

# 研究報告編



# 報 文



# 長崎県における春季の微小粒子状物質の成分特徴について (2014～2016年)

土肥 正敬、田村 圭<sup>1</sup>、富永 勇太<sup>2</sup>

1 現所属:長崎県環境部環境政策課 2 現所属:長崎県県南保健所

長崎県では、2014年から2016年にかけて春季のPM2.5採取及び成分分析を県内2地域で実施した。収集したPM2.5成分データについて発生源種別をPositive matrix factorization (PMF解析)により、発生源位置をConcentration Weighted Trajectory (CWT解析)により推定した。この結果、最も高濃度化に寄与していたのはSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>を指標とする硫酸系二次生成粒子と推定された。併せて、硫酸系二次生成粒子の発生源位置をCWT解析により推定したところ大陸側からの移流が示唆されたが、その発生源寄与は年々減少していると推定された。

キーワード：PM2.5成分分析、発生源推定、越境移流

## はじめに

微小粒子状物質（以下、「PM2.5」という）は粒径2.5 μmの非常に小さな粒子であるため人体へ取り込まれやすく、呼吸器系や循環器系などへ健康被害を及ぼす可能性が指摘されていることから近年注目されるようになった。

環境省は2009年にPM2.5質量濃度の環境基準を設定するとともに、いわゆる大気汚染防止法に係る事務処理基準<sup>1)</sup>を改正し、全国的なPM2.5監視測定体制の整備を進めてきた。この一環として、2011年にはPM2.5成分分析ガイドラインが策定され、「地方自治体は、環境基準の達成状況を把握するために質量濃度の測定を行うとともに、特定の発生源への対策等、地域独自の対策の検討を行うために成分分析を行うことが求められる。」とする方針が示された。これにより、PM2.5構成成分について各自自治体の主導による常時監視体制の整備が進められ、2016年度時点ではほぼ全ての都道府県で実施されるに至っている。加えて、全国の地方環境研究所が独自に取り組む研究課題にもPM2.5が取り上げられるようになり、今日までその実態解明が進められてきた。環境保健研究センター（以下、「環保研」という）においても、特に高濃度が観測されやすい春季におけるPM2.5成分分析を実施したので、発生源推定結果と併せて報告する。

## 材料および方法

### 1 調査地点



図1 試料採取地点

調査地点を図1に示す。県内2地点で同時にPM2.5試料を採取した。1地点目は離島地区の五島局とした。2地点目は、本土地区の諫早局としたが、都合により環保研と大村局に地点変更した期間がある。

### 2 調査日数

調査日数を表1に示す。2014年から2016年の3年にわたって、春季（概ね3月から5月）にPM2.5試料を採取した。採取日数はのべ408日間であった。内訳は、五島局186日間、諫早局168日間、環保研27日間、大村局27日間である。なお、前述のとおり、調査期間3年を通じて地点変更がなかったのは、離島地区（五島局）だけである。

表 1 地点毎の試料採取日数

		(単位:日)			
年	月	離島地区		本土地区	
		●五島局	●諫早局	●環保研	●大村局
2014	2		10		
	3		29		
	4				
	5	21		22	
	6			5	
2015	3	29		30	
	4	30		25	
	5	27		25	
	6			1	
2016	3	30		31	
	4	25		17	3
	5	24			24
小計		186	168	27	27

合計408日

### 3 試料採取

試料採取方法及び使用機器を表 2 に示す。試料採取は、原則、成分分析ガイドライン<sup>2)</sup>及び成分測定マニュアル<sup>3)</sup>に準拠した。連日、正午から積算流量 24m<sup>3</sup> の大気試料をフィルター採取、成分分析に供した。使用したフィルターの大きさは Φ47 mm で、石英製もしくは PTFE 製のものを用いた。石英製フィルターは炭素成分とイオン成分の分析に、PTFE 製フィルターは無機成分分析に使用した。

表 2 試料採取方法及び使用機器

採取方法	使用機器
正午開始, 16.7 L/min, 24hr	FRM2025 series (H26年2~3月はLV-250)

### 4 成分分析

成分分析方法と測定項目を表 3 に示す。成分分析は、原則、成分分析ガイドライン及び成分測定マニュアルに準拠した。なお、質量濃度は秤量法ではなく、調査地点近傍にある自動測定機の日平均値(μg/m<sup>3</sup>)を参照した。

表 3 成分測定項目及び使用機器

測定項目	使用機器
<b>質量濃度(μg/m<sup>3</sup>)</b>	
五島局・諫早局	自動測定機(機種:PM-712)
大村局	自動測定機(機種:FPM-377)
環保研	(大村局測定値を参照)
<b>炭素成分(μg/m<sup>3</sup>)</b>	熱分離・光学補正式炭素計
水溶性有機炭素	全有機体炭素計
<b>無機成分(ng/m<sup>3</sup>)</b>	誘導結合プラズマ質量分析計
<b>イオン成分(μg/m<sup>3</sup>)</b>	イオンクロマトグラフ
<b>測定項目(詳細)</b>	
<b>炭素成分</b>	有機性炭素(OC)、無機炭素(EC)
<b>3項目</b>	水溶性有機炭素(WSOC)
<b>無機成分</b>	Al, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Se, Rb, Mo, Cd, Ba, La, Ce, Sm, Hf, W, Pb
<b>イオン成分</b>	Cl, NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> , SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , Na <sup>+</sup> , NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> , K <sup>+</sup> , Mg <sup>2+</sup> , Ca <sup>2+</sup> , シュウ酸
<b>9項目</b>	

### 5 発生源解析

#### (1) 発生源種類の推定

米国環境保護庁が提供するソフトウェア EPA PMF5.0 を使用して、レセプターモデル解析のひとつである positive matrix factorization (以下、「PMF 解析」という)<sup>4)</sup> による発生源種類の推定を試みた。変数に PM2.5 質量濃度を追加し、測定項目の重み付けを表 4 のとおりとした。モデル全体の不確かさを一律 15%とし、100 回計算を実行した。

なお、PMF 解析結果について以下の内容を確認し、妥当性が高い最終解を選択した。

- ・各発生源の因子を説明できるか
- ・Q 値と Q<sub>exp</sub> 値が近似しているか (2 倍以下)
- ・PM2.5 構成成分の実測値と推定値の相関係数
- ・Bootstrap 結果の IQR 値及び mapping 値
- ・PM2.5 (Total variable) の寄与が 0 でないこと

表 4 PMF 解析における各成分の重み付け

	Total variable	イオン成分	無機成分	炭素成分
<b>Strong</b>		NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> , SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , Na <sup>+</sup> , NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> , Mg <sup>2+</sup> , Ca <sup>2+</sup>	Al, Ti, V, Mn, Fe, Co, Cu, As, Se, Rb, Cd, Ba, La, Ce, W, Pb	
<b>Weak</b> (予測から除外)	PM <sub>2.5</sub>	K <sup>+</sup>	Ni, Mo	OC, EC
<b>Bad</b> (解析から除外)		Cl, シュウ酸	Cr, Zn, Sm, Hf,	WSOC

#### (2) 発生源位置の推定

Yaqiang Wang 氏が提供する MeteoInfo Trajectory Statistics plugin (version 1.4.4R5) を用いて Concentration weighted trajectory (以下、「CWT 解析」という)<sup>5)</sup> による発生源位置の推定を試みた。なお、CWT 解析に投入する変数には、前述の PMF 解析により推定された発生源の寄与濃度(μg/m<sup>3</sup>)を使用した。解析条件は以下のようにした。

後方流跡線:NOAA-HYSPLIT

遡及時間:72 時間

描画頻度:1 時間毎

グリッド:0.5 度 x 0.5 度

遡及起点:本土地区(諫早局、環保研、大村局)

起点高度:500, 1000, 1500 m

### 結果および考察

#### 1 PM2.5 質量濃度の経年変化等について

長崎県では全 18 地点において PM2.5 質量濃度常時監視を実施しており、環境基準達成地点は既報<sup>6)</sup>のとおり経年的に増える傾向にあった。ここでは、本研究で PM2.5 成分分析を実施した 3 地点(五島局、諫早局及び大村局)における PM2.5 質量濃度について、過去 4 年間(2013 から 2016 年度)のデータを図 2 に示す。なお、図中の赤枠は本研究において成分分析を実施した期間を示している。

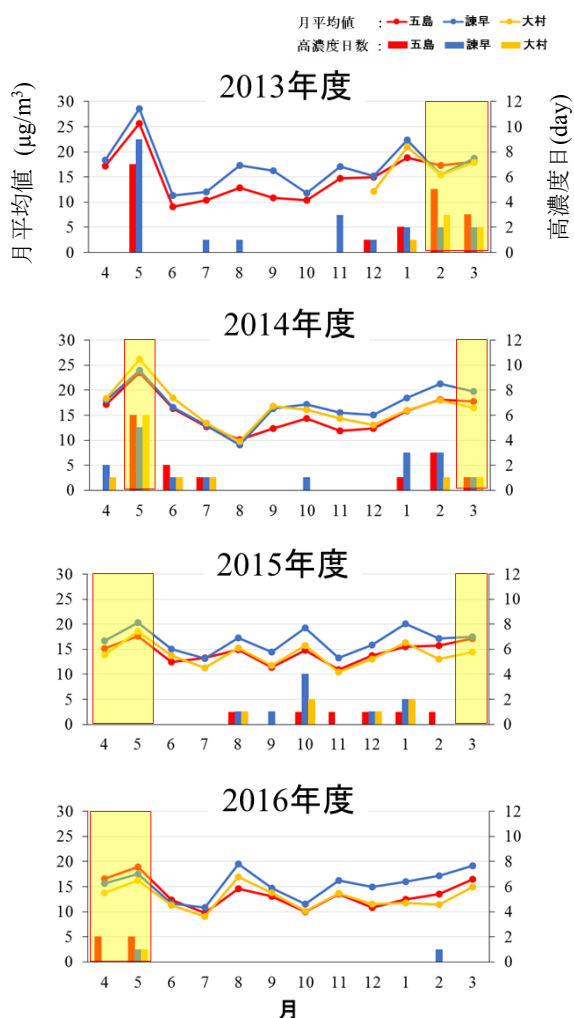


図2 PM2.5 月平均値の推移 (2014-2016 年度)  
※赤枠は成分分析を実施した期間を示す

(1) PM2.5 月平均値

月平均値について、2014 年度までは春季の濃度上昇が特徴的であるが、2015 年度以降は観測されなかった。

また、諫早局の月平均値は五島局や大村局と挙動が似ているものの、概ね諫早局がわずかに高濃度であった。このことは、他地点と比べて地域発生源(道路交通や産業活動等)が多いと推察される諫早局での濃度の上乗せが考えられる。

(2) PM2.5 日平均値の高濃度日

日平均値が 35 µg/m<sup>3</sup> を超過した日を高濃度日として集計した。

2014 年度までは冬から春にかけて高濃度日が多く観測されており、偏西風の影響により大陸からの越境汚染を受けやすいとされる長崎県の特徴と考えられた。しかし、2015 年度以降は冬春の高濃度日がほとんど観測されておらず、経年傾向に変化がみられた。

2 発生源種類の推定

(1) 発生源種類とその指標成分

PMF 解析を用いて、春季の PM2.5 成分データから発生源種類の推定を行った。この結果、7 種類の発生源が推定された。各発生源の指標成分を表 5 及び図 3 に示す。なお、指標成分に対する各発生源の割り当ては文献<sup>7-14)</sup>や成分測定マニュアルで確認したが、全く同じ指標成分の組み合わせでない場合、解析者による恣意的な解釈も含まれている。

(a) 海塩

海塩粒子は Na<sup>+</sup>, Mg<sup>2+</sup>, Cl<sup>-</sup> が指標となるが、本解析から Cl<sup>-</sup> を除外しているため Na<sup>+</sup> と Mg<sup>2+</sup> のみで検討した。この発生源の寄与は大きくないが、漫然と一定量が存在する点で海塩粒子の特徴があった(図なし)。なお、Cl<sup>-</sup>を解析から除外した理由は検出下限値未満のデータが多かったためであるが、原因のひとつとしてクロリンロス (NaCl + HNO<sub>3</sub> → NaNO<sub>3</sub> + HCl)<sup>15)</sup> の影響などが考えられる。

(b) 工業系

複数の無機成分が含まれる発生源を工業系としたが、特定の事業所を示すものではない。As, Se が含まれるため石炭燃焼を含む事業所の可能性もあるが、本解析では分離できなかった。

(c) 土壌系

Ti, Al, Fe など特徴的な無機成分を含む発生源を土壌系とした。黄砂観測日にその寄与度が大きくなることが多い。

(d) 石油燃焼系

V, Ni など特徴的な無機成分を含む発生源を石油燃焼とした。石油燃焼灰に V, Ni 等が含まれることは広く知られており<sup>15)</sup>、また、石油精製グレードや燃焼機関によってその組成が異なる。例えば、船舶とその他の産業では石油燃焼灰の組成が異なることもありうるが、本解析では分離できていない。

(e) 硝酸系二次生成

NO<sub>x</sub>を指標とする発生源を硝酸系二次生成とした。本来、単一の指標成分で一次排出粒子か二次生成粒子かを判断することは難しいが、既報<sup>6)</sup>において長崎県全域で PM2.5 と NO<sub>x</sub> (ガス状物質) の相関が高くなかったことから、ここでは外部からの流入を想定した二次生成とした。

(f) タングステン

W を指標とする発生源をタングステンとした。後述するが、タングステンの寄与は諫早局で大きかった点で特徴的であった。

(g) 硫酸系二次生成

SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>等を指標とする発生源を硫酸系二次生成粒子とした。本解析では SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>が当量比約

1:2 で存在していることから、硫酸アンモニウム塩 (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> で存在していると考えられた。(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> は大気中で安定に存在することから長距離輸送され、越境汚染の指標に使われる<sup>15)</sup>。

表 5 PMF 解析により推定された発生源

発生源	指標成分
1 海塩	Na <sup>+</sup> , Mg <sup>2+</sup>
2 工業系	Mn, Cu, As, Se, Rb, Pb, Cd
3 土壌系	Ca <sup>2+</sup> , Al, Ti, Fe, Ba, La, Ce
4 石油燃焼系	V, Ni
5 硝酸系二次生成	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>
6 タングステン	W
7 硫酸系二次生成	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> , OC, EC

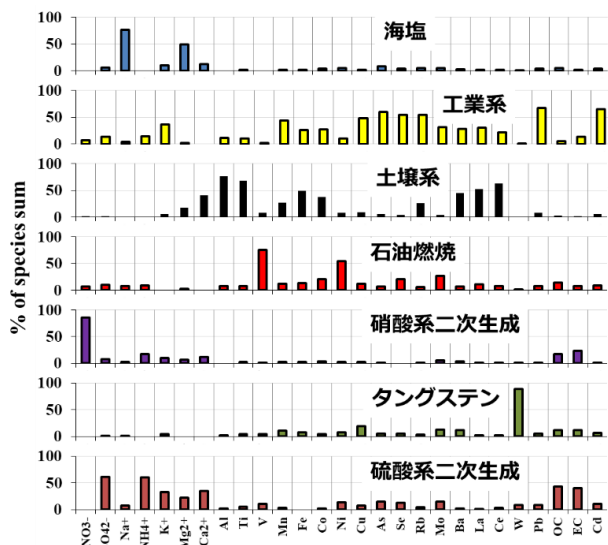


図 3 発生源プロフィール (% of species sum)

(2) 発生源寄与

(a) 地点別の発生源寄与割合

各調査地点における発生源寄与割合について図 4 に示す。

各調査地点とも、硫酸系二次生成の寄与割合が最も大きかった点で共通していた。しかし、地点毎の調査日数に差があるため、以降は特に調査期間が長かった五島局と諫早局について述べる。

調査期間中の PM<sub>2.5</sub> 質量濃度を比べると五島局と諫早局は同レベルであった (18.3, 18.6 μg/m<sup>3</sup>)。

その発生源寄与割合をみると、硝酸系二次生成は五島局よりも諫早局が高くなっており (10%, 16%)、諫早局の周辺環境 (道路交通や産業活動等) に由来する一次排出源の影響を反映した結果と考えられた。

また、タングステン発生源は諫早局に特徴的な発生源であった。その寄与割合は 5%と大きくはないが、地域発生源に由来する可能性がある。ただし、タングステンは切削工具への添加材など用途はいくつかあるが、本解析においてタングステンが単独で発生源に分離された理由は不明である (例えば、タングステンが鋼材等の切削研磨に利用されるのであれば、鋼材成分を伴って飛散することも考えられる)。

一方、石油燃焼系の発生源は五島局が諫早局よりも高くなっており (9%, 5%)、周辺環境から推察すると船舶往来に由来する燃焼灰などが考えられる。

さらに、工業系の発生源は、五島局と諫早局ではほぼ同レベル (8%, 9%) であるが、特に五島局周辺で無機成分を排出する工業系発生源は想定しにくいいため、外部からの流入の可能性もある。

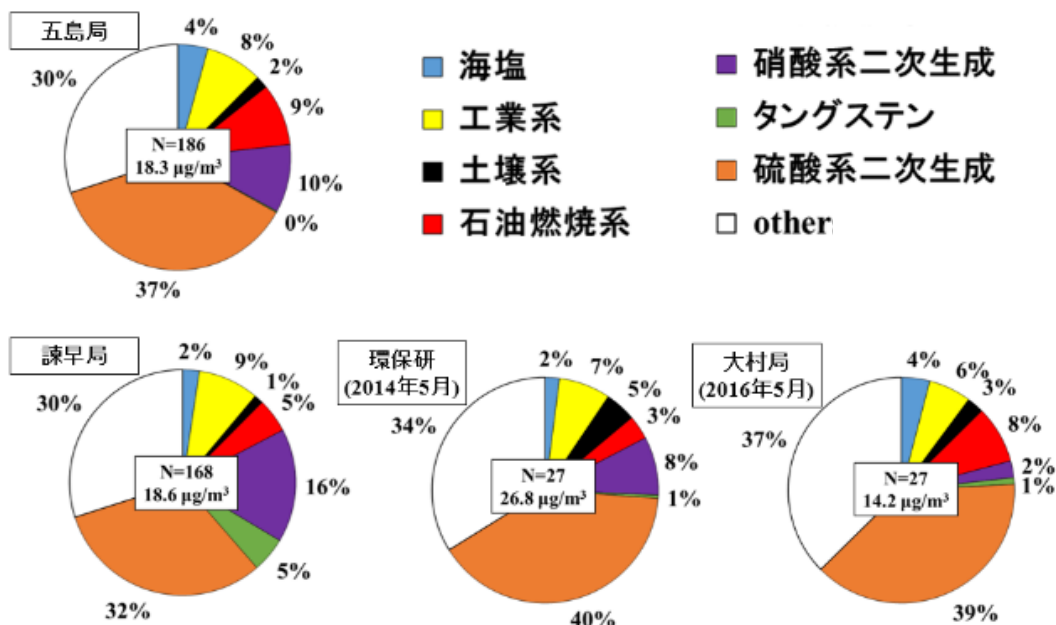


図 4 調査地点毎の発生源寄与割合 (%)



