

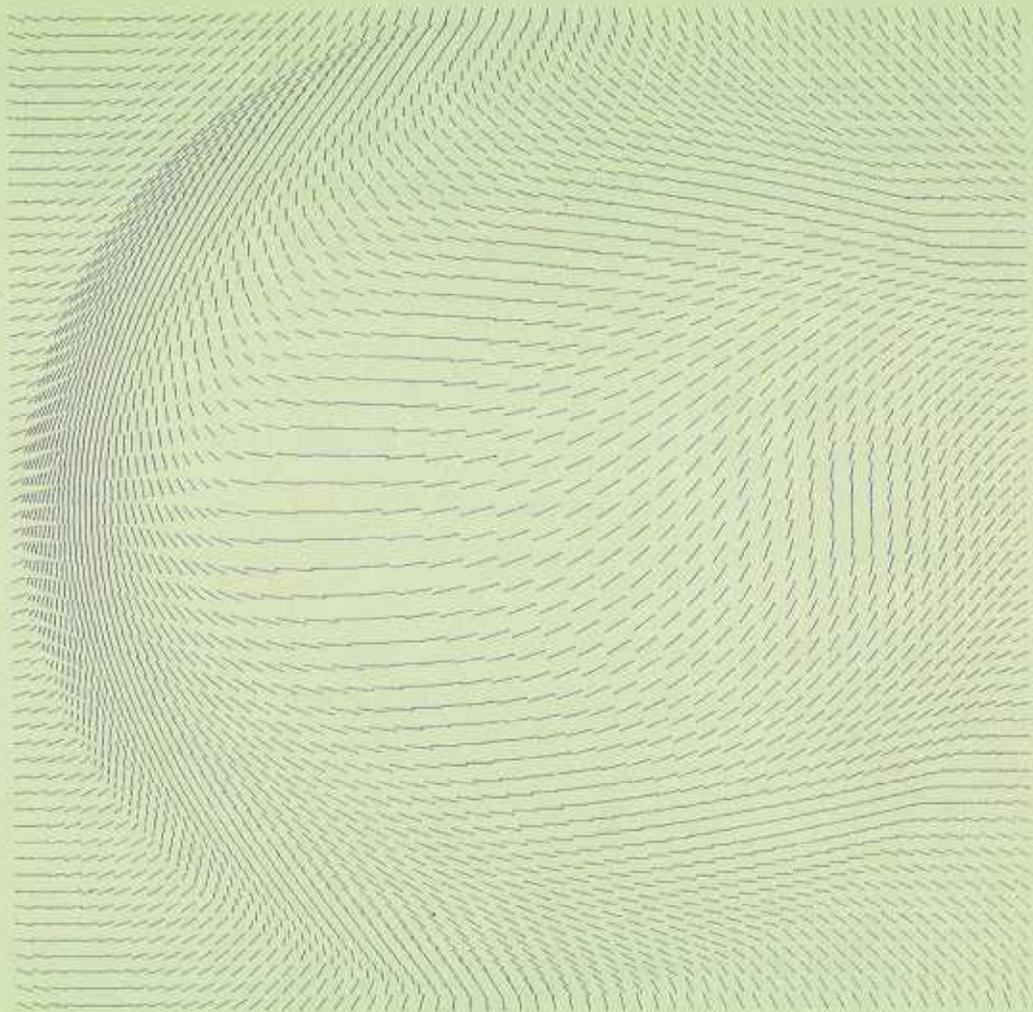
ISSN 0917-3331

# 宮崎県衛生環境研究所年報

第2号 (平成2年度)

Annual Report of  
the Miyazaki Prefectural Institute for  
Public Health and Environment

No. 2 (1990)



宮崎県衛生環境研究所

# 目次

## I 事業の概要

1 沿革	1
2 組織機構	2
(1) 組織と業務	2
(2) 庁舎の概要	3
3 職員の異動及び事務分掌	4
(1) 職員の異動	4
(2) 事務分掌	4
4 予算及び決算(平成2年度)	8
(1) 歳入予算及び決算額調	8
(2) 歳出決算額調	8
5 試験検査業務実績	9
6 各部事業概要	10
7 講師派遣及び研修指導	19
8 学会、研修、講習への参加	20
9 研究発表会	21
10 施設見学等	22
11 宮崎県衛生環境研究所職員名簿	23

## II 誌上発表・学会発表

・ 誌上発表・学会発表	27
-------------	----

## III 調査研究

・ Enzyme-linked immunosorbent assay(BLISA)による恙虫病の血清診断	31
・ 宮崎県の恙虫病に関する調査(9)	37
・ 苦味を発生した牛乳の細菌学的検索について	43
・ 百日咳の疫学及びワクチンの有効性の評価に関する研究	44
・ 流行予測調査-百日咳	46
・ 流行予測調査-日本脳炎	56
・ 流行予測調査-ジフテリア	57
・ 平成2年度感染症サーベイランス事業 〈病原体検索事業〉	59
・ 1990~1991年のインフルエンザ流行状況	61

・ 風疹H I 抗体保有状況 .....	63
・ 畜水産物中の残留合成抗菌剤の分析法の検討（第1報） .....	65
－イオン対クロマトグラフィーによるアンプロロウム、ハロフジノンと ミロキサシリンの定量－ .....	
・ アロエ含有製剤のバルバラロインの定量 .....	70
・ 宮崎県内温泉の化学組成と経年変化について（IV）（都城市、北諸県郡の温泉） .....	74
・ 食物繊維の生理作用と所要量に関する研究：食物繊維の血中コレステロールへ の影響－宮崎県における実験結果について－ .....	78
・ 宮崎県の環境放射能レベルについて .....	84
・ 宮崎県内における酸性雨調査 .....	86
・ 悪臭規制基準強化対策実態調査 .....	93
・ 宮崎県における大気汚染の現状（平成2年度） .....	97
・ 御池の水質特性（第3報） .....	103
・ ゴルフ場使用農薬による水質汚濁 .....	109
・ トリクロロエチレン等に係わる水質調査結果 .....	115
・ クロルデンによる井戸水汚染の追跡調査 .....	117

# Enzyme-linked immunosorbent assay (ELISA)

## による恙虫病の血清診断：キャプチャー法

山本正悟・大浦恭子(微生物部ウイルス科)

神奈川県衛生研究所

古屋由美子, 吉田芳哉, 大津みゆき

宮崎医科大学微生物学教室

南嶋洋一

### はじめに

我々は、恙虫病の病原体である *Rickettsia tsutsugamushi* (Rt) の抗原型には3標準型(Karp, Kato, Gilliam型)に加えてKawasaki型<sup>1)</sup>およびKuroki型<sup>2)</sup>のあること、また、宮崎県内の恙虫病の流行が主として後者の2型のRtにより引き起こされていることを報告した<sup>3)</sup>。

一方、このようなRtを抗原とした恙虫病の血清診断法として、補体結合反応<sup>4)</sup>、間接蛍光抗体法(IF法)<sup>5)</sup>、および間接免疫ペルオキシダーゼ法<sup>6) 7)</sup>が良く知られており、中でもIF法と間接免疫ペルオキシダーゼ法は特異性の優れていることに加えて抗原の作製や手技も容易なことから広く実施されている。しかし、両方法とも判定にある程度の熟練を要するとともに、操作および判定を自動化し難いという問題が依然として指摘されていた。

我々は、判定の自動化によりこの問題を解決できる検査法として、まずサンドイッチ法によるEnzyme-linked-immunosorbent assay (ELISA)<sup>8)</sup>を、ついでKawasaki型に特異的なモノクローナル抗体(MAb)<sup>9)</sup>を利用した間接サンドイッチ法によるELISA<sup>10)</sup>を開発したが、前者の方法では抗原に精製したRtを必要とするという問題点を、また、後者の方法では、簡単な処理をした感染細胞をそのまま抗原として使用できるが、IgG抗体測定に際して偽陰性率が高いという問題点をそれぞれ残していた。

そこで、今回、間接サンドイッチ法と同様に、感染細胞をそのまま抗原として使用できるキャプチャー法(マイクロプレート上に抗ヒトIgG抗体または抗ヒトIgM抗体を固相化し、これに患者血清、Rt抗原、ペルオキシダーゼ標識MAb, 基質を順次反応させていく)によるELISAを応用し、同時におこなったIF法による成績と比較してその有用性を検討した。

### 材料と方法

抗原を精製することなく調製でき、しかも非特異的反応が無いことを条件として、①抗原の濃度、②被検血清の希釈倍数と反応時間、③標識抗体の濃度と反応時間を検討した結果、後述の方法を採用した。

#### 1. *Rickettsia tsutsugamushi* (Rt)

標準3株(Karp, Kato, Gilliam株)およびKawasaki株とKuroki株を用いた。Karp株とGilliam株はクローニングした株を多村憲博士(新潟薬科大学)から、Kato株は川村明義博士(前東京大学医科学研究所)からそれぞれ分与していただいた。Kawasaki株とKuroki株は、1981年に宮崎県で発生した患者からCyclophosphamide処理を併用したマウス(ddY)接種法<sup>11)</sup>により分離した。

また、Kawasaki株はVero細胞で、他の4株はL929細胞でそれぞれ継代して使用した。

#### 2. 患者血清

1989年に同県内で発生した患者10名の対血清20検体および10名の単一血清10検体の計30検体を用いた。

対照として宮崎県内の非患者7名の血清7検体を用いた。

#### 3. キャプチャー法に用いるKawasaki株抗原の調製

間接サンドイッチ法で用いた抗原<sup>10)</sup>と同様の手順で感染細胞をダウンスのホモジナイザーで処理し、これをそのまま抗原原液として用いた。また、用時に0.1%BSA-T-PBSで1:15(IgG抗体測定用)または1:55(IgM抗体測定用)に希釈して使用した。

なお、抗原原液は0.5mlずつに分注した後、-80℃で保存した。

#### 4. キャプチャー法の試薬類

(1) 炭酸-重炭酸緩衝液(CBB),リン酸緩衝食塩水(PBS),Tween20 (0.05%)加PBS(T-PBS),bovine serum albumin (10%)加PBS (10% BSA-PBS),基質液,発色停止液およびKawasaki株特異的MAb(MAb358)はそれぞれ間接サンドイッチ法<sup>10)</sup>で示した方法に従って調製した。

(2) bovine serum albumin (1%)加T-PBS (1% BSA-T-PBS)BSA1gをT-PBS100mlに溶解して調製した。

(3) ヒトIgMおよびヒトIgG捕捉用抗体

被検血清中のIgMおよびIgG抗体をマイクロプレート上に捕捉するためにヒトIgM ( $\mu$ 鎖)およびヒトIgG ( $\gamma$ 鎖)に対するヤギ血清(Tago社製)を用い、用時にCBBでそれぞれ1:2000および1:400に希釈して使用した。

(4) ペルオキシダーゼ標識MAb358抗体(PO-標識MAb358)

精製したMAb358に、POを常法<sup>12)</sup>に従い標識し、用時に0.1%BSA-T-PBSで1:50に希釈して使用した。

#### 5. キャプチャー法による抗体測定

以下の手順で行った。

① CBBで希釈した50  $\mu$  lの抗ヒトIgMあるいは抗ヒトIgG抗体を各被検血清につき1穴ずつ加え、4°Cで一夜または37°Cで1時間反応させて固相化した後、洗浄した。なお、96穴マイクロプレートの第一列の各穴にはCBBを50  $\mu$  l加えてブランクとした。

② 10% BSA-PBSを間接サンドイッチ法<sup>10)</sup>の場合と同様に反応させてブロッキングを行った。

③ 1%BSA-T-PBSで希釈した被検血清50  $\mu$  lを所定の各穴に加え、室温で1時間反応させた後、洗浄した。なお、IgM抗体の場合は1:500希釈血清を、IgG抗体の場合は1:100希釈血清を使用した。また、一列目の各穴には1%BSA-T-PBSを同量加えた。

④ 0.1%BSA-T-PBSで希釈したKawasaki株抗原を各穴に50  $\mu$  l加え、室温で1時間反応させた後、洗浄した。また、一列目の各穴には0.1%BSA-T-PBSを同量加えた。

⑤ 0.1%BSA-T-PBSで希釈したPO標識MAb358を各穴に50  $\mu$  l加え、室温で1時間反応させた後、洗浄した。

また、一列目の各穴には0.1%BSA-T-PBSを同量加えた。

⑥ 基質の反応および吸光度の測定は、間接サンドイッチ法<sup>10)</sup>の場合と同様に行った。

#### 6. 間接蛍光抗体法

抗原として5株のRt(Karp,Kato,Gilliam,Kawasaki,Kuroki株)を用いた。また、ヒトIgM ( $\mu$ 鎖)およびヒトIgG ( $\gamma$ 鎖)に対するFluorescein isothiocyanate標識ヤギ血清(Tago社製)を二次抗体とし、既報<sup>13)</sup>に従って抗体価(IF抗体価)を測定した。なお、1:20以上の希釈で特異蛍光を認めた場合に陽性と判定した。

### 成 績

#### 1. キャプチャー法による非患者血清の吸光度と判定基準

(1) IgM抗体:非患者血清の吸光度は1:500希釈血清で0.1以下であった。このため、被検血清の吸光度が0.3以上を示した場合にIgM抗体陽性と判定した。(表1)。

(2) IgG抗体:非患者血清の吸光度は1:100希釈血清で0.2以下であった。このため、被検血清の吸光度が0.4以上を示した場合にIgG抗体陽性と判定した(表1)。

#### 2. キャプチャー法による患者血清の成績

(1) IgM抗体:急性期血清7検体、回復期血清9検体および単一血清8検体が抗Kawasaki株IgM抗体陽性であった。これらの陽性血清のうちKawasaki株に対して20倍のIF抗体価であった血清の吸光度は、非患者血清の吸光度に比べ0.5以上高い値を示していた。また、一部の対血清を除き、各対血清でIF抗体価に対応した吸光度の上昇が確認された(表1)。

(2) IgG抗体:急性期血清5検体、回復期血清8検体および単一血清5検体が抗Kawasaki株IgG抗体陽性であった。また、IgM抗体と同様に、陽性血清の吸光度は非患者血清の吸光度に比べて明らかに高く、対血清における吸光度の上昇も確認された。(表1)。

表1. 間接蛍光抗体法およびELISA（キャプチャー法）による恙虫病患者の抗体測定成績

患者	病	間接蛍光抗体法										キャプチャー法				
		抗体価										判定：吸光度				
		IgM					IgG					IgM	IgG			
No	日	KP	KT	G	KW	KR	KP	KT	G	KW	KR	1:500	1:100			
C-1		<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	-:	0.058	-:	0.118	
C-2		<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	-:	0.035	-:	0.096	
C-3		<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	-:	0.035	-:	0.123	
C-4		<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	-:	0.082	-:	0.198	
C-5		<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	-:	0.044	-:	0.104	
C-6		<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	-:	0.066	-:	0.122	
C-7		<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	-:	0.043	-:	0.106	
21-1	6	320	320	320	20	1280	130	320	160	20	640	-:	0.198	-:	0.129	
	2	20	1280	1280	640	320>2560	640	1280	640	80>2560		+	0.449	-:	0.132	
22-1	2	<20	<20	40	160	<20	<20	<20	<20	<20	<20	+	1.408	-:	0.274	
	2	19	20	80>2560	>2560	80	<20	<80	320	640	20	+	1.839	+	>2.000	
23-1	7	<20	<20	<20	20	<20	<20	<20	<20	80	<20	+	0.650	+	0.460	
	2	17	<20	40	320	640	40	<20	<20	<20	320	<20	+	1.597	+	>2.000
24-1	15	20	80	40	640	80	<20	<20	20	80	20	+	>2.000	+	1.046	
	2	22	20	160	160>2560	160	<20	<20	160>2560	320		+	>2.000	+	>2.000	
25-1	8	320	320	320	320	640	160	160	160	320	160	+	1.859	+	1.003	
	2	27	1280>2560	>2560	>2560	>2560	640	640	320>2560	640		+	>2.000	+	>2.000	
26-1	6	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	-:	0.131	-:	0.145	
	2	31	20	40	640	1280	40	<20	<20	20	160	20	+	1.767	+	1.107
27-1	2	<20	<20	640>2560	<20		<20	<20	<20	320	<20	+	>2.000	+	>2.000	
	2	18	<20	<20>2560	>2560	<20	80	160	160>2560	40		+	>2.000	+	>2.000	
28-1	4	<20	<20	<20	20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	+	0.583	-:	0.153	
	2	27	<20	20	80	160	20	<20	<20	80	320	<20	+	1.674	+	0.997
29-1	10	<20	<20	160	640	<20	<20	<20	20	40	40	+	>2.000	+	>2.000	
	2	18	80	160	320>2560	40	320	320	320	640	160	+	>2.000	+	>2.000	
30-1	6	1280	1280	640	80	1280	1280	640	80	80>2560		-:	0.097	-:	0.110	
	2	20	1280	1280	320	80>2560	1280	1280	160	160>2560		-:	0.100	-:	0.128	
31	19	<20	<20	20	40	20	20	20	20	160	20	+	1.984	+	>2.000	
32	23	40	80	320	1280	80	160	320	640	1280	80	+	1.987	+	>2.000	
33	11	80	320	640	1280	320	40	40	160	160	160	+	1.983	+	1.859	
34	1	<20	<20	80	80	<20	<20	<20	<20	40	<20	+	1.320	+	0.943	
35	10	<20	<20	640	1280	<20	40	80	1280	1280	40	+	1.811	+	>2.000	
36	不明	1280	1280	640	40>2560		40	640	40	40>2560		-:	0.065	-:	0.105	
37	3	<20	<20	<20	40	<20	<20	<20	<20	<20	<20	+	0.724	-:	0.167	
38	7	<20	<20	<20	40	<20	<20	<20	<20	<20	<20	+	0.746	-:	0.157	
39	14	320	640	320	160	1280	40	80	40	40	320	+	0.415	-:	0.146	
40	10	40	20	20	20	80	320	160	40	40	640	-:	0.033	-:	0.124	

KP: Karp株, KT: Kato株, G: Gilliam株, KW: Kawasaki株, KR: Kuroki株.

C-1 ~ C-7: 非患者血清.

### 3. キャプチャー法とIF法の比較

(1) IgM抗体:IF法に対するキャプチャー法の陽性および陰性の一致率はそれぞれ83%と100%であった(表2)。IF法で陽性にもかかわらずキャプチャー法で陰性であった5例(No: 21-1, 30-1・2, 36, 40)の血清はすべてKuroki株に最も高いIF抗体価を示していた(表1)。

また、これら5例の血清を除いた場合、IF抗体価の高い血清ほどキャプチャー法でも吸光度の高い傾向が見られた(図1)。

表2. ELISA(キャプチャー法, 1:500)と間接蛍光抗体法の比較(IgM)

キャプチャー法	間接蛍光抗体法	
	陽性	陰性
陽性	24(83%)	0
陰性	5(17%)	1(100%)
計	29	1

キャプチャー法: 1:500 希釈血清で測定し、吸光度0.3以上を陽性と判定した。  
間接蛍光抗体法: 抗体価20倍以上を陽性とした。

(2) IgG抗体:IF法に対する陽性および陰性の一致率はそれぞれ72%と100%であった(表3)。IF法で陽性にもかかわらずキャプチャー法で陰性であった7例(No: 21-1・2, 30-1・2, 36, 39, 40)の血清はIgM抗体の場合と同様にKuroki株に最も高いIF抗体価を示していた(表1)。

また、これら7例の血清を除いても、キャプチャー法による吸光度は必ずしもIF抗体価と関連しなかった(図1)。

表3. ELISA(キャプチャー法, 1:100)と間接蛍光抗体法の比較(IgG)

キャプチャー法	間接蛍光抗体法	
	陽性	陰性
陽性	18(72%)	0
陰性	7(28%)	5(100%)
計	25	5

キャプチャー法: 1:100 希釈血清で測定し、吸光度0.4以上を陽性と判定した。  
間接蛍光抗体法: 抗体価20倍以上を陽性とした。

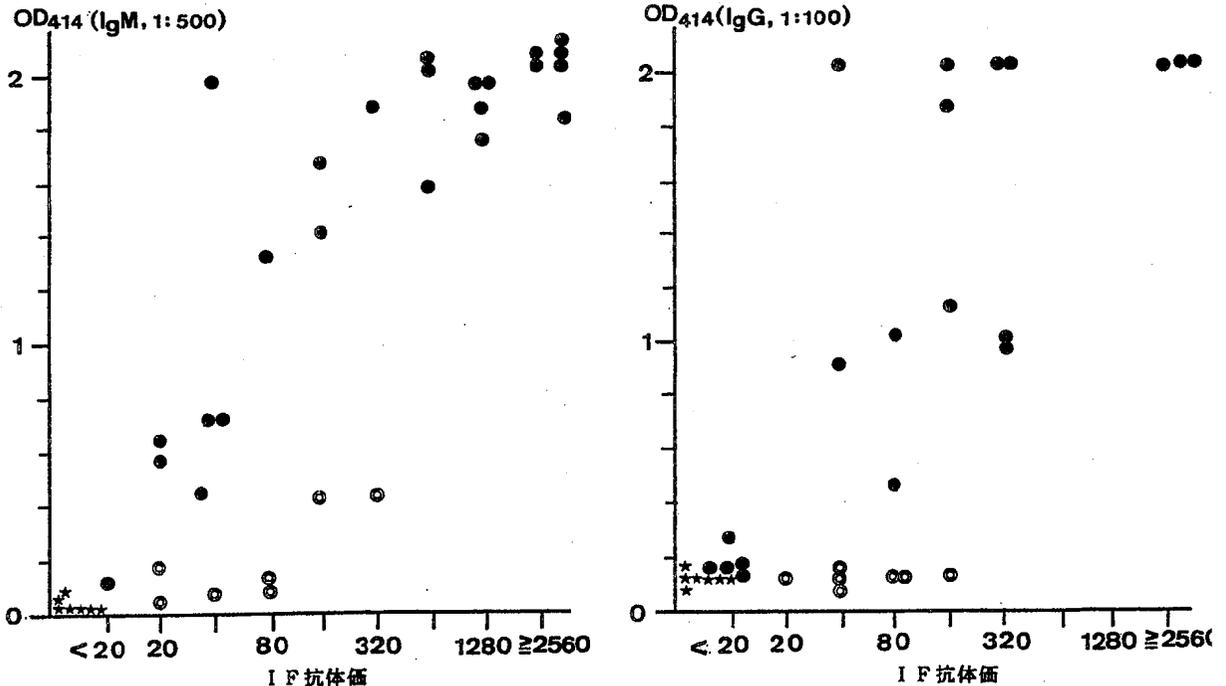


図1. ELISA(キャプチャー法)と間接蛍光抗体法の比較(IgM, IgG)

●: 間接蛍光抗体法により、Kawasaki株に最も強い反応性を示した患者血清。

○: 間接蛍光抗体法により、Kuroki株に最も強い反応性を示した患者血清。

★: 非患者血清。

## 考 察

Dash<sup>14)</sup>らおよび我々<sup>8)</sup>は、すでにサンドイッチ法によるELISAを恙虫病の血清診断に応用し、ELISA end point titer とIF抗体価が良く相関することを報告している。しかし、精製Rtを抗原とするこれらのサンドイッチ法は、Rtを大量培養し精製するための器材と労力を必要とした。今回試みたKawasaki型特異的なPO標識MAbを利用したキャプチャー法は、間接サンドイッチ法<sup>10)</sup>と同様にこの問題をも解決し、簡単な処理をおこなった感染細胞をそのまま抗原とすることを可能にした。

また、間接サンドイッチ法ではIgG抗体の測定に際して偽陰性の見られる傾向があったが<sup>10)</sup>、キャプチャー法ではIgM、IgG抗体ともに陽性血清は非患者血清に比べて明らかに高い吸光度を示していた。従って、本法は、非特異反応も無く、恙虫病患者のIgMおよびIgG抗体の測定に有用と思われる。

さらに、IF法で抗体陽性にもかかわらずキャプチャー法で陰性と判定された血清は、5株のRtに対するIF抗体価から、すべてKuroki型のRtに感染した患者に由来すると推定された。このことは、型特異的なPO標識MAbを用いたキャプチャー法により、主として型特異的な抗体が検出されることを示唆している。従ってKawasaki型以外の型特異抗原、あるいは各型に共通な抗原に対するPO標識MAbを応用し、血清診断法としての本法の有用性を高めることが今後の課題と思われる。

以上のように、課題はあるが、キャプチャー法は、IgM、IgG抗体ともに特異性に優れており、多量の検体を対象としたスクリーニング法として有用と思われる。

## 文 献

1. Yamamoto S., Kawabata N., Tamura A., Urakami H., Ohashi N., Murata M., Yoshida Y., Kawamura A. Jr. 1986. Immunological properties of *Rickettsia tsutsugamushi*, Kawasaki strain, isolated from a patient in Kyusyu. *Microbiol. Immunol.*, 30: 611-620.
2. Ohashi N., Tamura A., Sakurai H., Yamamoto S. 1990. Characterization of a new antigenic type, Kuroki, of *Rickettsia tsutsugamushi* isolated from a patient in Japan. *J. Clin. Microbiol.* 28: 2111-2113.
3. 山本正悟, 川畑紀彦, 大浦恭子, 村田道里, 南嶋洋一. 1989. 宮崎県における恙虫病患者由来の *Rickettsia tsutsugamushi* の抗原型とその分布. *感染症誌*, 63: 109-117.
4. Shishido A. 1964. Strain variation of *Rickettsia orientalis* in the complement fixation test. *Japan. J. M. Sc. & Biol.*, 17: 59-72.
5. Iida T., K. Okubo and M. Ishimaru. 1966. Immunofluorescence for seroepidemiological study of tsutsugamushi disease rickettsia. *Japan. J. Exp. Med.*, 36: 435-447.
6. Yamamoto S. and Minamishima Y. 1982. Serodiagnosis of tsutsugamushi fever (scrub typhus) by the indirect immunoperoxidase technique. *J. of Clinical. Microbiol.*, 15: 1128-1132.
7. 須藤恒久. 1983. 我が国における最近のつつが虫の現状と早期迅速診断法〜特に免疫ペルオキシダーゼ反応による三型IgG, IgM抗体の完全同時測定法について〜. *臨床とウイルス*, 11: 23-30.
8. 南嶋洋一, 山本正悟. 1984. つつが虫の臨床と診断, 血清診断の各種—その特性と評価—Enzyme-linked-immunosorbent assay (ELISA). *臨床とウイルス*, 12: 230-284.
9. Furuya Y., Yamamoto S., Otu M., Yoshida Y., Ohashi N., Murata M., Kawabata N., Tamura A. and Kawamura A. Jr. Use of monoclonal antibodies against *Rickettsia tsutsugamushi* Kawasaki strain for serodiagnosis by enzyme-linked immunosorbent assay (ELISA). *J. Clin. Microbiol.*: (in press)
10. 山本正悟, 大浦恭子, 川畑紀彦, 古屋由美子, 吉田芳哉, 大津みゆき, 南嶋洋一. 1989. Enzyme-linked-immunosorbent assay (ELISA) による恙虫病の血清診断: 間接サンドイッチ法の検討. *宮崎県衛生環境研究所年報* 1: 48-55.
11. 山本正悟. 1988. 日常検査で検出困難な病原微生物—*Rickettsia tsutsugamushi*—. *臨床と微生物*, 15: 63-67.
12. 山田剛太郎, 中根一穂. 1977. 酸素抗体法, 免疫実験操作法 (日本免疫学会編: 右田俊介編集):

1835-1844.

13. 山本正悟. 1984. つつが虫病の臨床と診断, 血清診断の各種-その特性と評価-蛍光抗体法. 臨床とウイルス, 12: 270-274.
14. Gregory A. Dasch, Sidney Halle and A. Louis

Bourgeois. 1979. Sensitive microplate enzyme-linked immunosorbent assay for detection of antibodies against the Scrub Typhus *Rickettsia*, *Rickettsia tsutsugamushi*. J. Clin. Microbiol., 19: 38-48.

# 宮崎県の恙虫病に関する調査(9)

山本正悟・大浦恭子  
八木利喬 (微生物部ウイルス科)

## はじめに

恙虫病は当初、新潟・山形および秋田県に分布する風土病として見られていたが、その後、東南アジアからパキスタンに及ぶ広い範囲に分布することが明らかになるとともに、田宮ら<sup>1)</sup>により、わが国でも上記の3県に限らず、本州・九州・四国および伊豆七島などにも分布することが明らかにされた。また、年間数百名の規模で発生していた患者は、1960年以降激減したが、1970年代後半から増加し始め、1982年以降には例年500から900名前後の発生を見ている<sup>2)</sup>。

この様なわが国における患者数の増加と並行して、宮崎県でも、1980年以降患者数の増加が見られ、1960, 1963, 1964, 1971, 1976, 1977, 1978, 1979年にそれぞれ1, 2, 4, 3, 1, 2, 2, 10名であった患者数は、1980, 1981, 1982, 1983年にはそれぞれ41, 26, 47, 32名に達し、1984年以降では年間100から150名前後の発生を継続している。

この稿では、資料とすることを主な目的として、1983年度以降の恙虫病患者発生状況とともに、1990年度に発生した患者から分離された *Rickettsia tsutsugamushi* の抗原型を概説する。

## 1. 恙虫病患者発生状況

### 1) 市町村別恙虫病患者発生状況

1983年度から1990年度までの市町村別患者発生状況を表1と図1に示した。

宮崎県内で感染し、血清学的診断による確認や臨床診断から恙虫病と判定した患者はこの8年間で合計886名に及び、その発生地区は県南部を中心とした26市町村にわたっている。この886名中123名(13.9%), 122名(13.8%), 115名(13.0%), 88名(9.9%), 73名(8.2%), 71名(8.0%)はそれぞれ野尻町, 小林市, 都城市, 山田町, 高崎町, 田野町で発生しており、67.4%(597名)の患者がこれらの6地区に集中して発生している。また、都城保健所, 小林保健所, 宮崎保健所管内の患者数は、それぞれ347名(39.2%), 324名(36.6%), 120

名(13.5%)で、患者の実に89.3%がこれらの3保健所管内に集中し、特に、前2者への集中が著しい。

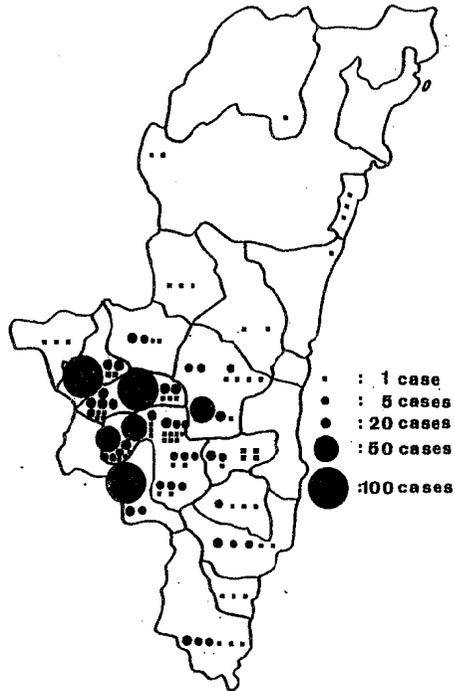


図1. Geographical distribution of tsutsugamushi disease cases in Miyazaki Prefecture from April 1983 to March 1991.

### 2) 月別恙虫病患者発生状況

この8年間に発生した患者886名の月別発生状況を図2に示した。

患者は、11月をピークに秋から冬(9月末から4月)にかけて発生しているが、特に、11月(556名: 62.8%), 12月(120名: 13.5%)及び10月(112名: 12.6%)の3カ月(788名: 88.9%)に患者の発生が集中する傾向がある。





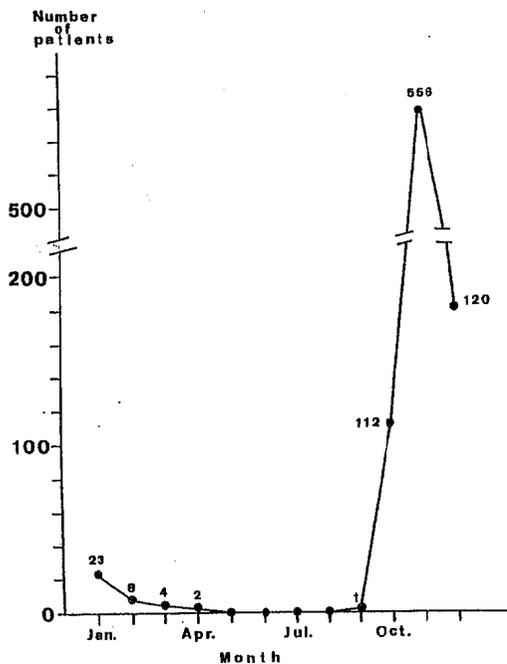


図2. Monthly fluctuation of tsutsuganushi disease cases in Miyazaki Prefecture from April 1983 to March 1991.

