

# 大分県衛生環境研究センター年報

平成 23 年度

第 39 号

Annual Report

of

The Oita Prefectural Institute of Health and Environment

2011

大分県衛生環境研究センター



---

# 大分県衛生環境研究センター一年報

平成 23 年度

第 39 号

---



## はじめに

今年、1992年にブラジルのリオデジャネイロで開催された地球サミットからちょうど20年を迎えます。

この間、日本ではダイオキシン対策や酸性雨等の様々な環境問題に取り組んできましたが、昨年3月の東日本大震災に伴う福島第一原子力発電所の事故により、今後は環境放射能の長期にわたるモニタリングが必要になるものと思われます。

当センターにおいても、原子力発電所の事故直後から環境中の放射能調査監視体制の強化に努め、行政機関と緊密な連携のもとに、県民への迅速かつ確かな情報発信を行ってきました。また、文部科学省のモニタリング計画に基づき、平成23年度にモニタリングポスト(1基→5基)やゲルマニウム半導体検出器(1台→2台)等を増設し、県内の環境放射能モニタリング体制を強化したところです。

一方、感染症や食品衛生等の業務では、平成21年の新型インフルエンザ、22年の口蹄疫・鳥インフルエンザなど、毎年、県民の安全と安心を脅かす事例が多発しています。

また、本県を代表する水産物である養殖ヒラメの寄生虫 *kudoa septempunctata* が食中毒の原因となったことから、農林水産研究指導センターと協力して検査体制の確立と予防対策等にも取り組んできました。

このような状況に的確に対応するためには、迅速かつ信頼性のある試験検査結果の提供に加えて県民の安全と安心及び検査効率の向上につながる調査研究等が求められます。

当センターとしては、日々、技術の研鑽等、努力するとともに、ここ数年にわたる団塊世代の退職により、研究員の年齢構成の偏りが顕著になってきたことから、若手職員の人材育成を目的とした技術研修をより充実させるなどして対応しているところです。

今後も、健康及び環境危機管理に迅速・的確に対応できる試験検査技術の確保と保健・衛生及び環境分野における科学的、技術的根拠を提供する中核機関としての役割を果たすために、職員が一人丸となって諸課題に対応してまいりますので、皆様のより一層のご指導を賜りますようお願い申し上げます。

ここに当センター年報第39号がまとまりましたのでお届けします。

この年報は、平成23年度の試験検査及び調査研究業務を中心にとりまとめたものです。ご高覧のうえ忌憚のないご意見ご提言をお寄せいただければ幸いに存じます。

平成24年12月

大分県衛生環境研究センター

所長 井上昭二



# 目 次

1	沿 革	1
2	組織及び分掌事務	1
3	職 員	2
4	施 設	3
5	経理執行の状況	3
6	主 要 機 器	6
7	業 務 概 要	9
8	研 修 状 況	18
9	調 査 研 究	19
	(1) 報 文	
	1) 大分県におけるマダニの分布状況及びマダニからのリケッチアの検出（第2報）	19
	2) 河川水中のダイオキシン類濃度特性について（第4報）	23
	3) 異性体指標法による河川水中ダイオキシン類発生源寄与の推算について	30
	(2) 調査・事例	
	1) LC/MS/MS による食品中の保存料及び甘味料の一斉分析	41
	2) 畜水産物における残留農薬一斉分析法の検討	48
	3) 食品添加物の収去検査結果（2007～2011年度）について	60
	4) 大分県における浴用水中のレジオネラ属菌の検出状況（2011年度）	64
	5) 大分県における大気中の硫酸イオン濃度調査（2011年度）	69
	6) 久住地域における乾性沈着物中のイオン成分の特性について（2011年度）	74
	7) 大分県におけるモニタリング強化時の環境放射能水準調査	84
	8) 由布地域の環境大気調査（2011年度）	92
	(3) 資 料	
	1) 食品の理化学的検査結果について（2011年度）	105
	2) 九州地方における臨床由来溶血レンサ球菌の血清型の推移と 薬剤感受性について（2011年）	108
	3) 大分県における細菌性下痢症サーベランスの動向（2011年）	116
	4) 感染症発生動向調査からみたウイルスの流行状況（2011年）	120
	5) 感染症流行予測調査について（2011年度）	123
	6) 食品の微生物学的検査成績について（2011年度）	124
	7) 大分県における雨水成分調査（2011年度）	127
	8) 大分県沿岸域における海水温等の変動傾向について	141
	9) 大分県における温泉の泉質について —温泉法改正に伴う温泉水再分析結果について—	144
10	学 会 発 表 等	151

## CONTENTS (Research)

(1) Original	
1) The Distribution of Ticks in Oita Prefecture and Detection of Rickettsiae from the Ticks (II) .....	19
2) Characteristics of Dioxins in River Waters (IV) .....	23
3) Estimation of Pollution Sources of Dioxins in River Waters Using Indicative Congeners .....	30
(2) Report and Case Study	
1) Simultaneous Determination of Preservatives and sweeteners in Foods with LC/MS/MS .....	41
2) Investigation of Simultaneous Determination Method of Pesticide Residues to Livestock and Marine Products .....	48
3) The Survey of the Food Additives, 2007 ~ 2011 .....	60
4) Isolation of <i>Legionella</i> Species from Public Bath Water in Oita Prefecture, 2011 .....	64
5) Survey of Sulfate Ion in the Atmosphere at Oita Prefecture, 2011 .....	69
6) Properties of Ionic Component in the Dry Deposition at Kuju Area, 2011 .....	74
7) The Report of Environmental Radioactivity at Strengthening Monitoring in Oita Prefecture .....	84
8) Survey of Air Pollution at Yufu Area, 2011 .....	92
(3) Technical Data	
1) Chemical Examination of Distribution Foods in Oita Prefecture, 2011 .....	105
2) Serotype and Drug Susceptibility of Group A Hemolytic Streptococci Isolated in Kyushu Area, 2011 .....	108
3) Trend of Bacterial Diarrhea Surveillance in Oita Prefecture, 2011 .....	116
4) Report on Isolation of Viruses in Oita Prefecture, 2011 .....	120
5) Surveillance of Vaccine-preventable Diseases, 2011 .....	123
6) Microbiological Examination of Foods, 2011 .....	124
7) Ion Components of Rainwater in Oita Prefecture, 2011 .....	127
8) Trends of the Seawater Quality on the Coast of Oita Prefecture .....	141
9) The Quality of the Hot Springs of Oita Prefecture	
-Regarding the Hot Spring Water Reanalysis Results Associated with the Hot Spring Law Revision- .....	144



# 1

## 沿革

- |          |  |          |   |
|----------|--|----------|---|
| 昭和26年 7月 | 予防、環境及び業務の3課に属していた各試験室を統合し、大分県衛生研究所として発足した。  | 昭和52年 4月 | 組織改正により細菌部が微生物部となった。  |
| 昭和28年 8月 | 大分市寿町に独立した新庁舎が完成した。  | 昭和62年 5月 | 組織改正により化学部に理化学科と食品衛生科、微生物部に細菌科とウイルス科、大気部に大気科と情報調査科、水質部に水質科と環境生物科を新設して、10部1課8科制となった。                   |
| 昭和29年10月 | 組織改正により庶務及び試験検査2係制となった。  | 平成 3年 5月 | 衛生環境研究センターに名称が改められ、組織改正により5部及び全科が廃止され、管理部が管理情報部となり、管理課及び企画情報課を設け、技術部門の化学部、微生物部、大気部及び水質部と併せて5部2課制となった。 |
| 昭和33年 4月 | 組織改正により化学試験及び細菌検査の2課制となった。   | 平成12年 3月 | 特定化学物質分析棟が完成した。   |
| 昭和41年 4月 | 組織改正により庶務、化学試験及び細菌検査の3課制となった。  | 平成12年 4月 | 組織改正により管理情報部が管理部となり、企画情報課が廃止され、新たに企画・特定化学物質部を設け、6部1課制となった。  |
| 昭和45年 4月 | 組織改正により化学試験課及び細菌検査課がそれぞれ部に昇格した。  | 平成14年 4月 | 組織改正により管理課が廃止され、6部制となった。  |
| 昭和45年 7月 | 大分市大字曲 芳河原団地に新庁舎が完成した。   | 平成15年 3月 | 大分市高江西2丁目8番に新庁舎が完成し、芳河原団地から移転した。  |
| 昭和46年 5月 | 機構改革により大分県衛生研究所に公害検査部を新設し、1課3部制となった。また、県下の試験研究機関が、公害に関して有機的連携が図られるよう機構が改められ、大分県公害センターが発足し、6部制となり、各試験研究機関の専門者が部長兼務として発令された。 | 平成18年 4月 | 組織改正により6部制が廃止され、企画・管理担当、化学担当、微生物担当、大気・特定化学物質担当及び水質担当の5担当制となった。  |
| 昭和48年 3月 | 大分市大字曲 芳河原団地に公害センター庁舎が完成した。  |          |   |
| 昭和48年 4月 | 機構改革により10部1課制となり、大分県公害衛生センターとして発足した。   |          |   |

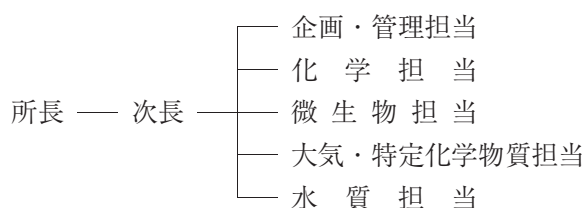
# 2

## 組織及び分掌事務

### (1) 組織

#### 組織

平成24年4月1日現在



### (2) 分掌事務

#### ○企画・管理担当

- 1 公印の管守に関する事
- 2 文書の収受、発送、編集及び保存に関する事
- 3 職員の身分及び服務に関する事
- 4 庁舎の維持及び管理に関する事
- 5 予算の執行に関する事
- 6 現金、有価証券及び物品の出納命令に関する事

- 7 諸収入の徴収に関する事
- 8 県有財産の維持及び管理に関する事
- 9 衛生及び環境情報の収集及び解析に関する事
- 10 検査及び分析並びに調査研究の調整に関する事
- 11 衛生及び環境教育の技術指導の企画並びに調整に関する事
- 12 研修指導並びに精度管理の企画並びに調整に関する事
- 13 衛生及び環境に係る広報に関する事
- 14 その他、他の担当の所掌に属しない事

○化学担当

- 1 医薬品、毒物、劇物等の試験検査に関する事
- 2 食品衛生及び環境衛生の試験検査に関する事
- 3 衛生化学に係る調査研究に関する事
- 4 食品衛生検査等に係る業務管理に関する事
- 5 衛生化学的試験検査技術の研修及び指導並びに精度管理に関する事

○微生物担当

- 1 病原微生物の試験検査に関する事
- 2 血清学的検査に関する事
- 3 感染症に係る疫学的試験検査に関する事
- 4 食品衛生及び環境衛生に係る微生物学的検査に関する事
- 5 微生物学に係る調査研究に関する事
- 6 食品衛生検査等に係る業務管理に関する事

- 7 微生物学的試験検査技術の研修及び指導並びに精度管理に関する事

○大気・特定化学物質担当

- 1 ばい煙及び粉じんの分析及び解析に関する事
- 2 環境大気の測定、分析及び解析に関する事
- 3 ばい煙発生施設における排ガス並びに燃料の測定及び解析に関する事
- 4 悪臭物質の測定、分析及び解析に関する事
- 5 環境放射能の測定、分析及び解析に関する事
- 6 大気汚染に係る環境の常時監視に関する事
- 7 特定化学物質の分析及び解析に関する事
- 8 大気汚染及び特定化学物質に係る調査研究に関する事
- 9 大気汚染及び特定化学物質の試験検査技術の研修及び指導並びに精度管理に関する事

○水質担当

- 1 公共用水域の水質の分析及び解析に関する事
- 2 工場排水等の水質の分析及び解析に関する事
- 3 水質に係る有害物質の分析に関する事
- 4 水質の生物学的検査に関する事
- 5 汚泥、底質等の調査及び分析に関する事
- 6 廃棄物に係る有害物質の分析に関する事
- 7 温泉の分析に関する事
- 8 水質汚濁に係る調査研究に関する事
- 9 水質環境の試験検査技術の研修及び指導並びに精度管理に関する事

3

職員

職員配置表

平成24年6月1日現在

組織別	種別	事務吏員	技術吏員	非常勤嘱託	臨時職員	計	備考
所長			1			1	
次長		1	1			2	
企画・管理担当		3		2	1	6	
化学担当			4	2	2	8	
微生物担当			7	1		8	
大気・特定化学物質担当			6	1	1	8	
水質担当			6	1	1	8	
計		4	25	7	5	41	

## 4

## 施 設

○所在地

大分市高江西2丁目8番

○敷地面積

13,238.82㎡

○建物構造面積

①研究棟

鉄筋コンクリート 3階建

面 積 2,284.91㎡ (延面積5,255.35㎡)

②附属棟

設備棟、車庫、倉庫等

延床面積 (合計) 367.54㎡

○完工期日

平成15年2月10日

○工事費総額

2,038,190千円

## 5

## 経理執行の状況

(1) 平成23年度歳入調書

(単位：円)

科 目	調 定 額	収 入 済 額	収 入 未 済 額
(款) 使用料及手数料	304,013	304,013	0
(項) 使 用 料	83,153	83,153	0
(目) 総務使用料	83,153	83,153	0
(節) 庁舎等使用料	83,153	83,153	0
(項) 手 数 料	220,860	220,860	0
(目) 保健環境手数料	0	0	0
(節) 衛生免許試験その他手数料	0	0	0
(目) 証紙収入	220,860	220,860	0
(節) 証紙収入	220,860	220,860	0
(款) 財 産 収 入	525,000	525,000	0
(項) 財産売払収入	525,000	525,000	0
(目) 物品売払収入	525,000	525,000	0
(節) 物品売払収入	525,000	525,000	0
(款) 諸 収 入	475,756	475,756	0
(項) 受託事業収入	316,810	316,810	0
(目) その他受託事業収入	316,810	316,810	0
(節) 大気分析調査事業分	0	0	0
(節) 衛生試験検査事業分	316,810	316,810	0
(項) 雑 入	158,946	158,946	0
(目) 雑 入	158,946	158,946	0
(節) 健康対策課所属	0	0	0
(節) 環境保全課所属	8,745	8,745	0
(節) 生活環境企画課所属	150,201	150,201	0
合 計	1,304,769	1,304,769	0

## (2) 平成23年度歳出調書

予算主務課 目名		人 事 課		福祉保健 企画課	健康対策課	医療政策課	生活環境企画課		
		職員厚生費	人事管理費	社会福祉 総務費	予防費	薬務費	温泉費	センター費	公害対策費
報	酬	268,800						12,011,500	
共	済 費							3,194,647	
賃	金							7,553,587	
報	償 費							43,000	
旅	費				329,460	54,140	65,000	3,079,302	
交	際 費								
需	用 費	6,000	87,780	35,333	8,623,520	146,000	363,000	22,640,386	22,500
	食 糧 費		2,000						22,500
	その他需用費	6,000	85,780	35,333	8,623,520	146,000	363,000	22,640,386	
役	務 費				120,000			1,379,583	
委	託 料							14,645,575	
使	用 料 及 賃 借 料							78,400	20,000
工	事 請 負 費								
備	品 購 入 費							18,287,518	
負	担 金 補 助 及 交 付 金							347,450	
公	課 費							60,400	
合	計	274,800	87,780	35,333	9,072,980	200,140	428,000	83,321,348	42,500
予 算 執 行 の 状 況	令 達 予 算 額	274,800	87,780	35,333	9,072,980	200,140	428,000	83,321,348	42,500
	支 出 済 額	274,800	87,780	35,333	9,072,980	200,140	428,000	83,321,348	42,500
	予 算 残 額	0	0	0	0	0	0	0	0

(単位：円)

環境保全課	廃棄物 対策課	食品安全・衛生課		漁業管理課	水産振興課	土木建築企画課		計
		食品衛生 指導費	環境衛生 監視費	水産振興費	水産振興費	企画調査費	港湾管理費	
								12,280,300
213,000								3,407,647
1,451,933								9,005,520
								43,000
1,372,765	51,000	435,390	54,320	67,450				5,508,827
								0
25,365,000	4,500,000	12,424,000	0	463,600	288,761	150,000	276,000	75,391,880
								24,500
25,365,000	4,500,000	12,424,000		463,600	288,761	150,000	276,000	75,367,380
378,454								1,878,037
21,316,837		5,147,310						41,109,722
152,142								250,542
								0
23,759,610								42,047,128
								347,450
								60,400
74,009,741	4,551,000	18,006,700	54,320	531,050	288,761	150,000	276,000	191,330,453
74,009,741	4,551,000	18,006,700	54,320	531,050	288,761	150,000	276,000	191,330,453
74,009,741	4,551,000	18,006,700	54,320	531,050	288,761	150,000	276,000	191,330,453
0	0	0	0	0	0	0	0	0

## 6

## 主要機器

## (1) 化学担当

品目	取得年月日	メーカー	型式	備考
蛍光分光光度計	H 1. 2.14	日立製作所	F-2000	
自記分光光度計	H 2. 1.10	日立製作所	U-3210	
ガスクロマトグラフ	H 6.12. 6	(株)島津製作所	GC-14BP	ECD,FID
ガスクロマトグラフ	H 8.11.27	ヒューレットパッカード社	HP-6890	NPD,FID
ガスクロマトグラフ質量分析装置	H 9. 2.24	ヒューレットパッカード社	HP6890 MSD	
高速液体クロマトグラフ	H10. 1.29	ヒューレットパッカード社	HP-1100	
ガスクロマトグラフ	H14. 2.19	(株)島津製作所	GC-2010	FPD,FTD
高速液体クロマトグラフ質量分析装置	H15. 3.16	アプライドバイオシステムズ社	API-2000	
ICP 発光分光分析装置	H15.12.15	日本ジャーレルアッシュ(株)	IRIS Intrepid II XSP DVO	
質量分析装置(高速液体クロマトグラフ用)	H17. 2. 1	日本ウォーターズ(株)	ZQ2000	
ガスクロマトグラフ質量分析計	H18. 2.10	アジレントテクノロジー	Agilent 5975 inert MSD	
高速液体クロマトグラフ装置(MS/MS・PDA)	H21. 9. 7	アジレントテクノロジー	HPLC1200 MS/MS6460A	MS/MS,PDA
有機化合物クリーンアップ GPC システム	H21.12.18	ジーエルサイエンス(株)	G-PREF GPC8100single	

## (2) 微生物担当

品目	取得年月日	メーカー	型式	備考
万能写真顕微鏡	S 61. 9. 1	日本光学工業	MICROPHOT-FX-2	
バイオハザード対策システム	S 63. 3.28	新興精機	特注	P3
パルスフィールド泳動装置	H10. 3.31	日本バイオラッドボラトリズ	CHEF-DR III チラーシステム	
蛍光微分干渉顕微鏡	H10. 9. 1	(株)ニコン	E8-FL-DIC	
遺伝子増幅装置	H12. 8. 2	MJ RESEARCH	RCT-225DNA エンジンテトラッド	
電子顕微鏡	H15. 3.27	日本電子	JEM-1230,JSM-6360LV	
リアルタイム PCR 装置	H17.12.26	ロッシュ・ダイアグノスティックス	Light Cycler DX400	
遺伝子取り込み・解析装置	H19.11.26	バイオ・ラッドラボラトリーズ(株)	GelDocXR/WindowsP	
ジェネティックアナライザ	H20.12.25	アプライドバイオシステムズジャパン(株)	3130 xl-100	
遺伝子増幅装置	H21.10. 1	日本バイオラッドボラトリズ	PTC-240	
パルスフィールド泳動装置	H21.10. 1	日本バイオラッドボラトリズ	CHEF-DR III チラーシステム	
リアルタイム PCR 装置	H21. 9.24	アプライドバイオシステムズジャパン(株)	StepOnePlus-01	
超高速遠心機一式	H22. 3.16	日立工機株式会社	CW80WX	

## (3) 大気・特定化学物質担当

品目	取得年月日	メーカー	型式	備考
位相差顕微鏡	S 63. 8. 8	カールツァイス		
硫黄分析計	H 2.12. 5	理学電機工業(株)	サルファ X	
分光光度計	H 3. 3.30	日立(株)	U-2000	
高速液体クロマトグラフ	H10.11.15	ヒューレットパッカード社	HP-1100	
自動ソックスレー抽出装置	H12. 2.10	柴田科学(株)	B-811	3台
自動ソックスレー抽出装置	H15. 6.13	柴田科学(株)	B-811	
高分解能ガスクロマトグラフ質量分析装置	H12. 3.15	日本電子(株)	JMS-700D	
気中水銀測定装置	H12.10.24	日本インスツルメンツ(株)	マーキュリー WA-4	
イオンクロマトグラフ	H15. 3.20	日本ダイオネックス(株)	DX-120	
VOC分析用前処理装置	H19. 3.16	エンテック社	7100A/4600A/3100A	
ガスクロマトグラフ質量分析装置	H19.12.28	アジレント・テクノロジー(株)	Agilent 5975C MSD	
ガスクロマトグラフ(悪臭等分析装置)	H21.11.27	アジレント・テクノロジー(株)	7890A	FPD,FID
超純水製造装置	H23. 9.28	アドバンテック東洋(株)	RFU665DA、RFP742HA	
大気汚染観測用コンテナ	S 61. 8.15	矢野特殊自動車	特注	別府青山中学校設置
校正用ガス調製装置	H10.12. 2	電気化学計器(株)	CGS-12型	
大気汚染観測用コンテナ	H12. 3.31		特注	西部振興局設置
硫黄酸化物・浮遊粒子状物質測定装置	H14. 3.29	東亜ディーケーケー(株)	GFS-256	津久見市役所設置
窒素酸化物測定装置	H15. 3.28	東亜ディーケーケー(株)	GLN-254	南部振興局設置
窒素酸化物測定装置	H16. 3.12	東亜ディーケーケー(株)	GLN-254	津久見市役所設置
窒素酸化物測定装置	H16. 3.12	東亜ディーケーケー(株)	GLN-254	白杵市役所設置
硫黄酸化物測定装置	H16. 3.12	東亜ディーケーケー(株)	GFS-212J	大気環境測定車に搭載
一酸化炭素測定装置	H16. 3.12	東亜ディーケーケー(株)	GIA-272H(S)	大気環境測定車に搭載
オキシダント測定装置	H16. 3.12	東亜ディーケーケー(株)	GUX-213J	大気環境測定車に搭載
データ収録処理装置	H16. 3.12	東亜ディーケーケー(株)	DNS309(S)	大気環境測定車に搭載
浮遊粒子状物質測定装置	H16. 3.12	東亜ディーケーケー(株)	DUB-222	大気環境測定車に搭載
窒素酸化物測定装置	H16. 3.12	東亜ディーケーケー(株)	GLN-214J	大気環境測定車に搭載
大気環境測定車	H16. 3.17	日産	キャラバン LC-VPE25	
オキシダント測定装置	H18. 1.25	東亜ディーケーケー(株)	GUX-253	日出町鷹匠設置
オキシダント測定装置	H18. 1.25	東亜ディーケーケー(株)	GUX-253	西部振興局設置
硫黄酸化物・浮遊粒子状物質測定装置	H18. 6.30	東亜ディーケーケー(株)	GFS-256	西部振興局設置
窒素酸化物測定装置	H18.12. 8	東亜ディーケーケー(株)	GLN-254	別府青山中学校設置
窒素酸化物測定装置	H19.10. 2	東亜ディーケーケー(株)	GLN-254	西部振興局設置
硫黄酸化物・浮遊粒子状物質測定装置	H19.10. 2	東亜ディーケーケー(株)	GFS-256	別府青山中学校設置
オキシダント測定装置	H21. 3.27	東亜ディーケーケー(株)	GUX-353	別府青山中学校設置
オキシダント測定装置	H21. 3.27	東亜ディーケーケー(株)	GUX-353	中津総合庁舎設置
硫黄酸化物・浮遊粒子状物質測定装置	H21. 3.27	東亜ディーケーケー(株)	GFS-327	白杵市役所設置
窒素酸化物測定装置	H21. 3.27	東亜ディーケーケー(株)	GLN-354	日出町鷹匠設置
硫黄酸化物・浮遊粒子状物質測定装置	H21. 5.29	東亜ディーケーケー(株)	GFS-312	豊肥保健所設置
窒素酸化物測定装置	H21. 5.29	東亜ディーケーケー(株)	GLN-354	豊肥保健所設置
オキシダント測定装置	H21. 5.29	東亜ディーケーケー(株)	GUX-313	豊肥保健所設置
硫黄酸化物・浮遊粒子状物質測定装置	H22. 2.10	東亜ディーケーケー(株)	GFS-327	南部振興局設置
オキシダント測定装置	H22. 3.10	東亜ディーケーケー(株)	GUX-353	白杵市役所設置
オキシダント動的校正装置	H22. 1.20	東亜ディーケーケー(株)	GUX-313,OZ-200	
オキシダント測定装置	H23.10.31	東亜ディーケーケー(株)	GUX-353	南部振興局設置
オキシダント測定装置	H23.10.31	東亜ディーケーケー(株)	GUX-353	津久見市役所設置
硫黄酸化物・浮遊粒子状物質測定装置	H23. 3.31	東亜ディーケーケー(株)	GFS-327	日出町鷹匠設置
窒素酸化物測定装置	H23. 3.31	東亜ディーケーケー(株)	GLN-354	中津総合庁舎設置
硫黄酸化物・浮遊粒子状物質測定装置	H24. 3. 8	東亜ディーケーケー(株)	GFS-327	中津総合庁舎設置
電気炉	H15. 2.28	アドバンテック東洋(株)	KM-1000S	文部科学省備品
γ線核種分析ソフト及びデータ処理装置	H19. 9. 7	キャンベラジャパン(株)		文部科学省備品
液体窒素蒸発散防止装置	H19.11.30	キャンベラジャパン(株)	CA201	文部科学省備品
ベータ線自動測定装置	H20.10.15	アロカ(株)	JDC-3201	文部科学省備品
モニタリングポスト	H21.10. 1	アロカ(株)	MAR-22	文部科学省備品
γ線核種分析装置(Ge半導体検出器)	H23. 3.25	キャンベラジャパン(株)	GC3018	文部科学省備品
γ線核種分析装置	H24. 3. 9	キャンベラジャパン(株)	GC3018	文部科学省備品
モニタリングポスト	H24. 3.27	日立アロカメディカル(株)	MAR-22	文部科学省備品、4台

## (4) 水質担当

品 目	取得年月日	メーカー	型 式	備 考
携帯型ラドン計	S 60. 8.23	EDA 社	RD-200	
自記分光光度計	H 1.12.25	日本分光工業(株)	Ubest-50	
分光光度計	H 4. 1.27	ブラン・ルーベ(株)	UV- II 型	
超音波ネブライザー	H 7. 9.13	日本ジャーレルアッシュ(株)	U-5000AT	
元素分析計	H 7.11.22	ヤナコ分析工業(株)	MT-5	
分光光度計	H 8.10.30	日本分光工業(株)	V-550DS	
ICP 質量分析装置	H11. 3.23	横河アナリティカルシステムズ(株)	HP-4500	
高速液体クロマトグラフ	H12. 2. 9	日立製作所	L-7000	電気伝導度計
冷却高速遠心機	H13. 1.15	コクサン	H-2100M <sub>2</sub>	
水分析用自動固相抽出装置	H13. 1.23	ジーエルサイエンス	ASPE-599	
ICP 発光分光分析装置	H15.12.15	サーモエレクトロン(株)	IRI SIntrepid II XSP	
ガスクロマトグラフ質量分析計	H19. 3.29	日本電子(株)	JMS-Q1000GC (GC/MS/EI)	ヘッドスペースオートサンプラー付
原子吸光分析装置	H19. 3.30	サーモエレクトロン(株)	SOLAAR S-2	水素化物発生装置付き
還元気化水銀測定装置	H19.11.14	日本インストルメント(株)	マーキュリー RA-3320	
ガスクロマトグラフ質量分析計	H19.11.15	日本電子(株)	JMS-Q1000GC	
pH自動測定器	H20.11.13	東亜ディーケーケー(株)	MM-60R 型他	多検体pH、EC測定装置
全有機態炭素分析計	H20.12. 9	(株)島津製作所	TOC-V <sub>CHS</sub>	
ガスクロマトグラフ分析計	H20.12.15	アジレント・テクノロジー社	7890GC (ECD)	ECD検出器
水質自動分析計(オートアナライザー)	H21. 9.30	ビーエルテック(株)	SWAAT,QuAAtro2-HR	分光光度計付き
ICP 質量分析装置	H22.12.22	サーモサイエンティフィック	X シリーズ 2	
イオンクロマトグラフ	H23.11. 8	ダイオネックス(株)	ICS1600	電気伝導度計



**(1) 企画・管理担当**

企画・管理担当は、予算執行等の管理的業務とともに、調査研究に関する総合調整及び評価、衛生及び環境教育の技術指導に関する企画・調整、衛生及び環境情報の収集及び解析、研修指導及び精度管理に関する企画・調整、衛生及び環境に係る広報等を主な業務としている。

これらの業務の概要は、次のとおりである。

**ア 調査研究の調整及び評価**

センターで実施する調査研究の総合調整をするとともに、提出された新規課題、継続課題、終了課題について、それぞれ評価要綱に基づき内部評価、外部評価を実施した。また終了課題について結果報告会を行った。

**イ 環境・衛生教育**

環境月間に地元の小学校3年生を対象に、実習や施設見学を通して環境や健康の大切さを学ぶ体験学習を行った。

また、各種団体からの依頼による体験学習や実技研修の受け入れも行った。

**ウ 情報の整備**

所内LANを構築し、同時に複数のクライアントからサーバ上のデータを利用することができるようになり、業務の効率化が図られている。

関係担当において、これまでに次のシステムを開発し、これらのシステムの改良やデータの更新等の運用・管理が行われている。

- ①温泉情報データベース
- ②公共用水域水質測定管理
- ③地下水水質測定管理
- ④大気常時測定結果管理
- ⑤酸性雨測定結果管理
- ⑥図書管理
- ⑦備品管理
- ⑧関係機関住所録
- ⑨公用車予約管理
- ⑩地方衛生研究所業績集検索
- ⑪会議室・分析機器の予約管理

**エ 広報**

広報誌「衛生環境研究センターだより」は、トピックスとして「大分県内の環境放射能レベルは安全・安心」及び「かび毒の一種であるアフラトキシンの指標が変わりました」、調査研究の紹介として「野鳥の鳥インフルエンザ調査」並びに機器の整備状況などの内容を掲載しており、県内各保健所、市町村等関係機関に配布した。

また、衛生環境研究センターのホームページを運営し、当センターの施設や業務の紹介、感染症情報等について情報提供している。また、調査研究の課題及び外部評価結果、研修指導など時期に応じて速やかに更新を行った。

(URL<http://www.pref.oita.jp/soshiki/13002/>)

**(2) 化学担当**

化学担当は、食品衛生法、薬事法、有害物質を含む家庭用品の規制に関する法律などに基づく行政検査や依頼検査のほか、それぞれの分野に関連した調査研究、研修指導等を主たる業務としている。

これらの業務の概要は、次のとおりである。

**ア 食品衛生に関する業務****(ア) 行政検査**

食品衛生法に基づき食品安全・衛生課が策定した大分県食品衛生監視指導計画により、県特産食品、県内広域に流通する食品、輸入食品を重点に、以下の項目について、県下5ブロックの食品衛生監視機動班が収去・搬入した食品や食中毒、違反、苦情食品の検査を行う。

**a 残留農薬の検査**

県産或いは輸入野菜・果物等に残留する農薬について、残留基準に適合しているかどうかの検査を75検体で行った。また、一斉試験法の測定項目の拡大を随時検討し、現在では248項目296成分が測定可能である。

**b 動物用医薬品の検査（合成抗菌剤、抗生物質等）**

市販されている食肉、鶏卵、養殖魚介類等に残留する合成抗菌剤及び抗生物質等について、残留

基準に適合しているかどうかの検査を 162検体で行った。現在では 90項目108成分が測定可能である。

#### c 食品添加物

市販されている県産の漬物等について、合成保存料（安息香酸、ソルビン酸）や漂白剤、発色剤が食品添加物使用基準に適合しているかどうかの検査を 115検体で行った。

#### d アレルギー物質検査

アレルギー物質（乳、卵、小麦粉、そば、落花生、かに、エビ）を原材料で使用している場合は、その旨を表示しなければならないが、表示のないものについて、使用されていないかの検査を 50検体で行った。

前述の食品表示モニター業務委託事業による検査で、1件の違反事例があり、追って収去検査を行い、表示違反とした。

#### e カビ毒

輸入穀類や加工食品のカビ毒（アフラトキシン類）について残留基準に適合しているかどうかの検査を 10検体で行った。

### （イ）委託業務等

#### 貝類毒化モニタリング検査

漁業管理課からの委託を受け、年間計画に基づきヒオウギガイ、アサリ、カキ、イワガキ等について麻痺性貝毒の検査を 42検体行った。

### イ 家庭用品に関する業務

薬務室の行政検査として、有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律に基づき、市販の乳幼児用衣類おむつ、下着等を使用されているホルムアルデヒド、有機スズの残留量検査を 15検体について行った。

### ウ 薬事に関する業務

薬務室の行政検査として、健康食品中の医薬品成分や血液パック等の医療用具の溶出物試験について検査を行う。

### エ 食品衛生検査施設における検査等の業務管理 （GLP：Good Laboratory Practice）

内部点検標準作業書（SOP：Standard Operating Procedure）に基づき、信頼性確保部門責任者による内部点検を実施している。

### オ 外部精度管理

食品衛生外部精度管理事業として、食品薬品安全センター秦野研究所が実施している外部精度管理に参加し、シロップの食品添加物（ソルビン酸）、動物用医薬品（スルファジミジン）及び農薬3成分（マラチオン、クロルピリホス、フルトラニル）について精度管理を実施している。

表1 平成23年度業務実績（化学担当）

区 分		検 体 数	成 分 数
総 件 数		584	25,927
◎行 政 検 査			
食 品 衛 生	残 留 農 薬	75	11,611
	動 物 用 医 薬 品	162	8,307
	食 品 添 加 物	115	340
	ア レ ル ギ ー 物 質	50	50
	カ ビ 毒	10	40
	そ の 他	40	540
計		452	20,888
家 庭 用 品		15	45
小 計		467	20,933
◎委 託 業 務 検 査			
貝 毒 モ ニ タ リ ン グ ( 漁 業 管 理 課 )		42	42
小 計		42	42
◎調 査 研 究			
精 度 管 理		3	8
危 機 管 理 対 策			
食 品 添 加 物		60	780
残 留 農 薬		12	4,164
小 計		75	4,952

### (3) 微生物担当

微生物担当の業務は、細菌、ウイルス、リケッチア及び血清免疫学等に関する各分野の行政検査、委託業務検査、依頼検査、調査研究並びに検査技術の研修・指導などである。

行政検査では、感染症、食中毒、収去食品等の検査、公共用水域並びに海水浴場等の水質検査、及び保健所からの依頼による検査を行っている。

委託業務検査では、厚生労働省の感染症流行予測事業、大分市（中核市）との委託契約に基づく食品等の微生物学的検査を行っている。

依頼検査では、つつが虫病等の血清学的検査など

を行っている。

調査研究では、感染症・食中毒の疫学等に関する研究や、新しい検査方法の開発・導入に関する研究等に取り組んでおり、その一部は国や地方衛生研究所等との共同研究（分担研究、研究協力を含む）である。

研修・指導業務では、主に保健所の検査担当者を対象として検査実技等の研修を行うとともに、大分県試験検査精度管理事業実施要綱に基づき微生物部門の精度管理を実施している。また、大分県衛生環境研究センター研修生取扱要綱に基づき県内の臨床検査技師専門学校の臨地実習等を行っている。

このほか、大分県健康対策課に設置している大分

県感染症情報センターに関して、感染症情報の収集・解析・還元等の業務支援を行っている。

#### ア 感染症

「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」に基づき実施している大分県感染症発生動向調査事業における全数把握疾病では、2011年は結核310人、腸管出血性大腸菌感染症45人、腸チフス1人、つつが虫病11人、デング熱2人、レジオネラ症3人、アメーバ赤痢6人、ウイルス性肝炎1人、クロイツフェルトヤコブ病2人、劇症型溶血性レンサ球菌感染症1人、後天性免疫不全症候群7人、梅毒9人、破傷風1人、風しん2人、麻しん1人の報告があった。

当所では同調査事業の一環として、検査定点で採取した臨床検体からの原因微生物検索を行っており、細菌関係は主に溶血レンサ球菌感染症及び感染性胃腸炎の検体を検査している。溶血レンサ球菌感染症では、2011年は206検体を検査し、158検体（76.2%）からA群156株、B群1株、C群1株の溶血レンサ球菌を分離した。A群菌のT型別では、T-12型が24.0%と最も多く分離された。感染性胃腸炎では、2011年は58検体を調べ、35検体（60.3%）から39株の下痢起因細菌を検出した。その内訳はサルモネラ属菌21株、病原大腸菌7株、黄色ブドウ球菌4株、カンピロバクター4株、NAGビブリオ2株、エロモナス1株であった。ウイルス関係は、インフルエンザ様疾患、無菌性髄膜炎、感染性胃腸炎等の患者の検体469件の検査依頼があり、インフルエンザウイルスAH1pdm型78株、インフルエンザウイルスAH3型42株、インフルエンザウイルスB型32株、ライノウイルス32株、コクサッキーウイルスA6型30株など337株のウイルスを検出した。

ウイルス性胃腸炎の集団感染事例は1事例4検体を検査し、ノロウイルスGⅡ型を検出した。

#### イ 食中毒

微生物による食中毒が疑われた検査は27事例で、そのうち細菌関係は15事例を検査し、3事例から病原大腸菌（2事例）やウエルシュ菌（1事例）を検出した。ウイルス関係は23事例を検査し、9事例からノロウイルスを検出した。寄生虫関係は9事例を検査し、6事例からクドアやザルコシステイスを検出した。このうち腸管出血性大腸菌1事例、ノロウイルス1事例、ウエルシュ菌1事例の合計3事例

が、微生物を原因とする食中毒事件となった（大分市を除く）。

#### ウ 感染症流行予測事業等

厚生労働省の感染症流行予測事業に基づき、県産豚の血液による日本脳炎の感染源調査を行った。2011年のHI抗体陽性率50%突破時期は8月1日採血豚において認められた。日本脳炎ウイルスは、9月2日採血豚で初めて分離された。

#### エ インフルエンザ

2011年48週（11/28-12/4）から患者が増加し始め、2012年6週（2/6-2/12）にピークに達した後、18週（4/30-5/6）に終息する流行パターンを示した。2011年10月からの2012年4月までのウイルス検出状況は、AH3型100件、B型16件で、AH3型が主な原因ウイルスであった。

#### オ 食品検査

大分県食品衛生監視機動班等が収去した食品159検体について、食中毒起因菌及び抗生物質、二枚貝のノロウイルス等を検査した。食用肉では59件中27件から黄色ブドウ球菌、カンピロバクター、サルモネラ属菌が検出された。県産ミネラルウォーターは20件検査し、3検体から一般細菌が検出された。二枚貝は20件検査し、3件からノロウイルスが検出された。

#### カ 水の検査

水質汚濁防止法等に基づいて公共用水域、海水浴場、公衆浴場等の微生物検査を実施している。2011年度の総件数は366検体で、公共用水域の検査がその大部分を占めている。公衆浴場のレジオネラは、56検体を検査した。

#### キ 血清学的検査

##### （ア）リケッチアに対する抗体検査

本県におけるつつが虫病患者は例年10月から11月を中心に発生しているが、2011年度は疑い患者17人の検査依頼があり、7人が有意の抗体上昇を示して、つつが虫病と診断された。

##### （イ）HIV抗体等の検査

大分県HIV抗体検査実施要領に基づくHIV抗体の確定検査等を8件実施し、4件が陽性であった。

また、大分県B型肝炎感染防止対策実施要綱による保健所職員等のHBs抗原・抗体236件を検査した。2007年度からクラミジアとHCVの検査を大分県特定感染症検査事業として実施しているが、2011年度はクラミジア113件、HCV2件の検査を行った。

#### ク 調査研究

細菌関係では、厚生労働省科学研究費補助金により、分担研究として「レジオネラ対策に係る公衆

浴場等の効果的衛生管理手法に関する研究」を実施し、他に「アルコバクターの疫学調査」の2題の調査研究に取り組んだ。ウイルス・リケッチア関係では、「日本紅斑熱の疫学的研究」に取り組んだ。

#### ケ 研修指導

保健所や食肉衛生検査所の検査担当者を主体に、検査業務に関する実技研修や精度管理を実施した。また、臨床検査技師専門学校の臨地実習を行った。

表2 平成23年度業務実績（微生物担当）

区 分	検 体 数	成 分 数
項 目		
総 件 数	3,977	11,488
◎行政検査		
（病原体分離・同定・検出）		
感染症	1,052	5,433
食中毒	214	1,301
食品	171	602
水質検査	477	633
（血清検査）		
エイズ	5	20
B型肝炎	196	196
小 計	2,115	8,185
◎委託業務検査		
感染症流行予測調査	160	160
食中毒・食品・血清等（大分市）	7	33
小 計	167	193
◎依頼検査		
（血清検査）		
つつが虫病	17	170
飲用水	1	2
小 計	18	172
◎調査研究		
共同研究	1,054	2,109
感染症疫学調査研究	270	330
食中毒病原体調査研究	353	499
小 計	1,677	2,938

#### (4) 大気・特定化学物質担当

大気・特定化学物質担当は、大気汚染や特定化学物質、悪臭等の環境保全対策に資するため、法律に基づく規制物質等の調査分析を行うとともに、酸性雨や特定化学物質に関する調査研究、文部科学省の委託による環境放射能の調査などを行っている。

これらの業務の概要は、次のとおりである。

##### ア 有害大気汚染物質調査

大気汚染防止法に基づき、平成9年度から一般環境等における揮発性有機化合物（VOC）等の有害大気汚染物質についてモニタリング調査を行っている。平成23年度は、行政検査により5市の一般環境等において最大15項目の調査を行った。

##### イ 浮遊粉じん調査

浮遊粉じんによる大気汚染状況を把握するため、平成23年度は、行政検査により重金属成分等の調査を1市の固定発生源周辺で行った。

##### ウ 特定化学物質調査

ダイオキシン類対策特別措置法に基づき、平成12年度から環境大気、公共用水域水質（河川、海域及び湖沼）、底質（河川、海域及び湖沼）、地下水及び土壌中のダイオキシン類の分析を行っている。平成23年度は、ダイオキシン類対策特別措置法に基づく行政検査によるものが41検体であった。

##### エ 大気汚染の常時監視

大気汚染防止法に基づき、昭和46年度からテレメータシステムで監視を行っており、平成23年度は、大気汚染状況の常時監視を7市1町の8か所においてオンラインシステムで行っている。測定項目は、二酸化硫黄、窒素酸化物、浮遊粒子状物質、光化学オキシダント及び風向・風速である。

##### オ 交通環境・一般環境の大気測定調査

常時監視測定局が設置されていない道路沿道などの地域の有害大気汚染物質濃度（二酸化硫黄、窒素酸化物、浮遊粒子状物質、一酸化炭素、光化学オキシダント）の実態を把握するため、大気環境測定車により調査を行っている。平成23年度は、行政検査により4市1町で調査を行った。

##### カ 悪臭物質等調査

悪臭等防止対策の資料とするため、平成23年度は、行政検査により1町の旧産業廃棄物最終処分場におけるアンモニア、硫黄化合物等の調査を行った。

##### キ 国設酸性雨測定所の管理運営

酸性雨による大気汚染の実態を把握するため、環境省の委託を受け、平成6年度から、竹田市久住町の阿蘇くじゅう国立公園の区域内に設置された国設酸性雨測定所の管理運営を行っている。平成23年度も引き続き、同所における気象データの収集を行うと共に雨水のpH、電気伝導率（EC）測定と成分分析を行った。

また、平成22年3月にオゾン自動測定機が新たに設置され、翌4月から本格的にオゾンの測定を開始した。

##### ク 環境放射能調査

放射能のバックグラウンドを測定し、環境放射能の水準を把握するため、文部科学省の委託を受け、昭和62年度から調査を行っている。平成23年度も引き続き、定時降水中のβ線や、モニタリングポストにより空間放射線量率の測定を行うとともに、大気浮遊じん、降下物、土壌、野菜、牛乳等のγ線を測定し、環境中に存在する放射性核種の調査を行った。

なお、平成23年3月11日に発生した東北地方・太平洋沖地震に伴い福島第一原子力発電所からの放射性物質飛散事故の影響を把握するため、文部科学省の指示により3月12日から12月27日までの間、監視を強化した。

##### ケ 調査研究

PM2.5と光化学オキシダントの実態解明と発生源寄与に関し、平成22年度から地方環境研究所と国立環境研究所との共同研究に参加し、汚染実態の解明及び発生源寄与の評価を進めることとしている。

また、ダイオキシン類に関し、県内15の中小河川において、水質中のダイオキシン類を調査し、その挙動に関して調査研究を行っている。

さらに、酸性雨に関し、県内における酸性雨の実態と推移を把握し、発生メカニズムを解明することを目的として、大分市、日田市、竹田市久住町において昭和60年度から継続的に調査研究を行っているほか、平成21年度から硫酸塩調査について九州各県の共同調査や平成23年度からは乾性沈着物中のイオン成分調査について、全国環境研究所協議会の共同調査に参加している。

表3 平成23年度業務実績（大気・特定化学物質担当）

区 分 項 目	検 体 数	成 分 数
総 件 数	1,407	7,092
◎行政検査		
有害大気汚染物質調査	120	539
浮遊粉じん調査	12	60
ダイオキシン類調査	41	1,599
大気汚染常時監視	8	56
交通環境・一般環境調査	5	28
悪臭物質等調査	2	44
その他	90	260
小 計	278	2,586
◎委託業務検査		
酸性雨調査（環境省）	48	474
環境放射能調査（文部科学省）	858	2,028
小 計	906	2,502
◎調査研究		
酸性雨調査	111	1,094
ダイオキシン類調査	21	819
共同研究、共同調査	91	91
小 計	223	2,004

## (5) 水質担当

水質担当は、水質汚濁防止法、廃棄物及び清掃に関する法律、温泉法に基づく行政検査、委託業務検査、依頼検査並びに調査研究を主たる業務としている。

### ア 行政検査

(ア) 測定計画による調査（公共用水域及び地下水の水質調査）

公共用水域の水質測定は、昭和46年度から水質汚濁防止法に定める測定計画に基づいて実施している。平成23年度は県担当分の39河川54地点）、2湖沼6地点において生活環境項目（9項目）、健康項目（26項目）、要監視項目（22項目）、水生生物保全項目（4項目）、特定項目（1項目）、特殊項目（6項目）

及びその他項目（10項目）について年6～12回の測定を行った。

また、地下水の水質測定は、測定計画に基づき県担当分の69井戸において環境基準項目（26項目）、要監視項目（24項目）及びその他項目（6項目）について年1～2回の測定を行った。

(イ) 海水浴場水質調査

県下の主要海水浴場（年間利用者数が、おおむね1万人以上）の水質の現況を把握するとともに、その結果を公表して住民の利用に資することを目的として、昭和47年度から実施している。

平成23年度は4箇所について、微生物担当及び東部保健所と分担し、遊泳期間前2回、遊泳期間中1回調査を実施した。

#### (ウ) 工場・事業場排水監視調査

水質汚濁防止法及び瀬戸内海環境保全特別措置法に基づく規制対象工場・事業場の排水監視のため、水質測定を行っている。

平成23年度は、生活環境項目、健康項目等について、延234箇所の事業場排水について、234検体、1174成分の水質測定を行った。

#### (エ) 産業廃棄物処理施設等維持管理状況等調査

廃棄物及び清掃に関する法律に基づき県が指導・監督を行っている産業廃棄物処分場等の維持管理指導のため、水質測定を行っている。

平成23年度は、金属等の有害物質を中心に排出される放流水、浸透水及び地下水等について、255検体、3236成分の水質測定を行った。

#### (オ) 温泉資源監視基礎調査

平成13年度から、温泉資源の現状を把握し、実施してきた保護対策の効果を見守るために県が実施している温泉資源監視基礎調査事業に基づき、実施している。

平成23年度は、温泉資源を保護するために指定した保護地域等において12地点（大分市3、別府市3、日田市1、竹田市1、由布市3、九重町1）の泉源において、年1回、泉温、遊離二酸化炭素等の現地試験や試験室において密度、ナトリウム等の化学成分の試験を12検体、延べ480項目にわたる水質測定を行った。

#### (カ) その他

測定計画外の公共用水域・地下水の水質調査や土壌汚染対策にかかる調査等の分析を138検体、延べ1195成分の検査を行った。

### イ 委託業務検査

#### (ア) 瀬戸内海広域総合調査

瀬戸内海全域にわたって、ほぼ同時期に調査を行い瀬戸内海の水質状況を的確に把握するための調査で、環境省の委託を受け、昭和47年度から調査を行っている。

平成23年度も春季、夏季、秋季、冬季の年4回、14地点の表層水、底層水を現地船上において採水、水温等の測定、試験室で生活環境項目、クロロフィル-a、TOC、栄養塩類、プランクトン等を延べ116検体、2157項目の検査を行った。

#### (イ) 化学物質環境実態調査

環境リスクが懸念される化学物質について、特定化学物質の環境中への排出量の把握及び管理の改善の促進に関する法律の指定化学物質の指定、その他化学物質による環境リスクに係る施策について検討する際の暴露の可能性について判断するための基礎資料等とするための調査で環境省の委託を受け、平成2年度から調査を行っている。

平成23年度は秋季（11月）1回、大分川河口域の船上で採水、採底泥、水温の測定等、試験室で水中の過マンガン酸カリウム消費量等の一般項目を1検体9項目、底泥中の硫化物濃度3検体42項目、魚類の前処理、脂質量等3検体12項目の検査を行った。

なお、化学物質の分析は、環境省委託分析機関で実施した。

### ウ 依頼検査

#### (ア) 温泉分析

平成23年度は、一般からの依頼により現地試験・試験室試験を5検体166項目にわたり行った。

### エ 調査研究

#### (ア) 地球温暖化がもたらす日本沿岸域の水質変化とその適応策に関する研究

大分県の公共用水域水質測定結果（昭和50年度～平成21年度の30年間）中、欠測が少なく、測定水深、時刻、月日の変更が少沿岸域3地点の表層水温について、12ヶ月移動平均による単回帰分析及びダミー変数を用いた重回帰分析法によるトレンドを比較した。（詳細は、9 調査研究（3）資料8）（141頁）

#### (イ) 大分県における温泉の泉質について

温泉法改正に伴い温泉の再分析が必要となり、当センターで温泉の再分析をした20地点の泉質の変化を調査した。（詳細は、9 調査研究（3）資料9）（144頁）

#### (ウ) 産業廃棄物最終処分場における侵出水中の化学的酸素要求量（COD）の公定法と簡易測定法による測定結果の差異について

産業廃棄物最終処分場の現場でCODの測定を簡易検査法で実施した値と試験室で公定法で行った値に差異があるので、その原因を究明する水質調査を行った。



表4 平成23年度業務実績（水質担当）

区 分		検 体 数	成 分 数
項 目			
総 件 数		1,383	16,761
◎行政検査			
測定計画による調査		541	8,107
海水浴場調査		54	162
事業場監視調査		234	1,174
産業廃棄物処理施設等維持管理等調査		255	3,236
温泉分析	中分析試験	12	480
	うち飲用試験	(0)	(0)
	可燃性ガス測定	0	0
その他		138	1,195
小 計		1,234	14,354
◎委託業務検査			
瀬戸内海広域総合調査		116	2,157
化学物質環境実態調査		7	63
小 計		123	2,220
◎依頼検査			
温泉分析	中分析試験	5	166
	うち飲用試験	(0)	(0)
	可燃性ガス測定	0	0
小 計		5	166
◎調査研究			
水環境保全に関する研究		21	21
小 計		21	21

## 8

## 研修状況

## (1) 研修生の受入れ状況

研修名	所属	研修生	期間	担当
専門学校の臨地実習	大分県臨床検査技師専門学校	橋本 明穂	H23. 6. 1 ~ 6.30	微生物担当
食品中環境放射能分析法	(社)薬剤師会検査センター	炭本 悟朗 小柳 雅裕	H23. 6. 8 ~ H23. 6.15	大気・特定化学 物質担当
微生物検査研修会	東部保健所 豊肥保健所	鳥越ハルミ 高嶋 絵実	H23. 7. 4 ~ 7. 8	微生物担当
結核菌PCR法、分子疫学解析 (VNTR法)研修	佐賀県衛生薬業センター	吉原 琢哉	H23. 7. 7 ~ 7. 8	微生物担当
リアルタイムPCR研修	食肉衛生検査所	田代 潔子 三村純一郎	H23. 7.11	微生物担当
専門学校の臨地実習	大分県臨床検査技師専門学校	堀 裕美子	H23. 9. 1 ~ 9.30	微生物担当
公衆衛生獣医師インターンシップ	山口大学 東京農工大学	山中 恒星 中島 勝紘	H24. 3.30	微生物担当

## (2) 研修生派遣状況

研修内容	派遣先	派遣職員		期間
		所属	氏名	
環境放射能分析研修 (環境試料の採取及び前処理)	(財)日本分析センター	大気・特定化学 物質担当	酒盛 早美	H23. 4.25 ~ 4.28
特定機器分析研修Ⅱ	環境省環境調査研究所	化学担当	林 由美	H23. 5.16 ~ 5.27
環境放射能分析研修 (環境放射能分析・測定の入門)	(財)日本分析センター	大気・特定化学 物質担当	小野由加里	H23. 5.30 ~ 6. 3
ガスクロマトグラフ (ビギナーズコース)	日本電子株式会社	大気・特定化学 物質担当	伊賀上美紗	H23. 6.17
機器分析研修	環境省環境調査研究所	化学担当	幸 花苗	H23. 6.20 ~ 7. 1
イオンクロマトグラフ トレーニングコース (実用編、ワークステーションスクール)	日本ダイオネクス株式会社 九州営業所	大気・特定化学 物質担当	酒盛 早美	H23. 7.21 ~ 7.22
環境放射能分析研修 (ゲルマニウム半導体検出器による測定法)	(財)日本分析センター	大気・特定化学 物質担当	酒盛 早美	H23. 7.28 ~ 8. 5
ダイオキシン類環境モニタリング研修 (基礎課程)	環境省環境調査研究所	大気・特定化学 物質担当	伊賀上美紗	H23.11. 7 ~ 11.25
第28回分析化学基礎セミナー (無機分析編)	(社)日本分析化学会	大気・特定化学 物質担当	小野由加里	H23.11. 8
平成23年度【短期研修】細菌研修	国立保健医療科学院	微生物担当	佐々木麻里	H23.11.14 ~ 12. 2
環境大気常時監視技術講習会	(社)日本環境技術協会	大気・特定化学 物質担当	小野由加里	H23.11.17 ~ 11.18
水質分析研修	環境省環境調査研究所	水質担当	佐藤 洋子	H23.11.24 ~ 12. 9
ガスクロマトグラフカスタムトレーニング (Agilent7890/5975MSDオペレーション基礎及びメンテナンス基礎)	新川電機株式会社 分析カスタムセンター	大気・特定化学 物質担当	伊賀上美紗	H23.12. 6 ~ 12. 9
指定薬物分析研修	国立医薬品食品衛生研究所	化学担当	長谷川昭生	H24. 1.27
機器分析研修 (A コース)	環境省環境調査研究所	大気・特定化学 物質担当	酒盛 早美	H24. 2.13 ~ 2.24
機器分析研修 (B コース)	環境省環境調査研究所	大気・特定化学 物質担当	小野由加里	H24. 2.13 ~ 2.24
LC-MS/MSによる麻痺性貝毒の 分析方法研修	大阪市立環境科学研究所	化学担当	橋口 祥子	H24. 3. 5 ~ 3. 6

## (1) 報 文

- |   |    |
|---|----|
| 1) 大分県におけるマダニの分布状況及びマダニからのリケッチアの検出（第2報） | 19 |
| 2) 河川水中のダイオキシン類濃度特性について（第4報）            | 23 |
| 3) 異性体指標法による河川水中ダイオキシン類発生源寄与の推算について     | 30 |



## 大分県におけるマダニの分布状況及びマダニからのリケッチアの検出(第2報)

小河 正雄、加藤 聖紀、本田 顕子、田中 幸代

## The Distribution of Ticks in Oita Prefecture and Detection of Rickettsiae from the Ticks (II)

Masao Ogawa, Miki Kato, Akiko Honda, Sachiyo Tanaka

Key word : 日本紅斑熱 Japanese spotted fever, リケッチア ジャポニカ *Rickettsia japonica*, マダニ tick

## 要 旨

2008年から2011年にかけて国東市、杵築市、臼杵市、津久見市、佐伯市の5市7地点で旗振り法により3属5種284個体のマダニを採取した。マダニの種類は、フタトゲチマダニ、タカサゴチマダニ、キチマダニ、タカサゴキララマダニ、ヤマトマダニであり、優占種はフタトゲチマダニとタカサゴチマダニであった。全個体についてリケッチア遺伝子を検索したところ、フタトゲチマダニから高率(108/207個体)に紅斑熱群リケッチア遺伝子が検出され、大部分がLONであった。タカサゴキララマダニ4個体中2個体から *Rickettsia tamurae* の遺伝子が検出された。*Rickettsia japonica* は検出されなかった。

## はじめに

我が国で紅斑熱群リケッチア症の患者が最初に発見されたのは1984年、馬原らによってであり、日本紅斑熱と命名された<sup>1)</sup>。その病原体は *Rickettsia japonica* (以下、*R. japonica*) であり、マダニが保有し、ヒトを刺咬することによって感染する<sup>2)</sup>。症状は発熱、発疹、刺し口であり、つつが虫病と類似する。その後、日本のマダニ類からは *R. helvetica*<sup>3)</sup>、*R. tamurae*<sup>4)</sup> などのリケッチアが検出されており、ヒトへの病原性が疑われている。

日本紅斑熱患者は関東以西で増加傾向であり、九州でも近年、熊本県、鹿児島県、宮崎県、長崎県で毎年報告されている(図1、図2)。大分県では2004年に患者が1名報告されているが、その後報告は無く、病原体の分布は不明である。

我々は、日本紅斑熱の感染予防に資するため県内のマダニの種類、及び分布、リケッチアの保有状況を調査したので報告する。

## 材料及び方法

## 1 調査期間と調査地区

2008～2009年は、臼杵市佐志生、津久見市釜戸、佐伯市上浦町蒲戸崎の県南地域3ヶ所でマダニの採取を行った<sup>5)</sup>。2010年は杵築市藤川、国東市安岐町吉松中村、国東市国東町上小原の国東地域3ヶ所で、2011年は佐伯市蒲江町竹野浦河内でマダニの採

取を行った。

## 2 マダニの採取法

70cm×70cmの白いフランネル布と約1mの棒で旗を作成し、植生上のマダニを採取する旗振り法でマダニを採取した。成虫、若虫と一部の幼虫をピンセットで旗から回収し、小試験管に入れて研究室に持ち帰った。マダニは、70%エチルアルコールで保存し、実体顕微鏡で同定を行った。

## 3 PCR検査

マダニからのDNA抽出は、QIAamp DNA Mini Kit (QIAGEN) を用いた。リケッチア遺伝子の検出は、マダニのクエン酸合成酵素A (*giltA*) 遺伝子を標的としたStenosらのプライマー及びプローブを用い、リアルタイムPCR法で行った<sup>6)</sup>。リケッチアの遺伝子が検出された検体について、Hiraokaらの方法で *giltA* を標的としたPCRを実施し<sup>7)</sup>、そのPCR産物をダイレクトシーケンス法で遺伝子解析し、分子系統樹解析でリケッチアの同定を行った。

## 結 果

## 1 マダニ相

フタトゲチマダニ、タカサゴチマダニ、キチマダニ、タカサゴキララマダニ、及びヤマトマダニの3

属5種、284個体を採取した(表1)。最も多く採取されたのがフタトゲチマダニで79.2%を占め、全地点で採取された。次いでタカサゴチマダニが23.6%と多く、4地点で採取された。

## 2 マダニの保有するリケッチア

フタトゲチマダニ207個体中108個体から紅斑熱群リケッチア遺伝子が検出された。このうち39個体の遺伝子配列を決定し同定すると、32個体がLON、国東町の3個体が*Rickettsia felis*類似株、臼杵市の3個体がGenotype IVであった。LONの保有率は地域により異なり、国東地域では保有率が平均9.5%であるのに対し、県南地域では平均64.9%と高かった。

その他、タカサゴキラマダニ4個体中2個体から紅斑熱群リケッチア遺伝子が検出され、いずれも*Rickettsia tamurae*であった。タカサゴチマダニとキチマダニから紅斑熱群リケッチア遺伝子が検出されたが遺伝子解析できず、種は不明であった。ヤマトマダニから紅斑熱群リケッチア遺伝子は検出されなかった。

## 考 察

大分県と豊後水道を隔てた愛媛県では、ミカン畑での農作業中に日本紅斑熱に感染した例が多いと推定されている<sup>8)</sup>。大分県は、愛媛県と地理的に近く、瀬戸内気候で環境条件が似ているため、ミカン畑が多い県南地域と国東地域でマダニの調査を行った。県南地域(臼杵市、津久見市、佐伯市)では3属4種のマダニが採取され、フタトゲチマダニとタカサゴチマダニが大部分を占めるマダニ相であった。国東地域(国東市、杵築市)では2属4種のマダニが採取され、フタトゲチマダニが大部分を占めるマダニ相であった。

日本紅斑熱の病原体である*R. japonica*は、ヤマアラシチマダニ、フタトゲチマダニ、キチマダニ、タカサゴチマダニ等から分離、又は検出された報告がある<sup>9)</sup>。特にヤマアラシチマダニからの分離・検出例は広島県、愛媛県、高知県、福岡県、長崎県、熊本県、宮崎県、鹿児島県と西日本で広範囲に報告されており、日本紅斑熱の主要な媒介マダニと推定される<sup>10-14)</sup>。今回の調査地では、ヤマアラシチマダニは採取されず、これが本県での日本紅斑熱患者が少ない要因の一つと考えられた。フタトゲチマダニからの*R. japonica*分離・検出例は、高知県、

宮崎県、鹿児島県で報告されている。今回及び前回の調査で、フタトゲチマダニは最も多く採取され、紅斑熱群リケッチアを高率に保有していることが明らかとなったが、その大部分はフタトゲチマダニに多いLONであり、一部に*Rickettsia felis*類似株、とGenotype IVが検出された。*R. japonica*は検出されなかった。本県で、フタトゲチマダニが日本紅斑熱の媒介種となる可能性は低いと思われた。キチマダニは杵築市で3個体採取されたのみであり、保有する紅斑熱群リケッチアの種は不明であった。タカサゴチマダニからも紅斑熱群リケッチアは検出されたが種は不明で、*R. japonica*は検出されなかった。

これらの結果により、県南地域及び国東地域では日本紅斑熱患者が発生する可能性は極めて低いであろう。今後は、海岸から離れた地域でのマダニの調査が必要である。

## 参 考 文 献

- 1) 馬原文彦、古賀敬一、沢田誠三、谷口哲三、重見文雄、須藤恒久、坪井義昌、大谷明、小山一、内山恒夫、内田孝宏：わが国初の紅斑熱リケッチア感染症，感染症学雑誌，59，1165-1172 (1985)
- 2) Uchida T., Uchiyama T., Kumano K., Walker D.H. : *Rickettsia japonica* sp. nov., the etiological agent of spotted fever group rickettsiosis in Japan. Int. J. Syst. Bacteriol., 42, 303-305 (1992)
- 3) 高田伸弘、石畝 史、藤田博巳：福井県で初めて確認され血清学的に*R. helvetica*感染が示唆された症例，病原微生物検出情報，27，40-41 (2006)
- 4) Pierre-Edouard Fournier, Nobuhiro Takada, Hiromi Fujita and Didier Raoult: *Rickettsia tamurae* sp. nov., isolated from *Amblyomma testudinarium* ticks, International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology, 56, 1673-1675 (2006)
- 5) 小河正雄、加藤聖紀、人見徹、本田顕子：大分県におけるマダニの分布状況及びマダニからのリケッチアの検出(第1報)，大分県衛生環境研究センター年報，37，19-23 (2009)
- 6) Stenos, J., Graves, R. S. and Unsworth, B. N. : A highly sensitive and specific real-time PCR assay for the detection of spotted fever and typhus group rickettsiae., Am. J. Trop. Med.

