

(3) 資 料

- 1) 食品の理化学的検査結果について (2014年度) 49
- 2) 食品の微生物学的検査成績について (2014年度) 52
- 3) 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 (2014年) 55
- 4) 大分県における細菌性下痢症サーベイランスの動向 (2012-2014年) 62
- 5) 感染症発生動向調査からみたウイルスの流行状況 (2014年) 67
- 6) 感染症流行予測調査について (2014年度) 72
- 7) 大分県における雨水成分調査 (2014年度) 74
- 8) 環境水におけるノニルフェノール分析方法の検討 88

食品の理化学的検査結果について (2014年度)

今村 洋貴、岡本 盛義、二宮 健^{*1}、高橋 尚敬、橋口 祥子、衛藤 加奈子、長谷川 昭生

Chemical Examination of Distribution Foods in Oita Prefecture, 2014

Hiroataka Imamura, Moriyoshi Okamoto, Takeshi Ninomiya^{*1}, Naotaka Takahashi,
Shoko Hashiguchi, Kanako Eto, Akio Hasegawa

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

はじめに

2014年度に県下5ブロックの食品衛生監視機動班が、「平成26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」）について報告する。また、行政依頼検査についても報告する。

材料及び方法

1 材料

2014年4月から2015年3月の間に収去した食品216検体及び行政依頼があった試料7検体について実施した。

2 検査方法

2.1 収去検査

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。

また、厚生労働省から「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」が示され、各試験検査機関で実施している食品中の農薬等の試験法について、妥当性評価試験を実施し、確認することと定められた。これを受け、当センターにおいても動物用医薬品及び残留農薬について、試験法の妥当性評価試験を実施しているところである。

2.2 行政依頼検査

フグ毒テトロドトキシン（以下、「TTX」）におい

て、高速液体クロマトグラフ質量分析装置（LC-MS/MS）を用いて、検査を実施した。¹⁾

また、異物の同定において、産業科学技術センター所有機器（大分県試験研究機関設備機器相互利用対象機器）であるエネルギー分散型X線分光分析装置（EDX）を用い、無機元素の定性分析を実施した。

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・国産・輸入食肉及び県産・国産・輸入養殖魚介類89検体について検査を実施した。すべての検体において、いずれの項目も定量下限値未満であった。

2 残留農薬

収去検査において、県産及び輸入野菜・果実30検体について検査を実施した。県産野菜・果実から、アゾキシストロピン、ジフェノコナゾール、チアメトキサム及びトルフェンピラドが検出されたが、すべて基準値未満であった。また、輸入野菜・果実からは、イマザリル、シベルメトリン、チアベンダゾール、ピリプロキシフェン、フルジオキシニル、フルバリネートが検出されたが、すべて基準値未満であった。

3 食品添加物

3.1 漂白剤

収去検査において、県産・国産加工食品15検体について二酸化硫黄の検査を実施した。県産加工食品

*1 大分県立病院薬剤部

2 検体及び国産加工食品 4 検体から検出されたが、すべて基準値未満であった。

3.2 保存料・甘味料

収去検査において、県産・国産加工食品（魚肉ねり製品、漬物、醤油及び食肉製品等）の合計45検体について保存料（ソルビン酸、デヒドロ酢酸、安息香酸及びパラオキシ安息香酸類）及び甘味料（サッカリンNa）の検査を実施した。

10検体からソルビン酸が、7 検体からサッカリンNaが検出された。

うち1 検体からは、基準違反となる濃度のサッカリンNaが検出された。それ以外の検体は、基準値未満で表示も適正であった。

3.3 発色剤

収去検査において、保存料及び甘味料の検査を実施した食肉製品15検体については、同時に亜硝酸根の検査も実施し、13検体から検出された。

うち1 検体からは、基準違反となる濃度の亜硝酸根が検出された。

4 特定原材料（アレルギー物質）

4.1 落花生

収去検査において、県産・国産加工食品15検体について検査を実施した。

1 検体で陽性となったが、注意喚起表示等は無かった。

4.2 小麦

収去検査において、県産加工食品12検体について検査を実施した。

3 検体で陽性となったが、うち1 検体においては、注意喚起表示がなされており、他2 検体では注意喚起表示等はなかった。

4.3 そば

収去検査において、県産加工食品10検体について検査を実施した。

すべての検体において、陰性であった。

5 自然毒

行政依頼検査において、食中毒原因物質としてTTXが疑われた6 検体（調理残品等）について検査を実施した結果、5 検体からTTXが検出された。

6 異物の同定

行政依頼検査において、県民から保健所へ異物苦情のあったサンドウィッチに混入した「歯」と疑いのある異物1 検体について検査を実施した結果、「歯」とは異なると判定した。

参 考 文 献

- 1) 森崎澄江、溝腰利男、山下秀門：フグ食中毒事例におけるTTX分析について、大分県衛生環境研究センター年報, 第36号, 39-42 (2008)

表1 食品の理化学的検査結果

検査項目	検体名	検体数	基準値等 超過数	結果の概要
収去検査				
動物用医薬品	県産鶏卵	10	0	すべて定量下限値未満
	県産鶏肉	10	0	すべて定量下限値未満
	輸入鶏肉	5	0	すべて定量下限値未満
	県産豚肉	17	0	すべて定量下限値未満
	輸入豚肉	7	0	すべて定量下限値未満
	県産牛肉	3	0	すべて定量下限値未満
	輸入牛肉	8	0	すべて定量下限値未満
	県産養殖魚介類	8	0	すべて定量下限値未満
	国産養殖魚介類	1	0	すべて定量下限値未満
	輸入養殖魚介類	20	0	すべて定量下限値未満
残留農薬	県産野菜・果実	21	0	1検体からアゾキシストロビン、1検体からジフェノコナゾール、1検体からチアメトキサム、1検体からトルフェンピラドが検出されたが、すべて基準値未満
	輸入野菜・果実	9	0	9検体からイマザリル、1検体からシペルメトリン、6検体からチアベンダゾール、1検体からピリプロキシフェン、2検体からフルジオキシニル、1検体からフルバリネートが検出されたが、すべて基準値未満
漂白剤	県産加工食品	8	0	2検体から二酸化硫黄が検出されたが、すべて基準値未満で表示も適正
	国産加工食品	7	0	4検体から二酸化硫黄が検出されたが、すべて基準値未満で表示も適正
保存料 甘味料	県産加工食品	40 ^{注1}	1	10検体からソルビン酸が、7検体からサッカリンNaが検出 うち1検体からは基準違反となる濃度のサッカリンNaが検出 それ以外の検体は基準値未満で表示も適正
	国産加工食品	5 ^{注1}	0	3検体からソルビン酸が検出されたが、すべて基準値未満で表示も適正
発色剤	県産加工食品	13 ^{注1}	1	13検体から亜硝酸根が検出 うち1検体からは基準違反となる濃度が検出
	国産加工食品	2 ^{注1}	0	すべて検出せず
特定原材料 (落花生)	県産加工食品	13	1	1検体で陽性
	国産加工食品	2	0	すべて検出せず
特定原材料 (小麦)	県産加工食品	12	2	3検体で陽性 うち2検体には注意喚起表示等の表示なし
特定原材料 (そば)	県産加工食品	10	0	すべて検出せず
行政依頼検査				
自然毒	フグ毒テトロド トキシン	6		5検体から検出
異物の同定	異物	1		歯とは異なると判定
合計		223	5	

注1) 保存料・甘味料の検査を実施した45検体のうち食肉製品15検体については、同一の検体を用い発色剤の検査も行っている

食品の微生物学的検査成績について (2014年度)

佐々木 麻里、一ノ瀬 和也、本田 顕子、緒方 喜久代*¹、成松 浩志

Microbiological Examination of Foods, 2014

Mari Sasaki, Kazuya Ichinose, Akiko Honda, Kikuyo Ogata*, Hiroshi Narimatsu

Key words : 微生物学的検査 microbiological examination, 食品 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及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。2014年度は、県産・輸入食肉、加工食肉、県産鶏卵、県産ミネラルウォーター、県産養殖魚介類、輸入養殖魚介類および二枚貝の計144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。

材料及び方法

1 材料

2014年4月から2015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30検体、輸入食肉20検体、加工食肉15検体、県産鶏卵10検体、県産ミネラルウォーター30検体、県産養殖魚介類9検体、輸入養殖魚介類20検体及び二枚貝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、腸炎ビブリオ)、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)、抗生物質及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。

検査法の詳細は既報のとおり⁵⁾であるが、平成24年12月17日付け厚生労働省医薬食品局食品安全部監視安全課長通知「腸管出血性大腸菌O26、O111及びO157の検査法について」に基づいて、2013年度から病原大腸菌のうち腸管出血性大腸菌についての検査法を変更した¹⁾。

結 果

144検体中15検体(10%)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30検体中3検体から食中毒起因菌が検出された。内訳は、鶏肉3検体からサルモネラ属菌とカンピロバクターが同時に検出され、うち1検体からは黄色ブドウ球菌も検出された。豚肉及び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、豚肉3検体、牛肉1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、抗生物質はいずれの食肉からも不検出であった。

加工食肉15検体については、豚ミンチ及び牛豚合挽ミンチ各1検体から黄色ブドウ球菌、鶏ミンチ1検体からサルモネラ属菌が検出された。

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。

*¹大分県薬剤師会検査センター

県産ミネラルウォーター20検体では、大腸菌群、レジオネラ属菌は共に不検出であった。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4検体あり、内訳は 10^4 オーダーが2検体、 10^2 オーダーが2検体であった。

県産養殖魚介類9検体及び輸入養殖魚介類20検体

からは、抗生物質は検出されなかった。

二枚貝(生カキ)10検体からは、ノロウイルス遺伝子は検出されなかった。このうち生食用殻付きカキ1検体は成分規格に適合していた。また、別の1検体から生食用かきの成分規格を超えるE. coli最確数が検出されたが、後に生食用でないことが判明した。

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	腸炎ビブリオ	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	30	3	0	1 ^{注1)}	3 ^{注2)}	3 ^{注3)}						0	
(内訳)													
鶏肉	10	3	0	1	3	3						0	
豚肉	17	0	0	0	0	0						0	
牛肉	3	0	0	0	0	0						0	
輸入食肉	20	4	0	4 ^{注1)}	0	0						0	
(内訳)													
鶏肉	5	0	0	0	0	0						0	
豚肉	7	3	0	3	0	0						0	
牛肉	8	1	0	1	0	0						0	
加工食肉(ミンチ・成型肉)	15	3	0	2 ^{注1)}	1 ^{注4)}	0							
県産鶏卵	10	0			0							0	
県産ミネラルウォーター	30	4						0	4 ^{注5)}	0			
県産養殖魚介類	9	0										0	
輸入養殖魚介類	20	0										0	
生食用・加熱用二枚貝	10	1					0 ^{注6)}			1 ^{注6)}			0
合計	144	15	0	7	4	3	0	0	4	1	0	0	0

注1) コアグラージェ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)

注3) *Campylobacter Jejuni*

注4) *S.Schwarzengrund*(O4:d:1,7)

注5) 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6) 生食用かき(むき身)として検査したが、後に生食用でないことが判明した。

表2 黄色ブドウ球菌のコアグラージェ型とエンテロトキシン産生性

エンテロトキシン型	n	コアグラージェ型				
		II	III	IV	V	VII
D	1		1(1)			
A-D非産生	6	2(1)		1	1(1), 1	1(1)
	7	2	1	1	2	1

()内は、輸入食肉分再掲、斜字は加工食肉由来

考 察

これまでの成績¹⁻⁸⁾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、20%(3/15)の検体が複数の細菌に汚染されていた。特にカンピロバクターは、近年、細菌性食中毒の発生件数としては最多の病因物質となっており⁹⁾、鶏肉の不十分な加熱は食中毒のリスクが高いことが示唆される。また、ミンチ等の加工食肉から食中毒起因菌が検出されていることから、食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さらに啓発すべきと考える。

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(10²/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。これまでの成績¹⁻⁷⁾によると原水の基準を超えた細菌数が認められたミネラルウォーターは、2007年度以降20%前後で推移していたが、2012年度は30%(6/20)、2013年度は35%(7/20)と増加傾向であった。2014年度は13%(4/30)に減少したものの、依然として菌数のオーダーが高い検体があり、県内の清涼飲料水製造業者に対し、さらなる指導が必要と考える。

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。

参 考 文 献

- 1) 佐々木麻里、成松浩志、緒方喜久代、本田顕子、加藤聖紀、小河正雄：食品の微生物学的検査成績について（2013年度），大分県衛生環境研究センター年報，41，79-81（2013）
- 2) 佐々木麻里、成松浩志、緒方喜久代、本田顕子、田中幸代、加藤聖紀、小河正雄：食品の微生物学的検査成績について（2012年度），大分県衛生環境研究センター年報，40，88-90（2012）
- 3) 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：食品の微生物学的検査成績について（2011年度），大分県衛生環境研究センター年報，39，124-126（2011）
- 4) 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，38，92-94（2010）
- 5) 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，37，55-59（2009）
- 6) 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，36，61-65（2008）
- 7) 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，35，47-78（2007）
- 8) 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，34，65-69（2006）
- 9) 厚生労働省：食中毒統計資料，
http://www.mhlw.go.jp/stf/seisakunitsuite/bunya/kenkou_iryuu/shokuhin/syokuchu/04.html，（最終アクセス日：2015年8月13日）

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 (2014年)

佐々木 麻里、一ノ瀬 和也、緒方 喜久代^{*1}、高良 武俊^{*2}、奥野 ルミ^{*3}、成松 浩志

Serotype and Drug Susceptibility of Group A Hemolytic Streptococci Isolated in Kyusyu Area, 2014

Mari Sasaki, Kazuya Ichinose, Kikuyo Ogata^{*1}, Taketoshi Takara^{*2}, Rumi Okuno^{*3}, Hiroshi Narimatsu

Key words : A群溶レン菌 Group A Streptococci, 血清型別 Sero-typing, 九州地方 Kyusyu 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¹⁾」に基づき、共同でA群溶血性レンサ球菌感染症の調査²⁻¹⁴⁾を行っている。2014年の動向について報告する。

材料及び方法

1 材料

2014年に大分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95株について集計を行った。その内訳は大分県が70株、沖縄県が25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β溶血を示した菌株について常法に従い同定し¹⁵⁾、ストレプトLA (デンカ生研)を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、ピロリドニルアリアルアミダーゼ活性試験¹⁶⁾ (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。

^{*1}大分県薬剤師会検査センター, ^{*2}沖縄県衛生環境研究所, ^{*3}東京都健康安全研究センター

3 薬剤感受性試験

大分県で分離された株のうち69株を用いて、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)、セフジトレン (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剤を用いた。

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型分布及び年次菌型推移を図1、表1に示した。2014年に九州地区で分離された血清型は8種類で、分離頻度の高かった順にT12型 (25%)、TB3264型 (18%)、T4型 (12%)、T28型 (11%)の順であったが、例年に比べ、特定の血清型が突出して分離されるという傾向は見られなかった。県別に主な流行血清型を見ると、大分県では7種類の血清型が分離され、T12型が33%と最も多く、TB3264型が21%、T28型が14%で、T1型は減少した (図2、表2)。沖縄県では5種類の血清型が分離され、T1型が28%、T4型が20%と、これらの血清型で半数近くを占め、例年主流であったTB3264型が大きく減少した (図3、表3)。全国的にはT1型の分離頻度が減少し、TB3264

型が増加傾向である中、沖縄県では独特の流行が見られた。

次に、T型別の経年変化（1992～2014年）を図1、表4に示した。昨年、それまで数年流行したT1型が減少し、T12型、TB3264型、T4型、T28型が主要な血清型となったが、2014年も同様の結果となった。これは大分県の流行の影響を強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

