

m431

ISSN 0914-0395
CODEN : KEKKEK

熊本県衛生公害研究所報

昭和61年度

Annual Report of Kumamoto Prefectural
Institute of Public Health

No.16 1986



熊本県衛生公害研究所

熊本市南千反畑町4番33号

は じ め に

好天に恵まれた5月3連休に、九州中央山地を南下して宮崎県の綾町まで足を伸ばした。

途中目立った植林地の荒廃に比し、椎葉村の八村杉は亭々としてなお青年の風貌を呈していた。

綾町は、しい、たぶ、かし、いすのき、椿等の照葉樹林に被われた綾南川に吊り橋を架け、照葉樹林博物館を設置して、日本文化、環境問題に鮮明な問いかけを行っている。

森林の効用が昭和56年の試算で、水源かん養 3兆円余、土砂崩壊・流失防止 5兆円余、保健休養 4兆円弱、野生動物保護 約1兆円、酸素供給・大気汚染除去11兆円余、計 25兆4,300億円と評価されている。最近研究者の視野が自然生態分野まで広がりつつあるのは喜ばしい。

初日米良村の天包山に天幕を張ったが、つたうるしの新緑にかざられた山頂近くの巨石には西南戦役の弾こんが刻まれていた。

日本の近代化が本格的に始まったこの時期からわずかに100年、現在の学問水準まで進歩の速さが岩にふれた指先から触感として伝わってくる。光がさし始めた山頂には無数のほうちゃく草の花がゆれていた。

自然、健康事象へのより直接的な接触、それぞれの学問の歴史的回顧が研究所職員として現在必要になっていると考える。

研究所の見直しが各地で行われているが、なによりも研究者各人の意識変革が先行すべきであろう。

2泊目の宮崎、熊本県境の峠から米良三山がくっきりと展望された。各個人が描く研究所像を今問いかけているが、はたしてどのような回答が出てくるであろうか。

最後に研究所発展に関係各位のご指導、ご支援をお願いして序文とする。

昭和62年6月2日

熊本県衛生公害研究所長

道 家 直

目 次

1	運 営	
1・1	施設 の 概 要	1
1・2	組 織 機 構	2
1・3	職 員 の 構 成	2
1・4	職 員 一 覧 表 及 び 人 事 異 動	3
1・5	予 算	4
1・6	会 議 研 修 等	5
2	検 査 業 務	
2・1	検 査 年 報	7
2・2	業 務 概 要	9
3	調 査 研 究	
1)	下痢症からの <i>Alteromonas putrefaciens</i> の検出 同菌種の人体材料、自然界分布	16
2)	伝染病流行予測調査	17
3)	インフルエンザ流行調査(1986~1987)	19
4)	1986年の日本脳炎調査	21
5)	魚介類中の多環芳香族炭化水素類の分析法	23
6)	熊本県の地下水の硝酸性窒素濃度	25
7)	都市小河川における化学成分濃度の変動	30
8)	殺虫剤 BPMC, MIPC の玄米への残留実態調査 及び炊飯等による BPMC の濃度変化	36
9)	熊本県下における合成抗菌剤の調査状況(昭和54年度~61年度)	39
10)	食物繊維の分析法の検討	40
11)	ソ連チェルノブイル原子力発電所事故に伴う 熊本県における環境放射能調査	43
12)	二酸化鉛法により捕集した大気中硫黄酸化物の 高速液体クロマトグラフによる分析	45
13)	硫化物生成と重金属溶出に及ぼす浸漬液 pH の影響	47
14)	豊肥温泉群の変動傾向	50
15)	硝酸性窒素及び総窒素の分析について	53
16)	底生動物相による河川汚濁評価(第8報)	55
4	学 会 発 表 ・ 誌 上 発 表	58
5	抄 読 談 話 会	59

1 運 営

1・1 施 設 の 概 要

敷 地 熊本県熊飽事務所管掌

庁舎概要		(単位 m ²)
本 館	鉄筋コンクリート造3階建 (昭和43年12月24日完成)	1,908.91
1 F	総務課、理化学部、大気部	678.06
2 F	生物科学部、図書室	600.00
3 F	理化学部、会議室	600.00
	廃水処理室	30.85
雑 屋 建	鉄筋コンクリート造動物舎	73.52
倉 庫 建	鉄骨ブロック造公害測定車庫	40.00
別 館	鉄筋コンクリート造4階建 (昭和48年10月20日完成)	1,412.26
1 F	ボイラー、機械室、受付、宿直室等	445.30
2 F	大気部、テレメーター	349.46
3 F	水質部、大気部、機器室	344.55
4 F	水質部	272.95
	計	3,434.69

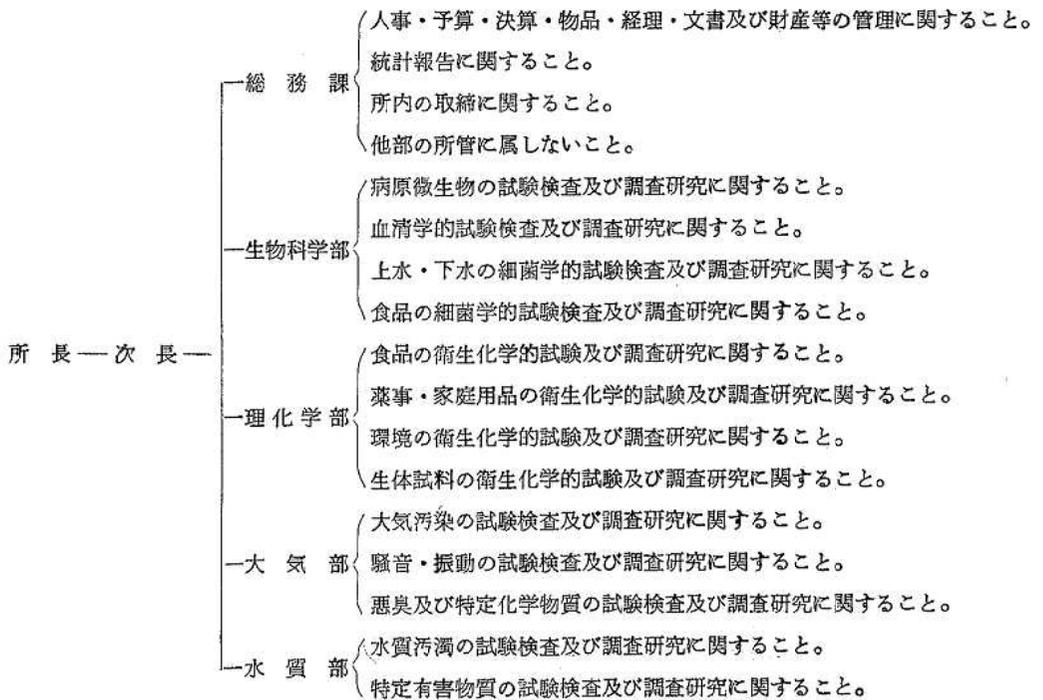
施設の建物別面積

(単位 m²)

区 分	面 積		備 考
	本 館	別 館	
管 理 部 門	109.15	36.30	
研 修 部 門	148.85		図 書 室 27.10 会 議 室 121.75
技 術 部 門	1,539.15	1,249.16	
そ の 他	動 物 舎	73.52	
	倉 庫	35.85	44.00
	そ の 他	115.91	82.80
計	2,022.43	1,412.26	

1・2 組織機構 (昭和62年4月1日現在)

県総人口 1,839,073人



1・3 職員の構成

(単位 人)

組 織	定 員 職 員 数								合 計
	事務吏員	技 術 吏 員						技能吏員	
		医 師	獣医師	薬剤師	検査技師	農学系技師	理工系技師		
所 長		1						1	1
次 長	1			1				1	2
総 務 課	5							3	8
生 物 科 学 部			1	4	1			6	7
理 化 学 部				5		1	2	8	9
大 気 部				2			5	7	7
水 質 部				2		1	6	9	9
合 計	6	1	1	14	1	2	13	32	43

1・4 職員一覧表及び人事異動

(1) 職員一覧表

(昭和62年4月1日現在)

職		氏名	職	氏名	
所長(技)	道家直	理化学部	主任技師	村嶋君代	
次長(事)	高数幸		〃	幸健	
次長(技)	鍋田正賢		〃	森山秀樹	
総務課	総務課長	林田満月	技師	平田昇	
	参事	桂木義彦	大気部	研究主幹 (大気部長事務取扱) 主任技師	
	主任主事	村上政子			鶴田雄二
	〃	松永敬子			上野一憲
	〃	嶽道静子			小笹康人
	技師	堀敬			今村修
〃	尾方新八郎	川上正宏			
生物科学部	研究主幹 (生物科学部長事務取扱)	渡辺邦昭	水質部	部長	
	研究参事	甲木和子			杉村継治
	主任技師	中島龍一			久保清
	〃	原田誠也			松岡良三
	〃	村川弘			恒松和昭
	〃	梅田哲也			塘岡穰
理化学部	研究主幹 (理化学部長事務取扱)	野口敏子	水質部	主任技師	
	研究参事	山本誠司			野田茂
	〃	辻功			宮田謙治
	〃	植木肇			小田泰史
	主任技師	小出圭子			北岡宏道

(2) 人事異動

- ① 転入 62. 4. 1
- | | | | |
|------|------|------|-------|
| 研究参事 | 松岡良三 | 主任技師 | 姫井るり子 |
| 〃 | 恒松和昭 | 技師 | 原田誠也 |
| 主任主事 | 村上政子 | | |
- ② 転出 62. 4. 1
- | | | | |
|------|------|------|------|
| 研究参事 | 井村義弘 | 主任技師 | 永山賛平 |
| 主任技師 | 戸泉慧 | 〃 | 中村辰郎 |
| 主任主事 | 斉藤節子 | | |

1・5 予 算 (昭和61年度)

(1) 取 入 (決算額)

(単位 千円)

節	件 数	取 入 額	備 考
衛生試験手数料	1,366	5,438	熊本県衛生公害研究所条例
合 計	1,366	5,438	

(2) 取 出 (決算額)

一 般 会 計

(単位 千円)

節・細節 目	人 件 費	共 済 費	賃 金	報 償 費	旅 費	需 用 費	食 糧 費	一 般 需 用 費	役 務 費	保 險 料	一 般 役 務 費	委 託 料	賃 借 料 及 び 料	工 事 請 負 費	備 品 購 入 費	交 担 金 及 び 金	公 課 費	計
人事管理費					89													89
公衆衛生 総務費					26	135	135											161
予 防 費					607	3,197		3,197										3,804
衛生公害 研究所費	262,178	4	251		2,384	10,937	172	10,765	544	21	523	8,278	152			81	13	284,822
食品衛生 指導費				38	235	2,640		2,640	6		6							2,919
環境衛生 指導費						70		70										70
公害規制費		32	1,740		3,008	12,739	50	12,689	113	69	44	1,794	540				101	20,067
環境整備費					142	211		211	25		25							378
保健所費			139		332									878	8,520			9,869
業 務 費					128	130		130										258
農業総務費					50	50		50	10		10		10					120
森林病害虫 防 除 費					280	510		510	40		40							830
水 産 業 振 興 費					250	200		200	250		250		50					750
計	262,178	36	2,130	38	7,531	30,819	357	30,462	988	90	898	10,072	752	878	8,520	81	114	324,137

1・6 会議研修等 (昭和61年度)

(1) 職員の出席した会議

年月	名 称	場 所	出 席 者	
			人員	氏 名
61. 5	地研全国協議会理事会	東 京 都	1	道家
6	全国地研所長会議、協議会臨時総会	〃	1	道家
〃	地方公共団体公害試験研究機関等所長会議	〃	1	鍋田
8	地研全国協議会九州支部総会	沖 縄 県	3	道家・桂木・嶽道
〃	第13回公害研協議会九州沖繩支部総会	鹿 児 島 市	3	道家・鍋田・松永
9	地研全国協議会理事会、衛生微生物技術協議会理事会	東 京 都	1	道家
10	地研全国協議会総会、次長庶務課長会議	仙 台 市	2	道家・高
〃	カンピロバクター血清型別システム開発会議	東 京 都	1	梅田
62. 2	昭和61年度健康づくり等調査研究に係る分析担当者会議	宮 崎 市	1	幸
3	カンピロバクター血清型別システム開発会議	東 京 都	1	梅田

(2) 職員の出席した学会、研究会

年月	名 称	場 所	出 席 者	
			人員	氏 名
61. 6	第1回熊本県公衆衛生研究会	熊 本 市	43	道家他全所員
〃	第27回日本臨床ウイルス学会	大 阪 市	1	中島
7	第21回日本脳炎生態学研究会	阿 蘇 町	2	道家・中島
〃	衛生微生物技術協議会第7回研究会	熊 本 市	43	道家他全所員
9	日本ウイルス学会	福 岡 市	1	甲木
10	1986年度日本地球化学会年会	富 山 市	1	植木
〃	第13回環境汚染物質とそのトキシコロジーシンポジウム	金 沢 市	1	辻
〃	日本陸水学会第51回大会	清 水 市	1	小田
〃	第23回全国衛生化学技術協議会	長 崎 市	3	野口・植木・小出
11	第52回九州山口薬学大会	〃	3	野口・小出・梅田
〃	西日本感染症学会	松 山 市	1	戸泉
〃	第12回九州衛生公害技術協議会	北 九 州 市	15	道家・鍋田・野口・鶴田 甲木・植木・小出・上野 永山・小田・小笹・飛野 中島・梅田・北岡
〃	日本食品衛生学会第52回学術講演会	高 知 市	1	森山
〃	大気汚染学会	京 都 市	3	小笹・川上・飛野
12	全国公害研シンポジウム及び環境保全公害防止研究発表会	東 京 都	1	鍋田
〃	第13回環境保全公害防止研究発表会	〃	1	久保
〃	水域における生物指標の問題点と将来のシンポジウム	茨 城 県	1	小田
62. 1	第23回衛生工学研究討論会	東 京 都	1	村嶋
3	第2回環境工学連合講演会	〃	1	植木
〃	第21回水質汚濁学会	〃	4	鍋田・杉村・塘岡・中村
〃	対ガン10ヶ年総合戦略合同発表会	〃	1	甲木

(3) 職員の出席した研修講演会

年月	名 称	場 所	出 席 者	
			人員	氏 名
61. 6	地研薬事試験担当者講演会	東 京 都	1	山本
9	国立公害研究所特別研修(共同研究)	茨 城 県	1	小田
〃	昭和61年度と畜検査員技術研修会	七 城 町	1	戸泉
10	防疫担当者研修会	山 鹿 市	4	道家・戸泉・中島・梅田
11	自然保護指導者講習会	矢 部 町	2	杉村・小田
〃	放射線安全管理講習会	福 岡 市	1	小笹
62. 1	第2回日本電子GC-MSユーザーズ ミーティング	〃	2	小笹・飛野
2	エイズ予防対策強化のための職員研修	東 京 都	1	中島
3	カンピロバクター外調査及び研修	鹿 児 島 市	1	戸泉
〃	エイズの確認試験法研修	宇 部 市	1	甲木
〃	感染症サーベイランス研修	高 松 市	1	渡辺

(4) 所が行った研修

年月	対 象 者	人 員	研 修 内 容
61. 4	熊本女子大研究室卒論学生	1	環境中の抗変異原物質の検索について
62. 2			
5	県下伝染病施設職員	15	最近の伝染病の動向
7	熊本大学工学部学生	1	食品分析
8	熊本大学工学部学生	1	下水試験
10	熊本女子大学食物栄養学科学生	41	公衆衛生一般
〃	防疫担当者	30	AIDS、ATL、クラミジア
62. 2	県職員衛生検査技師	30	STDの検査、ツツガ虫の分類
〃	保健所し尿浄化槽担当職員	5	下水試験
3	熊本大学医学部学生	120	食中毒

2 検査業務

2・1 試験年報

(1) 種類別試験状況調

(昭和62年3月31日現在)

区 分			件 数		区 分			件 数		
			60年度	61年度				60年度	61年度	
細菌検査	分離定	腸管系病原菌(01)	331	132	水質検査	飲水	細菌学的検査(38)	12	24	
		その他の細菌(02)	2				理化学的検査(39)	15	9	
	血清検査	化学療法剤に対する耐性検査(04)	11			井戸水	細菌学的検査(40)	34	59	
							理化学的検査(41)	60	76	
ウィルス・ウレチア等検査	分離同定	インフルエンザ(05)	81	40		その他	細菌学的検査(42)	3	6	
		その他のウイルス(06)	389	287			理化学的検査(43)	95	100	
		リケッチアその他(07)	3			利用水	細菌学的検査(44)	5	5	
	血清検査	インフルエンザ(08)	1,356	900			理化学的検査(45)	166	1	
		その他のウイルス(09)	4,273	2,039			生物学的検査(46)			
		リケッチアその他(10)	16	117		下水	細菌学的検査(47)	8	6	
					理化学的検査(48)		8	6		
						生物学的検査(49)				
	病原微生物の動物実験(11)					廃棄物検査	し尿	細菌学的検査(50)		26
	寄生虫等	原虫(12)					理化学的検査(51)	514	439	
寄生生虫(13)					生物学的検査(52)		7			
そ族・節足動物(14)					その他(53)		6			
真菌・その他(15)					公害関係検査	大気	SO ₂ ・NO・NO ₂ ・O _x ・CO(54)	1,846	1,768	
結核	培養(16)			浮遊粒子状物質(粉じんを含む。)(55)			543	526		
	化学療法剤に対する耐性検査(17)			降下ばいじん(56)		384	384			
性病	梅毒(18)				その他(57)	3,043	2,967			
	りん病(19)			河川	理化学的検査(58)	1,426	1,575			
	その他(20)				その他(59)	11				
食中毒	病原微生物検査(21)	70	169	騒音・振動	騒音・振動(60)	24	12			
	理化学的検査(22)				その他(61)	3,587	3,798			
臨床検査	血液	血液型(23)			一般環境	一般室内環境(62)				
		血液一般検査(24)				浴場水・プール水(63)				
	生化学検査	生化学検査(25)			その他(64)	966	1,635			
		先天性代謝異常検査(26)			放射能	雨水・降水(65)				
	その他(27)			空気中(66)						
	尿便	尿(28)			食品(67)					
		便(29)			その他(68)		32			
		病理組織学的検査(30)			温泉(鉱泉)泉質検査(69)	56	36			
	食品検査	その他(31)			家庭用品検査(70)	46	34			
		病理微生物検査(32)	216	140	薬品	医薬品(71)	45	55		
理化学的検査(33)	683	712	その他(72)	34		8				
水質検査	水道原水	細菌学的検査(35)	25	40	栄養	養(73)	138	122		
		理化学的検査(36)	31	44	その他(74)	948	3,781			
		生物学的検査(37)								
					計			21,570	22,138	

(2) 依頼経路別試験検査状況調

昭和62年3月31日現在

区 分	依 頼 に よ る も の										自 ら 行 う も の		計	
	保 健 所 (検査室) (01)		保 健 所 以 外 の 行 政 機 関 (02)		医 療 機 関 (03)		学 校 及 び 事 業 所 (04)		そ の 他 (05)		(06)		60年度	61年度
	60 年度	61 年度	60 年度	61 年度	60 年度	61 年度	60 年度	61 年度	60 年度	61 年度	60年度	61年度		
細菌検査(1)	76	45	2		7	2	5				246	311	336	358
ウイルス・リケッチア 等検査(2)	9	44									6,113	3,336	6,122	3,380
病原微生物の動物実験 (3)														
原虫・寄生虫等(4)														
結 核(5)														
性 病(6)														
食 中 毒(7)	109	122											109	122
臨 床 検 査(8)														
食 品 検 査(9)	21	18	726	713			11	7	3	5	66	28	827	771
水 質 検 査(10)		3	64	45	1	1	50	22	21	92	255	94	391	257
廃棄物関係検査(11)			4				89	374			438	324	531	698
公害関係検査(12)											10,864	11,030	10,864	11,030
一 般 環 境(13)			4								231	906	235	906
放 射 能(14)												32		32
温泉(鉱泉)泉質検査 (15)			5	3	1		16	6	17	18			39	27
家庭用品検査(16)			94	71			1						95	71
薬 品(17)			12	3	60	55	3			4			75	62
栄 養(18)											138	122	138	122
そ の 他(19)				4						2	948	3,778	948	3,784
計 (20)	215	232	911	839	69	58	175	409	41	121	19,299	19,961	20,710	21,620

2・2 業務概要

2・2・1 生物科学部の業務

昭和61年度に実施した日常業務の主なものは、行政依頼試験として病原細菌の同定並びに菌型決定、食中毒の原因菌検索、市販の馬刺中のウェルシュ菌の菌数測定、食品中の残留抗生物質含有量調査等があり、国の委託事業としてのポリオ、インフルエンザ、日本脳炎の伝染病流行予測事業、感染症サーベイランス事業に伴う検査等があった。一般依頼試験として水道法に基づく飲料水の検査、廃棄物の処理及び清掃に関する法律に基づく放流水の検査、保存血液や新鮮凍結血漿の無菌試験、ツツガ虫病に関する試験、HTLV-Ⅲの抗体検査等があった。調査研究として、インフルエンザの流行調査、日本脳炎の調査、カンピロバクター血清型別に関する調査、EBウイルスを指標とした腫瘍プロモーターの検索等があった。日常業務の概要は次のとおりである。なお、調査研究は別項に掲げる。

1) 行政試験の検査成績

病原菌の同定並びに菌型決定の検査依頼はわずかに6件で、うち腸チフスが5件（フェージ型別ではM1が2件、Vi(-)、DVS、D2がそれぞれ1件）、赤痢菌型決定が1件で、S. sonneiであった。

食中毒原因菌の検査依頼が10件で、うち5件は腸炎ビブリオ、5件は病原性大腸菌によるものであった。

市販の馬刺し34検体について推定ウェルシュ菌数及び一般細菌、大腸菌群の菌数測定を行った。

市販のからし蓮根その他9検体について、ボツリヌス毒素の検査を行ったが、全て不検出であった。

食品中の残留抗生物質含有量調査（ペニシリン、ストレプトマイシン、テトラサイクリンの3剤について）は牛乳が21件、肉が15件、鶏卵が10件、魚介類が10件合計56件であったがいずれの食品からも検出されなかった。

2) 一般依頼試験の検査成績

飲料水の依頼検査が15件（原水12件、給水検水3件）であったが、うち大腸菌群不適が8件、一般細菌数不適が8件であった。またし尿処理施設放流水の依頼検査は31件で不適合はなかった。

保存血液や新鮮凍結血漿等の無菌試験検査依頼は60件あったが、すべて細菌適否試験に適合していた。

HTLV-Ⅲの抗体検査は、61年11月2件、12月4件、62年1月以降に増加し、1月15件、2月97件、3月118件、総計236件でありELISA法にて検査の結果全て陰性であった。

3) ポリオの感受性調査

玉名郡菊水町の乳幼児（0～3才）18名、鹿本郡鹿本町の5～57才の100名について、ポリオウイルスSabin株Ⅰ、Ⅱ、Ⅲ型に対する中和抗体価の測定を

行った。抗体保有率（4倍以上）はⅠ型86.4%、Ⅱ型99.1%、Ⅲ型77.1%であった。

4) インフルエンザの感受性調査

熊本市の乳幼児（0～4才）46名、菊池郡大津町の小学生（7～12才）、中学生（13～15才）、高校生（16才）94名、20才台より60才台までの5区分160名総合計300名について、インフルエンザHⅠ抗体価の測定を4抗原で調査した。その結果、 ≥ 16 の抗体保有率は乳幼児でA/山形/120/86に28%、A/福岡/C29/85に63%、A/バンコック/10/83に42%、B/茨城/2/85に10%の割合で保有していた。以上4抗原について抗原順に小学生では、89%、97%、94%、97%、中学生、高校生では、すべての抗原に100%、20才台では、80%、96%、96%、91%、30才台では、65%、85%、82%、68%、40才台では、41%、86%、91%、50%、50才台では、77%、87%、87%、70%、60才以上では、91%、82%、86%、71%の割合で保有していた。

5) 日本脳炎の感受性調査

菊池郡大津町の小学生、中学生、高校生合計93名、20才以上の年齢層159名について日本脳炎中和抗体価を測定した結果、 ≥ 10 以上の抗体保有率は、小学、中学、高校生で、100%、20才台で、96%、30才台で、68%、40才台で、91%、50才台で、87%、60才以上では、86%であった。

6) ポリオの感染源調査

八代、玉名2地区の乳幼児0～1才、2～3才、4～6才の各年齢層各々40名合計120名について、ポリオウイルスの分離を試みた結果、すべての検体からポリオウイルスは分離されなかった。

7) ツツガ虫病の調査成績

ツツガ虫病疑いの患者の急性期及び回復期の血清について R. tsutsugamushi に対する抗体を Karp、Kato、Gillam の3株を用いて測定した結果、6名のうち3名は、IgM、IgG ともに有意の上昇がみられ確認患者として診断した。残りの3名については、2名は IgG 抗体のみ陽性で以前に不顕性感染があったことがわかり他の1名は否定された。なお確認患者3名の住所及び発症月日は、水俣市の61年11月13日、玉名郡玉東町の11月25日、球磨郡水上町の11月27日であり、症状はいずれも典型的であった。

8) サーベイランス事業に伴う検査

S. 61年4月から62年3月まで熊本市を中心とした5医療機関にて採取した検体、糞便4、髄液11、咽頭ぬぐい液1、尿道分泌物50について Hela、Vero 細胞及び蛍光抗体直接法等により検査した結果、エコー7型が糞便より2株、髄液、咽頭ぬぐい液より各々1株、クラミジア・トラコマチスが3検体陽性、淋菌が1株分離された。

2・2・2 理化学部の業務

昭和61年度に実施した日常業務の主なものは、行政依頼試験として食品衛生法に基づく食品、添加物、器具・容器包装及び洗浄剤等の規格基準試験、畜水産食品の抗菌剤、TBTO試験、魚介類水銀調査、薬事関連法による試験、家庭用品の有害性物質試験、パークロルエチレン等に係る緊急対策事業に伴う地下水調査及び松くい虫防除に使用する薬剤の残留調査である。一般依頼試験としては水道法に基づく水道用水の水質基準試験、地下水中のトリクロルエチレン等低沸点有機塩素化合物検査・成分指定水質試験、温泉分析、し尿処理施設の汚水試験・浄化機能検査、食品衛生試験及び生物試料の衛生化学試験等がある。調査事業としては、国内農産物残留農薬実態調査、表示栄養成分の分析法と摂取量に関する研究、衛生化学検査における精度管理、変異原性試験等がある。

調査研究はその主なものを別項に掲げる。

61年度理化学部の日常業務の概要は次のとおりである。

1) 食品中の残留農薬

本年度は牛乳、野菜・果実類等総計80検体について、牛乳では暫定基準に基づく農薬を、野菜・果実類では残留基準の設けられている農薬及び国の委託による国内農産物残留農薬実態調査において指定された農薬を対象として延べ735項目の試験を行った。

牛乳では10検体について試験を行い平均値で総BHC 0.002ppm、総DDT 0.001ppm、ディルドリン 0.000ppm (fat basis で 0.005ppm) で検出率は100%であったが、基準値をはるかに下回っていた。

野菜・果実類はメロン、すいか、みかん、茶等20検体のうち、有機塩素系農薬で、総BHCが茶5検体のすべてに検出されたが基準値をかなり下回っていた。その他はすべて不検出であった。

国の委託による国内農産物残留農薬実態調査では、玄米、なす、トマト、きゅうり、みかんの5品目50検体についてプロチオホス、ホサロン等残留基準未設定の農薬12種を対象として試験を実施し報告した。

2) 食品中のPCB

魚類、食肉及び牛乳35検体について試験した結果、魚類10検体ではその平均値が、0.01ppm、食肉15検体(牛肉7、豚肉8)では0.00ppm (fat basis で 0.04ppm)、いずれも検出率100%であったが、すべて暫定規制値をはるかに下回っていた。牛乳では10検体すべて不検出であった。

3) 食品中の合成抗菌剤

魚類、鶏卵及び食肉35検体についてサルファ剤3種、フラゾリドン等延べ140項目の試験を行った結果、魚類1検体にスルファモノメトキシが検出されたが、その他はすべて不検出であった。

4) 食品中のビストリブチルスズオキシド (TBTO)

魚網防汚剤中のTBTOの養殖魚への移行残留状況把握のため、養殖魚10検体についてTBTOの試験を行った結果、不検出～0.12ppmの値であった。

5) 食品中の重金属類

魚介類の総水銀 187検体、メチル水銀7検体について試験を行った。総水銀の平均値は0.066ppm(0.005ppm未満~0.411ppm)であった。なお、メチル水銀については、県下2保健所で試験した検体を含めて総水銀値で暫定規制値を超えたものについて試験を行った。

