

## 感染症発生動向調査事業の概要と問題点について

### はじめに

医療の進歩した現代においても、エボラ出血熱・エイズ・O157・SARS 等、以前には知られなかった感染症(新興感染症)の出現や、結核・マラリアなど近い将来克服されると考えられてきた感染症の再燃(再興感染症)など、感染症の脅威は依然として存在している。

また、社会的側面から見ても、生活水準・衛生意識の向上、人権の尊重、行政の公正・透明化への要請、それに、国際交流の活発化など、感染症を取り巻く状況が大きく変化していることを受け、「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」という。)が制定され、平成 11 年 4 月 1 日付けで施行された。同法では、第 3 章(第 12 条～第 16 条)に感染症発生動向調査の位置づけがなされ、医師等の医療関係者の協力のもと、1 類～4 類感染症、未知の感染症でエボラ出血熱など第 1 類の疾患と同様な対処が求められる新感染症及び既に知られている感染症で国民の生命及び健康に重大な影響を与えるおそれがありながら第 1 類～3 類に含まれていない疾患で、期間を 1 年に限定して政令で指定する指定感染症の全てについて一元的な情報収集、分析、提供・公開体制を構築していくこととされている。

これに先立ち平成 11 年 3 月 19 日付けで「感染症発生動向調査事業実施要綱」(健医発第 458 号)が策定され、これに基づき現在の感染症発生動向調査事業が運用されている。

感染症法附則第二条では、「この法律施

行後 5 年(平成 16 年)を目途として、…」感染症の流行状況、医学の進歩、それにこの法律の施行状況等を勘案し「…必要があると認められるときは、所要の措置を講ずるものとする。」としていることから、本事業の実施体制とその中での愛知県衛生研究所(以下、衛生研究所という。)の位置付け、業務内容及び事業実施上の問題点等について述べる。

### 感染症発生動向調査体制の現在までの流れ

- ・本県では全国にさきがけ、1966 年(昭和 41 年)から「ウイルス定点観測」として、西尾市民病院小児科での患者の臨床観察及び衛生研究所でのウイルス分離・血清学的診断を開始
- ・1973 年(昭和 48 年)から「原因不明下痢症調査」として、豊橋市民病院及び一宮市民病院(当初は新川病院)を対象とした衛生研究所での各種ウイルス血清疫学調査を開始
- ・1980 年(昭和 55 年)から「伝染性疾患対策事業」(感染症サーベイランス)として、県内 5 ヶ所の医療機関定点を対象とした県衛生部環境衛生課での患者発生情報の収集(週単位)、還元(月単位)を開始
- ・1981 年(昭和 56 年)10 月、本県独自の「感染症サーベイランス事業実施要綱」が定められ、厚生省が同 7 月から開始した地域における感染症サーベイランスの全国ネット化に対応
- ・1987 年(昭和 62 年)1 月から結核・感染症サーベイランス事業(結核及び性感

染症追加)として、コンピュータ・オンライン・システムによる迅速な情報の収集、解析及び還元を開始

・1998年(平成10年)1月から新たに感染症発生動向調査事業として、梅毒様疾患、C型肝炎の追加及び小児感染症の発症年齢階級の細分化(従来、5~9歳が1階級であったものを各年齢ごとに1階級とした。)

以上のようなその時代に対応した変遷の後、1999年(平成11年)4月1日には「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」という。)が施行された。これに伴い「伝染病予防法」、「性病予防法」、及び「後天性免疫不全症候群の予防に関する法律」の三法は「感染症法」に組み入れられる形で廃止された。また、同年、県衛生部環境衛生課で実施されていた感染症発生動向調査事業が衛生研究所に設置された地方感染症情報センターにおいて新たに開始された。

従来の「伝染病予防法」では、患者等の行動に制限を加える際の人権に係る体系的な手続きや保障が設けられていなかったが、感染症法では、その基本理念を人権の尊重に置き、入院を要する患者等が発生した場合の感染症指定医療機関への入院勧告制度の導入、入院期間の延長に係る感染症診査協議会への諮問など、その手続きが整備されている。

また、当該感染症の感染力や罹患した場合の症状の重篤性などに基づいて、総合的な観点からみて危険性の高い順番に1類感染症~4類感染症に類型化されており、また、新感染症及び指定感染症についても規定されている(表1)。この中で、コレラ、細菌性赤痢、腸チフス、パラチフス等、従来の「伝染病予防法」規定されていた多くの疾患は2類感染症に、腸管出血性大腸菌感染症は3類感染症に分類され、類型別に異なる対応が取られることとなった。最近ではSARSが新感染症への指定(平成15年4月3日)を経た後、病原体が判明し既に未知の疾患ではなくなった等の理由から7月14日付けで、指定感染症へと類型化された。また、昨年10月にはアメリカ合衆国、カナダでの大流行を受ける形で、ウエストナイル熱が4類感染症に類型

化されている。

感染症法の施行以降、愛知県における「感染症発生動向調査事業」は、それまで県独自の予算事業であったものが法で規定された事業へと大きく変化した。

## 対象感染症

感染症法が対象としている疾病については表1のとおりである。

## 実施体制の上での愛知県衛生研究所の位置付け

感染症発生動向調査事業実施要綱において、「地方感染症情報センターは、各都道府県等域における患者情報及び病原体情報を収集・分析し、都道府県等の本庁に報告するとともに、医師会等の関係機関に提供・公開することとして、各都道府県等域内に1か所、地方衛生研究所等の中に設置すること」となっている。

また、「都道府県、保健所を設置する市、特別区等との協議の上、当該都道府県内の地方感染症情報センターの中で1か所を基幹地方感染症情報センターとして、都道府県全域の患者情報及び病原体情報を収集、分析し、その結果を各地方感染症情報センターに送付すること」としている。

