

ISSN 0911-2073
CODEN: HEKNEU

0342

広島市衛生研究所年報

ANNUAL REPORT

OF

HIROSHIMA CITY INSTITUTE OF PUBLIC HEALTH

No. 4

(昭和59年度)

広島市衛生研究所



は じ め に

当衛生研究所は、昭和57年4月の発足以来今日まで試験検査、調査研究、研修指導等に精励してまいりました。

近年、社会情勢、生活環境の変化に伴い、衛生行政の対象も大きく変遷しており、地方衛生研究所としての業務も対人保健サービスから、食品衛生、環境衛生、家庭用品の安全性などを含めた幅広い保健衛生、さらには公害関連の各分野において、高度な技術を駆使した試験研究体制が必要となっております。

このような状況に鑑み、引き続き技術者の育成、機器の整備拡充、情報収集など、当所における試験研究等の業務を推進するための体制づくりに努め、今後とも市民の健康を守り、快適な生活環境をめざして行きたいと考えております。

ここに、昭和59年度における業務の概要と調査研究業務を取りまとめ、年報第4号として発刊いたします。

御高覧のうえ、御指導と御教示を賜われれば幸いに存じます。

昭和60年10月

所長 石 澤 正 一

目 次

総 務

I 沿 革	1
II 組織機構及び業務内容	2
1. 組織及び業務内容	2
2. 職員配置	3
3. 職員名簿	4
4. 職員の異動	4
III 庁舎及び施設概要	5
1. 建物・施設概要	5
2. 庁舎配置図	5
3. 主要機器整備状況	8
IV 予算概要	10
V 会議・学会・研修等	12
1. 会 議	12
2. 学会・研究会	12
3. 研修・講習会	13
4. 所内技術専門研修	13
5. 技術指導	14
6. 施設見学	14

業 務 報 告

食品環境部

1. 食品化学関連業務	15
2. 環境衛生関連業務	16
3. 疫学情報関連業務	17

微生物部

1. 細菌病理関連業務	19
-------------------	----

2. 食品細菌関連業務	20
3. ウイルス関連業務	21

公 害 部

1. 水質関連業務	23
2. 大気関連業務	23
3. 特殊公害関連業務	24

調査研究報告

I 調査研究

1. キャピラリーガスクロマトグラフィーによるクロルデン類の分析	25
2. 高速液体クロマトグラフィーによる 市販食品中の食用タール色素含有量調査	29
3. 広島市における飲料用地下水の無機成分	33
4. 低沸点有機塩素化合物の負イオン化学イオン化質量分析法	40
5. 広島市における異型肺炎の流行について	43
6. 散発下痢小児および動物，食肉からの カンピロバクター検出状況と分離株の性状比較	48
7. 昭和59年度の広島市における無菌性髄膜炎の検査結果について	54
8. 河川底質中の金属成分（第1報） —中上流河川底質における金属成分の分布—	58
9. ICP発光分析法による底質金属の分析	65
10. 河川水中の除草剤残存量について	69
11. 環境大気中の未規制物質調査（第2報） —低沸点有機塩素化合物について—	73
12. 広島市における雨水成分調査（第1報）	78
13. 蛍光X線分析法による大気浮遊粉じん中の重金属成分の測定	82
14. 生物学的水質評価法の検討	87
15. 太田川水域の底生動物相の群集構成	93

I 沿 革

昭和25年7月、当所の前身である衛生試験室が、広島市保健所に設置された。その後、昭和44年4月衛生試験所として独立、昭和46年10月に公害試験所を分離設置し、市民生活の衛生的基盤の確立に努力してきた。

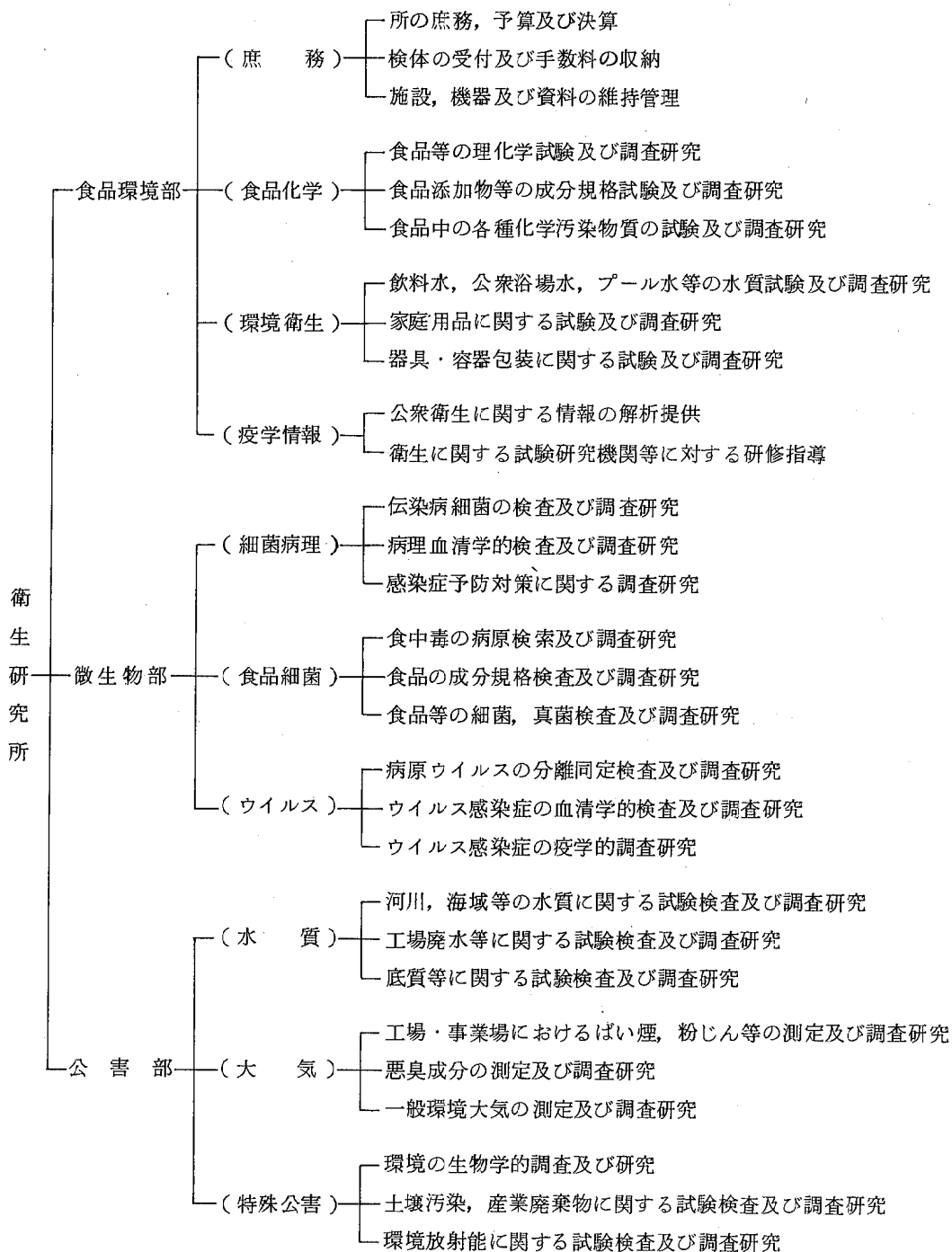
昭和55年政令指定都市昇格を機に、昭和57年4月衛生試験所と公害試験所を統合し衛生研究所を新設した。組織は、庶務・食品化学・環境衛生・疫学情報に関する業務を行う食品環境部、細菌病理・食品細菌・ウイルスに関する業務を行う微生物部、水質・大気・特殊公害に関する業務を行う公害部の3部体制をとり、複雑多様化してきた公衆衛生に係る行政需要に対応している。

年 譜

- (1) 昭和25年7月 広島市保健所（昭和28年より東保健所）に衛生試験室を設置。
- (2) 昭和44年4月 衛生試験所条例施行により、東保健所（現在・中保健所）の2階の一部に衛生試験所（化学試験係、細菌病理検査係）を設置。
- (3) 昭和45年1月 東保健所に増築された3階部分に移転。
- (4) 昭和46年10月 化学試験係より公害関連業務を分離、環境保全部に公害試験所を新設。
- (5) 昭和48年4月 衛生試験所の係制を科制に変更。
- (6) 昭和50年7月 衛生試験所に環境科を新設し、化学試験科を食品科に改め、細菌病理科と合わせて3科体制となる。
- (7) 昭和55年3月 「衛生研究所建設事業計画」にもとづいて、庁舎の建設に着手。
- (8) 昭和55年4月 政令指定都市に昇格。
衛生試験所に食品衛生科を新設し、食品科を食品化学科に、環境科を環境衛生科に改め、細菌病理科と合せて4科体制となる。
公害試験所は水質科と大気科の2科体制となる。
- (9) 昭和57年4月 衛生研究所条例施行により衛生試験所と公害試験所を統合し、商工センター4丁目に衛生研究所を設置。
食品環境部、微生物部、公害部の3部体制で発足。

II 組織機構及び業務内容

1. 組織及び業務内容



2. 職員配置

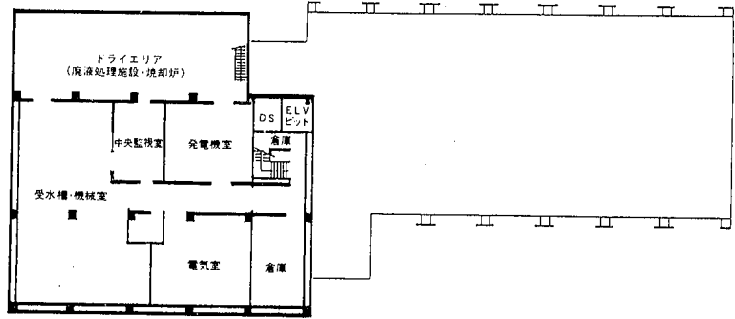
(昭和60年4月1日現在)

部門 職名	職種	事務 一般事務	技 術					計
			一 般 技 術					
			医 師	薬 劑 師	獣 医 師	化学 系	農学 系	
所	長		1					1
	次長(事)微生物部長		1					1
	次長(事)公害部長						1	1
食品 環境 部	部 長						1	1
	(庶務)	主 任	1					1
		主 査	1					1
		主 事	1					1
	(食品化学)	主 任					1	1
		技 師				6		6
	(環境衛生)	主任技師				1		1
		技 師		1	1	2		4
	(疫学情報)	主任技師				1		1
		技 師				1		1
微生 物部	部 長			(1)				(1)
	(細菌病理)	主 任			1			1
		技 師		2	1		1	4
	(食品細菌)	主 任			1			1
		技 師			1		2	3
	(ウイルス)	専 門 員			1			1
		主任技師			1			1
技 師				2			2	
公 害 部	部 長						(1)	(1)
	(水質)	専 門 員					1	1
		主任技師				1		1
		技 師				4		4
	(大気)	主 任				1		1
		技 師				4		4
	(特殊公害)	主 任					1	1
		技 師				3		3
合 計		3	2	3	9	24	8	49

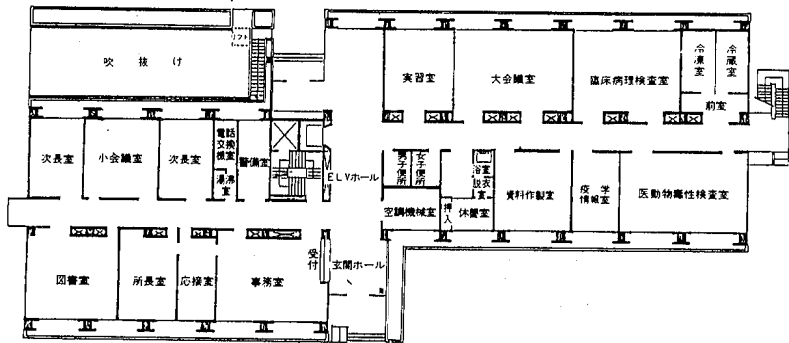
平面図

(本館)

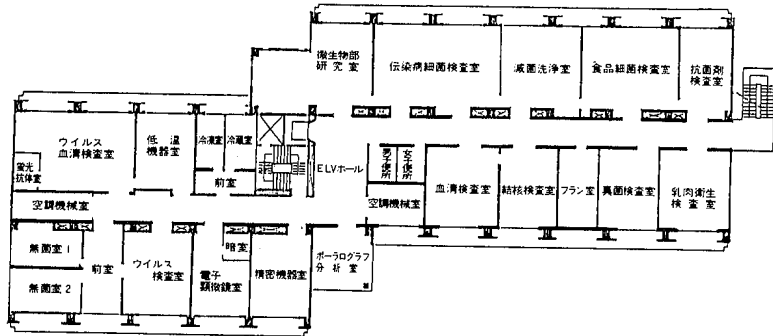
B1階



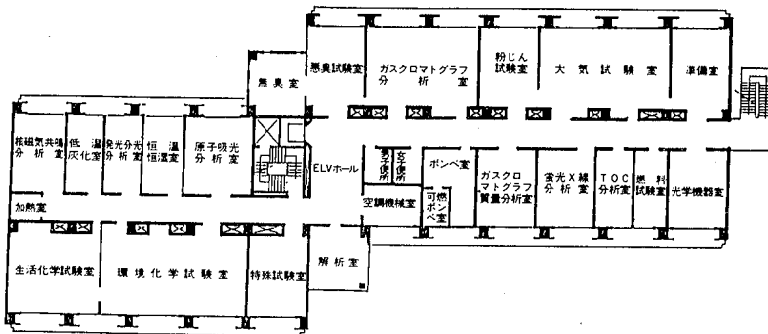
1階



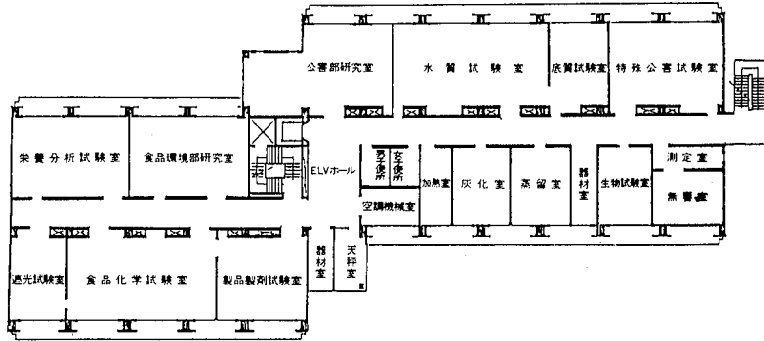
2階



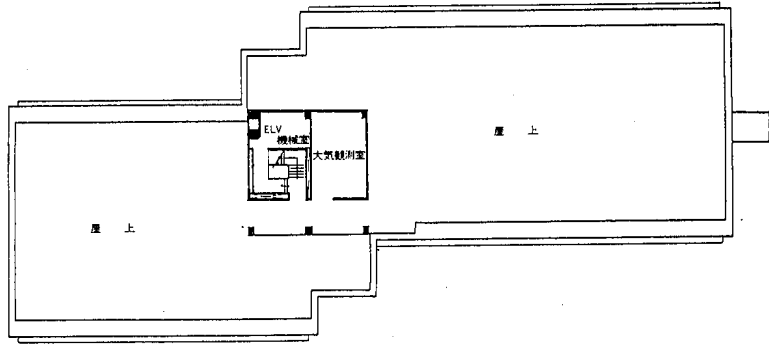
3階



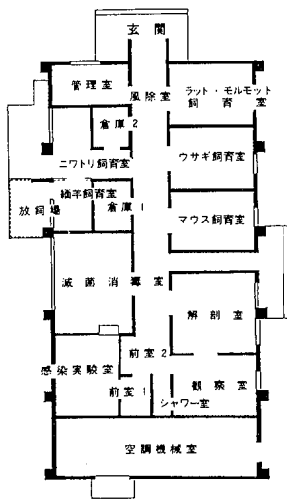
4階



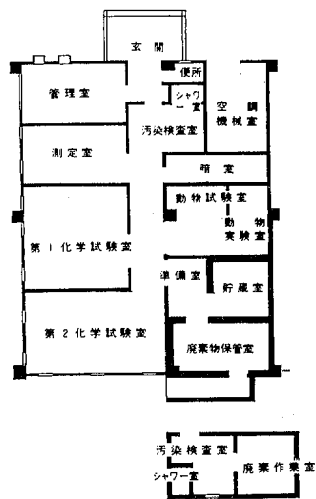
5階



(動物管理棟)



(R I 管理棟)



IV 予算概要

1. 昭和60年度歳入

款 項 目	節	予 算 額
		(千円)
使用料及び手数料		
手 数 料		
衛 生 手 数 料	保健衛生手数料	10,066
国庫支出金		
国庫補助金		
衛 生 費 国 庫 補 助 金	保健衛生費補助金	3,033
諸 収 入		
受託事業収入		
試験検査施設排水処理業務受託収入	試験検査施設排水 処理業務受託収入	151
計		13,250

2. 昭和60年度歳出

款 項 目	節	予 算 額
		(千円)
衛 生 費		
保健衛生費		
環境衛生費		
衛生研究所費		192,865
	賃 金	800
	旅 費	2,609
	普通旅費	(2,609)
	需用費	116,611
	消耗品費等	(44,172)
	燃料費	(611)
	食糧費	(144)
	光熱水費	(67,242)
	修繕料	(4,442)
	役 務 費	1,095
	通信運搬費	(986)
	手数料等	(51)
	保 險 料	(58)
	委 託 料	42,900
	使用料及び賃借料	744
	原 材 料 費	50
	備 品 購 入 費	27,774
	負担金, 補助及び交付金	255
	公 課 費	27
計		192,865

食 品 環 境 部

食品環境部の主要業務は、食品衛生及び環境衛生に関する試験検査、調査研究ならびに公衆衛生情報の解析提供であり、食品化学関連業務、環境衛生関連業務及び疫学情報関連業務に大別される。

食品化学関連業務では、食品中の各種添加物試験、食品中の重金属類・残留農薬・かび毒等の各種化学汚染物質の試験、食品衛生法に基づく製品検査、さらに、その他の食品の理化学試験等の各種試験検査ならびに調査研究を実施している。

環境衛生関連業務では、水道法に基づく飲料水試験、環境衛生関係の法令等に基づく浴場水、プール水等の水質試験、有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律に基づく家庭用品試験、食品衛生法に基づく器具及び容器包装試験等の各種試験検査ならびに調査研究を実施している。

疫学情報関連業務では、公衆衛生情報の解析提供及び研修指導に関する業務を実施している。

さらに当部では、衛生研究所の庶務に関する事務もあわせて行っている。

昭和59年度に実施した業務の概要を以下報告する。

試験区分別試験検査件数を表1に示す。

表1 試験区分別試験検査件数

試験区分	行政 依頼	一 般 依 頼	計
食品等の理化学試験	1,008	348	1,356
食品等の規格及び 添加物試験	1,782	510	2,292
重金属・残留農薬・PCB 等の試験	856	62	918
特 殊 試 験	82	—	82
小 計	3,728	920	4,648
飲料水試験	709	596	1,305
環境水質試験	843	209	1,052
家庭用品試験	651	22	673
器具・容器包装等の試験	23	143	166
その他の試験	138	31	169
小 計	2,364	1,001	3,365
製品検査	—	558	558
計	6,092	2,479	8,571

1 食品化学関連業務

市内7保健所からの行政依頼による食品化学に関する試験を行った。また、市内食品製造所等からの一般依頼による試験も合わせて行った。

(1) 行政依頼試験

食品等の取去検査のほか、市民からの食品に対する苦

情に伴う試験等の行政依頼試験である。

59年度は、新たにいわゆる健康食品の実態調査のための試験、さらに前年度に引続き、増大する輸入食品を対象とした試験等を重点的取去検査として、環境保健部環境衛生課の企画に基づいて実施した。行政依頼試験の計3,728件の主な内訳は、次のとおりである。

a 食品等の理化学試験

試験件数は1,008件で、その内訳は表2に示す。試験項目は、油脂使用食品類の酸価と過酸化価、食肉製品、魚肉ねり製品等の水分活性、さらに揮発性塩基窒素、塩分濃度、既存フェオホルバイド量の試験等である。

このうち、既存フェオホルバイド量については、健康食品等を対象として試験を行った。

表2 食品等の理化学試験件数

区 分	件 数
酸 価 ・ 過 酸 化 物 価	139
水 分 活 性	106
揮 発 性 塩 基 窒 素	104
そ の 他	659
計	1,008

b 食品等の規格及び添加物試験

試験件数1,782件で、その内訳は表3に示す。試験内容は、学校給食用などの牛乳の成分規格試験、加工食品中の各種食品添加物試験等である。

食品添加物試験では、保存料604件、着色料260件、甘味料(サッカリンナトリウム)162件の実施件数が、例年同様多かった。食品添加物に関する不良検体(計39件)の内訳は、表示違反32件、添加物使用基準違反7件である。この中の主なものとして、和菓子より法定外色素(黄色1号、ナフトールイエロー)が検出された。また、添加物使用量については、例年と比較して顕著な差はなかった。

表3 食品等の規格及び添加物試験件数

区 分	件 数
牛乳・加工乳の成分規格試験	257
保 存 料	604
着 色 料	260
甘 味 料	162
品 質 保 持 剤	116
酸 化 防 止 剤	74
発 色 剤	67
そ の 他	242
計	1,782

c 重金属・残留農薬・PCB等の試験

試験件数 938 件で、その内訳は表4に示す。重金属試験は、魚介類、清涼飲料水、缶詰食品のほか、健康食品29検体のカドミウム、鉛、ヒ素、総水銀などの試験を行った。このうち健康食品についての詳細は、資料に記載した。

残留農薬試験では、従来から継続して実施している成分規格の定められた野菜・果実のほか、加工食品類も含め計146件の試験を行った。

その他としては、PCB、フタル酸エステル類、ヘキサクロロベンゼン(HCB)などの環境汚染化学物質類、さらにカビ毒の試験を行った。このうち、57年度から食品中の残留実態把握を図っているHCBについては、59年度もガスクロマトグラフ法及び負イオン化学イオン化質量分析法により、チーズその他の乳製品、食肉、魚介類、野菜類等の試験を行った。

表4 重金属、残留農薬、PCB等の試験件数

区 分	件 数
重 金 属	430
総 水 銀	89
残 留 農 薬 (成 分 規 格)	113
残 留 農 薬 (そ の 他)	33
P C B	90
フタル酸エステル類, ベンツピレン	51
生 理 活 性 毒 物	50
H C B 等 の 特 殊 試 験	82
計	938

d 苦情に伴う試験(理化学関係分)

苦情品の試験結果の主なものを、表10に示す。ここ数年來の、食品衛生に対する市民の関心の高さを反映してか、多種多様な苦情内容であった。

(2) 一般依頼試験

表5 一般依頼試験件数

区 分	件 数	
食 品 添 加 物 規 格 試 験 及 び 試 験	牛乳・加工乳の成分規格	68
	保 存 料	162
	着 色 料	92
	甘 味 料	60
	酸 化 防 止 剤	54
	発 色 剤	23
そ の 他	51	
重 金 属	40	
残 留 農 薬	17	
栄 養 分 析	71	
そ の 他	282	
計	920	

市内の食品製造、加工、販売業者等から直接依頼を受けて、公的試験検査機関の成績書が必要なものを主に、食品の各種試験検査を実施した。試験区分別試験件数は、表5に示す。

2 環境衛生関連業務

市内7保健所及び環境保健部環境衛生課からの行政依頼による環境衛生に関する試験を行った。また、市民からの依頼や公官庁の試験成績書を必要とする市内事業所からの依頼による飲料水等の試験を行った。

(1) 飲料水試験

飲料水の種類別試験件数を表6に示す。行政及び一般依頼により実施した総数は1,086件で、水道法水質基準に適合しなかったものは288件(不適率27%)であった。不適検体のほとんどが井戸水や表流水であり、その項目は大腸菌群、一般細菌であった。

表6 飲料水の種類別試験件数

区 分	行政依頼	一般依頼	合 計	
水道水	一般項目	14	244	258
	全 項 目	5	3	8
	計	19	247	266
井戸水	一般項目	219	335	554
	全 項 目	202	8	210
	計	421	343	764
その他	一般項目	38	3	41
	全 項 目	15	0	15
	計	53	3	56
合 計	493	593	1,086	

(2) トリハロメタン等の試験

専用水道を対象としてトリハロメタン試験を18件行い、すべて基準値内であった。また、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン等による地下水汚染調査を201件実施したが、すべて基準値内であった。このうち、現在飲料に供されている井戸水等においては、ほとんど検出されなかった。

(3) 環境水質試験

環境水質試験の種類別試験件数を表7に示す。プール水、公衆浴場水とも、ほとんどが水質基準に適合していた。一般依頼によるかき洗浄水については、溶存酸素飽

表7 環境水質試験の種類別試験件数

区 分	行政依頼	一般依頼	合 計
プ ール 水	190	7	197
公衆浴場水	532	0	532
かき洗浄水	106	134	240
そ の 他	153	99	252

和率と塩分濃度が適合しないものが数件あったが、おおむね良好な結果であった。その他については、下水道工事や土木建築工事に伴う水質変化を把握することを目的とした試験などで、pH、COD、Cl⁻などの項目について行ったものである。

(4) 家庭用品試験

家庭用品の種類別、項目別試験件数を表8に示す。家庭用品の安全性をチェックするため試買した453検体、651件について試験した結果、すべて基準に適合していた。また、一般依頼により、繊維製品9件、洗浄剤13件の試験を行った。

表8 家庭用品の項目別試験件数(行政依頼)

項目	区分 検体数	繊維製品	その他	合計
ホルムアルデヒド		350	103	453
T B T・T P T		40	7	47
ディルドリン		54	0	54
有機水銀		33	9	42
塩酸・硫酸		0	16	16
NaOH・KOH		0	13	13
塩化ビニル		0	57	57
メタノール		0	57	57
A P O		17	0	17
D T T B		56	0	56
T D B P P		28	0	28
B D B P P		31	0	31
パークレン・トリクレン		0	34	34
計		458	193	651

(5) 器具及び容器包装等の試験

行政依頼により、器具及び容器包装等の規格試験を23件行い、すべて規格に適合していた。また、一般依頼により、食器に残留する陰イオン界面活性剤の試験を117件、容器包装等の規格試験を26件行った。

3 疫学情報関連業務

公衆衛生情報の有効な活用を図るため、情報の収集及び解析提供に関する業務を行った。また、併せて研修指導に関する業務を行った。

(1) 公衆衛生情報の解析提供

a 情報の収集整理

当所における試験検査、調査研究業務に必要な学術資料等を積極的に収集し、効果的な利用に供するため分類整理を行い、蓄積を図った。

b 文献、資料等の提供

衛生関係部局等からの要請により、文献や各種技術資料29件187点を提供した。

また、厚生省汚染物質研究班に対し、昭和58年度分析試料(318検体)について、2,301件のデータを食品汚染物モニタリングデータとして提供した。

c 感染症サーベイランス患者情報の集計

環境保健部健康管理課(広島市感染症情報センター)の協力を得て、感染症患者発生情報のパーソナルコンピュータシステムを開発し、患者発生状況の把握と解析及びデータバンク化を試行した。

d 刊行物による情報提供

当所で得られた情報や公衆衛生に関する最近の話題を掲載した技術情報誌「衛研情報」を隔月おき年6回編集発行し、衛生関係部局及び外部関係機関に配付した。

昭和58年度における当所の事業概要と調査研究等を収録した「広島市衛生研究所年報第3号」を、また、安川水域における底生動物相の調査結果をとりまとめた「広島市における水生生物 I.安川水域の底生動物」を、それぞれ年報編集委員会及び公害部と連携して刊行し、関係部局及び関係機関等に配付した。

表9 昭和59年度刊行物

発行年月	刊行物名	判	部数
昭和59.5	衛研情報 第7号	B5	400
7	衛研情報 第8号	B5	400
9	衛研情報 第9号	B5	400
11	衛研情報 第10号	B5	400
12	広島市衛生研究所年報 第3号	B5	500
12	広島市の水生生物 I 安川水域の底生動物	B5	100
60.1	衛研情報 第11号	B5	400
3	衛研情報 第12号	B5	400

e 図書室の管理運営

昨年度に引き続き、これまで収集した逐次刊行物の分類整理に重点を置き、図書管理委員会と連携をとりながら図書室を運営した。

(2) 研修指導の企画調整

本市の化学系技術職員を対象とした昭和59年度専門研修「中級化学講座」の企画調整を行い、職員研修所と密接に連携をとり実施した。

対象者 19名

期間 昭和60年1月28日～2月1日

会場 職員研修所及び衛生研究所

内容 講義及び実習

表10 苦情に伴う試験結果(理化学試験分)

No	検体名	苦情内容	試験項目	試験結果		
					苦情品	対照品
1	ツブ貝	煮てた後、腐敗臭がする	VBN pH NH ₄ -N	VBN 42mg% pH 7.3 NH ₄ -N 33mg%	対照品 12mg% 7.2 23mg%	
2	生アゲ	油に過酸化水素を使用した疑い	H ₂ O ₂ POV	H ₂ O ₂ : 不検出 POV: 5.3 meq/kg		
3	黒ごま	着色料を使っているのではないか	合成着色料	合成着色料: 不検出		
	しいたけ	刺激臭がする	ホルムアルデヒド	ホルムアルデヒド: 33ppm		
4	キャラメル	口の中がピリピリして変な味がした	シアン化合物	シアン化合物: 不検出		
5	米	米の中に殺虫剤を落とした疑い(DDVP16%含有)	DDVP	DDVP: 0.016 ppm		
6	氷菓	苦い味がする	カルシウム マグネシウム	Ca: 2400 ppm Mg: 不検出		
7	ブランデー	味がおかしく嘔吐をもよおした (薄い感じもする)	アルコール度 pH 透過率 比重 屈折率 ヒ素 シアン化合物		苦情品	対照品
				アルコール(v/v%) pH 透過率(500nm) 比重(26°C) 屈折率(°) ヒ素 シアン化合物	43 4.9 36 0.942 1.355 不検出 "	43 4.8 36 0.942 1.355 不検出 "
8	こんにゃく	渋味がし、口がしびれ舌が白くなった。	カルシウム pH	Ca (ppm) pH	苦情品 1,330 8.9	対照品 1,280 -
9	洋生菓子	腐敗臭がする	pH エタノール 揮発性有機酸		苦情品	対照品
				pH EtOH 酢酸	5.1 0.39% 0.15 "	5.7 0.59% 0.06 "
10	ニンニク漬	自家製ニンニク漬(ニンニク、酢、砂糖)が緑色化した	合成着色料 クロロフィル	合成着色料: 不検出 クロロフィル: 検出		
11	飯	飯を炊いたら緑色化した所があった (近くに銅製品があった)	銅	Cu	苦情品 0.84 ppm	対照品 0.71 ppm
12	なたね油	天ぶらが苦い	AV POV		なたね油	天ぶら
				AV POV	0.3 1.2 meq/kg	4.0 1.3 meq/kg
13	きゅうり	かび臭い(農薬臭)がする	残留農薬	有機塩素剤: 不検出 有機リン剤: 不検出		
14	ドーナツ	食べたら嘔吐した	AV POV		皮部	クリーム部
				AV POV	1.3 1.4 meq/kg	0.68 0.1 meq/kg未満
15	ミル貝	食後嘔吐した	VBN	VBN	苦情品 6.2 mg%	対照品 2.5 mg%
16	ジャガイモ	苦い味がする	ソラニン	皮つき 中身	79 ppm 20 "	

微生物部

微生物部の主要業務は、微生物に関する試験検査並びに疾病予防などに関する調査研究で、細菌病理関連業務、食品細菌関連業務及びウィルス関連業務を実施している。

細菌病理においては、伝染病予防法、結核予防法に基づく伝染病細菌などの検査、感染症サーベイランス事業に基づく病原細菌の分離同定、性病予防法に基づく梅毒などの血清学的検査並びに感染症予防のための調査研究業務を行っている。

食品細菌においては、食品衛生法に基づく食品の成分規格検査、食中毒病原検索、食品などの細菌、真菌検査並びに食中毒予防のための調査研究業務を行っている。

ウィルスにおいては、伝染病予防法、感染症サーベイランス事業に基づく病原ウィルスの分離同定及び伝染病流行予測のためのウィルス学的検査並びに感染症予防の調査研究業務を行っている。

1 細菌病理関連業務

市内7保健所からの行政依頼及び市民・事業所からの一般依頼を受け、腸管系病原菌・呼吸器系病原菌・結核菌・性病及び臨床病理に関する検査を実施した。その内訳を表1に示した。

昭和59年度の総検査件数は、行政依頼6,037件、一般依頼2,521件の計8,558件であった。

表1 細菌病理検査件数

検査区分	依頼	行政	一般	計
腸管系病原菌		2,500	348	2,848
呼吸器系病原菌		822	0	822
結核菌		730	362	1,092
性病		1,000	904	1,904
臨床病理		985	907	1,892
計		6,037	2,521	8,558

(1) 腸管系病原菌検査

行政依頼検査では、法定伝染病予防・腸チフス防疫対策・コレラ防疫対策・下痢症病原菌検索として、赤痢菌・チフス菌・パラチフス菌・コレラ菌・サルモネラ・病原大腸菌などの検査を行った。また、一般依頼検査では、赤痢菌を主とした腸内細菌一般の検査を行った。その内訳を検査項目別に表2に示した。

昭和59年度の検出病原菌は、サルモネラ129株、病原大腸菌18株、腸炎ビブリオ15株、赤痢菌12株、ビブリオコレラ non-01 11株、パラチフスB菌4株、エルシニア・エンテロコリチカ2株、カンピロバクター・ジェジュニ1株であった。

(2) 呼吸器系病原菌検査

表2 腸管系病原菌検査件数

検査項目		依頼	行政	一般	計
法定伝染病予防	赤痢菌		1,366	347	1,713
	チフス菌・パラチフス菌		388	—	388
	コレラ菌		60	1	61
腸チフス防疫対策	河川調査など (チフス・パラチフス) (サルモネラ 回復者検便)		261	—	261
			58	—	58
コレラ防疫対策	海水調査など (コレラ・腸炎ビブリオ) (ヒブリオコレラ non-01)		38	—	38
下痢症病原菌検索	海外旅行者及び感染症サーベイランスなど		329	—	329
計			2,500	348	2,848

(2) 呼吸器系病原菌検査

呼吸器系病原菌の検査件数を疾患別に表3に示した。

溶連菌感染症では、菌分離56件中A群溶連菌を17株検出した。また本年度は異型肺炎の流行がみられ、262件中マイコプラズマを126株検出した。

表3 呼吸器系病原菌検査件数

疾患名	検査項目	分離	血清検査他	計
溶連菌感染症		56	221	277
百日咳様疾患		24	58	82
異型肺炎		262	71	333
髄膜炎その他		68	62	130
計		410	412	822

(3) 結核菌検査

結核菌の行政依頼、一般依頼検査件数を表4に示した。

塗抹、培養あわせて1,092件検査し、そのうち培養検査では、514件中、結核菌を5株検出し、結核菌以外の抗酸菌として、非定型抗酸菌を7株検出した。

表4 結核菌検査件数

検査項目	依頼	行政	一般	計
塗抹		365	213	578
培養		365	149	514
計		730	362	1,092

(4) 性病検査

梅毒血清反応及び淋菌検査件数を表5に示した。

梅毒血清反応は、行政依頼1,000件、一般依頼901件の計1,901件であった。そのうちCL3法定性試験では、行政依頼942件中8件、一般依頼で626件中18件が陽性であった。

表5 性病検査件数

検査項目		依 頼	行 政	一 般	計
梅毒血清反応	定 性 (CL3法)	婚 姻 168 妊 婦 673 その他 101		626	1,568
	緒方法定量 TPHA・FTA		0 58	244 31	244 89
計			1,000	901	1,901
淋 菌(塗抹)			0	3	3

(5) 臨床病理検査

臨床病理検査件数を検査項目別に表6に示した。

寄生虫卵検査は、蟯虫卵97件、その他の寄生虫卵210件の計307件で、そのうち蟯虫卵陽性は5件であった。

潜血反応では、7件中2件が陽性であった。

血液一般検査は、行政依頼、一般依頼あわせて554件で、その内訳は血球計算(赤血球数・白血球数)365件、血色素量189件であった。

血液型は、ABO式、Rh式あわせて130件を検査した。

なお、本年度は、試行的に神経芽細胞腫検査を実施し、581件を検査した。

表6 臨床病理検査件数

検査項目	依 頼	行 政	一 般	計
寄 生 虫 卵		0	307	307
尿 検 査		0	37	37
潜 血 反 応(糞便)		0	7	7
血 液 一 般		186	368	554
血 液 型		0	130	130
ポ ー ル バ ン ネ ル 反 応		0	50	50
原 虫 検 査		218	8	226
神 經 芽 細 胞 腫(定性)		581	0	581
計		985	907	1,892

2 食品細菌関連業務

市内7保健所からの行政依頼による取去食品の細菌検査

表7 検査検体数及び件数

依 頼	区 分	検 査 件 数	検 査 区 分				
			成 分 規 格	食 中 毒 菌	一 般 細 菌 等	病 原 菌 検 査	
行政依頼	取去検査	3,554	4,968	1,407	2,009	1,552	—
	食中毒	314	314	—	—	—	314
	その他	942	1,110	43	607	460	—
	小計	4,810	6,392	1,450	2,616	2,012	314
一般依頼		1,770	2,105	1,139	335	631	—
合 計		6,580	8,497	2,589	2,951	2,643	314

査、食中毒病原検索及び苦情に伴う細菌検査などを行った。また、市内食品製造所などからの一般依頼による細菌検査を行った。

昭和59年度に扱った検体数及び件数を依頼別に区分して表7に示した。

(1) 取去食品の検査

取去食品の検査検体数及び件数を食品別に表8に示した。

表8 取去食品の検査検体数及び件数

食 品	区 分	検 査 件 数	検 査 区 分		
			成 分 規 格	食 中 毒 菌	一 般 細 菌 等
魚 介 類		516*	498	118	36
冷 凍 食 品		56	56	—	—
魚 介 類 加 工 品		96	93	32	32
肉 卵 類 及 び そ の 加 工 品		159	74	93	22
牛 乳 ・ 加 工 乳		254	254	—	4
乳 製 品		68	68	—	—
乳 類 加 工 品		58	58	1	1
ア イ ス ク リ ー ム ・ 氷 菓		212	212	1	—
穀 類 及 び そ の 加 工 品		283	—	272	233
野 菜 ・ 果 実 及 び そ の 加 工 品		1,376	—	1,288	1,023
菓 子 類		377	—	199	196
清 涼 飲 料 水 ・ 粉 末 清 涼 飲 料		69	69	1	3
容 器 包 装 詰 加 工 加 熱 食 品		25	25	—	—
そ の 他		5	—	4	2
計		3,554	1,407	2,009	1,552

*加熱調理用かきも含む。

総検体数は3,554検体で、多かったものは弁当のそごいを主とする野菜・果実及びその加工品1,376検体、生かきを主とする魚介類516検体、洋菓子を主とする菓子類377検体、米飯を主とする穀類及びその加工品283検体、牛乳・加工乳254検体、ソフトクリームを主とするアイスクリーム類・氷菓212検体、食肉を主とする肉卵類及びその加工品159検体であった。検査区分別件数では成分規格検査(細菌に係るもの)1,407件、食中毒菌検査2,009件、一般細菌検査1,552件であった。

(2) 食中毒病原検索

表9 食中毒病原検索検体数

区 分	検 体 数	
食 品	28	
患 者	吐 物	—
	ふ ん 便	199
	そ の 他	—
従 業 員	ふ ん 便	16
ふ き と り		62
そ の 他		9
計		314

食中毒発生時に病原検索を行った検体数を表9に示した。昭和59年度の食中毒発生件数は4件で、患者数は74名であった。病因物質として、ブドウ球菌2件、腸炎ビブリオ1件、カンピロバクター1件であった。

(3) その他の行政依頼検査

収去検査、食中毒病原検索以外に行政依頼により検査を行った検体数及び件数を表10に示し、その内訳を表11に示した。

表10 その他の行政依頼検査検体数及び件数

検出	区分	検体数	検査件数		
			成分規格	食中毒菌	一般細菌等
食品		382	43	190	245
患者	吐物	—	—	—	—
	ふん便	36	—	36	—
従業員ふん便		46	—	46	—
ふきとり		368	—	261	110
その他		110	—	74	105
計		942	43	607	460

表11 その他の行政依頼検査の内訳

区分	検体数
苦情	616
その他	326
計	942

総検査検体数は942検体で、そのうち苦情に伴い検査を行ったもの616検体、その他のもの326検体で、衛生指導のため行った施設、器具などのふきとりが主であった。

(4) 一般依頼検査

表12 一般依頼の検査検体数及び件数

区分	検体数	検査件数		
		成分規格	食中毒菌	一般細菌等
食品				
魚介類	602*	555	32	60
冷凍食品	7	7	4	4
魚介類加工品	58	8	15	53
肉卵類及びその加工品	120	17	77	111
牛乳・加工乳	76	76	2	—
乳製食品	29	26	3	3
乳類加工品	36	36	—	—
アイスクリーム・氷菓	384	384	—	—
穀類及びその加工品	56	—	21	56
野菜・果実及びその加工品	212	—	79	204
菓子類	39	—	12	37
清涼飲料水粉未清涼飲料	2	2	—	—
容器包装詰加工加熱食品	28	28	—	3
その他	121	—	90	100
計	1,770	1,139	335	631

* 加熱調理用かきも含む。

市内食品製造所からの一般依頼による検査検体数及び件数を表12に示した。

総検体数は1,770検体で、検体数の多かったものは、生かきを主とする魚介類602検体、ソフトクリームを主とするアイスクリーム類・氷菓384体、弁当のそうざいを主とする野菜・果実及びその加工品212検体であった。

3 ウイルス関連業務

行政検査として、感染症サーベイランス、集団発生例等の病原診断と感染症流行予防のための感染源及び感受性調査を行った。また一般市民からの依頼検査を行った。昭和59年度に取扱った検査件数を表13に示す。

表13 検査件数

区分	行政検査	一般依頼検査	計
呼吸器系疾患	431	0	431
神経系疾患	978	0	978
発疹性疾患	455	0	455
消化器系疾患	309	0	309
眼疾患	254	0	254
その他の疾患	213	52	265
計	2,640	52	2,692

(1) 感染症サーベイランス事業に係る検査

昭和56年7月に発足した国の感染症サーベイランス事業に基づき、市内10か所の検査定点医療機関から集められた検体について病原検索を行った。本事業の検査件数を表14に示す。

検査対象9疾患からのウイルス分離率は52.8%であった。無菌性髄膜炎からはコクサッキーB5型、エコー11, 18型が、ヘルパンギーナからコクサッキーA10型が多く分離された。咽頭結膜熱及び流行性角結膜炎ではアデノ4型のほか、前者で3型、後者で19型が多く分離された。

(2) 集団発生等の検査

表14 感染症サーベイランス検査件数

区分	検査件数
乳児嘔吐下痢症	62
その他の感染性下痢症	71
手足口病	45
ヘルパンギーナ	66
咽頭結膜熱	51
流行性角結膜炎	227
急性出血性結膜炎	27
無菌性髄膜炎	462
脳・脊髄炎	35
その他の疾患	157
計	1,203

表15 集団発生等の検査件数

区 分	検査件数
インフルエンザ	46
感染性下痢症	176
食品のウイルス検索	77
計	299

インフルエンザ、感染性下痢症の病原検索及び食品のウイルス検査を行った。これらの検査件数を表15に示す。

今冬の市内におけるインフルエンザ集団発生は2月に入ってからで、2施設の患者材料からB型インフルエンザウイルスが分離された。

(3) 感染源及び感受性調査

感染源及び感受性調査の検査件数を表16に示す。

表16 感染源、感受性調査件数

区 分	検査件数	
インフルエンザ	感染源	72
	感受性	60
日本脳炎	感受性	340
ポリオ	感染源	25
	感受性	116
風疹	感受性	210
麻疹	感受性	200
B型肝炎	HBs抗原・抗体	70
その他		45
計		1,138

a インフルエンザ感染源調査

昭和59年10月より60年3月までに感冒様症状を呈した患者についてインフルエンザウイルスの分離検査を行った。

昭和60年1月21日採取検体を初回に、3月までにB型が27株分離された。

b インフルエンザ感受性調査

昭和59年2月から4月までに採取された4歳から12歳の小児血清について、昭和59年度のワクチン株及び昭和58年度の分離株(AH1)を用いてHI抗体価を測定した。

1:16以上及び1:64以上の抗体保有率は、A/Bangkok/10/83(H1N1)では73.3%、60.0%、A/Philippines/2/82(H3N2)では96.7%、90.0%、B/Singapore/222/79では75.0%、43.3%、A/広島/C-1/84(分離株)では71.7%、60.0%であった。

c 日本脳炎感受性調査

妊婦(年齢分布15~44歳)を対象にHI抗体価を測定した。1:10以上のHI抗体保有率は50.3%であった。

d 風疹感受性調査

0歳から14歳の小児についてHI抗体価を測定した。5歳ごとの年齢層別感受性者の割合は0~4歳 71.4%、5~9歳 41.7%、10~14歳 28.6%であった。

(4) 一般依頼検査

一般市民よりHBs抗原・抗体の検査依頼が52件あった。

公 害 部

公害部の主要業務は、公害に関する試験検査ならびに調査研究であり、水質関連業務、大気関連業務及び特殊公害関連業務を実施している。

水質関連業務では、水質汚濁防止法及び瀬戸内海環境保全特別措置法に基づき、工場、事業場等の排水試験、公共用水域（河川、海域）の水質試験、底質調査及びこれらに関する調査研究を行っている。

大気関連業務では、大気汚染防止法及び悪臭防止法に基づく煙道排ガス、悪臭等の調査・測定、市内における環境大気中の有害物質等の調査・測定及びこれらに関する調査研究を行っている。

特殊公害関連業務では、環境の生物学的調査、土壌、産業廃棄物に関する試験検査、環境放射能に関する試験検査及びこれらに関する調査研究を行っている。

以下に述べる業務報告は昭和59年度中に公害部において実施した業務の概要である。

1 水質関連業務

行政依頼検査として、公共用水域における水質、底質、栄養塩類、洗剤残存調査、排水規制に係わる水質試験及び一般依頼による試験を行った。

表1は昭和59年度実施した各区分ごとの試験検査件数及び延べ項目数である。

表1 水質関連業務試験件数

区 分		件 数	延項目数
行政 依頼 調 査	河 川 水 調 査	533	2,904
	広 島 湾 海 域 調 査	413	1,973
	底 質 調 査	2	26
	栄 養 塩 類 調 査	48	248
	洗 剤 残 存 調 査	40	40
	規制指導対象事業場排水試験	1,047	3,768
	リン排出状況実態調査	163	163
一 般 依 頼 試 験		58	111
そ の 他		241	549
河 川 底 質 の 重 金 属 類 調 査		55	1,100
地 下 水 汚 染 実 態 調 査		117	396
計		2,662	11,278

(1) 河川水調査（太田川、瀬野川）

太田川水系13地点、瀬野川水系5地点についてCOD、BOD等の生活環境項目と重金属その他有害物質などの健康項目及び水浴場判定試験に基づく水質調査を行った。又定点環境調査の補足として、中小河川についてCOD、BOD等の生活環境項目について調査を行った。

(2) 広島湾海域調査

広島湾5地点についてCOD、油分などの生活環境項目

とNH₃-N、T-N、T-Pなどの栄養塩類について調査を行った。

(3) 底質調査

河川2地点について、COD、硫化物、重金属その他有害物質など13項目について調査を行った。

(4) 栄養塩類調査

公共用水域の富栄養化防止対策の一環として、河川（太田川、瀬野川）5地点、海域5地点について、NH₃-N、NO₂-N、NO₃-N、T-N、PO₄-P、T-Pの項目について調査を行った。

(5) 洗剤残存調査

河川（太田川、瀬野川）11地点について、直鎖型陰イオン界面活性剤（LAS）、T-P、CODについて調査を行った。

(6) 規制指導対象事業場排水試験

水質汚濁防止法、瀬戸内海環境保全特別措置法、広島県条例に基づき、工場・事業場排水について、COD、BODなどの生活環境項目、鉛、カドミウム等の健康項目、亜鉛、銅等の特殊項目について試験を行った。

(7) リン排出状況実態調査

広島県の「リン及びその化合物に係る削減指導方針」に基づき、工場・事業場排水のT-Pについて調査を行った。

(8) 一般依頼試験

市内事業場等からの依頼にもとづき、COD、BOD等の各種試験を行った。

(9) そ の 他

行政上必要な依頼試験及び苦情にともなう試験を必要に応じて行った。

(10) 河川底質中の金属成分調査

市内5河川55地点について、鉛、銅、亜鉛、カドミウム等の金属成分の調査を行った。

(11) 地下水汚染実態調査

環境庁の委託事業として、地下水、河川水、工場排水中のトリクロロエチレン、テトラクロロエチレン、1,1,1-トリクロロエタン、電気伝導度等の調査を行った。

2 大気関連業務

行政依頼検査として、大気汚染防止法に基づく煙道排ガス中のばいじん、有害ガス等の試験、悪臭防止法に基づく悪臭物質の試験及び燃料規制地域内において使用される重油中の硫黄分の測定を行った。その他、浮遊粉じん調査、降下ばいじん調査及び環境大気中の各種汚染物質調査を行った。

表2は、昭和59年度中に分析を行った各区分ごとの件

表2 大気関連業務試験件数

区 分	件 数	延項目数
煙 道 測 定	50	486
悪 臭 測 定	31	206
重油中の硫黄分測定	109	109
浮遊粉じん調査	58	233
降下ばいじん調査	60	300
環 境 大 気 調 査	463	1,600
計	771	2,934

数及び延べ項目数である。

(1) 煙道測定

煙道排ガスについては、ばいじん、塩化水素、窒素酸化物、硫黄酸化物、フッ素及び重金属類等の測定を行った。なお、今年度は廃棄物焼却炉からの排出水銀について分析法の検討を含めた調査を行った。

(2) 悪臭測定

悪臭防止法に定められた8物質(硫化水素、硫化メチル、二硫化メチル、トリメチルアミン、アセトアルデヒド、スチレン、アンモニア、メチルメルカプタン)を中心に、下水・し尿処理場、化製場、木製品製造工場等の測定を行った。また、化製場、調味料製造工場等について三点比較臭袋法による官能試験の臭気調査を行った。

(3) 重油中の硫黄分測定

市内の事業所から採取した重油について、その中に含まれる硫黄分の濃度をアイソトープ法及び燃焼管-空気法を併用して測定した。

(4) 浮遊粉じん調査

昭和58年度にひきつづき、市内3ヶ所において年4回大気中の浮遊粉じん、重金属類(Pb, Cd, Cu, Zn, Fe, Mn, Niの7項目)の調査を行った。また、自動車排ガス中の鉛調査として、市中心部交差点の1ヶ所で年4回浮遊粉じん及び鉛の調査を行った。

(5) 降下ばいじん調査

市内5ヶ所で年12回、デポジット法により降下ばいじん量、溶解性物質、pH等の項目について調査を行った。

(6) 環境大気調査

昭和58年度にひきつづき、環境大気中の未規制物質(ホルムアルデヒド、水銀、ベンツピレン、芳香族炭化水素)の調査を市内3ヶ所で年4回(5日間連続)行った。また今年度は、環境庁委託の「非特定重大障害物質環境濃度調査」においてトリクロロエチレン、テトラクロロエチレン、1,1,1-トリクロロエタンの環境大気中濃度を測定した。その他、酸性雨の実態把握のため、市北部1ヶ所(安佐北区役所)に採雨器を設置しpH、電気伝導度、陽イオン、陰イオンの全11項目について雨水成分調査を行った。

3 特殊公害関連業務

特殊公害関連業務では、環境の生物学的調査、環境放射能測定及び依頼検査として、土壌・産業廃棄物の試験を行った。

表3は、昭和59年度に実施した試験検査件数及び延べ項目数である。

表3 特殊公害関連業務試験件数

区 分	件 数	延項目数
環境の生物学的調査	98	490
環境放射能測定	148	332
土壌・産業廃棄物試験	42	123
計	288	945

(1) 環境の生物学的調査

環境の汚染状況を、生物を指標として評価することが行われるようになり、水質の汚濁をより総合的に把握することを目的として、底生動物の生息分布状態の調査を行った。

調査は58年度からの継続として、太田川水域(太田川本流及び支流11河川)、安川水域において調査季節を変えて行い、さらに根谷川水域において春夏秋冬の各季節について行った。

(2) 環境放射能測定

市内の生活環境中の放射能レベルを把握し、その変動をみるために、河川水、雨水、降下じん、食品等について、全β放射能測定、トリチウム測定、γ線核種分析を行った。

測定試料、測定項目等の内訳は表4のとおりである。

表4 試料別放射能試験件数

試 料 \ 測定項目	件 数	全 β 放射能	ト リ チウム	γ 線核種分析
陸 水	62	62	62	62
海 水	10	10	10	10
定 時 降 水	12	—	12	—
降 下 じ ん	12	12	—	12
浮 遊 粉 じ ん	24	24	—	—
農 産 物	9	9	—	9
海・河底土	13	13	—	13
松 葉	6	6	—	6
計	148	136	84	112

(3) 土壌・産業廃棄物試験

行政依頼及び一般依頼により、土壌、廃棄物中の有害物質について、溶出試験、成分試験を行った。また焼却灰中の有機塩素系特殊化学物質について検討を行った。

調查研究報告

I 調查研究

キャピラリーガスクロマトグラフィー によるクロルデン類の分析

細末次郎 松井俊治 吉田 宏 松室信宏
増田富子 光野幸一 橋本和久 佐伯彩路*
上野博昭 久保田明利 岡 新

白蟻防除剤として用いられているクロルデンの分析法を、フューズドシリカキャピラリーガスクロマトグラフィーを用いて検討した。キャピラリーカラムの液相として、化学結合型のcross-linked methyl silicone, URBON HR-54, Hi-Cap CBP10とウォールコーティッド型のSE-30, DC-200, OV-101の6種類を比較した結果、cross-linked methyl siliconeが最も良かった。

はじめに

クロルデンは、米国において殺虫剤として広く使用されていたが、現在では防蟻用としての使用に限定されている。我国でも、シロアリなどの防除用及び木材、合板用として用いられている。

昭和53年、東京都衛研の宮崎ら¹⁾によって東京湾のマハゼ中にクロルデンの残留が確認された。その後、環境庁の調査²⁾により底質及び魚介類の全国的な汚染の実態が明らかになった。

クロルデン類の分析には、フロリジルカラムによる分離精製後、ガスクロマトグラフィーにより定性定量を行う方法^{1)~4)}が一般的である。しかしながら、生体中PCBやDDTなどの有機塩素化合物との分離、そして工業製品中に存在する約40種の共存成分の分離が分析を困難にしている。そのため質量分析計⁵⁾を用いたり、パックドカラムより分離能の高いキャピラリーカラム^{6)~8)}を用い

て分析をより信頼性の高いものにしていく。

今回、数種類のフューズドシリカキャピラリーカラムを用いて、クロルデン類の分析条件を検討したので報告する。

調査方法

1 試 薬

trans-chlordane, cis-chlordane, heptachlor, heptachlor epoxide, 塩素系農薬標準品, その他試薬は和光純薬工業⁹⁾製の残留農薬試験用又は特級を用いた。oxy-chlordane, trans-nonachlorはヴェルシコール・パンフィック社から、cis-nonachlorは国立衛生試験所から供与されたものを用いた。

2 装 置

ガスクロマトグラフ：嶋島津製作所製GC-7AG(EG D⁶³Ni付), データ処理装置：嶋島津製作所製C-R1A

表1 キャピラリーカラム及びGC設定条件

液 相	cross-linked methyl silicone	ULBON HR-54	Hicap-CBP 10	SE-30	DC-200	OV-101	
極 性	無	微	中	無	無	微	
コーティング法	chemical bonded	chemical bonded	chemical bonded	wall coated	wall coated	wall coated	
メーカ	HEWLET PACKARD	信和化工	嶋津製作所	信和化工	ガスクロ工業	信和化工	
内 径(mm)	0.20	0.24	0.20	0.24	0.25	0.20	
長 さ(m)	25	25	25	30	25	25	
カラム温度	initial (°C)	200	200	220	155	180	200
	final (°C)	220	220	240	180	200	220
	rate (°C/min)	1	1	1	1	1	1
カラム圧(kg/cm ²)	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7	
メークアップガス	N ₂	N ₂	N ₂	N ₂	N ₂	N ₂	
メークアップガス流量(ml/min)	30	30	30	30	30	30	
検出器温度(°C)	300	300	300	300	300	300	