### 3) 年度別月別恙虫病患者発生状況

患者発生の年度別月別変動を図3に示した。

患者は前述の様に例年11月をピークに秋から冬にかけて発生する。

1980年度から1983年度にかけては年間20から50名前後であった患者数は1984年度以降激増し、1984年度には147名、1985年度には188名にまで達した。その後、1986年度には131名、1987年度には123名と漸減したが、1988、1989、1990年度にはそれぞれ81、86、104名の発生を見ており、依然として患者発生の終息する傾向は見られない。なお、宮崎県での患者発生数は、1984年度以降毎年全国の発生数の15から20%を占めている<sup>2)</sup>。

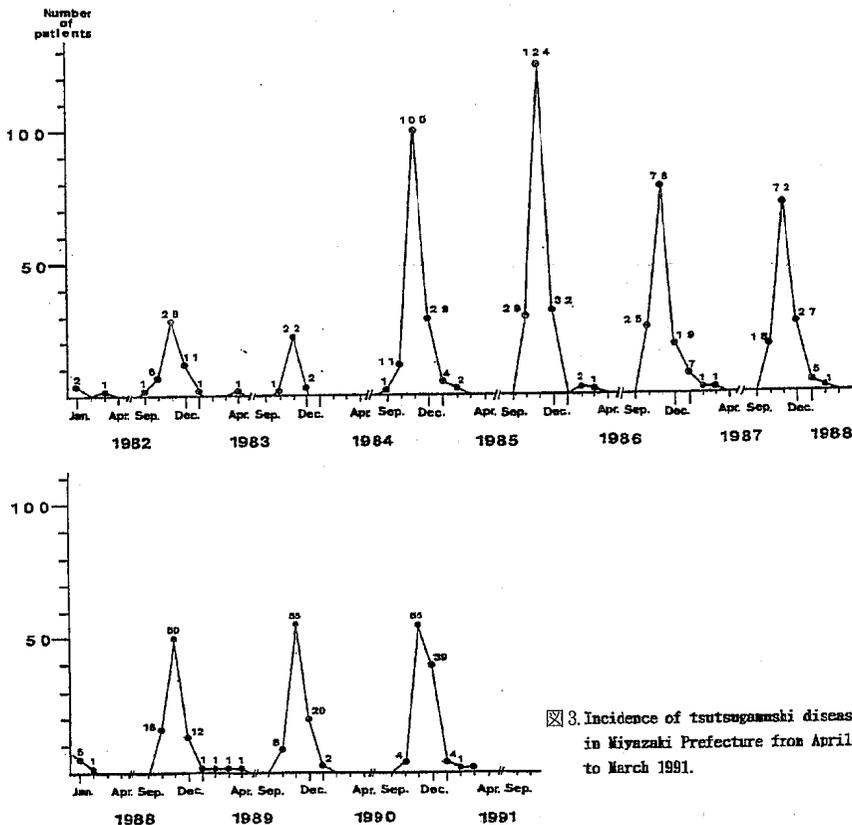


図3. Incidence of tsutsuganushi disease cases in Miyazaki Prefecture from April 1983 to March 1991.

4) 市町村別年度別恙虫病患者発生状況

患者発生の市町村別年度別変動を図4に示した。

患者の大部分は、例年、小林、都城、宮崎保健所管内のそれぞれ西諸県、北諸県、東諸県地区をフォーカスとして発生し、他の市町村では、ほぼ毎年患者発生が見られる日南市と串間市を除き、10名以下の散発的な発生にとどまっている。上述の3保健所管内の市町

村のうち、小林市、高崎町、野尻町、高城町、高岡町では、それぞれ1988年度、1986年度、1984年度、1985年度、1985年度をピークとして、年々患者発生数の減少が見られ、特に後者の3町で減少が著しい。また、都城市と山田町では、それぞれ1985年度をピークとして減少傾向が見られたが、1990年度には再びほぼピーク時に相当する患者が発生した。

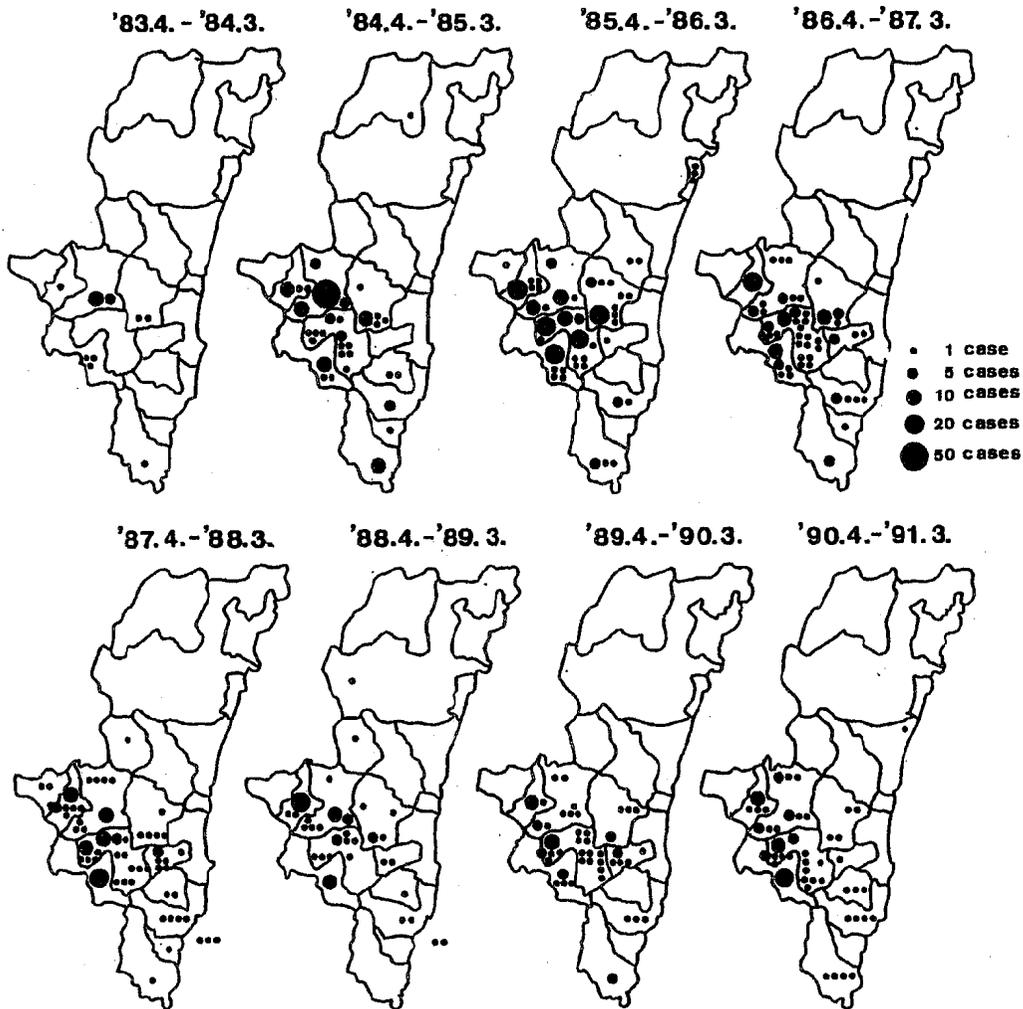


図4. Geographical distribution of tsutsugamushi disease cases in Miyazaki Prefecture from April 1983 to March 1991.

2. 1990年度の患者から分離された

*Rickettsia tsutsugamushi*の抗原型

1990年度に発生した患者104名中50名について、

急性期に採取されたヘパリン血を材料としてcycl-  
ophosphamide処理を併用したマウス接種法<sup>3)</sup>に  
より、*Rickettsia tsutsugamushi*の分離を試みた

結果、40名の患者材料から40株を分離した。

また、これらの株の抗原型別を、3標準型(Karp, Kato, Gilliam型)とKawasaki型<sup>4)</sup>およびKuroki型<sup>5)</sup>にそれぞれ型特異的なモノクローナル抗体を用いて実施した結果、20株がKawasaki型に、16株がKuroki型に、1株がKarp型にそれぞれ型別された(3株は未型別)。

以上述べたように、やや減少の傾向はあるが、宮崎県内では依然として恙虫病患者の高い発生数を維持している。恙虫病には特別な予防法が無く、最良の対策は早期発見・早期治療である。従って、主な発生地である小林、都城、宮崎保健所管内の西諸県、北諸県、東諸県地区での啓蒙の促進は勿論、他の地区での患者の掘り起こしと啓蒙を積極的に進める事が重要と思われる。また、宮崎県での恙虫病の流行が主として標準型とは抗原性の異なるKawasaki型とKuroki型の*Rickettsia tsutsugamushi*により引き起こされていることを以前報告したが<sup>6)</sup>、1990年度に分離した株の型別結果からも、同様な結論が得られた。なお、Karp型の*Rickettsia tsutsugamushi*はこの数年来分離されておらず、今回分離されたKarp型の株については病原性等の検討を加えたい。

## 文 献

1. Tamiya T., "Recent advances in studies of Tsutsugamushi disease in Japan." Ed., Medical Cultuer Inc., Tokyo. (1962)
2. Kawamura A., Jr. and Tanaka H., Rickettsiosis in Japan. *Japan. J. Exp. Med.*, 58 : 169-184 (1988)
3. 山本正悟. 特集-日常検査で検出困難な病原微生物-Rickettsia tsutsugamushi(Q熱リケッチアも含む). *臨床と微生物*, 15 : 63-67 (1988)
4. Yamamoto S., Kawabata N., Tamura A., Urakami H., Ohashi N., Murata M., Yoshida Y., Kawamura A., Jr. Immunological properties of *Rickettsia tsutsugamushi*, Kawasaki strain, isolated from a patient in Kyusyu. *Microbiol. Immunol.*, 30 : 611-620 (1986)
5. Ohashi N., Tamura A., Sakurai H. and Yamamoto S. Characterization of a new antigenic type, Kuroki, of *Rickettsia tsutsugamushi* isolated from a patient in Japan.
6. 山本正悟、川畑紀彦、大浦恭子、村田道里、南嶋洋一. 宮崎県における恙虫病患者由来の*Rickettsia tsutsugamushi*の抗原型とその分布. *感染症誌*, 63 : 109-117 (1988)

# 苦味を発生した牛乳の細菌学的検索について

津 曲 洋 明・河 野 喜 美 子  
八 木 利 喬 (微生物部細菌科)

平成3年2月に県内の販売店から配達された200ml瓶入り牛乳が苦味を呈したとの苦情があり保健所より当該牛乳2本(製造年月日が異なる)と同一メーカーの正常牛乳1本の3検体について検査依頼があった。

原因究明のため当所で各種細菌学的試験をおこなった結果、試験した3本の牛乳のいずれからも低温細菌 *Pseudomonas Fluorescens* が検出された。各試験結果は表1のとおりで苦情牛乳2本と正常牛乳とは味、臭い、アルコールテスト等に差が見られ苦情牛乳は明ら

かに変質していた。

この3本の牛乳から分離した *Pseudomonas Fluorescens* を市販のLL牛乳に接種し苦味の発現や腐敗臭について試験したところ本菌の増殖により凝塊形成、味が苦味を呈すること、腐敗臭を発生することが明らかとなった。

分離菌の同定のため行った試験結果は表2のとおりである。

表1. 牛乳の試験結果

検体名 試験項目	苦 情 A (1月30日製造)	牛 乳 B (1月28日製造)	正 常 牛 乳 C (1月25日製造)
外 観	少し凝固 (ザラザラした凝集)	少し凝固 (ザラザラした凝集)	異常を認めず
pH	6.2	6.1	6.2
味	苦味有り	苦味有り	苦味無し
臭い	牛乳臭が強い	牛乳臭が強い	異常を認めず
アルコールテスト	陽性 (凝集)	陽性 (凝集)	陰性 (非凝集)
直接塗抹鏡検	グラム陰性桿菌	グラム陰性桿菌	グラム陰性桿菌 グラム陽性桿菌
生菌数	$5.1 \times 10^6$	$9.1 \times 10^6$	$3.9 \times 10^6$
大腸菌群	陰 性	陰 性	陰 性
真菌	検出せず	検出せず	検出せず
嫌気性菌	検出せず	検出せず	検出せず
低温細菌	<i>Pseudomonas Fluorescens</i>	<i>Pseudomonas Fluorescens</i>	<i>Pseudomonas Fluorescens</i>

現在の市販牛乳の大半は超高温加熱処理法(UHT)で殺菌されている。牛乳等省令で牛乳は生菌数5万/ml以下、大腸菌群陰性と規定されているが生菌数が5万/mlに達する日数はUHT処理で製造直後から10°C保存で平均4~5日、5°Cで平均6~7日と言われている。このことは製造時の衛生管理また製造から販売、飲食するまでの低温管理が必要でありLL牛乳以外の市販牛乳は無菌でなく生菌もいると言うことを消費者は念頭におき購入後は早く消費することが望ましい。

表2. 同定試験結果

試験項目	牛乳A 分離株	牛乳B 分離株	牛乳C 分離株
試験菌株	陰性桿菌	陰性桿菌	陰性桿菌
グラム染色	+	+	+
オキシダーゼテスト	+	+	+
カタラーゼ	+	+	+
運動性	+	+	+
TST 斜面/高層	-/-	-/-	-/-
ガス	-	-	-
H <sub>2</sub> S	-	-	-
OFテスト 酸化(O)	+	+	+
発酵(F)	-	-	-
嫌気培養	-	-	-
発育温度			
5°C 72時間	+	+	+
25°C 24時間	+	+	+
35°C 24時間	+	+	+
42°C 72時間	+	+	+
色素産生(赤/黄色色素)	-	-	-
(25°C, 24時間) キングB	+	+	+
NAC	+	+	+
クリステンゼンクエン酸(CC)	+	+	+
シモンズクエン酸(SC)	+	+	+
ゼラチン液化	+	+	+
硝酸還元	-	-	-
サッカロース	-	-	-
サリシン	-	-	-
キシロース	+	+	+
マンニット	-	-	-
ラクトース	-	-	-
卵黄反応(25°C, 24時間)	+	+	+

# 百日咳の疫学及びワクチンの有効性の評価に関する研究

河野 喜美子・津 曲 洋 明  
八木 利 喬 (微生物部 細菌科)

## はじめに

改良型百日咳ワクチンの効果を評価するため、昭和63年度に本研究班が発足し活動を続けている。今年度の活動の概要を報告する。

## 材料と方法

本研究班の活動の内容は、(1) 百日咳患者からの菌分離、(2) 患者の血清抗体価測定、臨床症状等の調査、および(3) 同居家族の続発状況調査等であり、今年度もこれらを行なった。

菌分離のための材料は宮崎市内の3小児科において採取された咽頭ぬぐい液および咳材料を用いた。また家族内感染調査表を配布し、必要事項を調査した。

## 結果および考察

平成2年度は、43例の患者について検査を行ったが、そのうち菌分離陽性は7例であった。その月別および年齢別分離状況は、表1、図1、表2に示すとおりである。検査定点のある宮崎市では春を中心に菌が分離され、8、9月は、特に延岡市、日向市等の北部、小林市、都城市等の西部で臨床報告が多かったが、この地域に検査定点がないため菌分離による説明はなされなかった。また分離株はすべて凝集原因子1、3、6、を持つポピュラーな菌であった。

菌分離陽性の患者はすべてワクチン未接種であり、またワクチン接種している兄弟への伝播はみられなかった。このことよりワクチンの有効性が示唆された。

表1. 百日咳菌の月別分離状況

	平成2年			平成3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	1月	2月	3月
検体数	0	4	5	12	7	8	7	2	1	0	2	3	0	1	0
菌分離数 (分離率%)	0 (0)	2 (50)	2 (40)	3 (25)	2 (29)	0 (0)	2 (29)	0 (0)							

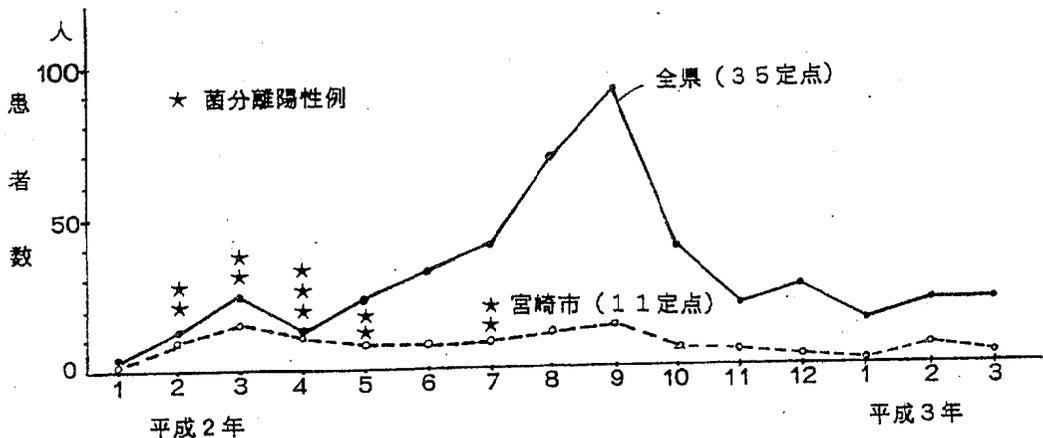


図1. サーベランス臨床定点からの報告患者数及び検査定点からの菌分離数

表 2. 百日咳菌の年齢別分離状況 (平成 2 年度)

年 齢	0	1	2	3	4	5	6 歳以上
検体数	12	16	8	5	0	1	1
菌分離数 (分離率%)	3 (25)	1 (6)	3 (38)	0 (0)	0 (0)	0 (0)	0 (0)

# 流行予測調査 - 百日咳

河野 喜美子・津曲 洋明  
八木 利 喬 (微生物部細菌科)

## はじめに

現在百日咳の予防接種は、LPF-HA (百日咳毒素) とF-HA (繊維状赤血球凝集素) を含んだコンポーネントワクチンが使用されている。この予防接種による抗体の獲得状況を知るため、今年度も0-9歳の小児について百日咳の抗体保有調査を行った。

## 材料と方法

平成2年6-8月に県立宮崎病院で採血された0-9歳の血清109例について、百日咳に対する凝集抗体価およびELISA抗体価を測定した。方法は、伝染病流行予測検査術式によって行った。すなわち、凝集法は、ワクチン株 (東浜株) および流行株 (山口株) を抗原としたラテックス凝集反応、ELISAは、LPF-HA およびF-HAを抗原としたプレート法で行った。

## 結果および考察

### 1. 凝集法

#### (1) 年齢群別抗体保有状況 (表1、図1)

20倍以上の抗体保有率を見ると、図1に示すように、ワクチン株では、年齢が上がるにつれ徐々に上昇し、4-6歳群でピークとなり、7-9歳群で僅かに減少している。しかし、ピーク時でも57.1%の抗体保有率しか示さず、ワクチン株に対しては全体として低い保有率であった。これに反して流行株では、0-1歳群で、すでに抗体保有率が84%と高かった。

#### (2) 年齢群別累積抗体保有状況 (図2)

ワクチン株では、明らかに年齢群間の差が見られた (図2)。最も低値を示したのは0-1歳群で、最も高値を示したのがワクチンを完了したばかりの年齢群である4-6歳群であった。流行株では、20倍以上の保有率は全ての年齢群で高いが、40倍以上の保有率はワクチン株と同様の傾向を示した。

表1. 凝集法による年齢群別抗体保有状況  
1) ワクチン株 (東浜株)

年齢群	抗体価						計
	<20	20	40	80	160	320x	
0-1歳	28 (87.4)	2 (6.3)		2 (6.3)			32 (100%)
2-3	18 (75.0)	2 (8.3)	2 (8.3)	1 (4.2)	1 (4.2)		24 (100)
4-6	12 (42.9)	3 (10.7)	4 (14.3)	3 (10.7)	3 (10.7)	3 (10.7)	28 (100)
7-9	13 (52.0)	6 (24.0)	3 (12.0)	2 (8.0)	1 (4.0)		25 (100)
計	71 (65.1)	13 (11.9)	9 (8.3)	8 (7.3)	5 (4.6)	3 (2.8)	109 (100)

2) 流行株 (山口株)

年齢群	抗体価						計
	<20	20	40	80	160	320x	
0-1歳	5 (15.6)	19 (59.4)	8 (25.0)				32 (100%)
2-3	2 (8.3)	14 (58.3)	7 (29.2)		1 (4.2)		24 (100)
4-6	2 (7.1)	12 (42.9)	10 (35.7)	4 (14.3)			28 (100)
7-9	2 (8.0)	16 (64.0)	3 (12.0)	4 (16.0)			25 (100)
計	11 (10.1)	61 (56.0)	28 (25.7)	8 (7.3)	1 (0.9)		109 (100)

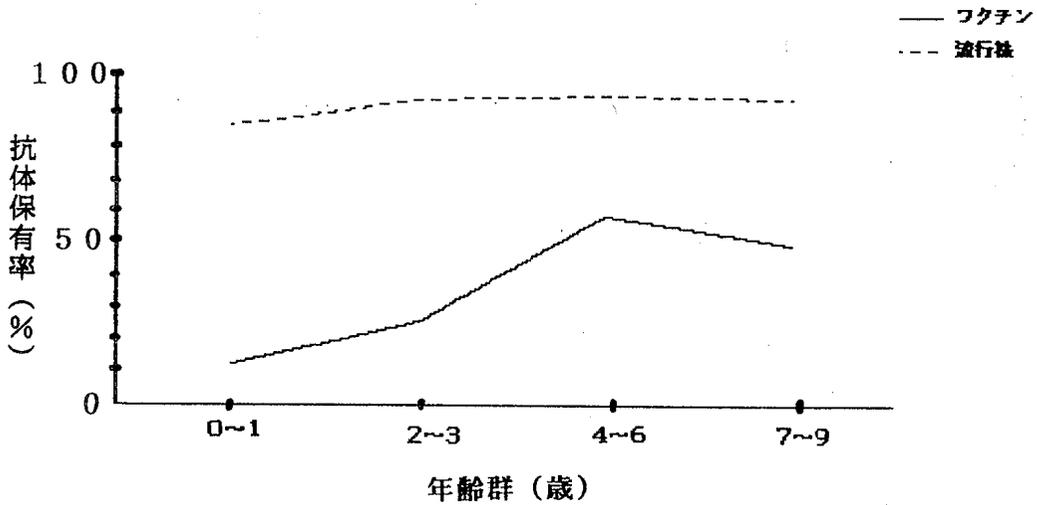


図1. 凝集法による年齢群別抗体保有状況(20倍以上)

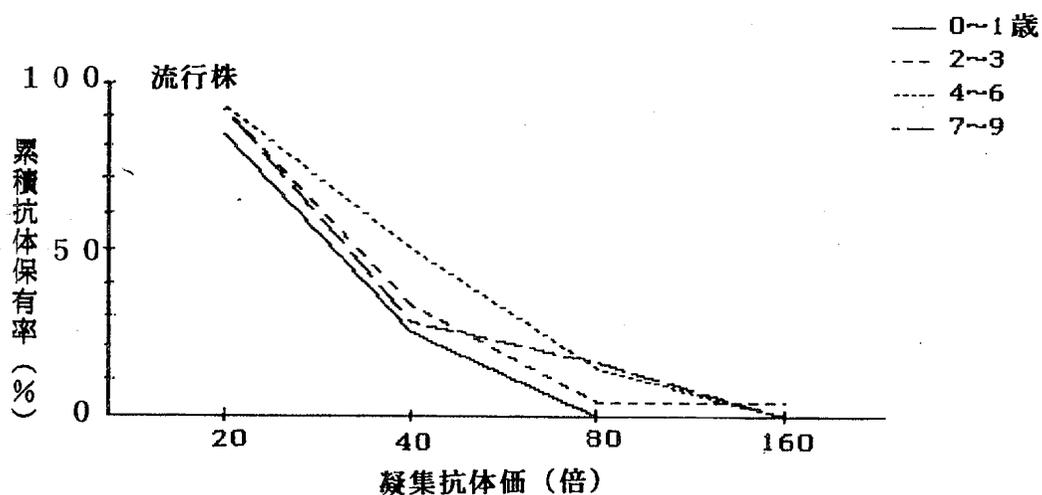
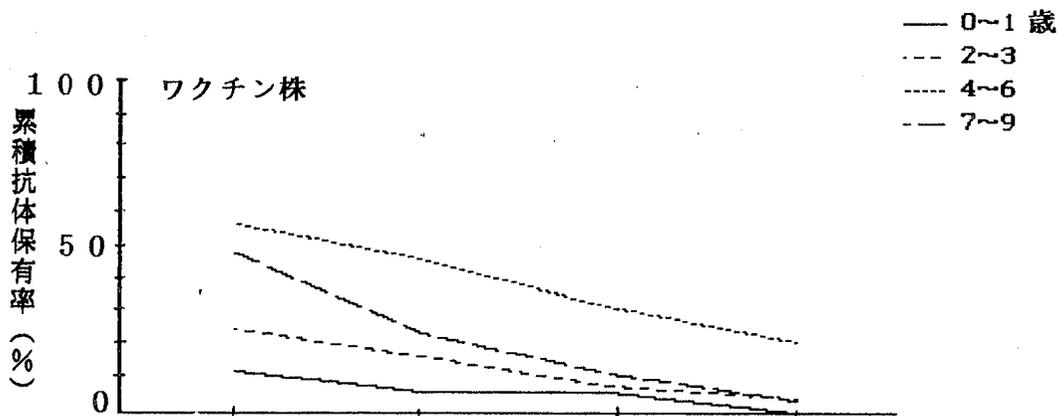


図2. 凝集法による年齢群別累積抗体保有状況

(3) ワクチン接種歴別抗体保有状況 (表2、図3)

特にワクチン株で、ワクチン接種による効果が示唆された。すなわち、Ⅱ期完了群が他の群に比べて抗体保有率が明らかに高かった。

(4) ワクチン接種歴別累積抗体保有状況 (図4)

ワクチン株、流行株とも、ワクチン接種による抗体価の上昇および抗体保有率の上昇が見られた。Ⅱ期完了群は他の群より明らかに高値を示した。

表2. 凝集法によるワクチン接種歴別抗体保有状況  
1) ワクチン株 (東浜株)

ワクチン歴 \ 抗体価	<20	20	40	80	160	320x	計
未接種	45 (83.3)	3 (5.6)	2 (3.7)	3 (5.6)	1 (1.8)		54 (100%)
I	10 (77.0)		2 (15.4)		1 (7.7)		13 (100)
I + II	16 (39.0)	9 (22.0)	5 (12.2)	5 (12.2)	3 (7.3)	3 (7.3)	41 (100)
不明		1 (100)					1 (100)
計	71 (65.1)	13 (11.9)	9 (8.3)	8 (7.3)	5 (4.6)	3 (2.8)	109 (100)

2) 流行株 (山口株)

ワクチン歴 \ 抗体価	<20	20	40	80	160	320x	計
未接種	7 (13.0)	32 (59.3)	14 (25.9)		1 (1.8)		54 (100%)
I	1 (7.7)	8 (61.5)	3 (23.1)		1 (7.7)		13 (100)
I + II	4 (9.8)	19 (46.3)	11 (26.8)		7 (17.1)		41 (100)
不明		1 (100)					1 (100)
計	12 (11.0)	60 (55.0)	28 (25.7)		9 (8.3)		109 (100)

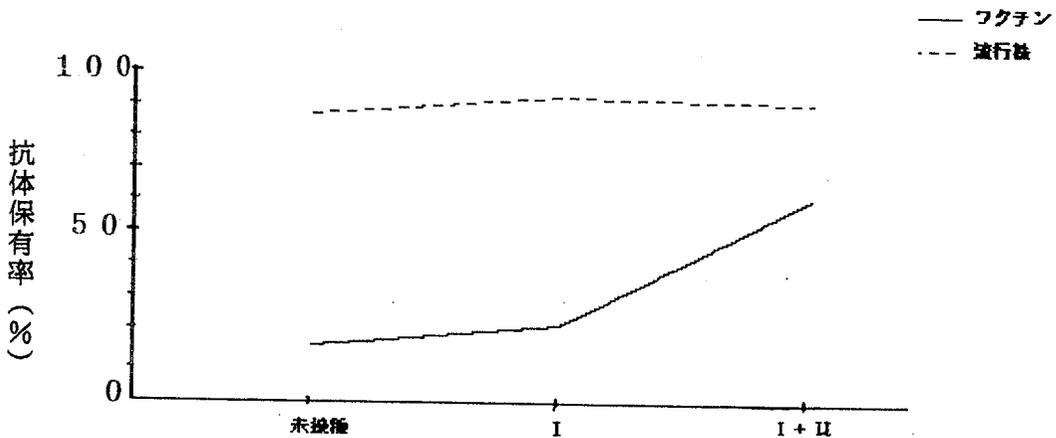


図3. 凝集法によるワクチン接種歴別抗体保有状況  
(20倍以上)

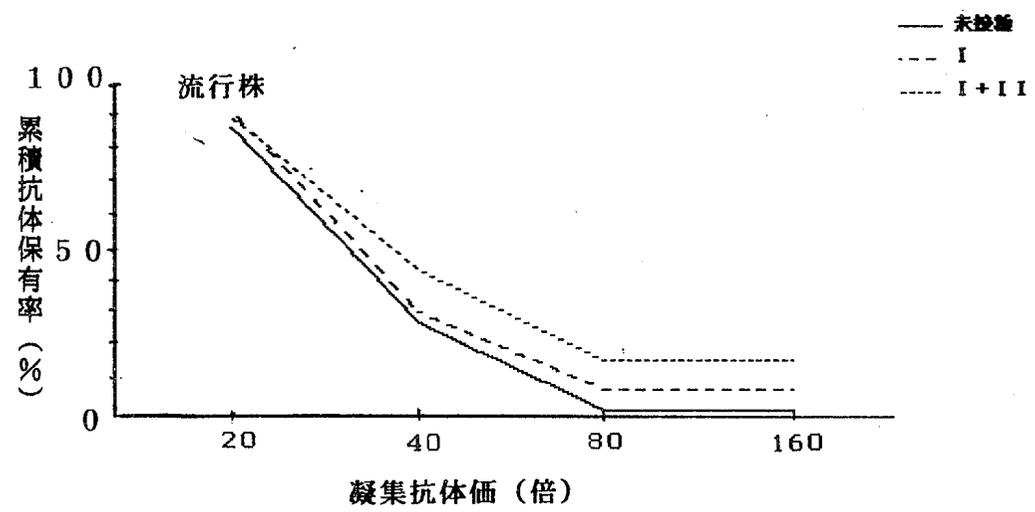
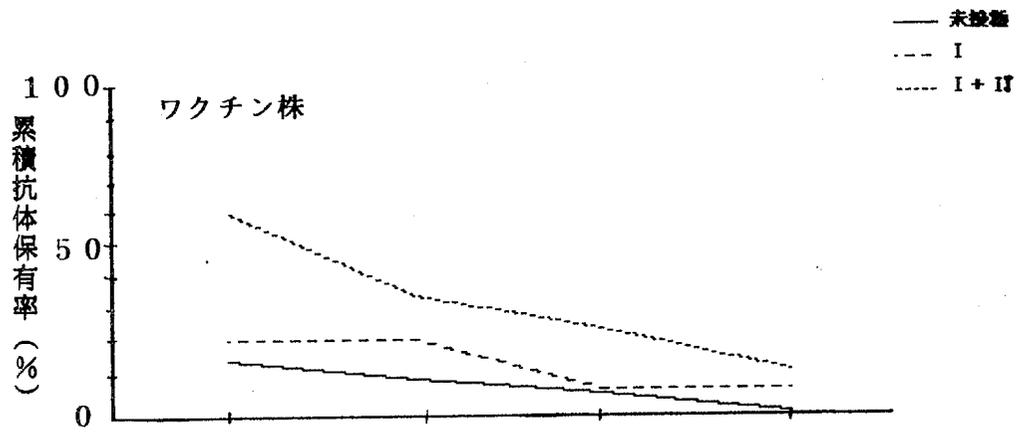


図4. 凝集法によるワクチン接種歴別累積抗体保有状況

2. ELISA

(1)年齢群別抗体保有状況(表3、図5)

抗LPF-HA、抗F-HAについて、それぞれ1≤、5≤、10≤、20≤IU/mlの抗体保有状況を年齢群別  
に示したものが図5である。昨年度までと異なり、

LPF-HA、F-HAともに、今年度は0-1歳群での  
抗体保有率が高いため年齢群で明確な差はなかった。

(2)年齢群別累積抗体保有状況(図6)

昨年まで低値を示していた0-1歳群が今年度は他  
の年齢群と差がなかった。

表3. ELISAによる年齢群別抗体保有状況

1) LPF-HA

年齢群 \ ELISA値	<1	1~4	5~9	10~19 (IU/ml)	20~29	30~39	40~59	60≤	計
0-1歳	4 (12.5)	3 (9.4)	5 (15.6)	4 (12.5)	4 (12.5)		2 (6.2)	10 (31.3)	32 (100%)
2-3	2 (8.3)	1 (4.2)	3 (12.5)	6 (25.0)	6 (25.0)		3 (12.5)	3 (12.5)	24 (100)
4-6		5 (17.8)	7 (25.0)	6 (21.4)	7 (25.0)	1 (3.6)	1 (3.6)	1 (3.6)	28 (100)
7-9		8 (32.0)	5 (20.0)	6 (24.0)	2 (8.0)	2 (8.0)	1 (4.0)	1 (4.0)	25 (100)
計	6 (5.5)	17 (15.6)	20 (18.3)	22 (20.2)	19 (17.4)	3 (2.8)	7 (6.4)	15 (13.8)	109 (100)

2) F-HA

年齢群 \ ELISA値	<1	1~4	5~9	10~19 (IU/ml)	20~29	30~39	40~59	60≤	計
0-1歳	5 (15.5)	6 (18.8)	3 (9.4)	6 (18.8)	4 (12.5)	3 (9.4)	1 (3.1)	4 (12.5)	32 (100%)
2-3	1 (4.2)	1 (4.2)	5 (20.8)	5 (20.8)	5 (20.8)	1 (4.2)	2 (8.3)	4 (16.7)	24 (100)
4-6		3 (10.7)	6 (21.4)	8 (28.6)	3 (10.7)	4 (14.3)	1 (3.6)	3 (10.7)	28 (100)
7-9		3 (12.0)	4 (16.0)	3 (12.0)	5 (20.0)	3 (12.0)	1 (4.0)	6 (24.0)	25 (100)
計	6 (5.5)	13 (11.9)	18 (16.5)	22 (20.2)	17 (15.6)	11 (10.1)	5 (4.6)	17 (15.6)	109 (100)