地方感染症情報センターについては、愛知県は当所(愛知県衛生研究所)に、名古屋市は名古屋市衛生研究所内に、豊田市は豊田市保健所内に、豊橋市は豊橋市保健所内に、岡崎市は岡崎市保健所内に設置している。また、当所にはこれら県内の地方感染症情報センターを統括する基幹地方感染症情報センターが設置されており、当所は地方・及び基幹地方感染症情報センターを兼ねる位置付けとなっている。

基幹地方感染症情報センターとしての機能充実に図る目的で、県全域からの情報収集の徹底、正確かつ効率的な分析、それに情報還元の効率化、迅速化等を検討するため、県、名古屋市、豊田市、豊橋市及び岡崎市の関係行政機関の代表者

並びに県医師会、県内の大学医学部等の学識経験者からなる感染症発生動向調査企画委員会を年1回、感染症情報の解析評価等を行うための同解析評価部会を年6回開催している。

### 基幹地域感染症情報センターの役割

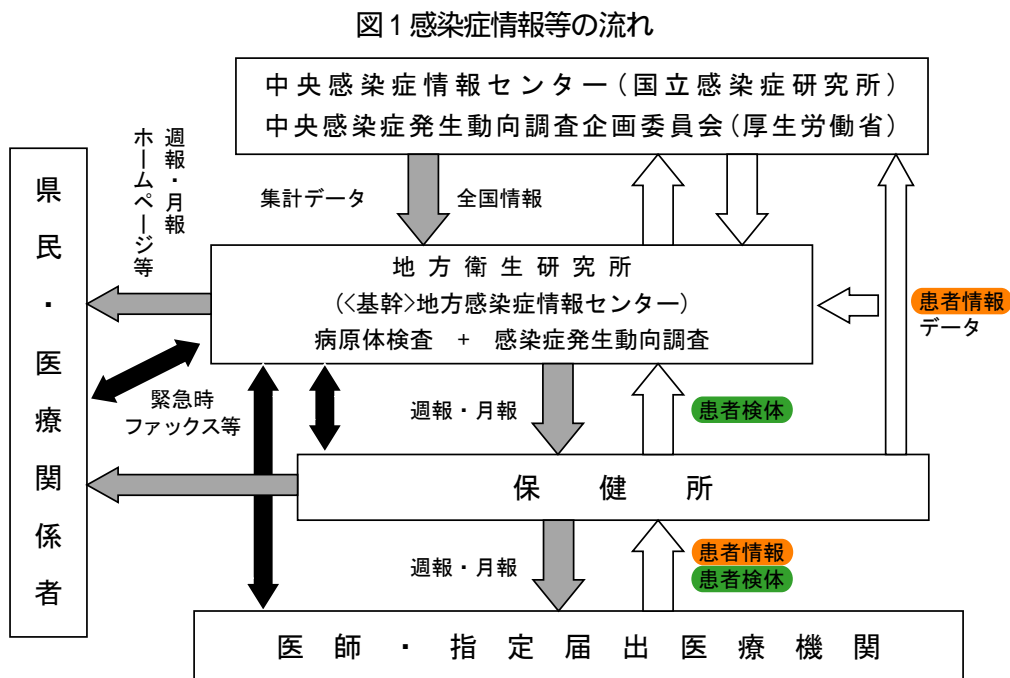
感染症法では、第3章の「感染症に関する情報の収集及び公表」において、医師・獣医師の届出義務（1類～3類の全例、及び4類疾患の一部、新感染症及び指定感染症）、感染症の発生状況及び動向

表1 感染症法における対象疾病

1類感染症	エボラ出血熱 マールブルグ病	クリミア・コンゴ出血熱 ラッサ熱	ペスト	
2類感染症	急性灰白髄炎 ジフテリア	コレラ 腸チフス	細菌性赤痢 パラチフス	
3類感染症	腸管出血性大腸菌感染症			
4類感染症	全数届出（法第12条第1項第2号）	アメーバ赤痢	ウエストナイル熱	エキノкокクス症
		黄熱	オウム病	回帰熱
		Q熱	急性ウイルス性肝炎	狂犬病
		クリプトスポリジウム症	クロイツフェルト・ヤコブ病	劇症型溶血性連鎖球菌感染症
		後天性免疫不全症候群	コクシジオイデス症	ジアルジア症
		腎症候性出血熱	髄膜炎菌性髄膜炎	先天性風疹症候群
炭疽	ツツガムシ病	デング熱		
日本紅斑熱	日本脳炎	乳児ボツリヌス症		
梅毒	破傷風	発疹チフス		
バンコマイシン耐性腸球菌感染症		ハンタウイルス肺症候群		
Bウイルス病	ブルセラ症マラリア			
ライム病	レジオネラ症			
4類感染症	指定機関届出（法第14条第2項）	小児科定点	咽頭結膜熱 水痘 百日咳 麻疹（成人麻疹を除く。）	A群溶血性連鎖球菌咽頭炎 手足口病 風疹 ヘルパンギーナ 流行性耳下腺炎
		インフルエンザ定点	インフルエンザ	
		眼科定点	急性出血性結膜炎	流行性角結膜炎
		STD定点	性器クラミジア感染症 尖形コンジローム	性器ヘルペスウイルス感染症 淋菌感染症
		基幹定点	急性脳炎（日本脳炎を除く。） 細菌性髄膜炎 マイコプラズマ肺炎 メチシリン耐性黄色ブドウ球菌感染症 薬剤耐性緑膿菌感染症	クラミジア肺炎（オウム病を除く。） ペニシリン耐性肺炎球菌感染症 無菌性髄膜炎
指定感染症	政令で1年間に限定して指定された感染症（既知の感染症の中で1～3類に分類されない感染症において、1～3類に準じた対応の必要が生じた感染症）			
新感染症	〔当初〕都道府県知事が厚生大臣の技術的指導・助言を得て個別に応急対応する感染症 〔要件指定後〕政令で症状等の要件指定をした後に1類感染症と同様の扱いをする感染症（人から人に伝染すると認められる疾病であって、既知の感染症と症状等が明らかに異なり、その伝染力及び罹患した場合の重篤度から判断した危険性が極めて高い感染症）			

