

青森県環境保健センター研究報告

Bulletin

of

Aomori Prefectural Institute of Public Health and Environment

No. 4 1993

青森県環境保健センター

ま え が き

平成4年度の青森県環境保健センター所報をお送り致します。

当センターが創設されもう4冊目の所報になりますが、ときの経つことの速さに戸惑っている此の頃です。

本年は政変、冷夏など史上稀なる事例の発生があり私達の日常生活にも少なからず影響を受けた年であったと思います。

それだけでなく私達をとりまく環境は目にみえて変るもののほか目に見えない変化が進行しており、私達のささやかな調査研究が貴重なものと認識しています。

地球に人類が誕生して三百万年、自然環境と仲よく過ごして来たつもりが近年環境破壊につながる問題が多発し、安全で快適な生活環境の確保が難しくなっており、その対策の確立が緊急な課題となっています。

私達はその実態を早期に把握し、必要なものは継続調査を行い、関係方面に的確な対策を講じてもらうべく地域特性をつかみながら各地区の情報を交換しつつ調査研究を続けてきました。

良質の農産物の生産に必要とされる病虫害駆除のための農薬の消長、日常生活を豊かにする各種製品製造のために排出・廃棄される大気汚染物質、水質汚濁物質の追求等、また健康保持のための農畜産物や水産物の成分分析、健康に有害な物質の検索等地道な事例を報告させて頂きます。

報告事例につきましてご意見等ご指摘戴ければ幸いです。

日頃のご指導ご教示に感謝しご挨拶とします。

平成6年3月

青森県環境保健センター

所長 西 舘 篤

目 次

I 報 文

アセトン固定感染細胞からの PCR による HIV 遺伝子の検出

三上 稔之 畑山 一郎 木村 淳子 大友 良光 佐藤 允武 西舘 篤	1
---------------------------------------------	---

PCR 法によるマダニ由来ボレリアからのライムボレリア DNA の検出

佐藤 允武 三上 稔之 木村 淳子 畑山 一郎	4
-------------------------------	---

食品中のネライストキシンの分析

古川 章子 高橋 政教	9
-------------------	---

エゴマ添加飼料による鶏卵中の脂肪酸経時変化

野村 眞美 高橋 政教 西藤 克己	17
-------------------------	----

青森県の温泉泉質経年変化 (第九報)

— 津軽地域の温泉群の泉質経年変化について —

高橋 政教 平出 博昭 村上 淳子 野村 眞美 今井美代子	23
-------------------------------------	----

GC / MS を用いた水質・底質中化学物質の測定

石塚 伸一 早狩 進	38
------------------	----

陸奥湾における底質中化学物質の水平分布特性

石塚 伸一 三上 一 早狩 進	47
-----------------------	----

ゴルフ場における農薬の使用状況と排水中濃度

石塚 伸一 佐藤真理子 高柳 和弘 奈良 忠明 今 俊夫	60
------------------------------------	----

総合指標による河川水質の評価

大久保英樹 三上 一 早狩 進	67
-----------------------	----

堤川水系における泡の発生機構解析 (I)

－ 水 質 特 性 －

三上 一 石塚 伸一 早狩 進 工藤 真哉 工藤 俊明 奈良 忠明	72
--------------------------------------------	----

臨海工業地帯における湿性沈着量の実態

野田 正志 坂上 素一	81
-------------------	----

青森県南地域における道路粉じん調査 (VI)

－ 法規制の効果について －

工藤 隆治 工藤 精一 野田 正志 中道 敬 岡 典子 工藤 志保	86
--------------------------------------------	----

大気中汚染物質の簡易測定法の検討

－ NO, NO₂同時測定用サンプラーについて －

岡 典子 中道 敬 野田 正志 工藤 隆治 工藤 志保 工藤 精一 今 武純	91
-------------------------------------------------	----

姉沼の水質汚濁調査

高柳 和弘 柞木田むつみ 小山田久美子 早狩 敏男 工藤 精一 ...	97
-------------------------------------	----

Ⅱ ノ ー ト

青森県における恙虫病の発生状況について

木村 淳子 三上 稔之 佐藤 允武	103
-------------------------	-----

青森県における貝毒調査結果 (平成4年)

三上 浩二 古川 章子 秋田谷礼治 高橋 政教	106
-------------------------------	-----

大気関係届出データベースについて

今 武純 早狩 進	111
-----------------	-----

Ⅲ 他誌投稿抄録

117

Ⅳ 学会等発表抄録

119

CONTENTS

I Review Articles

- Detection of HIV Gene in Acetone-Fixed Infected Cell by PCR
Toshiyuki MIKAMI, Ichiro HATAYAMA, Junko KIMURA
Yoshimitsu OHTOMO, Nobutake SATOH and Atsushi NISHIDATE ... 1
- DNA Detection of *Borrelia Burgdorferi* B31 from *Borrelia* Strains
Originating in Tick by PCR Method
Nobutake SATOH, Toshiyuki MIKAMI, Junko KIMURA and
Ichiro HATAYAMA 4
- Analysis of Nereistoxin in Foods
Akiko KOGAWA and Masanori TAKAHASHI 9
- Changes of Fatty Acid Contents in Eggs
of Chicken Fed on Perilla-Seed Added Feeds
Masami NOMURA, Masanori TAKAHASHI and Katsumi SAITO 17
- Lapse of Years of Water of Hot Springs in Aomori Prefecture
– Lapse of Years of Water in a Group
of Hot Springs in Tsugaru Area –
Masanori TAKAHASHI, Hiroaki HIRAIDE, Atsuko MURAKAMI
Masami NOMURA and Miyoko IMAI 23
- Measurement of Chemical Substances in Water
and Sediment by GC/MS
Shin-ichi ISHIZUKA and Susumu HAYAKARI 38
- Property of Horizontal Distribution of Chemical Substances
in Sediment in the Mutsu Bay
Shin-ichi ISHIZUKA, Hajime MIKAMI and Susumu HAYAKARI 47
- State of Use and Concentration of Pesticide
in Water Pollution in Golf Course
Shin-ichi ISHIZUKA, Mariko SATOH, Kazuhiro TAKAYANAGI
Tadaaki NARA and Toshio KON 60
- Evaluation of River Water by WQI
Hideki OKUBO, Hajime MIKAMI and Susumu HAYAKARI 67

Mechanism of Foam in Tsutsumi River ()	
– Characteristics of Water –	
Hajime MIKAMI, Shin-ichi ISHIZUKA, Susumu HAYAKARI	
Shinya KUDOH, Toshiaki KUDOH and Tadaaki NARA	72
Actual Condition of Wet Deposition in the Coastal Industrial Zone	
Masashi NODA and Motoichi SAKAGAMI	81
Composition of Dust Around the Road	
in the South-East District of Aomori Prefecture (VI)	
Ryuji KUDOH, Seiichi KUDOH, Masashi NODA	
Satoshi NAKAMICHI, Noriko OKA and Shiho KUDOH	86
Investigation of Pollutant in Atmosphere	
with Simple Determination Method	
– NO, NO ₂ Simultaneous Determination Sampler –	
Noriko OKA, Satoshi NAKAMICHI, Masashi NODA, Ryuji KUDOH	
Shiho KUDOH, Seiichi KUDOH and Takezumi KON	91
Survey of Water Pollution in the Lake Anenuma	
Kazuhiro TAKAYANAGI, Mutsumi TARAKITA, Kumiko OYAMADA	
Toshio HAYAKARI and Seiichi KUDOH	97
II Notes	
Incident of Tsutsugamushi Disease	
in Aomori Prefecture from 1989 to 1993	
Junko KIMURA, Toshiyuki MIKAMI and Nobutake SATOH	103
Finding on Shellfish Poison in Aomori Prefecture (1992)	
Kohji MIKAMI, Akiko KOGAWA, Reiji AKITAYA and	
Masanori TAKAHASHI	106
Construction of Database System Concerning the Notification	
of Air Pollution Factory Using Personal Computer	
Takezumi KON and Susumu HAYAKARI	111
III Summaries of Papers Other Publications	117
IV Abstracts of Presentation in Society Meetings	119

I 報 文

アセトン固定感染細胞からのPCRによるHIV遺伝子の検出

三上 稔之 畑山 一郎 木村 淳子
大友 良光 佐藤 允武 西舘 篤

IFA用スライドガラスに乾燥固定してあるHIV-1感染細胞を用いて、PCR法によりHIV-1のgag遺伝子(142塩対)を特異的に増幅した。本PCR法では、約10³ヶの感染細胞で特異的にDNAの増幅が認められ、血液検査材料からの検出の可能性が示唆された。

Key words: PCR, HIV-1, gag gene.

1. はじめに

HIV (human immunodeficiency virus) 感染のスクリーニング検査は、現在ゼラチン凝集 (PA), ELISA法で、また確認試験は蛍光抗体法 (IFA), ウェスタンブロット (WB) 法で行われている。いずれも、HIV抗体の検出を目的としているが、抗体が感染後数週間検出されないことや、サイレント感染のように2年から3年以上抗体が検出されにくい場合が指摘されている¹⁾。さらに感染妊婦においては、母親から抗体が新生児に移行するために、子供の早期における確認が困難なことや¹⁾、非特異的反応による偽陽性の問題などから上記のエイズ検査法は最良とは言えない。これらの問題を解決するために、血液中にある微量のHIV遺伝子を迅速に検出するPCR (polymerase chain reaction) 法が検討されている。

今回、IFA用スライドガラスに乾燥、アセトン固定してある微量のHIV-1感染細胞からDNAを抽出し、Nested PCR (2段階PCR) 法を用いてHIV-1遺伝子の検出を試みたのでその概要を報告する。

2. 材料と方法

2.1 PCR確認用陽性コントロール

HIV-1のDNA1,000ヶ/5 μlのものを10倍階段希釈して用いた。

2.2 DNA抽出用感染細胞

IFA用に培養したHIV感染ヒトリンパ球由来TALL-1細胞、約10⁶ヶをスライドガラスにスポットしたものを使用した。

2.3 DNAの抽出

IFA用スライドガラスの10スポットから感染細胞をメスで削りとり、セパジーン試薬 (三光純薬) でHIV-1の組

み込まれたDNAを抽出した後、蒸留水50 μlに溶解、その5 μlを鋳型DNAとして用いた (10倍希釈)。

2.4 プライマー

Nested PCRに用いた2種類のプライマーセットはHIV-1のgag遺伝子部分を特異的に増幅させるために化学合成されたオリゴヌクレオチドである。それらの塩基数は1回目のPCRプライマーセットが20塩基、2回目PCRプライマーセットが30塩基と27塩基である²⁾ (表1)。

表1 オリゴヌクレオチドPrimer

1st PCR	
Primer 1 (SK145A)	5'-CCCACAAGATTTAAACACCA-3'
Primer 2 (SK431A)	5'-TGAAGGGTACTAGTAGTTC-3'
2nd PCR	
Primer 1 (SK145)	5'-AGTGGGGGACATCAAGCAGCCATGCAAAT-3'
Primer 2 (SK431)	5'-TGCTATGTCAGTTCCTTGGTTCTCT-3'

2.5 増幅部位

図1にHIV-1の遺伝子地図を示すように、本プライマーはHIV-1のgag (核を包む核蛋白をコードしている) 遺

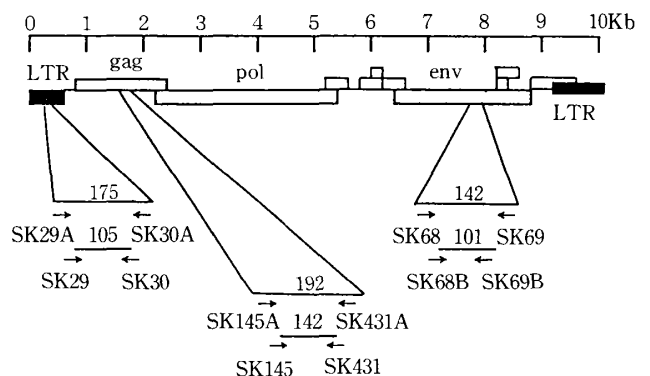


図1 HIV-1 遺伝子地図

表2 PCR設定条件

変性 (Denaturation)	93°C	2.0分
アニーリング (Annealing)	56°C	2.5分
合成 (Extension)	71°C	3.0分
サイクル数	30回	
最終合成 (Final Extension)	71°C	7.0分

伝子約1,400塩基のうちの142塩基対を増幅した²⁾。

2.6 PCR設定条件

PCRはDNA増幅装置 (RIKOH) を用い、表2に示した条件で行った。

熱変性93°C2.0分、アニーリング56°C2.5分、合成71°C

3.0分1サイクルとして30サイクル行った²⁾。

2.7 反応液の調製

2.6の設定条件で鋳型DNAを1回目PCRで増幅し、その生成物5 μ lを2回目PCRでさらに増幅した。その時に使用する反応液の組成を表3に示した。

2.8 アガロース電気泳動

PCR終了後、10 μ lを2%アガロースゲル (5 μ g/mlエチジウムブロマイドを含む) で泳動し、トランスイルミネータ (紫外線照射装置) でDNAバンドを確認した。またサイズマーカーとして ϕ 174ファージのDNAを制限酵素 Hinf I で切断したものを用いた。

表3 反応液の調製

1st PCR		2nd PCR	
H ₂ O	28 μ l	H ₂ O	33 μ l
10 \times Reaction buffer	5 μ l	10 \times Reaction buffer	5 μ l
dNTPs Mix (1mM)	10 μ l	dNTPs Mix (1mM)	10 μ l
Primer 1 (20 μ M)	1 μ l	Primer 1 (20 μ M)	1 μ l
Primer 2 (20 μ M)	1 μ l	Primer 2 (20 μ M)	1 μ l
Taq DNA Polymerase (5U/ μ l)	0.25 μ l	Taq DNA Polymerase (5U/ μ l)	0.25 μ l
Template DNA	5 μ l	1st PCR Product	5 μ l
Total	50.25 μ l	Total	55.25 μ l

3. 結果

3.1 陽性コントロール

写真に示したように、HIV-1のDNAを鋳型にした場合は、少なくとも10ヶで検出可能であった。またDNA1ヶでは数回に1回の割合で検出された。

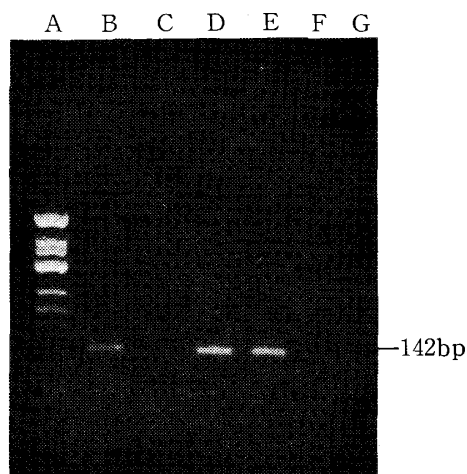
3.2 IFA スライドからの検出

感染細胞から抽出し、増幅したDNAは陽性コントロールと同じ位置にバンドを確認した。サイズマーカーを基

に計測した結果、このバンドは142bp (塩基対) であり目的のサイズと一致した。抽出DNAも陽性コントロール同様に希釈し、PCRを実施した結果、100倍希釈まで検出できた (写真)。この希釈度はスポットの1/10、10⁵細胞に相当する。

4. 考 察

本研究ではアセトン固定 HIV-1 感染細胞より抽出したDNAから目的とした遺伝子を検出できた。検出限界は10⁵の細胞であったが IFA スライドガラスに用いた HIV-1 の細胞感染率は1%程度であり10³の HIV-1 遺伝子を含んでいると計算される。固定標本からのDNA抽出の効率から考えて無傷の HIV-1 遺伝子はさらに少なく本 PCR 法はかなりの感度で HIV-1 遺伝子を検出できるものと考えられる。従って、血液検査材料からの検出も十分可能であると思われる。しかし、検出したDNAが本当に目的としているものなのか、また、検出感度をより高めるためにも、特異的なプローブを用いサザンブロット法等を行う必要がある。今回は細胞のDNAに組み込まれた遺伝子検出であるが、これとは別に血清中に存在するRNAウイルスの遺伝子を検出するRT (reverse transcription) - PCR も実施する必要があると思われる。また、検出したDNAが特異的か否か詳細に解析する必要がある。それには今後検出部分の塩基配列の解読が重要であると考えられる。



A: 泳動サイズマーカー D: DNA - 10倍希釈
 B: HIV-1 DNA (10ヶ) E: " 100 "
 C: " (1ヶ) F: " 1,000 "
 G: 試薬コントロール

写真 PCR法で増幅した HIV-1 遺伝子

謝 辞

PCR を実施するにあたりプライマー及び貴重な試薬等を分与いただいた、今井光信先生（神奈川衛研）、武部豊先生（国立予研）に深謝します。

文 献

- 1) 武部豊, 他: PCR を用いた HIV 診断—非放射性プローブの利用, 蛋白質 核酸 酵素, **35**, 17, 3061—3072, 1990.
- 2) 今井光信: 臨床検査における PCR 法—PCR 法による HIV 遺伝子診断の意義とその検査法の実際, 医学検査, **42**, 7, 1308—1312, 1993.

Abstract

Detection of HIV Gene in Acetone-Fixed Infected Cell by PCR

Tochiyuki MIKAMI, Ichiro HATAYAMA, Junko KIMURA,
Yoshimitsu OHTOMO, Nobutake SATOH, and Atsushi NISHIDATE

Gag gene (142bp) in HIV-1 was specifically amplified by Nested PCR method using HIV-1 infected cells, dry and acetone-fixed on a IFA-slide glass. The specific DNA amplification was detected with ca. 10^3 cells by PCR method, suggesting that detection of the gene became possible with samples for hematological examination by this method.

Key words : PCR, HIV-1, *gag* gene.

PCR法によるマダニ由来ボレリアからの ライムボレリアDNAの検出

佐藤 允武 三上 稔之 木村 淳子 畑山 一郎

県内生息のマダニから分離したボレリア22株を対象としてライムボレリア (*Borrelia burgdorferi* B31) の3組のプライマーを用いPCR法によりDNA検出を試み次の成績を得た。

プライマーによって検出数、検出株に差異を認めたが、DNAはいずれのプライマーでも検体の半数以上から検出できた。特に鞭毛遺伝子の1組 (5'-CAAAATGTAAGAACAGCTGAA, 5'-GTACTATTCTTTATAGATTC, Lebech, A.M. et al: *J. Clin. Microbiol.*, 29: 731-737, 1991) では100%の検出率であった。

本プライマーセットは日本産ボレリアにおけるライムボレリアのDNA検出に極めて有用と考える。

Key words: lyme borreliosis, *Borrelia burgdorferi* B31, PCR assay, *Ixodes persulcatus*, *Ixodes ovatus*

1. はじめに

ライム病の検査室診断には現在、①検体からボレリアを直接顕微鏡で観察する方法 ②組織等検体からの分離培養による方法 ③間接蛍光抗体法や免疫ペルオキシダーゼ法による血清学的検査法等が知られる¹⁻⁵⁾。しかしながら、顕微鏡法による検査法は感度や特異性が低く、また培養法においては時間がかかるうえに培養液のコストが高く、保存期間が短い等一般に臨床検査には適さないため、現在、診断は主に種々の血清学的検査で行う場合が多い。とは言え、血清学的検査も多くの問題点が指摘されている。例えば、検査に使用するライムボレリアは梅毒のトレポネーマを初めとして他微生物の一部と抗原的に交差すること⁶⁻⁷⁾、そして、これに関連して検出された抗体が真の抗体であるかどうかの確認の方法が未だ確立されていないこと⁸⁻⁹⁾、また、我国で分離されるボレリアは多様な抗原性を示すこと⁸⁻¹⁰⁾から検査にどのようなタイプの抗原を使用するか等クリアすべき多くの課題を抱えている。

このような検査の現況から最近、これらに代わる polymerase chain reaction (PCR) 法が導入されつつあり、臨床材料や動物組織及びマダニ等を対象としての病原体検出報告が相次いでみられるようになった¹¹⁻¹³⁾。今回我々は県内採集のマダニから分離したボレリア¹⁴⁾を対象にライムボレリアDNAの検出を試み若干の成績を得たので、その結果について報告する。

2. 材料及び方法

2-1 検体と前処理

青森県内生息のマダニから分離した *Ixodes persulcatus* (シュルツェマダニ) 由来の3株と *Ixodes ovatus* (ヤマトマダニ) 由来の19株の分離株計22株とライムボレリアの標準株である *Borrelia burgdorferi* B31株を検査の対象とした。

凍結保存していた検体を融解後-PBSで2回遠心洗浄し沈渣に1%濃度のTriton X-100を100 μ l添加、10分間煮沸後急冷しPCR用検体とした(図1)。

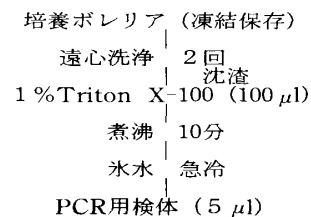
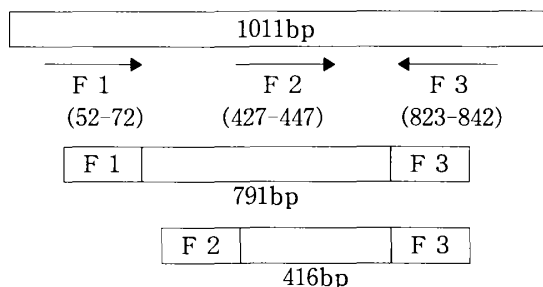


図1 検体処理方法

2-2 PCRプライマー

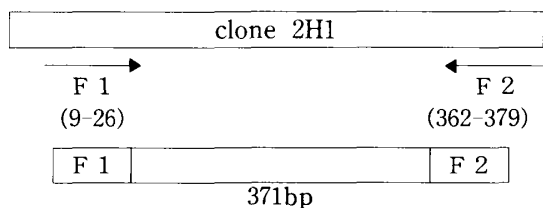
1991年Lebechら¹³⁾が報告した *Borrelia burgdorferi* の2組の鞭毛遺伝子と1989年にRosaら¹¹⁾が報告した染色体DNAの計3組のプライマーを用いた。前者のプライマーは委託合成したもので後者はジーンメッド (GMD) 社から購入した。図2に示すように鞭毛遺伝子ではPCR産物791bpと416bpプライマーセット、染色体DNAでは371bpプライマーセットで、それぞれの塩基配列は図2のとおりである。

1. 鞭毛遺伝子 (Lebech et al. 1991)



F 1 : 5'-ATT AAC GCT GCT AAT CTT AGT-3'
 F 2 : 5'-CAA AAT GTA AGA ACA GCT GAA-3'
 F 3 : 5'-GTA CTA TTC TTT ATA GAT TC-3'

2. 染色体DNA (GMD社, Rosa et al. 1989)



F 1 : 5'-CGA AGA TAC TAA ATC TGT-3'
 F 2 : 5'-GAT CAA ATA TTT CAG CTT-3'

図2 *Borrelia burgdorferi*プライマー

2.3 PCR法の試薬と操作手順

試薬濃度は上記購入プライマーに添付されていたマニュアルに準拠し、検査の反応量は1/2とした。

PCRは鞭毛遺伝子プライマーではdenature 91°C 1分, annealing 41°C 30秒, extension 66°C 30秒の35サイクル (Lebech A.M. et al.¹³⁾), 染色体DNAプライマーではそれぞれ94°C 1分, 42°C 1分, 72°C 1分の32サイクル (添付のマニュアルどおり) の条件で行った。PCR反応後、その産物10 µlをサンプルとして2%アガロースゲルにより電気泳動し、エチジウムブロマイドで染色して増幅されたDNA断片のバンドを確認した。詳細は図3に示した。

3. 結果

分離株等のプライマー別PCRの一部、標準株B31とシュルツェマダニ由来2株及びヤマトマダニ由来の2株の結果を写真に示した。2組の鞭毛プライマーではレーン3 (AP83) のように弱いバンドもみられたが、すべて目標としたバンドは検出された。一方、染色体DNAプライマーではヤマトマダニ由来2株は検出されたが、シュルツェマダニ由来の2株は不検出であった。

表1にB31株、分離ボレリア22株のPCR反応結果を示した。PCRの反応度はPCR産物のアガロースゲルバンドの染色度によって3+, 2+, 1+, ±, -の五段階で表示した。1+以上を陽性としてプライマー別に各株の反応性についてみると標準株のB31では3組のプライマー

1. 試薬

蒸留水	32.3 µl	
PCR反応緩衝液 (10×)	5.0 µl	1 × 緩衝液
プライマーA (10 µM)	2.5 µl	0.5 µM
プライマーB (10 µM)	2.5 µl	0.5 µM
dNTP (1.25mM)	2.5 µl	62.5 µM
Taqポリメラーゼ (5u/µl)	0.2 µl	1.0U
サンプル (鋳型)	5.0 µl	
	50.0 µl	
ミネラルオイル	1 ~ 2滴	

2. 操作手順

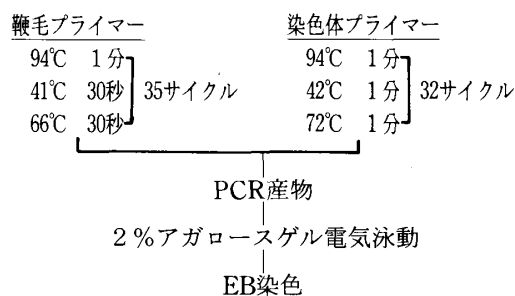
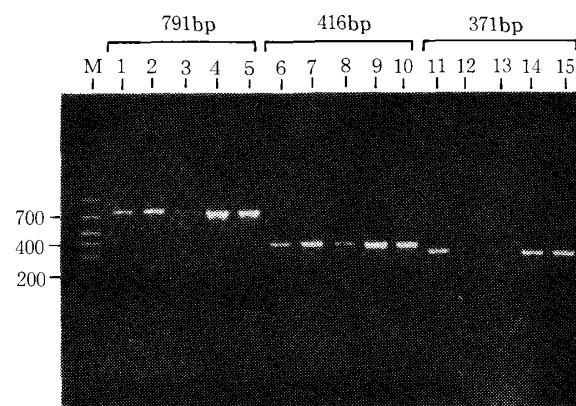


図3 PCRの試薬と操作手順

すべてでDNAが検出されたが、分離株ではプライマーによって検出数、検出株に差異を認めた。ヤマトマダニ由来株における鞭毛遺伝子416bpプライマーのDNA検出率100%に対し、鞭毛遺伝子791bp及び染色体DNAプライマーでは不検出もみられた。また、シュルツェマダニ由来3株では2組の鞭毛遺伝子プライマーによってはすべてDNAが検出されたが、染色体DNAプライマーではいずれも不検出であった。分離株のプライマー別DNA検出率はPCR産物791bp鞭毛遺伝子プライマーが13/22 59%, 371bpの染色体DNAが16/22 73%, 416bpの鞭毛遺伝子が22/22 100%の順で416bpプライマーが際立って高かった。



M: マーカー 1,6,11L (B31) 2,7,12L (AP18)
 3,8,13L (AP83) 4,9,14L (AO47) 5,10,15L (AO72)

写真 分離ボレリアのプライマー別PCR反応

表1 分離ボレリアのプライマー別PCR反応性

No.	strain		鞭毛遺伝子		染色体DNA
			set 1 (791bp)	set 2 (416bp)	set 3 (371bp)
※ 1	B	31	2+	2+	2+
※ 2	AP	18	2+	3+	-
3	AP	31	2+	2+	-
※ 4	AP	83	1+	2+	-
5	AO	34	-	1+	-
6	AO	42	±	2+	2+
7	AO	44	-	2+	1+
※ 8	AO	47	3+	3+	2+
9	AO	48	2+	3+	1+
※10	AO	72	3+	3+	2+
11	AO	94	-	2+	1+
12	AO	2006	3+	3+	-
13	AO	2011	-	2+	2+
14	AO	2018	-	2+	1+
15	AO	2026	2+	3+	2+
16	AO	2051	2+	3+	2+
17	AO	2053	-	2+	1+
18	AO	2066	-	3+	1+
19	AO	2068	1+	3+	1+
20	AO	2073	-	3+	1+
21	AO	2078	3+	3+	2+
22	AO	2107	2+	2+	±
23	AO	2111	2+	2+	1+
検出率			13/22(59%)	22/22(100%)	16/22(73%)

※写真に示した検体 AP：シュルツェマダニ由来 AO：ヤマトマダニ由来

4. 考 察

日本産ライムボレリアの高感度で特異的な迅速DNA診断法の確立を目的として、PCR法の応用の可能性について検討した。

本鞭毛遺伝子のプライマーを報告したLebechら¹³⁾の791bpプライマーによる分離*B. burgdorferi*株に対する検出率

は100%、また、Rosaら¹¹⁾の染色体DNAプライマーによる検出率は94%で、本研究の同プライマーによる検出率よりも高かった。本研究においても416bpプライマーの結果は報告のあった検出率に匹敵するほど高かったがLebechらの同報告には本プライマーによる分離株の成績記載はなく、同一プライマーにおける比較検討はできなかった。

3組のプライマーによって検出率，検出株に差異を認めしたが，検出率の高いプライマーほどPCR産物のゲルにおける電気泳動バンドの染色性が強い傾向を示した。

染色の強さはPCR産物の生成量によるが，これには一般には鋳型の数や試薬濃度及びPCR条件等が深く関係する。

しかし，同時点で実施した2組の鞭毛遺伝子等のプライマー別PCR結果からみる限り，今回は上述の鋳型の数量や条件等の技術的面の理由より，プライマーの標的DNAとなる鋳型遺伝子の塩基配列の状況が深く関連しているように思われる。すなわち，鞭毛遺伝子プライマー791bpと416bpのPCR結果において，416bpのプライマーによる反応が791bpより一般的に強い傾向を示すのは416bpに対する鋳型遺伝子が791bpのそれより高度に保存されている結果によるもので，プライマーが鋳型に強固に結合し十分量のPCR産物が生成されるためであろうと推察される。しかも，プライマー2組の逆プライマー(anti-sense strand)が共通であることから考えると，その保存性の違いは順プライマー(sense strand)の結合部位にあると推定される。したがって，日本産ボレリアにおけるライムボレリアのDNA検出には鋳型遺伝子の安定性からPCR産物416bpの鞭毛遺伝子プライマーが極めて有用と言える。現在，我国におけるボレリア媒介動物としてシュルツェマダニ，ヤマトマダニが知られるが，諸外国からは蚊，虻等もボレリアを保有しているとの報告¹⁵⁾もあり，これらの動物やヒト感染病巣，関節液等からのボレリア検索にも応用可能と考える。

文 献

- 1) Burgdorfer, W. et al: Lyme disease—a tick-bone spirochetosis. *Science*, **216**, 1317–1319, 1982.
- 2) Burgdorfer, W.: Discovery of the lyme disease spirochete and its relation to tick vectors. *Yale J. Biol. Med.*, **57**, 515–520, 1984.
- 3) 久保信彦他：ライムスポットIF用いたボレリア血清抗体価測定の検討. *新薬と臨床*, **39**, 672–677, 1990.
- 4) 井口和幸：免疫ペルオキシダーゼ法によるライム病血清診断とその応用による疫学調査. *日本医誌*, **47**, 955–961, 1988.
- 5) 宮本信治他：ゼラチン粒子凝集反応による抗ライムボレリア抗体の検出. *医学検査*, **41**, 1004–1009, 1992.
- 6) Magnarelli, L. A., Anderson, J. F. and Jonson, R. C.: Cross-reactivity in serological test for lyme disease and other spirochetal infections. *J. Infect. Dis.*, **156**, 183–188, 1987.
- 7) 川端真人：ライム病. *臨床病理*, **XXXVIII**, 1232–1237, 1990.
- 8) 佐藤允武，三上稔之，木村淳子：分離ライムボレリアの抗原性と血清学的検査法. *青森県環境保健センター研究報告*, **3**, 9–13, 1992.
- 9) 杉山芳宏：ライム病と動物. *モダンメディア*, **39**, 485–498, 1993.
- 10) 森守，大谷昌：平成3年度希少感染症診断技術研修会，東京，1992.
- 11) Rosa, P. A. and Schwan, T. H.: A specific and sensitive assay for the lyme disease spirochete *Borrelia burgdorferi* using the polymerase chain reaction. *J. Infect. Dis.*, **160**, 1018–1029, 1989.
- 12) Lebeck, A. M. and Hansen, K.: Detection of *Borrelia burgdorferi* DNA in urine samples and cerebrospinal fluid samples from patients with early and late lyme neuroborreliosis by polymerase chain reaction. *J. Clin. Microbiol.*, **30**, 1646–1653, 1992.
- 13) Lebeck, A. M. et al: Comparison of in vitro culture and polymerase chain reaction for detection of *Borrelia burgdorferi* in tissue from experimentally infected animals. *J. Clin. Microbiol.*, **29**, 731–737, 1991.
- 14) 佐藤允武，三上稔之，木村淳子：青森県におけるライム・ボレリア検索. *青森県環境保健センター研究報告*, **2**, 1–3, 1991.
- 15) Magnarelli, L. A., Anderson, J. F. Barbour A. G.: The etiologic agent of lyme disease in deer flies, horse flies, and mosquitoes. *J. Infect. Dis.*, **154**, 355–358, 1986.

Abstract

DNA Detection of *Borrelia burgdorferi* B31 from *Borrelia* Strains Originating in Tick by PCR Method

Nobutake SATOH, Toshiyuki MIKAMI, Junko KIMURA and
Ichiro HATAYAMA

A detection of DNA was attempted by PCR method using 3 kinds of primers in 22 strains of borrelia isolated from tick living in our prefecture and the following results were obtained.

There were differences in the number of detection and the kind of detected strains among the primers. For either of the three primers, however, the DNA of *Borrelia burgdorferi* B31 was detected in more than half of the samples. When a pair of genes (5'-CAAAATGTAAGAACAGCTGAA, 5'-GTACTATTCTTTATAGATTC, Lebech, A.M. et al.: J. Clin. Microbiol., **29**:731-737, 1991) in flagellar genes was used as a primer, the detection rate was 100%.

Thus, this primer set was thought to be very useful for DNA detection of *Borrelia burgdorferi* B31 from *Borrelia* living in Japan.

Key words : lyme borreliosis, *Borrelia burgdorferi* B31, PCR assay, *Ixodes persulcatus* *Ixodes ovatus*

食品中のネライストキシンの分析

古川 章子 高橋 政教

輸入農産物等の残留農薬調査の一環として、カルタップ、チオシクラム及びベンスルタップ3農薬の分析法について検討した。イオウ化合物の多いたまねぎ、だいこん等については凍結・リン酸処理法及び液々分配によるクリーンアップ法の組み合わせ、ほうれんそうについては酢酸亜鉛処理法により精製可能であった。

また、ベンスルタップについては塩酸で処理することにより回収率を上げることができた。

調査した農産物96検体のうち、23検体の茶から3農薬の変換生成物であるネライストキシンの検出された。その他の農産物では検出されなかった。

Key words: cartap, thycyclam, bensultap, nereistoxin tea

1. はじめに

輸入農産物の増大に伴ない、規制対象農薬及び農産物も平成5年度(5年5月1日より適用)から大幅に増え、今後も更に増加する見込みである。

このような状況から、輸入、国産を問わず食品衛生上農産物全般の残留農薬実態の把握が急務とされる所である。

今回、当所でも農産物の残留農薬調査の一環として、環状動物イソメの殺虫成分であるネライストキシンの誘導体で、稲や野菜、果樹の鱗翅目害虫の防除に用いられているカルタップ、ベンスルタップ及びチオシクラムについて調査した。

これら3農薬は、試料から抽出後ネライストキシンの変換して測定する方法が採られているが、農産物の種類によってはクロマトグラムに妨害ピークが多く定量が困難であったり、回収率が低い等から分析方法について検討を行い、若干の知見を得たので報告する。

2. 調査方法

2.1 試料

平成4年8月～平成5年5月に県内の小売店等で購入した農産物12品目96検体(国産76 輸入20)

2.2 試薬

(1) 標準原液

ベンスルタップ、チオシクラム・シュウ酸塩、ネライストキシンのシュウ酸塩は和光純薬工業(株)の残留農薬試験用、カルタップ塩酸塩はナノゲン社の1000ppm溶液(メタノール)を用いた。

ベンスルタップはアセトン、チオシクラム、ネライストキシンはメタノールに溶解し各々100ppmに調製した。

(2) 標準溶液

上記の標準原液をメタノールで希釈し、カルタップ、ベンスルタップ、チオシクラムは4ppm、ネライストキシンは2.5ppmとした。

(3) その他の試薬

和光純薬の残留農薬試験用または試薬特級を用いた。

2.3 装置及び測定条件

(1) ガスクロマトグラフ: 島津GC-9A (FPD-S)

カラム: 10%PEG20MクロモゾルブW(AW-DMCS) 60~80メッシュ, 3mm×1m

カラム温度: 170°C

注入口及び検出器温度: 250°C

ガス: キャリヤーガスN₂ 50ml/min H₂ 0.6kg/cm² air 0.4kg/cm²

注入量: 4 µl

(2) ガスクロマトグラフ・質量分析計: 島津GCMS-QP1100EX

カラム: CBJ1-S30-025 (島津製作所)

カラム温度: 100°C - [5°C/min] - 170°C

注入口温度: 240°C

検出器温度: 270°C

ガス: キャリヤーガスHe 0.5kg/cm²

注入量: 1 µl

セパレータ及びイオン源温度: 250°C

イオン化電圧: 70eV (EI)

2.4 試験溶液の調製法

(1) 玄米, かぼちゃ, にんじん, きゅうり, みかん, りんご

農薬登録保留基準ハンドブック(作物残留の分析法)¹⁾に準じ, 試料を希塩酸で抽出, アンモニアアルカリ性でネライストキシンに変換後, ジクロロメタンで抽出した(図1 A)。

(2) はくさい, キャベツ, だいこん, たまねぎ

凍結・リン酸処理²⁾した試料を用いて(1)と同様に希塩酸次いでジクロロメタン抽出後, 液々分配によるクリーンアップ操作^{3),4)}を行った(図1 A+B)。

但し, たまねぎについてはクリーンアップ操作を省いた。

(3) ほうれん草

希塩酸抽出後, 酢酸亜鉛処理^{5),6)}を行い, 以下(1)と同様に処理した(図1 A)。

(4) 茶

ハンドブック法に準じて沸騰水による浸出液を用い, 酢酸鉛でタンニン除去後, ヘキサン抽出を行った(図2)。

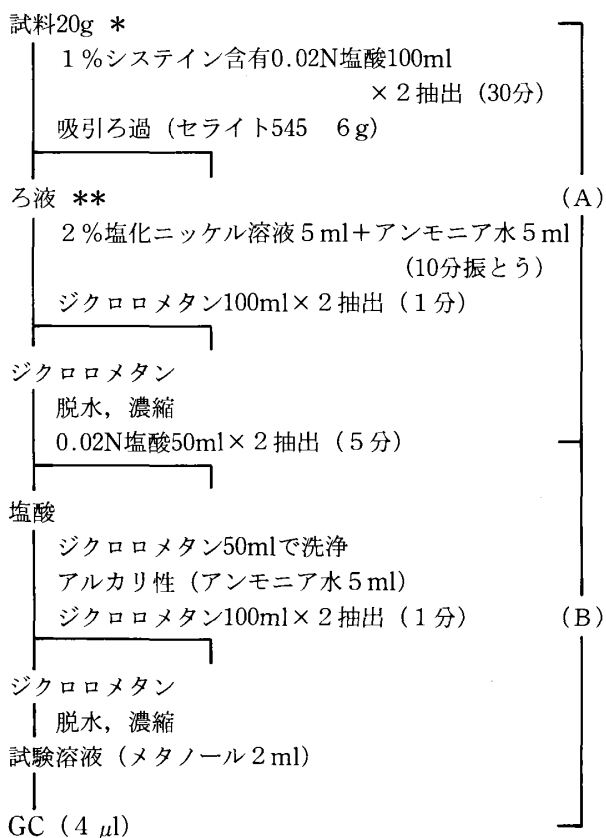


図1 野菜, 果実, 穀類のネライストキシン分析法

* イオウ化合物の多い農産物は凍結・リン酸処理した試料40g
** ほうれん草は酢酸亜鉛処理を行う(酢酸亜鉛5gを加え15分放置後, セライト545 5gでろ過, アンモニア水は10ml加える)

3. 結果および考察

3.1 前処理法の検討

(1) 玄米, かぼちゃ, にんじん, きゅうり, みかん, りんご

これらの農産物は, 図1 A法に準じて調製した結果, 妨害ピークのないチャートが得られた(図3)。

(2) たまねぎ, だいこん, はくさい, キャベツ (イオウ化合物の多い野菜)

たまねぎは, 図1 A法により調製したが, 妨害が多く定量困難であった。また, ハンドブック法に準じてアルミナカラムクロマトグラフィー(6%含水)によるクリーンアップを行ったが, ほとんど妨害物は除去できなかった(図4)。

そこで, 長南²⁾がたまねぎの有機リン系農薬分析で効果を上げている凍結・リン酸処理法を用いることにした。

すなわち, 酵素活性を抑えるために凍結した農産物に同量の3%リン酸溶液を加えてホモジナイズ処理後, A法により調製した結果, 妨害ピークは殆ど除去することができた(図4)。

だいこんについては, 凍結・リン酸処理法を用いA法

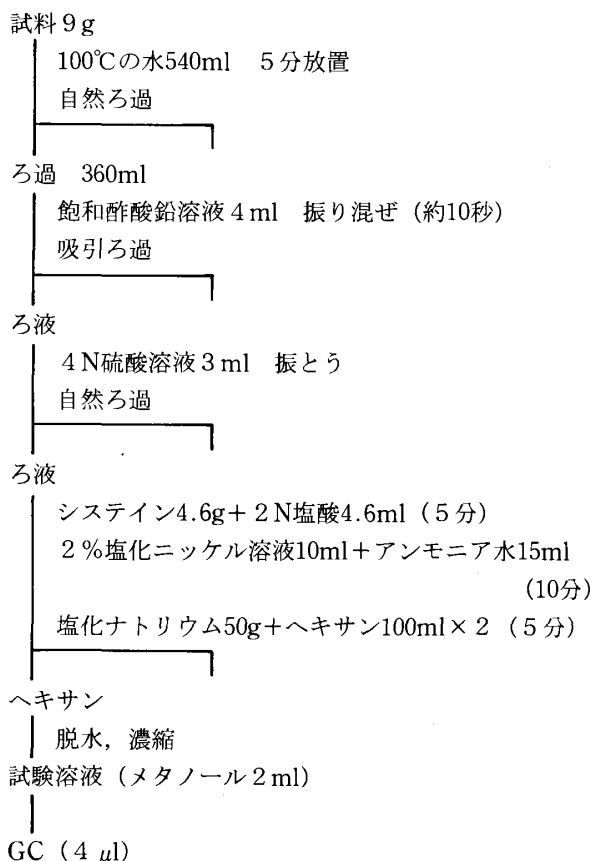


図2 茶のネライストキシン分析法

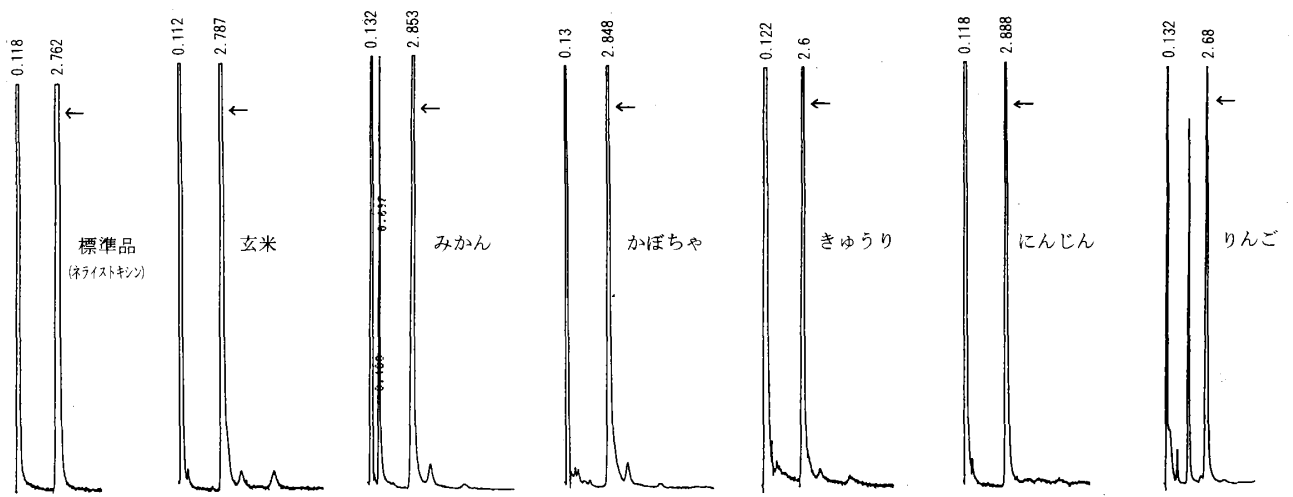


図3 チオシクロム添加農産物のガスクロマトグラム (A法) 添加量: 4 μg (メタノール溶液)

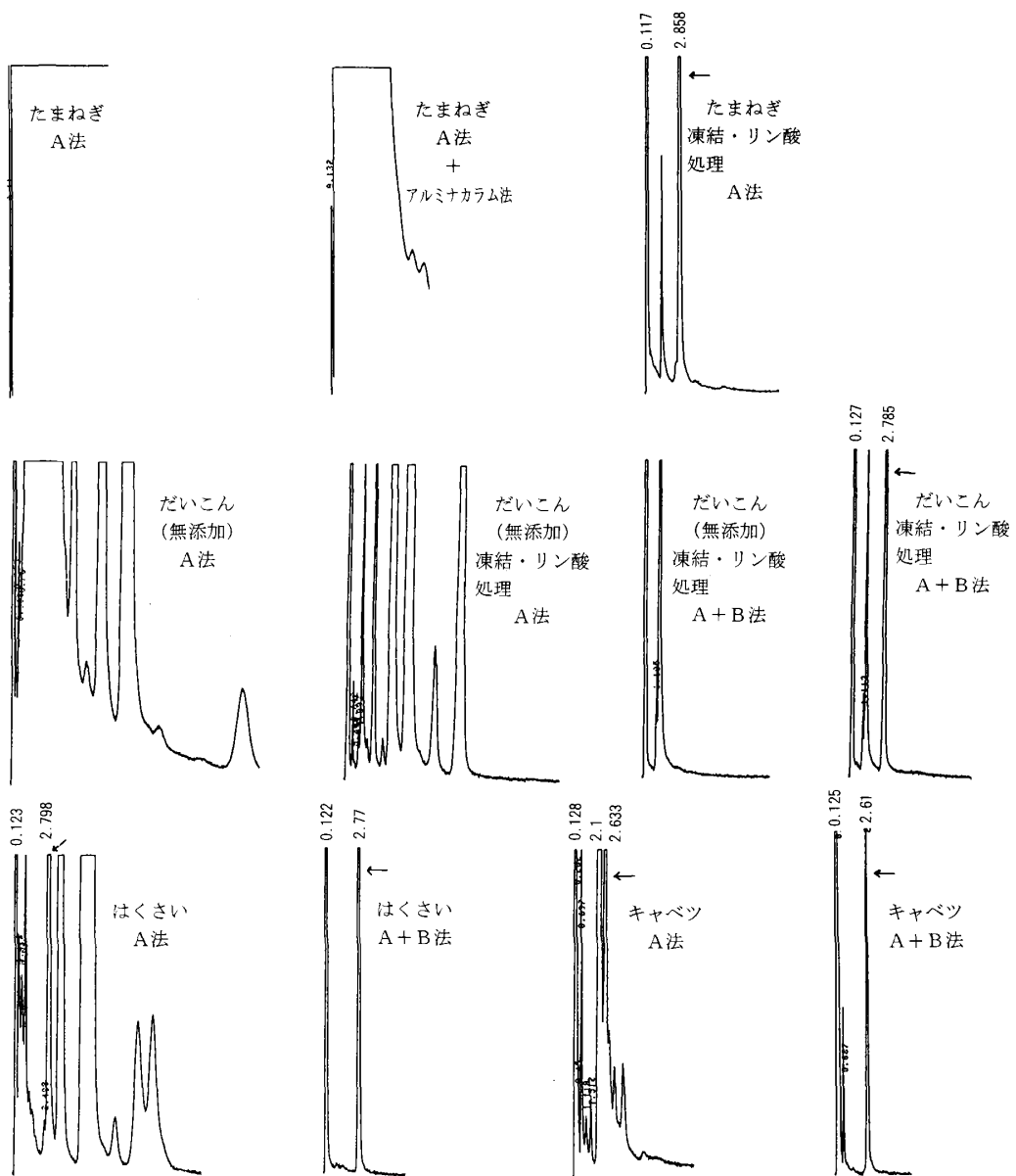


図4 チオシクロム添加農産物のガスクロマトグラム 添加量: 4 μg (メタノール溶液)

により調製したものは、無処理に比べ妨害ピークがかなり除去されたが、たまねぎ程の効果は見られなかった。

そこで、さらにクリーンアップ法^{3),4)}を用いることにした。これは、ネライストキシンが酸性では水に、アルカリ性ではジクロロメタンに溶けるという性質を利用した液々分配法で、これを用いた結果、妨害ピークのないクロマトグラムが得られた(図4)。

はくさい、キャベツについては凍結・リン酸処理法による効果はあまり見られず、液々分配によるクリーンアップ法を用いることにより妨害ピークのないクロマトグラムが得られた(図4)。

(3) ほうれんそう

希塩酸により同時に抽出されるほうれんそうの緑色色素を除去するため、ハンドブック法に準じて、ジクロロメタン抽出液を乾固した後、凝固法(塩化アンモニウム+リン酸)によるクリーンアップを行った。その結果、色素は除去されたが、チオシクロラムによる添加回収率は0%であった(表1)。

そこで、ジクロロメタン抽出液を乾固せず約2mlに濃縮し、アセトン添加量を5~30mlまで変えた場合のチオシクロラムによる添加回収率を調べた結果、29.0~49.4%と低い値であった。

また、液々分配によるクリーンアップも行ったが、やはり50%未満の回収率であった。これらの結果を表1に示した。

表1 ほうれんそうの凝固法およびクリーンアップ法(液々分配)によるチオシクロラム添加回収率

処理法	ジクロロメタン抽出液	アセトン量(ml)	添加回収率(%)
凝固法	乾固	0	0.0
"	約2mlに濃縮	5	38.8
"	"	10	29.0
"	"	15	49.4
"	"	20	31.1
"	"	30	31.1
クリーンアップ法(液々分配)			49.4

試料：ほうれんそう+チオシクロラム4 μ g(メタノール溶液)→A法によるジクロロメタン抽出液

そこで、外海等^{5),6)}がカーバメート系農薬等の分析に用いた酢酸塩処理法について検討した。

これも凝固法の一つであるが、希塩酸抽出液に酢酸塩5gを入れ、時々振り混ぜて15分間放置後ろ過し、以下A法に準じアンモニアアルカリ性にしてジクロロメタン抽出を行った。

この方法に従い、ほうれんそうの希塩酸抽出液にチオシクロラムを添加した試料を用いて、鉛、亜鉛、銅、マグネシウムの4種類の酢酸塩を加えた場合の各々のチオシ

クロラム添加回収率を表2に示した。

表からわかるとおり、酢酸亜鉛を用いた場合に約80%の回収率が得られ、GC用試験溶液も希黄色となって色素除去の効果も十分みられた。

表2 ほうれんそうの各種酢酸塩処理によるチオシクロラム添加回収率

酢酸塩の種類	GC用試験溶液	添加回収率(%)
酢酸鉛	希黄色	69.2
酢酸亜鉛	"	79.1
酢酸銅	"	妨害あり測定不能
酢酸マグネシウム	希緑黄色	49.4
無添加	濃緑褐色(沈殿あり)	——

試料：ほうれんそうの1%システイン含有0.02N塩酸抽出液+チオシクロラム4 μ g(メタノール溶液)

(4) 茶

茶については、湯浸出液にシステイン及び塩酸を加えた後、酢酸鉛で脱タンニン操作を行った場合³⁾、ヘキサソル層にエマルジョンが生じ分離が悪かった。

そこで、図2の方法に準じてタンニン除去後にシステイン及び塩酸を加えた結果、良好に分離した。

3.2 3 農薬添加回収試験

上記前処理法に従い、12農産物に3農薬を添加した場合の回収率を表3に示した。

チオシクロラムは67.8~121.5%、カルタップは62.7~128.2%で、これら2農薬については60%以上の回収率が得られた。しかし、ベンズルタップはかぼちゃ、ほうれんそう、玄米、にんじん、きゅうりにおいて50%未満の低い回収率であった。

表3 農産物の3農薬添加回収率 単位：%

農産物名	チオシクロラム	カルタップ	ベンズルタップ
たまねぎ	121.5	128.2	76.5
だいこん	76.3	96.9	96.8
はくさい	72.0	94.0	63.0
紫キャベツ	87.6	98.3	87.8
キャベツ	76.3	68.4	70.9
茶	74.2	72.7	57.4
みかん	89.0	84.1	82.1
かぼちゃ	98.9	86.9	45.0
ほうれんそう	70.6	78.4	40.5
玄米	87.6	84.1	47.2
にんじん	90.4	81.2	38.2
きゅうり	67.8	62.7	40.5
りんご	98.9	95.5	69.8

添加量：チオシクロラム、カルタップ各々4 μ g ベンズルタップ8 μ g(メタノール溶液)

3.3 ベンスタップ添加回収率の検討

ベンスタップ添加回収率が低いのは、ネライストキシンの変換が不十分なことも一因と考えられる。

そこで、変換に必要とされるシステイン、塩化ニッケル及びアンモニアの量を変化させた場合の回収率の変化を標準液のみを用いて調べた。

システインを0～3%，2%塩化ニッケル溶液を0～20ml、アンモニア水を0～50mlまでそれぞれ変化させた場合のベンスタップ添加回収率を表4に示した。

表4 標準液によるベンスタップ添加回収率

システイン(%)	2%塩化ニッケル溶液(ml)	アンモニア水(ml)	添加回収率(%)
1	5	0	0.0
1	5	5	79.3
1	5	10	77.0
1	5	20	78.8
1	5	30	77.6
1	5	40	75.4
1	5	50	63.0
1	0	5	68.6
1	5	5	79.3
1	10	5	77.6
1	20	5	75.4
0	5	5	0.0
1	5	5	79.3
2	5	5	74.2
3	5	5	70.9

試料：0.02N塩酸250ml+ベンスタップ8 μg(メタノール溶液)

アンモニア及びシステイン無添加の場合は回収率0%であるが、その他の場合では添加量による差はほとんど見られず約70～80%であった。

しかし、実際に回収率の一番低いにんじんを用い、システイン、アンモニア、塩化ニッケルの量を変えて回収率を調べた結果は、いずれの場合も40%未満の低い値であった(表5)。

表5 にんじんのベンスタップ添加回収率

システイン(%)	2%塩化ニッケル溶液(ml)	アンモニア水(ml)	添加回収率(%)
1	5	5	36.0
1	5	20	38.2
1	20	5	38.2
3	5	5	28.7*
3	20	20	37.1*

ベンスタップ添加量：8 μg(メタノール溶液)

* 妨害ピークがあり、クリーンアップ操作(液々分配)を行った。

そこで、操作のどの段階でベンスタップのロスが生じるのか、同じくにんじんを用いて調べてみた(表6)。

つまり、①ホモジナイズしたにんじんに標準液を添加後、試験法に準じて塩酸次いでジクロロメタン抽出を行ったもの ②にんじんの塩酸抽出液に標準液を添加し、ジクロロメタン抽出を行ったものについて各々の回収率を調べた結果 ①は36%、②は65%で塩酸抽出の段階でロスのあることが分かった。

表6 にんじんの操作段階におけるベンスタップ添加回収率

No.	試料	操作	回収率(%)
①	にんじん+標準液	塩酸、ジクロロメタン抽出	36.0
②	にんじんの塩酸抽出液+標準液	ジクロロメタン抽出	65.2

ベンスタップ添加量：8 μg(メタノール溶液)

そこで、ホモジナイズしたにんじんの植物成分とベンスタップが接触することにより分解することも考えられることから、表7に示すように、①ホモジナイズしたにんじんに標準液を添加し15分放置後抽出 ②直ちに抽出した場合の添加回収率を調べた。

さらに、試料液性が酸性のもの(凍結・リン酸処理した農産物及びりんご、みかん)において概してベンスタップ回収率が高いことから③塩酸処理したにんじんに標準液を添加し15分放置後抽出した場合についても同様に回収率を調べた。①～③の結果はそれぞれ37、70、90%の回収率であった。このときの試料の液性は①②が中性(PH6～7) ③が酸性(PH1)であった。

表7 にんじん、きゅうり、ほうれんそうのベンスタップ添加回収率

No.	試料	操作	回収率(%)
①	にんじん+標準液	15分放置後 抽出	37.1
②	にんじん+標準液	直ちに抽出	69.8
③	塩酸処理にんじん+標準液	15分放置後 抽出	90.0
①	きゅうり+標準液	15分放置後 抽出	40.5
②	きゅうり+標準液	直ちに抽出	58.5
③	塩酸処理きゅうり+標準液	15分放置後 抽出	92.2
①	ほうれんそう+標準液	15分放置後 抽出	36.0
③	塩酸処理ほうれんそう+標準液	15分放置後 抽出	65.2

ベンスタップ添加量：8 μg(メタノール溶液)

塩酸処理：1/10量の4N塩酸溶液を加えホモジナイズしたもの

すなわち、中性付近では標準液添加後の放置時間が長くなるにつれて回収率が低下したが、酸性状態では同じ放置時間でも高い回収率が得られた。

きゅうり、ほうれんそうについても同様な結果が見ら

れ、塩酸処理したものでは各々92, 65%の回収率が得られた(表7)。

このことから、中性付近ではベンスルタップがホモジナイズした植物成分との接触により分解している可能性が示唆された。

但し、同じ酸性状態でも3%リン酸溶液を加えてホモジナイズした場合には、にんじんで約78%の回収率であったが、ほうれんそう、きゅうり、玄米では30%未満の低い値であった(表8)。

ベンスルタップについては、酸性状態でホモジナイズすることにより60%以上の添加回収率が得られたが、チオシクロラム及びカルタップではどうなのか、同様に処理した試料を用い2農薬についても添加回収試験を行った。結果を表8に示した。

チオシクロラム、カルタップ2農薬の添加回収率は塩酸処理をしない場合と比較して殆ど差が見られなかった。

従って、上記野菜の3農薬を分析する場合は、試料に塩酸を加え酸性状態でホモジナイズする必要がある。

表8 塩酸処理(無処理)農産物の3農薬添加回収率

単位：%

農産物名	カルタップ		チオシクロラム		ベンスルタップ		
	塩酸処理	処理なし	塩酸処理	処理なし	塩酸処理	処理なし	リン酸処理
にんじん	106.9	81.2	101.7	90.4	90.0	38.2	77.6
きゅうり	62.7	62.7	77.7	67.8	92.2	40.5	25.3
ほうれんそう	67.0	78.4	67.8	70.6	65.2	40.5	27.6
かぼちゃ	—	86.9	—	98.9	76.5	45.0	—
玄米	85.5	84.1	86.2	87.6	81.0	47.2	29.8

添加量：チオシクロラム、カルタップ各々4 μg ベンスルタップ8 μg (メタノール溶液)

3.4 調査結果

調査した96農産物のうち、23検体の茶から0.10~2.07 ppmの範囲でネライストキシンが検出された。しかし、8検体の茶及びその他の農産物からは検出されなかった(表9)。

表9 農産物のネライストキシン調査結果

農産物名	検体数	国産	輸入	測定値 (ppm)
キャベツ	8	4	4	ND
きゅうり	4	3	1	ND
たまねぎ	5	1	4	ND
にんじん	4	1	3	ND
みかん	4	4	0	ND
りんご	4	4	0	ND
かぼちゃ	4	0	4	ND
ほうれんそう	8	8	0	ND
玄米	8	8	0	ND
だいこん	8	8	0	ND
はくさい	8	8	0	ND
茶	31	27	4	ND~2.07 ND(国産4 輸入4) 0.10~2.07(国産23)
合計	96	76	20	ND~2.07

ND：0.025ppm未満

これらについてはGC/MS-SIMで確認した。(測定イオン(m/z) 70 71 103 149)

これら3農薬については食品衛生法に基づく残留農薬基準が設定されていないが(6年1月現在)、環境庁告示によると茶の残留基準値はカルタップ20ppm、チオシクロラム25ppm、ベンスルタップ20ppmとなっている。

ネライストキシンは、カルタップ、ベンスルタップ及びチオシクロラムの変換生成物であることから、最終的には係数を乗じてこれら農薬の濃度を算出する必要がある。

しかし、使用農薬が特定できないことから仮に換算係数の高いベンスルタップ(1.8)に換算すると、最高値の2.07ppmはベンスルタップとして3.73ppmとなり、環境庁告示の20ppmに比べ約1/5の低い値であった。

これらの農薬は、カイコに対する毒性は強いものの人畜毒性は低く残留性は小さいとされている³⁾。

「有機農産物等に係る青果物等特別表示ガイドライン」(農水省)が制定され、平成5年4月1日より実施されている。そこで、今回調査した茶を、農薬使用状況の表示をもとに「無農薬栽培」、「低農薬栽培」、「表示なし」の3グループに分け、ネライストキシンの濃度を調べた(表10)。

その結果、「無農薬栽培」では9検体のうち4検体が不検出、残り5検体からは低濃度ではあるがネライストキシンが検出された。また、「低農薬栽培」、「表示なし」ではすべての検体からネライストキシンが検出された。

グループ毎のネライストキシンの平均値をとると、「無農薬栽培」0.16ppm、「低農薬栽培」0.61ppm、「表示なし」1.15ppmであった。

表10 茶の調査結果 (国産)

単位: ppm

農薬の使用状況	検体数	測定値			検出率	平均値
無農薬栽培	9	0.10	0.18	0.23	5/9	0.16
		0.23	0.70	ND		
		ND	ND	ND		
低農薬栽培	8	0.19	0.32	0.45	8/8	0.61
		0.47	0.60	0.67		
		0.80	1.40			
表示なし	10	0.24	0.42	0.67	10/10	1.15
		0.82	0.85	1.27		
		1.47	1.67	2.03		
		2.07				
合計	27	ND~2.07			23/27	

ND: 0.025ppm未満

4. ま と め

(1) 輸入農産物等の残留農薬調査の一環として、カルタップ、チオシクラム、ベンスルタップ3農薬について分析を行った。

(2) イオウ化合物の多い農産物については凍結・リン酸処理した試料を用い、液々分配によるクリーンアップ操作を行うことにより妨害ピークを除去できた。

ほうれんそうについては酢酸亜鉛処理により回収率の向上及び緑色色素の除去が可能であった。

回収率の低いベンスルタップは塩酸処理した試料を用いることにより回収率を上げることができた。

(3) (2)の前処理法を用いて12農産物に対する添加回収率を調べた結果、カルタップ、チオシクラム、ベンスルタップではそれぞれ62.7~128.2, 67.8~121.5, 57.4~96.8%であった。

(4) 調査した96農産物のうち23検体の茶からネライストキシシン (0.10~2.07ppm) が検出された。

これらの値はベンスルタップに換算した場合 (0.18~3.73ppm)、環境庁告示の基準値の約1/100~1/5であった。

文 献

- 1) 農薬環境保全対策研究会編: 農薬登録保留基準ハンドブック (作物残留の分析法), 化学工業日報社, 東京, 1990.
- 2) 長南隆夫: 凍結-リン酸添加磨砕法を用いたタマネギ及びネギ中の有機リン系農薬の迅速定量, 食品衛生学雑誌, **33** (6), 543-547, 1992.
- 3) 後藤真康 加藤誠哉: 増補残留農薬分析法, ソフトサイエンス社, 東京, 1987.
- 4) 厚生省生活衛生局食品化学課編: 残留農薬分析法Draft, 124-128, 日本食品衛生協会, 東京, 1986.
- 5) 外海泰秀, 他: 農産物中の9種カーバメイト系及び12種有機リン系農薬の試験溶液の同時調製法についての検討, 食品衛生学雑誌, **33** (5), 449-457, 1992.
- 6) 外海泰秀, 他: 定量操作中に分解し易いキャプタン, カプタホール等12種殺菌剤の一斉分析法の検討, 衛生化学, **38** (3), 270-281, 1992.