6) 食品中の食品添加物

漬物、食肉製品、魚肉製品、魚肉ねり製品、菓子類、魚介乾製品、佃煮、そうざい、調味料等の保存料204検体のうち1検体(魚肉ねり製品)、漬物、そうざい、野菜加工品、調味料、もちとり粉等の漂白料29検体のうち1検体(漬物)、めん類のプロピレングリコール51検体のうち3検体、漬物、佃煮等の甘味料(サッカリン)67検体のうち4検体が使用基準不適合であった。菓子類のプロピオン酸11検体、食肉製品、魚肉製品、魚肉ねり製品の発色剤43検体、漬物、魚介乾製品、そうざい等の着色料41検体、生鮮野菜のリン酸塩2検体、魚介乾製品の酸化防止剤5検体については、いずれも使用基準適合であった。

7) その他の行政依頼による食品衛生試験

清涼飲料水の成分規格のうちヒ素等4金属の定量試験4検体、塩漬蓮根等のpH、水分活性、塩分を測定した。食肉11検体のニコチン酸及びニコチン酸アミドの定量試験を行い、ニコチン酸で不検出~1.10mg%、ニコチン酸アミドで不検出~2.50mg%の値を得た。また、学校給食等8施設において使用されている洗浄剤の成分規格と使用基準の試験を行った結果、成分規格でpHにおいて適合しないものが1件、使用基準で使用濃度において適合しないものが2件あった。

8) 食品等の一般依頼試験

食品、生物試料等の残留農薬、重金属等有害物質70件、食品添加物使用基準適否試験2件、清涼飲料水成分規格、容器包装規格試験等を行った。

9) 薬事試験

血液比濁測定用硫酸銅液6検体の比重測定、脱臭剤等の重金属試験、急性毒性試験等を行った。

10) 家庭用品試験

繊維製品24検体のホルムアルデヒド、同5検体のデイルドリン、同5検体のビス(2,3-ジブロムプロピル)ホスフェイト化合物、家庭用洗剤7検体の塩化水素、硫酸、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、家

庭用ワックス等9検体のメタノール、家庭用クリーナー13検体のテトラクロロエチレン、トリクロロエチレンについてそれぞれ試験した結果、全て基準適合であった。

11) 表示栄養成分の分析法と摂取量に関する研究

地研全国協議会の共同研究の一環として、前年度に実施検討した結果確立された分析法による「食物繊維のクロスチェック」とその他の栄養成分の分析を実施した。

地区別共通試料として配布された精白米、乾燥わかめ等指定品目5試料、任意品目3試料について、食物繊維を統一分析法：酵素法により、その他の栄養成分(蛋白質等主要成分とCa、P、Fe、Na、K)を任意の方法により分析、検討した。これらの分析結果については全国的に集計評価され、引続き分析対象品目を広げ、さらに摂取量調査へと進展の予定である。

12) 衛生化学検査における精度管理

全国衛生化学技術協議会より配布された共通試料、(毛髪)についてCa、Fe、Mg、Zn、K、Na、Cu、Mn、Hg、Ni、Cr、Cd、Al、Pb、Pの分析を行い報告した。

13) 水道用水の水質基準試験(全項目試験)

本年度中に検査依頼を受け62年3月までに試験が終了したものは、水道原水12件(三角町内の水源予定河川継続調査6件を含む)、同浄水3件の合計15件であった。依頼先は県下の市町村水道事業体が主である。依頼件数は前年度より17件の減少である。

試験結果によると水質基準に適合するものは原水2件(16.7%)、浄水2件(66.7%)であった。

不適理由を大別すると理化学的項目だけによるもの3件、細菌学的項目だけによるもの4件、両項目によるもの4件であった。項目別の不適合件数は一般細菌数及び大腸菌群各8(両者によるもの8)、濁度4、鉄及び色度各3、蒸発残留物2、マンガン1であった。また、マンガンの指導基準値0.05mg/lを超えるものが1件あった。

水道用水について化学成分を指定した分析依頼が、5件(延べ26成分)あった。

14) 地下水等の水質試験

水道用水以外の地下水等についての分析依頼が101件(延べ610成分)あった。

主なものとして、地下水中のトリクロロエチレン等の低沸点有機塩素化合物の分析依頼が50件(延べ114

成分)あった。これには「パークロロエチレン等に係る緊急対策事業」の行政試験18件(延べ54成分)を含む。

また、地下水等の化学成分を指定した分析依頼は33件(延べ492成分)であった。

このほかクロルデン、パラコートの分析依頼が各2件あった。

15) 松くい虫防除に使用する薬剤の残留調査

県林務水産部長(造林課)の依頼により、松くい虫特別防除事業(空中散布)に使用される薬剤(NAC水和剤)の残留調査を、5町村22地点の水源地及び河川水等延べ94検体について行った。検査は空中散布前の61年5月下旬から散布後の6月下旬までの期間中に行った。その結果、94検体のうち1検体から0.007ppmのNACが検出されたが、他の93検体はいずれも検出限界値(0.004ppm)未満であった。

16) 温泉分析

本年度(一部前年度依頼分を含む)中の温泉分析依頼により現地分析を行い、分析が終了したものは中分析26件であった。このうち療養泉に該当するもの25件、療養泉に該当しないが温泉法の鉱泉の定義には該当するもの1件であった。

療養泉となった25件を泉質別にみると、単純温泉(アルカリ性単純温泉を含む)15件、食塩泉4件、重曹泉2件、芒硝泉1件、硫化水素泉2件、放射能泉1

件であった。これらの泉源の湧出状況は自噴泉7件、動力利用泉18件であった。液性の分布はpH6未満が2件、pH6以上7.5未満が2件、pH7.5以上8.5未満が13件、pH8.5以上が8件であった。また、これらを泉温別にみると、25°C未満が1件、25°C以上34°C未満が5件、34°C以上42°C未満が10件、42°C以上が9件であった。浸透圧でみるといずれも低張泉であった。

このほか小分析の依頼が1件あり、鉱泉の定義に該当すると推定された。

17) 下水

本年度はし尿処理汚水106件(脱離液23件、二次処理水他83件)、し尿処理施設浄化機能検査3件(現在解析中)、河川水21件(河川課からの行政依頼9件を含む)について依頼試験を行った。

前年度に引続き、嫌気性硝化処理水について硝化、脱窒処理を行い追跡調査を実施した。一時処理水の悪化がみられたが、この原因については返送汚泥ポンプの羽根部の摩耗により流量低下し硝化率が低減していた。また、放流水中には $\text{NH}_4\text{-N}$ が40ppm以上残留していた。

浄化機能検査結果をみると、し尿無希釈ばっ気処理施設ではM-アルカリ度が高いため集集沈殿に苦慮していた。二段活性汚泥処理施設では、ばっ気槽の有効利用が課題となっている。

2・2・3 大気部の業務

大気等調査計画に基づく、大気汚染、悪臭、化学物質の行政試験を中心に業務を遂行した。

本年度は、60年度に引続き、荅北町火力発電所環境保全調査、環境庁委託の未規制汚濁源水質調査(トリクロロエチレン等3物質)、財団法人熊本開発研究センター依頼の熊本港建設に伴う環境大気の通年調査及び阿蘇町永水地区環境影響評価調査を実施した。

更に、地下水質保全対策の一環として、有機塩素系溶剤等の化学物質の調査を精力的に実施した。

調査試験の結果の詳細は、別途「大気汚染等調査報告書」、「公害白書」に公表されるので、ここでは主な概要について述べる。

1) 工場周辺等環境調査

現在16局のテレメータシステムにより、大気汚染防止法に基づき環境大気の常時監視が行われている。これを補完するため荒尾地区、西原村鳥子工業団地周辺で公害測定車搭載の自動測定装置で延べ8日間にわたって、 SO_x 、 NO_x 、ダスト、気象及びハイポリウムエアサンプラーにより浮遊粉じん量とバナジウム等の

有害金属10項目、ベンゾ(a)ピレンを測定分析した。

2) 燃料重油の調査

大気汚染の原因となっている燃料重油中のS分析を229試料についてRI法により実施し、硫黄酸化物排出量の基礎資料とした。

3) 煙道排ガス調査

大気汚染の大きな原因となっている煙道排ガスについて24施設において、ダスト濃度、排ガス量、NO_x、SO_x、O₂、HCl、有害金属（10項目）の調査分析を行った。

4) 自動車排ガス及び光化学スモッグ調査

熊本市世安町、熊本市新南部町、宇土市、芦北町において、交通量の多い交差点付近の道路沿いで連続1日間ずつ、SO_x、NO_x、CO、O_x、HC、ダスト、気象、ハイポリウムエアサンプラー採取粉じん量、金属成分10項目、ベンゾ（a）ピレン、騒音及び交通量の測定分析を保健所、市役所の協力のもとに行った。測定結果は全地点で全項目とも環境基準以下であった。

5) 二酸化鉛法による SO_x の調査

60年度に引き続き荒尾、長洲、玉名、宇土、八代、田浦、水俣計41地点において測定を実施した。測定の結果は、年間平均値が最も高い値を示したところは八代地区で、次いで、水俣、田浦、宇土地区であった。60年度に比べて全地区で若干減少した。

6) テポジットゲージ法による降下ばいじん量の調査

60年度に引き続き荒尾、長洲、玉名、宇土、八代、田浦、水俣計32地点において測定を実施した。測定の結果、年間平均値が最も高い値を示したところは60年度と同様に水俣地区で、次いで田浦、八代地区であった。

7) テポジットゲージ法によるふっ素調査

60年度に引き続き荒尾、長洲、玉名、八代、水俣計17地点において測定を実施した。測定の結果、年間平均値が最も高い値を示したところは60年度と同様に水俣地区で、次いで八代、荒尾地区であった。60年度に比べて各地区とも若干減少した。

8) 指標植物のふっ素調査

大牟田市、荒尾市との県境にある三井アルミ工業KKから排出されるHFガスの影響調査のため、60年度に引き続き荒尾、長洲地区の正木の葉3検体のふっ素の分析を実施した。調査結果は60年度に比べて若干増加した。

9) 熊本港環境大気調査

現在、県は熊本港を熊本市沖新町地先で建設中であ

るが、環境アセスメントの一端として大気環境調査を熊本開発研究センターの依頼により、60年度に引き続き、SO_x、NO、NO₂、ダストの通年調査を実施した。

10) 苓北発電所環境保全調査

九州電力（株）苓北火力発電所は昭和68年に一号機の運転開始を予定しているが、この影響を把握するため、運転開始前の環境大気中の大気汚染物質等の調査を実施した。SO_x、ダスト、窒素酸化物、オキシダント、一酸化炭素、炭化水素、降下ばいじん、気象、気中及び粒子状水銀、HF、塩化水素、浮遊粉じん量及び浮遊粉じん中の有害な33物質について測定分析を実施した。

11) 苓北発電所建設工事監視調査

苓北火力発電所建設に伴う護岸工事等による大気汚染の状況を適確に把握するため、九電設置の大気汚染測定局の自動測定計の機能の監視を目的としてSO_x、NO_x、浮遊粒子状物質、風向、風速各機器の校正を実施した。

12) 塩化水素調査

水俣地区における大気中の塩化水素の実態把握のため、毎月一回、連続24時間調査分析を実施した。測定結果288試料中最高65ppbで、平均ND値（40ppb未満）以下であった。

13) 未規制汚濁源水質調査

トリクロロエチレン等微量有害物質について、近年地下水の広範な汚染が判明し、公共用水域への汚染が懸念されている。このような状況に鑑み、これらの物質の公共用水域への排出状況および公共用水域における汚染の実態について調査し、今後有効かつ円滑な汚染対策に資するため環境庁の委託により調査した。工場、事業場排水52検体、公共用水域水質13検体中のトリクロロエチレン、テトラクロロエチレン、1,1,1-トリクロロエタンについて調査分析を実施した。

14) 化学物質環境汚染調査

60年に引き続きPCB（40検体）、有機りん剤（17検体）、有機水銀（4検体）について調査分析した。

更に本年度は地下水保全対策の一環として県独自に有機塩素系溶剤（トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン、1,1,1-トリクロロエタン）を工場排水、地下水、河川水の126試料について調査分析を実施した。

2・2・4 水質部の業務

水質測定計画に基づく、水質環境測定、工場排水の試験等の行政試験を中心に業務を遂行した。

本年度は、60年度に引続き、水生生物を指標とした河川汚濁評価、河川水質浄化対策調査及び本年度から新たに火力発電所建設に伴う工事監視調査について実施した。

調査試験の結果は、別途「水質調査報告書」、「公害白書」として公表されるので、次にその主な概要について述べる。

1) 水質環境測定調査

測定回数、測定項目等若干の変更はあったが、ほぼ前年度と同様の調査規模で河川、海域93地点、底質29地点について、一般項目1,272、健康項目707、特殊項目830計2,857項目の測定をした。水質悪化の傾向はあまりみられなかったが、昨年同様に類型指定の厳しい河川上流水域や、都市排水の影響を受ける都市周辺において環境基準の達成状況が悪い傾向にあった。

2) 工場、事業場排水監視調査

水質汚濁防止法に係る特定事業場を対象に延べ681事業場の水質測定を行った。年々、公害防止の排水処理施設が整備されているが、排水基準違反の中には、処理施設の維持管理が不十分と思われるものが多く見受けられた。

3) 地下水調査

地盤沈下対策の基礎資料として地下水塩水化の経緯を明らかにするため、50年度より継続実施している。本年度は基準井30地点で90検体(3項目)の水質を測定した。

4) 水生生物を指標とした河川汚濁調査

河川の汚濁状況を底生生物、魚類を指標として評価することが最近行われるようになった。前年度実施し

た球磨川に引続き、本年度は白川について調査した。

白川の本流及び支流の計20地点について、水質の化学的調査、底生生物のサンプリング及び分類解析を行い、河川生物相からの水質汚濁評価について検討した。

5) 水浴場調査

利用人工5万人以上を対象に県内3地点について、遊泳期間前及び遊泳期間中の2回にわたり、計48検体の調査を行った。

6) 井芹川水系浄化対策調査

本調査は井芹川水系の水質を保全するに当たり効果的な水質浄化対策を推進するための基礎資料を得るため実施した。調査水域は、1市2町にわたり、河川水質調査4地点、団地排水調査、底生生物調査5地点及び魚類調査を行い、水域内の汚濁及び負荷量を把握した。また住民への啓蒙活動も併せて行った。

7) 苓北発電所建設工事監視調査

天草郡苓北町に建設が進められている火力発電所の埋立工事に伴う海水の汚染状況を監視するため、3地点36検体について一般項目36、濁度36及びn-ヘキサン抽出物12を測定した。

3 調 査 研 究

1) 下痢症からの *Alteromonas putrefaciens* の検出 同菌種の人体材料、自然界分布

道家 直 梅田哲也 原田 誠也 竹田哲郎*
 本田れい子* 江藤睦子* 松田由美子*

はじめに

King は臨床側から分離された糖非発酵、硫化水素産生の22株に "1b.", の仮称を与えたが、Hugh はバターから Derby 等が分離した NCIB10471 と同じもので *Pseudomonas putrefaciens* と位置づけた。1972年 Baumann 等は糖非発酵の海水細菌の1部を新しい *Alteromonas* 属に入れ、1977年 Lee 等は NCIB 10471 を含めた *Pseudomonas putrefaciens* を *Alteomonas putrefaciens* とすることを提案している。

1986年腸炎ビブリオ(神奈川現象陽性)検出の3件をふくむ食中毒患者22名の糞便から8例に本菌も分離された。その後人体材料、自然界からの検索を行った結果を報告する。

検体ならびに検査方法

病院検査室呈出の糞便、膿、喀痰、健康者糞便、鮮魚店の海産魚類、トリ肝臓、海水、海泥、直接海辺採取貝類、河川、池溝水等が検体である。

増菌培地にはアルカリペプトン水又はA培地を、分離にはビブリオ寒天培地、又はB培地を用いた。

A 培地

ゼラチン 10g、可溶性デンプン 5g
 食塩 10g、精製水 1ℓ、pH 8.0

B 培地

ペプトン 10g、肉エキス 3g、ブドウ糖 10g
 チオ硫酸ナトリウム 1g、クエン酸鉄アンモニウム 1g、塩酸システイン 0.2g、食塩 10g、
 BTB 0.04g、寒天 15g、精製水 1ℓ、pH 8.0
 培養は 30°C 又は 37°C の温度で行った。

ビブリオ寒天培地では腸炎ビブリオより小さい透明コロニーを、B培地上では黒色又は中心黒色のコロニーをとり、食塩 0.5%添加 TSI 培地に移し、硫化水素産生、酸非産生の株について諸性状を調べた。

結果ならびに考察

1986年食中毒患者糞便 22例中2例に直接ビブリオ寒天培地で、アルカルペプトン水増菌で8例に *A. putrefaciens* が検出された。

この8例中2例に *Vibrio parahaemolyticus* が、2例に *Vibrio fluvialis* が同時に検出された。

食中毒の2事例では原因施設の赤貝、ヒラス、ウニ魚種不明刺身4検体からすべてに *A. putrefaciens* が分離された。

病院検査室搬入の糞便 43例、膿 12例、喀痰 17例、一般健康者糞便 50例は増菌法によってもすべて *A. putrefaciens* を検出しなかった。

環境、魚介類等からは高率に分離され、鮮魚店の海産魚類より93株、海産貝類より30株、トリ肝臓より3株、池溝水より16株、河川水より17株、海水、海泥より15株を採取した。

前記食中毒事例からの12株とあわせて計 186株について諸性状を調べた結果を次に述べる。

Manual of Clinical Microbiology 1985年 (Lennette) の Bioval 1型に相当するものが 105株、2型に相当するものが81株であった。

食中毒事例のヒト、食品由来12株はすべて2型、淡水由来はすべて1型、海産魚介類、海水、汽水等の由来株は1型、2型がほぼ同数であった。

オルニチン脱炭酸陰性のもの、DNA 分解陰性の株が少数みられた。2型の少数に SS 寒天非発育、42°C 非発育のものがみられた。

トリメチルアミン・オキシド還元は試験したすべての株が陽性であった。

少数の株に寒天水解陽性のもの、あるいは SDS 添加培地でサルファターゼ陽性のものを認めた。

A. putrefaciens の臨床分離例は多数報告されている。1963年皆川は夏期の急性胃腸炎下痢便から赤褐色色素を産生する好塩性の菌が分離されることを報告しているが、本菌の性状にはほぼ一致する。

日和見感染が増大している現在、自然界に広く分布している本菌の臨床材料検出に留意が必要であろう。

特に腸炎ビブリオ食中毒事例では高率に分離されるものと考えられ、その頻度、意識については今後検討を加えてゆきたい。

* 熊本市保健衛生研究所

2) 伝染病流行予測調査

渡辺邦昭 中島龍一 甲木和子 道家直

はじめに

厚生省の流行予測事業のなかで本県では、ポリオ、日本脳炎、インフルエンザの感染源調査及び感受性調査を行った。この事業は流行要因としての感染源と感受性を調査し、伝染病の流行を予測して、その予防対策に資するものである。昭和61年度の調査結果を報告する。

ポリオの感受性調査

前年に引き続きポリオの抗体保有状況を調べた。対象は、玉名郡菊水町の乳幼児及び鹿本郡鹿本町の年齢層別に区分し計 118名について行った。採血日は61年7月3日及び10日である。検査結果は、×4スクリーニングにてⅠ型86.4%、Ⅱ型99.1%、Ⅲ型81.3%の抗体保有がみられた。年齢別では、7~9才の年齢層についてⅠ型、Ⅲ型に比較的感受性者が多かった。(表1)

表1 昭和61年度年齢別、型別中和抗体保有状況

年齢	検体数	Ⅰ型		Ⅱ型		Ⅲ型	
		×4	×64	×4	×64	×4	×64
0~1	4	4 (100)	4 (100)	4 (100)	2 (50)	3 (75)	1 (25)
2~3	8	8 (100)	7 (88)	8 (100)	4 (50)	8 (100)	0 (-)
4~6	25	23 (92)	14 (56)	25 (100)	14 (56)	22 (88)	1 (4)
7~9	21	15 (71)	3 (14)	21 (100)	14 (67)	13 (62)	1 (5)
10~14	20	19 (95)	3 (15)	20 (100)	14 (70)	12 (60)	1 (5)
15~19	20	15 (75)	0 (-)	19 (95)	7 (35)	19 (95)	0 (-)
20以上	20	18 (90)	3 (15)	20 (100)	6 (30)	19 (95)	2 (10)
計	118	102 (86.4)	34 (28.8)	117 (99.1)	61 (51.6)	96 (81.3)	6 (5.0)

ポリオの感染源調査

61年9月~10月、玉名郡岱明町及び八代市より搬入された120検体についての検査結果では、ポリオウイルスは分離されなかったが、岱明町の3才児及び4才児よりコクサッキーB4型が分離された。(表2)

表2 昭和61年度ウイルス分離成績

年齢	岱明町			八代市			合計		
	検体数	ポリオ	非ポリオ	検体数	ポリオ	非ポリオ	検体数	ポリオ	非ポリオ
0~1	20	0	0	13	0	0	33	0	0
2~3	18	0	1	24	0	0	42	0	1*
4~6	22	0	1	23	0	0	45	0	1*
計	60	0	2	60	0	0	120	0	2*

* コクサッキーB4型

日本脳炎の感受性調査

検体採取は61年9月~10月、調査客体252名から年齢区分別に従い、中和抗体、HI抗体価を測定した。調査地区は小学、中学、高校生及び60才以上の高年齢層は菊池郡大津町、20才台は看護学院の学生、他の年齢層は、県庁、衛生公害研究所の職員を対象とした。

中和抗体は鶏胎児細胞上のブラック減少法、HI抗体はマイクロタイター法により実施した。抗原は両検査にJaGar 01株を使用した。

検査結果、年齢別中和抗体保有状況(表4)では、小中高の年齢層で100%保有、30才台の68%を除いて他の年齢層で80%~90%の抗体を保有していた。なおHI抗体と中和抗体価の相関を(表5)に示した。

表3 HI抗体と中和抗体の相関

HI抗体	計	26	17	27	31	36	41	47	15	8	4	252
2,560												
1,280										1		1
640											2	2
320							1		1	1	2	5
160				2	3	9	15	9	4			42
80			2	4	5	19	19	1	2			52
40			2	4	16	4	12	4				42
20	2	10	8	15	8	7						50
10	1	2	10	6	4	1	1					25
<10	25	5	5									35
	<10	10	20	40	60	160	320	640	1,280	2,560	計	

(中和抗体)

表4 年令別日本脳炎中和抗体保有状況

	<10	10-20	20-40	40-80	160	320	640	1,280	≥2,560	計	≥10%
小学		2	1	5	4	6	12	3	1	35	100
中学		1	1	3	4	9	7	1	4	30	100
高校				3	5	10	7	2	1	28	100
20~29	5	5	5	8	9	5	6	2		45	89
30~39	11	4	7	3	3	1	3	1	1	34	68
40~49	2	2	3	2	4	4	3	1		21	90
50~59	4	2	5	4	5	2	4	2	1	30	87
60以上	4	1	5	3	2	4	5	3	1	29	86
計	26	17	27	31	36	41	47	15	8	252	90

インフルエンザの感受性調査

流行前の昭和61年9月から10月にかけて、熊本市及び大津町で収集した0~89才の血清300検体について、インフルエンザのHI抗体保有状況調査を実施した。

年令層別に区分し抗原別に調査した結果、32倍以上の抗体保有率は、低年令層を除いて、小、中、高校では、4抗原に対し、いずれも高い保有率を示している。また、A/福岡、A/バンコックに対しては、すべての年令層に高い価がみられるものの、A/山形、B/茨城に対し、40才台の年令では22.7%と低い傾向がみられている。(表5)

表5 昭和61年インフルエンザ年令別、抗原別HI抗体保有状況

	<16	16-32	32-64	128	256	≥512	計	>32 抗体保有率
1才未満	9	1					10	0
1才~5才	24	3	2	3	1	1	2	36
小学生	4	4	4	6	9	5	3	35
中学生		2	4	8	10	5	1	30
高校生			1	12	12	4		29
20~29才	9	7	3	12	8	5	1	45
30~39才	12	7	5	7	2	1		34
40~49才	13	4	2	1	1	1		22
50~59才	7	7	3	6	6		1	30
60才以上	3	9	5	3	2	4	3	29
計	81	44	29	58	51	26	11	300

A/山形/120/86

	<16	16-32	32-64	128	256	≥512	計	>32 抗体保有率
1才未満	4	1						5
1才~5才	7	1	1	4	1			14
小学生	2	3	3	3	11	13		35
中学生					10	14	6	30
高校生					2	20	7	29
20~29才	2	1	3	6	16	16	1	45
30~39才	6	3	7	6	9	3		34
40~49才	2	4	5	3	7			21
50~59才	4	6	7	5	6	2		30
60才以上	4	8	7	5	5			29
計	31	27	33	32	67	68	14	272

A/バンコック/10/85

	<16	16-32	32-64	128	256	≥512	計	>32 抗体保有率
1才未満	8	1	1				10	10
1才~5才	9	4	4	6	8	5		36
小学生	1			12	13	9		35
中学生			3	11	13	3		30
高校生			5	11	8	5		29
20~29才	2	1	12	5	14	6	5	45
30~39才	5	4	9	7	8	1		34
40~49才	3	8	1	4	5	1		22
50~59才	4	6	6	5	3	4	2	30
60才以上	5	3	4	5	8	2	2	29
計	32	27	37	40	80	53	26	300

A/福岡/C29/85

	<16	16-32	32-64	128	256	≥512	計	>32 抗体保有率
1才未満	9	1						10
1才~5才	32	1	2				1	36
小学生	1	1	6	8	10	8	1	35
中学生			1	8	13	7	1	30
高校生	1		2	7	10	8	1	29
20~29才	4	3	3	14	14	7		45
30~39才	11	6	7	3	6	1		34
40~49才	11	6	2	3				22
50~59才	9	5	11	3	2			30
60才以上	9	4	3	5	3	1	4	29
計	87	27	37	51	58	32	8	300

B/茨城/2/85

3) インフルエンザの流行調査 (1986~1987)

中島龍一 渡辺邦昭 甲木和子 道家直

はじめに

熊本県では近年1月から3月にかけて小中学校を中心にインフルエンザ様疾患の流行がみられるが、本年は昨年と同様12月に集団発生の初発が報告された。本年度もその流行の状況を把握するために集団発生状況、患者からのウイルス分離と同定及び急性期、回復期の血清抗体価の測定等の調査を実施したので、その概要を報告する。

結果及び考察

全国における今冬のインフルエンザ様疾患の流行はAソ連型によるもので集団発生の初発は10月26日東京都で報告された。その後年内に19都道府県から報告され、累計患者数は6,359人で昨年同期と比べ極端に少なかった。1987年に入っても患者発生数は例年のように増加せず、約11万人に終わり、過去10年間で最低となった。

一方本県における流行は12月18日大津町の大津中学校で学級閉鎖が報告されたが、年内はこの1件のみであった。1987年に入っても全国と同様増加はみられず、またピーク時(2/8~2/14)の患者発生も783人と少なく、3月6日に終息した。(図一)

本年度の流行の特徴は初発から終息までの期間は長かったが、散発型の小規模流行であったといえる。

届出施設は小学校18、中学校13計31施設、届出患者数は小学校700人、中学校1,098人計1,798人で過去18年間で昭和45年度について少ない年であった。(表一) 本年は気候が例年になく暖かったのも患者発生数の少なかった一因だと思われる。

地域別発生状況を図一2に示す。今冬は熊本市で集団発生がみられなかった。

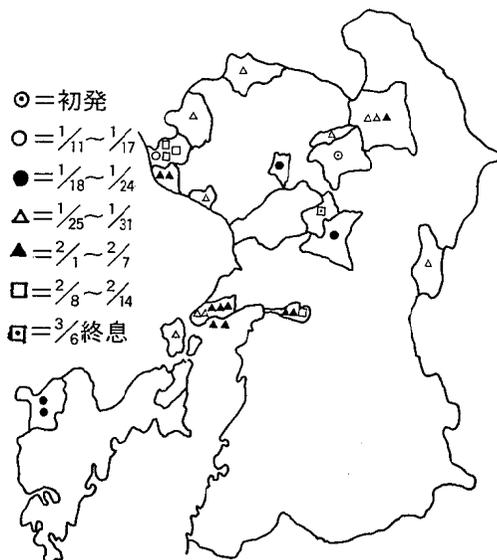


図2 集団発生地区別状況

集団発生校9校の罹患者35人のうがい液からウイルス分離を行い、2人からウイルスを分離した。今季の全国における分離ウイルスは全てAソ連型であり、本県においても分離株は同定の結果Aソ連型であった。