の把握（厚生労働省令で定める4類感染症の患者）感染症の発生状況・動向及び原因の調査並びに情報の公表について定めている。その中で基幹地方感染症情報センターの役割は、感染症法が対象としている全疾患（1～4類の73疾患、新感染症及び指定感染症）の患者情報の収集・分析と、病原体に関する検出情報の収集・分析を行ない、一般県民や医療現場で予防、診療、研究などに役立つ情報の提供を行なうこととされている。感染症情報等の流れを図1に示す。

図1において、患者情報データが中央感染症情報センターに直接向いているが、これは通常、各保健所のパソコンから患者情報データの報告処理を行なうと、一旦中央感染症情報センターのサーバーにアップロードされ、中央に集まったデータを衛生研究所にダウンロードして集計・分析を行なった後再度中央のサーバーに最終的な報告としてアップロードする形をとっていることによる。



### 地方感染症情報センターの業務の実際

感染症の発生状況の届出を担当する病院・診療所（以下「指定届出機関」という。）から各保健所を経由して報告される患者情報と、衛生研究所において検査している病原体定点医療機関からの検体の検査結果を収集・集計し、国（中央感染症情報センター）に報告すると共に、保健所別、年齢階層別の感染症発生状況として集計・解析を行なった上、独自の解析結果、指定届出機関からの疾病の流行状況等のコメント及び国の週報・月報等を愛知県感染症情報週報・月報としてホームページ、電子メール、印刷物等により提供している。

なお、ホームページでは、週報・月報にとどまらず、感染症に関するより詳しい解説や予防法等の情報を提供している。

### 問題点及び考察

病原体情報と患者情報を同一所内で収集できるため、迅速な解析評価への反映が可能となっている。例えば、インフルエンザ患者発生動向と患者血清からのウイルス分離結果を迅速に入手できる。また、衛生研究所では日常的に保健データの解析を行っており、科学的な解析に必要な微生物学的知識、統計学的知識が集積されているため、正確な解析評価を行なうことが可能と

なっているにもかかわらず、現時点ではこうしたメリットを生かせない種々の問題点がある。

いくつか例を挙げると、まず病原体検出情報において、人口比等を考慮し県内各地域に満遍なく設定された 28 の病原体定点のうち平成 14 年度に検体を提出したのは 19 定点のみであった。すなわち、全定点のうち約 1 / 3 の定点からは全く検査検体が提出されておらず、病原体検出の対象となる検体の提出数に関して地域間のばらつきが大きいいため、その検出結果、特に地域間の比較等に関しては統計的解析に耐えられない、または、解析の信頼性が低いものとなっている。

また、“患者情報と病原体情報の一元化”による迅速かつ利用可能な感染症情報の収集・解析・提供が感染症法で謳われているにもかかわらず、次のような事態も発生している。

例えば、平成 14 年度に病原体検査検体として無菌性髄膜炎の患者 214 名の検体（うち、53 名の検体からエコー 13 型ウイルスを分離）が衛生研究所へ搬入されたにもかかわらず、法律に基づく無菌性髄膜炎の患者発生報告数は半数にも満たない 102 名に過ぎなかった等、大きな矛盾が発生している。その理由としては、患者発生の届け出義務のある医療機関（無菌性髄膜炎の場合は、基幹定点）で、ある疾病を疑って検体を採取したものの、患者としては報告されていないことなどにより、病原体検出情報と患者情報が大きく乖離してしまっている。

また、病原体検査点毎の検体提出数にも大きな差があり、疾病の地域間流行状況の違いを始めとする感染症発生情報を正しく評価するためには、臨床現場における感染症の診断に、より客観性を持たせるために米国 CDC が示すような臨床診断に関する詳細かつ客観的な診断基準を策定する必要があるだけでなく、診療を行なう医師に届出対象疾患を正確に把握してもらうために、報告される情報の信頼性を確保するための研修を行政サイドが実施するとともに、病原体定点からの検査検体の提出件数を最低

限保証するために、無菌性髄膜炎等特定の疾患に関しては、検査検体の提出数を具体的に指示する必要があると考えられる。

一方、現在多くの臨床検査が民間検査所（基幹病院を含む）において実施されていることから、これらの民間検査機関における病原体検査結果を病原体検出動向調査に反映させる方策が必要不可欠である。

さらに、現在の 73 疾患のうち 15 疾患（エボラ出血熱、クリミア・コンゴ出血熱、ペスト、マールブルグ病、ラッサ熱、ジフテリア、黄熱、回帰熱、狂犬病、腎症候性出血熱、炭疽、ハンタウイルス肺症候群、B ウイルス病、発疹チフス及びウエストナイル熱）が感染症法施行後の 4 年間で全国的にも一例の発症も報告されていないこと等を考慮し、感染症法の対象疾患、届け出疾患数を絞り込み、発症が非常に稀であり、かつ発症した場合も直ちに公衆衛生上深刻な事態を引き起こす可能性の非常に小さな疾患はグループ化するなどの見直しも必要と考える。

次に患者情報における問題点として、同規模の人口を擁する保健所間で比較すると、各定点数は人口規模に応じて設置されているにもかかわらず、愛知県全域で流行するような疾患（例えばインフルエンザなど）であっても定点当たりの報告数に 10 倍以上もの差が生じているものもある。

また、基幹定点からの報告対象疾患（例えばマイコプラズマ肺炎）の報告数が低調であるにもかかわらず報告義務の無い内科・小児科定点からは流行している旨のコメントが多く寄せられるといった現象が毎年発生している。（表 2）

これらについては、マイコプラズマ肺炎等を基幹定点把握疾患から小児科定点疾患に変更する、基幹定点を 2 次医療圏に複数カ所設置する、あるいは基幹定点の報告対象疾患を廃止するといった対応も必要になるのではないと思われる。