Abstract

Analysis of Nereistoxin in Foods

Akiko KOGAWA and Masanori TAKAHASHI

Analytical methods for three pesticides ; cartap, thycyclam and bensultap were investigated as part of the investigation of persticides residues in imported agricultural products and so on. These compounds could be purified from onion, Japanese raddish, etc. by combination of the methods of lyophilization and phosphate treatment and liquid-liquid partition and from spinach by the zinc acetate treatment method. The recovery of bensultap could be raised by HCl treatment. Nereistoxin, a metabolite of the three pesticides was detected in 23 samples of tea leaves, but not in othere out of 96 samples of agricultural products tested in this study.

Key words : cartap, thycyclam, bensultap, nereistoxin tea

エゴマ添加飼料による鶏卵中の脂肪酸経時変化

野村 眞美 高橋 政教 西藤 克己¹

α -リノレン酸の含量を高めた鶏卵の生産技術を確立することを目的として、エゴマを添加した飼料を給与し、 α -リノレン酸の卵黄中への移行について調査した。その結果、卵黄中の α -リノレン酸は経時的に増加傾向を示し、エゴマの添加量が多いほど増加割合が高かった。無添加飼料に切り替えると、卵黄中の α -リノレン酸は速やかに減少した。貯蔵卵は成分の減少は認められたが、著しい変化ではなかった。飽和脂肪酸に対する不飽和脂肪酸比 (U/S) や、多価不飽和脂肪酸比 (P/S)、及び ω 6 系列脂肪酸に対する ω 3 系列脂肪酸比 (ω 3/ ω 6) はエゴマの添加割合が多いほど、また給与期間が長いほど栄養学的に脂肪酸摂取の適正な比率とされている値に近くなった。

Key words: perilla seeds, chicken egg, egg yolk, α -linolenic acid

1. はじめに

本県の県南地方で「じゅね」と呼ばれ、古くから栽培されているエゴマには、必須脂肪酸の α -リノレン酸が多く含まれている¹⁾。 α -リノレン酸は近年、脳・神経機能を高く保つ上で必須であり²⁾、制ガン作用³⁾等を有する脂肪酸であることが明らかになっている。

そこで、飼料中の脂肪酸は卵黄中に移行することに着目し、エゴマ添加飼料を卵用鶏に給与したところ、卵黄中の α -リノレン酸含量が高くなり付加価値の高い鶏卵の生産が可能であった⁴⁾。しかし、この鶏卵を商品化する際に問題となる添加割合および添加飼料の給与期間等については明確な結論は得られていなかった。

今回、この生産技術を確立する目的でエゴマの添加割合を変化させた飼料の連続給与による卵黄中の脂肪酸の経時変化について、青森県畜産試験場五戸支場と共同研究を行ったので、その結果を報告する。

2. 調査方法

2.1 試験期間

試験期間は5年1月6日～3月23日で、内訳は表1に示した。基礎飼料給与の予備試験、試験飼料給与の本試験および再び基礎飼料給与に戻した後試験の3期に分けた。また保存による脂肪酸の経時変化について調査する目的で、本試験5週目に採卵し10℃で4週間貯蔵した卵について分析を行った。

表1 試験期間

試験名	開始月日～終了月日	給与飼料	
予備試験	1月6日～1月19日	基礎飼料	
本試験	1週目	1月20日～1月26日	試験飼料
	2週目	1月27日～2月2日	〃
	3週目	2月3日～2月9日	〃
	4週目	2月10日～2月16日	〃
	5週目	2月17日～2月23日	〃
	6週目	2月24日～3月2日	〃
後試験	1週目	3月3日～3月9日	基礎飼料
	2週目	3月10日～3月16日	〃
	3週目	3月17日～3月23日	〃
	4週目	3月24日～3月30日	〃
貯蔵試験	2月22日～3月22日		

2.2 供試鶏

4年6月24日孵化のロード種

2.3 試験区分

表2に試験区分を示した。基礎飼料にエゴマを添加割合が、2.5、5.0、7.5および10%の割合になるように添加し、不足分をコーンスターチで代替して試験飼料を調製した。またエゴマ無添加を対照とした。各区に供試鶏7羽を割り付け2系列試験を行った。

2.4 試験場所

青森県畜産試験場五戸支場

2.5 飼養試験

産卵鶏を表2の区分および羽数に従い、ゲージで1羽

1: 青森県畜産試験場五戸支場

表2 試験区分

区分	内 容	添加割合 (kg)			(羽×系列)
		基礎飼料	エゴマ	コーンスターチ	
1区	対 照	18	0.0	2.0	7×2
2区	エゴマ2.5%添加	18	0.5	1.5	7×2
3区	エゴマ5.0%添加	18	1.0	1.0	7×2
4区	エゴマ7.5%添加	18	1.5	0.5	7×2
5区	エゴマ10%添加	18	2.0	0.0	7×2

ずつ飼養した。試験期間中の飼料は不断給与とした。

2.6 調査項目

エゴマ、全区の飼料、全区の卵黄の脂肪酸組成及び脂肪酸量について調査を行った。卵黄中の脂肪酸の測定は、各試験区別に一週間毎に採卵し、卵黄をストマッカーを用いて混合し検体とした。分析は各区で2系列行い、分析値はその平均値を用いた。

2.7 分析法

脂肪酸組成及び脂肪酸量は「加工食品の栄養成分分析法」に準じた。すなわち、水酸化カリウム・エタノールでケン化後、酸性下でジエチルエーテルに抽出、ついで三フッ化ホウ素メタノール試薬でメチル化し、ヘキサンに転溶した後、FID-GCで測定した。

3. 結果及び考察

3.1 飼料の脂肪酸組成

エゴマにはα-リノレン酸が59.5%含まれており主要脂肪酸であった。基礎飼料の中にα-リノレン酸は3.6%含まれていた。エゴマの添加量が2.5, 5.0, 7.5および10%と増えるに従い、飼料中の組成比も15.0, 25.0, 28.9, 30.9%と増加することが認められた(図1)。

3.2 経時変化

本試験1週～6週と経過すると、全添加区でα-リノレン酸の組成比及び含量が増加し、添加量が多いほど増加割合が高かった。後試験では、組成比及び含量とも経

時的に減少傾向を示した(図2, 3)。このためα-リノレン酸の含量を高めた鶏卵の生産は、添加飼料を連続給与する必要があると考えられる。一方、総脂肪酸量はα-リノレン酸の組成比および含量とは異なり、添加割合の増加に伴う含量の差は認められず、また本試験から後試験に移行しても著しい変化がなかった(図4)。このことから、卵黄中の総脂肪酸量はほぼ一定であり、飼料中の脂肪酸の変化に伴い卵黄中の脂肪酸組成比および各脂肪酸の含量が変化すると考えられる。

3.3 貯蔵試験

結果は表3に示した。本試験5週目の分析結果と比較すると、貯蔵卵ではα-リノレン酸の組成比の変動割合は、-9.1～4.7%であり一定の傾向は示さなかった。一方、α-リノレン酸および総脂肪酸の含量の変動割合はそれぞれ、-1.7～-11.6%、-0.6%～-7.3%であり、減少傾向が認められるが著しい変化ではなかった。不飽和脂肪酸は光、酸素等により自動酸化されやすく、変質する可能性が高い。しかし、貯蔵卵で経時変化が比較的少なかったのは、卵質成分は卵殻により保護されており、脂肪酸を変質させる諸因子の影響を受けにくい。このため貯蔵条件が10℃、4週間と厳しい条件下でも脂肪酸の経時変化が少なかったものと思われる。

3.4 α-リノレン酸の相関

本試験5週目における、飼料と卵黄中のα-リノレン酸組成比の回帰分析の結果を示した。r=0.959と高い値

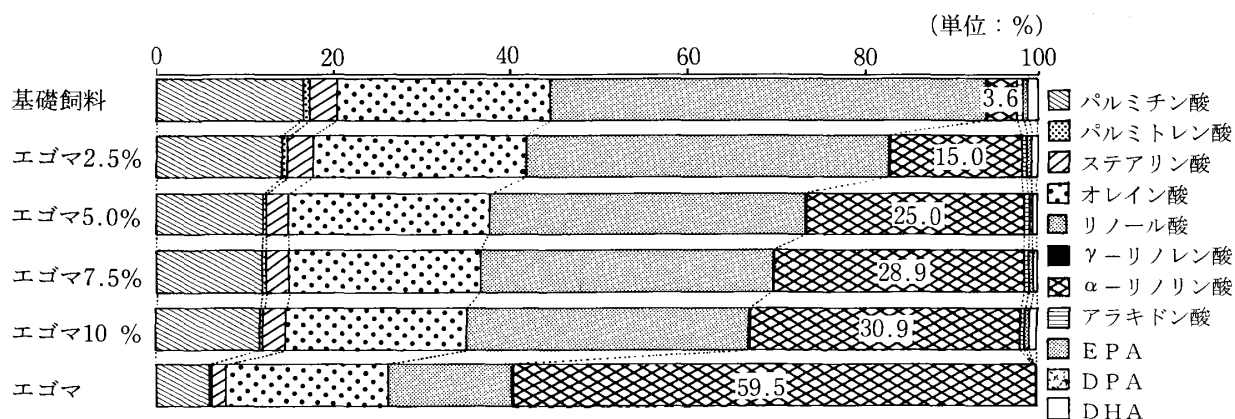


図1 飼料の脂肪酸組成

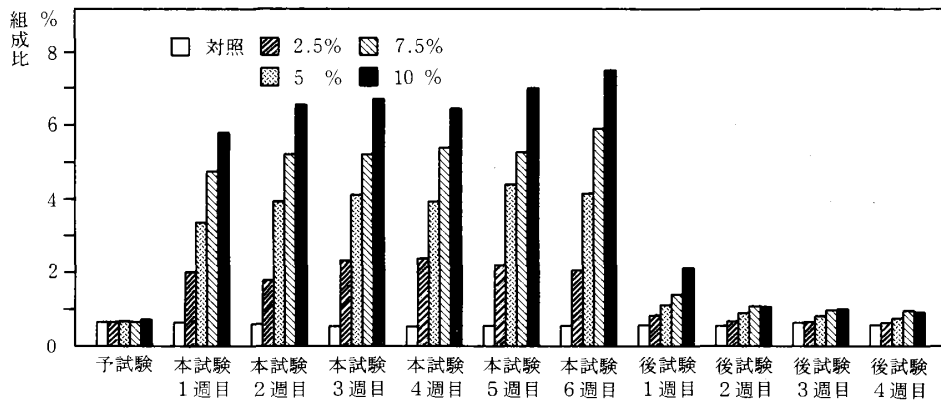


図2 α-リノレン酸組成比の経時変化

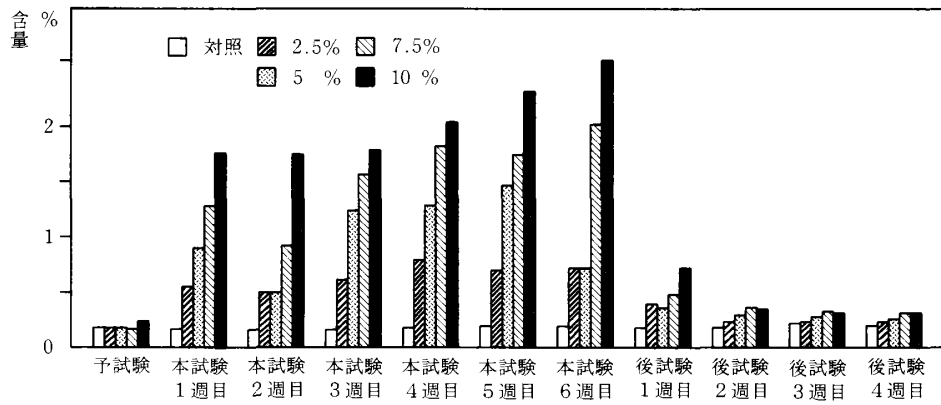


図3 α-リノレン酸含量の経時変化

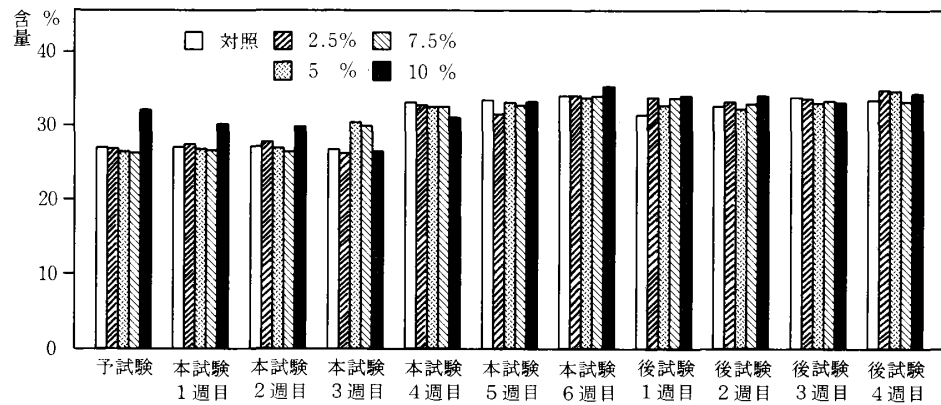


図4 総脂肪酸含量の経時変化

表3 貯蔵試験結果

(単位: %)

項目	添加割合	本試験5週目	貯蔵卵	変動割合	項目	添加割合	本試験5週目	貯蔵卵	変動割合	項目	添加割合	本試験5週目	貯蔵卵	変動割合
α-リノレン酸の組成比	対照	0.57	0.60	5.3	α-リノレン酸の含量	対照	0.19	0.18	-5.3	総脂肪酸の含量	対照	33.4	30.3	-9.3
	2.5%	2.20	2.00	-9.1		2.5%	0.70	0.62	-11.4		2.5%	31.6	31.4	-0.6
	5.0%	4.41	4.13	-6.3		5.0%	1.46	1.29	-11.6		5.0%	33.1	31.0	-6.3
	7.5%	5.29	5.54	4.7		7.5%	1.74	1.68	-3.4		7.5%	32.8	30.4	-7.3
	10%	7.01	7.34	4.7		10%	2.32	2.28	-1.7		10%	33.2	31.1	-6.3

注) 変動割合: (貯蔵卵の分析値/本試験5週目の分析値-1) × 100

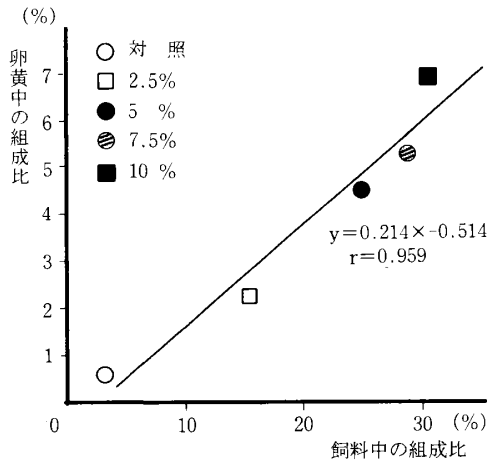


図5 飼料と卵黄のα-リノレン酸の関係 (本試験5週目)

であり、飼料中の組成比と卵黄中の組成比との間に相関が認められた(図5)。

3.5 脂肪酸構成比

栄養学的には、個々の成分よりも、構成比で論じられることが多いので、飽和脂肪酸(S)、不飽和脂肪酸(U)、多価不飽和脂肪酸(P)、及びリノレン酸系列(ω3)とリノール酸系列(ω6)に分類し検討した。

α-リノレン酸はω3系列の多価不飽和脂肪酸であるため、エゴマの添加割合が増えるのに従い、飼料中のU/S比、P/S比、ω3/ω6比は高くなった(図6)。

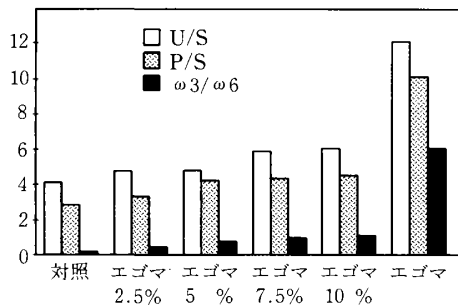


図6 飼料のU/S比、P/S比およびω3/ω6比

栄養学的には、U/S比は2、P/S比は0.7以上²⁾が食事による脂肪酸摂取の基準的な比率とされている。卵黄中のU/S比、P/S比は本試験において経時的に増加傾向を示し、添加割合が多いほど比率が高くなりエゴマ10%添加区で目標とされている比率を満たした値が得られた(図7、8)。

ω3系列脂肪酸には、α-リノレン酸、EPA、DHA等がある。生体内でα-リノレン酸からEPAついでDHAに代謝されるため、α-リノレン酸が必須脂肪酸とされている。α-リノレン酸は学習能の向上、制ガン効果およびアレルギー性疾患との関連性が認められており、重要な生理活性を有している。これらω3系列脂肪酸は、魚

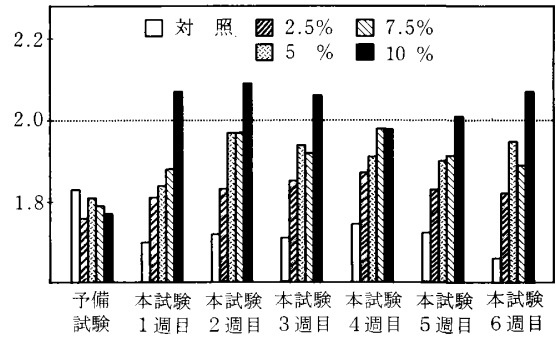


図7 U/S比の経時変化

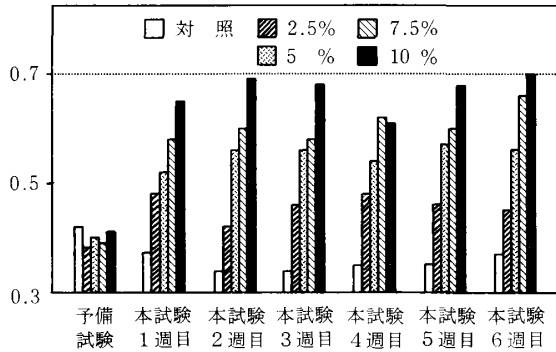


図8 P/S比の経時変化

介類、野菜等に多く含まれているが摂取量は減少傾向にある。一方、食生活の洋風化に伴い、油脂食品、肉類、乳製品に多く含まれるω6系列の必須脂肪酸であるリノール酸は過剰摂取状態である。最近、ω3系列脂肪酸とω6系列脂肪酸との摂取比率が多くの慢性疾患の症状と深い関連があることが明らかになった²⁾。ω3/ω6比は年々低下しており、特に若年層で著しい減少傾向を示している。このため健康に及ぼす影響が危惧されている。

ω3/ω6比は0.2~1を食事による脂肪酸摂取の適正比率⁶⁾としている。対照のω3/ω6比は0.4~0.5の値であった。また各添加区ではU/S比、P/S比と同様に増加傾向が認められた。10%添加区におけるω3/ω6比は、本試験1週目では0.78であり、本試験2週目以降は0.83以上で、本試験6週目では0.97であった(図9)。適正摂取

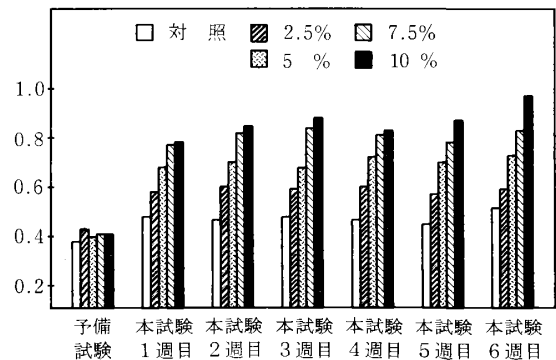


図9 ω3/ω6比の経時変化

比率の上値1を越えることはなかったが、エゴマ10%添加飼料の $\omega 3/\omega 6$ 比は1.03であるため、本試験2週目以降の $\omega 3/\omega 6$ は飽和状態に近いものと思われる。

エゴマには図1より、 α -リノレン酸が59.5%含まれている。飼料中の組成比と卵黄中の組成比との間に相関が認められたことから、エゴマの添加量をさらに増やすことにより、卵黄中の α -リノレン酸量をより高めた鶏卵の生産が可能であると思われる。しかし、卵用鶏に及ぼす影響やコスト面での問題があるため、今後の検討課題としたい。

以上、脂肪酸の構成比から考えると、飼料に対するエゴマの添加割合は、10%添加が脂肪酸摂取の適正な比率とされている値に最も近くなった。また脂肪酸組成および各比率の増加割合は、本試験2週目以降比較的ゆるやかになっている。このため、生産時には10%添加飼料で2週間程度の飼養の後に製品化することが必要であると考えられる。

4. ま と め

- (1) エゴマは α -リノレン酸を主要脂肪酸として含んでおり、添加割合に応じて飼料中の α -リノレン酸が増加した。
- (2) エゴマ添加飼料給与により、卵黄中の α -リノレン酸の組成比、含量は経時的に増加し、添加量と卵黄中の濃度に相関が認められた。
- (3) 添加飼料給与を停止すると卵黄中の α -リノレン酸は減少傾向を示した。
- (4) 貯蔵試験では、多少の成分の減少は認められたが著しい変化ではなかった。
- (5) U/S比、P/S比及び $\omega 3/\omega 6$ 比は、エゴマの添加割

合が多く、給与期間が長いほど栄養学的に脂肪酸摂取の適正な比率とされている値に近くなった。

(6) 10%添加飼料で2週間の飼養後に、脂肪酸摂取の適正な比率とされる脂肪酸組成を有する鶏卵の生産が可能であると考えられる。

エゴマ添加飼料による α -リノレン酸の含量を高めた鶏卵は、栄養学的に脂肪酸のバランスがとれており、不足がちな $\omega 3$ 系列脂肪酸のなかで特に重要な必須脂肪酸の摂取量を多くすることができる。このため、より一層の健康増進を願う消費者の健康志向にかなり優れた食品と言える。今後、本県特産の自然健康食品としての活用を図りたい。

文 献

- 1) 科学技術庁資源調査会編：〈四訂〉日本食品成分表，1，259，医歯薬出版株式会社，東京都，1982.
- 2) 奥山治美，坂井恵子，森内敦子：食品の必須脂肪酸の変化と慢性疾患，食品衛生学雑誌，33，1～7，1989.
- 3) 磯田好弘，平野二郎：癌と脂質，衛生化学，34，259～302，1988.
- 4) 西藤克己，吉田晶二：地域特産鶏肉・鶏卵の生産技術4) エゴマ種子利用による特殊卵，青森県畜産試験場試験研究成績書，平成3年～4年，149～160，1992.
- 5) 井上裕正 他：日本国民の栄養摂取量の地域差に関する研究Ⅲ，16～17，地方衛生研究所全国協議会事務局，名古屋市，1984.
- 6) 斎藤衛郎：脂質の適正摂取レベルおよびバランスの検討，国立健康・栄養研究所研究報告，41，62，1992.

Abstract

Changes of Fatty Acid Contents in Eggs of Chicken Fed on Perilla-Seed Added Feeds

Masami NOMURA, Masanori TAKAHASHI and Katsumi SAITO

For an attempt to establish a production technique of eggs containing a high level of α -linolenic acid, transfer of the fatty acid into egg yolk was investigated using feeds added with Perilla seeds. The level of α -linolenic acid in the eggs gradually raised with time and the rate of increase was high as increase in the content of the seeds. The level of the fatty acid in the yolk was rapidly decreased by changing to nonadded feeds. In stocked eggs, there was some decrease in this component, but the decrease was not significant.

The ratios of unsaturated fatty acid to saturated (U/S), polyunsaturated fatty acids to saturated (P/S) and ω 3 series fatty acids to ω 6 series (ω 3/ ω 6) were close to the values which are thought to be each nutritionally appropriate one as an increase in the content of Perilla seed and the length of its administration period.

Key words : perilla seed, chicken egg, egg yolk, α -linolenic acid

青森県の温泉泉質経年変化（第九報） —津軽地域の温泉群の泉質経年変化について—

高橋 政教 平出 博昭¹ 村上 淳子
野村 眞美 今井美代子

当所では温泉の適正利用および泉源保護の目的で温泉泉質経年変化調査を行っている。今回は津軽地域の湧出後10年以上経過した30源泉について、温泉泉質経年変化調査を行った。その結果、療養泉泉質分類では5源泉において療養泉泉質の経年変化が認められた。また、七角ダイアグラムを用いた泉質変化では、1源泉で海水型から地下水型に移行していた。さらにトリリニャーダイアグラムによる水質区分では、1源泉に水質区分領域の移行が認められた。本成績のみで、これらの泉質変化が温泉開発に伴う乱掘、過剰揚湯等による温泉衰退現象の結果と結論づけるのは困難であるが、その可能性も考えられるため、今後定期的に調査する必要がある。

Key words: hot springs, lapse of years, Tugaru area, heptadiagram, trilineardiagram

1. はじめに

青森県は全国でも有数の温泉県である。源泉総数は911本で全国第6位、湧出量149.5kl/minで第4位、42度以上の高温源泉数は553本で第5位、温泉地数は145ヶ所で第3位となっている¹⁾。これらの温泉はレクリエーションあるいは医学的治療を目的として広く県民に利用されている。

しかしながら、温泉はその複雑な湧出機構等により泉質が変化する可能性がある。また、近年温泉開発に伴う乱掘、過剰揚湯による温泉の衰退現象が問題になっている²⁻⁵⁾。

このため、当所では温泉の適正利用および泉源保護の目的で、昭和55年度より県内温泉の泉質経年変化について継続調査している⁶⁻¹³⁾。今回は、平成2年～4年度に行った津軽地域の調査結果について報告する。

2. 調査方法

2.1 調査地域

図1に調査地域を示した。今回の調査地域は津軽地域とし、湧出後10年以上経過し現在でも利用に供されている30ヶ所の源泉について調査した。

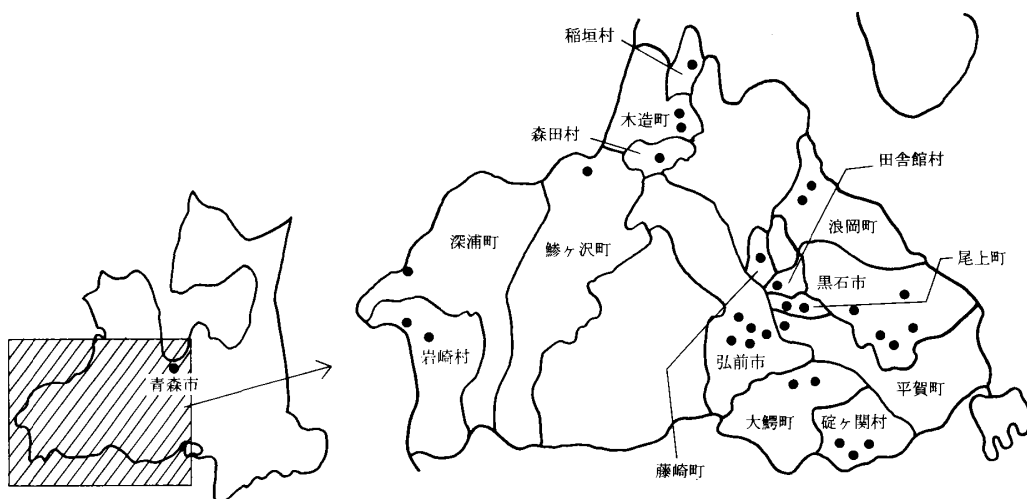


図1 調査対象地域

1：現青森保健所

2・2 調査対象源泉および泉質

表1に調査対象源泉, 前回および今回調査時の泉質を示した。また, 表2に前回調査時における30源泉の主要イオンの組成比を, 当量比率によって示した。陽イオンではNa型が28件で全体の93.3%占めており, Ca型が1件, Mg型が1件であった。

一方, 陰イオンではCl型が22件で全体の73.3%を占め, HCO₃型が6件, SO₄型が2件であった。

2・3 調査時期

平成2年～4年度

2・4 調査項目および分析方法

調査項目は, pH, 蒸発残留物, 陽イオンとして, Na⁺,

K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺, 陰イオンとして, Cl⁻, SO₄²⁻, HCO₃⁻, 遊離成分として, H₂SiO₃, HBO₂, 溶存ガス成分としてCO₂, H₂Sである。なお, 泉温については, 湧出箇所が密閉されているため測定できなかった源泉が数ヶ所あったため, 本成績から除外した。

分析方法は鉱泉分析法指針に準拠した¹⁴⁾。

3. 調査結果および考察

泉質調査結果は表3, 4, 5に示した。

3・1 基礎統計量について

表6, 7に前回および今回調査時の基礎統計量を示した。平均値でみるとpH値, Ca, HCO₃では変化は認めら

表1 調査地域、源泉名および療養泉泉質

調査地域	源	泉	名	前回調査年月	前回調査の泉質	今回調査の泉質
碓ヶ関村	遠	辺	沢 温 泉	S. 39. 5	Ca・Na-Cl・HCO ₃ ・SO ₄ 泉	変化なし
〃	新	相	乗 温 泉	S. 41. 1	単純温泉	〃
〃	秋	元	温 泉	S. 52. 11	含S-Na-Cl泉	〃
浪岡町	花	岡	温 泉	S. 53. 4	Na-Cl泉	〃
〃	細	田	温 泉	S. 53. 3	アルカリ性単純温泉	〃
平賀町	柏	木	温 泉	S. 54. 10	Na-Cl泉	〃
田舎館村	吉	菊	温 泉	S. 54. 6	アルカリ性単純温泉	〃
藤崎町	藤	崎	温 泉	S. 54. 9	単純温泉	〃
尾上町	猿	賀	温 泉	S. 56. 4	アルカリ性単純温泉	〃
〃	大	和	温 泉	S. 52. 6	単純温泉	〃
鯨ヶ沢町	舞	戸	温 泉	S. 54. 6	Na・Ca-Cl泉	〃
岩崎村	新	湯	温 泉 2 号 泉	S. 54. 10	Na-Cl・SO ₄ 泉	〃
〃	十二	湖	キ ャ ニ オ ン 温 泉	S. 47. 11	単純温泉	単純冷鉱泉
深浦町	舩	作	温 泉	S. 56. 5	含CO ₂ -Na-Cl泉	Na-Cl泉
森田村	森	田	温 泉	S. 47. 1	Na-Cl・HCO ₃ 泉	変化なし
木造町	尾	野	病 院 温 泉	S. 55. 2	含S-Na-Cl泉	Na-Cl泉
〃	秋	元	観 光 温 泉	S. 45. 12	Na-Cl泉	変化なし
稲垣村	稲	垣	温 泉 3 号 泉	S. 53. 3	Na-Cl泉	〃
大鱈町	大	鱈	温 泉 石 原 源 泉	S. 57. 8	Na・Ca-Cl泉	〃
〃	大	鱈	温 泉 公 民 館 源 泉	S. 57. 8	Na・Ca-Cl・SO ₄ 泉	〃
黒石市	青	荷	温 泉 (龍神の湯)	S. 49. 7	単純温泉	〃
〃	下山	形	温 泉 (長寿温泉3号泉)	S. 56. 6	単純温泉	〃
〃	鶴	泉	温 泉	S. 60. 7	Na-Cl泉	〃
〃	大	川	原 温 泉	S. 50. 9	単純温泉	〃
〃	二	庄	内 温 泉 (新二庄内温泉)	S. 52. 9	単純温泉	〃
弘前市	富	の	湯 温 泉	S. 54. 6	Na-Cl泉	〃
〃	弘	前	寒 沢 温 泉	S. 44. 12	Na-Cl泉	単純温泉
〃	緑	ヶ	丘 温 泉	S. 51. 3	含S-Na-Cl泉	変化なし
〃	福	士	病 院 温 泉	S. 46. 7	単純温泉	〃
〃	松	原	温 泉	S. 54. 11	含S-Na-Cl泉	Na-Cl・HCO ₃ 泉

表2 主要イオン組成 (前回調査)

陽イオン			陰イオン		
イオン型	イオン組成	件数	イオン型	イオン組成	件数
Na 型	Na※	6	Cl 型	Cl※※	2
	Na>Ca>Mg	17		Cl>HCO ₃ >SO ₄	13
	Na>Mg>Ca	5		Cl>SO ₄ >HCO ₃	7
Ca 型	Ca>Na>Mg	1	SO ₄ 型	SO ₄ >Cl>HCO ₃	2
Mg 型	Mg>Ca>Na	1	HCO ₃ 型	HCO ₃ >Cl>SO ₄	4
				HCO ₃ >SO ₄ >Cl	2

※Naイオンが全陽イオンの95%以上、※※Clイオンが全陰イオンの95%以上

れなかったが、その他の調査項目ではすべて減少していた。特に、蒸発残留物、Na、Clが顕著であった。

3.2 pHについて

pH(湧出地)値は1以上変化したのは新相乗温泉(6.4から7.4)、秋元温泉(8.4から7.4)の2ヶ所であり、その他の源泉においては大きな経年変化は認められなかった。

3.3 蒸発残留物およびHCO₃⁻について

表8に蒸発残留物およびHCO₃⁻の経年変化を示した。

蒸発残留物は現状維持が12ヶ所、減少が15ヶ所、増加が3ヶ所であった。減少した15ヶ所中20%以上減少したところが6ヶ所あり、そのうちの5ヶ所はNa-塩化物泉であった。これらの源泉はいわゆる化石水の地下水であるため、長時間の過剰揚湯による衰退現象の可能性も考えられる^{15,16)}。今後、これらの源泉については定期的に調査する必要がある。

HCO₃⁻の増減は涵養地下水の流動状況を推察する重要な指標である。本調査では30源泉中22源泉において増加していた。このことはHCO₃⁻を多く含む地下水が混入していることを示している。特に、下山形温泉、松原温泉において顕著であった。

3.4 相関関係行列について

表9に示すように蒸発残留物とNa、Ca、Clとの間に高い相関関係が認められた。このことは従来より報告されているように蒸発残留物の変化は泉質変化を予測する重要な目安になることを示している。

一方、蒸発残留物とMg、SO₄、HCO₃とは1%の危険率で有位差が認められた。また、NaとCa、Cl間にも高い相関関係が認められた。

3.5 泉質経年変化の検討

(1) 泉質について

表10に今回調査した30源泉の泉質を示した。陽イオンではすべてNa型であった。一方、陰イオンでは、Cl型23ヶ所、HCO₃型6ヶ所、SO₄1ヶ所であった。本調査における津軽地域の温泉泉質は圧倒的にNa+Cl型が多く、ついでNa+HCO₃型、含Ca+SO₄型の順であった。

Na+Cl型の源泉は23ヶ所であるが、そのうち19ヶ所は

Na-塩化物泉であった。これらの多くは石油鉱床型の温泉でいわゆる石油母層といわれている泥岩層に包蔵されている¹⁵⁻¹⁸⁾。他の4ヶ所は単純温泉であった。

Na+HCO₃型はすべて単純温泉であった。これらの温泉は構造型といわれ¹⁸⁾、いずれも被圧性の深層地下水として包蔵されており、地下水の涵養が盛んであるため相互干渉にたいする配慮が必要であると報告されている^{15,16)}。

含Ca+SO₄型の多くは金属鉱床型の温泉であり¹⁸⁾、これらは緑色凝灰岩といわれる金属鉱床胚胎地層中に包蔵されるもので、石油鉱床型と同様に化石水の地下水の性格をもつため過剰揚湯には十分な注意が必要である¹⁵⁻¹⁷⁾。

(2) 主要イオン組成の変化

主要イオン組成の変化は表11、12に示した。陽イオン組成においては遠辺沢温泉ではCa²⁺型からNa⁺型に、新相乗温泉ではMg²⁺型からNa⁺型の泉質に移行していた。陰イオン組成においては藤崎温泉ではCl⁻型からHCO₃⁻型に、二所内温泉ではSO₄²⁻型からCl⁻型の泉質に変化していた。

これらイオン組成の変化は温泉水の移動にともない、HCO₃⁻に富む冷地下水の混入、還元によるHCO₃⁻の増加、冷地下水による希釈化にともなうCl⁻、SO₄²⁻の減少、Ca²⁺、Mg²⁺とNa⁺+K⁺との塩基置換作用などが行われていることを示している¹⁹⁻²²⁾。

(3) 療養泉泉質分類による泉質経年変化

調査対象30源泉のうち、変化が認められた5源泉について表13に示した。

十二湖キャニオン温泉では単純温泉から単純冷鉱泉になっていた。これは泉温が26℃から23℃に低下したため、遊離成分であるメタケイ酸(102.0mg/kg)のみを含有する鉱泉となった。従って、療養泉として認められない。

鱸作温泉では含CO₂-Na⁺-Cl⁻型からNa⁺-Cl⁻型の泉質に変化していた。これは遊離成分であるCO₂が著しく減少した(4,004から82.3mg/kg)ためである。これは火山性から海水性の泉質に移行したためと考えられる¹⁷⁾。

尾野病院温泉においては、含S-Na⁺-Cl⁻型からNa⁺-Cl⁻型に泉質変化していた。これは成分中のS(H₂S)が消失(3.1から0.0mg/kg)したためである。温泉成分に

表3 泉質調査結果（平成2年度）

（単位：pHを除くその他はmg/kg）

No.	源泉名	pH	蒸残	Na ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻	HCO ₃ ⁻	H ₂ SiO ₃	HBO ₂	CO ₂	H ₂ S
1	遠辺沢温泉 S39	6.0	5174	460.0	122.0	36.4	639.4	1220	807.4	1061.0	153.6	34.0	—	—
2	遠辺沢温泉 H2	6.6	4750	780.0	55.0	100.0	560.0	1276	700.0	1342.0	150.6	5.2	—	—
3	新相乗温泉 S41	6.4	731	21.0	2.5	70.7	78.8	53.2	387.6	73.2	69.5	6.4	—	—
4	新相乗温泉 H2	7.4	410	69.0	2.0	0.2	51.0	56.7	175.0	9.2	51.3	0.1	—	—
5	秋元温泉 S52	6.4	6913	2178	222.8	97.5	329.1	4002	225.0	518.9	77.0	44.2	—	25.9
6	秋元温泉 H2	6.2	7220	1920	270.0	108.0	370.0	3900	27.5	518.7	106.7	9.0	—	112.8
7	花岡温泉 S53	8.0	7307	264.0	86.0	3.6	82.0	4066	204.4	170.7	170.8	27.7	—	—
8	花岡温泉 H2	8.0	6420	242.0	94.0	1.6	97.0	3829	155.0	115.9	183.4	4.3	—	—
9	細田温泉 S53	8.9	899	289.5	8.6	0.2	5.6	262.1	65.8	249.2	164.9	7.9	—	—
10	細田温泉 H2	8.6	700	200.0	4.7	0.4	6.3	191.5	22.5	140.3	115.7	1.5	—	—
11	柏木温泉 S54	7.8	3649	1230	58.6	7.8	21.8	1581	493.0	158.8	194.1	22.1	—	—
12	柏木温泉 H2	7.6	2500	830.0	43.0	2.3	24.0	1099	260.0	115.9	156.7	2.8	—	—
13	吉菊温泉 S54	8.6	458	116.1	4.3	0.7	2.0	98.6	0.5	164.4	179.4	4.3	—	—
14	吉菊温泉 H2	8.7	460	116.0	5.7	0.1	3.0	109.9	0.0	100.7	142.3	0.4	—	—
15	藤崎温泉 S54	8.4	427	113.1	4.7	1.5	3.6	87.8	1.8	171.0	152.1	4.3	—	—
16	藤崎温泉 H2	8.2	410	101.0	4.7	0.2	3.4	85.1	2.0	103.7	126.7	24.0	—	—
17	猿賀温泉 S56	8.6	391	94.3	4.9	0.1	2.4	62.2	22.7	143.4	147.2	5.5	—	—
18	猿賀温泉 H2	8.6	380	89.0	3.5	0.2	3.0	56.7	5.0	103.7	121.0	0.3	—	—
19	大和温泉 S52	8.6	266	59.7	2.2	1.0	0.0	17.7	19.3	112.4	84.4	0.0	—	—
20	大和温泉 H2	8.6	290	64.0	3.0	0.1	3.0	21.2	5.0	94.6	129.3	0.1	—	—

（注：源泉名の末尾の数字は調査年度，—不検出）

表4 泉質調査結果 (平成3年度)

(単位: pHを除くその他はmg/kg)

No.	源泉名	pH	蒸残	Na ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻	HCO ₃ ⁻	H ₂ SiO ₃	HBO ₂	CO ₂	H ₂ S
21	舞戸温泉 S54	7.7	31540	8920	56.7	80.2	2556	18480	442.3	18.3	51.0	36.4	-	-
22	舞戸温泉 H3	7.4	31010	8500	62.0	30.0	2900	18960	460.0	21.4	57.0	7.0	-	-
23	新湯温泉2号泉 S54	7.4	3430	1172	15.6	15.1	24.0	913.6	880.6	592.5	131.3	33.4	-	-
24	新湯温泉2号泉 H3	7.6	3460	1150	13.7	15.0	11.8	939.5	927.9	399.7	95.0	27.0	-	-
25	十二瀬キャニオン温泉 S47	7.2	230	42.0	1.9	1.0	0.0	33.4	17.0	44.0	141.1	0.6	-	-
26	十二瀬キャニオン温泉 H3	7.2	220	37.0	1.6	0.1	0.0	31.2	14.0	34.2	102.0	0.0	-	-
27	船作温泉 S56	6.6	21270	6100	320.0	595.0	670.0	11010	1043	1617	114.5	33.3	4004	-
28	船作温泉 H3	7.2	19480	5500	280.0	525.0	520.0	10140	1293	1098	122.3	5.5	82.3	-
29	森田温泉 S47	6.6	4670	1680	125.0	29.0	48.2	1819	0.3	1814	198.2	15.2	-	-
30	森田温泉 H3	6.6	3930	1150	85.0	21.0	30.0	1276	0.0	1281	244.7	3.2	-	-
31	尾野病院温泉 S55	7.8	13930	5104	109.5	57.0	106.0	7793	320.0	678.0	117.0	83.2	-	3.1
32	尾野病院温泉 H3	7.4	13910	5100	116.0	50.0	100.0	7800	490.0	805.5	86.3	17.0	-	0.0
33	秋元観光温泉 S45	8.4	11340	4040	279.0	4.6	31.2	6263	0.8	500.0	170.8	123.0	-	-
34	秋元観光温泉 H3	7.4	9700	3500	150.0	11.0	16.0	4822	65.0	1709	114.3	15.6	-	-
35	稲垣温泉3号泉 S53	7.4	5790	2130	57.6	14.6	48.1	3198	201.3	213.4	186.3	29.1	-	-
36	稲垣温泉3号泉 H3	7.4	4280	1470	65.0	3.3	64.0	2305	110.0	263.4	130.0	4.7	-	-
37	大鱗温泉石原源泉 S57	7.1	1500	367.0	23.1	4.0	116.9	602.5	178.4	134.2	71.7	1.4	-	-
38	大鱗温泉石原源泉 H3	7.2	1340	313.3	23.0	2.2	103.0	498.0	190.0	152.6	47.3	3.1	-	-
39	大鱗温泉公民館源泉 S57	6.8	3730	1056	61.0	10.6	254.5	1590	682.5	189.2	96.4	6.1	-	-
40	大鱗温泉公民館源泉 H3	6.8	3410	907.0	65.0	9.3	230.0	1383	650.0	204.4	55.0	8.4	-	-

(注: 源泉名の末尾の数字は調査年度, - 不検出)

表5 泉質調査結果（平成4年度）

（単位：pHを除くその他はmg/kg）

No.	源泉名	pH	蒸残	Na ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻	HCO ₃ ⁻	H ₂ SiO ₃	HBO ₂	CO ₂	H ₂ S
41	青荷温泉 S49	7.4	320	71.1	2.3	0.9	14.4	72.0	74.7	59.9	53.4	14.0	-	-
42	青荷温泉 H4	7.7	310	73.0	1.6	0.6	13.0	63.8	70.0	51.9	43.8	8.5	-	-
43	下山形温泉 S56	8.0	860	260.2	15.9	5.8	3.0	153.9	25.3	448.5	155.4	16.2	-	-
44	下山形温泉 H4	8.2	770	140.0	10.0	0.7	2.5	30.0	14.0	390.5	162.9	6.5	-	-
45	鶴泉温泉 S60	7.6	1120	334.0	10.8	2.9	30.0	413.8	137.0	140.3	99.2	4.4	-	-
46	鶴泉温泉 H3	7.6	1190	200.0	10.0	2.6	32.0	354.6	120.0	122.0	94.8	25.5	-	-
47	大川原温泉 S50	8.0	210	59.7	0.3	0.5	0.0	15.2	33.3	94.2	16.9	0.0	-	-
48	大川原温泉 H4	8.9	240	38.0	0.6	0.0	0.4	23.9	24.0	45.8	75.6	2.0	-	-
49	二庄内温泉 S52	8.0	590	181.5	3.7	0.5	7.2	113.3	175.9	91.2	93.5	17.6	-	-
50	二庄内温泉 H4	8.0	570	126.7	3.7	0.0	7.6	113.5	115.0	82.4	87.3	15.0	-	-
51	富の湯温泉 S54	7.5	2640	892.0	31.3	11.2	20.0	1351	8.8	204.0	145.3	13.0	-	-
52	富の湯温泉 H4	7.4	2350	700.0	20.0	8.5	10.0	1064	13.0	183.1	139.5	7.3	-	-
53	弘前寒沢温泉 S44	8.8	4000	1314	3.0	13.9	21.2	2357	21.9	146.4	85.4	47.5	-	-
54	弘前寒沢温泉 H4	7.6	970	220.0	10.0	2.6	6.3	453.8	10.0	97.6	143.4	4.5	-	-
55	緑ヶ丘温泉 S51	7.4	8570	3257	36.6	29.3	72.3	4951	219.1	305.6	57.5	64.1	-	5.6
56	緑ヶ丘温泉 H4	8.0	5120	1800	20.0	13.0	34.0	2836	6.0	378.3	67.5	22.7	-	7.5
57	福土病院温泉 S46	7.5	250	52.0	4.0	0.7	2.8	17.0	0.0	140.3	144.9	0.0	-	-
58	福土病院温泉 H4	8.0	260	32.0	2.6	0.5	3.0	15.6	34.0	122.0	104.4	0.0	-	-
59	松原温泉 S54	8.4	2750	993.2	2.7	1.7	6.8	1349	25.3	348.4	70.7	21.0	-	5.8
60	松原温泉 H4	8.4	1920	670.0	3.2	1.2	2.2	850.9	12.0	408.8	29.0	17.4	-	0.0

（注：源泉名の末尾の数字は調査年度、-不検出）

表6 前回調査の基礎統計量 (30源泉, 30試料)

(単位 蒸残: g/kg, pHを除くその他: mg/kg)

変数	平均値	最大値	最小値	標準偏差	変動係数 (%)
1 pH (湧)	7.64	8.9	6.0	0.77	10.13
2 pH (試)	7.780	8.93	6.48	0.702	9.03
3 蒸残	4.8318	31.540	0.210	6.9543	143.93
4 Na	1442.24	8920.0	21.0	2116.73	146.77
5 K	55.88	320.0	0.3	83.76	149.90
6 Mg	36.60	595.0	0.1	108.61	296.75
7 Ca	173.24	2556.0	0.0	481.21	277.77
8 Cl	2464.88	18480.0	15.2	4018.22	163.02
9 SO ₄	223.83	1043.0	0.0	290.41	129.75
10 HCO ₃	253.41	1814.0	18.3	434.15	122.84

表7 今回調査の基礎統計量 (30源泉, 30試料)

(単位 蒸残: g/kg, pHを除くその他: mg/kg)

変数	平均値	最大値	最小値	標準偏差	変動係数 (%)
1 pH (湧)	7.67	8.9	6.2	0.67	8.76
2 pH (試)	7.828	9.16	6.25	0.702	8.97
3 蒸残	4.268	31.01	0.22	6.708	157.16
4 Na	1273.87	8500.0	32.0	1974.29	154.98
5 K	47.62	280.0	0.6	72.97	153.23
6 Mg	30.32	525.0	0.0	97.25	320.70
7 Ca	173.55	2900.0	0.0	535.67	308.66
8 Cl	2152.87	18960.0	15.6	3984.25	185.07
9 SO ₄	199.00	1293.0	0.0	317.32	159.46
10 HCO ₃	349.88	1709.0	9.2	445.04	127.20

表8 蒸発残留物および炭酸水素イオンの経年変化

(単位: %)

No.	源泉名	蒸残の増減	※HCO ₃ ⁻ の増減	No.	源泉名	蒸残の増減	※HCO ₃ ⁻ の増減
1	遠辺沢温泉	- (-8.2)	+ 5.2	16	尾野病院温泉	± (-0.1)	+ 0.7
2	新相乗温泉	- (-43.9)	+ 2.2	17	秋元観光温泉	- (-13.8)	+ 4.1
3	秋元温泉	± (+4.4)	+ 0.4	18	稲垣温泉3号泉	- (-26.1)	+ 2.8
4	花岡温泉	- (-12.2)	- 0.3	19	大鱈温泉石原源泉	± (-2.2)	+ 2.8
5	細田温泉	- (-12.1)	+ 6.9	20	大鱈温泉公民館源泉	- (-8.6)	+ 1.0
6	柏木温泉	- (-31.5)	- 0.3	21	青荷温泉(龍神の湯)	± (-3.1)	- 0.1
8	藤崎温泉	± (-4.0)	+ 8.0	22	下山形温泉	- (-10.5)	+25.7
9	猿賀温泉	± (-2.6)	+ 6.1	23	鶴泉温泉	+ (+5.9)	+ 0.7
10	大和温泉	+ (+8.3)	+ 5.1	24	大川原温泉	+ (+12.5)	- 4.2
11	舞戸温泉	± (+1.7)	+ 0.1	25	二庄内温泉	± (-3.4)	+ 1.9
12	新湯温泉2号泉	± (+4.3)	+ 6.6	26	富の湯温泉	- (-11.0)	+ 6.8
13	十二湖キャニオン温泉	± (-4.3)	- 3.4	27	弘前寒沢温泉	- (-75.7)	+ 7.5
14	舩作温泉	- (-8.4)	- 2.0	28	緑ヶ丘温泉	- (-40.3)	+ 3.9
15	森田温泉	- (-15.8)	+ 0.1	29	福士病院温泉	± (+3.8)	-16.1
				30	松原温泉	- (-30.2)	+12.2

※HCO₃⁻の増減は主要陰イオン当量比中のHCO₃⁻%

表9 相関関係行列 (1) (30源泉, 60試料)

変数	1 pH (湧)	2 pH (試)	3 蒸残	4 Na	5 K
1 pH (湧)	1.0000	0.8917**	-0.2470	-0.1726	-0.4652**
2 pH (試)	0.8917**	1.0000	-0.3795**	-0.3090*	-0.5639**
3 蒸残	-0.2470	-0.3795**	1.0000	0.9791**	0.5882**
4 Na	-0.1726	-0.3090*	0.9791**	1.0000	0.5633**
5 K	-0.4652**	-0.5639**	0.5882**	0.5633**	1.0000
6 Mg	-0.3407**	-0.4154**	0.5389**	0.4928**	0.6956**
7 Ca	-0.2259	-0.3051*	0.8293**	0.7407**	0.2317
8 Cl	-0.1949	-0.3298*	0.9942**	0.9758**	0.5421**
9 SO ₄	-0.4761**	-0.4704**	0.4995**	0.4518**	0.4428**
10 HCO ₃	-0.4635**	-0.5357**	0.3277*	0.3283*	0.6303**

表9 相関関係行列 (2) (30源泉, 60試料)

6 Mg	7 Ca	8 Cl	9 SO ₄	10 HCO ₃
-0.3407**	-0.2259	-0.1949	-0.4761**	-0.4635**
-0.4154**	-0.3051*	-0.3298*	-0.4704*	-0.5357**
0.5389**	0.8293**	0.9942**	0.4995**	0.3277*
0.4928**	0.7407**	0.9758**	0.4518**	0.3283*
0.6956**	0.2317	0.5421**	0.4428**	0.6303**
1.0000	0.2616*	0.4872**	0.6469**	0.5136**
0.2616*	1.0000	0.8426**	0.3608**	0.0382
0.4872**	0.8426**	1.0000	0.4300**	0.2454**
0.6469**	0.3608**	0.4300**	1.0000	0.3861**
0.5136**	0.0382	0.2454	0.3861**	1.0000

(** : $\gamma > 0.3301$ は, 危険率1%で有意)

(* : $\gamma > 0.2542$ は, 危険率5%で有意)

表10 主要イオン組成 (今回調査)

陽イオン			陰イオン		
イオン型	イオン組成	件数	イオン型	イオン組成	件数
Na型	Na※ Na>Ca>Mg Na>Mg>Ca	5 20 5	Cl型	Cl※※	2
				Cl>HCO ₃ >SO ₄	15
				Cl>SO ₄ >HCO ₃	6
			SO ₄ 型	SO ₄ >Cl>HCO ₃	1
				HCO ₃ 型	HCO ₃ >Cl>SO ₄
HCO ₃ >SO ₄ >Cl	1				

※Naイオンが全陽イオンの95%以上, ※※Clイオンが全陰イオンの95%以上

表11 主要陽イオン組成の経年変化

源泉名	組成変化
遠辺沢温泉	Ca>Na>Mg→Na>Ca>Mg
新相乗温泉	Mg>Ca>Na→Na>Ca>Mg
大和温泉	Na>Mg>Ca→Na>Ca>Mg
森田温泉	Na>Ca>Mg→Na>Mg>Ca
秋元温泉	Na>Ca>Mg→Na>Mg>Ca
寒沢温泉	Na>Mg>Ca→Na>Ca>Mg

備考: 各イオンは当量比

表12 主要陰イオン組成の経年変化

源泉名	組成変化
藤崎温泉	HCO ₃ >Cl>SO ₄ →Cl>HCO ₃ >SO ₄
二所内温泉	SO ₄ >Cl>HCO ₃ →Cl>SO ₄ >HCO ₃
新相乗温泉	SO ₄ >HCO ₃ >Cl→SO ₄ >Cl>HCO ₃
鱸作温泉	Cl>HCO ₃ >SO ₄ →Cl>SO ₄ >HCO ₃
稲垣温泉	Cl>SO ₄ >HCO ₃ →Cl>HCO ₃ >SO ₄
大川原温泉	HCO ₃ >SO ₄ >Cl→HCO ₃ >Cl>SO ₄
富士病院温泉	HCO ₃ >Cl>SO ₄ →HCO ₃ >SO ₄ >Cl

備考: 各イオンは当量比

表13 療養泉泉質分類による泉質の経年変化

源 泉 名	泉 質 名 の 変 化
十二湖キャニオン温泉	単純温泉→単純冷鉱線
鱸 作 温 泉	含CO ₂ -Na ⁺ -Cl ⁻ →Na ⁺ -Cl ⁻
尾野病院温泉	含S-Na ⁺ -Cl ⁻ →Na ⁺ -Cl ⁻
弘前寒沢温泉	Na ⁺ -Cl ⁻ →単純温泉
松 原 温 泉	含S-Na ⁺ -Cl ⁻ →Na ⁺ -Cl ⁻ ・HCO ₃ ⁻

ついてみると、SO₄、HCO₃の増加、HBO₂の減少していることから、この温泉はいわゆる化石水的地下水であるため、温泉水の補給機能が劣り、長期間の揚湯により温泉水の供給源が変化し、新たな地下水が混入したものと推察される。

弘前寒沢温泉では蒸発残留物が著しく減少し(4,000から970mg/kg)、Na-塩化物泉から単純温泉に泉質変化していた。これは蒸発残留物、陽および陰イオン成分等の変化から推察すると、湧出経路において大量の地下水が混入して淡水化したものと考えられる。

松原温泉においては、含S-Na⁺-Cl⁻型からNa⁺-Cl⁻・HCO₃⁻型の泉質に変化していた。これはS (H₂S) の消失(5.8から0.0mg/kg)およびHCO₃⁻が増加(348.4から408.8 mg/kg)したためである。Sの消失は前述の尾野病院温泉と同様なメカニズムと思われる。また、HCO₃⁻の増加はHCO₃⁻の豊富な冷地下水の混入、還元によるHCO₃⁻の増加等によるものと予測される。

これら5源泉は療養泉の泉質が変化したため、浴用、飲用に際しての適応症、禁忌症が異なってくる。従って、

早急に再調査する必要がある。

(4) 七角ダイアグラムによる泉質変化の検討

主要陽イオン (Na⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺) と陰イオン (Cl⁻, SO₄²⁻, HCO₃⁻) の含有量、組成パターンの変化をみるため、図2, 3, 4に示すように七角ダイアグラムを作成した。比較のために、海水、地下水についても作成した。寒沢温泉では海水型から地下水型に移行していた。緑ヶ丘および松原温泉は海水型から地下水型に移行する可能性がある。

(5) トリリニャーダイアグラムによる泉質変化の検討

図5, 表13にトリリニャーダイアグラムによる泉質経年変化を示した。トリリニャーダイアグラムの特徴は水質組成を領域区分できることである。それぞれの領域に属する試料は次のような組成をもつ。