上記罹患者のうち30人から採血したベア血清についてワクチン株であるA/山形/120/86、A/福岡/C29/85、B/茨城/2/85を用いてHI抗体価を測定した結果、12人の血清がA/山形/120/86に対して有意の抗体上昇を示した。

まとめ

今季の集団発生は、昨年同様12月に確認されたが、患者発生は過去18年間で、昭和45年について少なく、散発型の小規模流行となり、3月6日には終息した。また流行の型はウイルス学的、血清学的にもAソ連型によるものであった。

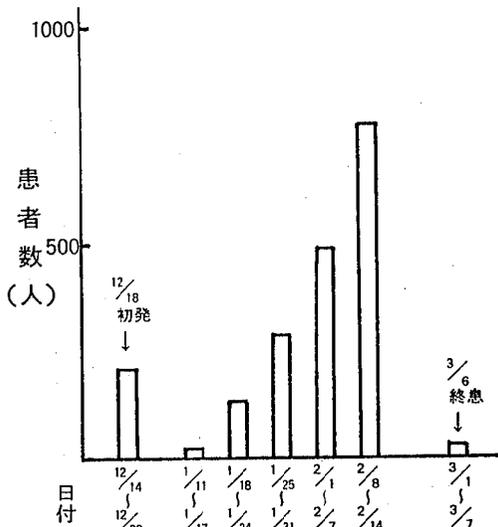


図1 週別患者発生状況

表1 インフルエンザ様疾患集団発生状況

年 度	施設数	休校数	学年閉鎖校数	学級閉鎖校数	患者数(人)	ウイルス分離状況
61年	31	5	3	23	1,798	H ₁ N ₁
60年	81	10	21	50	8,415	H ₃ N ₂
59年	143	7	34	102	7,694	B
58年	157	12	63	62	11,341	H ₁ N ₁
57年	70	11	27	32	6,418	H ₁ N ₁ , H ₃ N ₂
56年	239	40	86	113	56,941	B
55年	58	4	22	37	9,780	H ₁ N ₁ , B
54年	175	32	62	85	53,389	H ₁ N ₁ , H ₃ N ₂ , B
53年	32	6	19	10	5,508	H ₁ N ₁
52年	305	70	116	196	184,481	H ₃ N ₂ , H ₁ N ₁
51年	234	52	69	155	144,956	B
50年	344	171	87	140	178,009	H ₃ N ₂
49年	52	7	20	28	15,777	H ₃ N ₂
48年	345	55	45	290	109,810	B, H ₃ N ₂
47年	38	5	7	32	12,924	H ₃ N ₂
46年	41	2	7	67	11,300	H ₃ N ₂
45年	7	4	2	3	595	B
44年	97	22	75	218	13,421	B, H ₃ N ₂

4) 1986年の日本脳炎調査

中島龍一 渡辺邦昭 甲木和子 道家直

はじめに

日本脳炎（以下日脳と略す）患者は昭和47年より2ケタに減少したが、依然として増減をくり返しながら毎年発生している。また最近ではコガタアカイエカの薬剤耐性が問題視され、増加の兆しさえみせている。

本県においても今季8名（福岡県届出2名を含む）の患者が発生し、伝染病予防対策の大きなウエイトを占めている。本年度も蚊の発生消長、ウイルス分離、豚のHI抗体保有状況及び患者発生状況等について疫学的調査の概要を以下に報告する。

調査方法

蚊の発生消長、ウイルス分離については昨年同様の方法で行った。豚の抗体調査については昨年に引き続き、熊本市及びその周辺10町の生ワクチン接種地区及び非接種地区から搬入された豚から各々採血し検査に供した。また日脳患者として届出られた血清及び届出地区住民の血清についてもHI抗体測定を行った。抗原は化血研 JaGar O1株を使用した。

結果

(1) コガタアカイエカの発生消長とウイルス分離

発生消長を図-1に示した。本年度も昨年同様8月中旬にピークがみられた。C₆/36細胞により7月7日採集蚊から3株、7月14日3株、7月21日2株、7月27日1株、8月4日2株計11株のウイルスを分離し、検査の結果、7月8日、22日、29日、8月5日採集のもの7株が日脳ウイルスと同定された。

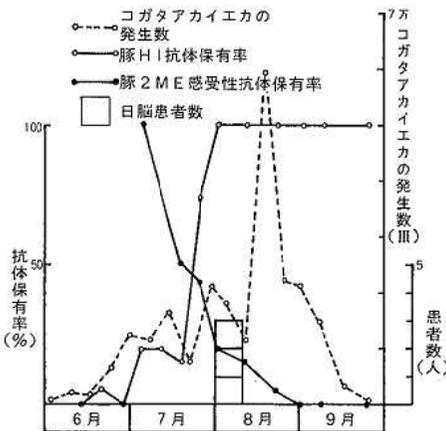


図1 コガタアカイエカの発生消長、豚のHI抗体保有状況（ワクチン接種地区）及び患者発生

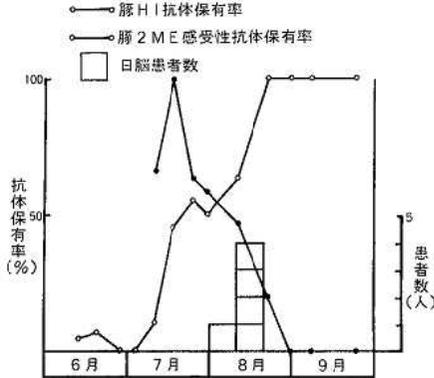


図2 豚のHI抗体保有状況（ワクチン非接種地区）及び患者発生

(2) 豚のHI抗体保有状況

ワクチン接種地区及び非接種地区から搬入された豚のHI抗体保有状況を表-1に示す。接種地区豚、非接種地区豚とも7月25日において50%以上の抗体保有率を示した。接種地区豚は8月1日には100%を示し9月下旬までピークを保持した。一方非接種地区豚は3週間遅れて8月22日に100%に達した。

2ME感受性抗体は接種地区豚で7月4日に100%に達し、7月中、下旬50%、8月初旬20%、9月1日に0%となり、その後は2ME耐性となった。その時期は昨年より1ヶ月遅く、これはワクチン接種の時期をもっと考慮に入れるべきかも知れない。非接種地区豚においては、7月11日67%、7月18日100%に達し、その後8月下旬まで証明され、9月1日に2ME耐性となった。図-1、2にみられるように感受性抗体の低下は接種地区と比し遅れている。

(8) 患者及び患者発生地区住民の抗体調査

患者発生分布を図-3に示す。患者数は熊本市3名南関町3名（うち2名は福岡県届出）、玉東、菊水町各1名の計8名であった。初発患者は8月1日発病（熊本市）し、以後8月8日、10日に熊本市で発生した。ウイルス分離は熊本市内で捕獲したコガタアカイエカから行っているが、7月8日から8月5日にかけてウイルスが分離されている。その後県北部の3町において患者発生がみられた。当該地区における日脳は玉東町で12年前発生をみただけで菊水、南関町においては最近20年間患者は発生していない。

上記福岡県届出2名を除く6名の血清学的検査を行

表1 豚HI抗体保有状況
(ワクチン非接種地区) (ワクチン接種地区)

採血 月日	検査 頭数	H I 抗体価							陽性率 (%)	2ME感受性 抗体保有率 (%)	採血 月日	検査 頭数	H I 抗体価							陽性率 (%)	2ME感受性 抗体保有率 (%)						
		<10	10	20	40	80	160	320					640 \leq	<10	10	20	40	80	160			320	640 \leq				
5.30	10	9	1						10.0		5.30	30	25	5						16.7							
6.13	30	29	1						3.3		6.13	10	10							0.0							0.0
6.20	20	19	1						5.0		6.20	20	19					1		5.0							
6.27	20	20							0.0		6.27	20	20							0.0							
7.4	20	20							0.0		7.4	20	16	2		1	1			20.0							100.0
7.11	30	27			1			2	10.0	66.7	7.11	10	8	2						20.0							
7.18	20	11				2	1	6	45.0	100.0	7.18	23	19						4	17.4							50.0
7.25	20	9		1	1	2	1	6	55.0	63.6	7.25	23	6		1	2		1	5	8	73.9						43.7
8.1	24	12				2	2	8	50.0	58.3	8.1	10					2	6	2	100.0							20.0
8.11	24	9				2	6	7	65.0	47.0	8.11	20			1	2	8	9		100.0							15.0
8.22	20				1	3	10	6	100.0	20.0	8.22	20				8	7	5		100.0							5.0
9.1	20				2	8	9	1	100.0	0.0	9.1	20			2	5	11	2		100.0							0.0
9.8	20						7	13	100.0	0.0	9.8	20				1	5	11	3	100.0							0.0
9.24	30				4	11	14	1	100.0	0.0	9.24	10			1	2	7			100.0							0.0

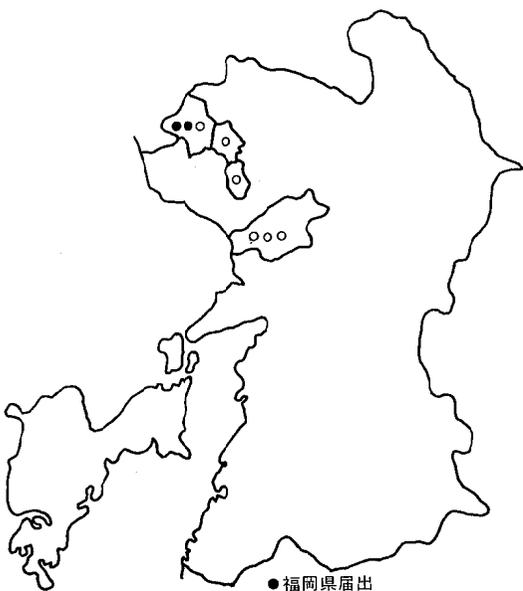


図3 患者の発生分布

ったが、抗体の有意の上昇と2ME感受性抗体が証明され、日脳患者と確認した。6名とも50才以上であり、また全員ワクチン未接種で、全治1名、後遺症を残したものの5名であった。

なお、患者届出地区住民のHI抗体保有状況を表一2に示す。

ま と め

- (1) コガタアカイエカからC6/38細胞を用いて11株のウイルスを分離し、7株が日脳ウイルスであった。
 - (2) 豚HI抗体の上昇、2ME感受性抗体の低下は生ワクチン接種地区が非接種地区よりも早い、その差は昨年よりも小さかった。
 - (3) 近年患者発生は県北部に集中している。本年も豚生ワクチン非接種地区に5名の発生をみた。これらの地域を含めた豚生ワクチン接種の拡大が望れる。
- 豚の採血に御協力頂きました熊本県食肉衛生検査所の皆様深く感謝致します。

表2 日本脳炎発生地区住民HI抗体保有状況

	三加和町(コントロール地区)									菊永町								
	<10	10	20	40	80	160	320 \leq	計	抗体保有率	<10	10	20	40	80	160	320 \leq	計	抗体保有率
~29	5	6	6	2	1	1		21	76.2	5	6	4	3	1	1		20	75.0
~39	6	8	4	1		4		23	73.9	3	5	5	2	3	1	2	21	85.7
~49	5	3	6	1	4	1		20	75.0	2	1	2	2	8	3	2	20	90.0
~59	3	5	3	4	3	3	2	23	86.9	4	2	4	4	4	3		21	80.9
60歳以上	4	4	2	4	5	4	1	24	83.3	5			6	3	4	3	21	76.2
合 計	23	25	22	12	13	13	3	111	79.3	19	13	16	17	19	12	7	103	81.6

	玉東町									南関町								
	<10	10	20	40	80	160	320 \leq	計	抗体保有率	<10	10	20	40	80	160	320 \leq	計	抗体保有率
~29	6	3	8	2	2	1		22	72.7	4	9	6	3	1			23	82.6
~39	6	3	5	2	1	4	2	23	73.9	4	6	5	2	2	1		20	80.0
~49	4	1	3	5	4	5		22	81.8	8	2	2	5	2	1		20	60.0
~59	5	4	3	3	3	4	1	23	78.3	7	3	2	8	1	1	1	23	69.6
60歳以上	2	5	6	9	4	5	3	34	94.1	4	2	1	3	8	3		21	80.9
合 計	23	16	25	20	15	19	6	124	81.5	27	22	16	21	14	6	1	107	74.8

5) 魚介類中の多環芳香族炭化水素類の分析法

辻 功

緒 言

著者らは前報¹⁾で魚介類中のベンゾ(a)ピレン(BaP)の分析法としてバイオ・ビーズS-X4樹脂を用いてクリーンアップした後、高速液体クロマトグラフ(HPLC)で定量する簡単な方法を報告した。

今回、BaPだけでなく、アントラセン(An)、フルオランテン(Fl)、ベンゾ(a)アントラセン(BaA)、ベンゾ(b)フルオランテン(BbF)、ベンゾ(k)フルオランテン(BkF)、ベンゾ(ghi)ペリレン(BghiPer)などの多環芳香族炭化水素(PAH)の分析法を検討したので報告する。

実 験

1 試 薬

PAH標準品：An、ピレン(Py)、BaP〔和光純薬工業〕、Fl、BaA、ジベンゾ(ah)アントラセン(diBahA)〔東京化成〕、BkF〔R.K.Chemical〕、ベンゾ(e)ピレン(BeP)、ペリレン(Per)〔Aldrich Chemical〕。

アセトニトリル、エタノール：HPLC用
n-ヘキサン、ベンゼン、無水硫酸ナトリウム：残留農薬試験用

硫酸：精密分析用

水酸化カリウム：特級

水：イオン交換蒸留水

カラムクロマト用担体：バイオ・ビーズS-X4 (Bio-Rad)

2 機 器

HPLC装置：日立635型(検出器は日立204-S型蛍光分光光度計)

ホモジナイザー：ポルトロン(キネマチカ)

濃縮器：ロータリーエバポレーター(柴田科学)

3 HPLCの条件

カラム：4.6×250mm ステンレスカラム

充填剤：Inertsil ODS 5 μ m (ガスクロ工業)

移動相：アセトニトリル-水(80-20)

流速：1.2ml/min

温度：室温

測定波長²⁾： λ_{ex} 370nm λ_{em} 410nm

4 抽出及びクリーンアップ

試料20gに2N水酸化カリウム-エタノール溶液100mlを加え2時間加熱還流しアルカリ分解した。

これをろ過(東洋ろ紙No7)し、ろ液に水100ml、n-ヘキサン100mlを加えて液-液分配を行い、水層は更にn-ヘキサン100mlを加えて同様に操作し、n-ヘキサン層をあわせる。n-ヘキサン層を10%硫酸50ml、次いで水100mlで2回洗浄した後、無水硫酸ナトリウム25gで脱水した。これをロータリーエバポレーターで約4mlに減圧濃縮、濃縮液をバイオ・ビーズS-X4カラム¹⁾上に移し、ベンゼンで溶出して70mlから120mlまでの分画50mlを分取する。

これを減圧濃縮し、更にテトラヒドロフランで乾固、残留物にアセトニトリル2mlを加えて溶解してHPLC検液とした。

結 果

1 バイオ・ビーズS-X4によるPAH溶出パターン

前報¹⁾と同様にして調製したバイオ・ビーズS-X4カラムに、An、Fl、Py、BaA、BeP、BbF、Per、BkF、BaP、diBahA、BghiPerの混合ベンゼン標準溶液4mlを注加し、ベンゼンで溶出し、各PAHの溶出パターンを検討した。70mlまではPAHの溶出はなく、70mlから110mlまでですべてのPAHが溶出した。カラムへのPAHの吸着はなく各PAHとも100%溶出された。

2 測定波長

SEP-PAKシリカカートリッジ³⁾を用いたときには、測定波長を3つのグループに分けたが今回は、より操作を簡単にするために、測定波長は λ_{ex} : 370nm λ_{em} : 410nmに固定した。このため、感度の低下、選択性などにより試料中の測定PAHはAn、Fl、BaA、BbF、BkF、BaP、BghiPerの7種とした。

3 添加回収試験

魚(グチ)20gにAn、Fl、BaA、BbF、BkF、BaP、BghiPerの混合アセトニトリル標準溶液(濃度はそれぞれ80、800、600、400、40、40、200ppb)1mlを添加し、実験4に従って操作し添加回収試験を行った。

結果を表1に、クロマトグラムを図1に示す。

表1 PAHの添加回収率(グチ)

PAH	添加量 ng	回収率 %(n=3)	変動係数 %
An	80	93.1	2.3
Fl	800	95.2	2.2
BaA	600	94.8	2.6
BbF	400	94.8	3.2
BkF	40	96.8	3.0
BaP	40	97.1	3.7
BghiPer	200	95.1	4.2

回収率は93.1~97.1%と良好であり、変動もすくなく満足できる結果がえられた。

4 魚介類中のPAH

本試験法を用いてアサリ、グチ、イワシ(スモーク)サバ(スモーク)のPAHを測定した。

表2 アサリ、グチ、イワシ(スモーク)、サバ(スモーク)のPAH含有量(ppb)

試料	PAH						
	An	Fl	BaA	BbF	BkF	BaP	BghiPer
アサリ	0.17	1.7	ND	ND	0.25	0.42	0.34
アサリ	0.47	5.6	2.5	ND	0.23	0.45	0.28
グチ	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
イワシ (スモーク)	58	151	29	27	6.7	13	5.5
サバ (スモーク)	38	105	19	19	3.6	8.4	3.9

ND: None detected

結果を表2に示す。アサリは前報³⁾と同程度の含有量であった。スモーク製品は文献値^{4) 5)}と比較して高い数値がえられたが、これは製法により変化するものと考えられ、他のスモーク製品を数多く調査する必要がある。

結 論

魚介類中のPAHの分析法として、試料のアルカリ分解→n-ヘキサン抽出→バイオ・ビーズS-X4樹脂によるクリーンアップ→HPLCという簡単な分析法を作成した。回収率、再現性もすぐれており、本法を用いて魚介類中のPAH含有量を分析したところ、スモーク製品に高い値がえられた。今後、スモークあるいは加熱調理することによるPAHの生成、増減、更には1日摂取量などの調査をする予定である。

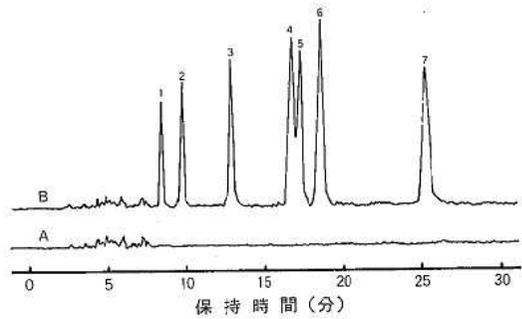


図1 グチ及びグチにPAH添加のHPLCクロマトグラム

A: 無添加、B: 添加

1. An 2. Fl 3. BaA 4. BbF 5. BkF
6. BaP 7. BghiPer

文 献

- 辻 功, 小出圭子, 森山秀樹, 野口敏子: 熊本県衛生公害研究所報 12, 25 (1982).
- KEIGO TAKATSUKI, SHIGERU SUZUKI, NOBUTOSHI SATO, ISAMU USHIZAWA: J. Assoc. Offic. Anal. Chem., 68, 945 (1985).
- 辻 功, 小出圭子, 森山秀樹, 田辺 潔, 松下秀鶴: 食品衛生学雑誌 26, 50 (1985).
- FRANKL. JOE, Jr, JEAN SALEMME, THOMAS FAZIO: J. Assoc. Offic. Anal. Chem., 67, 1076 (1984).
- 斉藤行生: 食品衛生研究 34, 1003 (1984).

6) 熊本県の地下水の硝酸性窒素濃度

植木 肇

緒 言

硝酸性窒素(以下 $\text{NO}_3\text{-N}$)は有機物の最終分解生成物として広く自然界に分布し、地下水中にも比較的高濃度で溶存することが多い。衛生学上の見地から地下水中の $\text{NO}_3\text{-N}$ は過去の人為的汚染に起因し、地上から負荷された窒素化合物が酸化分解を受けた最終生成物と考えられ、その存在は他の窒素化合物、汚染指標成分とともに水質判定の有力な手懸りとなっている。また $\text{NO}_3\text{-N}$ を多量に含有する地下水は乳児のメトヘモグロビン血症の原因となることも広く知られている^{1),2)}。そのほか食品工業用水中の硝酸イオンに起因する缶詰缶内面からのスズの異常溶出^{3),4)}、食品への混入移行例⁵⁾なども報告されている。 $\text{NO}_3\text{-N}$ は酸化的環境では安定であり、人間活動の増大とともに地下水中に蓄積され、富栄養化の原因ともいわれている。

ところで熊本県の水道普及率は75.7%であり、水道水源の85%は井戸水、湧水などの地下水に依存している⁶⁾。水道未普及地域的一般家庭でも多くは地下水を飲料用水源として利用している。このような現況から、地下水中の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の現状把握は衛生学的にみても極めて重要であり、同時に今後の飲料水としての適正利用を図る上からも意義あるものと考えられる。

熊本県内の地下水中の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度を測定し、その分布及び挙動について調査したので概要を報告する。

調査方法

本報での調査試料は1969年4月以降に当所で独自に採取した試料を中心としたほか、一部分分析依頼があった試料を対象とした。 $\text{NO}_3\text{-N}$ の分析は「上水試験方法」⁷⁾に準じ、ブルソン法及びカドミウム・銅カラム法(1978年4月以降)を用いた。またその他の化学成分も「上水試験方法」⁷⁾に準じて分析した。

なお同一水源で2回以上の測定値が得られた場合は算術平均値を求め、その水源の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度とした。今回検討した試料は1,555件である。

結果及び考察

1 地下水中の $\text{NO}_3\text{-N}$ の変動

S療養所の井戸(深度不明)で毎月1回継続して

$\text{NO}_3\text{-N}$ を測定した結果を図1に示した。 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は0.3~3.3mg/l(n=44)の範囲で増減を繰り返し、しかも6~9月頃の夏季よりも12~3月の冬季が高濃度となる季節変動が認められる。これらの測定値を整理し、分布型を検定すると正規分布型であった(図2)。S療養所での $\text{NO}_3\text{-N}$ の算術平均値は2.02mg/l、標準偏差0.66mg/l、変動係数0.33であり、変動は大きいと考えられた。

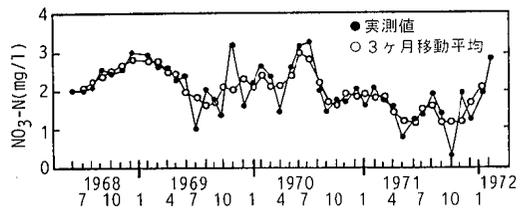


図1 硝酸性窒素濃度の経月変化(S療養所)

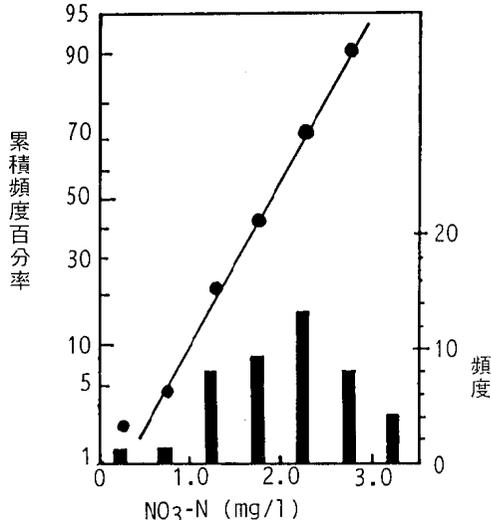


図2 正規確率紙による分布型の検定

2 地下水中の $\text{NO}_3\text{-N}$ の濃度分布

一般家庭用水(主に浅井戸水)を対象とした一斉調査(熊本市を除く)の測定結果及び水道源水(予定分を含む)などの測定結果をもとに、地下水中の $\text{NO}_3\text{-N}$ の濃度分布と算術平均値を一般家庭用水、深井戸水、浅井戸水、湧水に区分して図3に示した。

これによると10mg/lを超えるものは1,555試料のうち43試料(2.8%)であった。このほとんどが一般家庭用水で占められた。一方1.0mg/l以下の占め

る割合は、湧水で91%、深井戸水で73%、浅井戸水で36%、一般家庭用水で54%であった。

NO₃-Nの全試料の算術平均値は1.65mg/lであった。これは地方衛生研究所全国協議会での調査結果⁹⁾の1.24mg/l(n=97)よりも高濃度であった。また全国各地で調査された測定例に比較しても、特殊

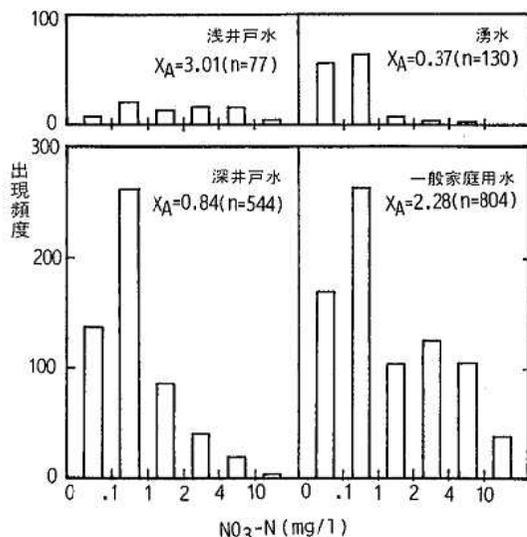


図3 硝酸性窒素の濃度分布(水源別)

な例⁹⁾を除き、ほぼ同程度のオーダーであった。このほか甘きつ類への施肥肥料からの溶出に由来する例として、愛媛県松山平野の地下水で4.59mg/lという結果¹⁰⁾など¹¹⁾も得られている。

水源別にNO₃-Nの平均値をみると、湧水の0.37mg/lが最も低く、次いで深井戸水の0.84mg/l、浅井戸水の3.01mg/lの順に高濃度となる。また一般家庭用水の平均値は2.28mg/lであり、浅井戸水の平均値に近い値であった。

表1に浅井戸水を中心とする一般家庭用水の一斉調査(熊本市を除く)を各地域ごとに順次実施した時のNO₃-Nの濃度分布を示した。

これによると一般家庭用水804試料のうち433試料(53.8%)が1.0mg/l未満(不検出を含む)であった。とくに飽田町、天明町、富合町、西原村では1.0mg/l未満の試料が約90%以上を占めていた。また熊本市、三角町、大矢野町、松橋町、城南町、不知火町などではNO₃-N濃度の分布範囲は大きく、これらの地域では平均値も高い。さらに調査対象井戸の10%以上が10mg/lを超えている地域があった。これらの地域には花卉、果樹園芸栽培が盛んな地区が含まれている。この起源について大矢野町¹²⁾を例として人為的汚染、施肥肥料の溶出由来の両面から検討したが、

表1 一般家庭用水の硝酸性窒素の濃度分布(単位:mg/l)

市町村名	n	<0.1	0.1~1.0	1.0~2.0	2.0~4.0	4.0~10.0	10.0<	Ave.	NH ₄ -N*	NO ₂ -N*
熊本市	136	31	30	24	24	17	10	2.64	—	—
飽田町	76	42	25	4	4	1	0	0.42	66(0.57)	51
天明町	63	35	25	1	2	0	0	0.19	61(1.37)	27
富合町	30	2	24	2	0	2	0	0.64	26(0.38)	0
松橋町	66	14	12	10	10	12	8	4.17	35(0.09)	20
城南町	30	0	15	3	2	8	2	3.32	3	5
小川町	30	7	9	5	4	5	0	1.64	6	7
豊野村	30	4	4	7	14	1	0	2.04	0	4
中央町	30	0	7	4	13	5	1	2.93	2	5
砥用町	30	0	21	1	6	2	0	1.20	0	5
甲佐町	60	6	10	16	18	10	0	2.22	2	7
不知火町	29	2	6	7	3	5	6	4.58	0	0
宇土市	30	2	18	2	2	6	0	1.80	8	3
三角町	33	2	8	1	7	8	7	5.1	3	13
大矢野町	31	0	0	3	7	18	3	7.2	1	8
新和町	30	3	16	8	2	1	0	0.87	1	12
阿蘇町	32	10	16	3	2	1	0	0.7	6	2
西原村	20	10	9	1	0	0	0	0.2	0	0
高森町	18	0	8	2	5	3	0	2.1	0	1
合計	804	170	263	104	125	105	37	2.28		