また、性感染症（STD）定点についても、愛知県の報告数の男女比は厚生労働省の報告と全く逆になっている。これは産婦人科と泌尿器科等の定点の割合が全国では

1：1（450：450）であるのに対して、当県では1：2.87（23：66）と産婦人科の割合が1/3であり、女性の報告数が少なくなっているためと考えられる。

このことについては、産婦人科と泌尿器科等の定点の割合の見直しが必要である。

いずれにしても各保健所からの定点への適切な働きかけが不可欠であるとともに、現在の感染症法の見直しも必要となってくる。その他の感染症法に関連した見

直しについては、麻疹等の予防接種率を向上させるために、感染症法第九条（基本指針）に基づき平成11年4月1日付けで告示された「感染症の予防の総合的な推進を図るための基本的な指針」中、現行では第一の九で規定されている予防接種をより前方に置き、予防接種の一層の推進を図る形で盛り込むことが望まれ、さらに、麻疹に関しては感染症法第十一条に規定する特定感染症予防指針を作成する感染症として定め、指針を策定することにより、国内での年間死亡者数が100～300名とも推定されている麻疹の撲滅を目指すことも考慮する必要がある。

また、病原体検査では、特定の病原体に関して国のリファレンスセンターとしての役割を全国の地方衛生研究所に付与し、その地域（複数の都道府県）の検査を実施できる体制を構築し、稀少疾患の病原体検査の技術水準の維持・向上及び検査の効率化及び検査結果の信頼性を担保する必要があると考えられる。

感染症法附則第2条では、「この法律施行後5年（平成16年）を目途としてこの法律の規定を再検討し、必要があると認められるときは所要の措置を講ずること」とされていることから、これを踏まえ、平成15年2月に地方衛生研究所全国協議会から厚生労働省に対してこれまで述べたことを含む要望書を提出し対応を求めている。

当企画情報部においては、愛知県における基幹地方感染症センターとしての立場が

表2 平成14年度マイコプラズマ週報コメント件数と基幹定点報告数

地 区	非定点コメント件数*	基幹定点報告数
尾 張 西 部	66	9
尾 張 東 部	69	6
西 三 河	50	56
東 三 河	12	44
総 計	197	115

\* コメント件数：コメント中の表現に、「マイコプラズマ患者多発」、「マイコプラズマ流行中」等、正確な患者数がかめられない場合が多いため、マイコプラズマ患者発生に関するコメントの件数をカウントした。したがって、[コメント件数] < [実際の患者数]となる。

ら、各保健所に対し県内全保健所の届出状況を定期的に還元する等の働きかけの実施、指定届出機関で使用する調査票の見直しによる届出の簡便化、収集した情報の集計解析に使用するコンピュータ・プログラムの改良等を実施し、より正確かつ迅速に情報を収集・還元することのできるシステムを構築していくことが必要であると思われる。

（文責 企画情報部 櫻井 博貴）

## 新水道法とICP-MSによる多元素一斉分析

水道法の検査方法に ICP-MS (誘導結合プラズマ質量分析法) が採り入れられたのは、平成 10 年 6 月 1 日付生衛発第 928 号によって監視項目の中にウランの暫定基準が設定された時である。そして今回、平成 15 年 5 月 30 日付厚生労働省令第 101 号で改正された水質基準に関する省令では、同年 7 月 22 日付厚生労働省告示第 261 号 (以下、厚労第 261 号) に示されたように、ICP-MS による一斉分析法で B、Al、Cr、Mn、Cu、Zn、As、Se、Cd、Pb の 10 元素の分析が対象とされた。表に厚労告示第 261 号に示された ICP-MS を含む機器による一斉分析を指示された元素について、種類と定量範囲、及び水質基準等を示した。

表中で分析の対象元素が最も多いのは、ICP (誘導結合プラズマ発光分析法) の 12 元素であったが、そのうち、Na、Mg、Ca、及び Fe は ICP-MS が分析を苦手とする元素である。ICP-MS と ICP 両法による一斉分析の対象とされた 8 元素のうち、Al については定量範囲が同じであったが、B、Cr、Mn、Cu、Zn、Cd、Pb の 7 元素については ICP-MS の方が低い定量範囲が示されている。また、ICP-MS は、As や Se についても直接他の 8 元素と共に高感度な一斉分析が可能で優れていた。すなわち、表には示さなかったが厚労第 261 号では、As や Se については個別に水素化物発生 原子吸光度法 (定量範囲: 両元素共 0.0001-0.01 µg/L)

表 新水道法水質基準等と36元素一斉分析の定量下限値

測定 質量数 (m/z)	元素名	新水道法水質基準			厚生労働省告示第261号 定量範囲				36元素一斉分析 定量下限値 *4 (10 <sup>-1</sup> )
		水質基準項目 基準値	水質管理目標 設定項目目標値	要検討項目 目標値	別表第 3 FL-AAS	別表第 4 F-AAS	別表第 5 ICP	別表第 6 ICP-MS	
7	Li								0.02
9	Be								0.02
11	B	1000					6-600	2-200	1
23	Na	200000			2-200	60-600	6-600		5
24	Mg	*1	*2			5-50	0.6-60		0.02
27	Al	200			1-100		0.4-40	0.4-40	0.2
28	Si								5
39	K								4
43	Ca	*1	*2			20-200	40-4000		20
51	V								0.007
53	Cr	50			1-100	5-50 *3	0.8-80	0.2-20	0.1
55	Mn	50	10		1-100	5-50 *3	0.2-20	0.08-8	0.04
56	Fe	300			10-1000	10-100 *3	1-100		3
59	Co								0.02
60	Ni		10P						0.05
63	Cu	1000			1-100	40-400	0.6-60	0.2-20	0.2
66	Zn	1000			1-100	20-200	0.6-60	0.2-20	0.1
69	Ga								0.01
75	As	10			1-100			0.06-6	0.03
82	Se	10			1-100			0.4-40	0.5
85	Rb								0.01
88	Sr								0.02
95	Mo			70					0.02
107	Ag			*5					0.1
111	Cd	10			0.1-10	1-10 *3	0.5-50	0.07-7	0.05
115	In								0.005
118	Sn			*6					0.03
121	Sb		15						0.01
133	Cs								0.001
137	Ba			700					0.01
202	Hg	0.5							0.1
205	Tl								0.01
208	Pb	10			1-100		1-100	0.2-20	0.02
209	Bi			*5					0.01
232	Th								0.01
238	U		2P						0.002