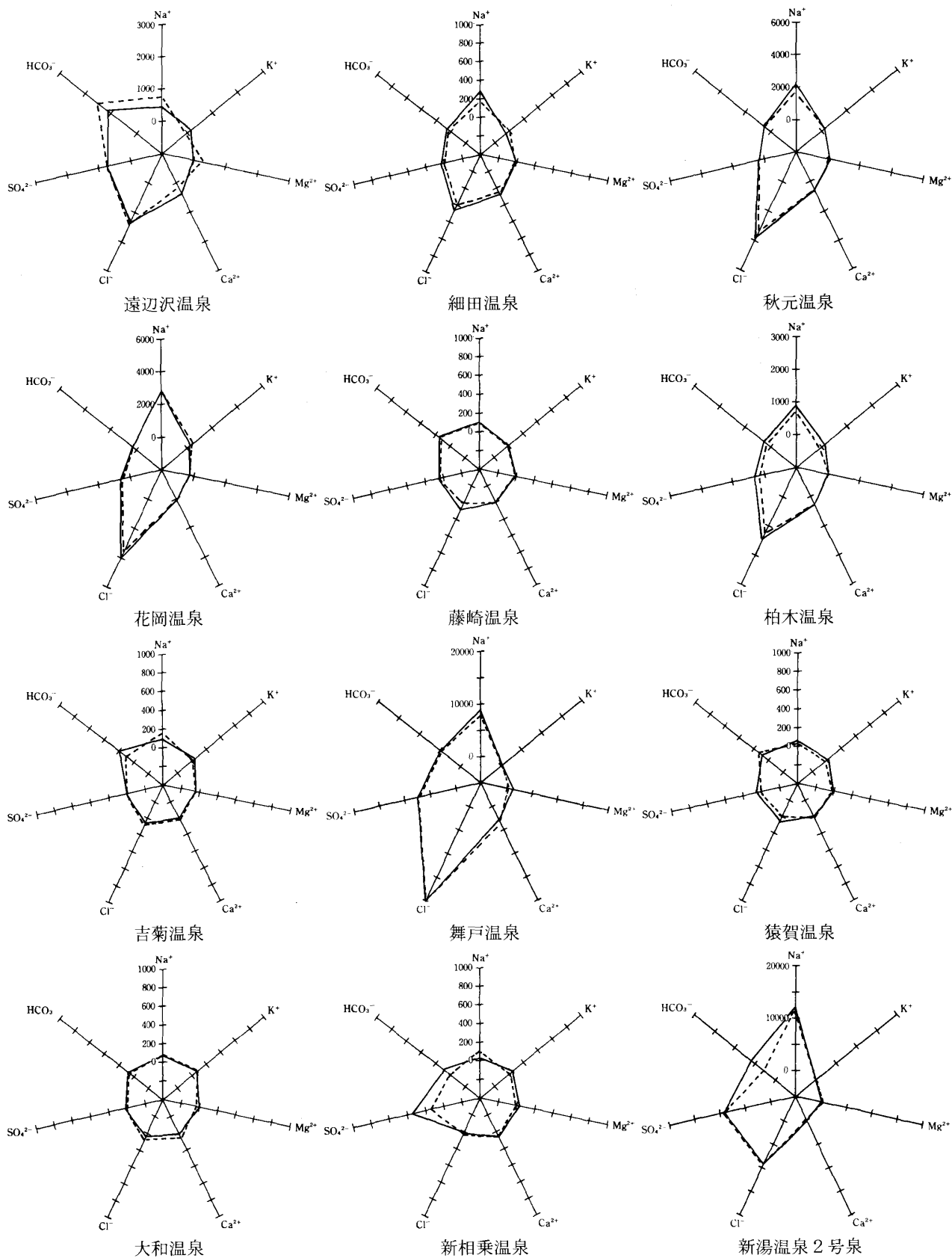
- I アルカリ土類重炭酸塩 [Ca(HCO₃)₂型]
- II アルカリ重炭酸塩 (NaHCO₃型)
- III アルカリ土類非重炭酸塩 (CaSO₄又はCaCl型)
- IV アルカリ非炭酸塩 (NaCl型)

普通の淡水はI, IIとこれに接する領域にあり、IIは

表14 トリリニャーダイアグラムによる泉質の経年変化

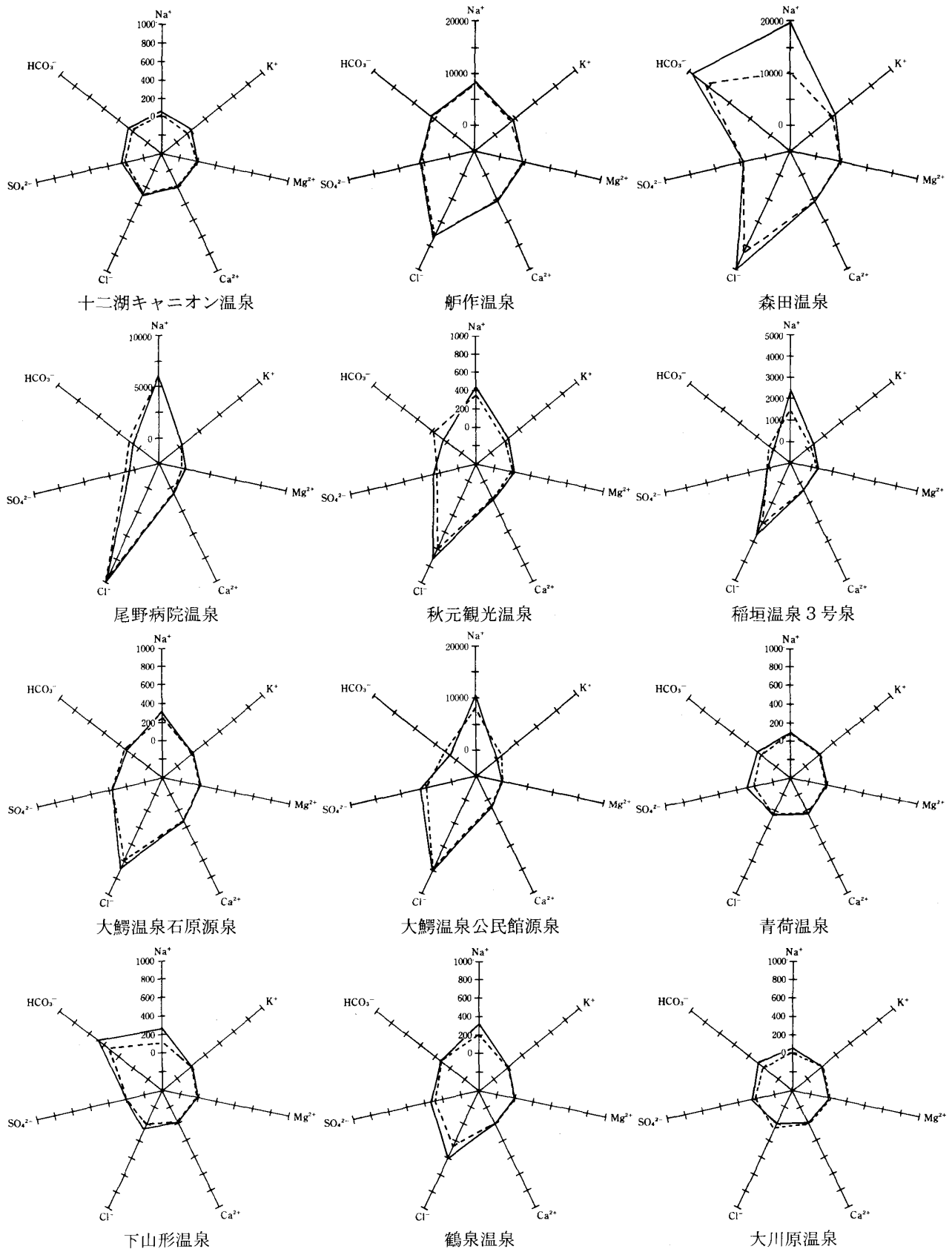
No.	源 泉 名	最近のパターン	過去のパターン	No.	源 泉 名	最近のパターン	過去のパターン
1	遠 辺 沢 温 泉	▲	▲	16	尾野病院温泉	○	○
2	新 相 乗 温 泉	○	▲	17	秋 元 観 光 温 泉	○	○
3	秋 元 温 泉	○	○	18	稲 垣 温 泉 3 号 泉	○	○
4	花 岡 温 泉	○	○	19	大 鱈 温 泉 石 原 源 泉	○	○
5	細 田 温 泉	○	○	20	大 鱈 温 泉 公 民 館 源 泉	○	○
6	柏 木 温 泉	○	○	21	青 荷 温 泉 (龍 神 の 湯)	○	○
7	吉 菊 温 泉	○	○	22	下 山 形 温 泉	●	●
8	藤 崎 温 泉	●	●	23	鶴 泉 温 泉	○	○
9	猿 賀 温 泉	●	●	24	大 川 原 温 泉	●	●
10	大 和 温 泉	●	●	25	二 庄 内 温 泉	○	○
11	舞 戸 温 泉	○	○	26	富 の 湯 温 泉	○	○
12	新 湯 温 泉 2 号 泉	○	○	27	弘 前 寒 沢 温 泉	○	○
13	十二湖キャニオン温泉	○	○	28	緑ヶ丘温泉	○	○
14	鱸 作 温 泉	○	○	29	福 士 病 院 温 泉	○	○
15	森 田 温 泉	○	○	30	松 原 温 泉	○	○

● : II (NaHCO₃型), ▲ : III (Ca(HCO₃)₂型), ○ : IV (NaCl型)



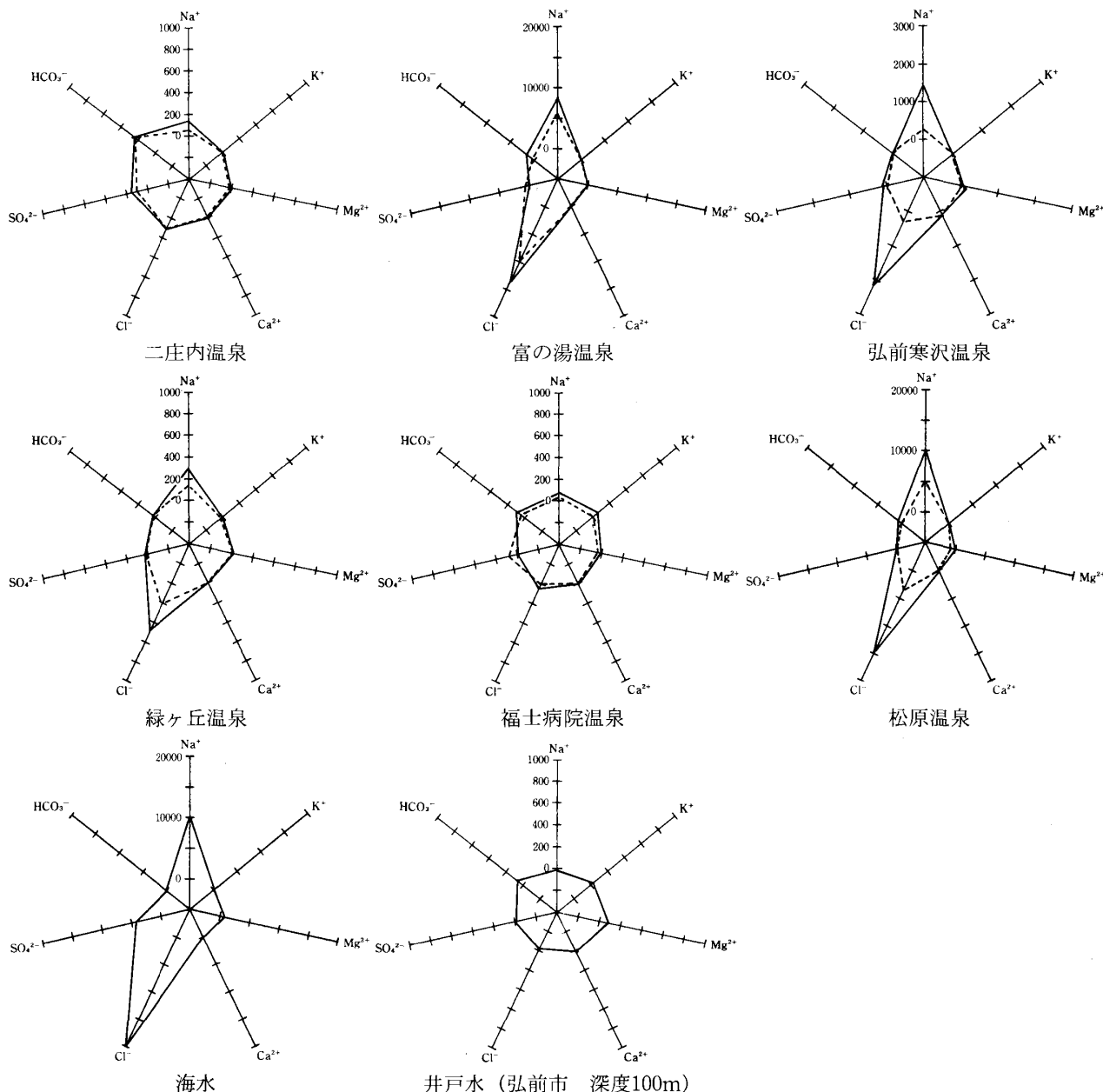
(注1 単位：mg/kg
 注2 ー：前回測定値，---：平成2～3年測定値)

図2 調査対象源泉の七角ダイヤグラム



(注1 単位：mg/kg
 注2 ー：前回測定値，---：平成3～4年測定値)

図3 調査対象源泉の七角ダイヤグラム



(注1 単位：mg/kg
 注2 ー：前回測定値，---：平成4年測定値)

図4 調査対象源泉の七角ダイヤグラム

被圧地下水の性質をもつ水が多い。またⅢは鉱山、火山性の水に多くみられるタイプであり、Ⅳは化石水的性質、その典型が海水である²²⁾。

前回調査した30源泉について、この領域区分で分類すると、Ⅱは5源泉、Ⅲは2源泉、Ⅳは23源泉であった。また、地質学的にみるとAは金属鉱床型、Bは石油鉱床型、Cは構造型のグループに分類される。

泉質経年変化についてみると新相乗温泉ではⅢからⅣ領域に移行していた。また、遠辺沢温泉はⅢからⅣ領域に移行する可能性がある。

なお、今回は調査検体が少ないため、因子分析法、クラスター分析法等の数値処理を行わなかった。今後、岩木山周辺地域、五所川原市地域等の調査成績を加えて、津軽地域の温泉泉質経年変化の因子推定を行う予定である。

温泉中の化学成分が経時的に変化することはよく知られている。即ち降雨、気圧、海水位、地下水位、揚水状況などの経時変化が湧水量の変化として表れ、それが温泉水に地下水や海水などの混合比を変化させ溶存成分が変化する。しかし湧出量の変化と溶存物質との関連は非

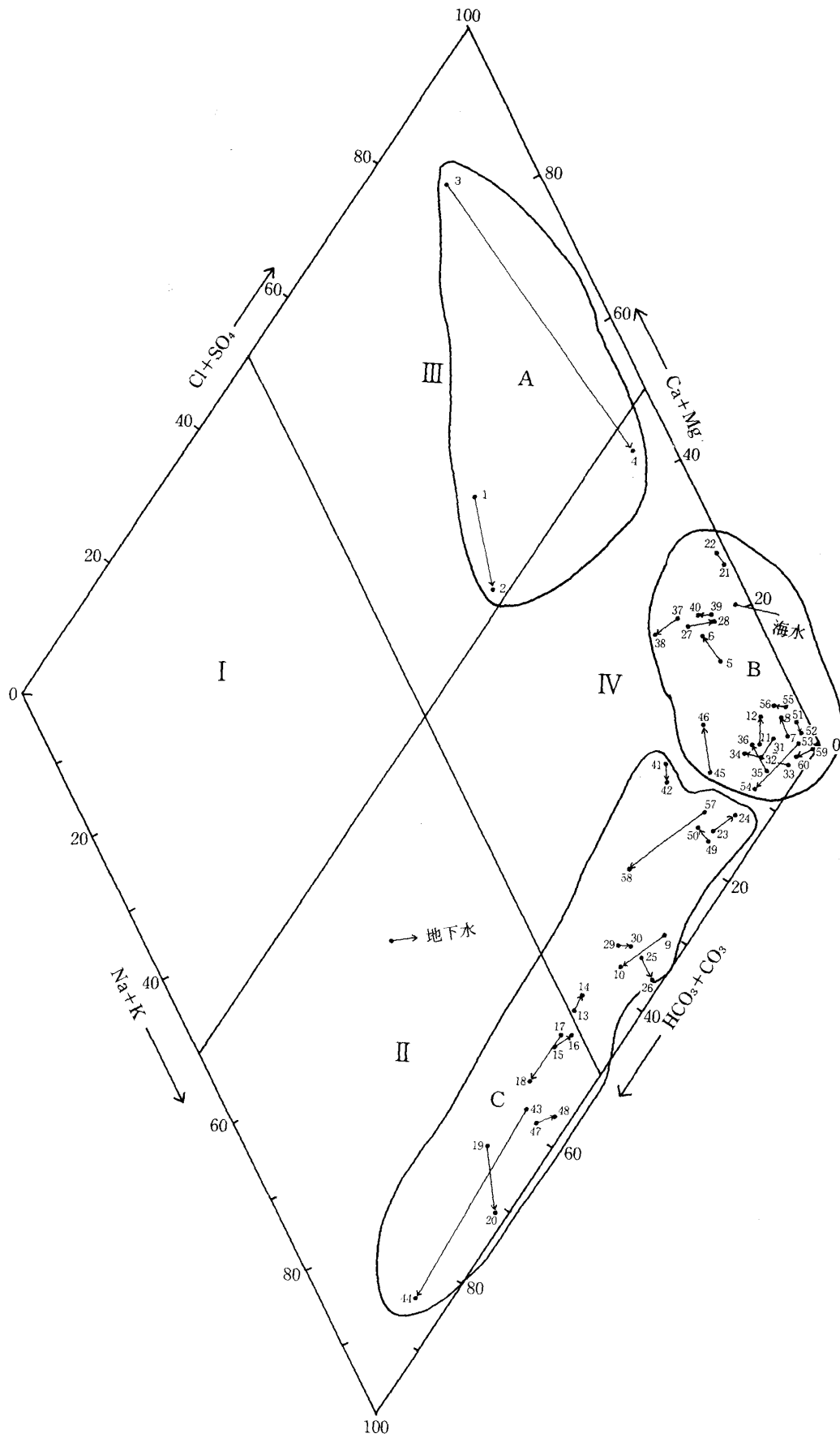


図5 トリリニャーダイヤグラムの領域区分 (meq・%)

常に複雑でいまだに不明な点が多いとされている²³⁾。

一方、温泉の泉質は経年的にも変化する。その大きな原因は温泉開発に伴う乱掘、過剰揚水等により地下の流動状況や地下水との混合比が変化して泉質を変化させることが挙げられる。このような例は温泉の衰退現象として全国的に問題になっている。

本調査では30源泉中5源泉に療養泉泉質変化が認められた。また、化学成分が大きく変化し、泉質変化の可能性のある源泉が数列認められた。

本成績のみで、これらの泉質変化が温泉の衰退現象の結果であると結論づけることは困難である。しかし、これら源泉についてはその可能性が高いため、今後は定期的に調査する必要がある。

4. ま と め

津軽地域に湧出する30ヶ所の源泉について、温泉泉質経年変化調査を行った。その結果は次のとおりである。

- (1) 5源泉において療養泉泉質の経年変化が認められた。これら源泉では、浴用、飲用に際しての適応症、禁忌症が異なるため早急に再調査する必要がある。
- (2) 6源泉において蒸発残留物量が20%以上減少していた。これらの源泉の殆どはいわゆる化石水の地下水であり、今後、温泉水の過剰揚湯等による温泉衰退現象を起こす可能性がある。
- (3) 蒸発残留物質と Na^+ 、 Ca^{2+} 、 Cl^- 間に高い相関関係が認められた。また、 pH 、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 SO_4^{2-} のあいだにも危険率1%で有意の差が認められた。これらのことから、蒸発残留物量の変化は泉質経年変化を予測するための目安になる。
- (4) 津軽地域の温泉泉質は、概括的には Na^+ + Cl^- 型、 Na^+ + HCO_3^- 型、含 Ca^{2+} + SO_4^{2-} に大別される。
- (5) 七角ダイヤグラムを用いて泉質変化を検討した。その結果、1源泉で海水型から地下水型に移行していた。
- (6) トリリニヤーダイヤグラムを用いて水質区分による経年変化について検討した。その結果、1源泉に水質区分領域の移行が認められた。

本調査にあたり種々のご協力をいただいた県自然保護課、各保健所の担当職員の方々および数値処理に協力していただいた当所の三上一主任研究員に厚く謝意を表します。

文 献

- 1) 環境庁自然保護局施設整備課：都道府県別温泉利用状況(平成4年3月末現在)
- 2) 益子安、他：温泉水の過剰摂取と枯湯現象について(その2) - 湯ヶ島温泉および周辺地域の温泉につ

いて - 温泉工学誌, 11, 1-22, 1976.

- 3) 辻沢広、他：白浜温泉の経年変化について。和歌山県衛生研究所年報, 24, 63-69, 1978.
- 4) 渡辺啓司、他：県内温泉の衛生化学的研究(1). 東山温泉の泉質について。福島県衛生公害研究所報, 27, 49-57, 1979.
- 5) 田中勝美、他：滋賀県における温泉の泉質について。滋賀県立環境衛生センター, 16, 120-125, 1981.
- 6) 高橋政教、他：青森県の温泉経年変化について(第一報), 青森県衛生研究所報, 18, 33-37, 1982.
- 7) 高橋政教、他：青森県の温泉経年変化について(第二報), 青森県衛生研究所報, 19, 28-32, 1982.
- 8) 野村真美、他：青森県の温泉経年変化について(第三報), 青森県衛生研究所報, 21, 28-33, 1984.
- 9) 秋山由美子、他：青森県の温泉経年変化について(第四報), 青森県衛生研究所報, 23, 22-26, 1986.
- 10) 小林繁樹、他：青森県の温泉経年変化について(第五報), 百沢地域温泉の現状と経年変化, 青森県衛生研究所報, 24, 18-23, 1987.
- 11) 小林繁樹、他：青森県の温泉経年変化について(第六報), 青森県衛生研究所報, 25, 28-33, 1988.
- 12) 石塚伸一、他：青森県の温泉経年変化について(第七報), 一多変量解析法による八甲田山地域温泉群の比較及び経年変化の検討 - 青森県衛生研究所報, 26, 11-34, 1989.
- 13) 石塚伸一、他：青森県の温泉経年変化について(第八報), 一小川原湖周辺地域温泉群の泉質経年変化の検討 - 青森県環境保健センター研究報告, 1, 44-60, 1990.
- 14) 環境庁自然保護局監修：鉱泉分析法指針(改訂), 温泉工学会, 1978.
- 15) 岩井武彦：青森県弘前盆地地域における温泉群の研究, 19-27, 青森県環境保健部, 1980.
- 16) 岩井武彦：青森県津軽平野地域における温泉群の研究, 20-25, 青森県環境保健部, 1978.
- 17) 青森県環境保健部：西津軽群地域の温泉ゆう出地基礎調査報告書, 2-9, 1985.
- 18) 岩井武彦：本県の温泉地質の概要について, 6-9, 青森県環境保健部, 1981.
- 19) 酒井軍治朗、他：岩木山麓温泉群の研究, 40-50, 青森県環境保健部, 1963.
- 20) 酒井軍治朗、他：地下水学, 359, 朝倉書店, 東京, 1965.
- 21) 半谷高久、他：水質調査法(改訂2判), 37-38, 丸善, 東京, 1987.
- 22) 地下水ハンドブック編集委員会編：地下水ハンドブック, 367, 建設産業調査会, 東京, 1979.

Abstract

**Lapse of Years of Water of Hot Springs in Aomori Prefecture
— Lapse of Years of Water in a Group
of Hot Springs in Tsugaru Area —**

Masanori TAKAHASHI, Hiroaki HIRAIDE, Atsuko MURAKAMI
Masami NOMURA and Miyoko IMAI

To utilize fairly hot springs and protect fountainhead, we have studied the lapse of years of water of hot springs. In this paper, we surveyed about them at 30 fountainheads in more than 10 years since spring in the Tsugaru area. The results showed the lapse of years of water was observed in 5 headsprings under classification of water quality of hot springs for balneotherapy. By means of heptadiagram, a headsprings changed from sea water to underground type. With trying again trilineardiagram to the water division, a fountainhead was found to move the section of water quality. It is difficult to conclude from only the results in this paper that the change of water quality of hot springs is depend on the degeneration phenomena of hot springs by too many sink and excess pumping hot water with the development of hot springs, but we could think it's ability, then will have to do a periodical inspection.

Key words : hot springs, lapse of years, Tsugaru area, heptadiagram,
trilineardiagram

GC/MSを用いた水質・底質中化学物質の測定

石塚 伸一 早狩 進

現在、化学物質の検索、微量分析の手段として広く用いられているGC/MS分析法を十三湖の水質・底質試料に適用したところ、次のとおりであった。

水質からはp-ジクロロベンゼン (5~19ng/l) が検出された。

底質からは、HCB (0.11ng/g·dry), p,p'-DDE (1.5~2.7ng/g·dry), p,p'-DDD (4.3~11ng/g·dry), o-ジクロロベンゼン (0.7~1.3ng/g·dry), p-ジクロロベンゼン (2.2~2.9ng/g·dry), m-ターフェニル (0.38~0.42ng/g·dry), p-ターフェニル (0.18~0.23ng/g·dry), ベンゾ(a)ピレン (6.1~8.3ng/g·dry) が検出された。

これら化学物質の濃度は、全国的に低いレベルであり、問題となる濃度レベルではなかった。

また、底質抽出液のマススペクトル及びPTRIから、前述の8物質の他にDiocetyl Adipate, B(e)p, Peryleneが検索された。

Key words : chemical substance, water and sediment, Lake Jusan, GC/MS

1. はじめに

GC/MS分析法は、化学物質の検索、微量分析、多成分同時分析の手段として極めて有効であり、最近、環境測定に広く使われてきている。一方、環境中の化学物質濃度は非常に低いレベルであることから、分析操作全体の精度管理が要求されている。

このため、GC/MS分析の基礎的な検討を行い、その結果を前報¹⁾において報告した。

今回、それらの検討結果を踏まえ、GC/MS分析法を水質・底質試料に適用したので、その結果を報告する。

2. 方 法

2.1 試薬、器具、装置、調査対象物質

既報¹⁾のとおりである。

2.2 試料採取地点

水質・底質試料採取地点は、当所管内の最大河川である岩木川の河口部にあたる十三湖(中央)である。

試料採取地点を図1に示す。

2.3 試料採取年月日：平成3年11月7日

平成4年10月13日

試料採取は、秋期の比較的晴天が続き、水質が安定している日に行った。

2.4 試料の前処理

試料の採取方法、保存方法は既報¹⁾のとおりである。

水質・底質モニタリング調査マニュアル(1991)²⁾に従っ

て試料の前処理を行った。前処理のフローシートを図2に示す。

カラムクロマト溶出試験の結果は、表1、図3のとおりである。

2.5 GC/MS測定条件

カラム温度、ヘリウム流量、イオン化法、イオンマルチ電圧、測定物質、内標準物質、サロゲート化合物の質量数等のGC/MS測定条件は既法¹⁾のとおりである。GC/MS/SIMの分析パラメータは表2のとおりである。混合

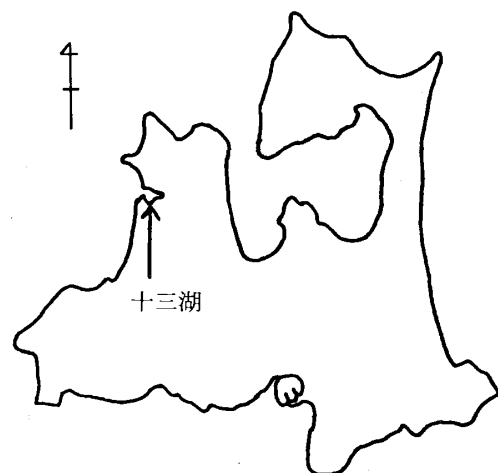


図1 試料採取地点

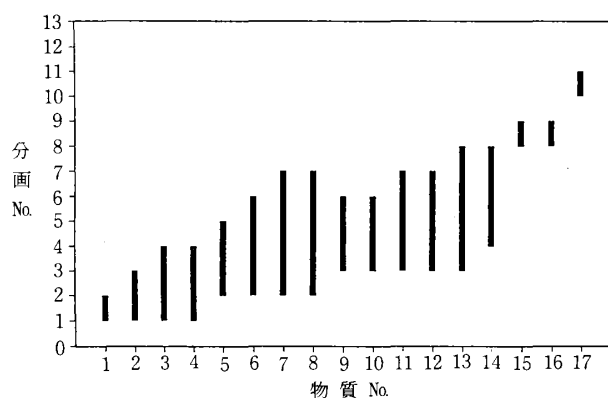
表1 カラムクロマト溶出率

(単位：%)

No.	物質名	No.1	No.2	No.3	No.4	No.5	No.6	No.7	No.8	No.9	No.10	No.11	No.12
1	HCB	77.9	22.1										
2	p,p'-DDE	40.1	58.4	1.5									
3	t-Nonachlor	8.1	47.8	35.1	9.0								
4	p,p'-DDT	4.4	57.4	36.0	2.1								
5	c-Chlordane		3.5	38.0	48.5	10.0							
6	t-Chlordane		6.0	23.7	44.8	22.8	2.7						
7	m-Terphenyl		0.7	12.4	44.4	35.7	6.4	0.5					
8	o-Terphenyl		2.3	20.7	47.8	25.5	3.3	0.3					
9	B(a)P			12.5	59.0	25.8	2.7						
10	BHT			38.6	49.5	11.4	0.5						
11	p,p'-DDD			3.1	22.9	52.2	16.8	5.0					
12	p-Terphenyl			4.4	31.0	48.2	13.5	2.9					
13	c-Nonachlor			1.5	11.0	34.2	29.8	17.6	6.0				
14	α -HCH				4.5	40.7	35.1	17.0	2.7				
15	Dieldrin								26.6	73.1	0.3		
16	β -HCH								33.7	66.3			
17	TBP										93.1	6.9	

注1) 分画量 10ml

注2) 溶離液 No.1～No.2 ヘキサン
 No.3～No.7 1%アセトン含有ヘキサン
 No.8～No.12 10%アセトン含有ヘキサン



注) 物質No.は表1のNo.に対応している

図3 カラムクロマト溶出試験結果

標準溶液のTICクロマトグラムは、図4のとおりである。

3. 結果及び考察

3.1 試料採取地点の概要

十三湖は、青森県津軽半島の西北部に位置する汽水湖である。その湖面積は約18km²、最大水深は3m、平均水深は0.75m、湖容積は約2.3×10⁷m³、湖岸延長は26.4kmである。湖内には、津軽平野を北流する岩木川のほか、中小数河川が流入し日本海へと続いている。

湖内では、しじみ漁を主とした内水面漁業が行われて

いる。

十三湖に流入している最大の河川である岩木川は、鯉ヶ沢町と西目屋村に境をなす櫛石山(標高764.4m)に源を発し、浅瀬石川、平川と合流して津軽地域を北上し、十三湖を経て日本海に注ぐ一級河川であり、津軽地域を代表する河川である。

岩木川の流域は、弘前市、黒石市、五所川原市等3市11町10村にまたがっており、その流域面積は2,540km²(十三湖を含む)(水田面積率15.7%、畑面積率8.6%、山林面積率56.6%、その他19.1%)、流域人口は49万4千人(平成元年10月1日現在)、幹川流路延長は102kmである。

流域には、水田、りんご畑が広がっており、また、農村工業団地(電子機器関係工場等が立地している)が数カ所散在している。

3.2 試料採取当日における調査地点の状況

試料採取時における天候等は、表3のとおりである。

3.3 試料採取時における水質・底質の状況

試料採取時における水質・底質の状況は表4、表5のとおりである。

3.4 調査対象物質の用途

調査対象物質の主な用途を表6に示す。

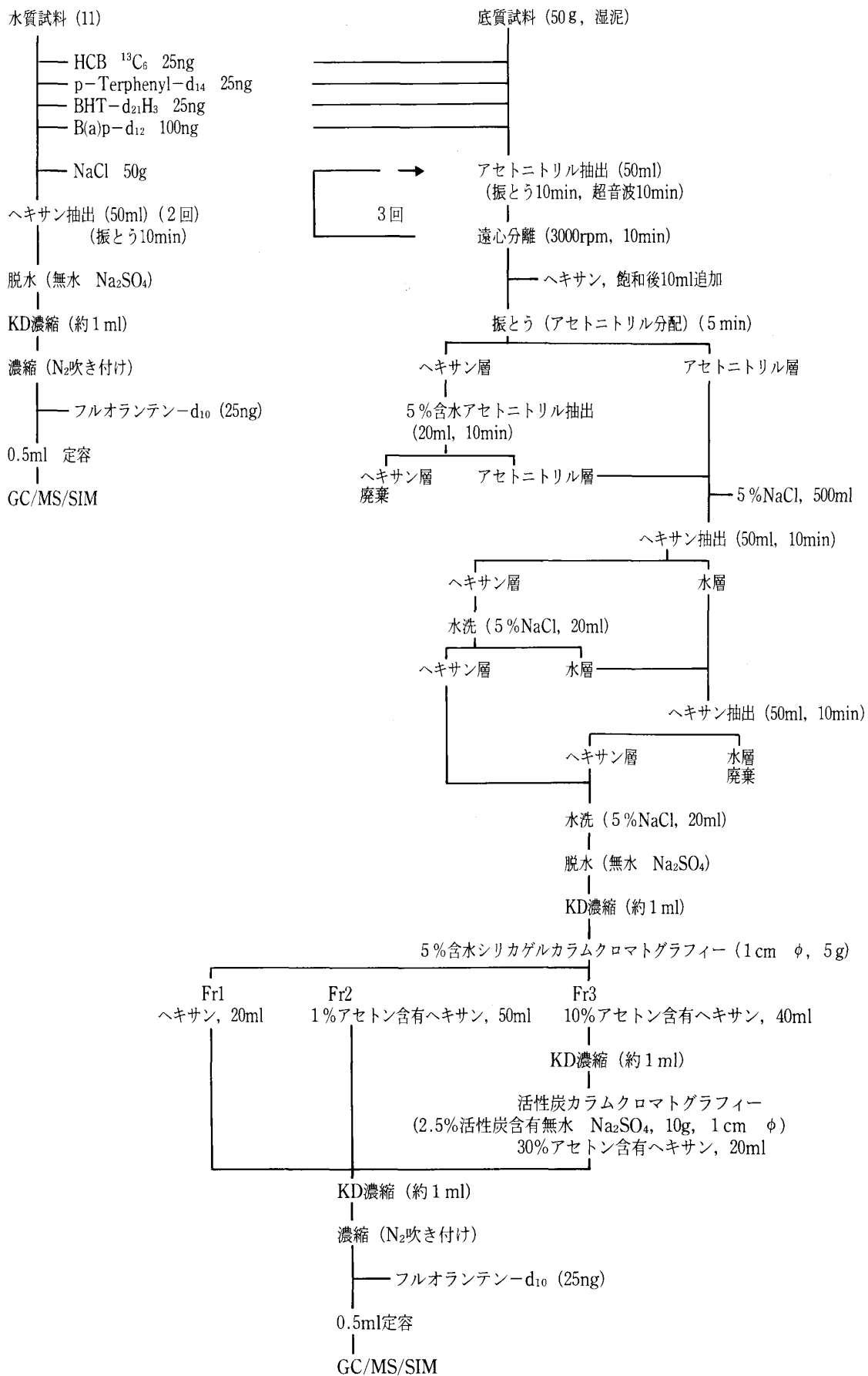


図2(1) 分析フローシート (ジクロロベンゼン類以外)

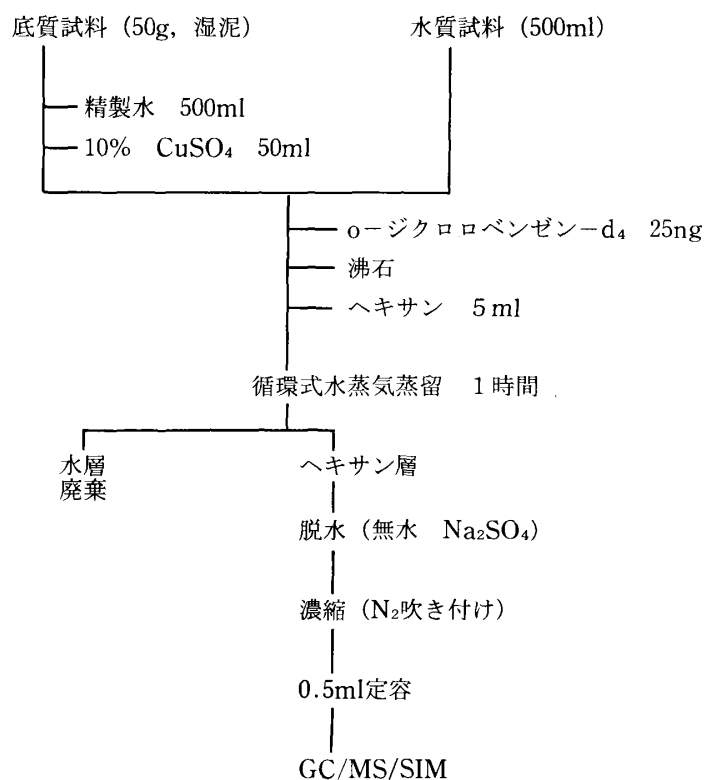


図2(2) 分析フローシート (ジクロロベンゼン類)

表2 SIMパラメータテーブル

IonSet	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Time	9.50	14.50	21.00	23.50	24.61	27.01	29.01	31.27	32.09	33.08	39.00
	{	{	{	{	{	{	{	{	{	{	{
	12.50	16.50	23.00	24.60	27.00	29.00	31.26	32.08	33.07	34.80	42.00
m/z	146.0	136.0	222.3	99.0	180.9	230.1	212.1	246.0	235.0	235.0	264.2
	152.0		205.2	211.1	289.8		372.8	244.2	408.8		252.1
					283.8		230.1	230.1			
							408.8	262.9			

注1) フィラメントoff時間：9.20min

注2) Rate：3

3.5 水質測定結果

試料31を十分混合した後、試料A, B各1l (ジクロロベンゼン類については各500ml) を分析した。2つの測定値が許容差¹⁾の範囲内にあることを確認し、その2つの測定値の平均値を試料の濃度とした。

水質の測定結果を表7に示す。

調査対象20物質のうち、p-ジクロロベンゼンのみが5～19ng/l検出された。

表3 試料採取時における天候等

調査年月日	H 3. 11. 7	H 4. 10. 13
天候	晴	晴
気温 (°C)	14.0	16.0
水温 (°C)	10.5	15.8
透明度 (cm)	55	95
水深 (m)	1.92	2.00
色相	微褐色	微褐色

表4 試料採取時における水質の状況

項目	H. 3. 11. 7	H. 4. 10. 13
pH	7.5	8.3
COD (mg/l)	3.7	5.4
SS (mg/l)	4.6	10

表5 試料採取時における底質の状況

項目	H. 3. 11. 7	H. 4. 10. 13
性状	泥状, 黒色	泥状, 黒色
泥温 (°C)	11.8	17.0
含水率 (%)	53.0	48.9
熱灼減量 (%)	9.4	8.1

表6 調査対象物質の用途

物質名	主な用途
HCB	農薬, 殺虫剤, 化学合成品の原料
ディルドリン	殺虫剤, 農薬
p,p'-DDE	DDTの環境中の分解産物
p,p'-DDD	DDTの環境中の分解産物
p,p'-DDT	殺虫剤
trans-クロルデン	白蟻防除剤
cis-クロルデン	白蟻防除剤
trans-ノナクロル	白蟻防除剤
cis-ノナクロル	白蟻防除剤
α-HCH	農薬, 殺虫剤
β-HCH	農薬, 殺虫剤
o-ジクロロベンゼン	殺虫剤, 染料の中間体
m-ジクロロベンゼン	殺虫剤, 染料の中間体
p-ジクロロベンゼン	殺虫剤, 染料の中間体
BHT	酸化防止剤, プラスチック老化防止剤
o-ターフェニル	熱媒体
m-ターフェニル	熱媒体
p-ターフェニル	熱媒体
リン酸トリブチル	安定剤, 可塑剤, 繊維加工用消泡剤
ベンゾ(a)ピレン	燃焼生成物

ジクロロベンゼン類は、有機溶媒、殺虫剤等として広い用途に用いられている。

平成3年度における「水質・底質モニタリング調査(環境庁保健調査室)³⁾」(以下、全国調査という)における、検出頻度(検出検体/総検体数)は、12/18であり、全国的にもよく検出されている物質である。その検出濃度範囲は、3.5~180ng/lであり、十三湖は全国的には低い濃度レベルであった。

なお、十三湖の湖容積は約 $2.3 \times 10^7 \text{m}^3$ であるから、p-ジクロロベンゼンの濃度が10ng/lの場合は、単純に見積

もって、230gのp-ジクロロベンゼンが十三湖の水に溶解している場合に相当する。

3.6 底質測定結果

試料を十分混合した後、湿泥A、B各50gを分析した。2つの測定値が許容差¹⁾の範囲内にあることを確認し、その2つの測定値の平均値を試料の濃度とした。

底質の測定結果を表7に示す。

調査対象20物質のうち、HCB、p,p'-DDE、p,p'-DDD、o-ジクロロベンゼン、p-ジクロロベンゼン、m-ターフェニル、p-ターフェニル、ベンゾ(a)ピレンの8物質が検出された。

検出された物質の数は、水質より底質の方が多かった。

十三湖で検出された物質の検出状況等は、次のとおりであった。

(1) HCBは、「化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律」(以下化審法)に基づく第1種特定化学物質(化審法)に指定されており、現在、生産中止、使用中止されているものである。全国調査における検出頻度は8/18で、検出濃度範囲は0.047~14ng/g·dryである。十三湖では0.11ng/g·dryであり、全国的には低い濃度レベルであった。

(2) p,p'-DDTは、第1種特定化学物質(化審法)に指定されており、現在、使用中止されているが、過去においてはHCHやドリル剤とともに多用された殺虫剤である。

p,p'-DDEとp,p'-DDDはp,p'-DDTの環境中の分解産物であり、還元的な底質では主として脱塩素反応によってp,p'-DDDが生じ、好氣的な条件ではp,p'-DDEが生じると考えられている⁴⁾。

十三湖からはp,p'-DDEとp,p'-DDDがそれぞれ、1.5~2.7、4.3~11ng/g·dry検出された。全国調査における検出頻度は、それぞれ、12/18、8/18、検出濃度範囲は0.28~74、0.20~18ng/g·dryである。

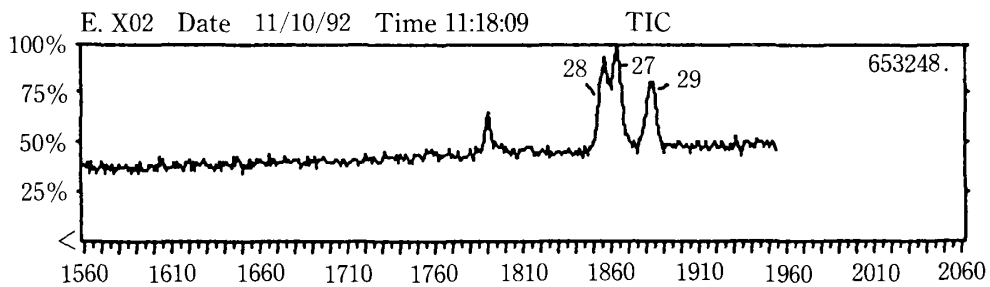
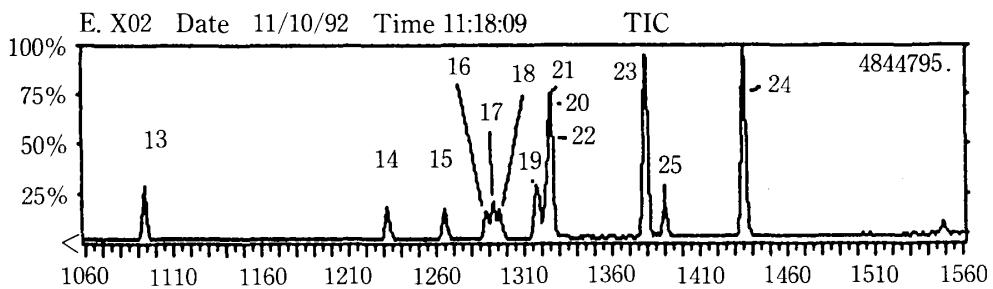
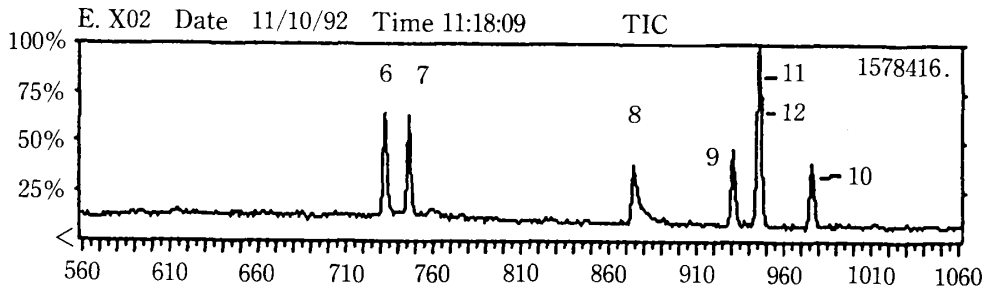
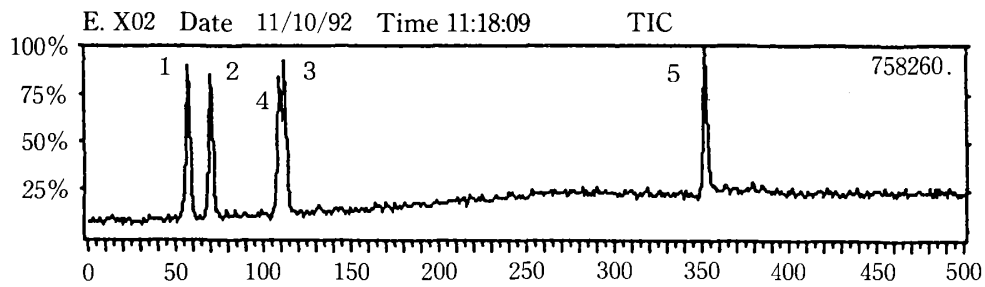
(3) o-ジクロロベンゼンとp-ジクロロベンゼンは、殺虫剤等として広く使われ、全国調査における検出頻度は、それぞれ14/18、16/18、検出濃度範囲は0.63~56、1.9~150ng/g·dryである。

十三湖の濃度は、それぞれ0.7~1.3、2.2~2.9ng/g·dryであり、全国的には低い濃度レベルであった。

(4) m-ターフェニルとp-ターフェニルは、熱媒体等として広く使われているものである。全国調査における検出頻度は、それぞれ、15/18、14/18検出濃度範囲は0.42~160、0.22~87ng/g·dryである。

十三湖の濃度は、それぞれ0.38~0.42、0.18~0.23ng/g·dryであり、全国的には低い濃度レベルであった。

(5) ベンゾ(a)ピレン⁵⁻⁶⁾は、化石燃料中に存在し、またその燃焼過程やコールタール処理、石油精製等の製造工



- 1 : m-ジクロロベンゼン 2 : p-ジクロロベンゼン 3 : o-ジクロロベンゼン
 4 : o-ジクロロベンゼン-d₄ 5 : ナフタレン-d₈ 6 : BHT-d₂₁H₃ 7 : BHT
 8 : TBP 9 : α-HCH 10 : β-HCH 11 : HCB-¹³C⁶ 12 : HCB 13 : o-ターフェニル
 14 : フルオランテン-d₁₀ 15 : t-クロルデン 16 : c-クロルデン 17 : m-ターフェニル
 18 : t-ノナクロル 19 : p, p'-DDE 20 : p-ターフェニル 21 : p-ターフェニル-d₁₄
 22 : ディルドリン 23 : p,p'-DDD 24 : p,p'-DDT 25 : c-ノナクロル 27 : B(a)p
 28 : B(a)p-d₁₂ 29 : ペリレン-d₁₂

図4 調査対象物質のTICクロマトグラム

表7 水質・底質測定結果（十三湖）

（単位：水質 ng/l；底質 ng/g-dry）

物質名	水質 H3 年度	H4 年度	検出 限界	全国の 検出頻度	全国の 検出範囲	底質 H3 年度	H4 年度	検出 限界	全国の 検出頻度	全国の 検出範囲
HCB			1.5	0/18		0.11	0.11	0.10	8/18	0.047～ 14
ディルドリン			16.7	0/18				0.71	2/18	2.0 ～ 2.2
p,p'-DDE			1.9	0/18		2.7	1.5	0.73	12/18	0.28 ～ 74
p,p'-DDD			4.6	0/18		11	4.3	3.98	8/18	0.20 ～ 18
p,p'-DDT			4.3	0/18				2.96	5/18	0.21 ～ 13
trans-クロルデン			4.4	0/18				0.31	9/18	0.073～ 16
cis-クロルデン			3.5	0/18				0.27	8/18	0.094～ 15
trans-ノナクロル			5.2	0/18				0.18	7/18	0.061～ 14
cis-ノナクロル			5.1	0/18				0.35	5/18	0.039～ 4.4
α-HCH			9.8	0/18				0.60	1/18	2.0
β-HCH			6.1	1/18	26			0.75	2/18	1.2 ～ 4.4
o-ジクロロベンゼン			3.2	4/18	4.9 ～ 34	1.3	0.7	0.73	14/18	0.63 ～ 56
m-ジクロロベンゼン			3.0	3/18	0.11～ 12			0.72	9/18	0.083～ 17
p-ジクロロベンゼン	19	5.0	4.5	12/18	3.5 ～180	2.9	2.2	1.32	16/18	1.9 ～ 150
BHT			13.0	2/18	11 ～ 43			1.70	9/18	0.49 ～ 120
o-ターフェニル			4.6	0/18				0.30	5/18	0.057～ 29
m-ターフェニル			4.8	0/18		0.42	0.38	0.25	15/18	0.42 ～ 160
p-ターフェニル			4.6	0/18		0.23	0.18	0.092	14/18	0.22 ～ 87
リン酸トリブチル			77.5	3/17	65 ～220			3.09	8/17	1.8 ～ 14
ベンゾ(a)ピレン			8.2	0/18		8.3	6.1	2.49	16/18	1.5 ～1500

注1) 空欄は検出限界値未満である。

注2) 検出限界値は当所のものである。

注3) 試料の定量値がブランク値の2倍を超えない場合は、定量下限未満とし、数値化しなかった。

注4) 全国の検出頻度、検出範囲は平成3年度の測定結果³⁾である。

程において非意図的に生成するものである。その他、堆積物中有機物の続成作用によるもの、バクテリア、藻類及び高等植物の代謝物等によるものも考えられている。

全国調査における検出頻度は16/18、検出濃度範囲は1.5～1500ng/g・dryである。

十三湖の濃度は、6.1～8.3ng/g・dryであり、全国的には低い濃度レベルであった。

以上、全国的に検出頻度の高い物質が、十三湖においても検出されていたが、その濃度は、全国的には低いレベルであり、問題となる濃度レベルではなかった。

HCB、p,p'-DDTなど、現在、生産中止、使用中止されているものについては、今後、濃度が低下していくものと推察される。

3.7 化学物質の同定及び検索

GC/MSには未知物質を検索できるという機能がある。

今回、底質抽出液のTICを測定し、p-ジクロロベンゼン、p,p'-DDD、p,p'-DDE、ベンゾ(a)ピレンの保持時間におけるピークのマスマスペクトルを測定したところ、標準物質と同じマスマスペクトルパターンが得られ、これ

らの物質の存在が確認できた。

TICクロマトグラム、マスマクロマトグラムは、図5、図6のとおりである。

PTRI及びマスマスペクトルのライブラリーサーチにより、前述の物質の他に、DBP、DOP、Diocetyl Adipate、B(e)p、Peryleneが検索された（溶媒に起因するものも含む）。

DBP、DOP、Diocetyl Adipateは可塑剤であり（Diocetyl Adipateは特に、耐寒性の可塑剤として利用されている）、B(e)p、Peryleneは多環芳香族炭化水素である。

底質抽出液には、蛍光が認められたが、これは、多環芳香族炭化水素によるものと思われる。

4. ま と め

現在、化学物質の検索、微量分析の手段として広く用いられているGC/MS分析法を、十三湖の水質・底質試料（平成3年度～平成4年度）に適用したところ、次のとおりであった。

水質からは、p-ジクロロベンゼンが5～19ng/l検出された。

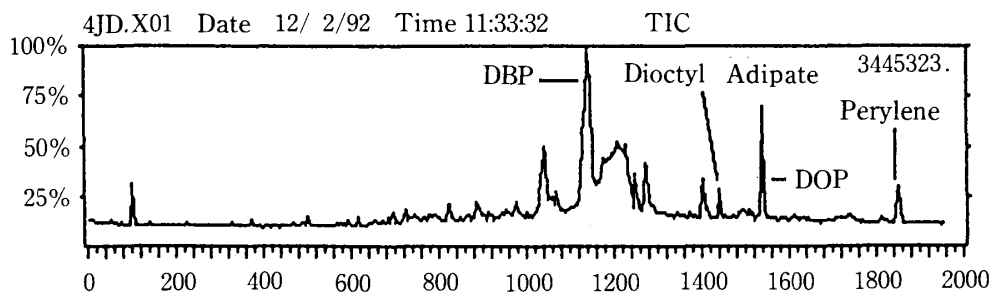


図5 底質抽出試料のTICクロマトグラム

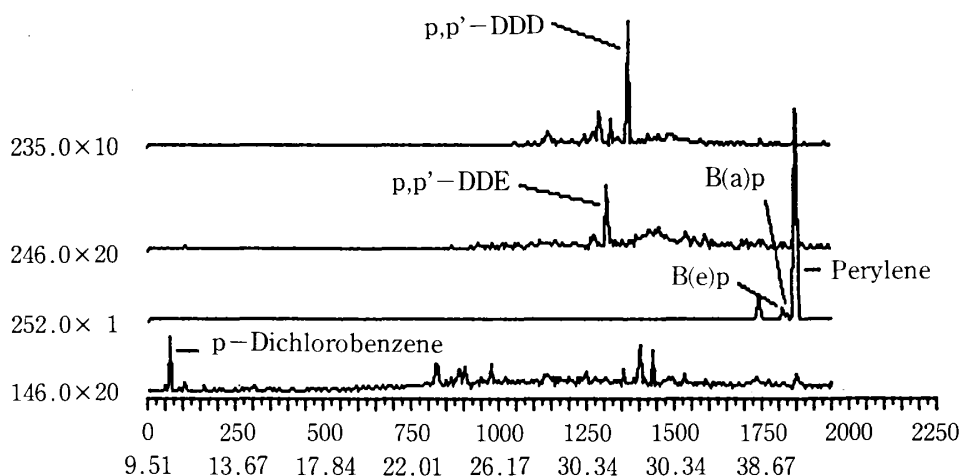


図6 底質抽出試料のマスキロマトグラム

底質からは、HCB(0.11ng/g·dry), p,p'-DDE(1.5~2.7ng/g·dry), p,p'-DDD(4.3~11ng/g·dry), o-ジクロロベンゼン(0.7~1.3ng/g·dry), p-ジクロロベンゼン(2.2~2.9ng/g·dry), m-ターフェニル(0.38~0.42ng/g·dry), p-ターフェニル(0.18~0.23ng/g·dry), ベンゾ(a)ピレン(6.1~8.3ng/g·dry)が検出された。

ほとんどの化学物質の濃度は、全国的に低いレベルであり、問題のない濃度レベルであった。

底質抽出液のマスペクトル、PTRIより、前述の8物質の他に、DBP, DOP, Diethyl Adipate, B(e)p, Peryleneが検索された。

文 献

- 1) 石塚伸一：水質・底質化学物質調査におけるGC/MS分析の基礎的検討，青森県環境保健センター研究報告，**3**，25-36，1993.
- 2) 環境庁保健調査室：水質・底質モニタリング調査マニュアル（1991年版），平成3年7月.
- 3) 環境庁保健調査室：化学物質と環境（平成3年版）.
- 4) (社)日本水質汚濁研究協会：底質汚濁改善対策調査—総合報告書—，26，昭和62年1月.
- 5) 有賀孝成，他：多摩川底質中の多環芳香族炭化水素調査，東京都衛生研究所年報，**35**，371-377，1984.
- 6) 永淵修，他：周防灘西部海域堆積物中多環芳香族炭化水素の分布，水質汚濁研究，**13**（6），367-373，1990.

Abstract

Measurement of Chemical Substances in Water and Sediment by GC/MS

Shin-ichi ISHIZUKA and Susumu HAYAKARI

Samples of water and sediment in the Lake Jusan were analyzed by GC/MS, used widely as the method of search, and micro analysis for chemical substances. The following results were obtained: p-Dichlorobenzene (5~19ng/l) was detected in water.

HCB (0.11ng/g·dry), p,p'-DDE (1.5~2.7ng/g·dry), p,p'-DDD (4.3~11ng/g·dry), o-dichlorobenzene (0.7~1.3ng/g·dry), p-dichlorobenzene (2.2~2.9ng/g·dry), m-terphenyl (0.38~0.42ng/g·dry), p-terphenyl (0.18~0.23ng/g·dry) and benzo(a)pyrene (6.1~8.3ng/g·dry) were detected in the sediment.

The concentrations of these chemical substances were not so high levels in the whole country that they were aside from the question.

Diocetyl Adipate, B(e)p and perylene other than the above compounds were searched from the mass spectra and PTRI of the extracted solution from sediment.