* 広島市下水道局千田下水処理場

試料導入装置：(株)島津製作所製ムービングニードル形ソルベントカット試料導入装置を用いた。

3 キャピラリーカラム及びガスクロマトグラフ設定条件

6種類のフューズドシリカキャピラリーカラムを用いて、分析条件を検討した。また、液相には化学結合型3種とウォールコーティッド型3種を用いた。表1に使用キャピラリーカラム並びにガスクロマトグラフ設定条件を示す。

4 試験方法

宮崎らの方法⁵⁾に準拠して、溶媒抽出後にアセトニトリル分配を行い、次にフロリジルカラムにより分離精製を行った。図1にその概略をフローシートで示す。

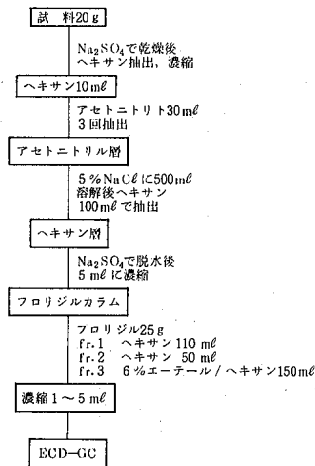


図1 クロルデン類分析フローチャート

結果及び考察

1 ガスクロマトグラフィ

クロルデン類の分析には、従来パックドカラムが用いられてきたが、定性定量には数種類のカラムを使って目的成分の確認を行わねばならない。しかし、近年発展してきたキャピラリーカラムでは高分離能が得られ、ピーク同志の重りが少ない。表2は、クロルデン類の保持時間とピーク面積の再現性を調べたものである。化合物同

表2 cross-linked methyl silicone カラムの再現性

クロルデン標準品各45pg n=10

	Retention time		Peak area	
	$\bar{x} \pm SD(\text{min})$	CV(%)	$\bar{x} \pm SD$	CV(%)
oxy-chlordane	12.65 ± 0.01	0.08	24060 ± 670	2.8
trans-chlordane	13.79 ± 0.01	0.07	28090 ± 730	2.6
cis-chlordane	14.90 ± 0.01	0.07	26210 ± 560	2.1
trans-nonachlor	15.53 ± 0.01	0.06	26720 ± 710	2.7
cis-nonachlor	20.05 ± 0.01	0.05	34080 ± 620	1.8
heptachlor	8.89 ± 0.01	0.10	27380 ± 1650	6.0
heptachlor epoxide	12.41 ± 0.01	0.08	27090 ± 540	2.0

定の指標となる保持時間の標準偏差はすべて0.01分であり、変動係数も0.1%以下であった。また、ピーク面積の変動係数は heptachlor が6.0%であるほかは、すべて3%以下を示しており、定性定量とも良好な結果を得た。図2にクロルデン類の検量線を示したが、すべてよい直線性を示した。

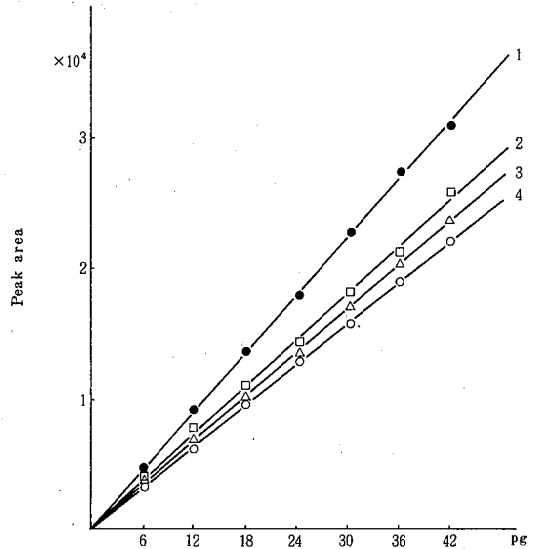


図2 クロルデン類の検量線

- 1. cis-nonachlor
- 2. trans-chlordane
- 3. cis-chlordane
- 4. oxy-chlordane

試料導入部には、注入試料の1/50程度しかカラムに導入できないスプリット法では感度不足のためムービングニードル形ソルベントカット法を用いた。この方法では、ニードルで溶媒を蒸発させるときに気散する低沸点成分の分析には利用出来ないため、クロルデン標準液をニードルに塗布し、その蒸発時間を1分、2分、5分と変化させたが、ピーク面積に変化は見られなかった。実際の分析時には、蒸発時間を1分に固定した。

2 キャピラリーカラムの比較

6種類のキャピラリーカラムについて、クロルデン類7種と有機塩素系農薬11種の分離を検討した。表3にaldrinに対する相対保持時間を示した。ウォールコーティッド型の3種類はoxy-chlordaneとheptachlor epoxideが分離不良であった。SE-30では、endrinとpp'-DDEの分離も不良であり、cis-nonachlorとpp'-DDDが重った。DC-200では、dieldrinとpp'-DDEの2種とcis-nonachlor、op-DDDとop-DDTの3種が分離不良であった。OV-101では、cis-nonachlorとop-DDT、dieldrinとpp'-DDEが重った。化学結合型のHR-54では、cis-nonachlorとpp'-DDDが分離不良、heptachlor epoxideとoxy-chlordane、dieldrinとpp'-DDEが重った。Hi-Cap CBP

表3 クロルデン類及び有機塩素系農薬の相対保持時間

	cross-linked methyl silicone	ULBON HR-54	HiCap-CBP10	SE-30	DC-200	OV-101
oxy-chlordane	1.20	1.23	1.30	1.27	1.23	1.19
trans-chlordane	1.31	1.39	1.63	1.41	1.35	1.29
cis-chlordane	1.41	1.51	1.69	1.56	1.43	1.39
trans-nonachlor	1.47	1.56	1.70	1.65	1.55	1.45
cis-nonachlor	1.91	2.14	2.61	2.24	2.04	1.88
heptachlor	0.83	0.83	0.88	0.81	0.82	0.85
heptachlor epoxide	1.17	1.23	1.41	1.24	1.20	1.16
α-HCH	0.49	0.48	0.66	0.41	0.43	0.53
β-HCH	0.53	0.54	0.80	0.45	0.47	0.56
γ-HCH	0.56	0.57	1.14	0.49	0.51	0.59
δ-HCH	0.58	0.63	1.30	0.51	0.53	0.51
dieldrin	1.57	1.70	1.90	1.75	1.65	1.54
endrin	1.70	1.89	1.74	1.90	1.79	1.68
pp'-DDE	1.55	1.70	2.09	1.85	1.67	1.54
pp'-DDD	1.83	2.11	2.53	2.24	2.00	1.82
op-DDT	1.91	2.14	2.17	2.32	2.08	1.88
pp'-DDT	2.22	2.23	2.71	2.77	2.47	2.19
retention time of aldrin (min)	9.88	6.36	8.28	8.09	10.14	8.61

10では、cis-chlordaneとtrans-nonachlor, oxy-chlordaneとδ-HCHが重った。今回、分離の最も良かったものはcross-linked methyl siliconeでcis-nonachlorとop-DDTが重った以外、他のピークはすべて分離した。図3にクロルデン類並びに有機塩素系農薬のガスクロマトグラムを示す。

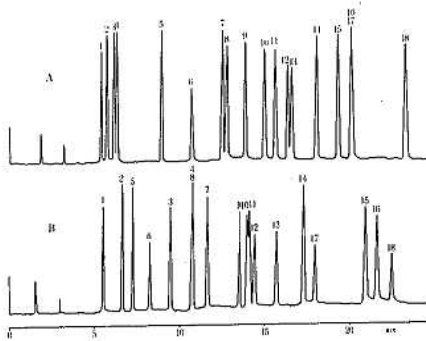


図3 クロルデン類及び有機塩素系農薬のECD-ガスクロマトグラム

- A. カラム cross-linked methyl silicone 200 $\frac{1^\circ\text{C}/\text{min}}{220^\circ\text{C}}$
 B. カラム HiCap-CBP10 210 $\frac{1^\circ\text{C}/\text{min}}{230^\circ\text{C}}$
 1. α-HCH 2. β-HCH 3. γ-HCH 4. δ-HCH
 5. heptachlor 6. aldrin 7. heptachlor epoxide
 8. oxy-chlordane 9. trans-chlordane
 10. cis-chlordane 11. trans-nonachlor
 12. pp'-DDE 13. dieldrin 14. endrin
 15. pp'-DDD 16. cis-nonachlor 17. op-DDT
 18. pp'-DDT

以上、クロルデン類の分析において、キャピラリーガスクロマトグラフィーが有益であることがわかったので、今後は、各種生体試料の分析を行う予定である。

謝 辞

クロルデン類の標準品を御恵送いただいた国立衛生試験所の関田寛先生及びヴェルシコール・パシフィック社に深く感謝いたします。

文 献

- 1) T. Miyazaki et al: Gas Chromatographic Method for the Determination of Residues of Chlordanes and Related Compounds in Fish and Shellfish, Bull. Environm. Contam. Toxicol., **25**, 305-312 (1980)
- 2) 環境庁環境保健部保健調査室レポートシリーズNo.9, 昭和58年版ケミカルアセスメントアニュアルレポート "化学物質と環境"
- 3) 堀内遼一, 他: 環境および魚介中のクロルデンについて, 宮崎県衛研年報, **25**, 29-34 (1984)
- 4) 武田明治, 他: 低濃度投与レベルでの連続投与時におけるクロルデン類のラット体内分布, 国立衛生試験所報告, **102**, 113-116 (1984)
- 5) 宮崎奉之, 他: 魚介類中のクロルデンとその近縁化合物の分離同定と定量法, 東京都衛研年報, **31-1**, 161-165 (1980)
- 6) 宮崎奉之, 他: Technical chlordane成分と生物中に残留するchlordane成分との相関について, 食品衛生学会第45回講演要旨集, 16 (1983)
- 7) 中村彰夫: 環境管理の手法に関する研究, 大阪府公衛研年報, **13**, 49-55 (1982)
- 8) R. W. Stringham et al: Capillary Gas Chromatographic Determination of Technical Chlordane in

高速液体クロマトグラフィーによる市販食品中の食用タール色素含有量調査

吉田 宏 佐伯彩路* 福田 裕 松室信宏
増田富子 細末次郎 光野幸一 橋本和久
松井俊治 久保田明利 岡 新

広島市内に流通する合成着色料を使用している加工食品について、食用タール色素の含有量を調査した。許可されている11色素中8種が検出され、食用黄色4号が最高590 ppm含まれていた。漬物類に含有量が多く、100 ppmを超えるものがほとんどであった。魚介加工品に2検体100 ppmを超えたものがあつたが、他の食品では数ppm程度の含有量だった。また食用黄色4号については、核磁気共鳴スペクトルによる確認を行った。

はじめに

タール色素の中には発ガン性・催奇性などを示すものもある。そのため種々の試験により安全性が高いとされた11種のみが食用色素として許可されている。我国においては現在使用量の規制は無いが、FAO/WHO 専門委員会は1日許容摂取量について勧告している^{1)~5)}。含有量の実態については椎名らの調査⁶⁾などがあるが、量的規制が無いためあまり調査されていない。しかし、食用黄色4号などアゾ色素にはぜん息などの過敏反応も報告⁷⁾されており、含有実態を把握することが重要であると思われる。

そこで、高速液体クロマトグラフィー(HPLC)を用いて食用タール色素を定量し、含有量を調査した。また、分析方法についても若干の検討を行ったので報告する。

実験方法

1 装置

高速液体クロマトグラフ：(株)島津製作所製 LC-3A型、グラジエント装置 GRE-2B型付

検出器：(株)島津製作所製 SPD-2A型 UV可変波長型
核磁気共鳴分析装置：日本電子(株)製 JNM-GX270型
二波長自記分光光度計：(株)日立製作所製 557型

2 試薬

標準色素：食用黄色4・5号(Y-4・Y-5)、食用青色1・2号(B-1・B-2)、食用緑色3号(G-3)、食用赤色2・102・105・106号(R-2・R-102・R-105・R-106)東京化成工業(株)製 食用赤色3・104号(R-3・R-104)和光純薬工業(株)製 酢酸アンモニウム、炭酸アンモニウム、硫酸ナトリウム、リン酸一カリウム、リン酸二カリウム、アンモニア水、1-ブタノール 和光純薬工業(株)製特級

メタノール、アセトニトリル、蒸留水、和光純薬工業(株)製液体クロマトグラフィー用

アンバーライト LA-2 オルガノ(株)製

3 高速液体クロマトグラフ操作条件

カラム：Zorbax ODS (4.6mmφ×25cm)

カラム温度：40℃ 流速：1 ml/min.

移動相：(1) 5%メタノール・0.02MCH₃COONH₄水→0.02MCH₃COONH₄メタノール リニアグラジエント(4min. ini. Hold; 0→12%, 6%/min.; 12→90%, 3%/min.); 11色素

(2) 6%メタノール・0.05MCH₃COONH₄水; Y-4

(3) 22%アセトニトリル・0.02MKH₂PO₄・0.02MK₂HPO₄水; B-1

4 核磁気共鳴分析装置測定条件

測定核種 炭素13 67.80 MHz

測定方法 プロトンデカップリング法 NOEモード

溶媒 重水(D₂O)

内部標準 メタノール(49.57 ppm)

5 試験溶液の調製

固体食品：食品中の食品添加物分析法³⁾の方法に準じた。アンモニア水(9→125)では抽出が困難な場合は、3→10と濃度を高くした。また、試料量は着色の程度により5~30gと変えた。

液体食品：試料を酢酸酸性にし、アンバーライト LA-2・ブタノール液30mlを加えて抽出して以下固体食品と同様に処理した。

結果及び考察

1 実験方法の検討

(1) 色素抽出方法について

魚肉ねり製品には、希アンモニア水と1-ブタノールでは完全な抽出が困難な検体が多かったが、アンモニア水メタノール液で抽出しメタノールを減圧留去したもの

* 広島市下水道局千田下水処理場

表1 市販食品中のタール色素含有量

	品名	色素	含有量(ppm)		品名	色素	含有量(ppm)	
魚介加工品	魚肉ねり製品	R-104	2.2	煮豆	グリーンピース	B-1	5.6	
		R-106	1.7			Y-4	26	
	R-104	1.1	B-1			1.3		
	R-106	6.4	Y-4			1.9		
	魚肉ねり製品	B-1	1.2		グリーンピース	B-1	2.6	
		Y-4	tr*			Y-4	16	
	魚肉ねり製品	R-106	6.8			グリーンピース	B-1	6.7
		R-3	1.5				Y-4	43
	かまぼこ	R-106	tr*	清涼飲料水	セキキ		Y-4	8.2
		R-106	tr*		セキキ		Y-4	10
	かまぼこ	R-106	tr*		ソダ	Y-5	17	
		R-106	tr*		チューブドリンク	R-102	1.3	
	かまぼこ	R-106	tr*		チューブドリンク	Y-5	2.9	
		R-106	3.6		チューブドリンク	B-1	tr*	
	かちで	R-106	1.5		チューブドリンク	Y-4	tr*	
		R-106	28		チューブドリンク	R-106	tr*	
	でんぶ	Y-4	36		チューブドリンク	Y-4	tr*	
		Y-5	29		チューブドリンク	B-1	tr*	
	短冊	Y-4	67		チューブドリンク	B-1	tr*	
		Y-5	37		チューブドリンク	Y-4	5.0	
	短冊	Y-4	28		チューブドリンク	R-102	4.3	
		Y-5	21		チューブドリンク	Y-4	2.5	
		R-102	2.2		チューブドリンク	Y-5	4.6	
		R-106	2.9		チューブドリンク	Y-4	2.6	
刻みするめ	Y-4	9.2	チューブドリンク	Y-5	1.7			
	Y-5	4.3	チューブドリンク	B-1	3.7			
刻みするめび	Y-4	160	チューブドリンク	Y-4	13			
	Y-5	380	チューブドリンク	R-2	11			
		3.7	チューブドリンク	Y-4	18			
			チューブドリンク	R-102	17			
			チューブドリンク	Y-4	2.6			
			チューブドリンク	Y-5	4.0			
			チューブドリンク	B-1	tr*			
			チューブドリンク	Y-4	2.4			
			チューブドリンク	R-102	tr*			
			チューブドリンク	Y-4	1.2			
			チューブドリンク	Y-5	3.8			
			チューブドリンク	R-102	1.9			
			シロップ(5倍)	B-1	22			
			シロップ(5倍)	Y-4	170			
			シロップ(5倍)	R-2	170			
			シロップ(5倍)	Y-4	160			
			シロップ(5倍)	B-1	23			
			シロップ(5倍)	Y-4	66			
海藻加工品	梅昆布	R-102	280	漬物	たたく	Y-4	590	
						Y-4	510	
菓子	キャンディ	B-1	1.4			Y-4	100	
		Y-4	18			Y-4	70	
キャンディ	B-1	tr*			Y-4	480		
	Y-4	4.6			Y-4	470		
ゼリー	B-1	tr*			Y-4	310		
	B-1	1.3			Y-4	290		
ゼリー	Y-4	2.2			Y-4	290		
	R-106	3.0			R-102	180		
らくが	R-106	tr*			B-1	tr*		
	R-106	2.7			Y-4	4.7		
桜もち	R-102	2.7			R-102	160		
	R-106	1.8			R-102	70		
水ようか	R-106	1.2			Y-4	32		
	B-1	1.2			Y-5	67		
水ようか	Y-4	7.2			R-102	55		
	R-106	1.1			R-106	4.4		
よゆうか	B-1	1.7			Y-4	120		
	Y-4	29						
和菓子	R-106	tr*						
	R-2	1.2						
和菓子	R-102	1.5						
	B-1	2.1						
和菓子	Y-4	15						
	Y-4	33						
和菓子	R-106	1.6						
	B-1	6.3						
和菓子	Y-4	52						
	Y-4	3.3						
和菓子	R-106	1.6						
	B-4	19						
和菓子	R-106	1.6						

* : 1 ppm未満

を試料とすることで、抽出率がかなり改善されることがわかった。糊料を多く含む液体食品においては、エマルジョンが生成した。そこで試料と同量のアセトンを加え遠心分離した後、上澄をとりアセトンを減圧留去したと

ころ良好に抽出できた。

水層からアンバーライトLA-2・ブタノール液で色素を抽出しにくい場合には、硫酸ナトリウムを水層に加えると良い結果が得られた。また、アンモニア水で抽出した

試料溶液については、アンモニアを弾散させないとB-1が分解されることがあった。

(2) 高速液体クロマトグラフィーによる定量

文献⁸⁾⁹⁾ではイオン化抑制剤として酢酸アンモニウムが、報告¹⁰⁾では炭酸アンモニウムが使われている。まず0.2%炭酸アンモニウム・水・メタノール系でグラジエント分析したが、R-3とR-106の分離が充分でなく、またカラムが急速に劣化することがわかった。ODSカラムは一般にアルカリ性に弱く、炭酸アンモニウム系ではpHが8~9と高いことが原因と思われる。

そこで0.02M酢酸アンモニウム・水・メタノール系を用いたところ、11種のタール色素(各100ppm)を分離することができた。しかし食品試料中には、ソルビン酸などY-4を妨害する物質があるためグラジエント速度を検討した。その結果、試料注入4分後からグラジエントを開始し、12%までは6%/min.それ以後90%までは3%/min.とすることでかなり分離できた(図1)。

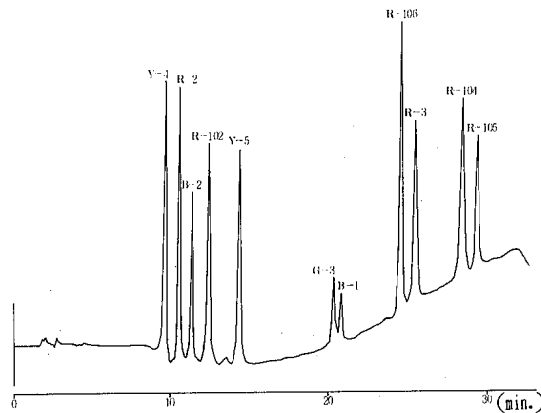


図1 食用タール色素11種のクロマトグラム

さらに妨害の大きい試料については、酢酸アンモニウム0.05Mに増しメタノール濃度を6%一定とすることで、Y-4のみを分離して定量することができた。

B-1については254nmでは感度が低いため定量は不可能であった。UVスペクトルによれば、205nmから短波長側で吸光度が急速に増大している。しかしこのような短波長では酢酸アンモニウム・水・メタノール系での分析は困難である。そのため、イオン化抑制剤をUV吸収の極めて小さいリン酸塩に変え、溶媒もアセトニトリルを用いることで安定したベースラインが得られた。

以上のようにしてまず移動相(1)でグラジエント分析し、Y-4が妨害される試料については移動相(2)を用い、B-1については移動相(3)UV検出器(3)の条件で定量することにより、食品中のタール色素を良好に分析できた。(B-1については可視検出器(630nm)を用いれば感度良く分析できることが報告されている⁹⁾)

2 核磁気共鳴スペクトルによる食用黄色4号の確認

Y-4の使用量が多いからし漬1検体について、炭素13-核磁気共鳴スペクトル(¹³C-NMR)による確認を行った。¹³C-NMRは感度が低いのでS/N比の悪いスペクトルとなったが、標準品との比較によりY-4を確認することができた(図2, 図3)。

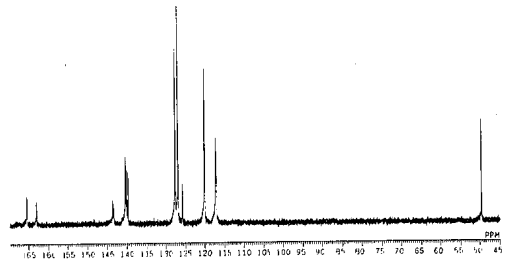


図2 Y-4標準品の¹³C-NMRのスペクトル

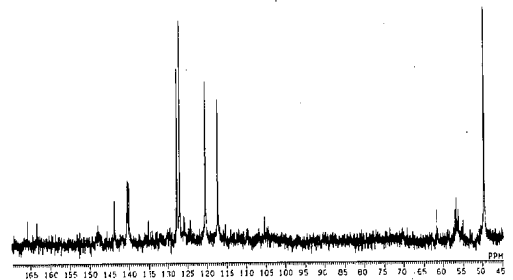


図3 からし漬黄色色素の¹³C-NMRスペクトル

117.2, 120.0, 126.9, 127.6ppmの4本のピークは水素のついたベンゼン環炭素のピークである。また、140, 143ppm付近のピークは窒素原子またはスルホン酸基のついたベンゼン環炭素のピークと思われる。165.4ppmのピークはカルボキシル基と考えられる。

Y-4 ¹³C-NMRデータ(ppm)

- 49.6 117.2 120.0 125.8 126.9 127.6 139.7
- 140.1 140.3 143.3 143.5 163.0 165.4

3 食用タール色素の含有状況

市販食品80検体についてタール色素含有量を調査した結果を表1に示す。1種の色素を含む食品が最も多く44検体、次いで2種の色素を含むもの32検体、3種含むものが3検体、4種含むものが1検体あった。

単品で使われた色素としてはY-4とR-106が最も多く15検体に含まれ、次いでR-102が8検体に使用されていた。2種混合したものでは緑色を出すためのB-1・Y-4の使用が19検体と多かった。今回調査した検体にはG-3は含有されておらず、当所における定性試験でも検出された例はほとんど無いことから、一般に使用されていないと思われる。この原因は明らかではないが、B-1・Y-4の方が食品に好ましい色調が出せる

ためと思われる。また青色ではB-2も検出されなかったが、B-1よりもさらに分解しやすいためであろう。

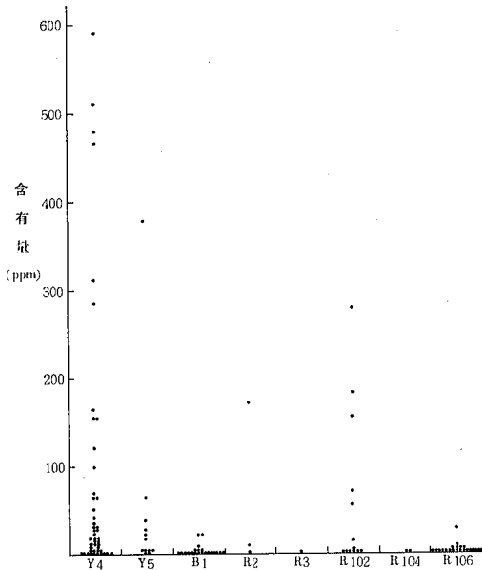


図4 食用タール色素の含有量分布

色素ごとの含有量分布を図4にまとめた。Y-4は46検体から検出され、最高含有量は590ppmで100ppm以上含むものが11検体あった。Y-4が多く含まれているのは赤や青色に比べて同濃度でも色が淡いことも原因と思われる。Y-5は12検体から検出され最高380ppmだった。B-1は21検体中最高23ppmだった。またR-102は13検体からR-106は23検体から検出され、最高はそれぞれ280ppmと28ppmだった。

表2 食用タール色素の1日許容摂取量

色	素	ADI (mg/kg体重)
食用黄色	4号	7.5
食用黄色	5号	5.0
食用青色	1号	12.5
食用青色	2号	5.0
食用緑色	3号	12.5*
食用赤色	3号	2.5

* : 暫定値

次に食品別にみると、漬物に含有量が多いのが特に目立った。魚介加工品では魚肉ねり製品は少なく、その他のものは多い傾向がみられた。菓子類・煮豆ではB-1・Y-4合わせて、それぞれ58ppm・50ppm含むものが最高だった。清涼飲料水はB-1・Y-4合わせて190ppmが最高値であったが、この検体は5倍希釈用シロップだった。希釈しないものでは18ppm(Y-4)が最高と比較的低い値となった。清涼飲料水ではあまり濃い色は好まれないためかと思われる。

FAO/WHOの勧告した1日許容摂取量(ADI)を表2に示した。体重50kgの人がADIを超えるためにはY-4を590ppm含む食品を633g以上食べなければならず、一般的には問題ないと思われる。しかし、Y-4は検出率が58%と高く、また含有量も多いことからかなりの量を摂取する可能性がある。そのため使用してあることをわかりやすくすることが必要と考えられる。Y-4を中心として食用タール色素の使用実態に注意するとともに、我国においても物質名表示について早急に検討する必要があるだろう。

文 献

- 1) WHO: Technical Report Series, 505, 24 (1974)
- 2) WHO: *ibid.*, 557, 15 (1974)
- 3) WHO: Food Additive Series, 6, 38 (1974)
- 4) WHO: *ibid.*, 8, 7 (1975)
- 5) 厚生省環境衛生局食品化学課: 食品添加物関係資料(資料編), 172 (1983)
- 6) 椎名ら: 各種食品中のタール系着色料含有状況調査について, 食品衛生研究, 28, 86~90 (1978)
- 7) 末次勉ら: 食用タール系アゾ色素の市販食品における使用状況について, 藤田学園医学会誌, 4, 135~138 (1980)
- 8) 厚生省環境衛生局食品化学課 編: 食品中の食品添加物分析法, 485~495, 講談社, (1982)
- 9) 長谷川ら: 高速液体クロマトグラフィーによる食品中のタール色素の定量, 神戸市環境保健研究所 研究報告, 14, 55~59 (1981)
- 10) 野田明男ら: 高速液体クロマトグラフィーによるタール系色素の分離, 食衛誌, 18, 321~327 (1977)

広島市における飲料用地下水の無機成分

関川 恵子 高野 義夫 福田 裕 恋田 和憲
徳森 裕子 上野 博昭 吉崎 征吾* 岡 新

広島市の飲料用地下水 396 検体の無機成分を調査し、町別にその濃度を明らかにするとともに、主成分分析を用いて各地区における地下水の水質特性の把握を試みた。水質基準を超える項目は、pH 値(2件)、鉄(10件)、フッ素(4件)であった。主成分分析の結果、第1主成分は土壌溶出成分、第2主成分は流動成分、第3主成分は表流水成分と考えられ、第3主成分までに80%の情報が説明できた。主成分スコアの分布は、ほぼ中央に集まるパターンを示した。

はじめに

広島市における上水道の普及率は年々上昇し、昭和60年3月現在95%に達しているが、市内周辺部において地下水は重要な水資源として活用されている。一方、最近おいしい水を求める声が高まり、地下水を飲料用にしたリ、ミネラルウォーターとして市販化する傾向がみられる。一般家庭の飲料用地下水は、比較的浅層を利用してのものが多いため、家庭下水、し尿、肥料等の人為汚染の影響を受けやすく、また、地質や地形等の地域特性により、無機成分の含有量が相違がみられることも考えられる。このような複雑多様な影響が推測される地下水質を把握するため、当所では昭和57年度より3年間、飲料用地下水の無機成分の調査を実施してきた。今回、調査地域全体の無機成分の濃度を明らかにするとともに、多変量解析の一方法である主成分分析を用いて、広島市の地下水質の解析を試みたので報告する。

方 法

1 調査地域の概況

調査地域は図1に示すように、広島市の周辺に位置し、

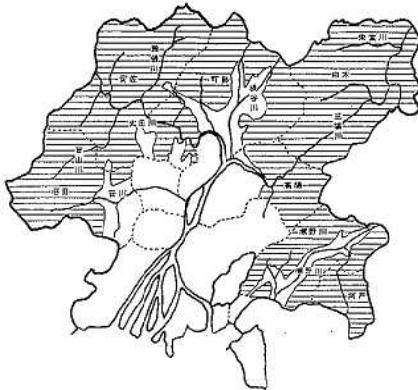


図1 調査地域

安佐町、白木町、阿戸町のほぼ全域と、高陽町、可部町、沼田町、瀬野川町の一部である。北部は太田川やその支流である三篠川、根谷川、西部は安川、東部は瀬野川が流下しており、その流域沿に沖積低地が開けている。集落は沖積低地から丘陵地にかけて広がっている。

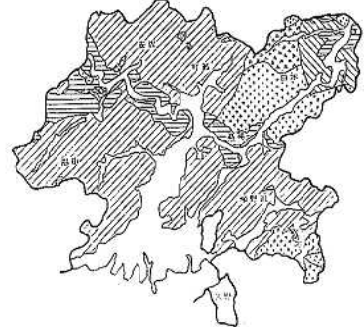
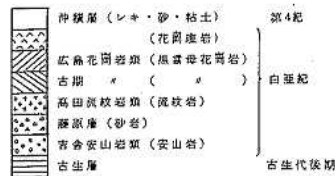


図2 広島市の地質図
(広島県地質図資料による)

地質は図2に示すように、花崗岩が広く分布し、一部白木町、阿戸町に流紋岩が現われ、また安佐町や高陽町に局部的に、主として粘板岩から成る古生層が出現している。沖積層は大小河川の流域沿に分布し、砂、礫、粘土から成っている。¹⁾²⁾

2 調査期間および検体数

調査期間は昭和57年4月から昭和60年3月までである。検体数は安佐町85件、白木町77件、高陽町60件、可部町79件、沼田町33件、瀬野川町29件、阿戸町33件、合計396件である。

3 試験項目および試験方法

試験項目は pH 値、硝酸性窒素(NO₃-N)、塩素イオ

* 安芸地区衛生施設管理組合

ン(Cℓ⁻), 総アルカリ度, 硫酸イオン(SO₄²⁻), 溶性ケイ酸(SiO₂), リン酸イオン(PO₄³⁻), カリウム(K), ナトリウム(Na), マグネシウム(Mg), カルシウム(Ca), 蒸発残留物, 電気伝導度, 鉄(Fe), 銅(Cu), マンガン(Mn), 亜鉛(Zn), 水銀(Hg), カドミウム(Cd), 鉛(Pb), 六価クロム(Cr⁶⁺), ヒ素(As), フッ素(F), シアンイオン(CN⁻)である。

試験方法は上水試験方法による³⁾

結果および考察

1 無機成分の含有量

町別水質試験結果を表1に, 各項目の濃度分布を図3に示した。

(1) pH値

pH値の範囲は5.5~8.3で, 平均値は6.5であった。濃度分布は正規分布し, 6.5~6.7にピークがみられた。各町の平均値の範囲は6.4~6.6であった。水質基準以下の地点が白木町と沼田町に1件ずつみられ, 6.0以下の地点は安佐町に8件, 白木町に5件, 高陽町に4件, 可部町に3件, 瀬野川町に2件, 阿戸町に1件あった。これらの地点は遊離炭酸量が対応する炭酸イオン量より多いことが推測される。

(2) 硝酸性窒素

硝酸性窒素の範囲は0.06~9.5mg/ℓで, 平均値は1.6mg/ℓであった。濃度分布は対数正規分布に近似し, 0.7mg/ℓ以下にピークがみられた。各町の平均値の範囲は

表1 飲料用地下水の町別水質試験結果

	pH値	NO ₃ -N (mg/ℓ)	Cl ⁻ (mg/ℓ)	蒸発残留物 (mg/ℓ)	アルカリ度 (mg/ℓ)	SiO ₂ (mg/ℓ)	SO ₄ ²⁻ (mg/ℓ)	PO ₄ ³⁻ (mg/ℓ)	K (mg/ℓ)	Na (mg/ℓ)	Mg (mg/ℓ)	Ca (mg/ℓ)	電気伝導度 (μmℓ/cm)	Fe (mg/ℓ)	Cu (mg/ℓ)	Mn (mg/ℓ)	Zn (mg/ℓ)	F (mg/ℓ)	
安佐町 n=85	範囲	5.9-7.5	0.08-5.6	4.6-160	20-330	2.0-150	11-41	0.5-19	<0.1-0.2	0.2-6.5	4.6-28	0.1-5.8	1.7-77	47-530	<0.03-0.36	<0.01-0.04	-	<0.01-0.32	<0.1-3.6
	平均値	6.5	1.5	11	90	28	21	4.0	-	1.1	8.0	1.6	9.0	110	0.05	-	-	0.02	0.1
	標準偏差	0.3	1.1	16	40	18	6.0	3.6	-	0.8	2.9	0.9	8.3	80	0.05	-	-	0.03	0.4
白木町 n=77	範囲	5.5-7.7	0.05-8.5	1.4-28	30-270	3.0-98	10-40	0.5-22	<0.1-0.3	0.2-5.8	3.7-22	0.2-4.6	1.1-46	31-260	<0.03-0.52	<0.01-0.07	<0.01-0.25	<0.01-0.09	<0.1-2.7
	平均値	6.5	1.2	8.4	80	28	22	4.9	-	1.4	7.5	1.6	9.6	100	0.07	0.01	-	0.01	0.2
	標準偏差	0.4	1.4	3.9	40	16	7.0	4.7	-	1.0	3.2	0.9	7.0	49	0.11	0.01	0.03	0.01	0.3
高陽町 n=50	範囲	5.9-8.3	0.12-9.5	4.2-28	40-340	4.0-79	12-38	1.0-25	-	0.3-5.4	2.6-15	0.5-13	1.3-79	35-340	<0.03-1.3	<0.01-0.52	<0.01-0.32	<0.01-0.11	<0.1-1.8
	平均値	6.5	2.8	10	110	30	23	8.7	-	1.3	8.3	2.4	15	120	0.05	0.02	-	0.02	0.1
	標準偏差	0.4	2.9	3.5	50	16	6.0	4.7	-	1.2	2.7	2.4	12	53	0.06	0.07	-	0.02	0.3
可部町 n=33	範囲	5.9-7.5	0.09-7.3	4.9-15	40-170	9.0-72	14-39	1.3-20	-	0.3-2.8	3.9-16	0.6-8.1	2.8-27	50-220	<0.03-0.12	<0.01-0.18	<0.01-0.17	<0.01-0.10	<0.1-0.5
	平均値	6.6	1.2	8.3	80	24	23	7.9	-	1.0	5.9	1.6	11	98	-	0.01	-	0.01	-
	標準偏差	0.3	1.1	2.3	30	11	6.0	3.5	-	0.5	2.0	1.1	4.4	32	-	0.02	-	0.01	-
沼田町 n=33	範囲	5.7-7.0	0.05-5.0	4.6-17	40-130	6.0-42	9.0-38	1.0-9.9	-	0.3-2.7	4.0-12	0.4-2.0	1.9-25	48-170	<0.03-0.07	<0.01-0.05	-	<0.01-0.11	<0.1-0.3
	平均値	6.4	1.4	8.9	80	20	20	4.2	-	1.2	6.7	1.1	8.4	95	-	0.01	-	0.01	-
	標準偏差	0.3	1.2	2.9	20	8.0	5.0	2.4	-	0.6	1.7	0.5	4.7	29	-	0.01	-	0.01	-
瀬野川町 n=29	範囲	5.9-7.5	0.13-9.2	2.8-19	30-230	6.0-51	13-35	<0.5-18	-	0.4-4.1	4.2-13	0.4-4.6	1.6-37	44-870	<0.03-0.12	<0.01-0.03	-	<0.01-0.11	<0.1-0.7
	平均値	6.6	1.7	9.6	90	24	21	5.5	-	1.6	8.4	1.4	9.3	140	0.04	-	-	0.02	0.1
	標準偏差	0.4	2.0	3.3	40	10	6.0	4.0	-	0.8	2.1	0.9	6.7	140	-	-	-	0.02	0.1
阿戸町 n=33	範囲	5.9-7.3	0.06-9.2	4.2-25	40-220	6.0-170	15-38	<0.5-20	-	0.4-5.7	4.4-15	0.2-5.1	1.6-49	36-250	<0.03-0.48	<0.01-0.04	<0.01-0.14	<0.01-0.17	<0.1-1.4
	平均値	6.6	1.7	10	110	38	22	7.7	-	1.9	7.8	1.4	15	120	0.05	-	-	0.02	0.1
	標準偏差	0.3	1.8	4.5	50	35	5.0	4.9	-	1.0	2.5	1.1	11	56	0.05	-	0.02	0.03	0.2
全町 n=396	範囲	5.5-8.3	0.05-9.5	1.4-160	20-340	2.0-170	9.0-53	<0.5-25	<0.1-0.3	0.2-6.5	2.6-28	0.1-13	1.1-79	31-870	<0.03-1.3	<0.01-0.52	<0.01-0.25	<0.01-0.32	<0.1-3.6
	平均値	6.5	1.6	9.6	90	28	22	6.0	-	1.4	7.8	1.6	11	110	0.05	0.01	-	0.02	0.1
	標準偏差	0.4	1.8	8.3	40	18	6.0	4.6	-	1.0	3.0	1.3	6.4	64	0.10	0.03	0.02	0.02	0.3

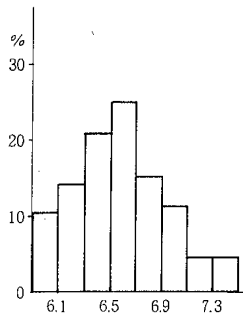


図3-1 pH値の濃度分布

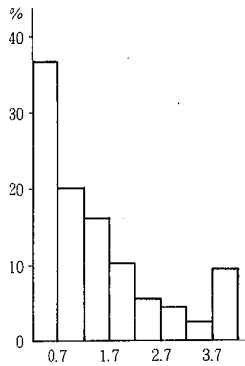


図3-2 NO₃-Nの濃度分布

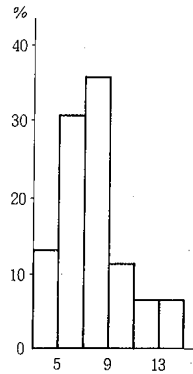


図3-7 Naの濃度分布

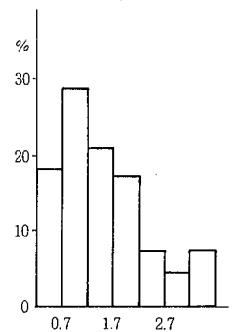


図3-8 Mgの濃度分布

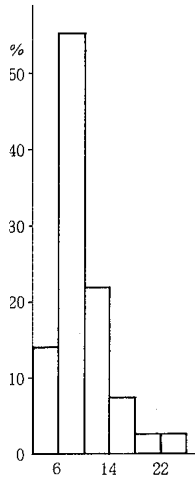


図3-3 Cl⁻の濃度分布

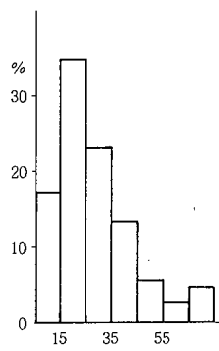


図3-4 アルカリ度の濃度分布

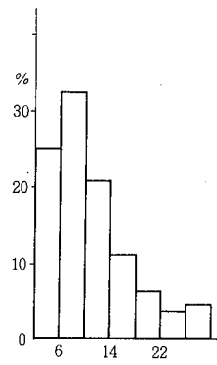


図3-9 Caの濃度分布

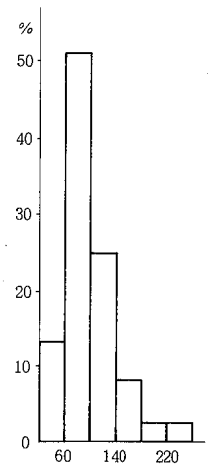


図-10 蒸発残留物の濃度分布

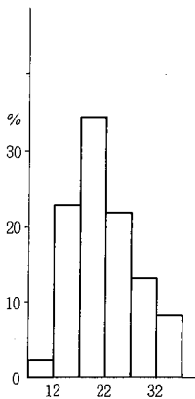


図3-5 SiO₂の濃度分布

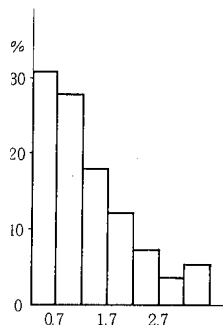


図3-6 Kの濃度分布

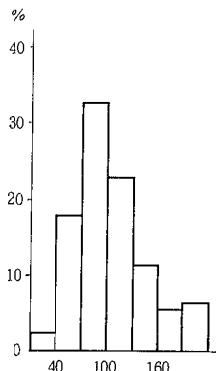


図3-11 電気伝導度の濃度分布

表2 地区別平均値

地区名	項目	pH値	NO ₃ -N (mg/l)	Cl ⁻ (mg/l)	蒸発残留物 (mg/l)	アルカリ度 (mg/l)	SiO ₂ (mg/l)	K (mg/l)	Na (mg/l)	Mg (mg/l)	Ca (mg/l)	電気伝導度 (μs/cm)
1	小河内(9)	6.5	1.9	11	110	25	22	2.0	7.7	2.2	10	140
2	鈴張(20)	6.4	1.5	9.5	90	34	22	0.98	8.8	1.9	10	110
3	飯室(23)	6.5	1.4	8.7	100	31	21	1.0	7.5	1.5	11	110
4	久地(2)	6.5	1.2	9.1	70	18	20	1.0	7.2	1.0	6.1	95
5	後山, 毛木 宮野, 筒賀(12)	6.6	1.6	11	92	29	23	1.1	7.7	1.6	7.1	100
6	志路(2)	6.8	1.2	8.8	97	36	23	1.5	7.4	2.0	9.6	120
7	古屋, 井原(12)	6.4	1.4	8.7	87	32	24	1.6	7.8	2.0	11	110
8	小越, 有留 秋山(8)	6.2	0.77	6.2	81	18	23	1.0	6.5	0.63	6.5	72
9	市川(12)	6.5	0.80	7.1	71	23	23	1.4	7.6	1.3	8.4	89
10	三田(23)	6.5	1.5	9.3	82	24	20	1.5	8.0	1.4	12	110
11	狩留家(2)	6.4	2.0	10	95	26	22	1.8	8.1	1.7	12	110
12	上深川(15)	6.5	2.5	11	110	30	20	1.8	7.2	2.3	15	120
13	小河原(19)	6.6	4.6	11	140	35	25	2.0	9.5	3.5	20	150
14	大林(20)	6.6	1.3	9.4	86	28	23	0.97	7.0	1.9	13	110
15	上町屋(7)	6.5	1.1	8.0	87	26	21	1.3	6.3	1.5	11	99
16	桐原(9)	6.7	0.54	7.6	78	23	27	0.61	7.6	1.1	8.9	83
17	南原(13)	6.4	1.0	6.7	77	21	20	1.3	5.3	1.2	9.2	86
18	勝木(13)	6.7	1.2	7.6	76	25	26	0.66	7.7	1.9	11	100
19	綾ヶ谷(12)	6.7	0.85	8.9	70	19	23	1.2	6.5	1.2	8.9	84
20	畑賀, 中野(7)	6.6	0.77	10	83	29	25	1.2	9.3	1.3	8.6	120
21	上瀬野(16)	6.5	1.5	8.8	90	22	19	1.5	7.6	1.3	8.2	110
22	阿戸町(23)	6.6	1.7	10	110	38	22	1.9	7.8	1.4	15	120
23	伴(24)	6.2	1.5	8.7	80	21	20	1.2	6.8	1.1	7.2	98
24	阿戸, 吉山(9)	6.7	1.1	9.6	77	19	18	1.2	6.6	1.2	12	90

()内は件数

表3 相 関 行 列

	pH値	NO ₃ -N	Cl ⁻	蒸発残留物	アルカリ度	SiO ₂	K	Na	Mg	Ca	導電率
pH値	1.000										
NO ₃ -N	-0.018	1.000									
Cl ⁻	0.253	0.591	1.000								
蒸発残留物	0.062	0.857	0.591	1.000							
アルカリ度	0.255	0.477	0.481	0.715	1.000						
SiO ₂	0.300	-0.025	-0.127	0.067	0.269	1.000					
K	-0.090	0.639	0.522	0.666	0.405	-0.268	1.000				
Na	0.174	0.484	0.530	0.499	0.569	0.473	0.247	1.000			
Mg	0.252	0.841	0.548	0.795	0.653	0.236	0.525	0.533	1.000		
Ca	0.265	0.776	0.471	0.746	0.584	0.090	0.552	0.363	0.778	1.000	
導電率	0.187	0.749	0.733	0.846	0.716	0.058	0.672	0.661	0.822	0.627	1.000

1.2~2.8 mg/lで、高陽町が高値を示した。8.0 mg/l以上の地点は高陽町に5件、白木町に1件、瀬野川町に1件、阿戸町に1件あった。これらの地点は動植物体由来する有機窒素化合物を多く含有した土壌の影響が考えられる。

(3) 塩素イオン

塩素イオンの範囲は1.4~160 mg/lで、平均値は9.6 mg/lであった。濃度分布は対数正規分布に近似し、6.0~10 mg/lにピークがみられた。各町の平均値の範囲は8.3~11 mg/lで、汚染の指標となる30 mg/l以上⁴⁾の地点は、安佐町の160 mg/l検出した1件のみであった。この地点は井戸の深さが20 m以上あり、汚染の可能性もなく、フッ素が3.6 mg/l検出したことから特殊な地質の影響を受けた所と考えられる。

(4) 総アルカリ度

総アルカリ度の範囲は2.0~170 mg/lで、平均値は28 mg/lであった。濃度分布は対数正規分布に近似し、15~25 mg/lにピークがみられた。各町の平均値の範囲は20~38 mg/lで高濃度地点は高陽町で170 mg/l、安佐町で150 mg/lがあった。総アルカリ度は淡水では主に重炭酸イオンであり、深さが増すにつれ遊離炭酸が土壌と反応して重炭酸イオンを生ずると言われている⁴⁾。また、炭酸塩を多く含む堆積岩から浸出してくる水はアルカリ度が大きい。これらの地点はいずれも井戸の深さが20 m以上あり、カルシウムが高濃度に検出したことから堆積岩である石灰岩が部分的に分布していると考えられる。

(5) 溶性ケイ酸、硫酸イオン、リン酸イオン

溶性ケイ酸の範囲は9.0~53 mg/lで、平均値は22 mg/lであった。濃度分布は対数正規分布に近似し、17~22 mg/lにピークがみられた。各町の平均値の範囲は20~23 mg/lであった。

硫酸イオンの範囲は0.5未満~25 mg/lで、平均値は6.0 mg/lであった。各町の平均値の範囲は4.0~8.7 mg/lであった。

リン酸イオンはほとんど定量限界以下であり、白木町で0.3 mg/l、安佐町で0.2 mg/l検出した地点があった。

(6) カリウム、ナトリウム、マグネシウム、カルシウム

カリウムの範囲は0.2~6.5 mg/lで、平均値は1.4 mg/lであった。濃度分布は対数正規分布に近似し、0.7 mg/l以下にピークがみられた。各町の平均値の範囲は1.1~1.9 mg/lであった。

ナトリウムの範囲は2.6~2.8 mg/lで、平均値は7.8 mg/lであった。濃度分布は対数正規分布に近似し、7.0~9.0 mg/lにピークがみられた。各町の平均値の範囲は6.7~8.3 mg/lであった。

マグネシウムの範囲は0.1~13 mg/lで、平均値は1.6 mg/lであった。濃度分布は対数正規分布に近似し、0.7

~1.2 mg/lにピークがみられた。各町の平均値の範囲は0.8~2.4 mg/lであった。

カルシウムの範囲は1.1~79 mg/lで、平均値は11 mg/lであった。濃度分布は対数正規分布に近似し、6.0~10 mg/lにピークがみられた。各町の平均値の範囲は8.4~15 mg/lであった。

高濃度地点は、カリウムでは安佐町の6.5 mg/l、ナトリウムでは安佐町の28 mg/l、白木町の22 mg/l、マグネシウムでは高陽町の13 mg/l、カルシウムでは高陽町の79 mg/l、安佐町の77 mg/lがあった。

カルシウム>ナトリウム>マグネシウム>カリウムの順に濃度が小さくなる傾向がみられ、これらは主に岩石や土壌により供給され、地下水が流動するにつれ、土壌とのイオン交換によりナトリウムがカルシウムに置換され増大する傾向がみられた。

(7) 蒸発残留物、電気伝導度

蒸発残留物の範囲は20~340 mg/lで、平均値は90 mg/lであった。濃度分布は対数正規分布に近似し、60~100 mg/lにピークがみられた。各町の平均値の範囲は80~110 mg/lであった。

電気伝導度の範囲は31~870 $\mu\text{S}/\text{cm}$ で、平均値は110 $\mu\text{S}/\text{cm}$ であった。濃度分布は対数正規分布に近似し、70~100 $\mu\text{S}/\text{cm}$ にピークがみられた。各町の平均値の範囲は95~140 $\mu\text{S}/\text{cm}$ であった。

(8) 鉄、銅、マンガン、亜鉛、フッ素

各項目ともほとんど定量限界以下であった。水質基準を超えた検体は、鉄では白木町に6件、安佐町に2件、高陽町に1件、阿戸町に1件あり、フッ素では安佐町に1件、白木町に1件、高陽町に1件、阿戸町に1件あった。

(9) 水銀、カドミウム、鉛、ヒ素、六価クロム、シアニオン

各項目ともすべて定量限界以下であった。

2 主成分分析による地区別水質の特性

地質や地形の類似性から主に大字により地区を分け、11項目について平均値をとった結果を表2に示した。

11項目には相互の関連があると考えられ、相関係数を算出し、この相関行列から主成分分析を行った⁵⁾。相関行列を表3に示した。

(1) 累積寄与率と因子負荷量

累積寄与率は表4に示したとおりで、第3主成分まで約80%の情報が含まれた。第3主成分までの因子負荷量を表5に示し、それから各主成分の意味を推定すると次のとおりとなる。

第1主成分はすべて正の値を示した。マグネシウム、カルシウム、硝酸性窒素、塩素イオンが高い負荷を示したことより、第1主成分は地下水中に溶存する成分の大きさを示し、土壌溶出成分を表わす因子と考えられる。

表4 固有値と寄与率

主成分	固有値	寄与率(%)	累積寄与率(%)
Z ₁	6.084	55.311	55.311
Z ₂	1.712	15.563	70.874
Z ₃	0.905	8.230	79.104

表5 因子負荷量

	Z ₁	Z ₂	Z ₃
pH値	0.223	0.597	0.747
NO ₃ -N	0.872	-0.243	-0.128
Cl ⁻	0.740	-0.101	0.296
蒸発残留物	0.918	-0.132	-0.115
アルカリ度	0.770	0.256	-0.044
SiO ₂	0.136	0.864	-0.356
K	0.693	-0.510	0.024
Na	0.669	0.432	-0.289
Mg	0.901	0.093	-0.022
Ca	0.815	-0.033	0.131
導電率	0.931	-0.004	0.004

第2主成分は溶性ケイ酸, pH値, ナトリウムが正の負荷を示した。一般に, 地下水が地下に浸透するにつれ, 地表の肥料, し尿, 下水等の影響が減少し, 土壌中の生物作用により生じた遊離炭酸により風化岩石を溶かし, カルシウム, ナトリウム, マグネシウム, ケイ酸を溶出させる。さらに流動が進むと, ナトリウムは土壌とのイオン交換においてカルシウムに置換されて放出されやすくなる⁶⁾。正の負荷を示す溶性ケイ酸, ナトリウムは地下水の流動に伴い増加し, 第2主成分は地下水の流動に伴い溶存成分の形態に変化を示す因子と考えられる。

第3主成分はpH値が正の高い負荷を示した。pH値は地下水では遊離炭酸の影響で中性より低くなり, 表流水では中性か少し高くなることより, 第3主成分は表流水による影響を示す因子と考えられる。

(2) 主成分スコア

各地区の主成分スコアの第1主成分(Z₁)と第2主成分(Z₂), 第1主成分(Z₁)と第3主成分(Z₃)を図4に示した。図中の番号は表2に示した地区番号である。これより, Na13の小河原地区を除いてほぼ中央に集まるパターンを示し, 地質や地形による地域差がみられなかったことがわかった。

図4-1に示したZ₁の土壤溶出成分, Z₂の流動成分は各地区の水質特性の傾向を説明することができた。図4-1に実線で囲んだ様に, Z₂が同位置でZ₁が負から正の方向に, 小越・秋山・有留(8), 久地(4), 上町屋(5), 三田(10), 狩留家(11)地区が並んでいる。これらの地区はいずれも河川の流域沿に集落があり, 主に沖積層から採水されている。また, この地区の順は河川の上流から下流

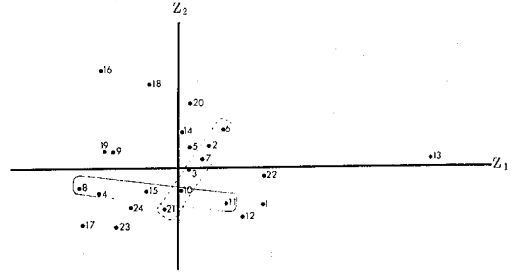


図4-1 主成分スコア(Z₁, Z₂)

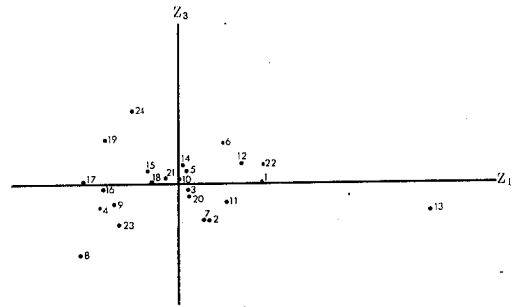


図4-2 主成分スコア(Z₁, Z₃)

へという順である。次に図4-1に破線で囲んだ様に, Z₂が正から負の方向でZ₁を斜めに, 志路(6), 鈴張(2), 古屋・井原(7), 飯室(3), 三田(10), 上瀬野(12)地区が並んでいる。6→7→10は柴堂川の上流から下流, さらにその本流である三篠川へという順で, 2→3は鈴張川の上流から下流という順である。また, 6, 2, 7の地区は丘陵地が多く, 3, 10, 21の地区は河川の流域沿に集落があるものが多い。これらのことから, 河川の流域沿の沖積層の地下水は河川の流下に従ってZ₁の土壤溶出成分が大きくなり, 丘陵地の地下水は沖積層の地下水よりZ₂の流動成分が大きくなることがわかった。

高陽町の3地区ともZ₁の土壤溶出成分が大きく, 特に小河原地区(13)は集団からはずれて大きい値を示した。この地区のZ₁を正にしている主な項目は, 硝酸性窒素, カルシウムであり, 実際のデータにおいても他の地区に比較して平均値が高値を示した。この地区の多くは浅層地下水を利用しており, 他地区より比較的多く窒素化合物を含有した土壌の影響を受けやすい⁷⁾。そのため窒素酸化物の最終酸化生成物である硝酸性窒素の土壌からの溶出量が多くなり, Z₁の土壤溶出成分を大きくしているものと思われる。

地下水質を把握するため今回用いた手法は, 各地区の平均値で主成分分析を行い, 地区の水質特性の傾向をみることであったが, 今後いくつかの課題が残されている。各地点のデータで主成分分析を行い, 井戸の深さや季節的な変動についても検討すること等が考えられる。今

