

(3) 資 料

| | |
|--|----|
| 1) 食品の理化学的検査結果について (2007年度) | 47 |
| 2) 感染症流行予測調査について (2007年度) | 49 |
| 3) 感染症発生動向調査からみたウイルスの流行状況 (2007年) | 50 |
| 4) 食品の微生物学的検査成績について (2007年度) | 53 |
| 5) 大分県における細菌性下痢症サーベイランスの動向 (2007年) | 58 |
| 6) PCBに汚染された底質試料分析に伴う工程別相互汚染リスクの検討 | 63 |
| 7) 大分県における雨水成分調査 (2007年度) | 68 |
| 8) 大分県の公共用水域における燐の測定結果について | 76 |

食品の理化学的検査結果について (2007年度)

曾根聡子, 武田亮, 森崎澄江, 溝腰利男, 後藤成一

Chemical Examination of Distribution Foods in Oita Prefecture, 2007

Satoko Sone, Ryou Takeda, Sumie Morisaki, Toshio Mizokoshi, Seiichi Goto

Key words : 化学的検査 Chemicalexamination, 収去食品 Distribution foods

はじめに

2007年度に県下5ブロックの食品衛生監視機動班が、年間計画に基づいて収去した食品の理化学的検査結果について報告する。

材料及び方法

2007年4月から2008年3月の間に収去した食品240検体について、食品衛生法に定められた試験法に準拠した大分県検査実施標準作業書に基づき検査を実施した。

結果

食品の理化学的検査結果を表1に示す。

県産鶏卵及び県産・国産・輸入食肉、県産・輸入魚介類100検体について動物用医薬品の検査を実施した結果、県産食肉2検体からオキシテトラサイクリンまたは5-プロピルスルホニル-1H-ベンズイミダゾール-2-アミンが、輸入食肉4検体からは5-プロピルスルホニル-1H-ベンズイミダゾール-2-アミンまたはジクラズリルが検出されたが、すべて基準値以下であった。また県産養殖魚3検体からはオキシテトラサイクリンが検出されたがすべて基準値以下であった。

国産野菜・果実30検体について残留農薬検査を実施した結果、国産野菜・果実5検体からアセタミプリドなど1~4農薬が検出されたが、梨1検体から基準値(0.2ppm)を超えるフェニトロチオンが検出されたほかは、すべて基準値以下であった。輸入野菜・果実20検体については、無登録農薬等を含む

残留農薬検査を実施した結果、5検体からイマザリル、チアベンダゾール等1~2農薬が検出されたが、すべて基準値以下であった。

野菜・果実加工品や食肉製品などについて、亜硝酸根、着色料、漂白剤、保存料・甘味料の検査を実施した。すべての検体で使用基準違反となるものはなかったが、表示内容が不相当であるもの、表示のないものが数件あった。食肉製品では、保存料の使用表示がない2検体からソルビン酸が、発色剤の使用表示がない4検体から亜硝酸根が検出された。ただし、亜硝酸根については微量であったことおよび食品衛生監視員の調査結果から、製造工程で窒素酸化物から生成したものと思われた。漬物では、甘味料の使用表示がない1検体からサッカリンナトリウムが、着色料の使用表示がない1検体から黄色4号が検出されたほか、サッカリンナトリウムをサッカリンと表示しているもの、着色料では用途名のみの記載で物質名が表示されていないものがあつた。菓子等10検体で特定原材料(小麦)の検査を、麺類・菓子10検体で特定原材料(そば)の検査を実施した。小麦の検査では3検体で、そばの検査では1検体でELISA法陽性となったが、いずれも注意喚起表示等はなかった。

県産天然魚10検体について、有機スズ化合物の検査を実施したが、すべて検出下限値未満であった。

表 1 食品の理化学検査結果

| 検体名 | 検査項目 | 検体数 | 項目数 | 不良数 | 結果の概要 |
|-------------|---------------------|-----|-----------|-----|------------------------|
| 鶏卵 | 動物用医薬品 | 20 | 48 ~ 67 | 0 | すべて検出せず |
| 県産鶏肉 | | 20 | 61 ~ 63 | 0 | すべて検出せず |
| 県産食肉, 国産食肉 | | 20 | 60 ~ 69 | 0 | 2 検体から検出されたが, すべて基準値以下 |
| 輸入食肉 | | 10 | 65 ~ 67 | 0 | 4 検体から検出されたが, すべて基準値以下 |
| 県産養殖魚 | | 20 | 4 ~ 64 | 0 | 3 検体から検出されたが, すべて基準値以下 |
| 輸入エビ | | 10 | 64 | 0 | すべて検出せず |
| 国産野菜・果実 | 残留農薬 | 30 | 142 ~ 202 | 1 | 5 検体から検出され, 1 検体基準値超過 |
| 輸入野菜・果実 | | 10 | 6 | 0 | 1 検体から検出されたが, すべて基準値以下 |
| | | 10 | 141 ~ 145 | 0 | 4 検体から検出されたが, すべて基準値以下 |
| 魚肉練り製品 | 保存料, 甘味料 | 13 | 4 | 0 | すべて基準値以下 |
| 漬物 | | 4 | 4 | 0 | すべて基準値以下, 表示不適 1 件 |
| 食肉製品 | 亜硝酸根, 保存料, 甘味料 | 14 | 5 | 0 | すべて基準値以下, 表示不適 6 件 |
| たらこ | | 1 | 5 | 0 | 基準値以下 |
| 県産漬物等 | 保存料, 甘味料, ター ル色素 | 15 | 14 | 0 | すべて基準値以下, 表示不適 2 件 |
| 加工食品 | 漂白剤 | 13 | 1 | 0 | 4 検体から検出されたが, すべて基準値以下 |
| 穀類, 菓子類 | 特定原材料 (小麦) | 10 | 1 | 0 | 表示のない 3 検体で陽性 |
| 麺類, 菓子類 | 特定原材料 (そば) | 10 | 1 | 0 | 表示のない 1 検体で陽性 |
| 県産天然魚 (底もの) | 有機スズ化合物 | 10 | 3 | 0 | すべて検出せず |

感染症流行予測調査について (2007年度)

長岡健朗, 吉用省三, 小河正雄

Surveillance of Vaccine-preventable Diseases, 2007

Kenro Nagaoka, Shozo Yoshimochi, Masao Ogawa

Key words : 流行予測調査 Surveillance of Vaccine-preventable Diseases,
日本脳炎 Japanese encephalitis

はじめに

2007年度の厚生労働省委託による感染症流行予測事業として、大分県内の日本脳炎感染源調査を行ったので、その概要を報告する。

材料及び方法

検査材料は2007年度感染症流行予測調査実施要領により採取した。検査方法は感染症流行予測調査検査術式(2002年6月)に従って行った。

結果及び考察

2007年6月下旬から9月下旬まで、各旬20頭ずつ計200頭のと畜場に搬入されたブタについて、日本

脳炎HI抗体を測定した(表1)。最初にHI抗体保有豚が検出されたのは6月22日で、前年より13日早かった。日本脳炎汚染地区の判定基準であるHI抗体保有率が50%を超えたのは9月14日で、例年より約1ヶ月遅く、その後HI抗体保有率が100%に達することは無かった。8月10日及び8月24日に採血したブタの血液からC6/36細胞を用いて日本脳炎ウイルスをそれぞれ2株および1株、計3株分離した。

2007年は、2006年に引き続きHI抗体保有率が100%に達することは無く、また、50%を超えたのも、9月になってからであった。近年、養豚場が大規模化し、SPF農場またはそれに準じたクリーンな環境の農場が増え、ウイルスの伝播がしにくくなったことが一つの要因として考えられた。

表1 日本脳炎感染源調査(2007)

| 採血月日 | 検査頭数 | HI抗体価 | | | | | | | | 抗体陽性率(%) | 2ME感受性抗体保有率(%) |
|-------|------|-------|----|----|----|----|-----|-----|------|----------|----------------|
| | | <10 | 10 | 20 | 40 | 80 | 160 | 320 | 640≤ | | |
| 6月22日 | 20 | 19 | | 1 | | | | | | 5.0 | 0.0 |
| 7月6日 | 20 | 18 | | 2 | | | | | | 10.0 | 0.0 |
| 7月20日 | 20 | 20 | | | | | | | | 0.0 | 0.0 |
| 7月27日 | 20 | 19 | 1 | | | | | | | 5.0 | 0.0 |
| 8月10日 | 20 | 19 | | | | | | | 1 | 5.0 | 100.0 |
| 8月17日 | 20 | 19 | | | | 1 | | | | 5.0 | 100.0 |
| 8月24日 | 20 | 14 | | | 1 | 1 | | | 4 | 30.0 | 83.3 |
| 9月7日 | 20 | 11 | | | 1 | 1 | 1 | | 6 | 45.0 | 55.6 |
| 9月14日 | 20 | 9 | | | | 1 | | | 10 | 55.0 | 45.5 |
| 9月28日 | 20 | 6 | | | | | 1 | 3 | 10 | 70.0 | 14.3 |

感染症発生動向調査からみたウイルスの流行状況 (2007年)

長岡 健朗, 吉用 省三, 小河 正雄

Report on Isolation of Viruses in Oita Prefecture, 2007

Kenro Nagaoka, Shozo Yoshimochi, Masao Ogawa

Key words : 感染症発生動向調査 surveillance, ウイルス virus

はじめに

我々は、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に係わる感染症発生動向調査事業に基づき、ウイルスの検索及びその動態などについて大分県内の調査を行っている。2007年の調査結果について報告する。

検査方法

ウイルス検索は大分県内の医療機関より提出された咽頭拭い液、咽頭うがい液、糞便、尿などを対象に、HEp-2, RD-18S, Vero, CaCo-2, MDCKの5種細胞を使用し、細胞変性効果を指標に2代まで継代培養を行った。分離ウイルスの同定は中和試験、又はPCR法とシークエンスで行った。A群ロタウイルスの検出にはラピッドテスト ロタ・アデノ(第一化学薬品株式会社)を使用した。ノロウイルス、ライノウイルス、エンテロウイルス(一部)、サイトメガロウイルスおよびヒトヘルペスウイルス6型の検出は、PCR法で行った。

結果及び考察

2007年は県内の12医療機関から330件の検査依頼があり、検出した病原体は153件であった(表1)。多く検出されたウイルスは、ノロウイルスGII型、エコーウイルス18型、インフルエンザウイルスAH3型であった。

感染性胃腸炎では、ノロウイルスGIIが最も多く検出され、1~4月に19件、10~12月に16件が検出された。2006/2007シーズンでは、ウイルスの遺伝

子型はGII/4が主流であったがGII/13も散見された。2007/2008シーズンでも、遺伝子型はGII/4が主流であった。A群ロタウイルスは3~5月に14件が検出された。その他、アデノウイルスが3件、エンテロウイルス属が4件検出された。

ヘルパンギーナからはコクサッキーウイルスA10型が5件とA6型とエコーウイルス30型がそれぞれ1件検出された。全国的にはコクサッキーA6型が多く検出されている。

無菌性髄膜炎からは、エコーウイルス30型が17件検出された。全国的には、コクサッキーウイルスB5型とエコーウイルス30型が多く検出されている。

インフルエンザ様疾患からは、1月から3月にかけてインフルエンザウイルスAH3型を18件、B型を10件分離した。インフルエンザウイルスAH1型を5月から8月にかけて4件、12月に11件分離した。腸重積症からはアデノウイルス2件の他にエコーウイルス5型、9型、25型がそれぞれ1件分離された(表2)。

表1 ウイルス及びクラミジアの月別分離状況(2007年)

| 病原体名 | 1月 | 2月 | 3月 | 4月 | 5月 | 6月 | 7月 | 8月 | 9月 | 10月 | 11月 | 12月 | 合計 |
|---------------------------------|----|----|----|----|----|----|----|----|----|-----|-----|-----|-----|
| Coxsackievirus A6 | | | | | | | 1 | | | | | | 1 |
| Coxsackievirus A10 | | | | | | 2 | 3 | | | | | | 5 |
| Coxsackievirus B5 | | | | | | | | | | 1 | | | 1 |
| Echovirus 5 | | | | | | | | | | 1 | | | 1 |
| Echovirus 9 | | | | | | | | | 1 | | | | 1 |
| Echovirus 25 | | 1 | | | | | | | | 1 | | | 2 |
| Echovirus 30 | | | | | | | | 9 | 9 | 4 | 2 | | 24 |
| Parechovirus 1 | | | | | | | | | 1 | 1 | | | 2 |
| Poliovirus 3 | | | | | 1 | | | | | | | | 1 |
| Enterovirus 71 | | | | | 1 | | | | | | | | 1 |
| Rhinovirus | | | | | | | 3 | 1 | 1 | | 1 | | 6 |
| Influenza virus A H1 N unknown | | | | | 1 | | | 3 | | | | 11 | 15 |
| Influenza virus A H3 N unknown | 2 | 8 | 8 | | | | | | | | | | 18 |
| Influenza virus B | 4 | 3 | 3 | | | | | | | | | | 10 |
| Parainfluenza virus - not typed | | | | | 1 | | | | | | | | 1 |
| Measles virus | | | | | | | | 1 | | | | | 1 |
| Rotavirus group A | | | 4 | 9 | 2 | | | | | | | | 15 |
| Norovirus genogroup II | 14 | 1 | 3 | 1 | | | | | | 1 | 1 | 14 | 35 |
| Adenovirus 1 | | 1 | | | | | 2 | 2 | | | | | 5 |
| Adenovirus 5 | | | | | 1 | | | | | | | | 1 |
| Adenovirus 40/41 | | | | | | | | | | | 1 | | 1 |
| Herpes simplex virus 1 | | | | | | 1 | | | | | | | 1 |
| Cytomegalovirus (CMV) | 1 | | | 1 | 1 | | | | | | 1 | | 4 |
| Human herpes virus 6 (HHV 6) | | | | | | | | 1 | | | | | 1 |
| 合計 | 21 | 14 | 18 | 11 | 8 | 5 | 9 | 15 | 12 | 9 | 6 | 25 | 153 |

表2 診断名別ウイルス及びクラミジア分離状況(2007年)

| 臨床診断名 | 病原体名 | 1月 | 2月 | 3月 | 4月 | 5月 | 6月 | 7月 | 8月 | 9月 | 10月 | 11月 | 12月 | 合計 | |
|------------|---------------------------------|----|----|----|----|----|----|----|----|----|-----|-----|-----|-----|----|
| 感染性胃腸炎 | Coxsackievirus B5 | | | | | | | | | | 1 | | | 1 | |
| | Echovirus 30 | | | | | | | | 1 | 1 | | 1 | | 3 | |
| | Poliovirus 3 | | | | | 1 | | | | | | | | 1 | |
| | Rhinovirus | | | | | | | 1 | | 1 | | | | 2 | |
| | Rotavirus group A | | | 3 | 9 | 2 | | | | | | | | 14 | |
| | Norovirus genogroup II | 14 | 1 | 3 | 1 | | | | | | | 1 | 1 | 14 | 35 |
| | Adenovirus 1 | | 1 | | | | | 1 | | | | | | | 2 |
| | Adenovirus 40/41 | | | | | | | | | | | | 1 | | 1 |
| 手足口病 | Enterovirus 71 | | | | | 1 | | | | | | | | 1 | |
| ヘルパンギーナ | Coxsackievirus A6 | | | | | | | 1 | | | | | | 1 | |
| | Coxsackievirus A10 | | | | | | 2 | 3 | | | | | | 5 | |
| | Echovirus 30 | | | | | | | | 1 | | | | | 1 | |
| インフルエンザ様疾患 | Influenza virus A H1 N unknown | | | | | 1 | | | 3 | | | | 11 | 15 | |
| | Influenza virus A H3 N unknown | 2 | 8 | 8 | | | | | | | | | | 18 | |
| | Influenza virus B | 4 | 3 | 3 | | | | | | | | | | 10 | |
| 咽頭結膜熱 | Adenovirus 1 | | | | | | 1 | | | | | | | 1 | |
| | Herpes simplex virus 1 | | | | | | 1 | | | | | | | 1 | |
| 無菌性髄膜炎 | Echovirus 30 | | | | | | | | 6 | 7 | 3 | 1 | | 17 | |
| かぜ症候群 | Echovirus 30 | | | | | | | | | | 1 | | | 1 | |
| | Parechovirus 1 | | | | | | | | | 1 | | | | 1 | |
| | Rhinovirus | | | | | | | | | | | 1 | | 1 | |
| 肺炎 | Parainfluenza virus - not typed | | | | | 1 | | | | | | | | 1 | |
| 発疹症 | Echovirus 25 | | | | | | | | | | 1 | | | 1 | |
| | Adenovirus 5 | | | | | 1 | | | | | | | | 1 | |
| 腸重積症 | Echovirus 5 | | | | | | | | | | 1 | | | 1 | |
| | Echovirus 9 | | | | | | | | | 1 | | | | 1 | |
| | Echovirus 25 | | 1 | | | | | | | | | | | 1 | |
| | Rotavirus group A | | | 1 | | | | | | | | | | 1 | |
| | Adenovirus 1 | | | | | | | 2 | | | | | | 2 | |
| 熱性けいれん | Echovirus 30 | | | | | | | | | 1 | | | | 1 | |
| | Parechovirus 1 | | | | | | | | | | 1 | | | 1 | |
| その他 | Echovirus 30 | | | | | | | | 1 | | | | | 1 | |
| | Rhinovirus | | | | | | | 2 | 1 | | | | | 3 | |
| | Measles virus | | | | | | | | 1 | | | | | 1 | |
| | Cytomegalovirus (CMV) | 1 | | | 1 | 1 | | | | | | 1 | | 4 | |
| | Human herpes virus 6 (HHV 6) | | | | | | | | 1 | | | | | 1 | |
| 合 計 | | 21 | 14 | 18 | 11 | 8 | 5 | 9 | 15 | 12 | 9 | 6 | 25 | 153 | |