Key words : chemical substance, water and sediment, Lake Jusan, GC/MS

陸奥湾における底質中化学物質の水平分布特性

石塚 伸一 三上 一 早狩 進

陸奥湾の水質・底質環境は、現状においては比較的清澄であるが、今後、生活様式の多様化複雑化に伴い、汚濁の進行が危惧されている。今回、底質環境を把握するため、底質中化学物質の水平分布について検討を行った。

陸奥湾における底質中の化学物質濃度は、概ね全国レベルより低く、問題のないレベルであった。

陸奥湾の中で相対的に化学物質濃度の高い水域は、陸奥湾の中央域と主要都市（青森市、むつ市）地先水域にみられた。前者は、化学物質の集積しやすい地点であり、後者は都市部からの流出負荷の影響を受けている地点と考えられる。

底質中化学物質濃度についてクラスター分析を行ったところ、陸奥湾水域は、東湾の中央部、西湾の中央部、西湾の沿岸部、東湾の沿岸部の4つの水域に分類された。

Key words : chemical substance, Mustu Bay, sediment, distribution, cluster analysis

1. はじめに

陸奥湾は水産業や観光等県民と深いつながりをもった水域である。

陸奥湾の水質については、公共用水域調査において測定データが多く蓄積されており、現状においては比較的清澄であるが、今後、生活様式の多様化、複雑化に伴い、汚濁の進行が危惧されている。底質については、数地点において測定されているのみであり、湾全体の底質環境は、あまり把握されていない。

一般に、水中や大気中の化学物質は、底質に移行し蓄

積されるため、底質調査は、環境汚染全般の状況を知る手がかりとして、有用と考えられている。

今回、底質環境を知るため、化学物質濃度の水平分布特性について検討を行ったので、その結果を報告する。

2. 調査方法

2.1 調査地点

調査地点は図1に示す29地点である。

2.2 試料採取時期

1991年8月27日～1991年8月29日

2.3 試料採取方法

スミス・マッキンタイヤ採泥器により採取し、表層をガラスビンに入れた。

2.4 試料の調製

採取した試料は、冷凍庫（-20℃）に保存し、分析直前に遠心分離して大部分の水分を除いて分析に供した。

2.5 試薬、装置

試薬、装置は既報¹⁾のとおりである。

2.6 分析方法¹⁾

分析方法は、水質・底質モニタリング調査マニュアル²⁾に準じた。

2.7 調査対象物質

調査対象物質は、次の22物質である。

HCB, ディルドリン, DDT類, クロルデン類, HCH類, ジクロロベンベン類, ターフェニル類, BHT, TBP, B(a)p, B(e)p, ペリレン

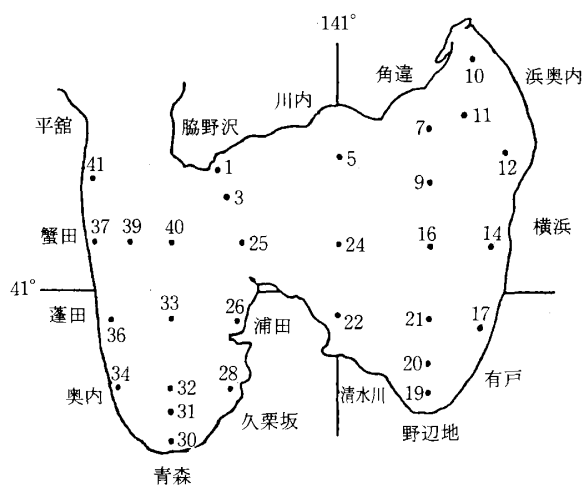


図1 陸奥湾底質調査地点

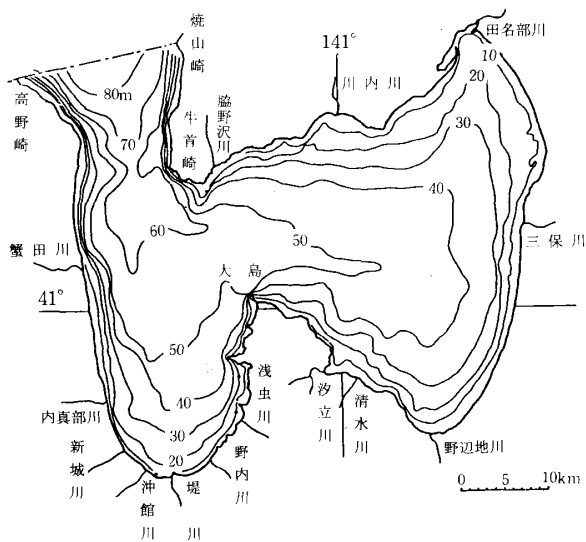


図2 陸奥湾の水深と流入河川

これらの物質は、GC/MSにより高感度に一斉分析が可能であり、簡便に底質中化学物質の水平分布特性を知る上で有用な指標と考えられるものである。

3. 結果及び考察

3.1 陸奥湾の概況³⁻⁴⁾

陸奥湾は本州の北端に位置し、西側は津軽半島、東と北側は下北半島に囲まれており、湾口部は幅約10kmで津軽海峡に開いている内湾性の強い湾である。湾口部の平館海峡の一部に湾内側の方が水深の深くなる鞍部地形がみられ、湾の閉鎖性を強めている（閉鎖度指標≒4）。

湾の面積は、約 $1.66 \times 10^3 \text{ km}^2$ 、海岸線の長さは約246km、平均水深は約38m、流域面積は約2190 km^2 である。

陸奥湾は、地形的にも海洋構造からも、下北半島南端と大島（夏泊半島）の間で東湾（ $1.02 \times 10^3 \text{ km}^2$ ）と西湾（ $0.64 \times 10^3 \text{ km}^2$ ）に二分されている。

陸奥湾に流入する河川は蟹田川、新城川、堤川、駒込川、野内川、小湊川、野辺地川、田名部川、小荒川、宇曾利川、永下川、川内川等の2級以下の中小規模の河川である。西湾には東湾の2倍以上の陸水が流入している。

陸奥湾は三方を陸に囲まれ、干満の差が少ないので外海との海水の交換は悪い。

淡水現存量と河川流量から求めた淡水の平均滞留時間は東湾で3～4ヶ月、西湾で約1ヶ月とされている。

流況については、湾口から入った津軽暖流は西湾を反時計回りに環流し、その一部は東湾の中央まで伸展する。東湾の表層水は反時計回りに東湾内を環流して西湾に進み、その一部が海峡部に流出していると考えられている。また、青森湾、大湊湾などの湾奥では、時計回りの小還流ができやすいと考えられている。

陸奥湾には2市5町3村が面しており、これらの地域の第2次産業は食品、木材等第1次産業関連業種が主で

あり、今回の調査対象物質製造工場は立地していない。

湾内には重要港湾の青森港、大湊港や地方港湾の小湊港、野辺地港、川内港をはじめ、漁港が20数港ある。

また、湾内では、ホタテ貝養殖が盛んである。

海底地形は、湾口部で水深80mを超え、湾内に向かうにつれて徐々に浅くなり、西湾では50～60m、東湾では40～50m付近で平坦面が広く分布している。

陸奥湾底泥の堆積速度は、西湾で $0.064 \pm 0.014 \sim 0.069 \pm 0.007 \text{ cm/year}$ ($0.037 \pm 0.010 \sim 0.039 \pm 0.005 \text{ g/cm}^2/\text{year}$)、東湾で $0.14 \pm 0.003 \sim 0.17 \pm 0.03 \text{ cm/year}$ ($0.043 \pm 0.001 \sim 0.077 \pm 0.011 \text{ g/cm}^2/\text{year}$) と見積もられている⁵⁾。

陸奥湾の水深と流入河川を図2に示す。

3.2 底質の性状

底質は概ね深度が増すにつれて砂質から泥質に変化し、湾口部と湾岸域を除く水深30m以深には泥質堆積物が分布している。

一方、青森市、むつ市地先水域は、水深が浅くても泥質堆積物が見られる。

強熱減量（LL）の水平分布を図3に示す。

3.3 化学物質の濃度

調査結果を表1に示す。

調査対象物質のうちTBP、 α -HCH、 β -HCH、Dieldrinは全地点で検出されなかった。

m-Dichlorobenzene(0.2)、HCB(0.1)、o-Terphenyl(0.07)、t-Chlordane(0.12)、c-Chlordane(0.08)、t-Nonachlor(0.06)、c-Nonachlor(0.04)はNo.30地点のみで検出された。（ ）内は検出濃度 ng/g·dry

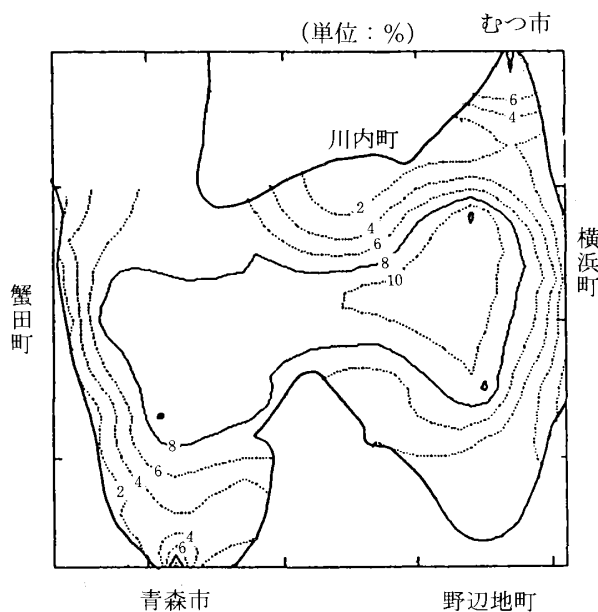


図3 強熱減量の水平分布

表1 陸奥湾底質化学物質調査結果(1)

(単位: ng/g·dry)

物質名	No.1	No.3	No.5	No.7	No.9	No.10	No.11	No.12	No.14	No.16	No.17	No.19	No.20	No.21	No.22	No.24
m-Dichlorobenzene																
p-Dichlorobenzene	2.5	3.9	0.51	0.56	4.8	3.6	1.1		1.6	4.4		2	1.8	6.3	1.3	6.2
o-Dichlorobenzene	0.28	0.48	0.08	0.08	0.57	0.49	0.16		0.21	0.55		0.21	0.2	0.62	0.15	0.29
BHT	0.21	0.2			0.48	0.34	0.16									0.2
TBP																
α-HCH																
β-HCH																
HCB																
o-Terphenyl																
t-Chlordane																
c-Chlordane																
m-Terphenyl	0.34	0.41		0.1	0.32	0.35	0.1		0.21	0.47	0.1	0.18	0.11	0.33	0.1	0.41
t-Nonachlor																
p,p'-DDE	0.12	0.22			0.25	0.25			0.11	0.28		0.1	0.1	0.29	0.1	0.25
p-Terphenyl	0.12	0.17		0.05	0.18	0.19	0.06		0.08	0.18		0.08	0.04	0.1	0.04	0.15
Dieldrin																
p,p'-DDD	0.05	0.29			0.2	0.21	0.05		0.05	0.22		0.08	0.07	0.27		0.26
c-Nonachlor																
p,p'-DDT						0.15				0.1						0.12
B(a)P	46	46	1	9.1	22	42	6.3	0.86	19	27	0.92	14	7.2	20	6.3	33
B(e)P	19	27	0.95	4	13	19	3.5	0.7	9.7	18	0.73	8	4.9	15	4.6	24
Perylene	13	17	0.48	3	22	31	3.7	8.7	11	24	0.66	7.1	4	14	2.5	18
水分 (%)	35	47.5	20.8	25.3	56.2	42.5	27.1	21.3	36.9	56	15.9	30.9	28.9	49	23.9	52.6
強熱減量 (%)	6.3	7	1.6	1.5	10.7	8.6	3.4	1.7	5.4	10	2	4.1	3.9	9.3	4.6	9.7
性状	砂泥	砂泥	砂	砂	砂泥	砂泥	砂	砂	砂	砂泥	砂礫	砂泥	砂	砂泥	砂	砂泥

注) 空欄はN.Dである

表1 陸奥湾底質化学物質調査結果(2)

(単位: ng/g·dry)

物質名	No.25	No.26	No.28	No.30	No.31	No.32	No.33	No.34	No.36	No.37	No.39	No.40	No.41	検出限界値
m-Dichlorobenzene				0.2										0.06
p-Dichlorobenzene	4.1	5.5	1.9	8.4	1.6	3.3	6	2		0.97	6.7	4.8	1.7	0.5
o-Dichlorobenzene	0.55	0.74	0.28	1.5	0.21	0.34	0.65	0.27		0.11	0.7	0.58	0.17	0.06
BHT	1.4	0.69	0.27	4	0.25	0.36	0.54	0.23	0.16		0.27	0.75	0.3	0.16
TBP														1
α-HCH														0.2
β-HCH														0.2
HCB				0.1										0.1
o-Terphenyl				0.07										0.05
t-Chlordane				0.12										0.1
c-Chlordane				0.08										0.08
m-Terphenyl	0.41	0.78	0.27	1.7	0.23	0.42	0.57	0.73	0.08	0.3	0.43	0.54	0.73	0.08
t-Nonachlor				0.06										0.05
p,p'-DDE	0.32	0.37	0.14	0.58	0.14	0.29	0.31	0.11			0.34	0.24		0.1
p-Terphenyl	0.19	0.36	0.13	0.62	0.08	0.15	0.2	0.27			0.14	0.18	0.24	0.04
Dieldrin														0.2
p,p'-DDD	0.26	0.36	0.12	1.7	0.1	0.17	0.41	0.13			0.37	0.26		0.04
c-Nonachlor				0.04										0.04
p,p'-DDT	0.49	0.5	0.13	1.8	0.48	0.12	0.4	0.17			0.47	0.14	0.17	0.1
B(a)P	44	160	32	66	33	61	58	120	7.2	56	65	70	140	—
B(e)P	22	55	13	37	15	27	28	45	3.6	20	33	36	57	—
Perylene	18	34	11	120	9.3	18	22	41	2.5	9.7	17	22	30	—
水分 (%)	52.1	49.3	33.6	55	31	40.7	57.1	28	21.8	23.5	50.6	54.8	30.7	—
強熱減量 (%)	8.3	8	4.2	10.6	3.8	5.5	9.1	2.4	2	2	8.8	8.4	4.3	—
性状	砂泥	砂泥	砂泥	泥	砂	砂泥	砂泥	砂	砂	砂	砂泥	砂泥	砂	—

注) 検出限界値: S/N比=5より求めた値である。

p-Dichlorobenzeneはn.d~8.4ng/g·dry, o-Dichlorobenzeneはn.d~1.5ng/g·dry, BHTはn.d~4.0ng/g·dry, m-Terphenylはn.d~1.7ng/g·dry, p,p'-DDEはn.d~0.58ng/g·dry, p-Terphenylはn.d~0.62ng/g·dry, p,p'-DDDはn.d~1.7ng/g·dry, p,p'-DDTはn.d~1.8ng/g·dry, B(a)pは0.86~160ng/g·dry, B(e)pは0.7~57ng/g·dry, Peryleneは0.48~120ng/g·dryの範囲で検出された。

p-Dichlorobenzene, o-Dichlorobenzene, BHT, m-Terphenyl, p,p'-DDE, p-Terphenyl, p,p'-DDD, p,p'-DDT, Peryleneの最高濃度地点はNo.30地点であった。

B(a)pはNo.26, B(e)pはNo.41地点で最も濃度が高かった。

陸奥湾における化学物質濃度を全国の調査結果⁶⁾と比較すると、概ね全国レベルより低く問題のない濃度レベルであった。

3.4 水平分布

陸奥湾において比較的多くの地点で検出されている物質(p-Dichlorobenzene, o-Dichlorobenzene, m-Terphenyl, p-Terphenyl, p,p'-DDE, p,p'-DDD, p,p'-DDT, B(a)p, B(e)p, Perylene, BHT)及び強熱減量の水平分布の様子は次のとおりであった。

各物質の濃度分布を図4に示す。

なお、濃度分布図は、スプライン補間法により作成した等濃度分布をもとに、3次元グラフとして表示したものである。

ここで、濃度が高いというのは、測定地点の中で相対的に濃度が高いということであり、汚染レベルが高いということではない。

- (1) p-Dichlorobenzene
西湾中央, 東湾中央で濃度が高い。
No.30地点で最も濃度が高い。
- (2) o-Dichlorobenzene
西湾中央, 東湾中央で濃度が高い。
No.30地点で最も濃度が高い。
- (3) m-Terphenyl
西湾側で濃度が高い。
No.30, 26, 34, 41で高濃度である。
- (4) p-Terphenyl
No.30, 26, 34, 41で高濃度である。
- (5) p,p'-DDE
西湾中央, 東湾中央で濃度が高い。
No.30地点で最も濃度が高い。
- (6) p,p'-DDD
西湾中央, 東湾中央で濃度が高い。
No.30地点で最も濃度が高い。
- (7) p,p'-DDT
西湾側で濃度が高い。

No.30地点で最も濃度が高い。

- (8) B(a)p
西湾側の方が濃度が高い。
No.26, 41, 34で濃度が高い。
- (9) B(e)p
西湾側の方が濃度が高い。
No.41, 26, 34, 30で濃度が高い。
- (10) Perylene
西湾側で濃度が高い。
No.30地点で最も濃度が高い。
- (11) BHT
西湾側で濃度が高い。
No.30地点で最も濃度が高い。
- (12) 強熱減量
東湾中央, 西湾中央で濃度が高い。
No.30, 10地点で濃度が高い。

この分布図から次のことが分かった。

- (1) 化学物質の高濃度域は、大別して陸奥湾の中央域と主要都市沿岸域の青森市、むつ市地先水域にみられる。
濃度の高くなる地点は、都市部、港湾部等からの流出負荷を受ける地点及び海底の凹部や海水の還流域、過流域など物質の集積しやすい地点と考えられる。
今回の調査地点のうち、No.30, 10は主要都市部、港湾部の地先水域であり、これらからの流出負荷の影響を受けているとともに湾奥部の停滞域にあたっているため濃度が高くなっているものと考えられる。
底質中の化学物質は海底部を底層流によって移動し、堆積しやすい所に集積されると考えられるが、陸奥湾中央域は水深が深く、海底の凹部にあたり、物質の集積しやすい地点と考えられる。
その上、陸奥湾中央域は還流域でもあり、一層化学物質が集積しやすい水域となっている。
一方、No.26, 34, 41は沿岸部であるが、これら水域が過流域にあたっていて汚染物質の集積しやすい地点と考えられるが、あるいは局所的な発生源の影響を受けている可能性も考えられる。
- (2) 物質によって水平分布に差がみられ、m-Terphenyl, p-Terphenyl, p,p'-DDT, B(a)p, B(e)p, Perylene, BHTは西湾側の方が濃度が高く、p-Dichlorobenzene, o-Dichlorobenzene, p,p'-DDE, p,p'-DDD, 強熱減量は、西湾中央, 東湾中央で濃度が高くなっていた。
- (3) 青森市地先水域は各物質とも濃度が高く、また、m-Dichlorobenzene, HCB, o-Terphenyl, t-Chlordane, c-Chlordane, t-Nonachlor, c-Nonachlorはこの地点のみで検出された。
この水域は陸奥湾の中で最も化学物質濃度の高い水域である。

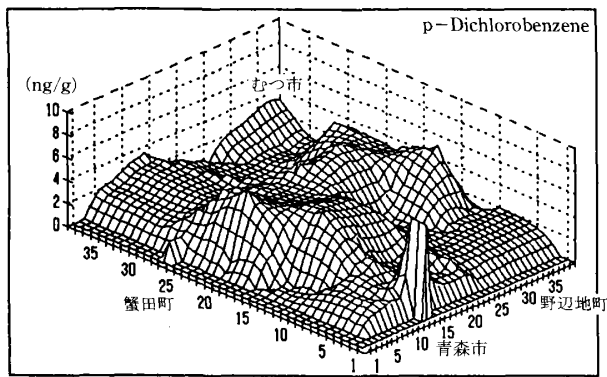


図 4(1) p-Dichlorobenzene

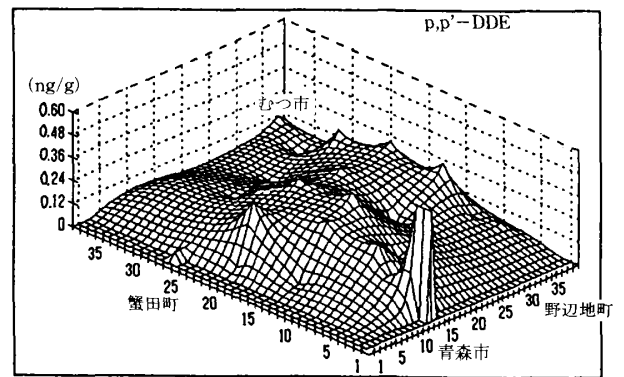


図 4(4) p,p'-DDE

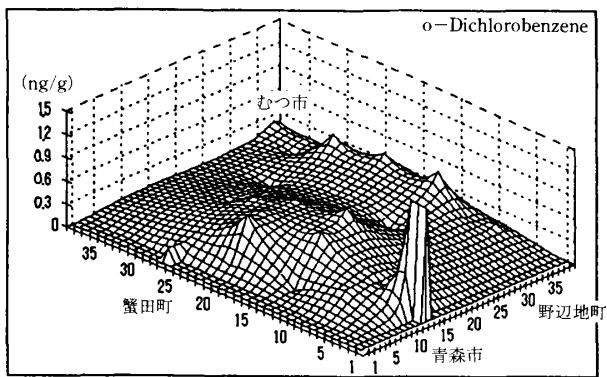


図 4(2) o-Dichlorobenzene

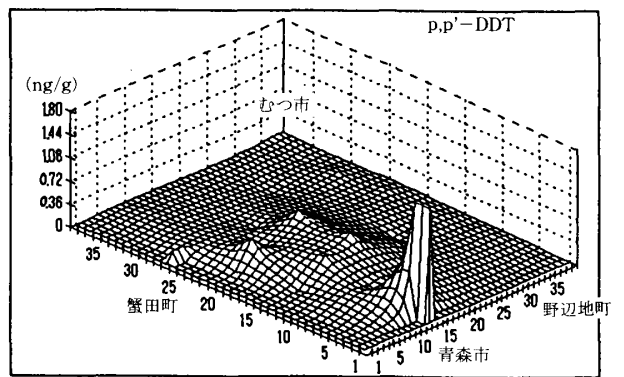


図 4(5) p,p'-DDT

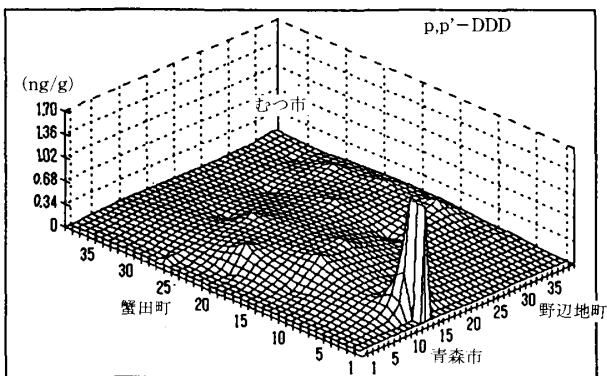


図 4(3) p,p'-DDD

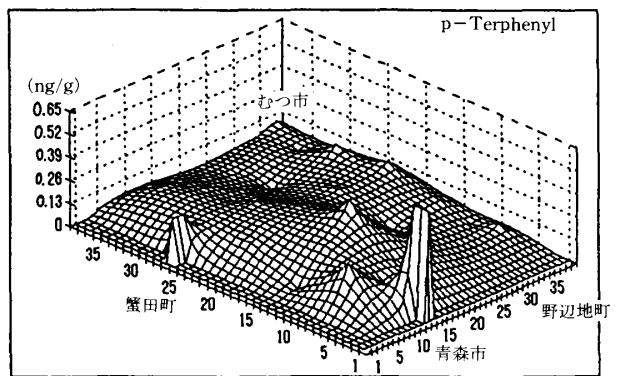


図 4(6) p-Terphenyl

図 4(1)~(6) 化学物質の水平濃度分布

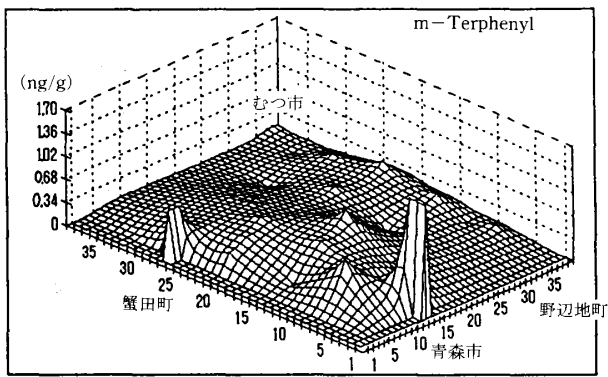


図 4 (7) m-Terphenyl

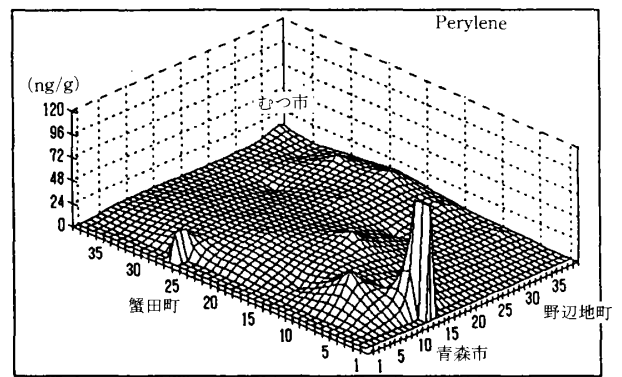


図 4 (10) Perylene

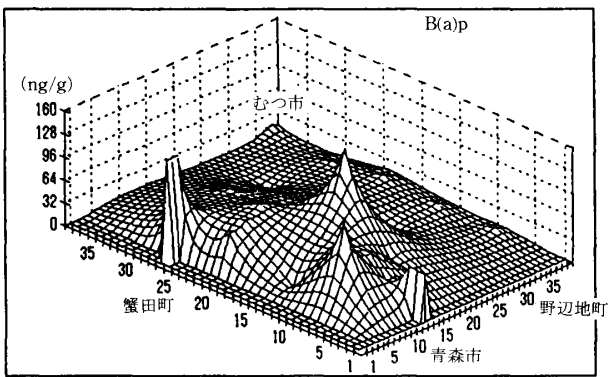


図 4 (8) B(a)p

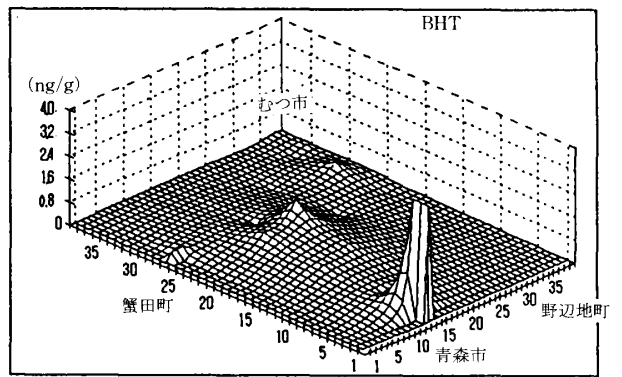


図 4 (11) BHT

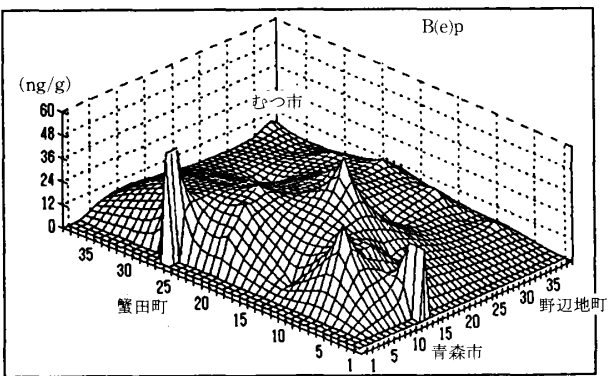


図 4 (9) B(e)p

図 4 (7)~(11) 化学物質の水平濃度分布

(4) Terphenyl等の異性体の濃度比率をみると、Terphenylのm-体/o-体は約2.5、Dichlorobenzeneのp-体/o-体は約8.7、B(e)p/B(a)pは約0.55でほぼ一定であった。

p-Terphenylとm-Terphenylの関係を図5に示す。

3.5 化学物質濃度と水深の関係

水平分布をみたときに水深の深い陸奥湾の中央域に高濃度域がみられるものがあつたことから、化学物質濃度と水深の関係を検討した。

水深と強熱減量、p-Dichlorobenzene、p,p'-DDEとの間には相関関係（危険率1%）がみられた。

例として、水深と強熱減量、水深とp-Dichlorobenzeneの関係を図6に示す。水深が深くなる程濃度も高くなっている様子が分かる。

このことは、底質中の化学物質が底層流によって水深の深い所へ集積していくことを示唆しているものと思われる。

なお、No.30、10地点は都市部、港湾部からの流出負荷の影響を受けているため、水深が浅くても濃度が高くなっているものと思われる。

3.6 主成分分析による検討

陸奥湾の化学物質濃度分布特性を総合的にみるため、化学物質の濃度、水深、強熱減量の相関係数行列をもとに主成分分析を行った。

化学物質間にはB(a)pとp,p'-DDD、B(a)pとp,p'-DDT、B(a)pとBHT間を除いて相互に正の相関関係（危険率5%）がみられている。

主成分分析結果を表2、3及び図7に示す。

固有値が1以上の主成分は3個あり、この3成分で全体の変動の95.4%を説明できる。

第1主成分は総合的な化学物質濃度の分布状態を示す指標と考えられる。Z₁のスコアが（+）側程、総体的に濃度が高い地点である。

第2主成分は、水深と化学物質濃度の関係を示す指標と考えられる。

第3主成分は有機塩素系化合物と芳香族系化合物の割合に関する指標と考えられる。

Z₃のスコアが（+）側の地点は有機塩素系化合物（p-Dichlorobenzene、o-Dichlorobenzene、p,p'-DDE、p,p'-DDD、p,p'-DDT）の割合が高く、（-）側のものは、芳香族系化合物（m-Terphenyl、p-Terphenyl、B(a)p、B(e)p、Perylene）の割合が高い地点である。

Z₁のスコアから、相対的に陸奥湾の中で濃度の高い所は、No.30地点であり、続いてNo.26、33、39、25、40地点の順となっていることが分かる。

濃度の低い水域は、No.17、5、12の東湾の沿岸部である。

また、概ねZ₁、Z₂ともに正のスコアの地点は水深が浅くて濃度が高い地点、Z₁が正、Z₂が負のスコアの地点は

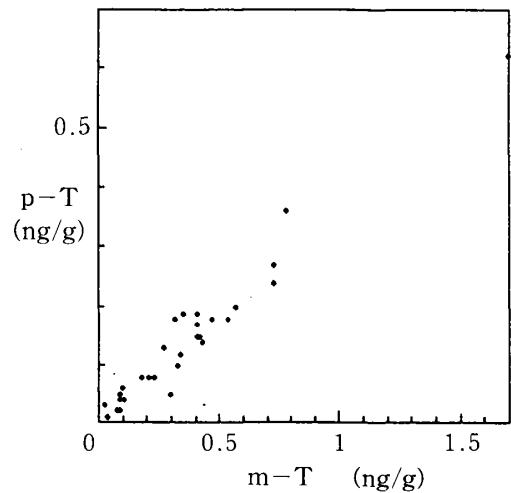


図5 m-Terphenylとp-Terphenylの関係

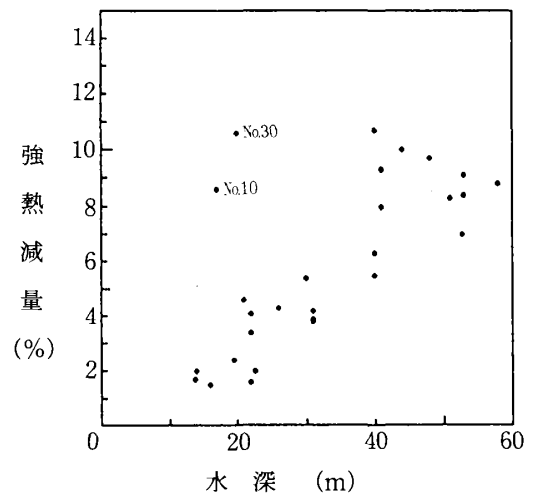


図6(1) 水深と強熱減量の関係

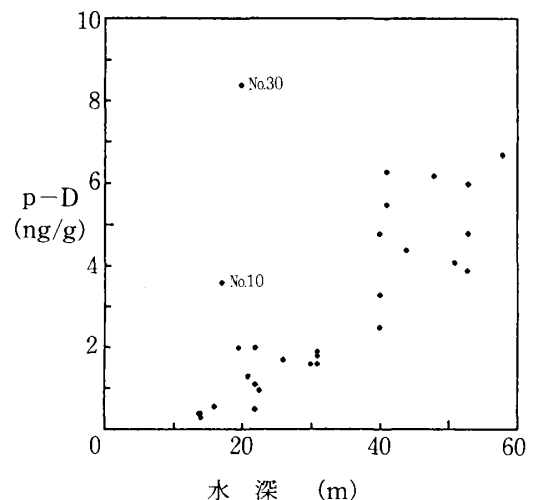


図6(2) 水深とp-Dichlorobenzeneの関係

表2 主成分分析法解析結果

(固有値・寄与率・固有ベクトル・負荷量)

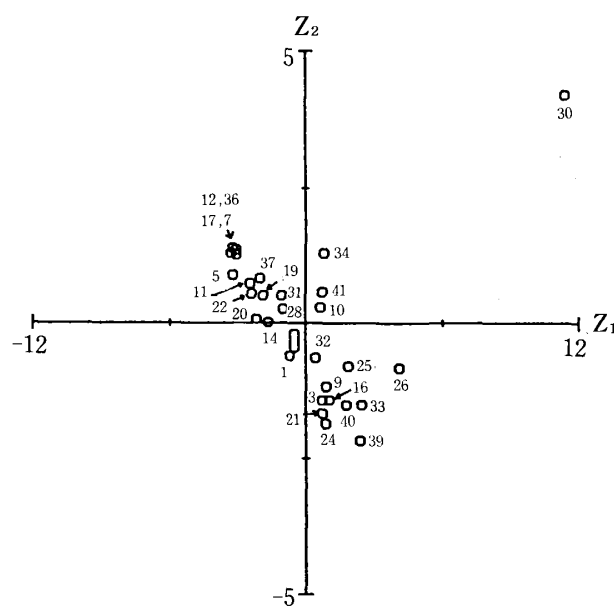
成分	合成変数	Z ₁	合成変数	Z ₂	合成変数	Z ₃
固有値	8.9846		1.8842		1.5297	
累積寄与率	0.6911		0.8361		0.9537	
p-Dichlorobenzene	0.2884	0.8644	-0.3007	-0.4127	0.1621	0.2005
o-Dichlorobenzene	0.3195	0.9577	-0.0530	-0.0727	0.1715	0.2122
m-Terphenyl	0.3158	0.9467	0.1425	0.1956	-0.1672	-0.2068
p,p'-DDE	0.3067	0.9192	-0.1815	-0.2492	0.1771	0.2190
p-Terphenyl	0.3178	0.9527	0.1245	0.1709	-0.1439	-0.1780
p,p'-DDD	0.3062	0.9179	0.1922	0.2638	0.2061	0.2548
B(a)p	0.1895	0.5681	-0.0832	-0.1142	-0.6518	-0.8062
B(e)p	0.2328	0.6977	-0.1419	-0.1947	-0.5528	-0.6836
Perylene	0.3038	0.9106	0.2662	0.3654	-0.0251	-0.0310
p,p'-DDT	0.2923	0.8760	0.2605	0.3576	0.1171	0.1449
BHT	0.2805	0.8408	0.3111	0.4270	0.1549	0.1916
強熱減量	0.2485	0.7449	-0.3866	-0.5306	0.2268	0.2806
水深	0.1339	0.4015	-0.6238	-0.8563	0.0396	0.0490

表3 主成分分析法解析結果
(スコアの計算結果)

地点	Z ₁	Z ₂	Z ₃
1	-0.640	-0.613	-0.282
3	-0.752	-1.425	-0.077
5	-3.231	0.881	0.518
7	-3.084	1.252	0.149
9	0.924	-1.200	1.224
10	0.660	0.287	0.300
11	-2.469	0.731	0.565
12	-3.200	1.390	0.461
14	-1.638	0.003	0.330
16	1.013	-1.427	0.764
17	-3.269	1.283	0.461
19	-1.898	0.497	0.401
20	-2.162	0.075	0.689
21	0.744	-1.686	1.311
22	-2.388	0.531	0.670
24	0.876	-1.878	0.496
25	1.906	-0.811	0.746
26	4.154	-0.846	-2.538
28	-1.008	0.256	0.062
30	11.426	4.174	1.770
31	-1.037	0.494	0.068
32	0.466	-0.662	-0.507
33	2.452	-1.540	0.348
34	0.790	1.268	-3.099
36	-3.068	1.333	0.328
37	-2.002	0.807	-1.103
39	2.379	-2.203	0.269
40	1.817	-1.524	-0.501
41	0.734	0.555	-3.823

水深が深くて濃度の高い地点となっている。

次に、Z₁とZ₃のスコア散布図から、有機塩素系化合物の割合の高いグループと芳香族系化合物の割合の高いグ

図7(1) Z₁とZ₂間のスコア散布図

ループに大別できる。

すなわち、東湾側は有機塩素系化合物の割合が高く、西湾側は、芳香族系化合物の汚染の割合が高くなっている。

なお、化学物質濃度を対数変換した後に主成分分析を行った場合も同様な結果が得られている。

3.7 地点間の分類

地点間の分類を行うために、(1-相関係数の絶対値)を類似度とし、最長距離法を用いてクラスター分析を行った。クラスター分析結果を図8に示す。

デンドログラムから、次の4つのグループに分類された。

- Aグループ：東湾の中央部
 - Bグループ：西湾の中央部
 - Cグループ：西湾の沿岸部
 - Dグループ：東湾の沿岸部
- A, Bグループの東湾中央部及び西湾中央部は還流域

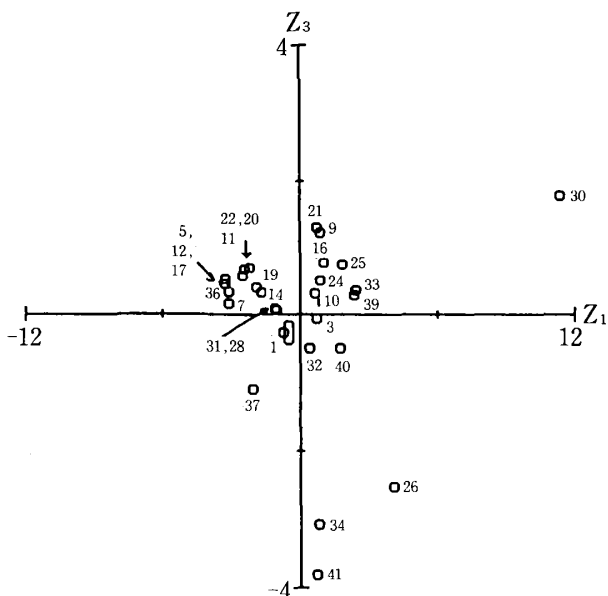


図7(2) Z_1 と Z_3 間のスコア散布図

であるとともに水深の深い凹部水域であり、化学物質の集積しやすい水域と考えられる。

Cグループの西湾沿岸部は都市部、港湾部からの影響を受けている水域及び海水の停滞域にあたり化学物質の集積しやすい水域と考えられる。

Dグループの東湾沿岸部は陸奥湾の中では最も化学物質濃度の低い水域と考えられる。

3.8 化学物質の濃度と底質の種類の関係

底質の化学物質濃度は、底質の粒度組成の影響を受けていると考えられる。

そこで、化学物質の濃度を底質の種類別にみると、外観が砂れき一砂一砂泥一泥質の順に化学物質濃度が高くなっていった。なお、No.41, 34地点では砂質ではあるがB(a)pとB(e)pの濃度が高く特異な水域であった。

p-Dichlorobenzene及びB(a)pの例を図9, 10に示す。

3.9 強熱減量当りの化学物質濃度

底質の化学物質濃度は底質の有機物含量に依存すると考えられる。

そこで、強熱減量当りの化学物質濃度を算出し、その分布をみたところ次のとおりであった。

有機塩素系化合物については、前述の化学物質濃度の分布とほぼ同じであった。

一方、芳香族化合物については、西湾沿岸（特にNo.34, 37, 41地点）に極大をもつという特徴がみられた。

p-Dichlorobenzene/ILとB(a)p/ILの分布例を図11に示す。

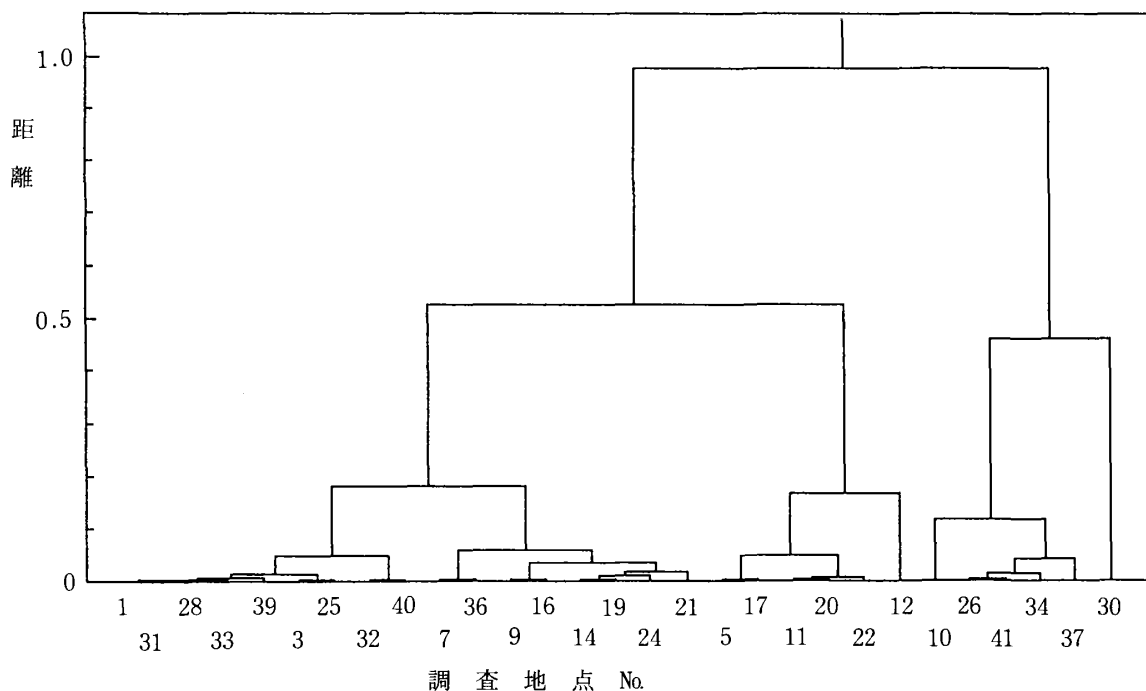


図8 クラスタ分析解析結果

3.10 化学物質の検索

GC/MSには未知物質の検索ができるという特徴があるため、No.30地点の底質抽出液のマススペクトル、PTRIから化学物質の検索を試みた。

その結果、p-Dichlorobenzene, DBP, Fluoranthene, Pyrene, B(a)A, Chrycene, DOP, B(b)F, B(j)F, B(k)F, B(a,h)A, B(g,h,i)Pが検索された。

底質抽出液のTICを図12に示す。

多環芳香族炭化水素が多く検索されている⁷⁻⁸⁾。

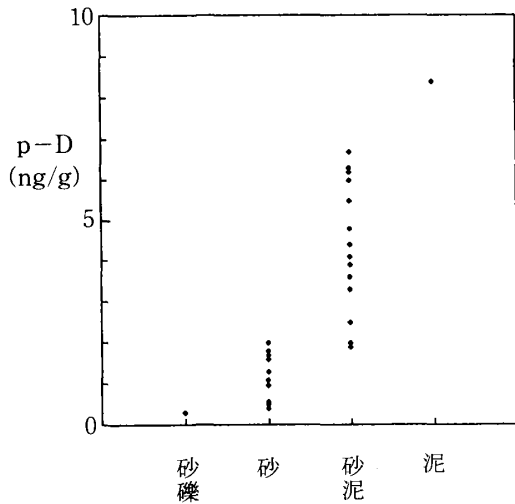


図9 底質種類別のp-Dichlorobenzene濃度

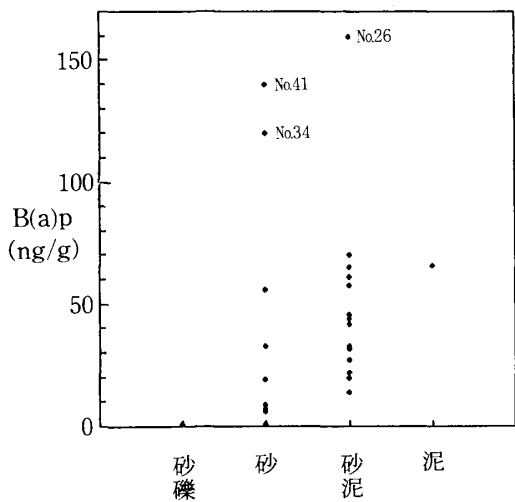


図10 底質種類別のB(a)p濃度

4. ま と め

陸奥湾の底質環境を把握するため、底質中化学物質の水平分布特性について検討した結果は、次のとおりであった。

4.1 化学物質の検出状況

TBP, α -HCH, β -HCH, Dieldrinは全地点で検出されなかった。

m-Dichlorobenzene(0.2), HCB(0.1), o-Terphenyl(0.07), t-Chlordane(0.12), c-Chlordane(0.08), t-Nonachlor(0.06), c-Nonachlor(0.04)は青森市地先水域のみで検出された。()内は検出濃度ng/g·dry)

p-Dichlorobenzeneはn.d~8.4ng/g·dry, o-Dichlorobenzeneはn.d~1.5ng/g·dry, BHTはn.d~4.0ng/g·dry, m-Terphenylはn.d~1.7ng/g·dry, p,p'-DDEはn.d~0.58ng/g·dry, p-Terphenylはn.d~0.62ng/g·dry, p,p'-DDDはn.d~1.7ng/g·dry, p,p'-DDT

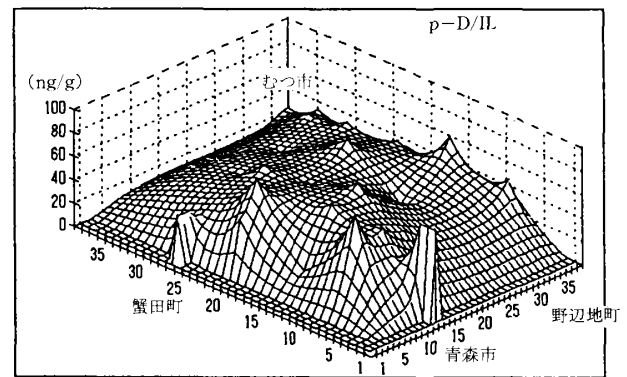


図11(1) p-Dichlorobenzene/I.L

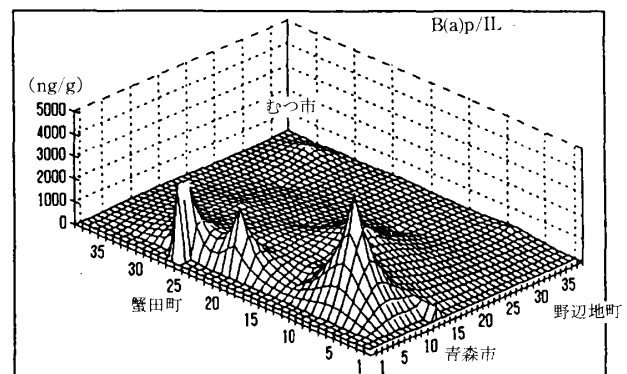
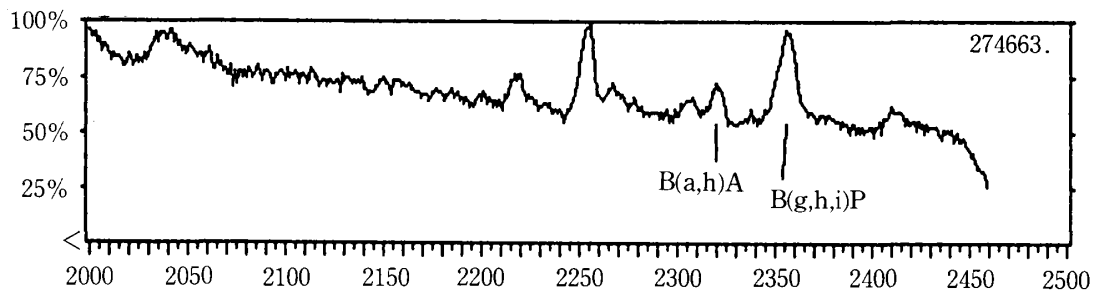
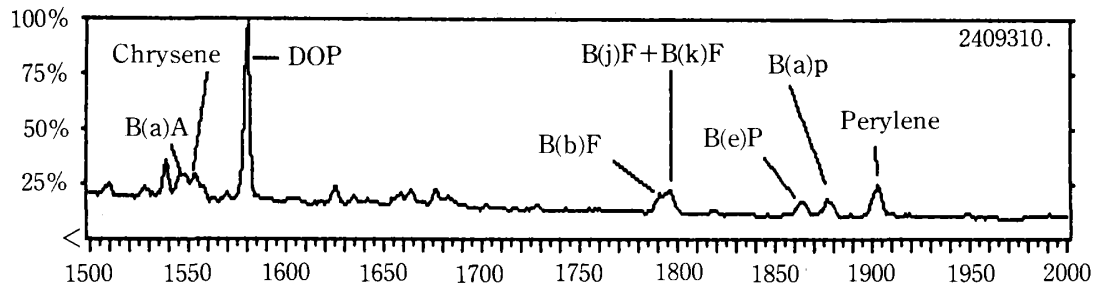
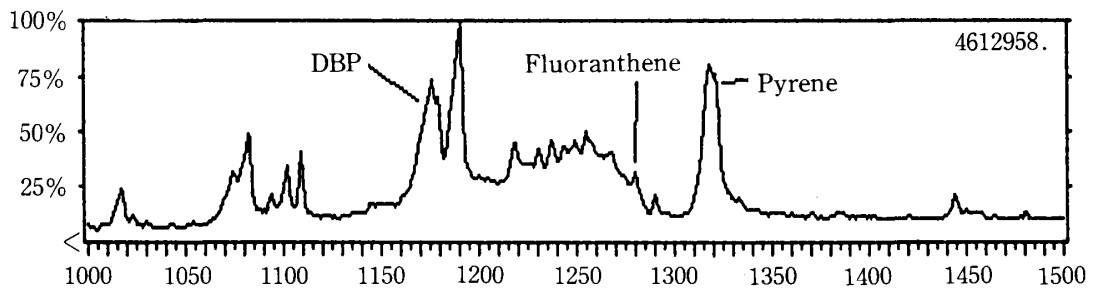
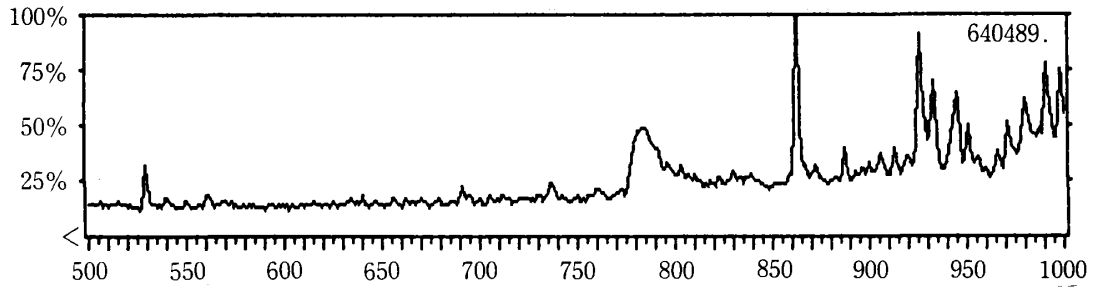
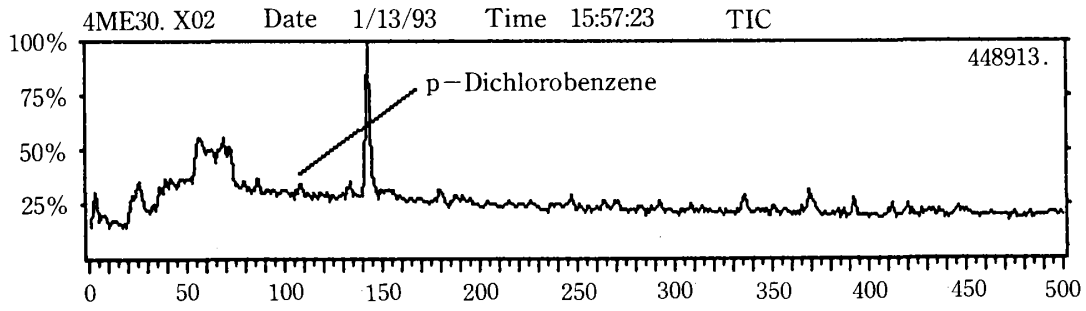


図11(2) B(a)p/I.L

図11 強熱減量当りの化学物質水平濃度分布



(No.30地点)

図12 陸奥湾底質抽出液のTIC

はn.d~1.8ng/g·dry, B(a)pは0.86~160ng/g·dry, B(e)pは0.7~57ng/g·dry, Peryleneは0.48~120ng/g·dryの範囲で検出された。

陸奥湾底質の化学物質濃度は、全国レベルより低く、問題のない濃度レベルであった。

4.2 水平分布特性

(1) 陸奥湾の中で相対的に化学物質濃度の高い水域は、陸奥湾の中央域と主要都市（青森市、むつ市）地先水域にみられた。

陸奥湾中央域は水深が深く、海底の凹部にあたり、また還流域でもあることから物質の集積しやすい地点と考えられる。

一方、青森市、むつ市地先水域は停滞域であるとともに、主要都市部、港湾部からの流出負荷の影響を受けている地点と考えられる。

結局、陸奥湾底質の化学物質濃度は、都市部等から供給される負荷量と水域内の水理環境によってその分布が決まっているものと考えられる。

(2) 物質によって水平分布に差がみられ、m-Terphenyl, p-Terphenyl, p,p'-DDT, B(a)p, B(e)p, Perylene, BHTは西湾側の方が濃度が高く、p-Dichlorobenzene, o-Dichlorobenzene, p,p'-DDE, p,p'-DDD, 強熱減量は、西湾中央、東湾中央で相対的に濃度が高くなっていた。

(3) 陸奥湾の中で最も化学物質濃度の高い水域は、青森市地先水域であり、最も濃度の低い水域は東湾沿岸部であった。

4.3 主成分分析による検討

陸奥湾底質の化学物質水平濃度分布特性を総合的にみるため、主成分分析を行った。

固有値が1以上の主成分は3個であり、この3成分で全体の変動の95.4%を説明できた。

第1主成分は総合的な化学物質濃度の分布状態を示す指標、第2主成分は水深と化学物質濃度の関係を示す指標、第3主成分は有機塩素系化合物と芳香族化合物の割合に関する指標と考えられる。

概ね Z_1 、 Z_2 ともに正のスコアの地点は水深が浅くて濃度が高い地点、 Z_1 が正、 Z_2 が負のスコアの地点は水深が深くて濃度の高い地点となっている。

更に、東湾側は有機塩素系化合物の割合が高く、西湾側は、芳香族系化合物の割合が高くなっていた。

4.4 地点間の分類

地点間の分類を行うために、クラスター分析を行った結果、次の4つの水域に分類された。

東湾中央部：化学物質の集積しやすい水域であり、有機塩素系化合物の割合が高い水域

西湾中央部：化学物質の集積しやすい水域であり、芳香族化合物の割合が高い水域

西湾沿岸部：都市部からの流出負荷の影響を受ける水域

東湾沿岸部：最も化学物質濃度の低い水域

4.5 化学物質の濃度と底質の種類の関係

概ね化学物質濃度は、外観が砂れき一砂一砂泥一泥質の順に濃度が高くなっていた。

4.6 化学物質の検索

No.30地点の底質抽出液のマススペクトル、PTRIから化学物質の検索を行った。

その結果、p-Dichlorobenzene, DBP, Fluoranthene, Pyrene, B(a)A, Chrycene, DOP, B(b)F, B(j)F, B(k)F, B(a,h)A, B(g,h,i)Pが検索された。

文 献

- 1) 石塚伸一：水質・底質化学物質調査におけるGC/MS分析の基礎的検討，青森県環境保健センター研究報告，25~36，3，1993.
- 2) 環境庁環境保健部保健調査室：水質・底質モニタリング調査マニュアル（1991年版），平成3年7月.
- 3) 青森県：陸奥湾水質環境予測調査報告書（昭和56年3月）
- 4) 青森県：陸奥湾漁業開発基本調査最終報告書，昭和51年3月.
- 5) 青森県水産増殖センター：昭和62年度陸奥湾漁場保全対策基礎調査報告書.
- 6) 環境庁環境保健部保健調査室：化学物質と環境，平成3年版，平成4年12月.
- 7) 三好広志，深沢均，太田俊也，浅岡龍郎：環境中におけるベンゾ(a)ピレン類の実態調査，静岡県衛生環境センター報告，99-105，34，1991.
- 8) 川田邦明，横山ひろみ，森山登，白井文雄：中小河川底質中の多環芳香族炭化水素の分布，衛生化学，248-255，34（3），1988.
- 9) 有賀孝成，他：多摩川底質中の多環芳香族炭化水素調査，東京都衛生研究所年報，371-377，35，1984.

Abstract

Property of Horizontal Distribution of Chemical Substances in Sediment in the Mutsu Bay

Shin-ichi ISHIZUKA, Hajime MIKAMI and Susumu HAYAKARI

An environment of water and sediment in the Mutsu Bay of today is relatively clear, but we entertain misgivings about increasing pollution with various and complex life style. We investigated, in this paper, a horizontal distribution of chemical substances in sediment for understanding the environment of it.

The concentrations of chemical substances in sediment in the Mutsu Bay are lower than the level of the whole country, so they are out of question.

The zone of relatively higher concentration of them was the middle area and a point of main cities (Aomori and Mutsu-city), the former might be an area to accumulate chemical substance and the latter effected by the load of outflow from city.

By cluster analysis of the concentration of chemical substance in sediment, the waters of the Mutsu Bay was divided into 4 classes such as the central part of the east and the west, the distinct along the shore of the west and the east of the Bay.

