



—暮らしあおもり—
活彩あおもり

I S S N 0917-1924

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.12 2001

青森県環境保健センター

は じ め に

新世紀1年目の今年度、「感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律」いわゆる「感染症新法」の施行に伴って、当センターに感染症情報センターが開設されました。感染症情報の収集・解析・還元を実施してほぼ1年が経過しましたが、さらに改良を加えて感染症発生防止に努める所存です。

さて、秋には当県でも米国同時多発テロ事件に便乗した炭疽菌騒動が発生し、昼夜、休日を問わず検査に追われる一方、EU輸出ホタテガイの精度管理（GLP）体制下でのモニタリング検査についてEUの査察があり、査察官からの好評を得て終了できました。

その他、今年度は、P3対応安全実験室の稼働、食品流通の国際化に伴う遺伝子組み換え食品の検査技術の導入、ダイオキシン検査のためのケミカルハザード対応施設の着工など多様な検査体制の整備が新たに始まりました。

このような状況の中で、研究機関の本分である研究の成果が7報の報文、5報のノートにまとめることができました。御一読の上、御意見などお寄せ下されば幸甚に思います。

2002年3月

青森県環境保健センター

所 長 福 彗 寛 二

目 次

I 報 文

青森県の志賀毒素産生性大腸菌 (STEC) O157の発生状況 —1996年~2001年 対馬 典子 武沼 浩子 大友 良光	1
修学旅行中に発生したNorwalk virusによる食中毒 石川 和子 筒井 理華 三上 稔之 大友 良光 畑山 一郎 宇田川悦子	7
小学校における胃腸炎集団発生からのNorwalk virus検出 筒井 理華 石川 和子 三上 稔之 大友 良光 宇田川悦子	12
マウス肝化学発癌及び肺転移に対するリンゴポリフェノールの抑制効果 畑山 一郎 日暮 太一 下平 義隆 獵山 一雄	16
粒径組成とC, N, Pからみた十和田湖の底質環境 (1999年) 三上 一 石塚 伸一 早狩 進 野澤 久志 神 毅統 高村 典子	21
八戸市内における有害大気汚染物質 (重金属類) の発生源の推定 花石 竜二 早狩 進 齋藤 輝夫 高橋 俊行 石塚 伸一	31
ばいじんの重力沈降, 沈着を考慮した正規型大気拡散式の特 性—ダイオキシン類の沈着量の推定— 吉田 毅 花石 竜治	42

II ノ ー ト

神経芽細胞腫マスキリーニング検査に関わるデータベースの作成 武沼 浩子	53
陸奥湾産ホタテガイ中のマウス致死成分・イエットキシン含量の周年変動 中谷 実 神 毅統 今井美代子 三浦 啓徳 古川 章子	56
青森県における有害大気汚染物質モニタリングの分析方法の確立 —重金属類— 花石 竜治 石塚 伸一	60
原子燃料サイクル施設周辺地域における広域的な空間放射線量率調査 竹ヶ原 仁 渡部 陽一 佐々木 守 工藤 和利 工藤 徹 今 武純	68
TLDによる積算線量測定の特徴について 工藤 香織 今 武純	72

Ⅲ 他誌投稿抄録..... 75

Ⅳ 学会等発表抄録..... 79

CONTENTS

I Original Articles

Incidence of Infection with Shiga-toxin Producing <i>E. coli</i> (STEC) O157 in Aomori Prefecture In 1996 – 2001 Noriko Tsushima, Hiroko Takenuma and Yoshimitsu Otomo	1
Food Poisoning with Norwalk Virus during School Trip Kazuko Ishikawa, Rika Tsutsui, Toshiyuki Mikami, Yoshimitsu Otomo, Ichiro Hatayama and Etsuko T. Utagawa	7
Detection of Norwalk Virus in Mass Outbreak of Gastroenteritis at an Elementary School Rika Tsutsui, Kazuko Ishikawa, Toshiyuki Mikami, Yoshimitsu Otomo, and Etsuko T. Utagawa	12
Inhibitory Effects of Apple Polyphenol on Chemical Hepatocarcinogenesis and Pulmonary Metastasis in Mice Ichiro Hatayama, Taichi Higurashi, Yoshitaka shimotai and Kazuo Ryoyama	16
Sedimentary Environment from Viewpoint of Particle Size Distribution and C, N, P in Lake Towada (1999) Hajime Mikami, Shin-ichi Ishizuka, Susumu Hayakari, Hisashi Nozawa, Taketo Jin and Noriko Takamura	21
The estimation of emission sources of heavy metals of hazardous air pollutants in Hachinohe city Ryuji Hanaishi, Susumu Hayakari, Teruo Saito, Toshiyuki Takahashi and Shin-ichi Ishizuka	31
Characteristics of Gaussian Atmospheric Diffusion Equation in Consideration of the Gravitational Settling and Deposition of Particulate Matters —Estimation of the Deposition Quantity of Dioxines— Tsuyoshi Yosida and Ryuji Hanaishi	42
II Notes	
Production of database Concerning Mass screening of Neuroblastoma Hiroko Takenuma	53
Yearly fluctuation of yessotoxin in scallops in Mutsu Bay Minoru Nakaya, Taketo Jin, Miyoko Imai, Hironori Miura and Akiko Kogawa	56
The Establishment of Analysis Methods of Heavy Metal of Hazardous Air Pollutants in Aomori Prefecture Ryuji Hanaishi and Shin-ichi Ishizuka	60
Extensive Study of Gamma-ray Dose Rate in Areas around Nuclear Fuel Cycle Facilities Htoshi Takehara, Yoichi Watanabe, Mamoru Sasaki, Kazutoshi Kudo, Toru Kudo and Takezumi Kon	68

Fading of Cumulative Dose Measurements using Thermoluminescence Dosimeter (TLD)	
Kaori Kudo and Takezumi Kon	72
III Summaries of Other Publication	75
IV Abstracts of Presentation in Society Meeting	79

I 報 文

青森県の志賀毒素産生性大腸菌 (STEC) O157の発生状況 —1996～2001年—

対馬 典子 武沼 浩子 大友 良光

1996年から2001年の県内における志賀毒素産生性大腸菌 (STEC) による感染事例は126事例であった。これらの事例から得られた165菌株について考察した結果、感染月は、例年6～9月に多く、検出年齢層は、低年齢層に加え近年はそれ以外の年齢層にも見られる。血清型別ではO157が依然として多い。家族内感染における母子の感染形態も特徴的であるが、6年間で、感染源を特定するに至った事例は、1997年8月に発生した2事例と2001年3月に発生した1事例についてのみであり、今後、感染源と感染経路の究明が必要とされるところである。

Key words : Shiga toxin-producing *Escherichia coli* (STEC), O157,
Polymerase chain reaction (PCR), Pulsed-field gel electrophoresis (PFGE),
Epidemiology, Sporadic infection

1. はじめに

1996年に全国的に志賀毒素産生性大腸菌 (Shiga toxin-producing *Escherichia coli* : 以下STECと略) 感染症患者が多発し、大きな社会問題となった¹⁾。本県においても、これまで集団発生はないが、1996年以降散発下痢症患者が相次いで発生し²⁻³⁾、一部ではその感染源が明らかになっている。

今回は、青森県における1996～2001年までのSTECの発生状況をまとめるとともに、特に保存されているSTEC O157の性状ならびに病原性についての成績をまとめたので報告する。

更に、2001年3月に発生した感染事例に関して感染源追究のための遺伝子解析を実施したので併せて報告する。

2. STEC感染者の発生状況

1996年～2001年の間、126事例（'96年：7事例、'97年：19事例、'98年：19事例、'99年：10事例、'00年：34事例、'01年：37事例）の発生があり、165人のSTEC感染者（うちO157は120人）が確認されている。保健所で調査した資料を用いての年別、月別、性差、感染様式別および居住地別の疫学的特徴は次のとおりである。

2. 1 年別発生状況

本県のSTEC発生状況を図1に示した。1997年には前年の3倍に増加し、1998年は1997年とほぼ同数、そして2000年から再び急増した。検出菌の血清型は1999年以外はO157：H7が最も多く分離されており、STECに占める割合は1996年～2001年までにそれぞれ88%、74%、65%、8%、77%、94%となっており2001年はほとんどがO157であった。なお、O157以外の血清型としては、O26、O103、O121そして、O55が見受けられたが、1999年以降はO26のみである。また、本県のO157感染者は、1999年には1人と減少したものの再び2000年には36人と急激に増加し、2001年に至っては45人と更に前年を上回った。

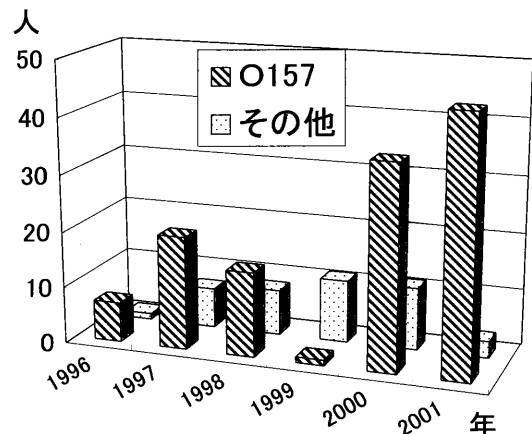


図1 STEC感染者の年別発生状況

2.2 月別発生状況

各年とも、検出数は6～9月に多く、1996年は検出数全体の100%、1997年は67%、1998年は83%を占めている(表1)。夏場に多いが、冬場にも若干の発生がみられる。

2.3 性別、年齢別、感染様式別

男女別年齢分布についてみると、感染者はいずれも19才以下(特に0～9才の低年齢層)が大部分を占め、また、性差としては中間年齢層(20～59歳)の女性が男性より多い傾向がみとめられる(図2)。特に感染者の多かった2001年については、19才以下の場合には男性が多く、中間年齢層については女性のみで

表1 STEC感染者の月別発生状況

	'96	'97	'98	'99	'00	'01
1	0	0	0	0	2	1
2	0	0	0	0	0	0
3	0	4	0	0	0	0
4	0	2	0	0	0	3
5	0	0	3	1	0	0
6	1	0	6	1	1	2
7	2	4	2	1	10	14
8	2	12	6	7	13	17
9	3	2	5	2	12	8
10	0	3	1	0	5	2
11	0	0	0	0	2	1
12	0	0	0	0	2	0
合計	8	27	23	12	47	48

表2 STEC感染者の居住地別発生数

	'96	'97	'98	'99	'00	'01
青森市		1		1	5	5
黒石市	1			4	2	3
十和田市					3	
八戸市	2	4	5	2	9	3
弘前市		4	8	3	10	17
三沢市		4	1	1		
上北郡	4	6	3		5	3
下北郡						4
三戸郡	1				8	1
北津軽郡					1	2
中津軽郡		6		1		2
西津軽郡						1
東津軽郡		2				
南津軽郡			6		4	7
合計	8	27	23	12	47	48

あり(図3)そのほとんどが、子供(0～9歳の低年齢層)と母親(あるいは父も含めて)に感染している家族内感染事例である(図4)。

2.4 居住地別

極端な地域差は見られないが、2001年には特に弘前市に多くの感染者がみとめられた(表2)。

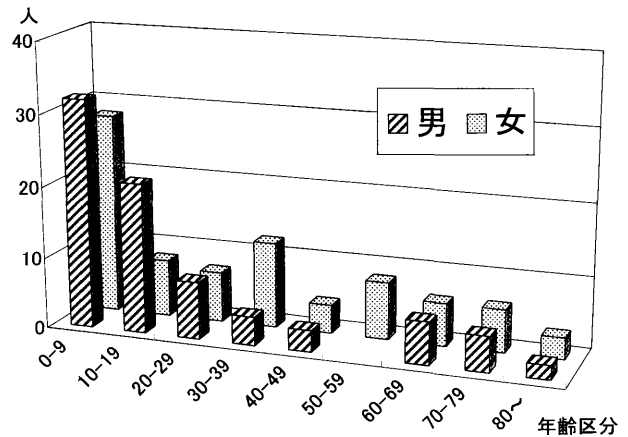


図2 STEC感染者の性別年齢分布 (1996年～2001年)

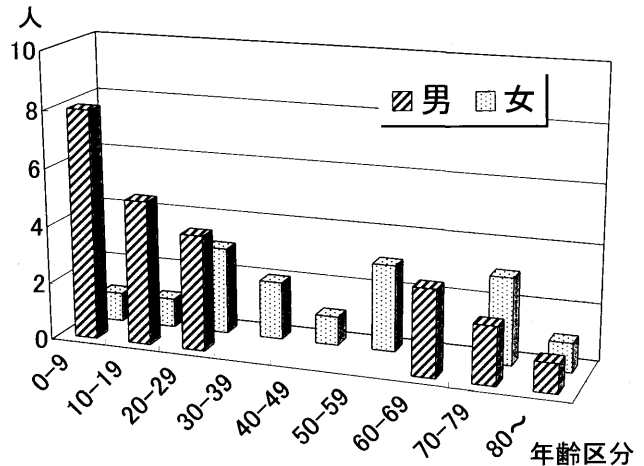


図3 STEC感染者の性別年齢分布 (2001年分)

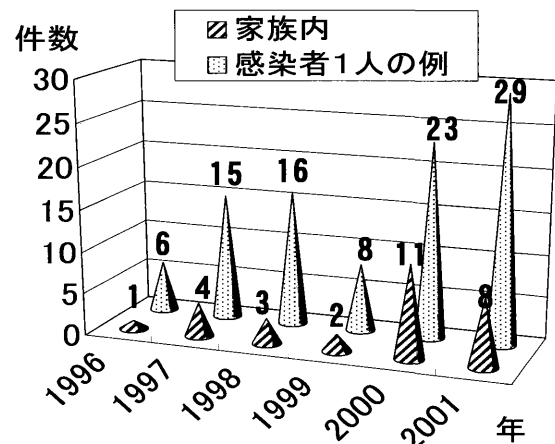


図4 STEC感染者の感染様式別発生状況

3 2001年に感染源が推測された事例の概要

2001年3月末、5才の男児から両毒素型のO157が検出された。患者の接触者には感染者は認められなかったが、家族で「豚レバー」を刺身として喫食していたことから、保存されていた「豚レバ刺し」を検査したところ、STEC O157が検出された。

4. 材料と方法

4.1 検 体

1996年から2000年に分離され当所において保存されている65菌株のO157（感染者由来61株、その他の食品等由来4株）を対象とした。

また、パルスフィールドゲル電気泳動法（pulsed-field gel electrophoresis:以下、PFGEと略）については、O157保存菌株110菌株のうち、2001年3月に発生した感染事例に関する感染源追求のために、感染者由来株および原因食品と思われるものから検出された菌株を利用した。

4.2 生物化学的性状

市販キット（日本ビオメリュー社）を用いたが、O157はソルビトール非分解性のため、ソルビトールのインデックスの入っているAPI20 E（35～37℃、18～24時間培養）を用いずRapid20 E（35～37℃、4時間培養）を使用し、判定表に従って読み取ったコードを用いてプロファイルインデックスで大腸菌であることを確認した。

4.3 血 清 型

市販の病原大腸菌免疫血清（デンカ生研社）を用い添付マニュアルに従って血清型別（O, H）を行う一方、H7型についてはGannonらの方法⁴⁾に準じPCR（Polymerase chain reaction）法により確認した。用いたプライマーは、FLICH7-F:（5′-GCG-CTG-TCG-AGT-TCT-ATC-GAG-C-3′）および FLICH7-R（5′-CAA-CGG-TGA-CTT-TAT-CGC-CAT-TCC-3′）である。また、これらのプライマーを用いた増幅産物のサイズは625（bp）である。

4.4 病原性関連遺伝子の検出

市販のプライマー（TAKARA社）を用いて、PCR法により志賀毒素遺伝子（*stx 1*, *stx 2*）の検出を行う一方、ヒト大腸粘膜上皮細胞の病変に関与する外膜タンパク質、インチミンを規制する*eaeA*⁵⁾の検出をPCR法により行った。

4.5 PFGE

感染源追求のため、国立感染症研究所の方法⁶⁾に準じ実施した。

5. 結 果

5.1 生物化学的性状

検査対象65菌株はすべて*Escherichia coli* Iと同定された。

なお、項目別陽性率を表3に示す。Rapid20Eに添付の文書に記載されている陽性率表の値と比較すると、4項目（ODC, RHA, SAC, RAF）以外はほぼ同率を示した。

5.2 血 清 型

65菌株すべて市販の血清によりO抗原が「157」であることを確認した。

H抗原については、スライド凝集法で65株中46株

表3 Rapid20Eによる67菌株の性状検査結果

略語	項 目	陽性率 (%)
ONPG	O-ニトロフェニル-β-Dガラクトシダーゼ	100
LDC	リジンデカルボキシラーゼ	100
ODC	オルニチンデカルボキシラーゼ	100
URE	尿素加水分解	0
CIT	クエン酸利用	0
PPA	フェニルアラニンデアミナーゼ	0
MNT	マロン酸利用	0
ESC	β-グルコシダーゼ	0
ARA	D-アラビノース	98.5
XYL	D-キシロース	70.8
ADO	アドニット	0
RHA	L-ラムノース	23.1
CEL	D-セロビオース	0
MEL	D-メリビオース	95.4
SAC	サッカロース	66.2
TRE	D-トレハロース	81.5
RAF	D-ラフィノース	64.6
GLU	グルコース	100
IND	インドール産生	100
VP	アセトイン産生	0
OX	チトクロームオキシダーゼ	0

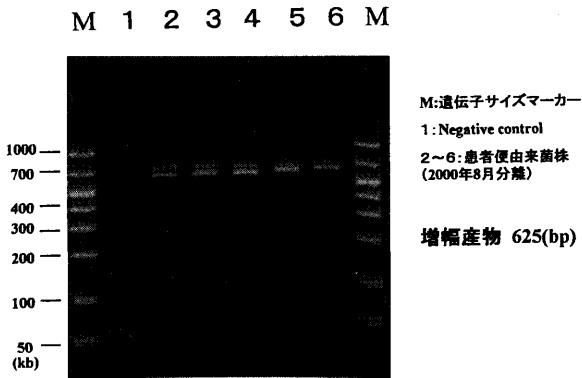


図5 PCR法によるH7関連遺伝子の検出

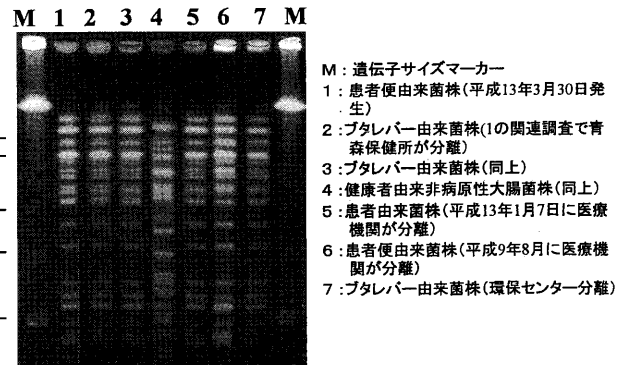


図6 STEC O157のPFGE像

がH7に凝集し、PCR法ではすべての株がH7であることが確認された(図5)。

5.3 病原性関連遺伝子

stx 1 および *stx 2* 保有状況については、65菌株中両毒素型が57株(87.7%)、そして *stx 2* 単独型が8株(12.3%)であった。

eaeA については65株すべてが保有していた。

5.4 2001年に発生した1事例の感染源追求を目的とした遺伝子解析

患者由来菌株と食品由来菌株について、*Xba I* 消化DNAのPFGEによる遺伝子解析を実施したところ、遺伝子パターンは一致し、本事例は豚レバーを生で喫食したことによる感染であると推測された(図5)。

6. 考 察

1999年に一旦落ちついたO157の発生が、2000年より急増していることや、2000年まではほとんど地域差が見られなかったにもかかわらず2001年には地域を限局した発生状況である、というように、県内のSTEC発生状況はこれまでの勃発的な様相から変化してきている。また、夏場に多かった発生も2000年からは冬場にも若干見られるようになったため、季節に関係なく注意を要すると考えられる。近年、母親から子供の感染をうかがわせる状況もある。

また、毒素型については、全国的に1996年にはO157:H7分離菌の87%が両毒素型で *stx 2* 単独型は13%であったものが、2000年には両毒素型は54%まで減少し逆に *stx 2* 単独型は42%にまで増加したが⁷⁾、本県においては特にこのような傾向は見られず両毒素型が割合として多い状況である。

今回、喫食調査から「豚レバー(生)」が原因ではと

の見方があがったが、通常豚がO157を保有していないとされていることから、患者由来のPFGEパターンと比較を行ったところ同一であったことは、豚を感染ルートのひとつと決定づける有力な要因となった。この今回の感染事例では、豚レバ刺しを家族で喫食していたにもかかわらず感染したのは5才の子供だけだった、ということから、「肉類を食す際にはじゅうぶんに加熱する、焼肉などの場合でも『とりばし』に注意する」との普及啓蒙を徹底すること、そして「小さい子供に対しては十分留意すること」などの重要性が浮き彫りとなった。

今回のPFGE解析には、1996年8月に発生した1株も加えたが、豚レバー事例と同様の遺伝子パターンを示している。これは、当時、県内ではじめて感染源が推測されるに至ったO157同一感染事例として話題となったもので、同地域で同時期に発生した2事例の感染源は患家の家畜便であり、食物との間をイエバエが媒介した可能性の高いことが示唆されたものであり²⁾、今回の豚レバ刺しに関する事例と4年前のイエバエが関与した事例との関係が興味もたれるところである。

また、感染源を推測するに至ったのは、前述の1996年(2事例)および2001年(1事例)に発生した事例のみであるが、それ以外の事例では感染源がつきとめられていないことから、今後も原因の特定に努めていく必要がある。

また、2001年は弘前、黒石保健所管内(64.6%)に限局してO157が集中的に発生しており、ある意味で非常事態ともいえる。今後、感染源究明に向けて、取り組まなければならないが、それにはまず現場サイドとして伝染経路の特定を含めた種々の現地調査が必要

とされる。その一方、県内においてこれまで分離されているSTEC O157に関し、PFGEによる遺伝子解析およびデンドログラムによる類似性を解析することにより、分子疫学的な考察を行い、分離菌株についてのPFGEによるDNA解析のデータベースを作成し、随時、菌株間の類似性を確認する必要がある。また、通常実施しているPFGEでは、最短でも3日間要するため、併せて、1日で同様の良好な結果が得られる方法⁸⁾も取り入れていく必要がある。

また、全国規模でのdiffuse outbreak（潜在的集団発生）の早期発見には、分離菌株についてのPFGEパターンなどの解析情報を関連機関でいち早く共有化することが重要であるが、現在、国立感染症研究所（感染研）と全国地方衛生研究所等でオンラインによるPFGE解析情報等を共有化するための、「PulseNet Japan（パルスネット）」システムが感染研により構築中⁹⁾であり、早急な進展が期待されるところである。

7. ま と め

過去6年間の県内のSTEC発生の疫学的特徴として以下のことがわかった。

- 1) 1999年に落ち着いたものの、2000年から急増している。
- 2) 以前は夏場の発生にほぼ限局されていたが、2000年から冬場にも若干の発生が見られるようになった。
- 3) 年齢分布は低年齢層（0～9才）が大部分であり、中間年齢層については女性が多い。
- 4) 6年間で見ると、弘前市と八戸市に集中している。

また、PFGEによるDNA解析の結果、2001年3月末に発生した事例の感染源は、家庭で喫食した豚レバーによる可能性の高いことが示唆された。

文 献

- 1) 国立感染症研究所：〈特集〉Vero毒素産生性大腸菌（腸管出血性大腸菌）感染症 1996～1997.6. 病原微生物検出情報，**18**，153－154，1997.
- 2) 岡典子ら：青森県内における志賀毒素産生性大腸菌（STEC）による感染疫学—1993年～1997年9月—。青森県環境保健センター研究報告，**8**，1－5，1997.
- 3) 対馬典子ら：青森県における志賀毒素産生性大腸菌（STEC）の発生状況。青森県環境保健センター研究報告，**9**，41－43，1998.
- 4) V. P. J. Gannon., et al. : Use of the flagellar H7 gene as a target in multiplex PCR assays and improved specificity in identification of enterohemorrhagic *escherichia coli* strain. J. Clin. Microbiol., **35**，656－662，1997.
- 5) 八柳潤ら：腸管集合性大腸菌耐熱性エンテロトキシン-1（EAST-1）遺伝子を保有する食中毒様事例由来病原血清型大腸菌，感染症学雑誌，**70**，73－79，1996.
- 6) 国立感染症研究所細菌部：資料『腸管出血性大腸菌O157の検出・解析等の技術研修会』，平成9年.
- 7) 国立感染症研究所：〈特集〉腸管出血性大腸菌感染症 2001年4月現在，病原微生物検出情報，**22**，135－136，2001.
- 8) Gautom, R. K. : Rapid pulsed-field gel electrophoresis protocol for typing of *escherichia coli* O157 : H 7 and other gram-negative organisms in 1 day. J. Clin. Microbiol., **35**，2977－2980，1997.
- 9) 渡辺治雄：平成12年度厚生科学研究費補助金新興・再興感染症研究事業 総括・分担研究報告書『パルスフィールドゲル電気泳動法（Pulsed-Field Gel Electrophoresis, PFGE）の標準化及び画像診断を基盤とした分散型システムの有効性に関する研究』。国立感染症研究所細菌部.