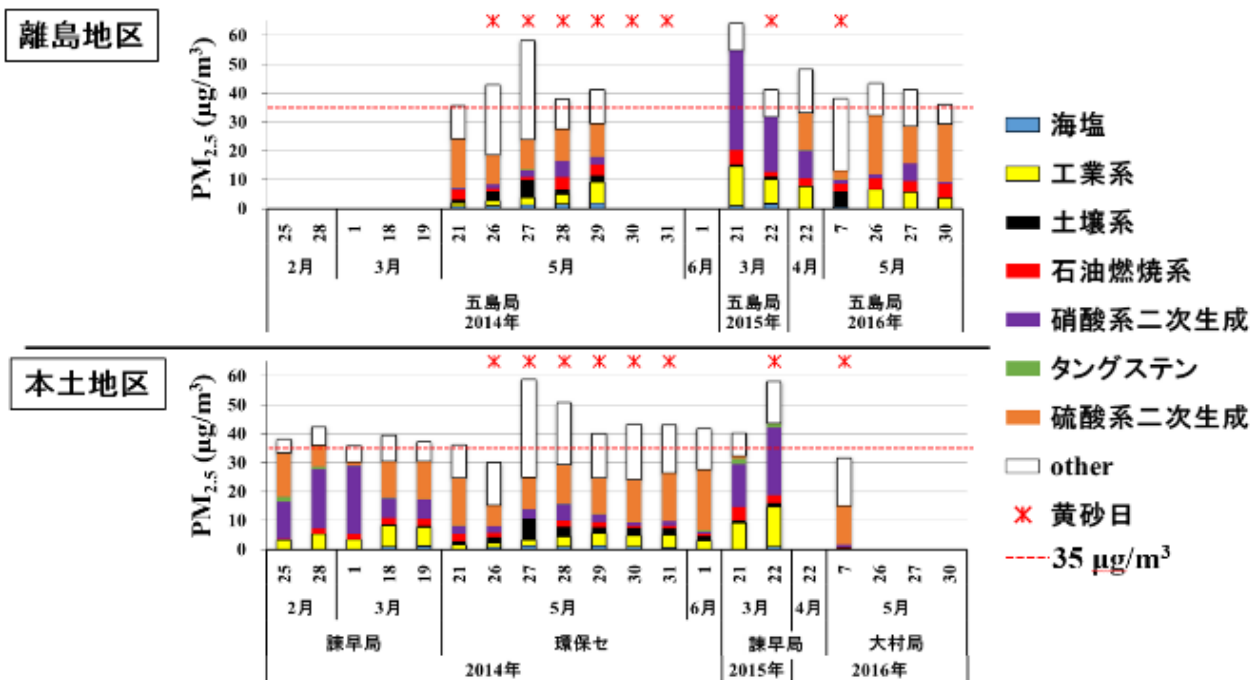


図5 高濃度日(日平均値>35µg/m³)の発生源寄与濃度 (µg/m³)

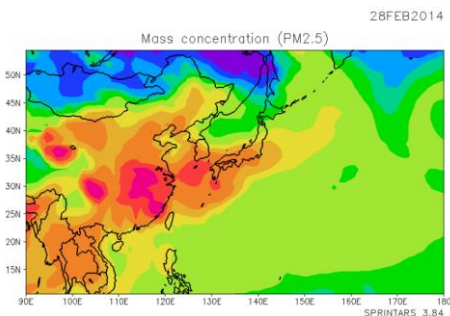


図6 高濃度事例 (2014/2/28~31)

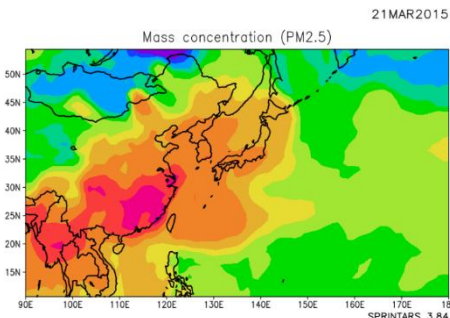


図7 高濃度事例 (2015/3/21~22)

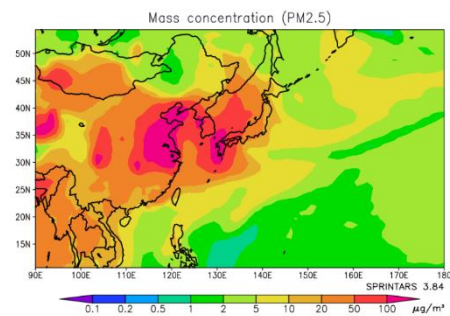


図8 高濃度事例 (2016/5/26~30)

(b) 高濃度日の発生源寄与濃度

成分分析期間において 35 µg/m³ 以上となった日を高濃度日として図5に示す。以下に高濃度事例を挙げる。なお、黄砂観測情報は気象庁 HP<sup>16)</sup>より入手した。

一事例目は、硝酸系二次生成によるものである。本研究では諫早局 2014/2/28~31の事例である(図6)<sup>17-19)</sup>。また、五島局 2015/3/21~3/22のように、黄砂発表日であっても、硝酸系二次生成を主体とする煙霧が観測された事例もあった。

二事例目は、土壌系発生源によるものである。本研究では五島局 2015/5/26~5/31の事例などである(図7)。黄砂日は土壌発生源(図中黒)の影響が大きくなるとともに、その他の発生源 (other) の増加を伴うことが多い。これは、測定項目に含まれない炭酸塩やケイ素などの土壌由来成分によると考えられる。

三事例目は、硫酸系二次生成によるものである。本研究では、五島局 2016/5/26~30の事例などである(図8)。

3 発生源位置の推定結果 (硫酸系二次生成)

前述の PMF 解析で推定された7つの発生源のうち、最も寄与が大きい硫酸系二次生成の発生源位置について、CWT 解析を用いて推定した結果を図9に示す。

解析準備として、本土地区3地点を起点とした後方流跡線を描画したところ、2014年度から2016年度の春季は大陸側からの移流が多いことが確認できた。続いて、硫酸系二次生成の寄与濃度 (µg/m³) を使った CWT 解析を実行した結果、大陸側からの

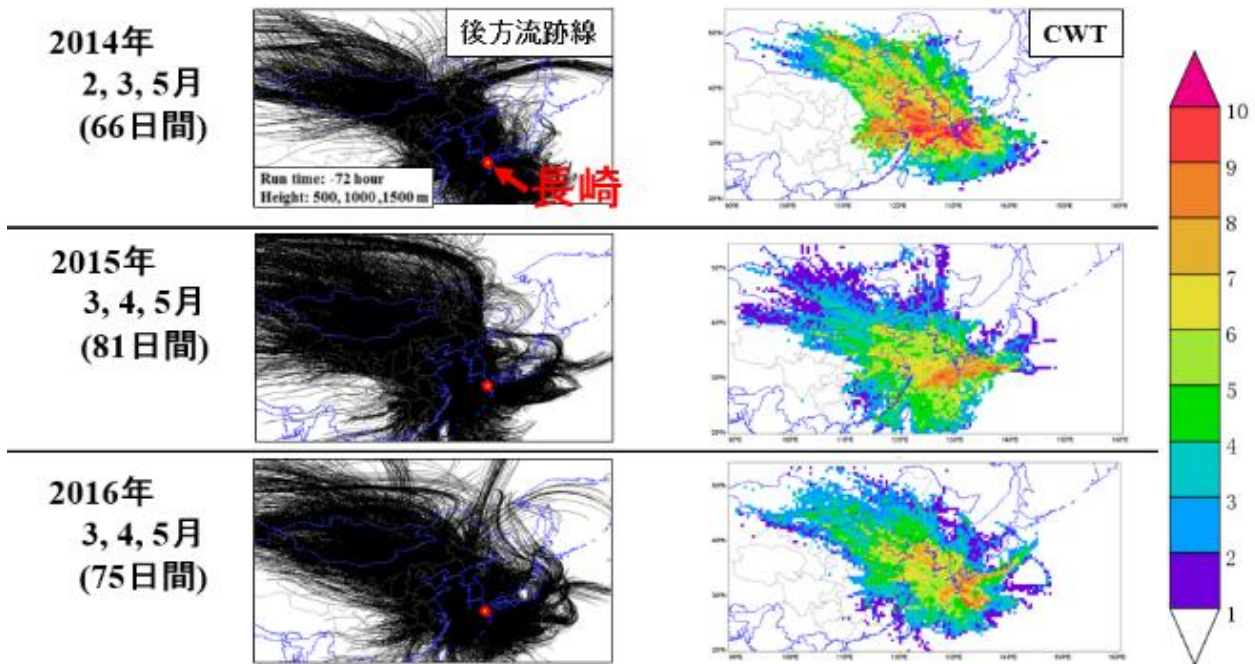


図9 高濃度日(日平均値 $>35\mu\text{g}/\text{m}^3$ )の発生源寄与濃度 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )

越境移流が経年的に減少していた。このことは、近年、春季(特に5月)のPM2.5濃度が減少している要因のひとつと考えられた。

### まとめ

本研究は、長崎県におけるPM2.5の実態を把握することで、発生源対策やヒトへの影響評価の検討に資する基礎データの蓄積を目的として実施した。2014年時点では、長崎県においてPM2.5構成成分を網羅的に分析した事例は少なく、環境省が常時監視の一環として実施している離島(五島、対馬)での常時監視(年間56日間)などであった。春季に限定されるものの、本研究の成果は長崎県のPM2.5に関する新しい知見が得られるものと期待された。

本研究は離島地区と本土地区において同時にPM2.5を採取し、機器分析により得られた成分データを用いて発生源の種類と位置を推定した。この結果、春季のPM2.5発生源は7種類と推定された。調査期間を通して最も寄与が大きいのは、硫酸系二次生成(指標成分: $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NH}_4^+$ )であったが、日平均値 $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える高濃度日は、硫酸系二次生成以外の発生源の影響を強く受けている事例もあった。

また、最も寄与が大きい硫酸系二次生成の発生源位置をCWT解析により推定したところ、大局的には大陸側から流入している傾向がみえたが、その強度は経年的に小さくなっていった。このことは、春季の月平均値が経年減少している一因である可能性を示唆している。

ただし、本研究で実施したPMF解析及びCWT解析は、発生源種類及び発生源位置を推定する手法であり特定には至らないと思われる。また、その他の発生源(other)が占める割合が1/4以上を占めて

いる事実からも、環境場におけるPM2.5の挙動を正確に再現するためには多角的な成分分析やモデル解析手法の導入を検討する必要がある。

なお、当研究所では長崎大学病院及び熱帯医学研究所と共同でPM2.5健康影響調査に取り組んでおり、PM2.5が喘息患者の呼吸器機能に与える影響についても解析中である。解析にあたっては、本研究で蓄積した成分データ使用しており、35症例から憎悪因子の抽出を試みている。この研究結果については、別途報告する予定である。

### 謝辞

本研究を実施するにあたり、国立環境研究所II型共同研究メンバー皆様には多大なるご協力及び御助言を頂きました。また、九州大学応用力学研究所 竹村俊彦教授を開発責任者とする予測数値モデルsprintersの画像データを使用させて頂きました。ここに記してお礼申し上げます。

### 参考文献・脚注

- 1) 環水大大発第 100331001 号、環水大自発第 100331002 号 (2010)
- 2) 環境省 HP: 微小粒子状物質の成分分析ガイドライン, [https://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/110729/no\\_110729001b.pdf](https://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/110729/no_110729001b.pdf) (2016.6.20 アクセス)
- 3) 環境省 HP: 大気中微小粒子状物質成分測定マニュアル, <https://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/manual.html> (2018.6.20 アクセス)
- 4) United States Environmental Protection Agency: Positive Matrix Factorization Model for environmental data analyses, <https://www.epa.gov/air-research/positive-matrix-factorization-model->

- [environmental-data-analyses](#) (2018.6.20 アクセス)
- 5) Yaqiang Wang: MeteoInfo, <http://www.meteothinker.com/index.html> (2018.6.20 アクセス)
  - 6) 土肥正敬: 長崎県の微小粒子状物質(PM2.5)環境基準達成状況等について(2014~2016年度), *長崎県環境保健研究センター所報*, **62**, 26-31 (2017)
  - 7) J.-B. Heo: Source apportionment of PM2.5 in Seoul, Korea, *Atmos. Chem. Phys.*, **9**, 4957-4971 (2008)
  - 8) Mi-Seok Oh: Quantitative Source Apportionment of Size-segregated Particulate Matter at Urbanized Local Site in Korea, *Aerosol and Air Quality Research*, **11**, 247-264 (2011)
  - 9) 船坂邦弘他: PMF 法による大阪市内における PM2.5 発生源因子の解析, *大阪市立環境科学研究報告*, **77**, p65-70 (2015)
  - 10) 山神真紀子他: 微小粒子状物質(PM2.5)の発生源寄与率の推定, *名古屋市立環境科学調査センター年報*, **1**, p20-25 (2012)
  - 11) 東京都微粒子状物質検討会: レセプターワーキング報告書 (2011), [http://www.kankyo.metro.tokyo.jp/air/air\\_pollution/torikumi/pm2\\_5/pm25-report2011.files/9\\_Receptor\\_working\\_report.pdf](http://www.kankyo.metro.tokyo.jp/air/air_pollution/torikumi/pm2_5/pm25-report2011.files/9_Receptor_working_report.pdf) (2018.6.20 アクセス)
  - 12) 高島輝男他: PM2.5 成分分析結果の PMF 解析, *岐阜県保健環境研究所報*, **24**, p20-24 (2016)
  - 13) 鈴木亮太他: 長崎県福江島・福岡県福岡市におけるエアロゾル金属成分の特徴と発生源推定, *大気環境学会誌*, **49(1)**, 15-25 (2014)
  - 14) 工藤慎治他: クラスタ分析および CWT 解析を用いた東京の PM2.5 質量濃度の増加に影響を及ぼす地域の推定, *大気環境学会誌*, **52(3)**, p89-99 (2017)
  - 15) 環境省 HP: 粒子状物質の特性について, <http://www.env.go.jp/council/former2013/07air/y078-02/mat02-1.pdf> (2018.6.20 アクセス)
  - 16) 気象庁: [地球環境のデータバンク]黄砂, [http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa\\_data\\_index.html](http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa_data_index.html) (2018.6.20 アクセス)
  - 17) Takemura, T., H. Okamoto, Y. Maruyama, A. Numaguti, A. Higurashi, and T. Nakajima: Global three-dimensional simulation of aerosol optical thickness distribution of various origins, *Journal of Geophysical Research*, **105**, 17853-17873 (2000)
  - 18) Takemura, T., T. Nakajima, O. Dubovik, B. N. Holben, and S. Kinne: Single-scattering albedo and radiative forcing of various aerosol species with a global three-dimensional model, *Journal of Climate*, **15**, 333-352 (2002)
  - 19) Takemura, T., T. Nozawa, S. Emori, T. Y. Nakajima, and T. Nakajima: Simulation of climate response to aerosol direct and indirect effects with aerosol transport-radiation model, *J*

*Journal of Geophysical Research*, **110**, D02202, doi:10.1029/2004JD005029 (2005)

## Characteristic of PM2.5 components in spring in Nagasaki prefecture (2014 - 2016)

Masataka DOI, Kei TAMURA<sup>1</sup>, Yuta TOMINAGA<sup>2</sup>

1 Nagasaki Prefectural Government Environmental Policy Division

2 Nagasaki Prefectural Government Kennan Healthcare Office

PM2.5 samples were collected at two monitoring station in Nagasaki prefecture, every spring from 2014 to 2016 and analyzed for their chemical constituents. Sources were deduced using Positive Matrix Factorization (PMF), and pollutant source position were estimated using Concentration weighted trajectory (CWT). A total of 7 sources were deduced and major source of PM2.5 was Secondary sulfate (consist of  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NH}_4^+$ ). CWT analysis results showed that possible source areas contributing to Secondary sulfate concentration in Nagasaki to be the continent of china, but the source contribution was decrease with year by year.

Key words: PM2.5 component analysis, Source Apportionment, transboundary transport

# 長崎県における微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) 濃度の特徴 (2017年度)

前田卓磨、土肥正敬、田中雄規

現在、長崎県では18地点でPM<sub>2.5</sub>常時監視を実施している。本稿では、2017年度に収集した常時監視データを用いて、PM<sub>2.5</sub>の質量濃度の日内変動、週内変動、および年内変動パターンをまとめた。また、PM<sub>2.5</sub>と他の監視項目 (SPM, SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, O<sub>x</sub>) を比較し傾向をまとめた。

この結果、PM<sub>2.5</sub>の日平均値は1.1 - 66.3 μg/m<sup>3</sup> の範囲であり、環境基準達成局地点は18地点中16地点であった。PM<sub>2.5</sub>濃度の日内変動はNO<sub>x</sub>と比較して多様であり、週内変動は水曜日に低濃度となり週末から高くなる傾向があった。また、月別変動では春季に高濃度となるパターンが多いことがわかった。

キーワード：PM<sub>2.5</sub>、月別変動、週内変動、日内変動

## はじめに

微小粒子状物質(以下PM<sub>2.5</sub>)は粒径が2.5 μmより小さく、器官や肺胞に到達することで人体へ悪影響を及ぼすことが知られており、欧米での疫学調査では呼吸器疾患や循環器疾患とPM<sub>2.5</sub>濃度の間に有意な相関が認められている。日本でも健康リスクの観点から2009年に環境基準が制定された<sup>1)2)</sup>ことで、全国的にPM<sub>2.5</sub>質量濃度の常時監視局の設置が進められている。本県においても現在では離島を含む全18局で監視を行っている。また、これまでPM<sub>2.5</sub>の越境汚染について注目され様々な調査・研究がされてきたが、本県では佐世保地域(大塔・吉井)や島原半島地域(島原・小浜)において高濃度地点と低濃度地点が近在していることがわかり、これらの地域の国内発生源の影響の解明を目的とした研究が2017年度から当センターで開始されている。本稿ではその一環として質量濃度の時間変動等について解析を行った。

PM<sub>2.5</sub>の日内変動、週内変動、年内変動は各地域で傾向がみられ、汚染特性および汚染源の推定に役立てられている<sup>3)4)</sup>。また、本稿では県内の各地域において2017年度に観測された浮遊粒子状物質(以下SPM)とPM<sub>2.5</sub>質量濃度の時間変動(月間、週内、日内)を示す。また、PM<sub>2.5</sub>の二次生成粒子の原因となる気体状大気汚染物質(二酸化硫黄、窒素酸化物、オキシダント)との比較を行う。

## 調査地点及び方法

### 1 調査地点

県内の大気常時監視測定局のうち、PM<sub>2.5</sub>を監視

項目に含む18地点(図1)を解析の対象とした。

なお、局種内訳は、福石局のみ自動車排出ガス測定局(以下、自排局)であり、これ以外の測定局は一般環境大気測定局である。

### 2 調査項目

自動測定機を用いた以下の常時監視データを使用した。(測定方法は環境大気常時監視マニュアルに準拠)

- PM<sub>2.5</sub>
- SPM
- 二酸化硫黄(以下SO<sub>2</sub>)
- 窒素酸化物(以下NO<sub>x</sub>)
- オキシダント(以下O<sub>x</sub>)

(2017年4月1日～2018年3月31日)

※黄砂日を含む

## 結果及び考察

### 1 環境基準(長期、短期)と日平均値

PM<sub>2.5</sub>の環境基準は、以下の①②をともに達成することとされている。

①長期基準：年平均値15 μg/m<sup>3</sup>以下となること

②短期基準：日平均値の年間98パーセンタイル値35 μg/m<sup>3</sup>以下となること

ここで、年平均値は、有効な時間値を単純平均したものである。短期基準においては、年間の日平均値のうち最高値から2%の範囲にある測定値は許容範囲にあるものとして評価から除外し、最低値から98%目に該当する日平均値を短期基準の対象としている。なお、本稿では大気環境の実態を把握す



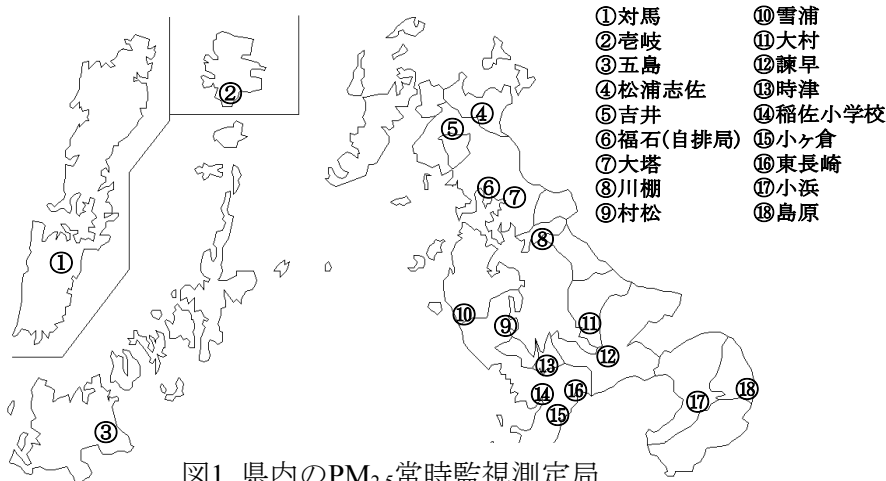


図1 県内のPM<sub>2.5</sub>常時監視測定局

るため、単純な日平均値を求めて解析の対象とした。

表1に2017年度のPM<sub>2.5</sub>の環境基準達成状況と日平均値を示す。2017年のPM<sub>2.5</sub>年平均濃度の局変動は10.9-16.6 μg/m<sup>3</sup>で長期基準である15 μg/m<sup>3</sup>を超過したのは自排局のみだった。大気基準の対象である日平均値年間98パーセンタイル値の局変動は、27.7-36 μg/m<sup>3</sup>となり、35 μg/m<sup>3</sup>を超過した測定局は2局であった。