Key words : chemical substance, Mutsu Bay, sediment, distribution, cluster analysis

ゴルフ場における農薬の使用状況と排水中濃度

石塚 伸一 佐藤真理子 高柳 和弘¹
奈良 忠明² 今 俊夫³

ゴルフ場使用農薬による環境汚染状況を把握するため、青森県内の13ゴルフ場における農薬の使用状況と排水中濃度を調査した。使用量の多い農薬はオキシシン銅、チウラム、キャプタン、ダイアジノン、ブタミホスであった。シマジンとテルブカルブは本県では使用されていなかった。

農薬散布のピークは、殺菌剤では11月頃、殺虫剤では夏期、除草剤では5月と10月であった。

ゴルフ場の排水中からフルトラニル、イソプロチオラン、オキシシン銅、トルクロホスメチル、メコプロップ、ブタミホス、アシュラムが微量検出されたが、いずれの農薬も環境庁の指針値を大きく下回っており、問題のない濃度レベルであった。

Key words: water pollution, pesticide, golf course

1. はじめに

ゴルフ場では芝の管理のため農薬が使用されている。近年、これらゴルフ場使用農薬による河川水等の環境汚染が懸念され、それに対処するため、環境庁から30種類の農薬について、ゴルフ場排水の暫定指針値が示された¹⁾。

当所では、ゴルフ場使用農薬による環境汚染状況を把握するため、青森県内の13ゴルフ場における農薬の使用状況と排水中濃度を調査している。

本稿では、平成元年度～4年度の調査結果について報告する。

2. 方 法

2.1 調査時期

(1) ゴルフ場における農薬の使用量

平成元年度～平成3年度

(2) ゴルフ場排水中の農薬濃度

平成3年度～平成4年度

なお、排水中農薬調査は可能な限り降雨時等排水中の農薬濃度の高くなる時に調査を行った。

2.2 調査試料

調査試料はゴルフ場排水口において採取した。

なお、ゴルフ場によっては、複数の排水口から採取した。

2.3 調査対象ゴルフ場

県内全ゴルフ場 (13ゴルフ場)

2.4 調査対象農薬

環境庁から指針値の示されている農薬(指針値設定農薬)を調査対象とした。

平成3年度: 21物質

平成4年度: 30物質

2.5 分析方法

分析方法は、環境庁または厚生省の方法に準じた²⁻⁶⁾。

オキシシン銅、アシュラム、チウラム、ベンスリドはHPLCにより、それ以外はGC/MSにより分析した。

GC/MS分析の試薬、分析装置、分析操作は既報のとおりである⁷⁾。

3. 結果及び考察

3.1 県内ゴルフ場の概要

平成5年3月現在、県内には13ゴルフ場が営業中である。規模は27ホールを有するものが2箇所、18ホールを有するものが8箇所、9ホールを有するものが3箇所である。13ゴルフ場の総面積は約118haであり、県土面積の0.12%を占めている。

なお、今後、新規に営業予定のものや、コースの増設予定のものがいくつかある。

3.2 農薬の使用状況

(1) 農薬の種類

指針値設定農薬のうち、本県ゴルフ場で使用されている農薬は19種類、使用されていない農薬は11種類であった。これらの種類を表1に示す。

各農薬の使用されているゴルフ場数及び使用量を表2

1: 八戸公害事務所 2: 鯉ヶ沢保健所 3: 環境保全課

表1 ゴルフ場における使用農薬の種類（青森県，平成元年～3年度，指針値設定農薬）

	使用されている農薬	使用されていない農薬
殺虫剤	イソキサチオン，ダイアジノン トリクロルホン，フェニトロチオン	イソフェンホス，ピリダフェンチオン クロルピリホス
殺菌剤	イソプロチオラン，イプロジオン エトリジアゾール，オキシシン銅 クロロタロニル，クロロネブ チウラム，トルクロホスメチル フルトラニル，ペンシクロン メプロニル，キャプタン	
除草剤	アシュラム，ブタミホス メコプロップ	ベスロジン，シマジン プロピザミド，テルブカルブ ペンディメタリン，メチルダイムロン ナプロパミド，ベンスリド

表2 農薬使用ゴルフ場数及び農薬使用量（青森県）

農薬名	農薬使用ゴルフ場数			農薬使用量 (kg)			
	H元	H2	H3	H元	H2	H3	
殺虫剤	ダイアジノン	6	6	6	516	457	2065
	トリクロルホン	5	6	7	143	243	303
	フェニトロチオン	3	5	5	137	305	301
	イソキサチオン	1	0	0	1	0	0
殺菌剤	イソプロチオラン	4	6	8	196	210	234
	イプロジオン	4	4	4	141	120	136
	エトリジアゾール	2	1	0	10	2	0
	オキシシン銅	13	13	11	1536	1505	1446
	キャプタン	10	9	9	580	597	394
	クロロタロニル	7	8	3	357	185	114
	クロロネブ	4	7	5	67	236	324
	チウラム	11	11	11	1046	750	568
	トルクロホスメチル	0	2	3	0	17	115
	フルトラニル	4	9	10	196	266	332
	ペンシクロン	1	1	0	15	18	0
	メプロニル	1	1	2	38	21	27
除草剤	アシュラム	1	1	2	69	2	190
	ブタミホス	2	2	2	82	346	591
	メコプロップ	4	5	8	1701	211	249

に示す。

半数以上のゴルフ場で使用されている農薬（平成3年度）は除草剤のメコプロップ、殺虫剤のトリクロロホン、殺菌剤のイソプロチオラン、オキシシン銅、チウラム、フルトラニル、キャプタンであった。

使用されている農薬を用途別にみると、殺菌剤は指針値設定農薬12種類全てが使われていた。除草剤は11種類のうち3種類のみ、殺虫剤も7種類のうち3種類のみと限られた農薬が使用されていた。

全国的に排水中の検出率の高いシマジンとテルブカルブは、本県では使用されていなかった。

(2) 農薬使用量

平成元年度から平成3年度における本県ゴルフ場の農薬使用量の状況を表2、図1に示す。

指針値設定農薬は、本県全ゴルフ場で約5,500~7,400 kg/年散布されていた。

平成3年度の本県全ゴルフ場における農薬（指針値対象外農薬を含む）の使用量（製品としての量）は約14.5 tであり、本県の同年度の農薬流通量は20,935t⁸⁾であるから、本県における農薬使用量のうち0.07%がゴルフ場で使用されていたことになる。

用途別に使用量をみると、殺菌剤が最も多く使用されていた。

毎年、使用量の多い農薬は殺菌剤のオキシシン銅(1,446~1,536kg)、チウラム(568~1,046kg)、キャプタン(394~597kg)、殺虫剤のダイアジノン(457~2,065kg)、除草剤のブタミホス(82~591kg)であった。()内は平成元年度~3年度における使用量である。)これら5種類の農薬で指針値設定農薬の全使用量の70~80%を占めている。

メコプロップは平成元年度は最も多く使われたが、その後使用量が減少した。

一方、ダイアジノンは使用量が増加していた。

ゴルフ場排出口からよく検出されるフルトラニル及びイソプロチオランの全農薬使用量に対する割合は、それぞれ3~5%、3~4%であった。

単位面積当りの農薬使用量（平成3年度）についてみると、平均値7.8kg/ha、最大値は14.7kg/ha、最小値は2.9kg/haであり、ゴルフ場によって開きがあった。

単位面積当りの農薬使用量の度数分布を図2に示す。

(3) 農薬の月別散布パターン

図3に平成2年の月別農薬散布量を示す。

農薬散布パターンには、次のような特徴があった。

- 殺菌剤は雪腐防止のため、降雪直前（11月頃）に最も多く散布されていた。
- 除草剤は5月と10月頃に散布のピークがあった。
- 殺虫剤は夏期に多く散布されていた。

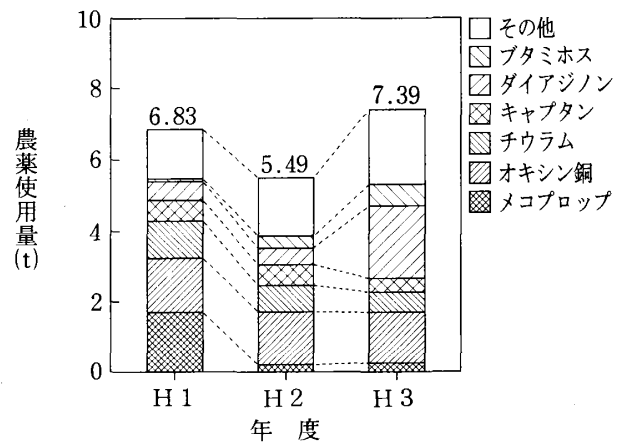


図1 ゴルフ場における農薬使用量

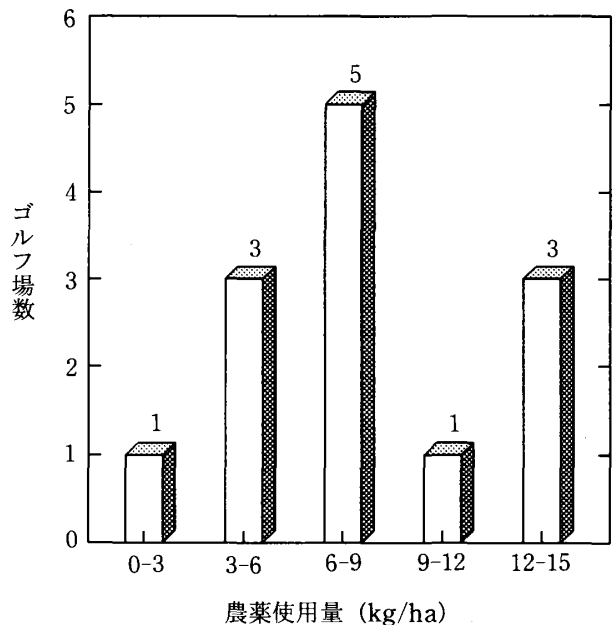


図2 単位面積当たりの農薬使用量

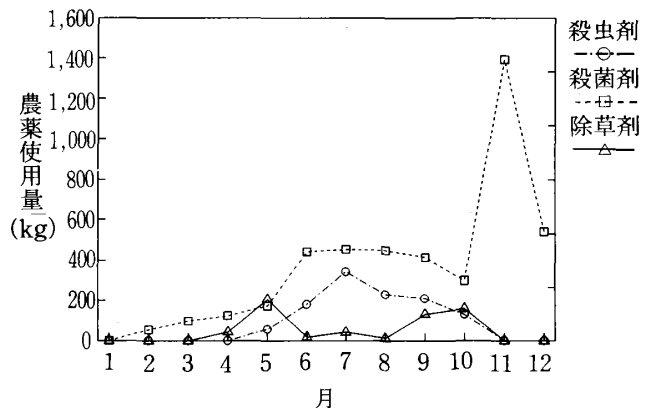


図3 農薬使用量の経月変化 (平成2年)

表3 ゴルフ場排水中農薬調査結果 (H3~H4年度)

農薬名	青森県の調査結果				全国の調査結果 ⁹⁾		排水中の 指針値 ($\mu\text{g/l}$)	
	検出最高 濃度($\mu\text{g/l}$)	検出 検体数	調査 検体数	検出率 (%)	最高検出 濃度($\mu\text{g/l}$)	検出率 (%)		
殺虫剤	イソキサチオン	N.D		41		5	0.5	80
	イソフェンホス	N.D		41		1	0.5	10
	クロルピリホス	N.D		41		1	0.2	40
	ダイアジノン	N.D		41		32	3.5	50
	トリクロルホン	N.D		41		9	0.5	300
	ピリダフェンチオン	N.D		27		17.8	0.7	20
	フェニトロチオン	N.D		41		53	1.6	30
殺菌剤	イソプロチオラン	2	10	41	24.4	113	12.6	400
	イプロジオン	N.D		41		173	1.7	3000
	エトリジアゾール	N.D		27		4	0.1	40
	オキシ銅	2	3	41	7.3	12	0.8	400
	キャプタン	N.D		41		2.1	0.2	3000
	クロロタロニル	N.D		41		2	0.3	400
	クロロネブ	N.D		27		2	0.4	500
	チウラム	N.D		41		23	2.4	60
	トルクロホスメチル	3	2	41	4.9	55	2.7	800
	フルトラニル	4	14	41	34.1	146	18.1	2000
	ペンシクロン	N.D		27		32	4.6	400
	メプロニル	N.D		27		2.8	0.9	1000
	除草剤	アシュラム	3	1	41	2.4	150	3.9
シマジン		N.D		41		130	20.7	30
テルブカルブ		N.D		27		540	20.5	200
ナプロパミド		N.D		41		57	2.8	300
ブタミホス		3	1	41	2.4	31	0.6	40
プロピザミド		N.D		41		190	6.0	80
ベンスリド		N.D		41		170	2.2	1000
ベスロジン		N.D		27		7	0.6	800
ペンディメタリン		N.D		41		4	0.4	500
メコプロップ		3.3	2	27	7.4	82	3.1	50
メチルダイムロン		N.D		27		12.4	1.5	300

注1) N.D チウラム：<0.2；アシュラム，オキシ銅，ベンスリド：<0.5；その他<0.1

注2) 検出検体数の空欄：0

注3) 検出率の空欄：0%

3.3 排水中の農薬

(1) 検出農薬の種類及び検出率

排水中農薬調査結果を表3に示す。

排水中から殺菌剤のフルトラニル(34.1%), イソプロチオラン(24.4%), オキシシン銅(7.3%), トルクロホスメチル(4.9%), 除草剤のメコプロップ(7.4%), ブタミホス(2.4%), アシュラム(2.4%)が検出され, その検出率は()内に示すとおりであった。

フルトラニルとイソプロチオランの検出率が特に高く20%を超えていた。

殺虫剤は検出されなかった。

全国の測定結果(平成3年度)⁹⁾をみると, シマジン(20.7%), テルブカルブ(20.5%), フルトラニル(18.1%), イソプロチオラン(12.6%)が検出されやすい農薬であり, 検出率が10%を超えていた。()内は検出率である。)

全国的に検出率の高いフルトラニルとイソプロチオランは本県においても検出率が高く, 全国と同様の傾向であった。

シマジン, テルブカルブは全国的には検出率が高いが, 前述したようにこれら農薬は本県では使用されておらず, 従って検出されていない。

農薬にグラステンが使用されている場合, フルトラニルとイソプロチオランが同時に検出される場合が多かった。

(2) ゴルフ場排水中の農薬検出濃度

排水中の濃度を表4に示す。

全国の測定結果(平成3年度)では除草剤のシマジン, テルブカルブ, プロピザミド, メコプロップは指針値を超えて検出されている。

本県の調査結果では, 検出濃度はいずれも指針値を大きく下回っており, 問題のない濃度レベルであった。

本県における最高検出濃度は, イソプロチオランが0.002mg/l, オキシシン銅が0.002mg/l, トルクロホスメチルが0.003mg/l, フルトラニルが0.004mg/l, アシュラムが0.003mg/l, ブタミホスが0.003mg/lは, メコプロップが0.0033mg/lであった。

一方, これらの全国における最高検出濃度は, イソプロチオランが0.113mg/l, オキシシン銅が0.012mg/l, トルクロホスメチルが0.055mg/l, フルトラニルが0.146mg/l, アシュラムが0.15mg/l, ブタミホスが0.031mg/l, メコプロップが0.082mg/lであり, 本県における検出濃度は全国的に低いレベルであった。

(3) 農薬の検出状況

排水中の農薬の検出状況は, 農薬の使用量(剤型, 散布方法, 使用量), 農薬成分の物理化学的性質(水溶解度, 分解性等), ゴルフ場の構造(調整池の容量, 土質, 排水構造, 傾斜, 水はけの状態), 気象状況(降水量)等

の要因が複雑に絡み合っているものと考えられる¹⁰⁻¹¹⁾。

フルトラニルとイソプロチオランがよく検出されるのは, これらが分解しにくい農薬であること, またメコプロップが比較的検出されるのは, この水溶解度が大きいことと関連があるものと考えられる。

3.4 ゴルフ場における環境汚染防止対策

青森県では, 平成2年9月に「青森県ゴルフ場の設置等に係る環境保全調査等及びゴルフ場における農薬の適正使用等に関する要綱」を定め, 所要の指導を行っている。指導の結果, 各ゴルフ場では, 毒性の弱い農薬に変更したり, 農薬の使用量及び散布頻度を必要最小限にとどめたり, 除草剤を使用する場合はスポット処理にとどめる等種々の措置を講じている。

今回の調査結果から, 排水中の農薬濃度は, 環境庁の指針値を大きく下回っており, 問題のない濃度レベルであることが分かった。

今後も, 排水中の農薬監視や農薬の適正使用について事業者を指導する等, 環境の保全に万全を期すこととしている。

4. ま と め

本県におけるゴルフ場使用農薬による環境汚染状況を把握するため, 農薬の使用状況, 排水中の農薬調査を行った結果(平成元年度~4年度)は次のとおりであった。

(1) 農薬の使用状況

1) 指針値設定農薬のうち, 本県ゴルフ場で使用されている農薬は19種類であった。

全国的に排水中の検出率の高いシマジンとテルブカルブは本県では使用されていなかった。

毎年, 使用量の多い農薬は殺菌剤のオキシシン銅, チウラム, キャプタン, 殺虫剤のダイアジノン, 除草剤のブタミホスであった。

2) 本県全ゴルフ場で, 指針値設定農薬は年間約5,500~7,400kg散布されていた。単位面積当りの農薬使用量(平成3年度)についてみると, 平均値は7.8kg/ha, 最大値は14.7kg/ha, 最小値は2.9kg/haであった。

3) 農薬散布パターンをみると次のような特徴があった。殺菌剤は雪腐防止のため降雪直前(11月頃)に最も多く散布されており, 除草剤は5月と10月に散布のピークがあり, 殺虫剤は夏期に多く散布されていた。

(2) 排水中の農薬

1) 検出農薬の種類及び検出率

排水中から殺菌剤のフルトラニル(34.1%), イソプロチオラン(24.4%), オキシシン銅(7.3%), トルクロホスメチル(4.9%), 除草剤のメコプロップ(7.4%), ブタミホス(2.4%), アシュラム(2.4%)が検出され, その検出率は()内に示すとおりであった。

表4 ゴルフ場排水中農薬検出濃度

(単位: $\mu\text{g/l}$)

農薬の種類	調査年度 サンプル名	H3秋				H4春					H4秋				排水中 指針値		
		U	R	A	O ₁	O ₂	U	B	R	A	N	O ₂	C	U		B	R
殺菌剤	イソプロチオラン	0.4	2	0.3	0.4		0.3	0.7	0.4		0.1	0.3				1.7	400
	オキシシン銅				2									1	0.7	400	
	トルクロホスメチル						0.2		0.3							800	
	フルトラニル	0.2	1		1	0.4	0.4	2.2	0.9	0.1	0.1	4	0.1	0.1	0.6	1.3	2000
除草剤	アシュラム															4	2000
	ブタミホス															3	40
	メコプロップ						3.3									2.5	50

注1) 空欄はN.Dである。

アシュラム, オキシシン銅: <0.5; イソプロチオラン, トルクロホスメチル, フルトラニル, ブタミホス, メコプロップ: <0.1

フルトラニルとイソプロチオランの検出率が特に高く20%を超えていた。

全国的にもフルトラニルとイソプロチオランは検出率が高く、本県は全国と同様の傾向であった。

殺虫剤は検出されなかった。

グラステンが使用されている場合、フルトラニルとイソプロチオランが同時に検出される場合が多かった。

2) ゴルフ場排水中の農薬検出濃度

ゴルフ場排水中の農薬検出濃度は、いずれも指針値を大きく下回っており、問題のない濃度レベルであった。

最高検出濃度は、イソプロチオランが0.002mg/l、オキシシン銅が0.002mg/l、トルクロホスメチルが0.003mg/l、フルトラニルが0.004mg/l、アシュラムが0.003mg/l、ブタミホスが0.003mg/l、メコプロップが0.003mg/lであった。

検出濃度は全国的にみても低いレベルであった。

文 献

- 1) 環境庁水質保全局長通知：ゴルフ場で使用される農薬による水質汚濁の防止に係る暫定指導指針の一部改正について、平成4年12月21日。
- 2) 環境庁水質保全局長通知：ゴルフ場で使用される農薬による水質汚濁の防止に係る暫定指導指針について、平成2年5月24日。
- 3) 環境庁水質保全局長通知：ゴルフ場で使用される農薬による水質汚濁の防止に係る暫定指導指針の一部改正について、平成3年7月30日。
- 4) 厚生省生活衛生局水道環境部水道整備課長通知：ゴルフ場使用農薬に係る検査方法について、平成2年5月31日。
- 5) 厚生省生活衛生局水道環境部水道整備課長通知：ゴルフ場使用農薬に係る検査方法について、平成3年2月28日。
- 6) 厚生省生活衛生局水道環境部水道整備課長通知：ゴルフ場使用農薬に係る検査方法について、平成3年7月30日。
- 7) 石塚伸一：GC/MSによるゴルフ場使用農薬分析方法の検討、青森県環境保健センター研究報告, 3, 37-48, 1992。
- 8) 青森県：環境白書, 平成4年版, 132, 1993。
- 9) 環境庁水質保全局土壌農薬課：ゴルフ場暫定指導指針対象農薬に係る水質調査結果について、平成4年7月31日。
- 10) 早川修二, 佐来栄治, 加藤進, 金丸豪：農薬の分解性について—蒸留水, 河川水, 海水中での分解性の比較—, 三重県環境科学センター研究報告, 12, 26-30, 1992。
- 11) 北森成治, 他：農薬の水環境における分解に及ぼす物理化学的・生物学的因子の影響, 用水と廃水, 34(6), 477-484, 1992。

Abstract

State of Use and Concentration of Pesticide in Water Pollution in Golf Course

Shin-ichi ISHIZUKA, Mariko SATOH, Kazuhiro TAKAYANAGI
Tadaaki NARA and Toshio KON

To make clear the state of environmental pollution by the use of pesticide in the golf course, we studied the conditions of the application and the concentration of pesticides in the thirteen golf courses in Aomori prefecture. A lot of oxine-copper, thiram, captan, diazinon and butamifos were used, but simazine and terbucarb were not spread in the prefecture.

The peaks of pesticide spraying were near November, summer and both May and October by fungicide, insecticide and herbicide, respectively.

The trace of flutolanil, isoprothiolane, oxine-copper, tolclofsmethyl, mecoprop, butamifos and asulam were detected in the water pollution in the golf course, but these concentration levels were much lower than the index of the environmental protection agency, and consequently they were beside the question.

Key words : water pollution, pesticide, golf course

総合指標による河川水質の評価

大久保英樹 三上 一 早狩 進

県内の河川について、公共用水域の水質測定計画に基づいて行った調査結果から総合水質指標(WQI: Water Quality Index)を作成し河川水質の評価を行い、水質汚濁マップにより汚濁状況を把握した。その結果、県内の河川水質は概ね良好であったが、一部中小都市河川、特に類型指定されていない河川の汚濁が高い傾向を示した。また、汚濁の高い地点の季節変動をみると同一水系または周辺水系が同じ挙動を示す傾向にあることから、汚濁の要因に地域特性があることも示唆された。今回、WQIによる水質評価を試みたがBOD等の単一項目によるよりも煩雑さがなく、視覚的な理解が得られ易い利点があるものと思われる。

Key words: river, evaluation of water, WQI (Water Quality Index), map of water pollution.

1. はじめに

水質の常時監視は公共用水域の水質測定計画に基づき河川、湖沼、海域において実施されているが、評価については河川はBOD、湖沼・海域はCOD等の単一指標によるところが多い。しかしながら、各水域の水質特性は種々の項目が密接に関連し、固有の水環境を形成していることから水質の有する多面的な汚濁状況を的確に把握する評価手段の開発が望まれている。その一つとして複数の項目により総合的に水質を評価する手法が各地で試みられている¹⁻⁶⁾。今回、県内河川の公共用水域の水質測定データを用い、主成分分析法により一般項目に係わる総合水質指標(WQI: Water Quality Index)及び水質汚濁マップを作成し、水質汚濁状況の総合的な把握とWQIによる水質汚濁特性について検討したので報告する。

2. 調査方法

昭和63年度の公共用水域測定結果を用いた。対象とした項目は各地点において全て測定されている水温、pH、DO、BOD、SS、E.coliの6項目で、77水域、155地点、データ数は6,840 (1,140×6)である。

表1 基礎統計量 (原データ)

変数	単位	平均値	最大値	最小値	標準偏差
水温	(°C)	11.9	28.0	0.1	6.80
pH		7.0	9.4	3.2	0.78
DO (mg/l)		10.1	15.0	1.0	1.86
BOD (mg/l)		1.5	33.0	0.3	2.00
SS (mg/l)		15.6	540.0	0.51	31.32
E.coli*		12400	350000	1	31100

* : (MPN/100ml)

3. 結果と考察

3.1 水質の概要

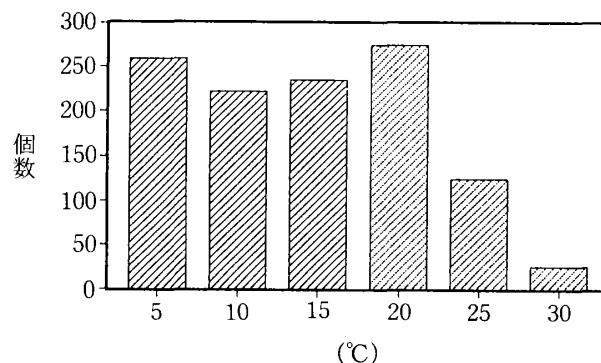


図1 水温の分布

対象とした各項目を基礎統計量 (表1) 及び度数分布からみると、水温は平均値11.9°Cであり、大部分は0~20°Cに分布している (図1)。

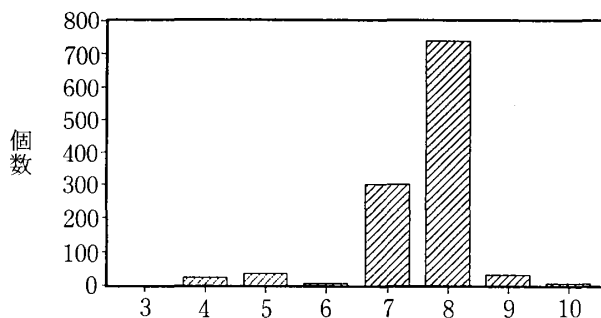


図2 pHの分布

pHは、平均値7.0で、最頻値はpH7~8である。また、温泉排水、休廃止鉱山、酸性湖からの流出等、自然由来

がほとんどと思われるpHの低下がみられる。また、夏季の炭酸同化作用によると思われるpHの上昇が認められる(図2)。

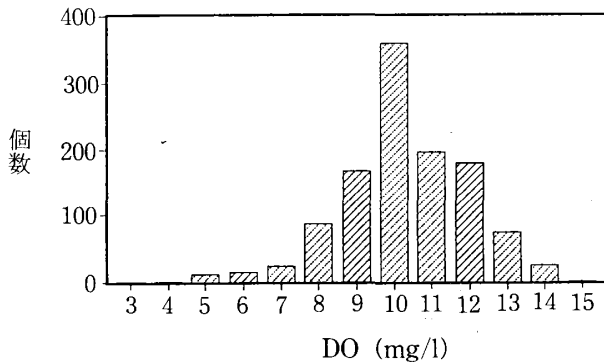


図3 DOの分布

DOは、平均値10.1 (mg/l)、最頻値は9~10 (mg/l)であり、正規分布に近い形となっている。また、汚濁の進行に伴うと思われるDOの低下がみられる(図3)。

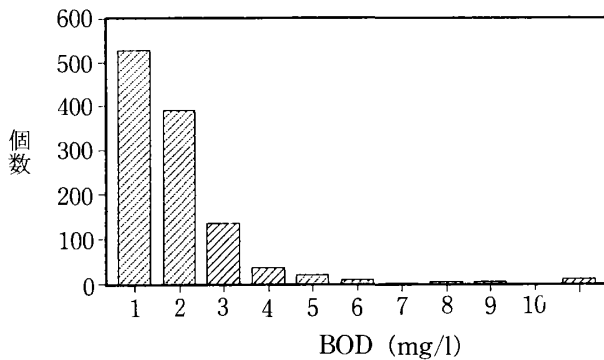


図4 BODの分布

BODは、平均値1.5(mg/l)であり最頻値は0~1 (mg/l)で大部分は、3 (mg/l)以下である(図4)。

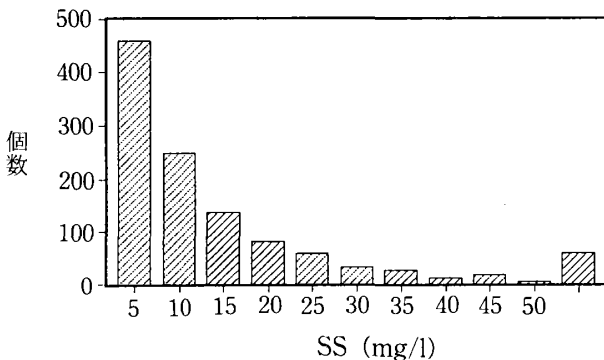


図5 SSの分布

SSは、平均値15.6(mg/l)であり最頻値は0~5 (mg/l)である。また、分布状況がBODと類似したものとなっているのが特徴である(図5)。

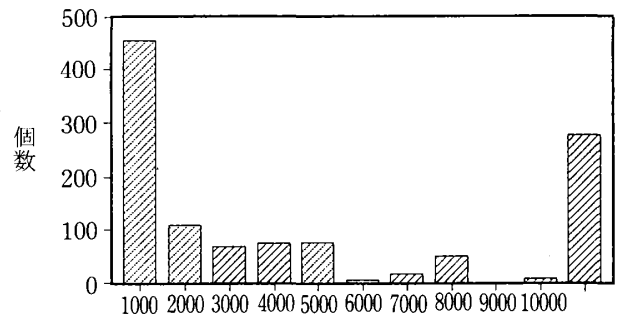


図6 E.coliの分布

E.coliは、平均値12400 (MPN/100ml)、最頻値は0~1000 (MPN/100ml)であるが、次いで10000 (MPN/100ml)以上が高くなっている(図6)。

3.2 WQIの作成

ここで統計解析を行うにあたり、使用するデータは正規分布に従うような数値変換を行う必要がある²⁾という指摘がされているため、各項目について χ^2 検定により分布を検討した。その結果、BOD、SS、E.coliの3項目は対数変換した方がより正規分布に近かったので次の変換様式で実施した。

原データ：水温、pH、DO

対数変換：BOD、SS、E.coli

表2 相関係数行列

変数	水温	pH	DO	BOD	SS	E.coli
水温	1.00					
pH	0.14**	1.00				
DO	-0.76**	-0.02	1.00			
BOD	0.10**	0.18**	-0.16**	1.00		
SS	0.04	0.01	-0.15**	0.40**	1.00	
E.coli	0.20**	0.24**	-0.31**	0.55**	0.38**	1.00

(** : $\gamma > 0.0762$ は、危険率1%で有意)

相関係数行列(表2)からDO、BOD、SS、E.coliの4項目は互いに相関がよく、また、汚濁特性を反映する項目と考えられることからこの4項目を用いて主成分分析により汚濁特性を把握した(表3)。

表3 主成分分析解析結果

成分	合成変数Z ₁	合成変数Z ₂	合成変数Z ₃
固有値	2.02	0.90	0.65
寄与率	0.50	0.73	0.89
DO	-0.34	-0.48	0.90
BOD	0.56	0.79	0.29
SS	0.49	0.69	0.33
E.coli	0.58	0.83	-0.03

主成分分析の結果、第1主成分(Z₁)はE.coliとBODが高い因子負荷量で抽出されたことから、Z₁は生活排水などによる水質汚濁を示す成分であると考えられる。第2主成分(Z₂)は、DOが高い因子負荷量で抽出されたことから自浄作用を示す成分であると考えられる。第3主成分(Z₃)は、SSの因子負荷量が高かったことから懸濁性汚濁を示す成分であると考えられる。

主成分分析の結果から第1主成分の固有ベクトルを用いて吉見²⁾らの方法により以下のとおりWQIを作成した。

$$WQI = \sum K_i (X_i - M_i) / D_i$$

K_i : i番目の変量の固有ベクトル

X_i : i番目の変数の実測値

M_i : i番目の変数の平均値

D_i : i番目の変数の標準偏差

すなわち

$$\begin{aligned} WQI &= -0.34\{(\text{DO}) - 10.1\} / 1.86 + 0.56\{\log(\text{BOD}) - 0.027\} / 0.36 + 0.49\{\log(\text{SS}) - 0.85\} / 0.54 + \\ & 0.58\{\log(\text{E.coli}) - 3.13\} / 1.13 \\ &= -0.58 + 0.51\log(\text{E.coli}) + 0.90\log(\text{SS}) + 1.56\log(\text{BOD}) - 0.18(\text{DO}) \end{aligned}$$

..... ①

得られたWQIは①式の各項目の符号から値が正に大きいほど汚濁が進行していることを示し、負に大きいと自浄作用が進んでいることを示している。WQIの度数分布を示す(図7)。

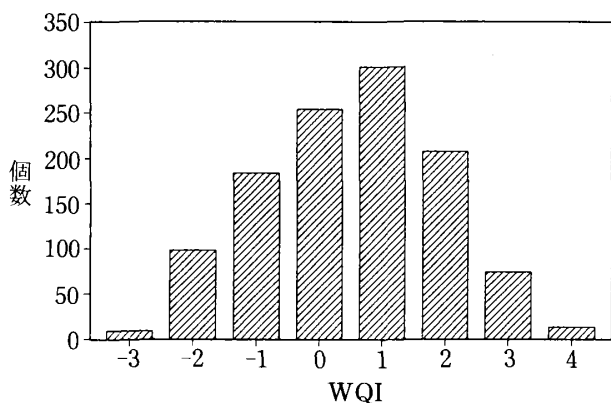


図7 WQIの分布

河川の水質は、BODで評価されることからWQIとBODの関係を見ると、BODが高濃度の時にWQIが低くなるものもあるが、概ねよい相関がみられることからWQIによる水質汚濁評価は可能であることがわかる(図8 ただし、BODは原データである)。

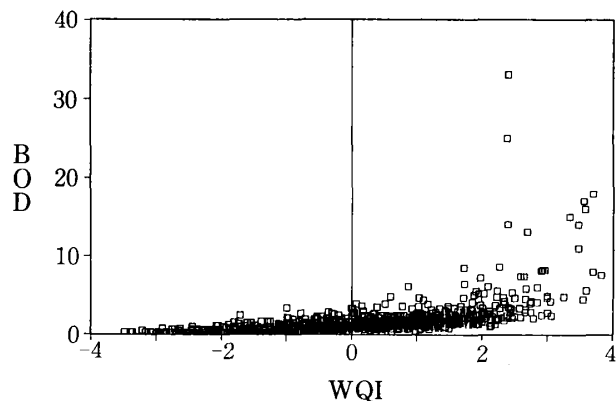


図8 WQIとBODの関係 (n=1140)

3.3 WQI (75%値) による類型分類

ここでWQIによる水質評価を行うためにその評価基準として①式にDO, BOD, SS, E.coliの類型別の環境基準値を代入して得られた値をWQI基準値と定めた(表4)。

表4 WQI値の類型分類

類型	DO (mg/l)	BOD (mg/l)	SS (mg/l)	E.coli (MPN/100ml)	WQI 基準値
AA	7.5以上	1以下	25以下	50以下	0.189以下
A	7.5	2	25	1000	1.327
B	5	3	25	5000	2.415
C	5	5	50	5000	3.032

一方、BODの評価はBOD75%値でされるため、各地点における年間の代表値として75%値を①式に代入してWQI75%値を算出した。このWQI75%値をWQI基準値によりどの類型に該当するか調べ各地点のWQI75%値の適合状況を類型別にみた(図9)。

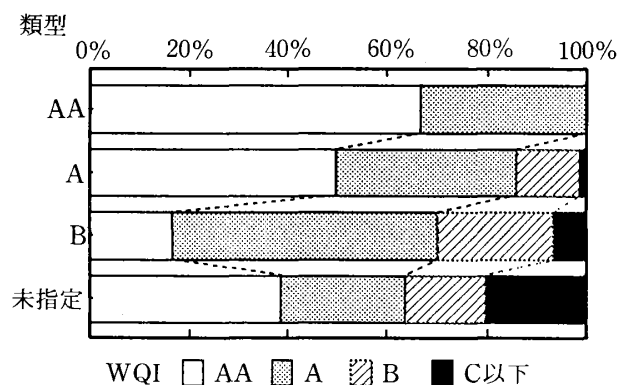
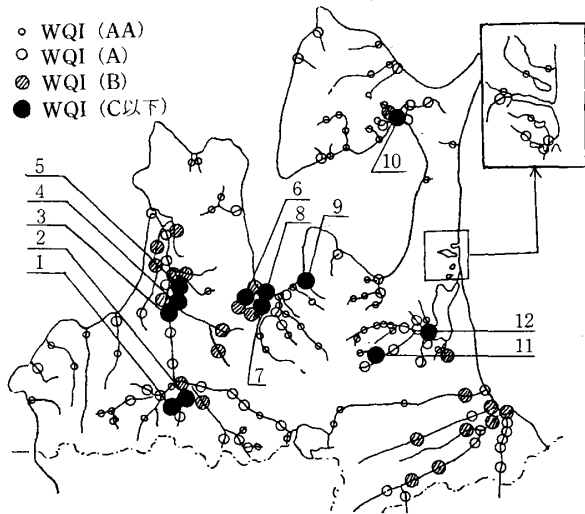


図9 類型別によるWQI (75%値) の適合率

適合率をみると、AA類型は66.7%、A類型は85.9%、B類型は93.3%で、全体適合率は87.4%であった。類型指定のない地点ではC以下にランクされたものが20.5%と比較的多かった。

3.4 水質汚濁マップ作成

県内河川の汚濁状況を見るために先に求めたWQI75%値を用いて水質汚濁マップを作成した(図10)。



- 1) 寺沢川 日暮橋 2) 土淵川 西田橋 3) 新十川 湊橋
 4) 旧十川 鎌谷橋 5) 旧十川 川山橋 6) 新城川 戸門沢橋
 7) 西滝川 沖館川流入前 8) 沖館川 沖館橋 9) 浅虫川 鉄橋下
 10) 田名部川 下北橋 11) 七戸川 作田川八橋 12) 花切川 河口

図10 河川の水質汚濁マップ

WQIでC以下にランクされたのは12地点あり、マップにより中小都市河川の汚濁が高いことが確認された。このうち、類型指定されているのは3地点であることから類型指定されていない中小都市河川の汚濁が高いのが特徴である。

3.5 WQIによる季節消長

汚濁の著しい12地点について汚濁の機構を知るため、季節変動をみた(図11)。

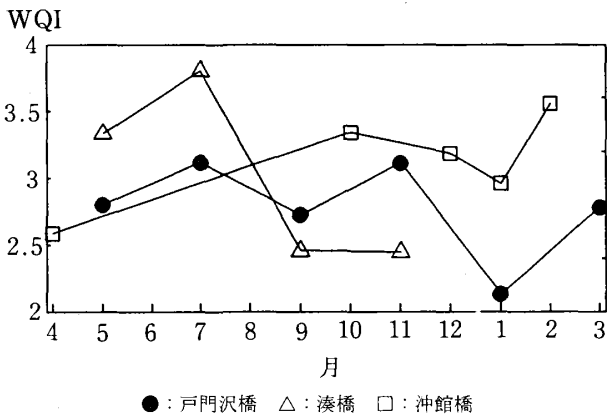


図11 WQIからみた季節変動

変動パターンは3群に分けられるようである。

- ① 夏と冬にピークを有するもの：5地点

日暮橋(1), 西田橋(2), 戸門沢橋(6), 作田川八橋(11), 花切川 河口(12)

- ② 夏のみピークを有するもの：4地点

湊橋(3), 鎌谷橋(4), 川山橋(5), 沖館川流入前(7)

- ③ その他：3地点

沖館橋(8), 鉄橋下(9), 下北橋(10)

分類された結果を地図で検討してみると同一水系、または、その周辺水系が同じ挙動を示しているようである。このことは、上記地点における汚濁の要因には地域特性があることを示しており、汚濁機構解明のためには経年的な変動パターンを把握することが重要であると思われる。

3.6 係数の経年的評価の検討

ここで、63年度のWQI算定式は①式のとおり得られたのでこの式が経年的な評価に用いることが可能であるかを検討するために62年度及び元年度についても同様の手法により算定式を求めた。

WQI (62)

$$= -0.69 + 0.52 \log(\text{E.coli}) + 0.88 \log(\text{SS}) + 1.54 \log(\text{BOD}) - 0.18(\text{DO})$$

(62年度)

WQI (元)

$$= -0.79 + 0.46 \log(\text{E.coli}) + 0.93 \log(\text{SS}) + 1.52 \log(\text{BOD}) - 0.17(\text{DO})$$

(元年度)

この結果から、年度別の各項目の係数を比較してみるとほぼ近い値となっており、63年度の係数を1として62年度、元年度の係数をみたところ次のとおりであった(図12)。

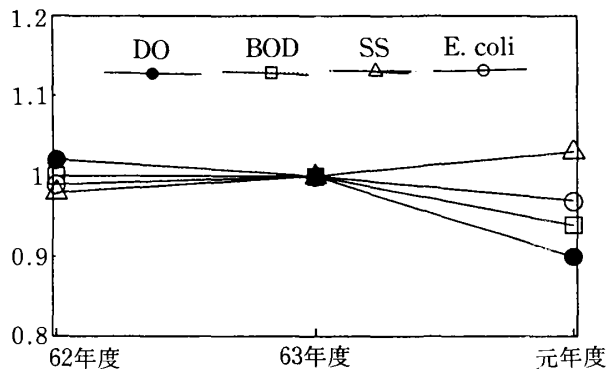


図12 年度別の係数の比較

係数のばらつきは、全て10%以内におさまっておりこの係数は経年的に用いることが可能であることが示唆さ

れた。特に62年度は3%以内におさまっている。元年度がこれに比べてばらつきが大きいのは測定地点の変更(増減)が他の年度に比べて多かったためと考えられる。また、測定地点が安定していれば算出された係数を用いての経年的な評価が可能であることから、各水系別にWQIによる経年的評価を行うことにより、水質汚濁状況のより一層の把握が可能であると思われるので、これについては今後のテーマとしたい。

4. ま と め

今回、昭和63年度県内河川の公共用水域測定データを用いてDO, BOD, SS, E.coliの4項目による総合水質指標(WQI)を作成し水質汚濁状況を調べた。

その結果、

- (1) WQI75%値による水質評価を行ったところ、県内河川は概ね良好な水質であった。
- (2) WQIによる水質汚濁マップでは中小都市河川である12地点において汚濁が高く、かつ、類型指定されていない地域が多かった。
- (3) 測定地点の変更が多くなければ作成された算定式を用いての経年的な評価は可能であると思われる。また、岩浪⁶⁾らの報告のとおりT-N及びT-Pを含めた評価を行うことにより、さらに総合的な汚濁特性の把握が可能であると思われる。
- (4) 総合的に水質をとらえようとする場合、BOD等の単一項目ごとに評価するよりも複数の項目によるWQIでの

評価が煩雑さがなく、理解が容易である。

- (5) WQIにより、県内河川の汚濁状況が視覚的・感覚的にとらえることができることから一般住民の理解が得られ易い利点があるものと思われる。

文 献

- 1) 高橋陽子他：生活雑排水の水田に及ぼす影響について—WQIによる農業用水の水質評価—, 公害と対策, **Vol.24**, No.2, 147-155, 1988.
- 2) 吉見洋：河川水質項目の階級化と総合化手法について, 用水と廃水, **Vol.27**, No.3, 247-252, 1985.
- 3) 石橋良信他：総合指標による内湾水質の評価, 環境システム研究, **Vol.20**, 399-404, 1992.
- 4) 結城多門：総合水質指標の利用からみた愛知県下の河川水質の変化, 用水と廃水, **Vol.27**, No.3, 253-258, 1985.
- 5) 原沢英夫 石橋良信 内藤正明：河川水質の総合指標化に関する一考察, 衛生工学研究論文集, **Vol.24**, 295-303, 1988.
- 6) 岩浪春輝 村山等 谷川義夫：総合水質指標による河川の水質評価, 新潟県衛生公害研究所報, 第8巻, 125-131, 1992.
- 7) 青森県：公共用水域水質測定結果 昭和62年度版
- 8) 青森県：公共用水域水質測定結果 昭和63年度版
- 9) 青森県：公共用水域水質測定結果 平成元年度版

Abstract

Evaluation of River Water by WQI

Hideki OHKUBO, Hajime MIKAMI and Susumu HAYAKARI

WQI (Water Quality Index) was calculated by the results of surbey on the basis of water quality examination plan in the area of public water in Aomori prefecture. We evaluated river water by WQI and seized the state of pollution from a map of water pollution. Water quality was good in almost river, but exhibited a tendency to high pollution in a part of river in the samll-to-medium-sized cities, especially not designated one as a typical river. With studing about the seasonal change of the high pollution area, the behavior of pollution in the same and around water system showed the same tendency. A primary factor, accordingly, was characteristic of a local region. In this paper, we tried to evaluate the water quality by WQI and found that this method was more simple than one item such as BOD and more visual to image them.

Key words: river, evaluation of water, WQI (Water Quality Index), map of water pollution.

堤川水系における泡の発生機構解析 (I)

— 水 質 特 性 —

三上 一 石塚 伸一 早狩 進
 工藤 真哉¹ 工藤 俊明² 奈良 忠明³

青森市東部を貫流し、陸奥湾に注ぎ込む堤川の中流域では春～夏季に発泡現象がみられ、景観を損なうことから、泡の発生機構を解明するため、モニターによる泡の発生状況の測定と河川及び事業場の水質調査を実施した。その結果、泡の発生は朝と夕方に多く認められ、昼に消滅する傾向にあった。調査期間中、深夜～朝方と午後～夕方に満潮で、朝方～昼と深夜に干潮になるが、泡の発生は満潮時に認められ、干潮時に少ない傾向にあることから泡の消長は潮汐に関連するようである。特に堤川はpH3.5～4.5の強酸性で、泡は堤川に特有に認められることから酸性河川であることが発生要因の一つと考えられる。泡の発生は間屋橋からラバーダム通過後の堰堤下で常時認められたが、同区間では磷濃度及びその負荷量の増加が顕著であった。また、事業場の調査では水産加工場から排出される磷の負荷が大きく影響していた。

Key words : acid river, water, foam, waste water, phosphorus.

1. はじめに

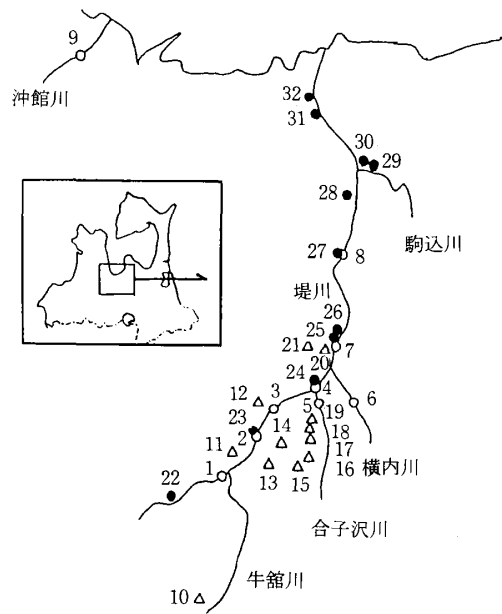
堤川は八甲田山系に源流を発し、青森市東部を貫流しながら、陸奥湾に注ぎ込む青森市の代表的な2級河川である。同河川の中流域では春～夏季に泡が大量に発生し、黄色～茶褐色の無数の塊となったり、川幅全体を覆う帯状の流れとなって下流域まで流下し、景観を損なうことから苦情が寄せられ、その対策が求められている。

ここでは、泡の発生機構解明のため実施した泡の発生状況の監視モニター結果と河川及び事業場の水質調査結果の概要を報告する。

2. 調査方法

調査地点は河川9、事業場12である(図1)。採水は、河川は1992年7月13日、事業場は1992年7月15日、16日に行った。河川のうち、沖館橋は調査対象とした堤川水系に属していないが、市内で最も汚濁が進行している河川の一つであることから、堤川水系の水質特性と比較するために選定した。また、横内川上流には特定施設として横内浄水場(排水量:477m³/日)があるが、水質の状況から泡の発生に関与しないものと判断して調査から除外した。

項目は流量、排水量、pH、DO、COD、BOD、SS、T-N、T-P、PO₄-P、MBAS、溶存性糖類、溶存性タンパク質の13項目である。なお、事業場の排水量について



- 1) 牛館橋 2) 間屋橋 3) 小水路 4) 新妙見橋 5) 妙見橋 6) 横内川末端
 - 7) 堰堤下 8) 筒井 9) 沖館橋 10) A汚水処理場 11) B水産加工場
 - 12) C汚水処理場 13) D汚水処理場 14) E事業場 15) F事業場
 - 16) G水産加工場 17) H食品加工場 18) I汚水処理場 19) J食品加工場
 - 20) K事業場 21) L食品加工場 22) 荒川橋 23) 間屋橋 24) 新妙見橋
 - 25) 堰堤下-1 26) 堰堤下-2 27) 筒井交番 28) 桜川合流前
 - 29) 駒込川合流前 30) 合流点 31) 堤川交番 32) 旭橋
- : 河川 (No.1~9) △: 事業場 (No.10~21)
 ●: モニター (No.22~32)

図1 調査地点

1: 原子力環境対策室 2: 六ヶ所放射線監視局 3: 鯉ヶ沢保健所

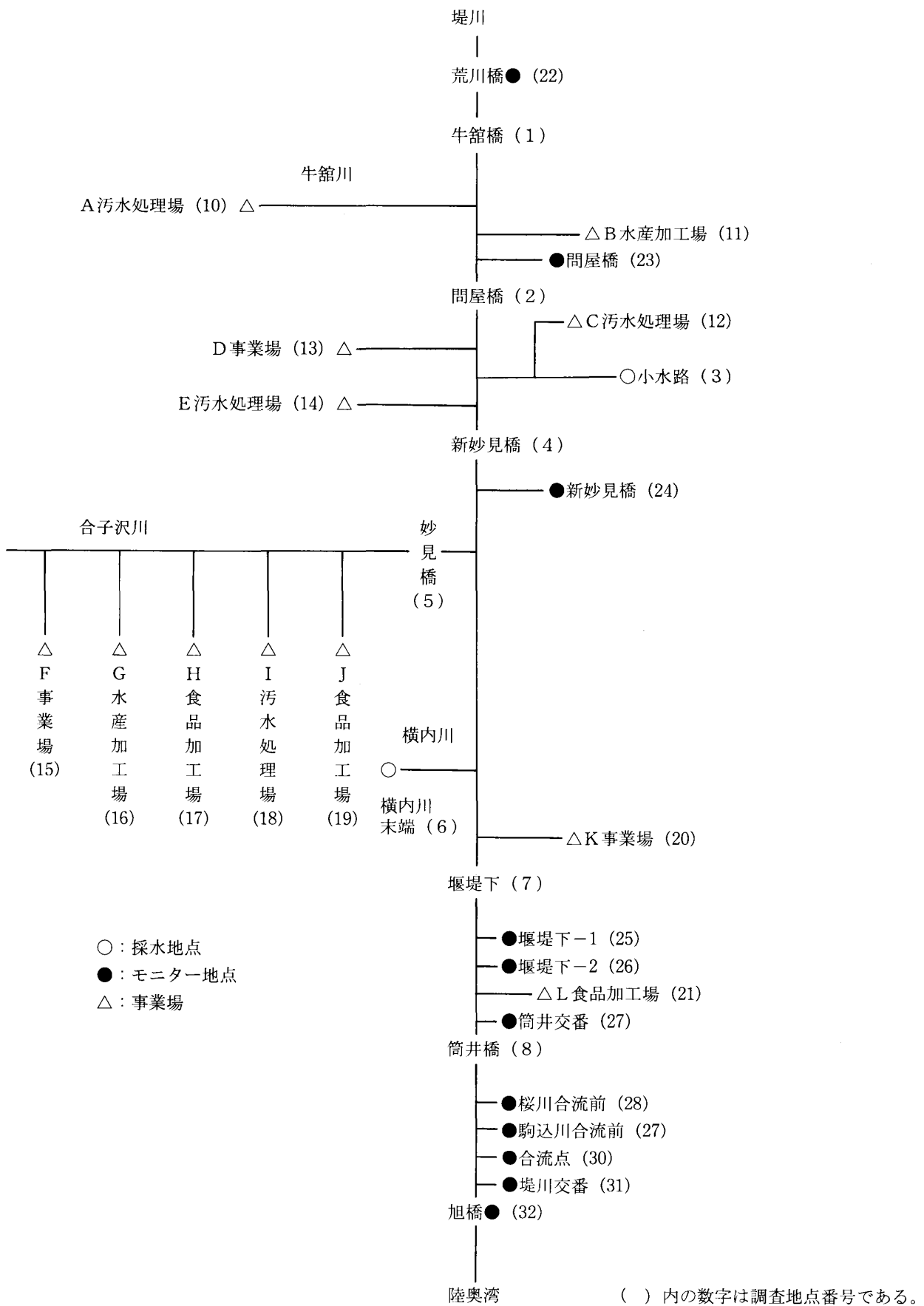


図2 調査地点概略図

は届出台帳に記載されている最大排水量を用いて負荷量を算定した。

溶存性糖類及び溶存性タンパク質はワットマンGF/Cでろ過したろ液をロータリエバポレータで30℃以下で濃縮し、冷凍保存した。試料は解凍後、溶存性糖類はアンシロン法により、溶存性タンパク質はローリ法により分析した。

堤川水系で泡が発生する時間を確定し、発生地点や発生量を把握するため河川沿岸に住むモニター11名を選定し、1992年7月15日～21日の1週間にわたり朝、昼、夕方の方の1日3回の目視により泡の発生状況を監視した。

3. 結果と考察

3.1 モニターによる監視結果

泡は主に農業用水取水のためにラバーダムが設置される5月～8月に発生し、ラバーダムを解体した期間には泡の発生が認められないようである(写真1, 2)。

発生した泡は白色～黄色をした無数の細かい泡であるが、下流域に流下するとともに泡は成長し、白色～黄色であった色が褐色～茶褐色に変化し、時には帯状となり、川幅全体を覆うようになる(写真3, 4)。

しかしながら、泡の発生時間や状況、発生地点が常に一樣でないことから発生頻度、パターンを知るため河川沿岸に住むモニター11名を選定し、泡の発生状況を監視した。

表1 モニターによる泡の監視状況(1992/7/15～7/21)

No.	地点名	7/15	7/16	7/17	7/18	7/19	7/20	7/21
		朝昼夕	朝昼夕	朝昼夕	朝昼夕	朝昼夕	朝昼夕	朝昼夕
1	荒川橋	×××	×××	×××	×××	×××	×××	×××
2	問屋橋	×○	○×	×××			×××	×××
3	新妙見橋	○×	○××	●××	×××		×××	○
4	堰堤下-1	○○○	○○○	○○○	○○○	○○○	○○○	○○○
5	堰堤下-2	×○○	○○○	●○○	●○○	●	●●●	×○
6	筒井交番	○○×	×	●○○	○	×	○××	
7	桜川	○	×	○××	○×	○×	○	×
8	駒込川	○××	×××	×××	×××	×××	×××	○×
9	合流点	○○×	●○○	○××	●●●	●○○	●●×	●●
10	堤交番	×○	×○	○××	○○○	×	××○	●××
11	旭橋	××	×	××	×	×	×	×

●：泡の量が多い ○：泡の量が少ない ×：泡なし
空欄：観測なし (青森市環境保全課調べ)

泡は調査対象の最上流地点である荒川橋では全く認められず、問屋橋以降で発生しはじめることから発生要因は問屋橋付近にあると考えられる。また、監視期間を除いた時期では牛館橋上流では泡の発生が認められないが、問屋橋とラバーダムが設置されている区間では泡の発生がみられ、時には泡が大量に滞留することから泡の発生要因が牛館橋以降の下流域に存在するといえる(図2)。

ラバーダムが設置されている堰堤下(No.7)では常時細かい泡が発生していることから泡の発生にはラバーダ

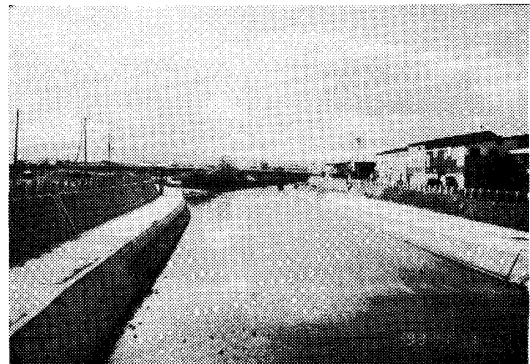


写真1 ラバーダム設置前

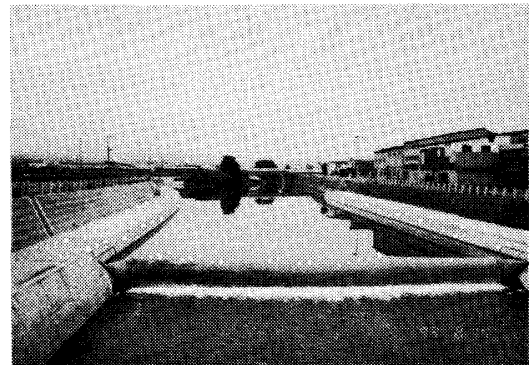


写真2 ラバーダム設置後



写真3 泡の発生状況(筒井橋付近)



写真4 泡の発生状況(筒井橋付近)

ムの寄与が大きいと考えられる。駒込川では7月20日の夕方に泡の発生がみられるが、これは駒込川と荒川の合流点に滞留していた泡が風、或いは、潮流により駒込川に吹き寄せられたものであり、駒込川には泡の発生要因が存在しないと考えられる。駒込川を除いた地点では桜川合流点までは下流になるにつれて泡の発生頻度が高く、泡の生成量も多い傾向にあることから、泡の発生は堤川に特有の現象であり、下流になるとともに泡が成長するといえる。発生パターンをみると、泡は堰堤下では常時認められるが、筒井橋交番から堤交番までの区間では朝と昼に発生し、夕方に消滅する傾向にあった（表1）。

表2 陸奥湾における潮見表（1992/7/14～7/22）

月日	満潮	潮	干潮	潮
7/14	2:19(大)	15:37	9:11	21:23
7/15	3:01(大)	16:09	9:49	22:03
7/16	3:41(大)	16:41	10:21	22:42
7/17	4:15(中)	17:09	10:53	23:14
7/18	4:51(中)	17:39	11:22	23:50
7/19	5:26(中)	18:04	11:50	—
7/20	6:01(中)	18:34	12:19	0:22
7/21	6:42(小)	19:01	12:49	0:57
7/22	7:26(小)	19:36	13:23	1:38

注) (大) :大潮 (中) :中潮 (小) :小潮

堤川は感潮河川であるが、泡が帯状に川幅全体を覆うようになるのは主に河川が滞留、或いは、流れが遅い時であり、流れが早い時には泡の発生が少なく、発生パターンに日周期性が見受けられる。潮汐は日周期をもつことから泡の消長と潮汐の関連について検討した。監視期間中では深夜～朝方と午後～夕方に満潮で、朝方～昼と深夜に干潮となる（表2）。泡の発生は満潮時に認められ、干潮時に認められない傾向にあることから泡の消長の要因は潮汐と関連するようである。

3.2 水質の概要

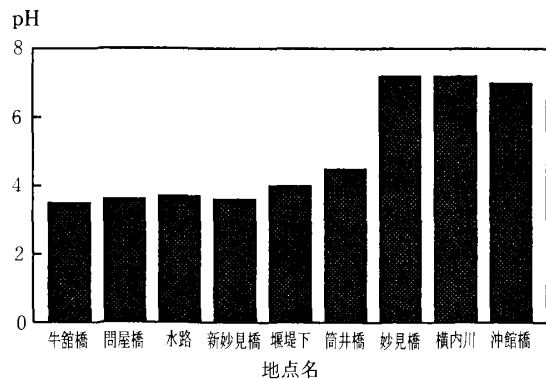


図3 堤川水系におけるpHの推移

河川のpHは3.5～7.2で、泡の発生区間である牛館橋、問屋橋、新妙見橋、堰堤下及び筒井橋の5地点のpHは3.5～

4.5の強酸性を示している（図3）。市内で最も汚濁が進行している中小都市河川の1つである沖館川ではBOD、CODの有機物汚濁指標や泡の構成成分と推察される糖類、タンパク質の有機物濃度が堤川水系に比較して高いにもかかわらず、泡の発生が認められないことから泡の発生要因の1つに堤川水系が酸性河川であることが考えられる。

堤川水系の酸性化は、荒川は昭和15年秋、群発性地震による地殻変動に伴い、pH1.3～1.4の強酸性の湧水が流入し、酸性化が進行した河川であり、駒込川は藩政時代の嘉永年間（1848～1853年）に酸性水による被害が報告されている特異な都市河川^{1,2)}である。

一方、県では酸性河川である堤川水系を中性化する「荒川地区鉱毒対策事業」を平成8年度に完成することになっている。これに伴い、酸性河川である堤川の中性化により泡の発生¹の1つと考えられる要因が除去されることから中性化以降の泡の消長に興味もたれる。

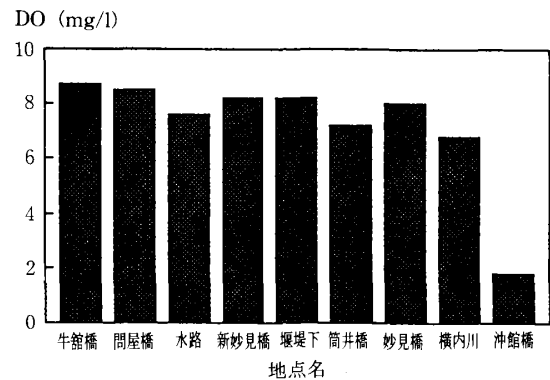


図4 堤川水系におけるDOの推移

DOは1.8～8.7mg/lである。泡の発生区間である問屋橋から筒井橋の5地点ではDOは7.2～8.5mg/lと比較的高いが、泡の発生が認められない沖館橋でDOは1.8mg/lと著しく低く、汚濁が進行していた（図4）。

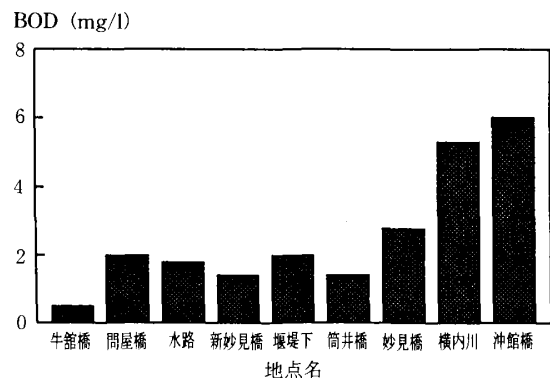


図5 堤川水系におけるBODの推移

BODは<0.5～6.0mg/lである。調査対象の最上流地点の牛館橋のBODは0.5mg/l以下で清浄な水質であるが、

問屋橋以降の地点ではBODは高くなる。これは問屋橋付近の下流域では商業団地や住宅化の進行が著しいためである。

また、横内川末端ではBODは5.3mg/lと沖館川のBOD 6.0mg/lと同様に高い値であり、生活雑排水の影響が顕著であった(図5)。

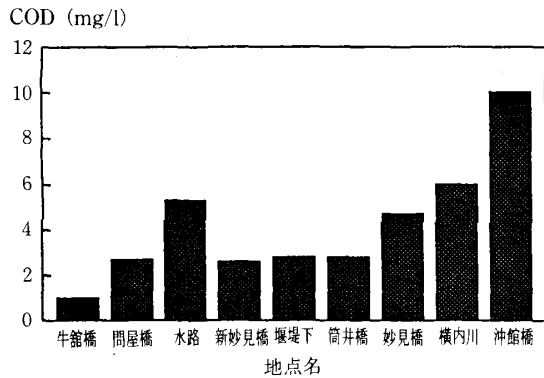


図6 堤川水系におけるCODの推移

CODは1.0~10mg/lで、小水路を除いてはBODとほぼ同じ挙動を示していた(図6)。この小水路は問屋橋と新妙見橋の中間点に位置するが、水路には生活雑排水のほかにはC汚水処理場(排水量245m³/日)の排水が流入しているためCOD値が高いものと考えられる。

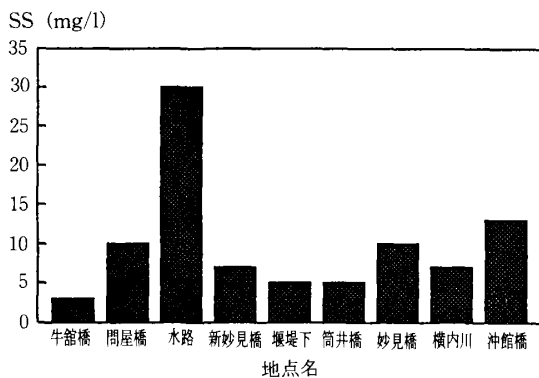


図7 堤川水系におけるSSの推移

SSは3~30mg/lである。CODが高い小水路はSSは30mg/lで、他の地点に比較して著しく高い値であった(図7)。

この水路は水門により放水量が調整されているが、水門閉鎖時には滞留状態となり、大量の泡が認められることから泡の残渣の影響によりSSが高いものと考えられる。

T-Nは0.42~2.9mg/lである。泡の発生が認められる問屋橋から筒井橋までの5地点では小水路が2.0mg/lと高い値であるが、残りの4地点のT-Nは0.74~0.95mg/lと比較的低い値であった(図8)。小水路では泡の残渣によると思われるSS成分も高いことから泡の構成成分の1つとして窒素化合物の存在が示唆された。