Abstract

Incidence of Infection with Shiga-toxin Producing *E. coli* (STEC) O157 in Aomori Prefecture In 1996-2001

Noriko Tsushima, Hiroko Takenuma and Yoshimitsu Otomo

There were 126 cases of infection with Shiga-toxin producing *E. coli* (STEC) in Aomori Prefecture in 1996-2001. Studies of the 165 bacterial strains obtained from these cases revealed that this type of infection most frequently occurred in June through September, children were most susceptible to this infection although it has recently occurred in other age populations, and the most frequent serotype was O-157. These cases were characterized by domestic infection between mothers and children. The origin of infection was identified in only 2 cases in the 6 years from 1996 to 2001 : 1 case occurred in August 1997 and the other in March 2001. It is necessary to investigate the origin and route of infection.

Key words : Shiga toxin-producing *Escherichia coli* (STEC), O157,
Polymerase chain reaction (PCR), Pulsed-field gel electrophoresis (PFGE)
Epidemiology, Sporadic infection

修学旅行中に発生したNorwalk virusによる食中毒

石川 和子 筒井 理華 三上 稔之 大友 良光 畑山 一郎 宇田川悦子¹

2001年4月24日、北海道からの修学旅行者が、青森市内の旅館において発症者の80.0%が入院する集団発生があり、発症者の糞便および食品からの病原検索を行った。その結果、電顕法により患者からSRSV粒子を確認し、PCR法によりNorwalk virus遺伝子を検出し、Norwalk virusによる集団発生であることを明らかにした。しかし、食品からは検出されず、感染源、原因食品の特定には至らなかった。また、患者の日時別発生状況を見ると2峰性になっていることから、食中毒が発端となり患者の便、吐物による二次感染が推察された。検出した2名の患者のNorwalk virus遺伝子をプローブにサザンハイブリダイゼーションによる交差性を検討した結果、本集団発生には2種類のウイルスが存在することが示唆された。

Key words : Norwalk virus, School excursion, PCR, Southern hybridization

1. はじめに

Norwalk virus (以下NV) は、乳幼児から高齢期の成人までの広い年齢層に感染して嘔吐、腹痛、ときに下痢など比較的軽度の急性胃腸炎を引き起こす¹⁾。発生時期は冬であり、感染規模と推定原因食品との関係は、小規模事例の場合41%がカキが原因と推定されている。一方、大規模事例では、伝播経路や原因食品を特定できない事例が多い²⁾。

一般的発生時期から少しはずれた4月下旬に北海道からの修学旅行者100名中81名の集団食中毒が発生し、旅館で発症した患者の80.0%が入院するという、NV集団発生においては例を見ない入院率であった。本集団発生の病原検索を実施したところ、電子顕微鏡(以下EM)法によりSRSV粒子、polymerase chain reaction (以下PCR)法、enzyme immunoassay (以下EIA)法によりNV Genogroup II型であることを明らかにした。さらに検出遺伝子を用いての交差性をサザンハイブリダイゼーション法により検討したのでその概要と併せて報告する。

2. 発生概要

2001年4月24日、北海道からの修学旅行者(100名:生徒90名,教師8名,添乗員2名)が、青森市内の旅館において発熱、嘔吐、腹痛など食中毒様症状を呈した。患者発生は24日夕方から始まり、25日午

前での患者数は、入院56名(生徒53名,教師3名)の計70名であった。軽症者および発症しなかった42名は、25日14時20分発のフェリーで函館へ向かった。途中船内で新たに生徒11名(入院1名)が発症し、本事例の患者数は、81名におよんだ。最初の患者発生のピークが、24日夜から25日午前中、次のピークが25日午後と2峰性を示した(図1)。臨床症状について、旅

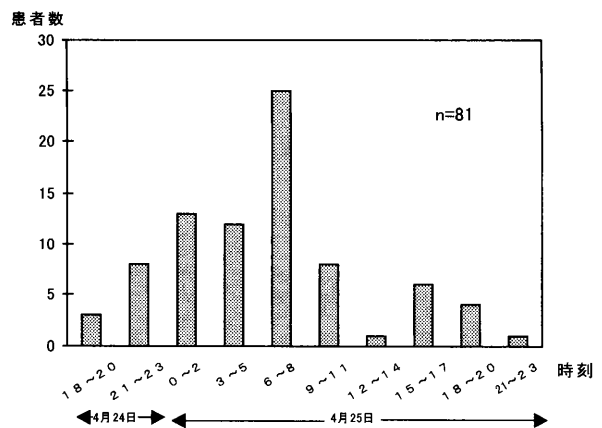


図1 日時別患者発生数

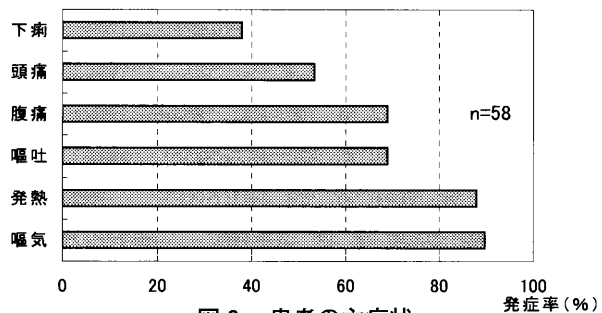


図2 患者の主症状

1 国立感染症研究所 ウイルス第2部

館で発症した患者58名に聞き取りを行ったところ、嘔気(89.7%)、発熱(87.9%)、腹痛(69%)、嘔吐(67%)が多く、下痢(37.9%)は少なかった(図2)。

本事例の患者数を発症場所別に見てみると、青森市内旅館で生徒90名中67名、教師8名中3名が発症し、そのうち発症者の80.0%である56名(生徒53名、教師3名)が入院した。また、船内での発症者は、生徒42名中11名で入院1名であった。最終患者数は81名(生徒78名、教師3名)、入院57名(生徒54名、教師3名)であった(表1)。また、帰宅後修学旅行者からの二次感染と思われる家族内感染の報告もあった。

表1 患者の内訳

発症場所	修学旅行者	人数	患者数*1	入院者数*2
宿泊旅館	生徒	90	67(74.4%)	53(79.1%)
	引率教師	10	3(30%)	3(100%)
帰りの船内	生徒	42	11	1
計		100	81(81%)	57(70.4%)

*1:()内は人数に対する百分率

*2:()内は患者数に対する百分率

3. 材料および方法

3.1 検査材料

検査材料は、食中毒様症状を呈した修学旅行者の便11検体、吐物3検体と同時期に発症した旅館従業員便1検体を用いた。感染経路の解明のため調理従事者便6検体と摂食した食品の同一ロットで青森市内旅館の4月23日の夕食と4月24日の朝食各2検体(各品目の量が少ないので夕食は15品目、朝食は10品目を2グループにまとめる)をそれぞれ検体とした。修学旅行者からの従業員への二次感染および続発防止のため、発生から2週間後の旅館従業員全員の便45検体についても実施した。

3.2 EM材料およびRNA抽出

EM材料は、便を滅菌蒸留水で10%乳剤として3,000rpm、20分間遠心後、等量のダイフロン処理後、ポリエチレングリコールで濃縮、さらに15,000g×150分間の超遠心により得た。ウイルスRNA抽出は、EM試料を用いた。

3.3 検査方法およびDNA解析

cDNA合成には、RNA PCR kit (Takara) を使用した。患者便の検査については、EM法、ポリメラーゼ領域のプライマーを用いてのPCR法とEIA(国立感染症研究所で配布した2000年1月のSRSV抗原検出用キ

ット)法によりNV検索および調理従事者便は、EM法とPCR法を実施した。プライマーは、1回PCRにはNV81/82・SM82を使用し、Nested-PCRには1stに35′/36、MR3/MR4を使用し、2ndにNV81/82、SM82、Yuri22F/Yuri22Rを使用した。また、得られたPCR産物についてサザンハイブリダイゼーションを実施した。

4. 結果

EM法では、患者便21検体中5検体から小型球形ウイルス(SRSV)粒子を検出した(図3)。PCR法では、患

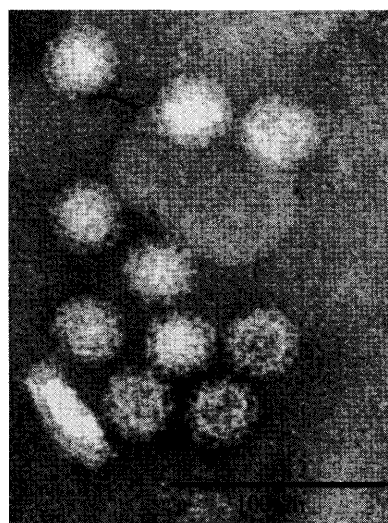


図3 検体番号16から検出されたSRSVの電子顕微鏡像

表2 検査結果

番号	検体		検査法	
	種類	搬入年月日	PCR法	電子顕微鏡法
1	患者便	13.4.25	+	陰性
2	“	“	+	陰性
3	吐物	“	陰性	陰性
4	“	“	陰性	陰性
5	“	“	陰性	陰性
6	患者便	13.4.26	陰性	陰性
7	“	“	陰性	陰性
8	“	“	陰性	陰性
9	“	“	陰性	陰性
10	“	“	陰性	陰性
11	“	“	陰性	陰性
12	“	“	陰性	陰性
13	“	“	陰性	陰性
14	“	“	陰性	陰性
15	“	“	+	+
16	“	“	陰性	+
17	“	“	陰性	+
18	“	“	+	+
19	“	“	陰性	陰性
20	“	“	陰性	陰性
21	“	13.4.28	+	+

者便21検体中5検体(23.8%)がNV陽性となった(図4)。プライマーは、35′/36-NV81/82。SM82, NV81/82。SM82で検出され、MR3/MR4-Yuri22F/Yuri22Rでは検出されなかった。表2にこれらの結果をまとめて示した。EIA法では患者番号2からNVが検出されGenogroupはII型であった。吐物、食品については、すべて陰性であった。また、二次感染、不顕性感染が懸念されることから、発生から2週間後に旅館従業員便45検体のPCRをおこなった結果、1名が陽性であったがその後の検査で陰性になった。

NV陽性者のPCR産物5検体について、陽性者の検体番号1(生徒)と検体番号21(発症した従業員)をプローブとしてサザンハイブリダイゼーションを実施したところ、検体番号1は他の4検体(検体番号2, 15, 18, 21)と交差がみられなかったが、検体番号

21は検体番号1を除いた3検体(検体番号15, 18, 21)と交差が見られた(図5)。旅館従業員(検体番号59)についてもサザンハイブリダイゼーションを実施したところ検体番号1にも検体番号21にも交差が見られなかった(図6)。

5. 考 察

本事例は、宿泊した旅館で発症した修学旅行者の入院者数が80.0%と、NV集団発生において例を見ない入院率であった。NVは一般的には軽症で経過することを考えると、このように発症者、入院者が多かったのは、修学旅行中という集団発生のおこりやすい状況と疲れが重なり高い入院率となったものと考えられる。発生状況を経時的に見ると4月24日の夜から25日午前中に発症のピークがあり、また25日午後2

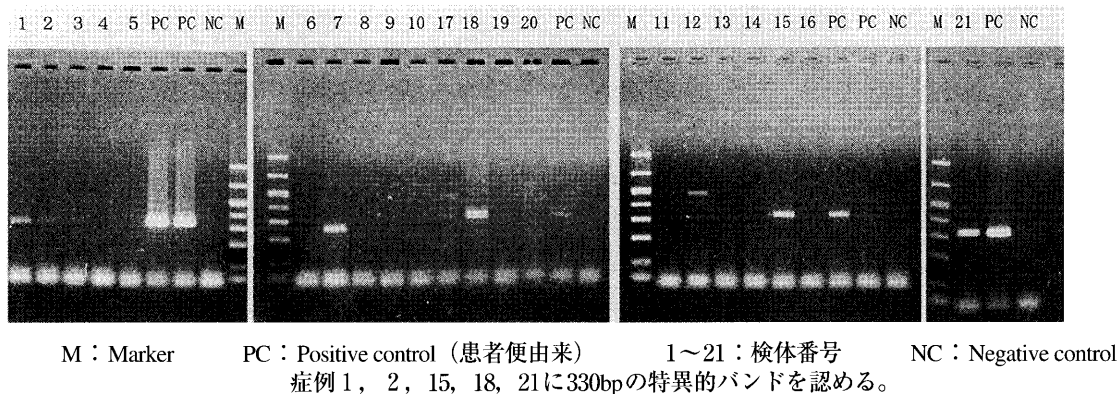
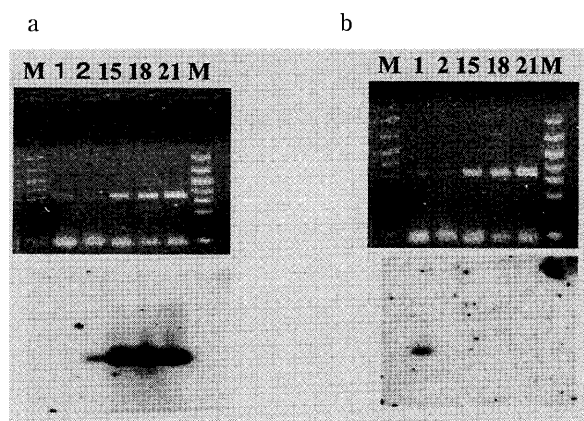
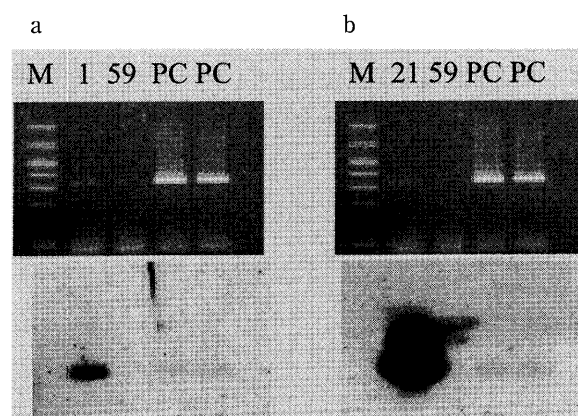


図4 RT-PCR法によるNV遺伝子の検出



a: 検体番号2のプローブでは15, 18, 21に対し交差が見られた。
 b: 検体番号1のプローブでは2, 15, 18, 21に対し交差が見られなかった。

図5 検体番号1, 2をプローブとしたサザンハイブリダイゼーション



a: 検体番号1のプローブでは59に対し交差が見られない。
 b: 検体番号21のプローブでは59に対し交差が見られない。

図6 検体番号59に対する検体番号1, 21プローブによるサザンハイブリダイゼーション

度目の発症のピークがみられ、発症の波形が2峰性になっていることにより、食中毒が発端となり後半のフェリーでの発生、家族内感染は、便、吐物などを介しての二次感染が推察され、NV感染症としての二次感染を防ぐことができず、多くの感染者を出すことになったものと思われる。

NVの潜伏期間は平均1～2日であることから、原因施設として札幌市内（23日昼食）、青森市内（23日夕食、24日朝食）秋田県大館市（24日昼食）の3施設が考えられたが、いずれの施設も修学旅行者以外に有症苦情がなく、青森市内旅館の23日の夕食と24日の朝食の検食からNV遺伝子は検出されなかった。このことから原因施設、食品の特定には至らなかった。現時点ではNVは培養できないため、推定原因食品中の微量のウイルスを検出することが困難²⁾であるが、磁気ビーズを用いてウイルス濃縮後、RT-PCR法で食品からのNV遺伝子の検出した食中毒事例⁴⁾の報告もあり、検査方法のさらなる検討が必要と思われる。

今回の事例においては、EM法、PCR法、EIA法とそれぞれの結果は必ずしも一致せず、しかもPCR法ではNV検出率が23.8%と低く、NVが多様な遺伝子型をもつことから今後は新たなプライマーの検討や、ポリメラーゼ領域だけでなくキャプシド領域プライマーを用いたPCR法を検討する必要があると思われる。

修学旅行の発症者検体番号1と同時期に発症した旅館従業員検体番号21のPCR産物をプローブとしてサザンハイブリダイゼーションを実施したところ、検体番号21は検体番号1以外の修学旅行者と交差がみられたが、同時期に発症していることから、この従業員が食中毒の感染源とは考えられず、検体番号1と検体番号21の2種類のNVによる食中毒と考えられる。また、2週間後の検査で陽性になった旅館従業員の遺伝子

が、サザンハイブリダイゼーションで検体番号1にも検体番号21にも反応しなかったことから別のNVの感染が考えられる。

本事例は疫学調査から食品由来と推定されたが、検査においては食品からNVは検出されず、感染源、感染経路の特定には至らなかった。

現在、さらに増幅ウイルスDNAのダイレクトシーケンスによる分子疫学的解析を検討中である。

6. ま と め

本事例はEM法、PCR法、EIA法によりNVによる集団食中毒であった。サザンハイブリダイゼーションにより本事例において2種類のウイルスの存在が示唆された。発生状況が2峰性になっていることにより、食中毒が発端となり、便、吐物を介しての二次感染であることが推察された。

最後に疫学調査資料を提供していただきました青森保健所環境衛生課、試験検査課担当諸氏ならびに青森市民病院内科大川正臣先生に深謝します。

文 献

- 1) 大石功，他：1982年から1998年の期間に本邦で検出したNorwalk virusの遺伝子型の変遷．大阪府立公衛研究所報，**39**，1－6，2001.
- 2) 国立感染症研究所：〈特集〉ウイルス性胃腸炎集団発生．病原微生物検出情報月報，**20**，265－266，1999.
- 3) 小林慎一，他：磁気ビーズを利用したRT-PCRによる食品からのノーウォークウイルスの検出．第49回日本ウイルス学会抄録集，**84**，2001.

Abstract

Food Poisoning with Norwalk Virus during School Trip

Kazuko Ishikawa, Rika Tsutsui, Toshiyuki Mikami, Yoshimitsu Otomo,
Ichiro Hatayama and Etsuko T. Utagawa

On Apr. 24, 2001, an incident of food poisoning occurred at a Japanese style hotel in Aomori City in students on a school trip from Hokkaido and 96.4% of the school children were hospitalized. Feces from the patients and leftover food were examined to identify the pathogen. As a result, SRSV particles were revealed by electron microscopy and Norwalk virus genes were detected by the PCR method, showing that this mass food poisoning was due to infection with Norwalk virus. However, Norwalk virus was not detected in the leftover food and the origin of the infection and the causative food could not be identified. From the fact that the incidence showed two time peaks, it was inferred that the primary food poisoning caused a secondary infection through patient's feces and vomit. The study of cross infection by Southern hybridization using Norwalk virus genes from 2 patients as a probe suggested that two types of virus were involved in the mass food poisoning.

Key words : Norwalk virus, School excursion, PCR, Southern hybridization

小学校における胃腸炎集団発生からのNorwalk virus検出

筒井 理華 石川 和子 三上 稔之 大友 良光 宇田川悦子¹

2001年5月1日に青森県内のN小学校において、嘔吐、腹痛を主症状とする感染性胃腸炎と思われる集団発生の報告があった。原因究明のため、発症者、非発症者の糞便及び発症者の吐物、計22検体について、電子顕微鏡法によるウイルス粒子検索、PCR法によるNorwalk virus遺伝子検出を実施した。その結果、電子顕微鏡法では発症者4名（調理従事者1名を含む）、PCR法では発症者7名（調理従事者1名を含む）からそれぞれSRSV粒子、Norwalk virusウイルス遺伝子が検出された。PCR法により検出された増幅遺伝子7検体の塩基配列を解析した結果、本事例は同一のウイルス感染による集団発生であることが明らかになった。

Key words : SRSV, Norwalk virus, RT-PCR

1. はじめに

小型球形ウイルス（SRSV）は、形態学的には単一であるが、遺伝子学的には様々な種類があり、代表的なものとして、Norwalk virus（以下、NV）がある。NVは冬季を中心に発生する乳幼児下痢症や急性胃腸炎の起因ウイルスの一つである。NVは培養が困難であり、電子顕微鏡法（以下、電顕法）による食品や水からの検出も困難である¹⁾。しかし、PCR法によりウイルス量が極微量でも検出可能となったため²⁾、SRSVは食中毒起因ウイルスとして位置付けられることになり、食品衛生法に加えられた。

2001年5月1日に青森県内のN小学校で発生したNV感染による胃腸炎の集団発生事例について、発生状況と原因究明のため、電顕法によるウイルス粒子の検索、PCR法によるNV遺伝子の検出、更に、増幅DNAの解析を行ったので、その概要を報告する。

2. 発生概要

患者の発生を3時間間隔で見ると、最初の患者は5月1日6時頃に発症し、翌2日15時までに11名発症者が見られた。発症者のピークは18時から21時までの18名、続いて15時から18時までの14名、21時から翌3日0時までの10名であった。その後、発症者は徐々に減少し、3日21時以降では発症者は認められなかった（図1）。

学年別の発生状況を見ると、発症者は1年生19名中15名（78.9%）、2年生19名中12名（63.2%）、3年生15名中7名（46.7%）、4年生13名中10名（76.9%）、5年生14名中10名（71.4%）、6年生18名中10名（55.6%）、小学校教職員14名中5名（35.7%）、調理従事者5名中1名（20.0%）と発症率に大きな学年差は見られなかった。同様の調理を喫食したN小学校に隣接の中学校生徒及び教職員からの発症者は見られなかった。（表1）

主症状は、嘔吐82.9%、腹痛71.4%、発熱57.1%、下痢54.3%であった（図2）。

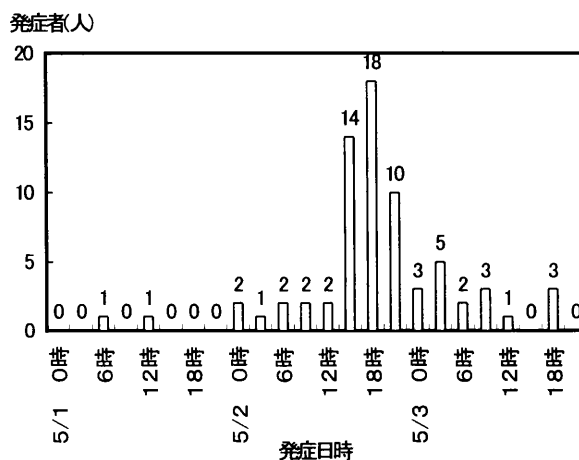


図1 日時別患者発生数

1 国立感染症研究所 ウィルス第2部

表1 発症者と通院者の内訳

	人数	発症者	通院者
1年生	19	15(78.9)	7(46.7)
2年生	19	12(63.2)	8(66.6)
3年生	15	7(46.7)	4(57.1)
4年生	13	10(76.9)	5(50.0)
5年生	14	10(71.4)	6(60.0)
6年生	18	10(55.6)	7(70.0)
小学校教職員	14	5(35.7)	1(20.0)
調理従事者	5	1(20.0)	1(100)
合計	115	70(60.9)	39(55.7)

()内は%

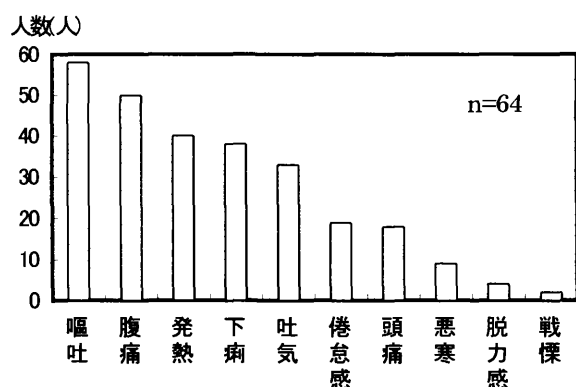


図2 症状別発生状況

3. 材料及び方法

3・1 検査材料

発症者便13検体, 非発症者便7検体, 発症者吐物2検体の計22検体を用いた。

3・2 検査方法

(1) 検体処理

便及び吐物を滅菌蒸留水で10~20%乳剤として3,000rpmで20分間遠心し, 夾雑物除去のため, 上清に等量のトリフルオロカーボンを混和し, 再び3,000rpmで20分間遠心した。更に, ウイルスを濃縮するため, その上清に等量の20%ポリエチレングリコールを加え, NaClを0.5Mになるように加え, 4℃4時間放置後, 再び3,000rpmで20分間遠心した。その沈渣に滅菌蒸留水200 μlを加え, 溶解液とした。

(2) 電子顕微鏡法観察

溶解液100 μlを150,000 × g, 150分間超遠心し, 沈渣に滅菌蒸留水50 μlを加え, 電顕試料として

表2 NV検査成績

検体番号	検体	電顕法	PCR法
1	調理従事者便	—	—
2	〃	—	—
3	〃	—	—
4 (AO7)	〃 (発症者)	+	+
5	発症者便	—	—
6 (AO8)	〃	+	+
7	〃	—	—
8	〃	—	—
9 (AO9)	〃	—	+
10(AO10)	〃	+	+
11	〃	—	—
12(AO11)	〃	—	+
13(AO12)	〃	+	+
14(AO13)	〃	—	+
15	〃	—	—
16	発症者吐物	・	—
17	〃	・	—
18	調理従事者便	・	—
19	〃	・	—
20	〃	・	—
21	〃 (発症者)	—	—
22	〃	・	—