2014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5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、A群溶血性レンサ球菌T1型を中心に、2011年から同感染症の報告数が激増した。2014年の報告数は9例と減少はしたが、依然として多い状態が続いており、引き続き、その動向に注意を要する。また、前年まで主要であったA群溶血性レンサ球菌T1型の症例はなく、特定の血清群・血清型に偏

ることもなかった。

3 薬剤感受性試験

薬剤感受性試験の結果、β-ラクタム系薬剤であるABPC、CFDN、CEX、CDTRの4剤及び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（ $\geq 8\mu\text{g/ml}$ ）の単独耐性が3株（4.4%）、EM（ $\geq 1\mu\text{g/ml}$ ）及びCAM（ $\geq 1\mu\text{g/ml}$ ）の2剤耐性が11株（16.2%）、TC、EM及びCAMの3剤耐性が1株（1.5%）、EM、CAM、CLDM（ $\geq 1\mu\text{g/ml}$ ）及びLCMの4剤耐性が10株（14.7%）、TC、EM、CAM、CLDM及びLCMの5剤耐性が15株（22.1%）であった。このうち、EM $> 64\mu\text{g/ml}$ の高度耐性株はEM耐性株37株中25株（67.6%）と高い値を示した。これは、分離株中に、EM高度耐性株に多い血清型であると報告されている¹⁷⁾T12及びT28の占める割合が高いためと考えられた。

表1 九州地区：A群溶レン菌のT型別分布（2014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	1	1		2		8	8.4	
	T-2												0	0.0	
	T-3												0	0.0	
	T-4	1	1		1		2		1	1	1	2	11	11.6	
	T-6											1	5	6	6.3
	T-8													0	0.0
	T-9													0	0.0
	T-11													0	0.0
	T-12	2	1	7	4	1		1		3		2	3	24	25.3
	T-13													0	0.0
	T-14/49													0	0.0
	T-22	1												1	1.1
	T-23													0	0.0
	T-25	5	1						1					7	7.4
	T-28	1	3	2	2							2		10	10.5
	T-B3264		3			1			2	1	2	2	6	17	17.9
	T-5/27/44													0	0.0
型別不能		1		1	1	1	2			4		1	11	11.6	
T型別の計	12	11	9	8	3	4	4	5	5	9	9	16	95		
(%)	12.6	11.6	9.5	8.4	3.2	4.2	4.2	5.3	5.3	9.5	9.5	16.8		100.0	
B群											1		1		
C群													0		
G群		2											2		
合計	12	13	9	8	3	4	4	5	5	10	9	16	98		

注) 九州地区：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（2014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	
	T-2												0	0.0	
	T-3												0	0.0	
	T-4	1	1		1							2	1	6	8.6
	T-6											1	5	6	8.6
	T-8													0	0.0
	T-9													0	0.0
	T-11													0	0.0
	T-12	2	1	7	4	1		1		3		2	2	23	32.9
	T-13													0	0.0
	T-22													0	0.0
	T-23													0	0.0
	T-25	5	1						1					7	10.0
	T-28	1	3	2	2							2		10	14.3
	T-B3264		2			1			2	1	2	2	5	15	21.4
	T-5/27/44													0	0.0
	型別不能				1			1						2	2.9
T型別の計	10	8	9	8	2	0	2	3	4	2	9	13	70		
(%)	14.3	11.4	12.9	11.4	2.9	0.0	2.9	4.3	5.7	2.9	12.9	18.6		100.0	
B群											1		1		
C群													0		
G群													0		
合計	10	8	9	8	2	0	2	3	4	3	9	13	71		

表3 沖縄県：溶レン菌の群・A群T型別分布（2014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	1	1		2		7	28.0	
	T-2												0	0.0	
	T-3												0	0.0	
	T-4						2		1	1	1		5	20.0	
	T-6												0	0.0	
	T-8												0	0.0	
	T-9												0	0.0	
	T-11												0	0.0	
	T-12												1	1	4.0
	T-13													0	0.0
	T-14/49													0	0.0
	T-22	1												1	4.0
	T-23													0	0.0
	T-25													0	0.0
	T-28													0	0.0
	T-B3264		1										1	2	8.0
	型別不能		1			1	1	1			4		1	9	36.0
T型別の計	2	3	0	0	1	4	2	2	1	7	0	3	25		
(%)	8.0	12.0	0.0	0.0	4.0	16.0	8.0	8.0	4.0	28.0	0.0	12.0		100.0	
B群													0		
C群													0		
G群		2											2		
合計	2	5	0	0	1	4	2	2	1	7	0	3	27		

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、中曾根民雄、古賀由恵、帆足喜久雄：九州地方におけるA群溶血レンサ球菌の血清型と薬剤感受性について (1991年～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群溶血レンサ球菌の血清型と薬剤感受性について (第2報) (1993年～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) 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レンサ球菌の血清型の推移と薬剤感受性について (2011年), 大分県衛生環境研究センター年報, 39, 108-115 (2011)
- 13) 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レンサ球菌の血清型の推移と薬剤感受性について (2012年), 大分県衛生環境研究センター年報, 40, 75-82 (2012)
- 14) 緒方喜久代、佐々木麻里、吉原琢哉、高良武俊、奥野ルミ：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 (2013年), 大分県衛生環境研究センター年報, 41, 62-70 (2013)
- 15) 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
- 16) A群溶血レンサ球菌 (Streptococcus pyogenes) 検査マニュアル, p9
- 17) 国立感染症研究所、厚生労働省健康局結核感染症課：病原微生物検出情報, 33, 214-215, 2012

表4 九州地区の推移(1992年~2014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	2012	2013	2014	計
T-1	213	86	45	22	39	142	156	48	95	52	73	31	16	22	97	42	11	34	20	72	64	13	8	1401
T-2					8	58	133	135	37	15	4	2		1	1		1	3	1					399
T-3			2	76	39	46	8	2				1			1	6	7	1	1		1			313
T-4	149	147	197	92	66	81	110	73	39	39	73	178	106	37	13	25	34	28	14	28	59	20	11	1619
T-6			10	8	21	68	64	22	3	2	3	1	3	8	2	3	2	11	12			2	6	251
T-11	4	10	26	23	9	14	7	8	8	6	4	6	5	10	5	9		1		3	2	1		161
T-12	46	47	148	194	145	150	122	51	159	127	103	32	122	135	28	31	139	60	15	63	31	21	24	1993
T-22	11	13	22	43	29	16	8	5	19	12	5	9	1		4	6	3	2	3			2	1	214
T-28	39	34	49	34	77	97	58	34	34	26	27	24	35	15	17	22	19	9	17	4	12	16	10	709
T-B3264	60	40	56	29	8	11	10	13	38	36	33	27	25	21	6	7	4	14	37	19	29	18	17	558
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	8	17	7	381
型別不能	37	15	13	5	3	13	14	23	19	24	27	45	16	12	27	11	11	15	16	8	7	6	11	378
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	213	116	95	8377

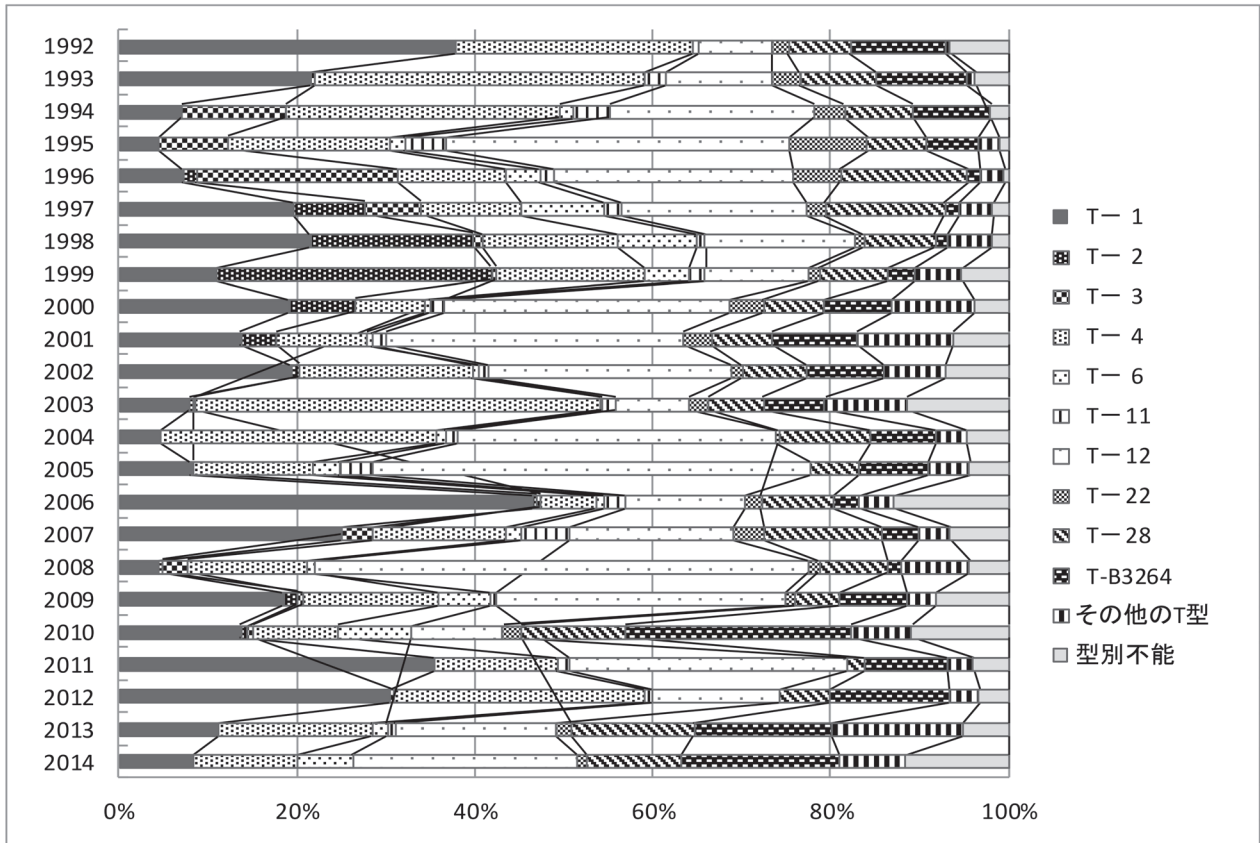


図1 九州地区の推移 (1992~2013)

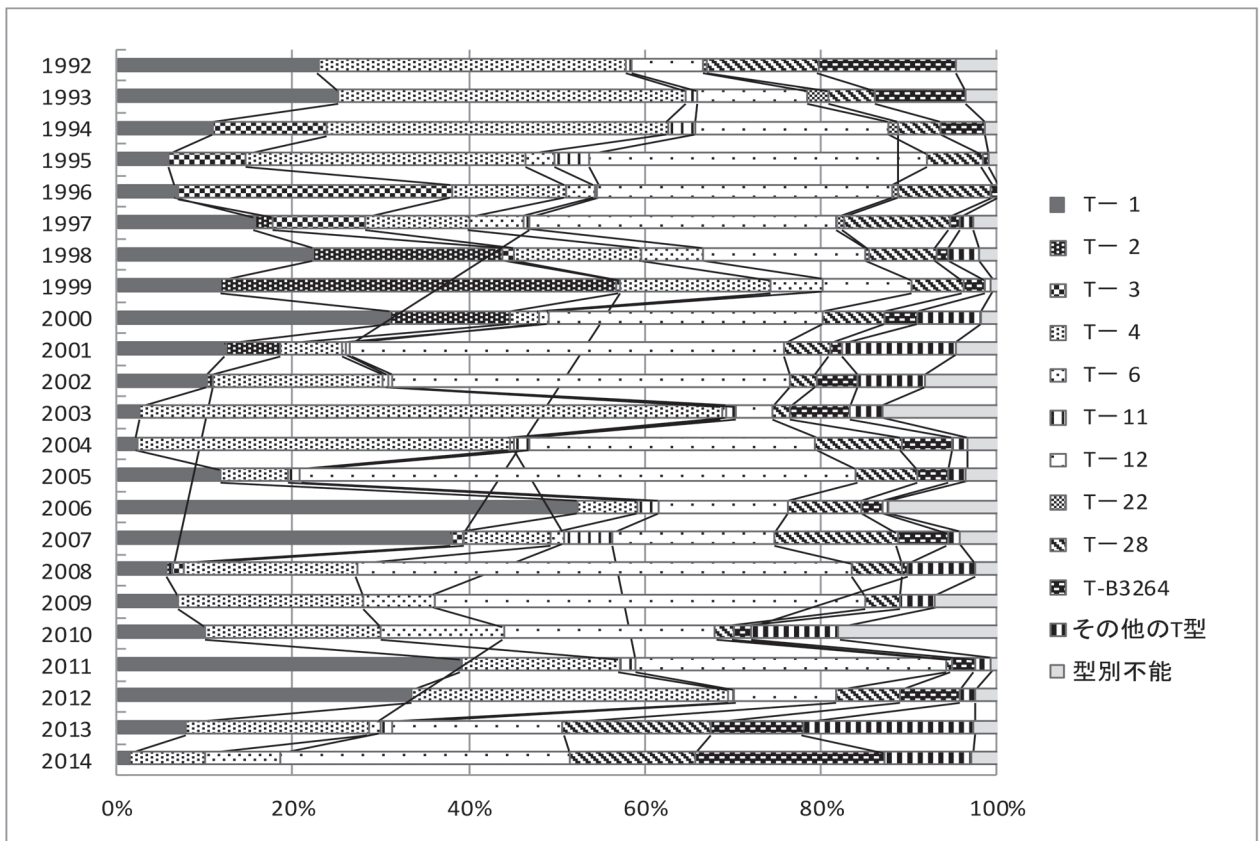


図2 大分県の推移 (1992~2013)