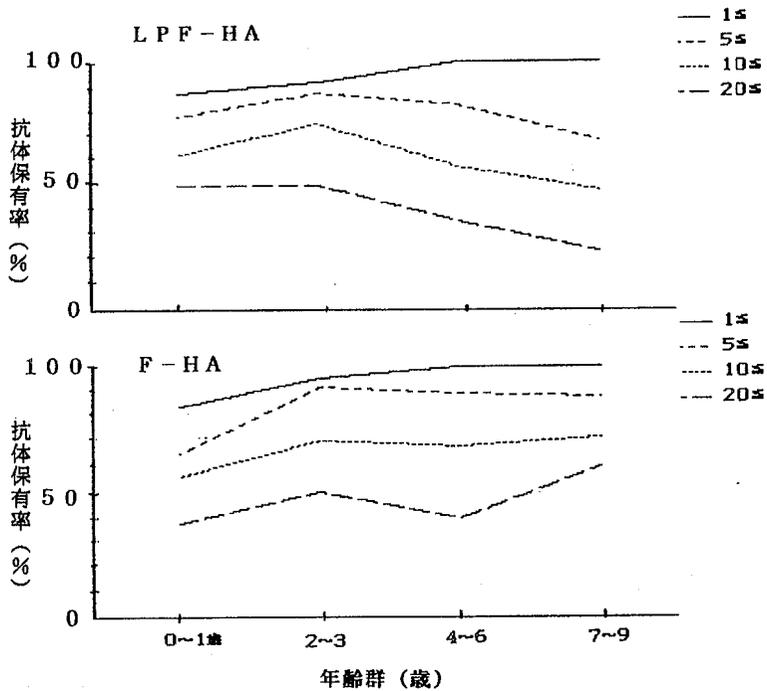


図5. ELISAによる年齢群別抗体保有状況  
(ELISA値レベル:1≤、5≤、10≤、20≤IU/ml)

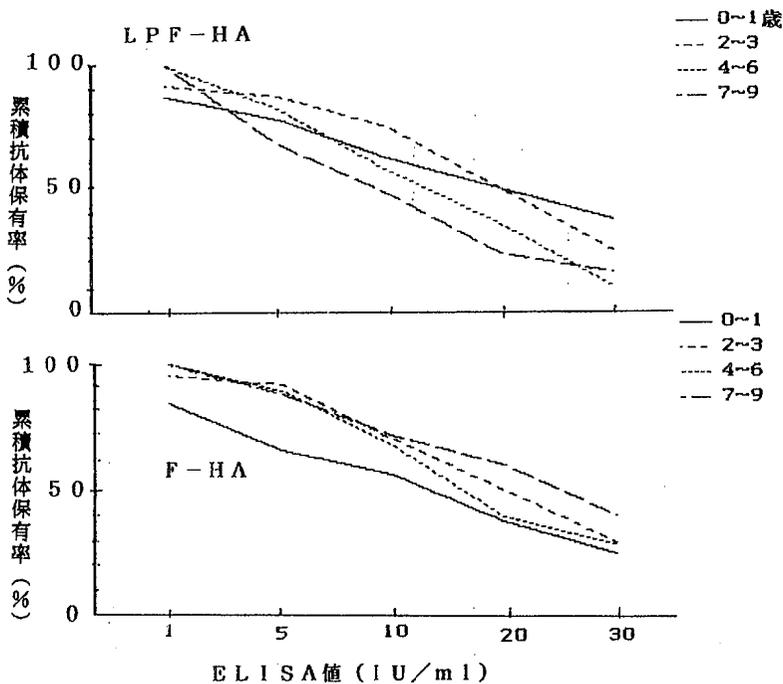


図6. ELISAによる年齢群別累積抗体保有状況

(3) ワクチン接種歴別抗体保有状況 (表4、図7)

今年度は、未接種群が、抗体価および抗体保有率ともに高く、ワクチン接種による差が見られなかった。

(4) ワクチン接種歴別累積抗体保有状況 (図8)

ここでも未接種群と他の群との差は見られなかった。

表4. ELISAによるワクチン接種歴別抗体保有状況

1) LPF-HA

ワクチン接種歴 \ ELISA値	<1	1~4	5~9	10~19 (IU/ml)	20~29	30~39	40~59	60≤	計
未接種	5 (9.3)	7 (13.0)	8 (14.8)	10 (18.5)	6 (11.1)		5 (9.3)	13 (24.0)	54 (100%)
I		2 (15.4)	5 (38.5)	1 (7.7)	4 (30.8)			1 (7.6)	13 (100)
I + II		8 (19.5)	7 (17.1)	11 (26.8)	9 (22.0)	3 (7.3)	2 (4.9)	1 (2.4)	41 (100)
不明		1 (100)							1 (100)
計	5 (4.6)	18 (16.5)	20 (18.3)	22 (20.2)	19 (17.4)	3 (2.8)	7 (6.4)	15 (13.8)	109 (100)

2) F-HA

ワクチン接種歴 \ ELISA値	<1	1~4	5~9	10~19 (IU/ml)	20~29	30~39	40~59	60≤	計
未接種	6 (11.1)	10 (18.5)	7 (13.0)	10 (18.5)	7 (13.0)	3 (5.6)	2 (3.7)	9 (16.6)	54 (100%)
I		2 (15.3)	3 (23.1)	5 (38.5)	1 (7.7)		1 (7.7)	1 (7.7)	13 (100)
I + II		1 (2.5)	8 (19.5)	8 (19.5)	7 (17.1)	8 (19.5)	3 (7.3)	6 (14.6)	41 (100)
不明					1 (100)				1 (100)
計	6 (5.5)	13 (11.9)	18 (16.5)	23 (21.1)	16 (14.7)	11 (10.1)	6 (5.5)	16 (14.7)	109 (100)

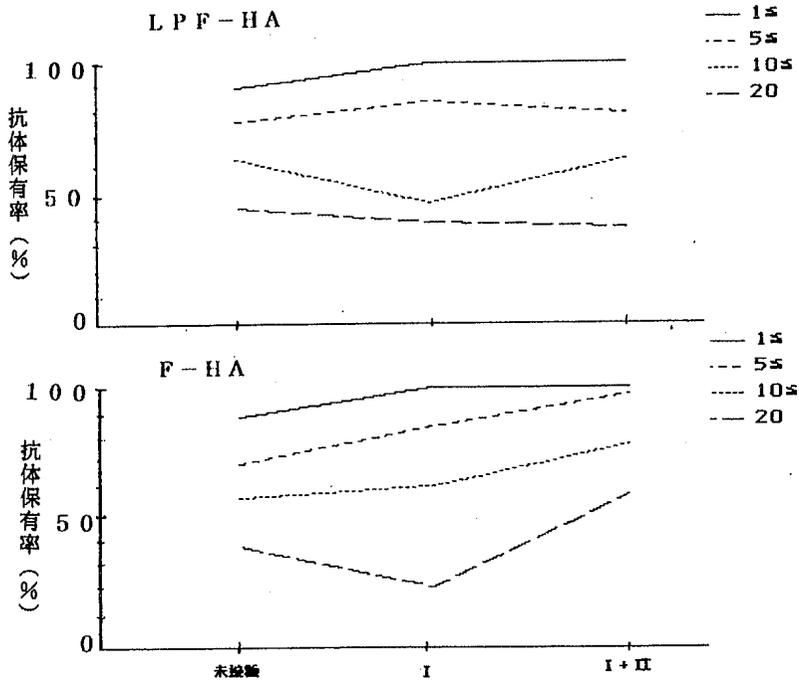


図7. ELISAによるワクチン接種歴別抗体保有状況  
(ELISA値レベル:1≤、5≤、10≤、20≤IU/ml)

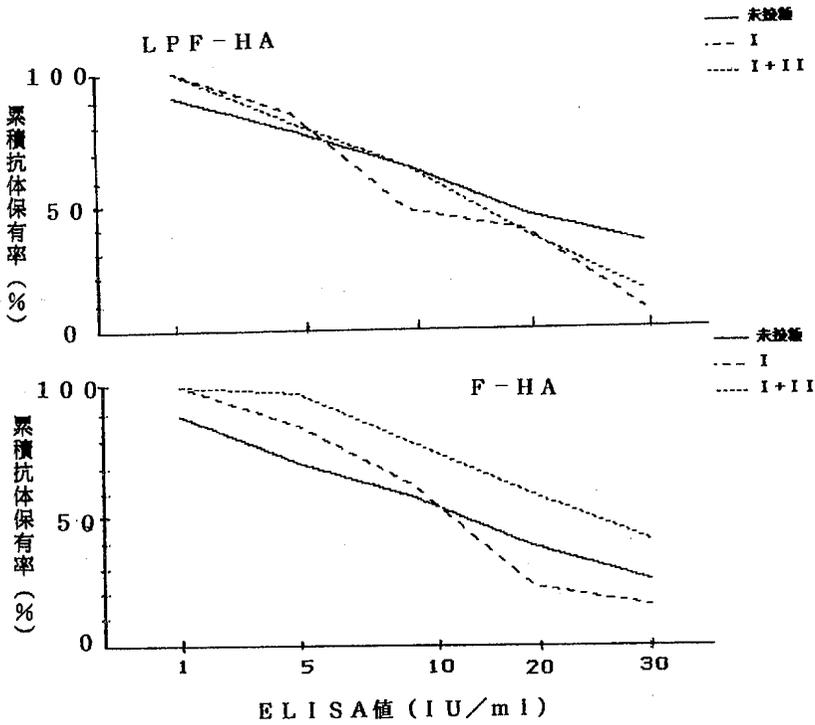


図8. ELISAによるワクチン接種歴別累積抗体保有状況

今年度は、特にELISAにおいて0-1歳群、およびワクチン未接種群の高抗体価、高抗体保有率が見られたが、これが何に原因するのか確認できなかった。た

だし、0-1歳群で百日咳様の症状を呈する例も何例も見られたことより百日咳の流行の影響も無視できないだろう。さらに検討する必要がある。

# 流行予測調査 - 日本脳炎

山本正悟・大浦恭子  
八木利喬 (微生物部ウイルス科)

## ○ 感受性調査

平成2年7月から9月まで、県中央部を中心とする各地から都城食肉衛生検査所宮崎支所へ搬入されたブタのHI抗体保有状況の調査を行った。HI試験は、JaGAR<sup>®</sup>-01株(化血研)を抗原とし、伝染病流行予測実施要領に準じて行った。

7月中旬にHI抗体陽性のブタが見られ、HI抗体保有率が50%を越えたのは8月28日であった(表1)。また、例年宮崎市から最初にHI抗体陽性ブタが出現するが、今年度は日向市、日南市で最初のHI抗体陽性ブタが出現した(表2)。

表1. 平成2年度と畜場豚の日本脳炎H I抗体保有状況

採血 月日	検査 頭数	H I 抗体価								HI陽性数 率(%)	2ME感受性 抗体保有率	
		<10	10	20	40	80	160	320	640			≥1280
7. 9	22	22									0(0)	-
7.18	22	20				1	1				2(9)	50%
7.31	22	22									0(0)	-
8. 8	22	14						2	2	4	8(36)	63
8.16	22	12		1	1			2	4	2	10(45)	89
8.28	24	8		1				7	5	3	16(67)	47
9. 5	24	5				2	4	11	2		19(79)	21
9.17	22	3				1	8	7	3		19(86)	11

表2. 生育地別H I抗体保有状況

	採 血 月 日								
	7. 9	7.18	7.31	8. 8	8.16	8.28	9. 5	9.17	
日 向 市	0/5	1/4	0/5	4/5		5/5	5/5		
川 南 町		0/4	0/4	0/4	2/5	2/4		2/5	
新 富 町	0/9						5/5	5/5	
西 都 市							0/4		
佐 土 原 町					4/4				
高 岡 町					4/4				
綾 町			0/4					4/4	
小 林 市	0/4					2/5			
小 宮 崎 市	0/4	0/5		4/4		5/5		4/4	
山 之 口 町					0/5				
高 城 町			0/5	0/4					
都 城 市		0/5					4/5	4/4	
日 南 市		1/4	0/4	0/5	0/4	2/5	5/5		

## ○ 患者発生状況

平成元年～2年に患者の発生はなかった。

# 流行予測調査 - ジフテリア

大浦 恭子・山本 正悟  
八木 利喬 (微生物部ウイルス科)

## はじめに

3種混合ワクチン(百日咳、ジフテリア、破傷風)の集団接種は従来、生後24カ月から実施されてきたが、昭和63年12月に予防接種実施要領の一部が改正され、百日咳及びジフテリアの予防接種は個別接種を基本とし、集団接種を行う場合でも低年齢層(3カ月~)から接種できるようになった。

宮崎県では集団接種の年齢引き下げがまだ行われていない地域もあるが、ワクチンによる抗毒素獲得状況を把握するため、今年度も0~9才の小児についてジフテリア抗毒素保有調査を行った。

## 材料と方法

材料は平成2年6月から8月に宮崎県立病院において採取された血清109例を用いた。中和試験は伝染病流行予測実施要領に準じ、Vero細胞を用いたカラーチェーン法で行った。

## 結果及び考察

### ① 年齢群別抗毒素保有状況(表1、図1、2)

感染防御レベルである0.01IU/25 $\mu$ l以上の保有率は、0~0.5才未満で43%と高く、母親からの移行抗体と思われた。0.5~1才では25人すべてが0.01IU/25 $\mu$ l以下になり、年齢が上昇するとともに保有率も高くなった。しかし、7~9才になると保有率は低下し、免疫力の低下を思わせた。

表1. 年齢群別抗毒素保有状況

年齢群	抗毒素価 (IU/25 $\mu$ l)										計
	<0.01	0.01	0.02	0.04	0.08	0.16	0.32	0.64	1.28	5.12	
0~0.5>	4		1	1	1						7
0.5~1	25										25
2~3	17	1		1	1		3	1			24
4~6	4			2	1	3	7	3	7	1	28
7~9	4	1	1	2	4	6	3	2	2		25
計	54	2	2	6	7	9	13	6	9	1	109

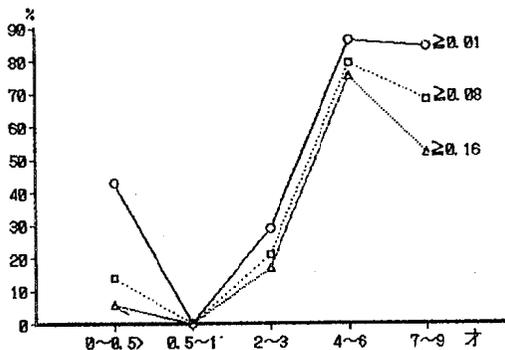


図1. 年齢群別ジフテリア抗毒素保有率 (抗毒素レベル:  $\geq 0.01$ ,  $\geq 0.08$ ,  $\geq 0.16$  IU/25 $\mu$ l)

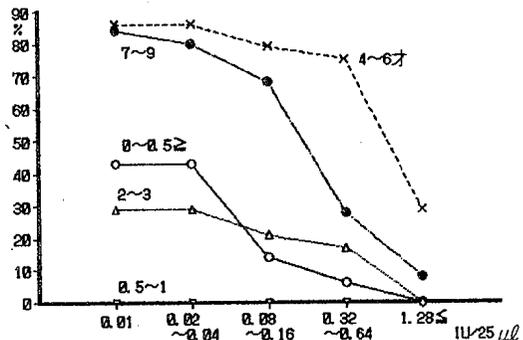


図2. 年齢群別ジフテリア抗毒素累積保有率

② ワクチン歴別抗毒素保有状況 (表2、図3, 4)  
 ワクチン未接種群に比べ、ワクチン接種群の抗毒素保有率が著しく高く、有意な差が見られた。すなわち、未接種群では0.01IU/25 $\mu$ l以上の累積保有率が9%と低いが、接種群ではI期のみ接種群で85%、I期+II期接種群で93%と高く、集団免疫におけるワクチン

の効果を端的に示した。さらに、抗毒素価レベルによる保有率を見ると、I期のみ接種群の保有率では0.04 IU/25 $\mu$ lのレベルで高いが、I期+II期接種群の保有率では0.16IU/25 $\mu$ l以上の抗毒素価レベルで高くなる傾向にあり、II期接種の重要性を示唆した。

表2. ワクチン接種歴別抗毒素保有状況

(接種歴不明を除く、単位;人)

接種歴	抗毒素価 (IU/25 $\mu$ l)										計
	<0.01	0.01	0.02	0.04	0.08	0.16	0.32	0.64	1.28	5.12	
無	49		1	1	1		1	1			54
I期	2	1		3	2	1	2		2		13
I+II期	3	1	1	2	4	8	9	5	7	1	41
計	54	2	2	6	7	9	12	6	9	1	108

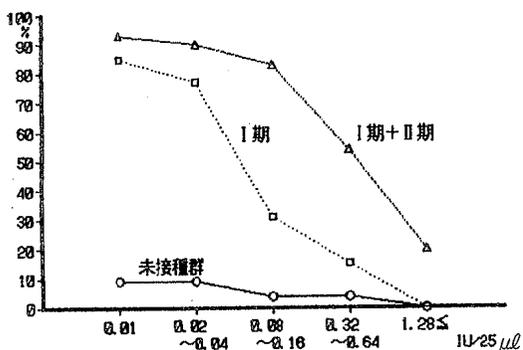


図3. ワクチン接種歴別抗毒素累積保有率

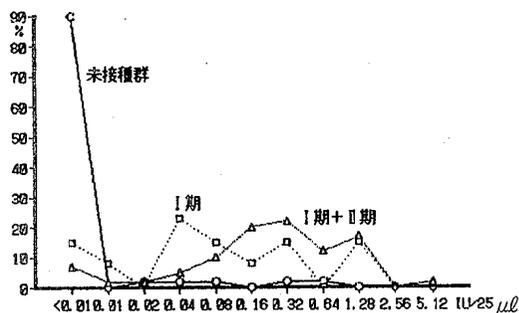


図4. ジフテリア抗毒素価レベルによるワクチン接種歴別抗毒素保有率

# 平成2年度感染症サーベイランス事業 〈病原体検索事業〉

大浦 恭子・山本 正悟・河野 喜美子  
津曲 洋明・八木 利喬 (微生物部)

従来、感染症サーベイランス事業では無菌性髄膜炎を病原体検索の対象としていたが、事業の拡充を図るため、さらに8疾患(百日咳様疾患、手足口病、インフルエンザ様疾患、咽頭結膜熱、流行性角結膜炎、急

性出血性結膜炎、淋病様疾患、陰部クラミジア感染症)を追加した。平成2年に、当衛研で受付けた依頼件数および病原体分離・検出件数を表1、2に示した。

表1. 平成2年度病原体検索依頼受付状況(材料件数)

疾患名	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	計
百日咳様疾患		4	5	12	7	8	7	2	1		2	3	51
手足口病					2								8
インフルエンザ様疾患									4			2	0
咽頭結膜熱													0
流行性角結膜炎							2						2
急性出血性結膜炎										8	34		42
無菌性髄膜炎	2	1			1					2			6
淋病様疾患										4	3	1	8
陰部クラミジア感染症									6	9	5	3	23
													合計 140

表2. 病原体分離(or 検出)結果

病原体名	採取部位	病巣擦過液又は分泌物	咽喉ぬぐい液
百日咳菌			1 1
エンテロウイルス71		2	2
コクサッキーA16		1	
アデノウイルス11		1	
淋菌		8	
クラミジア・トラコマチス		6	

## 結 果

- ① 百日咳様疾患: 51名の検体を受付け、11名から百日咳菌が分離された。これら11名はすべてワクチン未接種者で、9名は2才3カ月未満、1名は5才、1名は7才であった。
- ② 手足口病: 宮崎市内の皮膚科医から採取して頂いた材料の水疱内容からエンテロウイルス-71、コクサッキーA16型ウイルスが分離された。
- ③ 無菌性髄膜炎: 昨年まで材料の殆どが県立宮崎病院から搬入されていた。ところが移転で遠く離れた為か平成2年度は全く搬入されなかった。MMRワクチン接種後の無菌性髄膜炎(宮崎、日向保健所管内各1件)では血清学的にムンプスウイルスに対する有意の抗体上昇が見られたが、ウイルスは分離できなかった。

- ④ 急性出血性結膜炎: 患者は殆どが高校生であった。急性出血性結膜炎の主な病原体はエンテロウイルス-70(E-70)とコクサッキーA24型ウイルス(CA24)であるが、E-70は乳のみマウスを発症させないといわれており、また株化細胞で分離しにくいので血清学的に確認されていることが多い。CA24は株化細胞での分離が容易であり、乳のみマウスを発症させた報告も見られる。当所でも乳のみマウスと株化細胞を用いてウイルス分離を試みたが、乳のみマウスを発症させることができず、細胞からも分離できていない。
- ⑤ 淋病様疾患、陰部クラミジア感染症(非淋菌性尿道炎): 淋病様疾患の材料8件からすべて淋菌が分離された。非淋菌性尿道炎の検査は、現在蛍光抗体法を採用しており、検体23件のうち、6件からクラミジアトラコマチスが検出された。当所で検査を受付けた患者

及び病原体検出陽性患者の分離分布を図1に示した。  
女性は産科、婦人科を受診するものと思われ、患者の

殆どが男性であった。

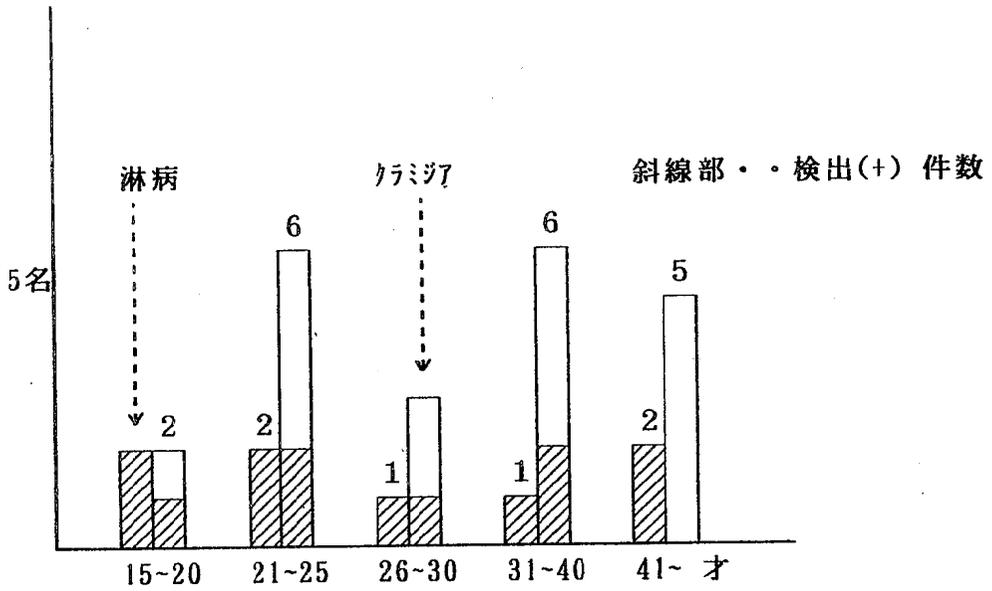


図1. 年齢別患者分布

# 1990～1991年のインフルエンザ流行状況

山本正悟・大浦恭子  
八木利喬 (微生物部ウイルス科)

## はじめに

昨年度の本県におけるインフルエンザの流行はA/北海道/20/89に類似した抗原性を持つA香港型インフルエンザウイルスにより引き起こされたが、今年度はB型インフルエンザウイルスによる流行が発生した。以下にその概略を報告する。

表1. 1990/1991のインフルエンザ様疾患発生状況

施設別	施設数	在籍者数	患者数	欠席者数	措置状況		
					休校	学年閉鎖	学級閉鎖
小学校	5	216	160	99	0	1	4
中学校	2	188	137	63	0	1	1
合計	7	404	297	162	0	2	5

## 2. 感染源調査

保健所の協力のもとに4施設の患者24名から採取したうがい液と対血清について、伝染病流行予測実施要領に従い、MDCK細胞と孵化鶏卵接種法によるウイルス分離および赤血球凝集抑制(HI)試験を実施した。その結果、国富町立木脇小学校を除く3施設で、B型インフルエンザウイルスによる流行が確認された(表2,3)。また、国立予防衛生研究所で行った同定試験により、今回分離されたB型インフルエンザウイルスがB/バンコク/163/90に近い抗原性を持つことが確認された(表4)。また、B/香港/22/89,B/愛知/5/

## 1. 患者発生状況

平成3年2月中旬に、都城保健所管内の高城町立有水小学校で今年度初のインフルエンザ様疾患の集団風邪が発生し、3月までに7校からの届け出があった(表1)。今年度の届け出施設数と患者数は昨年度の45%程度であった。

88及び分離株(B/宮崎/8/91)を抗原としたHI試験では、18名の対血清でインフルエンザウイルスに対する抗体の有意上昇が見られた。なお、B/香港/22/89,B/愛知/5/88および分離株で有意上昇の見られた対血清はそれぞれ12,8及び18件であり、分離株でのみ有意上昇を確認された対血清が6件(33%)見られた。また、分離株を抗原とすることにより、18対血清中15対血清で、最も明瞭な抗体価の上昇が確認された(表5)。従って、血清診断に際しては流行時の分離株を抗原として用いることが必要と思われる。

表2. ウイルス分離およびHI試験成績

急性期検体 採取年月日	施設名	ウイルス分離			HI試験		型
		検体 件数	陽性件数		対血 清数	抗体価の上昇を 示した件数(*3)	
			MDCK細胞	孵化鶏卵			
H3.2.16	高城町立有水小学校	10	6	6(*1)	10	10	B
H3.2.22	国富町立木脇小学校	6	0	nd	6	0	
H3.2.26	串間市立福島小学校	3	1(*2)	nd	3	3	B
H3.2.26	えびの市立真幸中学校	5	0	nd	5	5	B
計		24	7	6	24	18	

\*1: B/宮崎/2/91、B/宮崎/3/91、B/宮崎/4/91、B/宮崎/5/91、B/宮崎/6/91、B/宮崎/8/91

\*2: B/宮崎/M19/91

\*3: 対血清で4倍以上の抗体価の上昇を示した件数を記載した。

表3. 分離ウイルスの同定試験（実施施設：宮崎県衛生環境研究所）

	抗血清			
	A/山形/32/89 (H1N1)	A/貴州/54/89 (H3N2)	B/香港/22/89	B/愛知/5/88
A/山形/32/89	2048	< 32	< 32	< 32
A/貴州/54/89	< 32	512	< 32	< 32
B/香港/22/89	< 32	< 32	256	< 32
B/愛知/5/88	< 32	< 32	< 32	128
B/宮崎/2/91	< 32	< 32	128	< 32
B/宮崎/3/91	< 32	< 32	128	< 32
B/宮崎/4/91	< 32	< 32	256	< 32
B/宮崎/5/91	< 32	< 32	128	< 32
B/宮崎/6/91	< 32	< 32	128	< 32
B/宮崎/8/91	< 32	< 32	128	< 32
B/宮崎/M19/91	< 32	< 32	256	< 32

表4. 分離ウイルスの同定試験（実施施設：国立予防衛生研究所）

	抗血清			
	B/山形/16/88	B/香港/22/89	B/愛知/5/88	B/沖縄/163/90
B/山形/16/88	2048	256	32	512
B/香港/22/89	64	256	32	64
B/愛知/5/88	< 32	< 32	512	< 32
B/沖縄/163/90	128	64	32	512
B/宮崎/2/91	512	512	< 32	1024
B/宮崎/3/91	512	256	< 32	1024
B/宮崎/4/91	512	512	< 32	1024
B/宮崎/5/91	512	512	< 32	1024
B/宮崎/6/91	512	512	< 32	512
B/宮崎/8/91	512	512	< 32	512
B/宮崎/M19/91	512	256	< 32	512

表5. 赤血球凝集抑制試験で陽性と判定した患者血清の反応性

患者No.	赤血球凝集抑制試験による抗体価					
	標準株				分離株	
	B/香港/22/89		B/愛知/5/88		B/宮崎/8/91	
急性期	回復期	急性期	回復期	急性期	回復期	
1	< 16	512	< 16	16	< 16	1024
2	128	512	128	512	16	128
3	32	128	128	256	32	128
4	64	512	64	256	32	512
5	128	128	128	128	32	128
6	< 16	128	32	128	< 16	128
7	16	> 8192	< 16	< 16	16	64
8	128	512	128	256	32	256
9	< 16	< 16	< 16	< 16	16	64
10	64	512	128	512	< 16	128
11	128	256	128	256	128	512
12	128	256	128	256	32	128
13	64	512	128	512	16	256
14	16	256	64	256	< 16	256
15	512	1024	1024	1024	64	256
16	32	128	< 16	32	64	256
17	128	256	256	512	64	256
18	< 16	128	32	64	32	256

— : 対血清で、4倍以上の抗体価上昇が見られた例を示す。

□ : 対血清で、最も高い抗体価上昇が見られた例を示す。

# 風疹 HI 抗体保有状況

大浦 恭子・山本 正悟  
八木 利 喬 (微生物部ウイルス科)

## はじめに

昭和56年以降の宮崎県内での風疹の流行は、1982～1984年と1987～1989年の2回見られ、全国と同様、2年目の流行に患者発生が多くなっている(図1)。全国的には、今まで5～10年の間隔で風疹の流行が起きているので、1992年頃からまた患者が増加することが考えられる。そこで今回、成人女性と小児における風疹の抗体保有率調査を行い、今後の流行予測の資料とした。

## 材料と方法

当所に検査依頼のあった成人女性及び1990年6～8月に採血された小児の血清を材料とした。検査の方法は、伝染病流行予測実施要領に準じ、HI試験を行った。

## 結果及び考察

当所に検査の依頼のあった成人女性(33人)のHI抗体保有状況を見ると、ワクチン接種年齢では全員HI抗体を保有していた(HI抗体:<8の一人は、ワクチン未接種者である)。しかし、ワクチン未接種年齢では流行後にもかかわらず、26人中11人(42%)が風疹に対する感受性を示した(表1)。また、1990年6～8月に採血された0～9才の小児における保有率を見ると、1987～1989年の流行にもかかわらず、各年齢群で54%～74%の小児が風疹に対する感受性を示した。逆に、30%近くの小児が256倍以上の高抗体価を保有しており、最近の感染と思われた(表2)。

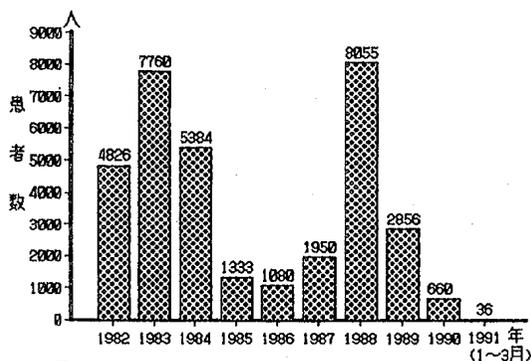


図1. 宮崎県における風疹患者発生状況(年次別)  
(サーベイランス情報より)

表1. 平成2年度年齢別風疹抗体保有状況

年齢	HI 抗体価								合計(人)	陰性率(%)	
	<8	8	16	32	64	128	256	512			1024≤
25≥	1		2	1		3				7	14
26	1			1						2	50
27	2		1							3	67
28	1			1						2	50
29	1			2	2			1		6	17
30	2			1	1	2				6	33
31≤	4		1		1	1				7	57
合計	12	0	4	6	4	6	0	1	0	33	36

(当所受付分)

表2. 年齢群別風疹抗体保有状況 (1990. 6 ~ 8)

年 齢	H I 抗体価									合計 (人)	陰性率 (%)	
	<8	8	16	32	64	128	256	512	1024≤			
0 ~ 1	23	2			2	1	3				31	74
2 ~ 3	15			1			5	3			24	63
4 ~ 6	15			2			2	4	5		28	54
7 ~ 9	14					1	2	2	6		25	56
合 計	67	2	0	3	2	2	12	9	11		108	62

このことから、風疹の流行があったにもかかわらず、成人女性および小児の風疹に対する感受性は蓄積されており、MMRワクチンが副作用の課題とのからみか

らなかなか普及しにくい現在、感受性はなかなか減少し難く、次の流行を誘発する一因になると思われた。

# 畜水産物中の残留合成抗菌剤の分析法の検討 (第1報) —イオン対クロマトグラフィーによるアンプロリウム、 ハロフジノンとミロキサシンの定量—

山本雄三、橋口玲子、小野和則  
武田 攻 (衛生化学部食品科)

Studies on Rapid Determination of Residual Synthetic Antibacterials in Fish and Meat. I.  
Determination of Amprolium, Halofuginone and Miloxacin by Ion-Pair  
High Performance Liquid Chromatography

Yuzo Yamamoto, Reiko Hashiguchi, Kazunori Ono and Osamu Takeda

Determination of Amprolium (APL), Halofuginone (HF) and Miloxacin (MLX) by ion-pair liquid high performance chromatography was developed. The APL, HF and MLX were extracted with a simultaneous analytical method shown by the ministry of health and welfare.

APL and HF were separated on an Inertsil ODS-2 column (4.6 mm i.d. × 250 mm) by using an acetonitrile-McIlvaine buffer (pH3.4) containing 10 mM sodium 1-laurylsulfonate (4:6) as a mobile phase. The recoveries of APL and HF in chicken muscle at the level of 0.5 μg/g were 94.2 ± 5.0% (n=10) and 74.8 ± 17.2% (n=10). The both lower limits of APL and HF were 0.05 μg/g.