・実施せず

観察した。

(3) 遺伝子学的検査

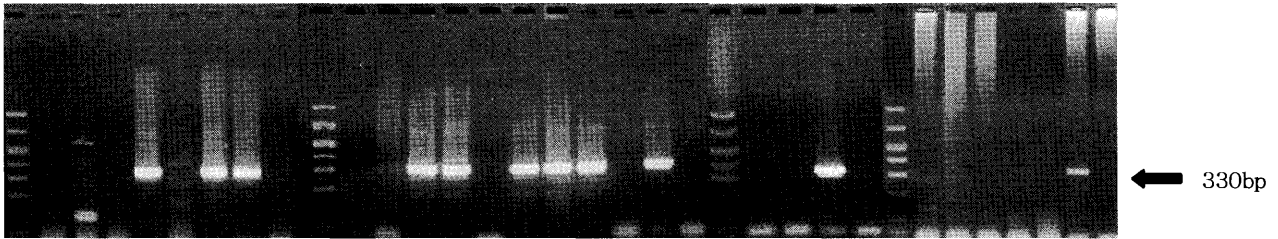
溶解液100 μlからISOGEN-LS (ニッポンジーン社)によりRNAを抽出し, RNA PCR Kit (Takara社)を用いて, cDNAを合成した。NV遺伝子の検出には, nested PCR法を使用した。1st PCRのプライマーには, RNAポリメラーゼをコードする遺伝子領域の470bpを増幅するNV35' /36を, 2nd PCRには, 増幅DNAの内側330bpを増幅するNV81/82, SM82を各々用いた³⁾。

検出されたNV遺伝子の塩基配列を決定するために, DNAシーケンサABI310を用いた。

4. 結果

発症者, 非発症者の便及び吐物について, 電顕法によるSRSV粒子の検索とnested PCRによる330bpのNV遺伝子検出の結果を表2に示した。電顕法では4検体(調理従事者を含む)からSRSV粒子が検出された。一方, PCR法では7名(調理従事者を含む)から

M 1 2 3 4 5 6 PCNCM 7 8 9 10 11 12 13 14 15 PCNCM 16 17 PCNCM 18 19 20 21 22 PCNC



M: DNA size marker, 1-22: 検体番号, PC: 陽性コントロール, NC: 陰性コントロール
4, 6, 9, 10, 12, 13, 14 から 330bp の NV 遺伝子が認められる。

図 3 PCRによるNV遺伝子の検出

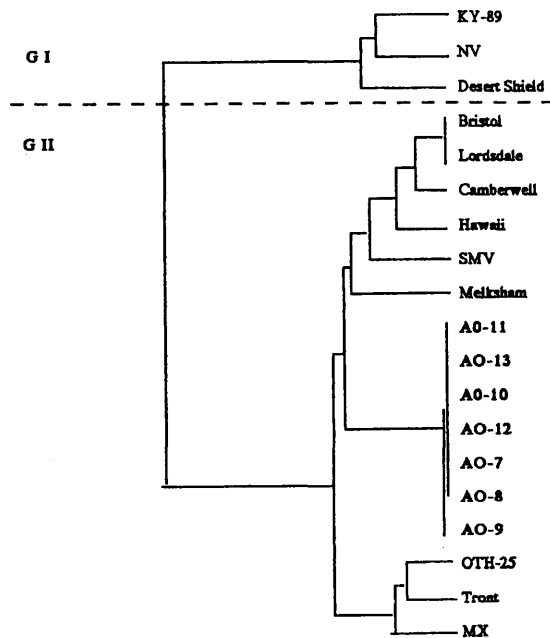


図 4 検出したNV株とNV代表株の系統樹

NVが検出された(図3)。

NV代表株の遺伝子解析の結果から作成された系統樹を用いて、今回検出された分離株の塩基配列から類縁関係を比較した。

検体番号4(AO7), 6(AO8), 9(AO9), 10(AO10), 12(AO11), 13(AO12), 14(AO13)の7検体についての結果を図4に示した。7検体全てからgenogroup II型に属し、SMV遺伝子と79%、Melksham遺伝子と77%類似した株である事が判明した。

5. 考 察

本事例の患者発生状況は、2日の午後をピークとした一峰性であったため、単一暴露が起こったものと考えられ、当初、学校給食による食中毒が疑われた。しかし、隣接する中学校にも同様に調理したメニューの給食が提供されているにもかかわらず、中学校の生徒には発症者は見とめられなかった。また、4月28～30日は学校が休日のため、給食はなかった事など疫学調査から、給食による食中毒ではなく、ヒトからヒトへの糞口感染による感染症であると断定された。

SRSVの感染は、汚染された飲食物の摂取による食中毒とヒトからヒトへの糞口感染や嘔吐によるエアロゾル感染がある。さらに、SRSVは食品中では増殖せず、わずか数個から100個程度のウイルス粒子の摂取により発症に至り、感染するなどの報告がある⁴⁾。このため、SRSV事例は食中毒であるか感染症であるかを判断することは容易ではない。

今回の事例について、発症者が単一暴露であること、発症率が学年により大きな差は見とめられなかったことから、何か共通な感染源によるものであると考えられるが、追跡調査が行われなかったため、追求には至らなかった。また、給食の調理食品等の入手が困難なため、検査が行われなかったことも残念であり、今後の課題として残るところである。

これからのSRSV感染対策として、感染症法におけ

る感染症発生動向調査情報を利用した病原体検索を取り入れるなどして発生実態を把握し、食中毒及び感染症の両面から感染源及び感染経路の検討をしていく必要があると思われる。また、今後、集団事例が発生した場合、食品や患者など感染源、感染経路について、十分な検体の確保と検査に務めるとともに、分離したウイルスの遺伝子学的解析を迅速に行う必要があると考えられる。

6. ま と め

2001年5月1日に青森県内のN小学校において、感染性胃腸炎と思われる集団発生があった。ウイルス学的検査の結果、電顕法では発症者4名（調理従事者1名を含む）、PCR法では発症者7名（調理従事者1名を含む）からそれぞれSRSV粒子、NVウイルス遺伝子を確認し、さらに、PCR法により検出された増幅遺伝子7検体について塩基配列により解析した結果、

本事例は同一のNVウイルス感染による集団発生であることが示唆された。

本稿を終えるにあたり、ご協力頂いた保健所関係各位に謝意を表します。

文 献

- 1) 関根大正：食品と小型球形ウイルス感染症。日本食品微生物学雑誌，14，135－143，2000.
- 2) 大石功：小型球形ウイルス（SRSV）と食中毒。第22回日本食品微生物学会学術総会講演要旨集，13－14，2001.
- 3) 三上稔之他，：食中毒に起因するSRSVの分子疫学的解析。青森県環境保健センター研究報告，9－11，1998.
- 4) 瀬戸祥介：小型球形ウイルス，防菌防黴，27，4，255－260，1999.

Abstract

Detection of Norwalk Virus in Mass Outbreak of Gastroenteritis at an Elementary School

Rika Tsutsui, Kazuko Ishikawa, Toshiyuki Mikami, Yoshimitsu Otomo, and Etsuko T. Utagawa

A mass outbreak of symptoms of mainly vomiting and abdominal pain, indicative of infectious gastroenteritis, occurred at elementary school N in Aomori Prefecture on May 1, 2001. To determine the cause of the outbreak, with a total of 22 samples of feces from the sufferers and non-sufferers and vomit from the sufferers, the search for virus particles was conducted by electron microscopy and the detection of Norwalk virus genes was attempted by the PCR method. Electron microscopy showed SRSV particles in 4 sufferers including 1 member of the cooking staff and Norwalk virus genes were detected by the PCR method in 7 sufferers including 1 member of the cooking staff. The analysis of the base sequence of PCR-amplified genes from 7 samples showed that this mass outbreak was an infection with the same virus.

Key words : SRSV, Norwalk virus, RT-PCR

マウス肝化学発癌および肺転移に対する リンゴポリフェノールの抑制効果

畑山 一郎 日暮 太一¹ 下平 義隆¹ 獵山 一雄¹

リンゴポリフェノール (apple polyphenol; AP) のマウス肝化学発癌と高肺転移性細胞株 r/mSFME-HM-1 (r/mHM-1) のマウス肺転移に対する抑制効果に関して調べた。生後15日目雄 B 6 C 3 F 1 マウスへの diethylnitrosamine (DEN) の腹腔内投与1週後から、半数には0.5%AP液を混水投与した。DEN投与24週後に肝前癌病巣の数と面積を π クラス glutathione s-transferase の免疫組織染色から計測して両者で比較した結果、AP投与群の肝前癌病巣の数は対照群に較べて45%、面積は23%と低値を示し、APは肝発癌を抑制することが判明した。

また、0.5%APを2週間前投与した雌 balb/c マウスの foot pat に 2×10^5 個の r/mHM-1 を皮下接種し、肺への転移細胞数を AP 非投与群と比較した。接種後4.5週で対照群の 6.7×10^4 に対して AP 投与群は 1.0×10^4 と転移細胞数の減少があり、転移の抑制が認められた。また、培養 r/mHM-1 への終濃度 0.001% 以上の AP 添加で殺細胞効果が見られたが、apoptosis は確認できなかった。

Key words : apple polyphenol, mouse, hepatocarcinogenesis, lung metastasis

1. はじめに

果物や野菜にはヒトの健康を保つ種々の機能性成分が含まれていることが報告されている^{1, 2)}。それらの植物性成分のうち、茶のカテキンなどのポリフェノールには制癌作用のあることが指摘されている³⁾ のに加え、茶とは異なるポリフェノールが含まれているカカオやバナナに関しても、それらの制癌作用や機能性ポリフェノール成分の同定に関して検討がなされている。

リンゴ、特に未熟な果実には多量のポリフェノールが含まれていることが知られている。リンゴポリフェノール (apple polyphenol : AP) にはアトピー性皮膚炎改善効果、血圧上昇抑制作用や抗菌作用などの多様な生物作用がある⁴⁾ が、癌の分野における検討はされてこなかった。

癌は日本における死因の第一位であり、その克服が大きな命題となっている。そのためには、癌治療技術の向上は勿論であるが、細胞の癌化阻止或いは検診等による早期発見という癌の一次予防が重要である。また、癌の進展で最も深刻な状況は転移である。転移を抑えれば、癌はそれほど恐い病気ではない。以上の点

から、本研究では、APの発癌抑制および癌転移抑制効果に関して検討した。

2. 材料と方法

2. 1 試薬と動物

Fibronectin, Dulbecco's modified Eagle's medium nutrient mixture F-12 HAM (F/D medium), insulin, transferrin は SIGMA 社から、DIG Luminescent Detection Kit と DIG DNA Labeling Kit は ベーリンガー・マンハイムから、BioMarker と ベクタステイン ABC キット は フナコシから、制限酵素 Hind III は TOYOBO から、各々購入した。5% AP 含アップルフェノンはニッカウキスキーから入手した。Primer は グライナー・ジャパンで合成した。マウス Pi class glutathione s-transferase (mGSTP1-1) 抗体は既報⁵⁾ の通り作製した。雌 balb/c, 雄 C 3 H/He, 雌 C57BL/6 マウスはチャールズリバーから購入した。B 6 C 3 F 1 は C 3 H/He と C57BL/6 マウスの交配から得られた。

2. 2 マウス肝化学発癌

生後15日令の雄 B 6 C 3 F 1 マウスに 10mg/kg 体重の diethylnitrosamine (DEN) を腹腔内投与し、その1週後に3群に分けた。1群は対照として使用し、残りの2群には実験終了まで0.1%と0.5%APを混水投与した。DEN投与24週後にエーテル麻酔下で断頭屠殺

1 青森大学工学部生物工学科

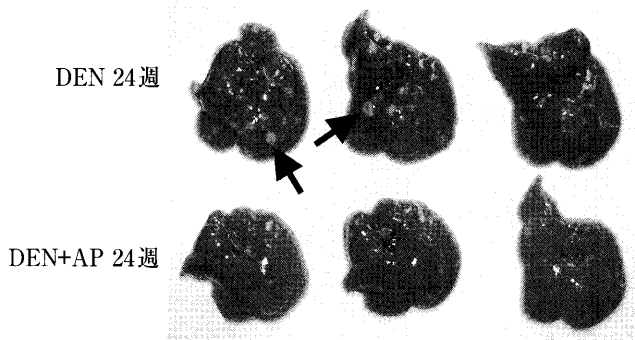


図1 DENで誘発したマウス肝腫瘍のAPによる抑制。矢印は腫瘍を示す。

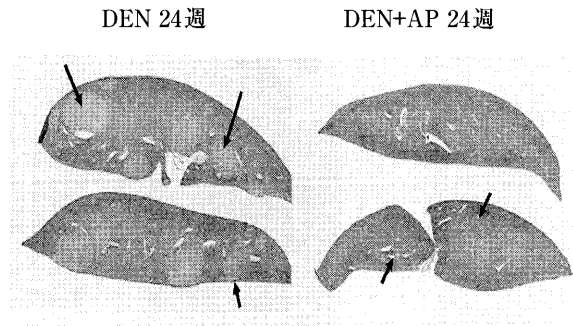


図2 mGSTP1-1の免疫組織化学。矢印はmGSTP1-1陰性巣として検出された肝前癌病巣を示す。

し、肝を摘出後、左葉と中葉を2 mmの厚さに切断して冷アセトンで固定した。肝前癌病巣の免疫染色には第1抗体として10,000倍希釈したmGSTP1-1抗体とABCキットを用いた。雄マウス肝前癌病巣はmGSTP1-1陰性巣として検出された^{5, 6)}。病巣の数と肝に占める面積は、NIH Image computer解析ソフトを用いて算出した。

2. 3 r/mHM-1細胞の肺転移数の測定

r/mHM-1の培養とマウスへの接種および同細胞に導入したヒトc-Ha-ras遺伝子のPCR-Southern hybridizationによる肺への転移数の解析は既報⁷⁾に従った。

2. 4 r/mHM-1細胞数の計測

培養r/mHM-1へのAP添加後、経時的に細胞を回収し、トリパンプルーの排除から生細胞数を計測した。

2. 5 DNAのアガロース電気泳動

培養面積20cm²のボトルで培養したr/mHM-1を回収し、SepaGene DNA抽出キットにてDNAを抽出し、その1μgを2%アガロースで泳動した。

3. 結 果

3. 1 APのマウス肝化学発癌抑制効果

図1にDEN投与24週後の典型的なマウス肝腫瘍の発生パターンを示す。肉眼的には、対照群で平均60個の腫瘍が確認されたのに対し、0.5%AP群では13個(22%)と低値を示した。さらに、正確な前癌病巣の数と面積を計測するために、mGSTP1-1の免疫染色を行った。図2に示すように、雄マウス肝の病巣はmGSTP1-1陰性巣として検出されるが、0.5%AP投与群では明らかに対照群より数、面積共に少なくなっていた。各群10匹の値をまとめたものを図3に示す。

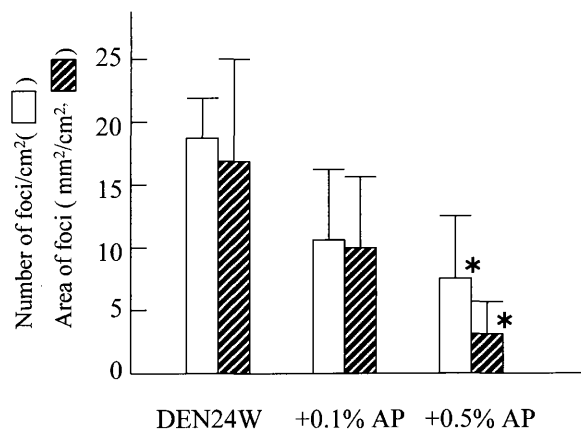


図3 マウス肝前癌病巣の数と占める面積に及ぼすAPの効果。グラフは平均と標準偏差、*はDEN24週の値に対してp<0.05で有意差のあることを示す。

病巣の数は、対照群の18.6 ± 3.6個/cm²に対し、0.1%AP投与群で11.3 ± 5.9個(61%)、0.5%AP投与群で8.3 ± 4.6個(45%)とAP濃度依存性に減少した。また、病巣の肝に占める面積も、対照群の16.7 ± 8.1mm²/cm²に対して0.1%AP群で10.0 ± 5.8(60%)、0.5%AP群で3.8 ± 2.5(23%)に低下した。以上の結果は、APは0.5%で有意にマウス肝化学発癌を抑制することを示す。

3. 2 APの癌肺転移抑制効果

我々は高肺転移性細胞r/mHM-1を用いたマウス肺転移の定量的解析システムについて報告した⁷⁾。この系を使用してAPの転移抑制効果について検討した。

7週令の雌Balb/cマウスを2群に分け、1群には2週間0.5%APを混水投与した。他の1群は対照として

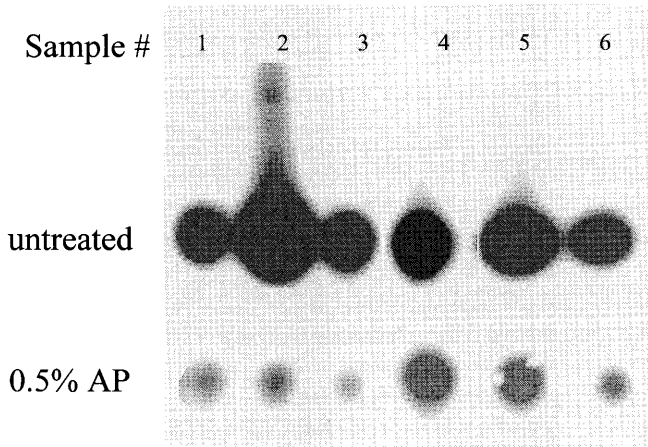


図4 肺転移r/mHM-1のヒトc-Ha-rasのPCR-Southern hybridizationのパターン。Sample番号は各マウス個体を示す。

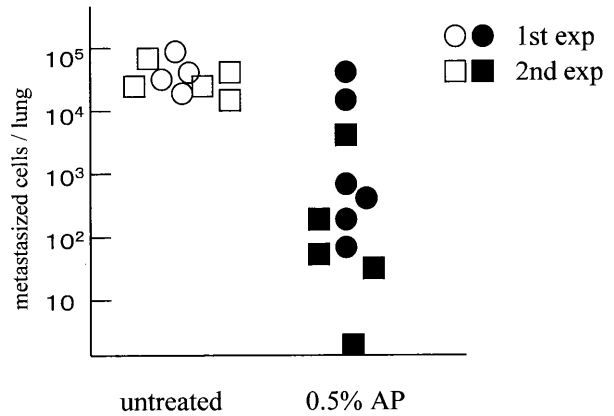


図5 肺転移r/mHM-1細胞数のAPによる減少。1st exp及び2nd expは各々2回の別実験を示す。

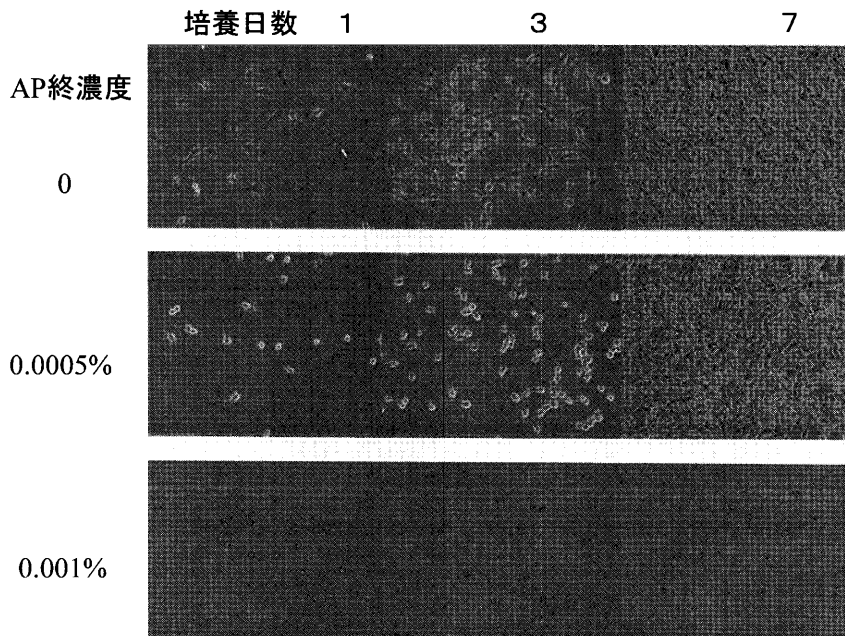


図6 培養r/mHM-1のAPによる細胞形態変化

用いた。全てのマウスの右foot patの皮下に 2×10^5 の細胞を接種し、4.5週後に肺への転移細胞数をr/mHM-1に導入したヒトc-Ha-rasのPCR-Southern hybridizationから計測した。図4にその典型的なパターンを示す。実験は2回行い、標準曲線から値を算出した。図5は2回の実験結果をまとめたものである。対照群の肺への転移細胞数 6.7×10^4 に対して0.5% AP投与群は 1.0×10^4 と85%の抑制が認められた。しかし、AP投与群は 10^3 付近に収斂しているため、例数を増加すれば90%

以上の抑制を示すものと思われる。

3. 3 APの癌細胞殺効果

APのr/mHM-1肺転移抑制は、APの癌細胞殺効果によるものか或いは細胞増殖の抑制によるものか明らかにするため、*in vitro*でのAPの添加実験を行った。

1×10^4 個のr/mHM-1を径3 cmのプラスチックシャーレに播種し、無添加および終濃度0.0005%と0.001% AP添加系で、経時的に細胞数を観察した。図6に示すように、AP無添加対照では、培養7日目では

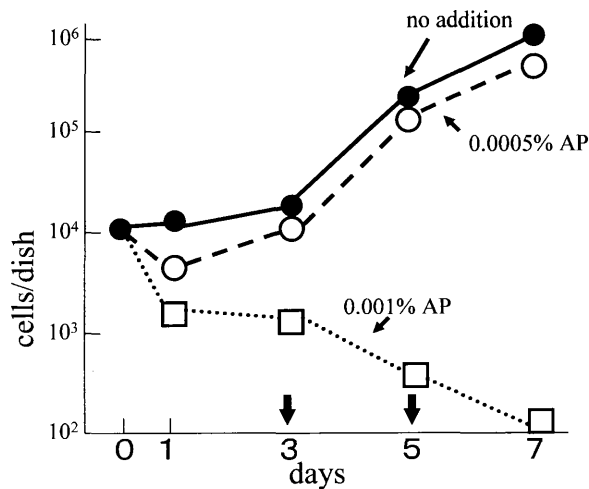


図7 AP処理r/mHM-1の生細胞数の経時変化。各時点の細胞数は3枚のディッシュの平均数を、また、培養日数の上にある矢印は培地交換日を示す。

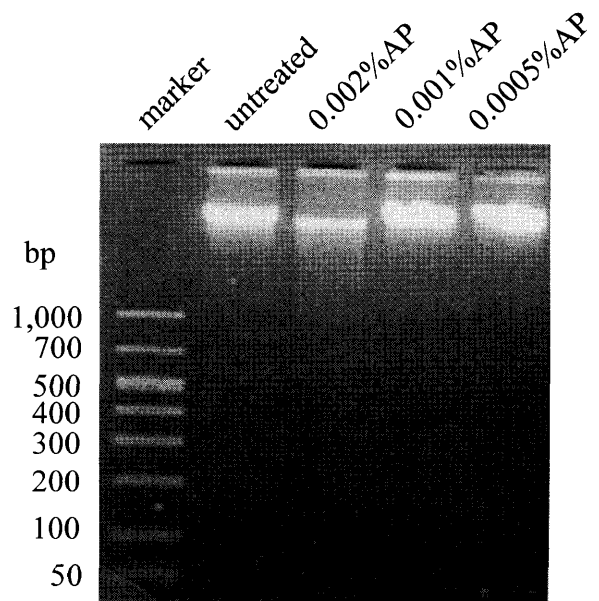


図8 各濃度APで24時間処理したr/mHM-1 DNAのアガロース電気泳動。

ばコンフルエントになった。0.0005% AP添加の増殖形態は、対照と差異が認められなかった。しかし、0.001%では、培養3日目で細胞数が激減した。図7は、各培養時点での生細胞数を示す。この結果は、APは癌細胞の増殖を抑制するのではなく、癌細胞に対する殺効果をもつことを示唆する。APによるr/mHM-1の細胞死はアポトーシスか、またはネクローシスによるのか検討した。

0.0005%から0.002% AP添加24時間後の細胞DNAのアガロース電気泳動では、図8のように180bpを基本としたDNAの断片が認められなかったことから、APの細胞死誘導はアポトーシスによるものでないことを示す。

4. 考 察

本研究において、リンゴポリフェノール (AP) のマウス肝化学発癌及び癌転移に対する抑制効果が明らかになった。発癌は、体細胞の遺伝子変化の段階 (イニシエーション) と、イニシエーションのかかった細胞の増殖を伴う悪性方向への進行であるプロモーション及びプログレッションの多段階からなる。APは、免疫組織化学的にはマウス肝前癌病巣の数よりも肝に占める面積において著明な減少もたらした。この結果は、

APは発癌過程におけるプロモーション段階に抑制的に作用していることを示唆する。しかし、本研究に用いたマウス肝化学発癌は、DENによるイニシエーション後にAPを投与する系であるため、異なる発癌系を用いてAPのイニシエーションに対する効果を検討する必要がある。

APは、0.5%混水投与でマウスの高肺転移性株細胞r/mHM-1の肺転移を顕著に抑制した。APは接種部位の癌細胞を殺すのか、増殖して血管から侵入し血中にある細胞をころすのか、肺に正着した癌細胞を殺すのか、或いはそれら全てに関与しているのか不明である。0.5% AP投与群の接種部位の癌の大きさは、対照群に較べて若干の低値を示したものの有意の差は認められなかった (データ未発表) こと、また、*in vitro*でAP終濃度0.001%で5日以内に殆どの細胞を殺したことは、APの作用として血流によって転移に向かおうとするr/mHM-1を或る濃度以上で存在するAPが殺す可能性が最も高い。しかし、APの体内への吸収率、特にAPの血中濃度と接種箇所の癌細胞内濃度を測定することが必要である。

APは、多くの成分、即ちcatechin, epicatechin, rutin, procyanidin, tannic acidなどからなるため、発癌或いは転移抑制に関与しているAPの成分を同定す

ることが重要である。これまでのところ, tannic acid についてはマウス肝化学発癌, 肺への転移共に著明な抑制効果が認められなかった (データ未発表)。現在, 他のAP構成成分に関して検討をすすめている。

5. 文 献

- 1) Dorte, T. H. et al : A review of mechanisms underlying anticarcinogenicity by brassica vegetables. *Chemico-Biol. Interact.*, **103**, 79 – 129, 1997.
- 2) 今西二郎, 他 : 食品から医薬品を開発する, 医学のあゆみ, **194**, 189 – 192, 2000.
- 3) Santosh, K. et al : Tea antioxidants in Cancer chemoprevention. *J. Cell. Biochem.*, **27**, 59 – 67, 1997.
- 4) Ohnishi-Kameyama, M. et al : Identification of catechin oligomers from apple in matrix-assisted laser des-

orption/ionization time-of-flight mass spectrometry and fast-atom bombardment mass spectrometry. *Rapid Commun. Mass Spectrom.*, **11**, 31 – 36, 1997.