後ともさらに検討を加えることにより、広島市の地下水質の把握を従来以上に適確に行っていきたい。

文 献

- 1) 広島県：広島県地質図
- 2) 楠見久他監修：広島県地学のガイド，61～89，コロナ社，(1980)
- 3) 厚生省：上水試験方法，日本水道協会，(1979)
- 4) 半谷高久：水質調査法，29～34，227，丸善，(1982)
- 5) 応用統計ハンドブック編集委員会編：応用統計ハンドブック，328～377，養賢堂，(1982)
- 6) 本島公司他：地下水・温泉の分析，30～33，講談社，(1975)
- 7) 広島市：高陽町史，480～488，広島市合併町町史刊行会，(1979)

低沸点有機塩素化合物の負イオン化学 イオン化質量分析法

恋田和憲 福田 裕 徳森裕子 関川恵子
高野義夫 吉崎征吾* 岡 新

ガスクロマトグラフィー ー負イオン化学イオン化質量分析(GC-NCI-MS)法を11種の低沸点有機化合物に適用した。その結果テトラクロロエチレン、四塩化炭素等は通常のGC-MS法の電子衝撃型イオン化(EI)法と比べて感度良く検出できた。しかも、NCI-MSスペクトルは、すべての化合物で質量数35と37に塩素イオンによるベースピークを有する単純なパターンを示し、この種の塩素化合物に特有であることがわかった。

はじめに

負イオン化学イオン化質量分析(NCI-MS)^{1,2)}は親電子性の高い有機ハロゲン化合物³⁾あるいはニトロ化合物⁴⁾に対して特異的でしかも感度良い方法として注目され、本法を用いた分析法が種々行われている。代島らは⁵⁾土壌、底質土、河川水中に残留する13種の有機塩素系農薬を、Hassらは⁶⁾生体試料中のダイオキシンを、また著者らは⁷⁾低沸点有機臭素化合物、特に水中の含臭素トリハロメタンをNCI-MS法を用いて定量を行った。

今回、地下水汚染物質として問題となっている1,1,1-トリクロロエタン、トリクロロエチレン、及びテトラクロロエチレンを含む11種の低沸点有機塩素化合物のNCI-MS法による検討を行った。その結果、これらの化合物のNCI-MSスペクトルでは、すべての化合物で質量数35と37に塩素イオンによるベースピークが観察された。その他のピークとしては二、三の化合物で質量数70,72及び74に塩素2個分のピークが、またテトラクロロエチレンでは質量数164,166,168及び170に分子イオンのピークが観察されたが、残りの化合物については質量数35と37のピーク以外は観察されなかった。

また化合物によってNCI-MS法に対する感度が異なり、テトラクロロエチレン、四塩化炭素等では比較的感度良く検出されたがクロホルム等では悪く、化合物間に感度差があることがわかった。そこでテトラクロロエチレンを基準として他の化合物の相対感度を、質量数35を指定したマスクロマトグラフィーにより求めた。

実 験

1 試 薬

トリクロロエチレン、テトラクロロエチレンは関東化学製の溶媒抽出用標準原液(1000ppm)を用いた。その他の試薬については和光純薬製及び東京化成工業製の特

級及び一級試薬を用いた。溶媒は和光純薬製の残留農薬試験用ジエチルエーテルを用いた。反応ガスは高千穂化学製の99.9%イソブタンガスを用いた。

2 標準溶液

トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン以外の標準溶液については、以下の操作により1000ppm溶液を調製し、原液とした。

化合物100mgを正確に量り、100mlのかつ色メスフラスコに入れ、残留農薬試験用ジエチルエーテルでメスアップし、使用時に希釈して用いた。

3 装置及び測定条件

ガスクロマトグラフィー質量分析装置：日本電子製 JMS-DX300 及び同社製データ処理装置 JMA-3100 GC-MS conditions
column: 1.5% OV-1 on Chromosorb W AWD MCS 60-80 mesh, inner diameter 3mm X 1.5m glass column;
column temp.: 70°C
injection temp.: 120°C
carrier gas: Helium 10ml/min
separator temp.: 120°C
ion source temp.: 200°C
ionization mode: a) EI, potential energy: 70eV;
ion current: 300µA
b) CI, potential energy: 200eV; ion current: 300µA
ion source pressure: 1.1torr
reactant gas: isobutane
detector: genitive ion detector

4 マスクロマトグラフィー

テトラクロロエチレンと各化合物の各々1ppm標準溶液を調製し、1µl(1ng)をGC-NCI-MS計へ注入する。測定終了後、質量数35を指定したマスクロマトグラムを求め、マスクロマトグラムのテトラクロロエチレン1ngのピーク面積を求め相対感度とした。この濃度で検

* 安芸地区衛生施設管理組合

出できない化合物については、マスキングでトリクロロエチレンのピーク面積と同程度のピーク面積となるように、更に濃度の高い標準溶液を調製し、測定した。

結果と考察

1 GC-NCI-MS法

表1に今回、ガスクロマトグラフィー一負イオン化学イオン化質量分析(GC-NCI-MS)法の対象とした11種の有機塩素化合物と *cis*-1,2-ジクロロエチレンのGCの保持時間を1.0とした時の他の化合物の相対保持時間を示す。

表1 有機塩素化合物のGCの相対保持時間

No	物質名	沸点	相対保持時間
1	<i>cis</i> -1,2-ジクロロエチレン	61°C	1.0
2	1,1-ジクロロエタン	57°C	1.1
3	クロロホルム	61°C	1.1
4	1,1,1-トリクロロエタン	74°C	1.1
5	四塩化炭素	77°C	1.2
6	1,2-ジクロロエタン	83°C	1.2
7	トリクロロエチレン	87°C	1.3
8	1,1,2-トリクロロエタン	114°C	1.6
9	テトラクロロエチレン	121°C	2.0
10	1,1,1,2-テトラクロロエタン	129°C	2.4
11	1,1,2,2-テトラクロロエタン	146°C	3.1

これらの化合物中、クロロホルムは水道水中のトリハロメタンとして制御目標値が、1,1,1-トリクロロエタン、トリクロロエチレン、及びテトラクロロエチレンは地下水汚染物質として暫定基準が、各々設けられているものである。また1,2-ジクロロエタン及び四塩化炭素は昭和60年度から厚生省が新しく行う「地域環境測定監視計画(通称 MOREウォータープロジェクト)」の調査対象物質である。

質量分析法のイオン化法を、インブタンを反応ガスとした化学イオン化法、検出器を負イオン検出器とした負イオン化学イオン化質量分析(NCI-MS)法により求めたトリクロロエチレン、1,1,2,2-テトラクロロエタン、テトラクロロエチレンのNCI-MSスペクトル図1-a、1-b、1-cに示す。3化合物共、質量数35と37に強度比3対1の塩素イオンによるベースピークが観察されたが、1-aではその他の質量数には全くピークが見られず、1-bでは質量数70、72、74に強度比9対6対1の塩素二個分のピークが、1-cで質量数164、166、168、170に分子イオンが各々観察された。その他の化合物のNCI-MSスペクトルでは1,1,2-トリクロロエタンが1-b型を示したが、残りの化合物についてはすべて1-a型を示し、今回の塩素化合物のNCI-MSスペク

トルは質量数35と37に共通してベースピークを与えるスペクトルパターンであった。

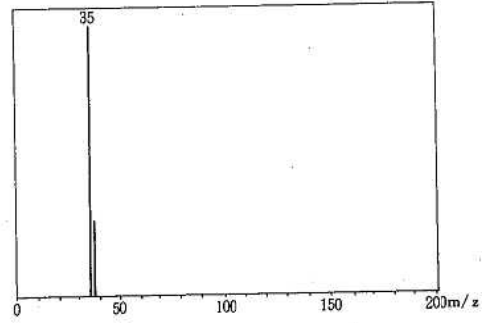


図1-a トリクロロエチレンのNCI-MSスペクトル

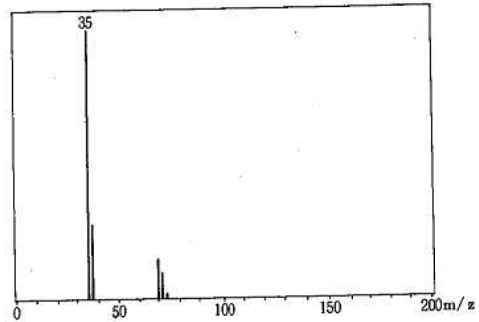


図1-b 1,1,2-トリクロロエタンのNCI-MSスペクトル

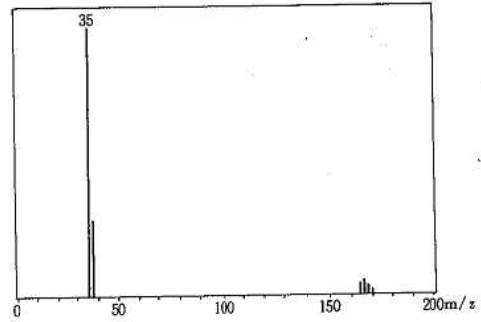


図1-c テトラクロロエチレンのNCI-MSスペクトル

有機臭素化合物のNCI-MSスペクトルでは、同様に、質量数79と81に臭素原子によるベースピークが観察されたが、臭素2個分の質量数158、160、162のピークはその化合物の分子構造、特に立体配置に密接に係っていた。しかし、塩素化合物のNCI-MSスペクトルでは、トリクロロエチレンで分子イオンのピークが見れるなど、臭素化合物の場合とは異なり、化合物とスペクトルの関係は複雑で、現在さらに多くの化合物について検討中である。

2 GC-NCI-MS-MC

トリクロロエチレン1ppm、テトラクロロエチレン1

ppmの溶液1 μ lをGC-NCI-MS計へ注入し、測定終了後質量数35を指定したマスクロマトグラフィー(MC)により求めたクロマトグラムを図2に示す。

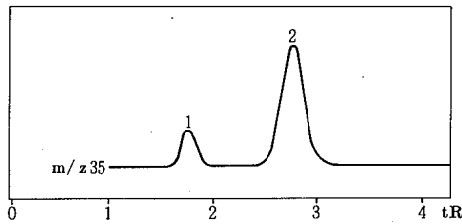


図2 標準品のマスクロマトグラム

ピーク1:トリクロロエチレン
ピーク2:テトラクロロエチレン

通常のGC-MS法の電子衝撃型イオン化法では、これらの濃度では両化合物共ピークとして検出されない。しかしNCI-MS法では、マスクロマトグラムのベースをみだすことなく両化合物共感度良く検出され、NCI法に対して塩素原子が特異的な感度を示した。特に、テトラクロロエチレンでは感度が良く、またそのピーク面積は同一濃度のトリクロロエチレンのピーク面積の約8倍と大きく、このことから同じ塩素化合物でも化合物によって感度差があることがわかった。そこでテトラクロロエチレンを基準として、他の化合物の相対感度を、質量数35を指定したMCにより求めた。表2にテトラクロロエチレン1 ngのピーク面積を1,000とした時の各化合物1 ngのピーク面積を示す。

表2 有機塩素化合物の相対感度

No.	物質名	相対感度
1	<i>cis</i> -1,2-ジクロロエチレン	1
2	1,1-ジクロロエタン	21
3	クロホルム	48
4	1,1,1-トリクロロエタン	320
5	四塩化炭素	969
6	1,2-ジクロロエタン	2
7	トリクロロエチレン	124
8	1,1,2-トリクロロエタン	11
9	テトラクロロエチレン	1000
10	1,1,1,2-テトラクロロエタン	1620
11	1,1,2,2-テトラクロロエタン	128

その結果、1,1,1,2-テトラクロロエタンが最も大きく、テトラクロロエチレンの1.6倍、また四塩化炭素がほぼ同程度を示した。しかし*cis*-1,2-ジクロロエチレン、1,1-ジクロロエタン、1,2-ジクロロエタン、1,1,2-トリクロロエタンではテトラクロロエチレンのピーク面積

の約五十分の一以下であった。また検出限界はテトラクロロエチレンで注入量で50 pgであった。

今回の検討の結果、同じ低沸点有機塩素化合物でもNCI-MS法に対する感度が大きく異なり、化合物によっては千倍以上の差があることがわかった。これらの化合物の感度の差及びNCI-MSスペクトルにおける質量数70等のピークの出現の有無は、明らかに分子構造に起因するものであり、共通して質量数35, 37を与えるスペクトルパターンと合わせて興味深いところである。今回対象とした11種の化合物の中で実際の分析には感度の点で1, 1,1-トリクロロエタン、四塩化炭素、トリクロロエチレン、及びテトラクロロエチレンが適用可能であり、化合物の同定法として今回のNCI-MS法が有効であると思われる。

謝 辞

稿を終えるにあたり、ご指導、ご校閲を賜った広島大学理学部 中山充助教授に深謝致します。

文 献

- 1) 藤井敏博: 負イオンの質量分析法, 化学, **32**, 882 - 888, (1977)
- 2) 杉浦俊男: 負イオン, その生成と性質, 質量分析, **27**, 217 - 245, (1979)
- 3) 林時司他: 負イオン化学イオン化質量分析法の医学生化学領域への応用(I)生体成分の超高感度分析, 医用マス研究会講演集, **6**, 145 - 148, (1981)
- 4) H. Miyazaki, et al.: Simultaneous Determination of Glyceryl Trinitrate and its Principal Metabolites, 1,2-and 1,3-Glyceryl Dinitrate, in Plasma by Gas Chromatography-Negative Ion Chemical Ionization Mass Spectrometry, *Anal. Chem.*, **50**, 1474-1479, (1978)
- 5) 代島茂樹他: 負イオン化学イオン化を利用したガスクロマトグラフ質量分析法による有機塩素系農薬の定量, 日本化学会誌, **1983**, 1271 - 1276.
- 6) J. R. Hass, et al.: Determination of Polychlorinated Dibenzo-p-dioxins in Biological Samples by Negative Chemical Ionization Mass Spectrometry, *Anal. Chem.*, **50**, 1474-1479, (1978)
- 7) 恋田和憲他: ガスクロマトグラフィー-負イオン化学イオン化質量分析法を用いた水中の有機臭素化合物の定量, 衛生化学, **29**, 352 - 356, (1983)

広島市における異型肺炎の流行について

奥備敏明 伊藤文明 萱島隆之 山岡弘二
荻野武雄

広島市感染症サーベイランス事業における異型肺炎患者からの *Mycoplasma pneumoniae* (M.p) 検索の結果、1984年夏を中心としたM.pによる異型肺炎の流行を認めた。

1983年4月から1985年3月までの2年間に、市内6定点病院で検体採取された患者273名中131名(48%)から131株のM.pを分離したが、その分離材料は、咽頭ぬぐい液129検体、喀痰1検体および胸水1検体であった。

M.p分離は、1983年10月から見られ、翌年5月以降患者の増加とともに急増し7月にピークを示し、引き続き12月まで多くのM.pを分離した。しかし、1985年1月以降分離率が低下し、流行の終息を示した。

3~9歳児のM.p分離数は全体の約90%を占め、幼児期~小学校低学年が好発年齢層として重視された。また、流行期間中に学校内流行や家族内感染の疑われる数例に遭遇した。

M.p分離には、選択重層培地がPPLO培地より有用であった。

はじめに

1944年、Eatonらが孵化鶏卵の使用により、肺炎患者から分離したいわゆるEaton agentは、当時ウイルスとして考えられていた。しかし、1962年にChanockら¹⁾が無細胞培地での培養に成功したことにより、*Mycoplasma pneumoniae* (M.p)と命名されるに至った。これを機に異型肺炎の基礎的、臨床的な研究が多く行われ、マイコプラズマ感染症における病態や疫学がしだいに明らかにされてきた。^{2) 3)}

M.pによる異型肺炎の流行は、約4年の周期性をもって起こることが一般的に知られている。M.pの伝播は濃厚な飛沫感染によりヒトが密接に接触する小集団を通じて浸淫性に進行し、インフルエンザのような汎流行的な様式は示さないと考えられている。

広島市では、広島市感染症サーベイランス事業における患者情報の収集を1981年末から開始し、異型肺炎患者からのM.p検索は1983年4月から行っている。その結果、1984年夏を中心とした流行を認めると共に、2年間のM.p検索をとおし、マイコプラズマ感染症の疫学や病態における若干の知見を得た。これらの概要について、M.p分離用培地の検討を含め報告する。

方 法

1. 患者報告数

広島市感染症サーベイランス情報をもとに集計した。

2. 検査材料

1983年4月から1985年3月までの2年間に、市内6定点病院を受診し異型肺炎と診断された患者の内273名から検体採取が行われた。咽頭ぬぐい綿棒と喀痰はPPLO培地に、心嚢液、胸水、髄液は滅菌バイアル瓶に採取さ

れ、随時衛生研究所に送付された。

3. 培養と同定

培養には一部組成を改変したChanockらのPPLO培地とメチレンブルー添加選択重層培地を用いた。なお、今回用いた2種の培地は、56°C30分加熱した馬血清を15%の割合で添加した点を除いて、広く用いられている組成と同様である。²⁾⁻⁴⁾また、検体の接種は培地量の10分の1⁵⁾を基準とした。

M.p増殖の判定は、グルコース分解による培地色の変化と試験管壁のコロニー観察によった。増殖を認めたものは、PPLO寒天培地に接種し常法に従ってクローニングを行った後、ヒツジ血球溶血性、ニワトリ血球吸着性および抗血清による発育阻止試験を行い同定した。^{6) 7)}

4. 抗M.p抗体価測定

抗体価の測定には、間接血球凝集試験(富士レビオ)を用いた。

5. M.p検出用培地の比較

1984年7月末~12月末までに採取された146検体について、PPLO培地と選択重層培地のM.p検出数、異種マイコプラズマの増殖、雑菌汚染を調べた。つまり、異種マイコプラズマの増殖は直接発育阻止試験を行った寒天平板上のコロニー観察により、雑菌汚染は培地の混濁により判定した。

結 果

1. 月別患者報告数および分離状況

市内23定点からの患者報告数と6定点におけるM.p分離状況を表1に示した。

1982年の患者数は、月平均6.3名で大きな変動は見られなかったが、1983年に入ると5月と11~12月に前年同

表 1. 月別患者報告数および分離状況

年	患者報告数												計
	陽性数 / 検体採取者数												
1982	12	13	7	3	2	7	6	6	4	3	3	10	76
1983	13	21	13	12	25	14	2	8	9	8	25	28	178
1984	18	12	30	21	50	83	194	132	73	77	69	90	849
1985	90	37	20										147
月	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	計

表 2. 年齢別性別分離状況

年齢	0	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	不詳	計
男性	0/2*	0/4	0/2	8/10	7/20	10/15	7/21	8/16	10/16	8/13	2/7	1/1	0/1	4/5	1/4	66/137
女性	0/1	0/4	3/6	4/6	3/16	6/16	15/25	9/14	12/17	5/10	4/6	0/1	1/1	2/6	0/1	64/130
性不詳	0	0	0	0	0/1	0	0	0/2	0	0	0	0	0	0	1/3	1/6
計	0/3	0/8	3/8	12/16	10/37	16/31	22/46	17/32	22/33	13/23	6/13	1/2	1/2	6/11	2/8	131/273

*陽性数 / 被検者数

時期の約3~8倍の患者数を示す小ピークが認められた。1984年は、特に5月以降の増加が顕著で、7月に194名のピークを示す大流行へ移行し、翌年1月頃まで多発傾向が続いた。なお、1984年の患者総数は、1982年、1983年のそれぞれ約11倍、5倍を示した。

一方、M.p分離は、1983年10月から見られ、1984年5月以降患者数の増加とともに急増し、7月に38株のピークを示し、12月まで引き続いて多くのM.pを分離した。流行初期の1983年10月から1984年12月までのM.p分離率は52.9%(127/240)と比較的高率であったが、1985年1月以降は12.1%(4/33)と低下した。

2. 年齢別性別分離状況

年齢別性別の分離状況を表2に示した。検体採取された患者は、0~46歳の年齢層に分布していた。M.pが分離されたのは、2~26歳の患者131名(48.0%)で、特に3~9歳児は全分離数の87.8%を占めた。しかし、1歳以下11名からは分離されなかった。

性別では、男性66/137(48.2%)、女性64/130(49.2%)と分離率に有意な差は見られなかった。

3. 検体別分離状況

患者273名から採取された5種277検体における分離状況を表3に示した。咽頭ぬぐい液268検体中129検体、喀痰3検体中1検体、計130検体の気道材料と、気道以外では胸水1検体からM.pを分離した。

合併症が疑われて採取された心臓液、胸水、髄液について、M.p分離にあわせてIHA価の測定を行った結果

を表4に示した。抗M.p抗体を検出したのは、心臓液(80倍)とM.pを分離した胸水(160倍)の2例であり、髄膜炎を併発した3例の髄液は、咽頭からM.pを分離した1例も含めて全て陰性であった。

表 3. 検体別分離状況

検体	咽頭ぬぐい液	喀痰	心臓液	胸水	髄液	計
検体数	268	3	1	1	4	277
陽性数	129	1	0	1	0	131

表 4. 合併症が疑われた症例

患者	検体	採取日	病日	IHA	培養	咽頭培養(病日)
6歳男	心臓液	59.3	6	×80	陰性	
5歳男	胸水	59.7	8	×160	陰性	
10歳男	髄液	59.5	13	<×40	陰性	陽性(6)
26歳女	髄液	59.10	9	<×40	陰性	
				11	<×40	陰性
6歳男	髄液	60.2	4	<×40	陰性	陰性(3)

4. 家族内流行

家族内発症例として、同胞2人発症の15例と3人発症の1例から検体採取された。この内、3人発症を含む8例は全員から、3例は一方のみからM.pを分離した。

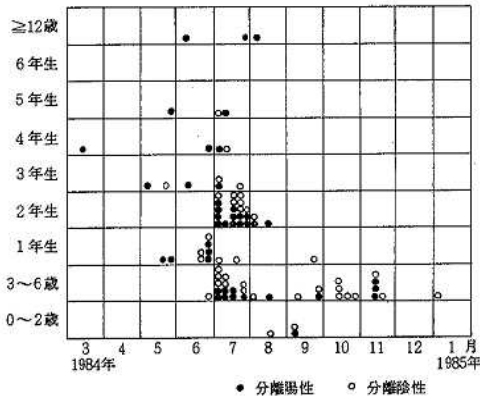
同胞の発病間隔は5例の同時期発病を除いて8~24日

で、一般的に考えられている潜伏期に一致していた。

5. 学校内流行

今回の流行の最盛期に一致する時期に、西区の某小学校児童間で流行が見られた。図1に検体採取された患者の

図1. 某小学校通学域の発生状況



発病日とM.p分離状況を示した。患者は低学年に多く見られ、47名の児童の内28名(59.6%)からM.pを分離した。M.pは3月に1名から分離し、5月以降増加し7月にピークを示したが、8月中旬以後見られなくなった。

一方、同地区の未修学年齢層における発生状況を見ると、患者の大部分を3~6歳児が占めており、その発生は7月をピークとし11月まで続き、31名中12名(38.7%)からM.pを分離した。

6. M.p検出用培地の比較

146検体の咽頭ぬぐい液について、PPLO培地と選択重層培地のM.p検出能を比較した結果を表5に示した。

表5. M.P検出用培地の比較

		選 択 重 層 培 地				計
		陽 性	異種M*	雑 菌	陰 性	
P P L O 培 地	陽 性	55	0	0	5	60
	異種M*	3	0	0	1	4
	雑 菌	6	0	2	5	13
	陰 性	3	0	0	66	69
	計	67	0	2	77	146

* M.p以外のマイコプラズマの増殖

PPLO培地のみでは60検体、選択重層培地のみでは67検体が陽性であったが、両培地を併用すると72検体が陽性となった。PPLO培地で陽性を示した5例が選択重層培地では陰性であったものの、検出数、異種マイコプラズマの増殖、雑菌汚染など全ての点で選択重層培地の方が良好な結果が得られた。

考 察

異型肺炎の流行は、我国では仙台市⁸⁾や長崎市⁹⁾などの調査で、約4年の周期性をもって起こることが明らかにされており、1980年の流行以来4年後の流行が目されていた。広島市においては、前回流行期の様相は明らかでないが、患者数の推移を見ると1982年頃は今回の流行と前回のちょうど谷間の時期にあったかのように推察された。

流行の推移について新津ら⁸⁾は、流行年の前年後半から増加の兆を認め、多発年は7月以後増加し、翌年1月以降終息に向かうとしている。しかし、泉川ら¹¹⁾は季節的な大きな変動は認めておらず、1年中を通じて発生を見ている。今回の広島市における流行は、ほぼ新津らのパターンに類似していると思われるが、流行年の増加は5月以降顕著であった。また、岡崎ら¹⁰⁾も今回神奈川県において我々と同様なパターンを認めている。流行の周期性や季節の変動については、防疫対策を構ずる上から、今後さらに追求されなければならない。

一般に、マイコプラズマによる異型肺炎の流行は、インフルエンザの様な汎流行的な様相は示さず、濃厚な飛沫感染により家族、保育園、学校などの小集団や小地方に浸淫性に発生するとされている。今回流行期間中に認められた小学校内流行は、春先に発生の兆を見せ、患者は5月から7月に向けて急増した。しかし、発病は8月中旬では見られなくなっており、潜伏期を考慮すると、児童間の密な接触が無くなった夏休みを境に流行は終息したものと考えられた。定点医師が同小学校の校医であったため、検体採取は患者発生の動向に沿って行われており、低学年ほど多い傾向が見られた。また、6年生からは検体採取されておらず、新津ら¹²⁾の保育所園児の調査で、園児の室によりM.pを分離しない室が存在することが示されているように、本小学校においても患者と密な接触の無い学年やクラスには発生しなかったことが推察された。一方、小学校児童の発生が夏休みを境に無くなったのに対し、同地区の未修学年齢層では11月まで引き続いて見られた。定点医師は、同地区の保育所園児間の流行も認めており、保育所を通じて長期間に伝播を繰り返したことが推察された。さらに今回、家族内感染の疑われる数例に遭遇しており、本感染症の流行の広がりの上では、家族、学校など密接に接触する小集団の存在が重要であり、その地域での伝播は長期間に浸淫性に進む特徴がうかがえた。

今回、流行の中心となったのは幼児期~小学校低学年であり3~9歳児から多数のM.pを検出したが、1歳以下からは検出しなかった。しかし、乳幼児には不顕性感染例や軽症例が認められており¹²⁾M.p感染は否定できない。

近年の培養法の改善や血清学的検査法の進歩、普及により、マイコプラズマ感染症は典型的な肺炎以外にも多彩な病像を呈することが明らかにされてきた。^{11) 13)}我々は、咽頭ぬぐい液を主な検査材料としてM.p.検索を行ってきたが、胸水からM.p.を分離した1症例に遭遇した。(表4)胸水からの分離例は、Nakaoら¹⁴⁾もすでに報告しているが、その数は少ない。富田ら¹⁵⁾は、マイコプラズマ性肺炎113例中13例に胸水貯留を認めているが、いずれからもM.p.は分離されなかった。マイコプラズマ性肺炎やこれに合併する病態の発症メカニズムとして、自己免疫あるいはアレルギー性機構とM.p.自身の直接侵襲の2つが重視されているが、いまだ充分な説明はされていない。しかし、我々が胸水から分離した症例は、直接胸膜内を侵襲したことを示唆するものである。一方、神経障害の発生メカニズムも前に述べた2つの機構が考えられている。髄膜炎併発患者の髄液からのM.p.分離例は、少数であるが報告されている。¹⁶⁾我々が認めた3例の髄液からは、咽頭から分離した1例も含めて全て分離されなかった。(表4)しかし、アレルギー性機構を考慮するとマイコプラズマ性髄膜炎は否定できないと思われるが、髄液中の抗体価の変動を認めるには至らず、明確にされなかった。また、心嚢液の抗体価が80倍を示した症例も同様であり、これら合併症の診断にあたっては、分離検査と共に血清、髄液など体液での抗体価の変動を検索することが重要であると考えられた。

マイコプラズマの培養には、従来からChanockらのPPLO培地が広く使用されているが、M.p.のみを目的とする場合には、選択重層培地が有利であるとされている。⁴⁾今回、この2種の培地を用いてM.p.検出能の比較を行った結果、選択重層培地の有用性が再確認された。ただし、メチレンブルーのM.p.増殖阻害も否定できないので、培地への添加量については、今後の検討が必要である。

馬血清はロットにより、様々な程度のM.p.増殖阻害を示すことが知られており、²⁾不良な血清を用いた場合には、分離率に大きな影響を及ぼすことが考えられる。従来からPPLO培地では、非加熱馬血清を20%添加して使用されてきた。しかし、岡崎らは、20%添加では馬血清の品質の差が出現することを認めている。¹⁷⁾我々もM.p.検索を開始する前に、馬血清の添加条件を検討し、56°C30分加熱血清を15%添加するのが適当であると判断して用いてきた。一方、M.p.検索が多く施設で実施されていない理由としては、良質な馬血清の入手が容易でなく、均一な培地が作成しにくいこと、分離同定に一ヶ月以上の長期間を要することが考えられる。Sasakiらは、¹⁸⁾馬血清に代わる鶏卵黄液の有用性を、また、Granatoらは、¹⁹⁾Modified NYC mediumの使用により培養日数を短縮でき

ることを報告しており、今後これらを検討することは重要であると思われる。

感染症サーベイランス事業における異型肺炎は、主要な病原体であるM.p.を検索対象としているが、この外にアデノウイルスなど各種ウイルスやクラミジアも病原と成り得る。しかし、これらの病原体を臨床診断で区別することは容易でない。また、近年のマイコプラズマ感染症における研究は、非M.p.感染症患者における抗M.p.抗体の上昇例²⁶⁾やウイルスの同時感染例²¹⁾など本感染症の複雑性も提示している。したがって、異型肺炎の疫学を詳細に理解していくためには、より精度の高い血清学的検査法の応用や、ウイルスをも含めた幅広い病原検索を行うことが重要であると思われる。

謝 辞

M.p.検索を開始するにあたり、標準株の分与と御助言をいただいた広島県衛生研究所の金本康生研究員および培養法における御助言をいただいた国立予防衛生研究所の木原光城無菌試験室長、神奈川県衛生研究所の明間鯉一郎科長、岡崎則男主任研究員の各位に深く感謝いたします。

文 献

- 1) Chanock R. M. et al.: Growth on an artificial medium of an agent associated with atypical pneumonia and its identification as a PPLO., Proc. Natl. Acad. Sci., **48**, 41-49 (1962)
- 2) 中村昌弘他: マイコプラズマ, 第1版, 67-76, 講談社(1974)
- 3) 佐々木正五: マイコプラズマ図説, 第1版, 64-86, 東海大学出版会(1980)
- 4) 日本細菌学会教育委員会: ヒト・動物および植物マイコプラズマの分離と同定, 8-16, 菜根出版(1982)
- 5) 市川光太郎他: *Mycoplasma pneumoniae*の分離率に及ぼす培養条件, 医学と生物学, **103**, 111-114 (1981)
- 6) Aluotto, B. B. et al.: Standardized Bacteriologic techniques for the characterization of *Mycoplasma* species. J. System. Bacteriol., **20**, 35-58 (1970)
- 7) Clyde, D. G. et al.: *Mycoplasma* species identification based upon growth inhibition by specific antisera. J. Immunol., **92**, 958-965 (1964)
- 8) 新津泰孝他: 肺炎マイコプラズマ感染の規則正しい4年ごとの流行と肺炎マイコプラズマ分離株の抗生物質感受性, 第8回日本マイコプラズマ研究会記録, 163-168 (1981)
- 9) 岩崎博圓他: 過去15年間の長崎市における *Mycopla-*

- sma pneumoniae* 感染症の発生状況についての検討, 第11回日本マイコプラズマ学会記録, 93~96(1984)
- 10) 岡崎則男: 神奈川県における肺炎マイコプラズマ分離状況, 病原微生物検出状況, 6巻1号(1985)
- 11) 小林宏行: 呼吸器感染症, 初版, 111~120, 医典社(1983)
- 12) 新津泰孝他: 乳幼児における肺炎マイコプラズマ感染, 第8回マイコプラズマ研究会記録, 125~129(1981)
- 13) 志村政文他: 非呼吸器系マイコプラズマ感染症, 臨床と細菌, 7, 217~221, (1981)
- 14) Nakao, T. et al.: *Mycoplasma pneumoniae pneumonia with pleural effusion, with special reference to isolation of Mycoplasma pneumoniae from pleural fluid.* Tohoku J. Exp. Medi., **104**, 13, (1971)
- 15) 富田弘志他: *Mycoplasma* 胸膜炎について, 第8回マイコプラズマ研究会記録, 145~149(1981)
- 16) 大坪庸子他: 髄膜脳炎を併発し, 髄液から *M. pneumoniae* を分離したマイコプラズマ肺炎の一例, 第11回日本マイコプラズマ学会記録, 128~131(1984)
- 17) 岡崎則男他: 肺炎マイコプラズマの発育におよぼす馬血清, 鶏卵黄および酵母エキス濃度の影響, 神奈川県衛生研究所研究報告, **9**, 37~39(1979)
- 18) Sasaki, T. et al.: Utility of egg yolk medium for cultivation of *Mycoplasma pneumoniae*. J. Clin. Microbiol, **18**, 1167-1173(1983)
- 19) Granato, p. A. et al.: New York City medium for enhanced recovery of *Mycoplasma pneumoniae* from clinical specimens. J. Clin. Microbiol, **17**, 1077-1080(1983)
- 20) 梅津征夫他: 非 *M. pneumoniae* 感染症患者における抗 *M. pneumoniae* 血中抗体の上昇, 第10回日本マイコプラズマ学会記録, 78~80(1983)
- 21) 小松茂夫他: 肺炎マイコプラズマ抗体とウイルス抗体とが同時に上昇した小児呼吸器感染症, 第9回日本マイコプラズマ学会記録, 111~114(1982)

散発下痢小児および動物、食肉からのカンピロバクター検出状況と分離株の性状比較

石村勝之 笠間良雄 伊藤英二 平崎和孝
森本 博* 荻野武雄

散発下痢小児 337 名中46名(13.6%)からカンピロバクターが検出され、月別では5, 6, 7月に30%前後の高い検出率を示した。家畜ではウシ64.0%, ブタ43.3%から、ペットではイヌ13.1%, ネコ10.0%から検出された。食肉では鶏肉26.3%, 豚肉15.4%, 牛肉4.5%から検出され、鶏肉汚染の高いことが認められた。

分離株 103 株は馬尿酸加水分解性により、ブタおよび豚肉由来株全てとイヌ、鶏肉由来各1株が *Campylobacter coli* に、他は *Campylobacter jejuni* に鑑別された。また、この2菌種の生化学的性状は DHL 寒天発育性と DNA 加水分解性を除いて類似していた。

分離株の生物型は、全株とも Skirrow & Benjamin の 1 型に該当した。また Hébert の生物型では、ヒト由来株は 4 型、2 型が多く、ウシ、イヌ、鶏肉由来株も 4 型、2 型の一方あるいは両方に該当する株が多く認められた。

ヒト由来と動物、食肉由来の *Campylobacter jejuni* はほぼ同様の感受性傾向を示したが、ヒト由来に耐性株が多い傾向が認められ、ヒト由来 2 株、鶏肉由来 1 株の *Campylobacter jejuni* が EM に対して MIC 100 $\mu\text{g}/\text{m}\ell$ 以上の高度耐性を示した。

はじめに

近年、ヒトの下痢症においてカンピロバクターが重要な原因菌であることが広く認められており、我々¹⁾も小児散発例においてはサルモネラ以上の症例が認められることを既に報告した。また、本菌は集団食中毒の原因菌でもあり、現在までかなりの事例²⁾が報告されてきている。しかし、その感染源については、本菌がニワトリ³⁾、ブタ⁴⁾、ウシ⁴⁾、イヌ⁵⁾などの家禽、家畜、ペットに広く分布していることから、これら動物、食肉との関連が強く示唆されているが、未だその詳細については明らかにされていない。

そこで今回は、散発下痢小児および動物、食肉からのカンピロバクター検出状況と分離株の生化学的性状、生物型、薬剤感受性について比較検討したので報告する。

方 法

1 材 料

(1) 散発下痢小児：1983年1月から1984年12月までの2年間に広島市内の小児科2医院に来院した下痢小児337名の下痢便および軟便について菌検索を行った。

(2) 動物：イヌおよびネコについては、1983年8月から1984年12月までに市内獣医科医院および市動物管理センターにおいて採取された直腸スワブ99検体および10検体の計109検体について行った。ウシおよびブタについては、1984年8月から12月までに市と畜場においてと殺さ

れたウシ25頭、ブタ30頭の盲腸内容物計55検体について行った。

(3) 食肉：1983年4月から1984年12月までに収去等で搬入された鶏肉57検体、牛肉66検体、豚肉52検体、羊肉4検体、馬肉3検体の計182検体について行った。

2 カンピロバクターの分離・同定

各種材料からの分離は Skirrow 培地を用い、43°C、2日間混合ガス置換による微好気培養を行った。なお、動物、食肉からの分離には、CEM 培地による増菌培養を併用した。同定は、カンピロバクターが疑われる集落について位相差鏡検による特異的運動性の確認をし、Brucella 寒天により純培養を行った後、Skirrow & Benjamin⁶⁾の記載に従って同定した。また、一部の菌株について DHL 寒天、TTC (400 $\mu\text{g}/\text{m}\ell$) 寒天、CYE 寒天発育性、DNA 加水分解性、硫化水素 (iron medium) 産生性についても検討した。

3 生物型別

Skirrow & Benjamin⁶⁾ および Hébert⁷⁾ の生物型別を行った。

4 薬剤感受性

ヒト由来56株(15株は1982年分離株)、動物由来32株、食肉由来15株の計103株について一濃度ディスク法で行った。薬剤は Erythromycin (EM), Gentamycin (GM), Tetracycline (TC), Chloramphenicol (CP), Ampicillin (AP), Kanamycin (Ka), Streptomycin (SM), Nalidixic acid (NA) の8薬剤を使用した。また、ヒト由来26株、動物由来24株、食肉由来11株計61株の *Campylobacter jejuni*

* 広島市動物管理センター

(*C. jejuni*)については、EMに対するMIC値を化学療法学会法に準じて測定した。

結 果

1 散発下痢小児からのカンピロバクター検出状況

散発下痢小児からのカンピロバクター検出状況を図1に示した。

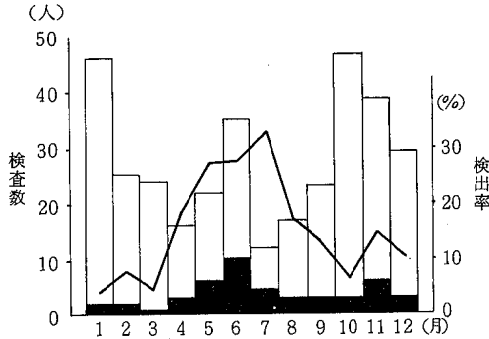


図1 ヒト(散発下痢小児)からの thermophilic Campylobacter 検出状況(二ヶ年合計)

年間の検出状況は、1983年は143検体中24検体(16.8%)から、1984年には194検体中22検体(11.3%)から検出され、2ヶ年合計で337検体中46検体(13.6%)から検出された。

2ヶ年合計における月別検出状況は、1月から3月までは約4%から7%の低い検出率であったが、4月から上昇し、5月(27.3%)、6月(28.6%)、7月(33.3%)と約30%の高い検出率の広いピークが認められた。8月、9月、10月は低下したが、11月には15.4%と再び検出率の上昇が認められた。

2 動物からのカンピロバクター検出状況

家畜、ペットからのカンピロバクター検出状況を表1に示した。家畜ではウシが25検体中16検体(64.0%)から検出され、ブタからも30検体中13検体(43.3%)と高い検出率を示した。一方、イヌからは99検体中13検体(13.1%)から、ネコからは10検体中1検体(10.0%)から検出された。

表1. 動物(家畜・ペット)からの thermophilic Campylobacter 検出状況

種 類*	検体数	陽性数	(%)
ウ シ	25	16	(64.0)
ブ タ	30	13	(43.3)
イ ヌ	99	13	(13.1)
ネ コ	10	1	(10.0)
計	164	43	(26.2)

* ウシ、ブタは盲腸内容物、イヌ、ネコは直腸スワブ

3 食肉からのカンピロバクター検出状況

各種食肉からのカンピロバクター検出状況を表2に示

表2 食肉からの thermophilic Campylobacter 検出状況

種 類	検体数	陽性数	(%)
鶏 肉	57	15	(26.3)
牛 肉	66	3	(4.5)
豚 肉	52	8	(15.4)
羊 肉	4	0	(0)
馬 肉	3	0	(0)
計	182	26	(14.3)

した。鶏肉では57検体中15検体(26.3%)から検出され、最も高い検出率を示した。牛肉では66検体中3検体(4.5%)から、豚肉からは52検体中8検体(15.4%)から検出された。羊肉、馬肉は検体数が少ないが、検出されなかった。

4 カンピロバクターの由来別生化学的性状

ヒト由来41株、動物由来36株、食肉由来23株のカンピロバクター計100株の生化学的性状を表3に示した。各由来株とも運動性、オキシダーゼ、カタラーゼ、25℃、37℃、43℃発育性、硫化水素産生性、ナリジク酸(30μg)感受性については典型的な thermophilic Campylobacter の性状を示した。

馬尿酸加水分解性により*C. jejuni*と*Campylobacter coli*(*C. coli*)を区別した場合、ブタおよび豚肉由来株全てと、イヌ由来、鶏肉由来の各1株が馬尿酸加水分解陰性の*C. coli*に、他の株は陽性の*C. jejuni*と同定された。

DHL寒天上では、*C. jejuni*はヒト由来の1株を除いて全てが陰性を示したが、ブタ由来の*C. coli*は13株中8株(61.5%)が陽性であった。TTC寒天上ではほとんどの株が発育したが、CYE寒天上では10%前後の株しか発育しなかった。DNA加水分解性はイヌ由来*C. jejuni*の77.8%が陽性を示し、ヒト、ウシ由来の*C. jejuni*は約30%が陽性であった。ブタ由来の*C. coli*は7株中1株(14.3%)だけが陽性であった。

5 生物型別

ヒト由来26株、動物由来28株、食肉由来14株のカンピロバクター計68株についてSkirrow & BenjaminおよびHébertの方法により生物型別したものを由来別に表4に示した。Skirrow & Benjaminの生物型別では各由来株全てが生物型1型に該当した。ブタ、豚肉由来10株は*C. coli*であるが同様に行った。

Hébertによる生物型別では、5型を除く全ての型に該当する株がみられたが、特に*C. jejuni*は4型が最も多く56株中28株(50.0%)、次いで2型が17株(30.4%)

表3. thermophilic Campylobacter の由来別生化学的性状

性 状	陽 性 株 数 (%)						
	ヒ ト	動 物			食 肉		
		ウ シ	ブ タ	イ ヌ	牛 肉	豚 肉	鶏 肉
	(n =41)	(n =12)	(n =13)	(n =11)	(n =3)	(n =4)	(n =16)
運 動 性	41(100)	12(100)	13(100)	11(100)	3(100)	4(100)	16(100)
オキシダーゼ	41(100)	12(100)	13(100)	11(100)	3(100)	4(100)	16(100)
カタラーゼ	41(100)	12(100)	13(100)	11(100)	3(100)	4(100)	16(100)
発 育 温 度 25 °C	0(0)	0(0)	0(0)	0(0)	0(0)	0(0)	0(0)
37 °C	41(100)	12(100)	13(100)	11(100)	3(100)	4(100)	16(100)
43 °C	41(100)	12(100)	13(100)	11(100)	3(100)	4(100)	16(100)
ブドウ糖	0(0)	0(0)	0(0)	0(0)	0(0)	0(0)	0(0)
1%グリシン	41(100)	12(100)	13(100)	11(100)	3(100)	4(100)	16(100)
H ₂ S 産生性 sensitive medium	41(100)	12(100)	13(100)	11(100)	3(100)	4(100)	16(100)
ナリジクス酸感受性 (30 µg)	41(100)	12(100)	13(100)	11(100)	3(100)	4(100)	16(100)
馬尿酸加水分解性	41(100)	12(100)	0(0)	10(90.9)	3(100)	0(0)	15(93.8)
	(n =31)	(n =12)	(n =13)	(n =11)	(n =3)	(n =4)	(n =9)
H ₂ S 産生性 iron medium	0(0)	0(0)	0(0)	0(0)	0(0)	0(0)	0(0)
DHL寒天発育	1(3.2)	0(0)	8(61.5)	0(0)	0(0)	0(0)	0(0)
TTC(400µg/ml)寒天発育	28(90.3)	11(91.7)	11(84.6)	11(100)	3(100)	3(75.0)	9(100)
	(n =26)	(n =12)	(n =7)	(n =9)	(n =2)	(n =3)	(n =9)
CYE寒天発育	3(11.5)	1(8.3)	1(14.3)	1(11.1)	2(100)	0(0)	1(11.1)
DNA加水分解性	8(30.8)	4(33.3)	1(14.3)	7(77.8)	0(0)	0(0)	1(11.1)

表4. thermophilic Campylobacter の由来別生物型

由 来	生物型 (Skirrow & Benjamin)		生物型 (Hébert)							
	iron medium	- +	hippurate hydrolysis							
			+	+	+	+	-	-	-	-
			+	+	-	-	+	+	-	-
			+	-	+	-	+	-	+	-
			1	2			1	2	3	4
ヒト	散発下痢小児	24					6	3	15	
	食中毒患者	2					2			
動物	ウシ	12					4	1	7	
	ブタ	7								1
	イヌ	9				2	5	1		1
食肉	牛肉	2						2		
	豚肉	3								3
	鶏肉	9				1	1	6		1
	計	68				3	17	8	28	1
										1
										10

みられた。

由来別にみると、ヒト、ウシ由来株は4型、2型が多くみられ、イヌ由来株は2型が、鶏肉由来株は4型が多い傾向がみられた。

6 カンピロバクターの由来別薬剤感受性

カンピロバクターのEM, GM, TC, CP, AP, Ka, SM, Ndの8薬剤に対する感受性を由来別に表5に示した。

ヒトおよび動物、食肉由来の各 *C. jejuni* は概して同様の感受性傾向を示した。CP, GMに高い感受性が認められ、Ndはブロードな感受性を示した。TC, AP, Kaもブロードな感受性を示したが、耐性株がTCに対してヒト由来2株、APに対してヒト、イヌ、鶏肉由来各1株、Kaに対してウシ由来1株に認められた。

EM, SMはほとんどの *C. jejuni* が高い感受性を示したが、耐性株がEMに対してヒト由来2株、鶏肉由来1

表5. thermophilic Campylobacterの由来別薬剤感受性

由 来	株 数	薬 剤 感 受 性								
		EM	GM	TC	CP	AP	Ka	SM	Nd	
散発下痢小児	51	+++	49	51	31	51	36	39	45	33
		++			8		13	11	1	17
		+			10		1	1		1
		-	2		2		1		5	
ヒト										
食中毒事例	5	+++	5	5	1	5	5	5	5	4
		++			3					1
		+			1					
		-								
ウ シ	12	+++	12	12	9	12	12	7	11	12
		++			3			5		
		+								
		-							1	
動物 ブ タ	12	+++	12	12	4	11	9	3	1	10
		++			4	1	3	9		2
		+			4					
		-								11
イ ヌ	8	+++	8	8	6	8	7	6	6	7
		++			1			2		1
		+			1				1	
		-					1		1	
牛 肉	3	+++	3	3	2	3	3	2	3	2
		++			1			1		1
		+								
		-								
食肉 豚 肉	3	+++	2	3	2	3	2	1		1
		++						1		2
		+			1		1		1	
		-	1					1	2	
鶏 肉	9	+++	8	6	4	9	8	7	8	8
		++		2	2			2	1	1
		+		1	3					
		-	1				1			

株に認められ、SMに対しては、ヒト由来5株、ウシ、イヌ由来各1株に認められた。一方、ブタおよび豚肉由来の *C. coli* はSMに対して耐性を示す株が多く、*C. jejuni* とは異った感受性を示したが、他の薬剤に対しては同様の感受性傾向を示した。

EMに対して耐性株が認められたことから、*C. jejuni* 61株についてEMに対するMICを測定し、その累積百分率を図2に示した。ヒト由来、動物由来、食肉由来の *C. jejuni* はほとんどの株がMIC 3.13 $\mu\text{g}/\text{ml}$ であったが、一濃度法で耐性と判定されたヒト由来2株と鶏肉由来1株の *C. jejuni* はいずれも100 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 以上の耐性を示した。

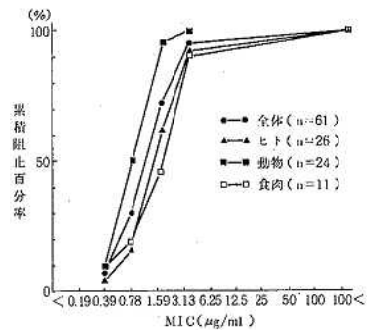


図2. *Campylobacter jejuni* に対するエリスロマイシン (EM) の累積阻止分布

考 察

カンピロバクターによる散発および集団食中毒事例が世界各地で報告され、わが国でも数多くの発症例が現在までに報告されている。当所においても昭和57年から散発下痢小児の細菌、ウイルスを対象とした病原検索を実施し、*C. jejuni*が15.5%から検出され、サルモネラの7.4%を大きく上回っていることを既に¹⁾報告した。今回の58年、59年における検出率も、それぞれ16.8%、11.3%と高い検出率を示し、二ヶ年合計では13.6%であった。このように、広島市においても小児の細菌性下痢症の中でカンピロバクターが重要な位置を占めていることが認められた。一方、月別の検出状況をみると年間を通して検出されたが、特に5、6、7月にすその広い30%前後の検出率を示すピークが認められ、9月、10月は気温が高いにもかかわらず検出率は低下した。このような月別変動傾向は何らかの気象的因子の関与が考えられるが、これらの変動因子に関しては、今後解析されなければならない課題であろう。

このように主要な下痢原因菌であるカンピロバクターの感染源追求の観点からは、多種の動物について検討されている。ウシ、ブタの保菌率について松崎ら⁴⁾は、ウシ57件中6件(10.5%)、ブタ195件中137件(70.3%)からカンピロバクターを検出し、石井ら⁸⁾も同様の結果を報告している。今回の我々の成績でもウシ64%、ブタ43%と、高い保菌率を示した。一方、イヌの保菌率については、村上ら⁵⁾は健康イヌ120件中11件(9.2%)、下痢イヌ12件中7件(58.3%)から検出したと報告している。我々の調査でも、今回13.1%から検出されたことから、他の報告例と同様にこれらのヒトに關係の深い動物の感染源としての可能性が示唆された。

家畜、家禽のヒトへの関与として最も考えられるのが、その食肉であろう。これらの食肉について検討した報告も近年多数みられるが、小田ら⁹⁾の結果は牛肉48件中2件(4.2%)、豚肉50件中6件(12.0%)、鶏肉68件中28件(41.2%)の検出率であった。我々の結果も牛肉4.5%、豚肉15.4%と同様であった。一方、鶏肉は26.3%と、小田らに比べると低い検出率であったが、他の食肉よりは高い値を示した。この検出率の差については、処理工程の差が指摘されており、その改善が必要であろう。このように食肉段階においてカンピロバクターによる汚染がみられることは、食生活におけるこれらの直接的、間接的関与が考えられ、鶏肉はその検出率からして重要性が高いと思われる。

*C. jejuni*と*C. coli*の分類に関しては、Skirrow & Benjaminの提案した馬尿酸加水分解の有無が重要であることが指摘されている。⁶⁾ 今回の分離株をこの性状により分類した場合、ブタおよび豚肉由来株全てと、イヌ、

鶏肉由来1株が*C. coli*と分類された以外は全て*C. jejuni*であった。このことから*C. jejuni*がヒト下痢症の主要な原因菌種であり、ブタおよび豚肉由来に多くみられた*C. coli*は、その原因頻度としてはかなり低いものと考えられる。一方、DHL寒天発育性とDNA加水分解性において2菌種間に差がみられたが、伊藤ら¹⁰⁾の指摘するように、これらの2性状で区別することは困難であり、両菌種の鑑別は馬尿酸加水分解性で行うのが妥当であろう。

カンピロバクターの生物型に関してはSkirrow & Benjamin,⁶⁾ Hébert,⁷⁾ Roop IIら¹¹⁾などの研究の報告があり、血清型とともにその疫学マーカーとしての有用性が検討されている。iron mediumによるSkirrow & Benjaminの生物型によると、わが国における分離株は1型が多いことが報告されており、我々が今回行った58株も全て1型であった。このことから他地域と同様に、広島市およびその周辺部においても*C. jejuni*は1型が多く分布していることがうかがわれる。一方、8型に分類するHébertらの生物型別を検討したところ、ヒト由来株は4型が最も多く57.7%みられ、次いで2型が30.4%みられた。また、ウシ由来株もヒト由来株同様に4型、2型が多くみられ、イヌ由来株には2型が多くみられた。また鶏肉由来株にも4型を示すものが多くみられた。これらの生物型別結果からウシ、イヌ、鶏肉由来株はヒト由来株と同様の4型、2型を示す割合が高く、このことからこれらを感染源とする直接的、間接的感染経路の存在が強く示唆されるとともに、この生物型別の疫学的手法としての有用性が考えられた。

カンピロバクターの薬剤感受性に関しては、わが国では河島ら¹²⁾深見ら¹³⁾の臨床的観点からの報告と、伊藤ら¹⁴⁾の疫学的観点からの報告等がみられる。我々の行った薬剤感受性結果においても、ヒト由来と動物、食肉由来の*C. jejuni*の感受性パターンはほぼ同様であったが、ヒト由来株に耐性株が多い傾向が認められた。EMはカンピロバクター下痢症における第一選択剤として使用されており、河島ら、伊藤らはEM耐性*C. jejuni*を分離していないことを報告している。しかし、我々の今回の分離株のうち、ヒト由来2株、鶏肉由来1株の*C. jejuni*がEMに対して100 μg/ml以上の耐性を示した。これが耐性化が進んできたことを示しているのかは即断できないが、今後ともその動向に注目していく必要がある。また、1株ながら鶏肉からEM耐性菌が分離されたことは、カンピロバクター下痢症におけるヒトと食肉との關係を考察する上で、臨床、疫学の両面から重要であろう。

以上述べてきた結果は、これまで考えられていたこれら動物、食肉とカンピロバクター下痢症との関連を一層強く示唆しているものと考えられる。従って、今後これ

らを考慮した適切な予防衛生対策の確立、啓蒙と、個々の家庭や食品製造業者における衛生管理の実施が本下痢症の発生防止において重要であると考えらる。

謝 辞

検体採取に際しまして多大な御協力をいただきました関係各位に対し深謝いたします。

文 献

- 1) 山岡弘二 他：広島市における小児下痢症の病原検索について，広島市衛研年報，**2**，63～67(1982)
- 2) 伊藤武 他：1979～1981年に東京都内で発生した *Campylobacter jejuni* による15事例の集団下痢症に関する調査，感染症誌，**57**，576～586(1983)
- 3) 伊藤武 他：ニワトリにおけるカンピロバクターの保菌状況ならびに本菌の排菌推移および養鶏場の環境における本菌汚染状況について，感染症誌，**59**，86～93(1984)
- 4) 松崎静枝 他：家畜における *Campylobacter jejuni/coli* 保菌状況について，山口衛研年報，**24**，27～28(1981)
- 5) 村上正博 他：散発下痢症患者およびイヌより分離された *Campylobacter* の生化学的性状並びに血清型，静岡衛環セ報告，**25**，7～11(1982)
- 6) Skirrow & Bejamin, J.: Differentiation of enteropathogenic *campylobacter*, J. Clin. Pathol., **33**, 1122(1980)
- 7) Hébert 他：30 Years of *Campylobacters*: Biochemical Characteristics and a Biotyping Proposal for *Campylobacter jejuni*, J. Clin. Microbiol., **15**, 1065～1073(1982)
- 8) 石井啓次 他：大阪市における *Campylobacter jejuni/coli* の疫学的調査(その2)，大阪市衛研年報，**45**，137～145(1982)
- 9) 小田隆弘 他：市販食肉からの *Campylobacter jejuni/coli* の検出成績，福岡市衛研報，**7**，36～38(1982)
- 10) 伊藤武 他：*Campylobacter jejuni* と *Campylobacter coli* の各種生化学的性状ならびに菌体脂肪酸組成の検討，東京衛研年報，**35**，8～17(1984)
- 11) Roop II 他：Improved Biotyping Schemes for *Campylobacter jejuni* and *Campylobacter coli*, J. Clin. Microbiol., **20**，990～992(1984)
- 12) 河島尚志 他：*Campylobacter jejuni* 臨床分離株のMIC近似値と血清型，感染症誌，**57**，901(1983)
- 13) 深見トシエ 他：散発下痢患者を対象とした *Campylobacter* 属菌の検出状況と *Campylobacter jejuni* にたいする37薬剤の抗菌力について，感染症誌，**58**，613～626(1984)
- 14) 伊藤武 他：ヒトおよび各種動物から分離した *Campylobacter jejuni* および *Campylobacter coli* の抗生物質感受性の比較，感染症誌，**58**，1206～1212(1984)