日平均値は-1.1-66.3 μg/m<sup>3</sup>となり、35 μg/m<sup>3</sup>を超過した日数は1-8日であり全測定局の合計で79日となった。気象庁による黄砂観測日は県内で5月6-8日であり、観測期間中に15の測定局で35 μg/m<sup>3</sup>を超過

しており県内全域が土壌性粒子(黄砂)の影響下にあったことが示唆された。しかしながら、観測日でない3月25日に35 μg/m<sup>3</sup>を超過した測定局が17局あることから、黄砂以外の広域汚染現象があったことが示唆された。また、比較的近傍の測定局(大塔-吉井、島原-小浜等)で重量濃度に差が見られていることから、特定の地域汚染が発生していることが示唆された。

2 経時変動解析

ここでは各測定局の時間変動を示す。

(1) 日内変動

1日の中の時刻による濃度変化を把握するため、各項目の1時間値を対象に、時刻ごとの年間平均値を求め、図2-1~2-4に示した。PM<sub>2.5</sub> (図2-1)の変動パタ

表1 県内のPM<sub>2.5</sub>環境基準達成状況と日平均値 (2017年度)

市町村	測定局	長期基準 対象値	短期基準 対象値	日平均値		
				年間最低値~最高値 (記録した月日)	35 μg/m <sup>3</sup> を 超過した日数	35 μg/m <sup>3</sup> を超過した月日 (太字: 5/8)
諫早市	諫早	13.9	31.6	0.8~45.3 (5/8)	1	5/8
島原市	島原	14	34.2	0.3~42.4 (12/30)	6	1/19,2/24,3/25~26,12/29~30
大村市	大村	12.7	30.6	0.8~49.6 (3/25)	3	3/25~26,5/8
川棚町	川棚	12.5	29.3	0.9~43.0 (5/8)	3	3/25~26,5/8
時津町	時津小学校	12.1	29.2	0.8~46.0 (3/25)	3	3/25~26,5/8
西海市	雪浦	12.3	29.1	0.8~47.3 (3/25)	3	3/25~26,5/8
松浦市	松浦志佐	12.9	30.8	0.0~49.3 (5/8)	4	2/24,3/25~26,5/8
対馬市	対馬	12.9	33.8	1.7~53.6 (5/8)	6	1/19,2/23,3/25,5/8,9/19,12/30
壱岐市	壱岐	14.3	36	3.0~66.3 (3/25)	8	1/19,2/23~24,3/25~27,5/8,12/30
五島市	五島	13.2	32	2.1~47.5 (1/19)	6	1/19,2/24,3/24~26,5/8
雲仙市	小浜	10.9	27.7	-1.1~45.3 (3/25)	1	3/25
長崎市	小ヶ倉支所	13.1	30.3	1.0~52.3 (3/25)	4	1/19,3/25~26,5/8
	稲佐小学校	13.8	32.9	-0.3~56.9 (3/25)	5	1/19,3/25~26,5/8,12/30
	村松	11.7	30.1	0.2~48.0 (3/25)	3	3/25~26,5/8
	東長崎支所	13	32.1	-0.1~48.0 (3/25)	5	3/25~26,4/29~30,5/2
佐世保市	福石(自排)	16.6	35.5	3.4~57.9 (5/8)	8	1/19,2/24,3/25~27,5/8,9/26,12/30
	大塔	14.4	33.9	0.8~54.3 (5/8)	6	2/24,3/25~26,4/29~30,5/8
	吉井	12.5	30.1	1.5~49.9 (3/25)	4	2/24,3/25~26,5/8

※ PM<sub>2.5</sub>環境基準 以下①②ともに達成すること①長期基準:年平均値15 μg/m<sup>3</sup>以下  
②短期基準:日平均値年間98パーセンタイル値35 μg/m<sup>3</sup>以下

環境基準非達成

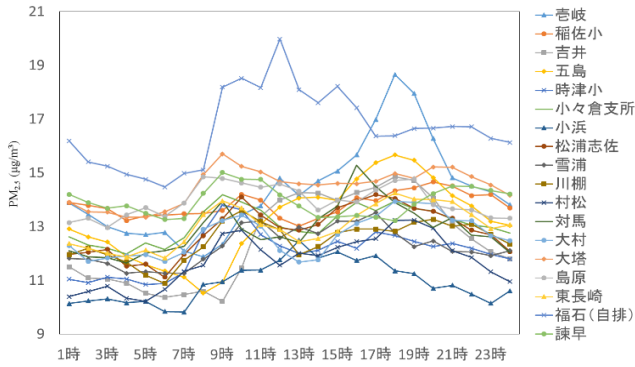


図2-1 県内のPM<sub>2.5</sub>日内変動

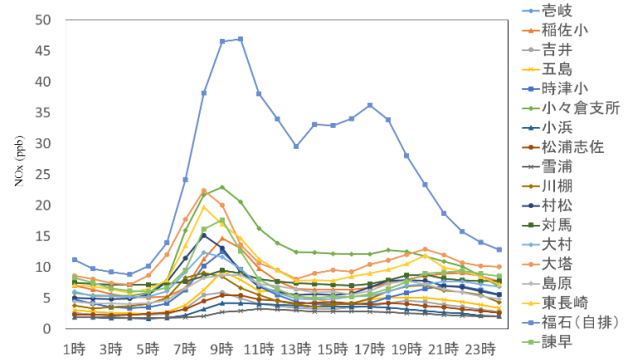


図2-2 県内のNOx日内変動

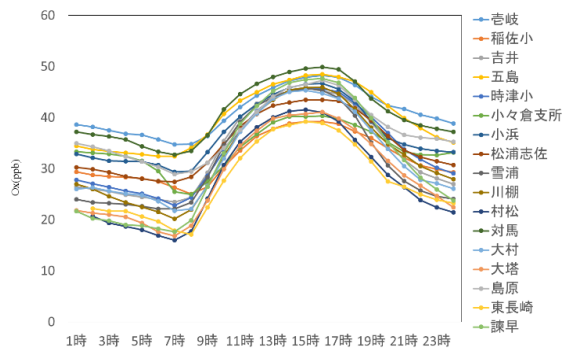


図2-3 県内のOx日内変動

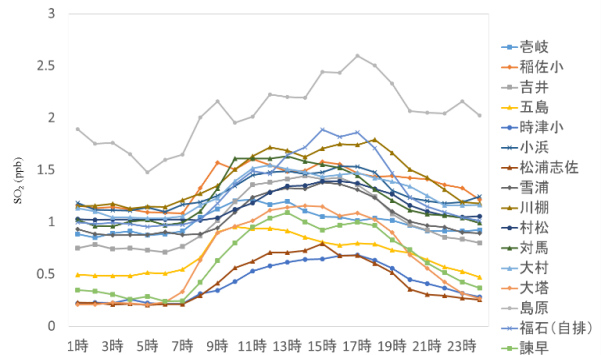


図2-4 県内のSO<sub>2</sub>日内変動

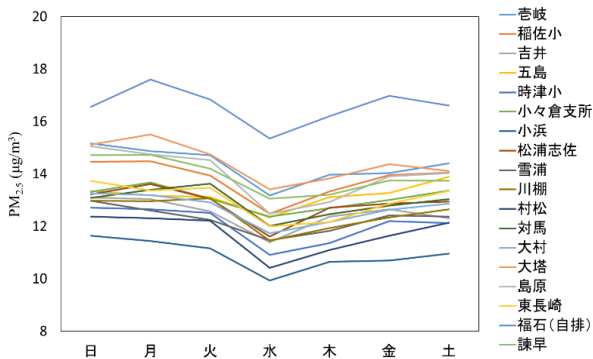


図3-1 県内のPM<sub>2.5</sub>週内変動

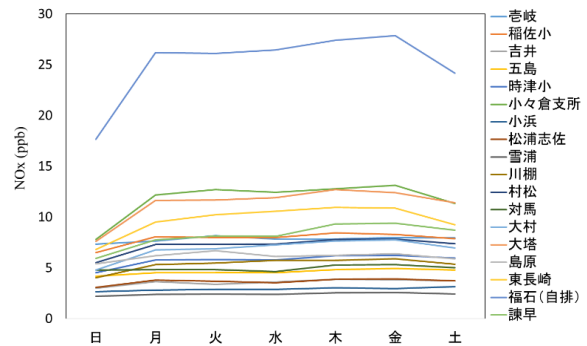


図3-2 県内のNOx週内変動

ーンは測定地点により様々だったが、9時前後または18時前後に最高値が出現する測定局が多くみられた。また、最低値は午前中（4時～8時）に多く見られた。次にNOx濃度（図2-2）の最高値は午前中に（4時～8時）に集中しており、夕刻にもピークを持つ二山型の変動パターンを示す測定局が多かった。このことからPM<sub>2.5</sub>とNOxの濃度変動パターンは異なっていることがわかった。2014年-2016年度における県内のPM<sub>2.5</sub>とNOxの相関解析<sup>5)</sup>では、相関係数が0.4未満の弱い相関を示す測定局が多いことが報告されている。

次にOx（図2-3）の変動パターンは午前中（7時～8時）から上昇し、日中（15時～16時）にピークを迎えた後に夜間にかけて減少することが示された。次にSO<sub>2</sub>（図2-4）の変動パターンは（5時～8時）から上昇し日中にピークを迎える傾向にあり、Oxと類似していた。

最後にSPMの日内変動は時間のずれは多少あるが、概ねPM<sub>2.5</sub>と連動して変動していた。2017年度データでの日平均値を用いた相関係数は0.67-0.91と高い数値を示した。

(2)週内変動

曜日による濃度変化を把握するため、曜日ごと

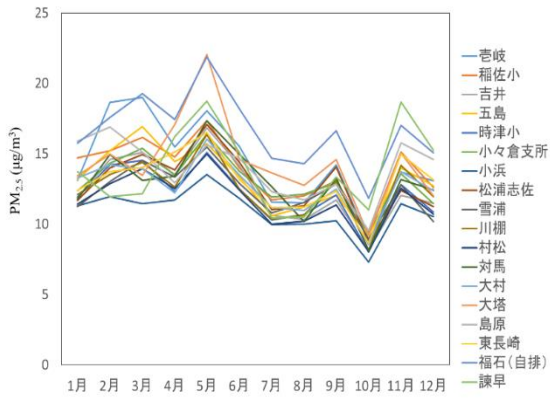


図4-1 県内のPM<sub>2.5</sub>年内変動

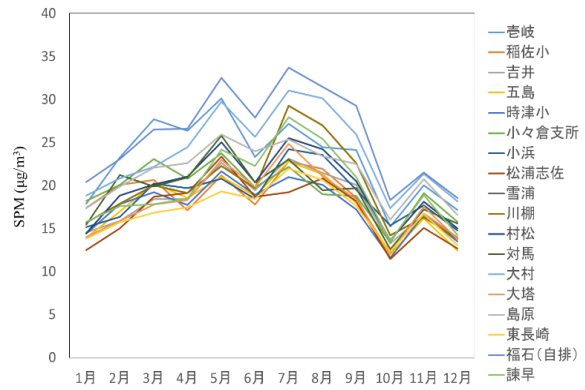


図4-2 県内のSPM年内変動

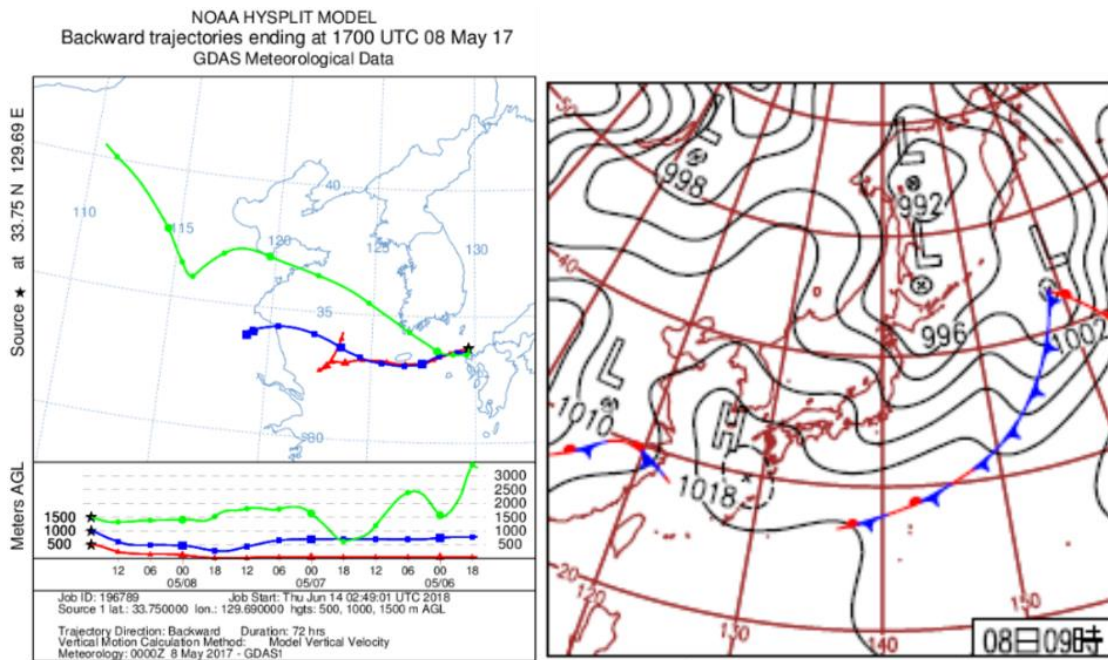


図5 壱岐における5/8 (17時)の後方流跡線及び天気図

の年間平均値を求めた。図3-1にPM<sub>2.5</sub>の週内変動を示す。PM<sub>2.5</sub>の曜日別平均濃度は週初めの日曜-月曜に最高値を示し、週半ばの水曜に最低値を示す測定局が多数であった。一方、図3-2に示したNO<sub>x</sub>の週内変動をみると週後半の木曜-金曜に最高値を示し、休日の日曜に最低値を示す傾向が見られた。これは板野らが示した傾向<sup>3)</sup>とは異なる結果であった。このことは、県内において平日の交通量上昇によるNO<sub>x</sub>の排出は二次生成を含めてPM<sub>2.5</sub>濃度の週内変動に対しては大きく寄与していない可能性を示唆しているが、年度が変われば同一月であっても濃度レベルは異なることがいわれているため、単年度の結果であることを留意する必要がある。

その他としてO<sub>x</sub>及びSO<sub>2</sub>は測定局によって変動パターンが様々で、曜日による変動は少なかった。

SPMについてはPM<sub>2.5</sub>と同様に月曜日が最高値であり、最低値は水曜以外にも見られ、様々であった。

### 3) 月別変動

季節による濃度変化を把握するため、月ごとの年間平均値を求めた。PM<sub>2.5</sub>月別平均濃度は図4-1に示すように春季(3月-5月)に最高値が観測される測定局が多く、夏季(6月-8月)に比較的低く10月に全測定局で最低値となった。一方、図4-2に示すSPM濃度は春季から夏季にかけて高く、7月に最高値を示し、10月及び12月に最低値を示す測定局が多かった。このことは、春季はSPMの粒径分布に対する寄与は人為起源とされるPM<sub>2.5</sub>が比較的大きく、夏季については粗大粒子領域に主として粒径分布を持つ海塩や土壌粒子が比較的大きく寄与している可能性を示している。



次にNOxは壱岐を除いて11月-2月にかけて高く、春季から冬季にかけて低い傾向となった。ここでも日内、週内変動と同様に低い相関が示された。最後にOxは全測定局でPM<sub>2.5</sub>と同様に春季(3-5月)に高く、7月に最低値を示した。光化学反応による大気汚染物質の生成は春季に起こりやすいとみられ、PM<sub>2.5</sub>の濃度変動に寄与している可能性が示唆された。

3 黄砂観測日(5/6-5/8)について

ここでは2017年度において特に高濃度を示した5月前半の黄砂観測日について報告する。各測定局で最高値を示した5月8日における壱岐局を始点とする後方流跡線<sup>6)</sup>及び天気図<sup>7)</sup>を図5に示す。黄砂は東アジアの砂漠域で発生し中国北東部から日本へ飛来するが、後方流跡線では大陸からの流入が示されている。天気図からは移動性高気圧による偏西風に乗って黄砂が飛来したと推測される。8日の早朝にはオキシダントが88ppbまで上昇しており、高濃度のPM<sub>2.5</sub>に光化学反応による汚染物質生成の影響があると推測される。

### まとめ

2017年度の県内18局中で年平均値が15 µg/m<sup>3</sup> を超過したのは自排局の福石のみであった。また、日平均値で35 µg/m<sup>3</sup> を1-8日超過した。2017年度のPM<sub>2.5</sub>濃度は春季に高い傾向を示しており、黄砂観測日の後方流跡線に見られるように大陸由来からの移流による影響を受けていることが推測される。一方で、近傍な測定局間において濃度差が見られたことから地域汚染の機構解明も重要であると考えられる。

PM<sub>2.5</sub>の日内変動パターンは多様な変動を示しており、週内変動では水曜日に最低値を示す結果となった。代表的な人為的汚染源であるNOxの濃度変動パターンとも異なっていたため、その他の汚染源の影響を受けていると思われる。

年内変動について、PM<sub>2.5</sub>とSPMは春季に高い傾向を示したが、SPMは夏季も高い傾向を示したため、海塩等の粗大粒子の影響を受けた可能性が考えられる。

### 参考文献・脚注

- 1) 環境省水・大気環境局:微小粒子状物質に係る環境基準の設定について(2009).
- 2) 環境省:微小粒子状物質による大気の汚染に係る環境基準について, 環告33(2009).
- 3) 板野泰之, 他:2011年度の連続測定結果に基づく全国的なPM<sub>2.5</sub>汚染の状況解析, 大気環境学会誌, 48, 154-160(2013).
- 4) 山神真紀子, 他:PM<sub>2.5</sub>中元素状炭素の自動車排出係数の推計と一般環境における大気中濃度の変

動, 大気環境学会誌, 43, 273-283(2008).

- 5) 土肥正敬:長崎県の微小粒子状物質(PM<sub>2.5</sub>)環境基準達成状況等について(2014~2016年度),長崎県環境保健研究センター所報, 62, 26-31(2016)
- 6) 米国海洋大気庁(NOAA) : HYSPLIT - Trajectory Modelによる解析
- 7) 気象庁:日々の天気図,<http://www.jma.go.jp/jma/index.html>(2018/8/21アクセス).

## Characteristics of PM<sub>2.5</sub> mass concentrations in Nagasaki(2017)

Takuma MAEDA, Masataka DOI, Yuki TANAKA

A number of PM<sub>2.5</sub> monitoring sites are eighteen in Nagasaki prefecture. The temporal variation pattern of PM<sub>2.5</sub> mass concentration were summarized about 2017 fiscal year. The comparison between trend of PM<sub>2.5</sub> and other air pollutants (SPM, SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, O<sub>x</sub>) were summarized. In the result, the daily concentration ranged 1.1-66.3 µg/m<sup>3</sup> and monitoring sites achieved air quality standard of PM<sub>2.5</sub> is sixteen out of eighteen for the year 2017. Diurnal variation patterns of PM<sub>2.5</sub> were multifarious compared to those of NO<sub>x</sub>. Day-of-week variation increasing on weekends and decreasing on Wednesday was detected. Monthly maxima tended to appear in spring.