- 5) Hatayama, I. et al : Sex-dependent expression of class pi glutathione S-transferase during chemical hepatocarcinogenesis in B 6 C 3 F 1 mice. *Carcinogenesis*, **14**, 537 – 538, 1993.
- 6) 三浦啓徳, 他 : 遺伝子毒性発癌剤で誘発したマウス肝前癌病巣におけるクラス π glutathione S-transferase II および核内癌遺伝子c-JUNの発現, 青森県環境保健センター研究報告, **6**, 46 – 50, 1995.
- 7) 畑山一郎, 他 : マウス癌の微小肺転移巣の定量的解析法, 青森県環境保健センター研究報告, **11**, 9 – 12, 2000.

Abstract

Inhibitory Effects of Apple Polyphenol on Chemical Hepatocarcinogenesis and Pulmonary Metastasis in Mice

Ichiro Hatayama, Taichi Higurashi, Yoshitaka shimotai and Kazuo Ryoyama

Apple polyphenol (AP) was studied in mice for its inhibitory effects on chemical carcinogenesis in the liver and the pulmonary metastasis of the highly pulmonary-metastatic cell strain r/m SFME-HM-1 (r/m HM-1). Male B6C3F1 mice aged 15 days were given an i.p. injection with diethylnitrosamine (DEN) and half of the mice were given 0.5% AP solution mixed with water from 1 week after the injection. The number and area of the precancerous lesions in the liver were calculated by immunohistological staining of (class glutathione s-transferase and compared between mice in the AP treated and untreated groups at 24 weeks after the injection with DEN. The number and area of precancerous lesions for the AP treatment group were 45% and 23% of the respective values for the control group, showing that AP inhibits liver carcinogenesis.

Two weeks after treatment with 0.5% AP, female balb/c mice were given an s.c. injection of r/m HM-1 cells at 2 (10⁵ into the foot pad to compare the number of pulmonary-metastatic cells between the AP treated and untreated groups. The number of pulmonary-metastatic cells at 4.5 weeks was 1.0 (10⁴ for the AP treatment group and 6.7 (10⁴ for the control group, showing inhibited metastasis. When AP was added to cultured r/m HM-1 to make a final concentration of 0.001% or higher, a cell-killing effect was observed but no apoptosis was detected.

Key words : apple polyphenol, mouse, hepatocarcinogenesis, lung metastasis

粒径組成とC, N, Pからみた十和田湖の底質環境 (1999年)

三上 一 石塚 伸一 早狩 進 野澤 久志 神 毅統 高村 典子¹

十和田湖湖内43地点において底質調査を行い、粒径組成がC, N, Pの堆積状況に及ぼす影響について検討した。その結果、粒径組成はsilt loamが主で、砂は湖岸東～北～西の沿岸域、シルトは休屋前面（西湖）、中湖、粘土は湖央部（北湖）に多く分布していた。T-Cは一部の沿岸域で高いほかは、バラツキがみられた。T-Nは水草帯が発達している休屋前面で、T-Pは湖央部で高かった。粒径組成と成分間の相関をみると、粘土とT-P, HBAP (highly bioavailable phosphorus), BAP (bioavailable phosphorus) との間には良い相関が認められた。このことから、十和田湖では、湖水中の生物利用可能なリンが粘土などの細かい土壌粒子と吸着、沈降し、堆積したものと考えられた。

Key words : lake, sediment, particle size distribution & nutrient.

1. はじめに

底質は集水域から流入する重金属をはじめとする様々な物質を高濃度に含有していることから、これら物質の貯蔵の場である。また、底質に貯蔵されたこれらの物質は水質-底質間の相互作用により水中に回帰し、水質汚濁を引き起こすことから、汚濁物質の供給の場でもある。更に、底質はベントスや水生植物を育む場でもあり、生物生産量や浄化にも寄与している。このため、底質は集水域の汚濁過程、水質汚濁や浄化能を予測するうえで、貴重な情報をもたらす。

粒径組成は底質の構造、保水力、比表面積などの物理的性状と密接に関連することから、重金属類、化学物質などの動態や生態系を考察するうえで、欠かせない項目の一つである。

しかしながら、粒径組成の分画には多大な労力と時間を要するためか、例えば、含有量と粒径組成との関連で論じられること^{1, 2, 3)}は多くないのが実情である。

青森県が行ってきた十和田湖における底質調査の歴史を紐解くと、環境部門では、1973年から鉱山・休廃止鉱山排水による重金属汚染に端を発した一連の底質調査^{4, 5, 6, 7, 8, 9)}、水産部門では、1974～1979年にヒメマス異常斃死の原因調査¹⁰⁾、ヒメマス資源維持培養のためのモニター調査¹¹⁾が報告されている。

これらの調査では、底質からの重金属溶出による水質汚濁やヒメマス漁獲量に及ぼす可能性が指摘されている。

一方、十和田湖における水質調査は、1974年から青森・秋田両県により公共用水域測定計画に基づき水質のモニタリング調査が行われている。1986年にCODが環境基準値（AA類型；1 mg/L以下）を超えて以降、十和田湖における調査・研究は底質調査から富栄養化に着目した水質調査^{12, 13)}に移行したためか、1980年代初頭から底質調査が行われていない。

しかしながら、底質から水中へのリンの溶出が富栄養化に及ぼす可能性が指摘され^{14, 15)}、多くの湖沼では浚渫をはじめとする底質改善対策が行われてきた。十和田湖においても春季循環期には底質から溶

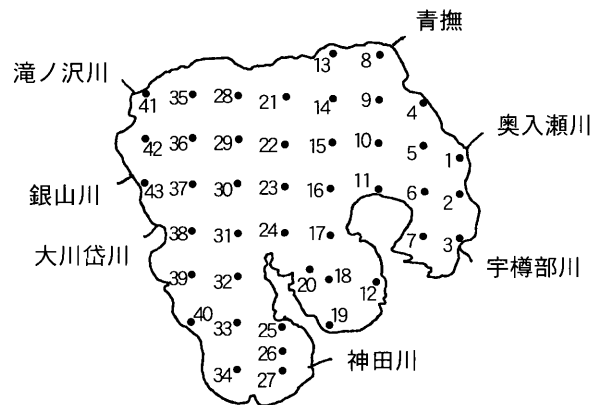


図1 調査地点

1 国立環境研究所

出したリンの湧昇と考えられる現象が観測されていることから、底質と水質を巡る物質循環に着目する必要がある。

ここでは、十和田湖における底質の粒径組成がC, N, Pなどの有機物や栄養塩類の堆積状況に及ぼす影響について報告する。

2. 調査方法

調査は1999年9月14日、9月28日、10月21日で、湖内43地点（1区画500m×500m）においてエクマンバージ採泥器により底質を採取した（図1）。

試料の調整及び分析法は以下のとおりである。採取した試料は実験室に持ち帰り、試料調整まで冷蔵庫に保存後、2mmフルイを通してレキ等を除いた後、遠心分離（30分、3,000rpm）し、沈殿物を試料とした。この際、遠心分離した上澄み液と沈殿物から含水率を求めた。遠心分離した底質を均一に混合し、1夜50℃で乾燥後、乳鉢で粉碎し、均一に混合した乾泥試料は比重、強熱減量（IL）、T-C、T-N、T-P

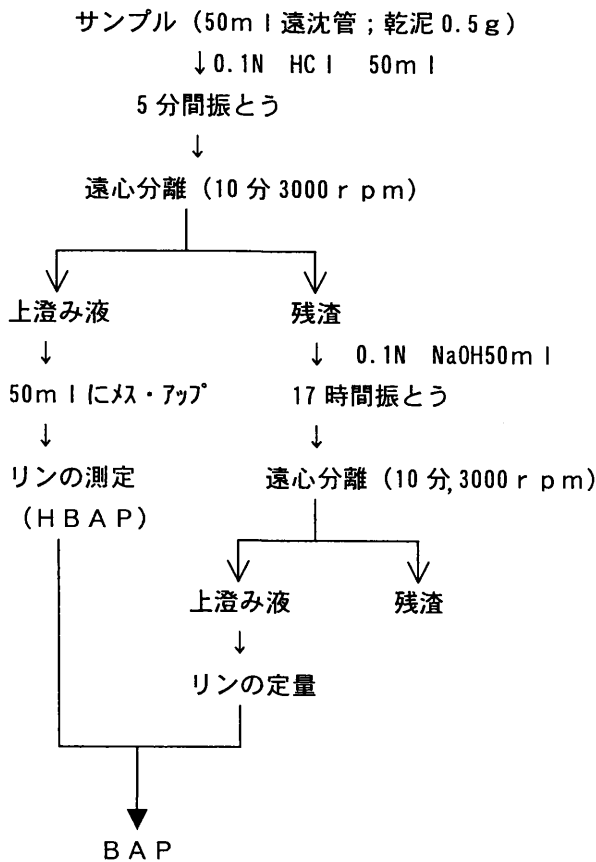


図2 生物利用可能なリンの定量法

及び形態別リンの分析に供した。

一方、遠心分離し、均一に混合した湿泥試料は粒径組成、クロロフィル分解物の分析に供した。

比重は比重ビン法、粒径組成は過酸化水素により有機物を分解後、ピペット・フルイ法により分画し、国際（土壌学会）法に従い、粗砂（直径2.0～0.2mm；以下同じ）、細砂（0.2～0.02mm）、シルト（0.02～0.002mm）、粘土（<0.002mm）に区分した¹⁶⁾。T-C、T-NはCN計、T-Pは硫酸-過塩素酸分解後、モリブデン青法によった。Pearsonの酸・アルカリ抽出法の改変法¹⁷⁾により、リンをHBAP（生物利用可能性が高いリン；highly bioavailable phosphorus）とBAP（生物利用可能なリン；bioavailable phosphorus）に分別定量した（図2）。

3. 概況

十和田湖は青森・秋田両県に跨る湖面積61.06km²、最大水深327.0m、平均水深71.0m、滞留時間8.5年の二重式カルデラ湖である。

十和田湖は休屋前面域の西湖、最も水深が深く火口に当たる中湖、宇樽部川前面域の東湖及び北湖に区分される。休屋前面、宇樽部川前面の水深0～20mの地域には遠浅が僅かに広がるほかは、湖岸が急激に深くなるというカルデラ湖特有の湖盆形態をもっている（図3）。

十和田湖の集水域は外輪山を取り巻く集水域と湖岸北東部に位置し、水力発電用取水と、春季と秋季に逆送水として湖内に渓流水を戻している青撫集水域から

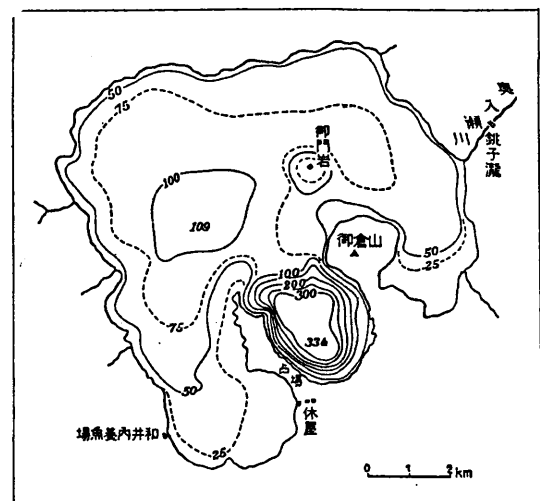


図3 十和田湖の湖盆形態

成っている。外輪山を取り巻く集水域は湖とほぼ同じ
は広さで、98%以上がブナ、ミズナラなどの落葉広
葉樹林である。青撫の集水域は湖を上回る広さで、針
葉樹の植林が行われなど、両集水域では植生や土地利
用形態が異なっている。

十和田湖には、およそ70河川が流入しているとい
われている。このうち、およそ40河川が晴天時でも
十和田湖に流入する河川で、宇樽部川、大川岱川、銀
山川、滝ノ沢川の4河川が主な流入河川である。これ
ら河川のほかに、流入経路として青撫から逆送水があ
る。残りおよそ30河川は融雪期、降雨時にのみ流入
する乾河川である。流出河川は奥入瀬川と青撫での発
電用取水の2経路である¹⁸⁾。

表1 十和田湖湖心における水質の概要
(1999年4月～11月)

項 目	平 均 (最小-最大)
透明度 (m)	10.8 (7.3 - 15.6)
COD (mg/L)	1.2 (1.0 - 1.3)
T-N (mg/L)	0.07 (<0.05 - 0.12)
T-P (mg/L)	0.004 (<0.003 - 0.007)
Chl-a (μg/L)	0.7 (<0.2 - 1.9)

表2 十和田湖底質の基礎統計量 (n=43)

項 目	平均(最小-最大)	標準偏差
水 深 (m)	73.4 (14.0 - 327)	62.8
粗 砂 (%)	2.81 (0.10 - 47.3)	7.98
細 砂 (%)	13.6 (0.37 - 58.4)	15.0
砂 (%)	16.4 (0.62 - 79.0)	19.8
シルト (%)	72.3 (17.1 - 94.3)	21.2
粘 土 (%)	11.2 (1.46 - 60.7)	13.6
含 水 率 (%)	36.3 (16.2 - 48.1)	7.87
比 重	2.41 (2.22 - 2.53)	0.062
強熱減量 (%)	8.72 (4.69 - 16.4)	1.85
TC (mg/kg.dry)	21900 (6900 - 72400)	11000
TN (mg/kg.dry)	1940 (477 - 5370)	909
TP (mg/kg.dry)	1090 (376 - 3430)	656
HABP (mg/kg.dry)	264 (91 - 651)	134
BAP (mg/kg.dry)	789 (195 - 2790)	551
N-BAP (mg/kg.dry)	303 (66 - 644)	137
Chl分解物 (SCDP/100g)**	36 (2.81 - 133)	32.5

注1) N-BAPはT-PからBAPを差し引いたリン含有量と
した。

注2) SCDP: Sedimentary Chlorophyll Degradation
Product Unit

4. 結果と考察

4・1) 水質の概要

青森・秋田両県では、公共用水域測定計画に従い、
4～11月に月1回の頻度で、湖内9地点において水深
0.5mと5m層で、水質測定を行っている。

ここでは、十和田湖湖心における透明度と水深
0.5m層におけるCOD、T-N、T-P及びクロロフィ
ル-aにより水質¹⁹⁾を概観した。

吉見が提唱した多変数富栄養化指数 (MTSI ;
Multiparameter trophic state indices) により十和田湖の
富栄養化を評価²⁰⁾すると、十和田湖は生物活動の乏
しい貧栄養湖といえる。

また、底質—水質間での物質移動には底層における
DO飽和率が大きく関与し、富栄養化した海域、湖沼
では貧酸素水界を形成する夏季には底質からのリンが
溶出し、富栄養化に影響を及ぼしている。

十和田湖湖心における水深100m層でのDO飽和率
の季節変動をみると、水温躍層が最も発達し、DO飽
和率の低下が最大と考えられる夏季～秋季でも70%
を下回ることがなかった²¹⁾。中湖 (水深327m) にお
いてもマルチ水質モニタリングシステム (Ocean7 ;
2001年10月30日) により同様の測定結果が得られた
ことから、十和田湖の湖底直上は年間を通して好氣的
な環境であると思われる。

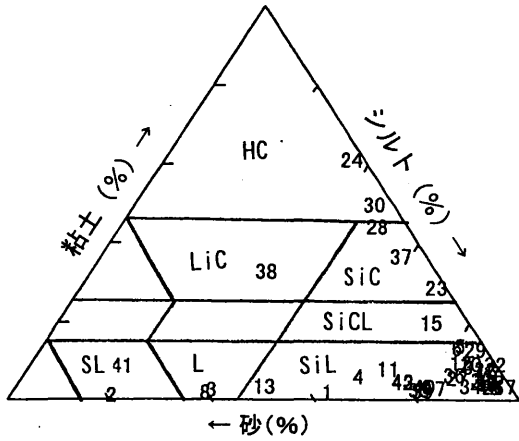
今後、湖心、中湖を対象とした水温、DOなどの季
節変動の計測も必要である。

4・2) 粒径組成と成分量の分布状況

底質を砂 (粗砂と細砂の計)、シルト、粘土に区分
すると、粒径が0.02mm～0.002mmのsilt loamが主で
あった (図4)。

湖内での砂、シルト及び粘土の分布状況をみると、
砂は湖岸東～北～西の北湖沿岸域に多く分布し、湖岸
から急激に水深が深くなる中湖では分布量が少なかっ
た。今回、湖内全域を500mメッシュに分割している
ため、沿岸域での精密な分布状況は不明であるが、中
湖を除く沿岸域では砂の分布量が多いことが推察され
る。特に、宇樽部川、水力発電用取水と逆送水が流入
する青撫、滝ノ沢川近傍の地点では砂の分布量が多い
ことから、沿岸域での分布状況は河川の影響に留意す
る必要がある (図5)。

砂の含有量が高い地点を除いた湖内全域では、底質
はシルト含有量が高く、特に、休屋前面 (西湖) 及び



SL : sandy loam L : loam SiL : silt loam
 SiCL : silty clay loam SiC : silty clay
 LiC : light clay HC : heavy clay

図4 十和田湖底質中の粒径組成 (n=43)

中湖では全域、青撫の沖合で局所的に高かった(図6)。

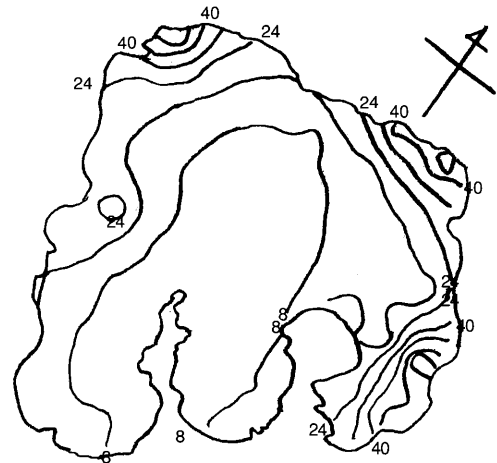
粘土の分布量は湖央部(北湖)で多く(図7)、湖内における砂、シルト、粘土の分布状況に地点間で差が認められた。

近年、多くの湖沼では水質汚濁による透明度の低下や沿岸域の改修工事などにより、水生植物の衰退や消失が問題となっている。一部の湖沼では、消滅した水生植物の復元が試みられているが、復元作業は困難を極めている²²⁾。

十和田湖では、透明度の低下により水生植物の分布域が縮小しているといわれているが、休屋前面、宇樽部川前面の遠浅や沿岸域には水生植物が群生している。十和田湖では、固有種は確認されていないが、各地の湖沼で絶滅している車軸藻類であるヒメフラスコモ、カタシャジクが群生していることから、十和田湖はこれら貴重種の保存の場²³⁾である。また、水生植物は水質浄化や生物多様性に関連していることから、十和田湖の水質改善・保全の立場からも、水生植物の保護・育成が必要である。

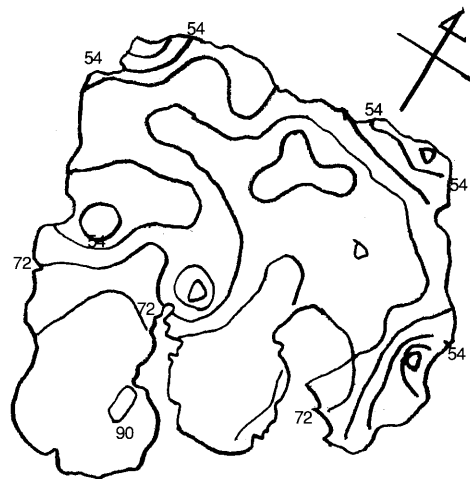
水生植物は透明度と底質の性状に大きな影響を受けており、細砂～シルトから成る砂質帯(2000～63 μm)では水生植物の群生が確認されている²⁴⁾。

今回、調査対象とした沿岸域では、粒径組成は砂～シルトが主であることから、粒径組成からみると十和田湖は良好な水生植物の生息環境を保全しているとい



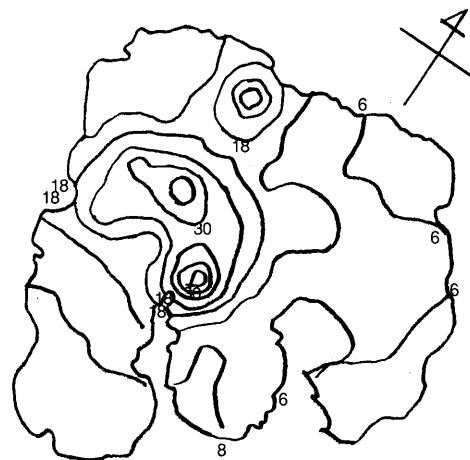
(単位: %)

図5 十和田湖底質中における砂の分布状況



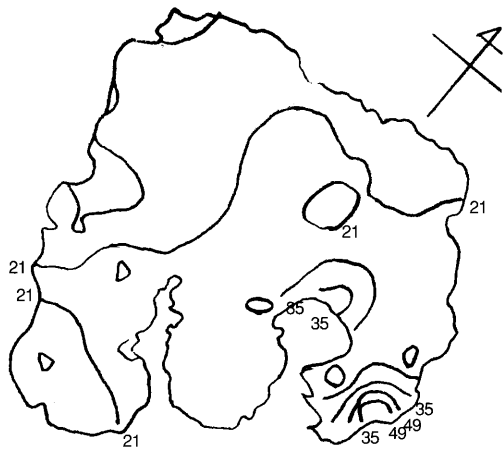
(単位: %)

図6 十和田湖底質中におけるシルトの分布状況



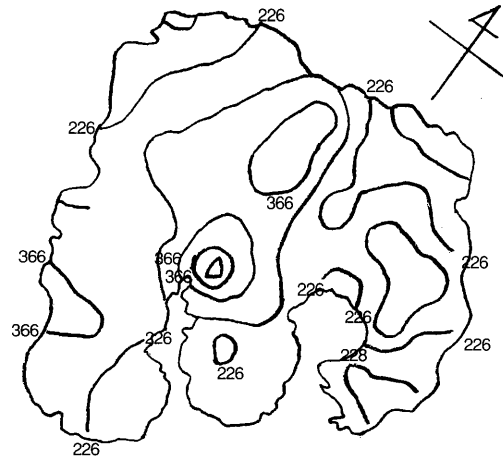
(単位: %)

図7 十和田湖底質中における粘土の分布状況



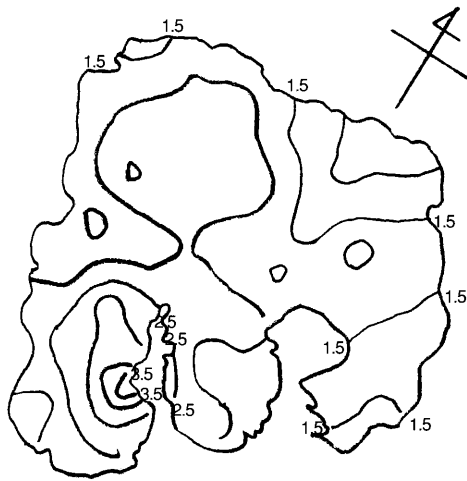
(単位: $\times 1000\text{mg/kg.dry}$)