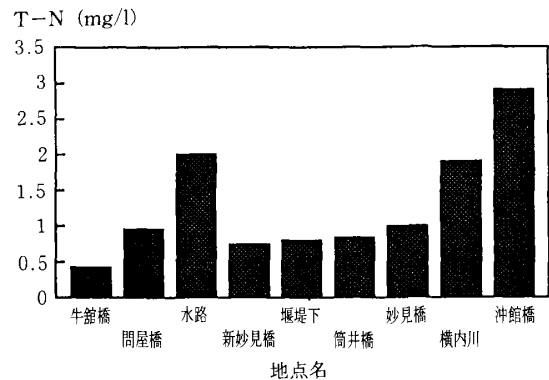


図8 堤川水系におけるT-Nの推移

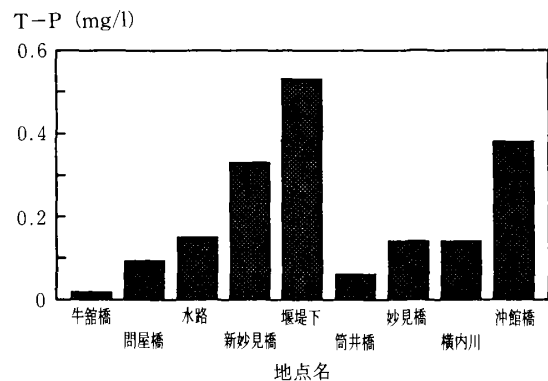


図9 堤川水系におけるT-Pの推移

T-Pは0.017~0.53mg/lであり、泡の発生する問屋橋から堰堤下までの4地点ではT-Pは直線的に増加しており、他の成分とは著しく異なる挙動を示していた(図9)。

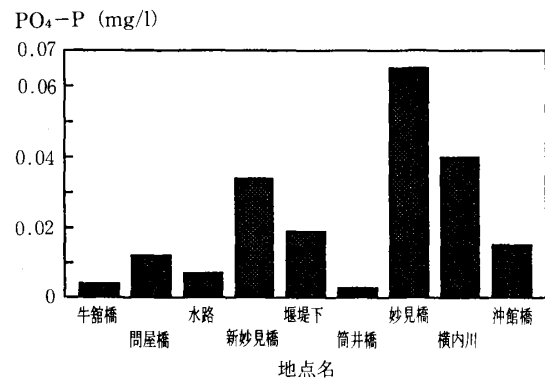


図10 堤川水系におけるPO₄-Pの推移

PO₄-Pは<0.003~0.065mg/lであり、PO₄-P/T-P比は中性河川である妙見橋は46.4%、横内川は28.6%と高いが、泡の発生する問屋橋から筒井橋までの5地点では3.6~12.9%であり、T-Pとは異なる挙動を示すとともにPO₄-P/T-P比に差が認められた(図10)。

PO₄-Pは土壌粒子中のFe等のプラスの電荷をもつ物質に吸着しやすい性質をもつが、嫌気状態や酸性化により溶脱、可溶化することが知られている。

泡の発生区間はpHは3.5~4.5の強酸性であり、土壌等の不溶性成分の指標であるSSは小水路で著しく高いが、問屋橋から堰堤下までのSSは暫減する傾向にあることから、燐の存在形態は土壌粒子等に吸着しやすい無機態燐、或いは、有機態燐の形態で存在しているものと思われる。

泡の発生要因に深く関与していると考えられるラバーダムは高さ2~3mあり、設置期間中は満水で、新妙見橋付近からラバーダムが設置されている区間は流れが遅くなり、時には滞留状態になることから、この区間ではT-Pは泡の構成成分として成長するものと推察される。

食品では調理、貯蔵中に褐色に変化することは日常的にみられる現象である。この反応はアミノカルボニル反応と呼ばれ、アミノ化合物とカルボニル化合物の縮合により褐色の高分子含窒素化合物が生成³⁾される。

堤川水系で発生する泡は白~黄色をした無数の細かい泡であるが、流下するとともに泡は大きくなり、更に、色も褐色~茶褐色に変化することから、泡の流下過程でアミノカルボニル反応が進行しているものと考えられる。

また、湖沼では糖類による泡の発生^{4,5)}が報告されていることや燐の存在形態が有機態の可能性あることから、河川及び事業場における溶存性のタンパク質と糖類について検討した。なお、タンパク質の標準物質としては(株)和光純薬社製牛血清アルブミンを用い、濃度は牛血清アルブミン量(mg-BSA/l)として算出した。

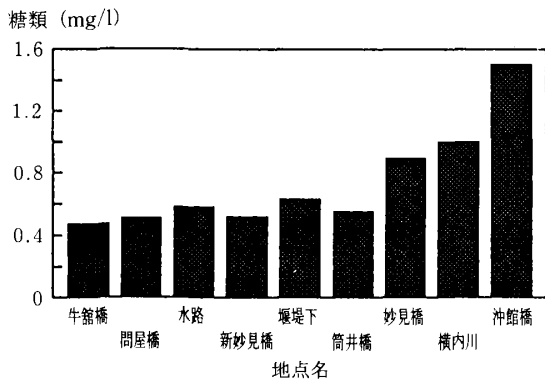


図11 堤川水系における溶存性糖類の推移

溶存性糖類は0.47~1.5mg/lで、沖館橋は1.5mg/lと最も高く、これに横内川末端は1.0mg/l、妙見橋は0.89mg/lと続き、中性河川では溶存性糖類は比較的高い値であった。泡の発生区間である問屋橋と筒井橋の溶存性糖類は0.50~0.63mg/lとほぼ同じ濃度で、その変動パターンはBOD及びCODに類似していることから、有機物汚濁指標として有用であるようである(図11)。

溶存性タンパク質は0.50~2.2mg-BSA/lで、溶存性糖類と極めて類似した変動パターンを示していた(図12)。

糖類とタンパク質は泡の主要な構成成分を形成しているものと考えられるが、溶存性成分としてみると両者と

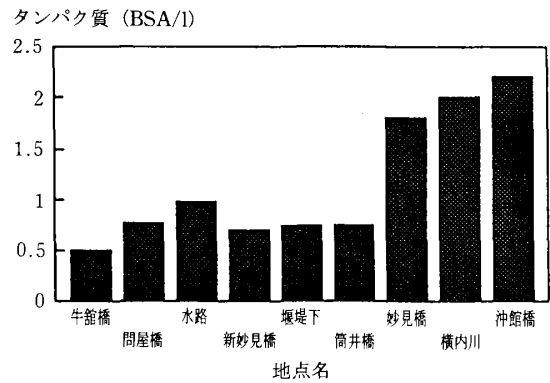


図12 堤川水系における溶存性タンパク質の推移

もに泡の発生する地点ではいずれも低いことから溶存性糖類及び溶存性タンパク質は泡とは関連しないことになる。しかしながら、溶存性糖類と溶存性タンパク質が低い地点はpHは3.6~4.5の強酸性を示していることから糖類及びタンパク質以外にも水中のフミン質がばっ気の過程で泡に取り込まれている可能性があり、検討が必要である。

また、発泡に関与すると思われるMBASは横内川末端は0.64mg/l、沖館橋は0.81mg/lと両地点で検出されるが、残りの地点では不検出であり、堤川水系は酸性河川であることからMBASは泡の発生に関与しないことがわかる。

3.3 負荷量の解析

水質汚濁特性の解明には負荷量解析が有効⁶⁾であることから、泡の発生区間である牛館橋から堰堤下における河川及び事業場からの負荷量の収支図を作成し、負荷量を把握した。

なお、河川及び事業場からの負荷量は日量当りに換算して求めた。調査時には筒井橋は滞留であり、負荷量の算定が出来ないことから河川は筒井橋を除いた4地点を対象とした。これにより筒井橋上流に放流しているL食品加工場についても対象から除外し、堰堤下の直前に放流するK事業場は排水量が少ないことから対象事業場から除外した。

これにより解析の対象とした地点は河川は小水路を含めた7地点で、事業場はし尿処理5、食品加工場2、水産加工場2、車両洗浄施設1の計10施設である(表3)。

負荷量の収支図では河川及び事業場の寄与を以下のとおり算出して求めた。

河川では牛館橋~問屋橋~新妙見橋~堰堤下までの4地点の負荷量を流下負荷量とし、事業場、小水路及び妙見橋と横内川末端の12地点の負荷量を流入負荷量とした。

図において流下負荷量の()内の%数字は下流に流下する過程での負荷量の増減を表している。牛館橋と問屋橋のCODを例にとれば、CODは牛館橋は250kg/日、問屋橋は837kg/日であり、問屋橋でのCODは335%増加し

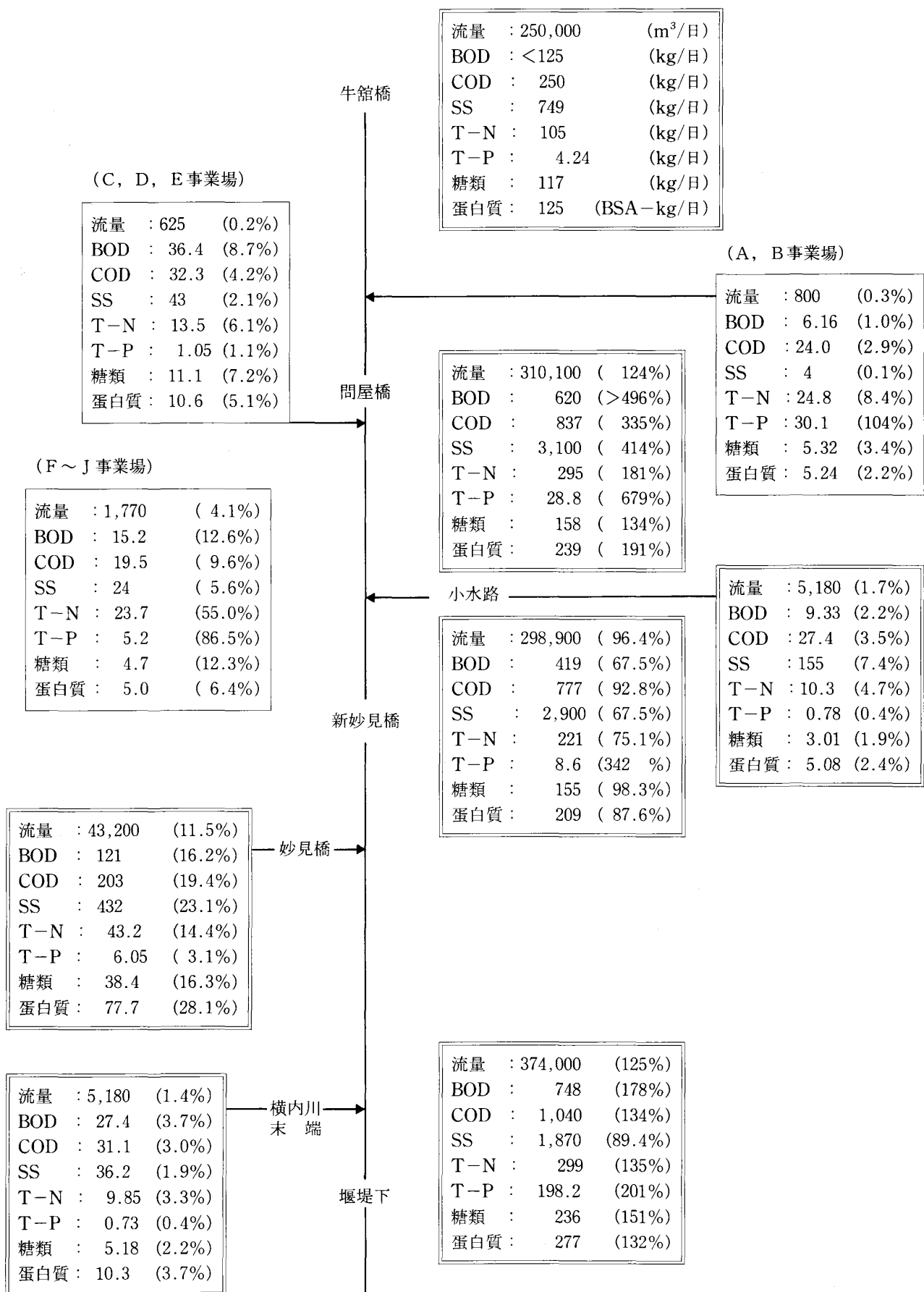


図13 負荷量の収支図

表3 事業場の概要

河川(7)	事業場(12)	特定施設番号	排水量(m ³ /日)	放流河川
問屋橋	A 汚水処理場	72	504~918	牛館川→堤川
	B 水産加工場	3	300~500	堤川
小水路				
新妙見橋	C 汚水処理場	72	245	堤川
	D 事業場	72	190	堤川
	E 汚水処理場	69の2, 72	190	堤川
妙見橋	F 事業場	71	89	合子沢川
	G 水産加工場	3	90	合子沢川
	H 食品加工場	17	200~210	合子沢川
	I 汚水処理場	72	1,320	合子沢川
	J 食品加工場	9	52~69	合子沢川
横内川末端				
堰堤下	K 事業場	67	5.6~8	堤川
筒井橋	L 食品加工場	5(4)	650~840	堤川

ているものと見なした。流入負荷量の()内の%数字は事業場が負荷量を排出する河川で測定地点に最も近接する流下負荷量に占める割合を表している。A汚水処理場とB水産加工場を例にすると、両事業場とも牛館橋と問屋橋の中間に位置することから両事業場を1群と見なし、両事業場のCOD:24.0kg/日が問屋橋のCOD:837kg/日に占める割合では2.9%となる。

負荷量収支図により河川の流下負荷量と小水路、妙見橋及び横内川末端を含む事業場の流入負荷量を検討し、泡の発生要因との関連性を調べた。

牛館橋から堰堤下までの4地点における流下負荷量の推移をみると、最上流の牛館橋に比較すると問屋橋ではいずれの流下負荷量とも高くなり、特に、T-P、BOD、SS、CODは著しく増加していた。牛館橋上流域は主に水田を中心とする農村地帯であることから水質汚濁の進行は認められないが、下流域では商業団地や宅地化による水質汚濁が著しかった。一方、A汚水処理場とB水産加工場排水の問屋橋への寄与をみると、T-Pを除いてはいずれも少なかった。両事業場のT-Pは30.1kg/日で、両事業場を区分すると、A汚水処理場は0.1kg/日、B水産加工場は30.0kg/日であり、B水産加工場から排出されるT-P負荷量は他の事業場に比べて著しく高かった。河川に及ぼす寄与率をみると、問屋橋で104%となることから、河川のT-Pの大半はB水産加工場由来と見なされる。なお、B水産加工場のT-Pが著しく高い要因として水産加工時にポリリン酸化合物を使用するためである。

対象事業場の負荷量及び河川に及ぼす寄与率をみると、B水産加工場のT-Pが全事業場排水の80%以上で、河川への影響も大きいことからB水産加工場のT-Pと泡の発

生との関連が示唆された(図13)。

牛館橋と堰堤下までの各成分の負荷量の変動パターンを概観すると、T-Pを除いた各々の負荷量は流量と類似したパターンであるが、T-Pは他の成分とは異なった挙動を示していることから、泡の発生について検討する必要がある。特に、B水産加工場から排出される燐の濃度が著しく高いことから同事業場における燐の排出抑制とともに、同事業場における燐の排出状況と泡の発生頻度との関連についての調査が必要である。

更に、泡の発生機構解明や発生源説明のためには水質調査は勿論のこと、河川及び事業場を含めた各地点における泡中の糖類やタンパク質等の成分の同定や各地点で採取した泡の構成成分の照合が必要と思われる。なお、県では酸性河川である堤川水系を中性化する「荒川地区鉱毒対策事業」を平成8年度に完成することになっている。これに伴い、酸性河川である堤川水系の水質が変化することが予想され、堤川に特有な泡の発生とともに河川水質の変遷に興味もたれる。

4. ま と め

堤川水系では春～夏季にかけて泡が発生することからその発生機構解明のため、河川及び事業場の水質調査を行った。しかし、泡の発生機構解明、対策までに至らなかったが、要因として以下のことが考えられる。

(1) モニターによる監視結果では、

① 泡は問屋橋付近で発生しはじめるが、ラバーダムが設置されている堰堤下では常時発生していることからラバーダムによる水のかく拌が泡の発生に大きく関与しているものと思われる。

② 泡は下流になるとともに成長し、堤川と駒込川付近で発生量、頻度ともに高くなる。特に、泡の出現には周期性が認められ、泡の消長に潮汐の関与が示唆される。

(2) 泡の発生区間である牛館橋と筒井橋における河川及び事業場の水質調査の結果では、

- ① pHが3.5~4.5の強酸性であること。
 - ② 牛館橋と堰堤下の区間では磷の増加が著しいこと。
 - ③ 水産加工場からの磷の汚濁負荷量が大きいこと。
- の3点が他の地点及び河川と異なる特徴であり、泡発生の一次的な要因として堤川が酸性河川であり、ラバーダムの存在と磷の高いことが考えられる。

文 献

1) 青森市：堤川水系自然汚濁対策調査報告書，昭和50

年3月。

- 2) 小林純：水の健康診断，岩波書店，P.17-21，1993.
- 3) 八木一文：食品化学，講談社サイエンティフィック，P.95-100，1976.
- 4) 世取山守 小山次郎 池田浩三 小林紀男：中禅寺湖のアワ発生機構(1)アワ成分とその起源についての検討，水質汚濁研究，**10**，31-38，1987.
- 5) 小山次郎 渡辺牧子：中禅寺湖の湖水中糖類の起源—アワ発生に関連して—，水質汚濁研究 **12**，353-357，1989.
- 6) 建設省土木研究所：土木研究所彙報—河川の総合負荷量調査実施マニュアル（案），第53号，1989.

Abstract

Mechanism of Foam in Tsutsumi River (I) — Characteristics of Water —

Hajime MIKAMI, Shin-ichi ISHIZUKA, Susumu HAYAKARI
Shinya KUDOH, Toshiaki KUDOH and Tadaaki NARA

Bubble foams in the middle reaches of the Tsutsumi river, runs through the east of Aomori city and flows into Mutsu Bay, from the spring to the summer season. Foam injures the beauty of sight, so that the counterplan is demanded. To elucidate the mechanism of foam and solve the problem, monitor of conditions of foam generation and survey water quality of river and waste water were carried out. These results showed that foam was observed in the morning and the evening, and not in the noon. In the period of the survey, a high tide was from midnight to the morning and from the afternoon to the evening, while an ebb tide was between the morning and the noon, and at night. As foam was observed at the high tide and not at the ebb tide, the prosperity and decay of foam might correlate to the tide. The Tsutsumi river is acidic to pH3.5~4.5, and characteristic of generation of foam, so that a main cause of foam was the acidic river.

Phosphorus concentration and loading amount in the area of foam generating, between the Tonya-bashi and under weir of dam, were so large that phosphorus might be participated to them. By the survey of waste water, foam was effected by phosphorus load discharged from some fish factories.

Key words : acid river, water, foam, waste water, phosphorus.

臨海工業地帯における湿性沈着量の実態

野田 正志 坂上 素一

八戸市の臨海工業地帯において、ばい煙等による固定発生源からの降雨への影響を見るために、降雨の時間採取を行い、風向と湿性沈着量の関係を調査した。

その結果、製造工程やばい煙処理対策でアンモニア、アンモニウム塩、カルシウム塩、カリウム塩を使用している工場が多数立地している方向から風が吹いている時には、非海塩起源の硫酸イオン、カルシウム、カリウムやアンモニウムイオンなどの沈着量が多く、また、相関も高かった。

また、海側から風が吹いている時には、塩化物イオン、ナトリウムイオンやマグネシウムイオンの沈着量が多く、また、相関も高いことから、海塩粒子の影響を受けていることがわかった。

Key words : wet, washout, back ground

1. はじめに

酸性雨問題は、生態系へ与える深刻な影響や汚染物質が広域拡散することなどから、地球的規模の環境問題として認識されている。

そして、発生、移流のメカニズムから広域的な沈着量の実態調査など各方面で調査、研究がなされている。

当所における酸性雨調査では、八戸市において、梅雨期に臨海工業地帯からの影響を受けているとみられる降雨が観測されている¹⁾。

今回、ばい煙等による固定発生源からの降雨への影響を把握するため、風向別の湿性沈着量調査を実施したので報告する。

2. 調査方法

2.1 調査期間

平成4年4月～10月及び平成5年4月～10月

2.2 調査地点

降雨の捕集は、八戸市の臨海工業地帯の北西部に位置する新産都市会館の屋上で行い、風向は、臨海工業地帯の南西部に位置する、八戸第二魚市場局のデータを用いた(表1, 2, 図1)。

2.3 捕集方法

降雨は、2個のデポジットゲージ(口径:300mm)を用いて1時間毎(夜間を除く)に採取し、両者を合わせて分析試料とした。

表1 調査地点の概要

区 分	内 容
住 所	八戸市大字河原木字北沼1-131
用途区分	工業専用地域
捕集高さ	地上から約14m
そ の 他	東へ約100mで八戸港 西へ約500mで標高約30mの海岸段丘

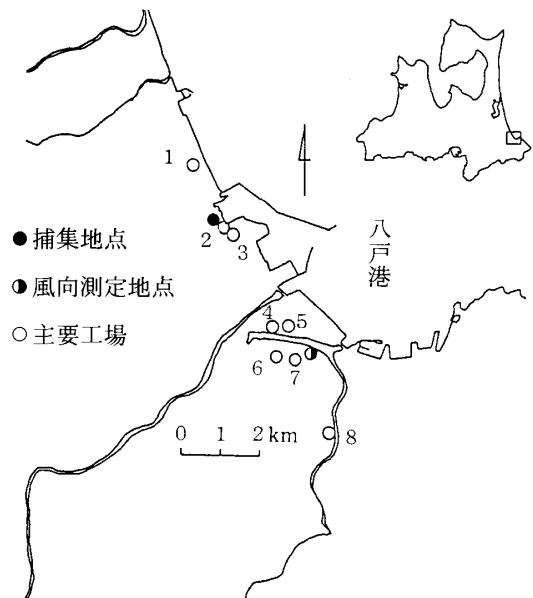


図1 調査地点

表2 主要工場の概要

No.	業種	備考
1	パルプ・紙製造業	石灰焼成炉
2	非鉄金属製造業	石灰乳等による湿式脱硫 硫酸製造
3	表面処理業鋼材製造業	塩化アンモニウム
4	鉄鋼業	自家発用ディーゼル
5	電気業	石灰による湿式脱硫 NH ₃ 注入
6	石膏製品製造業	焼成炉, 乾燥炉
7	化学肥料製造業	高度化成, 普通化成等
8	セメント製造業	焼成炉

2.4 調査項目及び分析方法

表3のとおり

なお、非海塩起源の成分(以後nssと表示)は、次式により算出した²⁾。ただし、単位はmg/lである。

$$nssSO_4^{2-} = SO_4^{2-} - 0.251 \times Na^+$$

$$nssCa^{2+} = Ca^{2+} - 0.038 \times Na^+$$

$$nssK^+ = K^+ - 0.036 \times Na^+$$

表3 分析項目及び分析方法

項目	分析方法
pH	ガラス電極法
SO ₄ ²⁻ , NO ₃ ⁻ , Cl ⁻	イオンクロマト法
Ca ²⁺ , Mg ²⁺ , K ⁺ , Na ⁺	原子吸光法
NH ₄ ⁺	インドフェノール法

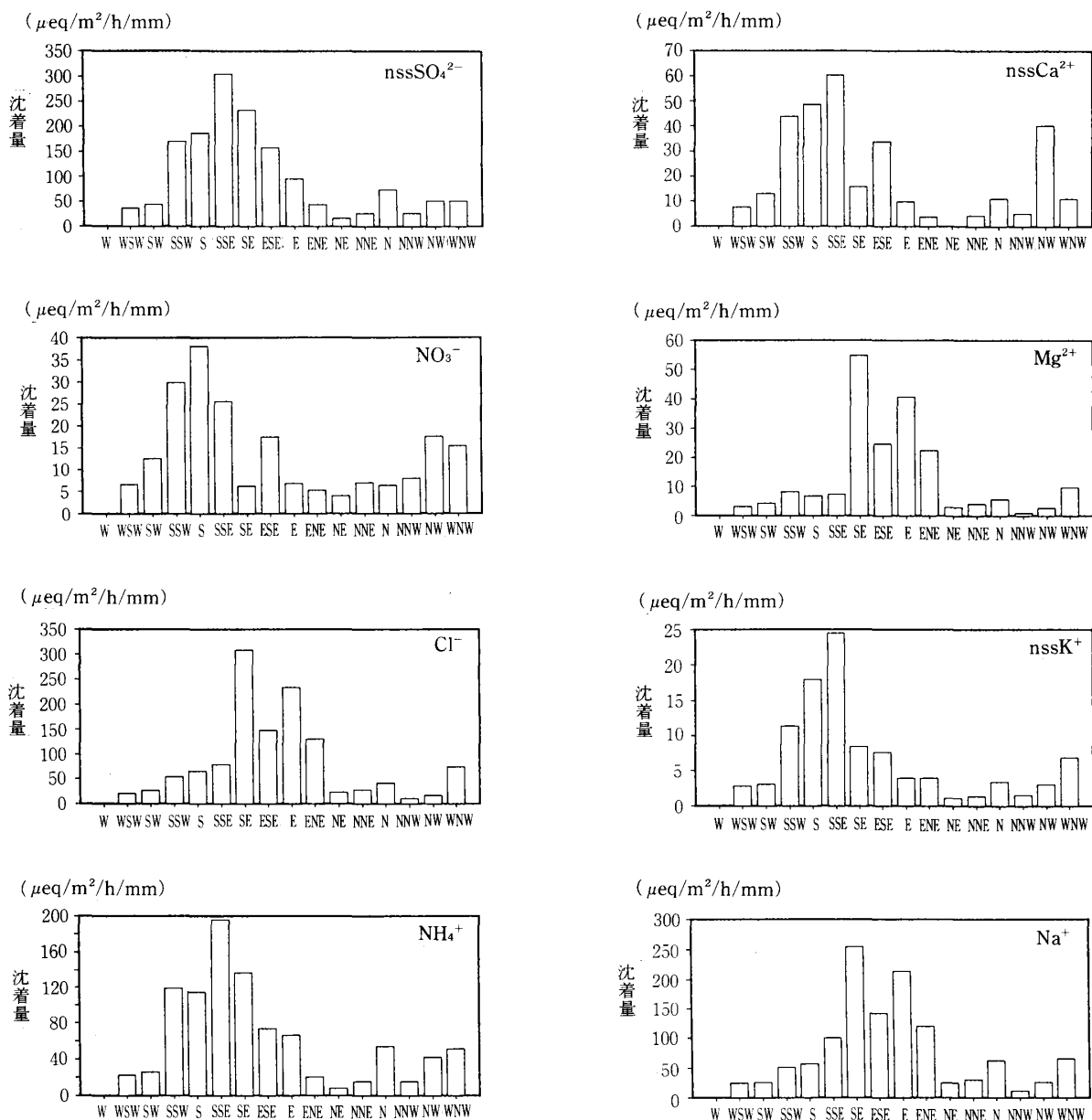


図2 風向別の湿性沈着量

3. 結果及び考察

解析は、降雨中に発生する汚染物質の、降雨への影響を調べるため、次の①～③に該当する試料を除いた11降雨66試料を、捕集時間の主風向毎（16方位）に分類して行った。

なお、風向のWに該当する試料はなかった。

- ①すでに大気中にある成分の、ウォッシュアウトによる影響を除くため、初期降雨の約1.5mmまで
- ②降雨が不連続の可能性のある、降水量が0.3mm未満
- ③風向の特定が困難な夜間等の長時間採取

3.1 風向別沈着量

各試料毎に、各成分の沈着量を捕集面積1m²、捕集時間1時間、降水量1mm当りで算出し、各風向毎の平均沈着量を求めたところ次のとおりであった（図2）。

非海塩起源の硫酸イオンの沈着量は、南南西～東にかけて多く、最大は南南東の306（ $\mu\text{eq}/\text{m}^2/\text{h}/\text{mm}$ ）であった。

硝酸イオンの沈着量は、南西～東南東、北西～西北西にかけて多く、最大は、南の38.0（ $\mu\text{eq}/\text{m}^2/\text{h}/\text{mm}$ ）であった。

塩化物イオンの沈着量は、南東～東北東にかけて多く、最大は、南東の309（ $\mu\text{eq}/\text{m}^2/\text{h}/\text{mm}$ ）であった。

アンモニウムイオンの沈着量は、南南西～東と北～西北西にかけて多く、最大は、南南東の196（ $\mu\text{eq}/\text{m}^2/\text{h}/\text{mm}$ ）であった。

非海塩起源のカルシウムイオンの沈着量は、南南西～東南東にかけて多く、最大は、南南東の60.2（ $\mu\text{eq}/\text{m}^2/\text{h}/\text{mm}$ ）であった。

マグネシウムイオンの沈着量は、南東～東北東にかけて多く、最大は、南東の54.7（ $\mu\text{eq}/\text{m}^2/\text{h}/\text{mm}$ ）であった。

非海塩起源のカリウムイオンの沈着量は、南南西～東南東にかけて多く、最大は、南南東の24.5（ $\mu\text{eq}/\text{m}^2/\text{h}/\text{mm}$ ）であった。

ナトリウムイオンの沈着量は、南南東～東北東にかけて多く、最大は南東の254（ $\mu\text{eq}/\text{m}^2/\text{h}/\text{mm}$ ）であった。

3.2 風向間の関連

各風向間の関連を見るため、各風向毎の9成分の平均沈着量を用いてクラスター分析を行った。

その結果、沈着量の少ない第1、2の群と、沈着量の多い第3、4の群の2つの大きな群に分類することができた（図3、表4）。

第1群は、各成分の沈着量は他の群に比べ少ない。

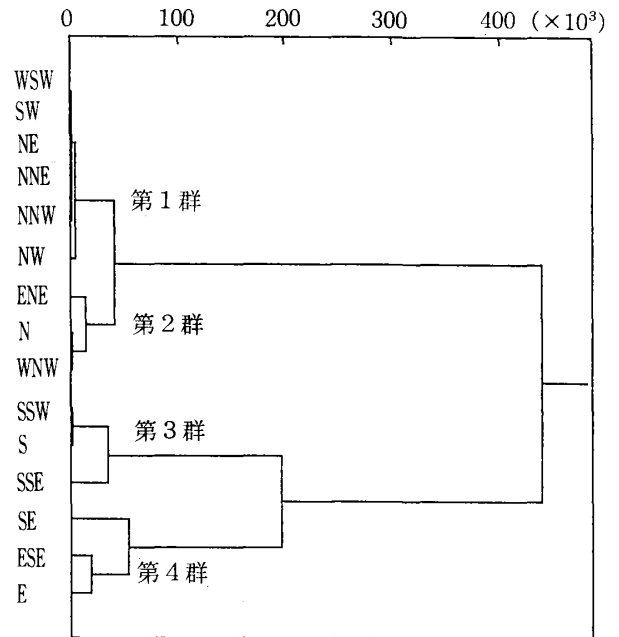
この群に含まれる風向方向の近傍には、大手工場等の発生源がないことから、バックグラウンド的なグループとみられる。

第2群は、第1群に比べ、硝酸イオンや非海塩起源の

カルシウム等の沈着量は同程度あるが、その他の成分の沈着量はやや多くなっている。

第3群は、塩化物イオン、マグネシウムイオンやナトリウムイオンを除く、非海塩起源の硫酸イオンやアンモニウムイオン等の沈着量が、特に多くなっている。

第4群は、特に塩化物イオン、マグネシウムイオンやナトリウムイオンの沈着量が多く、その他の成分の沈着量も第3群に次いで多くなっている。



類似度の計算：ユークリッド平方距離
分析方法：ウォード法

図3 クラスタ分析によるデンドログラム

表4 各群の風向分類と沈着量

群	第1	第2	第3	第4
風 向	WSW SW	ENE	SSW	SE
	NE NNE	N	S	ESE
	NNW NW	WNW	SSE	E
H ⁺	18.5	8.95	27.8	24.5
nssSO ₄ ²⁻	33.3	56.2	221	162
NO ₃ ⁻	9.22	8.94	31.2	10.1
Cl ⁻	20.2	81.4	66.1	230
NH ₄ ⁺	21.4	41.8	143	92.1
nssCa ²⁺	11.7	8.62	50.8	19.8
Mg ²⁺	2.85	12.4	7.14	40.0
nssK ⁺	2.13	4.74	17.9	6.63
Na ⁺	22.5	81.7	68.2	203

単位： $\mu\text{eq}/\text{m}^2/\text{h}/\text{mm}$

表5 相関行列

	H ⁺	nssSO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	nssCa ²⁺	Mg ²⁺	nssK ⁺	Na ⁺
H ⁺									
nssSO ₄ ²⁻	0.240				** : 危険率1%で有意				
NO ₃ ⁻	0.349	0.597*			* : 危険率5%で有意				
Cl ⁻	0.086	0.486	-0.151						
NH ₄ ⁺	0.150	0.982**	0.633*	0.429					
nssCa ²⁺	0.173	0.770**	0.885**	-0.011	0.792**				
Mg ²⁺	0.098	0.400	-0.231	0.993**	0.338	-0.091			
nssK ⁺	0.142	0.891**	0.787**	0.164	0.908**	0.847**	0.054		
Na ⁺	0.025	0.526*	-0.144	0.993**	0.471	0.036	0.975**	0.209	

今回の調査では、非海塩起源の硫酸イオン、カルシウムイオン、カリウムイオンやアンモニウムイオン、硝酸イオン等の沈着量は、風向が南南東付近を中心に多かった。

この傾向は、風向別の平均沈着量だけでなく、同一降水でも見られる(図4)。

そして、非海塩起源の硫酸イオンは、非海塩起源のカルシウムイオン、カリウムイオンやアンモニウムイオンとの間に高い相関がみられる(表5)。

調査地点の南南東方面には、八戸市内でも硫黄酸化物や窒素酸化物の排出量の多い大工場が立地している。

この中には、製造工程やばい煙処理対策で、アンモニアやアンモニウム塩、カルシウム塩やカリウム塩を使用しているところもあることから(表2)、これらの工場から排出されているものが、降雨に取り込まれていることも考えられる。

また、非海塩起源の硫酸イオンと硝酸イオンとの関係を見ると、周辺環境からの影響の少ない風向の場合、その沈着量の当量比(NO₃⁻/nssSO₄²⁻)は0.3前後であるが、周辺環境の影響を受ける風向になると、その当量比は、さらに小さくなっている(図5)。

この要因としては、

- ①亜硫酸ガスにくらべて、窒素酸化物が水に溶けにくい。
- ②硫酸塩を含み硫黄酸化物の供給量が窒素酸化物の供給量より多い。

ことなどが考えられる。

次に、塩化物イオン、ナトリウムイオンとマグネシウムイオンの沈着量は、風向が南東から東北東にかけて特に多く(表4)、また、強い相関がみられた(表5)。

これは、調査地点の東側に広がる太平洋から供給される海塩成分が降雨に取り込まれているためと考えられる。

4. ま と め

今回、八戸市の臨海工業地帯において、降水を1時間毎に採取し、各成分の湿性沈着量と風向から、ばい煙等

($\mu\text{eq}/\text{m}^2/\text{h}/\text{mm}$)

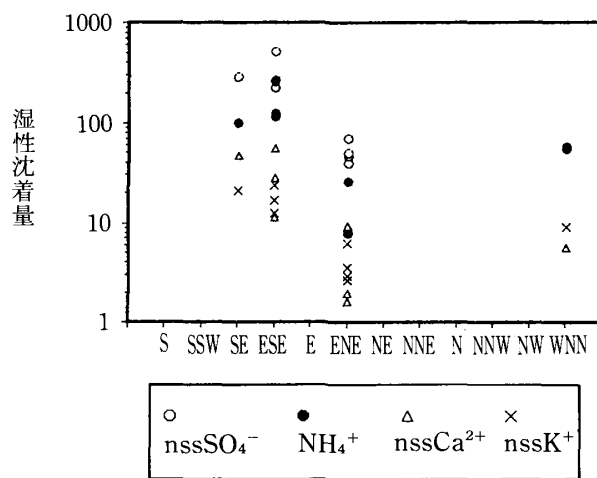


図4 一降水中の各成分の風向別沈着量

($\mu\text{eq}/\text{m}^2/\text{h}/\text{mm}$)

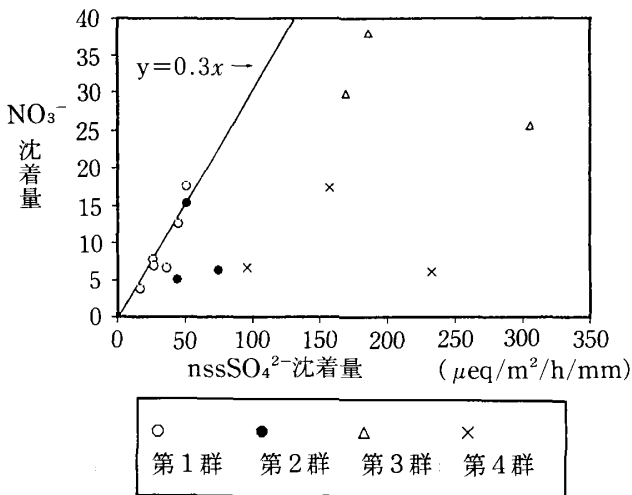


図5 nssSO₄²⁻とNO₃⁻の沈着量の比較

による固定発生源からの降水への影響を調べたところ、次のことがわかった。

- (1) 非海塩起源の硫酸イオン・カルシウムイオン・カリウムイオン、硝酸イオンやアンモニウムイオンの沈着量は、風向が南南東を中心に多かった。
- (2) 非海塩起源の硫酸イオン・カルシウムイオン・カリウムイオンやアンモニウムイオンは相関が高く、調査地点の南東部に立地している工場からの影響が考えられる。
- (3) 塩化物イオン、マグネシウムイオンやナトリウムイオンの沈着量は、風向が南東を中心に多く、各成分間の相関も高いことから、太平洋から供給された海塩粒子の影響と考えられる。
- (4) 発生源の影響を受けない各成分の湿性沈着量は、非海塩起源の硫酸イオンは $33(\mu\text{eq}/\text{m}^2/\text{h}/\text{mm})$ 、硝酸イオンは $9(\mu\text{eq}/\text{m}^2/\text{h}/\text{mm})$ 、アンモニウムイオンは $21(\mu\text{eq}/$

$\text{m}^2/\text{h}/\text{mm})$ 、非海塩起源のカルシウムイオンは $12(\mu\text{eq}/\text{m}^2/\text{h}/\text{mm})$ 、非海塩起源のカリウムイオンは $2(\mu\text{eq}/\text{m}^2/\text{h}/\text{mm})$ 程度であった。

なお、今後は、さらに多くの試料についても解析を加えるとともに、降水量強度等による影響についても検討して行きたい。

文 献

- 1) 全国公害研協議会北海道・東北支部酸性雨調査部会：北海道・東北ブロック酸性雨合同調査解析報告書(昭和62～平成3年度)，平成5年5月。
- 2) 酸性雨調査法研究会：酸性雨調査法，株式会社ぎょうせい，平成5年6月。

Abstract

Actual Condition of Wet Deposition in the Coastal Industrial Zone

Masashi NODA and Motoichi SAKAGAMI

A relation between the wind direction and the wet deposition was studied by the time sampling of rainwater so as to be clear the effect of smoke and others of factories on rainwater in the coastal industrial zone in Hachinohe city.

Results showed that wet depositions of sulphate, calcium and potassium ion not originated seasalt and ammonium ion were large when the wind set from the zone of many factories using ammonia and ammonium, calcium and potassium salt through manufacturing process and process treatment for smoke. A good correlation between them was found.

When the wind set from the sea side, wet depositions of chloride, sodium magnesium ion were large and a good correlation between them was found, too. The above results indicated that these were effected by the seasalt particles.

Key words : wet, washout, back ground

青森県南地域における道路粉じん調査 (VI)

— 法規制の効果について —

工藤 隆治 工藤 精一 野田 正志
 中道 敬 岡 典子 工藤 志保¹

平成4年4月1日から、一部車両を除きスパイクタイヤの使用に罰則が適用され、平成4年度冬期のスパイクタイヤ装着率はピーク時で約4%と著しく減少した。

その結果、平成4年度冬期の降下ばいじん量は、平成3年度の半分と大幅に減少した。また、ほとんどの測定地点のピーク値は20t/km²/月以下となった。

降下ばいじん量の減少の要因として、スパイクタイヤによるアスファルト舗装材由来の道路粉じんの減少だけでなく、土壌由来の道路粉じんも減少していることが推測された。

Key words: studded tire, dust fall

1. はじめに

平成2年6月27日に「スパイクタイヤ粉じんの発生防止に関する法律」(以下、法と略す)が公布、施行され、一部の車両を除いて、平成3年4月1日からスパイクタイヤの使用が禁止となり、また平成4年4月1日からは罰則が適用されることになった。

本県においては、67市町村のうち47市町村がスパイクタイヤの使用禁止地域として指定されている。

当所等では、昭和57年度の予備調査以降、11年間にわたり道路粉じん調査を継続して実施し、その間種々の検討を加えてきたところである(表1)。

今回、法規制後の平成4年度冬期を中心として、道路粉じんの状況を把握したので報告する。

2. 調査方法

調査期間：昭和60年11月から平成5年7月

調査地点及び調査方法：表2のとおり

表1 道路粉じん調査の概要^{1~5)}

年度	調査の概要
S58 ¹⁾	スパイクタイヤ装着率と気象因子 浮遊粉じん量とその成分 道路堆積物の粒径分布とその成分 道路粉じんと道路堆積物の比較 浮遊粉じんの距離減衰
S60 ²⁾	浮遊粉じんの距離減衰と気象因子 浮遊粉じんの粒径分布 浮遊粉じんのアスファルト舗装材と土壌からの寄与率
S62 ³⁾	降下ばいじんの距離減衰 浮遊粉じんの粒径分布とその成分 浮遊粉じん、浮遊粒子状物質、道路堆積土砂のアスファルト舗装材からの寄与率
H1 ⁴⁾	降下ばいじんの三次元分布の把握
H1 ⁵⁾	浮遊粉じん発生量の推定

表2 道路粉じん調査地点および調査方法

地域	調査地点名	(図中略称)	主要路線名	車線数	日交通量 ⁶⁾ (台)	採取方法
						ダストジャー法 道路端からの距離 (m)
八戸市	青葉町サンデー前	(青 葉)	国道45号線	6	44050	5
	県八戸合同庁舎	(合 庁)	県道八戸百石線	4	11140	5
	根城浄水場	(根 城)	市道348号線	4	—	300
	八日町長崎屋前	(八 日 町)	国道340号線	2	13410	0
十和田市	マルホン十和田店前	(マルホン)	国道4号線	2	12800	5
	(株)ナナオ家具十和田店	(ナ ナ オ)	国道4号線	2	12260	4
三沢市	三沢市役所	(三 沢)	市道46号線	2	—	5

1：八戸保健所

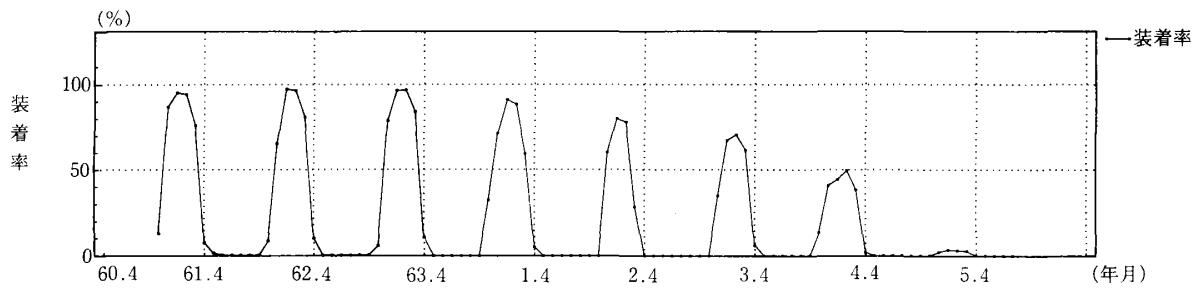


図1 スパイクタイヤ装着率 (月平均)

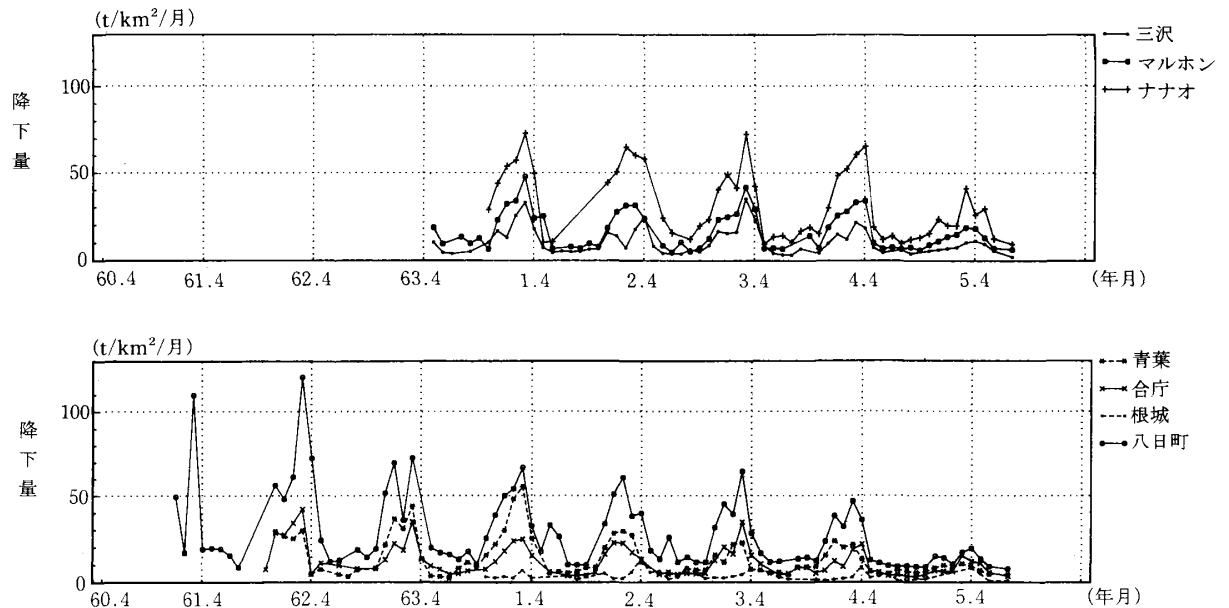


図2 降下ばいじん量の経月変化

3. 結果

3.1 スパイクタイヤ装着率⁷⁾

八戸市におけるスパイクタイヤ装着率のピークは、昭和63年度まで95%以上であったが、平成元年度から減少し始め、使用が禁止された平成3年度は約50%であり、罰則適用の平成4年度には約4%と著しく減少した(図1)。

なお、大型車は平成5年4月1日からの使用禁止、罰則適用であるが、平成4年度の調べによると全車両に占める大型車混入率は約4%であり、そのスパイクタイヤ装着率はピーク時で27%であった。

3.2 降下ばいじん

(1) 降下量のピーク

平成4年度の降下ばいじん量のピーク値(図2)は、(株)ナナオ家具十和田店の41t/km²/月(3月)が最大であり、他の地点はいずれもスパイクタイヤ使用禁止地域指定の要件である20t/km²/月を下回った。

昭和60年度からの測定結果において、降下量の最大は

昭和62年3月に八日町長崎屋前で測定された121t/km²/月であったが、その平成4年度冬期のピークは19t/km²/月(平成5年4月)と1/6に減少した。

(2) スパイクタイヤ装着期の平均降下量

12月～4月のスパイクタイヤ装着期(以下、装着期と略す)は降下ばいじん量が多く、対照地点である根城浄水場を除く6地点(以下、6地点と略す)の、その期間の月平均降下量は、法規制前である昭和63年度は19～55(平均35)t/km²/月、平成3年度14～51(平均27)t/km²/月、平成4年度8.4～26(平均14)t/km²/月であった(図3)。

平成4年度は6地点平均で、昭和63年度と比較して6割の減少、平成3年度と比較して5割の減少であり、装着期の降下ばいじん量は大幅に減少した。

降下量の減少率が最も大きかったのは青葉町サンデー前で、昭和63年度と比較し1/4に減少した。

降下量の減少は八日町長崎屋前で著しく、昭和63年度と平成4年度の装着期平均の差は33t/km²/月であった。

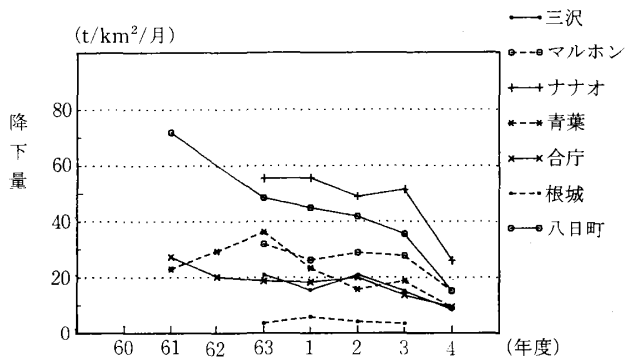


図3 装着期(12月～4月)の平均降下ばいじん量

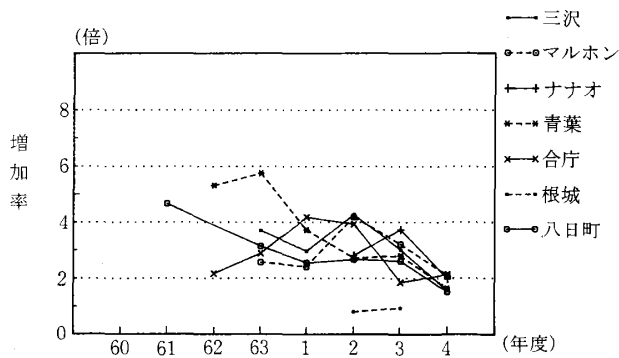


図5 装着期の平均降下ばいじん量の増加率

(3) スパイクタイヤ非装着期の平均降下量

5月～10月のスパイクタイヤ非装着期(以下、非装着期と略す)は降下ばいじん量が少なく、平成4年度の6地点のその期間の月平均降下量は4.4～13(平均7.7)t/km²/月であった。

測定地点のうち降下量が比較的多い(株)ナナオ家具十和田店、マルホン十和田店前、八日町長崎屋前での降下量は減少の傾向にあり、他の降下量の少ない測定地点では降下量はほぼ横ばいであった(図4)。

地点の月平均降下量(12月～3月)は、昭和63年度0.53～1.68(平均1.10)t/km²/月、平成3年度0.28～1.41(平均0.84)t/km²/月、平成4年度0.11～0.40(平均0.26)t/km²/月であった(図6)。平成4年度は6地点平均で、昭和63年度と比較して1/4に減少、平成3年度と比較して7割の減少であった。また、その平均含有率は、昭和63年度2.5～3.7(平均3.2)%,平成3年度2.4～4.0(平均3.2%)に対し、平均4年度は1.5～2.3(平均1.8)%と減少した。

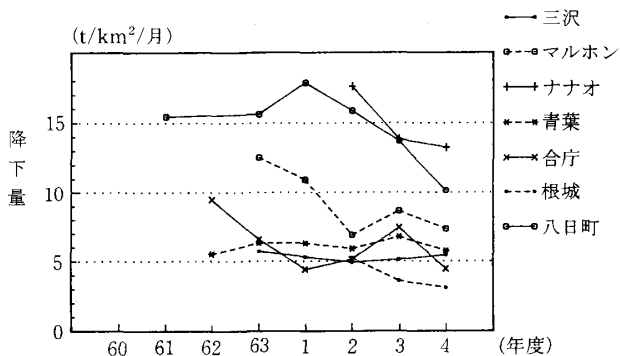
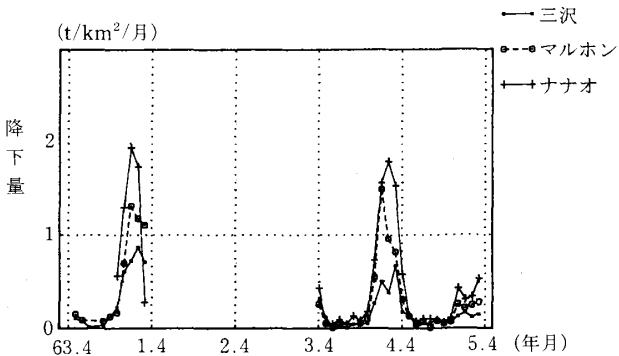


図4 非装着期(5月～10月)の平均降下ばいじん量



(4) 非装着期に対する装着期の降下量の増加率

6地点の非装着期に対する装着期の降下ばいじん量の増加率は、昭和63年度2.5～5.7(平均3.6)倍(株)ナナオ家具十和田店は未測定のため5地点)、平成3年度2.6～3.7(平均3.0)倍(県八戸合同庁舎を除く5地点)であったが、平成4年度は1.5～2.1(平均1.8)倍と増加率は低下した(図5)。なお県八戸合同庁舎前では平成3年度冬期に下水道工事が行われ、測定地点寄りの車線が走行できない状態にあったことから、装着期の降下量が少なく評価され、このことが他の測定地点と異なった経年変化を示した要因と考えられた。

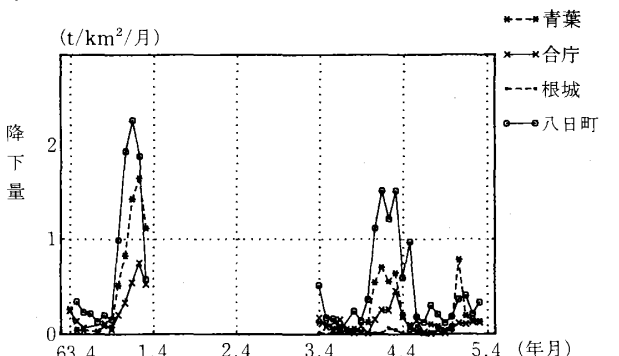


図6 降下ばいじん中のベンゼン抽出物の経年変化

(5) ベンゼン抽出物

降下ばいじん中のベンゼン抽出物は装着期で多く、6

4. 考 察

4.1 平成4年度の降下ばいじん量の減少について

昭和62年度の青葉町サンデー前において、スパイクタイヤ装着期の降下ばいじんに対するアスファルト舗装材の寄与率は、11月20~30%、1月50~60%、3月30~50%であり、土壌の寄与率は、11月60~70%、1月30~50%、3月50~70%と推定された。この値から導いた昭和62年度の降下ばいじん中のアスファルト舗装材の推定降下量をX軸に、昭和62年度と平成4年度の降下ばいじん量の差をY軸にとりプロットし回帰直線を引いたのが図7である。また参考のため昭和61年度、昭和63年度についても昭和62年度の推定値を用い同様に示した。

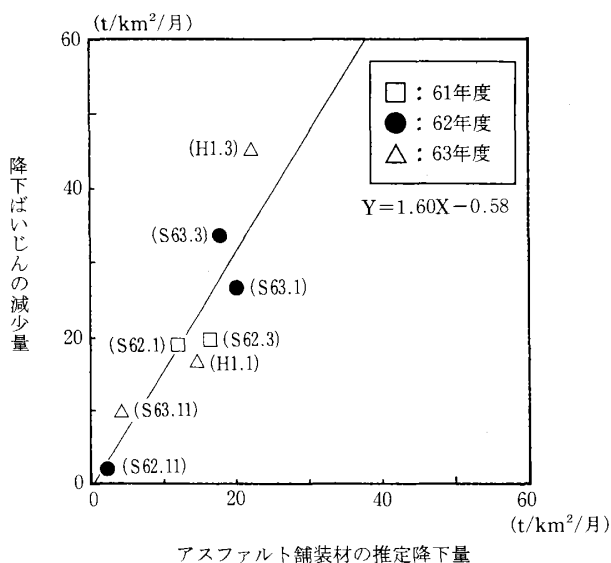


図7 アスファルト舗装材の推定降下量と降下ばいじんの減少量

回帰直線はY軸側に傾いており、昭和62年度の降下ばいじん中のアスファルト舗装材の量より、昭和62年度から平成4年度の降下ばいじん減少量が多いということを示している。

このことから、平成4年度冬期における降下ばいじん量の大幅減少の要因として、スパイクタイヤ装着率の低下によるアスファルト舗装材由来の道路粉じんの減少と、さらに土壌由来の道路粉じんも減少していることが推測された。

4.2 ㈱ナナオ家具十和田店の降下ばいじん量について

㈱ナナオ家具十和田店の降下ばいじん量のピークは昭和63年度の測定開始以来毎年一番多く、平成4年度においても41t/km²/月と他の測定地点の2倍以上の降下量があった。また非装着期においても降下量は一番多く平均13t/km²/月と、根城浄水場を除くその他5地点平均の2倍の降下量があった。

㈱ナナオ家具十和田店における交通量は、マルホン十

和田店前とほぼ同数であるが、マルホン十和田店前の降下量はピーク19t/km²/月、非装着期平均7t/km²/月と少なく、また青葉町サンデー前は3.6倍の交通量があるが、ピーク11t/km²/月、非装着期平均6t/km²/月とさらに少なかった。

非装着期に降下ばいじん量が多い地点として八日町長崎屋前があり、㈱ナナオ家具十和田店との共通点は、道路と建物が比較的近接しており、その間にダストジャーを設置している点である。

その他、各測定地点の状況を考え合わせると、㈱ナナオ家具十和田店において降下ばいじん量が多い要因として、舞い上がった道路粉じんが拡散しにくいこと及び大型車両による道路粉じんの巻き上げの影響があるものと考えられた。

5. ま と め

平成4年度の道路粉じん調査結果は以下のとおりであった。

- (1) スパイクタイヤ装着率はピーク時で4%と著しく減少した。
- (2) 降下ばいじん量のピーク値は、すべての地点において過去最低となり、㈱ナナオ家具十和田店を除くと、他の地点はスパイクタイヤ使用禁止指定要件の20t/km²/月を下回った。
- (3) スパイクタイヤ装着期の降下ばいじん量は、6地点平均14t/km²/月であり、罰則適用前の平成3年度と比較すると半分の降下量となった。
- (4) 降下ばいじん中のベンゼン抽出物は6地点平均0.26t/km²/月であり、平均3年度と比較すると7割減少した。また、その含有率は平均1.8%と減少した。
- (5) 降下ばいじん量の減少の要因として、スパイクタイヤによるアスファルト舗装材由来の道路粉じんの減少だけでなく、土壌由来等の道路粉じんも減少していることが推測された。
- (6) ㈱ナナオ家具十和田店において、測定地点での道路粉じん拡散等の条件を勘案すると、現状では降下ばいじん量の減少は難しいのではないかと考えられた。

6. お わ り に

平成4年度において、脱スパイクタイヤが急速に進み、各測定地点での降下ばいじん量は著しく減少し、その効果が顕著に現れた結果となった。

文 献

- 1) 阿部征裕, 工藤精一: 青森県南地域における道路粉じん調査 (I), 青森県公害センター所報, 6, 63-67, 1983.

- 2) 阿部征裕, 鈴木寿秋: 青森県南地域における道路粉じん調査(Ⅱ), 青森県公害センター所報, 7, 68-73, 1985.
- 3) 野田正志, 他: 青森県南地域における道路粉じん調査(Ⅲ), 青森県公害センター所報, 8, 72-82, 1987.
- 4) 野田正志, 今 武純: 青森県南地域における道路粉じん調査(Ⅳ), 青森県公害センター所報, 9, 31-35, 1989.
- 5) 今 武純, 野田正志, 吉田 毅: 青森県南地域における道路粉じん調査(Ⅴ), 青森県公害センター所報, 9, 36-41, 1989.
- 6) 青森県土木部編: 道路交通センサス(1990)
- 7) 八戸市環境保全課調べ

Abstract

Composition of Dust Around the Road in the South-East District of Aomori Prefecture (VI) — Effect of Regulation of a Law —

Ryuji KUDOH, Seiichi KUDOH, Masashi NODA, Satoshi NAKAMICHI
Noriko OKA and Shiho KUDOH

The use of studded tire has been punished according to the penal regulation without a part of vehicle since the first of April, the fiscal year 1992. The fitting rate of them decreased largely to about 4% at the peak in the winter season, fiscal 1992.

The amount of dust fall in the winter season, fiscal 1992, decreased to a half of them in the 1991 fiscal year. The peak value was less than 20t/km²/month at almost measurement stations.

It was speculated that factors of reducing amount of dust fall were not only decreasing of dust on road originated asphalt pavement material by studded tire but also that of soil.