*NH₄-N, NO₂-Nは検出試料数, ()は平均値

他の化学成分などとの相関性は小さく、いずれも $\text{NO}_3\text{-N}$ の起源を特定するまでには至らなかった。

このような高濃度の $\text{NO}_3\text{-N}$ を含む地域に対し、一方では 1.0mg/l 未満が80%以上を占める地域も多く、これには次の二つの事例が考えられる。一つは天明町などのように地下水中の溶存酸素平均値が 1.4 mg/l と少なく、還元的条件下にあり、しかも $\text{NH}_4\text{-N}$ を多量に含む地域である。これは溶存酸素が有機物や無機物の酸化に消費されて、 $\text{NH}_4\text{-N}$ を $\text{NO}_3\text{-N}$ に酸化する環境になく、逆に $\text{NO}_3\text{-N}$ が微生物などにより $\text{NH}_4\text{-N}$ まで還元されたため、 $\text{NO}_3\text{-N}$ が低濃度になったと推定される事例である。これに対し西原村のように $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ のいずれも検出されず、他の成分濃度からみても汚染が少なく、清澄良好な水質であるため、 $\text{NO}_3\text{-N}$ が低濃度であると考えられる事例である。しかしながら不知火町のように $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ がいずれも検出されていないにもかかわらず、 $\text{NO}_3\text{-N}$ が広い濃度範囲で分布し、しかも平均値が高い場合も認められている。

また $\text{NO}_3\text{-N}$ と細菌学的項目(一般細菌数、大腸菌群)との関係を、天明町¹⁵⁾及び $\text{NO}_3\text{-N}$ の濃度分布範囲が大きい松橋町を例にして検討した(図4)が、これら相互間にはいずれも明瞭な関係は認められなかった。しかし図4でも明らかなように、一般細菌数が増加すると大腸菌群陽性率は高くなる傾向が認められる。

3 $\text{NO}_3\text{-N}$ と井戸深度との関係

水道源水の種類別でも浅井戸水の $\text{NO}_3\text{-N}$ の平均値は高く、また一般家庭用水でも $\text{NO}_3\text{-N}$ が高濃度で検出されていたので、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度と井戸深度との関係を検討した。図5に大矢野町と松橋町の例を示した。

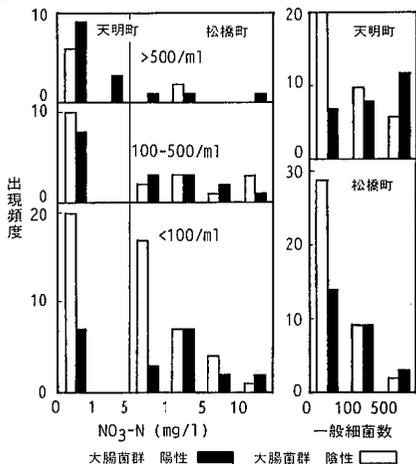


図4 硝酸性窒素濃度と細菌学的項目との関係

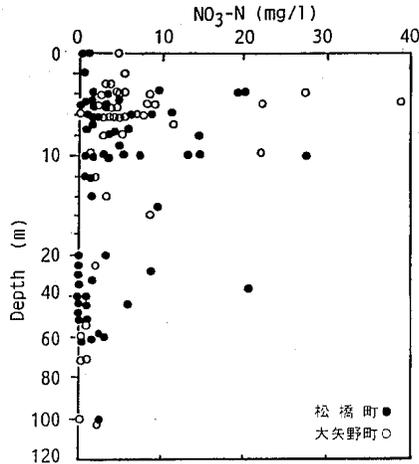


図5 硝酸性窒素濃度と井戸深度との関係

図5から明らかなように、井戸深度が浅いほど $\text{NO}_3\text{-N}$ は広範囲な濃度分布を示しており、しかも高濃度の $\text{NO}_3\text{-N}$ を含む傾向がある。このことは汚染の種類、度合を別にすれば、少なくとも従来からいわれているように浅井戸水は汚染を受けやすいということを支持する結果である。とくに10m以浅でこのことは顕著である。井戸深度が深くなるに従い、 $\text{NO}_3\text{-N}$ は低濃度となる傾向が認められる。図には示さなかったが、同様の傾向は熊本市周辺地域あるいは荒尾市などの70~200m 深度の井戸水でも認められ、 $\text{NO}_3\text{-N}$ は1~3 mg/l と低濃度であった¹⁴⁾。

4 $\text{NO}_3\text{-N}$ の季節変化

同一地域内の同一井戸水を対象とし、採水時期を変えて $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度を測定した結果を表2に示した。ここで熊本市及び周辺地域(以下熊本市周辺)の1975年と1986年とは対象井戸が異なる。

図1のS療養所井戸水の経月変化でも、明らかに12~3月の冬季が6~9月の夏季よりも $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は高濃度であることが認められた。同様の傾向は表2の鮑田町及び熊本市周辺(1975~77年)の場合にも認められ、冬季の平均値は夏季の約2倍の濃度であった。しかし1986年に熊本市周辺の深井戸水を中心とした調査では両季の差は小さく、冬季にいくぶん濃度が減少するという結果であった。熊本市周辺の場合、調査対象井戸が異なるため速断できないが、試験方法の違いを考慮しても、なお1986年の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度が1975~77年にくらべて高濃度であった。このことは近年熊本市の水源用井戸の硝酸イオンが増加傾向にあるとの報告¹⁵⁾もあり、一応理解できる。

またいずれの調査の場合も、個々の井戸水ごとに夏季と冬季の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度を比較すると、増加及び減

表2 硝酸性窒素濃度の季節変化(単位: mg/l)

地域 (種別)	飽田町 (井水)	熊本市周辺 (井水) (湧水)		熊本市周辺 (深井戸水)
試料数	22	9	12	25
夏季 (調査年月)	0.43±0.97 (1972/8)	0.28	0.42	1.51±1.73 (1986/9)
冬季 (調査年月)	0.71±1.60 (1981/2)	0.57	0.84	1.40±1.02 (1986/2)
(夏季→冬季)				
増加	7	5	6	10
変化なし	7	2	3	3
減少	8	2	3	12

少傾向を示す井戸とほとんど変化がない井戸とがそれぞれ含まれていた。井戸によっては局地的に外部要因の影響でNO₃-N濃度が変動することを示唆している。

このように地下水中のNO₃-N濃度が経年的、季節的に変動し、増減する例が認められることは、河川水、降雨水などの自然環境由来あるいは土壌中の有機物の分解からの由来だけでは説明できない。従来の人間生活排水、し尿処理水の土壌浸透などの人為的影響の増大によるほか、近年地下水中のNO₃-Nの増加の原因として宅地化の進行¹⁶⁾、¹⁷⁾、過剰の施肥肥料の溶出^{9)~11)}、¹⁸⁾など¹⁹⁾の影響が考えられ、地下水中のNO₃-Nが蓄積することが指摘され、富栄養化の問題も含めて検討されている。

熊本市周辺地域の土地利用状況²⁰⁾を表3に示した。これによると最近ではほぼ畑地の減少量に対応するように、非かん養地域の割合が増加する傾向があり、市街地及び宅地が増加している。一方例えば水稲作付面積は約7万ha(1970年代)から約6万ha(1980年代)へと減少している。各作物への施肥量を全域で算出す

表3 熊本市周辺地域の土地利用状況²⁰⁾
(単位: km²)

	1965年頃	1975年頃	1983年頃
かん養域	916.3	873.3	843.4
水田	260.7	264.2	254.5
畑地	238.7	208.9	191.3
林地	336.5	312.9	329.0
その他	80.4	87.8	68.5
非かん養域	90.9	133.4	163.9
市街地	26.0	54.8	72.0
宅地	58.7	67.3	75.3
その他	6.2	11.3	16.6

ることは困難であるが、窒素、リン、カリ肥料の県内への入荷実績量は最近10年間では各2万トン前後で推移している状況である。このため1haあたりの施肥量がいくぶん増加しているとしても、全体的には近年になって施肥量が著しく増加しているとは考えられない。この施肥肥料からの溶出由来との関係については、今後さらに検討する必要があると考える。

5 NO₃-Nの地域分布

熊本県下の地下水中のNO₃-Nの地域分布を把握するため、現在も未測定地域を解消するよう継続して測定結果を収集中である。そのため熊本県下のNO₃-Nの地域分布を知る一応の目安として、図6に1976年までに得られた水道源水などを対象とした測定結果を中心として示した。便宜上市町村単位で平均値を算出した。

図6から熊本県下の地下水中のNO₃-N濃度の地域分布をみると、県北部から県中央部の市町村を中心とする地域に、比較的高濃度のNO₃-Nが分布している傾向が認められる。このほか平均値1.0mg/l以上の地域が宇土半島から天草地方の一部地域にも点在している。一方県南部地域あるいは九州山地に近い県境部の町村で湧水を主な水源としている地域の多くが、平均値0.5mg/l以下であった。

これまでの調査対象地域が県北部地域に集中しているため、県南部地域では測定した試料数が少ない。そのため測定試料数に地域的な偏りがあり、各地域が同一条件であるとして地域分布を検討するには至らなかった。今後さらに全県下からの試料を採取し、測定数を増すことによって、これらを検討して地域分布の詳細を明らかにする予定である。

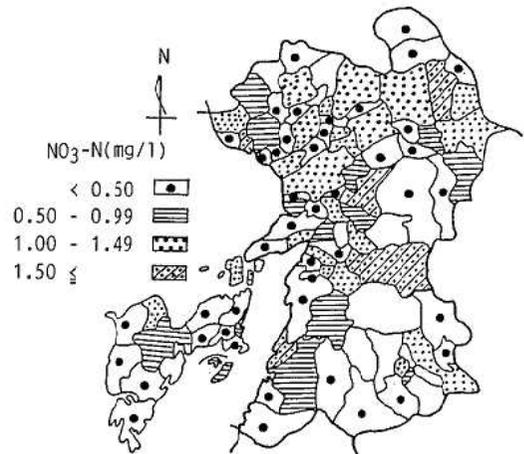


図6 硝酸性窒素の濃度分布(地域別)

結 言

1969年以降、熊本県下の水道源水及び一般家庭用水として使用される井戸水、湧水などの地下水を対象として $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度を測定した。その結果から以下のことが明らかとなった。

- 1) 同一井戸における $\text{NO}_3\text{-N}$ を4年間毎月1回測定した結果、濃度分布は正規分布型であり、季節的な変動も認められた。
- 2) 熊本県下の地下水中の $\text{NO}_3\text{-N}$ の平均濃度は 1.65mg/l ($n=1,555$) であった。水源別にみると湧水の 0.37mg/l 、深井戸水の 0.84mg/l 、浅井戸水の 3.01mg/l の順に平均値は高くなる。また一般家庭用水の平均値は 2.28mg/l であった。これには 10mg/l 以上の $\text{NO}_3\text{-N}$ を含むものが 2.8% あった。 $\text{NO}_3\text{-N}$ の濃度分布及び存在状態には、地域差をはじめ種々の形態が認められた。
- 3) $\text{NO}_3\text{-N}$ は井戸深度が浅いほど高濃度であり、しかも広範囲の濃度分布を示し、地上からの汚染を受けやすいと考えられた。深くなるに従い $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は減少する。
- 4) 熊本県下の $\text{NO}_3\text{-N}$ の地域分布は、一般的傾向として県北部から県中央部の地域で高濃度のものが多く、県南部及び山間部の湧水を水源とする地域で低濃度である。

以上熊本県下の地下水中の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度を測定し、その概要を明らかにしたが、 $\text{NO}_3\text{-N}$ の分布及び挙動は複雑であり、かつ種々の形態が認められ、しかも $\text{NO}_3\text{-N}$ の起源も数多くあるため、これらについてそれぞれの寄与の割合を定量的に明らかにすることは困難な点が多い。今後この点については継続して調査を行ない検討を加える予定である。

なお一斉調査を実施した熊本市以外の市町村においては、その後順次水道施設が完成普及し、現在ではほとんどの井戸が飲料水以外の生活雑用水などとして利用されている。

本調査を実施するにあたり、多大の御協力をいただいた関係市町村並びに関係保健所の担当者各位に深く感謝する。

(本報の概要は、昭和61年11月 第12回九州衛生公害技術協議会で発表した。)

文 献

- 1) 岡沢和好(訳):水道協会雑誌, **529**, 68 (1978).
- 2) 萩原耕一編著:“水質衛生学”, 光生館, (1985) p.100.
- 3) 堀尾嘉友, 岩本喜伴:缶詰時報, **20**, 418.
- 4) 岩本喜伴, 宮崎正則, 国里進三, 前田琇子, 堀尾嘉友:栄養と食糧, **21**, 47 (1968).
- 5) 丸山節子, 山浦由郎, 原田行雄:食品衛生研究, **35**, 955 (1985).
- 6) 熊本県衛生部環境衛生課:“熊本県の水道”, p.3 (1986).
- 7) 日本水道協会:“上水試験方法(1970年版)”, “上水試験方法(1978年版)”.
- 8) 地方衛生研究所全国協議会:“健康と飲料水中の無機成分に関する研究”, p.12 (1982).
- 9) 岩元 実, 山元政己:鹿児島県衛生研究所報, **21**, 45 (1985).
- 10) 真木 強, 江口 茂, 山竹定雄, 武智拓郎, 島本勉:愛媛県立衛生研究所年報, **36**, 16 (1974).
- 11) 武智拓郎, 江口 茂, 真木 強, 山竹定雄, 渡部三男, 島本 勉:愛媛県立衛生研究所年報 **38**, 21 (1977).
- 12) 植木 肇, 太田原幸人:日本地下水学会誌, **27**, 129 (1985).
- 13) 太田原幸人, 植木芳子, 植木 肇, 宮本留喜:熊本女子大学学術紀要, **27**, 89 (1975).
- 14) 植木 肇:未発表.
- 15) 清水正元, 安藤秀隆:“熊本市およびその周辺地域における湧水の涸渇化と地表水・地下水の汚濁化に対する方策”, 熊本開発研究センター, p.130 (1986).
- 16) 小倉紀雄, 宇田川隆男:水道協会雑誌, **529**, 32 (1978).
- 17) 吉田和広, 小倉紀雄:地球化学, **12**, 44 (1978).
- 18) 越野正義:科学, **45**, 603 (1975).
- 19) 有賀秀子, 斉藤文彦, 祐川金次郎:日本公衆衛生雑誌, **27**, 72 (1980).
- 20) 熊本県・熊本市:“熊本地域地下水調査報告書”, p.46 (1986).

7) 都市小河川における化学成分濃度の変動

植木 肇 小田泰史

緒 言

河川水中の化学成分は流域の種々の環境要因に支配され、土地利用状況や人間活動の影響を受けて、河川水質を特徴づけている。大河川での事例は多数報告されている。しかし都市周辺の小河川での報告^{1)~3)}は少ない。都市小河川では水質汚濁という視点でとらえられることが多く、主要成分まで言及する例は極めて少ない。また中小河川は大河川にくらべて長期間の水質測定値などの蓄積も少ないことが多い。中小河川における化学成分濃度あるいは流量の変化は、流入支川及び流入排水水質の影響に対して敏感であり、短期的な変動幅も大きく、かつ複雑なことが多い。そのため河川水質の現状と流域の状況とがどのように関係しているかを明らかにし、都市小河川の溶存化学成分の挙動と変動の大きさを知ることは重要である。

著者らは都市小河川である熊本市井芹川の各地点で2年間にわたって、主要成分及び汚濁成分を測定した。測定結果の一部はすでに報告した⁴⁾。本報では井芹川の河川水質を明らかにするとともに化学成分の変動状況の特徴と変動要因及び河川水の平均水質を推定する場合の条件について報告する。

調査方法

1 調査河川流域の概要

井芹川は熊本市西部を南に流下し、途中坪井川に合流して有明海へ流出する(図1)。その規模は流路延長15 km、流域面積30 km²、流量1~2 m³/secのいわゆる都市小河川である。流域人口は約45,000人である。上流は農耕地を流域とするが、下流は人口密集地を貫流するため、都市下水などが流入する。

2 調査地点及び調査期間

1975年11月から1977年10月までの2年間、晴天が続いた日を選んで、毎月1回6地点で採水した。また流入する支川、排水を適宜採水した。1985年1月にも同様の調査を実施した。なお小河川では採水時刻によって水質の日変動が激しいことが多い⁵⁾ので、なるべく同一採水条件となるように全地点の採水を10~12時までに終了するよう留意した。

3 分析方法

試水は橋上からあるいは直接ポリエチレン容器を用いて流れの速い中央部から採取した。現場で気温、水

温を測定し、溶存酸素(DO)の固定を行なった。試水はポリエチレンびんに採取後、試験室に持ち帰り分析した。測定成分と分析方法は次のとおりである。

pH; ガラス電極法。Na⁺、K⁺; 原子吸光度法。Ca²⁺、Mg²⁺; EDTA 滴定法。Cl⁻; 硝酸第二水銀法。SO₄²⁻; トリンを用いる塩化バリウム滴定法。HCO₃⁻; 中和滴定法でpH4.3アルカリ度を求め全量をHCO₃⁻とした。比色けい酸(SiO₂) ; モリブデンブルー法。全蒸発残留物(T-Re) ; 重量法(105°C)。NH₄-N; ネスラー比色法。NO₂-N; α-ナフチルアミン・スルファニル酸法。NO₃-N; プルシン法。PO₄-P; モリブデン酸アンモニウム法。BOD; JIS K 0102-1971。COD; 硫酸酸性KMnO₄法(N/100、100°C、5分間直火法)。

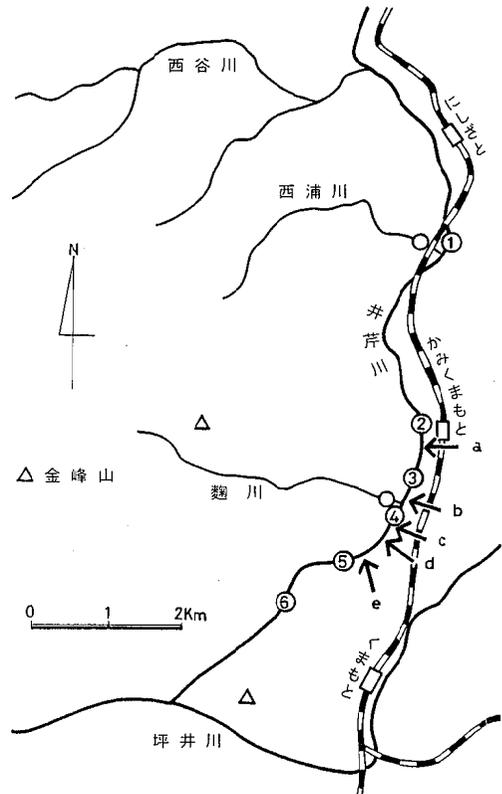


図1 井芹川の流程略図と採水地点

St.1—秋鯨橋、St.2—山王橋、St.3—花園橋、
St.4—段山橋、St.5—新四方池橋、St.6—尾崎橋
a~e; 都市下水流入

DO; ウインクラーの変法により測定し、DO飽和率(DO%)として求めた。

なお河川流量は流速計(東邦電探MB-1型)を用いたほか、せき流法などで調査期間中数回測定した。これによると井芹川の流量は上流の St. 1~St. 3で 1.0m³/sec、下流の St. 4~St. 6で 2.0m³/sec 程度であり、熊本市が定期的実施した年間平均値⁶⁾ともよく一致していた。

結果及び考察

1 井芹川の水質の現状

井芹川における各成分の2年間の測定結果を整理し、採水地点別に算術平均値±標準偏差($\bar{x}_A \pm SD$)を求め表1に示した。また最近の井芹川の水質の測定例として、1985年1月10日の調査結果を表2に示した。

井芹川の水質は化学成分濃度によって、明らかに St. 1~St. 3の上流域と St. 4~St. 6の下流域の二流域に大別することができた。このように上・下流の二流域に区分できることは、井芹川の底生動物相の調査結果⁷⁾ともよく一致していた。上流域は流域の家庭や工場からの人為的汚染の影響が少なく、河川が山地あるいは畑地、水田から成る農耕地帯を主として流下する田園地河川の形態を示した。一方下流域は上流域にくらべ化学成分濃度は高濃度となる。しかも主要成分の増加量に比較し、BOD、CODなどの汚濁成分

が顕著に増加していた。流域の生活活動の増加に起因する各種排水が本流に流入することによるもので、市街地河川の形態を示した。井芹川は小河川であるが、上流は田園地河川、下流は市街地河川の相異なる二種の河川形態をとっていることが明らかとなった。

井芹川の主要成分濃度は、日本河川平均値⁸⁾よりいずれも 1.5~2.5 倍も高濃度であった。

井芹川の最近の測定例(表2)でも、多少の濃度増減はあるが河川水質はほぼ同様の傾向を示し、全体的にはいずれも変化が小さいと考えられた。

2 井芹川の化学成分濃度の流程変化

井芹川各化学成分濃度の流程変化をみると、表1に示すように多くの成分が St. 2で濃度が一時的に減少するが、St. 4で増加し最高濃度となる。さらに St. 5、St. 6と流下するに従い、再びその成分濃度は次第に減少する。前者は清澄な支川である西浦川からの流入量増加に伴う希釈効果による濃度減少である。一方後者は単に流量増加による希釈効果で濃度が減少するのではなく、主要成分、汚濁成分のいずれも減少傾向を示すので、吸着や沈降などの物理的自浄作用が大きく関与していると考えられる。和田ら⁹⁾はこの物理的自浄作用が河川水ではかなり高い比重を占めるとしている。井芹川の St. 4~St. 6ではわずかに St. 6で堆積、沈降量が多いという結果であった¹⁰⁾。

このような河川水質の流程変化の傾向は現在でもほ

表1 井芹川の採水地点別の河川水質(算術平均値±標準偏差) 1975年11月~1977年10月

採水地点名称	St.1 秋 鯉 橋	St.2 山 王 橋	St.3 花 園 橋	St.4 段 山 橋	St.5 新四方池橋	St.6 尾 崎 橋
pH	7.5±0.4	7.4±0.2	7.4±0.2	7.4±0.4	7.3±0.3	7.3±0.2
Na ⁺ (mg/l)	13.4±1.7	12.6±1.7	14.1±1.6	18.9±2.6	17.2±1.8	16.6±2.1
K ⁺ (mg/l)	6.3±1.0	5.6±0.9	5.9±1.0	6.8±1.1	6.7±1.0	6.4±1.1
Ca ²⁺ (mg/l)	14.0±1.7	13.3±1.3	14.3±1.3	16.3±1.5	16.2±1.2	16.0±1.5
Mg ²⁺ (mg/l)	5.3±1.8	5.2±2.0	5.0±1.7	5.8±2.1	5.6±1.7	5.9±2.0
Cl ⁻ (mg/l)	13.6±3.0	12.0±2.9	13.1±2.1	18.8±4.1	17.0±2.4	17.0±3.5
SO ₄ ²⁻ (mg/l)	13.2±2.4	11.2±1.3	11.6±1.3	16.7±2.7	14.2±1.9	13.7±2.2
HCO ₃ ⁻ (mg/l)	58.6±8.5	60.4±9.2	64.1±7.3	73.2±9.2	72.6±8.5	71.4±9.2
SiO ₂ (mg/l)	49.8±12.8	44.7±10.9	45.1±10.4	45.3±9.9	44.9±9.7	43.4±11.0
T-Re (mg/l)	175±15	164±19	169±13	202±23	202±29	190±16
NH ₄ -N (mg/l)	0.46±0.38	0.59±0.64	0.84±0.58	1.17±0.49	1.23±0.57	1.05±0.57
NO ₂ -N (μg/l)	81±41	59±31	69±26	97±47	86±31	82±27
NO ₃ -N (mg/l)	2.24±0.99	1.73±0.75	1.81±0.71	2.12±0.92	1.90±0.84	1.94±0.82
PO ₄ -P (mg/l)	0.16±0.07	0.13±0.07	0.15±0.06	0.20±0.08	0.19±0.08	0.18±0.08
COD (mg/l)	1.8±0.8	1.9±0.9	2.1±0.6	7.2±5.4	5.6±3.5	3.9±2.8
BOD (mg/l)	2.6±1.0	2.8±1.4	4.1±1.3	15.3±11.9	13.0±9.3	7.3±4.1
DO (%)	100.1±6.0	96.6±6.0	91.2±3.8	83.6±5.5	72.6±7.5	69.6±8.0

表2 井芹川の河川水質 (1985年1月10日採水)

採水地点名称	St.1 秋 鉦 橋	St.2 山 王 橋	St.3 花 園 橋	St.4 段 山 橋	St.5 新 四 方 池 橋	St.6 尾 崎 橋	新島崎橋 d)
pH	7.1	7.3	7.2	7.2	7.2	7.2	7.2
Na ⁺ (mg/l) a)	15.5	16.1	17.4	21.9	21.0	18.9	21.7
K ⁺ (mg/l) a)	6.8	5.7	6.7	7.1	7.4	6.6	7.5
Ca ²⁺ (mg/l)	15.2	15.2	16.8	17.5	18.4	17.6	18.1
Mg ²⁺ (mg/l)	6.1	4.2	4.6	5.0	4.6	4.2	6.0
Cl ⁻ (mg/l)	13.9	12.6	17.4	19.6	19.0	16.4	19.1
SO ₄ ²⁻ (mg/l) b)	6.5	6.6	6.8	9.1	9.1	9.6	9.8
HCO ₃ ⁻ (mg/l)	75.2	70.4	74.0	80.5	84.5	81.7	78.2
SiO ₂ (mg/l)	46.0	46.7	41.8	42.3	35.9	47.0	42.3
T-Re (mg/l)	193	182	193	238	218	200	216
NO ₃ -N (mg/l) c)	0.80	0.95	0.84	1.12	1.35	0.65	1.32
COD (mg/l)	1.1	1.6	3.8	5.0	4.6	3.5	6.0
BOD (mg/l)	1.2	3.2	7.5	11.2	7.9	5.8	11.8
DO (%)	76.0	93.5	66.7	56.6	52.6	51.3	54.4

a) 蛍光光度法、b) 比濁法、c) Cd-Cu 還元カラム法、d) St.4 と St.5 の中間地点

とんど変化はない(表2)。

測定した成分の流程変化を個別にみると井芹川では次の4群に分類できる。すなわち(1) 流下に伴ない濃度が増加する成分で、これは増加量の違いによって(1a); K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺, SO₄²⁻, HCO₃⁻, T-Re、(1b); Na⁺, Cl⁻、(1c); NH₄-N, COD, BODに分類される。(2) 流下に伴ない濃度が減少する成分として SiO₂, DO%の2成分。(3) 流程変化が小さい pH, PO₄-P, NO₂-N の3成分。(4) 流程変化が不規則な成分の NO₃-N である。

ところで SiO₂ は流下するに従い、濃度が減少する流程変化のほか、図2に示すように、10~12月に高濃度、4~6月に低濃度となる季節変動を示した。Cl⁻をはじめ他の主要成分にはいずれもこのような季節変動は認められない。仮に降水による希釈作用であれば、SiO₂ 以外の主要成分の濃度も同時に減少する¹¹⁾。しかし本調査は降水の影響を極力避けて採水したので、この影響は当然無視できるほど小さい。このことは図2に示す Cl⁻ の濃度変化が小さいことから明らかである。採水時の水温の変化は年間に5~35°Cと大きい変動を示している(図2)。水温の増減に遅れて SiO₂ の濃度増減がみられることから、溶解度の相違あるいはけい酸類の季節消長と関係した増減ではないかと推察される。

3 測定値の分布とその変動の大きさ

次に各成分の測定値が各採水地点でどのような変動を示すかについて検討した。

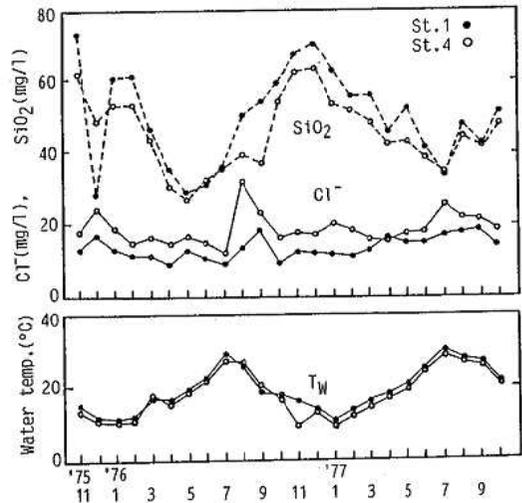


図2 SiO₂、Cl⁻、Tw の経月変化

測定値分布の代表例として、Ca²⁺, Mg²⁺, Cl⁻, NH₄-N, DO, BOD の St.3 及び St.4 での濃度分布、また上流域 (n=72) 及び下流域 (n=71) の各地点で得た全測定値の濃度分布をそれぞれ図3に示した。

