

茨城県衛生研究所年報

第 2 1 号

1 9 8 3



茨城県衛生研究所

目 次

第1章 昭和57年度事務事業概要	
I 庶務部	1
II 微生物部	4
III 環境保健部	6
IV 食品薬品部	6
V 生活環境部	7
第2章 昭和57年度調査研究報告	8
◦ 日本脳炎感染源調査	8
Epidemiological Survey on Japanese Encephalitis Virus Ibaraki Prefecture 1982.	
菊田 益雄・根本 治育・松木 和男・村田 輝喜	
◦ 茨城県におけるインフルエンザの流行について	10
Epidemiological Studies on Influenza in Ibaraki Prefecture - 1983	
菊田 益雄・根本 治育・松木 和男・村田 輝喜	
◦ 昭和57年度風疹感受性調査	13
Sero-epidemiological Survey of Rubella Virus in Ibaraki Prefecture of 1982.	
根本 治育・菊田 益雄・松木 和男・村田 輝喜	
◦ DETERMINATION OF TRIMETHYLSELENONIUM ION IN URINE BY GRAPHITE FURNACE ATOMIC ABSORPTION SPECTROMETRY.	17
Noritaka OYAMADA	
◦ VANADIUM CONTENT in ENVIRONMENTAL and BIOLOGICAL SAMPLES	23
Seiichi UENO	

◦ 納豆中の雑菌について 30

Studies on Saprophyte of natto.

掛札しげ子・山本 和則・神谷 隆久・小室 道彦・村上りつ子・高井 勝美

◦ 小中学生の糞便より分離されたウエルシュ菌について 34

Studies on clostridium perfringens isolated from feces of school children and high school student.

神谷 隆久・山本 和則・小室 道彦・掛札しげ子・村上りつ子・高井 勝美

◦ 茨城県の地下水の衛生化学的研究 (第11報) 38

Hygienic Chemical Studies of Groundwater in Ibaraki Prefecture (IX)
Groundwater in South East Area of Ibaraki Prefecture.

仲田 典子・笹本 和博・根本 雄二・鈴木八重子・久保田京子・勝村 馨 (現在, 茨城県薬剤師会)・斉藤 護 (現在, 土浦保健所)

◦ 原水種別による水道水中トリハロメタンの消長 48

Triharomethane formatin and migration in drinking Waters.

笹本 和博・鈴木八重子・久保田京子・勝村 馨 (現在 茨城県薬剤師会)・斉藤 護 (現在 土浦保健所)

第3章 他誌掲載論文要約 52

◦ 炭素炉原子吸光法による人尿中トリメチルセノニウムイオンの定量法

小山田則孝・石崎 睦雄

第 1 章 昭和 57 年度事務事業概要

I 庶務部

1. 機構

庶務部 (部長 高野 武)	食品薬品部 (部長 高井 勝美)
微生物部 (部長 村田 輝喜)	生活環境部 (部長 黒沢 勝則)
環境保健部 (部長 石崎 睦雄)	首席研究員 (勝村 馨)

2. 職員の配置

職 種 部 名	医師	薬剤師	獣医師	化学	農 芸 化 学	臨床検 査技師	その他の 技術史員	技 術 補 助	事務職	労務職	計
所 長	1										1
庶 務 部							1		3	1	5
微 生 物 部			1			3					4
環 境 保 健		3		1							4
食 品 薬 品		1	3		2						6
生 活 環 境		4						2			6
首 席 研 究 員		1									1
計	1	9	4	1	2	3	1	2	3	1	27

3. 人事異動

	職 名	氏 名	摘 要
57. 6. 1	事務史員	関 忠 雄	県北総合事務所総務課課長補佐に補する (転出)
"	"	高 野 武	衛生研究所庶務部長に補する (転入)
"	技術史員	石 川 亮	大宮保健所衛生課長に補する (転出)
"	"	村 田 輝 喜	衛生研究所微生物部長に補する (転入)
"	"	村 松 良 尚	県南食肉衛生検査所係長に補する (転出)
"	"	神 谷 隆 久	衛生研究所勤務を命ずる (転入)
"	"	斉 藤 護	土浦保健所勤務を命ずる (転出)
"	"	根 本 雄 二	衛生研究所勤務を命ずる (転入)
"	"	仲 田 典 子	消費生活センター商品試験課長兼務を解く
"	"	高 井 勝 美	首席研究員兼食品薬品部長に補する (昇格)
57. 6. 1	"	石 崎 睦 雄	衛生研究所主任研究員に補する (昇格)
"	"	菊 田 益 雄	衛生研究所主任研究員に補する (昇格)
57. 8. 1	"	豊 田 元 雄	願により本職を免ずる (退職)

3. 予算及び決算

1. 収入

款 項 目 節	調 定 額	収 入 済 額	収 入 未 済 額
使用料及び手数料	9,678,015	9,678,015	0
使 用 料	2,575	2,575	0
土 地 使 用 料	2,575	2,575	0
手 数 料	9,675,440	9,675,440	0
衛 生 研 究 所	9,670,740	9,670,740	0
証 明	4,700	4,700	0
財 産 収 入	8,000	8,000	0
物 品 売 払 収 入	8,000	8,000	0
船 舶 自 動 車	8,000	8,000	0
諸 収 入	2,1317	2,1317	0
雑 収 入	2,1317	2,1317	0

2. 支出

款 項 目 節	予 算 現 額	支 出 済 額	不 用 額
総 務 費	777,343	777,343	0
総 務 管 理 費	777,343	777,343	0
一 般 管 理 費	114,343	114,343	0
旅 費	114,343	114,343	0
財 産 管 理 費	663,000	663,000	0
修 繕 費	663,000	663,000	0
衛 生 費	4,820,750	4,818,940.2	1,134.8
保 健 所 費	2,400	2,398.3	17
保 健 所 管 理 費	2,400	2,398.3	17
旅 費	2,400	2,398.3	17
保 健 指 導 費	50,000	50,000	0
備 品 購 入 費	50,000	50,000	0
医 薬 費	1,513,000	1,512,875	125
薬 事 費	1,513,000	1,512,875	125
旅 費	383,000	382,875	125
需 用 費	770,000	770,000	0
役 務 費	60,000	60,000	0
備 品 購 入 費	300,000	300,000	0
環 境 衛 生 費	4,774,000	4,773,355	645
食 品 衛 生 指 導 費	4,674,000	4,673,355	645
賃 費	82,000	81,400	600
旅 費	372,000	371,955	45

需 要 費	4,220,000	4,220,000	0
水道施設指導費	100,000	100,000	0
需 用 費	100,000	100,000	0
公 衆 衛 生 費	41,889,750	41,879,189	10,561
結 核 對 策 費	20,000	19,927	73
旅 費	20,000	19,927	73
予 防 費	3,183,000	3,182,977	23
旅 費	217,000	216,977	23
需 用 費	466,000	466,000	0
備 品 購 入 費	2,500,000	2,500,000	0
衛 生 研 究 所 費	38,686,750	38,676,285	10,465
兒 童 手 當	60,000	60,000	0
共 濟 費	60,000	50,281	9,719
賃 金	3,960,000	3,959,660	340
報 償 費	10,000	10,000	0
旅 費	3,023,000	3,022,794	206
需 用 費	19,865,000	19,865,000	0
役 務 費	808,750	808,750	0
委 託 料	380,000	380,000	0
備 品 購 入 費	10,452,000	10,452,000	0
負 担 金 費	30,000	30,000	0
公 課 費	38,000	37,800	200
農 林 水 產 事 業 費	1,739,881	1,739,881	0
水 產 事 業 費	1,739,881	1,739,881	0
水 產 試 驗 場 費	1,739,881	1,739,881	0
旅 費	39,881	39,881	0
需 用 費	1,350,000	1,350,000	0
備 品 購 入 費	350,000	350,000	0
教 育 費	20,000	20,000	0
保 健 體 育 費	20,000	20,000	0
需 用 費	20,000	20,000	0
流域下水道事業費(特会)	4,900,000	4,899,848	152
常南流域下水道管理費	4,900,000	4,899,848	152
管 理 費	4,900,000	4,899,848	152
旅 費	805,000	804,848	152
需 用 費	4,095,000	4,095,000	0
合 計	55,637,974	55,626,474	11,500

II 微生物部

1. 業務の内容

微生物部は、次の各項目について試験検査及び調査研究並びにこれらに関する研修及び指導をおこなっている。

- 1) 細菌性感染症の検査及び調査研究
- 2) ウイルス性感染症の検査及び調査研究
- 3) 伝染病流行予測調査
- 4) 感染症サーベイランス事業

2. 試験検査の内容

昭和57年度試験検査実施状況（別表）のとおり依頼及び行政試験を実施した。

1) 行政試験検査

(1) 細菌分離同定検査

保健所からの検査依頼82件について、細菌の分離同定をおこなった。

(2) ウイルス分離同定検査

保健所及び病院からの検査依頼によるウイルスについて374件の分離同定をおこなった。

(3) ウイルス血清反応検査

保健所からの検査依頼による1545件について血清反応検査をおこなった。

(4) その他の血清反応検査

保健所等公的機関からの検査依頼による72件の梅毒血清反応検査を実施した。

(5) 伝染病流行予測調査

昭和57年度伝染病流行予測調査について、衛生部長の依頼によって次のとおり実施した。

i) 日本脳炎感染源調査

7月22日から9月30日までの期間のうち、7月2回、8月3回及び9月3回の計8回について、水戸と畜場に集荷された生後5月から8月までの県内産の豚を検査し毎回20頭採血して、豚血清中の日本脳炎赤血球凝集抑制抗体価（HI抗体価）の測定190件（うち2ME 感受性抗体価30件）を実施した。

ii) インフルエンザ感染源調査

昭和57年4月から6月までの3月間及び昭和57年10月から58年3月までの6月間において、陸上自衛隊勝田駐とん部隊及び日立市内医院から、ウガイ液72件及び血液（急性期、回復期）144件を採取して、ウイルス分離と赤血球凝集抑制抗体価（HI抗体価）を測定した。

iii) 風疹感受性調査

昭和57年7月から9月までの期間に水戸保健所管内の男性及び女性（0歳から30歳以上）について、血清中のHI抗体価を測定した。

(6) 感染症サーベイランス事業

感染症に対する監視体制が設置され、その検査定点医療機関（22定点）からの検体205件について、細菌及びウイルスの分離同定をおこなった。

2) 依頼試験検査

(1) 細菌性感染症

病院、総合健診協会等から45件のサルモネラ及び腸内細菌の同定依頼があった。

(2) ウイルス性感染症

市町村等から風疹及びHBs抗原の検査依頼があり323件のHI抗体価及び抗原価の測定をおこなった。

(3) その他の血清反応検査

少年鑑別所から312件の梅毒血清反応検査の依頼があった。

3. 調査研究

- 1) インフルエンザの流行状況及びウイルスの変異について
- 2) 県内における風疹感染者の実態について
- 3) 日本脳炎感染源調査
- 4) 感染症サーベイランスにおける病原微生物の検索

4. 研修指導

- 1) 臨床ウイルス談会に参加研修
- 2) 衛生微生物協議会に参加研修
- 3) 保健所検査技師の技術指導
- 4) 看護専門学生に対し、病原微生物における研修を実施した。

昭和57年度試験検査実施状況

区 分 項 目		依頼(A)	行 政				合 計 (A+B)	備 考	
			サーベイ ラ ン ス	流行予測	調査研究	そ の 他			小 計 (B)
細菌 分離同定	サルモネラ	41				44	44	85	
	赤 痢					4	4	4	
	腸内細菌	4				5	5	9	
	結 核					20	20	20	
	溶 連 菌								
	百日咳菌		7				7	7	
	そ の 他					2	2	2	
	小 計	45	7			75	82	127	
ウイルス 分離同定	インフルエンザ			72	102		174	174	
	麻疹様疾患		6				6	6	
	風 疹		27				27	27	
	水 痘		15				15	15	
	流行性耳下腺炎		24				24	24	
	手足口病		12				12	12	
	突発性発疹		3				3	3	
	ヘルパンギーナ		4				4	4	
	咽頭結膜炎		1				1	1	
	流行性角結膜炎		46				46	46	
	急性出血性結膜炎		59				59	59	
	髄 膜 炎		1				1	1	
	その他のウイルス					2	2	2	
	小 計		198	72	102	2	374	374	
ウイルス 血清反応	日本脳炎			190	263	1	454	454	患者含む (日脳)
	インフルエンザ			144	196		340	340	
	風 疹	322		250	481		731	1053	
	その他のウイルス	1				20	20	21	
	小 計	323		584	940	21	1545	1868	
その他の 血清反応	ガラス板法	308				5	5	313	
	緒方法(定性)	1				52	52	53	
	緒方法(定量)	2				3	3	5	
	TPHA(定性)	1				10	10	11	
	TPHA(定量)					2	2	2	
	小 量	312				72	72	384	
合 計		693	205	656	1042	170	2073	2753	

Ⅲ 環境保健部

1. 業務の内容

環境保健部は、対象を次のものにおいて試験検査（行政試験と一般依頼試験）、調査研究を行った。

- 1) 生体中化学物質
- 2) 家庭用品中有害物質
- 3) 衛生動物，衛生害虫
- 4) 環境試料中有害物質

2. 試験検査実施の概況

試験検査の実施状況は次表に示した。特に衛生行政遂行に関係が深い行政試験検査の概況は次のとおりである。

1) 家庭用品中有害物質検査

薬務課から送付された家庭用品 130 件について実施した。

2) 衛生害虫同定試験

保健所から送付されたダニ類 2 件について実施した。

3. 調査研究

1) 調査研究

- (1) 環境中セレンの化学形態別分布調査
- (2) 環境試料中の化学物質の変異原性調査
- (3) 有害家庭用品の使用調査

2) 学会等口頭発表

(1) ガスクロマトグラフィーによる食品中臭素酸の簡易分析法，日本食品衛生学会第44回学術講演会，（昭和57年11月）

(2) 人体臓器中の水銀濃度に関する調査研究，水俣病総括研究会（昭和58年2月）

3) 論文発表

炭素炉原子吸光法による人尿中トリメチルセレンニウムイオンの定量法，産業医学，Vol 24，320-321，1982

昭和57年度試験検査実施状況

種別	区分	依頼調査	行政検査
臨床化学検査		10	0
家庭用品有害物		0	130
衛生害虫		0	2

Ⅳ 食品薬品部

1. 業務内容

食品薬品部は、次の項目について試験検査（行政検査及び依頼検査）、調査研究をおこない、研修指導は主として保健所食品衛生監視員，環境衛生監視員を対象として実施した。

1) 食品試験検査

- (1) 食品中の食品添加物
- (2) 食品中の有害化学物質
- (3) 食品中の微生物
- (4) 容器包装規格基準検査
- (5) 貝類の毒化状況
- (6) 食中毒

2) 医薬品等試験検査

- (1) 日本薬局法収載医薬品
- (2) 一般医薬品
- (3) 医療用具，化粧品

2. 試験検査実施の概況

試験検査の実施概況は、次表のとおりである。特に衛政行政の遂行に関連の深い行政検査の状況は、次のとおりである。

1) 食品中の着色料及び添加物試験

魚肉ねり製品，生ハム，朝鮮漬，甘藷等19件の検査を実施。

2) 残留農薬試験

前年度に引続き県内野菜，果実等について50件の検査を実施。

3) PCB試験

県内で水揚げされる魚介類30件について検査を実施。

4) 食品の規格基準試験

前年度に引続き学校給食用牛乳26件，牛乳，加工乳規格試験7件について，試験検査を実施。

5) 畜水産食品中の残留抗菌性物質の試験検査

県内生産地より豚肉，鶏肉，鶏卵について150件検査を実施。

6) 重要貝類毒化点検調査

茨城県沿岸より採捕したムラサキガイ，コタマガイについて，下痢性貝毒61件，痲痺性貝毒49件について，試験検査を実施。

7) 弁当，惣菜類の試験

県内18保健所，当該製造所より収去した弁当，惣菜類54件について検査を実施。

8) 食品中の異物，寄生虫の検査

牛乳容器，乾燥いも，ひらめ等3件について，検査同意を実施。

9) その他食品中の細菌，カビ，酵母の試験検査

鮭切身，サーモン切身，生ハム，かえりちりめん等20件について試験検査を実施。

10) 食中毒検査

(1) 細菌性食中毒

発生件数18件，検体受理件数219件（原因食品，吐物，患者便，血液，増菌培地等）で摂食者数1,407名，患者数204名，原因物質は，ブドウ球菌，腸炎ピブリオ，ウエルシュ，エロモナスであった。

(2) 化学性食中毒

クサウラベニタケによる食中毒で摂食者数2名，患者数2名。

11) 医薬品等の検査

日局アスピリン錠17件，ウロキナーゼ注射液11件，キシリトール注射液2件，薬用マムシ酒オールド1件について試験検査を実施。

12) 医療用具等の検査

県内販売のラテックス製コンドーム18件について，試験検査を実施。

3. 研修・指導

保健所に勤務する食品衛生監視員，環境衛生監視員，及び試験検査機関の技術者に対して，それぞれ必要な技術指導を実施した。

4. 調査・研究

- 1) 小，中学生の糞便より分離されたウエルシュ菌について
- 2) 納豆中の雑菌について

V 生活環境部

1. 業務の内容

生活環境部は，対象を次のものにおいて試験検査（行政試験と一般依頼試験），調査研究を行い，試験検査指導は主として保健所職員を対象として実施した。

- 1) 水道水，井戸水等飲料水
- 2) 河川水，底質
- 3) 温泉水
- 4) 清掃施設の機能，放流水

2. 試験検査実施の概況

試験検査の実施状況は次表のとおりである。特に衛生行政遂行に関係が深い行政試験検査の概況は次のとおりである。

1) 利根川の水質及び底質試験

常南広域下水道処理水の利根川放流による影響調査のため県土木部下水道課からの依頼により毎月1回5地点について実施している。本年度は，河川水88件，底質18件について実施した。利根川浄化センターの処理放流水についても同センターとの試験検査クロスチェックをかねて検査を実施している。

3. 研修指導

保健所に勤務する環境衛生監視員，県内水道部の技術職員に対し，随時必要な技術指導をした。

4. 調査研究

- 1) 茨城県の地下水の衛生化学的研究（第11報）
- 2) 水道水中のトリハロメタンの経時変化に関する研究

昭和57年度試験検査の実施状況

	依 頼	行 政	計
食肉製品	253		253
乳，乳製品	30	33	63
納 豆	272		272
一般食品	14	227	241
食品化学	299	209	508
食 中 毒		221	221
医 薬 品	12	31	43
医療器具	173	18	191
計	1,053	739	1,792

種別	項 目	依 頼	行 政	計
飲料水等試験		24		24
河川水試験		27	88	115
清掃施設関係試験		278		278
下水試験			12	12
温泉分析試験		3		3
計		332	100	432

第 2 章 昭和 57 年度調査研究報告

日本脳炎感染源調査

菊田 益雄・根本 治育・松木 和男・村田 輝喜
(茨城県衛生研究所)

Epidemiological Survey on Japanese Encephalitis Virus Ibaraki prefecture .

Masuo KIKUTA, Haruyasu NEMOTO, Kazuo MATSUKI and
Teruyoshi MURATA.
Ibaraki Prefectural Institute of Health.