図8 十和田湖底質中におけるT-Cの分布状況



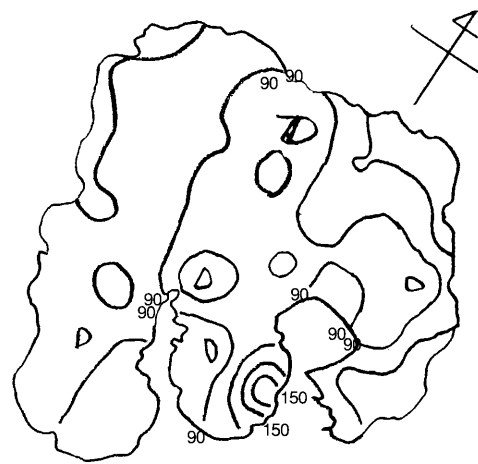
(単位: mg/kg.dry)

図11 十和田湖底質中におけるHBAPの分布状況



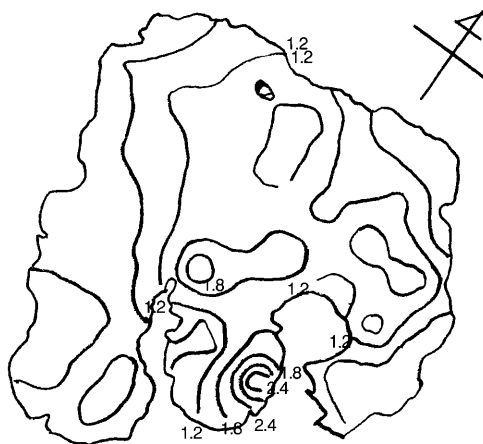
(単位: $\times 1000\text{mg/kg.dry}$)

図9 十和田湖底質中におけるT-Nの分布状況



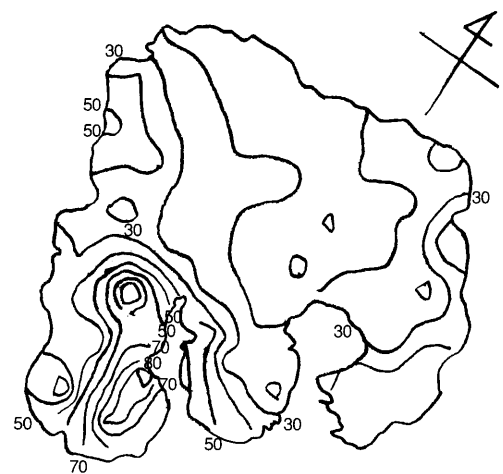
(単位: mg/kg.dry)

図12 十和田湖底質中におけるBAPの分布状況



(単位: $\times 1000\text{mg/kg.dry}$)

図10 十和田湖底質中におけるT-Pの分布状況



(単位: $\text{SCDP}/100\text{g}$)

図13 十和田湖における底質中のクロロフィル分解物の分布状況

える。

十和田湖では水質、生物モニタリングとともに底質のモニタリングが提言されている。粒径組成が水生植物の生息環境に大きな影響を及ぼすことから、底質の微細化と有機物含有量の増大による底質の悪化に主眼を置いたモニタリングも必要であろう。

T-Cは宇樽部川前面（東湖）、中湖と東湖に挟まれた御倉山の沿岸域の一部で高かったほかは、湖内におけるT-Cの分布にはバラツキがみられた（図8）。

T-Nは休屋前面（西湖）、湖央部（北湖）の一部において高かった（図9）。休屋前面の底質はシルト成分が主で、水深0～20mの遠浅では、水生植物が群落を形成している。

底質中のT-Nの大半が有機体窒素から成るといわれていることから、休屋前面でのT-Nは水生植物の枯死体由来のものと考えられた。

T-Pは中山半島地先の湖央部で高かった。一方、中湖の地点No.12のT-P濃度が湖内で最大の含有量であったが、この地点を除いた中湖での底質中のリン含有量は湖内全域の平均濃度を下回っていた（図10）。

生物に利用されることなく鉄、アルミニウムなどと結合し、懸濁態のまま底質に堆積したリンをHBAP（生物利用可能性の高いリン；highly bioavailable phosphorus）とBAP（生物利用可能なリン；bioavailable phosphorus）に分画すると、中湖におけるHBAPの分布状況がT-P、BAPと異なるほかは、概ね、HBAP、BAPともにT-Pに類似した分布を示したことから、3成分の堆積機構が関連していることが示唆された（図11、12）。

クロロフィル分解物の分布量は休屋前面（西湖）で、極めて高かった（図13）。この水域の底質はシルト成分が主であることや水深0～20mの遠浅で、水生植物の生息環境が良好で、群落を形成していることから、クロロフィル分解は水生植物の枯死体由来のものと考えられた。一方、宇樽部川前面は休屋前面とともに、水生植物の群落帯であるが、No.3、No.7ともに、この群落帯から外れているためクロロフィル分解物が少なかった。

4.3) 粒径組成と成分間の関係

閉鎖性海域である陸奥湾を対象とした底質調査では、水深は底質中の粒度分布やリンを除いた栄養塩類や有機物の堆積状況と関連し、水深がこれらの堆積状

況に大きな影響をもっていた。一方、同じ閉鎖性水域である十和田湖では水深と粒径組成や各成分間では殆ど相関が認められなかった。

青森県内の天然湖沼などを対象とした調査では、水深が浅い湖沼ほどT-N、T-Pが急激に増加し、富栄養化が進行しやすい傾向にあった。このことから、水深の浅い湖沼ほど植物プランクトン増殖が盛んで、底質への沈降量も増加することから、水深と底質中の有機物、栄養塩類の含有量の間では相関をもつことになる。

しかしながら、十和田湖の場合、水深が深く、カルデラ湖特有の湖盆形態をもつ貧栄養湖であるため、水深と底質中の有機物や栄養塩類の間には有意な相関をもたないものと考えられた。

粒径組成と成分間の相関をみると、砂とT-NとT-P、HBAP、BAP、N-BAPが負の相関、シルトとT-Nが正の相関、粘土とT-P、HBAP、BAPが正の相関、T-Cと粒径組成の間では相関が認められなかった。C、N、Pの3成分は有機物を構成する主要成分であるが、これら3成分と粒径組成との間に類似した相関が認められなかったことは、これら3成分の由来や構成成分が異なることが示唆された。

C、N、Pの3成分間では、T-CはT-Nとの間で比較的良い相関が認められるほかは、相関が認められなかったことも、これを支持するものと考えられた。

一方、これら3成分と他成分との相関をみると、T-Cは強熱減量と最も良い相関をもつが、クロロフィル分解物との間に相関がないことから、T-C中には高濃度の無機炭酸塩の存在が考えられた。T-Nとクロロフィル分解物との間で良い相関が認められた。これは休屋前面では水生植物が群落しており、この枯死体由来のものと考えられた。T-Pと形態別リンの間には良い相関が認められたことから、底質中のリンの堆積機構が相互に関連していた。形態別のリンとクロロフィル分解物が負の相関、T-P、HBAP、BAPが粘土と正の相関をもつことから、十和田湖の底質中のリンは非生物由来で、粒径組成に依存しないN-BAPと粘土に結合し、粒径組成に密接に関連するHBAP、BAPから成るものと考えられた。

また、比重はクロロフィル分解物など有機物と関連していることから、水生植物の生息状況を知るうえで、粒径組成とともに底質のモニタリングに有用な項目の一つである（表3）。

表3 十和田湖底質の相関図表 (n=43)

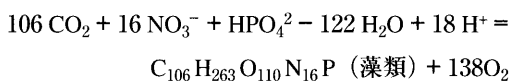
	水深	砂	シルト	粘土	含水率	比重	IL	T-C	T-N	T-P	HBAP	BAPN-BAP	Chl	
水深	1.00													
砂	-0.25	1.00												
シルト	0.18	-0.78	1.00											
粘土	0.07	-0.24	-0.42	1.00										
含水率	0.21	-0.62	0.46	0.18	1.00									
比重	0.09	0.31	-0.38*	0.15	-0.27	1.00								
IL	-0.17	-0.25	0.21	0.03	0.35*	-0.53	1.00							
T-C	-0.13	0.01	0.03	-0.07	0.18	-0.51	0.91	1.00						
T-N	-0.11	-0.45	0.35*	0.11	0.63	-0.60	0.56	0.38*	1.00					
T-P	0.08	-0.43	0.19	0.33*	0.15	0.10	0.14	0.03	0.03	1.00				
HBAP	0.20	-0.50	0.19	0.42	0.46	0.10	0.07	-0.03	0.17	0.70	1.00			
BAP	0.10	-0.42	0.18	0.32*	0.17	0.12	0.09	-0.01	0.04	0.99	0.75	1.00		
N-BAP	0.02	-0.38*	0.19	0.25	0.05	0.01	0.29	0.16	0.00	0.80	0.32*	0.71	1.00	
Chl	-0.27	-0.04	0.19	-0.23	0.27	-0.64	0.26	0.22	0.61	-0.53	-0.39*	-0.51	-0.49	1.00

* : 5%有意 (>0.30) □ : 1%有意 (>0.39)

表4 十和田湖底質中C : N : P比 (n=43)

	C	N	P
平均	27.3	2.44	1.00
最小	6.78	0.61	1.00
最大	116	13.2	1.00

光合成により植物プランクトンは以下の式により増殖する。

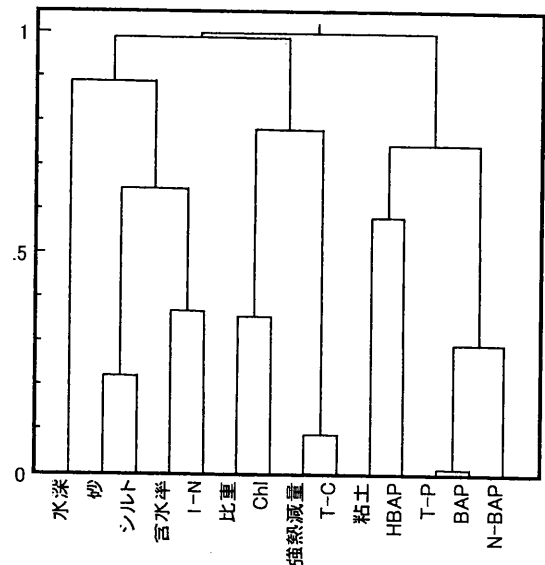


このため、植物プランクトンはC : N : P = 106 : 16 : 1の組成比をもつことになる。

今回、対象とした十和田湖湖内43地点におけるC : N : P比が植物プランクトンの組成比と異なっていた(表4)。このことから、十和田湖の底質中のC, N, Pの主たる起源は植物プランクトン以外の非生物由来であるといえる。

粒径組成とC, N, Pの関係をデンドログラムにより検討すると、粘土とHBAPおよびT-P, BAP, N-BAPのクラスターが組み合わせをつくったことから、リンの堆積状況は粒径組成に依存していることが示唆された(図14)。

十和田湖における主要なリンの供給源である河川水中のリンを形態別にみると、生物利用可能な形態で、溶解性のリン酸態リンが大部分であった¹⁶⁾。

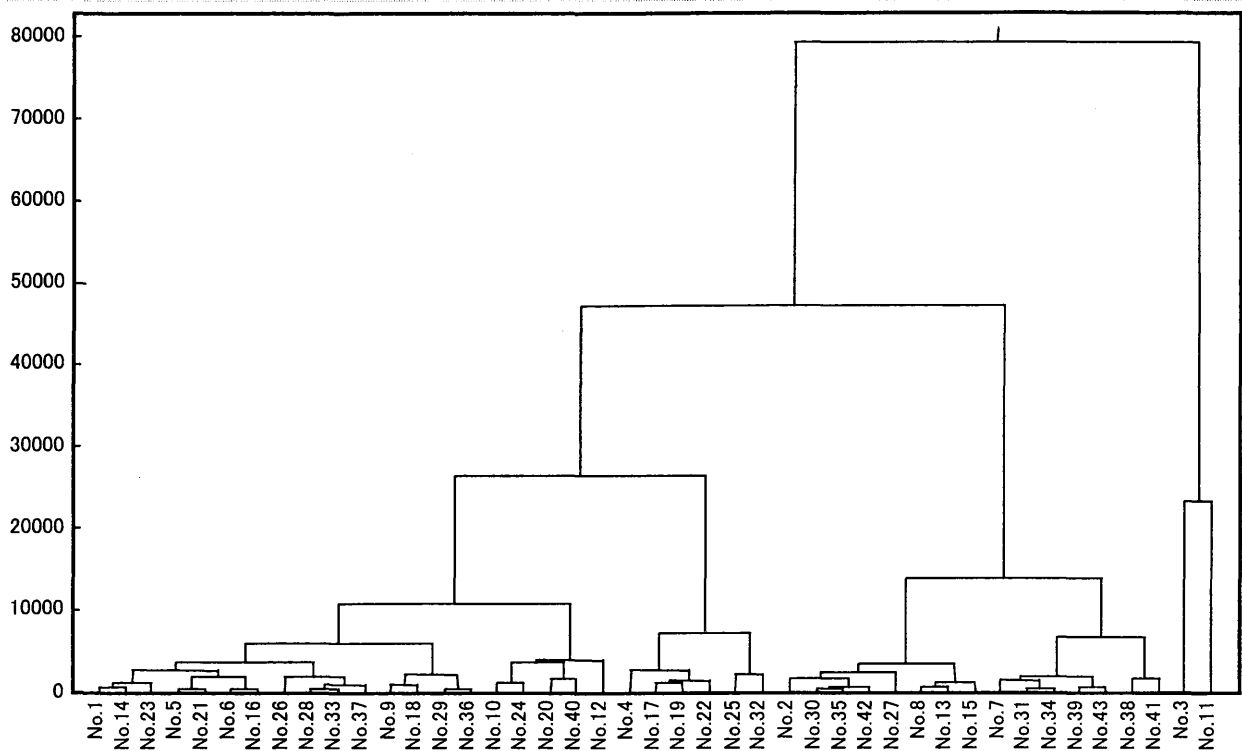


類似度計算法 : 1- 相関係数
要約集 : 最長距離法

図14 十和田湖底質のデンドログラム (n=13)

一方、底質中には、生物に利用されることなくHBAP, BAPとして高濃度に含まれていることから、流入した溶解性リンは不溶解性リンに変換され、堆積したことになる。

更に、底質の粒径が細かくなるとともに、T-P, HBAP, BAPともに含有量が高く、粘土とHBAPがクラスターをつくることから、湖水中の生物利用可能性



類似度計算法：ユークリッド平方距離
要約集：ウオード法

図15 十和田湖底質のデンドログラム (n=43)

が高いリンが粘土粒子に吸着、沈降し、堆積したものと考えられた。このことから、粘土はリンの除去体として働きをもつといえる²⁴⁾。

デンドログラムにより地点間の類似度をみると、3グループに区分された。第1グループ (No.1~32) は河川の影響があまり受けず、底質の攪乱が少ないため、湖内の汚濁状況をより反映している地点であると考えられた。一方、第2グループ (No.2~41) は宇樽部川をはじめとする比較的大きな河川が流入する近傍の沿岸域であることから、陸域からの影響が大きい地点で、集水域の汚濁状況を反映している地点と考えられた。また、第3グループ (No.3, 11) は、粒径が砂で大きいにもかかわらず、T-Cが高い地点であるため、特異な地点と考えられた (図15)。

5. ま と め

十和田湖では、1986年以降、CODが環境基準値 (AA類型：1mg/L以下) を超えていることから、1995~2000年に国立環境研究所などと共同研究を行い、

十和田湖の水質・生態系改善行動指針²⁶⁾ を策定した。行動指針では、水質・生態系のモニタリングとともに底質モニタリングが提言されている。

ここでは、十和田湖における底質の性状、水質と底質の相互作用を明らかにするため、湖内43地点において粒径組成とC, N, Pに係る底質調査を行った。その結果、

- (1) 粒径組成はsilt loamが主で、砂は湖岸東~北~西の沿岸域、シルトは休屋前面、中湖、粘土は湖央部で高かった。
- (2) 水深0~30mの沿岸域は砂~シルト帯で、良好な水生植物生息の環境が保全されていると考えられた。
- (3) T-Cは一部の沿岸域で高かったほかはバラツキがみられ、湖内での分布状況は粒径組成に依存していなかった。
- (4) T-Nはシルトが主で、水草が群生している休屋前面で高く、湖内での分布状況は粒径組成と水生植物の生息状況に依存していた。

- (5) T-P, HBAP, BAPともに中山半島地先の湖央部で高く、粘土との間により相関が認められ、湖内での分布状況は粒径組成に大きく依存していた。また、デンドログラムではこれらの項目がクラスターをつくることから、十和田湖では湖水中の生物利用可能なリンが粘土に吸着、沈降し、堆積したものと考えられた。
- (6) デンドログラムでは宇樽部川などの河川近傍地点では、陸域からの影響が考えられた。

文 献

- 1) 三上 一, 他: 粒度組成からみた陸奥湾底質中の栄養塩類の堆積状況. 青森県環境保健センター研究報告 11, 37-45, 2000.
- 2) 奈良 忠明, 他: 粒度組成からみた湖沼底泥の重金属及び有機物の挙動. 青森県公害センター所報 第8号, 47-54, 1987.
- 3) 小林 節子, 他: 東京湾底質の粒度分布. 用水と廃水. 19, 1398-1406, 1977.
- 4) 細川 可興, 他: 十和田湖に関する調査(第1報) 青森県公害センター所報 第1号, 137-153, 1975.
- 5) 細川 可興, 他: 十和田湖に関する調査(第2報) 青森県公害センター所報 第2号, 96-102, 1976.
- 6) 細川 可興, 他: 十和田湖に関する調査(第3報) —重金属による環境等影響調査—. 青森県公害センター所報 第3号, 118-125, 1977.
- 7) 野田 正志, 他: 十和田湖周辺岩石の重金属(その1) Cu, Zn, Pb, Cd, Mn, Ni, Coについて. 青森県公害センター所報 第4号, 120-124, 1979.
- 8) 野田 正志: 十和田湖周辺岩石の重金属(その2). 青森県公害センター所報 第5号, 91-95, 1981.
- 9) 野田 正志: 十和田湖の底質と周辺土壌及び岩石の関連性. 青森県公害センター所報 第6号, 57-62, 1983.
- 10) 長峰 良典, 他: 十和田湖資源対策事業調査報告書(昭和42年~55年度調査結果の総括), 1981.
- 11) 林 義孝, 他: 十和田湖資源対策調査—Ⅱ底質調査. 昭和59年度青森県内水面水産試験場事業概要, 153-177, 1986.
- 12) 根岸 勝信, 他: 十和田湖周辺事業場の排水調査. 青森県公害センター所報, 第8号, 98-104, 1987.
- 13) 工藤 健, 他: 十和田湖の水質汚濁に関する考察. 青森県公害センター所報, 第9号, 48-57, 1989.
- 14) 本橋 敬之助: 底泥からのリンの溶出と溶存酸素. 水質汚濁研究, 第9巻, 第1号, 45-48, 1986.
- 15) 細身 正明, 他: 湖沼底泥からのリンの溶出に関する研究. 水質汚濁研究, 第2巻, 第3号, 157-162, 1972.
- 16) 日本土壤肥料学会監修土壤標準分析・測定法委員会編: 土壤標準分析・測定法. 142, 1988, 博友社.
- 17) 秋田尚美, 他: 湖沼底泥中の生物利用可能リン定量方法の検討, 第35回日本水環境学会年会講演集, p.338, 2001.
- 18) 三上 一, 他: 十和田湖の負荷量調査(1999~2000). 国立環境研究所研究報告, 第167号, 高村典子編; 十和田湖の生態系管理に向けてⅡ. 1-14, 2001.
- 19) 青森県: 平成11年度公共用水域及び地下水の水質測定結果. 365-366.
- 20) 三上 一, 他: 湖沼の富栄養化に関する調査研究(I) —AGP試験及び多変数富栄養化指数からみた青森県の湖沼—. 全公研会誌 Vol.15, No.3, 113-118, 1990.
- 21) 青森県: 十和田湖水質汚濁機構解明調査報告書(平成7~9年度). 平成10年11月.)
- 22) 毎日新聞: 急速に姿消すシヤジクモ類—湖沼の汚染を反映. 1999年2月20日付け.
- 23) 野原 精一, 他: 十和田湖の水生植物の現状—1997年の調査結果から. 国立環境研究所研究報告 第146号 49-54, 1999.
- 24) 野原 精一, 他: 十和田湖の水生植物分布の現状と現存量. 国立環境研究所研究報告 第167号 64-74, 2001.
- 25) A.レルマン編奥田 節夫, 他監修: 湖沼の化学—化学 地質学 物理学. 147-148, 古今書院, 1984.
- 26) 青森県・秋田県: 十和田湖水質・生態系改善行動指針—恵み豊かで澄んだ水, 十和田湖を未来の子供たちへ—. 平成13年8月.

Abstract

Sedimentary Environment from Viewpoint of Particle Size Distribution and C, N, P in Lake Towada (1999)

Hajime Mikami, Shin-ichi Ishizuka, Susumu Hayakari, Hisashi Nozawa,
Taketo Jin and Noriko Takamura

The sedimentary environment was studied at 43 points of Lake Towada to examine the effect of particle size distribution on C, N, and P depositions. As a result, the main particle size distribution was found to be silt loam and sand distributed mainly on the east, north, and west shores of Lake Towada ; silt in front of Yasumiya (the west area of the lake) and in the middle of the lake, and clay in the center of the lake (the north area of the lake). T-C was high in some parts of the littoral region and varied widely in other places. T-N was high in front of Yasumiya where many water plants grow and T-P was high at the center of the lake. With respect to the relation of the particle size distribution to the elements, there was a high correlation of clay with T-P, HBAP (highly bioavailable phosphorus), and BAP (bioavailable phosphorus). These results suggest that bioavailable phosphorus in water was adsorbed by fine earth particles, which settled and were then deposited in Lake Towada.

Key words : lake, sediment, particle size distribution, nutrient

The estimation of emission sources of heavy metals of hazardous air pollutants in Hachinohe city

Ryuji Hanaishi, Susumu Hayakari, Teruo Saito, Toshiyuki Takahashi¹⁾ and Shin-ichi Ishizuka

The estimation of emission sources of heavy metals of hazardous air pollutants in Hachinohe city was described. Cluster analyses and single correlation analyses revealed similar behavior of nickel and chromium and of arsenic and mercury, respectively. By the analyses of correlations between frequencies of wind directions and the concentrations of the heavy metals in air, nickel and chromium were supposed to be emitted from a ferronickel factory and sources of arsenic and mercury were estimated to be a non-ferrous metal smelter and/or a steel factory. Furthermore, by analyzing the chemical compositions of the factory dust samples, arsenic was thought to come from the non-ferrous metal smelter. It also became possible to discuss where emission sources of nickel and chromium were in the ferronickel factory.

Key words :hazardous air pollutants, heavy metals, dust

1. Introduction

In the hazardous air pollutants (HAPs) monitoring in Aomori prefecture, measurements of heavy metals including nickel, chromium, manganese, arsenic, mercury and beryllium have started since 1999 at one site in Aomori city and at two sites in Hachinohe city.

The measurements of HAPs in 1999 were frequently obliged to be carried out in rainy days. When it rains during the measurement of atmospheric heavy metals, the concentrations of atmospheric suspending dust tends to decrease and the concentrations of atmospheric heavy metals are reduced.

In the investigations in 2000, nickel, chromium, manganese, arsenic and mercury were detected at much higher levels than the lowest limits of quantification at the two sites in Hachinohe city from spring to fall. In this season, i.e. from May to September, fortunately it did not rain during investigation periods and we could obtain measurement results without influence of rainfall. From spring to fall, the yamase wind blows in the Hachinohe area. This

yamase wind, which is an east wind, blows in the direction from the seaside where factories are built to a central part of Hachinohe. Furthermore, from May to September, principal wind directions in the investigation periods changed gradually. Namely, in the investigations of HAPs in Hachinohe city from May to September in 2000, no influence of rain existed and the most frequent wind directions shifted successively, thus we were lucky enough to be able to learn of the influences of emission sources in the area. In this paper, analyses of results of the investigations of atmospheric heavy metals of HAPs in Hachinohe city in 2000 are described so as to elucidate emission source factories. Finally, we estimate where emission sources were in the factories, by using results of chemical analyses of factory dust samples which were collected when we inspected the factories.

2. Methods

2. 1 Sites of investigations

The investigations were performed at two sites in Hachinohe city, i.e. Hachinohe primary school and Negishi primary school, once a month with the sampling

1) Drainage facility section, sewerage department of Hachinohe city

period of 24 hours. Locations of the sampling sites and of three principal metal factories are depicted in Figure 1. The factory A is a non-ferrous metal smelter which produces zinc, lead and cadmium. The factory B makes steels and it possesses an electric furnace. The factory C is a ferronickel factory and it had produced stainless steel until 1999.