Ca²⁺ は流下に伴ない各地点で濃度の増減があるが、下流域で高濃度となる。各地点の分布幅は同程度であり正規分布型に近似する。図3に示した Cl⁻のほか、Na⁺, K⁺, SO₄²⁻, HCO₃⁻, T-Re がこれと類似の

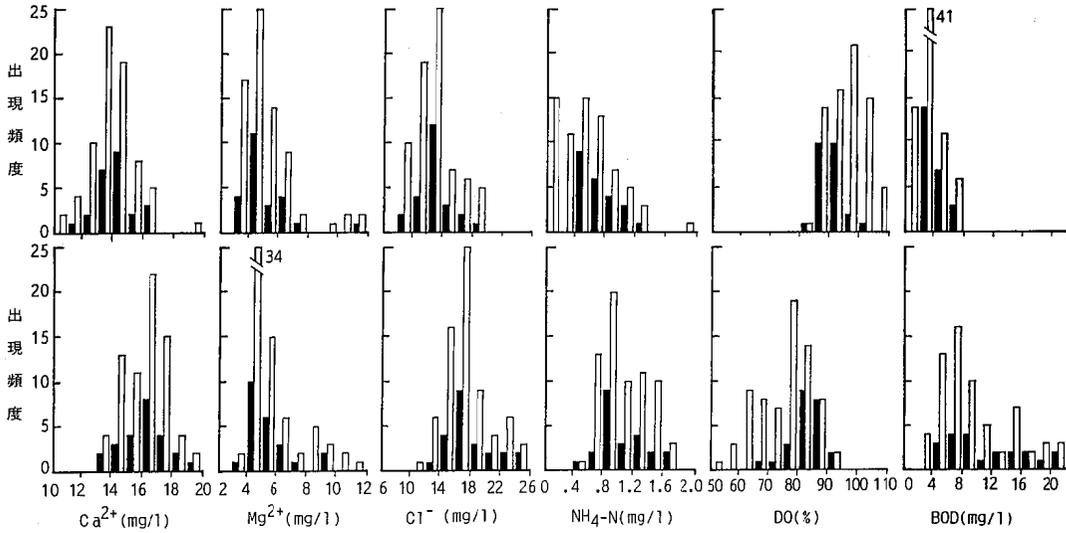


図3 河川水中の化学成分の濃度分布(1975年11月~1977年10月)

上段: St. 3 (■) 及び上流域全地点 (□)、 下段: St. 4 (■) 及び下流域全地点 (□)

分布型であった。

Mg^{2+} は各地点とも低濃度側に集中していた。

NH_4-N は各地点とも測定値のばらつきは大きい。ところが下流域の平均濃度が上流域の約2倍(表1)であるため、相対的な変動は下流域で小さくなる。しかも上流域全体及び St. 3 での濃度分布を比較すると St. 3 で高濃度の分布例が多く、流下に伴ない次第に濃度が増加していることがわかる。

$DO\%$ は下流の地点ほど減少するが、一般にその分布幅は小さく、しかも正規分布型に近いものである。上流域全体の濃度分布が St. 3 のそれより高濃度側にシフトし、また下流域全体の濃度分布は St. 4 のそれより低濃度側へとシフトしているため、 $DO\%$ は明らかに流下するに従い減少していることを示している。

BOD は上流域全体の測定値の90%が 5 mg/l 以下で最高値は 7.0 mg/l であった。上流域全体及び St. 3 での濃度分布はまったく類似の分布型である。ところが下流域では $2.8\sim 56.8\text{ mg/l}$ と広範囲の濃度分布である。とくに St. 4 でのばらつきが大きくこの地点での変動が著しいことは明瞭である。これと同様の分布型は COD でも認められる。両者はいずれも有機性物質の汚染指標であり、しかも相関係数が $+0.87$ であることから同一挙動を示すことが理解できる。

井芹川の各成分の測定値の濃度分布に種々の形態が認められたので、各成分の変動の大きさを検討した。

通常一定点における成分濃度の分布は主要成分では正規分布型に近似し、 COD 、濁度など変化の大きい成分は対数正規分布型に近似することが多い¹²⁾。また

成分濃度が正規分布型であれば、変動の絶対量は標準偏差で、相対的な変動は変動係数で表わされる。

井芹川の各成分の変動係数(CV)を採水地点別に表1の結果から $CV = SD/\bar{x}_A$ として求めると、主要成分のCVは $0.07\sim 0.38$ であった。すなわちCVが 0.10 以下は Ca^{2+} と T-Re、 $0.10\sim 0.26$ は Na^+ 、 K^+ 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 HCO_3^- 、 SiO_2 であり、 Mg^{2+} が $0.30\sim 0.38$ であった。各成分とも採水地点間のCV値の差は小さい。このCVは熊本県白川¹³⁾、宮崎県大淀川¹⁴⁾のCVと比較しても同程度かやや小さいものである。

井芹川の主要成分のCVは、晴雨に関係なく、毎日一定時刻に1年間連続して採水した熊本県白川¹³⁾のCVとT-Reを除きほぼ一致していた。このことは長期間で測定回数が多ければ、降水などの影響はほとんど無視できることを示唆している。また井芹川の主要成分のCVの差が上流から下流までの各地点で小さいことは、流域形態の違いが主要成分濃度の相対的な変動(CV)にはほとんど影響を与えていないことを示している。河川水中の主要成分のCVが小さいことは井芹川の流域形態からみて、主要成分の最大の供給源が流域周辺の土壌あるいは岩石からの溶解離脱という地質的因子に由来し、これらが継続的にしかも安定した状態で河川水中へ供給されていると解釈される。

一方汚濁成分の多くは変動が大きい。これは流域からの種々の要因のうち、とくに流入排水の影響が大きいためと考えられる。当然土壌あるいは岩石からの溶出などによる供給寄与は少ないと考えられる。

井芹川の pH と DO% の CV は小さく、それぞれ 0.03~0.06、0.04~0.12 であった。NH₄-N、NO₂-N、NO₃-N、PO₄-P、BOD、COD などの CV は 0.32~1.08 であり、主要成分の CV にくらべて変動が大きい。井芹川は流量の少ない小河川であり、しかも表るに示すように流域からは高濃度の汚濁物質を含む都市排水などが流入し、経時的に著しい増減をしている。さらに排水流入量が河川流量に影響を及ぼす量であると予測され、河川水中の化学成分、とくに汚濁成分が顕著な影響を受ける。そのため汚濁成分の濃度変化が激しく、水質が不安定にならざるを得ないことを明瞭に示し、採水時期により測定値にかなりの変動があることは否定できない。

また各採水地点間の CV 値の差は pH、DO%、PO₄-P、NO₃-N では小さいが、NH₄-N と NO₂-N は上流域での変動が大きく、とくに NH₄-N では顕著であった。BOD と COD は実際の分布型が上流域と下流域とで明らかに異なるので、単純な比較はできないが、下流域の変動がかなり大きいと考えられる。下流域の BOD と COD のように濃度変動が大きい成分は、実際には正規分布型ではなく対数正規分布型に近似することが多い。

以上の結果から、天候安定時の採水調査であれば、主要成分濃度については相当信頼性の高い評価が容易に得られる。これは水質変化を予測する時に極めて好

都合で、CV が小さいことは当然少ない測定回数で河川水中の化学成分濃度の真の代表値を推定できる。これに対し、CV が大きい汚濁成分のような場合には測定回数を多くする必要が生じる。

例えば井芹川の主要成分の CV は Mg²⁺ が 0.30~0.39 であるほかは、季節変動の可能性のある SiO₂ の 0.26 が最大であり、その他はいずれも 0.20 程度かそれ以下である。そのため真の代表値を危険率 5%、相対誤差 10% で推定するには、CV が 0.20 の場合で 16 回程度の測定回数を必要とする。また CV が 0.10 前後の pH、DO% は 4 回程度の少ない測定回数で推定できる。しかし NO₃-N、PO₄-P のように CV が 0.45 程度になると 80 回以上の測定を実施しなければ、真の代表値を推定できない。このことは両成分が種々の環境要因による影響を受けやすい成分の一つであることを示し、河川水質変動の実態を把握するには、測定回数で相当の努力を必要とするか、または少ない測定回数で真の代表値を推定するには、危険率あるいは相対誤差が大きくならざるを得ない。

実際の分布型が対数正規分布型に近似する Mg²⁺、下流域の COD 及び BOD などは少ない測定値でこれらを検討するのは危険が多いので今回は検討していない。

各成分の諸統計値を各採水地点別に算出したが、一例として河川水質が大きく変化する区間である上流域

表 3 井芹川の支流河川及び流入排水の水質

地点名	採水日	流量 (m ³ /sec)	pH	Cl ⁻ (mg/l)	NH ₄ -N (mg/l)	PO ₄ -P (mg/l)	COD (mg/l)	BOD (mg/l)	DO (%)
西浦川	(1)	0.1	7.4	7.6	0.22	0.06	1.4	1.4	99.7
	(4)		7.3	35.4			1.0	2.3	94.7
	(2)		7.3	26.1	2.28	0.38	19.1	24.7	73.6
	(3)		6.9	47.2	4.13	0.83	113.4	221.7	18.0
麴川	(4)		7.4	29.1			8.6	16.3	62.4
	(2)	0.1	7.3	30.6	3.66	0.52	93.1	127.3	0
	(4)		7.3	23.9			5.7	8.1	63.6
	(2)	0.1	7.1	50.3	4.74	0.39	16.8	37.9	18.1
排水一 a	(3)		6.8	64.1	3.37	1.01	37.8	165.7	10.5
	(4)		7.2	24.1			30.3	66.7	49.4
	(3)		6.6	54.0	9.37	1.67	116.4	290.1	3.0
	(2)	0.1	6.7	34.1	7.30	0.96	92.7	169.5	20.6
排水一 b	(3)		7.5	69.2	8.44	0.59	27.4	53.3	20.6
	(2)	0.04	7.2	23.2	4.10	0.34	20.1	43.9	47.6
排水一 c	(4)		7.2	25.2			38.3	42.8	77.3
	(3)								
排水一 d	(2)								
	(3)								
排水一 e	(2)								
	(4)								

採水日 (1) 1977年5月~10月の毎月1回6試料の算術平均値、(2) 1976年3月23日の4回採水の算術平均値、(3) 1977年12月6日の3回の算術平均値、(4) 1985年1月10日

表4 河川水中化学成分に関する統計値 (n=24) (単位; mg/l, max/min, CV を除く)

成分	Ca ²⁺		Mg ²⁺		NH ₄ -N		BOD	
	St.3	St.4	St.3	St.4	St.3	St.4	St.3	St.4
範囲 (min~max)	11.5~16.9	13.2~19.0	3.5~11.2	3.5~12.9	0.46~3.33	0.43~2.90	2.1~7.0	4.0~56.8
max/min	1.5	1.4	3.2	3.7	7.2	7.0	3.3	14.2
算術平均値 (\bar{x}_A)	14.3	16.3	5.0	5.8	0.84	1.17	4.1	15.3
標準偏差 (SD)	1.3	1.5	1.7	2.1	0.58	0.49	1.3	11.9
変動係数 (CV)	0.09	0.09	0.34	0.36	0.69	0.42	0.32	0.78
$\bar{x}_A - SD \sim \bar{x}_A + SD$	13.0~15.6	14.8~17.8	3.3~6.7	3.7~7.9	0.26~1.42	0.68~1.66	2.8~5.4	3.4~27.2
幾何平均値 (\bar{x}_G)	14.2	16.2	4.8	5.4	0.74	1.10	3.9	12.2
幾何標準偏差 (σ')	1.1	1.1	1.3	1.4	1.56	1.45	1.4	1.9
$\bar{x}_G / \sigma' \sim \bar{x}_G \cdot \sigma'$	12.9~15.6	14.7~17.8	3.7~6.2	3.8~7.6	0.47~1.15	0.76~1.60	2.8~5.5	6.4~23.2

ただし、n:測定試料数、 x_i :測定値、 $\bar{x}_A = (1/n) \cdot \sum x_i$ 、 $SD = \sigma = \sqrt{(1/(n-1)) \cdot \sum (x_i - \bar{x}_A)^2}$ 、
 $CV = SD / \bar{x}_A$ 、 $\log \bar{x}_G = (1/n) \cdot \sum \log x_i$ 、 $\log \sigma' = \sqrt{(1/(n-1)) \cdot \sum (\log x_i - \log \bar{x}_G)^2}$

の St.3 と下流域の St.4 における Ca²⁺、Mg²⁺、NH₄-N、BOD の諸統計値を表4に示した。

現在まで同一河川の上下流域の異なる数地点で、同時に水質変動を検討した例は少なく、上下流域で濃度分布型が異なる可能性のある成分については、その平均値を代表値として考える場合に、分布型などにも十分な配慮が必要である。

結 言

都市小河川での溶存化学成分濃度の変動を把握するため、熊本市井芹川の流程6地点で毎月1回2年間の採水調査を行ない、次のことを明らかにした。

1) 井芹川の主要成分濃度は日本河川平均値よりいづれも大きく、この供給起源は流域周辺の地質因子に由来していると考えられた。

2) 井芹川は成分濃度及び流程変化から、人為的汚染が少なく田園地河川の形態を示す上流域と、流域都市排水流入の影響を強く受ける市街地河川の形態をとる下流域との二流域に大別される。下流域では流入水質の影響を顕著に反映し、水質変動が大きい。

3) 井芹川の主要成分のCVは0.07~0.38であり、しかも流域各採水地点間の差は小さい。河川規模の大小、流域形態の相違などの要因に支配されることが少ないことを示唆していた。Mg²⁺ 以外の主要成分濃度は16回程度の測定で真の代表値(危険率5%、相対誤差10%)を推定できる。一方汚濁成分のCVは0.10~1.08であり、BOD、COD、NH₄-N などでは採水地点間の差が顕著に認められる。

4) 同一河川の上下流域での濃度分布型に違いがある場合には、変動要因のほか成分濃度の分布型に十分

配慮して、河川水質及びその変動を検討し、考察を進めないと事象を把握できない恐れがある。

文 献

- 1) 浜本 博, 笹野英雄, 池島伸至, 押田裕子, 菊池洋子, 黒田静夫, 原田裕文: 東京都立衛生研究所年報, 27, 342 (1976).
- 2) 小倉紀雄: 陸水学雑誌, 41, 138 (1980).
- 3) 市川 新: "都市河川の環境科学 水質管理計画の考え方", 培風館 (1980).
- 4) 植木 肇, 小田泰史: 熊本県衛生公害研究所報 (昭和51年度), 32 (1977).
- 5) 植木 肇, 太田原幸人: 水処理技術, 19, 335 (1978).
- 6) 熊本市公害対策課: "熊本市の公害(第11報)昭和52年版", 112 (1977).
- 7) 小田泰史, 植木 肇: 陸水学雑誌, 39, 137 (1978).
- 8) 小林 純: 農学研究, 48, 63 (1960).
- 9) 和田安彦, 中山不二雄, 児島 猛: 用水と廃水, 18, 312 (1976).
- 10) 小田泰史, 植木 肇: 水質汚濁研究, 2, 116 (1979).
- 11) 植木 肇: 熊本県衛生公害研究所報 (昭和52年度), 30 (1978).
- 12) 半谷高久: "水質調査法", 丸善 (1960), p.52.
- 13) 植木 肇, 西田浪子, 水谷範子, 太田原幸人: 日化, 1985, 1838.
- 14) 大西富雄, 金田 信, 遠藤澄子: 鹿児島大学理科学報告, 14, 35 (1965).

8) 殺虫剤 BPMC, MIPC の玄米への残留実態調査 及び炊飯等による BPMC の濃度変化

小出 圭子

緒 言

食品衛生法による残留基準が設定されている農薬については、各都道府県で定期的に果実・野菜類等の分析が行なわれているが、検出される農薬は少ない¹⁾。

残留基準がある農薬の中には有機リン系のパラチオン、有機塩素系の BHC、DDT、ドリノ剤等のように種々の規制から製造中止になったものもあり、代わって低毒性の有機リン系やカーバメート系の農薬が種類、量ともに大幅に増加している。しかしこれらの農薬の残留実態については TPN (ダコニール)²⁾³⁾⁴⁾、CNP⁵⁾⁶⁾ 等の報告はあるが、その種類は登録農薬の極く一部にすぎない。

カーバメート系殺虫剤である BPMC (バッサ) あるいはその成分を含む農薬製剤は熊本県では航空防除にも用いられ、使用量の多い農薬の一つである。また MIPC (ミブシン) は使用量はそれほど多くないが、水田状態での半減期が100~120日と永く⁷⁾ 残留性が懸念される。そこで玄米を用いそれらの農薬について残留実態を調査した。更に BPMC が残留する精白米を用い、炊飯等による BPMC の濃度変化を検討した。

実 験

1 試 料

昭和60、61年に熊本県内で生産された玄米を遠心粉碎機で粉碎し、0.25 mmのスクリーンを通したものを試料とした。61年産の玄米は、収穫して1、2ヵ月後に粉碎したが、60年産の玄米については収穫後、玄米のまま室温で1年4ヵ月放置した後に粉碎し試料とした。

2 試 薬

有機溶媒、無水硫酸ナトリウム (Na_2SO_4): 残留農薬分析用

りん酸: 試薬特級

シリカゲル: Kieselgel 60 (Merck 社製) 10g を 130°C で一夜活性化したもの

BPMC、MIPC 標準品: 和光純薬工業社製

3 装 置

遠心粉碎機: 日本精機製作所製 ZM-1型

ガスクロマトグラフ: 島津製作所製 GC-9A型 (FTD 検出器付)

ポリトロン: キネマチカ社製

4 試料溶液の調製

分析法は小林ら⁸⁾の方法を参考にした。

試料 10g を 300 ml 分液ロートに取り、30% 含水アセトン 100 ml、りん酸 3 ml を加え 30分間振とうし、3,000 rpm で10分間遠心分離した。上澄液は10% 塩化ナトリウム (NaCl) 水溶液 400 ml の入った 1 l 分液ロートに入れ、残渣は再び 300 ml 分液ロートに戻し、30% 含水アセトン 100 ml を加えて抽出、遠心分離を繰り返して、上澄液は先の 1 l 分液ロートに移した。1 l 分液ロートはジクロロメタン (CH_2Cl_2): n-ヘキサン (20:80) 200 ml で2回抽出した。有機層を Na_2SO_4 で脱水し、クデルナ・ダニッシュ (K_2D) 濃縮器で 5 ml まで濃縮した。この濃縮液を n-ヘキサンで 10 ml とし、100 ml 分液ロートに移し、アセトニトリル (CH_3CN) 20 ml で3回抽出し、 CH_3CN 層は 5% NaCl 水溶液 400 ml の入った 1 l 分液ロートに入れ、 CH_2Cl_2 : n-ヘキサン (20:80) 100 ml で2回抽出し、有機層は Na_2SO_4 で脱水後、 K_2D で濃縮し 5 ml とした。

次にシリカゲルカラム (10g を 130°C で一夜活性化し、内径 1.5 cm のカラムにつめ、上に Na_2SO_4 5g を層積したもの) に、この濃縮液を注ぎ、溶離液としてジエチルエーテル (以下エーテルと略す): n-ヘキサン (10:40) 50 ml を流し、次にエーテルのみに変えて最初の 10 ml は捨て、次の 30 ml をロータリーエバポレーターで濃縮し、窒素気流中で完全にエーテルをとばし、n-ヘキサンで 5 ml とし、ガスクロ検液とした。

5 ガスクロマトグラフィ条件

装置: 島津 GC-9A型 (FTD 検出器付)

カラム: i) 5% シリコン OV-17/ガスクロム Q (60-80メッシュ)、内径 3 mm、長さ 1.5 m のガラスカラム、注入口及び検出器温度: 250°C、カラム温度: 200°C ii) 2% シリコン OV-1/ガスクロム Q (60-80メッシュ)、内径 2.6 mm、長さ 1.6 m のガラスカラム、注入口及び検出器温度: 250°C、カラム温度: 170°C

キャリアガス流量: ヘリウム 50 ml/min

水素流量: 3 ml/min

空気流量: 150 ml/min

結果及び考察

1 クリーンアップカラムの検討

クリーンアップカラムとしてフロリジル、シリカゲル、活性炭を検討した。

フロリジルカラム(10g、130℃、一夜活性)は溶離液として(1) n-ヘキサン:アセトン(95:5) 90ml、(2) n-ヘキサン:アセトン(80:20) 100ml を流し(2)の分面を濃縮した。その時の回収率はBPMC 92.6%、MIPC 96.0%であった。しかし玄米を用いてクリーンアップを行なった場合、検液に着色が見られた。

シリカゲルカラム(10g、130℃、一夜活性)は溶離液として(1) n-ヘキサン:エーテル(40:10) 50ml (2) エーテルのみ 40ml とし(2)のエーテルの最初の10mlは捨て、次の30mlを濃縮した。その時の回収率はBPMC 98.5%、MIPC 95.3%であった。玄米を用いた場合、検液はわずかに着色が見られた。

活性炭カラム(ダルコG:アピセル(1:10) 5g)はベンゼンを溶離液とした場合、最初から40mlまでに溶出してきた。その時の回収率はBPMC 103.7%、MIPC 98.0%であった。玄米を用いても検液に着色は見られなかったが、ガスクロマトグラムのBPMC近くに大きなピークが見られた。また溶出液を濃縮乾固した時、フロリジル、シリカゲルに比べ残留物が多く、この条件では玄米のBPMCの分析には不適當であった。

以上の結果から、溶媒量が少なくすみ、検液の着色も比較的少ないシリカゲルをクリーンアップに用いた。

2 添加回収実験

玄米にBPMC、MIPCそれぞれ5μgを添加して一連の実験を行なった。

その時の回収率はBPMC 83.1%、MIPC 81.4%でありほぼ満足すべき値であった。

3 BPMC、MIPCの残留実態

昭和60、61年産の玄米についてBPMCとMIPCの分析を行なった。その結果を表1に示した。検出限界はBPMC、MIPC共に0.02ppmである。

MIPCは各年度とも検出されたのは10検体中1検体であり、その値はTrace、0.08ppmと低いものであった。

BPMCは各年度とも10検体中9検体検出された。その値は60年産が0.05~0.28ppm、61年産が0.07~0.52ppmであった。

60年産の玄米については、収穫後1年4カ月室温で放置後粉碎し分析を行なったものである。これらの検

表1 60、61年産玄米に残留するBPMC、MIPC濃度

No.	60年産		61年産	
	BPMC	MIPC	BPMC	MIPC
1	ND	ND	0.08	ND
2	0.05	ND	0.10	ND
3	0.20	ND	0.16	ND
4	0.25	Trace	ND	ND
5	0.16	ND	0.19	ND
6	0.21	ND	0.52	ND
7	0.24	ND	0.07	ND
8	0.28	ND	0.10	ND
9	0.10	ND	0.39	0.08
10	0.11	ND	0.15	ND
平均	0.16		0.18	

単位: ppm

ND: 不検出

体については収穫直後の残留濃度を測定していないが、60年と61年の平均値(0.16ppm、0.18ppm)にそれほど差がないところから、かなりの期間玄米中に残留するのではないかと推察される。

このようにBPMCは検出率及び残留濃度ともMIPCに比べ比較的高く、しかも長期間残留する可能性があることが判明した。

4 BPMCの玄米での濃度分布

61年産の玄米No6(BPMC 0.52ppm検出)を家庭用精米機(オムロン製:ヘルシーライサー)で精米し、ぬかと精白米に分け各部分のBPMC濃度を調べた。

500gの玄米を精米して得られたぬかの量は36g(7%)、精白米の量は464g(93%)であった。それぞれのBPMC濃度を測定すると、ぬかは3.03ppm、精白米は0.33ppmとなりほぼ9:1の濃度比であった。またこの精白米の濃度は玄米の時の濃度の63.5%であった。

精米して得られたぬか及び精白米の量から、それぞれの部分に含まれるBPMCの絶対量に換算すると、ぬかの部分に41%、精白米部分に59%存在することになる。この値はぬかに80%、精白米に20%という金沢⁹⁾の報告とかなり異なっていた。これは精米の方法及び玄米のBPMC濃度によっても異なると考えられるが、今回の実験では、BPMCはかなり精白米部分にも残留することが判った。

5 炊飯によるBPMCの濃度変化

精白米を炊飯することによるBPMCの濃度変化を調べた。

精白米10g (BPMC を3.3 μ g 含有) をトールビーカーに取り、水 40 ml を加え 30分間放置後、ホットプレート上でふきこぼれないように注意しながら沸騰後30分間加熱した。これで米は十分に炊けており、食することができる状態であった。放冷後このビーカーにアセトンを加え、ポリトロンで十分粉碎した後、実験の4に従って分析した。この時の BPMC 量は 2.0 μ g であり、減少率は39%であった。すなわち30分間加熱しても、約6割の BPMC がそのままごはんに残ったことになる。

6 水洗及び炊飯による BPMC の濃度変化

精白米を水洗することによる BPMC の濃度変化を調べた。

精白米 10g (BPMC を 3.3 μ g 含有) をトールビーカーに取り、水 50 ml を加えマグネチックスターラーで1分間攪拌しその洗水について BPMC を分析した。水洗は3回まで行なった。結果を表2に示した。

表2 洗水に含まれる BPMC の量及び減少率

水洗回数	BPMC量 (μ g)	BPMC 減少率 (%)
1	0.56	17.0
2	0.82	24.8 (7.8) *
3	0.98	29.7 (4.9)

* () はその回だけの減少率

BPMC は1回的水洗で17%減少し、3回水洗を繰り返すと約30%減少した。また3回的水洗で減少した BPMC のうち約60%が1回目の水洗で減少している。

3回的水洗により30%の BPMC が減少し、更に5で述べたように炊飯により40%が減少するので、それから試算すると42%の BPMC が残留することになる。そこで3回水洗後の米について、5と同様にして炊飯し、残留する BPMC の濃度を測定した。

水洗後炊いた米に残留していた BPMC 量は 1.3 μ g であり、最初の精白米 (3.3 μ g) と比較して40%が残留したことになり、試算した値42%とよく一致した。

今回これらの実験に用いた米の BPMC が 0.33 ppm と高濃度であったが、低濃度の場合も今後実験する必要がある。

ま と め

60、61年産の玄米を用いて、カーバメート系殺虫剤 BPMC、MIPC の残留実態を調査した。更に水洗、炊飯等による BPMC の濃度変化を調べた。

- 1 MIPC の検出率は10%であり、濃度も Trace~0.08 ppm と低かった。
- 2 BPMC の検出率は 90%であり、濃度は 0.05~0.52 ppm であった。平均値は 60年産が0.16 ppm、61年産が 0.18 ppm とあまり差がなかった。
- 3 玄米をぬかと精白米に分けた時、BPMC の濃度比は9:1となったが絶対量を考えた時、約4:6であった。また精白米の BPMC 濃度は玄米の時の63.5%であった。
- 4 30分間炊飯した時の BPMC の減少率は約40%であった。
- 5 水洗による BPMC の減少率は1回で17%、3回で30%であった。更に3回水洗後炊飯すると約60%減少した。

文 献

- 1) 汚染物質研究班: Food Contamination Monitoring Report II-VI (1981-1985).
- 2) 遠矢光孝 他: 鹿児島県衛生研究所報, 22, 67 (1986).
- 3) 真砂秀夫 他: 群馬県衛生公害研究所年報, 18, 89 (1986).
- 4) 小関正道 他: 東京都衛生研究所年報, 32-1, 172 (1981).
- 5) 金島弘恭 他: 北海道衛生研究所報, 34, 54 (1984).
- 6) 塚林 裕 他: 石川県衛生公害研究所年報, 23, 279 (1986).
- 7) 桜井 壽 編・著: "環境と農業" p.63 (昭和58) 全国農村教育協会.
- 8) 小林加代子 他 (国立衛試大阪支所): 60年度都道府県委託残農検査に係る残農分析法.
- 9) 金沢 純 他: 科学, 41, 426 (1971).

