

研 究 報 告 編

受賞研究

福岡県におけるHIV-1感染実態の解明

千々和勝己

(平成13年度知事賞受賞：平成13年11月30日)

AIDS患者の多発や、その病原ウイルスであるHIVの感染者の急増は、世界的に大きな問題となっている。そして、その患者・感染者の多くはアフリカや南アジア地域に集中している。一方、多くの先進工業国では予防対策が積極的にとられ、現在は感染者の増加率は減少傾向にある。その中で、日本では未だに感染者増加の勢いは衰えておらず、国民の関心の低下、性感染症の増加、ピルの解禁などから、近い将来の感染者のさらなる急増を予測する専門家も少なくない。このような状況の中で、HIV感染の実態を把握することは、予防対策立案のために極めて重要である。そこで、エイズ拠点病院である九州大学医学部附属病院、国立病院九州医療センターの協力を得て、両病院を受診するAIDS患者、及びHIV感染者について、感染しているHIVの遺伝子解析を行った。

HIVには1型と2型があるが、1型の中でも、遺伝子の比較によってA～Jのサブタイプと言われるグループ分けがなされている。そのグループによっては、地理的分布、感染経路などの疫学的特徴が存在するため、サブタイプを知ることは、感染の実態を知る上では、非常に重要である。しかしながら、サブタイプを決定する従来の方法では、高価な機器と高度な技術が必要であった。そこで、国内の実情にあったサブタイプを決める簡便な手法を検討し、血清を検体とする正確で決定率が高い方法を考案した。この方法では、国内で報告があったサブタイプA～Eについて、特異性が最も高いエンベロップ蛋白のV3領域のペプチドをそれぞれ合成した。そして、それらを抗原として、酵素免疫抗体法(EIA法)で血清中の各サブタイプに特異的な抗体を検出し、サブタイプを決定した。

このEIA法によるサブタイプ決定法と、従来の末梢血リンパ球中のHIV遺伝子の塩基配列から決定する方法を比較したところ、EIA法では判定不能例がやや多かったが、結果が異なる例は無かった。このことから、この方法は、高価な機器や高度な技術がなくて

もサブタイプを決定することができる、実用的な方法であると考えられた。

EIA法と塩基配列から決定する方法の両法を用いてHIV感染者54名についてサブタイプを検討した結果、次のことが明らかになった。感染経路別に見ると、血液製剤による感染者、及び男性同性愛による感染者は、全てサブタイプBであり、日本人の異性間性的接触による感染ではサブタイプBとサブタイプEが半数ずつであった。また、外国人には、サブタイプAや、複数のサブタイプの組み換え体であるウイルスも見つかった。これらの知見から、福岡における流行ウイルスは、日本国内で多数を占めるアメリカ由来と考えられるサブタイプBと東南アジア由来のサブタイプEがほとんどであると考えられた。しかし、同時に国内では珍しいサブタイプAや組み換え型ウイルスが存在することも確認された。今後も、サブタイプの分布状況には、十分な監視が必要である。

参考文献

- 1) 千々和勝己, 福吉成典 地域におけるHIV疫学調査 本邦における各地域の状況：福岡、臨床とウイルス, 21巻5号, 313-315, 1993.
- 2) Katsumi Chijiwa, Tetsuya Ishibashi, Seizaburo Kashiwagi and Ryoichi Mori. The Distribution of HIV-1 Subtypes in Fukuoka, Japan. Microbiology & Immunology, 43(3), 271-278, 1999.
- 3) 千々和勝己, 江藤良樹, 柏木征三郎 地方衛生研究所におけるHIV検査体制について(福岡県) 厚生科学研究費補助金エイズ対策研究事業 HIVの検査法と検査体制を確立するための研究 平成12年度研究報告書, 94-97, 2000.

検体を提供頂きました九州大学医学部附属病院柏木征三郎元教授、国立病院九州医療センター山本政弘先生、並びに研究に協力して頂いた方々に深く感謝致します。

受賞研究

環境汚染物質の分析技術の開発

永瀬 誠

(2001年度日本分析化学会技術功績賞：平成13年11月24日)

日本分析化学会技術功績賞は、分析技術の進歩及び応用における業績がその授賞対象となるが、今回の受賞は、環境汚染物質の分析技術の開発が認められたもので、その概要は下記のとおりである。

1. 有機スズ化合物の分析法の開発

有機スズ化合物は、船底塗料、ポリ塩化ビニルの安定剤、ポリウレタンの合成触媒などに広く使用されてきた。しかし、その有害性が指摘されており、内分泌攪乱化学物質としても注目されている。そこで、海水¹⁾、魚類²⁾、毛髪³⁾、軟質ポリウレタンフォーム⁴⁾中の有機スズ化合物の分析法を開発するとともにそれら試料中の有機スズ化合物量を明らかにした。これらの成果は、有機スズ化合物による汚染実態の解明に貢献すると同時に、引き続き必要なそれらのモニタリングのための分析手法を提供した。

2. 環境負荷の少ない分析法などの開発

パーミアントラップ法は、抽出溶媒が不要で、さらに、カラムクロマトグラフィーなどを用いたクリーンアップ操作を省けることから環境負荷の少ない前処理法である。この方法を用い、水中のエチレンオキシド及びプロピレンオキシド⁵⁾、アルデヒド類⁶⁾並びに食品中の亜硫酸塩⁷⁾などの分析法を開発した。

少量の有機溶媒と水試料を撹拌することにより目的物質を抽出する撹拌抽出法を用い、水中の染料⁸⁾、1-ニトロピレン⁹⁾、3-ニトロフルオランテン¹⁰⁾、ジニトロピレン¹¹⁾などの分析法を確立した。これらの分析法において、抽出溶媒の使用量の低減及びクリーンアップ操作の簡略化を実現できた。

大気汚染物質の捕集に多用される低温捕集法は、大気中の水分の凝縮による捕集操作の妨害及び分析妨害物質の捕集などがしばしば生じる。そこで、常温捕集法による大気汚染物質の捕集を試み、この方法を用いた大気中のトリメチルアミン¹²⁾及びエチレンオキシド¹³⁾の分析法を確立した。

3. 廃棄物起源の有害化学物質の分析法開発と汚染実態の解明

廃棄物埋立処分場起因する環境汚染の実態を解明するため、国立環境研究所を中心とするグループの一

員として、埋立処分場からの浸出水に含まれる1,4-ジオキサン、有機リン酸トリエステル類などの有害化学物質の分析法を確立し、それらによる汚染実態を明らかにした¹⁴⁾¹⁵⁾。また、プラスチック廃棄物中の有機リン酸トリエステル類の分析法を開発するとともに¹⁶⁾、ジブチルスズ化合物や有機リン酸トリエステル類などのプラスチック添加剤のプラスチック廃棄物からの溶出挙動を解明した¹⁷⁾¹⁸⁾。これらの成果は、安全性を考慮した廃棄物の埋立処分及び浸出水対策を実施する上で重要な知見をもたらした。

終わりに、これらの研究を進めるにあたり、ご指導、ご助言をいただきました加藤元博所長をはじめとする歴代の所長及び職員の皆様方に深くお礼を申し上げます。

文 献

1. Analytical Sciences, 6, 851-855 (1990).
2. ibid., 9, 517-522 (1993).
3. Analyst, 120, 1923-1926 (1995).
4. ibid., 123, 1091-1094 (1998).
5. 化学物質環境調査報告書, p. 155-160 (1980) 環境庁環境保健部保健調査室.
6. 分析化学, 38, 239-244 (1989).
7. 同上, 37, 30-34 (1988).
8. Journal of Chromatography, 465, 434-437 (1989).
9. Analytical Sciences, 5, 157-160 (1989).
10. 平成元年度化学物質分析法開発調査報告書, p. 73-82 (1990) 環境庁環境保健部保健調査室.
11. 同上, p. 83-93 (1990) 環境庁環境保健部保健調査室.
12. 分析化学, 29, 293-297 (1980).
13. 同上, 32, 633-636 (1983).
14. Journal of Chromatography A, 774, 321-332 (1997).
15. Waste Management & Research, 17, 186-197 (1999).
16. 第8回廃棄物学会研究発表会講演論文集, p. 967-969 (1997).
17. 第6回廃棄物学会研究発表会講演論文集, p. 756-758 (1995).
18. 第7回廃棄物学会研究発表会講演論文集, p. 918-920 (1996).

原著論文

陰膳方式による食事経由のダイオキシン類摂取量調査

堀 就英，芦塚由紀，飛石和大，中川礼子，飯田隆雄

福岡県内に在住する4名の成人から連続7日間の陰膳食事試料の提供を受け，ダイオキシン類29異性体の分析を行い，ダイオキシン類摂取量を算出した．検出下限値未満の異性体について，それらの摂取量をゼロと仮定した場合，4名のダイオキシン類平均摂取量は体重1kg あたり0.87～1.41ピコグラムであった．また，4名のうち2名について求めたダイオキシン類の日々の変動は，それぞれ体重1kg あたり0.34～3.76ピコグラム及び0.18～2.36ピコグラムであった．ダイオキシン類平均摂取量はいずれも耐容1日摂取量（4ピコグラム）を下回り，また日々の摂取量をみても耐容1日摂取量を上回る例は認められなかった．ダイオキシン類摂取量の日々の変動は主として魚の摂食に起因することが示唆された．

〔キーワード：ダイオキシン，PCB，食品，摂取量〕

1 はじめに

ダイオキシンのヒトへの曝露源の主要なものは日常の食事である．従って食品のダイオキシン類汚染度は健康リスク評価に直結する重要な指標である．ダイオキシン類の健康リスクは，食事経由のダイオキシン類摂取量を求め，耐容1日摂取量（TDI）値と比較することで実質的評価が可能である．

以前に，我々はトータルダイエツト方式により食事経由のダイオキシン類摂取量を調べた¹⁾．トータルダイエツト方式により求められる摂取量は，当該地域の食品摂取状況に基づく平均摂取量であって，個人の嗜好や食習慣の偏りは反映されない．従って食事経由のダイオキシン類摂取状況を詳細に調べるために，実際の摂取状況を別途把握し，平均摂取量との比較・検証を行う必要がある．本調査研究では，個人の嗜好等を反映した実際のダイオキシン類摂取量を調べるために，陰膳食事試料中のダイオキシン類分析を行い，健康リスク評価を行った．トータルダイエツト方式による調査結果との比較のほか，摂取量の日々の変動やそれらの食事内容との関連性について考察した．

2 調査方法

2・1 試薬等

アセトン，エタノール，ジクロロメタン，トルエン，*n*-ヘキサンはダイオキシン分析用（関東化学（株）製）を，無水硫酸ナトリウムは関東化学（株）製の PCB

・残留農薬分析用を，硝酸銀シリカゲルは和光純薬（株）製のダイオキシン分析用を，水酸化カリウム，*n*-ノナンは和光純薬（株）製特級をそれぞれ用いた．活性炭（ナカライテスク（株）製）はトルエンで約30時間還流洗浄し，無水硫酸ナトリウムに対して0.1%（w/w）になるように混合して用いた．蒸留水は *n*-ヘキサンで洗浄して用いた．

2・2 食事試料の採取及び調製

平成12年9月～12月に，福岡県内に在住する4名の健康な成人の連続7日間の陰膳食事試料を採取し，食事は一日ごとにまとめて均一化し試料とした．提供者 A 及び B の2名については，各試料を個別に抽出して分析し，日々の摂取量と7日間の平均を求めた．残りの2名（C 及び D）については，食事の重量比に従って試料の一部ずつを採り，7日間の混合試料とし，平均摂取量を求めた．提供者には7日間の献立や食材名，摂食量等についてアンケート調査を実施した．

2・3 食事試料中のダイオキシン類の分析

食事試料の分析方法を図1に示した．ダイオキシン類の摂取量算出値は，検出下限未満（ND）となる化合物が多いほど不確かとなり，ND 値の取り扱い方による変動も大きくなる．陰膳試料中のダイオキシン異性体の大部分を検出するためには，従来の個別食品分析の場合よりも10倍程度下の検出下限が達成されなければならない．自ずと5～10倍の抽出試料量が必要と考えられた．そこで，食事試料の提供者には，あらかじめ

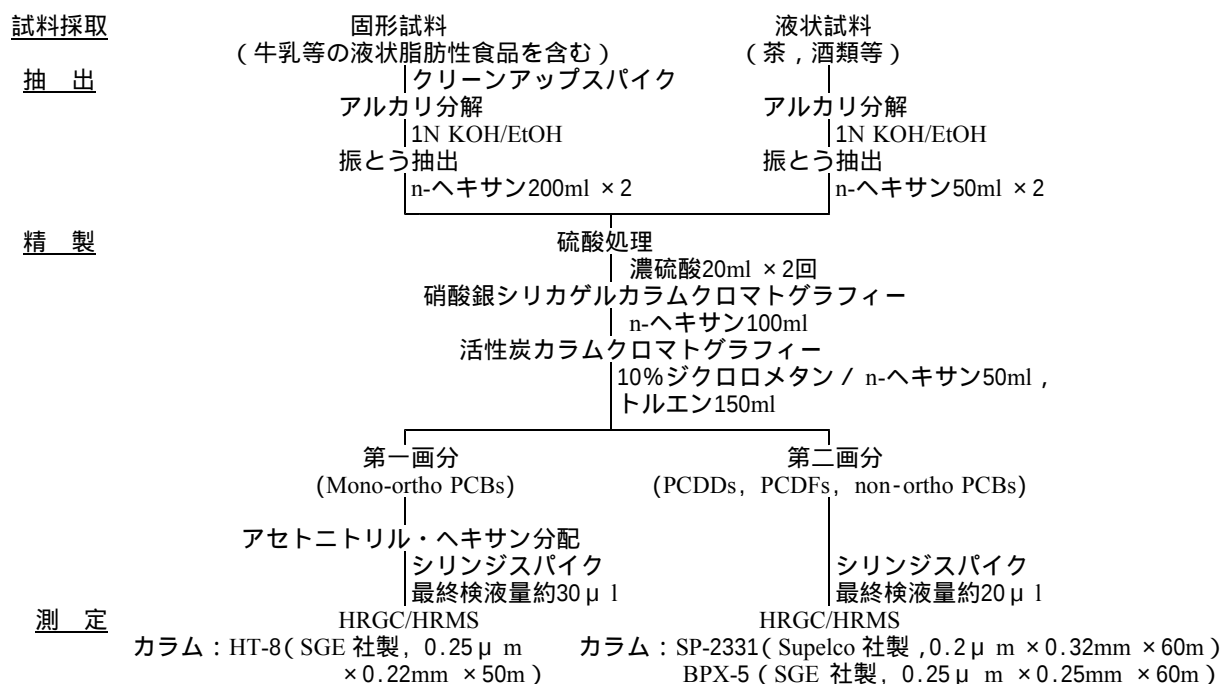


図1 陰膳食事試料(1日分)中のダイオキシン類分析フロー

試料を固形物(牛乳等の脂肪性食品を含む)と液状物(お茶やその他の飲料)に分けて採取するよう依頼し、実験室で固形物と液状物を別々に抽出した後これらを合わせ、食事試料約500gに相当する抽出液を得た。クリーンアップスパイクには測定対象物質に各々対応した29種の¹³Cラベル化体を使用した。

本研究では、食品試料中のダイオキシン類分析時に顕著な妨害成分(脂肪族炭化水素類)を効果的に取り除くための前処理法として、「アセトニトリル・ヘキサン分配」を採用した。本法を種々の個別食品試料に適用した場合の精製効果、定量性、回収率等はすでに検討され、平成11年に厚生省食品衛生調査会・精度管理分科会が作成した「食品中のダイオキシン類及びコプラナーPCBsの測定方法暫定ガイドライン」(以下「ガイドライン」)の条件を満たすことが報告されている²⁾。今回、本方法を陰膳食事試料の精製に適用したところ、良好なクロマトグラムが得られ、また操作全体の回収率は40~120%の範囲内であった。

分析にはHRGC/HRMS(GC: HP6890, MS: Micromass Autospec ULTIMA)を用い、分解能を10000以上に設定した。検出下限値は「ガイドライン」記載の方法に基づき算出した。

求めた食事試料中ダイオキシン類濃度に、食事重量を乗じてダイオキシン類の1日摂取量を算出した。摂取

量は2,3,7,8-TeCDD毒性等価係数(WHO-TEF, 1998年)を用いて毒性等量(TEQ)に換算して示した(表1)³⁾。

3 結果及び考察

3・1 ダイオキシン類の平均摂取量及び摂取傾向

表1に陰膳提供者4名のダイオキシン類摂取状況をまとめた。本調査では4~7塩化PCDD/DF及びノンオルトPCBにおいて通常の10倍程度下の検出下限値が得られたが、その他の化合物についてはブランクの寄与もあり達成が困難であった。

検出下限値未満の各異性体の濃度をゼロと仮定して摂取量を算出した場合(ND=0)、4名のダイオキシン類平均摂取量は体重あたり0.87~1.41pgTEQ/kg体重/日の範囲であり、耐容1日摂取量(4pgTEQ/kg体重/日)を下回っていた。また、このことは我々が平成10年にトータルダイエット方式で推定した九州地区における平均摂取量(2.67pgTEQ/kg体重/日、但し平均体重を50kgと仮定)より低い数値であった。一方、NDに検出下限値の1/2の値を当てはめた場合(ND=LOD/2)の摂取量は、ND=0の摂取量に対して、提供者Aで8.4%、Bで14%、Cで5.6%、Dで6.7%の増加にそれぞれ留まっていた。

ダイオキシン類の摂取状況において、最も毒性的寄

表1 陰膳方式による食事経由のダイオキシン類摂取量調査結果*

化合物名	TEF	検出 下限値 (pg/g)	(単位: pgTEQ/日)			
			陰膳提供者(性別/年齢/体重(kg))			
			A 男/32/84.5	B 女/52/55.5	C 男/52/56.0	D 女/52/55.7
2,3,7,8-TetraCDD	1	0.001	4.49	1.98	3.36	2.78
1,2,3,7,8-PentaCDD	1	0.001	12.21	8.72	27.18	10.91
1,2,3,4,7,8-HexaCDD	0.1	0.002	0.30	1.66	0.53	0.51
1,2,3,6,7,8-HexaCDD	0.1	0.002	1.13	1.37	1.18	1.03
1,2,3,7,8,9-HexaCDD	0.1	0.002	0.44	0.42	0.77	0.46
1,2,3,4,6,7,8-HeptaCDD	0.01	0.002	0.37	0.76	0.32	0.42
OctaCDD	0.0001	0.05	0.03	0.04	0.02	0.03
2,3,7,8-TetraCDF	0.1	0.001	5.50	1.33	1.38	1.50
1,2,3,7,8-PentaCDF	0.05	0.001	0.77	0.67	0.45	0.42
2,3,4,7,8-PentaCDF	0.5	0.001	19.12	6.71	8.46	8.14
1,2,3,4,7,8-HexaCDF	0.1	0.002	0.74	0.72	1.21	1.09
1,2,3,6,7,8-HexaCDF	0.1	0.002	0.79	0.70	1.16	0.74
1,2,3,7,8,9-HexaCDF	0.1	0.002	0	0.04	0	0
2,3,4,6,7,8-HexaCDF	0.1	0.002	0.83	0.37	0.86	0.64
1,2,3,4,6,7,8-HeptaCDF	0.01	0.002	0.12	0.20	0.11	0.13
1,2,3,4,7,8,9-HeptaCDF	0.01	0.002	0	0.01	0	0
OctaCDF	0.0001	0.05	0	0	0	0
3,4,4',5-TetraCB (#81)	0.0001	0.01	0.02	0.02	0.004	0.004
3,3',4,4'-TetraCB (#77)	0.0001	0.01	0.13	0.07	0.04	0.07
3,3',4,4',5-PentaCB (#126)	0.1	0.01	59.12	17.91	19.56	25.40
3,3',4,4',5,5'-HexaCB (#169)	0.01	0.01	1.39	0.47	0.48	0.65
2,3,3',4,4'-PentaCB (#105)	0.0001	1	1.74	0.67	1.00	0.93
2,3,4,4',5-PentaCB (#114)	0.0005	1	0.63	0.22	0.56	0.51
2,3',4,4',5-PentaCB (#118)	0.0001	1	5.28	1.95	2.98	2.57
2',3,4,4',5-PentaCB (#123)	0.0001	1	0.10	0.04	0.09	0.06
2,3,3',4,4',5-HexaCB (#156)	0.0005	1	3.14	1.12	1.93	1.56
2,3,3',4,4',5-HexaCB (#157)	0.0005	1	0.85	0.30	0.51	0.39
2,3',4,4',5,5'-HexaCB (#167)	0.00001	1	0.05	0.01	0.09	0.06
2,3,3',4,4',5,5'-HeptaCB (#189)	0.0001	1	0.06	0.02	0.05	0.04
Total Dioxins (pgTEQ/日)			119.35	48.51	74.28	61.07
Total Dioxins (pgTEQ/kg 体重/日)			1.41	0.87	1.33	1.10
Total Dioxins (ND=LOD/2, pgTEQ/日)			129.40	55.47	78.45	65.13
食事重量 (g/日)			2152.8	1555.8	2412.3	1987.4

*ND = 0として計算。

与の高いのは、3名(A, B, D)において3,3',4,4',5-penta CB (PCB#126) であって、この傾向はトータルダイエツト方式による結果と一致していた。一方、提供者 C においては1,2,3,7,8-pentaCDD の寄与が最も大きくなっていた。このことを反映して、総摂取量における同

族体別の寄与を比較した場合、提供者 A, B, D においてはコプラナー PCB が優位であるのに対し、提供者 C では PCDD となっていた(図2b)。

このような摂取状況の相違に関して、回収したアンケート内容から1週間の食事内容との関連を調べた。

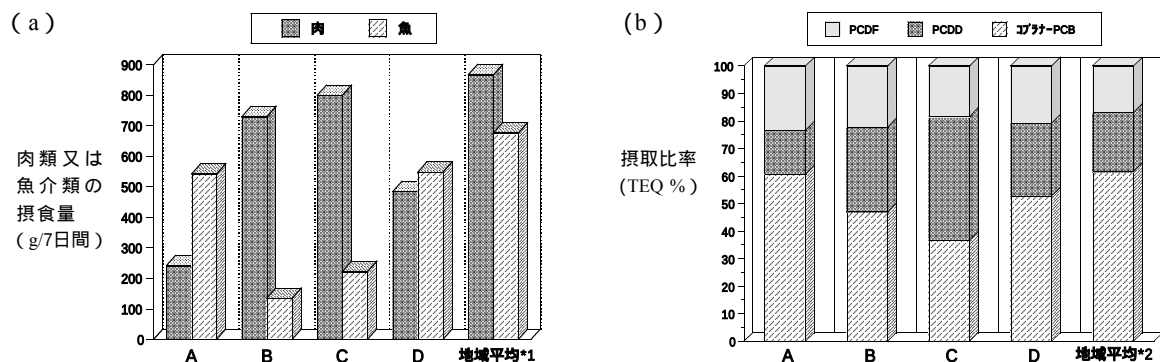


図2 陰膳提供者の食事内容及びダイオキシン類摂取状況。(a) 各提供者の肉類及び魚介類の摂食量 (b) 各提供者の同族体別摂取傾向。

*1: 平成10年度国民栄養調査成績における統計量(北部九州)。*2: トータルダイエツト方式による算出値¹⁾。

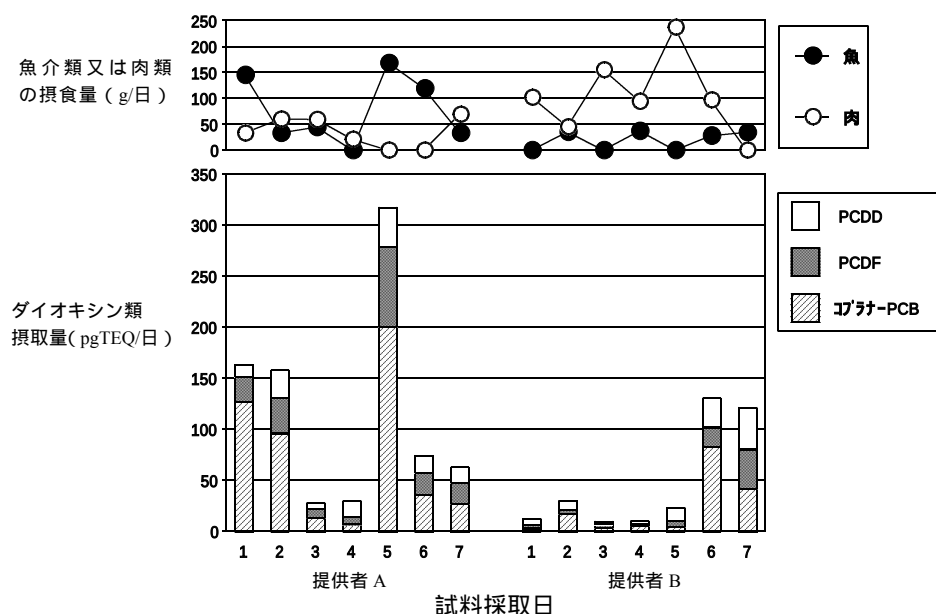


図3 陰膳提供者2名におけるダイオキシン類摂取量の日々の変動 (ND=0)。

ここでは、1週間に摂食した肉及び魚の量（調理重量）と PCDD、PCDF 及びコプラナー PCB 各摂取量の全体に占める割合を対比させた。その結果、魚に対して肉の摂食量の多い人（B 及び C）では、PCDD の寄与が高くなる傾向が認められた（図2a 及び b）。

このような PCDD の寄与率と肉の摂食量との関連を、我が国における個別食品の汚染傾向から考察した。すなわち、国内における個別食品の汚染実態調査結果⁴⁾から肉と魚の分析データを抽出し、検出濃度を平均して同族体別の汚染傾向を比較した。まず魚介類（例数 17）では、コプラナー PCB が全体濃度の約70%を占め、PCDD の寄与は15%程度と相対的に低くなっていた。これに対して肉類、特に豚肉（例数14）と鶏肉（例数 20）ではコプラナー PCB の寄与は約40%と低くなり、逆に PCDD の含量は約40%と高くなっていた。一方、今回のアンケート調査から、提供者 C が7日間に摂食した肉類の殆どは鶏肉であることが判明し、ダイオキシン類の摂取傾向は個別食品の汚染実態を反映していた。

3・2 ダイオキシン類摂取量の日間変動

提供者2名について求めた7日間のダイオキシン類摂取量の変動を図3に示した。

ND=0と仮定した場合、提供者 A のダイオキシン類摂取量の変動は、28.3～317.6pgTEQ/日であり、これを体重1kg あたりに換算すると0.34～3.76pgTEQ/日（平均1.41pgTEQ/日）となった。提供者 B では9.9～130.8pgTEQ の範囲であり、これは体重1kg あたり0.18～2.36pgTEQ/日（平均0.87pgTEQ/日）に相当し

表2 ダイオキシン類摂取量における各同族体の変動*

	提供者 A	提供者 B
PCDD	6.0	15.1
PCDF	11.3	19.7
コプラナー PCB	28.2	26.6

*最小値に対する最大値の比で示した。

た。

一方、ND=LOD/2と仮定したときの摂取量は、提供者 A で36.7～326.8pgTEQ/日（体重1kg あたり0.43～3.87pgTEQ/日、平均1.53pgTEQ/日）、提供者 B では18.0～132.4pgTEQ/日（体重1kg あたり0.32～2.38pgTEQ/日、平均1.00pgTEQ/日）と算出された。

各提供者のダイオキシン類総摂取量は日々変動し、その最小値と最大値には10倍程度の差があったが、日々の摂取量が耐容1日摂取量を超えた例は認められなかった。また、日々の変動を同族体の寄与からみると、コプラナー PCB の摂取量の変動が PCDD や PCDF に比べて明らかに大きいこと（表2）、コプラナー PCB の変動が日々の摂取量全体に大きく影響していた点も両提供者に共通していた。

次に、2名のダイオキシン類摂取状況と魚介類及び肉類の摂食量との関連について考察した。サンプリング期間中、肉類よりも魚介類を多く摂食していた提供者 A では、ダイオキシン類摂取量の変動状況と魚介類の摂食量との間に、関連を認めることができた。一方、魚介類よりも肉類を多く摂食した提供者 B においても、肉よりもむしろ魚の摂食量との関連がうかがわれた（図2a 及び図3）。このことから、ダイオキシン摂取

量の主たる変動要因が「魚介類の摂食」にあり、肉類摂取量が多い場合でも魚介類の摂取の影響が大きいことが示唆された。特に魚介類を全く摂取しなかった日（提供者 A の4日目及び B の1, 3及び5日目）のダイオキシン類摂取量は、9.9～30.3pgTEQ/日と明らかに低いものであった。一般に魚介類中のダイオキシン類濃度は他の食品種に比べて高く、特にコプラナー PCB の含有率が高いことが知られている。これらの要素がダイオキシン類摂取量の変動に色濃く反映されたものと考えられる。

4 まとめ

4名の成人より提供された陰膳食事試料中のダイオキシン類の同定・定量を行うことにより、食事経由のダイオキシン類摂取量を調べた。ND=0と仮定した場合の摂取量は体重1kg あたり0.87～1.41pgTEQ/日であった。

トータルダイエット方式によるダイオキシン類摂取量調査例では、九州地区で2.67pgTEQ/kg 体重/日¹⁾、厚生労働省研究班の全国調査で0.84～2.01pgTEQ/日（平成12年度）が得られている⁵⁾。今回の陰膳方式の結果と過去のトータルダイエット方式の結果とを比較した場合、異性体別または同族体別の摂取状況において若干の相違も認められたが、平均摂取量が耐容1日摂取量（体重1kg あたり4pgTEQ/日）を下回る点で双方の結果は一致していた。

現在のところ、ダイオキシン類の食事経由の平均摂取量は耐容1日摂取量を下回っており、概ね世界保健機関（WHO）が提唱している将来目標値（1ピコグラム）付近にあると推察される。今後、食品中のダイオ

キシン類、特に魚介類中の PCB 残留度に関して低減が図られることで、その人体負荷量の軽減に大きく寄与できるものと考えられる。

文献

- 1) T. Hori, T. Iida, T. Matsueda, M. Nakamura, H. Hirakawa, K. Kataoka and M. Toyoda : Investigation of Dietary Exposure to PCDDs, PCDFs, and Dioxin-like PCBs in Kyushu district, Japan. Organohalogen Compounds, 44, 145-148, 1999.
- 2) Y. Ashizuka, T. Hori, S. Takenaka, K. Tobiishi, R. Nakagawa and T. Iida : Improvement of the Methods for Analyzing Mono-ortho PCBs in Food. Organohalogen Compounds, 50, 146-149, 2001.
- 3) M. Van den Berg, L. Birnbaum, A.T.C. Bosveld, B. Brunstrom, P. Cook, M. Feeley, J.P. Giesy, A. Hanberg, R. Hasegawa, S.W. Kennedy, T. Kubiak, J.C. Larsen, F.X.R. van Leeuwen, A.K.D. Liem, C. Nolt, R. E. Peterson, L. Poellinger, S. Safe, D. Schrenk, D. Tillitt, M. Tysklind, M. Younes, F. Warn and T. Zacharewski : Toxic equivalency factors (TEFs) for PCBs, PCDDs, PCDFs for humans and wildlife. Environ. Health Perspec. 106, 775-792, 1998.
- 4) 平成10年度厚生科学研究「食品中のダイオキシン類汚染実態調査研究」研究報告書。
- 5) 平成12年度厚生科学研究「ダイオキシン類の食品経由総摂取量調査研究」研究報告書。

Investigation of Dietary Intake of Dioxins - Estimation by Duplicate Diet Study -

Tsuguhide HORI, Yuki ASHIZUKA, Kazuhiro TOBIISHI, Reiko NAKAGAWA and Takao IIDA

*Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences,
Mukaizano 39, Dazaifu, Fukuoka 818-0135, Japan*

To investigate actual daily intake of dioxins, a duplicate diet study (DDS) was performed in Fukuoka prefecture, Japan. We present here the results from diet samples collected from four adult volunteers (A, B, C and D) over seven successive days. The non-detect congeners were principally dealt with their intake as zero (ND = 0) in order to coordinate the data with our previous results from a total diet study (TDS). Replacement by half of the LOD (ND = LOD/2) was also evaluated for reference. As a result, the average total intakes of dioxins based on each volunteer's body weight were 0.87-1.41 pgTEQ/kg body weight/day, which were lower than the mean dietary intake estimated by our previous TDS at 2.67 pg TEQ/kg body weight/day for a 50 kg adult. Relatively high TEQ contribution of PCDDs observed in volunteer B and C

was associated with their high consumption of meat. It is worth noting that dioxin-like PCBs had larger daily variations than either PCDDs or PCDFs. These daily intake variations of dioxin-like PCBs greatly affected the daily overall dioxin-intake values of the volunteers. Moreover, there was a slight correspondence between the daily intake of dioxins and that of fish for volunteer A, who consumed more fish than meat during the week. Even in volunteer B who consumed more meat than fish during the week, the daily intake of dioxins seemed to depend on the amount of fish consumption rather than that of meat. In view of these findings, it is suggested that the daily variation of overall dioxin-intake values depends mainly on fish intake.

[Key words; Dioxins, PCBs, Food, Dietary intake]

原著論文

眼科疾患から検出されたアデノウイルス血清型の経年変化 (1997～2000年)

梶原淳睦, 濱崎光宏, 江藤良樹, 千々和勝己, 鬼木信乃夫^{*1}

流行性角結膜炎 (EKC) 等の眼科疾患の原因ウイルスを PCR 法及び培養細胞を用いたウイルス分離法により検索した。その結果, 培養細胞を用いたウイルス分離では35株のアデノウイルスが分離され, ウイルス分離の陽性率は30.4% (35/115) であった。一方, PCR 法では73.9% (85/115) が陽性であり, PCR 法はウイルス分離法の約2.4倍高感度にアデノウイルスを検出することができた。PCR 法と制限酵素を用いた RFLP 法により決定したアデノウイルスの血清型は1997及び98年は19型が最も多かったが, 1999及び2000年は8型の方が多くなった。特に, 1999年5月以降は8型が主に検出され, EKC の病原ウイルスの変化が明らかになった。EKC は例年6 - 9月をピークとする流行を繰り返し, 流行状況は4年間で大きな差はなかった。しかし, 各年の流行を引き起こしているアデノウイルスの血清型は変化していることを明らかにすることができた。

[キーワード : アデノウイルス, 血清型, 流行性角結膜炎 (EKC), PCR]

1 はじめに

EKC 等の眼科疾患の多くはアデノウイルスが原因となって引き起こされている。ヒトアデノウイルスは DNA の相同性等により A-F の6亜属に分類され, 47の血清型に分類されている¹⁾。従来より EKC 等の患者から培養細胞を用いて病因ウイルスの分離同定をしているが, ウイルスの分離同定には2週間以上の時間がかかり, ウイルス分離率は約20-30%であった。これはエンテロウイルスによる感染症からのウイルス分離率40-70%に比べ1/2以下である。また, 培養細胞を用いたウイルス分離では細胞の種類によりウイルス感受性が異なることも考えられる。最近, PCR 法と制限酵素を用いた RFLP 法により, EKC 等の患者の結膜ぬぐい液よりアデノウイルスの迅速で, 高感度な検出・血清型別の同定方法が報告されている²⁾。そこで同法を感染症発生動向調査事業により採取された検体に適用し, 培養細胞を用いたウイルスの分離同定結果と比較してきた³⁾。その結果, EKC の原因ウイルスの検出率を向上させ, ウイルス分離法では捉えられなかった病原ウイルスの変化を明らかにしたので報告する。

2 材料及び方法

ウイルス分離には Vero, FL, RD-18s, HEp-2細胞を使用した。ウイルス分離材料は1997年4月から2000年12月までに福岡県筑紫野市内の一眼科医院を受診した流行性角結膜炎, 咽頭結膜熱及び急性結膜炎の患者より採取された結膜ぬぐい液115検体を用いた。疾病ごとの内訳は流行性角結膜炎が113件, 咽頭結膜熱が1件, 急性結膜炎が1件であった。

2・1 ウイルス分離

ウイルス分離は, 96穴マイクロプレートに培養細胞(5×10^5 cells/ml) を0.1 ml ずつ分注し, 浮遊状態の細胞に結膜ぬぐい液25 μ l を1検体当たり2穴接種し, 37℃, 1週間 CPE の出現を観察した。最長4代継代し CPE 陰性の場合は分離陰性とした。分離されたアデノウイルスは国立感染症研究所より分与された抗血清, またはデシカ生研製の抗血清を用い中和試験により同定した。

2・2 PCR法

PCR 法は Saitoh-Inagawa らの方法により行った²⁾。即

福岡県保健環境研究所 (〒818-0135 太宰府市大字向佐野39)

* 1 鬼木眼科医院 (〒818-0051 筑紫野市二日市713-4))

表 1 プライマー及び PCR 産物

Primer	Nucleotide positions*	Sequence	PCR product length(bp)
AdTU7	20,734 - 20,753	5'-GCCACCTTCTTCCCCATGGC-3'	1,004
AdTU4'	21,718 - 21,737	5'-GTAGCGTTGCCGGCCGAGAA-3'	
AdnU-S'	20,743 - 20,762	5'-TTCCCCATGGCNCACAACAC-3'	956
AdnU-A	21,679 - 21,698	5'-GCCTCGATGACGCCGCGGTG-3'	

* : numbered by using Ad2 nucleotide sequence⁴⁾

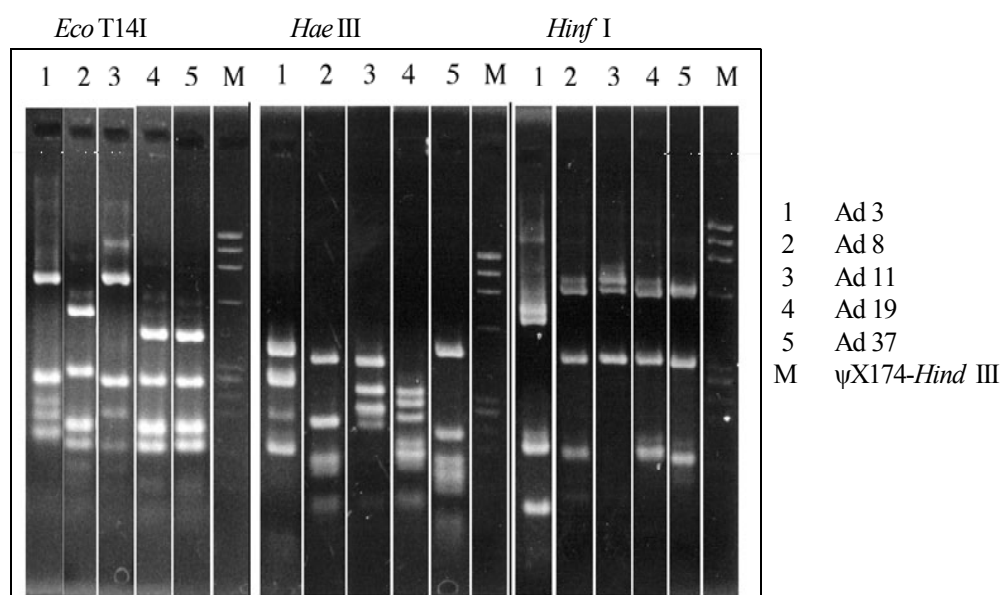


図 1 PCR 産物の制限酵素切断パターン

ち、結膜ぬぐい液 200 μ l を 12000 $\times$ g で 30 分間遠心し、沈殿させた角結膜成分に 100 μ l の 0.31 mg/ml Proteinase K, 0.5% Tween20, 1 mM EDTA, 10 mM Tris-HCl (pH8.3) を加え 55 $^{\circ}$ C, 1 時間消化し、95 $^{\circ}$ C, 1 分間加熱し DNA を抽出した。10000 $\times$ g で 10 分間遠心した上清 10 μ l に表 1 のプライマーを用い、まず AdTU7, AdTU4' で 1st PCR を、次いで AdnU-S', AdnU-A で nested-PCR で増幅した。表 1 にプライマー及び PCR 産物のアデノウイルスゲノム上の位置を示した。PCR 条件は 1st 及び nested-PCR とともに 94 $^{\circ}$ C 1 分, 50 $^{\circ}$ C 1 分, 72 $^{\circ}$ C 2 分を 36 サイクル行った後、72 $^{\circ}$ C で 7 分間加熱した。PCR 産物は 3% アガロース電気泳動後、エチジウムブロマイドで染色した。

2・3 RFLP 法

PCR 法により増幅された DNA のバンドが確認されたものは、EcoT14I, HaeIII, HinfI の 3 種の制限酵素を用いて付属のバッファー中にて 37 $^{\circ}$ C, 1 夜消化した。酵素消化後の DNA フラグメントは 1% アガロースゲル電気泳動後エチジウムブロマイド染色し、切断パターンよりア

デノウイルスの血清型別を決定した。

3 結果

眼科疾患の患者より採取された 115 件の検体から、培養細胞を用いたウイルス分離では 35 株のアデノウイルスが分離された。アデノウイルスは大半が HEp-2 細胞により分離され、一部 FL 細胞でも分離された。ウイルス分離の陽性率は 30.4% (35/115) で、分離されたウイルスの血清型別は 3 型 (12 株), 8 型 (1 株), 11 型 (1 株), 19 型 (18 株), 37 型 (3 株) であった。

表 2 ウイルス分離及び PCR 法により検出されたアデノウイルスの血清型

分離方法	陽性数(%)	血清型					陰性
		Ad 3	Ad 8	Ad 11	Ad 19	Ad 37	
ウイルス分離	35(30.4)	12	1	1	18	3	80
PCR	85(73.9)	12	26	1	31	15	30

一方、PCR 法では 73.9% (85/115) が陽性であり、

RFLP 法により同定されたウイルスの血清型別は 3 型 (12 株), 8 型 (26 株), 11 型 (1 株), 19 型 (31 株), 37 型 (15 株) であった。PCR 産物の制限酵素による切断パターンを図 1 に示した。ウイルス分離で決定されたウイルスの血清型と PCR 法で決められた血清型は全て一致した。培養細胞を用いたウイルス分離と PCR-RFLP 法との検出結果の比較を表 2 に示す。また、各年の PCR-RFLP 法でのアデノウイルスの検出状況を表 3 に示した。

表 3 検出されたアデノウイルス血清型の年次推移

分離年	検体数	血清型別陽性検体数					計
		Ad3	Ad8	Ad11	Ad19	Ad37	
1997	36	2	5		9	6	22
1998	40	7	6	1	16	3	33
1999	23	1	7		5	3	16
2000	16	2	8		1	3	14
合計	115	12	26	1	31	15	85

4 考察

アデノウイルスの流行状況は、1997 及び 1998 年は 19 型が最も多かったが、1999 及び 2000 年は 8 型の方が多くなった。また、1997 年は 37 型が、1998 年は 3 型も比較的多数検出された。3 型は咽頭結膜熱（プール熱）の原因ウイルスとしても知られ、1998 年は夏季に同病の流行があったため EKC から分離が多くなっている。各月のアデノウイルス検出状況は、1997-98 年は 19 型が年間を通じて検出され、3, 8, 37 型は散発的に検出されていたが、1999 年以降、19 型の検出数が減少し、9 月より 8 型の検出数が増加した。特に、2000 年 5 月以降は 8 型が主に検出され、EKC の病原ウイルスの変化が明らかになった。

EKC は例年 6-9 月をピークとする流行を繰り返し、流行状況は 4 年間で大きな差はなかった。しかし、各年の流行を引き起こしているアデノウイルスの血清型は変化していることを明らかにすることができた。

感染症発生動向調査では感染症流行の実態を監視する目的で、培養細胞によるウイルス分離を中心に病原体を特定している。一方、PCR 法が広く用いられるようになり、迅速で高感度な病原体検索が可能になってきている。今回用いた PCR 法では約 3 日で結果の判定が可能であり、ウイルス分離法の約 2.4 倍高感度であった。また、アデノウイルスの亜属や血清型による分離率の違いが明らかになった。即ち、B 亜属のアデノウイルス（3, 11 型）では検出率は培養細胞法と PCR 法でほぼ同程度であったが、D 亜属（アデノウイルス 8, 19, 37 型）では培養細胞法によるウイルス分離率は低く、特にアデノウイルス 8 型では PCR 法の 3.8% しか分離することがで

きなかった。この差がウイルス分離に用いた培養細胞の感受性によるものか、不感染性粒子の形成等のウイルスの側の原因によるものかは不明であるが、培養細胞を用いた病原体検索では病原ウイルスの流行状況を捉えきれないことが明らかになった。PCR 法ではウイルス遺伝子の特定の一部分だけが増幅され、抗原性の変化などの情報が得られない等の問題はあがあるが、病原体の検索として高感度であり培養細胞を用いたウイルス分離法と併用することが望ましい。さらにこれらの結果から、PCR 法で陽性になった検体からのウイルスの分離培養方法を検討する必要がある。

また、アデノウイルス 19 型と 37 型は標準抗血清による中和試験では交差が見られたが、PCR-RFLP 法では明瞭に区別することができた。従って、PCR-RFLP 法は検出方法としてばかりでなく同定方法としても有力であり、抗原変化など血清学的方法で型別の同定が出来ない場合にも利用可能である。

5 まとめ

1. 眼科疾患からのアデノウイルスの検出率は培養細胞を用いた際には 30.4% であったが、PCR 法を用いると 73.9% と迅速、高感度に検出でき、2 つの方法で決定された血清型は一致した。
2. アデノウイルスの血清型別では B 亜属の検出率はほぼ同等であったが、D 亜属特に 8 型では分離率は PCR 法の 3.8% と、培養細胞を用いた方法では流行ウイルスをとらえられていないことがわかった。
3. アデノウイルスの検出に PCR 法を導入することにより、1999 年以降の EKC の病原ウイルスの変化（19 型→8 型）を明らかにできた。

文献

- 1) D. Schnurr & M. E. Dondero : Intervirology, 36, 79 - 83, 1993.
- 2) W. Saitoh-Inagawa et al. : J. Clin. Microbiol., 34, 2113-2116, 1996.
- 3) J. Kajiwarra et al. : Jpn. J. Infect. Dis., 52, 18-19, 1999.
- 4) K. Chroboczek et al. : Virology, 186, 280-285, 1992.

Trend of adenovirus serotypes detected from patients with ophthalmological diseases (1997 - 2000)

**Jumboku KAJIWARA, Mitsuhiro HAMASAKI, Yoshiki ETO, Katsumi CHIJIWA
and Shinobu ONIKI *¹**

*Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences and Oniki Eye Clinic *¹*

Mukaizano 39, Dazaifu, Fukuoka 818-0135 , Japan

*Futsukaichi 713-4, Chikusino, Fukuoka 818-0051 , Japan *¹*

In this study ,we used polymerase chain reaction (PCR) and virus isolation using cell culture to detect adenovirus(Ad) on swabs from patients with conjunctivitis including epidemic kerato-conjunctivitis (EKC), who visited an eye clinic in Chikushino City in Fukuoka Prefecture. Virus isolation in culture and serotyping identified Ads from 35 specimens out of 115 (30.4%), whereas PCR identified 85 specimens out of 115 (73.9%), the PCR positivity being about 2.4 fold higher than virus isolation. In 1997 and 1998, Ad serotypes identified by PCR coupled with restriction fragment length polymorphism (RFLP) was mostly Ad 19, while in 1999 and 2000, Ad 8 was the most frequent serotype. Especially after September 1999, Ad 8 was mainly detected from EKC patients. The study revealed that the serotype of Ad causing EKC has changed in the course of time.

[Key words : Adenovirus, Sero type, Epidemic kerato-conjunctivitis, Polymerase chain reaction]

原著論文

FLOW INJECTION ANALYSIS OF ALKALINITY

Takahiko MATSUEDA and Okihiko OISHI

A flow-injection system (FIA) was described for the simple and rapid determination of alkalinity in fresh water. The method was based on the dependence of fluorescein's fluorescence intensity on pH, which was related to the concentration of alkalinity in the carrier solution.

The sample solution was injected into a flow system, which was comprised of reservoir, pump, line sampler, coil and fluorescence detector and the fluorescence intensity of the fluorescein was measured. The excitation and emission wavelength was 490 nm and 517 nm, respectively. The limit of determination was 0.5 mg/l of alkalinity as CaCO_3 . A sampling rate was 80 samples per hour. The relative standard deviation was 4.5 %. The dominant constituents in natural water did not interfere the determination of alkalinity. The results by the proposed method agreed well with those obtained by the titration method.

[Key Words: Alkalinity, Flow injection analysis, fluorescein, Fluorometric detection]

1 INTRODUCTION

Alkalinity is a fundamental parameter of natural water, and the determination of alkalinity is useful for the control of physico-chemical and biological parameters in the treatment of natural water supplies. Recently, natural water acidification has become a serious environmental problem throughout the world. Acidification is monitored by means of measuring pH and alkalinity. Therefore, a rapid and simple method is important for the analysis of alkalinity in fresh water including drinking water, river water, and lake water. Alkalinity is a measure of the contents of weak bases (mainly bicarbonate ion, carbonate ion, and hydroxide compounds) and is most commonly measured by titration with strong acid⁽¹⁻³⁾. Other methods are also available, such as ion-selective electrode⁽⁴⁾, ion exchange⁽⁵⁾, ion-chromatography⁽⁶⁾, and gel chromatography. There is a growing demand for fast, automated measurement methods. F. Canete et al.⁽⁷⁾ reported an automated flow injection method based on the acid-base reaction and spectrophotometric detection. Other automated methods have also been reported⁽⁸⁻¹⁰⁾. This paper reports a method for the determination of alkalinity by means of a

FIA system employing a spectrofluorometric detector connected to a flow cell. This method was based on the pH dependency of fluorescein's fluorescence intensity in a carrier solution. Results using proposed method were compared with those obtained by the titration method.

2 MATERIALS AND METHOD

2 • 1 Reagents

The fluorescein disodium salt (uranine) used was of first reagent grade (Wako Chemicals). A fluorescein stock solution of 2.5×10^{-3} M was prepared by dissolving 0.94g of fluorescein disodium salt in one liter of distilled water. The carrier solution was prepared as follows: 1 ml of stock solution and 500 ml of 0.86 M sodium chloride solution were mixed, and the pH was then adjusted to 5.2 with 0.01 M hydrochloric acid solution, then the final volume was adjusted to 1000 ml. Standard alkalinity stock solution composed of CaCO_3 at 0.01 M (1060 mg/l) were prepared by dissolving 1.06g of sodium carbonate in 1000ml of distilled water. The exact concentration of alkalinity was determined by titration with 0.02 M H_2SO_4 .

2 • 2 Apparatus

The system was comprised of the following components: a peristaltic pump (Atto Perista mini pump model SJ-1211 Japan), a line sampler (Kyowa Japan), and a fluorescence spectrophotometer (Simazu RF-530 Japan) equipped with a flow cell of 10 μ l. The diameter of the reaction coil (Teflon) was 0.8mm. The excitation and emission wavelengths were 490 nm and 517 nm, respectively. The analytical manifold is shown in Figure 1.

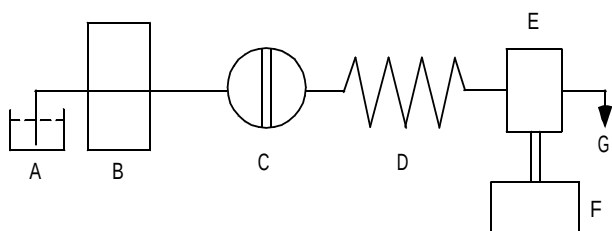


Fig.1 Manifold for the determination of alkalinity

A:Reservoir B:Pump C:Line sampler D:Coil
E:Fluorescence F:Detector F:Recorder G:Drain

2 • 3 Procedure

The carrier solution (pH 5.2) was pumped at flow rate of 1.5 ml/min. Five μ l of the sample was injected manually with a line sampler into the carrier stream. The increase in the emission intensity at 517 nm, owing to the dissociation of fluorescein by the alkalinity, was measured. The peak measured height can be related to the alkalinity concentration as CaCO_3 . The recommended conditions for the determination of alkalinity are listed in Table 1.

Table 1 Recommended conditions for determination of alkalinity by flow injection method

Conditions	Recommended condition
Coil length (m)	1.5
Flow rate (ml/min)	1
Concentration of carrier solution (M)	0.25×10^{-5}
Concentration of sodium chloride (M)	0.43
pH of carrier solution	5.2
Diameter of coil (mm)	0.8
Excitation wave length (nm)	490
Emission wave length (nm)	517

3 RESULTS AND DISCUSSION

3 • 1 Effect of Coil length and flow rate on the fluorescence intensity of fluorescein in carrier solution

Effect of coil length was studied with the injection of 0.25×10^{-5} M sodium carbonate solution. The results are shown in Figure 2. the peak height slightly decreased as the length of the reaction coil increased from 0.5 m to 2.5m. On the other hand, as shown in Figure 3, a significant decrease in peak height and a broadening of width were observed with an increasing flow rate of more than 1.5ml/min. Thus we set the flow rate at 1ml/min and the coil length at 1.5 ml/min.

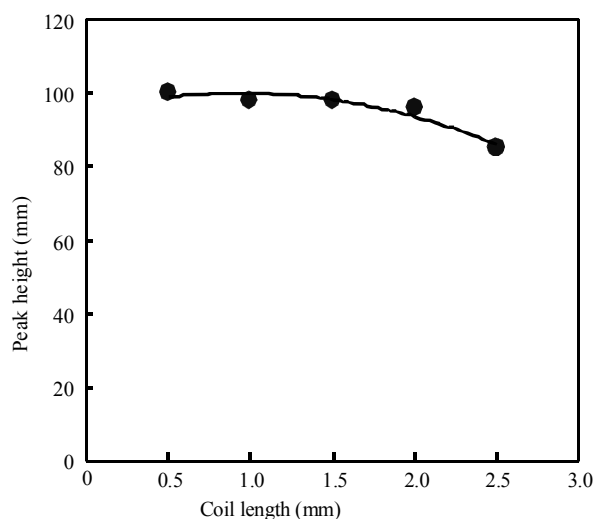


Fig.2 Effect of coil length

Fluorescein concentration: 0.25×10^{-5} M
pH: 5.3, HCO_3^- : 10^{-3} M, Injection volume: 5 μ l

3 • 2 Effect of pH on the fluorescence intensity of fluorescein in carrier solution

In order to identify the effect of pH on the fluorescence intensity of fluorescein in the carrier solution, the following experiment was performed. The initial pH value of the carrier solution was maintained at 4, and that of the carrier solution in a reservoir was adjusted by dropping diluted hydrochloric acid solution ranging from pH 4 to 8.5 stepwise. The fluorescence intensity was measured at each pH by using the FIA system described in Figure 1. The results are illustrated in Figure 4. The increase of pH, the cause of the

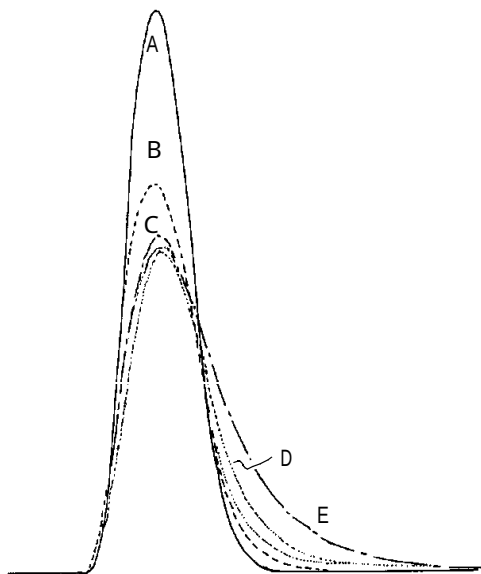


Fig.3 Effect of flow rate on the peak width of flow signals
A:0.5 ~ 1.5 B:2.0 C:2.5 D:3.0 E:3.5
Units:ml/min

change of fluorescence intensity due to the dissociation of fluorescein (which acts as a proton donor), caused a change of fluorescence intensity.