\*1: 両元素を合わせて、CaCO<sub>3</sub>として300000 µg/L。したがって、Caのみの場合は120000 µg/L、Mgのみの場合は72900 µg/Lに相当。

\*2: 両元素を合わせて、CaCO<sub>3</sub>として100000 ~ 1000000 µg/L。したがって、Caのみの場合は4000 ~ 40000 µg/L、Mgのみの場合は2430 ~ 24300 µg/Lに相当。

\*3: 10倍濃縮。

\*4: ブランクの標準偏差の10倍を濃度に換算した。

\*5: 設定値なし

\*6: 有機Sn化合物として0.6 µg/L暫定値

P: 暫定値

FL-AAS: フレームレス - 原子吸光度法

F-AAS: フレーム - 原子吸光度法

ICP: 誘導結合プラズマ発光分析法

ICP-MS: 誘導結合プラズマ質量分析法

や水素化物発生-ICP（定量範囲：両元素共 0.0001-0.01  $\mu\text{g/L}$ ）を指示している。なお、同様に表には示さなかったが厚労第 261 号では、Hg については還元気化 原子吸光光度法（定量範囲 0.05-0.5  $\mu\text{g/L}$ ）のみを指示している。したがって、これらのことを踏まえながら、実際には、機器分析は装置のコストを含めて各々長所・短所があり、対象試料、対象元素（項目）とその含有量レベル等を考慮して分析方法を選択することになる。

さて、愛知県では、こうした水道法の動きとは別に平成 13 年 7 月に健康危機管理対応備品として衛生研究所に ICP-MS が配備された。健康危機発生時の原因物質究明のための緊急時マニュアル作成を目的に、生活科学部では環境水を対象とした多元素一斉分析手法の確立に向けて検討を加えた。

これらの結果についてはすでに報告した<sup>1)</sup>が、ここでは、ICP-MSの測定原理と特徴、及び多元素一斉分析法における検討事項の概略を要約して述べ、前回の報告以降に得られた多元素一斉分析結果については、新水道法水質基準等と対比させて得られた知見を述べる。

## 1. ICP-MS の測定原理と特徴

ICP（inductively coupled plasma）のプラズマとは、原子力用語辞典<sup>2)</sup>によれば「超高温において高度にイオン化された原子群と自由になった電子群のように、全体としては帯電していないが正負の電荷が相当の密度でガス状に分布している集団であり、固体、液体、気体、のいずれでもない第 4 の状態のこと」である。図 1 に ICP-MS 装置の概略図を示したが、まずイオン化部のプラズマトーチの先端部分に、高周波誘導コイル内の高周波磁界によって生じる誘導電流で無電極放電を発生させ、Ar プラズマを生成させる。そして、試料水が、キ

ャリアーガスの Ar と共に試料導入部ネブライザーによって噴霧されながら、この Ar プラズマの中に導入される。この時、霧状試料水中に含まれる元素が、Ar プラズマの中でイオン化される。これらのイオンは、サンプリングコーンやスキマコーンを通じたのち、排気も兼ねた高真空領域に入り、イオンを効率よく質量選択部に導くためのイオンレンズ部を通過して四重極マスフィルタに導入される<sup>3)</sup>。検出部で測定質量数（ $m/z$ ）別にイオン量が計測されることによって、元素の同定と定量が同時に行なわれる。

長所は、対象元素が周期律表中の元素の約 70% と多く、測定レンジ幅が 8 桁と広いこと、 $\text{ng/L}$  オーダーから  $\text{mg/L}$  オーダーまでの多元素同時分析が可能であること等である。

短所は、試料中の共存元素による分子イオン干渉（例、 $^{23}\text{Na}^{16}\text{O}/^{39}\text{K}$ 、 $^{35}\text{Cl}^{16}\text{O}/^{51}\text{V}$ 、 $^{40}\text{Ar}^{16}\text{O}/^{56}\text{Fe}$ 等生成）同位体干渉（ $^{40}\text{Ar}/^{40}\text{Ca}$ 、 $^{58}\text{Ni}/^{58}\text{Fe}$ 等）、イオン化干渉（イオン化エネルギーの小さい元素がイオン化エネルギーの大きい目的元素のイオン化を抑制）及び原子量効果（共存元素の原子量が大きいほど目的元素の感度が減少）があり、その他にも B や Hg に顕著なメモリー効果（導入系にそれらのメモリーが残ってベースラインに戻らず、感度及び測定値に影響）があること等である。

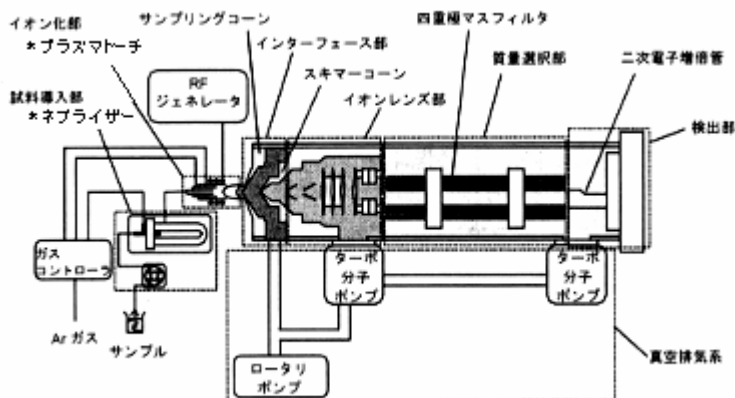


図 1 ICP-MS 装置

（Agilent 7500 ICP-MS ハードウェアマニュアルより転載、\*部は加筆）



## 2. 環境水の多元素一斉分析方法

### 1) 器具及び試薬

(1) 器具：全てポリエチレン製またはポリプロピレン製。ただし、ろ過装置は47 mmのパイレックス製ディスクホルダーを使用。使用時まで、ポリエチレン袋又はプラスチックケースにて密封保存。