2. 2 Methods of investigations of HAPs

The atmospheric heavy metals were measured according to manuals for measurements of hazardous air pollutants published by the ministry of the environment in Japan. Detailed materials on the methods of chemical analyses were reported separately¹⁾.

Nickel, chromium, beryllium, manganese and arsenic in the air were collected with high-volume air samplers on quartz fiber filters. Mercury was sampled by a gold-amalgam method. Wet decompositions in the chemical analyses of nickel, chromium and manganese were made with nitric acid, hydrofluoric acid and hydrogen peroxide in pressure vessels. For the analyses of arsenic and beryllium, acid digestions with nitric acid and hydrogen peroxide were done in pressure vessels. The concentrations of nickel, chromium and beryllium in the pre-treated solutions were determined by the method of standard addition

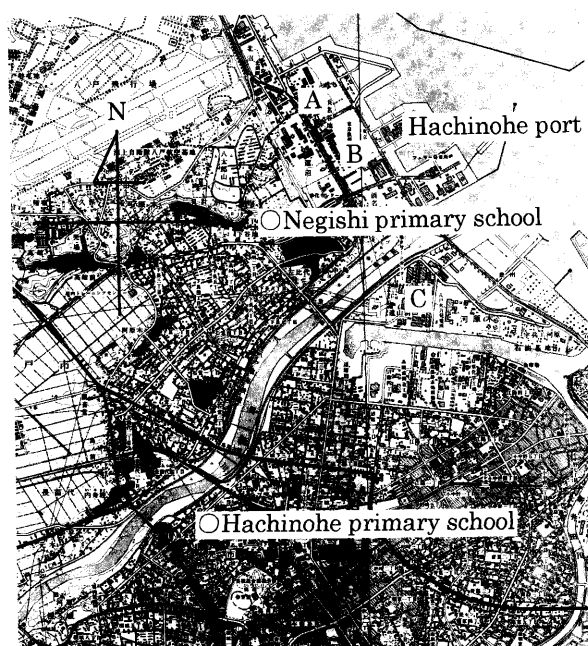


Figure 1 Locations of the sampling sites (○) and three principal metal factories (A, B and C).

of the graphite furnace atomic absorption spectrometry. The concentrations of manganese were measured by the flame atomic absorption spectrometry. The arsenic concentrations were quantified by the hydride generation atomic absorption spectrometry. Atmospheric mercury collected with gold-coated diatomaceous soil was quantified by the heat-gasification atomic absorption spectrometry.

2. 3 Methods of numerical analyses

Analyses of environmental data were carried out by using spreadsheet application add-in programs which were coded by SH and were run on a personal computer. The used add-ins were as follows: add-ins for single correlation analyses, for repeat-summing up and for making graphs on a map, and series of add-ins for statistical analyses. These spreadsheet application add-ins can be freely obtained from a web site²⁾ on the Internet.

2. 4 Methods of chemical analyses of the dust samples of the emission source factories

Dust samples collected in inspections to the metal factories were chemically analyzed with acid digestions. Table I shows the analysis methods. To ca. 50 mg of

Table 1 Methods for chemical analyses of heavy metals contained in factory dust samples.

Element	Used acids and oxidizer in pre-treatments with pressure vessels	Method of instrumental analysis
Ni	HNO ₃ /HF/H ₂ O ₂	Flame atomic absorption spectrometry
Fe		
Zn		
Cd		
Mn		
Cu		
Cr	HNO ₃ /H ₂ O ₂	Hydride generation atomic absorption spectrometry
Pb		
As		

the dust samples were added acids and oxidizer with the same amounts as used in the HAPs analyses.

If hydrofluoric acid is used in wet decomposition, evaporation of acids after the wet digestion is then needed. In some cases, lead was included in some insoluble solids produced after evaporation and these phenomena caused negative errors in the analysis results. Therefore, lead was analyzed by acid digestion without using hydrofluoric acid. Table 1 tabulates the analysis methods for the factory dust.

3. Results and discussion

3. 1 Monthly changes of concentrations of atmospheric heavy metals

(1) Weather conditions in investigation periods

Table 2 is filled with weather conditions in periods of the investigations in 2000. The principal wind directions and averaged wind velocities were calculated by the use of one-hour values of Hachinohe primary school station of the air pollution monitoring system in Aomori prefecture. Some averaged wind velocities were different between the two sites, because starting and ending times of sampling differed.

From May to September, no rains were observed in the investigation periods, thus mass concentrations of suspending dust in the air did not decrease due to rainfall. Furthermore, the principal wind direction changed from May to September just as if it gradually changed through NNE to SW.

(2) Rough trends of concentrations of atmospheric heavy metals

Firstly, in order to understand broad tendencies of concentrations of heavy metals in the air, the monthly changes from May to September when it did not rain during the periods of the investigations are shown in Figure 2.

Nickel and chromium behaved similarly to each other. These had their maximum concentrations in June at Hachinohe primary school, and in August at Negishi primary school, respectively. Furthermore, trends of arsenic and mercury were similar to each other. These concentrations were high in May and June at Hachinohe primary school, and at Negishi primary school the maximum was observed in May. Manganese behaved moderately, between the nickel-chromium group and arsenic-mercury group. Beryllium concentrations were below the lower

Table 2 Weather conditions in investigations of HAPs in 2000.

Month	Hachinohe primary school			Negishi primary school		
	Weather	Principal wind direction	Averaged wind velocity (m/s)	Weather	Principal wind direction	Averaged wind velocity (m/s)
4	Rainy	NE	2.4	Rainy	NE	2.3
5	Fine	NNE	2.1	Fine	NNE	2.1
6	Fine	NE	1.4	Fine	NE	1.4
7	Cloudy	ENE	1.8	Cloudy	ENE	1.9
8	Cloudy	ESE	2.0	Cloudy	ESE	2.1
9	Cloudy	SW	2.3	Cloudy	SW	2.3
10	Rainy	SW	1.6	Rainy	SW	1.6
11	Cloudy	W	3.2	Cloudy	W	3.3
12	Rain	W	4.5	Rain	W	4.5
1	Snowy	W	4.7	Snowy	W	4.8
2	Snowy	WNW	1.6	Snowy	WNW	1.6
3	Snowy	WSW	5.5	Snowy	WSW	5.3

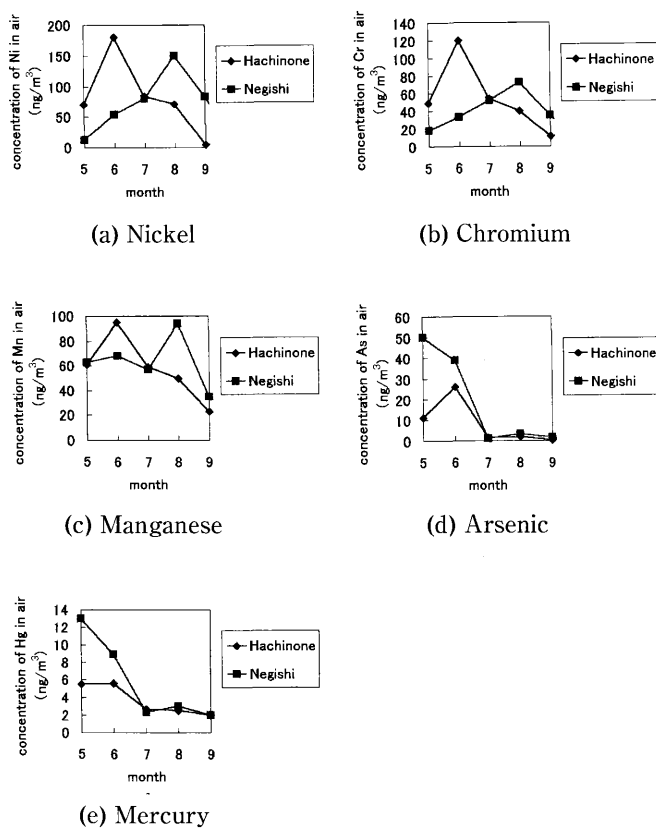


Figure 2 Monthly changes of concentrations of heavy metals in air at two sites, Hachinohe primary school and Negishi primary school.

limit of quantification in the all investigation periods at both sites.

(3) Comparisons of atmospheric heavy metal concentrations with the environmental quality standards in foreign countries

No environmental quality standards of concentrations of these atmospheric heavy metals were published in Japan, but for reference concentrations are compared with the 10^{-5} risk levels of the U. S. EPA etc. Here, breathing air containing pollutants with the concentrations of the 10^{-5} risk levels are estimated to result in not greater than a one-in-a-hundred thousand increased chance of developing cancer, by the use of mathematical models based on animal studies. Therefore, these risk levels should be compared with the annual average concentrations of heavy metals.

In table 3, comparisons of the annual average

Table 3 Comparisons of annual averages of concentrations of atmospheric heavy metals in Hachinohe city in 2000 with environmental quality standards in foreign countries (Units of the concentrations are ng/m^3)

* : Annual average of total chromium concentration
 ** : The risk level for chromium (VI) concentration

Element	Hachinohe primary school	Negishi primary school	Environmental quality standards of foreign countries
Ni	37	34	40
Cr	30*	21*	0.8**
Be	0.017	0.020	4
As	4.4	9.2	2
Mn	37	38	150
Hg	2.7	3.7	1000

concentrations of heavy metals in the air with these risk levels and the other environmental quality standard of foreign countries are made for reference.

In addition, we compare these risk levels etc. with the monthly data. The concentrations of nickel almost exceeded the risk level from May to September. The concentrations of arsenic were much greater than the risk level in May and June. For manganese and mercury, the concentrations did not exceed the WHO European secretariat guidelines. The risk level of chromium is applied to chromium (VI) and the investigations of HAPs reported here measured total chromium, so it was impossible to conclude that the chromium concentrations observed exceeded the risk level.

3. 2 Single correlation analyses

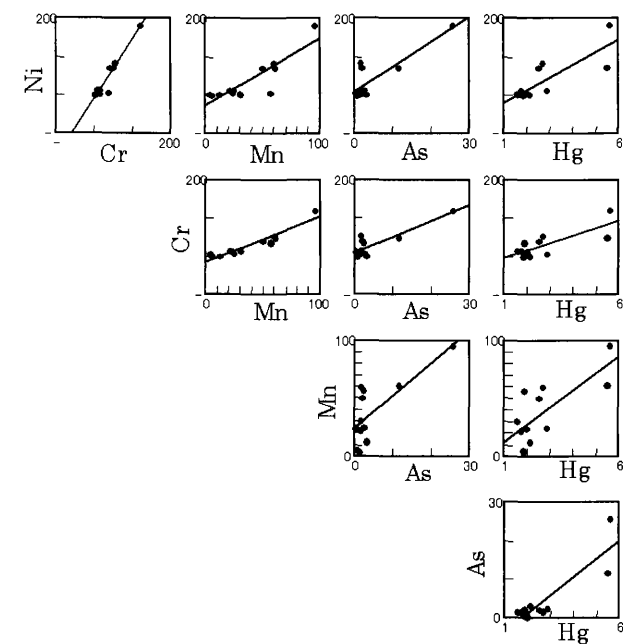
Results of single correlation analyses are

shown in Figure 3. All units used here were ng/m^3 . Here, a solid line indicates that the correlation is significant at a significant level of 5%. Points in common between observed data at Hachinohe primary school and at Negishi primary school were good correlations between nickel and chromium and between arsenic and mercury, respectively. Manganese is highly correlated with chromium in

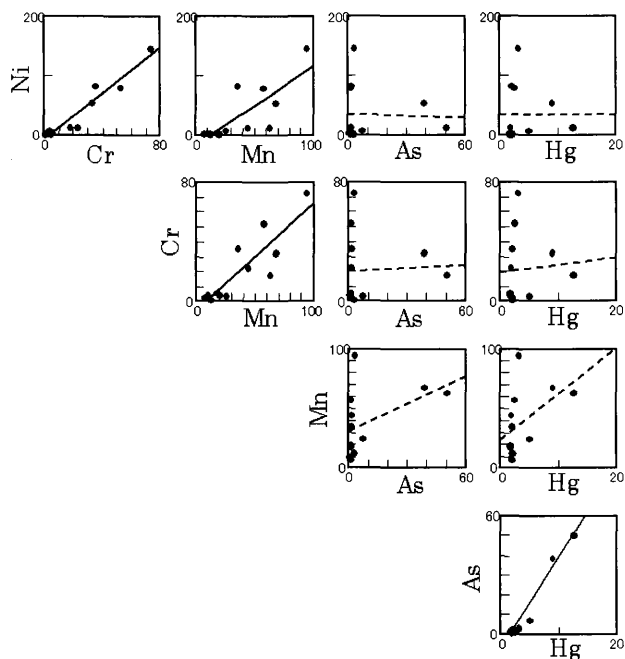
Hachinohe primary school.

3. 3 Cluster analyses

Cluster analyses are of assistance in understanding results of single correlation analyses. The results are shown in Figure 4. These cluster analyses were made on items of pollutants by taking the distance of $1 - |\text{correlation coefficient}|$ based on the Ward method. The longitudinal scales are different in the two graphs. At the both two sites of Hachinohe primary school and Negishi primary school, it turned out that nickel and chromium, and arsenic and mercury made combinations, respectively. These analysis results are equivalent to the results obtained in the single correlation analyses described in 3.2.

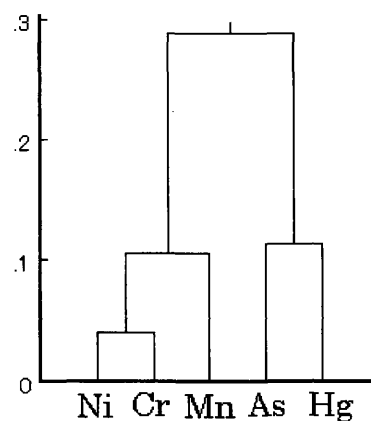


(a) Hachinohe primary school

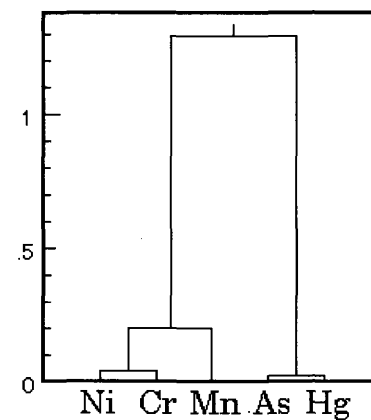


(b) Negishi primary school

Figure 3 Results of single correlation analyses



(a) Hachinohe primary school



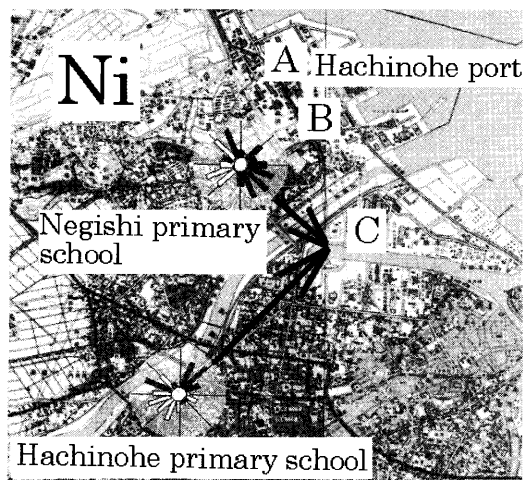
(b) Negishi primary school

Figure 4 Results of cluster analyses

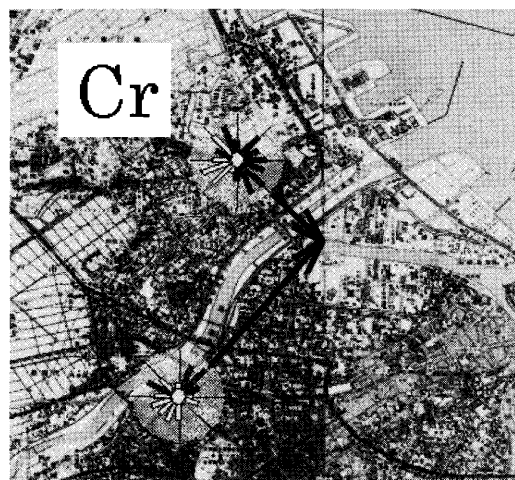
3. 4 Correlations of pollutant concentrations with frequencies of wind directions

Figure 5 shows correlations of pollutant con-

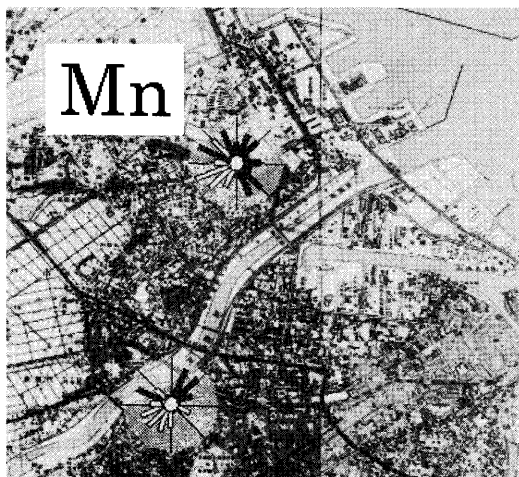
centrations with frequencies of wind directions. The used wind direction data were one-hour values observed at Hachinohe primary school station of the air pollution monitoring system in Aomori prefecture. In Figure 5, a black



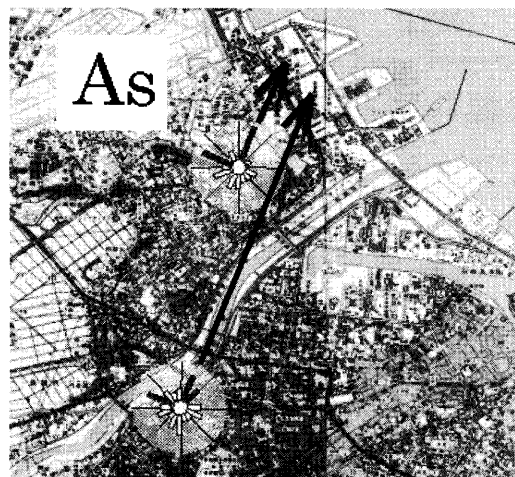
(a) Nickel



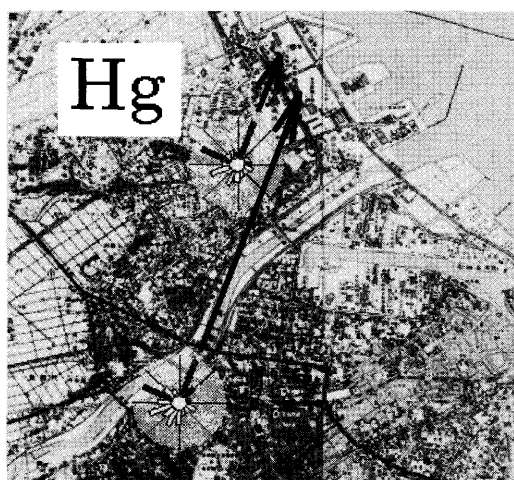
(b) Chromium



(c) Manganese



(d) Arsenic



(e) Mercury

Figure 5 Correlations of frequencies of wind directions and pollutant concentrations

stick inside the circles indicates a positive correlation, and a white stick depicts a negative correlation. The length of the stick represents the absolute values of correlation coefficient.

(1) Estimation of emission sources

In Figure 5, arrows are presented, which show major directions of black sticks indicating positive correlations of pollutants concentrations with frequencies of wind directions. For nickel and chromium, black sticks directed mainly to SW from Negishi primary school and to NE from Hachinohe primary school. These directions were indicated by arrows and these arrows crossed at a site where the ferronickel factory C is built. For arsenic and mercury, the black sticks were directed to NNE from both Hachinohe primary school and Negishi primary school. In this direction, the non-ferrous metal smelter A and the steel factory B are present. Conclusively, emission sources of nickel and chromium are estimated to be in the factory C and of arsenic and mercury in the factory A and/or factory B.

(2) Land breezes in the yamase season

In the yamase season when the yamase wind blows from the sea, the land breeze sometimes blows from the sea to the land at night. This phenomenon was sometimes observed in periods of investigations of HAPs in 2000, when in the daytime the yamase blew from the sea to the land and at night the land breeze blew in the other direction. When the yamase wind brought pollutants with the high concentrations from the seaside area in the daytime and at night the land breeze blew, an emission source would seem to exist also at the direction of the land breeze in a correlation graph of frequencies of wind directions and concentrations of pollutants. This phenomenon is, for example, presented in Figure 5 (a) where a black stick is drawn in the direction of WNW from Hachinohe primary school. If one discusses correlation of wind directions and concentrations of pollutants only by the use of principal wind direction, one cannot consider details of the wind. Thus it is necessary to discuss the problem by utilizing one-hour values of wind directions, although the phenomenon of the land and sea breeze does not always make the corre-

lation clear.

In the direction of WNW guided by the black stick in Figure 5 (a) no emission sources, e.g. metal smelters, exist. Because of the land breeze at night, one would think that some emission sources were in the direction.

3. 5 Results of chemical analyses of dust samples of factories and ensuing discussion

Table 4 tabulates results of chemical analyses of dust samples of the factories. The dust samples are as follows: dust samples on bag filters in the smelting processes, ores and slag of the factory A, dust collected by the electrostatic precipitator (EP) and dust accumulated inside a building of the factory B, and ores, slag, dust generated in the smelting processes of the factory C.

(1) Arsenic

Dust, ores and slag of the factory A contain much arsenic and zinc sulfide ores (sphalerite, ZnS) which are main raw materials in the factory include 0.075% of arsenic. The arsenic contents of dust of bag filters attached to the blast furnace and of dust of bag filters of the zinc distillation column were 0.30% and 0.48%, respectively. In the smelting process, arsenic proved to be concentrated in the dust. On the other hand, dust of the factory B contained rare arsenic. It became clear on the bases of the chemical analyses of the factory dust that the factory B was not an emission source of arsenic but the factory A was, although both the factory A and B had possibilities of their being emission sources when we interpreted only the results of correlations of frequencies of wind directions and concentrations of the pollutant as mentioned before.

If all ambient suspending dust had been consisted of dust of the zinc distillation column, 480 ng/m³ of arsenic would have been detected at the ambient site in the case where mass concentration of ambient suspending dust was 100 μg/m³. In turn, only the zinc sulfide ores had contributed to ambient suspending dust, 75ng/m³ of arsenic would have been observed in ambient air in the above case. The observed maximum concentration of arsenic in Negishi primary school was 50 ng/m³ and this observation was not

Table 4 Results of analyses of chemical compositions of the factory dust samples (%)

Factory		Ni	Fe	Pb	Zn	Cd	Mn	Cu	Cr	As
A	Dust collected by bag filters of the decopperizing furnace	0.23	3.6	48	12	0.0017	0.0015	7.7	< 0.003	0.045
	Dust collected by bag filters of the crusher of the sinter plant	< 0.02	7.7	32	27	0.68	0.2	0.71	0.013	0.17
	Dust collected by bag filters of the briquetting plant	0.02	2.7	17	48	0.032	0.3	0.19	0.02	0.087
	Dust collected by bag filters of the blast furnace	< 0.02	0.91	26	39	0.056	0.074	0.16	0.005	0.3
	Dust collected by bag filters of the zinc distillation column	< 0.02	0.26	1.8	55	2.5	0.023	0.068	< 0.004	0.48
	Lead oxide ores	< 0.02	0.14	63	3.2	0.091	0.0096	0.048	< 0.004	0.0005
	Lead sulfide ores	< 0.02	4.6	57	10	0.13	0.003	0.052	0.02	0.037
	Zinc oxide ores	< 0.02	0.83	2.5	78	0.045	0.061	0.024	0.036	0.004
	Zinc sulfide ores	< 0.02	12	2.1	48	0.15	0.76	0.24	< 0.002	0.075
	Slag	0.04	29	0.1	6.6	0.0003	0.96	0.7	0.062	0.1
B	Dust collected by the electrostatic precipitator	0.02	23	2	33	0.048	1.2	0.21	0.21	0.0016
	Dust deposited inside the factory building	0.02	12	0.29	4	0.0056	3.6	0.098	0.056	0.0017
	Dust deposited under the EP attached on the roof of the factory	0.02	17	2.1	29	0.042	1.2	0.18	0.12	< 0.0002
C	Dust generated in the kiln	2.2	18	< 0.005	0.048	0.0039	0.37	0.0036	0.35	< 0.0001
	Dust generated in the impact drier	2	14	0.16	1.1	0.0082	0.27	0.004	0.27	0.0007
	Dust generated in working environment	2.6	16	0.13	1.8	0.0043	0.29	0.0067	0.48	< 0.0002
	Nickel ores	1.7	16	< 0.007	0.014	< 0.0003	0.29	0.001	0.16	< 0.0002
	Slag, brown	0.04	2.8	< 0.007	0.022	< 0.0004	0.23	< 0.001	0.36	< 0.0002
	Slag, colorless	0.03	3.5	< 0.006	0.033	< 0.0003	0.35	< 0.0008	0.63	< 0.0002

unreasonable if the dust of factory A scattered. Furthermore, the arsenic contents in the factory dust increased in the course of smelting, so it will be needed to investigate the arsenic concentrations in the exhaust gasses

of the factory A.