Hyg., 73(6), 1083-1085 (2005)

- 7) Hiraoka, H., Shimada, Y., Sakata, Y., Watanabe, M., Itamoto, K., Okuda, M. and Inokuma, H. : Detection of rickettsial DNA in Ixodid tick recovered from dogs and cats in Japan, J. Vet. Med. Sci., 67 (12), 1217-1222 (2005)
- 8) 稲荷公一、大瀬戸光明、近藤玲子、山下育孝、豊嶋千俊、井上博雄：愛媛県におけるマダニの分布状況及びマダニからの *Rickettsia japonica* の検出, 愛媛県衛生環境研究所年報, 7, 5-12 (2004)
- 9) 藤田博巳、高田伸弘：マダニ類から検出されるリケッチアの多様性, 「ダニと新興再興感染症」SADI組織委員会, 129-139 (2007), 全国農村教育協会
- 10) 島津幸枝, 高尾信一, 谷澤由枝: 広島県における日本紅斑熱患者の発生状況, 病原微生物検出情報, 31, 131-132 (2010)
- 11) 山本正悟、千々和勝巳、藤田博巳、片岡丘、田原研司、御供田陸代、大瀬戸光明、荻野和正、川端寛樹：福岡県の紅斑熱患者発生地における媒介マダニの調査, 九州衛生環境技術協議会抄

録, 32, 84-85 (2006)

- 12) 山本正悟、平野学、山口顕徳、松尾繁、八尋俊輔、田原研司、片岡丘、古屋由美子、本田俊郎、御供田陸代、岩切章、三浦美穂、藤田博巳、高田伸弘、矢野康弘、川端寛樹、安藤秀二、岸本壽男：九州地域におけるリケッチア感染症の実態調査－日本紅斑熱の患者発生状況および宮崎県、長崎県、熊本県の患者発生地における媒介マダニの調査－, 厚生労働科学研究費補助金 リケッチア感染症の国内実態調査及び早期診断体制の確立による早期警鐘システムの構築 平成19年度総括・分担研究報告書, 99-107 (2008)
- 13) 松本一俊、八尋俊輔、松尾 繁、原田誠也、山本正悟、本田俊郎、安藤秀二：熊本県における日本紅斑熱患者の急増, 病原微生物検出情報, 31, 134-135 (2010)
- 14) Shinichi Noda, Susumu Yamamoto : Detection of Japanese spotted fever rickettsiae DNA from ixodid ticks in Osumi Peninsula of Kagoshima Prefecture, Japan, Medical Entomology and Zoology, 57 (4), 273-277 (2006)

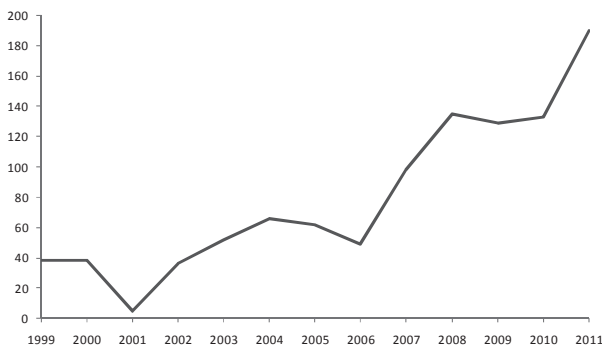


図1 日本紅斑熱患者の年別届出状況



図3 マダニの採取地点

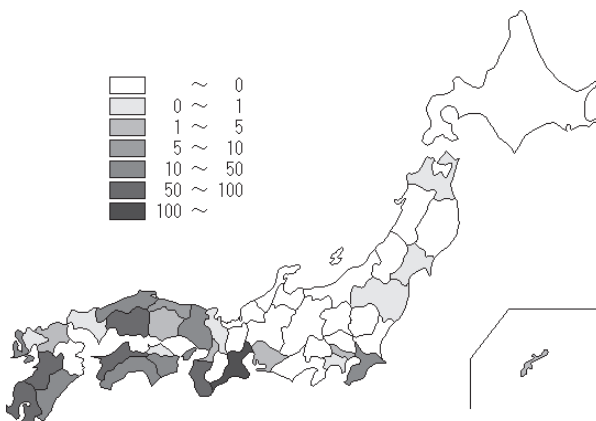


図2 日本紅斑熱患者の都道府県別届出状況 (2006-2011年)

表1 採取されたマダニの種類

採取年	採取地	フタトゲチマダニ	タカサゴチマダニ	キチマダニ	タカサゴキラマダニ	ヤマトマダニ	計
2009	臼杵市 佐志生	29	13	0	0	1	43
2008-2009	津久見市釜戸	11	48	0	4	0	63
2009	佐伯市 上浦町蒲戸崎	51	5	0	0	0	56
2010	杵築市 藤川	17	1	2	0	1	21
2010	国東市 安岐町吉松中村	16	0	0	0	2	18
2010	国東市 国東町上小原	29	0	0	0	0	29
2011	佐伯市 蒲江町竹野浦河内	54	0	0	0	0	54
	計	207	67	2	4	4	284

図4 マダニからの紅斑熱群リケッチア検出状況

マダニの種類	採取地	検査数	陽性数	保有率(%)	リケッチアの種類	(同定数)
フタトゲチマダニ	国東市国東町上小原	29	3	10.3	<i>R. felis</i>	3
	国東市安岐町吉松中村	16	1	6.3	<i>R. sp. LON</i>	1
	杵築市藤川	17	2	11.8	<i>R. sp. LON</i>	1
	臼杵市佐志生	29	10	34.5	Genotype IV	3
	津久見市釜戸	11	7	63.6	<i>R. sp. LON</i>	2
	佐伯市上浦町蒲戸崎	51	38	74.5	<i>R. sp. LON</i>	17
	佐伯市蒲江町竹野浦河内	54	47	87.0	<i>R. sp. LON</i>	12
タカサゴチマダニ	杵築市藤川	1	0	0.0		
	臼杵市佐志生	13	0	0.0		
	津久見市釜戸	47	3	6.4		
	佐伯市上浦町蒲戸崎	5	2	40.0		
タカサゴキラマダニ	津久見市釜戸	4	2	50.0	<i>R. tamurae</i>	2
ヤマトマダニ	国東市安岐町吉松中村	2	0	0.0		
	杵築市藤川	1	0	0.0		
	臼杵市佐志生	1	0	0.0		
キチマダニ	杵築市藤川	3	1	33.3		
	計	284	116	40.8		



# 河川水中のダイオキシン類濃度特性について (第4報)

長野 真紀、伊賀上 美紗、中田 高史、上田 精一郎、鈴木 龍一

## Characteristics of Dioxins in River Waters (IV)

Maki Nagano, Husa Igagami, Takashi Nakata, Seiichiro Ueda, Ryuichi Suzuki

Key words : ダイオキシン類 dioxins, 毒性等量 toxicity equivalency quantity, 河川水 river water

### 要 旨

県内の河川水中における年間のダイオキシン類濃度変動等の特性を調査した事例はなく、2008年度から県内15の中小河川において河川水中のダイオキシン類濃度特性について調査を行ってきた。<sup>1-3)</sup> 2011年度は新たに犬丸川、伊呂波川及び駅館川において同様の調査を行ったところ、2010年度の報告と同様に、6月から7月の田植え時期に河川水中のダイオキシン類濃度が一時的に上昇する傾向を示し、同族体組成比パターンは、水田農薬由来のパターンに類似していることが認められた。このことから、過去に使用された水田除草剤に不純物として含まれていたダイオキシン類が、田植え時期に土壤中から流出し、河川水中ダイオキシン類濃度の極大を示す原因となっている示唆を得た。

### はじめに

河川水中のダイオキシン類濃度の田植えによる一時的な上昇、または過去に使われた除草剤に不純物として含まれていたダイオキシン類が河川水のダイオキシン類濃度に寄与しているという報告は、以前からいくつもなされている。<sup>4-6)</sup>

当センター年報においても犬丸川において田植え時期に、河川水中のダイオキシン類濃度が一時的に上昇傾向を示すことを報告した。<sup>7)</sup>

2008年度以降は、他の河川において田植え時期に河川水中のダイオキシン類濃度がどのように変動するか、その特性を明らかにすることにより、水環境行政の一助となることを目的として調査を行うこととし、2011年度は3河川において調査を行った。

### 方 法

#### 1 調査地点及び調査頻度

表1に示すように3河川において感潮域直上流の地点を各河川1地点ずつ選定し、2011年4月から10月の7か月間に毎月1回、河川水を採取した。調査地点は図1に、調査河川の概要を表1に示した。

表1 調査河川の概要

河川名	幹川流路延長 (m)	流域面積 (km <sup>2</sup> )
犬丸川	23,812	76.5
伊呂波川	18,511	82.1
駅館川	175,126	389.5

備考1 平成7年度河川海岸表(大分県)による。

備考2 流域面積は支川を含む。

備考3 駅館川には津房川を含む



図1 調査地点図

#### 2 分析方法

ダイオキシン類は、「工業用水・工場排水中のダイオキシン類及びコプラナー PCB の測定方法」(JIS

K 0312) に定める方法により分析測定し、ダイオキシン類を定量解析した。また、併せて pH、SS、電気伝導率を測定した。

結 果

1 毒性等量及び SS との相関

調査した3河川における毒性等量の最高値は、3河川とも環境基準値(1pg-TEQ/L)を超えた。しかし、環境基準適合性の評価の年平均値と比較すると、調査期間7か月の平均値は、0.76pg-TEQ/L(犬丸川)、0.66pg-TEQ/L(伊呂波川)、0.40pg-TEQ/L(駅館川)であり、環境基準を満たしている。

調査期間中における河川別の最高値及び最低値は、それぞれ、犬丸川(古川橋)は2.7pg-TEQ/L(7月)、0.30pg-TEQ/L(4月)、伊呂波川(高津橋)は2.3pg-TEQ/L(7月)、0.21pg-TEQ/L(10月)、駅館川(川部大橋)は1.5pg-TEQ/L(7月)、0.080pg-TEQ/L(10月)であった。(表2、表3、図2)

毒性等量とSSについては、いずれも7月に極大(図2、図3)を示し、3河川とも相関関係が認められた。

(図4)各調査地点近傍の気象観測所における採取前3日間、7日間及び10日間の雨量を見ると、7月は3日間雨量が30mm前後、7日間及び10日間雨量は50mm前後を記録していた。(図5)

表2 調査結果概要

調査地点	調査月日	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月
		2011/4/6	2011/5/19	2011/6/3	2011/7/1	2011/8/11	2011/9/5	2011/10/6
犬丸川 (古川橋)	毒性等量 (pg-TEQ/L)	0.30	0.43	0.56	2.7	0.62	0.40	0.31
	SS (mg /L)	4.6	6.7	1.4	2.9	4.4	1.1	0.4
	pH	9.2	8.2	7.8	7.5	7.6	7.1	7.6
	EC (μs /cm)	277.0	199.7	154.7	132.3	159.9	155.3	144.8
伊呂波川 (高津橋)	毒性等量 (pg-TEQ/L)	0.24	0.36	0.93	2.3	0.24	0.35	0.21
	SS (mg /L)	3.0	8.8	2.0	23.5	6.7	1.0	2.8
	pH	9.1	8.2	7.6	7.4	7.5	7.5	7.21
	EC (μs /cm)	154.3	165.0	144.5	140.9	154.9	143.2	136.0
駅館川 (川部大橋)	毒性等量 (pg-TEQ/L)	0.10	0.23	0.46	1.5	0.18	0.28	0.080
	SS (mg /L)	1.7	8.5	3.8	2.9	5.4	0.5	1.0
	pH	7.8	8.3	7.3	7.3	8.6	7.2	6.9
	EC (μs /cm)	187.4	153.1	123.0	105.7	136.7	108.3	136.8

表3 同族体別毒性等量

単位：pg-TEQ/L

調査地点	調査月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月
犬丸川 (古川橋)	PCDDs	0.25	0.36	0.49	2.3	0.53	0.34	0.26
	PCDFs	0.039	0.063	0.059	0.38	0.084	0.052	0.49
	コプラナー PCBs	0.0016	0.0067	0.0037	0.012	0.0056	0.0035	0.0036
	ダイオキシン類	0.30	0.43	0.56	2.7	0.62	0.40	0.31
伊呂波川 (高津橋)	PCDDs	0.21	0.30	0.84	2.0	0.20	0.30	0.18
	PCDFs	0.025	0.053	0.090	0.28	0.028	0.049	0.026
	コプラナー PCBs	0.0016	0.0056	0.0056	0.0086	0.0046	0.0015	0.0025
	ダイオキシン類	0.24	0.36	0.93	2.3	0.24	0.35	0.21
駅館川 (川部大橋)	PCDDs	0.088	0.20	0.64	1.3	0.16	0.24	0.070
	PCDFs	0.010	0.025	0.074	0.18	0.017	0.033	0.0092
	コプラナー PCBs	0.0025	0.0036	0.0035	0.010	0.0016	0.0026	0.0015
	ダイオキシン類	0.10	0.23	0.46	1.5	0.18	0.28	0.080

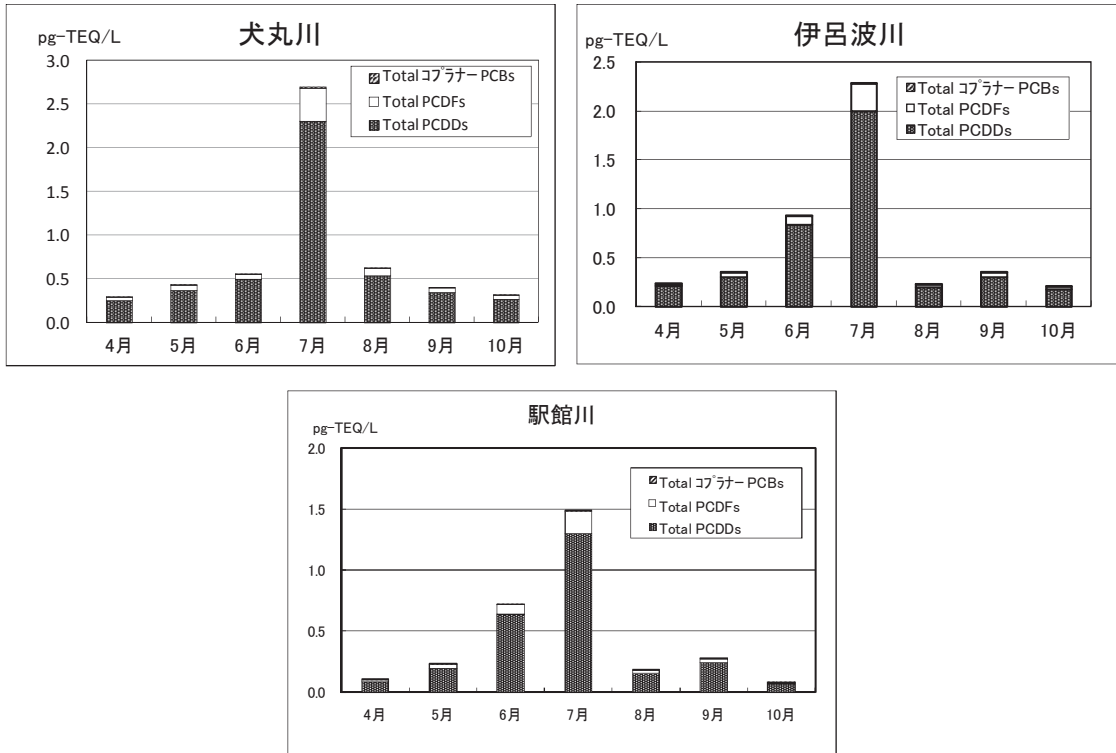


図2 毒性等量

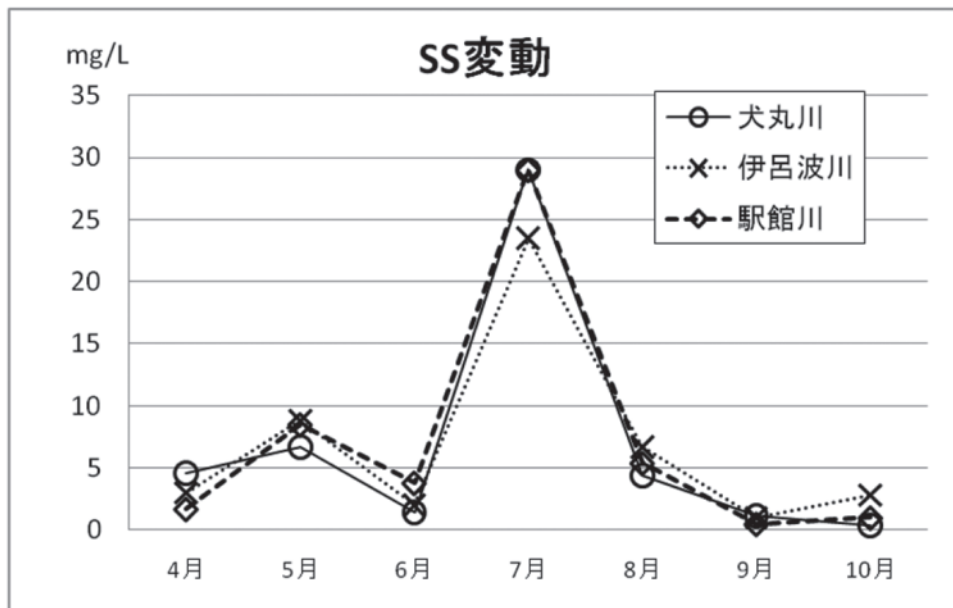


図3 SS変動

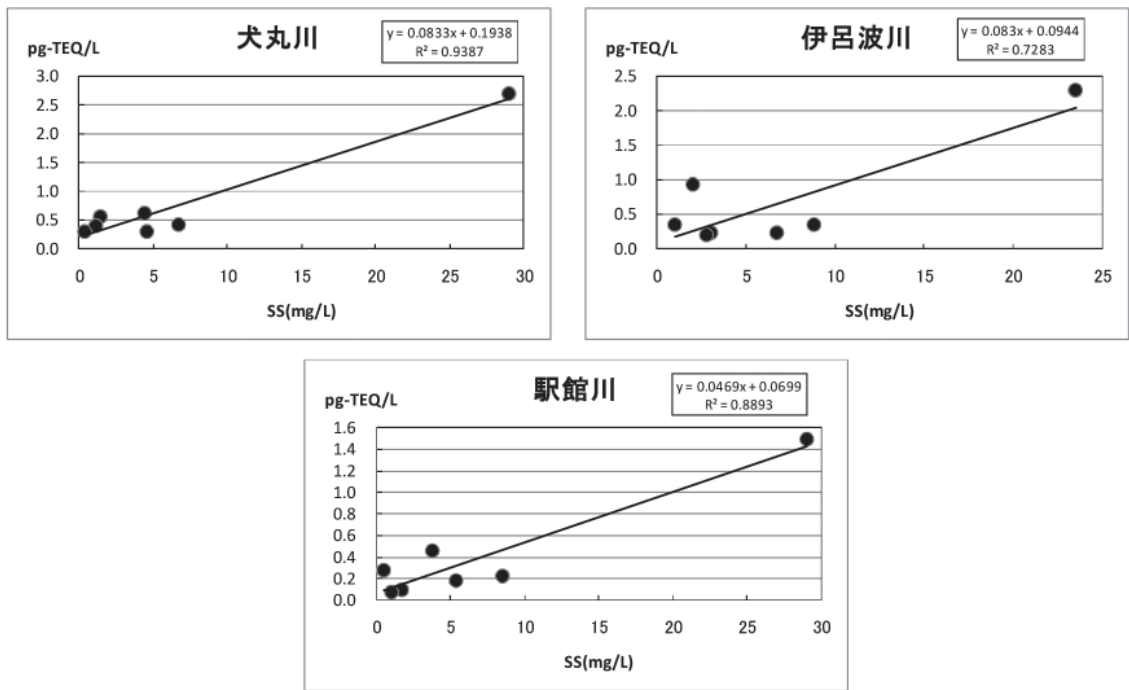


図4 毒性等量とSSの相関

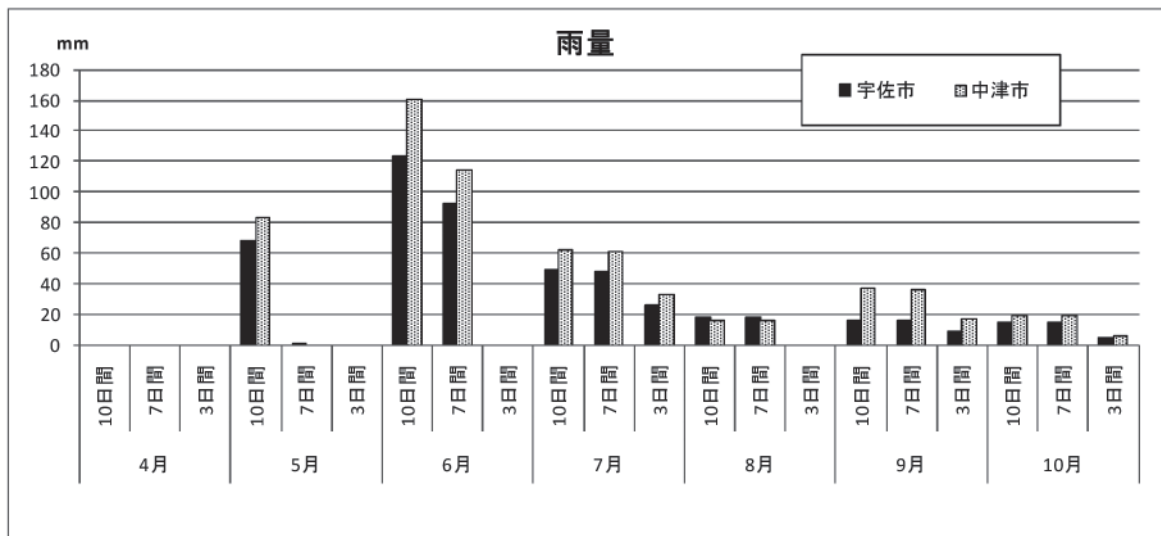


図5 雨量

## 2 濃度

ダイオキシン類濃度 (Total PCDDs+PCDFs+Co-PCBs (non+mono)) の最高値は、犬丸川の2600pg/L(7月)であった。調査期間中における河川別の最高値及び最低値は、それぞれ、犬丸川は2600pg/L(7月)、170pg/L(4月)、伊呂波川は2100pg/L(7月)、

140pg/L(4月)、駅館川は1600pg/L(7月)、59pg/L(4月)であった。(表4、表5、図6)

3河川とも OCDD の濃度がダイオキシン類濃度の最高値を示した月において濃度上昇が顕著だった。(図7)

表4 同族体別濃度 (1)

単位 : pg/L

調査地点	調査月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月
犬丸川 (古川橋)	PCDDs	160	330	210	2500	580	300	280
	PCDFs	6.3	11	7.5	90	21	12	11
	コプラナー PCBs	4.3	6.3	5.7	11	4.3	2.8	4.7
	ダイオキシン類	170	340	220	2600	610	320	300
伊呂波川 (高津橋)	PCDDs	130	270	200	2100	230	250	160
	PCDFs	5.5	10	7.5	83	9.2	10	6.5
	コプラナー PCBs	3.1	4.3	3.6	4.4	3.3	2.3	2.0
	ダイオキシン類	140	290	210	2100	240	260	170
駅館川 (川部大橋)	PCDDs	55	140	610	1500	150	200	57
	PCDFs	2.0	5.0	17	43	4.5	7.4	2.1
	コプラナー PCBs	1.8	3.1	2.7	6.3	3.6	3.2	1.8
	ダイオキシン類	59	150	630	1600	160	210	61

表5 同族体別濃度 (2)

単位 : pg/L

調査地点	調査月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月
犬丸川 (古川橋)	TeCDDs	51	86	55	620	170	91	80
	PeCDDs	7.3	12	7.6	99	23	11	10
	HxCDDs	3.6	5.1	2.8	27	6.7	4.2	3.2
	HpCDDs	15	25	15	150	35	26	20
	OCDD	86	200	130	1600	340	170	170
	TeCDFs	2.0	3.2	2.2	21	5.8	3.3	3.0
	PeCDFs	0.79	1.3	0.88	8.2	2.2	1.1	1.2
	HxCDFs	0.90	1.6	1.1	11	2.9	1.7	1.3
	HpCDFs	1.4	2.4	1.7	23	5.5	3.2	2.7
	OCDF	1.2	2.4	1.7	28	4.9	3.2	3.1
	Total PCDDs + PCDFs	170	340	210	2600	600	310	290
	伊呂波川 (高津橋)	TeCDDs	46	87	49	760	85	89
PeCDDs		6.4	13	7.9	100	12	12	7.8
HxCDDs		2.7	4.2	2.9	24	3.1	3.5	2.1
HpCDDs		11	18	15	110	15	16	10
OCDD		67	150	120	1100	110	130	88
TeCDFs		2.1	3.9	2.3	31	3.7	4.0	2.1
PeCDFs		0.72	1.4	0.91	12	1.2	0.53	0.92
HxCDFs		0.62	1.4	1.1	8.5	1.1	1.1	0.78
HpCDFs		0.99	2.0	1.6	15	1.7	2.1	1.4
OCDF		1.0	1.9	1.7	17	1.6	2.4	1.3
Total PCDDs + PCDFs		140	280	210	2100	240	260	170
駅館川 (川部大橋)		TeCDDs	19	44	150	410	44	69
	PeCDDs	2.8	7.4	25	68	6.2	10	2.5
	HxCDDs	1.2	2.7	6.7	15	2.2	2.8	0.68
	HpCDDs	4.7	13	42	77	11	14	4.0
	OCDD	27	77	390	970	84	110	29
	TeCDFs	0.79	1.6	4.8	13	1.4	2.8	0.81
	PeCDFs	0.27	0.63	1.8	5.3	0.56	0.27	0.28
	HxCDFs	0.23	0.71	2.0	5.0	0.62	0.85	0.26
	HpCDFs	0.36	1.1	3.7	9.4	1.0	1.7	0.42
	OCDF	0.35	0.96	4.6	10	0.95	1.8	0.37
	Total PCDDs + PCDFs	57	150	630	1600	150	210	59

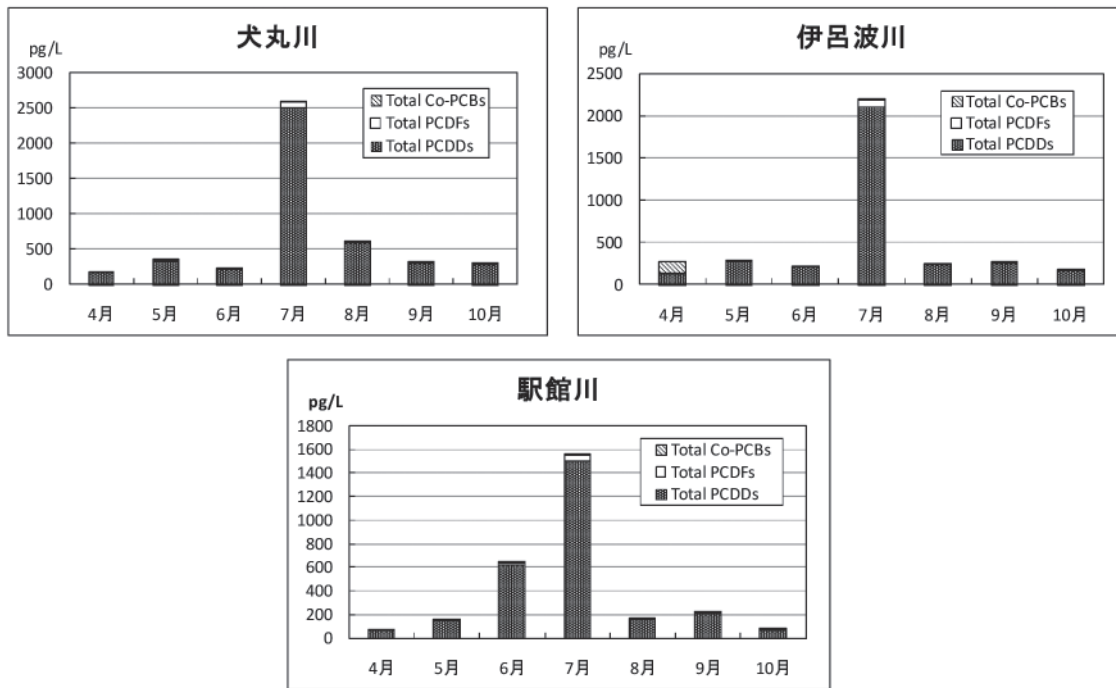


図6 ダイオキシン類濃度

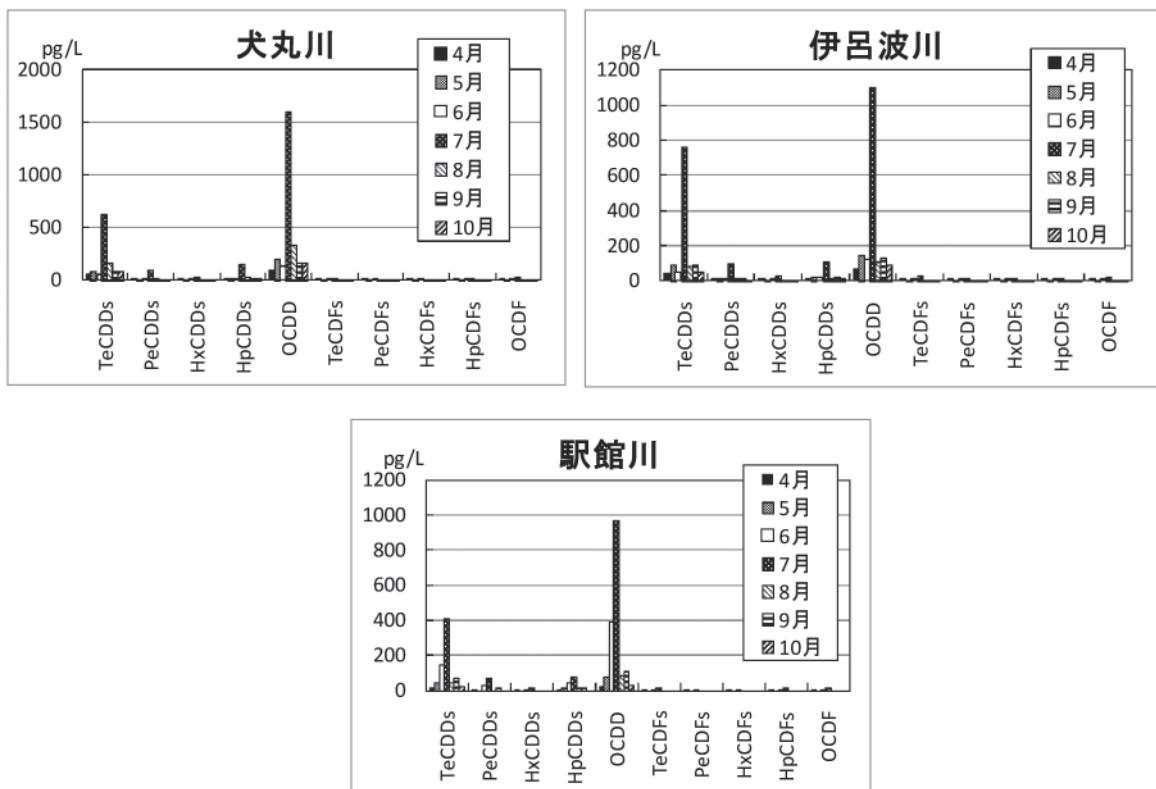


図7 同族体別PCDDs, PCDFs濃度

### 3 同族体組成

同族体組成比は、各河川とも月ごとの顕著な変動はほとんど認められず、3河川とも OCDD が 50 ~

60%程度で最も比率が高かった。次いで TeCDDs が 30%と高かった。(図8)

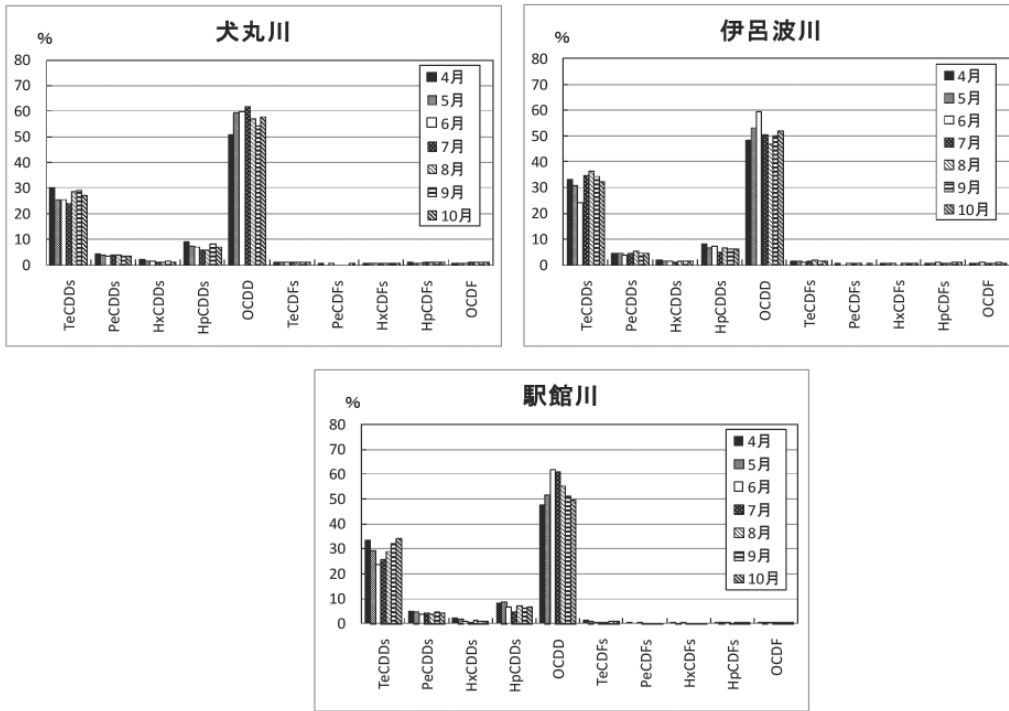


図8 同族体組成パターン

考 察

毒性等量及びダイオキシン類濃度は、3河川とも田植え時期に一時的に上昇傾向を示した。(図2、6、7)

また、PCDDs及びPCDFs同族体別濃度を比較すると、3河川とも田植え時期にOCDDの濃度上昇が顕著に見られた。(図7)

毒性等量とSSの相関については、3河川全てで相関関係が認められた。(図3)

同族体組成比パターンは環境省が2001年度に実施した田植え時期の水田排水調査の同族体組成比パターンと類似しており<sup>8)</sup>、組成比は調査期間を通して顕著な変動は見られなかった。(図8)ただ、各河川ともOCDDの比率が最高を示した月はTeCDDの比率も上昇する特徴が見られた。

また、犬丸川は中津市、駅館川と伊呂波川は宇佐市を主な流域としているが、3河川における同族体組成パターンは、いずれもOCDDは50～60%程度、TeCDDsは30%程度を占めており、地域差は認められなかった。(図8)

以上のことから、2003～2004年度にかけて犬丸川で行った調査及び2008～2010年度までに行った調査結果と同様に、過去に使用された水田除草剤に不純物として含まれていたダイオキシン類が、田植え時期に土壤中から流出し、河川水中ダイオキシン類濃度の極大を示す原因となっている示唆を得た。

参 考 文 献

- 1) 上田精一郎、長野真紀、二村哲男：大分県衛生環境研究センター年報，河川水中のダイオキシン類濃度特性について，21-28（2008）
- 2) 上田精一郎、長野真紀、二村哲男：大分県衛生環境研究センター年報，河川水中のダイオキシン類濃度特性について，24-32（2009）
- 3) 長野真紀、嶋崎みゆき、中田高史、上田精一郎：大分県衛生環境研究センター年報，河川水中のダイオキシン類濃度特性について，27-35（2010）
- 4) 飯田勝彦、加藤陽一：水田土壤中のダイオキシン類の河川水への影響，神奈川県環境科学センター業務報告，67-69（2004）
- 5) 吉澤正ら：千葉県公共用水域ダイオキシン類常時監視結果の特徴と問題点，千葉県環境研究センター年報，3,171-175（2003）
- 6) 安田裕、村瀬秀也、大平武俊：岐阜県内河川環境中のダイオキシン類，岐阜県保健環境研究所報，11,9-14（2003）
- 7) 上田精一郎、二村哲男、久枝和生、佐々木清：大分県衛生環境研究センター年報，河川水中のダイオキシン類濃度について，19-22（2004）
- 8) 環境省環境管理局水環境部土壤環境課農薬環境管理室：水田等農用地を中心としたダイオキシン類の排出実態調査結果について（2002）

## 異性体指標法による河川水中ダイオキシン類発生源寄与の推算について

伊賀上 美紗、長野 真紀、上田 精一郎、鈴木 龍一

### Estimation of Pollution Sources of Dioxins in River Waters Using Indicative Congeners

Fusa Igagami, Maki Nagano, Seiichiro Ueda, Ryuichi Suzuki

Key words : ダイオキシン類 dioxins, 指標異性体 indicative congeners,  
河川水 river water, 汚染源 pollution source

#### 要 旨

当センターにおいて実施した2008～2011年度の調査研究において県内の中小河川水中のダイオキシン類濃度は、田植え時期に上昇が見られ、ダイオキシン類の同族体組成比から農薬由来であることが示唆されたことを報告した。<sup>2)～5)</sup>今回、2008～2011年度の調査研究の結果を基に、ダイオキシン類の発生源寄与率について、異性体指標法を用いて推算したところ、農薬由来が優位であることがわかったので、報告する。また、田植え時期は農薬由来の異性体濃度が上昇することによりダイオキシン類濃度が上昇していることの示唆を得た。

#### はじめに

国内におけるダイオキシン類の主な発生源は、燃焼、PCB製品、PCP製剤、CNP製剤の4つと言われている。河川中のダイオキシン類濃度は、主に過去に水田除草剤として使用されたPCP製剤およびCNP製剤中に不純物として含まれていたダイオキシン類によるものであるが、燃焼・焼却過程からの寄与も認められる。<sup>1)</sup>

2008～2011年度の調査研究において県内の中小河川における田植え時期のダイオキシン類濃度及び組成変動の特性実態を報告した。特に、田植え時期にダイオキシン類濃度の上昇が見られ、環境省による実態調査結果の農薬中のダイオキシン類の同族体組成比から農薬由来であることが示唆された。<sup>6)</sup>今回、2008～2011年度に行った調査研究を基に、異性体指標法を用いて、河川ごとの発生源寄与率を求めた。

#### 方 法

異性体指標法は、各発生源試料の測定結果において、実濃度が総TEQと相関性の高い異性体を探索し、各発生源の指標異性体を選択して、これらの指標異性体の実測濃度を用いて各発生源に由来するTEQを推算するものである。各発生源の指標となる異性体（以下指標異性体という）は次のとおりである。燃焼由来、PCP製剤由来およびCNP製剤由来の指標異性体は、それぞれ2,3,4,7,8-PeCDF、1,2,3,4,6,7,8-HpCDDおよび1,2,3,7,8-PeCDDである。PCB製品由来の指標異性体は3,3',4,4'-PeCB(#126)と2,3,3',4,4'-PeCB(#105)の2異性体である。

この推算は2段階のステップを踏んで行う。指標異性体は、対応する発生源以外の発生源試料においても検出されるため、第1段階として各発生源に由来する指標異性体の濃度を、5つの指標異性体の実測濃度から、式1を用いて推算する。第2段階として、式1で得られた各発生源に由来する5つの指標異性体の推算濃度から、式2を用いて対応する発生源に由来するTEQを得る。総TEQは4つの発生源に由来するTEQの合計と考えられるため、指標異性体法による総TEQ<sup>Total</sup>は式3で表される。<sup>1)</sup>



$$C_{\text{Combustion } 2,3,4,7,8\text{-PeCDF}} \begin{pmatrix} C_{2,3,4,7,8\text{-PeCDF}}^{\text{燃焼}} \\ C_{\#126\text{-PeCB}}^{\text{PCB}} \\ C_{\#105\text{-PeCB}}^{\text{PCB}} \\ C_{1,2,3,4,6,7,8\text{-HpCDD}}^{\text{PCP}} \\ C_{1,2,3,7,8\text{-PeCDD}}^{\text{CNP}} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1.03 & -0.00471 & -2.16 \times 10^{-6} & -6.41 \times 10^{-4} & -0.0679 \\ -0.825 & 1.00 & 1.73 \times 10^{-6} & 5.41 \times 10^{-4} & 0.0545 \\ -0.639 & 0.00292 & 1.00 & 3.98 \times 10^{-4} & 0.0422 \\ -3.62 & 0.0166 & 7.60 \times 10^{-6} & 1.00 & 0.239 \\ -0.330 & 0.00151 & 6.93 \times 10^{-7} & -0.00151 & 1.02 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_{2,3,4,7,8\text{-PeCDF}} \\ C_{\#126\text{-PeCB}} \\ C_{\#105\text{-PeCB}} \\ C_{1,2,3,4,6,7,8\text{-HpCDD}} \\ C_{1,2,3,7,8\text{-PeCDD}} \end{pmatrix} \dots\dots\dots \text{式1}$$

$$\begin{pmatrix} TEQ^{\text{燃焼}} \\ TEQ^{\text{PCB}} \\ TEQ^{\text{PCP}} \\ TEQ^{\text{CNP}} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1/0.673 \times C_{2,3,4,7,8\text{-PeCDF}}^{\text{燃焼}} \\ 0.116 \times C_{\#126\text{-PeCB}}^{\text{PCB}} + 1.13 \times 10^{-4} \times C_{\#105\text{-PeCB}}^{\text{PCB}} \\ 1/29.2 \times C_{1,2,3,4,6,7,8\text{-HpCDD}}^{\text{PCP}} \\ 1/0.742 \times C_{1,2,3,7,8\text{-PeCDD}}^{\text{CNP}} \end{pmatrix} \dots\dots\dots \text{式2}$$

$$TEQ^{\text{Total}} = TEQ^{\text{燃焼}} + TEQ^{\text{PCB}} + TEQ^{\text{PCP}} + TEQ^{\text{CNP}} \dots\dots\dots \text{式3}$$

2008～2011年度に行った調査研究における県内中小河川の測定結果に異性体指標法を適用し、各発生源の指標異性体の実測濃度から求めた各発生源由来のTEQを求め、発生源寄与を推算した。

解析対象は2008～2011年度の調査研究試料（河川水質試料計107検体）とした。

結果及び考察

1 総TEQの推算値と総TEQの実測値の比較

2008～2011年度の調査研究における河川水質試料のデータを異性体指標法によって解析したところ、総TEQの推算値は0.020～3.1pg-TEQ/Lの広い濃度範囲で実測の総TEQと概ね一致し、異性体指標法が使用できることを確認した。なお、これらのデータの中には指標異性体の実測濃度が検出下限未満のものも含まれている。

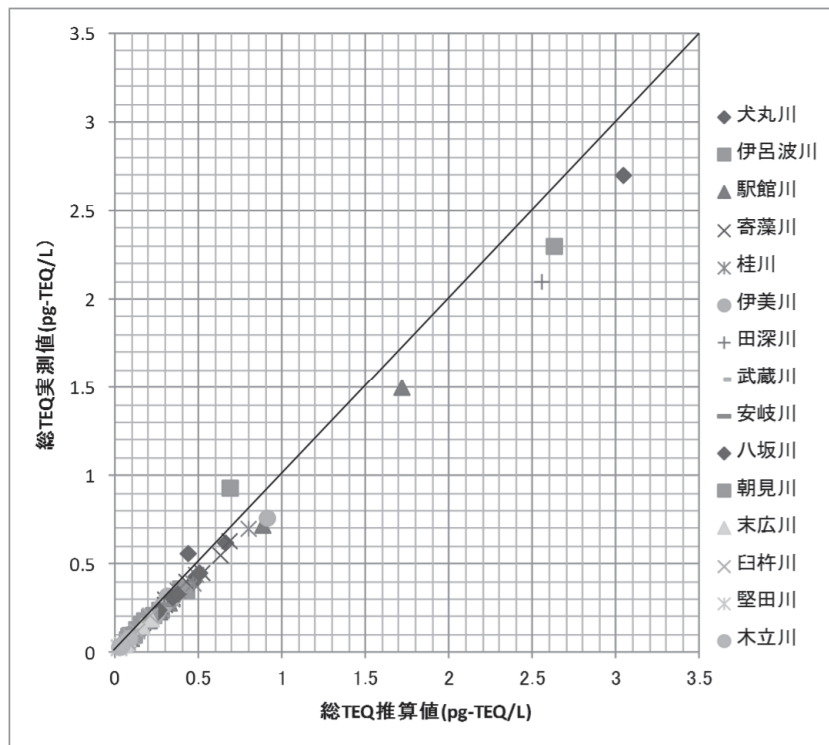


図1 総TEQの推算値と実測値

## 2 2011年度調査結果に基づく推算結果

犬丸川、伊呂波川及び駅館川における発生源別に推算した毒性等量の経月変化を図2に示した。

犬丸川、伊呂波川及び駅館川は、田植え時期にダイオキシン類濃度が環境基準値(1pg-TEQ/L)を超える極大を示すことは、本年報で報告している。<sup>2)</sup>異性体指標法を適用した結果、調査した全ての月においてPCP製剤由来の寄与が最も大きく、ダイオキシ

ン類濃度(毒性等量)の上昇と共にPCP製剤由来の毒性等量も上昇していることがわかった。これらのことから田植え時期にダイオキシン類濃度が上昇する要因は、過去に使用されたPCP製剤由来によるものと示唆された。なお、図2に示すとおり、CNP製剤由来の毒性等量も増加していることから、CNP製剤も使用されていたものと考えられる。

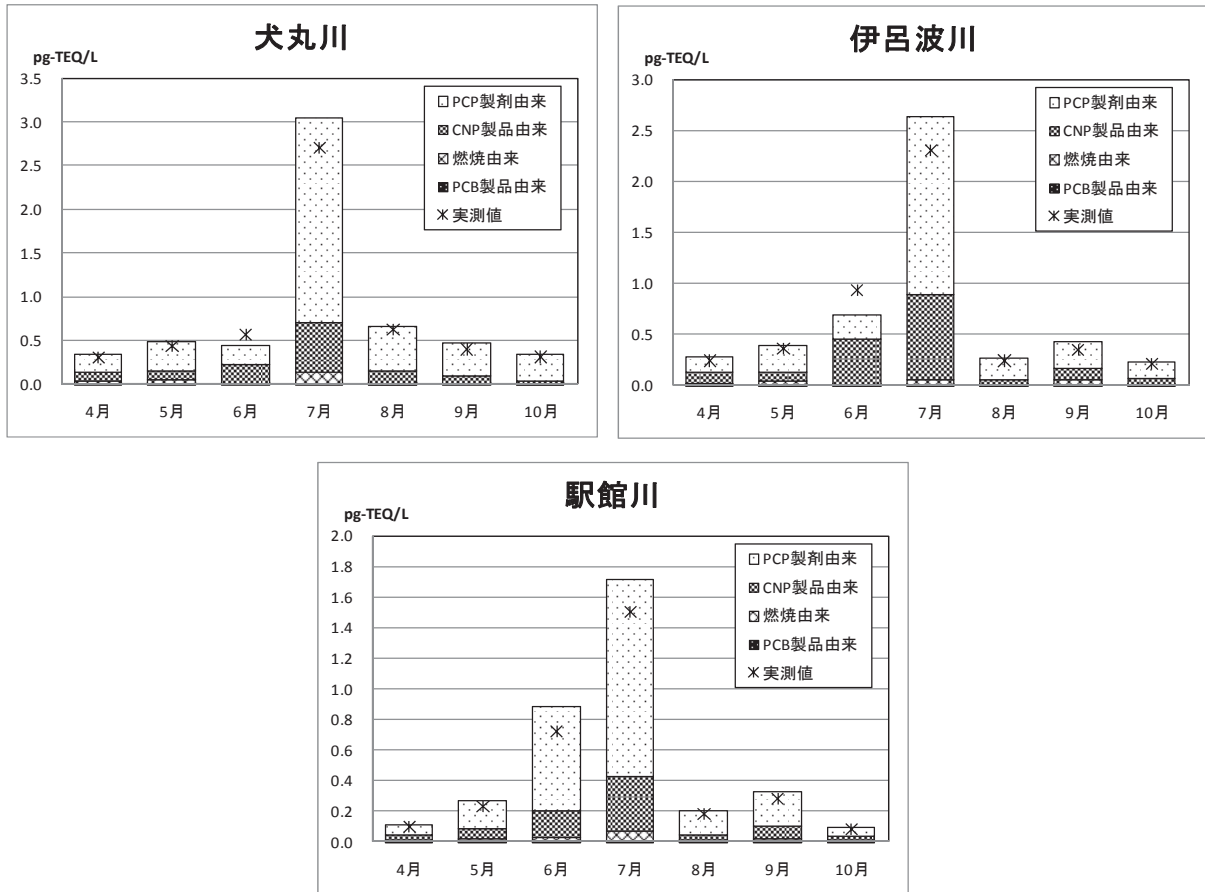


図2 2011年度調査における河川の解析結果

### 3 2010年度調査結果に基づく推算結果

寄藻川、桂川、伊美川及び田深川における発生源別に推算した毒性等量の経月変化を図3に示した。

寄藻川、桂川、伊美川及び田深川は、調査した

全ての月においてPCP製剤由来の寄与が最も大きく、田植え時期にダイオキシン類濃度が上昇する要因は、2011年度に調査した3河川と同様に、過去に使用されたPCP製剤によるものと示唆された。

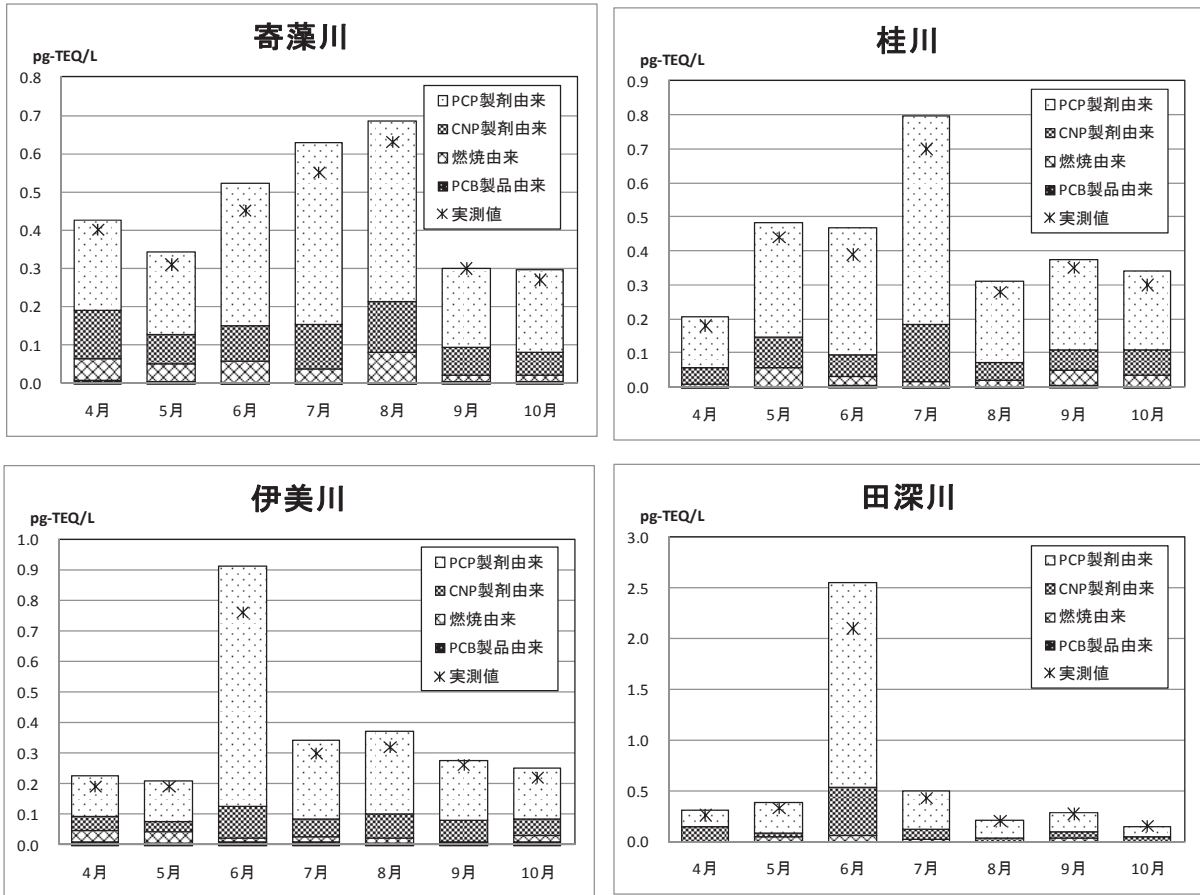


図3 2010年度調査における河川の解析結果

#### 4 2009年度調査結果に基づく推算結果

武蔵川、安岐川、八坂川及び朝見川における発生源別に推算した毒性等量の経月変化を図4に示した。

武蔵川、安岐川及び八坂川は、PCP製剤由来の

寄与が最も大きいことが示唆された。朝見川は、CNP製剤由来の寄与が最も大きい、全体的に燃烧由来の寄与が他の河川に比べやや大きく、ダイオキシン類濃度の上昇はPCP製剤とCNP製剤及び燃烧由来の寄与によるものと考えられる。

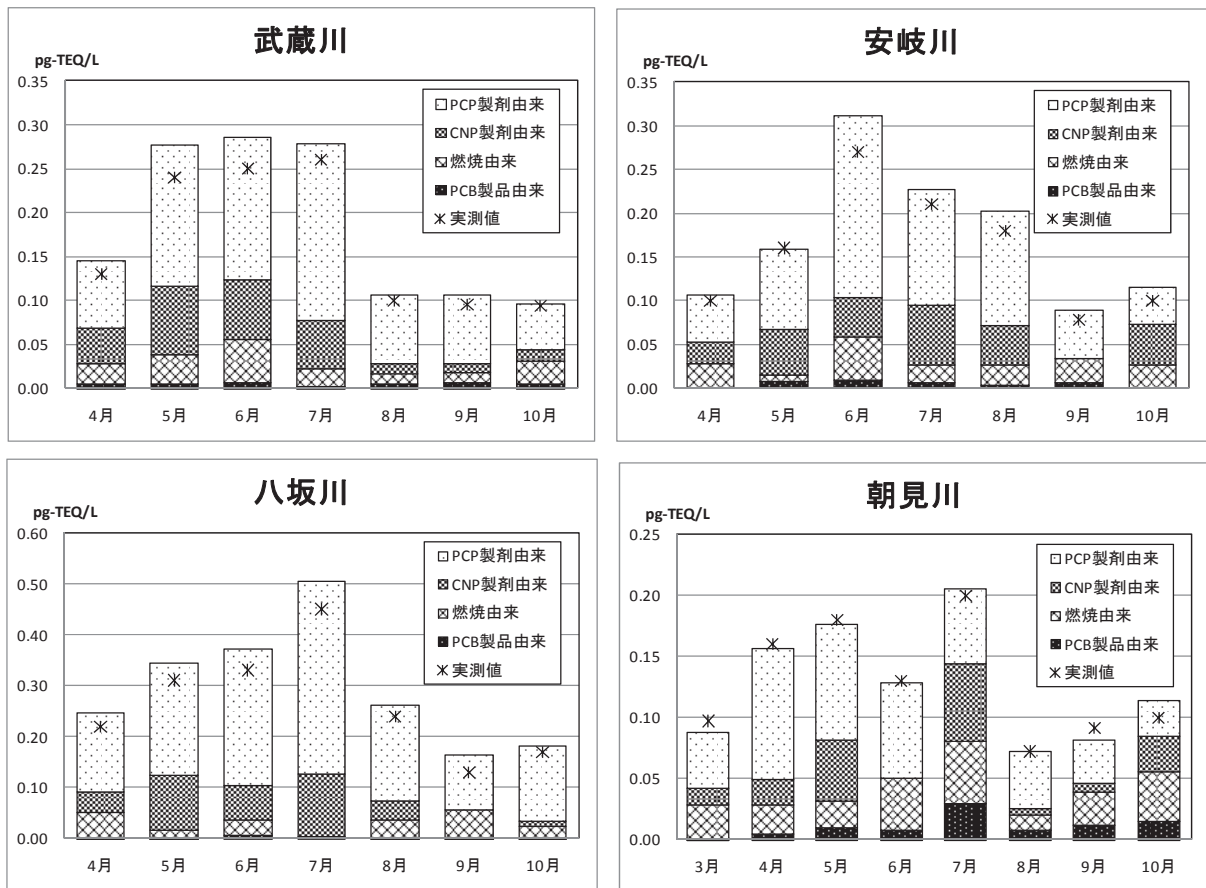


図4 2009年度調査における河川の解析結果

5 2008年度調査結果に基づく推算結果

末広川、臼杵川、堅田川及び木立川における発生源別に推算した毒性等量の経月変化を図5に示した。

末広川及び臼杵川は、CNP製剤由来の寄与があるものの、ダイオキシン類濃度上昇にはPCP製剤由来の寄与が最も大きく、ダイオキシン類濃度上昇する要因は過去に使用されたPCP製剤によるもの

と示唆された。堅田川及び木立川は、全体的にダイオキシン類濃度が低いためPCB製品由来の寄与が大きくなっているが、ダイオキシン類濃度上昇の主な要因としては、堅田川はPCP製剤由来及びCNP製剤由来、木立川はPCP製剤由来の寄与が大きいことが示唆された。なお、木立川流域では、早期米の作付けが多く、4月が田植え時期となっているため、ダイオキシン類濃度が4月に極大を示している。

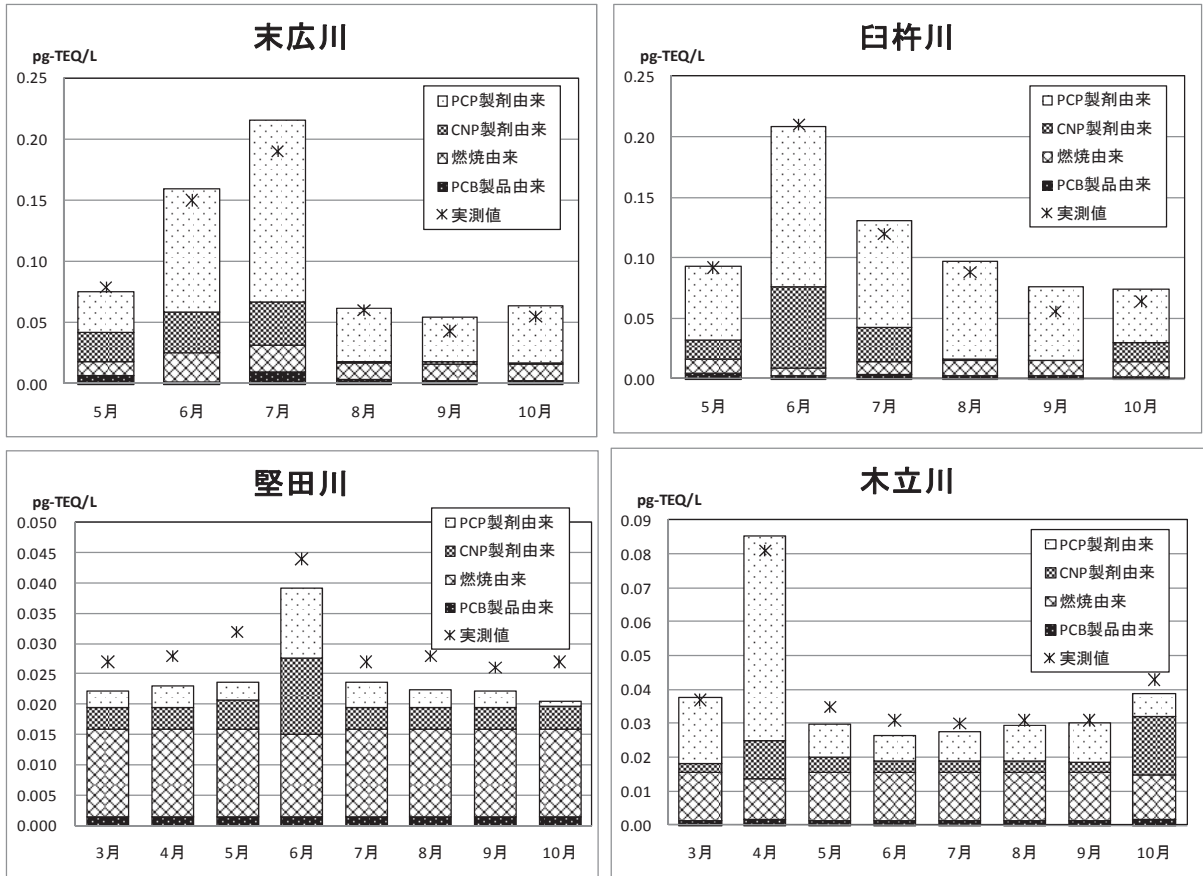


図5 2008年度調査における河川の解析結果

2008～2011年度に調査を行った15河川のダイオキシン類濃度が極大を示した要因を表1に示した。また、ダイオキシン類濃度が極大を示す月の発生源別寄与の割合を表2及び図6～9に示した。

過去の調査研究で示唆されたとおり、田植え時期

に極大を示す原因は農薬（主にPCP製剤）由来によるものであり、今回、異性体指標法を用いて発生源寄与を求めた結果、河川毎に発生源寄与における特徴を把握することができた。

表1 調査河川のダイオキシン類濃度の極大要因

年度	河川名	主な寄与要因
2011	犬丸川	PCP 製剤
	伊呂波川	PCP 製剤
	駅館川	PCP 製剤
2010	寄藻川	PCP 製剤
	桂川	PCP 製剤
	伊美川	PCP 製剤
	田深川	PCP 製剤
2009	武蔵川	PCP 製剤
	安岐川	PCP 製剤
	八坂川	PCP 製剤
	朝見川	PCP 製剤、CNP 製剤及び燃焼由来
2008	末広川	PCP 製剤
	臼杵川	PCP 製剤
	堅田川	PCP 製剤及び CNP 製剤
	木立川	PCP 製剤

表2 ダイオキシン類濃度が極大を示す月の発生源別寄与率

年度	河川名	極大を示した月	寄与率 (%)			
			PCP 製剤由来	CNP 製剤由来	燃焼由来	PCB 製品由来
2011	犬丸川	7月	77	18	4.5	0.15
	伊呂波川	7月	66	32	1.8	0.25
	駅館川	7月	75	20	3.9	0.37
2010	寄藻川	8月	69	19	12	0.02
	桂川	7月	77	21	1.6	0.21
	伊美川	6月	86	12	1.2	1.0
	田深川	6月	79	19	2.5	0.075
2009	武蔵川	6月	57	23	17	2.3
	安岐川	6月	67	15	16	3.0
	八坂川	7月	75	25	0.0	0.79
	朝見川	7月	30	31	25	14
2008	末広川	7月	69	17	10	4.3
	臼杵川	6月	64	32	2.6	1.5
	堅田川	6月	29	32	34	3.7
	木立川	4月	71	13	14	1.9