食品の微生物学的検査成績について (2007年度)

若松正人, 成松浩志, 緒方喜久代, 長岡健朗, 小河正雄

Microbiological Examination of Foods, 2007

Masato Wakamatsu, Hiroshi Narimatsu, Kikuyo Ogata, Kenrou Nagaoka, Masao Ogawa

Key words : 微生物学的検査microbiological examination, 収去検査 distribution foods

はじめに

食の安全性確保の関心が高まる中、国内での食中毒事件数は、年間約15,000件、患者数は約3万人発生しており、その主な原因物質は細菌やウイルスなどの微生物である。

平成10年のイクラを原因とする腸管出血性大腸菌O157の食中毒事件、平成11年の乾燥イカ菓子を原因とするサルモネラ属菌の食中毒事件、平成13年の輸入かきを原因とする赤痢菌の食中毒事件、平成19年のイカの塩辛を原因とする腸炎ビブリオの食中毒事件など広域大規模な食中毒事件が発生している。これらの食中毒事件は、広域に流通する食品が食中毒起因菌などに一旦汚染されると広域大規模な食中毒事件に発展することを示している。

大分県では、食中毒発生の未然防止対策、汚染食品の排除および流通食品の汚染実態の把握を目的とし、大分県食品衛生監視指導計画に基づき、市販食品の収去検査を実施している。2007年度は、県産食肉、県産鶏肉、県産鶏卵、輸入食肉、県産ミネラルウォーター、県産養殖魚、輸入エビおよび生食用二枚貝の計130件について、食中毒起因菌や汚染指標細菌、残留抗生物質、ノロウイルスなどの項目について検査を実施した。

材料および方法

1 材料

2007年4月から2008年3月にかけて、県下5ブロックの食品衛生監視機動班が収去・搬入した県産食肉40検体、輸入食肉10検体、県産鶏卵20検体、輸入エビ10検体、県産ミネラルウォーター10検体、県産養殖魚20検体、および生食用二枚貝20検体について

検査した。

2 検査項目

検査項目は、食中毒起因細菌（病原大腸菌、黄色ブドウ球菌、サルモネラ属菌、カンピロバクター、病原ビブリオ(コレラ菌を含む)、エロモナス、レジオネラ属菌、汚染指標細菌（一般細菌数、大腸菌群）、抗生物質およびノロウイルスについて検査を行った。

3 方法

3.1 細菌検査

各項目の検査方法は、成分規格がある食品は公定法（食品衛生法および関連法規）に従い実施し、それ以外の食品については、大分県検査実施標準作業書に基づいて実施した。

3.1.1 病原大腸菌（EPECを除く）、黄色ブドウ球菌、サルモネラ属菌、カンピロバクター（図1）

検体75gに0.1%ペプトン加PBS(-)150mlを加えて3倍乳剤を調製し、試料原液とした。

(1) 腸管出血性大腸菌O157

試料原液25mlに2倍濃度のチオグリコレート酸加BPW 25mlを加え36±1℃で24時間培養後、免疫磁気ビーズで集菌した。ビーズ集菌後はクロモアガーO157寒天培地、CT-Smac寒天培地、DHL寒天培地を用いて分離培養した。また、ビーズ集菌後の一部はTSB培地で36±1℃ 18時間静置培養し、ベロ毒素遺伝子検出用のPCRを行った。分離平板上に発育した疑わしいコロニーを釣菌し、生化学的性状試験、必要に応じて血清型別試験やベロ毒素産生試験を行った。

(2) 腸管出血性大腸菌O157以外の病原大腸菌

試料原液25mlに2倍濃度のTSB 25mlを加え、36±1℃ 18時間培養した。その培養液を用いて、易熱性・耐熱性毒素、組織浸透性、ベロ毒素の各遺伝子をPCR法にて検索し、PCRが陽性の場合、当該由来の増菌培養液についてクロモアガーO157寒天培地、CT-Smac寒天培地、DHL寒天培地を用いて分離培養した。平板上に発育した疑わしいコロニーを釣菌し、生化学的性状試験、必要に応じて血清型別試験やベロ毒素産生試験を行った。

(3) サルモネラ属菌

試料原液25mlを2倍濃度のEEM培地で36±1℃ 18時間前培養し、その1mlをセレナイトシスチン培地で43℃ 16時間水浴中で選択増菌培養した。その培養液について、DHL寒天培地、SS寒天培地、MLCB寒天培地を用いて分離培養した。平板上に発育した疑わしいコロニーを釣菌し、生化学的性状試験、必要に応じて血清型別試験を行った。

(4) 黄色ブドウ球菌

試料原液 0.1ml をMSEY培地へコンラージし、36±1℃ 48時間培養した。マンニト分解、卵黄反応が見られた疑わしいコロニーを釣菌し、コアグララーゼ型別、エンテロトキシン、VP反応試験

等を行った。

(5) カンピロバクター

試料原液0.1 mlをスキロー培地で42℃ 48時間微好気培養すると同時に、試料原液1mlをプレストン培地で微好気下42℃ 24時間増菌培養後、スキロー培地で分離培養した。平板上に発育した疑わしいコロニーを釣菌し、必要に応じて確認検査を行った。

3.1.2 病原ビブリオ属(コレラ菌を含む)

検体25gずつを2回分取し、一方に0.2%食塩加アルカリペプトン水75mlを、もう一方には2%食塩加アルカリペプトン水50mlを加え、それぞれ36±1℃ 18時間増菌培養した。さらに前者は培養液 1mlを0.25%アルカリペプトン水で36±1℃ 8時間二次増菌した。増菌培養後、TCBS寒天培地、ビブリオ寒天培地およびクロモアガービブリオを用いて36±1℃ 18時間分離培養した。平板上に発育した疑わしいコロニーを釣菌し、生化学的性状試験、ペプトン水の発育試験、血清型別試験等を行った。(図2)

3.1.3 レジオネラ属菌

「レジオネラ症防止指針」に準拠した。試料500mlを0.2μmフィルターでろ過し、そのフィルターを、滅菌蒸留水5mlを無菌的に分注しておい

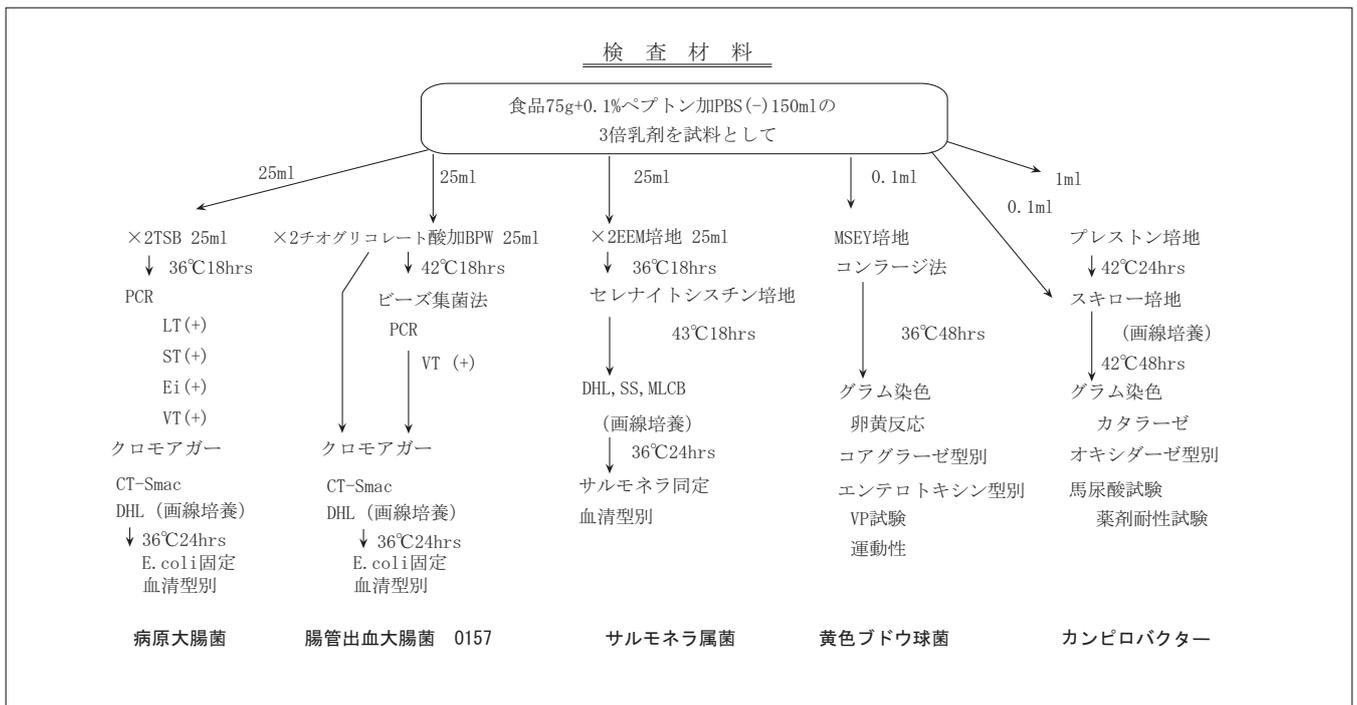


図 1 食中毒起因菌の検査方法

たコニカルビーカーに入れ、5分間ミキサーで攪拌した後、50℃20分間加熱処理後、急冷したものを試料原液とした。試料原液から10⁴まで段階希釈し、その各々0.1mlをWYO α 寒天培地2枚にコンラージした。高湿条件下で37±1℃ 3~7日間培養後、集落数を計測し、疑わしいコロニーについて

BCYE α およびBCYE基礎培地を用いて発育テストを行った。BCYE α 培地に発育したコロニーをPCR法で同定し、必要に応じて血清群別試験を行った。(図3)

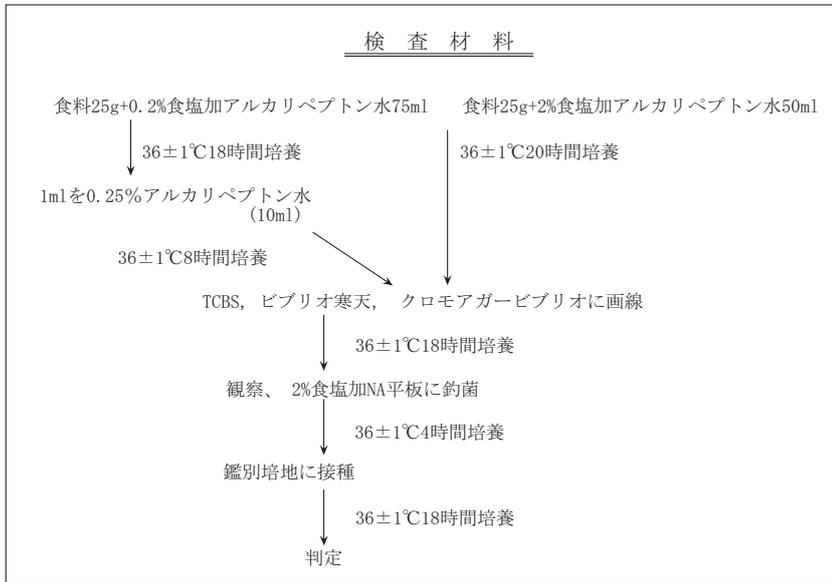


図2 病原ビブリオの検査法

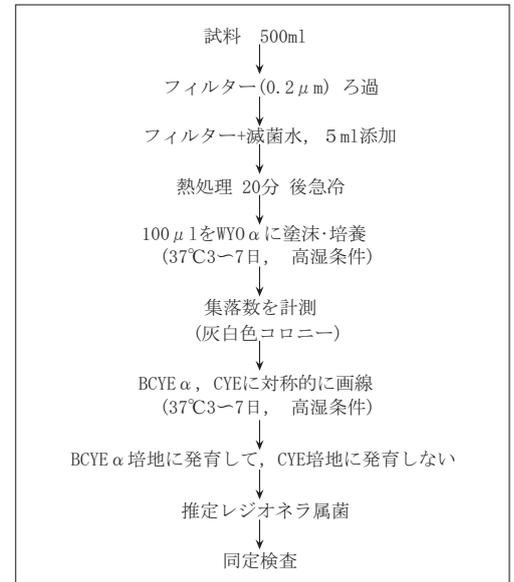


図3 レジオネラ属菌の検査方法

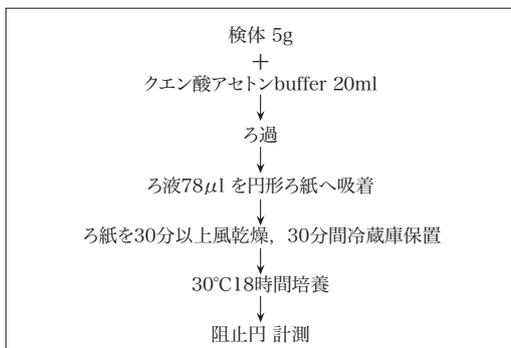


図4 抗生物質の検査方法

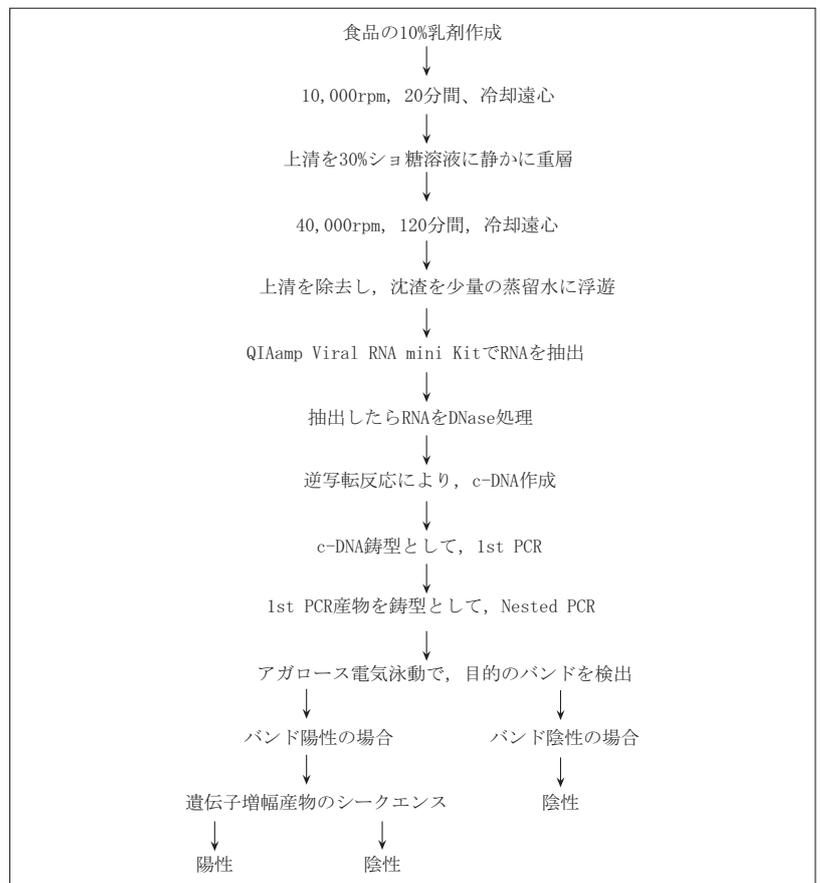


図5 ノロウイルスの検査方法

3.2 畜水産食品の残留抗生物質モニタリング検査

化学部でホモジナイズした検体 5 g をクエン酸アセトンバッファー20ml で抽出後, No.5Aのろ紙を用いてろ過し, ろ液78μlを高圧蒸気滅菌した抗菌性物質検査用ろ紙に吸収させ, 30分間安全キャビネット内で風乾させた。Bacillus cereus(mycooides), Bacillus subtilis, Micrococcus luteus を規定量混和して作製した平板培地上へ風乾したろ紙をパッチし, 30分以上冷蔵放置後, 30℃18時間培養して阻止円の大きさを測定した。(図4)

抽出し, 抽出RNA を DNase 処理した。逆転写反応により c-DNA を作成し, それを鋳型として1st PCR を行った。1st PCRで陰性の時にはNested PCR を行い, アガロース電気泳動で目的のバンドの有無を確認した。バンドが認められた場合は, 確認検査として遺伝子配列を調べ, 既知のノロウイルスと類似の配列が認められた時に陽性とした。バンドが認められなかった場合, 既知のノロウイルスと類似の配列が認められなかった場合は陰性とした(図5)。

3.3 ウイルス検査

ノロウイルスの検出は食品の10%乳剤を作成し10,000回転20分間冷却遠心した。その上清を30%ショ糖溶液に静かに重層して40,000回転120分間冷却遠心後上清を除去し, 沈渣を少量の蒸留水に浮遊させた。QIAamp Viral RNA mono Kit でRNA を