昭和59年度の広島市における無菌性髄膜炎の 検査結果について

池田義文 野田 衛 瀬尾和範 松石武昭
荻野武雄

昭和59年度中の広島市における無菌性髄膜炎患者報告数は209人で、7月から10月にかけて8月をピークとする患者の発生がみられた。前年度に比べて、患者数は約3分の1で、約1カ月遅い流行であった。年齢層別では5～9歳が40.2%を占め、1～4歳が37.3%、1歳未満が11.5%、10～14歳が6.7%、15歳以上が4.3%であった。

無菌性髄膜炎患者188人の412検体についてウイルス分離を実施し、115人から13種類217株のウイルスを分離した。その内訳はコクサッキーB5型46人、エコー18型25人、エコー11型25人、コクサッキーB3型2人、コクサッキーB1型1人、コクサッキーB4型1人、コクサッキーA9型1人、エコー6型1人、アデノ1型1人、アデノ2型1人、アデノ5型1人、単純ヘルペス1型1人、未同定ウイルス16人で、7人の患者からは2種類のウイルスが分離された。今回の流行は糞便からの分離率が76.7%と高く、また、複数の検体が採取された患者の分離率は73.9%であった。

以上の結果から、昭和59年度の広島市における無菌性髄膜炎の流行はコクサッキーB5型、エコー18型及びエコー11型の混在したものと結論された。

はじめに

感染症サーベイランス情報ならびに病原体検出情報の集計により、わが国の無菌性髄膜炎は毎年異なったエンテロウイルスによって流行することが明らかにされ、昭和56年はコクサッキーB2型(CB2)、エコー11型(E11)及びE18¹⁾、57年はCB3とコクサッキーA9型(CA9)が主流であった。²⁾³⁾58年はE30を主流にE9、E24及びCB4の混在した流行で、⁴⁾広島市においても患者176人からE30が分離され、E30による大規模な流行であった。⁵⁾

昭和59年は前年度ほどではないが局地的な流行がみられ、愛知、大阪、愛媛、福岡などの地域では患者報告数が多かった。⁶⁾広島市でも7月から10月にかけて小規模ながら患者の多発がみられた。

本報は昭和59年度中に感染症サーベイランス事業の一環として行った広島市における無菌性髄膜炎患者のウイルス分離成績について報告する。

方 法

1 患者発生数

広島市感染症サーベイランス情報をもとに集計した。

2 検査対象者

昭和59年4月から60年3月までの1年間に、広島市感染症サーベイランス事業の検査定点病院を受診し、無菌性髄膜炎と診断された患者のうち188人を対象に検査した。

3 分離同定

患者188人から採取された髄液177、咽頭ぬぐい液119、糞便116の計412検体を分離材料とした。

細胞はHE_p-2、ヒト胎児線維芽細胞(HE)を全例に、アフリカミドリザル腎細胞(AGMK)を一部の220検体に使用した。

分離は24穴プレートを用い、1検体当たり2穴の培養細胞に処理検体を接種し、36℃で静置培養した。細胞変性効果(CPE)を指標に7～10日間観察し、CPEのみられたものは次代へ継代し、同定用ウイルスとした。2代の継代でCPEの現われないものは分離陰性とした。

同定はCPEを指標にマイクロプレートを用いた中和法で行った。単純ヘルペス(HSV)の血清型別には蛍光抗体間接法を用いた。

結 果

1 患者発生状況

無菌性髄膜炎患者報告数を表1に示した。4月から6月までの患者報告数は1、8、6人と少数で推移していたが、7月から急増し、8月の61人をピークに10月まで多発した。1年間の患者数は209人で、158人(75.6%)が7～10月の4カ月間に報告された。

年齢層別では5～9歳が84人(40.2%)と最も多く、次いで1～4歳78人(37.3%)、1歳未満24人(11.5%)、10～14歳14人(6.7%)、15歳以上9人(4.3%)の順で、10歳未満の患者が約9割を占めていた。

表1. 月別年齢層別患者報告数

年 齢	年59 月4	5	6	7	8	9	10	11	12	60 1	2	3	合 計 (%)
<1		2		4	7	4	2	1	1	2	1		24 (11.5)
1~4			2	11	26	19	11	4	1	2	2		78 (37.3)
5~9		3	3	9	21	12	17	4	7	6		2	84 (40.2)
10~14		3			6	3	1					1	14 (6.7)
15≤	1		1	1	1	3				1	1		9 (4.3)
合 計	1	8	6	25	61	41	31	9	9	11	4	3	209 (100)

2 ウイルス分離成績

188人から採取された412検体についてウイルス分離を実施した。

検体別では糞便89/116(76.7%), 咽頭ぬぐい液66/119(55.5%), 髄液58/177(32.8%)の計213検体(51.7%)から13種類217株のウイルスが分離された(表2)。

多く分離されたウイルスはCB5, E18, E11で, CB5は糞便39, 咽頭ぬぐい液24, 髄液24の計87検体から, E18は糞便20, 咽頭ぬぐい液14, 髄液11の計45検体から, E11は髄液15, 糞便14, 咽頭ぬぐい液11の計40検体からそれぞれ分離された。分離数は少ないが, CB1とCB3が各3検体から, CB4, CA9, E6が各2検体から, アデノ1型(Ad1), Ad2, Ad5, HSV1が各1検体から分離された。未特定ウイルス(NT)は糞便13, 咽頭ぬぐい液11, 髄液5の計29検体から分離された。

検体として髄液が多く採取されたが, ウイルスは糞便から種類, 株数とも多く分離され, 分離率は76.7%と高かった。また, 糞便4検体からは2種類のウイルスが分離された。

表2 検体別ウイルス分離成績

ウイルス	人 数	分 離 株 数			合 計
		糞 便	咽頭ぬぐい液	髄 液	
CB5	46	39	24	24	87
E18	25	20	14	11	45
E11	25	14	11	15	40
CB1	1	1	1	1	3
CB3	2		1	2	3
CB4	1	1	1		2
CA9	1	1	1		2
E6	1	1	1		2
Ad1	1	1			1
Ad2	1	1			1
Ad5	1	1			1
HSV1	1		1		1
NT	16	13	11	5	29
合 計	122	93	66	58	217
陽性者数	115	89	66	58	213
検査人数	188	116	119	177	412

表3. 月別ウイルス分離成績

	年 月	59 4	5	6	7	8	9	10	11	12	60 1	2	3	合計
検査人数		3	5	12	30	56	38	27	7	1	1	6	2	188
陽性者数		0	1	5	23	39	23	21	3	0	0	0	0	115
ウ イ ル ス 別 陽 性 者 数	CB5				8	20	8	9	1					46
	E18				11	6	5	3						25
	E11		1	3	3	6	6	5	1					25
	CB1								1					1
	CB3								2					2
	CB4							1						1
	CA9			1										1
	E6									1				1
	Ad1					1								1
	Ad2					1								1
	Ad5					1								1
	HSV1								1					1
NT			1	1	8	4	2						16	
合 計		0	1	5	24	42	24	23	3	0	0	0	0	122

表4. 性別年齢層別ウイルス分離成績

年 齢	男 性							女 性						
	検 査 人 数	陽 性 者 数	ウイルス別陽性者数					検 査 人 数	陽 性 者 数	ウイルス別陽性者数				
			CB5	E 18	E 11	その他	計			CB5	E 18	E 11	その他	計
<1	14	8	4	1	3		8	11	10	4	4	1	1	10
1~4	38	28	12	4	6	10	32	20	16	7	5	2	4	18
5~9	55	33	12	8	6	7	33	25	14	5	2	4	4	15
10~14	7	3		1	2		3	5	0					0
15≤	6	2	2				2	6	0					0
不 詳	1	1			1		1	0	0					0
合 計	121	75	30	14	18	17	79	67	40	16	11	7	9	43

各ウイルスの分離された患者数はCB5 46人, E18とE11 各25人, CB3 2人, CB1, CB4, CA9, E6, Ad1, Ad2, Ad5及びHSV1 各1人づつ, NT 16人であった(表3)。分離陽性者は115人で, 7人からは2種類のウイルスが分離された。その内訳はCB5とE11が2人, CB5とE18, CB5とAd1, E11とHSV1, E18とAd5及びAd2とNTが各1人づつであった。複数の検体が採取された患者134人では99人(73.9%)が分離陽性で, 1検体のみ採取された54人では16人(29.6%)が分離陽性であった。

月別ウイルス分離成績を表3に示した。CB5は8月の20人をピークに7~11月の5カ月間に46人から分離された。E18は7月が最も多く11人から分離され, 以後減少し10月までみられた。E11は5~11月の7カ月間に分離された。これら3ウイルスの分離数を月別に集計すると, 患者発生数におおむね比例した成績が得られた。CB1とCB3は10月にそれぞれ1人と2人から, CB4は9月に, CA9は6月に, Ad1とAd2は8月に, Ad5は7月に, HSV1は10月に各1人から散発的に分

表5. 細胞別ウイルス分離成績

ウイルス	分離株数	HE _p -2	HE	AGMK
CB5	87	86		36
E18	45	17	42	3
E11	40	37	32	1
CB1	3	3		2
CB3	3	3		
CB4	2	2		
CA9	2	2	2	
E6	2	2	1	
Ad1	1		1	
Ad2	1	1		
Ad5	1	1		
HSV1	1	1	1	
NT	29	11	28	10
合 計	217	166	107	52
検査検体数	412	412	412	220

離された。

男性75/121(61.7%), 女性40/67(59.7%)からウイルスが分離された(表4)。CB5は男性30人, 女性16人, E18は14人, 11人, E11は18人, 7人からそれぞれ分離され, E18は女性での, E11は男性での分離率が高かった。いずれのウイルスも, 女性は0~8歳の年齢層から分離され, 且つ低年齢層, 分離率が高かった。男性はCB5が0~32歳, E18が0~11歳, E11が0~13歳と女性よりも広い年齢層から分離され, 分離率も1~4歳, 5~9歳, 1歳未満, 10~14歳の順に高く, 女性と異なっていた。CA9, CB3, CB4, Ad1, Ad2は男性から, CB1, E6, Ad5, HSV1は女性から, NTは男性11人, 女性5人からそれぞれ分離された。

HE_p-2とHEを全例に, AGMKを220検体に使用し, HE_p-2では166株(40.3%), HEでは107株(26.0%), AGMKでは52株(23.6%)のウイルスが分離され, 分離率はHE_p-2が最も高かった(表5)。CB5は87株中86株がHE_p-2で, 36株がAGMKで, E18は45株中42株がHEで, 17株がHE_p2で, E11は40株中37株がHE_p-2で, 32株がHEでそれぞれ分離された。コクサッキーB群ウイルスはHEでは分離されなかった。

考 察

昭和58年の無菌性髄膜炎は5月から10月にかけて全国的な流行がみられ, E30を主流とした流行であった。⁶⁾59年は前年と比較して小規模ながら局地的な流行がみられ,⁶⁾CB5, CB4, E11, E30などのウイルスが多く報告されている。⁷⁾

広島市においても59年度は7月から10月に患者の多発がみられ, 1年間に209人が報告された(表1)。これを前年度と比較すると, 約1カ月遅い流行で, 患者数は約3分の1であった。病原検索を実施した188人のうちCB5が46人から, E18とE11が各25人から分離された。各ウイルスの分離状況を月別に比較すると時期的に少し差異が認められたが(表3), 分離数を月別に集計する

とおおむね患者発生状況に比例した成績が得られ、広島市ではCB5、E18及びE11の3ウイルスを病原とした流行と考えられた。

本邦では35年にCB5、46年にE11による無菌性髄膜炎の全国的な流行がみられている⁸⁾。E18は55年に中部地方の無菌性髄膜炎患者から分離され、⁹⁾新たな病原ウイルスとして注目されていたところ、¹⁰⁾56年には島根県、愛知県、三重県などで流行がみられた¹⁾。

広島市では衛生研究所が発足した57年から感染症サーベイランス事業の病原検索を行っている。E11とE18は57年に無菌性髄膜炎患者各1人から分離されたが、58年には分離されなかった。CB5は当所では今回初めて分離されたが、広島県衛研によって52年に無菌性髄膜炎患者からE11とともに分離されていた¹¹⁾このことから、CB5、E18、E11は今回流行する以前から広島市に浸淫していたものと推察された。

ウイルスは男性75人、女性40人と男性から多く分離されたが、検査を実施した患者の男女比は1.8:1.0で、分離率に性差は認められなかった。

CB5、E18、E11以外にも9種類のウイルスが分離同定されたが、いずれも少数で散発的な患者から分離されたものと思われた。

NTはいずれの細胞でもエンテロウイルス様のCDEを示し、16人から分離されたが、当所保有の抗血清では同定されなかった。このウイルスは患者発生状況に比例して分離されており、今回の流行に関与していた可能性も考えられ、分離株の同定とともに今後検討する予定である。

無菌性髄膜炎の病原検索には髄液が最も診断的価値の高い検体とされており、¹²⁾今回も検体として髄液が多く採取されたが、分離率は32.8%と低かった。一方、複数の

検体が採取された患者の分離陽性率は73.9%と高かったことから、病原検索には複数の検体について実施することが必要と思われた。

分離にはHE_p-2、HE、AGMKの3種を使用した。コクサッキーB群ウイルスはHE_p-2とAGMKで、E18はHEで、E11はHE_p-2とHEで良く分離された。

文 献

- 1) 微生物検査情報のシステム化に関する研究班：病原微生物検出情報年報1981年、133～135(1982)
- 2) 微生物検査情報の解析評価に関する研究班：病原微生物検出情報年報1982年、156～159(1983)
- 3) 厚生省：昭和56、57年感染症サーベイランス事業年報、83(1983)
- 4) 厚生省：昭和58年感染症サーベイランス事業年報、58～61、厚生環境問題研究会(1985)
- 5) 池田義文 他：1983年広島市で流行した無菌性髄膜炎について、広島医学、38、215～219(1985)
- 6) 厚生省：病原微生物検出情報第56号(1984)
- 7) 厚生省：病原微生物検出情報、6、11(1985)
- 8) 甲野礼作 他編：臨床ウイルス学 講義編 第1版、313～330、講談社(1978)
- 9) 厚生省：病原微生物検出情報第11号、13(1981)
- 10) 微生物検査情報のシステム化に関する研究班：病原微生物検出情報年報1980年、179(1981)
- 11) 瀬川和幸 他：1972年からの感染症調査(定点観測)におけるウイルス分離状況、広島県衛生研究所業務年報、22～24(1979)
- 12) 甲野礼作 他編：臨床ウイルス学 手技編 第1版、13～32、講談社(1978)

河川底質中の金属成分(第1報) —中上流河川底質における金属成分の分布—

末田義博 花尾裕士 国弘 節 石川六郎
蔵田義博 杉本謙吉 石川 隆* 清岡弘治

広島市内の主要河川(中上流部)における55地点の底質中の金属成分調査を行った。
その結果、平均的な金属濃度レベルは、瀬野川、安川(古川を含む。)、三篠川、根谷川の各流域の順に高いことがわかった。

また、人為的汚染指標といわれている、Zn, Cu, Ni, Cr, Pb, P について、上記各流域における底質の濃度分布状況が把握できた。

濃度相関マトリックス法により算出した底質の対照値($\mu\text{g/gDS}$)は、Zn 32, Cu 6.8, Ni 1.2, Cr 1.9, Pb 5.8, P 78, As 2.0, Hg 0.008, Fe 7800, Mn 220, Al 6300, Ca 830, Mg 1100, Ti 440, Co 1.5, V 7.3 であった。

はじめに

市内河川の水質は、魚類のへい死、着色水の流出等に見られた一時の汚濁状況に比べ、ここ数年、改善若しくは横ばい状態であり、主要河川においては、良好な水質が保たれている。特に、健康項目等の重金属成分については、ほとんど検出限界以下である。

また、河川水中の金属成分濃度が、瞬時の濃度を示しているのに比べ、底質中の金属成分濃度は、地質的要因にも影響されるが、河川水中の金属類が底質に蓄積されるので、河川中の金属を、平均的かつ長期的な評価を行うのに格好の尺度となる。

さらに、底質中の金属類は、河川底のまき上げ、河川への溶出などにより、河川水質に影響を与えるので、こういった点からも、底質の濃度を知る意味は大きい。

そこで、市内河川のうち、中上流部において、流域ごとの底質中の金属部分を調査するとともに、下流部等の底質汚染度の基準となるべき対照値の算出を試みたので、ここに報告する。

方 法

1 調査時期

昭和59年4月～昭和60年3月

2 調査地点の概要

調査地点を図1に、地点名を表1に示す。

(N1～N13)は根谷川流域、(M1～M14)は三篠川流域、(SU1～SU2)は鈴張川流域で、本市上流部で太田川に合流している。(Y1～Y15)は安川(古川を含む。以下同じ。)流域であり、本市中流部で太田川に合流している。(S1～S11)は瀬野川流域であり、直接広島湾に注ぐ。

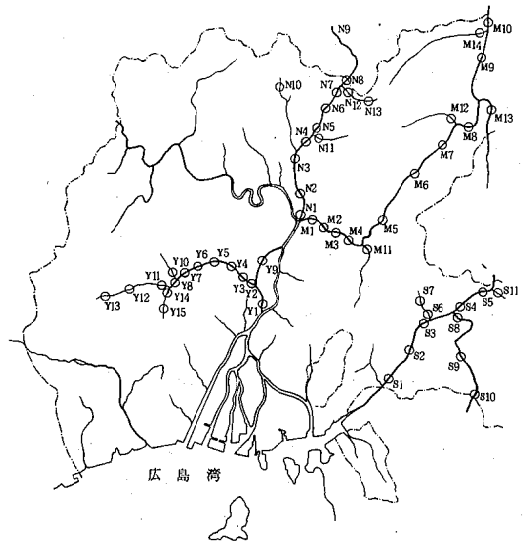


図1. 測定地点

表1. 測定地点名

番号	地点名	番号	地点名	番号	地点名
N1	根谷川河口	M7*	八幡橋	Y12*	中間田橋
N2	上原橋	M8*	喜楽橋	Y13	奥畑川源流
N3	南原川合流後	M9	大寺橋	Y14	大塚川下流
N4	土居橋	M10*	迫田橋	Y15*	大塚集会所前
N5	桐原川合流前	M11*	住田橋	SU1*	宇津橋
N6	大林小学校前	M12	河津川河口	SU2*	榎原橋
N7	人甲川合流後	M13*	関川河口	S1*	貫道
N8*	人甲川合流前	M14	栄堂川河口	S2*	高部
N9	落合後	Y1*	大正橋	S3	丸畑橋
N10	南原キャンプ場前	Y2*	五軒屋	S4	一貫田
N11	桐原川河口	Y3*	自動測定局前	S5*	大山下
N12	人甲川河口	Y4*	上安	S6*	寺地
N13	人甲川上流	Y5*	安小学校前	S7*	上級橋
M1	深川橋	Y6	下地	S8*	熊野川河口
M2*	亀崎橋	Y7	下伴橋	S9	下跡バス停前
M3*	横川橋	Y8*	大塚川下流	S10	山崎橋
M4*	一之瀬橋	Y9	せせらぎ公園	S11	清松園入口
M5*	下西橋	Y10*	細坂川		
M6*	大橋	Y11*	奥畑川河口		

* 広島市安佐北保健所

(備考) *印は後述する代表調査地点を示す

表2 底質中の金属成分測定結果

単位: $\mu\text{g/gDS}$

		Zn	Cu	Ni	Cr	Pb	P	As	Hg	Fe	Mn	Al	Ca	Mg	Ti	Co	V
全域 (n=55)	最大値	95	74	21	27	18	350	25	0.061	33000	700	27000	6400	9000	1100	7.2	41
	最小値	18	1.9	0.68	0.70	3.4	37	0.46	0.002	3500	94	3000	380	380	150	0.63	2.9
	平均値	37	11	2.8	4.2	6.8	110	4.7	0.011	9900	250	8300	1300	1800	460	2.0	9.9
	変動係数(%)	39	113	132	127	46	65	131	95	55	37	53	93	96	50	62	70
根谷川 流域 (n=13)	最大値	60	74	21	27	13	350	23	0.061	33000	700	27000	6400	9000	860	7.2	41
	最小値	18	2.4	1.1	1.1	3.4	37	0.85	0.003	5600	180	5100	410	760	210	0.85	3.9
	平均値	40	17	6.9	10	7.0	180	9.0	0.016	14000	290	12000	2500	3500	480	2.7	16
	変動係数(%)	29	110	79	77	38	53	75	108	55	47	54	74	76	43	64	66
根谷川 本流 (n=9)	最大値	45	16	14	19	8.3	260	17	0.019	21000	340	18000	4300	6100	770	4.1	25
	最小値	26	3.5	1.1	1.1	4.5	45	2.9	0.006	7300	180	5600	410	760	220	1.2	5.3
	平均値	37	9.8	6.1	8.5	6.2	160	7.2	0.010	12000	240	10000	2000	2800	450	2.3	13
	変動係数(%)	17	42	62	61	19	42	69	42	34	20	37	56	55	36	38	43
三篠川 流域 (n=14)	最大値	64	55	7.0	15	15	200	25	0.021	21000	470	15000	2400	4100	490	5.5	24
	最小値	19	5.4	0.77	1.2	3.6	54	1.0	0.003	5100	150	4000	490	630	150	1.0	5.0
	平均値	34	15	2.3	3.9	6.7	89	7.2	0.010	8500	240	7200	1000	1300	290	1.8	8.8
	変動係数(%)	42	93	73	89	54	45	105	59	53	38	47	47	70	28	65	60
三篠川 本流 (n=10)	最大値	51	55	4.7	7.5	8.5	160	18	0.018	14000	370	9800	1400	2400	340	3.0	15
	最小値	20	5.5	0.99	1.8	3.9	58	2.3	0.003	5100	150	4000	490	740	150	1.0	5.0
	平均値	30	14	2.0	3.2	5.5	83	5.3	0.008	7300	210	6100	880	1100	260	1.5	7.5
	変動係数(%)	32	107	56	53	31	35	84	66	38	32	31	32	49	20	42	42
安川(古 川含む) 流域 (n=15)	最大値	95	13	3.1	5.1	18	170	4.9	0.033	15000	360	13000	1500	2300	1060	3.3	14
	最小値	23	1.9	0.74	1.1	4.0	40	0.67	0.002	7000	180	4600	380	1100	460	1.4	6.0
	平均値	37	5.7	1.2	1.9	7.3	89	1.5	0.010	11000	270	8100	860	1600	730	2.1	9.6
	変動係数(%)	46	44	49	48	49	32	68	90	20	16	28	27	19	21	23	20
安川(古 川含む) 本流 (n=8)	最大値	37	7.1	1.3	2.3	6.5	120	4.9	0.008	12000	330	9100	920	1800	860	2.2	11
	最小値	23	3.6	0.74	1.1	4.0	74	0.67	0.002	7000	180	4600	710	1100	460	1.4	6.0
	平均値	30	5.0	0.90	1.5	5.2	87	1.5	0.004	9600	260	6700	810	1500	680	1.8	8.5
	変動係数(%)	14	21	20	22	13	17	85	47	14	16	19	8	14	18	13	15
瀬野川 流域 (n=11)	最大値	58	13	1.4	2.5	12	89	2.7	0.021	11000	310	9800	930	1540	650	2.1	9.3
	最小値	22	4.9	0.68	0.70	3.7	41	0.59	0.003	3500	94	3000	400	380	180	0.63	2.9
	平均値	36	7.7	0.97	1.4	6.3	64	1.5	0.010	6210	200	6400	660	670	320	1.1	4.9
	変動係数(%)	33	35	22	37	35	26	43	57	28	29	30	22	48	40	33	39
瀬野川 本流 (n=5)	最大値	58	13	1.3	2.5	12	89	1.9	0.018	6300	230	6000	770	760	330	1.5	6.7
	最小値	24	5.0	0.68	0.70	4.1	45	0.59	0.003	3500	94	3000	400	430	180	0.63	3.2
	平均値	40	8.3	0.97	1.3	6.6	65	1.2	0.008	5300	180	5100	610	590	260	1.0	4.7
	変動係数(%)	31	34	23	50	43	29	36	76	19	26	22	20	20	21	27	27

流域延長、流域面積¹⁾は、それぞれ、根谷川16.5 km, 86.6 km², 三篠川55.5 km, 272.4 km², 安川16.0 km, 53.5 km², 鈴張川10.9 km, 32.4 km², 瀬野川22.4 km, 122.4 km²である。

河川流量²⁾は、根谷川, 安川, 瀬野川が 200,000 m³/日前後, 三篠川が 300,000 m³/日前後である。

水質³⁾をみると、宅地開発が進んでいる安川流域は最も良くない。根谷川流域は、中規模の食品製造工場が点在しているが、ほぼ良好な水質である。瀬野川流域は、中規模の機械器具・金属製品製造工場が点在しているが、この流域も、ほぼ良好な水質を示している。三篠川流域、鈴張川流域は、特定汚染源が少なく、清澄な河川である。

地質⁴⁾は、鈴張川, 根谷川, 安川, 瀬野川流域では、中生代白亜紀に生成した広島花崗岩質であり、三篠川流域は、古生代に堆積した粘板岩、中生代白亜紀に堆積した高田流紋岩質である。また、三篠川上流と根谷川上流に囲まれた地域は、白亜紀に堆積した砂岩及び古期花崗岩質である。

3 試料採取方法

試料は、エックマンバジ型採泥器または手堀りにより、右岸、左岸及び流心の3点で採取⁵⁾し、それらを混合して行った。

4 分析項目及び分析方法

試料を風乾後、2mmメッシュのふるいにかけて、硝酸塩酸分解後(Hgを除く。)次の方法により行った。

- (1) Hg ……金アマルガム加熱気化原子吸光光度法
- (2) As ……DDTC-Ag (プルシン, クロロホルム) 吸光光度法
- (3) Zn, Cu, Ni, Cr, Pb, P, Fe, Mn, Al, Ca, Mg, Ti, Co, V ……ICP発光分析法(詳細は、本報P.65の「ICP発光分析法による底質金属の分析」に掲げる方法による。)

結果と考察

1 金属成分濃度

測定結果は表2のとおりであった。

調査した55地点すべての平均値をみると、人為汚染指標⁶⁾と言われている金属成分濃度(μg/gDS, 以下同じ)については、Zn 37, Cu 11, Ni 2.8, Cr 4.2, Pb 6.8であった。これらは、多田ら⁷⁾の全国主要91河川上流部の底質の重金属分布に関する報告値、Zn 72, Cu 23, Ni 14, Cr 12, Pb 17に比べ、いずれの項目とも低かった。

また、調査した16項目のすべてについて、各水系の各項目の平均値を、全域の各項目の平均値で除した後、これらを平均した数値で各水系の平均的な金属濃度レベルをみると、表3に示すように、瀬野川, 安川, 三篠川, 根谷川流域の順に高くなっている。各水系の支流を含ん

表3. 水系別重金属濃度レベル

	根谷川	三篠川	安川 (古川含む)	瀬野川
流域 (支流含む)	1.61	0.94	0.87	0.63
本流	1.32	0.80	0.74	0.58

だ流域と本流とでは、4流域とも本流の方が低くなっている。

2 流域ごとの底質金属成分の分布(図2)

人為的発生源の影響が強いと考えられる項目のうち、1日1人当たりの原単位^{6) 8)}と全域平均値との比が大きい、Zn, Cu, Ni, Cr, Pb, Pについて、各流域ごとに底質の金属成分の濃度変化を述べる。

(1) 根谷川流域

本流での濃度範囲は、Zn 26~45, Cu 3.5~16, Ni 1.1~14, Cr 1.1~19, Pb 4.5~8.3, P 45~260であった。

Ni, Cr, Pは、同じような挙動を示しており、地点間の変動は大きく、本流では、大林小学校前(N6), 土居橋(N4)で極大値を示している。また、支流の人甲川は本流より濃度が高い。

Zn, Pbについては、地点間の変動は、Ni, Cr, Pに比べ小さい。また、支流の桐原川, 人甲川で本流より濃度が高い。

Cuは、地点間の変動が、Zn, Pbより大きい。また、支流の人甲川河口(N12)で、飛び抜けて高い濃度である。

人甲川合流後(N7)で、大林小学校前(N6)については、6項目とも支流の人甲川の影響を強く受けると見られ、自然の要因が強いと判断される。土居橋(N4)のNi, Cr, P, 上原橋(N2)のZn, Pb, Pは、極大値を示し、支流からの影響も少ないことから、付近の工場や生活排水の影響が強いと考えられる。

(2) 三篠川流域

本流での濃度範囲は、Zn 2.0~51, Cu 5.5~55, Ni 0.99~4.7, Cr 1.8~7.5, Pb 3.9~8.5, P 58~160であった。

Ni, Cr, Pは、ほぼ同じような挙動を示しており、地点間の変動は大きく、大寺橋(M9)で極大値を示している。また、支流の栄堂川で高い値を示す。

Zn, Pbについては、地点間の変動はNi, Cr, Pに比べ小さい。また、支流の栄堂川, 河津川で高い濃度を示す。

Cuは、本流の深川橋(M1)で極端に濃度が高く、ついで支流の河津川, 栄堂川で高い。

本流域では、各項目とも、支流からの影響が強く、おおむね、自然の要因によるものと考えられる。しかし、

Zn, Pb, Pについては、一之瀬橋(M4)で極大値を示し、人為的要因が考えられる。

深川橋(M1)については、Cuを始め、他の項目も隣接点より高いが、これは、昭和48年頃まで、約1km上流の山間部において、銅の採掘が行われていた地域であり、その影響が考えられる。

支流のうち、三篠川流域の河津川及び栄堂川並びに根谷川流域の桐原川及び人甲川は、おおむね、本流より高い金属濃度を示している。これは、三篠川と根谷川に囲まれた地域の地質の特異性によるものと考えられる。

(3) 安川流域

本流での濃度範囲は、Zn 23~37, Cu 3.6~7.1, Ni 0.74~1.3, Cr 1.1~2.3, Pb 4.0~6.5, P 74~120であった。

地点間の変動は、すべての項目について、他の3流域に比べて小さい。また、各項目とも似かよった挙動を示している。本河川は、水質が良好な河川とは言えないが、底質については、特に人為的汚染の強い地点は見られなかった。

古川にある大下(Y9)において、6項目すべてについて極端に濃度が高い。この底質は、粒子が細かくシルト状であった。古川流域は、かつては、たびたび洪水にみまわれ、残された遊水により湿地帯を形成していたようであり、その影響とも思われるが、はっきりした原因は不明であり、今後、検討する必要がある。

(4) 瀬野川流域

本流での濃度範囲は、Zn 22~58, Cu 5.0~13, Ni 0.68~1.3, Cr 0.70~2.5, Pb 4.1~12, P 45~89であった。

地点間の変動は、各項目とも似かよった挙動を示している。Ni, Cr, Pb, Znは丸畑橋(S3), Pは丸畑橋(S3), 高部(S2), Cuは高部(S2)で極大値を示し、付近の機械工場及び生活排水等の人為的要因が考えられる。

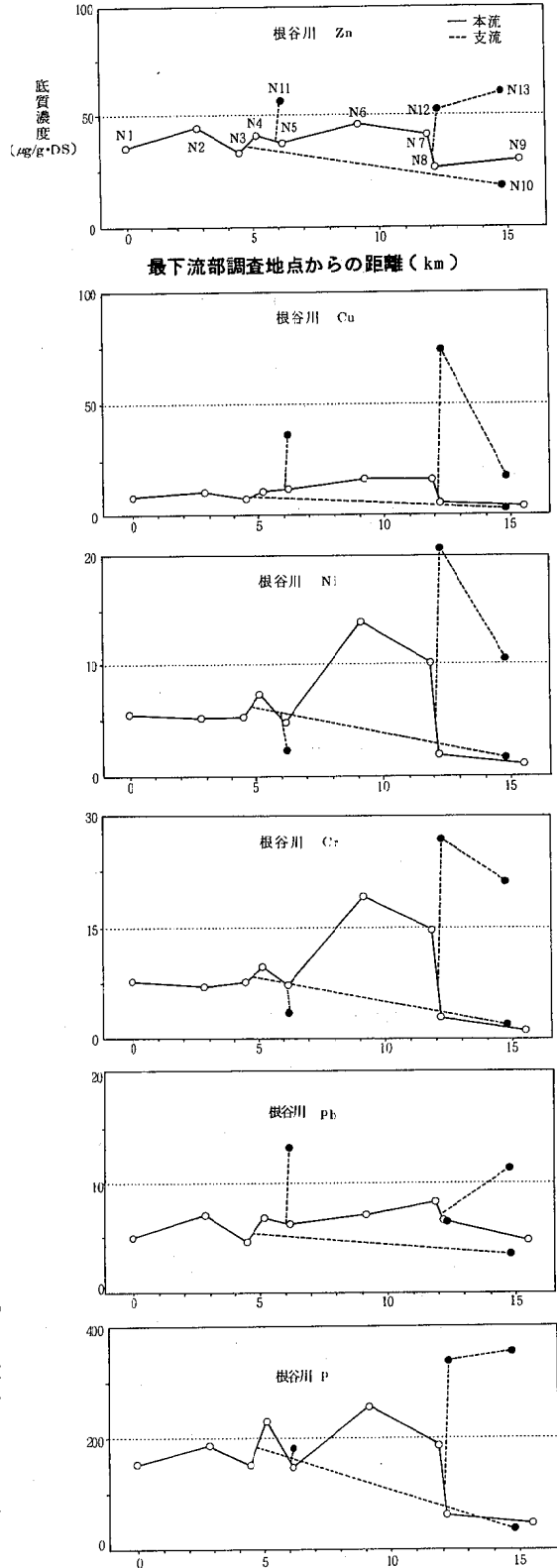
他の3流域は、おおむね、支流の方が金属濃度が高く、それが本流に影響を与えている。しかし、瀬野川流域では、支流と本流との濃度差は見られない。

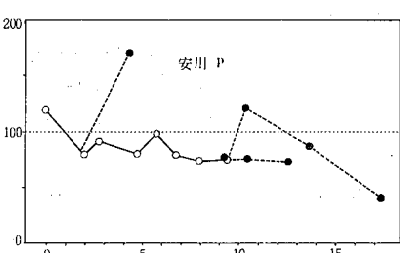
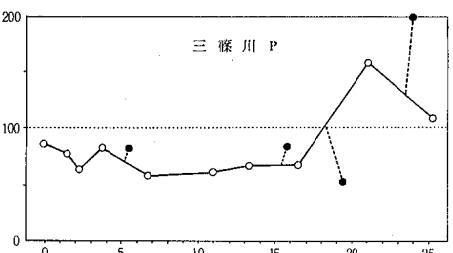
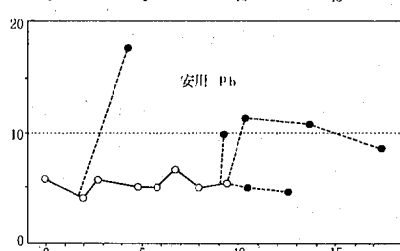
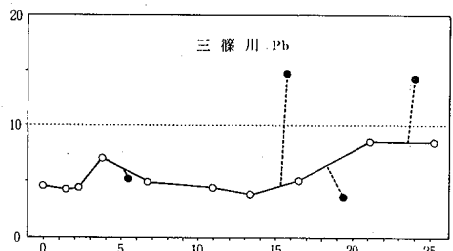
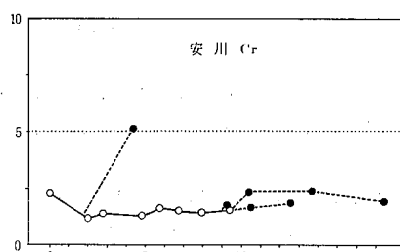
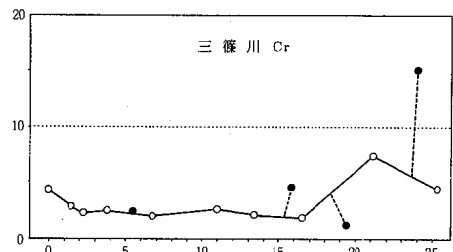
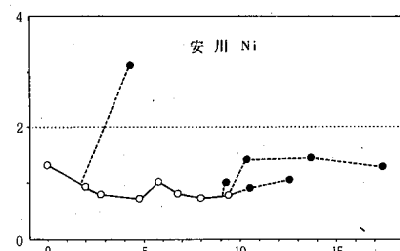
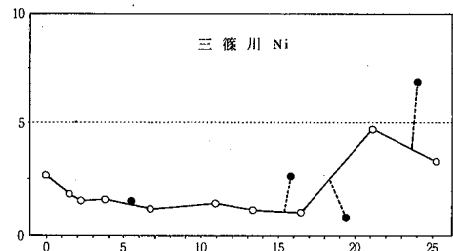
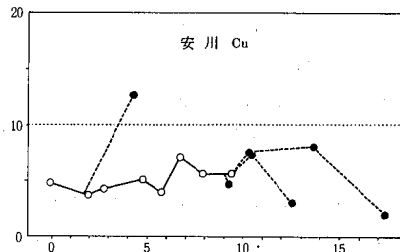
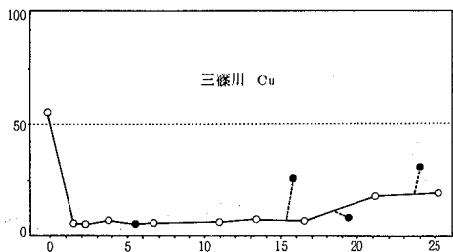
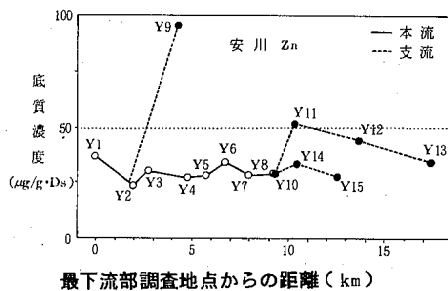
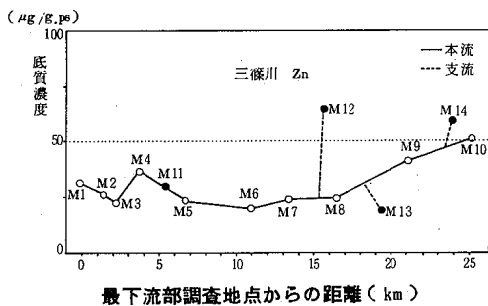
3 対照値の算出

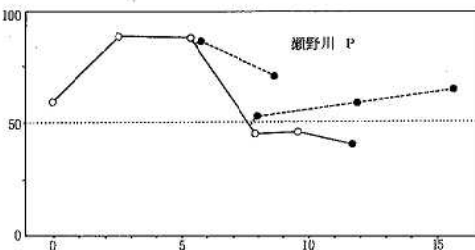
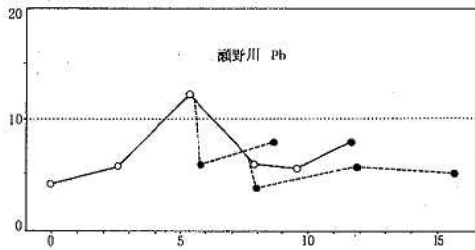
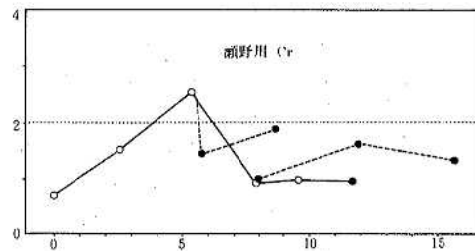
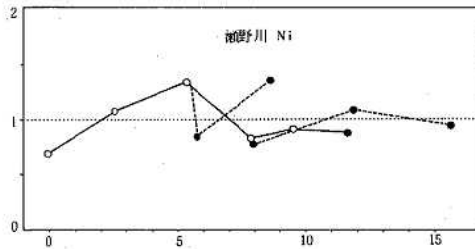
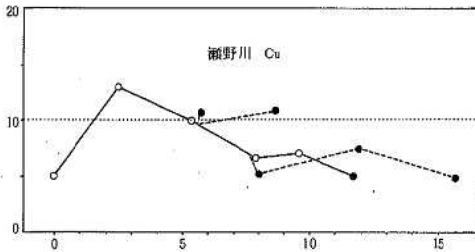
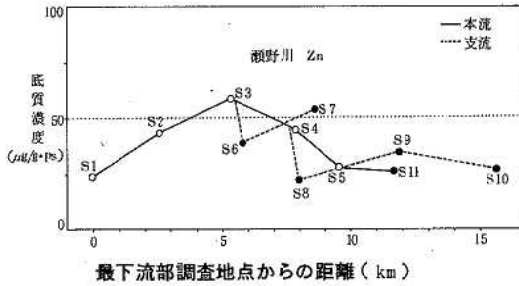
底質の汚染を考える場合、基準値あるいは対照値の把握が重要となってくる。

この方法としては、河口堆積物などの柱状試料から推定する方法⁹⁾、非汚染地域の底質から推定する方法¹⁰⁾並びに濃度相関マトリックスにより推定する方法^{11) 12) 13)}などがある。

本報では、濃度相関マトリックス法により対照値を算出した。







(1) 濃度相関マトリックスの作成

まず、地点ごとに、全金属成分16項目間の濃度比のマトリックスを作成する。つぎに、一つの地点の濃度比マトリックスで、他の地点のそれを除した地点間の濃度比のマトリックスを作成する。さらに、各項の値が、1/1.5から1.5の範囲内にあるものの数を全体の項数(120個)で除した値を相関数と定義し、これから、各地点相互の濃度相関マトリックスを作成する。

(2) 対照値の算出

他の多くの地点と類似性のある地点は、その地域を代表すると考えられるので、類似性のある地点を選出し、それらの平均値を対照値とする。

類似性の判定は、まず、相関数の累積度数曲線から累積度数(%:危険率を表わす)の相関数の値を求め、つぎに、各地点ごとに、濃度相関マトリックス表から、10~90%の危険率で、ある地点が他の何地点と類似しているかを調べる。そして、x%の危険率での類似地点数をyとして、最小二乗法で一次回帰直線($y = a + bx$)を作成する。その結果を表4に示す。

表4. 最小二乗法による代表調査地点の選択($y = a + bx$)

	a	b	r
N 1	-2.000	0.533	0.988
N 2	-3.278	0.583	0.973
N 3	-4.833	0.563	0.982
N 4	-2.028	0.452	0.953
N 5	-1.778	0.620	0.993
N 6	-1.417	0.308	0.923
N 7	-2.389	0.383	0.919
N 8	4.750	0.625	0.957
N 9	-1.444	0.660	0.978
N 10	-3.722	0.717	0.978
N 11	-7.694	0.592	0.992
N 12	-2.472	0.172	0.899
N 13	-4.667	0.427	0.957
M 1	-1.333	-0.587	0.993
M 2	7.500	0.570	0.984
M 3	8.389	0.583	0.962
M 4	6.194	0.552	0.991
M 5	10.750	0.565	0.939
M 6	2.417	0.618	0.985
M 7	11.889	0.547	0.939
M 8	14.472	0.502	0.924
M 9	-5.167	0.670	0.990
M 10	1.056	0.643	0.986
M 11	13.944	0.503	0.923
M 12	-6.194	0.648	0.999
M 13	1.500	0.617	0.980
M 14	-6.972	0.655	0.989

	a	b	r		a	b	r
Y 1	9.139	0.515	0.977	S U 1	3.056	0.637	0.969
Y 2	10.444	0.527	0.980	S U 2	1.056	0.637	0.963
Y 3	4.361	0.535	0.995	S 1 S 2 S 3 S 4 S 5 S 6 S 7 S 8 S 9 S 10 S 11	3.833	0.570	0.971
Y 4	2.917	0.548	0.993		4.222	0.547	0.979
Y 5	4.056	0.510	0.994		-7.944	0.610	0.989
Y 6	0.250	0.548	0.985		-0.222	0.560	0.992
Y 7	0.917	0.535	0.980		8.194	0.498	0.960
Y 8	2.833	0.603	0.987		9.167	0.530	0.943
Y 9	-11.222	0.713	0.987		5.806	0.522	0.952
Y 10	6.139	0.528	0.991		14.750	0.478	0.959
Y 11	9.500	0.490	0.995		-2.028	0.572	0.995
Y 12	9.194	0.492	0.989		-4.722	0.597	0.998
Y 13	-8.833	0.570	0.988		-3.833	0.543	0.996
Y 14	-1.444	0.547	0.964				
Y 15	6.111	0.507	0.998				

ここで、 $a \geq 1$ の基準で代表調査地点を選び、それらの平均値を対照値とした。(表5)

表5. 対照値

単位: $\mu\text{g/g DS}$

	Zn	Cu	Ni	Cr	Pb	P	As	Hg	Fe	Mn	Al	Ca	Mg	Ti	Co	V
平均値	32	6.8	1.2	1.9	5.8	78	2.0	0.008	7800	220	6300	830	1100	440	1.5	7.3
変動係数 %	32	48	41	39	35	23	79	68	34	27	33	28	41	53	34	35

これは、地質的に他の流域とは異なる人甲川を含む根谷川流域を除き、各流域からはほぼ均等に選ばれており、また、全域の平均値より各項目とも低い値を示していることから、広島市の底質の対照値として妥当であると考えられる。

今回の調査は、本市としては、初めての試みとして、中上流部の主要河川を中心に広範囲、多項目にわたる調査を実施した。その結果、広島市の中上流部河川の底質における金属成分濃度の分布状況及び底質の対照値が把握できた。今後は、各流域ごとの発生源データを加味した解析等を行う必要がある。また、下流部感朝河川についての汚染状況の把握、解析等に努めることも必要である。

文 献

- 1) 広島県土木部河川課：河川流域調査，昭和55年4月
- 2) 広島県土木部：水資源調査報告書，昭和58年度版
- 3) 広島市：公害の概況，47~70(1985)
- 4) 広島県地学のガイド編集委員会：広島県地学のガイド，80~94(1979)
- 5) 芦田賢一 他：河川堆積物の試料採取法について，兵庫県公害研究所研究報告，9，51(1977)
- 6) 田井慎悟 他：生活廃水汚泥中の重金属の由来について，国立公害研究所研究報告，14，203~211(1980)
- 7) 多田 史 他：全国主要河川の上流部の底質土の重金属分布，衛生化学，24，65~70(1978)
- 8) 蔵田義博 他：生活排水による水質汚濁(第1報)，広島市衛生研究所年報，2，75~78(1983)
- 9) 小川 務 他：伊勢湾および渥美湾の底質中金属元素について，愛知県公害調査センター所報，5，164(1977)
- 10) 久保 清 他：熊本県河川底質重金属調査(第3報)，熊本県衛生研究所報，7，45(1977)
- 11) 村上 剛 他：底質中の重金属元素に関する研究(第1報)，広島県衛生研究所・公害研究所研究報告，21-5，275~281，(1975)
- 12) 木羽敏泰 他：濃度相関マトリックスによる河床で試料の相関性の検討，分析化学，24，18~25(1975)
- 13) 湯浅正和 他：河川底質調査(第2報)，札幌市衛生研究所年報，9，98~103(1981)

ICP発光分析法による底質金属の分析

石川六郎 花尾裕士 国弘 節 末田義博
 蔵田義博 杉本謙吉 石川 隆* 清岡弘治

高周波誘導結合プラズマ(ICP)発光分析法により河川底質金属の多元素同時分析を検討した。底質中に含まれる主成分は、微量成分に対して分光干渉として妨害するため、主成分のうち鉄についてはメチルイソブチルケトンで除き、その他については微量成分に対する干渉の程度を調べ補正した。

得られた分析値を評価するため、池底質標準試料を分析し、また、河川底質を用いて添加回収試験を行った。その結果、カドミウムについては濃度が定量限界附近のため分析が困難であったが、アルミニウム、カルシウム、マグネシウム、チタン、コバルト、クロム、銅、マンガン、ニッケル、リン、鉛、バナジウム、亜鉛の13元素について同時定量ができた。

はじめに

ここ数年、金属の分析法として高周波誘導結合プラズマ発光分析法(以下ICP-AESと略記)が普及している。ICP-AESの特長として、多元素を同時に高感度、高精度に分析できること、検量線の直線範囲が広いこと、イオン化干渉が少いためナトリウム、カリウムなどのアルカリ金属の影響を受けにくいことなどがある。¹⁾²⁾一方、試料溶液中の主成分による分光干渉、酸の種類や濃度による物理干渉などの妨害を受ける。

ICP-AESを底質試料に応用した例として、池底質標準試料(NIES No.2)の分析報告³⁾があり、主成分から微量成分まで23元素の定量を行っている。それによると、主成分が微量成分に与える干渉は無視できないので、個々の主成分が微量成分に与える干渉濃度を調べ、これをもとに補正を行っている。しかし、強い干渉を受ける微量成分や比較的弱くても複数の主成分から干渉を受ける微量成分などは正確な分析値が得にくい点を指摘している。

そこで、主成分の1つで多くの元素に対して干渉する鉄を6規定塩酸性下でメチルイソブチルケトンにより抽出して除き、除鉄後の溶液を用いて金属成分の分析を検討した。さらに、得られた結果を評価するため、池底質標準試料を分析し、また、河川底質分解液に標準溶液を添加して回収率を検討したので報告する。

方 法

1 試薬と標準溶液

塩酸と硝酸は和光純薬工業製有害金属分析用を、その他の薬品は試薬特級を使用した。

標準溶液のうちナトリウムは塩化ナトリウム(定量分析用)を、リンはリン酸-水素アンモニウム(特級)を

1規定塩酸に溶かして使用した。アルミニウムは金属アルミニウム(99.99%)を、チタンは金属チタン(99.9%)を塩酸に溶かし用時1規定塩酸溶液として使用した。その他の元素については原子吸光分析用を使用した。

多元素混合標準溶液は表1に示すような5種類に分け、すべて1規定塩酸溶液とした。検量線は表1の混合標準溶液と1規定塩酸溶液(濃度0)の2点検量線とした。

表1 混合標準溶液

グループNo	元素と濃度(μg/l)							
1	Al 500	Ca 40	Fe 300	Mg 40	Ti 40			
2	Be 2	P 10	V 2	Zn 5				
3	Cd 0.1	Co 2	Cr 5	Cu 5	Mn 5	Ni 2	Pb 5	
4	As 5	Sb 5	Se 5	Sn 5				
5	Si 50							

2 装 置

ICP-AESの装置はセイコー電子工業製JY38PとJY48Pを使用した。JY38Pは単元素測定用のもので任意の波長を設定できる。JY48Pは多元素同時測定用のもので20元素の分析線が設定しており、JY38Pで設定した1元素を合せて21元素を同時測定できる。プラズマ用電源は周波数27.12MHz、最大出力2.5kWである。ネブライザーはガラス製同軸型を使用した。表2に分光器の主な仕様を、表3に分析線を示す。

3 分析方法

(1) 測定条件の検討

ICP-AESで測定する発光強度は、プラズマ用電源の出力、各アルゴンガス流量、測定高さの影響を受ける。そこで、標準溶液を噴霧し各条件を少しずつ変化させて、正味発光強度S(標準溶液の強度とブランク溶液の強度の

* 広島市安佐北保健所

表2 装置の概要

	JY48P	JY38P
分光器	パッシェンランゲ型	ツェルニーターナー型
焦点距離	1 m	1 m
グレーティング	ホログラフィック型	ホログラフィック型
溝数	2160本	3600本
逆線分散	0.46 nm/mm	0.276 nm/mm
波長範囲	160~492 nm	180~499 nm

差)とブランク溶液の強度Bとの比(S/B比)が最も大きくなる条件²⁾を求めた。

(2) 除鉄操作

試料分解液中に含まれる多量の鉄は図1に示す操作で除いた。

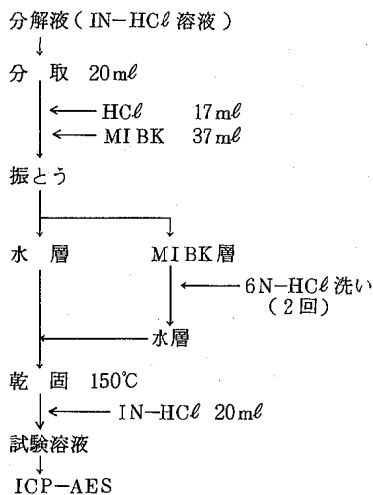


図1 除鉄操作

(3) 池底質標準試料の分析

110°Cで4時間乾燥した池底質標準試料1gをフッ化水素酸、硝酸、過塩素酸で分解したのち、かるく乾固し1規定塩酸で溶解後濾過して200mlとした。この1部をとり図1に示す方法で分析した。

(4) 実試料の分析

河川底質10gを硝酸と塩酸で分解したのち濾過して100mlとし、以下図1に示す方法で分析した。また分解液の一部に微量成分を標準添加して除鉄操作後の回収率を検討した。

結果と考察

1 測定条件の決定

プラズマ用電源の出力を0.8kWから1.7kWまで0.1kWごとに変化させながら標準溶液とブランク溶液の発光強度を測定しS/B比を求めた。その結果、S/B比は出力の低いほど大きくなり0.8kWで最大であった。しかし、

出力は低すぎると酸や塩による干渉が生じやすくなるので1.0kWとした。

プラズマ用電源の出力は0.1kWのままで、キャリアーガス流量を0.30ℓ/minから0.50ℓ/minまで0.05ℓ/minずつ変化させ、それぞれの流量について測定高さを6mmから30mmまで2mm間隔で変化させてS/B比を求めた。その結果、S/B比はキャリアーガス流量0.4ℓ/min、測定高さ16~20mmで最大であった。そこで、キャリアーガス流量は0.40ℓ/min、測定高さは16mmとした。

中間ガス流量と外側ガス流量はS/B比にそれほど影響しないのでそれぞれ0ℓ/min、16ℓ/minとした。

2 検出限界と定量限界

1で決定した測定条件のもとで標準溶液1~5とブランク溶液を発光させその発光強度から検出限界(D.L)と定量限界を算出した。その結果を表3に示す。検出限界(3σ)の算出方法は次式のとおりで、定量限界は検出限界を3.3倍(10σ相当)として求めた。

$$D.L = \frac{3\sigma_B}{I_S - I_B} \times C$$

I_S : 標準溶液(濃度C)の発光強度

I_B : ブランク溶液の発光強度

σ_B : ブランク溶液の標準偏差

表3の値はすべて切上で有効数字1桁で示した。なお、表3には底質10gを分解し100ml溶液にして分析する場合の定量限界も示した。

表3 検出限界と定量限界

分析線 (nm)	検出限界 (mg/ℓ)	定量限界 (mg/ℓ)	底質定量限界 (μg/g)	
Al	396.1	0.07	0.3	3
Ca	422.6	0.01	0.04	0.4
Fe	259.9	0.004	0.02	0.2
Mg	285.2	0.001	0.004	0.04
Ti	334.9	0.002	0.006	0.06
Be	234.8	0.001	0.004	0.04
Cd	226.5	0.002	0.004	0.04
Co	228.6	0.005	0.02	0.2
Cr	267.7	0.006	0.02	0.2
Cu	324.7	0.002	0.005	0.05
Mn	257.6	0.0003	0.0009	0.009
Ni	231.6	0.003	0.008	0.08
P	213.6	0.3	0.8	8
Pb	220.3	0.02	0.06	0.6
Si	288.1	0.03	0.09	0.9
V	292.4	0.003	0.008	0.08
Zn	213.8	0.003	0.008	0.08
As	193.6	0.02	0.04	0.4
Sb	206.9	0.02	0.04	0.4
Se	196.0	0.09	0.3	3
Sn	189.9	0.03	0.1	1

3 主成分の干渉補正

アルミニウム、カルシウム、鉄、カリウム、マグネシウム、ナトリウム、リン、チタンそれぞれの単独溶液1000mg/lを発光させ微量成分の分析線近傍でスペクトルプロファイル測定し、干渉の種類を調べた。また、各主成分について500mg/lと1000mg/l溶液を用いて微量成分に与える干渉濃度を調べた。それぞれの結果を表4と表5に示す。表5には、干渉濃度が主成分濃度に比例的なものについて示してある。表4から、主成分のうちアルミニウム、カルシウム、鉄、チタンは多くの元素に対して

表4 スペクトルプロファイルからみた干渉の種類

被 干 渉 元 素	干 渉 元 素							
	Al	Ca	Fe	K	Mg	Na	P	Ti
Be			近		B			近
Cd	B		近		B			近
Co	B		B重		B			重
Cr		重	B		重		重	重
Cu	重	重	B		重			B
Mn			B					重
Ni	B	重	近		B重			B重
P	B		近					
Pb	B	B	B		B重			近
V		B	近		重			近
Zn	重	重	重		重			近
As	B	B	近		B			
Sb	B		近		重			近
Se	B	B重	近					
Sn	B	B	B		B			近