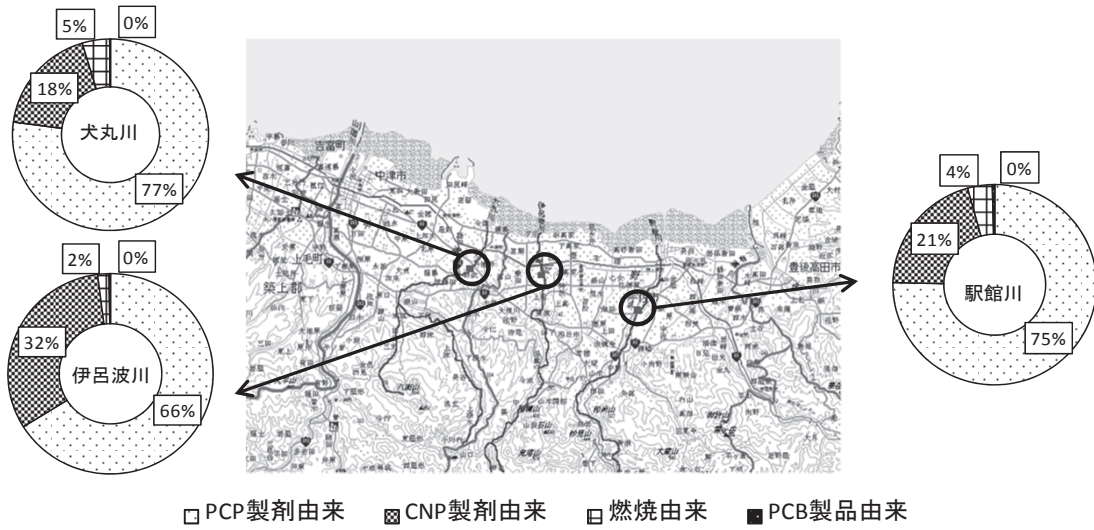


図6 2011年度調査河川におけるダイオキシン類濃度が極大となる月の発生源別寄与率

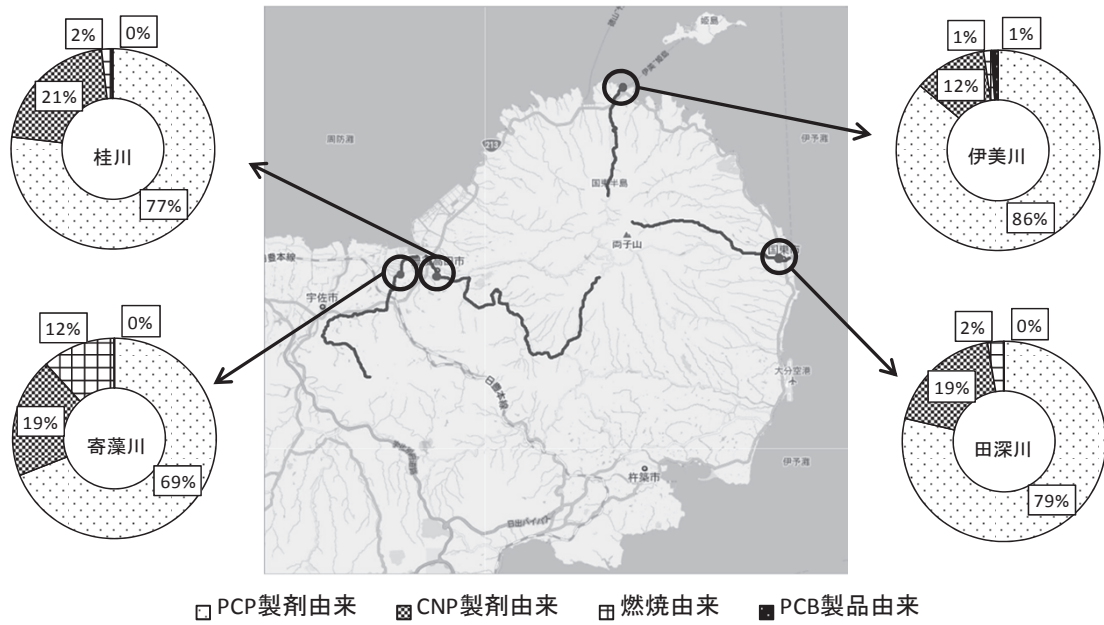


図7 2010年度調査河川におけるダイオキシン類濃度が極大となる月の発生源別寄与率

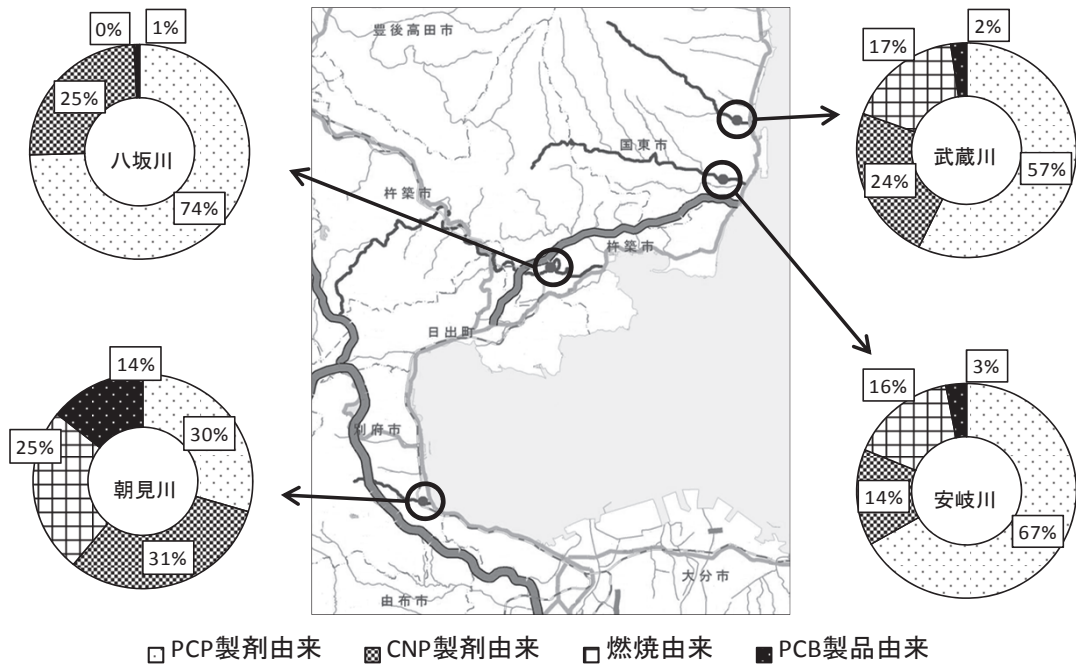


図8 2009年度調査河川におけるダイオキシン類濃度が極大となる月の発生源別寄与率

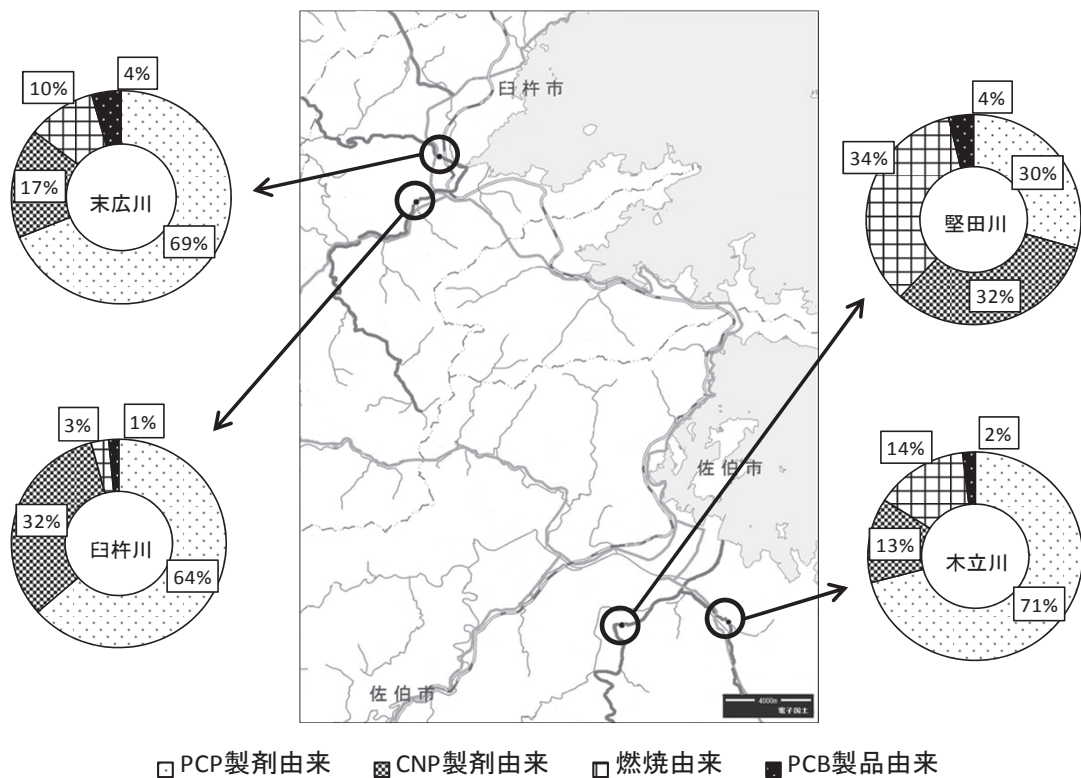


図9 2008年度調査河川におけるダイオキシン類濃度が極大となる月の発生源別寄与率



参 考 文 献

- 1) 野尻喜好, 蓑毛康太郎, 大塚宜寿: 異性体指標法によるダイオキシン類汚染源寄与の推算と分析管理への利用, 第38回 環境保全・公害防止研究発表会 講演要旨集 (2011,11)
- 2) 長野真紀, 伊賀上美紗, 中田高史, 上田精一郎: 河川水中のダイオキシン類濃度特性について(第4報), 大分県衛生環境研究センター年報23～29 (2011)
- 3) 長野真紀, 嶋崎みゆき, 中田高史, 上田精一郎: 河川水中のダイオキシン類濃度特性について(第3報), 大分県衛生環境研究センター年報27～35 (2010)
- 4) 上田精一郎, 長野真紀, 二村哲夫: 河川水中のダイオキシン類濃度特性について (第2報), 大分県衛生環境研究センター年報24～32 (2009)
- 5) 上田精一郎, 長野真紀, 二村哲夫: 河川水中のダイオキシン類濃度特性について, 大分県衛生環境研究センター年報21～28 (2008)
- 6) 環境省環境管理局水環境部土壤環境課農薬環境管理室: 水田と農用地を中心としたダイオキシン類の排出実態調査結果について (2002)



## (2) 調査・事例

1) LC/MS/MSによる食品中の保存料及び甘味料の一斉分析	41
2) 畜水産物における残留農薬一斉分析法の検討	48
3) 食品添加物の収去検査結果（2007～2011年度）について	60
4) 大分県における浴用水中のレジオネラ属菌の検出状況（2011年度）	64
5) 大分県における大気中の硫酸イオン濃度調査（2011年度）	69
6) 久住地域における乾性沈着物中のイオン成分の特性について（2011年度）	74
7) 大分県におけるモニタリング強化時の環境放射能水準調査	84
8) 由布地域の環境大気調査（2011年度）	92



# LC/MS/MS による食品中の保存料及び甘味料の一斉分析

麻生 花苗<sup>1</sup>、武田 亮<sup>2</sup>、林 由美、森崎 澄江、長谷川 昭生

## Simultaneous Determination of Preservatives and sweeteners in Foods with LC/MS/MS

Kanae Aso<sup>1</sup>, Ryo Takeda<sup>2</sup>, Yumi Hayashi, Sumie Morisaki and Akio Hasegawa

Key word : 保存料 Preservative, 甘味料 sweetener, 一斉分析法 Simultaneous Determination, 高速液体クロマトグラフィー質量分析 LC/MS/MS

### はじめに

近年、食品流通の広域化が進み輸入食品の割合は増加の一途をたどっており、とりわけ加工食品に使われる食品添加物は多種多様であり、使用範囲や残留基準は製造国により異なっている。このため、我が国の基準への適合を確認するためには日本で指定されていない添加物も含む多成分の迅速一斉分析が望まれる。

今回、保存料9項目、甘味料4項目について粕谷らの透析法<sup>1)</sup>及び鶴田らの精製法<sup>2)</sup>を参考に前処理を行い、LC/MS/MSによる一斉分析法の検討を行った。

試料にはウインナー、キムチ、魚肉練り製品、クラッカー、しょう油、ワインを用い、併せて市販食品のスクリーニング検査を行ったので報告する。

### 方 法

#### 1 試料

市販されているウインナー、キムチ、魚肉練り製品、クラッカー、しょう油、ワインを試料とした。

#### 2 試薬及び試液

##### 2.1 標準原液

保存料として安息香酸 (BA)、デヒドロ酢酸 (DHA)、ソルビン酸 (SOA)、パラオキシ安息香酸エステル類はパラオキシ安息香酸エチル (PHBA-Et) とパラオキシ安息香酸プロピル (PHBA-Pr)、パラオキシ安息香酸イソプロピル (PHBA-iPr)、パラオキシ安息香酸ブチル (PHBA-

Bu)、パラオキシ安息香酸イソブチル (PHBA-iBu) の他にパラオキシ安息香酸メチル (PHBA-Me) を、甘味料はサッカリン (SAC)、アスパルテーム (ASP)、サイクラミン酸 (SYC)、ズルチン (DU) とし、関東化学(株)または和光純薬工業(株)製を用いた。

サイクラミン酸及びズルチンは 10mg、アスパルテームは 50mg、その他は 100mg を秤量し、各々を 60%メタノールで 10ml に定容し、サイクラミン酸及びズルチンは 1000ppm、アスパルテームは 5000ppm、その他は 10000ppm を作成した。

##### 2.2 混合標準溶液

各標準原液を 100ppm となるように採取混合し、50%メタノールで 20ml に定容した。また、この原液をメタノール：6Mギ酸溶液 (pH2) (15：85) で希釈して 0.05、0.1、0.2、0.5、0.8、1.0ppm の標準溶液を調製した。

##### 2.3 その他の試薬等

メタノールは残留農薬PCB試験用、アセトニトリルは LC/MS 用又は残留農薬PCB試験用、その他の試薬は試薬特級、いずれも和光純薬(株)社製を使用した。透析用内液及び外液は 60%メタノールとした。

固相カートリッジは Oasis HLB (6cc、500mg、Waters社製) (以下、HLB とする) 及び Oasis WAX (6cc、150mg、Waters社製) (以下、WAX とする) をメタノール 5ml 及び精製水 5ml で、SepPak Vac C18 (6cc、500mg、Waters社製) (以下、C18 とする) をアセトニトリル 5ml 及び精製水 5ml でコンディショニングして使用した。

\*1 福祉保健部 東部保健所

\*2 生活環境部 環境保全課

### 3 装置及び測定条件

HPLC : Agilent社製 1100 シリーズ

MS/MS : AB Sciex社製 API2000

測定条件 : LC/MS/MS の条件を表1 に示した。

表1 LC-MS/MS条件

Column	CAPCELL PAK C18 AQ (S-3 $\mu$ m, 2.0mm i.d. $\times$ 150mm, Shiseido)
Mobile phase conditions	A :5mM ammonium acetate B :Acetonitrile
Flow rate	0.2ml/min
Gradient profile	A : B (total time) 95:5(0min) $\rightarrow$ 95:5(1min) $\rightarrow$ 90:10(1.5min) $\rightarrow$ 90:10(2.5min) $\rightarrow$ 80:20(3min) $\rightarrow$ 80:20(8min) $\rightarrow$ 60:40(15min) $\rightarrow$ 60:40(35min)
Injection volume	5 $\mu$ l

Additives	Retention time (min)	Monitoring ion			
		Precursor ion (m/z)	Product ion (m/z)	DP	CE
BA	7.1	121	77	-11	-14
SOA	8.3	111	67	-26	-10
DHA	9.5	167	83	-16	-16
PHBA-Me	17.7	151	92	-21	-26
PHBA-Et	20.8	165	92	-21	-26
PHBA-Pr	25.3	179	92	-21	-34
PHBA-iPr	24.5	179	92	-31	-28
PHBA-Bu	32.7	193	92	-26	-30
PHBA-iBu	32.0	193	92	-71	-32
SAC	8.0	182	106	-26	-24
CYC	8.3	178	80	-31	-30
ASP *	11.7	295	120	16	37
DU *	15.2	181	108	26	35

\*はポジティブイオン化

#### 4 試料の調製

試料10g又は10mlを60%メタノール溶液で20～24時間透析を行った。その透析溶液2mlを蒸留水で10mlに定容後、5mlを用いて固相カートリッジによる精製を行った。試料調製法を図1に示した。

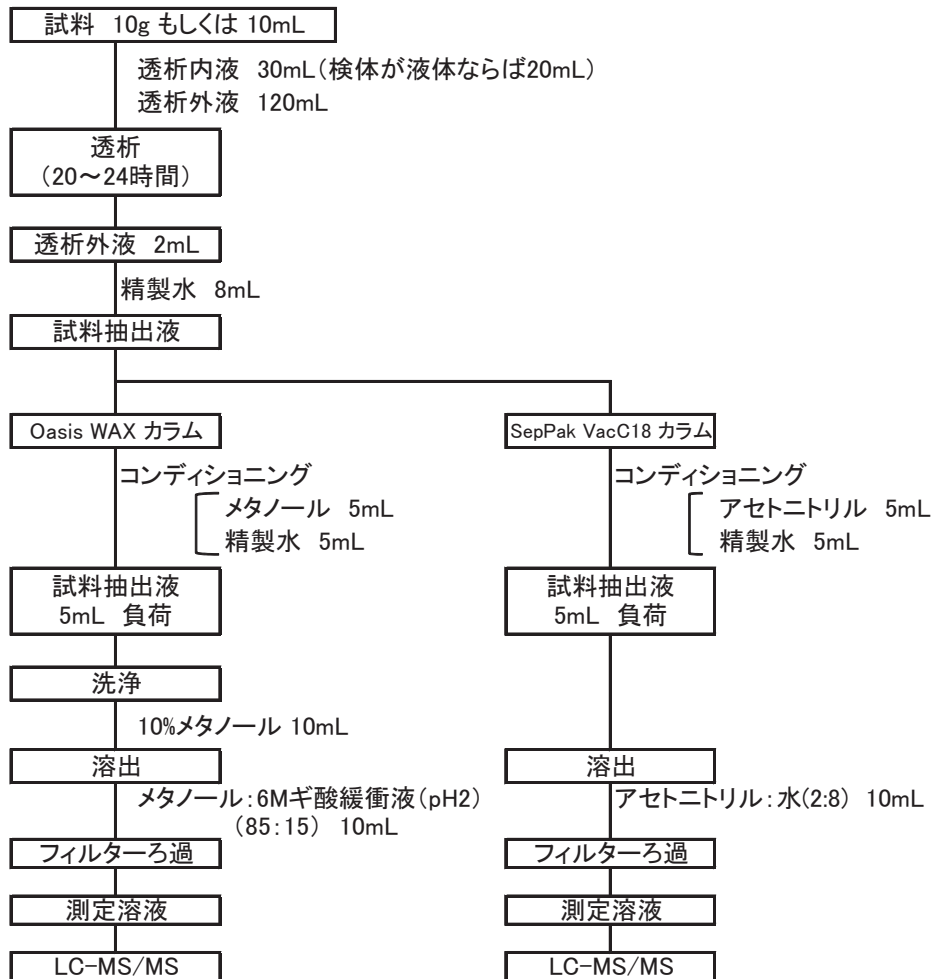


図1 試料の調製法

## 結 果

### 1 LC/MS/MS の条件検討

各標準品を用いてLC/MS/MS条件の検討を行い、表1に示した化合物ごとの測定パラメーターを決定した後、溶媒Aにギ酸又は酢酸アンモニウム溶液を、溶媒Bにアセトニトリルを用いてカラムからの溶出条件を検討した結果、5mM酢酸アンモニウムとアセトニトリルを用いたグラジエント法によりこれらの13物質をイオンペア試薬を用いない条件で溶出することが可能であった。各標準品のクロマトグラムを図2に示した。

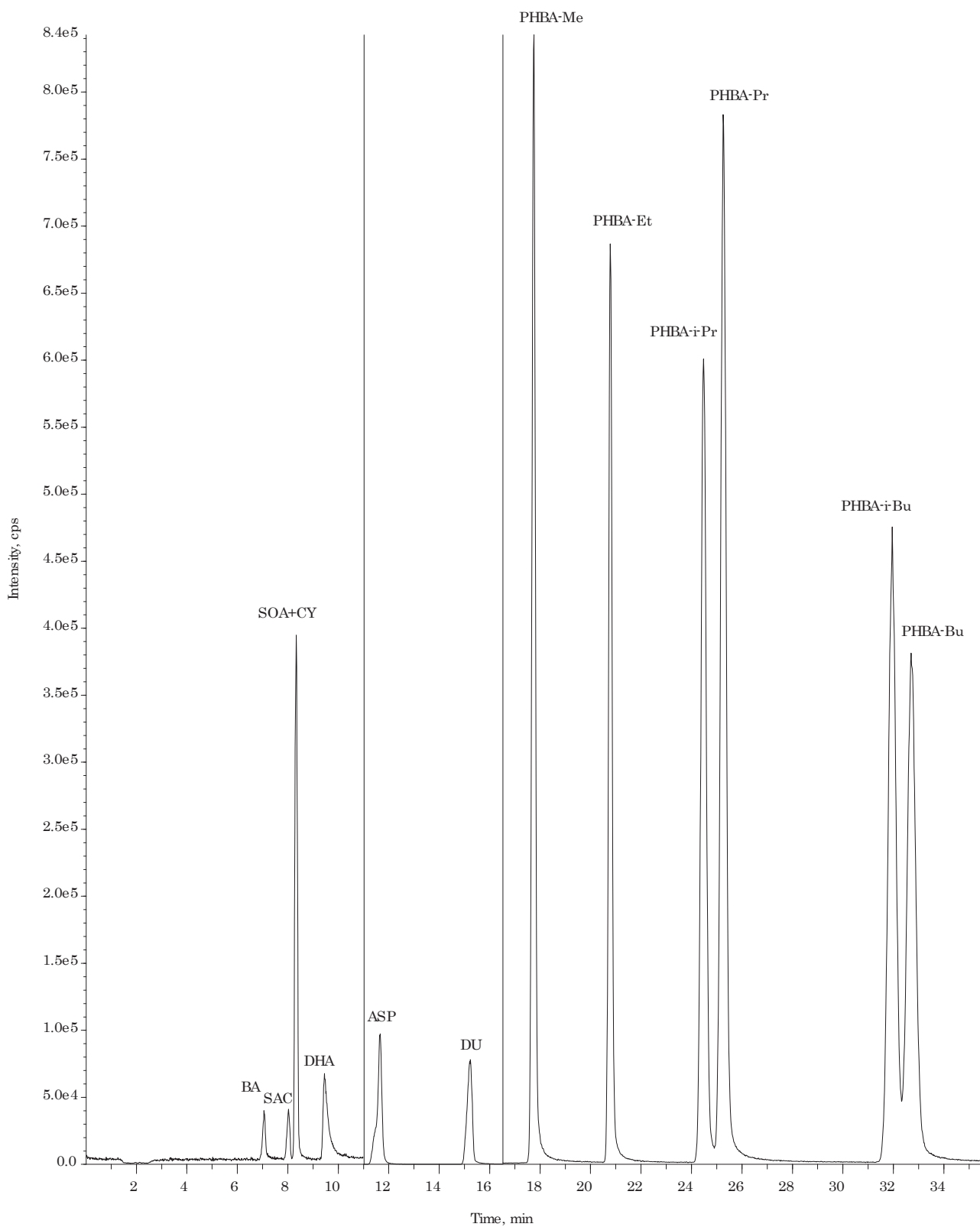


図2 保存料及び甘味料のトータルイオンクロマトグラム



## 2 精製法の検討

LC/MS/MS イオン化でのマトリックスの影響を低減するため、試料換算0.01g/kgとなるように混合標準溶液を添加したしょう油の透析外液を用いて、固相カートリッジ HLB、WAX 及び C18 による精製法の検討を行った。

表2に示したとおり、HLBは、パラオキシ安息香酸エステル類及びズルチンの7項目の回収率が56~112%となったが、サッカリン等これ以外の6項目は回収できなかった。一方、WAXは、サッカリン以外の12項目が回収でき、その回収率は56~150%であった。また、C18は、サッカリンを含む5項目が回収でき、その回収率が86~150%であったが、これ以外のパラオキシ安息香酸エステル類など8項目は回収できなかった。

したがって今回は固相カートリッジのWAX及びC18を用いて精製を行うこととした。

## 3 検量線及び検出下限値

0.05~1ppmの範囲で絶対検量線とマトリックス検量線を作成し、両者の傾きの比を用いて検量線の比較を行った。

表3にしょう油の例を示したが、13項目すべてにおいて両者の傾きの比は0.96~1.15となり、絶対検量線とマトリックス検量線で差が生じなかったものと考えた。また、直線性は、すべての項目で相関係

表2 しょう油透析外液による溶出試験結果

固相 添加物	Oasis HLB *1	Oasis WAX *2	SepPak C18 *3
ASP	×	○	○
CYC	×	○	○
DU	○	○	○
SAC	×	×	○
BA	×	○	×
DHA	×	○	×
SOA	×	○	○
PHBA-Me	○	○	×
PHBA-Et	○	○	×
PHBA-iBu	○	○	×
PHBA-iPr	○	○	×
PHBA-Bu	○	○	×
PHBA-Pr	○	○	×

\*1 : ○は回収率が56~112%

\*2 : ○は回収率が56~150%

\*3 : ○は回収率が86~150%

数が0.99以上となり良好な結果を得た。検出下限値はデヒドロ酢酸のみ0.0001g/kgとなり、それ以外の12項目は0.00005g/kgであった。

また、他の食品においても同様の結果が得られたことから、本法では絶対検量線を用いることとし、基準値超過や表示違反が疑われる場合においては、マトリックス検量線を用いて再定量を行うこととした。

表3 絶対検量線とマトリックス検量線の比較

添加物名	絶対検量線	マトリックス検量線 (しょう油)	傾きの比*	検出下限値 (ppm)
ASP	$y = 9.31E+05x + 3.54E+04$	$y = 8.07E+05x - 2.00E+03$	1.15	0.05
CYC	$y = 2.00E+06x + 4.42E+05$	$y = 1.78E+06x + 3.47E+05$	1.13	0.05
DU	$y = 1.04E+06x + 1.14E+05$	$y = 9.60E+05x + 1.11E+05$	1.08	0.05
SAC	$y = 2.71E+05x + 3.78E+04$	$y = 2.82E+05x + 2.65E+04$	0.96	0.05
BA	$y = 2.53E+05x + 3.76E+04$	$y = 2.12E+05x + 2.21E+04$	1.19	0.05
DHA	$y = 6.46E+05x - 2.08E+04$	$y = 6.14E+05x - 2.22E+04$	1.05	0.1
SOA	$y = 1.35E+05x - 1.53E+03$	$y = 1.17E+05x - 1.23E+03$	1.15	0.05
PHBA-Et	$y = 8.20E+06x + 1.87E+04$	$y = 7.82E+06x + 2.61E+04$	1.05	0.05
PHBA-Me	$y = 4.45E+06x - 1.75E+04$	$y = 4.15E+06x + 3.59E+02$	1.07	0.05
PHBA-Pr	$y = 3.93E+06x - 4.30E+03$	$y = 3.72E+06x - 1.72E+04$	1.06	0.05
PHBA-iPr	$y = 3.63E+06x - 3.79E+03$	$y = 3.44E+06x - 1.39E+04$	1.05	0.05
PHBA-Bu	$y = 4.44E+06x - 4.71E+04$	$y = 4.10E+06x + 1.46E+03$	1.08	0.05
PHBA-iBu	$y = 4.96E+06x - 3.22E+04$	$y = 4.61E+06x - 1.38E+04$	1.08	0.05

\*は絶対検量線の傾き/マトリックス検量線の傾きの値

#### 4 添加回収試験

ウインナー、キムチ、魚肉練り製品、クラッカー、しょう油、ワインの6種類の食品を用いて、13項目の添加回収試験を行った。

表4に示したとおり、ウインナー・魚肉練り製品・しょう油中のアスパルテーム、ウインナー・ワイン中のサイクラミン酸及び今回検討したすべての種類の食品中のパラオキシ安息香酸プロピルの回収率が50~69%もしくは121~150%となったが、概ね良好な結果を得ることができた。

#### 5 市販品の含有量調査

市販の各種食品20検体について、本法を用いて含有量調査を実施した結果、表5に示したとおりキムチ、魚肉練り製品、ワインからソルビン酸が、使用表示のあるしょう油からパラオキシ安息香酸類が検出されたものの基準値超過はなかった。また、日本で指定されていないサイクラミン酸、ズルチン及びパラオキシ安息香酸メチルはいずれの検体からも検出されなかった。

#### ま と め

今回検討した精製法は、パラオキシ安息香酸エステル類といった中性物質から安息香酸、サイクラミン酸やサッカリンといった強酸性物質まで幅広い極性を持つ化合物を対象としたため、2つの固相カートリッジによる精製を行わなければならなかったものの、簡易で迅速な精製法と考えられた。

また、LC/MS/MSによる測定は通常、マトリックス検量線を用いるが、測定溶液の希釈倍率が大きいため絶対検量線を用いることができ、有用な方法であると考えられた。

なお、今回調査した市販の各種食品20検体では、基準値超過や表示違反はなかった。今後も、県民の食への安全・安心につながるよう検査の迅速化や検査項目の増加に努めていきたい。

#### 参 考 文 献

- 1) 鶴田小百合他：LC-MS/MSによる保存料・甘味料の一斉分析法の検討，第48回全国衛生化学技術協議会年会 講演集，154-55（2011）
- 2) 氏家愛子他：食品中7種の保存料及びサッカリンのHPLCによる一斉分析とLC/MS/MSによる同定，食衛誌，48, No.6, 163-69（2007）

表4 食品における添加回収試験結果

食品名	回収率 (%)					
	ウインナー	キムチ	魚肉練り製品	クラッカー	しょう油	ワイン
ASP	150	97	150	80	150	142
CYC	149	74	105	120	111	150
DU	102	84	101	111	86	108
SAC	100	108	92	113	129	119
BA	118	149	85	116	96	81
DHA	105	98	102	126	98	126
SOA	92	105	104	101	104	101
PHBA-Me	97	98	94	111	109	111
PHBA-Et	90	94	90	108	102	96
PHBA-iBu	89	100	92	105	110	118
PHBA-iPr	104	103	96	116	109	119
PHBA-Bu	99	106	95	105	110	130
PHBA-Pr	51	52	50	60	56	131

\*は回収率50~69%もしくは121~150%のもの

表5 市販食品中の甘味料・保存料の含有量調査結果

食品名	検体数	測定結果 (g/kg)								
		ASP	CYC	DU	SAC	BA	DHA	SOA	PHBA-Me	PHBA-Es
ウインナー	4	N.D.*	N.D.*	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.*
キムチ	3	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.-0.52	N.D.	N.D.*
魚肉練り製品	3	N.D.*	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.-0.76	N.D.	N.D.*
クラッカー	3	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.*
しょう油	4	N.D.*	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.-0.079*
ワイン	3	N.D.	N.D.*	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.-0.20	N.D.	N.D.

N.D. : 検出下限値0.015g/kg未満

\*は回収率50~69%もしくは121~150%のもの

## 畜水産物における残留農薬一斉分析法の検討

武田 亮<sup>1</sup>、橋口 祥子、麻生 花苗<sup>2</sup>、林 由美、長谷川 昭生

### Investigation of Simultaneous Determination Method of Pesticide Residues to Livestock and Marine Products

Ryo Takeda, Shoko Hashiguchi, Kanae Aso, Yumi Hayashi, Akio Hasegawa

Key words : 残留農薬 pesticide residue, 畜水産物 livestock and marine products, 一斉分析 simultaneous determination

#### 要 旨

脂肪含量を調整した2種類の牛肉を試料として、残留農薬等の一斉試験法<sup>1)</sup>(以後、通知法)の畜産物一斉分析法(以後、畜水産物試験法)を一部改良した方法及び農作物一斉分析法(以後、農作物試験法)を用い、GC/MS及びLC/MS/MSによる残留農薬一斉分析法の検討を行った。

畜水産物試験法については、試料抽出時に加える水に代えて農作物試験法で用いるNaCl及び0.5mol/Lリン酸緩衝溶液を用いた方法(以後、改良法)でGC/MS測定及びLC/MS/MS測定共に回収率の向上がみられた。

また、GC/MS法では改良法で、低脂肪牛肉は213化合物のうち93.9%、高脂肪牛肉では86.9%、農作物試験法で低脂肪牛肉は80.3%が、また、高脂肪牛肉では82.6%が妥当性評価のガイドライン<sup>2)</sup>の真度及び精度の指標となる回収率70%~120%かつ併行精度15%以下(以後、指標)を満たす結果となり、両方法ともスクリーニング法として利用可能と考えられた。

同様に、LC/MS/MS法では改良法は、低脂肪牛肉は85化合物のうち62.4%指標を満たしたのに対し、高脂肪牛肉ではわずかに20.0%となり牛肉のスクリーニング法としては十分とはいえなかったが、農作物試験法が低脂肪牛肉は77.8%が、高脂肪牛肉では77.6%が指標を満たす結果となりスクリーニング法として利用できると考えられた。

#### はじめに

食品に残留する農薬等の規制は2006年12月からポジティブリスト制度が施行され、それまで残留基準がない農薬についても一律に0.01ppm以下の基準が適応されることとなった。

それに伴い、農作物と畜水産物を対象としたGC/MS及びLC/MSを用いる残留農薬等の一斉試験法<sup>1)</sup>が厚生労働省から通知された。

本県では、現在、農作物を対象に通知法に準ずる方法で行政検査を行っているが、畜水産物に対する検査は行っていないことから、今回、牛肉を試料として、畜水産物試験法及び比較的簡易で迅速な農作物試験法による検討も行ったので報告する。

#### 材料及び方法

##### 1 試料

オーストラリア産の牛肉を用い、出来る限り脂肪を取り除いた脂肪分6.6~8.0%の試料(以後、低脂肪牛肉)と、脂肪を取り除かずに牛脂を添加した脂肪分15.0~16.4%の試料(以後、高脂肪牛肉)を調整し用いた。

##### 2 試薬及び器具

###### 2.1 試薬等

###### 2.1.1 標準品

標準品は関東化学(株)製、和光純薬工業(株)製、Dr. Ehrenstorfer社製(残留農薬試験用)の粉末及び混合標準液の関東化学(株)製混合標準液31、48、62、林純薬工業(株)PL2005LC/MS Mix I、4、5、6を用いた。

添加回収用混合標準溶液1.0ppmをGC-MS用としてアセトン溶液、LC/MS/MS用としてアセトニトリル溶液で作成した。

また、検量線用混合標準溶液は、GC/MS用とし

\*1 生活環境部 環境保全課

\*2 福祉保健部 東部保健所

てアセトン:ヘキサン(1:1)溶液で、LC/MS/MS用としてメタノール:水(1:1)溶液で作成した。

2.1.2 試薬

ヘキサン、アセトニトリル、アセトン、メタノールおよびトルエンは残留農薬分析用を、その他は特級品を使用し、塩化ナトリウム及び無水硫酸ナトリウムは550℃で4時間以上加熱した。

0.5mol/Lリン酸緩衝溶液(pH7.0)はリン酸水素二カリウム(K<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub>) 52.7g及びリン酸二水素カリウム(KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>) 30.2gを量り採り、水約500mLに溶解し、1mol/L水酸化ナトリウム又は1mol/L塩酸を用いてpHを7.0に調整した後、水を加えて1Lとした。

2.1.3 カートリッジカラム

エチレンジアミン-N-プロピルシリル化シリカゲルミニカラムはジーエルサイエンス(株)GL-Pac GC/PSA(500mg/500mg)、オクタデシルシリル化シリカゲルミニカラムはウォーターズ社製Sep-Pak(1g)を使用した。

2.3 装置

GPC クリーンアップシステム

: ジーエルサイエンス(株)G-PREP GPC8100

液体クロマトグラフ/質量分析計

: HPLC部 Agilent 1100series (Agilent社製), MS部 API2000 (Applied Biosystems社製)

ガスクロマトグラフ/質量分析計

: GC部6890N, MS部5975MSD (Agilent社製)

3 試験方法

3.1 試料の調製

図1及び図2に示した、通知法に準ずる方法で行い、畜水産物試験法の改良点として、水溶性の高い残留農薬の抽出効率をあげる目的で、水の代替として農作物試験法で用いる0.5mol/Lリン酸緩衝溶液(pH7.0)及びNaClを用いた。(以後、改良法)

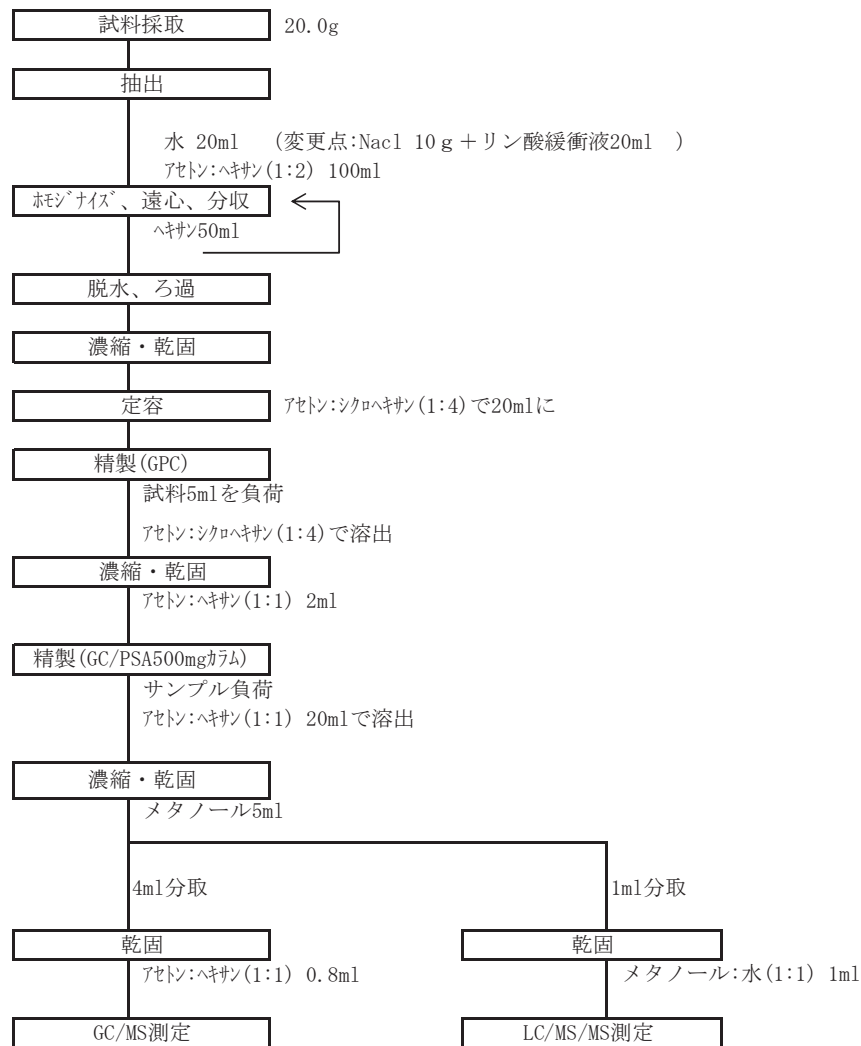


図1 農薬等の一斉試験法(畜水産物)

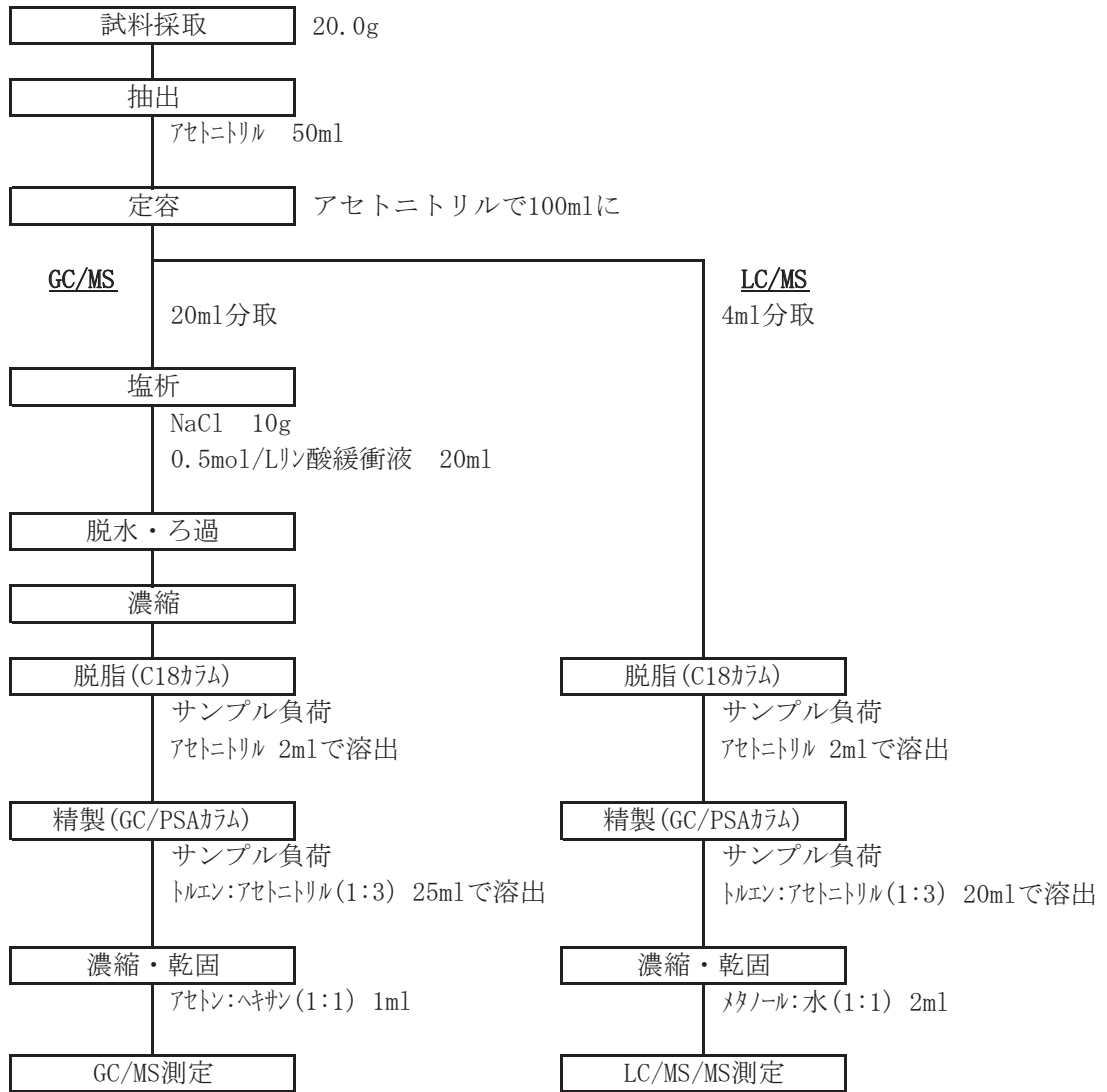


図2 農薬等の一斉試験法（農産物）

### 3.2 測定条件

#### 3.1.1 GPC クリーンアップシステム

カラム：Waters社製 Envirogel 19×300mm  
 移動相：アセトン及びシクロヘキサン（1：4）混  
 液  
 流速：5mL/min  
 カラム温度：40℃  
 注入量：5mL  
 モニター波長：254 nm

#### 3.1.2 GC/MS

カラム：HP-5MS (0.25 mm i.d. × 30 m, 膜厚0.25μm)  
 カラム温度：250℃ (1min) → 25℃ /min → 125℃  
 → 10℃ /min → 300℃ (10min)  
 注入口温度：250℃  
 注入量：2μL (パルスドスプリットレス)

キャリアーガス：He, コンスタントフローモード  
 MS イオン源温度：230℃  
 イオン化法：Electron Ionization (EI)  
 イオン化電圧：70eV  
 分析モード：Scan 及び Selective Ion Monitoring  
 (SIM) モード

#### 3.1.3 LC/MS/MS

##### HPLC 部分

カラム：L-column ODS (2.1 mm i.d. × 150 mm, 5  
 μm, 財団法人化学物質評価研究機構)  
 カラム温度：40℃  
 移動相：A液 5mmol/L 酢酸アンモニウム水溶液  
 B液 5mmol/L 酢酸アンモニウム-アセ  
 トニトリル溶液  
 グラジエント条件：初期 A75% → 12分後, A5% → 25

分後 A5%

注入量：試料4.0 $\mu$ L +マトリックス又は溶媒4.0 $\mu$ L

流量：0.2mL/min

MS/MS部分

イオン化法：Electrospray Ionization (ESI)

測定法：Mutiple Reaction Monitoring (MRM)

イオンスプレー電圧：5,000V (positive)

イオン源温度：500 $^{\circ}$ C

3.3 添加回収試験

低脂肪牛肉（脂肪分6.6～8.0%）及び高脂肪牛肉（脂肪分15.0～16.4%）それぞれ20gを試料（n=5）として添加回収用混合標準溶液1.0ml（各農薬成分1.0 $\mu$ g）を添加し、回収試験を行った。回収率の算出はマトリックス検量線を用いて行い、回収率の平均値と併行精度から指標を満たす項目及び満たさない項目に分類した。

4 結果

4.1 畜水産物一斉試験法の改良法

LC/MS/MS測定での回収率の向上を図る目的で、試料の抽出時に加える水に代えて農作物試験法で用いる0.5mol/Lリン酸緩衝溶液（pH7.0）及びNaClを用いたところ、図3に示したとおり、GC-MS測定において10%程度の化合物が回収率70%～120%に収まるように改善され、化合物名としてはジメトエート、ヘキサジノン、メビンホス、ジメチピン、ホスファミドン等であった。また、図4に示したとおりLC/MS/MS測定において回収率70%～120%の化合物比率が44.5%から66.3%と向上がみられ、化合物名としてはアセタミプリド、アルジカルブ、ジメチリモール、メソミル等であった。

従って抽出時の水の代わりに、0.5mol/Lリン酸緩衝溶液（pH7.0）及びNaClを用い、改良法とした。

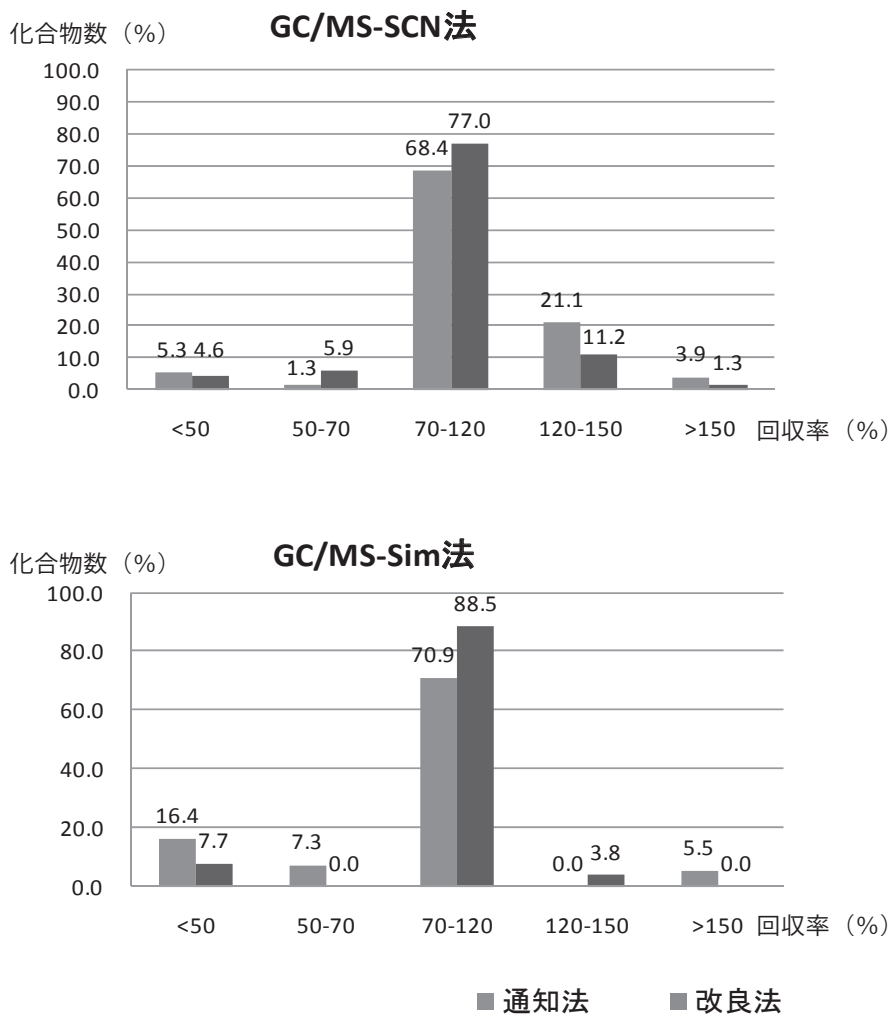


図3 畜水産物一斉分析法における抽出溶液別回収率の比較

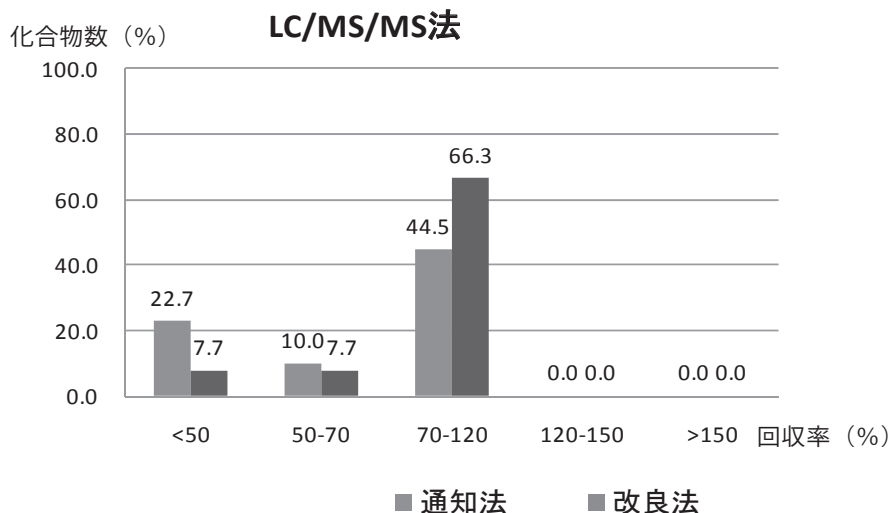


図4 畜水産物一斉試験法における抽出溶液別回収率の比較

## 4.2 回収率の結果

表1にGC/MS測定項目の平均回収率及び併行精度、表2にLC/MS/MS測定項目と平均回収率及び併行精度、表3に平均回収率集計表を示した。

### 4.2.1 改良法－GC/MS法

低脂肪牛肉は213化合物中93.9%が指標を満たす結果となった。また、高脂肪牛肉では86.5%で低脂肪牛肉に比べると若干低下したものの、回収率120%～150%、併行精度は15%未満のものが増加した。

今後、さらに測定化合物も増やせる可能性もあり畜水産物の一斉分析法利用可能と考えられたが、溶媒の使用量が多いことや迅速性に欠ける問題点があった。

### 4.2.2 農作物試験法－GC/MS法

上記と同様に表3の集計結果から、低脂肪牛肉は213化合物中80.3%が、また、高脂肪牛肉では82.6%が指標を満たす結果となり、両者ともほぼ同程度であったが、改良法に比べると若干少なかった。

しかし、操作の簡便・迅速性を考慮すると、回収率は指標を満たすが併行精度が15%を若干超える化合物の精度向上を図り畜水産物の一斉分析法として利用できるようにしたい。

### 4.2.3 改良法－LC/MS/MS法

低脂肪牛肉は85化合物中62.4%が指標を満たしたのに対し、高脂肪牛肉ではわずかに20.0%で低脂肪牛肉に比べると併行精度や回収率の低下がみられ、畜水産物の一斉分析法としては十分とはいえなかった。

### 4.2.4 農作物試験法－LC/MS/MS法

低脂肪牛肉は85化合物中78.8%が、高脂肪牛肉では77.6%が指標を満たす結果となり、ほぼ同程度で、両者とも改良法に比べると良好な結果となった。

操作の簡便・迅速性を考慮すると、GC/MS法と同様に回収率は指標を満たすが併行精度が15%を若干超える化合物等の精度向上を図り畜水産物の一斉分析法として利用できるようにしたい。



表1 GC/MS による残留農薬回収率

No.	試験法の種類	畜水産物試験改良法				農産物試験法				検出方法
	試料の種類	低脂肪牛肉		高脂肪牛肉		低脂肪牛肉		高脂肪牛肉		
	平均回収率、併行精度	回収率% (n = 5)	併行精度 (%)	回収率% (n = 5)	併行精度 (%)	回収率% (n = 5)	併行精度 (%)	回収率% (n = 4)	併行精度 (%)	
1	2,4-dichloroaniline	51.1	16.2	84.2	5.6					SCN
2	4,4'-dichlorobenzophenone	82.7	6.0	93.8	7.1	79.8	4.3	70.6	3.1	SCN
3	acephate					48.5	8.5	42.2	9.2	SIM
4	acetamiprid	84.5	8.0	80.2	9.9	81.7	15.7	55.5	9.9	SIM
5	acetochlor	83.3	7.2	100.5	6.0	88.3	7.4	80.2	3.2	SCN
6	alachlor	88.4	7.8	103.1	6.4	93.4	5.2	81.4	3.7	SCN
7	allethrin-1,2 [Gr:allethrin]	81.8	7.2			78.0	9.5	72.3	16.8	SIM
8	allethrin-3,4 [Gr:allethrin]	88.1	6.4	100.0	3.1	78.2	10.4	74.6	10.2	SIM
9	ametryn	84.9	6.4	106.6	6.4	93.4	5.2	82.1	4.9	SCN
10	anilofos	94.2	5.9	112.6	6.5	97.1	7.2	89.3	1.8	SCN
11	atrazine	89.7	5.0	105.3	6.3	89.8	6.7	86.9	2.5	SCN
12	azaconazole	90.4	5.2	110.4	8.5	102.3	9.2	90.8	7.4	SCN
13	azinphos-methyl	90.8	6.8	113.8	4.6	97.2	7.0	91.4	3.2	SCN
14	benalaxyl	92.7	6.1	102.7	7.3	90.5	6.3	87.5	3.5	SCN
15	benflurarin	86.7	6.5	105.5	5.6	78.7	15.3	70.7	8.5	SCN
16	benoxacor	89.9	4.7	116.1	2.8	94.7	9.5	86.6	4.0	SCN
17	BHC- $\alpha$ [Gr:BHC]	86.0	4.4	104.4	7.0	64.5	14.1	61.5	8.1	SCN
18	BHC- $\beta$ [Gr:BHC]	82.4	3.1	103.9	7.5	90.6	5.5	79.3	5.0	SCN
19	BHC- $\gamma$ [Gr:BHC]	93.0	8.4	101.6	6.5	76.3	10.5	67.6	8.1	SCN
20	BHC- $\delta$ [Gr:BHC]	83.1	5.9	100.2	7.1	82.0	5.5	81.7	4.4	SCN
21	bifenox	101.8	6.2	105.8	6.6	83.2	13.5	80.5	11.8	SIM
22	bifenthrin	94.0	5.3	97.5	6.5	72.8	8.4	64.7	3.8	SCN
23	bitertanol-1 [Gr:bitertanol]	92.2	4.8	102.8	7.8	77.6	18.7	83.9	13.7	SIM
24	bitertanol-2 [Gr:bitertanol]	102.8	7.0	103.0	9.5	82.1	13.5	81.9	14.5	SIM
25	bromacil	82.5	8.2	93.4	4.2	85.5	9.2	83.0	13.3	SIM
26	bromobutide	88.0	4.6	106.1	4.1	88.7	6.3	86.6	2.1	SCN
27	bromophos-methyl	88.5	6.1	99.1	6.9	81.4	7.1	73.9	4.5	SCN
28	bromopropylate	92.7	5.8	112.6	4.0	88.2	7.9	80.3	4.9	SCN
29	bupirimate	92.7	4.2	103.4	2.4	87.2	6.9	83.9	4.3	SCN
30	buprofezin	89.2	7.7	94.6	5.0	71.6	2.2	66.7	5.7	SCN
31	butachlor	91.3	7.0	106.1	6.1	88.0	6.1	76.6	2.1	SCN
32	butamifos	89.2	6.1	125.1	7.3	107.1	7.7	91.7	4.7	SCN
33	cafenstrole	94.2	5.4	106.2	4.8	92.0	8.9	95.6	3.4	SCN
34	carbaryl	79.4	6.5	105.6	6.1	96.4	3.8	88.9	5.6	SCN
35	carbofuran	80.0	5.8	101.7	2.7	83.5	2.3	87.4	10.4	SCN
36	carboxin	65.9	7.4	195.0	2.2	76.9	5.3	97.1	12.8	SCN
37	carfentrazone-ethyl	91.6	7.4	123.3	7.5	98.3	7.0	89.4	2.3	SCN
38	chlorbufam	83.6	8.9	106.2	8.7	100.4	7.1	86.2	5.6	SCN
39	chlorfenapyr	88.6	3.5	97.5	2.1	82.3	10.4	73.6	10.1	SIM
40	chlorfenvinphos-1 [Gr:chlorfenvinphos]	89.1	5.9	103.6	7.7	78.9	14.5	85.8	12.3	SIM
41	chlorfenvinphos-2 [Gr:chlorfenvinphos]	91.3	4.2	102.1	5.8	80.3	11.2	80.2	10.8	SIM
42	chlorpyrifos	91.0	8.3	104.6	6.9	81.1	7.1	71.9	5.1	SCN
43	chlorpyrifosmethyl	88.3	6.9	103.6	5.0	83.2	9.1	75.9	7.2	SCN
44	chlorthal-dimethyl	92.6	5.0	101.0	6.2	87.9	5.7	77.0	3.2	SCN
45	clomazone	88.8	5.2	104.3	6.9	83.8	9.8	80.4	6.5	SCN
46	cyanazine	88.9	4.7	105.2	5.8	98.9	6.2	89.3	6.0	SCN
47	cyanophos	89.2	6.0	103.8	5.4	88.9	9.9	81.3	6.0	SCN
48	cyfluthrin-1 [Gr:cyfluthrin]	96.8	6.6	96.8	7.5	75.9	13.4	75.1	11.8	SIM
49	cyfluthrin-2 [Gr:cyfluthrin]	97.3	6.8	92.9	8.4	75.1	13.4	75.5	10.6	SIM
50	cyfluthrin-3,4 [Gr:cyfluthrin]	101.0	6.9	90.3	10.8	79.2	14.1	77.8	10.6	SIM
51	cyhalofop-butyl	94.1	3.5	119.6	5.3	91.4	7.7	96.9	4.4	SCN
52	cyhalothrin-1 [Gr:cyhalothrin]	95.2	5.4	97.0	6.8	76.4	13.1	73.9	9.9	SIM
53	cyhalothrin-2 [Gr:cyhalothrin]	97.1	6.7	96.7	7.8	79.2	14.1	77.4	10.9	SIM
54	cypermethrin-1 [Gr:cypermethrin]	97.8	6.3	94.3	8.5	74.0	13.8	72.2	10.6	SIM
55	cypermethrin-2 [Gr:cypermethrin]	100.5	6.9	93.7	9.2	72.9	14.8	74.2	11.7	SIM
56	cypermethrin-3,4 [Gr:cypermethrin]	101.8	6.8	93.9	9.4	77.1	15.0	77.9	11.6	SIM
57	DDD-pp [Gr:DDT]	89.6	6.8	103.0	6.2	82.4	4.5	72.1	2.4	SCN
58	DDE-pp [Gr:DDT]	90.8	6.1	93.7	3.7	60.8	6.4	46.6	2.3	SCN
59	deltamethrin	97.3	8.8	92.5	11.4	71.3	16.4	66.6	9.0	SIM
60	demeton-s-methyl	81.3	3.3	99.0	9.5	74.0	13.2	84.3	21.4	SIM
61	diazinon	91.2	6.4	107.1	3.7	77.7	11.4	72.3	6.8	SCN
62	dichlofenthion	90.6	5.5	101.5	6.1	77.9	9.6	72.1	5.2	SCN
63	dichloran	82.2	6.0	76.2	10.6	91.4	9.9	78.9	10.7	SCN
64	diclocybet-1 [Gr:diclocybet]	87.7	4.5	101.5	8.4	94.0	4.0	87.8	3.2	SCN
65	diclocybet-2 [Gr:diclocybet]	83.6	7.4	96.2	10.3	93.1	3.4	89.6	4.6	SCN
66	diclofop-methyl	92.0	5.6	105.2	7.9	86.1	7.0	86.1	3.5	SCN
67	difenoconazole-1 [Gr:difenoconazole]	103.8	9.3	92.7	15.4	80.5	18.2	81.9	15.0	SIM
68	difenoconazole-2 [Gr:difenoconazole]	101.2	9.1	106.4	7.3	79.3	24.5	78.4	14.0	SIM
69	diflufenican					90.3	7.3	88.7	4.4	SCN
70	dimepiperate	91.4	6.6	109.3	4.5	84.1	8.8	82.6	6.8	SCN
71	dimethametryn	90.6	6.8	108.8	4.1	86.2	5.5	81.3	4.3	SCN

No.	試験法の種類	畜水産物試験改良法				農産物試験法				検出方法
	試料の種類	低脂肪牛肉		高脂肪牛肉		低脂肪牛肉		高脂肪牛肉		
	平均回収率、併行精度	回収率% (n = 5)	併行精度 (%)	回収率% (n = 5)	併行精度 (%)	回収率% (n = 5)	併行精度 (%)	回収率% (n = 4)	併行精度 (%)	
72	dimethenamid	90.2	6.2	104.2	4.8	89.4	8.7	82.3	4.1	SCN
73	dimethipin	64.8	6.3	74.2	8.2	82.8	6.8	82.4	5.9	SIM
74	dimethoate	75.8	4.0	94.5	6.8	90.5	8.1	92.1	2.9	SCN
75	diphenamid	90.0	5.7	103.8	7.1	92.5	4.7	89.6	4.5	SCN
76	endosulfan-sulfate	86.8	4.9	112.5	19.8	91.6	6.7	90.7	5.2	SCN
77	endosulfan- $\alpha$ [Gr:endosulfan]	90.9	6.6	100.0	7.9	78.6	1.8	71.5	5.3	SCN
78	endosulfan- $\beta$ [Gr:endosulfan]	90.4	6.7	94.9	6.6	87.6	2.9	77.7	5.0	SCN
79	ethalfuralin	86.9	5.3	111.9	4.3	79.3	18.8	68.1	11.7	SCN
80	ethion	92.7	5.6	109.3	4.4	94.8	7.3	84.9	2.9	SCN
81	ethofumesate	86.7	6.5	103.9	6.7	92.1	6.4	91.4	5.4	SCN
82	etofenprox	92.7	3.6	93.9	6.3	71.4	9.4	68.1	4.3	SCN
83	etoxazole	81.1	5.1	122.7	9.0	84.4	11.5	80.9	13.1	SCN
84	fenamidone	78.7	6.4	77.1	9.1	94.4	7.5	92.7	5.8	SCN
85	fenamiphos	91.6	4.0	141.4	2.8	80.3	11.9	82.0	16.8	SIM
86	fenarimol	93.1	6.4	106.0	7.0	95.8	8.3	92.5	4.1	SCN
87	fenbuconazole	92.7	7.6	85.2	6.3	96.8	12.1	100.6	4.1	SCN
88	fenitrothion	94.6	3.0	105.6	4.5	84.2	12.6	81.9	11.7	SIM
89	fenthiothiocarb	89.2	7.7	105.3	5.1	92.6	6.0	89.5	2.9	SCN
90	fenproprathrin	95.6	7.5	96.3	3.6	83.3	5.5	79.4	2.9	SCN
91	fenpropimorph	74.5	4.9	123.5	4.6					SCN
92	fenthion	90.1	5.7	137.6	4.7	83.8	2.5	87.5	6.7	SCN
93	fenvalerate-1 [Gr:fenvalerate]	96.4	6.1	88.9	11.4	70.0	14.6	71.4	10.2	SIM
94	fenvalerate-2 [Gr:fenvalerate]	99.0	7.5	93.4	10.4	74.4	16.6	73.2	12.8	SIM
95	fipronil	83.7	8.3	113.7	3.4	101.7	7.1	90.5	5.7	SCN
96	flamprop-methyl	90.7	7.0	103.5	5.4	96.9	5.9	90.8	5.5	SCN
97	fluacrypyrim	88.7	6.2	105.1	3.6	94.5	6.5	92.2	4.0	SCN
98	flucythrinate-1 [Gr:flucythrinate]	101.1	7.3	94.5	8.5	80.3	14.6	81.8	11.6	SIM
99	flucythrinate-2 [Gr:flucythrinate]	99.5	6.4	94.3	9.8	79.4	14.6	81.7	12.0	SIM
100	fludioxonil	85.1	6.6	90.6	3.5	91.1	4.9	96.5	6.7	SCN
101	flumiclorac pentyl	94.3	6.4	88.2	13.6	76.3	16.8	76.8	10.1	SIM
102	flumioxazin	100.5	5.2	97.2	10.3	80.1	15.8	85.4	13.7	SIM
103	fluquinconazole	90.8	3.3	105.3	7.4	96.0	8.9	91.4	3.1	SCN
104	fluridone	86.7	4.0	87.5	11.4	84.9	14.6	87.8	15.3	SIM
105	flusilazole	94.4	6.8	120.6	8.2	104.6	11.9	91.2	3.8	SCN
106	fluthiacet-methyl	72.8	26.9	75.7	16.6	74.8	19.2	74.8	14.3	SIM
107	flutolanil	92.5	6.1	107.1	4.2	97.3	6.5	92.7	3.1	SCN
108	flutriafol	95.4	3.2	102.4	3.5	86.9	11.9	84.6	11.9	SIM
109	fluvalinate-1 [Gr:fluvalinate]	96.3	4.4	90.4	11.2	71.7	16.8	72.0	15.6	SIM
110	fluvalinate-2 [Gr:fluvalinate]	100.2	4.7	86.4	9.2	73.1	16.8	72.0	10.5	SIM
111	fthalide	85.2	5.4	88.7	8.2	80.3	8.8	78.5	7.2	SCN
112	hexaconazole	90.0	4.0	105.0	4.7	77.6	11.2	73.2	10.8	SIM
113	hexazinone	83.8	5.8	88.5	6.5	82.1	11.9	79.1	10.9	SIM
114	hexazinone	86.0	5.3	103.8	3.9	99.9	10.3	94.6	3.6	SCN
115	imazalil	85.9	4.8	97.1	7.1					SIM
116	imazamethabenz-methyl	98.0	6.4	102.3	5.2	78.5	16.9	91.7	14.4	SIM
117	imibenconazole	107.3	2.8	86.8	10.7	84.1	11.7	76.3	13.2	SIM
118	imibenconazole-desbenzyl	83.5	5.0	83.0	9.2	86.2	14.1	82.2	13.8	SIM
119	iprobenfos	89.7	5.1	119.8	6.5	98.4	9.3	90.1	4.4	SCN
120	iprodione [Gr:iprodione]	90.9	2.8	107.0	7.4	89.8	8.6	84.8	4.7	SCN
121	iprodione metabolite [Gr:iprodione]	88.2	8.9	98.5	10.0	75.1	12.0	75.5	11.4	SIM
122	isazophos	83.5	7.3	106.0	6.8	93.7	3.9	82.4	5.8	SCN
123	isofenphos	81.6	12.0	95.9	6.3	88.8	6.6	80.6	6.3	SCN
124	isofenphos oxon	94.9	5.7	152.9	7.8	112.6	7.8	96.3	2.9	SCN
125	isoprothiolane	92.6	5.2	103.0	8.0	91.5	2.5	89.3	2.0	SCN
126	isoxathion	91.8	6.4	106.8	6.7	69.6	11.9	69.1	9.4	SIM
127	isoxathion oxon	72.7	8.1	104.1	4.4	67.4	11.8	67.6	20.7	SIM
128	kresoxim-methyl	90.9	5.1	101.1	7.1	95.4	6.4	90.5	3.5	SCN
129	malathion	92.8	4.6	122.0	9.7	100.1	4.8	91.0	4.7	SCN
130	mefenpyr-diethyl	91.6	4.4	110.6	5.7	89.4	7.3	91.1	2.2	SCN
131	metalaxyl	90.7	8.4	111.0	6.0	98.1	8.3	85.8	5.0	SCN
132	methidathion	91.3	6.8	109.4	3.7	91.9	6.3	91.7	1.0	SCN
133	methoprene-1 [Gr:methoprene]	65.0	6.7	87.2	1.9	53.6	12.8	79.6	14.3	SIM
134	methoprene-2 [Gr:methoprene]	72.2	7.4	71.0	8.8	60.8	12.4	68.4	58.5	SIM
135	methoxychlor	93.2	4.8	114.9	4.6	93.9	6.9	85.1	2.5	SCN
136	metolachlor	91.0	5.8	105.7	4.3	88.6	5.9	86.2	3.2	SCN
137	metominostrobin-E [Gr:metominostrobin]	92.8	5.7	108.0	6.2	98.5	3.6	93.1	2.4	SCN
138	metominostrobin-Z [Gr:metominostrobin]	93.2	6.1	104.2	5.5	100.8	6.7	87.3	4.1	SCN
139	mevinphos	77.5	6.6	84.5	5.7	67.8	16.5	64.9	13.2	SIM
140	monocrotophos					83.2	10.3	72.6	8.2	SIM
141	myclobutanil	91.1	4.1	104.1	4.3	83.8	11.5	81.2	12.4	SIM
142	napropamide	91.9	7.3	103.7	5.7	85.9	4.4	84.2	2.9	SCN
143	nitrothal-isopropyl	89.7	6.4	126.4	5.8	112.8	11.1	88.6	5.4	SCN
144	norflurazon	88.7	6.6	103.3	11.9	98.8	5.3	90.8	3.6	SCN