(2) 硝酸：関東化学製電子工業用。

(3) 標準液：36元素（表参照）混合標準液（0、0.5～100 µg/L）及び混合（Sc、Y、Ir）内部標準液（100 µg/L）の1%硝酸溶液を下記市販標準液から調製。

SPEX 製 ICP-MS 用 XSTC - 13：

31 元素（表中 36 元素から B、Si、Mo、Sn、Sb を除く）混合標準液 10 mg/L

SPEX 製 ICP-MS 用：

Si、Ir 単独標準液 各 10 mg/L

関東化学製原子吸光分析用：

B、Sc、Y、Mo、Sb 単独標準液 各 1000 mg/L

和光純薬製原子吸光分析用：

Sn 単独標準液 1000 mg/L

### 2) 試料の採取等

環境水の分析試料として、河川水、水道原水や温泉水等の地下水、水道蛇口水を用いた。いずれも、現地にてポリバケツまたは採取ビンにて直接採取、又は水中ポンプにて汲み上げた直後に採取した。試料水は即日実験室にて0.45 µmのメンブランフィルターにてろ過後、ろ液を試料保存ビンに入れて1 Lにつき硝酸10 mLを添加して、冷暗所保存した。なお、澄明な地下水や水道蛇口水については、ろ過は実施しなかった。

なお、厚労第261号では、「ビーカーに採取した検水100 mLに硝酸（保存のための添加量を含め）1 mLと混合内部標準液（Sc、Y、Ir 混合0.00005 mg/mL溶液）10 mLを添

加後、静かに加熱し、液量が100 mL以下になった所で冷却し、精製水を加えて100 mLとし、これを試験溶液とする」ことを指示している。

したがって、今回検討した方法は、酸添加後の加熱溶解によって総量を測定対象とする水道法に比して、加熱処理なしで採取試料に直接硝酸添加して溶解状態にあるもののみを測定する緊急時対応の簡便法である。

### 3) ICP-MS 測定

測定は、Agilent 7500i（環境仕様）にて行なった。試料はそのまま又は希釈のみで直接導入し、内部標準液はネブライザーの直前まで試料とは別系統で導入した。したがって、ここでの測定も、水道法では試料と内部標準が同一溶液でネブライザーに導入されるのに対して、装置による混合を利用した緊急時対応の簡便法である。

プラズマ：高周波出力 1550 W

キャリアーガス（Ar）1.1 L/分

試料噴霧：バビントン型ネブライザー

なお、今回の36元素一斉分析条件での必要試料量は約3 mL、1検体の分析時間は6分であった。

## 3. 検討事項

### 1) 標準元素と検量線の特徴

標準元素には、水道法関連元素を中心に、入手可能な混合標準液等を考慮して36元素を選択した。

検量線は、いずれも相関係数が0.999以上と良い直線性を示したが、よく知られているFe以外でもSi、K、Ca等については検量線が原点を通らず、Y軸切片がプラス方向に大きくずれる傾向があった。なお、36元素のうち、AgとHgは基本的には原点を通過して直線性も良好であったが、標準液測定時に比較的頻繁に外れ値が生じて検量線の直線性が劣る場合があった。Agは硝酸溶液での濃縮時に回収率が落ちると言われて

いることや塩素イオンの存在で塩化銀になりやすいこと、また、Hg はメモリー効果や器壁に吸着しやすい性質に関係があるものと思われた。したがって、この 2 元素の ICP-MS による測定時には、標準液作製後の時間経過による力価の減少が他の元素より顕著であることから、必ず用時調製する必要があると考えられた。その他、標準液測定時に検量線からの外れ値を生じ易い元素は、一般的に器具等からの汚染が懸念されている B、Na、Si、Ca、及び Cu であった。Cu 汚染は実験室に給湯されている温水のボイラーが銅製であることに起因していると考えられ、器具洗浄時に温水を使用しないことも改善策の一つであった。

混合標準液による検量線に直線性があつたとしても、混合標準液自体に含まれる他の元素の分子イオン干渉を受ける事例があつたため、単独の標準液で検量線を確認することも元素によっては必要であつた (Ca の事例後述)。

## 2) 定量下限値

表に測定質量数 ( $m/z$ ) と定量下限値 (10) を示した。定量下限値は B、Na、Si、K、Ca、Fe で  $1 \mu\text{g/L}$  以上と高かつたが、新水道法に基準値や目標値が示された 21 元素のうち、Sn、Se、Hg を除く 18 元素の測定に関しては基準値や目標値の  $1/100$  以下であつた。Sn の定量下限値は  $0.03 \mu\text{g/L}$  と有機スズ化合物としての目標値の約  $1/10$  ではあつたが、これは目標値の低さを考慮すれば良好な値であつた。Se は  $0.5 \mu\text{g/L}$  と基準値の  $1/20$  であつたが、これは ICP-MS 測定の短所である使用される Ar ガスの分子イオンによる干渉のためと考えられた。また、Hg は  $0.1 \mu\text{g/L}$  と基準値の約  $1/5$  でやや高目の定量下限値であつたが、これは Hg がメモリー効果を示すことや器壁に吸着しやすい性質を持つためと考えられた。なお表には示さなかつたが、Hg については、還元気化 原子吸光光度法の定量下限値が  $0.05 \mu\text{g/L}$  と ICP-MS より優れていた。

## 3) メモリー効果と試料導入条件

B や Hg のメモリー効果はよく知られてい

るが、高塩濃度試料では水の主成分である Na、Mg、K、Ca のメモリー効果も大きかつた。除去対策として、装置メーカーはフローインジェクション法を推奨しており、B 以外の元素については有効であつた。しかし、B については直接導入法とそのメモリー効果は殆ど変わらず、必ずしも有効ではなかつた。