Key words : PM<sub>2.5</sub>, annual variation, day-of-week variation, diurnal variation

# 諫早湾干拓調整池における底質有機炭素の起源推定調査

陣野 宏宙、桑岡 莉帆、橋本 京太郎、植野 康成

諫早湾干拓調整池内 10 地点で 2017 年 9 月と 12 月に底泥を採取し、有機炭素濃度を測定するとともに脂肪酸バイオマーカーを用いて有機物の起源推定を行った。

底質有機炭素濃度は、本明川の下流にあたる北部承水路上の地点で高く、調整池南東部の地点で低い結果となった。また有機炭素濃度が高い地点では、脂肪酸含有量も多く、またその内訳としては、陸上植物、次いで二次生産である細菌に由来することが分かった。更に、9 月に比べ 12 月の脂肪酸バイオマーカーの含有量が多くなっており、流域からの陸上植物の流入に加え、調整池内で発生した水草等の枯死の影響も疑われた。

キーワード：諫早湾、調整池、底質有機物、脂肪酸

## はじめに

一般的に浅い湖沼では底泥の巻上げ現象が発生しやすく、透明度の低下や栄養塩類の動態にも影響を及ぼす<sup>1)</sup>。本県本土中央部に位置する諫早湾干拓調整池(以下「調整池」という。)は平均水深が約 1.4 m と浅く、底泥が巻上げられやすい環境にある。実際、調整池の SS 濃度は他湖沼と比べて高く、全有機物に占める懸濁態有機物の割合が高いことが分かっている<sup>2)</sup>。また、調整池の水質は環境基準を超過した状態が続いているが、底泥からの有機物の巻上げが原因のひとつとして示唆されている<sup>3)</sup>。そのため、調整池の湖底に堆積する有機物の起源を把握することは、調整池の水質環境改善のために重要である。しかしながら、調整池における底質の有機物起源の調査事例は極めて少ない。

そこで本研究では、今後の有機汚濁の削減にむけた適切な施策につなげるため、脂肪酸バイオマーカーを用いて調整池底質有機物の起源推定を行った。

## 調査内容

### 1 調査時期・地点

調査は 2017 年 9 月 28 日と 12 月 20 日に調整池内 10 地点(St.1～8、P.1、P.2)で実施した(図 1)。なお St.5、St.8 及び P.1 は北部承水路上、St.6、St.7 は潜堤内のポイントである。

### 2 調査方法

#### (1) 試料採取

底質試料は、船上からエッグマンページ採泥器により

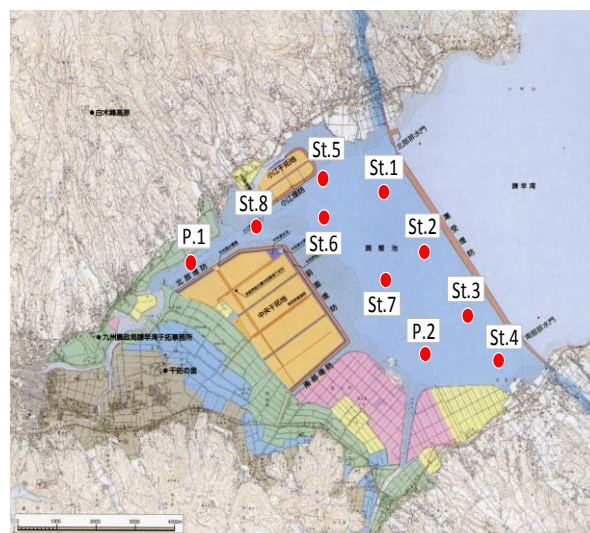


図 1 調査地点

表層 1 cm 程度の泥を採取した。採取した試料は分析に供するまで $-20^{\circ}\text{C}$ で凍結保存した。

#### (2) 底質有機炭素(TOC)分析

試料を凍結乾燥後、乳鉢でよくすりつぶした試料を有機微量元素分析装置(Perkin Elmer PE2400 II)で測定した。

#### (3) 脂肪酸分析

試料を凍結乾燥後、One-step method<sup>4)</sup>を用いて脂質の抽出及び誘導体化を行った。脂肪酸分析はガスクロマトグラフ(島津製作所 GC-2010 Plus)を用いて行った。分析条件は以下のとおりである。

カラム: Agilent Select FAME、0.25 mm × 100 m  
キャリアガス: ヘリウム、331.0 kPa

インジェクション:スプリット、1:90、270 °C  
 検出部:FID、280 °C  
 カラム温度:150 °C(5 min)－2.5°C /min－230°C(8 min)－4 °C /min－250 °C(20 min)

脂肪酸の標準物質としてはシグマアルドリッチ社の 37 種 FAME ミックス、BAME、PUFA NO.3、C25:0、C26:0、C28:0、ジーエルサイエンス社の C27:0、C30:0、マトレヤ社の ai17:0 を用いた。標準物質のリテンションタイムから、サンプル中の脂肪酸の同定を行った。また、内標準物質として Dr.Ehrenstorfer 社のトリコサン酸(C23:0)を使用した。なお、本研究では標準物質のリテンションタイムに該当しないピークに関しては全て除外することとした。

なお、既往の研究<sup>5, 6</sup>で用いられている脂肪酸バイオマーカーとその起源を表 1 にまとめた。なお、脂肪酸バイオマーカーとは、細菌や珪藻、藍藻などの植物プランクトン、陸上植物が特異的に合成する脂肪酸のことである。本研究ではこの脂肪酸バイオマーカーを用いて、調整池底質有機物の起源推定を行うこととする。

表 1 脂肪酸バイオマーカーとその起源

脂肪酸バイオマーカー	Source
i15:0、ai15:0、i17:0、ai17:0、18:1 $\omega$ 7	細菌
18:2 $\omega$ 6、18:3 $\omega$ 3	緑藻/藍藻
20:5 $\omega$ 3	珪藻
22:6 $\omega$ 3、18:4 $\omega$ 3	渦鞭毛藻
LCFA (26:0 – 30:0)	陸上植物

## 結果及び考察

### 1 底質有機炭素の分析結果

調整池 10 地点の底質有機炭素の分析結果を表 2 に示す。St.5 と P.1 の炭素濃度が 2 回の調査においてどちらも 30 mg/g・dry を超えていた。また St.8 についても、いずれの月も 20 mg/g・dry を超えており、これらの 3 地点は底質に有機物が溜まりやすい地点であると考えられた。なお、

この 3 地点は全て北部承水路上の地点であり、本明川や小江干拓地等からの有機物供給が大きいものと思われる。

また、St.4 と P.2 の 2 地点は、他の地点と比べて底質有機炭素濃度が低い値となっていた。なお、底泥含水率と底質有機炭素には強い正相関があることが示唆されているが<sup>7</sup>、St.4 と P.2 の 2 地点は含水率がそれぞれ 43.3 %、59.0 %と、2 地点を除いた 8 地点の平均値 69.0 %と比べて低い値となっていた。この 2 地点は調整池南東に位置し、隣接した調査地点である。調整池の底泥は主にシルト・粘土質であるが<sup>8</sup>、この 2 地点付近の底質は砂質で(図 2)、過去に行った調査でも中央粒径が 0.19 mm と細砂質に区分されるものであり、ヘドロが溜まりにくい地点であると考えられる。なお、詳細な考察にあたっては風向・風速、流向・流速等を調査し、調整池内の物質輸送モデルなどを用いて解析する必要があるものと考えており、今後の課題である。

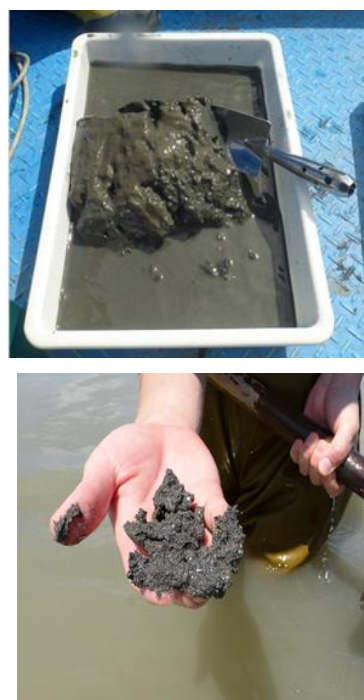


図 2 底泥の状態 (上: St.6 付近、下: St.4 付近)

表 2 底質有機炭素濃度

	St.1	St.2	St.3	St.4	St.5	St.6	St.7	St.8	P.1	P.2
9月	17.4	15.9	14.7	11.4	31.9	16.6	15.8	22.5	31.8	10.5
12月	16.2	16.8	15.7	4.5	34.6	21.5	16.2	25.2	38.3	11.5

## 2 底質脂肪酸分析結果

脂肪酸含有割合の結果を図3に、脂肪酸含有量の結果を図4に示す。若干の逆転はあるものの、全ての地点で陸上植物由来のマーカーク割合が1番大きく、次いで細菌由来のマーカーク割合が大きい傾向にあった。また含有量は、有機炭素濃度が高かったSt.5とP.1において高く、有機炭素濃度が低かったSt.4とP.2において低い結果となっていた。

なお、図5には細菌、植物プランクトン、陸上植物由来それぞれの脂肪酸バイオマーカー含有量の10地点平均値を示している。全てのマーカークで、9月に比べて12月の値が大きかった。12月に各マーカークの含有量が大きくなっているのは、夏季に増殖した藻類の沈降、それに伴うバクテリア生産の増加、冬になり枯死した陸上植物の流域からの流れ込みが考えられる。なお、過去にヨシ進出工内で底質の強熱減量や硫化物を調査した際には、夏季に増殖したヒシ等の水草が枯れた影響で冬季の底質環境の悪化が疑われた<sup>9)</sup>。そのため、陸上植物由来の脂肪酸含有量の増加は流域からの流れ込みに加えて、調整池内で発生した水草等の枯死の影響も考えられる。

### まとめ

本研究では調整池の底質有機物の起源推定を目的に脂肪酸バイオマーカー分析を行った。底質有機炭素濃度は北部承水路上の地点で高く、調整池南東部の地点で低い結果となった。なお、脂肪酸分析の結果、調整池底質は陸上植物や二次生産である細菌に由来する有機物の割合が大きいことが示唆された。なお、有機炭素濃度が高い地

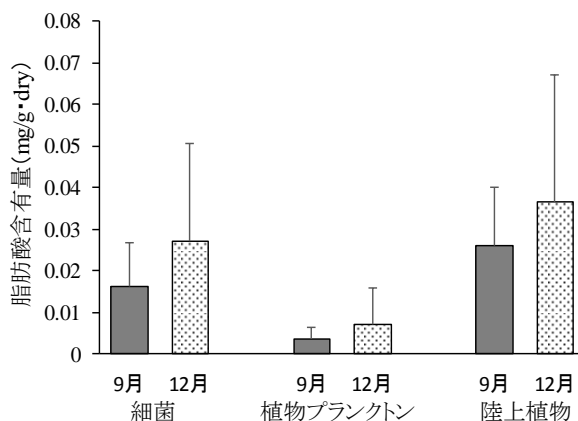


図5 起原別脂肪酸含有量の変化 (平均値+標準偏差)

点は脂肪酸含有量も多く、調整池内の特定の範囲に有機物が溜まりやすい傾向があることがわかった。調整池の水質改善の観点から考えると、調整池全体で同一の対策を講じるのではなく、有機物が溜まりやすい地点は重点的に浚渫を行うなどといった、地点の特性にあわせた細かな対策が必要になると考えられる。

また、9月と比べて12月の方が各脂肪酸バイオマーカー含有量が多くなっていた。原因としては、流域からの陸上植物の流入などに加え、調整池内で発生した水草等の枯死の影響も疑われたが原因の特定には至らなかった。今後調整池の底質有機物の起源推定を行う際は、今回用いた脂肪酸分析に加えて炭素・窒素安定同位体比の分析などを実施することで、より詳細な解析ができるものと思われる。

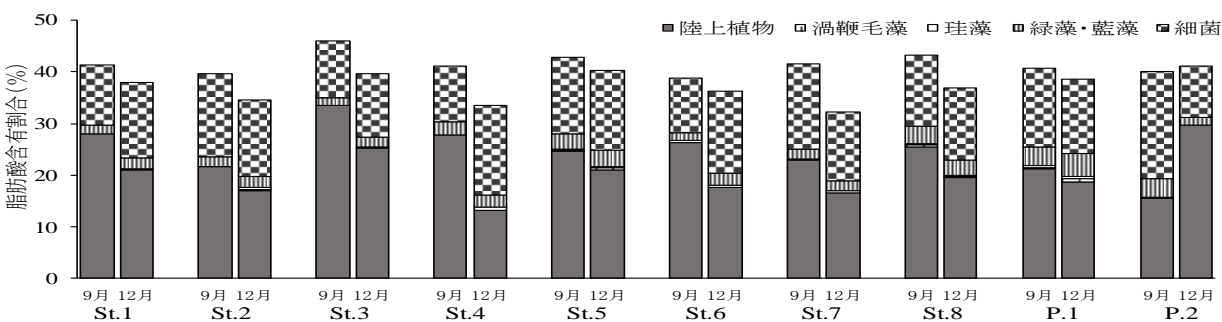


図3 調整池底泥の脂肪酸含有割合

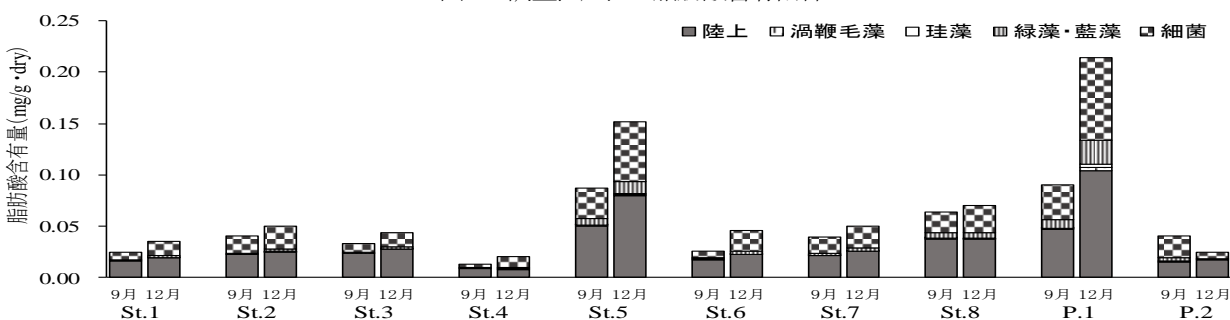


図4 調整池底泥の脂肪酸含有量

## 謝 辞

底質試料の脂肪酸分析に関して、秋田県立大学生物資源科学部生物環境科学科の藤林恵助教にご助言いただきました。ここに記して謝意を表します。

## 参 考 文 献

- 1) 天野 邦彦, 他: 浅い湖沼の水質への水生植物の影響解析, 水工学論文集, **49**, 1219-1224, (2005).
- 2) 三田村 緒佐武, 他: 琵琶湖周辺内湖の植物プランクトン増殖に対する栄養評価, 滋賀大学環境総合研究センター研究年報, **11**, 47-56, (2014).
- 3) 陣野 宏宙, 他: 諫早湾干拓調整池等における有機物特性, 長崎県環境保健研究センター所報, **62**, 62-67, (2016).
- 4) Sakdullah Abdulkadir, *et al.*: One-step method for quantitative and qualitative analysis of fatty acids in marine animal samples, *Journal of Experimental Marine Biology and Ecology*, **354**, 1-8, (2008).
- 5) 藤林 恵, 他: 流動と底質有機炭素の起源に注目した伊豆沼の底質形成機構の解析, 土木学会論文集 G, **69**, III\_565-III\_570, (2013).
- 6) Guillermo, E.N.: Fatty acids as trophic and chemical marker in freshwater ecosystems. In: M.T.Arts and B.C.Wainman(eds), *Lipids in freshwater ecosystems*. Springer, New York, 21-44, (1998).
- 7) 服部 啓太ほか: 底泥含水比と他の底質指標との普遍的な相関性について, 日本水環境学会要旨集, **21**, (2017)
- 8) 西田 渉, 他: 諫早湾干拓調整池北部水域における浮遊懸濁物質の変化に関する研究, 土木学会論文集 G, **70**, III\_341-III\_347, (2014).
- 9) 陣野 宏宙, 他: 諫早湾干拓調整池におけるイケチョウガイの地蒔き飼育の可能性に関する研究, 長崎県環境保健研究センター所報, **61**, 72-78, (2015).

## Investigation of the Origin of Sedimentary Organic Matter in Isahaya Bay Regulating Reservoir

Hirooki JINNO, Riho KUWAOKA, Kyotaro HASHIMOTO and Yasunari UENO

In order to surmise the origin of sedimentary organic matter, we sampled sediment at 10 points in Isahaya Bay regulating reservoir in Sep. and Dec. of 2017 and analyzed its organic matter and fatty acids.

Sedimentary organic matter concentration was high at the points on the lower Hon-myō River and low at the point on the southeast side in the reservoir. The fatty acids content in sediment was high at the points that organic matter concentration was high. The composition indicated that main origin of sedimentary organic matter seemed to be land plants and bacteria. The fatty acids content in sediment which was higher in Dec. than Sep.. This indicated that, adding an inflow of land plants from the basin of Isahaya regulating reservoir, the blighted hydrophyte had contributed to the increase of the fatty acids concentration in sediment.

Key words: Isahaya Bay, regulating reservoir, sedimentary organic matter, fatty acids



## 諫早湾干拓調整池に流入する仁反田川の水質調査結果

浦 伸孝、陣野 宏宙、桑岡 莉帆、植野 康成

国営諫早湾干拓事業によって造成された調整池では、県の第2期諫早湾干拓調整池水辺環境の保全と創造のための行動計画に基づき、各種の施策が実施されているが、現在まで環境基準が達成されていない。そこで、諫早湾干拓調整池に流入する河川の中でも、化学的酸素要求量（COD）、全窒素（T-N）及び全リン（T-P）濃度が高い傾向にある仁反田川に着目し、流域の巡回と水質調査を通じて、負荷が高まる要因を推定し、この地域で取り組むべき対策について考察した。調査の結果、負荷源としては流域の水田や畑地及び事業場等の影響が示唆されたため、負荷流出エリアを8つに区分し、それぞれのエリアで有効と思われる対策について提案する。今後は、仁反田川以外の調整池流入河川についても、負荷濃度が高く流量が多い主要な河川について同様の調査を行い、各河川に応じた負荷削減対策を検討していくことが重要と考えられる。

キーワード: 諫早湾干拓、調整池、環境基準、水質調査、負荷源

### はじめに

2008年に完了した国営諫早湾干拓事業によって造成された調整池の水質については、諫早湾干拓事業計画に係る環境影響評価において水質保全目標値が設定され、2009年1月16日（長崎県告示第47号）には、その利水目的を踏まえて、生活環境の保全に関する環境基準として湖沼B類型、湖沼V類型に指定されている。国、県、市などの関係機関は、2008年度以降「第2期諫早湾干拓調整池水辺環境の保全と創造のための行動計画」に基づき、連携して水質保全対策に取り組んできたが、現在も水質保全目標値及び環境基準を達成できていない。特に、T-Pについては、水質保全目標値（環境基準値）の2倍を上回るレベルで推移している<sup>1)</sup>。

調整池へは本明川の他にも、中小の河川が流入しており、国営諫早湾干拓事業の事業主体である九州農政局がまとめた流域ごとの負荷量によれば、有明川、仁反田川など調整池南部に流入する河川で負荷量が高い状況が見られる。本調査は、2017年度に長崎県が九州農政局の委託事業を受けて実施したもので、調整池に流入する河川の中でも、COD、T-N、T-Pの負荷濃度が相対的に高い仁反田川を対象に、水質調査及び流域の巡回により、当該流域において負荷の高まる要因を推定し、取り組むべき対策について考察した。

### 事業内容

#### 1 重点監視対象河川の選定

調整池に流入する河川の中でも、COD、T-N、T-Pの負荷濃度が相対的に高い仁反田川を、重点監視対象河川として選定した。

#### 2 仁反田川水質調査

##### (1) 河川概況及び調査地点

仁反田川は1級河川本明川水系に属し、延長は約4.25 km、流域面積は約9.75 km<sup>2</sup>である。諫早市森山町上井牟田地区を上流端とし、最も大きな支流である長走川と森山町慶師野地区で合流したのち諫早湾干拓調整池に流入する。河川流域には水田や畑が多く農業が盛んに行われており、山間部には、ゴルフ場や採石場（砕石場）等の事業場が点在する。

本調査では、まず、流域からの負荷源を推定するために、仁反田川流域全体の現地確認及び周辺状況調査を目的とした巡回監視を実施し、この巡回監視の結果に基づき水質調査地点を決定していった。水質調査を実施した地点を図1に示す。