Key words: studded tire, dust fall

大気中汚染物質の簡易測定法の検討 —NO, NO₂同時測定用サンプラーについて—

岡 典子 中道 敬 野田 正志 工藤 隆治
工藤 志保¹ 工藤 精一 今 武純

NO, NO₂同時測定用サンプラーによる簡易測定法（サンプラー法）は、大気中窒素酸化物（NO, NO₂）濃度を簡便に測定できる方法であり、本県の環境大気測定局において自動測定機による測定（自動測定法）との併行試験を行い、両法の比較検討を行った。

その結果、サンプラー法と自動測定法の間には、非常に良い相関関係がみられ、自動測定機による大気汚染常時監視の補完方法としては有用であることがわかった。

Key words : NO, NO₂ simultaneous determination sampler, nitrogen oxides, exhaust gas

1. はじめに

大気汚染状況を広域的に把握あるいは予測するには、より多くの地点で、簡易的に測定局の常時監視を十分に補完できる手段が要求される。

大気中の窒素酸化物（NO, NO₂）を簡便に測定する方法として、分子拡散を捕集原理としたNO, NO₂同時測定用サンプラーによる簡易測定法（サンプラー法）が横浜市の平野らによって開発され、比較的高濃度領域については自動測定機による測定（自動測定法）と良く一致すると報告されている¹⁾。また、それをを用いた道路周辺の濃度分布調査がなされており²⁾、他の自治体においても道路沿道や周辺環境の窒素酸化物濃度の調査等に利用されている³⁾⁴⁾⁵⁾。

今回、青森県内での低濃度領域におけるサンプラー法と自動測定法の比較検討を行ったので報告する。

表1 調査地点の概要

地域	地点名	用途	地域
青森市	本町公園	商	業
"	堤小学校	住	居
八戸市	第二魚市場	工	業
"	根岸小学校	第2種住居専用	

1 : 八戸保健所

2. 調査方法

2.1 調査期間

平成4年10月～平成5年3月

2.2 調査地点

青森市2地点, 八戸市2地点
計4地点（表1, 図1）

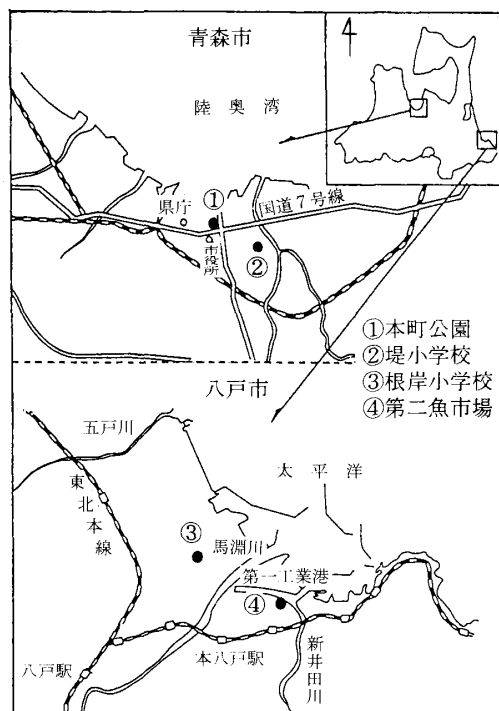


図1 調査地点

2.3 サンプルング方法

大気汚染監視測定局のサンプルング口の外側にサンプラー（図2）を設置し、シェルターをかぶせた。

捕集エレメントの交換は原則として1週間毎に行った。

なお、サンプラー、シェルターは(株)小川商会製のものをNO_x、NO₂エレメントは東京化成工業(株)製のものを使用した。

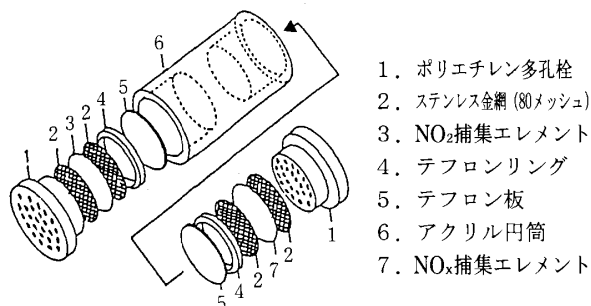
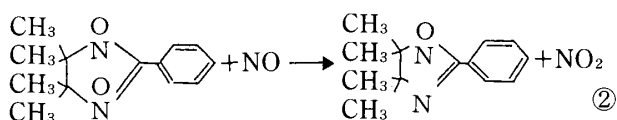
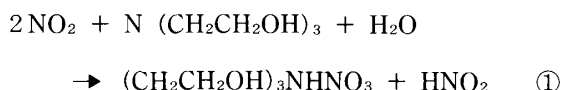


図2 NO, NO₂ 同時測定用サンプラーの構造



サンプラーはNO₂捕集部とNO_x捕集部に分かれ、大気中のNO、NO₂はそれぞれの捕集部へ分子拡散の原理によって捕集される。NO₂量は①式の反応によりNO₂捕集部に捕集された量から求める。また、NO_x捕集部では、②式の反応によりNOが有機酸化剤PTIO（2-Phenyl-4,4,5,5-tetramethylimidazoline-3-oxide-1-oxyl）によってNO₂に酸化されるため、NO_x量(NO+NO₂)が①式の反応によりNO₂として捕集され、そのNO_x量からNO₂捕集部のNO₂量を差し引いてNO量を求める。

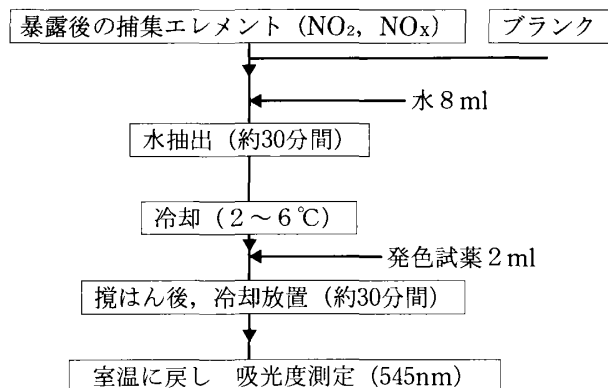


図3 分析方法

2.4 分析方法

試薬の調製及び分析操作については、横浜市の示した方法¹⁾に準じ行った。

サンプラーから、大気中に暴露されたNO₂及びNO_x捕集エレメントをそれぞれピンセットで取り出し、図3の操作により分析を行った。

2.5 濃度の算出方法

濃度の算出方法は以下のとおりである。

$$\text{NO 濃度 (ppb)} = \alpha_{\text{NO}} \times (W_{\text{NOx}} - W_{\text{NO}_2}) / t$$

$$\text{NO}_2 \text{濃度 (ppb)} = \alpha_{\text{NO}_2} \times W_{\text{NO}_2} / t$$

W_{NOx}, W_{NO₂} : NO_x及びNO₂捕集量 (ng)

α_{NO}, α_{NO₂} : ppb濃度換算係数 (ppb·min/ng)

t : 暴露時間 (min)

$$\alpha_{\text{NO}} = 1 / \beta_{\text{NO}}$$

$$\beta_{\text{NO}} = -0.780 \times [\text{RH}] / 100 + 2.20$$

$$\alpha_{\text{NO}_2} = 1 / \beta_{\text{NO}_2}$$

$$\beta_{\text{NO}_2} = 0.677 \times [\text{RH}] / 100$$

$$+ 2.009 \times 10^{-2} \times T + 0.898$$

β_{NO}, β_{NO₂} : NO, NO₂の捕集係数

(10⁻²·ng/ppb·min)

RH : 相対湿度 (%)

T : 温度 (°C)

なお、温・湿度のデータがない場合は、通常、温度20°C、湿度70%とみなし、α_{NO}=60、α_{NO₂}=56 (ppb·min/ng)の係数を用いる。

3. 結果及び考察

3.1 自動測定法とサンプラー法の相関

青森市、八戸市における4地点の測定結果をまとめ、NO及びNO₂のサンプラー法と自動測定法の相関関係を図4、5に示した。

両法間の相関係数は、NOで0.852、NO₂で0.854となり

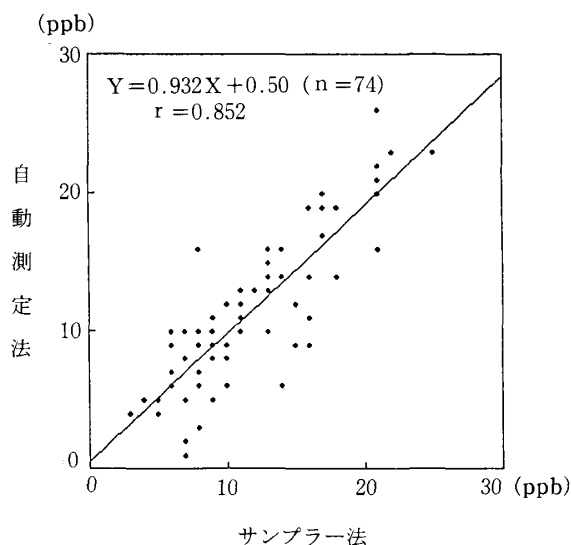


図4 NOの自動測定法とサンプラー法の相関

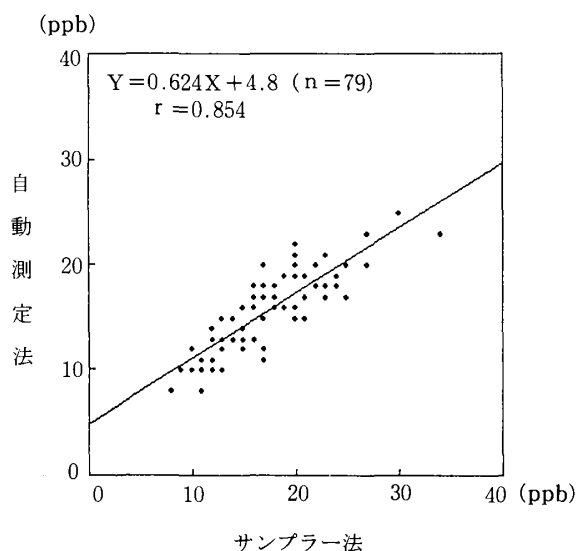


図5 NO₂の自動測定法とサンプラー法の相関

両者とも1%有意水準でかなり良い相関が認められた。サンプラー法(X), 自動測定法(Y)とする回帰式は、
 NO : $Y = 0.932X + 0.50$
 NO₂ : $Y = 0.624X + 4.8$ となった。
 また、NOについては両法の値はほぼ一致しているが、NO₂については自動測定法の約10%高い値がサンプラー法の値となった。

平野らの示した横浜市のデータ¹⁾によると、NO及びNO₂の相関係数はそれぞれ0.986, 0.967とともに高い相関を示しており、かつ、濃度の値も極めて良く一致している(図6)。

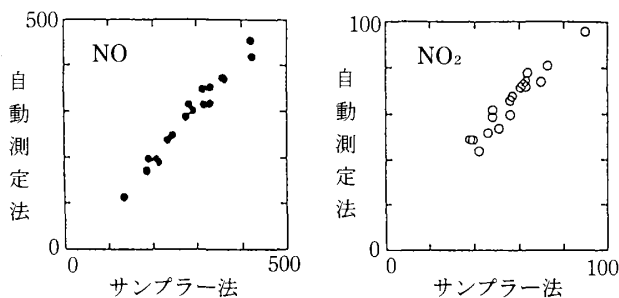


図6 横浜市の場合の自動測定法とサンプラー法の相関(単位: ppb)

横浜市のデータはNOで100~500ppb, NO₂で40~100ppbの範囲に、本県のデータはNO, NO₂とも0~40ppbの範囲にある。

本県の結果と横浜市の結果を比較すると、低濃度から高濃度までの広い範囲でほぼ直線関係になるとみられ、自動測定機による常時監視を補完する方法としては有用な方法と考えられる。

3.2 調査地点毎の相関

測定地点毎に、NO, NO₂について両法による相関をみ

ると、すべて1%有意水準で相関が認められ、特に、第二魚市場と根岸小学校のNOについては、相関係数がそれぞれ0.9484, 0.9358と高い相関がみられた(図7, 8)。

4地点をまとめた相関はすでに示したとおりであるが(図4, 5), 地点毎に相関をみると(図7, 8), 青森市2地点(本町公園, 堤小学校)と八戸市2地点(第二魚市場, 根岸小学校)とでは、若干異なった特徴を示した。

また、NH₃の影響があるとみられる第二魚市場局においても他の測定地点と同じように直線性は良好であった。

NO, NO₂とも八戸市2地点においては両法の値はほぼ一致しているが、青森市2地点においてはサンプラー法の値が自動測定法の値より高い値を示している。これは低濃度領域での特徴であり、前述したように広範囲では直線関係となるとみると、高濃度が予測される地点ではこの地点差は実質的には緩和され、広域的な大気濃度の評価には十分問題なく用いることができると考えられる。

3.3 道路沿道でのサンプラー法による測定

(1) 調査方法と結果

平成4年度のサンプラー法と自動測定法による併行試験の結果、両法間には非常に良い相関関係がみられ、サンプラー法による大気中窒素酸化物の濃度評価には有用な手段であることがわかったので、自動車排ガス測定局(自排局)の設置されていない自動車交通量の多い十和田市2地点, 三沢市1地点の道路沿道において、平成5年5~6月の期間、調査を実施した(表2)。

なお、サンプラーの交換は、検討時と同じ約1週間毎に行った。

表2 調査地点

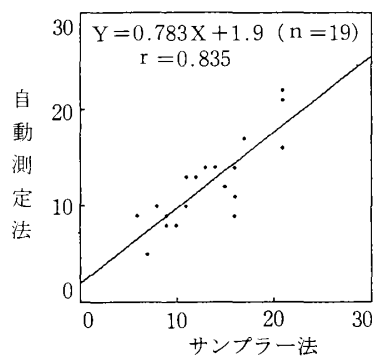
地域	地点名	サンプラーと道路端の距離(m)
十和田市	ナナオ家具十和田店	4
"	旧十和田マルホン	5
三沢市	三沢市役所	5

3地点ともNO, NO₂の測定結果は八戸市の環境大気測定局とほぼ同レベルの濃度であった(表3)。3地点のうちすべての測定期間でナナオ家具十和田店(以下ナナオと略す)が他の2地点と比較してNO, NO₂とも1.5~2.0倍の濃度を示した。しかも、NO/NO_x比も0.61と、他の2地点と比較し高い値を示し、NOの割合が大きいことを示している。交通量にさほど差がないことから、濃度の高い要因として、ナナオが他の2地点よりもサンプラーの設置位置が道路により近いこと、遮閉物としての建物の影響により十分に拡散されずに沿道に滞留していることが考えられる。

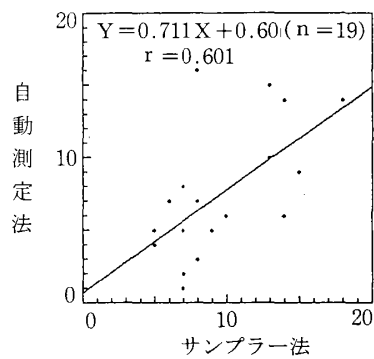
(2) NO/NO_x比

道路沿道では一般に排出ガスの影響が顕著でありNO/NO_x比は高いといわれている²⁾⁶⁾。

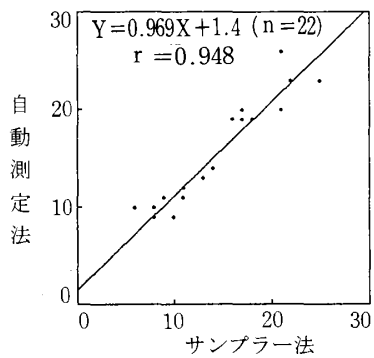
ちなみに、八戸市六日町の自排局においては0.65前後



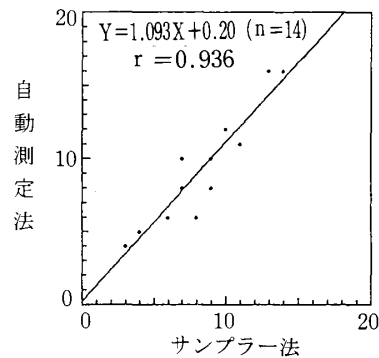
7-a 本町公園 (NO)



7-b 堤小学校 (NO)

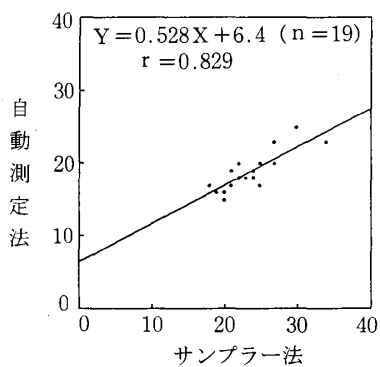


7-c 第二魚市場 (NO)

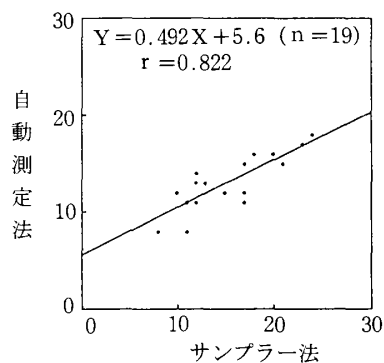


7-d 根岸小学校 (NO)

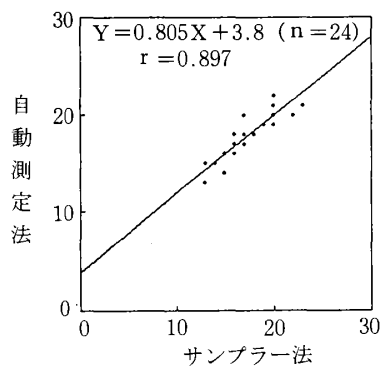
図7 調査地点毎の相関 (NO) (単位: ppb)



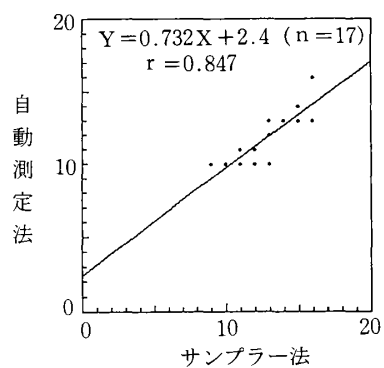
8-a 本町公園 (NO₂)



8-b 堤小学校 (NO₂)



8-c 第二魚市場 (NO₂)



8-d 根岸小学校 (NO₂)

図8 調査地点毎の相関 (NO₂) (単位: ppb)

表3 道路沿道でのサンプラー法による調査結果

(単位: ppb)

No.	調査期間	ナナオ家具十和田店			十和田マルホン			三沢市役所			
		NO	NO ₂	NO/NO _x	NO	NO ₂	NO/NO _x	NO	NO ₂	NO/NO _x	
1	5.5.18-5.25	13	11	0.54	5	7	0.42	6	11	0.35	
2	5.28-6.4	18	11	0.62	6	6	0.50	7	7	0.50	
3	6.4-6.14	20	10	0.67	9	6	0.60	7	9	0.44	
4	6.14-6.21	20	12	0.62	8	8	0.50	10	8	0.56	
5	6.21-6.29	15	11	0.58	5	7	0.42	6	9	0.40	
NO/NO _x (平均値)				0.61				0.49			0.45

の比(平成4年度の自排局のデータから月毎の平均濃度により算出)であり、他の環境と比べNOの割合が大きいが、併行試験を行った環境大気測定局4地点(本町公園、堤小学校、第二魚市場、根岸小学校)におけるNO/NO_x比の各地点毎の平均値は0.36~0.44の範囲であった。

今回の道路沿道での調査においては、ナナオのNO/NO_x比が0.61と高く自動車排ガスの影響を受けていると考えられる結果であった。

今後、気象条件、交通量等の影響を含め更に詳細に調査を行い、実態を把握する必要がある。

4. ま と め

青森市、八戸市で平成4年度に実施したNO、NO₂同時測定用サンプラーを用いた調査から次の知見を得た。

- (1) 大気中濃度の簡易測定法として以前から用いているアルカリろ紙法よりは、NO、NO₂濃度(ppbあるいはppm単位)を見積ることが可能とみられる。
- (2) 低濃度領域では、地点により相関に若干、特徴がみられたが(NO、NO₂とも青森市ではサンプラー法の値が自動測定法の値より高く、八戸市では両法の値はほぼ一致している)、広い濃度範囲ではNO、NO₂の両物質についてサンプラー法と自動測定法との直線性は良い。
- (3) 温・湿度の測定値への影響は、測定時の気象条件を考慮することにより補正できる。

以上、今回検討した簡易測定法は、自動測定機による

大気汚染常時監視の補完方法としては有用であることがわかった。

本法の特徴として、電源を必要とせず手軽に設置できることから、本県としても自排局設置に向けて、道路沿道における大気中窒素酸化物濃度の見積り、予測に活用していきたい。

文 献

- 1) 平野耕一郎、他: NO、NO₂の簡易測定法—分子拡散法によるNO、NO₂同時測定、環境と測定技術、**12**(12)、32-39、1985。
- 2) 前田裕行、平野耕一郎: 小型サンプラーによる道路沿道の窒素酸化物濃度、横浜市公害研究所報、**11**、5-14、1986。
- 3) 坂本明弘、他: 簡易測定法によるNO・NO₂の調査—沿道環境及び住居環境について—、和歌山県衛生公害研究センター年報、**36**、45-49、1990。
- 4) 千葉恵、他: NO₂簡易測定法(サンプラー法)による仙台市内のNO₂濃度測定について(平成元年度)、仙台市衛生研究所報、**19**、348-352、1989。
- 5) 千葉恵、他: 環境大気中NO₂測定法(自動測定法、プレート法及びサンプラー法)の比較について、仙台市衛生研究所報、**19**、353-360、1989。
- 6) 秋元肇: 大気中における窒素酸化物の化学的挙動、第26回大気汚染学会シンポジウム、1985。

Abstract

**Investigation of Pollutant in Atmosphere with
Simple Determination Method
— NO, NO₂ Simultaneous Determination Sampler —**

Noriko OKA, Satoshi NAKAMICHI, Masashi NODA, Ryuji KUDOH
Shiho KUDOH, Seiichi KUDOH and Takezumi KON

A simple determination method with NO, NO₂ simultaneous determination sampler (a sampler method) has been a very simple method to measure the concentration of nitrogen oxides (NO, NO₂) in the atmosphere. We observed them by this method and a NO_x monitor (a measuring method using NO_x monitor) at the environment atmospheric monitoring station in this prefecture and compared and discussed them.

From results, we found good relation between both methods and the sampler method to be useful as the substitutes for monitoring air pollution by the measuring method using NO_x monitor.

Key words : NO, NO₂ simultaneous determination sampler, nitrogen oxides,
exhaust gas

姉沼の水質汚濁調査

高柳 和弘 柞木田むつみ 小山田久美子
早狩 敏男 工藤 精一

小川原湖に接する姉沼は、恒常的に水質環境基準を超えている湖沼である。
今回、平成2年度に行った調査をもとに、流入する2河川の汚濁負荷量を求めその評価を行ったところ市街部からの生活雑排水による影響が大きいことがわかった。

Key words: Lake Anenuma, eutrophication, pollution loading amount

1. はじめに

湖沼、内湾等の閉鎖性水域では、生活排水などの流入による水質の悪化がみられ問題となっているところも少なくない。

小川原湖と接する姉沼は、湖面積1.6km²の小さな堰止湖¹⁾である。同湖の富栄養化については奈良、今らが報告²⁾³⁾しており、青森県では富栄養化の進んだ湖沼であり、水質測定を開始して以来恒常的に環境基準を超えている。

著者らは、その原因を究明するため、姉沼での水質調査及び流入河川の負荷量調査を行ったので報告する。

2. 調査方法

2.1 調査期間

湖沼水質調査：昭和60年～平成元年度
平成2年10, 11月

流入河川調査：平成2年10, 11月

2.2 調査地点

図1のとおり（黒枠の範囲は姉沼の流域面積）

姉沼：3地点（中央ほか2地点）

根井沼：1地点

姉沼川：4地点

中津川：1地点

2.3 測定方法

透明度, pH, 溶存酸素(DO), 生物的酸素要求量(BOD), 化学的酸素要求量(COD), 全窒素(T-N), 全リン(T-P), 陰イオン界面活性物質(MBAS), クロロフィルa(Chl-a)について表1の方法により測定を行った。

3. 湖沼概要

姉沼は青森県上北郡のほぼ中央、小川原湖の南岸に位置し、三沢市を貫通する姉沼川及び六戸町農村部を流れ

表1 調査項目及び測定方法

項目	測定方法
透明度	セッキ板法
pH	ガラス電極法
DO	告示法(ウインクラーアジ化ナトリウム変法)
COD	告示法(100℃酸性過マンガン酸カリウム法)
BOD	告示法(ウインクラーアジ化ナトリウム変法)
T-N	告示法(オートクレーブ分解UV法)
T-P	告示法(オートクレーブ分解モリブデン青法)
MBAS	メチレンブルー吸光光度法
Chl-a	三波長による吸光光度法

* 告示法：環境庁告示法

表2 姉沼, 根井沼の湖沼概要

項目	姉沼	根井沼
面積 (km ²)	1.6	0.0094
周囲 (km)	7.4	0.21
最大深度 (m)	4.3	3.2
平均深度 (m)	1.3	—

る中津川の2河川が流入し小川原湖に注ぐ淡水湖であり、湖沼としては小さく、平均水深も浅い。

また、姉沼と対照するため調査した根井沼は小川原湖の東岸に位置し、小川原湖の水位低下によってできた湿原に土手を築いて湧出する水を堰止めてできた人工の沼であり、流入河川はない。

姉沼, 根井沼の湖沼概要を表2に示す。

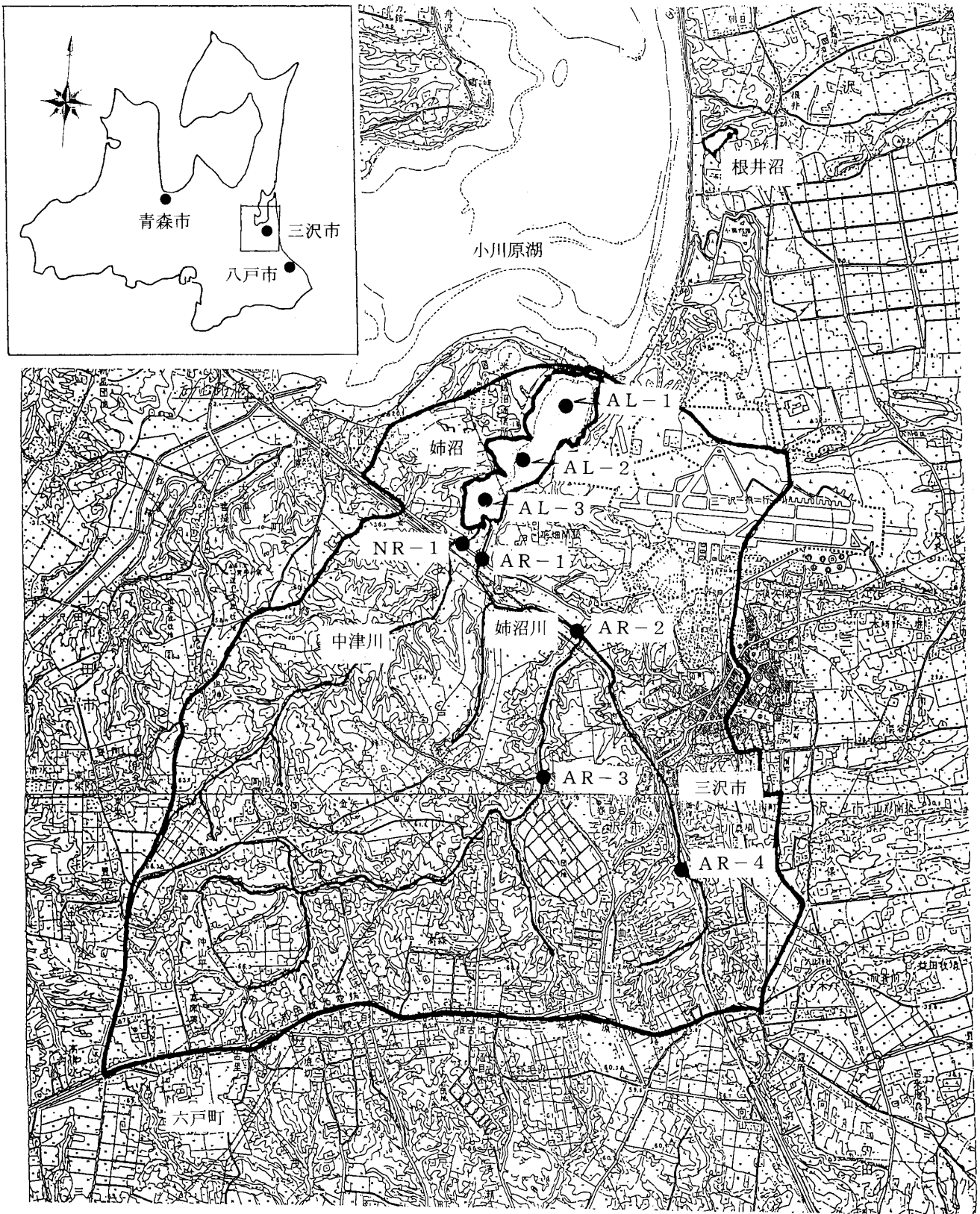


図1 調査地点

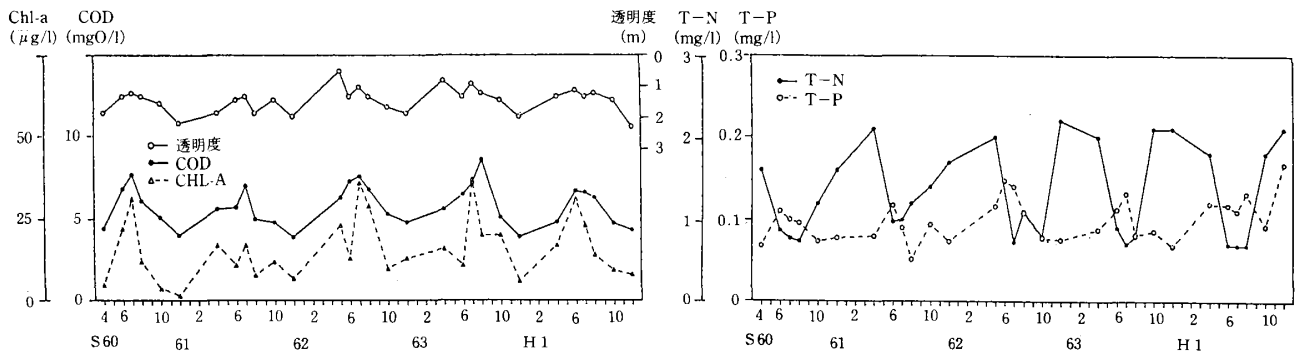


図2 姉沼中央 (AL-2) の水質経月変化

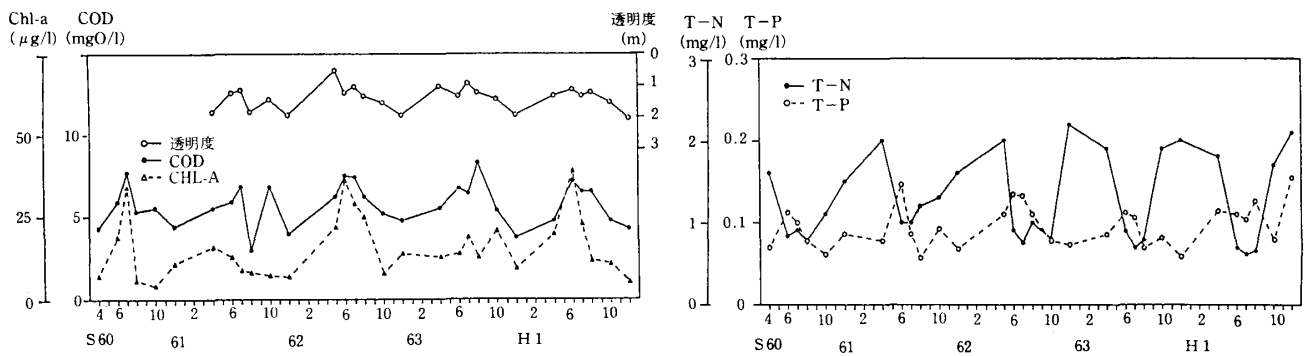


図3 姉沼出口 (AL-1) の水質経月変化

4. 結果と考察

4.1 姉沼の水質

昭和60年～平成元年度までの5年間の中央と出口の湖沼水質を図2, 3に示した。

中央において、COD値は恒常的に環境基準3mgO/lを超えており、夏季には冬季の4.0mgO/lから8.0mgO/lと高くなり、同時に、Chl-aも冬季の10µg/lから40µg/lと急激に増加している。しかし、冬季には急速に低くなるという周期的な挙動を示している。さらに、透明度はCOD, Chl-aほどの季節変化に合わせた値の変化は見られないが、夏季には0.5m程度低くなっている。

夏季にChl-aが増加するのは藻類の生物活動が活発化するためで、その結果としてCODが増加し、透明度が低下すると考えられる。

また、T-N, T-Pの挙動をみると、T-Nが夏季に冬季の2.0mg/lから0.7mg/lまで著しく減少していることがわかる。これはT-Nのうち無機体窒素が藻類の増殖に利用されているためと考えられる。

植物プランクトンは増殖するため、体組織に近い比で窒素、リンを体内に取り込むことが知られており、このN/P比は10～25の範囲⁴⁾にあるといわれている。

姉沼は、T-N/T-Pは夏季以外では30～60であるが、

夏季には10～20でありChl-aの増加と一致している。

COD, Chl-a, 透明度, T-N, T-Pを経年的に見ると季節的変動はあるが、ほぼ横ばい状態である。

出口においてもCOD, Chl-a等前述した項目の経月変化では類似の傾向がみられた。

4.2 流入河川の汚濁負荷量

平成2年10月31日と11月22日の姉沼川と中津川の2回の調査結果(表3, 4)から各地点の平均汚濁負荷を算出したものを図4に示した。

河口での姉沼川, 中津川を比較するとCODでは姉沼川(AR-1)は、中津川(NR-1)の約3倍、T-N, T-Pは約4倍であり、姉沼川からの負荷が大きいことがわかった。

さらに、姉沼川(AR-1, AR-2)では2回の調査ともMBASの負荷量が大きかった。これとは対照的に中津川(NR-1)や三沢市郊外のAR-3及び、三沢市街部に入る前のAR-4では負荷量がほとんどないことから三沢市街部からの生活雑排水による影響が大きいと考えられる。

また、姉沼川河口部(AR-1)で上流部(AR-2)のほうがCOD, T-N, T-Pが小さい値となっているのは、繁茂する水草等の吸収作用及び、河川浄化作用によ

表3 汚濁負荷量調査結果（その1）

調査地点	姉沼1	姉沼2	姉沼3	根井沼	姉沼川1	姉沼川2	姉沼川3	姉沼川4	中津川1	
調査年月日	H2.10.25	H2.10.25	H2.10.25	H2.10.25	H2.10.31	H2.10.31	H2.10.31	H2.10.31	H2.10.31	
採取時刻	9:55	10:05	10:10	10:40	12:05	11:40	11:23	10:50	12:29	
天候	晴れ	晴れ	晴れ	晴れ	晴れ	晴れ	晴れ	晴れ	晴れ	
気温(°C)	13	13	13	16	19.0	19.5	19.0	18.5	17.0	
水温(°C)	14	14	14	15	12.2	12.5	12.5	11.2	12.5	
水色相	淡緑色	淡緑色	淡緑色	無色	灰色	褐色	褐色	淡褐色	淡褐色	
調査項目	採取水深(m)	0	0	0	0	0	0	0	0	
	全水深(m)	3.6	4.2	2.5	2.2	—	—	—	—	
	透明度(m)	2.1	2.0	1.2	2.2	—	—	—	—	
	透視度(cm)	—	—	—	—	9.5	8.0	7.0	30	10.5
	流量(m ³ /s)	—	—	—	—	1.8	1.8	1.6	0.13	0.61
分析項目	pH	7.8	8.0	8.6	7.9	6.9	7.1	7.2	7.2	7.0
	DO(mg/l)	11	10	9.5	10	9.3	9.5	9.6	9.8	9.5
	BOD(mg/l)	—	—	—	—	1.7	2.0	<0.5	0.7	<0.5
	COD(mg/l)	4.2	4.9	7.0	4.3	8.7	10	11	4.8	9.0
	全窒素(mg/l)	2.0	2.1	3.0	2.7	5.5	5.6	5.8	4.8	4.7
	全リン(mg/l)	0.027	0.033	0.060	0.008	0.11	0.12	0.12	0.040	0.10
	MBAS(mg/l)	<0.03	<0.03	<0.03	<0.03	0.16	0.16	<0.03	<0.03	<0.03
クロロフィルa(μg/l)	7.2	14	54	3.7	—	—	—	—	—	

姉沼1：姉沼出口 姉沼2：姉沼中央 姉沼3：姉沼入口 姉沼川1：姉沼橋 姉沼川2：第一境橋
 姉沼川3：金矢橋 姉沼川4：古間木川上流の沢 中津川1：中津橋

表4 汚濁負荷量調査結果（その2）

調査地点	姉沼1	姉沼2	姉沼3	根井沼	姉沼川1	姉沼川2	姉沼川3	姉沼川4	中津川1	
調査年月日	H2.12.4	H2.12.4	H2.12.4	H2.12.4	H2.11.22	H2.11.22	H2.11.22	H2.11.22	H2.11.22	
採取時刻	10:35	10:40	10:45	11:35	11:05	10:50	10:30	10:15	11:15	
天候	曇り	曇り	曇り	曇り	晴れ	晴れ	晴れ	曇り	晴れ	
気温(°C)	4.5	4.5	4.5	4.3	8.0	7.0	6.0	6.5	9.0	
水温(°C)	7.5	7.6	7.5	6.2	7.0	7.0	7.0	7.0	7.5	
水色相	淡灰色	淡灰色	淡灰色	無色	淡灰色	淡灰色	淡灰色	無色	無色	
調査項目	採取水深(m)	0	0	0	0	0	0	0	0	
	全水深(m)	3.8	4.2	2.8	2.7	—	—	—	—	
	透明度(m)	1.0	0.9	0.8	全透	—	—	—	—	
	透視度(cm)	—	—	—	—	>30	>30	>30	>30	27
	流量(m ³ /s)	—	—	—	—	1.58	1.47	0.81	0.07	0.57
分析項目	pH	7.6	7.6	7.7	7.6	7.0	7.2	7.3	7.2	7.1
	DO(mg/l)	10	10	10	11	10	10	10	10	11
	BOD(mg/l)	—	—	—	—	1.7	2.0	<0.5	0.7	<0.5
	COD(mg/l)	3.6	3.6	3.3	4.4	3.8	4.3	3.7	2.8	4.5
	全窒素(mg/l)	1.5	1.5	1.6	1.6	4.1	4.2	4.0	3.4	3.2
	全リン(mg/l)	0.057	0.057	0.063	0.013	0.091	0.10	0.087	0.018	0.044
	MBAS(mg/l)	<0.03	<0.03	<0.03	<0.03	0.09	0.18	<0.03	<0.03	<0.03
クロロフィルa(μg/l)	4.6	5.0	4.2	11	—	—	—	—	—	

姉沼1：姉沼出口 姉沼2：姉沼中央 姉沼3：姉沼入口 姉沼川1：姉沼橋 姉沼川2：第一境橋
 姉沼川3：金矢橋 姉沼川4：古間木川上流の沢 中津川1：中津橋

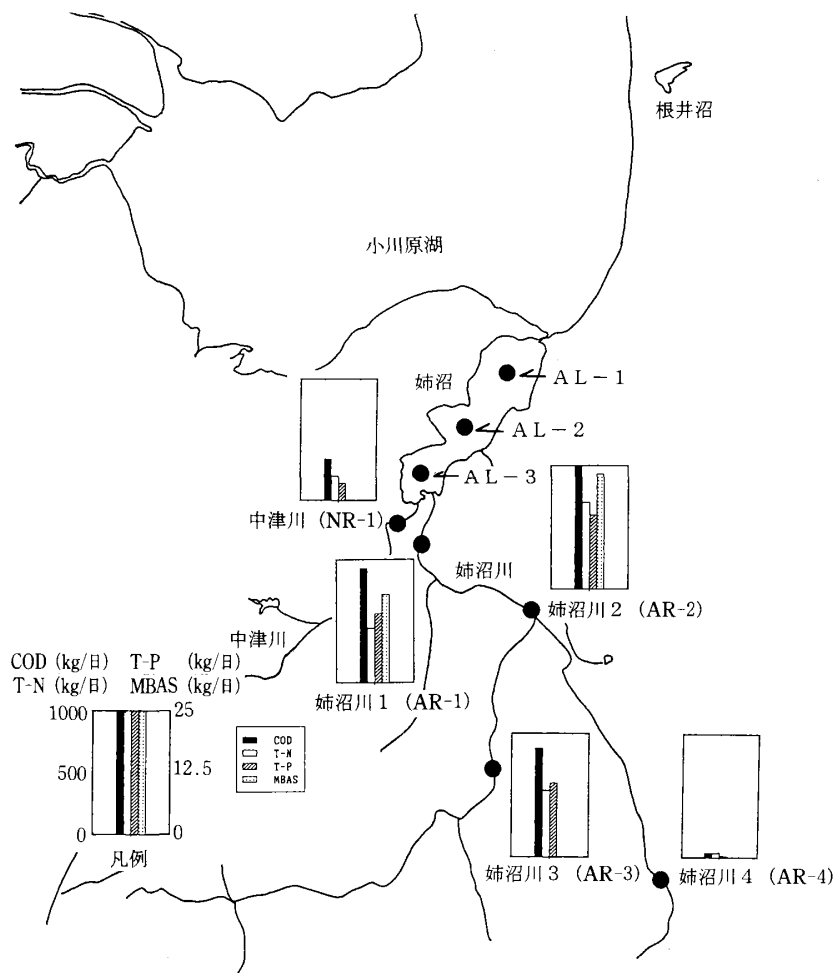


図4 姉沼川，中津川各地点の汚濁負荷量

るものと考えられる。

4.3 姉沼と根井沼の水質

姉沼 (AL-1 ~ AL-2) と根井沼の各項目の中で、T-Nでは10月25日，12月4日も大きな差異はみられなかったが，T-Pでは姉沼が根井沼の3~7倍と高い値を示した。

特に，10月25日のAL-3ではT-Pのほか，COD，Chl-aも他の地点よりも高い値を示した (表3)。

これは，AL-3が姉沼川河口及び中津川河口に近い地点であり，両河川の汚濁負荷の影響⁵⁾⁶⁾を直接受けやすいと考えられる。

なお，生活雑排水の指標とされるMBASは，両湖沼とも各地点で検出されなかった。

しかし，根井沼のT-N/T-Pが120~340であるのに対し，姉沼では24~74であり，前述した植物プランクトンの増殖の目安であるN/P比が10~25に近い値となっている。このことは秋から冬季にかけて姉沼への生活系等のリンの流入負荷増大により，富栄養化しやすい水質環境にあると考えられる。

5. ま と め

姉沼への負荷量は姉沼川からのものが多く，姉沼川の河口部では，MBASの汚濁負荷がみられることから，生活雑排水の影響が大きいことが考えられる。

また，姉沼は湖容積が小さいことに加え，直接生活排水の流入を受けていることが湖沼汚濁の原因になっているものと考えられる。

CODやChl-aを経年的にみると増加傾向はみられないが，恒常的に環境基準を超えていることから，特に関係市町の下水道整備の促進，啓発活動の継続，姉沼への負荷軽減等に努める必要がある。

今後の課題として，産業系や土地系を加味した負荷量の算定による詳細な調査があげられる。

文 献

- 1) 環境庁：日本の湖沼環境，106-107，1989。
- 2) 奈良忠明，他：富栄養化に関する調査 (その1) - 小川原湖・姉沼について -，青森県公害センター報告，1，128-134，1979。

- 3) 今武純, 他: 富栄養化に関する調査(その3) - 主成分分析法と富栄養化状態指標の比較検討 - 青森県公害センター所報, **5**, 35-45, 1981.
- 4) 手代森光仁, 他: 湖沼の富栄養化状態指標の比較検討, 青森県公害センター所報, **8**, 61-65, 1987.
- 5) 工藤精一, 他: 水田からのCOD, 窒素及び磷の汚濁負荷, 青森県公害センター所報, **8**, 55-60, 1987.
- 6) 奈良忠明, 他: 生活雑排水の汚濁負荷と汚濁指標細菌, 青森県公害センター所報, **6**, 39-49, 1983.
- 7) 田中正明: プランクトンからみた本邦湖沼の富栄養化の現状, 水, **25**, 61-65, 1983.

Abstract

Survey of Water Pollution in the Lake Anenuma

Kazuhiro TAKAYANAGI, Mutsumi TARAKITA, Kumiko OYAMADA
Toshio HAYAKARI and Seiichi KUDOH

Water quality of the Lake Anenuma on the border of the Lake Ogawara is always more than the water quality environmental standard.

In this study, we determined and estimated the pollution loading amount of two inlet rivers based on the survey in the fiscal year 1990. We made clear from these results that it's water pollution was effected with the domestic non-feed drainage from a city area.

Key words: Lake Anenuma, eutrophication, pollution loading amount

Π ノ ー ト

青森県における恙虫病の発生状況について

木村 淳子 三上 稔之 佐藤 允武

Incident of Tsutsugamushi disease in Aomori Prefecture from 1989 to 1993

恙虫病の予防及び県民に対する啓蒙を図ることを目的に1989年～1993年の過去5年間の本病の発生状況を調査した。その結果、届け出患者数は58名で、50歳以上が70%であった。職業別では農林業従事者が53%と最も多かった。発生時期は3月から11月であり、概ね5月と10月をピークとした2峰性を示した。また地域別では、1989年～1991年は三八、上北、下北地域、1992年～1993年は津軽地域に多い傾向がみられた。

Key words: tsutsugamushi disease, *Rickettsia tsutsugamushi*

1. はじめに

恙虫病は、伝染病予防法に基づき届け出を必要とする13疾患の1つである。青森県内においては、毎年10件前後の届け出があり、最近、死亡例も散見される。

地方衛生研究所全国協議会では1989年より恙虫病の調査事業を全国の患者把握と防疫対策の資料を得ることを目的として実施している。

そこで我々は、本県における調査結果をまとめ、恙虫病の発生状況を明らかにすることにより、本病の予防及び県民に対する啓蒙を図ることとした。

2. 方法

2.1 調査期間

1989年4月～1993年6月

2.2 調査方法

伝染病予防法に基づき届け出された場合は届け出病院宛、当センターへの血清検査依頼の場合は成績の如何を問わず、依頼病院へ表1に示す調査表を送付し、回収した。本報告では届け出患者についての調査結果をまとめた。

3. 結果及び考察

3.1 届け出患者数および調査表の回収数

結果は表2に示す。すなわち1989年より5年間で58名の届け出があった。また、調査表の回収数は43であった。

3.2 届け出患者の年齢、性別、職業

結果は表3に示す。届け出患者の年齢は60歳代が最も多く次いで50歳代となっている。

男女比では男が女の約3倍となっている。又職業別で

表1

つつが虫病様患者調査票 地研記入欄

届出地研名 地研コード 届出地研番号

主治医名 1. 通知 2. 変更 の場合 採血 回診

患者氏名 性別 1. 男 2. 女 年齢 歳

住所 届出日 19 年 月 日 (初回) 19 年 月 日 (再回)

深血日 19 年 月 日 (初回) 19 年 月 日 (再回)

調査事項 感染確定日 19 年 月 日 届

感染地 1. 山形 2. 岩手 3. 秋田 4. 山梨 5. 長野 6. 新潟 7. 富山 8. 石川 9. 福井 10. 岐阜 11. 愛知 12. 三重 13. 滋賀 14. 京都 15. 大阪 16. 和歌山 17. 奈良 18. 徳島 19. 香川 20. 高松 21. 愛媛 22. 高知 23. 福岡 24. 佐賀 25. 長門 26. 山口 27. 広島 28. 岡山 29. 鳥取 30. 島根 31. 福島 32. 茨城 33. 栃木 34. 群馬 35. 埼玉 36. 千葉 37. 東京 38. 神奈川 39. 新潟 40. 山形 41. 秋田 42. 岩手 43. 山梨 44. 長野 45. 岐阜 46. 愛知 47. 三重 48. 滋賀 49. 京都 50. 大阪 51. 和歌山 52. 奈良 53. 徳島 54. 香川 55. 高松 56. 愛媛 57. 高知 58. 福岡 59. 佐賀 60. 長門 61. 山口 62. 広島 63. 岡山 64. 鳥取 65. 島根 66. 福島 67. 茨城 68. 栃木 69. 群馬 70. 埼玉 71. 千葉 72. 東京 73. 神奈川

臨床所見 発熱 1. 有 2. 無 期間 日 月 日 - 日 月 日 最高体温 度

発疹 1. 有 2. 無 部位 1. 全身 2. 顔 3. 背 4. 腹 5. 右手 6. 左手 7. 右足 8. 左足 9. その他

リンパ節腫脹 1. 有 2. 無 部位 1. 右頸下 2. 右腋 3. 右鼠径 4. 左頸下 5. 左腋 6. 左鼠径

その他 1. 全身倦怠 2. 頭痛 3. 髄膜炎 4. 嘔吐 5. その他

臨床検査所見 白血球数 AST(GOT)上昇 1. 有 2. 無 CRP上昇 1. 有 2. 無 ALT(GPT)上昇 1. 有 2. 無 DIC 1. 有 2. 無 LDH上昇 1. 有 2. 無 尿検査 蛋白 1. 有 2. 無 円柱 1. 有 2. 無 その他 I. ()

処置 抗生物質投与 1. TC 2. その他 ()

連絡事項 ()

記入法: 医療機関は本枠内も記入して下さい。調査番号、または届出に○印して下さい。

血清検査成績 実施機関名 ()

検査法	1. IF	2. IP	3. CF	4. Weil-Felix
抗原	Kato Karp Gilliam ()	Kato Karp Gilliam ()	OXK OX2 OX19	
抗体価	初回 IgG			
	IgM			
	回 IgG			
	IgM			

判定 1. 血清学的につつが虫病と診断されました。 2. 抗体 (IgM, IgG) 未上昇と思われるので () 日後に再採血して下さい。 3. 過去の感染による残存抗体と思われます。 4. つつが虫病ではないと思われず。

結果 検査法 判定 初回 33 34 35 36

連絡事項 ()

本調査票は地研(原本)および予研(写し)に保管します(地方衛生研究所全国協議会)

表2 届出患者数及び回収数

	1989	1990	1991	1992	1993	計
届出患者数	14	10	9	12	13	58
回収数	14	9	5	5	10	43

表3 届出患者の年齢・性別・職業

年	年 齢							性別	職 業						
	10	20	30	40	50	60	70		農 建 会 学 無 不	以 男 女 林 設 社	業 業 員 生 職 明				
1989	0	0	4	2	3	4	1	10	4	9	0	1	0	1	3
1990	3	1	0	0	2	0	3	9	0	4	0	1	3	1	0
1991	0	0	1	1	1	1	1	1	4	2	0	1	0	2	0
1992	0	0	0	0	1	4	0	3	2	3	1	1	0	0	0
1993	0	0	1	0	3	4	2	8	2	5	1	1	0	1	2
計	3	1	5	3	10	13	7	31	12	23	2	5	3	5	5

は農林業従事者が最も多くなっており、これらの職業従事者に対して早期発見、早期治療の啓蒙啓発を行うことが重要である。

3.3 月別発生数

図1に示すように3月から11月までの期間に発生しており、特に5月及び10月をピークに2峰性としてみられた。この秋季における発生は、秋に孵化した有毒フトゲツツガムシの幼虫の吸着によるもの、春季では秋に吸着できなかった越冬後の幼虫の吸着によるものと推測されている²⁾。

3.4 感染地域

図2に示すように、津軽半島を除く地域で発生が見られる。1989～1991年の発生数26件のうち三八、上北、下北地域で17件と全体の65%を占めている。一方、1992年～1993年は、17件の発生数のうち津軽地域が10件と58%を占めている。しかし、その理由は現段階では明らかではない。

3.5 感染場所及び作業内容

表4に示したように感染場所は山地及び農地が全体の88%を占めている。又、作業内容は山作業及び農作業が約70%、ついで行楽中に感染したものが多く、農業従事者のみでなく山菜採り、魚釣り等行楽の際にも注意が必要である。

3.6 臨床所見

表5に示すように、刺口、発熱、発疹はほぼ100%みられるが、リンパ節腫張は約半数にしかみられなかった。又、刺口の部位として最も多かったのは下肢で、大腿部にみられたもの3例あった。他は腹部9例、胸部に6例みられた。ツツガムシの幼虫に吸着されやすいところは陰部、内股、脇の下、下腹部等皮膚の柔らかい隠れたところに多く、刺口は注意深く探してみる必要がある。発熱は有毒ツツガムシに吸着されてから10日前後にカゼ様

(人)

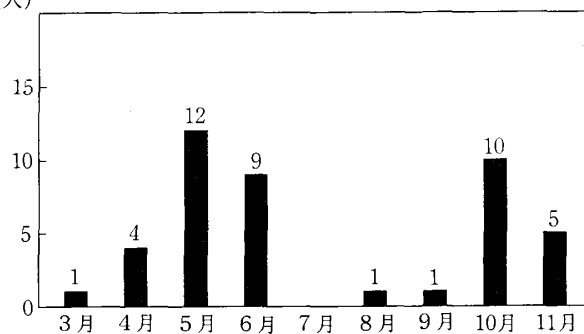


図1 月別発生数

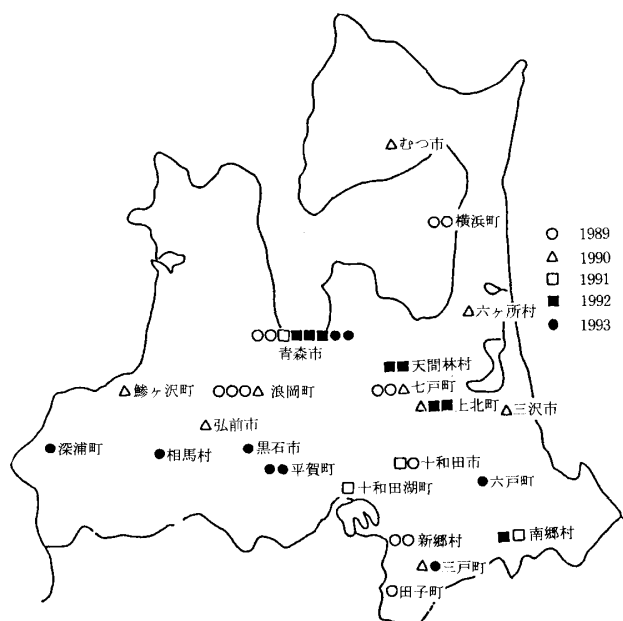


図2 発生地域

表4 推定感染場所及び作業内容

感 染 場 所	発 生 数	作 業 内 容	発 生 数
山 地	30	山 作 業	14
農 地	8	農 作 業	14
野 原	1	行 楽	8
河 川 敷	2	山 菜 採 り	6
そ の 他	1	そ の 他	2
不 明	1		

表5 症状の発現率

症 状	発 現 率
刺 し 口	100%
発 熱	100%
発 疹	93%
リンパ節腫張	54%

症状とともに始まり、本調査では最高体温40℃前後の高熱の患者が60%みられた。発疹は発熱後3～4日ぐらいから現れ、主として胸や腹部、顔面にみられ、今回は背又は腹部に出現したものが多くみられた。恙虫病は刺口、高熱、発疹を主症状として発病するが、本病の発生季節に発熱と発疹を伴う場合に恙虫病を疑い、刺口等の発見に努め早期治療する必要がある。

3・7 臨床検査所見

結果は表6に示す。白血球数は罹患により減少するとされているが、今回の調査では5,000個/ μ l以下の低値を示したものが30%であった。必発所見とされるCRP上昇は、85%にみられた。GOT上昇-85%、GPT上昇-80%、LDH上昇は80%にみられた。尿蛋白も80%で検出された。

3・8 血清検査成績

本調査では、血清検査を行わず、臨床診断で届け出されたものが14件あった。血清検査を行った総数31件について、検査方法別に見ると、IF（間接蛍光抗体）反応6件、CF（補体結合）反応が8件、IP（免疫ペルオキシダーゼ）反応が18件であった。検査結果は、ペア血清により有意上昇を示したものが17件、1回の血清検査で感染の指標となるIgM抗体が検出された症例が5件あった。

表6 臨床検査所見

	<5000	$\geq 5000 - < 8000$	>8000
白血球数	33%	37%	30%

CRP上昇	85%
DIC	25%
GOT上昇	85%
GPT上昇	80%
LDH上昇	80%
尿蛋白陽性	80%

文 献

- 1) 地方衛生研究所全国協議会：つつが虫病様患者調査表記入手引き，1989.
- 2) 須藤恒久：新ツツガ虫病物語．28-29，無明舎出版，秋田市，1991.