I はじめに

伝染病流行予測事業の一環で日本脳炎ウイルスの浸淫度を示すといわれる豚の血清中の抗体を調査し、今後の流行を推定する資料とする目的で感染源調査を実施してきているが、本報では茨城県における昭和57年度の調査結果について報告する。

昭和57年7月中旬～10月の各旬、合計10回

2) 調査対象

水戸と畜場に集まる県内産の生後5～8カ月の豚、毎回30頭、合計300頭

3) 調査項目

豚血清中の赤血球凝集抑制抗体価(HI価)を測定し、1:40以上のHI価を示す検体については、これが新鮮感染かどうかを判定するため2メルカプトエタノール(2ME)感受性抗体を測定した。

II 調査方法

1) 調査時期及び回数

表1 昭和57年度と畜場豚の日本脳炎ウイルスに対する抗体の検出状況(水戸と畜場)

回数	採血 月日	検査 頭数	H I 抗 体 価									HI 試験		2 ME 試験			
			1:10	1:20	1:40	1:80	1:160	1:320	1:640	1:128	陽性	%	検査数	陽性	%		
1	57. 7.22	30	30									0					
2	7.30	30	29		1							1	3.3	1	0		
3	8.10	30	30									0					
4	8.19	30	30									0					
5	8.25	30	19		2	2	3	1	2	1		11	36.7	9	7	77.8	
6	9. 8	30	3	1			1	9	13	3		27	90.0	26	15	57.7	
7	9.17	30					2	11	12	4	1	30	100	30	3	10.0	
8	9.30	30					5	4	16	5		30	100	30	1	3.3	
9	10.14	30					1	6	18	4	1	30	100	30	0		
10	10.26	30	3			1	9	14	2	1		27	90.0	27	1	3.7	
計		300	144	1	2	4	21	45	63	18	2	156	52.0	153	27	17.6	

厚生省、流行予測調査における基準件数では7月中旬から9月下旬までの各旬、毎回20頭、合計160頭となっている。

表2 土浦保健所管内において発生した患者の抗体検査結果

氏名	年齢	性別	検体採取月日	抗原名	H I 抗体価		2 ME感受性
					対照	2 ME処理	
[REDACTED]	43	男	57. 10. 16 (第19病日)	予研中山株 JaGAro株	1:5120	1:2560	(-)
					1:5120	1:2560	(-)

Ⅲ 検査方法

厚生省伝染病流行予測調査検査術式に基づき、抗原は武田薬品KK, JaGAro株乾燥抗原, 血球はガチョウ赤血球を使用した。

Ⅳ 検査成績

茨城県の昭和57年の調査結果は表1のとおりで、7月下旬の検査でH I価1:40の1頭が検出されたが、その後8月上, 中旬の2回は陽性数0であった。8月下旬の第5回採血で36.7%の陽性率となり、9月上旬から50%を越えて日本脳炎ウイルス汚染推定地区となった。表の如く8月下旬から9月中旬にかけて2 ME感受性抗体が高率にみられていることから8月中旬からこの時期にかけてウイルス散布の最盛期であったものと考えられます。人の患者発生では9月末に土浦保健所管内において1名確認された。この患者についての抗体検査の結果は表2のとおりで、発生後19日目の血液が採取されたが、予研中山株, JaGAro株共に1:5120のH I価を示しており、2 ME処理でも概に1:2560であった。幸い予後良好で社会復帰しているとのことである。

Ⅴ 考察

日本脳炎罹患数を全国的にみると、昭和20年代から30年代に最も多発がみられ、昭和46年に138人の発生以後10年間は2桁代の発生になっている。47年以後西日本を中心に低迷が続けていた患者発生は、53年には真性患者75名と多発の兆しをみせ、広島県、岡山県等では日本脳炎発生の兆候ありとの情報を流し県民に対し注意呼びかけを行っている。

茨城県においては昭和42年の13名真性患者発生

以後は43年から46年まで毎年数名の発生をみたのみで、47年に1名の患者が確認されて以後56年までの9年間は患者発生0であった。

53年同期の豚の抗体陽性率と同様今回も50%以上の陽性率で日本脳炎ウイルス汚染推定地区となり、しかも患者発生が確認されているところから今後もワクチン接種率の向上、環境衛生の向上等も含めて日本脳炎に対する監察を続けることが重要であると考えられます。

Ⅵ まとめ

昭和57年度茨城県における日本脳炎感染源調査において、7月~10月の間に300頭の豚及び人の患者1名から採血し、H I抗体検査を実施して次の様な結果を得た。

1) 9月上旬に豚のH I抗体陽性率が50%を越え、日本脳炎ウイルス汚染推定地区となった。

2) 2 MEを感受抗体では8月下旬から9月中旬にかけて高率にみられ、この時期がウイルス散布の最盛期であったものと考えられる。

3) 9月末に1名の患者発生がみられ、H I価1:5120の高い抗体価であった。

主要文献

- 1) 厚生省：伝染病流行予測調査報告書 昭和56年度
- 2) " : " 検査術式 " 53 "
- 3) " : 全国日本脳炎情報 " 53 "
- 4) " : " " 57 "
- 5) 茨城県：茨城県衛生統計年報 32 " 56 "
- 6) 菊田ほか：茨城衛研年報 17, 13 1979
- 7) " : " 18, 15 1980
- 8) " : " 19, 11 1981
- 9) " : " 20, 16 1982

茨城県におけるインフルエンザの流行について

菊田 益雄, 根本 治育, 松木 和男, 村田 輝喜
(茨城県衛生研究所)

Epidemiological Studies on Influenza in Ibaraki Prefecture 1983.

Masuo KIKUTA, Haruyasu NEMOTO, Kazuo MATSUKI and
Teruyoshi MURATA.
Ibaraki Prefectural Institute of Health.

I はじめに

1977年頃から全国各地でA/H₃N₂(ソ連型), A/H₃N₂(香港型), B型の3種類のウイルスによる流行がみられるようになり, これが1981年まで続いた。20年ぶりに再来したA/H₁N₁型は約5年間各地で流行をくり返したが, 1982年にはわずかな発生となり代ってB型が主流行を占めた。1983年にはA/H₃N₂型が全国で流行し, 単一種類のウイルスによる流行状況となっている。茨城県においても前流行期のB型に代り1983年1月~2月の流行ではA/H₃N₂型のみが確認されたが, 本報ではこの流行時における検査状況について報告する。

II 検査方法

インフルエンザ様疾患集団発生時の児童生徒から, うがい液, 急・回復期の血液を採取し, ウイルス分離は, ふ化鶏卵法, 一部MDC K細胞を併用, 血清検査は赤血球凝集抑制抗体価(HI価)を測定した。

抗原は下記のものを使用した。

ワクチン株	衛研分離株
A/熊本/37/79H ₁ N ₁	A/茨城/3/83H ₃ N ₂
A/新潟/102/81H ₃ N ₂	B/茨城/2/82
B/Singapore/222/79	

III 検査対象

内原町	妻里小学校	10名
下館市	西方いずみ幼	10名(うがい液のみ)
"	聖母幼稚園	4名(")
桜村	吾妻幼稚園	6名(")
"	竹園東幼稚園	9名(")

桜村	桜南幼稚園	8名(")
七会村	七会村立幼稚園	12名(")
十王町	十王中学校	13名
日立市	塙山小学校	9名
岩井市	七郷幼稚園	6名(うがい液のみ)
石岡市	志筑小学校	10名
常陸太田市	(散発)	7名
合計12集団		104名

IV 検査成績

今流行期の集団発生初発は1983年1月中旬で, 続いて表1の如く2月中旬頃までの約1カ月間に集中したようである。また幼稚園等の低年齢層の発生が多くみられた。検査結果は検体採取のあった12集団中10集団からA/H₃N₂(香港型)ウイルスが合計27株分離された。採血のあった5集団の抗体検査の結果は表1, 図1の如くで, 43名中ワクチン株A/新潟/102/81H₃N₂で20名, 今回流行の衛研分離株A/茨城/3/83H₃N₂で28名の有意抗体上昇者が確認された。昨秋接種されたワクチン株と今回流行株との間には多少の抗原変異がみられる結果となっている。A/H₁N₁型ではほとんど1:128以上, B型では1:32以上となっている。今流行期においては全てA/H₃N₂型のみ検出され, A/H₁N₁型及びB型はウイルス分離及び抗体検査共に全く検出されなかった。

V 考察

本邦における過去の流行株をみると1950~1956の約6年間はA/H₁N₁, 1957~1967の約10年間はA/H₂N₂, 1968~1975の約8年間はA/H₃N₂,

表 1 集団発生時検査状況

対 象	急 検体採取月日 回	ウイルス分離数 及 び 型 別	抗原別抗体上昇者数					判 定
			A/熊本 /37/79 H ₁ N ₁	A/新潟 /102/ 81N ₂ H ₂	B/ Singapore /222/79	A/茨城 /3/83 H ₃ N ₂	B/茨城/ 2/82	
内原 妻里小学校	58. 1. 24 2. 9	4/10, A/H ₃ N ₂	0/9	4/9	0/9	6/9	0/9	A/香港型
下館 西方いずみ幼稚園	58. 1. 25 うがい液のみ	1/10, A/H ₃ N ₂						A/香港型
下館 聖母幼稚園	58. 1. 31 うがい液のみ	0/4,						
桜村 吾妻幼稚園	58. 1. 31 うがい液のみ	1/6, A/H ₃ N ₂						A/香港型
桜村 竹園東幼稚園	58. 1. 31 うがい液のみ	4/9, A/H ₃ N ₂						A/香港型
桜村 桜南幼稚園	58. 1. 31 うがい液のみ	2/8, A/H ₃ N ₂						A/香港型
七会村 村立幼稚園	58. 2. 5 うがい液のみ	1/12, A/H ₃ N ₂						A/香港型
多賀郡 十王中学校	58. 1. 27 2. 14	5/13, A/H ₃ N ₂	0/11	4/11	0/11	6/11	0/11	A/香港型
日立 塙山小学校	58. 2. 5 2. 24	3/9, A/H ₃ N ₂	0/8	2/8	0/8	5/8	0/8	A/香港型
岩井 七郷幼稚園	58. 2. 15 うがい液のみ	0/6,						
石岡 志筑小学校	58. 2. 18 3. 10	5/10, A/H ₃ N ₂	0/9	6/9	0/9	8/9	0/9	A/香港型
常陸太田 散 発	58. 1. 21~28 2. 10	1/7, A/H ₃ N ₂	0/6	4/6	0/6	3/6	0/6	A/香港型
合 計		27/104 全株 A/H ₃ N ₂	0/43	20/43	0/43	28/43	0/43	

1977~1981の約5年間はA/H₁N₁, A/H₃N₂, 1982はB型, 1983がA/H₃N₂でその間に1~3年おきにB型が単独或は併合して流行をくり返している。また, これに合せて使用されたワクチン株の変遷をみると1950~1953はA/H₀N₁+B, 1953~1958はA/H₁N₁+B, 1958~1968はA/H₂N₂+B, 1968~1977はA/H₃N₂+B, 1978~1982はA/H₁N₁+A/H₃N₂+Bと実施されてきている。このような状況でA/H₁N₁に対する抗体保有率は感染防御レベルが維持されているものと考えられ, ひとまず終息しA/H₃N₂の流行が今後何年か続くの

か, 或は1967年頃まで検出されていたA/H₂N₂の再来があるものか, 全く新しい型のウイルスが出現するものか観察し続けなければならないものと考えられます。

VI まとめ

1983年1月~2月のインフルエンザ様疾患集団発生時において12集団, 104名からうがい液, 5集団から急・回復期血液43件を採取検査して次の様な結果を得た。

1)12集団中10集団において全てA/H₃N₂香港型

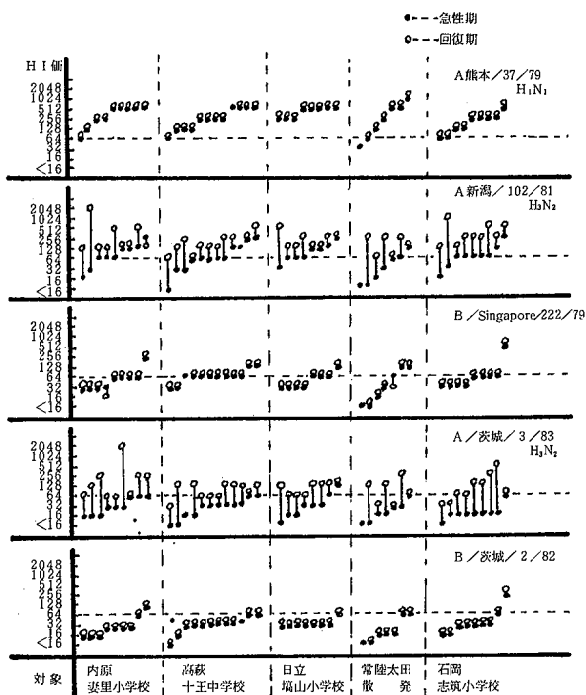


図1 集団発生時抗体価

ウイルスを合計27株分離した。

2) ワクチン株A /新潟/102/81H₃N₂で20名、今回流行の衛研分離株A /茨城/3 /83H₃N₂で28名の有意抗体上昇者を確認した。

3) 昨秋実施されたA /H₃N₂ワクチン株と今回流行株との間には多少の抗原変異がみられる結果となっている。

4) A /H₁N₁ (ソ連型) 及びB型の感染は全くみられなかった。

5) ワクチン株A /H₁N₁ではほとんどのものが1:128以上、B型では1:32以上の抗体保有状況であった。

主要文献

- 1) 厚生省：伝染病流行予測調査報告書 昭和55年度
- 2) " : " " 56 "
- 3) " : インフルエンザ様疾患発生報告 " 56 "
- 4) " : " " 57 "
- 5) 細菌製剤協会：予防接種必携 (インフルエンザ編) 1981
- 6) 時岡ほか：茨城衛研年報, 16, 13, 1978
- 7) " : " 17, 7, 1979
- 8) 菊田ほか： " 18, 6, 1980
- 9) " : " 20, 12, 1982

昭和 57 年度 風 疹 感 受 性 調 査

根本 治育・菊田 益雄・松木 和男・村田 輝喜
(茨城県衛生研究所)

Sero-epidemiological Survey of Rubella Virus in Ibaraki Prefecture of 1982.

Haruyasu NEMOTO, Masuo KIKUTA, Kazuo MATSUKI
Teruyoshi MURATA.
Ibaraki Prefectural Institute of Health.

I はじめに

1971年以降全国規模で伝染病流行予測事業の一環として風疹感受性調査が実施されており、本県も、1974年からこの事業に参加し調査を実施している。県内の一定点を選んで住民の抗体保有状況を調査し、風疹の浸淫度の状況把握と流行の予測を行ってきた。

我が国では、1964～1965年に風疹の流行があり、その後1975～1977年にかけて大規模の流行が確認された。この流行も3年を1サイクルとして流行が進行した。その後地域的な散発例で発生していたが1980年に北海道において流行が確認されたのを機会に全国的に広がる傾向を示し、本県でも県南部に散発的に流行を示し、1981年になって県西部に広がり、1982年には全県下に流行が拡大した。

風疹生ワクチンの接種が1976年末から開始され、1977年8月より定期の予防接種に組み込まれたが、ワクチン接種対象者が「13才に達する日の属する年度の初日から15才に達する年度の末日に至る期間」の女子に限られているために、該当年令以外の女子群および男子全般におけるワクチン接種は、ほとんど実施されていないものと考えられ、風疹の流行を防ぐことは不可能である。

今年も例年同様県内の一定点を選定し、抗体保有状況を調査したので、その成績を報告する。

II 調査対象

1. 内原町立鯉淵保育所、中妻保育所 (女子)
0～4才 25名
2. 内原町立妻里小学校 (女子) 5～9才 25名

3. 内原町立内原中学校 (女子) 10～14才 25名
 4. 農業実践大学校 (女子) 15～19才 25名
 5. 農業実践大学校 (男子) 15～19才 25名
 6. 鯉淵学園 (女子) 20～21才 25名
 7. 鯉淵学園 (男子) 20～21才 25名
 8. 県立水戸看護専門学院 (女子) 22～24才 25名
 9. 水戸市役所職員 (女子) 25～29才 25名
 10. 水戸市役所職員 (女子) 30才以上 25名
- の水戸保健所管内の女子および男子合計250名について抗体調査を実施した。

III 調査方法

伝染病流行予測検査術式(昭和53年)に従いがい、赤血球凝集抑制反応により赤血球凝集抑制抗体価(HI抗体価)を測定した。抗原は、北里研究所製診断用風疹抗原(Lot. 47-A)を使用した。

IV 調査成績

1. 男女別および年令別のHI抗体価の分布状況は、表1、2のとおりである。

抗体陰性率は、3才で83.3%、4才は、78.9%であり平均抗体価指数は、8.0、7.8と比較的高い傾向を示しているが、9才56%、12才38.9%、13才57.1%と低下の傾向が認められる。平均抗体価指数は、9才7.7、12才7.2と比較的高い傾向を示すが、13才では6.3と低下している。15才から19才の女子の抗体陰性者は、ほとんど認められないが、同年令の男子では、28.6～66.7%(平均40.0%)に抗体陰性が認められる。20～29才の女子群は、30%前後の抗体陰性者が認められた。

表1 年令別風疹H I抗体価の分布 (女子)

年令	<8	8	16	32	64	128	256	512	計	G. M.	LOG (G. M.)
3	5 (8.3.3)						1 (16.7)		6	256.0	8.0
4	15 (78.9)					2 (10.5)	1 (5.3)	1 (5.3)	19	215.3	7.8
9	14 (56.0)			1 (4.0)		4 (16.0)	3 (12.0)	3 (12.0)	25	211.9	7.7
12	7 (38.9)			1 (5.6)		7 (38.9)	3 (16.7)		18	145.2	7.2
13	4 (57.1)			2 (28.6)		1 (14.3)			7	80.6	6.3
15				1 (25.0)	1 (25.0)	2 (50.0)			4	76.1	6.3
16				1 (33.3)	1 (33.3)	1 (33.3)			3	64.0	6.0
17	1 (10.0)			1 (10.0)	3 (30.0)	3 (30.0)	1 (10.0)	1 (10.0)	10	109.7	6.8
18				1 (16.7)	2 (33.3)	3 (50.0)			6	80.6	6.3
19				1 (50.0)	1 (50.0)				2	45.3	5.5
20	5 (29.4)				3 (17.6)	8 (47.1)		1 (5.9)	17	120.8	6.9
21	3 (37.5)			1 (12.5)	1 (12.5)	2 (25.0)	1 (12.5)		8	97.0	6.6
22	8 (38.1)			1 (4.8)	5 (23.8)	6 (28.6)	1 (4.8)		21	93.0	6.5
23	1 (33.3)					1 (33.3)	1 (33.3)		3	181.0	7.5
24	0 (0)		1						1	16.0	4.0
25-29	5 (20.0)			2 (8.0)	8 (32.0)	5 (20.0)	5 (20.0)		25	100.4	6.6
30-39			1 (4.3)	6 (26.1)	8 (34.8)	5 (21.7)	2 (8.7)	1 (4.3)	23	72.2	6.2
40			1 (50.0)	1 (50.0)					2	22.6	4.5
計	68 (34.0)		3 (1.5)	16 (8.0)	37 (18.5)	50 (25.0)	19 (9.5)	7 (3.5)	200	101.1	6.7

表2 年令別風疹H I抗体価の分布 (男子)

年令	<8	8	16	32	64	128	256	512	計	G. M.	LOG (G. M.)
15	2 (33.3)			1 (16.7)		3 (50.0)			6	90.5	6.5
16	2 (40.0)				1 (20.0)	2 (40.0)			5	101.6	6.7
17	2 (28.6)				2 (28.6)	3 (42.9)			7	97.0	6.6
18	2 (50.0)						2 (50.0)		4	256.0	8.0
19	2 (66.7)						1 (33.3)		3	256.0	8.0
20	1 (64.7)			2 (11.8)	2 (11.8)	2 (11.8)			17	64.0	6.0
21	3 (37.5)					4 (50.0)	1 (12.5)		8	147.0	7.2
計	24 (48.0)			3 (6.0)	5 (10.0)	14 (28.0)	4 (8.0)		50	106.2	6.7

2. 調査対象の女子を、0～4才、5～9才、10～14才、15～19才、20～21才、22～24才、25～29才、30才以上の年令群に分別した抗体価の分布状況は、図1のとおりである。

0～4才の抗体陰性率は、80%、5～9才56%、

10～14才44%、15～19才4%、20～21才32%、22～24才36%、25～29才20%、30才以上は0%であった。年令の増加とともに減少傾向を示すが、15～19才で著しく低下の傾向を示している。また、抗体保有のピークも年令の増加とともに減少傾向