結 果

130検体中45検体(34.6%)から食中毒起因菌等が検出された(表1)。

県産食肉40検体中26検体から食中毒起因菌が検出され, その内訳は15検体から黄色ブドウ球菌, 12検

表1 食品の微生物学的検査成績

| 検査検体名 | 検体数 | 陽性検体数 | 検査項目及び検出件数 | | | | | | | | | | | | | |
|-------------------|-----|-------|------------|-------------------|-------------------|-------------------|------|------------------|------------------|---------|------------------|------|------|--------|------------------|--|
| | | | 病原大腸菌 | 黄色ブドウ球菌 | サルモネラ属菌 | カンピロバクター | コレラ菌 | 病原ビブリオ | エロモナス | レジオネラ属菌 | 一般細菌数 | 大腸菌群 | 抗生物質 | ノロウイルス | | |
| 県産食肉 計 | 40 | 26 | 0 | 15 ^{注1)} | 12 ^{注3)} | 18 ^{注4)} | | | | | | | | | 0 | |
| (内訳) | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 食鳥肉(鶏30, 鴨1, 合鴨1) | 32 | 24 | 0 | 13 | 12 | 18 | | | | | | | | | 0 | |
| 豚肉等(豚4, 猪1) | 5 | 2 | 0 | 2 | 0 | 0 | | | | | | | | | 0 | |
| 牛肉 | 3 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | | | | | | | | | 0 | |
| 輸入食肉 計 | 10 | 5 | 0 | 5 ^{注2)} | 0 | 0 | | | | | | | | | 0 | |
| (内訳) | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 鶏肉 | 3 | 3 | 0 | 3 | 0 | 0 | | | | | | | | | 0 | |
| 豚肉 | 4 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | | | | | | | | | 0 | |
| 牛肉 | 3 | 2 | 0 | 2 | 0 | 0 | | | | | | | | | 0 | |
| 県産鶏卵 | 20 | 0 | | | 0 | | | | | | | | | | 0 | |
| 輸入エビ | 10 | 9 | | | | | 0 | 9 ^{注5)} | 1 ^{注6)} | | | | | | | |
| 県産ミネラルウォーター | 10 | 2 | | | | | | | | 0 | 2 ^{注7)} | 0 | | | | |
| 県産養殖魚 | 20 | 0 | | | | | | | | | | | | | 0 | |
| 生食用二枚貝 | 20 | 3 | | | | | | | | | | | | | 3 ^{注8)} | |
| 合 計 | 130 | 45 | 0 | 20 | 12 | 18 | 0 | 9 | 1 | 0 | 2 | 0 | 0 | 0 | 3 | |

注1) *Staphylococcus aureus* (II enterotoxin(-)2件, III enterotoxin (C) 3件, III enterotoxin (-)1件, IV enterotoxin (-)3件, V enterotoxin(-)2件, V enterotoxin(B)1件, VII enterotoxin(A)1件, VII enterotoxin(B)1件, VII enterotoxin(-)2件, VIII enterotoxin (C) 1件)

注2) *Staphylococcus aureus* (I, II enterotoxin (-)1件, II enterotoxin(-)2件, V enterotoxin(-)1件, VII enterotoxin(-)1件)

注3) *S. Infantis*(O7:r:1,5)7件, *S. Schwarzengrund*(O4:d:1,7)5件, *S. Montevideo*(O7:g,m,s:-)1件

注4) *Campylobacter jejuni*

注5) *V. parahaemolyticus* 7件, *V. c. holerale* nonO1&O139 4件, *V. fluvialis* 3件, *V. furnissii* 2件, *V. vulnificus* 1件

注6) *Aeromonas sobria* 1件

注7) 食品衛生法によるミネラルウォーターの原水の基準(100/ml以下)を超えたものを検出件数としている

注8) ノロウイルスGII

体からサルモネラ属菌, 18検体からカンピロバクターが検出された。このうち, 15検体は数種の食中毒起因菌で複合汚染されていた。

輸入食肉10検体中5検体から黄色ブドウ球菌が検出された。

県産鶏卵20検体からサルモネラ属菌, 抗生物質ともに検出されなかった。

輸入エビ10検体中9検体から病原ビブリオ等が検出された。その内訳は, 7検体から*Vibrio parahaemolyticus*, 4検体から*Vibrio cholerae* nonO1&O139が, 3検体から*Vibrio flunialis*, 2検体から*Vibrio furnissii*, *Vibrio vulnificus*, *Aeromonas sobria*が各1検体から分離された。このうち, 6検体は数種の病原ビブリオ等で複合汚染されていた。

県産ミネラルウォーター10検体から大腸菌群, レジオネラ属菌はともに検出されなかったが, 食品衛生法でミネラルウォーターの原水の基準となっている一般細菌数 10^2 /mlを超えるものが2検体(7.1×10^3 , 2.1×10^2)検出された。

県産養殖魚20検体から抗生物質は検出されなかった。

生食用カキ20検体中3検体からノロウイルスGIIが検出された。

考 察

今回の調査における県産食肉において, 食肉の種類別では, 食鳥肉の検体数が最も多く32検体であり, そのうちの37.5%(12検体)からサルモネラ属菌, 56.3%(18検体)からカンピロバクターが検出され, また, これらの菌の複合汚染も34.4%(11検体)と, 高い汚染率であった。これらは細菌性食中毒の中で最も多い病因物質であり, 鶏肉を扱う飲食店, 小売業者, 消費者への注意喚起が必要と考えられる。

また, 検出されたサルモネラ属菌の中で, これまでほとんど検出されていなかった血清型*S.Schwarzengrund* (O4:d:1,7)が鶏肉から5件検出されており, 食鳥処理施設への衛生指導や今後の検出動向に注視する必要がある。

なお, 食鳥肉から検出された黄色ブドウ球菌のうち, コアグララーゼⅢ型・エンテロトキシンC産生性の3株はメチシリン耐性黄色ブドウ球菌(MRSA)であり, 市中型MRSA感染症との関連性が疑われた。

輸入エビからも病原ビブリオが高率(90%)に検出されており, 鶏肉の取り扱いと同様, 使用する調理器具等を他の食品用のものと区別するなどの二次汚染への注意を払うこと, 十分に加熱をすることなどが重要である。

ミネラルウォーターでは, 食品衛生法の規格基準で製品の一般細菌数の基準はないが, 原水の基準(10^2 /ml以下)を超えることは, 製造工程上の殺菌不良等の可能性があるため, 製造業者に対する指導が必要と考える。

平成18年末から19年初めにかけて, 福祉施設などを中心に, ノロウイルスによる食中毒及び集団感染症が大幅に増加しているが, その感染源として生食用二枚貝が関与しているという事例報告は少ない。しかし, 今回の調査で生食用二枚貝からノロウイルスが15%検出されたことから, ノロウイルスに感染した人から排泄された糞便が河川を汚染し, 二枚貝に蓄積され, 次期の流行型に繋がるのではないかと推測される。

以上のように, 広域に流通する食品の微生物汚染を探知することは, 汚染食品の流過程からの排除や, 衛生指導が必要な食品業者に対し早期の適切な指導を行うことにより, 食中毒発生の未然防止や食品の安全性の確保ができ, 衛生行政に貢献できると考える。

大分県における細菌性下痢症サーベイランスの動向 (2007年)

成松浩志, 緒方喜久代, 若松正人

Trend of Bacterial Diarrhea Surveillance in Oita Prefecture, 2007

Hiroshi Narimatsu, Kikuyo Ogata, Masato Wakamatsu

Key words : 細菌性下痢症 bacterial diarrhea, サルモネラ *Salmonella*, 大腸菌 *E.coli*

はじめに

前回の報告¹⁻¹⁴⁾に引き続き、大分県の主に小児における細菌性散発下痢症の2007年の発生動向を報告する。

材料及び方法

2007年1月から同年12月末までに、県内の医療機関において細菌性下痢症が疑われた患者便について細菌学的検索を実施した。検査方法の詳細は前報告¹⁻¹⁴⁾のとおりである。また、下痢原性大腸菌(腸管出血性大腸菌, 毒素原性大腸菌, 腸管組織侵入性大腸菌)等の検索には、スクリーニングとしてPCR法¹⁵⁻¹⁶⁾を用いた。一部の菌株については、前報告¹⁷⁾の方法によって*eae*, *aggR*等の病原性関連遺伝子の検査も実施した。

なお、1検体から同一の菌種または血清型が分離

された場合は「1株」として集計し、1検体から複数の菌種または血清型が分離された場合は、それぞれの菌種又は血清型ごとに「1株」として集計した。また「検出率」とは検査検体数における菌検出検体数(≡検出菌株数)の割合(%)で示した。

結果

1 検査した患者の構成

検体数は延べ195検体で、男性110検体、女性85検体(男女比 1.3 : 1)であった。検査した患者の男女別年齢分布を図1に示す。

2 下痢症起因菌の検出状況

195検体のうち140検体(71.8%)から151株の下痢症起因菌を検出した。検出菌の内訳は、サルモネラ属菌が最も多く85株(全菌株数の56.3%)、次いで腸管病原性大腸菌(以下、EPEC)29株(同

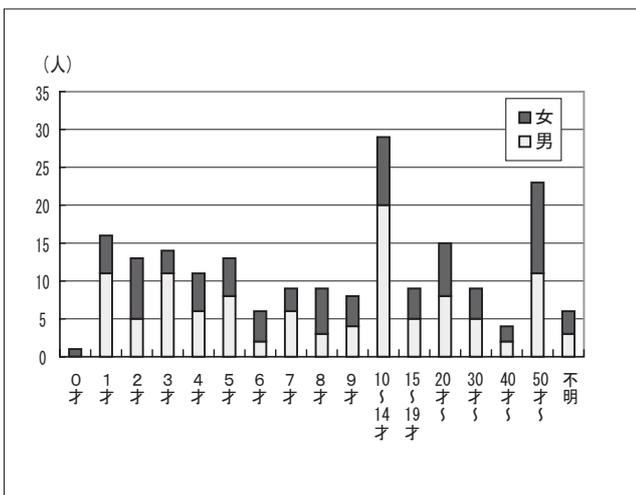


図1 患者の男女別年齢構成(2007年)

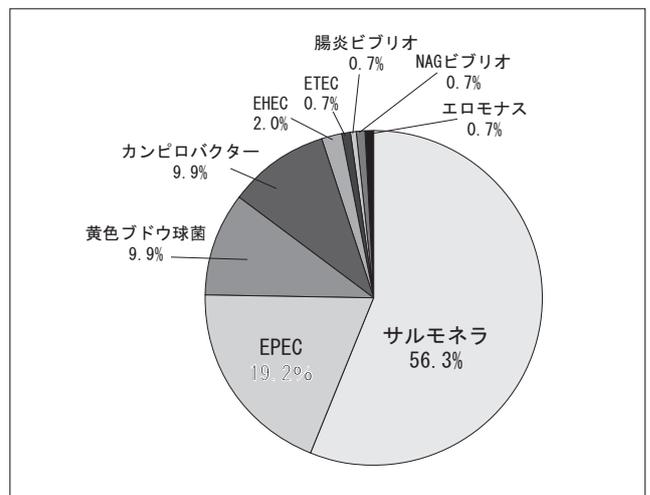


図2 検出菌の内訳(2007年)

19.2%)、黄色ブドウ球菌とカンピロバクターが各15株(同各9.9%)、腸管出血性大腸菌(以下、EHEC)が3株(同2.0%)、毒素原性大腸菌(以下、ETEC)、腸炎ビブリオ、NAGビブリオ(Non O1 & O139)およびエロモナス(*A.caviae*)が各1株(同各0.7%)であった(図2)。

カンピロバクターは、1株のみ*C.coli*で、あとの14株は全て*C.jejuni*であった。

2007年は組織侵入性大腸菌(EIEC)、セレウス菌、エルシニアは検出されなかった。

複数菌検出例は10検体あり、その組合せは、カンピロバクターとサルモネラ属菌が2検体、カンピロバクターとEPECが2検体、カンピロバクターと黄色ブドウ球菌が1検体、カンピロバクターと黄色ブドウ球菌とEPECが1検体、2種類の血清型のEPECが2検体、エロモナスと黄色ブドウ球菌が1検体、EPECと黄色ブドウ球菌が1検体であった。

2.1 サルモネラ属菌

サルモネラ属菌は195検体中85検体(43.6%)から12種類の血清型が計85株検出された。最もよく検出された血清型は、Braenderup(O7:e,h:e,n,z15)の42株で全サルモネラ検出菌株数の49.4%を占め、1991年以来首位を独占したEnteritidis(O9:g,m:-)の31株(36.5%)を抜いて第1位となった。Braenderupは、大分県でこれまでほとんど検出されていない血清型であったが、2005年に突如21株検出(21/125, 16.8%)され、引き続き2006年にも

13株(13/77, 16.9%)、そして2007年には、全サルモネラ検出菌株の約半数を占めるまでに検出数が増加した(表1)。Braenderupは、この3年間、毎年9月をピークに8月から10月にかけて集中的に検出されており(表2)、Diffuse outbreakも疑われた¹⁸⁾。

残り12株の血清型内訳は、Typhimurium(O4:i:1,2)とSaintpaul(O4:e,h:1,2)が各2株で、Chester(O4:e,h:e,n,x)、Derby(O4:f,g:-)、Infantis(O7:r:1,5)、Bareilly(O7:y:1,5)、Montevideo(O7:g,m,s:-)、Hadar(O6,8:z10:e,n,x)およびCorvallis(O8:z4,z23:-)が各1株、そして、H型別不能のO4群が1株であった。

2.2 下痢原性大腸菌

EPEC(病原性未確認のため疑い)は、8種類の血清型が計29株検出された。最も多かったのが血清型O1で15株(51.7%)、次いでO18が8株(27.6%)、他には、O20:HNM、O119、O126、O128、O146、O166が各1株検出された。ただし、O1とO18は、健康者からもよく検出されるので¹⁷⁾病原性には疑問がある血清型である。なお、O20:HNMは*eae*遺伝子を、O126は*aggR*遺伝子を保有していた。

EHECは3種類の血清型の計3株で、OUT:HNM(VT2産生)が1才男子から、O121:H19(VT2産生)が1才女子から、O157:H7(VT1・VT2産生)が12才女子から各々検出された。いずれの患者も血便が認められ、O121が検出された1才女子はHUSや脳症も発症した。

表1 サルモネラの血清型別検出数の年次推移(2000~2007年)

| 血清型 | 2000年 | 2001年 | 2002年 | 2003年 | 2004年 | 2005年 | 2006年 | 2007年 |
|-------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| Braenderup | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 21 | 13 | 42 |
| Typhimurium | 6 | 4 | 5 | 10 | 3 | 3 | 5 | 2 |
| Enteritidis | 43 | 13 | 32 | 15 | 10 | 86 | 39 | 31 |
| その他 | 15 | 21 | 23 | 17 | 15 | 15 | 20 | 10 |
| 計 | 64 | 38 | 60 | 42 | 28 | 125 | 77 | 85 |

表2 S.Braenderupの月別検出状況(2005年~2007年)

| | 1月 | 2月 | 3月 | 4月 | 5月 | 6月 | 7月 | 8月 | 9月 | 10月 | 11月 | 12月 | 計 |
|-------|----|----|----|----|----|----|----|----|----|-----|-----|-----|----|
| 2005年 | | | | | | | | 6 | 12 | 2 | 1 | | 21 |
| 2006年 | | | | | | | | 4 | 5 | 4 | | | 13 |
| 2007年 | | | | | | 1 | 3 | 9 | 22 | 6 | 1 | | 42 |
| 計 | | | | | | 1 | 3 | 19 | 39 | 12 | 2 | | 76 |

ETECはO27:H7 (ST産生) が1株, 腹痛と下痢 (4~5回/日) を発症した47才男性の水様便から検出された。この男性の海外渡航歴は不明 (検査依頼書に記載なし)。

2.3 黄色ブドウ球菌

黄色ブドウ球菌15株のコアグララーゼ型 (I~VIII) とエンテロトキシンA~Dの産生性の組合せは, 次のとおりである (コアグララーゼ型/エンテロトキシン産生性)。II型/C産生1株, III型/C産生1株, IV型/A産生2株, VII型/B産生1株, VII型/C産生1株, I・VII型/C産生1株, II・VII型/B産生2株であり, 残りの6株 (IV型1株, V型3株, VII型1株, VIII型1株) は, エンテロトキシンA~D非産生であった。

なお, III型/C産生1株はMRSAであった。

2.4 腸炎ビブリオ

腸炎ビブリオ1株の血清型はO3:K6で, *tdh*遺伝子を単独保有し, *trh*遺伝子の保有は認められなかった。

3 年齢層別の菌検出状況

年齢別の菌の検出状況を表3に示す。黄色ブドウ球菌は全年齢層から, サルモネラ属菌とEPECは1才未満を除くすべての年齢層から検出され

た。15才以上の年齢層からのみ検出されたのは, 腸炎ビブリオ (58才女性から), NAGビブリオ (78才男性から), エロモナス (55才男性から) およびETEC (上述) であった。カンピロバクターは, 1才から14才のすべての年齢層から検出されたが, 特に10才から14才の年齢層からの検出率が31.0% (9/29) と高率であり, 1才から9才までの年齢層からの検出率6.1% (6/99) よりも高い傾向にあった。

4 季節別の検出状況

月別の菌検出状況を表4に示す。前回までの報告1-14)と同様に全体的には夏季の検出数が多かった。これは, サルモネラ属菌の検出が7月から10月にかけて集中して増加したことによる影響が大きい。EPECは, 2月を除き, 黄色ブドウ球菌は2月, 11月を除き, カンピロバクターも1月, 2月, 4月, 6月, 12月を除き, 1年を通じて検出された。検体数・検出率が最も高いのは9月の34検体・88.2% (30/34) で, 逆に最も低いのは2月の5検体・0% (0/5) であった。

謝 辞

検体採取に御協力頂いた医療機関の諸先生方に深謝致します。

表3 年齢層別の菌検出状況(2007年)

| 年 齢 | 0才 | 1~3才 | 4~6才 | 7~9才 | 10~14才 | 15才~ | 不明 | 計 |
|-------------|----------|------|------|------|--------|------|----|-----|
| 検査検体数 (患者数) | 1 | 43 | 30 | 26 | 29 | 60 | 6 | 195 |
| 検出菌株数計 | 1 | 32 | 27 | 20 | 27 | 39 | 5 | 151 |
| 検出菌 | サルモネラ属菌 | | 19 | 18 | 15 | 7 | 21 | 85 |
| | カンピロバクター | | 1 | 2 | 3 | 9 | | 15 |
| | EPEC | | 8 | 6 | 2 | 6 | 7 | 29 |
| | 下痢原性ETEC | | | | | | 1 | 1 |
| | 大腸菌EHEC | | 2 | | | 1 | | 3 |
| | EIEC | | | | | | | 0 |
| 株内訳 | 黄色ブドウ球菌 | 1 | 2 | 1 | | 4 | 7 | 15 |
| | 腸炎ビブリオ | | | | | | 1 | 1 |
| | NAGビブリオ | | | | | | 1 | 1 |
| | エロモナス | | | | | | 1 | 1 |
| | エルシニア | | | | | | | 0 |
| セレウス菌 | | | | | | | | 0 |