以上の検討結果から、緊急時の一斉分析では、試料は直接導入することとし、洗浄液としては 2 %硝酸を使用し、標準液導入後ブランクとして 3 本の 1 %硝酸溶液を挿入した後さらに試料間にブランク 1 本を挿入して試料毎のメモリー量を把握し、必要に応じて試料濃度を補正することにした。高塩濃度試料に関しては、高くてもその濃度を海水の  $1/10$  程度までに抑えることとし、あらかじめ段階希釈した後に測定して各希釈段階のデータを比較して濃度を決定することとした。

## 4) 内部標準液の添加

ICP-MSでは、厚労第 261 号でも指示されているように試験溶液自体に添加された内部標準による補正が原則である。しかし、内部標準元素自体も測定妨害を受けるので、内部標準法は絶対的なものではない。今回は測定対象とした 36 元素に重ならない元素として、Sc (適用元素質量数範囲:  $7 \sim 66$ )、Y (同:  $69 \sim 137$ )、Ir (同:  $202 \sim 238$ ) を使用した。厚労第 261 号では、Irではなく Tl が指示されているが、Tl は上水試験方法解説編 2001 年版<sup>4)</sup>にも「毒性(神経系及び肝・腎毒性)の強い金属の一つ」と記載されている。したがって、今回の検討の測定対象元素として Tl を加え、高質量数用内部標準元素には Ir を用いることとした。

なお、低質量数用内部標準元素の Sc は高塩濃度試料で過剰補正となつた場合があつた。また、内部標準液添加の簡便法としてネプライザーの直前で ICP-MS 装置のペリスタルポンプを用いての添加では添加量に不均一な場合があつたので、簡便法の使用の有無にかかわらず、内部標準元素の計測値を確認後補正の有無を決定した。

#### 4. ICP-MS による一斉分析結果

1) 河川水標準物質：(社)日本分析化学会認証・頒布の河川水標準物質 2 種 JAC0031 と JAC0032 の Ca については実測値と認証値の比が 0.76 及び 0.79 と、実測値がいずれも 20%以上低値であった。これは、作成した Ca の検量線が、混合標準液自体に含まれる他の元素の分子イオン干渉を受けてその傾きが大きくなったために、結果として実測値が相対的に低値となったものと考えられた。

2) 市販混合標準液：Ca の値付け値に対して、36 元素混合標準液で 102%、31 元素混合標準液で 86%とほぼ満足できる測定値であったが、25 元素混合標準液では 58%、Ca 単独標準液では 76%と、標準液の共存元素により測定が妨害されることが明らかになった。

3) 環境水への標準添加：環境水において主成分濃度が比較的 low Na がおよそ 10 mg/L 以下の場合、含有量が数  $\mu\text{g/L}$  レベル以下の Be、Se 等を除けばいずれの元素も直接測定が可能であることが判明した。また、主成分濃度が比較的高く 100 mg/L 以上の場合、質量数が 70 未満の元素については信頼性のある測定値を得ることが困難で、さらに、主成分濃度が高いほど含有量が数  $\mu\text{g/L}$  レベル以下の Se も、回収率が低くなる傾向にあることが判明した。しかし、この場合には最大  $10^5$  倍までの希釈によって高塩濃度試料の主成分濃度を低くすれば、共存元素による分子イオン干渉を抑制し、測定可能な元素範囲が広がることを確認された。

#### 5. 新水道法水質基準と一斉分析による 36 元素含有パターン

環境水についての ICP-MS による 36 元素一斉分析結果から得た元素含有パターン（縦軸：対数表示の濃度、横軸：原点より低質量から高質量の元素）は、水の由来や賦存状態についての情報を得るのに有効であることが示唆された<sup>1)</sup>。

ここでは、県内の飲料水源としての地下水（ $n=27$ ）について 36 元素含有パターンをみた。図 2 にそれらの平均値と最大値について新水道水質基準値と共に示した。