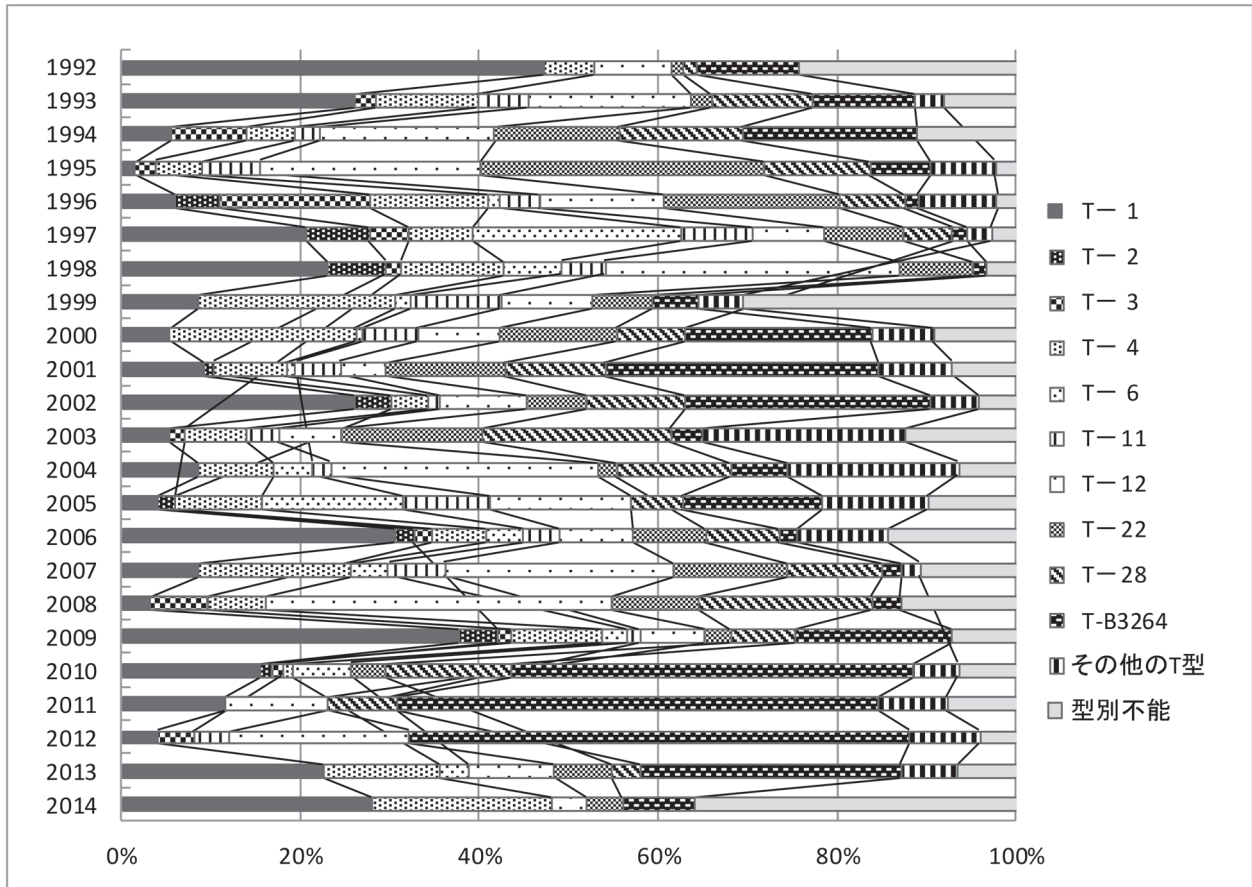


図3 沖縄県の推移（1992～2013）

表5 劇症型溶血レンサ球菌感染症例（2014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	転帰
1088	福岡県	92	女	2014.2.15	G		STG653.0	<i>stG653.0</i>		死亡
1089	長崎県	82	女	2014.2.22	C		STG643.0	<i>stG643.0</i>		死亡
1090	福岡県	79	女	2014.3.1	B	I b				軽快
1106	福岡県	73	女	2014.3.27	A	T9	EMM77.0	<i>emm77.0</i>	B,F	軽快
1107	福岡県	79	女	2014.4.7	A	T6	EMM6.0	<i>emm6.0</i>	A,B,C,F	軽快
1137	熊本県	45	男	2014.6.14	G		STG245.0	<i>stG245.0</i>		軽快
1162	熊本県	65	男	2014.8.30	B	III				軽快
1181	福岡県	64	男	2014.10.8	G		STG6.0	<i>stG6.0</i>		治療中
1193	福岡県	71	男	2014.11.12	A	TB3264	EMM89.0	<i>emm89.0</i>	B,C,F	軽快

注) *emm* : M蛋白（病原因子として知られている）遺伝子の型
 EMM : *emm* がコードする蛋白の型
spe : 発熱性毒素遺伝子

大分県における細菌性下痢症サーベイランスの動向 (2012-2014年)

一ノ瀬和也、成松浩志、佐々木麻里、緒方喜久代*¹

Trend of Bacterial Diarrhea Surveillance in Oita Prefecture, 2012—2014

Kazuya Ichinose, Hiroshi Narimatsu, Mari Sasaki, Kikuyo Ogata

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

はじめに

前回の報告¹⁻¹⁹⁾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2012年から2014年の3年間の発生動向を報告する。

材料及び方法

2012年1月から2014年12月末までに、県内の医療機関(小児科及び内科)において細菌性下痢症が疑われた患者便及び分離菌株について細菌学的検索を実施した。検査方法の詳細は前報告^{1,11)}のとおりである。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)、腸

管病原大腸菌(EPEC)および腸管凝集付着性大腸菌(EAggEC)はPCR法²⁰⁻²⁴⁾を用いて検索した。ただし、EPECとEAggECについては病原因子が不明(研究途上)であり、散発下痢症では確定診断が困難であるため、他の下痢原性大腸菌のカテゴリーの病原因子を保有せず、*eae*遺伝子を保有するのを「EPEC(疑い)」、*aggR*遺伝子を保有するものを「EAggEC(疑い)」として計上した。

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。

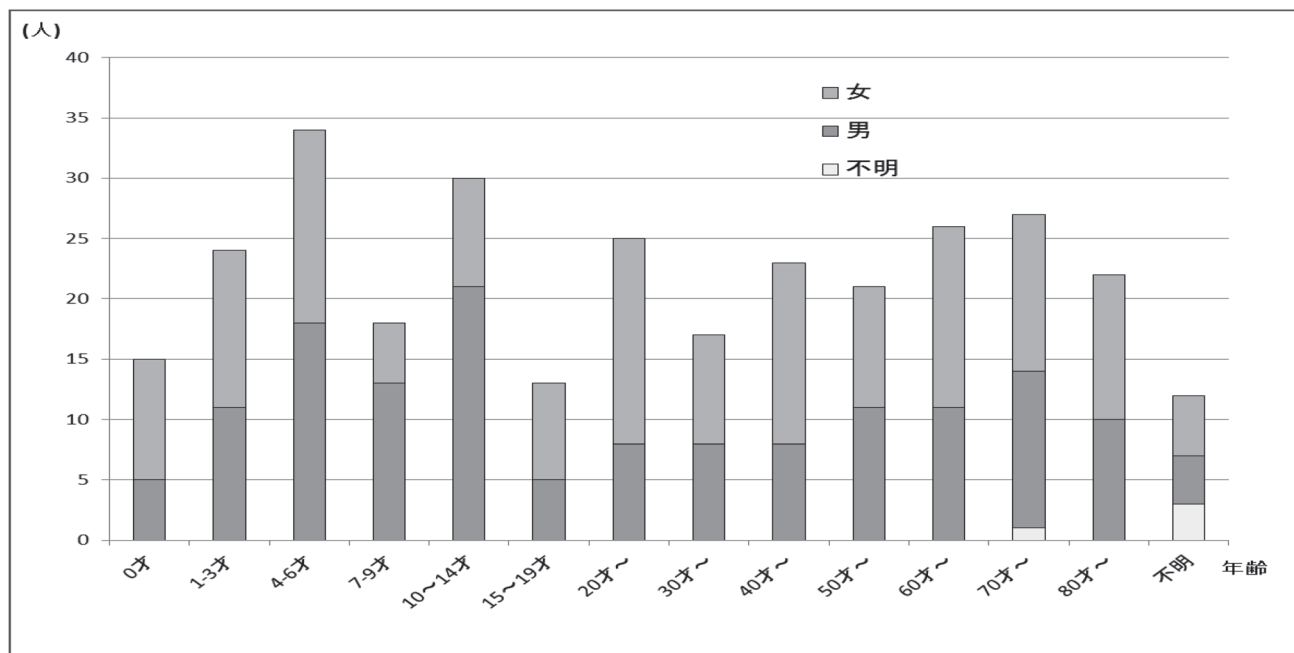


図1 患者の男女別年齢構成 (2012-2014年)

*¹大分県薬剤師会検査センター

結果及び考察

1 検査した患者の構成

検体数は延べ307検体で、男性146検体、女性157検体、不明4検体(男女比 1:1.1)であった。検査した患者の男女別年齢分布を図1に示す。

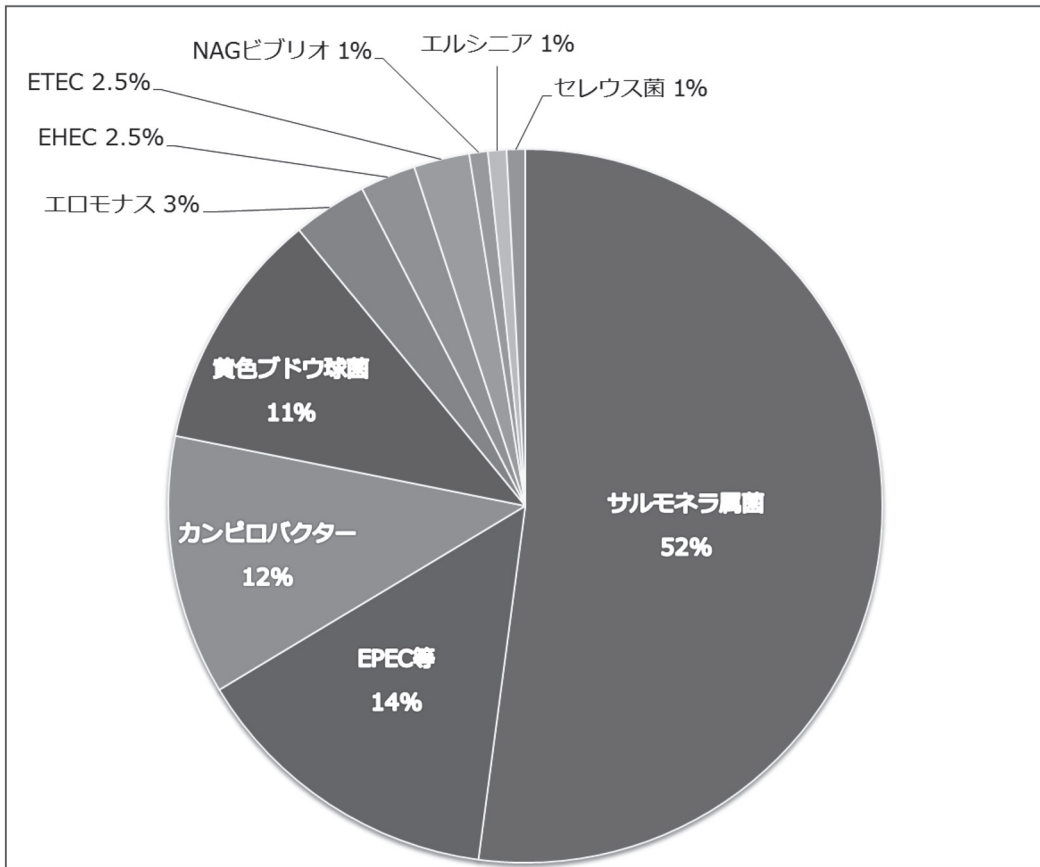
2 下痢症起因菌の検出状況

307検体のうち111検体(36.2%)から119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62株(全菌株数の52.1%)、次いでEPEC・EAggEC(疑い)17株(同14.3%)、カンピロバクターが14株(同11.8%)、黄色ブドウ球菌が13株(同10.9%)、エロモナスが4株(*A. hydrophila* 1株、

A. sobria 1株, *A. caviae* 2株(同3.4%)、ETECとEHECが各3株(同各2.5%)、エルシニア(*Yersinia enterocolitica* O9群)、NAGビブリオ及びセレウス菌(下痢型)が各1株であった(図2)。

カンピロバクターは、14株全てが*C. jejuni*であった。

複数菌同時検出例は7検体あり、その組合せは、カンピロバクターとサルモネラ(*S. Corvallis*)とEPEC O119(疑い)が1検体、カンピロバクターと黄色ブドウ球菌が2検体、カンピロバクターとエロモナスが1検体、サルモネラ(*S. Cerro*)とEPEC O74(疑い)が1検体、2菌種のエロモナス(*A. hydrophila*, *A. caviae*)または2種類の黄色ブドウ球菌が各1検体であった。



2.1 サルモネラ属菌

サルモネラ属菌は307検体中62検体(20.2%)から25種類の血清型が計62株検出された。よく検出された血清型は、Saintpaul (O4:e,h:1,2)とTyphimurium (O4:i:1,2)が各10株(全サルモネラ株の各16.1%)と最多であり、次いでThompson (O7:k:1,5)が5株(同8.1%)、Braenderup (O7: e,h: e,n,z15)、Corvallis (O8:z4,z23:-)及びMiyazaki(O9:1,7:l,z13)が各4株(同

各6.4%)、Schwarzengrund (O4:d:1,7)とEnteritidis (O9:g,m:-)が各3株(同各4.8%)、Infantis (O7:r:1,5)とO4:i:-が各2株(同各3.2%)であった。

残り15種類は、Stanley (O4:d:1,2)、Sandiego (O4:e,h:e,n,z15)、Montevideo (O7:g,m,s:-)、Oranienburg (O7:m,t:-)、Rissen (O7:f,g:-)、Manhattan (O6,8:d:1,5)、Newport (O6,8:e,h:1,2)、Hadar (O6,8:z10:e,n,x)、Weltevreden (O3,10:z6:r)、Cerro (O18:z4,z23:-)、

Alachua (O35:z4,z23:-)、O7:1,5:-、O18:z4,z23:-、OUT及び亜種*diarizonae*が各1株であった。

今期間中は、例年に比べてSaintpaulの検出が増加した。一方、Typhimuriumは例年数株程度の検出頻度であり、今回検出された10株中6株は、2013年7月にある事業所の集団発生に関連した一時的増加であった。

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、長期減少傾向が続いていた。今回のEnteritidis 3株の内訳は、2012年に2株、2014年に海外旅行者下痢症から1株検出されたものであったため、県内発生例由来のEnteritidisは2013年から2年間ゼロが続いたことになる。Enteritidisの検出ゼロは、本調査が開始された1985年と1986年そして1990年以後のことである。

2.2 下痢原性大腸菌

EPEC/EAggEC(疑い)は、6種類のO血清型が計11株とOUTが6株検出された。

血清型の内訳は、O119とO127aが各3株、O126が2株、O26、O74及びO167が各1株であった。O119は3株とも*eae*を保有し、内1株(O119:H2)は*bfpA*も保有していた。

O127aは、1株が*eae*、2株が*aggR*を保有していた。残りの菌株中、*eae*を保有していたものは、O26:HNM、O74、O167が各1株とOUTが3株で、*aggR*を保有していたものは、O126の2株とOUTが3株であった。

ETECは、2014年7月に52才男性からO27 (ST)が1株、同年8月に49才女性と32才男性からO159 (ST)が各1株検出された。

EHECについては、2013年7月に4才男子からO157:

H7 (VT1, VT2)が、2014年8月に5才女子からO26:H11 (VT1)が、同年12月に17才女子からO157:HNM (VT1, VT2)がそれぞれ検出された。この内O157については、2例とも血便が認められた。

EIECは検出されなかった。

2.3 黄色ブドウ球菌

黄色ブドウ球菌13株の内訳は、エンテロトキシンA産生でコアグラゼIV型、VII型及び型別不能が各1株、エンテロトキシンB産生でコアグラゼ型別不能が1株、エンテロトキシンC産生でコアグラゼIII型が2株、VII型が1株、エンテロトキシンA～D非産生でコアグラゼIIが2株、V型3株、VII型1株であった。なお、エンテロトキシンC産生でコアグラゼIII型の1株とエンテロトキシン非産生でコアグラゼV型の1株は同一検体から同時検出された。

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。サルモネラ属菌とEPEC/EAggEC(疑い)は幅広い年齢層から検出された。カンピロバクターは4～14才の年齢層からよく検出された。

EHECは20才未満、ETECは成人年齢層から検出された。セレウス菌は10代前半の男子から、エロモナスは15才以上の年齢層から、NAGビブリオは70代の男性から検出された。黄色ブドウ球菌は0才児からも検出されていた。エルシニアは、細菌性腸炎及び敗血症を呈した60代男性の血液からの分離株であった。

表1 年齢層別の菌検出状況 (2012-2014年)

年齢層	0	1~3	4~6	7~9	10~14	15~	20~	30~	40~	50~	60~	70~	80~	不明	計
検査検体数(患者数)	15	24	34	18	30	13	25	17	23	21	26	27	22	12	307
検出菌株数計	4	10	21	11	16	11	8	4	6	5	8	7	3	5	119
サルモネラ属菌		7	11	5	6	3	4	3	4	3	5	4	2	5	62
カンピロバクター		1	2	4	3	2	1					1			14
検出菌株内訳	EPEC等*		2	3		3	2	2		1	1	2	1		17
	ETEC							1	1	1					3
	EHEC			2			1								3
黄色ブドウ球菌	4		3	2	3	1									13
NAGビブリオ												1			1
エロモナス						2	1						1		4
エルシニア											1				1
セレウス菌					1										1

注1) 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。
EPEC等*: 「EPEC疑い」及び「腸管凝集付着性大腸菌(EAggEC)疑い」を計上した。