No.	試験法の種類	畜水産物試験改良法				農産物試験法				検出 方法
	試料の種類	低脂肪牛肉		高脂肪牛肉		低脂肪牛肉		高脂肪牛肉		
	平均回収率、併行精度	回収率% (n = 5)	併行精度 (%)	回収率% (n = 5)	併行精度 (%)	回収率% (n = 5)	併行精度 (%)	回収率% (n = 4)	併行精度 (%)	
145	oryzalin	82.6	24.2	70.1	18.3	73.3	13.0	73.0	15.2	SIM
146	oxadiazon	90.6	5.1	103.0	7.5	87.6	4.4	81.6	2.1	SCN
147	oxyfluorfen	94.5	8.9	118.4	4.6	108.2	13.0	99.5	11.2	SCN
148	penconazole	89.3	6.4	116.4	9.9	96.7	11.7	83.4	7.3	SCN
149	permethrin-1 [Gr:permethrin]	97.0	3.1	92.9	7.5	65.8	8.6	68.6	9.7	SCN
150	permethrin-2 [Gr:permethrin]	91.1	2.3	98.0	8.3	76.5	8.7	71.8	5.4	SCN
151	phenothrin-1 [Gr:phenothrin]	85.3	12.0	101.7	5.6	68.0	9.5	71.0	4.9	SCN
152	phenothrin-2 [Gr:phenothrin]	92.3	4.2	107.7	6.5	70.2	11.0	66.3	4.2	SCN
153	phorate	83.9	4.9	138.0	5.3	69.4	23.2	66.0	11.8	SCN
154	phosmet	90.5	6.5	112.4	4.5	93.6	6.9	91.8	0.7	SCN
155	phosphamidon	85.6	3.8	96.1	5.2	83.8	8.5	80.4	7.5	SIM
156	picolinafen					92.3	8.7	88.0	0.7	SCN
157	piperophos	95.2	4.3	124.3	11.7	95.6	12.8	89.9	5.9	SCN
158	pirimicarb	89.1	5.9	101.1	6.4	88.0	6.8	83.8	4.9	SCN
159	pirimiphos-methyl	88.5	6.7	103.3	4.9	84.7	7.1	80.5	6.0	SCN
160	procymidone	89.5	6.4	104.8	3.2	92.0	3.9	85.7	4.4	SCN
161	profenofos	89.6	5.9	99.7	3.7	78.9	10.8	75.7	9.1	SIM
162	prohydrojasmon-1 [Gr:prohydrojasmon]	86.2	6.0	100.8	3.6	85.9	9.3	75.0	5.5	SCN
163	prohydrojasmon-2 [Gr:prohydrojasmon]	81.8	11.3	106.4	5.2	76.7	13.8	71.6	12.5	SIM
164	prometryn	87.3	6.3	106.4	5.2	91.4	4.9	79.6	3.8	SCN
165	propanil	89.7	4.3	103.6	4.4	90.2	6.4	86.3	3.0	SCN
166	propargite	87.1	3.2	95.5	5.4	74.8	8.4	72.7	8.3	SIM
167	propazine	90.2	3.7	105.8	6.4	88.4	6.0	84.4	3.9	SCN
168	propiconazole-1 [Gr:propiconazole]	100.1	3.8	110.8	4.6	79.9	15.0	76.5	13.3	SIM
169	propiconazole-2 [Gr:propiconazole]	96.1	4.5	107.1	5.0	79.8	13.2	75.0	11.6	SIM
170	propoxur	90.2	5.0	110.1	4.2	92.7	9.0	88.7	4.7	SCN
171	propryzamide	81.9	3.0	102.9	6.2	95.2	2.4	88.4	2.0	SCN
172	pyraflufen ethyl	93.9	5.7	109.5	5.7	90.4	8.6	88.8	1.8	SCN
173	pyrazophos	95.3	5.2	113.6	3.0	96.1	9.8	93.9	3.7	SCN
174	pyributicarb	93.0	4.7	114.3	3.3	91.0	8.3	83.9	3.6	SCN
175	pyridaben	89.4	4.4	99.6	6.8	69.2	9.0	69.8	7.1	SCN
176	pyridafenthion	89.2	5.6	99.6	6.1	84.5	12.3	82.7	12.1	SIM
177	pyrimethanil	85.7	5.7	77.2	8.5	85.4	6.5	79.2	4.1	SCN
178	pyriminobac-methyl-E [Gr:pyriminobac-methyl]	93.8	4.2	112.3	4.1	96.7	5.9	93.7	2.5	SCN
179	pyriminobac-methyl-Z [Gr:pyriminobac-methyl]	91.0	6.1	111.0	4.8	97.9	6.2	90.4	3.3	SCN
180	pyriproxyfen	93.6	5.3	108.1	6.5	83.5	7.7	81.4	3.2	SCN
181	pyroquilon	83.6	10.6	93.0	7.2	86.4	7.0	83.0	6.1	SCN
182	quinoclamine					90.6	2.4	86.2	6.8	SCN
183	quinoxifen	88.3	6.2	79.1	9.3	70.0	7.2	62.4	4.7	SCN
184	quintozene	86.5	5.7	109.4	3.7	61.9	17.2	54.2	6.0	SCN
185	simazine	88.5	4.8	103.4	6.7	95.8	6.8	86.1	3.4	SCN
186	simetryn	86.9	5.4	108.2	4.5	96.1	3.0	87.3	3.6	SCN
187	spirodiclofen	73.9	8.3	87.0	8.8	62.4	13.1	57.7	9.2	SIM
188	spiroxamine-1 [Gr:spiroxamine]	73.3	4.8	286.0	2.4					SCN
189	spiroxamine-2 [Gr:spiroxamine]	70.4	5.6	249.6	2.5					SCN
190	TCMTB			68.1	8.9					SCN
191	tebconazole	95.8	5.0	103.8	7.1	80.4	13.8	74.6	12.0	SIM
192	tecnazene	83.2	6.8	100.9	5.7					SCN
193	tefuthrin	83.0	5.8	99.8	5.4	75.6	7.0	69.7	4.0	SCN
194	terbacil	86.9	7.4	106.8	3.8	103.8	7.1	95.7	4.2	SCN
195	terbufos	86.9	3.9	146.1	2.6	76.8	15.6	73.1	8.7	SCN
196	terbutryn	89.8	3.9	111.9	4.1	89.4	5.7	81.0	2.6	SCN
197	tetrachlorvinphos	90.4	5.1	116.8	1.3	82.4	8.8	81.3	3.4	SCN
198	tetradifon	93.1	3.4	103.4	7.5	81.4	7.5	76.3	7.1	SCN
199	thiabendazole					69.5	11.7			SIM
200	thifluzamide	88.5	4.3	107.2	7.7	96.6	6.5	88.8	6.6	SCN
201	thiobencarb	91.3	6.1	102.4	3.7	82.6	5.2	81.4	4.0	SCN
202	tolfenpyrad	92.2	5.5	88.7	14.4	72.9	17.0	70.3	11.9	SIM
203	triadimefon	91.0	4.4	109.8	6.9	111.0	6.9	91.4	2.5	SCN
204	triadimenol-1 [Gr:triadimenol]	91.8	6.4	102.4	6.1	86.4	11.0	82.1	11.4	SIM
205	triadimenol-2 [Gr:triadimenol]	92.5	4.5	110.5	9.3	86.9	10.4	72.1	12.0	SIM
206	tri-allate	88.1	4.7	100.1	9.1	64.8	11.3	59.8	11.3	SCN
207	triazophos	93.9	6.8	115.0	6.3	99.0	6.6	92.6	2.2	SCN
208	trifloxystrobin	89.8	4.5	100.2	4.9	82.6	10.4	81.5	10.7	SIM
209	trifluralin	83.8	6.6	106.5	6.1	77.1	16.1	70.0	7.9	SCN
210	uniconazole-P	90.5	4.6	103.7	4.4	79.4	12.1	75.0	12.6	SIM
211	vinclozolin	89.3	7.5	99.0	6.0	92.8	8.7	81.0	6.2	SCN
212	XMC	87.8	5.8	107.3	6.7	89.2	9.5	81.9	4.8	SCN
213	zoxamide	87.8	4.7	106.3	6.1	87.9	6.4	83.6	3.7	SCN

空白 は回収率50%未満

表2 LC/MS/MS による残留農薬回収率

No.	試験法の種類	畜水産物試験改良法				農産物試験法			
	試料の種類	低脂肪牛肉		高脂肪牛肉		低脂肪牛肉		高脂肪牛肉	
	平均回収率、併行精度	回収率% (n = 5)	併行精度 (%)	回収率% (n = 5)	併行精度 (%)	回収率% (n = 5)	併行精度 (%)	回収率% (n = 5)	併行精度 (%)
1	2,3,5trimethacarb	100.4	5.1	99.6	7.6	93.3	9.6	85.1	4.2
2	3,4,5trimethacarb	100.4	5.1	99.6	7.6	93.3	9.6	85.1	4.2
3	acephate							83.4	9.3
4	acetamiprid	73.5	2.0			113.3	6.9	91.8	2.8
5	aldicarb	80.4	17.0	68.4	9.3	76.2	10.9	73.1	7.8
6	aldicarb sulfone					122.6	16.0	93.7	6.9
7	aldicarb-sulfox					100.3	12.4	99.8	13.2
8	aminocarb	93.1	4.4			95.8	11.2	76.7	4.5
9	anilofos	105.2	2.9			106.6	3.8	83.2	6.5
10	azoxystrobin	131.7	5.8	59.7	19.5	104.9	4.9	89.9	5.3
11	bendiocarb	81.9	19.9			121.2	10.4	126.2	55.3
12	benfuracarb	68.1	10.0	54.7	27.2	87.0	11.1	84.0	12.8
13	benzofenap	99.2	3.5			87.8	9.0	73.7	6.0
14	butafenacil	64.0	25.3	56.8	19.9	107.0	7.0	80.4	12.9
15	butocarboxim	73.0	6.5	87.8	13.9	107.4	13.5	89.8	8.5
16	butocarboxim-sulfoxide					112.2	12.7	84.7	5.7
17	barbaryl	95.7	4.2	99.8	12.5	114.4	5.0	116.2	17.6
18	carbofuran	103.8	6.9	64.3	56.3	136.1	8.8	88.2	5.7
19	carbofuran-3-HO	77.0	8.4			108.0	11.3	98.3	10.2
20	carbosulfan	12.8	7.1					68.9	18.2
21	chloridazon	60.0	9.9			97.6	13.6	85.8	15.7
22	chlorxuron	106.9	4.5	58.9	15.2	105.6	9.1	87.5	7.6
23	cHROMAFENOZIDE	112.6	4.3	67.7	11.3	106.2	8.4	92.2	1.7
24	cloquintocet mexyl	96.1	2.4			72.5	5.8	65.6	10.1
25	cumyruron	110.3	4.6	72.0	18.1	105.0	7.7	91.2	2.9
26	cyazofamid	88.0	5.9	95.7	23.4	92.8	6.3	107.4	12.4
27	cyulufenamid	78.1	4.9	77.9	34.8	97.0	10.8	87.4	9.1
28	cyprodinil					71.0	9.8	71.8	4.0
29	dimethirimol	84.4	4.6	75.2	7.7	80.5	5.0	83.8	4.6
30	dimethomorph E	124.7	4.6	93.8	15.8	111.4	6.1	102.9	11.1
31	dimethomorph Z	115.6	5.5	74.1	13.9	89.9	11.1	74.5	3.5
32	dioxacarb	94.0	11.0			105.9	9.0	101.7	12.8
33	dymuron	106.9	3.1	75.2	16.5	112.4	6.6	94.1	2.8
34	epoxiconazole	99.8	5.8	101.5	15.0	94.8	1.0	92.2	6.5
35	ethiofencarb			60.3	11.5	91.2	1.9	82.5	8.2
36	ethiofencarb-sulfon	57.1	13.9			-	-	184.3	57.7
37	ethiofencarb-sulfox	82.4	18.8			141.5	10.9	146.7	38.4
38	fenamidone	79.3	7.0	89.3	18.9	97.5	5.8	89.7	4.5
39	fenobucarb	94.0	7.8	172.5	10.1	83.4	12.4	68.5	6.5
40	fenoxaprop-ethyl					95.8	8.1	84.4	6.3
41	fenpyroximate E	102.7	6.9	58.9	53.3	52.0	5.9	63.5	5.4
42	fenpyroximate Z	106.2	5.8			64.0	7.8		
43	ferimzone E	103.6	3.7	92.7	10.5	95.8	5.8	84.2	4.0
44	ferimzone Z	66.8	5.6	83.5	27.6	91.3	4.3	91.0	2.3
45	flufenacet	75.5	8.0	89.7	9.6	98.5	8.7	80.9	12.0
46	fluridon	91.5	2.2	75.9	19.4	107.9	11.4	99.6	2.3
47	furametpyr	113.5	2.4	94.7	11.3	106.9	9.8	92.4	5.3
48	furathiocarb	50.0	13.8					57.8	11.7
49	hexythiazox	114.8	5.5	72.1	100.9	77.3	10.4	67.3	46.2
50	imazaryl	84.4	3.3	66.8	21.3	51.1	14.5		
51	imidacloprid	50.0	20.0			131.8	26.2	116.7	18.6
52	indoxacarb	104.3	14.2	61.4	62.6	108.8	28.4	87.7	27.1

No.	試験法の種類	畜水産物試験改良法				農産物試験法			
	試料の種類	低脂肪牛肉		高脂肪牛肉		低脂肪牛肉		高脂肪牛肉	
	平均回収率、併行精度	回収率% (n = 5)	併行精度 (%)	回収率% (n = 5)	併行精度 (%)	回収率% (n = 5)	併行精度 (%)	回収率% (n = 5)	併行精度 (%)
53	iprovalicarb			81.4	17.2	103.6	5.2	86.1	3.3
54	isoprocarb	84.2	12.0	192.3	11.8	83.9	6.0	70.1	14.9
55	linuron	99.6	3.4	194.7	18.7	86.3	16.4	102.2	11.1
56	mepanipyrim					88.2	5.2	80.9	7.2
57	methabenzthiazuron	70.0	7.6	88.0	12.0	94.4	5.5	85.8	5.4
58	methamidophos					98.8	12.6	79.5	12.4
59	methiocarb	98.0	7.2	96.4	19.6	111.4	7.5	98.3	22.3
60	methiocarb-sulfox							140.0	47.0
61	methomyl	103.1	2.0	75.1	8.6	171.2	5.3	120.1	3.9
62	methoxyfenozide	109.4	4.9	63.0	12.8	108.4	10.3	94.2	6.8
63	metolcarb	70.1	21.7	76.9	27.1	82.4	15.0	85.0	12.0
64	monolinuron	92.4	9.7	144.0	4.3	95.6	10.3	80.6	9.1
65	pencycuron	99.8	2.0			100.1	4.3	73.7	3.9
66	pirimicarb	95.5	2.3	89.2	9.3	88.0	6.0	76.8	4.5
67	promecarb	98.6	4.8	114.9	9.6	92.2	7.0	81.4	6.8
68	propaquizafop					99.1	8.7	89.6	25.3
69	propoxsul	93.1	4.8	82.0	5.7	95.2	5.8	91.2	6.4
70	pyraclostrobin					109.9	6.7	79.1	3.5
71	pyrifthalid	115.7	8.3	65.7	15.9	104.0	10.4	87.9	8.6
72	quizalofop-ethyl					88.6	7.6	82.5	10.8
73	simeconazole	66.1	4.4	127.4	5.1	97.1	7.1	88.5	3.6
74	tebufenozide	62.3	4.8	72.1	16.0	100.3	5.6	84.8	4.7
75	tebuthiuron	101.4	6.4	78.3	8.5	92.9	6.1	87.8	5.1
76	terbucarb			89.4	23.6	95.5	8.2	77.9	1.2
77	tetradhchlorvinphos Z	102.2	4.6	141.5	8.4	102.5	3.9	89.7	7.0
78	thiacloprid	79.0	3.3			123.9	7.7	89.2	6.3
79	thiamethoxam					106.4	10.5	78.4	11.9
80	thiofanox	79.7	2.5			97.9	1.9	107.2	14.4
81	thiofanox-sulfone	79.9	4.9			124.4	32.6	95.3	14.4
82	thiofanox-sulfoxide	50.0	8.4			105.7	8.8	86.5	8.4
83	triticonazole	100.6	2.9	104.7	10.2	91.6	7.7	84.1	2.8
84	XMC	96.3	7.9	120.7	4.0	90.7	9.5	76.3	6.1
85	xylylcarb	95.3	11.4	155.7	9.5	90.4	10.5	83.4	6.3

空白 は回収率 50%未満

表3 残留農薬回収率の集計

GC/MS 法

試験法の種類	畜水産物試験改良法				農産物試験法					
	低脂肪牛肉		高脂肪牛肉		低脂肪牛肉		高脂肪牛肉			
試料の種類	項目数	比率	項目数	比率	項目数	比率	項目数	比率		
200<	0	93.9%	2	0.9%	0	80.3%	0	82.6%		
150-200	0		2	0.9%	0		0			
120-150	0		12	5.6%	0		0			
70-120 * 1	200		185	86.9%	171		80.3%		176	82.6%
70-120 * 2	2		4	1.9%	17		8.0%		6	2.8%
50-70	4		1	0.5%	17		8.0%		21	9.9%
<50	7		3.3%	7	3.3%		8		3.8%	10
合計	213		213		213		213			

LC/MS/MS 法

試験法の種類	畜水産物試験改良法				農産物試験法							
	低脂肪牛肉		高脂肪牛肉		低脂肪牛肉		高脂肪牛肉					
試料の種類	項目数	比率	項目数	比率	項目数	比率	項目数	比率				
200<	0	62.4%	0	20.0%	0	78.8%	0	77.6%				
150-200	0		4		4.7%		1		1.2%	1	1.2%	
120-150	2		2.4%		4		4.7%		7	8.2%	4	4.7%
70-120 * 1	53		62.4%		17		20.0%		67	78.8%	66	77.6%
70-120 * 2	3		3.5%		14		16.5%		2	2.4%	6	7.1%
50-70	10		11.8%		13		15.3%		3	3.5%	6.0	7.1%
<50	17		20.0%		33		38.8%		5	5.9%	2	2.4%
合計	85		85		85		85					

\* 1 : 回収率 70%~ 120%、併行精度 15%以下

\* 2 : 回収率 70%~ 120%、併行精度 16%以上

## ま と め

脂肪含量を調整した2種類の牛肉を試料として、残留農薬等の通知法を用いた、GC/MS及びLC/MS/MSによる残留農薬一斉分析法の検討を行い以下の結果となった。

1 畜水産物試験法の試料抽出時に加える水に代えて農作物試験法で用いるNaCl及び0.5mol/Lリン酸緩衝溶液を用いた結果、GC/MS測定及びLC/MS/MS測定共に回収率の向上がみられた。

2 改良法－GC/MS法は、低脂肪牛肉は213化合物中93.9%、高脂肪牛肉では86.9%が指標を満たす結果となり、畜水産物の一斉分析法利用可能と考えられたが、溶媒の使用量が多いことや迅速性に欠ける問題点があった。

3 農作物試験法－GC/MS法は、低脂肪牛肉は213化合物中80.3%、高脂肪牛肉では82.6%が指標を満たす結果となり、改良法に比べると若干少なかった。

しかし、操作の簡便・迅速性を考慮すると、今後精度向上を図り畜水産物の一斉分析法として利用できるようにしたい。

4 改良法－LC/MS/MS法は、低脂肪牛肉は85化合物中62.4%に対し、高脂肪牛肉ではわずかに20.0%で畜水産物の一斉分析法としては十分とはいえなかった。

5 農作物試験法－LC/MS/MS法は、低脂肪牛肉は85化合物中78.8%、高脂肪牛肉では77.6%が指標を満たした。

操作の簡便・迅速性を考慮すると、精度向上を図り畜水産物の一斉分析法として利用できるようにしたい。

## 参 考 文 献

- 1) 「食品の残留する農薬、飼料添加物又は動物用医薬品の成分である物質の試験法について」(平成17年11月29日食安発第1129002号 厚生労働省食品安全部長通知)
- 2) 「食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドラインについて」(平成19年11月15日食安発1115001号 厚生労働省食品安全部長通知)

# 食品添加物の収去検査結果 (2007～2011年度) について

橋口 祥子、武田 亮<sup>1</sup>、林 由美、麻生 花苗<sup>2</sup>、長谷川 昭生、岡本 盛義

## The Survey of the Food Additives, 2007～2011

Shoko Hashiguchi, Ryo Takeda, Yumi Hayashi, Kanae Aso, Akio Hasegawa, Moriyoshi Okamoto

Key words : Food Additives 食品添加物

### はじめに

大分県では食品安全・衛生課が策定した食品等の収去検査計画に基づき、県下5保健所に配置されている食品衛生監視機動班（以下機動班）が収去した検体を、当センターで検査している。今後の収去計画等の資料とするため、2007年度から2011年度における食品添加物の検査結果をまとめたので報告する。

### 材料及び方法

#### 1 材料

2007年4月から2012年3月までの5年間に収去し、当センターで分析した食品添加物の検査結果を集計した。

#### 2 検査方法

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（検査-化学-001,002,004,022）に記載されている方法を用いて分析した。

##### 2.1 保存料（ソルビン酸、デヒドロ酢酸、安息香酸）

透析法－高速液体クロマトグラフ法

水蒸気蒸留法－高速液体クロマトグラフ法

##### 2.2 甘味料（サッカリンナトリウム）

透析法－高速液体クロマトグラフ法

##### 2.3 漂白剤（二酸化硫黄）

通気蒸留法－アルカリ滴定法

通気蒸留法－比色法

##### 2.4 発色剤（亜硝酸根）

ジアゾ化法

### 結 果

食品添加物の収去検査結果を表1に示し、また添加物の使用基準に対する検出状況を図1～4に示した。

#### 1 保存料（図1）

ソルビン酸は239件中105件（43.9%）に検出された。

このうち、使用基準のある食品では220件中104件（47.3%）に検出され、魚肉練り製品1件において基準値を超過した。また、魚肉練り製品4件、食肉製品1件、しょう油漬け4件、みそ漬け1件、果実酒1件の測定値が、基準値の75%～100%の範囲にあった。

使用基準のない食品では19件中1件（5.3%）に検出された。この検体はクッキーであり、菓子としてはソルビン酸の使用基準はないが、原材料名としてはソルビン酸の使用表示もあった。

なお、デヒドロ酢酸、安息香酸については、両成分とも全ての検体から検出されなかった。

#### 2 甘味料（図2）

サッカリンナトリウムは239件中、基準値を超過したものはなかった。

このうち、使用基準のある食品は153件で、24件（15.7%）に検出された。使用基準のない食品86件ではいずれも検出されなかった。測定値が基準値の75%～100%の範囲にあるものは、みそ漬け1件のみであった。サッカリンは過剰に使用すると味が変わるため、自ずと使用が制限されることから、基準超過が起りにくいと考えられる。

#### 3 漂白剤（図3）

二酸化硫黄は74件中35件（47.3%）が検出された。このうち、かんぴょう1件において基準値を超過し

\*1 生活環境部 環境保全課

\*2 福祉保健部 東部保健所



た。その他食品1件の測定値が、基準値の75%~100%の範囲にあった。

#### 4 発色剤 (図4)

亜硝酸根は73件中63件(86.7%)が検出された。検出された検体は全て食肉製品で、うち1件において基準値を超過した。食肉製品4件の測定値が、基準値の75%~100%の範囲にあった。

### 5 表示について

#### 5.1 保存料

包装に保存料(ソルビン酸)の使用表示が無く、検出された検体が3件あった。いずれも食肉製品から検出された。一方、包装に保存料(ソルビン酸)の使用表示があり、検出下限値未満の検体が1件あり、食品は魚肉練り製品であった。

また、包装に保存料の使用表示はあるが、具体的な物質名が記載されていない検体が1件あり、食品はみそ漬けであった。

#### 5.2 甘味料

包装に甘味料の使用表示が無く、検出された検体が5件あった。食品別では、魚肉練り製品1件、みそ漬け1件、かす漬け1件、たくあん漬け2件であった。一方、包装に甘味料の使用表示があり、検出下限値未満の検体が1件あり、食品はしょう油漬けであった。

また、たくあん漬けにおいて甘味料の使用表示があり、具体的な物質名にサッカリンと書かれた検体が1件あった。たくあん漬けに使用基準があるものはサッカリンナトリウムであるが、サッカリンは使用基準がない。さらに、包装に甘味料の使用表示はあるが、具体的な物質名が記載されていない検体が1件あり、食品はみそ漬けであった(上記保存料の

みそ漬けと同一検体)。

#### 5.3 漂白剤

包装に漂白剤の使用表示が無く、検出された検体がその他の食品で1件あった。しかし、漂白剤においては原材料に亜硫酸塩が含まれる可能性があり、二酸化硫黄が検出される場合がある。一方、包装に漂白剤の使用表示があり、検出下限値未満の検体が19件あった。食品別では、甘納豆2件、煮豆1件、その他の食品16件であった。

#### 5.4 発色剤

包装に発色剤の使用表示が無く、検出された検体が食肉製品で13件あった。しかし、発色剤については燻煙により微量の亜硝酸塩が生成されるため、検出される場合がある。

測定値が基準値の75%~100%の範囲にある検体について、製造工程の管理方法等によっては基準値を超過するおそれがある。基準値未満であっても機動班との情報の共有を十分に行う必要があり、今後も食品添加物の検査を行う。また、食品添加物の使用表示についても、検査と併せて継続的な調査を行う。

### ま と め

保存料(ソルビン酸)1件、漂白剤(二酸化硫黄)1件、発色剤(亜硝酸根)1件の基準値超過があった。

また、基準値未満であっても測定値が基準値の75%~100%の範囲の検体が、保存料(ソルビン酸)11件、甘味料(サッカリンナトリウム)1件、漂白剤1件、発色剤4件あった。基準値未満であっても機動班と情報を共有し、今後も食品添加物について検査を行うとともに、食品添加物の使用表示も併せて調査する。

表1 食品添加物の収去検査結果

主要用途	品名	対象食品	使用基準 (g/kg)	検体 総数	非検出 件数	検出 総数	基準値に対する 検査結果値の割合	
							75%~ 100%	100% <
保存料	ソルビン酸	小計		239	134	105	11	1
		魚肉練り製品	2.0	57	23	34	4	1
		食肉製品	2.0	73	58	15	1	
		塩漬	1.0	17	12	5		
		たくあん漬	1.0	11	4	7		
		しょう油漬	1.0	41	7	34	4	
		みそ漬	1.0	3	1	2	1	
		かす漬	1.0	4	4			
		つくだ煮	1.0	1		1		
		あん類	1.0	3	2	1		
		ジャム	1.0	1	1			
		酢漬	0.50	5	3	2		
		ケチャップ	0.50	1		1		
		果実酒	0.20	3	1	2	1	
		菓子	-	1		1		
		その他の食品の缶詰	-	4	4			
その他の漬物	-	5	5					
その他の食品	-	9	9					
甘味料	サッカリン Na	小計		239	215	24	1	0
		たくあん漬	2.0	11	2	9		
		酢漬	2.0	5	4	1		
		しょう油漬	1.2	41	33	8		
		みそ漬	1.2	3	1	2	1	
		かす漬	1.2	4	3	1		
		つくだ煮	0.50	1	1			
		魚肉練り製品	0.30	57	54	3		
		塩漬	0.20	17	17			
		その他の漬物	0.20	5	5			
		あん類	0.20	3	3			
		ジャム	0.20	1	1			
		その他の食品の缶詰	0.20	4	4			
		菓子	0.10	1	1			
		食肉製品	-	73	73			
		果実酒	-	3	3			
ケチャップ	-	1	1					
その他の食品	-	9	9					
漂白剤	亜硫酸塩	小計		74	39	35	1	1
		かんぴょう	5.0	1		1		1
		乾燥果実	2.0	7		7		
		干しぶどう	1.5	1	1			
		果実酒	0.35	1		1		
		煮豆	0.10	1	1			
		甘納豆	0.10	3	2	1		
		えび	0.10	1	1			
		その他食品	0.03	55	30	25	1	
		野菜	-	4	4			
発色剤	亜硝酸根	小計		73	10	63	4	1
		食肉製品	0.1	70	7	63	4	1
		魚肉ソーセージ	0.1	1	1			
		たらこ	0.005	2	2			

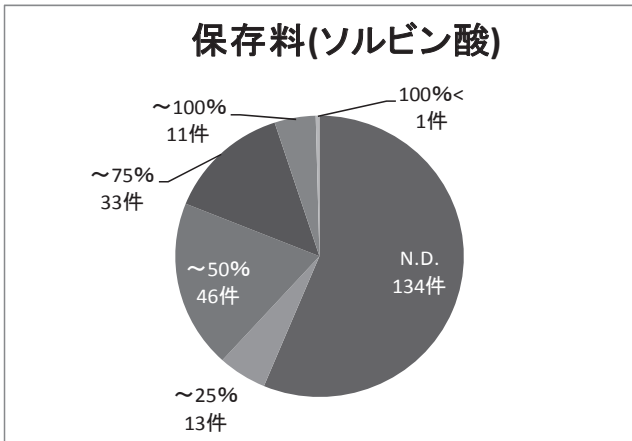


図1 保存料（ソルビン酸）の使用基準に対する検出状況

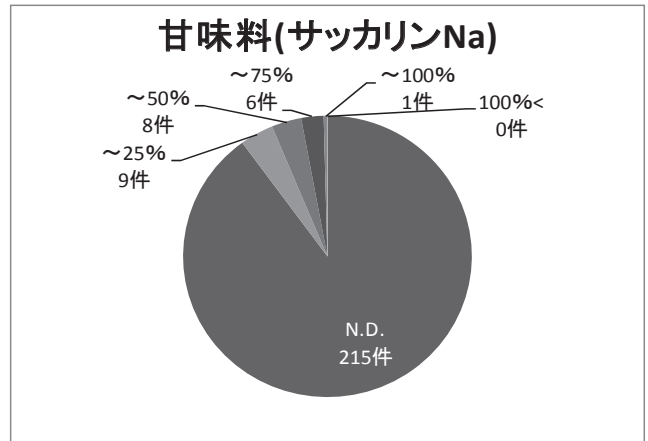


図2 甘味料（サッカリンNa）の使用基準に対する検出状況

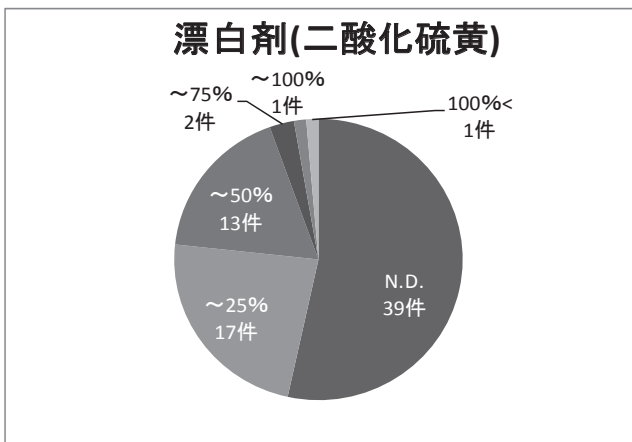


図3 漂白剤（二酸化硫黄）の使用基準に対する検出状況

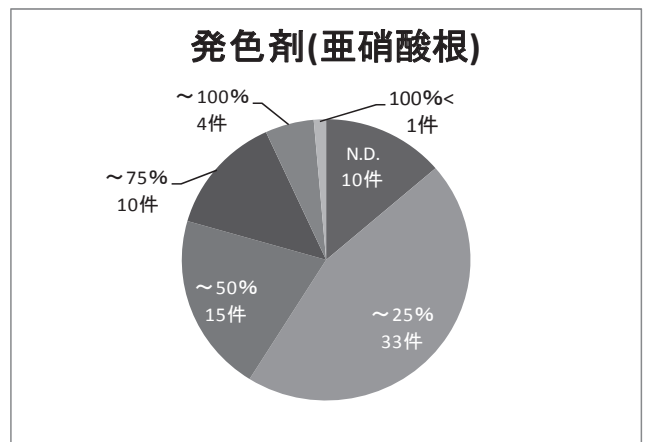


図4 発色剤（亜硝酸根）の使用基準に対する検出状況

# 大分県における浴用水中のレジオネラ属菌の検出状況 (2011年度)

緒方 喜久代、佐々木 麻里、大島 由香利、成松 浩志

## Isolation of *Legionella* Species from Public Bath Water in Oita Prefecture, 2011

Ogata Kikuyo, Sasaki Mari, Oshima Yukari, Narimatsu Hiroshi

Key words : レジオネラ属菌 *Legionella* sp. 浴用水 Public Bath Water

### 要 旨

2011年度は、県下29施設の公衆浴場浴槽水等56検体を対象に、レジオネラ属菌による生息状況等について調査した。併せて、斜光法を取り入れた培養法の迅速化についても検討を行った。浴槽水について、調査した29施設のうち19施設(66%)からレジオネラ属菌が検出され、うち18施設(62%)が基準値(10cfu/100ml未満)違反であった。浴槽の種類別では、掛け流し浴槽21施設のうち14施設(67%)から、循環式浴槽8施設のうち3施設(38%)からレジオネラ属菌が検出された。

### はじめに

宮崎県の集団感染事例<sup>1-2)</sup>を契機に、2003年4月1日、大分県公衆浴場法施行条例及び旅館業法施行条例を改正し、レジオネラ属菌の自費による検査(以下、自主検査)を含む、入浴施設管理者の自主衛生管理の強化を図ってきた。前年度に引き続き、入浴施設管理者の自主管理体制の効果を高め、衛生管理のより一層の徹底を図るため、県による行政検査(県保健所が採水し、搬入)を実施した。

レジオネラ属菌の検査法として広く用いられている培養法は、結果を得るまでに7日から10日の長い時間を要する。しかし、患者発生時の原因施設特定などの緊急調査時やレジオネラ属菌汚染施設の清掃・殺菌後の安全確認調査など、浴槽水中のレジオネラ属菌の存在あるいは菌数を速やかに把握する必要がある場合は、監視現場からより迅速で、かつ正確な検査が求められている。そこで、行政検査として搬入された検体を対象に、正確・簡便・迅速な培養結果を得る方法としての斜光法<sup>3)</sup>をレジオネラ属菌の検査法に導入することを目的に従来の培養法との比較検討を行った。併せて、選択分離培地の比較検討を行った。また、搬入から短時間で結果が得られる手法として、遺伝子増幅を利用したレジオネラ属菌の迅速検査法(LAMP法)についても検討したので、併せて報告する。

### 材料及び方法

#### 1 対象と材料

原則、公衆浴場業又は旅館業の許可を受けている営業施設内にある入浴施設とし、2011年、8月から10月の間、29施設から採取した浴槽水等56検体を試料とした。採水には高圧滅菌処理をしたポリプロピレン製ボトル(2L容器)を用い、約2000mlを採取した。また、採取時に残留塩素が認められた検体についてはチオ硫酸ナトリウムによる処理を直ちに施し、採水当日あるいは翌日に当所へ搬入され、検査に供するまでは冷蔵保存とした。なお、レジオネラ属菌が基準値以上検出された場合に、レジオネラ属菌汚染源の推定に役立てるため、湯口水を浴槽水と同時に採水し、検査に供した。

#### 2 レジオネラ属菌の検出

検査法は新版レジオネラ症防止指針に準じて実施した<sup>4)</sup>。すなわち、検水1200mlをメンブランフィルター(直径47mm、0.2 $\mu$ m、ADVANTEC社POLYCARBONATE)で吸引ろ過し、ろ過後のフィルターを滅菌蒸留水12ml入りの滅菌コニカルピーカー(100ml容量)に入れ、ボルテックスミキサーにて5分間激しく振とうした。ろ過濃縮後、濃縮検体(未加熱と表記)と50 $^{\circ}$ C 20分加熱後、急冷した濃縮検体(加熱処理と表記)をそれぞれ濃縮試料(100倍濃縮)とした。

### 3 分離培養法

レジオネラ属菌の分離培地として WYO  $\alpha$  寒天平板（栄研化学）、GVPC寒天平板（日研生物）、MWY寒天平板（自家製）を用い、非濃縮処理の検水および各濃縮試料について、必要に応じて階段希釈し、その 200  $\mu$ L を各分離平板1枚にコンラージ棒で塗布した。これらの培地を乾燥しないようにビニール袋に入れ、輪ゴム止めをした後、36°Cで培養した。

培養3日目に、2方向から光を照射し、実体顕微鏡下で各分離培地上に発育したコロニーについて特徴的なモザイク状の形態を観察した。レジオネラ属菌が疑われたコロニーは、BCYE  $\alpha$  寒天培地（自家製）及び血液寒天培地（ウマ血，自家製）に接種し、血液寒天培地での発育の有無を確認すると同時に、PCR法での同定検査を行った。斜光法観察後の分離培地は 36°Cで 10日間培養を継続し、分離平板上に出現した灰白色のレジオネラ様コロニーについて、同様の同定検査を行った。分離培地上にレジオネラ属菌の発育を認めない場合、レジオネラ属菌数は 10cfu/100ml未満とし、最終的に同定されたコロニー数をもって検水100mlあたりのレジオネラ属菌数に換算した。

L-システインの要求性からレジオネラ属菌が疑われたにもかかわらず、*mip* および 5S rRNA を標的とした PCR法で既知の生成物が得られなかった分離株あるいはスライド凝集に反応しなかった分離株については、

F: 5'-GTAAAGCACTTTCAGTGGGGAG-3', R: 5'-GGTCAACTTATCGCGTTTGCT-3' あるいは、ユニバーサル プライマー

(MicroSeq-F5:TGGAGAGTTTGATCCTGGCTCAG-3', MicroSeq-500R: 5-TACCGCGGCTGCTGGCAC-3') を用いた 16S シークエンス解析により詳細な同定を行った。

### 4 LAMP法

濃縮検体について、Legionella Detection Kit E（栄研化学）を用い、Loopampリアルタイム濁度測定装置 LA320-C で 1検体につき 3回繰り返し測定を行った。

加えて、培養 (+) LAMP (-) の濃縮検体について、阻害回避試薬を用いた検討および DNA抽出法の検討を行った。

## 結 果

### 1 レジオネラ属菌の検出状況

培養結果の概要を表1に示した。56検体中29検体（52%）からレジオネラ属菌が検出された。内訳は浴槽水29検体中18検体（62%）、湯口水27検体中11検体（41%）であった。当県の条例で定められている「濃縮法で 10cfu/100mL未満」という基準値を考慮すると、浴槽水では 17検体（57%）が、湯口水では 7検体（26%）が基準値違反であった。

同一施設における浴槽水と湯口水からのレジオネラ属菌の検出状況を比較すると、浴槽水と湯口水ともにレジオネラ属菌が検出された施設は 9施設で、浴槽水 (+) 湯口水 (-) となった施設は 8施設、浴槽水 (-) 湯口水 (+) となった施設は 2施設であった（表2）。

表3に非濃縮検体と濃縮検体からのレジオネラ属菌の検出状況の比較を示した。56検体のうち 1検体（2%）で、濃縮検体から検出されず、非濃縮検体からのみレジオネラ属菌が検出された。

斜光法は培養3日目を判定日とし、特徴あるモザイク状のコロニーについて確認検査を行った。その結果、レジオネラ属菌が検出された 29検体のうち 27検体は斜光法で確認することができたが、2検体は継続培養後にレジオネラ属菌が確認された（表4）。継続培養で陽性となった 2検体から分離されたレジオネラ属菌は、1検体は *L. pneumophila*、1検体は *L. anisa* であった。

レジオネラ属菌が検出された 29検体について、雑菌処理と未処理の併用効果と分離培地の検出感度を比較した結果を表5に示した。濃縮未加熱検体では、使用した 3種類の分離培地全てから分離されたものが 15検体、WYO  $\alpha$  + MWY からの分離が 2検体、GVPC + MWY からの分離が 2検体、WYO  $\alpha$  のみからの分離が 4検体、MWY のみから分離が 1検体であった。濃縮加熱検体では、3種類の分離培地全てから分離されたものが 16検体、WYO  $\alpha$  + GVPC からの分離が 2検体、WYO  $\alpha$  + MWY からの分離が 3検体、GVPC + MWY からの分離が 1検体、WYO  $\alpha$  のみからの分離が 2検体、MWY のみから分離が 3検体であった。

L-システインの要求性からレジオネラ属菌が疑われたにもかかわらず、同定ができなかった分離株を 16S rRNA あるいはユニバーサルプライマーを用い、シーケンスによる同定を試みた結果、5S rRNA プライマーに反応し、スライド凝集に反応し

なかった分離株は *L. anisa* と同定された。5S rRNA プライマーに反応せず、16S rRNA プライマーに反応した分離株は *L. taurinensis*、*L. longbeachae*、*L. oakridgenensis* と同定され、16S rRNA プライマーに反応しなかった分離株はユニバーサルプライマーを用いた PCR で *Mycobacterium sp.*、*Roseomomas*、*Pedobacter saltans*、*Soil basteriumu* と同定された。

## 2 遺伝子迅速検査法 (LAMP 法) と培養法の比較

濃縮検体1検体につき3回繰り返し測定を行い、1回でも陽性となった場合は、その結果を採用した(表6)。培養 (+) LAMP 法 (-) の濃縮検体について、阻害回避処理試薬を用い、再度測定を行ったが、得られた結果は同じであった。

レジオネラ属菌数が2000cfu/100ml検出されたにもかかわらず、LAMP法 (-) となったサンプルBについて、DNA抽出法の検討を行った。カラム抽出法では、3回繰り返し測定の結果、一回もLAMP法陽性の結果は得られなかった。また、3回連続測定で陽性結果が得られたものの安定した結果とはならなかった添付試薬による抽出とキレックス抽出については、さらに3回繰り返し測定を行った。しかし、添付試薬による抽出は、3回とも陰性結果となり、比較的安定した結果が得られたのは、キレックス抽出法であった(表7)。なお、レジオネラ属菌16SPCR法により、いずれの抽出方法においても、DNAが抽出されていることは確認できた。

## 考 察

本調査の結果、レジオネラ属菌の検出率(大分県条例違反)は43%で他の調査結果<sup>5-8)</sup>と同様の結果となった。浴槽水 (+) 湯口水 (-) となった8施設は、浴槽や床の清掃不足や入浴客の不適切な利用方法などが原因と考えられ、衛生管理指導の強化が望まれる。また、今回の調査において、レジオネラ属菌数が100mlあたり200,000cfu検出された施設については、感染者発生を未然に防ぐため、ただちに、当該保健所の環境衛生監視員による施設管理状況の把握、清掃・消毒の管理指導の徹底が図られた。

斜光法と従来法の比較では、培養7日以降で発育を認める検体もあったため、培養3日目で培養検査を打ち切ることにはできないものの、斜光法は、高価かつ特殊な機器を必要とせず、簡便で迅速な結果が得られる培養法として、非常に有用な方法であり、今後は、LAMP法で得られた結果と斜光法の培養

結果を合わせて迅速な行政対応を行い、7~10日間引き続き培養を継続し、最終結果として判断することが可能と考える。3日目観察・同定後、最終判定日まで作業を中断することができることから、負担軽減にも功を奏し、また、検査を集中することにより検出確率が上昇する利点も考えられた。

また、レジオネラ属菌数の汚染状況の予測が困難であるため、濃縮検体と非濃縮検体を同時に検査することが望ましいとの報告<sup>11)</sup>がある。今回、濃縮検体と非濃縮検体から同時にレジオネラ属菌の検出を試みた結果、濃縮検体からはレジオネラ属菌が検出されず、非濃縮検体からのみレジオネラ属菌が検出された検体が1検体あった。この検体は、平板上をスウォーミングするような雑菌の発育が多数観察され、濃縮工程を省略することにより、雑菌の影響が回避されたものと推測された。これらのことから濃縮法のみではレジオネラ属菌を見逃す危険性があると考えられた。

レジオネラ属菌が検出された29検体について、使用した分離培地WYO α、GVPC、MWYの個々の解析をすると、各分離培地でのレジオネラ属菌の分離は17検体から23検体であり、レジオネラ属菌を感度よく分離するためには、レジオネラ属菌の発育特性に配慮し、選択性の異なる培地を併用することが望ましい。また、未加熱の濃縮検体では24検体から、加熱処理では27検体からレジオネラ属菌が分離され、処理工程を併用することにより28検体からレジオネラ属菌が検出された。加えて、非濃縮検体のみから検出されたものが1検体あり、各種分離培地の併用や処理工程の併用など培養チャンスを多くすることが検出率アップにつながり、レジオネラ感染症の危険性を回避することに貢献できると考える。

L-システインの要求性からレジオネラ属菌が疑われたにもかかわらず、同定ができなかった分離株についてシークエンスによる同定を試みた結果、5S rRNA プライマーに反応しない株でもレジオネラ属菌と同定されたこと。16S rRNA プライマーを用いたPCRに反応しなかった株はレジオネラ属菌以外であったことから、16S rRNA プライマーを用いた確認方法が有用と思われた。

LAMP法において、レジオネラ属菌数が少ない検体の場合等は、検査結果にバラツキが生じやすく、培養法 (+) LAMP法 (-) の不一致の一因として考えられた。さらに、温泉検体では、「菌数」

だけではなく、検出される「菌種」や泉質などの様々な要因により、LAMP法で安定した結果が得られない場合が考えられ、測定時には注意を要する。

一方、2003年4月、レジオネラ症の診断に尿中抗原検出キットが保険適用になったことで検査件数そのものが増加し、以前は、原因不明の市中肺炎とされていた一部の肺炎患者がレジオネラ症と診断されるようになり、結果として、レジオネラ症は増加傾向に繋がっていると考えられる。しかし、感染源を特定し、感染防止対策を講じるうえでは、臨床検体からのレジオネラ属菌の分離・同定は不可欠で、医療機関との連携を図り、菌株確保に向けたより一層の努力が必要と考える。

加えて、現在までの厚生労働省からの通知では、塩素消毒を用いた管理手法が中心となっているが、塩素管理下ではレジオネラ SG1 が浴槽水中で優性化しているとの報告<sup>10)</sup>もあることから、塩素消毒に頼らない管理手法の早期確立が望まれる。

## 謝 辞

本調査を実施するにあたり、検体採取にご協力いただきました浴用施設および各保健所ならびに食品安全・衛生課の関係各位に深謝します。

## 参 考

- 1) 宮崎県福祉保健部：日向サンパーク温泉「お船出の湯」におけるレジオネラ症集団発生事例報告書，2003.
- 2) 岡田美香，河野喜美子，倉文明，前川純子，渡辺治雄，八木田健司，遠藤卓郎，鈴木泉：循環式入浴施設における本邦最大のレジオネラ症集団感染事例Ⅰ．発症状況と環境調査，感染症学雑誌，79,365-374
- 3) 森本 洋：分離集落の特徴を利用したレジオネラ属菌分別法の有用性．環境感染誌，2010.25(1)：8-14
- 4) 第3版 レジオネラ症防止指針，財団法人ビル管理教育センター，平成21年.
- 5) 鈴木敦子，市瀬正之，松江隆之，天野祐次，寺山 武，泉山信司，遠藤卓郎：各種生活環境水からのレジオネラ属菌検出状況－1996年4月から2000年11月まで－，感染症学雑誌，76,703-710
- 6) 笹原武志，菊野理津子，奥田舜治，関口朋子，佐藤義則，高山陽子，青木正人，井上松久：温泉水における *Legionella* 属菌汚染と泉質に関する調査・研究，感染症学雑誌，78,545-55
- 7) 楠木くみ子，岩谷美枝，花岡 暉，石上 武，矢野一好：多摩地域における入浴施設水のレジオネラ属菌汚染緊急調査とその対策事例（平成13年度），東京衛研年報，53,14-19
- 8) 磯部順子，綿引正則，清水美和子，嶋 智子，木全恵子，倉田 毅：富山県における浴用水中の *Legionella* 属菌の分離状況，富山衛研年報，30,110-114
- 9) 井上博雄：厚生労働省科学研究費補助金（地域健康危機管理研究事業）掛け流し式温泉における適切な衛生管理手法の開発等に関する研究 平成17年度～平成18年度 総合研究報告書，2007.
- 10) 遠藤卓郎：厚生労働省科学研究費補助金（健康科学総合研究事業）循環式浴槽における浴用水の浄化・消毒方法の最適化に関する研究 平成17年度 総括・分担研究報告書，2006.
- 11) 「迅速・簡便な検査によるレジオネラ対策に係る公衆浴場等の衛生管理手法に関する研究」厚生労働科学研究費補助金 健康安全・危機管理対策総合研究事業、研究代表者 倉 文明、H21年度総括研究報告

表1 培養法の結果 (n=56)

	採水箇所	検体数	検出数	
			基準値 <sup>a</sup>	基準値によらない <sup>b</sup>
非循環式	浴槽水	21	14	
	湯口水	20	5	3
循環式	浴槽水	8	3	1
	湯口水	7	2	1
計		56	24	5

a : 10cfu/100ml以上 b : 基準値未満の追加検体数

表2 浴槽水と湯口水の検出状況<sup>a</sup> (n=27)

		浴槽水		計
		+	-	
湯口水	+	9	2	11
	-	8	8	16
計		17	10	27

a : 基準値 10cfu/100mlのよらない

表3 非濃縮検体と濃縮検体からのレジオネラ属菌の検出比較

		濃縮検体		計
		検出	検出せず	
非濃縮検体	検出	13	1	14
	検出せず	12	30	42
計		25	31	56

\* 10cfu/100mlを基準値として「検出」、「検出せず」とした。

表4 斜光法と従来法の比較<sup>a</sup>

斜光法で検出 <sup>b</sup>	従来法のみで検出 <sup>b</sup>	合計
27	2	29

a : 基準値 10cfu/100mlのよらない

表5 雑菌処理と分離培地の検出感度 (n=56)

			未加熱	加熱
WYO	GVPC	MWY	15	16
WYO	GVPC		0	2
WYO		MWY	2	3
	GVPC	MWY	2	1
WYO			4	2
	GVPC			
		MWY	1	3
計			24	27

\* 基準値 10cfu/100mlのよらない

表5-1 雑菌処理と分離培地の検出感度 (n=56)

	未加熱	加熱
WYO a (市販品)	21	23
GVPC (市販品)	17	19
MWY (自家製)	20	23

\* 基準値 10cfu/100mlのよらない

表6 LAMP法と培養法の比較

	LAMP法		計	
	+	-		
培養法	+	21	3	24
	-	13	19	32

表7 DNA抽出法の検討

	測定回数	LAMP法測定結果 <sup>a</sup>	
LAMP法添付試薬による抽出	1回目	2/3	
	2回目	0/3	
キレックスによる抽出	1回目	1/3	
	2回目	2/3	
タカラ	カラム抽出 <sup>b</sup>	1回目	0/3
キアゲン	カラム抽出 <sup>c</sup>	1回目	0/3

<sup>a</sup> 陽性回数 / 測定回数

<sup>b</sup> TaKaRa NucleoSpin Tissue

<sup>c</sup> QIAamp DNA Mini Kit



# 大分県における大気中の硫酸イオン濃度調査 (2011年度)

安東 大悟, 小野 由加里<sup>1</sup>, 酒盛 早美, 中田 高史<sup>2</sup>, 上田 精一郎, 鈴木 龍一

## Survey of Sulfate Ion in the Atmosphere at Oita Prefecture, 2011

Daigo Ando, Yukari Ono, Hayami Sakamori, Takashi Nakata, Seiichiro Ueda, Ryuichi Suzuki

Key words : 硫酸イオン sulfate ion, 粒子状物質 particulate, 光化学オキシダント photochemical-oxidants

### はじめに

近年、全国的に光化学オキシダント(以下、「Ox」という)濃度が上昇し、注意報発令地域が広域化する傾向にあり、本県においても、2007年5月に初の注意報が発令された。

これはアジア地域の急速な経済発展に伴う大気汚染物質の排出量の増大によるものと懸念されている。Ox濃度の上昇が大陸からの移流であるか地域発生によるものかを判断する指標の1つとして、大気中の硫酸イオン(以下、「SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>」という)濃度による方法がある。

硫黄成分は、大気中では、二酸化硫黄(ガス状物質)(以下、「SO<sub>2</sub>」という)や硫酸ミスト(粒子状物質)などの状態で存在しており、これらは溶液に抽出して測定した場合、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>として検出される。2010年度の大気中のSO<sub>2</sub>の全国平均値は0.003ppmであり、近年はほぼ横ばいで推移している。このため、国内で排出される二酸化硫黄由来のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度は低濃度であると考えられる。しかし、アジア地域から排出された大気汚染物質が季節風により移流する際、Ox濃度の上昇とともに、国内のSO<sub>2</sub>濃度からは考えられないほど高濃度の粒子状SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>を検出することがある。移流によるOx高濃度と粒子状SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度には相関があると考えられており、粒子状SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度は移流の判断材料として利用できる<sup>1)</sup>。

今回、当センターにて、大気中の硫酸イオン濃度の調査を行ったので、その結果を報告する。

### 調査方法

#### 1 調査期間

2011年度：2011年4月1日～2011年6月30日

#### 2 調査地点

大分県衛生環境研究センター：大分市高江西2-8  
北緯33°09′ 東経131°36′ 標高約90m

大分市は、約48万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。

#### 3 試料採取方法及び分析方法

2段に組み立てたろ紙にローボリュームサンプラーを用いて、9時半～翌9時半までを1日とする24時間の大気試料採取を行った<sup>1)</sup>。ろ紙は、粒子状物質捕集用として前段にPTFEフィルターを、ガス状物質捕集用として後段にナイロンフィルターを装着した。ナイロンフィルターはガス状物質のうち、硝酸ガスの捕集には適しているが、二酸化硫黄、アンモニアガス及び塩酸ガスは一部しか吸着しないため、本方法による評価は難しい。

試料の分析は、各フィルターを超純水にて抽出した液についてイオンクロマトグラフ計を用いて測定した。測定したイオン成分は、2011年度は、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、塩化物イオン(以下、「Cl<sup>-</sup>」という)、硝酸イオン(以下、「NO<sub>3</sub><sup>-</sup>」という)、アンモニウムイオン(以下、「NH<sub>4</sub><sup>+</sup>」という)、ナトリウムイオン(以下、「Na<sup>+</sup>」という)、カリウムイオン(以下、「K<sup>+</sup>」という)、カルシウムイオン(以下、「Ca<sup>2+</sup>」という)及びマグネシウムイオン(以下、「Mg<sup>2+</sup>」という)の8成分である。

なお、2010年度も同条件での調査を行っている<sup>2)</sup>。

### 調査結果

#### 1 イオン成分濃度について

イオン成分のうち、粒子状物質は(p)、ガス状物質は(g)と表す。

\*1 環境保全課 \*2 南部保健所

2011年度の測定結果を表1に、日変動を図1に示す。図中の縦線はOx高濃度日（県内常時監視測定局において日最高値が0.100ppm以上）を表す。

SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)濃度の最高値は、6月14日の25.5μg/m<sup>3</sup>であった。10~20μg/m<sup>3</sup>以上が移流の指標として考えられているが、県内常時監視測定局において、Ox注意報発令基準<sup>3)</sup>である0.120ppmに達した測定局はなく、当日の県内のOx濃度最高値は、0.067ppm(6月14日15時、日田総合庁舎局)であった。

測定期間中、20μg/m<sup>3</sup>を超過した日数は、上記1日のみであった。

また、10μg/m<sup>3</sup>を超過した日数は、8日であった(4月は1日、5月は2日、6月は5日)。超過した4月15日及び5月16日、17日はOx高濃度日だった。

なお、2011年度は、Ox注意報等の発令はなかった。

NH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p)濃度の最高値は、6月14日の8.0μg/m<sup>3</sup>であり、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の高濃度日と一致した。

NO<sub>3</sub><sup>-</sup>(p)濃度の最高値は、5月2日の11.0μg/m<sup>3</sup>であり、翌日も10.3μg/m<sup>3</sup>と高濃度であった。

NO<sub>3</sub><sup>-</sup>(g)濃度の最高値は、4月14日の3.6μg/m<sup>3</sup>であった。

Ca<sup>2+</sup>(p)濃度の最高値は、5月2日の6.6μg/m<sup>3</sup>であった。5月1日、3日にも高濃度のCa<sup>2+</sup>(p)を検出した。

4月16日、6月2日~6月4日、6月8日、6月14日には煙霧、5月1日~5月5日及び5月13日には黄砂が観測されており<sup>4)</sup>、このときのSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>(p)、及びCa<sup>2+</sup>(p)の高濃度は大陸からの移流による影響が考えられる。

Na<sup>+</sup>(p)濃度の最高値は、4月16日の2.5μg/m<sup>3</sup>であった。4月16日は煙霧観測日であり、Cl<sup>-</sup>(p)濃度及びMg<sup>2+</sup>(p)濃度も高濃度であった。

K<sup>+</sup>(p)濃度の最高値は、黄砂観測日である5月2日の0.6μg/m<sup>3</sup>であった。

## 2 粒子状物質中のイオン成分の相関について

2011年度の粒子状物質のイオン成分の相関を表2に示す。

### 2.1 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p)とSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)

NH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p)濃度とSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)濃度の相関係数は、0.97であり高い相関関係にあった。NH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p)とSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)は大気中で硫酸アンモニウムなどの硫酸塩を形成していると考えられる<sup>5)</sup>。

### 2.2 Na<sup>+</sup>(p)とCl<sup>-</sup>(p)

Na<sup>+</sup>(p)濃度とCl<sup>-</sup>(p)濃度の相関係数は0.89であり高い相関関係にあった。Na<sup>+</sup>(p)とCl<sup>-</sup>(p)の比は0.56であり、海塩中の比<sup>6)</sup>である0.85より低かった(図2)。大気中の海塩由来のCl<sup>-</sup>(p)は、硝酸ガス等と反応しガス化した可能性が考えられる。

### 2.3 Na<sup>+</sup>(p)とMg<sup>2+</sup>(p)

Na<sup>+</sup>(p)濃度とMg<sup>2+</sup>(p)濃度の相関係数は0.74であり高い相関関係にあった。Na<sup>+</sup>(p)とMg<sup>2+</sup>(p)の比は0.13であり、海塩中の比である0.12とほぼ一致するため、これらは海塩由来成分であると考えられる(図2)。

## 3 イオン成分の月変動について

各イオン成分の月平均濃度の変動を図3に示す。

SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)は、4月がもっとも高く、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p)も同じ変動を示した。

NO<sub>3</sub><sup>-</sup>(p)は4月に最も高く、6月にかけて徐々に低下した。しかし、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>(g)は5月から6月にかけて増加傾向がみられた。これは光化学反応が活発になり、窒素酸化物から硝酸ガスへの酸化が促進されたため、相対的に粒子状物質が減少したと考えられる。

K<sup>+</sup>(p)は5月が最も高かったが、その他のNa<sup>+</sup>(p)、Cl<sup>-</sup>(p)、Ca<sup>2+</sup>(p)及びMg<sup>2+</sup>(p)は、4月に最も高く、6月にかけて徐々に低下した。

## 参 考 文 献

- 1) 国立環境研究所・地方環境研究所C型研究：「光化学オキシダントと粒子状物質等の汚染特性解明に関する研究」, 国立環境研究所研究報告 第203号, p179-191
- 2) 大分県衛生環境研究センター年報第38号：「大分県における大気中の硫酸イオン濃度調査(2009、2010年度)」
- 3) 大分県生活環境部：「大分県大気汚染緊急時等対策実施要綱」(2010)
- 4) 大分地方気象台：「大分県気象月報」  
[http://www.jma-net.go.jp/fukuoka/cgi-bin/chosa/geppou\\_past/oita.cgi](http://www.jma-net.go.jp/fukuoka/cgi-bin/chosa/geppou_past/oita.cgi)
- 5) 国環境研協議会編集委員会：「第4次酸性雨全国調査報告書(平成20年度)(1)」, 全国環境研会誌, VOL.35,p107-116 (2010)
- 6) 酸性雨調査法研究会編集：「酸性雨調査法」, (株)ぎょうせい, 267-268

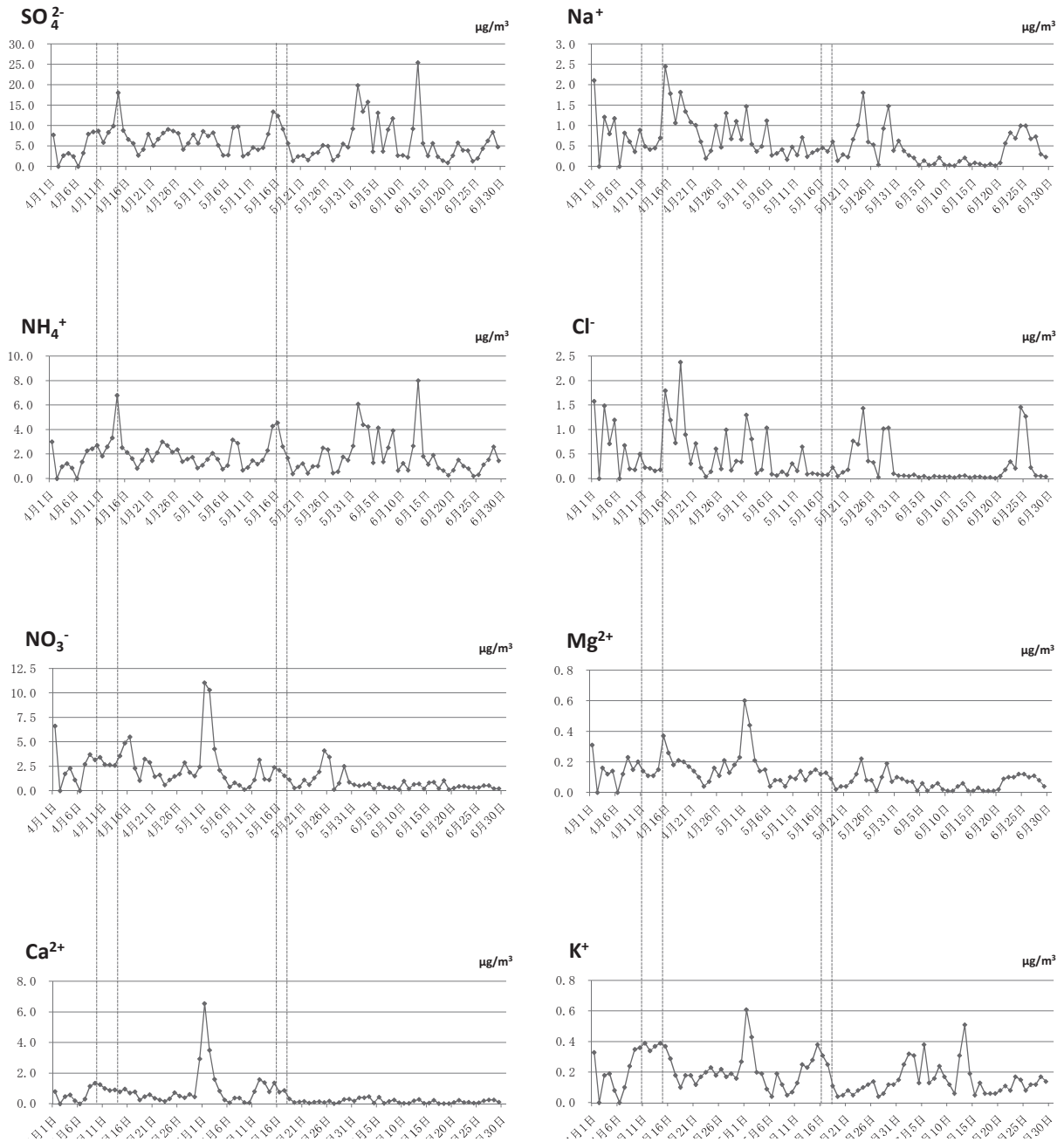


図1 粒子状物質の日変動



表2 粒子状物質のイオン成分濃度の相関 (2011年4月~6月)

	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	1							
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.158	1						
Cl <sup>-</sup>	-0.235	0.426	1					
Na <sup>+</sup>	-0.067	0.504	0.889	1				
K <sup>+</sup>	0.722	0.612	0.061	0.158	1			
Ca <sup>2+</sup>	0.211	0.795	0.202	0.228	0.666	1		
Mg <sup>2+</sup>	0.155	0.877	0.640	0.738	0.563	0.786	1	
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0.965	0.099	-0.260	-0.100	0.645	0.061	0.034	1