Two kinds of dusts existed which could be emission sources of arsenic. The first kinds included the zinc sulfide ores and the second were dust generated in the

smelting processes. The formers become coarse particles, and the latter fine particles which are generated via high-energy states. In order to know where emission sources of arsenic are in the factory A, investigations will be effectively carried out using Andersen air samplers by which one can collect ambient suspending dust samples with distinctions of the particle sizes.

In a previous paper ³⁾, it was demonstrated that dust of the zinc sulfide ores of the factory A contributed significantly to dust fall around the metal factory area in Hachinohe city although the source estimation was performed on the basis of the contents of nickel, lead, zinc and cadmium. This result is adequate only near the factory A and is not always possible to apply to the case of areas around Hachinohe primary school and around Negishi primary school at which the investigations reported in this paper were made. Actually, for zinc, lead and cadmium, dust samples of fine particles contributed to some extent in areas being apart from the metal factories as reported before ⁴⁾ in which investigations were done on the metal concentrations in the air with distinctions of dust particle diameters by the use of Andersen air samplers. This result was obtained in the past, but it should be a problem whether coarse particles or fine particles contribute to the ambient air, depending on a distance from factories to the investigation area.

Additionally, measurements of arsenic were not made in investigations of dust fall because dust falls must be analyzed after ashing and also because arsenic tends to vaporize at low temperature.

However, the zinc sulfide ores of the factory A significantly contributed to the metal contents in dust fall observed in an area around the factory A, and the ores contain no less than 0.075% of arsenic. Furthermore, the concentration of ambient atmospheric arsenic was observed to be 50 ng/m³ at most at Negishi primary school and this observation was possible viewed in the light of the arsenic content of the ores. The correlation of these three facts cannot be ignored.

(2) Nickel and chromium

As describing before, emission sources of nickel and chromium were estimated to be in the factory C.

Results of chemical analyses of the factory dust samples revealed that dust of the factory C included nickel with the content of a few percent. Therefore, it can be easily said that an emission source factory of nickel is the factory C. The chromium contents in dust of the factory B were not so little, but colorless slag of the factory C had the highest content. But the slag included rare amounts of nickel.

Ratios (Ni/Cr) of concentrations of atmospheric nickel to those of chromium in ambient air were from 1.3 to 1.4. On the other hand, no dust of the factory C included amounts of nickel and chromium having the ratios within this range. The dust of the factory C which were seen to have the same chemical compositions as those of the nickel ores of the factory had ratios (Ni/Cr) being in the range from 8 to 10. On the contrary, the slag contained nickel and chromium at ratios (Ni/Cr) of 1/10 to 1/20. The nickel and chromium contents of the dust of the factory C whose chemical compositions were similar to those of the ores were 2.6% and 0.48% at most, respectively. If only these dust samples constituted ambient suspending dust, 2600 ng/m³ of nickel and 480 ng/m³ of chromium would be detected in ambient air in the case where the mass concentration of suspending dust was 100 μg/m³. On the other hand, the colorless slag of the factory C, which had the considerable content of chromium, included 0.03% of nickel and 0.63% of chromium. If the slag entirely contributed to ambient suspending dust, the nickel and chromium contents in ambient air whose suspending dust had the mass concentrations of 100 μg/m³ were 30 ng/m³ and 630 ng/m³, respectively. Although emission sources of nickel and chromium are estimated to be in the same place, i.e., in the factory C as mentioned in the before section, nickel is postulated to have come from dust of the factory C which had the similar chemical compositions to those of the nickel ores used in the factory. For chromium, ambient air includes sufficient amounts of chromium when the dust of the factory C scatter whose chemical compositions resembled to those of the nickel ores, but the observed ratios of concentrations of nickel to those of chromium in the air cannot be explained. If only these dusts were emitted, ambient atmospheric chromium had to be detected to be in smaller concentration than that of actually observed. On the contrary, the dust generated from the slag of the factory C

does not give sufficient concentrations of nickel in ambient air, but does give sufficient concentrations of atmospheric chromium to understand the observed concentrations. An emission source factory was of course the factory C, but nickel is assumed to come from the dust having similar chemical compositions to those of the nickel ores, and an emission source of chromium is postulated to be the slag. The factory C had produced stainless steel until 1999, but influences of factory dust of those days cannot be confirmed at the present time even if the dust effect now.

(3) Manganese

Dust of the factory B had considerable contents of manganese although ambient manganese is estimated to be emitted from various sources as described before by the use of the results of analyses of correlation of frequencies of wind directions and pollutant concentrations. It should be difficult to decide emission sources since manganese also comes from soil which contains this element to some extent.

4. Conclusions

Results obtained in investigations of hazardous air pollutants in Hachinohe city in 2000 were analyzed.

Firstly, at both two investigation sites, the behaviors of nickel and chromium, and of arsenic and mer-

cury turned out to be similar to each other, respectively.

Correlations of frequencies of wind directions and pollutant concentrations in ambient air revealed that nickel and chromium are estimated to come from a ferrous nickel factory C and that arsenic and mercury are considered to be emitted from a non-ferrous metal smelter A and/or a steel factory B.

By interpreting results of analyses of chemical compositions of factory dust samples, an emission factory of arsenic became the factory A. Zinc sulfide ores which were main raw materials of the factory A contained 0.075% of arsenic. Furthermore, the dust generated in the smelting processes in the factory A contained more arsenic. These arsenic contents of the dust of the factory A could explain the observed concentrations of ambient atmospheric arsenic. Emission sources of nickel and chromium were thought to be in the factory C. However, these elements could not be derived from a single kind of dust. That is, nickel was postulated to come from the dust of the factory C which had similar chemical compositions to that of the nickel ores used in this factory. An emission source of chromium was assumed to be the slag of this factory. Thus, for nickel and chromium, different kinds of sources were supposed to be in the factory C. The above results are summarized in Table 5.

Interpretations of both the results of analyses of ambient pollutant concentrations and chemical compositions of the dust samples of the emission factories enabled

Table 5 Results of the estimations of emission sources of atmospheric heavy metals in Hachinohe city

Element	From the analyses results of correlation of frequencies of wind directions with pollutant concentrations	From the results of analyses of chemical compositions of factory dust samples	Emission sources estimated by means of both of the two methods
Ni	Factory C	Dust of factory C whose compositions resemble to those of nickel ores used in factory C	Dust of factory C whose compositions resemble to those of nickel ores used in factory C
Cr	Factory C	Slag of factory C	Slag of factory C
As	Factory A and/or B	Dust and/or raw materials used in factory A	Dust and/or raw materials used in factory A
Hg	Factory A and/or B	Obscure from the results of the analyses of the factory dust	Factory A and/or B
Mn	Various emission sources influenced.		

us to estimate emission sources in detail to such an extent that emission places in the factories could be assumed.

The aforementioned analysis methods and their results are exceedingly effective in the promotion of environmental conservation measures in the future.

References

- 1) Ryuji Hanaishi et al.: The establishment of analysis methods of heavy metals of hazardous air pollutants in Aomori prefecture, Bulletin of Aomori Prefectural Institute of Public Health and Environment, 12, 60 – 67, 2001. [in Japanese]
- 2) <http://www.jomon.ne.jp/~hayakari/index.html> [in Japanese]
- 3) Ryuji Hanaishi et al.: Water soluble heavy metal depositions in Hachinohe city: From analytical method to application of CMB apportionment, Bulletin of Aomori Prefectural Institute of Public Health and Environment, 11, 46 – 52, 2000. [in Japanese]
- 4) Shin-ichi Ishizuka et al.: Size distributions of atmospheric suspended particulates, heavy metals and water-soluble components in Hachinohe city, Bulletin of Environmental Pollution Control Center of Aomori Prefecture, 5, 20 – 29, 1981. [in Japanese]

(要約)

八戸市内における有害大気汚染物質（重金属類）の発生源の推定

花石 竜治 早狩 進 齋藤 輝夫 高橋 俊行¹⁾ 石塚 伸一

これまでの青森県における有害大気汚染物質モニタリング調査で明らかになった、八戸市内の重金属類の発生源推定について述べる。クラスター分析や単相関解析から、ニッケルとクロム、水銀とヒ素がそれぞれ同一挙動を示すことが分かった。また風向頻度と汚染物質濃度との相関を解析すると、ニッケルとクロムがフェロニッケル製造工場、ヒ素と水銀が非鉄金属製錬工場あるいは鉄鋼業工場が発生源と推定された。さらに、発生源と考えられる工場のダスト類の分析結果から、ヒ素は非鉄金属製錬工場に由来する可能性が濃厚になった。また、ニッケルとクロムの発生源がフェロニッケル製造工場のどこにあるのかを考察した。

- 1) 八戸市下水道部下水道施設課

ばいじんの重力沈降, 沈着を考慮した正規型大気拡散式の特 性 — ダイオキシン類の沈着量の推定 —

吉田 毅 花石 竜治

ダイオキシン類などのばいじんの沈着量の推定には, 従来のガスの拡散式では不十分である。

正規型の大気拡散式を“粉じん”として, 最大着地濃度地点 (Xmax), 最大着地濃度 (Cmax) を解き, ガスの値と比較した。

正規型の大気拡散式において, ばいじんによる重力沈降, 乾性沈着による地表濃度の減衰を, 見かけの発生源強度の減少として表した。

さらに, 正規型拡散式の中の数値積分を近似解法し, 事前にグラフ化することで, 従来の乾性沈着の拡散式と比較した。

最大湿性沈着量と最大乾性沈着量との比は, 大気安定度の比だけで表すことができ, 従来, Sutton式をベースにして中立条件で約8倍と言われていたが, Pasquill-Gifford線図での大気安定度“C”の場合には, さらに大きく約12に倍になることが分かった。

Key words : Gaussian Diffusion—Deposition Model, deposition velocity

1. はじめに

ダイオキシン類を排出する焼却炉からのばいじんの中には, ガス状物質や粒子状物質 (粉じん) が含まれている。

環境庁が行った大気中のダイオキシン類の調査では, ガス状が10~40%, 粒子状が90~60%と報告されており¹⁾, 多くは粒子状物質の表面に付着しており, 地表に沈着する。

しかし, 環境庁のダイオキシン類の土壌調査では, 土壌のサンプリング地点の選定には, ガスの大気拡散式から求められる最大着地濃度地点 (Xmax) を参考にするよう調査指針等^{2, 3)} が示されているが, 粉じんの取り扱いはなされていない。

いままで, Chamberlain (1953)⁴⁾ は, Suttonの拡散式を用い, 乾性沈着による地表濃度の減衰を, 見かけの発生源強度の減少で表し, 地表面への沈着量を推定した。

粉じんの拡散は, 地面反射の取り扱いが物理的にあいまいなことと, 拡散式中の数値積分が解けないこと等から使用しにくかったが, 本報では, 数値積分をあらかじめグラフ表示し, ばいじんでの使用しやすい拡散式を検討したので報告する。

2. “粉じん”の大気拡散式

ダイオキシン類は, 焼却で生ずる微粒子に付着して, 大気中に拡散され, 直接落下したり, 水への溶解度は低い雨がたたき落とされたりしながら, 地表に沈着するので, ガスの拡散理論を“粉じん”に応用する。

2. 1 Xmax, Cmaxの厳密解

標準的なガスの正規型拡散式は次式のように表記され,

$$C(x, y, z) = \frac{q \cdot 10^6}{2\pi\sigma_y\sigma_z U} \times \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right) \times \left[\exp\left\{-\frac{(z-He)^2}{2\sigma_z^2}\right\} + \exp\left\{-\frac{(z+He)^2}{2\sigma_z^2}\right\} \right] \dots\dots\dots (1)$$

ここで, 使用される式中の記号は以下の通りである。

- x : 煙源からの風下距離 (m)
- y : Xに直角方向の煙軸からの距離 (m)
- z : 地面からの垂直方向距離 (m)
- C(x, 0, 0) : 地上濃度 (ppm)
- q : 排出強度 (Nm³/s)
- U : 平均風速 (m/s)
- σ_y : 水平方向拡散幅 (m)
- σ_z : 鉛直方向拡散幅 (m)

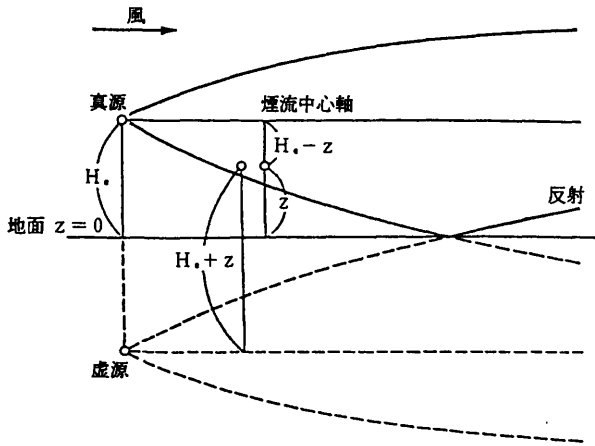


図1 煙の地面での反射の様相⁵⁾

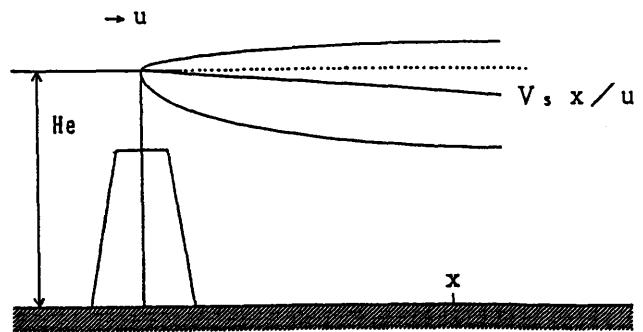


図2 重力落下する粒子の煙流主軸の傾きの説明図⁷⁾

He : 有効煙突高度 (m)

Vs : 粒子の沈降速度 (m/s)

Vg : 粒子の沈着速度 (m/s)

ガスの拡散理論では、地表でガスが完全反射をするとき、図1⁵⁾のように煙突高度Heからの濃度と、地面の下の虚煙突高度-Heからの濃度の和として表す。

これに対して“粉じん”は地表では反射せずに、全部沈着すると仮定され、式中の2項目の濃度は無視される。⁶⁾

さらに、大気中に放出された粒子状物質は、図2のように風速Uで風下に流されるうちに、重力をうけながらVs・x/uずつ落下する。

表1⁷⁾のように粒径と沈降速度Vsには明らかに関係が成り立つ。

そこで、粒径が大きく、重力による粒子の沈降が無視できない場合の、汚染物質の濃度分布がガス体と変わらないと仮定すると、煙軸上 (y = 0.) での地上濃度は次式になる。

$$C(x,0,0) = \frac{q \cdot 10^6}{2\pi\sigma_y\sigma_zU} \exp\left(-\frac{(He - Vs/U \cdot x)^2}{2\sigma_y^2}\right) \quad \dots\dots (2)$$

しかし、(2)式のままでは $\partial C / \partial x = 0$ なるxの厳密解が解けないので、便法として

$$He - Vs/U \cdot x = H \cdot x^\ell \quad \dots\dots (3)$$

表1 粒径区分と沈降速度⁷⁾

粒径範囲 (μm)	中間粒径 (μm)	沈降速度 (m/s)
0~2.0	1.0	0.000029
2.1~5.0	3.5	0.00036
5.1~10.0	7.5	0.0016
10.1~20.0	15.0	0.0065
20.1~40.0	30.0	0.0261
40.1~	60.0	0.104

ℓ : Heの距離減衰係数

σ_y, σ_z を大気安定度の函数として

$$\begin{aligned} \sigma_y &= \alpha \cdot x^m \\ \sigma_z &= \beta \cdot x^n \quad \dots\dots (4) \\ s &= (m+n)/(n-\ell) \end{aligned}$$

と置換えると、(2)式をxで微分でき、 $\partial C / \partial x = 0$ なるx、そこでのCが解け、各々着地濃度地点 (Xmax), 最大着地濃度 (Cmax) として、次のように整理できる。

$$X_{max}(m) = \left(\frac{He}{\sqrt{s \cdot \beta}}\right)^{1/(n-\ell)} \quad \dots\dots (5)$$

$$C_{max}(\text{ppm}) = \frac{q \cdot 10^6}{2\pi\alpha\beta U} \cdot \left(\frac{He}{\sqrt{s \cdot \beta}}\right)^{-s} \cdot \exp(-s/2) \quad \dots\dots (6)$$

Heの距離減衰係数ℓは、粒子の沈降速度Vsと風速Uの函数なので、事前にℓとVsとUの近似式を別に求

めておく必要がある。

この (5), (6) 式で, $\ell = 0$ とし, (6) 式の値を 2 倍すれば, 従来のガス拡散での X_{max} , C_{max} の値と一致する。

2. 2 C_{max} と C_0 との関係

(6) 式と, $C_0 = q/Q$ より,

$$C_0(\text{ppm})/C_{max}(\text{ppm}) = A \cdot He^S \cdot 10^6 / Q \quad \dots\dots\dots (7)$$

ここで,

C_0 : 排ガス中のばいじん濃度 (g/Nm^3)

Q : 排出ガス量 (Nm^3/s)

$$A = \frac{2\pi \cdot \alpha \cdot \beta^{1-s} \cdot U}{10^6 \cdot \exp(-s/2) \cdot (\sqrt{s})^s}$$

(7) 式より, 焼却炉の C_0 を与えられた時の X_{max} での C_{max} が求まる。

2. 3 具体例での試算結果

1) 焼却炉のデータ

	CASE 1	CASE 2
処理能力	2 トン/時間	150 トン/日
排出ガス量	24,926 (Nm^3/h)	40,269 (Nm^3/h)
排ガス温度	$T_s = 350^\circ\text{C}$	$T_s = 161^\circ\text{C}$
$H_0 = 18.0(\text{m})$,		$H_0 = 59.0(\text{m})$
$He = 32.0(\text{m})$ ($U = 6\text{m/s}$)		$He = 76.7(\text{m})$

2) 気象条件

○風速

$U = 6 \text{ m/s}$ (有効煙突濃度 He がこの条件で求められているので便宜上, 同じ条件とする)

○大気安定度

八戸地区の SO_2 対策で用いた乱れの大きい 1 時間平均時間の McEloy のパラメータ⁸⁾ から

$$\alpha = 2.251, \quad \beta = 0.029$$

$$m = 0.608, \quad n = 1.161 \text{ とする。}$$

3) He の距離減衰係数

粉じんの粒径が $20 \sim 30 \mu\text{m}$ の場合, $U = 6 \text{ m/s}$ では, 図 3 より $x = 500 \sim 1,000 \text{ m}$ までの範囲では $V_g/U = 0.01$ に対して, $\ell = -0.03$ がほぼ対応する。

4) X_{max} (m) の計算結果

表 2, 図 4 に CASE 1 の場合での ①, ②, ③に

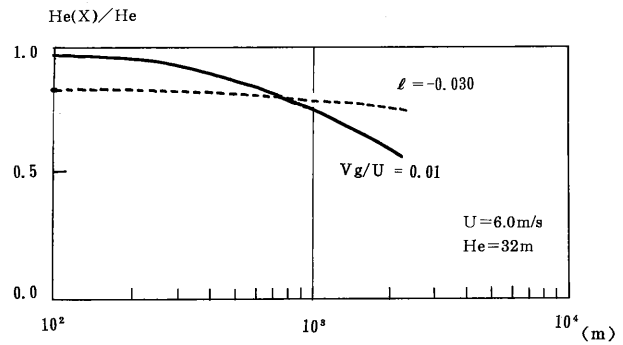


図 3 V_g/U と ℓ の沈降効果の比較

表 2 ℓ による X_{max} (m) の違い

	CASE 1	CASE 2
① $\ell = 0$.	347.	739.
② $\ell = -0.03$	304.	633.
③ ガス	347.	739.

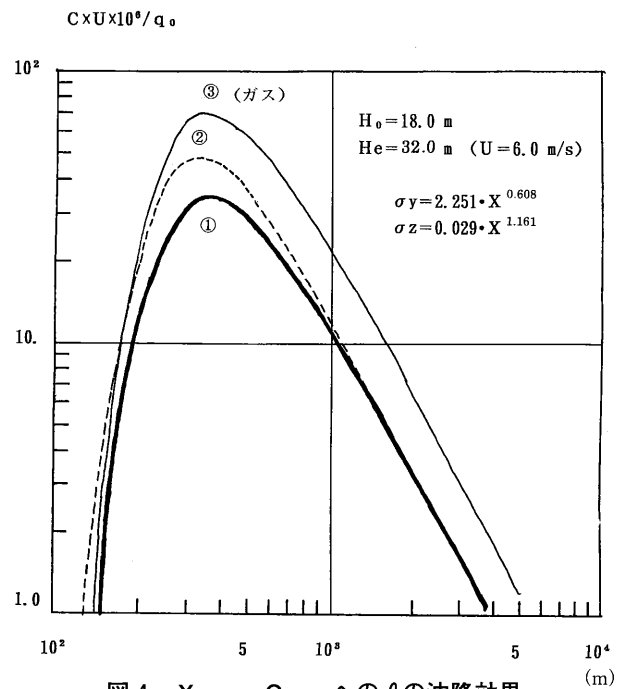


図 4 X_{max} , C_{max} への ℓ の沈降効果

おける X_{max} , C_{max} の違いを示した。

①の $\ell = 0$ と比較して, ③の $\ell = -0.03$ の場合は X_{max} は約 0.87 倍近くに現われ, そこでの C_{max} は 1.3 倍大きくなる。

③のガスの場合, X_{max} は①とほぼ同じだが C_{max} は①の 2 倍となる。

地上で完全反射した場合（ガス）の①と、全く反射しない場合（粉じん）の③では2倍の差がある。沈着を考慮した場合には、いずれの反射項の条件もきつい。

Overcamp (1976)⁹⁾ は、反射項に沈着効果を考慮した拡散式を発表しているが、実際、②のケースでは、地面への沈着によって q_0 が x 方向に距離減衰するので、図4の地上濃度は、 C_{max} を過ぎると図中の値よりも減衰するはず（後章）であり、(2)式の厳密解の代わりに“粉じん”の場合の便法としては、②の手法が使えるであろう。

5) C_0/C_{max} の計算結果

C_0/C_{max} の計算結果を次表に示す。

表3 ℓ による C_0/C_{max} の違い

	CASE 1	CASE 2
① $\ell = 0$.	2.38×10^4	5.56×10^4
② $\ell = -0.03$	1.82×10^4	4.17×10^4
③ガスの場合	1.19×10^4	2.78×10^4

Heが低いほど、かつ①、②、③の順に、拡散倍率が小さくなる。

6) C_0 (ng-TEQ/Nm³) の計算結果

C_0 の計算結果を次表に示す。

表4 ℓ による C_0 の違い

	CASE 1	CASE 2
① $\ell = 0$.	19	44
② $\ell = -0.03$	14	34
③ガスの場合	10	22

ここで、たとえば $C_{max} = 0.8$ (pg-TEQ/Nm³) とすると、 C_0 (ng-TEQ/Nm³) の規制値は表4のように逆算でき、焼却炉のダイオキシン濃度をこの値まで規制しなくては、設定した地上濃度を守れない。

これら計算に用いたCASE 1, CASE 2の焼却炉に対する排出規制は、平成14年12月1日より焼却能力に応じて各々、5, 1 ng-TEQ/Nm³以下に、さらに厳しく規制されるのでなおさらである。

3. 沈着を考慮した大気拡散式

Chamberlain (1953)⁴⁾ は、Suttonの拡散式を用い、沈降速度 V_g を用いた乾性沈着と、雨水の洗浄効果を用いた湿性沈着とで、地表面への沈着量を推定した。

角田 (1966)¹⁰⁾ は、放射能の降雨時の沈着量の推定を正規型の拡散式で行った。

本報では、Suttonの拡散式を正規型の拡散式に代え、粒子が10 μ mより小さく、重力沈降を無視できる場合のばいじんの沈着性について整理した。

3. 1 乾性沈着を考慮した場合

大気拡散式は、ガスの拡散式にもどすため、(2)式 $\times 2$ とし、 $V_s = 0$ とする。

また、みかけの排出源強度 q は、風下距離 x までに、地表に沈着した分を q から差し引いた値として連続の式から次式で仮定すると、

$$\frac{dq}{dx} = - \int_{-\infty}^{\infty} V_g \cdot C(x, y, 0) dy \quad \dots\dots (8)$$

ただし、 q : 排出強度 (Nm³/s)

V_g : 粒子の沈着速度 (m/s)

となり、この(8)式の両辺を積分すると $q(x)$ は一部に数値積分を含み、次式で表される。

$$q(x) = q_0 \cdot \exp\left(-\sqrt{\frac{2}{\pi}} \cdot \frac{V_g}{U} \int_0^x \frac{1}{\sigma_z} \exp\left(-\frac{H e^2}{2\sigma_z^2}\right) dx\right) \quad \dots\dots (9)$$

地表濃度は(2)式の q の代りに(9)式を代入した式になる。また、沈着量は次式が成り立つとすれば、

$$\omega g(x, 0) = V_g \cdot C(x, 0, 0) \quad \dots\dots (10)$$

求めた $C(x, 0, 0)$ をこの(10)式に代入すると求まる。

3. 2 湿性沈着を考慮した場合

大気拡散式は、ガスの拡散式にもどすため、(2)式 $\times 2$ とし、 $V_s = 0$ とする。

また、みかけの排出源強度 q は、雨水の洗浄効果 Λ と、雨滴との接触時間 x/U によって減少すると仮定すると、

$$q(x) = q_0 \cdot \exp\left(-\Lambda \cdot \frac{x}{U}\right) \quad \dots\dots (11)$$