9) 熊本県下における合成抗菌剤の調査状況 (昭和54年度~61年度)

森山秀樹 小出圭子 辻 功 野口敏子

緒 言

昭和52年8月に厚生省から「畜水産食品中の残留物質検査法」¹⁾が出されて以来これら合成抗菌剤の県産畜産物への残留実態を把握するための行政上の要求に応え当所では昭和54年度から食肉、鶏卵、養殖魚について合成抗菌剤の残留検査を継続して行ってきた。今回は昭和61年度までの調査結果について報告する。

実 験

1 試験材料

昭和54年10月から昭和61年10月までの間に採取された生産地の明らかかなものを検体とした。

2 実験方法

「畜水産食品中の残留物質検査法」に準じたが必要に応じ中沢²⁾、堀³⁾らの方法に従った。

3 装 置

高速液体クロマトグラフ：日立 635形(波長可変流動光度計及び 204-S形蛍光光度計つき)

ガスクロマトグラフ：島津GC-4BMIEE、島津GC-4CMPBE。

結 果

昭和54年から検体数にして270検体、延べ1,018件の検査を行ってきた。内訳を表1、2に示した。検出されたものは鶏卵、豚肉、牛肉、コイ、ヤマメであった。検出状況については表3に示したようにスルファ

表1 食肉、鶏卵の検査結果(S.54~S.61)
(検出件数/検査件数)

検査項目	対象品目	食 肉				計
		鶏卵	豚肉	牛肉	馬肉 鶏肉	
スルファモノメトキシ		3/72	1/47	2/48	4 11	6/182
スルファジメトキシ		63	1/47	48	4 11	1/173
スルファキノキサリ		63	47	48	4 11	173
フラゾリドン		20	44	33	— —	97
カブリロヒドロキサム酸		—	3	3	— —	6
カルバドックス		—	6	6	— —	12
ピリメタミン		7	16	6	— 5	34
計		3/225	2/210	2/192	12 38	7/677

モノメトキシが0.08から2.5ppmの範囲で鶏卵、豚肉、牛肉、コイ、ヤマメに、またスルファジメトキシが0.01から0.02ppmの範囲で豚肉とコイに検出された。

以上全体を通覧すると検出率は低いと言えるが前記のような検出事例もあり、合成抗菌剤の残留については引き続き監視されるべきであろう。またこの他にクロビドールの残留実態調査⁴⁾を行ってはいるが、それら以外の合成抗菌剤についても今後、調査検討の必要があろう。

表2 養殖魚の検査結果(S.54~S.61)

(検出件数/検査件数)

検査項目	対象品目										計	
	うなぎ	こい	あゆ	ニジマス	ヤマメ	たけのこ	車エビ	マダイ	いずみだい	はまち		ジャコ
スルファモノメトキシ	19	21	4	12	1/7	7	1	1	6	6	4	1/83
スルファジメトキシ	19	1/21	4	12	7	7	1	1	6	6	4	1/83
スルファキノキサリ	19	21	4	12	7	7	1	1	6	6	4	88
フラゾリドン	17	19	3	10	6	5	—	1	6	6	4	77
計	74	1/82	15	46	1/27	26	3	4	24	24	16	2/341

表3 合成抗菌剤の検出状況(S.54~S.61)

単位: ppm、()内は検出年度

	スルファモノメトキシ	スルファジメトキシ
	鶏 卵	0.09 (S.58) 0.14 (S.58) 0.08 (S.58)
豚 肉	0.17 (S.56)	0.01 (S.55)
牛 肉	1.10 (S.56) 0.12 (S.57)	
こ い		0.02 (S.57)
ヤ マ メ	2.5 (S.61)	

文 献

- 1) 厚生省環境衛生局乳肉衛生課：畜水産食品中の残留物質検査法第2集1—7
- 2) 中澤裕之他：分化, 32, 179 (1983)
- 3) 堀 義宏：食衛誌, 25, 158 (1984)
- 4) 辻 功他：熊本県衛生公害研究所報, 11, 23 (1981)

10) 食物繊維の分析法の検討

幸 健 野口敏子

緒 言

近年、栄養成分中の食物繊維に新しい定義がなされ¹⁾、その生理的効果が注目されている。県民の健全な食生活への指標とするためその成分組成と分析法を確立することを目的として、地研全国協議会の共同研究に参加し昨年度実施した分析法の検討²⁾³⁾⁴⁾⁵⁾⁶⁾の結果、統一分析法として改良酵素法(AOAC法)⁷⁾が採用された。

今年度はこの統一分析法による指定食品の食物繊維の分析並びに当分析法の詳細な検討が課題とされた。

そこで今回我々はこの分析法に反応条件等若干の検討を加え、2、3の知見を得たので報告する。

実 験 方 法

1 試験材料

今年度九州地区に共通試料として配布された食品8品目のうちの6品目(精白米、マカロニ、即度めん、乾燥わかめ、さつまいも、脱脂大豆)を使用した。

さつまいもと脱脂大豆を除く4品目は粉砕器を用いて粒子のサイズを0.5mm以下に調整した。さつまいもと脱脂大豆は凍結乾燥あるいは脱脂後上記のサイズに粉砕されたものが配布されたのでそのまま使用した。

2 試 薬

ターマミール: Novo, No.120L

プロテアーゼ: Sigma, No. P-5380

アミログルコンダーゼ: Boehringer, No.208-469

上記以外の試薬については和光純薬工業(株)製特級試薬を使用した。

3 装 置

粉砕器: 日本精機製作所製 ZM-1型

攪拌器付き加熱槽: 東洋科学(株) PA-6・PB-6

4 ろ過装置

内径25mmのろ過板を有する2G2のろつば形ガラスフィルターにろ過補助剤として1.4gの酸処理をしたセライト545をのせたものを使用した。

5 分析法

Prosky⁷⁾らの方法(61年度全国統一分析法)に準じて行った。図1に統一分析法のフローシートを示す。この中で我々はプロテアーゼを酵素として使用した。

試料 (必ず2検体同時に処理すること、また、適宜検体を加えずに同処理を行い試薬ブランクとすること)

0.1mgの精度で1gを秤量し400mlコニカルビーカ(又は三角フラスコ)へ

—50mlの0.05Mリン酸(Na)緩衝液pH6.0を加え充分懸濁

—0.1ml Termamyl (Novo No.120 L)を加える

フラスコをアルミ箔でカバーし、90°C 15min. (90°C水浴中で試料温度が90°Cになってから15分間振とう。振とう器付き水浴が無い時は数分毎にゆるやかに振り混ぜ)

冷後、0.2N NaOHでpH7.5に調整

—15mg Pronase (Boehringer) 又は
Protease (Sigma) 注1)

カバーし60°C 90min. incubate (Water bath中振とう)

冷後、0.205M H₃PO₄液約10mlを加えてpH4.5±0.2に調整

—25mg Amyloglucosidase (Boehringer)

カバーし60°C 30min. incubate (Water bath中、振とう)

—280ml 95%エタノール(60°C)

室温で60min.以上放置(最初からこの段階までは1日の行程とする。途中で放置しないこと。)

ろ 過 (吸引しつつ、定量的に行う)

—20ml 78%エタノール × 3 洗浄

—10ml 95%エタノール × 2 洗浄

—10ml アセトン × 2 洗浄

ろ過器を真空オーブン中70°C一夜または、空気が浴中105°Cで一晩乾燥しデンケーターで放冷後、秤量(0.1mgの精度まで秤量)

以上二検体を同処理したもの内、一方のサンプルを用いて、ケルダール法により窒素量を測定する(これに6.25を乗じて、非消化性タンパク質とする。)残りのサンプルは525°Cで5時間灰化、デンケーターで放冷後、秤量

注1) プロテアーゼを使用する場合は5mgをそのまま、フラスコにいれる。

注2) 反応時間60分でよい。

図1 酵素的食物繊維定量法(Prosky-AOAC法)

この場合プロテアーゼ5mgをそのまま反応液に加え、カバーし60°Cで60分 incubate した。

なお、食物繊維(DF値)は繊維性沈殿物から非消化性タンパクを減じたものをいう。

結果と考察

1 酵素量の検討

統一分析法どおりの酵素量を使用した場合をAとし、他の条件は変えずに酵素量だけを2倍量使用した場合をBとしたときの6品目の食品各々のDF値を比較したものを表1に示す。

ただしA、Bともに攪拌は後述の攪拌子を反応フラスコにいれ攪拌器付き加熱槽で加熱攪拌する方法で行った。

その結果乾燥わかめとさつまいもの繊維性沈殿物及び非消化性タンパクの分析値ではAよりBの方がわずかながら減少しているが、DF値にはほとんど差は見られなかった。

その他の4品目についてはA、Bいずれの場合の分析値も差が認められなかった。

表1 使用酵素量の違いによる比較

(単位: %)

	繊維性沈殿物		非消化性タンパク		食物繊維	
	A	B	A	B	A	B
精白米	1.9	1.9	1.3	1.3	0.6	0.6
マカロニ	3.0	3.2	0.5	0.4	2.5	2.8
即席めん	2.6	2.5	0.3	0.2	2.3	2.3
乾燥わかめ	50.6	45.4	12.4	8.8	38.2	36.8
さつまいも	7.0	6.6	0.8	0.2	6.2	6.4
脱脂大豆	20.3	20.6	5.4	5.6	14.9	15.0

Aは統一分析どおりでBはAの2倍量の酵素を使用

2 攪拌方法の検討

反応フラスコの中に3cmの攪拌子をいれ、攪拌器付き加熱槽で攪拌した場合と5分ごとに手動で30秒間攪拌した場合の6品目の食品各々のDF値を比較したものを表2に示す。なお、他の条件は統一分析法どおりである。

その結果乾燥わかめを除いた5品目の食品については繊維性沈殿物及び非消化性タンパク並びにDF値それぞれには差が見られなかった。

乾燥わかめについては手動で攪拌した場合の非消化性タンパクの分析値が低いように思われるので今後検討したい。

表2 攪拌の違いによる比較

(単位: %)

	繊維性沈殿物		非消化性タンパク		食物繊維	
	攪拌器	手動	攪拌器	手動	攪拌器	手動
精白米	1.9	2.1	1.3	1.5	0.6	0.6
マカロニ	3.1	2.5	0.4	0.3	2.7	2.2
即席めん	2.5	2.3	0.2	0.4	2.3	1.9
乾燥わかめ	47.1	47.5	10.0	6.8	37.1	40.8
さつまいも	6.7	7.7	0.4	0.7	6.3	7.0
脱脂大豆	20.5	21.0	5.5	5.3	15.0	15.7

3 反応時間の検討

統一分析法どおりの酵素反応時間で反応させた場合をAとし、反応時間各々を半分に短縮して反応させた場合をBとしたときの精白米、さつまいも及び脱脂大豆のDF値を比較したものを表3に示す。なお、A、Bともに攪拌方法は上記の手動で行い、その他の条件は統一分析法どおりである。

その結果3品目の食品とも予想どおりAよりBの場合が繊維性沈殿物及び非消化性タンパクの分析値が若干高かったが、DF値には差が見られなかった。

表3 酵素反応時間の違いによる比較

(単位: %)

	繊維性沈殿物		非消化性タンパク		食物繊維	
	A	B	A	B	A	B
精白米	2.1	2.3	1.5	1.8	0.6	0.5
さつまいも	7.7	8.0	0.7	1.1	7.0	6.9
脱脂大豆	21.0	21.8	5.3	6.0	15.7	15.8

Aは統一分析法どおりでBはAの半分の時間で反応

4 乾燥わかめの洗浄回数の検討

乾燥わかめはエタノールとアセトンで洗浄する際なかなか色素の色がとれにくい。

そこで色素がDF値にどれくらい影響があるか調べる必要があると思い、エタノールとアセトンの洗浄回数とDF値の比較をした。その結果を表4に示す。

洗浄回数は表の注)に示したとおりである。Cの場合に色素の色が完全にとれていた。反応条件については統一分析法どおり行ったが、攪拌は攪拌子による方法で実施した。

表4の結果から洗浄回数が多くなるほど繊維性沈殿物及び非消化性タンパクの分析値は減少するが、DF値にはほとんど差がないことがわかった。そこで洗浄回数は統一分析法どおりでよいと思われる。

表 4 乾燥わかめの洗浄回数と比較

(単位：%)

	繊維性沈殿物	非消化性タンパク	食物繊維
A	50.6	12.4	38.2
B	45.8	9.3	36.5
C	44.9	8.3	36.6

A : 78%エタノール 20 ml × 3回

95%エタノール 10 ml × 2回

アセトン 10 ml × 2回

B : 78%エタノール 20 ml × 3回

95%エタノール 10 ml × 6回

アセトン 10 ml × 6回

C : 78%エタノール 20 ml × 6回

95%エタノール 10 ml × 12回

アセトン 10 ml × 12回

ま と め

61年度食物繊維の統一分析法に反応条件等若干の検討を加え、以下の結果を得た。

1 反応酵素量を統一分析法の2倍使用しても6品目の食品についてはDF値に差が認められなかった。

2 攪拌子による攪拌方法も手動による方法も6品目の食品についてはDF値に有意の差は見られなかった。

3 反応時間を統一分析法の半分に短縮しても3品目の食品についてはDF値に差がなかった。

4 乾燥わかめの洗浄回数は統一分析法の回数より増してもDF値には差がほとんどなかった。

以上のことから反応条件等によって繊維性沈殿物の分析値に多少の変動があってもDF値にはほとんど影響がないことがわかった。

文 献

- 1) 印南敏 桐山修八：“食物繊維”，第一出版(1982)，p.7.
- 2) 食物繊維，“加工食品の栄養成分分析法”，社団法人日本栄養食品協会(1985)，p.30.
- 3) 衛生試験法，日本薬学会第105年会公衆衛生協議会資料(1985)，〔食物繊維〕，p.1.
- 4) N. -G. Asp, et al. : J. Agric. Food Chem., 31, 476 (1983).
- 5) 地方衛生研究所全国協議会：昭和60年度表示栄養成分の分析法と摂取量に関する研究(1986).
- 6) 昭和61年度健康づくり等財団の委託調査研究に係る分担研究者会議資料(1986).
- 7) L. Prosky, et al. : J. Assoc. Off. Anal. Chem., 68, 677 (1985).

11) ソ連チェルノブイル原子力発電所事故に伴う

熊本県における環境放射能調査

大気部 小笹康人 上野一憲 飛野敏明 鶴田雄二

はじめに

核実験による放射能の影響と原子力発電所事故によるそれとは本質的に変わりはないが、「原子力発電所事故」と言う身近に感じられる事故における放射能の影響、すなわち1986年4月26日に発生したソ連チェルノブイル原子力発電所事故の熊本県での影響を知るために環境放射能調査を行った。

現在、熊本県においては環境及び食品等の放射能を測定する機材及び施設を有しないが、とりあえずハイボリウム・エアサンプラーを用い当研究所屋上において環境大気浮遊粉じんを捕集し、後日、熊本大学黒髪地区R I 研究室の協力を得て放射能を測定することができ、数種類の放射性核種が検出されたので報告する。

調査方法

ハイボリウム・エアサンプラー(紀本電子工業製121型)及び石英ろ紙 2500 QAST (パルフレックス

社製)を用い、約24時間当研究所屋上において大気浮遊粉じんを捕集した。

このろ紙の一部を直径 50 mm の円形に打ち抜き、これを試料として純正 Ge 半導体検出器 (PGT 社製 IGC-688型)、 γ 線波高分析装置 (トレイコフ・ノーザン社製 TN-4000) を用いて30分間放射能を測定した。

調査結果

核種分析結果及びその放射能濃度を表1及び図1に示す。

^{108}Ru (ルテニウム、半減期39.7日以下同じ) と ^{131}I (ヨウ素、8.05日) は連休中の5月5日から、 ^{134}Cs (セシウム、2.06年) は5月7日から検出された。

^{137}Cs (30年) は測定を開始した4月30日から検出されたが、バックグラウンドと考えられる1982年7月30日の数値と比較して、5月5日以降高い放射能濃度が認められた。

表1 大気浮遊粉じん中の放射能調査結果

調査場所: 熊本県衛生公害研究所屋上

サンプラー: ハイボリウム・エアサンプラー (紀本電子工業製: 121型)

捕集ろ紙材: 2500 QAST (パルフレックス社製)

採取期間	天候	吸引量 (m^3)	浮遊粉じん量 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	測定時間 (sec)	検出核種濃度 (pCi/m^3)			
					^{137}Cs	^{108}Ru	^{131}I	^{134}Cs
1982.7.30, 10:19 - 7.31, 10:19	晴れ	1927	116.5	1800	0.088	N.D	N.D	N.D
1986.4.30, 10:37 - 5.1, 8:40	曇りのち雨	2249	81.2	1800	0.044	N.D	N.D	N.D
5.1, 9:30 - 5.2, 8:20	曇りのち雨	2339	55.1	1800	0.030	N.D	N.D	N.D
5.5, 11:20 - 5.6, 12:30	曇り時々雨	2552	25.2	1800	0.129	0.138	0.078	N.D
5.6, 13:00 - 5.7, 13:00	雨のち晴れ	2465	63.6	1800	0.084	0.172	0.423	N.D
5.7, 13:47 - 5.8, 13:20	晴れ	2505	94.5	1800	0.176	0.253	0.054	0.039
5.8, 13:43 - 5.9, 12:35	晴れ	2422	155.8	1800	0.271	0.542	0.971	0.209

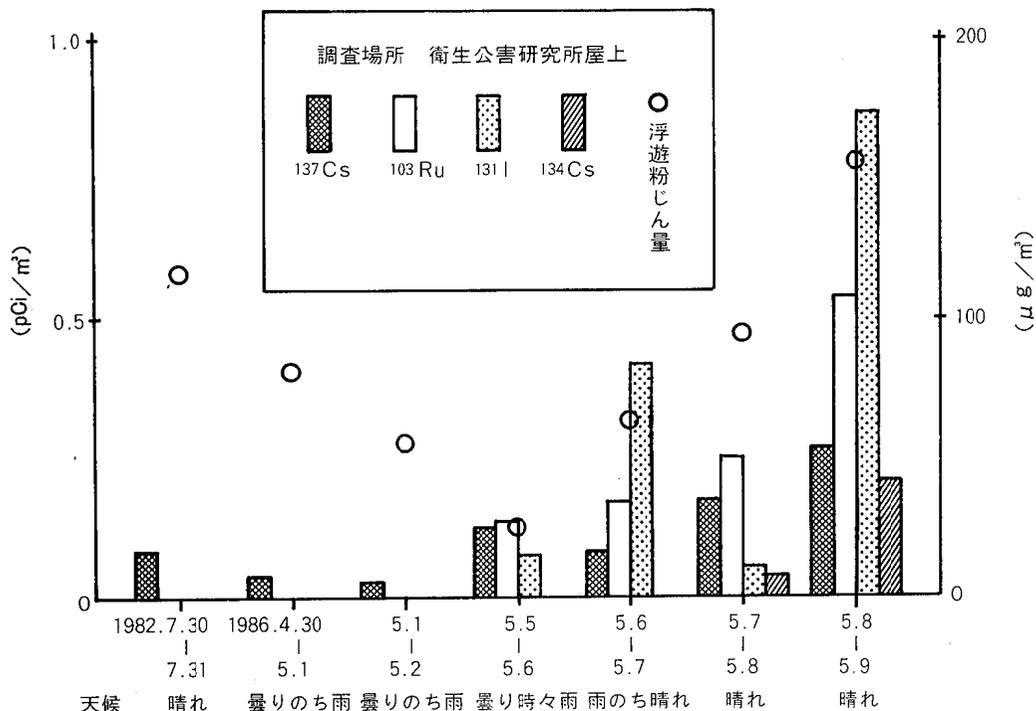


図1 放射能濃度及び浮遊粉じん量の日変化

ま と め

検出された放射性核種は ¹⁰³Ru、¹³¹I、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs の4核種であった。

Iは粒子状以外にガス状でも存在するので、今回フィルターで捕集した試料における¹³¹Iの濃度は実際よりも低い値である。

試料中のこれらの放射能濃度 (pCi/m³) は、試料採取時の天候の影響を受け、その濃度は浮遊粉じん量 (μg/m³) にほぼ比例している。

ここで得られたデータは科学技術庁の指示に基づく捕集方法及び計測時間と異なるが、今回のチェルノブイル原子力発電所事故に伴う放射能の県下における濃度はこの範囲内であったと思われる。

これら放射性核種の濃度は、放射線障害防止法に定める居住区域における最大許容空气中濃度 (¹⁰³Ru 3000 pCi/m³、¹³¹I 300 pCi/m³、¹³⁴Cs 400 pCi/m³、¹³⁷Cs 500 pCi/m³) に比べ、大きく下まわっており、これらの数値からは熊本県における放射能の影響は薄いと考えられる。

謝 辞

測定に際し測定機材及び御指導いただいた、熊本大学工学部岸川俊明助教授、並びに研究室の皆様へ深く感謝します。

参 考 文 献

山 登：“環境放射能測定法”，共立全書
 檜山義夫：“放射線影響の研究”，東京大学出版会
 Table of Isotope, seventh edition
 内山 裕：“ソ連チェルノブイル原子力発電所事故に伴う環境放射能調査結果報告書（速報）”，鹿児島県環境センター昭和61年9月

12) 二酸化鉛法により捕集した大気中硫黄酸化物の 高速液体クロマトグラフによる分析

飛野敏明 小笹康人 井村義弘 上野一憲 鶴田雄二

緒 言

二酸化鉛法¹⁾(二酸化鉛捕集-重量分析法)は、大気中硫黄酸化物の簡易測定法として広く利用されているが、近年公害防止対策等で大気中の硫黄酸化物の濃度が低下してきたことから、重量法による天秤感度の限界に近いサンプルが増えてきた。そこで低濃度でも精度よく分析できる方法として、すでに水中のアニオン分析等に利用されている高速液体クロマトグラフ(HPLC)を用いた逆相イオンペアクロマトグラフィ²⁾について検討し1ヶ月間環境大気に暴露した二酸化鉛(PbO₂)試料の分析を行い、重量法と比較を行った。

実 験

1 試 薬

0.4 M 水酸化テトラ-n-ブチルアンモニウム：関東化学製 二酸化鉛、トリメシン酸、硫酸鉛、炭酸ナトリウム、塩酸、水酸化カリウム等の試薬は特級以上のものを和光純薬より購入使用した。

移動相(0.8 mM トリメシン酸+1.0 mM 水酸化テトラ-n-ブチルアンモニウム)：トリメシン酸 336 mgを超音波洗浄器を用いて蒸留水 2 lに溶解させ0.4 M水酸化テトラ-n-ブチルアンモニウム溶液 5 mlを加える。次いで 1 N KOH 溶液を用いて pH を 4.20 に調整し、0.45 μm のフィルターでろ過する。

2 装置及び構成

高速液体クロマトグラフ：島津 LC4 A

紫外吸光光度計検出器：島津 SPD-2 AS

サンプルインジェクター：レオダイン 7125型 (200 μl サンプル計量管付)

カラム：ガードカラム Shim-pack GRD-ODS

分析カラム Shim-pack CLC-ODS

操作条件

カラムオープン温度 40 °C

流 量 1.5 ml/min

測定波長 282 nm

試料導用量 200 μl

システム構成

図1に示す。

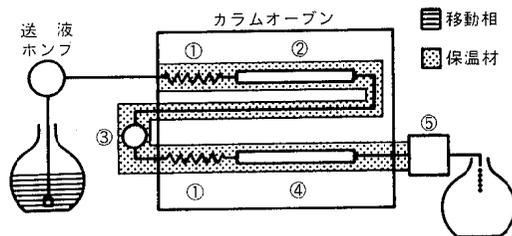


図1 システム構成

- ① 予熱コイル (内径 0.3 mm φ × 50 cm)
- ② ガードカラム
- ③ レオダイン 7125型インジェクター
- ④ 分析カラム
- ⑤ 紫外分光光度計

3 分析方法

1ヶ月間大気に暴露した二酸化鉛の綿布を乾式ではがし 100 ml の共栓付比色管に入れる。次いで、1%炭酸ナトリウム溶液 50 ml を加え、沸とう水浴中に一時間放置する。冷後よく振りまぜ PbO₂ が沈澱するまで静置する。この上澄液数 ml を 0.45 μm のフィルターでろ過し、ろ液1に対し 0.2 N HCl 1 を加え、更に移動相で 20~50倍に希釈して HPLC に導入し、ピーク高さ法で定量した。

結果及び考察

1 移動相 pH

1 N KOH を用いて移動相 pH を 4.6, 4.4, 4.2, 4.0 に調整し、NO₃⁻ と SO₄²⁻ ピークの分離条件を求めた。移動相 pH 4.6 では相対 Rt SO₄²⁻ 1 (Rt 4.6 min) に対し NO₃⁻ 0.96 で分離できない。pH 4.4 ではほぼ分離し、pH 4.2 では SO₄²⁻ 1 (Rt 5.2 min) に対し NO₃⁻ 0.87 となり完全に分離できた。pH 4.0 では SO₄²⁻ 1 (Rt 7.1 min) に対し NO₃⁻ 0.7 となった。SO₄²⁻, Cl⁻, NO₂⁻, NO₃⁻, IO₃⁻, Br⁻, BrO₃⁻ 混合標準の pH 4.6 及び pH 4.2 でのクロマトグラムを図2に示す。

2 試験溶液 pH の影響

100 ppm SO₄²⁻ 標準液 1 ml に 1% NaCO₃ 溶液 1 ml 及び 0.2 N HCl (0~2.0 ml, 0.2 ml きざみ)

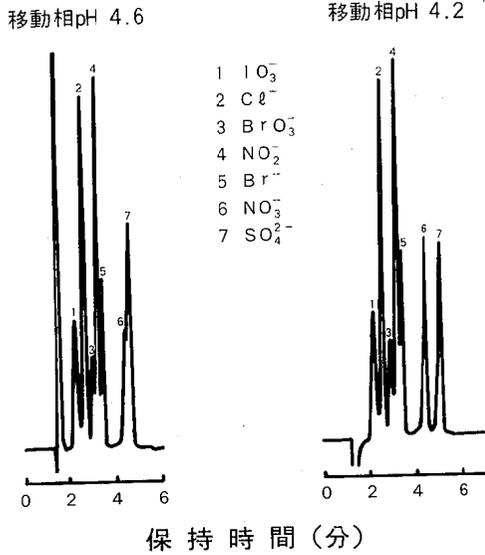


図2 混合標準のクロマトグラム

を加え、更に移動相 (pH 4.2) を加え全量を 50 ml とした。この溶液 200 μ l を HPLC に導入し保持時間、ピーク高さ及び溶液 pH を測定した。ピーク高さは HCl 添加量 0.8 ml ~ 1.6 ml ではほぼ一定となり、この時の pH は 5~3.1 であった。保持時間は pH 7~4 で一定となった。このことから 0.2N HCl の添加量は試料抽出液 (1% NaCO_3) 1 に対し 1 とした。0.2N HCl 添加量とピーク高さ及び pH の関係を図3に示す。

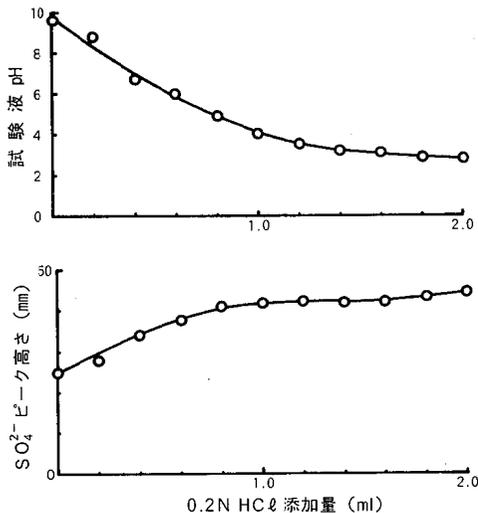


図3 0.2N HCl 量とピーク高さ及び pH

3 回収試験

PbO_2 に捕集された硫酸酸化物は PbSO_4 を生成す

ることから PbO_2 及び PbSO_4 を用いて回収試験を行った。100 ml 比色管に PbO_2 4g と PbSO_4 約 21 mg (SO_3 として 5.5 mg に相当) を入れよく混合し実験 3 の分析方法により分析した。回収率は $102 \pm 3.2\%$ ($N=5$) であった。

また、抽出方法として超音波抽出を試みたが PbO_2 の粒子が微細化しろ過が困難となったため水浴抽出を行った。

4 重量法と HPLC 法の比較

従来より PbO_2 法で測定を継続している八代市で 1ヶ月間暴露した試料を重量法により抽出し、この溶液 (200 ml) の一部を HPLC 法で、残液を重量法で分析し、測定値の比較を行った。図4に HPLC 法と重量法の測定値の関係を示す。