MLX was separated on a TSK-GEL ODS-80TM column (4.6 mm i.d. × 150 mm) by using an acetonitrile-McIlvaine buffer (pH3.4) containing 10 mM tetra-n-butylammonium bromide (1:4) as a mobile phase. The recovery of MLX in eels at the level of 0.5 μg/g was 77.97 ± 6.56% (n=6). The lower limit of MLX was 0.03 μg/g.

## はじめに

平成2年12月、厚生省により畜水産食品中の有害残留物質モニタリング検査が実施されるにあたり、高速液体クロマトグラフィー(HPLC)による残留合成抗菌剤の一斉分析法が示された<sup>1), 2)</sup>。これは、牛肉、豚肉、鶏肉、ウナギ、アユなどに残留の可能性のある、サルファ剤、キノキサリン系、キノロン系等、多岐にわたる合成抗菌剤の簡便な抽出、精製法、およびグラディエント溶出高速液体クロマトグラフィーによる迅速分析法であるが、飼育、養殖される過程で繁用され残留が懸念されながら、この分析法で分析できない薬物もある。そこで、著者らは、その中からプロイラーの抗コクシジウム薬アンプロリウム(APL)とハロフジノン(HF)、ウナギのパラコロ病薬ミロキサシン(MLX)をとりあげ簡便で迅速な定量法の検討を行った。

鶏肉中のAPLの分析法としては、薄層クロマトグ

ラフィーを用いた厚生省法<sup>3)</sup>、蛍光検出高速液体クロマトグラフィーによる方法<sup>4)</sup>などがあるが、広範な合成抗菌剤の一斉分析が求められている昨今の状況をかんがみるとさらに業務の効率化をはかる簡便で迅速な分析法が必要と考えられる。

また、鶏肉中のHFの定量法としては著者らの確立した方法<sup>5)</sup>があるが、本検討ではAPLと合わせて、厚生省の一斉分析法と同じ試料調製法で調製した試料で行えるHPLCの条件の検討を行った。

MLXはウナギのパラコロ病薬として近年ひろく用いられるようになってきたが、魚肉中のMLXの定量法としてはHPLCによる上野らの方法<sup>6)</sup>と堀江らの方法<sup>7)</sup>があるものの、同じキノロン系の合成抗菌剤で類似の構造をもつオキソリン酸(OXA)との明確な分別が困難である。MLXも、一斉分析法と同じ試料調製法で行え、OXAとの明確な分別が可能なHPLCによる定量法の検討を行った。

## 実験方法

### 1. 試料

平成3年2月から8月にかけて宮崎県下で生産された鶏肉とウナギを用いた。添加回収実験においては、その中で、あらかじめAPL、HFの残留のないことを確認した鶏肉、MLXの残留のないことを確認したウナギを用いた。

### 2. 試薬・試液

アセトニトリル：片山化学工業(株)製、液体クロマトグラフ用

ヘキサン：和光純薬工業(株)製、残留農薬試験用

1-プロパノール：和光純薬工業(株)製、特級

アンプロリウム(APL):マルピー・メルクシャー  
プアンドドーム(株)製

ハロフジノン(HF)臭化水素酸塩：日本ユクラフ  
(株)製

ミロキサシン(MLX):住友製薬(株)製

1-ラウリル硫酸ナトリウム(SDS)、臭化テトラ  
n-ブチルアンモニウム(TBA-Br):ナカライテス  
ク(株)製、イオンペアクロマト用

オキシリン酸(OXA):Sigma製

McIlvaine 緩衝液(pH3.4):M/5 リン酸ニナトリ  
ウム 285mlとM/10 クエン酸 715mlを合わせ1ℓとし  
た。

APL標準原液:APL 10.0mgをアセトニトリル  
水(1:1)に溶かして100mlとした。

HF標準原液:HF臭化水素酸塩を酢酸緩衝液に溶  
かし、500 $\mu$ g/mlの溶液とした。

MLX標準原液:MLX 10.0mgをアセトニトリル  
水(1:1)に溶かして250mlとした。

OXA標準原液:OXA 10.0mgをアセトニトリル  
水(1:1)に溶かして100mlとした。

APL, HF, MLX, OXA標準液:各標準原液を1ml  
にアセトニトリルを加えて2.5 $\mu$ g/mlの溶液とした。

### 3. 装置

高速液体クロマトグラフ：(株)島津製作所製、LC  
-6A型

検出器：(株)島津製作所製、紫外-可視分光光度計  
SPD-6AV型

ホモジナイザー:Polytron、Kinematica、  
Switzerland

### 4. HPLC測定条件

#### 4.1 APLとHF

カラム:Inertsil ODS-2 (5 $\mu$ m)4.6mm i.d.  $\times$  250  
mm

カラム温度:40 $^{\circ}$ C

移動相:10mM SDS含有McIlvaine緩衝液(pH  
3.4)-アセトニトリル(6:4)

流速:1.0ml/min

検出器波長:243nm

試料注入量:10 $\mu$ ℓ

4.2 MLX

カラム:TSK-GEL ODS-80TM 4.6mm i.d.  $\times$  150  
mm

カラム温度:40 $^{\circ}$ C

移動相:10mM TBA-Br 含有McIlvaine緩衝液  
(pH3.4)-アセトニトリル(4:1)

流速:1.0ml/min

検出器波長:260nm

試料注入量:10 $\mu$ ℓ

### 5. 試料溶液の調製法

有害残留物質モニタリング検査における合成抗菌  
剤の一斉分析法に示された試料調製法にしたがい、  
次のごとく行う。

試料5.0gを50ml遮光遠沈管にとり、アセトニ  
トリル25mlおよび無水硫酸ナトリウム10gを加えてホ  
モジナイズし、3000rpm、5分間遠心分離する。上  
清を100ml遮光分液ロートに移し、アセトニトリル  
飽和ヘキサン25mlを加えて5分間振とうして、アセ  
トニトリル層を100ml遮光ナスフラスコにとる。さ  
きに遠心分離した残留物にアセトニトリル25mlを加  
え、超音波洗浄器中で約30秒間かき混ぜる。3000  
rpm、5分間遠心分離後、さきに分離したアセトニ  
トリル飽和ヘキサンの入った遮光分液ロートに上清  
を移し、5分間振とうする。アセトニトリル層をさ  
きのアセトニトリル層と同じ遮光ナスフラスコに合  
わせ入れ、1-プロパノール10mlを加えてロータリー  
エバポレーターにより減圧乾固する(水浴40 $^{\circ}$ C)。残  
留物にアセトニトリル水(4:6)1mlを加え、超  
音波洗浄器中で約30秒間振り混ぜる。内容物を10ml  
遮光遠沈管にとり、アセトニトリル飽和ヘキサン  
0.5mlを積層し、3000rpm、5分間遠心分離する。  
ヘキサン層をとり除いた後、アセトニトリル水層  
をとり出し、10 $\mu$ ℓをHPLCの試料溶液とする。

## 結果及び考察

### 1. HPLC測定条件の検討

#### 1.1 APLとHF

厚生省の示した一斉分析法で用いられているカラムはTSK-GEL ODS-80TM 4.6mm i.d.×150mmであるが、本法で10mM SDSを添加するとポンプの圧力の低下をまねき、再現性に乏しく、また、試料から抽出した際の複雑ピークとの分離も考え合わせ、Inertsil ODS-2 (5 $\mu$ m)4.6mm i.d.×250mmを用いることとした。

福本ら<sup>8)</sup>はカウンターイオンとしてSDSを用い、イオン対クロマトグラフィーによる飼料中APLの定量法を報告しているが、本法においてもカウンターイオンとしてSDSを用いた。移動相における

McIlvaine緩衝液のpHやMcIlvaine緩衝液とアセトニトリルの割合についても検討した結果、前述測定条件が最も適していた(Fig.1)。

#### 1.2 MLX

MLXはテーリングをおこしやすく、OXAのピークとの分離が困難であるが、本法ではカウンターイオンとしてTBA-Brを添加し、移動相におけるMcIlvaine緩衝液とアセトニトリルの割合についても検討することにより、前述測定条件を設定した。MLXはODSカラムのシラノール基や金属不純物の影響をつよく受けるといわれているが、本移動相においては、TSK-gel ODS-80TMを用いてほとんどテーリングをおこさなかった。これにより、OXAと分別し、MLXを分析することができた(Fig.2)。

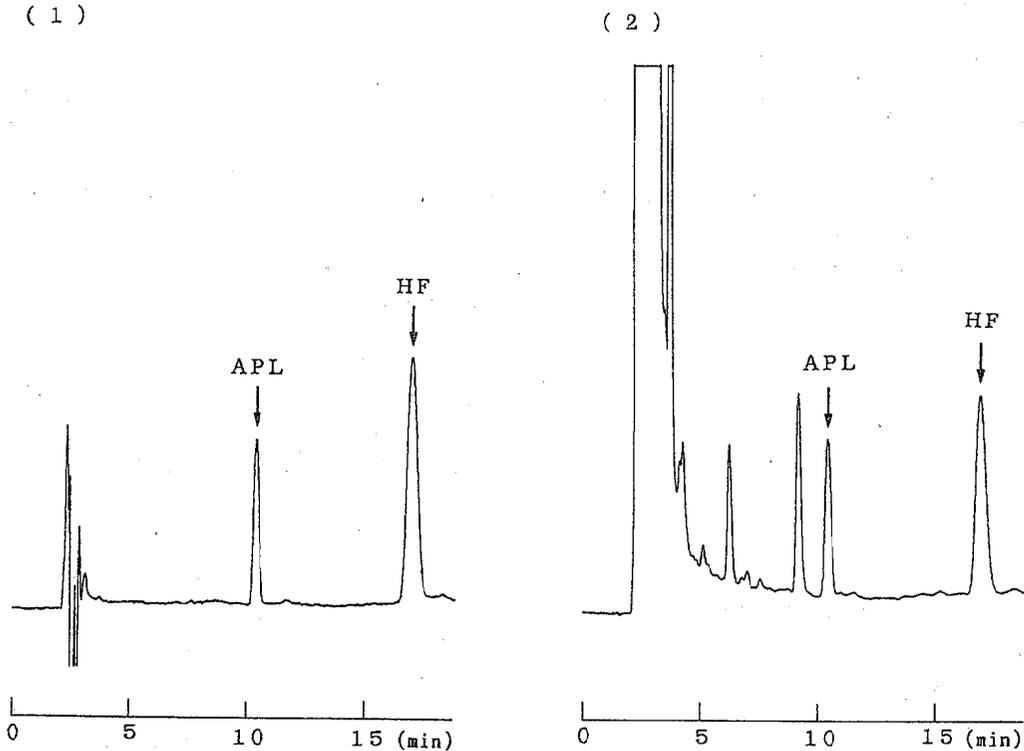
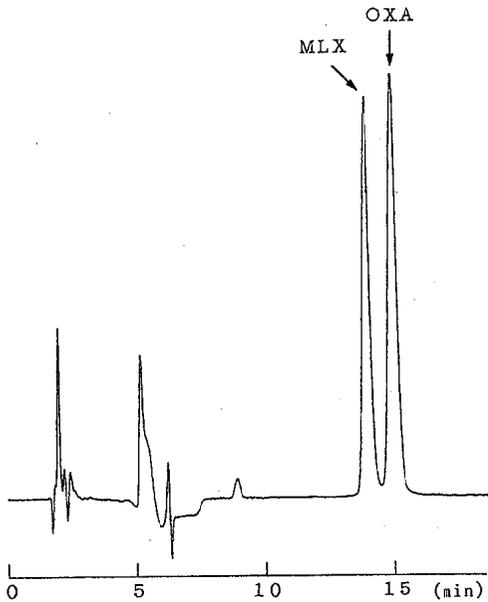


Fig. 1. High performance liquid chromatograms of amprolium and halofuginone standard and extract of chicken

(1) : standards[25 ng each of amprolium ( APL) and halofuginone (HF)]

(2) : extract of chicken[spiked with 2.5 $\mu$ g/5g of APL and HF]

( 1 )



( 2 )

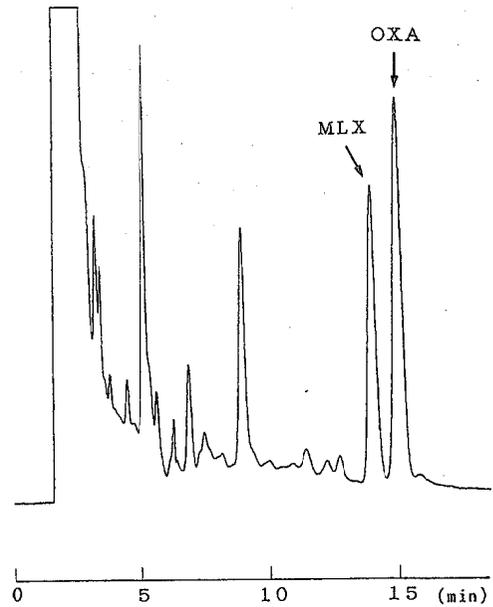


Fig. 2. High performance liquid chromatograms of miloxacin and oxolinic acid standard and extract of eel

(1): standards [25 ng each of miloxacin (MLX) and oxolinic acid (OXA)]

(2): extract of eel [spiked with 2.5 µg/5g of MLX and OXA]

## 2. 検量線及び検出限界

### 2.1 APLとHF

APL標準原液をアセトニトリル-水 (1:1) で希釈して0.15~1.25 µg/ml溶液を調製し、ピーク面積により検量線を作成した結果、この範囲で直線性が得られた。本法によるAPLの定量限界は、0.05 µg/gであった。

また同時に、HF標準原液もアセトニトリル-水 (1:1) で希釈して0.25~1.25 µg/ml溶液を調製し、ピーク面積にらり検量線を作成した結果、この範囲で直線性が得られた。本法によるHFの定量限界は、0.05 µg/gであった。

### 2.2 MLX

MLX標準原液をアセトニトリル-水 (1:1) で希釈して0.06~1.50 µg/ml溶液を調製し、ピーク面積により検量線を作成した結果、この範囲で直線性が得られた。本法によるMLXの定量限界は、0.03 µg/gであった。

## 3. 添加回収実験

### 3.1 APLとHF

鶏肉5.0 gにAPL 2.5 µg (2.5 µg/ml溶液 1.0 ml) とHF 2.5 µg (2.5 µg/ml溶液 1.0 ml) を添加し、本法による回収率 (平均±標準偏差) を求めた結果、APLの回収率は94.2±5.0% (n=10)、HFの回収率は74.8±17.7% (n=10) であった。

あわせて、実験方法1. 試料で述べた鶏肉8検体について本法でAPLとHFの残留検査を行ったところ、いずれの検体からも検出されなかった。

### 3.2 MLX

ウナギ5.0 gにMLX 2.5 µg (2.5 µg/ml溶液 1.0 ml) を添加し、本法による回収率 (平均±標準偏差) を求めた結果、MLXの回収率は77.97±6.56% (n=6) であった。

あわせて、実験方法1. 試料で述べたウナギ8検体について本法でMLXの残留検査を行ったところ、いずれの検体からも検出されなかった。

厚生省の示した残留合成抗菌剤の一斉分析法と同じ試料調製法を用いて調製した試料で行えるHPLCの条件の検討を行った。

APLとHFは、HPLCの移動相として10mM SDS含有McIlvaine緩衝液(pH3.4)-アセトニトリル(6:4)を用い、良好な分離をえた。本法による鶏肉中からのAPLの回収率は94.2%、HFの回収率は74.8%であった。

MLXは、HPLCの移動相として10mM TBA-Br含有McIlvaine緩衝液(pH3.4)-アセトニトリル(4:1)を用いて、良好な分離をえOXAと分別し、定量することができた。本法によるウナギからのMLXの回収率は78.0%であった。

一斉分析法で分析できないAPL、HFとMLXについて、イオン対クロマトグラフィーを用いて測定条件を設定することができ、広範な合成抗菌剤の定量をさらに簡便かつ迅速にした。

- 1) 厚生省生活衛生局乳肉衛生課長: "畜水産食品中の有害物質モニタリング検査の実施について" 平成2年12月21日, 衛乳105号.
- 2) 村山三徳, 内山貞夫, 齊藤行生: 食衛誌. 32, 155~160 (1991)
- 3) 厚生省生活衛生局乳肉衛生課編: "畜水産食品中の残留物質検査法" p.136~139 (1991) 中央法規出版.
- 4) 山口敏幸, 花井潤師, 平田睦子, 白石由美子, 青木襲, 高杉信男: 食衛誌. 25, 499~504 (1984)
- 5) 山本雄三, 橋口玲子, 荒木桂子, 串間奉文: 食衛誌. 32, 444~447 (1991)
- 6) 上野隆二, 奥村雅人, 阪中和紀, 堀口吉重: 三重大水産研報. 12, 167~173 (1985)
- 7) 堀江正一, 齊藤貢一, 星野庸一: 第28回全国衛生化学技術協議会年会講演集 p.48~49 (1991)
- 8) 福本祐二, 畠田秀一: 飼料研究報告. 12, 53~64 (1987)

# アロエ含有製剤中のバルバロインの定量

野崎祐司、平田泰久、前田 武 (衛生化学部化学科)

## Determination of Barbaloin in the Aloe Preparations.

Yuji NOZAKI, Yasuhisa HIRATA and Takeshi MAEDA

The contents of barbaloin in the Aloe preparations were determined by HPLC method. HPLC operating conditions were showed as follows, column ; Shimadzu Techno-Reserch inc. ODS-H (4mmI.D.×150mmL), mobile phase ; water / methanol = 53 / 47, temperature ; 40°C, detector ; UV 358nm. The contents of barbaloin in the Aloe foods were 1.83 - 4.64 mg / daily intake, and in the Aloe drugs were 9.18 - 26.4 mg / daily intake. And the Aloe preparations were also investigated with a view of comparing their quality by the weight variation test, the disintegration test and the Na, K - contents.

### はじめに

アロエは「医者いらず」と呼ばれ、古くから用いられている生薬であり、排便促進作用を有し、主として瀉下薬や健胃薬として繁用されて来た。日本では、日本薬局方に記載されているCape Aloeの他に民間薬として用いられているAloe arborescens Miller (キダチアロエ)がよく知られている。アロエの成分には、バルバロイン、アロエエモジンなどのアンスラキノン誘導体、D-グルクロン酸、D-マンノウロン酸などの多糖類、その他有機酸、アミノ酸等がある。<sup>1)</sup>

アロエの瀉下薬としての薬効は、アロエエモジン-アンスロンのC配糖体であるバルバロインによるもので、その構造を図1に示す。バルバロインは、苦味・刺激性が強く、服用すると腸内細菌により分解・活性化されて、大腸粘膜を刺激して瀉下作用を現わす。<sup>2)</sup>

今回、数種類のアロエ含有医薬品及びアロエ加工食品に関して、薬効成分であるバルバロインの定量を行い、その含有量を調べた。また、錠剤の品質試験として、重量偏差、崩壊性、灰分及びNa、K含有量を測定した。

### 実験方法

#### 1 試料

アロエ含有医薬品2品目(錠剤A,B)、アロエ加工食品4品目(粒状C,D,E/粉末F)

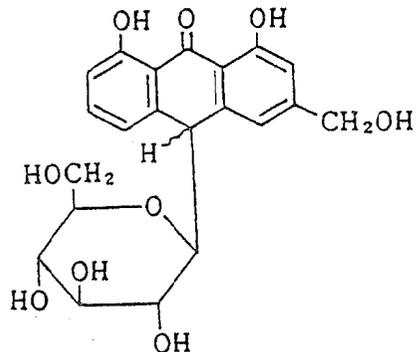


図1. バルバロインの構造

#### 2 装置及び試薬

##### 1. 装置

液体クロマトグラフ (島津 LC-3-A)  
原子吸光分光光度計 (セイコー SAS 760)  
崩壊試験器 (富山産業 NT-1H)

##### 2. 試薬

バルバロイン標準品 (和光純薬)  
メタノール: 液クロ用 (和光純薬)  
塩酸: 有害金属測定用 (和光純薬)  
Na、K標準液: 原子吸光分析用 (和光純薬)

#### 3 実験操作

##### 1. 重量偏差試験<sup>3)</sup>

日本薬局方一般試験法に準じた。

## 2. 崩壊試験<sup>9)</sup>

日本薬局方一般試験法に準じた。

## 3. 灰分定量<sup>9)</sup>

日本薬局方生薬試験法に準じた。

## 4. バルバロインの定量

試料を粉末とし、50号篩を通す。この1gを正確に量り、30mlの分液ロート中でメタノール15mlを加え振盪器で250spm、10分間抽出後3500rpmで10分間遠沈し得られた上清を分取する。沈殿は再度メタノール10mlを加え同様に操作し、得られた上清を合わせ液クロ用試料とした。

別にバルバロインの標準物質をとり、メタノールに溶かし標準溶液とした。

液体クロマトグラフの条件

[カラム;STR ODS-H(4mm×150mm),

移動層;水:メタノール(53:47),

流速;1.0ml/分(40℃),

検出波長;358nm]

## 5. Na,Kの定量<sup>9)</sup>

灰分定量法に準じて灰化する。

るつばに灰の粉が飛散しないように水を加えて潤した後塩酸(1→2)10mlを加える。これをホットプレート上で完全に蒸発乾固する。これに塩酸(1→4)10mlを加えて溶解後100mlのメスフラスコ中にろ過し、水を加えて100mlとし、試料溶液とする。原子吸光分光光度計により各試料溶液中のNa,Kの定量を行った。

## 実験結果

### 1. 重量偏差試験

重量偏差試験の結果を表1に示した。

試料20錠(粒)について試験した結果、Aが0.1~2.9% Bが0.1~4.5%で錠剤の項目で示された基準(7.5%)以内であった。C~Eに関しても7.5%を超えるものはなかった。

表1. 各試料の平均重量及び重量偏差

	平均重量(g)	偏差(%)
A	0.169	0.1 ~ 2.9
B	0.167	0.1 ~ 4.5
C	0.153	0.2 ~ 6.9
D	0.103	0.5 ~ 4.6
E	0.150	0.3 ~ 6.6

### 2. 崩壊試験

錠剤の項目に準じ、試験液に水を用い補助盤をいれ、30分間上下運動を行い崩壊試験を行った結果、A,Bは時間内に崩壊した。C~Eに関してはDのみが時間内に崩壊し、Cについては30分間の試験後小片を認め、Eは30分間でほとんど変化しなかった。

### 3. 灰分定量

灰分定量試験の結果を表2に示した。

Aが6.25%、Bが0.58%であるのに比較し、C~Fは11.3~30.3%と高い値であった。

表2. 各試料の灰分

	灰分(%)
A	6.25
B	0.58
C	30.3
D	11.3
E	15.4
F	20.6

### 4. バルバロインの定量

バルバロインの定量結果を表3に示した。

医薬品(A,B)の1日服用量当りのバルバロイン含有量は9.18~26.4mgで、アロエ加工食品(C-F)の1日摂取量当りのバルバロイン含有量は、1.83~4.64mgであった。

C~Fのバルバロイン含有量は、B(便秘薬)に比較すると1/7~1/3程度で、製品によりばらつきがあった。

表3. 各試料中のバルバロイン含有量

	1日摂取量	1日摂取量中のバルバロイン量(mg)
A	6錠	9.18
B	6~12錠	13.2~26.4
C	5粒	1.83
D	40粒	4.64
E	6粒	3.12
F	3杯*	3.66

\*: 付属のスプーンにより計量

### 5. Na,Kの定量

無機成分(Na,K)の定量結果を表4に示した。

Na,K共にA,Bに比べC~Fが高い値であった。

表4. 各試料中のNa,K含有量

1日摂取量	1日摂取量中の	
	Na量(mg)	K量(mg)
A 6錠	0.17	1.42
B 12錠	0.71	3.49
C 5粒	25.8	13.2
D 40粒	16.7	64.1
E 6粒	2.30	13.0
F 3杯*	2.66	14.9

\* : 付属のスプーンにより計量

ま と め

1. 重量偏差試験

A,Bは基準内であり、A~E間に大きな差はなかった。

2. 崩壊試験

医薬品(A,B)は錠剤の項目に規定される基準(30分)以内に崩壊した。

アロエ加工食品(C~E)の崩壊性を崩壊試験に準じて試験した結果、これらの崩壊性にはばらつきがあり、非常に崩壊しにくいものがあった。このように崩壊しにくいものは、よく噛んで服用する必要がある。

3. 灰分定量

医薬品に関しては、成分として生薬粉末を含む錠剤(A)が、成分としてエキスを含む錠剤(B)より約10倍高い値であった。

加工食品(C~E)の灰分は医薬品より高い値であった。これは添加されている原料中の無機物由来すると推察される。

4. バルバラロインの定量

今回のバルバラロイン定量における各試料中の回収率は、86.0~90.0%であった。

医薬品中のバルバラロイン含有量は、健胃薬(A)が9.18mg/1日服用量、便秘薬(B)が13.2~26.4mg/1日服用量であった。

アロエ加工食品中のバルバラロイン含有量は、医薬品に比較すると低く、製品によるばらつきが大きかった。

加工食品中のバルバラロイン含有量は、医薬品に比して低い値であったが、医薬品の小児薬用量からして瀉下作用が見込まれる量であるので小児に対して

は十分な注意を要する。

5. Na,Kの定量

今回のアロエ末含有医薬品(A)中のNa含量は、0.17mg/1日服用量であり、著者等が前回報告した漢方エキス製剤(柴胡含有製剤)中のNa含有量(15.6~43.5mg/1日服用量)<sup>9)</sup>に比較すると非常に低い値であった。これは、便秘・健胃等の治療を目的としたA(3種類の生薬0.3gを含有)は、多種生薬の配合剤(6~9種類の生薬19~24gの抽出エキスを含有)である漢方エキス製剤と比較すると、その成分とする生薬の重量が1/60~1/80程度であったためである。

アロエ加工食品中には、材料としてNaを含有するものや、原材料の内容によりNa,Kを多く含むものがあった。

6. 試験検体の規格

今回試験を行った検体の規格を表5に示した。

医薬品(A,B)の成分に比べ、アロエ加工食品(C~F)の原材料は、多種のものを含む。

また、1瓶中の量が医薬品は8~15日分であるのに比べ、アロエ加工食品は20~80日分と長期食用量であった。

表5. 各検体の規格

	規格	単価(円)	成分・分量・原材料名
A	90錠	1,200	(6錠中) 日局アロエ末 120mg 日局ケイヒ末 150mg 日局センブリ末 30mg
B	50錠	880	(12錠中) アロエエキス 252mg ダイオウエキスS 144mg
C	400錠 (60g)	4,000	キダチアロエ クエン酸第一鉄Na ビタミンC 食用イカ甲羅粉末
D	800錠	1,980	キダチアロエ葉末 キダチアロエエキス ギンギン、ハトムギ クマ笹、乳糖
E	65g	3,800	キダチアロエ成分
F	20g	1,500	キダチアロエ粉末

### 参 考 文 献

- 1) 石井雅章、他：静岡県衛生環境センター報告30、25-30 (1989)
- 2) 石井康子、他：薬学雑誌、101 (3)、254-258 (1981)
- 3) 厚生省：第12改正日本薬局方、(1991)
- 4) 原田正敏：繁用生薬の成分定量、398-399、広川書店 (1989)
- 5) 日本薬学会編：衛生試験法注解、266-267 (1990)
- 6) 野崎祐司、平田泰久、前田武：宮崎県衛生環境研究所年報、1、83-86 (1989)

# 宮崎県内温泉の化学組成と経年変化 (IV) (都城市、北諸県郡の温泉)

平田泰久、野崎祐司、前田 武 (衛生化学部化学科)

Chemical Compositions and Secular Variations of Mineral Springs in Miyazaki Prefecture, IV  
Miyakonojo District

Yasuhisa HIRATA, Yuji NOZAKI, Takesi MAEDA

## Abstract

Water samples were collected from mineral springs in Miyakonojo district, Miyazaki prefecture. And the chemical compositions were determined in order to investigate the properties of the waters and to observe the secular variation of each sources. The results were analysed by triangle diagram of principal components and by correlation matrix method.

These waters in Miyakonojo district are rich in  $H_2SiO_3$  and  $HBO_2$ . As the district is situated with in the reach of Sirasu areas,  $H_2SiO_3$  in the waters is considered to be originated from Sirasu. Small changes were recognized for some components as compared with the analytical results observed at the time of boring.

## 1. はじめに

宮崎県内の温泉の特徴を総合的に把握するとともに各温泉の経年的な変化を明らかにするため、昭和62年度から県内に湧出する温泉の一斉調査を実施し、その結果を本報により報告しているが、今回は霧島火山周辺地域のうちこれまでに調査の終了したえびの市<sup>1) 2)</sup>及び高原町とその周辺<sup>3)</sup>の各地域を除いた上記市、町内から湧出する温泉について調査し、結果を取りまとめたので報告する。

## 2. 調査方法

### (1) 調査対象温泉及び調査時期

都城市、北諸県郡内から湧出する温泉について昭和62年10月～平成2月11日の間に調査した。

また、昭和34年2月～昭和52年8月の間に各温泉所有者から依頼を受け、当所に於て実施した温泉試験の分析記録を経年変化の比較試料とした。

### (2) 調査項目及び調査方法

泉温、pH等現地調査を含む合計25項目について調査した。分析方法は「鉱泉分析法指針(改訂)」<sup>4)</sup>によった。

また、当該地域一帯に分布する軽石凝灰岩(シラス)を現地(都城市庄内町)で採取し、シラスと同重量の蒸留水をそれに加え、30℃で24時間振盪した後、10000rpmで20分間遠心分離し、得られた黄色透明の液体をシラス溶出液として各温泉水と同様の方法で分析した。

表1. 成分分析結果

温泉名	No.1 湯穴温泉	No.2 堀切温泉	No.3 龍ヶ山温泉	No.4 常磐荘	No.5 杉倉温泉	No.6 都城温泉	No.7 志和池温泉	No.8 シラス溶出液
調査年月日	90/11/08	90/11/07	90/11/07	90/11/07	90/11/09	89/12/07	87/10/29	—
泉温	16.9	17.2	18.0	18.8	19.1	39.8	19.9	—
pH	6.22	6.22	6.38	6.83	6.40	8.32	7.02	7.57
密度	1.0309	0.9984	0.9975	0.9982	1.0289	0.9994	0.9984	1.0204
蒸発残留物	1.369	0.261	0.221	0.186	0.131	1.132	0.142	0.168
ナトリウムイオン	38.4	9.6	7.5	7.6	8.5	402.8	14.6	4.9
カルシウムイオン	4.6	6.3	3.4	2.6	2.7	1.6	2.1	3.8
アンモニウムイオン	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.5	0.1	0.2
マグネシウムイオン	53.1	3.9	2.2	2.3	4.7	1.2	1.9	1.0
加水素イオン	388.0	15.0	8.6	9.6	11.9	0.9	4.9	3.1
アルミニウムイオン	0.0	2.3	0.0	2.1	0.0	0.2	0.1	0.0
マンガンイオン	0.7	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.4	0.3
鉄(II)イオン	0.5	0.0	0.1	0.0	1.5	0.4	1.6	2.1
亜鉛イオン	0.0	0.0	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
フッ素イオン	0.2	0.0	0.0	0.0	0.1	0.6	0.1	0.2
塩素イオン	23.0	12.4	9.6	8.9	12.1	46.1	5.1	8.5
亜硫酸イオン	0.2	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
硫酸イオン	0.7	13.7	11.2	11.3	12.9	3.0	11.1	2.7
リン酸イオン	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.1	0.0
炭酸水素イオン	1476.7	51.9	25.6	24.4	54.9	988.5	42.8	27.5
炭酸イオン	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	36.0	0.0	0.0
総ヒ素	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
メタケイ酸	72.8	75.4	76.7	43.5	44.2	31.8	72.3	55.2
メタホウ酸	38.4	13.5	3.9	14.8	21.4	23.9	13.6	0.0
遊離炭酸	686.6	10.6	5.3	8.8	18.5	0.0	5.7	17.6
遊離硫化水素	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.1	0.0	0.0

3. 結果及び考察

今回調査した地域の中心となる都城盆地は、本県唯一の火山地帯である霧島山地と本県南端部を占める南那珂山地との間にある南北約33km、東西約13kmの盆地で、基盤は主として四万十累層群からなり、更新世中期から後期に及ぶ末吉層・小林火砕流・都城層・始良火砕流により埋積されている。<sup>5)</sup>各温泉の位置の概要を図1.に示す。

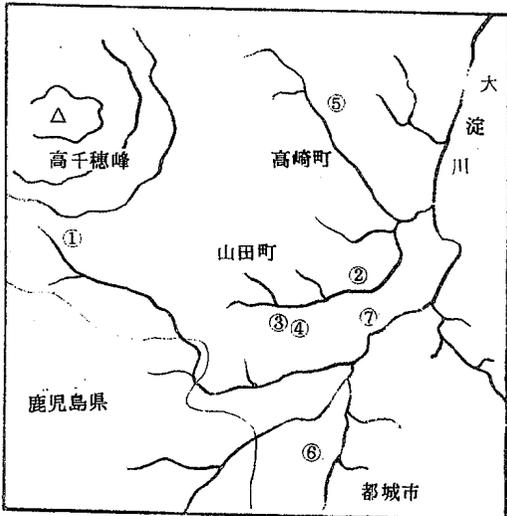


図1. 各温泉の位置

この地域は霧島山地の麓であるにもかかわらず、温泉には恵まれていない。特に高温の温泉はこの地区にはほとんどない。しかし、地区の人々が医効能があると利用している小規模の湧水は多く、都城市内に6、北諸郡内に10余を数える。<sup>5)</sup>これらの湧水のうち今回は温泉であることがはっきりして現在利用されており、調査試料として採取可能であった7温泉について調査した。各温泉の成分分析結果を表1.に示す。