注) 複数菌検出検体があるので, 菌株数合計と検出検体数は一致しない。

参 考 文 献

- 1) 成松浩志, 緒方喜久代, 渕 祐一, 帆足喜久雄 : 大分県における細菌性下痢症サーベランスの動向(1985-1994年). 大分県衛生環境研究センター年報, 22, 27-40(1994)
- 2) 成松浩志, 緒方喜久代, 渕 祐一, 帆足喜久雄 : 大分県における細菌性下痢症サーベランスの動向(1995年). 大分県衛生環境研究センター年報, 23, 53-56(1995)
- 3) 成松浩志, 緒方喜久代, 渕 祐一, 帆足喜久雄 : 大分県における細菌性下痢症サーベランスの動向(1996年). 大分県衛生環境研究センター年報, 24, 73-76(1996)
- 4) 緒方喜久代, 成松浩志, 渕 祐一, 帆足喜久雄 : 大分県における細菌性下痢症サーベランスの動向(1997年). 大分県衛生環境研究センター年報, 25, 87-88(1997)
- 5) 阿部義昭, 緒方喜久代, 渕 祐一, 帆足喜久雄 : 大分県における細菌性下痢症サーベランスの動向(1998年). 大分県衛生環境研究センター年報, 26, 79-80(1998)
- 6) 阿部義昭, 高野美千代, 緒方喜久代, 渕 祐一, 帆足喜久雄 : 大分県における細菌性下痢症サーベランスの動向(1999年). 大分県衛生環境研究センター年報, 27, 98-100(1999)
- 7) 阿部義昭, 高野美千代, 緒方喜久代, 渕 祐一, 帆足喜久雄 : 大分県における細菌性下痢症サーベランスの動向(2000年). 大分県衛生環境研究センター年報, 28, 86-88(2000)
- 8) 成松浩志, 阿部義昭, 高野美千代, 緒方喜久代, 帆足喜久雄 : 大分県における細菌性下痢症サーベランスの動向(2001年). 大分県衛生環境研究センター年報, 29, 67-70(2001)
- 9) 成松浩志, 緒方喜久代, 鷺見悦子, 帆足喜久雄 : 大分県における細菌性下痢症サーベランスの動向(2002年). 大分県衛生環境研究センター年報, 30, 61-64(2002)
- 10) 成松浩志, 緒方喜久代, 鷺見悦子 : 大分県における細菌性下痢症サーベランスの動向(2003年). 大分県衛生環境研究センター年報, 31, 45-48(2003)
- 11) 成松浩志, 緒方喜久代, 渕 祐一, 帆足喜久雄 : 大分県地方における散発下痢症の細菌学的研究, 1985~1996年. 感染症学雑誌, 71, 644-651(1997)
- 12) 緒方喜久代, 鷺見悦子, 長谷川昭生 : 大分県における細菌性下痢症サーベランスの動向(2004年). 大分県衛生環境研究センター年報, 32, 50-52(2004)

表 4 月別の菌検出状況(2007年)

| | | 1月 | 2月 | 3月 | 4月 | 5月 | 6月 | 7月 | 8月 | 9月 | 10月 | 11月 | 12月 | 計 |
|-------------|-----------|----|----|----|----|----|----|----|----|----|-----|-----|-----|-----|
| 検 査 | 検 体 数 | 7 | 5 | 9 | 10 | 12 | 14 | 28 | 30 | 34 | 24 | 12 | 10 | 195 |
| 検 出 | 検 体 数 | 4 | 0 | 6 | 5 | 7 | 9 | 24 | 25 | 30 | 19 | 7 | 4 | 140 |
| | サルモネラ属菌 | 2 | | | | 2 | 3 | 12 | 21 | 26 | 13 | 5 | 1 | 85 |
| | カンピロバクター | | | 4 | | 2 | | 1 | 2 | 1 | 3 | 2 | | 15 |
| | EPEC | 1 | | 2 | 3 | 3 | 3 | 7 | 2 | 3 | 2 | 1 | 2 | 29 |
| 検 出 菌 株 | 下痢原性 ETEC | | | | | | | | | | 1 | | | 1 |
| | 大腸菌 EHEC | | | | | | 2 | | | | | 1 | | 3 |
| | EIEC | | | | | | | | | | | | | 0 |
| | 黄色ブドウ球菌 | 1 | | 1 | 2 | 2 | 1 | 4 | 1 | 1 | 1 | | 1 | 15 |
| | 腸炎ビブリオ | | | | | 1 | | | | | | | | 1 |
| | NAGビブリオ | | | | | | 1 | | | | | | | 1 |
| | エロモナス | 1 | | | | | | | | | | | | 1 |
| | エルシニア | | | | | | | | | | | | | 0 |
| | セレウス菌 | | | | | | | | | | | | | 0 |
| 検 出 菌 株 数 計 | | 5 | 0 | 7 | 5 | 10 | 10 | 24 | 26 | 31 | 20 | 9 | 4 | 151 |

注) 複数菌検出検体があるので, 菌株数合計と検出検体数は一致しない。

- 13) 鷺見悦子, 緒方喜久代, 長谷川昭生: 大分県における細菌性下痢症サーベイランスの動向(2005年). 大分県衛生環境研究センター年報. 33, 50-52(2005)
- 14) 緒方喜久代, 長谷川昭生: 大分県における細菌性下痢症サーベイランスの動向(2006年). 大分県衛生環境研究センター年報. 34, 61-64(2006)
- 15) 伊藤文明, 荻野武雄, 伊藤健一郎, 渡辺治雄: 混合プライマーを用いたPCR法による下痢原性大腸菌の同時検出法. 日本臨床, 50, 343-347(1992)
- 16) 伊藤文明, 山岡弘二, 荻野武雄, 神辺眞之: 下痢原性大腸菌のPCR法, 臨床病理, 43, 772-775(1995)
- 17) 成松浩志, 緒方喜久代, 鷺見悦子, 帆足喜久雄: 健康人由来大腸菌における病原性関連遺伝子の保有状況調査. 大分県衛生環境研究センター年報. 30, 47-52(2002)
- 18) 倉本早苗, 緒方喜久代, 木戸内 清, 河野喜美子, 磯部順子, 京田芳人, 上野伸広, 富永 潔, 植木信介, 山下和予: Diffuse outbreakが疑われた*Salmonella* Braenderup 株の解析結果. 病原微生物検出情報, 26, 341-342(2005)

PCBに汚染された底質試料分析に伴う工程別相互汚染リスクの検討

上田精一郎, 長野真紀, 二村哲男

Study on Cross Contamination in Pretreatment of PCB Pollution Sediment

Seiichiro Ueda, Maki Nagano, Tetsuo Futamura

Key words : PCB coplaner-PCBs, 相互汚染cross contamination, 底質sediment

要旨

平成18年度環境測定分析統一精度管理調査¹⁾で配付された底質試料(汚染の大きい底質でPCB濃度は高いことが注意事項として示されている)中のダイオキシン類を分析した後に行った「測定方法の下限値」を算出するための測定値にバラツキが大き過ぎたことから、以前使用したガラス器具等からの相互汚染が強く疑われた。

その原因として、配付された底質試料中のコプラナーPCB濃度がこれまで扱った経験がないほどの高濃度だったことに加え、分析後の使用済みガラス器具等の溶媒洗浄が高濃度に汚染された試料に対応できないほど不十分なまま、次の洗浄工程の超音波洗浄水槽内で相互汚染が起き、ガラス器具等が汚染されたまま次の分析に使い回したことにありと考えられる。このことからどの操作工程が相互汚染リスクが高いのかを検証するため、同じ試料を用いて実験を行ったところ、いくつかの工程において相互汚染に注意が必要なが認められた。

方 法

配付された残りの底質試料を同様に分析した1検体について、各工程の使用済みガラス器具等のアセトン洗浄液(テフロン製洗瓶を用い3回洗い込むことを基本とした)を回収し、それを分析・測定した。クリーンアップスパイク添加時期の多層シリカゲルカラムクロマトグラフィ処理までの操作工程で回収した洗浄液には、全てクリーンアップスパイクを添加してそのまま濃縮し、窒素吹き付け濃縮を経てシリンジスパイクを添加して(一部工程の洗浄液は多層シリカゲルカラムクロマトグラフィ処理を経た、測定試料と)した。

多層シリカゲルカラムクロマトグラフィ処理以降の工程で回収した洗浄液にはクリーンアップスパイクの存在の可能性があり、測定時にこの痕跡から相互汚染の寄与率が推定できる手がかりになると考えられたため、クリーンアップスパイクの添加をせずに濃縮し、窒素吹き付け濃縮を経てシリンジスパイクを添加して、測定試料とした。ところが、測定結

果では添加したクリーンアップスパイクは検出が困難なほどごく微量だったため、測定濃度の算出に当たっては、0.5pg/ μ l検量線標準液のシリンジスパイクを基に求めたRRFを用いた。分析フローシート及び工程ごとのガラス器具等の一覧は図1及び表1に示したが、主な分析条件は次のとおりである。

抽出装置：柴田科学製自動ソックスレー抽出装置
B-811

抽出モード：SoxletStandard

試料分取量：10g

抽出溶媒：ダイオキシン類分析用トルエン180ml(
銅チップ15g添加)

抽出時間：20時間

定容：100ml

分取液量：25ml

最終検液量：50 μ l

洗浄溶媒：PCB残留農薬試験用300アセトン

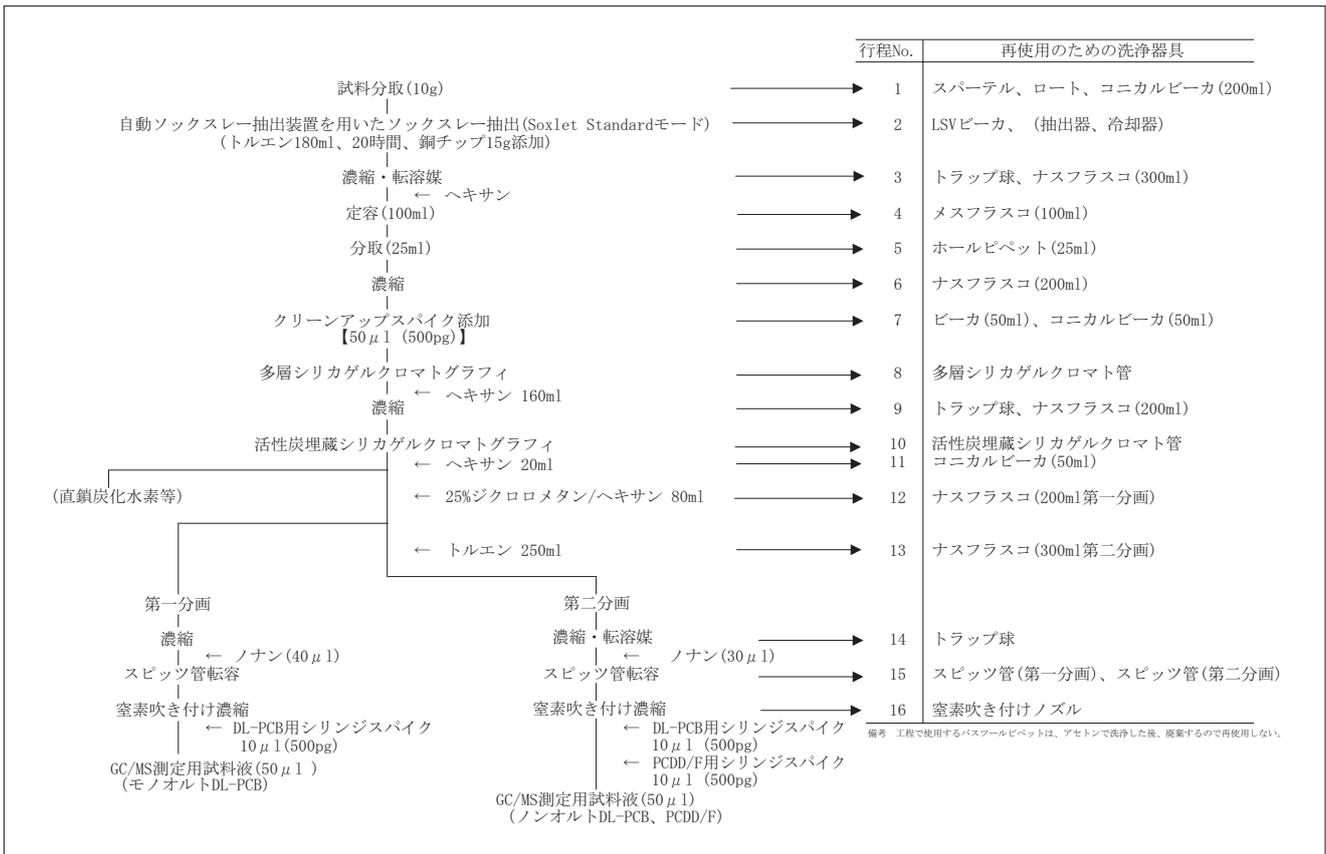


図1 分析フローシート及び工程ごとの再使用のための洗浄器具

結果及び考察

各工程で回収した溶媒洗浄液に汚染物質として含まれるコプラナーPCBのうち、最も濃度の高い#118-PeCBの測定値を表1に示した。以下、汚染状況については#118-PeCBについて記述する。

試料抽出後、銅チップが残留したままの状態では抽出液をディスポピペットでナスフラスコに移し、さらにトルエン5mlで3回洗い出した後のアセトン洗浄液の測定値は、60pg/μlと全工程の中では最高値を示した。(表1及び図2参照)このことから二次汚染のリスクが最も大きい工程は、試料抽出後のLSVビーカが考えられる。

また、アセトン再洗浄液の測定値は、0.0pg/μlと見かけ上はこの工程で汚染物質が除去されたように見えるが、LSVビーカには添加した銅チップ表面に生成した硫化銅等が剥離した微細な粉末が認められ、銅チップを廃棄してもLSVビーカ内には微細粉末がガラス壁に付着して残留しており、これにアセトンを加えて超音波洗浄後、洗浄液を処理して測定した結果は、2.0pg/μlと銅チップ存在下での再洗浄液の測定値 (0.0pg/μl) よりはね上がった。こ

のことから銅チップ表面に生成した硫化銅が剥離するほどの試料を抽出した場合は、銅チップ廃棄後、溶媒で超音波洗浄を追加する必要があることがわかった。なお、超音波による再洗浄液は0.0pg/μlと汚染物質は除去されていることがわかる。

多層シリカゲルクロマトグラフィによる精製操作の後、クロマト管 (内径15mm) 中の多層シリカゲルを別容器に押しだして一昼夜放置した後に、コックを装着したままアセトン洗浄した洗液の測定値は、0.02pg/μlと痕跡であったが、コックを取り外してクロマト管とコックを洗浄した測定値は、0.36pg/μlとはね上がったことから、コックとその接触部分に汚染が残っていたものと思われ、コックを取り外してから洗浄する工程を加える必要がある。一方、活性炭埋蔵シリカゲルクロマトグラフィによる分画操作後に、コックを取り外したときの洗液は0.02pg/μlで、今回の検証試験では多層シリカゲルクロマト管の汚染状況とは異なる結果だった。