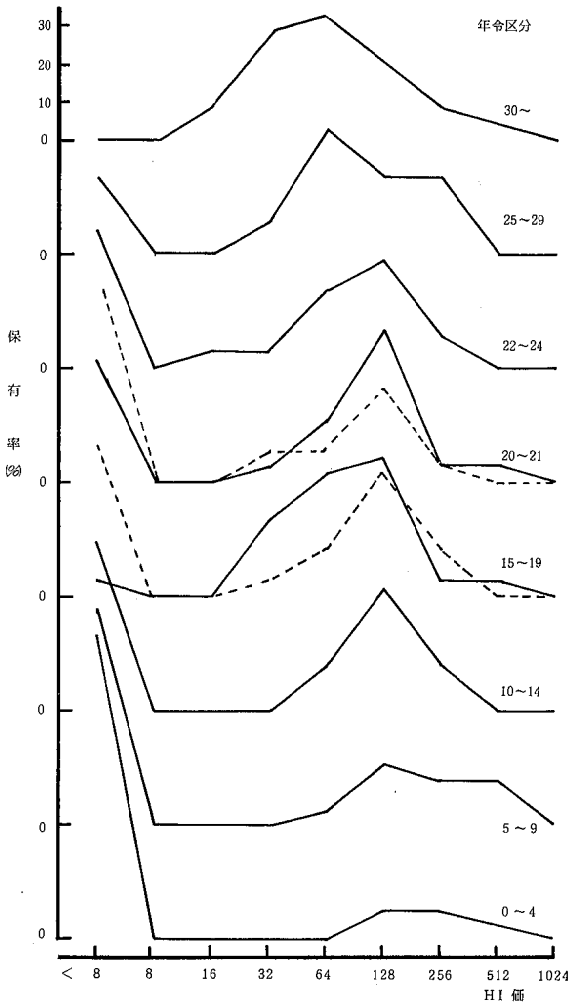


図1 年齢群別HI抗体価の分布

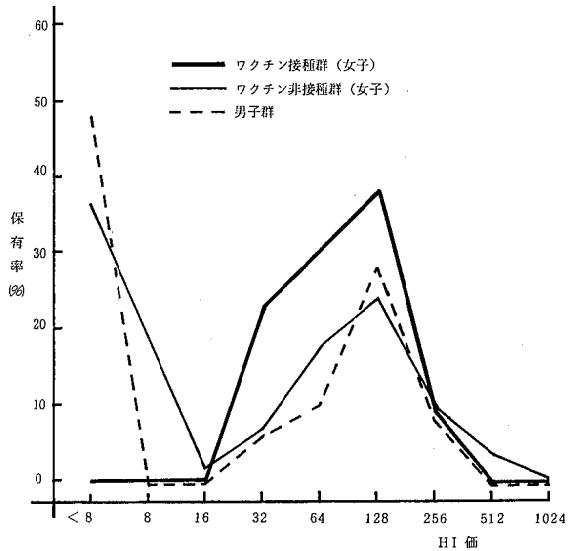


図2 ワクチン接種別の抗体保有比較

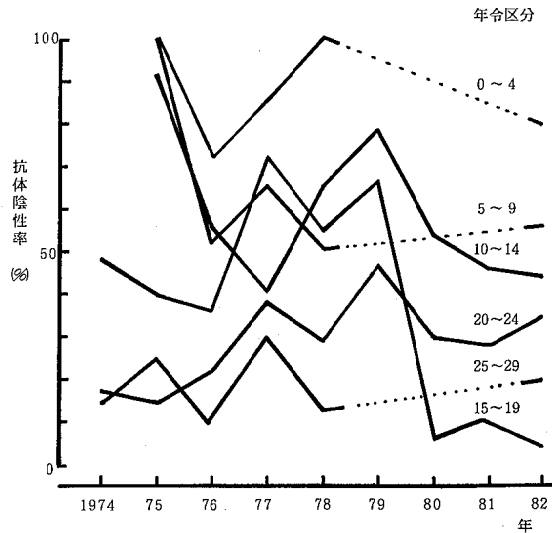


図3 年齢群HI抗体陰性率の年次推移

を示しているが、5~9才、25~29才の年齢層では、抗体価の高値への移行が認められる。

15~19才における男子の抗体陰性率は、40%であり、20~21才では、56%であった。

3. 風疹ワクチンの効果をみるために、調査対象をワクチン接種群と非接種群に分別したHI抗体保有状況の比較は、図2のとおりである。

ワクチン接種群のHI抗体保有状況は、32倍23.1%、64倍30.8%、128倍38.5%、256倍7.7%であった。ワクチン非接種群(女子)の抗体保有状況は、8倍未満36.4%、16倍1.6%、32倍6.9%、64倍17.6%、128倍24.1%、256倍9.6%、512倍3.7%であり、男子群では、8倍未満48%、32倍6%、64倍10%、128倍28%、256倍8%で

であり、ワクチン接種群とその他の群の抗体陰性率との間に、著しい差が認められた。

4. 風疹HI抗体陰性率の年次推移は、図3のとおりである。

全年令の年次推移は、1976年で低下を示し、その後漸次増加傾向が認められるが、1980年に著しい減少が認められた。1981年には、増加傾向を示しているが、1982年に減少傾向を示す。0~4才の

年令層は、1976年に減少し、その後増加する傾向が認められる。5～9才の年令層も同様であるが、1976年以降60%前後の抗体陰性率を示す。10～14才の年令層は、1977年に低下を示すがその後増加傾向を示しており1980年以降再び減少傾向を示した。15～19才の年令層は、1977年に低下を示すがその後増加傾向を示しており1980年以降再び減少傾向を示した。15～19才の年令層は1976年まで減少傾向を示したが、1977年以降増加傾向を示した。1980年には、抗体陰性率が5.6%と著しく減少し、その後10.3%（1981）、40%（1982）と低値を示している。

20～24才の年令層は、1975年以降漸次増加傾向を示しているが、25～29才の抗体陰性率は、20%前後を維持している。

V 考察

1975～76年にかけての全国的風疹流行の影響により、77年に抗体陰性率の低下が認められているが、特に0～14才の年令層に流行の影響が強い傾向が認められる。本県における抗体陰性率の低下は、76年に現れており、全国集計に比較し1年早い傾向が認められた。これは、流行が東日本を発端として広がりを見せたことによるものと推察される。その後流行の終息とともに漸次増加傾向が認められたが、1980年になり15～19才を中心とした抗体陰性率の低下が認められた、全国集計では78年以降15～19才の年令層において、漸次減少傾向をたどっているが、80年に抗体陰性率の低下が著しい傾向であった。風疹ワクチンが、77年に定期の予防接種に組み込まれたためにその影響がでているものと推測される。本県の場合は、予防接種による影響と考えられる抗体陰性率の低下が80年に認められており、79年の秋のワクチン接種から県内全域に普及し、その効果が現れたものと考えられる。

1982年には、抗体陰性率の低下傾向が認められるが、これは81年から本県でも流行が確認されており、今流行の影響によるものと考えられる。前回流行から5年後の今回の流行は、抗体保者の状況から0～4才、5～9才にかけての年令層と25～29才の年令層に影響が大きかったものと考えられる。また風疹流行は、3年を1サイクルとする流行であり今後の動向に注意する必要があるものと考えられる。

ワクチン接種群は、抗体陰性率が0%であり、全て抗体を保有しており明らかにワクチン効果があがっているものと考えられる。また15～19才の年令層において、ワクチン非接種群においても抗体陰性率が8%と著しく低いことから、風疹感受性者の選択および接種が適確に行われているものと考えられ、今後、結婚予備群の抗体保有率は、漸次増加していくものと考えられる。

現行のワクチン接種は、流行を阻止するというのではなく、個人防衛の立場で実施されており、風疹流行を防ぐことは不可能である。妊婦の先天性風疹症候群児出産の危険性は、以前として減少しているとは言えない。今調査においても、ワクチンの定期接種から外れている結婚予備群に抗体陰性者が28%存在していた。妊娠時の風疹感染の危険性に備えて、結婚前の抗体検査の実施およびワクチン接種等の対策が必要であろう。

VI まとめ

水戸保健所管内の住民250名について、風疹抗体調査を行い次のような結果を得た。

風疹抗体陰性率は、年令の増加とともに漸次減少傾向を示しており8倍以上の平均抗体価指数は、12才まで7.2～8.0と高い値を示した。15～19才の女子の抗体陰性率は、4%と低い値を示したが、男子は、40%と比較的高い値を示している。

ワクチン接種群の抗体陰性率は、0%であり、非接種群の女子は、46%、男子は48%であり、明らかにワクチン効果があることが認められた。

5～9才および25～29才の年令層において高抗体価の移行が認められたことは、新しい感染によるものと考えられ、今後の流行が危惧される。

参 考 文 献

- 1) 厚生省：伝染病流行予測検査術式 昭和53年
- 2) "：伝染病流行予測調査報告書（昭和50年度）
- 3) "："（昭和51年度）
- 4) "："（昭和52年度）
- 5) "："（昭和53年度）
- 6) "："（昭和54年度）
- 7) "："（昭和55年度）
- 8) "："（昭和56年度）
- 9) 根本ほか：茨城衛研年報 20, 18, 1982
- 10) 沢田春美他：臨床とウイルス 9, 4, 73, 1981

DETERMINATION OF TRIMETHYLSELENONIUM ION IN URINE BY GRAPHITE FURNACE ATOMIC ABSORPTION SPECTROMETRY

NORITAKA OYAMADA

Ibaraki Prefectural Institute of Health, 4-1, Atago-cho, Mito, Ibaraki.

Summary

Determination of trimethylselenonium ion (TMSe) in urine by graphite furnace atomic absorption spectrometry (GFAA) was studied. It is necessary to separate TMSe from other selenium compounds in urine and to inorganic selenium completely without any loss of selenium, so that ion exchange column chromatograph and pressure decomposition technique were applied prior to the analysis by GFAA. The proposed method could determine TMSe in urine with a recovery of 82-102%, and with a variation coefficient of 3.7-6.2%.

Trimethylselenonium ion [$(\text{CH}_3)_3\text{Se}^+$: TMSe] was reported as a metabolite of selenium by Byard et al.^{1,2} In these reports, they applied the tracer technique by using ^{75}Se to measure required special handling technique, so it is necessary to establish a simple and widely usable accurate analytical method for clarification of pharmacokinetics of selenium in biological milieu. In previous paper, we have reported the method for the determination of total selenium in biological materials by a combined with oxygen flask combustion method, solvent extraction, nickel matrix effect and graphite^{3,4} furnace atomic absorption spectrometry (GFAA). However, TMSe could not be decomposed completely to inorganic selenium with oxygen flask combustion method. Because the volatile selenium compounds (E. g. dimethylselenide) were partly yielded simultaneously with inorganic selenium, result in, TMSe could not be trapped quantitatively with absorbing solution as an inorganic selenium ion. For the avoidance of volatilization of selenium com-

pounds and for complete digestion of organic selenium compounds at digestive process, the pressure decomposition technique was applied prior to the analysis by GFAA. In this result, the sample could be decomposed completely without any losses of selenium by volatilization. The separation of TMSe from other selenium compounds in urine was carried out by ion-exchange column chromatography prior to the application of pressure decomposition technique. And the total selenium was determined after digestion of urine directly without treatment of ion-exchange column chromatography. The proposed method could determine TMSe in human urine with a recovery of 82-102% ($n=5$), and with a variation coefficient of 3.7-6.2%, and the total selenium in urine with a recovery of 94-101% ($n=5$), and with a variation coefficient of 3.7-6.7%. Detection limits of the TMSe in urine was 1.0ng/ml and that of total selenium was 0.5ng/ml

EXPERIMENTAL

Reagents

All solutions were prepared from distilled water and analytical grade reagents [except the standard selenium (IV) and trimethylselenonium solution].

Standard selenium (IV) solution, 1000ppm. Prepared and further diluted with distilled water to give concentration of 0.1, 0.05, 0.03 and 0.01ppm before use.

Standard trimethylselenonium (TMSe) solution, 1000ppm. TMSe was synthesized from dimethylselenide by the procedure of Wynne.⁵ Prepared by dissolving 128.6mg of trimethylselenonium chloride in distilled water and diluting to 1000ml. An aliquot of this solution is diluted with distilled water to give concentration of 0.1, 0.05, 0.03 and 0.02ppm before use.

Nickel solution, 0.1%, Prepared by dissolving 4.96g of nickel nitrate hexahydrate in 1000ml of distilled water.

Dithizone solution, 0.02%. Prepared by dissolving 20mg of refined dithizone in 100ml of carbon tetrachloride.

Cation-exchange resin. Dowex 50W-X 8, converted into the hydrogen form by treatment with hydrochloric acid.

Hydroxylamine hydrochloride solution, 20%

Apparatus

Hitachi Model 170 - 50 atomic absorption spectrometer, equipped with a Hitachi Model HFA heated graphite atomizer and a deuterium backgroundcorrector, was used. A Hitachi Model 056 recorder (10mV range) was used to record peak-heights. A Jintan 50 μ l microsyringe was used for injecting test solutions into the graphite furnace. A Finnpiptet 5 - 50 μ l micropipette was used for injecting nickel solutions into the graphite furnace.

Pressure decomposition vessel, obtained from Uniseal.

Instrument setting : The 196.3nm selenium resonance line was used. The line source was a Hamamatsu selenium hollow-cathod lamp operated at 8 mA. Background correction was used for all measurements. Control settings on the HFA were experimentally optimized and provided the following drying, ashing and atomizing times and temperatures : dry at 100° for 30sec, ash at 600° for 30sec, atomize at 2400° for 8 sec. Argon was used as the furnace purgegas at a flow-rate 0.81 / min.

Procedure

Separation of TMSe : 5 - 10ml of urine was placed on an ion-exchange column (1 x 20cm) contained Dowex 50W-X 8 (H⁺) resin suspend in 1N NH₄ OH. The column was washed with 50ml each of 1N NH₄ OH, distilled water, and HCl (0.05, 0.1, 0.5, 1.0 and 4 N). The TMSe was eluted in 4 N HCl fraction and the first 5 ml of the eluant was discarded then 40ml was collected as TMSe fraction. A 10 ml aliquot of the TMSe fraction was transferred into the pressure decomposition vessel and heated for 80min at 200° in a muffle furnace. After cooling the vessel in water, 2 ml of 20% hydroxylamine hydrochloride added to the decomposed solution and boiled for 10min. Then the solution was cooled to room temperature. The digested solution was transferred to separatory funnel and was added HCl to be adjusted with ca. 4 N of HCl concentration. The selenium ion in the solution was extracted with 1 ml of 0.02% dithizone in carbon tetrachloride.

Determination of total selenium : 1 ml of urine was taken into a pressure decomposition vessel containing 5 ml of 5 N HNO₃ and heated for 80min at 200°. Hydrochloric acid

was added to the digested solution to be adjusted with ca. 4 N of HCl concentration and the selenium was extracted with dithizone in carbon tetrachloride.

Analysis of selenium : 20 μ l aliquots of the extract were injected into the graphite furnace with microsyringe. The carbon tetrachloride was evaporated by heating for 20 sec at 100°. Then was added 50 μ l of 0.1% nickel solution to the residue and the selenium was determined according to the operating conditions shown in Table 1.

Table 1 Operating condition

Equipment	: Hitachi model 170-50 atomic absorption spectrometer, with deuterium background corrector, the HFA flameless atomizer
Light source	: Hamamatsu hollow cathod lamp of Se
Lamp current	: 8 mA
Wavelength	: 196.3nm
Ar gas	: 0.8l/min
Drying	: 100°C, 30s
Ashing	: 600°C, 30s
Atomizing	: 2400°C, 8s

RESULTS AND DISCUSSION

Separation of TMSe from urine

In order to determine TMSe, it is necessary to separate TMSe from other selenium compounds (i.e. SeO_3^{2-} and SeO_4^{2-}) in urine, so the ion-exchange chromatography method was adapted. TMSe was existed as cation form in urine, so TMSe is adsorbed with cation-exchange resin and is eluted with hydrochloric acid, so be able to separate from other selenium compounds. The

separation of TMSe by column chromatography on Dowex 50W-X 8 resin was attempted. Figure 1 shows the elution curve of TMSe by column chromatography on Dowex 50W-X 8 resin. The column was eluted with 50ml each of 1N NH_4OH , distilled water and hydrochloric acid (0.05, 0.1, 0.5, 1.0 and 4 N). TMSe was eluted with 4 N HCl and the first 5 ml of the eluant was discarded and then 40ml was collected as TMSe fraction. The recovery and the repeatability of TMSe with 4 N HCl were examined. Satisfactory results were obtained that the recovery values were 85-98%, and the variation coefficient were 3.5-4.7% when the amount of 0.1-1.0 μ g of TMSe were added to the ion-exchange column.

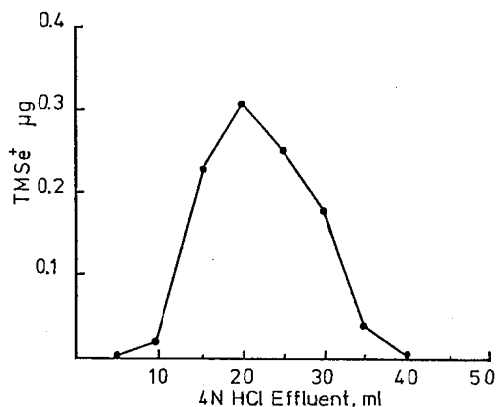


Fig. 1 Elution curve of TMSe^+ by column chromatography on Dowex 50W-X 8 resin.

The column was washed with 1N NH_4OH , distilled water, and HCl (0.05, 0.1, 0.5, 1.0N).

TMSe^+ was eluted with 4 N HCl.

Column size : 1.0cm x 20cm
; TMSe^+ taken : 1.0 μ g

Interference

Some cation (Cu, Ag, Hg and Bi) of over 10ppm show the same behavior as the selenium at the extraction process with dithizone and these cation suppress the selenium absorbance at atomizing stage of selenium. But each concentration of these cation in urine are very low level range (under 1.0ppm), so the suppression of selenium absorbance does not be occurred by these coexisting materials

Decomposition of TMSe

For extraction of selenium quantitatively with dithizone carbon tetrachloride, it is necessary to decompose TMSe to SeO_3^{--} or SeO_4^{--} . But the application of acid digestion and oxygen flask combustion method could not be obtained quantitative recovery of TMSe (below 40%) in comparison with corresponding quantities of standard inorganic selenium. This reason attribute to the formation of volatile compounds like as dimethylselenide and methylselenide during acid digestion or oxygen flask combustion process of TMSe. Therefore, it is necessary a new method to decompose TMSe quantitatively that to use closed system equipment. In this reason, we attempted the thermal decomposition method using pressure decomposition vessel.

Decomposition temperature : To obtain suitable condition for the thermal decomposition of TMSe in 4 N hydrochloric acid, obtained from ion-exchange chromatography, so suitable decomposition temperature was examined used by a muffle furnace. Figure 2 shows the relationship between recovery of TMSe and decomposition temperature. The recovery were obtained above 95% at the temperature higher than 170°. Then the decomposition was done at 200° by a muffle furnace.

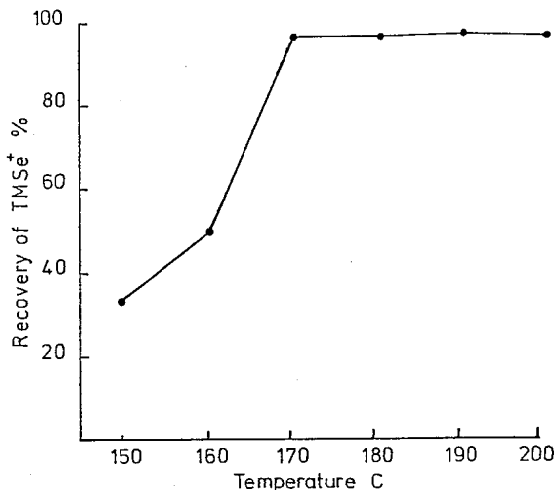


Fig. 2 Relationship between recovery of TMSe and decomposition temperature.

TMSe was taken into the pressure decomposition vessel containing 10ml of 4 N HCl and heated for 80min (TMSe : 2.0ng)

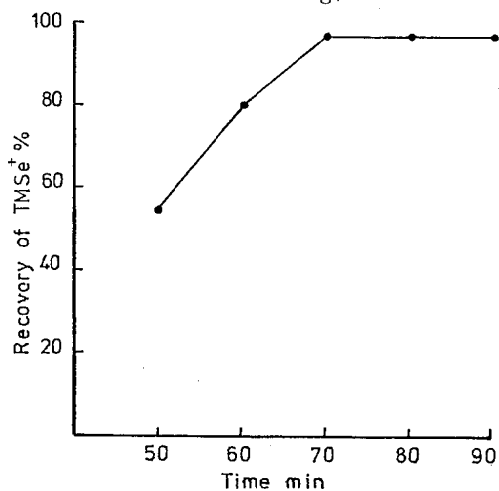


Fig. 3 Relationship between recovery of TMSe and decomposition time

TMSe was taken into the pressure decomposition vessel containing 10ml of 4 N HCl and heated at 200°C (TMSe : 2.0ng)

Table 2 Recovery of trimethylselenoium ions in human urine

Sample	TMSe ⁺ added ng	Found ng	Mean ng	Recovery %	C.V. %	
1 ml	0	14.5,16.0,15.7	16.2	85.9	9.0	
		18.5,16.2				
	15.6	30.0,31.2,26.7	29.6			
		29.5,30.8				
	31.2	44.5,42.5,42.5	44.6			91.0
		46.6,47.0				

Decomposition time : Figure 3 shows the relationship between recovery of TMSe and TMSe and decomposition time at 200°. In this result, the recovery were obtained about 96% at the time longer than 70min, so the reaction time was decided for 80min.