We applied this phenomena to the determination for alkalinity.

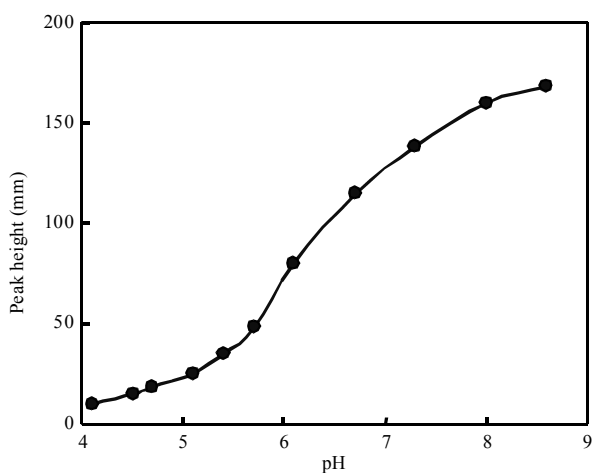


Fig.4 Effect of pH on the fluorescence intensity of fluorescein
Fluorescein concentration: 0.125×10^{-5} M
 HCO_3^- : 10^{-3} M, Injection volume: $5 \mu\text{l}$

3 • 3 Effect of initial pH of the carrier solution on the fluorescence intensity of fluorescein

The effect of initial pH of the carrier solution on the fluorescence intensity were studied by means of injecting 0.25×10^{-5} M sodium carbonate solution. As shown in Figure 5, the peak height increased with an increase of pH in the range of 3.8 to 4.8. Maximum and constant peak heights were obtained in the pH range from 4.8 to 5.5.

On the other hand the peak broadened and tailed with the increase of pH. It was presumed that the increment of pH causes the decrease of the reaction rate between the carrier solution and carbonate ions. The most suitable pH of the carrier solution was 5.2 which was chosen for all experiments regarding the determination of alkalinity.

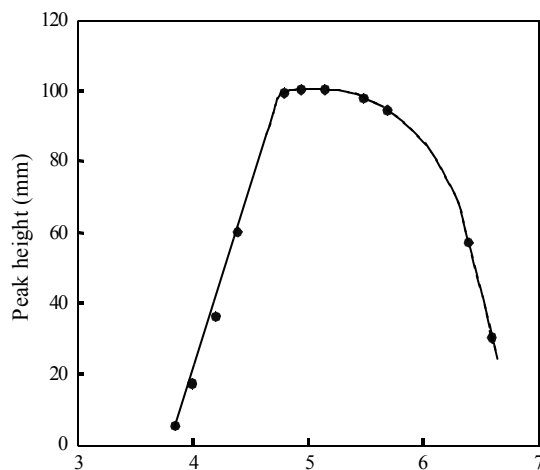


Fig.5 Effect of pH of carrier solution on the determination of alkalinity

Fluorescein concentration: 0.25×10^{-5} M
 HCO_3^- : 10^{-3} M, Injection volume: $5 \mu\text{l}$, coil length: 1.5m

3 • 4 Effect of diverse ions on the determination of alkalinity

The effects of diverse ions on the determination of 50 mg/l of CaCO_3 alkalinity were studied. The experimental results are shown in Table 2. Most cations and anions in the presence of 0.005M to 0.34M did not interfere with the

determination of alkalinity.

3 • 5 Calibration curve and precision

Figure 6 shows typical traces obtained by repeated injections of standard alkalinity solutions. A linear relationship was observed between the peak height and alkalinity concentration in the range from 0.5 to 120mg/l of CaCO_3 . The detection limit was calculated from flow trace

Table 2 Tolerable amounts of divers ions on the determination of alkalinity

Ions	Added as	Tolerable amounts (M)
Na^+	NaCl	0.34
K^+	KCl	0.090
Ca^{2+}	CaCl_2	0.0050
Mg^{2+}	MgSO_4	0.050
NH_4^+	NH_4Cl	0.0090
Cl^-	NaCl	0.34
Br^-	NaBr	0.10
I^-	NaI	0.080
SO_4^{2-}	Na_2SO_4	0.067
NO_3^-	NaNO_3	0.094
NO_2^-	NaNO_2	0.087

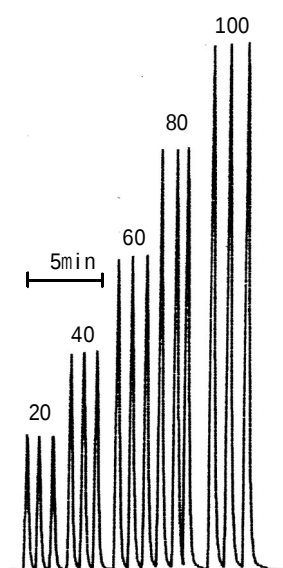


Fig.6 Typical continuous signal traces for alkalinity
Sample size: $5 \mu\text{l}$
Concentration: 20-100mg/ml as CaCO_3

(signal to noise ratio of 3).

The sampling rate was around 80 samples per hour. Turner et.al.¹¹⁾ reported that the analytical throughput was 30 samples per hour using flow injection method with

spectrophotometric titration, and was 10 to 30 minutes for conventional method (titration method). We achieved high throughput for the analysis for alkalinity compared with the conventional method. The relative standard deviation for ten determinations was 4.5% for 40 mg/l of CaCO_3 alkalinity.

3 • 6 Comparison between proposed and titration method

The validity of the proposed method has been examined by analyzing synthetic samples and real samples which were obtained from Fukuoka prefecture. The results of the proposed method were compared with those of the titration method.

The results are listed in Table 3. Based on five measurements for each sample using the respective method, the standard deviation was within 5%.

The values determined by the proposed method agreed well with those obtained by the titration method.

Table 3 Determination of alkalinity in synthetic samples and natural waters

Samples	Proposed method (mg/l)	Titration method (mg/l)
Synthetic samples 1	28.9	29.5
Synthetic samples 2	22.3	22.5
River water 1	57.8	56.0
River water 2	40.3	39.5
Tap water	22.8	24.0

4 CONCLUSIONS

The determination of alkalinity in water samples was achieved by means of the flow injection method employing a fluorescence detector. This method was based on the acid-base reaction between alkalinity and fluorescein (which was an acid). Fivemicro-liters of the sample solution were injected, and an increase in the fluorescence intensity of the fluorescein at 517 nm was detected. The dominant natural water ions such as Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , Cl^- , and SO_4^{2-} did not

interfere with the determination of alkalinity. The results of the analysis of various water samples obtained using the proposed FIA system corresponded closely to those by obtained by obtained using the standard titration method. The proposed FIA system can provide a rapid and simple analysis, with a high throughput of 80 samples per hour, requiring no complicated operation.

REFERENCES

- 1) T.E. Larson and L. Henley: Determination of low alkalinity or acidity in water, *Anal. Chem.*, 27, 851, 1955.
- 2) J.F.J Thomas and J.J.J. Lynch: Determination of carbonate alkalinity in natural waters, *J. AM. Water Works Assoc.*, 52, 259, 1960.
- 3) American Public Health Association; American Water Works Association; Water Pollution Control Federation "Standard Methods for the Examination of Water and Waste water", 15th ed.; American Public Health Association: Washington, DC, pp 253, 1980.
- 4) G.A.Rechnltz: Report 238490/7 GA U· S. Natiional Technical Information Service, 1974
- 5) H.Small, T.S.Stevens and W.C.Bauman: Novel ion exchange chromatographic method using conductimetric detection, *Anal. Chem.*, 47, 1801, 1975.
- 6) T. Hironaka, M. Oshima and S. Motomizu: Determination of total carbonate-carbon in river water by ion chromatography with photometric detection, *BUNSEKI KAGAKU*, 36, 503, 1987.
- 7) F. Canete, A. Rios, M.D.L. de Castro and M. Valcarcel: Determination of analytical parameters in drinking water by flow injection analysis Part Simultaneous determination of pH, alkalinity and total ionic concentration, *Analyst*, 112, 263, 1987.
- 8) R.B.Willis and G.L. Mullins: Automated analysis for water alkalinity, *Anal. Chem.*, 112, 263, 1983.
- 9) E. Hillbom, J.Liden and S. Pettersson: Probe for in situ measurement of alkalinity and pH in natural waters :*Anal. Chem.*, 55, 1180, 1983.
- 10) L.K.Shpigun, I.Ya Kolotyorkina, Y.A.Zolotov: Experience with flow-injection analysis in marine chemical research: *Anal. Chim. Acta*, 261, 307, 1992.
- 11) D.R.Turner, S.Knox and M.Whitfield :Flow injection titration of alkalinity in natural waters: *Anal.Proc.*, 24, 360, 1987.

アルカリ度のフローインジェクション分析

松枝隆彦，大石興弘

フローインジェクション法による天然水中のアルカリ度の簡易迅速な分析法を検討した。こ本法はフルオレスセインの蛍光強度のpH依存性を利用したもので、その強度はアルカリ度濃度と比例する。70-系はリザーバー、ポンプ、ラインサンプラー、コイル及び蛍光検出器より構成され、5 μlの試料を70-系に注入し、フルオレスセインの蛍光強度の変化を測定する。蛍光検出器の励起及び蛍光波長はそれぞれ、490nm及び517nmである。検出限界値は CaCO₃ 換算で0.5 mg/l、変動係数は4.5%であった。分析速度は1時間当たり80試料で操作は簡便である。天然水中に存在する Na⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺, Cl⁻, 及び SO₄²⁻等のイオンはアルカリ度の測定に影響しない。本法の結果は滴定法の結果とよく一致した。

原著論文

音響管を組み込んだ防音壁による低周波音の制御

松本 源生, 藤原 恭司*

防音壁により低周波音を制御するには, 従来10m を超える高さを要すると考えられていた. 本論文では, 防音壁の側面に音響的にソフトな表面を広くとれば, 高さに頼らなくとも低周波音を制御することが可能であることを示した. そして, ソフトな表面を実現する音響管を用いて, 高さが2m であっても十分な遮音効果が得られることを明らかにした. また, 音響管による遮音のメカニズムを検討した結果, 音響管はソフトとなる周波数帯で音のエネルギーの流れを上方に転じるため, 受音領域で効果的な遮音が得られること, 更に, 音響管の管幅が大きくなるほど遮音効果のピーク値も大きくなり, 効果のある帯域も広くなることもわかった.

[キーワード : 低周波音, 制御, 遮音効果, 音響管, 数値計算]

1 はじめに

低周波音は, ここ数年急速に苦情が増加し, 環境省において2002年に測定マニュアル¹⁾が作成され, 重大な環境問題としての認識が高まっている.

音を制御するために広く利用される手段として防音壁がある. しかし, 高さ3m 程度の防音壁に対しては, 周波数80Hz 以下の低周波音波は容易に回折するため, 遮音効果は極めて小さい. また, 低周波音に機能する吸音材は存在しない. そのため, 低周波音の制御に既存の防音壁を用いて十分な遮音効果を得るには, 10m を超える高さを要すると考えられていた.

道路交通騒音の制御に最も多く用いられている統一型防音壁は, 音源側(車道側)表面を吸音処理している. 交通量の増加などにより騒音レベルが上昇したときには, 高さを嵩上げすることにより対処することも有効であるが, 構造的な強度や景観上問題がある. このため, 防音壁背後の受音領域にとっては仮想的な音源とみなせる先端部(以後 エッジと呼ぶ)の音圧を減少させることが遮音量向上には有効であるため, この統一型防音壁のエッジ部分を音響的にソフト²⁾とする特殊形状を有する加工製品が開発されており, 嵩上げによらなくとも大きな遮音効果を得ることが可能となっている.

そこで今回, 防音壁の高さを抑えるためソフトな表面を狭いエッジに配置するのではなく, 防音壁側面に広く配置することにより遮音効果の向上を試みた. これまでも川瀬らによりソフトな表面を持つ防音壁により低周波音の制御を提案した研究³⁾があるが, 同一長の音響管の

配列を用いてソフトな表面を実現していたため, 高さ, 厚みとも非常に大きな防音壁を用いなければ低周波音の制御はできなかった.

本論文では低周波音の制御に, 防音壁の緩やかなスロープに音響管を配置する技術, 逆側の側面を活用する技術という, 新しい技術を適用することにより低周波音の制御の向上を図った.

2 検討方法

境界要素法⁴⁾による数値計算を用いて, 防音壁の遮音効果を計算した. 実在する音場は3次元であるが, Hothersall⁵⁾らにより遮音効果に着目すると, 3次元音場と2次元音による数値がほぼ一致することが示されている. そこで, 本論文の検討では防音壁の断面のみを考えればよいと計算時間が大きく減少し, プログラミングが容易な2次元音場を想定することとした.

ここでは, 防音壁に音響的にソフトなスロープを持たせることの効果の検討し, スロープ面をソフトとするために音響管を配置して高さを要しない低周波音用の防音壁の作成を試みた. なお, 防音壁の表面特性に関しては, 完全反射のときにはインピーダンスを0, ソフトと設定するときには無限大と設定した.

3 結果及び考察

3・1 ソフトな表面による遮音効果の向上

まず, ソフトなスロープ面による遮音性能を数値計算により検討した. 音源, 受音点および防音壁は図1に示

福岡県保健環境研究所

(〒818-0135 太宰府市大字向佐野39)

*九州芸術工科大学 芸術工学部

(〒815-8540 福岡市南区塩原4丁目9-1)

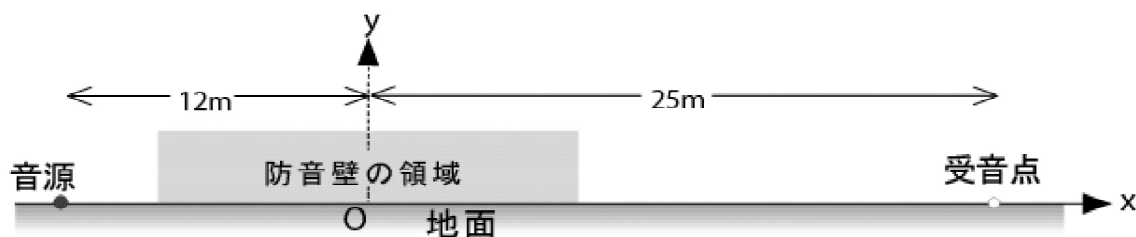


図1 数値計算に用いた音源，受信点と防音壁の位置

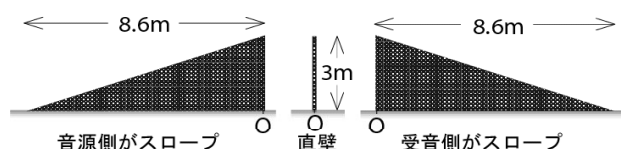


図2 防音壁の形状

す位置に置いた．防音壁に関しては図2に示すように，高さ3mの直壁，音源側または受信点側にスロープを持つ計3形状の防音壁を用い，防音壁の位置は図1の原点Oに図2のO点を置いた．音源側スロープと受信側スロープ形状のものは，それぞれ(0.05, 0)，(-0.05, 0)から真上3mにピークを置き，ピークからはそれぞれ3/8.6，-3/8.6の傾斜を持たせた．このように緩やかなスロープを持たせたのは，10Hz程度の超低周波音の制御をも視野に入れ，10Hzに対してソフトな表面を実現する1/4波長音響管の管長8.5mに対応させているためである．

防音壁の壁面の性状を表1に示すように設定し，4つのケースに対して受信点における遮音効果を算出した．図3に5Hzから50Hzまでの周波数帯での防音壁背後の遮音効果を示す．防音壁の全面が完全反射な直壁であるCaseAHにおいては遮音効果はわずかであり，20Hz以下では1dBの効果も得られていない．直壁のエッジのみをソフトとしたCaseESにおいては30Hz以下では2dB以下の効果しかなく，16Hz～20Hzにかけては遮音効果が特に減少している．一方，受信側スロープ面がソフトなRightSlopeSでは9～12dB，音源側スロープ面がソフトなLeftSlopeSの場合には12～16dBもの遮音効果が得られている．その遮音効果は，周波数が高くなるほど増加している．

道路交通騒音などの騒音の制御に関しては，受信点からすれば2次的な音源である防音壁エッジをソフトとすれば大きな遮音効果が得られるが，低周波音が対象であれば音波の回折が大きいために，エッジのみをソフトとしても効果は小さい．しかし，壁に広いスロープを持たせてスロープ面をソフトとすることにより大きな遮音効果を得ることが可能であることがわかった．

表1 壁面の性状の設定

名称	表面性状		
	音源側	エッジ	受信側
Case AH	完全反射	完全反射	完全反射
Case ES	完全反射	ソフト	完全反射
LeftSlope S	ソフト	完全反射	完全反射
RightSlope S	完全反射	完全反射	ソフト

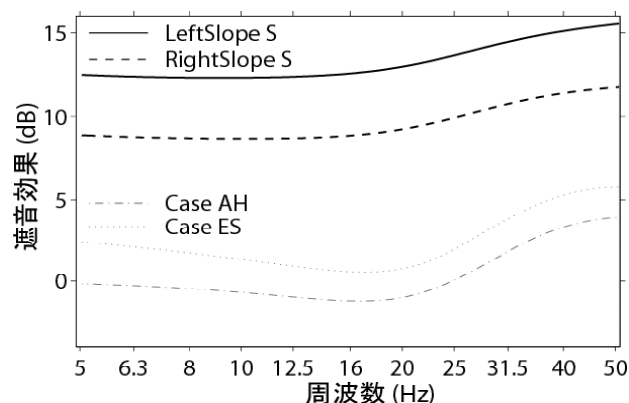


図3 遮音効果の周波数応答

3・2 音響管によるソフトな表面の実現

ソフトな表面を実現する素材は存在しないが，形状により実現が可能である．なかでも1/4波長音響管を表面に配置し，ソフトな表面を近似的に実現させる方法が代表的である．図4にその原理を示している．音波の波長を λ とおくと，音響管内部は管幅 Width に対して $\text{Width} < 0.59\lambda$ であれば音の伝搬は管の長さ方向のみに生じ平面波伝搬となる⁶⁾．音響管表面に入射した音波は管内を往復した後，反射波となって放出される．その際，管長が $\lambda/4$ である1/4波長音響管では，往復した経路が半波長となり開口端における反射波の位相は入射波に対して逆相となり音圧が0となる．すなわちソフトな表面が実現できる．管長 Length が $\lambda/4$ と等しければ，開口端において音圧が0となりソフトになる．しかし， $\lambda/4$ に近い管長に対しては開口端における音圧は0にはならないが，0に近い値となるため，開口端表面ではソフトに近い性状となる．

このように表面がソフトとなる周波数は音響管の長さ

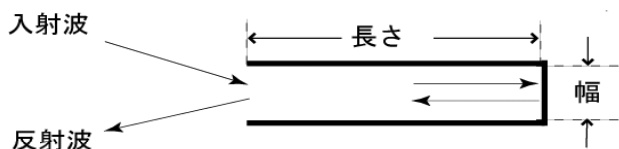


図4 音響管によるソフトな表面の原理

に依存するが、その周波数を中心として、ある程度の周波数幅で有効な遮音効果が得られる。ただ、その中心となる周波数は、厳密には管長の4倍の波長を有する周波数ではない。それは、空気には粘性があるため、音響管は管長よりも長いものとして振る舞うためである。その長くなる数値は、開口端補正值として知られおり、管幅 Width よりも小さい数値となる⁷⁾。

図2に示したスロープ面を有する防音壁に音響管を組み込むことを試みる。ここでは、受信側にスロープを持つ防音壁に音響管を配置して、ソフトな表面を作成した(音源側スロープに関しても後で検討を行う)。ただし、スロープ面に配置するため、通常の1/4波長音響管のように方形とはせずに、下部になるにつれ音響管が長くなる図5に示すような楕円形とした。(a)は高さ2.6mの間に0.1m厚の剛板を置き、(b)はその2.6mに等間隔に3枚の剛板を置き、それぞれは2本(Tube i, Tube ii)と4本(TubeI, TubeII, TubeIII, TubeIV)の音響管をスロープに配置したものとなる。なお、原点Oから上向きにある高さ3mの剛板は0.1m厚である。

図6に、音響管を用いたときの遮音効果の計算結果を示す。点線が2本の音響管による遮音量であり、14.9Hzおよび46.3Hzにピークがある。また、実線で示す4本の音響管によれば、遮音量がピークとなる周波数は、

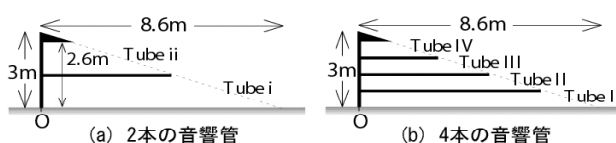


図5 防音壁の形状

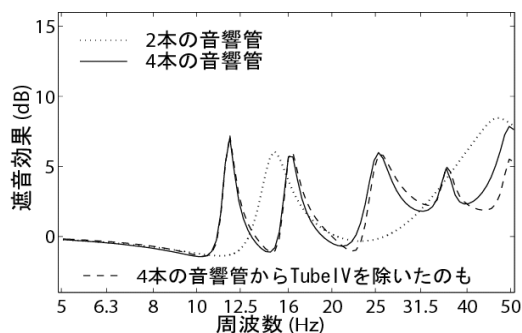


図6 遮音効果の周波数特性

-受信側スロープに音響管を配置した場合-

11.9Hz, 16.0Hz, 25.4Hz, 35.9Hz, 49.6Hz であり、2本の音響管によるピーク形状よりも急になっている。更に、音響管の幅を狭くして高さ2.6mの間に0.1m厚の剛板を等間隔に4枚置き、5本の音響管として同様に計算したところ、11.9Hz, 14.9Hz, 19.7Hz, 30.6Hz, 45.3Hzの周波数を中心として5dB程度の遮音効果が得られた。しかし、ピークが鋭くなり、有効な遮音効果が得られる周波数幅が狭まる結果となった。つまり、スロープに置く剛板の数を増やすことにより遮音効果がピークとなる周波数は増すが、ピークを中心とした有効な遮音効果が得られる周波数帯域は減少する傾向がある。

次に、4本の音響管で出現した多数のピークが、どの音響管の効果によるものかを調べることにした。TubeIVに関しては、音源との位置関係および形状から推測すると音響管として機能しない可能性もある。そこで、TubeIVを除いた図7に示す形状を作成し、再度遮音効果を計算した。その結果は図6の破線に示しているが、図5(b)によるものと比べると、30Hz以上の周波数帯域では1dB程度の差が見られる。しかし、図6による遮音効果のピークとなる周波数は11.9Hz, 16.4Hz, 25.4Hz, 35.9Hz, 49.6Hzであり、図5(b)によるものとほとんど同一である。従って、TubeIVは不要なものと結論づけることができる。

そこで、図7の防音壁形状に関して考察を行った。11.9Hzの1/4波長は7.1m、TubeIの長さは6.5m、開口端補正を考慮すると両者は良い対応を示しており、11.9Hzにおける遮音量の向上はTubeIによる効果であることがわかる。同様な解析により、16.0Hzと25.4Hz周辺での遮音量の向上は、それぞれTubeIIとTubeIIIによる効果であることがわかる。遮音量がピークを示した残りの周波数35.9Hzと49.6Hzは、それぞれの3/4波長とTubeI, TubeIIの管長との対応が良く3/4波長音響管として効果であることがわかる。

このように音響管によれば管長の4倍また4/3倍の波長を有する周波数を中心として有効な遮音効果が得られることがわかった。しかしながら、管長の異なる複数の音響管を用いれば遮音効果がピークとなる周波数は増えるがディップ(2つのピークの間に生じる谷間)となる周波数も増えるというデメリットも生じていた。

次に、音響管による遮音のメカニズムを調べるため、

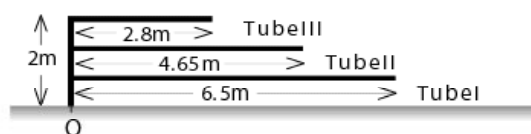


図7 4本の音響管(図5(b))からTubeIVを除いた防音壁形状

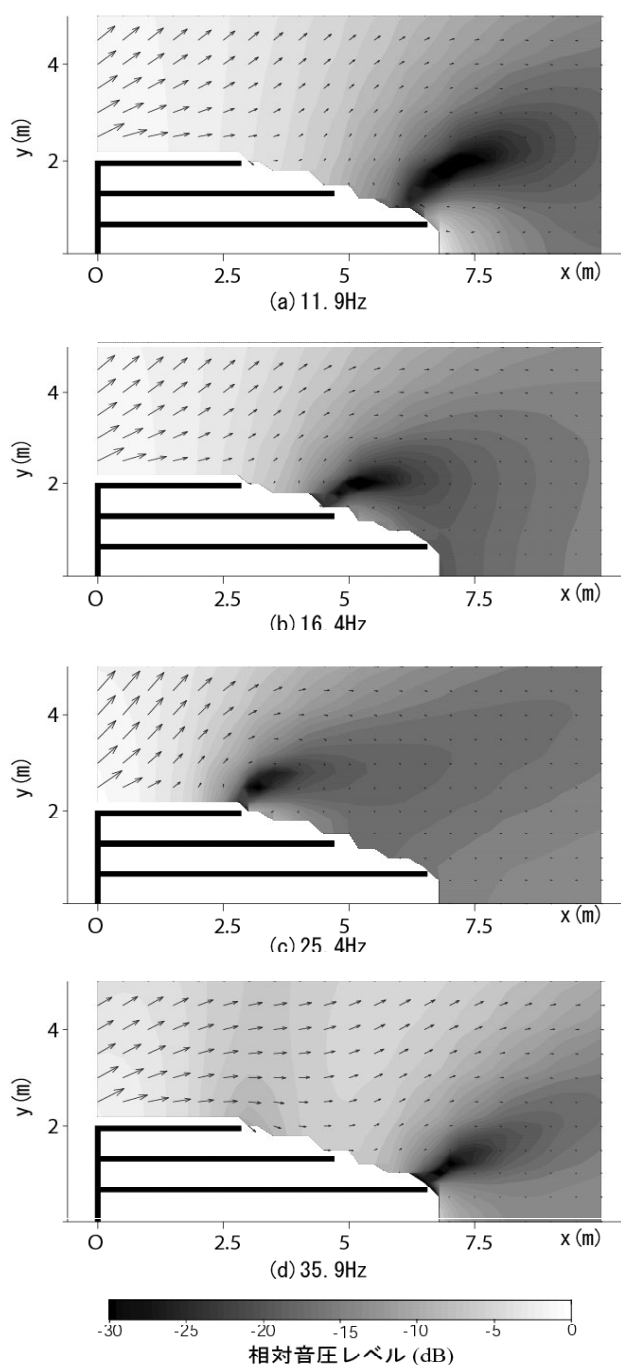


図8 音圧レベルとインテンシティの分布

音圧レベルとインテンシティの分布を描いてみた。遮音効果がピークとなった4つの周波数11.9Hz, 16.4Hz, 25.4Hz, 35.9Hz に対して計算を行った。音響管の開口端付近の分布図を図8に示す。矢印の大小と向きは、それぞれインテンシティの強さと向きを表している。

分布図(a)を一見すれば、音圧レベルの極小値は TubeII の開口端付近に位置し、音エネルギーの流れもその開口端を避けるように右上に転じており11.9Hz での遮音効果はあたかも TubeII による効果のように見える。しかしながら、等音圧レベル面を見ると、TubeI の開口端の

平面波面が徐々に丸い波面となっているものと、防音壁上部から到達する平面波に近い波面とが交わっている領域において、音圧レベルが極小値をとっていることがわかる。実際、TubeI のみを単体で設置して分布図を描いても、(a)と同じように TubeI の開口端の右上に音圧レベルの極小値が現れ、そこでエネルギー流が右上に向かっていた。従って、分布図(a)は TubeI の効果を示しているものである。他の3つの分布図においても、やはり音響管の右上に音圧レベルの極小値が存在しエネルギー流が右上に転じている。このように、受音側スロープの音響管の効果は、音のエネルギー流が斜め上方に転ずる影響であることがわかった。

3・3 広い周波数帯域での遮音効果向上 -音源側スロープの音響管に対する工夫-

遮音効果を広帯域化するための手段を考察した。具体的には、図7の防音壁形状で生じた13~15Hz にわたるディップを抑制するため、音源側に音響管を追加する。図3で示したように音源側をソフトとすることは受音側よりも遮音効果が高いため、ソフトな性質を持つ音響管によって優れた効果が期待できる。

図9に示すように、地面上に横たえる状態で0.1m 厚の剛板を用いて音響管を設置する。O 点から垂直に立つ剛板の高さは Width(m)とした。地面による鏡像を考慮すると、Width の倍の長さの管幅を有する音響管となる。開口は音源側に向け、O 点を図1の原点Oに合わせた。13~15Hz の制御のため管長は5.0m で固定し、Width を0.5m, 1.0m, 1.9m と変化させたときの遮音効果の周波数応答を図10に示す。大きな管幅のほうが、遮音効果がピークとなる周波数が小さくなっている。更には、管幅が大きくなるほど遮音効果のピーク値も大きくなり、効果のある帯域も大きくなることがわかる。Width=1.9のケースでは遮音効果は、13.6Hz でピーク値7.6dB をとり、12.8Hz から15.3Hz にわたって5dB 以上の効果が認められる。

ここでも、音源向きに開口を持つ音響管による遮音のメカニズムを調べるために、音響管の開口周辺の音圧レベルとインテンシティの分布を描いた。図11に Width=1.9のケースにおける13.6Hz での分布図を示す。音圧レベルが極小となる領域は開口の前方で、高さ2m あたりに位置しており、インテンシティをみると音のエ

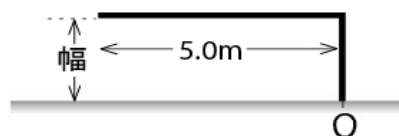


図9 音源側に音響管を置く防音壁形状

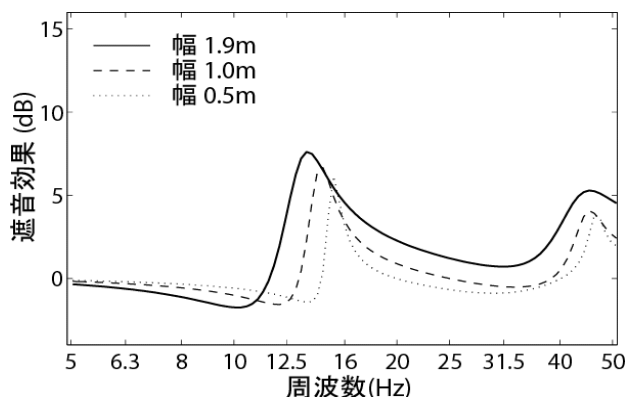


図 1 0 3つの管幅に対する遮音効果の周波数特性
-音源側スロープに音響管を配置した場合-

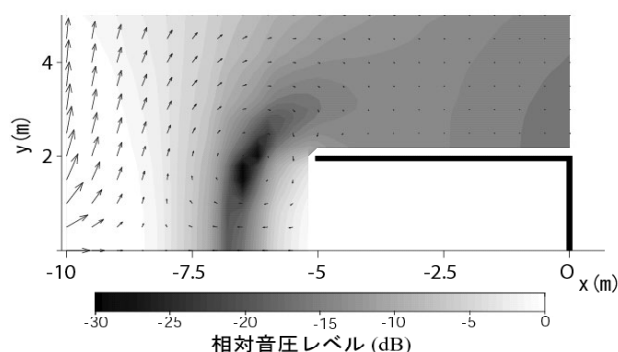


図 1 1 音圧レベルとインテンシティの分布 -13Hz-

エネルギーは開口よりも2.5m から5m 前方で真上に転じている．このように，受音点とかけ離れた領域で，エネルギーの向きが真上に転じることにより大きな遮音効果が得られたと結論できる．

3・4 両側のスロープに音響管を配置

続いて，図 7 で示した形状，すなわち防音壁の受音側に3本の音響管を配置した形状において生じた15Hz 前後での遮音効果のディップを，小さくすることを試みた．そのためには，図 7 の防音壁と，遮音効果のピークが緩やかな図 9 の Width=1.9のケースの防音壁とを組み合わせることが有効だと思われる．そこで，広帯域での遮音が可能となる防音壁形状の一例として図 1 2 に示す形状を考えた．遮音効果を計算したところ，図 1 3 の実線に示すように12Hz から18Hz という2/3オクターブバンド幅にわたり4.5dB 以上の遮音効果がある．その間には11.9Hz に5.6dB，13.6Hz に7.7dB，16.0Hz に8.2dB の大きな遮音効果を持つ3つのピークがある．図には結合前の図 7 と図 9 の単体での遮音効果も示しているが，単体時における遮音効果が重なり合う相乗効果として遮音効果が向上したことが明確に現れている．

防音壁に音響管を並列に配置したときには遮音効果がピークとなる周波数の間に大きなディップが生じていた．しかし，防音壁の反対の側面に追加した音響管に対

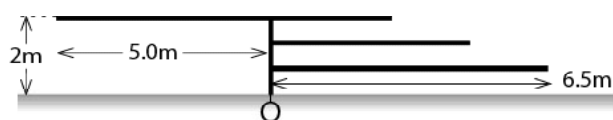


図 1 2 両側のスロープに音響管を配置

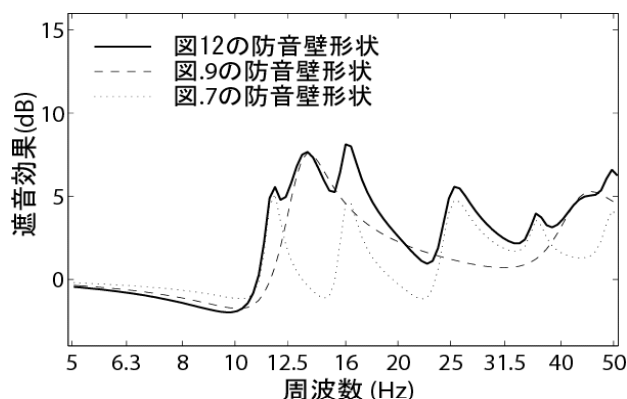


図 1 3 遮音効果の周波数特性
-両側のスロープに音響管を配置した場合-

しては，遮音効果が相乗的に増加することがわかった．ここで示した形状では8dB を超える遮音効果をも生じており，組み合わせのパターンによっては更なる効果の向上が期待できる．

以上の検討では，遮音効果は地面に沿った一地点に限っていた．ここで地面上空を含めた広い領域における遮音効果を確認するため，図 1 4 に遮音効果の分布図を描いた．対象としたのは，遮音量がピークを示した13.6Hz および16.0Hz である．広い範囲で7dB を超える遮音効果が得られている．

4 まとめ

低周波音の制御に防音壁を用いる場合，回折音波を抑えるため壁にかなりの高さが必要だと考えられていたが，防音壁の側面を音響的にソフトとすることにより，大きな遮音効果が得られた．ソフトな表面を近似的に実現できる音響管を用いた結果，防音壁の高さが2m であっても十分な遮音効果が得られた．音響管によれば開口端がソフトとなる周波数帯で，音のエネルギーを上方に転じるため，受音領域で効果的な遮音が得られる．また，音響管の管幅が大きくなるほど，遮音効果のピーク値が大きくなり，効果のある帯域も大きくなることもわかった．今回は10Hz ～20Hz までの制御を想定したため，防音壁に12m 程度の幅を要しており，まだ実用的とは言えない．しかし，20Hz ～40Hz の制御だと半分の幅で十分であり，対象とする周波数が高くなるほど幅は小さくて済む．

今後は，低周波音を発生する音源のスペクトルを考慮

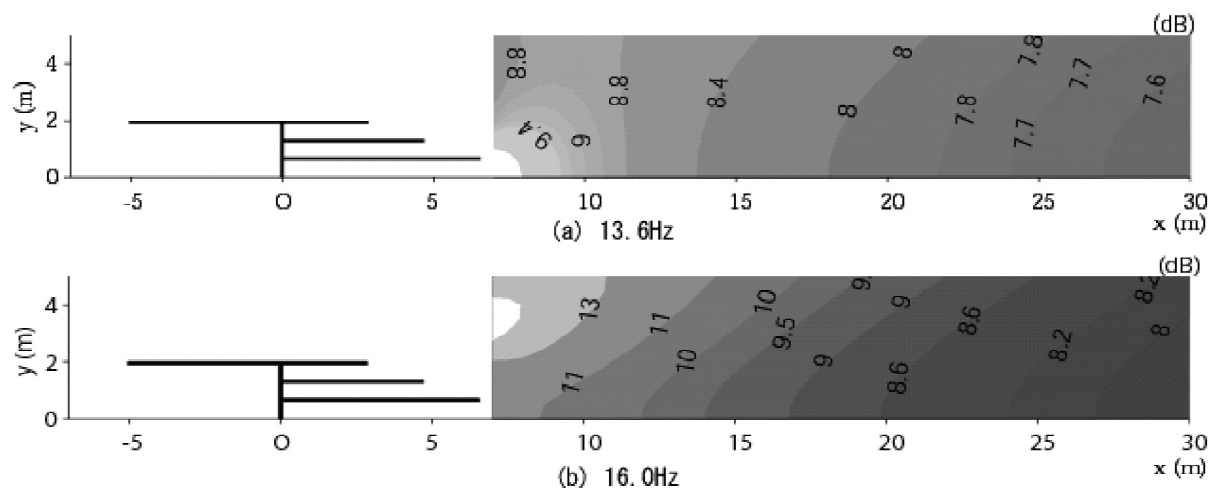


図 1-4 遮音効果の分布図 -両スロープに音響管を配置-

して、効果的な音響管配列を提案していきたい。加えて、音響管に比べて長さを必要としないヘルムホルツ共鳴器により、改良を進めていく方針である。

文献

- 1) 環境庁大気保全局：低周波音の測定法に関するマニュアル，2000.
- 2) 藤原恭司，四元英治：ソフトな表面を持つ防音壁について，日本音響学騒音研究会資料 N-92-7，187-196，1992.
- 3) 川瀬康彰：低周波域用防音壁に関する基礎研究，平成8年度九州芸術工科大学修士論文，1997.
- 4) R. Seznec：Diffraction of sound around barriers: use of the boundary elements technique, J. Sound. Vib. **73** (2), 195-209, 1980.
- 5) D. C. Hothersall, S. A. Chandler-Wild and M. N. Hajmirzae：Efficiency of single noise barriers, J. Sound. Vib. **146**, 303-322, 1991.
- 6) 前川純一：建築・環境音響学，共立出版，1992.
- 7) 伊藤毅：音響工学原論，コロナ社，1955.

Control for low frequency noise by the shielding barrier built in sound tubes

Gensei Matsumoto and Kyoji Fujiwara*

*Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences,
39 Mukaizano, Dazaifu, Fukuoka 818-0135, Japan*

**Kyushu Institute of Design, Lab. of Acoustical Environment Analysis,
4-9-1 Shiobaru, Minami-ku, Fukuoka 815-8540, Japan*

It has been considered that a shielding barrier needs height over 10 m to reduce low frequency noise sufficiently. Nevertheless, numerical calculation showed that a shielding barrier, which had wide soft surface in side, did not require such height. In this paper, sound tube was used for making soft surface. A shielding barrier built in sound tubes had sufficient shielding effect even if its height was only 2 m. Investigations for the mechanism of reduction by sound tube revealed that a sound tube made energy flow turn to upward, and sufficient noise reduction was gained in receiving region. Moreover, as width of sound tube was longer, the peak value of sound shielding effect was bigger and frequency region having sufficient shielding effect was wider.

[Key words : low frequency noise, noise control, sound shielding effect, sound tube, numerical method]

短 報

大量注入装置を用いた GC-MS分析法によるダイオキシン類分析

飛石和大, 堀就英, 黒川陽一, 石黒靖尚, 飯田隆雄

大量注入装置 (SCLV injection system) を用いたGC-MS分析法によるダイオキシン類分析において, 極性の異なる分析カラムの分離特性の検討を行った. その結果, シアノプロピル系の液相を用いた強極性カラムによる測定において, 2,3,7,8-TeCDD付近の分離が良好で, 従来法 (JIS法) とほぼ同等の分離特性を持つことがわかった.

[キーワード : SCLV injection system, ダイオキシン類, GC-MS分析]

1 はじめに

GC-MS分析の測定感度を上げる方法として, 機器への試料注入量を増やす目的で大量注入装置が知られている. この中でSolvent Cut Large Volume (SCLV) injection systemは, 注入口部を変更することなく大量注入を実現できる点が他の装置と比べ特徴的である^{1) 2)}. 具体的には, プレカラムにおいて目的成分だけを次のコールドトラップ部へ送り, 他を系外へ排出する. コールドトラップ部で分析カラムの先端に濃縮された目的成分だけがMS部へ送られる. この手法の利点は, 溶媒などの不要な成分をMS部へ導入しないこと, コールドトラップによって目的成分のバンドが狭まりシャープなクロマトグラムが得られること, 分析カラムに通常よりも径が細く短いカラムを使用できる点である. これによりキャリアーガスを減らしMS部の真空度を上げることでS/N比を向上させ, ダイオキシン類分析の高感度化に有効な手法と考えられる. しかしこの手法の応用例は限られており, 無極性カラムでの血液中ダイオキシン類測定への適用例³⁾と筆者らの応用例⁴⁾が報告されているのみである. そこで本研究では, 大量注入装置を用いたGC-MS分析法によるダイオキシン類分析において, 種々のキャピラリーカラムを用いた場合の分離特性について検討を行った.

2 実験方法

測定に用いた装置と分析カラムについて表1にまとめた. すべての測定においてプレカラムは固定とし, 分析カラムを交換して測定を行い, 3種のクロマトグラムを

得た. 測定には, 排ガスから得たダイオキシン類抽出液 4 μ L を用い, 測定条件は表2にまとめた.

3 結果と考察

分析カラム1~3を用いた測定より得られた, TeCDDsのクロマトグラムをそれぞれ図1~3に示す. 矢印は, 異性体2,3,7,8-TeCDDの溶出位置を示している. 分析カラム1は, シアノプロピル系の液相を用いた強極性カラムであり, JIS法⁵⁾で採用された液相と同種のものである. 図1より分離特性はJIS法に示されたものにほぼ等しかった. 特にHxCDFsの測定においてはJIS法以上の分離が得られた. 分析カラム2もシアノプロピル系の強極性カラムであるが, 2,3,7,8-TeCDD付近の分離は十分ではなく, 2,3,7,8-TeCDDと他の異性体との混合ピークであったため定量分析には使用できない. 同じ液相を持つカラムであっても製品によって分離特性は異なっていた. 分析カラム3は5%フェニル基相当の無極性カラムであり, 2,3,7,8-TeCDD付近の分離は, 分析カラム1よりやや劣る程度であった. しかし, 他のTeCDFs, PeCDFsの測定において十分な分離が得られなかったため, 総合的には定量分析には使用できない.

クロマトグラム上の各ピークは, SCLV injection systemを用いない場合と比較してシャープになった. 標準物質 (2,3,7,8-TeCDD) でピークの始点から終点を同じ測定条件で比較したところ, 用いない場合の約14秒に対して約7秒であった. SCLV injection systemを用いた測定では, コールドトラップにより目的成分がフォーカスされ, バンド幅が狭くなるため各ピークがシャープに

表1 使用した装置と分析カラム

GC	SCLV injection system (SGE, Australia) HP-6890 (Agilent Technology, USA)
MS	AutoSpec-Ultima (Micromass, UK)
プレカラム	BPX-5 : 5m×0.25mm×0.25 μm (SGE, Australia)
分析カラム1	Rtx-2330:40m×0.18mm×0.10 μm (Restek, USA) シアノプロピル系
分析カラム2	BPX-70 :30m×0.15mm×0.15 μm (SGE, Australia) シアノプロピル系
分析カラム3	BPX-5 :30m×0.15mm×0.15 μm (SGE, Australia) 5 %フェニル基相当

表2 測定条件

Inj. temp.	300
Oven temp.	80 → 20 /min→260 (8min)→40 /min →180 (1min)→5 /min→260 (14min)
Purge on time	5 min
Cold trap	3-10min cooling
Solvent cut	5-17min solvent cut valve: off

なったものと考えられる。

以上より、大量注入装置を用いたGC-MS分析法によるダイオキシン類分析において、3種の異なる分析カラムの分離特性について検討を行った結果、分析カラム1を用いた測定において、2,3,7,8-TeCDD付近の分離が良好で、従来法(JIS法)とほぼ同等の分離特性を持つことがわかった。

4 謝辞

本研究を行うにあたって、技術情報を提供いただいたSGE Japanの江崎達哉氏に感謝いたします。

文献

1. 松村徹ら:第8回環境化学討論会, 104, 1999.
2. 松村徹ら:第9回環境化学討論会, 174, 2000.

3. 増崎優子ら:第9回環境化学討論会, 402, 2000.

4. 飛石和大ら:第11回環境化学討論会, 550, 2002.

5. 排ガス中のダイオキシン類及びコプラナーPCBの測定方法, JIS K 0311, 1999.

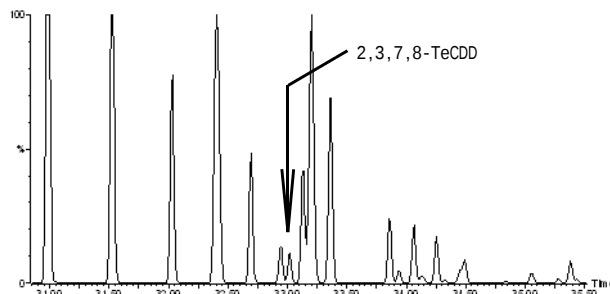


図1 TeCDDsクロマトグラム(Rtx-2330)

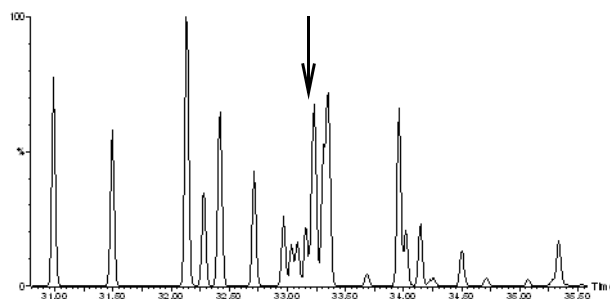


図2 TeCDDsクロマトグラム(BPX-70)

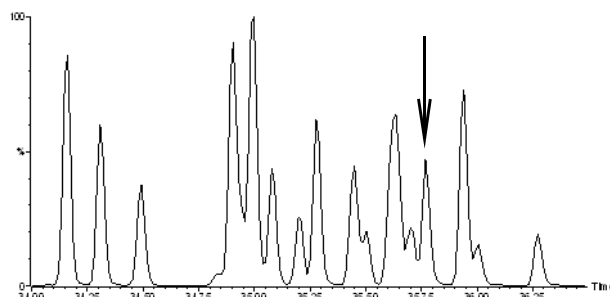


図3 TeCDDsクロマトグラム(BPX-5)

Dioxin analysis by GC-MS using SCLV injectin system

Kazuhiro TOBIISHI, Tsuguhide HORI, Yoichi KUROKAWA, Yasuhisa ISHIGURO, Takao IIDA

*Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences,
Mukaizano 39, Dazaifu, Fukuoka 818-0135, Japan*

The aim of this study is to investigate the separation characteristics of three analytical columns for analyzing dioxins using GC-MS equipped with a solvent cut large volume (SCLV) injection system. The cyanopropyl column demonstrated good separation near the peak of 2,3,7,8-TeCDD, and the separation characteristics were similar to those of the method of JIS.

[Key words : SCLV injection system, dioxin, GC-MS]

短 報

β -シクロデキストリンを酸化的二量化反応の制限媒体として用いた 2,2'-ジヒドロキシ-5,5'-ジアセチルアミノビフェニルの選択的合成

池浦太莊

無蛍光の p-アセトアミドフェノール (AAP) がオゾンと定量的に反応して酸化縮合し、強い蛍光を発する 2,2'-dihydroxy-5,5'-diacetylaminobiphenyl (Dimer) を生成する反応は、オゾンや過酸化水素の高感度測定法として利用されている。しかし、Dimer が市販されていないことが、使用上のネックとなっていた。そこで、Dimer の簡単な合成法を検討した結果、AAP を β -シクロデキストリンで包接した後酸化すると、副反応が抑えられ高い収率で Dimer が得られることを見いだした。

AAP は医薬品名をアセトアミノフェンと称し、鎮痛剤として広く利用されており、Dimer の簡単な合成法の開発は、医薬品の品質管理の分野においても意義あるものと考えられる。

[キーワード : オゾン, p-アセトアミドフェノール, アセトアミノフェン, 二量体]

1 はじめに

無蛍光の p-アセトアミドフェノール (AAP) が、オゾンと定量的に反応して酸化縮合し、強い蛍光を発する 2,2'-dihydroxy-5,5'-diacetylaminobiphenyl (Dimer) を生成する反応を見だし、大気中オゾン濃度の測定法および高感度オゾン簡易捕集器として報告¹⁻⁵⁾した。この方法は測定感度に優れているが、Dimer が市販されておらず、絶対蛍光強度の測定も通常困難なため、オゾン計と並行測定した試料の相対蛍光強度とオゾン濃度との検量線より、他試料のオゾン濃度を求める必要があり、利用範囲が限定されていた。純度の高い Dimer を簡単に合成できれば、Dimer の標準溶液の蛍光強度を元にオゾン濃度を求めることが可能になり、応用範囲は大きく広がると考えられる。

AAP の酸化縮合により、強い蛍光を発する Dimer が生成する反応は、過酸化水素の測定においても優れた性能を有することが報告⁶⁾されている。また、AAP は医薬品名をアセトアミノフェンと称し、解熱沈痛剤として広く使用されているが、AAP の分解反応は中性付近では酸化縮合反応が主である。従って、Dimer の簡単な合成法の開発は、過酸化水素の測定が関与する分野や AAP を含有する医薬品の品質管理の分野においても意義あるものと考えられる。

Dimer の合成法としては、海東らが酸化剤としてフェリシアン化カリウムを使用した方法を既に報告⁷⁾しているが、副反応が多く単離操作が煩雑で収率が低いのが欠

点⁸⁾である。過酸化酵素存在下での過酸化水素による AAP の酸化反応を検討した David W. Potter らは、水酸基の2箇所のオルト位と酸アミド結合の窒素部分の3箇所で重合反応が起こり、図1のような多くの副反応が生じることを報告⁹⁻¹¹⁾している。そこで、AAP を β -シクロデキストリン (β -CD) で包接した後、フェリシアン化カリウムで酸化する方法を検討したところ、酸アミド結合の活性部分が β -CD に包接されて重合反応が制限され、 β -CD を使用しない方法⁷⁾と比較し約1.5~2倍の高収率で Dimer を合成できることを見いだした。

2 実 験

2.1 試薬類

AAP は東京化成㈱の特級試薬 (H0190) を使用し、その他の試薬類はすべて和光純薬工業㈱の分析用試薬特級を使用した。なお、シリカゲルには和光純薬工業㈱のワコーゲル C-200を用いた。

2.2 装置類

蛍光光度計には、日立製作所製 F2000を、高速液体クロマトグラフ装置 (HPLC) には、島津製作所製 LC-4A型を使用した。

2.3 試料溶液の調製

100ml メスフラスコに AAP 溶液30ml とトリス (ヒドロキシメチル) アミノメタン (Tris) 1.21g (0.01M) を加えて混合し、酸化液4mlを加えて直ちに振り混ぜ、30のウオーターバス中で2分間反応させた後、停止液5mlを

加えて純水で100mlにメスアップし、試料溶液とした。

AAP 溶液：AAP2g を純水300ml に溶かした後、 β -CD
15g を加え40℃で2時間攪拌した。

緩衝液：ホウ酸 9.9g と塩化カリウム 11.9g を純水
800ml に溶かし、0.2M 炭酸ナトリウム溶液
約200ml を加え、pH8.5に調整した。

酸化液：フェリシアン化カリウム10.0g を純水100ml
に溶かした。

停止液：L-アスコルビン酸4.0g を純水100ml に溶か
した。

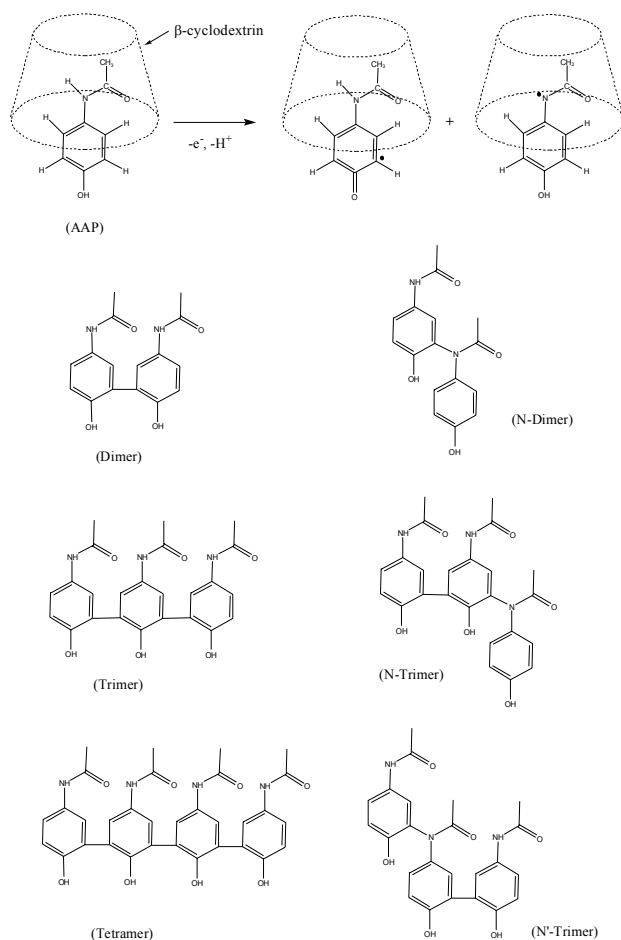


図1 AAPの酸化縮合反応

2.4 分析方法

試料溶液1ml を50ml メスフラスコに移し、蛍光光度計による測定の際には緩衝液で、HPLC による測定の際には純水でメスアップした。分析条件は次のとおりである。

蛍光光度計

励起波長：308nm

蛍光波長：405nm

HPLC

試料量：20 μ l

Column：Inertsil ODS-2, 5 μ m, 250 $\times$ 4.6mm I.D.
ジーエルサイエンス製

Eluent：A $\rightarrow$ 純水78%, メタノール20%, 酢酸2%
B $\rightarrow$ メタノール100%

Gradient：
0 - 1min. A = 100%, B = 0%
1 - 26min. A = 0%, B = 100%
26 - 31min. A = 0%, B = 100%
31 - 36min. A = 100%, B = 0%
36 - 45min. A = 100%, B = 0%

Flow rate：1.0ml / min.