これらの工程のほかに二次汚染に注意が必要と思われる工程は、表1に示すように抽出器及びスピッツ管であることがわかった。また、別途実施した追

表1 各工程における使用済みガラス器具等の溶媒洗浄液中の#118-PeCB濃度

| No. | 区 分 | GC/MS 測定値 (pg/ μ l) | 洗浄等溶媒量 (ml) | 備 考 |
|-----|-------------------------|-------------------------------|------------------------|--------------------------------|
| - | 精度管理底質試料(2.5gに相当) | 3964.03 | - | 79,000pg/gに相当 |
| - | 操作ブランク | 0.14 | - | |
| - | 底質試料用器具洗液 | 0.66 | アセトン 1366 ヘキサン 1109 | PCB・残農試験用300 グレードを使用 |
| - | 操作ブランク用器具洗液 | 0.79 | アセトン 2073 ヘキサン 1728 | PCB・残農試験用300 グレードを使用 |
| 1 | 試料分取-1 | 0.11 | アセトン 89 ヘキサン 52 | 器具(スパーテル, ロート, コニカルビーカ)水洗後の洗浄液 |
| | 試料分取-2 | 0.01 | アセトン 61 ヘキサン 26 | 同上再洗浄液 |
| 2 | LSVビーカ-1 | 60.25 | アセトン 115 | 添加銅チップを廃棄せずにそのまま洗浄 |
| | LSVビーカ-2 | 0.00 | アセトン 73 | 同上再洗浄液 |
| | LSVビーカ-3 | 2.02 | アセトン 200 | 添加銅チップを廃棄後, 超音波洗浄 |
| | LSVビーカ-4 | 0.00 | アセトン 200 | 同上超音波再洗浄液 |
| | 自動ソックスレー抽出器-1 | 13.04 | トルエン 120 | Hot Extractionモードで35分抽出操作後の抽出液 |
| | 自動ソックスレー抽出器-2 | 0.46 | アセトン 196 | 同上再洗浄液 |
| 3 | 抽出液濃縮ナスフラスコ-1 | 11.47 | アセトン 28 | 銅チップ凝固物廃棄後の洗浄液 |
| | 抽出液濃縮ナスフラスコ-2 | 0.04 | アセトン 230 | 同上超音波洗浄液 |
| | トラップ球-1 | 1.07 | アセトン 71 | 抽出液濃縮後の洗浄液 |
| | トラップ球-2 | 0.01 | アセトン 87 | 同上再洗浄液 |
| 5 | ホールピペット | 0.00 | アセトン 58 | アセトン50mlで洗浄後(廃棄)の再洗浄 |
| 6 | 多層シリカゲル負荷後ナスフラスコ-1 | 0.32 | アセトン 51 | 粗抽出液分取・濃縮・多層シリカゲル負荷後の洗浄 |
| | 多層シリカゲル負荷後ナスフラスコ-2 | 0.01 | アセトン 48 | 同上再洗浄液 |
| 8 | 多層シリカゲルクロマト管-1 | 0.02 | アセトン 29 | 多層シリカゲル廃棄後, コック付きで洗浄 |
| | 多層シリカゲルクロマト管-2 | 0.01 | アセトン 27 | 同上再洗浄液 |
| | 多層シリカゲルクロマト管-3 | 0.36 | アセトン 36 | コックを外してコック共々再々洗浄 |
| 9 | 活性炭シリカゲルクロマト負荷後ナスフラスコ-1 | 0.60 | アセトン 44 | 負荷後の洗浄液 |
| | 活性炭シリカゲルクロマト負荷後ナスフラスコ-2 | 0.02 | アセトン 48 | 同上再洗浄液 |
| 10 | 活性炭埋蔵シリカゲルクロマト管-1 | 0.03 | アセトン 25 | 活性炭シリカゲル廃棄後, コック付きで洗浄 |
| | 活性炭埋蔵シリカゲルクロマト管-2 | 0.00 | アセトン 25 | 同上再洗浄液 |
| | 活性炭埋蔵シリカゲルクロマト管-3 | 0.02 | アセトン 32 | コックを外してコック共々再々洗浄 |
| 11 | コニカルビーカ(直鎖炭化水素等含有) | 0.00 | アセトン 22 | アセトン15mlで洗浄後(廃棄)の再洗浄 |
| 12 | ナスフラスコ-1(第1分画) | 0.32 | アセトン 51 | スピッツ管転容後の洗浄液 |
| | ナスフラスコ-2(第1分画) | 0.01 | アセトン 52 | 同上再洗浄液 |
| 13 | ナスフラスコ-1(第2分画) | 0.04 | アセトン 68 | スピッツ管転容後の洗浄液 |
| | ナスフラスコ-2(第2分画) | 0.00 | アセトン 51 | 同上再洗浄液 |
| 15 | スピッツ管-1(第1分画) | 0.37 | アセトン 33 | アセトン31mlで洗浄後(廃棄)の再洗浄 |
| | スピッツ管-2(第1分画) | 0.01 | アセトン 28 | 同上再々洗浄 |
| 16 | 窒素吹き付けノズル | 0.82 | ヘキサン 16 | |

備考1 No. は図1の分析フローシートに示した工程のNo. に対応させた。

備考2 は相互汚染のリスクが考えられる工程の測定値

備考3 検出下限値: 0.05pg/ μ l

表2 自動ソックスレー抽出装置各パーツの溶媒洗浄液中の#118-PeCB濃度

| 区 分 | GC/MS 測定値 (pg/μl) | 洗浄等溶媒量 (ml) | 備 考 |
|-----------|-------------------------|----------------|------------------|
| 抽出器 -1 | 0.15 | アセトン 133 | トルエンで系の抽出洗浄後の洗浄液 |
| 抽出器 -2 | 0.00 | アセトン 136 | 同上再洗浄液 |
| 抽出器 -3 | 0.02 | アセトン 153 | 再々洗浄液 |
| パッキン -1 | 0.13 | アセトン 51 | 洗浄液 |
| パッキン -2 | 0.08 | アセトン 44 | 再洗浄液 |
| パッキン -3 | 0.65 | アセトン 133 | 超音波洗浄液 |
| パッキン -4 | 0.42 | アセトン 163 | 同上超音波再洗浄液 |
| 冷却器 -1 | 0.19 | アセトン 105 | 洗浄液 |
| 冷却器 -2 | 0.01 | アセトン 104 | 再洗浄液 |
| ろ紙ホルダー -1 | 0.02 | アセトン 35 | 洗浄液 |
| ろ紙ホルダー -2 | 0.00 | アセトン 111 | 同上超音波再洗浄液 |
| テフロンホルダー | 0.02 | アセトン 118 | 超音波洗浄液 |

備考 表1とは別に行った追加試験によるもの。

は相互汚染のリスクが考えられる工程の測定値

表3 ソックスレー抽出装置(500ml)を用いたときのガラス器具等の溶媒洗浄液中の#118-PeCB濃度

| 区 分 | GC/MS 測定値 (pg/μl) | 洗浄等溶媒量 (ml) | 備 考 |
|-----------------|-------------------------|----------------|-------------|
| 丸底フラスコ -1 | 0.08 | アセトン 67 | 粗抽出液転容後の洗浄液 |
| 丸底フラスコ -2 | 0.01 | アセトン 54 | 同上再洗浄液 |
| 抽出器 -1 | 0.12 | アセトン 139 | 洗浄液 |
| 抽出器 -2 | 0.00 | アセトン 137 | 再洗浄液 |
| 冷却器 -1 | 0.12 | アセトン 84 | 洗浄液 |
| 冷却器 -2 | 0.01 | アセトン 90 | 再洗浄液 |
| 抽出液濃縮用ナスフラスコ -1 | 1.89 | アセトン 38 | 定容後の洗浄液 |
| 抽出液濃縮用ナスフラスコ -2 | 0.19 | アセトン 228 | 同上超音波洗浄液 |

備考 抽出試料量：6.5g, 銅チップ添加なし

は相互汚染のリスクが考えられる工程の測定値

加試験の結果、パッキンの汚染対策も重要であることがわかった。(表2参照)

なお、銅チップを添加しない条件で通常の500mlソックスレー抽出装置を用いた同様の試験を行ったところ、抽出装置相互汚染のリスクに注意を必要とする結果は得られなかったが、抽出液濃縮に使用したナスフラスコは洗剤水槽で超音波洗浄する前に溶媒による洗浄が必要であることが認められた。(表3参照)

ま と め

- 自動ソックスレー抽出装置を用いた抽出においては、抽出液受器のLSVビーカの洗浄を十分に行う

- 必要がある。特に、LSVビーカに添加した銅チップに付着した硫化物等が剥離した場合は、残渣を廃棄した後、さらに超音波洗浄が必要である。
- 自動ソックスレー抽出装置のパッキンの洗浄を十分に行う必要がある。特に、LSVビーカに添加した銅チップに付着した硫化物等が剥離した場合は、さらに注意が必要である。パッキンの構造上、超音波洗浄でも除去しにくいことから、パッキンの廃棄も考慮に入れる必要がある。
- 抽出液を濃縮した後のナスフラスコには、剥離した硫化物等の微粒子が残っている場合があるので、アセトン等の溶媒を添加して超音波洗浄する必要がある。
- 高濃度のPCBを含有する抽出液等を濃縮した後

のトラップ球は、溶媒で十分に洗浄する必要がある。

- ・多層シリカゲルカラムクロマトグラフィで処理した後のコックは、個別に洗浄する必要がある。
- ・窒素吹き付けに用いたスピッツ管及び吹き付けノズルは、使用後の洗浄に注意する必要がある。

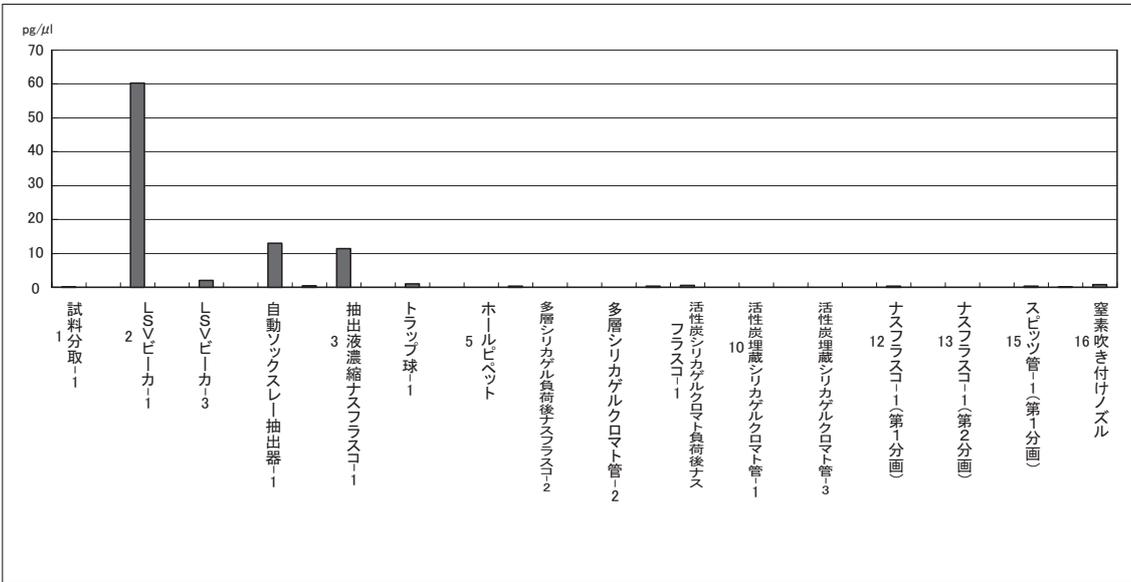


図2 各工程で使用した器具等の洗浄液中の#118-PeCB測定値

参 考 文 献

- 1) 環境省水・大気環境局総務課環境管理技術室,平成18年度環境測定分析統一精度管理調査結果(本編),19-38
- 2) 日本環境化学会第17回環境化学討論会講演要旨集, 352-353

大分県における雨水成分調査 (2007年度)

松原輝博

Ion Components of Rainwater in Oita Prefecture, 2007

Teruhiro Matsubara

Key words : 雨水 Rainwater, 酸性降下物 Acid deposition, 水素イオン濃度 pH

はじめに

当センターでは、雨水の化学的性状を把握し酸性雨発生機構解明の基礎資料を得るため、1985年度から継続して雨水成分調査を行っている。今回は、県内の3箇所で行っているろ過式採取法による調査について、2007年度のpH、雨水成分及び成分沈着量の状況とそれらの推移などを報告する。

調査方法

1 調査地点

- ①大分市：大分市高江西2-8 大分県衛生環境研究センター
北緯33° 10′ 東経131° 35′ 標高約20m

大分市は、約46万人の人口を抱える県下随一の都市である。北部には臨海工業地帯(当センターから北北東に約14km)があり、鉄鋼や石油化学等の工場が立地している。

当センターは、市の中心から南約10kmに位置している。周囲は閑静な住宅地域である。

- ②日田市：日田市大字有田字佐寺原 大分県農林水産研究センター林業試験場
北緯33° 20′ 東経130° 57′ 標高約159m

日田市は、周囲を標高1,000m級の山々に囲まれた盆地に開けた都市である。市の北西約50kmに福岡市があり、南南東約50kmには阿蘇山が座している。

当試験場は、市の中心から2kmほど離れた山間部に位置している。周囲は山林に囲まれ、大きなばい

煙の発生源はない。

- ③久住町：竹田市久住町大字久住字拓木 国設大分久住酸性雨測定所
北緯33° 02′ 東経131° 15′ 標高約560m

久住町は、九州のほぼ中央部に位置し、北部一帯は久住山を中心とするくじゅう火山群が占め、南に久住高原が広がっている。久住山の北西斜面には硫黄山があり、少量の硫黄性ガスを噴出している。当測定所は久住山の南麓にあり、周囲には牧草地帯が広がり、キャンプ場などの保養施設がある。約30m南方に国道442号が通っているが、交通量はあまり多くない。

2 試料採取方法及び分析方法

試料の採取は、ろ過式採取装置により月曜日の9時を基準として1週間ごとの雨水を採取する方法を用いた(ただし、久住町では2週間ごとに採取した。)

試料の分析は、環境省地球環境局環境保全対策課及び(財)酸性雨研究センターが作成した湿性沈着モニタリング手引き書に準じて、以下のとおり行った。測定項目のうち、pH及び電気伝導率(EC)は、原則として採取した日にpH計及び電気伝導率計を用いて測定した。その他の項目(雨水中のCl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻, NH₄⁺, Ca²⁺, Mg²⁺, K⁺, Na⁺濃度)については、試料を約4℃で冷蔵保存した後にイオンクロマトグラフ法により分析を行った。

調 査 結 果

1 2007年度の状況

1.1 降雨量について

2007年度の降雨量は、大分市2,126mm、日田市1,114mm、久住町1,522mmであり、大分市を除き前年度に比べ若干降雨量が減少した。

1.2 pHについて

2007年度のpHの降雨量加重年平均値は、大分市4.65、日田市4.80、久住町4.84であった。

1週間降雨(久住町は2週間)の測定値によるpHの分布状況は、大分市についてはpHが4.4~4.6の範囲の降雨が最も多かった。日田市ではpHが4.8~5.0の範囲の降雨が最も多く、4.0~6.0超までの間に幅広く分布していた。久住町ではpHが4.8~5.0の範囲の降雨が最も多く、4.4~5.2の間がほとんどであったが、6.0以上の降雨も幾度かあった。

1.3 成分沈着について

雨水成分沈着量は、全体としては概ね前年度と同程度であったが、大分市では海塩由来と思われる Na^+ が若干増加している。また、日田市及び久住町では冬期において K^+ 及び Mg^{2+} が増加しており、道路凍結防止剤の影響が疑われる。

お わ り に

本調査の実施に当たり、試料採取及びEC、pHの測定に協力いただいた大分県農林水産研究センター 林業試験場の職員に深謝する。

参 考 文 献

- 1) 恵良雅彰：「大分県における雨水成分調査(2005年度)」,大分県衛生環境研究センター 年報, 33, 50-57(2005)

表1 雨水pHの経年変化

| 地 点 | 年 度 | 雨水 pH | | | 試料数 | 降雨量 mm | 備 考 |
|------|------|-------|------|------|------|-----------|-----|
| | | 平均値 | 最大値 | 最小値 | | | |
| 大分市 | 1989 | 4.50 | 6.17 | 3.94 | 31 | 1543 | |
| | 1990 | 4.57 | 6.56 | 4.08 | 38 | 1505 | |
| | 1991 | 4.42 | 6.31 | 3.92 | 42 | 2096 | |
| | 1992 | 4.57 | 6.42 | 3.80 | 38 | 1208 | |
| | 1993 | 4.75 | 5.81 | 3.94 | 41 | 2842 | |
| | 1994 | 4.47 | 6.20 | 3.68 | 34 | 1152 | |
| | 1995 | 4.68 | 7.59 | 4.15 | 33 | 1251 | |
| | 1996 | 4.59 | 6.11 | 3.84 | 37 | 1217 | |
| | 1997 | 4.81 | 6.81 | 4.16 | 43 | 1807 | |
| | 1998 | 4.64 | 6.84 | 4.01 | 37 | 1451 | |
| | 1999 | 4.72 | 6.98 | 3.44 | 38 | 1833 | |
| | 2000 | 4.60 | 7.10 | 4.11 | 37 | 1313 | |
| | 2001 | 4.55 | 6.91 | 4.00 | 40 | 1404 | |
| | 2002 | 4.60 | 6.16 | 3.90 | 33 | 1144 | |
| | 2003 | 4.53 | 6.95 | 3.99 | 43 | 2125 | |
| | 2004 | 4.63 | 6.37 | 3.96 | 40 | 2325 | |
| | 2005 | 4.68 | 6.44 | 3.72 | 35 | 1662 | |
| 2006 | 4.58 | 6.51 | 3.92 | 40 | 1969 | | |
| 2007 | 4.65 | 6.40 | 3.12 | 36 | 2126 | | |
| 日田市 | 1989 | 4.45 | 4.98 | 3.90 | 41 | 1131 | |
| | 1990 | 4.55 | 6.01 | 3.75 | 45 | 1156 | |
| | 1991 | 4.59 | 7.04 | 4.00 | 44 | 1881 | |
| | 1992 | 4.51 | 5.99 | 3.95 | 39 | 1170 | |
| | 1993 | 5.06 | 6.84 | 3.69 | 42 | 2400 | |
| | 1994 | 4.76 | 7.06 | 4.03 | 34 | 900 | |
| | 1995 | 4.76 | 8.24 | 3.97 | 39 | 1805 | |
| | 1996 | 4.59 | 5.75 | 4.33 | 42 | 1512 | |
| | 1997 | 4.90 | 6.70 | 4.01 | 33 | 1906 | |
| | 1998 | 4.68 | 6.28 | 4.10 | 41 | 1461 | |
| | 1999 | 4.81 | 6.58 | 3.96 | 37 | 1813 | |
| | 2000 | 4.82 | 7.08 | 4.00 | 43 | 1875 | |
| | 2001 | 4.67 | 7.30 | 3.53 | 44 | 1822 | |
| | 2002 | 4.61 | 5.89 | 4.04 | 34 | 1159 | |
| | 2003 | 4.68 | 6.54 | 3.77 | 44 | 1988 | |
| | 2004 | 4.73 | 6.88 | 3.88 | 48 | 2143 | |
| | 2005 | 4.67 | 6.62 | 3.97 | 39 | 1328 | |
| 2006 | 4.66 | 6.14 | 3.82 | 45 | 1717 | | |
| 2007 | 4.80 | 7.50 | 4.09 | 38 | 1114 | | |
| 久住町 | 1994 | 4.51 | 5.61 | 3.91 | 18 | 664 | |
| | 1995 | 4.73 | 6.24 | 4.15 | 24 | 2000 | |
| | 1996 | 4.83 | 6.93 | 4.33 | 25 | 1799 | |
| | 1997 | 5.00 | 7.63 | 4.05 | 26 | 2518 | |
| | 1998 | 4.85 | 6.27 | 4.10 | 23 | 1632 | |
| | 1999 | 4.81 | 7.21 | 3.93 | 25 | 2032 | |
| | 2000 | 4.77 | 7.16 | 4.29 | 23 | 1852 | |
| | 2001 | 4.70 | 6.58 | 4.07 | 26 | 1818 | |
| | 2002 | 4.67 | 6.71 | 4.19 | 25 | 1647 | |
| | 2003 | 4.56 | 6.24 | 4.17 | 24 | 2460 | |
| | 2004 | 4.65 | 6.21 | 4.12 | 26 | 1667 | |
| | 2005 | 4.63 | 5.93 | 3.85 | 24 | 1478 | |
| | 2006 | 4.73 | 5.91 | 4.25 | 24 | 2096 | |
| 2007 | 4.84 | 6.62 | 4.05 | 26 | 1522 | | |