Recovery test of TMSe

TMSe which was one of urinary selenium metabolite was decomposed completely without any volatilization losses of selenium by using pressure decomposition vessel after separation of TMSe from other selenium compounds with cation-exchange resin on Dowex 50W - X 8 . Then the selenium in the decomposed solution was extracted with dithizone carbon tetrachloride and could be determined accurately by graphite furnace atomic absorption spectrometry. Table 2 shows the analytical results of TMSe in human urine, the recovery were 85.9~91.0% and a varition coefficient was 4.8~9.0%.

Determinatio of total selenium

Pretreatment for the determination of total selenium in urine was examined by using the pressure decomposition vessel. When decomposition of urine was carried out directly as same condition as decomposition of TMSe described above, the value of recovery test shows extremely low under 11%. This reason was presumed as follows, when urine was digested directly under the same condition as TMSe, the HCl medium could not have sufficient ability of decomposition of selenium compounds in urine. Therefore

the digestive ability was examined under medium of nitric acid. Figure 4 shows the relationship between recovery of selenium and concentration of nitric acid as medium. Quantitative digestion was obtained above 2 N of nitric acid. In this results, the concentration of nitric acid in the digestive vessel was made at an acidity of about 4 - 5 N at digestive process for determination

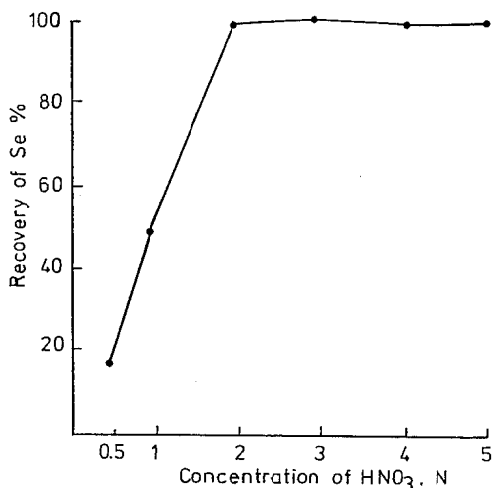


Fig. 4 Relationship between recovery of selenium and concentration of nitric acid. Se and 1.0ml of urine was taken into the pressure decomposition vessel and heated for 80min at 200°C

Table 3 Recovery of selenium in human urine

Sample	Se added ng	Found ng	Mean ng	Recovery %	C.V. %
1 ml	0	62,58,59	60	94.0	3.7
		56,65			
	50	106,113,104,			
		106,105			
	100	154,156,166			
		16.5,165	161	101.0	3.7

Table 4 Determination of selenium compounds in human urine

Sample (No.)	Total - Se (ppb)	TMSe ⁺ (ppb)	Sample (No.)	Total - Se (ppb)	TMSe ⁺ (ppb)
Male 1	42.9	4.2	Female 1	23.5	7.7
2	32.4	3.9	2	19.6	8.3
3	34.3	4.0	3	43.1	9.4
4*	104.1	36.6	4	38.6	4.8
5	26.9	12.6	5*	138.5	26.9

*Urine was collected after luncheon.

of total selenium.

Recovery test of total selenium from urine

The recovery value shows 94-101%, and a variation coefficient was 3.7 - 6.7 % (Table 3) using by proposed method. On the other hand, when the same sample were digested with nitric acid and hydrogen peroxide using conventional method of wet digestion, the recovery value were 80% and a variation coefficient was below 11%. The proposed method, the nitric acid digestion combined pressure decomposition vessel, may be digested quantitatively and could be avoided volatilization losses of selenium so it could be determined accurately.

Application to the sample analysis

The results for the determination of TMSe and total selenium in each of five normal adult males and females are shown in Table 4. Urine was collected before lunch, male No.4 and female No.5 urine were collected after lunch. As a result, total selenium in urine were 19.6 - 138.5ppb and

TMSe were 3.9 - 36.6ppb. It was evidence that TMSe was one of the selenium metabolites and was excreted in urine and equivalent 6.3 - 30.1% of total urinary selenium.

In the proposed method, detection limits of TMSe in urine was 1.0ng/ml and total selenium was 0.5ng/ml.

REFERENCES

1. J. L. Byard, Arch. Biochem. Biophys., 1969, **130**, 556.
2. I. S. Palmer and D. D. Fischer, Biochem. Biophys. Acta., 1969, **177**, 336.
3. M. Ishizaki, Bunseki Kagaku, 1977, **26**, 206.
4. M. Ishizaki, Talanta, 1978, **25**, 167.
5. K. J. Wynne and J. W. George, J. Am. Chem. Soc., 1969, **91**, 1649.

VANADIUM CONTENT in ENVIRONMENTAL and BIOLOGICAL SAMPLES

Seiichi UENO

Ibaraki Prefectural Institute of Health : 4 - 1 , Atago-cho, Mito, Ibaraki

ABSTRACT

Vanadium concentration in environmental samples has been measured by a new method which we have been developed for the determination of traces of vanadium in biological samples. As a results, it was found that traces of vanadium in environment could be measured with high sensitivity and selectivity even small amounts of sample by using proposed method. Furthermore, trace vanadium level in human blood, urine and hair has been investigated by this method. As a results, vanadium level in blood was a mean of 0.7 ng/ml, that in urine was less than 0.2 ng/ml and that in hair was the range of 5.0-155.0 ng/g.

INTRODUCTION

Vanadium is of biological interest, it occurs as a trace element in plants and animals. But the role of vanadium in biological system is not well know. While vanadium has been universally found in fossil fuels such as coal and petroleum, often in high concentrations, and it has been changed into vanadium oxide by burning of fossil fuels. A part of vanadium oxide is released in the atmosphere as particulates matters, and so the environmental pollution by vanadium is apprehended. Vanadium is also used industrially as raw materials of special steel, special glass, pigment and so on. As vanadium dust is harmful to humans, Japan Association of Industrial Health recommend the permissible concentration of $0.5\text{mg}/\text{m}^3$ as dust of vanadium pentoxide in the workplace atmosphere. In order to assess the vanadium-exposed degrees of workers, in general, vanadium concentrations in blood, urine and hair are

measured.

On the other hand, the determination of traces of vanadium in environmental and biological samples is difficult conventional methods such as spectrophotometric method, flame atomic absorption spectrometric method and emission spectral analysis. Because spectrophotometric and flame atomic absorption spectrometric methods do not have the sufficient sensitivity for determination of traces of vanadium, and emission spectral analysis has the problem as for selectivity.

Previously, we have been developed a new reagent, N-cinnamoyl-N-(2,3-xylol)-hydroxylamine (CXA), as a sensitive and selective chelating reagent for vanadium, and reported a method for determination of traces of vanadium in biological samples by a combined CXA extraction and carbon furnace atomic absorption spectrometry with an atomizer coated with pyrolytic graphite^{1,2)}

In this report, above mentioned method has been applied for monitoring of vanadium

concentration in environment. To grasp the accurate trace vanadium level range in normal human blood, urine and hair as index of industrial exposure to vanadium, furthermore, the concentration of vanadium in blood of 108 persons, urine of 50 persons and hair of 261 persons have been measured by this method.

EXPERIMENTAL

Reagent.

All the reagents used were analytical grade, and water was used doubly distilled one.

Standard vanadium solution, 1,000ppm. Prepared immediately before use, by dissolving 1.148g of ammonium metavanadate in a minimum quantity of ammonia solution and diluting to 500ml with water.

Potassium permanganate solution, 0.02M.
CXA solution, 0.1% in carbon tetrachloride.

Apparatus.

A Hitachi Model 170-50 atomic-absorption spectrometer, equipped with a Hitachi Model GA-2 heated-graphite atomizer and a deuterium background-corrector, was used. A Hitachi Model 056 recorder (10-mV range) was used to record peak-heights. A Jintan 50 ul micro-syringe was used for injecting test solutions into the carbon tube.

Instrument settings. The 318.4 nm vanadium resonance line was used. The line-source was a Hitachi vanadium hollow-cathode lamp operated at 10mA. Background correction was used for all measurements. Control settings on the GA-2 were experimentally optimized and provided the following drying, ashing and atomizing conditions: dry by raising the current from 0 to 25A at 1 A/sec (final temperature ca. 100°), ash at 150 A (ca. 1850°) for 20 sec, atomize at 300 A (ca. 2800°) for 10 sec. Argon was used as the furnace purge-gas at

a flow-rate of 2.6 l./min.

Procedure.

Pre-treatment of samples. Atmosphere: After the atmospheric particulates were collected on a glass fiber filter by a high volume air sampler, a glass fiber filter was divided by eight. A piece of divided filter was taken conical beaker, and then was added the mixture solutions of nitric acid and perchloric acid. To elute the vanadium from a glass fiber filter, the mixture solutions were heated about 1 hour. The eluate was transferred to Kjeldahl flask and was concentrated to white fumes of perchloric acid. After the hot solutions were cooled at room temperature, the solutions were transferred to volumetric flask, and then diluted to 100 ml with water. Water sample: 50 ml of sample was decomposed with nitric and perchloric acid, and decomposed solution was concentrated to white fumes of perchloric acid. Blood and urine: 10 ml of blood or 50 ml of urine was digested with nitric and perchloric acid, and digested solution was concentrated to white fumes of perchloric acid. Hair: The hair was cutted about 3-5 mm length and washed with neutral detergents, followed by water. 0.5g of washed hair was treated as those of blood and urine.

Preparation of test solution. The decomposed or digested solutions were diluted with water and transferred to a separatory funnel (Atmospheric sample was directly taken ca. 20-40ml from volumetric flask, and transferred to a separatory funnel). To keep the vanadium in the quinquevalent state, 0.02M potassium permanganate solution was drop by drop until a pink reagent colour persisted for 5 min, and then 1 ml of CXA solution in carbon tetrachloride was added, followed by ca. 20-40ml of concentrated hydrochloric acid (to give a concentration of ca. 6 M in the resulting solution).

The funnel was immediately shaken for 3 min and the vanadium extracted into carbon tetrachloride phase.

Analysis. Aliquots of the extract (20 μ l) were injected into carbon tube with a micro-syringe, and the vanadium was determined.

RESULTS AND DISCUSSION

Vanadium concentration in environmental samples

In general, the most widely used method for determination of vanadium in water samples, such as underground, river and sea

water, is spectrophotometric method. But this method is not suitable for routine analysis, because volumes of samples for determination of low concentration of vanadium in water samples are required (2^{3,4})—20l⁵). While proposed method is more accurate and sensitive than such a method, so volumes of samples for determination can be decreased (ca. 50ml). Hence, it is considered that proposed method is useful one for routine analysis of vanadium in water samples. Analytical results of water samples analyzed by the proposed method are shown in Table 1.

Table 1 - Vanadium concentration in natural and sea water samples

Sampling points	Vanadium concentration (μ g/l)
Underground water	
Toride city No. 1	2.0
2	2.8
3	1.8
4	0.6
5	6.0
Daigo town No. 1	3.1
2	0.3
Takahagi city	0.4
Kitaibaraki city	0.1
Hitachi city	0.3
River water	
Tone rivber No. 1 (Tone town, Ibaraki prefecture)	1.5
2 (Sakae town, Chiba prefecture)	4.3
Shin river (Katsuta city)	1.1
Hayato river (Katsuta city)	1.5
Sea water	
No. 1 (0.5 km off the coast of Tokaki)	0.5
2 (2 km off the coast of Tokaki)	0.9
3 (2 km off the coast of Nakaminato)	0.3
4 (4 km off the coast of Nakaminato)	0.5
5 (2 km off the coast of Oarai)	0.2

Table 2 Analytical results of vanadium in atmosphere

Sampling points	Vanadium content ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	
	Proposed method*	Flame method**
Kashima town (A)	0.003	0.01 <
(B)	0.018	0.019
(C)	0.009	0.01 <
Mito city (A)	0.027	0.030
(B)	0.006	0.01 <
Hitachi city	0.019	—
Tsuchiura city	0.017	0.01 <
Shimodate city	0.010	0.01 <

*Flameless atomic absorption spectrometric method

**Flame atomic absorption spectrometric method; Detection limit of this method was $0.01 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Table 3 The recovery of vanadium in atmosphere and sea water

Sample	Vanadium added(μg)	Found(μg)	Mean(μg)	Recovery(%)	C.V.(%)
Atmosphere 2m^3	0	0.037, 0.036, 0.037 0.037, 0.038	0.037	95.0	1.9
	0.02	0.055, 0.056, 0.056 0.056, 0.057	0.056		1.3
Sea water 50ml	0	0.065, 0.071, 0.071 0.073, 0.067	0.069	95.0	4.8
	0.02	0.092, 0.092, 0.084 0.084, 0.090	0.088		4.7

To determine vanadium in atmosphere by flame atomic absorption spectrometric method, volumes of samples are required 500m^3 . However proposed method is sufficient a volume of 10m^3 for determination. Table 2 shows the analytical results of atmospheric samples analyzed by proposed method, which

are in good agreement with data analyzed by flame atomic absorption spectrometric method.

Table 3 shows the recovery of $0.02 \mu\text{g}$ vanadium to 2m^3 of atmosphere and 50ml of sea water. The recovery was 95.0% and relative standard deviation was as low as 5%.

Table 4 Relationship between vanadium content in atmosphere and traffic volume

Sampling points	Vanadium content ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)*	Traffic volume** (passed numbers of car/12 hours)
Mito city (A)	0.017 ± 0.006 ***	23,925
Mito city (B)	0.010 ± 0.004	14,013
Kashima town (B)	0.008 ± 0.005	16,020
Tsuchiura city	0.013 ± 0.005	18,359
Shimodate city	0.008 ± 0.004	13,557

* Yearly average: N=12 (twelve-month)

** Yearly average: N=2 (spring and autumn)

*** Mean(N=12) \pm S. D.

Relationship between vanadium concentration in atmosphere and traffic volume

Table 4 shows the relationship between yearly average of vanadium concentration in atmosphere and that of traffic volume at each sampling point. Traffic volume are yearly average of passed numbers of car during 12 hours. There were correlation between vanadium concentration in atmosphere and traffic volume ($r=0.932$, $p<0.01$), hence it may be drawn the conclusion that vanadium concentration in atmosphere are influenced by traffic volume, in other words, the volumes of exhaust gases from car.

Vanadium concentration in human blood

Table 5 shows the analytical results of vanadium in blood of 108 persons. Vanadium concentrations in male blood of 64 persons were the range of 0.1–1.5 ng/ml and that

Table 5 Vanadium concentration in blood

Sex	Male	Female
Number of subjects	64	44
Minimum (ng/ml)	0.1	0.1
Maximum (ng/ml)	1.5	1.8
Mean (ng/ml)	0.7	0.7
S. D.	0.3	0.4

in female blood of 44 persons were the range of 0.1–1.8 ng/ml. Mean value of vanadium in blood of 108 persons was 0.7 ng/ml. Schroeder et al.⁶⁾ reported higher concentrations of 0.23 $\mu\text{g}/\text{ml}$, and Butt et al.⁷⁾ reported the value of 0.126 $\mu\text{g}/\text{ml}$. The data analyzed by present method are very low in comparison with these data analyzed by emission spectral method. While Allen et al.⁸⁾ reported a mean of 0.8 ng/ml vanadium using radiochemical neutron activation analysis, which is in excellent agreement with present results.

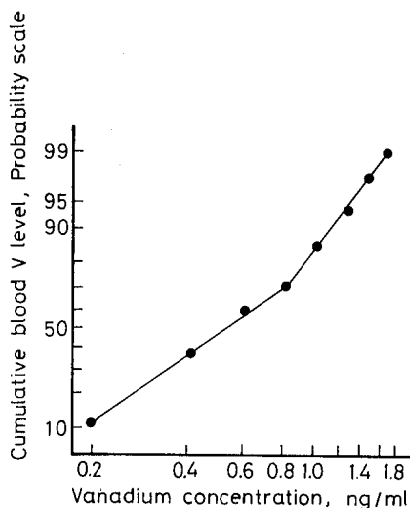


Fig.1 Cumulative vanadium frequency

Fig. 1 shows the cumulative frequency distribution of vanadium concentrations in blood on the logarithmic probability paper. From this graph, the distribution of vanadium in blood are considered logarithmic normal distribution.

There were no statistically significant difference at $p < 0.05$ comparison between vanadium concentrations of male blood and that of female blood.

Vanadium concentration in human urine

Table 6 shows the analytical results of vanadium in urine of 50 persons. Vanadium was detected from 13 samples, and was not detected from 37 samples ($0.1 \mu\text{g}/\text{l}$: 11 samples, $0.2 \mu\text{g}/\text{l}$: 2 samples ; detection limit : less than $0.1 \mu\text{g}/\text{l}$). Christian⁹⁾ reported the range of 0.004 – 0.048ppm in using the catalytic method. While Watanabe¹⁰⁾ and Usutani¹¹⁾ reported the value of $6 \mu\text{g}/\text{l}$ in using the spectrophotometric method. The present data are, as well as the case of blood, very low in comparison with these data. This difference is considered that catalytic and spectrophotometric methods are not so specific for vanadium as present method.

Table 6 Vanadium concentration in urine

Vanadium concentration ($\mu\text{g}/\text{l}$)	Number of subjects	
	Male	Female
N. D.	19	18
0.1	4	7
0.2	2	0

N.D. : less than $0.1 \mu\text{g}/\text{l}$

Vanadium concentration in human hair

Table 7 shows the results for the analy-

sis of hair of 261 persons. Vanadium concentrations in male hair of 130 persons were the range of 5.0 – 155.0 ng/g and that of female hair of 131 persons were the range of 7.8 – 118.8 ng/g. Mean value of 261 persons was 48.9 ng/g. As for the concentration of vanadium in hair, Takeuchi¹²⁾ reported the range of 8.1 – 478 ng/g (68 persons), and Ohmori et al.¹³⁾ reported 4 – 93 ng/g (45 persons). These data were analyzed by neutron activation analysis, which were in good agreement with present data.

Table 7 Vanadium concentration in hair

Sex	Male	Female
Number of subjects	130	131
Minimum (ng/g)	5.0	7.8
Maximum (ng/g)	155.0	118.8
Mean (ng/g)	53.6	44.2
S. D.	28.5	22.8

Table 8 shows the vanadium concentration in hair by age. There were no statistically significant difference at $p < 0.05$ comparison between age groups.

Table 8 Distribution of vanadium concentration in hair by age

Age group	Vanadium concentration (ng/g)	
	Male	Female
-19 yr	$35.6 \pm 21.1(21)^*$	$42.0 \pm 25.8(20)$
20-29	$52.0 \pm 27.1(21)$	$60.0 \pm 22.5(27)$
30-39	$57.1 \pm 21.3(22)$	$40.5 \pm 22.6(21)$
40-49	$58.6 \pm 26.9(23)$	$37.3 \pm 21.7(22)$
50-59	$57.5 \pm 29.9(21)$	$43.7 \pm 18.9(21)$
60-69	$60.0 \pm 37.0(22)$	$37.3 \pm 17.5(20)$

*Mean \pm S.D. (number of subjects)

Fig. 2 shows the cumulative frequency distribution of vanadium concentration in hair on the logarithmic probability paper. The dotted line, A and B were linear, so it is considered that the distribution of vanadium in hair show approximately logarithmic normal distribution.

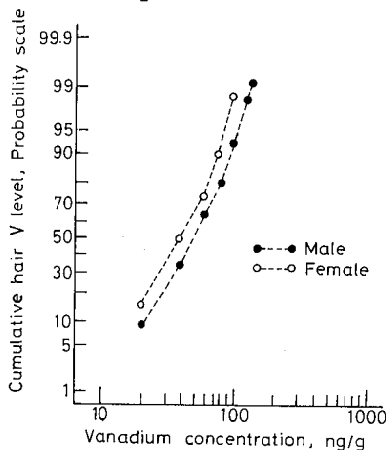


Fig. 2 Cumulative vanadium frequency

There were no statistically significant difference at $p < 0.01$ comparison between vanadium concentrations of male hair and that of female hair.