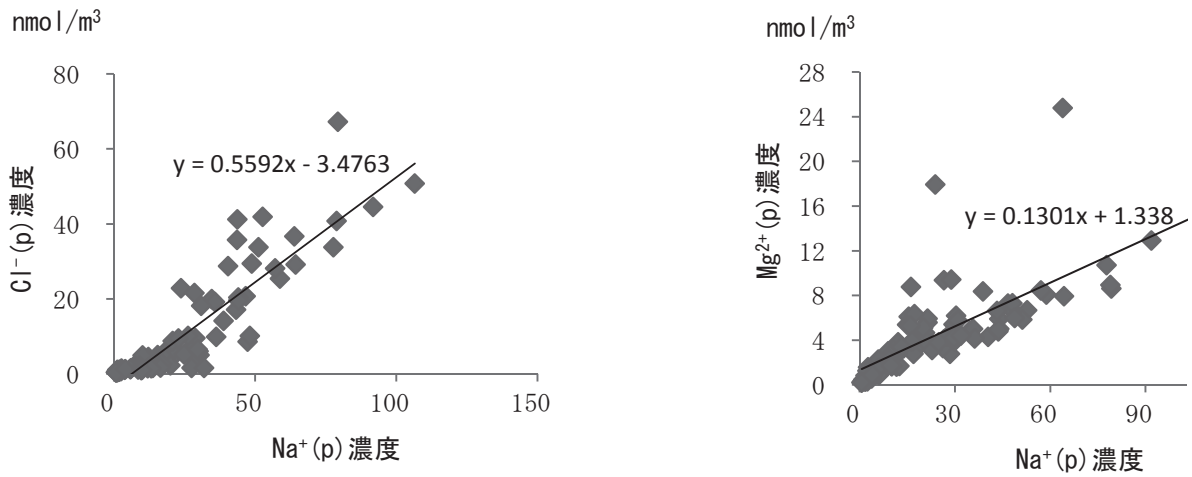


図2 Na<sup>+</sup> (p)、Cl<sup>-</sup> (p) 及び Mg<sup>2+</sup> (p) 濃度の関係

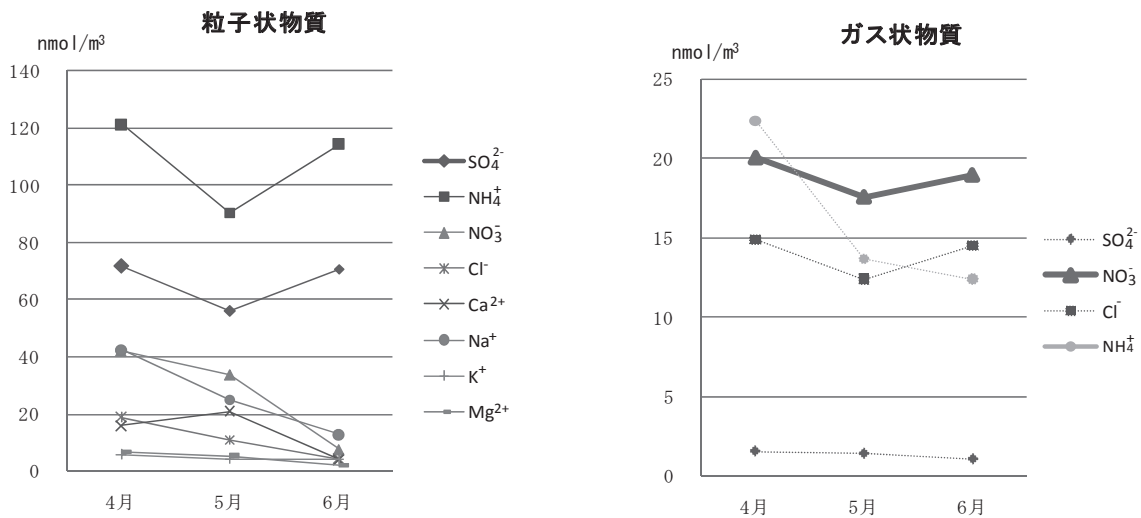


図3 粒子状物質及びガス状物質の月変動

# 久住地域における乾性沈着物中のイオン成分の特性について (2011年度)

酒盛 早美、小野 由加里<sup>1</sup>、中田 高史<sup>2</sup>、上田 精一郎、鈴木 龍一

## Properties of Ionic Component in the Dry Deposition at Kuju Area, 2011

Hayami Sakamori, Yukari Ono, Takashi Nakata, Seiichiro Ueda, Ryuichi Suzuki

Key word : 乾性沈着 Dry deposition, フィルターパック法 Filter Pack Method, 粒子状物質 Particulate

### 要 旨

アジア地域からの汚染物質の移流状況を調査するために、県内の大気環境上のバックグラウンド地点と考えられる久住地域において、乾性沈着物の調査を行った。

汚染物質の移流イベントと考えられている黄砂や煙霧が観測された期間は、カルシウムイオンや硫酸イオンが通常よりも高濃度に検出されており、久住地域が越境移流の影響を受けている可能性が示唆された。

### はじめに

近年、アジア地域において、急速な経済成長に伴い大気汚染物質の排出量が増加している。季節風の影響により、アジア地域で排出された汚染物質が日本へ移流し健康被害等を引き起こしている。一般に、アジア地域の汚染物質は、黄砂や煙霧とともに日本に移流すると考えられており、本県はアジア地域に比較的近い位置にあるため、汚染の影響を受けやすいと推察される。

国設大分久住酸性雨測定所は、周囲に人為的な発生源が少ないため、本県における大気環境上のバックグラウンド地点とすることができる。これまでに、アジア地域からの移流と高濃度硫酸イオンの観測には相関があるという報告<sup>1)</sup>があり、バックグラウンド地点において高濃度事例があった場合、人為的な発生源に近い都市地域に比べて、移流の可能性の判断材料になりやすいと考えられる。

今回、フィルターパック法により大気中の粒子状物質及びガス状物質である乾性沈着物の調査をおこなったので、その結果を報告する。

### 調 査 方 法

#### 1 調査期間

2011年4月11日～2012年3月26日

#### 2 調査地点

久住町：竹田市久住町大字久住平木

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、少量の火山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。

#### 3 試料採取方法及び分析方法

4段式フィルターパック法（以下、FP法という）により、大気中の粒子状物質及びガス状物質を毎分1Lの流速でろ紙上に捕集した。ろ紙は、粒子状物質捕集用として1段目にPTFEろ紙を、ガス状物質捕集用ろ紙として2段目に硝酸ガスを主に捕集するポリアミドろ紙、3段目に硫酸ガス及び塩素ガスを捕集する6%炭酸カリウム、2%グリセリン水溶液含浸セルロースろ紙、4段目にアンモニアガスを捕集する5%リン酸、2%グリセリン水溶液含浸セルロースろ紙を使用した。それぞれ超純水または過酸化水素水中に抽出したのち、イオンクロマトグラフ計を用いて測定した。測定対象成分は、硫酸イオン（以下、「 $\text{SO}_4^{2-}$ 」という）、塩化物イオン（以下、「 $\text{Cl}^-$ 」という）、硝酸イオン（以下、「 $\text{NO}_3^-$ 」と

\*1 環境保全課 \*2 南部保健所

いう)、アンモニウムイオン(以下、「 $\text{NH}_4^+$ 」という)、ナトリウムイオン(以下、「 $\text{Na}^+$ 」という)、カリウムイオン(以下、「 $\text{K}^+$ 」という)、カルシウムイオン(以下、「 $\text{Ca}^{2+}$ 」という)及びマグネシウムイオン(以下、「 $\text{Mg}^{2+}$ 」という)の8成分である。イオン成分のうち、粒子状物質は(p)、ガス状物質は、(g)と表す。

黄砂及び煙霧の観測記録は、大分地方気象台の発表する大分県気象月報(観測地点:大分市)を使用した<sup>2)</sup>。

四季は、4~6月を春季、7~9月を夏季、10~12月を秋季、1~3月を冬季と分類した。

## 結 果

### 1 粒子状物質の濃度について

粒子状物質の濃度を表1及び図1に示した。表1における非海塩性成分(nss: non sea salt)とは各成分の測定値から海塩由来成分量を差し引いた値である。<sup>3)</sup>

粒子状物質の総イオン量は4月がもっとも多く、夏季に減少し、秋季から冬季にかけて上昇する傾向にあった。黄砂を観測した期間に捕集した試料(4月25日~5月9日、5月11日~23日)では、高濃度のnss- $\text{Ca}^{2+}$ (p)及び $\text{Mg}^{2+}$ (p)が検出された。

粒子状物質に占める各成分の割合は、年間をとおしてnss- $\text{SO}_4^{2-}$ (p)の割合がもっとも高く、次いで $\text{NH}_4^+$ (p)が高かった。5月はnss- $\text{Ca}^{2+}$ (p)の占める割合が他の月と比較して高かったが、これは黄砂の主成分である炭酸カルシウムによるものと考えられる。9月は $\text{Na}^+$ (p)の占める割合が他の月と比較して高かった。(図2)

### 2 ガス状物質の濃度について

ガス状物質の濃度を表2及び図3に示した。年間をとおして $\text{SO}_2$ (g)濃度が高かった。 $\text{NH}_3$ (g)は、春季から夏季にかけて高く、冬季に低下し、反対に $\text{HNO}_3$ (g)は冬季に上昇した。

$\text{SO}_2$ (g)濃度の最高値は、黄砂を観測した期間に捕集した試料(5月11日~23日)の234.8mmol/m<sup>3</sup>であった。 $\text{NH}_3$ (g)濃度の最高値は、黄砂を観測した期間に捕集した試料(4月25日~5月9日)の100.7mmol/m<sup>3</sup>であった。

### 3 粒子状物質及びガス状物質の総濃度について

全硫酸( $\text{SO}_2$ (g)+nss- $\text{SO}_4^{2-}$ (p))、全硝酸( $\text{HNO}_3$ (g)

+ $\text{NO}_3^-$ (p))、全塩化物( $\text{HCl}$ (g)+ $\text{Cl}^-$ )、全アンモニア( $\text{NH}_3$ (g)+ $\text{NH}_4^+$ (p))濃度及びそれぞれの粒子化率の月平均値を図4及び図5に示した。粒子化率は、「(粒子状成分濃度) / (粒子状及びガス状成分の総濃度) × 100」としてとめた。

全硫酸濃度は、夏季に低くなる傾向があり、全アンモニア濃度は、秋季に低くなる傾向があった。全硝酸濃度及び全塩化物濃度は、年間を通じ、顕著な増減はみられなかった。

全硝酸及び全アンモニアの粒子化率は、夏季に低く、冬季に高かった。夏季に粒子化率が低くなる要因としては、気温が高い時期には、硫酸アンモニウムや塩化アンモニウムなどの解離が起こりやすいためや土壤から放出されるアンモニアの影響などが考えられる。<sup>3), 4)</sup>

### 4 各成分の相関関係について

各成分間の相関関係を表3に示した。nss- $\text{SO}_4^{2-}$ (p)と $\text{NH}_4^+$ (p)の相関係数は0.86と高く、また、 $\text{NH}_4^+$ (p)とnss- $\text{SO}_4^{2-}$ (p)のモル比は、おおむね1~2の間にあり、硫酸塩を含む粒子の大部分は、アンモニアで中和された硫酸アンモニウムや硫酸水素アンモニウムとして存在していると考えられた。<sup>3)</sup>(図6)

$\text{Mg}^+$ (p)とnss- $\text{Ca}^{2+}$ (p)の相関係数は0.93と高いが、黄砂時を除くと0.76になる。これは、黄砂中の土壤粒子に、 $\text{Ca}^{2+}$ (p)及び $\text{Mg}^+$ (p)が多く含まれるためと考えられる。黄砂飛来時を除いても他の成分よりも高い相関関係にあるため、黄砂飛来時以外にも土壤の巻き上げの影響を受けていると考えられる。

$\text{Cl}^-$ (p)が海塩粒子を起源とする場合、 $\text{Na}^+$ (p)と高い相関関係にあると考えられるが、相関係数は0.14と低かった。粒子としてフィルターに捕集された塩化ナトリウム粒子が、2週間の捕集期間中に大気中の $\text{HNO}_3$ と反応して、硝酸ナトリウム(粒子)と塩酸ガスになったと考えられるが、全塩酸( $\text{Cl}^-$ (p)+ $\text{HCl}$ (g))と $\text{Na}^+$ (p)の相関係数も0.11と相関関係は低かった。海塩粒子以外の塩化物イオンの発生源が懸念され、 $\text{SO}_2$ 濃度も比較的高いことから、近傍の久住山の火山活動による影響が考えられる。

### 5 黄砂及び煙霧現象との関係について

黄砂飛来時に捕集した試料は2検体、煙霧発生時

に採取した試料は11検体であった。黄砂時、煙霧時及び非黄砂・非煙霧時(11検体)の3区分に分類し、粒子状物質の各イオン成分の総イオン濃度に占める割合を図7に示した。

黄砂時には、黄砂中の土壌粒子に由来していると考えられる  $\text{nss-Ca}^{2+}$  濃度がもっとも高かった。

非黄砂・非煙霧時と比較して、煙霧時の方が  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  (p) 濃度が高く、これは、アジア地域からの移流と高濃度硫酸イオンの観測とが相関関係にあるという報告<sup>1)</sup>と一致しており、本調査地点が越境移流の影響を受けている可能性が示唆された。

$\text{nss-SO}_4^{2-}$  (p) の最高濃度を示した期間(9月27日～10月11日)では、2日間(10月7日、9日)大分市において煙霧が観測された。煙霧観測時の気塊の移動状況を国立環境研究所の提供する後方流跡線データ<sup>5)</sup>により調査地点上空500mを起点とした5日間の後方流跡線解析を行った。(図8)  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  (p) 高濃度現象時に観測された煙霧の気塊は、大陸上空を通過し、久住地域に到達していることがわかった。

## 参 考 文 献

- 1) 国立環境研究所・地方環境研究所C型研究：「光化学オキシダントと粒子状物質等の汚染特性解明に関する研究」, 国立環境研究所研究報告 第203号, p179-191
- 2) 大分地方気象台：大分県気象月報(2011年4月～2012年3月)
- 3) 国立環境研協議会酸性雨調査研究部会：全国環境研会誌, 35(3), 2010
- 4) 国立環境研協議会酸性雨調査研究部会：全国環境研会誌, 36(3), 2011
- 5) 国立環境研究所地球環境研究センター：トラジェクトリ(流跡線)計算(NIES-CGER)  
[Hp.hppt://db.cger.nies.go.jp/metex/trajectory.jp.html](http://db.cger.nies.go.jp/metex/trajectory.jp.html)



表1 粒子状物質の測定結果 (2011年度)

月	試料採取 開始日	試料採取 終了日	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	nss-Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>
			nmol / m <sup>3</sup>									
4月	4月11日	4月25日	55.4	54.4	38.7	52.8	16.4	3.0	5.7	5.7	2.9	123.9
5月	4月25日	5月 9日	51.0	49.7	33.8	4.2	21.1	4.3	41.6	41.6	8.4	34.4
	5月11日	5月23日	55.9	55.2	23.0	4.8	12.1	3.8	23.9	23.9	6.3	65.2
	5月23日	6月 6日	54.3	53.6	3.8	0.8	11.2	3.1	3.8	3.8	1.2	85.2
6月	6月 6日	6月20日	31.6	31.5	3.5	0.5	1.8	2.9	1.4	1.4	0.4	57.0
	6月20日	7月 4日	30.2	28.8	5.5	4.7	23.3	1.3	1.7	1.7	2.2	47.5
7月	7月 4日	7月20日	5.4	5.1	1.0	0.9	5.0	0.6	0.7	0.7	0.6	7.5
	7月20日	8月 1日	52.8	51.9	2.8	0.8	13.8	1.5	1.3	1.3	1.5	82.3
8月	8月 1日	8月15日	43.6	42.5	2.9	1.3	18.5	1.5	1.0	1.0	1.9	60.8
9月	8月29日	9月11日	27.5	26.4	3.5	3.6	18.3	1.4	1.4	1.4	1.9	36.0
	9月11日	9月26日	11.1	9.7	7.9	13.0	23.8	1.1	0.7	0.7	1.5	12.6
10月	9月27日	10月11日	68.9	68.3	34.8	32.8	9.5	2.6	3.2	3.2	1.7	107.4
	10月11日	10月24日	15.9	15.5	4.0	2.2	7.2	0.9	0.9	0.9	0.5	22.3
	10月24日	11月 7日	19.6	17.9	10.4	9.3	28.7	1.3	1.4	1.4	2.1	22.3
11月	11月 7日	11月21日	46.1	44.7	24.5	6.1	22.7	3.6	5.3	5.3	3.5	76.1
	11月21日	12月 5日	40.1	38.7	18.5	6.7	23.1	1.7	2.8	2.8	2.9	66.1
12月	12月 5日	12月19日	10.7	10.3	9.3	1.6	6.4	0.6	0.9	0.9	0.8	21.0
	12月19日	1月 4日	50.5	49.0	36.0	10.5	25.7	3.6	5.4	5.4	3.2	82.8
1月	1月 4日	1月16日	45.1	44.2	37.2	6.7	15.5	3.4	3.4	3.4	2.0	87.3
	1月16日	1月30日	50.0	48.9	37.4	6.1	17.9	5.5	5.0	5.0	2.5	93.0
2月	1月30日	2月13日	43.2	42.1	26.5	4.8	17.6	2.8	4.4	4.4	2.6	73.3
	2月13日	2月27日	46.3	45.4	24.8	5.3	15.0	2.3	2.9	2.9	1.9	83.2
3月	2月27日	3月12日	37.9	37.9	14.2	2.7	10.8	1.7	1.3	1.3	0.7	85.3
	3月12日	3月26日	48.6	48.6	47.8	12.4	24.2	5.6	14.8	14.8	4.1	107.3

表2 ガス状物質の測定結果 (2011年度)

月	試料採取 開始日	試料採取 終了日	HNO <sub>3</sub>	SO <sub>2</sub>	HCl	NH <sub>3</sub>
			nmol / m <sup>3</sup>			
4月	4月11日	4月25日	0.2	157.3	4.2	29.5
5月	4月25日	5月 9日	12.7	77.3	20.4	100.7
	5月11日	5月23日	18.8	234.8	23.7	82.4
	5月23日	6月 6日	5.3	119.1	20.5	32.1
6月	6月 6日	6月20日	8.1	22.4	4.9	44.5
	6月20日	7月 4日	2.9	86.5	15.9	48.5
7月	7月 4日	7月20日	3.3	16.4	8.2	46.8
	7月20日	8月 1日	13.0	79.3	10.9	51.6
8月	8月 1日	8月15日	6.8	59.9	15.1	56.9
9月	8月29日	9月11日	10.9	52.1	9.8	82.7
	9月11日	9月26日	11.9	20.8	3.6	45.9
10月	9月27日	10月11日	12.9	117.3	4.1	16.6
	10月11日	10月24日	13.9	201.3	34.8	34.3
	10月24日	11月 7日	14.9	53.6	25.3	28.2
11月	11月 7日	11月21日	15.9	42.5	14.1	33.1
	11月21日	12月 5日	16.9	164.3	17.9	25.8
12月	12月 5日	12月19日	17.9	3.8	1.6	0.2
	12月19日	1月 4日	18.9	77.2	20.1	9.5
1月	1月 4日	1月16日	19.9	126.0	26.0	7.3
	1月16日	1月30日	20.9	95.1	15.1	15.9
2月	1月30日	2月13日	21.9	92.0	13.4	16.4
	2月13日	2月27日	22.9	130.7	11.8	23.6
3月	2月27日	3月12日	7.1	61.3	4.6	46.2
	3月12日	3月26日	15.7	35.7	13.6	20.1

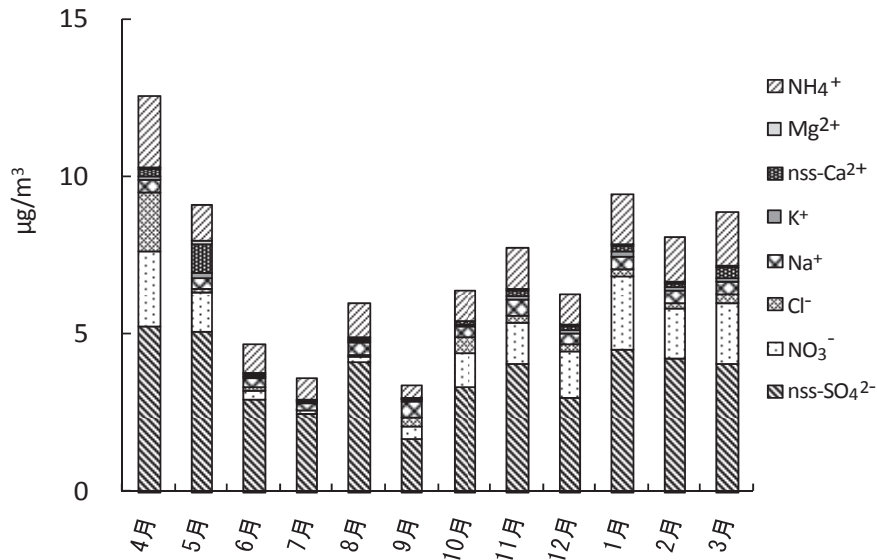


図1 粒子状物質濃度の月変動

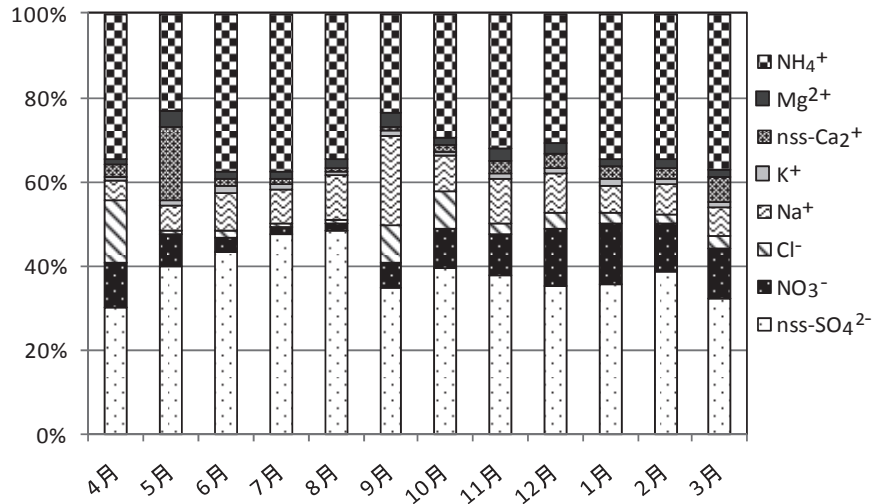


図2 粒子状物質成分比率の月変動

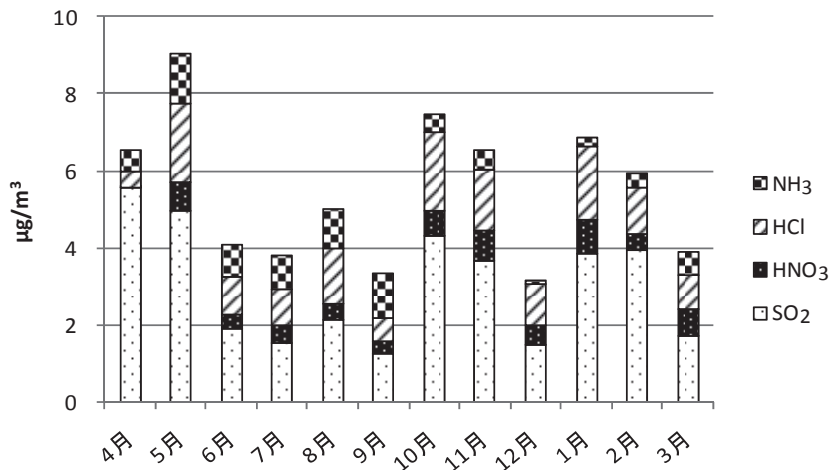


図3 ガス状物質濃度の月変動

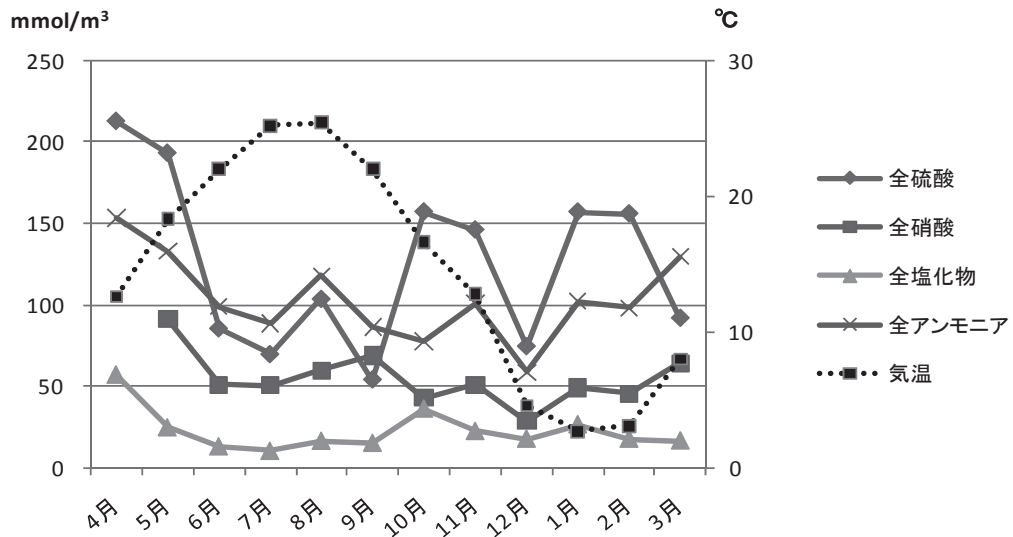


図4 粒子状物質及びガス状物質の総濃度の月変動

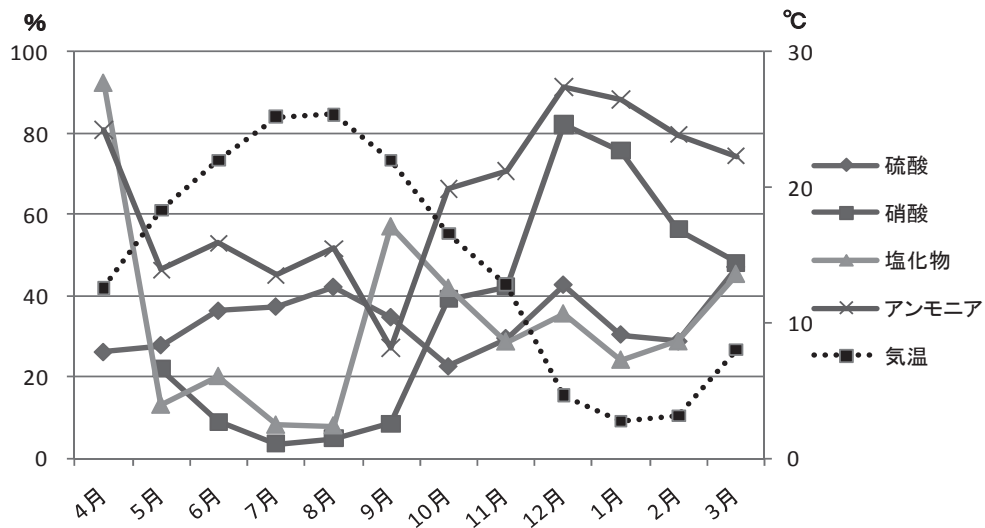


図5 粒子化率の月変動

表3 各成分間の相関係数

	nssSO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	nss-Ca <sup>+</sup>	Mg <sup>+</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	NH <sub>3</sub>	SO <sub>2</sub>	HCl	全硫酸	全硝酸	全塩化物	全アンモニア
nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	1														
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.62	1													
Cl <sup>-</sup>	0.37	0.52	1												
Na <sup>+</sup>	0.11	0.34	0.14	1											
K <sup>+</sup>	0.68	0.80	0.18	0.25	1										
nss-Ca <sup>+</sup>	0.38	0.45	0.01	0.18	0.57	1									
Mg <sup>+</sup>	0.45	0.55	0.11	0.45	0.60	0.93	1								
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0.86	0.66	0.51	0.07	0.62	0.03	0.13	1							
NH <sub>3</sub>	0.16	0.44	- 0.24	0.21	0.34	0.15	0.25	0.09	1						
SO <sub>2</sub>	0.44	0.23	0.24	- 0.07	0.16	0.21	0.27	0.33	0.18	1					
HCl	0.06	0.06	- 0.30	0.26	0.18	0.26	0.30	- 0.12	0.30	0.55	1				
NH <sub>3</sub>	- 0.01	- 0.33	- 0.23	0.01	- 0.07	0.54	0.47	- 0.35	- 0.36	0.06	0.07	1			
全硫酸	0.86	0.64	0.55	0.07	0.57	0.52	0.65	0.67	0.09	0.99	0.39	- 0.15	1		
全硝酸	0.30	- 0.13	- 0.23	0.10	0.26	0.71	0.64	- 0.03	0.15	0.22	0.14	0.83	0.25	1	
全塩化物	0.59	0.62	0.91	0.11	0.30	0.17	0.31	0.65	- 0.28	0.80	- 0.01	- 0.25	0.78	- 0.03	1
全アンモニア	0.74	0.38	0.50	0.06	0.49	0.51	0.55	0.70	- 0.18	0.51	- 0.15	0.34	0.58	0.78	0.48
総計 (粒子状物質 + ガス状物質)															

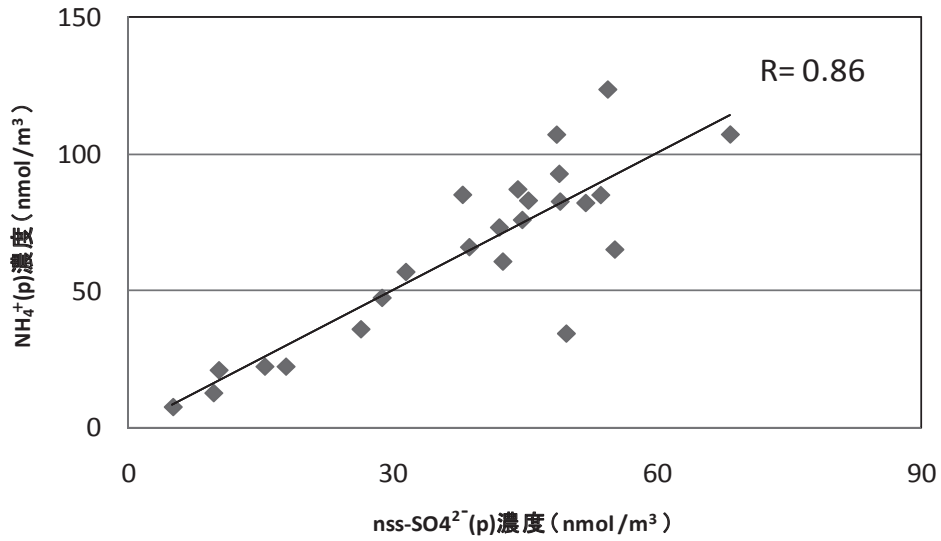


図6 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)濃度とNH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p)濃度の関係

### 粒子状物質

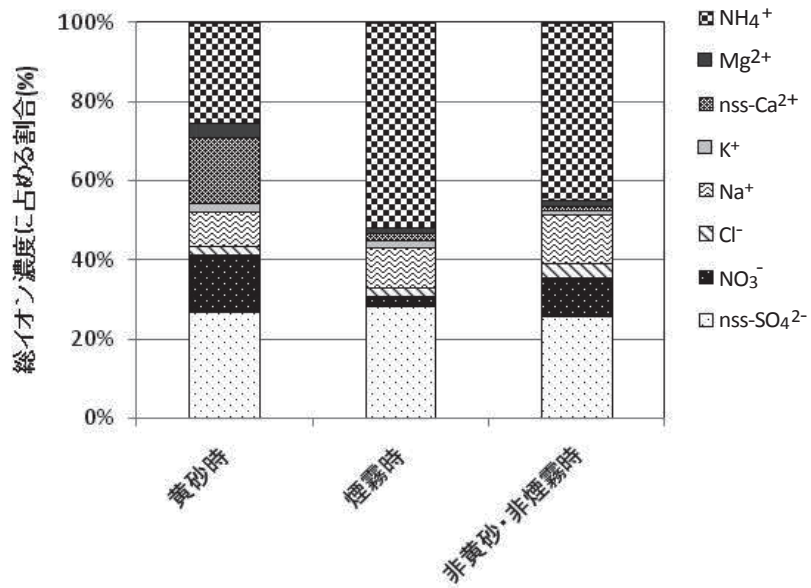
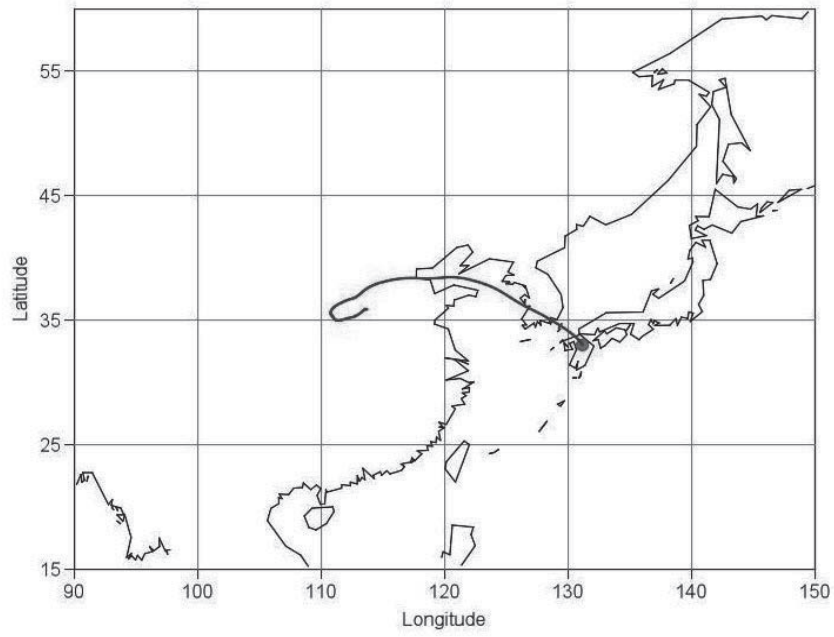
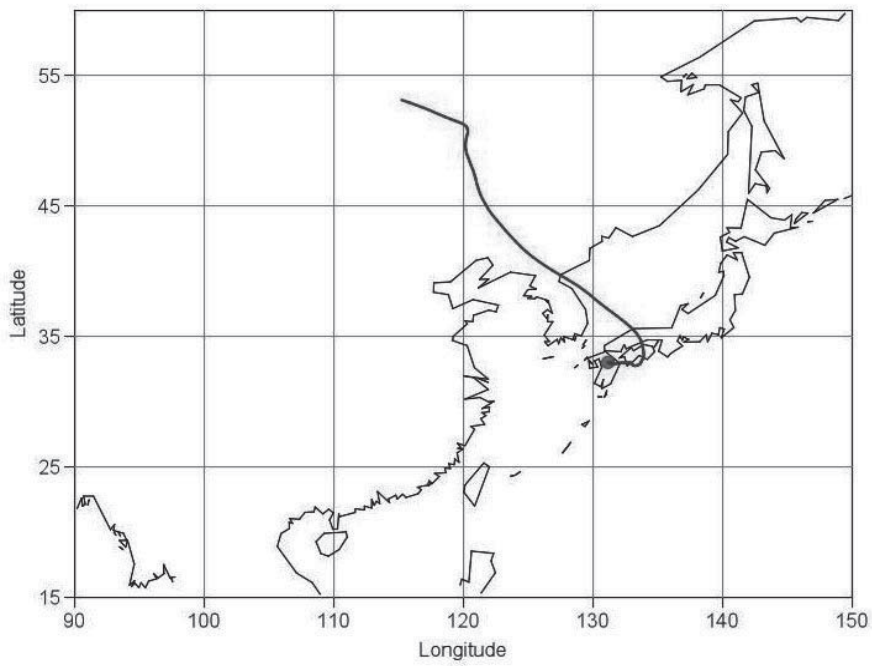


図7 黄砂、煙霧の有無で分類したイオン成分比率



2011年10月7日0時



2011年10月9日16時

図8 120時間の気塊の移動状況

# 大分県におけるモニタリング強化時の環境放射能水準調査

岡本 英子、酒盛 早美、上田 精一郎、鈴木 龍一

## The Report of Environmental Radioactivity at Strengthening Monitoring in Oita Prefecture

Eiko Okamoto, Hayami Sakamori, Seiichiro Ueda, Ryuichi Suzuki

Key words : 降下物 Fallout, ヨウ素 131 Iodine131  
セシウム 134 Cesium134, セシウム 137 Cesium137

### 要 旨

2011年3月に発生した東京電力福島第一原子力発電所事故（以下、福島原発事故という。）により、文部科学省は、モニタリング強化時調査（以下、強化時調査という。）を全都道府県に指示した。事故直後は、大分県においても降下物（以下、月間降下物という。）から人工放射性核種が、短期間にごく微量検出されたものの、それ以降は検出されていない。強化時調査で行った定時降下物及び陸水（蛇口水）からは、いずれも人工放射性核種は検出されなかった。モニタリングポスト及びサーベイメータによる空間放射線量率測定結果は、事故前後で大きな変動はなく、異常値は認められなかった。

### はじめに

環境放射能調査は、1954年のビキニ環礁における米国の核爆発実験や1986年の旧ソ連チェルノブイリ原子力発電所事故を契機として、関係行政機関における放射性物質の調査として開始された。現在、全都道府県が文部科学省の委託を受けて、「環境放射能水準調査」を実施している<sup>1)</sup>。大分県では1987年度に調査を開始した。

また、2011年の福島原発事故により、多量の放射性物質が環境中に飛散したため、文部科学省は、強化時調査を全都道府県に指示した。このとき大分県で行った強化時調査の結果を報告する。

### 調査対象及び方法

#### 1 調査期間

水準調査（2011年度）：2011年4月1日～  
2012年3月31日

強化時調査：2011年3月18日～2011年12月27日

#### 2 調査対象

環境放射能調査項目を表1に示す。

##### 2.1 水準調査

###### 2.1.1 核種分析

大気浮遊じん、月間降下物、陸水（蛇口水）、土壌、  
精米、野菜類、牛乳

###### 2.1.2 空間放射線量率

モニタリングポストによる連続測定

###### 2.1.3 全β放射能測定

定時降水

##### 2.2 強化時調査

###### 2.2.1 核種分析

定時降下物、陸水（蛇口水）

###### 2.2.2 空間放射線量率

サーベイメータ（地上1m）による測定



表1 大分県の環境放射能水準調査項目

	環境放射能水準調査	福島原発事故前	モニタリング強化時	モニタリング見直し後
	項目	期間 ～ 2011/ 3/17	2011/ 3/18～ 2011/12/27	2012/ 1/ 4～ (現在)
1	モニタリングポストによる空間放射線量率	連続測定	連続測定	連続測定
	サーベイメータ(地上1mで測定)	—	毎日	月1回
	サーベイメータによる広域エリア調査	—	県内17箇所	—
2	定時降水の全β放射能	降雨毎	—	降雨毎
3	γ線スペクトロメトリー			
	大気浮遊じん	年4回(四半期毎)	年4回(四半期毎)	年4回(四半期毎)
	定時降下物	—	毎日	—
	月間降下物	毎月	毎月	毎月
	陸水(蛇口水)	—	毎日	年4回(四半期毎)
		年1回	年1回	年1回
	土壌(0-5cm, 5-20cm)	年1回	年1回	年1回
	精米	年1回	年1回	年1回
	野菜類	年1回	年1回	年1回
	牛乳	年1回	年1回	年1回

### 3 測定方法

試料の採取、前処理及び測定は、「環境放射能水準調査委託実施計画書(平成22年度及び23年度)」及び文部科学省放射能測定法シリーズに準拠し実施した。

#### 3.1 水準調査

##### 3.1.1 大気浮遊じん

当センター屋上において、ハイボリュームエアサンプラーを用いて約1700m<sup>3</sup>の大気を吸引し、浮遊じんをろ紙上に採取する。これを1ヶ月に2回行い、3ヶ月分の試料を集め、ろ紙試料を裁断し約10000m<sup>3</sup>分取してU-8容器に充填したものを測定試料とした。

##### 3.1.2 降下物

当センター屋上に大型水盤(受水面積4972cm<sup>2</sup>)を設置し、1ヶ月間に降下した雨水及びちりを集め、濃縮後全量をU-8容器に移し、乾固したものを測定試料とした。

##### 3.1.3 陸水(蛇口水)

当センター2階の蛇口水を100L採取し、濃縮後、全量をU-8容器に移し、乾固したものを測定試料とした。

##### 3.1.4 土壌

竹田市久住町で0-5cm、5-20cmの深さの土壌を採取し、105℃で乾燥した後、ふるい(2mm)に通し、2mm以下の土壌をU-8容器に分取し、測定試料とした。

##### 3.1.5 精米

前処理することなく、生のまま約2kgを2Lマリネリ容器に入れ、測定試料とした。

##### 3.1.6 野菜(大根、ほうれん草)

可食部約4kgを乾燥器にて乾燥し、450℃で36時間灰化処理をした後、ふるい(0.35mm)に通し、0.35

mm以下の灰をU-8容器に充填し、測定試料とした。

##### 3.1.7 牛乳

畜産試験場(竹田市)のバルククーラーから採取し、前処理することなく、生のまま2L分取して2Lマリネリ容器に入れ、測定試料とした。また、乾燥器にて乾燥し、450℃で36時間灰化処理をした後、ふるい(0.35mm)に通し、0.35mm以下の灰をU-8容器に充填し、測定試料とした。

##### 3.1.8 空間放射線量率

当センター屋上(地上14.3m)に設置してあるモニタリングポストで24時間連続測定を行った。なお、文部科学省による指示に基づき、2011年3月12日からモニタリングポストによる空間放射線量率の1時間平均値を集計し、毎日、報告した。

##### 3.1.9 定時降水

当センター屋上に降水採取装置(受水面積452cm<sup>2</sup>)を設置し、降雨毎、1日分(毎日9時時点)の降水を採取し、200mL(それ以下の場合は全量)を分取する。分取した試料にヨウ素担体、硝酸銀溶液、硝酸を加え濃縮し、ステンレス製の試料皿に移して乾固したものを測定試料とした。

文部科学省による指示に基づき、強化時期間中は定時降水を行わず、後述の定時降下物を実施した。

### 3.2 強化時調査

#### 3.2.1 定時降下物

文部科学省による指示に基づき、2011年3月18日から毎日、当センター屋上に設置した採取装置で、1日(毎日9時時点)の雨水等降下物を採取し、80mL(それ以下の場合は全量)をU-8容器に分取し

測定試料とした。降水がないときは、採取装置に付着した降下物を純水で洗い流し、測定試料とした。

### 3.2.2 陸水（蛇口水）

文部科学省による指示に基づき、2011年3月18日から毎日、当センター2階の蛇口水を2L採取し、2Lマリネリ容器に入れ、測定試料とした。

### 3.2.3 空間放射線量率

文部科学省による指示に基づき、2011年6月17日から毎日10時に、当センター敷地内（地上1m）でNaIシンチレーションサーベイメータによる空間放射線量率を測定した。また、県内17箇所でNaIシンチレーションサーベイメータによる空間放射線量率を測定した。測定方法は、時定数30秒、地上1mの位置で30秒間隔でNaIシンチレーションサーベイメータの指示値を5回読み取り、平均値を算出した。

## 4 測定装置

### 4.1 核種分析

ゲルマニウム半導体検出器：キャンベラ社製 GC3018

### 4.2 空間放射線量率

モニタリングポスト：日立アロカ社製MAR-22  
NaIシンチレーションサーベイメータ：日立アロカ社製TCS-171

## 調査結果

### 1 核種分析

各種環境試料中の核種分析結果を表2に示した。

### 1.1 大気浮遊じん

大気浮遊じんは、4月4日～6月24日（のべ計6日間分）に採取した試料から人工放射性核種であるCs-134が0.054mBq/km<sup>3</sup>、Cs-137が0.061mBq/km<sup>3</sup>検出された。県内で大気浮遊じんから人工放射性核種が検出されたのは初めてである。7月以降は検出されていない（表3）。

### 1.2 月間降下物

月間降下物は、4月にI-131が0.76MBq/km<sup>2</sup>、Cs-134が0.28MBq/km<sup>2</sup>、Cs-137が0.33MBq/km<sup>2</sup>、5月にCs-134が0.83MBq/km<sup>2</sup>、Cs-137が0.85MBq/km<sup>2</sup>、6月にCs-137が0.054MBq/km<sup>2</sup>が検出された。

Cs-137は測定を開始した1987年度から1998年度までに7回検出されているが、I-131及びCs-134は2011年4月分（採取期間4月1日～5月2日）の試料から県内で初めて検出された（表4）。

### 1.3 土壌

土壌から、Cs-137が検出されているが、過去3年間の結果とほぼ同じレベルであった。これは、過去に行われた大気圏核実験等に由来するもので、異常は認められなかった（図1）。I-131及びCs-134等のその他の人工放射性核種は検出されなかった。

### 1.4 陸水（蛇口水）、精米、野菜、牛乳

陸水（蛇口水）、精米、野菜、牛乳からは、いずれも人工放射性核種は検出されなかった。

### 1.5 強化時調査

強化時調査の定時降下物及び陸水（蛇口水）の全ての試料からは、いずれも人工放射性核種は検出されなかった。

表2 ゲルマニウム半導体検出器による核種分析測定調査結果

	試料名		採取場所	採取年月	検体数	I-131 最高値	Cs-134 最高値	Cs-137 最高値	その他の 検出された人工放射 性核種	単位
	2011年度水 準調査	大気浮遊じん		大分市	2011. 4～2012. 3	4	N.D	0.054	0.061	なし
月間降下物		大分市	2011. 4～2012. 3	12	0.76	0.83	0.85	なし	MBq/km <sup>2</sup>	
陸水		蛇口水	大分市	2011. 6	1	N.D	N.D	N.D	なし	mBq/L
土壌		0-5cm	竹田市	2011. 7	1	N.D	N.D	45	なし	Bq/kg乾土
						N.D	N.D	890		MBq/km <sup>2</sup>
土壌		5-20cm	竹田市	2011. 7	1	N.D	N.D	6.5	なし	Bq/kg乾土
						N.D	N.D	320		MBq/km <sup>2</sup>
精米		宇佐市		2011.10	1	N.D	N.D	N.D	なし	Bq/kg精米
野菜類		大根	宇佐市	2011.11	1	N.D	N.D	N.D	なし	Bq/kg生
		ホウレン草	宇佐市	2011.10	1	N.D	N.D	N.D	なし	
牛乳	竹田市		2011. 8	1	N.D	N.D	N.D	なし	Bq/L	
強化時 調査	定時降下物		大分市	2011. 3～2011.12	279	N.D	N.D	N.D	なし	MBq/km <sup>2</sup>
	陸水	蛇口水	大分市	2011. 3～2011.12	280	N.D	N.D	N.D	なし	mBq/kg

備考1 N.Dは「検出下限値未満」を示す。

表3 大気浮遊じん 測定結果 (2011年度)

試料採取開始日	人工放射性核種および濃度 (mBq/km <sup>3</sup> )		
	I-131	Cs-134	Cs-137
2011/4/4 ~ 6/24	N.D	0.054	0.061
7/4 ~ 9/22	N.D	N.D	N.D
10/3 ~ 12/20	N.D	N.D	N.D
2012/1/4 ~ 3/22	N.D	N.D	N.D

備考1 N.Dは「検出下限値未満」を示す。

表4 月間降下物 測定結果 (2011年度)

試料採取開始日	人工放射性核種および濃度 (MBq/km <sup>3</sup> )		
	I-131	Cs-134	Cs-137
2011/3/1	N.D	N.D	N.D
2011/4/1	0.76	0.28	0.33
2011/5/2	N.D	0.83	0.85
2011/6/1	N.D	N.D	0.054
2011/7/1	N.D	N.D	N.D
2011/8/1	N.D	N.D	N.D
2011/9/1	N.D	N.D	N.D
2011/10/3	N.D	N.D	N.D
2011/11/1	N.D	N.D	N.D
2011/12/1	N.D	N.D	N.D
2012/1/4	N.D	N.D	N.D
2012/2/1	N.D	N.D	N.D
(参考) 過去、人工放射性核種が検出された年および濃度 (MBq/km <sup>3</sup> )			
1988/3/1	N.D	N.D	0.19
1988/7/1	N.D	N.D	0.07
1988/8/1	N.D	N.D	0.062
1990/3/2	N.D	N.D	0.32
1990/4/2	N.D	N.D	0.22
1991/2/1	N.D	N.D	0.11
1998/4/1	N.D	N.D	0.081

備考1 N.Dは「検出下限値未満」を示す。

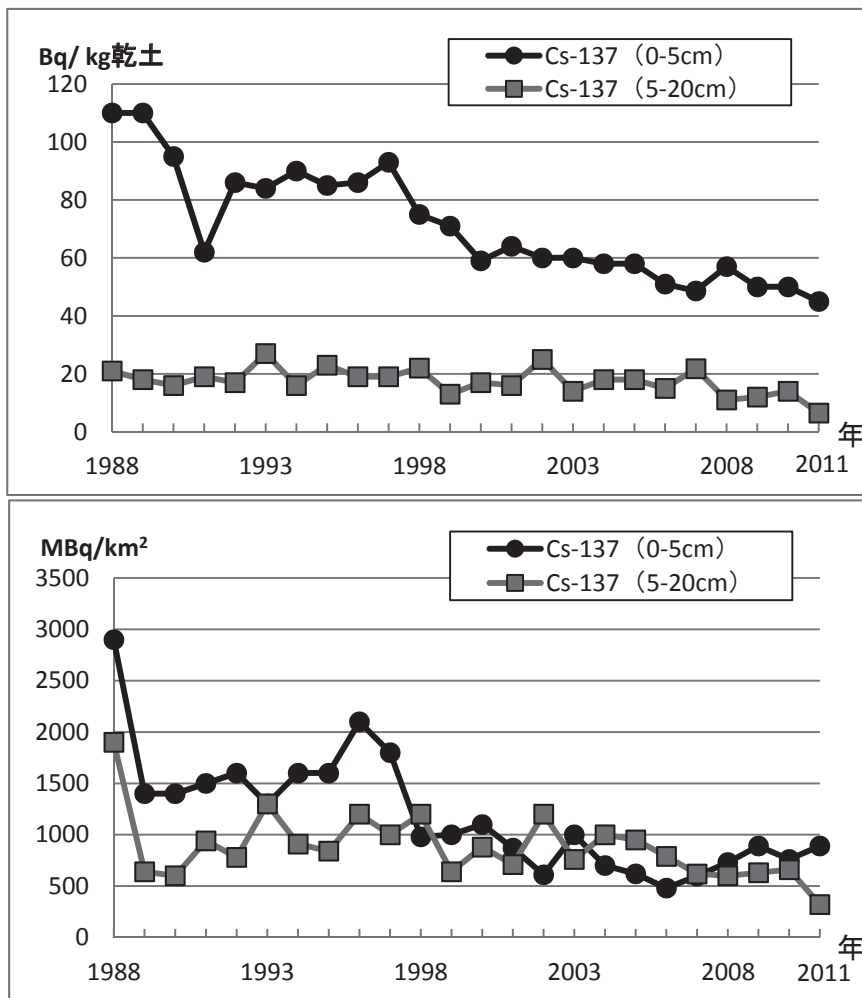


図1 土壌放射能濃度経年変化(1988-2011)

2 空間放射線量率

当センター屋上に設置してあるモニタリングポストにおいて、2010年度及び2011年度の空間放射線量率測定結果を、表5及び表6に示した。

2010年度の結果は、年間の最低値が48nGy/h、最高値が85nGy/h、平均値が50nGy/hであり、2011年度の結果は、年間の最低値が48nGy/h、最高値が77nGy/h、平均値が50nGy/hであった。

2011年3月の福島原発事故前及び事故後の空間放射線量率を比べると、ほぼ同じ放射能レベルにあり、異常値は認められなかった。

表5 空間放射線量率測定結果(2010年度)

測定年月日	モニタリングポスト (nGy/h)		
	最低値	最高値	平均値
2010年 4月	48	63	50
5月	48	68	50
6月	48	67	51
7月	48	73	51
8月	48	64	50
9月	49	85	50
10月	49	60	51
11月	49	60	51
12月	49	69	51
2011年 1月	49	52	50
2月	49	70	51
3月 (1~11日)	49	72	50
3月 (12~31日)	49	64	50
年間値	48	85	50
2009年までの過去3年間の値	40	78	45

備考1 モニタリングポストは2009年11月にアロカ製 MAR-22に更新

表6 空間放射線量率測定結果（2011年度）

測定年月日	モニタリングポスト (nGy/h)		
	最低値	最高値	平均値
2011年 4月	49	62	50
5月	48	62	50
6月	48	71	52
7月	48	73	50
8月	48	71	50
9月	48	69	50
10月	49	64	51
11月	49	59	50
12月	49	66	50
2012年 1月	49	65	50
2月	49	73	51
3月	49	77	51
年間値	48	77	50

また、2011年6月にサーベイメータ（地上1mで測定）で県内17箇所の空間放射線量率を測定した。調査地点を図2に、測定結果を表7に示す。測定値は、年間値の範囲にあり、福島原発以前に測定した結果<sup>2)</sup>と比較しても特に異常値は認められなかった。

空間放射線量率は地域により差が認められたが、土壤等地質によることが示唆されている<sup>2)</sup>。



●は既存、■は2012年3月に新設したモニタリングポストの地点

図2 空間放射線量率調査地点

表7 サーベイメータ(地上1m)による地点別空間線量率

地点番号	測定年月日	調査地点	空間放射線量率 (nG/h)	地表状態	降雨
①	2011/6/22	大分県佐伯市中村南町1丁目1番 佐伯市役所	40	アスファルト	なし
②	2011/6/22	大分県津久見市宮本町20番15号 津久見市役所	50	土	なし
③	2011/6/22	大分県臼杵市大字臼杵72番1号 臼杵市役所	38	アスファルト	なし
④	2011/6/23	大分県日田市田島2丁目6番1号 日田市役所	42	アスファルト	なし
⑤	2011/6/23	大分県玖珠郡玖珠町大字帆足268番5号 玖珠町役場	50	アスファルト	なし
⑥	2011/6/23	大分県玖珠郡九重町大字後野上8丁目1番 九重町役場	58	アスファルト	なし
⑦	2011/6/23	大分県由布市湯布院町川上3738番1号 由布市役所湯布院庁舎	62	アスファルト	なし
⑧	2011/6/24	大分県豊後大野市三重町内田878番地 エトピアおおの(豊後大野市総合文化センター)	56	アスファルト	なし
⑨	2011/6/24	大分県竹田市大字会々 1650番 竹田市役所	74	土	なし
⑩	2011/6/27	大分県国東市国東町田深280番2号 国東市役所	42	アスファルト	なし
⑪	2011/6/27	大分県杵築市大字杵築377番1号 杵築市役所	42	アスファルト	なし
⑫	2011/6/27	大分県速見郡日出町2974番1号 日出町役場	50	アスファルト	あり
⑬	2011/6/27	大分県別府市上野口町1番15号 別府市役所	76	土	なし
⑭	2011/6/28	大分県中津市豊田町14番3号 中津市役所	56	土	なし
⑮	2011/6/28	大分県宇佐市大字上田1030番1号 宇佐市役所	46	アスファルト	なし
⑯	2011/6/28	大分県豊後高田市御玉147番 豊後高田市消防本部	44	アスファルト	なし
⑰	2011/6/29	大分県東国東郡姫島村 姫島港フェリー発着所	50	アスファルト	なし
平均値			52	-	-
最高値			76	土	なし
最低値			38	アスファルト	なし
(参考)	2011/6/29	大分県大分市高江西2丁目8番 大分県衛生環境研究センター	46	草地	なし

## 考 察

月間降下物の核種分析で検出されたI-131及びCs-134は、半減期が8.04日及び2.06年と短いことから、福島原発事故の影響によるものと示唆された。

また、月間降下物の結果と強化時調査の定時降下物及び陸水（蛇口水）の結果を鑑みると、検出された放射性物質は、1ヶ月分集めて濃縮しなければ検出されない程、ごく微量であったことがわかる。

すなわち、大分県で検出された人工放射性核種は、3ヶ月間という短期間で、かつ、ごく微量であったことから、人体に影響はないものと思われる。

空間放射線量を測定するモニタリングポストは、当センター屋上に設置してある既存のものに加え、2011年8月2日に決定した国の「総合モニタリング計画」により、2011年度に4基追加配備されたものを含め、現在、県内に5基設置されている（図3）。5基のモニタリングポストの測定結果は、2012年4月

から、文部科学省にオンラインで24時間自動転送され、文部科学省のホームページでリアルタイムに公開されている。

原子力発電所事故や核爆発実験等により、大気中に飛散した放射性物質のうち、大気圏に拡散したものは比較的短期間に、また、成層圏に注入されたものは、数ヶ月から数年の滞留期間をもって徐々に降下するといわれているため<sup>1)</sup>、今後もモニタリングを続けることが必要である。

## 参 考 文 献

- 1) 環境水準調査委託実施計画書（平成24年度）文部科学省 科学技術・学術政策局 原子力安全課防災環境対策室
- 2) 岡本盛義, 上田精一郎, 森崎澄江, 池辺清士：大分県衛生環境研究センター年報, 大分県における空間線量率等調査, 21,70-71（1993）

## 由布地域の環境大気調査 (2011年度)

鈴木 龍一、小野 由加里<sup>1)</sup>、中田 高史<sup>2)</sup>、上田 精一郎

### Survey of Air Pollution at Yufu Area, 2011

Ryuichi Suzuki, Yukari Ono, Takashi Nakata, Seiichiro Ueda

Key words : 大気環境 atmospheric environment、常時監視 constant monitoring、  
光化学オキシダント photochemical-oxidants

#### はじめに

本県では、大気汚染防止法第22条の規定に基づき、大気汚染状況の常時監視において、常時監視測定局が整備されていない地域では、大気環境測定車を一定期間設置することにより、大気環境の把握を

行っている<sup>1)~4)</sup>。2010年度に由布市において実施したが、光化学オキシダント濃度が他の常時監視測定局と比べ高い値を示した。(表1)

このため、2011年度再度実施し、測定の検証を行ったので報告する。

表1 光化学オキシダント濃度の常時監視局別比較

単位：ppb

		2010年度				2011年度	
		5月21日	6月10日	6月17日	8月23日	7月5日	7月24日
		16:00	15:00	14:00	15:00	14:00	13:00
大分県	由布保健部 (測定車)	127	122	133	122	119	110
	中津総合庁舎	65	55	27	62	82	48
	日出町	46	54	45	42	57	65
	別府青山中	56	100	92	69	67	56
	臼杵市役所	52	62	46	44	69	43
	津久見市役所	76	85	32	43	51	32
	佐伯総合庁舎	71	76	48	31	59	40
	豊後大野市	78	60	35	46	56	63
	日田総合庁舎	77	62	46	48	51	43
大分市	三佐小	62	86	45	44	59	38
	敷戸小	84	69	35	46	55	44
	佐賀関小	61	56	34	16	33	26

#### 調査方法

##### 1 調査期間

2011年4月27日～2011年9月28日

ただし、表2の期間は測定器不良や校正中のため欠測とした。

\*1 環境保全課 \*2 南部保健所



表2 欠測期間

欠測期間	項目	事由
4月27日 ~ 5月17日12時	一酸化窒素、二酸化窒素	測定器不良
8月 9日 11時 ~ 15時	一酸化窒素	校正作業
8月 9日 11時 ~ 13時	二酸化硫黄	校正作業
8月 9日 11時 ~ 12時	浮遊粒子状物質	校正作業
8月 9日 12時 ~ 15時	二酸化窒素	校正作業
8月 9日 11時 ~ 8月17日 19時	一酸化炭素	測定器不良
9月14日 8時 ~ 13時	光化学オキシダント	アラーム誤作動

2 調査地点

中部保健所由布保健部駐車場敷地内：由布市庄内町大字柿原302（図1）

由布市は、大分県のほぼ中央部に位置し、北部から南西部にかけては由布岳や黒岳など標高1,000m級の山々が連なり、西部から東部に大分川が貫流し、河岸段丘を形成する人口3万人余の地域である。

当該保健部は標高170mの地点にあり、約150m北方に大分市と福岡県久留米市を結ぶ国道210号（由布市庄内町柿原交通量：約12,700台／日）が東西にかけて走っている<sup>5)・6)</sup>。また、南西～南東方向には田園が広がり、約100m東方には大分川の支流となる阿蘇野川が流れる。

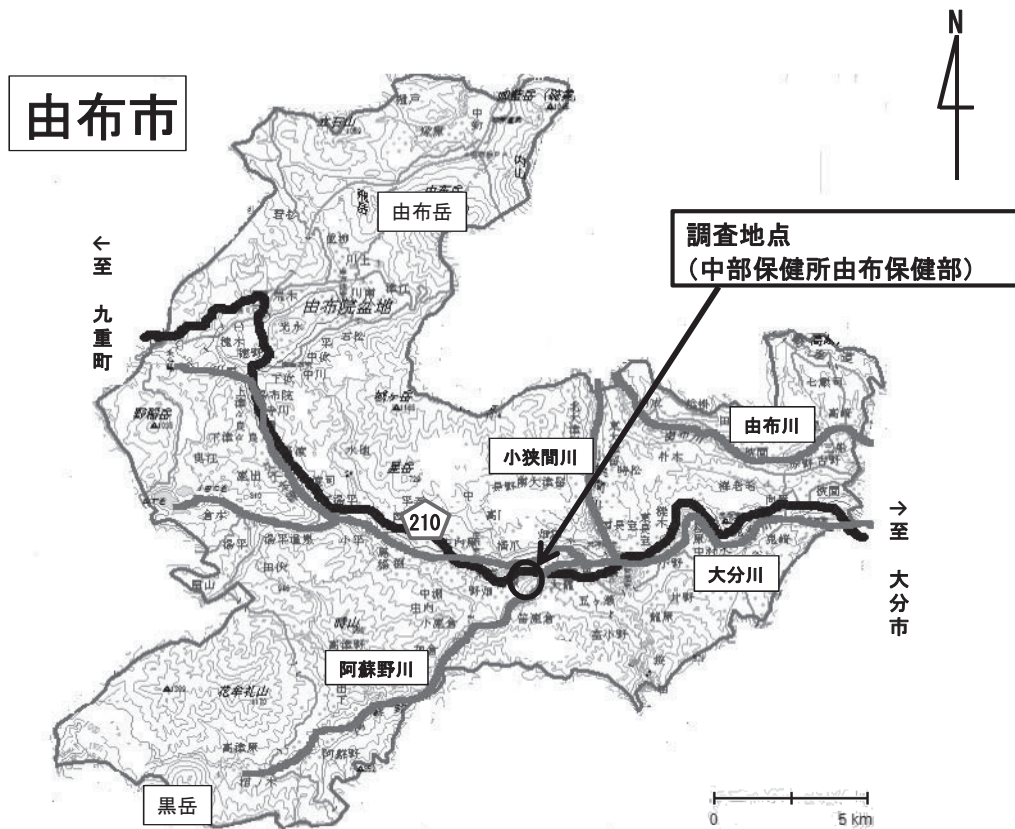


図1 調査地点<sup>5)</sup>

3 測定項目、方法及び使用機器

測定項目、方法及び使用機器は、2010年度と同様に表3のとおりである。各項目の測定は、環境大気

常時監視マニュアル<sup>7)</sup>に従って行った。なお、測定データは、バッチ処理による通信システムを用いて収集した。

表3 測定項目, 方法及び使用機器

測定項目	方法	使用機器
二酸化硫黄	紫外線蛍光法	大気中二酸化硫黄測定装置 GFS-212J <sup>1</sup>
窒素酸化物 (一酸化窒素及び二酸化窒素)	オゾンを用いる化学発光法	大気中窒素酸化物測定装置 GLN-214J <sup>1</sup>
一酸化炭素	非分散赤外線吸収法	大気中一酸化炭素測定装置 GIA-272H <sup>1</sup>
浮遊粒子状物質	ベータ線吸収法	浮遊粒子状物質測定装置 DUB-222 <sup>1</sup>
光化学オキシダント	紫外線吸収法	大気中オゾン測定装置 GUX-213J <sup>1</sup>
気象 (風向及び風速)	風向、風速計による測定	風向風速計 C-W503 <sup>2</sup>

\*1: 東亜ディーケーケー株式会社

\*2: 株式会社 小笠原計器製作所

## 調査結果

### 1 二酸化硫黄

二酸化硫黄（以下、「SO<sub>2</sub>」という）に係る測定結果の概要を表4に示す。

測定期間中の1時間値の平均値は、0.004ppmであった。

環境基準<sup>8)</sup>との適合状況を見ると、日平均値の期間中最高値は0.009ppmであり、基準値（日平均値0.04ppm以下）を満たしていた。また、1時間値の

期間中最高値は0.052ppmであり、同様に、基準値（1時間値0.1ppm以下）を満たしていた（図2）。

経時変化をみると、12時～18時に僅かな上昇がみられた（図3）。

風向別濃度は、0.002～0.005ppmの範囲にあり、東方向から南方向にかけてやや高い（0.004ppm）傾向にあった（図4）。2010年度と比べると5月の1時間値の最高値が高いものの他は同様の結果であった。

表4 二酸化硫黄測定結果

項目		4月	5月	6月	7月	8月	9月	平均値
有効測定日数	(日)	3	31	30	31	31	27	(153)
測定時間	(時間)	81	744	720	744	740	657	(3686)
月平均値	(ppm)	0.005	0.004	0.003	0.003	0.003	0.003	0.004
1時間値が0.1ppmを超えた時間数	(時間)	0	0	0	0	0	0	(0)
日平均値が0.04ppmを超えた日数	(日)	0	0	0	0	0	0	(0)
1時間値の最高値	(ppm)	0.026	0.052	0.039	0.024	0.022	0.017	0.030
日平均値の最高値	(ppm)	0.007	0.009	0.007	0.008	0.006	0.006	0.007

※ ( ) 内は合計値

### 2 窒素酸化物

窒素酸化物（以下、「NO<sub>x</sub>」という）に係る測定結果の概要を表5、表6及び表7に示す。

測定期間中の1時間値の平均値は、二酸化窒素（以下、「NO<sub>2</sub>」という）については0.005ppm、一酸化窒素（以下、「NO」）については0.002ppm、NO<sub>x</sub>については0.008ppmであった。

環境基準<sup>9)</sup>との適合状況を見ると、NO<sub>2</sub>の日平均値の期間中最高値は0.019ppmであり、基準値（日

平均値0.04ppm～0.06ppmまでのゾーン内又はそれ以下）を満たしていた（図2）。

経時変化をみると、NOは7時から10時に、NO<sub>2</sub>は16時から18時に小さなピークを示しており、移動発生源の影響が見られた（図3）。

NO<sub>2</sub>の風向別濃度は、0.003～0.008ppmの範囲にあり、風向による濃度差は小さい。東から南東方向の風が吹くときやや高い（0.007ppm）傾向にあった（図4）。

表5 二酸化窒素

項 目		4月	5月	6月	7月	8月	9月	平均値
有効測定日数	(日)	0	14	30	31	31	27	(133)
測定時間	(時間)	0	348	720	744	739	656	(3207)
月平均値	(ppm)	—	0.009	0.006	0.004	0.004	0.004	0.005
1時間値の最高値	(ppm)	—	0.044	0.028	0.035	0.026	0.022	0.031
日平均値の最高値	(ppm)	—	0.019	0.014	0.008	0.012	0.01	0.013
1時間値が0.2ppmを超えた時間数	(ppm)	—	0	0	0	0	0	(0)
1時間値が0.1ppm以上0.2ppm以下の時間数	(ppm)	—	0	0	0	0	0	(0)
日平均値が0.06ppmを超えた時間数	(ppm)	—	0	0	0	0	0	(0)
日平均値が0.04ppm以上0.06ppm以下の日数	(日)	—	0	0	0	0	0	(0)