注) 平均値は、降雨量加重年平均値

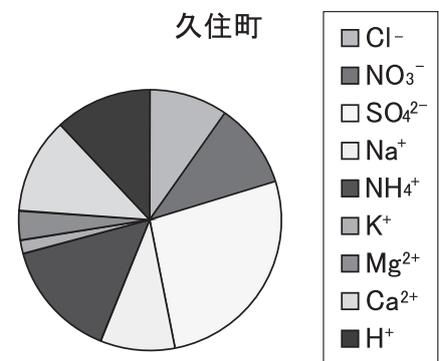
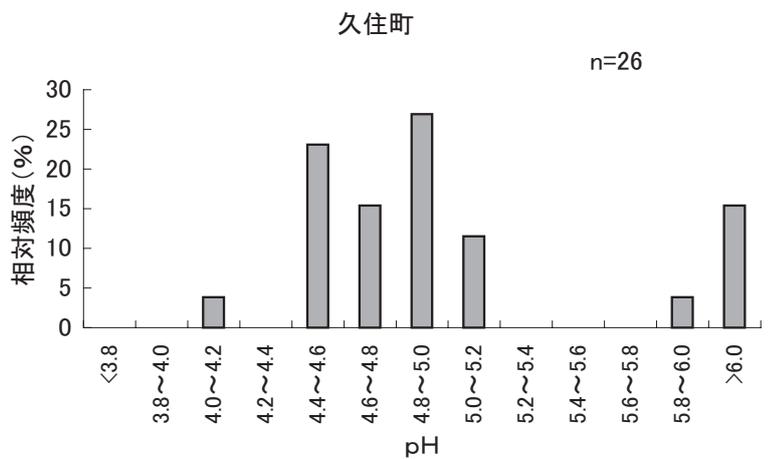
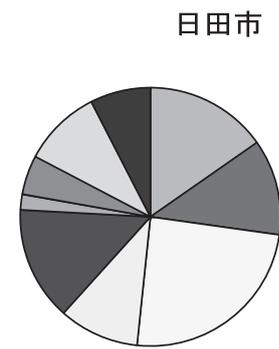
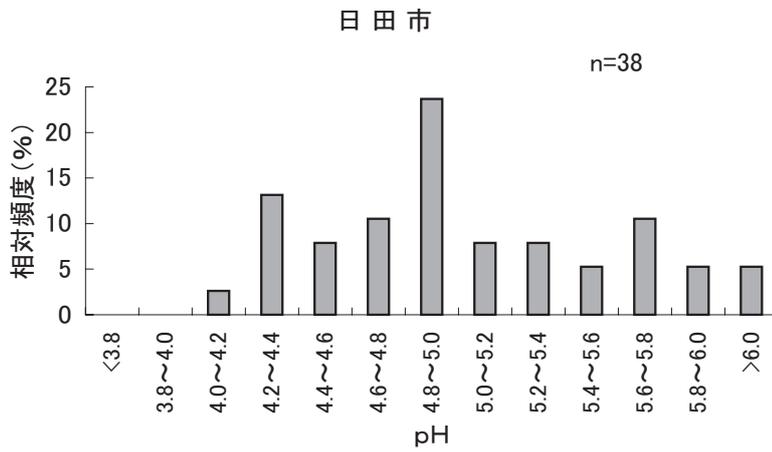
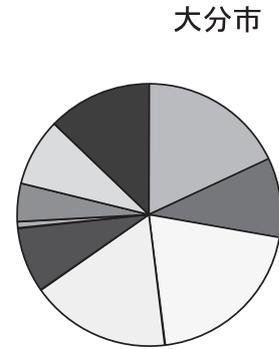
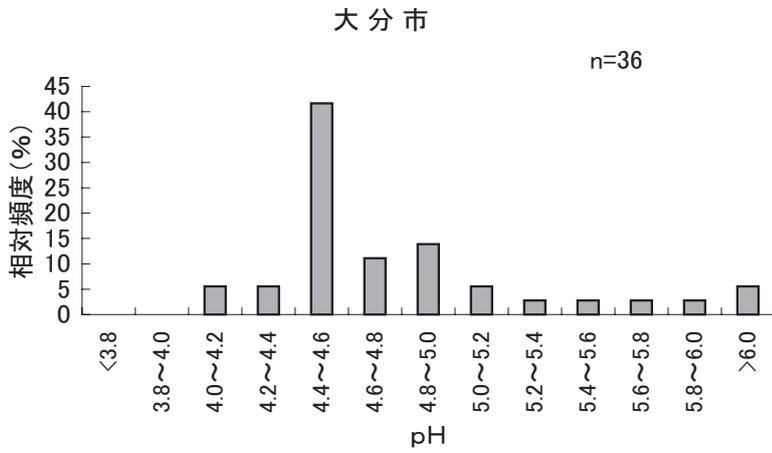


図1 2007年度 雨水のpH分布

図2 2007年度 沈着量の等量比

表2 2007月平均当量濃度
大分市

| | 測定期間 | | 測定 日数 | 降雨量 mm | 成分濃度 | | | | | | | | | | | 非海塩成分量 | | | |
|-----|--------|--------|----------|-----------|------|--------------|---------------------------|--|---|---------------------------|--|--------------------------|----------------------------|----------------------------|--------------------------|-------------------------------|----|------------------|----|
| | 開始 | 終了 | | | pH | EC μ S/cm | Cl ⁻ μ eq/l | NO ₃ ⁻ μ eq/l | SO ₄ ²⁻ μ eq/l | Na ⁺ μ eq/l | NH ₄ ⁺ μ eq/l | K ⁺ μ eq/l | Mg ²⁺ μ eq/l | Ca ²⁺ μ eq/l | H ⁺ μ eq/l | SO ₄ ²⁻ | | Ca ²⁺ | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | μ eq/l | % | μ eq/l | % |
| 4月 | 4月2日 | 5月1日 | 29 | 122 | 4.6 | 22.9 | 22.7 | 27.8 | 61.1 | 20.7 | 23.2 | 2.4 | 11.9 | 35.4 | 24.4 | 58.6 | 96 | 34.5 | 97 |
| 5月 | 5月1日 | 5月28日 | 27 | 76 | 4.7 | 18.4 | 8.8 | 23.3 | 55.4 | 8.3 | 22.2 | 1.7 | 8.0 | 35.5 | 19.4 | 54.4 | 98 | 35.1 | 99 |
| 6月 | 5月28日 | 7月2日 | 35 | 144 | 4.6 | 18.4 | 12.5 | 17.4 | 37.9 | 11.2 | 14.3 | 2.1 | 3.7 | 13.0 | 25.2 | 36.5 | 96 | 12.5 | 96 |
| 7月 | 7月2日 | 7月30日 | 28 | 808 | 4.8 | 10.3 | 15.4 | 10.2 | 20.8 | 14.3 | 7.5 | 0.6 | 3.2 | 7.7 | 17.0 | 19.1 | 92 | 7.1 | 92 |
| 8月 | 7月30日 | 9月3日 | 35 | 289 | 4.8 | 18.0 | 64.0 | 10.4 | 25.9 | 59.6 | 7.8 | 1.3 | 14.1 | 9.8 | 14.1 | 18.7 | 72 | 7.2 | 73 |
| 9月 | 9月3日 | 10月1日 | 28 | 147 | 5.2 | 6.3 | 10.9 | 4.9 | 11.1 | 8.5 | 1.6 | 0.6 | 5.9 | 4.6 | 6.7 | 10.0 | 91 | 4.2 | 92 |
| 10月 | 10月1日 | 11月5日 | 35 | 92 | 4.5 | 23.1 | 28.4 | 22.4 | 40.4 | 27.9 | 11.6 | 0.9 | 6.6 | 15.2 | 32.2 | 37.0 | 92 | 14.0 | 92 |
| 11月 | 11月5日 | 12月3日 | 28 | 39 | 4.5 | 23.7 | 20.5 | 31.1 | 46.7 | 15.6 | 14.6 | 1.2 | 5.0 | 21.9 | 31.6 | 44.9 | 96 | 21.3 | 97 |
| 12月 | 12月3日 | 12月25日 | 22 | 102 | 4.2 | 60.6 | 133.3 | 53.7 | 102.7 | 129.7 | 78.6 | 6.8 | 32.7 | 20.3 | 69.5 | 87.1 | 85 | 14.7 | 72 |
| 1月 | 12月25日 | 2月4日 | 41 | 164 | 4.5 | 26.5 | 54.4 | 21.0 | 41.6 | 53.1 | 13.2 | 1.6 | 14.5 | 16.8 | 31.5 | 35.2 | 85 | 14.4 | 86 |
| 2月 | 2月4日 | 3月3日 | 28 | 13 | 6.4 | 39.5 | 69.8 | 52.5 | 147.1 | 138.7 | 40.6 | 4.0 | 23.4 | 120.1 | 0.4 | 130.5 | 89 | 114.1 | 95 |
| 3月 | 3月3日 | 3月31日 | 28 | 131 | 4.5 | 24.9 | 20.5 | 26.7 | 66.8 | 18.4 | 24.5 | 1.7 | 5.2 | 31.0 | 30.0 | 64.6 | 97 | 30.2 | 97 |
| 年間値 | 4月2日 | 3月31日 | 364 | 2,126 | 4.7 | 18.2 | 31.6 | 16.9 | 35.9 | 30.1 | 14.4 | 1.4 | 8.3 | 14.7 | 22.3 | 32.3 | 90 | 13.4 | 91 |

日田市

| | 測定期間 | | 測定 日数 | 降雨量 mm | 成分濃度 | | | | | | | | | | | 非海塩成分量 | | | |
|-----|--------|--------|----------|-----------|------|--------------|---------------------------|--|---|---------------------------|--|--------------------------|----------------------------|----------------------------|--------------------------|-------------------------------|----|------------------|----|
| | 開始 | 終了 | | | pH | EC μ S/cm | Cl ⁻ μ eq/l | NO ₃ ⁻ μ eq/l | SO ₄ ²⁻ μ eq/l | Na ⁺ μ eq/l | NH ₄ ⁺ μ eq/l | K ⁺ μ eq/l | Mg ²⁺ μ eq/l | Ca ²⁺ μ eq/l | H ⁺ μ eq/l | SO ₄ ²⁻ | | Ca ²⁺ | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | μ eq/l | % | μ eq/l | % |
| 4月 | 4月2日 | 5月1日 | 29 | 104 | 5.1 | 18.0 | 24.4 | 24.3 | 63.8 | 23.4 | 24.0 | 7.0 | 31.4 | 42.0 | 8.9 | 61.0 | 96 | 41.0 | 98 |
| 5月 | 5月1日 | 5月28日 | 27 | 70 | 5.0 | 14.5 | 11.6 | 20.6 | 55.7 | 10.8 | 26.5 | 7.9 | 20.7 | 29.1 | 9.8 | 54.4 | 98 | 28.6 | 98 |
| 6月 | 5月28日 | 7月2日 | 35 | 233 | 4.9 | 10.4 | 8.1 | 9.8 | 28.4 | 4.4 | 13.7 | 2.2 | 4.2 | 4.3 | 12.4 | 27.9 | 98 | 4.1 | 96 |
| 7月 | 7月2日 | 7月30日 | 28 | 125 | 4.7 | 15.1 | 8.7 | 14.4 | 34.4 | 7.2 | 22.8 | 1.4 | 2.6 | 5.1 | 19.1 | 33.5 | 97 | 4.8 | 94 |
| 8月 | 7月30日 | 9月3日 | 35 | 138 | 4.7 | 15.7 | 9.2 | 13.8 | 33.8 | 7.3 | 18.4 | 1.8 | 2.6 | 6.9 | 21.0 | 32.9 | 97 | 6.6 | 95 |
| 9月 | 9月3日 | 10月1日 | 28 | 32 | 4.7 | 16.8 | 9.1 | 17.6 | 42.3 | 10.3 | 21.6 | 2.2 | 4.3 | 9.4 | 20.7 | 41.1 | 97 | 8.9 | 95 |
| 10月 | 10月1日 | 11月5日 | 35 | 63 | 5.4 | 7.8 | 14.3 | 7.3 | 16.7 | 10.4 | 13.6 | 1.3 | 3.1 | 6.0 | 3.7 | 15.5 | 93 | 5.6 | 92 |
| 11月 | 11月5日 | 11月26日 | 21 | 22 | 4.7 | 13.7 | 38.1 | 17.5 | 23.2 | 15.3 | 28.9 | 2.1 | 5.5 | 14.1 | 20.4 | 21.4 | 92 | 13.5 | 95 |
| 12月 | 11月26日 | 12月25日 | 29 | 58 | 4.5 | 44 | 56 | 49 | 119 | 33 | 70 | 7 | 11 | 24 | 34 | 115 | 97 | 23 | 94 |
| 1月 | 12月25日 | 2月4日 | 41 | 143 | 4.8 | 22.4 | 84.2 | 22.5 | 46.0 | 46.3 | 36.1 | 3.5 | 13.2 | 14.8 | 14.3 | 40.5 | 88 | 12.8 | 86 |
| 2月 | 2月4日 | 3月3日 | 28 | 35 | 4.6 | 60.4 | 176.6 | 129.0 | 165.7 | 120.6 | 106.1 | 7.9 | 32.9 | 90.6 | 23.4 | 151.2 | 91 | 85.4 | 94 |
| 3月 | 3月3日 | 3月31日 | 28 | 91 | 4.8 | 28.5 | 46.7 | 64.5 | 97 | 35.2 | 55.9 | 4.4 | 16.1 | 64.1 | 16.8 | 93 | 96 | 62.6 | 98 |
| 年間値 | 4月2日 | 3月31日 | 364 | 1,114 | 4.8 | 18.9 | 31.4 | 24.6 | 50.8 | 20.8 | 29.5 | 3.6 | 10.5 | 19.9 | 15.7 | 48.3 | 95 | 19.0 | 95 |

久住町

| | 測定期間 | | 測定 日数 | 降雨量 mm | 成分濃度 | | | | | | | | | | | 非海塩成分量 | | | |
|-----|--------|--------|----------|-----------|------|--------------|---------------------------|--|---|---------------------------|--|--------------------------|----------------------------|----------------------------|--------------------------|-------------------------------|----|------------------|----|
| | 開始 | 終了 | | | pH | EC μ S/cm | Cl ⁻ μ eq/l | NO ₃ ⁻ μ eq/l | SO ₄ ²⁻ μ eq/l | Na ⁺ μ eq/l | NH ₄ ⁺ μ eq/l | K ⁺ μ eq/l | Mg ²⁺ μ eq/l | Ca ²⁺ μ eq/l | H ⁺ μ eq/l | SO ₄ ²⁻ | | Ca ²⁺ | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | μ eq/l | % | μ eq/l | % |
| 4月 | 4月9日 | 5月7日 | 28 | 201 | 4.9 | 13.7 | 8.7 | 13.2 | 41.8 | 9.8 | 19.8 | 1.2 | 7.5 | 20.7 | 13.8 | 40.6 | 97 | 20.3 | 98 |
| 5月 | 5月7日 | 6月5日 | 29 | 66 | 6.2 | 19.4 | 16.1 | 26.2 | 74.1 | 15.8 | 53.0 | 12.0 | 12.5 | 69.4 | 0.6 | 72.2 | 97 | 68.7 | 99 |
| 6月 | 6月5日 | 7月2日 | 27 | 172 | 4.8 | 12.8 | 11.9 | 12.9 | 24.8 | 11.6 | 29.3 | 3.6 | 2.4 | 3.2 | 15.3 | 23.4 | 94 | 2.7 | 84 |
| 7月 | 7月2日 | 7月30日 | 28 | 173 | 4.8 | 11.4 | 8.3 | 9.1 | 23.8 | 6.6 | 19.5 | 0.8 | 0.2 | 0.6 | 16.7 | 23.1 | 97 | 0.4 | 55 |
| 8月 | 7月30日 | 8月27日 | 28 | 332 | 4.9 | 9.1 | 3.7 | 6.5 | 19.1 | 2.9 | 8.6 | 1.1 | 1.1 | 4.0 | 13.9 | 18.7 | 98 | 3.9 | 97 |
| 9月 | 8月27日 | 9月25日 | 29 | 119 | 4.7 | 11.4 | 7.8 | 7.1 | 21.7 | 6.4 | 5.4 | 0.8 | 1.3 | 1.9 | 18.7 | 21.0 | 96 | 1.6 | 85 |
| 10月 | 9月25日 | 11月5日 | 41 | 121 | 5.0 | 7.4 | 8.6 | 2.6 | 14.7 | 9.7 | 1.6 | 0.4 | 2.4 | 3.8 | 11.1 | 13.5 | 92 | 3.3 | 89 |
| 11月 | 11月5日 | 12月3日 | 28 | 45 | 5.3 | 11.0 | 14.4 | 18.3 | 27.7 | 17.1 | 8.6 | 2.5 | 7.9 | 40.6 | 5.6 | 25.6 | 93 | 39.9 | 98 |
| 12月 | 12月3日 | 12月28日 | 25 | 38 | 4.5 | 29.9 | 36 | 36 | 58 | 46 | 25 | 4 | 15 | 32 | 32 | 53 | 90 | 29 | 94 |
| 1月 | 12月28日 | 1月28日 | 31 | 106 | 4.7 | 15.5 | 13.0 | 10.9 | 32.1 | 15.9 | 12.3 | 1.5 | 5.9 | 13.7 | 20.2 | 30.2 | 94 | 13.0 | 95 |
| 2月 | 1月28日 | 2月25日 | 28 | 15 | 4.6 | 35.1 | 63.8 | 53.7 | 90.1 | 52.4 | 31.2 | 4.1 | 16.5 | 52.5 | 27.6 | 83.8 | 93 | 50.2 | 96 |
| 3月 | 2月25日 | 4月7日 | 42 | 135 | 4.9 | 20.8 | 29.3 | 29.2 | 64.8 | 25.6 | 32.0 | 2.3 | 9.2 | 40.9 | 11.8 | 61.7 | 95 | 39.8 | 97 |
| 年間値 | 4月9日 | 4月7日 | 364 | 1,522 | 4.8 | 13.2 | 11.7 | 12.9 | 32.4 | 11.5 | 17.7 | 2.0 | 4.4 | 14.6 | 14.6 | 31.0 | 96 | 14.1 | 97 |