Detector：UV 254nm

Oven Temp.：40

3 結果

3.1 アルカリ性物質の影響

フェノール類の C-C coupling はアルカリ性条件下でこりやすく、フェリシアン化カリウムによる反応も主にアルカリ性溶液中で行われる^{1,2)}。そして、Dimer の反応収率は使用するアルカリ性物質に影響されると考えられる。そこで、2・3節で使用した Tris の代わりに、アンモニア水、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、トリエタノールアミン、酢酸バリウム、炭酸水素ナトリウム、酢酸ナトリウム、炭酸アンモニウム、炭酸水素カリウム、リン酸二ナトリウムおよび pH8.5Tris/HCl 緩衝液を約0.01 M 添加し、2・3節に従い試料溶液の調製を行った。そして、試料溶液の pH と2・3節に従い測定した相対蛍光強度を比較した結果、図2に示すように相対蛍光強度は主に pH に依存し、アルカリ性物質の違いによる影響は見られないことから、Dimer の収率は主に pH に依存していると考えられる。

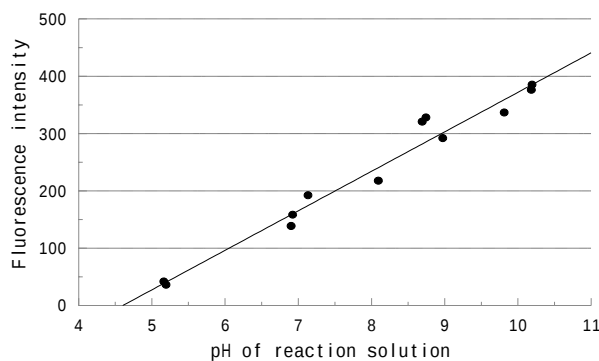


図2 pH と相対蛍光強度の関係

3・2 Tris濃度の影響

Dimer の収率は主に pH に依存し、アルカリ性物質の違いによる影響は見られないことが3・1節の実験から明らかとなったが、添加するアルカリ物質の濃度によっても反応収率が変化する事が予想される。そこで、Tris の添加量を0.30g(0.0025M)から4.84g(0.04M)の範囲で変化させ、2・3節に従い試料溶液の調製を行い相対蛍光強度を測定した。

その結果、図3に示すとおり相対蛍光強度は Tris の添加量が増えるに従い増加するが、1.21g(10mM)を超えると増加の程度が緩やかになる事が明らかとなった。

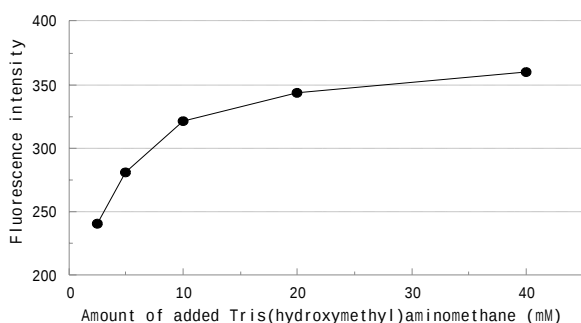


図3 Tris 添加量と相対蛍光強度の関係

3・3 酸化液添加量の影響

Dimer の合成に最適な酸化液の添加量を調べるため、酸化剤の添加量を1~8mlの間で変化させ、2・3節に従い試料溶液の調製を行い相対蛍光強度を測定した。

その結果、図4に示すとおり相対蛍光強度は酸化剤の添加量が3~4mlで最大となることが明らかとなった。

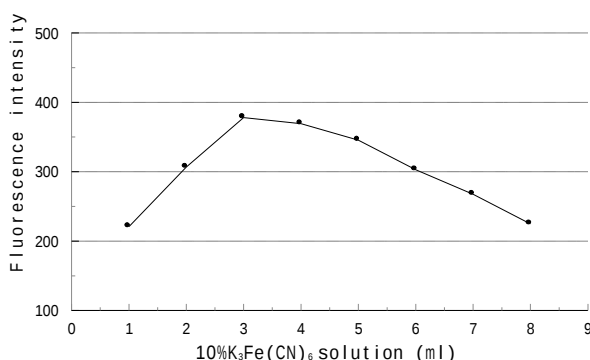


図4 酸化剤添加量と相対蛍光強度の関係

3・4 反応時間の影響

反応時間と Dimer の収率の関係を調べるため、30に保ったウォーターバス中で2・3節に従い反応を行い、時間をおって相対蛍光強度を測定した結果を図5に示す。

相対蛍光強度は2分で最大となり、その後徐々に減少してゆく事がわかった。

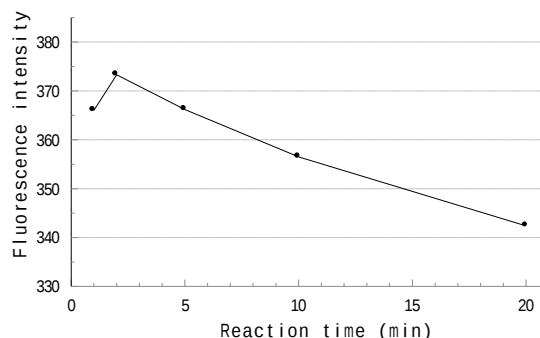


図5 反応時間と相対蛍光強度の関係

3・5 β-CD包接化の効果

AAP をβ-CD で包接した効果を確認するため、AAP をβ-CD で包接した AAP 溶液とβ-CD を添加しなかった溶液について、2・3節に従い試料溶液の調製を行い HPLC により分析した。その結果、図6に示すように AAP をそのまま酸化した場合と比較して AAP をβ-CD で包接して酸化した場合には、副生成物のピーク高さが全体的に低くなっている。特に N-Dimer および N-Trimer のピーク高が顕著に低くなっており、酸アミド結合のN位での反応が阻害されたためと考えられる。

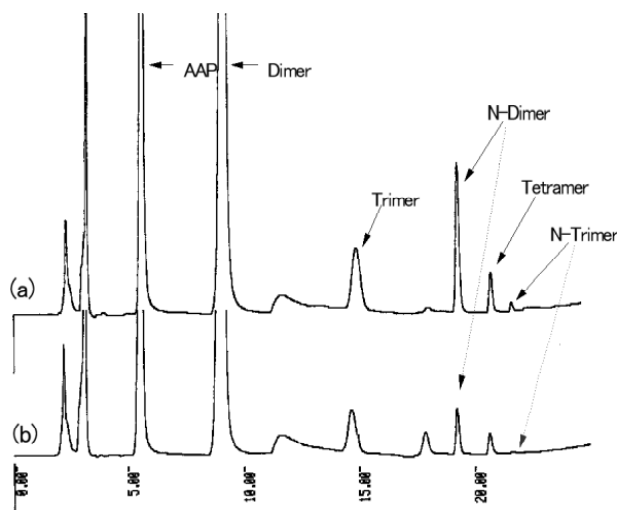


図6 HPLC クロマトグラフの比較
(a: β-CD 無添加, b: β-CD 添加)

なお、N-Dimer、Trimer、Tetramer などの副生成物については、標準物質が手に入らないため、David W. Potter らの文献^{9・11)}に記載された分析条件に従い分析し、溶出順序などから類推した。

3・6 合成法

3・1～3・5節の検討結果より次のように Dimer を合成した。AAP10.0g を2000ml ビーカーに取り純水1000ml に溶かした後、 β -CD75g と Tris65g を加え、さらに純水を追加して1500ml とし25～30 で2～3時間攪拌する。次に10% フェリシアン化カリウム溶液180ml を加えて素早く攪拌し、2分間反応させた後、10% L-アスコルビン酸溶液100ml を加えて反応を停止する。酢酸50ml を加えて pH を約5.0 に調整し、トルエン50ml を加えビーカーをサラップ等で覆って2時間ほど攪拌し、沈殿物をろ取る。沈殿物を500ml ビーカーに移してメタノール300ml を加え、十分に攪拌後ろ過し Dimer を抽出する。この操作をあと二度繰り返し、ろ液を1000ml ナスフラスコに合わせ、ロータリーエバポレータで溶媒を留去し残留物を得る。

残留物に純水250ml と25% アンモニア水10ml を加えて溶かした後、酢酸を加えて pH を約5.0 に調整し、一晚沈澱を熟成しろ取る。ろ取した沈澱を風乾するか105

で乾燥し、沈澱物1g 当たり30～40ml の2-プロパノールを加え少し加温して溶かし（完全に溶解しなくて良い）、2-プロパノールを溶離液としてシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより、Dimer を含む分画を分取し、500ml ナスフラスコに合わせ、ロータリーエバポレータで溶媒を留去し粗生成物を得る。

粗生成物をメタノール：水（2：1）混液に粒状活性炭を数粒加えて加温して溶かし吸引ろ過する。ろ液に当容量の熱水を加え一晚沈澱を熟成させた後、結晶をろ取る。さらに1～2度の再結晶を行い、白色針状結晶（mp 約220）を得る。収量約1.5～2g（収率15～20%）。

4 考 察

AAP を β -CD で包接して酸化すると、立体障害のためトリマーやテトラマーなどへのさらなる重合反応もある程度抑制されると考えられる。実際、図6を見るとトリマーやテトラマーのピーク高さが、 β -CD で包接せずに酸化した場合と比較して若干低い。しかし、逆に β -CD で包接する事によりピーク高さが大きくなる副生成物も見られる。

α -シクロデキストリン（ α -CD）も β -CD と同様に AAP と包接化合物を形成することを確認したが、 α -CD はかなり高価なので、本研究では安価な β -CD についてのみ検討を加えた。 α -CD は空洞の内径が4.5 と β -CD の7.0 よりもかなり小さい¹³⁾ので、 β -CD よりも強く副反応を抑制する可能性が高く、また、溶解度も β -CD より大きく合成に都合が良いので、将来、価格が下がれば検討する価値が出てくると思われる。

謝辞

本研究は、財団法人住友財団の研究助成を受け、実施したものであり、ここに謝意を表します。

文献

- 1) T. Ikeura: Fluorometric Determination of Atmospheric Ozone, J. Japan Soc. Air Pollut., 24(2), 160～162 (1989) [in Japanese].
- 2) 池浦太莊：高感度オゾン簡易測定器 - オゾン簡易測定器の開発とその実測例 -, 環境技術, 19(4), 232～237 (1990).
- 3) T. Ikeura, Tsuguo Mizoguchi: Sensitive Passive Sampler for Ozone, J. Chem. Soc. Jpn., 6, 811-819 (1991) [in Japanese].
- 4) Tasoh Ikeura, Tsuguo Mizoguchi: Performance Test of Ozone Diffusive Sampler, J. Chem. Soc. Jpn., 9, 819-824 (1996) [in Japanese].
- 5) 池浦太莊：オゾン測定法, 日本国特許第1660602号.
- 6) 青山正明：ペルオキシダーゼおよびそれと同等な触媒作用を有する物質の定量方法, 日本国特許第2079720号.
- 7) Tsunetoshi Kaito, Kazuhiko Sagara, Tsuguchika Yoshida, Yuji Ito: Studies on Fluorometric Analysis of Phenol Derivatives. Fluorometric Determination of Acetaminophen. (1), Yakugaku Zasshi, 94(5), 633-638 (1974) [in Japanese].
- 8) 池浦太莊, 溝口次夫：2, 2'-dihydroxy-5, 5'-diacetylaminobiphenyl の単離 - 蛍光光度法による大気中オゾン濃度測定 -, 第32回大気汚染学会講演要旨集, p477 (1991).
- 9) David W. Potter, Dwight W. Miller, Jack A. Hinson: Identification of Acetaminophen Polymerization Products Catalyzed by Horseradish Peroxidase, J. Biol. Chem., 260, 12174-12180 (1985).
- 10) David W. Potter, Dwight W. Miller, Jack A. Hinson: Horseradish Peroxidase-Catalyzed Oxidation of Acetaminophen to Intermediates that Form Polymers or Conjugate with Glutathione, Mol. Pharmacol., 29, 155-162 (1985).
- 11) David W. Potter, Jack A. Hinson: The 1- and 2-Electron Oxidation of Acetaminophen Catalyzed by Prostaglandin H Synthase, J. Biol. Chem., 262, 974-980 (1987).
- 12) 亀谷哲治, 福本圭一郎：フェノールオキシデーション, 技法堂, pp.11-15 (1970).
- 13) 戸田不二緒, 上野昭彦：シクロデキストリン, 産業図書, pp.1 (1995).

Selective Synthesis of 2,2'-dihydroxy-5,5'-diacetylaminobiphenyl using β -cyclodextrin as constrained medium for oxidative dimerization

Tasoh IKEURA

Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences

39, Mukaizano, Dazaifu, Fukuoka, 818-0135 Japan

The reaction of an oxidative dimerization of p-acetamidophenol(AAP), which gave a strongly fluorescent Dimer (2,2'-dihydroxy-5,5'-diacetylaminobiphenyl), is used as an highly sensitive measuring method for atmospheric ozone and hydrogen peroxide. However, it is a problem in practical use that Dimer is not marketed. Then, the convenient synthetic method of Dimer was surveyed. As a result, it was found that Dimer was obtained with high yield, when AAP was oxidized after inclusion to β -cyclodextrin.

Since AAP, also called Acetaminophen as a drug name, is used widely as an analgesic, this convenient synthetic method will be useful in the field of the quality control of the drugs.

[Key Words : Ozone, p-acetamidophenol, acetaminophen, dimer]

資 料

平成13年度 食中毒検査の概要について

世良暢之，長野英俊，村上光一，堀川和美，高田 智，
江藤良樹，浜崎光宏，梶原淳睦，千々和勝己

福岡県において平成13年度に発生した食中毒21事例（患者数273人）について，病因物質，原因食品，原因施設などについてまとめた．本年度も福岡県においては，夏季においては腸炎ピブリオをはじめとする細菌性による食中毒が，冬季には小型球形ウイルス（SRSV）をはじめとするウイルス性による食中毒が多く見られた．原因施設では飲食店によるものが約6割を占めてもっとも多かった．病因物質別では21事例中，腸炎ピブリオによるものが8事例，黄色ブドウ球菌によるものが4事例，サルモネラによるものが3事例及びSRSVによるものが3事例と，例年同様，腸炎ピブリオによるものが全体の約4割を占めていた．また，鹿肉を喫食して腸管出血性大腸菌O157に感染した事例も認められた．

〔キーワード：食中毒，細菌性，ウイルス性〕

1 はじめに

病原微生物による食中毒は，夏季には腸炎ピブリオ，黄色ブドウ球菌あるいはサルモネラなどの細菌性によるものが頻発し，冬季には小型球形ウイルス（Small Round Structured Virus，以下 SRSV と略す）などのウイルス性によるものが頻発することが知られている．福岡県においてもこの傾向はここ数年大きく変わることなく推移している．ここでは平成13年度に発生した食中毒事例をとりあげ，どのような病因物質，原因食品及び原因施設が見られたかについて報告する．

2 食中毒発生時の検査

平成13年度は，21事例，388検体（患者便，従事者便，食品残品，拭取り，菌株など）について，食中毒細菌及びウイルスについて検査を実施した．

細菌性食中毒と考えられる場合は，DHL，TCBS などの分離培地，セレナイト，アルカリペプトン水などの増菌培地を用いて分離培養した後，TSI，SIM などの生化学性状試験及び血清型別，毒素型別，PCR を用いた病原遺伝子の検出を行った．腸管出血性大腸菌については，さらにパルスフィールドゲル電気泳動により DNA パターンの解析を行った．

ウイルス性食中毒と考えられる場合は，糞便（数グラム程度）を PBS で10%乳剤とし，3000rpmで10分間遠心後，その上清を10000rpmで30分間遠心した．さらに超遠心分離により濃縮精製後，リンタングステン酸を用いて

ネガティブ染色し，30000～40000倍で電子顕微鏡観察した．また SRSV の RNA を抽出し，逆転写酵素を用いて相補的な DNA を合成した．これを鋳型に SRSV の遺伝子に特異的なプライマーを用いた PCR での増幅産物について電気泳動で確認後，その増幅産物の塩基配列を決定した．

3 食中毒検査結果

病因物質が判明した事例は20事例（95%）であった．そのうち，3事例が他県と関連していた．原因施設は飲食店が12事例と全体の約6割を占めていた．その他に，市販流通食品を購入して自宅で喫食した事例などが認められた．原因食品は，腸炎ピブリオの事例でウニ，魚介類，黄色ブドウ球菌の事例で錦糸玉子，サルモネラの事例で卵黄，マヨネーズなどが特定された．その他の事例では食品残品や原材料から病因物質が検出されず，原因不明であった．

病因物質別に見ると，腸炎ピブリオによるものが8事例（38%），黄色ブドウ球菌によるものが4事例（19%）及びサルモネラによるものが3事例（14%）であった．例年同様，これら3菌種で全体の病因物質の約7割を占めていた．その他に腸管出血性大腸菌O157，カンピロバクター，小型球形ウイルス（SRSV）などによるものが5事例（24%）認められた．

腸炎ピブリオによる食中毒は全体の約1/3を占め，そ

の血清型は平成8年度から増加傾向が見られる O3:K6の他に、O4:K68、O1:KUT が認められた。これらの株はいずれも腸炎ビブリオの病原因子である耐熱性溶血毒素（TDH）を産生した。黄色ブドウ球菌は、コアグラゼ3,7型、耐熱性エンテロトキシン A、C 型と特定の型による流行は認められなかった。サルモネラはすべてエンテリティディス（*Salmonella* Enteritidis）であったが、そのファージ型は36, 1及び6a と特定の型による流行は認められなかった。

その他、平成13年度は、鹿肉の摂取により腸管出血性大腸菌 O157を発症した食中毒が発生した。本事例は、大分県内を旅行中の1家族がお土産として購入した鹿肉（生食用）を持ち帰り、自宅で喫食した5歳の女の子が発症したのが始まりである。その後、同様に喫食した家族からも腸管出血性大腸菌 O157が検出された。検出さ

れた腸管出血性大腸菌 O157は、ペロ毒素2型を産生した。大分県において鹿肉（生食用）を検査したところ、12検体中5検体から腸管出血性大腸菌 O157が検出された。これらすべての菌株についてパルスフィールドゲル電気泳動による相同性について検討を加えた。その結果、最初に発症した女の子、自宅にあった鹿肉の食べ残し、大分県で検査された鹿肉から分離された菌株は全く同じ DNA パターンを示した。このことから、本事例は、腸管出血性大腸菌 O157（VT2産生株）に汚染された鹿肉（生食用）が提供されたことが原因であると考えられた。

小型球形ウイルス（SRSV）による食中毒は、11～3月に発生した3事例で認められた。このうち、2事例についてはカキの喫食がみられ、残り1事例も海産物の喫食が認められた。SRSV の遺伝子型は、塩基配列を解析した結果、すべてグループ2（G2）であった。

表1 平成13年度 食中毒細菌及びウイルス検査結果

事例	検査年月日	所轄保健所	発生場所	原因施設	検査件数	患者数	原因食品	病因物質	血清型別等
1	H13.5.29	系島	志摩町	飲食店	25	12	不明	カンピロバクター	<i>Campylobacter jejuni</i>
2	6.9	筑紫	大野城市	飲食店	30	11	不明	サルモネラ	<i>Salmonella</i> Enteritidis ファージ型(PT)36
3	6.28	筑紫	筑紫野市	自宅	9	7	不明	腸炎ビブリオ	O3:K6
4	6.29	久留米	久留米市	飲食店	5	8	ウニ	腸炎ビブリオ	O3:K6
5	7.17	筑紫	春日市	飲食店	23	3	錦糸玉子	黄色ブドウ球菌	コアグラゼ7型 エンテロトキシン C
6	8.8	系島	三瀬町	研修・合宿	8	13	不明	黄色ブドウ球菌	エンテロトキシン A
7	8.13	久留米	久留米市	自宅	27	11	不明	腸炎ビブリオ	O3:K6
8	8.15	山門	三橋町	集団給食施設	31	35	魚介類	腸炎ビブリオ	O3:K6
9	8.18	山門	柳川市	自宅	18	17	不明	腸炎ビブリオ	O3:K6
10	8.20	宗像	春日市	飲食店	6	6	不明	腸炎ビブリオ	UT
11	9.1	田川	田川市	飲食店	23	7	不明	腸炎ビブリオ	O4:K68
12	9.6	鞍手	直方市	飲食店	2	30	刺身	カンピロバクター	<i>Campylobacter jejuni</i>
13	9.10	京築	行橋市	飲食店	27	12	不明	腸炎ビブリオ	O1:KUT
14	9.17	嘉穂	山田市	飲食店	23	5	不明	不明	
15	9.18	筑紫	愛媛県松山市	飲食店	7	3	不明	サルモネラ	<i>Salmonella</i> Enteritidis ファージ型(PT)1
16	10.6	嘉穂	大分県宇目町	自宅	21	4	鹿肉	腸管出血性大腸菌 O157	VT2型
17	11.7	遠賀	水巻町	飲食店	2	15	不明	黄色ブドウ球菌	コアグラゼ3型 エンテロトキシン UT
18	11.27	久留米遠賀	長崎県内	旅行	5 6	5	不明	ウイルス	SRSV
19	12.17	朝倉	杷木町	修学旅行	8	43	不明	ウイルス	SRSV
20	12.21	遠賀	遠賀町	飲食店	31	21	卵黄, マヨネーズ	サルモネラ	<i>Salmonella</i> Enteritidis ファージ型(PT)6a
21	H14.3.18	田川	添田町	病院	51	5	不明	ウイルス	SRSV
計					388	273			

資 料

平成13年度食品の食中毒菌汚染実態調査

濱崎光宏, 堀川和美, 村上光一, 長野英俊, 世良暢之, 高田智

一般に市販されている食品について, 食中毒の予防, 汚染食品の排除, 流通食品の汚染実態の把握を目的とする食中毒菌の汚染実態調査を行った。鶏肉, 馬肉, 牛肉, ミンチ肉および野菜合計140検体について, 大腸菌, サルモネラおよび腸管出血性大腸菌 O157の検査を行った。その結果, 大腸菌68件およびサルモネラ2件が検出された。腸管出血性大腸菌 O157は, いずれの検体からも検出されなかった。

[キーワード : 食品検査, 細菌, 汚染実態調査]

1 はじめに

食中毒の発生件数は, 平成10年以降は全国で年間2000件以上発生しており, そのうち細菌が原因の事例が約80%を占めている。平成8年に関西地方で発生した腸管出血性大腸菌 O157による集団食中毒事件, 平成10年のイクラのしょうゆ漬けを原因とする腸管出血性大腸菌 O157の食中毒事件など大規模な食中毒が発生している。特に関西地方の事件は, 患者数が6000人を越え大規模な食中毒事件であった。今後, このような食中毒を未然に防止するためにも食品の安全性確保は, 行政の重要な役割である。

福岡県では, 汚染食品の排除, 食中毒発生の未然防止対策, 流通食品の汚染実態を把握を目的とし, 平成13年7月31日食発第205号厚生労働省医薬局食品保健部長通知による平成13年度食品の食中毒菌の汚染実態調査の実施に基づき調査を行った。なお, 本調査は, 北海道, 岩手県, 千葉県, 東京都, 神奈川県, 大阪府, 奈良県, 山口県, 宮崎県, 沖縄県, 札幌市, 川崎市, 横浜市, 福岡市, 北九州市, 宮崎市の各自治体でも同様な検査を実施した。

2 方法

2.1 検査項目

検査項目は, 大腸菌, サルモネラおよび腸管出血性大腸菌 O157の3菌種について行った。

2.2 検体

平成13年8月20日から10月1日にかけて, 県生活衛生課を通じ県内13保健所で収取した野菜類(カイワレ, アルファ, レタス, みつば, モヤシ, キュウリ, カット

野菜) 69件, ミンチ肉27件, 生食用の牛レバーや牛たたきなどの牛肉類34件, 鶏肉類3件および馬肉類7件, 合計140検体について検査した。

2.3 検査方法

それぞれの食品について各項目の検査方法は, 成分規格がある食品は公定法(食品衛生法および関連法規)¹⁾に従い実施し, それ以外の食品に関しては, 食品衛生検査指針²⁾および検査課微生物マニュアル³⁾に従い実施した。

大腸菌および腸管出血性大腸菌 O157の検査方法を図1に示す。腸管出血性大腸菌 O157の検査は, 検体25g にノボバイオシン加 mEC 培地(modified escherichia coli broth with noboviocin, 以下 N-mEC と略す)を225ml 加えストマッキングした。37℃で24時間培養後, 免疫磁気ビーズで O157を集菌し, クロモアガー O157寒天培地およびCT-SMAC 寒天培地で検出した。検査対象と考えられるコロニーを釣菌し, TSI, SIM, リジンを生化学性状を確認した。必要に応じて血清型別試験やベロ毒素産生試験を行い同定した。大腸菌の検査は, 検体25g に N-mEC 225ml 加え, ストマッキングした後, 37℃で24時間培養した。ダーラム管入り EC 培地で2次増菌を行い, クロモアガー ECC 寒天培地で検出した。サルモネラの検査方法を図2に示す。検体25g に Buffered pepton water (以下 BPW と略す)を225ml 加えストマッキングした。37℃で24時間培養後, ラパポートブイヨンおよびハートテトラチオン増菌培地で培養し, XLT4寒天培地およびSMID 寒天培地で検出した。検査対象と考えられるコロニーを釣菌し, TSI, SIM およびリジンで生化学性状を

確認した。必要に応じて血清型別試験や他の細菌学的検査を行い同定した。

3 検査結果

検査結果を表1に示す。大腸菌は、140検体中68件(49%)から検出された。サルモネラは、ミンチ肉から *Salmonella* Infantis が1件、鶏肉から O18 : Z4, Z23 : - (型別不能) が1件検出された。サルモネラが検出された検体からは、いずれの検体からも大腸菌も検出された。腸管出血性大腸菌 O157は、いずれの検体からも検出されなかった。

4 考察

食品ごとの大腸菌群の検出率を比較すると、鶏肉が100%と最も高く、ミンチ肉が77.8%、牛肉が55.9%、馬肉が40.0%、生野菜が30.4%であった。サルモネラについては、鶏肉から33.3%、ミンチ肉から3.7%検出された。以上の結果より、鶏肉の食中毒細菌による汚染が最も高く、調理する際には十分な加熱が必要であり、使用する調理機材も他の食品と区別するのが望ましいと思われる。

過去3年間の鶏肉からのサルモネラの検出率を比較すると、平成10年度は4.0%⁽⁴⁾、平成11年度は5.0%⁽⁵⁾、平成12年は5.0%⁽⁶⁾であった。過去3年間、サルモネラが検出された食品は、いずれもミンチ肉であり、鶏肉からは検出されていない。しかし、本年度は、鶏肉から33.3%検出されており今後注意が必要である。平成11年度の大腸菌の検出率は28.5%⁽⁵⁾、平成12年度は27.6%⁽⁶⁾、本年度は48.6%であり、かなり上昇していた。なかでも鶏肉

からは、100%検出されており高い汚染状況であった。本年度、実施した収去食品中の食中毒細菌検査においても他の食品と比較して、鶏肉が食中毒細菌の汚染状況が最も高かった。このことから、流過程において鶏肉の処理、取り扱いに問題がある可能性がある。このため、長時間室温に放置せず、調理時に十分に加熱する等その取り扱いに注意することが望ましいと考えられる。

5 まとめ

今回の調査で、現在流通している食品中の食中毒細菌の汚染状況を把握することができた。これらのデータは、今後、食中毒予防対策および食品の安全性確保のために利用でき、食品衛生行政に役立つものと考えられる。

文献

- 1)厚生省監修：食品衛生小六法，平成11年度版，222-706，東京，新日本法規，1999
- 2)厚生省監修：食品衛生検査指針・微生物編，67-203，東京，日本公衆衛生協会，1990
- 3)福岡県保健福祉部：検査課微生物マニュアル，8-60，福岡，1999
- 4)福岡県保健環境研究所：福岡県保健環境研究所年報，26，18-27，福岡，1998
- 5)福岡県保健環境研究所：福岡県保健環境研究所年報，27，17-22，福岡，1999
- 6)福岡県保健環境研究所：福岡県保健環境研究所年報，28，16-21，福岡，2000

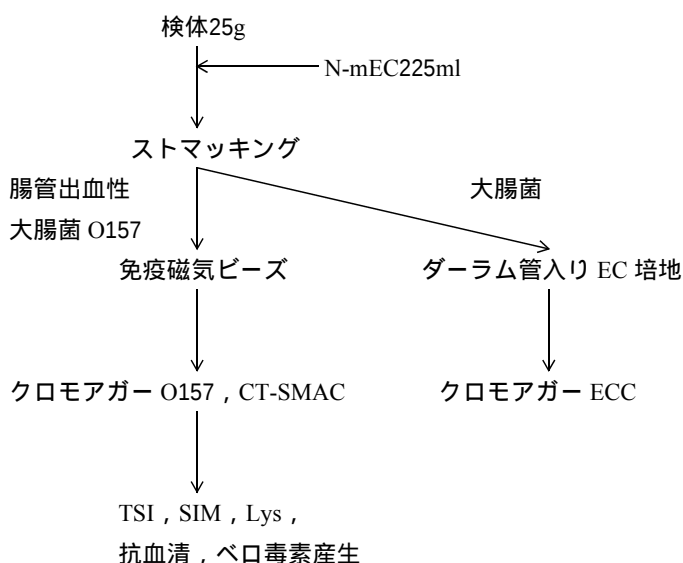


図1 腸管出血性大腸菌 O157および大腸菌の検査方法



図2 サルモネラの検査方法

表1 食品の食中毒菌汚染実態調査において検出された検体数

	検査検体数	大腸菌	サルモネラ	腸管出血性大腸菌 O157
野菜	69	21	0	0
牛肉	34	19	0	0
ミンチ肉	27	21	1 (<i>Salmonella</i> Infantis)	0
鶏肉	3	3	1 (O18 : Z4, Z23 : -)	0
馬肉	7	4	0	0
計	140	68	2	0

資 料

平成13年度収去食品中の食中毒細菌検査

濱崎光宏，村上光一，堀川和美，長野英俊，世良暢之，高田智

一般に市販されている食品について，食中毒の予防，汚染食品の排除，流通食品の汚染実態の把握を目的とした食品収去検査を行った．牛肉，豚肉，鶏肉，魚介類，魚介類乾燥品および生野菜合計100検体について，汚染指標細菌および食中毒細菌の検査を行った結果，大腸菌群51件，黄色ブドウ球菌18件，嫌気性菌21件，ウェルシュ菌7件，セレウス菌1件，サルモネラ15件検出された．また，畜水産食品については，残留抗生物質モニタリング検査も併せて行った．その結果，いずれの検体からも残留抗生物質は検出されなかった．

[キーワード : 収去検査，食品検査，細菌]

1 はじめに

食中毒の発生件数は，平成8年から増加傾向にあり，平成10年以降は全国で年間2000件以上発生している．そのうち細菌が原因の事例が約80%を占めている．平成8年に大阪府堺市での腸管出血性大腸菌 O157による集団食中毒事件，平成11年の乾燥イカ菓子を原因とするサルモネラの広域食中毒事件，平成12年の乳飲料中への黄色ブドウ球菌毒素混入事件など大規模な食中毒が発生している．今後，このような食中毒を未然に防止するためにも食品の安全性確保は，行政の重要な役割である．

福岡県では，汚染食品の排除，食中毒発生の未然防止対策，流通食品の汚染実態を把握を目的とし，食品衛生法に基づき，知事の権限で食品衛生監視員が収去した食品について，汚染指標細菌や食中毒細菌の検査を行った．また，厚生労働省医薬局食品保健部監視安全課長通知(平成13年3月30日，食監発第53号)により，畜水産食品について，残留抗生物質の有無を調査した．

2 方法

2・1 検査項目

検査項目は，汚染指標細菌（一般細菌数，大腸菌群，嫌気性細菌数）および食中毒細菌（黄色ブドウ球菌，サルモネラ，腸管出血性大腸菌 O157，カンピロバクター，エルシニア，ウェルシュ菌，セレウス菌，ナグビブリオ，腸炎ビブリオ，ビブリオ・ミミカス，ビブリオ・フルビアリス）の14項目について検査した．

2・2 検体

平成11年度に乾燥イカ菓子を原因とするサルモネラによる食中毒事件があり，平成12年度より検査対象食品に魚介類乾燥品が新たに追加された．平成13年5月21日から7月2日にかけて，県生活衛生課を通じ県内13保健所で収去した牛肉16件，豚肉14件，鶏肉30件，魚介類20件，魚介類乾燥品10件および生野菜10件，合計100検体について検査した．

2・2 細菌検査方法

それぞれの食品について各項目の検査方法は，成分規格がある食品は公定法（食品衛生法および関連法規）¹⁾に従い実施し，それ以外の食品に関しては，食品衛生検査指針²⁾および検査課微生物マニュアル³⁾に従い実施した．

エルシニア，カンピロバクター，黄色ブドウ球菌，ビブリオ属，セレウス菌の検査方法を図1に示す．検体25gにPBSを225ml加えストマッキングした．エルシニア増菌培地，プレストン培地，アルカリペプトン，ポリミキシン B および7.5%塩化ナトリウムブイヨンで増菌培養し，CIN 寒天培地，スキロー寒天培地，TCBS 寒天培地，NGKG 寒天培地，ビブリオ寒天およびエッグヨーク寒天培地などの分離培地で検出した．検査対象と考えられるコロニーを釣菌し，TSI や SIM で生化学性状を確認した．必要に応じて血清型別試験や他の細菌学的検査を行い同定した．腸管出血性大腸菌 O157の検査方法を図2に示す．検体25gにノボバイオシン加 mEC 培地

(modified escherichia coli broth with noboviocin, 以下 N-mEC と略す) を 225ml 加えストマッキングした。37℃ で 24 時間培養後, 免疫磁気ビーズで腸管出血性大腸菌 O157 を集菌した。クロモアガー O157 寒天培地および CT-SMAC 寒天培地で検出した。検査対象と考えられるコロニーを釣菌し, TSI, SIM, リジンで生化学性状を確認した。必要に応じて血清型別試験やペロ毒素産生試験を行い同定した。サルモネラの検査方法を図 3 に示す。検体 25g に Buffered pepton water (以下 BPW と略す) を 225ml 加えストマッキングした。37℃ で 24 時間培養後, ラバポートブイヨンおよびハートテトラチオン増菌培地で培養し, XLT4 寒天培地および SMID 寒天培地で検出した。検査対象と考えられるコロニーを釣菌し, TSI, SIM および リジンで生化学性状を確認した。必要に応じて血清型別試験や他の細菌学的検査を行い同定した。

魚介類については腸炎ピブリオ検査の代わりに, 厚生労働省医薬局食品保険部基準課長通知(平成 13 年度 6 月 29 日, 食基発第 22 号)により, 腸炎ピブリオ菌数を測定する最確数検査を実施した。また, 汚染指標細菌の検査は, 常法により行った。

2・3 畜水産食品の残留物質モニタリング検査方法

牛肉 16 件, 豚肉 14 件, 養殖魚介類 20 件の, 合計 50 件に付いて, 残留抗生物質等(ペニシリン系, アミノグリコシド系, マクロライド系, テトラサイクリン系, クロラムフェニコール, ノボバイオシン, フマル酸チアムリン)の有無を, 微生物を用いた簡易検査法により検査した。

3 結果

3・1 細菌検査結果

細菌検査結果を表 1 に示す。大腸菌群は 51 件が陽性を示し, 黄色ブドウ球菌は 18 件から検出された。嫌気性細菌は 21 件から検出され, 1 件当たりの嫌気性菌数は 1~14 CFU/g であった。ウエルシュ菌は 7 検体から分離された。セレウス菌は魚介類乾燥品の 1 件から分離された。サルモネラは鶏肉 15 件から分離され, *Salmonella* Infantis が 8 件, *Salmonella* Haifa が 2 件, *Salmonella* Virchow が 2 件, O18:z4,z23:- (型別不能) が 2 件, O7 (型別不能) が 1 件検出された。また, 他の食中毒細菌については検出されなかった。腸炎ピブリオ最確数については, 3CFU/g 未満であった。

3・2 畜水産食品の残留物質モニタリング検査結果

いずれの検体からも残留抗生物質等は検出されなかった。

4 考察

食品ごとの大腸菌群の検出率を比較すると, 鶏肉が

86.7%と最も高く, 生野菜が 60.0%, 魚介類が 45.0%であった。黄色ブドウ球菌については, 鶏肉が 30.0%, 魚介類が 20.0%, 牛肉が 18.8%, サルモネラについては, 鶏肉から 48.5%の検出率であった。以上の結果より, 鶏肉の食中毒細菌による汚染が最も高く, 調理するには十分な加熱が必要であり, 使用する調理機材も他の食品と区別するのが望ましいと思われる。

過去 3 年間の鶏肉からのサルモネラの検出率を比較すると, 平成 10 年は 13.5%⁽⁴⁾, 平成 11 年は 10%⁽⁵⁾, 平成 12 年は 63%⁽⁶⁾であり, 昨年度から増加傾向にある。当研究所に検査依頼があった食中毒事例のうちサルモネラが原因と判明した事例数は, 平成 10 年が 4 件 (13%)⁽⁴⁾, 平成 11 年が 5 件 (16%)⁽⁵⁾, 平成 12 年が 2 件 (10%)⁽⁶⁾で各年度による差はみられなかった。これは, 給食施設などの調理従事者が鶏肉などの取り扱いを十分注意して行っているため, サルモネラによる食中毒事件を未然に防止できていると考えられる。

汚染指標菌である大腸菌は, ほとんどの食品から検出されており, 流通課程で不潔な扱いを受けてきた可能性がある。生で食することが多い生野菜は, 食する前に流水で洗浄し, 長時間室温に放置しない等その取り扱いに注意することが望ましいと考えられる。

5 まとめ

今回の調査で, 現在流通している食品中の食中毒細菌, 残留抗生物質等の汚染状況を把握することができた。これらのデータは, 今後, 食中毒予防対策および食品の安全性確保のために利用でき, 食品衛生行政に役立つものと考えられる。

文献

- 1) 厚生省監修: 食品衛生小六法, 平成 11 年度版, 222-706, 東京, 新日本法規, 1999
- 2) 厚生省監修: 食品衛生検査指針・微生物編, 67-203, 東京, 日本公衆衛生協会, 1990
- 3) 福岡県保健福祉部: 検査課微生物マニュアル, 8-60, 福岡, 1999
- 4) 福岡県保健環境研究所: 福岡県保健環境研究所年報, 26, 18-27, 福岡, 1998
- 5) 福岡県保健環境研究所: 福岡県保健環境研究所年報, 27, 17-22, 福岡, 1999
- 6) 福岡県保健環境研究所: 福岡県保健環境研究所年報, 28, 16-21, 福岡, 2000

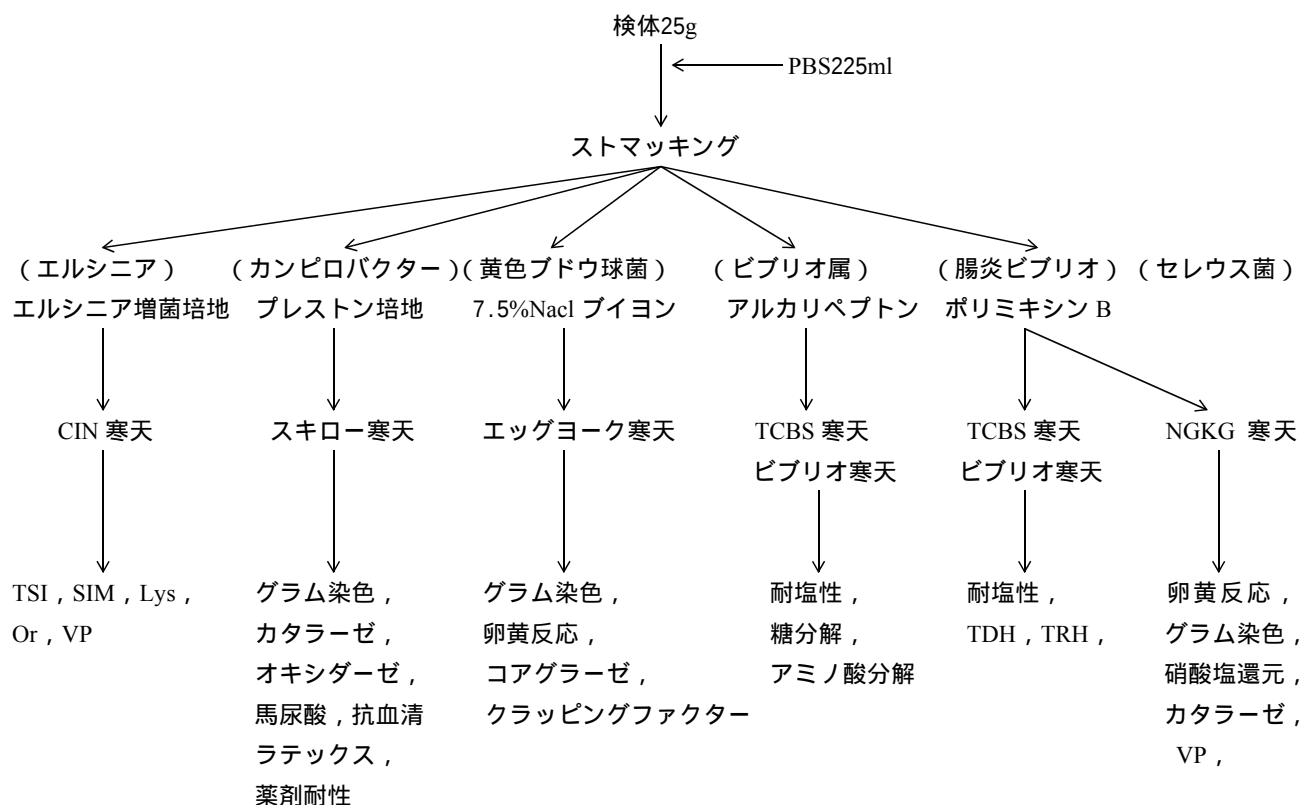


図1 収去食品中の食中毒細菌検査方法

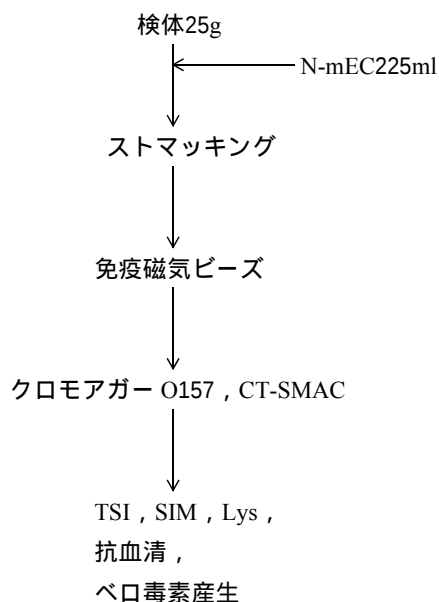


図2 腸管出血性大腸菌 O157の検査方法



図3 サルモネラの検査方法

表1 汚染指標細菌あるいは食中毒細菌が検出された検体数

	検査件数	大腸菌群	黄色ブドウ球菌	嫌気性菌	ウエルシュ菌	セレウス菌	サルモネラ
牛肉	16	3	3	2	1	0	0
豚肉	14	6	2	0	0	0	0
鶏肉	30	26	9	12	3	0	15
魚介類	20	9	4	2	0	0	0
魚介類乾燥品	10	1	0	3	3	1	0
生野菜	10	6	0	2	0	0	0
計	100	51	18	21	7	1	15

資 料

市販殻付き貝類中の腸炎ビブリオ汚染実態調査

長野英俊, 村上光一, 世良暢之, 堀川和美, 高田智

市場に流通している殻付きのアサリ, サザエ, はまぐり, シジミ等の計20検体について, 腸炎ビブリオ血清型 O3:K6及び TDH (耐熱性溶血毒) 産生腸炎ビブリオの汚染実態を調査した。その結果, 20検体中18検体から腸炎ビブリオを分離したがすべて TDH を産生しない非病原性株であった。MPN3管法での菌数測定の結果, シジミから 1.1×10^5 CFU / 10 g の菌量を検出した。さらにサザエ, アサリ, トコブシの3検体から PCR で TDH 遺伝子が検出されたが, これらの検体から血清型 O3:K6及びその他の TDH 産生腸炎ビブリオを分離することができなかった。

[キーワード : 腸炎ビブリオ, 耐熱性溶血毒, 殻付き貝類]

1 はじめに

腸炎ビブリオは海水中に広く存在し, 海水温が20を超えると検出される環境細菌であり, この菌の一部が産生する TDH (耐熱性溶血毒) がヒトへの病原性を示し食中毒を引き起こすと考えられている。この菌の生息環境から明かなように夏期に海域で採取された魚介類はほとんどこの菌の汚染を受けていると考えられている。このことから腸炎ビブリオ食中毒は夏期に多く発生し, 魚介類の生食習慣のある本邦において重要な食中毒細菌であり汚染の実態解明が急務である。1994年までは食中毒事例から分離される血清型は O4:K8が主流であったが¹⁾, 1996年頃から分離される血清型に変化がみられ, それまでの主流であった O4:K8から O3:K6へと変化した。この分離血清型の変化により1998年には食中毒発生事例がサルモネラを抜き第1位となった。

現在, 腸炎ビブリオ食中毒から分離される主要な原因血清型であるこの O3:K6は遺伝的に近縁の菌が何らかの要因により急速に広がったと考えられているが, その原因は判明していない²⁾。さらに従来からこの O3:K6は患者からは高頻度に分離することができるが, 食品や環境からの分離は極めて低いことが実情である。

今回, 腸炎ビブリオ O3:K6及び食中毒の原因となる TDH 産生腸炎ビブリオの魚介類中の汚染実態を把握するため, 平成13年厚生科学研究「食品中の微生物汚染実態・挙動の解析」において高感度な検出法を用いて国立感染症研究所と共同で調査を行った。なお本資料は福岡県で実施した検査結果について報告する。

2 方法

2・1 検体

平成13年10月16日から30日にかけて, 県生活衛生課を通じ県内3保健所(筑紫, 久留米, 田川)に設置されている食品衛生広域専門監視班に検体の買い上げを依頼し, 県内で市販されている殻付きの貝類を20検体購入した。検体の種類及び産地海域を表1に示す。

なお検体は, 殻付きの物はむき身として供試した。

表1 検体名及び産地海域

検体名	産地海域
サザエ	豊前海, 響灘, 玄海灘, 県外産
アサリ	豊前海, 有明海, 県外産
マテ貝	豊前海
いも貝	豊前海
生カキ	県外産
はまぐり	県外産
トコブシ	県外産
シジミ	有明海, 県外産
タイラギ	有明海

2・2 検査方法

検査法は研究班で示された検査法で実施した。(図1) 腸炎ビブリオ O3:K6及び TDH 産生腸炎ビブリオを分離するため免疫磁気ビーズ及び酵素発色基質を利用したクロモアガー・ビブリオを用いた定性法, 菌数測定として MPN を, TDH 産生腸炎ビブリオの菌数測定のため TDH 遺伝子を PCR で確認する方法を用いた。

2・2・1 定性法

検体25 gにアルカリペプトン水225mlを加え軽く手揉みし（定性原液），35～37℃で18時間培養した。（1次増菌），1次増菌液1mlを10mlの食塩ポリミキシンブイヨンに加え培養した（2次増菌）。更に，1mlを食塩ポリミキシンブイヨンで6時間培養後（3次増菌），その1mlを腸炎ビブリオ K6に対する免疫磁気ビーズ（デンカ生研）を用いて最終的に0.1mlに濃縮しクロモアガー・ビブリオ（関東化学）に塗抹した。培養後，腸炎ビブリオと思われるコロニーを，ブドウ糖及び乳糖，白糖の分解性，さらに食塩要求性，耐性を確認後同定した。さらに腸炎ビブリオと同定された株について TDH 遺伝子の保有を PCR で確認した。

2・2・2 MPN法

調整した定性原液を，10mlのアルカリペプトン水に各10ml，1ml，0.1ml，0.01ml，0.001ml加えた後（MPN 3管法，5段階），定性法と同様に3次増菌まで行い，各試験管をクロモアガー・ビブリオに塗抹培養後，定性法と同様に腸炎ビブリオの同定を行い，10g当たりの菌数を求めた。

2・2・3 TDH産生腸炎ビブリオの検出

定性法の1次増菌液と2次増菌液について各検体2回PCRでTDH遺伝子の検出を行った。TDH遺伝子が検出された検体についてMPN法の3次増菌液でTDH遺伝子の検出を行い検出された本数から10g当たりの菌数を算出し，TDH産生腸炎ビブリオの菌数とした。

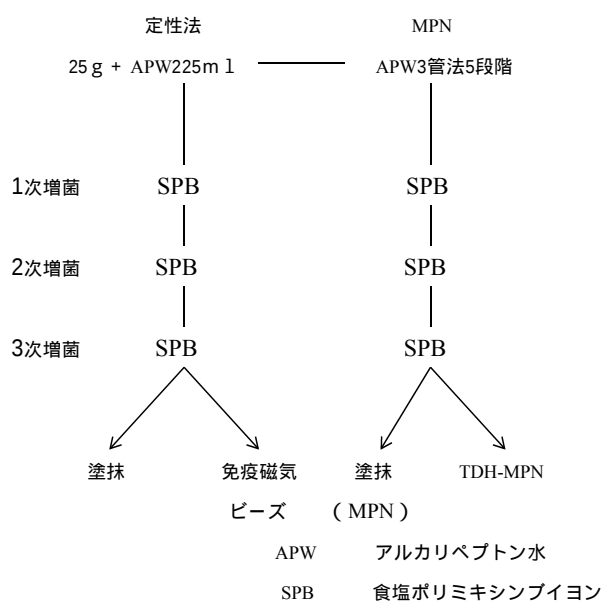


図1 検査方法

3 結果

調査した20検体のMPN法での腸炎ビブリオ菌数，TDH産生腸炎ビブリオの菌数（TDH-MPN）を表2に，TDH遺伝子の確認された3検体の生産海域及び結果を表3に示す。

表2 腸炎ビブリオ検出結果

	検体数	腸炎ビブリオ菌数（/10g）	TDH-MPN（/10g）
サザエ	6	3未満~750	ND ~ 15
アサリ	4	3.6~1100	ND ~ 15
マテ貝	1	43	ND
いも貝	1	240	ND
生力キ	2	3未満~460	ND
はまぐり	2	7.3~23	ND
トコブシ	1	7500	3未満
シジミ	2	3.6~1.1 × 10 ⁵	ND
タイラギ	1	24000	ND

ND 不検出

表3 TDH 遺伝子検出検体

	海域	菌数	TDH-MPN（/10g）
アサリ	県外産	930/10g	15/10g
サザエ	玄海灘	750/10g	15/10g
トコブシ	県外産	7500/10g	3/10g 未満

今回の調査でサザエ6検体中5検体から腸炎ビブリオが検出され，アサリは4検体すべてから検出された。さらに生力キ1検体，はまぐり2検体，シジミ2検体その他の貝類4検体からも検出され20検体中18検体から腸炎ビブリオが検出された。菌数はシジミから1.1 × 10⁵/10gが検出された。

TDH産生腸炎ビブリオはアサリ，サザエ，トコブシの各1検体からTDH遺伝子が検出され，菌数は3~15/10gであった（表3）。それぞれの検体から腸炎ビブリオ O3:K6及びTDH産生腸炎ビブリオを分離するため各200株鉤菌し確認を行ったがTDH産生腸炎ビブリオは検出できなかった。

4 考察

高感度な検出法として用いた免疫磁気ビーズは腸管出血性大腸菌 O157等の病原細菌や原虫類の濃縮に用いられ分離率の向上が確認されている。今回の調査で腸炎ビブリオのK6抗原に対する抗体を感作させたビーズを用いて濃縮を行い，さらに分離培地には酵素発色基質を利用したクロモアガー・ビブリオを用いたがO3:K6及びTDH産生腸炎ビブリオを分離できなかった。

工藤ら³⁾によると今回の調査と同様に免疫磁気ビーズ

法及び酵素発色基質を用いた培地を使用しアサリ貝について調査を行った結果、分離培地では従来から使用されている TCBS 培地よりも腸炎ビブリオの分離率が向上し、腸炎ビブリオ O3:K6の分離率も向上したと報告しているが、分離した全腸炎ビブリオからの O3:K6の割合はわずか0.14%であり、さらなる検出法の検討の必要性が報告されている。

今回の調査においては、PCR で TDH 遺伝子が検出されたが TDH 産生腸炎ビブリオは分離できなかった。このことは O3:K6以外の TDH 産生腸炎ビブリオの存在の可能性とすべての TDH 産生腸炎ビブリオの分離法の検討の必要性が示唆される。

腸炎ビブリオ食中毒の発生は6月から9月にかけて多発し、調査を行った10月においても貝類中には食中毒原因となる TDH 産生腸炎ビブリオが低菌量であるが存在することが確認された。腸炎ビブリオの特徴として温度が 20℃を超えると非常に早く増殖することが知られており、平成13年6月には腸炎ビブリオ食中毒の予防対策のため食品衛生法施行規則、食品、添加物等の規格基準が改正され水産食品に腸炎ビブリオの基準が設定されたことから食中毒対策の重要性が認識された結果であり、海域で採取された魚介類の流通から家庭までの低温での保存などに十分な注意を払うことが重要で、飲食店などの食品取扱い施設においては2次汚染と考えられる他食品での食中毒の発生報告もあることから食品の取扱い、保存温度等に十分な注意が必要である。さらに家庭内においても食中毒予防のための同様な注意が必要で腸炎ビブリオ食中毒予防のための啓発を行う必要があると考えられる。

参考文献

- 1) 国立感染症研究所 厚生省保健医療局エイズ結核感染症課：1996,(特集)腸炎ビブリオ1994~1995,病原微生物検出情報, Vol 17, 1-2
- 2) 国立感染症研究所 厚生省保健医療局結核感染症課：1999,(特集)腸炎ビブリオ1996~1998,病原微生物検出情報, Vol 20, 1-9
- 3) 工藤由起子ら：免疫磁気ビーズ法及び酵素発色基質培地を用いた TDH 産生性腸炎ビブリオ O3:K6の自然汚染貝からの検出。感染症誌, 2001; 75: 955-960。

資 料

平成13年度感染症細菌検査概要

堀川和美, 世良暢之, 村上光一, 長野英俊, 高田 智

平成13年度に当課で実施した感染症細菌検査項目は, コレラ菌, ソンネ赤痢菌コリシン型別, フレキシネリ赤痢菌の DNA 解析, 並びに腸管出血性大腸菌の国立感染症研究所への送付であった. 平成13年度の特記事項は, 平成13年11月から12月にかけて輸入カキを原因とするソンネ赤痢の発生で, 福岡県(福岡市, 北九州市及び大牟田市を除く)ではこの時期海外渡航歴のない赤痢患者が6名発生し, これらの分離株について当課でコリシン型別及び薬剤耐性試験を実施し, さらに国立感染症研究所で DNA 解析が行われた. これらの知見を含め当年度の検査概要を報告する.

[キーワード : 腸管出血性大腸菌, 赤痢菌, コリシン型別, コレラ菌, DNA 解析]

1 細菌検査(腸管出血性大腸菌を除く)

当年度は, 赤痢, コレラ及び急性胃腸炎の15事例, 25検体について検査を実施した.