REFERENCES

- 1) S. Ueno and M. Ishizaki : *J. Chem. Soc. Japan, Chem. Ind. Chem.* 1979, 217
- 2) M. Ishizaki and S. Ueno : *Talanta*, 26, 523 (1979)
- 3) N. Ohta, Y. Kume, M. Terai and T. Araki : *Bunseki Kagaku*, 24, 206 (1975)
- 4) T. Kiriyaama and R. Kuroda : *Anal. Chem. Acta*, 62, 464 (1977)
- 5) Editorial Committee, Applied Colorimetry for Inorganic component : *Applied Colorimetry for Inorganic Compont*, 5 Se-Zr Hf, p 392 (1976)
- 6) H.A. Schroeder, J.J. Balassa and I.T. Tepton : *J. Chronic Dis.*, 16, 1047 (1963)
- 7) E.M. Butt, R.E. Nusbaum, T.C. Gilmour and S.L. Didio : *Arch Environ. Health*, 8, 60 (1964)
- 8) R.O. Allen and E. Steinnes : *Anal. Chem.*, 50, 1553 (1978)
- 9) G.D. Christian : *Anal. Lett.*, 4, 187 (1971)
- 10) H. Watanabe, H. Murayama and S. Yamaoka : *Jap. J. Ind. Health*, 385 (1965)
- 11) S. Usutani, K. Nishiyama, I. Sato, K. Matsuura, Y. Sawada, T. Kawabata, Y. Hosokawa S. Izumi a and S. Izumi : *Jap. J. Ind. Health*, 21, 21 (1979)
- 12) T. Takeuchi : *Isotope News*, 4, 6 (1978)
- 13) S. Ohmori, T. Miura, Y. Kusaka, H. Tsuji, T. Sagawa, S. Furuya and Y. Tamari : *RADIOISOTOPES*, 24 (6), 397 (1975)

納豆中の雑菌について

掛札しげ子・山本 和則・神谷 隆久・小室 道彦
村上りつ子・高井 勝美
(茨城県衛生研究所)

Studies on Saprophyte of natto.

Shigeko KAKEFUUDA, Kazunori YAMAMOTO, Takahisa KAMIYA
Michihiko KOMURO, Rituko MURAKAMI, Katsumi TAKAI
Ibaraki Prefectural Institute of Health.

4-1, Atago-cho, Mito, Ibaraki.

I はじめに

納豆の雑菌数の測定については、食品衛生検査指針Ⅱに記載されているが、この方法で市販納豆中の雑菌数を測定した場合、常に、 $10^8 \sim 10^9/g$ という高いオーダーを示した。実際に、これだけの雑菌が存在するならば、良好な納豆は作れないし、食品衛生上、問題である。

そこで、納豆中には、どのような細菌が、どの程度存在するのか、菌種の同定を試み、公定法における問題点を検討した。

II 試験方法

1. 試料原液の調製

検体10gに90ccの滅菌生食水を加え、ホモジナイズし、試料原液とした。

2. 一般生菌数

食品衛生検査指針Ⅰ¹⁾に準拠

3. 耐熱菌数

試料原液10mlを滅菌試験管にとり、80°C水浴中に約20分間浸漬した後、一般生菌数の測定法に準ずる。

4. 雑菌数

一般生菌数から耐熱菌数を減じた値

5. 細菌の同定

一般生菌数を測定した後の鈎菌可能な希釈系列の平板上に表われた全てのコロニーを鈎菌し、標寒斜面に接種した。増殖した菌を「医学細菌同定の手引き²⁾」, 「Bergeys Manual 8th³⁾」により、属のレベルまで同定した。

6. Bacillus属の同定

Bacillus属と同定された株については、納豆菌とその他のBacillus属を区別するための、「食品中の好気性芽胞菌とその簡易同定Ⅰ(Ⅱ)⁴⁾」により、コロニーの形態及び次の生物学的性状から種のレベルまで同定した。

(1) citrateの利用 (cit)

(2) Nitrateの環元 (Nit)

(3) デンプンの水解 (Sta)

(4) アセチルメチルカルビノールの生成 (V.P)

(5) ゼラチンの水解 (Gel)

(6) 5%NaCl加液体培地での発育

(7) ビオチンの要求性

ビオチン定量用基礎培地を用いた。ビオチン無添加および $10\mu g/100ml$ 加培地に菌を白金耳接種、37°C72時間培養して、ビオチン加培地で増殖し、無添加培地で増殖をみなかったものを、要求陽性とした。

III 試験結果

1. 一般性菌数, 耐熱菌数, 雑菌数

Table 1のように、生菌数は全てが、 10^8 以上で、特に 10^9 が27件と半数以上を占めた。

一方、耐熱菌数は $10^4 \sim 10^9/g$ とバラツキがみられたが21件(42%)が $10^7/g$ 台であった。

また、検体別に一般生菌数と耐熱菌数を比較してみると、耐熱菌数が生菌数よりも2~3オーダー低い値を示した。(Table 2)これらの結果から、計算上、雑菌数のオーダーは、生菌数と全く同じであった。

Table 1 Viable Count of Samples

	10 ⁴	10 ⁵	10 ⁶	10 ⁷	10 ⁸	10 ⁹	10 ¹⁰
Viable Count					5 (7)	9 (18)	2 (9) (Samples)

Thermostability Viable C.	3 (2)	5 (4)	5 (9)	3 (16)	3 (2)	1 (1)
---------------------------	-------	-------	-------	--------	-------	-------

Saprophytik Viable C.	5 (7)	9 (18)	2 (9)
-----------------------	-------	--------	-------

Table 2 Viable Count of Sample Saprophyte were Positive

No.	Viable count (✓g)	Thermostability Viable count (✓g)	Saprophytic Viable count (✓g)
1	10 ⁸	10 ⁸	10 ⁸
2	10 ⁹	10 ⁶	10 ⁹
3	10 ⁹	10 ⁸	10 ⁹
4	10 ⁸	10 ⁶	10 ⁸
5	10 ⁹	10 ⁷	10 ⁹
6	10 ⁹	10 ⁶	10 ⁹
7	10 ⁹	10 ⁷	10 ⁹
8	10 ⁸	10 ⁶	10 ⁸
9	10 ⁸	10 ⁸	10 ⁸
10	10 ⁸	10 ⁵	10 ⁸
11	10 ¹⁰	10 ⁷	10 ¹⁰
12	10 ¹⁰	10 ⁵	10 ¹⁰
13	10 ⁹	10 ⁷	10 ⁹
14	10 ⁹	10 ⁶	10 ⁹
15	10 ⁹	10 ⁵	10 ⁹
16	10 ⁹	10 ⁷	10 ⁹

2. 雑菌の同定および比率

50検体中16検体から雑菌を分離した。殆んどは、1検体から1菌種分離されたにすぎず、鉤菌株に占める比率も1~20%であった。(Table 3)

菌種別には、Micrococcus の分離頻度が最も高く、全体の10%に当たる5検体から分離され

た。(Table 4)その他、納豆菌以外のBacillus 属の各菌、Lactobacillus, Staphylococcus, Pseudomonasの計7種39株を分離した。

Table 3 Ratio of B.natto and Saprophyte Bacteriological Species

No.	Fished Strains	B.natto (%)	Saprophyte (%)	Bacteriological Species (Saprophyte)
1	4 4	40 (91.0)	4 (9.0)	Micrococcus
2	2 7	26 (96.3)	1 (3.7)	Lactobacillus
3	2 5	22 (88.9)	3 (11.1)	Micrococcus
4	8 9	80 (89.9)	9 (10.1)	Micrococcus
5	1 5	14 (93.3)	1 (6.7)	Staphylococcus
6	5	4 (80.0)	1 (20.0)	Micrococcus
7	9	8 (88.9)	1 (11.1)	Lactobacillus
8	7 4	73 (98.6)	1 (1.4)	Staphylococcus
9	4 4	37 (84.1)	7 (15.9)	B.pumilus
10	2 2	20 (90.0)	2 (10.0)	B.pumilus
11	1 1	9 (81.8)	2 (18.2)	B.pumilus
12	7 8	75 (96.2)	3 (3.8)	Pseudomonas
13	1 2	11 (91.7)	1 (8.3)	B.subtilis
14	3 6	35 (97.2)	1 (2.8)	B.megaterium
15	9 7	96 (99.0)	1 (1.0)	B.megaterium
16	7 3	72 (98.6)	1 (1.4)	Micrococcus
				Pseudomonas

Table 4 Classification and Detected Count of Saprophyte

Bacteriological Species	Count of Samples (Samples) (%)
Micrococcus	5 (10)
Lactobacillus	3 (6)
Staphylococcus	2 (4)
Pseudomonas	2 (4)
B.pumilus	3 (6)
B.megaterium	2 (4)
B.subtilis (biotin)	1 (2)

3. Bacillus属の同定

Bacillus属と同定した株について、生物学的性状を調べたところ、Table 5に示す5つのパターンが得られた。

Aのパターン、すなわち、cit (+), Nit(+), Sta(+), V P(+), gel(+)を示す菌株は、東の分類⁴⁾によると、*B.cereus*, *B.subtilis*, *B.licheniformis*のいずれかである。そこで、コロニー性状を観察したところ、2つの所見が得られた。1つは、淡褐色で黄粉をまぶしたような乾燥感があり、寒天上を広くに遊走し、1つは、前述に加えて、コロニーの中央に水を含んでいるような膨みが見えた。以上のような性状から、これらの菌株は*B.subtilis*と思われる。さらに、ビオチンを除いた培地では発育できないことから、納豆菌と同定した。

Bのパターンを示す菌株は、*B.cereus*, *B.polymyxa*, *B.subtilis*のいずれかであるが、Aと同様のコロニー所見を呈すること、発育にビオチンが不可欠であることなどから、納豆菌と同定した。なお、このパターンを示す納豆菌は約4.0%であった。

CのパターンはAと同様であるが、このグループの菌株は、ビオチンを要求しないことから、納豆菌以外の*B.subtilis*と同定した。

Dは、*B.megaterium*, *B.pantothenticus*, *B.firmuslentus*Gのいずれかであるが、5%食塩加液体培地で発育することから、*B.megaterium*と同定した。

Eは、*B.pamilus*のみが示すパターンであった。

Table 5 Biological properties of Genus Bacillus

	Cit	Nit	Sta	V.P	Gel	5%NaCl	Biotin	V	要約
A	+	+	+	+	+			+	1. 市販納豆50検体の菌検索を行った結果16検体から雑菌を分離した。また、鉤菌株に占める雑菌の比率は、平均8.1%であった。 2. 分離した雑菌は、 <i>Micrococcus</i> , <i>B.pumilus</i> , <i>B.megaterium</i> , <i>B.subtilis</i> (ビオチン要求性 \ominus), <i>Lactobacillus</i> , <i>Staphylococcus</i> , <i>Pseudomonas</i> の7種であった。 3. 公定法により測定した雑菌数は、50検体すべて、一般生菌数と同じオーダー、すなわち、
B	-	+	+	+	+			+	
C	+	+	+	+	+			-	
D	+	-	+	-	+		+		
E	+	-	-	+	+				

IV 考察

Bergey's Manual 8版では、納豆菌は、*B.subt-*

*ilis*に包含され、特別の記載はないが、ここでは鈴木⁵⁾、藤井⁶⁾らの文献を参考に、*B.subtilis*の中でビオチンを要求する株を納豆菌とした。

市販納豆50件中16件から雑菌を分離したが、納豆菌に対するそれらの比率は数%にすぎず、残りの34件(約70%)も、雑菌が分離されなかったことから0またはそれに近い数と推定され、50件、全てが $10^8 \sim 10^9$ /gを示す公定法の結果とは著しく相違した。

なぜ、公定法では、このように雑菌数が多いのか、第1に、耐熱性菌=納豆菌とみなす点に問題があるように思われる。むしろ、納豆菌は有芽胞菌であるが、芽胞を産生していない増殖型(栄養型)の存在も考えられる。ところが、加熱処理の過程で、これら易熱性菌は死滅するために納豆菌数が実際よりも少なく計測され、相対的に雑菌数が増加することになる。

また、雑菌種をみると、*Micrococcus*に次いで、*B.pumilus*など納豆菌以外の*Bacillus*属が分離されている。耐熱性の芽胞を産生するのは*Bacillus*属に共通の性状であるから、耐熱性菌=納豆菌とすれば、これらの雑菌も、納豆菌として測定される可能性が高い。

第2点は、雑菌数の求め方にあると思う。

雑菌数は、一般生菌数から耐熱菌数を減じた値として間接的に計測されるが、納豆のように、もともと菌数の多い食品では誤差が非常に大きくなる。例えば 10^8 から 10^9 を減じても 10^8 または 10^9 でオーダーには殆んど影響しない。その結果、雑菌数は一般生菌数と同じオーダーを示すのである。

以上の2つの問題点から、今後は納豆菌の発育を抑え直接雑菌数を測定できるような方法について検討したい。

10²~10³を示し、鈎菌株から推定しうる雑菌数との間に、特に、雑菌の分離されなかった検体について、大きな差異が認められた。

4. 公定法における問題点としては、耐熱性菌=納豆菌としていること、雑菌数を間接的に測定していることなどが考えられる。

文献：

1) 厚生省監修; 「食品衛生検査指針 I, II」
日本食品衛生協会 (1973)

2) Cowan and steel s, 坂崎利一訳; 「医学細菌同定の手引き」第2版, (1974), 近代出版

3) Buchanan.R,E, Gibbons,N,E.; 「Bergeys Manual of Determinative Bacteriology」8thed, (1974)

4) 東量三; 「New Food Industry」4,9, (1962)

5) 鈴木達郎, 他; 「納豆科学研究会誌」2,33-39 (1978)

6) 藤井久雄; 農化, 37, 346-350 (1963)

小・中学生の糞便より分離された ウェルシュ菌について

神谷 隆久・山本 和則・小室 道彦・掛札しげ子
村上りつ子・高井 勝美
(茨城県衛生研究所)

Studies on *Clostridium perfringens* isolated from feces of school children and junior high school student.

Takahisa KAMIYA, Kazunori YAMAMOTO, Michihiko KOMURO
Shigeko KAKEFUJIDA, Ritsuko MURAKAMI, Katsumi TAKAI
Ibaraki Prefectural Institute of Health
4-1, Atago-cho, Mito, Ibaraki

I はじめに

ウェルシュ菌 (*Clostridium perfringens*) による食中毒は、1953年に始めてHobbs¹⁾により疫学的、実験的に証明されて以来数多く報告され、我国においても毎年何件かの発生がある。

ウェルシュ菌は、自然界に広く分布し、Duncan²⁾らにより一部のEnterotoxin (以下Ent) 産生菌が食物といっしょに摂取され腸管内で芽胞形成時に、Entを産出し、食中毒を起こすと言われている。安川³⁾らの報告によれば食中毒より分離したウェルシュ菌の78%にEnt産生が見られた。そこで我々は、健康人の糞便中に常在しているウェルシュ菌を分離し、そのEnt産生能を調査検討したのでその概要を報告する。

II 検査方法

1. 検体採取月日及び採取法

昭和56年7月4日～7月7日までの4日間、県下小、中学生を対象(小学生193名、中学生79名)に採便を実施し、採便パックに採取、冷却保存輸送した。

2. ウェルシュ菌の分離、同定

加熱の場合は、10倍に希釈した便を100℃60分加熱し、チオグリコレート培地で増菌したものと原液を5%卵黄CW寒天培地に、また非加熱の

場合は、KM加5%卵黄CW寒天培地にそれぞれ塗抹し37℃24hr嫌気培養し、1検体当り3～4株鉤菌以後伊藤⁴⁾の方法で同定した。

3. Hobbsの血清型別

耐熱性A型ウェルシュ菌診断用免疫血清(デンカ生研)を用い型別を調べた。

4. 分離菌の芽胞形成能

クックドミート培地で75℃20分の加熱処理を数回行い、チオグリコレート培地で8hr培養後0.5mlをDS培地に接種し、37℃48hr嫌気培養を行った。その後、両培地を75℃20分加熱し、5%卵黄CW寒天培地で嫌気培養し、芽胞数を算定した。

5. Enterotoxin産生能

上記と同操作を行い、DS培地とCarlos培地を37℃48hr嫌気培養後、遠心分離し、上清を用い逆受身ラテックス凝集反応法(デンカ生研のウェルシュ菌Ent検出用キット)を行った。

III 結果

1. 小学生の糞便からの分離率を調べた結果、Table 1に見られるように加熱後で18.8%、非加熱で30.1%の分離率であった。また普通便と軟便の分離率は、それぞれ33.7%、88.5%であり、小学生と中学生の分離率は、それぞれ35.8%、46.8%であった。

2. Hobbs の血清型別は Table 2 のとおり 9 つの型が見られ Hobbs の 13 型が 7 株と一番多かった。しかし型別不明が 105 株 (82%) もあった。

3. DS 培地と Carlos 培地における芽胞形成の比較は、Table 3 に見られるように芽胞の形成は両培地共に高率に見られたが、DS 培地では 10^6 から 10^8 台までとバラツキが多く、Carlos 培地では 10^6 台に集中し、Carlos 培地の方が 1 オーダーから 2 オーダー芽胞数が多かった。

4. Ent 産生は、Table 4 のとおり、両培地共に 3 株が陽性であった。Ent 産生株間の比較では、Table 5 に見られるように、4 株共に芽胞数は 10^5 ~ 10^6 あり、Hobbs 型は不明で普通便より分離された。耐熱性は 4 株中 1 株が持っていた。Ent 産生量は 4 株中 2 株は $100 \mu\text{g}/\text{ml}$ 以上の Ent を産生し、健康人の糞便中にも強 Ent 産生菌が存在していた。

IV 考 察

小、中学生 272 名の糞便からウェルシュ菌の検出を行った結果、加熱後では 51 名から分離され 18.8% の分離率であった。伊藤ら⁵⁾、刑部⁶⁾、谷口ら⁷⁾、金ら⁸⁾の報告では、それぞれ 14%、21%、27%、20% の分離率で、我々の成績と同様であった。また、非加熱では 82 名から分離され 30.1% の分離率であったが、刑部⁶⁾、谷口ら⁷⁾の報告では、65%、47% の分離率で我々の成績より高かった。ウェルシュ菌の分離率は、分離方法や検査対象の年齢、生活環境により違いがあると言われているが、今回非加熱における分離率が低いのは検査方法や年齢の違いのためと考えられるが、今後の検討課題である。

健康人の糞便の状態によりウェルシュ菌の分離率や Ent の産生に差が生じるかを調べるために普通便と軟便にわけた。その結果普通便で 33.7%、軟便で 88.5% 分離された χ^2 検定により有意差が認められ軟便からの分離がよかったが、Ent 産生株は分離されなかった。また小学生と中学生の分離率は、それぞれ 35.8%、46.8% で χ^2 検定により有意差は認められなかった。

Hobbs の血清型分布は、1 型、3 型、4 型、6 型、8 型、10 型、11 型、13 型、14 型と 9 つの型が検出され、13 型が 7 株と最も多かったが、分布に特徴がなく型別不明が 82% あった。これらの結果は、伊藤ら⁵⁾、刑部⁶⁾の報告と同様であった。

分離されたウェルシュ菌 128 株を使い Ent 産地培地である DS 培地と Carlos 培地で Ent 産生と芽胞数の比較を行った。芽胞形成については、DS 培地で 10^6 から 10^8 台までと菌株によりばらつきが多く、Carlos 培地では 10^6 台に集中し両培地共に高率に芽胞の形成が見られ芽胞数は Carlos 培地の方が 1 ~ 2 オーダー多かった。Ent 産生は DS 培地で 3 株 Carlos 培地で 3 株合計 4 株 (3%) に見られ、安川ら³⁾、刑部⁹⁾、稲葉ら¹⁰⁾の報告では、それぞれ 0.8%、1.4%、4.5% の陽性率であり、我々の成績と同様であった。

Ent 産生には芽胞形成が必要であるが、芽胞が形成されれば必ず Ent を産生するわけではないと現在考えられている。今回の我々の成績でも Ent 産生菌の DS 培地、Carlos 培地における芽胞数は、 10^5 ~ 10^6 台であり Ent 産生には芽胞形成が必要であると言える。しかし芽胞数が 10^5 以上で、Ent 非産生株が DS 培地 62 株、Carlos 培地 113 株あり芽胞を形成すれば必ず Ent を産生するわけではないとの結果を得た。また、安川ら³⁾、伊藤¹¹⁾、刑部¹²⁾の報告では、食中毒由来ウェルシュ菌の Ent 産生は、それぞれ 78%、79%、82% の高率であり、健康人由来ウェルシュ菌の Ent 産生は、0 ~ 4% と低率であるのと比較するとウェルシュ菌食中毒の検査には、Ent の検出が重要であると言える。