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¹⁻¹⁹⁾と同様に全体的には夏季の検出数が多かった

が、カンピロバクターは冬季でも検出されており、注意喚起の必要がある。

表2 月別および年次別の菌検出状況 (2012-2014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	2014年	2013年	2012年	
検査検体数	6	3	5	7	6	8	48	51	54	47	36	36	307	225	38	44	
検出検体数	3	1	5	0	4	2	18	27	21	9	15	6	111	66	22	23	
サルモネラ属菌	1		2			1	11	18	10	8	9	2	62	36	13	13	
カンピロバクター	2		2		2			3		2	2	1	14	7	2	5	
検出菌株内訳	EPEC等*		1	1		1		4	1	4	1	3	1	17	15	1	1
	下痢原性大腸菌	EPEC						1	2					3	3		
		EHEC						1	1				1	3	2	1	
	黄色ブドウ球菌					1	2	1	1	5		1	2	13	4	5	4
NAGビブリオ									1				1	1			
エロモナス								2			2		4	2		2	
エルシニア									1				1			1	
セレウス菌									1				1	1			
検出菌株数計	3	1	5	0	4	3	18	28	22	11	17	7	119	71	22	26	

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。
EPEC等* : 「EPEC疑い」及び「腸管凝集付着性大腸菌(EAggEC)疑い」を計上した。

謝 辞

検体採取に御協力頂いた医療機関の諸先生方に深謝致します。

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、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(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、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(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イランスの動向(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イランスの動向(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イランスの動向(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：大分地方における散発下痢症の細菌学的研究, 1985~1996年. 感染症学雑誌, 71, 644-651(1997)
- 12) 緒方喜久代、鷺見悦子、長谷川昭生：大分県における細菌性下痢症サーベイランスの動向(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イランスの動向(2005年). 大分県衛生環境研究センター年報, 33, 50-52(2005)
- 14) 緒方喜久代、長谷川昭生：大分県における細菌性下痢症サーベイランスの動向(2006年). 大分県衛生環境研究センター年報, 34, 61-64(2006)
- 15) 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イランスの動向(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イランスの動向(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イランスの動向(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イランスの動向(2010年). 大分県衛生環境研究センター年報, 38, 95-99(2010)
- 19) 成松浩志、佐々木麻里、緒方喜久代：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). 大分県衛生環境研究センター年報, 39, 116-119(2011)
- 20) 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)
- 21) 伊藤文明、山岡弘二、荻野武雄、神辺眞之：下痢原性大腸菌のPCR法, 臨床病理, 43, 772-775(1995)
- 22) 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)
- 23) 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)
- 24) 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 (2014年)

加藤 聖紀、本田 顕子、百武 兼道、緒方 喜久代¹

Report on Isolation of Viruses in Oita Prefecture, 2014

Miki Kato, Akiko Honda, Kanemichi Hyakutake, Kikuyo Ogata,

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

はじめに

大分県では、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基づく感染症発生動向調査事業で、ウイルスの検索及びその動態について調査を行っている。2014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鼻腔・咽頭ぬぐい液、糞便、髄液、血液、皮膚病巣、尿、剖検材料（脳）、及び心嚢液や関節液等の穿刺液を対象とした。

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、ヒトボカウイルス、ヘルペスウイルス属及び一部のエンテロウイルス属については、臨床診断名をもとに臨床検体から直接に核酸を抽出して、推定される各ウイルス遺伝子を標的としたPCR法^{1),2),3)}で遺伝子を増幅し、得られた増幅産物の塩基配列をダイレクトシーケンス法で決定した後、BLASTにて相同性検索を行い、ハイスコアを示した配列のウイルスをもって同定した。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法を用い、各遺伝子型はRT-PCR法及びダイレクトシーケンス法で同定した。

ウイルス分離にはHEp-2、RD-18s、Caco-2、MARC 145、Vero9013、VeroE6、MDCK、LLC-MK2の8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には、抗血清のあるものについては中和試験を実施し、抗血清のないものについては、培養上清を臨床検体と同様にPCR法及びダイレクトシーケンス法で遺伝子配列を決定した後、BLASTにて相同性検索を行った。A群ロタウイルスの検出にはラピッドテスト ロタ・アデノ(積水メディカル株式会社)を使用した。

日本紅斑熱リケッチア及びつつが虫病リケッチアの検出には、間接蛍光抗体法によるIgG抗体及びIgM抗体の定量と血液の遺伝子検査を行った。

結果及び考察

2014年は県内の13医療機関から550検体の検査依頼があった。疾患別にみると感染性胃腸炎が74検体と最も多く、次いで発疹症が71検体、インフルエンザ様疾患が60検体であった。

検出した病原体は、290件（1検体につき複数検出したものを含む）、検出率は50.9%であった。多く検出されたウイルスは、ライノウイルス、ノロウイルスGII、インフルエンザウイルスAH3及びHHV-6であった（表1）。

感染性胃腸炎では50件のウイルスが検出された。ノロウイルスGIIが最も多く24件で、ウイルスの遺伝子型の内訳はGII/4（2012変異株）が12件、GII/6が8件、GII/3が2件、GII/not typedが2件であった。次いで多かったのがA群ロタウイルスの9件、その他ではアデノウイルスが5件、サポウイルスが3件、アストロウイルスが1件、エンテロウイルス属ではパレコウイルスが3件（1型2件、3型1件）、コクサッキーウイルスが2件（A5及びB3が各1件）、エコーウイルスが2件（7型及び11型が各1件）、

*1 大分県薬剤師会検査センター

ライノウイルスが1件であった。

インフルエンザ様疾患では、AH3型が1月から4月にかけて9件、9月から12月にかけて14件検出された。AH1pdm09は1月から4月にかけて12件検出された。B型は1月から5月にかけて14件検出された。

手足口病では、コクサッキーウイルスA16型が9月から12月にかけて3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A5型が6月に1件、エンテロウイルス71型が9月に1件、ライノウイルスが5月に1件検出された。

咽頭結膜熱では、1月にアデノウイルスが3件(2型2件、3型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が9月に4件(B3型3件、B5型1件)検出され、8月にパレコウイルス3型、エンテロウイルス71型及びムンプスウイルスが各1件検出された(表2)。

2014年は7月から9月にかけて他県と同様に⁴⁾パレコウイルス3型の流行があり、15検体から検出した。そのうち11検体は生後1ヶ月未満(0ヶ月児5検体、1ヶ月児6検体)で、急性脳症、無菌性髄膜炎、不明熱及び発疹症の症例であった。4検体については1歳9ヶ月児が急性脳症、2歳児が感染性胃腸炎、8ヶ月児及び12歳児が上気道炎であった。

参 考 文 献

- 1)病原体検査マニュアル、国立感染症研究所・地方衛生研究所全国協議会
- 2)Donard R:Detection and Analysis of Diverse Herpesviral Species by Consensus Primer PCR
journal of Clinical Microbiology 1666-1671,1996
- 3)Ishiko H, Shimada Y, Konno T et al.: Novel human adenovirus causing nosocomial epidemic keratoconjunctivitis. J. Clin. Microbiol. 46: 2002-2008, 2008
- 4)＜速報＞生後3か月未満の乳児におけるヒトパレコウイルス感染症の発生
IASR Vol, 35 p. 221: 2014年9月号

表1 2014年 ウイルス・リケッチアの月別検出状況

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 A4					1		2						3
Coxsackievirus A5						3		1					4
Coxsackievirus A6	1			1			1						3
Coxsackievirus A10									1				1
Coxsackievirus A12								1					1
Coxsackievirus A16									1	1		1	3
Coxsackievirus B2									2				2
Coxsackievirus B3							2	4	3				9
Coxsackievirus B5									1	1			2
Echovirus6									2				2
Echovirus7								1					1
Echovirus11								1	2	2			5
Parechovirus 1							3	2	2	2			9
Parechovirus 3							4	5	6				15
Enterovirus71				2	1			1	2				6
Rhinovirus	1		2	4	10	5	1	1	6	5	2	5	42
Influenza virus A H1 pdm09	4	5	1	2									12
Influenza virus A H3 N unknown	4	1	3	1					2	8	3	1	23
Influenza virus B	4	5	1	3	1								14
Parainfluenza virus 1									1				1
Parainfluenza virus 2												1	1
Parainfluenza virus 3							3		2				5
Respiratory syncytial virus(RSV)									1				1
Human metapneumovirus			3	2			3		1				9
Human bocavirus			1	2		2							5
Mumps virus								1					1
Rubella virus		1*											1
Rotavirus group A			1	1	4	3							9
Astrovirus1			1										1
Norovirus genogroup II	2	3	4	3	2					2	2	6	24
Sapovirus		2		1								1	4
Adenovirus 1		1	1		1			2					5
Adenovirus 2	3		1		1	2							7
Adenovirus 3	1						1						2
Adenovirus 5			1	1			1					1	4
Adenovirus 41				2						1			3
Adenovirus 54											1		1
Herpes simplex virus 1					1			1					2
Herpes simplex virus 2		1											1
Cytomegalovirus(CMV)		2	3	1		1	4	1	1	3		1	17
Human herpes virus6(HHV-6)	2	3		2	4	1	3		1	2	2	1	21
Human herpes virus7(HHV-7)	1												1
Hepatitis A virus(HAV)				1					1				2
Orientia tsutsugamushi(R. tsutsugamushi)											1	1	2
Rickettsia japonica				1							1		2
Mycoplasma pneumoniae												1	1
合 計	23	24	23	30	26	17	28	22	38	27	12	20	290

(複数検出を含む)

*1 Rubella virusはワクチン株

表2 2014年 臨床診断名別ウイルス・リケッチア検出状況

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	
麻しん様疾患	Human herpes virus6(HHV-6)					1								1	
感染性胃腸炎	Coxsackievirus A5						1							1	
	Coxsackievirus B3								1					1	
	Echovirus 7								1					1	
	Echovirus11								1					1	
	Parechovirus 1							1	1					2	
	Parechovirus 3								1					1	
	Rhinovirus					1								1	
	Rotavirus group A			1	1	4	3							9	
	Astrovirus I			1											1
	Norovirus genogroup II	2	3	4	3	2					2	2	6	24	
	Sapovirus		1		1									1	3
	Adenovirus 5								1					1	2
	Adenovirus 41				1							1			2
	Adenovirus 54												1		1
手足口病	Coxsackievirus A16									1	1		1	3	
	Coxsackievirus B3								1					1	
	Enterovirus71				1						1			2	
	Rhinovirus												1	1	
ヘルパンギーナ	Coxsackievirus A5						1							1	
	Enterovirus71									1				1	
	Rhinovirus					1								1	
インフルエンザ様疾患	Influenza virus A H1 pdm09	1	5	1	2									9	
	Influenza virus A H3 N unknown	4	1	3	1					2	8	3	1	23	
	Influenza virus B	4	5	1	2	1								13	
MCLS	Parechovirus 1										2			2	
咽頭結膜熱	Adenovirus 2	2												2	
	Adenovirus 3	1												1	
無菌性髄膜炎	Coxsackievirus B3									3				3	
	Coxsackievirus B5									1				1	
	Parechovirus 3								1					1	
	Enterovirus71								1					1	
	Mumps virus								1					1	
脳炎	Coxsackievirus A6	1												1	
	Influenza virus A H1 pdm09	2												2	
	Adenovirus 1		1											1	
	Human herpes virus6(HHV-6)		2											2	
(急性) 脳症	Coxsackievirus B3								2					2	
	Echovirus11									1				1	
	Parechovirus 3									6				6	
	Rhinovirus					1				2	2	1		6	
	Adenovirus 2					1								1	
	Human herpes virus6(HHV-6)									1	1	1		3	
脳脊髄炎	Coxsackievirus B3							2						2	
不明熱	Coxsackievirus A4							1						1	
	Coxsackievirus B5										1			1	
	Echovirus11									1	2			3	
	Parechovirus 3							2						2	
	Rhinovirus	1				1								2	
	Adenovirus 5				1									1	
	Herpes simplex virus 2		1											1	
	Cytomegalovirus(CMV)								1			2		3	
かぜ症候群	Coxsackievirus A4					1								1	
	Coxsackievirus A5						1		1					2	
	Coxsackievirus B2									2				2	
	Parechovirus 1							1						1	
	Parechovirus 3								2					2	
	Rhinovirus			1	1		1			1				4	
	Parainfluenza virus 3									1				1	
	Rubella virus		1*											1	
	Adenovirus 1					1			2					3	
	Adenovirus 2	1					1							2	
	Adenovirus 3								1	1				1	
	Cytomegalovirus(CMV)		1	2					1	1		1		6	
	Human herpes virus6(HHV-6)	1					2				1			4	

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	
気管支炎	Coxsackievirus A6				1									1	
	Coxsackievirus A12								1					1	
	Parechovirus 1								1					1	
	Rhinovirus				1	4	2	1	1	2			1	12	
	Parainfluenza virus 1									1				1	
	Parainfluenza virus 3							2		1				3	
	Respiratory syncytial virus(RSV)									1				1	
	Human metapneumovirus				2	1			3					6	
	Human bocavirus				1			2							3
	Adenovirus 1				1										1
Cytomegalovirus(CMV)			1											1	
肺炎	Parechovirus 1							1		1				2	
	Parechovirus 3								1					1	
	Rhinovirus				2	1	1			1	2	1		8	
	Parainfluenza virus 2												1	1	
	Parainfluenza virus 3							1						1	
	Human metapneumovirus				1	1				1				3	
	Human bocavirus					2								2	
	Adenovirus 2				1									1	
	Adenovirus 5				1									1	
	Cytomegalovirus(CMV)					1								1	
	Human herpes virus7(HHV-7)	1													1
Mycoplasma pneumonia													1	1	
発疹症	Coxsackievirus A6							1						1	
	Echovirus6									1				1	
	Parechovirus 1									1				1	
	Parechovirus 3							2						2	
	Enterovirus71				1	1								2	
	Rhinovirus			1		1	1				1		2	6	
	Adenovirus 2						1							1	
	Adenovirus 41				1									1	
	Herpes simplex virus 1					1								1	
	Cytomegalovirus(CMV)				1				1				1	3	
Human herpes virus6(HHV-6)	1	1			2		1	2			1		8		
腸重積症	Sapovirus		1											1	
熱性けいれん	Coxsackievirus A4							1						1	
	Coxsackievirus A10									1				1	
	Echovirus6									1				1	
	Influenza virus A H1 pdm09	1												1	
	Influenza virus B				1									1	
	Cytomegalovirus(CMV)							1	1					2	
	Human herpes virus6(HHV-6)					1		1					1	3	
歯肉炎	Herpes simplex virus 1								1					1	
A型肝炎	Hepatitis A virus(HAV)				1					1				2	
日本紅斑熱	Rickettsia japonica				1							1		2	
	Orientia tsutsugamushi(R. tsutsugamushi)											1	1	2	
その他(心筋炎)	Rhinovirus												1	1	
その他(無熱せいけいれん)	Cytomegalovirus(CMV)									1				1	

(複数検出を含む)

* Rubella virus はワクチン株

感染症流行予測調査について (2014年度)

百武 兼道、加藤 聖紀、本田 顕子、緒方 喜久代^{*1}

Surveillance of Vaccine-preventable Diseases, 2014

Kanemichi Hyakutake, Miki Kato, Akiko Honda, Kikuyo Ogata

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

はじめに

2014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

2014年度感染症流行予測調査実施要領に従い、国東市で飼育され、と畜場へ出荷されたブタの血液を採取し、検査材料とした。検査方法は感染症流行予測調査事業検査術式(2002年6月)に従った。

結果及び考察

2014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抗体保有ブタが確認されたのは9月5日で、前年より24日遅く(図1)、最近10年間の平均(7月16日)より51日遅かった。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%を超えたのは9月12日で、50%を超えなかった2010年を除く最近10年間の平均(8月17日)より26日遅く、100%には達しなかった。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たところ、9月5日の血清から2株、9月12日の血清から2株分離された。