これらの温泉はその含有する化学成分から溶存成分の豊富な湯穴温泉 (No.1) 及び都城温泉 (No.6) と、溶存成分の希薄なその他の温泉との二つに大別することができる。前者の2温泉とも陰イオンの主成分は炭酸水素イオンで、その量は0.99g/kg~1.48g/kgあり、また、ガス成分を除く溶存物質総量も1.54g/kg~2.10g/kgと多く、療養泉に該当する。

湯穴温泉の湧出地は他の温泉から大きく離れ、霧島山地に隣接する山中にある。霧島火山からの距離は近いが、泉温は低い。陽イオンの主成分はカルシウムイオンであり、その他の溶存成分としてメタケイ酸、メタホウ酸、及び遊離二酸化炭素の含有量が多い。炭酸水素イオンを多く含むにもかかわらず液

性がほぼ中性なのは同時に含有するこの遊離二酸化炭素のためと思われる。

都城温泉は都城市のほぼ中心にあり、約800m掘削することにより、泉温39.8℃を得ている。陽イオンの主成分はナトリウムイオンで、他にメタホウ酸を多く含有する。炭酸水素イオン量が多いので液性はアルカリ性を呈する。

これら溶存成分の豊富な二温泉に対し、この地区から湧出するその他の温泉はメタケイ酸、及びメタホウ酸を多く含むが、その他の化学成分量は少なく、ガス成分を除く溶存物質総量は0.13g/kg～0.20g/kgであり、温泉法に基づく温泉には該当するが療養泉には該当しない。各温泉とも自然湧出か、またはごく浅い井戸から得られており、泉温は低く、液性はほぼ中性である。

これらの温泉はいずれも更新世後期の始良火砕流による非溶結の軽石凝灰岩（シラス）で埋積された土中より湧出している。シラスの化学組成は表2のとおりであり、成分中のメタケイ酸の由来としてこのシラスを考えることができる。

今回、現地よりシラスを採取し、蒸留水を加えた後、長時間振盪し、遠心分離して得られた水溶液について、他の温泉と同様に溶存物質の定量試験を実施したところ表1.No.8のとおりであった。これによるとシラス溶出液から55.2mg/kgのメタケイ酸が検出されており、この地区から湧出する温泉に溶存するメタケイ酸はこのシラスに由来していると推定できる。しかし、温泉水中に同様に多く溶存しているメタホウ酸はこの溶出液中からはほとんど検出されず、ほかの由来によるものと考えられる。

表2. 「シラス」の化学組成

Component	wt%	Component	wt%
SiO <sub>2</sub>	72.51	MgO	0.29
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	13.65	Na <sub>2</sub> O	3.04
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.14	K <sub>2</sub> O	2.68
CaO	1.26	Ig. loss	4.54
Total		100.11	

(宮崎県工業試験場の資料による)

各温泉水の主要成分について、グラム当量が全主要成分中にしめる割合を求め、三角座標上にプロットすると図2のとおりとなった。陽イオンではカルシウムの豊富な湯穴温泉 (No.1) が図の右下に、ナトリウムイオンの豊富な都城温泉 (No.6) が図の上

部に位置し、その他の温泉はその中間に比較的かたままって存在する。陰イオンでは湯穴温泉、都城温泉は豊富な炭酸水素イオンのために、いずれも右下に位置し、その他のイオンはその付近にかたまる。

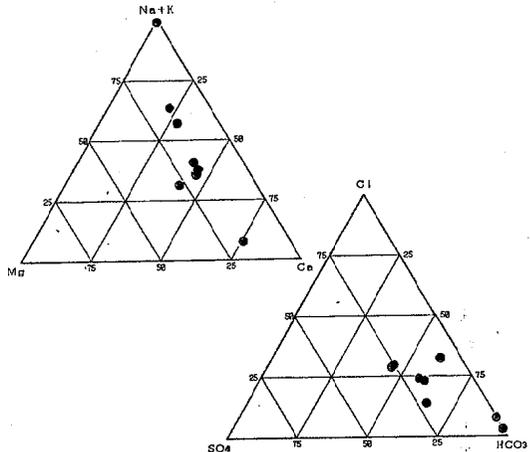


図2. 主要成分の当量三角図

地理上の位置は離れているにもかかわらず、この二温泉以外の温泉が陽イオン、陰イオンのいずれでも比較的似た位置を占めているのはそれぞれの温泉の湧出機構がおたがいに似ていることを示している。なお、前記したシラス溶出液もほぼ類似した位置を占める。

温泉相互の関連性をさらに細かく検討するため、主要成分について濃度相関マトリックスによる解析<sup>7) 8)</sup>を実施したところ、図3のとおりとなった。計算に用いた分析成分はナトリウムイオン、カルシウムイオン、塩素イオン、硫酸イオン、炭酸水素イオンとし、判定基準はM=1.3とした。その結果、堀切温泉 (No.2)、龍ヶ山温泉 (No.3)、常磐荘 (No.4)、杉倉温泉 (No.5) 間に高い相関数が得られた。特に龍ヶ山温泉と常磐荘間、及び堀切温泉と杉倉温泉間の相関数は1.0となり、これらの温泉はほぼ同質の温泉であり、同様の湧出機構により湧出していると推定される。逆に湯穴温泉と都城温泉は他のいずれの温泉との相関数も低く、上記した当量三角図上の位置等を考え合わせても、これらの温泉の湧出機構は他の温泉のそれとは相当異なっていると推定できる。

No.	1	2	3	4	5	6	7	8
1	1.0							
2	0.4	1.0						
3	0.4	0.7	1.0					
4	0.3	0.7	1.0	1.0				
5	0.4	1.0	0.7	0.7	1.0			
6	0.3	0.3	0.3	0.4	0.3	1.0		
7	0.3	0.4	0.5	0.5	0.4	0.4	1.0	
8	0.3	0.6	0.5	0.4	0.5	0.3	0.4	1.0

図3. 濃度相関マトリックスによる解析結果

過去において温泉所有者から依頼を受け、当所において実施した温泉試験の結果の記録と、今回の調査結果とを比較すると図4.のとおりとなった。前回と今回とで温泉の成分量が特に大きく変化した温泉はなく、全体的に大きな経年的変化はないと言える。ただ、個々の成分を細かく見ていくと、杉倉温泉を除く他の全温泉で、陽イオンではカルシウムイオン及びマグネシウムイオンが増加し、陰イオンでは炭酸水素イオン及び塩素イオンが増加している。杉倉温泉ではこれらのいずれの成分量も減少し、より希薄な温泉に変化している。また、メタケイ酸は4温泉中3温泉でその成分量が減少している。なお、メタホウ酸は過去の調査で測定されていない温泉があり、今回は比較しなかった。これらの温泉は前記したとおり自然湧出か、または比較的浅い井戸から湧出しており、温泉の水位の変化により、地下水による希釈の影響を強く受ける恐れがある。

なお、今回の調査結果において成分量が大幅に変化したため温泉に該当しなくなった温泉はなかった。

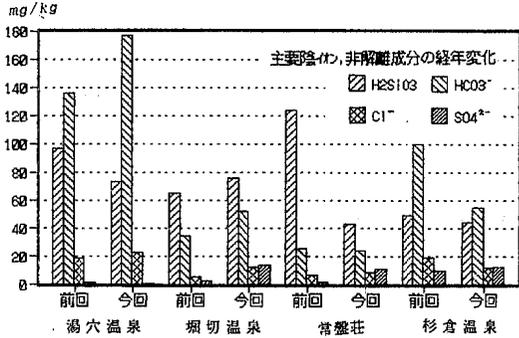
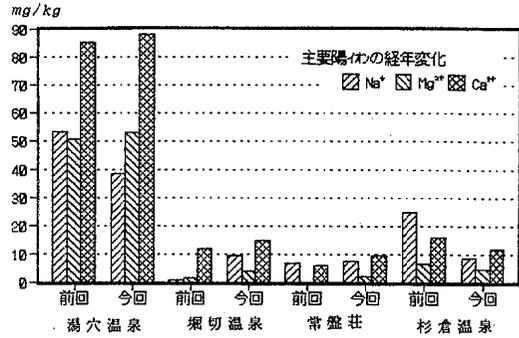


図4. 主要化学成分の経年変化

#### 4. 文献

- 1) 宮崎県衛生研究所報、30、55~56(1988)
- 2) 宮崎県衛生研究所報、29、22~25(1987)
- 3) 宮崎県衛生環境研究所年報、1、87~89(1989)
- 4) 宮崎県：宮崎県地質図説明書(昭和56年3月)
- 5) 環境庁自然保護局：鉱泉分析法指針(改訂)
- 6) 宮崎県：宮崎県の温泉(昭和43年)
- 7) O.U. Anders: Anal. Chem. 44. 1930 (1972)
- 8) 綿抜邦彦・高野穆一郎：温泉科学, 25, 26 (1974)

# 食物繊維の生理作用と所要量に関する研究 食物繊維の血中コレステロールへの影響 ……宮崎県における実験結果について……

橋口玲子、山本雄三、小野和則、武田 攻（衛生化学部食品科）

## はじめに

地方衛生研究所全国協議会における共同研究（主任研究者：大阪府立公衆衛生研究所長 国田信治）では、昭和60年度～昭和63年度の4年間で全国55の地研が参加して「表示栄養成分の分析法および主要食品の食物繊維量の測定に関する研究」を行い、平成元年度からは12地研の参加で「食物繊維の生理作用と所要量に関する研究」を行っている。

食品中の食物繊維の生理作用は、便秘の解消、血糖上昇抑制、血中コレステロール値正常化、肥満傾向の抑制等の他、腸憩室症や大腸癌の発症予防の可能性もあるといわれ、著しく広い範囲に及んでいる。また食物繊維自体も化学的に多成分を包含する概念として定義されている。しかしながら、現状では特定の化学成分と生理作用の対応は未だ明確にされてはならず、したがって厳密な所要量は提案されていない。

平成元年度は共同研究によって、食物繊維が便秘傾向の改善に有効であることを示し、食事以外の原因が無ければ、食品から1日約20gの食物繊維の摂取を継続すれば、平均して1日1回の排便が期待できることを示した。そして平成2年度は、食物繊維の血中コレステロールに対する影響を検討した。その結果に対する解析は現在大阪府立公衆衛生研究所（以下事務局とする）を中心に進められているが、やがて研究の結果が発表されるはずである。ここでは宮崎県で担当した実験について、その方法および実験結果を述べ、記録に残すことにしたい。

## 実験方法

### 1. 試料について

被験者に与えられた試料（食物繊維含有せんべい）は事務局が焼き和菓子メーカーにつくらせたものである。試料は次の3種類で、にんじんの粉末を含むせんべい（試料C）、まこんぶの粉末を含むせんべい（試

料D）および対照としての食物繊維無添加のせんべい（試料E）である。

事務局によると、試料（食物繊維含有せんべい）の製造法は次のとおりである。にんじんは、水洗の後可食部以外を除き、9mm×5mm×2mmにチップ状にし、水中で1分間ボイルし、ブドウ糖乳糖液に浸せき、80℃×20min熱風乾燥の後、凍結乾燥したもので、カップスープ等に使用されるもの（日本フィジーkk）を購入し、使用した。まこんぶはこぶ茶製造会社（大阪府内）から塩抜き製品を購入した。これらの原料を一流焼き和菓子メーカーに依頼して試料を調製した。食物繊維の実測の結果は、試料Cはせんべい3枚あたり1.44g、試料Dは同じく1.41g、試料Eは同じく0gであった。

### 2. 被験者について

被験者は、ボランティアとして当所職員20名（臨時職員を含む）に依頼した。全て健康な者で、内訳は男12名、女8名、年齢構成は、20代3名、30代6名、40代10名、50代1名である。20名のうち、試料C（にんじんの粉末を含むせんべい）には5名、試料D（まこんぶの粉末を含むせんべい）には9名、試料E（対照…食物繊維無添加せんべい）には6名を、くじにより無作為に割り当てた。

### 3. 食物繊維の摂取実験について

実験は平成3年1月から3月にかけて実施した。二重盲験法で実施し、投与された食物繊維の内容は、被験者にはもちろん実験担当者にも実験が完了するまで知らされなかった。

被験者には注意書を配付し、実験の目的、方法、予期される効果や副作用、異常を認めたときの対処の方法、実験にあたっての注意等を示し、説明した。

被験者は通常の日常食を摂取しながら、毎日所定量の食物繊維をせんべいとして各2週間づつ食べることを求められた。すなわち第1週はせんべいは食べない週とし、第2週と第3週は1日にせんべい3枚、第4週と第5週はその2倍量（せんべい6枚）、第6週と第7週は3

倍量（せんべい9枚）を摂取した。

#### 4. 日常生活における食物繊維、コレステロール、飽和脂肪酸の摂取量の算出について

食物繊維の摂取量を求めるには、せんべいとして所定量を摂取する外に日常生活で摂取する食物繊維量を知る必要がある。また血中コレステロールへの影響を検討するには、実験期間中での摂取コレステロール量や摂取脂肪量を知る必要がある。そこで被験者に毎日の食事内容を、せんべい摂取前の1週間は毎日、第2週と第3週、第4週と第5週、第6週と第7週にあっては2週間のうち7日間、記録してもらった。この記録から事務局の用意した算出表に従って、各被験者における日常生活での食物繊維、コレステロール、飽和脂肪酸の各々の1日あたりの平均摂取量を求めた。

#### 5. 血中コレステロールの測定について

食物繊維含有せんべい摂取前と、摂取2週間後、4週間後、6週間後に採血を行い、血中総コレステロール値を測定した。コレステロールの測定は、和光純薬㈱のコレステロールE-テストワコー（コレステロールオキシダーゼ・DAOS法）により行った。

#### 6. BMIについて

被験者に、実験開始時の身長および体重、実験終了後の体重の測定を求めた。そして実験開始時と終了後のBody Mass Index(BMI)を算出した。BMIは、肥満度や体重の増減などを判断するのに有用な指標であるが、次の式で示される。

$BMI (kg / m^2) = \text{体重 (kg)} / \text{身長(m)} / \text{身長(m)}$

### 実験結果

被験者の実験期間中における食物繊維摂取量・コレステロール摂取量・飽和脂肪酸摂取量・血中総コレステロール値・BMIの測定結果を、試料C（にんじんの粉末を含むせんべい）を摂取した人にとっては表1に、試料D（まこんぶの粉末を含むせんべい）を摂取した人にとっては表2および表3に、試料E（対照試料…食物繊維無添加せんべい）を摂取した人にとっては表4に示す。その他、ここには掲げていないが、被験者にアンケートとして飲酒習慣・喫煙習慣・運動習慣・日

常生活強度・便通への影響を答えてもらった。これらの結果と毎食（朝、昼、晩、その他）ごとの食物繊維摂取量・コレステロール摂取量・飽和脂肪酸量の算出結果を事務局に報告した。

### 考 察

食物繊維の血中コレステロールへの影響については、事務局で全国8地研の250名の被験者についての実験結果を解析中である。ここではその解析結果を待つことにして、宮崎県のみ20名の実験結果に考察を加えることを差し控えることにする。

### 謝 辞

この実験は被験者の協力が全てと言っても言い過ぎではないが、食事アンケート・献血・せんべい摂取と多くの煩わしさを乗り越えて快く被験者になっていた職員の皆さんに心から厚く御礼申し上げます。また、採血をしていただいた微生物部の方々、摂取量計算に協力いただいた衛生化学部化学科の方々、終始励まして下さった所長をはじめ職員の皆さんに心から感謝いたします。なお大阪府立公衆衛生研究所の西宗高弘食品化学課長には大変お世話になりました。ここに厚く御礼申し上げます。

### 備 考

#### 【共同研究参加の地方衛生研究所】

大阪府立公衆衛生研究所、神奈川県衛生研究所、大阪府立環境科学研究所、尼崎市立衛生研究所、堺市衛生研究所、和歌山県衛生公害研究センター、岡山県環境保健センター、福岡県衛生公害センター、熊本県衛生公害研究所、宮崎県衛生環境研究所、滋賀県立衛生環境センター、京都府衛生公害研究所 計 12地研

#### 【ヒトにおける食物繊維摂取実験・被験者数】

神奈川県32名、大阪府73名、大阪市22名、尼崎市20名、堺市10名、岡山県50名、熊本県23名 宮崎県20名 計 250名

表 1. 試料 C を摂取した人の測定結果

被験者	性	第 1 週	第 2 週	第 3 週	第 4 週	第 5 週	第 6 週	第 7 週	
C 0 4	男	日平均・食物繊維摂取量(g)	14.6	15.0+1.4	15.0+1.4	16.6+2.9	16.6+2.9	13.0+4.3	13.0+4.3
		” ヲラスロール 摂取量(mg)	280	422	422	221	221	216	216
		” 飽和脂肪酸摂取量(g)	10.3	13.5	13.5	10.2	10.2	13.7	13.7
		血中総コレステロール値(mg/dl)	134	.....	170	.....	176	.....	150
		B M I (kg/m <sup>2</sup> )	19.1	.....	.....	.....	.....	.....	19.1
C 0 6	男	日平均・食物繊維摂取量(g)	23.1	11.6+1.4	11.6+1.4	10.6+2.9	10.6+2.9	13.5+4.3	13.5+4.3
		” ヲラスロール 摂取量(mg)	434	265	265	236	236	245	245
		” 飽和脂肪酸摂取量(g)	10.9	13.1	13.1	12.2	12.2	10.3	10.3
		血中総コレステロール値(mg/dl)	250	.....	263	.....	234	.....	221
		B M I (kg/m <sup>2</sup> )	20.3	.....	.....	.....	.....	.....	19.9
C 1 1	男	日平均・食物繊維摂取量(g)	13.5	9.6+1.4	9.6+1.4	8.6+2.9	8.6+2.9	8.1+4.3	8.1+4.3
		” ヲラスロール 摂取量(mg)	172	239	239	233	233	162	162
		” 飽和脂肪酸摂取量(g)	11.3	9.2	9.2	9.7	9.7	8.3	8.3
		血中総コレステロール値(mg/dl)	199	.....	158	.....	135	.....	161
		B M I (kg/m <sup>2</sup> )	19.3	.....	.....	.....	.....	.....	19.3
C 1 8	女	日平均・食物繊維摂取量(g)	10.8	12.7+1.4	12.7+1.4	10.0+2.9	10.0+2.9	9.2+4.3	9.2+4.3
		” ヲラスロール 摂取量(mg)	257	253	253	302	302	182	182
		” 飽和脂肪酸摂取量(g)	15.5	16.9	16.9	10.0	10.0	5.2	5.2
		血中総コレステロール値(mg/dl)	175	.....	227	.....	214	.....	236
		B M I (kg/m <sup>2</sup> )	24.2	.....	.....	.....	.....	.....	24.2
C 2 0	男	日平均・食物繊維摂取量(g)	15.1	12.5+1.4	12.5+1.4	12.9+2.9	12.9+2.9	11.3+4.3	11.3+4.3
		” ヲラスロール 摂取量(mg)	365	253	253	256	256	379	379
		” 飽和脂肪酸摂取量(g)	12.5	10.0	10.0	10.4	10.4	11.2	11.2
		血中総コレステロール値(mg/dl)	196	.....	234	.....	208	.....	160
		B M I (kg/m <sup>2</sup> )	24.9	.....	.....	.....	.....	.....	24.5

表2. 試料Dを摂取した人の測定結果

被験者	性別	第1週	第2週	第3週	第4週	第5週	第6週	第7週
D 0 1	女	20.7	16.1+1.4	16.1+1.4	19.4+2.8	19.4+2.8	11.4+4.2	11.4+4.2
		189	213	213	161	161	111	111
		12.3	13.0	13.0	6.6	6.6	8.5	8.5
		142	.....	218	.....	215	.....	225
		22.7	.....	.....	.....	.....	.....	22.7
D 0 2	女	18.0	13.7+1.4	13.7+1.4	6.6+2.8	6.6+2.8	12.0+4.2	12.0+4.2
		374	345	345	213	213	284	284
		9.7	9.6	9.6	7.2	7.2	12.5	12.5
		160	.....	201	.....	176	.....	191
		25.0	.....	.....	.....	.....	.....	25.9
D 0 3	女	11.8	11.4+1.4	11.4+1.4	12.2+2.8	12.2+2.8	9.8+4.2	9.8+4.2
		119	177	177	126	126	201	201
		7.7	9.4	9.4	5.3	5.3	8.3	8.3
		107	.....	186	.....	159	.....	158
		17.7	.....	.....	.....	.....	.....	18.3
D 0 9	女	12.9	14.8+1.4	14.8+1.4	15.8+2.8	15.8+2.8	11.1+4.2	11.1+4.2
		139	187	187	245	245	179	179
		10.4	10.9	10.9	21.0	21.0	9.3	9.3
		168	.....	193	.....	210	.....	150
		20.2	.....	.....	.....	.....	.....	20.7
D 1 0	男	18.0	15.7+1.4	15.7+1.4	17.3+2.8	17.3+2.8	15.4+4.2	15.4+4.2
		417	545	545	492	492	448	448
		13.5	16.2	16.2	14.2	14.2	14.8	14.8
		173	.....	289	.....	271	.....	277
		22.6	.....	.....	.....	.....	.....	22.2

表3. 試料Dを摂取した人の測定結果

被験者 性別	第1週	第2週	第3週	第4週	第5週	第6週	第7週	
D13 女	日平均・食物繊維摂取量(g)	16.0	16.5+1.4	16.5+1.4	15.7+2.8	15.7+2.8	14.2+4.2	14.2+4.2
	” ヲリスチロール摂取量(mg)	314	239	239	303	303	277	277
	” 飽和脂肪酸摂取量(g)	13.5	16.2	16.2	15.5	15.5	16.0	16.0
	血中総コレステロール値(mg/dl)	252	.....	243	.....	210	.....	197
	BMI (kg/m <sup>2</sup> )	24.4	.....	.....	.....	.....	.....	24.9
D14 女	日平均・食物繊維摂取量(g)	23.2	23.2+1.4	23.2+1.4	24.7+2.8	24.7+2.8	21.1+4.2	21.1+4.2
	” ヲリスチロール摂取量(mg)	381	381	381	431	431	432	432
	” 飽和脂肪酸摂取量(g)	25.3	25.3	25.3	19.9	19.9	18.2	18.2
	血中総コレステロール値(mg/dl)	206	.....	201	.....	187	.....	186
	BMI (kg/m <sup>2</sup> )	16.4	.....	.....	.....	.....	.....	16.9
D15 男	日平均・食物繊維摂取量(g)	13.3	14.6+1.4	14.6+1.4	13.0+2.8	13.0+2.8	12.9+4.2	12.9+4.2
	” ヲリスチロール摂取量(mg)	349	314	314	232	232	266	266
	” 飽和脂肪酸摂取量(g)	7.9	10.5	10.5	13.8	13.8	9.5	9.5
	血中総コレステロール値(mg/dl)	210	.....	237	.....	228	.....	224
	BMI (kg/m <sup>2</sup> )	22.6	.....	.....	.....	.....	.....	21.6
D19 男	日平均・食物繊維摂取量(g)	13.5	20.8+1.4	20.8+1.4	13.8+2.8	13.8+2.8	14.6+4.2	14.6+4.2
	” ヲリスチロール摂取量(mg)	430	546	546	583	583	466	466
	” 飽和脂肪酸摂取量(g)	13.4	18.9	18.9	17.4	17.4	13.4	13.4
	血中総コレステロール値(mg/dl)	203	.....	195	.....	234	.....	209
	BMI (kg/m <sup>2</sup> )	23.9	.....	.....	.....	.....	.....	23.9

表4. 試料Eを摂取した人の測定結果

被験者	性別	第1週	第2週	第3週	第4週	第5週	第6週	第7週	
E05	男	日平均・食物繊維摂取量(g)	9.1	11.7	11.7	12.9	12.9	15.0	15.0
	"	リステロール摂取量(mg)	440	268	268	335	335	433	433
	"	飽和脂肪酸摂取量(g)	17.3	13.8	13.8	8.9	8.9	12.6	12.6
	"	血中総コレステロール値(mg/dl)	191	.....	245	.....	209	.....	202
	"	BMI (kg/m <sup>2</sup> )	22.5	.....	.....	.....	.....	.....	22.5
E07	男	日平均・食物繊維摂取量(g)	13.8	16.7	16.7	17.2	17.2	14.7	14.7
	"	リステロール摂取量(mg)	144	221	221	221	221	176	176
	"	飽和脂肪酸摂取量(g)	10.2	8.7	8.7	8.2	8.2	9.4	9.4
	"	血中総コレステロール値(mg/dl)	110	.....	174	.....	153	.....	209
	"	BMI (kg/m <sup>2</sup> )	23.9	.....	.....	.....	.....	.....	23.9
E08	男	日平均・食物繊維摂取量(g)	14.1	17.0	17.0	19.7	19.7	19.6	19.6
	"	リステロール摂取量(mg)	231	288	288	344	344	256	256
	"	飽和脂肪酸摂取量(g)	16.0	22.1	22.1	19.7	19.7	20.4	20.4
	"	血中総コレステロール値(mg/dl)	144	.....	154	.....	156	.....	141
	"	BMI (kg/m <sup>2</sup> )	18.9	.....	.....	.....	.....	.....	18.9
E12	男	日平均・食物繊維摂取量(g)	15.0	11.8	11.8	11.4	11.4	14.6	14.6
	"	リステロール摂取量(mg)	237	201	201	398	398	324	324
	"	飽和脂肪酸摂取量(g)	13.1	11.6	11.6	14.6	14.6	12.9	12.9
	"	血中総コレステロール値(mg/dl)	161	.....	153	.....	148	.....	150
	"	BMI (kg/m <sup>2</sup> )	19.4	.....	.....	.....	.....	.....	19.0
E16	男	日平均・食物繊維摂取量(g)	14.9	14.5	14.5	14.7	14.7	15.8	15.8
	"	リステロール摂取量(mg)	373	203	203	380	380	348	348
	"	飽和脂肪酸摂取量(g)	16.6	17.2	17.2	18.0	18.0	16.3	16.3
	"	血中総コレステロール値(mg/dl)	185	.....	191	.....	165	.....	178
	"	BMI (kg/m <sup>2</sup> )	20.7	.....	.....	.....	.....	.....	20.7
E17	女	日平均・食物繊維摂取量(g)	14.2	12.1	12.1	13.9	13.9	10.9	10.9
	"	リステロール摂取量(mg)	298	302	302	376	376	363	363
	"	飽和脂肪酸摂取量(g)	12.1	16.3	16.3	17.1	17.1	11.1	11.1
	"	血中総コレステロール値(mg/dl)	178	.....	181	.....	151	.....	179
	"	BMI (kg/m <sup>2</sup> )	18.5	.....	.....	.....	.....	.....	18.3

# 宮崎県内の環境放射能レベルについて

野崎祐司、平田泰久、前田 武（衛生化学部化学科）

## 1. はじめに

本県内の平常時における環境放射能レベルについては昭和63年度に当所に機器が配備されて以来、全国調査の一環として調査を続けているが、このたび平成2年度の調査を終了し、結果を取りまとめたので、その概要を報告する。

## 2. 調査の方法

### (1) 調査対象

降水：降雨を午前9時毎に採取し担体等（ $I^-$ ,  $Ag^+$ ,  $HNO_3$ ）を添加した後濃縮乾固し、全 $\beta$ 放射能を測定した。

大気浮遊塵：ハイポリウムエアサンプラで濾紙上に採取した浮遊塵について、そのまま $\gamma$ 線核種分析を実施した。

降下物：大型水盤に水を張り降下してくる放射性物質を捕集し、担体等を添加した後濃縮乾固し、 $\gamma$ 線核種分析を実施した。

蛇口水：試験室内の蛇口より上水を採取し降下物と同様に処理した。

土壌：圃場より採取した上層及び下層の土壌を乾燥後粉碎し、 $\gamma$ 線核種分析を実施した。

精米、牛乳：生産地から採取した試料について、そのまま $\gamma$ 線核種分析を実施した。

野菜、茶、日常食：生産地から直接採取した野菜（大根、ホウレン草）、煎茶、及び毎回5名のボランティアにより集められた各自1日分の食事等を乾燥炭化後灰化し、 $\gamma$ 線核種分析を実施した。

空間放射線量率：NaI(Tl)シンチレーション検出器を屋上（地上高20m）に設置し、常時連続して測定するとともに、サーベイメータにより地表上1mにおける線量率を測定した。

### (2) 測定装置

全 $\beta$ 放射能：GM式 $\beta$ 線測定装置（アロカ JDC-163）

$\gamma$ 線核種分析：Ge半導体核種分析装置（SEIKO EG&G MODEL 7800）

空間放射線量率：モニタリングポスト（アロカ MAR-11）及びシンチレーション式サーベイメータ（アロカ TCS-151）

## 3. 調査結果

降水中の全 $\beta$ 放射能調査結果を表 I に示す。平成2年度は106回、合計3162mmの降雨があったが、そのいずれから全 $\beta$ 放射能は検出されなかった。

表 II に $\gamma$ 線放出核種分析結果を示す。人工放射性核種としては $^{137}Cs$ が降下物、土壌、野菜（大根、ホウレン草）、茶、牛乳及び日常食から検出されたがその量は昭和63年度及び平成元年度の本県及び他県の調査結果<sup>1)・2)</sup>とはほぼ同程度であった。その他の人工放射性核種として $^{134}Cs$ が茶から検出された。

表 III に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調査結果を示す。年度間平均はモニタリングポストによる測定結果が11.8cps, サーベイメータによる測定結果が39.3nGy/hであった。平成2年4月の新庁舎移転に伴うモニタリングポストの移設のため、モニタリングポストの測定結果が前年度よりやや低い値を示した。

なお、これらのデータは、科学技術庁からの環境放射能水準調査の委託により得られた成果の一部である。

## 4. 文 献

- 1) 科学技術庁：第31回環境放射能調査研究成果論文抄録集（昭和63年度）
- 2) 科学技術庁：第32回環境放射能調査研究成果論文抄録集（平成元年度）

I 定時降水試料中の全β放射能調査結果

採年	取月	降水量 (mm)	降水の定時採取(定時降水)			
			放射能濃度(Bq/ℓ)			月間降水量 (MBq/km <sup>2</sup> )
			測定数	最低値	最高値	
平成2年	4月	63	5	N.D	N.D	N.D
	5月	262	10	N.D	N.D	N.D
	6月	315	11	N.D	N.D	N.D
	7月	152	4	N.D	N.D	N.D
	8月	266	13	N.D	N.D	N.D
	9月	635	16	N.D	N.D	N.D
	10月	746	9	N.D	N.D	N.D
	11月	133	7	N.D	N.D	N.D
	12月	10	6	N.D	N.D	N.D
平成3年	1月	78	7	N.D	N.D	N.D
	2月	125	5	N.D	N.D	N.D
	3月	377	13	N.D	N.D	N.D
	年間値	3162	106	N.D	N.D	N.D
	前年度までの値*		179	N.D	N.D	N.D ~ N.D

\*昭和63年7月調査開始、平成2年4月新庁舎移転 (N.D: 検出されず)

II 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	<sup>137</sup> Cs		前年度までの値*		その他の検出された人工放射線核種	単位
				最低値	最高値	最低値	最高値		
大気浮遊塵	宮崎市	2.4 ~ 3.3	4	N.D	N.D	N.D	N.D		mBq/m <sup>3</sup>
降下物	"	2.3 ~ 3.2	12	N.D	0.34	N.D	0.58		MBq/km <sup>2</sup>
陸水	蛇口水	"	2.6, 2.12	2	N.D	N.D	N.D		mBq/ℓ
土	0-5cm	佐土原町	2.7	1	11 750	11 880			Bq/kg乾土 MBq/km <sup>2</sup>
壤	5-20cm	"	"	1	11 2300	8.8 1700			Bq/kg乾土 MBq/km <sup>2</sup>
精米	"	2.8	1	N.D	N.D	N.D	N.D		Bq/kg精米
野菜	大根	高鍋町	2.12	1	0.052	0.025	0.071		Bq/kg生
	村草	"	1	1	0.33	0.13	0.23		Bq/kg生
茶	川南町, 都城市	2.5, 2.6	2	1.1	3.8	1.1	5.2	<sup>134</sup> Cs 0.26	Bq/kg乾物
牛乳	高原町	2.8, 3.2	2	N.D	0.23	0.17	1.0		Bq/ℓ
日常食	宮崎市, 高原町	2.7, 2.12	4	0.056	0.19	0.096	0.12		Bq/1人・日

\*昭和63年7月調査開始、平成2年4月新庁舎移転 (N.D: 検出されず)

III 空間放射線量率測定結果

測定年月	モニタリングポスト (cps)			サーベイメータ (nGy/h)	
	最低値	最高値	平均値		
平成2年	4月	11.0	15.8	12.0	41
	5月	10.8	14.5	11.6	37
	6月	11.0	14.5	11.7	40
	7月	10.6	13.5	11.7	38
	8月	10.3	15.5	11.8	42
	9月	10.3	15.0	11.6	36
	10月	10.5	18.5	11.8	42
	11月	11.0	20.5	12.0	35
	12月	11.0	14.9	11.8	39
平成3年	1月	11.0	14.5	11.6	38
	2月	11.0	17.5	11.8	41
	3月	10.2	20.0	12.1	43
	年間値	10.2	20.5	11.8	35 ~ 43
	前年度までの値*	12.0	23.0	13.7	36 ~ 49