今までに食中毒から分離したウェルシュ菌の多くは Hobbs 型に合致し、耐熱性を有すると報告されてきたが、近年易熱性ウェルシュ菌による食中毒が報告されるようになり易熱性ウェルシュ菌にも Ent 産生株が含まれることが認められるようになってきた。今回の我々の結果でも Ent 産生株には、耐熱性のものと易熱性のものがあり刑部の報告と同様に Ent 産生と Hobbs 型及び耐熱性には関連がないと考えられる。Ent 産生量は、DS 培地、Carlos 培地共に 2 株に $100 \mu\text{g}/\text{ml}$ 以上の毒力があり伊藤らの報告した食中毒菌の Ent 産生量は $10 \mu\text{g}/\text{ml}$ 以下が 90% と比較するとかなり Ent 量は多かった。このことは健康人の糞便中にも、強毒の Ent 産生菌が存在するということが、常にウェルシュ菌による食中毒が起りえることを意味している。今後も健康人の糞便から分離されるウェルシュ菌の Ent 産生について検討する必要があると思われる。

V まとめ

県内、小、中学生の糞便から分離されたウェルシュ菌について調査し次のような結果を得た。

1. 小、中学生の糞便からのウェルシュ菌の分離率は、加熱後で18.8%, 非加熱で30.1%であった。また、軟便と普通便では分離率に差があったが、小学生と中学生では差はなかった。

2. DS培地とCarlos培地における芽胞形成の比較では、両培地共に高率に芽胞を形成したが、芽胞数はCarlos培地の方が1~2オーダー多く、Ent産生の比較では、両培地共に3株にEnt産生があった。

3. 芽胞形成とEnt産生の関連については、Ent産生菌の芽胞数は $10^5 \sim 10^6$ 台あり、芽胞数 10^5 以上の大部分の株がEnt非産生株であったので、Ent産生には芽胞形成が必要であるが、芽胞形成すれば必ずEntを産生するとは限らないと言える。

4. 分離されたウェルシュ菌のEnt産生を調べた結果、128株中4株にEnt産生があり、そのうち2株に100 ug/ml以上のEnt産生能があった。またウェルシュ菌のEnt産生とHobbs型及び耐熱性には関連性は認められなかった。

なお今回の分離菌について、筑波大学基礎医学系美善志康博士が日本細菌学雑誌 (Vol 38, No 1, 1983)にヒト由来ウェルシュ菌のテトラサイクリ

耐性の伝達についてという論文で発表報告しています。

文献

- 1) Hobbs. B.C, Smith. M. E, Oakley. C. L, Warrack.GH, and Crrickshank. JC, : Clostridium welchii food poisonin J. Hyg. 51, 75-101 (1953)
- 2) Strong. D.H, Duncan. CL, Peina. G, : Infest & Immun, 3, 171 (1971)
- 3) 安川章, 岡田陽一, 北瀬照代, 宮本三郎: 食衛誌, 16, 313 (1975)
- 4) 伊藤武, 坂井千三: メディアサークル, 24, (1979)
- 5) 伊藤武: 都衛研年報 24 (1972)
- 6) 刑部陽宅: 食衛誌, 19, 236 (1978)
- 7) 谷口悦子, 青木正一: 栃木衛研年報, 11, 49 (1978)
- 8) 金鉄三郎: 秋田生科学研年報, 14, 107 (1970)
- 9) 刑部陽宅: 十全医誌, 83, 709 (1974)
- 10) 稲葉美佐子, 伊藤武, 坂井千三, 大橋誠: 都衛研年報, 32-1 (1981)
- 11) 伊藤武, 斉藤香彦, 稲葉美佐子, 坂井千三: 第8回嫌気性感染症研究会 91, (1978)
- 12) 刑部陽宅: 食衛誌 18, 375 (1977)

Table 1 Recovery of Clostridium perfringens

		Heated	Not heated	Total
Feces	Common	$\frac{40}{246}$ (16.3%)	$\frac{65}{246}$ (26.4%)	$\frac{83}{246}$ (33.7%)
	Loose	$\frac{11}{26}$ (42.3%)	$\frac{17}{26}$ (65.4%)	$\frac{23}{26}$ (88.5%)
Specimens	School children	$\frac{33}{193}$ (17.1%)	$\frac{50}{193}$ (25.9%)	$\frac{69}{193}$ (35.8%)
	Junior high School studnt	$\frac{18}{79}$ (22.8%)	$\frac{32}{79}$ (40.5%)	$\frac{37}{79}$ (46.8%)
	Total	$\frac{51}{272}$ (18.8%)	$\frac{82}{272}$ (30.1%)	$\frac{106}{272}$ (39.0%)

Table 2 Distribution of Isolates by Hobbs' Serological Type

Condition	Hobbs' Serological Type															
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	UT	
Heated (49 Strains)	2	2			2		1		1	1			4	1	35	
NotHeated (79 Strains)			1	4										3	1	70
Total (129 Strains)	2	3	4		2		1		1	1			7	2	105	

Table 3 Comparison of Sporulation in D.S and Carlos medium

Medium	Order of Spore counts						
	0	10 ²	10 ³	10 ⁴	10 ⁵	10 ⁶	10 ⁷
D. S m. (128 Strains)	3	17	18	25	37	23	5
Carlos m. (127 Strains)	2	1	3	6	26	73	16

Table 4 Enterotoxin Production of the Isolates

Medium	Positive	Negative
D.S medium	$\frac{3}{128}$	$\frac{125}{128}$
Carlos medium	$\frac{3}{127}$	$\frac{124}{127}$

Table 5 Comparison of Enterotoxin Producing Strains

No.	Medium	No of Spores (/ml)	Hobbs' Serotyps	Heat resistant	Feces	Ent ($\mu\text{g}/\text{ml}$)
1	D. S m.	4.3×10^5	U. T	+	Common	>100
	Carlos m.	4.1×10^6	U. T	+	Common	>100
2	D. S m.	4.3×10^5	U. T	-	Common	>100
	Carlos m.	1.5×10^5	U. T	-	Common	>100
3	D. S m.	4.5×10^5	U. T	-	Common	0.004
4	Carlos m.	2.0×10	U. T	-	Common	0.032

茨城県の地下水の衛生化学的研究（第11報）
～ 県南東部地域の地下水～

仲田 典子・笹本 和博・根本 雄二・鈴木八重子
久保田京子・勝村 馨※・斎藤 護※※
(茨城県衛生研究所)

**Hygienic chemical Studies of Ground water in Ibaraki
Prefecture (IX)**

Ground water in South East Area of Ibaraki Prefecture.

Michiko NAKATA, Tokihiro SASAMOTO, Yuji NEMOTO
Yaeko SUZUKI, Kyoko KUBOTA, kaoru KATSUMURA
Mamoru SAITO.

Ibaraki Prefectural Institute of Health.

I はじめに

本調査は豊富な水量と良質な地下水を得るための基礎資料を作ることを目的として、地下水の水質調査を衛生化学的な立場から行った。

II 調査方法

II・1 調査地域

調査地域は茨城県南東部の鉾田町、旭村、大洋村、大野村、小川町、北浦村、玉造町、麻生町、牛堀町、潮来町の6町、4村である。

調査検体は深井戸（30m以深）を対象とし、調査地域を代表するよう選んだ。調査井戸の位置は図1、調査井戸の概要は表1のとおりである。

II・2 採水時期および検体数

採水時期は昭和57年5月14日～5月21日で、36検体を採水した。

II・3 試験項目および試験方法

試験項目は気温、水温、PH、色度、濁度、蒸発残留物、導電率、アンモニア性窒素、亜硝酸性窒素、硝酸性窒素、過マンガン酸カリウム消費量、アルカリ度、塩素イオン、硫酸イオン、フッ素イオン、カリウムイオン、ナトリウムイオン、マグネシウムイオン、総硬度、鉄、亜鉛、マンガン、ケイ酸およびリン酸の25項目である。試験方法は上

水試験方法によった。

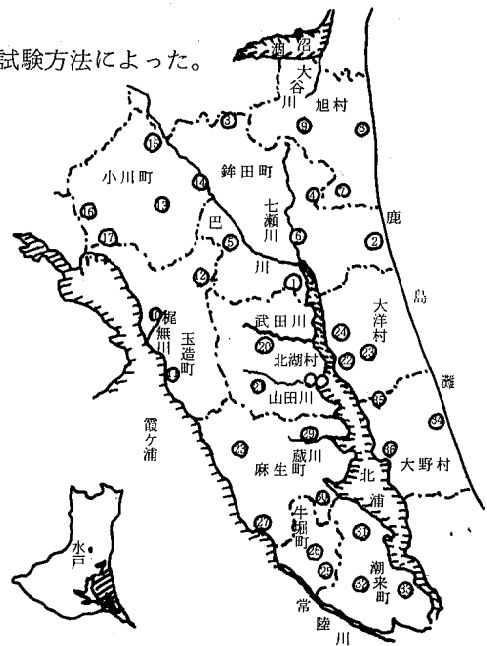


図1 調査地域及び採水地点

III 地形・地質

III・1 地形

調査地域は県の南東部に位置し、霞ヶ浦と鹿島灘にはさまれた地域で、ほぼ中央部に北浦の湖沼が存在する。

北浦には巴川、武田川、山田川等の小河川が流入している。北側の一部は湖沼に面している。

※ 茨城県薬剤師会公衆衛生検査センター

※※ 茨城県土浦保健所

表 1 調査井戸の概要

No.	所在地	標高	井戸深	ストレーナーの位置(m)
1	鉾田町串挽 町長宅	台	打込井	
2	“ 大竹 大竹小学校	“	“	
3	“ 舟木 舟木小学校	台	“	22~40m, 55~66.5m 89~95m
4	“ 徳宿 農高	台	“	
5	“ 借宿 ダイヤグリーン	“	100m	330~44m, 66~77m
6	“ 鉾田 合同庁舎	台	“	
7	旭村縦山 旭南小学校	“	打込井	
8	“ 荒地 旭東小学校	台	“	
9	“ 造谷 旭村公民館	台	70m	42~54m, 60~66m
10	玉造町谷島 中央準水場	台	100m	395~46m, 615~725m 785~835m
11	“ 手賀 手賀簡易水道	“	80m	43.5~490m, 60~76m
12	“ 榎本芹沢 工業高校	“	“	
13	小川町百里 航空自衛隊	“	120m	65~87m, 92.5~95m 98~102.5m, 109~112m
14	“ 下吉影	“	“	539~580m, 73.7~90m
15	“ 上吉影上吉影小学校	“	“	
16	“ 中延 すずらん保育園	“	“	
17	“ 幡谷 レッジマーク	“	“	395~56m, 72.5~89.0m
18	北浦村山田 簡易水道No.3	“	100m	395~56m, 72.5~89.0m
19	“ 山田 “ No.2	“	100m	
20	“ 小貫 小貫小学校	“	100m	285~45m, 56~61.5m 45.0~55m, 96~99m
21	“ 小橋 要小学校	“	100m	
22	太平洋村 白鳥西小学校	“	100m	
23	“ 大倉 太平洋中学校	“	“	
24	“ 梶山上島西小学校	“	“	
25	牛堀町上戸 朝日食品	低地	50m	
26	“ 堀の内 第二小学校	台	打込井	
27	麻生町麻生 警察署	“	“	
28	“ 小高 小学校	“	“	
29	“ 小松 大和第一小	“	“	
30	“ 矢幡 太田小学校	“	30m	
31	潮来町大生野原 上水道5号井	“	“	
32	“ 辻 醸造業(黒鹿)	“	40m	
33	“ 延方 ナイルス部品工業	低地	打込井	
34	大野村荒井 大同東小学校	台	50m	
35	“ 志崎 武井・志崎簡易水道	“	“	
36	“ 津賀 簡易水道	“	“	

本地域の台地は常総台地および下総台地の一部をなし、標高は30~40mで涸沼東部-大谷川-七瀬川-北浦を結ぶ南北の線をさかいとして東側を鹿島台地、西側を東茨城台地に区分されている。¹⁾ 東茨城台地の主部は海拔30m前後の平坦な地形を示し、その南部の行方台地は霞ヶ浦と北浦の間に尾根状の台地を形成している。鹿島台地は平坦であるが海拔40~50mで東茨城台地と10m前後の高度差がある。海岸砂丘は鹿島台地東縁をわずかにおおるように分布している。

沖積低地は湖岸周辺および河川流域とくに北浦から常陸川流域にかけて5~6mの低湿な平地が広がっている。^{2),3),4)}

III・2 地質

本地域の地質は図2のとおりで所によってそれぞれ固有の名称で呼ばれているが、概観すれば表2のような層序から成っている。

この地域の台地は前述したとおり、常総台地および下総台の一部を占め広く洪積層におおわれている。

洪積層は主として関東ローム層、常総粘土層、段丘砂礫層(涸沼南岸から巴川流域の東茨城台地等に分布)成田層から構成されている。

この地域の沖積低地は河川の流域および霞ヶ浦北浦の周辺部に分布し、砂(所によって砂礫)、粘土、シルトなどからなっており、沖積層全体の厚さは最大30m²⁾である。

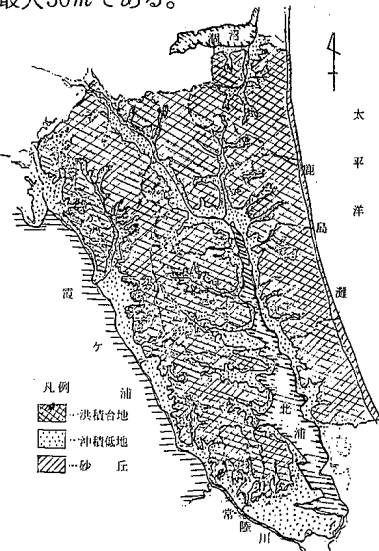


図2 調査地域の地形と地質

表2 地質層序と対比

新期 ローム層	新期ローム層	関東ローム層	関東 ローム層
常総粘土層	段丘砂レキ 常総粘土層	常総粘土層	
成田層	成田層	竜ヶ崎砂礫層	竜ヶ崎 砂レキ層
		半田層	鹿島層
		島津層	奈良毛層
鉾田層	鉾田層	有河層	石崎層
古生層 (東茨城台 地層序)	(行方台地 層序)	(霞ヶ浦 北岸周辺)	(鹿島台地)

III・3 帯水層

本地域の帯水層を柱状図(図3)から概観すれば、成田層および成田層相当層の砂層または、砂礫層から構成されている。

霞ヶ浦南東部地域(玉造、麻生、牛堀、潮来各町)は地質状況から、ほとんど全ての用水が同一

帯水層すなわち成田層相当層中の細砂~シルトの直上にある地下水を利用しており、ローム層を除きいずれも砂層~砂礫層を主体としているため、降水がこの面まで浸透して自由地下水に近い状態にあると思われる。この台地面の井戸の深さは20mを越えるものが多く、沖積層面の井戸は数mのものが多い。

調査地域の被圧地下水の帯水層は洪積層では第1帯水層(20~40m)、第2帯水層(60~80m)、第3帯水層(100m前後)の2~3層の帯水層を利用している。

IV 試験結果および考察

水質試験による分析結果および水質の概要を表3、表4に示す。また主な化学成分の含有率の頻度分布は図4のとおりである。

IV・1 水質の概要

IV・1・1) 気温、水温

気温は18.7~29.2℃の範囲で、平均値は24.5℃である。

水温は15.0~19.5℃の範囲にあり、平均値は16.5℃である

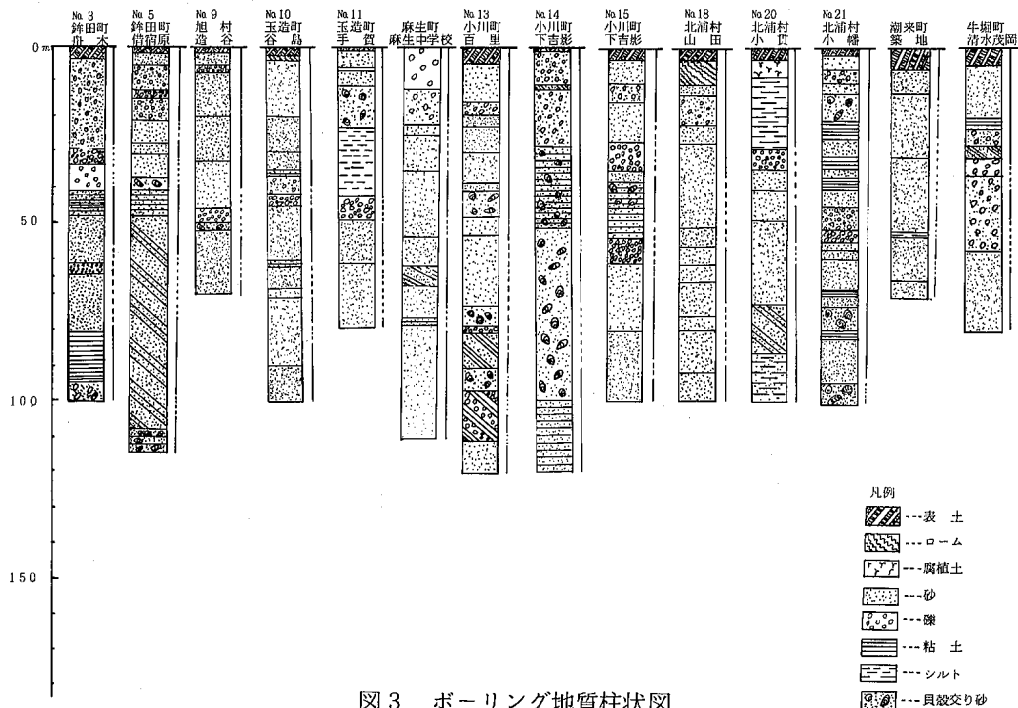


図3 ボーリング地質柱状図

表 4 水 質 の 概 要

項 目	最小値~最大値	平均 値	標準偏差
気 温 (°C)	18.7 ~ 29.2	24.5	2.91
水 温 (°C)	15.0 ~ 19.5	16.5	0.97
pH	6.7 ~ 8.7	7.61	0.50
色 度 (度)	0 ~ 30	3.78	6.15
濁 度 (度)	0 ~ 10	-	-
蒸 発 残 留 物 (ppm)	10.2 ~ 32.6	189.1	57.47
導 電 率 ($\mu\text{V}/\text{cm}$)	114 ~ 430	234.9	82.88
NH ₄ -N (ppm)	0.01 ~ 0.36	0.04	0.12
NO ₂ -N (ppm)	0.00 ~ 0.02	-	-
NO ₃ -N (ppm)	0.0 ~ 7.4	2.28	2.25
KMnO ₄ 消費量 (ppm)	1.3 ~ 7.0	2.88	1.03
アルカリ度 (ppm)	33.0 ~ 96.0	59.88	20.85
Cl (ppm)	7.9 ~ 46.3	23.03	10.23
SO ₄ (ppm)	0 ~ 42.0	8.83	12.43
F (ppm)	0 ~ 0	0	-
K (ppm)	0.5 ~ 6.7	2.37	1.87
Na (ppm)	7.7 ~ 23.0	16.84	19.71
Ca (ppm)	1.1 ~ 11.7	6.49	2.93
Mg (ppm)	2.1 ~ 14.4	7.02	3.46
総 硬 度 (ppm)	37.0 ~ 146.0	77.53	29.39
Fe (ppm)	0.00 ~ 2.0	0.319	0.48
Zn (ppm)	0.00 ~ 0.5	-	-
Mn (ppm)	0.00 ~ 0.04	-	-
SiO ₂ (ppm)	2.30 ~ 59.0	36.94	7.91
PO ₄ (ppm)	0.02 ~ 1.4	0.302	0.32

IV・1・2) pH

pHは6.7~8.7の範囲で、平均値は7.6である。頻度分布は7.1~7.2にピークがみられる。水質基準を越えるものは、No.9, No.14とともに8.7を示す。

IV・1・3) 色度, 濁度

色度は0~30度の範囲にあり、平均値は3.8で13件(36.1%)が0度を示し、水質基準を越えるものは、No.11, 21, 33(各7度), No.22, 30, 31(各15度), No.19(30度)の7件である。これら7件はいずれも鉄の含有量が高いことから、鉄に起因する色度と思われる。

濁度は0~10度の範囲にあり、33件(91.7%)が0度を示す。水質基準の2度を越えるものはNo.