2 ME感受性抗体保有率は8月下旬までは0%であったが9月上旬に50%となり、9月中旬には100%となっている。このことから、9月上旬から中旬にかけてブタの間での感染が急激に拡大したと推測される。

県内の気候は6月から7月中旬にかけて降雨量が多く、7月下旬は少雨傾向であったものの、8月も降雨量が多かった。また、6月、8月の気温は平年より低かった。日本脳炎ウイルスを媒介するコガタアカイエカの生育には高温少雨の気候が適しているが、こうした気象条件がコガタアカイエカの生育に負の影響を与え、HI抗体保有率が100%に到達しなかったことの原因と考えられる。

2014年度も県内で患者の届出はなかった。しかし、近接する熊本県では1名の患者が発生している。本調査でブタの血清から抗体が検出されたことから、県内でも日本脳炎ウイルスに感染する可能性があり、ワクチン接種の機会を逃した可能性のある平成7~18年度に生まれた世代については特に注意が必要である。

^{*1} 大分県薬剤師会検査センター

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	H I 抗体価								抗体陽性率 (%)	2 ME感受性抗体保有率 (%)
		< 10	10	20	40	80	160	320	640 ≤		
7月4日	10	10								0.0	0.0
7月14日	10	10								0.0	0.0
7月24日	10	10								0.0	0.0
8月1日	10	10								0.0	0.0
8月11日	10	10								0.0	0.0
8月25日	10	10								0.0	0.0
9月5日	10	8			1				1	20.0	50.0
9月12日	10	5							5	50.0	100.0

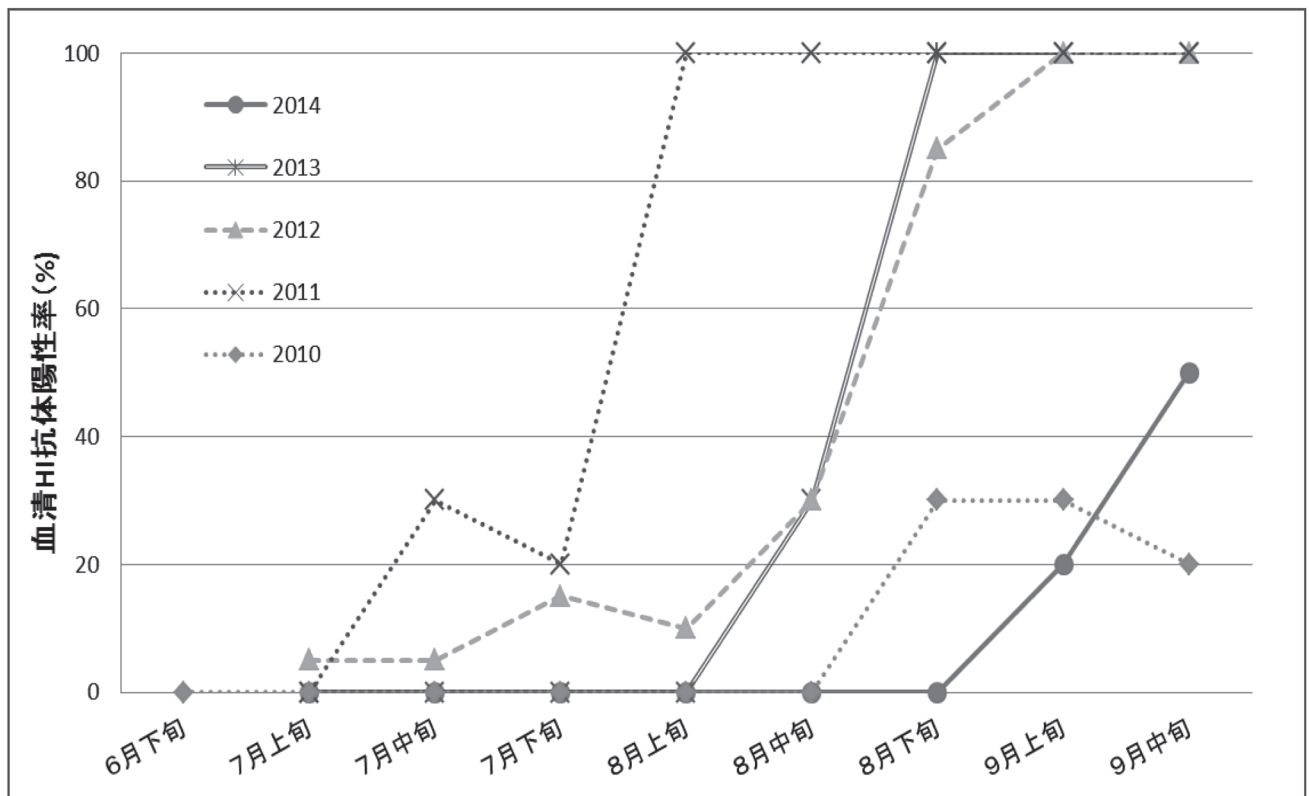


図1 各年の豚血清中HI抗体陽性率の推移 (2010年~2014年)

大分県における雨水成分調査 (2014年度)

岡本英子、伊賀上美紗、伊東達也

Ion Components of Rainwater in Oita Prefecture, 2014

Eiko Okamoto, Fusa Igagami, Tatsuya Ito

Key Words : 雨水 Rainwater, 酸性降水物 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¹⁾⁻²⁸⁾。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、2014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

2014年3月31日～2015年4月6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47万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。

当研究部は、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。

② 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²⁹⁾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⁻」という）、硝酸イオン（以下「NO₃⁻」という）、硫酸イオン（以下「SO₄²⁻」という）、アンモニウムイオン（以下「NH₄⁺」という）、ナトリウムイオン（以下「Na⁺」という）、カリウムイオン（以下「K⁺」

という)、カルシウムイオン (以下「Ca²⁺」という) 及びマグネシウムイオン (以下「Mg²⁺」という) の8成分である。

調査結果

以下に、2014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ものではなく、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³⁰⁾。

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

pHi: 各測定時のpH、Qi: 各測定時の降水量

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

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 (cm²) により算出した。

2014年度の降水量は、それぞれ、大分市1,973mm、日田市1,595mm、久住町2,169mmであった。また、1989~2014年度の年平均降水量は、大分市1,734mm、日田市1,641mm、久住町1,903mm (1994~2014年度) であった (表1-1~3)。

いずれの地点も平年並みであった。

2 pHについて

2014年度のpHの年平均値は、それぞれ、大分市pH4.57、日田市pH4.65、久住町pH4.37であった。

また、1989~2014年度における降水量加重平均値は、大分市4.59、日田市4.71、久住町4.69 (1994~2014年度) であった (表1-1~3)。

大分市では、2010年度以降ほぼ横ばいで推移している。日田市では、2011年度以降低下傾向にある。久住町では、調査を始めた1994年度以降で最も低くなった。

1週間降雨 (久住町は2週間) の測定値によるpHの分布状況を図1に示す。

大分市では、pHが4.4~4.6の範囲の雨水が最も多く、pH4.4~4.6を中心になだらかな分布となった。

日田市では、pHが4.4~4.6の範囲の雨水が最も

多く、次いでpH 5.0~5.2の範囲の雨水が多かった。前年度 (pH3.8~>6.0) と比較してpH4.0~5.6の狭い範囲の分布となった。

久住町では、pHが4.0~4.2およびpH4.4~4.6の範囲の雨水が最も多く、他地点と比較してpH4.6以下の雨水が多かった。

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⁺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⁺を基準に算出する²⁹⁾。雨水中には、海水中のSO₄²⁻やCa²⁺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、SO₄²⁻及びNO₃⁻が挙げられる。

年間平均 SO₄²⁻当量濃度は、それぞれ、大分市36.1µeq/l、日田市35.6µeq/l、久住町40.8µeq/lであり、久住町でもっとも高濃度であった。

年間平均 NO₃⁻当量濃度は、それぞれ、大分市12.5µeq/l、日田市10.7µeq/l、久住町9.3µeq/lであり、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、NH₄⁺及びCa²⁺が挙げられる。

年間平均 NH₄⁺当量濃度は、それぞれ、大分市10.6µeq/l、日田市6.2µeq/l、久住町10.7µeq/lであり、久住町でもっとも高濃度であった。

年間平均 Ca²⁺当量濃度は、それぞれ、大分市8.3µeq/l、日田市13.5µeq/l、久住町8.0µeq/lであり、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/m²) 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_4^{2-} 沈着量は、それぞれ、大分市 70.7meq/m^2 、日田市 56.7meq/m^2 、久住町 88.5 meq/m^2 であり、久住町で最大であった。

年間の NO_3^- 沈着量は、それぞれ、大分市 24.5 meq/m^2 、日田市 17.1 meq/m^2 、久住町 20.2meq/m^2 であり、大分市で最大であった。

年間の NH_4^+ 沈着量は、それぞれ、大分市 20.7 meq/m^2 、日田市 9.9meq/m^2 、久住町 23.3 meq/m^2 であり、久住町で最大であった。

年間の Ca^{2+} 沈着量は、それぞれ大分市 16.3meq/m^2 、日田市 21.5meq/m^2 、久住町 17.4 meq/m^2 であり、日田市で最大であった。

年間の総沈着量は、前年度と比較して久住町で増加し、大分市及び日田市ではほぼ横ばいであった。(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、久住町では SO_4^{2-} などの酸性成分の沈着量が増加したため、 H^+ 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) について検討した^{32)、33)}。

まず、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 、 Ca^{2+} 及び H^+ の2005年度から2014年度の10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/10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、すべての成分において、降水量の変動を加味した沈着量の年変化率が減少傾向にあった。

日田市では、すべての成分において、降水量の変動を加味した沈着量の年変化率が減少傾向にあり、特に塩基性成分である NH_4^+ の減少傾向が見られた。

久住町では、酸性成分である SO_4^{2-} が増加傾向にあったため、 H^+ も増加傾向を示した。その他の成分は減少傾向にあった。

また、すべての地点の秋季において、塩基性成分である NH_4^+ の減少傾向が見られた。

おわりに

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, 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) 酒盛早美 他:「大分県における雨水成分調査 (2011年度)], 大分県衛生環境研究センター年報, 39, 127-140 (2011)
- 27) 安東大悟 他:「大分県における雨水成分調査 (2012年度)], 大分県衛生環境研究センター年報, 40, 91-104 (2012)
- 28) 伊賀上美紗 他:「大分県における雨水成分調査 (2013年度)], 大分県衛生環境研究センター年報, 41, 82-97 (2013)
- 29) 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)
- 30) 酸性雨調査法研究会編集:「酸性雨調査法」, (株)ぎょうせい, P263-264, 267-268
- 31) 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
- 32) 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)
- 33) 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
		平均値注)	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	
2012	4.58	5.85	3.72	49	2506		
2013	4.57	5.92	3.78	38	1770		
2014	4.57	4.90	4.21	39	1973		

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
		平均値注)	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		
2010	4.75	5.73	4.05	43	1629	4/7~7/14 水曜採取	
2011	4.83	6.20	3.57	42	2313		
2012	4.75	5.40	3.92	48	2107		
2013	4.68	6.34	3.94	43	1755		
2014	4.65	5.14	4.27	45	1595		

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
		平均値注)	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	
	2012	4.59	6.26	4.19	27	2110	
	2013	4.65	5.17	3.99	27	2021	
2014	4.37	4.92	4.01	28	2169		