B:バックグラウンド上昇 重:重なるピーク

近:近接ピーク

表5 主成分の干渉濃度

被 干 渉 元 素	干 渉 元 素							
	Al	Ca	Fe	K	Mg	Na	P	Ti
Be		0.010	3.65		0.024			0.15
Cd	0.038	0.008	0.24					
Co	0.004	0.020	0.19		0.037			1.28
Cr		0.016	0.064		0.16		0.034	0.096
Cu	0.030	0.020	0.084		0.010			0.17
Mn			0.014					
Ni		0.044	0.16		0.13			0.046
P	1.76		0.52		0.48			0.42
Pb	1.10	0.13	0.56		0.30			0.56
V		0.013	0.16		0.22			0.44
Zn		0.020	0.19		0.030			1.12
As	16.2	0.46	0.082		0.50			0.26
Sb	3.25	0.18	0.43		0.26			1.16
Se	3.20	0.70	0.68		0.72			0.84
Sn	0.96	0.43	0.55		0.40			1.61

単位 mg/l (干渉元素1mg/lか被干渉元素に与える濃度)

干渉することが分る。特に、アルミニウムは多くの分析線に対してバックグラウンドを上昇させ、鉄とチタンは多くの分析線に対して近接ピークとして干渉する。表5から、アルミニウムはリン、鉛、ヒ素、アンチモン、セレン、スズに、鉄はベリリウムに、チタンはコバルト、亜鉛、アンチモン、スズにそれぞれ大きな干渉を与えることが分かる。

これらの干渉を補正するには、試験溶液中の主成分濃度と表5の目的元素の値との積を試験溶液中の目的元素のみかけ濃度から差引けばよい。なお、カリウム、ナトリウムについては、干渉がほとんどないので補正は行わなかった。

4 除鉄操作後の回収率

標準溶液1~5を用いて図1の除鉄操作を行ったのちの各元素回収率を表6に示す。ヒ素、セレン、アンチモン、スズについては回収率が悪いので今後の検討から除いた。その他の元素については、亜鉛の90%を除くと良好な回収率であった。なお、鉄はほぼ100%除去できた。

表6 除鉄操作後の回収率

	濃度 (mg/l)	回収濃度 (mg/l)	回収率 (%)
Al	500	494	98.8
Ca	40	40.8	102
Fe	300	0.4	0.1
Mg	40	39.1	97.8
Ti	40	39.3	98.3
Be	2	1.95	97.5
Cd	0.1	0.103	103
Co	2	1.89	94.5
Cr	5	4.85	97.0
Cu	5	4.83	96.6
Mn	5	4.74	94.8
Ni	2	1.88	94.0
P	10	9.64	96.4
Pb	5	4.82	96.4
V	2	1.88	94.0
Zn	5	4.53	90.6

5 池底質標準試料の分析結果

池底質標準試料を5回平行測定した結果の平均値と標準偏差を表7に示す。表7には除鉄しないで測定した結果と標準試料の保証値および参考値⁴⁾も示した。

保証値あるいは参考値と比較して、アルミニウム、カルシウム、チタン、クロム、亜鉛が約10%低い値であった。亜鉛以外の元素は試料分解後の濾過操作時に若干の白色沈殿が認められたため、残渣として損失したものと考えられる。亜鉛については、除鉄操作時の損失であろう。表7で保証値あるいは参考値の示されていない元素については、田尾³⁾らがマグネシウム8040μg/g、リン

表7 池底質標準試料の分析結果

	除鉄なし	除鉄	保証値・参考値*	定量限界
Al	96200±3200	96100±2600	106000±5000	60
Ca	7400±260	7240±230	8100±600	8
Fe	64900±400	44±19	65300±3500	4
Mg	8080±80	8060±70		0.8
Ti	5820±40	5910±40	6400*	1.2
Be	22.1±0.9	10.8±0.4		0.8
Cd			0.82±0.06	0.8
Co	22.0±0.3	25.3±0.1	27±3	4
Cr	64.3±0.3	64.7±0.3	75±5	4
Cu	197±2	203±2	210±12	1
Mn	746±8	749±6	770*	0.2
Ni	37.8±0.2	39.7±0.2	40±3	0.2
P	1350±20	1270±15		160
Pb	107±1	108±2	105±6	12
V	233±2	235±1	250*	2
Zn	324±4	311±2	343±17	0.2

単位 μg/g

1390 μg/g, ベリウム 2.50 μg/g という値を報告している。ベリリウムは今回の値と差が大きい、マグネシウム、リンについては良く一致している。カドミウムについては、濃度が定量限界附近であり、干渉補正後の値が負になったため分析できなかった。上記以外の元素は保証値あるいは参考値と良く一致した。

6 実試料の分析結果

河川底質4試料の分析結果を表8に示す。表8には主成分を除く元素について添加回収した結果も示した。この場合の添加濃度は添加後に増加する試料溶液中の濃度で示した。鉄の値は除鉄前の溶液を100倍希釈して求めたもので参考として示した。

添加回収結果はいずれの元素も良好であった。ただし、カドミウムについては実試料の濃度に比べ添加量が大きすぎるので、もう少し実試料に近い濃度での検討が必要である。

今回の検討結果から、ICP-AESで底質試料を分析する場合、試料の前処理に検討の余地が残るもの、得られた分解液については除鉄操作を行っても分析が可能

表8 河川底質分析結果

	試料1		試料2		試料3		試料4		回収率%	
	添加濃度	濃度 回収量	濃度 回収量	濃度 回収量	濃度 回収量	濃度 回収量	濃度 回収量			
Al	0	480	1030		463		333			
Ca	0	35.5	240		72.1		43.3			
Fe	0	(560)	(1270)		(698)		(348)			
Mg	0	82.3	337		116		49.6			
Ti	0	20.3	45.8		42.8		21.3			
Be	1	0.32	1.27	0.33	1.32	0.41	1.41	0.22	1.21	96~100
Cl	1	0.020	0.95	0.040	1.00	0.039	1.00	0.027	1.00	93~98
Co	1	0.11	1.06	0.28	1.25	0.27	1.25	0.13	1.13	95~100
Cr	1	0.16	1.12	0.83	1.79	0.19	1.18	0.14	1.14	96~100
Cu	1	0.12	1.10	0.98	2.02	0.39	1.43	0.70	1.71	98~103
Mn	10	17.2	off	19.4	off	21.0	off	12.4	22.0	98
Ni	1	0.15	1.10	0.60	1.55	0.14	1.11	0.13	1.13	95~100
P	10	3.68	13.0	19.1	29.4	9.86	20.5	7.02	17.0	94~103
Pb	1	0.39	1.35	0.69	1.69	0.60	1.57	0.47	1.46	97~100
V	1	0.35	1.29	1.03	1.99	0.77	1.76	0.37	1.36	95~99
Zn	1	1.86	2.81	4.35	5.30	3.19	4.27	3.30	4.25	98~102

単位 μg/g
off: off scale, フォトマルの光一電気変換の直線性を越えたことを示す。

であり、アルミニウム、カルシウム、マグネシウム、チタン、コバルト、クロム、銅、マンガン、ニッケル、リン、鉛、バナジウム、亜鉛の13元素を同時定量できることが分った。

謝 辞

今回の分析にあたって、適切な助言と貴重な純金属を提供していただいた広島市工芸指導所の奥村・山口・福原の3氏に深謝します。

文 献

- 1) 不破敏一郎 他: ICP発光分析法, 南江堂(1980)
- 2) 高橋務 他: 液体試料の発光分光分析-ICPを中心として-, 学会出版センター(1983)
- 3) 田尾博明 他: 池底質標準試料(NIES No.2)のICP発光分析法による多元素同時分析, プラズマスペクトロスコープ, 2, 171~178(1982)
- 4) 岡本研作 他: 環境標準試料NIES No.2「池底質試料」について, 125~138, (財)環境調査センター, (1981)

河川水中の除草剤残存量について

蔵田義博 花尾裕士 国弘 節 石川六郎
末田義博 杉本謙吉 石川 隆* 清岡弘治

広島市北西部に位置する安佐南区沼田町を流下する吉山川、安川において、田植時期に散布された除草剤(ベンチオカーブ、オキサジアゾン、CNP、ブタクロール)の河川水中濃度変化、及び河川への流出率を調査した。

ベンチオカーブは、6月初旬から検出され、7月初旬には検出されなくなった。オキサジアゾンは、4月下旬から検出され、10月下旬に至って検出されなくなった。CNP、ブタクロールは検出されなかった。

また、水田に散布された除草剤の河川への流出率は、ベンチオカーブ0.2%、オキサジアゾン1.3%と推定された。

はじめに

現在、我国の水田に散布される農薬は、その残留性、有害性が検討され、易分解、低毒性のものが使用されている。そのため、環境への影響はほとんどないと思われる。しかし、水田に用いる除草剤については、田植えの行われる5~6月に散布時期が集中するため、一時的に河川等へ流出していることが考えられる。また、相当な使用量が予想されるにもかかわらず、河川における除草剤の消長についての報告は数少ない。

そこで今回、河川水中に残存する除草剤の追跡調査、及び概算ではあるが、河川への除草剤流出率の算出を試みたので報告する。

方 法

1 調査地点

広島市内で、比較的農業のさかんな安佐南区沼田町をモデル地域に定め、そこに源を発する吉山川、安川の町内最下流部2地点で調査した。調査地点を図1に示す。なお、沼田町の作付面積を表1に、沼田町における推定使用除草剤を表2に示す。

2 調査期間

昭和59年4月13日から10月5日まで、約10日間の間隔で16回調査した。

3 調査項目

ベンチオカーブ
オキサジアゾン
CNP
ブタクロール

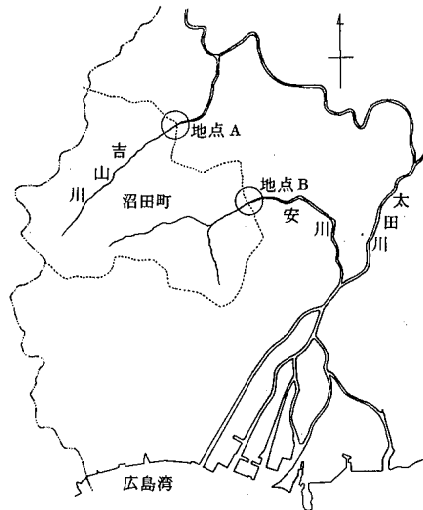


図1 調査地点

表1 沼田町の作付面積

作 付 面 積		38,178 (a)
内 訳	水 稲	29,700 (〃)
	春 野 菜	3,213 (〃)
	秋 野 菜	2,560 (〃)
	花 き	1,575 (〃)
	果 樹	470 (〃)
	そ の 他	660 (〃)

昭和57年度広島市農業生産状況より

4 試料

河川のはば中央において、表層水を採取した。

5 試薬

標準品については、ベンチオカーブ、オキサジアゾン、

* 広島市安佐北保健所

表2 沼田町における推定使用除草剤

使用時期 ¹⁾	除草剤名	使用量 ¹⁾	成分 ²⁾
田植3日以上前 (田植前土壌混和処理)	ロンスター乳剤	500ml/10a	オキサジアゾン 12.0%
	デルカット乳剤	500ml/10a	オキサジアゾン 8.0%
			ブタクロール 12.0%
田植前4日～ 田植後10日 (田植前後土壌処理)	サターンM粒剤	3kg/10a	ベンチオカーブ 7.0%
	サンバート粒剤	3～4kg/10a	C N P 6.0%
			ピラゾレート 10.0%
	クサカリン粒剤	3kg/10a	ブタクロール 2.5%
田植後8日～ 田植後20日 (田植後 茎葉兼土壌処理)	ワイダー粒剤	3kg/10a	ピペロホス 4.4%
			ジメタメトリン 1.1%
			ペンタゾン 10.0%
	サターンS粒剤	3kg/10a	ベンチオカーブ 7.0%
	クミリードSM粒剤	3kg/10a	シメトリン 1.5%
			ベンチオカーブ 10.0%
			シメトリン 1.5%
			M C P B 0.8%

農業協同組合稲作ごよみ等より

CNPは和光純薬工業製を、ブタクロールは、日本モンサントからの提供品を使用した。その他はすべて、和光純薬工業製、残留農薬分析用を使用した。

6 装置

ガスクロマトグラフは、島津製GC-4BM, GC-7AG, 及び柳本製G-3800を使用した。条件は次のとおりである。

(オキサジアゾン, CNP, ブタクロール)

検出器 ECD

カラム 内径3mm, 2mガラスカラム

充填剤 1.5%シリコンOV-17

温度 カラム部 220℃

検出器部 270℃

キャリアガス N₂ガス 50ml/min

(ベンチオカーブ)

検出器 EPD(Sフィルター)

カラム 内径3mm 1.5mガラスカラム

充填剤 シリコンDC-200+シリコンDC・QF-1
(10%+1.5%)

温度 カラム部 190℃

検出器部 250℃

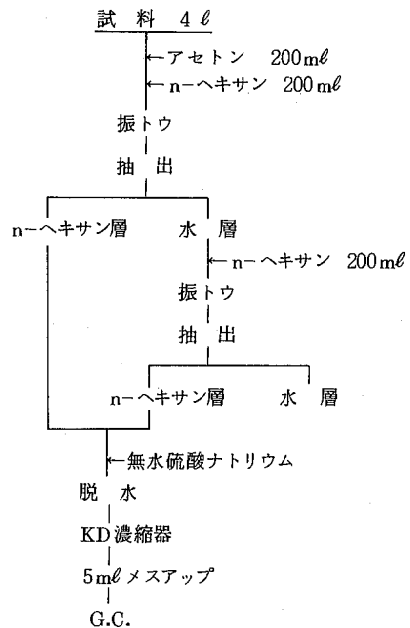
キャリアガス N₂ガス 50ml/min

7 分析方法

今回の調査で行った分析フローシートを、次に示す。

なお、定量限界をベンチオカーブ0.1μg/l, オキサジアゾン0.01μg/l, CNP 0.01μg/l, ブタクロール0.02

μg/lとした。



8 回収試験

ベンチオカーブ, オキサジアゾン, CNP, ブタクロールを、それぞれ10μg, 0.5μg, 0.5μg, 1.0μg, 純水4ℓに添加して回収率を求めた。その結果は、それぞれ99%, 102%, 91%, 102%と良好であった。

9 河川流量

河川流量は、河川断面積に流速を乗じて算出した。

結果と考察

1 ベンチオカーブ

図2に示すように、A B両地点とも6月初旬から6月下旬にかけて検出され、2地点とも6月14日に最高値を示した。最高値は、地点Aで0.2 $\mu\text{g}/\ell$ 、地点Bで0.9 $\mu\text{g}/\ell$ であった。

これは、兵庫県³⁾の3.9 $\mu\text{g}/\ell$ 、神奈川県⁴⁾の17~18 $\mu\text{g}/\ell$ に比較すると低濃度であったが、検出時期はほぼ同じであった。ベンチオカーブは、一般に田植え以降、土壤表面に散布するため、水田からの流出がはやく、検出期間も短いものと思われる。

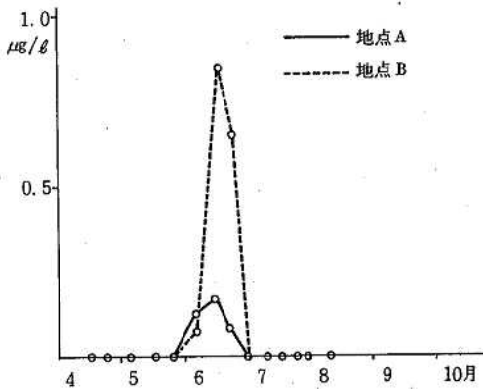


図2 ベンチオカーブの消長

2 オキサジアゾン

図3に示すように、A B両地点とも4月下旬から検出され、5月26日が最高値を示した。

その後、6月下旬に至るまで濃度は減少したが、それからのちは横ばい状態で検出が続き、10月初旬に至って検出されなくなった。最高値は、地点Aで0.34 $\mu\text{g}/\ell$ 、地点Bで0.37 $\mu\text{g}/\ell$ であった。ベンチオカーブの検出期間が

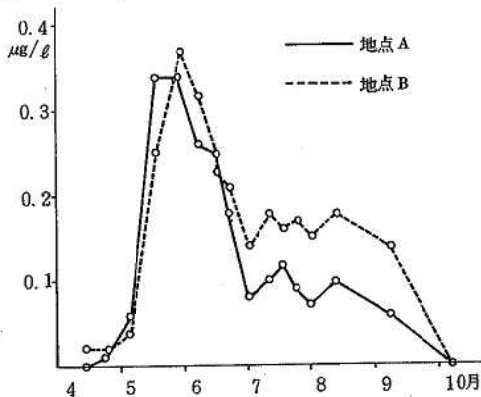


図3 オキサジアゾンの消長

4週間程度であったのに比べ、オキサジアゾンは、20週間を越えて検出が続いた。これは、オキサジアゾンが田植前のしろかき時に土壤中に混和使用されるため、除々に水へ溶出し、長期にわたって検出されたものと思われる。

なお、ガスクロマトグラムでの、オキサジアゾンの保持時間とブタクロールのそれが近接しているため、GC-MS法によりオキサジアゾン標準品並びに試料のトータルイオンクロマトグラム、及びオキサジアゾンの主要ピークであるm/z 346, 304, 260, 177を指定したマスクロマトグラムを示す。両者とも2分30秒に同一保持時間のピークがそれぞれ得られ、試料中のオキサジアゾンが確認された。

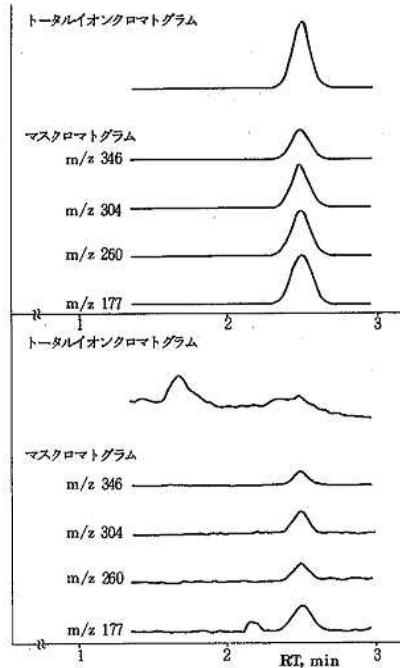


図4 オキサジアゾン標準品(上図)及び試料(下図)のトータルイオンクロマトグラム、マスクロマトグラム

3 CNP, ブタクロール

CNPについては、福岡県⁵⁾、神奈川県⁴⁾等の農村地域で検出が報告されているが、今回の調査では、調査期間を通じて、A B両地点ともまったく検出されなかった。これら2物質は、実際には、ほとんど使用されてなかったか、あるいは、水田から河川に流出する以前に分解⁶⁾していたことが考えられる。

4 河川への流出率

水田に散布された除草剤のうち、河川水中に流出した量、及び流出した割合を算出した。

計算の手順を図5に示す。なお、予想散布総重量を算

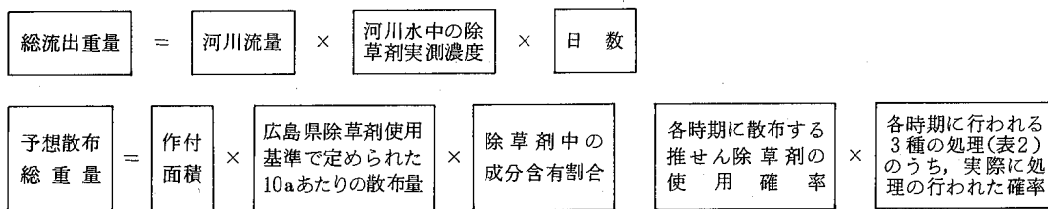


図5 計算の手順

出するについて、本来、田植前土壌混和処理、田植前後土壌処理、田植後茎葉兼土壌処理をすべて行うことはまれであるので、最も多い可能性を考慮し、田植前土壌混和処理、及び他の2処理の内のどちらか、の2回散布を行うものとして計算を進めた。その結果を表3に示す。

表3 河川への流出率

品名	総流出重量	予想散布総重量	流出率
オキサジアゾン	1.9 kg	149 kg	1.3%
ベンチオカーブ	0.6	356	0.2

これによると、流出率は、オキサジアゾン1.3%、ベンチオカーブ0.2%であり、ほとんど分解していると推定された。しかしながら、長期間にわたって河川水から検出されるため、今後は、土壌中での残留性、分解性、さらに分解生成物の追跡等を考慮しつつ調査を進めて行きたいと考えている。

謝 辞

本調査を進めるにあたり、貴重な標準品を提供して下さいました日本モンサント株式会社の脇森氏に深謝します。

文 献

- 1) 広島県農政部：除草剤使用基準 昭和59年度版
- 2) 福永一夫：農薬ハンドブック 1981年版、日本植物防疫協会
- 3) 大国信行 他：水田散布農薬の河川水への流出と飲料水への影響について、兵庫県衛生研究所研究報告，18，61～63(1983)
- 4) 飯塚宏栄 岩無才次郎：水田除草剤の河川水への流出、用水と廃水，24，629～635(1982)
- 5) 中村又善 大崎靖彦：環境における農薬に関する研究，全国公害研究誌，9，35～39(1984)
- 6) 高橋保雄 他：水中の1,3,5-トリクロル-2-(4-ニトロフェノキシ)ベンゼン(CNP)と1,3-ジクロル-2-(4-ニトロフェノキシ)ベンゼン(NIP)，東京衛研年報，30-1，224～226(1979)

環境大気中の未規制物質調査(第2報) —低沸点有機塩素化合物について—

堂道和彦 片岡真喜夫 山本 修 小谷茂夫
中本健治 石川 隆* 清岡弘治

環境大気中の低沸点有機塩素化合物濃度を把握するため調査を行い、次の結果をえた。

1. 市内居住地域3地点の平均濃度は、四塩化炭素0.12~0.15 ppb, 1,1,1-トリクロロエタン0.27~0.52 ppb, トリクロロエチレン<0.05~0.15 ppb, テトラクロロエチレン0.38~0.73 ppbであった。
2. 1,1,1-トリクロロエタン及びテトラクロロエチレンの2物質に、午前11時を最大とした顕著な経時変化がみられた。
3. 1,1,1-トリクロロエタン及びテトラクロロエチレンの2物質に、2日目から3日目を最大とした明らかな経日変化がみられた。
4. 周辺調査からは、1,1,1-トリクロロエタンについて地点間の濃度差が大きいたことが明らかになった。

はじめに

低沸点有機塩素化合物は、溶剤・金属脱脂洗浄剤として、化学工場、ドライクリーニング工場などで広く利用されており、その生産量も年々増加の傾向にある。しかし、最近これらの化合物のうち、四塩化炭素・テトラクロロエチレン等は肝機能障害などで直接人間の健康に被害を及ぼすといわれている¹⁾

すでに、第1報²⁾において環境大気中の芳香族炭化水素や重金属等について報告したが、今回低沸点有機塩素化合物について環境調査を行ったので報告する。

方 法

1 調査時期及び地点

昭和59年10月と昭和60年1月に、皆実小学校測定局(以下皆実という)で経時変化及び周辺調査を行い、昭和60年2月に皆実、三篠小学校測定局(以下三篠という)及び安佐南測定局(以下安佐南という)で経日調査を行った。その地点を図1, 2に示す。

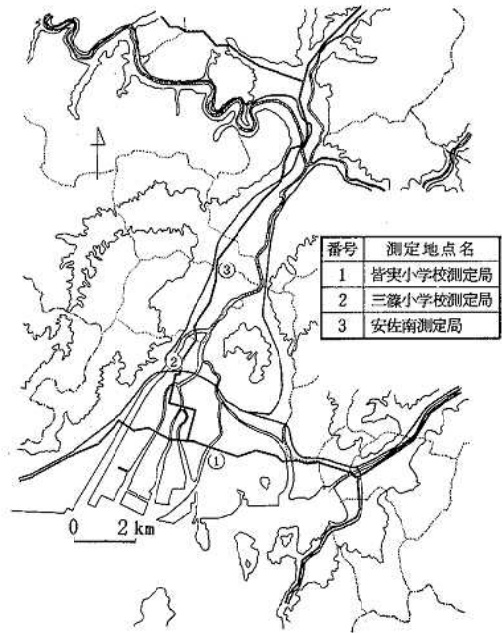
2 調査項目

四塩化炭素, 1,1,1-トリクロロエタン, トリクロロエチレン, テトラクロロエチレン

3 試料採取法

(1) 真空捕集びん

ガラス製の内容積約1ℓの真空捕集びんの内部をエーテルで2~3回洗浄した後、105℃の乾燥器中で数時間乾燥する。その後、テフロン製ゴックをしめ、シリコン栓をして加熱脱気する。不純物を除去した清浄N₂ガスを



番号	測定地点名
1	皆実小学校測定局
2	三篠小学校測定局
3	安佐南測定局

図1 調査地点図

充填し常圧にした後、GC-ECD法で調査物質のピークが検出されないものを試料採取容器として使用した。

(2) 試料採取

あらかじめ加熱脱気した真空捕集びんに試料を採取した。その際、試料採取口には内径0.2mm長さ5cmのキャピラリー管を取り付け、試料採取時間を5分以上とした。

* 広島市安佐北保健所

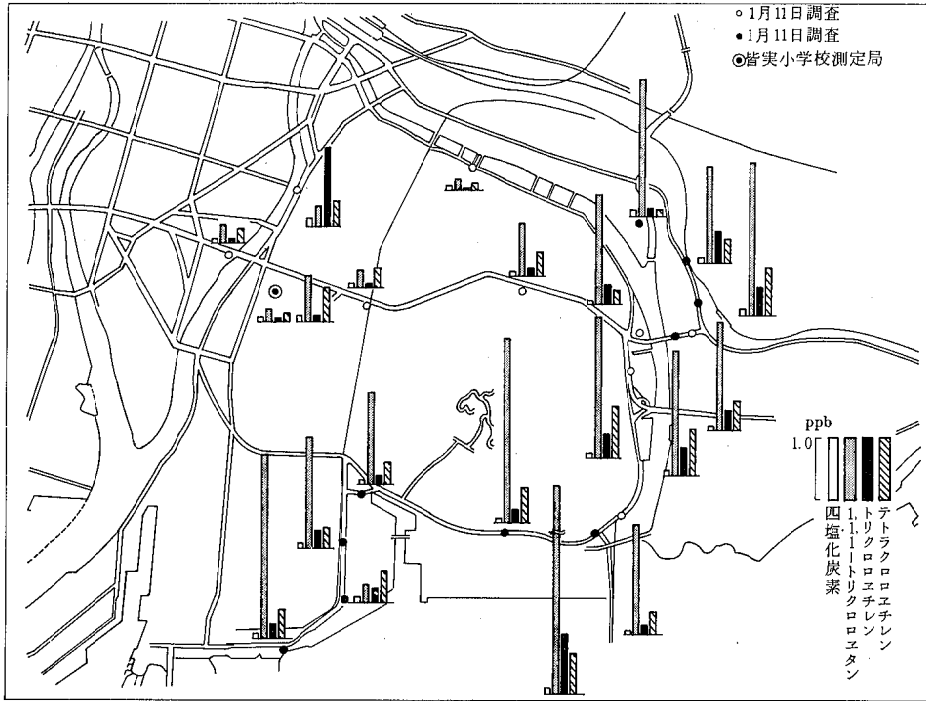


図2 周辺調査地点図及び結果

4 分析方法

(1) 分析装置

ガスクロマトグラフ：島津GC-5A

(2) 分析条件

カラム：10% Silicone DC-200 / Chromosorb
AW DMCS 60/80 3mmφ×3m

カラム温度：70℃

検出器：ECD

検出器温度：170℃

キャリアガス：N₂ 35ml/min

レンジ：4

センス：10²

5 検量線の作成

調査物質を、あらかじめ加熱脱気した真空捕集びんに注入気化させ、清浄N₂ガスを充填し標準原ガスを作製する。次に、この原ガスを順次希釈していき、最終濃度（四塩化炭素48.0 pg/ml, 1,1,1-トリクロロエタン39.9 pg/ml, トリクロロエチレン146 pg/ml, テトラクロロエチレン48.6 pg/ml）の標準ガスを調製し検量線を作成した。その検量線・クロマトグラム例を図3, 4に示した。

6 実試料の分析

真空捕集びんよりガスタイトシリンジを用いて1~3

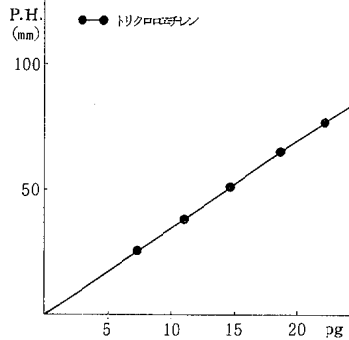
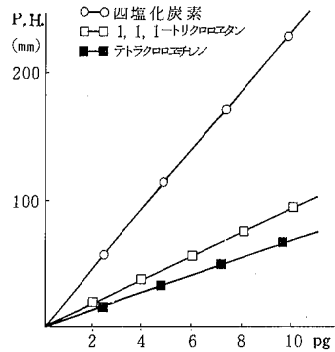


図3 GC-ECD法による低沸点有機塩素化合物の検量線

m^lの試料を採取し、GCに直接導入して分析を行った。そのクロマトグラム例を図5に示した。

結果と考察

1 経時調査

皆実で昭和59年10月4日、昭和60年1月9日の両日10時から14時までの毎正時に試料採取を行った。その結果を図6、7に示した。

1.1.1-トリクロロエタン及びテトラクロロエチレンは、午前11時に濃度の最大を示し、両日ともよく似た経時変化がみられた。四塩化炭素・トリクロロエチレンについては、変化はみられず、濃度も低かった。

2 周辺調査

昭和60年1月11日・22日の両日、皆実及びその周辺地域で調査を行った。試料採取は、経時調査の結果をもとに午前中とした。その結果を図2に示した。なお、調査地点については、気象条件や調査物質の取り扱い工場の立地等を考慮して選定した。

1.1.1-トリクロロエタンは、調査4物質中最も高い値であり、地点及び日による差も大きく、濃度が0.18~7.05 ppbであった。トリクロロエチレン及びテトラクロロエ

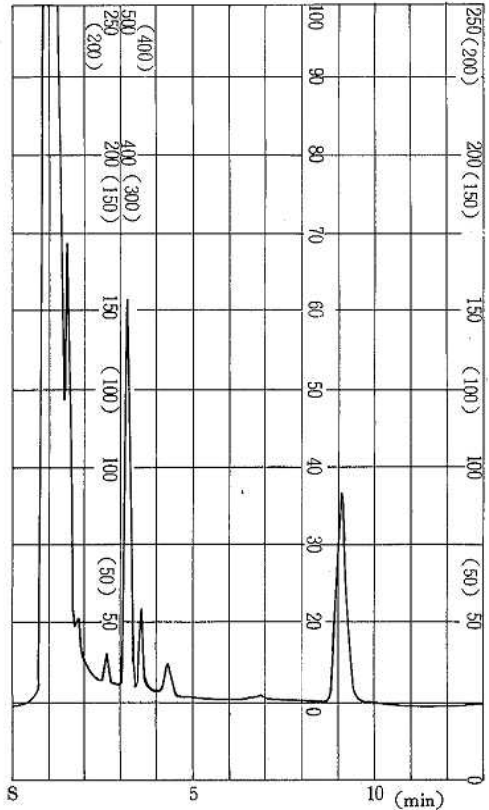


図5 試料大気のカクロマトグラム

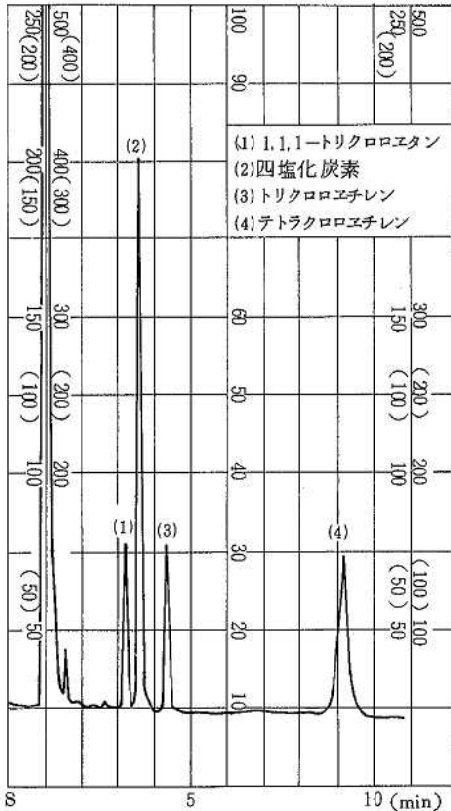


図4 標準ガスのカクロマトグラム

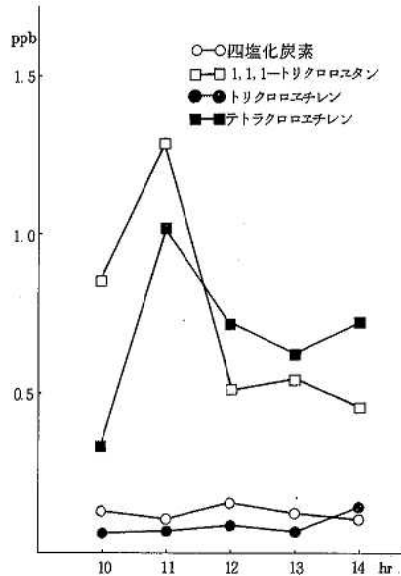


図6 経時調査結果 昭和59年10月4日

チレンは、地点及び日による濃度差があり、その範囲はそれぞれ0.05~1.25 ppb、0.10~0.83 ppbであった。な

お、四塩化炭素は地点及び日による濃度差がほとんどなかった。

トラクロロエチレンの2物質が、2日目(火曜日)から3日目(水曜日)にかけて濃度の最大を示した。

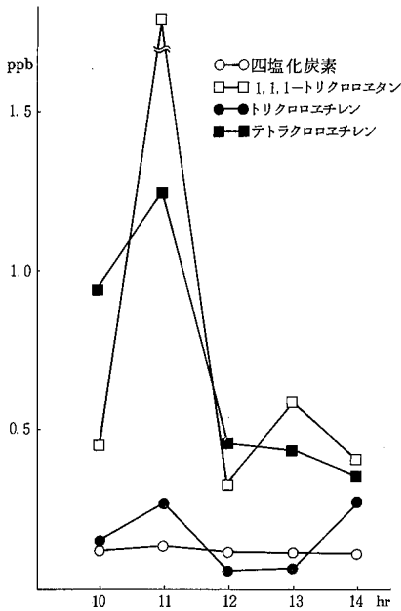


図7 経時調査結果 昭和60年1月9日

3 経日調査

皆実・三篠・安佐南の3地点において、昭和60年2月18日～22日の5日間経日調査を行った。なお、試料採取は午前と午後の1日2回とした。3地点における平均値・標準偏差・濃度範囲を表1に、経日変化を図8～10に示した。

その結果、テトラクロロエチレンの濃度が最も高く、平均値は皆実0.73 ppb、三篠0.38 ppb、安佐南0.57 ppbであり、1,1,1-トリクロロエタンは、平均値皆実0.52 ppb、三篠0.31 ppb、安佐南0.27 ppbと、両物質とも皆実が他の2地点より高い濃度を示した。四塩化炭素は、3地点とも平均値が0.12～0.15 ppbであり、周辺調査と同様の結果がえられた。トリクロロエチレンは、皆実において平均値0.15 ppbであり他の2地点では検出されなかった。

経日変化は、3地点とも1,1,1-トリクロロエタンとテ

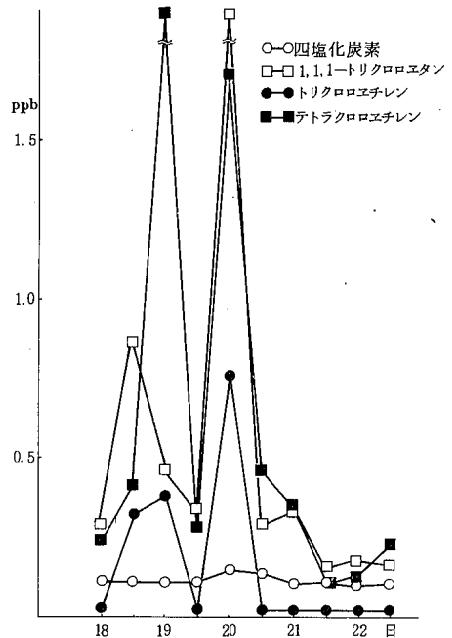


図8 経日調査結果(皆実)

表1 経日調査結果

単位 ppb

調査地点 調査項目	皆実 小学校 測定局			三篠 小学校 測定局			安佐南 測定局		
	平均値	標準偏差	濃度範囲	平均値	標準偏差	濃度範囲	平均値	標準偏差	濃度範囲
四塩化炭素	0.12	0.02	0.11～0.15	0.13	0.05	0.11～0.27	0.15	0.11	0.11～0.46
1,1,1-トリクロロエタン	0.52	0.61	0.16～2.16	0.31	0.31	0.12～1.15	0.27	0.14	0.13～0.53
トリクロロエチレン	0.15	0.26	<0.05～0.76	<0.05	—	<0.05	<0.05	—	<0.05
テトラクロロエチレン	0.73	1.04	0.11～3.36	0.38	0.47	0.05～1.50	0.57	0.67	0.13～2.41

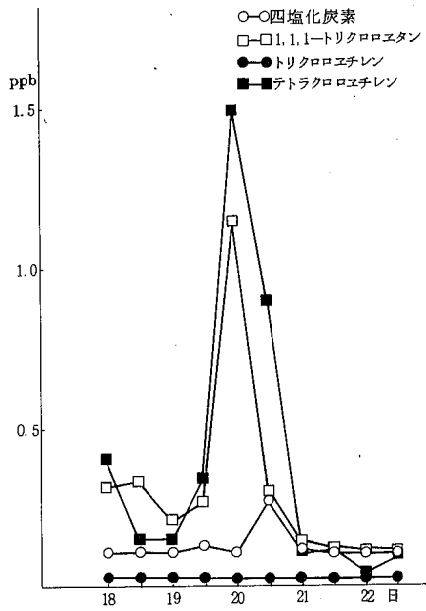


図9 経日調査結果(三篠)

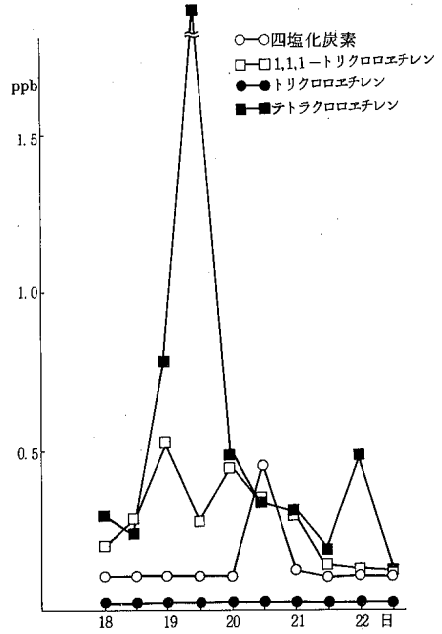


図10 経日調査結果(安佐南)

文 献

- 1) 富山県公害センター：環境大気中における有機化合物の分析法に関する研究，富山県公害センター年報10 33～46(1982)
- 2) 山本修 他：環境大気中の未規制物質調査(第1報)，広島市衛生研究所年報3，70～77(1984)

- 3) 巻出義紘：大気中のハロカーボン類の超微量分析，日本化学会誌，133～144(1981)
- 4) 環境庁環境保健部保健調査室：昭和56年版ケミカルアセスメント・アニュアルレポート，化学物質と環境(1981)

広島市における雨水成分調査(第1報)

小谷茂夫 堂道和彦 片岡真喜夫 山本 修
中本健治 石川 隆* 清岡弘治

雨水成分の実態を把握するため、降り始めから1mm毎に採取した5mmまでの雨水について成分調査を行った。その結果は以下のとおりであった。

- (1) 全試料のpHおよび各成分濃度は、平均値でpH4.3, Na^+ 1.5 $\mu\text{g}/\text{ml}$, NH_4^+ 0.86 $\mu\text{g}/\text{ml}$, Ca^{2+} 1.3 $\mu\text{g}/\text{ml}$, Cl^- 2.8 $\mu\text{g}/\text{ml}$, NO_3^- 2.9 $\mu\text{g}/\text{ml}$, SO_4^{2-} 6.1 $\mu\text{g}/\text{ml}$ であった。
- (2) 全試料でのpH出現状況は、pH4未満の出現率が31%であり、最多出現率はpH4.0~4.4の範囲で38%であった。
- (3) 雨水成分の季節による大きな変化はみられなかったが、夏季は全般的に低い濃度であった。
- (4) 成分間の関係では、 H^+ と相関が認められたのは、 NH_4^+ , NO_3^- , SO_4^{2-} であった。また各陰イオン成分と各陽イオン成分との相関が認められた。

はじめに

近年、欧米では、酸性雨によって森林の枯死、河川・湖沼の酸性化に伴う魚介類の減少などの被害がみられ、特に欧州では多国にまたがる国際問題となっている¹⁾我が国においては、これまでのところ欧米にみられるような生態系への影響という形での被害は報告されていないものの、昭和48年から50年にかけて、関東地方を中心に目や皮膚の刺激という人体被害の形で現われ²⁾酸性雨への関心が高まった。これを契機に、国及び自治体の公害関係研究機関を中心として、雨水成分の実態調査や原因究明のための研究が行われている。

本市においても、雨水成分の実態を把握するため調査を行った。

方 法

1 調査地点

調査地点は、市の北部に位置し、地形的に市内の工場や自動車排出ガスなどからの汚染物質が、気象条件によっては集中しやすく、市域全般の状況を把握し得ると考えられる安佐北区役所屋上とした。その調査地点を図1に示す。

2 調査期間

昭和59年4月から昭和60年3月までの1年間、34降雨について調査を行った。

3 雨水の採取方法

雨水採取装置により、降り始めから降雨5mmまでを1mm毎にそれぞれ100ml採取した。なお、装置の概要を図2に示す。

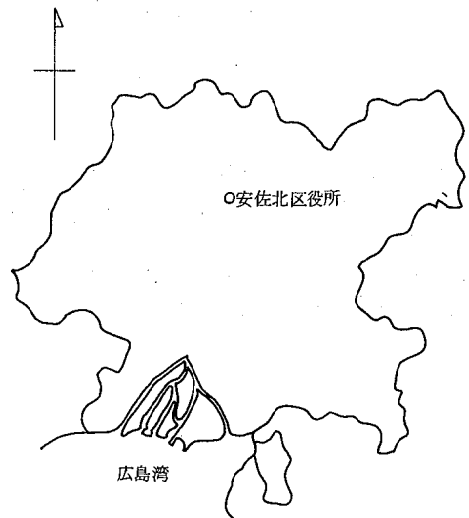


図1 調査地点

4 測定項目及び測定方法

- | | |
|--|-----------------------------|
| (1) pH | ガラス電極法 |
| (2) Na^+ , K^+ | 炎光光度法 |
| (3) Ca^{2+} , Mg^{2+} | 原子吸光光度法 |
| (4) NH_4^+ | インドフェノール法 |
| (5) F^- , Cl^- , NO_3^- | SO_4^{2-} イオンクロマト法 |
| (6) 導電率(E.C.) | 導電率計 |

* 広島市安佐北保健所

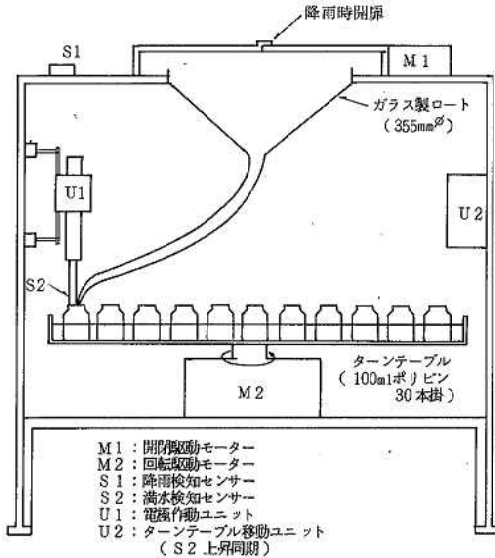


図2 雨水採取装置

結果と考察

1 雨水成分濃度

各雨水成分の1mm毎と全試料の最高値, 最低値, 平均

値及び1mm目と全試料の変動係数を表1に示す。

1mm目の各成分とも変動係数が大きく, 降雨毎の変動がかなり大きいことを示した。

全試料のpHは, 範囲3.5~6.3で平均4.3, NH_4^+ は<0.05~4.6 $\mu\text{g}/\text{ml}$, 平均0.86 $\mu\text{g}/\text{ml}$, Cl^- は0.05~23 $\mu\text{g}/\text{ml}$, 平均2.8 $\mu\text{g}/\text{ml}$, NO_3^- は0.08~14 $\mu\text{g}/\text{ml}$, 平均2.9 $\mu\text{g}/\text{ml}$, SO_4^{2-} は0.19~26 $\mu\text{g}/\text{ml}$, 平均6.1 $\mu\text{g}/\text{ml}$ であった。これを, これまで全国各都市で測定されている濃度^{2) 3) 4)}と比べてみると, NO_3^- , SO_4^{2-} がやや高く, pHはやや低い傾向にあった。

降り始めから5mm目までの濃度の推移をみると, pHと F^- 以外の成分は, 1mm目が高く, 2mm目以降はほとんど変化がなかった。

各成分の平均濃度については, 陽イオンで $\text{N}_a^+ > \text{Ca}^{2+} > \text{NH}_4^+ > \text{K}^+ \approx \text{Mg}^{2+}$, 陰イオンで $\text{SO}_4^{2-} > \text{NO}_3^- \approx \text{Cl}^- > \text{F}^-$ の傾向がみられた。

2 雨水成分のモル濃度

1mm毎のモル濃度を図3に, イオン当量構成比を図4に示す。

SO_4^{2-} と NO_3^- の平均モル濃度の比($\text{SO}_4^{2-}/\text{NO}_3^-$)は2.7であり, 大喜多が検討した結果⁵⁾(関東地方ではその比が1近い所もあるが, 他地域では2以上となっている)とはほぼ同程度であった。

イオン当量構成比については, 陽イオンで $\text{H}^+ > \text{Na}^+$

表1 雨水成分測定結果

	pH	Na^+ ($\mu\text{g}/\text{ml}$)	NH_4^+ ($\mu\text{g}/\text{ml}$)	K^+ ($\mu\text{g}/\text{ml}$)	Ca^{2+} ($\mu\text{g}/\text{ml}$)	Mg^{2+} ($\mu\text{g}/\text{ml}$)	F^- ($\mu\text{g}/\text{ml}$)	Cl^- ($\mu\text{g}/\text{ml}$)	NO_3^- ($\mu\text{g}/\text{ml}$)	SO_4^{2-} ($\mu\text{g}/\text{ml}$)	E.C. ($\mu\text{S}/\text{cm}$)	試料数
1mm目	最高値	6.3	13	4.6	2.3	8.7	2.2	0.92	23	14	26	166
	最低値	3.5	0.28	<0.05	0.11	0.12	0.03	0.00	0.36	0.25	0.44	20
	平均値	4.3	2.2	1.1	0.53	2.0	0.37	0.15	4.2	4.1	8.3	69
	変動係数	14	118	83	104	86	114	133	115	70	74	51
2mm目	最高値	5.8	5.7	2.5	0.48	3.3	1.1	0.47	13	5.7	20	145
	最低値	3.3	0.10	<0.05	0.07	0.00	0.02	0.00	0.05	0.08	0.19	11
	平均値	4.4	1.1	0.68	0.22	0.84	0.17	0.12	2.1	2.3	4.8	48
3mm目	最高値	4.8	4.3	1.9	0.81	5.2	1.0	0.90	6.9	8.6	17	120
	最低値	3.7	0.05	0.11	0.07	0.13	0.02	0.00	0.23	0.46	1.0	12
	平均値	4.3	1.1	0.68	0.23	0.85	0.20	0.13	1.9	2.4	4.8	47
4mm目	最高値	4.8	4.9	2.2	0.72	4.8	0.90	0.72	10	6.1	13	98
	最低値	3.7	0.12	0.11	0.05	0.08	0.02	0.00	0.16	0.22	0.77	10
	平均値	4.3	1.1	0.91	0.25	0.81	0.20	0.15	2.3	2.1	5.0	50
5mm目	最高値	4.8	5.9	1.8	0.47	3.3	1.2	0.60	11	4.7	11	116
	最低値	3.6	0.14	0.16	0.05	0.09	0.00	0.00	0.11	0.38	0.83	11
	平均値	4.3	1.1	0.77	0.19	0.88	0.21	0.15	2.3	2.1	5.2	50
全試料	最高値	6.3	13	4.6	2.3	8.7	2.2	0.92	23	14	26	166
	最低値	3.5	0.05	<0.05	0.05	0.00	0.00	0.00	0.05	0.08	0.19	10
	平均値	4.3	1.5	0.86	0.33	1.3	0.26	0.14	2.8	2.9	6.1	56
	変動係数	12	134	84	115	115	135	129	131	84	85	62

$\approx \text{Ca}^{2+} > \text{NH}_4^+ > \text{Mg}^{2+} > \text{K}^+$, 陰イオンで $\text{SO}_4^{2-} > \text{Cl}^- > \text{NO}_3^- \gg \text{F}^-$ の傾向がみられた。

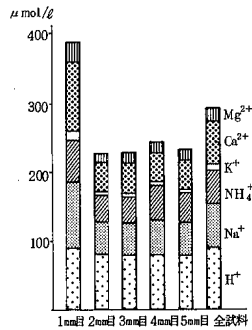


図3-1 陽イオンモル濃度

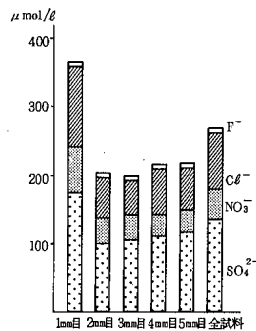


図3-2 陰イオンモル濃度

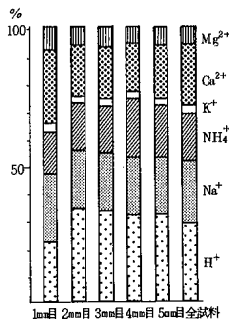


図4-1 陽イオン当量構成比

3 雨水のpH

全試料について、pHの出現状況を図5に示す。

全試料での最多出現率は、pH 4.0~4.4の範囲で38%であった。またpH 5.6以下を一般的には酸性雨と定義しているが、pH 4未満を強酸性雨とすれば、本調査における強酸性雨の出現率は、全試料で31%であった。

広島県が昭和57年に実施した、広島市内の雨水成分調査⁴⁾によると、一降雨中での最低pHは1~4mm目に出現する、そのうち1mm目に60%出現し、2mm目以降は指

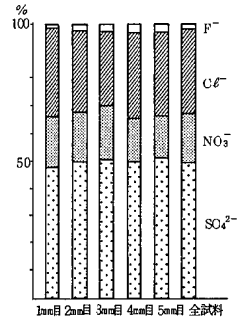


図4-2 陰イオン当量構成比

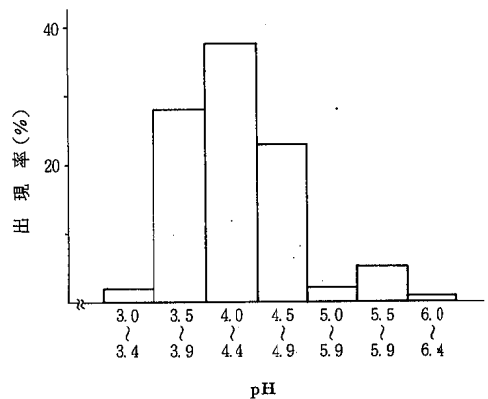


図5 pHの出現状況

数関数的に減少すると報告されている。そこで本調査においても4mm目まで採取できた13降雨について、検討してみた。その結果、1mm目47%、2mm目13%、3mm目13%、4mm目27%であり、1mm目に最低pHの出現する割合は大きかったが、2mm目以降はほぼ横ばいであった。

4 雨水成分の季節別変動

1mm目の雨水成分について、各季節毎の平均値を表2に示す。

各成分とも、季節による大きな変化はみられなかったが、夏季はpH、 Na^+ 、 Ca^{2+} 、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Cl^- 、 NO_3^- が最低値を示すなど全般的に低かった。ここで夏季と冬季について比較すると、 Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Cl^- はそれぞれ夏季0.77 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 、0.13 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 、1.7 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 、冬季3.2 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 、0.54 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 、6.0 $\mu\text{g}/\text{ml}$ と夏季が低く、海からの送風塩の影響は冬季に比べ小さい傾向を示した。

5 雨水成分間の相関

5mm目までの全試料について、各雨水成分間の相関係数を表3に示す。

H^+ との関係についてみると、 NH_4^+ 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、E.C.とは相関がみられたが、他の6成分(Na^+ 、 K^+ 、

Ca²⁺, Mg²⁺, F⁻, Cl⁻)とは相関が認められなかった。

各陽イオン(Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺)と各陰イオン(Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻)との関係については、全てに相関が認められた。また雨水中に溶存する総塩分濃度の指標であるE.C.と他の成分とは、当然ながら相関関がみられ、特にNH₄⁺, NO₃⁻, SO₄²⁻と強い相関が認められた。

各成分間で、強い相関を示したのは(Cl⁻—Na⁺, Mg²⁺), (NH₄⁺—NO₃⁻, SO₄²⁻), (NO₃⁻—SO₄²⁻), (Ca²⁺—Na⁺, Mg²⁺, Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻)であった。

以上のことから、陰イオン成分であるCl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻はpHを低下させる要因となる酸として存在するだけでなく、Na⁺, NH₄⁺, Ca²⁺, Mg²⁺等との塩として存在する割合も大きいことが考えられた。またCl⁻とNa⁺

表2 季節別雨水成分(平均値)

季節(調査月)	春 (3~5)	夏 (6~8)	秋 (9~11)	冬 (12~2)
pH	4.7	4.0	4.1	4.3
Na ⁺ (μg/ml)	2.5	0.77	3.0	3.2
NH ₄ ⁺ (μg/ml)	0.99	1.2	1.2	0.91
Ca ²⁺ (μg/ml)	0.49	0.28	0.56	0.91
K ⁺ (μg/ml)	2.5	1.2	2.7	2.1
Mg ²⁺ (μg/ml)	0.45	0.13	0.46	0.54
F ⁻ (μg/ml)	0.27	0.14	0.13	0.03
Cl ⁻ (μg/ml)	4.3	1.7	6.1	6.0
NO ₃ ⁻ (μg/ml)	4.0	3.7	4.9	4.3
SO ₄ ²⁻ (μg/ml)	8.7	7.6	10	7.3
E.C.(μS/cm)	70	68	83	60

表3 各成分間の相関係数

	H ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	F ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	E.C.
E.C.	0.676**	0.465**	0.857**	0.410**	0.653**	0.528**	0.490**	0.501**	0.804**	0.926**	1.000
SO ₄ ²⁻	0.491**	0.500**	0.879**	0.508**	0.781**	0.583**	0.530**	0.520**	0.822**	1.000	
NO ₃ ⁻	0.385**	0.503**	0.763**	0.518**	0.780**	0.584**	0.479**	0.514**	1.000		
Cl ⁻	-0.138	0.969**	0.384**	0.565**	0.752**	0.917**	0.152	1.000			
F ⁻	0.132	0.210*	0.547**	0.157	0.501**	0.349**	1.000				
Mg ²⁺	-0.142	0.954**	0.471**	0.556**	0.847**	1.000					
Ca ²⁺	-0.038	0.780**	0.598**	0.645**	1.000						
K ⁺	-0.055	0.573**	0.340**	1.000							
NH ₄ ⁺	0.533**	0.350**	1.000								
Na ⁺	-0.193	1.000									
H ⁺	1.000										

** 1%有意

* 5%有意

は相関係数も高く、モル濃度の比(Cl⁻/Na⁺)が1.24と海水の組成⁶⁾である1.17とほぼ一致していることから、海塩粒子の飛来によるものと考えられ、pHを低下させる主要因は、NO₃⁻, SO₄²⁻であると考えられた。

今回は、昭和59年4月から1年間の調査結果をもとに、降り始めから5mmまでの雨水成分について報告したが、今後の課題として、降雨順序による成分濃度変化の詳細な把握、初期降雨とそれを含む1降雨との検討、大気汚染物質及び気象条件との関連等解明すべき点は多く、これらをもつた調査を継続していきたい。