19(10度), No.22(10度), No.31(7度)の3件である。これらは色度同様無機性の鉄によるものと思われる。

IV・1・4) 蒸発残留物, 導電率

蒸発残留物は10.2~32.6 ppmの範囲にあり、平均値は189.1 ppmである。

導電率は114~430 $\mu\text{V}/\text{cm}$ の範囲で、平均値は234.9 $\mu\text{V}/\text{cm}$ である。

IV・1・5) アンモニア性窒素, 亜硝酸性窒素, 硝酸性窒素

アンモニア性窒素は0.00~0.36 ppmの範囲で平均値は0.04 ppmである。36検体中、不検出は20件(55.6%)であり、深井戸にも拘わらず検出量、検出率ともに低い。

亜硝酸性窒素は0.00~0.02 ppmの範囲で、検出したものはわずかに2件残りはすべて不検出である。

硝酸性窒素は0.00~7.4 ppmの範囲で、平均値は2.28 ppmである。アンモニア性窒素と逆に検出量、検出率(80.5%)ともに高い。

IV・1・(6) 過マンガン酸カリウム消費量

過マンガン酸カリウム消費量は1.3~7.0 ppmの範囲で、平均値は2.88 ppmである。水質基準を越えるものはないが、5 ppm以上の比較的高い値を示すものはNo.11(5.1 ppm), No.19(7.0 ppm)の2件でこの2件はいずれも色度および鉄の含有量が高い。

IV・1・(7) アルカリ度, 塩素イオン, 硫酸イオン, フッ素イオン

アルカリ度は33~96 ppmの範囲で、平均値は59.9 ppmである。

塩素イオンは7.9~46.3 ppmの範囲で、平均値は23.0 ppmである。頻度分布は20~25 ppmをピークに正規分布を示している。

硫酸イオンは0~42 ppmの範囲で、平均値は8.8 ppmである。36件中21件(58.3%)が不検出である。

フッ素イオンはすべて不検出である。

IV・1・(8) カリウムイオン, ナトリウムイオン

カリウムイオンは0.5~9.2 ppmの範囲で、平均値は2.37 ppmである。5 ppm以上の比較的高い値を示すものは、No.10(6.7 ppm), No.27(5.4 ppm), No.32(9.2 ppm)の3件みられ、ほとんどは3.0 ppm以下である。

表 3 水 質 試 験 結 果

No.	气温 (°C)	水温 (°C)	pH	色度 (度)	濁度 (度)	蒸発残留物 (ppm)	導電率 (μ s/cm)	NH ₃ -N (ppm)	NO ₂ -N (ppm)	NO ₃ -N (ppm)	KMnO ₄ 消費量 (ppm)	アルカリ度 (ppm)
1	23.3	16.6	7.8	3	0	129	151	0.02	0.00	0	3.1	56.0
2	19.2	17.5	8.1	0	0	179	219	0.02	0.00	2.5	2.5	33.5
3	21.8	16.4	8.1	0	0	182	204	0.01	0.00	4.1	1.9	41.0
4	18.7	15.6	6.9	0	0	155	153	0.01	0.00	3.8	2.2	39.0
5		15.6	7.2	0	0	118	137	0.02	0.00	1.5	3.1	34.0
6		15.3	8.1	1	0	177	227	0.02	0.00	0.4	2.2	72.0
7		17.7	8.0	2	0	167	199	0.02	0.00	2.6	2.5	34.5
8		15.6	7.2	0	0	228	278	0.01	0.01	6.1	2.8	46.0
9	20.5	19.5	8.7	4	0	128	137	0.02	0.00	0	2.8	39.0
10	26.7	16.5	7.7	3	0	170	216	0.28	0.00	0	4.1	83.0
11	24.5	17.4	8.0	7	0	157	197	0.36	0.00	0.2	5.1	78.0
12	26.2	16.4	7.8	0	0	225	292	0.00	0.00	3.8	3.2	81.5
13	27.0	15.6	8.4	3	0	130	158	0.04	0.00	0	1.6	58.5
14	29.2	16.5	8.7	3	0	151	168	0.12	0.00	0	3.2	71.0
15	28.5	16.5	8.3	3	0	220	246	0.00	0.00	0.7	2.8	50.0
16	28.0	16.5	7.4	2	0	114	148	0.00	0.00	0.5	1.9	56.0
17	27.2	17.0	6.7	0	0	237	289	0.00	0.00	5.7	2.2	38.5
18	24.5	15.4	7.4	0	0	134	173	0.00	0.00	1.0	2.5	60.5
19	24.0	15.6	7.2	30	10	233	272	0.60	0.00	3.5	7.0	77.0
20	26.8	15.0	7.4	3	0	143	180	0.00	0.00	0.5	2.8	43.0
21	27.0	16.3	7.0	7	0	292	396	0.00	0.00	7.1	1.3	88.0
22	22.5	16.5	7.2	15	10	208	276	0.00	0.00	0.3	2.2	96.0
23	23.5	16.5	7.8	0	0	126	152	0.00	0.00	0.9	2.5	34.0
24	25.0	16.0	7.9	3	0	102	114	0.00	0.00	0	2.5	33.0
25	21.6	16.5	7.2	1	0	278	358	0.00	0.00	2.9	3.1	88.0
26	21.0	18.0	7.8	3	0	326	430	0.00	0.00	7.4	2.8	72.0
27	23.5	16.0	7.1	0	0	267	336	0.00	0.00	5.1	3.1	60.0
28	23.6	17.6	7.5	3	0	192	215	0.00	0.00	3.5	3.1	36.0
29		15.4	7.8	3	0	241	304	0.00	0.02	2.4	3.1	83.0
30	20.2	17.0	7.6	15	0	173	203	0.02	0.00	0	4.7	63.0
31		16.8	7.1	15	7	189	211	0.00	0.00	5.8	1.9	44.0
32	23.5	18.5	7.1	0	0	287	418	0.00	0.00	2.4	2.5	83.0
33	28.0	17.5	6.9	7	0	245	327	0.00	0.00	0	2.5	96.0
34	25.0	16.5	7.6	0	0	194	280	0.00	0.00	1.9	2.8	56.0
35	27.2	16.2	7.7	0	0	117	161	0.00	0.00	1.5	2.8	91.5
36	27.4	15.6	7.4	0	0	192	233	0.00	0.00	3.9	3.4	40.5

Cl ⁻ (ppm)	SO ₄ ²⁻ (ppm)	F (ppm)	K ⁺ (ppm)	Na ⁺ (ppm)	Ca ⁺⁺ (ppm)	Mg ⁺⁺ (ppm)	総硬度 (ppm)	Fe (ppm)	Zn (ppm)	Mn (ppm)	ケイ酸 (ppm)	リン酸 (ppm)
10.3	0	0.0	3.2	9.2	5.5	3.3	51	0.21	0.06	0.00	39	0.32
33.6	0	0.0	1.1	18.8	7.5	3.5	52	0.22	0.02	0.00	34	0.20
26.0	0	0.0	0.7	9.6	5.9	6.8	69	0.11	0.00	0.00	32	0.12
22.1	0	0.0	0.6	11.1	5.3	5.5	56	0.00	0.00	0.00	40	0.12
14.9	0	0.0	0.9	7.8	1.1	4.6	46	0.11	0.00	0.00	33	0.16
18.7	13	0.0	2.2	10.7	2.5	4.3	84	0.11	0.00	0.00	40	0.40
29.9	0	0.0	0.8	13.9	4.8	8.1	58	0.19	0.07	0.00	33	0.12
45.5	0	0.0	1.2	22.3	8.0	11.1	87	0.06	0.02	0.00	25	0.14
8.9	11	0.0	4.1	8.5	5.3	2.4	54	0.04	0.00	0.00	49	0.28
11.9	11	0.0	6.7	15.8	5.7	4.2	66	0.17	0.00	0.00	33	0.40
9.7	0	0.0	3.7	10.3	6.2	4.7	72	0.28	0.02	0.02	40	1.40
24.7	13	0.0	1.3	11.8	10.9	9.8	114	0.14	0.00	0.00	25	0.12
7.9	10	0.0	3.7	10.1	4.6	3.3	53	0.06	0.00	0.00	39	0.56
7.9	0	0.0	4.4	16.8	4.6	2.3	43	0.08	0.00	0.00	44	0.36
37.7	0	0.0	1.5	7.7	11.7	5.8	89	0.15	0.00	0.00	42	0.72
11.0	0	0.0	0.8	9.1	4.3	5.5	54	0.36	0.00	0.00	32	0.06
22.5	34	0.0	1.5	12.0	8.5	9.8	102	0.00	0.50	0.00	40	0.12
14.4	0	0.0	1.0	9.5	5.0	6.8	67	0.11	0.00	0.00	33	0.10
21.3	0	0.0	2.9	13.1	8.5	8.1	93	1.78	0.00	0.00	55	1.30
19.5	11	0.0	1.4	9.5	4.6	6.3	66	0.11	0.00	0.01	40	0.36
31.4	27	0.0	2.8	17.9	12.6	13.0	146	0.61	0.00	0.01	33	0.18
22.2	0	0.0	3.0	17.3	7.1	10.2	90	1.14	0.06	0.00	38	0.14
20.2	0	0.0	1.1	12.9	3.2	3.9	39	0.21	0.01	0.00	36	0.16
17.1	0	0.0	0.7	9.3	2.5	2.1	37	0.14	0.02	0.00	30	0.16
29.8	35	0.0	3.1	17.0	8.5	14.2	135	0.03	0.00	0.00	39	0.26
46.3	24	0.0	1.3	23.0	9.4	13.4	122	0.53	0.20	0.00	32	0.10
28.1	29	0.0	5.4	16.6	13.5	6.8	107	0.08	0.10	0.00	28	0.24
19.9	17	0.0	2.6	10.9	4.8	6.6	66	0.13	0.02	0.02	42	0.44
21.6	21	0.0	2.4	13.1	10.3	10.1	109	0.11	0.08	0.00	39	0.08
16.9	0	0.0	2.9	16.4	4.3	5.1	54	1.25	0.02	0.02	59	0.90
21.0	0	0.0	0.5	10.3	4.1	9.7	75	2.00	0.00	0.01	26	0.07
40.4	42	0.0	9.2	21.5	7.8	14.4	132	0.11	0.00	0.00	40	0.36
29.5	20	0.0	2.2	19.0	8.5	10.1	113	0.58	0.05	0.04	49	0.08
36.2	0	0.0	2.2	18.5	7.8	7.0	79	0.08	0.00	0.00	36	0.24
21.4	0	0.0	0.7	12.9	3.4	3.9	45	0.18	0.00	0.00	32	0.10
28.7	0	0.0	1.4	16.1	5.3	5.9	66	0.03	0.00	0.00	23	0.02

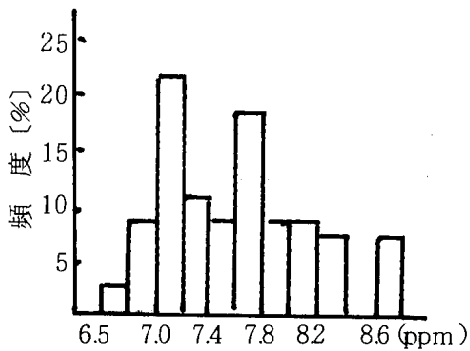


図 4.1 pHの頻度分布

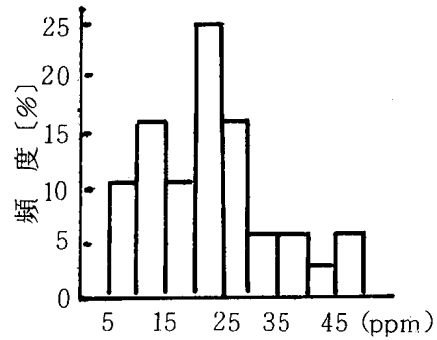


図 4.2 塩素イオンの頻度分布

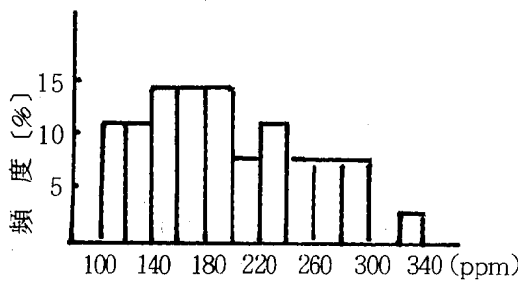


図 4.3 蒸発残留物の頻度分布

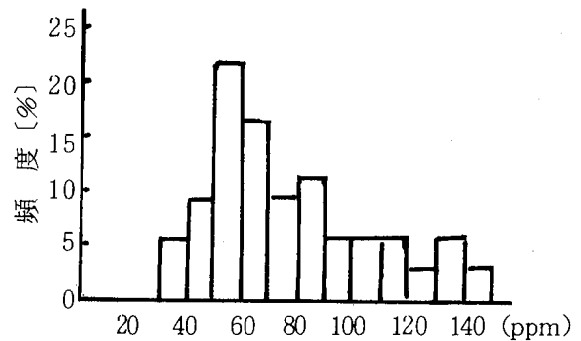


図 4.4 硬度の頻度分布

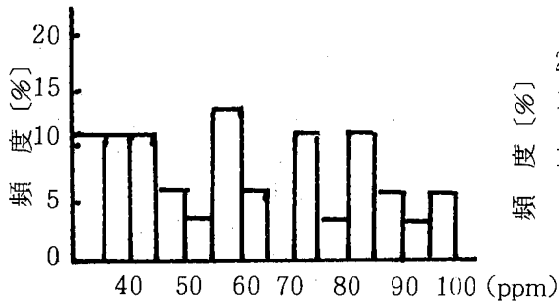


図 4.5 アルカリ度の頻度分布

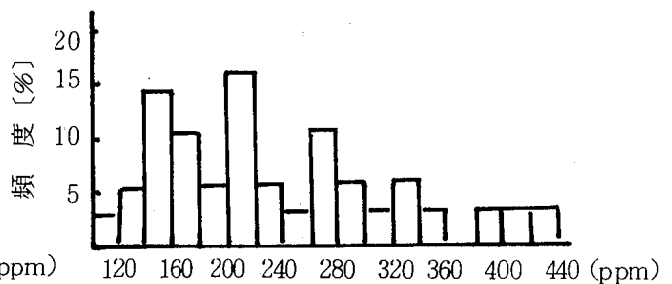


図 4.6 導電率の頻度分布

ナトリウムイオンは7.7~230ppmの範囲で、平均値は16.8ppmである。

IV・1・(9) カルシウムイオン、マグネシウムイオン

カルシウムイオンは1.1~117ppm範囲で、平均値は6.49ppmである。半谷によれば、わが国では一般にカルシウムイオンの含量が少く、5~20mgCa/lのものが多いと言われているが、本地域では5ppm以下の比較的低濃度のものが36件中

13件(36.1%)みられる。

マグネシウムイオンは2.1~14.4ppmの範囲で、平均値は7.02ppm

半谷によれば、Mgの量はアルカリ度、硫酸イオン、塩素イオンなどを検討して、それらが日本全国の平均値から著しくはずれていない場合は、 $\frac{Ca}{Mg} \div 0.6$ 当量比と考えてよいであろうと述べている。当地域の $\frac{Mg}{Ca}$ の当量比は0.8~6.8を示し、 $Ca^{me/l} > Mg^{me/l}$ の関係を示すものは6件(No.1, 2,

9, 14, 15, 27) のみであり, 残る30件(833%) は $Mg^{me} > Ca^{me}$ の関係にある。 $Mg > Ca$ の含量関係を示す原因については今後究明したい。

IV・1・(10) 総硬度

総硬度は37~146 ppmの範囲で, 平均値は77.5 ppmである。頻度分布は60~70ppmがピークで, 70ppm以上はなだらかな分布曲線を示している。

IV・1・(11) 鉄, 亜鉛, マンガン

鉄は000~2.0 ppmの範囲で, 平均値は0.32 ppmである。水質基準を越えるものは8件 (No.16, 19, 21, 22, 26, 15, 31, 33) でいずれも色度が高い。

マンガンは000~0.04 ppmの範囲で, 21件(58.3%) が不検出である。

IV・1・(12) ケイ酸, リン酸

ケイ酸は23~59ppmの範囲で, 平均値は36.9 ppmである。

リン酸は0.02~1.4 ppmの範囲で, 平均値は0.30 ppmである。

IV・2 主要化学成分からみた地下水の性格

本地域の地下水の化学的性質を明らかにするため, 主要陰陽イオンの当量百分率を求め, 三角座標とKey diagram を作成し, 図5で表した。

まず陽イオンの濃度関係を三角座標から考察すると, $Mg > Na + K > Ca$ が16件 (44.4%) で最も多い。次いで $Na + K > Mg > Ca$ が14件,

(38.9%), $Na + K > Ca > Mg$ が4件(11.1%)

$Mg > Ca = Na + K$, $Ca > Mg > Na + K$ が各1件 (2.8%) の順である。以上の関係から本地域の地下水の陽イオンの主成分は Mg と Na であり, Mg の含量比の高いのが特徴的である。

陰イオンの濃度関係を三角座標から考察すると $HCO_3 > Cl > SO_4$ が18件 (50.0%) と最も多い。次いで $Cl > HCO_3 > SO_4$ が15件 (41.7%), $SO_4 > Cl > HCO_3$ が2件 (5.6%), $Cl > SO_4 > HCO_3$ が1件 (2.7%) である。陰イオンの主成分は HCO_3 と Cl であり, はば同件数の割合で存在し, 硫酸イオンを主成分とするものはわずか2件である。

さらに地下水の性格を調べるため, $Na + K$, $Ca + Mg$, $Cl + SO_4$, HCO_3 の4成分系からなるKey diagram によって検討してみる。この水質組成はつぎのように区分されている。

〔第Iグループ〕は炭酸硬度型: $Ca(HCO_3)$ type

〔第IIグループ〕は炭酸アルカリ型: $NaHCO_3$ type

〔第IIIグループ〕は非炭酸硬度型: $CaSO_4$, $CaCl$ type

〔第IVグループ〕は非炭酸アルカリ型: Na_2SO_4 , $NaCl$ type

本地域の地下水は, 第IIIグループに属するものが16件 (44.4%) と最も多く, このタイプは調査地域全域に分布している。次いで第Iグループに属するものが11件 (30.6%), 第IVグループに属

表5 各成分間の相関係数

	色度	蒸発残留物	導電率	NH ₃ -N	NO ₃ -N	KMnO ₄ 消費量	アルカリ度	Cl	SO ₄	Na	硬度	Fe
色度		0.131	0.076	0.626	-0.018	0.568	0.278	-0.150	-0.186	0.016	0.096	0.899
蒸発残留物			0.976	-0.018	0.658	0.042	0.457	0.725	0.711	0.668	0.929	0.162
導電率				-0.018	0.586	-0.002	0.546	0.723	0.741	0.718	0.944	0.119
NH ₃ -N					-0.117	0.817	0.251	-0.267	0.187	-0.045	-0.033	0.378
NO ₃ -N						0.149	-0.085	0.619	0.366	0.386	0.542	0.145
KMnO ₄ 消費量							0.199	-0.156	-0.168	0.037	-0.038	0.325
アルカリ度								0.085	0.357	0.443	0.569	0.220
Cl									0.319	0.672	0.589	-0.021
SO ₄										0.371	0.772	-0.199
Na											0.585	0.084
硬度												0.187
Fe												

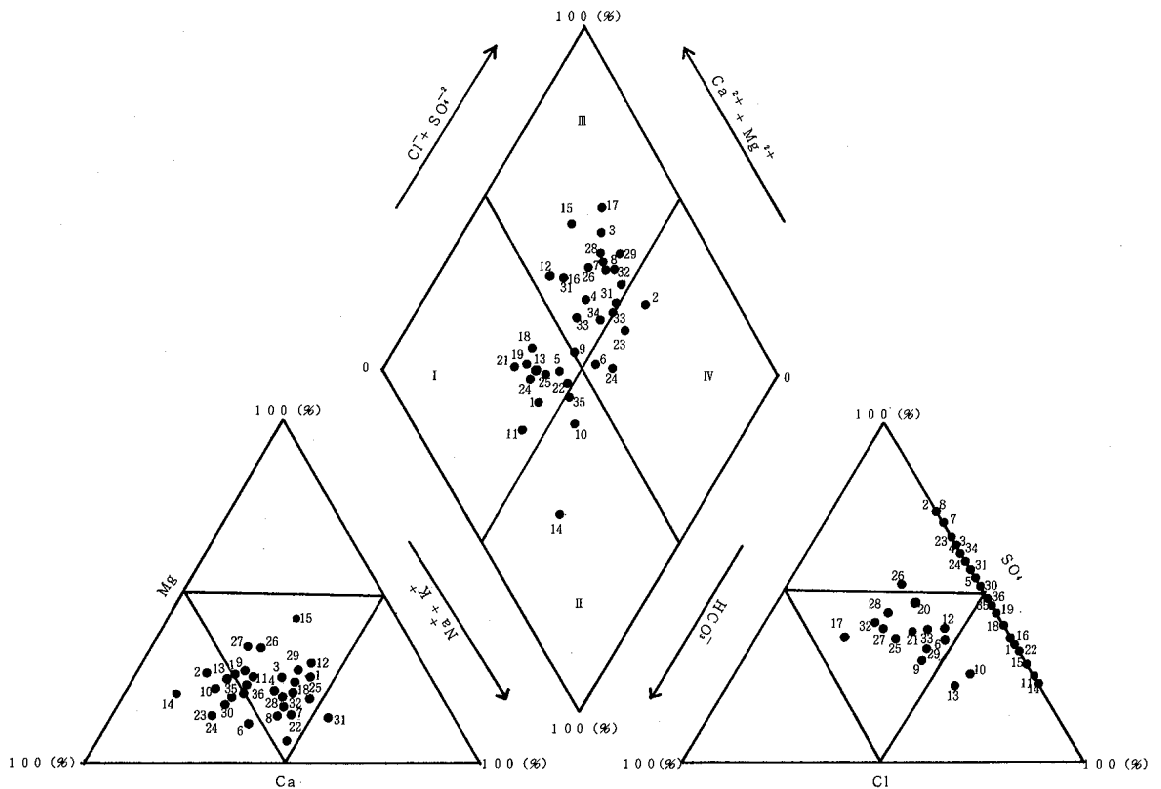


図5 主要陰陽イオン組成図

表6 正相関を示す成分と相関係数

相 関 成 分	相 関 係 数	相 関 成 分	相 関 係 数
pHとNO ₃ -N	0.446	蒸発残留物とCa	0.807
pHとSO ₄	0.452	蒸発残留物とMg	0.857
pHとMg	0.486	NO ₃ -NとCa	0.500
pHと総硬度	0.435	NO ₃ -NとMg	0.634
pHとZn	0.541	NO ₃ -NとSiO ₂	0.435
導電率とMg	0.872	KMnO ₄ 消費量とPO ₄	0.750
導電率とCa	0.775	ClとCa	0.559
NH ₃ -NとPO ₄	0.762	ClとMg	0.672
色度とSiO ₂	0.563	NaとCa	0.432
SQとK	0.588	NaとMg	0.564
SO ₄ とCa	0.523	CaとMg	0.593
SQとMg	0.637	SiO ₂ とPO ₄	0.600
SO ₄ とZn	0.428		