1・1 ソンネ赤痢菌コリシン型別検査

ソンネ赤痢の10事例, 12検体についてコリシン型別を実施した. コリシン型別は, 微生物検査必携 細菌・真菌検査第3版に準拠した¹⁾. タイ渡航歴のある患者由来3株はコリシン型9A型, ベトナム渡航歴のある患者由来1株は12型, 渡航歴のない患者由来8株は9A及び6型であった. 渡航歴のない患者8名のうち6名は, 11月から12月にかけて発症しコリシン型別はいずれも6型であった(表1). 6名のうち5名から分離された菌株は, 12剤(表2脚注)を用いたディスク法による薬剤耐性試験の結果 SM, Te, STX, TMP, NA の5剤に対して耐性を示した. これらの5名は保健所での摂食状況調査の結果, いずれもカキを発症の2-6日前に摂食していた. さらに国立感染症研究所で実施した DNA 解析の結果, これらの5株は国立薬品食品衛生研究所で韓国産カキから分離された株と同一の DNA パターン・A タイプであった²⁾.

1・2 コレラ菌検査

インド, フィリピン及びインドネシア・バリ島旅行者に関するコレラ3事例の発生に伴い, 関係者5名の便についてコレラ菌検査を実施した. 検査方法は微生物検査必携 細菌・真菌検査第3版に準拠した¹⁾. いずれの検体からもコレラ菌は検出されなかった(表2).

1・3 その他

前原市某小学校で, 平成13年5月中旬から下旬にかけ

発熱(70.5%), 嘔吐(52.9%), 腹痛(47.1%), 頭痛(47.1%), 嘔気(41.2%)及び下痢(23.5%)を主張とする嘔吐下痢症が発生し便7件について, ウイルス検査とともに腸管出血性大腸菌, カンピロバクター・ジュジュニ/コリ, サルモネラ, セレウス菌及び黄色ブドウ球菌の5菌種について検査を実施した. 5菌種の細菌検査方法は, 微生物検査必携 細菌・真菌検査第3版に準拠した¹⁾. その結果, いずれの菌も検出されず一部の検体から SRSV が検出された.

平成13年6月8日遠賀保健所にフレキシネリ赤痢の届け出があった. 患者は6月6日に発症し渡航歴が無かった. 同時期に同感染症の届け出が福岡市で2名(いずれも5月29日発症)及び佐賀県で1名(5月28日発症)あったため, 当県分患者との関連性を調査するため, 福岡市で4株の DNA 解析を行った. 各菌株の DNA を制限酵素 *Xba*I 及び *Sfi*I で処理し, DNA 解析を行った結果いずれも同一の DNA パターンを示し, 同一の感染源である可能性が示唆された.

2 腸管出血性大腸菌検査

当年度搬入された腸管出血性大腸菌は, O157が34株, O群型別不能株が2株の計36株であった(表3). 34株の O157のうち18株(52.9%)がベロ毒素(VT)1及び2産生株で, 16株がVT2単独産生株であった. O群血清型別不能として搬入された2株は, 血清型別を行った結果, O103:H11及び O150:H10 であった. これら菌株は, 諸性状及び VTを確認の上, パルスフィールドゲル電気泳動(PFGE)

によるDNA解析のため国立感染症研究所に送付した．国立感染症研究所でのDNA解析の結果を表3に示す．当年度本県から送付した菌株の特徴は，7月13日から8月1日に発症した患者から分離された5株（菌株番号01E010-12，01E014，01E020）が，平成13年5月首都圏で多発したDNAパターン（a：a：，#577株，VT 1及び2）と同一であった²⁾．また，10月上旬筑後地区で馬刺を摂食した5名から分離された菌株（菌株番号01E022-26）と嘉穂郡で鹿刺を摂食した3名から分離された株（菌株番号01E029-31）は，DNAパターン（k'：a：ND）が同一であっ

た．これら2事例はそれぞれ原因食品が異なるがいずれも生肉を原因とした食中毒事例であった．

3. 参考資料

- 1．微生物検査必携 細菌・真菌検査第3版：1887，厚生省監修，財団法人日本公衆衛生協会
- 2．平成13年度厚生科学研究費補助金 新興・再興感染症研究事業 パルスフィールドゲル電気泳動法の標準化及び画像診断を基盤とした分散型システムの有効性に関する研究：2002，

表1 平成13年度に当所に搬入されたソネ赤痢菌のコリシン型及び薬剤感受性試験結果

菌株番号	年齢	性別	所轄保健所	発症年月日	カキの食歴	コリシン型	DNA解析結果	薬剤耐性パターン*	海外渡航歴
01S02	29	F	粕屋	平成13. 8. 7	無	9A	-	SM, Te, STX, TMP	無
01S03	54	F	粕屋	(保菌者)	無	9A	-	SM, Te, STX, TMP	無
01S05	29	M	久留米	9. 8	無	9A	-	SM, Te, STX, TMP	タイ
01S06	15	F	田川	11. 9	無	6	E	SM	無
01S07	29	F	筑紫	11. 25	有(11/23)	6	A	SM, Te, STX, TMP, NA	無
01S08	79	F	鞍手	11. 26	有(11/24)	6	A	SM, Te, STX, TMP, NA	無
01S09	8	M	朝倉	11. 30	有(11/25)	6	A	SM, Te, STX, TMP, NA	無
01S10	37	F	朝倉	11. 27	有(11/25)	6	A	SM, Te, STX, TMP, NA	無
01S11	60	M	遠賀	12. 23	有(12/17)	6	A	SM, Te, STX, TMP, NA	無
01S12	25	F	筑紫	平成14. 1. 26	無	12	-	SM, Te, CP	ベトナム
01S14	73	M	鞍手	3. 13	無	9A	-	SM, Te, STX, TMP	タイ
01S15	55	F	田川	3. 10	無	9A	-	SM, Te, STX, TMP	タイ

*薬剤感受性試験法：ディスク法，使用薬剤μg/ディスク：

[ABPC]アンピシリン10，[SM]ストレプトマイシン10，[Te]テトラサイクリン30，[CIP]シプロキサシン5，[KM]カナマイシン30，[CTX]セフトキシム30，[CP]クロラムフェニコール30，[STX]ST合剤23.75/1.25，[TMP]トリメトプリム5，[GM]ゲンタマイシン50，[NA]ナリジクス酸30，[FQM]ホスホマイシン50

表2 平成13年度感染症細菌検査

事例	搬入年月日	所轄保健所	検査項目	検査件数	検査結果	備考
1	平成13. 5. 14	久留米	コレラ菌検査	3	陰性	インド
2	13. 6. 13	遠賀	ルキシル赤痢菌 DNA解析	1	(本文)	福岡市，佐賀県関連
3	13. 7. 6	久留米	コレラ菌検査	1	陰性	フィリピン旅行者
4	13. 8. 25	八女	コレラ菌検査	1	陰性	インドネシア・バリ島
	計			6		

表3 平成13年度に当所に搬入された腸管出血性大腸菌の PFGE 解析結果

菌株番号	搬入保健所	発症年月日	届出年月日	血清型	V T 型	PFGE 型 *		
						< 100kb	100-200kb	> 200kb
01E001	糸島	平成13. 4.18	平成13. 4.24	O157:H7	1+2	b	b	
01E002	久留米	5.18	5.23	O157:H7	1+2	ND	ND	ND
01E004	久留米	6. 4	6. 9	O157:H7	1+2	a'	ND	ND
01E005	久留米	6.19	6.23	O157:H7	1+2	ND	c	ND
01E006	久留米	(保菌者)	6.28	O157:H7	1+2	ND	c	ND
01E007	久留米	(保菌者)	6.28	O157:H7	1+2	ND	c	ND
01E008	糸島	6.25	6.27	O157:H7	1+2	a	b	ND
01E009	糸島	(保菌者)	7. 2	O157:H7	1+2	a	b	ND
01E010	嘉穂	7.13	7.20	O157:H7	1+2	a	a	
01E011	鞍手	(保菌者)	7.24	O157:H7	1+2	a	a	
01E012	宗像	(保菌者)	7.25	O157:H7	1+2	a	a	
01E013	鞍手	7.19	7.30	O157:H7	1+2	b	a	ND
01E014	嘉穂	7.23	7.31	O157:H7	1+2	a	a	
01E015	久留米	8.10	8.17	O103:H11	1	ND	ND	ND
01E016	嘉穂	8.15	8.21	O157:H7	2	a	ND	ND
01E017	田川	8.16	8.25	O157:H7	2	a'	ND	ND
01E018	嘉穂	8.27	9. 3	O157:H7	1+2	ND	ND	ND
01E020	遠賀	8. 1	8. 8	O157:H7	1+2	a	a	
01E021	遠賀	9. 4	9. 7	O157:H7	1+2	ND	ND	ND
01E022	三潁	(保菌者)	10. 6	O157:H7	2	k'	a	ND
01E023	三潁	(保菌者)	10. 6	O157:H7	2	k'	a	ND
01E024	三潁	(保菌者)	10.11	O157:H7	2	k'	a	ND
01E025	三潁	(保菌者)	10.11	O157:H7	2	k'	a	ND
01E026	久留米	(保菌者)	10.15	O157:H7	2	k'	a	ND
01E027	京築	9. 3	10. 2	O157:H7	1+2	a	b	
01E028	嘉穂	9.25	10. 5	O157:H7	2	n	ND	ND
01E029	嘉穂	9.27	10. 5	O157:H7	2	k'	a	ND
01E030	嘉穂	(保菌者)	10. 5	O157:H7	2	k'	a	ND
01E031	嘉穂	(保菌者)	10. 7	O157:H7	2	k'	a	ND
01E032	浮羽支所	9. 9	9.14	O157:H7	2	n	ND	ND
01E033	遠賀	11. 7	11.13	O157:H7	2	c	ND	ND
01E034	筑紫	(保菌者)	11.15	O115:H10	1	ND	ND	ND
01E035	遠賀	11. 7	11.17	O157:H7	2	c	ND	ND
01E036	遠賀	11. 7	11.17	O157:H7	2	c	ND	ND
01E037	久留米	平成14. 2.16	平成14. 2.20	O157:H7	1+2	ND	b	
01E038	久留米	(保菌者)	3.16	O157:H7	2	ND	ND	

* DNA のパターンは、*Xba*I で酵素処理した DNA の PFGE 像を分子量 <100kb, 100-200kb, >200kb の部分を下記に示すように分け、さらに1バンド違いではダッシュ (') を付け、またこれらに該当しないパターンは ND と表記され、これらの組み合わせにより型別されている。

<100kb : I--a,b,c, --a,b,c,d,e,f,g,h,j,k,m,n, --a,b,c,d,e,f,g,h,k,m,
--a,b, --a,b,c, --1種のみ, --1種のみ, 計32種類

100-200kb : --1種のみ, --a,b,c,d,e, --a,b, --1種のみ, --a,b, --1種のみ, 計12種類

>200kb : --3種, - 各1種のみ, 計8種類

資 料

健康食品の甲状腺末混入事例における組織学的検査

村上光一, 長野英俊, 世良暢之, 堀川和美, 高田智, 飯田隆雄

薬事法違反の疑いがある健康食品について, 組織学的な検査を実施し, 甲状腺末混入の有無を確認した。各検体の2・6粒のカプセルを検査対象とし, 試料を遠心処理し, 組織片が偏在している部分について, 各検体20-30枚のヘマトキシリン・エオジン染色組織標本を作製した。

これを, 顕微鏡下で観察した結果, 7検体のうち6検体については, コロイド状のものを内包したる胞の存在を認めた。加えて, コロイド状の構造を縁取る細胞が存在した。以上のことより, これら6各検体の組織片は, 甲状腺由来の組織片, つまり甲状腺末であることが強く疑われた。

[キーワード :健康食品, 甲状腺末, 組織検査, 薬事法, 病理組織学的検査]

1 はじめに

本年度, 輸入された健康食品の中に, 薬事法違反の疑いがあるものが他県で報告された。福岡県でも, 同様の疑いのある健康食品が流通していることから, 甲状腺末を添加した(あるいは甲状腺末が混入した)疑いのある健康食品について, 組織学的な検査を実施し, 混入の有無を確認した。

2 方法

各検体の2-6粒のカプセルを検査対象とし, 内容物を取り出し, 20%中性ホルマリンにて, 16時間固定した。これを, 15 ml 容量のディスポーザブル遠心管に入れ, 20%中性ホルマリンにて, 遠心処理による洗浄を4回行った(2,500rpm, 10分間遠心)。ついで, 沈渣に50に保温した5%寒天溶液を5ml加え, 冷却した。この操作により, 沈渣は寒天中に一部包埋された。その後, 沈渣を含む部分を, ディスポーザブル遠心管より切り出し, 50に保温した5%寒天溶液の中に加え, 沈渣の全体を寒天中に包埋した。続いて, 常法により, パラフィン包埋を行い, 試料中で遠心処理により組織片が偏在している部分を, 各検体20-30枚薄切し, 次いでヘマトキシリン・エオジン染色, 脱水, 透徹, 洗浄, 並びに封入を行い, 組織標本を作製した。これを, 顕微鏡下で観察した。

3 結果及び考察

検体2(次頁表1参照)は, いかなる動物組織の混入も認めなかった。他の検体については, 動物細胞からなる

組織片の混入が確認された。正常な甲状腺の組織学的な第一の特徴は, エオジンに均一に染色されるコロイドを含有したる胞(甲状腺小胞)の存在である。加えて, 正常な甲状腺のろ胞(甲状腺小胞)を縁取る細胞(ろ胞上皮細胞)は単層の低立方形ないし円柱状の細胞(立方上皮)である。各検体に含まれている組織片には, ともに, 完全な形態では認められなかったものの, エオジンに均一に染まったコロイド状のものを内包したる胞の存在を認めた(図1参照)。加えて, この組織片は変性が著しく, 低立方形ないし円柱状の細胞とは断言できなかったが, コロイド状の構造を縁取る細胞が存在した(図1参照)。日本薬局方乾燥甲状腺チラーゲン末を検体と同様に処理した場合, 検体中の組織片と同様の所見を示した(図2参照)。以上のことより, 各検体の組織片は, 甲状腺由来の組織片, つまり甲状腺末であることが, 強く疑われた。

検体の作成並びに組織学的診断に関して, 貴重な御意見を頂戴した東京農業大学農学部渡邊昌教授並びに宮崎県立宮崎病院医長林透先生に深謝します。

表1 健康食品中の甲状腺末混入検査結果

検体番号	検査実施年月	検査に用いた検 体量(粒)	作成したプレパラ ート数(枚)	検査結果
1	平成13年8月	2	20	陽性
2	平成13年9月	6	30	甲状腺を 疑う組織片の混入を認 めず
3	平成13年9月	6	20	陽性
4	平成13年9月	6	20	陽性
5	平成13年9月	6	20	陽性
6	平成13年9月	6	20	陽性
7	平成13年9月	6	20	陽性

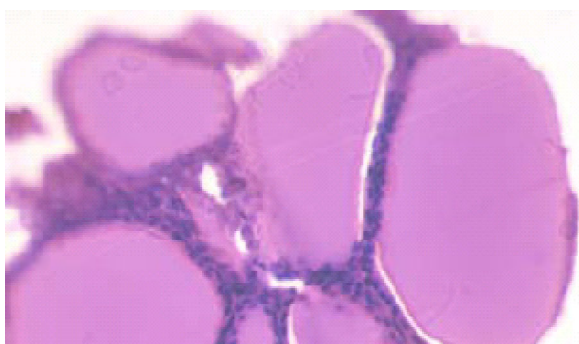


図1 検体3の顕微鏡写真（ヘマトキシリン・エオジン染色）

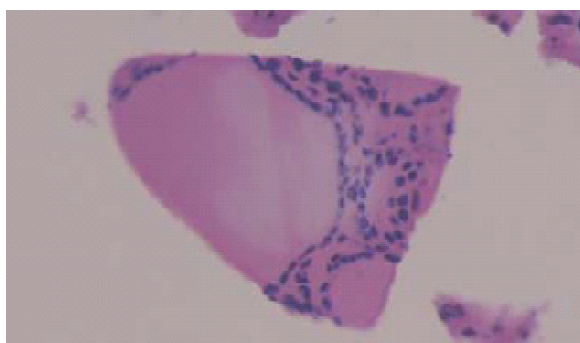


図2 日本薬局方乾燥甲状腺チラーゲン末の顕微鏡写真

資 料

不審物件中の炭疽菌検査に対する対応状況

堀川和美，世良暢之，村上光一，長野英俊，高田 智

平成13年9月ニューヨークで発生した同時多発テロ後，10月米国内で炭疽症患者が相次いで発生した．その原因物質が「白色粉末入り」の郵便物であることが報道された．本邦ではこれに呼応するように「白色粉末」状物質入りの郵便物などが届けられる事件が10月中旬から11月に頻発した．ここでバイオテロとしての炭疽菌検査について，対応及び検査の概要について報告する

[キーワード :炭疽菌，不審物件，バイオテロ，危機管理体制，PCR]

1 はじめに

炭疽は炭疽菌によって起こる疾病であり，公衆衛生上極めて重要な人畜共通感染症である．1876年コッホによって初めて純培養され，1881年パスツールによって初めて弱毒生ワクチンが作られた．長い間人獣共通感染症として公衆衛生上重視されてきたが，近年では欧米や本邦における発生は稀となった．一方，炭疽菌は「人に一旦感染すると死亡率が他の病原体に比べ極めて高い（治療しない場合95-100％）．自然環境で極めて安定性がある．診断や治療及び除染が困難であること．比較的容易にしかも安価に作成できる．遺伝子操作により毒性を強化したり，抗生物質に対する耐性を高めたりすることが容易である．」等の特徴をもち，第二次世界大戦前後からバイオテロの材料として研究開発されるに至った．しかし，本菌を有事に使用されることはなかった．ところが平成13年10月米国で，炭疽症の事例が報告され，テロの可能性が示唆された．

当県でもこのような事例に対応するため県庁で危機管理体制の整備が始められた．当研究所でも炭疽菌の検査体制を整え，検査を実施したので，その概要について経時的に報告する．

2 炭疽菌の検査体制の確立

炭疽菌の検査体制は家畜衛生やと畜衛生の方面では整備されているが，今回の炭疽事件以前は人の保健衛生面での検査体制は十分ではなかった．そこで培養検査法及び遺伝子診断法の両面での検査体制を整備することになった（10月10日）．培養検査法については農政部中央家畜保健衛生所・病性鑑定課に協力を得ることになり（10

月12日），炭疽菌検査手技について研修を受け，さらに早期に入手できない試薬等を借り受けた（10月17日）．10月14日福島県で不審郵便物から「白い粉」が漏出する事件が発生した．10月15日（午後6時頃）国立感染症研究所（感染研）で炭疽菌の有無について検査することとなった．福島県の事例で感染研でPCR法による遺伝子診断を用いているとのことから，当所でもPCR法について検討を行った．帯広畜産大学獣医学部牧野壮一教授が1999年厚生科学研究事業「炭疽菌の発症機構の解明と迅速検出法の確立」でPCR法の研究を行い，*Letters in Applied Microbiology*（2001，33，237 - 240）に検査法が掲載されていた．また，WHOのホームページにもPCR法が掲載されていたので，両者を検討すべく直ちにPCRに用いるプライマーの合成手配を行った（10月17日）．翌18日，県内2ヶ所の郵便局で不審郵便物が発見され同日午後5時50分各所轄警察署から検体が搬送されてきた．本検査は粉末状の炭疽菌である可能性があるため，他実験室と区別された微生物高度安全実験室（P3）の安全キャビネットの中で検査を実施した．所内にあった化学用の防護服やマスクを調達し，検査にあたった．準備はギリギリのところまで間に合った．その後，次々と同様な事例が続出し，検査を実施した（表1）．検査法は，最初の検査では遺伝子診断用のプライマーが間に合わず培養法のみで行ったが，2回目の検査以降はPCR法を併用して実施した．

10月18日付けの厚生労働省大臣官房 厚生科学課長，健康局総務課長，結核感染症課長名で「炭疽菌等の汚染のおそれのある郵便物等の取り扱いについて」が通知された．ここで不審郵便物に関する対応や検査法が提示さ

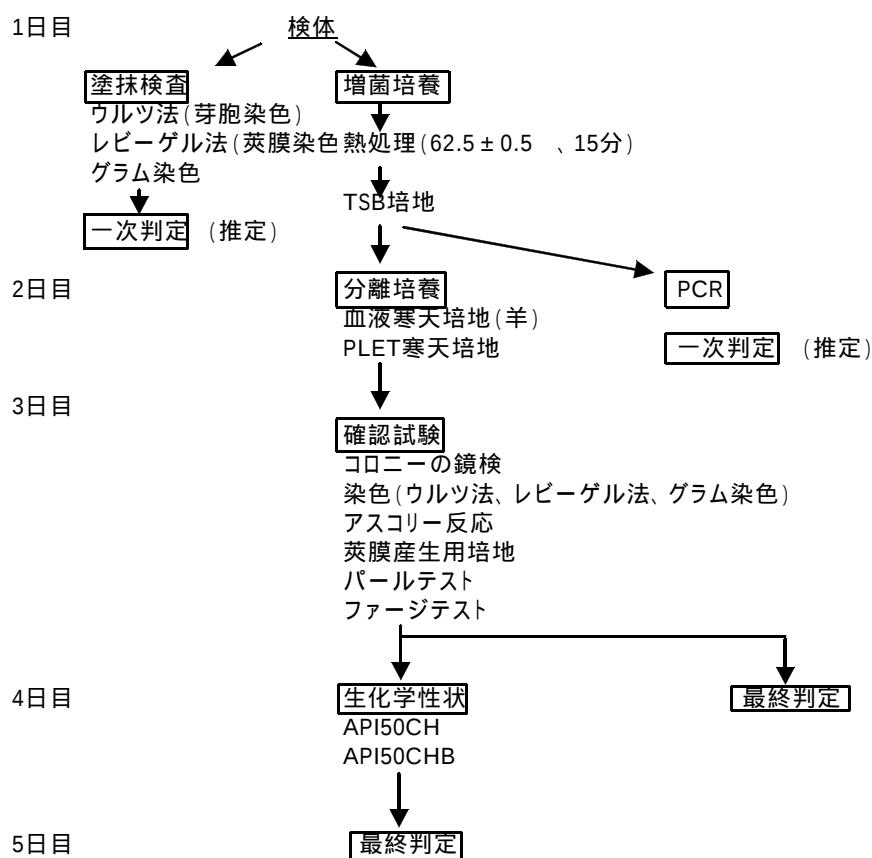
れた。検査には PCR 法が導入されていた（同時に10月25日に研修をする旨も発表された）。

10月25日（木）感染研で各都道府県市区衛生研究所，検疫所，防衛庁，主な民間検査機関など約120の機関が一堂に会して，「炭疽菌の検査法に関する講習会」が行われた。講習会は約3時間にわたり，定形的な検査法の説明，炭疽菌の取り扱い上の注意及び PCR 法の説明があり，PCR 合成プライマー（毒素及び莢膜遺伝子増幅用）及びコントロール DNA（陽性及び陰性コントロール）が配布された。実技が無い十分な質疑応答時間がとられ，質問の中から得るものが多かった。しかし，検査はいずれの場合でも同じであるが，研修を受けたから検査ができるというものではない。この研修以前に炭疽

菌について調査し，自分たちで器具・試薬の調達を行って始めて研修が生きることを実感した。

3 炭疽菌の検査法

当所で現在実施している炭疽菌の検査法は，図1に示すとおりである。検査結果は，第1日目から最終結果が判明するまで逐次県庁企画課に報告した。検査の回数を重ねる度に検査方法の検討を加え，環境材料に適応した検査方法を検討した。PCR は，検査結果の信頼性と効率の点から増菌培養液から行うこととした。直接材料を PCR に適用しても阻害物質により陰性の評価ができなためである。これまでの他細菌の検査の経験から培養法は，検査材料などの点から時に遺伝子診断より感度が



炭疽菌の細菌学的な特徴

- 1.形態: グラム陽性桿菌、竹節様に連鎖する。莢膜を有する。菌体中央に芽胞を形成する。
- 2.培養: 周辺波状、粗面、縮毛状のコロニー(菌集落)を形成する。溶血性は無い。
ブイヨン培養では長糸状の沈殿を生じ、管壁に輪状の菌膜を形成する。
- 3.パールテスト: ペニシリンに感受性であり、低濃度(0.05単位)のペニシリンを含む寒天上では円形のプロトプラスト(真珠状)として確認される。
- 4.ファージテスト: γファージで炭疽菌は特異的に溶菌する。
- 5.アスコリー反応: 炭疽菌の莢膜抗原を血清学的に検出する沈殿素血清反応陽性である。

図1 炭疽菌の検査方法手順

優れているときがあり、結果を急ぐあまりに偽陰性の結果を招かないよう培養法は公定法どおりにやることになった。

第1日目：材料を緩衝生理食塩水で乳剤にし、グラム染色法、レビーゲル法及びウルツ法で炭疽菌の有無を判定した。しかし、ごく一部しか見ることができないので損傷した菌を回復させて増やす増菌培養を行った。このとき増菌培地に接種する前に、乳剤に含まれる雑菌を死滅させるため62.5℃で15分間加熱した。

第2日目：増菌培養液中の炭疽菌の有無を調べるため培養液をPCRにかけた。一方、この増菌培養液を羊血液寒天培地及びPLET寒天培地に塗抹した。

第3日目：分離培地上に炭疽菌の特徴を持つ菌が生育しているかどうかを判定した。疑わしいコロニーがあれば釣菌し純培養するとともに、コロニー塗抹標本の染色、ファージテスト、パールテスト、アスコリー反応などの性状試験を行った。

第4日目：結果が疑わしい場合は、さらに生化学性状試験を行った。

第5日目：最終判定

以上が検査の概要である。実施した14事例中第4日目まで検査を継続した事例は1例のみであった。

4 検査結果の概要

当所に搬入された不審物件の概要は表1の通りである。14事例の検体からは、いずれも炭疽菌は検出されなかった。また、以下に事例の詳細について示す。

事例1, 2：10月18日（木）16:00、県庁企画課から炭疽菌の検査依頼第一報が入り、検査準備をした。17:50、検査材料が研究所に搬入された。課全員でP3に行き、2名が入室し他は外で待機した。まず光学顕微鏡をP3に入れ、その他細菌検査に必要な器具・試薬を最低限入れる（18:35）。P3に入れたものは、オートクレーブで滅菌して出さねばならない。20:20、2検体の直接塗抹標本の顕微鏡での観察及び培養が終了した。すべての検査は10月20日（土）に終了した。

事例3：10月24（水）、事例4, 5, 6：10月25日（木）、事例7：10月26日（金）、事例8：10月27日（土）、米国での炭疽菌感染者の報道がなされると連動し、毎日次々と検体が運び込まれた。事例が重なるとP3での検体処理が混雑するようになった。課員全員で手分けして検査にあたったが、PCRの検査時間が予想外に時間をとることが分かった。処理から結果が出るまでにどんなに頑張っても5時間要した。5事例の検査が10月29日に一段落した。ところがP3の2台の安全キャビネットの中は検査した後の培地や器具・器材が山積となっていた。ウイル

ス用に設計されたP3のオートクレーブは小さく、2日がかかりで滅菌処理した。かたづけが終了した翌日11月2日から3日にかけて3事例発生した。検査材料は最初の頃は粉状のものが封書の中に入っている気配があり不審に思うというパターンであったが、中盤からは米国での「白色粉末状物質」との報道から、公共交通機関や公共施設で「白色粉末状物質」に見えるものが発見され搬入されるケースが殆どとなった。

表1 当所に搬入された検査対象物件

	搬入年月日	時間	所轄署	検査対象物件
1	H13.10.18	17:50	門司	A*
2	10.18	17:50	小倉北	A
3	10.24	17:35	大牟田	A
4	10.25	12:46	筑紫野	A
5	10.25	14:15	久留米	A
6	10.25	17:20	筑紫野	B**
7	10.26	12:15	大牟田	B
8	10.27	11:02	後藤寺	A
9	11. 2	16:00	筑紫野	A
10	11. 2	17:50	小郡	A
11	11. 3	9:50	柳川	B
12	11. 6	9:18	筑紫野	B
13	11.26	11:04	筑紫野	B
14	H14. 1.16	11:05	筑紫野	A

*：郵便局又は個人宅等で発見された不審郵便物等

**：公共交通機関等で発見された白色粉末状物件等

5 まとめ

新興・再興感染症対策と一言でいわれているが、平素の情報収集と検査体制の整備により迅速な対応が図られる。今回の事例からも常に雑誌や学会等での情報収集さらに培養法や遺伝子診断技術の習得が必要であると考えられる。学問の進歩とともに検査法も進化している。特に遺伝子工学の進歩は目覚ましいものがあり、PCR法では全行程約5時間を要するがリアルタイムPCRを用いると2時間で確認作業まで完了する。検査体制強化のために早急な本機器の導入が望まれる。また、常に世界の感染症に注目し、将来を予測した研究を行っていかねばならない。

6 参考資料

1. 独立行政法人動物衛生研究所ホームページ
2. 国立衛生研究所ホームページ
3. 厚生労働省ホームページ
4. 戸田新細菌学第30版：1994、森良一、天児和暢 編、南山堂。
5. 人と動物の共通伝染病：1998、高島郁夫 監修、酪農総合研究所。

資 料

平成13年度福岡県感染症発生動向調査事業ウイルス検査結果

梶原淳睦，濱崎光宏，江藤良樹，世良暢之，千々和勝己

平成13年度の感染症発生動向調査事業のウイルス検査結果を報告する。当年度は12疾病，270件の検査材料から，18種105株のウイルスを検出した。内訳はエンテロウイルス37株，次いでアデノウイルスとインフルエンザウイルスが25株，ロタウイルス11件等であった。これら検出されたウイルスの流行状況について解説する。

[キーワード： ウイルス分離，疫学，感染症]

1 はじめに

本県では感染症の流行状況を明らかにし，感染症流行のメカニズムを解明するため感染症発生動向調査事業を実施している。平成13年度の福岡県感染症発生動向調査事業の検査対象疾病の病原ウイルス検索の結果を報告する。

2 材料及び方法

当年度県下（福岡市，北九州市を除く）の感染症発生動向調査検査定点の医療機関において採取した糞便，咽頭ぬぐい液等の検査材料は12疾病，270件であった。疾病別ではインフルエンザが114件と最も多く，次いで無菌性髄膜炎が53件，感染性胃腸炎28件等であった。これらの検体をVero，FL，RD-18sの3種の培養細胞に接種してウイルスを分離した。また，コクサッキーA群のウイルス分離には1-2日齢の乳のみマウスを用い，インフルエンザウイルスの分離はMDCK細胞及び発育鶏卵を用いた。分離したウイルスは国立感染症研究所より分与された抗血清やデンカ社製の抗血清を用い，中和試験，補体結合反応試験，赤血球凝集阻止試験により血清型別を同定した。

3 結果及び考察

疾病別の検査結果を表1に示した。本年検出されたウイルスは18種，105株であり，そのうち最も多かったのはエンテロウイルス37株，次いでアデノウイルスとイン

フルエンザウイルスが25株，ロタウイルス11件等であった。なお，ウイルスが分離されたものは株数で，ラテックス凝集法，電子顕微鏡法及びPCR法で検出されたものは件数で示した。また，ペア血清を用いた血清試験の結果，インフルエンザA/H₃N₂型の感染が疑われるものが1件あった。

次にウイルスごとの流行状況について述べると，エンテロウイルスではエコー11型が20株で最も多く，疾病別では無菌性髄膜炎から17株分離され当年度の同疾病の主要な原因であった。次に分離数が多かったのはコクサッキーA16型が12株でそのほとんどは手足口病から分離された。前年手足口病から多数分離されたエンテロウイルス71型は当年は1株も分離されなかった。インフルエンザウイルスは前年度の流行が長引き，4月までA/H₃N₂型が分離された。当年度の流行は例年より早く10月末にはA/H₃N₂型が分離され，その後1月まで分離された。A/H₃N₂型が当年度インフルエンザの主要な原因ウイルスであった。しかし，2月にはB型やA/H₃N₂型が分離され，3種のウイルスが順次流行した。アデノウイルスでは2型がインフルエンザやヘルパンギーナから18株分離されている。特に，11月から3月にかけてインフルエンザと報告された患者から16株分離されており，アデノウイルスによる上気道炎とインフルエンザの鑑別が治療上重要であると考えられる。下痢症関連ではSRSVが7件検出され，うち6件は12月に検出されている。一方，ロタウイルスは2月に11件検出され，流行時期が異なっていた。

表1 平成13年度感染症発生動向調査検査結果

疾 病 名	採取月	採取数 （種別）	分離ウイルス	数 （検体種別）
インフルエンザ	4～12月	114 (NP102,SF7,FC4,PS1)	A/H1N1型	20 株 (NP20)
			アデノ2型	16 株 (NP16)
			インフルエンザB型	4 株 (NP4)
			エコー11型	2 株 (NP2)
			A/H3N2型	1 株 (NP1)
			アデノ5型	1 株 (SF1)
			コクサッキーB4型	1 株 (FC1)
			A/H1N1型陽性疑い 陰性	1 件 (PS1) 68 件
咽 頭 結 膜 熱	6～9,2月	9 (NP9)	アデノ3型	2 株 (NP2)
			アデノウイルス	1 株 (NP1)
			陰性	6 件
感 染 性 胃 腸 炎	11～3月	28 (FC28)	ロタウイルス	11 件 (FC11)
			SRSV様粒子	7 件 (FC7)
			陰性	10 件
手 足 口 病	6,7,9月	18 (NP17,EX1)	コクサッキーA16型	11 株 (NP10,EX1)
			コクサッキーA6型	1 株 (NP1)
			陰性	6 件
ヘルパンギーナ	6,7,1,3月	5 (NP5)	コクサッキーA4型	1 株 (NP1)
			コクサッキーA16型	1 株 (NP1)
			アデノ2型	1 株 (NP1)
			陰性	2 件
麻疹（小児科定点）	4月	1 (NP1)	陰性	1 件
流行性耳下腺炎	5,10月	2 (NP1,SF1)	陰性	2 件
急性脳炎	9月	1 (SF1)	陰性	1 件
無菌性髄膜炎	4?3月	53 (SF37,NP11,FC5)	エコー11型	17 株 (SF11,NP5,FC1)
			エコー16型	1 株 (FC1)
			コクサッキーB3型	1 株 (SF1)
			陰性	34 件
流行性角結膜炎	6,7,3月	4 (ES4)	アデノ8型	1 件 (ES1)
			アデノ3型	1 件 (ES1)
			アデノ37型	1 株 (ES1)
			陰性	1 件
成人麻疹	4,5月	2 (NP2)	陰性	2 件
その他の疾患	4～3月	33 (NP26,SF3,FC3,UR1)	エコー11型	1 株 (NP1)
			アデノ2型	1 株 (SF1)
			陰性	31 件
検体数		270 件	ウイルス分離数	105 株

NP;鼻咽頭材料、FC;糞便、SF;髄液、ES;眼結膜ぬぐい液、UR;尿、EX;水泡内容液等

資 料

福岡県における風疹感受性調査

江藤良樹，濱崎光宏，世良 暢之，梶原淳睦，千々和勝己

福岡県における風疹の抗体保有状況調査を行ったので報告する．抗体陰性率は全体平均で23.9%，年齢区分で陰性率が最も高かったのは0-4歳のグループで61.7%，次は5-9歳グループで33.3%の順であった．一方，抗体陰性率が最も低かったのは20-24歳グループで6.4%であった．全体としては，乳幼児や児童などの若年齢層で抗体陰性率が高く，年齢を経るに従い抗体陰性率は低下する傾向があり，20歳以上の年齢層の女性では抗体陰性率がほぼ10%以下と良好な結果を示した．その一方で，男性は24歳以下の年齢層では年齢を経るに従って抗体陰性率が低下しているが，25歳以上の年齢層では25.0-37.5%と高い陰性率が観察された．また，ワクチン接種により効果的に免疫を獲得していることが判った．

[キーワード : 風疹，ワクチン接種，先天性風疹症候群，流行予測調査]

1 はじめに

風疹ウイルスに対する免疫を持たない女性が妊娠初期に風疹に罹患すると，まれにウイルスが胎児へ感染し先天性風疹症候群（CRS）と呼ばれる障害を引き起こす．CRSは，先天性心疾患，難聴，白内障といった重大な疾患であることから十分な予防対策をとる必要がある．現在のところ，風疹のワクチン接種やサーベイランスによる予防対策は非常に成功しており，日本でのCRSの報告は年に数例程度である．しかし，平成6年に風疹の予防接種が個別接種方式に変わったことからワクチン接種率が低下している現状がある．昨年の風疹の抗体保有状況調査の結果では，19歳以下の抗体陰性率が高い結果となっており，今後の抗体陰性率の変遷に注目する必要がある．当研究所では，厚生労働省の感染症流行予測調査事業の一環として福岡県の風疹の抗体保有率調査を行ったので報告する．

2 調査対象および方法

調査は，平成13年7-9月に久留米保健所によって採血された9年齢区分（0-4歳，5-9歳，10-14歳，15-19歳，20-24歳，25-29歳，30-34歳，35-39歳，40歳以上）の女性213名，男性193名の血清を対象として，感染症流行予測調査術式に準拠した赤血球凝集抑制試験（HI試験）により抗体価を測定した．判定は，HI抗体価8倍以上を抗体陽性とし，8倍未満を抗体陰性とした．

3 調査結果

調査結果を表1及び図1に示した．抗体陰性率は全体平均で23.9%（男性30.6%，女性17.8%），年齢区分で陰性率が最も高かったのは0-4歳のグループ61.7%（女性61.5%，男性61.9%）で，ついで5-9歳グループ33.3%（女性31.8%，男性35.0%）の順であった．一方，20-24歳グループで抗体陰性率が最も低く6.4%（女性3.8%，男性9.5%）であった．

4 考察

全体の傾向としては乳幼児や児童などの若年齢層で抗体陰性率が高く，年齢を経るに従い抗体陰性率は低下し，20歳以上の年齢層の女性では抗体陰性率がほぼ10%以下と良好な結果を示した．一方，男性は24歳以下の年齢層では年齢を経るに従って抗体陰性率が低下しているが，25歳以上の年齢層では陰性率が25.0-37.5%と高い傾向があった．平成6年に風しんの予防接種が個別接種方式に変わる以前は，女性のみが接種対象であり，男性の予防接種の接種率が低かったため相対的に抗体陰性率が高いものと推察される．また，今回の調査ではワクチン接種率は不明者を除くと19歳以下の年齢層の女性では28.6-55.0%にとどまり，ワクチン接種率向上のための啓発活動等が必要であると考えられる．同年齢層の抗体陰性率はワクチン接種者では0%であるが，ワクチン未接種者では100-15.4%であり，ワクチン接種により効果的に免疫を獲得していることが判った．

表1 平成13年度久留米地区における風疹ウイルスに対する年齢別HI抗体保有状況
(平成13年7-9月採血)

年齢区分 (歳)	検体数	HI抗体価 < 8	抗体陰性率 (%)	HI抗体価							平均抗体価	ワクチン 接種率*1 (%)
				8	16	32	64	128	256	512		
0-4	21(男)	13	61.9		1	1	3	2	1		69.8	46.2
	26(女)	16	61.5		3	3	3	1			36.8	50.0
5-9	20(男)	7	35.0	1	5	3	3	1			28.8	100.0
	22(女)	7	31.8	1	3	4	5	1		1	42.2	42.9
10-14	19(男)	4	21.1		5	4	4	2			36.8	28.6
	22(女)	6	27.3	3	2	2	4	3	2		45.3	28.6
15-19	23(男)	5	21.7				5	10	3		118.5	45.5
	33(女)	4	12.1			3	4	12	10		128.0	55.0
20-24	21(男)	2	9.5			2	3	11	3		110.6	14.3
	26(女)	1	3.8		2		10	8	5		94.4	91.7
25-29	24(男)	9	37.5		2	1		6	6		116.7	55.6
	21(女)	0	0.0		1	5	3	7	4	1	92.0	88.9
30-34	21(男)	6	28.6			1	2	5	7		147.0	50.0
	22(女)	0	0.0		1	6	4	5	5	1	87.7	100.0
35-39	20(男)	5	25.0		2	2	5	5	1		67.0	20.0
	21(女)	2	9.5		2	7	2	4	3	1	68.8	72.3
40-	24(男)	8	33.3	2	3	3	4	3	1		41.5	0.0
	20(女)	2	10.0	1		5	6	6			59.3	18.2
計	193(男)	59	30.6	3	18	17	29	45	22		73.6	45.1
	213(女)	38	17.8	5	14	35	41	47	29	4	74.7	57.1
合計	406	97	23.9	8	32	52	70	92	51	4	74.2	52.6

*1: 接種歴不明者を除く

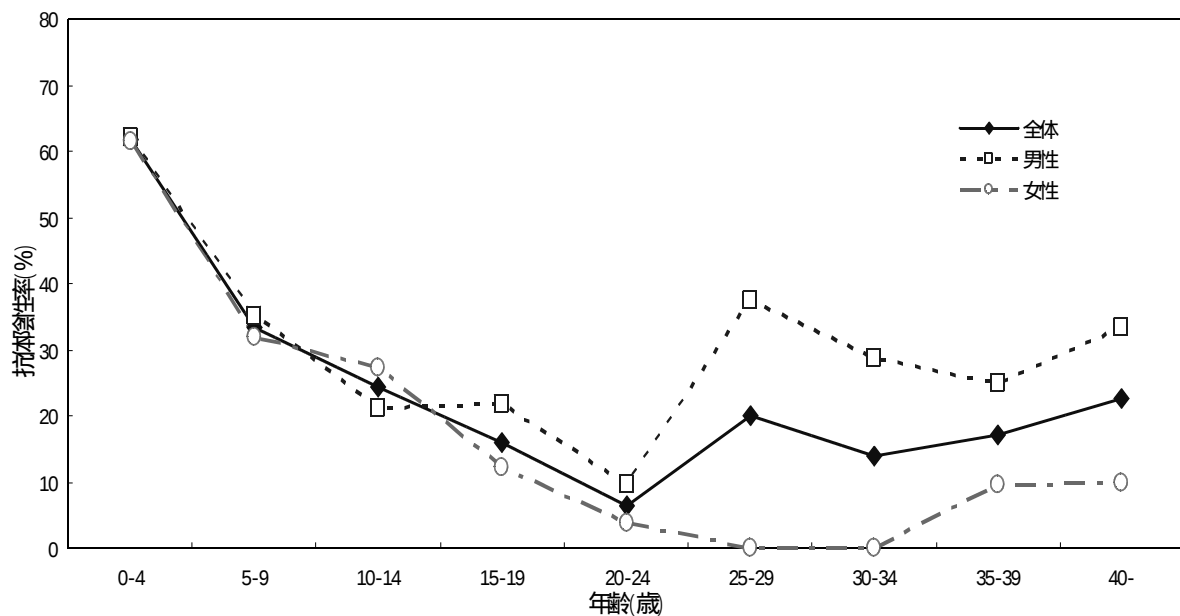


図1 風疹ウイルスに対する年齢別HI抗体陰性率

資 料

福岡県における大気環境の変遷

- 大気汚染常時監視測定データ(1974～2000年度)のまとめ -

濱村研吾・大久保彰人

福岡県における大気環境の変遷を大気汚染常時監視測定データから考察した。常時監視データから福岡県の大気汚染の推移をみると、80年頃を境に大きく2つの時期に分けることができる。テレメータシステムが整備された70年代は、大気汚染の主要な原因が工場であった。80年代以降はモータリゼーションが激に進み、工場に代わって自動車が大気汚染の主要な原因となった。また、近年は大気汚染物質の大陸からの移流が深刻な問題となっており、大気汚染問題の質が変化している。

〔キーワード：福岡県，大気環境，大気汚染常時監視測定データ〕

1 はじめに

福岡県の大気汚染常時監視テレメータシステムは、73年に北九州市、大牟田市及び福岡市のシステムと県が設置した測定局が統合され、全県的な監視がスタートした。蓄積されたデータは年度毎に報告されてきたが、この資料では今後の大気環境行政の方向性を考えるために長期間の大気汚染の推移について考察した。

2 二酸化硫黄(SO₂)

地域別 SO₂年平均値の推移を図1に示す。70年代中頃の SO₂年平均値は、工業都市である北九州市や大牟田市の方が福岡市よりも高く、SO₂の主要な発生源が工場等における硫黄分を含む化石燃料の燃焼であると推察される。参考として、二酸化鉛法(PbO₂法)による地域別硫酸化物年平均値の推移を図2に示す。硫酸化物濃度の推移から、北九州市や大牟田市の大気中 SO₂濃度は68～69年にピークを示した後、急減したと推察される。これは、68年に K 値規制が導入、さらに74～75年には北九州市と大牟田市が総量規制指定地域に指定され、燃料の低硫黄化や排煙脱硫装置の設置等の対策が進んだ結果、工場等からの SO₂排出量が大幅に減少したためと考えられる。

図1に示したように、80年代中頃から福岡市の方が大牟田市や北九州市よりも高い濃度を示している。福岡市における SO₂年平均値(局種別)の推移を図3に示す。福岡市では自排局の SO₂濃度が一般局よりも高いことから、自動車排出ガスの影響が大きいと考えられ

る。また図4に示したように、硫黄分を多く含む軽油を燃料とする大型車の保有台数は他の都市に比べて福岡市が多く、80年代中頃から大きく増加している。すなわち、工場等からの SO₂排出量が減少する一方で、軽油を燃料とする大型車の寄与が大きくなったため、都市化が進んだ福岡市にその傾向が顕著に現れたと考えられる。

SO₂の主な発生源は工場から軽油を燃料とする大型

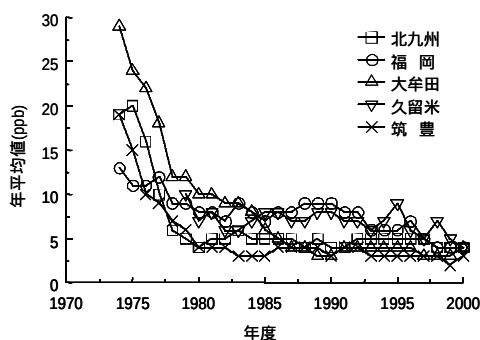


図1 地域別 SO₂年平均値の推移

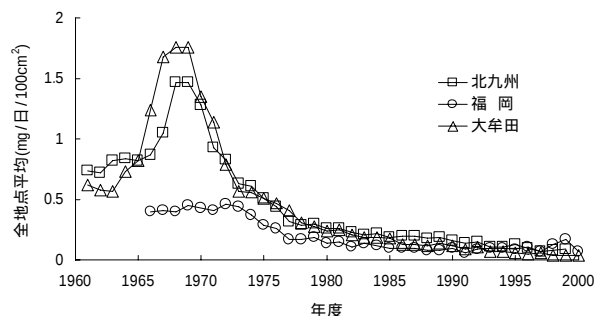


図2 PbO₂法による地域別硫酸化物年平均値の推移

車へ変化してきていると考えられるが、軽油中の硫黄分の規制はだんだん厳しくなっており、93年度以降 SO_2 年平均値は低い濃度で推移している。この傾向は今後も続くと思われる。

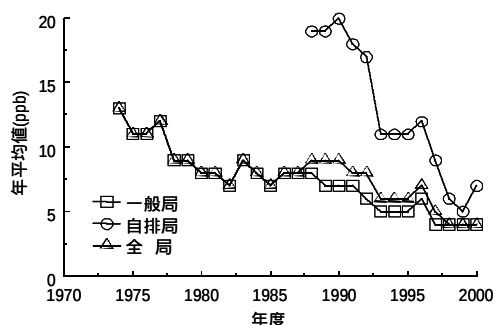


図3 福岡市における SO_2 年平均値(局種別)の推移

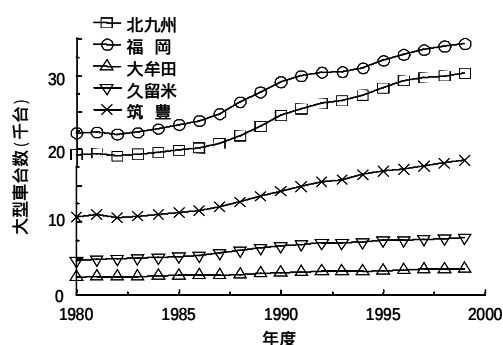


図4 地域別大型車保有台数の推移

3 浮遊粒子状物質 (SPM)

SPM の測定開始年度は SO_2 よりも遅く、常時監視測定局において SPM(当時は浮遊粉じん)の測定が開始された79年には、すでに現在の濃度レベルまで減少していたと推定される。79年以前の SPM 濃度を類推する資料として、地域別降下ばいじん年平均値の推移を図5に示す。降下ばいじん量の推移から、工業都市である北九州市や大牟田市の SPM 濃度は60年代の終わり頃まで高い値を示し、その後、急減したと思われる。また、79年以降の SPM 濃度(図6参照)と降下ばいじん量との関係から、降下ばいじんの測定が始まった直後の SPM 年平均値は大牟田市で $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、北九州市で $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えていたと推定される。

62年のばい煙規制法の実施以降、降下ばいじん量は少しずつ減少したが、急減したのは70年頃からである。これは71年にばいじんの排出基準が強化されたことにより燃焼方法の改善や集じん装置の設置等の対策が進み、工場等からのばいじんの排出量が急減したためと考えられる。なお、大牟田市の降下ばいじん量が91～93年の期間に高い値を示しているのは、90年11月に噴火した雲仙普賢岳の影響と思われる。

地域別 SPM 年平均値の推移を図6に示す。福岡市に

おいても、83年の測定開始以降、工業都市である北九州市や大牟田市と同程度の SPM 濃度を示している。福岡市における SPM 年平均値(局種別)の推移を図7に示す。福岡市では自排局の SPM 濃度が一般局よりも高いことから、自動車排出ガスの影響が大きいと考えられる。特に、大型車に多いディーゼル車は粒子状物質を多く排出するため、他の都市より大型車保有台数が多い福岡市では SPM に占めるディーゼル排出粒子の寄与が大きいと考えられる(図4参照)。なお、99年度以降、福岡市の自排局における SPM 年平均値は急減しているが、これは SPM の自動車排出ガス規制値(ディーゼル車)が、94年に $0.7\text{g}/\text{kWh}$ 、96～98年に $0.25\text{g}/\text{kWh}$ (車両総重量2.5トン超の重量車)と段階的に厳しくなり、ディーゼル車からの粒子状物質の排出が減少しているためと思われる。

SPM の自動車排出ガス規制値(ディーゼル車)は、03～04年に $0.18\text{g}/\text{kWh}$ (車両総重量2.5トン超の重量

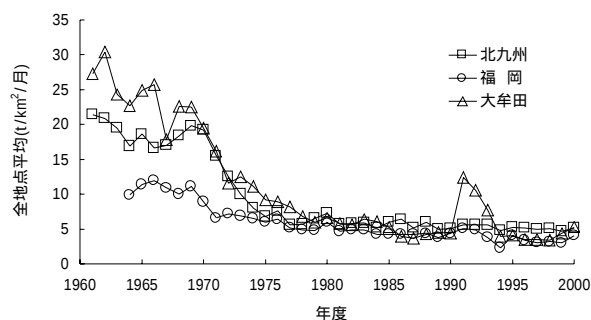


図5 地域別降下ばいじん年平均値の推移

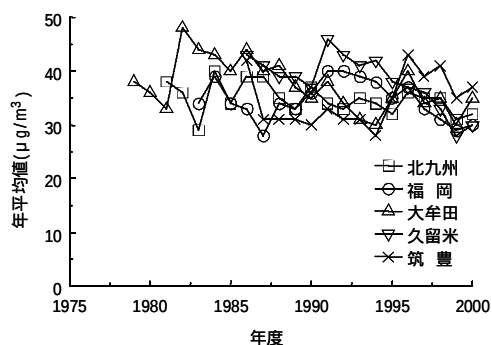


図6 地域別 SPM 年平均値の推移

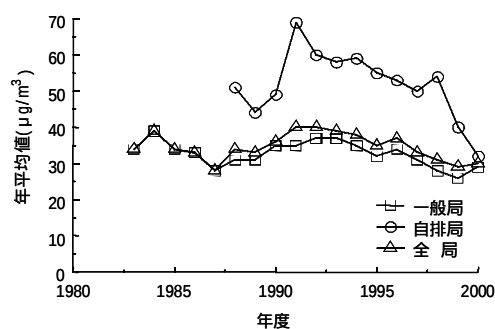


図7 福岡市における SPM 年平均値(局種別)の推移

車)とさらに厳しくなる予定であり、自動車から排出される SPM は今後も減少すると思われる。しかし、SPM の発生源は自動車排出ガス以外にも多様であり、特に近年飛来回数が増加している黄砂により SPM 年平均値が再び増加に転じる可能性も否定できない。

4 光化学オキシダント(Ox)

地域別 Ox 年平均値(昼間; 5~20時)の推移を図8に示す。Ox は窒素酸化物(NO_x)と炭化水素類(HC)の光化学反応によって二次的に生成する物質であることから、80年以前は後述する NO₂と同じように高い濃度であったと推定される。80年以降は緩やかな増加傾向を示しているが、北九州市及び大牟田市においては96年以降はやや減少傾向にある。また、局地風等の影響で汚染が後背地まで広がるケースも多い。

地域別 Ox 日最高値年平均値の推移を図9に、同じく日最低値年平均値の推移を図10に示す。日最高値は昼間に NO_x や HC から光化学反応によって生成する Ox 濃度を反映していると考えられる。90年代前半はどの地域もほぼ横ばいで推移しているが、90年代後半になると北九州市や大牟田市においてやや減少傾向がみられる。また、日最低値はバックグラウンドの Ox 濃度を反映していると考えられる。日没後、日中 Ox の生成に働いた NO_x は逆に Ox を消費するように働くが、NO_x によって消費しきれない Ox がこれに当たる。福岡市では緩やかな増加傾向を示しているが、北九州市や大牟田市では97年以降減少傾向を示している。

昼間の1時間値が環境基準である60ppb を超過した時間数割合の推移を図11に、福岡県における光化学オキシダント注意報発令回数の推移を図12に示す。環境基準超過時間数割合は、年によってばらつきはあるものの、福岡市と大牟田市では85年頃から、北九州市では91年頃から急増している。なお、「光化学オキシダントに係る緊急時対策基本要綱」に基づく注意報は、福岡市区域において90年に4回、96年に1回、北九州市区域において97年に1回、それぞれ発令されている。

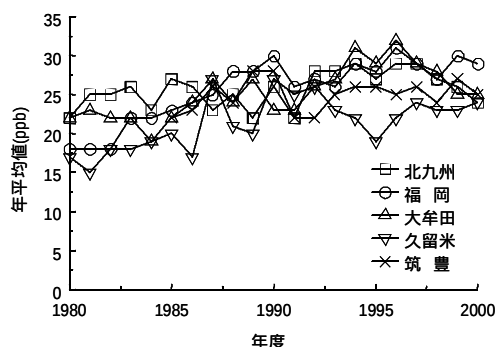


図8 地域別 Ox 年平均値(昼間)の推移

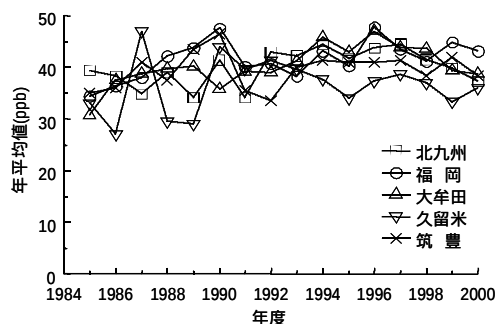


図9 光化学オキシダント日最高値年平均値の推移

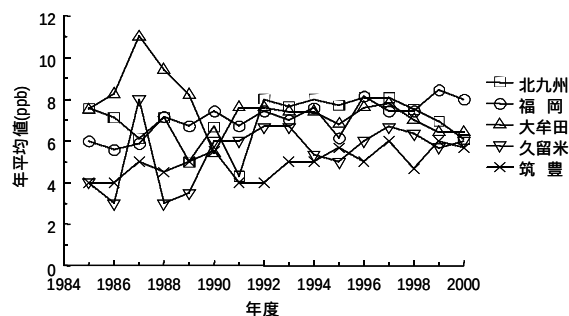


図10 光化学オキシダント日最低値年平均値の推移

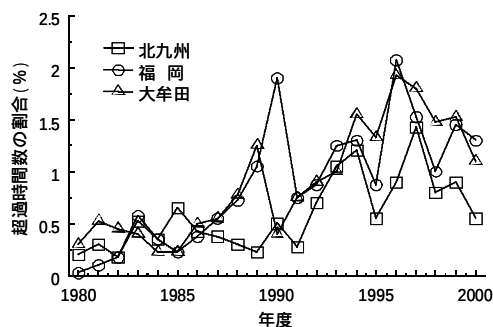


図11 昼間1時間値の環境基準超過時間数割合の推移

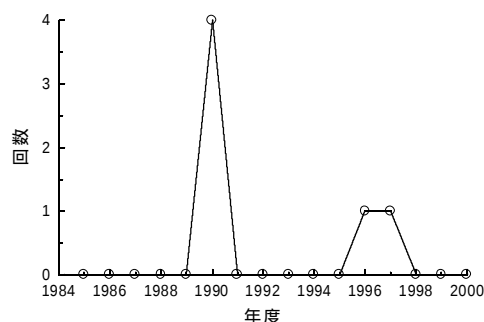


図12 光化学オキシダント注意報発令回数

5 二酸化窒素(NO₂)