※ ( ) 内は合計値

表6 一酸化窒素測定結果

項 目		4月	5月	6月	7月	8月	9月	平均値
有効測定日数	(日)	0	14	30	31	31	27	(133)
測定時間	(時間)	0	348	720	744	739	656	(3207)
月平均値	(ppm)	—	0.002	0.002	0.002	0.003	0.002	0.002
1時間値の最高値	(ppm)	—	0.014	0.018	0.019	0.016	0.013	0.016
日平均値の最高値	(ppm)	—	0.004	0.003	0.005	0.006	0.004	0.004

※ ( ) 内は合計値

表7 窒素酸化物測定結果

項 目		4月	5月	6月	7月	8月	9月	平均値
有効測定日数	(日)	0	14	30	31	31	27	(133)
測定時間	(時間)	0	348	720	744	739	656	(3207)
月平均値	(ppm)	—	0.011	0.009	0.006	0.007	0.007	0.008
1時間値の最高値	(ppm)	—	0.049	0.031	0.037	0.039	0.027	0.037
日平均値の最高値	(ppm)	—	0.022	0.016	0.01	0.016	0.013	0.015
月平均値 [NO <sub>2</sub> / (NO+NO <sub>2</sub> )]	(%)	—	79.1	72.9	62.4	61.2	65.2	68.2

※ ( ) 内は合計値

### 3 一酸化炭素

一酸化炭素（以下、「CO」という）に係る測定結果の概要を表8に示す。

測定期間中の1時間値の平均値は、0.2ppmであった。

環境基準<sup>8)</sup>との適合状況をみると、日平均値の期間中最高値は0.6ppmであり、基準値（日平均値10ppm以下）を満たしていた。また、1時間値の期間中最高値は、1.5ppmであり、同様に、基準値（1

時間値の8時間平均値20ppm以下）を満たしていた（図2）。

経時変化をみると、CO濃度は13時から20時に僅かな上昇がみられた。（図3）。

風向別濃度は、0.2～0.3ppmの範囲にあり、東方向から南東方向の風が吹くときやや高い（0.3ppm）傾向にあった（図4）。2010年度に比べ高い傾向にあるが、測定器の校正による差と考えられる。

表8 一酸化炭素測定結果

項 目		4月	5月	6月	7月	8月	9月	平均値
有効測定日数	(日)	3	31	30	31	22	27	(144)
測定時間	(時間)	81	744	720	744	543	658	(3490)
月平均値	(ppm)	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
8時間値が 20ppm を超えた回数	(回)	0	0	0	0	0	0	(0)
日平均値が 10ppm を超えた日数	(日)	0	0	0	0	0	0	(0)
1時間値の最高値	(ppm)	0.6	1.1	0.8	1.5	1.1	1.1	1.0
日平均値の最高値	(ppm)	0.3	0.5	0.4	0.4	0.4	0.6	0.4
1時間値が 30ppm 以上となったことがある日数	(日)	0	0	0	0	0	0	(0)

※ ( ) 内は合計値

#### 4 光化学オキシダント

光化学オキシダント(以下、「Ox」という)に係る測定結果の概要を表9に示す。

測定期間中の昼間<sup>\*1</sup>の1時間値の平均値は、0.038ppmであった。

昼間の1時間値が基準値<sup>8)</sup>(0.06ppm以下)を超過した時間数は、320時間であり、環境基準を満たさなかった。また、超過した日数は65日であった。

昼間の1時間値の月平均値は、春先(4月及び5月)に高く、夏季(6月、7月及び8月)から秋季(9月)にかけて減少した(図2)。

経時変化をみると、Ox濃度は14時から16時をピークに日中に山なりに高くなった(図3)。

風向別濃度は、0.018~0.041ppmの範囲にあり、北北東方向から南南東方向の風が吹くとき、やや高い傾向にあった(図4)。

表9 光化学オキシダント測定結果

項 目		4月	5月	6月	7月	8月	9月	平均値
昼間測定日数	(日)	4	31	30	31	31	28	(155)
昼間測定時間	(時間)	50	465	450	465	464	404	(2298)
昼間の1時間値の月平均値	(ppm)	0.057	0.046	0.039	0.028	0.028	0.029	0.038
昼間の1時間値が 0.06ppm を超えた日数	(日)	3	19	16	9	13	5	(65)
昼間の1時間値が 0.06ppm を超えた時間数	(時間)	20	115	79	38	45	23	(320)
昼間の1時間値が 0.12ppm 以上の日数	(日)	0	0	0	0	0	0	(0)
昼間の1時間値が 0.12ppm 以上の時間数	(時間)	0	0	0	0	0	0	(0)
昼間の1時間値の最高値	(ppm)	0.079	0.105	0.103	0.119	0.099	0.091	0.099
昼間の日最高1時間値の月間平均値	(ppm)	0.069	0.062	0.063	0.05	0.051	0.043	0.056

※ ( ) 内は合計値

\*1: 光化学オキシダントの測定における「昼間」とは、5時から20時までの時間帯をいう。

#### 5 浮遊粒子状物質

浮遊粒子状物質(以下、「SPM」という)に係る測定結果の概要を表10に示す。

測定期間中の1時間値の平均値は、0.020mg/m<sup>3</sup>であった。

環境基準<sup>8)</sup>との適合状況をみると、日平均値の期間中最高値は0.151mg/m<sup>3</sup>であり、基準値(日平均値0.10mg/m<sup>3</sup>以下)を満たさなかった。また、1時間

値の期間中最高値は0.203mg/m<sup>3</sup>であり、同様に、基準値(1時間値0.20mg/m<sup>3</sup>以下)を満たさなかった(図2)。

経時変化をみると、SPM濃度は14時から22時に僅かな上昇がみられた(図3)。

風向別濃度は、0.011~0.023mg/m<sup>3</sup>の範囲にあり、東方向から東南東方向にかけてやや高い(0.023ppm)傾向にあった(図4)。

表10 浮游粒子状物質

項 目		4月	5月	6月	7月	8月	9月	平均値
有効測定日数	(日)	3	31	30	31	31	27	(153)
測定時間	(時間)	81	744	718	742	740	657	(3682)
月平均値	(mg/m <sup>3</sup> )	0.021	0.028	0.022	0.016	0.019	0.011	0.020
1時間値が0.20mg/m <sup>3</sup> を超えた時間	(時間)	0	2	0	0	0	0	(2)
日平均値が0.10mg/m <sup>3</sup> を超えた日数	(日)	0	2	0	0	0	0	(0)
1時間値の最高値	(mg/m <sup>3</sup> )	0.052	0.203	0.081	0.083	0.098	0.054	0.095
日平均値の最高値	(mg/m <sup>3</sup> )	0.028	0.151	0.051	0.047	0.045	0.026	0.058

※ ( ) 内は合計値

### 考 察

今回の調査でも2010年度とほぼ同様の結果を得られた。2010年度<sup>4)</sup>で、SO<sub>2</sub>、NO<sub>2</sub>、Ox及びSPMは、東方向の風が吹くときやや高い傾向を示すことを報告したが、2011年度も同様の傾向にあった。

この傾向は、気温<sup>10)</sup>が上がる8時から18時にかけて、東方向の風が吹き、気温が下がる19時から7時の夜間に向け西からの風が吹き、風速も気温と連動し、調査地点の地形を考慮すると、海陸風と山谷風の影響を強く受けると考えられる。

また、気温と光化学オキシダント濃度の関係も、概ね一致している。(図6)

光化学オキシダント濃度の最高値が高かった表1の測定日の後方流跡線解析を米国海洋大気庁(NOAA)のHYSPLIT MODEL<sup>11)</sup>により行った結果、すべての日で大陸からの移流が認められた。

(図5)

これらのことから、この地域では、局所的な海陸風や山谷風が大分川に沿って吹き、アジアモンスーン気候の季節風とがあいまって、昼夜の温度差が大きくなる時期に光化学オキシダント濃度が高くなるものと推察される。

### 謝 辞

本調査の実施にあたり、大気環境測定車の設置及び保守管理にご協力いただいた中部保健所由布保健部の職員に深謝致します。

### 参 考 文 献

- 1) 岡本盛義 他：「杵築地域の環境大気調査」、大分県衛生環境研究センター年報, 20, 127-132 (1992)
- 2) 三浦清徳 他：「豊後高田地域の環境大気調査」、大分県衛生環境研究センター年報, 21, 58-62 (1993)
- 3) 小野由加里 他：「豊後大野地域の環境大気調査(2009年度)」、大分県衛生環境研究センター年報, 37,78-84
- 4) 小野由加里 他：「由布地域の環境大気調査(2010年度)」、大分県衛生環境研究センター年報, 38,65-72
- 5) 国土交通省 道路局道路経済調査室：「平成17年度 全国道路・街路交通情勢調査」(2006) <http://www.mlit.go.jp/road/ir/ir-data/ir-data.html#koutu>
- 6) 電子国土：URL <http://cyberjapan.jp/>
- 7) 環境省 水・大気環境局大気環境課：「環境大気常時監視マニュアル 第6版」(2010)
- 8) 昭和48年 環境庁告示25号「大気の汚染に係る環境基準について」別表(昭48環庁告35・昭53環庁告38・昭56環庁告47・平8環庁告73・一部改正)
- 9) 昭和53年 環境庁告示38号「二酸化窒素に係る環境基準について」(平8環庁告74・一部改正)
- 10) 大分地方気象台：「湯布院 2011年1時間毎の値」(2012) <http://www.jma-net.go.jp/oita/>
- 11) 米国海洋大気庁(NOAA) HYSPLIT MODEL (2012) <http://www.arl.noaa.gov/>

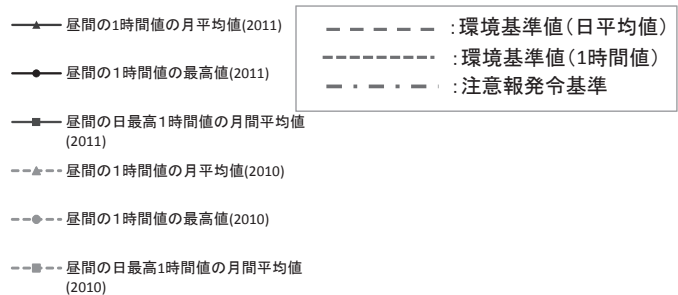
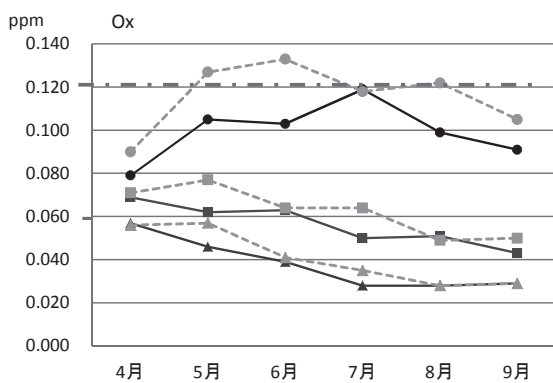
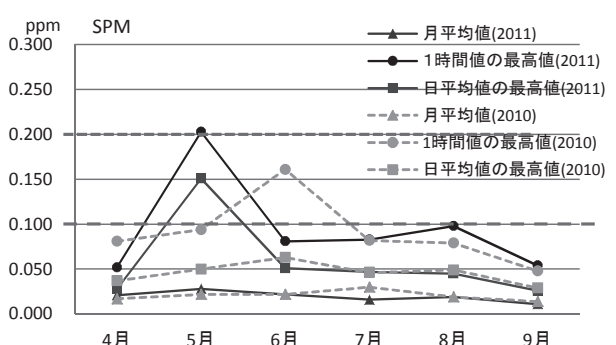
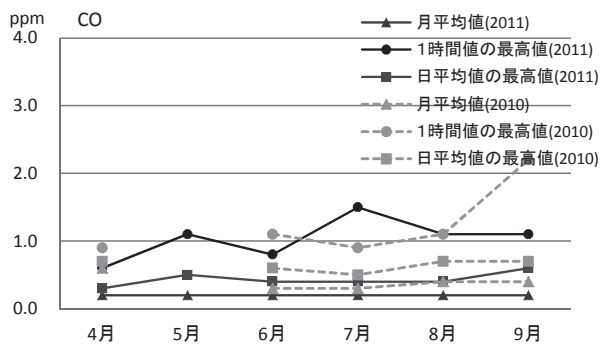
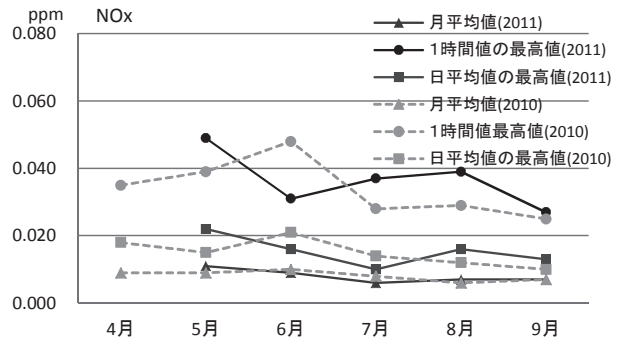
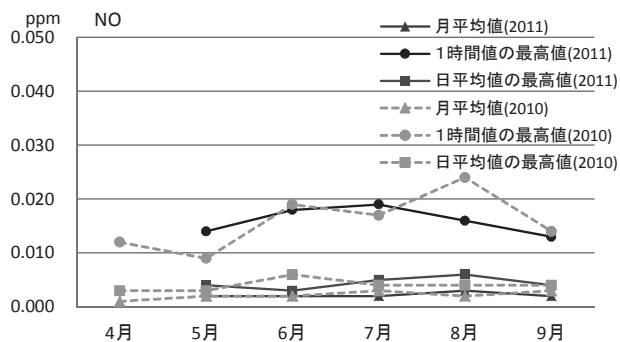
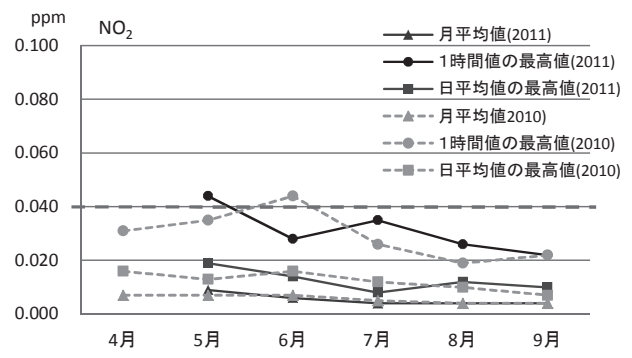
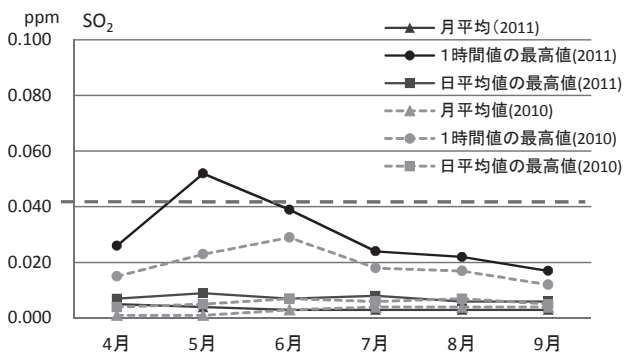


図2 月別濃度変化

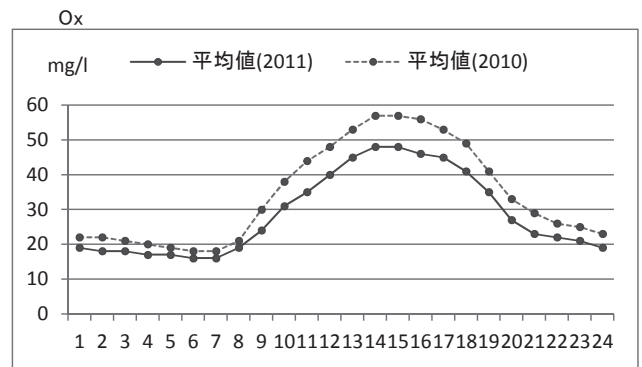
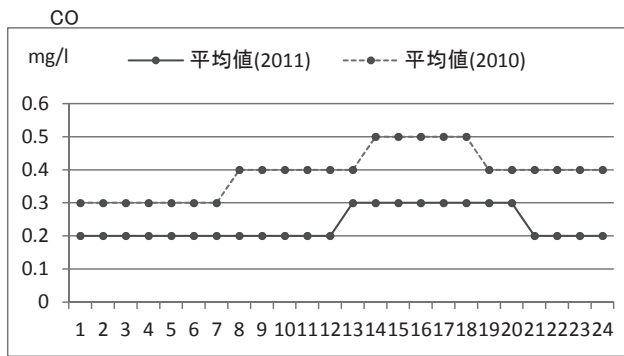
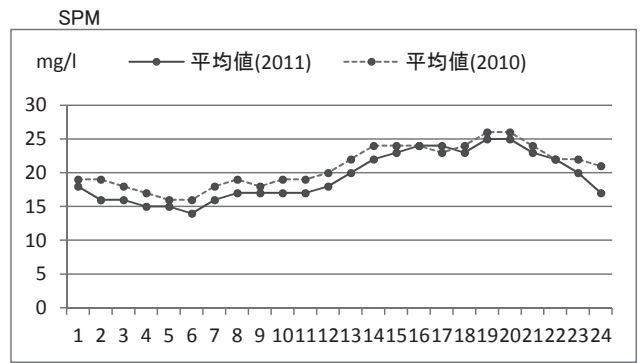
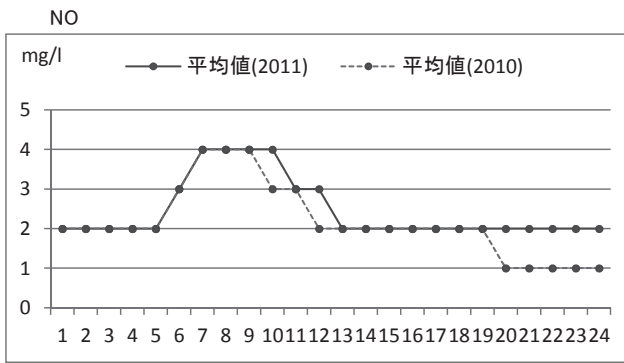
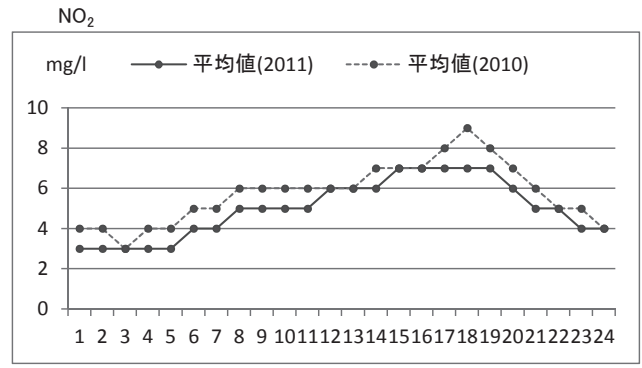
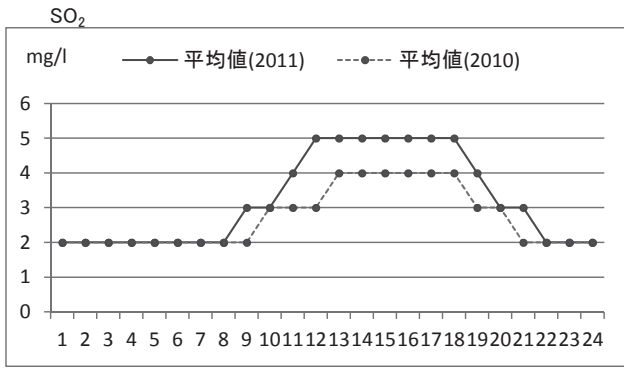


図3 項目別経時変化

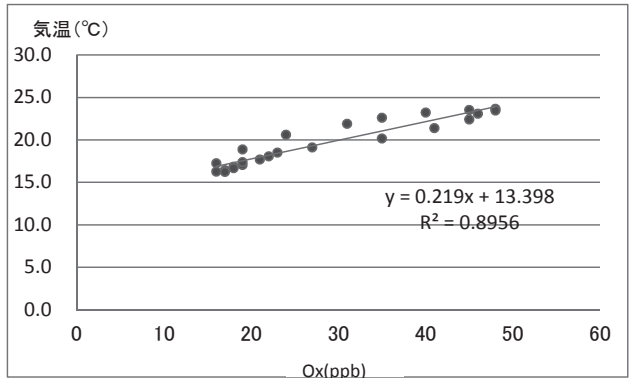
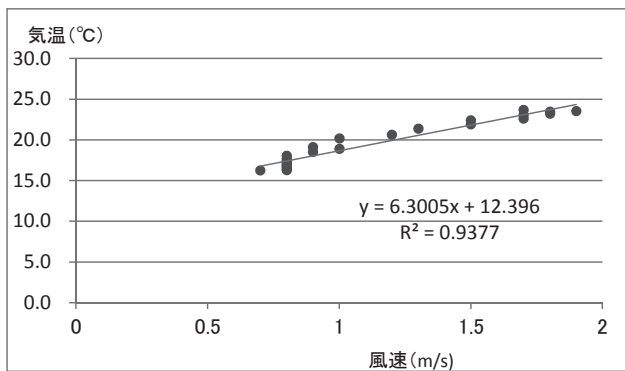
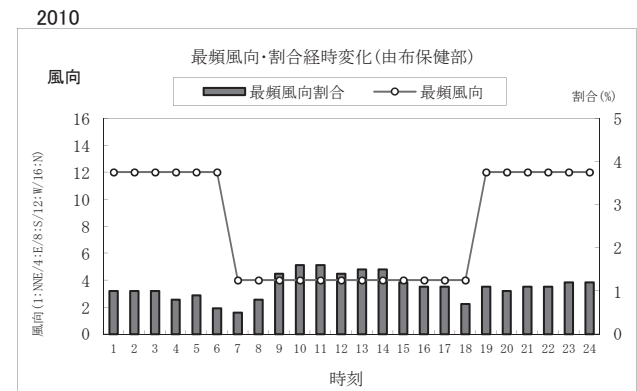
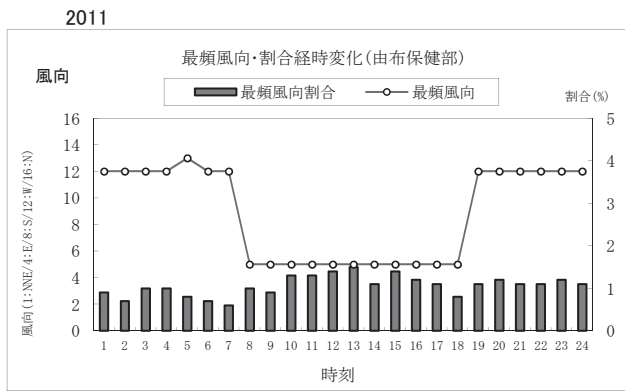
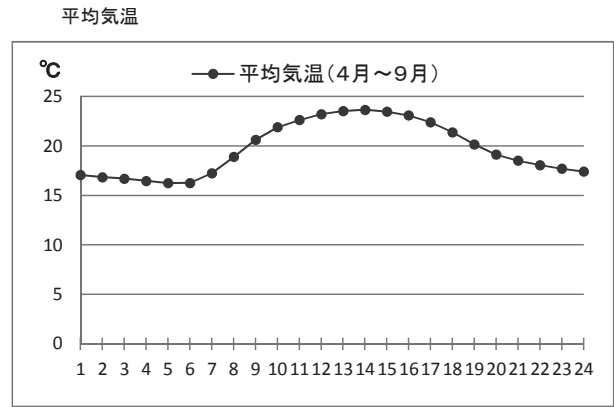
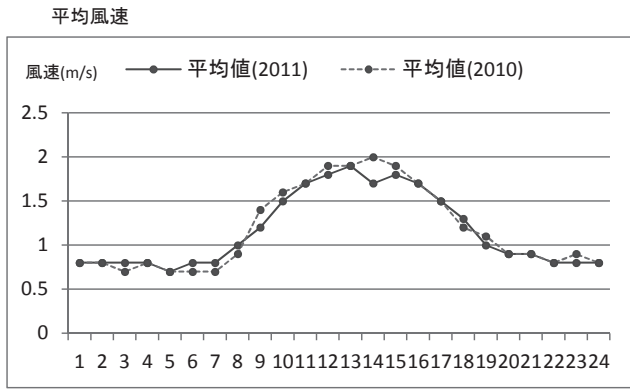


図3 項目別経時変化



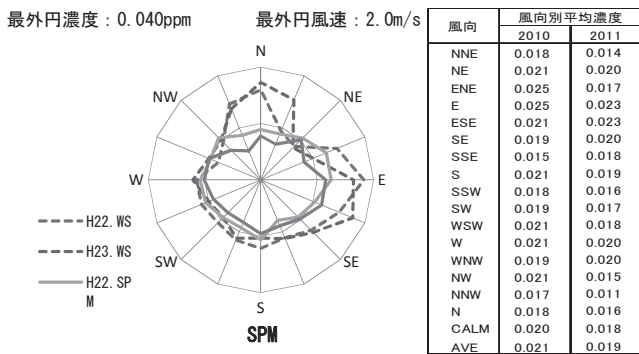
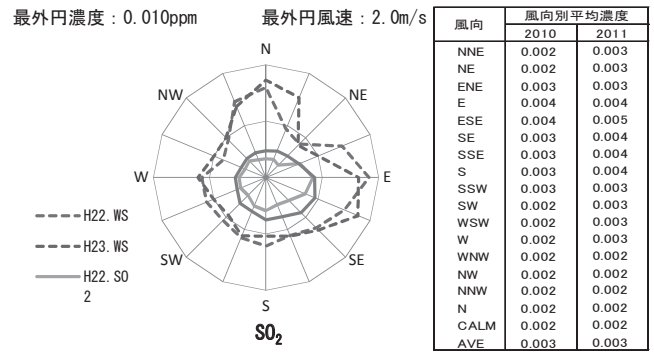
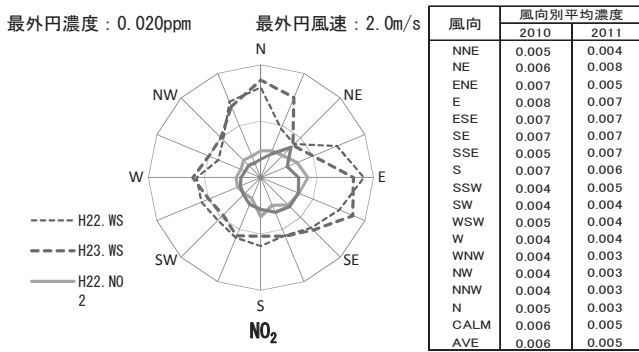
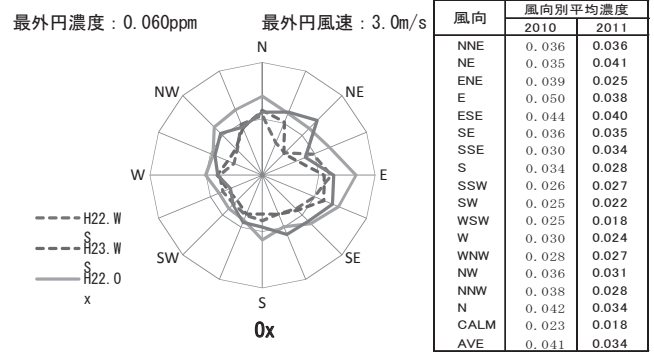
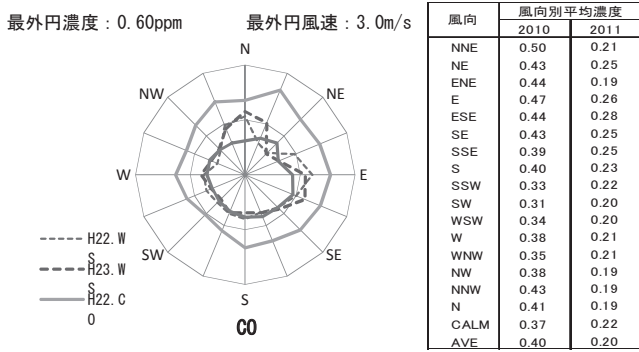
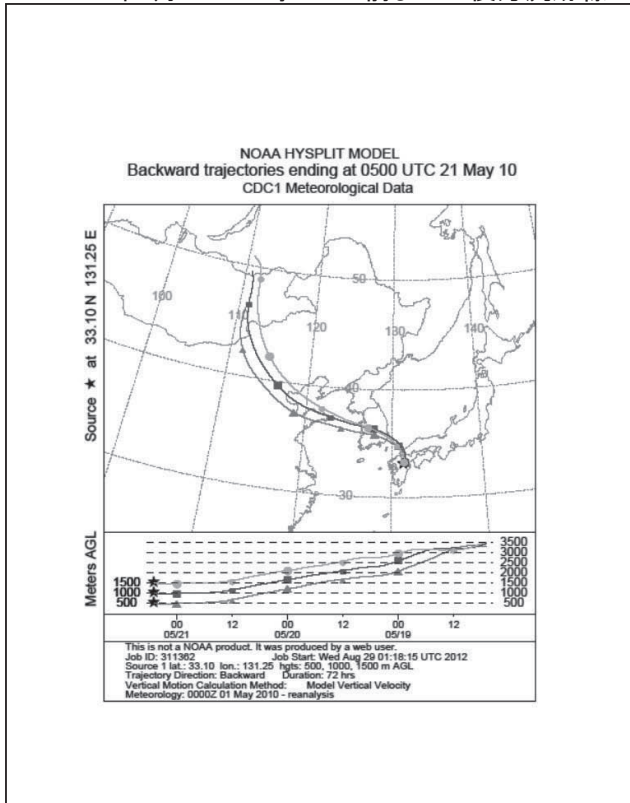
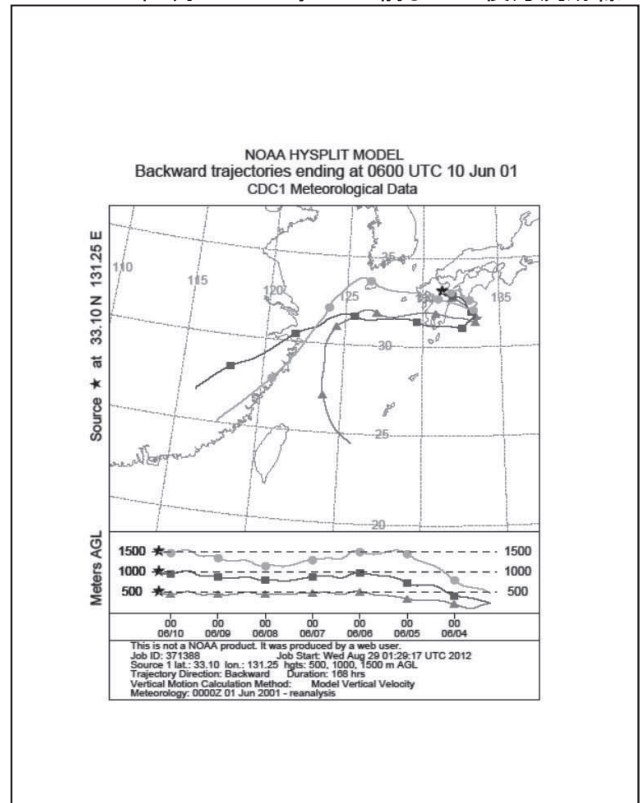


図4 風向別平均濃度

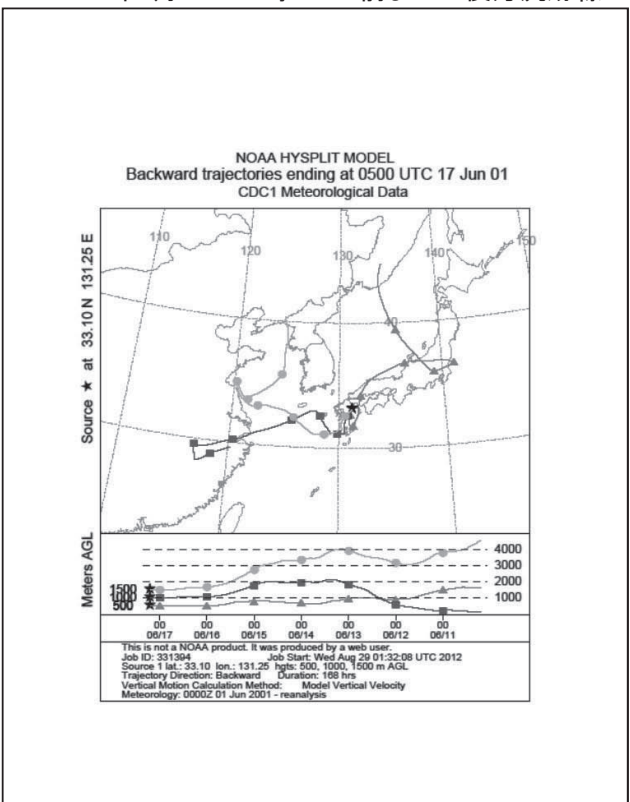
2010年5月21日16時の3日前までの後方流跡線



2010年6月10日15時の7日前までの後方流跡線



2010年6月17日14時の7日前までの後方流跡線



2010年8月23日15時の7日前までの後方流跡線

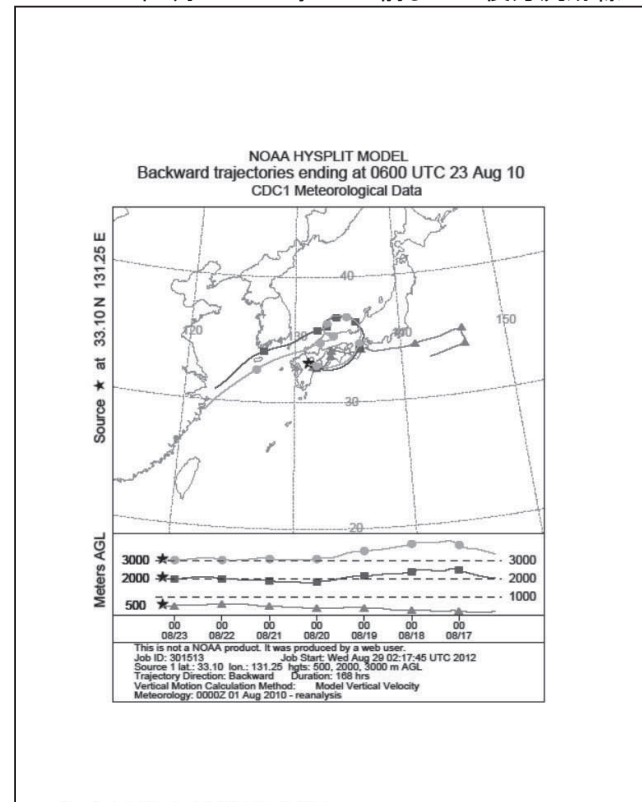
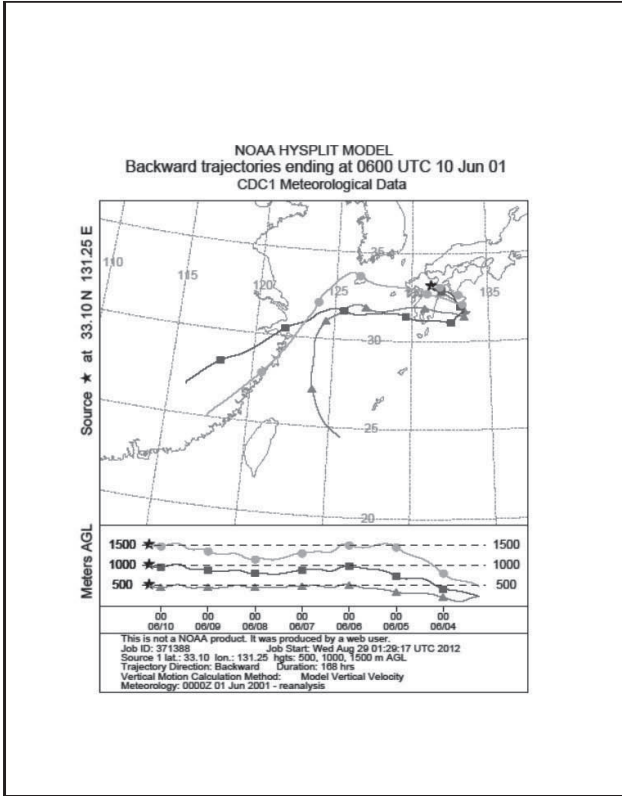


図5-1 NOAA HYSPLIT MODELによる後方流跡線解析

2011年7月5日14時の3日前までの後方流跡線



2011年7月24日13時の7日前までの後方流跡線

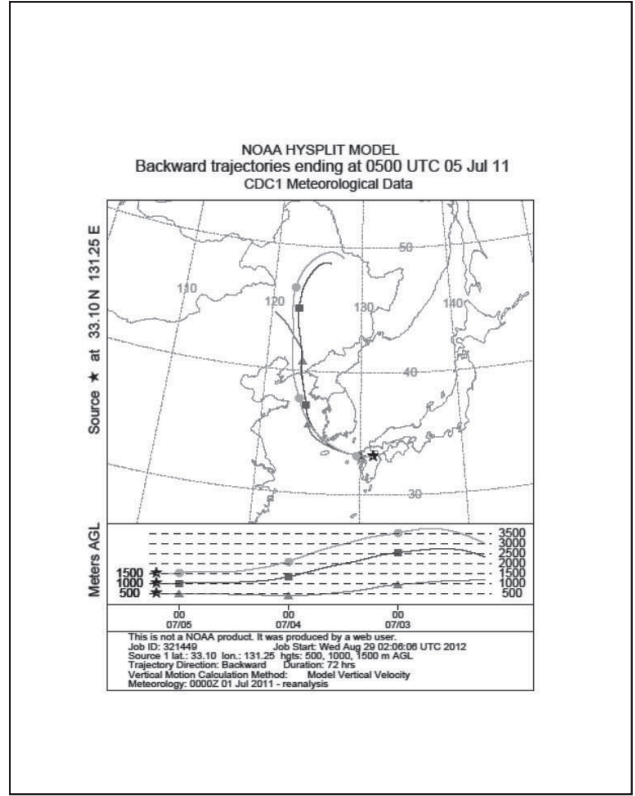


図5-2 NOAA HYSPLIT MODELによる後方流跡線解析



## (3) 資 料

---

1) 食品の理化学的検査結果について（2011年度）	105
2) 九州地方における臨床由来溶血レンサ球菌の血清型の推移と薬剤感受性について（2011年）	108
3) 大分県における細菌性下痢症サーベランスの動向（2011年）	116
4) 感染症発生動向調査からみたウイルスの流行状況（2011年）	120
5) 感染症流行予測調査について（2011年度）	123
6) 食品の微生物学的検査成績について（2011年度）	124
7) 大分県における雨水成分調査（2011年度）	127
8) 大分県沿岸域における海水温等の変動傾向について	141
9) 大分県における温泉の泉質について —温泉法改正に伴う温泉水再分析結果について—	144



## 食品の理化学的検査結果について（2011年度）

林 由美、橋口 祥子、麻生 花苗<sup>\*1</sup>、武田 亮<sup>\*2</sup>、森崎 澄江、長谷川 昭生、岡本 盛義

### Chemical Examination of Distribution Foods in Oita Prefecture, 2011

Yumi Hayashi, Shoko Hashiguchi, Kanae Aso<sup>\*1</sup>, Ryo Takeda<sup>\*2</sup>, Sumie Morisaki, Akio Hasegawa and Moriyoshi Okamoto

Key word : 化学的検査 chemical examination, 収去食品 distribution foods

#### はじめに

2011年度に県下5ブロックの食品衛生監視機動班が、「平成23年度食品衛生監視指導計画」に基づいて収去した食品の理化学的検査結果（以下「収去検査」という。）について報告する。また、食品表示モニター搬入の食品検査結果（以下「表示モニター検査」という。）についても報告する。

#### 材料及び方法

2011年4月から2012年3月の間に収去した食品259検体及び表示モニターが買い上げた食品99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。

##### 1 動物用医薬品

収去検査において、県産鶏卵、県産・輸入食肉、魚介類及び魚介類加工品99検体について検査を実施した結果、県産鶏肉からオフロキサシン、輸入食肉2検体からアルベンダゾール代謝物やナイカルバジン、県産養殖魚2検体から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。一方、表示モニター検査においては、国産・輸入食肉及び食肉加工食品15検体について検査を実施した結果、いずれの検体においても検出されなかった。

##### 2 残留農薬

収去検査において、国産・輸入野菜および果実40検体について検査を実施した結果、国産野菜・果実5検体からアゾキシストロビンやメチダチオン等が検出されたが、基準値以下であった。また、輸入野菜・果実・加工食品からは、イマザリルやチアベンダゾールなどの農薬が検出されたが、すべて基準値以下であった。一方、表示モニター検査においては、国産・輸入野菜及び果実35検体について実施した結果、12検体からイマザリルやチアベンダゾール、アセタミプリド等の13種類の農薬が検出されたが、すべて基準値以下であった。

##### 3 漂白剤、保存料、甘味料、発色剤

収去検査において、みそ及び水煮野菜等15検体について漂白剤を、魚肉ねり製品、輸入加工食品（漬物等）、県産漬物及び食肉製品の合計55検体について保存料及び甘味料の検査をそれぞれ実施した。このうち、食肉製品15検体については発色剤の検査も実施したところ、使用表示がある12検体から亜硝酸根が検出された。うち1検体は基準値を超える使用基準違反であった。11検体においては、いずれも基準値以下であった。また、使用表示が無い2検体から微量の亜硝酸根が検出されたが、調査の結果、これは製造する際の燻煙行程で生じる窒素酸化物からの生成物による影響と考えられた<sup>1,2)</sup>。一方、表示モニター検査においては、魚肉ねり製品、漬物、食肉製品の20検体について保存料及び甘味料を、このうち食肉製品10検体について発色剤の検査を、それぞれ実施した。基準値を超過したものはなく、検出されたものは全て包装に使用を示す記載があった。

##### 4 特定原材料（アレルギー物質）

収去検査において、穀類等加工食品10検体について

<sup>\*1</sup> 福祉保健部東部保健所, <sup>\*2</sup> 生活環境部環境保全課

て特定原材料（小麦）を、菓子等加工食品10検体について特定原材料（卵）の検査を、それぞれ市販キットの ELISA 法で実施した。卵の検査では1検体で陽性となったが、注意喚起表示等はなかった。一方、表示モニター検査においては、穀類等加工食品14検体について特定原材料（小麦）を、穀類等加工食品15検体について特定原材料（卵）の検査を、上記と同様の方法で実施した。小麦の検査では1検体で陽性となったが、注意喚起表示等はなかった。

## 5 その他の検査

収去検査において、輸入菓子類10検体についてメラミンを、穀類・豆類等加工食品10検体について総アフラトキシン（アフラトキシン B1、B2、G1、G2）を、生あん及び豆10検体についてシアンを検査を、それぞれ実施したが、いずれの検体においても検出されなかった。

## 参 考 文 献

- 1) 秋山麻里、木村滋人、大隈滋、北村雅子、上ノ段茂：発色剤を添加していない食肉製品中の亜硝酸根について、大分県食品衛生監視員・と畜食鳥検査員・狂犬病予防員研究発表会, 61-63 (2006)
- 2) 香月隆延、長律子：製造工程において硝酸根付加が認められた地鶏の炭火焼き, 食品衛生研究, 50(1), 75-79 (2000)



表1 食品の理化学検査結果

検査項目	検体名	検体数	項目数	基準超過数	結果の概要
動物用医薬品	収去検査				
	県産鶏卵	10	75	0	すべて検出せず
	県産鶏肉	19	75	0	1検体からオフロキサシンが検出されたが、基準値以下
	県産食肉	10	76	0	すべて検出せず
	輸入食肉	20	76	0	2検体からアルベンダゾール代謝物やナイカルバジンが検出されたが、すべて基準値以下
	県産養殖魚	10	59	0	2検体から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
	養殖輸入エビ	10	71	0	すべて検出せず
	輸入養殖魚介類	10	86	0	すべて検出せず
	輸入魚介類加工品	10	81	0	すべて検出せず
表示モニター検査					
国産・輸入食肉	15	63	0	すべて検出せず	
残留農薬	収去検査				
	国産野菜・果実	20	240	0	5検体からアゾキシストロピンやメチダチオン等が検出されたが、すべて基準値以下
	輸入野菜・果実及び加工食品	20	240	0	6検体からイマザリルやチアベンダゾール等が検出されたが、すべて基準値以下
	表示モニター検査				
国産・輸入野菜、果実及び穀類	35	80	0	12検体からイマザリルやチアベンダゾール等が検出されたが、すべて基準値以下	
漂白剤	収去検査				
	野菜等加工食品	15	1	0	7検体から二酸化硫黄が検出されたが、すべて基準値以下、表示も適正
保存料 甘味料	収去検査				
	魚肉ねり製品	14	4	0	6検体からソルビン酸が検出されたが、すべて基準値以下、うち1検体使用表示なし
	あん	1	4	0	1検体からソルビン酸が検出されたが、基準値以下、使用表示なし
	県産漬物	15	4	0	11検体からソルビン酸が、5検体からサッカリン Na が検出されたが、すべて基準値以下、うち1検体についてサッカリン Na の使用表示なし
	食肉製品 <sup>注1</sup>	15	4	0	1検体からソルビン酸が検出されたが、基準値以下、表示も適正
	輸入加工食品	10	4	0	6検体からソルビン酸が、1検体からサッカリン Na が検出されたが、すべて基準値以下、表示も適正
	表示モニター検査				
	魚肉ねり製品	2	4	0	1検体からソルビン酸が検出されたが、基準値以下、表示も適正
	漬物	10	4	0	すべて検出せず
食肉製品 <sup>注2</sup>	8	4	0	すべて検出せず	
発色剤	収去検査				
	食肉製品 <sup>注1</sup>	15	1	1	1検体から検出され、基準値超過であった。その他、13検体から亜硝酸根が検出されたがすべて基準値以下、うち2検体使用表示なし
	表示モニター				
食肉製品 <sup>注2</sup>	10	1	0	2検体から亜硝酸根が検出されたが、すべて基準値以下、表示も適正	
特定原材料 (小麦)	収去検査				
	穀類等加工食品	10	1	0	すべて検出せず
	表示モニター検査				
穀類等加工食品	14	1	1	表示のない1検体で陽性	
特定原材料 (卵)	収去検査				
	菓子・パン等加工食品	10	1	1	1検体で陽性
	表示モニター検査				
穀類加工品	15	1	0	すべて検出せず	
収去検査					
メラミン	輸入菓子類	10	1	0	すべて検出せず
アフラトキシン	穀類・豆類等加工食品	10	4	0	すべて検出せず
シアン	生あん	10	1	0	すべて検出せず

\*注1は同一検体である

\*注2は同一検体である

# 九州地方における臨床由来溶血レンサ球菌の血清型の推移と薬剤感受性について (2011年)

緒方 喜久代、諸石 早苗<sup>\*1</sup>、久高 潤<sup>\*2</sup>、奥野 ルミ<sup>\*3</sup>

## Serotype and Drug Susceptibility of Group A Hemolytic Streptococci Isolated in Kyushu Area, 2011

Kikuyo Ogata, Sanae Mroishi<sup>\*1</sup>, Jun Kudaka<sup>\*2</sup>, Rumi Okuno<sup>\*3</sup>

**Key word** : A 群溶レン菌 Group A Streptococci, 血清型別 Sero-typing, 九州地方 Kyushu area, 薬剤感受性 Drug Susceptibility

### はじめに

1991年度以来、九州地区では地方衛生研究所のレファレンス業務の一環として「九州ブロック溶レン菌感染症共同調査要領<sup>1)</sup>」に基づき、共同で A 群溶血性レンサ球菌感染症の調査<sup>2,11)</sup> を実施しており、前報に引き続き、2011年の血清型の動向について報告する。

併せて、1990年代後半からマクロライド系薬剤耐性 A 群溶血性レンサ球菌が検出され、その動向が問題となっているため、大分県において分離された A 群溶血性レンサ球菌について薬剤感受性試験を実施し、その傾向について検討したので報告する。

### 材料及び方法

#### 1 材料

2011年に大分県、佐賀県及び沖縄県の各医療機関定点で採取された臨床材料から、各地方衛生研究所で分離または群・型別した A 群溶血性レンサ球菌 203株について集計を行った。その内訳は大分県が 156株、佐賀県が 21株、沖縄県が 26株であった。

#### 2 同定、群別及び T 型別

ウマ血液寒天培地上で  $\beta$  溶血を示した菌株について常法に従い同定し<sup>12)</sup>、ストレプト LA (デンカ生研) 用いて群別を行った。T 蛋白による型別は、市販の T 型別用免疫血清 (デンカ生研) を用いてスライド凝集反応により実施した。血清凝集反応で型別不能となった菌株については、ピロリドニルア

リルアミダーゼ活性試験<sup>13)</sup> (以下、PYR 試験) で A 群溶血性レンサ球菌であることの確認を行った。

#### 3 薬剤感受性試験

ドライプレート (栄研化学) を用いた微量液体希釈法により実施し、LA-20 (栄研化学) により判定した。供試薬剤は、アンピシリン (ABPC)、セフジニール (CFDN)、セファレキシン (CEX)、セフトレン (CDTR)、テトラサイクリン (TC)、クロラムフェニコール (CP)、エリスロマイシン (EM)、クラリスロマイシン (CAM)、クリンダマイシン (CLDM)、リンコマイシン (LCM) の 10 剤である。

### 結果及び考察

#### 1 九州地方における A 群溶血性レンサ球菌の T 型分布の年次推移

九州地方における A 群溶血性レンサ球菌の T 型分布および年次菌型推移を図1、表1 に示した。2011年に九州地区で分離された血清型は 9 種類で、分離頻度の高かった順に T1 型 (35%)、T12 型 (31%)、T4 型 (14%) の順であった。県別に主な流行菌型を見ると、大分県では 8 種類の血清型が分離され、T1 型が 39% と最も多く、T12 型が 35%、T4 型が 18% で、この 3 種類の血清型で分離株の 90% 以上を占めた (図2、表2)。佐賀県では 5 種類の血清型が分離され、T1 型が 38% と最も多かった (表3)。沖縄県では 6 種類の血清型が分離され、TB3264 型が 54% と最も多かった (表4)。

次に、T 型別の経年変化 (1992 ~ 2011 年) を図1 ~ 4、表5 に示した。昨年主要菌型であった TB3264 型に代わり、T1 型、T12 型が血清型の主流

<sup>\*1</sup> 佐賀県衛生薬業センター, <sup>\*2</sup> 沖縄県衛生環境研究所,

<sup>\*3</sup> 東京都健康安全研究センター

を占めた。これは、大分県の流行の影響を大きく受けた結果となった。

## 2 劇症型溶血性レンサ球菌感染症報告

2011年に九州地区各県より報告のあった劇症型溶血性レンサ球菌感染症について表6に示した。九州地区においては、例年、年間4～5症例の同患者発生報告であったが、2011年以降、福岡県、熊本県を中心に劇症型溶血性レンサ球菌感染症の報告数が激増傾向にある。現在、大分県においては、同感染症の患者報告数は少ないものの、A群溶血性レンサ球菌感染症の患者報告数が増加傾向にあること、劇症型溶血性レンサ球菌感染症患者から良く分離されるT1型が増加傾向にあることから、その動向に注視する必要があると考える。

## 3 薬剤感受性試験

薬剤感受性試験の結果、 $\beta$ -ラクタム系薬剤であるABPC、CFDN、CEX、CDTRの4剤およびCPについては、いずれも良好な抗菌力を示した。一方、その他の5薬剤ではすべての薬剤に対して耐性株が見られた。耐性パターンをみると、TC( $\geq 8\mu\text{g}/\text{ml}$ )の単独耐性が7株(5%)、EM( $\geq 1\mu\text{g}/\text{ml}$ )およびCAM( $\geq 1\mu\text{g}/\text{ml}$ )の2剤耐性が50株(37%)、TC、EMおよびCAMの3剤耐性が9株(7%)、TC、EM、CAM、CLDMおよびLCMの5剤耐性が31株(23%)であった。このうち、EM $>64\mu\text{g}/\text{ml}$ の高度耐性株はEM耐性株93株中31株(33%)で、全国平均の21%に比べて高い値を示した。これは、分離株中にT12型の占める割合が高いためと考えられた。

## 謝 辞

検体採取に御協力頂きました医療機関の先生方、並びに検査関係者の皆様に深謝いたします。

## 参 考 文 献

- 1) 帆足喜久雄：第17回九州衛生公害技術協議会講演要旨集, p120 (1991)
- 2) 瀧 祐一、出 美規子、中曾根民男、古賀由恵、帆足喜久雄：九州地方におけるA群溶血性レンサ球菌の血清型と薬剤感受性について(1991～1992年), 大分県衛生環境研究センター年報, 20, 74-80 (1992)

- 3) 瀧 祐一、角 典子、久高 潤、古賀由恵、加野成明、帆足喜久雄：九州地方におけるA群溶血性レンサ球菌の血清型と薬剤感受性について(第2報)(1993～1994年), 大分県衛生環境研究センター年報, 22, 41-46 (1994)
- 4) 瀧 祐一、角 典子、久高 潤、加野成明、帆足喜久雄：九州地方における臨床由来溶血性レンサ球菌の血清型別について(1995年)(第3報), 大分県衛生環境研究センター年報, 23, 50-52 (1995)
- 5) 瀧 祐一、諸石早苗、久高 潤、加野成明、帆足喜久雄：九州地方における臨床由来溶血性レンサ球菌の血清型別について(1996～1997年)(第4報), 大分県衛生環境研究センター年報, 25, 81-86 (1997)
- 6) 阿部義昭、諸石早苗、久高 潤、加野成明、高野美千代、緒方喜久代、瀧 祐一、帆足喜久雄：九州地方における臨床由来溶血性レンサ球菌の血清型別について(1998～1999年)(第5報), 大分県衛生環境研究センター年報, 27, 93-97 (1999)
- 7) 緒方喜久代、鷺見悦子、成松浩志、増本喜美子、久高潤：九州地方において1993～2002年の10年間に分離された臨床由来A群溶血性レンサ球菌の菌型推移, 大分県衛生環境研究センター年報, 30, 67-71 (2004)
- 8) 緒方喜久代、岸川恭子、久高潤：九州地方における臨床由来溶血性レンサ球菌の血清型別の動向(2006年), 大分県衛生環境研究センター年報, 34, 70-77 (2006)
- 9) 緒方喜久代、諸石早苗、久高潤：九州地方における臨床由来溶血性レンサ球菌の血清型別の動向(2008年), 大分県衛生環境研究センター年報, 36, 70-77 (2008)
- 10) 緒方喜久代、諸石早苗、久高潤、奥野ルミ：九州地方における臨床由来溶血性レンサ球菌の血清型の推移と薬剤感受性について(2009年), 大分県衛生環境研究センター年報, 37, 64-71 (2009)
- 11) 緒方喜久代、諸石早苗、久高潤、奥野ルミ：九州地方における臨床由来溶血性レンサ球菌の血清型の推移と薬剤感受性について(2010年), 大分県衛生環境研究センター年報, 38, 100-107 (2010)
- 12) 厚生省監修：微生物検査必携 細菌・真菌検査 第3版 F28, 日本公衆衛生協会
- 13) A群溶血性レンサ球菌 (*Streptococcus pyogenes*) 検査マニュアル, p9

表1 九州地区：A群溶レン菌のT型別分布（2011年）

群・T型別	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	%	
A群	T-1	2	2	2	2	1	3	4	5		4	17	30	72	35.5
	T-2													0	0.0
	T-3													0	0.0
	T-4	1			1	1	1	3	1	2	2	5	11	28	13.8
	T-6													0	0.0
	T-8													0	0.0
	T-9	1							1					2	1.0
	T-11					1			1			1		3	1.5
	T-12	3	1	4	6	4	3	4	4	1	6	11	16	63	31.0
	T-13									1				1	0.5
	T-14/49													0	0.0
	T-22													0	0.0
	T-23													0	0.0
	T-25			1									2	3	1.5
	T-28				1		1		1			1		4	2.0
	T-B3264	1	1		2		3	2	2	3		1	4	19	9.4
	T-5/27/44													0	0.0
型別不能		1		1		1	1	2	1			1	8	3.9	
T型別の計	8	5	7	13	7	12	14	17	8	12	36	64	203		
(%)	3.9	2.5	3.4	6.4	3.4	5.9	6.9	8.4	3.9	5.9	17.7	31.5		100.0	
B群												1	1		
C群										1			1		
G群		1	1			1							3		
合計	8	6	8	13	7	13	14	17	8	13	36	65	208		

注) 九州地区：佐賀県+大分県+沖縄県

表2 大分県：溶レン菌分離株の群・A群T型別分布（2011年）

群・T型別	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	%	
A群	T-1	2	1	1	2		3	1	1		4	17	29	61	39.1
	T-2													0	0.0
	T-3													0	0.0
	T-4	1			1	1	1	3	1	2	2	5	11	28	17.9
	T-6													0	0.0
	T-8													0	0.0
	T-9	1												1	0.6
	T-11					1			1			1		3	1.9
	T-12	3	1	4	5	3		4	3	1	6	11	14	55	35.3
	T-13													0	0.0
	T-22													0	0.0
	T-23													0	0.0
	T-25												2	2	1.3
	T-28											1		1	0.6
	T-B3264									1			3	4	2.6
	T-5/27/44													0	0.0
	型別不能								1					1	0.6
T型別の計	7	2	5	8	5	4	8	7	4	12	35	59	156		
(%)	4.5	1.3	3.2	5.1	3.2	2.6	5.1	4.5	2.6	7.7	22.4	37.8		100.0	
B群												1	1		
C群										1			1		
G群													0		
合計	7	2	5	8	5	4	8	7	4	13	35	60	158		

表3 佐賀県：溶レン菌の群・A群T型別分布（2011年）

群・T型別	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	%	
A群	T-1			1		1		1	4			1	8	38.1	
	T-2												0	0.0	
	T-3												0	0.0	
	T-4												0	0.0	
	T-6												0	0.0	
	T-8												0	0.0	
	T-9												0	0.0	
	T-11												0	0.0	
	T-12					1	1		1				2	5	23.8
	T-13													0	0.0
	T-14/49													0	0.0
	T-22													0	0.0
	T-23													0	0.0
	T-25			1										1	4.8
	T-28								1					1	4.8
	T-B3264												1	1	4.8
	T-5/27/44													0	0.0
	型別不能		1		1		1			1			1	5	23.8
T型別の計	0	1	2	1	2	2	1	6	1	0	0	5	21		
(%)	0.0	4.8	9.5	4.8	9.5	9.5	4.8	28.6	4.8	0.0	0.0	23.8		100.0	
B群													0		
C群													0		
G群													0		
合計	0	1	2	1	2	2	1	6	1	0	0	5	21		

表4 沖縄県：溶レン菌の群・A群T型別分布（2011年）

群・T型別	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	%	
A群	T-1		1					2					3	11.5	
	T-2												0	0.0	
	T-3												0	0.0	
	T-4												0	0.0	
	T-6												0	0.0	
	T-8												0	0.0	
	T-9								1					1	3.8
	T-11													0	0.0
	T-12				1		2							3	11.5
	T-13									1				1	3.8
	T-14/49													0	0.0
	T-22													0	0.0
	T-23													0	0.0
	T-25													0	0.0
	T-28				1		1							2	7.7
	T-B3264	1	1		2		3	2	2	2		1		14	53.8
	型別不能							1	1					2	7.7
	T型別の計	1	2	0	4	0	6	5	4	3	0	1	0	26	
(%)	3.8	7.7	0.0	15.4	0.0	23.1	19.2	15.4	11.5	0.0	3.8	0.0		100.0	
B群													0		
C群													0		
G群		1	1			1							3		
合計	1	3	1	4	0	7	5	4	3	0	1	0	29		

九州地区経年集計結果

表5 九州地区の推移 (1992年～2011年)

群・T型別	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	計	
A 群	T-1	213	86	45	22	39	142	156	48	95	52	73	31	16	22	97	42	11	34	20	72	1316
	T-2					8	58	133	135	37	15	4	2		1	1		1	3	1		399
	T-3			2	76	39	122	46	8	2			1			1	6	7	1	1		312
	T-4	149	147	197	92	66	81	110	73	39	39	73	178	106	37	13	25	34	28	14	28	1529
	T-6			10	8	21	68	64	22	3	2	3	1	3	8	2	3	2	11	12		243
	T-11	4	10	26	23	9	14	7	8	8	6	4	6	5	10	5	9		1		3	158
	T-12	46	47	148	194	145	150	122	51	159	127	103	32	122	135	28	31	139	60	15	63	1917
	T-22	11	13	22	43	29	16	8	5	19	12	5	9	1		4	6	3	2	3		211
	T-28	39	34	49	34	77	97	58	34	34	26	27	24	35	15	17	22	19	9	17	4	671
	T-B3264	60	40	56	29	8	11	10	13	38	36	33	27	25	21	6	7	4	14	37	19	494
	その他のT型	3	4		12	14	28	36	23	46	41	26	36	12	13	8	6	19	6	10	6	349
	型別不能	37	15	13	5	3	13	14	23	19	24	27	45	16	12	27	11	11	15	16	8	354
	T型別の計	562	398	642	501	541	724	726	437	497	380	378	392	341	274	209	168	250	184	146	203	7604

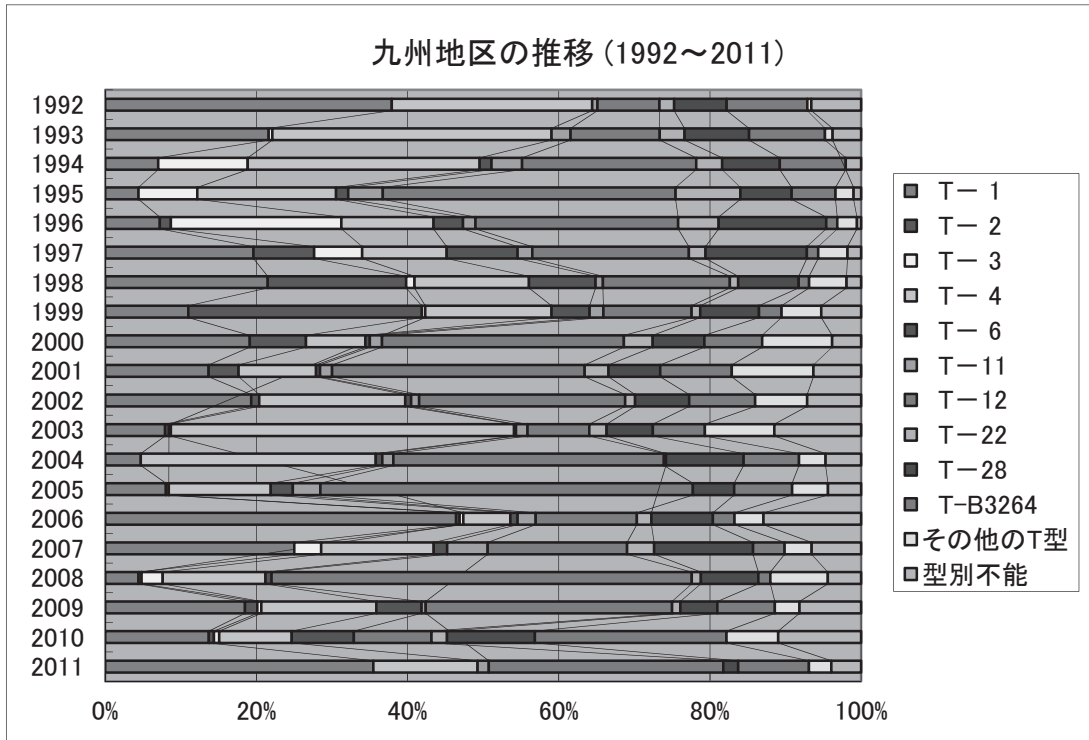


図1 九州地区の推移 (1992 ~ 2011)

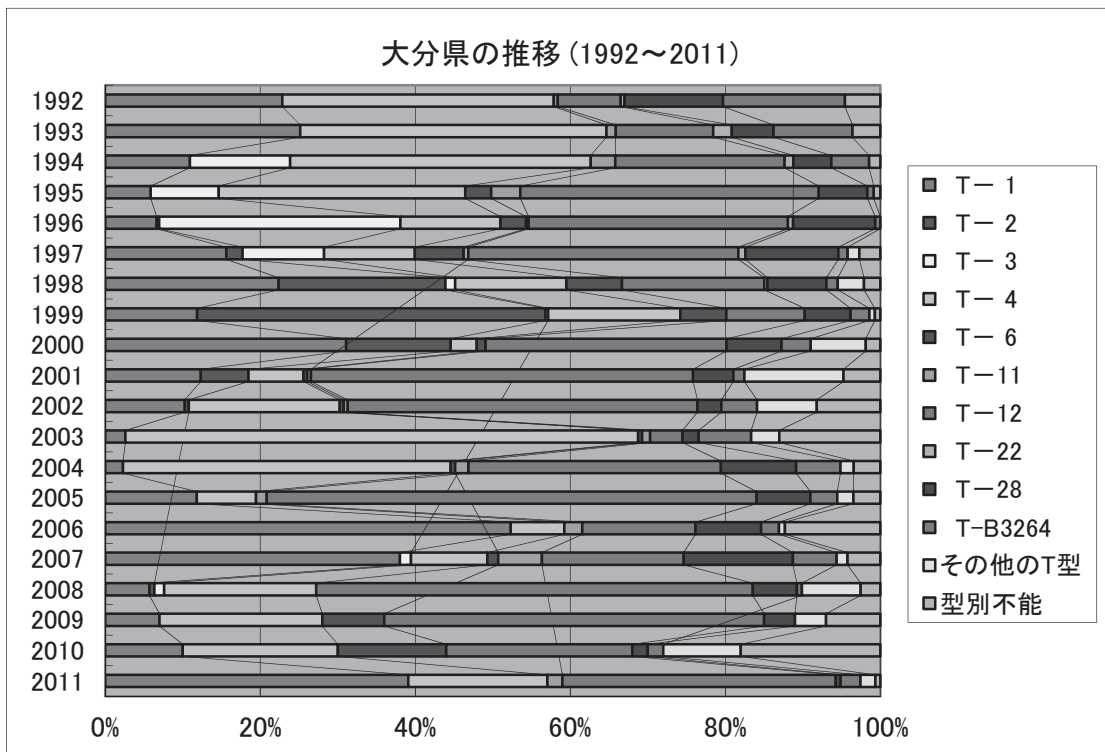


図2 大分県の推移 (1992 ~ 2011)