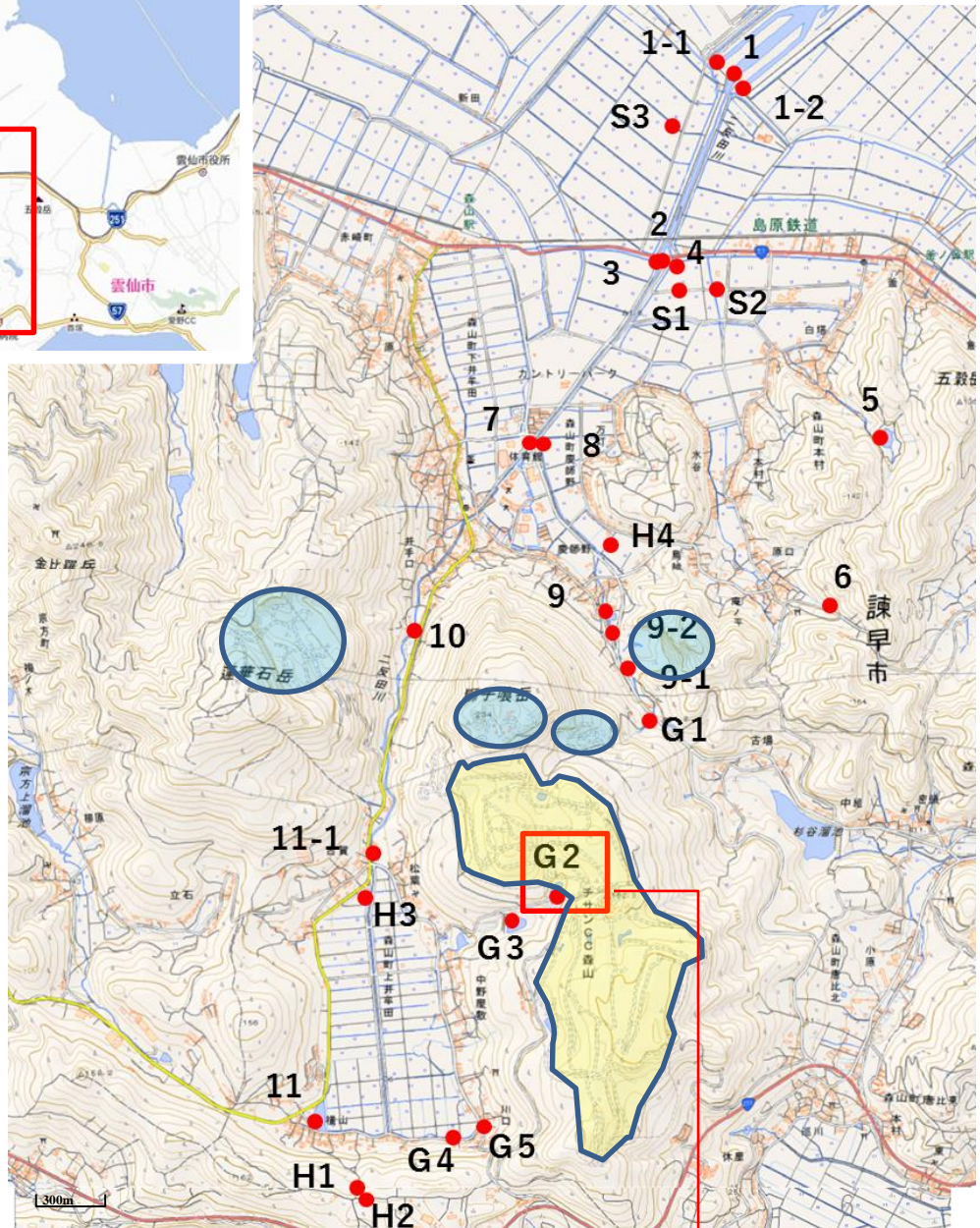
##### (2) 調査実施日

仁反田川流域では、農業が盛んに行われているため、河川の水質に影響があると思われる代かき（田植え）及び灌がいといった農事に合わせて水質調査を実施した。実際に調査を実施した日付を図2に示す。また、河川の水質調査であるため、日降水



量も重要な情報となるので併せて記載した。なお、日降水量は気象官署「諫早」<sup>2)</sup>のデータを使用して

いる。



\* 黄色着色地点:ゴルフ場、青色着色地点:採石場 (砕石場)

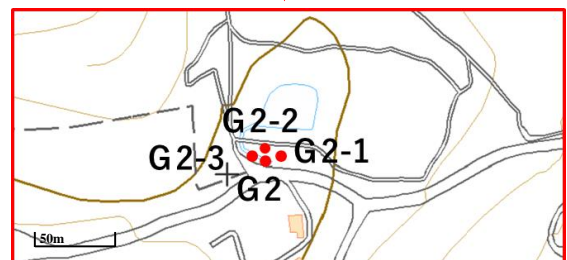
河川調査地点番号(地点1~11):河川の下流側から番号を振った調査地点

地点S系列:水田からの負荷に関する調査地点

地点H系列:畑地からの負荷に関する調査地点

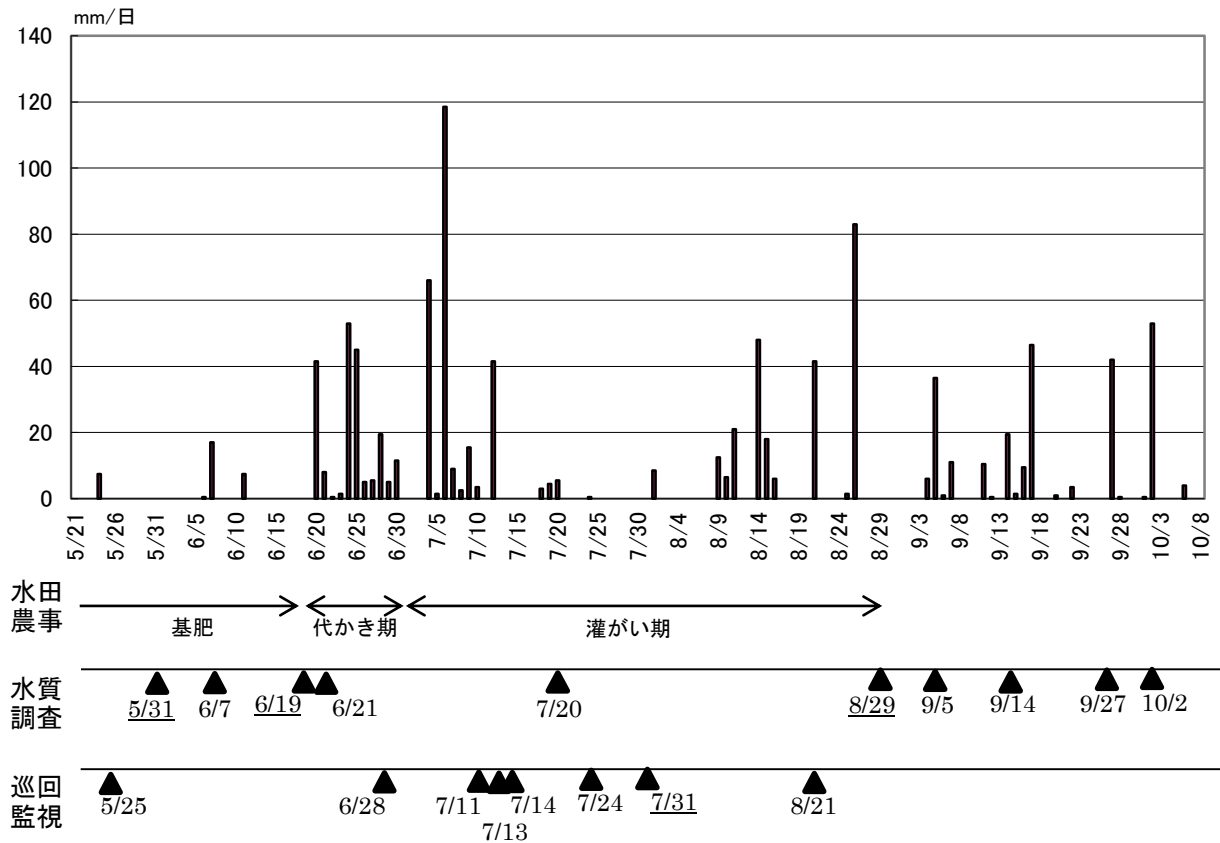
地点G系列:ゴルフ場からの負荷に関する調査地点

枝番号地点(地点2-1等):上記調査地点の結果を補完する調査地点



\* 枠線内:地点G2近傍の調査地点

図1 仁反田川水質調査地点



\* 下線のある日付は晴天時(調査日の前々日から調査日までの日降水量が0mm/日)に実施

図2 調査実施日及び日降水量 (2017年)

(3) 水質調査項目

水質調査で測定した項目を以下に記載する。なお、調査項目の分析については、公定法により実施した。

水温、pH、透視度、浮遊物質(SS)、化学的酸素要求量(COD)、全窒素(T-N)、硝酸性窒素(NO<sub>3</sub>-N)、亜硝酸性窒素(NO<sub>2</sub>-N)、アンモニア性窒素(NH<sub>4</sub>-N)、全リン(T-P)、リン酸態リン(PO<sub>4</sub>-P)、塩化物イオン(Cl<sup>-</sup>)、クロロフィルa(Chl.a)

結果及び考察

1 負荷源推定

(1) 水田及び畑地

流域の水田からの負荷を調査した地点S1～S3の結果を、図3-1～図3-4に示す。2017年6月19日に、地点S2でCOD:37 mg/L、T-N:2.9 mg/L、T-P:1.6 mg/L、SS:420 mg/Lと最も高い濃度となり、COD、T-N、T-P、SSの各項目について、高濃度の負荷が水

田から水路に流出していると考えられる。代かき期、田植え期にあたる6月と激しい降雨後の7月20日<sup>\*1</sup>には負荷濃度が高かった。(※1:7月20日の気象官署「諫早」の日降水量は、気象庁ホームページでは5.5 mm/日であるが、地元役場職員からの聴き取り情報及び他の調査日と当該日の河川状況の比較から、仁反田川流域では局地的に多量の降雨があったと推測される。)

仁反田川流域の水田地帯は、用排水兼用水路となっており、代かき期以降、下流の水門を締め切り、水路・ほ場の区別なく一定のエリアを湛水状態にして灌がいを行う形態(図4)がとられている。このため、1つ1つのほ場としての仕切りがなく水路にも通じているため、水田内の負荷は水門をオーバーフローして下流へ流出している。

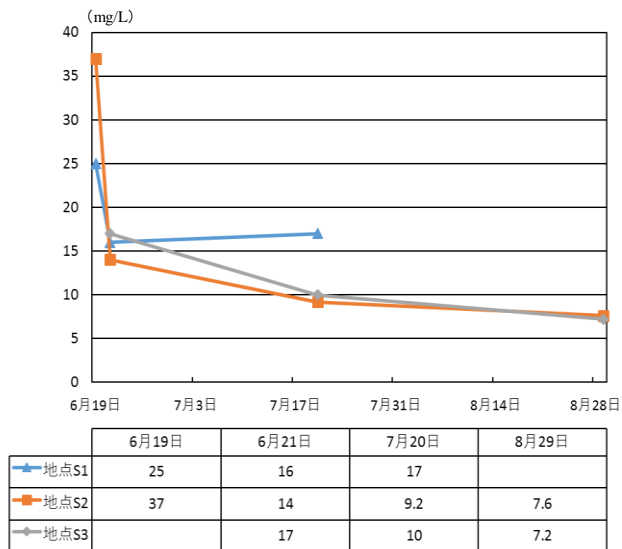


図3-1 水田からの流出水COD

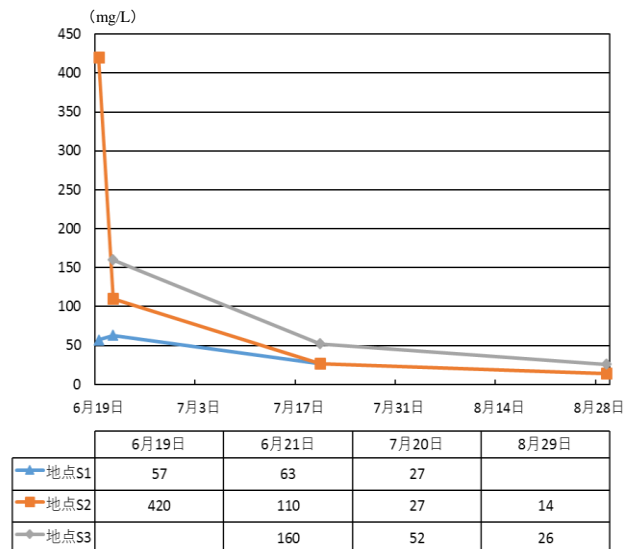


図3-4 水田からの流出水SS

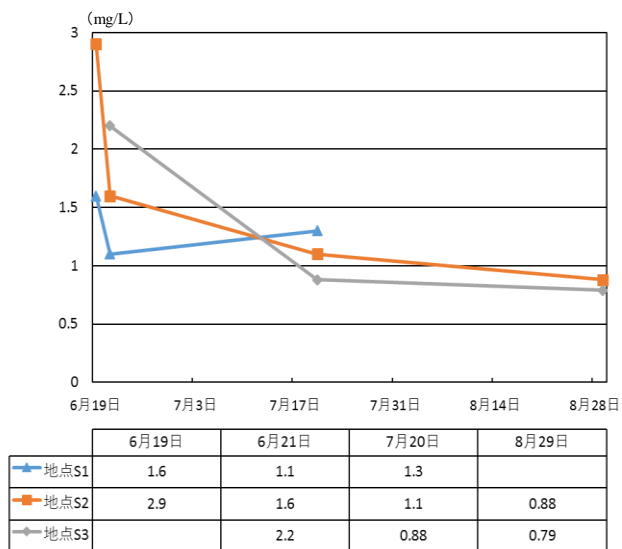


図3-2 水田からの流出水T-N

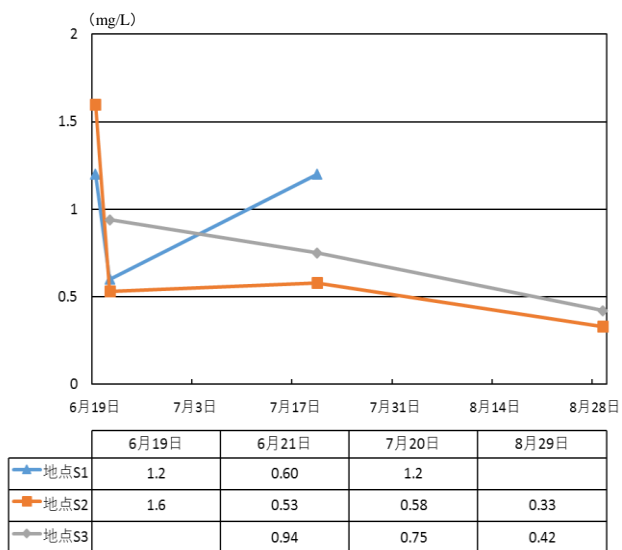


図3-3 水田からの流出水T-P



図4 灌がい期の水田

次に流域の畑地からの負荷を調査した地点H1～H4の結果を、表1-1～表1-4に示す。最大でCOD:14 mg/L（地点H1、9月5日）、T-N:55 mg/L（地点H2、9月27日）、T-P:3.3 mg/L（地点H2、9月27日）、SS:230 mg/L（地点H4、10月2日）となり、COD、T-N、T-P、SSの各項目について、高濃度の負荷が畑地から流出していると考えられる。

表1-1 畑地からの流出水COD (mg/L)

地点名	9月5日	9月27日	10月2日
地点H1	14		
地点H2		12	
地点H3		6.5	
地点H4			13



表1-2 畑地からの流出水T-N (mg/L)

地点名	9月5日	9月27日	10月2日
地点H1	5.6		
地点H2		55	
地点H3		13	
地点H4			8.7

表1-3 畑地からの流出水T-P (mg/L)

地点名	9月5日	9月27日	10月2日
地点H1	1.9		
地点H2		3.3	
地点H3		0.53	
地点H4			1.1

表1-4 畑地からの流出水SS (mg/L)

地点名	9月5日	9月27日	10月2日
地点H1	150		
地点H2		13	
地点H3		59	
地点H4			230

仁反田川流域の畑地では、水路が整備されている場所も多いが、畑地からの水抜き用の穴(図5)などを経由して、土壌とともに流出水が河川へ流れていっている。畑地からの土壌流出は、降雨時に年間を通して起きていると考えられる。



図5 畑地の水抜き用の穴(赤矢印は流出水の流れ)

6月19日、6月21日の水質調査結果で、中流域の調査地点(地点7、8、10)においては、COD、T-N、T-Pの各項目で水質保全目標値を達成か同程度の水準となっている。ところが、下流域の調査地点(地点1、2、3、4)の結果では、いずれの項目も水質保全目標値を超過する水準になっている。仁反田川においては、負荷濃度が高くなる4~7月にかけて、下流域の畑地・水田で集中的に負荷対策を実施すると有効と思われる。

下流域や中流域においては、水稻栽培のために水門で水を一定期間(4~8月頃)とどめており、水門付近には土壌と共にリンや窒素が堆積していると考えられる。非灌がい期間に、水門付近や水路に堆積している泥を除去することが、負荷対策として有効と思われる。

(2) ゴルフ場

ゴルフ場からの負荷を調査した地点G1~G5、G2-1~G2-3の結果を、図6-1~図6-4に示す。ゴルフ場の最も近傍にある地点G2の結果は、COD:6.5~11 mg/L、T-N:0.54~1.0 mg/L、T-P:0.055~0.21 mg/L、SS:6~18 mg/Lとなり、各項目において上流域の調査地点(地点5、6、9、11)と比較すると、地点6と同程度の濃度水準だった。水質保全目標値と比較すると、4回の調査の内CODは4回とも水質保全目標値以上であったが、T-NとT-Pは、それぞれ4回と2回水質保全目標値以下となった。

仁反田川中流域の水質調査結果と比較して、T-N、T-P及びSSに関してゴルフ場は、大きな負荷源とは言えないと思われる。ただCODについては、地点6のため池と同程度の負荷源となっていると考えられる。

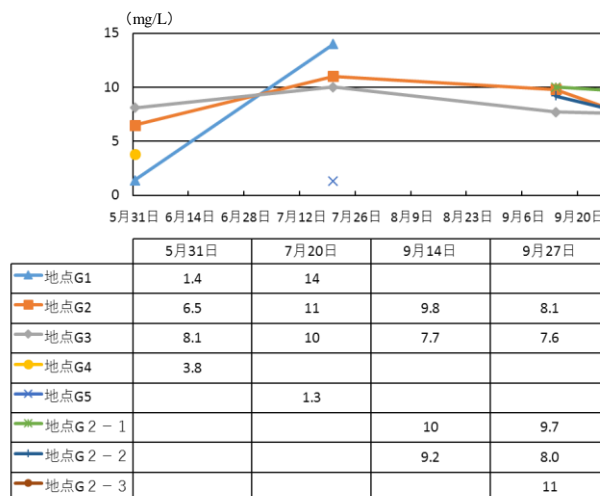


図6-1 ゴルフ場からの流出水COD

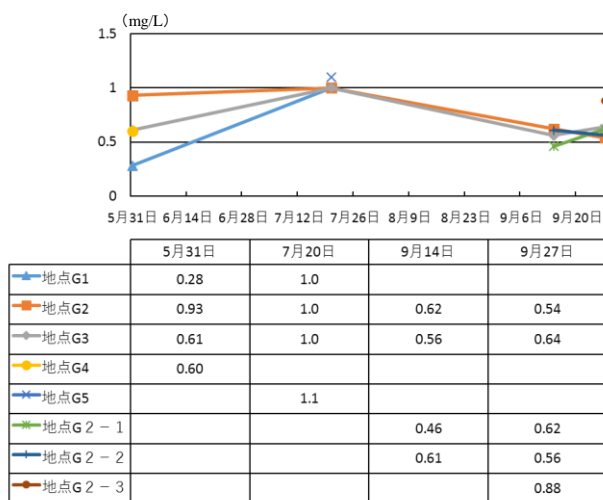


図6-2 ゴルフ場からの流出水T-N

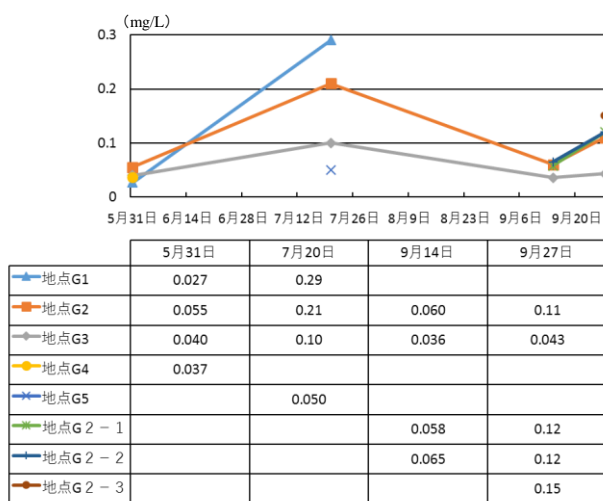


図6-3 ゴルフ場からの流出水T-P

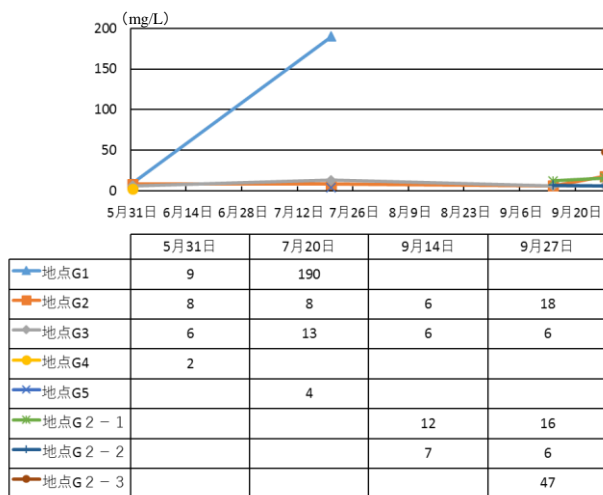


図6-4 ゴルフ場からの流出水SS

ゴルフ場からの負荷は大きくないが、更なる対策としては、ゴルフ場の水が集水されている地点G2において、排水浄化対策を行えば効果的と思

われる。

(3) 採石場 (砕石場)