地域別 NO₂年平均値の推移を図13に示す。SO₂と同じく、70年代中頃の NO₂平均値は、工業都市である北九州市や大牟田市の方が福岡市よりも高く、NO₂の主要な発生源が工場等における化石燃料の燃焼であると推察される。また、80年代中頃まで北九州市や大牟田市において NO₂年平均値が減少しているが、73年には

い煙発生施設に対する NO_x の排出基準が設定されて以来、75～83年にかけて強化拡充が図られ(第2～第5次規制)、二段燃焼や低 NO_x バーナーの採用、排煙脱硝装置の設置等の対策が進んだ結果、工場等からの NO₂排出量が大幅に減少したためと考えられる。

図13に示すように、福岡市における NO₂年平均値は81年度を境に増加に転じ、大牟田市や北九州市よりも高い濃度を示している。また、工場における発生源対策により減少し続けていた北九州市における NO₂年平均値も86年を境に増加に転じている。福岡市における局種別の NO₂年平均値の推移を図14に示す。福岡市や北九州市では自排局の NO₂濃度が一般局よりも高いことから、自動車排出ガスの影響が大きいと考えられる。また、NO_x を多く排出する大型車の保有台数は、NO₂ 年平均値と同じく、福岡市>北九州市>久留米市>大牟田市の順に大きい(図4参照)。

NO_x の自動車排出ガス規制値(直噴式ディーゼル車)は、94年に6.0g/kWh、96～98年に4.5g/kWhと段階的に厳しくなっており、03～04年には3.38g/kWh(車両総重量2.5トン超の重量車)とさらに厳しくなる予定である。しかし、各地域の NO₂年平均値が減少に転ずる兆しはみられず、さらなる対策が求められる。

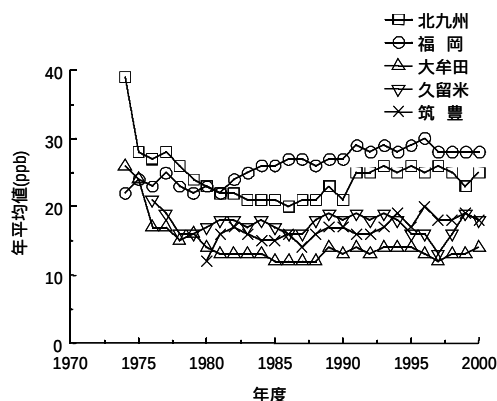


図13 地域別 NO₂年平均値の推移

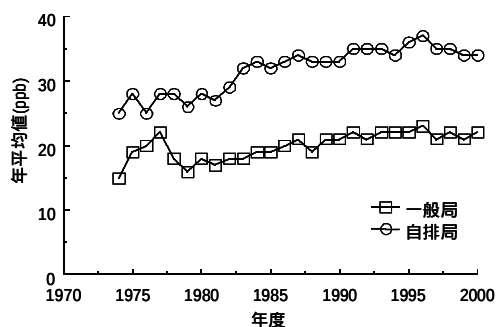


図14 福岡市における NO₂年平均値の推移(局種別)

6 一酸化炭素(CO)

地域別 CO 年平均値の推移を図15に示す。北九州市

及び大牟田市では SO₂や NO₂と同じく80年頃まで CO 年平均値が急激に減少している。

地域別自動車保有台数の推移を図16に示す。図15に示すように、77年以降の CO 年平均値は福岡市>北九州市>大牟田市の順に高く、自動車保有台数の順とほぼ一致することから、自動車が主要な発生源と推察される。しかし、排出対策が難しい NO_x と異なり、排出ガス中の CO 濃度は近年の燃焼技術の向上によりさらに低くなっており、自動車からの CO 排出量は今後も少しずつ減少していくと思われる。

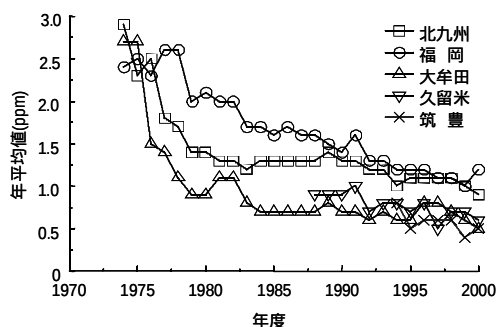


図15 地域別 CO 年平均値の推移

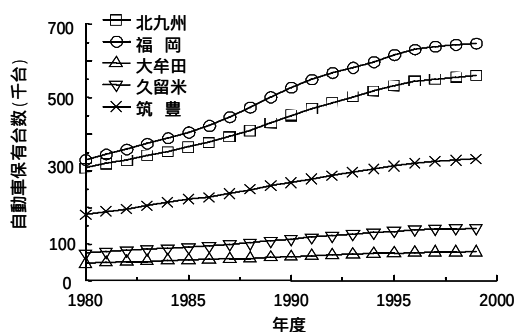


図16 地域別自動車保有台数の推移

7 おわりに

現在の大気汚染の課題としては、自動車を発生源とする NO₂、SPM(DEP)、O_x による局所的な汚染と、大陸からの黄砂や二次生成粒子、O_x の移流に代表されるような広域的な汚染が挙げられる。これらの課題に対処するため、大気汚染常時監視測定データのさらなる活用が望まれる。

引用文献

- 1)北九州市大気汚染常時監視測定データ
- 2)福岡市大気汚染常時監視測定データ
- 3)大牟田市大気汚染常時監視測定データ
- 4)久留米市大気汚染常時監視測定データ
- 5)福岡県大気汚染常時監視測定データ

資 料

福岡県における環境放射能について - 1989年から2000年 -

田上 四郎, 檜崎 幸範

福岡県は1957年から旧科学技術庁(現文部科学省)の委託を受け環境試料中の放射能調査を実施している。今回, 1989年から2000年までの福岡県内の降下物, 土壌, 日常食, 陸水, 海水及び海底土について ^{90}Sr 及び ^{137}Cs の分析結果について取りまとめた。1950年代, 60年代には大気圏内で大規模な核実験が行われ, 1980年の中国によるものを最後に大気圏内での核実験は停止されている。核爆発によって生じる核分裂生成物のうちで, 比較的長寿命の放射性核種で生成率が高いものが ^{90}Sr 及び ^{137}Cs であり, 大気圏内核実験により放出され, フォールアウト(放射性降下物)として環境に供給された。福岡県においては1963年に降下物中 ^{90}Sr 及び ^{137}Cs の最も高い値を検出したが, 大気圏内核実験が停止されてから20年以上経過した近年ではそのレベルは非常に低下している。本報告では, 対象とした降下物, 土壌, 日常食, 陸水, 海水及び海底土中の ^{90}Sr 及び ^{137}Cs の分布を求め, 最近の環境放射能の傾向を解析した。

[キーワード : 大気圏内核実験, フォールアウト, 環境放射能, ^{90}Sr , ^{137}Cs]

1 はじめに

福岡県下の環境放射能調査に伴い, 1957年から環境中の ^{90}Sr 及び ^{137}Cs の分析を行ってきた。核分裂によって生成される核種には質量数95と140あたりが最も多く, その代表的な核種が ^{90}Sr 及び ^{137}Cs である。

これらのフォールアウトは米・ソの大規模な大気圏内核実験によって生成し, 福岡県下で1963年度を最高値¹⁾

(^{90}Sr :639MBq/Km², ^{137}Cs :839MBq/Km²)とし, その後は中国核実験の影響を示しつつ1985年度まで指数関数的に減少した。1986年に起きたチェルノブイリ原子力発電所事故では ^{137}Cs :34.4MBq/Km²を検出したが, 翌年度から再び減少し1988年度以降は事故以前のレベルをさらに下回った。しかしながら, ^{90}Sr (T_{1/2}=28.8年)及び ^{137}Cs (T_{1/2}=30年)はそれぞれ半減期が比較的長く, 環境中に広く存在する。本研究は, 環境中における ^{90}Sr 及び ^{137}Cs 濃度について1989年以降の分析結果を対象に環境中での ^{90}Sr 及び ^{137}Cs の分布を解明することを目的にその濃度水準から, 最近の放射能汚染の推移を解析した。

2 実験方法

科学技術庁による環境放射能水準調査の中から1989～2000年の降下物, 土壌, 日常食, 陸水, 海水及び海底土を対象に調査を実施した。これらの試料は科学技術庁編放射能測定法シリーズ16・環境試料採取法²⁾に基づき処理

を行った。降下物は太宰府市にある当研究所の屋上(地上15m)に設置した受水面積4960cm²のステンレス製水盤で1ヶ月毎に採取し, 蒸発乾固して試料とした。土壌は撈乱の少ない福岡市の平地を選び, 直径5cmの円筒状の土壌採取器を用い, 地表面から5cm(表層)及び5cmから20cmまでの深さ(下層)の土壌を年1回(7月)採取した。

2層に分けて採取した試料は植物根, 石れき等の異物を除き105℃で乾燥後2mmのフルイを通し, 試料とした。

日常食は太宰府市(都市部)及び福岡市(漁村部)の5世帯の家庭から陰膳方式で年2回(6月, 11月)採取した1人1日分の食事を450℃で灰化し, 試料とした。陸水は, ダム湖放流水(源水), 浄水場水道水(蛇口水)をそれぞれ年2回(6月, 12月)100Lを採水し, 蒸発乾固して試料とした。海水は晴天が続いた日の表面水40Lを年1回(7月)採水した。採水は北九州市門司区門司港内で行った。海底土は海水と同日, 同一地点でエクスマンバーJ型採泥器を用い表層泥を採取した。採取した泥は石れき等の異物を取り除き, 105℃で乾燥後2mmのフルイを通し, 試料とした。

^{90}Sr , ^{137}Cs の測定値は試料を前処理後, 財団法人日本分析センターに送付し, 低バックグラウンドベータ線測定装置を用い分析した結果である。

3 結果及び考察

3・1 降下物

1989～1996年の月間降下物中に ^{90}Sr が検出されたのは5回であった。その濃度は $0.027 \sim 0.032 \text{ MBq/Km}^2$ で1997年以降検出されなかった。1989～2000年度に ^{137}Cs は12回検出され、その濃度は $0.033 \sim 0.110 \text{ mMBq/Km}^2$ であった。 ^{90}Sr 及び ^{137}Cs が検出されたのは3月及び4月に比較的多かった。1997年以降降下物中に ^{90}Sr は検出されず、まれに ^{137}Cs が検出された。これは大気圏内核実験が停止されてから20年近くが経過し、成層圏からの降下がなくなったためと考えられる。

3・2 土壌

1989～2000年において経年的に継続して採取した裸地土壌中 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 濃度の推移を図1に示した。土壌表層(0～5cm)の ^{90}Sr は $3.6 \sim 8.4 \text{ Bq/kg}$ 、下層(5～20cm)は $1.5 \sim 5.0 \text{ Bq/kg}$ で、表層と下層の比は平均1.9であった。一方、 ^{137}Cs は表層が $2.1 \sim 14 \text{ Bq/kg}$ 、下層が $0.23 \sim 4.7 \text{ Bq/kg}$ で表層と下層の比は平均5.6であった。 ^{90}Sr の下層への浸透は ^{137}Cs の2倍以上で、 ^{137}Cs の下層への移行は緩やかであった。2000年の表層土壌中 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 濃度は1989年の濃度に対してそれぞれ ^{90}Sr で0.4倍、 ^{137}Cs で0.2倍に減少した。なお、1992年以降表層の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 濃度に有意差はなくなった。 ^{90}Sr は比較的下層への浸透が認められる一方、 ^{137}Cs の表層での吸着は強く、その減少は降水等による流亡によるものと思われる。

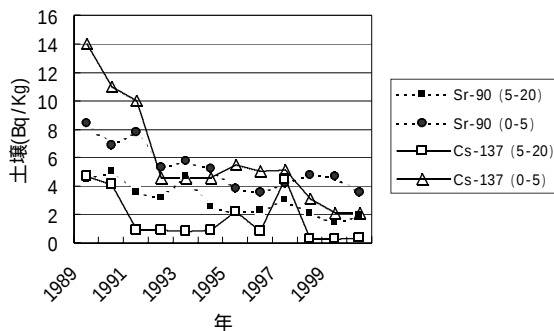


図1 土壌中の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 濃度

3・3 日常食

日常食中の ^{90}Sr は $5 \sim 47 \text{ mBq/kg}$ 、 ^{137}Cs は $2 \sim 62 \text{ mBq/kg}$ であった。都市部での ^{90}Sr は $12 \sim 47 \text{ mBq/kg}$ 、 ^{137}Cs は $6 \sim 62 \text{ mBq/kg}$ 、漁村部での ^{90}Sr は $5 \sim 30 \text{ mBq/kg}$ 、 ^{137}Cs は $2 \sim 25 \text{ mBq/kg}$ であった。都市部と漁村部の ^{90}Sr 及び ^{137}Cs には有意差が認められ、漁村部での濃度に低い傾向が認められた(図2)。なお、都市部及び漁村部の6月と11月の季節間の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 濃度に有意差はみられなかった。都市部と漁村部の日常食中の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 濃度に有意な差がみられ

たのは、食事内容のアンケート調査から、都市部の主食に小麦の割合が高く、野菜、肉、魚の頻度が高かったこと、漁村部の主食に米の割合が高く、野菜、肉、魚の頻度が都市部より低かったこと、及び1人1日分の食事量の比較では都市部が 2.043 kg 、漁村部が 1.728 kg で有意差が認められたことが考えられる。なお、6月と11月の季節間の変動はみられなかった。

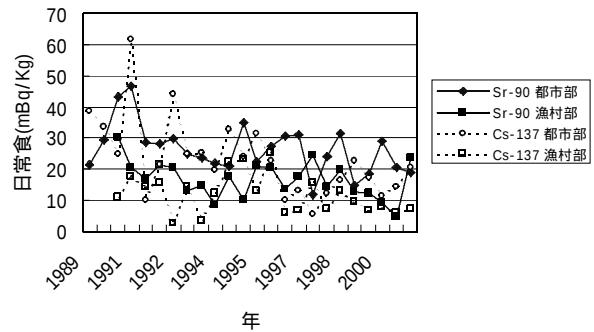


図2 日常食中の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 濃度

3・4 陸水

源水中の ^{90}Sr は $1.5 \sim 2.4 \text{ mBq/Kg}$ であった。また、 ^{137}Cs は検出されなかった。一方、蛇口水中の ^{90}Sr は $1.9 \sim 3.7 \text{ mBq/Kg}$ であった。 ^{137}Cs は源水と同様に検出されなかった。また、源水と蛇口水中の ^{90}Sr 濃度には有意差が認められた(図3)。陸水(源水、蛇口水)に ^{90}Sr は検出されるが ^{137}Cs は検出されない理由として、フォールアウトとして新たに供給されない近年では、 ^{137}Cs は土壌に強く吸着され、水系に流出しにくいと考えられる。また、源水と蛇口水中の ^{90}Sr 濃度には有意差が認められたのは、蛇口水は複数の水系から取水しているためと考えられる。

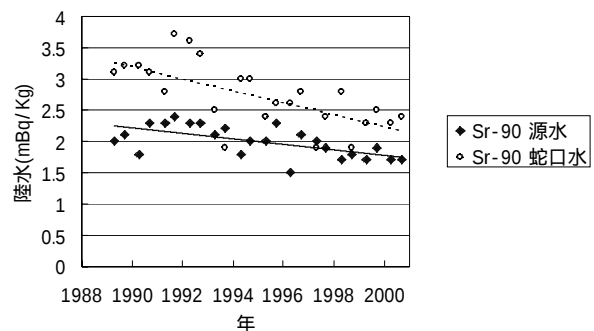


図3 陸水(源水、蛇口水)中の ^{90}Sr 濃度

3・5 海水、海底土

海水中の ^{90}Sr は $1.3 \sim 2.7 \text{ mBq/Kg}$ 、 ^{137}Cs は $2.1 \sim 4.1 \text{ mBq/Kg}$ であった。海底土からは ^{137}Cs が $1.1 \sim 3.3 \text{ Bq/kg}$ 検出さ

れたが、 ^{90}Sr は検出されなかった(図4)。 ^{137}Cs の海水から海底土への移行係数は平均730であった。 ^{90}Sr はイオン性が強く海水に良く溶解するため、海底土中には認められなかったと考えられる。

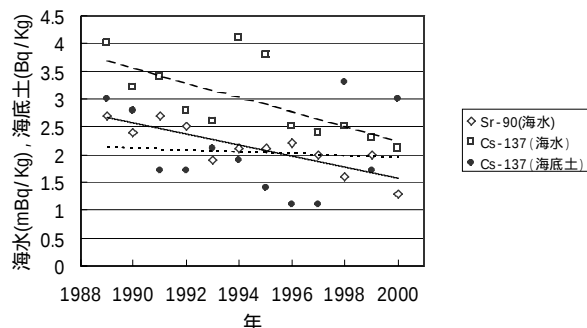


図4 海水、海底土中の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 濃度

3・6 環境中 ^{90}Sr 及び ^{137}Cs の分布

成層圏からの ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の降下が認められない現在の環境中での ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の分布を比較した。1989～2000年の平均 ^{90}Sr は土壌表層に5.3Bq/kg、下層に3.0Bq/kg、日常食に22mBq/kg、陸水中に2mBq/kg、海水中に2mBq/kg、海底土中はNDであった。一方、 ^{137}Cs 濃度の平均値は土壌表層に6.0Bq/kg、下層に1.5Bq/kg、日常食に18mBq/kg、陸水中はND、海水中に3mBq/kg、海底土中に2mBq/kgであった。

土壌中の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs はそれ以外の試料の数百倍から数千倍の濃度であった。このように、フォールアウトとして大気から降下した ^{90}Sr 、 ^{137}Cs は数十年を経た現在、土壌中に強く保持されており、環境中の分布は土壌中が圧倒的

に高かった。

4 まとめ

本調査は、環境中における ^{90}Sr 及び ^{137}Cs 濃度の分布を説明することを目的に、1989～2000年の土壌、食事及び水域中の濃度水準及び濃度推移を解析した。

1. 降下物中に検出された ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の頻度は低かった。
2. 土壌の分析結果では ^{90}Sr 、 ^{137}Cs に蓄積傾向が見られ、長期的な影響が認められた。また、表層土壌中 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 濃度に有意差はみられなかった。
3. 都市部と漁村部の日常食中 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs に有意差が認められた。
4. 陸水及び海水中の ^{90}Sr 濃度に有意差はみられなかった。また、陸水中に ^{137}Cs は検出されなかった。一方、海底土中に ^{90}Sr は検出されなかった。
5. 環境中の両核種の分布は、土壌中が圧倒的に高かった。

本調査にあたって永年 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 分析に携わって頂いた日本分析センターの担当者各位に厚くお礼申し上げます。

文献

- 1) 檜崎幸範，中山一成，加留部善晴：福岡県における環境放射能調査(1963年度～1990年度)，保健物理，28，325，1994
- 2) 科学技術庁(編)：環境試料採取法，放射能測定シリーズ16，1983，東京

資 料

泌川で観察されるBODの急激な変動について

志水 信弘，熊谷 博史，岩本 真二，奥迫 芳美*，桑名 由佳*

平成11年度から12年度にかけて，遠賀川水系河川の水質環境基準の類型見直しに係わる調査を行い，河川水質の現況予測を各河川について行った．この調査で泌川の水質調査地点において，BOD値が0.5から28mg/Lの間で大きく変動し，たびたび高いBOD値が観測され，河川水質の将来予測ができなかった．そこで，泌川において観察される高BOD値及び水質変動の実態を把握するために，平成13年度に詳細な水質調査及び負荷量調査を行った．

調査の結果は，泌川の泌大橋でのBOD濃度は1.7から32mg/Lの間で変動し，Cl⁻濃度の変動と傾向が類似していた．また，神崎大橋から泌大橋の間で，BOD負荷量は倍増し，イオン負荷量についてはNa⁺とCl⁻が等量モルで増加していた．

これらのことからBOD濃度を上昇させる有機汚濁質は，同時に塩化ナトリウムのような塩が含まれており，神崎大橋から泌大橋の間で流入していると推定された，また，この汚濁が塩を含むことから汚濁源が人為的なものと考えられたが，一般的な汚濁源の生活排水とは異なると推察された．

〔キーワード：BOD，Cl⁻濃度，負荷量，水質環境基準類型〕

1 調査背景

泌川は，田川市西部の船尾山に源を発し，糸田町，金田町を北に貫流し，中元寺川に合流する河川である．泌川については，平成11年度から12年度まで遠賀川水系河川における水質環境基準の類型見直しに係わる調査を行った．この調査期間に，水質調査地点（泌大橋）において図2に示すように，BOD値が大きく変動し，また直近下流の中元寺川，皆添橋での環境基準3mg/L（B類型）を超過したこともあった．このために，調査期間中のBOD75%値が極端に大きくなり，算出された実測排出負荷量（129.4 kg/日）が流域から流達予想される負荷量（97.7 kg/日）を超えていた¹⁾．

泌川のようなBOD値の急激な変動が確認される地点は，環境基準点としての妥当性を考慮するべきである．さら

に，このような水質変動の原因に対しては，適切な対策を講ずる必要がある．

そこで，泌川（泌大橋）で観測される水質変動の特徴を把握し，その原因を究明することを目的として，水質調査，および流域の負荷量調査を行った．

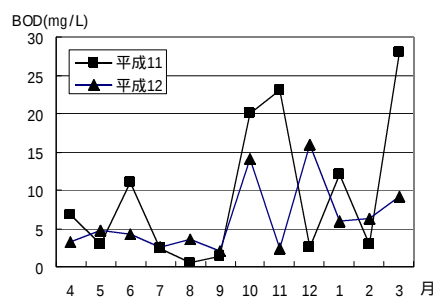


図2 泌大橋でのBOD値の経月変化

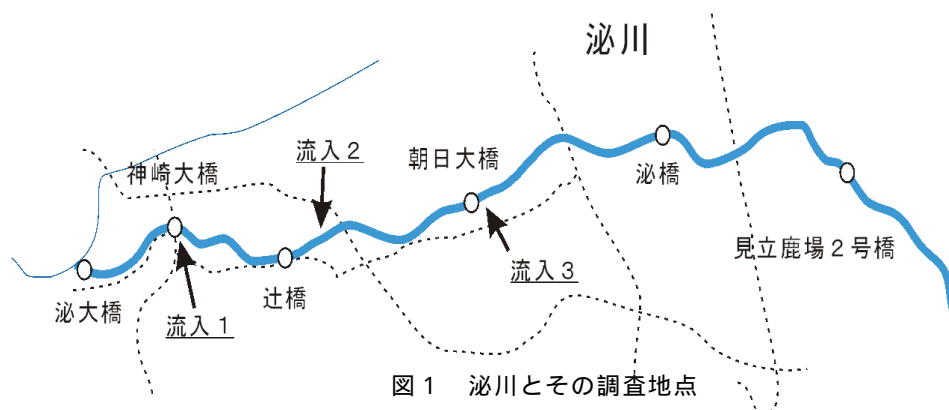


図1 泌川とその調査地点

* 福岡県環境部 環境保全課

2 調査方法

2・1 水質調査

泌川の水質特徴を把握するために、平成13年8月から平成14年2月まで水質調査を行った。水質調査地点は、泌川流末の泌大橋、泌川左岸から流入する流入1および直近下流の神崎大橋である。泌川の流程及び調査地点（丸印）を図1に示す。試料水は、ポリエチレンビンに1Lを採取した。また、上流の神崎大橋から下流の泌大橋の間までに存在する排水路などから流入が確認された時は、適宜試料水を採取した。試料水は、EC、pH、BOD、COD、SS、T-N、T-Pおよび F^- 、 Cl^- 、 NO_3^- 、 NO_2^- 、 SO_4^{2-} 、 Na^+ 、 NH_4^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} の各イオンを測定した。

2・2 河川負荷量調査

泌川における汚濁負荷の排出される流域を特定するため、河川負荷量調査を行った。上流から見立鹿場2号橋、泌橋、朝日大橋、辻橋、神崎大橋、泌大橋（図1の丸印）および流入路（図1の矢印で示す流入1から3）で、調査を行った。ポリエチレンビンに試料水1Lを採取し、水温及びDOを測定した。その後、流速を電磁流量計により、川幅及び水深をメジャーで測定し流量を算出した。試料水は、水質調査で測定したものと同一項目について測定した。

2・3 分析方法

EC、pH、BOD、COD、SS、T-N、T-Pは工場排水試験方法（JIS K0102）に従って分析した。イオン成分は、試料水を0.45mmのニトロセルロースフィルターで濾過後、イオンクロマトグラフ（IC-7000：横河電機）で定量した。

3 結果と考察

3・1 水質調査

調査期間内の主要項目の濃度変化についてBODは図3に、全窒素は図4、全リンは図5および Cl^- 、 SO_4^{2-} 濃度は図6に示す。

BODの泌大橋での変化は、以前と同様にかなり変動し、時には10mg/Lを超えることもあった。さらに、この変化は、CODの変化と対応していた。また、下流の泌大橋でBODが上昇しても、上流の神崎大橋では平常値であった（10月10日および12月14日）。一方、全窒素や全リンの濃度は、その変化があまりなく、上流の方が下流より高い濃度を示すこともあった。これらのことから、神崎大橋から泌大橋の間で、窒素やリンの含有が少ない有機汚濁が流入していると考えられた。イオン濃度の変化については、陽イオンは顕著な変化が認められなかった。しかし、陰イオンに関しては、泌大橋でのBOD濃度の変化に対応して Cl^- 濃度が上昇する傾向が見られた（10月10

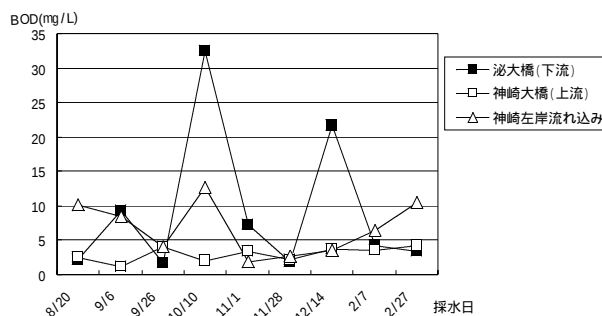


図3 調査期間のBOD濃度

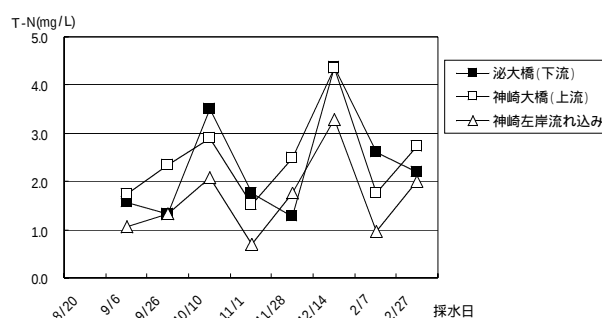


図4 調査期間の全窒素濃度

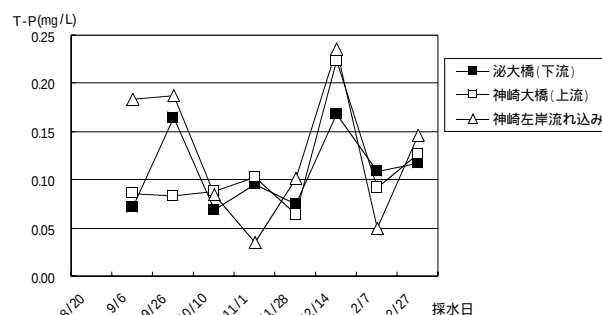


図5 調査期間の全リン濃度

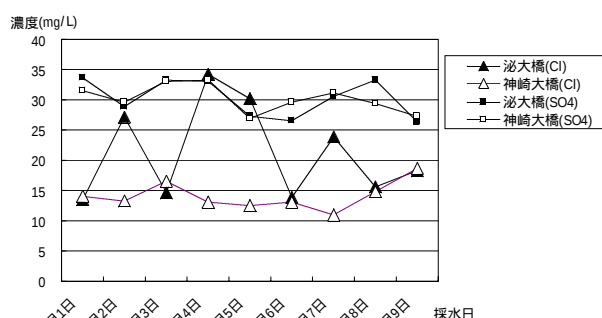


図6 調査期間の陰イオン濃度

日および12月14日）。上流部での Cl^- 濃度は約15mg/Lで一定しており、泌大橋での傾向と異なっていた。また、 SO_4^{2-} 濃度は泌大橋でも神崎大橋でも30mg/L前後で一定しており、泌大橋での Cl^- 濃度の傾向と異なっていた。このことから、BODなどの有機汚濁とともに Cl^- が、泌大橋 - 神崎大橋間で流入していることが推察された。

3・2 河川負荷量調査

各測定項目の濃度と流量から、各調査地点における日負荷量を計算した。この計算結果のグラフを、BOD、COD、全窒素および全リンについては図7に Na^+ 、 Ca^{2+} 、 Cl^- 、および SO_4^{2-} についてはモル換算値を図8に示す。

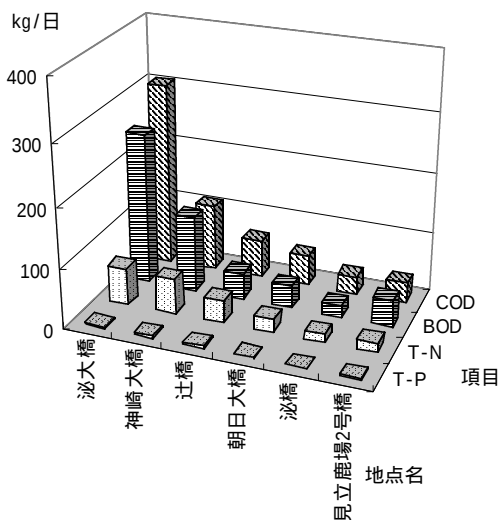


図7 各地点の負荷量

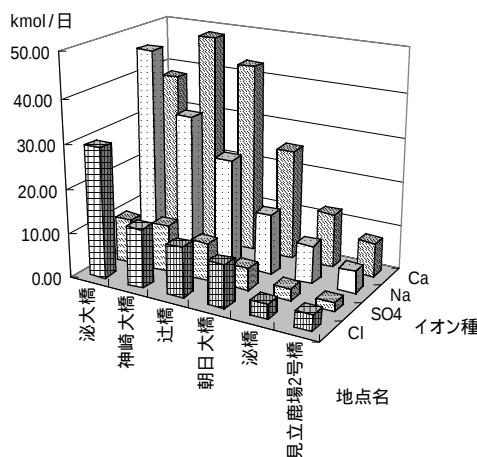


図8 各地点のイオン負荷量

図7に示すように泌大橋のBOD負荷量は、神崎大橋での約2倍になっていた。このことから、神崎大橋までの流域から排出される負荷量と同等の負荷量が神崎大橋－泌大橋の間で排出されていることが明らかとなった。このときの全窒素および全リン負荷量は、見立2号橋－泌大橋にかけて緩やかに増加しており、BODやCOD負荷量の増加パターンとは明らかに異なっていた。

イオン負荷量の変化は、 SO_4^{2-} 、 Ca^{2+} は流量増加に対応

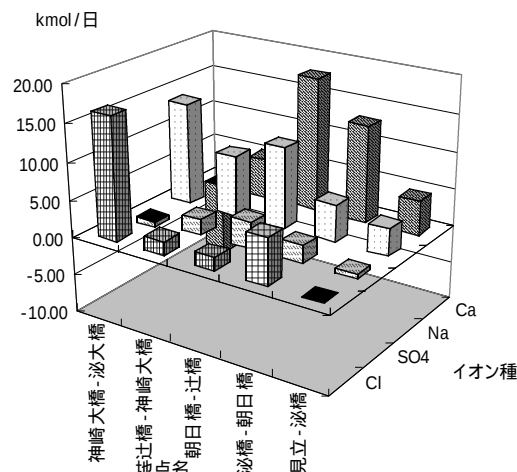


図9 各地点間のイオン負荷の増減量

して増加していた。一方、 Cl^- 、 Na^+ は、流量とは対応していない顕著な増加傾向があった。特に Cl^- イオンは、神崎大橋から泌大橋にかけて13.3kmol/日から29.6kmol/日に倍増している。そこで、各区間のイオン負荷量の増減を計算し、そのグラフを図9に示す。この図で示すように、 Cl^- イオンは神崎大橋から泌大橋にかけて増加しており、同時に Na^+ イオンが Cl^- イオンのほぼ等モル量増加していた。

4 まとめ

調査の結果をまとめると以下のとおりである。

泌川の泌大橋でのBOD濃度は1.7から32mg/Lの間で変動したが、この変動は上流の神崎大橋では観察されなかった。

泌大橋でのBOD濃度変動は、全窒素や全リン濃度の変動とは対応していないが、 Cl^- 濃度の変動と傾向が類似していた。

BOD負荷量は、神崎大橋から泌大橋の間で倍増したが、全窒素、全リン負荷量はほとんど変化がなかった。

イオン負荷量は、神崎大橋から泌大橋の間で Na^+ と Cl^- が等モルで増加していた。

これらのことから、BOD濃度を上昇させる有機汚濁質は、同時に塩化ナトリウムのような塩が含まれており、神崎大橋から泌大橋の間で流入していることが推察された。また、汚濁に塩が含まれると推定されることから、その汚濁源が人為的なものと考えられる。一般的な汚濁源の生活排水や浄化槽排水では、全窒素や全リンも同時に排出される^{2), 3)}。しかし、泌大橋ではこれらの顕著な増加が見られないことから、この汚濁源が生活排水とは異なるものと推察される。

このような推定の基に，周辺流域を地図上で調査したが，事業場などではなく，一般的な住宅街が広がっており，汚濁源を特定できていない．断続的かつ高濃度で少量の汚濁排出は，その発生源を特定することは難しい．泌大橋での通日採水調査と同時に周辺の排水調査を行い，引き続き原因の究明を行う予定である．

文献

- 1) 平成13年度遠賀川水系水質環境基準の類型見直しに関わる調査報告書
- 2) 生活雑排水対策調査（中間報告），生活雑排水対策調査検討会
- 3) 田中良春，小倉紀雄，用水と排水，20(10)，20-27，1978

資 料

生物同定試験検査結果(平成13年分)

緒方 健，山崎正敏，杉 泰昭

当所で窓口検査として行っている衛生害虫の生物同定試験の平成13年度分結果について記す．平成13年度に依頼された件数は47件で，食品中異物が過半数を占めていた．月別に見ると7,8月が最も多かったが，食品中異物については特にピークはなかった．

〔キーワード：衛生害虫，食品中異物，屋内害虫，皮膚掻痒原因虫〕

1 はじめに

当所では窓口検査として衛生害虫の生物同定試験を実施している．その内容について，衛生害虫の動向を知るための資料として記す．

2 試験検査方法

家屋や事業所内外で発生した昆虫や，食品中に異物として混入した昆虫等については，実体顕微鏡下で直接調べ同定した．なお，乾燥し体が縮んで観察が困難な検体については，10%水酸化カリウム溶液に数時間浸漬し，虫体を軟化させた後検鏡した．

室内じん(ごみ)中の皮膚掻痒原因ダニ類については，室内じんを篩別後，2～0.074mmの室内じんを対象にダーリング液懸濁遠沈法¹⁾を用いダニ類を抽出し，実体顕微鏡で直接鏡検またはプレパラート標本にした後生物顕微鏡で鏡検し同定した．

3 試験検査結果及び考察

平成13年度に依頼された生物同定試験検査は，表1に

示した47件で，その内容は，住居内外に発生した害虫6件，事業所内外に発生した害虫6件，食品中異物26件，皮膚掻痒原因虫検索9件であった．

図1に過去10年間の依頼件数の推移を示した．食品の安全性についての関心の高まりを反映して，近年食品中異物に関する検査が増加しており，平成12年度に続いて過半数を占めていた．また，住居内外に発生した害虫と事業所内外に発生した害虫とを比べると，近年では事業所からの害虫の比率が高くなってきている．事業所で発生した害虫の場合，ユスリカ科や翅アリなどの野外性の昆虫が燈火等に飛来し屋内に侵入した例が多いようである．また，食品中異物についても，菓子や貯穀中に発生したノシメマダラメイガやノコギリヒラタムシ等の貯蔵食品の害虫よりも，漬物や惣菜中に発見され，原料となる野菜や海草に付着して混入したと考えられるカメムシ類やアブラムシ，スナホリムシ科の1種等の農業害虫や海産無脊椎動物が混入し苦情原因となっている例が多かった．

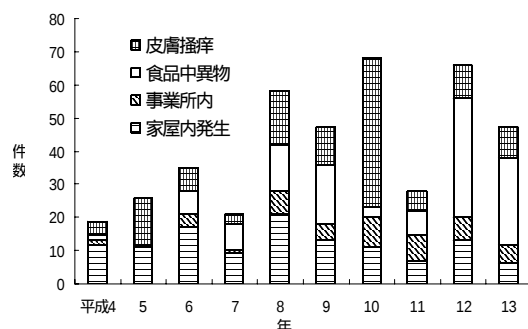


図1 過去10年間の依頼件数の推移

13年度に依頼を受けた件数を月別に見ると、総件数は7月が最も多く、次いで8月であった(図2)。皮膚掻痒原因虫検索は高温多湿の7,8月に集中し、住居や事業所内外に発生した害虫も夏季を中心に依頼が多かった。これに対して、食品中異物に関する依頼は特にピークはなかった。

文献

- 1) 宮本 旬子・大内 忠行：新築家屋，一般家屋での室内塵ダニ類の季節変動について，衛生動物，27(3)，251 - 259，1976。

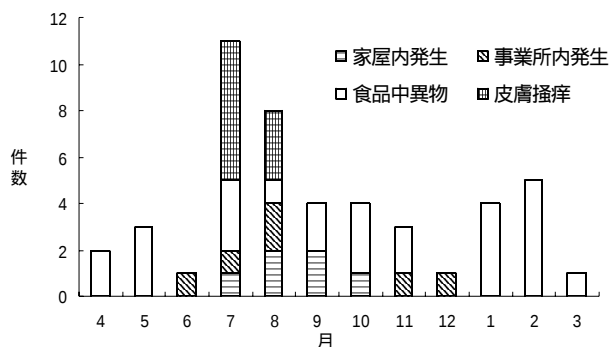


図2 平成13年度月別依頼件数の推移

表1 平成13年度生物同定試験検査結果

月	件数	種名	依頼理由
4	1	ハナアブ科の1種(蛹)	食品中異物
4	1	チーズバエ	食品中異物
5	1	ナトビハムシ	食品中異物
5	1	ミズミズ科の1種	食品中異物
5	1	セセリチョウ科の1種	食品中異物
6	1	マルガタゴミムシ	事業所内発生
7	3	ホコリダニ類・チリダニ類	皮膚掻痒
7	1	ノコギリヒラタムシ	食品中異物
7	2	チリダニ類・ミナミツメダニ・フトツメダニ	皮膚掻痒
7	1	メイガ科の1種	家屋内発生
7	1	ガイマイゴミムシダマシ	事業所内発生
7	1	ヒメイエバエ科の1種	食品中異物
7	1	ノシメダラメイガ	食品中異物
7	1	昆虫、ダニ検出せず	皮膚掻痒
8	1	タバコガ	食品中異物
8	1	カドコブホソヒラタムシ	家屋内発生
8	1	ヒラタチャタテ	家屋内発生
8	2	ハネナガヒシバツタ、ツマグロスケバ	事業所内発生
8	3	ヒワダニ類、イエササラダニ、ホコリダニ類、チリダニ類、ミナミツメダニ	皮膚掻痒
9	1	フタフシアリ亜科の1種	家屋内発生
9	1	ヒメカツオブシムシ	家屋内発生
9	2	クロゴキブリ、タバコシバンムシ	食品中異物
10	2	ノシメダラメイガ、シロシタヨトウ	食品中異物
10	1	コクヌストモドキ	家屋内発生
10	1	ハマベバエ	食品中異物
11	1	ノシメダラメイガ	食品中異物
11	1	ユスリカ科の1種	事業所内発生
11	1	アンダソンハエトリ	食品中異物
12	1	ヤマアリ亜科の1種	事業所内発生
1	1	ヤサイゾウムシ	食品中異物
1	1	クロバエ科の1種	食品中異物
1	1	キバガ科の1種	食品中異物
1	1	イエバエ	食品中異物
2	1	ノシメダラメイガ	食品中異物
2	1	スナホリムシ科の1種	食品中異物
2	1	スナホリムシ科の1種	食品中異物
2	1	モモアカアブラムシ	食品中異物
2	1	オオクモヘリカメムシ	食品中異物
3	1	クロバエ科の1種	食品中異物

発表論文抄録

1 Association between Blood Concentration of Polychlorinated Biphenyls and Manifestations of Symptoms and Signs in Chronic "Yusho" Patients from 1986 to 1997

Shoji Tokunaga*, Kyoichiro Kataoka: Fukuoka Acta Medica, 92(5), 122-133, 2001.

1986年から1997年までの12年間の全国油症患者追跡検診結果をもとに、認定患者について年度毎に自覚症状の有無と血中 PCB 濃度の間の関連を検討した。各年毎に内科・皮膚科・眼科の自覚症状の有/無所見を目的変数に、血中 PCB 濃度（対数変換値）を説明変数として性・年齢を調整した logistic 回帰分析を行った。皮膚科検診項目のうち黒色面皰（躯幹）とざ瘡様皮疹（外陰部と臀部）の有無所見率は血中 PCB 濃度と統計学的に有意な正の関連を示すことが12回の検診中5回以上で、他の症状に比べて特に多かった。これらの項目が血中 PCB 濃度と正の関連を示す傾向は、油症患者全国統一検診が開始されて以来減少が見られず、将来も継続すると予想される。

* Kyushu University

2 ICD-9死因分類からICD-10死因簡単分類への変換 片岡恭一郎，甲原隆矢，篠原志郎：福岡県保健環境研究所年報第28号，63-71，2001．

1993-1997年の死因別 SMR を計算するために ICD-9 と ICD-10の死因分類の変換について検討した。

その結果、ICD-9の簡単分類と ICD-10の死因簡単分類に共通して分類された死因は呼吸器結核（死因コード 1201）、心不全(9201)、他殺（20300）など38死因だった。これに子宮の悪性新生物(2113)及び脳内出血（9302）を加えた40死因が簡単分類法での変換が可能だった。これらの死因は全死因102分類中の39%を占めた。また、中間項目の25死因のうち、感染症及び寄生虫症（1000）、結核（1200）、ウイルス肝炎（1400）、心疾患（9200）、脳血管疾患（9300）、循環器系の疾患（9000）など15死因（全体の60%）も簡単分類法での変換が可能だった。一方、一致が不完全だった死因簡単分類の25死因と ICD-10から新たに死因簡単分類に取り上げられた37死因を加えた62死因及び中間項目の10死因は ICD-9の原死因基本分類から ICD-10の死因簡単分類への変換が必要だった。

3 地球観測衛星データの環境分野における利用 - 地域スケールの衛星リモートセンシング -

大久保彰人：環境管理，30，34-43，2001.

福岡県域を対象とした地域スケールの衛星リモートセンシング解析として、土地被覆分類、土壌水分の推定および温暖化に関連した二酸化炭素吸収源評価について述べた。まず、リモートセンシングの原理およびその環境分野における利用についてまとめた。そして、土地被覆分類の手法、地表面粗さを補正した土壌水分の推定および森林植生の変化抽出について述べた。特に、吸収源評価のための森林植生における変化抽出の解析では、マイクロ波のレーダデータにより、樹高の変化を抽出可能かどうかを、多時期のデータを使って試した結果を紹介した。

4 防音壁の遮音性能に及ぼす音源指向性の影響

松本源生，藤原恭司*，尾本章*：日本音響学会誌，57（4），272-281，2001．

騒音制御に有効な手段として広く用いられる遮音壁に関して、その減音効果は 前川チャートに代表されるように騒音源の音響放射が全ての方向に一樣な無指向性音源と仮定して算出されている。しかしながら、実在する騒音源の音響放射には指向性がある。本研究では音響放射の指向特性を考慮して、現在用いられているものより優れた減音効果の評価方法を確立した。建造物などの大きさを無視できない指向性音源に対しては、減音効果を精度良く算出する数値計算モデルを開発し、音源としての大きさが無視できる指向性音源に対しては、減音効果の近似算出方法を開発した。

* 九州芸術工科大学

5 Directivity of the sound radiated from a factory building

Gensei Matsumoto, Kyoji Fujiwara* and Akira Omoto*
Acoustical Science and Technology, 22(6), 434-436, 2001.

建物等の固定音源による音響放射について、音響理論を用いた数値計算により建物周辺の指向特性を求める簡易な計算手法を開発した。この手法を用いた計算結果と1/10縮尺模型実験結果との対比をおこない、手法の妥当性を証明した。更に、建物屋根よりも側壁に強度の大きな建築材料を用いた場合、音響放射は垂直方向に強くなることを数値計算により明らかにした。

* Kyushu Institute of Design

6 活性アルミナ吸着法を用いた飲用地下水中のヒ素除去

石黒靖尚, 鳥羽峰樹, 近藤紘之, 松本尚久^{*1}, 井上剛^{*1}, 堀ノ内和夫^{*2}, 芦谷敏夫^{*2}: 資源環境対策, 37(14), 1451-1458, 2001.

ヒ素濃度が基準値を超過している原水を水源とする小規模水道に設置された、活性アルミナによるヒ素除去施設について、その処理状況を平成9年7月～11年2月にかけて調査した。その結果、原水のヒ素濃度は0.037～0.082mg/lであったが、ヒ素の除去率約96.2%で、No.2吸着塔出口において約480日間基準値を超過することなく処理されていた。また、活性アルミナの実験結果から、活性アルミナはヒ素と同様にリンに対しても強い吸着力を持つため濃度が高い場合は拮抗的に妨害すること、一方、ケイ素は殆ど除去されず素通りの状態であったが、ヒ素と比較して濃度が非常に高いため、活性アルミナ粒子の内部まで吸着しており、ヒ素の内部への侵入を妨害している可能性が示唆された。

*1 福岡県南広域水道企業団

*2 住友化学工業(株)

7 公害防止管理者試験 よく出るダイオキシン類問題

三宅正志^{*1}, 姫野清^{*2}, 飯田隆雄: よく出るダイオキシン類問題, オーム社(東京), 1-228, 2001.

ダイオキシン類特別措置法の施行に伴い、特定工場における公害防止組織の整備に関する法律(管理者法)にダイオキシン類の公害防止管理者が追加された。本著は公害防止管理者の資格取得を目指す者を対象として、受験準備を効果的に進めるのに役立つように作成されている。4章構成で、第1章: 公害概論では、ダイオキシン類に関する高度な知見を紹介し、第2章: ダイオキシン類関係法令では、関係法令を体系的に整理し詳解した。第3章: ダイオキシン類の排出防止・処理技術では、処理技術の現状を詳解した。第4章ダイオキシン類関係測定技術では、原理及び具体的な測定方法について解説した。受験者の理解度を確認できるように各章には演習問題及び予想問題を掲載した。

*1 三宅技術士事務所

*2 DyStar UK 研究所

8 Effect of Dioxin in Mother's Milk on Sister Chlorinated Exchange Frequency in Infant Lymphocytes
Junya Nagayama^{*1}, Mayumi Nagayama^{*1}, Takao Iida, Hironori Hirakawa, Takahiro Matsueda, Takashi Yanagawa^{*1} and Jun'ichiro Fukushima^{*2}: Fukuoka Acta Med, 92(5), 177-183, 2001.

総合的で、鋭敏な遺伝毒性の指標である姉妹染色分体交換(Sister chromatid exchange, SCEs)頻度を生後1年前後の乳児の血液リンパ球細胞を用いて調べた。母乳を汚染しているダイオキシン類の遺伝毒性を評価するために、乳児の血液リンパ球細胞のSCEs頻度との関連性を調べた。その結果、ダイオキシン類はいずれのSCEs頻度とも有意の関連性を示さなかった。このことから、母乳を汚染しているダイオキシン類は生後1年前後の乳児の血液リンパ球細胞のSCEsを誘発するような遺伝毒性を生じないと考えられた。

*1 Kyushu University

*2 Fukuoka Children's Hospital

9 乳酸菌 *Lactococcus lactis* IO-1 が産生するバクテリオシン・ナisin Z の抗菌活性

田中義人^{*}, 堀川和美, 中山 宏, 塚谷裕子, 北森成治: 福岡県保健環境研究所年報第28号, 95-100, 2001.

乳酸菌 *Lactococcus lactis* IO-1 が産生するバクテリオシン・ナisin Z の腸管系病原微生物に対する抗菌活性を検討した。その結果, ナisin Z は液体培地及び寒天培地中において, グラム陰性菌には抗菌活性を示さなかったが, グラム陽性の黄色ブドウ球菌, セレウス菌, ボツリヌス菌及びウエルシュ菌に対して 25 IU/ml - 800 IU/ml で抗菌活性を示すことが明らかになった。また, その抗菌性は EDTA や市販の抗菌剤と併用することにより, 活性の増加及び補完効果が見られた。ナisin Z は乳酸菌が産生する抗菌性のペプチドで, 人体に影響がなく, かつ, 食品の味や風味に影響を与えないことから食品への利用が期待される。

* 環境部環境政策課

10 新しい試験菌株を用いたエームス試験の有用性について - 255化学物質についての検討 -

世良暢之, 塚谷裕子, 志水信弘, 田中義人^{*1}, 北森成治, 内海英雄^{*2}: 福岡県保健環境研究所年報第28号, 72-76, 2001.

従来から用いられている試験菌株 (TA98, TA100 など) に加え, 新しい試験菌株 (YG1041, YG1042, YG3003, YG7108など) を用いてエームス試験を行った。両菌株の感受性, 選択性及び操作性を調べるため, 255化学物質について検討した。その結果, 従来株にニトロ還元酵素や *O*-アセチル転移酵素を導入した新しい試験菌株は, 従来株より高感受性で, ニトロ化合物, アミノ化合物, 酸化型変異原やアルキル化剤に選択的に変異原性を示した。また, 代謝活性化法として古くから用いられているチトクローム P450酵素を誘導したラット肝臓と比較する意味で, 人由来肝臓を用いて検討を行った。その結果, 人由来肝臓を用いた代謝活性化系においても変異原性を測定できることが明らかとなった。

*1 環境部環境政策課

*2 九州大学

11 簡易生物評価法の開発と問題点 8-ヒドロキシグアニン試験について

世良暢之, 志水信弘, 塚谷裕子, 田中義人^{*1}, 北森成治, 内海英雄^{*2}: 福岡県保健環境研究所年報第28号, 77-82, 2001.

活性酸素による DNA 障害を測定する指標として, グアニン塩基の損傷産物である8-ヒドロキシグアニン (8-OH-Gua) がある。8-OH-Gua は従来高価な機器である高速液体クロマトグラフ (HPLC) で測定されていたが, 8-OH-Gua のモノクローナル抗体を作成し, 競合的酵素免疫測定法 (ELISA) で測定する簡易な代替法を考案した。この ELISA は HPLC とよい相関を示し ($r^2=0.91$), 10nM ~ 1mM の幅広い範囲の8-OH-Gua を測定できた。またこの ELISA を応用して抗変異原物質について検討したところ, ルテオリン, モリン, ミリセチンなどが8-OH-Gua の生成を抑制することが明らかとなった。

*1 環境部環境政策課

*2 九州大学

12 Environmental survey of salmonella and comparison of genotypic character with human isolates in Western Japan

Koichi Murakami, Kazumi Horikawa, Toshihiro Ito^{*}, Koichi Otsuki^{*}: Epidemiol. Infect., 126, 159-171, 2001.

サルモネラの生態を把握するため, 1995年から1998年にかけて, 様々な試料におけるサルモネラ汚染状況を検討した。鶏肉生産関連環境では *S. Infantis* が主な血清型であった。これに対し, サルモネラ・エンテリティディスサルモネラ・インファンティス (*S. Enteritidis*) は鶏卵生産環境に非常に偏って存在していた。パルスフィールド・ゲル電気泳動法による 134株のサルモネラ・エンテリティディス (*S. Enteritidis*) のパルスフィールド・プロファイルは18の型に分類された。このうち, 鶏卵選別場および産卵軽養鶏場の鶏糞から分離された 34株は, 1997年に福岡県で発生した食中毒と同様の型を持つ株であった。これらのことは, 一つの限られた, 遺伝型を有する *S. Enteritidis* が産卵鶏という保有体に, 変異をすることなく, 長期間存在し, 西日本において食中毒を起こし続けてきたことを意味する。このような結果は, サルモネラの分布と食中毒発生の機構の解明において有意義な発見である。

* Tottori University

13 Degradation of dioxins in contaminated environment by white rot fungus

Satoshi Takada: The Waksman Foudation of Japan Inc.

2000, 192-194, 2001.

白色腐朽菌によってダイオキシンが分解されることを明らかにしたが、その白色腐朽菌は長期間の保存によって、分解能力が低下することが判明した。この研究では白色腐朽菌のなかで代表的な菌株である *Phanerochaete chrysosporium* を用いて、その分解能力を回復する方法を検討した。その結果、保存株をビタミン B₁ 及びアスパラギンを含むポテトデキストロース寒天培地に植継ことによって分解能力が回復することが分かった。また、ダイオキシンの四及び八塩化物を用いて代謝物の検索を行った結果、ダイオキシン骨格のエーテル結合が開裂した化合物が確認できた。更に、白色腐朽菌をダイオキシンで汚染された土壌修復に用いるため、その基質について検討し、木粉と米ぬかの組み合わせが最もよかった。

14 A 型インフルエンザウイルスに対する塩酸アマンタジン使用の問題点

辻克郎^{*1}, 岩橋潤^{*1}, 今村宣寛^{*1}, 吉本静志^{*2}, 梶原淳睦, 石橋哲也, 森良一, 山田達夫^{*3}, 豊田哲也^{*1}: ウイルス, 51(2), 135-141, 2001.