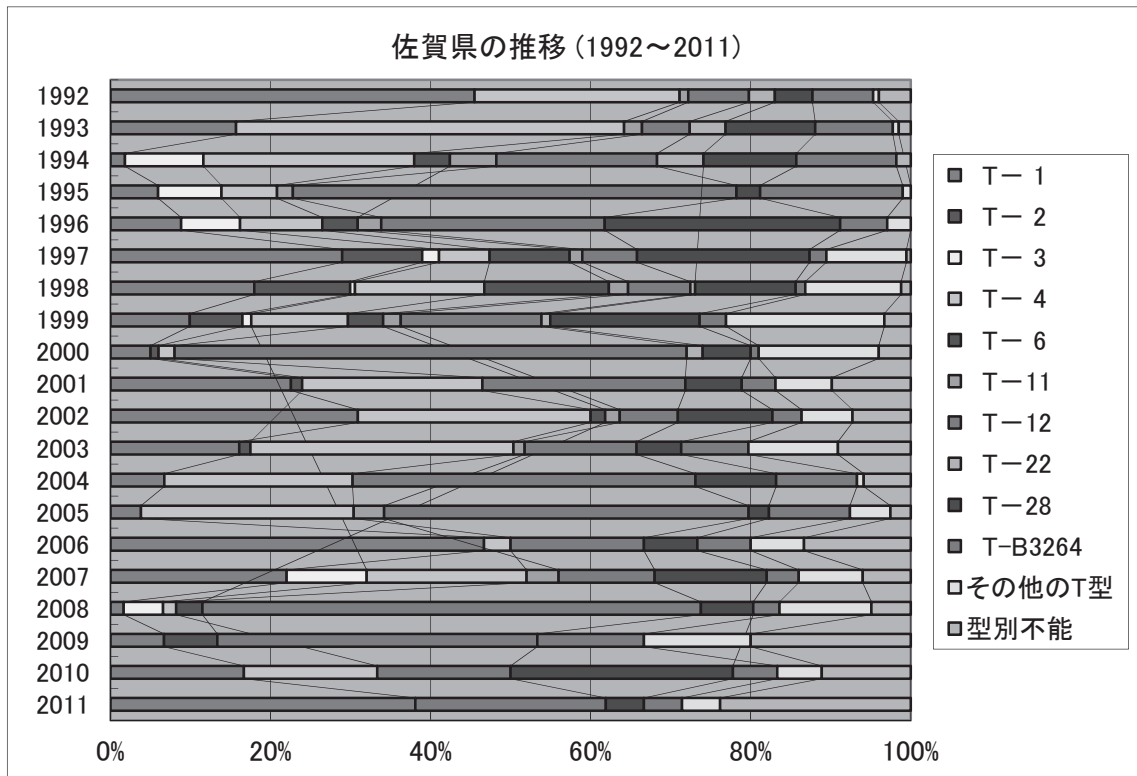


図3 佐賀県の推移 (1992 ~ 2011)

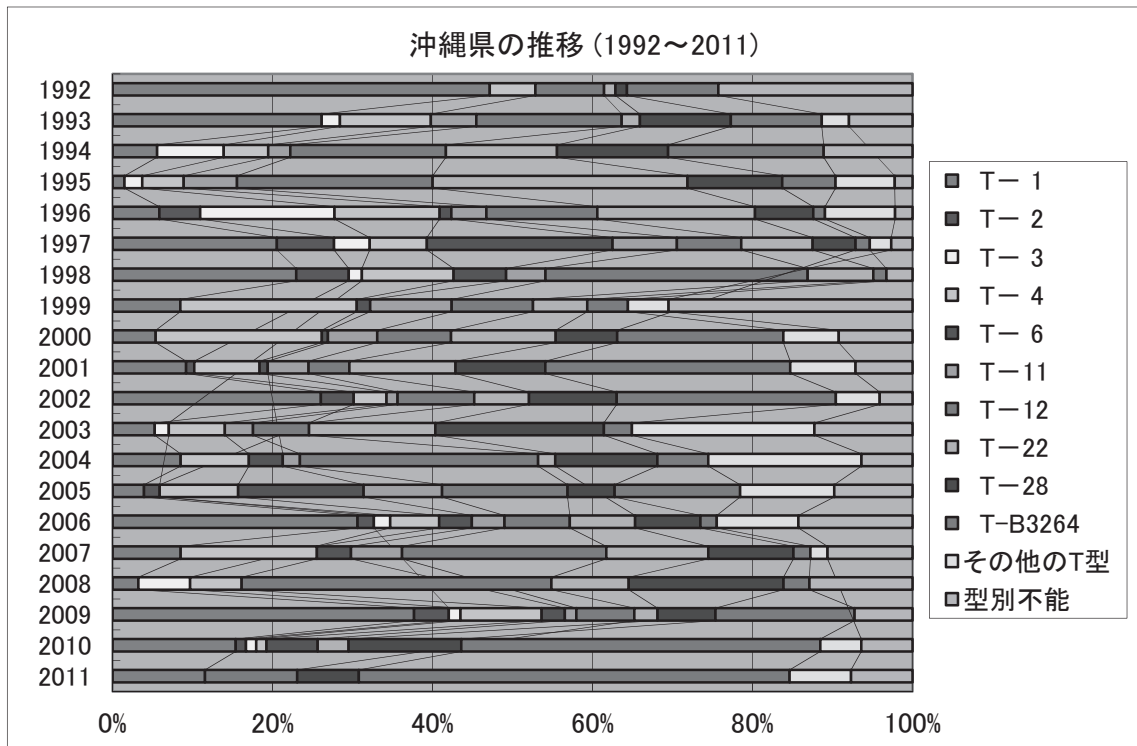


図4 沖縄県の推移 (1992 ~ 2011)



表6 劇症型溶血性レンサ球菌感染症例 (2011年)

NIH 症例番号	発生県名	年齢	性別	発症 年月日	群別	T 型別	EMM	<i>emm</i>	<i>spe</i> 型
677	長崎県	79	女	2011.2.16	A	T1	EMM1.0	<i>emm1.0</i>	A,B,F
678	福岡県	57	女	2011.1.22	A	T1	EMM1.0	<i>emm1.0</i>	A,B,F
703	福岡県	61	男	2011.3.30	A	T1	EMM1.0	<i>emm1.0</i>	A,B,F
709	福岡県	63	男	2011.5.1	A	T28	EMM28.10	<i>emm28.10</i>	B,C,F
715	宮崎県	54	女	2011.6.3	A	T1	EMM1.0	<i>emm1.0</i>	A,B,F
732	福岡県	70	男	2011.6.2	A	T1	EMM1.0	<i>emm1.0</i>	A,B,F
733	福岡県	89	女	2011.6.18	G		STG485.0	<i>stG485.0</i>	
734	福岡県	80	男	2011.6.28	A	T1	EMM1.0	<i>emm1.0</i>	A,B,F
735	佐賀県	81	男	2011.6.18	A	T1	EMM1.0	<i>emm1.0</i>	A,B,F
736	福岡県	84	男	2011.6.19	A	T1	EMM1.0	<i>emm1.0</i>	A,B,F
743	福岡県	88	男	2011.7.31	G		STG6.10	<i>stG6.10</i>	
764	(福岡県)	67	男	2011.9.13	G		STG485.0	<i>stG485.0</i>	
778	熊本県	60	女	2011.12.8	A	T1	EMM1.0	<i>emm1.0</i>	A,B,F
779	熊本県	76	女	2011.11.26	G		STG6792.3	<i>stG6792.3</i>	
780	熊本県	66	女	2011.12.20	A	T1	EMM1.0	<i>emm1.0</i>	A,B,F
781	熊本県	26	女	2011.12.29	A	T1	EMM1.0	<i>emm1.0</i>	A,B,F

# 大分県における細菌性下痢症サーベイランスの動向 (2011年)

成松 浩志、佐々木 麻里、緒方 喜久代

## Trend of Bacterial Diarrhea Surveillance in Oita Prefecture, 2011

Hiroshi Narimatsu, Mari sasaki, Kikuyo Ogata

Key word : 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<sup>1-18)</sup>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2011年の発生動向を報告する。

### 材料及び方法

2011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<sup>1,11)</sup>のとおりである。また、下痢原性大腸菌(腸管出血性大腸菌(EHEC)、毒素原性大腸菌(ETEC)、腸管組織侵入性大腸菌(EIEC))等の検索には、スクリーニングとしてPCR法<sup>19-20)</sup>を用いた。一部の菌株については、前報告<sup>21-23)</sup>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。

### 結果及び考察

#### 1 検査した患者の構成

検体数は延べ58検体で、男性33検体、女性25検体(男女比 1.32:1)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

58検体のうち35検体(60.3%)から39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21株(全菌株数の53.8%)、次いで腸管病原性大腸菌(以下、EPEC)(疑い)5株(同12.8%)、黄色ブドウ球菌とカンピロバクターが各4株(同各10.3%)、ETECとNAGビブリオが各2株(同各5.1%)、エロモナス(*A. caviae*)が1株(同2.6%)であった(図2)。なお、EPEC(疑い)の中

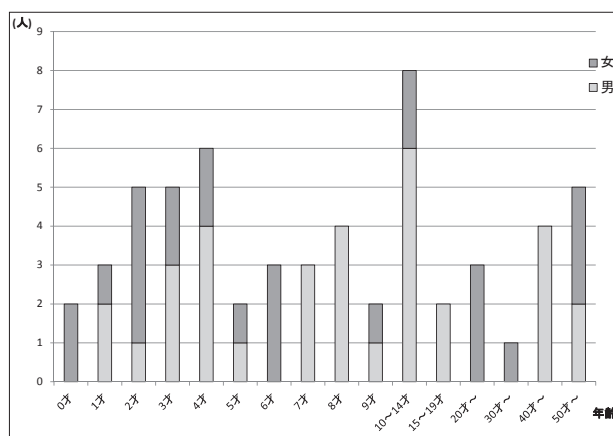


図1 患者の男女別年齢構成 (2011年)

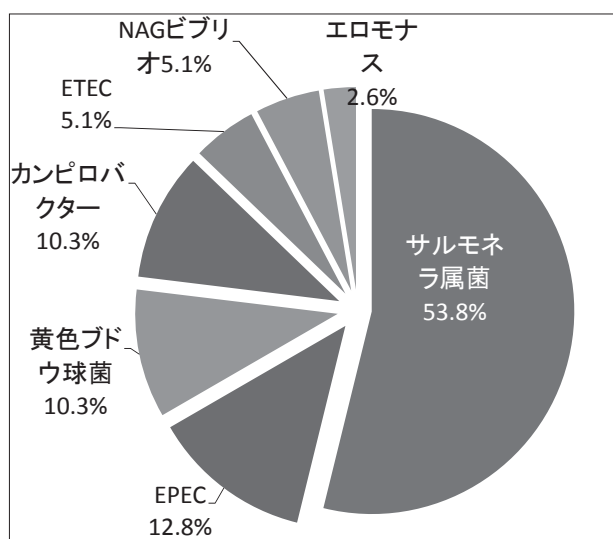


図2 検出菌の内訳 (2011年)

には、腸管凝集付着性大腸菌（EAggEC）の可能性がある3株が含まれる。

カンピロバクターは、4株全てが *C. jejuni* であった。

複数菌検出例は4検体あり、その組合せは、カンピロバクターと黄色ブドウ球菌またはエロモナスが各1検体、EPECとEAggEC（疑い）が1検体、2種類の血清型のEAggEC（疑い）株が1検体であった。

### 2.1 サルモネラ属菌

サルモネラ属菌は58検体中21検体（36.2%）から12種類の血清型が計21株検出された。最もよく検出された血清型は、5株（全サルモネラ株の23.8%）のEnteritidis（O9:g,m,-）で、次は4株（同19.0%）のSchwarzengrund（O4:d:1,7）であった。

残りは、Saintpaul（O4:e,h:1,2）3株とSchleissheim（O4:b,-）、Typhimurium（O4:i:1,2）、Braenderup（O7:e,h,e,n,z15）、Thompson（O7:k:1,5）、Mbandaka（O7:e,n,z15:z10）、Oranienburg（O7:m,t,-）、Javiana（O9:l,5,l,Z23）、Miyazaki（O9:l,7:l,z13）及び亜種diarizonae（OUT:HUT）が各1株であった。

検出株数に占めるEnteritidisの割合は、2010年に一時的に増加したものの、減少傾向が続いている。Schwarzengrund（O4:d:1,7）は、2011年度の食品収去検査で鶏肉22検体中4検体（18.2%）から分離された血清型でもある（本年報参照）。

### 2.2 下痢原性大腸菌

EPEC/EAggEC（病原性未確認のため疑い）は、4種類のO血清型が計5株検出された。

血清型の内訳は、O1が1株、O15が2株、O86aとO26が各1株であった。O1は、健康者からもよく検出されるので<sup>21)</sup> 病原性が疑問視されている血清型である。O15とO86aはaggR遺伝子を保有しており、EAggECの可能性はある。なお、O15とO86aは、腹痛と下痢を呈する一人の女性（58才）の水様便から同時に分離された。

O26:HNMは、5才女児の水様便から分離され、eae遺伝子を保有していた。

EPECは、O6:HNM（ST・LT産生）が2月にインド旅行帰りの23才女性（腹痛、下痢）の水様便からO15と共に、O148（ST産生）が9月に中国旅行帰りの40才男性の水様便からそれぞれ分離された。

EHEC及びEIECは検出されなかった。

この他に下痢原性大腸菌としては計上しなかったが、eae遺伝子を保有するO121（非EHEC）やaggR遺伝子を保有するOUT:HNMが検出されている。

### 2.3 黄色ブドウ球菌

黄色ブドウ球菌4株は、エンテロトキシンA産生のコアグラゼIV型が各1株、エンテロトキシンC産生のコアグラゼIII型が1株（MRSA）、エンテロトキシンA～D非産生のコアグラゼVII型が2株であった。

## 3 年齢層別の菌検出状況

年齢別の菌の検出状況を表1に示す。サルモネラ属菌は幅広い年齢層から検出された。

表1 年齢層別の菌検出状況（2011年）

年齢層		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）		2	13	11	9	8	15		58
検出菌株数計		1	10	5	5	5	13		39
サルモネラ属菌		1	7	1	4	1	7		21
カンピロバクター				1	1	2			4
検出菌株内訳	EPEC		2	1			2		5
	下痢原性 ETEC						2		2
	大腸菌 EHEC								0
	EIEC								0
	黄色ブドウ球菌		1	1			2		4
	腸炎ビブリオ								0
	NAG ビブリオ							2	2
	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。

0才9 か月齢の女児の血便から分離されたサルモネラ血清型は Schwarzengrund であった。カンピロバクターは、4～14才の年齢層から検出された。ETEC は上述のように旅行者下痢症と思われ、成人年齢層から検出された。

NAG ビブリオは、58才と 41才の男性のからそれぞれ検出され、前者については海外渡航歴（中国）が認められた。

#### 4 季節別の検出状況

月別の菌検出状況を表2 に示す。前回までの報告<sup>1-18)</sup>と同様に全体的には夏季の検出数が多かった。サル

モネラ属菌は冬季の検出が少ないが Enteritidis だけは例外的であるという現象<sup>18)</sup>は今回も認められ、12月に1株検出された。2011年の大分県における食中毒発症件数は前年の半分程度であったが、細菌性散発下痢症も同様に低調で、検体数が例年よりも少なく、各菌のはっきりした季節的傾向は把握できなかった。2011年の春（4～5月）に富山県を中心とした EHEC O111等による集団食中毒で5名の死者が出て、大きく報道され、全国的に食の衛生について注意喚起された影響があるのかもしれない。

表2 月別の菌検出状況（2011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	3	4	6	3	9	7	6	6	7	4	1	2	58
検出検体数	0	2	4	1	4	4	2	5	6	4	1	2	35
サルモネラ属菌			3	1	3	3	1	2	3	4		1	21
カンピロバクター		1			1			1	1				4
		EPEC	1	1		2			1				5
下痢原性		EPEC	1						1				2
大腸菌		EHEC											0
		EIEC											0
黄色ブドウ球菌								1	1		1	1	4
腸炎ビブリオ													0
NAG ビブリオ							1	1					2
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	0	3	4	1	4	5	2	6	7	4	1	2	39

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。

#### 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。

#### 参 考 文 献

- 1) 成松浩志、緒方喜久代、淵 祐一、帆足喜久雄：大分県における細菌性下痢症サーベイランスの動向（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、淵 祐一、帆足喜久雄：大分県における細菌性下痢症サーベイランスの動向（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、淵 祐一、帆足喜久雄：大分県における細菌性下痢症サーベイランスの動向（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、淵 祐一、帆足喜久雄：大分県における細菌性下痢症サーベイランスの動向（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、淵 祐一、帆足喜久雄：大分県における細菌性下痢症サーベイランスの動向（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、瀧 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、瀧 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、瀧 祐一、帆足喜久雄：大分県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）
- 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) 成松浩志、緒方喜久代、若松正人：大分県における細菌性下痢症サーベランスの動向（2007年）. 大分県衛生環境研究センター年報, 35, 47-78（2007）
- 16) 成松浩志、緒方喜久代、若松正人：大分県における細菌性下痢症サーベランスの動向（2008年）. 大分県衛生環境研究センター年報, 36, 66-70（2008）
- 17) 成松浩志、緒方喜久代、若松正人：大分県における細菌性下痢症サーベランスの動向（2009年）. 大分県衛生環境研究センター年報, 37, 60-63（2009）
- 18) 成松浩志、若松正人、緒方喜久代：大分県における細菌性下痢症サーベランスの動向（2010年）. 大分県衛生環境研究センター年報, 38, 95-99（2010）
- 19) 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）
- 20) 伊藤文明、山岡弘二、荻野武雄、神辺真之：下痢原性大腸菌のPCR法, 臨床病理, 43, 772-775（1995）
- 21) 成松浩志、緒方喜久代、阿部義昭、帆足喜久雄：大分県における下痢症由来大腸菌の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, 29, 51-55（2001）
- 22) 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）
- 23) 成松浩志、緒方喜久代、鷺見悦子：下痢症患者および健康人から分離された *eaeA* および *aggR* 遺伝子保有大腸菌におけるその他の病原性関連遺伝子の分布、並びに、*afa* 遺伝子保有大腸菌検査. 大分県衛生環境研究センター年報, 31, 35-40（2003）

## 感染症発生動向調査からみたウイルスの流行状況 (2011年)

加藤 聖紀、本田 顕子、那須 真美子、田中 幸代、小河 正雄

### Report on Isolation of Viruses in Oita Prefecture, 2011

Miki Kato, Akiko Honda Mamiko Nasu, Sachiyo Tanaka, Masao Ogawa

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

#### はじめに

私たちは、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について、大分県内の調査を行っている。2011年の調査結果について報告する。

#### 検査方法

ウイルス検索の材料は、大分県内の医療機関より提出された咽頭ぬぐい液、眼ぬぐい液、髄液、糞便、尿、皮膚病巣、血液及び気管支肺胞洗浄液を対象とした。

ウイルス分離には HEp-2、RD-18s、Caco-2、MARC145、Vero9013、VeroE6、MDCK の7種の細胞を使用し、細胞変性効果を指標に3代まで継代培養を行った。分離ウイルスの同定は、抗血清のあるものについては中和試験を行い、それ以外のものについては、PCR法で遺伝子を増幅し、ダイレクトシーケンス法で遺伝子配列を決定した後、BLASTにて同源性検索を行った。

また臨床検体から直接PCR及びダイレクトシーケンスを実施し、ライノウイルス、パレコウイルス、パラインフルエンザウイルス、RSウイルス、ヒトメタニューモウイルス、ヘルペスウイルス及び一部のエンテロウイルスの検出を行った。ノロウイルス及びサポウイルスの検出には、リアルタイムPCR法を行った。

A群ロタウイルスの検出にはラピッドテストタタ・アデノ(積水メディカル株式会社)を使用した。

#### 結果及び考察

2011年は県内の16医療機関から469件の検査依頼があり、検出した病原体は、1検体につき複数検出したものを含んで337件であった(表1)。多く検出されたウイルスは、インフルエンザウイルス AH1pdm09・AH3・B、ライノウイルス及びコクサッキーウイルス A6型であった。

インフルエンザウイルスでは、AH1pdm09型が1月から2月にかけて78件検出され、AH3型が1月から4月にかけて30件、10月から12月にかけて12件検出された。B型は1月から4月にかけて32件検出された。インフルエンザの流行し始める11月から翌年1月にかけてインフルエンザ病原体サーベイランスを実施し、県内6保健所から週に3件を上限として検体採取を行った結果、県内各地域の流行状況を把握することができた。

感染性胃腸炎では、ノロウイルス G II が最も多く13件検出された。ウイルスの遺伝子型は GII/2 が最も多く6件、次いで G II /4及び G II /12 が各3件、G II /not typed が1件検出され、昨年の傾向から変化が見られた。A群ロタウイルスは2月から5月にかけて10件検出された。この他に、アデノウイルス2型は2件、サポウイルスはG I が3件検出された。

手足口病では、コクサッキーウイルス A6型が最も多く、6月から9月にかけて22件検出された。次いでコクサッキーウイルス A16型が3月から6月にかけて10件、8月及び11月に各1件検出された。

ヘルパンギーナでは、コクサッキーウイルス A10型が4件、エンテロウイルス71型及びパレコウイルス3型が各1件検出された。

無菌性髄膜炎では、コクサッキーウイルス B1型が3件検出された。他にエコーウイルスが4件(7型2件、3型1件16型1件)、HHV-6が2件検出された。

結膜炎では7月にアデノウイルス53型が1件検出

された。

本年の特徴として、呼吸器系疾患の検体が77件とインフルエンザの163件に次いで多く搬入され、かぜ症候群が32件、気管支炎が10件、肺炎が35件であった。最も検出数の多かったウイルスはいずれ

もライノウイルスで、かぜ症候群で15件、気管支炎で4件、肺炎で5件、合計24件であった。また6月から7月にかけて、発疹や上気道炎、肺炎、発熱（不明熱を含む）を臨床症状とするパレコウイルス3型が13件検出された。（表2）

## ウイルス検出状況

表1 平成23年 ウイルスの月別検出状況

検出病原体	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
Coxsackievirus A6						1	13	14	1		1		30
Coxsackievirus A10							2	2			3		7
Coxsackievirus A16			1	2	2	6	1	1			1		14
Coxsackievirus B1				1				1	2		1		5
Coxsackievirus B3								1					1
Coxsackievirus B5											1		1
Echovirus3						1	1	1					3
Echovirus6												1	1
Echovirus7										1	2		3
Echovirus9												1	1
Echovirus16										1			1
Parechovirus 3						5	9						14
Parechovirus-not typed								1					1
Poliovirus 2					1								1
Poliovirus 3					1								1
Enterovirus68	1		1	1									3
Enterovirus71						2							2
Rhinovirus	2	1	2	7		1	8	2		2	5	2	32
Influenza virus A H1pdm09	70	8											78
Influenza virus A H3 N unknown	15	7	7	1						1	2	9	42
Influenza virus B	5	12	14	1									32
Parainfluenza virus1							1					1	2
Parainfluenza virus3			1	1		1							3
Parainfluenza virus4										1			1
Respiratory syncytial virus (RSV)		2	1									1	4
Human metapneumovirus					1	2	1	1	1				6
Rotavirus group A		3	4	1	2								10
Norovirus genogroup II	3	2	3		3							2	13
Sapovirus				1						1		1	3
Adenovirus 1				1									1
Adenovirus 2		1	2	1	1								5
Adenovirus5											1		1
Adenovirus 53							1						1
Herpes simplex virus1 (HHV-1)												1	1
Cytomegalovirus (HHV-5)				1		1		1					3
Human herpes virus6 (HHV-6)				2		2	1		3			2	10
合 計	96	36	34	22	11	23	38	25	7	7	17	21	337

(複数検出を含む)

表2 平成23年 臨床診断名別ウイルス・クラミジア検出状況

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	Echovirus7										1			1	
	Echovirus9												1	1	
	Rhinovirus												1	1	
	Rotavirus group A		3	4	1	2								10	
	Norovirus genogroup II	3	2	3		3								2	13
	Sapovirus				1							1		1	3
	Adenovirus 2		1					1							2
手足口病	Coxsackievirus A6						1	10	10	1				22	
	Coxsackievirus A16			1	2	2	5		1			1		12	
	Echovirus3							1						1	
	Enterovirus68				1									1	
	Parechovirus 3						1							1	
	Rhinovirus								1	1				2	
ヘルパンギーナ	Coxsackievirus A10								1	2		1		4	
	Enterovirus71							1						1	
	Parechovirus 3							1						1	
インフルエンザ様疾患	Influenza virus A H1pdm09	70	8											78	
	Influenza virus A H3 N unknown	15	7	7	1						1	2	9	42	
	Influenza virus B	5	12	13	1									31	
	Respiratory syncytial virus RSV		1											1	
無菌性髄膜炎	Coxsackievirus B1									2		1		3	
	Echovirus3							1						1	
	Echovirus7											2		2	
	Echovirus16										1			1	
	Human herpes virus6 HHV-6										1		1	2	
(急性)脳症	Poliovirus 2					1								1	
	Poliovirus 3					1								1	
	Adenovirus 2				1									1	
	Human herpes virus6 HHV-6						1				1			2	
不明熱	Coxsackievirus A6											1		1	
	Coxsackievirus B3								1					1	
	Coxsackievirus B5											1		1	
	Echovirus3								1					1	
	Parechovirus 3							3						3	
かぜ症候群	Coxsackievirus A6									1				1	
	Coxsackievirus A10							1				2		3	
	Parechovirus 3							2						2	
	Parechovirus-not typed								1					1	
	Rhinovirus		1		4			2	1		2	5		15	
	Influenza virus B			1										1	
気管支炎	Adenovirus 5											1		1	
	Echovirus6												1	1	
	Enterovirus68	1												1	
	Rhinovirus			1	1			1					1	4	
	Respiratory syncytial virus RSV												1	1	
	Human metapneumovirus							1						1	
肺炎	Parechovirus 3							1						1	
	Enterovirus68			1										1	
	Rhinovirus	1		1	2			1						5	
	Parainfluenza virus1							1					1	2	
	Parainfluenza virus3			1			1							2	
	Parainfluenza virus4										1			1	
	Respiratory syncytial virus RSV		1	1										2	
	Human metapneumovirus					1	2		1	1				5	
Adenovirus 1				1									1		
発疹症	Coxsackievirus A6							3	3					6	
	Coxsackievirus A16							1	1					2	
	Parechovirus 3							3	3					6	
	Rhinovirus							1	1					2	
	Parainfluenza virus3				1									1	
	Adenovirus 2				1									1	
	Herpes simplex virus HHV-1												1	1	
	Cytomegalovirus HHV-5						1							1	
Human herpes virus6 HHV-6			2		1	1			1			1	5		
腸重積症	Adenovirus 2					1								1	
	Adenovirus53							1						1	
結膜炎	Adenovirus53							1						1	
	Coxsackievirus B1									1				1	
	Cytomegalovirus HHV-5									1				1	
熱性けいれん	Human herpes virus6 HHV-6							1						1	
	Coxsackievirus B1					1								1	
	Cytomegalovirus HHV-5							1						1	
その他	Human herpes virus6 HHV-6								1					1	
	Coxsackievirus B1				1									1	
	Enterovirus71							1						1	
	Rhinovirus	1							2					3	
Cytomegalovirus HHV-5				1									1		

(複数検出を含む)



# 感染症流行予測調査について (2011年度)

田中 幸代、加藤 聖紀、本田 顕子、那須 真美子、小河 正雄

## Surveillance of Vaccine-preventable Diseases, 2011

Sachiyo Tanaka, Miki Kato, Akiko Honda, Mamiko Nasu, 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

2011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2011年度感染症流行予測調査実施要領に従って採取を行い、国東市で飼育されたと畜場出荷豚の血液を用いた。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

2011年7月上旬から9月中旬まで約10日毎に10頭ずつ、計80頭の日本脳炎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7月11日で、前年より46日早く、最近10年間の平均(7月11日)と同じであった(図1)。また、日本脳炎汚染地区の判定基準であるHI抗体保有率50%を超え、100%に達したのは8月1日で、50%を超えなかった昨年を除く最近10年間の平均(8月19日)より18日早かった。採取した血液からVero9013細胞を用いて日本脳炎ウイルスの分離を試み

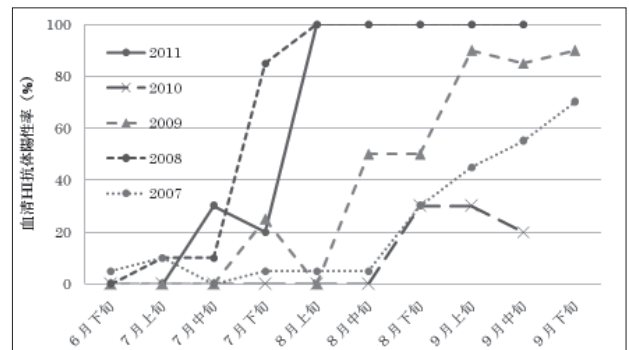


図1 各年の豚血清中HI抗体陽性率の推移 (2007～2011年)

たところ、9月2日の血清から1株分離した。

県内の気温及び降雨状況は、6月下旬に高温少雨となり、日本脳炎ウイルスを媒介するコガタアカイエカが発生しやすい気候になったと考えられた。7月は、気温及び降雨ともに平年並みで、7月下旬に少雨になったことから、8月上旬にHI抗体保有率が100%に達したと考えられた。2011年度も県内で患者の発生は無かった。しかし、近県では、8月から10月の間に福岡県で患者4名が発生している。コガタアカイエカの飛行距離は数キロメートルと言われており、本調査で豚の血清から抗体が検出されたことから、県内で日本脳炎ウイルスに感染する可能性があり、ワクチン接種や蚊に刺されないように注意することが必要であると考えられる。

表1 と畜場出荷豚の日本脳炎HI抗体保有状況

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 ≤		
7月 1日	10	10								0.0	0.0
7月 11日	10	7	3							30.0	0.0
7月 22日	10	8	1	1						20.0	0.0
8月 1日	10		1	7	2					100.0	0.0
8月 12日	10			2	5	3				100.0	0.0
8月 22日	10			8	2					100.0	0.0
9月 2日	10		3	3					4	100.0	100.0
9月 12日	10		2						8	100.0	38.0

## 食品の微生物学的検査成績について (2011年度)

佐々木 麻里、成松 浩志、緒方 喜久代、田中 幸代、加藤 聖紀、小河 正雄

### Microbiological Examination of Foods, 2011

Mari Sasaki, Hiroshi Narimatsu, Kikuyo Ogata, Sachiyo Tanaka, Miki Kato, Masao Ogawa

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

#### はじめに

大分県では、食中毒の発生防止対策、流通食品の汚染状況の把握および汚染食品の排除を目的とし、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。2011年度は、県産・輸入食肉、加工食肉、県産鶏卵、輸入エビ、県産ミネラルウォーター、県産養殖魚、輸入生食用魚介類および生食用・加熱用二枚貝の計159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

2011年4月から2012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29検体、輸入食肉20検体、加工食肉10検体、県産鶏卵10検体、輸入エビ10検体、県産ミネラルウォーター20検体、県産養殖魚10検体、輸入生食用魚介類30検体、生食用二枚貝10検体および加熱用二枚貝10検体について検査した(表1)。

##### 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、コレラ菌、病原ビブリオ、赤痢菌)、レジオネラ属菌、汚染指標細菌(一般細菌数、大腸菌群・大腸菌)、抗生物質およびノロウイルスについて検査を行った。

##### 3 検査方法

各項目の検査方法は、規格基準の定められた食品は公定法(食品衛生法および関連法規)に従って実施し、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。

#### 結 果

159検体中42検体(26%)について、食中毒起因菌等の検出や汚染指標菌が示す不良な衛生状態が認められた(表1)。

県産食肉29検体中15検体から食中毒起因菌が検出され、その内訳は8検体から黄色ブドウ球菌、4検体からサルモネラ属菌、9検体からカンピロバクターが検出された(重複有り)。食中毒起因菌が検出された15検体は全て鶏肉で、豚肉、牛肉からはいずれの菌も検出されなかった。

輸入食肉20検体中鶏肉2検体、豚肉4検体、牛肉2検体から黄色ブドウ球菌が検出された。病原大腸菌、サルモネラ属菌、カンピロバクターは検出されなかった。

なお、病原大腸菌、抗生物質は県産品、輸入品いずれの食肉からも不検出であった。

加工食肉10検体については、1検体(豚ミンチ)からベロ毒素産生性大腸菌(OUT:HNMV,VT2)が、2検体(鶏ミンチ、ハンバーグ)から黄色ブドウ球菌が、1検体(鶏ミンチ)からサルモネラ属菌及びカンピロバクターが検出された。

県産鶏卵10検体からサルモネラ属菌及び抗生物質は不検出であった。

県産ミネラルウォーター20検体については、大腸菌群、レジオネラ属菌はともに検出されなかった。食品衛生法のミネラルウォーターの製造基準で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3検体あり、内訳は $10^4$ オーダー、 $10^3$ オーダー、 $10^2$ オーダーが1検体ずつであった。

県産養殖魚10検体では、抗生物質は検出されなかった。

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	赤痢菌	レジオネラ属菌	一般細菌数	大腸菌・大腸菌群	抗生物質	ノロウイルス
県産食肉	29	15	0	8 <sup>注1)</sup>	4 <sup>注2)</sup>	9 <sup>注3)</sup>								0	
(内訳)															
鶏肉	22	15	0	8	4	9								0	
豚肉	4	0	0	0	0	0								0	
牛肉	3	0	0	0	0	0								0	
輸入食肉	20	8	0	8 <sup>注1)</sup>	0	0								0	
(内訳)															
鶏肉	5	2	0	2	0	0								0	
豚肉	4	4	0	4	0	0								0	
牛肉	11	2	0	2	0	0								0	
加工食肉(ミンチ・ハンバーグ)	10	4	1 <sup>注4)</sup>	2 <sup>注1)</sup>	1 <sup>注5)</sup>	1 <sup>注3)</sup>									
県産鶏卵	10	0			0									0	
輸入エビ	10	8					0	8 <sup>注6)</sup>	6 <sup>注7)</sup>						
県産ミネラルウォーター	20	3								0	3 <sup>注8)</sup>	0			
県産養殖魚	10	0												0	
輸入生食用魚介類	30	0					0			0					
生食用・加熱用二枚貝	20	4						0			1	0			3 <sup>注9)</sup>
合計	159	42	1	18	5	10	0	8	6	0	0	4	0	0	3

- 注1) コアグララーゼ型とエンテロトキシン産生性の分布は表2に示す。
- 注2) S.Schwarzengrund (O4:d:1,7) 3件, S.Infantis (O7:r:1,5) 1件
- 注3) *Campylobacter jejuni*
- 注4) ペロ毒素産生性大腸菌 (OUT : HNM,VT2)
- 注5) S.Infantis (O7:r:1,5) 1件
- 注6) *Vibrio parahaemolyticus* 8件, *V. cholerae* nonO1&O139 6件, *V. mimicus* 5件, *V. vulnificus* 4件, *V. fluvialis* 2件, *V. furnissii* 2件
- 注7) *Aeromonas hydrophila* 4件, *A. sobria* 3件, *A. caviae* 1件
- 注8) 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9) ノロウイルス G II

表2 黄色ブドウ球菌のコアグララーゼ型とエンテロトキシン産生性

エンテロトキシン型	n	コアグララーゼ型					
		II	III	IV	V	VI	VII
A				1			1
C							1 (1)
A-D 非産生		2 (2)	4	1	2 (1)	1	5 (4)

( ) 内は、輸入食肉分再掲、斜字は加工食肉由来

輸入エビ 10検体中8検体から病原ビブリオ等が検出され、そのいずれもが数種の病原ビブリオ等で複合汚染されていた。その内訳は、8検体から *Vibrio parahaemolyticus*、6検体から *Vibrio cholerae* nonO1&O139、5検体から *Vibrio mimicus*、4検体から *Vibrio vulnificus*、2検体から *Vibrio fluvialis*、2検体から *Vibrio furnissii*、4検体から *Aeromonas hydrophila*、3検体から *Aeromonas sobria*、1検体から *Aeromonas caviae* が分離された。

輸入生食用魚介類は、検査項目をコレラ菌 (20検

体) と赤痢菌 (10検体) とに分けて検査したが、すべて検出されなかった。

生食用二枚貝10検体 (殻つき岩カキ 6検体、生食用むき身カキ 4検体) 中3検体のカキからノロウイルス G II 遺伝子が検出された。また、この3検体とは別に、食品衛生法の規格基準となっている一般細菌数50,000/gを超えるものが1検体あった。この1検体は、基準内ではあったが、大腸菌最確数も高い値を示した。腸炎ビブリオ最確数はすべて検出下限値未満であった (4検体)。加熱用二枚貝10検体から

ノロウイルスは検出されなかった。

## 参 考 文 献

### 考 察

既報と同様に今回の調査においても、鶏肉から黄色ブドウ球菌、サルモネラ属菌、カンピロバクターが検出され、県産品、輸入品あわせて63% (17/27)の検体がいずれか若しくは複数の細菌に汚染されていた。また、今回は輸入食肉の40% (8/20)から黄色ブドウ球菌が検出されており、ミンチ等の加工食肉の40% (4/10)から食中毒起因菌が検出されていることから、県産、外国産を問わず食肉、特に鶏肉を取り扱う業者や消費者に対し、十分な加熱の必要性和二次汚染への注意を払うことを啓発すべきと考える。

厚生労働省が公表している食中毒統計によれば、近年、腸炎ビブリオによる食中毒事件数は激減しているものの、輸入エビから病原ビブリオ等が高率(80%)に検出されていることから、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対策、十分な加熱は重要である。

ミネラルウォーターについては、食品衛生法の規格基準には製品の一般細菌数の基準はないものの、原水の基準(10<sup>2</sup>/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。

生食用かきの規格基準検査(一般細菌数、大腸菌最確数等)において成分規格違反(一般細菌数)が1検体あり、製造者に対して管轄する自治体の行政指導が行われた。なお、生食用二枚貝からはノロウイルスが30%の割合で検出されたが、成分規格違反の1検体からノロウイルスは検出されておらず、昨年度同様、規格基準の検査成績の良し悪しはノロウイルスの存在とは無関係であった。このことは、生食用かきの細菌学的規格基準に適合していてもノロウイルス食中毒の危険性があることを示唆しており、「生食用」であっても場合によっては加熱する等の注意が必要であると考え。

以上のように、流通する食品の微生物汚染を早期に探知することで、食中毒の未然防止や食品の安全確保が図られ、衛生行政に貢献できると考える。

- 1) 成松浩志、若松正人、緒方喜久代、小河正雄：食品の微生物学的検査成績について(2010年度), 大分県衛生環境研究センター年報 第38号, 92-94 (2010)
- 2) 若松正人、成松浩志、緒方喜久代、小河正雄：食品の微生物学的検査成績について(2009年度), 大分県衛生環境研究センター年報 第37号, 55-59 (2009)
- 3) 若松正人、成松浩志、緒方喜久代、小河正雄：食品の微生物学的検査成績について(2008年度), 大分県衛生環境研究センター年報 第36号, 61-65 (2008)
- 4) 若松正人、成松浩志、緒方喜久代、長岡健朗、小河正雄：食品の微生物学的検査成績について(2007年度), 大分県衛生環境研究センター年報 第35号, 47-78 (2007)
- 5) 緒方喜久代、小河正雄、長岡健朗、長谷川昭生：食品の微生物学的検査成績について(2006年度), 大分県衛生環境研究センター年報 第34号, 65-69 (2006)

# 大分県における雨水成分調査 (2011年度)

酒盛 早美、小野 由加里<sup>\*1</sup>、中田 高史<sup>\*2</sup>、上田 精一郎、鈴木 龍一

## Ion Components of Rainwater in Oita Prefecture, 2011

Hayami Sakamori, Yukari Ono, Takashi Nakata, Seiichiro Ueda, Ryuichi Suzuki

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<sup>1)-25)</sup>。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、2011年度の降水量、pH、イオン成分濃度及び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 調査期間

2011年3月28日～2012年4月2日

#### 2 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° 09′ 東経131° 36′ 標高約90m

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指導センター

林業研究部

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平木

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、少量の火山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。

#### 3 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原則月曜日に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、湿性沈着モニタリング手引き書<sup>26)</sup>に準じて、次のとおり行った。

測定項目のうち、pH及び電気伝導率は、pH計及び電気伝導率計により測定した。雨水中のイオン成分濃度については、イオンクロマトグラフ計により測定した。測定したイオン成分は、塩化物イオン（以下、「Cl<sup>-</sup>」という）、硝酸イオン（以下、「NO<sub>3</sub><sup>-</sup>」という）、硫酸イオン（以下、「SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>」という）、アンモニウムイオン（以下、「NH<sub>4</sub><sup>+</sup>」という）、ナトリウムイオン（以下、「Na<sup>+</sup>」という）、カリウムイオン（以下、「K<sup>+</sup>」という）、カルシウムイオン（以下、「Ca<sup>2+</sup>」という）及びマグネシウムイオン（以下、「Mg<sup>2+</sup>」という）の8成分である。

<sup>\*1</sup> 環境保全課 <sup>\*2</sup> 南部保健所

## 調査結果

以下に、2011年度の状況を示す。

pH及びイオン成分当量濃度の月平均値及び年平均値は、降水量加重平均値とした。降水量加重平均値とは、測定値を単純に平均したのではなく、降水量で重み付けした平均値のことであり、以下の計算式により算出した<sup>27)</sup>。

$$\begin{aligned} \text{降水量加重平均値 (pH)} &= -\log \left\{ \sum (10^{\text{pHi}} \times \text{Qi}) \right\} / \sum \text{Qi} \\ &= -\log (\text{合計 H}^+ \text{量}) / \text{合計降水量} \end{aligned}$$

pHi：各測定時の pH、Qi：各測定時の降水量

$$\begin{aligned} \text{降水量加重平均値 (成分濃度)} &= \left\{ \sum (\text{Ci} \times \text{Qi}) \right\} / \sum \text{Qi} \\ &= \text{合計成分量} / \text{合計降水量} \end{aligned}$$

Ci：各測定時の成分濃度、Qi：各測定時の降水量

### 1 降水量について

降水量 (mm) は、捕集試料量 (ml) と捕集面積 (cm<sup>2</sup>) により算出した。

2011年度の降水量は、それぞれ大分市2,432mm、日田市2,313mm、久住町2,618mmであった。また、1989～2011年度の年平均降水量は、大分市1,689mm、日田市1,618mm、久住町1,871mm (1994～2011年度) であった (表1-1～1-3)。

前年度と比較して、大分市では1,200mm、日田市で680mm、久住町で820mm増加しており、年平均降水量と比較してもすべての採取地点において700mm程度多かった。

### 2 pHについて

2011年度のpHの年平均値は、それぞれ大分市pH4.57、日田市pH4.83、久住町pH4.67であった。また、1989～2011年度における降水量加重平均値は、大分市4.60、日田市4.71、久住町4.72 (1994～2011年度) であった (表1-1～1-3及び図6)。

大分市では、前年度とほぼ同程度であり、2007年度以降低下傾向にあったが、わずかに上昇した。日田市及び久住町では、横ばいまたは、減少傾向であったが、わずかに上昇した。

1週間降雨 (久住町は2週間) の測定値によるpHの分布状況を図1に示す。

大分市では、pHが4.2～4.6の範囲の雨水が最も多く、前年度と比較すると4.2～4.6を中心に3.8～5.4までの比較的狭い分布となったが、pH6.0以上の雨水があった。

日田市では、pHが4.8～5.0の範囲の雨水が最も多く、4.8～5.0を中心になだらかな広い分布となった。pH3.8以下の雨水及び6.0以上の雨水があった。

久住町では、pHが4.4～4.8の範囲の雨水が最も多く、前年度 (pH4.0～5.2) と比較し4.0～5.6と広い範囲に分布を示した。

### 3 イオン成分当量濃度について

地点別のイオン成分当量濃度を表2に示す。

表2及び表3における非海塩成分 (nss-: non-sea-salt) とは、各成分の測定値から海塩由来成分量を差し引いた値である。海塩由来成分は、雨水に含まれるNa<sup>+</sup>をすべて海塩由来であるとし、かつ海塩由来の成分濃度の比率は海洋→大気(雲)→雨水中で変化しないと仮定して、Na<sup>+</sup>を基準に算出する<sup>26)</sup>。雨水中には、海水中のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>やCa<sup>2+</sup>などが含まれるため、人為的起源による沈着量を把握するには、海塩成分を考慮する必要がある。

雨水中の酸性成分として、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びNO<sub>3</sub><sup>-</sup>が挙げられる。

年間平均SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>当量濃度は、それぞれ、大分市32.9μeq/l、日田市26.9μeq/l、久住町29.7μeq/lであった。

年間平均NO<sub>3</sub><sup>-</sup>当量濃度は、それぞれ、大分市13.0μeq/l、日田市10.1μeq/l、久住町8.5μeq/lであり、酸性成分は大分市でもっとも高濃度であった。

雨水中の塩基性成分としては、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>及びCa<sup>2+</sup>が挙げられる。

年間平均NH<sub>4</sub><sup>+</sup>当量濃度は、それぞれ、大分市7.3μeq/l、日田市12.4μeq/l、久住町8.9μeq/lであった。

年間平均Ca<sup>2+</sup>当量濃度は、それぞれ、大分市8.8μeq/l、日田市8.5μeq/l、久住町5.9μeq/lであり、塩基性成分は日田市でもっとも高濃度であった。

イオン成分当量濃度の季節変動を図2に示す。

降水量は例年と同様に、初夏に多く、冬期に少なかった。降水量が少ない期間は多い期間と比較して、イオン成分が高濃度になりやすいため、各成分とも冬季に高い傾向にあった。

### 4 イオン成分沈着量について

地点別のイオン成分沈着量を表3及び図3に示す。

沈着量 (meq/m<sup>2</sup>) は、イオン成分濃度 (μeq/l) と降水量 (mm) により算出した。

年間のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>沈着量は、それぞれ、大分市79.7

meq/m<sup>3</sup>、日田市61.5meq/m<sup>3</sup>、久住町77.8meq/m<sup>3</sup>であり、大分市で最大であった。

年間のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>沈着量は、それぞれ、大分市31.4meq/m<sup>3</sup>、日田市23.2 meq/m<sup>3</sup>、久住町22.1meq/m<sup>3</sup>であり、大分市で最大であった。

年間のNH<sub>4</sub><sup>+</sup>沈着量は、それぞれ、大分市17.7 meq/m<sup>3</sup>、日田市28.3meq/m<sup>3</sup>、久住町23.4meq/m<sup>3</sup>であった。

年間のCa<sup>2+</sup>沈着量は、それぞれ大分市21.3meq/m<sup>3</sup>、日田市19.5meq/m<sup>3</sup>、久住町15.5meq/m<sup>3</sup>であり、塩基性成分は日田市で最大であった。

年間の総沈着量は、前年度と比較して大分市は、1.9倍に増加し、久住町では、わずかに増加した。また、日田市でわずかに減少した(図4)。

## 5 イオン成分沈着量の経年変動について

イオン成分の沈着量の経年変動を図5に示す。

前年度と比較して、大分市ではSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>やNO<sub>3</sub><sup>-</sup>など酸性成分の沈着量が増加したため、H<sup>+</sup>も同様に増加した。

イオン成分の沈着量は、沈着量=成分濃度×降水量として計算されるため、沈着量の増減は降水量に影響される。そのため、沈着量のみで降水中の大気成分の経年変動を評価することは難しい。そこで、降水量の変動を加味した沈着量の年変化率(%・year<sup>-1</sup>)について検討した<sup>28)、29)</sup>。

まず、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>及びH<sup>+</sup>の2004年から2011年度の8年分の月間集計値を、4~6月を春季、7~9月を夏季、10~12月を秋季、1月~3月を冬季に分類した。季節ごとに、年度をx軸、各イオン成分の沈着量をy軸とする回帰直線を作成し、「(回帰直線の傾き/8年間の平均値)×100」として、沈着量の年変化率を求めた。降水量についても同様の操作を行い、沈着量の変化率から降水量の変化率を差し引いたものを「降水量の変動を加味した沈着量の年変化率」とした(表4、図6)。

大分市では、酸性成分であるSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>が減少傾向を示したが、降水量も減少傾向を示したため、降水量の変動を加味した沈着量の年変化率は、わずかに増加傾向を示した。また、酸性成分であるNO<sub>3</sub><sup>-</sup>もSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>と同様に増加傾向を示したため、H<sup>+</sup>も増加傾向を示した。しかし、黄砂の影響が大きいとされる春季は全成分で減少傾向にあった。

日田市では、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>が減少傾向を示し、また降水量が増加傾向を示したため、降水量の変動を加味し

た沈着量の年変化率は、減少した。酸性成分であるSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>が減少傾向にあったため、H<sup>+</sup>も減少傾向を示した。塩基性成分であるNH<sub>4</sub><sup>+</sup>が増加傾向にあった。

久住町では、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>が増加傾向を示したが、降水量も増加傾向を示したため、降水量の変動を加味した沈着量の年変化率は、わずかに減少傾向を示した。秋季にNH<sub>4</sub><sup>+</sup>の減少傾向が見られた。

## 謝 辞

本調査の実施にあたり、試料採取並びにpH及びECの測定にご協力いただいた大分県農林水産研究指導センター林業研究部の職員に深謝致します。

## 参 考 文 献

- 1) 都甲伊知郎 他：「大分における初期雨水の酸性化について」, 大分県公害衛生センター年報, 13, 92-97 (1985)
- 2) 足立和治 他：「大分地域における雨水の性状調査について」, 大分県公害衛生センター年報, 14, 78-82 (1986)
- 3) 足立和治 他：「大分地域における雨水の性状調査について」, 大分県公害衛生センター年報, 15, 83-92 (1987)
- 4) 森崎澄江 他：「大分地域における雨水成分調査について」, 大分県公害衛生センター年報, 16, 91-93 (1988)
- 5) 森崎澄江 他：「大分地域における雨水成分調査」, 大分県公害衛生センター年報, 17, 84-87 (1989)
- 6) 森崎澄江 他：「大分地域における雨水成分調査(第6報)」, 大分県衛生環境研究センター年報, 18, 36-41 (1990)
- 7) 森崎澄江 他：「大分地域における雨水成分調査(第7報)」, 大分県衛生環境研究センター年報, 19, 71-78 (1991)
- 8) 森崎澄江 他：「大分地域における雨水成分調査(第8報)」, 大分県衛生環境研究センター年報, 20, 133-138 (1992)
- 9) 森崎澄江 他：「大分地域における雨水成分調査(第9報)」, 大分県衛生環境研究センター年報, 21, 63-69 (1993)
- 10) 森崎澄江 他：「大分地域における雨水成分調査(第10報)」, 大分県衛生環境研究センター年報

- 報, 22, 73-78 (1994)
- 11) 森崎澄江 他:「大分地域における雨水成分調査 (第11報)」, 大分県衛生環境研究センター年報, 23, 66-71 (1995)
  - 12) 森崎澄江 他:「大分地域における雨水成分調査 (第12報)」, 大分県衛生環境研究センター年報, 24, 79-84 (1996)
  - 13) 藤原信子 他:「大分地域における雨水成分調査 (第13報)」, 大分県衛生環境研究センター年報, 25, 91-96 (1997)
  - 14) 藤原信子 他:「大分地域における雨水成分調査 (第14報)」, 大分県衛生環境研究センター年報, 26, 84-89 (1998)
  - 15) 恵良雅彰 他:「大分県における雨水成分調査 (第15報)」, 大分県衛生環境研究センター年報, 27, 101-106 (1999)
  - 16) 仲摩聰 他:「大分県における雨水成分調査 (2000年度及び2001年度)」, 大分県衛生環境研究センター年報, 29, 75-81 (2001)
  - 17) 仲摩聰 他:「大分県における雨水成分調査 (2002年度)」, 大分県衛生環境研究センター年報, 30, 72-80 (2002)
  - 18) 恵良雅彰 他:「大分県における雨水成分調査 (2003年度)」, 大分県衛生環境研究センター年報, 31, 56-63 (2003)
  - 19) 恵良雅彰:「大分県における雨水成分調査 (2004年度)」, 大分県衛生環境研究センター年報, 32, 57-64 (2004)
  - 20) 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)
  - 21) 松原輝博:「大分県における雨水成分調査 (2006年度)」, 大分県衛生環境研究センター年報, 34, 78-85 (2006)
  - 22) 松原輝博:「大分県における雨水成分調査 (2007年度)」, 大分県衛生環境研究センター年報, 35, 68-75 (2007)
  - 23) 小野由加里 他:「大分県における雨水成分調査 (2008年度)」, 大分県衛生環境研究センター年報, 36, 78-87 (2008)
  - 24) 小野由加里 他:「大分県における雨水成分調査 (2009年度)」, 大分県衛生環境研究センター年報, 37, 85-99 (2009)
  - 25) 小野由加里 他:「大分県における雨水成分調査 (2010年度)」, 大分県衛生環境研究センター年報, 38, 108-122 (2010)
  - 26) 環境省地球環境局環境保全対策課, 酸性雨研究センター:湿性沈着モニタリング手引き書 (第2版) (2001)
  - 27) 大喜多敏一 監修:「新版 酸性雨-複合作用と生態系に与える影響-」, 博友社, p55-59
  - 28) 九州衛生環境技術協議会大気分科会/山口県環境保健センター:「九州・沖縄・山口地方酸性雨共同調査研究 第Ⅱ期調査報告書」, p8, p11-12 (2011)
  - 29) 全国環境研協議会編集委員会:「第4次酸性雨全国調査報告書 (平成20年度) (1)」, 全国環境研究会誌, VOL.35, p132-133 (2010)



表1-1 雨水pHの経年変化(大分市)

地点	年度	雨水 pH			試料数	降雨量 mm	備考
		平均値 <sup>(注)</sup>	最大値	最小値			
大分市	1989	4.50	6.17	3.94	31	(1543)	11、12月採取不可
	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	4.12	36	2126	
	2008	4.54	6.13	3.95	40	1778	
2009	4.49	6.38	4.06	38	1419		
2010	4.58	5.92	3.89	38	1220		
2011	4.57	6.16	3.82	40	(2432)	9/20 - 9/26 採取不可	

注) 降水量加重年平均値

表1-2 雨水pHの経年変化(日田市)

地点	年度	雨水 pH			試料数	降雨量 mm	備考	
		平均値 <sup>(注)</sup>	最大値	最小値				
日田市	1989	4.45	4.98	3.90	41	(1131)	5月から開始	
	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)		2、3月採取不可
	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		
	2008	4.74	6.77	4.16	45	1428		
2009	4.77	6.70	4.20	33	1565	4/7 ~ 7/14 水曜採取		
2010	4.75	5.73	4.05	43	1629			
2011	4.83	6.20	3.57	42	2313			

注) 降水量加重年平均値

表1-3 雨水pHの経年変化(久住町)

地点	年度	雨水 pH			試料数	降雨量 mm	備考	
		平均値 <sup>(注)</sup>	最大値	最小値				
久住町	1994	4.51	5.61	3.91	18	(664)	5月から開始	
	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)		7/18 ~ 8/14 採取不可
	2008	4.68	5.91	4.17	25	2647		
	2009	4.64	5.45	3.93	19	(1423)		6/22 ~ 7/21 採取不可
	2010	4.62	6.04	4.00	23	1796		
2011	4.67	5.48	4.02	25	2618			

注) 降水量加重年平均値

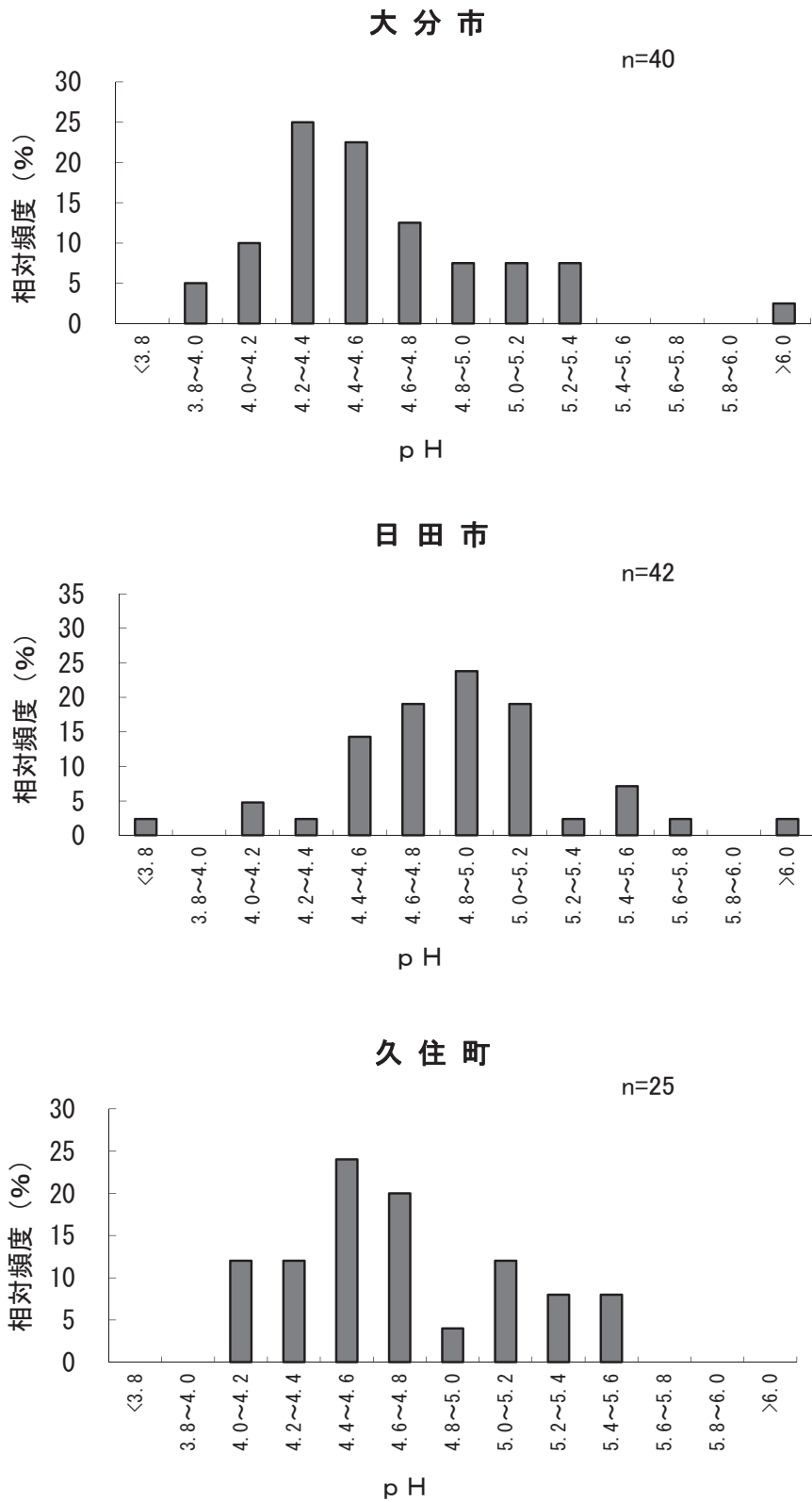


図1 2011年度 雨水の pH分布

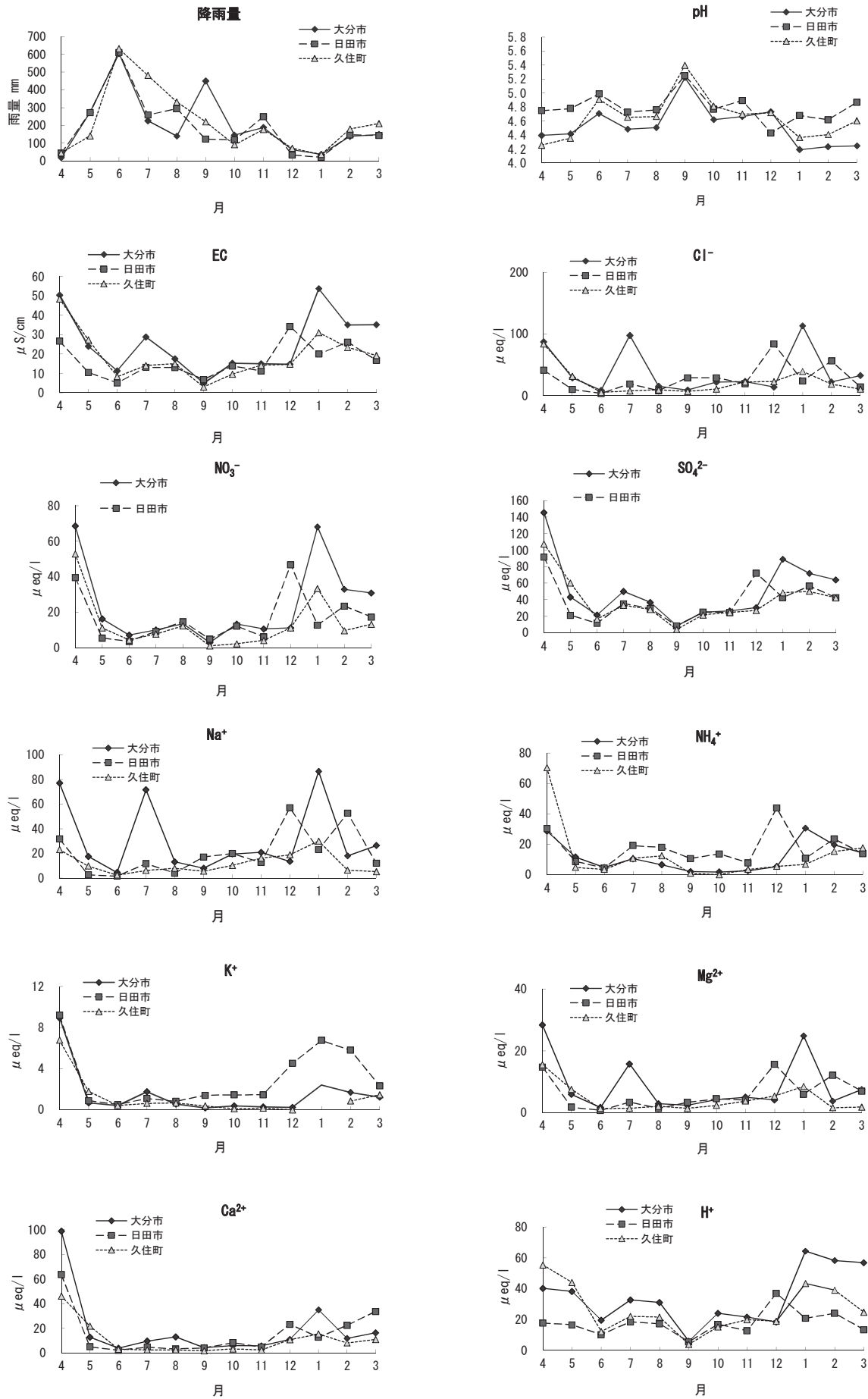
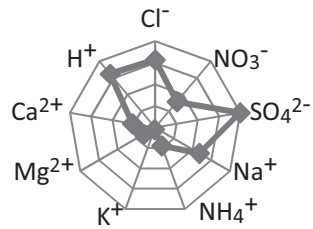


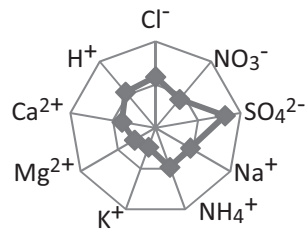
図2 イオン成分濃度の季節変動 (成分別)

## 大分市



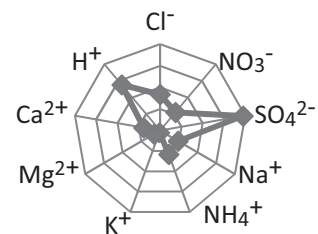
最外円沈着量80meq/m<sup>2</sup>

## 日田市



最外円沈着量80meq/m<sup>2</sup>

## 久住町



最外円沈着量80meq/m<sup>2</sup>

図3 2011年度 年間イオン成分沈着量 (地点別)