するものが6件（16.0%）であり、これらNaCl型6件はいずれも鹿島台地に分布している。最も少ないのは第IIグループに属するもので3件（8.3%）みられる。

主要陰陽イオンの三角座標およびKey Diagramから考察した結果、本地域の地下水はHCO₃>Cl>SO₄、Na>Mg>Caの関係を示すものが多く、水質区分から炭酸硬度型、非炭酸硬度型がほとんどで、炭酸アルカリ型の第IIグループに属する停滞性の地下水はわずか8.3%である。

IV・3 成分間の相関係数

本地域の地下水の主な溶存成分の相関係数は表5のとおりである。最も高い相関関係を示す成分は導電率と蒸発残留物（ $r = 0.976$ ）である。また表5以外の成分で、有意水準0.01で有意の相関（ $r = 0.424$ 以上）を示すものは表6のとおりである。

V 結 論

県南東部地域の地下水の調査結果から次のことがいえる。

(1) 調査地域の深井戸の深度は120 mまでで、帯水層はおおむね洪積層の成田層および成田層相当層中の砂層～砂礫層を主体とした2～3層からなり、これを利用している。

(2) 水質基準を越えるものは36件中10件(27.8%)である。成分的には鉄、色度、濁度、pHが原因となっている。

(3) 色度、鉄ともに高いものが北浦村、潮来町(各2件)、麻生町、牛堀町、太洋村(各1件)で湖岸周辺に分布している。

(4) 本地域のカルシウムイオンとマグネシウムの含量関係は $Mg > Ca$ を示すものが多い。

(5) 主要陰陽イオンの組成図から、本地域の地下水のイオン関係は $HCO_3 > Cl > SO_4$, $Na > Mg > Ca$ の関係を示すものが多い。また水質区分から第Ⅰ、第Ⅲグループに属するものが75.0%を占め、第Ⅱグループに属する停滞性の地下水と言われるものは8.3%である。

文 献

- 1) 坂本享：磯浜地域の地質，地質調査所報告，No.22，1(1971)
- 2) 藤田至則，秀平重久，真野勝友：石岡市周辺地区天然ガス予察報告，茨城県地下資源調査報告書，第10号，35，1960
- 3) 藤田至則，秀平重久：霞ヶ浦南東部の天然ガス予察調査，茨城県地下資源調査報告書，第10号27，1960
- 4) 茨城県立研修センター：県土地史の研究，研究報告(26) 57 1972
- 5) 半谷高久：水質調査法，22Q丸善株式会社出版，1974
- 6) 村下敏夫：地下水学要論，131，昭晃堂出版，1973
- 7) 大山年次，蜂須紀夫：地学のガイド(茨城県)コロナ社出版，1979
- 8) 馬場勝良，青木直昭：茨城県，霞ヶ浦～北浦地域の下総層群の層序区分，地質学雑誌，78，(11) 577，1972
- 9) 青木直昭，馬場勝良：関東平野東部，下総層群の層序と具化石群のまとめ，地質学雑誌，79(7) 453，1973
- 10) 茨城県，建設省計画局編：茨城県鹿島地区の地盤都市地盤調査報告書第6巻，10，1964

原水種別による水道水中トリハロメタンの消長

笹本 和博・齊藤 馨 ※※
勝村 馨 ※※

(茨城県衛生研究所)

Triharomethane formation and migration in drinking waters.

Tokihiro SASAMOTO, Mamoru SAITOU, Yaeko SUZUKI
Kyoko KUBOTA, and Kaoru KATSUMURA.
Ibaraki Prefectural Institute of Health.

I はじめに

トリハロメタンには、クロロホルム（トリクロロメタン）、ジクロロプロモメタン、クロロジプロモメタン、プロモホルム（トリプロモメタン）の4種があり、これらの総量を総トリハロメタン（以下「THM」という）という。

水道水中にTHMが常在することが判明してきた¹⁾。そのため、厚生省は、56年3月に、暫定指針として、四季平均THM0.10^{mg/l}以下の制御目標値を示した。

THMは前駆物質である有機物の質及び量により変動するため、水道原水の種類により、THM量及びその消長も変化すると考えられる。

水道の原水としては、河川水、地下水が多く利用されている。また、本県では湖水の利用も多い。

THMの分析対象は、末端給水であるが、水道水は、直接飲用する以外に、加熱、保温後利用される場合も多い。

このようなことから、原水種別による水道水中THMの消長について検討した。

II 実験方法の概要

1. 試料

水道原水の種別として、湖水、河川水、地下水とし、表1に示す。

2. 実験方法

実際の飲用形態を考え、放置、加熱、保温の3条件について検討した。

表1 試料

記号	原水種別	取水先	水道事業体
A	湖水	霞ヶ浦	土浦市水道部
B	河川水	那珂川	勝田市水道部
C	地下水	茨城町前田	茨城町水道部

1) 放置

放置は、採取後から3時間、解封と密封の2条件について検討した。解封は、2ℓポリびんに約1ℓ試料を入れ栓をせず、密封は2ℓポリびんにほぼ口まで試料を入れ栓をする。検体は1時間毎に採取した。

2) 加熱

5ℓガラスびんに採取後、保冷し、実験は翌日行った。加熱は、家庭用ケトルで行い、50℃時、75℃時、沸騰時、沸騰3分後、5分後、10分後に検体を採取した。

3) 保温

保温は、2)加熱で、10分間沸騰させたものを用い。家庭用魔法びん(約2.3ℓ)で行った。1時間後、3時間後、6時間後に検体を採取した。

3. 分析方法

THMの分析は「水道におけるトリハロメタン対策について」(昭和56年3月25日、環水第46号、厚生省環境衛生局水道環境部長)によった。

III 実験成績

実験結果を図1に示す。

1) 放置によるTHMの消長

A(湖水)は減少、B(河川水)は、ほぼ変化

※ 現在茨城県土浦保健所

※※ 現在茨城県薬剤師会

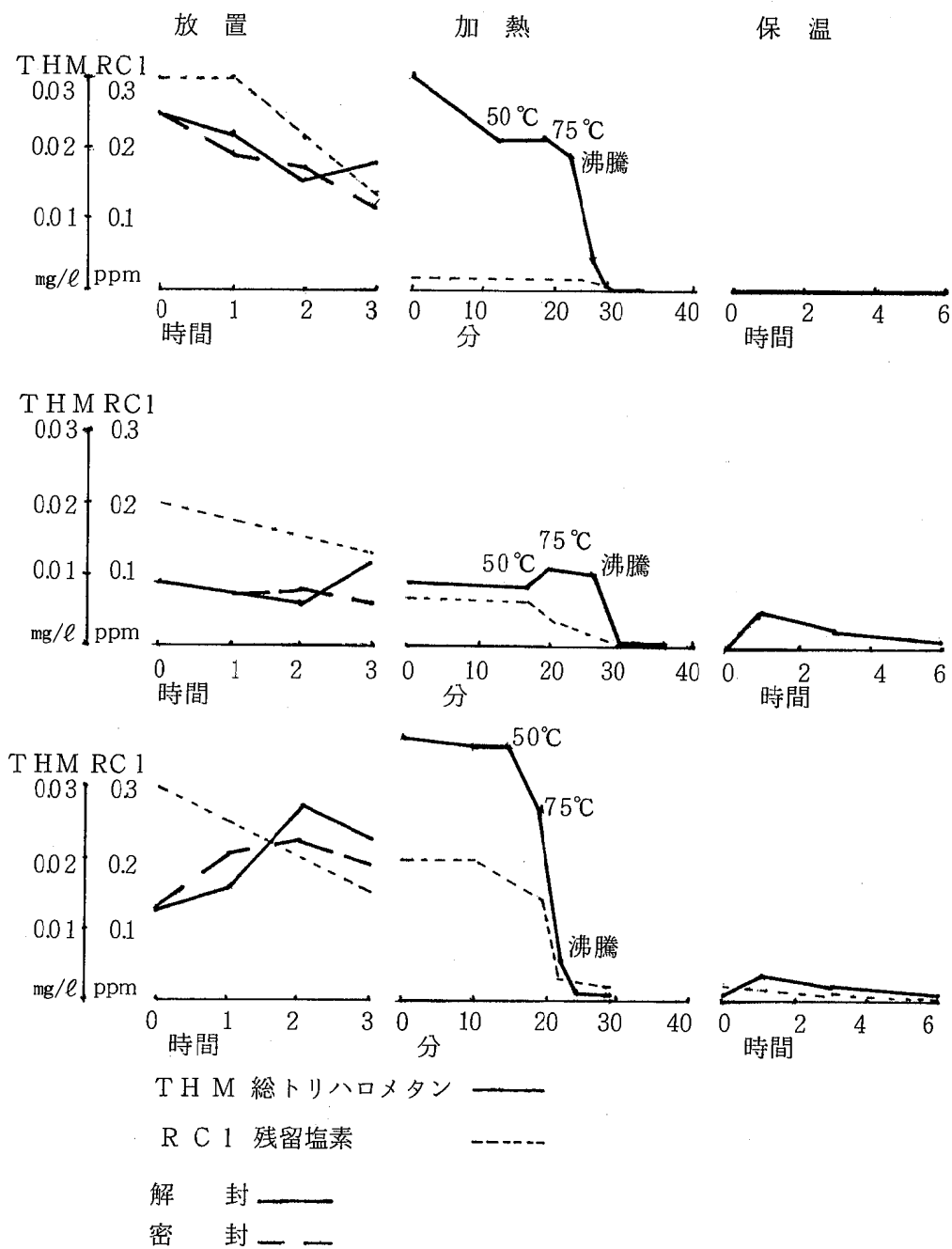


図1 原水種別によるトリハロメタン消長

なく、C（地下水）は、逆に増加した。また、解封、密封による差は、ほとんどなかったが、3時間後では、密封の方がわずかに高かった。

2) 加熱によるTHMの消長

すべての試料で、沸騰後急激に減少し、Aでは、沸騰後5分で検出されなくなり、Bでは沸騰後3分で検出されなくなったが、Cでは沸騰後5分で0.001mg/l検出され、10分後でも0.001mg/l検出された。

いずれも、加熱によりTHMは減少するが、75℃前後にピークがあらわれ、特にB（地下水）では、加熱前及び、50℃時に比べ増大し、THMの生成がみられた。

3) 保温によるTHMの消長

A（湖水）は、保温開始時、保温後1時間、3時間、6時間すべて、THMは検出されなかった。

B（河川水）は保温開始時検出されなかったが、保温後1時間では0.005mg/l検出され、その後は減少したが、6時間後でも0.001mg/l検出された。

C（地下水）は保温開始時0.001mg/lであったが、保温後1時間で0.004mg/lとわずかに増加し、6時間後でも0.001mg/l検出された。

4) 残留塩素の消長

残留塩素は、3時間放置することにより $\frac{1}{2}$ ~ $\frac{1}{3}$ に減少した。

加熱試料（放置した試料と同時に採取、保冷した）の1日後（実験時）の残留塩素は、A（湖水）では、0.01ppm、B（河川水）は0.09ppm、C（地下水）は0.2ppmで、加熱により急激に減少し、A、Bでは、沸騰3分後では、検出されなくなった。Cは、沸騰3分後でも0.04ppmあり、沸騰10分後で0.02ppmあった。

保温資料では、A、Bとも沸騰後検出されなくなり、保温時も検出されなかった。Cは、保温開始時0.02ppmで、6時間後でも、痕跡量（約0.005ppm）検出され、Cだけ、放置、加熱、保温のすべての実験中残留塩素が検出された。

IV 考 察

1) 原水種別によるTHMの消長特性

A（湖水）では、放置により減少した。また、加熱を行うと減少し、沸騰後急激に減少し、沸騰5分後では、検出されなくなった。その後、保温を行っても再び検出されることはなかった。

B（河川水）では、放置してもほとんど変化がなかった。加熱すると、75℃時点では、加熱前に比べ増加し、沸騰後は急激に減少し、3分間沸騰後では、検出されなくなった。その後、保温を行うと、保温開始時検出されなかったものが、保温1時間後では0.005mg/l新たに検出され、6時間後でも、わずかに検出された。

C（地下水）では、放置により増加した。加熱を行うと、75℃時点から急激に減少したが、5分間沸騰後、10分間沸騰後もわずかに検出された。その後、保温を行うと、1時間後には、わずかに増加し、6時間後でもわずかに検出された。

2) THMの消長特性を左右する要因

THMの生成は、種々の要因により左右されるが、今回の3試料の差異の大きなものとしては、THMの前駆物質として含有される有機物の質的、量的差異、残留塩素との反応条件（接触条件）の差異が上げられる。

後者の塩素処理条件の差異についてみると、A（湖水）の試料では、前塩素、中塩素、後塩素と数回の塩素処理を行っており、給水面積が広く、滞留時間が長い。

B（河川水）の試料では、前塩素、後塩素処理で、給水は市内であるので、Aに比べれば、塩素処理の回数は少なく、滞留時間も短い。

C（地下水）は、揚水後、後塩素処理され、貯留槽から給水されるので、Bに比べさらに、塩素処理回数は少ない。この原泉は町内の1部地区に給水されるもので、滞留時間は、Bに比べ短い。

THMは、反応条件等により、塩素処理後、短時間で生成されるものから、長時間かかって生成されるものまであり、その生成過程は多種多様と考えられる。

水と塩素の接触回数、接触時間（滞留時間）についてみると、Aが一番接触回数が多く、接触時間も長い。逆にCは、1回の塩素処理で接触回数は少なく、接触時間も短い。Bは、AとCの中間程度とみられる。

すなわち、放置することにより、Aでは、新たにTHMの生成はみられず、気散等により減少する。ところが、Cでは、放置中でも新たにTHMの生成がみられ増加する。Bは、気散等による減少と、新たな生成がほぼ一致するため変化がないと考えられる。

保温後に、B、Cでは、新たにTHMの生成がみられたのも、塩素化された中間体²⁾等をへて塩素化反応が進みTHMが生成されたと考えられる。

水に含有される有機物の差異によるTHM消長については、今後検討したい。

3) THM消長と残留塩素消長について

放置により残留塩素は、A、B、Cいずれも減少するが、THMは、放置により、減少、変化なし、増加と一定でない。すなわち、放置することにより、残留塩素が減少することと、THMの消長とは直接的関係はみられない。

加熱開始時の残留塩素は、採水後約1日経過しているため、低くなっている。特にAは低く、このことが今回の加熱実験によるTHM消長特性に影響をあたえたことも考えられる。このことについても、今後検討したい。

保温時に、Cでは、残留塩素が検出されたが、A、Bでは、検出されなかった。Bでは残留塩素が検出されないにもかかわらず、保温後1時間では、わずかながらTHMが検出され、残留残素が検出されなくなった後でも、THMの生成がみられた。

4) THMの低減化対策

実験結果から、放置することは、THMの低減化対策として有効の場合もあるが、逆の場合もある。

しかし、沸騰させることにより、A、Bは検出されなくなり、Cもおおはばに減少した。このことから、約5分程度沸騰させることは、水道水中のTHMの低減化にきわめて有効といえる。ただ、この場合、同時に残留塩素の減少をとまなう。その結果、衛生面での注意も必要となる。

V まとめ

湖水、河川水、地下水を原水とする3の水道水中のTHMの消長を検討し以下の結論を得た。

1) 湖水を原水とする水道水では、放置することによりTHMは減少した。加熱することによっても減少し特に沸騰後は、急激に減少し検出されなくなった。その後、6時間まで保温しても、もはや検出されなかった。

2) 河川水を原水とする水道水では、放置することによりTHMは減少せず、ほとんど変化しなかった。加熱するとTHMは増加し、沸騰すると急激に減少し、検出されなくなった。その後、保温を行うと、1時間後には、0.005^{mg/l}検出され、6時間後でもわずかに検出された。

3) 地下水を水源とする水道水では、放置することによりTHMは、増加した。加熱すると減少し、沸騰後は、急激に減少したが、10分間沸騰後もわずかに検出された。その後、保温を行うと、1時間後には、0.004^{mg/l}とわずかに増加し、6時間後でも検出された。

4) 水道水中のTHMの消長を左右する要因の1つとして、水と塩素との接触条件(塩素処理回数、滞留時間等)の差異が考えられた。

5) 沸騰すると急激にTHMの減少がみられ、ほぼ検出されなくなることから、水道水中のTHM低減化対策として、約5分程度沸騰させることは、きわめて有効と考えられる。

参考文献

- 1) 岡沢和好, 用水と廃水 17, 3 (1975) 他多数
- 2) 梶野勝司, 水道協会誌 57, 33 (1982)

第 3 章 他誌掲載論文要約

炭素炉原子吸光法による人尿中トリメチルセレン ニウムイオンの定量法

小山田則孝・石崎 睦雄

(茨城県衛生研究所)

産業医学 Vol. 24, (3) 320~321 (1982)

セレン尿中代謝産物トリメチルセレンニウムイオン (TMSe) の定量法について検討した。TMSe は陽イオン交換樹脂で分離後、高圧分解ルツボを用いて分解操作を行うことでセレンが揮散することなく完全に分解でき、ジチゾン-四塩化炭素抽出後、炭素炉原子吸光法で精度よく測定することができた。本法による人尿での添加回収実験では、

回収率82~102%, 変動係数7%以下と良好な結果が得られた。また成人男女各5名ずつの尿中のTMSe量を測定したところ、その値は3.9~36.6 ppbであったことから、人尿中にもセレン代謝産物の一つとしてTMSeの存在することが明らかになった。

編 集 後 記

研究者には文章を書くという大事な仕事があります。如何によい調査研究又は実験ができて文章として公表されない限り価値がないものと同じであります。年報第21号の集録に当り編集委員の一人として特に痛感いたしました。

昭和57年8月には首席研究員、獣医学博士豊田 元雄氏が勇退されました。支柱として長く本県の食品衛生を支え、ことに本県納豆が特産品として全国的に有名なものとして定着するまでの問題と対策に情熱を尽され、今日の「茨城の納豆」たらしめた業績は特記すべきことでありましょう。年報21号発刊に当り深い敬意を表します。

県民の健康とその予防対策のための試験研究は仕事の生命であります。全力を集中して今後も努力する一念であります。昭和60年3月17日に開催される科学万博一つくば'85の足音が聞えてきました。大きくそして力強く響いて参ります。(高野 記)

茨城県衛生研究所年報

第 21 号

発行日 昭和58年12月1日

編集 茨城県衛生研究所
発行

〒310 水戸市愛宕町4番1号
(0292) 24-3367

印刷所 石崎印刷株式会社

茨城県衛生研究所年報 第21号

平成30年 一部修正
編集兼発行 茨城県衛生研究所
水戸市笠原町 993-2
電話 029-241-6652
FAX 029-243-9550