文 献

- 1) 平石尹彦: 酸性雨に係る国際的動向, 環境技術, 12, 828~834(1983)
- 2) 光化学二次生成物質検討会(湿性分科会): 湿性大気汚染調査総合報告書(総括編), 2~106, (1981)
- 3) 玉置元則: 大気汚染と雨水の酸性化, PPM, 15(3), 2~11, (1984)
- 4) 昭和57年度環境庁季託業務結果報告書, 分析の自動化に関する研究(酸性雨測定方法), (1983)
- 5) 大喜多敏一: 酸性雨の物理と化学, 公害対策, 19, 1186~1188(1983)
- 6) 角皆静男: 雨水の分析, 67, 講談社(1972)

蛍光X線分析法による大気浮遊粉じん中の重金属成分の測定

山本 修 堂道和彦 片岡真喜夫 小谷茂夫
 中本健治 石川 隆* 清岡弘治

今回、蛍光X線分析法を用いて浮遊粉じん中の重金属成分を測定するために、標準試料の作製方法等を含めた測定方法の検討を行った。

測定に用いた標準試料は、DDTCキレート沈殿法により作製した。作製条件のうち、キレート沈殿生成の最適pHは6~8の範囲であり、沈殿濾過フィルター上の金属元素の捕集率(回収率)は、ほぼ完全であった。また、ハイボリウムサンプラーで採取した試料フィルター面上での各金属元素の分布は、ほぼ均一であり、特異な分布も認められず、全平均値に対する濃度比は0.94~1.06の範囲であった。

実際の試料について、本法による測定値と原子吸光分析法による測定値の比較を行った結果、対象としたすべての金属元素に関して測定値の相関は良好であったが、原子吸光分析法の測定値の方が低く、その比率は回帰式より0.82~0.86の範囲であった。

はじめに

浮遊粉じん中に含まれる重金属成分については、以前より人体影響や汚染指標として関心を集めており、その重金属成分の分析法としては、種々の方法が提案されている。当所では、従来より原子吸光分析法¹⁾を主として用いてきたが、試料の前処理に伴う種々の操作が必要であり、その前処理操作で誤差を生じやすい。

一方、蛍光X線分析法は、環境試料分析法としてみると非破壊分析という特徴がある。このことは、試料の前処理を必要とせず、問題が起きた時には再分析が可能であるなど環境管理分析を行っていく上で他の分析法にはみられない特徴である。すでに本法を用いた浮遊粒子状物質中の重金属成分の測定も数例報告されているが^{2),3)}当所においてもこのことについて種々の検討を加えた。その検討結果及び本市における測定例を併せて報告する。

方 法

1 採取地点及び採取方法

試料採取は、皆実小学校測定局で行った。採取期間は、昭和58年5月より昭和60年2月である。

試料は、ハイボリウムエアサンプラー(紀本電子工業製、MODEL-120A)を用い、流量約1.4 m³/minで24時間連続してガラス繊維濾紙(ワットマン、EPM-1000)上に採取した。

2 装置及び分析条件

蛍光X線分析装置は、理学電機工業製の全自動蛍光X線分析装置システム3080を用いた。分析は、表1に示す分析条件で行った。

試料測定中は、一次X線を均一に試料面に照射させる

表1 蛍光X線分析条件

X線管	クロム対陰極
管電圧電流	50KV-50mA
分光結晶	フッ化リチウム
検出器	シンチレーションカウンター
X線通路	真 空
波高検出器	微分測定(100-300)
X線強度	定時計数法

ためと試料面での金属元素の偏りを防ぐため毎分30回で試料面を回転させた。また、対象試料が薄膜状であるため、中空アルミニウム製受皿を試料ホルダーとして用い、バックグラウンドのX線強度を低下させるようにした。対象金属元素(Pb, Cu, Zn, Fe, Mn, Ni)の測定スペクトルは、PbはLβ線、Cu・Zn・NiはKα線、Fe・MnはKβ線を用いた。X線強度の測定は、定時計数法(計測時間:通常80秒)で行い、ネットのX線強度の算出は、2点バックグラウンド補正法で行った。このとき、バックグラウンドの測定角度(2θ角)はピークの2θ角の前後0.50°とした。ただし、Mnの場合はMnKβ線の附近にFeKα線(2θ=57.50°)が存在するためバックグラウンドの2θ角は、ピークの2θ角の前後2.60°とした。

3 標準試料の作製

測定対象金属は、大気浮遊粉じん中に最も一般的に存在しているFe, Mn, Pb, Cu, Zn及びNiとした。

標準試料の作製は、DDTCキレート沈殿法⁴⁾により以下の手順で行った。Pb, Cu, Zn, Niについては、2~10 μg/mlの溶液、Fe及びMnについては、5~25 μg/mlの溶液を調製する。これらの溶液を適量分取し、共沈剤としてFe 300 μgあるいはCo 500 μgを添加した後、水で約100 mlとする。BTB指示薬を少量滴下し指示薬の色

* 広島市安佐北保健所

が黄→緑に変化するまで(1+5)アンモニア水を加えPHを調整する。約10分間静置後、2%DDTC溶液10mlを加え十分に攪拌する。時々振り混ぜながら約20分間放置し、室温で沈殿を熟成させる。次に、濾過直径39mmの硬質ガラス製フィルターホルダーを用いてメンブランフィルター(ミリポアフィルターHAWP 04700, ポアサイズ0.45 μm)上へ沈殿物を約1~2分間で吸引濾過する。その後、沈殿物及びフィルターは減圧デシケータ中で乾燥させる。これを標準試料として測定に用いる。

結果と考察

1 標準試料作製条件の検討

(1) 沈殿生成に及ぼすpHの影響と回収率

標準試料の作製時に最も重要なことは、溶液中に存在する金属元素を100%キレート沈殿物としてフィルター上に捕集することである。そこで次の2種類の溶液を調製して検討を行った。

(a) Pb, Cu, Zn, Fe, Mn及びNi各30μgとCo500μgを含む溶液

(b) Pb, Cu, Zn, Mn及びNi各30μgとFe300μgを含む溶液

(a), (b)それぞれの溶液に(1+5)塩酸と(1+1)アンモニア水を用いて、pHを1~11の範囲に変化させる。

その後、DDTC沈殿法に従って操作し、フィルター上へキレート沈殿物を捕集する。この試料に(1+9)硝酸20mlを加え、約80℃の湯浴上でフィルターごと沈殿物を加温溶解したのち、20mlに定容して原子吸光分析法で捕集率(回収率)を求めキレート沈殿物生成へのpHの影響について検討した。その結果を図1に示した。

Pb, Cu, Zn及びNi元素は、pH4~8の範囲で、どちらの共沈剤を用いてもほぼ完全(95~100%)な回収率が得られた。Mnについては、共沈剤の違いにより差がみられCo添加の場合では、pH4~8の範囲で約85%の回収率であったが、Fe添加では、ほぼ完全な回収率が得られた。従って、キレート沈殿生成時のpH範囲は、pH4~8が適当であると考えられるが、酸性領域でのDDTCキレートの安定性を考慮して、標準試料作製時のpH範囲はpH6~8とした。また、共沈剤としては、MnではFe添加の方法を、それ以外の元素についてはFe及びCoとも使用できることが確認できた。

(2) キレート沈殿物の熟成時間

前述の溶液(b)を用いて、pHを6~8に調整し、キレート沈殿物生成へのDDTC溶液添加後の熟成時間の影響を検討し、その結果を図2に示した。

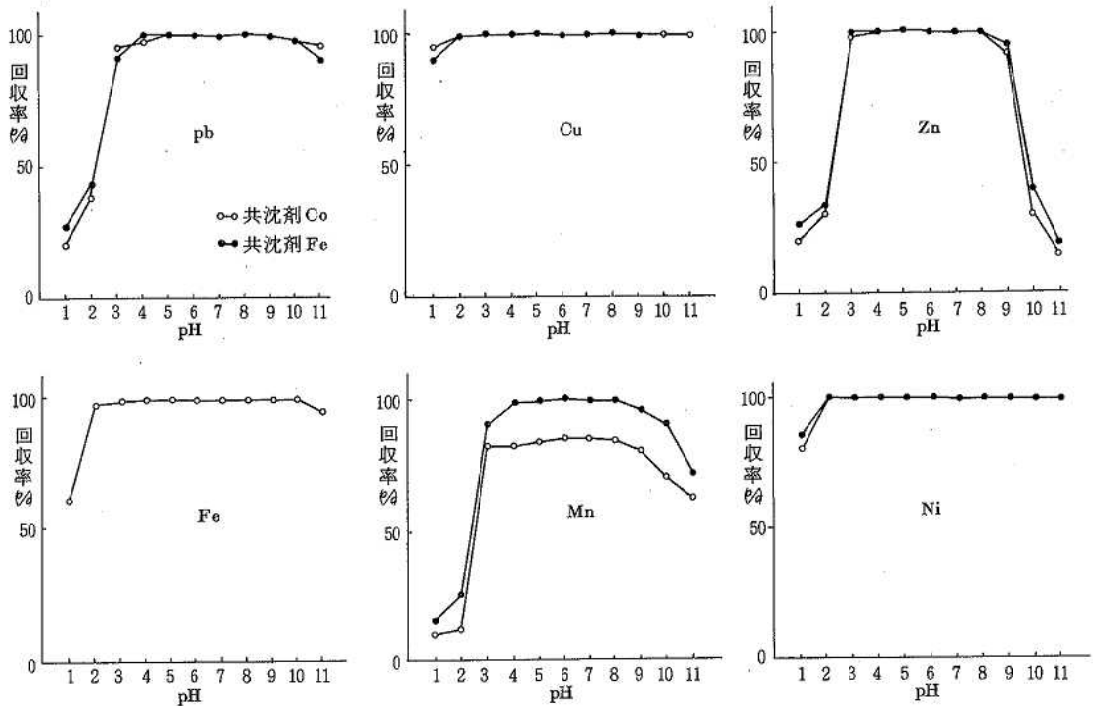


図1 DDTC沈殿物生成へのpHの影響と回収率

熟生時間10分以上で、各元素のX線強度は、ほぼ一定となったので、標準試料作製時の熟成時間は20分以上とした。

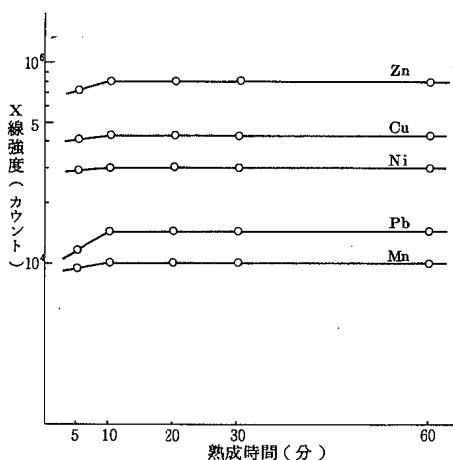


図2 DDTC沈殿物生成への熟成時間の影響

2 検量線

上記の方法で標準試料を作製し、各元素のX線強度を測定して検量線を作成した。その結果を図3に示した。

横軸は、 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ (標準試料作製時の金属添加量をフィルターの沈殿濾過面積で除したもの)であり、縦軸は、

バックグラウンドを差し引いたネットのX線強度(カウント数)である。また、検量線の再現性を調べるために、月1回の割合で1年間標準試料を作製し測定を行った。検量線の傾きの変動係数は、Pb:1.1%、Cu:1.3%、Zn:1.9%、Fe:1.4%、Mn:2.2%、Ni:1.3%といずれも2%前後であり、検量線の再現性は良好であった。

3 検出限界の推定

計測されるX線強度は、検出器に入射したX線光子をパルスとして計数したものであり、本質的な統計的ゆらぎを持っている。このとき理論的に得られる計数值上の標準偏差(6cal)は、 $6\text{ cal} = \sqrt{I_p}$ (I_p はX線強度)であらわされる。また、バックグラウンドを含む場合は、 $6\text{ cal} = \sqrt{(6p + \beta)^2 + (6\beta)^2}$ である。

各金属元素の検出限界の推定は、標準偏差の3倍に相当するX線強度を示す濃度を用いて算出した。ここで、計測時間(T)と検出限界濃度(Y)の関係は、 $Y^2 T = K$ (Kは分析条件及び元素の種類により異なる)の式であらわれ単に計測時間を長くしX線強度(カウント数)を大きくしても検出限界濃度が大きく変らないことと、大気浮遊粉じん中の重金属成分の濃度範囲は、一般にかなり変動があるものの約0.01~数 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であることから、X線強度の計測時間は、80秒とした。

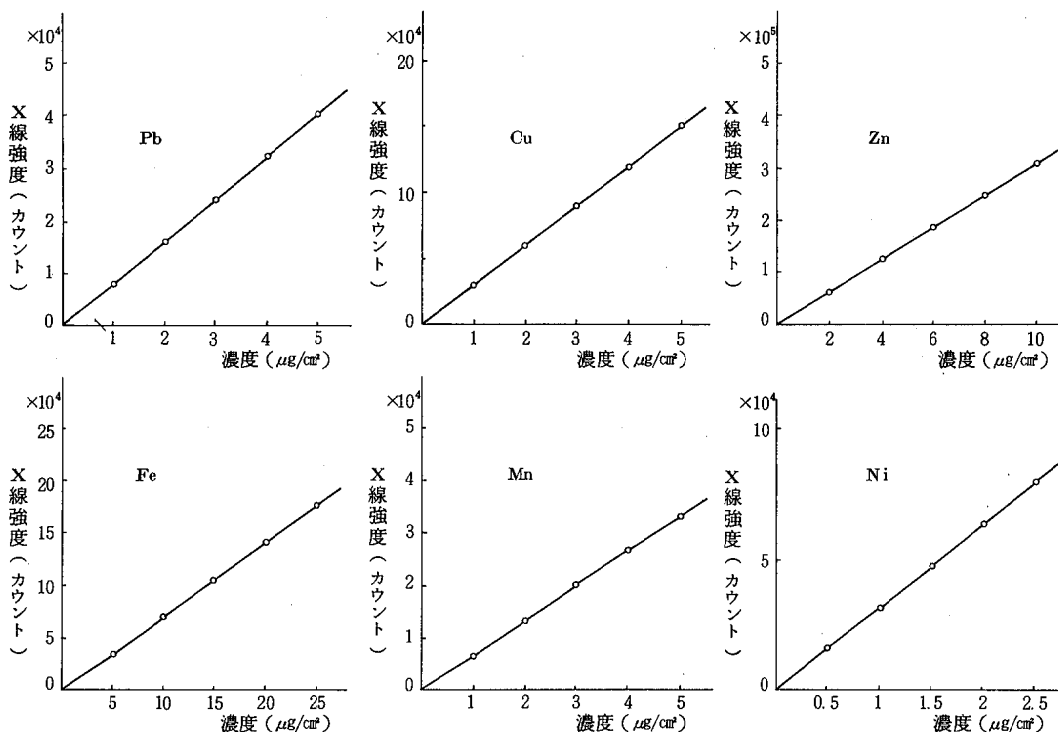


図3 検量線

ハイボリウム試料(採気量2000m³)に換算すると、検出限界濃度はPb:0.0035 μ g/m³, Cu:0.0018 μ g/m³, Zn:0.0020 μ g/m³, Fe:0.0022 μ g/m³, Mn:0.011 μ g/m³, Ni:0.0027 μ g/m³であった。ただし、実試料の分析では低濃度を示すNiや検出限界の高いMn等では、200秒測定(Ni:0.0018 μ g/m³, Mn:0.007 μ g/m³)で分析を行わないと大きい誤差を生じる場合がある。

4 捕集フィルター上の各金属元素の分布

ハイボリウムサンプラーで捕集したフィルター面上での分布を調査するために図4に示すように、フィルター面の11カ所を直径50mm ϕ の円形に打ち抜き、前述の方法でX線強度を測定した。全平均値に対するそれぞれの部位の濃度比を表2に示した。

Pb, Cu, Zn, Fe及びMnの5元素は、周辺部-中央部、縦方向、横方向のいずれの方向にも特異な分布は認められず、濃度比は0.94~1.06の範囲であった。なおNi

については、部位によりバラツキがみられ、濃度比は0.80~1.20の範囲であったことにより以降の検討からは除いた。

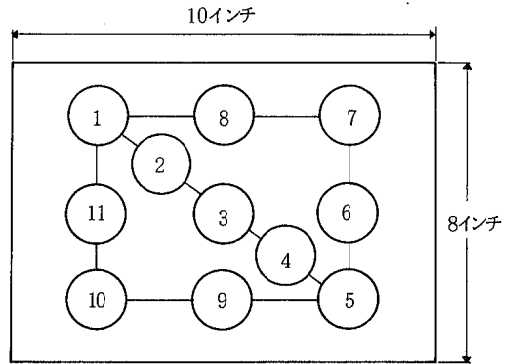


図4 フィルター面上での元素分布調査のための測定部位

表2 捕集フィルター面での金属元素の濃度比

元素名	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	MAX	MIN
Pb	0.98	0.97	1.00	1.04	1.00	1.04	1.01	1.00	1.03	0.96	1.00	1.04	0.96
Cu	0.94	0.95	1.00	1.05	1.06	1.06	1.02	1.00	1.02	0.96	0.94	1.06	0.94
Zn	0.99	0.99	1.02	0.99	1.00	1.03	0.99	1.01	0.98	0.99	1.02	1.03	0.98
Fe	0.99	1.00	1.02	1.00	0.99	1.01	1.01	0.99	0.99	0.98	1.00	1.02	0.98
Mn	1.02	0.95	0.95	0.98	1.03	1.00	0.95	1.06	0.98	0.99	0.98	1.06	0.95
Ni	0.86	1.00	1.04	0.82	1.17	1.01	1.06	1.20	0.80	1.20	0.87	1.20	0.80

5 原子吸光分析法との比較

ハイボリウムサンプラーで捕集した試料について、蛍光X線分析法で測定した値と、また同一の試料を酸抽出法(硝酸-過酸化水素)及び酸分解法(フッ酸-硝酸-過塩素酸)で前処理後、原子吸光分析法で得られた値を比較した。酸抽出法との比較を表3に、酸分解法との比較を表4に示した。

酸抽出法との比較では、すべての元素について測定値の相関は良好(0.972~0.990)であったが、原子吸光分析法による測定値の方が蛍光X線分析法に比べ低く、その比率は測定値の回帰式より、Pb:0.86, Cu:0.84, Zn:0.82, Fe:0.83, Mn:0.83であった。また、酸分解との比較でも同様の傾向がみられ、測定値の相関は0.965~0.987と良好であり、濃度の比率は、Pb:0.95, Cu:0.93, Zn:0.91, Fe:0.91, Mn:0.90であった。

蛍光X線分析法が原子吸光分析法の値に対して酸抽出法で14~18%, 酸分解法で5~10%の偏りがみられる。これらの測定値の差異は、捕集フィルター面での金属元素の偏在や標準試料作製時の沈殿捕集誤差も考えられるが、フィルター面での金属分布は0.94~1.06の範囲であ

表3 実試料についての蛍光X線分析法と原子吸光分析法(酸抽出法)の比較

元素名	回帰式	相関係数	濃度範囲(μ g/m ³)
Pb	y=0.855x-0.002	0.970	0.012~0.135
Cu	y=0.844x-0.004	0.988	0.016~0.196
Zn	y=0.820x+0.002	0.985	0.036~0.427
Fe	y=0.826x-0.004	0.990	0.440~3.41
Mn	y=0.828x+0.002	0.972	0.015~0.121

注) y:原子吸光分析法, x:蛍光X線分析法(μ g/m³)

表4 実試料についての蛍光X線分析法と原子吸光分析法(酸分解法)の比較

元素名	回帰式	相関係数	濃度範囲(μ g/m ³)
Pb	y=0.952x-0.003	0.981	0.022~0.195
Cu	y=0.927x-0.004	0.979	0.032~0.253
Zn	y=0.912x-0.006	0.982	0.042~0.353
Fe	y=0.906x-0.004	0.987	0.367~3.77
Mn	y=0.901x-0.002	0.965	0.019~0.143

り、検量線の再現性も良好な事から、主として原子吸光

分析の際、試料前処理での抽出割合が低いためと考えられる。しかし、両分析法の測定値の相関が良好な事から、大気浮遊粉じん中の重金属成分の分析法として蛍光X線分析法は実用上、十分な精度で測定が可能であることが確認できた。

6 実試料の測定結果

試料は、皆実小学校測定局にてハイボリウムサンプラーで捕集し、直径50mmの円形に打ち抜き、直接蛍光X線分析法により測定を行った。

(1) 大気中の重金属濃度

浮遊粉じん中の重金属成分濃度の年平均値、標準偏差、最高値、最低値について昭和58年度の結果を表5に、昭和59年度の結果を表6に示した。

表5 調査結果(昭和58年度) (μg/m³)

項目	年平均値	標準偏差	最高値	最低値
粉じん	112	50	239	56
Pb	0.072	0.035	0.129	0.014
Cu	0.086	0.036	0.155	0.040
Zn	0.148	0.124	0.464	0.024
Fe	2.175	2.020	7.470	0.473
Mn	0.097	0.056	0.260	0.032

表6 調査結果(昭和59年度) (μg/m³)

項目	年平均値	標準偏差	最高値	最低値
粉じん	105	64	293	56
Pb	0.043	0.022	0.102	0.014
Cu	0.062	0.035	0.123	0.023
Zn	0.133	0.065	0.307	0.066
Fe	2.150	1.620	5.950	0.839
Mn	0.066	0.047	0.190	0.029

この2年間を比較すると、両年度共に年平均値はFeが最も高く、以下Zn, Mn, Cu, Pbの順であった。また、粉じん, Fe及びZnの年平均値は、ほぼ同程度であるが、Pb及びMnについては差が認められた。

(2) 粉じん及び重金属成分の相関

粉じん及び重金属成分の相関について、昭和58年度の結果を表7に、昭和59年度の結果を表8に示した。

両年度共に高い相関が認められたのは、粉じん-Pb, 粉じん-Fe-Mn, Pb-Mnであり、粉じん-Zn, Pb-

表7 粉じん及び重金属成分相関表(昭和58年度)

	粉じん	Pb	Cu	Zn	Fe	Mn
粉じん	1.00					
Pb	0.633**	1.00				
Cu	-0.004	0.233	1.00			
Zn	0.333	0.416	0.678**	1.00		
Fe	0.950**	0.485*	-0.116	0.225	1.00	
Mn	0.921**	0.685**	0.076	0.314	0.853**	1.00

*, ** 危険率5%, 1%有意 N=20

表8 粉じん及び重金属成分相関表(昭和59年度)

	粉じん	Pb	Cu	Zn	Fe	Mn
粉じん	1.00					
Pb	0.655**	1.00				
Cu	0.448*	0.677**	1.00			
Zn	0.807**	0.844**	0.466*	1.00		
Fe	0.711**	0.265	0.327	0.545*	1.00	
Mn	0.988**	0.649**	0.434*	0.834**	0.764**	1.00

*, ** 危険率5%, 1%有意 N=19

Cu, Pb-Znについては、昭和59年度に高い相関が認められた。

今回、蛍光X線分析法による浮遊粉じん中の重金属成分(Pb, Cu, Zn, Fe, Mn)について測定方法の検討を行った。

その結果、原子吸光分析法との相関も良好であり、実用上十分精度よく重金属成分の測定ができることが確認できた。

今後は、大気中の重金属成分だけでなく、粉じんの主要な成分であるケイ素やアルミニウムなどの軽元素の測定にも十分活用してゆく所存である。

文 献

- 1) 橋本芳一 他：大気浮遊粒子状物質中の金属成分の分析方法, 分光研究, 23, (1974)
- 2) 野上祐作 他：大気エアロゾルのけい光X線分析用標準試料の作製, 分析化学, 29, T85~T89(1980)
- 3) 大野勝美 他：大気中浮遊粒子状物質のけい光X線分析の標準化への検討, 公害と対策, 13, 144~151(1976)
- 4) 理学電機工業応用研究室：蛍光X線分析法による環境管理分析

生物学的水質評価法の検討

尾川 健 岩崎幸治 矢野泰正 亀井且博
石川 隆* 清岡弘治

昭和58年から60年にかけて太田川水域と根谷川水域で行った延べ139地点の水生物調査の結果をもとにBODと各種生物学的水質評価法の比較検討を行った。その結果から次のことが分かった。

- (1) BOD値と各種水質評価法の指数を比較すると、生物指数、多様性指数は相関が低く、種の指標性と個体数の相方を考慮した汚濁指数、インディケーター値を用いた汚濁指数、Zelinka-Marivan法から算出したK値は比較的相関が高かった。
- (2) 生物指数は汚濁の程度を低めに評価し、汚濁指数は高めに評価する傾向があった。
- (3) 今回検討した結果では、インディケーター値を用いた汚濁指数が最も適切な評価法であった。

はじめに

近年、全国の多くの湖沼や河川でその水域の水質判定に従来の理化学的水質調査法に加えて生物相を汚染状態の把握に用いる生物学的水質調査法が実施されてきた。この生物学的水質調査法は、理化学的調査法で知ることの難かしい長期的かつ複合的な環境汚染を知ることができるなどの利点をもっており、非常に有効な判定方法である。しかしながら、今まで多く用いられてきた多様性指数(DI)、生物指数(BI)、汚濁指数(PI)による評価の方法は、それぞれ種の指標性が考慮されない、個体数が考慮されない、個体数をそのまま計算式に組込まないなどの理由により、水域の条件によっては評価に適正さを欠くことも多かった。そのため最近では、これらの条件を満たしたより複雑な水質評価法も考えられている。今回、新旧6通りの水質評価法による評価結果をBODによる水質評価結果と比較検討し若干の知見を得たので報告する。

方 法

昭和58年から60年にかけて実施した太田川水域24地点、根谷川水域12地点、計36地点の各4回(ただし太田川水域の4地点と根谷川水域の1地点は各3回)延べ139地点の調査結果をもとに、次に示すような各生物学的水質評価法による水質階級を求め、BODによる評価と比較検討した。なお生物の採集等については、本号(p.93)「太田川水域の底生動物相の群集構成について」と同じ方法で行い、同時にBODの測定を行った。

1 多様性指数(DI)¹⁾

多様性指数には種々の式があるが、今回は Shannon の式を使用した。

$$DI = -\sum (Ni/N) \log_2 (Ni/N)$$

* 広島市安佐北保健所

N : 総個体数

Ni : i 番目の種の個体数

2 生物指数(BI)²⁾

出現した種を汚濁に耐えない種と汚濁に耐え得る種に分け、それぞれに属する種数をA、Bとし次式により算出する。

$$BI = 2A + B$$

生物指数に対応する水質階級は次のとおりである。

BI	水質階級
0~5	強腐水性(PS)
6~10	α -中腐水性(α -ms)
11~19	β -中腐水性(β -ms)
20 \leq	貧腐水性(OS)

3 汚濁指数(PI)²⁾

出現した種の指標性を4段階に、その種の個体数(出現頻度)を3段階に分けて、次式により算出する。

$$PI = \sum (S \cdot h) / \sum h$$

S : 汚濁階級 h : 出現頻度

貧腐水性	S = 1	1個体	h = 1
β -中腐水性	S = 2	2~9個体	h = 2
α -中腐水性	S = 3	10個体以上	h = 3
強腐水性	S = 4		

汚濁指数に対応する水質階級は次のとおりである。

PI	水質階級
1.0~1.5	貧腐水性(OS)
1.5~2.5	β -中腐水性(β -ms)
2.5~3.5	α -中腐水性(α -ms)
3.5~4.0	強腐水性(PS)

4 インディケーター値を用いた汚濁指数³⁾

指標となる生物にも生活環境に対する選択性が強い種と弱い種があり、選択性の強い種ほど生物指標としての価値は高い。この環境選択性をもとに1から5までのI

ンディケーター値を設定し、汚濁指数の式に組み入れたのがこの方法(以下PI(g)と略す)である。

$$PI(g) = \sum s \cdot h \cdot g / \sum h \cdot g$$

s : 汚濁階級

h : 出現頻度

g : インディケーター値

5 Zelinka-Marvan 法⁴⁾ (以下ZM法と略す)

ひとつの種がひとつの汚濁階級の水域だけに生息するとは言えない。ある種の指標性の重点がどの汚濁階級にあるかを表わしたのがザプロビ値である。このザプロビ値とインディケーター値を使い次の式から階級を評価する。

貧腐水性(OS)の評価平均は $\sum a \cdot h \cdot g / \sum h \cdot g$

β -中腐水性(β -ms)の評価平均は $\sum b \cdot h \cdot g / \sum h \cdot g$

h : 個体数

h : 個体数

g : インディケーター値

a : 貧腐水性(OS)に対するザプロビ値

b : β -中腐水性(β -ms)に対するザプロビ値

以下 α -中腐水性(α -ms), 強腐水性(PS)について

も同様の計算を行い、評価平均の最も大きい階級をその地点の水質階級とする。

6 Zelinka-Marvan 法のK値による評価法⁵⁾

ZM法では階級ごとに計算を行うため、水質階級の評価はできても連続的な指数として表わすことができない。これを連続的な指数として表わしたのが次式のK値である。

$$K = (4A + 3B + 2C + D) / 10$$

A : 貧腐水性(OS)の評価平均値

B : β -中腐水性(β -ms)の評価平均値

C : α -中腐水性(α -ms)の評価平均値

D : 強腐水性(PS)の評価平均値

結 果

1 各水質評価法による指数とBODとの相関

各水質評価法による指数とBODを表1に示し、またそれぞれの指数間の相関係数を表2に示す。相関係数はBODの対数値を用いて算出した。

表1. 各水質評価法による指数と評価結果

St. No	PI		BI		PI		PI(g)		ZM法の評価平均				K 値		BOD	
	指数	階級	指数	水質階級	指数	水質階級	指数	水質階級	OS	β -ms	α -ms	PS	指数	水質階級	ppm	水質階級
1	2.89	47 OS	1.30	OS	1.25	OS	6.97	OS	2.90	0.13	0	0	3.68	OS	0.5	OS
	3.63	74 OS	1.13	OS	1.09	OS	6.41	OS	3.40	0.19	0	0	3.62	OS	1.0	OS
	4.04	78 OS	1.24	OS	1.26	OS	7.28	OS	2.61	0.11	0	0	3.72	OS	0.4	OS
	1.50	32 OS	1.13	OS	1.06	OS	8.28	OS	1.72	0	0	0	3.83	OS	1.3	OS
2	3.51	63 OS	1.32	OS	1.19	OS	6.85	OS	3.02	0.14	0	0	3.67	OS	0.5	OS
	3.61	61 OS	1.27	OS	1.14	OS	6.60	OS	3.24	0.16	0	0	3.64	OS	1.1	OS
	3.82	62 OS	1.20	OS	1.18	OS	6.75	OS	3.13	0.12	0	0	3.66	OS	0.4	OS
	3.43	73 OS	1.15	OS	1.12	OS	5.96	OS	3.79	0.24	0	0	3.57	OS	1.3	OS
3	3.37	74 OS	1.28	OS	1.21	OS	7.40	OS	2.56	0.04	0	0	3.74	OS	0.5	OS
	3.41	56 OS	1.14	OS	1.11	OS	6.81	OS	3.05	0.14	0	0	3.67	OS	1.0	OS
	3.93	59 OS	1.27	OS	1.28	OS	6.17	OS	3.57	0.26	0	0	3.59	OS	0.6	OS
4	3.33	63 OS	1.38	OS	1.33	OS	6.82	OS	3.08	0.11	0	0	3.67	OS	1.3	OS
	2.92	71 OS↑	1.33	OS↑	1.19	OS↑	5.27↑	OS↑	4.33	0.40	0	0	3.49	β -ms	2.8	β -ms
5	3.39	46 OS	1.34	OS	1.32	OS	5.81	OS	3.80	0.39	0	0	3.54	OS	1.2	OS
	3.49	61 OS	1.35	OS	1.30	OS	6.40	OS	3.38	0.22	0	0	3.62	OS	0.4	OS
	3.47	66 OS	1.26	OS	1.17	OS	6.16	OS	3.61	0.23	0	0	3.59	OS	1.2	OS
6	3.54	58 OS	1.41	OS	1.31	OS	5.72	OS	3.77	0.50	0	0	3.52	OS	0.8	OS
	3.21	56 OS	1.28	OS	1.19	OS	6.87	OS	3.09	0.03	0	0	3.68	OS	0.5	OS
	3.18	65 OS	1.15	OS	1.13	OS	6.92	OS	3.02	0.06	0	0	3.69	OS	1.1	OS
	3.78	51 OS	1.30	OS	1.24	OS	5.15	OS	4.36	0.49	0	0	3.47	β -ms↓	0.6	OS
7	3.52	63 OS	1.36	OS	1.23	OS	6.39	OS	3.58	0.02	0.01	0	3.63	OS	1.8	OS
	3.95	39 OS	1.65	β -ms↓	1.42	OS	5.38	OS	3.88	0.74	0	0	3.46	β -ms↓	0.9	OS
	3.53	70 OS	1.34	OS	1.14	OS	7.97	OS	1.96	0.07	0	0	3.79	OS	1.5	OS
	3.11	54 OS	1.38	OS	1.36	OS	5.97	OS	3.90	0.12	0	0	3.58	OS	0.5	OS
	3.67	64 OS	1.45	OS	1.20	OS	7.08	OS	2.90	0.03	0	0	3.71	OS	1.8	OS

8	0.81	16	β -ms↓	2.00	β -ms↓	1.30	OS	(6.60)	3.27	0.13	0	3.65	OS	0.9	OS
	0.99	8	α -ms↓	2.70	α -ms↓	1.00	OS↑	(7.00)↑	3.00	0	0	3.70	OS↑	2.7	β -ms*
	1.26	23	OS	1.93	β -ms↓	1.52	β -ms↓	(5.73)	3.96	0.31	0	3.54	OS	1.4	OS
9	2.07	28	OS	1.79	β -ms↓	1.39	OS	(6.60)	2.92	0.48	0	3.61	OS	0.2	OS
	1.05	64	OS	1.34	OS	1.13	OS	(7.89)	2.09	0.03	0	3.79	OS	0.5	OS
	2.82	41	OS	1.34	OS	1.28	OS	4.58	(4.68)↓	0.74	0	3.38	β -ms↓	0.5	OS
10	0.75	34	OS	1.44	OS	1.16	OS	(8.05)	1.61	0.34	0	3.77	OS	1.4	OS
	3.52	59	OS	1.33	OS	1.14	OS	(7.41)	2.50	0.09	0	3.73	OS	0.5	OS
	3.96	74	OS	1.19	OS	1.08	OS	(6.90)	2.94	0.16	0	3.67	OS	0.8	OS
	3.53	48	OS	1.39	OS	1.22	OS	(6.27)	3.48	0.25	0	3.60	OS	0.5	OS
11	4.21	62	OS	1.16	OS	1.07	OS	(7.43)	2.48	0.09	0	3.73	OS	1.0	OS
	2.64	46	OS	1.19	OS	1.02	OS	(8.23)	1.77	0	0	3.82	OS	0.4	OS
	3.70	61	OS	1.18	OS	1.08	OS	(8.04)	1.91	0.04	0	3.80	OS	0.7	OS
	3.42	65	OS	1.25	OS	1.13	OS	(7.24)	2.69	0.07	0	3.72	OS	0.3	OS
12	4.07	79	OS	1.13	OS	1.04	OS	(7.61)	2.32	0.07	0	3.75	OS	1.3	OS
	2.59	42	OS	1.37	OS	1.14	OS	(7.28)	2.71	0.01	0	3.73	OS	0.4	OS
	3.28	69	OS	1.24	OS	1.13	OS	(7.40)	2.49	0.10	0	3.73	OS	0.8	OS
	3.40	65	OS	1.32	OS	1.23	OS	(6.43)	3.36	0.21	0	3.62	OS	0.6	OS
13	3.87	75	OS	1.20	OS	1.11	OS	(7.30)	2.60	0.10	0	3.72	OS	1.7	OS
	3.00	53	OS	1.23	OS	1.10	OS	(8.78)	1.21	0.02	0	3.88	OS	1.1	OS
	3.22	52	OS	1.23	OS	1.10	OS	(7.19)	2.63	0.18	0	3.70	OS	1.7	OS
	3.43	45	OS	1.37	OS	1.19	OS	(7.32)	2.60	0.08	0	3.72	OS	0.9	OS
14	3.33	74	OS	1.12	OS	1.08	OS	(6.58)	3.18	0.24	0	3.63	OS	2.0	OS
	2.91	48	OS	1.40	OS	1.13	OS	(7.86)	2.13	0.01	0	3.79	OS	0.5	OS
	3.32	45	OS	1.35	OS	1.14	OS	(7.26)	2.64	0.10	0	3.72	OS	0.8	OS
	2.58	47	OS	1.29	OS	1.25	OS	(6.89)	3.02	0.09	0	3.68	OS	0.9	OS
15	3.49	58	OS	1.18	OS	1.13	OS	(7.22)	2.72	0.06	0	3.72	OS	1.9	OS
	1.38	21	OS	1.40	OS	1.00	OS	(7.05)	2.95	0	0	3.71	OS	0.6	OS
	0.82	16	β -ms↓	1.26	OS	1.14	OS	(6.90)	3.04	0.06	0	3.68	OS	1.3	OS
	2.12	33	OS	1.33	OS	1.14	OS	(8.22)	1.77	0.01	0	3.82	OS	1.1	OS
16	3.34	56	OS	1.20	OS	1.11	OS	(6.31)	3.45	0.24	0	3.61	OS	1.4	OS
	2.29	20	OS	1.69	β -ms↓	1.29	OS	(6.63)	3.28	0.09	0	3.65	OS	2.3	OS
	1.02	26	OS↑	1.70	β -ms	1.37	OS↑	(6.30)↑	3.53	0.17	0	3.61	OS↑	3.8	β -ms
	1.05	19	β -ms↑	1.89	β -ms↑	1.61	β -ms↑	(5.33)↑	3.54	1.11	0.03	3.42	β -ms↑	5.9	α -ms*
17	2.12	36	OS↑	1.80	β -ms	1.32	OS↑	(4.48)↑	3.45	2.07	0	3.24	β -ms	3.8	β -ms
	2.54	39	OS	1.49	OS	1.17	OS	(9.13)	0.82	0.05	0	3.91	OS	1.7	OS
	2.83	31	OS	1.41	OS	1.13	OS	(7.26)	2.60	0.14	0	3.71	OS	1.9	OS
	3.38	40	OS	1.26	OS	1.25	OS	(7.35)	2.58	0.07	0	3.73	OS	0.3	OS
18	3.12	51	OS↑	1.22	OS↑	1.09	OS↑	(6.48)↑	3.26	0.26	0	3.62	OS↑	2.8	β -ms*
	2.54	36	OS	1.38	OS	1.13	OS	(7.15)	2.82	0.03	0	3.71	OS	2.0	OS
	1.74	34	OS↑	1.35	OS↑	1.10	OS↑	(7.18)↑	2.74	0.08	0	3.71	OS↑	2.7	β -ms*
	1.38	16	β -ms	2.14	β -ms	1.96	β -ms	(5.89)↑	2.82	0.57	0.73	3.39	β -ms	3.5	β -ms
19	2.28	23	OS↑↑↑	1.81	β -ms↑↑	1.45	OS↑↑↑	(6.59)↑↑	3.01	0.40	0	3.62	OS↑↑↑	16.2	PS*
	3.32	59	OS	1.27	OS	1.09	OS	(8.76)	1.20	0.01	0.03	3.87	OS	0.3	OS
	3.60	55	OS	1.28	OS	1.04	OS	(7.96)	1.99	0.05	0	3.79	OS	0.3	OS
	2.81	60	OS	1.25	OS	1.04	OS	(8.87)	1.12	0.01	0	3.89	OS	0.3	OS
20	4.02	63	OS	1.28	OS	1.04	OS	(8.52)	1.42	0.05	0	3.85	OS	0.9	OS
	3.32	48	OS	1.31	OS	1.08	OS	(8.64)	1.34	0.01	0	3.86	OS	0.4	OS
	3.32	46	OS	1.35	OS	1.06	OS	(8.19)	1.76	0.05	0	3.81	OS	0.4	OS
	3.15	50	OS	1.29	OS	1.06	OS	(7.11)	2.86	0.03	0	3.71	OS	0.2	OS

20	4.01	69	OS	1.28	OS	1.04	OS	(7.61)	2.28	0.11	0	3.75	OS	1.8	OS
21	2.49	36	OS	1.47	OS	1.13	OS	(8.90)	1.08	0.02	0	3.89	OS	0.6	OS
	2.49	44	OS	1.25	OS	1.05	OS	(6.78)	3.15	0.07	0	3.67	OS	0.6	OS
	2.23	42	OS	1.63	β -ms↓	1.52	β -ms↓	(6.17)	3.38	0.28	0.17	3.56	OS	1.1	OS
	2.24	50	OS↑	1.43	OS↑	1.27	OS↑	(6.83)↑	3.14	0.01	0.02	3.68	OS↑	2.6	β -ms*
22	1.39	28	OS	2.00	β -ms↓	1.48	OS	1.16	2.02	(6.82)↓	0	2.43	α -ms↓	1.6	OS
	0.87	18	β -ms	2.20	β -ms	1.63	β -ms	1.31	2.01	(6.68)↓	0	2.46	α -ms↓	4.0	β -ms
	2.07	27	OS↑	2.31	β -ms	1.79	β -ms	2.16	1.92	(5.65)↓	0.27	2.60	β -ms	4.4	β -ms
	1.24	21	OS↑	2.29	β -ms	1.63	β -ms	2.61	2.27	(5.11)↓	0	2.75	β -ms	4.4	β -ms
23	1.47	19	β -ms	2.28	β -ms	1.61	β -ms	(3.89)↑	2.51	3.60	0	3.03	β -ms	3.0	β -ms
	1.34	21	OS↑↑	2.23	β -ms↑	1.93	β -ms↑	(4.37)↑	3.64	0.78	1.21	3.12	β -ms↑	8.7	α -ms*
	2.58	24	OS↑	2.52	α -ms↓	2.27	β -ms	1.93	2.84	(4.66)↓	0.58	2.61	β -ms	3.6	β -ms
	1.57	19	β -ms↑↑	2.45	β -ms↑↑	2.14	β -ms↑↑	2.33	2.43	(4.61)↑	0.63	2.64	β -ms↑↑	14.2	PS*
24	1.87	21	OS	1.88	β -ms↓	1.64	β -ms↓	(5.96)	2.77	1.21	0.06	3.46	β -ms↓	1.0	OS
	2.23	23	OS↑	1.97	β -ms	1.78	β -ms	(6.69)↑	2.62	0.54	0.16	3.58	OS↑	2.7	β -ms
	1.40	19	β -ms↑	2.48	β -ms↑	2.22	β -ms↑	1.39	1.63	(4.87)	2.12	2.23	α -ms	7.5	α -ms
	2.08	34	OS↑↑	1.93	β -ms↑	1.52	β -ms↑	3.46	1.98	(4.54)	0.01	2.89	β -ms↑	6.5	α -ms
25	3.61	47	OS	1.26	OS	1.05	OS	(7.99)	1.93	0.07	0.01	3.79	OS	0.5	OS
	3.54	67	OS	1.20	OS	1.05	OS	(7.79)	2.20	0.01	0	3.78	OS	0.3	OS
	3.73	60	OS	1.31	OS	1.04	OS	(7.85)	2.14	0.02	0	3.78	OS	0.6	OS
	4.46	83	OS	1.27	OS	1.05	OS	(8.21)	1.76	0.03	0	3.82	OS	1.0	OS
26	3.75	65	OS	1.23	OS	1.05	OS	(8.35)	1.62	0.03	0	3.83	OS	0.2	OS
	4.06	69	OS	1.18	OS	1.08	OS	(7.83)	2.12	0.06	0	3.78	OS	0.5	OS
	3.73	89	OS	1.11	OS	1.04	OS	(8.02)	1.90	0.07	0	3.79	OS	0.9	OS
	4.29	90	OS	1.16	OS	1.06	OS	(7.40)	2.46	0.13	0	3.73	OS	1.2	OS
27	2.45	43	OS	1.30	OS	1.03	OS	(8.04)	1.92	0.03	0	3.80	OS	0.5	OS
	3.83	50	OS	1.10	OS	1.07	OS	(7.28)	2.70	0.02	0	3.73	OS	0.4	OS
	3.81	74	OS	1.16	OS	1.06	OS	(7.74)	2.20	0.06	0	3.77	OS	0.9	OS
	3.76	81	OS	1.16	OS	1.13	OS	(8.33)	1.58	0.09	0	3.83	OS	1.4	OS
28	2.33	43	OS	1.35	OS	1.06	OS	(8.28)	1.69	0.03	0	3.82	OS	0.9	OS
	3.26	60	OS	1.24	OS	1.13	OS	(7.37)	2.57	0.06	0	3.73	OS	0.3	OS
	3.32	73	OS	1.18	OS	1.10	OS	(7.46)	2.44	0.10	0	3.74	OS	1.1	OS
	3.32	63	OS	1.17	OS	1.11	OS	(6.34)	3.42	0.24	0	3.61	OS	1.6	OS
29	0.67	24	OS	1.58	β -ms↓	1.10	OS	(8.74)	1.24	0.02	0	3.87	OS	1.2	OS
	3.32	52	OS	1.40	OS	1.28	OS	(6.30)	3.43	0.27	0	3.60	OS	0.3	OS
	2.91	74	OS	1.22	OS	1.16	OS	(5.52)	4.08	0.41	0	3.51	OS	0.9	OS
	2.95	66	OS	1.38	OS	1.16	OS	(5.70)	3.99	0.31	0	3.54	OS	1.7	OS
30	0.88	24	OS	1.83	β -ms↓	1.15	OS	(6.89)	3.01	0.10	0	3.68	OS	1.3	OS
	3.25	39	OS	1.57	β -ms↓	1.49	OS	(6.21)	3.36	0.41	0.02	3.58	OS	1.3	OS
	2.74	54	OS	1.46	OS	1.33	OS	(5.86)	3.31	0.83	0.01	3.50	OS	1.6	OS
	3.39	68	OS	1.63	β -ms↓	1.31	OS	(5.85)	3.26	0.89	0	3.50	OS	1.6	OS
31	2.00	41	OS	1.58	β -ms↓	1.25	OS	(6.63)	3.13	0.24	0	3.64	OS	1.3	OS
	3.09	40	OS	1.54	β -ms↓	1.41	OS	(6.03)	3.34	0.61	0.01	3.54	OS	1.3	OS
	2.97	68	OS	1.40	OS	1.24	OS	(6.23)	3.58	0.19	0	3.60	OS	1.1	OS
	4.18	79	OS	1.50	OS	1.26	OS	(6.31)	3.38	0.31	0	3.60	OS	1.5	OS
32	1.20	32	OS	1.60	β -ms↓	1.33	OS	(7.42)	2.19	0.35	0.04	3.70	OS	1.5	OS
	2.75	39	OS	1.44	OS	1.30	OS	(6.11)	3.59	0.30	0	3.58	OS	1.8	OS
	2.96	60	OS	1.35	OS	1.14	OS	(5.86)	3.87	0.28	0	3.56	OS	1.2	OS
	3.47	69	OS	1.36	OS	1.26	OS	(6.21)	3.56	0.23	0	3.60	OS	1.5	OS
33	1.18	41	OS↑	1.45	OS↑	1.30	OS↑	(6.76)↑	2.88	0.34	0.02	3.64	OS↑	2.5	β -ms*

33	2.81	34	OS↑	1.69	β -ms	1.64	β -ms	5.27↑	3.84	0.88	0	3.44	β -ms	2.5	β -ms
	2.06	42	OS↑↑	1.82	β -ms↑	1.65	β -ms↑	1.80	2.37	5.83	0	2.60	β -ms↑	6.2	α -ms
34	1.92	34	OS	1.49	OS	1.05	OS	7.24	2.74	0.02	0	3.72	OS	0.3	OS
	3.85	35	OS	1.13	OS	1.08	OS	7.71	2.25	0.04	0	3.77	OS	0.6	OS
	3.26	59	OS	1.25	OS	1.06	OS	7.96	2.01	0.03	0	3.79	OS	0.5	OS
	3.49	70	OS	1.08	OS	1.06	OS	7.71	2.23	0.06	0	3.77	OS	1.4	OS
35	1.33	38	OS	1.69	β -ms↓	1.27	OS	5.79	3.08	1.04	0.09	3.46	β -ms↓	0.8	OS
	3.03	42	OS	1.56	β -ms↓	1.20	OS	5.02	4.53	0.46	0	3.46	β -ms↓	1.1	OS
	2.15	53	OS	1.73	β -ms↓	1.43	OS	4.63	4.75↓	0.58	0.03	3.40	β -ms↓	1.3	OS
	2.73	69	OS	1.51	β -ms↓	1.21	OS	4.91	4.57	0.52	0	3.44	β -ms↓	1.3	OS
36	3.25	51	OS	1.39	OS	1.11	OS	8.34	1.57	0.09	0	3.83	OS	1.0	OS
	3.91	72	OS	1.24	OS	1.10	OS	7.66	2.26	0.08	0	3.76	OS	0.3	OS
	3.25	70	OS	1.19	OS	1.10	OS	6.13	3.55	0.31	0	3.58	OS	0.5	OS
	3.07	77	OS	1.18	OS	1.11	OS	7.64	2.28	0.08	0	3.76	OS	1.4	OS

注1) ZM法の評価平均が○で囲んであるものは、ZM法で判定した水質階級を示す。

注2) BODで判定した水質階級と比較して、汚濁がわに判定したものに↓、清冽がわに判定したものに↑を記し、判定した水質階級が2段階異なるものには↑↑あるいは↓↓、3段階異なるものには↑↑↑または↓↓↓を記入した。

注3) BODでの水質階級に*の付いたものは、他の評価法のいずれとも一致しないものである。

表2 相関係数 (n=139)

	DI	BI	PI	PI(g)	K値	BOD(対数)
DI	1.000	0.795	-0.663	-0.438	0.393	-0.437
BI		1.000	-0.730	-0.539	0.418	-0.384
PI			1.000	0.814	-0.740	0.598
PI(g)				1.000	-0.805	0.598
K値					1.000	-0.580
BOD(対数)						1.000

PI, PI(g), K値はBODと0.580~0.598の相関を示している。しかしDI, BIはそれぞれ0.384~0.437と他の指数と比べて相関関係は低かった。またPI, PI(g), K値は互いに0.740~0.814の相関にあり、DIとBIは0.795と田中⁶⁾が指適したとおり高い相関であった。

2 各水質評価法による水質階級とBODによる水質階級の比較

各水質評価法による水質階級を表1に、各水質評価法による水質階級とBODによる水質階級の異なる個数および異なる度合の総数を表3に示す。なおK値による水質階級は、 $4 \geq K \geq 3.5$ はOS, $3.5 > K \geq 2.5$ は β -ms, $2.5 > K \geq 1.5$ は α -ms, $1.5 > K \geq 1$ はPSとし、PI(g)による評価はPIに準じた。またBODによる水質階級は津田⁷⁾に従って2.5ppm未満をOS, 2.5ppm以上5ppm未満を β -ms, 5ppm以上10ppm未満を α -

ms, 10ppm以上をPSとした。ただしDIと水質階級との関連は明確になっていないのでBODによる水質階級との比較は行なわなかった。

表3 各評価法による水質評価とBODによる水質評価の比較

	BI	PI	PI(g)	ZM法	K値
水質階級の異なった判定をした件数	13	24	9	14	14
(1)清冽がわに評価しすぎた度合の総数	+13	+4	+6	+7	+4
(2)汚濁がわに評価しすぎた度合の総数	-2	-20	-3	-8	-11
(1)+(2)度合の総数	+11	-16	+3	-1	-7

注1) BOD値による水質評価結果が他の方法による水質評価のいずれとも一致しないときは、BOD値による評価に問題があるとして除外した。

注2) 水質判定結果が1階級異なった場合度合を1, 2階級異なった場合は度合を2とした。

注3) 表1中の↑を+1, ↓を-1とした。

各評価法での結果はBODがOSと判定された地点では比較的良くBODと一致しているが、 β -ms, α -msと汚濁した地点ではBODとの評価が異なり、また各評価法間でも違いがあった。それぞれの評価法での水質階級とBODでの水質階級が異なった割合はBIが10%, PIが18%, PI(g)が7%, ZM法が11%, K値が11%であった。また評価の階級が2段階異なったものはBIで2件、ZM法とK値が各1件でありPIとPI(g)では無かった。異なる度合の総数を見ると負の値になったものはPI, ZM法, K値であり、正の値になったものはBIとPI(g)

であった。特にBIは+11で清冽がわに評価する傾向にあり、またPIは-16で汚濁がわに評価する傾向にあった。

考 察

河川の有機汚濁を表わす理化学的方法のなかでBODは最も良くその汚濁の程度を示すもののひとつと考えられている。ただし、河川の性状は時間とともに変化しており、瞬時瞬時の値であるBOD値を平均的な河川の汚濁状態を示したものとして評価に用いるには慎重が必要である。今回使用したBODの値は生物調査と同時に測定した1回だけのものであり、誤差を妨ぐためBODでの水質階級が他の方法での水質階級のいずれとも一致しない場合は比較対照から除いた。

各指数間の相関を見るとDI、BIはBODとの相関は低いものの互いに高い相関にあった。またPI、PI(g)、K値はBODとの相関も比較的高く互いに高い相関を示していた。このことは種ごとの指標性と個体数の相方を考慮した評価法が適切な値を示したと言える。

各評価法での水質階級とBODでの水質階級を比較してみるとBIは汚濁の程度を低めに評価する傾向にあった。またBODとの相関も低く、種の分類が進んだ現在ではそれぞれの水質階級に対応する値を検討し直すか地点間を比較する目安の数値として扱うか検討の時期と思われる。一方、PIは汚濁の程度を高めに評価する傾向にあった。PIは生物の汚濁階級や出現頻度を単純化し過ぎる傾向にあり、時に現状を把握しきれない面もあると思われる。これに対しZM法、K値はインディケータ値、サブロビ値、出現個体数を計算に組込む評価法であり複雑な計算を伴うものの生物のもつ多くの情報を評価に反映させると言う利点がある。しかしZM法ではSt.23の1回目、St.24の4回目に見られるように評価平均が2つのかけはなれた階級で共に高い値を示

すこともあり水質階級の判定に大幅なずれを生じるおそれもある。ZM法を連続した指数で表わしたK値ではこのような欠点はないが階級に対応する値の検討が必要である、またZM法は出現個体数をそのまま計算式に組込むため出現頻度のきわめて高い種の影響が大きくなり過ぎる、出現頻度に出現個体数をそのまま用いるのではなく、種ごとの生息可能個体数を加味した値を用いればより適切な評価が得られると考える。今回の調査でBODとの相関、評価結果いずれもよく一致していたのはPI(g)であり最も適切な方法であると考えられた。今回の結果からはPI(g)はPIの良い面にインディケータ値を加味した適切な水質評価法と言える。しかしながら今回調査を行った水域はOSと判定される水域が大部分であり、汚濁した水域でのデータに乏しいため、今後さらにデータを積重ね検討してゆくことが必要である。

文 献

- 1) 渡辺直：多様性指数による生物学的な水質判定，用水と廃水，15，725～730（1973）
- 2) 津田松苗 他：biotic indexとpullution index，水処理技術，15，457～462（1974）
- 3) Landesamt für Wasser und Abfall Nordrhein-Westfalen, Wasserwirtschaft Nordrhein-Westfalen (1982)
- 4) 御勢久右衛門：Zelinka-Marvanによる肉眼的底生動物のザプロビ値，インディケータ値の適用への試み，水処理生物誌，14，9～17（1978）
- 5) 足立雅彦 他：生物指標による水質評価の試み，京都府衛公研年報，28，70～75（1983）
- 6) 中雄二郎：biotic indexとdiversity indexの関係，水処理生物誌，9，1～3（1972）
- 7) 津田松苗 他：生物による水質調査法，102～103，山海堂（1974）

太田川水域の底生動物相の群集構成

矢野泰正 岩崎幸治 尾川 健 亀井且博
石川 隆* 清岡弘治

昭和58, 59年度の2年間にわたり, 太田川水域で底生動物相の現況調査を行い, 群集構成について比較検討を行った。その結果, 出現種数, 多様性, 類似性について, 次の知見を得た。

1. 出現種数について

本流の出現種数は, 大芝水門(St. 8)を除くと極めて多く, 生物相の豊かな河川であった。本流に流入する河川の河口部での出現種数は, 下流部で流入する河川ほど減少する傾向が認められた。また, 出現種数の差は, 水生昆虫, 特に蜉蝣目, 毛翅目, 襃翅目の出現種数の差に起因するものであった。

2. 多様性について

本流の多様性指数は, 大芝水門(St. 8)を除くと高く, 複雑な群集構成を示していた。本流に流入する河川の河口部での多様性指数は, 下流部で流入する河川ほど低下し, 群集構成が単純化する傾向が認められた。