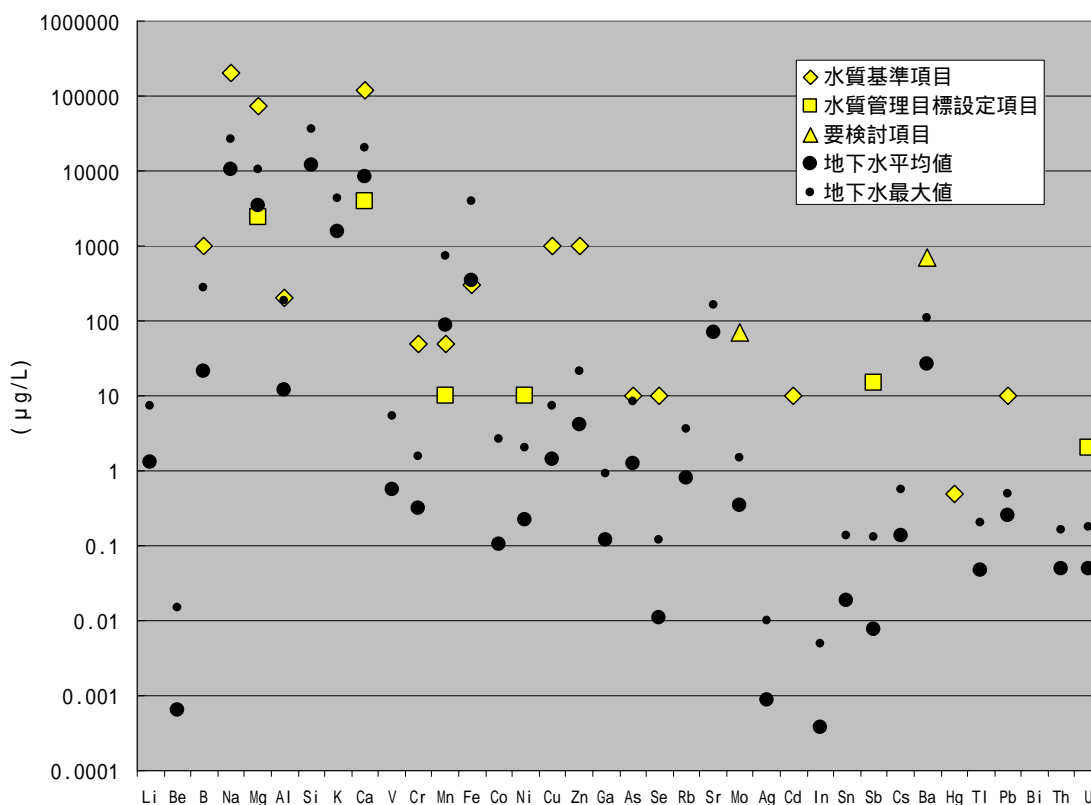
これら地下水の元素毎の溶存レベルの違いを平均値で見ると以下のものであった。

10000	$\mu\text{g/L}$ オーダー以上	Na、Si
1000	$\mu\text{g/L}$ オーダー	Mg、K、Ca
100	$\mu\text{g/L}$ オーダー	Fe
10	$\mu\text{g/L}$ オーダー	B、Al、Mn、Sr、Ba
1	$\mu\text{g/L}$ オーダー	Li、Cu、Zn、As
0.1	$\mu\text{g/L}$ オーダー	V、Cr、Co、Ni、 Ga、Rb、Mo、Cs、Pb
0.01	$\mu\text{g/L}$ オーダー	Sn、Sb、Tl、Th、U
0.01	$\mu\text{g/L}$ オーダー未満	Be、In
	検出下限値未満	Se、Ag、Cd、Hg、Bi

また、これらの結果のうち、ここでは水質基準項目 15 元素（B、Na、Mg、Al、Ca、Cr、Mn、Fe、Cu、Zn、As、Se、Cd、Hg、Pb）、水質管理目標設定項目 6 元素（Mg、Ca、Mn、Ni、Sb、U）、要検討項目 5 元素（Mo、Ag、Sn、Ba、Bi）中 Mo と Ba の 2 元素について注目した。すなわち、水質基準項目 15 元素のうち、Mn と Fe は平均値が基準値と同レベルであった。また、Al と As については、平均値が基準値より 1 桁低かったものの、最大値は基準値と同レベルであった。他の水質基準元素は、いずれも最大値で基準値より約 1 桁以上低かった。水質管理目標設定項目 6 元素のうち、硬度成分である Ca と Mg の平均値は目標値と同レベルであり、Mn の平均値は目標値より 1 桁以上高かった。しかし、他の Ni、Sb、U については、それらの最大値でも目標値より 1 桁以上低かった。さらに、要検討項目の Mo、Ba については、最大値でも目標値より約 1 桁以上低かった。

したがって、図 2 から、県内の飲料水源としての地下水について新水道法上の評価を加えるならば、Mn と Fe の除去が必要な水源が多いこと、及び Al と As については全体的には基準値より 1 桁低い濃度であるが同レベルの水も存在するため水道原水の

図2 新水道法水質基準と飲料水源としての地下水の36元素含有パターン



水質変動や浄水処理等に注意が必要であることも判明した。

なお、県内飲料水源中の Mn、Fe、As 濃度についてはこれまでも日常的に検査されているが、Al については測定例が少ない。そこで、生活科学部では、今年度の行政検査「水道原水水質調査(特定項目水質調査)」にて ICP-MS による Al の実態調査を計画している。

## 6. 最後に

以上、述べてきたように、ICP-MS による多元素一斉分析は、水の主成分元素である Na、Mg、K、Ca 等については精度、感度共に良くない傾向にあるものの、試料水の適正な希釈で多くの元素情報が感度よく得られるため、健康危機管理時における無機元素原因物質の迅速究明に有効であることが示唆された。また、今回検討を加えた ICP-MS による多元素一斉分析法は、水道法による一斉分析法としてはあくまでも簡便法ではあるが、日常業務としての水道水質

検査においても監視等、その目的によっては大いに有効であることが判明した。

今後は、さらに対象元素を広げると共に、個々の元素の測定精度を上げることが必要と考えている。

(文責 生活科学部 大沼 章子)

## 参 考

- 1) 大沼章子、池田清栄、富田伴一：誘導結合プラズマ質量分析法による環境水の多元素一斉分析について、愛知衛所報、53、49-61、2003
- 2) 原子力用語研究会編：図解 原子力用語辞典 新版、290、日刊工業新聞社、東京、1979
- 3) 河口広司、中原武利：日本分光学会 測定法シリーズ 28 プラズマイオン源質量分析、pp.1 - 43、学会出版センター、東京、2001
- 4) 日本水道協会編：上水試験方法 解説編、pp.437-438、(社)日本水道協会、東京、2001

愛知衛研技術情報 第27巻 第3号 平成15(2003)年9月30日  
照会・連絡先 愛知県衛生研究所  
〒462-8576 名古屋市北区辻町字流7番6号 FAX:052-913-3641  
愛知県衛生研究所のホームページ【<http://www.pref.aichi.jp/eiseiken>】

平成13年5月よりダイヤルインとなりました。

所 長 室：052-910-5604	毒性部・毒性病理科：052-910-5654
次 長：052-910-5683	毒性部・毒性化学科：052-910-5664
研 究 監：052-910-5684	化学部・生活化学科：052-910-5638
総 務 課：052-910-5618	化学部・環境化学科：052-910-5639
企 画 情 報 部：052-910-5619	化学部・薬品化学科：052-910-5629
微生物部・細菌：052-910-5669	生活科学部・水質科：052-910-5643
微生物部・ウイルス：052-910-5674	生活科学部・環境物理科：052-910-5644

FAX：052-913-3641(変更ありません)