仁反田川流域の上流域及び中流域には、採石場 (砕石場) が点在しており、これらの事業場からの負荷を調査した地点9-1、9-2、G1の結果を、表2-1、2-2に示す。沈砂池などを設置している事業場もあるが、これらの下流にあたる地点9、9-1、9-2、G1には、降雨時に茶濁水が流入し、最大でCOD:14 mg/L (地点G1、7月20日)、T-N:1.3 mg/L (地点9-2、10月2日)、T-P:0.40 mg/L (地点9-2、10月2日)、SS:500 mg/L (地点9-2、10月2日) となり、各負荷濃度が上昇した。ただ、SSは高い濃度となっているが、COD、T-N、T-Pは水質汚濁防止法における一律排水基準内に収まる水準である。

降雨時は河川流量が増加し、さらに負荷濃度も上昇すると考えられることから、河川に相当量の負荷が流入していると考えられる。

特にSS対策として、沈砂池など既存の排水処理施設が効果的に機能するよう維持管理することが有効と思われる。

表2-1 地点G1の水質調査結果

調査日	COD (mg/L)	T-N (mg/L)	T-P (mg/L)	SS (mg/L)
5月31日	1.4	0.28	0.027	9
7月20日	14	1.0	0.29	190

表2-2 地点9上流の水質調査結果(H29.10.2実施)

調査地点	COD (mg/L)	T-N (mg/L)	T-P (mg/L)	SS (mg/L)
地点9-1	12	1.0	0.26	230
地点9-2	12	1.3	0.40	500

(4) 沈砂池 (地点9上流)

降雨時には、上流にある沈砂池からの茶濁水が地点9に流入してくる。この沈砂池からの負荷を調査した地点9、9-1、9-2の結果を、表3に示す。

地点9の水質調査結果から、一定の降雨量 (流量) までは、沈砂池が機能していると思われる。しかし、10月2日調査時のように降雨量が多くなると、沈砂池への流入水 (地点9-2) の負荷濃度があまり低下しないまま、大量に沈砂池から流出していると考えられる。

先述のとおり、現時点において沈砂池は機能していると考えられるが、沈砂池に堆積した土砂などを定期

的に除去することで、地点9より上流からの負荷流入削減に効果があると思われる。

表3 沈砂池の上流及び下流の水質調査結果  
(H29.10.2実施)

調査地点	COD (mg/L)	T-N (mg/L)	T-P (mg/L)	SS (mg/L)
地点9-1	12	1.0	0.26	230
地点9-2	12	1.3	0.40	500
地点9	8.9	1.2	0.34	450
負荷減少率 (地点9-2→地点9間)	26%	8%	15%	10%

## 2 負荷流出エリア及び有効と思われる対策

巡回監視、水質調査及び負荷源推定の結果を基に、土地利用や負荷要因が異なる水系単位にブロックを分けると図7のように8つのエリアに大別される。各エリアからの流出水に当たる水質調査地点、水田の水管理方法及びエリアごとに流出負荷削減のために有効と思われる対策を表4に整理した。なお、各エリアの流出水に当たる調査地点における水質結果(平均値)を図7に記載した。

### 参考文献

- 1) 九州農政局: 諫早湾干拓調整池水質検討委員会資料(2018)
- 2) 気象庁: 気象庁ホームページ 過去の気象データ検索,  
<http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php>



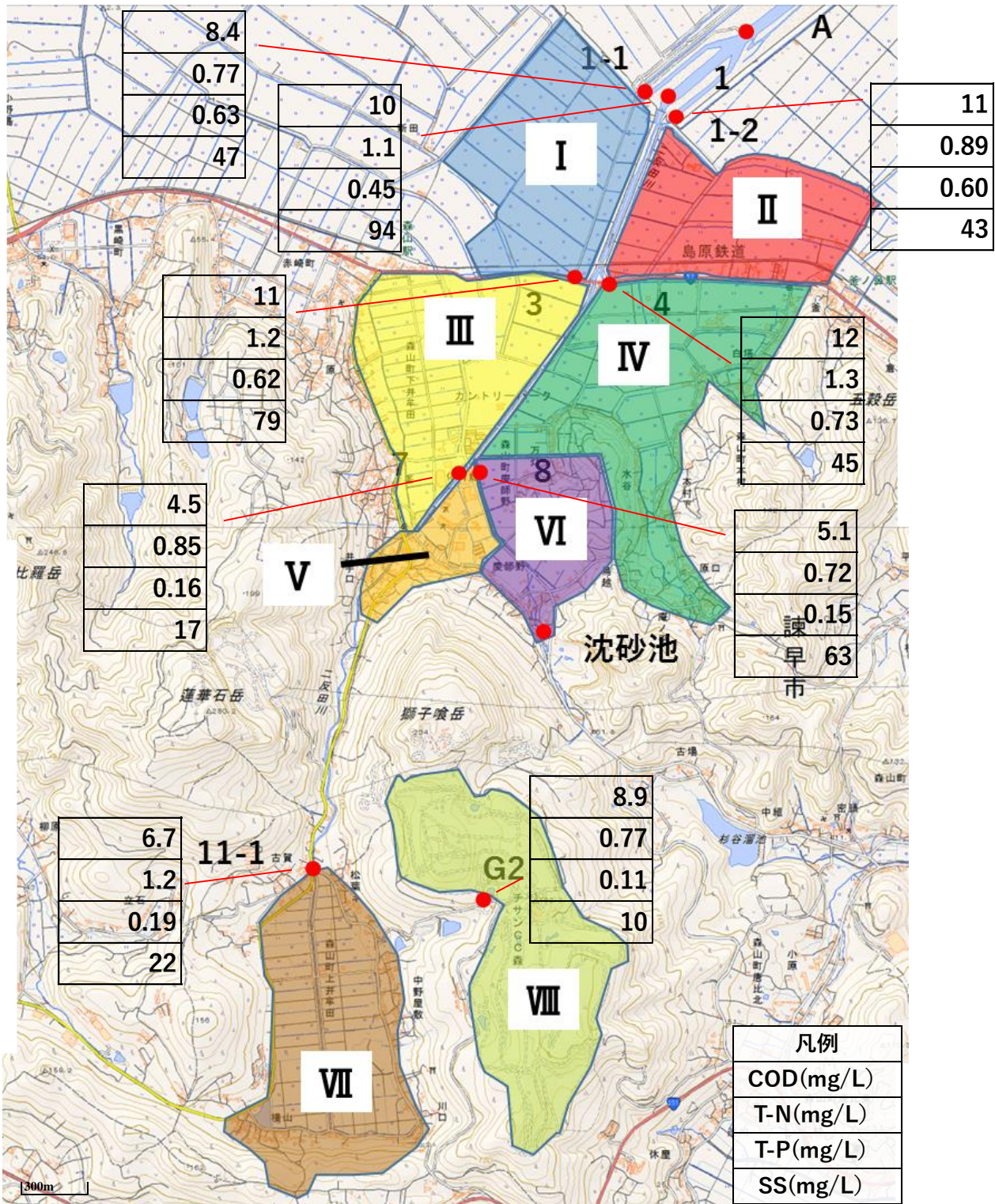


図7 仁反田川流域の主な負荷流出エリア末端の水質調査結果(H29年5月～9月平均)

表4 負荷流出エリアごとの有効と思われる対策

エリア名	主な流出先※1	水田の水管理の方法※2	有効と思われる対策
I	地点1-1	・下流の水門を締め切り、水路・ほ場の区別なく一定のエリアを湛水状態にして灌がいを行う形態。	・ほ場単位に仕切った水管理にする。 ・畑地からの流出水管理。 ・地点1、地点1-1、地点1-2の水が集水される地点A付近で、SSを含めた負荷削減効果が期待されるヨシや植物帯を利用した浄化対策。
II	地点1-2	・下流の水門を締め切り、水路・ほ場の区別なく一定のエリアを湛水状態にして灌がいを行う形態。	・ほ場単位に仕切った水管理にする。 ・畑地からの流出水管理。 ・地点1、地点1-1、地点1-2の水が集水される地点A付近で、SSを含めた負荷削減効果が期待されるヨシや植物帯を利用した浄化対策。
III	地点3	・下流の水門を締め切り、水路・ほ場の区別なく一定のエリアを湛水状態にして灌がいを行う形態。	・ほ場単位に仕切った水管理にする。 ・畑地からの流出水管理。 ・水路の水面に生えている植物体(主にヒシ)の除去。 ・非灌がい期に、地点3の水門などに堆積していると思われる泥の除去。
IV	地点4	・下流の水門を締め切り、水路・ほ場の区別なく一定のエリアを湛水状態にして灌がいを行う形態。	・ほ場単位に仕切った水管理にする。 ・畑地からの流出水管理。 ・非灌がい期に、地点4の水門などに堆積していると思われる泥の除去。
V	地点7	水田無し	・畑地からの流出水管理。
VI	地点8	・下流の水門を締め切り、水路・ほ場の区別なく一定のエリアを湛水状態にして灌がいを行う形態。 ※3	・ほ場単位に仕切った水管理にする。 ・畑地からの流出水管理。 ・非灌がい期に、地点8の水門などに堆積していると思われる泥の除去。
VII	地点11-1	・水田と水田用水路の水は区分されている状態。 ※4	・畑地からの流出水管理。 ・水路や上流のため池(地点11)水面に繁茂した植物体(主にヒシ)の除去。 ・非灌がい期に、地点11-1の水門などに堆積していると思われる泥の除去。
VIII	地点G2	水田無し	・ゴルフ場の水が集まる地点G2において、特にCOD低減のための浄化対策。

※1、※2:本調査において、当該エリアの主な状況について、現地確認や資料等で確認された内容をまとめたもの。

※3:本調査開始前に代かきが終了していたため、灌がい期のみ記載。

※4:本調査開始前に、当該地域の代かき、田植えはほぼ終了していたが、6月初旬に3枚程度の水田で代かき、田植えが実施されていたため、その状況で確認した。



## Water Quality of Nitanda River Basin of the Regulating Reservoir originated from Isahaya Bay Land Reclamation

Nobutaka URA, Hirooki JINNO, Riho KUWAOKA, Yasunari UENO

Environmental standards aren't achieved up to now at the regulating reservoir originated from state-operated business of Isahaya Bay land reclamation though various measures have been performed based on the 2nd period action plan for preservation and creation the water-front environment of regulating reservoir originated from Isahaya Bay land reclamation. Therefore, we aimed at Nitanda river which has a high concentration of the chemical oxygen demand (COD), total nitrogen (T-N) and total phosphorus (T-P) among the rivers poured into the regulating reservoir and conducted water quality survey and a patrol investigation and inferred the factor by which a load increases to consider necessary measures for this area. On investigation, because it was suggested that the load sources are paddy fields, fields, workplaces and so on, we zoned the Nitanda basin into eight areas and proposed measures that are considered effective at each area. It is thought that it is important to conduct similar investigations into main river, with much flow quantity and high load concentration, except for Nitanda river and consider the load reduction measures that suitable each river in future.

Key words: Isahaya Bay land reclamation, regulating reservoir, environmental standard, load source

## 長崎県におけるレジオネラ症の発生状況(2006～2017年)

蔡 国喜、田栗 利紹

レジオネラ症はレジオネラ属菌が原因で起こる感染症で、その病型には、劇症の「肺炎型」と一過性の「ポンティアック熱型」がある。レジオネラ属菌は、水や土壌などの自然環境中いたるところに存在するが、レジオネラ症の集団感染は、通常、循環風呂や冷却塔などの人口環境におけるレジオネラ汚染水と関連することが知られている。1999年4月の感染症法の改正によってレジオネラ症は全数把握疾患となり、四類感染症として全ての医師等に管轄の保健所への届出が義務づけられている(感染症法第12条)。2006年には報告内容の変更が行われ、患者属性等がより詳細となった。近年、高齢化の進む日本では日和見感染である本疾患の今後の動向が注目されている。本研究では、長崎県の2006年から2017年まで12年間のレジオネラ発生届出を集計し、その記述統計情報をまとめて報告する。

キーワード: レジオネラ症、記述統計、感染症情報

### はじめに

レジオネラ症は細胞内寄生性のグラム陰性桿菌レジオネラ属菌(*Legionella* spp.)による細菌感染症で、菌は経気道感染する<sup>1</sup>。その病型には劇症型のレジオネラ肺炎(Legionnaires' disease, 在郷軍人病)と一過性のポンティアック熱(Pontiac fever)がある。レジオネラ肺炎は1976年、米国フィラデルフィアにおける在郷軍人集会(American Legion)で集団肺炎として発見されたところから、Legionnaires' diseaseと命名された<sup>2</sup>。ポンティアック熱は、1968年に起こった米国ミシガン州 Pontiac における集団感染事例にちなんで命名された。

「肺炎型」はレジオネラ症の大半を占め、肺炎を主徴とする。2～14日の潜伏期の後に、全身倦怠感、悪寒、高熱の急性感染症状に始まり、続いて乾性咳、喀痰、呼吸困難、胸痛などの呼吸器症状が出現する<sup>3</sup>。意識障害や歩行障害などの中枢神経系の症状や腹痛、下痢等の消化器症状も見られる。「ポンティアック熱型」は、12時間から2～3日の潜伏期を経て集団で発症する傾向にあり、発熱を主徴とし、全身倦怠感、悪寒、頭痛、および筋肉痛などを伴うが肺炎はみられない。レジオネラ肺炎は適切な治療がなされない場合、重篤化して死に至ることもあり、致死率は15%から20%である<sup>4</sup>。一方、ポンティアック熱はインフルエンザ様の熱性疾患で特に治療

せずとも自然治癒するとされる<sup>5</sup>。

レジオネラ属菌は、もともと土壌や水環境に普通に存在する菌であり、一般的には水中や湿った土壌中などにアメーバ等の原虫類を宿主として存在し、20～45℃で増殖が可能となり、36℃前後で最もよく繁殖する<sup>6</sup>。人類は快適な生活や水資源の節約のため、エアロゾルを発生させる人工環境(噴水等の水景施設、ビル屋上に立つ冷却塔、ジャグジー、および加湿器等)や循環水を利用した風呂が屋内外に多くなっていることなどが感染する機会を増やしているものと考えられる。

レジオネラ症は「感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律」(以下感染症法)に基づく感染症発生動向調査において1999年4月から全数把握の対象となり、四類感染症としてすべての医師等に管轄の保健所への届出が義務づけられている疾患である(感染症法第12条)<sup>7</sup>。また、2006年4月から報告内容の変更が行われ、患者属性等がより詳細となった。近年、高齢化の進む日本では日和見感染であるレジオネラ症の動向が注目されている<sup>8</sup>。

### 材料および方法

#### 1 材料

(1) 感染症発生動向調査事業(NESID)の還元データ

感染症発生動向調査事業 (NESID, National Epidemiological Surveillance of Infectious Diseases)は、国内の感染症に関する情報の収集及び公表、発生状況及び動向の把握を、医師・獣医師の届出に基づいて行うものである。現在、1999(平成 11)年 4 月に施行された感染症法に基づいて実施されている。長崎県環境保健研究センターは地方感染症情報センターとして、県内 10 地区の保健所から届けられた感染症発生届出を確認した上で NESID システムに登録する作業を行う。今回我々は同事業により収集された 2006 年から 2017 年までのレジオネラ症発生届(図 1)の情報を用いて整理・集計・分析した。

(2) 長崎県感染症情報年報(2006 年~2017 年)

長崎県感染症情報センターが毎年公開している県内感染症情報年報(表 1)のデータを集計した。

別記様式 4-4 2

**レジオネラ症発生届**

都道府県知事(保健所設置市長・特別区長) 殿

感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律第 12 条第 1 項(同条第 9 項において準用する場合を含む。)の規定により、以下のとおり届け出る。

届出者の氏名 届出年月日 平成 年 月 日  
(署名又は記名押印のこと)

届出する医療・診療所の名称  
上記施設・診療所の所在地(※)  
電話番号(※)

(※)医療・診療所に従事していない医師にあっては、その住所・電話番号を記載)

1 診断(機転)した者(死体)の種類	10 感染原因・感染経路・感染地域
・患者(確定例) ・無症状感染者(確定例) ・感染症患者の死体 ・感染症患者の遺体	①感染経路(確定・推定)
2 当該者氏名	1 水系感染(水の種類・状況)
①性別 ②年齢 ③性別 ④生年月日 ⑤診断時の年齢(満年齢) ⑥当該者職業	2 塵埃感染(吸入物の種類・状況)
7 当該者住所	3 その他( )
①住所 ②電話番号	
8 当該者所在地	
①住所 ②電話番号	
9 医療機関名	
①住所 ②電話番号	

この届出は診断後に行ってください

図1 レジオネラ症発生届出(NISID システム)

2 データ解析

(1) 統計解析用 SPSS データセットの作成

NESID システムから還元された長崎県における 2006 年から 2017 年までのレジオネラ症の csv ファイル及び長崎県感染症情報センターの年報データの編集した後に、統計ソフト SPSS(Statistical Package for Social Science、IBM SPSS Statistics 20)により SPSS データセットを作成し統計解析に供した。

表 1 長崎県におけるレジオネラ症の届出(2017 年)

診断週(月)	管轄保健所	年齢性別	症状	推定感染経路	推定感染地域
第11週(3月)	S地区	50歳代 男性	発熱・下痢・肺炎・その他(嘔吐)	水系感染(循環式風呂)	県内
第12週(3月)	S地区	50歳代 男性	咳嗽・呼吸困難・肺炎・その他(倦怠感)	水系感染(循環式風呂)	県内
第12週(3月)	S地区	80歳代 男性	発熱・咳嗽・その他(倦怠感・関節痛)	水系感染(温泉施設)	県内
第16週(4月)	KC地区	60歳代 男性	発熱・咳嗽・呼吸困難・下痢・肺炎	水系感染(自宅シャワーヘッド)	県内
第17週(4月)	N地区	50歳代 男性	発熱・肺炎・その他(低Na血症・CK上昇・食欲不振)	水系感染(船の雨水排出作業)	県内
第21週(5月)	KN地区	50歳代 女性	発熱・咳嗽・肺炎	その他(不明)	国内
第23週(6月)	S地区	90歳代 女性	発熱・呼吸困難・肺炎	その他(不明)	ドバイ
第30週(7月)	N地区	60歳代 男性	肺炎	水系感染(ディケイ入浴)	県内
第40週(10月)	KC地区	80歳代 男性	発熱・咳嗽・呼吸困難・肺炎	水系感染(複数の温泉)	佐賀県
第42週(10月)	KN地区	80歳代 男性	発熱・肺炎・その他(ふらつき・呂律困難)	水系感染(温泉施設)	大分県
第46週(11月)	KN地区	60歳代 男性	発熱・咳嗽・意識障害・肺炎	その他(不明)	県内
第48週(11月)	N地区	80歳代 男性	発熱・意識障害・肺炎	水系感染(温泉)	県内
第50週(12月)	KC地区	60歳代 男性	発熱・呼吸困難	その他(不明)	県内