\*昭和63年7月調査開始、平成2年4月新庁舎移転

# 宮崎県における酸性雨調査

川井田哲郎・齋藤信弘

大上琢磨\*・後藤英治\*\* (環境科学部 大気科)

## 1. はじめに

本県におけるこれまでの酸性雨調査(雨水のみ)から宮崎市で観測される酸性雨の中には、桜島からの火山噴出物の影響を受けているものがあることが明らかになった<sup>1), 2)</sup>。しかしながら、これまでの調査は、宮崎市の1地点だけであり、この地点だけの調査で宮崎県の酸性雨の状況を評価するには、無理があるように思われた。そこで、県内の雨水の状況を把握するために、濾過式雨水採取器を用いて広域的な調査を試みた。

平成2年度は、当研究所屋上に5月から濾過式雨水採取器を設置、また、6月4日から7月3日の1か月間、宮崎市以外の4市町にも同様の採取器を設置して、雨水の分析調査を行ったので、その結果を報告する。

## 2. 調査方法

### 1) 採取方法

採取装置を図1に示す。装置は、ほぼ環境庁方式に準拠して製作したが、採取装置の架台以外は手造りである。雨水を集めるロートは20ℓのポリ瓶の底を切り取り、シリコンゴム栓で蓋をしてテフロンチューブで濾過器と接続した。濾過器はミリポア-OM041を使用し、貯留瓶はロート部と同様のポリ瓶を使用した。

### 2) 採取期間

採取期間は一週間とし、原則として毎週月曜日の午前9時に、試料を回収した。

### 3) 分析方法

表 1

項目	分析方法	定量限界
pH	ガラス電極法	小数点以下第2位
EC	電気伝導度計	0.01 $\mu\text{s}/\text{cm}$
$\text{SO}_4^{2-}$	イオンクロマトグラフィー	0.05 $\mu\text{g}/\text{ml}$
$\text{NO}_3^-$	同上	同上
$\text{Cl}^-$	同上	同上
$\text{F}^-$	同上	同上
$\text{NH}_4^+$	インドフェノール法	0.01 $\mu\text{g}/\text{ml}$
$\text{Na}^+$	炎光光度法	同上
$\text{K}^+$	同上	同上
$\text{Ca}^{2+}$	原子吸光光度法	同上
$\text{Mg}^{2+}$	同上	同上

\* 現 宮崎県土木部宮籍課 \*\*退職

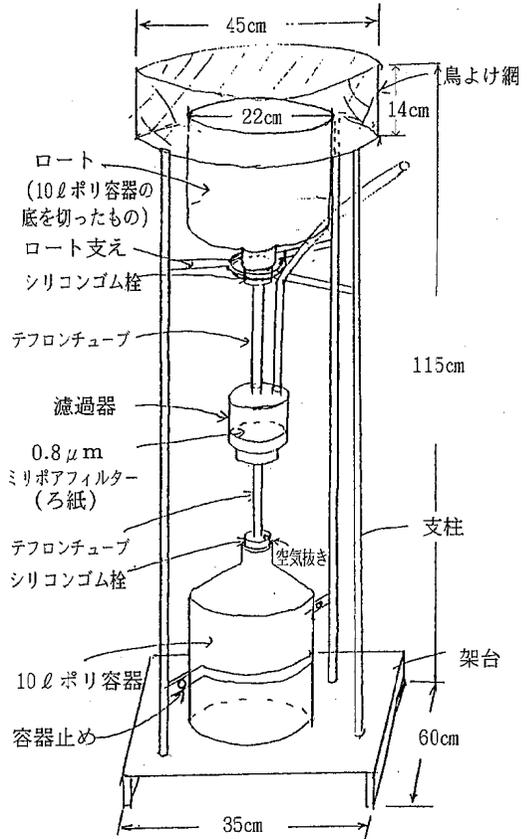


図1 濾過式雨水採取器

## 3. 調査結果及び考察

### 1) 平成2年度、宮崎市(当研究所)における雨水分析結果

平成2年度の調査期間は、当研究所への統合移転作業のために4月に調査できなかったため、5月から平成3年3月までとした。

月別の各イオン濃度及び降水量を表2, 3に示す。ここで、平均値は降水量で重み付けした加重平均値である。

平成2年度の平均pHは4.8であった。過去4年間は4.4前後であったのに比較して0.4程度高い結果となった。これは、まず、採取方法が自動雨水採取式（雨水のみ）から濾過式（雨水及び乾性降下物）へ変わったことで、雨水以外に乾性降下物の可溶性成分を取り込んでいることと、採取地点が市内中心部から南へ約10km移動したことによって、環境条件が異なっていること等が要因と考えられる。

各イオン濃度を過去のデータ（雨水のみ）と比較して、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{Na}^+$ が高くなっている。河野によると宮崎市の大気エアロゾル中の主な無機イオンの化合形態として、粗大粒子については $\text{NaCl}$ 、 $\text{MgCl}_2$ 、 $\text{NaNO}_3$ 及び $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2$ を、微小粒子については $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、 $\text{NH}_4\text{NO}_3$ 、 $\text{NH}_4\text{Cl}$ を推測している<sup>3)</sup>。このことから、このような形態をとる粒子が乾性降下物として、採取された雨水に影響していると思われる。

## 2) 広域調査の試みから

高千穂町、延岡市、都城市、日南市にある保健所庁舎屋上に濾過式雨水採取器を設置後の6月4日から7月3日の1か月間、1週間毎に雨水を採取した。採取地点を図2に、また、各地点の1週間毎の各イオン濃度及び、1か月の平均濃度を表4.1～5に、更に、各地点毎の平均イオン組成を図3.1～4に示す。

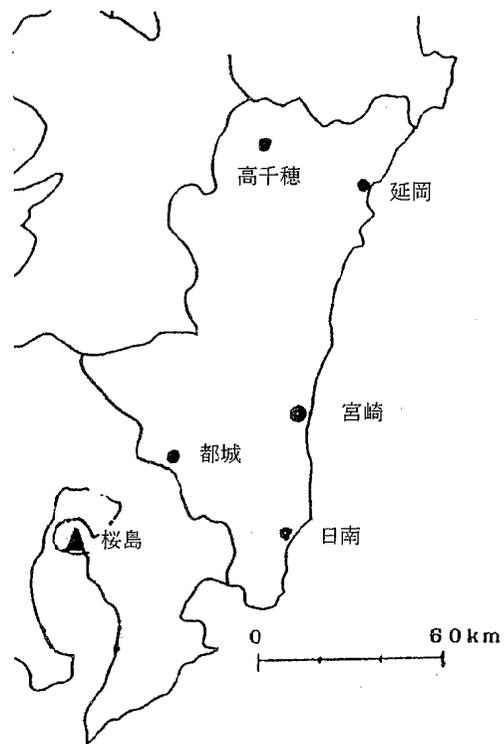


図2 採取地点位置図

表4.1

地点	試料番号	雨量	pH	EC	$\text{H}^+$	$(\mu\text{eq}/\ell)$							
						$\text{SO}_4^{2-}$	$\text{NO}_3^-$	$\text{Cl}^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{Ca}^{2+}$	$\text{Mg}^{2+}$	$\text{K}^+$	$\text{Na}^+$
高千穂	1	62	5.13	7.09	7.40	14.79	4.68	15.49	11.66	4.50	0.82	0.23	8.70
	2	64	5.17	7.40	6.75	23.54	5.97	3.94	12.77	8.00	—	0.23	—
	3	21	3.98	56.25	104.50	132.00	20.48	37.74	43.88	18.00	3.29	1.53	8.70
	4	381	5.45	4.05	3.54	8.54	2.90	—	8.33	4.50	—	—	—
	平均	—	5.08	6.89	8.40	16.00	4.18	3.80	10.67	5.46	0.23	0.12	1.37

表4.2

地点	試料番号	雨量	pH	EC	$\text{H}^+$	$(\mu\text{eq}/\ell)$							
						$\text{SO}_4^{2-}$	$\text{NO}_3^-$	$\text{Cl}^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{Ca}^{2+}$	$\text{Mg}^{2+}$	$\text{K}^+$	$\text{Na}^+$
延岡	1	126	5.27	14.85	5.36	28.95	4.52	63.66	26.11	3.50	9.88	1.02	50.86
	2	36	5.00	13.00	9.98	47.91	8.39	10.70	47.22	8.00	0.82	0.51	3.04
	4	473	5.09	10.10	8.11	33.75	3.71	13.23	33.88	6.00	3.29	—	8.70
	平均	—	5.12	11.20	7.67	33.60	4.13	23.10	33.10	5.62	4.46	0.23	16.74

表4.3

地点	試料番号	雨量	pH	EC	$\text{H}^+$	$(\mu\text{eq}/\ell)$							
						$\text{SO}_4^{2-}$	$\text{NO}_3^-$	$\text{Cl}^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{Ca}^{2+}$	$\text{Mg}^{2+}$	$\text{K}^+$	$\text{Na}^+$
宮崎	1	129	4.96	12.70	10.94	16.66	8.87	39.43	15.00	8.00	8.23	0.51	32.17
	2	21	4.17	41.80	67.49	80.83	17.25	37.74	33.33	17.00	3.29	0.51	12.17
	4	346	4.90	8.80	12.56	20.00	4.68	12.67	10.55	4.00	—	—	—
	平均	—	4.84	11.21	14.46	21.70	6.30	20.69	12.67	5.59	2.22	0.15	8.88

表 4. 4

地点	試料番号	雨量	(μeq/l)										
			pH	EC	H <sup>+</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	K <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>
日南	1	194	5.13	7.34	4.89	10.20	4.35	32.39	10.00	8.00	4.94	0.26	25.21
	2	26	4.46	14.80	34.60	44.37	10.96	14.36	23.88	12.50	0.32	0.51	10.00
	4	273	4.78	10.70	16.56	29.79	3.55	9.86	10.00	4.00	—	—	2.17
	平均	—	4.89	9.59	12.92	22.85	4.26	18.96	10.73	6.02	1.99	0.13	11.65

表 4. 5

地点	試料番号	雨量	(μeq/l)										
			pH	EC	H <sup>+</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	K <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>
都城	1	129	8.70	4.10	—	8.96	3.55	7.04	23.57	4.50	—	0.26	0.43
	2	37	4.70	28.00	19.91	80.20	12.25	45.91	83.57	28.00	3.29	2.05	10.86
	4	346	6.20	8.53	0.63	22.08	3.39	8.73	25.00	6.00	0.82	—	3.04
	平均	—	5.73	8.82	1.86	22.97	4.07	10.99	22.45	7.21	0.79	0.21	2.95

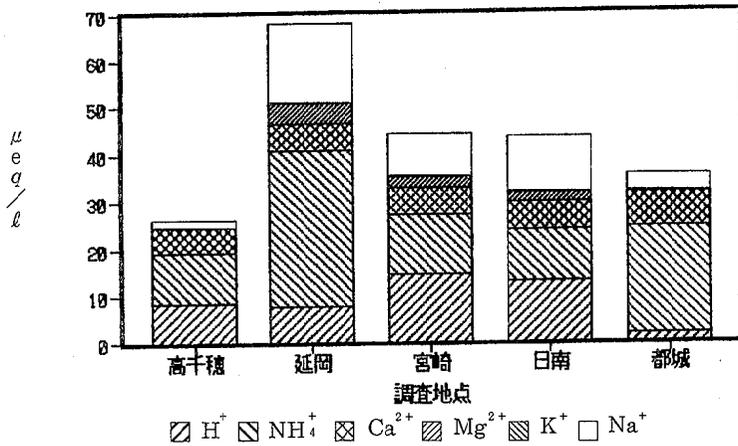


図 3.1 平均イオン等量濃度/カチオン

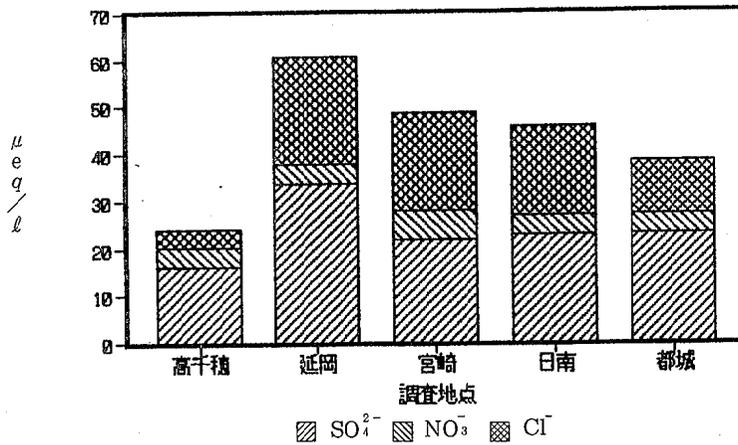


図 3.2 平均イオン等量濃度/アニオン

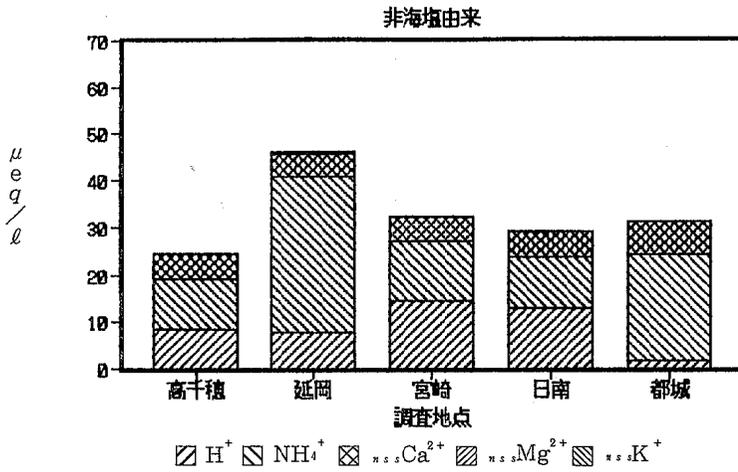


図3.3 平均イオン等量濃度/カチオン

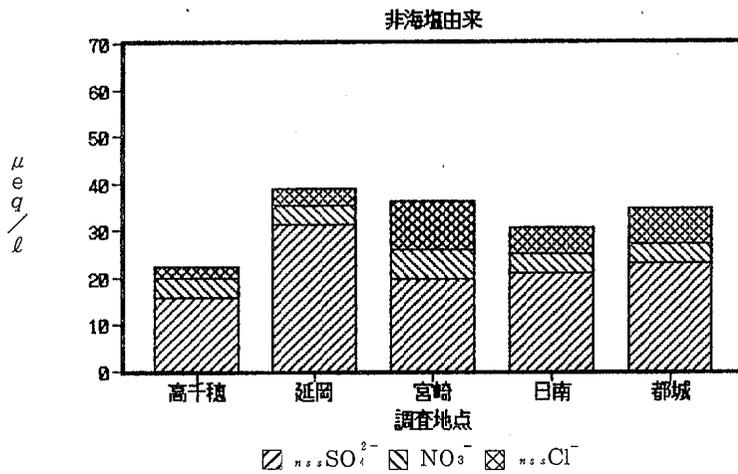


図3.4 平均イオン等量濃度/アニオン

ここで、試料番号1~4は第1週~4週に対応し、6月4日~11日を第1週、6月11日~18日を第2週、6月18日~25日を第3週、6月26日~7月3日を第4週とした。

これらのデータからいくつかの特徴がみられる。

延岡では、硫酸イオン及びアンモニウムイオンの濃度が他の地点より高い。この理由は、化学繊維工場で大量のアンモニアが使用されていることで、大気中のアンモニアガス濃度は他の地点よりも高い雰囲気にあることが予想される。これは、延岡市に設置してある大気汚染常時監視局のSO<sub>2</sub>自動測定機に高濃度用のアンモニアクラバーを取り付けてSO<sub>2</sub>計のマイナスぶれを防止していることから十分考えられることである。

また、火力発電所において排出されるSO<sub>2</sub>濃度を削減させるために、煙道内にアンモニアガスを吹き込んで硫酸アンモニウムとして回収しているが、未回収の硫酸アンモニウムの微粒子が煙突から放出されていることなども予想される。このように、延岡における大気降下物は人為発生源に由来する物質と密接な関係があるようである。

一方、高千穂においては、一か月平均の等量イオン濃度の総量が最も少ないことから、比較的に清浄な環境にあることがわかる。ただ、第3週の試料で、pH 3.98を記録し、全ての試料の中で最低であった。また、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>やnssCl<sup>-</sup>が高い値を示した。この週の雨は6

月23日に21mm降ったもので、他の地点では降水はほとんどなかった。この時期、阿蘇山は火山活動が活発で、18日には噴煙を1500mも吹き上げたことが観測されている。しかしながら、濾紙残留物量は少なく火山灰を取り込んでいるとは思われなかった。この週の阿蘇山の風向は主に南よりであったことから、阿蘇山との関係は特定できなかった。

宮崎では非海塩性の塩化物イオン( $\text{nssCl}^-$ )と $\text{NO}_3^-$ が他の4地点よりも高かった。 $\text{nssCl}^-$ は、桜島からの火山噴出物であるHClに起因するものと思われる。

日南は、宮崎のイオン組成に近い。

都城では、延岡に次いでアンモニウムイオンが高かったが、この地方は畜産及び農業の盛んな地域であることから、発生源としては第一次産業に由来すると思われる。また、この地点は桜島の噴火による降灰がしばしば観測されるが、6月11日から18日の期間に採取された濾紙残留降下物量が95.3mgで他の地点と比較して極めて多かった。6月の桜島の火山活動の状況を見ると、10日から14日及び17日にかけて活動が活発で、延べ25回の噴火を記録している。また、12日と14日の鹿児島上空1500mの主風向は、南西であった。これらのことから、この期間に降灰があったものと思われた。

なお、第1週の試料はイオンバランスがとれていないために平均化の対象外とした。

このように、県内でも自然環境、産業構造の違いにより、雨水の成分にそれぞれ特徴が見られるようである。

しかしながら、この調査は梅雨時期の一か月だけ行われたものであり、これだけで十分な調査とは言い難い。今後は、できれば、調査地点を増やし、長期的な調査を継続して行う必要がある。

#### 4. 謝 辞

最後に、この広域的な調査を行うにあたり、御協力いただいた高千穂保健所の山田技師、延岡保健所の垣内技師、日南保健所の木島主査(現宮崎保健所)、都城保健所の黒木技師をはじめとする各保健所の方々に深く感謝します。

#### 文 献

- 1)川井田哲郎：宮崎市における酸性雨調査(第3報)、宮崎県衛生環境研究所年報、第1号(1990)、P91~98
- 2)九州衛生公害技術協議会：「平成元年度九州・沖縄地方酸性雨共同調査報告書」
- 3)河野満洋：大気エアロゾル中の無機イオンの挙動、宮崎県公害センター年報、第10号、P44~52(1987)

表2 月別平均イオン濃度等

( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )

月	雨量	pH	EC	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	F <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	nssSO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	nssCl <sup>-</sup>	nssK <sup>+</sup>	nssCa <sup>2+</sup>	nssMg <sup>2+</sup>
5	187	4.8	14	1.4	0.42	0.60	-	0.27	0.25	0.01	0.13	0.04	1.3	0.14	0.0009	0.12	0.0094
6	409	4.8	13	1.3	0.47	0.89	-	0.27	0.33	0.017	0.16	0.037	1.2	0.30	0.0049	0.15	-
7	23	4.8	16	1.8	0.77	1.2	-	0.36	0.65	0.06	0.28	0.1	1.6	0.02	0.037	0.26	0.021
8	278	4.8	31	1.9	0.76	4.5	0.018	0.27	2.3	0.15	0.24	0.31	1.4	0.43	0.064	0.16	0.036
9	919	5.1	21	0.88	0.30	3.8	-	0.078	2.1	0.082	0.13	0.27	0.36	0.053	0.0069	0.054	0.013
10	398	5.0	27	1.3	0.71	4.8	0.0013	0.16	2.6	0.11	0.16	0.34	0.59	0.095	0.017	0.057	0.027
11	148	4.7	23	1.5	1.2	2.0	-	0.57	0.99	0.047	0.16	0.14	1.3	0.22	0.011	0.13	0.017
12	9	4.3	105	9.3	5.4	10	0.33	2.7	4.4	0.35	2.1	0.69	8.2	2.3	0.20	2.0	0.16
1	80	4.6	31	2.4	1.2	2.6	-	0.70	1.1	0.076	0.29	0.16	2.1	0.54	0.035	0.25	0.027
2	133	5.1	28	1.7	0.79	5.4	0.0081	0.66	2.9	0.14	0.26	0.37	1.0	0.31	0.036	0.15	0.028
3	414	4.3	43	3.2	1.6	2.0	0.024	1.2	0.70	0.060	0.24	0.11	3.1	0.70	0.035	0.21	0.028
平均	273	4.8	25	1.6	0.72	3.1	0.0065	0.37	1.6	0.077	0.18	0.21	1.2	0.26	0.020	0.12	0.018

表3 月別イオン降下量

(mg/m<sup>2</sup>)

月	雨量	H <sup>+</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	F <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	nssSO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	nssCl <sup>-</sup>	nssK <sup>+</sup>	nssCa <sup>2+</sup>	nssMg <sup>2+</sup>
5	187	3.20	254	77.7	112	-	51.0	47.3	1.87	24.3	7.48	242	26.7	0.167	22.5	1.76
6	409	6.22	515	191	365	-	109	136	6.90	65.7	15.1	481	121	2.02	60.5	-
7	23	0.347	41.6	17.7	27.4	-	8.28	15.0	1.38	6.44	2.30	37.9	0.490	0.842	5.87	0.491
8	278	3.96	536	213	1250	4.96	76.4	629	40.4	67.5	86.2	377	120	17.8	43.5	10.1
9	919	7.29	811	279	3510	-	71.5	1922	75.5	123	244	327	49.1	6.33	49.8	11.8
10	398	3.65	498	281	1920	0.51	63.1	1040	44.2	62.5	137	235	37.8	6.65	22.8	10.7
11	148	3.02	229	181	296	-	78.6	147	6.95	24.1	20.2	192	32.6	1.67	18.5	2.47
12	9	0.475	83.6	48.8	91.4	2.96	23.8	39.4	3.19	19.1	6.23	73.7	20.6	1.77	17.6	1.46
1	80	1.89	194	98.7	207	-	56.3	90.7	6.10	23.3	13.1	171	43.5	2.83	19.9	2.16
2	133	1.02	231	105	723	1.08	88.1	380	18.5	34.8	49.7	135	40.7	4.84	20.4	3.78
3	414	21.1	1345	681	808	9.93	482	288	24.9	98.9	46.5	1270	289	14.5	87.9	11.6
計	2998	52.2	4734	2172	9301	19.4	1108	4738	230	549	628	3543	782	59	369	55

# 悪臭規制基準強化対策実態調査

川井田哲郎・齋藤信弘  
大上琢磨\*・後藤英治\*\*（環境科学部 大気科）

## 1. はじめに

平成2年4月1日から悪臭防止法施行令等が改正施行され、これまで悪臭物質として指定されていたアンモニア、硫化水素など8物質に加え、プロピオン酸、ノルマル酪酸など4物質の低級脂肪酸が追加された。

これに伴い、工場、事業場の敷地境界線における規制基準の範囲<sup>1)</sup>が定められたので、低級脂肪酸の主たる発生源となっている業種のうち、養豚場及び化製場についてその実態を把握するために、敷地境界線などで測定を行ったので、その結果を報告する。

## 2. 調査期間

平成2年7月10日から平成2年7月17日まで

## 3. 調査内容

### 3.1 調査対象事業場

養豚場	3事業場
化製場	3事業場
計	6事業場

### 3.2 調査対象物質

プロピオン酸  
ノルマル酪酸  
ノルマル吉草酸  
イソ吉草酸

### 3.3 試料採取地点

調査対象事業場の臭気が強く感じられる発生源1地点及び風下の敷地境界線上の2地点、合計3地点で試料採取を行った（図1）。

### 3.4 試料採取の方法

試料採取地点において、100ℓのテドラーバッグにカートリッジ式フレックスポンプを用いて約5分間採気した。

### 3.5 試料分析方法

悪臭物質の測定の方法（環境庁告示）

## 4. 調査結果

調査結果を表1に示した。また、図2及び3に試料採取地点及び業種別に、測定物質を推定臭気濃度及び臭気強度で表した。

注)

$$\text{推定臭気濃度} = \frac{\text{測定濃度}}{\text{閾値（臭気強度1に対する濃度）}}$$

事業場の敷地境界線における規制基準は、規制地域の住民の大多数が悪臭による不快感をもつことのないような濃度の範囲として定められており、その上限は臭気強度3.5とされている。今回の調査結果をこれと照らしてみると超えているものが、6件であった。また、悪臭物質としては、ノルマル酪酸、ノルマル吉草酸がそれぞれ2件、4件であった。業種別では、それぞれ3件ずつであり、業種による大きな違いはなかった。

\* 現 宮崎県土木部営繕課 \*\*退職



## 5. おわりに

今回調査したプロピオン酸等4物質は、主としてタンパク質の構成成分であるアミノ酸の嫌気性分解により発生する物質であり、主な発生源としては、畜産事業場、化製場、澱粉製造業等があげられる。

これら業種は、いずれも本県の主な地場産業と関係の深いものであり、事業場やその関連施設からの悪臭物質の漏出や排出により周辺環境に影響を及ぼしていると思われる。

今後、環境部局と農政部局が連絡を密にし、協力

して事業者を指導していくことが必要であり、さらにこのたびの悪臭物質の追加指定及び規制基準の地域指定（平成3年4月1日地域指定）により、依然として本県の悪臭苦情の発生源としてのウェイトの高い畜産事業場や代表的な悪臭発生源である化製場等において、悪臭防止対策が促進されていくことを期待したい。

この調査を行うに当たり、ご協力いただいた環境保健部公害課、関係保健所衛生環境課の職員の方々に感謝いたします。

表1 調査結果

(機器分析)

(単位：ppb)

事業場	採取地点	プロピオン酸	ノルマル酪酸	ノルマル吉草酸	イソ吉草酸
A	発生源	20	<0.1	<0.1	2.9
	境界1	11.0	9.1	<0.1	1.6
養豚場	境界2	<0.1	0.5	0.3	0.2
	発生源	18.7	2.4	<0.1	1.8
B	境界1	40.5	15.4	<0.1	5.3
	境界2	41.4	5.7	<0.1	2.0
C	発生源	10.9	0.5	<0.1	<0.1
	境界1	15.2	0.7	0.3	0.3
養豚場	境界2	2.5	0.1	<0.1	<0.1
	発生源	61.7	<0.1	<0.1	5.5
D	境界1	20.0	0.65	<0.1	2.0
	境界2	2.5	0.14	<0.1	<0.1
E	発生源	9.3	16.4	11.2	2.3
	境界1	0.3	<0.1	12.4	<0.1
養豚場	境界2	1.0	0.3	8.6	<0.1
	発生源	8.3	21.5	5.6	2.7
F	境界1	<0.1	0.4	9.8	<0.1
	境界2	<0.1	2.9	10.3	<0.1

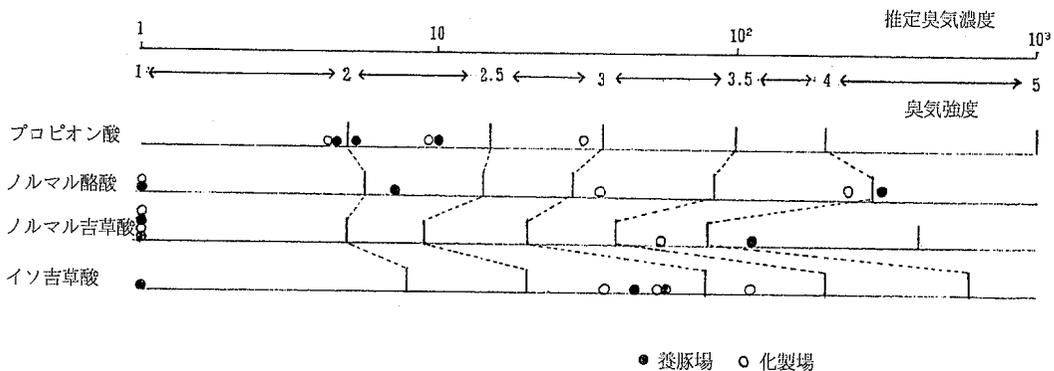


図2 指定臭気濃度及び臭気強度(発生源)

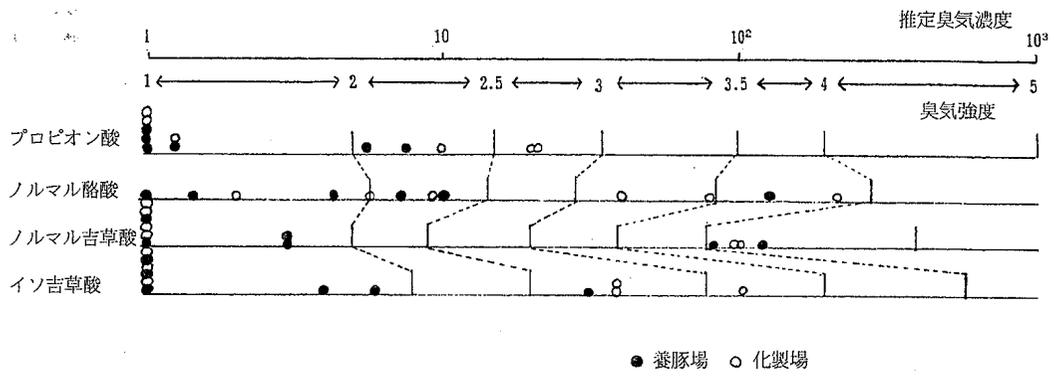


図3 指定臭気濃度及び臭気強度(敷地境界)

参 考

規制基準の範囲

(単位 : ppm)

物質名	臭気強度	1	2	2.5	3	3.5	4	5
プロピオン酸		0.002	0.01	0.03	0.07	0.2	0.4	2
ノルマル酪酸		0.00007	0.0004	0.001	0.002	0.006	0.02	0.09
ノルマル吉草酸		0.0001	0.0005	0.0009	0.002	0.004	0.008	0.04
イソ吉草酸		0.00005	0.0004	0.001	0.004	0.01	0.03	0.3

# 宮崎県における大気汚染の現状 (平成2年度)

藤田芳和、大上琢磨\*

川井田哲郎、齋藤信弘、後藤英治\*\* (環境科学部大気科)

## 1 大気汚染の監視状況

視局4局・逆転層観測局1局の県下27か所で大気汚染の常時監視を行った。

本県では、大気汚染防止法第22条に基づき、一般大気測定局18局・自動車排出ガス測定局4局・発生源監

測定局配置図を図1、測定局と測定項目一覧表を表1に示す。

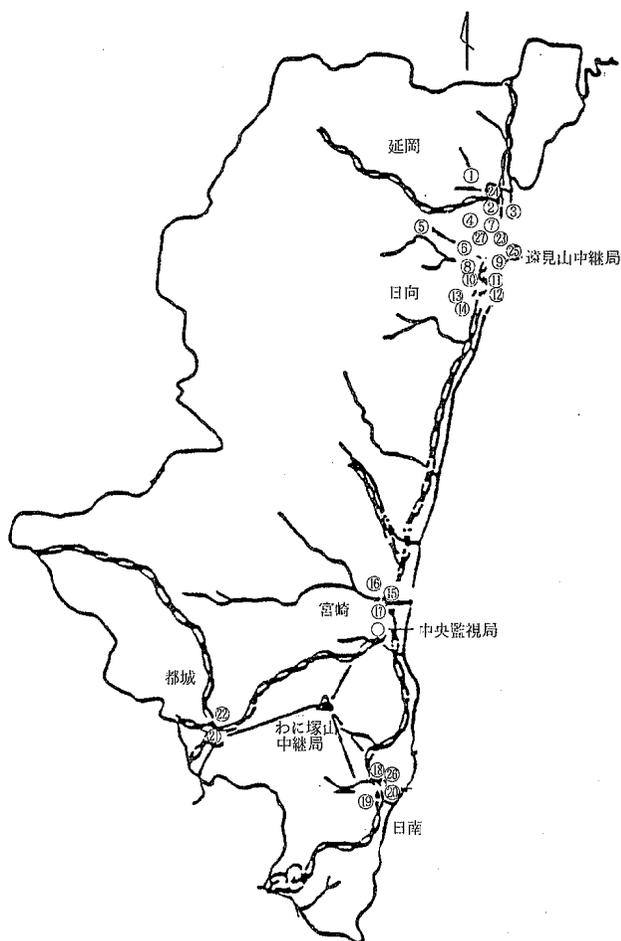


図1 測定局配置図

\* 現 宮崎県土木部管轄課 \*\*退職

表1 測定局と測定項目一覧表

(平成2年4月1日現在)