3. 類似性について

本流の隣接2地点間における群集構成の類似性は, 大芝水門(St. 8)を除くと, すべての地点間で高かった。はなれた地点間での類似性は, 地点間の距離が長くなるほど低下し, この変化は流下距離に基づく地理的分布の違いによる影響が大きいと考えられる。

本流に流入する河川には, 合流点前後の地点との類似性が高い河川と低い河川があるが, 本流に及ぼす影響は小さいと考えられる。

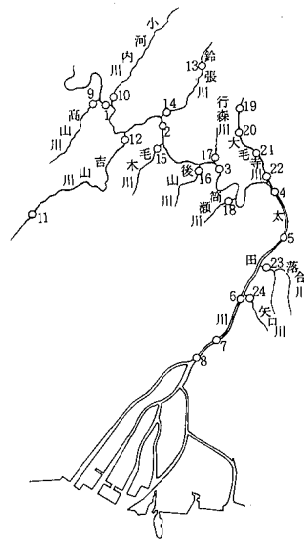
はじめに

太田川は, 中国山地の冠山を水源とし, 柴木川, 滝山川, 水内川, 西宗川などの支流を合流した後, 本市の西北部安佐町に入る。その後, 湾曲しながら南東流して可部盆地に流入し, さらに南南西流して広島湾に注いでいる河川延長 102.9 km, 流域面積約 1,690 km²の一級河川である。¹⁾ 環境庁の「各水百選」にこの河川の中流域(行森川合流点~祇園水門)が選定されたことをみても分かるように, 水質, 周辺環境の保全状況が良好であり, 市民の生活と深く関わりをもった河川である。

太田川水域での底生動物相の調査は, 過去に一部水域で実施されてはいるものの,^{2) 3) 4)} 淡水域全域にわたって実施されたものはまだない。そこで今回, 昭和58~59年度にかけて, 太田川の市域部の水域環境を総合的に把握することを目的として底生動物相の現況を調査した。その結果から, 各調査地点での底生動物相の群集構成を明らかにすべく, 出現種数, 多様性, 類似性について比較検討を行ったので, その結果について報告する。

方 法

1 調査地点



番号	調査地点名	番号	調査地点名	番号	調査地点名
1	高山川合流後	9	高山川河口	17	行森川河口
2	壬辰橋	10	小内川河口	18	簡瀬川河口
3	行森川合流後	11	戸山	19	大毛寺川源流
4	大毛寺川合流後	12	吉山川河口	20	鯉ヶ谷橋
5	太田川橋	13	樹原橋	21	平和台谷地入口
6	矢口川合流後	14	宇津橋	22	灰川橋
7	戸坂	15	毛木川河口	23	落合川河口
8	大芝水門	16	後山川河口	24	矢口川河口

図1 調査地点

* 広島市安佐北保健所

調査は、太田川水域12河川(本流および支流11河川)、24地点で実施した。調査地点の内訳は、本流8地点、大毛寺川4地点、吉山川、鈴張川各2地点、及び高山川、小河内川、毛木川、後山川、行森川、筒瀬川、落合川、矢口川各1地点で、図1に示すとおりである。

2 調査時期

各季節ごとに4回の調査を実施した。冬期調査の際に、連続的な降雨の影響で、かなりの長期間河川が増水したため、4地点が欠測となった。

春期調査 昭和58年5月12日～昭和58年5月31日

夏期調査 昭和59年8月2日～昭和59年9月4日

秋期調査 昭和58年11月4日～昭和58年12月1日

冬期調査 昭和60年2月4日～昭和60年2月25日

3 調査方法

川の瀬で、流心に近い石礫底の場所を選び、コドラート(30cm×30cm)とチリトリ型金網(24メッシュ)を用いて各地点で3回ずつ底生動物の採集を行い、それらを合わせて1試料とした。採集後、ユスリカ科(赤色)Chironomidae Red-Typeのみを分類した後、70%エチルアルコール溶液を用いて固定し、同定および個体数の計数を行った。同定は出来得る限り種のレベルまで行い、困難な種については、属、科あるいはそれ以上のレベルでとどめ、便宜上1種として取扱った。貧毛類Oligochaetaの個体数については、虫体が寸断されたものが多いため、虫体の頭部及び後端の数を計数し、その総数を2で除して求めた。

なお分類は、津田⁵⁾、上野⁶⁾、河田⁷⁾、御勢⁸⁾に基づいて行った。

その結果に基づいて、底生動物相の群集構成を把握するため、出現種数、多様性指数、類似度指数を求め、検討を行った。

多様性指数は、群集構成の複雑さを表わす数学的表現法で、いろいろな数式が提唱され、その有効性が論じられている。⁹⁾¹⁰⁾¹¹⁾今回は次式に示すShannonの式を用いて算出した。

$$D. I. = -\sum_{i=1}^s (N_i / N) \log_2 (N_i / N)$$

N : 総個体数

N_i : 第i番目の種の個体数

また、Morisitaの重複度によるCλ指数¹²⁾を算出し、調査地点間の群集構成の類似度指数とした。

$$C\lambda = \frac{2 \sum_{i=1}^s n_{1i} \cdot n_{2i}}{(\lambda_1 + \lambda_2) N_1 \cdot N_2}, \lambda_1 = \frac{\sum_{i=1}^s n_{1i} (n_{1i} - 1)}{N_1 (N_1 - 1)}$$

$$\lambda_2 = \frac{\sum_{i=1}^s n_{2i} (n_{2i} - 1)}{N_2 (N_2 - 1)}$$

N₁ : 試料1の総個体数

N₂ : 試料2の総個体数

n_{1i} : 試料1における第i番目の種の個体数

n_{2i} : 試料2における第i番目の種の個体数

結果と考察

1 出現種数

今回の調査の結果、得られた底生動物は156種で、この水域には極めて多くの生物が生息していた。分類別に見た出現種数は表1に示すとおりであった。水生昆虫が

表1 分類別出現種数

群	目	目	目	目	目	目	目	目	類	類	類	類	類	類	類	計
42	4	16	1	2	34	1	14	26	1	3	1	1	3	6	1	156

141種と多数出現し、総出現種数の90.4%と大部分を占めた。水生昆虫の中では、蜉蝣目、毛翅目、双翅目、鱗翅目の順に多く、これらの種だけで水生昆虫の83.7%、

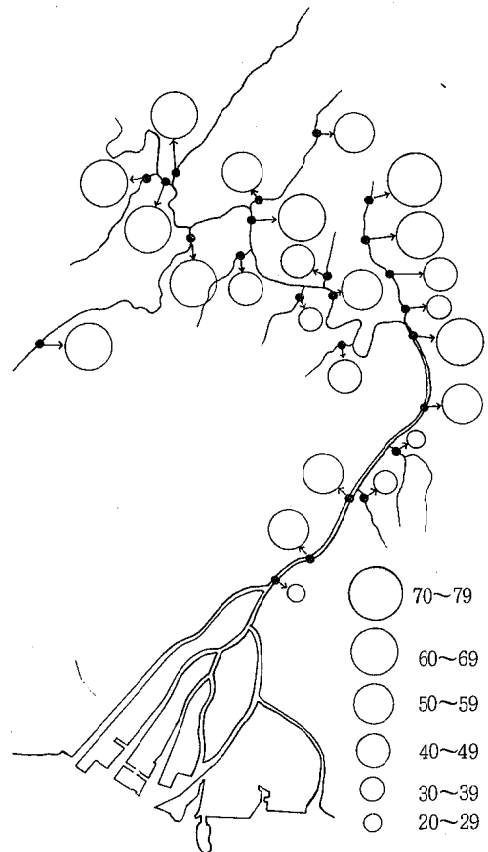


図2 総出現種数

総出現種数の75.6%を占めた。水生昆虫以外では、軟体動物が6種出現したのが目立つ程度であった。

調査地点での出現種数をみると、大きな相違が認められた。各調査地点の出現種数を図2に示す。この相違は、水生昆虫の出現種数、特に制限された水域に限定された生活様式をもつ蜉蝋目、毛翅目、襜翅目の出現種数の違いに起因するものであり、雑多な水域に生息する双翅目¹⁹⁾には影響をうけていない。蜉蝋目、毛翅目、襜翅目は清水域に生息する種が多く、清水域で多数出現していたのが汚濁域では減少し、出現種数の減少となったのであろう。

調査地点のうち総出現種数が最も多かったのはSt19で72種、逆に最も少なかったのはSt8で20種であった。総出現種数が50種以上と多数出現した地点は、本流のSt1~St7, St9, St10, St11, St12, St13, St14, St19, St20の15地点であった。40~50種出現した地点は、St15, St17, St18, St21の4地点、30~40種出現した地点は、St16, St22, St23, St24の4地点であった。

同一河川内に複数の調査地点をもつ本流、吉山川、鈴張川、大毛寺川のうち、地点間で出現種数に変化が認められた河川は、本流、大毛寺川であった。本流ではSt1~St7までは出現種数に大きな変化が認められなかったが、最下流部のSt8は大幅に減少していた。また、大毛寺川では流下に伴う顕著な減少傾向が認められた。

本流へ流入する河川の河口部での出現種数は、下流部で流入する河川ほど出現種数が減少する傾向が認められた。出現種数は、汚濁の程度が軽微な場合、汚濁耐性種の存在により単純に減少するとはいえない。しかし、これらの河川間に認められる出現種数の大幅な変動は、下流部で流入する河川ほど流域人口が多いことを考えると、水質悪化がかなり進行していることに起因するものと示唆される。

各地点間での4回の平均出現種数の状況は、今までに述べた総出現種数の状況と同様の傾向があった。しかし、各調査地点とも総出現種数に比較して各調査時期ごとの出現種数には大きな違いが認められた。また、調査時期ごとにも出現種数に大きな変化が認められた。これらのことは、調査時期により底生動物相を構成する種が大きく変化していることであり、この原因が河川環境の変化によるものか、生活史などに起因する季節の変動によるものかは、今回の調査では明らかにできなかった。

2 群集構成の多様性

各調査を通じて得られた多様性指数を平均して、地点間の群集構成の比較検討を行った。多様性指数の平均値を図3に示す。最も高い値を示した地点はSt10で3.81、逆に最も低い値を示した地点はSt8で1.02であった。

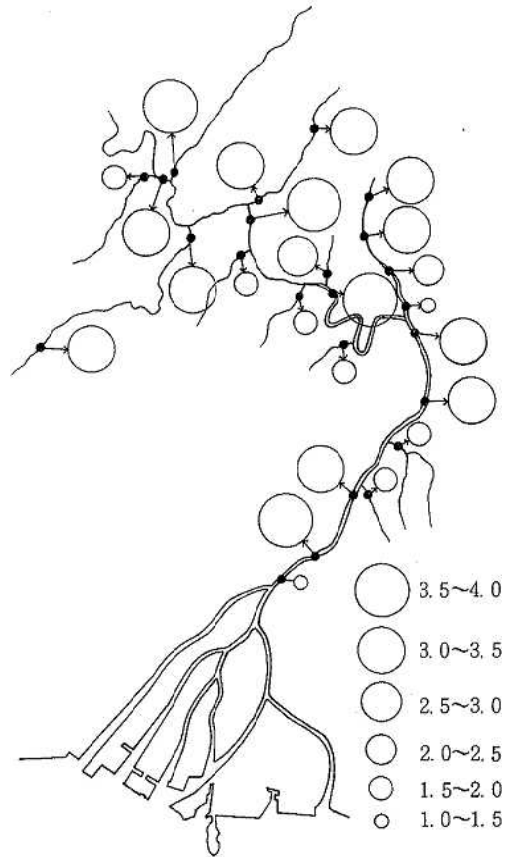


図3 多様性指数

指数が3以上と高く群集構成が複雑な地点は、本流のSt1~St7, St10, St11, St12, St13, St14, St19, St20の14地点であった。2~3の値を示した地点は、St17, St21の2地点、1~2と群集構成が単純化した地点は、St8, St9, St15, St16, St18, St22, St23, St24の8地点であった。

同一河川内に複数の調査地点をもつ河川のうち、吉山川、鈴張川では、上流部に較べ河口部で多様性指数は若干低下したものの顕著な変化はみられなかった。しかしながら、本流ではSt8で大幅に低下し、大毛寺川では流下に伴う顕著な低下があり、群集構成の単純化がみられた。

本流へ流入する河川の河口部での多様性指数は、下流部で流入する河川ほど低く、群集構成が単純化する傾向が認められた。

多様性指数のもつ一つの側面である種の豊富さを反映して、この値は出現種数と高い相関があった。

3 群集構成の類似性

調査地点間の群集構成の類似性について、Cλ指数を用いて類似マトリックスを作成し比較検討を行った。

表2 合流点前後の類似マトリックス

春 期	夏 期	秋 期	冬 期
St. 9 St.1 0.955	St. 9 St.1 0.336	St. 9 St.1 0.084	St. 9 St.1 0.985
St.10 12 14 2 St.1 10 12 14 0.583 0.780 0.863 0.501 0.896 0.888 0.866 0.744 0.802 0.674	St.10 12 14 2 St.1 10 12 14 0.643 0.553 0.789 0.400 0.535 0.500 0.759 0.828 0.846 0.519	St.10 12 14 2 St.1 10 12 14 0.904 0.655 0.675 0.674 0.687 0.951 0.941 0.898 0.808 0.856	St.10 12 14 2 St.1 10 12 14 0.104 0.319 0.654 0.142 0.554 0.868 0.209 0.611 0.630 0.562
St.15 16 17 3 St.2 15 16 17 0.464 0.662 0.377 0.171 0.107 0.262 0.785 0.239 0.714 0.155	St.15 16 17 3 St.2 15 16 17 0.396 0.224 0.127 0.650 0.277 0.316 0.818 0.317 0.221 0.580	St.15 16 17 3 St.2 15 16 17 0.147 0.190 0.993 0.444 0.407 0.433 0.945 0.145 0.205 0.528	St.15 16 17 3 St.2 15 16 17 0.804 0.385 0.659 0.738 0.876 0.671 [] [] [] []
St.18 22 4 St.3 18 22 0.440 0.358 0.247 0.818 0.741 0.222	St.18 22 4 St.3 18 22 0.262 0.254 0.948 0.725 0.687 0.715	St.18 22 4 St.3 18 22 0.210 0.125 0.938 0.552 0.738 0.643	St.18 22 4 St.3 18 22 [] [] [] [] [] 0.884 [] [] [] [] [] []
St.23 24 6 St.5 23 24 0.195 0.184 0.750 0.338 0.807 0.713	St.23 24 6 St.5 23 24 0.370 0.428 0.663 0.651 0.298 0.356	St.23 24 6 St.5 23 24 0.396 0.425 0.889 0.667 0.789 0.844	St.23 24 6 St.5 23 24 [] [] [] [] [] 0.596 [] [] [] 0.178 0.276 []

(1) 合流点前後での類似性

合流点での類似マトリックスを作成し、流入河川の河口部での底生動物相と、その前後での本流の底生動物相との群集構成の類似性について隣接2地点間ごとに検討を行った。類似マトリックスを表2に示す。

a ~高山川合流後(St1)

高山川が合流する。St1とSt9の類似度指数は、春期、冬期には極めて高い値、夏期、秋期には低い値となり季節により大きな差異が認められた。

St9の底生動物相は、St1の底生動物相と比較すると構成種の季節による違いが大きく、また、出現頻度の高い種も季節により変動していた。St9ではユスリカ科Chironomidae、ブユ科Simuliidaeといった双翅目の種の出現頻度が高く、St1では毛翅目、蜻蛉目の出現頻度が高かった。しかし、St1ではユスリカ科Chironomidaeが多数出現することもあり、この時にだけ2地点間の類似度が高い値を示した。St9では山間渓流水域を生活圏とするブユ科Simuliidaeや、他の調査地点でほとんど出現しなかったDiplectrona sp. DCが高い出現頻度を示す様に、他の調査地点とは異った特異な生物相をしており、St1が多様性の高い複雑な群集構成、St9が単純な群集構成であったことを考えあわせると両地点の底生動物相の類似性は小さいと考えられる。

b 高山川合流後(St1)~壬辰橋(St2)

小河内川、吉山川、鈴張川が合流する。St10、St12、St14と本流2地点を比較すると、3地点ともSt1よりSt2との類似度指数が高い値であった。しかし、St1との類似度指数も冬期を除くとそれほど低くない値であった。

これらすべての地点の多様性指数は高く、複雑な群集構成であり、出現頻度の高い種も類似していた。出現頻度の高い種は、双翅目のAntocha sp.、ユスリカ科Chironomidaeの他、貧腐水性の流水域での代表的な毛翅目である造網型のシマトビケラ科のウルマーシマトビケラHydropsyche ulmeri、ナカハラシマトビケラHydropsyche nakaharaiなどであり、β-中腐水性水域の生息種であるコガタシマトビケラHydropsychodes brevilineataもかなりの頻度で混棲していた。

これらのことから、St10、St12、St14と本流2地点の類似性は比較的高いと考えられる。

c 壬辰橋(St2)~行森川合流後(St3)

毛木川、後山川、行森川の3河川が合流する。St15、St16、St17の3地点の底生動物相は、St2、St3のどちらの地点の底生動物相とも類似度指数は低い値であった。

出現頻度の高い種は、St2、St3では、ウルマーシマ

トビケラ *Hydropsyche ulmeri*, コガタシマトビケラ *Hydropsychodes brevilineata*, アカマダラカゲロウ *Ephemera rufa* などであった。St 15, St 16, St 17 の3地点は、ウルマーシマトビケラ *Hydropsyche ulmeri*, コガタシマトビケラ *Hydropsychodes brevilineata* とともにユスリカ科 Chironomidae の出現頻度が高く、特に St 17 ではブユ科 Simuliidae, イノブスヤマトビケラ *Mystrophora inops* も多く出現した。

多様性指数は、St 2, St 3 では極めて高く、また、St 17 も高い値であったが、St 15, St 16 では低く、これらの地点は単純な群集構成であった。

これらのことから、St 15, St 16, St 17 の3地点は、本流2地点と類似性は低いものの、その中では St 17 がやや類似性が高いと考えられる。

d 行森川合流後 (St 3) ~ 大毛寺川合流後 (St 4)

筒瀬川, 大毛寺川が合流する。St 18, St 22 は St 3 との類似度指数は低く、St 4 とは比較的高い値であった。これは St 18, St 22 で極めて出現頻度の高いユスリカ科 Chironomidae が、St 3 では少ないのに比較して St 4 では多数出現したためと考えられる。

出現頻度の高い種は、ユスリカ科 Chironomidae 以外では、St 3, St 4 はウルマーシマトビケラ *Hydropsyche ulmeri*, コガタシマトビケラ *Hydropsychodes brevilineata*, St 18 は *Antocha* sp., コカゲロウ属 *Baetis* spp., St 22 はミズムシ *Asellus hilgendorffii* であった。

多様性指数は、本流2地点では高く、支流2地点では低い値であり、群集構成の複雑さに相違が認められた。

これらのことから、St 18, St 22 は本流2地点のどちらの地点とも類似性は低いと考えられる。

e 太田川橋 (St 5) ~ 矢口川合流後 (St 6)

落合川, 矢口川が合流する。St 23, St 24 は St 5 との類似度指数は低く、St 6 とは比較的高い値であったが、これはユスリカ科の出現頻度に影響を受けているものと考えられる。

多様性指数は、本流2地点が複雑な群集構成を示す値であり、支流2地点は単純な群集構成を示す値であった。

出現頻度の高い種は、St 5, St 6 がユスリカ科 Chironomidae, ウルマーシマトビケラ *Hydropsyche ulmeri*, コガタシマトビケラ *Hydropsychodes brevilineata*, オオシマトビケラ *Macronema radiatum*, St 23, St 24 ではユスリカ科 Chironomidae と汚濁耐性種の負毛類 Oligochaeta, ユスリカ科 (赤色) Chironomidae Red-type, ミズムシ *Asellus hilgendorffii* であった。

St 23, St 24 は本流2地点のどちらの地点とも類似性は低いと考えられる。

(2) 本流各地点間の類似性

太田川本流2地点間の類似マトリックスを作成し、群

表3 本流各地点間の類似マトリックス

St.2	0.866						
3	0.558	0.785					
4	0.527	0.772	0.818				
5	0.318	0.616	0.777	0.848			
6	0.872	0.820	0.618	0.406	0.338		
7	0.185	0.187	0.127	0.177	0.154	0.184	
8	0.812	0.590	0.412	0.271	0.175	0.746	0.088
	St.1	2	3	4	5	6	7

St.2	0.759						
3	0.701	0.818					
4	0.388	0.608	0.725				
5	0.412	0.689	0.789	0.864			
6	0.427	0.564	0.635	0.652	0.651		
7	0.334	0.386	0.380	0.426	0.464	0.666	
8	0.124	0.214	0.223	0.656	0.423	0.354	0.307
	St.1	2	3	4	5	6	7

St.2	0.941						
3	0.890	0.945					
4	0.539	0.619	0.552				
5	0.814	0.858	0.803	0.855			
6	0.262	0.412	0.386	0.838	0.667		
7	0.290	0.430	0.371	0.727	0.622	0.921	
8	0.016	0.123	0.127	0.651	0.365	0.765	0.645
	St.1	2	3	4	5	6	7

集構成の類似性について検討を行った。なお冬期調査については欠測地点が多いため、3回の調査のみで検討を行った。類似マトリックスを表3に示す。

隣接する2地点間の類似度指数をみると、St 1 から St 5 の間は、St 3 と St 4 の類似度指数が秋期調査で 0.552 であったのを除くと、各調査時期とも類似度指数はすべて 0.7 以上と高い値であった。St 5 と St 6, St 6 と St 7 の間の類似度指数は、St 5 より上流の隣接2地点間と比較すると低い値であった。また、St 7 と St 8 の間の類似度指数は、春期に 0.088, 夏期に 0.307 と特に低く、全体に低い値であった。

隣接しない2地点間の類似度指数をみると、地点間の距離が長くなるほど類似度指数は低下する傾向を示した。総出現種数についてみると、St 7 より上流の各調査地点は50種以上と多く、顕著な変化はみられなかった。しかしながら、St 8 は20種と激減していた。

多様性指数は、St 7 より上流の各調査地点はすべての地点とも3以上と複雑な群集構成を示すのに対し、St 8 は 1.02 で単純な群集構成であった。

出現頻度の高い種についてみると、St 7 より上流の

各調査地点は毛翅目、蜉蝣目の出現頻度が高く、St 8は双翅目のユスリカ科 Chironomidae, 負毛類 Oligochaeta の出現頻度が高かった。

本流の底生動物相の群集構成の類似性は、St 7より上流の隣接2地点間ではすべて高く、St 7とSt 8の間では低かった。St 8は若干ではあるが満潮時に塩分が認められる地点であり、塩分が生物の生息に対して制限因子として作用し、群集構成が変化するため類似性が低下した。汽水域に生息する種である多毛類(ゴカイ類)の出現がみられるように水生昆虫を主体とする淡水域の範囲の境界水域と考えられる。

前に述べたように本流に流入する河川の中には、底生動物相の群集構成が、合流点前後の地点の群集構成と高い類似性を示す河川と低い類似性を示す河川があるが、隣接2地点間の類似性が高いことを考えると、流入河川の本流の群集構成に及ぼす影響は小さいと考えられる。

類似度指数が隣接しない2地点間では、距離が長くなるほど低下した。このことは、流入河川の本流に及ぼす影響が小さい、また、出現種数、多様性指数には大きな変化がみられないことを考えると、この変化は流下距離による地理的分布のちがいによる影響が大きいと考えられる。

またユスリカ科 Chironomidae を便宜上一種として取扱ったことにより、ユスリカ科 Chironomidae の占める割合が極めて高くなり、類似度指数に及ぼす影響が大きかった。今後、同種の調査を行う場合には、ユスリカ科 Chironomidae のより詳細な分類を行う必要がある。

文 献

- 1) 広島市：公害の概況, 62, (1984)
- 2) 建設省中国地方建設局太田川工事事務所：太田川水系下流生物相調査報告, (1972)
- 3) 広島水産研究会：内陸部埋立に伴う漁業への影響調査報告書〔冬期調査〕, 45～56, (1982)
- 4) 広島水産研究会：内陸部埋立に伴う漁業への影響調査報告書〔夏期調査〕, 116～144, (1983)
- 5) 津田松苗編：水生昆虫学 第6版, 北隆館(1980)
- 6) 上野益三編：日本淡水生物学 第3版, 北隆館(1980)
- 7) 河田黨 他：日本幼虫図鑑 第7版, 北隆館(1976)
- 8) 御勢久右衛門：日本産カゲロウ類一分類と検索1～10一, 海洋と生物, (1979)
- 9) 渡辺直：多様性指数による生物学的水質判定, 用水と廃水, 15, 725～730 (1973)
- 10) 岡田光正, 須藤隆一：生物種の多様性指数による水質汚濁の評価, 用水と廃水, 18, 712～724 (1976)
- 11) 森谷清樹：多様性指数による水域環境の生態学的評価, 用水と廃水, 18, 729～748 (1976)
- 12) 木元新作：重複度による指数, 動物群集研究法 I, 136～138, 共立出版(1978)
- 13) 徳永雅明：陸水関係の諸水域における指標的な双翅目昆虫, 環境と生物指標 2, 169～177, 共立出版(1975)

II 資 料

いわゆる健康食品中の含有成分実態 調査結果

食 品 環 境 部

はじめに

近年、我国において高齢化社会の到来、既存の食品への不安、さらに医薬品に対する不信感などから、いわゆる健康食品(以下健康食品)がブームとなっている。しかし、健康食品についてはその安全性に対する問題点が指摘され、また実際に消費者の健康被害の苦情も多くなっている。こうしたことから厚生省は、健康食品に対し昭和60年度を目標に規格基準を定めて法的規制に乗り出すこととしている。

そこで今回、市内に流通する健康食品について重金属を中心に残留農薬、食品添加物等の検査を実施したので、その結果を報告する。

調 査 方 法

1 試 料

昭和59年度、市内デパート等の健康食品あるいは自然食品コーナー等で販売されていたもの29検体を試料とした。その内訳は表1に示したように菌・植物起源食品18検体、動物起源食品4検体、鉱物起源食品6検体、その他1検体である。

なお各試料の分類は、「健康食品の販売等に関する総合実態調査(経済企画庁、昭和59年3月)」によった。

2 試験方法

(1) 重 金 属

試料を硫酸により湿式分解後、既報¹⁾による原子吸光光度法および吸光光度法により測定を行った。なお、ゲルマニウムはフェニルフルオロンによる吸光光度法によった。

(2) 残留農薬

厚生省告示第332号および333号に準じて行った。

(3) P C B

厚生省環境衛生局PCB分析研究班「分析方法に関する研究」に準じて行った。

(4) 食品添加物、シアン化合物等

日本薬学会編、衛生試験法注解(1980)に準じて行った。

3 試 薬

(1) 重 金 属

標準品、その他試薬は和光純薬工業(株)製の精密分析用、有害金属分析用を用いた。

(2) 残留農薬、PCB

標準品、その他試薬は和光純薬工業(株)製の残留農薬試験用およびPCB・フタル酸エステル試験用を用いた。

(3) 食品添加物、シアン化合物等

和光純薬工業(株)の特級を用い、また酸価・過酸化価試験には関東化学(株)製の油脂試験用エーテルを用いた。

4 装 置

原子吸光分析装置：第二精工舎SAS-727型

分光光度計：日立ダブルビーム分光光度計UV-100-50型

水銀分析装置：平沼HG-1型

ガスクロマトグラフ：島津GC-7AG型

結 果

1 重金屬類

試験結果を表1に示す。

(1) 総 水 銀

かきの葉を主原料とした食物繊維等加工品に0.047ppm、その他緑葉植物加工品、海藻類加工品、穀類胚芽加工品、生薬類似加工品に0.011～0.022ppm程度含まれていた。

(2) 亜 鉛

すべての試料から検出され、100ppmを超えたものは、穀類胚芽加工品、骨粉等加工品に見られた。

(3) 鉛、カドミウム

特に高い数値は見られなかったが、1ppmを超えたものは鉛では、海藻類加工品、食物繊維加工品、生薬類似加工品、骨粉等加工品があり、カドミウムでは、海藻類加工品のみであった。

(4) ヒ 素

ほとんどの試料が検出限界以下であったが、ヒジキを主原料とした海藻類加工品から56ppmと高い値を示したものがあつた。

(5) 総クロム、スズ

すべての試料が検出限界以下であった。

(6) 銅

特に高い数値は見られず、緑葉植物加工品に11ppm、生薬類似加工品に13ppm含まれていた。

(7) マンガン、鉄

両元素とも、ほとんどの試料から検出され100ppmを超えたものはマンガンでは、緑葉植物加工品、穀類胚芽加工品、生薬類似加工品があり、食物繊維等加工品で400ppmと高い値を示したものがあつた。また、鉄で100ppm

表1 原材料別にみた健康食品の分類と重金属検査結果

(湿重量 ppm)

	主原料	T-Hg	Zn	Pb	Cd	As	T-Cr	Cu	Mn	Fe	Sn	Co	Ni	Ge		
菌	果実・果肉加工品	梅	<0.005	11	0.28	0.03	<0.1	<0.1	3.9	13	100	<10	0.09	1.1	—	
		果実	"	3.7	<0.05	0.03	"	"	1.3	2.0	8.9	"	<0.05	0.41	—	
	緑葉植物加工品	コンフリー	0.013	40	0.61	0.021	"	"	11	140	180	"	"	0.74	<0.05	
	海藻類加工品	ヒジキ	0.017	22	1.5	1.0	56	"	2.8	13	340	"	"	0.38	1.5	
	植物種子加工品	大豆	<0.005	4.9	<0.05	<0.005	<0.1	"	0.89	4.0	12	"	"	<0.05	0.37	
		ごま	"	34	0.10	0.02	"	"	3.4	11	5.3	"	"	0.06	<0.05	
	植	穀類胚芽加工品	玄米	0.011	84	0.15	0.12	0.41	"	7.3	190	99	"	"	<0.05	1.3
			"	0.011	23	<0.05	0.11	<0.1	"	2.3	40	20	"	"	0.30	—
			"	0.016	61	0.23	0.12	"	"	6.5	214	94	"	"	1.5	—
			小麦胚芽	<0.005	120	<0.05	0.14	"	"	8.5	150	72	"	"	0.79	—
起	植物性油脂類	小麦胚芽	"	1.1	"	<0.005	"	"	0.58	1.6	7.0	"	"	0.06	—	
		"	"	1.6	"	"	"	"	0.31	1.4	6.1	"	"	0.19	—	
		"	"	0.23	"	"	"	"	0.59	1.3	2.3	"	"	<0.05	—	
源	食物繊維等加工品	かきの葉	0.047	21	1.1	0.051	"	"	6.3	400	320	"	0.28	2.6	—	
		こんにゃく	<0.005	2.9	<0.05	<0.005	"	"	1.1	4.4	46	"	<0.05	0.31	—	
	生薬類似加工品	八草	0.011	38	0.43	0.054	"	"	7.1	37	490	"	"	2.2	—	
		アマチャヅル	0.022	28	1.1	0.20	"	"	13	210	660	"	0.32	3.7	—	
	花	花粉	<0.005	7.0	0.11	0.086	"	"	6.8	31	32	"	0.06	1.3	—	
動物起源	貝類エキス	かき	0.006	79	0.68	0.060	"	"	9.3	1.5	69	"	<0.05	0.58	—	
		しじみ	<0.005	16	0.43	0.18	1.9	"	8.2	7.7	20	"	0.10	1.1	—	
	動物性油脂類	鰹の肝臓	"	0.19	<0.05	<0.005	<0.1	"	0.61	1.2	2.4	"	<0.05	0.06	—	
鉱物起源	骨粉等加工品	牛骨粉	"	130	1.2	"	"	"	2.2	9.2	180	"	"	1.0	—	
		健康酢(1)	"	0.36	0.10	"	"	"	0.05	0.53	3.1	"	"	0.07	—	
	イオン水等飲料	"(2)	"	0.14	<0.05	"	"	"	0.14	<0.05	0.25	"	"	<0.05	—	
		"(3)	"	0.04	"	"	"	"	0.06	0.08	0.19	"	"	"	<0.05	
		"(4)	"	0.32	"	"	"	"	0.21	<0.05	0.14	"	"	"	"	
		"(5)	"	0.02	"	"	"	"	0.03	"	<0.05	"	"	"	"	
		健康茶	"	0.04	"	"	"	"	<0.02	1.2	"	"	"	"	—	
その他	—	"	16	"	0.02	"	"	0.52	8.6	31	"	"	1.0	—		

を超えたものは、果実・果肉加工品、緑葉植物加工品、海藻類加工品、食物繊維加工品があり、生薬類似加工品で660ppmと高い値を示すものがあった。

(8) コバルト、ニッケル

両元素とも、特に高い数値は見られず、コバルトの最高値は海藻類加工品の0.38ppmであった。またニッケルの最高値は生薬類似加工品の3.7ppmであった。

(9) ゲルマニウム

イオン水等飲料にゲルマニウム含有と表示してあるものがあったが、すべて検出限界以下であった。

2 残留農薬、PCB

穀類胚芽加工品および生薬類似加工品、計6検体の有機塩素系農薬については、BHCを0.003~0.016ppm(総BHCとして)の範囲で検出した。これは一般農作物の基準値0.2ppmより低い値であるものの、なかには無農薬の旨の表示が付されているものがあった。

なお、有機リン系農薬および動物性油脂類を対象としたPCBは、いずれも不検出であった。

3 食品添加物、シアン化合物等

果実・果肉加工品2検体についてシアン化合物、安息香酸の検査を行った。その結果、シアン化合物は不検出であったが梅を主原料とするものから安息香酸を50ppm検出した。しかし、この含有量から考えて保存の目的で添加したものではなく、天然由来と思われる。

油脂含有食品である植物種子加工品および植物性油脂類の酸価・過酸化価については、いずれも低値であり問題点はなかった。

また、緑葉植物加工品については、クロレラ加工品に指導基準値(100mg%以下)の設定されている既存フェオホルバイド量の検査を行ったところ、24.5mg%であった。

なお穀類胚芽加工品、花粉の計5検体について異物(ダニ類)混入の有無を検査したが、いずれの検体からも検出されなかった。

文 献

- 1) 松井俊治他：広島市における食品中の微量金属含有量(第1報)、広島市衛生研究所年報, 2, 31, (1982)

広島市における日常食品からの各種化学物質の1日摂取量調査結果 (昭和59年度)

食 品 環 境 部

はじめに

59年度も前年度に引き続き、マーケットバスケット方式を用いて、広島市における各種化学物質の1日摂取量調査を行ったので報告する。

調 査 方 法

1 試料の収集および分別方式

試料の調製は、内山充研究班のマーケットバスケット方式¹⁾に基づいて行った。試料は昭和57年国民栄養調査成績の食品群別表²⁾に準じ89食品種を選定し、昭和59年11月6日から11月15日の期間に広島市内の小売店およびスーパーマーケットで購入した。これらの食品を国民栄養調査成績の食品群別1日摂取量(中国地方)の値により、2~50日分ずつ秤取し、13群に分別した。(表1)

2 試料の調理および調製

試料の調理は、広島地方の一般的方法に従い表2のとおり行った。調理後、各群別に試料を均一に混合し分析試料とした。なおⅩⅤ群の飲料水は当所の水道水を用いた。

3 分析項目

(1) 重金属類

総水銀、亜鉛、鉄、マンガン、銅、カドミウム、鉛、ヒ素、ニッケル、コバルトの10項目を行った。

(2) 有機塩素化合物

α -HCH, β -HCH, γ -HCH, δ -HCH, pp'-DDE, pp'-DDD, op'-DDT, pp'-DDT, アルドリン, ディルドリン, エンドリン, HCB, PCBの13項目を行った。

(3) 有機リン化合物

ダイアジノン, フェントエート, EPN, パラチオン, フェントロチオン, マラチオンの6項目を行った。

4 試験方法

重金属の分析は、既法³⁾により、その他有機塩素化合物等の分析は、汚染物質研究班の方法により行った。

結 果

各群ごとの分析結果および1日摂取量を表3に示す。中国地域の1人1日当たりの食品摂取総量は1392.6gである。このうち食品群別に見ると、I群15.4%, Ⅷ群14.3%, II群11.6%, VI群11.4%が上位を占めている。

1 重金属類

重金属類の摂取量は全国レベルと同程度であり、I群、V群、X群、XI群の寄与が大きかった。各金属別では、鉄、亜鉛、マンガン、銅の順で多く、カドミウム、鉛、ヒ素、ニッケル、総水銀は少なかった。またコバルトはすべての群から検出しなかった。各群からの寄与を見ると、亜鉛、マンガン、銅、カドミウムはI群からの摂取が多く、鉄、ニッケルはV群、鉛はVI群、又ヒ素、総水銀はX群が多かった。

2 有機塩素化合物

主な有機塩素化合物の摂取量は、PCB 1.48 μ g, HCB 0.13 μ g, 総HCH 1.28 μ g, 総DDT 2.02 μ g, ディルドリン 0.60 μ gであった。昨年度と比較して、HCB, HCH, DDTが減少したが、全国平均値⁴⁾と同程度の値であり、ひきつづき低レベルの汚染が継続している。有機塩素化合物の摂取は、X群の魚介類由来が多く、寄与率はPCB 93%, HCB 69%, 総DDT 80%であった。ディルドリンはキュウリを含むⅧ群からの寄与が58%あった。総HCHでは、摂取量の55%がX, XI, XII群の動物性食品に起因し、V群の豆類からの寄与も19%あった。異性体別にみると、 α 体64%, β 体21%, γ 体15%, δ 体0%であった。総DDTでは、96%が動物性食品由来でその内訳は、pp'-DDE 65%, pp'-DDD 19%, op'-DDT 8%, pp'-DDT 8%であった。 δ -HCH, アルドリン, エンドリンは検出しなかった。

3 有機リン化合物

有機リン系農薬は、マラチオンがII群、III群から、フェントロチオンがII群から検出し、輸入小麦に由来するものと思われた。ダイアジノン, フェントエート, EPN, パラチオンはすべての群から検出しなかった。

文 献

- 1) 汚染物質研究班, 食品中の各種汚染物の実態に関する調査研究報告
- 2) 厚生省編, 昭和59年版国民栄養の現状, 15~18, 88~90
- 3) 松井俊治 他: 広島市における食品中の微量重金属含有量(第1報), 広島市衛生研究所年報, 2, 31, (1982)
- 4) 斎藤行生: 有害化学物質のモニタリング, 食品衛生, 34, 1008 (1984)

表 1 食品群別 1日摂取量

食品群	食品No.	食品名	産地 (製造所)	1日摂取量 (g)	分 別 (g)	調理	調理後重量 (g)	備 考		
I	2	精 白 の 米 だ ん ご の 粉	広 島	207.7	4151.4	○	830.8	2日分		
	3			6.9	13.8	○	30.4			
				214.6	429.2		861.2			
II	4	押 麦 し 麦 薄 小 粉 力 食 ン あ ゆ ん ン ひ び や ん 即 席 だ ん き じ じ じ さ じ じ じ ポ テ ト チ ッ プ ス	山 梨	0.7	7.0	○	24.5	10日分		
	5		山 香	5.4	54.0	○	101.3			
	6		山 香	50.1	501.0					
	7		山 香	8.8	88.0					
	8		山 香	28.0	280.0	○	306.3			
	9		東 京	3.4	34.0	○	108.8			
	10		東 京	2.3	23.0	○	55.2			
	11		東 京	0.9	9.0					
	12		東 京	1.5	15.0					
	13		東 京	11.6	116.0	○	118.3			
	14		東 京	22.4	224.0	○	219.5			
	15		東 京	13.6	136.0	○	163.2			
	16		東 京	12.4	124.0					
						161.1	1,611.0		1,834.1	
	III		17	ベ ッ シ ュ ガ い ち じ ゃ ム せ ん べ い カ ス テ ラ ビ ク リ ま じ ゅ	東 京	12.5	250.0			20日分
			18		東 茨	0.8	16.0			
19		東 京	1.0		20.0					
20		東 京	4.0		80.0					
21		東 京	5.4		108.0					
22		東 京	2.1		42.0					
23		東 京	14.0		280.0					
				39.8	796.0					
IV	24	バ マ タ ー 天 ぶ り 動 物 性 マ ヨ ネ	札 幌	1.2	60.0			50日分		
	25		札 幌	2.1	105.0					
	26		東 京	10.1	505.0					
	27		東 京	0.1	5.0					
	28		東 京	4.8	240.0					
				18.3	915.0					
V	29	み と う そ と 油 き ふ 煮 煮 げ こ 豆	広 島	13.7	274.0			20日分		
	30		広 島	38.8	776.0					
	31		山 口	7.6	152.0	○	416.4			
	32		山 口	4.7	94.0					
	33		山 口	2.3	46.0					
				67.1	1,342.0		1,606.4			
VI	34	み り か ん ん り かん ぞ バ い ナ ナ い ち ナ ぞ 白 桃 缶 詰 ト マ ト ジ ュ ース	—	73.6	736.0			10日分		
	35		—	24.5	245.0					
	36		—	7.1	71.0					
	37		広 島	0.6	6.0					
	38		東 京	47.3	473.0					
	39		—	5.6	56.0					
				158.7	1,587.0					
VII	40	に っ じ ん ん ほ ー れ 草 ピ ー マ ン し っ ぽ ん き	—	13.2	132.0	○	145.2	10日分		
	41		—	21.9	219.0	○	168.6			
	42		—	3.7	37.0	○	31.1			
	43		—	19.6	196.0	○	156.8			
					58.4	584.0			501.7	

食品群	食品№	食品名	産地 (製造所)	1日摂取量 (g)	分別 (g)	調理	調理後重量 (g)	備考
Ⅷ	44	大根	—	38.5	192.5			5日分
	45	たまねぎ	—	22.7	113.5			
	46	マ	—	6.2	31.0			
	47	トキベウツリ	—	21.7	108.5			
	48	キヤウサ	—	9.7	48.5			
	49	ハモヤシ	—	24.7	123.5	○	119.8	
	50	かなつけもの	広島	39.5	197.5	○	134.3	
	51	たなつけもの	山口	11.1	55.5			
	52	キュウリつけもの	—	10.4	52.0			
	53	マッシュルーム	—	9.7	48.5			
54	味付のり	広島	4.8	24.0				
				199.0	995.0		928.1	
Ⅸ	55	こいくち醤油	三	21.1	211.0			10日分
	56	ウスターソース	名	4.4	44.0			
	57	食塩	古	1.8	18.0			
	58	日本酒	川	27.4	274.0			
	59	ピュール	島	26.5	265.0			
	60	ウイスキー	東	3.7	37.0			
	61	炭酸飲料	大	33.2	332.0			
				118.1	1,181.0			
Ⅹ	62	まろい	—	2.8	14.0			5日分
	63	れんごだ	—	8.2	41.0	○	39.4	
	64	いわさし	—	12.6	63.0	○	60.5	
	65	紅わさし	—	0.7	3.5	○	3.5	
	66	はえまび(生)	—	18.1	90.5			
	67	あさん	広島	13.9	69.5	○	34.8	
	68	あさん	島	5.3	26.5	○	47.7	
	69	さめざ	〃	5.2	26.0	○	22.4	
	70	めざ	〃	6.0	30.0			
	71	まぐろフレーク味付	東	1.4	7.0			
	72	切りかあめ煮	兵	0.2	1.0			
	73	かまぼこ	東	15.5	77.5			
	74	フランクソーセージ	佐	0.7	3.5			
					90.6	453.0		431.8
Ⅺ	75	牛肉	—	22.5	112.5	○	97.9	5日分
	76	豚肉	—	20.7	103.5	○	86.9	
	77	鶏肉	—	19.2	96.0	○	78.7	
	78	鰹肉	—	0.7	3.5	○	2.3	
	79	ひじり肉	—	1.1	5.5	○	4.1	
	80	ひらめ	広島	9.4	47.0			
	81	鶏卵	〃	44.6	223.0	○	200.7	
				118.2	591.0		517.6	
Ⅻ	82	市乳	広島	126.3	1,263.0			10日分
	83	チヨ	千	1.5	15.0			
	84	ヨーグルト	福	6.9	69.0			
					134.7	1,347.0		
ⅫⅢ	85	ぎょうざ	福	1.8	90.0	○	90.0	50日分
	86	しゅうまい	千	0.7	35.0	○	33.9	
	87	コロッケ	大	2.7	135.0			
	88	サラダ	〃	0.4	20.0			
	89	カレー(レトルト)	大	8.5	425.0			
				14.1	705.0		703.9	
ⅫⅣ	90	水道水	広島					

表2 食品別調理法

食品№	食品名	調理法	食品№	食品名	調理法
2	精白米	白米を水で4回洗いを切り、水600mlを加え、ガスで炊く。	44	大根	水洗いし、おろし器でする。
3	だんごの粉	水を加え固め、500mlの水で沸とう後、2分間ゆでて湯を切る。ゆで汁はすてる。	45	たまねぎ	外皮を除去した後、4つ割にし、200mlの水で沸とう後6分間ゆでる。ゆで汁はすてる。
4	押し麦	水250mlを加え、10分間炊く。	49	白菜	水洗いし、500mlの水で沸とう後5分間ゆでる。水にさらして軽くしぼる。
5	小麦粉	60mlの水でこね、10分間フライパンで焼く。	50	もやし	水洗いし、300mlの水で沸とう後3分間ゆでて、湯を切る。ゆで汁はすてる。
8	ゆでうどん	500mlの水を沸とうさせ、2分間ゆでる。ゆで汁はすてる。	53	マッシュルーム	水洗いし、200mlの水で沸とう後2分間ゆでて、湯を切る。ゆで汁はすてる。
9	ひやむぎ	1000mlの水を沸とうさせ、5分間ゆでた後水洗いをして水を切る。ゆで汁はすてる。	63	れんこだい	切身を300mlの水で沸とう後5分間煮る。骨を除去し煮汁はすてる。
10	即席めん	500mlの水を沸とうさせ、3分間ゆでる。ゆで汁はすてる。	64	いわし	頭を除去し、金網で10分間焼く。
13	さつまいも	皮つきのまま水洗いし、5cmの厚さに切って蒸器に入れ20分間むす。	65	紅さけ	切身を金網で5分間焼き、骨を取る。
14	じゃがいも	皮つきのまま水洗いし、500mlの水に入れ、沸とう後15分間ゆでる。ゆで汁はすてる。	67	エビ	水洗いし、水300mlで煮る。煮汁はすてる。
15	さといも	水洗い後皮をむき、500mlの水に入れ、沸とう後15分間ゆでる。ゆで汁はすてる。	68	あさり	水洗いし、130mlの水に入れ、沸とう後5分間煮る。殻を除去し、煮汁も入れる。
31	油あげ	300mlの水を沸とうさせ、10分間ゆでて湯を切る。ゆで汁はすてる。	69	塩さけ	切身を金網で5分間焼き、骨を取る。
34	みかん	皮をむく。	70	めざし	まるごと金網で、3分間焼く。
35	りんご	芯、種を除く。	75	牛肉もも	フライパンに食油5ml入れ3分間いためる。
36	バナナ	皮をむく。	76	豚肉もも	フライパンに食油5ml入れ3分間いためる。
37	いちご	へたを除く。	77	鶏肉	200mlの水に入れ、5分間煮る。煮汁はすてる。
40	にんじん	皮つきのまま水洗いし、乱切にする。120mlの水で沸とう後15分間ゆでる。ゆで汁はすてる。	78	鯨肉	フライパンに食油5ml入れ3分間いためる。
41	ほうれん草	水洗いし、500mlの水で沸とう後3分間ゆでる。水にさらして軽くしぼる。	79	ひつじ肉	フライパンに食油5ml入れ3分間いためる。
42	ピーマン	水洗いし、葉柄、種を除いて金網で3分間焼く。	81	鶏卵	フライパンに食油20ml入れ卵焼をつくる。
43	春菊	ほうれん草と同じ。	85	ぎょうざ	フライパンに食油10ml入れ3分間焼き、水30mlを加え更に3分間焼く。

表3 食品群別分析結果および摂取量

上段: ppm on whole basis. 下段: daily intake 及び Total, μg

	I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII	K	X	XI	XII	XIII	XIV	Total
Moist(%)	61.4	55.2	12.7	4.2	67.5	86.9	92.9	94.3	86.6	67.8	66.1	87.1	37.5	—	—
Fat (%)	—	—	—	85.2	7.4	—	—	—	—	5.5	8.1	3.7	16.3	—	—
Zn	5.09 2,190	3.52 646	2.46 97.9	0.18 3.29	11.8 948	0.74 117	4.12 207	2.59 481	2.07 244	12.0 1,040	19.0 1,970	3.19 430	4.86 68.5	0.01 6	8,448.7
Fe	0.74 319	5.33 978	3.40 135	0.28 5.12	20.9 1,680	2.15 341	11.1 557	4.97 922	9.13 1,080	16.5 1,420	15.4 1,590	0.23 31.0	11.5 162	0.03 18	9,238.1
Mn	3.46 1,490	2.53 464	1.92 76.4	nd	8.53 685	0.59 93.6	7.10 356	1.62 301	2.24 265	3.61 312	0.26 26.9	0.08 10.8	4.27 60.2	nd	4,140.9
Cu	0.85 366	0.92 169	0.67 26.7	nd	2.47 198	0.32 50.8	0.75 37.6	0.38 70.5	0.09 10.6	0.76 65.6	0.60 62.1	0.04 5.39	1.15 16.2	nd	1,078.5
Cd	0.025 10.8	0.022 4.04	0.011 0.44	nd	0.022 1.77	nd	0.048 2.41	0.007 1.30	0.002 0.24	0.008 0.69	nd	nd	0.028 0.39	nd	22.1
Pb	nd	0.03 5.50	nd	nd	nd	0.09 14.3	nd	nd	nd	0.05 4.32	nd	nd	nd	nd	24.1
As	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	0.43 79.8	nd	1.16 100	nd	nd	nd	nd	179.8
Ni	0.08 34.4	0.20 36.7	0.09 3.58	0.23 4.21	1.05 84.3	0.03 4.76	0.07 3.51	0.13 24.1	0.27 31.9	0.05 4.32	0.03 3.11	nd	0.40 5.54	nd	240.5
T-Hg	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	0.083 7.17	0.005 0.52	nd	nd	nd	7.69
PCB	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	0.016 1.38	0.001 0.10	nd	nd	nd	1.48
HCB	nd	nd	0.0001 0.004	0.0005 0.009	nd	nd	nd	nd	nd	0.0010 0.09	0.0002 0.02	0.0001 0.01	nd	—	0.13
α -HCH	0.0001 0.04	0.0002 0.04	0.0003 0.01	0.0021 0.04	0.0023 0.19	nd	0.0006 0.03	0.0002 0.04	nd	0.0033 0.29	0.0005 0.05	0.0005 0.07	0.0011 0.02	—	0.82
β -HCH	nd	0.0003 0.06	0.0002 0.008	nd	0.0001 0.008	nd	0.0003 0.02	nd	nd	0.0010 0.09	0.0004 0.04	0.0003 0.04	0.0004 0.006	—	0.27
γ -HCH	nd	0.0001 0.02	nd	nd	0.0005 0.04	nd	0.0001 0.005	nd	nd	0.0006 0.05	0.0004 0.04	0.0002 0.03	0.0004 0.006	—	0.19
Total HCH	0.0001 0.04	0.0006 0.12	0.0005 0.02	0.0021 0.04	0.0029 0.24	nd	0.0009 0.05	0.0002 0.04	nd	0.0049 0.43	0.0013 0.13	0.0010 0.14	0.0019 0.03	—	1.28
pp'-DDE	nd	nd	0.0004 0.02	nd	nd	0.0002 0.03	0.0002 0.01	nd	nd	0.0111 0.96	0.0021 0.22	0.0007 0.09	0.0011 0.02	—	1.35
pp'-DDD	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	0.0042 0.36	nd	nd	nd	—	0.36
op-DDT	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	0.0017 0.15	nd	nd	nd	—	0.15
pp'-DDT	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	0.0017 0.15	0.0001 0.01	nd	nd	—	0.16
Total DDT	nd	nd	0.0004 0.02	nd	nd	0.0002 0.03	0.0002 0.01	nd	nd	0.0187 1.62	0.0022 0.23	0.0007 0.09	0.0011 0.02	—	2.02
Dieldrin	nd	nd	0.0001 0.004	nd	0.0006 0.05	nd	0.0008 0.04	0.0019 0.35	nd	0.0007 0.06	0.0006 0.06	0.0002 0.03	0.0010 0.01	—	0.60
Malathion	nd	0.0112 2.05	0.0061 0.24	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	—	2.29
MEP	nd	0.0036 0.66	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	—	0.66

昭和59年度広島湾内産かきの重金属試験結果

食 品 環 境 部

は じ め に

昭和49年度より継続している広島湾内産かきの重金属試験を、本年度も11月から2月までの間、30件行った。検査項目は、総水銀、カドミウム、鉛、亜鉛、銅、マンガン、鉄、コバルト、ニッケル、ひ素、総クロム、ズである。

方 法

試料の調製及び分析は、既報¹⁾に準じて行った。

結 果

試験結果は表1のとおりであった。各金属とも例年の結果と比べ著しい差は見られなかった。

文 献

- 1) 松井俊治 他：広島市における食品中の微量重金属含有量(第1報)，広島市衛生研究所年報，2，31～35，(1982)

表1 広島湾内産かきの重金属含有量

(湿重量：ppm)

No	T-Hg	Cd	Pb	Zn	Cu	Mn	Fe	Co	Ni	As	T-Cr	Sn
1	ND	0.22	0.19	270	14	6.6	21	ND	0.09	1.7	ND	ND
2	0.01	0.38	0.21	450	29	12	27	ND	0.06	2.1	ND	ND
3	ND	0.26	0.17	410	27	8.3	28	ND	0.15	1.7	ND	ND
4	ND	0.23	0.26	480	31	9.7	54	ND	0.29	2.8	ND	ND
5	0.01	0.26	0.33	480	30	9.7	33	ND	0.23	2.7	ND	ND
6	0.01	0.30	0.29	560	42	15	36	ND	0.26	3.0	ND	ND
7	0.02	0.33	0.32	290	27	14	43	0.06	0.10	3.4	ND	ND
8	0.01	0.41	0.22	430	30	9.3	36	0.05	ND	2.2	ND	ND
9	0.01	0.25	0.21	420	24	6.3	30	ND	ND	2.5	ND	ND
10	0.02	0.33	0.21	290	24	11	40	ND	ND	2.3	ND	ND
11	0.01	0.30	0.26	330	26	6.0	24	ND	ND	1.4	ND	ND
12	0.01	0.23	0.18	200	13	3.3	18	ND	ND	2.3	ND	ND
13	0.01	0.21	0.15	260	17	4.1	25	ND	ND	2.3	ND	ND
14	ND	0.21	0.11	360	25	4.6	23	ND	ND	2.5	ND	ND
15	ND	0.17	0.18	170	11	5.8	33	ND	ND	1.4	ND	ND
16	0.01	0.22	0.17	220	15	9.5	28	ND	ND	1.9	ND	ND
17	0.01	0.19	0.17	160	10	7.1	25	ND	ND	1.7	ND	ND
18	0.01	0.19	0.19	160	14	5.4	29	0.06	0.07	2.3	ND	ND
19	0.01	0.19	0.18	130	12	3.8	23	ND	0.08	1.4	ND	ND
20	0.02	0.23	0.18	220	18	6.1	42	ND	0.08	1.3	ND	ND
21	0.02	0.22	0.29	140	15	6.7	33	0.06	ND	1.7	ND	ND
22	0.01	0.20	0.18	180	18	5.0	32	ND	ND	1.6	ND	ND
23	0.01	0.24	0.17	170	19	5.8	34	ND	ND	1.6	ND	ND
24	0.01	0.20	0.16	230	19	5.8	33	ND	0.08	0.80	ND	ND
25	0.01	0.19	0.14	150	14	4.1	29	ND	0.06	1.0	ND	ND
26	0.02	0.26	0.16	240	16	6.9	29	0.05	0.05	2.4	ND	ND
27	0.01	0.19	0.20	210	19	6.8	31	ND	ND	2.2	ND	ND
28	0.02	0.24	0.51	180	21	15	50	ND	0.09	2.0	ND	ND
29	0.02	0.29	0.24	280	23	8.6	31	ND	0.06	2.0	ND	ND
30	0.01	0.19	0.34	170	20	7.0	40	ND	0.05	2.0	ND	ND
範 囲	< 0.01	0.17	0.11	130	10	3.3	18	< 0.05	< 0.05	0.80	< 0.1	< 10
	0.02	0.41	0.51	560	42	15	54	0.06	0.29	3.4		
平 均	0.01	0.24	0.22	270	21	7.6	32	< 0.05	0.07	2.0	< 0.1	< 10