(2) 統計解析法

記述統計は以下 3 部分に分けて集計した:1.発生届出数の経年推移、季節変動、及び地域分布、2. 患者の年齢、性別、及び職業等の生物・社会属性、3. 病型、症状、診断方法、及び感染ルート等の臨床疫学情報。

次に、性別差や年齢差等を検討するために、男女・年齢別に分けて比較解析した。各統計量は全国発生動向調査の成績<sup>9</sup>と比較した。統計解析手法に関しては、連続変量(平均年齢の差等)に対して Student's t-test、カテゴリ変量間に割合の比較に際しては Pearson Chi-Square 検定或いは Fisher's Exact Test 検定を採用した。

結果と考察

1 レジオネラ症発生概要及び患者の社会属性

(1) 発生届出数の推移及び季節変動

2006 年 1 月~2017 年 12 月に 97 例がレジオネラ症と診断され、平均年罹患率は 0.58/10 万人で、同期間日本全国平均の 0.82/10 万人より少し下回っていた(図 2)。その一方で、97 件届出の内 2 件が死亡例で病死率は 2.1%であり、全国同期間の病死率 1.9%(196/10310)より上回ることが分かった。

レジオネラ症発生の季節変動について、全国データでは 7 月を中心に増加し、翌 3~5 月にかけて減少する傾向に対して、長崎県では 7 月と 11 月に二つのピークが認められた(図 3)。夏季で空調用冷却塔等の稼働が増加すると共に生活環境水の温度も高めになることが考えられる要因の一つであるが、11 月における報告数増加の原因となるリスクファクタの究明にはさらなる疫学調

査が必要である。

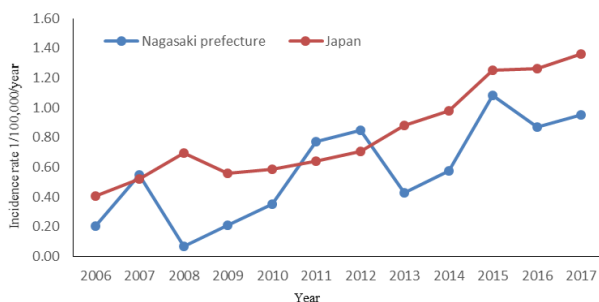


図2 レジオネラ症罹患率の推移(1/10万)

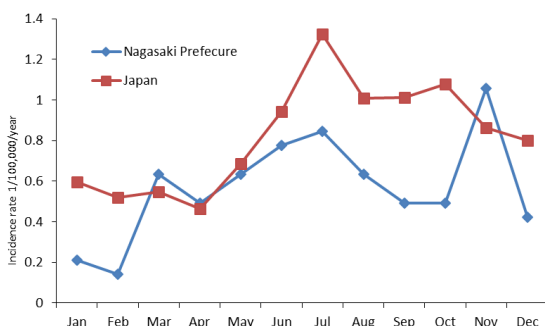


図3 レジオネラ症罹患率の季節変動(1/10万)

(2) 性別、年齢及び地域分布

長崎県のレジオネラ症患者(以下長崎患者)を性別に分けてみると、男性 84 名(86.6%)、女性 13 名(13.4%)であった(表 2)。全国のレジオネラ症患者(以下全国患者)もほぼ同じ傾向で男性が約 8 割を占めており、長崎県と全国とのデータ間に有意差は認められなかった(P=0.191、全国データ男性:81.4%、女性 18.6%)<sup>9</sup>。

長崎患者の平均年齢は報告時点で 69.3 歳(標準偏差 SD=13.4)であり、全国患者平均の 67.8 歳(男性 66.3 歳、女性 74.6 歳)と同じ傾向で(P=0.275)、各年代の割合は高年齢層に偏っていた(表 2)。長崎患者の女性の平均年齢(78.1歳、SD=13.14)は男性(67.9, SD=13.0)より高いことが明らかになった(P=0.01)。

長崎患者の職業について、高齢者が多いことから最も多いのが無職 60 人(61.9%)、続いては事務室仕事 13 人(13.4%)、建設業 8 人(8.2%)、運送・郵便業 6 人(6.2%)、水道設備関係 5 人(5.2%)及びその他 5 人(5.2%)の順であった。

レジオネラ症発生の地域分布を探索するため、長崎県内 10 箇所の保健所管内を分けてその報告数と罹患率(1/10万)を比較した。表 2 に示したとおり、報告数が多い順から長崎地区 35 人、県央地区 24 人、佐世保地

区 13 人、県南地区 10 人であった。一方、10 万人あたり平均罹患率が多い順に県央地区 0.75、県北地区 0.73、

表 2 患者の性別・年齢および地域分布(N=97)

	Frequency	%
<b>Gender</b>		
Male	84	86.6
Female	13	13.4
<b>Age (year)</b>		
<10	1	1.0
40-49	2	2.1
50-59	17	17.5
60-69	36	37.1
70-79	18	18.6
80-89	17	17.5
90-98	6	6.2
<b>Health center</b>		
Tushima	1	1.0
Iki	1	1.0
Kamigoto	1	1.0
Goto	2	2.1
Seihi	4	4.0
Kenhoku	6	6.2
Kennan	10	10.3
Sasebo	13	13.4
Kenou	24	24.7
Nagasaki	35	36.1

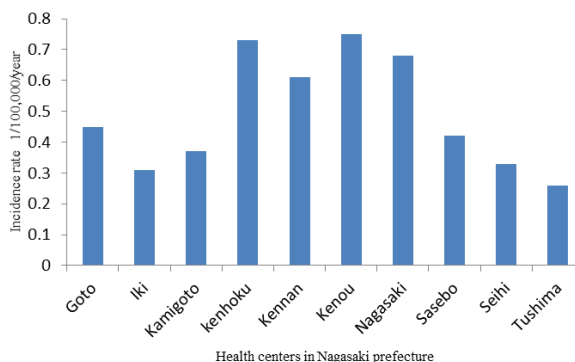


図4 各保健所管内における罹患率(1/10万)

長崎地区 0.68、及び県南地区 0.61 であった(図 4)。全体的に、離島地区に比べて人口の多い・観光業の発達している地区からの報告数が多い傾向であった。

2 臨床疫学情報

(1) 病型

診断(検案)された病型によると、長崎患者は「肺炎型」が殆どを占め(92 名、94.8%)、「ポンティアック熱型」が 4 名で無症状病原体保有者が 1 名報告されていた(表 3)。「肺炎型」92 名中の 2 名は死亡しており(病死率 2.17%)、2 名ともに男性であった(2011 年 12 月、65 歳、佐世保市;2017 年 3 月、58 歳、長崎市)。

(2) 症状

長崎患者の病型と臨床症状を表 3 に示した。発熱 (90.7%)、肺炎 (87.6%)、咳嗽 (45.4%)、呼吸困難 (41.2%)、意識障害 (14.4%)、下痢 (14.4%)、多臓器不全 (9.3%)、および腹痛 (3.1%) であった。表 4 に長崎患者の年齢別および性別と各種臨床症状との因果関係を分析した一覽を示した。呼吸困難を呈する患者の割合 (29 名、50.9%) は全国のデータと同様に<sup>9</sup>、65 歳以上の高齢者において 65 歳以下組 (11 名、27.5%) より高い傾向が認められた (P=0.021)。

(3) 診断方法

診断方法としては、尿中抗原の検出 87 例 (89.7%)、イムノクロマト法 79 例 (81.4%)、培養法 3 例 (3.1%)、酵素抗体法 8 例 (8.2%)、検体から直接の PCR 法による病原体遺伝子の検出 7 例 (7.2%)、LAMP 法 1 例 (1.0%)、間接蛍光抗体法による血清抗体の検出 2 例 (2.1%)、血清抗体価の測定 2 例 (2.1%) であった (複数検査の症例あり)。

(4) 感染原因

感染原因について、39 件 (40.2%) は水系感染 (温泉・銭湯、循環式風呂、シャワー、井戸水など)、4 件 (4.1%) は塵埃感染 (解体工事など) と推定され、54 件 (55.7%) は不明であった。

推定された感染地域について、長崎県内 77 件 (79.4%)、県外 22 件 (20.6%) であり、そのうちに外国旅行の期間内で感染されたと思われるケースは 3 件あった。

3 名のうち、中華人民共和国での感染が推定されたのは 2 名であった (男性 1 名、80 代無職; 女性 1 名、60 代民宿業)。もう 1 名は男性で、10 月 17-19 日の間にアラブアラブ首長国連邦 ドバイ滞在中に噴水を見物していた経験があると臨床医からの聞き取り調査で分かった。2016 年 10 月から 2017 年にかけて、多数の外国人観光

客がドバイでレジオネラ症に感染したと報告されたことか

表 3 患者の病型や臨床症状 (N=97)

	Frequency	%
<b>Clinic type</b>		
Pneumonia type	92	94.8
Pontiac fever	4	4.1
Asymptomatic carrier	1	1.1
<b>Symptoms</b>		
<b>Fever</b>		
Yes	88	90.7
No	9	9.3
<b>Cough</b>		
Yes	44	45.4
No	53	54.6
<b>Dyspnea</b>		
Yes	40	41.2
No	57	58.8
<b>Bellyache</b>		
Yes	3	3.1
No	94	96.9
<b>Diarrhea</b>		
Yes	14	14.4
No	83	85.6
<b>Conscious disturbance</b>		
Yes	14	14.4
No	83	85.6
<b>Pulmonary inflammation</b>		
Yes	85	87.6
No	12	12.4
<b>Multiple organ dysfunction</b>		
Yes	9	9.3
No	88	90.7
<b>Others</b>		
Yes	22	22.7
No	75	77.3

ら<sup>10</sup>、本ケースとの関連性の探索が必要と考えられる。加えて、今後諸外国と人的な交流が多くなることが予測される日本では、レジオネラ症など旅行感染症のコントロ

表 4 年齢別や性別におけるレジオネラ症症状の発生状況

Symptoms	Age (year)			Gender		
	<65 (n=40)	≥65 (n=57)	P value	Male (n=84)	Female (n=13)	P value
Fever	38(95.0%)	50(87.7%)	0.30	76 (90.5%)	12 (92.3%)	0.99
Cough	18(45.0%)	26(45.6%)	0.95	39 (46.4%)	5 (38.5%)	0.59
Dyspnea	11(27.5%)	29(50.9%)	0.02	35 (41.7%)	5 (38.5%)	0.83
Bellyache	1(2.5%)	2(3.5%)	0.99	3 (3.6%)	0	0.99
Diarrhea	9(22.5%)	5(8.8%)	0.06	12(14.3%)	2(15.4%)	0.99
Conscious disturbance	5(12.5%)	9(15.8%)	0.65	12 (14.3%)	2 (15.4%)	0.99
Pulmonary inflammation	38(95.0%)	47(82.5%)	0.07	75 (89.3%)	10 (76.9%)	0.20
Multiple organ dysfunction	4(10.0%)	5(8.8%)	0.99	9 (10.7%)	0	0.60
Others	9(22.5%)	13(22.8%)	0.97	19 (22.6%)	13(22.8%)	0.97

ール対策を講じるとともに、積極的に諸外国の感染症情報入手や情報交換を実施することが望ましい。

## おわりに

日本でのレジオネラ症の報告例としては冷却塔水でのポンティアック熱集団感染<sup>11</sup>、温泉等の温浴施設でのレジオネラ肺炎集団感染<sup>12</sup>、給湯水や加湿器でのレジオネラ肺炎<sup>13</sup>、園芸用土でのレジオネラ肺炎<sup>14</sup>等があるが、温泉等の温浴施設での感染、死亡例が多いのが特徴である。しかしながら冷却塔水も感染のリスクは決して低くないため、温浴施設と同様に注意が必要である。また、レジオネラ症は日和見感染症として位置づけられ、高齢化との関係が懸念されており<sup>8</sup>、今回の調査でも患者は高齢層に偏りが認められた。今後、高齢化の進む我国において、レジオネラ症の動向は注意を要すると考えられる。

レジオネラ症が新たな感染症と認知されてから既に40年以上が経つが、公衆浴場や大型商業ホテル・福祉施設等の利用が向上し、それらの施設が原因となる集団感染の報告は世界中で後を絶たないことから、レジオネラ症は公衆衛生上最も注意されるべき感染症のひとつである。本来レジオネラ属菌は自然環境中に広く生息しているが、これらの自然環境に生息するレジオネラ属菌が冷却塔水や浴槽水などの人工の水環境に入り込み、レジオネラ属菌汚染が広がりレジオネラ症の原因となる。すなわち、人類が便利さを求めて様々な人工水環境を造り上げた結果として、レジオネラ症が一般的な感染症となり広がっていると言えるだろう。したがって、これらの人工水環境の安全利用や集団発生を防ぐためにはレジオネラ属菌の効果的な制御が必須で、そのためにはレジオネラ属菌汚染の実態把握のための有効なレジオネラ属菌検査法の開発や生活環境中のサーベイランスの強化が求められる。

## 謝辞

長崎県内各保健所における感染症情報センター業務や現場疫学調査に携わる担当者の皆様、並びに感染症情報収集に協力していただいた臨床関係者の皆様方に感謝の意を表す。

## 参考文献

- 1) 国立感染症研究所：レジオネラ症とは，<http://www.niid.go.jp/niid/ja/diseases/ra/legionella/392-encyclopedia/530-legionella.html>(2018.7.14 アクセス)
- 2) Fraser, D.W., Tsai, T.R., Orenstein, W., et al. :

- Legionnaires' disease, description of an epidemic of pneumonia, *N. Engl. J. Med.*, **297**, 1189-1197 (1977).
- 3) Cunha BA, Burillo A, Bouza E.: Legionnaires' disease. *Lancet* (London, England) ; 387(10016): 376-85 (2016).
- 4) Fields, B.S., Benson, R.F., and Besser R.F. : *Legionella* and Legionnaires' disease: 25 year of investigation, *Clin. Microbiol. Rev.*, **15**, 506-526 (2002).
- 5) 吉田真一, 宮本比呂志, 小川みどり: レジオネラ属菌の比較生物学—宿主との相互関係を中心として—, *日本細菌学雑誌*, **50**, 745-764(1995).
- 6) 国立感染症研究所: 特集 レジオネラ症 2008.1～2012.12., 病原微生物検出情報 (IASR), (2012).
- 7) 厚生労働省感染症法に基づく医師の届出のお願い: [http://www.mhlw.go.jp/stf/seisakunitsuite/bunya/kenkou\\_iryuu/kenkou/kekkaku-kansenshou/kekkaku-kansenshou11/01.html](http://www.mhlw.go.jp/stf/seisakunitsuite/bunya/kenkou_iryuu/kenkou/kekkaku-kansenshou/kekkaku-kansenshou11/01.html) (2018.7.14 アクセス).
- 8) 感染症発生動向調査週報 (IDWR) : <注目すべき感染症> 最近のレジオネラ症の発生動向 2014 年第 25 号.
- 9) 国立感染症研究所: 我が国のレジオネラ症の発生動向調査における概要, <https://www.niid.go.jp/niid/ja/legionella-m/legionella-idwrs/7638-legionella-20171030.html> (2018.7.14 アクセス).
- 10) Dabrera G, Brandsema P, Lofdahl M, et al. : Increase in Legionnaires' disease cases associated with travel to Dubai among travellers from the United Kingdom, Sweden and the Netherlands, October 2016 to end August 2017, *Euro Surveill.*, 2017 Sep 21;22(38) (2017).
- 11) 藪内英子, 他: *Legionella pneumophila* serogroup 7 による Pontiac fever の集団発生例 II. 疫学調査結果, *感染症学雑誌*, **69**, 654-665 (1995).
- 12) 藪内英子, 縣 邦雄: 日向市の新設温泉施設を感染源とするレジオネラ症集団発生, *感染症学雑誌*, **78**, 90-98 (2004).
- 13) 山下直哉, 他: 新生児レジオネラ肺炎の 4 例. *日本小児科学会雑誌*, **102**, 323, (1998).
- 14) 岡崎美樹, 小出道夫, 斉藤厚: 造園業者に発症した *Legionella longbeachae* 肺炎の 1 例. *感染症学雑誌*, **72**, 1076-1079 (1998).

## Descriptive analysis of legionellosis epidemic in Nagasaki Prefecture between 2006 and 2017

Guoxi CAI and Toshitsugu TAGURI

Legionellosis is an infectious disease which is caused by *Legionella* species, and the disease has two distinct clinical forms: Pontiac fever, which is an influenza-like illness, and Legionnaires' disease, which is a more severe form that causes pneumonia. Though *Legionella* is ubiquitous in the natural environment (in water and soil), outbreaks of legionellosis have often been linked to the water contaminated with the bacteria in artificial water systems such as hot tubs and cooling towers.

Based on Infectious Diseases Law and National Epidemiological Surveillance of Infectious Diseases (NESID) Program in Japan, legionellosis is grouped into the notifiable disease surveillance system from April, 1999. As a Category IV Infectious Disease, medical doctors are obliged to report it to public health centers (Article 12 of Infectious Diseases Law). A change of the report form was made from 2006, and the patient's characteristics became more detailed. Legionnaires' disease is also known as an opportunistic infection, and as Japan's population is aging, the latest information on this disease is believed to become increasingly important for future medical workers. This report aims to summarize the legionellosis epidemic in Nagasaki prefecture between 2006 to 2017, by descriptive analysis on the NESID data.

Key words: legionellosis, descriptive analysis, infectious disease information



# FT-IR/ATR による牛脂肪組織中のオレイン酸組成比 簡易測定技術の開発

辻村和也、吉村裕紀、山口陽子、本多昭幸<sup>1</sup>、橋元大介<sup>1</sup>

## 1 長崎県農林部 畜産課

減衰全反射吸収フーリエ変換赤外分光法 (FT-IR/ATR 法) 及び多変量解析手法の一つである部分的最小二乗回帰 (PLS 回帰) を組み合わせた牛脂肪中のオレイン酸組成比簡易測定技術の開発を試みた。FT-IR/ATR 分析では、アルミニウム箔を用いることで、有害試薬による脂肪酸抽出操作等を行わず、微量の牛脂肪を未処理のまま直接分析する IR スペクトルデータ取得法 (AL-IR/ATR) を確立した。また、脂肪試料から IR スペクトルデータと通常行われているガスクロマトグラフによる脂肪酸組成比実測値の両方を取得し、PLS 回帰解析を行うことで IR スペクトルデータによるオレイン酸組成比予測用 PLS モデル式を構築した。その性能検証の結果、定量モデル式から算出した予測値とガスクロマトグラフによる実測値との間の決定係数 (相関係数) は、 $R^2=0.7949$  ( $R=0.8916$ ) と良好であり、予測誤差の平均は、 $1.3 \pm 1.0$  ポイントと十分な精度であった。加えて、PLS モデル式構築に未使用の牛脂肪試料を用いた外部検証の結果も 1.5 ポイント未満の予測値誤差 ( $1.3 \pm 0.9$  ポイント) を示した。一価不飽和脂肪酸組成比のための構築した PLS モデル式を用いた交差検証は、オレイン酸のモデル式と同様に十分な精度を持つ結果が得られた。以上、微量牛脂肪試料による FT-IR/ATR 分析を利用したオレイン酸及び一価不飽和脂肪酸組成比迅速測定技術が確立できた。

キーワード：牛肉食味、オレイン酸、一価不飽和脂肪酸、FT-IR/ATR 法、部分的最小二乗回帰 (PLS) モデル

### はじめに

牛肉の品質は、消費者のニーズに対応し、牛肉独特の香り、味、舌触りといった食味が重視される。その中で、牛肉の食味と関係がある不飽和脂肪酸、特にオレイン酸組成比は、重要な評価マーカーである。一般的に脂肪酸組成比測定にはガスクロマトグラフ (GC-FID) 法が用いられているが、ガス配管等の設備と高額な分析機器が必要であり、その手技も煩雑で時間も要する。また、簡便な方法として、近赤外線 (NIR) を利用した測定機器が開発されており、有る程度の測定精度を有した非破壊分析法であるが比較的試料量及び厚さが必要である。そのため、対象となる牛肉の部位、量及び厚さがそれぞれ異なる生産、流通、加工、販売、消費の場で全てにおいて適用は困難である。そこで、非破壊、簡便、迅速かつ微量で脂肪成分の直接分析が可能な減衰全反射吸収フーリエ変換赤外分光法 (FT-IR/ATR 法) 及び多変量解析手法の一つである部分的最小二乗回帰 (PLS 回帰) による牛脂肪中 (筋間及び皮下脂肪) のオレイン酸組成比測定技術の開発