表3 2007年度月降水量
大分市

| | 測定期間 | | 測定 日数 | 降雨量 mm | 成分沈着量 | | | | | | | | | | | 非海塩成分量 | | | |
|-----|--------|--------|----------|-----------|-------|-------------|---------------------------|--|---|---------------------------|--|--------------------------|----------------------------|----------------------------|--------------------------|-----------------------------------|----|----------------------|----|
| | 開始 | 終了 | | | pH | EC μS/cm | Cl ⁻ meq/m2 | NO ₃ ⁻ meq/m2 | SO ₄ ²⁻ meq/m2 | Na ⁺ meq/m2 | NH ₄ ⁺ meq/m2 | K ⁺ meq/m2 | Mg ²⁺ meq/m2 | Ca ²⁺ meq/m2 | H ⁺ meq/m2 | nss-SO ₄ ²⁻ | | nss-Ca ²⁺ | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | meq/m2 | % | meq/m2 | % |
| 4月 | 4月2日 | 5月1日 | 29 | 122 | 4.6 | 22.9 | 2.8 | 3.4 | 7.5 | 2.5 | 2.8 | 0.3 | 1.5 | 4.3 | 3.0 | 7.2 | 96 | 4.2 | 97 |
| 5月 | 5月1日 | 5月28日 | 27 | 76 | 4.7 | 18.4 | 0.7 | 1.8 | 4.2 | 0.6 | 1.7 | 0.1 | 0.6 | 2.7 | 1.5 | 4.1 | 98 | 2.7 | 99 |
| 6月 | 5月28日 | 7月2日 | 35 | 144 | 4.6 | 18.4 | 1.8 | 2.5 | 5.5 | 1.6 | 2.1 | 0.3 | 0.5 | 1.9 | 3.6 | 5.3 | 96 | 1.8 | 96 |
| 7月 | 7月2日 | 7月30日 | 28 | 808 | 4.8 | 10.3 | 12.4 | 8.2 | 16.8 | 11.5 | 6.0 | 0.5 | 2.6 | 6.2 | 13.7 | 15.4 | 92 | 5.7 | 92 |
| 8月 | 7月30日 | 9月3日 | 35 | 289 | 4.8 | 18.0 | 18.5 | 3.0 | 7.5 | 17.2 | 2.3 | 0.4 | 4.1 | 2.8 | 4.1 | 5.4 | 72 | 2.1 | 73 |
| 9月 | 9月3日 | 10月1日 | 28 | 147 | 5.2 | 6.3 | 1.6 | 0.7 | 1.6 | 1.2 | 0.2 | 0.1 | 0.8 | 0.7 | 1.0 | 1.4 | 91 | 0.6 | 92 |
| 10月 | 10月1日 | 11月5日 | 35 | 92 | 4.5 | 23.1 | 2.6 | 2.1 | 3.7 | 2.6 | 1.1 | 0.0 | 0.6 | 1.4 | 2.9 | 3.4 | 92 | 1.3 | 92 |
| 11月 | 11月5日 | 12月3日 | 28 | 39 | 4.5 | 23.7 | 0.8 | 1.2 | 1.8 | 0.6 | 0.6 | 0.1 | 0.2 | 0.8 | 1.2 | 1.7 | 96 | 0.8 | 97 |
| 12月 | 12月3日 | 12月25日 | 22 | 102 | 4.2 | 60.6 | 13.6 | 5.5 | 10.4 | 13.2 | 8.0 | 0.7 | 3.3 | 2.1 | 7.1 | 8.9 | 85 | 1.5 | 72 |
| 1月 | 12月25日 | 2月4日 | 41 | 164 | 4.5 | 26.5 | 8.9 | 3.4 | 6.8 | 8.7 | 2.2 | 0.3 | 2.4 | 2.7 | 5.1 | 5.8 | 85 | 2.4 | 86 |
| 2月 | 2月4日 | 3月3日 | 28 | 13 | 6.4 | 39.5 | 0.8 | 0.6 | 1.6 | 1.5 | 0.4 | 0.0 | 0.3 | 1.3 | 0.0 | 1.4 | 89 | 1.2 | 95 |
| 3月 | 3月3日 | 3月31日 | 28 | 131 | 4.5 | 24.9 | 2.7 | 3.5 | 8.8 | 2.4 | 3.2 | 0.2 | 0.7 | 4.1 | 3.9 | 8.5 | 97 | 4.0 | 97 |
| 年間値 | 4月2日 | 3月31日 | 364 | 2,126 | 4.7 | 18.2 | 67.0 | 35.8 | 76.1 | 63.7 | 30.5 | 3.0 | 17.5 | 31.1 | 47.2 | 68.4 | 90 | 28.3 | 91 |

日田市

| | 測定期間 | | 測定 日数 | 降雨量 mm | 成分沈着量 | | | | | | | | | | | 非海塩成分量 | | | |
|-----|--------|--------|----------|-----------|-------|-------------|---------------------------|--|---|---------------------------|--|--------------------------|----------------------------|----------------------------|--------------------------|-----------------------------------|----|----------------------|----|
| | 開始 | 終了 | | | pH | EC μS/cm | Cl ⁻ meq/m2 | NO ₃ ⁻ meq/m2 | SO ₄ ²⁻ meq/m2 | Na ⁺ meq/m2 | NH ₄ ⁺ meq/m2 | K ⁺ meq/m2 | Mg ²⁺ meq/m2 | Ca ²⁺ meq/m2 | H ⁺ meq/m2 | nss-SO ₄ ²⁻ | | nss-Ca ²⁺ | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | meq/m2 | % | meq/m2 | % |
| 4月 | 4月2日 | 5月1日 | 29 | 104 | 5.1 | 18.0 | 2.5 | 2.5 | 6.7 | 2.4 | 2.5 | 0.7 | 3.3 | 4.4 | 0.9 | 6.4 | 96 | 4.3 | 98 |
| 5月 | 5月1日 | 5月28日 | 27 | 70 | 5.0 | 14.5 | 0.7 | 1.2 | 3.2 | 0.6 | 1.5 | 0.5 | 1.2 | 1.7 | 0.6 | 3.1 | 98 | 1.6 | 98 |
| 6月 | 5月28日 | 7月2日 | 35 | 233 | 4.9 | 10.4 | 1.9 | 2.3 | 6.6 | 1.0 | 3.2 | 0.5 | 1.0 | 1.0 | 2.9 | 6.5 | 98 | 1.0 | 96 |
| 7月 | 7月2日 | 7月30日 | 28 | 125 | 4.7 | 15.1 | 1.1 | 1.8 | 4.3 | 0.9 | 2.9 | 0.2 | 0.3 | 0.6 | 2.4 | 4.2 | 97 | 0.6 | 94 |
| 8月 | 7月30日 | 9月3日 | 35 | 138 | 4.7 | 15.7 | 1.3 | 1.9 | 4.7 | 1.0 | 2.5 | 0.3 | 0.4 | 0.9 | 2.9 | 4.5 | 97 | 0.9 | 95 |
| 9月 | 9月3日 | 10月1日 | 28 | 32 | 4.7 | 16.8 | 0.3 | 0.6 | 1.4 | 0.3 | 0.7 | 0.1 | 0.1 | 0.3 | 0.7 | 1.3 | 97 | 0.3 | 95 |
| 10月 | 10月1日 | 11月5日 | 35 | 63 | 5.4 | 7.8 | 0.9 | 0.5 | 1.0 | 0.6 | 0.8 | 0.1 | 0.2 | 0.4 | 0.2 | 1.0 | 93 | 0.3 | 92 |
| 11月 | 11月5日 | 11月26日 | 21 | 22 | 4.7 | 13.7 | 0.8 | 0.4 | 0.5 | 0.3 | 0.6 | 0.0 | 0.1 | 0.3 | 0.4 | 0.5 | 92 | 0.3 | 95 |
| 12月 | 11月26日 | 12月25日 | 29 | 58 | 4.5 | 43.6 | 3.1 | 2.8 | 6.7 | 1.9 | 4.0 | 0.4 | 0.6 | 1.4 | 1.9 | 6.5 | 97 | 1.3 | 94 |
| 1月 | 12月25日 | 2月4日 | 41 | 143 | 4.8 | 22.4 | 12.1 | 3.2 | 6.6 | 6.6 | 5.2 | 0.5 | 1.9 | 2.1 | 2.0 | 5.8 | 88 | 1.8 | 86 |
| 2月 | 2月4日 | 3月3日 | 28 | 35 | 4.6 | 60.4 | 5.5 | 4.0 | 5.2 | 3.8 | 3.3 | 0.2 | 1.0 | 2.8 | 0.7 | 4.7 | 91 | 2.7 | 94 |
| 3月 | 3月3日 | 3月31日 | 28 | 91 | 4.8 | 28.5 | 4.3 | 5.9 | 8.9 | 3.2 | 5.1 | 0.4 | 1.5 | 5.9 | 1.5 | 8.5 | 96 | 5.7 | 98 |
| 年間値 | 4月2日 | 3月31日 | 364 | 1,114 | 4.8 | 18.9 | 34.4 | 27.0 | 55.7 | 22.8 | 32.4 | 3.9 | 11.6 | 21.8 | 17.2 | 53.0 | 95 | 20.8 | 95 |

久住町

| | 測定期間 | | 測定 日数 | 降雨量 mm | 成分沈着量 | | | | | | | | | | | 非海塩成分量 | | | |
|-----|--------|--------|----------|-----------|-------|-------------|---------------------------|--|---|---------------------------|--|--------------------------|----------------------------|----------------------------|--------------------------|-----------------------------------|----|----------------------|----|
| | 開始 | 終了 | | | pH | EC μS/cm | Cl ⁻ meq/m2 | NO ₃ ⁻ meq/m2 | SO ₄ ²⁻ meq/m2 | Na ⁺ meq/m2 | NH ₄ ⁺ meq/m2 | K ⁺ meq/m2 | Mg ²⁺ meq/m2 | Ca ²⁺ meq/m2 | H ⁺ meq/m2 | nss-SO ₄ ²⁻ | | nss-Ca ²⁺ | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | meq/m2 | % | meq/m2 | % |
| 4月 | 4月9日 | 5月7日 | 28 | 201 | 4.9 | 13.7 | 1.8 | 2.7 | 8.4 | 2.0 | 4.0 | 0.2 | 1.5 | 4.2 | 2.8 | 8.2 | 97 | 4.1 | 98 |
| 5月 | 5月7日 | 6月5日 | 29 | 66 | 6.2 | 19.4 | 1.1 | 1.7 | 4.9 | 1.0 | 3.5 | 0.8 | 0.8 | 4.6 | 0.0 | 4.7 | 97 | 4.5 | 99 |
| 6月 | 6月5日 | 7月2日 | 27 | 172 | 4.8 | 12.8 | 2.0 | 2.2 | 4.3 | 2.0 | 5.0 | 0.6 | 0.4 | 0.6 | 2.6 | 4.0 | 94 | 0.5 | 84 |
| 7月 | 7月2日 | 7月30日 | 28 | 173 | 4.8 | 11.4 | 1.4 | 1.6 | 4.1 | 1.1 | 3.4 | 0.1 | 0.0 | 0.1 | 2.9 | 4.0 | 97 | 0.1 | 55 |
| 8月 | 7月30日 | 8月27日 | 28 | 332 | 4.9 | 9.1 | 1.2 | 2.2 | 6.3 | 0.9 | 2.8 | 0.4 | 0.4 | 1.3 | 4.6 | 6.2 | 98 | 1.3 | 97 |
| 9月 | 8月27日 | 9月25日 | 29 | 119 | 4.7 | 11.4 | 0.9 | 0.8 | 2.6 | 0.8 | 0.6 | 0.1 | 0.2 | 0.2 | 2.2 | 2.5 | 96 | 0.2 | 85 |
| 10月 | 9月25日 | 11月5日 | 41 | 121 | 5.0 | 7.4 | 1.0 | 0.3 | 1.8 | 1.2 | 0.2 | 0.1 | 0.3 | 0.5 | 1.3 | 1.6 | 92 | 0.4 | 89 |
| 11月 | 11月5日 | 12月3日 | 28 | 45 | 5.3 | 11.0 | 0.6 | 0.8 | 1.2 | 0.8 | 0.4 | 0.1 | 0.4 | 1.8 | 0.3 | 1.1 | 93 | 1.8 | 98 |
| 12月 | 12月3日 | 12月28日 | 25 | 38 | 4.5 | 29.9 | 1.4 | 1.4 | 2.2 | 1.8 | 1.0 | 0.1 | 0.6 | 1.2 | 1.2 | 2.0 | 90 | 1.1 | 94 |
| 1月 | 12月28日 | 1月28日 | 31 | 106 | 4.7 | 15.5 | 1.4 | 1.2 | 3.4 | 1.7 | 1.3 | 0.2 | 0.6 | 1.4 | 2.1 | 3.2 | 94 | 1.4 | 95 |
| 2月 | 1月28日 | 2月25日 | 28 | 15 | 4.6 | 35.1 | 1.0 | 0.8 | 1.4 | 0.8 | 0.5 | 0.1 | 0.2 | 0.8 | 0.4 | 1.3 | 93 | 0.8 | 96 |
| 3月 | 2月25日 | 4月7日 | 42 | 135 | 4.9 | 20.8 | 3.9 | 3.9 | 8.7 | 3.4 | 4.3 | 0.3 | 1.2 | 5.5 | 1.6 | 8.3 | 95 | 5.4 | 97 |
| 年間値 | 4月9日 | 4月7日 | 364 | 1,522 | 4.8 | 13.2 | 17.8 | 19.6 | 49.3 | 17.5 | 27.0 | 3.1 | 6.7 | 22.2 | 22.2 | 47.2 | 96 | 21.4 | 97 |

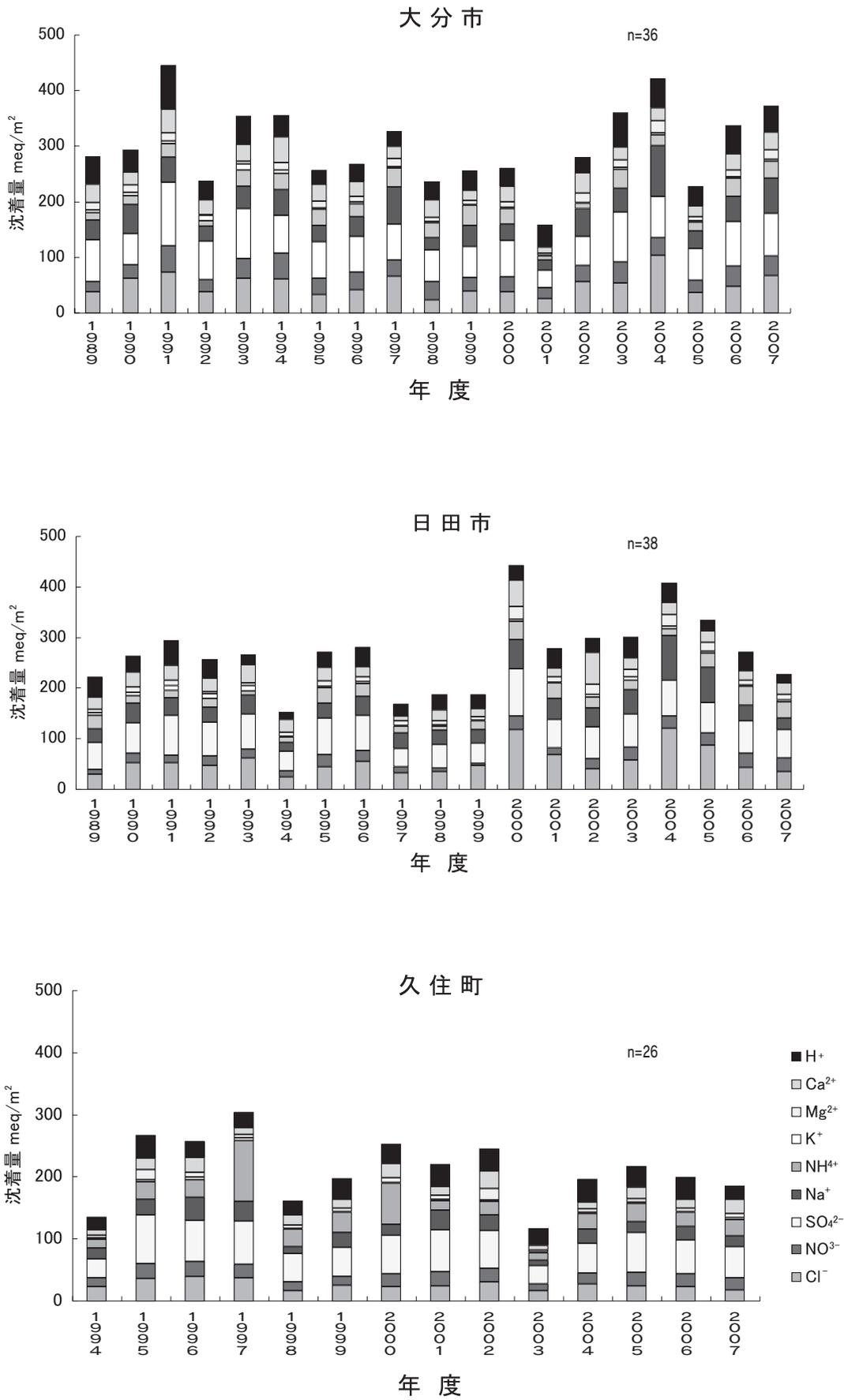


図 3 雨水成分沈着量の経年変化(地点別)