注)降水量加重年平均値

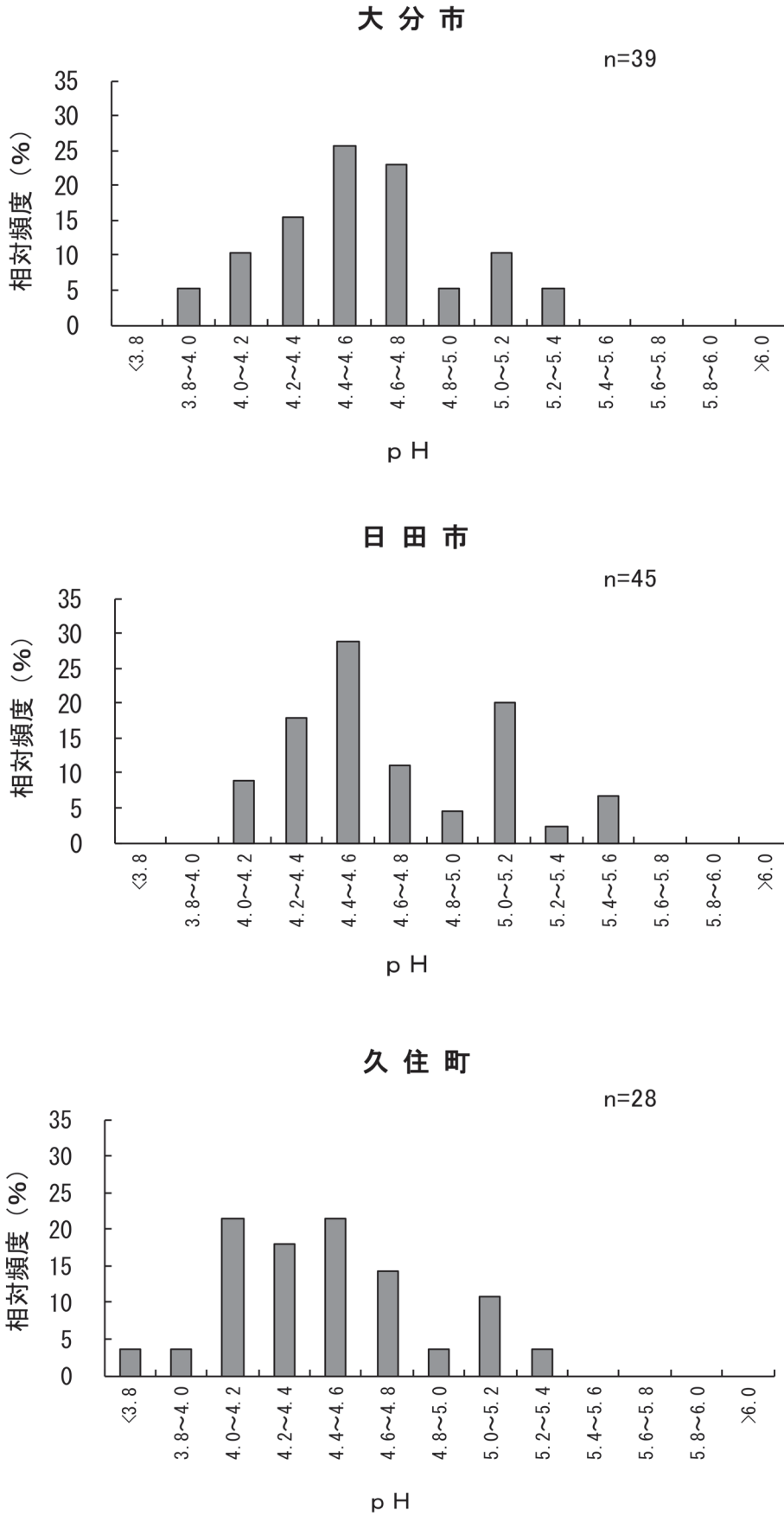


図1 2014年度 雨水のpH分布

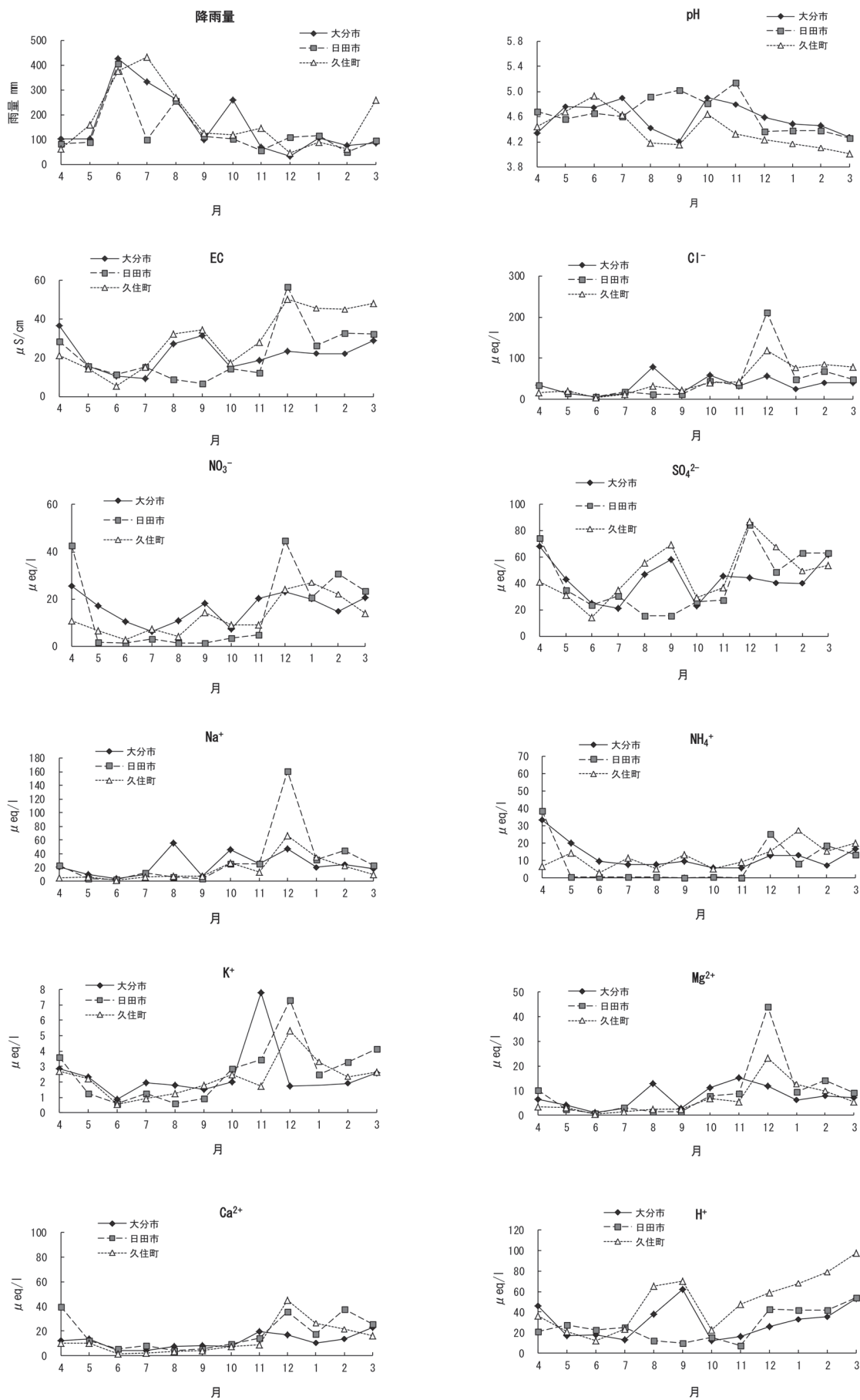
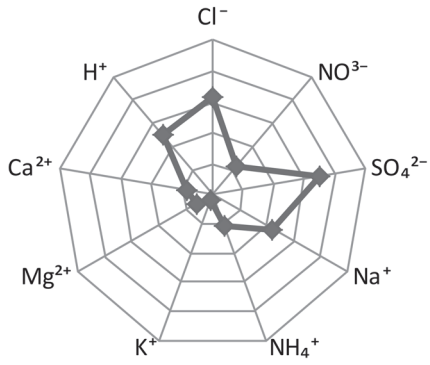


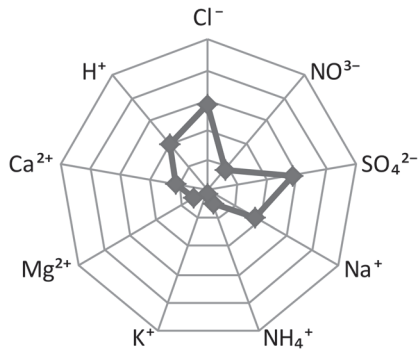
図2 イオン成分濃度の季節変動 (成分別)

大分市



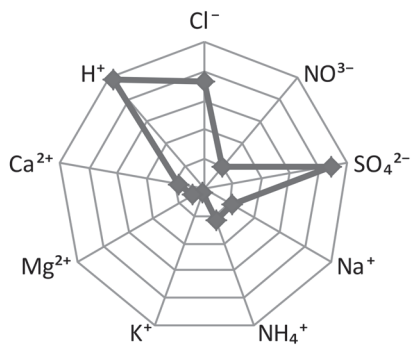
最外円沈着量100meq/m²

日田市



最外円沈着量100meq/m²

久住町



最外円沈着量100meq/m²

図3 2014年度 年間イオン成分沈着量 (地点別)

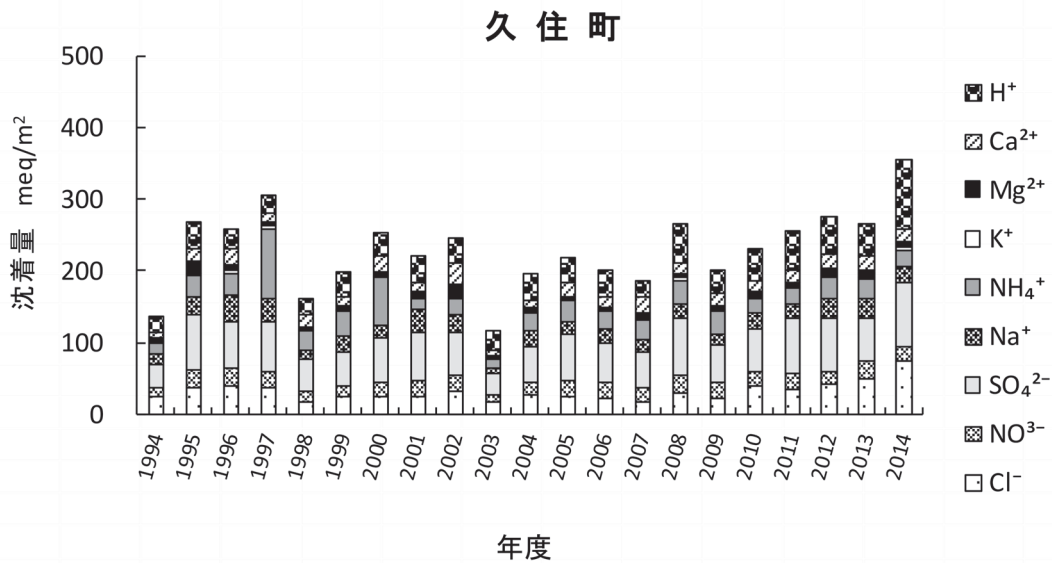
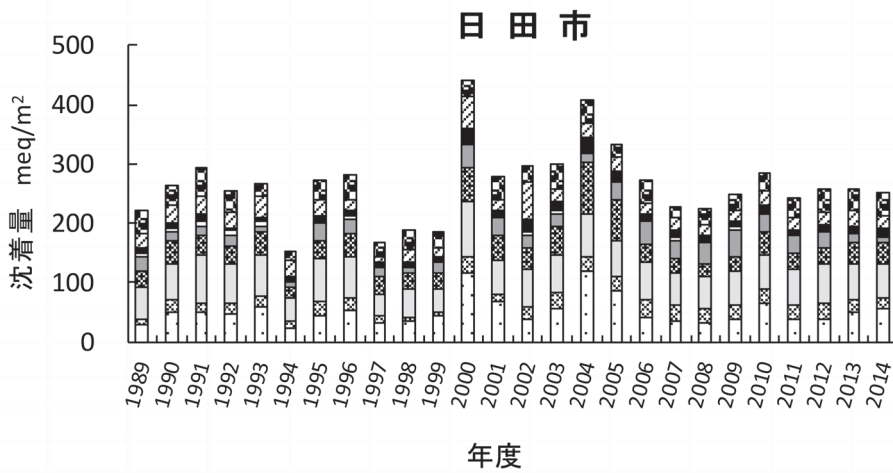
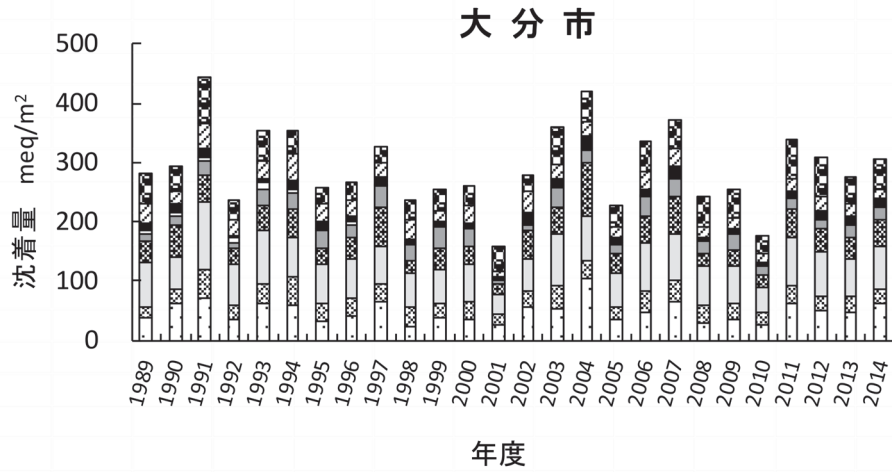


図4 イオン成分沈着量の経年変化(地点別)