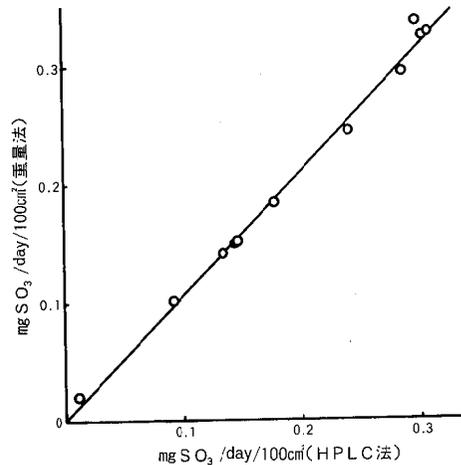


図4 HPLC 法と重量法の測定値の比較

回帰式は $Y=1.06X-0.00009$ で相関係数は 0.997 ($n=11$) となり非常によく一致した。

また、重量法の検出限界は SO_3 として 2 mg 程度であるのに対し HPLC 法では、20倍希釈で 0.4mg/30日であった。

まとめ

PbO_2 法により捕集した SO_x を 1% NaCO_3 で抽出し 0.2N HCl で pH を調整し、逆相イオンペアクロマトグラフィーと紫外吸光度計を組み合わせたアニオン間接分析法を用いて分析することで分析時間を重量法の半分以下に短縮できた。また、低濃度でも精度よく分析できた。

参考文献

- 1) 日本化学会編：硫酸酸化物，丸善 (1975)。
- 2) 島津アプリケーションニュース：高速液体クロマトグラフィー-136。

13) 硫化物生成と重金属溶出に及ぼす浸漬液 pH の影響

久保 清 杉村継治 塘岡 穰 宮田謙治

緒 言

河口域底泥には、河川により堆積した有機物が多量に含まれている。海水中に存在する硫酸イオン(2700 mg/l)は、堆積した底泥中の硫酸還元菌などのバクテリアによって、生物学的に還元され硫化物を生ずる。¹⁾²⁾

このようにして生じた硫化物が、底泥中の重金属、主に鉄などと反応して硫化鉄を生成する。

そこで、底泥中重金属の可溶化、不溶化及び硫化物生成量が、浸漬液 pH と還元過程においてどのような関係にあるかについて、検討を行ったので報告する。

実 験

1 試薬及び装置、底質分解法、分析法³⁾

2 試料調製

試料は重金属濃度が高く、有機物を多量含有している河口水域の底泥を用い、風乾後 60 mesh に調製して実験に用いる均一な試料とした。

3 浸漬実験条件

2で調製した試料 10g を 300 ml フランビンに入れ、浸漬液として pH 条件を 1~13まで変化させた蒸留水及び海水を用い、密栓後 20 °C フラン器中に30日間放置した。浸漬後、ろ液(5 Cろ過)については、直ちに pH、重金属、残渣中の硫化物の分析を行った。

結果及び考察

1 底泥の緩衝 pH 域

溶出液に接している底質と H⁺ の反応が、底質の基質である粘土鉱物中の負電荷を帯びた酸素原子や、底泥中のフミン質などの反応によって、pH 緩衝性が生じるといわれている⁴⁾。

図1は浸漬液(蒸留水、海水) pH 条件を pH 1~13に変化させ、底泥の pH 緩衝域について示したものであり、この pH 曲線は、各 pH 値における硫化物生成を伴った緩衝 pH 曲線である。

蒸留水は浸漬前 pH 3~11の間で、緩衝 pH 値7を示した。海水は浸漬前 pH 11~12 で緩衝 pH 値 9.5を示し、pH 条件に対して2段緩衝域がみられた。

この2段緩衝 pH 値 9.5 は、海水によって生じた高濃度の硫化物アルカリ塩が、一部加水分解したためであろう。

図中に T-S 7.0 mg/g を含有する同じ試料を用い、振とう実験(1時間)で求めた pH 緩衝曲線と比較すると、やはり硫化物高濃度の場合、緩衝 pH 値 9.5で一致しており、この緩衝 pH 域が硫化物生成と加水分解が起る境界と思われる。

この結果、底泥の pH 緩衝値には底泥基質の他に、硫化物生成も影響していることが判った。

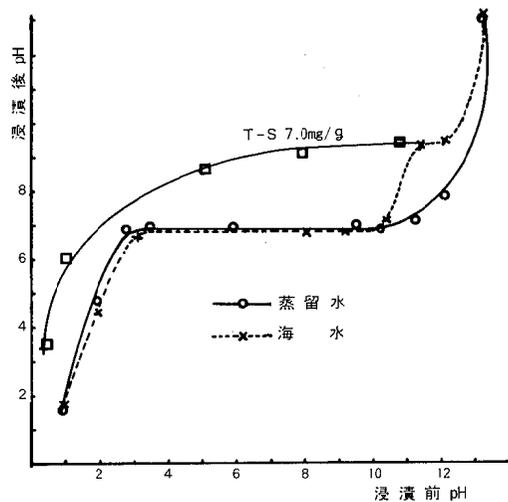


図1 底泥の緩衝 pH 域

2 浸漬液 pH と硫化物生成

底泥の酸化還元系と pH の変化は、酸化還元反応に H⁺ イオンが関係しているため直接的に、あるいはイオン平衡に影響するため、間接的に酸化還元に影響する。

図2には浸漬実験から底泥中の硫化物生成と、浸漬液 pH との関係について示してある。

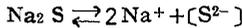
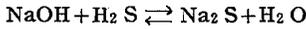
硫化物生成 pH 曲線は、浸漬液 pH 5以下の酸性側では硫化物が全く存在しないことを示している。

これは硫化物が溶液中で二段電離し、電離度が [H⁺] 濃度によって非常に小さくなるため、浸漬液の酸性が強くなるほど [S²⁻] はますます小さくなり、H₂S として揮散してしまうためである。

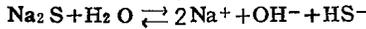


pH 7~10 にかけてのアルカリ側で、硫化物生成が急増しているのは、溶液中に生成した [S²⁻] がアルカリと化合して塩を生じ、その塩の電離度が大きく、

溶液中の $[S^{2-}]$ 濃度が高くなるためである。



しかし pH 10以上になると加水分解して、 HS^- となり著しく $[S^{2-}]$ を減ずる。



要するに、このようにして生成した $[S^{2-}]$ が、酸性またはアルカリ性溶液中で重金属イオンと化合して、硫化物を生成していく。

このことは、生成する硫化物の K_{sp} (溶解度積) との関係から、重金属は酸性が増すと $[S^{2-}]$ が小さくなって、硫化物沈殿がしにくくなるが、アルカリ性になると $[S^{2-}]$ が増加するので、硫化物は沈殿しやすくなることを示している。

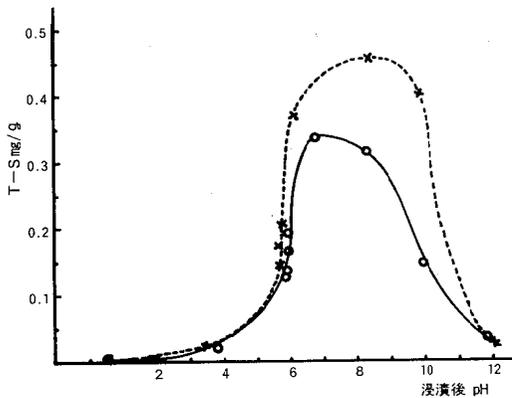


図 2 硫化物生成に及ぼす浸漬液 pH の影響

3 浸漬液 pH と重金属溶出

底泥の重金属溶出実験から求めた不溶化 pH 値、溶出曲線などに示された不溶化現象が、底泥に対し各重金属の自然界における濃縮状態と考えられるため、これらについて比較検討を行った。

1) Fe, As

図3に示すように、硫化物生成が急激に始まる pH 7で Fe, As ともに溶出率が最も高くなる。

これは明らかに AsO_2^- 、 Fe^{2+} による還元溶出である。しかし pH 8になると、 Fe^{2+} が硫化物 FeS 及び水酸化物 $Fe(OH)_2$ を生成し不溶化してしまう。

As も Fe と同じ溶出パターンを示しているのは、還元溶出した AsO_2^- が、pH 上昇に伴い生成した FeS や $Fe(OH)_2$ に吸着されてしまうためである。

Fe が pH 4.5 で不溶化しているのは、風乾時に試料中の Fe が空気酸化によって Fe^{3+} となり、生成する水酸化物 $Fe(OH)_3$ の $K_{sp} = 7.1 \times 10^{-40}$ で非常に小さく、比較的低い pH で沈殿を生じるためである。

従って Fe の場合、pH 4.5以下の酸による pH 依存性溶出と pH 7 附近の還元溶出の溶出パターンが現われている。

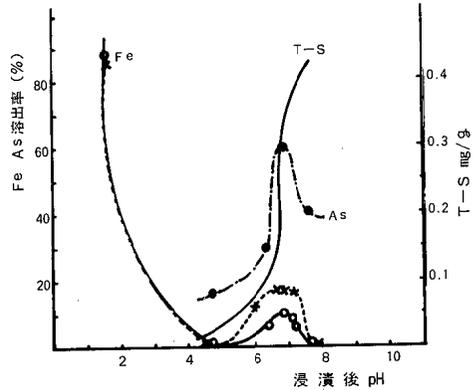


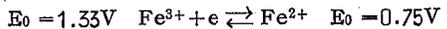
図 3 Fe, As 溶出率と硫化物量の関係

2) Cr

図4に示すように、硫化物の生成が pH 7 附近であるにもかかわらず、Cr は pH 4.5~5 で不溶化しており、しかも海水、蒸留水の差は全くみられない。

これは Fe の水酸化物による不溶化 pH 値と一致しており、 $Cr(OH)_3$ の K_{sp} が 6×10^{-31} と非常に小さいことからして、硫化物による不溶化ではなく、 $Cr^{6+} \rightarrow Cr^{3+}$ に還元され、比較的低い pH で生成する $Cr(OH)_3$ による不溶化と考えられる。

風乾試料中の Cr は、Fe と同じく空気酸化により安定な酸化物となっているが、酸性溶液中での酸化還元系は、 $Cr_2O_7^{2-} + 14H^+ + 6e \rightleftharpoons Cr^{3+} + 7H_2O$



でこれら二つの系が水溶液中で混合すると、Fe は全て Fe^{3+} に酸化され、クロム酸は Cr^{3+} に還元される。

この場合の反応は、pH が低いほど促進される。

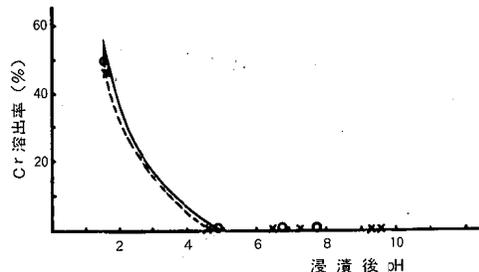


図 4 Cr 溶出率と浸漬液 pH の関係

3) Mn

図5に示す溶出曲線を比較すると、浸漬液として海水を用いた方が溶出率が高くなり、不溶化 pH も蒸留水の pH 8 に比べて海水 pH 9 を示し、アルカリ側での溶出がみられる。

これは MnS $K_{sp} = 3 \times 10^{-10}$ $Mn(OH)_2$ $K_{sp} = 1.9 \times 10^{-13}$ からみて、海水中の SO_4^{2-} が硫化物に還元され、 Mn 溶出に大きく影響している。

他の重金属が不溶化する硫化物生成 pH7 では沈殿せず、硫化物生成が最も高い pH 8~9 で不溶化している。

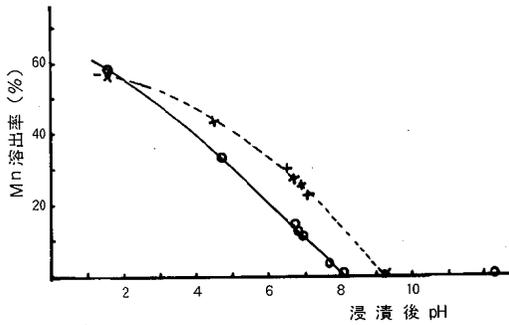
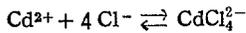


図 5 Mn 溶出率と浸漬液 pH の関係

4) Cd

水溶液中の Cd^{2+} は 4 個の水分子を配位したアquoイオン $Cd(OH)_4^{2+}$ として存在すると考えられ、水分子の代わりに海水中の Cl^- と配位したクロロ錯塩を形成しているため、pH 5 まで硫化物の影響を受けず溶出率約 90% を示している。(図 6)



一般に重金属イオンは、水中の陰イオン濃度が増すと、過剰の陰イオンと結合して錯イオンを形成するため、蒸留水より海水の方が溶出しやすい。

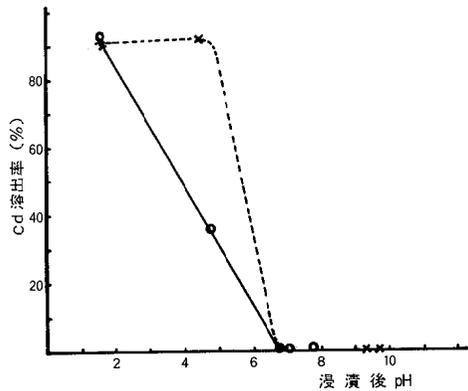


図 6 Cd 溶出率と浸漬液 pH の関係

5) Cu, Ni, Co, Zn

図 7 に示すこれらの重金属の水酸化物、硫化物の K_{sp} 値は 10^{-20} 前後でほとんど同じである。

pH に対する硫化物生成曲線から、pH 7 附近で急激に硫化物が生成することが判り、重金属の硫化物生成と水酸化物沈殿生成 pH の理論値が大体 7~7.5 で

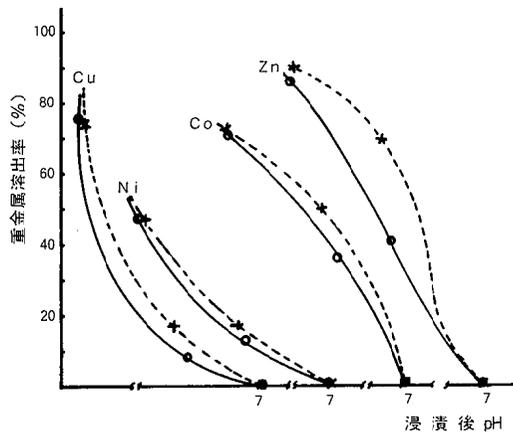


図 7 Cu, Ni, Co, Zn 溶出率と浸漬液 pH の関係

あり、水酸化物生成による沈殿不溶化が、同時に生じているものと考えられる。

結 語

以上のような硫化物生成に伴う重金属溶出に関する実験から

- 1 底泥中の硫化物生成は、硫化物の電離度と加水分解の関係から、浸漬液 pH 7.5~10 の範囲で最も安定で生成率が高い。
- 2 Fe^{3+} 、 Cr^{3+} は硫化物形成沈殿する前に、水酸化物として沈殿する。
- 3 Mn 、 As は硫化物生成に伴って還元溶出がみられるが、 Cd 、 Zn 、 Co 、 Ni などの重金属は pH 7 で不溶化し硫化物生成 pH 値と一致した。

文 献

- 1) 武藤暢夫, 金 甲守: 水質汚濁研究, 9, 10, 661 (1986).
- 2) 大西喜代嗣, 佐野方昂, 田中庸史: 愛知県公害調査センター所報, 1, (1973).
- 3) 久保 清: 熊本県衛生公害研究所報, 11, 31 (1981).
- 4) 日本土壤肥科学会編: 土壌の吸着現象, p 5, 博友社 (1981).

14) 豊肥温泉群の変動傾向

松岡良三

はじめに

阿蘇郡小国町、南小国町及び玖珠郡九重町一帯は豊肥地域と総称され、九州では最も優勢な地熱エネルギーを包含するとみられる地域である¹⁾。同域内の岳湯・峽湯周辺は本県内で地熱開発を期待できる唯一の地域であり、環境バックグラウンド調査は重要なテーマとなっていた。

本報告は豊肥地域における温泉群について昭和54年から60年まで泉温、湧出量、成分を継続して調査した結果をまとめ評価を加えたものである。

調査は涌蓋山周辺の温泉のうち長期調査に適すると思われる自噴の源泉のうち2源泉について簡単な変動調査を毎週1回実施した。降水量は(財)日本気象協会熊本支部の測定データを参考とした。

調査地点及び調査方法

1. 新湯

阿蘇郡小国町西里にある新湯は汐井川源流域に湧出

し、峽湯下流にあたる。掘さく自噴泉であるが現在は利用されていない。泉質はほぼ中性の $\text{Na}_2\text{-HCO}_3$ 系の単純温泉である。

2. 釜口の温泉 新清館源泉

釜の口温泉は玖珠郡九重町田野(やまなみハイウェイの飯田高原近く)にあり鳴子川流域に湧出する。新清館源泉は昭和38年に18mの掘さくにより湧出しますので、泉質はほぼ中性の Ca, Mg-SO_4 を含む $\text{Na}_2\text{-HCO}_3$ 泉である。

上記2源泉の変動調査項目及び分析法²⁾は次に示す要領で実施した。

泉温：二重管標準温度計

湧出量：ストップウォッチ法

Cl^- ：モール法

Na^+ ：炎光法(原子吸光分光光度計)

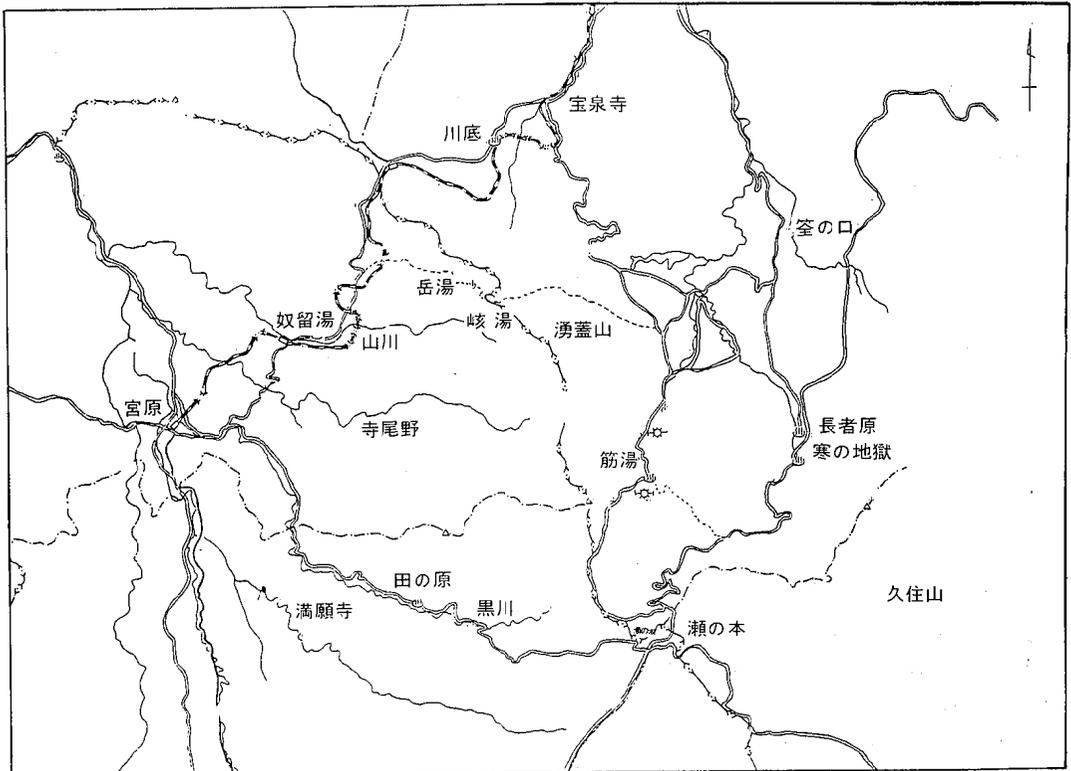


図1 豊肥温泉群位置図

結果及び考察

降水量は岳の湯及び湯坪において測定した。岳の湯
 変動分析の結果は表1に示すとおり、各調査年度ご
 とに各調査項目の最大値、最小値、平均値で示した。

表1 新湯及び釜の口温泉の経年変動結果

項目	地点	統計	年 度						単 位	
			54	55	56	57	58	59		60
泉 温	新 湯	MAX	59.8	59.7	59.7	59.7	59.3	59.7	59.8	°C
		MIN	59.2	59.2	59.3	58.9	58.8	58.5	58.8	
		AVE	59.3	59.4	59.5	59.4	59.0	59.2	59.3	
釜 の 口	新 湯	MAX	43.1	43.5	43.3	43.2	43.2	49.9	42.6	°C
		MIN	42.2	41.4	42.6	41.2	42.0	42.0	42.0	
		AVE	42.7	42.8	43.1	42.7	42.6	42.7	42.2	
湧 出 量	新 湯	MAX	33.3	40.5	51.7	55.6	44.8	42.9	44.8	ℓ/分
		MIN	32.3	31.6	31.9	33.1	34.7	34.9	22.5	
		AVE	32.7	35.5	34.5	37.1	37.3	36.5	37.1	
釜 の 口	新 湯	MAX	97.8	129.0	113.0	100.0	101.0	114.8	85.5	ℓ/分
		MIN	78.2	96.0	88.6	82.6	75.8	75.5	75.0	
		AVE	87.0	110.6	101.5	91.8	88.9	87.4	80.1	
Na	新 湯	MAX	57.0	54.9	52.0	53.0	52.5	51.0	55.5	mg/l
		MIN	51.0	48.5	49.0	46.5	47.5	40.5	46.5	
		AVE	53.2	51.2	50.8	49.2	50.5	49.1	51.4	
釜 の 口	新 湯	MAX	293	295	280	288	284	274	299	mg/l
		MIN	265	245	256	245	248	239	226	
		AVE	281	269	270	260	268	260	260	
Cl	新 湯	MAX	12.2	13.5	14.9	13.5	14.2	13.5	11.6	mg/l
		MIN	10.9	11.3	11.3	11.3	9.2	6.4	6.4	
		AVE	11.6	12.0	12.5	12.6	11.6	9.8	8.7	
釜 の 口	新 湯	MAX	235	238	238	242	250	244	274	mg/l
		MIN	235	213	227	220	227	199	188	
		AVE	234	231	234	235	239	224	225	
放 出 熱 量	新 湯	AVE	1.02	1.10	1.08	1.16	1.16	1.14	1.15	10 ⁹ Kcal/年
		釜 の 口	AVE	1.95	2.49	2.30	2.06	1.99	1.96	

(注) データ数 各地点 各項目 321

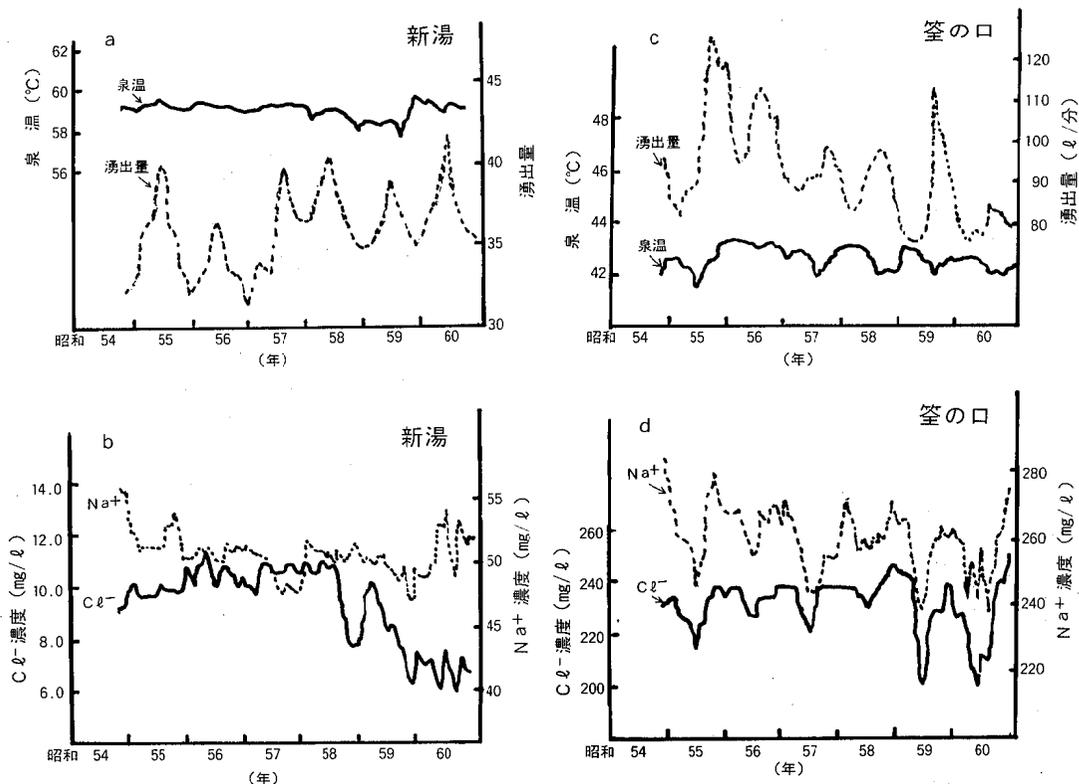


図2 新湯及び釜の口における泉温、湧出量、Na、Clの1ヶ月移動平均線

(日最大263mm)であった。

気温は新湯源泉附近及び長者原附近において測定し調査期間中の新湯での平均値は11.3°C(最高27.9°C、最低-4.3°C)、長者原の平均値は11.5°C(最高24.6°C、最低-5.0°C)であった。

泉温の平均値及び標準偏差は新湯においては59.2±0.2°C、釜の口においては42.6±1.1°Cを示した。新湯の場合は泉温は比較的安定していたが釜の口では降水量が多くなる夏季に泉温の低下がみられた(図2)。

湧出量は新湯においては36.1±2.9ℓ/分、釜の口においては92.5±3.1ℓ/分であった。

Na及びClは新湯においては各々50.4±2.1mg/l、11.3±2.4mg/l、釜の口では各々265±15.7mg/l、231±17mg/lであった。

湧出量グラフから新湯の湧出量は増加傾向にあり、釜の口では漸減傾向を示している。湧出量の変動要因としては(1)降水量との関係(2)地震など地殻変動との関係あるいは(3)源泉附近での揚水の影響などが考えられるが、本調査においては(2)、(3)の要因を無視することが可能であったので(1)の降水量との相関にしばって検討した。

新湯も釜の口も共に湧出量が増加した時、泉温は低下する傾向を示しており、地下水の混入を示唆している。降雨は地下に浸透し、地下水として湧出量に影響するため湧出量と降雨量の間にはズレ(タイムラグ)が生じ、ズレの程度は各源泉の湧出機構によって

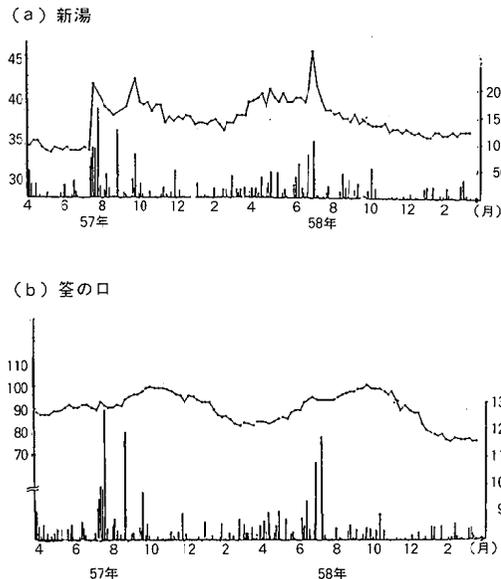


図3 新湯及び釜の口における湧出量と週間降水量比較

異なる。湧出量調査は1週間間隔で実施しているため、日測の降水量を調査日前の1週間の積算降水量としてまとめ湧出量と対比させた。この様にして、新湯(昭和57年度及び58年度)では2週間の積算降水量が湧出量のピークとよく一致した。しかし、釜の口では更にピークのずれが認められた(図3)。

次に、月平均湧出量及び月間降水量を算出し、相互相関解析³⁾を行った。図5から新湯では1ヶ月と13ヶ月に、釜の口では3ヶ月と15ヶ月に相関係数のピークが認められ、このピーク時の相関係数はいずれも有意水準1%で有意であった(図4)。