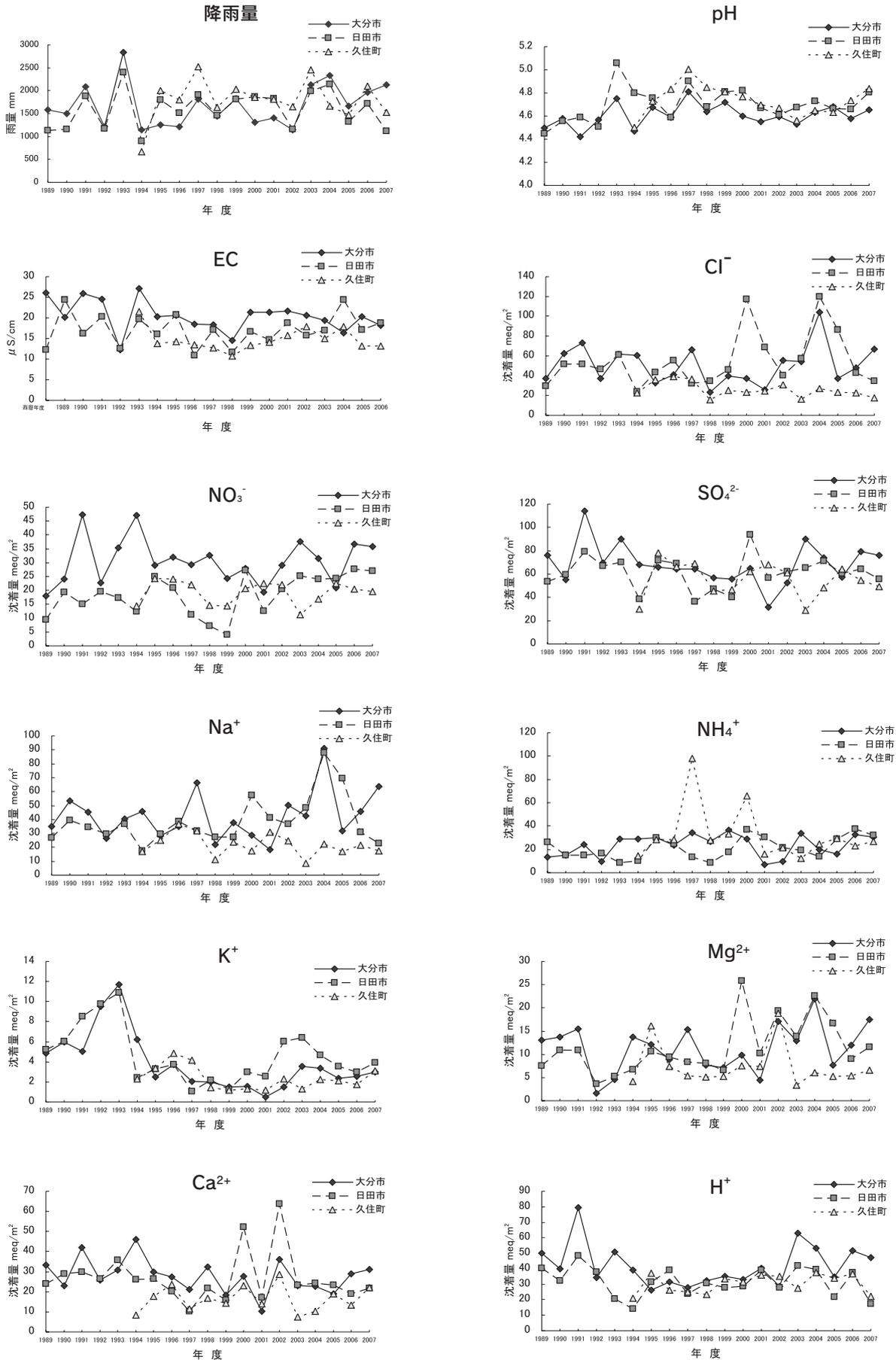


図4 雨水成分沈着量の経年変化(成分別)

大分県の公共用水域における燐の測定結果について

武田 亮, 宮崎博文

The Survey of Phosphorus compound at Public water body in Oita Prefecture

Ryou Takeda, Hirofumi Miyazaki

Key words : Phosphorus compound 燐化合物

はじめに

燐・窒素等の栄養塩類は、閉鎖性水域において、赤潮・アオコの発生等の水質汚濁を引き起こすことが問題となっている。一方で、燐は農業における肥料等として重要な物質であり、現在、世界的に枯渇が心配されている資源の一つである。

今回、富栄養化や燐の循環の機構を解明するための基礎データとして、河川、湖沼及び海域における全燐の測定結果を取りまとめたので報告する。

調査方法

1988年4月から2008年3月まで20年間の公共用水域における全燐(T-P)の測定結果を集計した。

調査地点：54河川109地点，3湖沼8地点，8海域56地点

調査回数：毎月1回(一部の測定点においては、年6回又は4回)

測定方法：日本工業規格K0102の46.3に定める方法

調査結果

1 河川

県内の主要河川について、海水の影響を受けない最も下流の環境基準点における年平均値を求めた(筑後川については、大分県内の最下流地点)。近年、燐の測定値の変化はほぼ横ばいで、山国川0.02mg/L、番匠川0.01mg/L、筑後川0.04mg/L、大野川0.05mg/L、大分川0.08mg/Lとなっており、都市部を流れる河川において高い値を示している(図1)。

また、中小河川については、裏川0.4mg/L、尼ヶ瀬川0.6mg/L等、都市部を流れる河川でより高い値を示す地点があった。

2 湖沼

大分川水系の芹川ダムについてまとめた結果を図2に示した。表層、10m、20mの年平均値を求めたところ、10m、20mでは経年変化は小さいが、表層では大きく値が上昇した年があった。季節変化については、4~7月頃に表層の値が上昇する傾向が見られた。このダムは、流域に特筆すべき燐の供給源が無いことから、長期にわたり湖底に堆積した燐による何らかの影響が現れているものと思われる。

3 海域

各測定地点の表層の年平均値により経年変化を求めた。いずれの地点においても燐の測定値の変化は、ほぼ横ばいで、河口付近を除き全域で0.02mg/L程度で推移していた。都市部の河川が流入する沿岸域においては、高い値を示す地点があるが、すぐ沖合の地点では0.02~0.03mg/L程度に下がった。例として、別府湾の河口から沖合に至る調査地点における測定結果を図3に示す。

表層の季節変化については、大半の地点で認められなかったが、入津湾においては、10~12月に燐濃度が上昇し、年平均値も他の海域より高くなる傾向が見られた(図4)。1994年~1998年の調査では、中層(2m)、下層(10m)の濃度も測定しているが、中層、下層においても表層とほぼ同じ傾向を示した。なお、入津湾は完全な閉鎖性水域の入江で、ブリなどの養殖が盛んに行われている水域であり、これまで大分県農林水産研究センター水産試験場が水質調

査を行っており¹⁾, その結果によると, 入津湾の海底付近(海底より1m地点)で磷酸態磷(PO₄-P)が高濃度で検出されていることから, 海底に磷が蓄積しているのではないかと推測される。

ま と め

河川等陸域から磷が流入しているにもかかわらず, 海域における磷の濃度は, ほぼ一定であった。このことから, 海域に流入した磷は広く拡散することなく, 沿岸域の底質中に移行しているのではないかと

推測される。瀬戸内海環境管理基本調査における底質の調査から, 中津沖及び別府湾の奥部において0.06mg/gを超える高濃度の磷が検出されていることからこの推測が裏付けられる。

今後, さらに詳しい底質調査により, 堆積している磷の潜在量を明らかにしていきたい。

参 考 文 献

- 1)大分県：平成17年度 大分県農林水産研究センター水産試験場事業報告,146-150

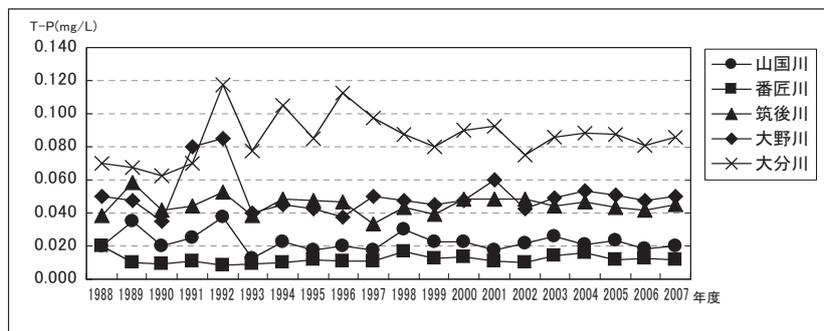


図 1 県内主要河川における磷の測定値の経年変化

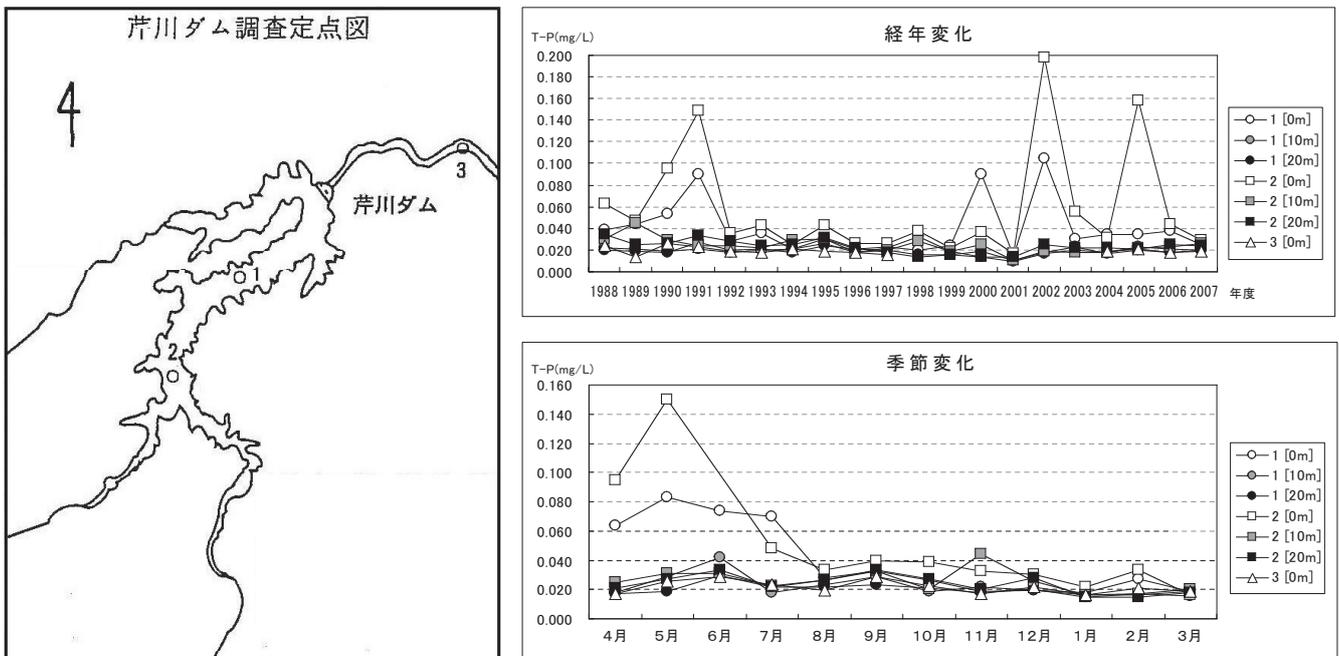


図 2 芹川ダムにおける磷の測定値の経年・季節変化

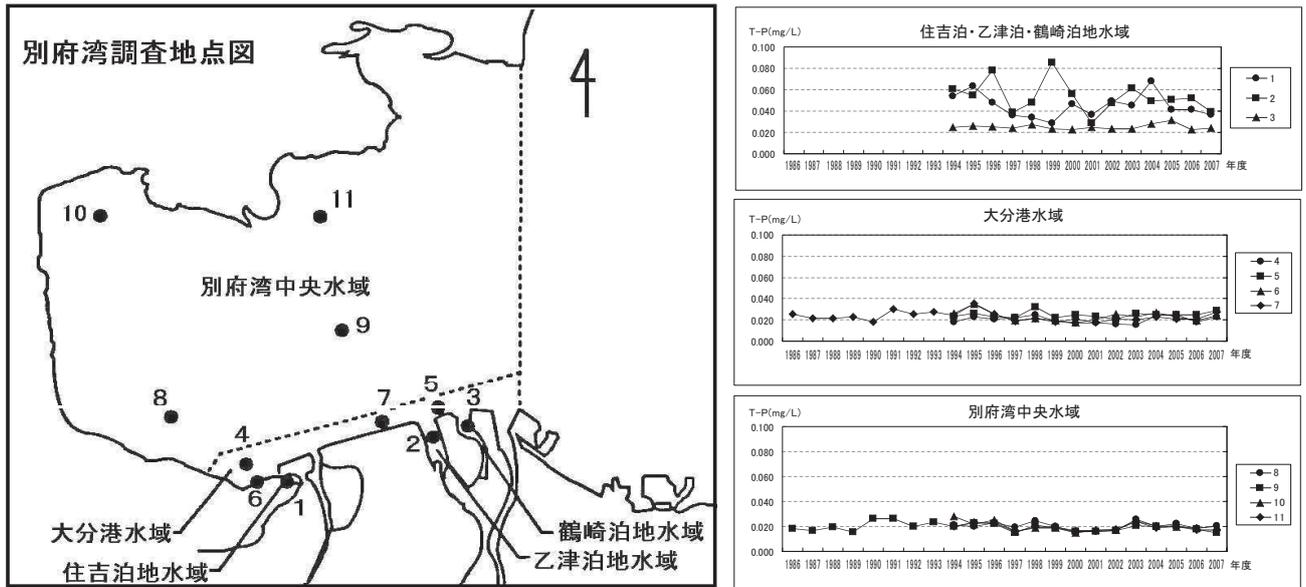


図3 別府湾における磷の測定値の経年変化

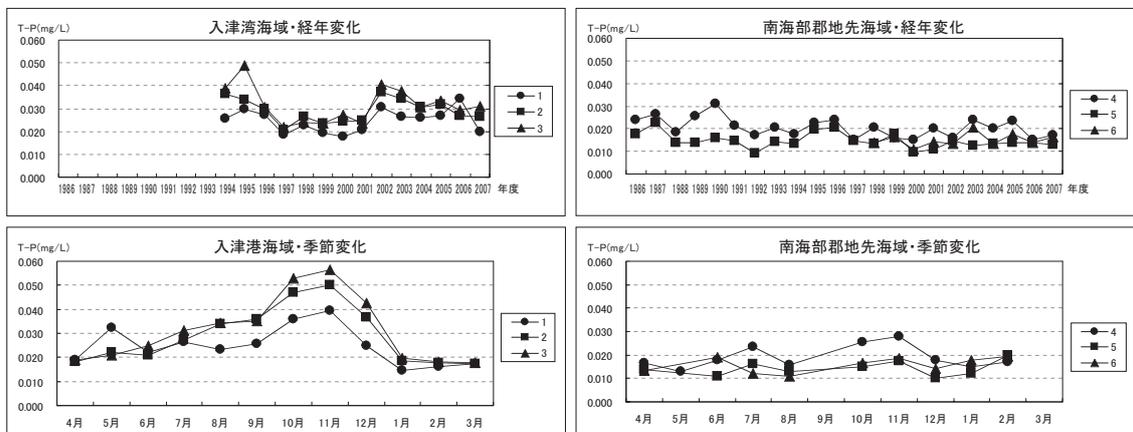
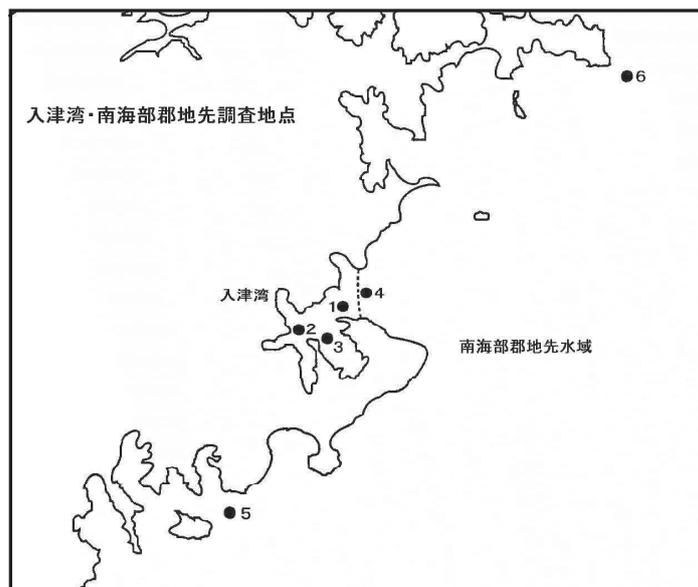


図4 入津湾水域及び南海部郡地先水域における磷の測定値の経年・季節変化