A 型インフルエンザウイルスは高齢者においてはしばしば肺炎を併発し、致死率も高い。その対策として、ワクチンの他にアマンタジンが注目されるようになった。アマンタジンはこれまで脳梗塞後遺症による抑うつ及びパーキンソン病（症候群）の治療として、広く用いられている。そこで、アマンタジンのインフルエンザウイルス感染予防効果と耐性ウイルスの発生について高齢者を対象に調査を行った。その結果、アマンタジンの A 型インフルエンザウイルス感染に対する予防効果は認められるが、既に耐性ウイルスが存在することが示唆された。これはもともとアマンタジンは予防的投与の方が効果的であるのに治療的投与を行っていることに無理があると思われる。今後も耐性ウイルス発生に対する監視が必要であると思われる。

*1 久留米大学

*2 嬉野温泉病院

*3 福岡大学

15 Isolation of Amantadine-Resistant Influenza A Viruses (H3N2) from Patients Following Administration of Amantadine in Japan.

Jun Iwahashi^{*}, Katsuro Tsuji^{*}, Tetsuya Ishibashi, Jumboku Kajiware, Yoshihiro Imamura^{*}, Ryoichi Mori, Koya Hara^{*}, Takahito Kashiwagi^{*}, Yasushi Ohtsu^{*}, Nobuyuki Hamada^{*}, Hisao Maeda^{*}, Michiko Toyoda^{*} and Tetsuya Toyoda^{*}: J. Clin. Microbiol., 39(4), 1652-1653, 2001.

日本では1998年11月まではインフルエンザ A 型の治療に対するアマンタジンの使用は認められていなかったが、パーキンソン病の治療薬として広く使用されていた。この間、我々はアマンタジン耐性インフルエンザ A 型ウイルスの出現を監視し、長期間アマンタジン服用患者より2株の耐性ウイルスを分離した。

* Kurume University

16 HIV 感染者に対する多剤併用療法による高ガンマグロブリン血症の改善についての検討

鄭湧^{*1}, 池松秀之^{*2}, 山本政弘^{*3}, 千々和勝己, 有山巖^{*1}, 李文^{*1}, 林純^{*1}, 白井洸^{*2}, 柏木征三郎^{*3}: 感染症学雑誌, 75, 535-540, 2001.

HIV 感染者における HIV の増殖と高ガンマグロブリン血症との関連について検討するために、未治療群、多剤併用療法後ウイルス消失群、多剤併用療法後ウイルスの残存群について、ガンマグロブリン分画、IgM, IgG, IgA, IgE 値を測定した。その結果、カンマグロブリン分画はウイルス消失群において有意に低かった。イソタイプ別にみると、IgG 値はウイルス消失群で有意に低かった。また、ガンマグロブリン値が、未治療群では上昇し、ウイルス消失群では改善していることから、HIV の増殖と高ガンマグロブリン血症は、密接に関連すると考えられた。

*1 九州大学

*2 医療法人原土井病院

*3 国立病院九州医療センター

17 Surveillance of Poliovirus-Isolates in Japan, 2000

Tetsuo Yoneyama^{*1}, Kennji Sakae^{*2}, Junniti Baba^{*3}, Takashi Nakayama^{*4}, Katsumi Chijiwa, Kazuhiro Kizoe^{*5}, Hideaki Shimizu^{*6}, Setsuko Iizuka^{*7}, Tohru Ishizaki^{*8}, Reiko Kondo^{*9} and Tatsuo Miyamura^{*1} : Jpn.J.Infect.Dis. 54,80-82, 2001.

2000年に、全国9府県で12株のポリオウィルスが分離された。そのうち9株は、一過性の麻痺等の症状を示した患者から分離され、3株は健康者から分離された。これらの株は、国立感染症研究所で RFLP 法で検討された結果、すべてワクチン由来株であることが確認された。2000年10月に WHO は西太平洋地区からのポリオウィルスの根絶を宣言したが、世界からポリオウィルスが根絶されるまで、このようなポリオウィルスのサーベイランスを日本国内でも継続しなければならない。

*1 国立感染症研究所

*2 愛知県衛生研究所

*3 福岡市保健環境研究所

*4 富山県衛生研究所

*5 宮崎県衛生環境研究所

*6 川崎市衛生研究所

*7 島根県保健環境科学研究所

*8 京都府保健環境研究所

*9 愛媛県立衛生環境研究所

18 Chlorophyll derived from Chlorella inhibits dioxin absorption from the gastrointestinal tract and accelerates dioxin excretion in Rats

Kunimasa Morita, Masahiro Ogata^{*} and Takashi Hasegawa^{*} : Environmental Health Perspectives, 109, 289-294, 2001.

クロロフィルをラットに投与し、食品経由のダイオキシン類（17種類）の吸収抑制に及ぼす効果を検討した。0.01～0.5%のクロロフィル食を投与した結果、毒性が高い2,3,7,8-TCDD 及び2,3,4,7,8-PentaCDF の糞中排泄量はコントロール食と比べて、それぞれ1.6～14.1倍、1.7～15.6倍増加した。クロロフィル投与量を0.01%から0.5%に増加するに伴って、ダイオキシン類の糞中排泄量は増加した。ダイオキシン類投与5日後の PCDD 及び PCDF の体内量はコントロール食と比べて、それぞれ3.5-50.0 %, 3.7-41.7 %低下した。クロロフィルは食品経由のダイオキシン類の消化管吸収を抑制し、糞中への排泄を助長し、ダイオキシン類の体内蓄積を防ぐ効果があることを明らかにした。

* Chlorella Industry Company

19 茶のダイオキシン排泄促進作用

森田邦正: 茶の機能 - 生体機能の新たな可能性 -, 学会出版センター, 294-298, 2002.

食品経由のダイオキシンの消化管吸収を抑制し排泄促進させる実験を緑茶を用いて行った。ダイオキシンが混入した油症原因ラيسオイル0.5 ml を4 g のコントロール食及び10%緑茶食に1回添加し、ラットに投与した。その結果、緑茶食群のラットの飼料摂取量、体重増加量及び肝臓重量はコントロール食群と比べて特に影響はみられなかった。緑茶食群のダイオキシンの糞中排泄量は、コントロール食群と比べて1,2,3,7,8-PentaCDD, 1,2,3,4,7,8-HexaCDD, 1,2,3,6,7,8-HexaCDD, 1,2,3,7,8,9-HexaCDD がそれぞれ4.7, 3.7, 3.6, 3.5倍増加し、2,3,7,8-TCDF, 1,2,3,7,8-PentaCDF, 2,3,4,7,8-PentaCDF, 1,2,3,4,7,8-HexaCDF がそれぞれ9.0, 9.1, 6.5, 4.6倍増加した。ダイオキシン投与5日後のラット肝臓中のダイオキシン分布量は、緑茶食群の1,2,3,7,8-PentaCDD が33%, 2,3,4,7,8-PentaCDF が25%コントロール食群と比べて低下した。緑茶はダイオキシンの消化管吸収を抑制し、糞中への排泄を助長し肝臓蓄積を防ぐ効果あることを明らかにした。

20 Seaweed accelerates the excretion of dioxin stored in rats

Kunimasa Morita and Takahisa Nakano^{*} : Journal of Agricultural and Food Chemistry, 50, 910-917, 2002.

海藻類（わかめ、ひじき、こんぶ）を用いて、ダイオキシン類（17種類）の消化管吸収抑制及び再吸収抑制に及ぼす効果をラットで検討した。ダイオキシン類を海藻食に添加し吸収抑制実験を行った結果、10%わかめ食群のダイオキシン類の糞中排泄量は毒性が高い2,3,7,8-TCDD, 1,2,3,7,8-pentaCDD 及び2,3,4,7,8-PentaCDF がそれぞれ2.8, 4.0, 3.7倍、コントロール食と比べて増加した。海藻類は食品経由のダイオキシン類の消化管吸収を抑制し、糞中への排泄を助長し、体内蓄積を防ぐ効果があることを明らかにした。再吸収抑制実験を行った結果、わかめ食群の糞中排泄量はコントロール食と比べて2,3,7,8-TCDD, 1,2,3,7,8-pentaCDD 及び2,3,4,7,8-PentaCDF がそれぞれ1.7, 1.8, 2.0倍増加した。海藻類は消化管壁から消化管内に分泌されたダイオキシン類の再吸収を抑制し、糞中に排泄促進する効果があることを明らかにした。

* Riken Vitamin Company

21 Effects of cooking on concentrations of Polychlorinated dibenzo-p-dioxins and related compounds in green leafy vegetable “ Komatsuna ”

Tsuguhide Hori, Reiko Nakagawa, Kazuhiro Tobiishi, Takao Iida, Tomoaki Tsutsumi*, Kumiko Sasaki* and Masatake Toyoda*: Journal of the Food hygienics Society of Japan, 42, 339-342, 2001.

小松菜中のダイオキシン類濃度に対する調理の効果調べた。生産者より直接購入した小松菜を用いて、水洗いと煮沸操作を行い、調理前後のダイオキシン類29異性体の濃度を比較した。小松菜に含まれるダイオキシン類の2,3,7,8-TeCDD 毒性当量 (TEQ) は、水洗いによって平均0.058pgTEQ/g から平均0.026pgTEQ/g へ、引き続き煮沸操作により平均0.019pgTEQ/g へと減少した。PCDDs 及び PCDFs 濃度の減少度はコプラナー PCBs のそれと比較して明らかに大きかった。日常の調理操作の過程で緑色野菜に残留するダイオキシン類は減少することが示された。

* National Institute of Health Sciences

22 油症患者血中ダイオキシン類レベルの追跡調査 (1998年～1999年)

竹中重幸, 平川博仙, 中村又善, 中川礼子, 飯田隆雄, 戸高尊*: 福岡医学雑誌, 92(5), 139-148, 2001.

油症患者血中の総 PCDFs 濃度は PCB パターンがCの患者を除き、依然高いレベルにあることがわかった。特に、2,3,4,7,8-PeCDF, 1,2,3,4,7,8-HxCDF, 1,2,3,6,7,8-CDF および3,3',4,4'-PCB は PCB パターン別にみると、各群間で有意な差(p<0.01)を認めた。PCB パターンがAの典型的な油症患者群では、1998年の平均はPCDDs が21pg-TEQ/g lipid, PCDFs が206pg-TEQ/g lipid, non-ortho PCBs が14pg-TEQ/g lipid であった。1999年の平均はそれぞれ、30, 308, 14pg-TEQ/g lipid で、PCDFs の毒性寄与率は依然として高く、C パターンの患者群の平均値は一般人と比べ、有意な差を認めなかった。しかし、中にはAパターンの患者並みのPCDFs 毒性寄与率を持つ患者も診られた。

*(社)日本食品衛生協会

23 Update of daily Intake of PCDDs, PCDFs, and dioxin-like PCBs from food in Japan

Tomoaki Tsutsumi*¹, Toshihiko Yanagi*², Munetomo Nakamura*², Yoichi Kono*², Hiroyasu Uchibe*², Takao Iida, Tsuguhide Hori, Reiko Nakagawa, Kazuhiro Tobiishi, Rieko Matauda*¹, Kumiko Sasaki*¹ and Masatake Toyoda*¹: Chemosphere, 45, 1129-1137, 2001.

1999年及び2000年に日本国内16地域で採取、調製したトータルダイエット試料中のダイオキシン類29異性体を分析し、食事経路のダイオキシン類摂取状況を調べた。未検出の異性体濃度をゼロとして計算した場合、平均摂取量は2.25pgTEQ/kg 体重/日、未検出の異性体濃度に検出限界の1/2を当てはめた場合は3.22 pgTEQ/kg 体重/日であった。これらの値はいずれも耐容1日摂取量を下回っている。摂取量全体に対し最も寄与の高いのは魚介類(76.9%)であり、次いで肉・卵類(15.5%)であった。総摂取量に対する同族体別の寄与をみるとダイオキシン様 PCB が摂取量全体の約50%を占めていた。

*1 National Institute of Health Sciences

*2 Japan Food Research Laboratories

24 アセトニトリル/水抽出 - 固相抽出管精製による残留農薬の簡易分析法

中川礼子: 福岡県保健環境研究所年報第28号, 83-88, 2001.

日常的に使用しうる農薬の一斉分析法として、アセトニトリル/水抽出-固相抽出管精製による残留農薬の簡易分析法を検討した。検討した対象農薬は有機リン系19種、有機塩素系13種及び有機窒素系13種の計45種であり、添加回収実験での対象農作物はイチゴ、カボチャ、玄米の3品目で、その平行回数はn=5で実施した。塩素系農薬のTPN、リン系農薬のDDVP、エトリムホス、フェンチオン、窒素系農薬のカルバリル、フェナリモルについては、農作物によって回収率が規定の70-120%をはずれる場合もあったが、その他は概ね良好な結果を得た。本法によって1人1.5日(10-12時間)で8件の前処理、測定及び解析が可能である。

25 高活性炭素繊維を用いた沿道排ガス削減技術に関する調査

下原孝章，力 寿雄，中村又善：福岡県保健環境研究所年報第28号，89-94，2001.

ピッチ系の炭素繊維である OG20A を不活性ガス中で 1100 で焼成した OG20A-H1100 及び PAN 系を 800 で焼成した FE300-H800 を用いて環境大気浄化への応用を検討した．これら高活性炭素繊維 (ACF) の二酸化窒素に対する吸着，除去能は非常に高く，各 0.1g の ACF で，20ppm の二酸化窒素を 16～18 時間，吸着，除去できた．この時，二酸化窒素の吸着に伴い，その半分量の一酸化窒素を ACF から排出する不均化反応が観察された．FE300-H800 では不均化反応により一酸化窒素が排出される現象が認められない時間（完全脱硝時間）が約 1 時間観察された．ACF は標準ガス以外に，実際の環境大気中の二酸化窒素，二酸化硫黄に対しても高い吸着活性が認められた．仮に，1kg の OG20A-H1100 あるいは FE300-H800 の ACF を用い，平均 50ppb の二酸化窒素を含む環境空気を流速 6m/分 で採気した場合，このシート 1 枚で約 270～300 日間，二酸化窒素を吸着し続けることが推測された．6 m/分の速い採気流速であっても，二酸化窒素，二酸化硫黄以外に，ベンゼン，トルエン，トリクロロエチレン等及び揮発性有機化学物質類を吸着，除去する能力に優れていることが分かった．

26 茶抽出液によるアオコ増殖抑制への効果

笹尾敦子，松尾 宏，田中義人*：陸水学雑誌，62(2)，115-122，2001.

茶の抽出液により，アオコ発生の制御の試験を試みた．茶の抽出液（風乾した茶葉 1g に 100mL の水を加え，120，15 分間オートクレーブした液．この溶液の濃度は 10g/L で表す）でアオコの原因藻類の 1 つである *Microcystis aeruginosa* の増殖阻害試験を行った．その結果，5day-EC₅₀ が 7.7mg/L で，茶の抽出液が *M. aeruginosa* の増殖阻害に有効であることが明らかになった．また，同様に緑藻類の *Selenastrum capricornutum* に対しても 3day-EC₅₀ は 10.8mg/L で *M. aeruginosa* と近い値を得た．この EC₅₀ ではミジンコ及びヌカエビの生育阻害は起こらないので（48hr.-LC₅₀，4day-LC₅₀ はいずれも約 430mg/L），茶抽出液による藻類増殖阻害は自然界の動物に対する影響は少ないと考えられた．

* 環境部環境政策課

27 Determination of ppt levels of atmospheric volatile organic compounds in Yakushima, a remote south-west island of Japan

Minoru Koga^{*1}，Yoshifumi Hanada^{*2}，Junlin Zhu^{*1} and Osamu Nagafuchi: Microchemical Journal，68，257-264，2001.

大気中の ppt レベルの VOCs 濃度を検出するために分析方法を改善した．分析方法は US-EPA の TO-14 を基にした．ターゲットにした化合物はフロン類（4 種），ベンゼン及び誘導体（14 種），ハロゲン化炭化水素（20 種）である．ターゲットにした化合物のこの方法での検出限界は 0.016-0.040ppb (0.06-0.23μg/m³) の範囲であった．回収率は 77-113% であり，変動係数は 3.0-9.0% であった．試料大気は 200kPa の窒素ガスで加圧した後，少なくとも 14 日間は安定であった．屋久島の大気中 VOCs を測定するためにこの方法を応用した．その結果，屋久島の大気中 VOCs はローカルな汚染でないことが明らかになった．

*1 Kumamoto pref. University

*2 Kitakyushu Ins. Env.

28 水環境の管理と分析上の課題

永淵修，沼辺明博*：水環境学会誌，24，499-503，2001.

水環境の管理と分析上の課題ということで，(1) 地方自治体における常時監視と環境調査の変遷，(2) 環境分析の現状と課題，(3) 新たな環境監視システムの必要性，(4) データ管理とその活用について記述し，今後，規制項目がどのように変遷していくか予想が立たないが，問題となる物質を一つ一つ規制し，監視していく方法は早晚行き詰まるであろうことは予想される．そのためには，パイオアッセイのような総合的水質評価手法の導入が不可欠になるであろう．そして総合指標で影響の可能性が示された試料について，その原因物質を検索し，改善を図るという手法も必要となろう．いずれにしても，環境の測定結果も含め多くの情報が自由に利用・解析できるように公開され，有効に活用されることが望まれる．

* 北海道環境科学研究センター

29 除草剤ダイムロンの水田からの流出特性

永淵修，海老瀬潜一^{*1}，浮田正夫^{*2}，井上隆信^{*3}：水環境学会誌，24,325-330，2001.

水田散布農薬の環境への流出特性を明らかにするため試験水田において除草剤ダイムロンの田面水，土壌水中濃度の経日変化を調査した．ダイムロンは散布後1日で最大濃度に達し，その後一次反応速度式に近似して濃度減少を示した．また，田面水中ダイムロン濃度は降雨毎に濃度が上昇し，水・土壌間の吸脱着が示唆された．土壌水中濃度は田面水中濃度に比較して濃度ピークに時間差が認められ，散布後10-14日後に最大濃度に到達した．表面流出量は田面水濃度と表面流出水量から，溶脱量は土壌水濃度（70cm）と降下浸透量から推測した．その結果，溶脱量は0.31%，表面流出量は33.0%であり，標記農薬は大部分表面流出で水田から流出することが明らかになった．

*1 摂南大学

*2 山口大学

*3 岐阜大学

30 水田における無機態窒素（TIN）の浸透流出モデルに関する研究

Elshat Rahim^{*1}，永淵修，柿本大典^{*2}，史秀華^{*3}，浮田正夫^{*3}：水環境学会誌，24，619-625，2001.

本研究は，試験水田を対象に肥料成分（無機態窒素：TIN）の変化移動機構をモデル化し，調査データを用いて，試験水田における肥料成分の浸透流出特性を再現しようとしたものである．構築したモデルは水田における有機物の分解，土壌の吸脱着，稲の吸収，脱窒およびパラメータにより有機物質の分解，施肥の溶解・拡散などを考慮し，作付け期間中の TIN 濃度の浸透流出を推定した．計算結果に関し70cm 深の間隙水 TIN 濃度実測値と比較を行った．その結果はほぼ70cm 深の間隙水 TIN 濃度を再現することができ，構築したモデルは水田肥料成分流出の推定に利用できる．また，モデルによる制定した浸透負荷量は30.6kg/haであり，作付け期間施肥量（103kg/ha）の約30%であった．

*1 西日本技術開発（株）

*2 （財）九州環境管理協会

*3 山口大学

31 空間ガンマ線量率への黄砂の影響

檜崎幸範，加留部善晴^{*}，保健物理，36，123-129，2001.

黄砂による空間放射線量率への影響を1991年4月～1999年12月に観測された空間放射線量率をもとに解析した．黄砂の飛来は1～5月及び11月に認められ，黄砂の出現頻度は1～11日/年，合計58日であった．黄砂時の空間放射線量率には有意な上昇が認められた．黄砂日後の一雨中における空間放射線量率の平均値は黄砂日前の一雨中の平均空間放射線量率に比べ有意に高く，その減衰時間からラドン娘核種の寄与が窺えた．また，黄砂日後の降水中に検出された全ベータ放射能は黄砂日前に比べ有意に高く，ラドン娘核種のほかにトロン娘核種の増加が示唆された．黄砂日の大気浮遊じんから²³⁸U，²³²Thの壊変核種である²¹⁴Bi及び²¹²Pb，²⁰⁸Tlが検出された．これらのガンマ線放出核種の大気中濃度の増加が，黄砂時の空間放射線量率及び黄砂後の降水時における空間放射線量率の上昇に寄与したものと考えられた．

* 福岡大学

32 森林内における土壌中¹³⁷Csの分布と特徴

檜崎幸範：保健物理，37，28-36，2002.

福岡県の1969～1999年における攪乱の少ない裸地表層土壌中¹³⁷Cs濃度は見かけの半減期7年で指数関数的に減少した．また，表層土壌に対する下層土壌中¹³⁷Cs濃度の比は約1/5であった．一方，1991～1998年にかけて採取された森林内及びその周辺の裸地土壌48試料について¹³⁷Cs，⁴⁰K及び安定元素のCsを測定した．また，土壌のプロファイルとして強熱減量，pH及び電気伝導率を測定した．森林内土壌中の¹³⁷Cs濃度は1～424Bq/kg乾土，平均131Bq/kg乾土であった．¹³⁷Csは森林周辺の裸地土壌からはほとんど検出されなかった．¹³⁷Cs濃度には地域的な偏りは認められず，土壌のpH及び電気伝導率に依存した．また，¹³⁷Cs濃度は常緑樹林内より落葉樹林内土壌で高い傾向を示した．

33 2,4-ジニトロフェニルヒドラジン含浸シリカゲル法によるホルムアルデヒド測定における二酸化窒素の影響

池浦太莊，柳川正男，大野ちづ子*，大気環境学会誌，36(4)，195-207，2001.

環境大気中のホルムアルデヒドを2,4-ジニトロフェニルヒドラジン含浸シリカゲルで24時間捕集しGC/MSにより分析したところ，2,4-ジニトロアニリン，5-ニトロベンゾフラゾン，m-ジニトロベンゼン，2,4-ジニトロフェノール，1-クロロ-2,4-ジニトロベンゼン，5-ニトロベンゾフラゾン-3-オキシド，1-ヨード-2,4-ジニトロベンゼン，1,2-ジアミノ-4-ニトロベンゼン，2-クロロ-5-ニトロアニリン，m-ニトロアニリンが検出された．これらの化合物は，2,4-ジニトロフェニルヒドラジンと二酸化窒素，よう素，塩素などとの反応により生成したと推察された．

DNPHの分解反応は，大気中の二酸化窒素濃度とDNPH含浸シリカゲル上の水分量に大きく依存するため，試料捕集部の加温，除湿管ないしDMN/Celiteスクラバーの使用が妨害反応の抑制に効果的なことが分かった．

* 徳島県保健環境センター

34 食料品製造業排水におけるリンの除去

志水信弘，松尾宏，永淵義孝，岩本眞二：福岡県保健環境研究所年報第28号，101-104，2001．

有明海の全窒素，全リンに関わる環境基準の水質類型の指定が行われたことから，福岡県流入域から排出される窒素，リンの削減が必要となった．そこでリン除去における生物処理と物理化学処理の併用の有効性と問題点に注目し，排水中のリン濃度の高いあん類製造業の事業所排水を対象として実態調査を行った．活性汚泥法における凝集剤添加のリン除去に関する効果を検討するため，凝集剤（硫酸ばん土）の低（1.7kg/日）または高添加時（7.8kg/日）に調査を行った．その結果，凝集剤の低添加時ではリンを効率的に除けなかったが，リン排出量に見合う量の凝集剤を添加することにより排水中から効率的にリンが除去された．その際に適正な凝集剤の添加がなされていることを確認する指標として，汚泥中に含まれるアルミニウムに対するリンのモル比が常に1より高くすることが望ましいことが明らかになった．また，排水処理コストの33%は，品質改良材の使用に起因しており，使用量の適正化によりリンの排出及び処理コストが削減可能であった．

35 竹炭入りコンクリートによる水質浄化

土田大輔，中村融子，徳永隆司^{*1}，世利桂一^{*2}，倉富伸一^{*3}：福岡県保健環境研究所年報第28号，105-109，2001.

竹炭を含有させたコンクリートブロックを作製し，その水質浄化能を，溶出する溶解物質と，付着微生物による有機物分解の両面から検討した．浸漬実験の結果，竹炭入りコンクリートからは，カルシウムイオン，硫酸イオンといったセメントに由来するものは少なく，カリウムイオンなどの竹炭由来の無機物質が多く溶出した．また竹炭入りコンクリートは，竹炭の入っていないコンクリートに比べ，六価クロムの溶出量が少なく，吸着実験の結果，竹炭に吸着されていた．試験片を酸化池に3ヵ月間浸めて微生物を付着させた結果，普通コンクリートの3倍近い量が付着しているのが確認された．この微生物量の違いにより，BOD除去速度も大きいことがわかった．

*1 福岡県リサイクル総合研究センター

*2 福岡県商工部 新産業・技術振興課

*3 (株)神垣組

36 ジクロベニルによるアサヒナコミズムシの色素異常

緒方 健：環境毒性学会誌，4(1)，29-34，2001.

1970年代にイギリスでジクロベニルによりミズムシ類に脱皮後の色素形成が阻害される異常が生じることが報告されている．しかし，野外での報告例のみで，色素異常がどの程度の濃度で生じるかは不明なままであった．そこで，日本に生息するアサヒナコミズムシを用いて色素異常が生じる濃度について室内実験で調べた．その結果，50%の個体が完全に白化する濃度は13.4μg/L，50%の個体で正常個体よりも体色が薄くなる濃度は0.75μg/Lであることがわかった．一方，急性毒性試験においては50ng/Lでも死亡は認められず，色素異常が認められる濃度は急性毒性値と比べて極めて低いことがわかった．

第 1 回 福岡県保健環境研究所研究終了報告会
(平成 13 年度研究終了課題)

講演要旨集

平成 14 年 6 月 14 日

福岡県保健環境研究所

保健環境研究所研究終了報告会

プログラム

日 時：平成14年6月14日（金） 13：00～17：00

場 所：保健環境研究所 2階講堂

（ 研 究 課 題 ）

（ 研 究 代 表 者 ）

保-1．食品及び人体試料中の毒劇物迅速分析法の開発 （生活化学課 中川礼子）

保-2．ダイオキシン類による食品汚染実態調査研究 （保健科学部長 飯田隆雄）

環-1．有害大気汚染物質に関する研究 （大 気 課 柳川正男）

環-2．福岡県における酸性降下物に関する調査研究 （大 気 課 大石興弘）

環-3．陸水の酸性化に関する研究 （研究企画課 永淵 修）

環-4．シュロガヤツリ及び炭入りコンクリートの水質浄化能の実証化研究
（水 質 課 中村融子）

環-5．福岡県における環境放射能の調査研究 （水 質 課 檜崎幸範）

環-6．RDF焼却灰の有効利用等における安全性の評価に関する研究
（廃 棄 物 課 鳥羽峰樹）

環-7．自動車騒音対策に関する研究—遮音壁の改良に関する研究—
（情報管理課 松本源生）

食品及び人体試料中の毒劇物迅速分析法の開発

研究期間（平成11年度～13年度）

中川礼子*・芦塚由紀*・飯田隆雄*

要 旨

地方衛生研究所は健康被害が発生した際、健康被害の原因をいち早く明かにするという重要な責務を有している。ヒ素入りカレー事件やアジ化ナトリウム入り茶事件を始めとして、世情不安に陥せられた健康被害事例が近年発生していることから、特に万全の対処法を構築しておくことが強く求められている。そのため、被害事例に対して、迅速にかつ冷静に着手できるよう、被疑毒物に関する情報及び分析方法を整理するとともに、新たな分析法の開発や実験データの追補を行って、付加価値のあるマニュアル作成が必要であると考えられた。健康被害の原因になる化学物質はヒ素やアジ化ナトリウムの他にも殺虫剤（農薬）、漂白剤、防腐剤、重金属など多種に及んでいるが、本研究では緊急性を要するシアン、亜ヒ酸、農薬（リン剤・カーバメート剤などコリンエステラーゼ阻害作用のあるもの、及びパラコート・ジクワット剤）、アジ化ナトリウム及びキノコ毒について、その毒性の強度、毒性の作用機作、中毒症状、試験方法を一部デジタル写真で示すことによる、マニュアル化を試みた。

〔キーワード：食中毒、毒劇物、迅速分析法〕

1 はじめに

グローバル化による流通拡大と大量消費によって、世界中の食品が誰でも手に入る時代となった。

しかし、その便利さと引き替えに、一旦、毒劇物の混入などの事件が生じた時の被害も今までの予想を越えるような甚大な規模のものとなるのがこれまでの事例で既に明らかとなっている。和歌山でのヒ素入りカレー事件直後、これを模したアジ化ナトリウムや青酸カリ混入事件の発生や、害虫やカビなどの異物混入等の苦情が相継いだことは記憶に新しい。衛生研究所は、事件を早期解決に導いて県民の不安を解消させるため、健康被害事例の原因究明を速やかに行うことが最大の任務である。健康被害発生時に活用できるシステムは全国的には中毒情報センターのシステムが構築されつつあるが、衛生研究所・保健所では、検査機器は大きく異なることから、全国標準を参考として、事件解明のためのシステムを個々に構築する必要がある。著者らは、平成11年度から13年度まで本研究課題に取り組み、迅速分析法の開発と原因究明のための情報を収集整理し、パソコンデータとして収録し、新たな健康被害の解明の迅速化を図った。

本研究の成果物である、「毒劇物混入による食中毒のための原因究明マニュアル」は、ヒ素、農薬、シアン、アジ化ナトリウム及び毒キノコについて、その毒性や一般常識、分析法（簡易キットに及び機器を用いた迅速分析法）を収録している。作成にはホームページ作成ソフトを使用し、実務担当者にわかりやすいように、図表や写真等を出来るだけ多く挿入した。内容は、オリジナルなものの外に、インターネットや、文献からも引用している。本マニュアルの概要について以下に紹介する。

2 研究方法 機器及びソフト 1) コンピュータ：Power Macintosh G3 2) ネットスケープ3) デジタルカメラ：カシオ QV-2000UX

3 結果及び考察

3-1 初動検査では何を優先させるのか

検査は健康被害の所見を参考に、検体に混入したと考えられる被疑化学物質が揮発性が難揮発性かにより、図1に示したフローに従って検索を行うのが正攻法であるが、健康被害事例では最初に猛毒性の農薬、シアン、ヒ

素について簡易キット法やその他の迅速分析法を使用し、それらの存在の有無を確認する必要がある。

3 - 2 農薬の検出キットの問題点と開発した迅速分析法の実際の使用例

平成13年6月発生した口のしびれ等の健康被害事例を通して農薬の簡易キットの使用に注意すべき点があることが明らかとなった。農薬の簡易キット AT-10を使用する時は、液状の試料では、飲料水試験法（写真1左端、陽性）ではなく、ジュース試験法（写真1中央、陰性）で行う必要があること。しかし、コーヒーのように強く着色した試料はジュース試験法でも検査不能であった。このように、共存物質の多い食品試料は直接簡易キットでの検査にかけられないため、別の迅速分析法で確認することが必要である。我々は短時間に農薬をスクリーニングできる分析法を開発

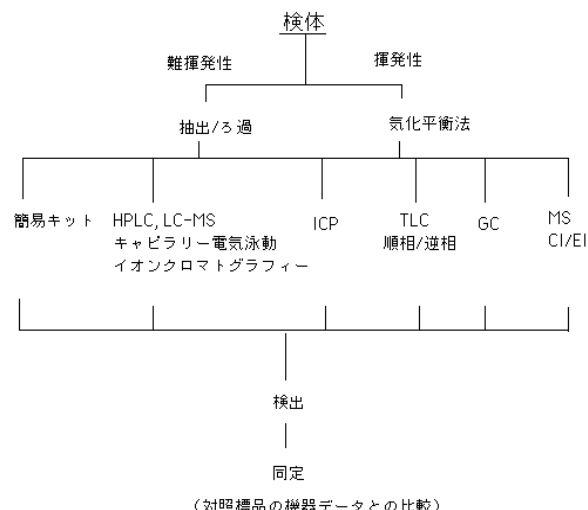


図1. 被疑食品からの食中毒原因物質検索模式図

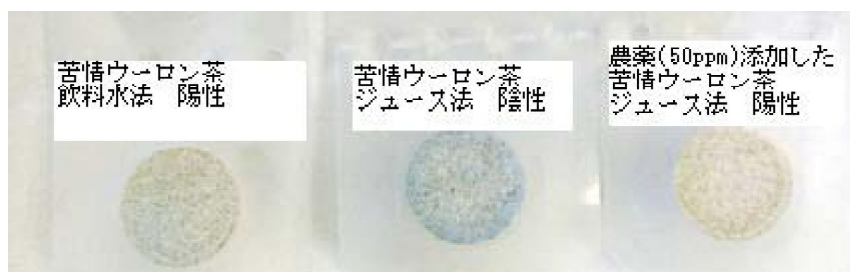


写真1 苦情ウーロン茶についての農薬簡易キットによる検査結果

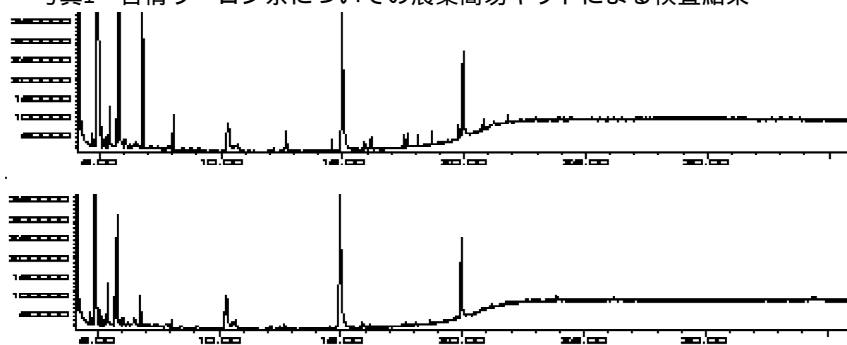


図2 ウーロン茶（上：苦情品、下：対照品）のGC/MSクロマトグラム

3 - 3 その他

その他の試験についても、試験結果の写真を多く掲載し、検査担当者の実際の試験や判定の参考となることを目指した。実例紹介では、本県で健康被害が報告された事例（キノコ中毒）について収録した。

4 まとめ

食品（サプリメントも含まれる）への薬物混入による健康被害はインターネットによる個人輸入の増加などが一因となって、多くなる傾向が見られる。その内容には薬物の種類、また、食品・飲料水など汚染された試料自体の違い等もあることから、特に未経験な物質・試料に遭遇した場合の対応策は困難になるおそれがある。初動検査を支障なく進めるに当たっては、我々地方衛生研究所や保健所は中毒情報センター（TEL0990-50-2499）や厚生労働省のホームページ（<http://www.mhw.go.jp>）を利

用して情報を入手することは最優先事項であるが、しかしまた、一方で現場に則した解明のためのマニュアルを逐次充実させることにより、迅速な対応を常に心掛けなければならない。

謝辞：本研究を遂行するに当たり、福岡市保健環境研究所の方々に農薬標品の提供及びご助言頂きましたことを深謝します。

引用文献

1) 中川礼子他 「食品及び人体試料中の迅速分析法の開発」研究報告書(CD 付き), 2002.

ダイオキシン類による食品汚染度実態調査研究

研究期間（平成12年度～13年度）

飯田隆雄^{*}，堀 就英^{*}，中川礼子^{*}，芦塚由紀^{*}，竹中重幸^{*}，
平川博仙^{*}，飛石和大^{*}，豊田正武^{**}

要 旨

食事経由のダイオキシン類暴露状況並びに個別食品中のダイオキシン類汚染度を調べた。県内に在住する4名の成人より連続7日間の食事試料の提供を受け、試料中のダイオキシン類濃度を分析して摂取量を算出した（陰膳方式）。見積もられた食事経由のダイオキシン類平均摂取量は、体重1kg あたり0.87～1.4ピコグラムの範囲であった。一方「トータルダイエット方式」を用いて行った全国調査においても、耐容1日摂取量（TDI）の4ピコグラムを上回る例は認められなかった。個別食品の汚染度は、米、野菜、果実類等の植物性食品に対して、魚介類中の濃度が高く、さらに肉、乳製品を含めた動物性食品において濃度、頻度ともに高く検出される傾向が認められた。ほうれん草の可食部（葉及び茎部）中のダイオキシン類濃度は、非可食部（根部）に比べて低く（葉部はひげ根部の約1/20）、また検出されたダイオキシン類の異性体組成を解析した結果、可食部の汚染の大部分は大気由来であることが示された。また、一般的な調理操作により、食品に含まれるダイオキシン類は、小松菜で約70%、サバで15～30%、牛肉では約40%減少し、日常の調理により食品のダイオキシン含有量は低減することがわかった。

[キーワード：ダイオキシン，P C B，食品，摂取量，調理]

1 はじめに

平成11年に厚生省研究班によりダイオキシン類の耐容1日摂取量が4ピコグラム（体重1kg あたり）に見直されたことを受け、ダイオキシン類と生活環境に関わる厳密な安全性評価が求められている。ダイオキシンのリスク評価及びリスクマネジメントは、精密な科学データによる根拠、裏付けに基づかなければならない。ダイオキシンのヒトへの曝露は主に食品を介しており、食品汚染度は健康リスク評価に直結する重要な指標と考えられるが、食品中のダイオキシン類濃度及びその食品を介した曝露量に関する調査は依然として限られている。

本調査研究は、食品中のダイオキシン汚染度と食事経由の曝露量に関してその実態と推移を科学的に解明し、県民、国民の健康保持と食品衛生上の安全確保に資することを目的とした。まず、食事経由のダイオキシン摂取量を求めるために、陰膳方式とトータルダイエット方式による調査を実施した。また、国内に流通する農作

物中のダイオキシン類汚染状況を把握するため、モニタリング調査を実施した。さらに食品のダイオキシン汚染のメカニズムを探る目的で、個別食品モデルを用い、ダイオキシン類の部位別濃度、調理による消長について検討した。

2 研究方法

2 - 1 ダイオキシン類摂取量調査研究

2 - 1 - 1 陰膳方式による実際の摂取量調査

平成12年9月～12月に福岡県内に在住する4名の成人から連続7日間の陰膳食事試料を採取した。試料は各日ごとに均一化し、試料中のダイオキシン類の分析を行い、摂取量の7日間平均値と日々の変動を調べた（提供者 A 及び B）。試料提供者 C 及び D については7日間の試料の一部ずつをとって混合して分析し、7日間の平均摂取量を求めた。

2 - 1 - 2 トータルダイエット方式による平均摂取量

*福岡県保健環境研究所（〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39）

**国立医薬品食品衛生研究所（〒158-8501 東京都世田谷区上用賀1-18-1）

調査

全国7地区16機関においてそれぞれ調製したトータルダイエット試料を用いて行った。各機関は厚生労働省の平成10年度国民栄養調査・食品群別摂取量を参考にして約120品目の食品を購入し、食事形態に沿って調理したあと、14の食品種別ごとに混合し、分析試料とした。

2-2 個別食品中のダイオキシン類汚染度調査研究

全国から79種229検体の食品試料を集め、ダイオキシン類濃度を測定した。

2-3 ダイオキシン類の食品汚染機構と調理による消長に関する調査研究

2-3-1 小松菜の調理実験

露地栽培の小松菜（約10kg）を生産者より直接購入した。小松菜に付着した土、泥等を払い落とし、根部を切り落とした可食部を調理実験に用いた。試料全体を無作為に約500g ずつ15の群に分け、調理前試料（未洗浄試料）、水洗浄した試料及び水洗浄後に煮沸処理した試料（沸騰水中3分間）の各5検体を調製した。試料はフードプロセッサを用いて細切均一化し、分析試料とした。

2-3-2 魚の調理実験

国内近海産サバを購入して調理実験に供した（体長20～30cm）。包丁で3枚におろし、片側の半身は生のまま均一化し対照試料とした。一方の半身は調理を施したのち均一化して分析試料とした。調理方法は、焼く（半身のまま8分程度焼く）、煮る（半身のまま10分間煮る）、つみれ（団子状にして煮る）の3種類である（試行数各3）。

2-3-3 肉の調理実験

食用牛肉（ヒレ肉ブロック、約1kg を3個）を購入して試料とした。端から約2mm にスライスし、スライスの順に4つに取り分け、ひとつを対照群とし、残りの3つについて煮る（スライスのまま5分間煮る）、焼く（焦げ目が付く程度に焼く）及びハンバーグ（ハンバーグに成形して両面を焼く）の調理試料を調製した（試行数各3）。

2-3-4 ほうれん草中のダイオキシン類の部位別濃度

ほうれん草（露地栽培品、約10kg）を購入した。土や泥等を払い落とし、水道水で十分に洗い水分を切った。続いて無作為に約2.5kg ずつ4つの群に分け、各群を葉、茎、赤茎、根、ひげ根の5つの部位に分離した後、部位ごとに均一化し、分析試料とした（試行数各4）。

2-4 各食品試料中のダイオキシン類の分析同定と毒性評価

本調査におけるダイオキシン類分析方法は、平成11年に厚生省食品衛生調査会・精度管理分科会が検討、作成した「食品中のダイオキシン類及びコプラナー PCBs の

測定方法暫定ガイドライン」（以下「ガイドライン」）に準拠した。

また本研究では、緑色野菜や動物性食品試料の分析時に顕著な妨害成分（脂肪族炭化水素類）を効果的に取り除くための前処理法として、「アセトニトリル・ヘキサン分配」を採用した。本方法を適用するに当たり、事前にその精製効果を検討するとともに、ガイドラインの条件（定量性、回収率等）を満たすことを確認した¹⁾。

ダイオキシン類29異性体の同定・定量には、高分解能ガスクロマトグラフ/質量分析計（Micromass Autospec-Ultima）を用いた。求めた各異性体の実測濃度は、1998年に世界保健機関（WHO）が設定した2,3,7,8-TeCDD 毒性等価係数（TEF）を用いて毒性当量（TEQ）に換算した。

3 結果及び考察

3-1 陰膳方式によるダイオキシン類摂取量（実際の摂取量）調査

表1に陰膳提供者4名のダイオキシン類摂取状況をまとめた。4名のダイオキシン類平均摂取量は体重あたり0.87～1.4pg TEQ /日の範囲であって、いずれも耐容1日摂取量（4 pg TEQ /kg 体重/日）を下回っていた。また、このことは我々が平成10年にトータルダイエット方式で行った九州地区における摂取量調査結果と一致していた²⁾。

また、ダイオキシン類摂取状況において、コプラナーPCBの摂取割合がPCDDやPCDFよりも大きく、中でも最も毒性的寄与の大きい異性体が3,3',4,4',5-pentaCBであること（提供者4名中3名）は、トータルダイエット方式における傾向とよく一致していた。

ダイオキシン類の摂取量算出値は、検出下限未満（ND）となる化合物が多いほど不確かとなり、NDをどのように取り扱うかによって変動や誤差を伴うことが知られている（調査例によっては、総摂取量の算出値が約60%変動することが報告されている）。陰膳試料中のダイオキシン異性体の大部分を検出するためには、従来の個別食品分析の場合よりも10倍程度下の検出下限が達成されなければならない。自ずと5～10倍の抽出試料量が必要と考えられた。そこで、陰膳の提供者には、あらかじめ食事試料を固形物（牛乳等の脂肪性食品を含む）と液状物（お茶やその他の飲料）に分けて採取するよう依頼し、実験室で固形物と液状物を別々に抽出した後これらを合わせ、食事試料約500gに相当する抽出液を得た。

このような抽出方法の改善により、「ガイドライン」の標準的検出下限値に対し、最大で10倍程度下の検出下限を達成することができた。結果として、NDに検出限界

表1 陰膳方式による食事経由のダイオキシン類摂取量調査結果

(単位: pgTEQ/日)

化合物名	陰膳提供者 (性別 / 年齢 / 体重(kg))			
	A	B	C	D
	男/32/84.5	女/52/55.5	男/52/56.0	女/52/55.7
2,3,7,8-TetraCDD	4.49	1.98	3.36	2.78
1,2,3,7,8-PentaCDD	12.21	8.72	27.18	10.91
1,2,3,4,7,8-HexaCDD	0.30	1.66	0.53	0.51
1,2,3,6,7,8-HexaCDD	1.13	1.37	1.18	1.03
1,2,3,7,8,9-HexaCDD	0.44	0.42	0.77	0.46
1,2,3,4,6,7,8-HeptaCDD	0.37	0.76	0.32	0.42
OctaCDD	0.03	0.04	0.02	0.03
2,3,7,8-TetraCDF	5.50	1.33	1.38	1.50
1,2,3,7,8-PentaCDF	0.77	0.67	0.45	0.42
2,3,4,7,8-PentaCDF	19.12	6.71	8.46	8.14
1,2,3,4,7,8-HexaCDF	0.74	0.72	1.21	1.09
1,2,3,6,7,8-HexaCDF	0.79	0.70	1.16	0.74
1,2,3,7,8,9-HexaCDF	0.00	0.04	1.95	0
2,3,4,6,7,8-HexaCDF	0.83	0.37	0.86	0.64
1,2,3,4,6,7,8-HeptaCDF	0.12	0.20	0.11	0.13
1,2,3,4,7,8,9-HeptaCDF	0	0.01	0	0
OctaCDF	0	0	0	0
3,4,4',5'-TetraCB (#81)	0.02	0.02	0.004	0.004
3,3',4,4'-TetraCB (#77)	0.13	0.07	0.04	0.07
3,3',4,4',5'-PentaCB (#126)	59.12	17.91	19.56	25.40
3,3',4,4',5',5'-HexaCB (#169)	1.39	0.47	0.48	0.65
2,3,3',4,4'-PentaCB (#105)	1.74	0.67	1.00	0.93
2,3,4,4',5'-PentaCB (#114)	0.63	0.22	0.56	0.51
2,3',4,4',5'-PentaCB (#118)	5.28	1.95	2.98	2.57
2',3,4,4',5'-PentaCB (#123)	0.10	0.04	0.09	0.06
2,3,3',4,4',5'-HexaCB (#156)	3.14	1.12	1.93	1.56
2,3,3',4,4',5'-HexaCB (#157)	0.85	0.30	0.51	0.39
2,3',4,4',5',5'-HexaCB (#167)	0.05	0.01	0.09	0.06
2,3,3',4,4',5',5'-HeptaCB (#189)	0.06	0.02	0.05	0.04
Total Dioxins	119.35	48.51	78.80	61.07
Total Dioxins (体重1kg あたり)	1.41	0.87	1.41	1.10
Total Dioxins (ND=LOD/2)	129.40	55.47	81.01	65.13

*ND =0として計算。

表2 トータルダイエツト方式による全国調査結果 (平成12年度)

(単位: pgTEQ/kg 体重/日)

地区名	ダイオキシン類 摂取量
北海道	0.84
東北 A	1.10
東北 B	1.92
関東 A	1.30
関東 B	1.72
関東 C	1.48
中部 A	1.44
中部 B	1.41
中部 C	1.80
関西 A	2.01
関西 B	1.43
関西 C	2.01
中四国 B	0.98
中四国 C	1.40
九州 A	1.55
九州 B	0.86

値の1/2を当てはめた場合 (ND=LOD/2) の摂取量は, NDを摂取量ゼロと計算する場合 (ND=0) の摂取量に対して, 提供者 A で8.4%, B で14%, C で6.7%, D で2.9%の増加にそれぞれ留まっていた。

提供者 A 及び B について求めた7日間のダイオキシン類摂取量の変動は, 提供者 A で体重1kg あたり0.34~3.8pgTEQ (平均1.4pgTEQ), 提供者 B では0.18~2.4pgTEQ (平均0.87pgTEQ) の範囲であり, 7日間平均値または各日ごとの摂取量をみても耐容1日摂取量を上回る例は認められなかった。さらに, コプラナー PCB はダイオキシン総摂取量の日々の変動においても, 主たる変動要因になりうる事が示唆された。

3-2 トータルダイエツト方式による摂取量 (地域平均摂取量) 調査

表2にトータルダイエツト方式で求めたダイオキシン摂取量を示す。全国平均値は, 1日あたり72.66pgTEQ (範囲42.1~100.5pgTEQ) と見積もられた。日本人の平均体重を50kg と仮定し, 体重あたりの摂取量に換算すると, 平均1.45pgTEQ (範囲0.84~2.01pgTEQ) となり, 耐容1日摂取量4ピコグラム以下となっていた。摂取量全体に対する寄与の大きさを食品種別にみると, 大きい順に, 魚介類, 肉・卵類, 乳・乳製品であって, ND=0及び ND=LOD/2で算出した場合のいずれにおいてもこの

傾向は変わらなかった。

3-3 国内流通食品中のダイオキシン類濃度

表3に個別食品試料中のダイオキシン類分析結果を示す。調査食品中のダイオキシン類濃度を種別ごとに比較すると, 魚介類中濃度が高く, 平均1.593pgTEQ/gであった。次いで魚加工品の0.398pgTEQ/g, 乳・乳製品 (牛乳, 粉乳, チーズ等) 0.174pgTEQ/g, 肉類 (牛肉, 豚肉, 鶏肉等) 0.128pgTEQ/g であった。一方, 野菜類等は平均0.012pgTEQ/g, 穀類・豆類は0.001pgTEQ/g 未満であって, 動物性食品に対する植物性食品の汚染度は明らかに低かった。

3-4 調理における食品中ダイオキシン類の消長

小松菜に含まれるダイオキシン類は, 水洗いにより平均0.058pgTEQ/g から平均0.026pgTEQ/g へ, 引き続き煮沸操作により平均0.019pgTEQ/g へ減少した (減少率約70%)。一方, サバを用いた実験では調理により15~30%, 牛肉では約40%減少した。

3-5 緑色野菜中ダイオキシン類の部位別濃度

ほうれん草中のダイオキシン類の部位別濃度を比較したところ, 葉部のダイオキシン類平均濃度は0.068pgTEQ/g, 茎部は0.017pgTEQ/g, 赤茎部0.028pgTEQ/g, 根部0.14pgTEQ/g, ひげ根部1.5pgTEQ/g であり, 可食部の葉に含まれるダイオキシン類はひげ根に対して約

表3 個別食品中のダイオキシン類調査結果（平成12年度抜粋）

（単位：pgTEQ/g）

食品名	例数	濃度	平均濃度	食品名	例数	濃度	平均濃度
牛肉（国産）	5	0.107～1.687	0.465	アジ	2	3.164～3.551	3.358
牛肉（輸入）	6	0.001～0.252	0.066	牛乳	6	0.015～0.042	0.031
豚肉（国産）	5	0.005～0.015	0.009	米（輸入）	4	<0.001	<0.001
豚肉（輸入）	6	<0.001～0.018	0.007	ほうれん草	7	0.002～0.154	0.046
タイ（マダイ）	2	1.122～1.916	1.519	にんじん	3	<0.001	<0.001
タチウオ	3	0.669～6.332	4.101	みかん	3	<0.001	<0.001

1/20であった。また、可食部に検出されたダイオキシン類の異性体パターンは、大気試料のそれとよく一致しており、ほうれん草可食部の汚染は主に大気経由によることが示唆された。

4 まとめ

「陰膳方式」により見積もられた食事経由のダイオキシン平均摂取量は、体重（kg）あたり0.87～1.4ピコグラムであり、耐容1日摂取量（4ピコグラム）を下回っていた。トータルダイエット方式で求めた「地域平均量」は、陰膳方式で求めた「実際量」で実証された。総合的にみると、現在のダイオキシン類の食事経由の平均摂取量は耐容1日摂取量を下回っており、概ね世界保健機関（WHO）が提唱している将来目標値（1ピコグラム）付近にあるものと推察された。

一方、個別食品試料の分析結果では、食品種別では、魚介類中濃度が最も高く、次いで肉類、乳製品と、総じて動物性食品において相対的に濃度、頻度ともに高く検出された。これに対して、主食の米や野菜、果実類等の植物性食品の汚染度は低くなっていた。限られたサンプリング数ではあるが、本調査により国内に流通する主要な食品について、ダイオキシン汚染の実態と傾向が明らかになった。

調理による食品のダイオキシン類含有量の変化や汚染機構に関する知見は、食品からのダイオキシン類摂取量の正確な推定に必須である。小松菜、サバ及び牛肉を調理したところ、食材中のダイオキシン類は明らかに減少していた。一方、緑色野菜中ダイオキシン類の部位別の分布状況について調べたところ、可食部（葉）と非可食部（ひげ根）ではダイオキシン類の残留度に約20倍の差があった。従って、食品汚染調査データの比較において、例えば「可食部のみを対象とした計測値」と「非可食部を含めた計測値」とを直接比較することは不適切であり、その際には試料の試験法や採取方法等の背景を含めて考察する必要がある。

食事経由のダイオキシン摂取量調査から得られた知見の中で、コプラナー PCB が PCDD や PCDF よりも摂取

寄与率が高いことは改めて記すべきことであり、焼却炉等のダイオキシン発生源の管理のみならず、PCBを含む産業廃棄物の保守管理の徹底が今後一層推進されるべきと考えられる。

5 行政的意義、貢献

ダイオキシン類の食品汚染に関しては、従来から数例が報告されていたが、調査例数が限られ、地域も限定されており、行政資料としては不十分であった。本研究は食品のダイオキシン汚染実態を全国規模でかつ継続的に調べた初めての例である。本調査は、食品中のダイオキシン分析に関する標準的試験方法（ガイドライン）に基づき、試料採取から測定に至るまで徹底した信頼性確保と精度管理のもとに行われた。よって本研究の成果は、例数、信頼性ともに高い水準を確保しており、ダイオキシン政策のための行政資料として十分に活用に足るものと考えられる。

謝辞

本研究の一部は厚生科学研究費補助金（生活安全総合研究事業）により行われた³⁾。

参考文献及び報告書

- 1) Ashizuka, Y., Hori, T., Takenaka, S., Tobiishi, K., Nakagawa, R., and Iida, T. Improvement of the Methods for Analyzing Mono-ortho PCBs in Food. *Organohalogen Compounds*, 50, 146-149 (2001)
- 2) Hori, T., Iida, T., Matsueda, T., Nakamura, M., Hirakawa, H., Kataoka, K., and Toyoda, M. Investigation of Dietary Exposure to PCDDs, PCDFs, and Dioxin-like PCBs in Kyushu district, Japan. *Organohalogen Compounds*, 44, 145-148 (1999)
- 3) 平成12年度厚生科学研究「ダイオキシン類の食品経由総摂取量調査研究」研究報告書。

有害大気汚染物質に関する研究

研究期間（平成11年度～13年度）

柳川正男^{*}、池浦太荘^{*}、久富啓次^{*}、力 寿雄^{*}

要 旨

本県では、大気中の多様な有害大気汚染物質(HAPs)のモニタリングを平成9年度後半から4地点で毎月継続実施している。これまでの調査結果の集計、解析を行った。また、ホルムアルデヒドの測定方法(公定法)に問題があったため、測定方法の検討、改良を行った。さらに揮発性有機化合物(VOC)の長期間簡易捕集法開発のための検討を行い、良好な結果が得られた。

[キーワード：有害大気汚染物質，環境大気調査，簡易測定法，機器分析法]

1 はじめに

各種産業の発展に伴い、大気中に放出されてきた多種多様な有害化学物質に多くの人々が暴露されている。これらの物質による発がん等の長期慢性的な健康リスクを低減するために、環境庁(当時)の指針により、平成9年度後半から全国的にほぼ同時期に有害大気汚染物質のモニタリング調査が開始された。本県でも平成9年10月から調査を開始したが、11年度からはキャニスター GC/MS や水銀の測定装置による測定分析も開始した。この報告は、これまでの調査結果の集計、解析、測定方法の改良及び開発等、有害大気汚染物質に関する調査および検討結果である。