青森県における貝毒調査結果（平成4年）

三上 浩二 秋田谷礼治¹ 古川 章子 高橋 政教

Finding on Shellfish Poison in Aomori Prefecture (1992)

陸奥湾、津軽海峡西部及び東部3海域のホタテガイについて、下痢性及び麻痺性貝毒の毒力調査を行った。下痢性貝毒は、陸奥湾では、前年より毒力の検出時期が早かったものの、規制期間が短縮し、毒力最高値についても低下した。麻痺性貝毒は規制値を超えなかった。流通貝については、22検体中3検体が規制値を超え、依然として、出荷自主規制期間中に中腸腺付きの生ホタテガイが出回っていた。

Key words: scallop, DSP, PSP

1. はじめに

本県では、ホタテガイの毒化状況の把握、毒化機構の解明等を目的として、昭和53年度から、国の委託事業として県水産部を中心に「赤潮防止対策事業」及び「貝毒安全対策事業」を実施している。当所でも、本事業の一環として、昭和53年度から継続して下痢性及び麻痺性貝毒の毒力調査を行ってきた。今回は、平成4年の調査結果について報告する。

2. 調査方法

2.1 試料

陸奥湾、津軽海峡西部及び津軽海峡東部3海域の定点から採取したホタテガイ及び流通貝を試料とした。

2.2 調査期間

平成4年1月～平成4年10月

2.3 検査方法

下痢性及び麻痺性貝毒検査は、厚生省の定めた公定法^{1),2)}に準じて行った。

3. 結果および考察

3.1 陸奥湾定点毒化状況

(1) 下痢性貝毒（青森定点）

青森定点の毒化状況を、表1に示す。垂下養殖貝（以下、養殖貝とする）は、昨年より³⁾約1月早く2月24日（2/24とする。以下同じ）に初めて毒力（0.3MU/g）が検出された。5月に入ると急激に上昇し、5/11には、規制値

（可食部あたり0.05MU/g）を超え、5/18には、陸奥湾で今年最高の1.0MU/gとなった。昨年の1.5MU/gに比べると2/3に減少した。6月以降低下し、7/20の0.6MU/gを最後に規制値以下となり、8月以降はNDとなった。

地まき貝は、昨年より51日早く、2/24に規制値未満の毒力が検出されたが、その後毒力が低く、6/9及び7/20に規制値未満の毒力0.4MU/gを示した以外はNDとなった。

(2) 下痢性貝毒（野辺地定点）

野辺地定点の毒化状況を、表1に示す。

養殖貝は、昨年より10日早く3/9に初めて毒化が検出

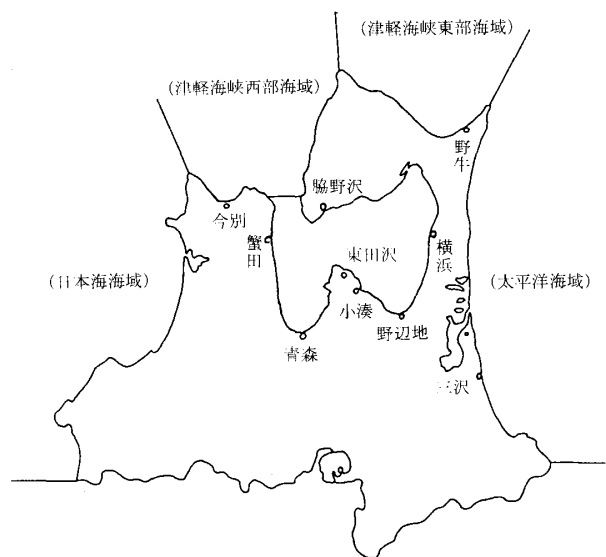


図1 調査定点

1：現八戸公害事務所

表1 陸奥湾定点における貝毒調査結果

(MU/g)

青 森 定 点					野 辺 地 定 点				
調査年月日	垂下養殖貝		地まき貝		調査年月日	垂下養殖貝		地まき貝	
	下痢性貝毒	麻痺性貝毒	下痢性貝毒	麻痺性貝毒		下痢性貝毒	麻痺性貝毒	下痢性貝毒	麻痺性貝毒
平4. 1. 20	ND (ND)	(ND)	ND (ND)	(ND)	平4. 1. 21	ND (ND)	(ND)	ND (ND)	(ND)
2. 24	0.3 (0.02)	(ND)	0.3 (0.02)	(ND)	2. 24	ND (ND)	(ND)	ND (ND)	(ND)
3. 5	ND (ND)		ND (ND)		3. 5	ND (ND)		ND (ND)	
3. 9	ND (ND)	(ND)	ND (ND)	(ND)	3. 9	0.3 (0.03)	(ND)	ND (ND)	(ND)
3. 17	0.3 (0.03)		ND (ND)		3. 17	0.3 (0.04)		0.3 (0.03)	
3. 24	0.3 (0.03)	(ND)	ND (ND)	(ND)	3. 23	0.3 (0.03)	(ND)	0.3 (0.03)	(ND)
3. 30	ND (ND)		ND (ND)		3. 30	0.4 (0.05)		ND (ND)	
4. 6	ND (ND)	(ND)	ND (ND)	(ND)	4. 6	0.4 (0.04)	(ND)	0.3 (0.03)	(ND)
4. 13	ND (ND)		ND (ND)		4. 13	0.75 (0.08)		ND (ND)	
4. 20	ND (ND)	(ND)	ND (ND)	(ND)	4. 20	0.75 (0.07)	(ND)	0.3 (0.03)	(ND)
4. 27			ND (ND)		4. 27			ND (ND)	
5. 6			ND (ND)		5. 6			ND (ND)	
5. 11	0.4 (0.05)	(ND)	ND (ND)	(ND)	5. 12	0.3 (0.03)	(ND)	0.3 (0.03)	(ND)
5. 18	1.0 (0.11)		ND (ND)		5. 18	ND (ND)		ND (ND)	
5. 25	0.6 (0.07)		ND (ND)		5. 25	0.5 (0.05)		ND (ND)	
6. 1			ND (ND)		6. 1			ND (ND)	
6. 9	0.75 (0.08)		0.4 (0.03)		6. 9	0.6 (0.06)		0.6 (0.05)	
6. 22	0.6 (0.07)	(ND)	ND (ND)	(ND)	6. 22	0.6 (0.06)	(ND)	ND (ND)	(ND)
7. 6	0.6 (0.06)		ND (ND)		7. 6	ND (ND)		ND (ND)	
7. 20	0.6 (0.05)	(ND)	0.4 (0.03)	(ND)	7. 21	0.4 (0.03)	(ND)	0.4 (0.03)	(ND)
7. 27			ND (ND)		7. 28			ND (ND)	
8. 3			ND (ND)		8. 4			ND (ND)	
8. 17	ND (ND)	(ND)	ND (ND)	(ND)	8. 17	ND (ND)	(ND)	ND (ND)	(ND)
8. 24	ND (ND)				8. 24	ND (ND)			
8. 31	ND (ND)	(ND)	ND (ND)	(ND)	8. 31	ND (ND)	(ND)	ND (ND)	(ND)
9. 21	ND (ND)	(ND)	ND (ND)	(ND)	9. 21	ND (ND)	(ND)	ND (ND)	(ND)
10. 21	ND (ND)	(ND)	ND (ND)	(ND)	10. 21	ND (ND)	(ND)	ND (ND)	(ND)

ND：下痢性貝毒は0.3MU/g未満（中腸腺）

麻痺性貝毒は0.875MU/g未満

（ ）：可食部

され、3/30に規制値を超え、4/13及び4/20には今年最高値の0.75MU/gが検出された。5月以降6月までND～0.6MU/gの範囲で増減し、7/6以降は規制値未満の毒力となり、8/17以降はNDとなった。

地まき貝は、昨年より15日早く3/17に初めて毒化が検出されたが、その後6/9に規制値を超えた(0.6MU/g)以外は、断続的に0.3MU/gの毒力を検出した程度と低い毒力であった。6/22以降は規制値未満の毒力となり、7/28以降はNDとなった。

(3) 麻痺性貝毒

陸奥湾2定点の養殖貝及び地まき貝については、表1のとおりすべてND(可食部あたり)であった。

3.2 外海定点毒化状況

外海定点毒化状況を表2に示す。

(1) 下痢性貝毒(津軽海峡西部)

4月から7月まで4回調査を行い、いずれもNDであった。

(2) 下痢性貝毒(津軽海峡東部)

6月から8月まで4回調査を行い、いずれもNDであった。

(3) 麻痺性貝毒(津軽海峡西部)

4回調査を行い、いずれもNDであった。

(4) 麻痺性貝毒(津軽海峡東部)

3回調査を行い、6/1に1.76MU/gの毒力が検出された。可食部ではすべてNDであった。

3.3 出荷自主規制解除のための貝毒調査結果

陸奥湾海域のホタテガイ出荷自主規制解除のための下痢性貝毒調査結果を表3に示した。

陸奥湾における出荷自主規制解除は、養殖貝と地まき貝に区分し、「生産海域の監視地点におけるホタテガイの貝毒の量が、国の規制値以下となり、かつ、1週間後、

2週間後の検査において同様な場合」と定められている。

平成4年は、養殖貝、地まき貝ともに、規制解除体制に入って3週目で解除できた。

3.4 ホタテガイの出荷自主規制期間

各海域でのホタテガイの出荷自主規制期間を表4に示した。

陸奥湾海域養殖貝の規制期間は、4月1日から9月4日までの157日間であった。これは、昨年に比べ規制開始が9日遅れ、解除が17日早く、期間全体で25日短縮された。

陸奥湾海域地まき貝の規制期間は、6月11日から8月11日までの62日間であり、昨年に比べ規制開始が1月遅れ、解除が26日早く、期間全体で57日短縮された。

津軽海峡西部及び東部海域ホタテガイについては、昨年規制された西部海域も含め、ホタテガイについては規制されなかった。

3.5 流通貝の貝毒調査結果(県生活衛生課)

夏季一斉取締りに伴う流通貝の調査結果を表5に示す。

22検体について調査を行ったが、3検体が下痢性貝毒の規制値を超えており、その値は、可食部あたり0.05以上0.8未満MU/gであった。また、3検体中2検体は生貝であった。

出荷自主規制期間中に、例年このような中腸腺付きの生貝が市場に出回っており、関係機関の強力な監視指導が望まれる。

4. ま と め

4.1 下痢性貝毒について、平成4年は、陸奥湾海域において、昨年より約1月早く2月下旬に毒化が始まり、前年より約2月早く7月下旬に毒化が終了した。

表2 外海における貝毒調査結果

		(MU/g)			
海 域	調 査 定 点	調 査 年 月 日	下 痢 性 貝 毒	麻 痺 性 貝 毒	
		平4. 4. 15	ND (ND)	ND (ND)	
津 軽 海 峡 西 部	今 別 (垂下養殖貝)	5. 12	ND (ND)	ND (ND)	
		6. 10	ND (ND)	ND (ND)	
		7. 7	ND (ND)	ND (ND)	
		平4. 6. 1	ND (ND)	1.76 (ND)	
津 軽 海 峡 東 部	野 牛 (地まき貝)	7. 20	ND (ND)	ND (ND)	
		7. 28	ND (ND)		
		8. 25	ND (ND)	ND (ND)	

ND：下痢性貝毒は0.3MU/g未満(中腸腺)
麻痺性貝毒は0.875MU/g未満

表3 出荷自主規制解除のための下痢性貝毒調査結果

(1) 地まき貝 (MU/g)									
採取地点	採取月日								
	7. 20	7. 21	7. 22	7. 27	7. 28	7. 30	8. 3	8. 4	8. 7
青 森	0.4(0.03)			ND(ND)			ND(ND)		
野 辺 地	0.4(0.03)			ND(ND)			ND(ND)		
横 浜	※0.3~0.5(0.02~0.04)			※<0.3(<0.03)			ND(ND)		
東 田 沢	※0.3~0.5(0.03~0.04)			※<0.3(<0.02)			ND(ND)		
(2) 垂下養殖貝 (MU/g)									
採取地点	採取月日								
	8. 17	8. 18	8. 19	8. 24	8. 25	8. 26	8. 31	9. 1	9. 2
青 森	ND(ND)			ND(ND)			ND(ND)		
野 辺 地	ND(ND)			ND(ND)			ND(ND)		
蟹 田	※<0.3(<0.03)			※<0.3(<0.03)			ND(ND)		
小 湊	※<0.3(<0.03)			※<0.3(<0.03)			ND(ND)		
脇 野 沢	※<0.3(<0.02)			※<0.3(<0.02)			ND(ND)		

ND : 0.3MU/g未満 (中腸腺)
 () : 可食部
 ※ : 財団法人日本冷凍食品協会において分析されたもの

表4 ホタテガイ出荷自主規制期間

海 域	貝の種別	貝毒の種類	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	(月)
陸奥湾	垂下養殖 地まき	下痢性	4 / 1 ————— 9 / 4 (157日間)												
			6 / 11 ——— 8 / 11 (62日間)												

このうち、養殖貝では前年より9日遅く規制値を超え、解除も17日早く、規制期間は25日短縮された。

地まき貝では、前年より1月遅く規制値を超え、解除も26日早く、規制期間が57日短縮された。

津軽海峡西部海域は、昨年規制が実施されたが、今年、規制されなかった。

4・2 下痢性貝毒の毒力の最高値は、陸奥湾海域の養殖貝において、青森定点1.0MU/g、野辺地定点0.75MU/gであり、青森定点では前年の1.5MU/gに比べて2/3に低下した。

地まき貝は、青森定点0.4MU/g、野辺地定点0.6MU/gであった。

津軽海峡西部及び東部海域の毒力はすべて不検出であっ

た。

平成4年は、昨年に比べ毒力が低く、低毒力が前年から続いている。

4・3 麻痺性貝毒は、陸奥湾海域においてすべて不検出であった。

他の海域においても可食部で規制値を超える毒力は検出されなかった。

4・4 流通貝の調査では、22検体中3検体が下痢性貝毒の規制値を超え、依然として、出荷自主規制期間中に中腸腺付きの生ホタテガイが出回っていることから、関係機関の監視指導等の強化及び徹底が必要であると考えられる。

表5 流通貝の貝毒調査結果

(MU/g)

No.	貝の種類	ボイル・生貝の別	採捕場所	採捕月日	貝毒の種類	毒力		収去先
						可食部あたり		
1	ホタテガイ	ボイル	—	—	下痢性	0.4	以上～0.8 未満	青森市
2	ホタテガイ	ボイル	—	—	下痢性	0.05	未満	青森市
3	ホタテガイ	ボイル	県外	—	下痢性	0.05	未満	青森市
3	ホタテガイ	生	津軽海峡東部	7.15	下痢性	0.05	未満	青森市
4	ホタテガイ	生	津軽海峡東部	7.15	下痢性	0.05	未満	青森市
5	ホタテガイ	生	陸奥湾	—	下痢性	0.05	未満	青森市
6	ホタテガイ	生	山田湾	—	下痢性	0.05	未満	青森市
7	ホタテガイ	生	県外	—	下痢性	0.05	未満	青森市
8	ホタテガイ	生	宮城県北部	7.16	下痢性	0.05	未満	弘前市
9	ホタテガイ	生	—	—	下痢性	0.05	未満	藤崎町
10	ホタテガイ	生	—	—	下痢性	0.05	未満	五所川原市
11	ホタテガイ	生	—	—	下痢性	0.05	未満	五所川原市
12	ホタテガイ	生	—	—	下痢性	0.05以上～0.10未満		十和田市
13	ホタテガイ	生	陸奥湾	—	下痢性	0.05以上～0.10未満		三沢市
14	ホタテガイ	生	山田湾	—	下痢性	0.05	未満	三沢市
15	ホタテガイ	生	—	—	下痢性	0.05	未満	野辺地町
16	ホタテガイ	生	陸奥湾野辺地	—	下痢性	0.05	未満	野辺地町
17	ムールガイ	—	ニュージーランド	7.16	麻痺性	0.875未満		青森市
18	ムールガイ	—	ニュージーランド	7.16	麻痺性	0.875未満		青森市
19	ホタテガイ	生	宮城県北部	7.16	麻痺性	0.875未満		弘前市
20	ホタテガイ	生	—	—	麻痺性	0.875未満		八戸市
21	ホタテガイ	生	岩手県南部	7.15	麻痺性	0.875未満		八戸市
22	ホタテガイ	生	北海道津軽海峡	7.13	麻痺性	0.875未満		むつ市

文 献

- 1) 厚生省環境衛生局乳肉衛生課：下痢性貝毒検査法。
昭和56年5月。
- 2) 厚生省環境衛生局乳肉衛生課：麻痺性貝毒検査法。
昭和55年5月。
- 3) 三上浩二他：青森県における貝毒調査結果（平成3

年），青森県環境保健センター研究報告，3，91-95，1992。

- 4) 青森県：下痢性貝毒により毒化したホタテガイの取扱方針，昭和56年4月25日（平成4年6月1日一部改正）。

大気関係届出データベースについて

今 武純 早狩 進

Construction of Database System Concerning the Notification of Air Pollution Factory Using Personal Computer

大気汚染防止法および青森県公害防止条例に基づく大気関係の届出のデータベースを構築するためのシステム作成に着手した。元になる届出データは、環境庁からMTで提供される平成2年度の施設マスターファイルを使用し、平成4年度分までの不足分については新規に入力した。その結果、市町村等からの問い合わせに対して迅速に答えることが可能になった。

Key words: database, personal computer, notification, air pollution

1. はじめに

当所では公害関係の調査研究の他に届出・立入等の行政事務も行っている。大気汚染防止法及び青森県公害防止条例にもとづく届出件数は青森県全体で年間約700、届出累計施設数は約6000あり、その事務処理には多くの時間を要しており、迅速に処理する必要がある。また、届出に関するデータは一度入力するといろいろな形に加工でき、市町村からの問い合わせ等いろいろな利用が考えられる。日常的に使われる届出等の処理システムはその公所独特の工夫のされた事務処理のやりかたがあるので専門のソフトハウス等に依頼したとしても我々の満足できるシステムが作成できるかどうか疑問である。出来れば業務に精通した人が作成するのがよいと思われる。

今回、新しいパソコンが1台増えて、大気関係の届出データベース作成専用に使えようになったので、パソコンを用いた大気関係届出データベース（以下届出システムという）を作成し、一部処務に利用できるところまでできたので報告する。

2. 使用機器等

届出システムの作成には、以下のシステムを用いて行った。

- ハードウェア
- CPU本体 PC-9801シリーズ及びその互換機
- ハードディスク 10Mbyte以上（取り扱うデータ量による）
- EMSメモリ 2 Mbyte以上
- プリンタ PC-PR201G

○ ソフトウェア

OS MS-DOS Ver.3.3以降

（日本電気㈱）

データベースソフト

日本語データベースシステム 桐Ver.4

（㈱管理工学研究所）

なおファイル名は、MS-DOSのファイル名命名方法に従い、“ファイル名+拡張子”の形で表記されており、今回使用した日本語データベース桐Ver.4では表形式データファイルは“TBL”，帳票形式でデータを印刷又は画面に出力する場合の帳票ファイルは“FRM”，一連のデータ処理手続きを記述した一括処理ファイルは“CMD”という拡張子でファイルの性格を区分している。

3. 大気関係届出データベースシステムの概要

コンピュータを用いたデータ処理システムは、いくら立派なシステムを作成しても使われなければ絵に描いた餅である。従って届出システムを作成するにあたっては絵に描いた餅にならないよう以下のことに留意して作成した。

- 1) 現在の業務を置き換えられること
- 2) 使いやすいこと
- 3) メンテナンスが容易であること

3.1 メニュー構成

届出システムのメニューは、メインメニューとサブメニューの2階層からなっている。メインメニューは、“A/ばい煙関係”，“B/粉じん関係”，“C/立入関係”，“D/その他集計”と業務別に構成され（図1，図2），それぞれのメニューは、さらに3～5のサブメニューをもっている

(図1, 図3)。

3.2 ファイル構成

ファイルの構成は、共通に用いられるもの、特定の業務だけに用いられるもの、その他となっている(表1)。

共通に用いられるものには、市町村名等が入った市町村ファイル、法および条例に定める施設の一覧ファイルなどである。

業務別には、「ばい煙・粉じん関係」では届出受理に係したものと施設リスト一覧に係したファイル、「立入関係」はばい煙・粉じん立入調査の結果を記録するファ

イル、「その他集計関係」では、市町村別等集計に係したものと同環境白書等のように特定の業務に係したファイルに分けられる。さらに、これらの業務をメニューから実行させるためのプログラムが一括処理に載せたファイルである。

3.3 ばい煙・粉じん関係データ処理

(1) 届出処理

ばい煙関係と粉じん関係の届出処理のおよその流れは、1) ばい煙・粉じん関係の届出は事業者が最寄りの保健所に届出書を提出し、2) 保健所から審査機関である県

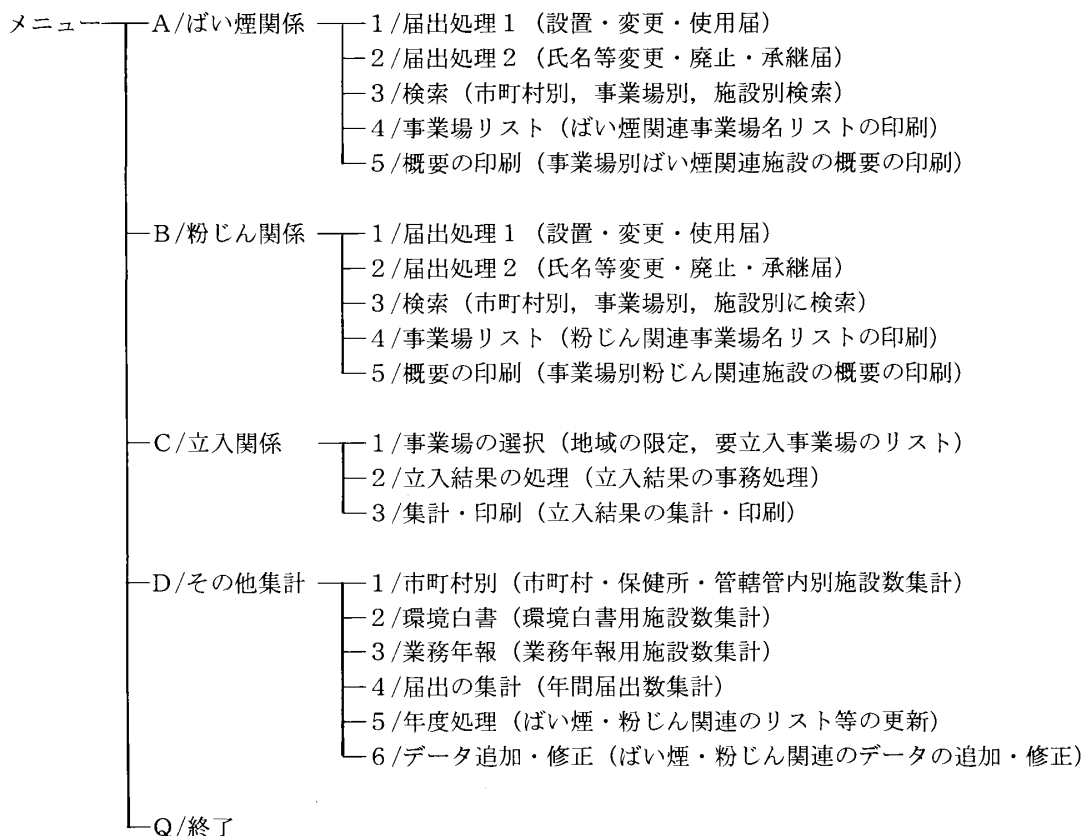


図1 大気関係届出データベースシステムメニュー

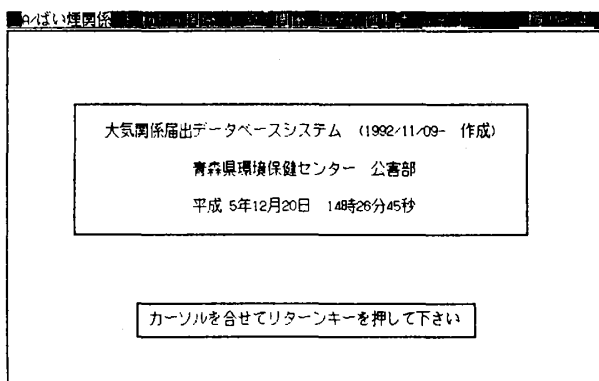


図2 届出システムメインメニュー

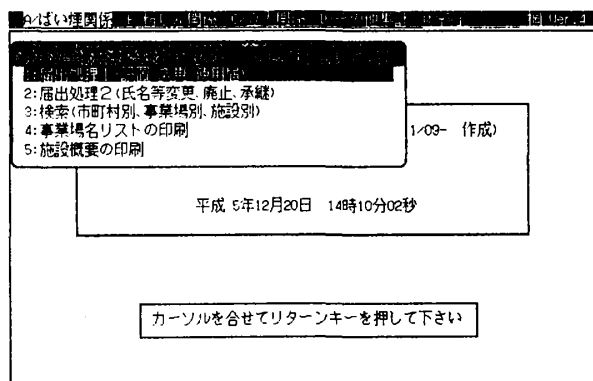


図3 届出システムサブメニュー

表1 使用ファイル一覧表

ファイル区分	業務区分	ファイル名
共通ファイル		施設(ば).TBL,施設(粉).TBL,施設名 .TBL 処理施設.TBL,市町村.TBL
業務別ファイル	ばい煙関係	受理ば1.TBL,受理ば2.TBL,名簿(ば).TBL リスト(ば).TBL,名簿(ば).FRM,施設詳細.FRM 届出概要.FRM,受理ば1.FRM,届出審査.FRM 施設一覧.FRM,概要(ば).FRM,受理粉1.TBL
	粉じん関係	受理粉2.TBL,名簿(粉).TBL リスト(粉).TBL,概要(粉).FRM,名簿(粉).FRM
	立入関係	立入(ば).TBL,立入(粉).TBL,立入(ば).FRM
	集計関係	集計(ば).TBL,集計(粉).TBL,集計ば市.TBL 白書(電).TBL,白書(法).TBL,白書(電).FRM 白書(法).FRM,市町村別.FRM
その他のファイル	一括処理	届出処理.CMD,ばい煙.CMD,粉じん.CMD 立入調査.CMD,集計.CMD,年度処理.CMD

環境保健センター（八戸公害事務所）に進達され、3）県環境保健センター（八戸公害事務所）から審査結果が事業者及び保健所に受理通知されるという流れである（図4）。この中で指名変更等の届出処理2に該当する部分は事業者及び保健所への受理通知は必要ない。

届出処理の結果は、届出受理関係のファイル（受理ば1.TBL・受理粉1.TBL（設置届等）、受理ば2.TBL・受理粉2.TBL（氏名変更等））に記録されるが、既存の名簿ファイル等に更新の必要が生じてもすぐには更新されず、後述する「その他集計」の年度処理で名簿ファイル等の更新作業を行うことにしている。

(2) 事業場名リスト・施設概要の印刷

ばい煙・粉じん関連の届出データは、事業場の名簿ファ

イル（名簿（ば）.TBL,名簿（粉）.TBL）と事業場が所有している施設の詳細データ（リスト（ば）.TBL,リスト（粉）.TBL）に分けて管理されている。ばい煙関係の元になる届出データは、環境庁からMTで提供される平成2年度の施設マスターファイルをMS-DOSファイルに変換し（図5）、平成4年度分までの不足については新規に入力した。ばい煙関係の事業場名簿・施設概要の出力例を図6、図7に示す。

3.4 立入検査結果処理

当所では、ばい煙・粉じん関連工場・事業場の立入検査を実施しているが、届出システムは立入検査事務遂行の上で対象事業場の選択や立入検査結果の集計・印刷に利用できる。

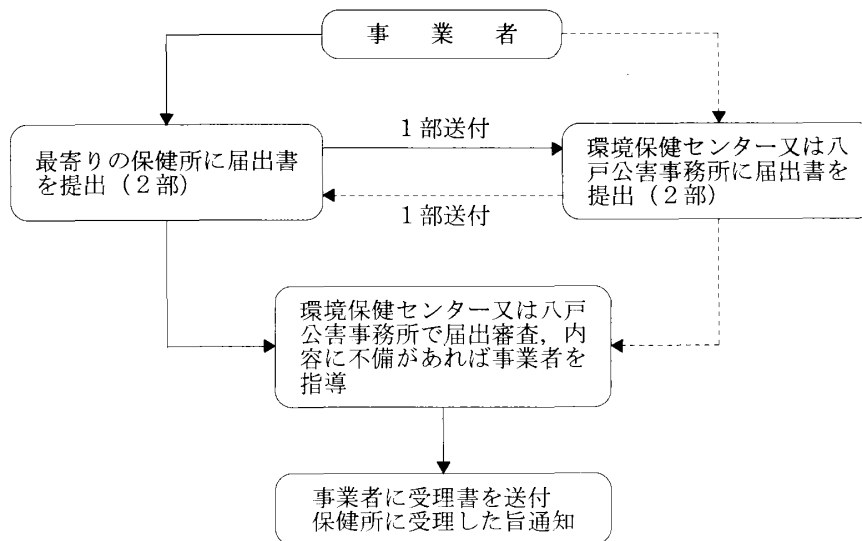


図4 大気関係届出処理フロー

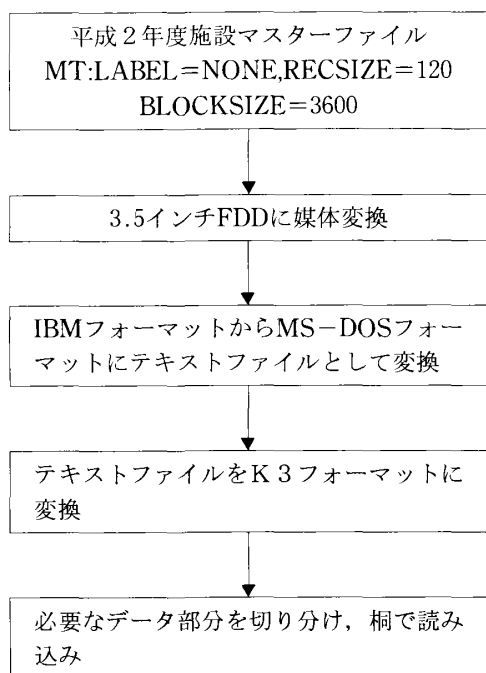


図5 MTからのMS-DOSファイルへの変換手順

3.5 その他集計処理

データの集積が進めばデータの利用方法についても考えなければならないが、当面は定例的な1年間の集計データの県庁への報告や保健所への提供、市町村から問い合わせ等に答えられるようにする。

(1) 市町村別・施設別事業場数の集計・印刷

ばい煙・粉じん関係の工場・事業場数施設数を施設の種別・市町村別・保健所別・本所支所・管轄管内別に集計し、それを印刷する。

(2) 定められた書式での出力

毎年刊行する環境白書・業務年報で使われる書式で集計・印刷する。

(3) 年度処理

ばい煙・粉じん関係の届出や立入調査を年度末で終了すると名簿ファイル、施設の概要を納めたリストファイルの更新が必要となる。ここでは届出受理簿ファイル(受理(ば).TBL等)や立入検査結果のファイル(立入(ば).TBL)を元に名簿ファイル(名簿(ば).TBL等)、施設

概要ファイル(リスト(ば).TBL等)の更新作業を行うとともに年度末で更新されたファイルの別途保存および次年度の準備を行う。従ってこの年度処理は1年に1回だけ行う。

(4) データの追加・訂正

初期データは環境庁から提供される平成2年度施設マスターファイルをデータ変換して用いたが、平成2年度以降のデータの追加入力や既存のデータの訂正等については別途入力する手段が必要である。特に粉じん関係はすべて追加入力である。

4. ま と め

大気関係届出データベースの構築に1年前に着手し、一部処務に利用できるまで来たが未完成の部分が多く残している。また、本格的に運用していないので使にくい部分や間違いなどの多くの不備な部分が出てくると思う。今後は、未完の部分の完成、使にくい点の改善をして行くとともにデータの活用を計れるようにしたい。また、今年度は市町村の都市計画の見直しによる大気関係の工場・事業場等に関する問い合わせが多かったが、大気関係の届出データベース化したことにより迅速に対応できた。なお、環境庁から届出等のデータの提供を受ける際、現在はMTでデータが提供されているが、取り扱いの簡便性を考えると今後はフロッピーディスクでデータを提供されるよう要望していきたい。

最後に、平成2年度施設マスターファイルをMTからフロッピーディスクへの媒体変換して戴いた青森県情報システム課の小塚裕主事、IBMフォーマットからMS-DOSフォーマットに変換するフリーソフト「TXIBM」を作成された緒方達志氏に感謝いたします。

文 献

- 1) 日本語データベースシステム桐ver.4 リファレンス1(会話処理・表編集メニュー), (株)管理工学研究所, 1992.
- 2) 日本語データベースシステム桐ver.4 リファレンス2(関数・一括処理), (株)管理工学研究所, 1992.

ばい煙発生(関係)施設設置工場・事業場リスト一覧表

青森県環境保健センター
平成6年1月6日 印刷

市コード	市町村名	工場コード	工場・事業場名称	工場・事業場所在地	行管マシユコード	設備	業務	電話	ガス	
201	青森市	9209	(株) イケダ沼田焼竹輪工場	〒030 青森市港町2丁目27-1					○	
		0354	(株) オカムラ食品工業	〒030 青森市造道字磯野969	61402604	○				
		0403	(株) サンデー青森東店	〒039-35 青森市矢田前字弥生田	61401694	○	○			
		0064	(株) トーモク青森工場	〒038 青森市羽白字沢田513	61402524	○				
		0428	(株) はとや製菓	〒030 青森市幸畑字谷脇69-1	61401662	○	○			
		0274	(株) ホクエツ青森工場	〒038 青森市油川字浪返6-1	61402516	○	○			
		0173	(株) みなみ百貨店	〒030 青森市古川2丁目9-3	61401589	○				
		9009	(株) リバービル	〒030 青森市堤町2丁目10-15						○
		0410	(株) 館山製あん工場	〒030 青森市栄町1丁目5-12	61401681	○	○			
		9158	(株) 丸本田中商店本社社屋	〒030-01 青森市ハッ役字矢作1-32						○
		0444	(株) 共栄環境	〒030-01 青森市田茂野字大沢78-1	61401604	○				
		9123	(株) 協進	〒039-35 青森市野内字浦島281						○
		0292	(株) 工藤パン油川工場	〒038 青森市油川字柳川81	61402516	○	○			
		9065	(株) 三国家	〒039-34 青森市浅虫字山下370-2						○
		9021	(株) 柴基商店	〒030 青森市青柳1丁目13-6						○
		0096	(株) 小山商店製紙部	〒030 青森市花園1丁目5-13	61401681	○				
		0343	(株) 松原水産	〒038 青森市新城字山田208-9	61401572	○				
		9084	(株) 松田製材所	〒038 青森市油川字岡田6-4						○
		0474	(株) 西田酒造店	〒038 青森市油川字大浜46						○
		0435	(株) 青森テレビ	〒030 青森市松森1丁目4-8	61401672					○
		9205	(株) 青森ともや	〒038 青森市西田沢沖津247-10						○
		0104	(株) 青森協働社	〒030 青森市新町2丁目2-1	61401589	○				
		0378	(株) 青森県建設会館	〒030 青森市安方2丁目9-13	61401589	○	○			
		9179	(株) 青森住研	〒030 青森市幸畑ひばりヶ丘団地コミュニティセンター						○
		0411	(株) 青森製作所	〒030-01 青森市野木字山口245-8	61401509	○				
		0442	(株) 青森廃棄物処理センター	〒030 青森市駒込字榎ノ沢161-1	61401624	○				
		0068	(株) 青森放送	〒030 青森市松森1丁目8-1	61401671	○	○			
		9029	(株) 千葉室内	〒030 青森市新町2丁目8-15						○
		9200	(株) 千葉室内	〒030 青森市新町2丁目8-12						○
		0271	(株) 大阪組	〒039-35 青森市築木館字岩瀬105	61401687	○				
		0297	(株) 大阪組生コン工場	〒039-35 青森市野内字菊川5-1	61402605	○				
		0448	(株) 大豊	〒030-01 青森市卸町11-4	61406130	○	○			
		9166	(株) 第一勧業銀行青森支店	〒030 青森市新町2丁目1-15						○
		0285	(株) 中三青森店	〒030 青森市新町1丁目7-1	61401589	○				
		0200	(株) 読売新聞青森工場	〒030 青森市浜館字見取37-2	61401673	○				
		0264	(株) 内真部製材所	〒038 青森市清水字浜元195	61402584	○				
		0353	(株) 南部屋旅館	〒039-35 青森市浅虫字蛸谷31	61402669	○				
		0097	(株) 武田百貨店	〒030 青森市新町1丁目13-2	61401589	○				
		0425	(株) 旅館秋田屋	〒039-34 青森市浅虫字蛸谷293-12	61402669	○	○			
		9003	(株) 鈴木商店青森店	〒030 青森市本町1丁目4-4						○
		9008	(協) 青森総合センター	〒030-01 青森市横内字泉川3-75						○
		0436	(財) 双仁会青森厚生病院	〒038 青森市新城字山田488-1	61401594					○
		0471	(社) すずかけの里	〒038 青森市三内字里見63-1						○
		0386	(社) 喜伴会重度身体障害者更生援護施設津美園	〒038 青森市西田沢字浜田279	61402535	○	○			
		0208	(有) 高橋製材所	〒038 青森市油川字柳川1-3	61402516	○				
		0359	(有) 松野製麺	〒030 青森市大野字若宮135-1	61401569	○	○			
		0281	(有) 青森グランドホテル	〒030 青森市新町1丁目1-267	61401599	○	○			
		0441	(有) 青森連合清掃センター医療廃棄物焼却場	〒030-01 青森市野沢字川部633-35	61400612	○				
		0387	(有) 千代田水産加工	〒038 青森市沖館字小浜131-4	61402508	○	○			
		9028	(有) 大出クリーニング工場	〒030 青森市古川3丁目15-20						○

図6 ばい煙関係事業場名簿出力例

ばい煙発生（関係）施設の概要

青森県環境保健センター
平成6年1月6日 印刷

市町村名	工場 コード	工場・事業場名称	施設名	設置年月日	施設 規模	燃原料の種類	燃原料使用量 (定格)	最大排気量 (Nm ³ /h)	煙突高 (m)	SO _x 総量 (Nm ³ /h)	K'値
青森市	0005	青森県立青森東高等学校	ボイラー1号	S49/11/02	19.3 m ²	A重油	118.3 l/h	1544	18.8	1.51	3.80
			ボイラー2号	S49/11/02	19.3	A重油	118.3	1544	18.8	1.51	3.80
	0006	青森県教育センター	ボイラー1号	S55/11/10	26.3	A重油	218.7	2847	18.0	0.98	2.36
	0007	青森県社会福祉協議会	ボイラー2号	S43/06/21	21.2	A重油	100.0	1124	36.0	0.32	0.24
	0008	青森県保健衛生センター	ボイラー1号	S43/04/01	23.2	A重油	100.0	1163	20.0	0.31	0.75
	0009	朝日生命保険相互会社青森支社	ボイラー1号	S41/09/13	13.4	A重油	80.0	1157	25.0	0.36	0.53
	0010	青森県立中央病院	ボイラー1号	S54/08/15	208.5	A重油	1340.0	17485	43.3	5.82	2.00
			ボイラー2号	S54/08/15	208.5	A重油	1340.0	17485	43.3	5.82	2.00
			ボイラー3号	S54/08/15	44.0	A重油	267.0	3906	43.3	1.16	0.60
			廃棄物焼却炉1号	S55/01/30	360.0 kg/h	A重油		2998	49.3	0.20	
			廃棄物焼却炉2号	S55/01/30	360.0 kg/h	A重油		2998	49.3	0.20	
	0013	青森地域広域事務組合鶴ヶ坂清掃工場	ボイラー1号	S41/10/02	49.8	A重油	120.0	2296	18.0	0.52	1.43
			廃棄物焼却炉1号	S48/07/01	400.0	し査+A重油	40.0	2126	15.0	0.34	1.06
	0014	青森銀行本店	ボイラー1号	S45/06/25	49.9	A重油	260.0	3383	51.4	2.98	0.38
			ボイラー2号	S45/06/25	49.9	A重油	260.0	3383	51.4	2.98	0.38
	0015	鷹揚郷腎研究所青森病院	ボイラー1号	S52/08/10	24.6	A重油	110.0	1411	18.5	0.70	1.30
			ボイラー2号	H01/04/20	24.6	A重油	127.0	1462	19.0	0.31	0.76
	0016	青森市立金沢小学校	ボイラー1号	S43/94/01	25.2	A重油	110.0	1342	19.0	0.62	1.60
			ボイラー2号	S43/04/01	11.4	A重油	50.0	609	19.0	0.28	0.75
	0017	青森市立新城小学校	ボイラー1号	S49/11/21	21.2	A重油	134.9	1685	19.0	0.67	2.00
	0018	青森市立神館小学校	ボイラー1号	S45/08/21	11.4	B重油	45.7	599	14.8	0.66	1.16
			ボイラー2号	S55/10/01	14.3	A重油	108.6	1205	14.8	0.28	1.16
	0019	青森市立三内小学校	ボイラー1号	S57/12/10	24.0	A重油	255.3	3370	18.0	1.39	3.38
			ボイラー2号	S44/12/01	7.8	A重油	50.0	611	17.0	0.22	0.78
	0020	青森市立筒井小学校	ボイラー2号	H03/07/29	15.3	A重油	116.6	1406	13.5	0.69	3.76
	0021	青森市立西中学校	ボイラー1号	S51/12/21	30.8	A重油	272.0	3296	18.0	1.08	2.60
	0022	青森市立南中学校	ボイラー1号	S45/06/12	24.9	B重油	14.0	1840	13.9	1.75	8.10
0023	青森市立横内小学校	ボイラー1号	S46/01/20	34.3	B重油	114.0	1710	23.0	1.45	2.16	
0027	日本電信電話（株）青森中央健康管理所	ボイラー1号	S55/10/20	15.1	A重油	85.0	941	22.0	0.35	0.69	
		ボイラー2号	S55/10/20	15.1	A重油	85.0	941	22.0	0.35	0.69	

図7 ばい煙関係施設概要出力例

Ⅲ 他誌投稿抄録

他誌投稿抄録

青森県八戸市で発生した鶏卵が汚染源と見られる *Salmonella enteritidis* 食中毒 大友良光 豊川安延：病原微生物検出情報月報，13（7），4-5，1992

1992年4月21日，八戸市内の仕出し店（A社）の昼食弁当（オムレツ）によると推定される *Salmonella enteritidis*（S.E）集団食中毒が発生した。発病者11名中6名，届け出患者3名中3名，調理従事者7名中1名の便からS.Eが分離され，A社の営業施設の排水路汚泥からも同一菌が分離された。分離S.Eのファージ型はすべて国内では希な1型であり，薬剤感受性試験ではすべての菌株がABPC，KM，GM，TC，CET，CP，NAに感受性，SM，x（サルファ剤）に耐性であった。S.Eの汚染源調査として，B商店で仕入れていた鶏卵について二回に分けてS.E分離試験を行い，第一回目の鶏卵100個の調査では非卵殻部位10検体（10個ブルーを1検体）中1検体から，第二回目の鶏卵130個の調査では卵殻を含む1個から，それぞれ93 MPN/100 ml， 6×10^2 /mlのS.Eが分離された。そのファージ型は，第一回目の検体から分離した6株中1株が患者由来のものと同様の1型，他の5株は7a型であった。

1991年青森県内で発生した2事例のE型ボツリヌス食中毒 大友良光 豊川安延：Jpn. J. Food Microbiol.，9（3），177-181，1992

1991年青森県内で2事例のボツリヌス食中毒が発生した。両事例とも原因菌はボツリヌスE型菌であった。1事例はウグイしを原因食品とし，摂食者10名中1名が発症したが患者は抗毒素血清治療なしで治癒した。ウグイの漁獲地は以前の調査でボツリヌスE型菌が確認されている小川原湖であった。他の1事例はアユしを原因食品とし，摂食者29名中1名が発症したが患者はボツリヌス抗毒素血清治療により治癒した。アユしによる事例について起因菌の汚染源調査を行ったところ，アユの漁獲された河川の砂から高率にボツリヌスE型菌が分離された。

青森県野辺地町における *Yersinia pseudotuberculosis* 血清型5a菌による集団発生症 大友良光 豊川安延 秋山 有 増田和茂¹ 葛西幹雄² 金子誠二³ 丸山 務⁴：メディアサークル，37（12），1-5，1992

（要旨省略：感染症学雑誌，67（1），36-44，1993）

1：青森県環境保健部

2：公立野辺地病院小児科

3：東京都立衛生研究所乳肉衛生研究科

4：国立公衆衛生院衛生獣医学部

青森県弘前地区における *Yersinia enterocolitica* 血清型08菌の分離例について 齋藤雅明¹ 山口美佳子¹ 豊川安延 大友良光：メディアサークル，37（12），6-9，1992

1984年1月から1991年12月にかけて青森県弘前地区で11例の *Yersinia enterocolitica* 血清型08菌による感染症が確認された。分離された11菌株のうち9菌株は糞便から，2菌株は盲腸内容物から分離された。分離用の材料は開業医から細菌学的な検査依頼を受けたものである。分離菌株はすべてWautersの生物型が1型で，42メガダルトンの病原性プラスミドを保有し，自己凝集性とカルシウム依存性が陽性であった。患者は45才の1例を除いてすべて15才以下であった。患者は7人は山間部，3人は都市部，1人は平野部に居住していた。感染源はすべての事例で不明であった。

1：弘前市医師会立成人病検診センター

青森県野辺地町における *Yersinia pseudotuberculosis* 5a型の集団感染症 豊川安延 大友良光 秋山 有 増田和茂¹ 葛西幹雄² 金子誠二³ 丸山 務⁴：感染症学雑誌，67（1），36-44，1993

1991年6月，青森県野辺地町の小学校4校と中学校1校で *Yersinia pseudotuberculosis* 5a型による集団感染症が発生した。患者数は732名（児童生徒725名，教職員7名），入院者は134名を数えた。感染源は学校給食施設，原因食品は不明であった。平均潜伏期間は6.5日，暴露日は5月30日と推定された。男女の発病比率は1.1：1で，患者中478名の症状は発熱（86.4%），発疹（73.8%），腹痛（66.7%），嘔気・嘔吐（63.4%）等の他に褥舌，咽頭発赤，手指の膜様落屑，関節痛等が見られた。多くの患者に抗体価の有意上昇があった。起因菌は患者便33中27（81.8%），給食施設の排水1及び調理従事者便17中2（11.7%）から分離された。本菌は生物化学的性状が同一で，カルシウム依存性と自己凝集性が陽性，40~50 Mdalの病原プラスミドを保有し，その制限酵素切断パターンも同一であった。本菌はセフェム系，ペニシリン系，アミノグリコシド系等に感受性，マクロライド系，スルファ剤系に耐性を示した。

1：青森県環境保健部

2：公立野辺地病院小児科

3：東京都立衛生研究所乳肉衛生研究科

青森県におけるライムボレリア検索—マダニ類からの分離と抗原性— 佐藤允武：病原微生物検出情報月報，13（7），5-18，1992

青森県内におけるライム病の実態を把握するため，県内5地域で採集したマダニ類240匹を対象にボレリア検索を行った。

検査の結果，分離率に地域差を認めたものの，すべての地域のダニからライムボレリア類似の株が分離された。

その分離率は *Ixodes ovatus* ヤマトマダニ188匹中48匹(26%)，*I. persulcatus* シュルツェマダニ20匹中3匹(15%)であった。*I. nipponensis* タネガタマダニ，*Haemaphysalis* spp. チマダニ属からは分離されなかった。

分離株の抗原性を調べるため，分離代表株4株と標準株B31株の計5株の免疫血清を作製し，免疫ペルオキシダーゼ法で交差試験を行った。結果，すべての分離株はB31とは大きく異なるばかりではなく，分離株間でも抗原の多様性が示唆された。また，同抗原，抗体を用いたW.B法によって，31～32 kDa 蛋白は株特異的，41 kDa 蛋白は群共通抗原であることが判明した。

IV 学会等発表抄録

学会等発表抄録

青森県野辺地町における *Yersinia pseudotuberculosis* 5 a 菌感染症の集団発生例 豊川安延 大友良光 秋山 有 増田和茂¹ 葛西幹雄² 金子誠二³ 丸山 務⁴ : 第66回日本感染症学会学術講演会, 東京都, 1992. 4. 16

(要旨省略: 感染症学雑誌, 66, 臨時増刊号, 152, 1992)

- 1: 青森県環境保健部
- 2: 公立野辺地病院小児科
- 3: 東京都立衛生研究所乳肉衛生研究科
- 4: 国立公衆衛生院衛生獣医学部

青森県野辺地町に集団発生をみた *Yersinia pseudotuberculosis* 5 a 型による感染症 豊川安延 大友良光 菊地秀子 佐藤允武 三上稔之 木村淳子 秋山 有 葛西幹雄¹ 金子誠二² 丸山 務³ : 第19回青森県臨床衛生検査学会, 青森市, 1992. 5. 10

(要旨省略: 第19回青森県臨床衛生検査学会発表要旨集および感染症学雑誌, 67 (1), 36-44, 1993)

- 1: 公立野辺地病院小児科
- 2: 東京都立衛生研究所乳肉衛生研究科
- 3: 国立公衆衛生院衛生獣医学部

1991年青森県における無菌性髄膜炎について 三上稔之 木村淳子 佐藤允武 : 第19回青森県臨床衛生検査学会, 青森市, 1992. 5. 10
第12回青森県感染症研究会, 弘前市, 1992. 8. 1

1990年11月から1991年2月にかけて三沢市周辺で集団発生した無菌性髄膜炎と1991年6, 8月のむつ市周辺で集団発生した無菌性髄膜炎の病原検索を行った。結果は, 三沢市の発症者からはエコー30型, むつ市6月の発症者からはエコー9型, 8月からはエコー30型とエコー9型が分離された。1990年末から1991年にかけて県内で発生した無菌性髄膜炎の主な病原はエコー9型, エコー30型ウイルスによると推定した。両ウイルスは全国的にも検出され, 全国的規模で流行したことが推測された。

HPLCによる尿中VMA及びHVA定量法の検討 下山純子 野呂キョウ 小鹿 晋¹ : 第19回青森県臨床衛生検査学会, 青森市, 1992. 5. 10

神経芽細胞腫は小児期における悪性固形腫瘍の中で最も頻度が高く, 発見が遅れると予後不良の場合が多い。

しかし, 本疾患に特異的な尿中パニールマンデル酸(VMA)及びホモバニリン酸(HVA)の測定によって早期発見, 早期治療が可能である。

今回, 電気化学検出器を装備した高速液体クロマトグラフィー(HPLC)の導入に伴い, 尿ろ紙からの溶出法として, ガラス注射筒を用いた独自の方法を考案し, HPLCによる定量法の基礎的検討を実施した。

その結果, 直線性, 再現性, 回収試験等にはほぼ満足できる成績が得られ, 本法によるカットオフ値をVMA 18, HVA 29 $\mu\text{g} / \text{mg.cre}$ と設定した。

- 1: 県環境保全課

青森県野辺地町における *pseudotuberculosis* 5 a による人の集団感染 大友良光 豊川安延 : 第9回 *Yersinia* の生態学研究会, 静岡市, 1992. 8. 1

(要旨省略: メディアサークル, 37 (12), 1-5, 1992)

青森県弘前地区における *Yersinia enterocolitica* 08 の分離状況 齋藤雅明¹ 豊川安延 大友良光 : 第9回 *Yersinia* の生態学研究会, 静岡市, 1992. 8. 1

(要旨省略: メディアサークル, 37 (12), 6-9, 1992)

- 1: 弘前市医師会立成人病検診センター

1991年青森県内で発生した2事例のボツリヌス食中毒について 大友良光 : 東北食中毒研究会, 仙台市, 1992. 8. 21

(要旨省略: Jpn. J. Food Microbiol., 9 (3), 177-181, 1992)

青森県におけるライムボレリア検索—マダニからの分離と抗原性— 佐藤允武 : 第46回日本細菌学会東北支部総会, 仙台, 1992. 9. 3

(要旨省略: 病原微生物検出情報月報, 13 (7), 5-18, 1992)

平成3年度青森県内で発生した感染症の細菌学的考察 大友良光 豊川安延 三上稔之 木村淳子 佐藤允武 : 平成4年度青森県環境保健部職員研究発表会, 青森市, 1993. 1. 29

交通機関の発達や食生活の多様化に伴って, 本県でも海外旅行者あるいは輸入食品によるコレラの発生あるいは鶏卵が汚染源と言われているサルモネラ・エンテリティ

デイスによる散発感染症事例がみられるようになった。一方では地域的な感染症とも言えるボツリヌス食中毒が後を断たず、これに加えて、これまで本県ではあまり注目されていなかったエルシニア感染症が大きくクローズアップされている。特に津軽地区におけるエルシニア・エンテロコリチカ血清型08型菌による感染症は我国では当該地区だけで確認されており疫学上その汚染ルートの究明は急務の課題である。今後、前述感染症予防のためにも一層の監視体制の強化並びに汚染源の追及等を行った上で的確な予防法の確立が必要である。

乳児嘔吐下痢症の ELISA 法および電子顕微鏡法によるウイルス検索 木村淳子 三上稔之 佐藤允武：平成4年度青森県環境保健部職員研究発表会，青森市，1993. 1. 29

1991年1月～5月及び1991年12月～1992年4月までの期間に発生した乳児嘔吐下痢症の患者便44検体を対象に、ELISA 法、電子顕微鏡法及びアガロースゲル電気泳動法によりヒトロタウイルス（HRV）の検索を行った。

その結果、検出率は ELISA 法55%、電子顕微鏡法45%、アガロースゲル電気泳動法18%であった。ELISA 法と電子顕微鏡法の検出率はほぼ同じ程度であったが ELISA 法は、測定法が簡単なおえ、判定まで1時間なので、HRV 抗原を検出する方法としては、三つの方法の中では最も適していると思われる。しかし、電子顕微鏡法は、HRV 以外のウイルスも検出可能であることから ELISA 法と電子顕微鏡法の併用が望まれる。

HPLC 法による神経芽細胞腫マス・スクリーニングについて—従来法との比較— 下山純子 野呂キョウ 金田量子 工藤ハツエ 佐藤允武：平成4年度青森県環境保健部職員研究発表会，青森市，1993. 1. 29

本県の神経芽細胞腫マス・スクリーニングは昭和59年12月から開始され、平成2年7月までは一次検査に VMA スポット法（定性法）、二次検査に HPLC 法（定量法）を実施してきたが、平成2年8月以降は一次検査から HPLC 法（定量法）を行っている。

現行法は従来法に比較して測定精度、特異性が高いので、一次検査の疑陽性数は減少したが、尿ろ紙の乾燥不十分、低クレアチニン等による不備検体が増加した。また、平成3年度の再採尿依頼に対する回収率は94.4%で、157名が再検査を受けていなかった。保護者が検査目的や採尿法について十分理解できるよう行政指導の周知徹底が望まれる。

現行法は測定に時間がかかるため結果報告が遅れがち

であり、今後の課題と思われる。

青森市におけるライム病の血清疫学と血清学的検査法について 佐藤允武：平成4年度希少感染症診断技術研修会，東京，1993. 2. 5

県内における *Borrelia burgdorferi* 感染の実態を把握するために青森市住民の633の血清を対象に抗体保有調査を行った。免疫ペルオキシダーゼ（IP）法で18血清が陽性（率2.8%）と判定されたが、抗体が特異的か否かの鑑別はアベジン・ピオチンフォスファターゼシステムのウエスタンブロット（WB）法では不能であった。

ホタテガイの脂肪酸組成について 村上淳子：第31回日本薬学会東北支部大会，秋田市，1992. 10. 18

村上淳子 高橋政教：平成4年度青森県環境保健部職員研究発表会，青森市，1993. 1. 29

ホタテガイの中腸腺及び生殖巣の、脂肪酸量と脂肪酸組成比を求めた。その結果、脂肪酸量は粗脂肪と同様の季節変化を示し、高い相関が認められた。

脂肪酸組成比では、C：16（パルミチン酸）がどの部位でも20%程度を占め、季節変化も少なかった。C：20-5（EPA）やC：22-6（DHA）は両方で40～60%を占めたが季節変化が認められた。

また、不飽和脂肪酸/飽和脂肪酸の比も高い値を示した。

中小都市河川の水質汚濁特性—新城川水系における窒素・リンの挙動と AGP 試験— 三上 一 早狩 進 奈良忠明¹ 阪崎俊璽 工藤孝宣² 小林繁樹³ 高井秀子 角田智子⁴ 田澤良基⁵：第18回北海道・東北ブロック公害研究連絡会議，仙台市，1992. 10. 19～20

青森市西部を貫流し陸奥湾に注ぎ込む中小都市河川である新城川水系における水質汚濁特性を把握するため、負荷量解析と AGP 試験を実施した。その結果、流量と負荷量との間には密接な関係があり、流量から負荷量の推定が可能であり、特に、窒素では著しかった。負荷量収支図から早稲田橋と戸建沢橋の間では負荷量の増加が著しく、し尿処理施設以外の発生源の存在が示唆された。また、AGP 試験の結果、窒素・リンによる有機物汚濁の潜在的な能力が大きく、新城川水系の水質汚濁改善には事業場からの BOD のほかに窒素・リンの削減を含めた対策が必要であると思われる。

1：鱒ヶ沢保健所

2：十和田保健所

- 3 : 三沢保健所
- 4 : 県立つくしが丘病院
- 5 : 弘前保健所

山岳地帯における酸性降下物の広域モニタリングの研究
(I) 早狩 進 松尾 章 福崎紀夫¹ 佐々木一敏²
清水源治³ 久米一成⁴ 鳥山成一⁵ 近藤隆之⁵ 藤平蔵芳
光⁵ 土器屋由紀子⁶ 丸田恵美子⁷ 村野健太郎⁸ 溝口次
夫⁹ : 第33回大気汚染学会, 大阪市, 1992. 12. 3

国立環境研究所との共同研究として, 標高1,000 m 以上の山岳地帯(八甲田山, 妙高山, 八方尾根, 美女平, 室堂, 富士山)において酸性降下物調査を平成3年度から始めた。その, 初年度のデータについて考察した。

6月から11月まで行った調査(八甲田山だけは通年調査)の結果, pH 平均値では美女平が最も低く, 次いで室堂, 八方尾根の順であった。最高は八甲田山夏期であった。但し, 八甲田山における11~3月の雪のpHは美女平の雨のpHよりも低かった。

nss-SO₄²⁻のイオン当量濃度では, 八甲田山の冬期が特に多く, 次いで美女平であった。pHの高い八甲田夏期はSO₄²⁻よりもCa²⁺の濃度が高かった。

nss-SO₄²⁻とNO₃⁻の月平均降水量では, 八甲田山冬期, 美女平, 室堂の順で多かった。

- 1 : 新潟県衛生公害研究所
- 2 : 長野県衛生公害研究所
- 3 : 山梨県衛生公害研究所
- 4 : 静岡県衛生環境センター
- 5 : 富山県公害センター
- 6 : 気象大学校
- 7 : 慶応大学
- 8 : 国立環境研究所
- 9 : 国立公衆衛生院

湖沼の富栄養化に関する調査研究—湖沼底泥中の栄養塩類と湖沼特性の関係— 三上 一 角田智子¹ 奈良忠明² : 平成4年度青森県環境保健部職員研究発表会, 青森市, 1993. 1. 29

湖沼底泥中の窒素・リン等の栄養塩類の堆積状況と湖沼流域特性との関係について調査した。その結果, 強熱減量と全窒素は良好な相関が認められた。リンを形態別にみると, 無機態リンが全リンの半分近くを占め, 溶出に関連するFe-Pが最も高く, Ca-Pが著しく低かった。更に, 底泥中の成分と湖沼の特性との関係をみるため主成分分析を行った結果, 底泥中の窒素・リンは流域特性の影響を反映しており, 湖沼の富栄養化を考えるうえで流域特性

は重要である。

- 1 : 県立つくしが丘病院
- 2 : 鱒ヶ沢保健所

スパイクタイヤによる道路粉じん等調査結果について(その4) 澤田 讓 今 武純 早狩 進 : 平成4年度環境保健部職員研究発表会, 青森市, 1993. 1. 29

青森市役所前と弘前警察署前の道路粉じんについて, 平成3年度に調査した結果とそれ以前の調査結果とを比較・検討した。

「スパイクタイヤ粉じんの発生の防止に関する法律」の施行により平成3年度は青森市と弘前市のスパイクタイヤ装着率は約60%程度に減少し, 青森市役所前と弘前警察署前の降下ばいじん量は2年度に比較して大幅な減少を示し, 過去5年間で最低値を示した。しかし降下ばいじん, 浮遊粉じん及び浮遊粒子状物質中のアスファルト分は, 昭和61年度の測定値と比べても大きな変化は見られなかった。

スパイクタイヤ装着率の減少により, 降下ばいじん等の道路粉じんは, 量的にはある程度の減少を見せたが, 質的にはあまり変化していないと思われる。

八戸市内の降下ばいじん—不溶性重金属について— 工藤隆治 : 第18回北海道・東北ブロック公害研究連絡会議, 仙台市, 1992. 10. 19~20

八戸市内におけるデポジットゲージ法による降下ばいじん中の不溶性重金属降水量について検討した。

その結果, 臨海工業地帯の一部において, 昭和63年度から, 鉛, 亜鉛, カドミウムの降水量が増加していた。

降水量の分布, 及び風向との関係から発生源は非鉄金属精錬工場と推定された。

八戸市内の降下ばいじん—溶解性成分について— 工藤隆治 藤田志保 工藤精一 野田正志 中道 敬 岡典子 : 平成4年度環境保健部職員研究発表会, 青森市, 1993. 1. 29

八戸市内における昭和63年度から平成2年度のデポジットゲージ法による降下ばいじん中の溶解性成分(pH, Cl⁻, F⁻, SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺, Na⁺, Ca²⁺)降水量について検討した。

その結果, F⁻, SO₄²⁻, NH₄⁺, Ca²⁺は降水量の分布, 及び風向との関係から発生源の方向が推定された。

また, pHはCa²⁺の降水量に大きく影響されていた。

アルカリろ紙法による八戸市の環境大気評価 中道
敬 野田正志 工藤隆治 藤田志保 鈴木 実¹ 齊藤輝
夫²：平成4年度環境保健部職員研究発表会，青森市，1993.
1. 29

八戸市の窒素酸化物等の状況を把握するため，環境大
気中の簡易測定法である，アルカリろ紙法による調査を
実施しているが，今回10年間の調査結果をもとに，フッ
化物，窒素酸化物の推移についてまとめたところ，フッ
化物，亜硝酸性窒素の測定値は減少する傾向にあるが，
硝酸性窒素は横ばい状態であった。

- 1：八戸保健所
- 2：むつ保健所

色度の測定における試料の前処理について 高柳和弘
坂上素一 小山田久美子：平成4年度環境保健部職員研
究発表会，青森市，1993. 1. 29

色度測定において，試料の前処理による影響を検討す
るため，検水量，ろ紙の種類，ろ過方法を変えて測定を
おこなった。その結果検水量を多く取る程，SSは高くな
るが，色度は逆に低くなった。また，ろ紙の種類，ろ過

方法等の違いによっても測定値は最大で約110度の差がみ
られた。この結果より，前処理方法を定める必要がある
と考えられる。

原子燃料サイクル施設周辺の環境放射線等調査の概要
木村秀樹 阿部征裕 外崎久美子 竹ヶ原仁 関野正義
赤津康夫¹ 南館正和²：日本保健物理学会第27回研究発表
会，秋田市，1992. 6. 11～12

原子燃料サイクル施設に係る県と設置者の環境モニタ
リングの概要と平成元年度及び2年度に実施した操業前
の調査結果について取りまとめた。

空間放射線量は，全国的にみて低いレベルであった。
¹³⁷Csの月間降水量は，春先に多くなっている。大気中水
蒸気状の³H濃度は，春と秋に比較的高くなる傾向を示し
た。尾駮沼の湖沼水中のU及びF濃度は塩素量と正の相
関がみられ，海水の影響と考えられる。サイト周辺の土
壌中の¹³⁷Cs濃度と²³⁹⁺²⁴⁰Pu濃度の比は，採取地点によ
らず近い値であった。

- 1：日本原燃サービス(株)
- 2：日本原燃産業(株)

編集委員

佐藤 允武 今 武純 工藤 精一
木村 秀樹 木村 淳子 三上 浩二
伊藤 博

青森県環境保健センター研究報告

(平成五年度)

平成 6 年 3 月 発行

編 集 〒030 青 森 市 東 造 道 1 - 1 - 1
発 行 TEL 0177-(36)-5411
青 森 県 環 境 保 健 セ ン タ ー
所 長 西 舘 篤
印 刷 〒038 青 森 市 石 江 字 三 好 120 の 20
 (有) こ が わ 印 刷
 TEL 0177-(66)-2345(代)