種別	番号	局名	所在地	測定項目											備考	
				SO <sub>2</sub>	SD	NO <sub>x</sub>	O <sub>x</sub>	W	CO	HC	TS	SPM	N			
一般 大気 測定 局 及び 自動車 排出 ガス 測定 局	1	延岡商業高校	延岡市桜ヶ丘	○	○	○	○	○								
	2	アツマヤ	" 幸町	○	○	○	○	○								
	3	東小学校	" 出北町	○	○	○	○	○			○					
	4	延岡保健所	" 大貫町	○		○	○	○			○	○	○			
	5	延岡植物園	" 天下町	○	○	○	○	○								
	6	延岡第2高校	" 平原町	○	○	○	○	○								
	7	新延岡自動車排ガス局	" 出北町			○				○	○					○
	8	門川福祉館	門川町平城東	○		○	○	○						○		
	9	大王谷小学校	日向市大王谷	○		○	○	○			○					
	10	日向保健所	" 春原町	○		○	○	○				○	○			
	11	細島公民館	" 細島	○		○	○	○								
	12	日向職訓	" 日知屋	○		○	○	○								
	13	日向高校	" 財光寺	○	○	○	○	○								
	14	日向工業高校	" 赤岩	○	○	○	○	○								
	15	自治学院	宮崎市旭町	○		○	○	○						○		
	16	高千穂通自動車排ガス局	" 北高松町			○					○	○				○
	17	南宮崎 "	" 中村町			○					○	○				○
	18	吾田中学校	日南市吾田	○		○	○	○								
	19	日南保健所	" 戸高	○		○	○	○			○	○	○			
	20	油津小学校	" 園田町	○		○	○	○								
	21	都城自動車排ガス局	都城市姫城	○	○	○	○	○	○	○	○					○
	22	都城高専	" 吉尾町	○	○	○	○	○								
		局名	所在地	SO <sub>2</sub>	NO <sub>x</sub>	F	O <sub>2</sub>									
23		旭化成第1火力	延岡市旭町	○	○	○	○									
24		旭化成第2火力	" 中川原町	○	○	○	○									
25		旭化成第3火力	" 長浜町	○	○	○	○									
26		王子製紙	日南市戸高	○	○	○	○									
その他		局名	所在地	SO <sub>2</sub>	SD	NO <sub>x</sub>	O <sub>x</sub>	W	CO	HC	TS	SPM	備考			
27		愛宕山逆転層	延岡市愛宕山								○					
		移動監視車		○		○	○	○	○	○	○	○				

※SO<sub>2</sub> 二酸化いおう O<sub>x</sub> オキシダント TS 温湿度計及び日射計 SO<sub>x</sub> いおう酸化物  
 SD 浮遊粉じん CO 一酸化炭素 N デジタル騒音計 F 燃料使用量  
 NO<sub>x</sub> 窒素酸化物 HC 炭化水素 W 風向・風速 O<sub>2</sub> 酸素濃度  
 SPM 浮遊粒子状物質

## 2 大気汚染の状況

酸化窒素・一酸化炭素・光化学オキシダント及び浮遊粒子状物質の測定結果を表2、環境基準を超えた回数を表3に示す。

大気汚染常時監視測定結果のうち、二酸化硫黄・二

表2 大気汚染常時監視測定結果

市町名	測定局名	二酸化硫黄		二酸化窒素		一酸化炭素		光化学オキシダント		浮遊粒子状物質	
		年平均値	年間の日平均値の2%除外値	年平均値	日平均値の年間98%値	年平均値	年間の日平均値の2%除外値	昼間の日最高1時間値の年間平均値	昼間の1時間値の最高値	年平均値	年間の日平均値の2%除外値
延岡市	延岡商業高校	0.004	0.009	0.003	0.008	—	—	0.039	0.084	—	—
	アヅマヤ	0.005	0.015	0.009	0.016	—	—	0.023	0.062	—	—
	東小学校	0.004	0.011	0.012	0.025	—	—	0.032	0.077	—	—
	延岡保健所	0.009	0.020	0.010	0.025	—	—	0.012	0.047	0.027	0.092
	延岡植物園	0.004	0.012	0.002	0.005	—	—	0.029	0.076	—	—
	延岡第二高校	0.005	0.013	0.004	0.010	—	—	0.039	0.086	—	—
	新延岡自排局	—	—	0.014	0.026	0.8	1.6	—	—	—	—
門川町	門川福祉館	0.007	0.018	0.004	0.009	—	—	0.022	0.076	0.027	0.058
日向市	大王谷小学校	0.007	0.017	0.004	0.010	—	—	0.033	0.087	—	—
	日向保健所	0.006	0.015	0.004	0.010	—	—	0.021	0.085	0.019	0.036
	細島公民館	0.007	0.016	0.009	0.020	—	—	0.021	0.063	—	—
	日向職訓	0.003	0.009	0.006	0.013	—	—	0.019	0.052	—	—
	日向高校	0.006	0.016	0.001	0.004	—	—	0.023	0.075	—	—
	日向工業高校	0.004	0.012	0.003	0.006	—	—	0.024	0.072	—	—
宮崎市	自治学院	0.006	0.013	0.011	0.023	—	—	0.035	0.081	0.041	0.072
	高千穂通自排局	—	—	0.020	0.031	1.4	2.7	—	—	—	—
	南宮崎自排局	—	—	0.021	0.042	2.0	3.5	—	—	—	—
日南市	吾田中学校	0.003	0.009	0.006	0.014	—	—	0.015	0.042	—	—
	日南保健所	0.004	0.008	0.005	0.012	—	—	0.032	0.064	0.018	0.036
	油津小学校	0.002	0.007	0.008	0.017	—	—	0.019	0.055	—	—
都城市	都城高専	0.004	0.011	0.006	0.014	—	—	0.035	0.075	—	—
	都城自排局	0.012	0.025	0.022	0.034	2.0	3.3	0.012	0.033	—	—

表3 環境基準を超えた回数 注1)

市町名	測定局名	二酸化硫黄		二酸化窒素		一酸化炭素		光化学オキシダント		浮遊粒子状物質	
		1時間値が0.1ppmを超えた回数	日平均値が0.04ppmを超えた回数	日平均値が0.04ppm以上0.06ppm以下の回数	日平均値が0.06ppmを超えた回数	8時間値が20ppmを超えた回数	日平均値が10ppmを超えた回数	1時間値が0.06ppmを超えた回数	1時間値が0.12ppmを超えた回数	1時間値が0.2mg/㎡を超えた回数	日平均値が0.1mg/㎡を超えた回数
延岡市	延岡商業高校	0	0	0	0	—	—	90	0	—	—
	アツマヤ	0	0	0	0	—	—	1	0	—	—
	東小学校	0	0	3	0	—	—	27	0	—	—
	延岡保健所	0	0	0	0	—	—	0	0	65	4
	延岡植物園	2	0	0	0	—	—	93	0	—	—
門川町	延岡第二高校	0	0	0	0	—	—	89	0	—	—
	新延岡自排局	—	—	0	0	0	0	—	—	—	—
	門川福祉館	0	0	0	0	—	—	22	0	2	0
日向市	大王谷小学校	0	0	0	0	—	—	18	0	—	—
	日向保健所	1	0	0	0	—	—	16	0	0	0
	細島公民館	0	0	0	0	—	—	5	0	—	—
	日向職訓	0	0	0	0	—	—	0	0	—	—
	日向高校	0	0	0	0	—	—	9	0	—	—
	日向工業高校	0	0	0	0	—	—	9	0	—	—
宮崎市	自治学院	2	0	0	0	—	—	99	0	7	2
	高千穂通自排局	—	—	0	0	0	0	—	—	—	—
	南宮崎自排局	—	—	11	0	0	0	—	—	—	—
日南市	吾田中学校	0	0	0	0	—	—	0	0	—	—
	日南保健所	0	0	0	0	—	—	13	0	0	0
	油津小学校	0	0	0	0	—	—	0	0	—	—
都城市	都城高专	3	0	0	0	—	—	109	0	—	—
	都城自排局	3	0	0	0	0	0	0	0	—	—

注1) 環境基準

- 二酸化硫黄：1時間値の1日平均値が0.04ppm以下であり、かつ1時間値が0.1ppm以下であること。
- 二酸化窒素：1時間値の1日平均値が0.04ppmから0.06ppmまでのゾーン内、又はそれ以下であること。
- 一酸化炭素：1時間値の1日平均値が1.0ppm以下であり、かつ1時間値の8時間平均値が2.0ppm以下であること。
- 光化学オキシダント：1時間値が0.06ppm以下であること。
- 浮遊粒子状物質：1時間値の1日平均値が0.1mg/㎡以下であり、かつ1時間値が0.2mg/㎡以下であること。

1) 二酸化硫黄(SO<sub>2</sub>)

各測定局(19局)の年平均値は、0.002~0.012 ppmで前年度と比較して、全局とも横ばいの状況であった。

日平均値の2%除外値でみると、0.007~0.025 ppmで、全局とも環境基準(0.04ppm)を満足していた。

1時間値では、延岡植物園(延岡市)・日向保健

所(日向市)・自治学院(宮崎市)・都城高専(都城市)及び都城自排局(都城市)の5局で、環境基準(0.1 ppm)を超過していた。図2に10月18~19日における県内の二酸化硫黄の状況を示す。高濃度の出現時間に同じ地域の他の測定局でも高濃度を示しており、局所的な大気汚染ではなく、桜島等火山による広域的な大気汚染であると思われる。

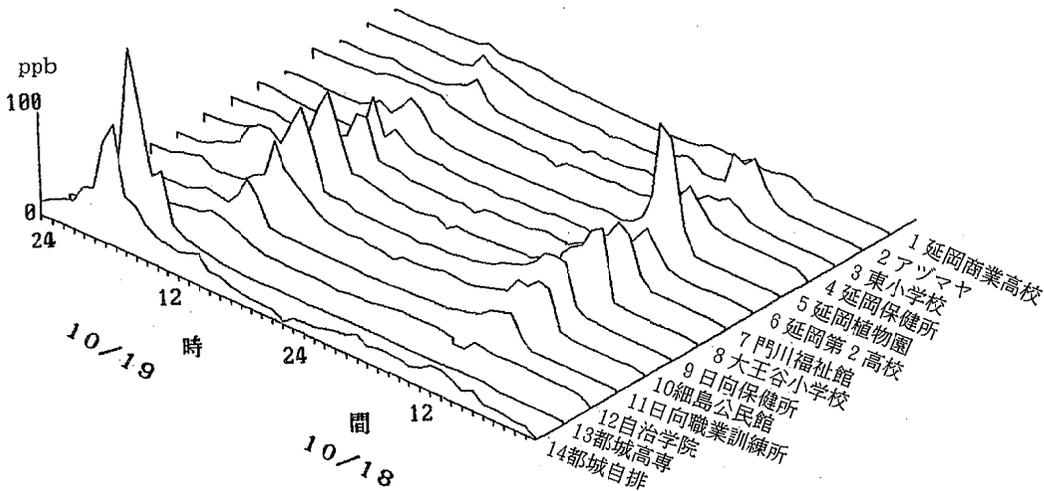


図2 県内測定局の二酸化硫黄の状況(平成2年10月18日~19日)

2) 二酸化窒素(NO<sub>2</sub>)

各測定局(22局)の年平均値は、0.001~0.022 ppmで前年度と比較して、全局とも横ばいの状況であった。

日平均値の年間98%値でみると、0.004~0.042 ppmで、南宮崎自排局(宮崎市)で、0.04ppmを超過していた。

南宮崎自排局におけるNO<sub>2</sub>年間98%値と交通量の経年変化(図3)に示すとおり、交通量の増加にともないNO<sub>2</sub>年間98%値も増加の傾向にある。また、NO<sub>2</sub>の経月変化(平均値)を図4に示すが、各局とも夏期(6月~9月)に比べ冬期(12月~3月)のほうが高い傾向にあった。

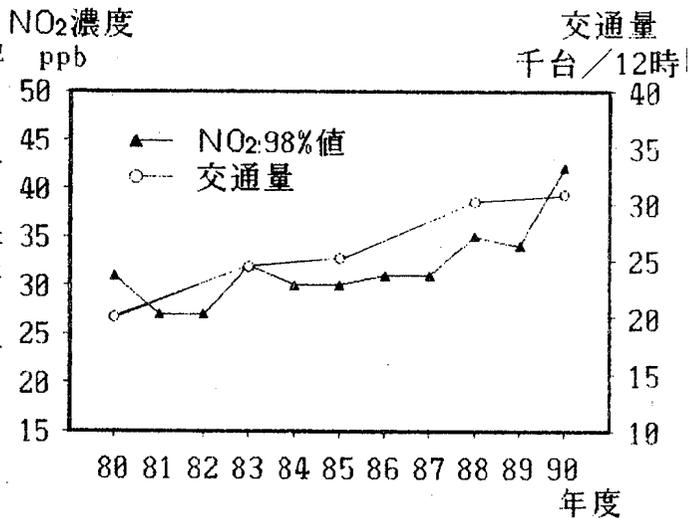


図3 南宮崎自排局におけるNO<sub>2</sub>年間98%値と交通量の経年変化

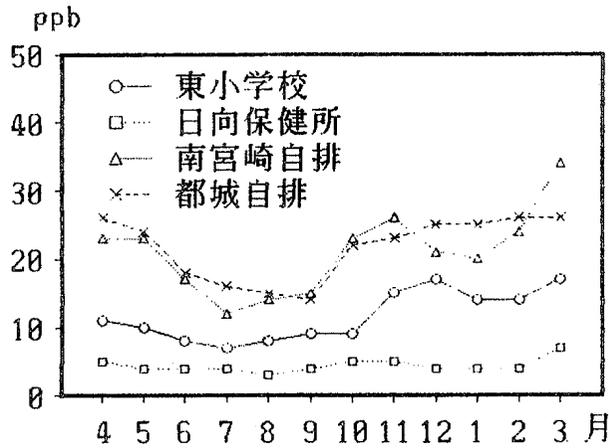


図4 NO<sub>2</sub>の経月変化

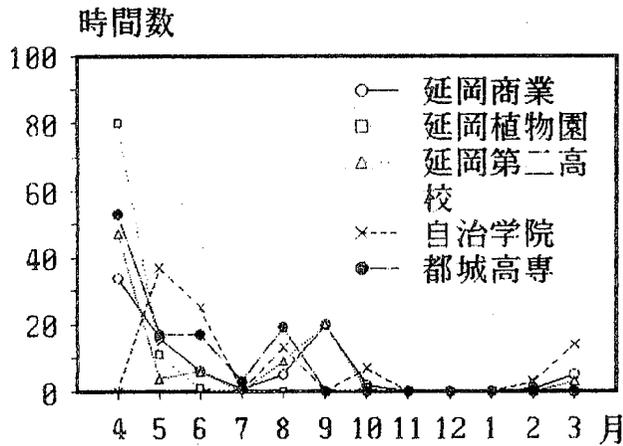


図5 光化学オキシダントの1時間値が0.06ppmを越えた時間数

### 3) 一酸化炭素(CO)

各測定局(4局)の年平均値は、0.8~2.0 ppmで前年度と比べて、全局とも横ばいの状況であった。

日平均値の年間98%値でみると、1.6~3.5 ppmで、全局で環境基準を満足していた。

### 4) 光化学オキシダント(Ox)

各測定局(19局)のうち、14局で環境基準(0.06 ppm)を超過していた。

光化学オキシダントの1時間値が0.06ppmを超えた時間数の経月変化を図5に示す。4~6月及び8~9月が、他の月に比べて超過時間が多い傾向にあるこ

とがわかる。

### 5) 浮遊粒子状物質(SPM)

各測定局の年平均値は、0.018~0.041 mg/m<sup>3</sup>であり、日平均値の2%除外値は、0.036~0.092 mg/m<sup>3</sup>であった。

延岡保健所(延岡市)及び自治学院(宮崎市)の2局で、日平均値が0.1 mg/m<sup>3</sup>を連続2日以上超過し、また、延岡保健所(延岡市)・門川福祉館(門川町)及び自治学院(宮崎市)の3局で、1時間値が0.2 mg/m<sup>3</sup>を超過していた。

# 御池の水質特性 (第3報)

杉本美喜・高橋麻里子\*・河野謙一  
 岩切淳・野口辰美・後藤英治\*\* (環境科学部 水質科)

## 1. はじめに

御池では、昭和63年春に淡水赤潮が発生して以来、毎年同時期に赤潮が発生している。そこで、赤潮発生防止の基礎資料を得る目的で、昭和63年4月から調査を実施している。今回は、湖沼水質及び流入河川水質について季節毎の調査を行ったので報告する。

## 2. 御池の概要

御池は霧島屋久国立公園に位置し、周囲約4km、すり鉢状の火口湖である。概要を表-1に示す。

表-1 御池の概要

最大水深	: 約100 m
湖面積	: 0.720 km <sup>2</sup>
湖容積	: 37,500×10 <sup>3</sup> m <sup>3</sup>
水面標高	: 305 m
湖流域面積	: 5.25km <sup>2</sup>
流入河川	: 通常 3カ所 (No.1, No.2, No.3) 雨天時 5カ所 (上記, No.4, No.5)
流出河川	: 1カ所 (水門) (No.6)

また、流域の概要としては、前年度と同様であるが、2年度には、宮崎県御池青少年自然の家を建設途中であり、御池周辺の観光のみばかりか、教育の場としても今後、大いに期待される所である。

## 3. 湖沼の調査方法

### 3.1 調査時期

調査は、平成2年5月から平成3年1月まで、隔月1回の計5回行った。

### 3.2 調査地点

調査地点及び深度を表-2及び図-1に示した。

表-2 調査地点及び深度

A地点	: 0、2.5、5、10、30 m (5月は表層のみ)
C地点	: 0 m

流入河川: No.1, No.2, No.3, No.4, No.5, No.7, No.8

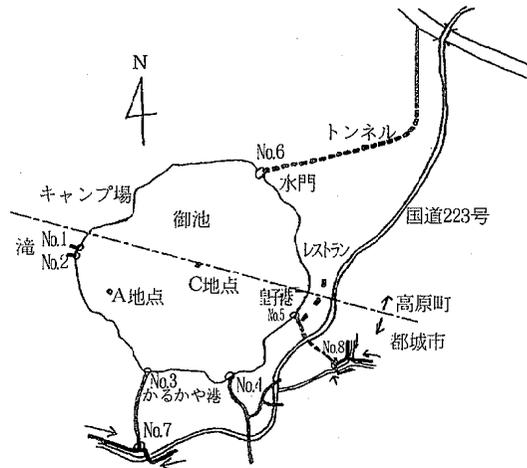


図-1 御池の概要及び調査地点

### 3.3 調査項目

調査項目及び分析方法を、表-3に示した。

表-3 調査項目及び分析方法

調査項目	分析方法
*水温	ベッテンコーヘル水温計
透明度	透明度板
*pH	ガラス電極法
DO	ウィンクラー・アジ化ナトリウム変法
*TCOD	100°C、30min、KMnO <sub>4</sub> 加熱法
DCOD	同上
*SS	GFP法
*NO <sub>2</sub> -N	スルファニルアミド-N-(1-ナフチル)イソシアニド法
*NO <sub>3</sub> -N	Cu-Cd還元カラム法
*NH <sub>4</sub> -N	インドフェノール法
*DTN	過硫酸カリウム・オートクレーブ分解・UV法
*T-N	同上
*PO <sub>4</sub> -P	モリブデンブルー法
*DTP	過塩素酸分解・モリブデンブルー法
*T-P	同上
クロロフィルa	アセトン抽出・吸光光度法
*Cl	イオンクロマトグラフィー
*Na	炎光光度法
*K	同上
*Ca	原子吸光光度法
*Mg	同上
*EC	電気伝導度計

\* 流入河川の測定項目

\* 現 宮崎県立延岡病院薬剤科 \*\* 退職

#### 4. 湖沼の調査結果及び考察

A、C地点の水質はほぼ類似した水質特性を示していたため、測定深度の数が多く、赤潮も観察されたA地点について述べる。

##### 4.1 水温

A地点の深度別経月変化を図-2に示した。第1、2報で述べたように、本湖は夏季に成層をなし、冬季に循環する単循環湖であり、水深30mでは、水温も年間を通じてほぼ一定である。

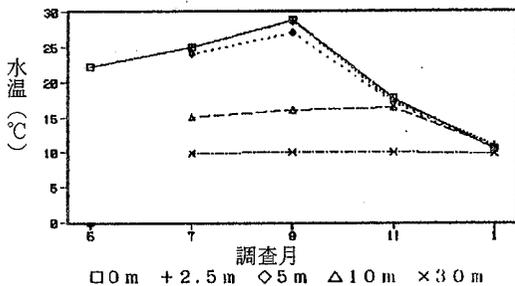


図-2 水温の深度別経月変化

##### 4.2 DO, pH, 透明度

DOは、図-3に示すように5、7、9月と、表層から水深10mまでは、ほぼ飽和状態に近く、藻類の生産活動が活発であることがうかがえる。

水深30mでは、年間を通じて4mg/l以下と低くなっている。

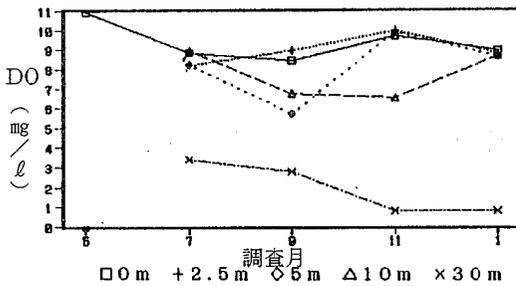


図-3 DOの深度別経月変化

pHは、図-4に示すように5、7、9月に藻類の光合成活動の活発化によって、pH8以上となり、特に、成層をなしている7、9月には、水深5mと10mではpH値に0.4から1.2と大きな差が生じている。

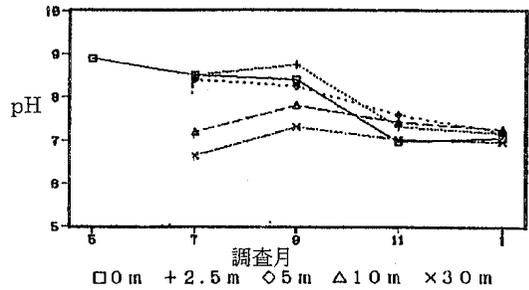


図-4 pHの深度別経月変化

また、図-5に示すように、透明度で見ても、7月、9月に各々2.7、2.5mと低下している。

これらDO及びpHの結果から藻類の生産層が、水深10mより上層であることがうかがえる。

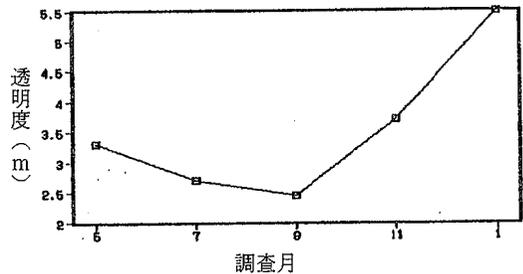


図-5 透明度の経月変化

##### 4.3 COD

CODは、図-6に示すように表層から水深5mまでは、3mg/l以上と高く、水深10m、30mとの差があり、DO、pH等と同様、藻類の生産層が水深10mより上層であることがうかがえる。

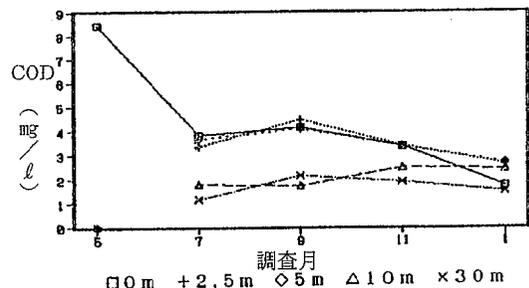


図-6 CODの深度別経月変化

##### 4.4 窒素、りん

図-7、8に示すようにT-N、T-Pは、循環期となる11月、1月には各深度とも各々約0.3mg/l、0.01mg/lと一定であるが、藻類の生産活動が活発な7、9月には大きな差が生じている。特に9月にはT-Nでは水深5

m、T-Pでは水深10mで最も大きな値を示している。これは、クロロフィルaがやはり、表層よりも水深5m、10mの方が高い値を示していることから、藻類の影響と考えられる。

以上、pHから窒素、りん等の栄養塩類に共通している点は、元年度の水質よりも濃度等が低くなっていることである。

これは、次に述べるプランクトンについても共通している。

これらの原因として、豪雨による大量の汚濁物質の流入が示唆された元年度と異なり、2年度はあまり集中的な雨が少なかったためと考えられる。

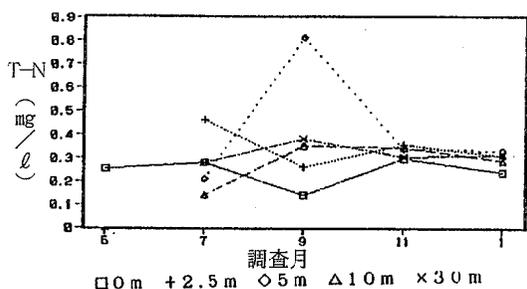


図-7 T-Nの深度別経月変化

表-4 A地点における植物プランクトン

月	第一優占種	第二優占種	第三優占種
5	Staurastrum gracile	Fragilaria crotonensis	Peridinium bipes
7	Fragilaria crotonensis	Staurastrum gracile	Synedra sp.
9	Fragilaria crotonensis	Asterionella sp.	Synedra sp.
11	Fragilaria crotonensis	Asterionella sp.	Peridinium bipes
1	Fragilaria crotonensis	Asterionella sp.	Synedra sp.

植物プランクトンの優占種としては、Fragilaria crotonensis等の珪藻類が年間を通じて上位優占種となっているが、5月は、緑藻類のStaurastrumが第一優占種となっている。

例年5月はperidinium bipesが、第一優占種となっていたが、今回の調査では、第三優占種にとどまっている。これは、赤潮が認められなかった日に調査を行ったためであり、赤潮発生時にはやはり、第一優占種であったと思われる。

また、今回の調査では、前年度に確認された富栄養化の指標藻類であるAnabaena sp.は全く確認されなかった。

## 5. 流入河川調査方法

### 5.1 調査時期

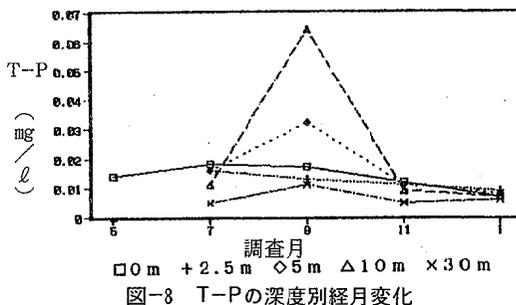


図-8 T-Pの深度別経月変化

## 4.5 プランクトン

プランクトンは春季に赤潮の集積が認められたA地点において、プランクトンネット(NXX-25号、60μm)を水平に引いて捕集し、ホルマリン固定を行ったものを、検鏡に供した。

平成2年度における植物プランクトンの優占3種を表-4に示す。

調査は、湖沼調査と同一日及び雨天時調査として8、9月の2回、計7回行った。

### 5.2 調査地点

調査地点は前述の図-1及び表-2に示した。

### 5.3 調査項目

調査項目及び分析方法は前述の表-3に示した。

なお、御池に流入する河川水の入流量調査においては、河川の場合、原則として流速と断面積を測定し、その積で求め、滝の場合、一定容量のバケツ等を用いる簡単な方法により測定を行った。

## 6. 流入河川調査結果と考察

御池の水質が年々悪化していることから、その原因の一つとして流入河川からの汚濁負荷量の流入があるのではないかと考え、それぞれの河川の流量とCO

D、窒素等の汚濁負荷に係わる項目について、調査を行った。

御池への直接的な流入河川としてはNo.1～No.5であり、No.7はNo.3の上流にあり、自然林や養鶏場周辺の排水が流れ込む。また、No.8はNo.5の上流にあり、畜舎や飼料

畑周辺の水が流れ込む。

これら河川のうち、常時流入しているのはNo.1～No.3で、雨天時に流入する河川としてNo.4、5の河川がある。

流入河川の流量とCOD、T-N、T-Pの濃度を表-5に示した。

表-5 流入河川の流量とCOD、T-N及びT-Pの濃度

調査地点	調査項目	5月21日 ** 0 mm		7月3日 ** 1.8 mm		8月17日 ** 1.0 mm		9月10日 ** 0 mm		9月25日 ** 7.5 mm		11月19日 ** 0 mm		1月10日 ** 0 mm	
		流量 m <sup>3</sup> /hr	濃度 mg/ℓ												
* COD		77	1.1	130	0.2	80	0.1	130	0.3	採					
No.1 T-N			0.16		0.15		0.13		0.17	水					
* T-P			0.032		0.035		0.035		0.058	せ					
* COD		58	1.1	55	0.2	36	0.1	54	0.3	ず					
No.2 T-N			0.16		0.15		0.13		0.17						
* T-P			0.032		0.035		0.035		0.058						
COD			2.8		1.3		0.9		1.2						
No.3 T-N		100	1.23	310	1.80	250	1.62	180	0.67						
T-P			0.022		0.030		0.029		0.045						
COD		2	3.2	35	2.1										
No.4 T-N			12.16		9.80										
T-P			0.027		0.122										
COD					7.94		15.3								
No.5 T-N				15	1.84	0.2	2.54								
T-P					1.000		0.294								
COD			7.7	2	7.7		12.8		0.5	4.0	25	0.5	15	0.7	
No.7 T-N			0.48		0.48		1.02	14	0.14	0.38	0.08	0.08	0.15	0.15	
T-P			0.055		0.055		0.038		0.007	0.046	0.039	0.039	0.088	0.088	
COD			4.4		4.4		19.1		3.2	29.9	2.3	2.3	4.5	4.5	
No.8 T-N			0.62		0.62	5	4.01	4	0.33	3.26	0.19	0.19	2	0.56	
T-P			0.590		0.590		0.750		0.188	0.802	0.059	0.059	0.099	0.099	

1) \*No.1、2の滝については前年度測定時に同様な値を示したので、今回はNo.1のデータをNo.2にも併用した。

2) -は、流れていなかったため、採水出来なかった。

3) \*\*は当日雨量。

4) 9月25日は高原町役場による採水。

今回の調査では、湖沼調査の実施日に併せて、流入河川の調査を行ったため、晴天時での調査が主であり、雨天時の調査としては、8月17日、9月25日の2回だけである。

直接流入するNo.1～3に関しては、晴天時と雨天時の汚濁負荷濃度には余り差はないものの、No.3及びNo.5の上流となるNo.7、8においては、その濃度差は大きく、降雨によって濃度が高くなる傾向がみられた。

しかし、No.7からNo.3に達するまでに、その水量はゆう水により10～500倍までに増量する。また、No.8からNo.5へ流下する途中で一部、地中に浸透し、再び下流で合流して湖内に注いでいる。そのため、No.3とNo.7及びNo.5とNo.8との濃度差は大きく、上流の水が直接下流の河川を通して、御池に影響を及ぼしているかは確認できなかった。

また、本湖に流入する河川（No.3～No.7、No.4、No.5～No.8）は、勾配が急であり、降雨終了後、ただちに流量が激減することや、御池が、本研究所からかなり遠いこともあり降雨日の流入河川の調査は極めて困難であった。そのため今回の調査では調査回数が少なく、また、最も汚濁負荷物質濃度が高くなると思われる大降雨時での調査を行っていないため、流入汚濁負荷量の推定はできなかった。

## 7. まとめ

平成2年度における御池及び流入河川の水質調査結果は次のとおりである。

- 1) 御池の水質においては、前年度のT-N、T-Pに代表される栄養塩類濃度の極端な水質変化はなく、その他の項目についても比較的落ち着いており、前々年度の水質に類似していた。
- 2) プランクトンについては富栄養化の指標藻類であるAnabaena sp.が今年度は認められず、中栄養、貧栄養化の指標藻類の珪藻類、緑藻類が優占種であった。
- 3) 全体的に平成2年度の御池の水質は元年度よりも、改善がみられた。（表-6）

しかし、その理由として、汚濁物質の流入が少なかったためか、もしくはその他の因子があるのかは、判明しなかった。

表-6 表層水における水質の経年変化（御池）

年度	透明度	COD	T-N	T-P
51	4.5	0.83	0.26	0.004
59	4.5	2.8	0.19	0.009
63	4.4	4.4	0.30	0.011
元年	3.2	5.1	0.61	0.020
2年	3.6	3.3	0.24	0.014

\* 7、9、11、1月の表層水における平均値

\* 年度によって採水地点、採水地点数の違いがある。

4) 流入河川調査においては、測定回数、雨天時調査の不足から汚濁負荷量流入の特定は出来なかった。

## 8. おわりに

平成3年度は、引き続き湖沼調査及び晴天時の流入河川調査を行っている。さらに、高原町役場においても降雨時の流入調査を行っているため、今後の調査結果に期待したい。

今回の調査にあたり、採水にご協力いただいた高原町役場総務課、同観光協会の職員の方々に深く感謝いたします。

## 参 考 文 献

- 1) 高橋麻里子、柏田雅徳、黒木裕一、杉本美喜：御池の水質特性（第1報）、宮崎県公害センター年報、第11号（昭和62、63年度）、49～52、（1989）
- 2) 杉本美喜、高橋麻里子、河野謙一、黒木裕一、後藤英治：御池の水質特性（第2報）、宮崎県衛生環境研究所年報、第1号（平成元年度）、103～110、（1990）
- 3) 吉富堅一郎、原田博行、西森義継、谷川博利、前田武、武田攻：国立公園湖沼水質調査結果について、宮崎県衛生研究所報、第18号（昭和51年度）、23～26（1977）
- 4) 小坂妙子、山田音由記、甲斐純男、小畑聡子：御池水質調査、宮崎県公害センター年報、第8号、9号合併号（昭和58、59年度）、88～92、（1985）
- 5) 宮崎地方気象台：宮崎県農業気象月報、平成元年4月～平成2年3月
- 6) 日本水質汚濁研究協会編：湖沼環境調査指針（公害対策技術同友会）、（1982）
- 7) 福島博：淡水植物プランクトン（ニュー・サイエンス社）、（1983年）
- 8) 環境庁自然保護局、国立公園湖沼水質調査報告書

(第6集)、(1977)