2 方法

2・1 モニタリング調査

1) 調査地点(地域分類)

- 1 柳川市立図書館(一般環境)
- 2 宗像局(一般環境)
- 3 久留米市民会館(発生源周辺)
- 4 香春局(沿道)

2) 調査の実施方法

環境庁の指針¹⁾及び測定方法マニュアル²⁾によった。
測定日時：毎月一回の24時間測定

3) 調査対象物質

平成9年度後半の調査開始時には、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン、クロロホルム、ホルムアルデヒド^{*}、アセトアルデヒド^{*}、マンガンおよびその化合物(マンガン)、ニッケル化合物(ニッケル)、ベリリウムおよびその化合物(ベリリウム)、ヒ素及びその化合物(ヒ素)、合

計10物質を対象として調査を開始した。その後ベンゼン、ジクロロメタン、アクリロニトリル、1,3-ブタジエン、塩化ビニル、1,2-ジクロロエタン、水銀を追加し、現在は合計17物質を調査対象としている。

2・2 アルデヒド類測定法(公定法)の改良

オゾンスクラバーの改良、及び GC/MS 等による妨害物質の同定と生成経路の推定、分析条件の検討等を行った。実験方法は文献⁴⁾参照。

2・3 VOC用長期間簡易捕集器(PS)の開発検討

分析方法は環境庁マニュアル²⁾の溶媒抽出-GC/MS 法を使用した。検討した PS は、捕集用容器として、市販のガラスびん(外形15mm、高さ47mm)の穴明きキャップ付きを用いた。充填材は、スプレー製加圧セル564を精製し、その0.5gを使用し、キャップにテフロン製フィルターを丸く切って挿み密栓する。びんの外側はアルミ箔で覆い、紀本製のフィルター内にフィルター部を下向きにセットする。これを用いて太宰府局で約一ヶ月間の測定を市販のサンプラー(柴田製、PGT)と並行して行い性能を比較した。

3 結果と考察

1) モニタリング調査

ベンゼン等の環境基準項目について、現在まで、年平均値が環境基準を超えた地点はない。³⁾ベンゼンについては図1に示すように、4地点とも全国平均レベルかそれ以下であり、全国的な傾向と同様、濃度は徐々に低くなる傾向にある。図2に、ベンゼンの月毎の濃度推移を示す。主に冬～春に久留米や柳川で環境基準($3\mu\text{g}/\text{m}^3$)以上の高濃度がみられた。

^{*}福岡県保健環境研究所

(〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39)

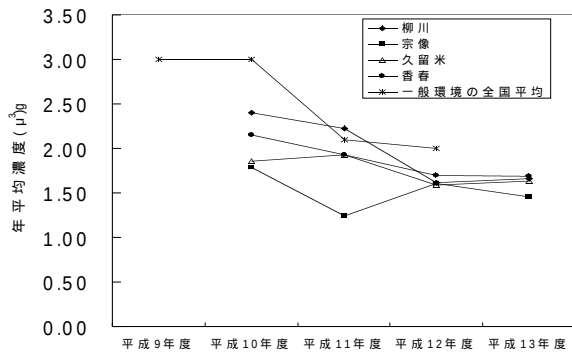


図1 ベンゼン濃度の経年変化

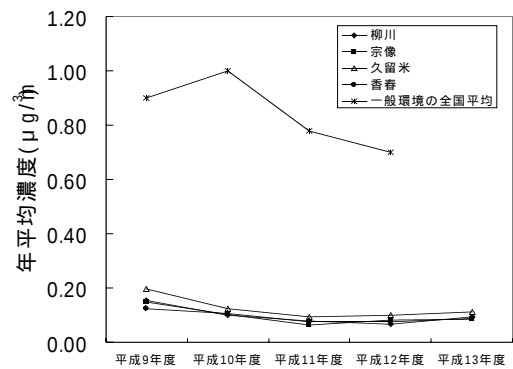


図4 テトラクロロエチレンの経年変化

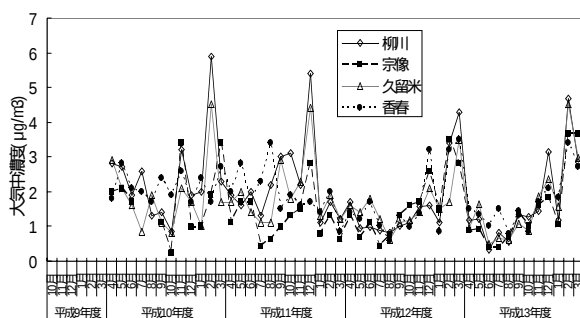


図2 ベンゼン濃度の推移

また、図3～図4にトリクロロエチレン、テトラクロロエチレンの経年変化を示す。各地点とも環境基準(2物質とも $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$)以下であり、柳川市のトリクロロエチレンを除きどれも全国平均の1/4以下であった。

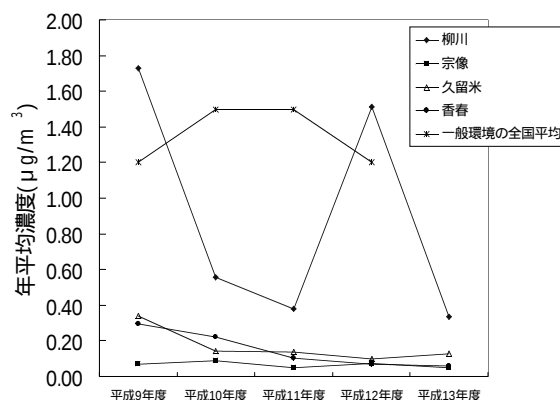


図3 トリクロロエチレンの経年変化

次にジクロロメタンの経年変化を図5に示す。

各地点とも、環境基準($150 \mu\text{g}/\text{m}^3$)以下であり、久留米以外は全国平均の1/2以下であった。久留米は、全国平均より高く、測定地点周辺に発生源の存在が推定される。

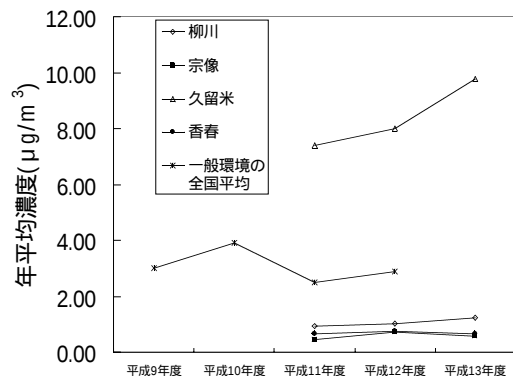


図5 ジクロロメタンの経年変化

その他の物質については、香春町の知ム、ニッカル、ヒ素、マンガンが全国平均を超える場合を除いて、すべて全国平均レベルと同等または、以下であった。香春町については、今後の動向に留意する必要がある。

以上の結果から、本県の測定地点のHAPsは、環境基準以下であり、一部を除き概して低い汚染状況と言える。

2) アルデヒド類公定法の改良

高湿度時にオゾンスクラブ-に水が凝縮し、吸引流量が低下したり、溶解した硝酸カルシウムがDNPH捕集管に到達し、GC/FTD法で測定不能になる現象については、ミストラップ付オゾンスクラブ-を自作し解決した。また、DNPHと NO_2 の反応により多くの化合物が生成し、その中の2,4-ジニトロコリンがGC/FTD法においてホルムアルデヒドの定量を妨害している事を確認した。ホルムアルデヒドの分析時の妨害は、キャビ-

シリカを微極性から無極性ものに変え、GCの昇温条件を調整することで解決した。また、NO₂除去のための方法として、セライトに3,3-ジメチルブタジンを被覆したカートリッジが有効であった。4)

3) VOC用長期間簡易捕集器の開発検討

以前からVOC類や有機塩素化合物の長期間捕集用として試作、検討していたVOC用のパツプサンプラー(PS:CBX法)⁵⁾をベンゼンの測定に適用する検討を行った。図6にサンプリング時の図を示す。

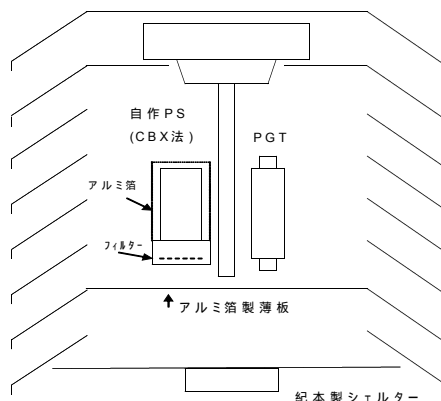


図6 サンプラーと設置方法

このPSの特長は、(1)調製が簡易で自作可能、(2)低コストで、多数地点の長期平均濃度の測定が可能、(3)一部の材料(フィルター)を除き、すべて再利用可能であることである。ベンゼンの場合、図7に示すように一ヶ月後までほぼ直線的に吸着された。また、同時に並行して行った捕集管法(公定法)との比較結果でも図8に示すように良好な相関関係があった。したがって、長期捕集用のPSとしての有用性が確認できた。市販のPGTについてもほぼ同様の良好な結果($R^2 = 0.9729$)が得られた。

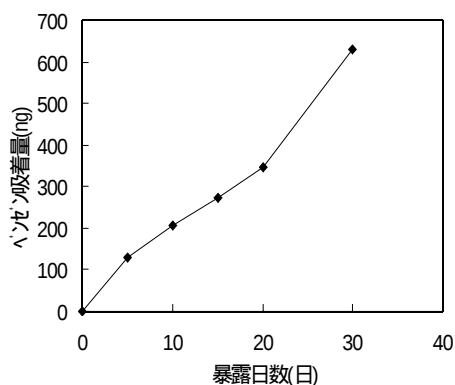


図7 暴露日数とベンゼン吸着量(CBX法)

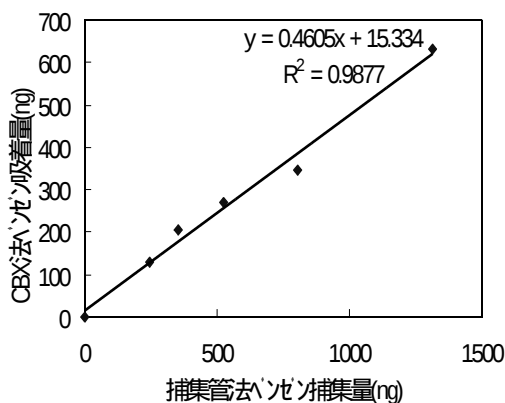


図8 CBX法と捕集管法の相関

4 まとめ

- (1) モニタリング調査結果は、本県の測定点での環境基準超過はなかったが、月別ではベンゼンの環境基準($3 \mu g/m^3$)を超える測定結果もなおみられるため、今後も調査を継続していく必要がある。また、未実施のベンゾ(a)ピレンや酸化エチレンの測定も開始する必要がある。
- (2) アルデヒド類測定法の改良のための検討を行い、測定法の問題を解決した。
- (3) PSの開発では、ベンゼンの一ヶ月間の長期間捕集に応用できることが分かった。今後、発生源周辺や一般環境に適用する実証試験を行う計画である。

5 行政的意義

HAPsのモニタリング調査は、都道府県等の各自治体とも行政主体の調査であり、関連の調査研究の実施により、行政施策形成のための基礎資料が収集できる。

参考文献

- 1) 環境庁大気保全局、「有害大気汚染物質モニタリング指針」平成9年2月。
- 2) 環境庁大気保全局大気規制課、「有害大気汚染物質測定方法マニュアル」平成9年2月、同9年10月、同10年3月。
- 3) 福岡県、「平成10～13年版環境白書」。
- 4) 池浦太荘他、2,4-ジニトロフェニルベンゼン含浸シリカ法によるホルムアルデヒド測定における二酸化窒素の影響、大気環境学会誌、36、4、2001。
- 5) 柳川正男他、パツプサンプラーによる揮発性有機塩素化合物の測定、第37回大気環境学会年会講演要旨集、457、1996。

福岡県における酸性降下物に関する調査研究

研究期間（平成11年度～13年度）

大石興弘*, 下原孝章*, 濱村研吾*, 久富啓次*

要 旨

酸性雨問題は、主に都市汚染、火山等の自然汚染、長距離輸送される越境汚染を起源とする硫黄酸化物、窒素酸化物等の酸性・酸化性物質によるものである。湿性沈着、乾性沈着（ガス・エアロゾル）の調査を行い、これらの汚染物質の動態について検討した。湿性沈着において、pH はこの13年間4.8前後で推移し、降水は依然として酸性化していた。また SO_4^{2-} の沈着量は横這いであるのに対し、 NO_3^- の沈着量はやや増加しており、都市汚染の影響が大きくなる傾向にあった。乾性沈着（ガス・エアロゾル）において、全 NO_3^- （粒子状 NO_3^- とガス状 HNO_3 の和）濃度が高くなっていること、 SO_4^{2-} と Ca^{2+} 濃度が春季に高く、また増加していること、 O_3 についても春季、冬季に増加傾向にあること等の特徴が見られた。 SO_4^{2-} の高濃度は南高北低の気圧配置の場合に多く、大陸起源の SO_4^{2-} は西寄りの風により移流され西日本域を広く覆うことが考えられた。この SO_4^{2-} の広域的挙動については長崎県五島と太宰府との同時調査でも認められ、また五島では酸性粒子である NH_4HSO_4 の存在が推測された。併せて、ガス・エアロゾル濃度から年間乾性沈着量を算出し、年間湿性沈着量と合わせた年間総沈着量を推定した。また、フィルタ・バック法とデニユ・ダ法との捕集法の比較検討を行い、フィルタ・バック法の問題点であるア・ティファクト（ろ紙上での変質）について検討した。

[キ - ワ - ド：酸性雨，ガス，エアロゾル，デニユ・ダ法]

1 はじめに

酸性雨等環境の酸性化は、温暖化と同様、主に化石燃料の燃焼に起因している。健康被害及び森林衰退との関連が注目された1980年代以降、全国各地で酸性雨調査が行われ、降水の酸性化が明らかにされた。東アジア地域は、酸性雨原因物質である硫黄酸化物及び窒素酸化物の排出量が多く、大気環境に与える負荷の大きい地域である。これらの酸化物の排出量は今後も増加することが予想されており、酸性・酸化性物質による広域的・長期的な環境酸性化及び酸性降下物による生態系への影響が懸念されている。本研究は、湿性・乾性の酸性・酸化性物質の実態を把握し、環境酸性化の要因を検討することにより、生態系影響評価及び酸性雨対策の基礎資料とするものである。データは、主に国設筑後小郡酸性雨測定局（以下小郡）における酸性雨調査、福岡県保健環境研究所（以下太宰府）におけるガス・エアロゾル調査によるもので、湿性沈着及び乾性沈着の季節変化、経年変化及び大陸からの長距離輸送等について検討した。

2 方法

湿性沈着の各成分濃度は、小郡において1988年度から自動雨水採取装置により2週間毎に採取分析されたものである。ガス・エアロゾル中各成分濃度は、太宰府において1998年度から3年間フィルタ・バック法を用い、2～3 L/min で1週間毎に試料を捕集分析したものである。フィルタ・バック法では、3段ろ紙（F1：PTFE ろ紙，F2：6%炭酸カリウム含浸ろ紙，F3：5%リン酸含浸ろ紙）及び1段ろ紙（ナイロンろ紙）を用いた。 NH_4^+ 及び NH_3 濃度はインドフェノール法で、その他の各成分はイオンクロマトグラフ法を用いて分析した。 O_3 濃度は小郡においてオゾン自動測定器（dasibi 1006A）により測定されたものである。

3 結果及び考察

3・1 湿性沈着の経年変化

小郡における1988年度から2000年度までの pH 及び各成分沈着量の経年変化を図1～図3に示す。pH の年平均値は4.6～5.0の範囲にあり、1990年前後にやや低い値と

*福岡県保健環境研究所

（〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39）

なっているが、それ以降は4.8前後で推移している。

nss-SO₄²⁻（非海塩由来のSO₄²⁻）の年間沈着量は1990, 1991年度にやや多くなっているが、それ以降 3g/m²/year 前後でほぼ横這い状態にある。NO₃⁻の年間沈着量はやや増加する傾向にあり、1.5g/m²/year を越える値となっている。このため、NO₃⁻/nss-SO₄²⁻の当量比は1996年度以降0.4以上と大きくなる傾向にあり、酸性化に対して都市汚染に由来する NO₃⁻の寄与が大きくなっている。NH₄⁺及び nss-Ca²⁺の年間沈着量に明確な経年的傾向は見られていないが、NH₄⁺の沈着量は、nss-Ca²⁺の沈着量より多く、降水の酸性化抑制として NH₄⁺が大きく寄与している。しかしこの2,3年春季に nss-Ca²⁺の沈着量が増加し、nss-Ca²⁺/NH₄⁺の当量比が大きくなっており、nss-Ca²⁺の寄与が大きくなる傾向にある。

3・2 乾性沈着

(1)ガス・エアロゾル中成分の経年変化

太宰府における1998年度から3年間のガス・エアロゾル中成分の経年変化を図4に示す。nss-SO₄²⁻濃度は約5.5 μg/m³で、横這いか、やや減少傾向にあるのに対し、ガス状 HNO₃と粒子状 NO₃⁻を合わせた t-NO₃⁻は約4 μg/m³で増加傾向にある。このために t-NO₃⁻/nss-SO₄²⁻の当量比は、降水同様高くなる傾向にある。また、ガス・エアロゾルは t-NO₃⁻/nss-SO₄²⁻当量比が0.7で降水の0.4に比べ高く、都市汚染である NO₃⁻の寄与が大きくなっている。各成分の季節別経年変化を図5～図6に示す。nss-SO₄²⁻濃度は、夏季、秋季、冬季に減少傾向にあるが、春季は濃度が高く、また増加傾向にある。Ca²⁺濃度も、最近黄砂が多くなっており、同様に春季に増加傾向にある。nss-SO₄²⁻と黄砂は同様の気象パターンで大陸から移流することが考えられ、春季における nss-SO₄²⁻と Ca²⁺濃度の増加はこれを反映しているものと考えられる。粒子状 NO₃⁻濃度は春季、冬季に高く、特に春季は増加傾向にある。これに対し、ガス状 HNO₃濃度は夏季に高く、また増加傾向にある。このように t-NO₃⁻は暖候季に高くなる傾向を示している。次に O₃濃度の季節別経年変化を図7に示す。O₃濃度は夏季、秋季に横這いであるのに対し、冬季、春季にはわずかながら増加傾向が見られており、大陸からの移流による可能性が考えられる。

(2)nss-SO₄²⁻濃度と気圧配置

nss-SO₄²⁻の高濃度は主に、寒冷前線の通過後、移動性高気圧が東シナ海を東進する南高北低の気圧配置、あるいは九州南海上の梅雨前線の北側を高気圧が通過する気圧配置であった。これに対し、低濃度は、九州付近に前線が停滞した気圧配置、太平洋高気圧に覆われた夏型の気圧配置、及び強い冬型の気圧配置であった。nss-SO₄²⁻濃度が高濃度となる春季は南高北低の気圧配置が多く、

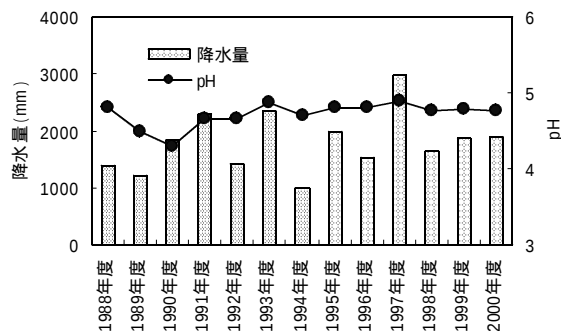


図1 pH及び降水量の経年変化

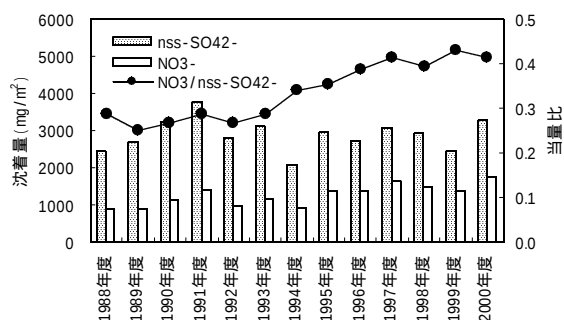


図2 nss-SO₄²⁻、NO₃⁻沈着量及びNO₃⁻/nss-SO₄²⁻当量比の経年変化

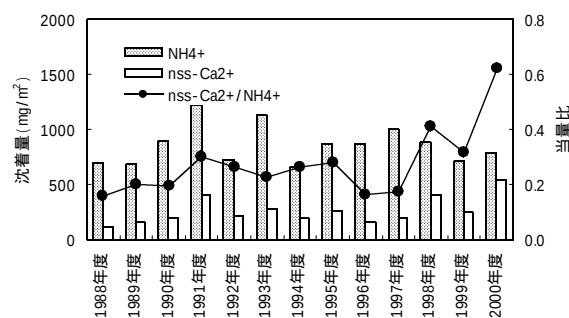


図3 NH₄⁺、nss-Ca²⁺沈着量及びnss-Ca²⁺/NH₄⁺当量比の経年変化

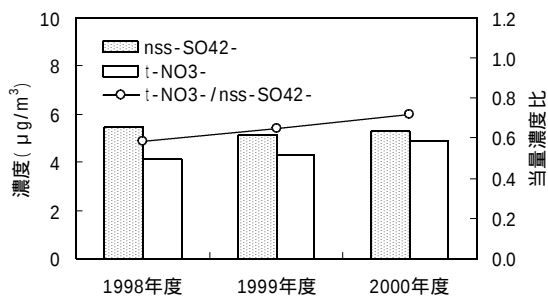


図4 nss-SO₄²⁻とt-NO₃⁻濃度の経年変化

この時の高層風は西寄りであり、流跡線は中国中北部からの移流を示している。数値シミュレーションした nss-SO₄²⁻の濃度分布を図8に示す。nss-SO₄²⁻は、鶴野ら¹⁾によって報告されているように、寒冷前線の通過後、高気圧の北

側の北西から西寄りの風により移流され、移動性高気圧の東進とともに、大陸起源の nss-SO_4^{2-} が朝鮮半島から西日本域を広く覆うことが示唆された。

(3) 長崎県五島と太宰府におけるガス・エアロゾルの同時調査

五島と太宰府における nss-SO_4^{2-} 濃度の経時変化を図9に示す。五島と太宰府は約200Km 離れているが、ほぼ同じ濃度で類似した変動を示した。特に2/7～2/11の高濃度は、移動性高気圧がゆっくり東進して続いたもので、前述した南高北低の気圧配置であった。これは nss-SO_4^{2-} の広域的挙動と、また大陸の寄与が大きいことを示している。 NO_3^- は五島と太宰府で濃度差が見られており、太宰府では地域的な汚染が大きいことを示している。しかし NO_3^- についても nss-SO_4^{2-} の高濃度時にやや高い値となっており、移流の影響が見られている。

五島における非海塩性の陰イオン濃度と陽イオン濃度を図10に示す。五島では測定された陰イオン量が陽イオン量より多く、酸性粒子である NH_4HSO_4 あるいは H_2SO_4 の存在が推測され、薄膜法により NH_4HSO_4 の存在が認められた。

(4) 乾性沈着量の推定

大気中のガス・エアロゾルが直接、土壌あるいは樹木に沈着する乾性沈着量も湿性沈着量に匹敵すると言われている。乾性沈着量の推定は、主に代理表面法及びインファレンシャル法が用いられるが、最近ではガス・エアロゾル中成分濃度と沈着速度から算出されるインファレンシャル法が一般的である²⁾。沈着速度は気象条件、地表面の性状あるいは樹木により異なる。ここでは沈着速度として、 SO_2 : 0.35cm/s, SO_4^{2-} : 0.25cm/s, HNO_3 : 2.5 cm/s, NO_3^- : 0.25cm/s を用い、乾性沈着量を次式により算出した。

$$F = V_D \times C$$

F: 乾性沈着量 V_D : 沈着速度 C: 成分濃度

硫酸化物は、 SO_2 の濃度が冬季に高いため、沈着量が冬季に多くなる。これに対し、窒素酸化物の沈着量は、ガス状 HNO_3 の沈着速度が大きく、また春季、夏季に濃度が高いことから、暖候季に多くなる。年間乾性沈着量、年間湿性沈着量を表1に示す。乾性沈着量は、粒子状成分 (SO_4^{2-} , NO_3^-) よりガス状成分 (SO_2 , HNO_3) の方が多く、特にガス状 HNO_3 の沈着量が大きかった。湿性沈着量と比較した場合、硫酸化物の場合、湿性沈着量の方が多いのに対し、窒素酸化物では、乾性沈着量の方が多かった。硫酸化物及び窒素酸化物の総沈着量はそれぞれ4.21, 3.14g/m²/年であった。ただし、裸地、農地、広葉樹、針葉樹等に対する沈着速度はそれぞれ異なるため、乾性沈着量は沈着表面により異なることになる。

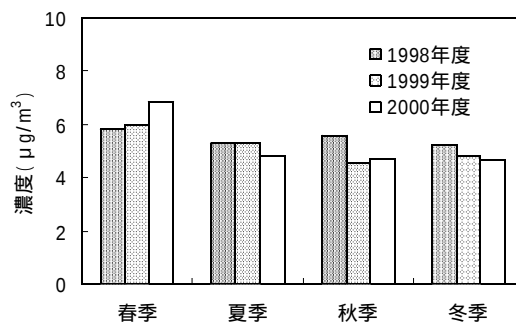


図5 nss-SO_4^{2-} 濃度の季節別経年変化

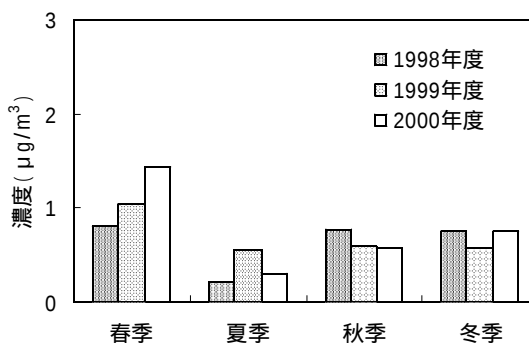


図6 Ca^{2+} 濃度の季節別経年変化

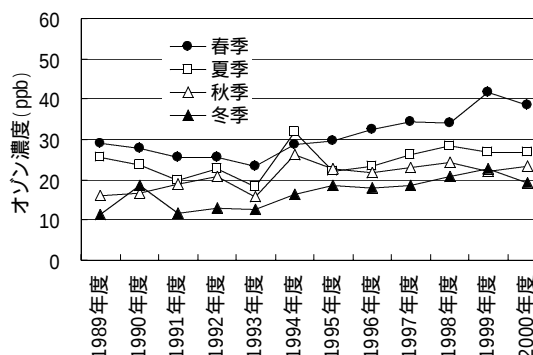


図7 オゾン濃度の季節別経年変化

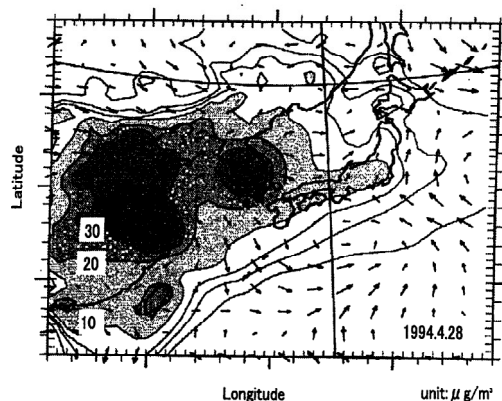
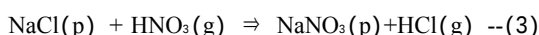
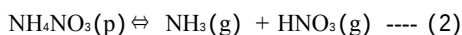


図8 シミュレーションによる nss-SO_4^{2-} の濃度分布

3・3 拡散デニユ - ダ法とフィルタ - パック法による捕集法の検討

ガス・エアロゾルの捕集法である拡散デニユ - ダ法とフィルタ - パック法についてガス・エアロゾル中成分濃度の比較を行い、ア - ティファクト（ろ紙上での粒子、ガス成分の反応変質）について検討した。フィルターパック法は、簡便な方法なため広く用いられているが、ア - ティファクトについて問題点が指摘されている³⁾。特に粒子状 NO_3^- 、ガス状 HNO_3 については(2)、(3)式の反応が考えられ、大気中の濃度とは異なると言われている。



デニユ - ダ法は、ガス成分をろ紙捕集の前に捕集するためにガス成分と粒子状成分とのろ紙上での反応が少ないと言われており、この両法による濃度を比較した SO_4^{2-} 、 Ca^{2+} 及び Na^+ 粒子濃度は、両法でほぼ等しく、濃度差は20%以下であった。これに対し NO_3^- 、 HNO_3 や NH_4^+ 、 NH_3 は(2)の反応により NH_4NO_3 がガス化し、両法で濃度が異なる。 NO_3^- 粒子の場合、気温の低い季節には濃度差は20%以下に抑えられるが、20℃を越えると50%以上がガス化し HNO_3 となる。 NH_4^+ 、 NH_3 も同様であるが、ア - ティファクトによる濃度差の割合は小さい。これは NH_4^+ 粒子は $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ としての濃度が高いことによる。(3)の反応については、両法による粒子状 Cl^- の濃度差が小さいことから、大気中で起こっていることが考えられる。また SO_4^{2-} は主に $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ として存在しているが、 NaCl 、 CaCO_3 がある場合、気温の高い春季、夏季に Na_2SO_4 、 CaSO_4 の形態が見られ、ろ紙上で NaCl 、 CaSO_4 と $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ とが反応するア - ティファクトが考えられる。

フィルタ - パック法によりガス・エアロゾル調査を行う場合、気温の高い季節にはガス状の HNO_3 、 NH_3 濃度を高く評価する等のア - ティファクトを考慮する必要がある。

4 行政的意義

上述したように都市汚染、大陸からの長距離輸送等による環境酸性化の現状を明らかにした。本研究は、都市汚染等大気汚染の原因解明及び対策の資料となると共に、今後も酸性雨等のモニタリング調査により、都市汚染、長距離輸送等の影響を長期的に把握していく必要性を示した。

文 献

- 1) 鶴野, 村野, 若松, 大気環境学会誌33, 164-178 (1998)。
- 2) 松本, 村野, 日化誌, 1998(7)。
- 3) 阿相, 金子, 天野, 大気環境学会誌25, 30-40 (1990)。

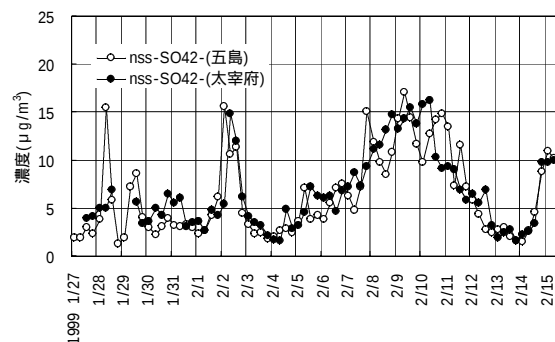


図9 太宰府及び五島のnss- SO_4^{2-} 濃度の経日変化

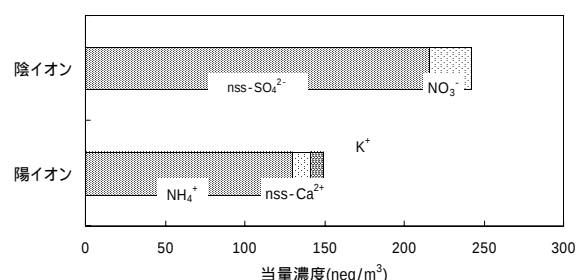


図10 五島における非海塩性の陰イオンと陽イオンの組成

表1 年間乾性・湿性沈着量

	nss- SO_4^{2-}	SO_2	NO_3^-	HNO_3
乾性沈着量	420	910	210	1400
計	1330		1610	
湿性沈着量	2880		1530	
総沈着量	4210		3140	

単位: $\text{mg}/\text{m}^2/\text{year}$ 調査期間: 1988-2000年度

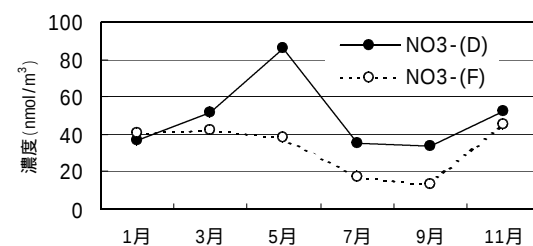
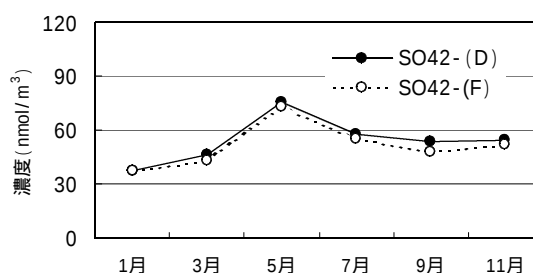


図11 デニユ - ダ法とフィルタ - パック法の比較

陸水の酸性化に関する研究

研究期間（平成8年度～13年度）

永淵 修，阿久根卓^{*}，吉村和久^{*}，海老瀬潜一^{**}

要 旨

屋久島は周囲を黒潮が流れているため海水の蒸発が活発であり，さらに急峻な山岳のため降雨量が非常に多い．このため，北欧や米国北東部と同様に土壌層が薄い．また，母岩が花崗岩であることも類似している．屋久島は化石燃料使用量が増大している東アジア諸国の東側に位置しているため，越境汚染してくる酸性降下物による陸水影響を検討する最適のサイトである．なぜなら，北半球の中緯度地域の主な風は西風である．さらに，豊富な降水により豊かな森林が発達している．ここでは酸性降下物による陸水酸性化が発現しているかどうか．また，この森林が酸性降下物と渓流水質の仲介者としてどのように機能しているかも併せて検討した．

降水のpHと SO_4^{2-} は明確な季節変動を示した．すなわち，冬季にpHは低く， SO_4^{2-} は高濃度になっている．これは明らかに大陸からの影響があることを示唆している．渓流水質は中央山岳の源流部では降水に非常に近い値であった．これは降水がそのまま流出していることを意味しており，酸性降下物の陸水への影響が懸念される．さらに，島西部の渓流河川群のイオン濃度が特異的に高濃度であった．この原因として，密な樹冠による濃縮が考えられた．さらに，その影響による土壌・母岩の化学風化が示唆された．

〔キーワード：酸性降下物，渓流水，アルカリ度，ケイ酸イオン，化学風化〕

1 はじめに

大気中に放出された硫黄酸化物（ SO_x ）や窒素酸化物（ NO_x ）を含むガス状物質や粒子状物質が雨や霧に溶け込み，地表へ降下してくるものを酸性雨と呼び，これら酸性物質の長距離移流は，国を超えた越境汚染として国際的な問題である．屋久島のような大気環境からみればバックランド地域と考えられるところでも年平均 pH4.6の雨が降っており，その酸性物質の由来は，著者らの研究で大陸からの長距離移流によるものであることが明らかになっている¹⁾⁻²⁾．

土壌，地層中には，地表面付近を除いて CaCO_3 に代表される炭酸塩鉱物が存在している．これらの炭酸塩は他の鉱物に比較して H^+ と反応しやすく酸性降下物を短時間で中和する．しかし，炭酸塩の分布量が少ない場合は短時間で消失しやすい．屋久島は，大部分花崗岩に覆われた島であり，また山岳では年間降雨量10,000mmを超え

るほどの多雨であるため土壌の流亡が激しく，したがって土壌層はうすいため炭酸塩は少なく，それによる酸性降下物の中和は多く望めない．

土壌粒子の表面は一部の土壌を除いて大部分はマイナスに帯電しており，この部分に Ca^{2+} ， Mg^{2+} ， Na^{2+} ， K^{2+} などの塩基性陽イオンが吸着している．これらが土壌水中の H^+ とのイオン交換により中和作用を示すが，前記したように屋久島は土壌層が他の地域に比べて薄い上に花崗岩地域であるため酸に対する中和能力は低い．森林地帯での降水は，その一部は樹冠にて遮断されたり大気中へ蒸発する．それ以外の大部分が地表面に到達する．地表面に到達した降水は，滞留時間の短い土壌水や滞留時間の長い基岩内部にまで浸透した基岩水となる．渓流水の水質はこれらの単純混合であり，渇水期においては基岩水の影響が大きくなることが以前の研究で明らかにされている．したがって酸性降下物による土壌や陸水の水

福岡県保健環境研究所（〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39）

^{*}九州大学大学院理学研究科（〒810-0044 福岡市中央区六本松4-2-1）

^{**}摂南大学工学部土木工学科（〒572-8508大阪府寝屋川市池田中町17-8）

質形成過程に与える影響は大きいものと考えられる。

本研究では、照葉樹林帯を流域とする屋久島西部地域において、その渓流水の水質形成にどのような鉱物が関与するかを、化学風化する水 - 二酸化炭素 - 岩石相互作用から考察した。さらに、長距離移流による酸性物質が酸中和能の低い花崗岩地域にどのように影響するかを検討した。

2 研究方法

2.1 調査対象地域

本研究の調査は九州本土の最南端佐多岬から南へ60km、北緯30度20分、東経130度30分に位置する屋久島の西部地域で行った。屋久島の一部は1993年白神山地とともに、日本で初めて世界遺産条約による自然遺産としてユネスコにより認定登録され、西部地域もそれに含まれている。調査地点は屋久島西部地域の国割岳を源流部とする、流域面積1.54km²の川原1号渓流であり、調査は晴天時と降雨時に行った。

2.2 実験方法

採取した試料は、現場で水温、ECを測定し、研究室に持ち帰った試料はただちに0.45μmのメンブレンフィルターによりろ過し、渓流水中の溶存成分濃度は、Ca²⁺、Mg²⁺、K⁺、Na⁺、Cl⁻、NO₃⁻及びSO₄²⁻についてはイオンクロマトグラフィー、SiO₂についてはモリブデン黄吸光度法、HCO₃⁻については酸塩基滴定により求めた。また、1年間の物質の移動量を求めるために必要な河川流量をプロベラ式のプライス流速計を用いて測定し、降水量は転倒樹式雨量計にデータロガーを接続して観測した。

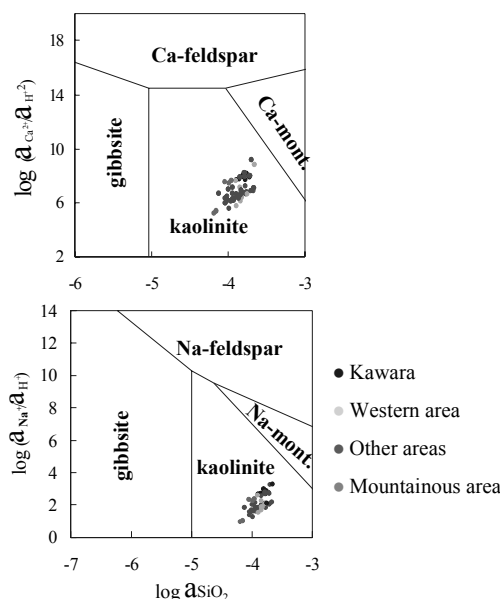
3 結果及び考察

3.1 渓流水の形成過程

降雨が森林の樹冠に到達すると、一部は遮断されるが、大部分は林内雨と樹冠流とに分かれる。樹冠を通過する降水は、樹冠上の乾性沈着物を洗い流したり、樹冠上での蒸発や葉面上での反応を経て地表面に到達し、一部はそのまま流出する。これを表面流出水と呼ぶ。また流出しなかった一部は、基岩内部にまで浸透し溜められ、化学風化により一次鉱物を二次鉱物へと変化させる。その時、アルカリ金属やアルカリ土類金属が溶出する。このような水は基岩水と呼ばれ、基底流出水は基岩水の影響を色濃く受けるため基底流出水は化学風化由来の渓流水質成分と考えることができる。渓流水の水質はこの表面流出水と基底流出水との単純な混合であると理解されている。

3.2 風化安定図

採取した渓流水の溶存成分分析の結果からその測定値を風化安定図中にプロットした。風化安定図をFig. 1に示した。この図は、基岩内部での化学風化における平衡反応を表したものである。実際の渓流水の測定値を用いて、水 - 鉱物間化学平衡計算プログラムであるWATEQを用いて活量を計算した。屋久島の花崗岩中には、石英の次に斜長石が多く、また渓流水中のカリウムイオンの濃度が低いことからカリ長石の風化による影響は、斜長石に比べると無視できるとし、化学風化を受ける一次鉱物としては、Ca長石(Anorthite)とNa長石(Albite)の固溶態である斜長石を考えた。この風化安定図における線は



Activity diagram showing the chemical composition of mountain streams and river waters collected from Yakushima Is.

→ Kaolinite is the stable phase.

Fig. 1 Activity diagram showing chemical composition of small stream waters collected Yakushima Is.

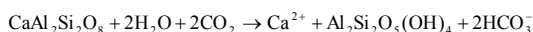
鉱物間と水の平衡関係より求め、それぞれの鉱物と水との反応式は3.3に示した。Fig. 1より、採取した渓流水は晴天時、降雨時にかかわらず、カオリナイトの安定領域に存在することが確認された。九州大学附属福岡演習林で行われた研究では、湯水期においては、Ca-モンモリロナイトとカオリナイトの間の溶解平衡により、Caの濃度が制御されているという結果が得られた。一般に基底流出水においては基岩水の化学的性質が顕著に示され、例えばCa-montmorillonite - Kaoliniteのような溶解平衡が成立すると考えられる。しかし、本研究の対象地域である屋久島西部地域の渓流河川群は、国割岳をそ

の源流部とする急峻な（平均斜度 20°）河川である．そのため帯水層のタンクが他の非石灰岩地域に比較すると小さいので滞留時間が短く演習林のような溶解平衡が成り立たず、カオリナイトの生成の方向に化学風化は進行しているということが明らかになった．

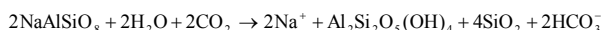
3.3 化学風化によって生成した炭酸水素イオンとケイ酸

化学風化とは土壌中の二酸化炭素と鉱物、水の反応である．Ca 長石及び Na 長石の化学風化によってにカオリナイトが生成する場合の反応式は以下になる．

Anorthite – Kaolinite



Albite – Kaolinite



この式から考えられる化学風化によって生成した HCO_3^- に対する SiO_2 の渓流水中への最大溶出量は、Albite が Kaolinite への化学風化のみを考えた場合であり、 SiO_2 は HCO_3^- の 2 倍であることが分かる．そこで、実際の測定値の HCO_3^- 濃度と SiO_2 濃度を Fig. 2 にプロットした．この結果より、 HCO_3^- に対して明らかに多くの SiO_2 が溶出

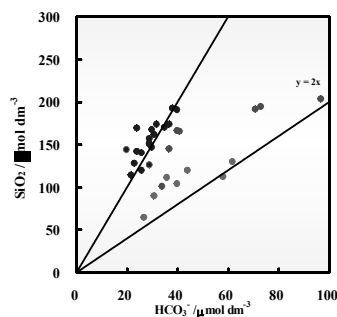


Fig. 2 Relationship between the concentration of SiO_2 and HCO_3^- in Yakushima Is.

していることが分かる．この結果より化学風化へ、何らかの形で酸が関与していることが示唆された．

3.4 非海塩性硫酸の化学風化への関与

Fig. 3 に渓流水中の SO_4^{2-} 濃度から、海からの巻き上げにより渓流水中に添加する海塩由来の SO_4^{2-} 濃度（sea salt : ss-SO_4^{2-} ）を除いた、非海塩由来の SO_4^{2-} （non sea salt : nss-SO_4^{2-} ）と HCO_3^- の当量の和を SiO_2 に対してプロットした．

nss-SO_4^{2-} は以下の式により計算した．

$$[\text{nss-SO}_4^{2-}] = [\text{SO}_4^{2-}]_{\text{sample}} - [\text{Cl}^-]_{\text{sample}} * \frac{[\text{SO}_4^{2-}]_{\text{sea}}}{[\text{Cl}^-]_{\text{sea}}}$$

渓流水中の Cl^- 濃度と ss-SO_4^{2-} 濃度は海水中的の比と等し

い、という考えからこの式は成り立っている．

この結果、 nss-SO_4^{2-} と HCO_3^- の当量の和に対して SiO_2 はその 1.4 倍になることが分かった．斜長石中の Albite

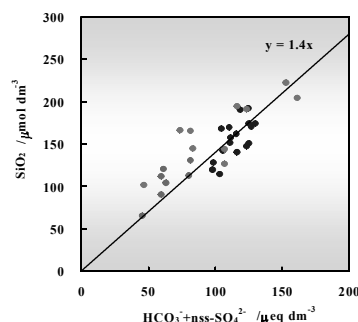


Fig. 3 Relationship between the concentration of SiO_2 and the equivalent concentration of $\text{HCO}_3^- + \text{nss-SO}_4^{2-}$ for surface waters in Yakushima Is.

のみの化学風化によって SiO_2 が渓流水中に溶出してくる際には、前記したとおり nss-SO_4^{2-} と HCO_3^- の当量の和に対して SiO_2 は 2 倍になると考えられるが、実際には Anorthite や黒雲母等のような鉱物の化学風化も関与しているため、この値は妥当であると考えられる．この結果より、化学風化に何らかの形で nss-SO_4^{2-} が関与していると示唆された．

3.5 化学風化への関与方法

それでは、この nss-SO_4^{2-} が風化にどのような過程で関与するのだろうか．まず第一に考えられるのは nss-SO_4^{2-} から供給される H^+ が直接風化に影響することが考えられる．化学風化では土壌 CO_2 と H_2O から H^+ が供給され、この H^+ が風化に用いられるが、硫酸などの酸性物質が多い場合であるところの酸性物質から供給される H^+ が優先的に風化に関与していると考えられる．

次に、化学風化に伴って生成した HCO_3^- が酸性物質からの H^+ を中和することも考えられる．しかし、これら二つのうちどちらのメカニズムで風化が進行するかは今のところ明らかにできていないため、この部分は今後研究の余地がある．

いずれにせよ、化学風化に用いられる H^+ の比率では 70% ~ 80% が nss-SO_4^{2-} であるという結果が得られた（Fig. 4）．この結果、酸性降水物の中和が化学風化に関連して行われているということが明らかになった．

長野県天竜川支川の小流域の調査報告のように日本国内の流域では、化学風化に用いられる H^+ の供給源の大部分は CO_2 の溶解によるものであり、また酸性降水物を含むこれらの H^+ は鉱物の化学風化により中和され、短期間で陸水が酸性化することはないという報告が出されている．しかし、本研究において対象とした屋久島西部地域では、 H^+ の供給源の大部分が酸性降水物による

ものであり、これらの酸性降水物の流域への負荷が増え続けるのであれば、短期間のうちに渓流水の酸性化が起こることが示唆された。

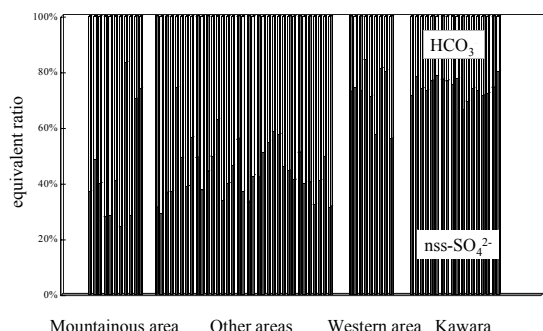


Fig. 4 The equivalent ratio of nss-SO_4^{2-} and HCO_3^- relatively to chemical weathering

今回の調査地域である屋久島西部地域において化学風化に伴う炭素消費量は $0.0008 \text{ kg m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ であった。この値は石灰岩地域の $1/20$ であり、他の非石灰岩地域と比べても小さい値であった。しかし、 SiO_2 の溶出量は炭素消費量に比較して多い。Fig. 1 に示すように、 SiO_2 濃度は HCO_3^- と nss-SO_4^{2-} イオン濃度に対して直線関係を示した。屋久島西部地域における化学風化の特徴の一つは、風化に関与する H^+ の供給が土壌 CO_2 だけでなく酸性降水物によることが初めて明らかになった。

4 結論と今後の課題

本研究では、酸性物質の中和能に乏しいと考えられる屋久島西部地域内川原 1 号流域内において、化学風化に関連して行われる、長距離移流により飛来するとされる酸性物質の中和機構を検討した。以下に本研究での成果と今後の課題を示す。

屋久島西部地域川原 1 号流域において、化学風化によって生じる HCO_3^- 濃度と SiO_2 濃度の関係から、斜長石の化学風化から予想されるよりも大きな SiO_2 の溶出が確認された。この結果より、土壌 CO_2 からの H^+ 以外にも、風化に関与する H^+ の存在が示唆され、その供給源としては nss-SO_4^{2-} によるものであると理解された。このことにより、酸性降水物が風化のメカニズムに関連して中和されていることが明らかになった。また、 nss-SO_4^{2-}

が化学風化に寄与する割合は H^+ 供給源の 70% から 80% を占めており酸性降水物による渓流水質への影響は大きく、今後短期間のうちに渓流水の酸性化が起こることが示唆された。しかし、 nss-SO_4^{2-} によって放出される H^+ を化学風化に関連してどのように中和しているのかは本研究中では不明なため、屋久島内の他の流域調査によって明らかにすべきである。

5 行政的意義

酸性雨の陸水影響をモニタリングする上で最適と考えられる屋久島において、人為的酸性降水物による潜在的な陸水の酸性化現象を明らかにしたことは意義がある。すなわち、環境汚染の系が複雑な地点では陸水の酸性化がこのようなシンプルに発現しないであろうし、おそらくこの現象を他の地点で見いだすことは不可能であろう。しかし、この結果は環境汚染の系が複雑な地点の解析に大いに役立つと考える。

文 献

- 1) O. Nagafuchi, R. Suda, H. Mukai, M. Koga and Y. Kodama: Analysis of long-range transported acid aerosol in rime founded at Kyushu Mountainous regions, Japan, War. Air Soil Poll., 85, 2351-2356(1995).
- 2) O. Nagafuchi, H. Mukai and M. Koga: Black acidic rime ice in the remote island of Yakushima, a world natural heritage area. War Air Soil Poll., 130, 1565-1570(2001).
- 3) 生原喜久雄: 森林流域における渓流水質の形成, 現代の林学 6 「森林水文学」, p218(1992)
- 4) 池田英史, 宮永洋一: 鉱物の化学風化による酸性降水物中和作用の評価法, 電力中央研究所報告, U96017(1996)
- 5) 一國雅巳: ケイ酸塩の風化とその生成物, 日本科学会編, 化学総説 4, 土の化学, p11 (1989) .