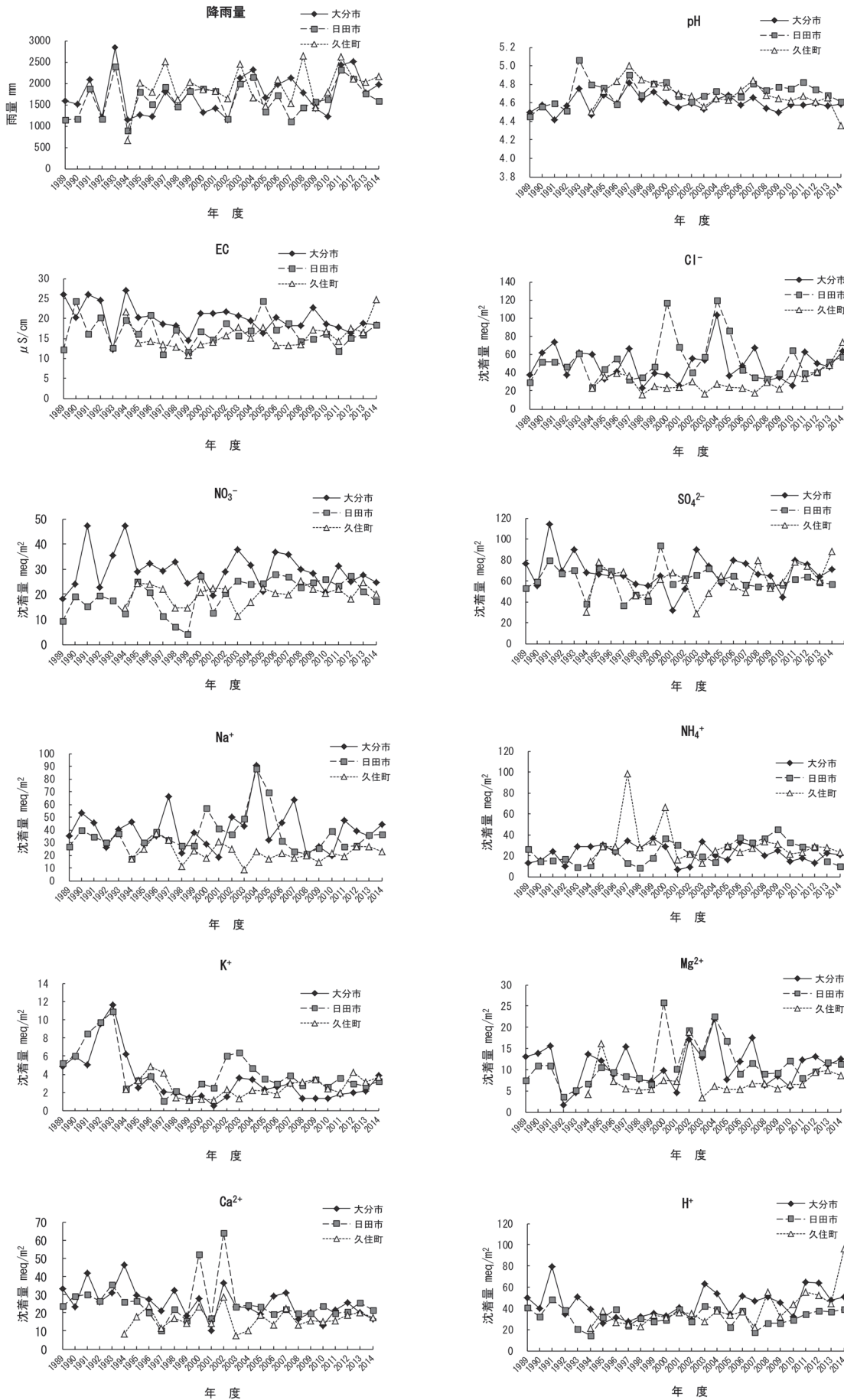


図5 イオン成分沈着量の経年変動（成分別）

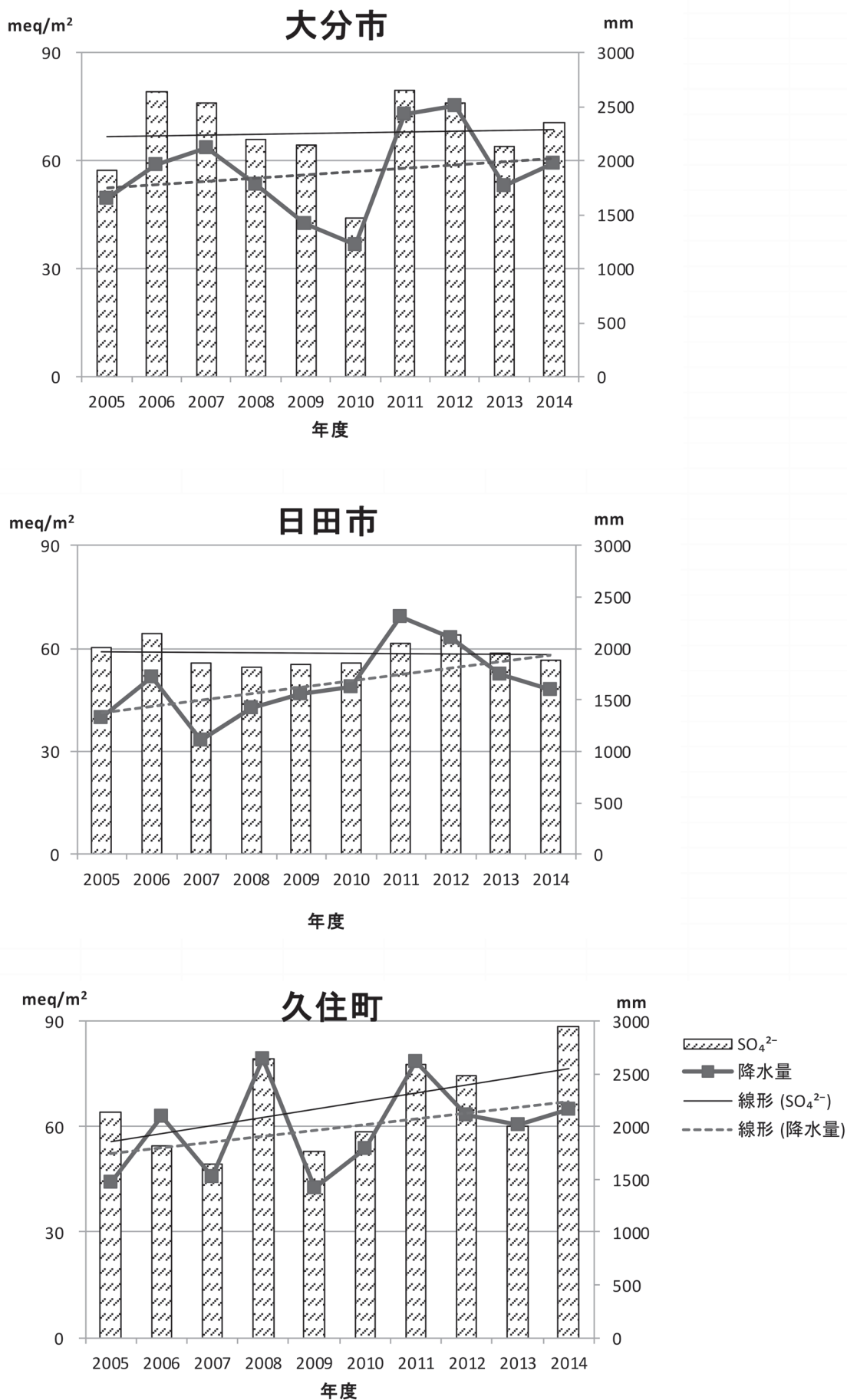


図6 SO₄²⁻の年間沈着量と降水量の経年変化

表2 2014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 μ eq/l	NO ₃ ⁻ μ eq/l	SO ₄ ²⁻ μ eq/l	Na ⁺ μ eq/l	NH ₄ ⁺ μ eq/l	K ⁺ μ eq/l	Mg ²⁺ μ eq/l	Ca ²⁺ μ eq/l	H ⁺ μ eq/l	SO ₄ ²⁻		Ca ²⁺	
																μ eq/l	%	μ eq/l	%
4月	3月31日	4月28日	28	104	4.34	36.5	34.4	25.5	68.3	21.2	33.6	2.9	6.6	12.0	46.0	65.8	96	11.0	92
5月	4月28日	6月2日	35	104	4.76	15.6	15.3	17.0	42.7	9.4	19.9	2.3	4.1	13.6	17.4	41.6	97	13.1	97
6月	6月2日	6月30日	28	48	4.74	10.5	5.8	10.3	25.0	3.8	9.6	0.9	1.2	3.8	18.0	24.5	98	3.7	96
7月	6月30日	8月4日	35	334	4.90	9.4	13.6	6.3	21.2	10.0	7.5	2.0	2.8	3.9	12.7	20.0	94	3.4	89
8月	8月4日	9月1日	28	265	4.42	27.3	79.6	10.7	47.0	56.0	7.8	1.8	13.0	7.4	38.1	40.3	86	4.9	67
9月	9月1日	9月29日	28	101	4.21	31.5	16.8	18.2	58.2	7.3	9.4	1.5	2.9	8.2	62.2	57.3	98	7.9	96
10月	9月29日	10月27日	28	262	4.90	15.3	58.4	7.2	23.3	45.5	5.6	2.0	11.2	7.8	12.6	17.8	76	5.8	75
11月	10月27日	12月1日	35	70	4.79	18.8	33.1	20.1	45.8	25.4	6.0	7.8	15.3	19.4	16.1	42.8	93	18.3	94
12月	12月1日	12月26日	25	33	4.59	23.3	56.6	23.0	44.5	47.5	12.8	1.7	11.7	17.0	25.9	38.8	87	14.9	88
1月	12月26日	2月2日	38	109	4.48	22.2	25.3	20.0	40.3	20.2	13.1	1.8	6.3	10.4	32.9	37.9	94	9.5	92
2月	2月2日	3月2日	28	77	4.45	22.1	40.4	14.8	40.1	24.5	7.2	1.9	7.9	13.6	35.4	37.2	93	12.5	92
3月	3月2日	3月30日	28	87	4.27	28.8	41.2	20.6	62.0	17.9	16.6	2.6	7.3	22.6	53.2	59.8	97	21.8	9
年間値	3月31日	3月30日	364	1,973	4.59	18.3	32.4	12.5	36.1	22.7	10.6	2.0	6.4	8.3	25.9	33.4	92	7.3	88

日田市

	測定期間		測定 日数	降雨量 mm	成 分 濃 度											非海塩成分量			
	開始	終了			pH	EC μ S/cm	Cl μ eq/l	NO ₃ ⁻ μ eq/l	SO ₄ ²⁻ μ eq/l	Na ⁺ μ eq/l	NH ₄ ⁺ μ eq/l	K ⁺ μ eq/l	Mg ²⁺ μ eq/l	Ca ²⁺ μ eq/l	H ⁺ μ eq/l	SO ₄ ²⁻		Ca ²⁺	
																μ eq/l	%	μ eq/l	%
4月	3月31日	4月28日	28	86	4.68	28.4	34.1	42.7	74.7	22.9	38.8	3.6	10.4	39.5	21.0	71.9	96	38.5	97
5月	4月28日	6月2日	35	91	4.56	15.7	13.8	1.8	35.0	4.3	0.4	1.3	2.5	12.2	27.8	34.5	99	12.0	98
6月	6月2日	7月7日	35	408	4.65	11.5	6.7	1.4	23.7	2.3	0.7	0.6	0.9	5.6	22.3	23.4	99	5.5	98
7月	7月7日	8月4日	28	100	4.60	15.4	19.4	3.1	30.6	12.2	0.7	1.3	3.3	8.4	25.4	29.1	95	7.9	94
8月	8月4日	9月1日	28	259	4.92	8.7	12.7	1.5	15.6	6.7	0.4	0.6	1.6	4.0	12.1	14.8	95	3.7	93
9月	9月1日	9月29日	28	113	5.03	6.9	11.6	1.4	15.4	4.2	0.2	0.9	1.6	5.8	9.4	14.9	97	5.6	97
10月	9月29日	10月27日	28	104	4.82	14.2	44.7	3.6	26.0	25.6	0.8	2.9	8.0	9.7	15.3	22.9	88	8.6	89
11月	10月27日	11月25日	29	58	5.14	12.2	33.7	4.8	27.2	25.8	0.1	3.5	8.8	14.5	7.2	24.1	89	13.4	92
12月	11月25日	1月5日	41	110	4.37	56.7	211.6	44.6	84.7	161.1	25.5	7.3	44.2	35.4	42.9	65.4	77	28.4	80
1月	1月5日	2月2日	28	117	4.38	26.3	48.9	20.7	48.9	32.0	8.2	2.5	9.6	17.7	41.7	45.0	92	16.3	92
2月	2月2日	3月2日	28	50	4.37	32.5	68.5	30.9	63.0	44.4	18.7	3.3	14.3	37.5	42.2	57.6	92	35.5	95
3月	3月2日	3月30日	28	98	4.27	32.4	48.2	23.3	63.1	22.7	13.5	4.2	9.1	25.5	54.3	60.4	96	24.5	96
年間値	3月31日	3月30日	364	1,595	4.61	18.4	35.9	10.7	35.6	23.1	6.2	2.0	7.1	13.5	24.6	32.8	92	12.5	93

久住町

	測定期間		測定 日数	降雨量 mm	成 分 濃 度											非海塩成分量			
	開始	終了			pH	EC μ S/cm	Cl μ eq/l	NO ₃ ⁻ μ eq/l	SO ₄ ²⁻ μ eq/l	Na ⁺ μ eq/l	NH ₄ ⁺ μ eq/l	K ⁺ μ eq/l	Mg ²⁺ μ eq/l	Ca ²⁺ μ eq/l	H ⁺ μ eq/l	SO ₄ ²⁻		Ca ²⁺	
																μ eq/l	%	μ eq/l	%
4月	4月7日	4月21日	14	65	4.44	21.3	15.8	10.8	41.3	5.0	6.9	2.7	3.5	10.3	36.3	40.7	99	10.1	98
5月	4月21日	6月2日	42	161	4.68	14.4	20.3	6.6	30.8	6.1	14.2	2.2	3.1	10.3	21.1	30.1	98	10.0	97
6月	6月2日	6月30日	28	377	4.92	5.5	4.9	2.8	14.3	1.2	2.9	0.6	0.6	1.5	11.9	14.2	99	1.4	96
7月	6月30日	8月4日	35	435	4.62	15.2	13.2	7.5	34.7	6.1	11.4	0.9	1.4	2.0	23.9	34.0	98	1.7	87
8月	8月4日	8月25日	21	272	4.18	32.4	32.8	4.3	55.7	7.4	5.4	1.2	2.6	3.4	65.5	54.8	98	3.1	91
9月	8月25日	9月22日	28	127	4.15	34.3	23.4	14.2	69.3	7.9	13.2	1.8	2.6	4.1	70.4	68.4	99	3.8	92
10月	9月22日	10月20日	28	120	4.64	17.3	40.0	9.1	29.0	26.9	5.1	2.5	7.0	7.2	23.0	25.8	89	6.0	84
11月	10月20日	12月1日	42	148	4.32	27.9	43.1	9.2	36.5	13.2	9.0	1.7	5.4	8.9	47.7	35.0	96	8.4	94
12月	12月1日	12月26日	25	46	4.23	50.3	119.6	24.1	87.1	66.7	15.3	5.3	23.4	45.2	58.7	79.1	91	42.3	94
1月	12月26日	1月26日	31	92	4.17	45.6	76.8	27.0	67.6	34.8	27.4	3.3	12.7	26.3	68.1	63.5	94	24.8	94
2月	1月26日	2月23日	28	64	4.10	45.0	85.5	22.0	49.4	22.2	15.2	2.3	10.0	21.4	78.9	46.8	95	20.4	95
3月	2月23日	4月6日	42	262	4.01	48.0	78.9	14.1	53.9	10.2	20.0	2.7	5.6	16.0	97.3	52.7	98	15.5	97
年間値	4月7日	4月6日	364	2,169	4.35	24.8	34.0	9.3	40.8	10.6	10.7	1.7	4.0	8.0	44.6	39.5	97	7.6	94

注) 降雨量加重平均値

表3 2014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 μ S/cm	Cl ⁻ meq/m ²	NO ₃ ⁻ meq/m ²	SO ₄ ²⁻ meq/m ²	Na ⁺ meq/m ²	NH ₄ ⁺ meq/m ²	K ⁺ meq/m ²	Mg ²⁺ meq/m ²	Ca ²⁺ meq/m ²	H ⁺ meq/m ²	nss-SO ₄ ²⁻		nss-Ca ²⁺		
																meq/m ²	%	meq/m ²	%	
4月	3月31日	4月28日	28	104	4.34	36.5	3.5	2.6	7.0	2.2	3.4	0.3	0.7	1.2	4.7	6.7	96	1.1	92	
5月	4月28日	6月2日	35	104	4.76	15.6	1.5	1.7	4.3	0.9	2.0	0.2	0.4	1.4	1.7	4.2	97	1.3	97	
6月	6月2日	6月30日	28	428	4.74	10.5	2.5	4.4	10.7	1.6	4.1	0.4	0.5	1.6	7.7	10.5	98	1.6	96	
7月	6月30日	8月4日	35	334	4.90	9.4	4.5	2.1	7.1	3.3	2.5	0.6	0.9	1.3	4.2	6.7	94	1.1	89	
8月	8月4日	9月1日	28	265	4.42	27.3	21.1	2.8	12.5	14.8	2.1	0.5	3.5	2.0	10.1	10.7	86	1.3	67	
9月	9月1日	9月29日	28	101	4.21	31.5	1.7	1.8	5.8	0.7	0.9	0.2	0.3	0.8	6.2	5.7	98	0.8	96	
10月	9月29日	10月27日	28	262	4.90	15.3	15.3	1.9	6.1	11.9	1.5	0.5	2.9	2.0	3.3	4.7	76	1.5	75	
11月	10月27日	12月1日	35	70	4.79	18.8	2.3	1.4	3.2	1.8	0.4	0.5	1.1	1.3	1.1	3.0	93	1.3	94	
12月	12月1日	12月26日	25	33	4.59	23.3	1.8	0.7	1.5	1.5	0.4	0.1	0.4	0.6	0.8	1.3	87	0.5	88	
1月	12月26日	2月2日	38	109	4.48	22.2	2.7	2.1	4.3	2.2	1.4	0.2	0.7	1.1	3.5	4.0	94	1.0	92	
2月	2月2日	3月2日	28	77	4.45	22.1	3.0	1.1	3.0	1.8	0.5	0.1	0.6	1.0	2.7	2.8	93	0.9	92	
3月	3月2日	3月30日	28	87	4.27	28.8	3.5	1.8	5.3	1.5	1.4	0.2	0.6	1.9	4.6	5.1	97	1.9	97	
年間値	3月31日	3月30日	364	1,973	4.59	18.3	63.5	24.5	70.7	44.4	20.7	3.9	12.5	16.3	50.7	65.4	92	14.4	88	

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 μ S/cm	Cl ⁻ meq/m ²	NO ₃ ⁻ meq/m ²	SO ₄ ²⁻ meq/m ²	Na ⁺ meq/m ²	NH ₄ ⁺ meq/m ²	K ⁺ meq/m ²	Mg ²⁺ meq/m ²	Ca ²⁺ meq/m ²	H ⁺ meq/m ²	nss-SO ₄ ²⁻		nss-Ca ²⁺		
																meq/m ²	%	meq/m ²	%	
4月	3月31日	4月28日	28	86	4.68	28.4	2.9	3.6	6.4	2.0	3.3	0.3	0.9	3.4	1.8	6.2	96	3.3	97	
5月	4月28日	6月2日	35	91	4.56	15.7	1.3	0.2	3.2	0.4	0.0	0.1	0.2	1.1	2.5	3.1	99	1.1	98	
6月	6月2日	6月30日	35	408	4.65	11.5	2.7	0.6	9.7	0.9	0.3	0.3	0.4	2.3	9.1	9.5	99	2.2	98	
7月	6月30日	7月7日	28	100	4.60	15.4	1.9	0.3	3.1	1.2	0.1	0.1	0.3	0.8	2.5	2.9	95	0.8	94	
8月	7月7日	8月4日	28	259	4.92	8.7	3.3	0.4	4.0	1.7	0.1	0.2	0.4	1.0	3.1	3.8	95	1.0	93	
9月	8月4日	9月29日	28	113	5.03	6.9	1.3	0.2	1.7	0.5	0.0	0.1	0.2	0.7	1.1	1.7	97	0.6	97	
10月	9月29日	10月27日	28	104	4.82	14.2	4.7	0.4	2.7	2.7	0.1	0.3	0.8	1.0	1.6	2.4	88	0.9	89	
11月	10月27日	11月25日	29	58	5.14	12.2	1.9	0.3	1.6	1.5	0.0	0.2	0.5	0.8	0.4	1.4	89	0.8	92	
12月	11月25日	1月5日	41	110	4.37	56.7	23.2	4.9	9.3	17.7	2.8	0.8	4.9	3.9	4.7	7.2	77	3.1	80	
1月	1月5日	2月2日	28	117	4.38	26.3	5.7	2.4	5.7	3.8	1.0	0.3	1.1	2.1	4.9	5.3	92	1.9	92	
2月	2月2日	3月2日	28	50	4.37	32.5	3.4	1.6	3.2	2.2	0.9	0.2	0.7	1.9	2.1	2.9	92	1.8	95	
3月	3月2日	3月30日	28	98	4.27	32.4	4.7	2.3	6.2	2.2	1.3	0.4	0.9	2.5	5.3	5.9	96	2.4	96	
年間値	3月31日	3月30日	364	1,595	4.61	18.4	57.1	17.1	56.7	36.7	9.9	3.2	11.3	21.5	39.2	52.3	92	19.9	93	