家庭用エアゾール製品中の有機溶剤調査結果

食 品 環 境 部

はじめに

家庭用エアゾール製品は広く一般家庭に使用されている。しかし、手軽な反面内容物を吸入、経皮、経口摂取しやすい。現在、エアゾール製品の溶剤としてメタノール、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレンが規制されているが、他にも多くの有機溶剤の使用が予想される。

今回、ガスクロマトグラフ質量分析法を用いて、家庭用エアゾール製品中の有機溶剤の実態調査を行った。

方 法

1 試 料

昭和58年及び59年度、市内で試買された家庭用エアゾール製品70検体を試料とした。

用途別内訳はクリーナー11検体、防水剤11検体、洗たくのり11検体、静電防止剤2検体、塗料5検体、カーワックス3検体、ワックス6検体、部分洗たく助剤3検体、防カビ、防菌剤9検体、防臭剤4検体、その他5検体である。

2 試 薬

すべての標準品は和光純薬製及び東京化成工業製の試薬特級及び一級を用いた。

3 装置及び測定条件

ガスクロマトグラフ—質量分析装置：日本電子製JMS-DX300、及び同社製データ処理装置JMA-3100
GC-MS conditions

column: 2% OV-17 on Chromosorb W AWDMS 60-80 mesh, inner diameter 3mm X 2.5m glass column;

column temp.: 65°C;

injection temp.: 120°C;

carrier gas: Helium 20ml/min;

separator temp.: 120°C;

ion source temp.: 200°C;

ionization mode: EI;

potential energy: 70eV;

ion current: 300µA

4 試験方法

水冷したゴム栓付き円筒形のガラスびんに試料を1g噴出させ、ゴム栓をアルミキャップで巻きしめて密栓する。30°Cの水浴中にガラスびんを入れ加温する。30分後、ヘッドスペースガスを100µl採り、ガスクロマトグラフ

質量分析(GC-MS)装置に注入した。得られたMSスペクトルから化合物を同定した。また同定した化合物の標準品を用いてGC法の保持時間及びMSスペクトルによる化合物の再確認を行った。

結 果

今回の調査は、溶剤のガス化された部分を直接分析する方法であり、対象は揮発性のある比較的低温点あるいは中沸点の有機溶剤が主であった。図1に3種類の有機溶剤が検出された検体のトータルイオンクロマトグラムを示す。各々の化合物はMSスペクトルよりピーク1が

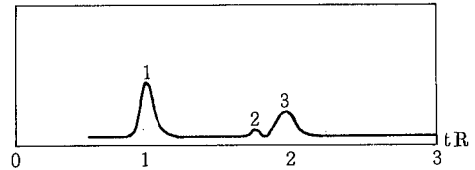


図1 エアゾール中の有機溶剤のトータルイオンクロマトグラム

酢酸エチル、ピーク2がメチルイソブチルケトン(MIBK)、ピーク3がトルエンであることが同定された。同様に他の検体についてもGC-MS法による分析を行った。

表1に検出した有機溶剤と、GCのペンタンを1.0とした時の相対保持時間を、表2に家庭用エアゾール製品中の有機溶剤検出結果を示す。

今回の調査結果では、家庭用エアゾール製品70検体中、21検体から10種類の有機溶剤が検出されたが規制物質であるトリクロロエチレン、テトラクロロエチレンについては、いずれの検体からも検出されなかった。

最も多く検出された物質は1,1,1-トリクロロエタンで15検体から、そしてn-ペンタン、n-ヘキサン、トルエンが3検体から、メチルシクロペンタン、n-ヘプタンが2検体から、1,1-ジクロロエタン、酢酸エチル、1,4-ジオキサン、MIBKが各々1検体から検出された。1,1,1-トリクロロエタンは現在には使用されていないトリクロロエチレン、テトラクロロエチレンの代替品として、溶剤、圧力調整剤あるいは洗浄剤としてエアゾール製品に繁用されている。1,1-ジクロロエタンは工業的に特殊溶剤以外には使用されることはなく、また1,1,1-トリクロロエタンの製造原料であることから、今回の検出分については、不純物によるものと考えられる。

表1 検出した有機溶剤とGCの相対保持時間

No.	物質名	分子量	沸点	相対保持時間
1	n-ペンタン	72	36℃	1.0
2	n-ヘキサン	86	69℃	1.2
3	メチルシクロペンタン	84	72℃	1.5
4	1,1-ジクロロエタン	98	57℃	1.5
5	n-ヘプタン	100	98℃	1.7
6	酢酸エチル	88	77℃	1.8
7	1,1,1-トリクロロエタン	132	74℃	1.9
8	1,4-ジオキサン	100	101℃	3.5
9	MIBK	100	116℃	3.7
10	トルエン	92	111℃	4.1

表2 家庭用エアゾール製品中の有機溶剤検出結果

用途	検体数	有機溶剤
クリーナー	2	1,1,1-トリクロロエタン
防水剤	4	1,1,1-トリクロロエタン
	1	1,1,1-トリクロロエタン, 1,4-ジオキサン
	2	1,1,1-トリクロロエタン, n-ヘプタン
塗料	1	1,1,1-トリクロロエタン
	2	トルエン, n-ペンタン
	1	MIBK, 酢酸エチル, トルエン
カーワックス	1	n-ヘキサン, メチルシクロペンタン
ワックス	1	1,1,1-トリクロロエタン
	1	1,1,1-トリクロロエタン, n-ヘキサン
パックフィルム	1	n-ヘキサン, メチルシクロペンタン
部分洗たく助剤	2	1,1,1-トリクロロエタン
	1	1,1,1-トリクロロエタン, 1,1-ジクロロエタン
防カビ剤	1	n-ペンタン

今回調査した70検体のうち製品の容器に物質名の表示があった検体は部分洗たく助剤の3検体に1,1,1-トリクロロエタンの表示があった。また16検体には有機溶剤あるいは不燃性溶剤の表示があったが、そのうち5検体

は今回対象とした有機溶剤は検出されず、これらの検体については比較的高沸点な有機溶剤の使用が考えられる。残り51検体には表示はなく、そのうち7検体から有機溶剤が検出された。

養護施設における*S. sonnei*の集団発生事例について

微生物部

はじめに

近年わが国において発生する赤痢の主要菌型は、*S. sonnei*である。本菌による病症は軽く、潜伏流行へと拡大する集団発生事例が多く報告されており、¹⁾²⁾ 昭和58年の国内集団発生事例の92%が*S. sonnei*によるものであった。³⁾

昭和58年12月から59年7月にかけて広島市内及び隣接町の養護施設においてみられた*S. sonnei*による赤痢の集団発生事例について概要をとりまとめた。

方法

菌の検出は、SS寒天培地及びDHL寒天培地を使用し、一部の検体については、セレンナイト培地を用いて増菌培養を併せて実施した。同定は常法⁴⁾に準じて実施した。

コリシン型別は、コリシン型別標準検査法⁴⁾に準じて行った。一部菌株については大阪府公衆衛生研究所へ型別を依頼した。

生物型は、Sztrum-Rubinsten及びEwing等の分類により実施した。

薬剤感受性試験は、一濃度ディスク(昭和ディスク)による平板拡散法⁵⁾で実施した。薬剤はストレプトマイシン(SM)50 μ g, カナマイシン(KM)50 μ g, テトラサイクリン(TC)200 μ g, クロラムフェニコール(CP)100 μ g, アミノベンジルペニシリン(AB-PC)30 μ g及びナリジクス酸(NA)50 μ gの6種類を用いた。耐性がみられた薬剤についてはさらに寒天平板希釈法で最小発育阻止濃度(MIC)を求めた。

一部の患者血清について*S. sonnei*に対する抗体価を中谷等の方法⁶⁾に準じ赤血球凝集反応(HA)で測定した。すなわち、感作血球は*S. sonnei*1相からのアルカリ抽出抗原で羊赤血球を感作し作製した。HAはマイクロタイター法を用い、37 $^{\circ}$ C 2時間後に一次判定し、さらに4 $^{\circ}$ C 18時間後に最終判定を行った。

結果

1 発生状況及び概要

赤痢患者発生状況を図1に示した。昭和58年12月広島市内に住む16歳の女性が*S. sonnei*による赤痢と診定された。この患者は隣接町日養護学校に通学しており、その後の調査で同養護施設をはじめ同校生徒の入園している市内O養護施設及び市外K養護施設からも患者、保菌者

が次々と発見され、3施設(1市2町)にまたがる集団発生となった。

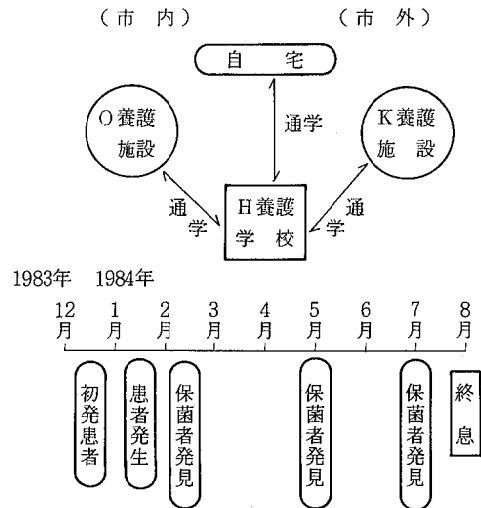


図1 赤痢患者発生状況

表1に各施設の検便実施状況を示した。*S. sonnei*は延4,387件中67件から検出された。

表1 検便実施状況

発生施設	検便実施数	陽性数
市内 O養護施設(110人)*	1,597	30
市外 K養護施設(89人)	1,242	32
日養護学校(348人)	1,548	5
計	4,387	67

* (): 施設人員

当所で実施したO養護施設では、昭和58年12月から59年7月までの8ヶ月間に13回の集団検便を行い延1,597件中30件から*S. sonnei*を検出した。表2にその検出状況を示した。*S. sonnei*の検出1回のみが12人、2回が6人、3回が2人の計20人で、これらの菌陽性者の平均検便回数は11回であった。

また、汚染の疑われた井戸水及び食品、スワブ等126件の検査を実施したがいずれからとも*S. sonnei*は検出されなかった。

本事例は、*S. sonnei*による病症の特徴及び発生施設の特異性から終息までに長期間を有し、感染源も判明しな

いものであった。

表2 O 養護施設における赤痢菌検出状況

検出回数	患者数 (20人)	月別検出数					計 (件)
		12月	1月	2月	5月	7月	
1回	4 3 3 2	4	3	3	2		12
2回	1 1 1 3	1	1	1	1	3	12
3回	2 1 1	1	1	1	1	1	6
計		8	4	8	9	1	30

2 生化学的性状

検出した *S. sonnei* の性状を表3に示した。生化学的性状は、*S. sonnei* の通常の性状とほぼ一致したが、オルニチン脱炭酸能を欠く点が異なっていた。

表3 *S. sonnei* の生化学的性状

生化学的性状	今回検出株	通常の性状
インドール産生	-	-
硫化水素産生	-	-
VP 反応	-	-
クエン酸 (Shimons)	-	-
クエン酸 (Christensen)	-	-
尿素	-	-
ONPG 試験	-	-
リジン脱炭酸	-	-
アルギニン脱水素	-	-
オルニチン脱炭酸	-	+
マンニット	-	-
キシロース	-	-
アドニット	-	-
イノシット	-	-
アラビノース	-	-
ラムノース	-	-
マルトース	+	+
乳糖	(+)	(+)
ブドウ糖	+	+
ブドウ糖ガス産生	-	-

18時間後判定 +:陽性 -:陰性 (+):遅れて陽性

3 検出菌のコリシン型、生物型及び薬剤耐性

今回集団発生のあった各施設では、昭和50年にも *S. sonnei* による赤痢の集団発生がみられていた。

昭和50年検出株と今回検出株(昭和58年株)のコリシン型、生物型及び薬剤耐性を比較して表4に示した。コリシン型はいずれも12型を示した。生物型はONPG試験、乳糖分解能及びキシロース分解能による Sztrum-Rubin-

表4 検出株のコリシン型、生物型及び薬剤耐性

検出株	コリシン型	生物型		薬剤耐性
		Sztrum-Rubinsten	Ewing	
50年株 (46株)	12型	a型	4型	TC-CP (19.6%) TC (2.2%)
58年株 (20株)	12型	a型	4型	TC (25.0%)

sten の生物型別でいずれも a 型を示し、さらに ONPG 試験の代わりにマンニット分解能及びオルニチン脱炭酸能を加えた Ewing 等の生物型別でいずれも 4 型を示した。薬剤耐性は、今回検出株では TC 耐性株だけで、昭和50年検出株にみられた TC, CP の 2 剤耐性株は検出されなかった。耐性株がみられた TC の MIC は、耐性株が 200 µg/ml, 感受性株が 1.56 µg/ml であった。

4 抗体価

患者の累積 HA 抗体保有状況を図2に示した。血清は2月と5月の2回にわたり採取した。HA 抗体価80倍以上を示すものは、2月患者血清が100%であったが、5月患者血清では77%に低下した。2月、5月患者血清及び対照として一般健康人血清の抗体価を指数換算し平均値で表わすと4.4, 3.8, 1.1となり患者と対照者間に有意の差がみられた。

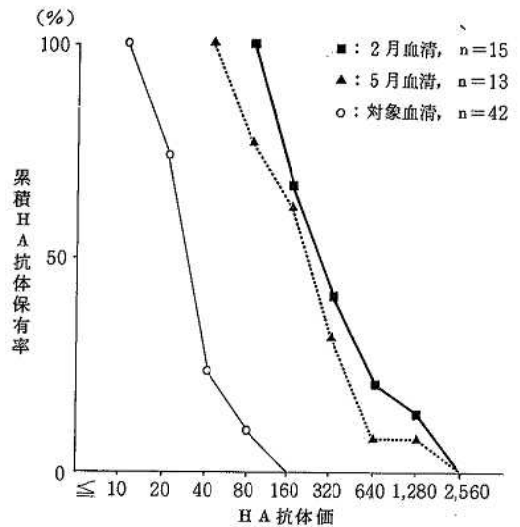


図2 赤痢患者の累積HA抗体保有率

文 献

- 宮田義人 他: 赤痢患者および保菌者の血中抗体について, 第1報 *Sonnei* 赤痢, 日本伝染病学会雑誌, 43, 217~223 (1969)
- 芦田博之 他: 戸田市の2小学校に発生した集団赤痢の疫学調査, 埼玉県衛生研究所報, 9, 30~37 (1975)

- 3) 厚生省感染症対策課：昭和58年の赤痢の発生状況について，日本医事新報，**3138**，114（1984）
- 4) 岡田正次郎 他：下痢・食中毒—赤痢菌，微生物検査必携 細菌・真菌検査，第2版，195～204，日本公衆衛生協会（1982）
- 5) 三橋 進：薬剤感受性測定法，68～121，講談社（1980）
- 6) 中谷林太郎：間接血球凝集反応の手法 — 赤痢への応用例 —，感染症学雑誌，**46**，216～220（1972）

昭和59年度のインフルエンザ集団発生について

微生物部

はじめに

今季のインフルエンザ様感冒の流行は、全国的に例年より約1カ月遅く始まり、広島市においても、昭和59年中はほとんど発生が報告されなかった。しかし、60年1月から徐々に患者報告数が増加し、2月下旬をピークに

3月末まで患者発生をみた。(図1) その間、4つの小中学校から集団発生の届出があり、学年あるいは学級閉鎖の措置がとられた。(表1) そのうちA、B2中学校の罹患生徒から採取された検体についてウイルス分離と赤血球凝集抑制抗体価(HI抗体価)の測定を行った。

表1 インフルエンザ様感冒集団発生届出状況

施設名	発生月日	全校罹患率(%)	措置 罹患率(%)	クラス 欠席率(%)	措置	ワクチン 接種率(%)
* A中学校(中区)	2/4	23.9	97.7	39.5	学級閉鎖	81.6
* B中学校(安佐南区)	2/22	15.6	82.6	37.0	学級閉鎖	81.8
C小学校(安芸区)	2/26	29.5	54.9	28.7	学年閉鎖	90.3
D中学校(南区)	3/5	16.0	87.5	32.5	学級閉鎖	20.9

(*:検体採取校)

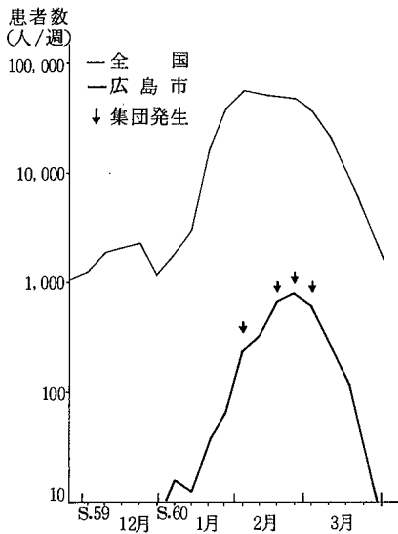


図1 インフルエンザ様感冒患者報告数
(感染症サーベイランス情報)

方法

1 検体

A校の罹患生徒10名から2~6病日の咽頭ぬぐい液が採取され、そのうち4名からペア血清が、2名からは急性期血清が採取された。B校においても罹患生徒10名から2~4病日の咽頭ぬぐい液が採取され、そのうち8名からペア血清が採取された。なお、回復期血清の採取は急性期血清採取から14日後に行われた。

2 ウイルス分離

(1) 細胞培養法

常法に準じて6穴プレートに培養されたMDCK細胞の2~3穴に検体を接種し、CPEを指標に7日間観察し、CPE陽性検体の培養液についてニワトリ赤血球による赤血球凝集反応(HA)を行った。

(2) 発育鶏卵培養法

9~10日卵の羊膜腔内及び漿尿膜腔内接種後34℃で3日間培養し、HAで判定した。分離陰性例では3代まで継代した。

(3) 同定

HA陽性の培養液はHA価1:16に調製後、自家製のニワトリ抗血清を用いてマイクロタイター法によるHIで同定した。抗血清は抗B/Singapore/222/79, 抗A/熊本/37/79(H1N1), 抗A/Singapore/1/57(H2N2), 抗A/Bangkok/1/79(H3N2)を使用した。

3 HI抗体価測定

12名のペア血清と2名の単一血清について、RDE処理後ニワトリ赤血球を用いたマイクロタイター法によりHI抗体価を測定した。抗原は化血研製のB/Singapore/222/79, B/神奈川/3/76, A/Bangkok/10/83(H1N1), A/Philippines/2/82(H3N2)及び、分離株のB/広島/C-2/85(1月末散発例より分離)とB/広島/C-22/85(B校生徒より分離)を用いた。

結 果

1 ウイルス分離状況

細胞培養法によってA校は10名中8名, B校では10名全ての咽頭ぬぐい液からB型インフルエンザウイルスが分離された。A校の咽頭ぬぐい液については発育鶏卵による分離も試みたが, 全て分離陰性であった。

予研インフルエンザセンターで行われた抗原分析の結果(表2)によれば, 今回の分離株にはB/Norway/1/84類似株とともにB/青森/2/84類似株が存在したものとされた。

2 HI抗体価

各抗原に対するHI抗体価は図2のとおりで, 両校生徒とも同一レベルにあると思われた。それぞれの抗原に対する急性期血清及び回復期血清抗体価の指数平均(±SD)は, 分離株で4.7(±0.61), 7.5(±1.09), B/Singapore/222/79で6.4(±0.74), 8.3(±1.22) B/神奈川/3/76で6.1(±0.47), 7.8(±0.94), A/Bangkok/10/83(H1N1)で8.4(±0.84), 8.3(±0.62), A/Philippines/2/82(H3N2)では7.4(±0.85), 7.3(±0.78)であった。

A型ではH1, H3ともに抗体価の変動は認められなかったが, B型では分離株で4~16倍(平均8.0), B/Singapore/222/79で1~8倍(平均4.2), B/神奈川/3/76で1~16倍(平均3.7)の上昇を認めた。標準株と比べて, 分離株に対する急性期血清の抗体価は平均2^{-1.5}ほど低値で, 抗体価の上昇巾が大きいことから, 今回の流行株にはいく分の抗原構造の変異があったものと思われた。

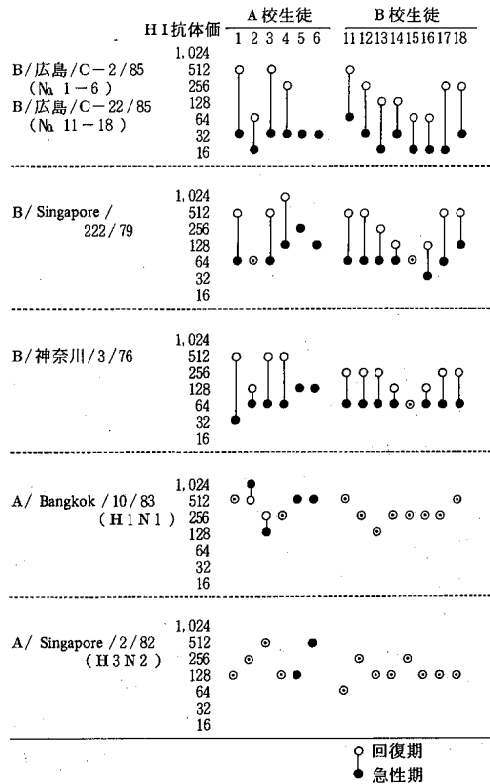


図2 HI抗体価の比較

表2 分離株の抗原分析

(予研インフルエンザセンター資料より抜粋)

抗原	フェレット感染血清	B/Singapore/222/79	B/USSR/100/83	B/Norway/1/84	B/Aomori/2/84
B/Singapore/222/79		256	512	512	128
B/USSR/100/83		32	128	256	64
B/Norway/1/84		64	128	256	128
B/Aomori/2/84		128	512	512	512
B/Hiroshima/C-2/85		64	256	256	256
B/Hiroshima/C-5/85		64	256	256	256
B/Hiroshima/C-7/85		128	512	512	512
B/Hiroshima/C-11/85		128	512	512	512
B/Hiroshima/C-20/85		32	256	256	128
B/Hiroshima/C-22/85		64	512	256	64
B/Hiroshima/C-26/85		128	512	512	512

(C-5, 7, 11: A校分離株, C-20, 22, 26: B校分離株)

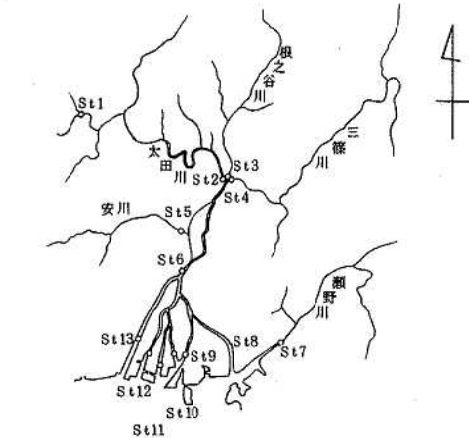
市内河川水中のふん便性大腸菌群について

公 害 部

はじめに

環境水中の大腸菌群の検査方法としてBGLB法が指定されているが、大腸菌群の中にはふん便に由来するものと、自然界に常在化しているものがあり、この方法ではふん便汚染の実態を把握することは困難で、より適確に判定できる方法が求められている。

昭和59年度より、環境庁は水浴場の水質調査項目のうち大腸菌群検査のBGLB法を変更し、ふん便性大腸菌群検査としてM-FC法(メンブランフィルター法)を指定した。M-FC法は簡便で迅速な方法で検水の量も多量に扱えるといった利点があり、BGLB法に比べふん便性大腸菌群に対して選択性が高い。その反面コロニーの計数において形態及び色調など判別に際し不明瞭なコロニーも多く、また非典型コロニーが多いと、発育が阻害されるといった問題点がある。一方食品衛生検査指針においては貝類のふん便性大腸菌検査にECテストが指定されている。そこで今回我々は市内河川水中のBGLB法陽性菌群数(以下「TC」という)、M-FC法陽性菌群数(以下「FC」)及びECテスト陽性菌群数(以下「EC」)について比較を行ったので、その結果を報告する。



St	地点名	St	地点名
1	高山川合流後	8	仁保橋
2	太田川橋	9	御幸橋
3	根之谷川橋	10	南大橋
4	深川橋	11	舟入橋
5	五軒屋	12	昭和橋
6	西原南	13	旭橋
7	日浦橋		

図1 測定地点

調査地点及び方法

図1に示す市内河川13地点の表層水について、昭和59年8、9月及び昭和60年2月の各月1回調査した。なおSt.8~13は感潮域のため満潮時と干潮時の2回採水した。

検査方法は表1のとおりである。

表1 検査方法

検査方法	検査条件
BGLB法	BGLB培地-36±1℃-48±3時間培養
M-FC法	M-FC培地-44.5±0.2℃-24±1時間培養
ECテスト	EC培地-44.5±0.2℃-48±3時間培養(5本発酵管-3段階-MPN法)

結果

調査結果を表2に示す。図2からFCとECの分布はよく似た傾向を示しているが、TCの分布はFC、ECの分布に比べ高い値に偏っている。それぞれの中央値は表3に示すとおりで、TCの中央値はFC、ECの値に比べ約10倍高かった。またTC中に占めるFC、ECの比のヒストグラム(図3)でも、感潮域、淡水域とも10%前後に集中した。これらのことから、大腸菌群に含まれるふん便性大腸菌群は約1割程度であると思われる。次に、TC、FC及びECのlog大腸菌群数の全域、感潮域及び淡水域の相関係数を表4に示す。表4をみると感潮域に比べ淡水域の方が高い相関を示した。FC-EC間には高い相関($r=0.840$ $n=56$)が認められ、全域についてのFC/ECのヒストグラム(図4)では階級値が1のところ集中し、その割合は23%であった。

表3 TC、FC、ECの中央値

	淡水域	感潮域	全域
TC (MPN/ 100ml)	3.5×10^3	1.3×10^4	1.1×10^4
FC (個/100ml)	2.2×10^2	2.8×10^3	1.6×10^3
EC (MPN/ 100ml)	4.9×10^2	1.7×10^3	1.7×10^3

表 2 調 査 結 果

St	採水年月	FC (個/100ml)	TC (MPN / 100ml)	EC(MPN / 100ml)	FC/TC(%)	EC/TC(%)	FC/EC
1	59.8	1.4×10^2	3.5×10^3	2.2×10^2	4.0	6.2	0.64
	59.9	2.0×10^2	1.7×10^3	$<1.8 \times 10$	12	<1.1	>11
	60.2	6.0×10	2.4×10^2	<1.8	25	<0.75	>33
2	59.8	1.6×10^2	1.7×10^3	1.3×10^2	9.4	7.6	1.2
	59.9	1.6×10^2	4.9×10^2	4.5×10	33	9.1	3.6
	60.2	2.0×10	1.1×10^2	7.8	18	7.1	2.6
3	59.8	1.8×10^2	1.3×10^3	4.0×10	14	3.0	4.5
	59.9	$<2.0 \times 10$	6.8×10	$<1.8 \times 10$	<29	<26	1.1
	60.2	3.0×10^3	3.5×10^3	9.2×10^2	86	26	3.3
4	59.8	2.2×10^2	2.4×10^3	4.9×10^2	9.2	20	0.45
	59.9	1.4×10^2	4.9×10^3	4.9×10^2	2.9	10	0.29
	60.2	1.8×10^2	3.5×10^3	3.3×10	5.1	0.94	5.5
5	59.8	3.8×10^4	1.3×10^5	$>2.4 \times 10^4$	29	>18	<1.6
	59.9	1.0×10^4	2.2×10^5	7.0×10^3	4.5	3.1	1.4
	60.2	2.0×10^3	9.2×10^4	1.7×10^4	2.1	18	0.12
6	59.8	2.6×10^4	4.9×10^4	1.6×10^4	53	33	1.6
	59.9	2.0×10^3	4.9×10^4	2.2×10^3	4.1	4.5	0.91
	60.2	2.0×10^3	5.4×10^4	5.4×10^3	3.7	10	0.37
7	59.8	2.4×10^4	4.9×10^4	1.7×10^4	49	35	1.4
	59.9	2.4×10^3	4.9×10^4	4.5×10^2	4.9	0.91	5.3
	60.2	2.0×10^3	1.3×10^5	1.6×10^4	1.5	12	0.13
*8	59.8	5.8×10^3	4.9×10^4	1.1×10^4	12	22	0.53
		1.4×10^4	2.4×10^4	1.7×10^4	58	71	0.82
	59.9	2.8×10^4	3.5×10^5	7.9×10^3	8.0	2.2	3.5
*9	59.8	1.8×10^3	7.9×10^3	3.3×10^3	23	42	0.55
		1.2×10^4	2.4×10^4	4.6×10^3	50	19	2.6
	59.9	3.8×10^3	4.9×10^3	4.5×10^2	78	9.2	8.4
*10	59.8	4.6×10^2	4.9×10^3	3.5×10^3	9.4	71	0.13
		1.2×10^3	7.9×10^3	1.7×10^3	15	22	0.71
	59.9	1.6×10^3	1.1×10^4	1.7×10^3	15	15	0.94
*11	59.8	6.0×10^2	1.7×10^3	4.9×10^2	35	29	1.2
		6.6×10^3	3.5×10^4	5.4×10^3	19	15	1.2
	59.9	3.2×10^3	2.4×10^4	1.7×10^3	13	7.1	1.9
*12	59.8	6.2×10^2	3.3×10^3	1.7×10^3	19	52	0.36
		1.4×10^3	1.3×10^4	3.5×10^3	11	27	0.40
	59.9	4.2×10^3	4.9×10^4	1.3×10^3	8.5	2.6	3.2
*13	59.8	3.2×10^3	1.7×10^4	9.2×10^3	19	54	0.35
		5.2×10^3	3.5×10^4	3.5×10^3	15	10	1.5
	59.9	1.6×10^4	1.1×10^5	1.7×10^3	15	1.5	9.4
*14	59.8	3.6×10^2	2.4×10^4	1.7×10^2	1.5	0.70	2.1
		3.0×10^2	1.3×10^4	1.6×10^3	2.3	12	0.19

*...感潮域

満潮時
干潮時

表4 log大腸菌群数相関表

TC	0.821	
FC	0.840	0.837
	EC	TC

全 域 n = 56

TC	0.664	
FC	0.816	0.816
	EC	TC

感潮域 n = 35

TC	0.910	
FC	0.884	0.885
	EC	TC

淡水域 n = 21

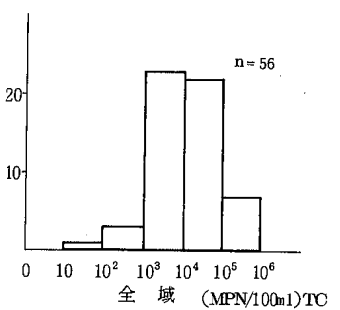
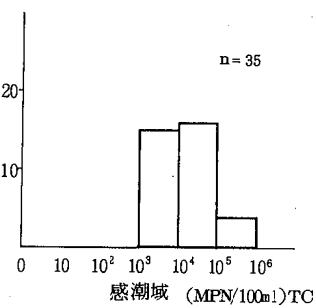
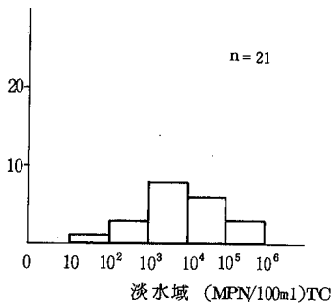
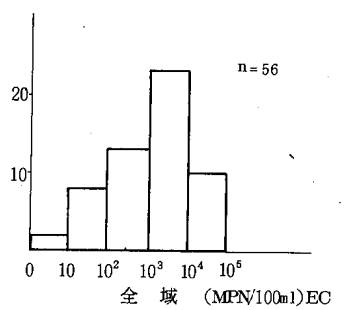
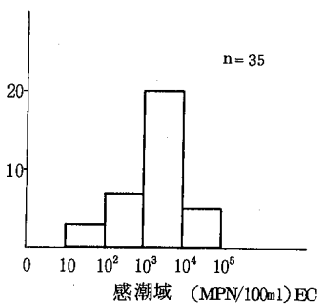
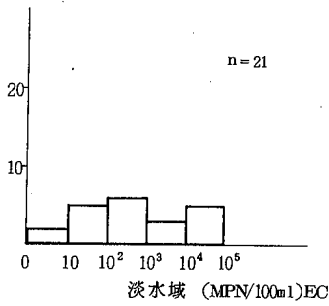
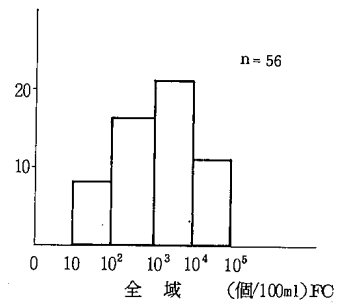
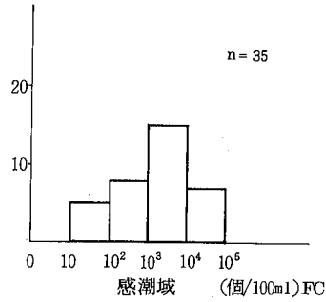
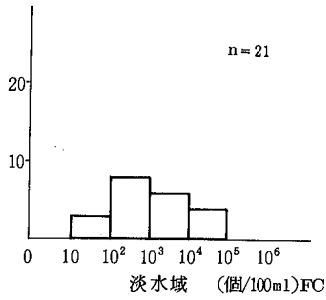


図2 FC, EC, TCのヒストグラム

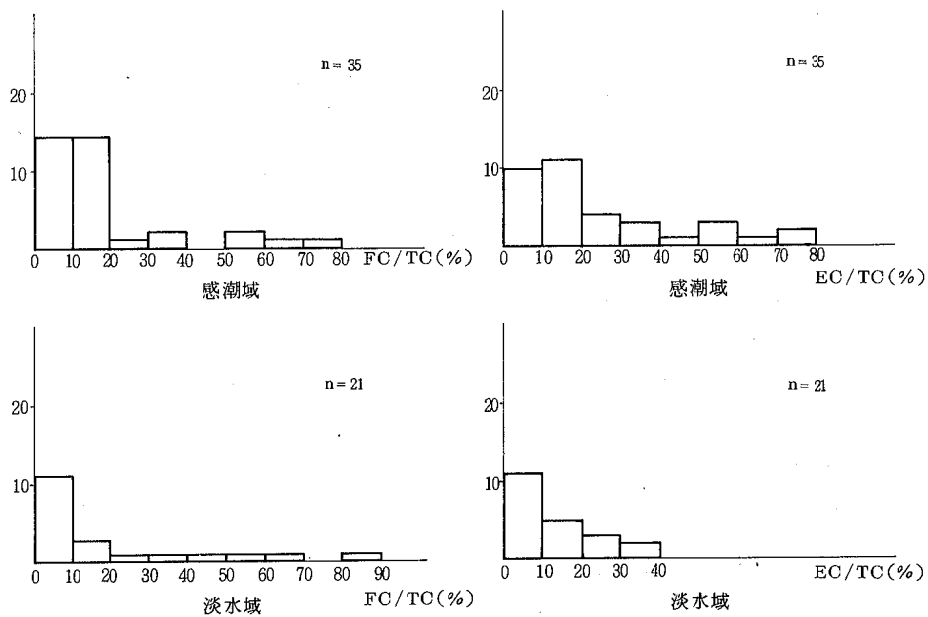


図3 FC/TC EC/TCヒストグラム

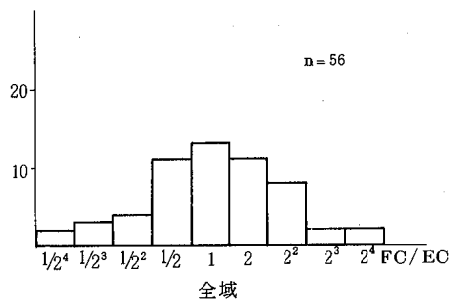


図4 FC/ECのヒストグラム

広島市における放射能調査結果について(その2)

— 降水・自然降下じん埃及び松葉の γ 線核種分析結果 —

公 害 部

はじめに

前報では、各種試料の全 β 放射能調査結果について報告した。本報では、57~59年度に行った降水・自然降下じん埃及び松葉の γ 線核種分析結果について報告する。

方 法

1 試料の採取及び前処理

各試料の採取地点は、次のとおりである。

降水・自然降下じん埃

西区商工センター4丁目 衛生研究所屋上

松 葉

St.1: 西区山田町 (市西部)

St.2: 安佐北区野登呂山 (市北部)

St.3: 安芸区鉾取山 (市東部)

降水・自然降下じん埃の採取は、「全ベータ放射能測定法(科学技術庁 昭和51年改訂)」に準じ、大型水盤(0.5 m^2)を用いて1ヶ月単位で行った。採取した試料水は、磁製皿で蒸発、乾固し、残留物をプラスチック製容器(36 $mm\phi \times 8mm$: 内容量20g, 以下S型容器と略)に密封して γ 線測定用試料とした。

松葉は、1年葉と2年葉の採取を行った。それぞれの生試料500gを磁製皿に分取し、大型マッフル炉を用いて500 $^{\circ}C$ をこえない温度で灰化をした後、灰化物をプラスチック製容器(45 $mm\phi \times 35mm$: 内容量50g, 以下M型容器と略)に密封して γ 線測定用試料とした。

2 標準容積線源の作製

容積線源の標準ピーク効率を求めするため、S型及びM型の2種類の容器を用いて、次に示す方法で標準容積線源の作製を行った。

線源はEu-152(日本アイソトープ協会製, $EuCl_3$ in 0.1N-HCl)を用い、媒体物質は活性アルミナ(和光純薬工業製, 200mesh)とした。それぞれの容器には一定量の活性アルミナを入れ、あらかじめメチレンブルーを加えて着色させたEu塩酸溶液を一定量ずつ滴下して吸収させた後、それらの容器を密封した。メチレンブルーで着色した部分が全体に均一に広がるまで振とう攪拌した後、標準容積線源として用いた。それぞれの容器に対する線源及び活性アルミナの量は次のとおりである。

Eu-152 活性アルミナ

S型容器 : 0.129 μCi 1g

M型容器 : 0.103 μCi 30g

また、これらの標準容積線源を用いて得られたピュアゲルマニウム半導体検出器(H.P.Ge検出器)の標準ピーク効率を図1に示す。

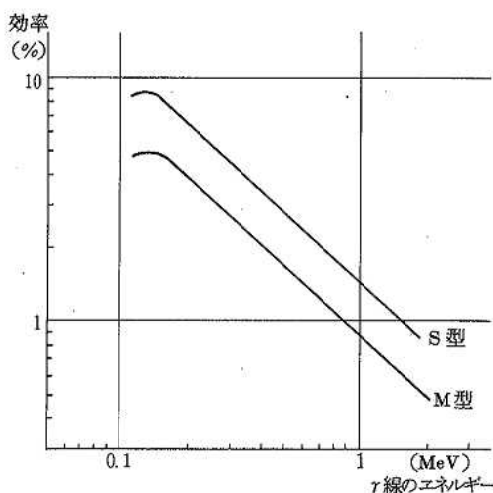


図1 H.P.Ge検出器の容積線源に対するピーク効率曲線

3 測定

測定はORTEC社製のピュアゲルマニウム γ 線スペクトロメーターを用いた。検出器はGEM-10195(分解能: 1.75 keV, 相対効率: 13.2%), また、MCAは7050シリーズである。

結 果

1 降水・自然降下じん埃

調査期間中、検出された放射性核種はU系列, Th系列の核種を除くとBe-7, K-40, Cs-137の3核種のみであった。それぞれの月間降下量を表1に示す。

Be-7は、地球大気の上空でC-12の原子核に宇宙線の成分である陽子線等が衝突することにより破碎反応を起して生じる宇宙線起源の自然放射性核種であり、今回の調査でも常に検出された。K-40はU系列やTh系列と同じく地球起源の自然放射性核種で、K元素中に0.0117%の割合で含まれており、今回の調査で検出されたK-40は、ほと

表1 降水・自然降じん埃の調査結果

年度	採取期間	核種 mCi/km ²		
		Be-7	K-40	Cs-137
57	57. 7. 3 ~ 7. 31	2.57 ± 0.03	0.17 ± 0.01	0.005 ± 0.001
	7. 31 ~ 8. 31	1.17 ± 0.07	1.72 ± 0.03	-
	8. 31 ~ 9. 30	1.88 ± 0.11	-	-
	9. 30 ~ 10. 30	0.74 ± 0.04	-	0.001 ± 0.002
	10. 30 ~ 11. 30	1.37 ± 0.05	-	-
	11. 30 ~ 58. 1. 5	2.81 ± 0.03	-	0.002 ± 0.001
	58. 1. 5 ~ 1. 31	0.83 ± 0.04	0.06 ± 0.03	0.003 ± 0.002
	1. 31 ~ 2. 28	3.42 ± 0.05	-	0.003 ± 0.002
2. 28 ~ 3. 31	5.60 ± 0.06	0.31 ± 0.04	0.010 ± 0.003	
58	58. 3. 31 ~ 4. 30	5.82 ± 0.05	0.09 ± 0.03	0.009 ± 0.002
	4. 30 ~ 5. 31	4.16 ± 0.04	0.06 ± 0.03	0.006 ± 0.002
	5. 31 ~ 6. 30	4.08 ± 0.04	-	0.004 ± 0.001
	6. 30 ~ 7. 30	2.86 ± 0.04	0.08 ± 0.03	0.004 ± 0.002
	7. 30 ~ 8. 31	1.81 ± 0.02	0.12 ± 0.02	0.002 ± 0.001
	8. 31 ~ 9. 30	1.45 ± 0.05	-	0.003 ± 0.002
	9. 30 ~ 10. 31	2.67 ± 0.03	-	0.002 ± 0.002
	10. 31 ~ 11. 30	1.65 ± 0.04	0.09 ± 0.02	0.003 ± 0.002
	11. 30 ~ 59. 1. 5	2.14 ± 0.03	-	0.003 ± 0.002
	59. 1. 5 ~ 1. 31	0.97 ± 0.02	0.10 ± 0.02	-
	1. 31 ~ 2. 29	2.36 ± 0.03	0.22 ± 0.03	0.003 ± 0.002
2. 29 ~ 3. 31	2.92 ± 0.03	0.20 ± 0.02	0.005 ± 0.001	
59	3. 31 ~ 4. 30	5.61 ± 0.07	-	0.005 ± 0.002
	4. 30 ~ 5. 31	3.14 ± 0.16	-	0.003 ± 0.002
	5. 31 ~ 6. 30	4.98 ± 0.15	-	0.003 ± 0.002
	6. 30 ~ 7. 31	1.76 ± 0.08	-	0.003 ± 0.002
	7. 31 ~ 8. 31	0.81 ± 0.04	-	0.002 ± 0.001
	8. 31 ~ 10. 1	3.89 ± 0.07	-	0.004 ± 0.002
	10. 1 ~ 10. 31	1.26 ± 0.04	-	0.002 ± 0.002
	10. 31 ~ 11. 30	1.76 ± 0.03	-	0.003 ± 0.002
	11. 30 ~ 60. 1. 4	1.76 ± 0.07	0.16 ± 0.03	0.001 ± 0.001
	60. 1. 4 ~ 1. 31	3.96 ± 0.05	0.04 ± 0.02	-
	1. 31 ~ 2. 28	0.50 ± 0.03	0.07 ± 0.04	-
	2. 28 ~ 3. 31	6.31 ± 0.05	0.19 ± 0.03	0.001 ± 0.002

んどが地表から舞い上ったちり等の影響と考えられる。Cs-137は核実験等により生成した人工放射性核種であり、半減期が30年と長いことから、今まで、一般環境中に放出された核種が、現在もまだ残存しているものと思われ、今回の調査においても検出された。

Be-7、Cs-137の月間降下量の変化を図2に示す。大気の循環が活発になる春に高く大気が安定している秋、冬に低いスプリングピークが顕著に現われている。Cs-137の年間降下量は、昭和58年が0.052mCi/km²、昭和59年が0.034mCi/km²と減少した。これは、3、4、5月のスプリングピーク時の降下量が減少したためであり、他の月の降下量には大きな相違は認められなかった。

2 松葉

松葉の調査では、降水・自然降じん埃の調査で検出されたBe-7、K-40、Cs-137の3核種に加え、Mn-54、Ce-144の2核種が検出された。調査結果を表2に示す。Mn-54、Ce-144はどちらも人工放射性核種であり、Mn-54はFeに重陽子線を照射することにより生成し、Ce-144はUやPuが核分裂を起こした際に生成する核種である。

Mn-54は57、58年度の調査で検出されたが59年度の調査では検出されなかった。また、Ce-144は57年度の調査では検出されたが58、59年度の調査では検出されなかった。しかし、Cs-137は各地点で常に検出され、ま

た、Be-7もSt.3の2年葉(58年度)を除いたすべての調査で検出された。K-40は、松葉中に多量に存在するK元素の同位体であり、常に検出された。

今回報告した松葉による大気中放射性核種のモニタリ

ングは、検出される放射性核種の絶対量が水盤法に比べ10倍以上であり、微量放射性核種の定性的な測定には有用な方法である。

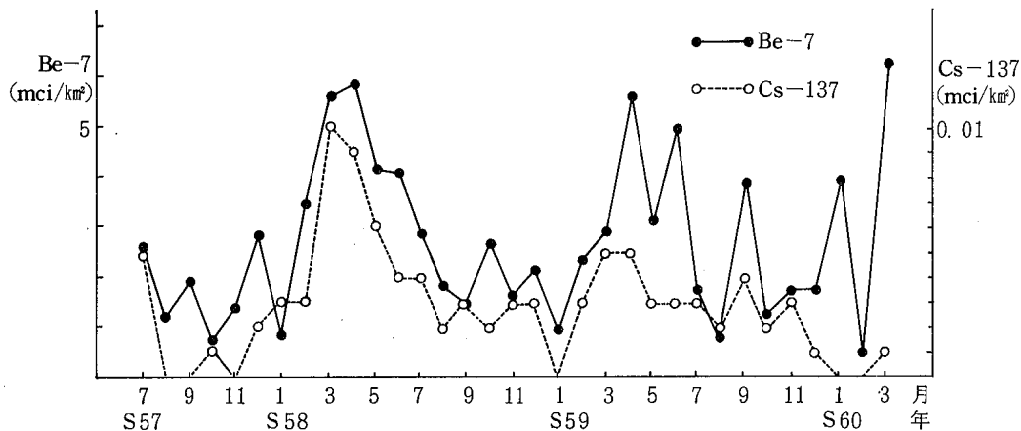


図2 降水・自然降下じん埃によるBe-7, Cs-137の月間降下量の推移

表2 松葉の調査結果

St.No	採取年月日	核種 pCi/g生					
		Be-7	K-40	Mn-54	Cs-137	Ce-144	
1	1年葉	57. 9. 14	0.63 ± 0.10	2.99 ± 0.05	—	0.091 ± 0.003	—
		58. 9. 30	1.00 ± 0.04	2.44 ± 0.06	—	0.116 ± 0.003	—
		59. 9. 25	0.86 ± 0.13	2.78 ± 0.07	—	0.231 ± 0.005	—
	2年葉	57. 9. 14	0.58 ± 0.13	2.28 ± 0.07	—	0.066 ± 0.004	0.039 ± 0.017
		58. 9. 30	1.48 ± 0.04	1.70 ± 0.05	0.007 ± 0.002	0.090 ± 0.003	—
		59. 9. 25	0.98 ± 0.11	1.80 ± 0.05	—	0.115 ± 0.003	—
2	1年葉	58. 1. 25	0.94 ± 0.04	1.93 ± 0.06	—	0.087 ± 0.004	—
		58. 9. 16	0.89 ± 0.04	2.00 ± 0.06	—	0.118 ± 0.003	—
		59. 9. 28	0.99 ± 0.15	1.93 ± 0.06	—	0.117 ± 0.004	—
	2年葉	58. 1. 25	0.89 ± 0.03	1.87 ± 0.03	0.009 ± 0.001	0.075 ± 0.002	0.032 ± 0.005
		58. 9. 16	0.94 ± 0.05	1.52 ± 0.05	0.007 ± 0.002	0.072 ± 0.003	—
		59. 9. 28	0.83 ± 0.14	1.88 ± 0.06	—	0.072 ± 0.004	—
3	1年葉	57. 10. 5	0.87 ± 0.07	3.04 ± 0.05	0.007 ± 0.002	0.033 ± 0.002	—
		58. 9. 8	0.32 ± 0.03	2.55 ± 0.04	—	0.031 ± 0.002	—
		59. 9. 27	0.74 ± 0.09	2.30 ± 0.07	—	0.086 ± 0.004	—
	2年葉	57. 10. 5	1.15 ± 0.07	2.84 ± 0.05	0.004 ± 0.001	0.040 ± 0.002	0.077 ± 0.008
		58. 9. 8	—	1.85 ± 0.05	—	0.028 ± 0.002	—
		59. 9. 27	0.66 ± 0.13	1.76 ± 0.06	—	0.074 ± 0.003	—

Ⅲ 抄 録

他誌掲載論文

異型肺炎の流行

荻野武雄 山岡弘二
医学のあゆみ 132 648~649 1985

1982年1月から1984年10月までに広島市感染症サーベイランス事業における、異型肺炎患者の発生状況及びM. pneumoniaeの分離状況について紹介する。

患者発生は1983年の秋から冬の小流行後、翌年の春から夏にかけて7月の194人をピークとする大流行へと移行した。この流行は全国的な流行パターンとはほぼ一致した。1984年1月から10月までの690人の患児年齢は5~9歳が444人、1~4歳165人、10~14歳54人、15歳以上19人、1歳未満8人であった。M. pneumoniaeは1984年4月から10月末までの202検体中103検体(約51%)

から分離された。年齢別分離状況は1~4歳が約44%、5~9歳約54%、10歳以上約52%で1歳未満からは分離されなかった。病週別では1週目が約55%、2週目が約37%、3週目が約25%と病初期で高い分離率がみられた。検体採取後3日以内に検査を開始すれば分離率は、ほぼ同じ成績が得られた。感染様式は散発例の他に、N小学校において3月から7月にかけて集団発生がみられ、45検体中28例から分離された。家族内発生は14例の同胞発生例中8例から分離された。

広島市における小児下痢症の細菌学的・ウイルス学的検索について

山岡弘二 池田義文 笠間良雄 瀬尾和範
萱島隆之 伊藤文明 伊藤英二 石村智加子*1
奥備敏明 石村勝之 船崎康浩*2 野田 衛
佐々木良和*3 松石武昭 森本 博*4 荻野武雄
小島 啓*5 川本功一*6

広島医学 37 953~957 1984

広島市における小児下痢症の実態を明らかにするため、昭和57年7月から58年6月までに、市内の2小児科医院で採取した下痢症患児の糞便について、細菌及びウイルス検索を実施した。

病原体は179検体中103検体(57.5%)から検出された。その内訳はRotavirus 37株(20.7%)、C. jejuni 35株(19.6%)、EPEC 20株(11.2%)、Salmonella 12株(6.7%)、Adenovirus 7株(3.9%)、SRV 3株

(1.7%)及びPoliovirus 2株(1.1%)であった。四半期別病原検出状況では、細菌は4~12月に多く、逆にウイルスは11~3月に多く検出された。性別では男女間に差異はみられなかった。年齢別ではウイルスは、主として3歳以下の患児から検出された。病原体が検出された患児の臨床症状は発熱42件、嘔吐30件、白色便25件、上気道炎22件、血便17件及び腹痛14件であった。

*1 広島市西保健所環境衛生課
*2 広島市中保健所環境衛生課
*3 広島市経済局農林水産部農業振興課
*4 広島市動物管理センター
*5 こばたけ小児科医院
*6 川本小児科医院

1983年広島市で流行した無菌性髄膜炎について

池田義文 野田 衛 瀬尾和範
松石武昭 荻野武雄

広島医学 38 215 ~ 219 1983

1983年の1年間における広島市の無菌性髄膜炎患者報告数は619人で、6月から9月にかけて7月をピークとする患者の多発がみられた。年齢層別では5~9歳が44.9%を占め、0~4歳が25.4%、10~14歳が24.9%、15歳以上が4.8%であった。

無菌性髄膜炎患者376人の411検体についてウイルス分離を実施し、191人から6種類199株のウイルスを分離した。その内訳はエコー30型(E30)が176人、コクサッキーB4型が7人、エコー24型が4人、コクサッキー

A9型が2人、エコー9型が1人、コクサッキーA2型が1人であった。今回の流行では髄液からの分離率が49.2%と高く、HEp-2細胞でよく分離された。

対血清の得られた161人の患者血清についてE30に対する中和抗体価を測定したところ、88人に4倍以上の上昇が認められた。このうち62人からはE30が分離された。

以上の結果より1983年の広島市における無菌性髄膜炎の多発はE30の大規模な流行によるものと結論された。

学会発表

ガスクロマトグラフィー-負イオン化学イオン質量分析法を用いた低沸点有機臭素化合物の選択的分析法

恋田和憲 高野義夫 福田 裕 関川恵子
吉崎征吾* 岡 新 中山 充**

昭和59年度中国工業技術協会分析技術専門分科会

1985. 2. 9 広島市

30種の低沸点有機臭素化合物について、ガスクロマトグラフィー-負イオン化学イオン化質量分析(GC-NCIMS)法を適用した。

その結果、多くの化合物のNCIMSスペクトルはm/z 79と81の臭素イオンのみによる単純なパターンを示し、しかも通常の電子衝撃型イオン化MS法と較べて感度良く有機臭素化合物を検出できた。

またジブromoエチレンのNCIMSスペクトルは m/z

79と81のピーク以外に m/z 158, 160および162に臭素分子に相当するピークが観察された。しかもシス体とトランス体とでこれらの2個分のピーク強度が著しく異なることからこれらのピークが分子内臭素原子の立体配置に密接に関わっていることが示唆された。

また実試料における分析法として、エチレンジブロマイドのマスクロマトグラフィーを用いた定量法について検討した。

* 安芸地区衛生施設管理組合

** 広島大学理学部化学科

急性結膜炎からのウイルスの分離成績

荻野武雄 松石武昭 池田義文 瀬尾和範
野田 衛

第54回 日本感染症学会西日本地方総会

1984. 11. 30 山口市

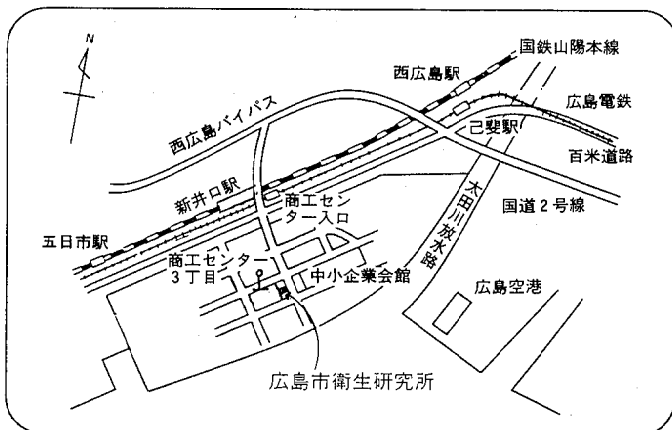
広島市では1983年4月より、感染症サーベイランス事業の一環として、市内2眼科医院を受診し、急性結膜炎と診断された患者の結膜ぬぐい液からのウイルス分離を実施している。今回は1984年3月迄の1年間における検査結果をまとめた。

検査総数128例中ウイルスを検出したものは38例(29.7%)で、すべてアデノウイルスであった。内訳は19型20、3型12、8型4、1型1、4型1で、19型が約半数を占めた。

診断名別にみると、流行性角結膜炎は82例中28例が分離陽性で、19型17、3型6、8型4、1型1であった。咽頭結膜熱は14例中7例が陽性で、3型5、19型2、急性出血性結膜炎は16例中2例陽性で4、19型が各1、急性結膜炎は17例中1例陽性で3型であった。

今回最も多く検出された19型は7~9月を除く各月に分離され、すべて20歳以上の患者からの分離であった。ウイルス分離は11病日までの検体で可能であった。

案 内 図



- 国 鉄 山陽本線新井口駅下車徒歩10分
広島電鉄 宮島線商工センター入口下車徒歩10分
広島バス 国鉄広島駅発商工センター行，商工センター3丁目下車徒歩2分

編 集 委 員

萩野 武雄(委員長)
平崎 和孝 高野 義夫
蔵田 義博 松井 俊治
矢野 泰正 伊藤 文明

分類登録番号 広HO-84-119

広島市衛生研究所年報

第 4 号
(昭和59年度)

発行日 昭和60年11月1日

編集発行 広島市衛生研究所
〒733 広島市西区商工センター四丁目1番2号
電話(082)277-6575

印刷所 株式会社ニシキプリント
〒733 広島市西区商工センター7丁目5-33
電話(082)277-6954