シュロガヤツリ及び炭入りコンクリートの水質浄化能の実証化研究

- その1 - シュロガヤツリによる環境の再生

研究期間（平成11年度～13年度）

中村 融子^{*}，土田大輔^{*}，緒方健^{*}，徳永隆司^{**}，世利桂一^{***}

要 旨

本研究所敷地内池にシュロガヤツリを植栽し，水質浄化効果などについて検討した．シュロガヤツリは水耕栽培が可能であり，冬期でも夏期の1/10ではあるが生長することが分かった．シュロガヤツリによるT-N及びT-P除去量は0.363及び0.089g/m²・dで，植栽面積6割で，流入負荷量に対するシュロガヤツリに固定されたN及びPは，6及び15%であった．また，植栽前の池水のpHは，夏期に10以上まで上昇することがあったが，植栽後，常に排水基準値を満足したことから，水質改善効果が確認された．水生昆虫は，6年間で，トンボ類など30種確認し，シュロガヤツリの植栽は，多数の水生昆虫の定着を促すことが分かった．

〔キーワード：シュロガヤツリ，水質浄化，窒素，リン，富栄養化〕

1 はじめに

これまで，植物植栽による水質浄化は，安価で容易であることから，多く検討されてきた¹⁾⁻²⁾．その代表的なものにホテイアオイ，ヨシ，キショウブなどがあるが，耐寒性，生長力及び再利用の面から，これらに代わる新しい植物としてシュロガヤツリ (*Cyperus alternifolius* L.)³⁾に注目した．

シュロガヤツリは，マダガスカル島原産と言われている多年草の植物で，現在，日本では一部野生化している．その特徴は，株分けで容易に増やすことができること，水耕栽培³⁾が可能であること，非木材紙などへの再利用ができることである．

本研究所敷地内池は，施設排水が流入する池で，夏季には，池水が植物プランクトンの増殖によって緑化し，透視度が低下するとともにpHが10以上まで上昇する現象が観測された．また，このとき，水生生物もほとんど生息していない状況であった．そこで，水質の改善と生態系を回復することを目的として，シュロガヤツリを植栽し，その効果について検討した．

2 方法

2・1 実験池及び植栽方法

実験に使用した池（本研究所敷地内池）は，水深0.45 m，面積270m²でコンクリート製である．施設本館の雑排水とし尿が処理施設を通過後，池に流入する．滞留時間は約5日である．

植栽方法は土壌を使用しない水耕栽培方式で，植栽面積は池面積の約6割を占めた．

2・2 生長率及び栄養塩の除去量

生長率は，以下の式に従って求めた．

$$Y_t = Y_0(1+X)^t \quad (1)$$

ここで，Y_tはt日後のシュロガヤツリの重量，Y₀は植栽したシュロガヤツリの重量，tはY₀からY_tになるまでの日数，Xは生長率である．

シュロガヤツリは，水面より60cmの高さで刈り取り，その乾燥重量を測定し，単位面積，1日あたりの刈り取り量を求めた．この刈り取り量にシュロガヤツリの窒素（N）及びリン（P）の含有量を乗じて，刈り取りによる栄養塩の除去量を算出した．

2・3 水質分析

水質測定項目は，水温，pH，溶存酸素（DO），電気伝導率（EC），化学的酸素要求量（COD），全窒素（T-N），全リン（T-P）及びクロロフィルa量（Chl-a）である．

*福岡県保健環境研究所

（〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39）

**リサイクル総合研究センター

（〒808-0135 福岡県北九州市若松区ひびきの2番1号）

***福岡県商工部新産業・技術振興課

（〒812-8577 福岡県福岡市博多区東公園7番7号）

池からの流出水については、Chl-aを除く項目は、1997年7月から1998年8月まで、毎月1回採水し、分析した。Chl-aはこの期間に5回測定した。流入水については、1997年11月、1998年2月、5月及び8月に、土、日及び祝日を除く連続5日間、9時から17時まで2時間おきに採水し、分析を行い、その平均値をその月の流入水の水質とした。

2・4 水生昆虫の調査

1997年10月から2002年5月に、14回調査した。D-フレームネットを用い、根際や底質（沈殿物）をランダムにすくい、水生昆虫を採取した。

3 結果及び考察

3・1 シュロガヤツリの生長

式(1)に従って生長率を求めると、夏季の生長率は平均で4.3%、冬季では0.5%であり、年間を平均すると、1.6%であった。同じ池を用いてホテイアオイの生長率を測定した結果⁴⁾と比較すると、シュロガヤツリの生長率は、夏季にはホテイアオイのほぼ5割であったが、冬季にはホテイアオイは枯死することから、一年を通して考えると、冬季でもわずかに生長するシュロガヤツリの方が、水質浄化には有利といえる。

3・2 水質浄化効果

測定結果を図に示す。流出水のpH値は、植栽直後の1997年7月に9.0と高い値であったが、それ以降は、常に排水基準の8.6以下であった。流出水のT-Nは、1997年10月から11月及び1998年5月から7月にかけて低い値を示した。1997年10月から11月では、T-Pも同様に低い値を示し、また、シュロガヤツリの生長率が大きな時期で、繁殖するに十分なスペースがあったことから、シュロガヤツリの吸収効果が大きいことによるものと考えられた。1998年5月から7月は、T-Pは減少しておらず、D0も飽和度に換算して5.7%から14%であったことから、シュロガヤツリの繁殖が圧密状態になり、吸収効率が著しく低下したのと考えられ、T-Nの減少は、脱窒によるものと推察された。

3・3 栄養塩の除去量

シュロガヤツリのN及びP平均含有量は、茎葉部で1.30%及び0.32%、根部で1.34%及び0.29%であった。また、シュロガヤツリ全体に対する茎葉部の割合は38%であった。

水面より60cmでの刈り取り量は、年間平均で28g/m²・d（夏季：53.5g/m²・d、冬季：2.7g/m²・d）であった。よって、T-N及びT-Pの除去量は、年間平均0.363g/m²・d（夏季：0.695g/m²・d、冬季：0.035g/m²・d）及び0.089g/m²・d（夏季：0.171g/m²・d、冬季：0.008g/m²・d）となった。1998年3月に刈り取ったときの生育量は1,320g/m²であることから、全刈り取りは81,200gとなる。よって、T-Nの

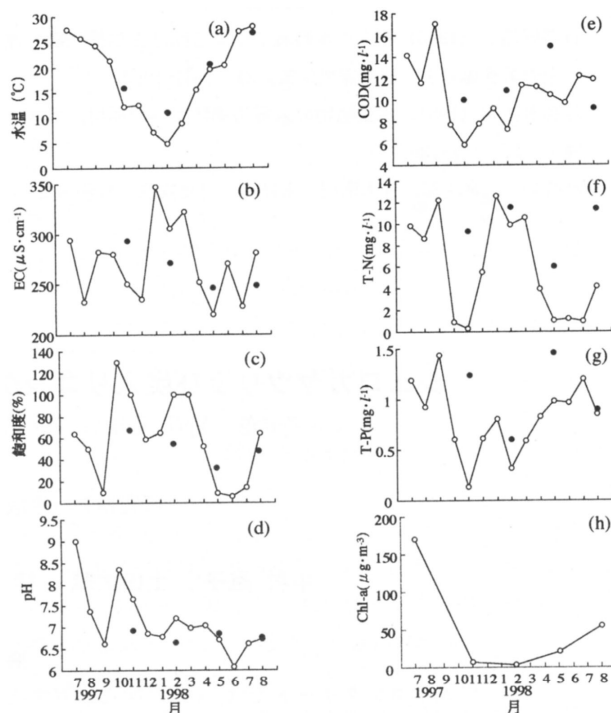


図 池の水質調査結果

○：流出水，●：流入水

除去量は1,055g、T-Pが259gと計算された。一方、この9カ月間に池に流入した栄養塩の負荷量は、T-Nが40,600g、T-Pが4,390gであることから、刈り取りによる栄養塩の除去率はT-Nで2.5%、T-Pで5.8%となるが、根部を含めると、T-Nで6%、T-Pで15%がシュロガヤツリに固定されたことになる。

3・4 水生昆虫

1997年10月から2002年5月までの14回の調査で、カゲロウ目3種、トンボ目12種、カメムシ目7種、コウチュウ目8種の計30種確認した。このことから、シュロガヤツリの植栽は、多数の水生昆虫の定着を促すことがわかる。

4 まとめ

シュロガヤツリのT-N及びT-P除去量は0.363及び0.089g/m²・dであった。また、冬季にもわずかながら生長することから、安価で容易な水質浄化方法として、シュロガヤツリが使用可能であることが確認された。

（行政的意義、貢献）

県内各地で、シュロガヤツリを河川水や池水の水質浄化、事業場排水の3次処理等に使用する計画のある市町村または事業場等の指導にあたることにより、県内各地での環境再生に寄与している。

参考文献

- 1) 平野浩二 (1995) 花卉の水耕栽培による団地浄化槽二次処理水中の栄養塩除去, 資源環境対策, **31**, 1041-1050.
- 2) 徳永隆司 (1981) 水生植物の水質汚濁防止への利用, 用水と廃水, **23**, 127-135.
- 3) 縣和一, 宮崎彰, 青木則明, 宋祥甫, 児島安信, 日隈由安 (1998) ゴルフ場調整池における水面緑化, 水質浄化並びに植物生産のための水上栽培法に関する研究, 西日本グリーン研究所研究報告, **1**, 23-30.
- 4) 徳永隆司, 北喜代志, 北直子, 森本昌宏 (1978) ホテイアオイの生長と無機栄養元素の貯蔵, 日本水処理生物誌, **14**, 1-8

シュロガヤツリ及び炭入りコンクリートの水質浄化能の実証化研究

- その2 - 竹炭入りコンクリートによる水質浄化能の評価

研究期間 (平成11年度～13年度)

中村 融子*, 土田大輔*, 緒方健*, 徳永隆司**, 世利桂一***

要 旨

炭入りコンクリートでは, Cr^{6+} が炭に吸着することにより, Cr^{6+} の溶出は, 炭の入っていないコンクリートと比較して, 1/10以下となった. 炭入りコンクリート及び炭の入っていないコンクリート試験片を本研究所敷地内池に3ヶ月間浸漬し, それら表面の生物付着量及び好気性従属栄養細菌数を測定したところ, 炭入りコンクリートの方が約3倍高かった. また, 人工下水を用いてBODの減少を観察したところ, 炭入りコンクリートを使用の方が炭の入っていないコンクリートより早くBODが低下した. これらのことから, 炭入りコンクリートの方が, 炭の入っていないコンクリートより, 水質浄化効果が高いことが期待された.

[キーワード : 炭, 間知ブロック, Cr^{6+} , BOD, 水質浄化]

1 はじめに

竹炭や木炭等の炭化物には, 水質の浄化能があることが報告されている¹⁾. しかし, これらは炭化物が有機汚濁物質を吸着する効果を利用したものであり, 吸着量が有限であるため, 飽和した後, 交換が必要となる. そこで, 浄化能を持続させるために, コンクリートに炭化物を含有させ, 微生物の付着を促し, 水質浄化に役立たせることを目的とした竹炭入りコンクリートを作製した²⁾. 本研究では, 作製した炭入りコンクリートの特性及び浄化能について検討した.

2 方法

2・1 六価クロム (Cr^{6+}) の溶出試験

Cr^{6+} の溶出は, 炭入りコンクリート及び炭の入っていないコンクリート試験片をそれぞれ蒸留水250mlに浸し, 20℃恒温室内で振とう攪拌 (80rpm) した. pH及びECが安定したところで, 試料を採取し, ジフェニルカルバジド吸光光度法によって測定し求めた. また, 0.1mg/lの

濃度の Cr^{6+} 溶液1lに炭 (竹炭) 10gを添加し, 経時変化をみた.

2・2 生物付着量及び好気性従属栄養細菌数

試験片を本研究所敷地内池に約3ヵ月間浸漬し, 一定面積から付着生物をハブラシで落とした. これを, 105℃で乾燥して単位面積あたりの重量として求めたものを生物付着量とした. また, PYG寒天培地表面に塗布して20℃で14日間培養し, 出現したコロニー数を好気性従属栄養細菌数とした.

2・3 水質浄化能

本研究所敷地内池で微生物を付着させた炭入りコンクリート及び炭の入っていないコンクリートの試験片5個をそれぞれ合成下水200mlに入れ, 20℃恒温室内で振とうし, 数時間おきに試験水 (合成下水) を採取し, BODを求めた.

3 結果及び考察

3・1 Cr^{6+} の溶出

溶出試験の結果では、炭の入っていないコンクリートでは、 Cr^{6+} が0.99mg/l検出された。しかし、炭入りコンクリートでは、0.06mg/lであり、炭の入っていないコンクリートと比較して非常に小さい値であった。炭を0.1 mg/lの濃度の Cr^{6+} 溶液に浸し、経時変化をみたところ、図1に示すように、徐々に減少していることから、炭が Cr^{6+} を吸着しているものと考えられた。

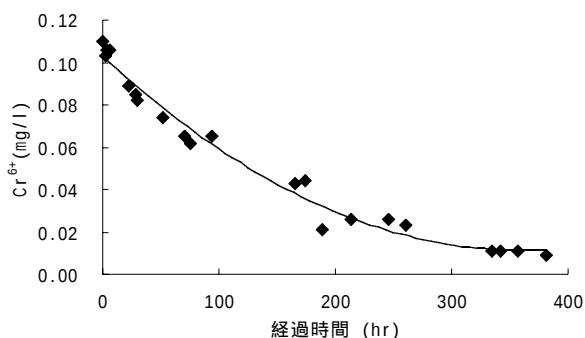


図1 Cr^{6+} の経時変化

3・2 生物付着量

生物付着量及び好気性従属栄養細菌数を表1に示す。炭入りコンクリートの生物付着量及び好気性従属栄養細菌数は、炭の入っていないものに比べ、約3倍であった。これは、コンクリートに炭を含有させたことにより、表面積が増したため、微生物などの付着量が増大したと推察された。

表1 生物付着量及び好気性従属栄養細菌数

種類	炭入りコンクリート	炭の入っていないコンクリート
生物付着量(mg/cm ²)	1.22	0.42
好気性従属栄養細菌数(×10 ⁶ CFU/cm ²)	14.5	5.20

3・3 水質浄化

池に3ヶ月間浸漬し生物が付着した試験片に、BODを調整した人工下水を加え、BOD残存率の経時変化を測定し、結果を図2に示す。BODが開始時の50%以下になるのに要する時間は、炭入りコンクリートの方が炭の入っていないコンクリートに比べ、約4時間速かった。よって、炭入りコンクリートの方が水質浄化能が高いと考えられた。

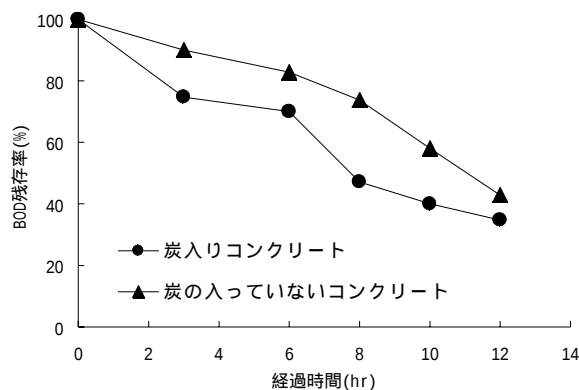


図2 BOD残存率

4 まとめ

河川護岸用間知ブロックに、炭を含有させることにより、コンクリート表面に微生物などがより多く付着し、BOD除去効果が增大することが期待された。

(行政的意義、貢献)

現在、福岡県では、竹林の増加や建築廃材の増加が問題となっている。それらの有効利用方法として、炭入りコンクリートを作製し、製品化するとともに、静脈産業といわれるリサイクル産業の育成に貢献した。

参考文献

- 1) 田中淳夫 (1999) 伐って燃やせば森は守れる, 羊泉社, 108-114
- 2) 世利桂一, 徳永隆司, 中村融子, 野田和孝, 倉富伸一 (2000) 植物系炭化物を混合した機能性コンクリートの調整と水質浄化特性, 第50回日本木材学会研究発表要旨集, 542

福岡県における環境放射能の調査研究

[地下公共施設におけるラドン濃度測定と線量評価]

-福岡市天神地下街-

研究期間 (平成12年度～平成13年度)

檜崎幸範^{*1}, 床次眞司^{*2}

要 旨

福岡市にある天神地下街においてラドン濃度を測定した。ラドン濃度は $1.9 \sim 13.6 \text{ Bq/m}^3$ に分布し、その平均値は算術平均で $6.9 \pm 2.4 \text{ Bq/m}^3$ であった。ラドン濃度は深夜から午前中に高く、午後に低い日変動を示した。ラドンとラドン娘核種との関係を示す平衡ファクタは 0.21 ± 0.10 であり、エアロゾルの粒度別個数分布から求めたラドン娘核種の放射能中央径は 150 nm 、経験式によって推定された非付着成分比は 0.025 であった。国連科学委員会 (UNSCEAR) 1993年報告の線量換算係数を用いて計算した、天神地下街に勤務する職業従事者のラドンによる年間実効線量は 0.024 mSv/y と推定された。

[キーワード: ラドン濃度, ラドン娘核種, 天神地下街, 実効線量, 平衡ファクタ]

1 はじめに

地下公共施設におけるラドン濃度の実態を把握するため、福岡市天神地下街でのラドン濃度のレベル、空間分布及び時間的変動など、線量評価に関連した環境パラメータの計測を行った。

さらに、このような特殊環境下で働く人々のラドン及びラドン娘核種による年間実効線量を推定した。

2 方法

ラドン濃度の測定にはラドン濃度水準調査で使用されたパッシブ型ラドン濃度測定器を用いた。ラドン濃度測定器は唐草模様の金網で仕切られた高さ 3 m の天井裏 (深度 5 m) に1か所に1台ずつ計15台を設置した。

測定期間は1998年4月～1999年6月までの1年3か月間とした。各測定器は1～3月 (冬期), 4～6月 (春期), 7～9月 (夏期), 10～12月 (秋期) の3か月ごとに交換した。

3 結果と考察

(1) 天神地下街 (地点番号2～16) におけるラドン濃度は $1.9 \sim 13.6 \text{ Bq/m}^3$ 、算術平均値は $6.9 \pm 2.4 \text{ Bq/m}^3$ であっ

た (表1)。

ラドン濃度は正規分布を示し、その90パーセンタイルは 10.2 Bq/m^3 であった。

地下街のラドン濃度と地下2階のラドン濃度との間に有意差は認められなかった。

(2) 地下街における季節ごとの算術平均値は $5.9 \sim 7.7 \text{ Bq/m}^3$ で、ラドン濃度に有意な季節変動は認められなかった。

(3) 地下街周辺の屋外ラドン濃度は $0.0 \sim 6.4 \text{ Bq/m}^3$ 、算術平均値は $3.3 \pm 2.0 \text{ Bq/m}^3$ であった (表2)。

(4) 7月及び1月に中央広場 (地点番号14) においてアクティブ型の測定器であるアルファガードを用い、1時間ごとにラドン濃度を測定した。ラドン濃度は8～12時及び23～24時に高く、13～22時に低くなる日変動を示した (図1)。

(5) 7月に中央広場においてWLメータを用い、平衡等価ラドン濃度を測定した。

ラドン娘核種濃度の指標となる平衡等価ラドン濃度は $0.9 \sim 9.3 \text{ Bq/m}^3$ まで変動し、算術平均値は $3.3 \pm 2.3 \text{ Bq/m}^3$ であった。

^{*1} 福岡県保健環境研究所 (〒818-0135 福岡県太宰府市向佐野39)

^{*2} 放射線医学総合研究所 (〒263-8555 千葉県稲毛区穴川4-9-1)

表 1 天神地下街におけるラドン濃度結果 (Bq/m³)

測定地点番号	1998年4月-1998年12月			1999年1月-1999年6月	
	春期	夏期	秋期	冬期	春期
1	12.4 ± 2.4	7.1 ± 1.8	9.0 ± 2.0	7.4 ± 1.9	4.4 ± 1.6
2	8.5 ± 2.0	6.8 ± 1.7	9.7 ± 2.1	7.8 ± 2.0	4.4 ± 1.6
3	7.4 ± 1.8	5.3 ± 1.6	4.0 ± 1.4	5.8 ± 1.8	6.0 ± 1.8
4	7.8 ± 1.9	3.8 ± 1.4	3.6 ± 1.4	7.8 ± 2.0	8.4 ± 2.1
5	8.9 ± 2.0	9.0 ± 2.0	5.5 ± 1.6	6.6 ± 1.8	5.2 ± 1.7
6	5.8 ± 1.6	4.2 ± 1.4	13.6 ± 2.5	7.8 ± 2.0	8.4 ± 2.1
7	5.8 ± 1.6	6.4 ± 1.7	4.8 ± 1.5	10.9 ± 2.3	6.4 ± 1.8
8	8.9 ± 2.0	9.3 ± 2.0	10.9 ± 2.2	6.2 ± 1.8	4.0 ± 1.5
9	8.5 ± 2.0	5.7 ± 1.6	7.1 ± 1.8	5.0 ± 1.7	2.4 ± 1.3
10	5.0 ± 1.5	4.9 ± 1.5	9.4 ± 2.1	5.8 ± 1.8	3.2 ± 1.4
11	8.2 ± 1.9	7.1 ± 1.8	6.3 ± 1.7	7.8 ± 2.0	5.6 ± 1.7
12	6.6 ± 1.7	8.6 ± 1.9	10.9 ± 2.2	10.9 ± 2.3	4.4 ± 1.6
13	6.6 ± 1.7	4.6 ± 1.5	4.8 ± 1.5	3.8 ± 1.5	8.0 ± 2.0
14	11.7 ± 2.3	4.2 ± 1.4	12.8 ± 2.4	9.3 ± 2.1	9.2 ± 2.1
15	8.9 ± 2.0	8.2 ± 1.9	7.1 ± 1.8	7.0 ± 1.9	9.2 ± 2.1
16	1.9 ± 1.0	6.4 ± 1.7	4.8 ± 1.5	7.0 ± 1.9	3.2 ± 1.4
地下街の平均値	7.4 ± 0.3	6.3 ± 0.2	7.7 ± 0.4	7.3 ± 0.2	5.9 ± 0.3

測定地点番号 1 は地下2階の中央制御室である。

表 2 天神地下街周辺の屋外ラドン濃度結果 (Bq/m³)

測定地点番号	1998年4月-1998年12月			1999年1月-1999年6月	
	春期	夏期	秋期	冬期	春期
17	2.7 ± 1.2	1.6 ± 1.0	2.9 ± 1.2	3.8 ± 1.5	0.0 ± 0.9
18	6.2 ± 1.7	4.6 ± 1.5	0.2 ± 0.7	5.0 ± 1.7	3.9 ± 1.6
19	4.3 ± 1.4	6.4 ± 1.7	1.7 ± 1.0	1.1 ± 1.1	4.8 ± 1.7
平均値	4.4 ± 1.8	4.2 ± 2.4	1.6 ± 1.3	3.3 ± 2.0	2.9 ± 2.5

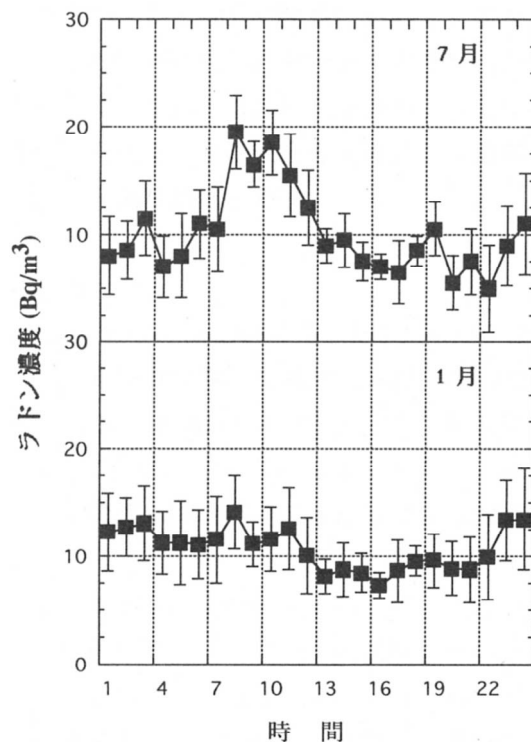


図 1 天神地下街(地点14)におけるラドン濃度の日変動

ラドン濃度とラドン娘核種濃度との関係を示す平衡ファクタは0.13~0.75まで変動し、営業時間帯(8~21時)の平衡ファクタは 0.21 ± 0.10 であった(図2)。

(6) 天神地下街における職業従事者の実効線量を UNSCEAR1993の方式¹⁾により求めた結果、ラドンによる年間実効線量は0.024mSv/yと推定された。

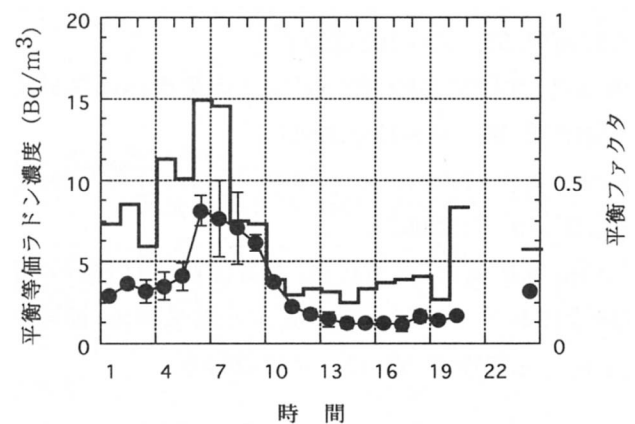


図 2 天神地下街(地点14)における平衡等価ラドン濃度及び平衡ファクタの日変動

平衡等価ラドン濃度(●:左軸)及び平衡ファクタ(ステップグラフ:右軸)を示す。

4 まとめ

天神地下街における平均ラドン濃度 6.9Bq/m^3 は屋外ラドン濃度の2倍程度とあまり高くなく、全国の屋内ラドン濃度の算術平均値²⁾ 15.5Bq/m^3 の1/2以下の濃度であった。ラドン濃度の空間的な分布によるばらつきは比較的小さく、季節による明らかな濃度変化は認められなかった。

ラドン及びラドン娘核種濃度は空調システムの稼動中は低く、停止すると上昇する傾向がみられた。

天神地下街における職業従事者の実効線量 0.024mSv/y は、わが国のラドンによる実効線量 0.46mSv/y に対し10%以下の割合であった。

本調査に当たって、測定器の設置等種々の便宜をはかって頂いた福岡地下街開発株式会社及び西鉄ビル管理株式会社の関係者各位へ深甚の意を表します。

5 行政的意義

本研究は、福岡県における放射能による被ばく線量の現状を明らかとする唯一の調査研究であり、自然放射線の変動^{3,4)}及び代表的な人工放射性核種^{1,3,7} Cs⁵⁾並びに天然放射性核種のラドン⁶⁾について環境中の濃度レベル、変動及び挙動等の実態を解明し、実効線量を推定することで、県民の安全と健康に寄与した。

参考文献

- 1) UNSCEAR ; Sources and effects of ionizing radiation, United Nations, New York(1993).
- 2) T. Sanada, K. Fujimoto, K. Miyano, M. Doi, S. Tokonami, M. Uesugi and Y. Takata ; Measurement of nationwide indoor radon concentration in Japan, J. Environ. Radioactivity, **45**, 129-137(1999).
- 3) 榑崎幸範:連続モニタによる空間放射線量率の測定と解析, 保健物理, **35**, 187 ~ 192(2000).
- 4) 榑崎幸範, 加留部善晴:空間ガンマ線量率への黄砂の影響, 保健物理, **36**, 123 ~ 129(2001).
- 5) 榑崎幸範:森林内における土壌中^{1,3,7} Csの分布と特徴, 保健物理, **37**, 28 ~ 36(2002).
- 6) 榑崎幸範, 床次眞司, 真田哲也, 菅野信行, 山田裕司:地下公共施設におけるラドン濃度測定と線量評価-福岡市天神地下街-, 保健物理, **35**, 435 ~ 442(2000).

R D F 焼却灰の有効利用等における安全性の評価に関する研究

研究期間（平成12年度～13年度）

鳥羽峰樹^{*}，永瀬誠^{*}，高橋浩司^{*}，土田大輔^{*}，石黒靖尚^{*}，松枝隆彦^{*}，徳永隆司^{**}

要 旨

RDF 焼却灰とその有効利用製品等の重金属類含有量及び環境庁告示46号の方法による溶出試験を行い，RDF 焼却灰の性状把握及び固化方法の違いによる有効利用製品の性状比較を行った．また，塩酸や酢酸を使用してpH4における溶出試験，pH依存性試験等を実施し，重金属類の溶出傾向を明らかにした．また，平成14年12月に運転を開始する大牟田 RDF 発電所から排出される焼却灰の処理方法の1つである水和固化体（ボゾテックR）の固化条件の検討に伴う環境安全性の確認のため，重金属類の溶出試験等を行った．その他，焼却灰をセメント原料として再利用するための脱塩技術の検討を行った．さらに，RDF 焼却灰等をセメントと混合し，コンクリート化する過程でのダイオキシン類の分解性を検討した．

〔キーワード：RDF 発電，焼却灰，有効利用，安全性評価〕

1 はじめに

廃棄物の処理については，現在，焼却後埋立処理が主であるが，新たな最終処分場建設は困難を極め，埋立可能容量はあと数年と言われ逼迫した状況である．そのため，廃棄物の有効利用及び広域的処理が求められており，県が推進している RDF 発電においても多量に発生すると予想される焼却灰等の有効利用方法が検討されている．本研究は，これら RDF 発電焼却灰等廃棄物の有効利用製品の環境に対する安全性を確認し，循環資源化を推進することを目的とする．

2 研究方法

RDF 焼却灰とその固化物の性状把握のため，RDF 焼却灰5種，その溶融物2種，溶融飛灰2種及び水和固化物2種の CaO，SiO₂及び Al₂O₃等の成分分析，重金属類（水銀，カドミウム，鉛，クロム，ヒ素，セレン，銅，亜鉛等）の含有量試験，環境庁告示46号による溶出試験を実施した．

また，重金属類の溶出特性を明らかにするため，塩酸及び酢酸を使用してpH4での溶出試験を行った．さらに，pHによる溶出傾向の違いを調べるため，pHコントローラーを使用して，pH依存性試験を実施した．

pHの調整には硝酸及び水酸化ナトリウムを用いた．

その他，リサイクル総合研究センターのプロジェクト研究である「焼却灰の土木資源化に関するプロジェクト研究」で九州大学島岡教授，三井鉱山(株)，電源開発(株)と共同でボゾテックRの環境安全性に関する検討を行った．また，同じくリサイクル総合研究センターの研究会の一つである「焼却残さの循環資源化研究会」で，九州大学島岡教授，麻生セメント(株)，(株)麻生，電源開発(株)，栗田工業(株)，リサイクル推進室，リサイクル総合研究センターと共同で，焼却灰の脱塩技術に関する検討を行った．

さらに，ダイオキシン類のコンクリート化による分解性の検討を行った．

3 結果及び考察

3・1 RDF焼却灰及びその固化体の性状把握

RDF 焼却灰の性状把握，重金属類含有量及び固化・溶融時の重金属類の挙動を明らかにした．RDF 焼却灰の基本性状は，表1に示すように CaO，SiO₂及び Al₂O₃で約70%を占めている．また，Cl 濃度は4.97～7.80%であった．RDF 焼却灰は，飛灰として捕集されるため法律上は「特別管理一般廃棄物」に分類されるが，重金属類

^{*}福岡県保健環境研究所

（〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39）

^{**}福岡県リサイクル総合研究センター

（〒808-0135 福岡県北九州市若松区ひびきの2番1号）

表1 RDF灰の基本組成(n=5)

	含有量(%)
CaO	24.6 - 31.9
SiO ₂	23.8 - 27.1
Al ₂ O ₃	14.4 - 16.6
MgO	1.83 - 2.73
SO ₃	1.84 - 2.57
Na ₂ O	3.25 - 3.64
K ₂ O	1.67 - 1.93
Cl	4.97 - 7.80
合計	84.6 - 90.4

の含有量は表2に示すとおり、これまでごみ焼却の主力であったストーカ炉から排出される飛灰に比べ低濃度であった。

次に RDF 焼却灰の固化・溶融時の重金属類の挙動は、溶融時には、クロムを除いて溶融飛灰に濃縮された。特に鉛は、飛灰中に4900～6000mg/kgであった。また、水和固化物には原灰と同程度の濃度で存在した。

環境庁告示46号による溶出試験の結果、表3に示すように RDF 焼却灰から水銀、鉛、六価クロム及びセレン

が溶出したが、溶融物から溶出は見られなかった。水和固化体からは鉛等の溶出が見られたが、その濃度は RDF 焼却灰と比較して低かった。

3・2 重金属類の溶出特性

3・2・1 pH 4での溶出試験

溶媒として塩酸溶液及び酢酸溶液を使用し、試料に対して10倍量の溶媒を加えて6時間振とうした。その後、0.45μmのメンブランフィルターでろ過し、ろ液中に溶出した重金属類の濃度を分析した。最初に塩酸でpH 4に調整したもの、塩酸で1時間ごとにpH 4に調整したもの、最初に酢酸でpH 4に調整したもの、及び酢酸で1時間ごとにpH 4に調整したものの4種類の方法で溶出試験を行った。その結果、及びについては環境庁告示46号による溶出試験結果とほぼ同程度であった。最初にpHを調整しても、試料の緩衝能力によってpHが上昇することが原因であった。及びについては、溶出量が増加し、表4及び5に示すように、の場合、カドミウム、銅及び亜鉛の溶出量が高く、の場合、カドミウム、銅、亜鉛に加えて、鉛、ヒ素の溶出量が高かった。溶出量はに比較しての方が高かった。つまり、塩酸よりも酢酸の方が重金属類の溶出効果が高かった。

表2 都市ごみ焼却灰及びRDF灰中の重金属類含有量

単位:mg/kg

		水銀	カドミウム	鉛	クロム	ヒ素	セレン
ストーカ飛灰 ^{*1}		7.0	160	3300	440	34	—
ストーカ主灰 ^{*1}		0.61	11	1600	290	7.4	—
流動床飛灰 ^{*2}		0.30	21	1900	210	4.3	—
RDF灰	原灰(n=5)	0.07-3.0	14-48	990-1800	480-950	2.1-5.3	0.9-1.1
	溶融物(n=2)	<0.01	<0.04	<2-150	220-9000	1.7-2.3	0.1-0.3
	溶融飛灰(n=2)	0.26-1.9	70-82	4900-6000	32-3600	5.7-15	0.9-4.0
	水和固化物(n=2)	0.04-4.81	11-14	360-1300	170-430	2.3-4.6	1.1-1.8

*1: 産業物研究財団「特別管理一般廃棄物ばいじん処理マニュアル」(化学工業日報社)より、連続燃焼方式(ボイラ式、150t以上)のデータを使用。

*2: 産業物研究財団「特別管理一般廃棄物ばいじん処理マニュアル」(化学工業日報社)より、連続燃焼方式のデータを使用。

表3 都市ごみ焼却灰及びRDF灰の重金属類溶出量

単位:mg/l

		水銀	カドミウム	鉛	六価クロム	ヒ素	セレン
RDF灰	原灰(n=5)	<0.0005-0.0035	<0.001	<0.005-0.11	<0.04-0.51	<0.005	<0.002-0.002
	溶融物(n=2)	<0.0005	<0.001	<0.005	<0.04	<0.005	<0.002
	溶融飛灰(n=2)	0.0013-0.10	<0.001-0.026	<0.005-260	<0.04-6.0	<0.005	0.010-0.034
	水和固化物(n=2)	<0.0005	<0.001	<0.005-0.010	<0.04	<0.005	0.002-0.003

表4 塩酸で1時間ごとにpH4に調整し6時間溶出

単位: mg/l

		水銀	カドミウム	鉛	六価クロム	ヒ素	セレン
RDF灰	原灰(n=5)	<0.0005-0.0013	0.25-2.0	0.27-0.64	<0.04	<0.005	0.010-0.041
	溶融物(n=2)	<0.0005	<0.001	<0.005-0.11	<0.04	<0.005	<0.002
	溶融飛灰(n=2)	0.022-0.096	0.30-2.4	9.6-160	<0.04	<0.005	0.003-0.010
	水和固化物(n=2)	<0.0005-0.0065	0.23-0.32	0.38-0.53	<0.04	<0.005	0.037-0.13

表5 酢酸で1時間ごとにpH4に調整し6時間溶出

単位: mg/l

		水銀	カドミウム	鉛	六価クロム	ヒ素	セレン
RDF灰	原灰(n=5)	0.0008-0.0038	0.16-1.1	22-53	-	0.15-0.20	0.012-0.020
	溶融物(n=2)	<0.0005	0.006-0.04	0.30-2.1	-	<0.005-0.10	<0.002
	溶融飛灰(n=1)	0.022	2.4	20	-	0.33	0.026
	水和固化物(n=2)	<0.0005-0.0059	0.16-0.34	16-37	-	0.14-0.29	0.030-0.25

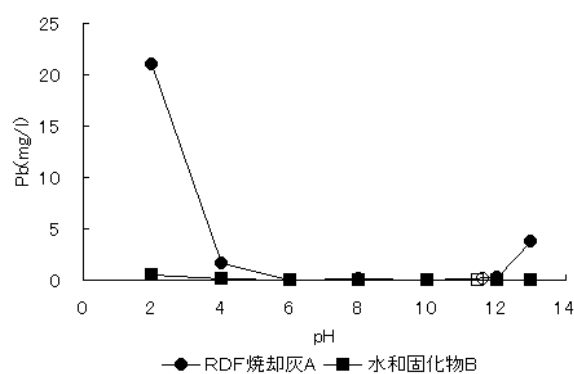


図1 pH依存性試験(Pb-1)

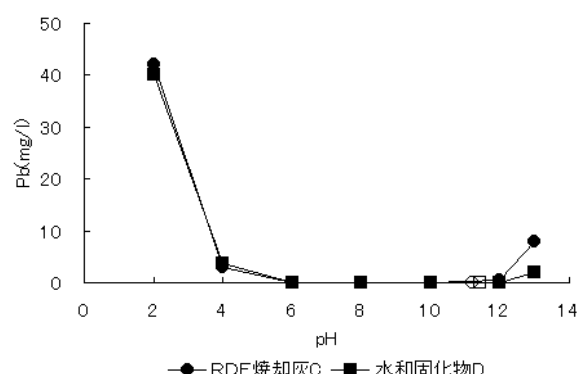


図2 pH依存性試験(Pb-2)

注) 白抜きのマーカーは環境庁告示46号による溶出試験結果

3・2・2 pH依存性試験

pH 依存性試験を実施し、重金属類の溶出特性を明らかにした。金属は基本的には酸性で溶出量が多いが、種類によって溶出傾向は異なり、特に鉛は図1、2に示すように pH12以上でも溶出量が増える。水和固化体の場合、環境庁告示46号による溶出試験方法によれば、検液の pH は12近くになることがあり注意を要する。しかし、固化条件によって、溶出を抑制できることが分かった。

3・3 ポゾテックRの溶出試験

平成14年12月に運転を開始する大牟田の RDF 発電所から出る焼却灰の一部をポゾテックRとして利用することが決まっている。このため、平成14年6月までに(財)福岡県建設技術情報センターの民間開発技術審査証明事業で土木資材(主に路盤材)としての審査証明

を取得するために、プロジェクト研究グループで強度及び環境安全性を満足するために最適な配合比を検討した。このなかで、環境安全性の確認のため固化28日後のテストピースの環境庁告示46号による溶出試験を行った。配合の割合を検討したものは、RDF 灰種、セメント添加率、RDF 灰混和率及び脱硫スラッジ混和率であり、水銀、カドミウム、鉛、六価クロム及びヒ素の溶出は見られなかったが、セレンについて溶出が見られ、条件によっては土壤環境基準値を超過した。RDF 焼却灰の混和率が少ないほど、すなわち石炭灰混和率が多いほどセレン溶出量が多く、セレンが溶出する原因は、ポゾテックRに配合される石炭灰であることが分かった。今回の検討に使用した石炭灰は、たまたまセレン含有量の高いものであったが、石炭灰中のセレン濃度は、使用する石炭の銘柄、集塵機付近の温度に影響されるため、

実際にポゾテック R を製造するときにも、注意が必要である。一連の検討試験の結果、ポゾテック R の配合比が決定した。

また、配合比の決定したポゾテック R の一般環境での影響を観察するために、大牟田市内の県道において試験施工された。その現場コアを、1 ヶ月後、3 ヶ月後及び 6 ヶ月後の溶出試験を行った結果、重金属類の溶出はセレン以外見られなかった。セレンについても最高 0.003 mg/l であり、土壤環境基準を満足していた。

3・4 焼却灰の脱塩技術の検討

焼却灰のリサイクルを考える上で、コンクリート骨材や路盤材のような二次製品の場合、需要に限られる。焼却灰の主成分がカルシウム、珪素及びアルミニウムであることを利用して、セメントの原料とする事が出来れば、無限の用途が広がる。しかし、焼却灰中には高濃度の塩素が含有しており、普通セメントの原料とするには洗浄等の工夫が必要である。そのため、「焼却残さの循環資源化研究会」において脱塩技術の検討を行った結果、水量、水温及び時間を変えても、水洗では、セメント原料に使用できる濃度まで脱塩することは不可能であり、難溶性の塩を分解する必要があることが示唆された。

3・5 ダイオキシン類のコンクリート化による分解性の検討

コンクリート骨材として RDF 焼却灰を利用し、コンクリート化の過程でのダイオキシン類分解性を検討した結果、分解する傾向が認められたが、十分な再現性が得られなかった。

4 まとめ

RDF 焼却灰の主成分は、CaO、SiO₂及び Al₂O₃であり、塩素含有量が 4.97～7.80%であった。重金属類濃度は、ストーカ飛灰と比較して低濃度であった。環境庁告示 46 号による溶出試験の結果、RDF 焼却灰に比較して、その固化・溶融物からの重金属類の溶出は少なかった。

重金属類の溶出特性は、pH によって影響が大きく、基本的に酸性で溶出量が増えたが、鉛は pH12 以上でも溶出量が増え、注意を要する。しかし、固化条件を適切に設定することにより、溶出を抑制できることが分かった。

RDF 発電所から出る焼却灰の一部を処理するために使用されるポゾテック R の材料配合比の検討、環境安全性の検討を行った。大牟田市内の県道に試験施工されたポゾテック R のコア抜きを 1 ヶ月後、3 ヶ月後、6 ヶ月後に行い、溶出試験を実施した結果、土壤環境基準を満足していた。今後、重金属類の溶出抑制メカニズムを解明することにより、溶出抑制のコントロールが可能となると考えられ、今後の課題である。

焼却灰をセメント原料とすることは、非常に有効であるが、塩素の除去が課題である。適切な除去方法の開発が次の課題である。

5 行政的意義、貢献

循環型社会構築に向けてリサイクル技術の開発とリサイクル製品の環境安全性及び健康安全性の確認・確立に貢献できた。焼却灰の有効利用技術の開発に貢献でき、特に RDF 焼却灰の有効利用技術は、RDF 発電を成功に導く技術となった。焼却灰の有効利用技術が確立され、焼却灰の有効利用時の安全性が確認できれば、路盤材等への使用が促進される。すなわち、廃棄物の減量化に多大な効果をもたらす。

謝辞

本研究は、リサイクル総合研究センターのプロジェクト研究及び研究会のなかで、提供された焼却灰、固化体等を使用して行っており、関係者である九州大学島岡教授、電源開発(株)、三井鉱山(株)、麻生セメント(株)、(株)麻生、栗田工業(株)、リサイクル推進室及びリサイクル総合研究センターの方々に感謝いたします。

自動車騒音対策に関する研究 - 遮音壁の改良に関する研究 -

研究期間（平成12年度～13年度）

松本 源生^{*}，藤原 恭司^{**}，尾本 章^{**}

要 旨

騒音制御に有効な手段として広く用いられる遮音壁に関して、その減音効果は 前川チャートに代表されるように騒音源の音響放射が全ての方向に一樣な無指向性音源と仮定して算出している。しかしながら、実在する騒音源の音響放射には指向性音源があることが最新の調査研究により明らかとなった。そこで、本研究は音響放射の指向特性を考慮して、現在用いられているものより優れる減音効果の評価方法を確立した。具体的には、建築物などの大きさを無視できない指向性音源に対しては、減音効果を精度良く算出する数値計算モデルを開発し、音源としての大きさが無視できる指向性音源に対しては、減音効果の近似算出方法を開発した。

[キーワード：指向性音源，遮音壁，挿入損失，境界要素法]

1 はじめに

騒音に関する苦情は、毎年1万件以上におよび公害苦情のなかでも2割程度を占めており、騒音対策の徹底が強く求められている。道路交通騒音や工場騒音の制御に対しては、遮音壁が有効な手段として広く用いられている。遮音壁の効果は、その設置前後の音圧レベル差すなわち挿入損失によって評価することができる。この値が大きいほど減音効果が大きいこととなる。挿入損失は、実際の騒音制御に際して、無指向性音源の仮定のもとで前川チャート¹⁾により求めることが広く普及している。しかし、自動車を例にすれば、音響放射に水平方向に強い指向特性があることが報告されている。更に、工場騒音に対しても、工場建屋の屋根より側壁に使用される材質の透過損失が6dB 程度大きければ、鉛直方向に強い指向性が生じることが確認されている²⁾。

このように、実際の音源には指向性がある。ところで、水平方向への指向性が強いほど無指向性音源と比べて遮音壁の挿入損失は増し、鉛直方向への指向性が強いほど挿入損失は減少してしまう³⁾。従って、現在広く普及している前川チャートに頼る方法では、遮音壁設置前に減音効果を正確に知ることはできない。このことは、設置

後に予測した程の効果が得られないことによる苦情にも発展しかねない。

そこで、本研究テーマにおいては、騒音源の指向特性を組み込んだ上で、遮音壁による挿入損失の計算方法の開発を行った。

2 音源の指向特性を考慮した遮音壁効果の計算手法

検討に当たって、音源を遮音壁からみた音源サイズで分類した。すなわち、建築物などの大きさを無視できない指向性音源と、小型スピーカのように大きさを無視できる指向性音源とで分けて、音源の指向特性が遮音壁の遮音性能におよぼす影響を検討した。なお、指向性音源による挿入損失と無指向性音源による挿入損失の差を、以後「指向性挿入損失差」と呼ぶこととする。

2・1 大きさを無視できない音源に対する挿入損失

建築物から発生する騒音は、複数音源や面音源の場合もあり、それら全ての音源からの寄与を考慮しなくてはならない。例えば、工場建屋の外壁からの透過音は外壁全面を面音源とし、建物サイズが大きく、その大きさと比較すれば遮音壁までの距離は小さいことも多く、面音源からの伝搬は遮音壁エッジ地点で音が複雑に伝播する近接音場の範囲となる。大きさを無視できない音源とし

^{*}福岡県保健環境研究所

(〒818-0135 太宰府市大字向佐野39)

^{**}九州芸術工科大学 芸術工学部

(〒815-8540 福岡市南区塩原4丁目9-1)

て、このような工場建屋透過音を例にとり、挿入損失の計算手法を検討した。ここで、検討に用いた遮音壁は、一般的に使用されている直壁である。

2・1・1 開発した数値計算手法

騒音の発生源が多数存在している建物内部は、拡散音場と考え、この内部音場から外壁面に音響エネルギーが入射し、透過していく。透過音を外部音場の音源と考え、外壁の外音場側は多数の線音源が等間隔で連続的に分布していると想定した。そこで、任意の受音点における音圧レベルは、それぞれの線音源からの寄与をエネルギー加算することより求めることができる。ただし、屋根と側壁から放出される音響パワーの差は、屋根上の線音源からの寄与をエネルギー加算する際に、屋根と側壁の透過損失(壁に音が入射するときの、入射音と透過した音との音圧レベル差)の差を加えることにより調整した。外壁に位置する各線音源からの寄与は CHIEF(Combined Helmholtz Integral Equation Formulation)の頭文字を取ったもの⁴⁾を適用した境界要素法⁵⁾により求めた。この数値計算手法を用いて、遮音壁設置前後の音圧レベル差を算出することにより、挿入損失を求めることが可能となる。

本数値計算手法による音場計算の精度を確認するため、1/10スケールの模型を作成し、実寸にして遮音壁背後20m 地点までの測定を行った(図1)。模型実験と数値計算による挿入損失の差の最大値は、2.0dBであった。遮音壁から6~12m にかけての地面に近い領域において、このような差違が見られたが、この領域は受音点が地面に近く干渉による誤差が現れやすい位置であったことが影響していると考えられる。この点を除けば、両者の挿入損失分布は良い一致を示していた。従って、建物内部を拡散音場と考え、外壁透過音による寄与を音響理論に基づく計算により求め、それらの寄与をエネルギー加算する数値計算手法を用いて、挿入損失が精度良く計算されることがわかった。



図1 半無響室における1/10縮尺模型による測定

2・2 大きさを無視できる音源に対する挿入損失

既にした数値計算手法によれば、精度よく遮音壁の効果を算出することができる。しかし、計算量が多く、高性能コンピュータでも数時間の計算時間を要し、専門的なプログラム言語コーディング技術も必要であるため、騒音制御の実務担当者向きではない。そこで、簡易な近似計算手法を開発することとした。

小型のスピーカなどは、2m 程度の距離でも指向性が安定している。更に、乗用車などでも遮音壁の距離であれば指向性は安定している。このように、遮音壁から見て音源の大きさが無視できる程度に小さい指向性音源について、挿入損失を検討した。

2・2・1 半無限障壁に対する指向性の影響

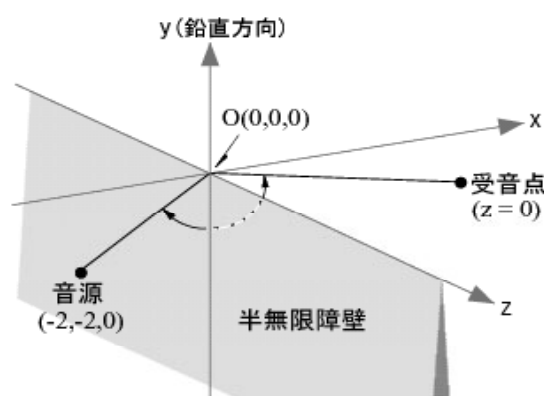


図2 位置関係

まず、地面が存在しない空間において、音響的に完全反射な表面を持つ半無限障壁により検討を行った。半無限障壁とは、図2に示すように先端部を持つが高さは無限大におよび、無限小な厚さを持つ壁のことである。半無限障壁はz軸に沿ってそのエッジがy=0にあるように置いた。また、音源は(-2,-2,0)の位置とし、受音領域と同様にz=0面に置いた。音源としては、点音源列を用いて⁶⁾図3で示すような水平方向に音響放射が強い指向性音源を作成した。この指向性音源は、1000Hzの周波数では音源中心から0.82m以上の距離において、指向性が安定するという特徴を持つ。無限に薄い完全反射な

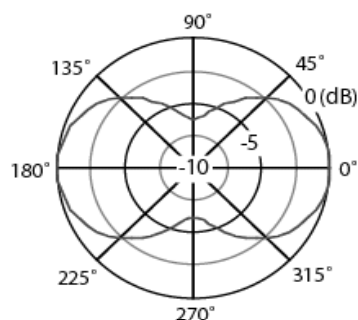


図3 検討に用いた音源の指向特性

半無限障壁による回折場の音圧計算には、Clemmow⁷⁾が開発した高精度な式を適用した。なお、音源から受音点をのぞむ角度は仰角である。障壁が無いときに、音源を中心としたエッジまでの距離の同心円上における、受音点方向とエッジ方向の地点での音圧レベル差を、「指向性音圧レベル差」と呼ぶこととした。

指向性挿入損失差の分布を描いたのが、図4である。指向性挿入損失差は、音源高さ面 $y=-2$ に対してほぼ対称で、仰角に依存する分布となり、その中心は音源位置である。また、指向性音圧レベル差と指向性挿入損失差を比較したところ、仰角が小さいほど良く一致しており、仰角が大きくなりエッジ向きの角度である45度を超えると両者の差は大きくなっていった。しかし、実際に遮音壁を設置するとき、騒音を制御したい受音点は地面近傍であることが多く、仰角は大きくはならない。従って、指向性挿入損失差を定量的に示すものとして、指向性音圧レベル差を指標として用いても誤差は小さい状況が多いと考えられる。

水平方向に強い指向性に関する結果しか示していないが、鉛直方向に強い指向性音源の場合、および、水平方向から鉛直方向にかけて極大値と極小値が繰り返されるような、複雑な指向性音源の場合も検討したところ、音源からエッジまでの距離で指向性が安定すれば、指向性挿入損失差は音源から受音点をのぞむ仰角に依存すること、および、指向性挿入損失差と指向性音圧レベル差との一致性は確認できた。従って、障壁の存在によって音源が見えない領域であれば、指向性挿入損失差は指向性音圧レベル差により近似され、特に、仰角が小さくなるほどその近似精度は高くなることがわかった。

2・2・2 一般的な条件における検討

地面が存在する場合についても検討した。その結果、エッジまでの距離で指向性が安定するならば、水平方向に強い指向性の場合や、鉛直方向に強い指向性の場合でも、また極大値と極小値が繰り返されるような複雑な指向性の場合でも、指向性音圧レベル差により指向性挿入損失差が表現され仰角が小さくなるほど、その近似精度は高くなることが同様な手順で確認できた。

以上の検討は、遮音壁の厚さは無視してきた。しかし、実際の遮音壁には厚みがあり、最もよく用いられている統一型遮音壁に関しては0.1mの厚さがある。また、統一型防音壁は音源側にグラスウールを入れているため、吸音性能をも有する。このケースについては、境界要素法⁵⁾を用いて遮音壁背後の音場をシミュレーションし、指向性挿入損失差を算出した。その結果、指向性挿入損失差は、指向性音圧レベル差により精度良く近似されることが確認できた。

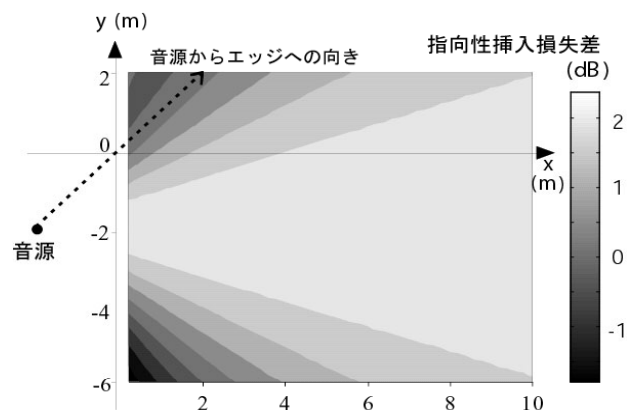


図4 指向性挿入損失差の分布 ($z=0$ 面)

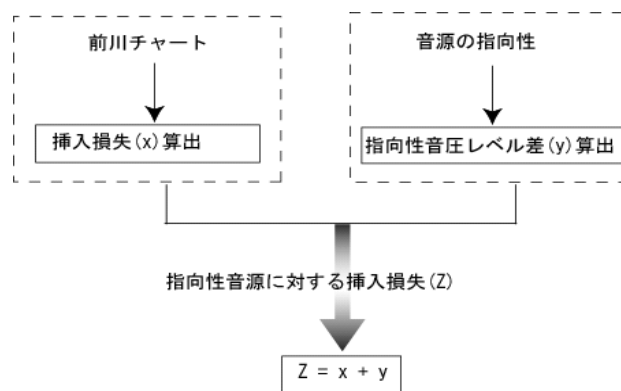


図5 挿入損失の算出手順

2・2・3 挿入損失の算出手順

音源としての大きさが無視できるほど小さいため遮音壁エッジまでの距離で指向性が安定するような音源が、地面または地面近傍に置かれたときの挿入損失は、図5に示す手順で求めることができる。ただし、指向性音圧レベル差が指向性挿入損失差と完全に一致するわけではない。しかし、これまでの検討から、仰角が小さくなるほどその近似精度は高くなり、地面近傍の受音点では問題ない精度となることは保障されている。

3 まとめ および 今後の課題

音源の指向特性を考慮して、遮音壁の挿入損失を検討した。その結果、複数の面音源を持つ構造物からの音響放射など、大きさを無視できない指向性音源に対しては、境界要素法を適用する2次元音場計算モデルを開発し、遮音壁の挿入損失の算出を可能とした。乗用車など遮音壁のエッジまでの距離で指向性が安定する指向性音源に対しては、遮音壁の減音量を簡易に導出する高精度な近似式を開発した。前者による計算は専門的な知識を要するが、後者の計算は極めて容易である。

平成14年度からは、これまで行った遮音壁に関する減音効果の近似計算法や境界要素法などの技術を活用し

て、減音効果の優れる新型遮音壁の開発に取り掛かる．
ところで、工場や交通機関から発生する騒音に関しては騒音制御技術の向上により苦情件数は減少傾向にあるが、80Hz 以下の周波数帯にある低周波音に起因する睡眠障害や、建具ガタツキなどの苦情が増加している．低周波音による苦情を訴えている住民にとっては、有効な制御技術の確立が急務な課題である．そこで、低周波音を制御対象として、新型遮音壁を開発する方針である．

低周波音に対して、既存の直立型遮音壁による制御は遮音壁に非常な高さを要するため施工が困難となるうえ、周辺環境の日照悪化、圧迫感の問題があり実用的ではない．これまでの検討により、以下の3項目を基礎として開発する新型遮音壁によれば、低周波音にも有効に機能することがわかった．

遮音壁の壁面を音響的にソフトとする

低周波音波に対しては、遮音壁の壁面自体を音響的にソフトとすることにより、低い高さの遮音壁でも低周波音に対しても有効な遮音効果が得られる．

壁面を緩やかなスロープ面とする

壁面が直立しているものよりも、スロープのほうが面積が大きくなるため、ソフトな効果も向上する．

ソフトな特性を実現する手段として共鳴器を用いる
現在、ソフトな特性を持つ素材は存在していない．

しかし、共鳴器を遮音壁の壁面に複数配置すれば、
広い周波数に及ぶ遮音効果が実現可能である．

低周波音を遮音壁により制御するための上記3項目はまだ、基礎的なアイデア段階である．今後は、音響管やヘルムホルツ共鳴器などの共鳴器の形状・組み合わせの最適化、雨・ゴミ等の共鳴器への進入を防ぐ方策を、平成14年度から立ち上げるテーマ「低周波音を制御する防音壁の開発」として取り組む．

4 行政的意義

これまで自動車騒音などの低減のため遮音壁を設置する場合、設置前に予測した減音量ほどの性能が得られなかったことによる苦情が、ここで示した遮音壁の減音効果の高精度な計算手法を用いることにより、解消できる．

また、減音効果の大きい新型遮音壁が開発されれば、多くの音源に適用可能な汎用性の優れた、騒音制御が可能となり、環境改善に広く寄与することとなる．

参考文献

- 1) Z. Maekawa, " Noise reduction by screens, Appl. Acoust. 1 , 157-173 (1968) .
- 2) G. Matsumoto, K. Fujiwara and A. Omoto " Directivity of the Sound Radiated from a Factory Building,

" Acoust. Sci. & Tech. 22,6 434-436 (2001) .

- 3) G. Matsumoto, K. Fujiwara and A. Omoto, " A study on the insertion loss of a noise barrier for a directional sound source, " J. Acoust. Soc. Jpn. (E) 20. 4, 325-328 (1999) .

- 4) H. A. Schenck, " Improved integral formulation for acoustics radiation problems, " J. Acoust. Soc. Am. 44, 141-158 (1968) .

- 5) R. Seznec, " Diffraction of sound around barriers: use of the boundary elements technique, " J. Sound. Vib. 73 (2), 195-209 (1980) .

- 6) 城戸健一, 音響工学 (コロナ社, 東京, 1982), pp.64-73.

- 7) J. J. Bowman, T. B. A. Senior and P. L. E. Uslenghi, Electromagnetic and Acoustic Scattering by Simple Shappes (North-Holland Publishing Co. , Amsterdam, 1969), pp.323-330.