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 μ S/cm	Cl ⁻ meq/m ²	NO ₃ ⁻ meq/m ²	SO ₄ ²⁻ meq/m ²	Na ⁺ meq/m ²	NH ₄ ⁺ meq/m ²	K ⁺ meq/m ²	Mg ²⁺ meq/m ²	Ca ²⁺ meq/m ²	H ⁺ meq/m ²	nss-SO ₄ ²⁻		nss-Ca ²⁺		
																meq/m ²	%	meq/m ²	%	
4月	4月7日	4月21日	14	65	4.44	21.3	1.0	0.7	2.7	0.3	0.4	0.2	0.2	0.7	2.4	2.6	99	0.7	98	
5月	4月21日	6月2日	42	161	4.68	14.4	3.3	1.1	5.0	1.0	2.3	0.4	0.5	1.7	3.4	4.8	98	1.6	97	
6月	6月2日	6月30日	28	377	4.92	5.5	1.9	1.0	5.4	0.5	1.1	0.2	0.2	0.6	4.5	5.3	99	0.5	96	
7月	6月30日	8月4日	35	435	4.62	15.2	5.7	3.3	15.1	2.7	5.0	0.4	0.6	0.9	10.4	14.8	98	0.8	87	
8月	8月4日	8月25日	21	272	4.18	32.4	8.9	1.2	15.1	2.0	1.5	0.3	0.7	0.9	17.8	14.9	98	0.8	91	
9月	8月25日	9月22日	28	127	4.15	34.3	3.0	1.8	8.8	1.0	1.7	0.2	0.3	0.5	8.9	8.7	99	0.5	92	
10月	9月22日	10月20日	28	120	4.64	17.3	4.8	1.1	3.5	3.2	0.6	0.3	0.8	0.9	2.8	3.1	89	0.7	84	
11月	10月20日	12月1日	42	148	4.32	27.9	6.4	1.4	5.4	2.0	1.3	0.3	0.8	1.3	7.1	5.2	96	1.2	94	
12月	12月1日	12月26日	25	46	4.23	50.3	5.5	1.1	4.0	3.1	0.7	0.2	1.1	2.1	2.7	3.6	91	2.0	94	
1月	12月26日	1月26日	31	92	4.17	45.6	7.1	2.5	6.2	3.2	2.5	0.3	1.2	2.4	6.3	5.8	94	2.3	94	
2月	1月26日	2月23日	28	694	4.10	45.0	5.4	1.4	3.1	1.4	1.0	0.1	0.6	1.4	5.0	3.0	95	1.3	95	
3月	2月23日	4月6日	42	262	4.01	48.0	20.6	3.7	14.1	2.7	5.2	0.7	1.5	4.2	25.5	13.8	98	4.1	97	
年間値	4月7日	4月6日	364	2,169	4.35	24.8	73.6	20.2	88.5	23.0	23.3	3.7	8.6	17.4	96.7	85.7	97	16.4	94	

表4 イオン成分沈着量年変化率 (2005~2014年度)

大分市

(%/year)

	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺	Ca ²⁺	H ⁺
春季	-3.2	-5.4	-6.4	-12.8	0.9
夏季	0.8	0.4	-0.4	5.3	2.3
秋季	-8.8	-10.4	-15.6	-6.2	-8.5
冬季	0.0	-0.3	-0.5	-3.7	3.2
年間	-1.3	-3.5	-5.4	-4.6	1.2

日田市

	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺	Ca ²⁺	H ⁺
春季	0.2	-4.1	-10.4	0.2	4.5
夏季	-4.7	-5.2	-11.5	3.5	-2.5
秋季	-9.4	-12.9	-18.1	-6.5	-0.7
冬季	-5.0	-4.4	-9.3	-6.6	3.7
年間	-3.9	-6.5	-11.8	-3.1	1.8

久住町

	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺	Ca ²⁺	H ⁺
春季	-1.6	-4.2	-6.6	0.1	1.2
夏季	0.2	1.8	1.7	8.8	0.6
秋季	-3.0	-8.6	-12.6	-2.1	0.1
冬季	-3.3	-1.9	-6.1	-6.4	5.9
年間	0.8	-3.0	-3.9	-2.0	7.3

環境水におけるノニルフェノール分析方法の検討

中村 千晴

Analytical method of Nonylphenol in environmental water

chiharu Nakamura

Key words : ノニルフェノール Nonylphenol, 固相抽出 Solid Phase Extraction

要 旨

ノニルフェノール（以下、NP）の分析方法について固相カラム、溶出溶媒及び溶出量の検討を行った。告示法（環境庁告示第59号付表11）に示される溶出溶媒（アセトン）及び溶出量（4 mL）をジクロロメタン6 mLに変更したところ、固相カラムは3種類のうち2種類でNP回収率、サロゲート物質回収率とも良好な結果となった。また、最も良い回収率の得られた固相カラムで河川水への添加回収試験を行ったところ、NP回収率、サロゲート物質回収率とも許容範囲を満足する結果を得た。

目 的

NPは内分泌攪乱作用を有するといわれている物質であり、水生生物及びその生育環境に影響があるといわれている¹⁾。そのため、平成24年8月22日には環境基本法に基づく水質汚濁に係る生活環境の保全に関する環境基準のうち、水生生物の保全に係る環境基準（水生生物環境基準）項目として追加された。

NPは主にノニルフェノールエトキシレート（以下、NPnEO）の原材料として使用されており、環境への排出は全て人為発生源からのものである。NPとして環境中に排出されるものと、NPnEOの分解生成物として環境中に排出されるものとが存在するが、主に繊維産業、金属加工業、工業洗浄、クリーニング業等から排出されたNPnEOの分解による排出が多いといわれている²⁾。

告示法に従って確認試験を行ったところ、次の点に問題があった。(1) 異性体のピークのうち、定量イオンのピークは検出されるが、確認イオンのピークは検出されないものがある。(2) 添加回収試験において、標準物質は良好な回収率が得られるがサロゲート物質については回収率が低い。

これらのことから前処理条件について検討を行った。

方 法

1 試薬等

NP標準試薬はNP異性体混合物50 µg/mL in acetone、サロゲート物質は¹³Cラベル化4-(3,6-ジメチル-3-ヘプチル)フェノールサロゲート溶液10 µg/mL in acetone（以上、シグマアルドリッチ社製）、内部標準物質はp-n-ノニルフェノール-d4標準品（環境分析用）、ジクロロメタン及びアセトンは残留農薬・PCB試験5000倍濃縮用、硫酸ナトリウム（無水）は残留農薬・PCB試験用、塩酸は特級（以上、和光純薬工業(株)製）を使用した。また、水はメルク(株)製MilliQ Integral 10 EDSで精製した超純水を使用した。

固相カラムについては、ジーエルサイエンス社製InertSep PLS-3（270mg/6mL）、シグマアルドリッチ社製Supel Select HLB（200mg/6mL）、ウォーターズ社製Oasis HLB（200mg/6mL）を使用した。

2 分析方法

2.1 前処理

前処理には固相抽出装置アクアトレースASPE599（ジーエルサイエンス社製）を使用した。1mol/L塩酸でpH3.5に調製した試料水500mLにサロゲート物質0.05 µgを添加し、あらかじめアセトン及

び水でコンディショニングした固相カラムに毎分7 mLで通水した後、水洗し、30分間窒素を吹き付け水分を除去した。その後、アセトンを滴下して溶出させ、40°Cに加熱した状態で窒素吹き付けによる濃縮を行い、濃縮液をジクロロメタンに転溶し硫酸ナトリウム（無水）約0.3gで脱水を行った。その後、内標準物質0.05 μ gを添加し、約0.5mLに濃縮して検液とした。

この方法を基本とし、いくつかの検討を行った。

2.2 分析装置

表1 GC/MS分析条件

GC条件	
キャリアガス	He 1.3mL/min
カラム	ジーエルサイエンス(株)製 InertCap 5MS/NP(0.25mm I.D.×30m, df=0.25 μ m)
注入法	パルスドスプリットレス(30psi, 1min)
注入口温度	250°C
ライナー	アジレント・テクノロジー(株)製5190-2293
注入量	2 μ L
昇温条件	50°C (1min)-8°C/min-200°C (0min)-20°C/min-300°C (2min)
MS条件	
イオン源温度	270°C
GCITF温度	280°C
測定モード	SIM

表2 各異性体の保持時間(min)、定量イオン(m/z)、確認イオン(m/z)及び組成比

No.	物質名	保持時間 (min)	定量イオン (m/z)	確認イオン (m/z)	組成比
NP1	4-(2,4-ジメチルヘプタン-4-イル)フェノール	18:03	121	163	0.0418698
NP2	4-(2,4-ジメチルヘプタン-2-イル)フェノール	18:10	135	220	0.1169004
NP3	4-(3,6-ジメチルヘプタン-3-イル)フェノール	18:18	135	107	0.1759162
NP4	4-(3,5-ジメチルヘプタン-3-イル)フェノール	18:21	149	191	0.0833272
NP5	4-(2,5-ジメチルヘプタン-2-イル)フェノール	18:24	135	163	0.0613082
NP6	4-(3,5-ジメチルヘプタン-3-イル)フェノール	18:26	149	191	0.0573639
NP7	4-(3-エチル-2-メチルヘキサ-2-イル)フェノール	18:34	135	220	0.0702268
NP8	4-(3,4-ジメチルヘプタン-4-イル)フェノール	18:37	163	121	0.0386222
NP9	4-(3,4-ジメチルヘプタン-3-イル)フェノール	18:41	149	107	0.0853361
NP10	4-(3,4-ジメチルヘプタン-4-イル)フェノール	18:44	163	121	0.0360743
NP11	4-(2,3-ジメチルヘプタン-2-イル)フェノール	18:49	135	220	0.1408293
NP12	4-(3-メチルオクタン-3-イル)フェノール	18:53	191	163	0.0412823
NP13	4-(3,4-ジメチルヘプタン-3-イル)フェノール	18:56	149	107	0.0509432
サロゲート	13Cラベル化4-(3,6-ジメチル-3-ヘプチル)フェノール	18:17	155	113	
内標	p-n-ノニルフェノール-d4	20:16	111	224	

※NP4と6、NP8と10、NP9と13はそれぞれ立体異性体

2.3 添加回収試験

NP標準液をアセトンを用いて2 μ g/mLに調製し、0.5 μ g/Lとなるように超純水及び検体に添加した。

結 果

1 濃縮倍率の検討

告示法のとおり標準液を調製して測定したとこ

ろ、NP5、NP7、NP12の確認イオンのピークが検出されなかった。そのため、約0.5mLに濃縮するところを約0.2mLに濃縮して測定したところ、全てのピークが検出された。そのため、以後は検液を約0.2mLに濃縮した。

2 超純水への添加回収試験

2.1 固相カラム及び溶出溶媒の検討

PLS-3、Supel Select HLB、Oasis HLBの3種類の固相カラムを用いて、添加回収試験を行った。ブランク値は、PLS-3及びSupel Select HLBにおいて告示法で示される定量下限値0.06 µg/L未満となった。Oasis HLBでは0.31 µg/Lと0.06 µg/Lを超える結果となったため、検討対象から除外した。NP平均回収率はPLS-3が77.7%(n=2)、Supel Select HLBが85.3%(n=2)であり、サロゲート物質平均回収率はPLS-3が44.4%(n=2)、Supel Select HLBが53.9%(n=2)であった。変動係数は

いずれも10%未満であった。

溶出溶媒をアセトンからジクロロメタンにし、上記3種類の固相カラムを用いて添加回収試験を行った。その際、固相カラムのコンディショニングは、ジクロロメタン、アセトン、水の順に行った。ブランク値は、PLS-3及びSupel Select HLBにおいて、告示法で示される定量下限値0.06 µg/L未満となった。Oasis HLBでは0.41 µg/Lと0.06 µg/Lを超える結果となったため、検討対象から除外した。NP平均回収率はPLS-3が82.9% (n=2)、Supel Select HLBが84.1%(n=2)であった。また、サロゲート物質平均回収率はPLS-3が54.6% (n=2)、Supel Select HLBが58.6%(n=2)であった。変動係数はいずれも10%未満であった。(表3、表4)

この結果から、ジクロロメタンの方がよい回収率を得たため、以後はジクロロメタンで溶出した。

表3 固相カラム、溶出溶媒及び溶出量の違いによるブランク値

溶出溶媒	溶出量	PLS-3	Supel Select HLB	Oasis HLB
アセトン	4mL	<0.06	<0.06	0.31
ジクロロメタン	4mL	<0.06	<0.06	0.41
	6mL	<0.06	<0.06	

表4 固相カラム、溶出溶媒及び溶出量の違いによる回収率 (単位: %, n=2)

溶出溶媒	溶出量	回収率	PLS-3	Supel Select HLB
アセトン	4mL	NP回収率	77.7	85.3
		サロゲート回収率	44.4	53.9
ジクロロメタン	4mL	NP回収率	82.9	84.1
		サロゲート回収率	54.6	58.6
	6mL	NP回収率	89.2	<u>90.4</u>
		サロゲート回収率	69.7	<u>75.7</u>

2.2 固相カラム及び溶出量の検討

PLS-3、Supel Select HLBの2種類の固相カラムを用いて、ジクロロメタンの溶出量を4mLから6mLにして添加回収試験を行った。ブランク値は、どちらも0.06 µg/L未満となった。NP平均回収率はPLS-3が89.2%(n=2)、Supel Select HLBが90.4%(n=2)であった。また、サロゲート物質平均回収率はPLS-3が69.7%(n=2)、Supel Select HLBが75.7%(n=2)で

あり、変動係数はいずれも10%未満であった。(表3、表4)

この結果から、固相カラムはSupel Select HLB、溶出溶媒及び溶出量はジクロロメタン6mLを用い、以後の測定を行った。

2.3 河川水への添加回収試験

県内の環境基準点の河川水5検体を試料とし、上

記の条件で測定を行ったところ、全ての検体で定量下限値0.06 μ g/L未満であった。

また、この5検体で添加回収試験を行ったところ、NP回収率は91.9~97.0%、サロゲート物質回収率は64.2~74.9%であった。

考 察

以上の結果から、濃縮倍率は約2500倍、固相カラムはSupel Select HLB、溶出溶媒及び溶出量はジクロロメタン6 mLが最適な前処理条件であった。NP回収率の許容範囲目安は70~120%³⁾、サロゲート物質の回収率は50~120%とされており、今回の前処理条件では満足することができた。

河川水への添加回収試験においても、NP回収率、サロゲート物質回収率ともに許容範囲を満足する結果となった。しかし、超純水への添加回収試験と比較してサロゲート物質回収率は少し低い傾向にあった。フェノール類はマトリックスの影響により測定感度が上昇するという報告⁴⁾があり、今回の結果もマトリックスの影響を受けたものと推測される。NP標準物質やサロゲート物質に比較して、内標準物質の方がマトリックスの影響を受けやすいため、サロゲート物質回収率が低い結果となったと考えられる。マトリックスの影響がある試料を測定する際

にはクリーンアップ操作を行ってその影響を除去するなどにより、サロゲート物質回収率を検討する必要があると思われる。

今回の検討結果から、溶出溶媒を告示法に示されるアセトンからジクロロメタンに変更すると回収率の向上がみられた。また、アセトンを使用した場合にはジクロロメタンに転溶するという操作が必要になるが、ジクロロメタンを使用した場合には転溶操作が必要ない。そのため、前処理を短縮することができ効率性が高まるが、ジクロロメタンは毒性が高いため使用の際には注意が必要である。

参 考 文 献

- 1) 環境省環境保健部環境リスク評価室：化学物質の環境リスク評価 第2巻 (2003)
- 2) 環境省総合環境政策局環境保健部：ノニルフェノールが魚類に与える内分泌攪乱作用の試験結果に関する報告 (2001)
- 3) 環境省水・大気環境局水環境課：要調査項目等調査マニュアル (水質、底質、水生生物), 12 (2008)
- 4) 高橋保雄、森田昌敏：GC/MSによる水中のフェノール類分析, 環境化学, Vol6, No3, 363-373, (1996)