- 9) 沖野田輝夫：富栄養化調査法(講談社)、(1973)
- 10) 半田暢彦、金成誠一、井内美郎、沖野外輝夫：湖沼調査法(古今書院)(1977)
- 11) 津野洋、相崎守弘、須藤隆一、合田健：霞ヶ浦高浜入の夏期における水質生物変動-II、国立公害研究報告、1号、83(1976)
- 12) 畑幸彦、西島敏隆、今井彦、近森邦英、安達六郎、岡市友利、西尾幸郎、伊藤猛夫：永瀬ダム湖における

淡水赤潮の発生機構に関する研究(高知県委託研究報告書)、(1984)

- 13) 小野田義輝、淡水赤潮の発生に関する二、三の考察-I. 淡水赤潮の特徴と発生例-I、用水と廃水、31、6、495~501、(1989)
- 14) 森下郁子：ダム湖の生態学(山海堂)、(1983)
- 15) 小野田義輝：淡水赤潮生物 *Peridinium cuningtonli*(LEMM)LEMMの生態と形態特性に関する研究、昭和57年度三重大学院修士論文、(1983)

# ゴルフ場使用農薬による水質汚濁

河野謙一・野口辰美・杉本美喜  
岩切 淳・高橋麻里子\*（環境科学部水質科）

Water Pollution by Pesticides used at Golf Links

Ken'ichi KOHNO, Tatumi NOGUCHI, Miki SUGIMOTO, Jyun IWAKIRI and Mariko TAKAHASHI

## 1 はじめに

リゾート開発に伴い、全国的にゴルフ場が増加する傾向にあり、ゴルフ場からの農薬流出による水質汚濁が懸念され、大きな社会問題となっている。

当県では、平成元年7月に、「ゴルフ場における農薬の安全使用に関する指導要綱」を定め、事業者にはゴルフ場使用農薬の水質検査を義務づけた。平成2年5月には、環境庁及び厚生省から水質（排水、水道水）について、ゴルフ場で使用量の多い21種類の農薬の暫定基準値（平成3年7月、9種類の追加）が設定された。

これに伴い、当県では、「ゴルフ場の排水及びその周辺公共用水域における水質調査実施要領」を定め、ゴルフ場による農薬の水質汚濁を監視することになった。

暫定基準値の設定に伴い、ゴルフ場使用農薬の分析法も環境庁及び厚生省から提示されたが、測定条件等に関する詳細な方法は明示されていないため、検討を加えた。農耕地やゴルフ場等から公共用水域に流出する農薬は多種類であるため、農薬の多成分分析法の確立が不可欠である。

農薬の多成分分析法については、キャピラリーカラムを用いたガスクロマトグラフ法が検討<sup>1)</sup>されているが、ゴルフ場使用農薬についての報告は少ない。又、農薬等の同定手段としてガスクロマトグラフ法より優れているGC/MSによる報告<sup>2-8)</sup>がある。

GC/MSは、平成2年3月に導入して日が浅く、内部標準物質の準備や機器の操作に習熟するまでの期間が必要であるため、キャピラリーカラムによるガスクロマトグラフの条件等について検討した。測定条件を検討した農薬は、暫定基準値の示された21種類の農薬のうち、水道水の場合、高速液体クロマトグラフ法で測

定するアシュラム、チウラム及びオキシシン銅を除いた18種類に加えて、県内ゴルフ場の使用農薬のうち、使用頻度の高い12種類を加えた計30種類である。さらに、県内のゴルフ場の排水、周辺公共用水域及び一部の場内池（調整池及びその他の池）を対象に調査した結果の概要を報告する。

## 2 実験及び調査方法

### 2.1 試薬

農薬標準品：和光純薬工業(株)、Nanogen社、住友化学工業(株)、日本特殊農薬製造(株)、及び県総合農業試験場より入手。

ジクロロメタン、n-ヘキサン、アセトン、無水硫酸ナトリウム：残留農薬試験用

ジエチレングリコール：片山化学工業(株)、EP印

塩化ナトリウム：特級

### 2.2 装置

ガスクロマトグラフ：GC-9A2台及びGC-14A（島津製作所）GC-9Aの1台は、スプリット/スプリットレス試料導入装置付きで、FTDを装着。

検出器：FPD、FTD及びECD

データ処理装置：C-R4A及びC-R6A（島津製作所）

### 2.3 ガスクロマトグラフの測定条件

分析カラムは、FTDの場合、ミドルボアカラム（0.2mmφ×25m）、FPD及びECDではワイドボアカラム（0.53mmφ×15m）を使用した。測定条件を表-1に示した。

\* 現 宮崎県立延岡病院 薬剤科

表-1 ガスクロマトグラフの条件

検出器	カラム名及び条件
FPD P717付 付き	① カラム：ULBON HR-1 (methyl silicone)、0.53mmφ×15m、膜厚さ 1.0μm キャリアーガス：He、線速度120cm/秒、注入口及び検出器：260℃ 昇温条件：130℃ (0.5分) → 3℃/分 → 180℃ (0分) → 10℃/分 → 250℃ (1分) 水素及び空気：適量
	② カラム：DB-17 (50% phenyl methyl silicone)、0.53mmφ×15m、膜厚さ 1.0μm キャリアーガス：He、線速度120cm/秒、メイクアップガス：He、28ml/分 注入口及び検出器：230℃ 昇温条件：120℃ (0.5分) → 5℃/分 → 220℃ (1分) 水素及び空気：適量
FTD	① カラム：ULBON HR-1 (methyl silicone)、0.2mmφ×25m、膜厚さ 0.25μm キャリアーガス：He、線速度50cm/秒、メイクアップガス：He、35ml/分 注入口及び検出器：260℃ 昇温条件：130℃ (0.5分) → 3℃/分 → 250℃ (0分) → 10℃/分 → 260℃ (5分) 水素及び空気：適量
	② カラム：ULBON HR-52 (5% phenyl methyl silicone)、0.2mmφ×25m 膜厚さ 0.25μm キャリアーガス：He、線速度50cm/秒、メイクアップガス：He、35ml/分 注入口及び検出器：260℃ 昇温条件：130℃ (0.5分) → 3℃/分 → 250℃ (0分) → 10℃/分 → 260℃ (5分) 水素及び空気：適量
ECD	① カラム：ULBON HR-1 (methyl silicone)、0.53mmφ×15m、膜厚さ 1.0μm キャリアーガス：He、線速度120cm/秒 パージガス：N <sub>2</sub> 、50ml/分、注入口及び検出器：310℃ 昇温条件：120℃ (0.2分) → 3℃/分 → 180℃ (0分) → 10℃/分 → 260℃ (10分)
	② カラム：DB-17 (50% phenyl methyl silicone)、0.53mmφ×15m、膜厚さ 1.0μm キャリアーガス：N <sub>2</sub> 、線速度50cm/秒、パージガス：N <sub>2</sub> 、40ml/分 注入口：250℃、検出器：300℃ 昇温条件：120℃ (0.2分) → 5℃/分 → 180℃ (0分) → 10℃/分 → 230℃ (10分)

#### 2.4 分析操作

水質を対象とした農薬の抽出操作は次の方法に従った。

- ① 1ℓの分液ロートに試料 500mlを入れ、塩化ナトリウム25gを加える。
- ② ジクロロメタン100ml及び50mlで2回、振とう抽出(5分間)する。
- ③ ジクロロメタン層をとり、無水硫酸ナトリウムを加え、脱水後、ろ紙でろ過する。
- ④ キーパーとして、0.1% ジエチレングリコール/アセトン溶液1mlを加え、40℃以下で減圧濃縮する。
- ⑤ 溶媒を留去後、アセトンに溶解し、5mlの定容として試験溶液とする。

ガスクロマトグラフの検出器別の注入量は次のとおりである。

FPD:試験溶液の2μlを注入する。

FTD:試験溶液の1μlを注入する。

ECD:試験溶液の1mlにn-ヘキサンを加え、50mlとし、この2μlを注入する。

#### 2.5 調査試料及び調査時期

水質の測定地点は、ゴルフ場(平成2年10月現在16カ所)から排出される排水口付近及びその排水水が公共用水域へ流入する地点から500m下流の地点の2ポイントを原則とした。

例外として、沿海地帯のゴルフ場で排水のない場合、ゴルフ場内の池(場内池と略記)を、又、河川敷のゴルフ場も通常、排水がないため、隣接している河川2ポイントを測定地点とした。調査試料は1ℓのガラスビンに採取し、分析に供試した。

調査時期は、平成2年8月6~8日及び10月24~25日の2回である。

### 3 結果及び考察

#### 3.1 農薬の分離及び感度

表-2に検出器別の農薬の相対保持時間と最小検出量を、図-1から図-6に農薬標準品のガスクロマトグラムを示した。各農薬の最小検出量はS/N=6として算出した。なお、ガスクロマトグラムにおける成分ピー

表-2 ゴルフ場使用農薬の相対保持時間と最小検出量

NO. Pesticide	検出器	HR-1		HR-5.2		DB-1.7	
		R.R.T.	最小検出量ng	R.R.T.	最小検出量ng	R.R.T.	最小検出量ng
○ 1 trichlorfon	F P D	0.21	0.08			0.31	0.1
○ 2 diazion		0.75	0.05			0.71	0.1
○ 3 tolichlophos-methyl		0.89	0.04			0.92	0.09
○ 4 fenitrothion		1.00	0.05			1.00	0.1
○ 5 chlorpyrifos		1.13	0.06			0.99	0.1
○ 6 isofenphos		1.34	0.09			1.12	0.1
○ 7 butamifos		1.50	0.1			1.25	0.1
※ 8 penicycuron	F T D	0.53	0.2	0.54	0.4		
※ 9 benfluralin		0.55	0.1	0.55	0.2		
○ 10 simazin		0.58	0.05	0.61	0.06		
※ 11 terbcarb		0.80	0.06	0.80	0.1		
○ 12 pendimethalin		1.00	0.06	1.00	0.08		
○ 13 procymidone		1.04	0.2	1.04	0.2		
14 siduron		-	-	-	-		
○ 15 napropamide		1.12	0.06	1.11	0.1		
○ 16 flutoluanil		1.14	0.2	1.13	0.3		
○ 17 isoxathion		1.21	0.01	1.20	0.02		
※ 18 mepronil		1.30	0.2	1.28	0.4		
19 lenacil		1.32	0.09	1.32	0.2		
20 chloridazon		1.82	0.1	1.33	0.1		
※ 21 pyridaphenthion		1.46	0.01	1.45	0.02		
○ 22 iprodione		1.47	0.04	1.44	0.2		
○ 23 bensulide		-	-	-	-		
※ 24 etridiazole	E C D	0.32	0.009			0.46	0.01
※ 25 chloroneb		0.40	0.2			0.56	0.2
○ 26 chlorothalonil		1.00	0.006			1.00	0.005
○ 27 propyzamide		1.06	0.01			0.86	0.02
○ 28 chlorthal-dimethyl		1.70	0.008			1.11	0.006
○ 29 captan		1.75	0.01			1.30	0.02
○ 30 isoprothiolane		2.17	0.04			1.44	0.06

1) ○印は平成2年5月、※印は3年7月に暫定基準が設定された農薬。

2) F P D HR-1 カラム : fenitrothionの R. T = 10.82分

DB-1 7カラム : fenitrothionの R. T = 13.42分

3) F T D HR-1 カラム : pendimethalinの R. T = 23.79分

HR-5.2カラム : pendimethalinの R. T = 26.25分

4) E C D HR-1 カラム : chlorothalonilの R. T = 7.84分

DB-1 7カラム : chlorothalonilの R. T = 14.26分

クの上に表示した番号は、表-1の農薬の番号に対応する。

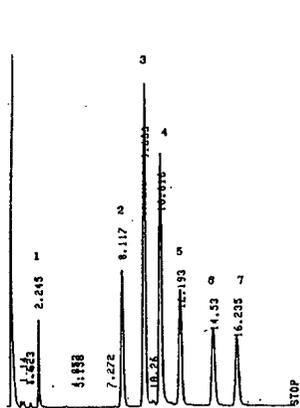


図-1 FPD:HR-1カラム

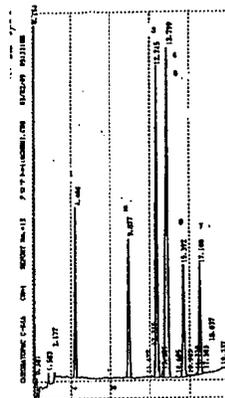


図-2 FPD:DB-17カラム

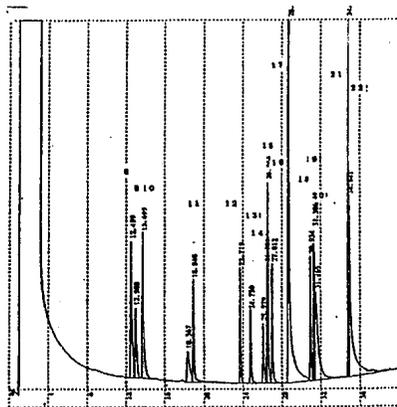


図-3 FTD:HR-1カラム

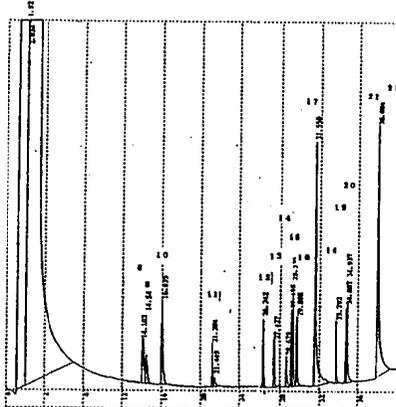


図-4 FTD:HR-52カラム

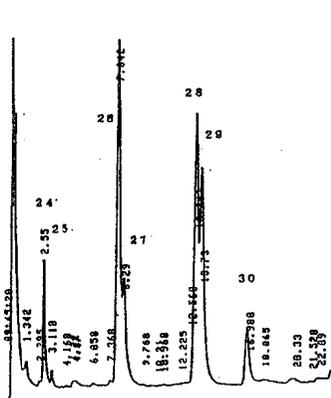


図-5 ECD:HR-1カラム

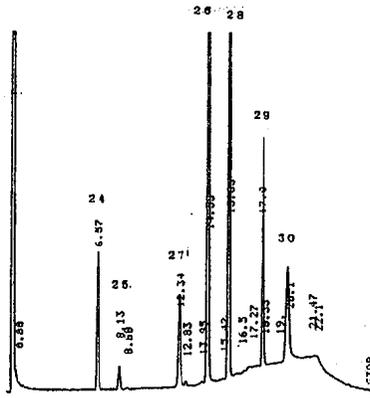


図-6 ECD:DB-17カラム

次に、検出器別に検討した結果を示した。

### 3.1.1 FPD

HR-1カラムでは7種類とも分離できたが、DB-17カラムでは、クロルピリホスとフェニトロチオンのピークが重複し、分離できなかった。

トリクロロホンは、熱分解しやすいため、注入口温度が280℃の場合、こん跡程度のピークしか示さないが、注入口の温度を260℃に下げることにより、他の農薬も同時に測定できた。トリクロロホンのみを注入した場合、トリクロロホンのピークの前にDDVPのピークが出ないことから、トリクロロホンの熱分解はほぼないと考えられる。

### 3.1.2 FTD

イプロジオンとピリダフェンチオンはピークが隣接しており、同定が困難であるが、カラムの種類によりピークの順序が異なる特徴がみられる。

シデュロンはHR-1及びHR-52カラムとも、2本のピークを示すため、標準品に問題があることも考えられ、相対保持時間等は算出しなかった。

ベンスリドは保持時間がきわめて長いいため、表-1の条件ではピークを示さなかった。ベンスリドの場合、長さ10m程度の短いワイドポアカラムを使用し、ベンスリドのみを測定する方法が良いと考えられた。

### 3.1.3 ECD

HR-1カラムの場合、クロロタロニルとプロピザミド、クロロサルージメテルとキャプタンのクロマトグラムは隣接していた。DB-17カラムでは、これらの農薬の分離がきわめて良好であった。

ECDの場合、環境水中の数多くの親電子性化合物にも応答するため、フロリジルカートリッジ等<sup>9)10)</sup>を利用してクリーンアップ操作を実施するこ

とにより、きれいなガスクロマトグラムが得られるため、溶出条件について今後の検討が必要である。

### 3.2 ゴルフ場排水等の調査結果

県内の全ゴルフ場を対象に調査したが、水質に検出された農薬の最大値を表-3に示した。

ゴルフ場内の場内池（調整池を含む）及び排水の水質ともに、環境庁の設定した暫定指導指針値（水道水の暫定水質目標の10倍）をいずれも下まわった。

ゴルフ場の排水に検出された農薬は、殺虫剤3種類（ダイアジノン、トリクロロホン、DDVP）、殺菌剤3種類（プロシミドン、ベンシクロン、フルトラニル）及び除草剤3種類（シマジン、テルブカルブ、クロリダゾン）の延べ9種類であった。

排水水中にトリクロロホンが比較的高く検出されたK地点（0.0141mg/ℓ）では、トリクロロホンの代謝分解物であるDDVP（0.0186mg/ℓ）も同時に検出された。

ゴルフ場周辺の公共用水域に検出された農薬は、殺虫剤1種類（トリクロロホン）、殺菌剤1種類（イソプロチオラン）及び除草剤2種類（シマジン、テルブカルブ）の延べ4種類であった。分析値は、いずれも厚生省の定めた水道水の暫定水質目標を下まわっており、特に問題点は認めなかった。

排水水や周辺公共用水域に検出された農薬の特徴として、比較的、水溶解度（表-3）<sup>11)</sup>が高い共通点がみられた。ゴルフ場に散布された農薬は降雨により、場内池や排水水中の農薬濃度が上昇するという報告<sup>12)13)</sup>があり、晴天が続いている時期と降雨時のゴルフ場排水水が公共用水域に及ぼす影響について、今後の調査が必要である。

表-3 平成2年度に検出した農薬の最大値

単位：mg/ℓ

分類	農薬名	水溶解度 ppm	毒性 区分	魚毒性	水道水の 暫定水質 目標	場内池 (10点)*	排水水 (27点)*	周辺公共用 水域 (25点)*
殺虫剤	ダイアジノン	40	劇 劇 劇	B - s	0.005	0.0001 (1) 0.0107 (1)	0.0004 (1)	0.0004 (1)
	トリクロロホン	15			0.03		0.0141 (1)	
	DDVP	10000			—		0.0186 (1)	
殺菌剤	キャプタン	3.3	普 普 普 普 普	C A B A A	0.3	0.001 (1)	0.008 (1)	0.004 (1)
	プロシミドン	4.5			—		0.005 (1)	
	ベンシクロン	0.5			0.04		—	
	イソプロチオラン	50			0.04		—	
	フルトラニル	9.6			0.2		0.0053 (1)	
除草剤	シマジン	5	普 普 普	A A A	0.003	0.0081 (2)	0.0011 (1)	0.0007 (1) 0.0085 (5)
	テルブカルブ	6~7			0.02		0.0021 (3)	
	クロリダゾン	400			—		0.003 (1)	

注 1) \*印は、延べ調査地点数 2) ( )内は検出された調査地点数  
3) 空欄はND 4) ベンシクロン及びテルブカルブは平成3年7月に追加設定の農薬

#### 4 おわりに

ゴルフ場の排水及び周辺公共用水域について、ゴルフ場使用農薬を今後も継続して監視することは、安全な飲料水源の確保や、魚介類及び水生昆虫等の水生生物の保護のために必要である。

ゴルフ場使用農薬の調査には、数多くの農薬成分の分離にキャピラリーカラムの使用が不可欠である。ガスクロマトグラフ法では、3種類(FPD、FTD、ECD)の検出器により、定性及び定量し、検出された場合、性質の異なる別のカラムにより確認する必要があり、測定に長時間を要している。多成分の定性定量の手段として、GC/MS-SIM法が、ガスクロマトグラフ法に比較して、短時間に測定できるため、平成3年度の調査では、GC/MS法を中心に実施中である。

#### 謝 辞

今回の調査にあたり、採水等にご協力いただいた県公害課水質保全係ならびに各保健所の職員に深く感謝いたします。

#### 参 考 文 献

1) 西島修：農薬検査所報告、22、32～35、36～40

(1982)

- 2) 西島修：農薬検査所報告、24、35～43 (1984)
- 3) 山本優、大内格之ら：札幌市衛研年報、16、178～182 (1989)
- 4) 小林規矩夫、茅野陽子ら：山梨県衛公研年報、33、54～58 (1989)
- 5) 劔持堅志、鷹野洋ら：第25回水質汚濁学会講演集、508～509 (1991)
- 6) 辻正彦、中野武ら：兵庫県公害研究所研究報告、22、45～50 (1990)
- 7) 奥村為男、今村清：水質汚濁研究、14、2、109～122 (1991)
- 8) 小笹康人、飛野敏明：第15回九州衛生公害技術協議会資料、53 (1990)
- 9) 池谷紀代子、小松一裕ら：第11回農薬残留分析研究会要旨集、日本農薬学会、15～20 (1987)
- 10) 山上富貴子、今泉則子ら：第9回農薬残留分析研究会要旨集、日本農薬学会、28～31 (1985)
- 11) 富澤長次郎、上路雅子、腰岡政二編集：1989年版最新農薬データブック、ソフトサイエンス社
- 12) 加藤充哉、塚林裕ら：第25回水質汚濁学会講演集、502 (1991)
- 13) 寺沢潤一、月岡忠、森田昌敏：第24回水質汚濁学会講演集、329 (1990)

# トリクロロエチレン等に係わる水質調査結果

野口辰美・高橋麻里子\*・杉本美喜  
岩切 淳・河野謙一（環境科学部水質科）

## 1 はじめに

宮崎県では、トリクロロエチレン等低沸点有機塩素化合物（以下、トリクロロエチレン等と略す。）の汚染状況を把握することを目的として、昭和59年度から調査を実施している。平成2年度も引き続き事業場排水、水道法で規制を受けない飲料水供給施設及び共同給水施設等（以下、飲料水供給施設等と略す。）について調査を実施したので、過去の調査結果も含め、その概要を報告する。

## 2 調査方法

トリクロロエチレン等を使用している事業場、飲料水供給施設の内から無作為に抽出した事業場排水、飲料水について、トリクロロエチレン(TCE)、テトラクロロエチレン(PCE)、1,1,1-トリクロロエタン(MC)の調査を行った。分析方法は、日本工業規格、用水・排水中の低分子量ハロゲン化炭化水素試験方法(JIS K 0125)による溶媒抽出法により行った。

## 3 調査結果

### 3.1 平成2年度の調査結果

#### 3.1.1 事業場排水

クリーニング業71事業場72検体、その他の事業場23事業場23検体の排水を調査した結果を表-1に示した。トリクロロエチレン等が検出された検体数の割合は、14～55%であった。排水基準又は管理目標（表-2）を超過した割合は、PCEが最も多く9.5%、次にMC 1.1%、TCE 0%であった。

#### 3.1.2 飲料水供給施設等

飲料水55検体を調査した結果を表-3に示した。トリクロロエチレン等3物質はいずれも検出されなかった。

表-1 平成2年度事業場排水測定結果

項目	事業場数	検体数	検出検体数 (検出率%)	排水基準 超過検体数 (超過率%)
TCE	94	95	13 (14%)	0 (0.0%)
PCE	94	95	52 (55%)	9 (9.5%)
MC	94	95	39 (41%)	1 (1.1%)

MCについては管理目標

表-2 公共用水域への排出に関する排水基準

TCE	0.3 mg / ℓ
PCE	0.1 mg / ℓ
MC	3 mg / ℓ

MCについては管理目標

表-3 平成2年度飲用井戸水等測定結果

項目	検体数	検出検体数
TCE	55	0
PCE	55	0
MC	55	0

### 3.2 過去5年間における調査結果

昭和61年度から平成2年度までの5年間におけるトリクロロエチレン等について、クリーニング業、その他の事業場についての排出状況及び飲料水供給施設等の汚染状況を比較検討した。

#### 3.2.1 クリーニング業における排出状況

クリーニング業における排出状況を表-4に示した。PCEが検出率、超過率ともTCE、MCを大きく上回っており、ドライクリーニングでPCEがよく使用されていることと一致する。調査対象となった事業場、調査時期が同一でないため、5年間の比較は単純にはできないが、排水基準等の超過率は、PCEについては減少傾向、MCについては63、1年度に比べ2年度は低くなっており、TCEは0%であった。

\* 現 宮崎県立延岡病院薬剤科

表-4 クリーニング業における排出状況

項目	調査年度	61	62	63	1	2
TCE	検出率%	14	38	11	14	11
	超過率%	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
PCE	検出率%	81	84	67	73	67
	超過率%	33	49	30	27	13
MC	検出率%	31	24	22	27	46
	超過率%	0.0	0.0	3.7	4.5	1.4

3.2.2 その他の事業場における排出状況

その他の事業場における排出状況を表-5に示した。3物質の検出率を比較すると、MC、TCEは同等の検出率、PCEは2者に比べ若干低く、県内のその他の事業場で3物質をMC、TCE、PCEの順に多く使用していることとほぼ一致する。調査対象となった事業場、調査時期が同一でなく、業種別の構成比率も異なるため、5年間の比較は単純にはできないが、排水基準等の超過率は、TCEについては63年度をピークに減少、MCについては62年度に超過検体を認めたが、それ以降は認められなかった。PCEについては超過検体はなかった。

3.2.3 飲料水供給施設等汚染状況

昭和61年度から平成2年度の5年間、トリクロロエチレン等3物質は、いずれも検出されなかった。

表-5 その他の事業場における排出状況

項目	調査年度	61	62	63	1	2
TCE	検出率%	33	17	15	23	22
	超過率%	0.0	2.1	5.1	2.3	0.0
PCE	検出率%	22	6.3	7.7	11	17
	超過率%	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
MC	検出率%	44	17	13	20	26
	超過率%	0.0	2.1	0.0	0.0	0.0

その他の事業場：繊維製品、化学工業、石油石炭製品、ゴム製品、窯業製品、金属製品、電気機械器具、輸送用機械器具、精密機械器具、水道業、廃棄物処理業

4 おわりに

昭和61年度から平成2年度に調査した結果を見ると、事業場排水におけるトリクロロエチレン等の排水基準等の超過率は減少傾向にあった。しかしながら排水からのトリクロロエチレン等の検出率は依然として高く、環境への汚染が懸念される。今後とも排水基準等の遵守を徹底させるために、事業場排水の汚染状況調査並びに適切な行政指導を実施する事が必要である。

今後の課題として、調査方法（調査時期、回数、事業場の選定等）の検討を行い、より詳細な調査を実施することが必要である。

参考文献

- 1) 柏田雅徳他：未規制化学物質実態調査－低沸点有機塩素化合物－、宮崎県公害センター年報、第10号（昭和60年度・61年度）、72-74
- 2) 杉本美喜他：未規制化学物質実態調査（第2報）－低沸点有機化合物－、宮崎県公害センター年報、第11号（昭和62年度・63年度）、71-74
- 3) 高橋麻里子他：トリクロロエチレン等に係わる調査結果、宮崎県衛生環境研究所年報、第1号（平成元年度）、111-112

# クロルデンによる井戸水汚染の追跡調査

岩切 淳・杉本美喜（環境科学部）  
野崎祐司・平田泰久・前田武（衛生化学部）

## 1 はじめに

昭和62年5月延岡市稲葉崎町で白蟻防除作業が行われた後、井戸水がクロルデンに汚染される事例が発生した。このことについて、前報<sup>1)</sup>に掲載しているとおりであるが、今回その後の追跡調査を行ったので報告する。

## 2 分析方法等

採水井戸は、図-1のとおりであり、分析方法は、前報<sup>1)</sup>のとおり行った。

## 3 調査結果

事故発生（昭和62年5月）から平成3年3月までの経年変化を片対数で図-2に示した。

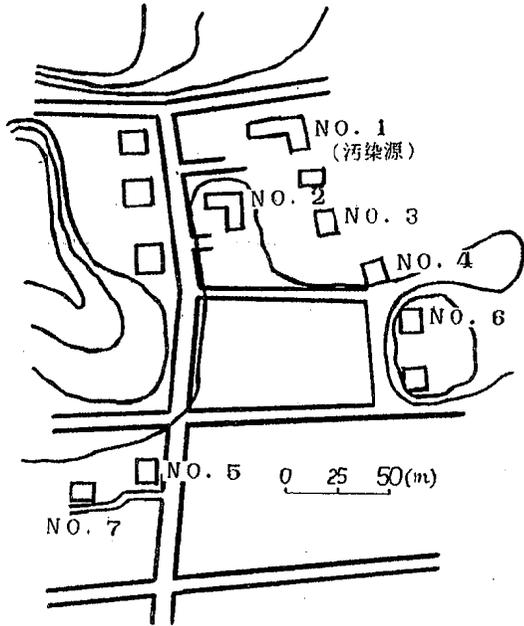


図-1 採水井戸の位置関係

測定値はトータルクロルデンとして示した  
No.5、No.6、No.7の井戸は  
いずれもND  
(検出限界、0.01  $\mu\text{g}/\ell$ )

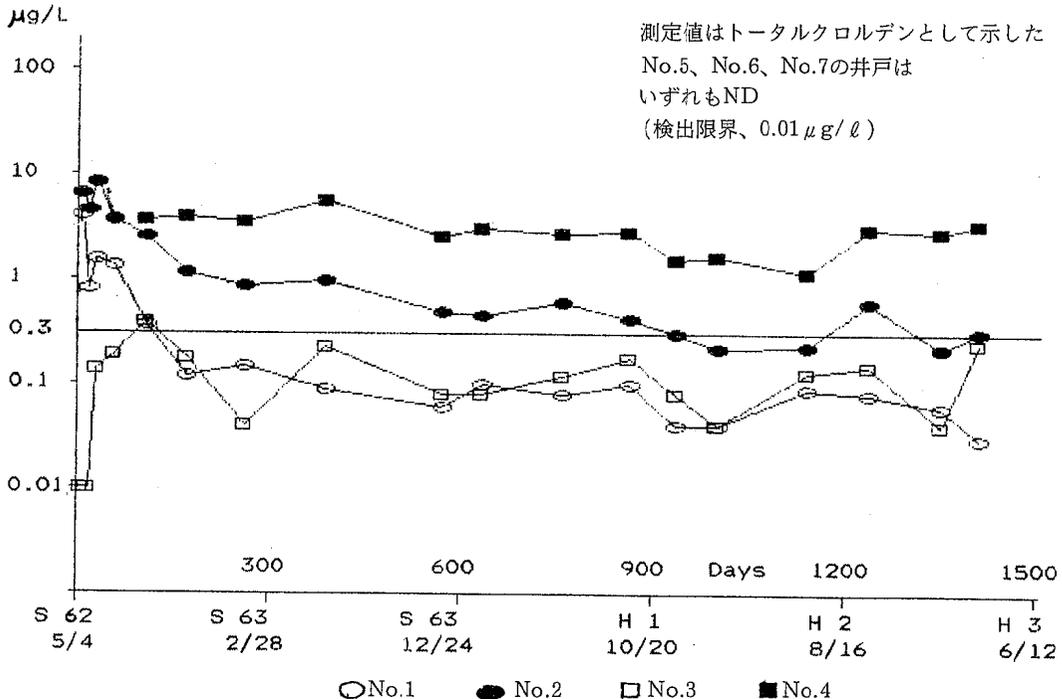


図-2 クロルデンの測定値

#### 4 ま と め

この地区は、谷あいの傾斜地にあり、頁岩の風化した堆積土壌で、浅井戸である。

過去4カ年のデータにより、全体として上手の井戸から下手の井戸に汚染が進行していく傾向がみられた。

最も上手にある散布現場のNo.1は、他の井戸に比べ減少が早く、4カ月後にWHOガイドラインである $0.3 \mu\text{g}/\ell$ を下まわった。4カ年経過した現在では、検出限界に近い $0.03 \mu\text{g}/\ell$ である。

No.1より下手のNo.2は、ガイドライン値以下になるまでに2年半を要した。その後、 $0.3 \mu\text{g}/\ell$ を上下している現状にある。

No.3は、事故1カ月後位から検出され、 $0.1 \sim 0.4 \mu\text{g}/\ell$ の範囲で推移している。

No.4は、水位が高く滞留していることから、他の井戸と異なり、 $1.1 \sim 5.7 \mu\text{g}/\ell$ の範囲にあり、現在（平成3年3月）でも、ガイドライン値の10倍ほどの $3.4 \mu\text{g}/\ell$ が検出されている。

クロルデンは難分解性で、また残留性も高い化学物

質であるので、今後も定期的な追跡調査を行ってきたい。

#### 参 考 文 献

- 1) 野崎祐司 他：最近のクロルデンによる井戸水汚染事例について、宮崎県衛生研究所報、29, 54～56 (1987)
- 2) 斉藤和洋：白アリ駆除剤のクロルデンによる地下水及び井戸水の汚染について、宮崎県衛生研究所報、24, 34～39 (1982)
- 3) 益田宣弘 他：井戸水中のクロルデンの分析、長崎県衛公研報、28, 161～163 (1986)
- 4) 稲本信隆：鹿児島県内河川のクロルデン類による汚染状況について、第16回九州衛生公害技術協議会資料、48 (1990)
- 5) 斉藤和洋 他：環境および魚介中のクロルデンについて、宮崎県衛生研究所報、25, 29～34 (1983)

宮崎県衛生環境研究所年報(第2号)

---

平成30年12月

編集・発行 宮崎県衛生環境研究所  
〒889-21

宮崎市学園木花台西2丁目3の2

TEL 宮崎 (0985) 58-1410

FAX 宮崎 (0985) 58-0930

印刷所 有限会社 大淀総合印刷  
〒880

宮崎市祇園2丁目92番2

TEL 宮崎 (0985) 29-6655

FAX 宮崎 (0985) 29-6643