を行った。また、オレイン酸を含む一価不飽和脂肪酸組成比についても検討を行った。

### 実験方法

#### 1 試料

平成 27 年 4 月から平成 29 年 10 月までに、118 試料の牛脂肪組織を入手し、PLS モデル式構築用に 100 試料 (皮下 55, 筋間 45)、その PLS モデル式の外部検証用に 18 試料 (皮下 9, 筋間 9) をランダムに振り分けた。脂肪試料は、分析に供するまで  $-30^{\circ}\text{C}$  冷凍保存した。

#### 2 ガスクロマトグラフ法による牛脂肪組織中遊離脂肪酸組成比分析

前処理方法は、事前の検討で既手法<sup>1)</sup>と同等の結果が得られることを確認したナカライテスク社の脂肪酸メチル化キットを用いた。牛脂肪組織約 200 mg を小試験管に取り、抽出試薬 2 mL を加えてガラス棒で肉片を押しつぶし、ボルテックスで攪拌後、上澄み液 0.5 mL を分取し、キットプロトコルに準じてメチルエステル



化反応を行った。最終溶液について、水素炎イオン化型検出器付ガスクロマトグラフ(GC-FID)に供し、主要7脂肪酸(C14:0 [ミスチン酸]、C14:1 [ミストレイン酸]、C16:0 [パルミチン酸]、C16:1 [パルミトレイン酸]、C18:0 [ステアリン酸]、C18:1 [オレイン酸]、C18:2 [リノール酸])のピーク面積を取得した。オレイン酸組成比は、7種の脂肪酸の総ピーク面積に対するオレイン酸の面積値から算出した。また、一価脂肪酸(MUSFA)組成比(C14:1 + C16:1 + C18:1)も同様に算出した。GC-FIDは、GC-2010システム(島津製作所製)を使用した。分析条件は表1に示す。

表1 GC分析条件

【使用機器】	GC-2010システム(島津製作所)
【検出器】	水素炎イオン化検出器(FID)
【GCカラム】	Rtx-2330 (60 m × 0.25 mm ID, 0.2 μm, Restek)
【注入モード】	スプリット(1:100)
【注入口温度】	250°C
【キャリアーガス】	ヘリウム
【線速度】	35 cm/秒
【昇温条件】	160°C (15分) - 4°C/分 - 200°C - 30°C/分 - 230°C (2分)
【注入量】	1 μL

### 3. 全反射フーリエ変換赤外分光法(FT-IR/ATR法)

による牛脂肪赤外吸収(IR)スペクトルの取得

微量の牛筋間及び皮下脂肪を市販アルミニウム箔(AL:2.5 cm×2.5 cm程度に切ったもの)に直接薄く塗布し、FT-IR/ATR測定を行うアルミニウム箔直接分析法(AL-IR/ATR法)によりIRスペクトルデータを各試料につきn=2で取得した。ALは光を良く反射しIRスペクトル上にほとんど吸収をもたないためATR分析との相性が良く油脂のサンプリング用いた事例もあることから、今回適用した<sup>2)</sup>。FT-IRは、Agilent Cary 630 (アジレント・テクノロジー社)を用いた。ATRアタッチメントは、1回反射型ダイヤモンドATRアタッチメントを用いた。FT-IR/ATR分析条件を表2に示す。

表2 FT-IR/ATR分析条件

【使用機器】	Agilent Cary 630 FTIR(アジレントテクノロジー)
【アタッチメント】	ダイヤモンドATR (1回反射型)
【スペクトル測定範囲】	4000 cm <sup>-1</sup> ~ 600 cm <sup>-1</sup>
【バックグラウンドスキャン回数】	32
【サンプルスキャン回数】	32
【分解能】	2 cm <sup>-1</sup>

### 4. PLSモデルの構築及び内部交差検証

PLSモデル構築用試料のGC-FID分析で得られたオレイン酸組成比及び同試料からAL-IR/ATR分析で

得られたIRスペクトルデータをPLS解析することでオレイン酸及び一価脂肪酸組成比を算出するためのPLSモデルの構築を試みた。最適なPLSモデル構築のために、AL-IR/ATR分析で得られた脂肪酸の構造に由来するスペクトルピークのうち、予測率の高い波長域を探索した。

PLSモデルの評価は、検量データを用いた10分割相互検証法(10 fold cross-validation method)で得られる「予測誤差の二乗の和(prediction error sum of squares, 以後PRESSと略す)」、「理論値と予測値の回帰直線の傾き」および「相関係数」で行った。

PLS定量モデル構築及び内部交差検証には、Thermo Fisher Scientific社のGRAMS/IQを用いた。

### 5. PLSモデルの外部交差検証

外部検証用18試料について、構築したモデル式を用い、IRスペクトルデータによるオレイン酸組成比及びMUSFA組成比の予測値を算出した。組成比算出には、Thermo Fisher Scientific社のIQ Predictを用いた。

## 結果及び考察

### 1. 全反射フーリエ変換赤外分光法(FT-IR/ATR法)による牛脂肪赤外吸収(IR)スペクトル

確立したAL-IR/ATR法により取得した牛脂肪IRスペクトルを図1に示す。既報<sup>3)-5)</sup>と同様に脂肪酸の構造に由来する波長として1160 cm<sup>-1</sup>付近(C-O伸縮、CH変角)、1,462 cm<sup>-1</sup>付近(C-H変角)、1,745 cm<sup>-1</sup>付近(C=O伸縮)、2,852 cm<sup>-1</sup>付近(C-H非対称伸縮)、2,921 cm<sup>-1</sup>付近(C-H対称伸縮)が、AL-IR/ATR法により取得したスペクトルデータからも確認され、当該分析方法の有効性が示された。また、皮下脂肪と筋間脂肪にIRスペクトルデータに差はみられなかった。

### 2. PLSモデルの構築及び内部交差検証

PLSモデルに適用可能な波長範囲として、空気中の水分の影響を受ける1,462 cm<sup>-1</sup>付近及び1,745 cm<sup>-1</sup>付近の波長域を排除し、脂肪酸に特徴的なピークのうち、不飽和度によりピークシフトが現れる<sup>6)</sup>とされる2,985~2,818 cm<sup>-1</sup>及び1,254~998 cm<sup>-1</sup>の2波長域を選択し、波長と強度からなるRowデータを平準化処理、ベースライン補正及び二次微分処理したものを暫定モデル式構築に用いた。暫定モデル式から予測された試料の濃度行列とGC分析された試料の既知濃

度行列との予測誤差 PRESS 値が最小になる潜在成分数を探索した。オレイン酸 PLS モデルについては、「9」、MUSFA モデルでは「8」が最適な潜在成分数であり、その値で構築した PLS モデルを用い、内部交差検証を行った。最終的に決定した解析条件を表 3 に示す。また、フロースキームを図 1 に示す。

表 3 PLS 解析条件

<b>【Data processing】</b> <Data preparation>:Mean Center, Variance Scale <Baseline>:Automatic <Pathlength Correction>:None <Derivative>:GAP 2 <sup>nd</sup> , 20 points
--

それぞれの最適な潜在成分数及び解析条件から算出された AL-IR/ATR 予測値と GC-FID 実測値の相関図を図 2 に示す。オレイン酸における決定係数(相関係数)は、 $R^2=0.7949$  ( $R=0.8916$ )と良好であり、予測誤差の平均は、 $1.3 \pm 1.0$  ポイントと十分な精度であった。また、MUSFA では、決定係数(相関係数)は、 $R^2=0.8302$  ( $R=0.9112$ )と良好であり、予測誤差の平均は、 $1.3 \pm 1.2$  ポイントとオレイン酸と同様に十分な精度であった。また、それぞれの傾きも 0.8 以上あり、有意な相関関係が確認できた( $p<0.001$ )。

### 3 PLS モデルの外部交差検証

ランダムに選ばれた 18 試料(皮下:9、筋間:9)について、構築した PLS モデル式を当てはめ、外部交差検証を行った。その結果、オレイン酸においては、皮下脂肪試料の平均予測誤差は  $1.8 \pm 0.7$  ポイント、筋間脂肪試料の平均予測誤差は  $0.7 \pm 0.9$  ポイントであり、全体の平均予測誤差  $1.3 \pm 0.9$  ポイントと外部交差検証でも内部交差検証結果と同等であった。

同様に、MUSFA では、皮下脂肪試料の平均予測誤差は  $1.4 \pm 0.8$  ポイント、筋間脂肪試料の平均予測誤差は  $1.0 \pm 0.9$  ポイントであり、全体の平均予測誤差  $1.2 \pm 0.8$  ポイントと良好であった。(表 4)

### ま と め

以上の結果、アルミホイル、FT-IR/ATR 法と PLS 回帰を組み合わせた簡易・迅速で、現場でも適用可能な精度をもつオレイン酸(含一価不飽和脂肪酸)組成比の測定技術が確立できた。それにより、通常の GC 分析に比べ、最大で 1/14 の時間削減が出来ること試算さ

れ、その精度も平均値で $\pm 2$ ポイント程度であると考えられる。今後実用化に向けては、更に検体数を増やすとともに、施設間や FT-IR 機器間の交差検証が必要である。

### 参 考 文 献

- 1) 社団法人 畜産技術協会、牛肉の品質評価のための理化学分析マニュアル、2003.3.
- 2) 見城ら：ATR-FTIR による皮脂組成の簡易分析法, J. Soc. Cosmet. Chem. Jpn., 31 (2), 176-182, (1997).
- 3) Kiyohiko Toyoda *et.al* : CHARACTERIZATION OF FATTY ACID COMPOSITION PROFILE OF JAPANESE BLACK WAGYU BEEF BY ATR-FTIR SPECTROSCOPY, Proceedings of the 5th International Symposium on Machinery and Mechatronics for Agriculture and Biosystems Engineering Tokyo, Japan, (2010).
- 4) Kiyohiko Toyoda *et.al* : FTIR Spectroscopy Analysis of Fatty Acid Composition for Quality Evaluation of Beef, Proceedings of the 5th International Symposium on Machinery and Mechatronics for Agriculture and Biosystems Engineering Jeonju, Korea, (2012).
- 5) 豊田ら：肉牛資源の戦略的価値形成のための非破壊牛肉品質評価システムの開発、科学研究費補助金研究成果報告書, (2010).
- 6) Yoshida S, Yoshida H.: Nondestructive analyses of unsaturated fatty acid species in dietary oils by attenuated total reflectance with Fourier transform IR spectroscopy. Biopolymers. Dec;70(4):604-13,(2003).

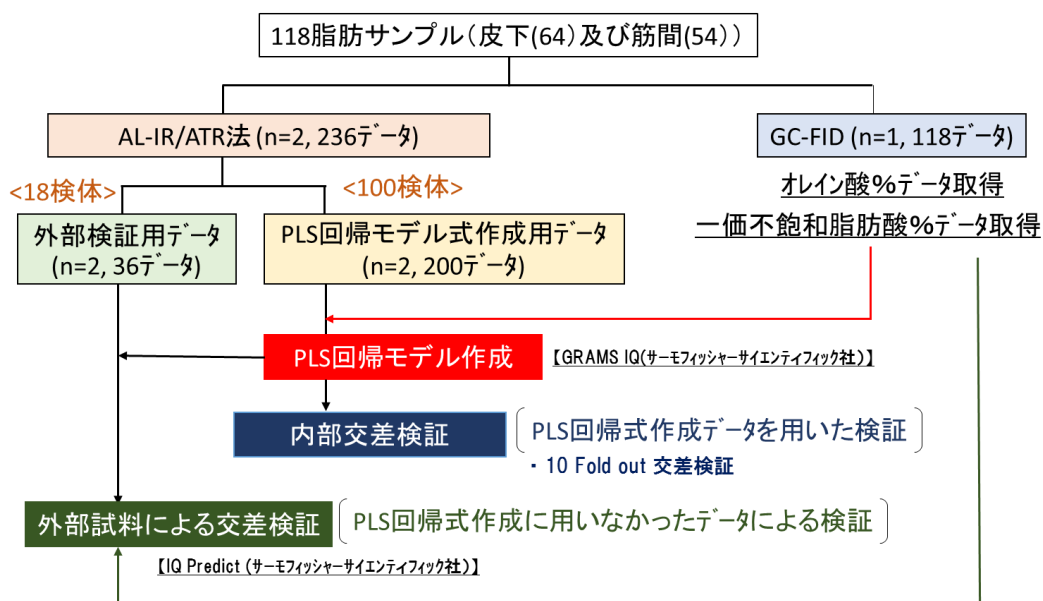


図 1 PLS モデルの構築、内部及び外部交差検証フロースキーム

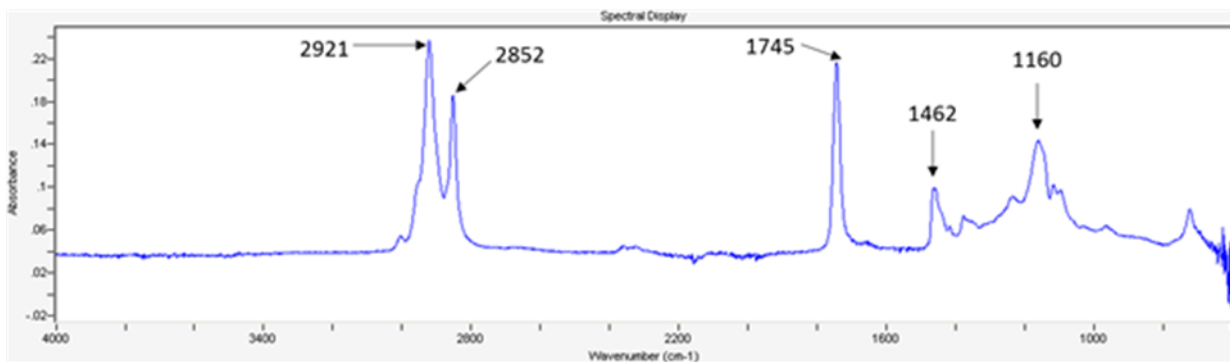


図 2 AL-IR/ATR 法による牛脂肪(皮下)の IR スペクトル

1,160 cm<sup>-1</sup>:C-O 伸縮,及び CH 変角、1,462 cm<sup>-1</sup>:C-H 変角(はさみ)、1,745 cm<sup>-1</sup>:C=O 伸縮、  
2,852 cm<sup>-1</sup>:C-H 非対称伸縮、2,921 cm<sup>-1</sup>:C-H 対称伸縮

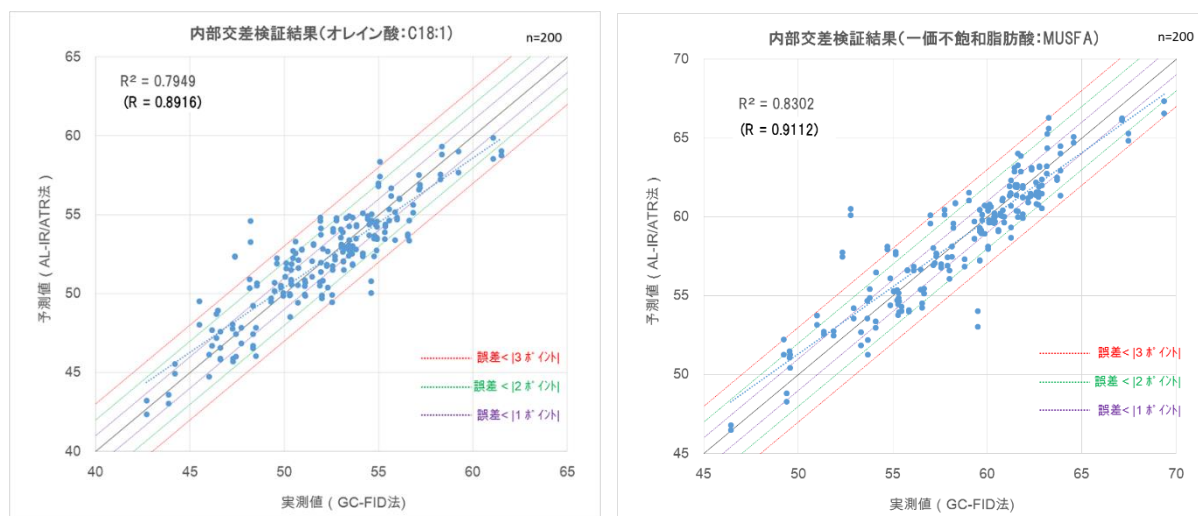


図3 オレイン酸及び一価不飽和脂肪酸 PLS モデルの内部交差検証  
左:オレイン酸, 右:一価不飽和脂肪酸(MUSFA)

表4 オレイン酸及び一価不飽和脂肪酸(MUSFA) PLS モデルの外部交差検証  
左:オレイン酸, 右:一価不飽和脂肪酸(MUSFA)

脂肪	サンプル No.	予測平均値(%)	GC-FID オレイン酸 実測値(%)	vs GC-FID誤差 (ポイント)	脂肪	サンプル No.	予測平均値(%)	GC-FID MUSFA 実測値(%)	vs GC-FID誤差 (ポイント)
皮下脂肪	①	51.0	48.4	2.6	皮下脂肪	①	56.6	55.6	1.0
	②	52.4	51.3	1.1		②	59.5	58.4	1.1
	③	51.3	49.2	2.0		③	59.1	57.2	2.0
	④	52.6	54.4	-1.8		④	60.4	63.5	-3.1
	⑤	59.9	57.6	2.2		⑤	69.9	68.0	2.0
	⑥	52.6	53.6	-1.0		⑥	59.7	59.7	-0.1
	⑦	53.8	55.4	-1.6		⑦	60.1	62.1	-2.0
	⑧	49.4	48.0	1.4		⑧	57.0	56.4	0.6
	⑨	51.5	50.0	1.4		⑨	56.5	56.9	-0.4
	⑩	50.0	49.9	0.1		⑩	52.9	54.5	-1.7
筋間脂肪	⑪	52.4	51.9	0.5	筋間脂肪	⑪	58.3	57.0	1.3
	⑫	50.1	51.3	-1.2		⑫	52.2	54.6	-2.4
	⑬	56.3	56.7	-0.5		⑬	64.1	63.1	1.0
	⑭	54.6	56.7	-2.1		⑭	59.0	60.9	-2.0
	⑮	53.3	51.6	1.8		⑮	58.4	56.0	2.3
	⑯	54.0	54.1	-0.1		⑯	60.1	59.7	0.4
	⑰	54.0	54.6	-0.5		⑰	60.1	60.6	-0.4
	⑱	48.7	49.0	-0.3		⑱	55.3	55.3	0.0

## Development of simple measurement method for oleic acid composition in beef fat tissue by FT-IR / ATR

Kazunari TSUJIMURA, Hiroki YOSHIMURA, Yoko YAMAGUCHI,  
Akiyuki HONDA<sup>1</sup> and Daisuke HASHIMOTO<sup>1</sup>

*1 Livestock Division, Agriculture and Forestry Department*

We developed a simple and easy measurement method for the composition ratio of oleic acid in beef fat by combining Fourier transform infrared spectroscopy with Attenuated Total Reflectance (FT-IR/ATR) and partial least squares regression (PLS model) which is one of multivariate analysis methods. In FT-IR/ATR analysis, we established an analytical method to apply beef fat directly to aluminum foil with a small amount of beef fat (AL-IR/ATR). This method does not use harmful reagents. In addition, the PLS model for predicting oleic acid composition ratio was constructed using both FT-IR/ATR spectral data obtained from a fat sample and measured values of fatty acid composition ratio obtained by gas chromatographic analysis. As a result of internal cross-validation, the coefficient of determination (coefficient of correlation) between the predicted value calculated by applying the PLS model and the traditional measured value by the gas chromatograph, was a high value of  $R^2 = 0.7949$  ( $R = 0.8916$ ). The average of the prediction errors was  $1.3 \pm 1.0$  points, which was good accuracy. External cross-validation using other beef fat samples also had a prediction error of less than 1.5 points. Furthermore, the PLS model constructed for monounsaturated fatty acid composition also confirmed the goodness of the results of cross-validation.

In this research, a rapid measurement technique of oleic acid and monounsaturated fatty acid composition ratio value from small volumes of beef fat using FT-IR/ATR analysis was established.

Key words: Taste of beef, Oleic Acid, Monounsaturated fatty acid, FT-IR/ATR, Partial least squares (PLS) model.