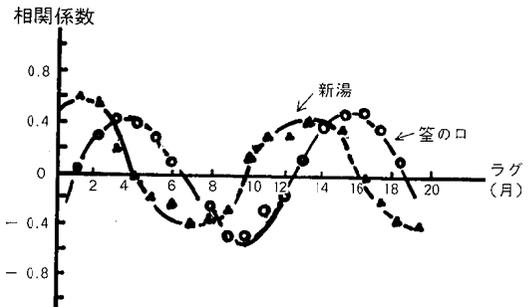


図4 月平均湧出量と月降水量の相互相関係数の変動

まとめ

新湯及び釜の口温泉で実施した長期変動調査の結果、湧出量と降水量の相関が認められ、新湯においては半月～1ヶ月、釜の口温泉においては約3ヶ月のタイムラグを認めた。又、乾期に降水量が減少した際においても湧出量の減少の程度が緩慢であることは降水量の時間的遅れと同時に源泉への長期的影響(源泉函養)に寄与しているものと推定された。

参考文献

- 1) 湯原浩三 地熱開発総合ハンドブック p. 69 (1982) (フジテクノシステム)。
- 2) 環境庁自然保護局：“鉱泉分析法指針”(1978)。
- 3) 唐沢英雄：“確率、統計”p. 133 (1980) (理工図書)。

15) 硝酸性窒素及び総窒素の分析について

—銅・カドミウムカラムの改良—

北岡宏道 杉村総治 小田泰史 中村辰郎

緒 言

当所では、河川水及び海水の硝酸性窒素及び総窒素の分析は JIS K 0102 工場排水試験法(以下「JIS」という)に準じて行っている。これらの分析で硝酸を亜硝酸に還元するため銅・カドミウムカラム還元法を採用している。この還元法の欠点は還元処理時間が長いこと、廃液は有害物質のカドミウムを含有するため廃液処理が必要でむやみに排水できないことである。そこで、これらの欠点を少しでも少なくするため銅・カドミウムカラムを改良したのでその2例を報告する。

実 験

1 試薬及び測定操作

JIS K 0102 工場排水試験法に準じて行った。

2 装 置

マイクロチューブポンプ：東京理化工機 MP-3

分光光度計：日本分光 UVIDEC-610C

フローインジェクションシステム

ポンプ：日本分光 RP-4 F

インジェクター：日本分光 LI-25 F

反応槽(水槽)：日本分光 RU-150 F

フローセル：日本分光 FIC-361

結果及び考察

1 マイクロチューブポンプ装置への改良

JIS のカラムは、構造的に上水試験法及び海洋観測指針等と同じで内径8mm 銅・カドミウムカラム充てん剤の高さ 120mm 全高 200mm のカラムである。JIS では流量を約 10ml/min と記載されているが、実際は自然流下方式のためかなり遅く1検体の還元処理時間も長かった。当所では JIS のカラム5本を用いて還元していたが、各カラムの流量が異なるため25検体の処理時間は3時間であった。しかも、カラムの還元率もそれぞれ違っていた。また、廃液の量は2000mlであった。

そこで、カラムの流量を多くし一定にするため、JIS のカラムを図1のAのように改良しマイクロチューブポンプと接続した。内径及び全高はそのままにし空気が入らないように蓋をかぶせ、排出口は自由に動

かせるようにチューブと接続した。このカラムを三方コックをはさんでマイクロチューブポンプと接続し、流量を 15ml/min とした。なお、この装置のチューブはシリコン製で入った空気を三方コックを用いて排除する。

この装置で1検体の還元時間は5分、25検体では、125分と還元処理時間が55分間短縮された。さらにカラムが1本のため還元率等の誤差もなくなった。

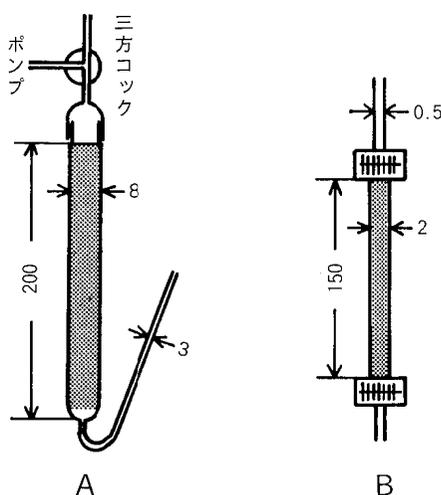


図1 改良カラム

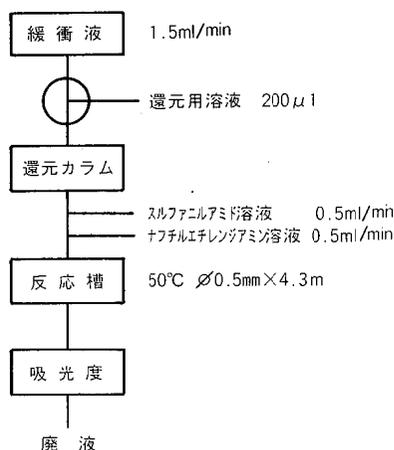


図2 フローインジェクションシステムのフローシート

2 フローインジェクションシステムへの改良

昭和61年4月に分光光度計の付属品として、フローインジェクションシステム日本分光 FIU-300 の一部を購入した。さっそく、硝酸性窒素測定用にシステムを組むため図1のBのようにカラムを大幅に改良した。テフロン製の内径2mm 外径3mm 高さ150mmのチューブに径0.42から0.50mmの銅・カドミウムカラム充てん剤を詰めた。更に、両端は継ぎ手で内径0.5mm 外径2mmのチューブと接続した。このカラムを図2フローシートのフローインジェクションシステムに組み込んだ。

検体の還元用溶液と液性を同じにするためキャリアーに塩化アンモニウムアンモニア緩衝液(pH9.2)の10倍希釈を使用し流量を1.5ml/minとした。カラムを通過後、それぞれ流量0.5ml/minのスルファニ

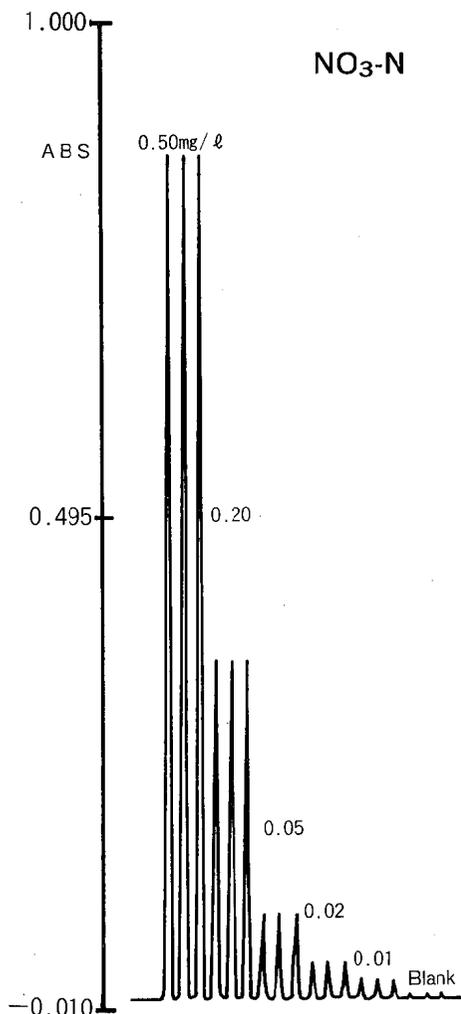


図3 スタンドのチャート

表1 スタンドの吸光度及びピーク高

スタンダード (mg/l)	吸光度 (ABS)	ピーク高 (mm)
Blank	0.005	0.5
0.01	0.021	3.2
0.02	0.038	6.0
0.05	0.088	14.1
0.20	0.345	55.3
0.50	0.857	137.2

ルアミド溶液及びN-(1-ナフチル)エチレンジアミン溶液の発色試薬と混合し計2.5ml/minの流量となる。そして、50°Cの反応槽で内径0.5mm長さ4.3mの反応コイル(チューブ)を通り、分光光度計を経て排出される。還元用溶液はインジェクターから200μl注入した。吸光度はチャート紙に記録され、背圧として内径0.25mm長さ1.8mのチューブを用いた。

このシステムで測定したスタンダードのチャートを図3に、このときの吸光度及びピーク高を表1に示した。再現性がかなり良く検量線の直線性が見られた。このように、定量範囲を0.02mg/lから0.50mg/lにし、還元用溶液の還元はもちろん発色試薬の添加、反応及び吸光度測定までの処理時間を60秒にした。なお、流量、還元用溶液の注入量、反応コイルの長さ及びチャートスケール等を変えることで、定量範囲及び処理時間等を調整できる。

このシステムによって、25検体の処理時間は装置の前後の調整を含めて更に1時間と従来の3分の1に短縮された。しかも、2000mlであった廃液も10分の1の200mlと激減した。

ま と め

河川水及び海水の硝酸性窒素及び総窒素の分析で採用している銅・カドミウムカラム還元法の還元処理時間を短縮し廃液の量を少なくするため、それぞれカラムを改良し装置を組んだ。一つはマイクロチューブポンプと接続し、もう一つはフローインジェクションシステムに組み込んだ。前者では25検体の処理時間が、125分と55分間短縮され、還元率等の誤差もなくなった。後者では1検体当たり60秒で吸光度測定までですが、システムの調整を含めて処理時間が60分と従来の3分の1に短縮され、しかも廃液の量が200mlと10分の1に激減した。

16) 底生動物相による河川汚濁評価(第8報)

—白川水系・井芹川の底生動物相—

小田泰史 杉村継治 塘岡 稜 野田 茂 宮田謙治

はじめに

底生動物による河川の汚濁評価は清冽な水域、汚濁した水域にそれぞれ異なった生物が生息し、異なった群集組成を示すことを利用している。これは底生動物の生息期間において、人間活動が河川へおよぼす直接的、間接的な影響による複雑な水質汚濁と、その水域の水環境を総合的に評価する手段として注目できる。

このことから人間活動にとって、その水域の水環境が適切なものかどうかを底生動物相から探ろうとするものである。

調査方法

井芹川は熊本市の西部を流下する流程約15kmの小河川である。調査地点は図1に示す5地点で、St.1~2は水田地帯である。St.3~5は熊本市の中心部を流下するため都市下水の流入がある。これらの地点は中流~下流型の河川形態であり、全地点とも中・小礫の沈み石の河床状態である。

底生動物の採集は底面積50cm×50cmのサーパーネット(24mesh)を用い、水深約10~40cmの石礫底の瀬において1地点2回行った。各標本は水質管理計画調査報告書に準じて処理を行い、出来得る限り種まで同定した。理化学的水質については表1に示す9

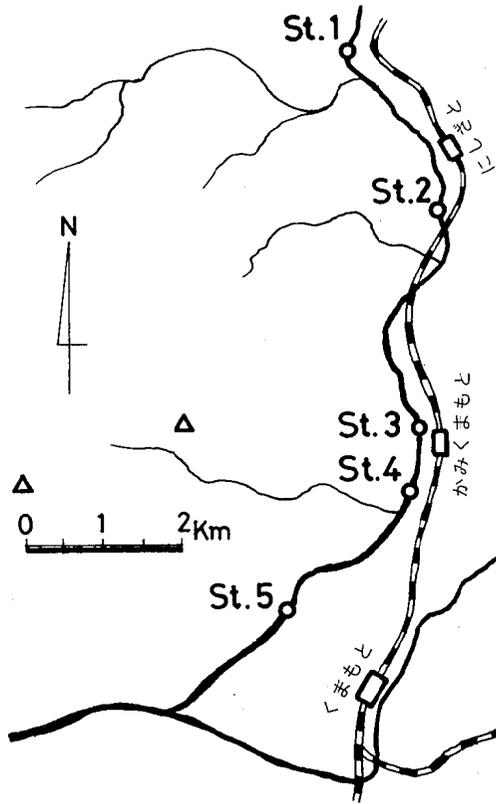


図1 調査地点略図

表1 底生動物相及び水質調査結果

	St.1	St.2	St.3	St.4	St.5
カゲロウ目	3	2	1	1	
トビケラ目		1	1		
双翅目	2	2	2	3	2
その他	3	4	4	5	4
種数	8	9	8	9	6
総個体数	241	521	149	529	101
総重量 (dry-mg)	63	189	46	141	44
Diversity Index(N)	1.66	1.67	1.52	1.20	1.85
Diversity Index(W)	2.33	2.14	2.40	2.01	2.04
Pollution Index(N)	2.32	2.44	2.43	2.47	3.37
Pollution Index(W)	2.51	2.83	2.80	3.11	3.52
pH	7.5	7.7	7.6	7.4	7.6
DO (mg/L)	10.5	10.0	9.1	7.7	7.5
BOD (mg/L)	1.6	1.6	3.4	7.2	8.8
COD (mg/L)	1.6	1.8	3.6	4.4	7.5
SS (mg/L)	6	4	4	6	13
Cl ⁻ (mg/L)	13.7	15.1	20.7	26.0	24.9
NH ₄ -N (mg/L)	0.31	0.23	1.89	0.49	1.44
T-N (mg/L)	3.97	3.04	3.96	2.35	3.03
T-P (mg/L)	0.215	0.210	0.506	0.294	0.549

項目を JIS K 0102 及び環境庁告示第140号に準じて測定した。

結果及び考察

理化学的水質と底生動物の調査結果を表1に示す。理化学的水質は各成分とも流下に伴い増加する傾向を示す。BOD、CODで示される有機物による汚濁がSt.3より増加し、St.5では上流域(St.1、2)の約5倍の濃度となる。したがって、DOの濃度も下流域になるほど減少し、有機物の分解能力が低下している水域である。これらのことは人間活動の増加に伴うものと考えられる¹⁾。

生物学的指数は群集組成の把握に Diversity Index (DI) を Shannon の指数、汚水生物体系での Pollution Index (PI) を Pantle-Buck の方法

に準じ、それぞれ個体数と重量 (dry・mg) にいて次式を用いて算出した。

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

$$DI(W) = -\sum (wi/W) \log_2 (wi/W)$$

$$PI(N) = \sum (si \cdot ni) / N$$

$$PI(W) = \sum (si \cdot wi) / W$$

ただし

- ni, N : 個々の種の個体数、総個体数
- wi, W : 個々の種の重量、総重量 (dry・mg)
- si : 個々の種の汚濁階級値

底生動物相は全体でカゲロウ目3種、トビケラ目1種、双翅目5種、水生昆虫以外の生物が9種で計18種が出現したが、15種までが汚濁耐忍種である。

各地点の出現種数は6~9、個体数は101~529、重量は44~189 dry・mg と底生動物相は貧弱で、生産力も小さい。このことから DI (N) 値は 1.20~1.85 と群集組成は崩れている。

個体数での優占種は St. 1~4 までが β-中腐水性種 (β-ms) のユスリカで、St. 1、2 の相対優占度はそれぞれ 53.5、46.1% であり、St. 3、4 は 71.1、73.2% と 1 種優占の群集組成である。St. 5 では強腐水性種 (ps) のアカムシユスリカが 45.5% を占めた。このことから PI (N) 値は St. 1~4 が 2.32~2.47 と β-中腐水域を示し、St. 5 が 3.37 と α-中腐水域 (α-ms) を示した。

一方、重量での優占構成種は表 2 に示すように各地点の第 1 位優占種の相対優占度は 31.2~48.8% の範囲であるが、優占構成種は St. 1、2 場合 β-ms~α-ms の指標種であり、St. 3~5 では β-ms~ps の指標種であることから PI (W) 値は 2.51~3.52 と α-中腐水域から強腐水域を示す。この PI (N, W)

値と BOD、COD 値による井芹川の流程変化を図 2 に示す。

St. 1、2 ではそれぞれ 8、9 種 241、521 個体が出現し、重量は 63、189 dry・mg であった。個体数での優占種はユスリカ (β-ms) とサホコガゲロウ (α-ms) の 2 種優占の群集組成であり、PI (N) 値はそれぞれ 2.32、2.44 と β-中腐水域を示す。重量での優占種は表 2 に示すようにサホコガゲロウ、ピロウドインビル (α-ms) が優占種となり、PI (W) 値はそれぞれ 2.51、2.83 と α-中腐水域を示す。

St. 3 では 8 種 149 個体が出現し、重量は 46 dry・mg と貧弱な群集である。個体数での優占種はユスリカ (71.1%) の 1 種優占の群集組成であり、PI (N) は 2.43 と β-中腐水域を示す。重量での優占種はピロウドインビルが第 1 位優占種となり、強腐水性種のアカムシユスリカも優占構成種となることから PI (W) 値は 2.80 と α-中腐水域を示す。このことから有機的な汚濁が認められる水域である。

表 2 優 占 構 成 種

(50×50)cm × 2

地点名	優 占 種 重 量 (dry・mg)			
	第 1 位	第 2 位	第 3 位	第 4 位
St. 1 硯川橋	サホコガゲロウ α-ms: 31.2%	ユスリカ科 β-ms: 27.4%	ピロウドインビル α-ms: 19.0%	カゲロウ属 β-ms: 14.7%
St. 2 上古閑橋	サホコガゲロウ α-ms: 48.8%	ピロウドインビル α-ms: 16.1%	ユスリカ科 β-ms: 13.3%	
St. 3 山王橋	ピロウドインビル α-ms: 38.1%	シラ β-ms: 19.2%	ユスリカ科 β-ms: 16.6%	アカムシユスリカ類 ps: 13.4%
St. 4 段山橋	アカムシユスリカ類 ps: 42.9%	ユスリカ科 β-ms: 33.2%		
St. 5 尾崎橋	アカムシユスリカ類 ps: 39.9%	ピロウドインビル α-ms: 32.4%	エラミミシ ps: 14.5%	

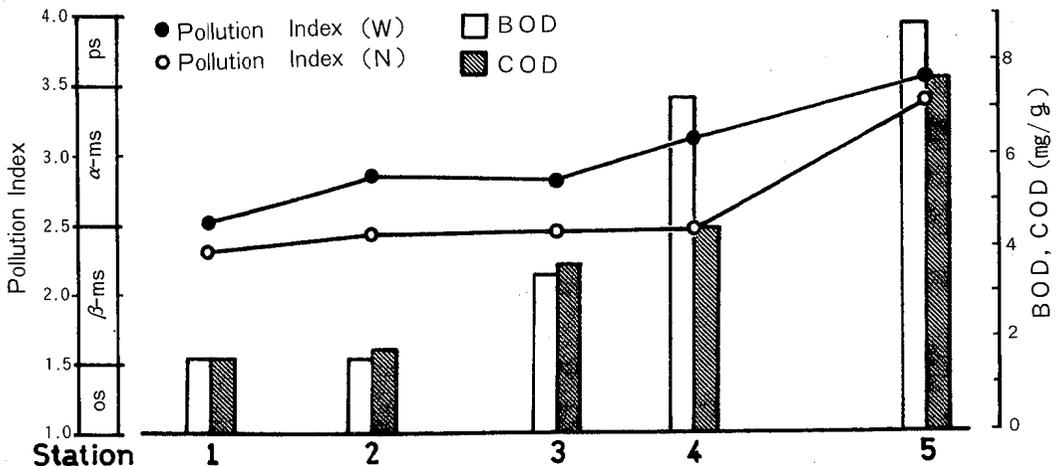


図 2 井芹川における Pollution Index (N, W) と BOD 及び COD の流程変化

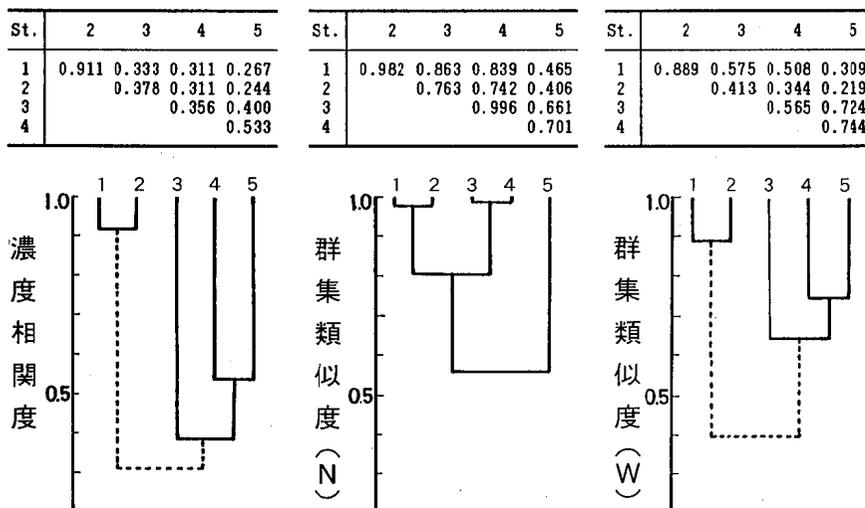


図3 井芹川における濃度相関、類似度 (N、W) マトリックスとこれを用いて作成したデンドログラム

St. 4では9種 529個体か出現し、重量は141dry・mgであった個体数での優占種はユスリカ (73.2%) の1種優占で、PI (N) は2.80とβ-中腐水域を示すが、重量では強腐水性種のアカムシユスリカ (42.9%) が第1位優占種となり、PI (W) 値は3.11とα-中腐水域を示す。このことから有機的な汚濁の強い水域であるといえる。

St. 5では6種 101個体か出現し、重量は44dry・mgと貧弱な群集である。個体数での優占種はアカムシユスリカ (ps) が45.5%、ユスリカ (β-ms) が30.7%を占める2種優占の群集組成で、PI (N) 値は3.37とα-中腐水域を示す。重量では強腐水性種のアカムシユスリカ (39.9%)、エラミミズ (14.5%) とα-中腐水性種のピロウドイシビル (32.2%) の3種優占の群集組成で、PI (W) 値は3.52と強腐水域を示す。このことから河床の状況も含め、井芹川において最も有機的な汚濁が強い水域であると考えられる。

調査した5地点を相対的に評価する目的で、理化学的水質については濃度相関マトリックスを用い、底生動物については群集類似度 (Cλ) を用いて解析を行い、その結果の把握を容易にするために群分析の平均連結法によるデンドログラムを作成してグループ分けを行った結果を図3に示す。

理化学的水質を群別化した結果 (濃度相関度) をみると上流の St. 1、2と下流の St. 3~5の2つのグループに別れ、上流域と下流域では各成分の濃度比が異なることがわかる。下流域の3地点は熊本市に位置

し、特に BOD、COD、Cl⁻ などの濃度が高い水域である。

また、底生動物の重量による群集類似度 (W) も理化学的水質と同様に上流2地点と下流3地点とは異なる群集組成であることを示す。これは下流域の3地点 (St. 3~5) で有機的な汚濁に強いアカムシユスリカ (ps) が優占構成種となっているためである。

このように井芹川では水質の各成分濃度が底生動物の群集組成 (特に重量) を決定づける大きな要因となっている。

まとめ

調査した5地点は貧弱な群集で、出現種数は6~9と少なく、個体数は101~529、重量は44~189dry・mgと生産力も小さい。各地点の出現種の75~100%が汚濁耐性種であることから PI (N、W) 値は St. 1、2がβ-中腐水域~α-中腐水域を示し、St. 3~5ではα-中腐水域~強腐水域を示す。このように上流域と下流域とで評価が異なることは図3に示す濃度相関度、群集類似度 (特に重量) を用いて作成したデンドログラムでの解析結果からも明確に示されている。

文献

- 1) 小田泰史, 植木 肇: 陸水雑, 39, 3, 137-144, (1978).

4 学会発表・誌上発表

1 学会発表

- 1) 昭和60年の日本脳炎の流行について
渡辺邦昭, 中島龍一
第1回熊本県公衆衛生研究会
昭和61年6月22日(熊本市)
- 2) 工場排水底質における変異原性物質の検索
山本誠司, 森山秀樹, 中島龍一
同上
- 3) 主としてEBウイルス(EBV)の活性化を指標とした発癌プロモーターの検索
甲木和子, 村川 弘, 村嶋君代
同上
- 4) 発癌プロモーター・主としてEBウイルス(EBV)の活性化を指標として行った検索成績
甲木和子, 村川 弘, 村嶋君代
衛生微生物技術協議会第7回研究会
昭和61年7月22~23日(熊本市)
- 5) 日本脳炎流行事業の成果(ブタへの予防接種)
渡辺邦昭, 中島龍一
同上
- 6) 熊本県の日本脳炎(昭和41年からの推移)
渡辺邦昭, 中島龍一, 道家 直
第21回日本脳炎ウイルス生態学研究会
昭和61年7月24日(熊本県阿蘇郡阿蘇町)
- 7) 熊本県内河川水中の比色けい酸濃度の分布と変動
植木 肇
第23回全国衛生化学技術協議会
昭和61年10月2~3日(長崎市)
- 8) 河川形態に伴う底生動物の群集組成
小田泰史, 杉村継治
第51回日本陸水学会
昭和61年10月3~5日(清水市)
- 9) 熊本県球磨川水系河川水質
植木 肇
1986年度日本地球化学会年会
昭和61年10月11~13日(富山市)
- 10) 植物由来腫瘍プロモーターの培養細胞に対する多面的作用
*¹
甲木孝人, 甲木和子, 村川 弘
第34回日本ウイルス学会総会
昭和61年10月13~15日(福岡市)
- 11) 熊本県下の環境大気中のベンゾ(a)ピレン含量
上野一憲, 飛野敏明, 鶴田雄二
第12回九州衛生公害技術協議会
昭和61年11月27~28日(北九州市)
- 12) 底生動物の流程分布の差異と指標性
小田泰史, 杉村継治
同上
- 13) 飲料水中のNO₃-Nの分布と挙動について
植木 肇
同上
- 14) 熊本における湖沼の水質
北岡宏道, 小田泰史, 杉村継治, 野田 茂,
中村辰郎
同上
- 15) TENAX-GCを用いた大気中のフタル酸エステルの分析
小笹康人, 飛野敏明
同上
- 16) 河口域底泥中Asの溶出及び吸着挙動に及ぼす加熱酸化の影響
久保 清, 杉村継治, 塘岡 稔, 永山賛平
第13回環境保全公害防止研究発表会
昭和61年12月4~5日(東京都)
- 17) 環境指標生物としての水生昆虫群集
小田泰史
国立公害研究所シンポジウム
昭和61年12月15~16日(茨城県)

2 誌上発表

- 1) 多変量解析法による阿蘇火山流域河川の汚濁評価
*²
中島重旗, 松並裕子, 小田泰史
水質汚濁研究, Vol. 10 No. 2 105~114 (1987)

*¹ 熊本大学医学部微生物学

*² 熊本大学工学部

5 抄 読 談 話 会

第99回 昭和61年5月2日(金)

- 1 In Vitro Antimicrobial Susceptibility, Plasmid Analysis, and Serotyping of Epidemic-Associated *Campylobacter jejuni*
〔*Campylobacter jejuni* (集団発生) についての疫学的検査法について〕

生物科学部 梅田

- 2 発癌プロモーター作用を持つ天然物質について
理化学部 村川

第100回 昭和61年6月27日(金)

- 1 チアゾリジン誘導体生成によるコーヒー中のアルデヒドのガスクロ測定

理化学部 野口

- 2 パーオキシアセチルナイトレート単独及びオゾンとの混合による健康な若い女性への影響, 紫外光感知ビデオシステムを用いての二酸化硫黄発生の遠隔測定

大気部 今村

- 3 阿蘇火山流域河川の底生動物相と汚濁評価

水質部 小田

第101回 昭和61年10月29日(水)

- 1 ブルーコットン(青線)による変異原の吸着について

理化学部 山本

- 2 Agricultural impact of Chernobyl: a warning High level radioactive nuclides in Japan in May

大気部 小笹

- 3 熊本における湖沼の水質

水質部 北岡

第102回 昭和62年1月30日(金)

- 1 河口域底泥中 As の溶出及び吸着挙動に及ぼす加熱処理の影響

水質部 久保

- 2 高速液体クロマトグラフィーを用いた果菜, 穀類中の N-メチルカルバメート系殺虫剤の多成分分析

理化学部 小出

- 3 中国における大気汚染

大気部 井村

第103回 昭和62年4月17日(金)

- 1 スウェーデンにおける降水, 表流水, 地下水のブロム濃度

理化学部 植木

- 2 石炭, フライアッシュ, 重油及びガソリン中の微量元素の分析

大気部 上野

昭和61年度所報編集委員

道家直 桂木義彦 中島龍一
幸健 飛野敏明 小田泰史

熊本県衛生公害研究所報

昭和61年度 第16号

1986

昭和62年9月10日発行

編集兼 熊本県衛生公害研究所
発行所 熊本市南千反畑町4番33号
TEL (096) 355-2351 (代)

印刷所 侑花岡印刷
熊本市坪井3丁目1番52号
TEL (096) 343-9226 (代)