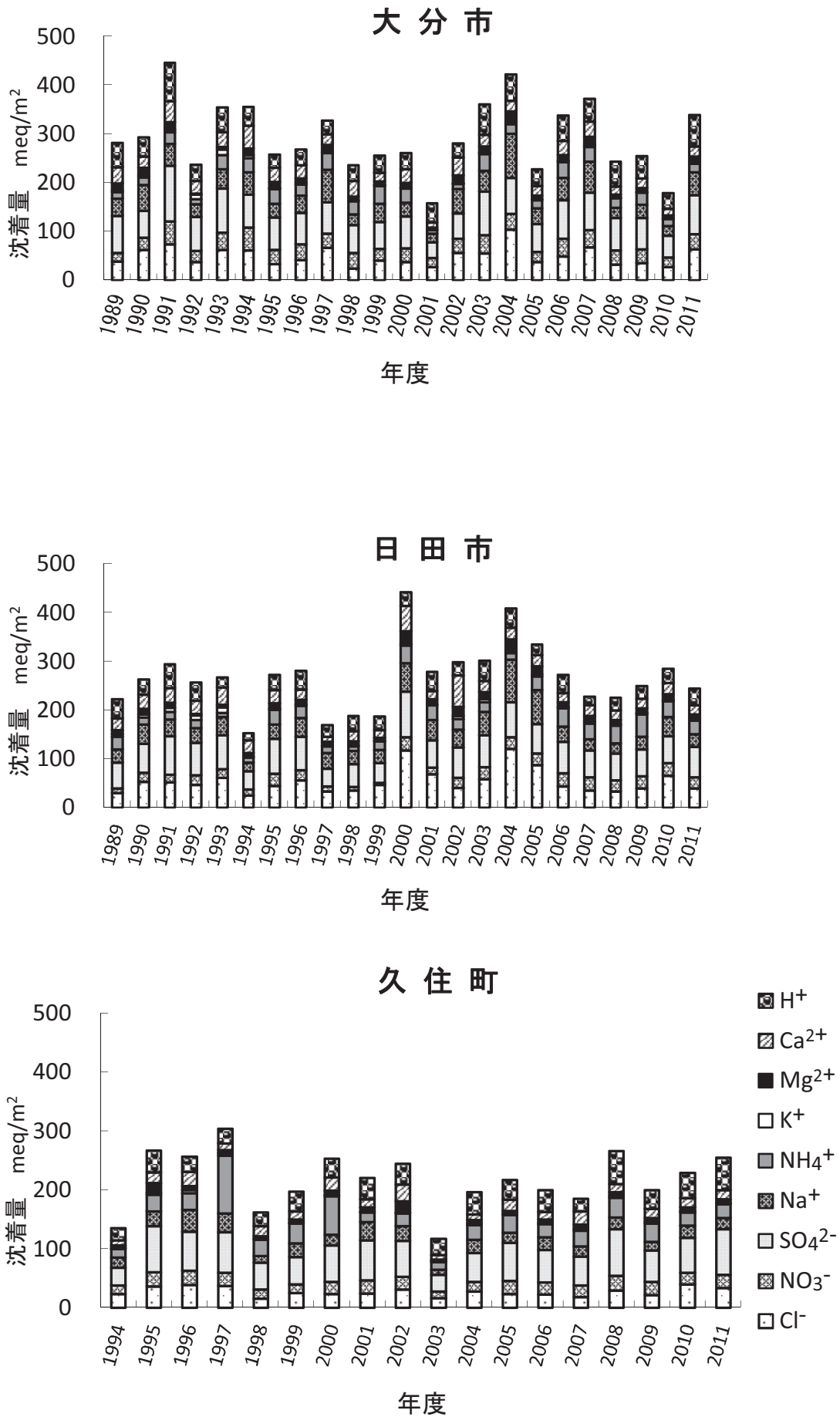


図4 イオン成分沈着量の経年変化（地点別）

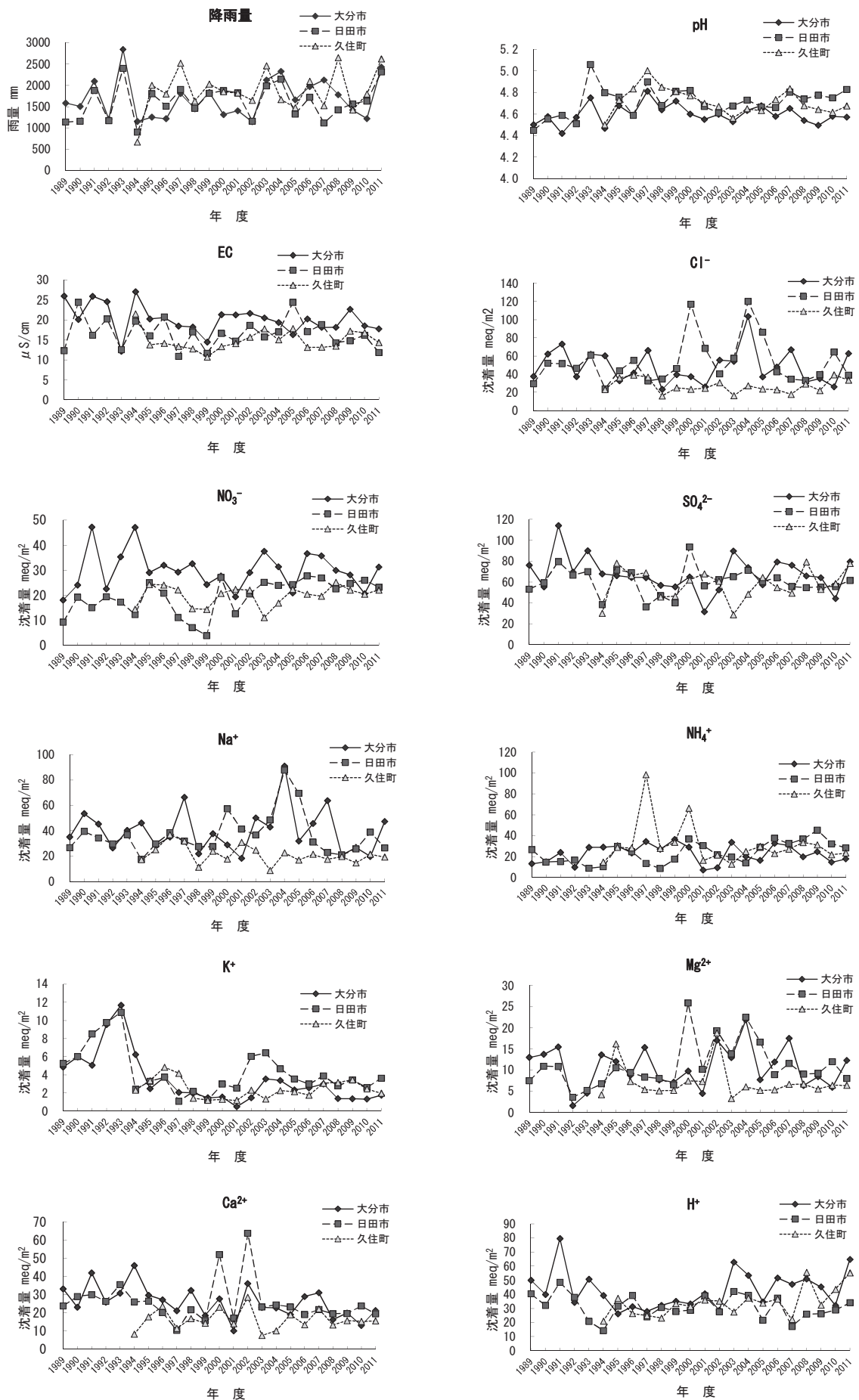


図5 イオン成分沈着量の経年変動 (成分別)

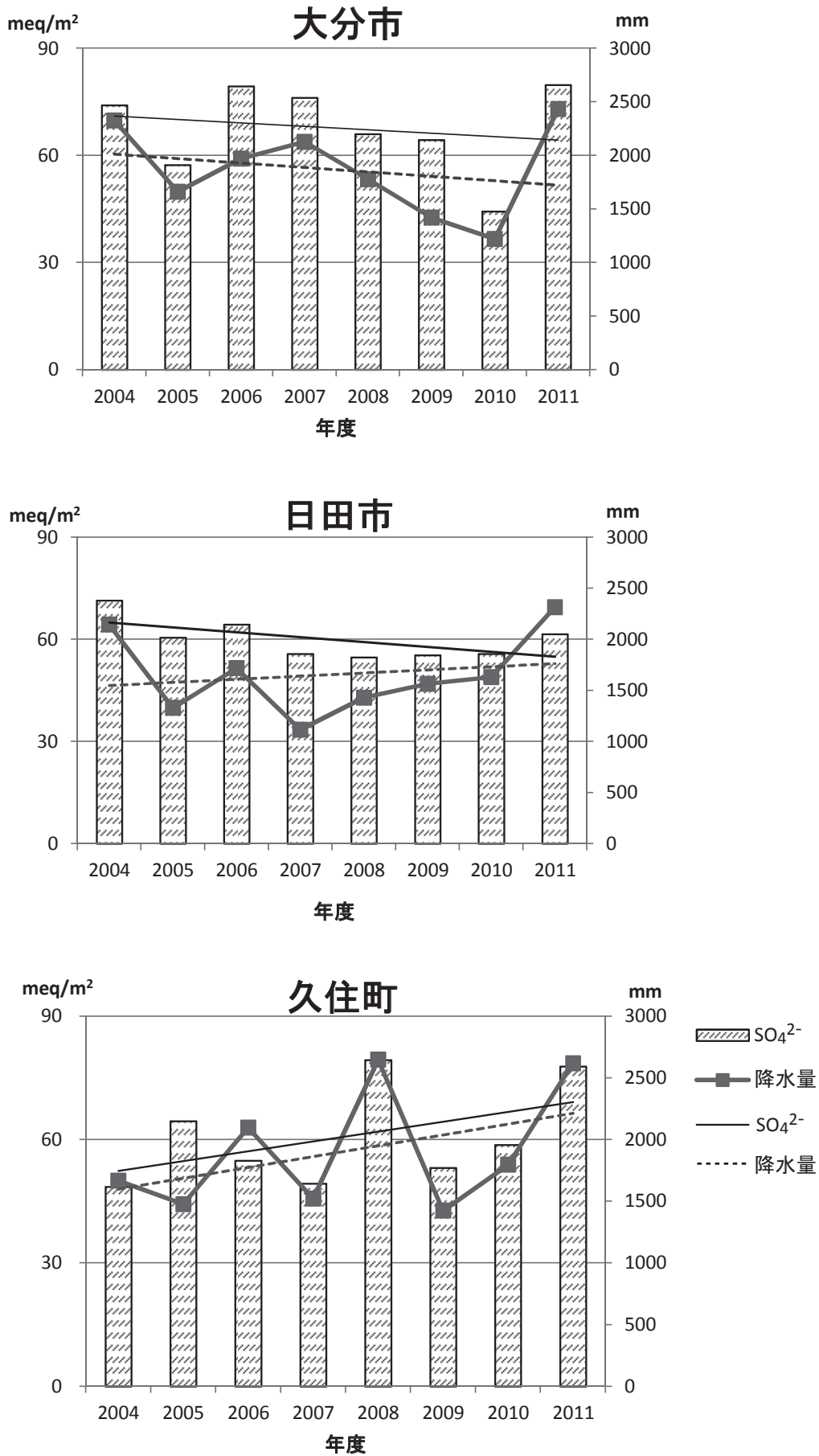


図6 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の年間沈着量と降水量の経年変化

表2 2011年度月平均当量濃度

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 <sup>-</sup> μ eq/l	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> μ eq/l	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> μ eq/l	Na <sup>+</sup> μ eq/l	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> μ eq/l	K <sup>+</sup> μ eq/l	Mg <sup>2+</sup> μ eq/l	Ca <sup>2+</sup> μ eq/l	H <sup>+</sup> μ eq/l	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>		Ca <sup>2+</sup>	
																μ eq/l	%	μ eq/l	%
4月	3月28日	5月2日	35	19	4.40	50.4	87.3	68.6	145.4	77.0	28.6	8.9	28.4	98.9	40.3	136.1	94	95.5	97
5月	5月2日	5月30日	28	274	4.42	24.0	28.8	16.2	43.0	17.5	11.6	0.7	5.9	12.8	38.3	40.9	95	12.1	94
6月	5月30日	6月27日	28	605	4.71	11.4	8.4	7.1	21.2	4.5	4.8	0.4	1.6	4.0	19.6	20.7	97	3.8	95
7月	6月27日	8月1日	35	226	4.48	28.8	97.8	10.1	50.0	71.5	10.5	1.8	15.8	9.7	32.8	41.4	83	6.5	68
8月	8月1日	8月29日	28	139	4.51	17.6	15.1	13.5	36.7	13.1	6.6	0.6	2.9	13.1	31.2	35.2	96	12.6	96
9月	8月29日	9月26日	28	450	5.22	4.9	9.0	3.0	8.1	8.0	2.1	0.2	2.4	4.3	6.0	7.2	88	3.9	92
10月	9月26日	10月24日	28	145	4.62	15.3	22.0	13.4	24.8	19.4	1.8	0.4	4.2	6.0	24.1	22.5	91	5.1	86
11月	10月24日	11月28日	35	188	4.66	15.0	23.0	10.6	26.4	20.9	2.6	0.3	5.0	5.8	21.7	23.9	90	4.9	84
12月	11月28日	12月26日	28	63	4.73	14.7	13.8	11.2	30.4	13.5	5.3	0.2	4.1	11.0	18.5	28.8	95	10.4	95
1月	12月26日	1月30日	35	37	4.19	53.7	113.0	68.0	88.9	86.5	30.6	2.4	24.9	35.0	64.4	78.5	88	31.2	89
2月	1月30日	2月27日	28	138	4.23	35.0	22.5	32.8	71.6	18.1	19.7	1.7	3.7	12.0	58.4	69.5	97	11.2	93
3月	2月27日	4月2日	35	149	4.24	35.1	32.5	30.8	64.0	26.3	14.2	1.2	7.4	16.4	57.0	60.9	95	15.3	93
年間値	3月28日	4月2日	371	2,432	4.57	17.8	25.9	13.0	32.9	19.5	7.3	0.7	5.1	8.8	26.8	30.6	93	7.9	90

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 <sup>-</sup> μ eq/l	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> μ eq/l	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> μ eq/l	Na <sup>+</sup> μ eq/l	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> μ eq/l	K <sup>+</sup> μ eq/l	Mg <sup>2+</sup> μ eq/l	Ca <sup>2+</sup> μ eq/l	H <sup>+</sup> μ eq/l	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>		Ca <sup>2+</sup>	
																μ eq/l	%	μ eq/l	%
4月	3月28日	5月2日	35	43	4.75	26.7	41.4	39.6	91.7	31.7	30.3	9.2	14.8	63.7	17.8	87.9	96	62.3	98
5月	5月2日	5月30日	28	273	4.78	10.6	10.4	5.5	21.1	2.6	8.6	0.9	1.7	5.1	16.6	20.8	98	5.0	98
6月	5月30日	7月4日	35	611	4.99	5.1	3.5	3.6	11.3	1.6	4.4	0.5	0.7	2.3	10.3	11.1	98	2.3	97
7月	7月4日	8月1日	28	259	4.73	13.1	19.0	9.3	35.2	11.7	19.2	1.1	3.4	4.9	18.6	33.8	96	4.4	90
8月	8月1日	8月29日	28	294	4.76	13.0	8.2	14.7	29.5	4.0	18.0	0.8	1.4	3.3	17.3	29.1	98	3.1	95
9月	8月29日	9月26日	28	123	5.25	6.8	28.9	4.8	8.3	17.1	10.6	1.4	3.3	4.1	5.6	6.2	75	3.4	82
10月	9月26日	10月31日	35	118	4.77	13.8	28.9	12.3	25.2	19.9	13.7	1.5	4.5	8.4	17.0	22.8	90	7.6	90
11月	10月31日	12月5日	35	249	4.89	11.3	19.2	6.1	24.6	12.7	7.8	1.5	4.0	4.9	12.8	23.0	94	4.4	89
12月	12月5日	1月4日	30	33	4.43	34.3	83.7	46.8	72.2	56.9	43.9	4.5	15.7	23.2	37.1	65.3	91	20.7	89
1月	1月4日	1月30日	26	21	4.68	20.0	24.0	12.8	42.4	23.1	10.8	6.8	5.9	12.8	20.9	39.6	93	11.8	92
2月	1月30日	2月27日	28	147	4.62	26.1	56.2	23.5	56.6	52.7	23.6	5.8	12.1	22.5	24.1	50.3	89	20.2	90
3月	2月27日	3月26日	28	143	4.87	16.8	14.5	17.3	42.4	11.9	13.8	2.3	6.9	33.7	13.5	41.0	97	33.2	98
年間値	3月28日	3月26日	364	2,313	4.83	11.9	17.1	10.1	26.9	11.6	12.4	1.6	3.5	8.5	14.9	25.5	95	8.0	94

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 <sup>-</sup> μ eq/l	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> μ eq/l	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> μ eq/l	Na <sup>+</sup> μ eq/l	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> μ eq/l	K <sup>+</sup> μ eq/l	Mg <sup>2+</sup> μ eq/l	Ca <sup>2+</sup> μ eq/l	H <sup>+</sup> μ eq/l	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>		Ca <sup>2+</sup>	
																μ eq/l	%	μ eq/l	%
4月	3月28日	4月27日	30	45	4.26	48.4	83.9	52.8	107.5	23.0	70.3	6.8	15.5	46.3	55.4	104.8	97	45.3	98
5月	4月27日	5月23日	26	141	4.36	27.3	31.4	11.2	60.1	9.7	4.9	1.8	7.5	21.8	44.1	58.9	98	21.4	98
6月	5月23日	6月20日	28	632	4.91	8.3	5.2	4.4	16.6	2.4	3.4	0.4	1.3	3.2	12.3	16.3	98	3.1	97
7月	6月20日	8月1日	42	481	4.65	14.1	7.9	7.7	33.2	6.2	10.8	0.6	1.4	2.6	22.2	32.5	98	2.3	90
8月	8月1日	8月29日	28	332	4.67	15.0	9.5	12.3	28.1	8.0	12.4	0.7	2.0	2.6	21.6	27.2	97	2.2	87
9月	8月29日	9月26日	28	220	5.40	3.0	6.9	1.1	3.9	5.5	1.0	0.4	1.3	1.8	4.0	3.2	83	1.5	86
10月	9月26日	10月24日	28	91	4.81	9.6	10.5	2.2	21.5	10.2	0.0	0.1	2.3	3.3	15.3	20.2	94	2.9	87
11月	10月24日	11月21日	28	177	4.70	14.3	22.4	4.1	24.3	16.1	3.5	0.2	3.7	2.4	20.0	22.4	92	1.7	71
12月	11月21日	12月19日	28	71	4.72	14.7	22.7	11.2	27.0	18.9	5.5	0.0	5.3	10.8	19.0	24.8	92	10.0	92
1月	12月19日	1月31日	43	36	4.36	31.0	39.2	33.3	48.3	30.0	6.9	1.0	8.5	15.5	43.4	44.7	93	14.2	92
2月	1月31日	2月27日	27	180	4.41	23.3	18.5	9.5	50.0	6.4	15.3	0.9	1.6	8.1	39.1	49.3	98	7.8	97
3月	2月27日	3月26日	28	211	4.61	19.3	10.7	13.2	42.2	5.3	17.7	1.5	1.8	11.1	24.8	41.6	99	10.9	98
年間値	3月28日	3月26日	364	2,618	4.67	14.4	12.8	8.5	29.7	7.3	8.9	0.8	2.5	5.9	21.1	28.8	97	5.6	95

注) 降雨量加重平均値



表3 2011年度月沈着量

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	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>	H <sup>+</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>		nss-Ca <sup>2+</sup>	
						μ S/cm	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	%	meq/m <sup>2</sup>
4月	3月28日	5月2日	35	19	4.40	50.4	1.3	1.0	2.2	1.2	0.4	0.1	0.4	1.5	0.6	2.1	94	1.4	97
5月	5月2日	5月30日	28	274	4.42	24.0	7.9	4.4	11.8	4.8	3.2	0.2	1.6	3.5	10.5	11.2	95	3.3	94
6月	5月30日	6月27日	28	605	4.71	11.4	5.1	4.3	12.8	2.7	2.9	0.3	1.0	2.4	11.9	12.5	97	2.3	95
7月	6月27日	8月1日	35	226	4.48	28.8	22.1	2.3	11.3	16.1	2.4	0.4	3.6	2.2	7.4	9.3	83	1.5	68
8月	8月1日	8月29日	28	139	4.51	17.6	2.1	1.9	5.1	1.8	0.9	0.1	0.4	1.8	4.3	4.9	96	1.8	96
9月	8月29日	9月26日	28	450	5.22	4.9	4.1	1.3	3.6	3.6	0.9	0.1	1.1	1.9	2.7	3.2	88	1.8	92
10月	9月26日	10月24日	28	145	4.62	15.3	3.2	1.9	3.6	2.8	0.3	0.1	0.6	0.9	3.5	3.3	91	0.7	86
11月	10月24日	11月28日	35	188	4.66	15.0	4.2	2.0	4.9	3.9	0.5	0.1	0.9	1.1	4.0	4.4	90	0.9	84
12月	11月28日	12月26日	28	63	4.73	14.7	0.9	0.7	1.9	0.8	0.3	0.0	0.3	0.7	1.2	1.8	95	0.7	95
1月	12月26日	1月30日	35	37	4.19	53.7	4.1	2.4	3.2	3.1	1.1	0.1	0.9	1.3	2.3	2.8	88	1.1	89
2月	1月30日	2月27日	28	138	4.23	35.0	3.1	4.5	9.7	2.5	2.7	0.2	0.5	1.6	7.9	9.4	97	1.5	93
3月	2月27日	4月2日	35	149	4.24	35.1	4.8	4.6	9.5	3.9	2.1	0.2	1.1	2.4	8.5	9.1	95	2.3	93
年間値	3月28日	4月2日	371	2,432	4.57	17.8	62.8	31.4	79.7	47.2	17.7	1.8	12.3	21.3	64.8	74.0	93	19.2	90

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	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>	H <sup>+</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>		nss-Ca <sup>2+</sup>	
						μ S/cm	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	%	meq/m <sup>2</sup>
4月	3月28日	5月2日	35	43	4.75	26.7	1.8	1.7	3.9	1.4	1.3	0.4	0.6	2.7	0.8	3.7	96	2.6	98
5月	5月2日	5月30日	28	273	4.78	10.6	2.7	1.4	5.4	0.7	2.2	0.2	0.4	1.3	4.2	5.3	98	1.3	98
6月	5月30日	7月4日	35	611	4.99	5.1	2.1	2.2	6.9	1.0	2.7	0.3	0.4	1.4	6.3	6.8	98	1.4	97
7月	7月4日	8月1日	28	259	4.73	13.1	4.9	2.4	9.1	3.0	5.0	0.3	0.9	1.3	4.8	8.7	96	1.1	90
8月	8月1日	8月29日	28	294	4.76	13.0	2.4	4.3	8.7	1.2	5.3	0.2	0.4	1.0	5.1	8.5	98	0.9	95
9月	8月29日	9月26日	28	123	5.25	6.8	3.5	0.6	1.0	2.1	1.3	0.2	0.4	0.5	0.7	0.8	75	0.4	82
10月	9月26日	10月31日	35	118	4.77	13.8	3.4	1.5	3.0	2.4	1.6	0.2	0.5	1.0	2.0	2.7	90	0.9	90
11月	10月31日	12月5日	35	249	4.89	11.3	4.8	1.5	6.1	3.1	1.9	0.4	1.0	1.2	3.2	5.7	94	1.1	89
12月	12月5日	1月4日	30	33	4.43	34.3	2.7	1.5	2.3	1.8	1.4	0.1	0.5	0.7	1.2	2.1	91	0.7	89
1月	1月4日	1月30日	26	21	4.68	20.0	0.4	0.2	0.8	0.4	0.2	0.1	0.1	0.2	0.4	0.7	93	0.2	92
2月	1月30日	2月27日	28	147	4.62	26.1	8.3	3.5	8.3	7.7	3.5	0.9	1.8	3.3	3.5	7.4	89	3.0	90
3月	2月27日	3月26日	28	143	4.87	16.8	2.1	2.5	6.1	1.7	2.0	0.3	1.0	4.8	1.9	5.9	97	4.7	98
年間値	3月28日	3月26日	364	2,313	4.83	11.9	39.1	23.2	61.5	26.5	28.3	3.6	8.0	19.5	34.1	58.4	95	18.3	94

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	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>	H <sup>+</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>		nss-Ca <sup>2+</sup>	
						μ S/cm	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	meq/m <sup>2</sup>	%	meq/m <sup>2</sup>
4月	3月28日	4月27日	30	45	4.26	48.4	3.8	2.4	4.9	1.0	3.2	0.3	0.7	2.1	2.5	4.8	97	2.1	98
5月	4月27日	5月23日	26	141	4.36	27.3	4.4	1.6	8.5	1.4	0.7	0.3	1.1	3.1	6.2	8.3	98	3.0	98
6月	5月23日	6月20日	28	632	4.91	8.3	3.3	2.8	10.5	1.5	2.2	0.3	0.8	2.0	7.8	10.3	98	1.9	97
7月	6月20日	8月1日	42	481	4.65	14.1	3.8	3.7	16.0	3.0	5.2	0.3	0.7	1.2	10.7	15.6	98	1.1	90
8月	8月1日	8月29日	28	332	4.67	15.0	3.2	4.1	9.3	2.6	4.1	0.2	0.7	0.9	7.2	9.0	97	0.7	87
9月	8月29日	9月26日	28	220	5.40	3.0	1.5	0.2	0.8	1.2	0.2	0.1	0.3	0.4	0.9	0.7	83	0.3	86
10月	9月26日	10月24日	28	91	4.81	9.6	1.0	0.2	2.0	0.9	0.0	0.0	0.2	0.3	1.4	1.8	94	0.3	87
11月	10月24日	11月21日	28	177	4.70	14.3	4.0	0.7	4.3	2.9	0.6	0.0	0.7	0.4	3.5	4.0	92	0.3	71
12月	11月21日	12月19日	28	71	4.72	14.7	1.6	0.8	1.9	1.3	0.4	0.0	0.4	0.8	1.4	1.8	92	0.7	92
1月	12月19日	1月31日	43	36	4.36	31.0	1.3	1.1	1.7	1.0	0.2	0.0	0.3	0.5	1.5	1.5	93	0.5	92
2月	1月31日	2月27日	27	180	4.41	23.3	3.3	1.7	9.0	1.1	2.8	0.2	0.3	1.5	7.0	8.9	98	1.4	97
3月	2月27日	3月26日	28	211	4.61	19.3	2.3	2.8	8.9	1.1	3.7	0.3	0.4	2.3	5.2	8.8	99	2.3	98
年間値	3月28日	3月26日	364	2,618	4.67	14.4	33.5	22.1	77.8	19.2	23.4	2.0	6.4	15.5	55.3	75.5	97	14.7	95

表4 イオン成分沈着量年変化率 (2004 ~ 2011年度)

大分市

(%・year-1)

	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	H <sup>+</sup>
春季	-5.0	-6.0	-9.3	-14.6	-0.2
夏季	-0.1	1.1	0.5	4.5	0.1
秋季	1.7	0.7	-5.6	0.7	2.6
冬季	2.7	2.7	4.0	-4.0	10.1
年間	0.8	0.9	-1.0	-2.3	3.5

日田市

	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	H <sup>+</sup>
春季	-4.7	-6.5	-1.0	-7.1	2.3
夏季	0.6	6.6	10.9	-0.2	-5.0
秋季	-2.6	-0.7	7.3	-3.1	5.2
冬季	3.5	2.7	4.0	-4.0	10.1
年間	-4.3	2.4	3.6	-3.7	-3.0

久住町

	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	H <sup>+</sup>
春季	-1.8	-1.2	-9.8	1.2	-0.2
夏季	1.5	1.2	1.2	2.6	-1.8
秋季	1.8	-5.2	-17.6	-3.5	5.5
冬季	-3.7	-7.1	-3.8	-10.3	6.5
年間	-0.7	-2.5	-5.5	-3.3	1.4

# 大分県沿岸域における海水温等の変動傾向について

中村 千晴、村上 泰隆\*、入江 久生

## Trends of the Seawater Quality on the Coast of Oita Prefecture

Chiharu Nakamura, Yasutaka Murakami, Hisao Irie

Key words : 傾向 trend, 移動平均 moving average, ダミー変数 dummy variable

### はじめに

近年、日本沿岸域では水温上昇や、A類型に指定されている非汚濁海域での化学的酸素要求量(COD)漸増傾向や環境基準超過が報告されている。また、汚濁負荷が減少している海域においても以前として赤潮等の被害が発生している。

こうした水質汚濁の原因として海水温の上昇が影響を与えているとの指摘があることから、国立環境研究所と地方環境研究所で「地球温暖化がもたらす日本沿岸域の水質変化とその適応策に関する研究」(2008年度から2010年度)及び「沿岸海域環境の診断と地球温暖化の影響評価のためのモニタリング手法の提唱」(2011年度から)と題して共同研究を行った。その中で、大分県沿岸域における水温等の変動傾向について解析を試みたので報告する。

### 材料及び方法

#### 1 使用データ

水質汚濁防止法に基づき、大分県では1970年代から公共用水域の常時監視を行っている。その際、水温を初めさまざまな項目について水質測定を行っており、実測データが蓄積している。そのため、この実測データを利用し大分県沿岸の海水温等の長期的な変動傾向を解析した。解析を行った項目及び測定方法は、表1のとおりである。

表1 解析項目及び測定方法

解析項目	測定方法
水温	棒状温度計及びデジタル温度計*により測定
化学的酸素要求量(COD)	COD <sub>Mn</sub> 法 (JIS K 0102 17)
溶存酸素量(DO)	よう素滴定法 (JIS K 0102 32)
クロロフィルa	吸光光度法(ストリックランドアンドパーソン法)

\*1980年頃からデジタル温度計を使用

また気温については、大分地方気象台測定データ<sup>1)</sup>を用いた。

#### 2 解析地点

本県では、54地点の環境基準点及び補助点において水質測定を行っている。この中から、欠測や年間測定回数、採水月等の変更が比較的少なく、河川水や事業場排水の影響が少ない国東半島地先Kst-3、別府湾Bst-19、佐伯湾Sst-9の3地点を選定し、これらの地点の表層について解析した。

また気温については、上記地点に近い国見、杵築、佐伯の3地点について解析した。(図1)



図1 解析地点

\*西部保健所衛生課

### 3 解析方法

表1の項目について、12か月移動平均による単回帰分析で解析した。

なお水温については、季節変動による影響が大きいため、ダミー変数を用いた重回帰分析により月毎に説明変数を設定し、解析を行った。<sup>2)、3)、4)</sup>

### 4 解析期間

公共用水域の常時監視データが電子化されて残っている1980年度から2009年度の30年間を解析期間とした。

しかし、前頁のとおり選定した3地点についても、表2に示すとおり過去に採水月等が変更されている。そのため12か月移動平均による単回帰分析においては、毎月採水している期間は偶数月のデータを採用し、6か月分のデータを平均したものとした。ただし、気温については12か月分のデータを平均し解析した。

表2 解析地点における採水月の詳細

解析地点	採水の詳細
Kst-3	1980年度～1985年度毎月採水
	1986年度～1999年度2ヶ月に一度偶数月採水
	2000年度～2009年度2ヶ月に一度奇数月採水
Bst-19	1980年度～1999年度毎月採水
	2000年度～2009年度2ヶ月に一度偶数月採水
Sst-9	1980年度～1985年度毎月採水
	1986年度～1993年度2ヶ月に一度偶数月採水
	1994年度～1999年度2ヶ月に一度奇数月採水
	2000年度～2009年度2ヶ月に一度偶数月採水

※一部採水月の変更、欠測あり

### 結果及び考察

12か月移動平均による単回帰分析の結果を表3に示す。気温、水温、CODについては3地点とも表3のとおり、t検定において5%危険率で有意な上昇傾向となり、DOについては減少傾向となった。

表3 12か月移動平均による単回帰分析の結果

項目	地点	傾向	単位
気温	国見	0.054 *	℃ / 年
	杵築	0.061 *	
	佐伯	0.053 *	
水温	Kst-3	0.030 *	℃ / 年
	Bst-19	0.049 *	
	Sst-9	0.017 *	
COD	Kst-3	0.005 *	mg · L <sup>-1</sup> / 年
	Bst-19	0.005 *	
	Sst-9	0.007 *	
DO	Kst-3	-0.005 *	mg · L <sup>-1</sup> / 年
	Bst-19	-0.005 *	
	Sst-9	-0.015 *	
クロロフィル a	Kst-3	0.035 *	μg · L <sup>-1</sup> / 年
	Bst-19	0.007	
	Sst-9	0.019 *	

\* : 危険率<5%

クロロフィル a については、過去のデータの一部分が電子化されていなかったため、Kst-3は1991年度から、Sst-9は1986年度からのデータを解析した。その結果、Kst-3とSst-9では5%危険率で有意な上昇傾向であったが、Bst-19では5%危険率で有意とはならなかった。

これらの結果から1980～2009年度の30年間で気温1.59～1.83℃、水温0.51～1.47℃の上昇が示された。

さらに、気温と水温の関係について相関係数を算出したところ、表4のとおり高い相関関係があることが確認された。

表4 各地点の水温と気温の相関係数

水温地点	気温地点	相関係数
Kst-3	国見	0.83
Bst-19	杵築	0.80
Sst-9	佐伯	0.88

また、CODとDOについてはそれぞれ上昇傾向及び減少傾向が確認されたため、水温との関係について相関係数を算出したところ、COD、DOともに相関関係は見られなかった。気温上昇が水温上昇に影響を与え、さらに水温上昇により水質が変化し、COD等に影響が出るのではないかと予測したが、今回の方法では明確な関係を示す結果は得られなかった。

ダミー変数を用いた水温の重回帰分析の結果は表

5のとおりである。解析期間は上記30年間に加え、気温上昇が顕著といわれる1999年度までとそれより後に分けて検討した。

その結果、1980～2009年度の30年間と1980～1999年度の20年間では3地点とも、表5のとおり有意な上昇傾向を示した。さらに1980～1999年度の20年間の傾向は、1980～2009年度の30年間と比較して大きくなった。2000～2009年度については、5%危険率で有意とはならなかった。

表5 ダミー変数を用いた水温の重回帰分析の結果

年度	地点	傾向	単位
1980～2009	Kst-3	0.048 *	℃ / 年
	Bst-19	0.047 *	
	Sst-9	0.026 *	
1980～1999	Kst-3	0.066 *	
	Bst-19	0.073 *	
	Sst-9	0.042 *	
2000～2009	Kst-3	0.023	
	Bst-19	0.028	
	Sst-9	0.003	

\*：危険率<5%

有意性が確認された2期間について、水温の上昇量を算出すると、1980～2009年度の30年間では水温が0.78～1.44℃、1980～1999年度の20年間では0.84～1.46℃であることが示され、1980～1999年度の20年間に水温が大きく上昇していると考えられた。

参 考 文 献

- 1) 大分地方気象台ホームページ：http://www.jma-net.go.jp/oita/
- 2) 二宮勝幸、柏木宣久：単回帰分析による季節時系列のトレンド推定の問題点,横浜市環境科学研究所報,34,43-45 (2010)
- 3) 二宮勝幸、柏木宣久、岡敬一、岩渕美香、飯島恵：東京湾西部海域における表層水温のトレンドーダミー変数を用いた重回帰分析による推定ー,横浜市環境科学研究所報,34,46-51 (2010)
- 4) 村上泰隆：地方公共団体環境研究機関等と国立環境研究所とのC型共同研究「地球温暖化がもたらす日本沿岸域の水質変化とその適応策に関する研究」大分県報告書

# 大分県における温泉の泉質について —温泉法改正に伴う温泉水再分析結果について—

佐藤 洋子、鈴木 龍一\*、入江 久生

## The quality of the Hot Springs of Oita Prefecture -Regarding the Hot Spring Water Reanalysis Results Associated with the Hot Spring Law Revision-

Yoko Sato, Ryuichi Suzuki, Hisao Irie

Key words : 温泉法改正 hot spring law revision, 温泉水 hot spring water, 再分析結果 reanalysis result

### 要 旨

2007年（平成19年）に温泉法が改正され、源泉の所有者に10年毎の温泉成分の再分析が義務づけられた。大分県衛生環境研究センターでは2009年度から2011年度の3年間に行った再分析結果を用い、同一地点の過去の結果と比較し泉質の変化について検討した。その結果、19地点中9地点において泉質名又は鉱泉の区分の変化があった。その他の地点についても泉温、pH、蒸発残留物、温泉水中に含まれるイオン成分の割合の増減があることがわかった。

### はじめに

大分県は、全国でも有数の温泉県である。平成22年度における源泉総数は4,538孔、湧出量は291,340L/分であり、ともに全国1位となっている<sup>1)</sup>。

温泉の泉質は、過剰採取や乱掘削等により変化することがあり<sup>2)</sup>、そのような場合には再分析をする必要があると言われてきた<sup>3)</sup>。そこで、大分県では行政指導<sup>3)</sup>によりおおむね10年毎に温泉事業者等に再分析を行うよう指導してきた。しかし、使用中の温泉すべての再分析を行うまでには至っていなかった。そのような中、温泉の利用者に適切な情報を提供するという主旨で2007年に温泉法が改正された。この改正により、すべての温泉事業者等は10年毎に再分析を行わなければならなくなった<sup>4)</sup>。

本報は、この法改正により得られた温泉の再分析結果と同一地点の以前の分析結果を比較し、泉質の変化について考察したものである。

### 材料及び方法

#### 1 調査対象

大分県衛生環境センターで2009年度から2011年度に分析を実施した温泉調査地点のうち、前回の調査（1980年度から2008年度）と泉源の位置と掘削深度が同一であった19地点を対象とした。（以下、2009年度から2011年度に分析を行った温泉調査を「本調査」、1980年度から2008年度に分析を行った温泉調査を「前調査」とする。）

調査対象源泉の湧出地及び泉質名等を図1及び表1



図1 調査対象地点数

\*大気・特定化学物質担当

表1 再分析の概要 (泉質名・鉱泉区分等の変化)

No.	市町村名	温泉地名	泉質		泉質名、鉱泉区分変更の要因等	泉質変化あり：○
			前調査 結果	本調査 結果		
1	宇佐市	平原温泉	Na-Cl泉 (低張性 アルカリ性 高温泉)	1993.2 → 単純温泉 (低張性 弱アルカリ性 高温泉)	2009.12 溶存物質量の減少 pH下降 (8.5→8.3)	○
2	中津市	西谷温泉	単純温泉 (低張性 弱アルカリ性 温泉)	1996.6 → アルカリ性単純温泉 (低張性 アルカリ性 高温泉)	2009.11 pH上昇 (8.4→9.1) 泉温上昇 (41.4℃→43.7℃)	○
3	中津市	宇曾温泉	アルカリ性単純温泉 (低張性 アルカリ性 低温泉)	1994.9 → 単純温泉 (低張性 弱アルカリ性 低温泉)	2010.1 pH下降 (8.6→8.2)	○
4*	別府市	別府温泉	Na・Mg・Ca-HCO <sub>3</sub> ・Cl泉 (低張性 弱アルカリ性 高温泉)	2005.11 → 単純温泉 (同 左)	2011.8 溶存物質量の減少	○
5	別府市	別府温泉	Na-HCO <sub>3</sub> ・SO <sub>4</sub> ・Cl泉 (低張性 弱アルカリ性 高温泉)	1984.9 → Na-HCO <sub>3</sub> ・SO <sub>4</sub> 泉 (同 左)	2009.11 Clの割合減少	○
6	別府市	別府温泉	Na・Mg-HCO <sub>3</sub> 泉 (低張性 弱アルカリ性 高温泉)	1982.11 → 単純温泉 (同 左)	2009.9 溶存物質量の減少	○
7	別府市	別府温泉	Na-Cl泉 (低張性 アルカリ性 高温泉)	1988.7 → 含S-Na-Cl・SO <sub>4</sub> 泉 (同 左)	2012.2 H <sub>2</sub> S等の割合増加 SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> の割合増加	○
8	別府市	別府温泉	Na・Mg・Ca-HCO <sub>3</sub> ・Cl泉 (低張性 中性 高温泉)	1981.3 → 単純温泉 (低張性 弱アルカリ性 高温泉)	2009.12 溶存物質量の減少 pH上昇 (7.1→7.5)	○
9*	別府市	別府温泉	Na-Cl・SO <sub>4</sub> 泉 (低張性 弱アルカリ性 高温泉)	2005.11 → 同 左 (同 左)	2011.8	
10	由布市 湯布院町	由布院温泉	アルカリ性単純温泉 (低張性 アルカリ性 高温泉)	1998.2 → 同 左 (同 左)	2010.11	
11*	由布市 湯布院町	由布院温泉	単純温泉 (低張性 弱アルカリ性 温泉)	2005.11 → アルカリ性単純温泉 (低張性 アルカリ性 温泉)	2011.7 pH上昇 (8.4→8.7)	○
12*	由布市 湯布院町	由布院温泉	単純温泉 (低張性 弱アルカリ性 高温泉)	2005.11 → 同 左 (同 左)	2011.7	
13*	由布市 湯布院町	湯平温泉	Na-Cl・HCO <sub>3</sub> 泉 (低張性 アルカリ性 高温泉)	2005.11 → 同 左 (同 左)	2011.7	
14*	竹田市 直入町	長湯温泉	Mg・Na・Ca-HCO <sub>3</sub> 泉 (低張性 中性 高温泉)	2005.11 → 同 左 (同 左)	2011.7	
15*	日田市 天瀬町	天ヶ瀬温泉	単純温泉 (低張性 中性 高温泉)	2005.11 → 同 左 (同 左)	2011.8	
16	日田市 天瀬町	天ヶ瀬温泉	単純温泉 (低張性 弱アルカリ性 高温泉)	1993.11 → 同 左 (同 左)	2010.1	
17*	九重町	宝泉寺温泉	Na-Cl泉 (低張性 アルカリ性 高温泉)	2006.11 → 同 左 (同 左)	2011.7	
18	九重町	川底温泉	単純温泉 (低張性 弱アルカリ性 高温泉)	1993.11 → 同 左 (同 左)	2009.10	
19*	大分市	大分温泉	Na-HCO <sub>3</sub> ・Cl泉 (低張性 中性 温泉)	2008.11 → 同 左 (同 左)	2011.7	

備考1 \* 経年変化調査している地点 (泉源の位置と掘削深度が同一であった結果を取り上げるため、本調査と前調査の間隔が10年より短くなっている)  
備考2 下線部は前調査から本調査の変更点

に示した。表1の\*地点は経年変化を調査している地点であるため、本調査と前調査の間隔が10年より短くなっている。

## 2 調査項目

泉温、pH値、蒸発残留物、溶存物質合計量 (ガス成分は除く) と主要化学成分である、ナトリウムイオン (以下「Na<sup>+</sup>」)、カリウムイオン (以下「K<sup>+</sup>」)、マグネシウムイオン (以下「Mg<sup>2+</sup>」)、カルシウムイオン (以下「Ca<sup>2+</sup>」)、塩化物イオン (以下「Cl<sup>-</sup>」)、硫酸イオン (以下「SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>」)、炭酸水素イオン (以下「HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>」)、炭酸イオン (以下「CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>」)、の12項目とし、分析方法は鉱泉分析法指針<sup>5)</sup>により行った。

## 結果及び考察

### 1 泉質名、鉱泉の区分の比較

結果は、表1のとおりであった。19地点中9地点で、本調査と前調査の間に泉質名が変わっていた。温泉には主要化学成分の割合等で決定する泉質名の

ほかに、泉温、液性 (pH)、浸透圧により区分する鉱泉としての分類がある。今回、泉質名が変わった9地点のうち5地点で鉱泉の区分についても変更があった。鉱泉の区分が変わった理由は、泉温の上昇、pHの変動のためだった。

## 2 項目別の変化

### 2.1 泉温

表2に鉱泉分析法指針による泉温の分類を示した。本県の温泉の特徴は42℃以上の高温泉が多いことである<sup>1)</sup>。調査対象地点の泉温変化について、10℃以上の上昇と下降、5℃以上10℃未満の上昇と下降、5℃未満の変動の5段階に分けて表3にまとめた。調査対象19地点のうち、13地点の泉温変化は5

表2 泉温による分類

種類		泉温
冷	鉱泉	25℃未満
低	温泉	25℃以上34℃未満
温	泉	34℃以上42℃未満
高	温泉	42℃以上

表3 泉温の変化

調査地点	低下		変動 5℃未満	上昇		地点数
	10℃以上	5℃以上10℃未満		5℃以上10℃未満	10℃以上	
宇佐市			1			1
中津市			2			2
別府市	1	1	4			6
由布市湯布院町		1	2	1		4
竹田市直入町			1			1
日田市天瀬町			1	1		2
九重町	1		1			2
大分市			1			1
計	2	2	13	2	0	19

℃未満であったが、2地点で10℃以上の変化があった。

泉温の区分変化については1地点で41.4℃から43.7℃に上昇することによる温泉から高温泉への変化があった。

## 2.2 pH

表4に鉱泉分析法指針によるpHの分類を示した。今回の調査で、pHの変動により鉱泉の区分が変化したのは5地点であった。アルカリ性と弱アルカリ性の境界であるpH8.5の前後で変動した地点が4地点、中性から弱アルカリ性に変わった地点が1地点であった。

表4 pHによる分類

種類	泉温
酸性	pH3未満
弱酸性	pH3以上6未満
中性	pH6以上7.5未満
弱アルカリ性	pH7.5以上8.5未満
アルカリ性	pH8.5以上

## 2.3 溶存物質合計量、蒸発残留物

溶存物質合計量（ガス成分は除く）は、溶存成分の分析値の合計で、Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Ca<sup>2+</sup>、Cl<sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>、CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>等のイオン成分とメタホウ酸、メタケイ酸、メタ亜ヒ酸等の非解離成分の分析結果の合計で表される。溶存物質合計量が1000mg/kg以上のものを塩類泉と言い、塩類泉は塩化物泉、硫酸塩泉および炭酸水素塩泉に分類される。

19地点の溶存物質合計量の変化幅の分布を表5にまとめた。表1に示すように19地点のうち4地点で

溶存物質合計量が減少したため、泉質名が塩類泉から単純温泉に変化した。これらのうち2地点は、溶存物質合計量（ガス成分は除く）の境界（1000mg/kg）を100mg/kg未満とわずかに下まわったための変化であった。

温泉成分分析では蒸発残留物という項目も分析する。蒸発残留物は、試料を水浴上で蒸発乾固し、110℃で乾燥したときに残る物質の量である。表6に溶存物質合計量と同様、19地点の蒸発残留物の変動幅の分布をまとめた。

溶存物質合計量と蒸発残留物は、同一試料でも等しくならない。その理由は、試料を蒸発乾固する過程で、溶存していた二酸化炭素が気相にぬけ、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>がNa<sup>+</sup>やCa<sup>2+</sup>と炭酸塩を作ること、ケイ酸（H<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub>）が二酸化ケイ素（SiO<sub>2</sub>）などとして残留すること等が考えられる<sup>6)</sup>。

再分析の結果、溶存物質合計量と蒸発残留物が本調査と前調査の間で同じように100mg/kg以上の変化をしていた地点は、5地点であった。

## 2.4 主要化学成分

本調査と前調査の変化を、Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Ca<sup>2+</sup>、Cl<sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>、CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>の組成比をもとに比較した。組成比の比較には、トリリニヤーダイアグラムを用いた。トリリニヤーダイアグラムはキーダイアグラムによる水質区分にくわえ、3成分三角図で陽・陰イオンの主要成分の個々の比率を明瞭に把握することができる。

トリリニヤーダイアグラムは、対象水の主要陽イオン（Na<sup>+</sup>+K<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Ca<sup>2+</sup>）と陰イオン（Cl<sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>+CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>）を3成分系としてあらわす1対の三角図とキーダイアグラムとで構成される。



表5 溶存物質合計（ガス成分を除く）1kgあたりの変化

調査地点	変動幅			地点数
	100mg以上 低下	100mg未満	100mg以上 上昇	
宇 佐 市		1		1
中 津 市	1	1		2
別 府 市	2	4		6
由 布 市 湯 布 院 町	1	2	1	4
竹 田 市 直 入 町			1	1
日 田 市 天 瀬 町	1	1		2
九 重 町	1	1		2
大 分 市	1			1
計	7	10	2	19

表6 蒸発残留物1kgあたりの変化

調査地点	変動幅			地点数
	100mg以上 低下	100mg未満	100mg以上 上昇	
宇 佐 市			1	1
中 津 市	1	1		2
別 府 市	2	4		6
由 布 市 湯 布 院 町		3	1	4
竹 田 市 直 入 町		1		1
日 田 市 天 瀬 町		2		2
九 重 町	1	1		2
大 分 市		1		1
計	4	13	2	19

キーダイヤグラムは図2中の菱形のように、対象水の主要イオンを陽イオン・陰イオンの当量百分率で表し、4成分菱形図としたものである。このキーダイヤグラムはⅠ～Ⅳの領域にわけられる。下記に各領域を占める特徴的な水の種類を示す<sup>6)</sup>。

区分	水質	水の種類
Ⅰ	アルカリ土類重炭酸塩	河川水・浅層地下水
Ⅱ	アルカリ重炭酸塩	深層地下水
Ⅲ	アルカリ土類非重炭酸塩	鉱山、火山性の水
Ⅳ	アルカリ非炭酸塩	化石水的性質を持つ水（海水等）

今回調査対象とした19地点の本調査と前調査を比較したところ、図2に示したようにキーダイヤグラム上で領域の変化がみられた地点が4地点あった。領域ⅡからⅠへの移動が1地点、領域ⅣからⅡ

への移動が3地点であった。表7に4地点の本調査と前調査の結果を示す。

No.6は、 $\text{Na}^+$ と $\text{K}^+$ の合計量と $\text{Ca}^{2+}$ の減少、 $\text{Mg}^{2+}$ の増加のため、キーダイヤグラム上で深層地下水が多く区分される領域Ⅱから河川水・浅層地下水が多く区分されるⅠへ移動した。

No.2、10、18は、 $\text{Cl}^-$ の減少、 $\text{HCO}_3^-$ と $\text{CO}_3^{2-}$ の合計量の増加のため、キーダイヤグラム上で化石水的性質を持つ水（海水等）が多く区分される領域Ⅳから深層地下水が多く区分される領域Ⅱへ移動した。

これらのことから、温泉水中に含まれるイオン成分の割合が、10年以上の年月の間に変化していたことが確認できた。

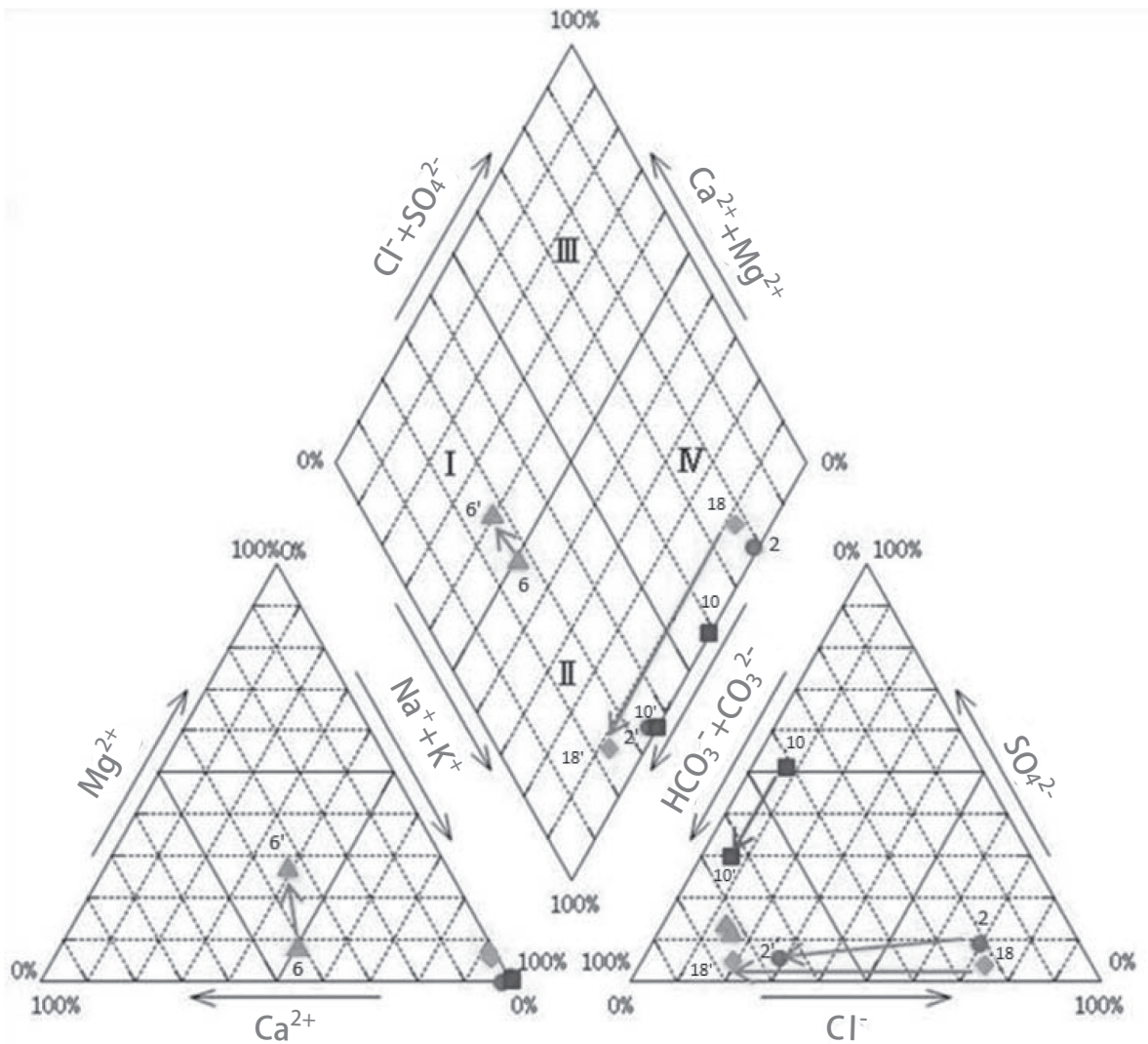


図2 トリリニャーダイヤグラム (meq%)

表7 図2中の4地点の本調査と前調査

No.	記号	市町村名	温泉地	調査年.月	泉温 (℃)	pH 値 (湧出地)	溶存物質合計量 (ガス成分を除く) (mg/kg)	泉質
2	●	中津市	西谷温泉	前調査 1996.6	41.4	8.4	894	単純温泉
				本調査 2009.11	43.7	9.1	259	アルカリ性単純温泉
6	▲	別府市	別府温泉	前調査 1982.11	60.6	8.4	1689	Na・Mg - HCO <sub>3</sub> 泉
				本調査 2009.9	56.2	7.9	837	単純温泉
10	■	湯布院町	由布院温泉	前調査 1998.2	51.9	9.0	414	アルカリ性単純温泉
				本調査 2010.11	43.6	9.2	297	アルカリ性単純温泉
18	◆	九重町	川底温泉	前調査 1993.11	69.9	8.3	690	単純温泉
				本調査 2009.10	59.5	7.8	620	単純温泉

表8 前調査と本調査

No.	市町村名	温泉地	調査区分	泉温 (℃)	pH 値 (湧出地)	溶存物質合計量 (ガス成分を除く) (mg /kg)	蒸発残留物 (mg /kg)	トリリニャーダイ アグラム領域区分
1	宇佐市	平原温泉	前調査	69.5	8.5	1062	507.0	IV
			本調査	65.8	8.3	980	924.3	IV
2	中津市	西谷温泉	前調査	41.4	8.4	894	856.4	IV
			本調査	43.7	9.1	259	235.9	II
3	中津市	宇曾温泉	前調査	32.8	8.6	387	245.4	II
			本調査	31.0	8.2	396	220.8	II
4	別府市	別府温泉	前調査	49.0	7.9	1007	769.0	II
			本調査	49.8	7.5	929	701.0	II
5	別府市	別府温泉	前調査	55.1	8.4	1142	890.0	II
			本調査	48.3	8.1	1188	966.0	II
6	別府市	別府温泉	前調査	60.6	8.4	1689	1313.0	II
			本調査	56.2	7.9	837	655.0	I
7	別府市	別府温泉	前調査	99.2	9.1	1710	1798.0	IV
			本調査	94.4	9.1	1771	1809.0	IV
8	別府市	別府温泉	前調査	56.5	7.1	1215	875.0	II
			本調査	45.4	7.5	936	685.7	II
9	別府市	別府温泉	前調査	71.0	7.8	1688	1547.0	IV
			本調査	72.0	7.6	1717	1555.0	IV
10	由布市 湯布院町	由布院温泉	前調査	51.9	9.0	414	340.4	IV
			本調査	43.6	9.2	297	247.0	II
11	由布市 湯布院町	由布院温泉	前調査	37.6	8.4	254	212.6	II
			本調査	38.1	8.7	326	215.0	II
12	由布市 湯布院町	由布院温泉	前調査	55.5	8.1	690	513.0	II
			本調査	56.7	8.2	687	510.0	II
13	由布市 湯布院町	湯平温泉	前調査	57.1	8.5	1208	964.0	IV
			本調査	65.6	8.6	1553	1301.0	IV
14	竹田市 直入町	長湯温泉	前調査	48.4	6.7	4544	3128.0	I
			本調査	47.6	7.0	4644	3207.0	I
15	日田市 天瀬町	天ヶ瀬温泉	前調査	55.4	7.0	671	547.0	IV
			本調査	64.0	7.4	278	596.0	IV
16	日田市 天瀬町	天ヶ瀬温泉	前調査	44.6	8.2	345	261.8	II
			本調査	43.4	8.2	398	260.1	II
17	九重町	宝泉寺温泉	前調査	96.1	8.7	2206	1929.2	IV
			本調査	98.0	8.7	1866	1906.0	IV
18	九重町	川底温泉	前調査	69.9	8.3	690	600.6	IV
			本調査	59.5	7.8	620	423.0	II
19	大分市	大分温泉	前調査	36.3	6.8	4731	3522.0	II
			本調査	36.6	7.1	4552	3453.0	II

## ま と め

本調査と前調査で同一地点を調査した19地点のうち、泉質名の変化があったのは9地点であり、そのうち、鉱泉の区分についても5地点で変化があった。その他の地点についても泉温、pH、蒸発残留物、温泉水中に含まれるイオン成分の割合の増減があった。これらのことから、大分県の温泉についても温泉中の成分が変化していたことが確認できた。

また今回、泉質名の変化があった地点のひとつに、硫化水素の濃度が上昇していた地点があった。硫化水素含有泉はその利用にあたって温泉利用施設の換気に十分注意する必要がある。利用者の健康を守り、様々な泉質をもつ大分県の温泉をより良く利用していただくという観点からも、定期的に再分析を行い、適切な温泉の利用を推進する必要がある。

## 謝 辞

今回の温泉情報及び参考文献の収集においては、(財)中央温泉研究所、別府市役所ONSEN ツーリズム部温泉課、大分県生活環境企画課、関係保健所の皆様にご指導・ご協力をいただき深く感謝いたします。

## 参 考 文 献

- 1) 環境省監修：平成22年度温泉利用状況報告
- 2) 地下水ハンドブック編集委員会：地下水ハンドブック、155-166、1980年11月、(株)建設産業調査会
- 3) 昭和53年5月15日付け環自施第213号 環境庁自然保護局施設整備課長通知「鉱泉分析法指針の改訂について」
- 4) 環境省監修：「温泉法改正のあらまし」、平成19年10月
- 5) 環境省自然保護局監修：鉱泉分析法指針(改訂)、平成14年3月
- 6) 水収支研究グループ編：地下水資源・環境論－その理論と実践－、148-149,152-154 (1993)、共立出版株式会社

## (1) 他誌等掲載論文

表 題	著 者	学 会 誌 名	卷 (No) , ページ , 年
Commercially Distributed Meat as a Potential Vehicle for Community-Acquired Methicillin-Resistant <i>Staphylococcus aureus</i>	<u>Kikuyo Ogata,</u> Hiroshi Narimatsu, Masahiro Suzuki, Wataru Higuchi, Tatsuo Yamamoto, and Hatsumi Taniguchi	Applied and Environmental Microbiology	78(8), 2797-2802, 2012

## (2) 学会等発表演題

表 題	発 表 者	学 会 名	会 期	会 場
ストレス耐性との関連における腸炎ビブリオの分布状況の解析	○長谷川朗生、工藤由起子、緒方喜久代、小西良子、熊谷進	第101回日本食衛生学会学術講演会	2011.5.16 ~ 17	東京都
2007年から2010年に分離された <i>Streptococcus pyogenes</i> の薬剤耐性株検出状況について	○奥野ルミ、藤元琢也、遠藤美代子、保科清、小黒祐子、嶋智子、勝川千尋、富永潔、緒方喜久代、貞升健志、甲斐明美	第43回レンサ球菌感染症研究会	2011.6.17 ~ 18	東京都
MOLECULAR EPIDEMIOLOGY OF GROUP A STREPTOCOCCUS ISOLATED FROM PATIENTS WITH SEVERE INVASIVE INFECTIONS IN JAPAN DURING 2004-2010	○Tadayoshi Ikebe, Chihiro Katsukawa, Hitomi Ohya, Rieko Suzuki, Yuuko Oguro, Kiyoshi Tominaga, Tomoko Shima, Junko Isobe, Kikuyo Ogata, Rumi Okuno, Yumi Uchitani, Yuki Tada, Makoto Ohnishi, Haruo Watanabe	第84回日本細菌学会総会	2011.9.6 ~ 10	札幌市
DRUG RESISTANCE AND T SEROTYPES OF <i>Streptococcus pyogenes</i> ISOLATES FROM CLINICAL SPECIMENS OBTAINED IN JAPAN DURING 2007-2010	○Rumi Okuno, Takuya Fujimoto, Miyoko Endoh, Kiyoshi Hoshina, Yuuko Oguro, Tomoko Sima, Tihiro Katsukawa, Kiyoshi Tominaga, Kikuyo Ogata, Kenji Sadamasu, Akemi Kai	第84回日本細菌学会総会	2011.9.6 ~ 10	札幌市
Characterization of <i>Kluyvera cryocrescens</i> strains harboring a novel variant of blaCTX-M gene isolated from retail poultry in AKITA, Japan.	○J. Yatsuyanagi, S. Saito, Masanori Watahiki, Yutaka Shiraki, Masahiro Suzuki, Fubito Ishiguro, Nami Kanno, Katsuhiko Sunaoshi, Koichi Murakami, Kikuyo Ogata, and Yoshichika Arakawa	第84回日本細菌学会総会	2011.9.6 ~ 10	札幌市
Multilocus Line PCR: A novel epidemiological tool based on the polymorphism of functional gene units	○Masanori Watahiki, Jun Yatsuyanagi, Junko Isobe, Yutaka Shiraki, Masahiro Suzuki, Fubito Ishiguro, Nami Kanno, Atsuko Aoki, Katsuhiko Sunaoshi, Koichi Murakami, Kikuyo Ogata, Takeshi Kurata, and Yoshichika Arakawa	第84回日本細菌学会総会	2011.9.6 ~ 10	札幌市
The analytical study of the diverse strains of <i>Vibrio parahaemolyticus</i> by the tolerances to multiple stresses.	○Akio Hasegawa, Yukiko Hara-Kudo, Kikuyo Ogata, Yoshiko Sugita-Konishi and Susumu Kumagai	第84回日本細菌学会総会	2011.9.6 ~ 10	札幌市
クドア検査法の開発	○小河正雄、若松正人、人見徹、緒方喜久代	第49回大分県感染症研究会例会	2011.9.1	大分東洋ホテル
台所用洗剤の食品混入時の対応について (LC/MS/MSによる洗剤の鑑別方法の検討)	○林 由美、安井 玉樹、森崎 澄江、岡本 盛義	第37回九州衛生環境技術協議会	2011.10.6	熊本市国際交流会館
大分県の呼吸器感染症におけるウイルス検出状況	○加藤聖紀、本田顕子、那須真美子、田中幸代、小河正雄	第37回九州衛生環境技術協議会	2011.10.6	熊本市国際交流会館
事業場排水中の白濁物質の原因調査事例について	佐藤洋子	第37回九州衛生環境技術協議会	2011.10.6	熊本市国際交流会館
大分県における放射能調査	酒盛早美	第53回環境放射能調査研究成果発表会	2011.12.1	文部科学省講堂
大分県における環境中の放射能調査について	酒盛早美	平成23年度環境衛生監視員等事例研究発表会	2012.2.1	大分県庁新館
大分県における福島第一原発事故の放射能影響について	酒盛早美	第57回大分県公衆衛生学会	2012.2.25	大分県医師会館
腸管侵入性大腸菌のゲノム解析	○小椋義俊、大岡唯祐、磯部順子、河野喜美子、勢戸和子、緒方喜久代、林哲也	第6回日本ゲノム微生物学会年会	2012.3.10 ~ 12	東京都

### (3) 講師派遣の状況

課 題	主 催	年 月 日	派遣職員	場 所
生食用生鮮食品を共通食とする原因不明有症状事例について	保健所食品監視機動班	2011.6.7	小河 正雄	衛生環境研究センター
糞便性大腸菌、及びサルモネラ属菌の検査方法について	大分県薬剤師検査センター	2011.6.28	緒方喜久代	薬剤師検査センター
馬肉中の住肉胞子虫について	食品安全・衛生課	2011.6.30	成松 浩志	大分市保健所
腸管出血性大腸菌O111について	保健所食品監視機動班	2011.7.5	緒方喜久代	衛生環境研究センター
腸管出血性大腸菌O111について	健康対策課	2011.7.8	緒方喜久代	衛生環境研究センター
馬肉に寄生する住肉胞子虫について	食品安全・衛生課	2011.7.27	小河 正雄	衛生環境研究センター
収去検査と GLP	食品安全・衛生課	2011.8.17	岡本 盛義 成松 浩志	食肉衛生検査所
食品添加物について	大在西小学校	2011.11.20	岡本 盛義 林 由美 橋口 祥子	大在西小学校
食品衛生検査について	衛生環境研究センター	2011.11.25	小河 正雄	衛生環境研究センター
サポウイルス感染症			加藤 聖紀	
細菌検査（遺伝子検査法）	国立保健医療科学院	2011.11.27 ～12.2	成松 浩志	国立感染症研究所
性感染症	大分県臨床検査技師会	2011.12.3	小河 正雄	平松学園専門学校
ウイルス性胃腸炎	豊肥保健所食品監視機動班	2012.1.13	加藤 聖紀	衛生環境研究センター
レジオネラ属菌の培養検査法と精度管理	全国生活衛生関係技術担当者研修会	2012.2.17	緒方喜久代	厚生労働省
放射能汚染について	大分県職員臨床検査技師会	2012.3.3	上田精一郎	大分県労働福祉会館

大分県衛生環境研究センター年報

第39号

---

平成24年12月1日発行

編集・発行者 大分県衛生環境研究センター

〒870-1117 大分市高江西2丁目8番

TEL (097)554-8980

FAX (097)554-8987

---

印刷所 小野高速印刷株式会社

〒870-0913 大分市松原町2丁目1-6

TEL 097-558-3444

FAX 097-552-2301

---