となり、この場合、 $q(x)$ は大気安定度や、Heには関係しない。

ここで Λ は、雨との衝突効率、雨滴の粒度分布、粒

子の粒度分布等により変わる係数 (1/s) である。

地表濃度は (2) 式の q の代わりに (11) 式を代入すると求まる。

一方、 $\omega g(x, y)$ は、雨が浮遊物の存在する高さより充分高いところから落下するとすれば、次式が成り立つ。

$$\omega g(x, 0) = \int_0^{\infty} \Lambda \cdot C(x, 0, z) dz \quad \dots\dots (12)$$

(12) 式の右辺を z で積分し、整理すれば次式になる。

$$\omega g(x, 0) = \frac{q_0 \cdot \Lambda}{\sqrt{2\pi} \sigma_y U} \exp\left(-\Lambda \cdot \frac{x}{U}\right) \quad \dots\dots (13)$$

3. 3 具体的な計算例

○ 計算の条件

Pasquill-Gifford 線図の大気安定度 “C (ほぼ中立)”
 $U = 2.0$ (m/s)
 $He = 50$ (m)
 $V_g : 0.02, 0.10$ (m/s)
 $\Lambda : 1.0 \times 10^{-4}, 2.0 \times 10^{-4}$ (1/s)

なお、本報での地表濃度 $C(x, 0, 0)$ は、Pasquill-Gifford 線図の σ_y は 3 分平均値を用いているので、1 時間値の場合には、 $-1/5$ で減則によれば (2), (10), (13) 式に $\times 0.55$ の補正が必要である。

○ 計算結果

(1) 図 5 に、(9), (11) 式の $q(x)/q_0$ と V_g/U , Λ の影響を示す。

$q(x)$ が沈着により距離減衰し、風下 5 Km で $V_g/U = 0.01$ または $\Lambda = 1.0 \times 10^{-4}$ で、約 25% 減少する。

(2) 図 6 に、(2) 式の $V_s = 0$ に、(9), (11) 式を代入した地上濃度と V_g/U , Λ の影響を示す。地上濃度は、風下で沈着の影響により減衰し、風下 5 Km では $V_g/U = 0.01$ または $\Lambda = 1.0 \times 10^{-4}$ で、約 8% 減少する。

(3) 図 7 に、(10), (13) 式の沈着量と V_g/U , Λ の影響を示す。

沈着量は、乾性沈着の場合には C_{max} 付近で、湿性沈着の場合には煙突直下が最も高い値になる。

降水や、霧の延べ時間数の記録は通常の気象統計にはないが、年間での出現頻度は 10 ~

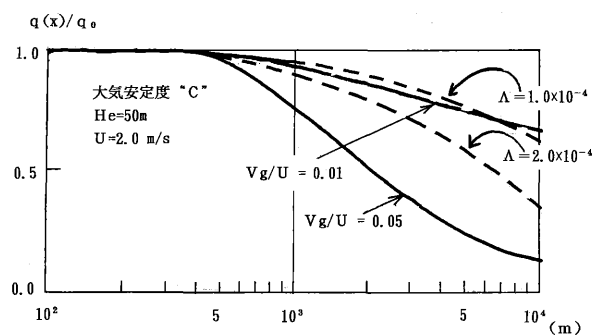


図 5 沈着による発生源強度 $q(x)/q_0$ の変化

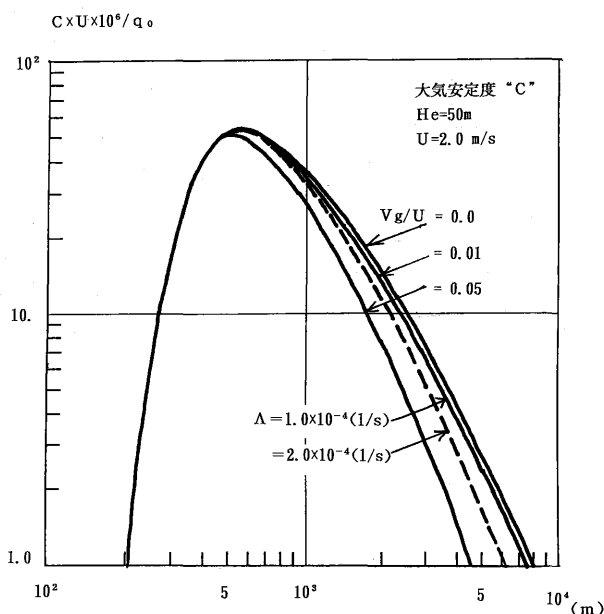


図 6 地上濃度と V_g/U , Λ の変化

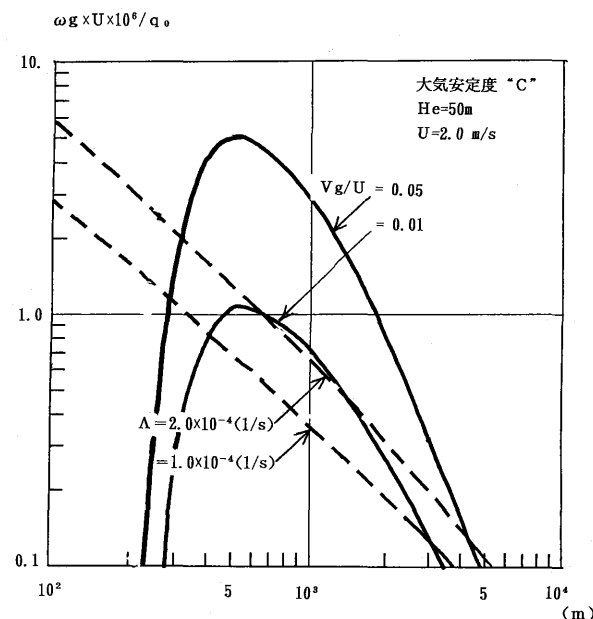


図 7 沈着量と V_g/U , Λ の変化

20%程度と予想されるので¹⁰⁾、湿性沈着の影響は無視できない。

4. 粒子の重力沈降と、乾性沈着を考慮したガス体の大気拡散式

前2章では、重力沈降のみを考慮した粉じんの大気拡散式を、前3章では、重力沈降を無視し、沈着を考慮したガスの大気拡散式を検討したが、物質の地上反射と、沈着現象の取り扱いが物理的にあいまいなので、とりあえず本章ではガスの大気拡散式を基本にする。

本章では、粒子の重力沈降と、乾性沈着を考慮したガス体の大気拡散式により、具体的な産業廃棄物焼却炉からのダイオキシン類の年間降下量を算定した。

4.1 大気拡散式の特徴

煙軸上の地表濃度を推定する式は、前章の“粉じん”の(2)式を2倍して、ガスの次式とする。(使用する記号は前報と同じ)

$$C(x, 0, 0) = \frac{q(x) \cdot 10^6}{\pi \sigma_y \sigma_z U} \cdot \exp\left(-\frac{(He - V_s/U \cdot x)^2}{2\sigma_z^2}\right) \dots\dots\dots (14)$$

排出強度を推定する式は、前章の重力沈降のなかった(9)式のHeの代わりに、 $He - V_s/U \cdot x$ を代入した次式になる。

$$q(x) = q_0 \cdot \exp\left(-\sqrt{\frac{2}{\pi}} \cdot \frac{Vg}{U} \int_0^x \frac{1}{\sigma_z} \exp\left(-\frac{(He - V_s/U \cdot x)^2}{2\sigma_z^2}\right) dx\right) \dots\dots\dots (15)$$

ここで、 V_s と V_g の関係は、層流状態では $V_s = V_g$ となるが、北林ら(1983)によると⁷⁾、乱流拡散を考慮して $V_g = V_s + 0.006 \cdot U$ を提唱しているが、本報ではとりあえず、 $V_s \approx V_g$ として扱う。

地表の沈着量を推定する式は、前章の(10)式と変わらない。

$$\omega g(x, 0) = Vg \cdot C(x, 0, 0)$$

なお、 $J = \int_0^x \frac{1}{\sigma_z} \exp\left(-\frac{(He - V_s/U \cdot x)^2}{2\sigma_z^2}\right) dx$

は、風下距離 x までの数値積分を必要とするが、めんどろなので、大気安定度“C”での $He - Vg/U \cdot x =$

0~200(m)について、あらかじめ近似計算し、図8に示した。(横山らの計算値¹¹⁾に、 $He - Vg/U \cdot X = 0 \sim 40(m)$ のケースを加えた)

(15)式の中の、数値積分を要する部分の近似計算は、 J を x で微分した函数を $f(x)$ とすれば、 J は $f(x)$ の面積を計算することに他ならない。

4.2 ダイオキシン類の年間降下量の算定

実際に稼働している焼却能力が2トン/時間程度の産業廃棄物焼却炉をモデルにして、ガスの大気拡散式を用いて、最大着地濃度地点(X_{max})でのばいじん、ダイオキシン類の年間降下量を算定した。

○ K 廃棄物焼却炉の諸元

(平成11年8月28日自主測定値)

処理能力：2トン/時間

(バッチ式、乾式サイクロン)

排出ガス量：22,100 (m³N/時間)

ばいじん濃度：0.55 (g/m³N)

ダイオキシン類濃度：34 (ng-TEQ/m³N)

乾炉時間：16/24時間、

排出量 $q(g/s) \rightarrow (g/y)$

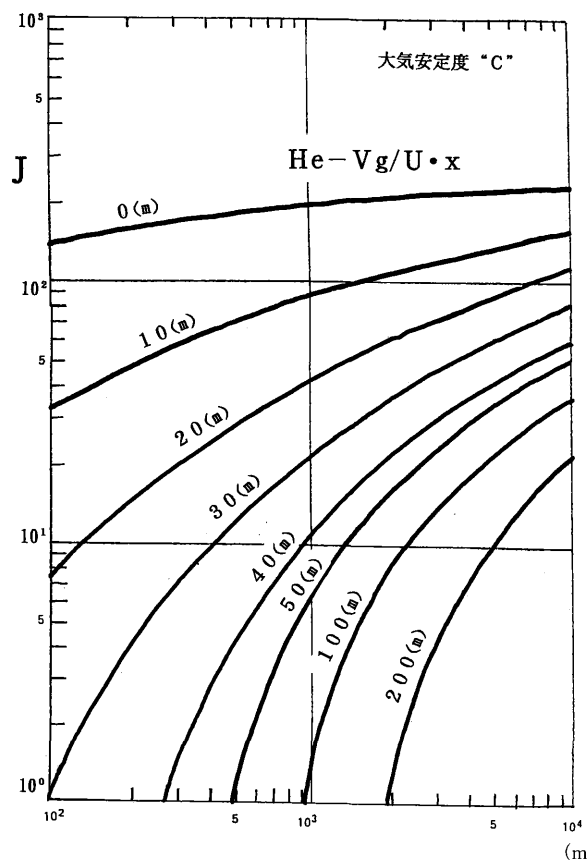


図8 風下距離 x と J の近似値との関係

○計算の条件

本報では年間降水量を推定するため、煙源から風下1/16方位のxの孤上 $(\pi/8) \cdot x$ では、濃度が一様となるように、(14)式で $\sqrt{2\pi}\sigma_y \Rightarrow (\pi/8) \cdot x$ と置換える。このことは、 $\sigma_y = \alpha \cdot x^m$ において、 $m = 1.0$, $\alpha = 0.157$ としたことに外ならない。
Pasquill-Gifford図での大気安定度“C”(中立)
 $U = 4.0$ (m/s) (八戸市第二魚市場局の年間の最多風向WSW時(出現頻度21%)の平均風速)
粉じん粒径 $\approx 20 \mu\text{m}$, $V_s \approx V_g = 0.04$ (m/s)
 $H_e = 50$ (m) ($H_o = 18\text{m}$)とした。

○計算結果

図9に、地上濃度と V_g/U の影響を示す。
図中、 $V_g/U = 0$, $V_g/U = 0.01$, $V_g/U = 0.05$ に従って、 X_{max} が発生源に近くなり、予想どおり C_{max} が大きくなる。
図から明らかなように、粒径が大きくなると、 H_e の代わりに $H_e - V_s/U \cdot x$ として粉じんの重力沈降を考慮した数値積分の項の減衰効果が大きく、 $V_g/U = 0.05$ の場合には、 $x \approx 1,000\text{m}$ で $H_e - V_s/U \cdot x = 0$ となり、それより風下では地上発生源扱いとなる。

図10に、沈着量と V_g/U の影響を示す。沈着量は、 V_g/U によって大きく変わる。
実際の焼却炉では、排ガス中の粉じんの粒径はほとんどが $20 \mu\text{m}$ 以下と言われているので¹²⁾、ここでは推定値としては $V_g/U = 0.01$ のケースを採

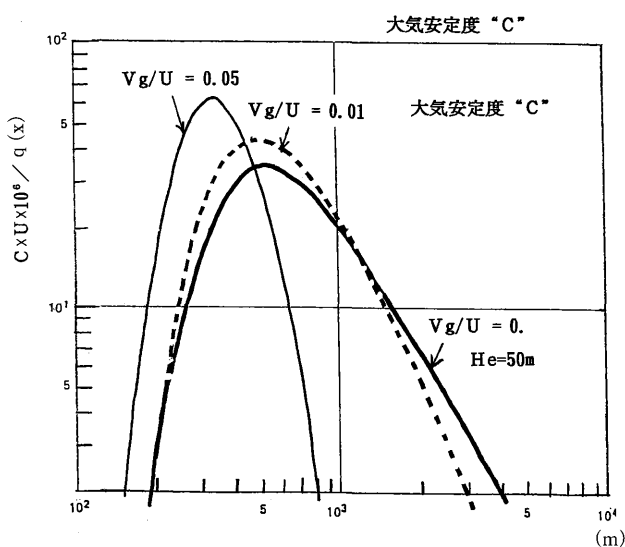


図9 地上濃度と V_g/U の影響

用した。

環境庁で行った「ごみ焼却施設周辺環境におけるダイオキシン類濃度シミュレーション調査結果」¹²⁾では、粒径 $= 20 \mu\text{m}$ の粒子の重力沈降を考慮した場合でも、 X_{max} 地点での年間の濃度増加は3~6%程度と推定しているが、粒径によっては、もっと大きく変わりうる。

ダイオキシン類は次表のように推定される。

表5 X_{max} でのダイオキシン類の推定値

	大気濃度 (pg-TEQ/m ³ N)	降水量 (ng-TEQ/m ² ・y)	土壌濃度 (pg-TEQ/g)
推定値	0.34	400	8*
環境基準値	0.6	-	1,000

最高濃度の出現地点は、煙流からENE方向へ風下約500 (m) で、ばいじんの地表濃度は 5.6×10^{-6} (g/m³)、ばいじんのダイオキシン類の地表濃度の推定値は、環境基準地の約1/2に相当する。

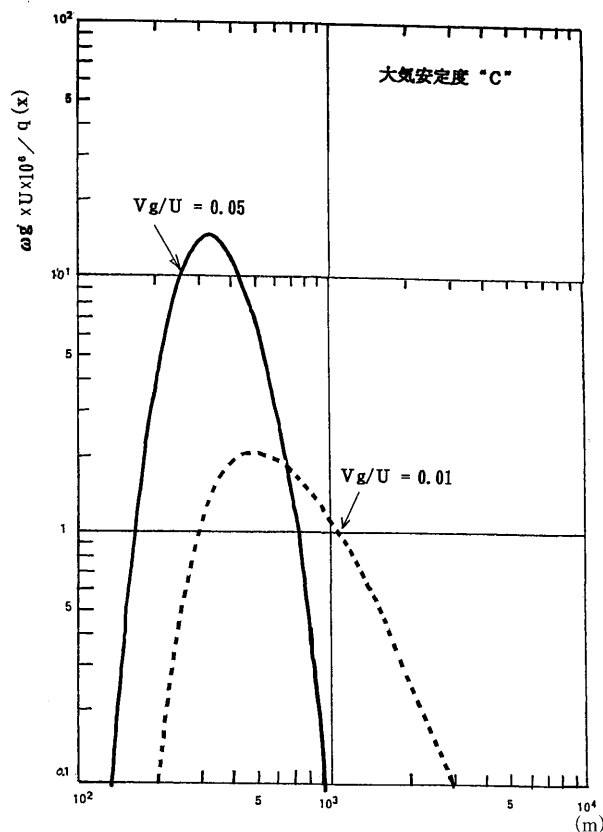


図10 沈着量と V_g/U の影響

ばいじんの降下量は $6.8 \text{ (g/m}^2 \cdot \text{y)} = (0.6 \text{ t/Km}^2 \cdot \text{月)}$ となり、八戸市内の一般的な降下ばいじん量の約1/10程度である。

※注 環境庁の「ダイオキシン類に係る土壌調査マニュアル」²⁾では、「…シミュレーションでの最大着地濃度地点 (Xmax) を中心に、試料採取を原則として直径5 cm程度、深さ5 cmまでを試料とする」とあることから、採取試料約100gの未汚染土壌中の表層に、約0.8ng-TEQ/yのダイオキシン類が含まれても、基準値の1/100程度にしかならないことを意味する。

この土壌の環境基準値では、焼却灰が捨てられた土地の規制には使うことができて、焼却場周辺の大気中のばいじんからの影響までは評価できないほどの緩い基準となっている。

ドイツでのダイオキシン類の土壌の環境基準値は、表6のように、農地では40pg-TEQ/g以下、子供の遊び場等は100以下等ときめ細かに決められているが、日本での土壌の環境基準値が、土地の使用目的に関係なく、一律に1,000pg-TEQ/gというのは今後に残す。

表6 ドイツの土壌利用と修復に関する目標値 (制限規則)¹⁵⁾

(単位: PCDD+PCDF, pg-TEQ/g乾燥土壌)

5未満	農業の目標値
5を超える場合	食物生産禁止はないが食物中の濃度増が認められたとき中止
40を超える場合	農業及び園芸への使用制限
100を超える場合	児童生徒運動場では土壌入替え覆土などの修復措置必要
1,000を超える場合	都市住宅地では修復措置
10,000を超える場合	工業地で修復措置

ダイオキシン類は太陽光の紫外線で徐々に分解される¹³⁾と言うので、この推定計算からは、沈着による土壌への影響は少ないと考えられるが、風下が農地の場合には、葉菜類へのばいじんの付着等の影響が懸念される。

実際のばいじんの沈着は、地面の状態や、大気安定度にも影響され、特に粒径による沈着速度に大きく作用され、焼却炉のばいじんの粒径分布ご

との沈着量を積算する必要がある。

5. 乾性、湿性沈着量の差異

焼却灰は炉から掻き出されたあと、地表から大気中へ飛散・拡散され、風下に沈着する。

大気拡散式では、 $He = 0$ の場合 (9)式の数値積分が解けるのでその場合での乾性、湿性沈着量の特性を検討した。

5.1 最大沈着量の存在

風下距離 x での沈着量の大きさは、沈着速度 Vg に比例して大きくなるが、一方、 Vg が大きいと、風下距離 x に至るまでに既に沈着量 ωg も大きくなり、地上濃度 C を小さくするため、最大沈着量をもたらす Vg が存在することになる。

○乾性沈着での沈着速度 Vg^* 、最大沈着量 $\omega g^* dry$

前章の (15)式において、数値積分の値 J は、 $He - Vg/U \cdot x = 0$ の場合のみ厳密解が求まり、次式になる。

$$J = x^{1-n}/\beta(1-n) \quad \text{ただし } 1-n > 0 \quad \dots\dots (16)$$

$$\omega g(x, 0) = \frac{q_0 \cdot Vg}{\pi \sigma_y \sigma_z U} e^{-x} p\left(-\sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{Vg}{U} \cdot J\right) \quad \dots\dots (17)$$

この (17)式を Vg で微分し、 $= 0$ とすると、 ωg を最大にする Vg は、 x の関数として次式で表される。

$$Vg^* = U \cdot \beta(1-n) \sqrt{\frac{\pi}{2}} \cdot x^{n-1} \quad \dots\dots (18)$$

例えば、Pasquill-Gifford線図での大気安定度“C”で、 $x = 500$ (m) では、 $Vg^* = 0.047$ (m/s)となる。

従って、最大沈着量は (17)式に代入し、次式になる。

$$\omega g^*(x, 0) dry = \frac{q_0 \cdot (1-n) x^{-(m+1)}}{e \sqrt{2\pi} \alpha} \quad \dots\dots (19)$$

○湿性沈着での Λ^* 、最大沈着量 ω^*_{wet}

$$\omega g(x, 0) = \frac{q_0 \cdot \Lambda}{\sqrt{2\pi} \sigma_y U} e^{-\Lambda \cdot \frac{x}{U}} \quad \dots\dots (13)$$

この式を雨の洗浄係数 Λ で微分し、 $=0$ とすると、 ωg を最大にする Λ は、 x の函数として次式で表される。

$$\Lambda^* = U / x \quad \dots\dots (20)$$

例えば、Pasquill-Gifford線図での大気安定度“C”で、 $x = 500$ (m) では、 $\Lambda^* = 0.8 \times 10^{-4}$ (1/s)となる。

従って、最大沈着量は (13)式に代入し、次式になる。

$$\omega^*_{wet}(x, 0) = \frac{q_0 \cdot x^{-(m+1)}}{e \sqrt{2\pi} \alpha} \quad \dots\dots (21)$$

5. 2 乾性最大沈着量 ω^*_{dry} と、湿性最大沈着量 ω^*_{wet} の比

(19)式と (21)式との比は

$$\omega^*_{wet}(x, 0) / \omega^*_{dry}(x, 0) = 1 / (1 - n) \quad \dots\dots (22)$$

となり、この比は、 σ_z の x のべき乗 n の大気安定度のみの係数で表される。

例えば、ここで、大気安定度は、Pasquill-Gifford線図での“C”では $n = 0.918$ なので、(22)式の値は12となり、雨による洗浄沈着量が、乾性沈着量よりも約1ケタ大きくなる。

これは、Chamberlain (1953)⁴⁾が、Suttonの拡散式を用い、大気安定度が中立のときに8倍とした値¹⁴⁾よりもさらに大きくなる。

また、この倍数は、大気が安定側に傾けば12よりも小さくなり、不安定側になるにつれて12よりも大きくなる。しかし、強不安定では $n > 1$ となり、(16)式の成立条件に反するので注意を要する。

6. ま と め

1) 粉じんの重力沈降を考慮した正規型の大気拡散式で、最大着地濃度地点 (X_{max})、最大着地濃度 (C_{max}) の算定式を解き、 C_{max} と C_0 との関係式から排出規制値 C_0 の妥当性を検討した。

例えば、粉じんの重力沈降を考慮した場合には X_{max} は約0.87倍近くに現われ、そこでの C_{max} は約1.3倍大きくなる。

2) ばいじんによる重力沈降、乾性沈着による地表濃度の減衰を、正規型拡散式の中の数値積分を近似解法してグラフ化することで簡略化し、ダイオキシン類の年間降下量を算定した。

しかし、土壌の環境基準との比較は、土壌を5センチメートルの深さまで採取することが義務づけられているため、地表に沈着するダイオキシン類を未汚染土で極端に希釈させて評価する仕組みになっている。

3) 雨による湿性沈着量は、煙突の高さには関係なく、煙源に近いほど大きい。

4) 最大湿性沈着量と最大乾性沈着量との比は、大気安定度だけの比で表すことができ、従来Sutton式をベースにして中立条件で8倍と言われてきたが、Pasquill-Gifford線図での大気安定度“C”の場合には、約12倍と大きくなり、雨や霧の出現時間数が多い場合には注意を要する。

7. 今後の課題

1) 粉じんの場合、粒径に関係なく、地面で全く反射しないというきつい条件と、粒子の沈着量に関しては、まだ理論的に曖昧さが残る。

2) 焼却炉の排ガス中での粉じんの粒径分布を確認する必要がある。

3) 今回は、有風時で、大気安定度を中立の条件のみ考慮したが、種々の安定条件の場合との比較が必要である。

4) 湿性沈着現象を、雨の洗浄率 Λ のみで取り扱ったが、実際は、雨や雪での湿性沈着速度 V_g' の効果も考慮すべきである。

8. おわりに

本報のテーマに関しては、元秋田保健所の佐藤信也氏、京都大学原子炉実験所の小出裕章の両氏から、貴重な自筆ノートの提供をいただいたこと、また、原子力資料情報室の故高木仁三郎氏から沈着現象に対し貴重なご教示をいただいたことに心から感謝します。

文 献

1) 中央環境審議会大気部会ダイオキシン類環境基準

- 専門委員会：大気の汚染に係るダイオキシン類環境基準専門委員会報告，22，平成11年10月
- 2) 環境庁水質保全局土壤農薬課：ダイオキシン類に係る土壤調査暫定マニュアル，54，平成10年1月
- 3) 厚生省生活衛生局水道環境部：廃棄物処理施設生活環境影響調査指針，128，平成10年10月
- 4) 原子力気象調査会：拡散沈着に関する総合調査報告，vol. 4～6，1961
- 5) 横山長之：大気汚染シミュレーション－大気の流れと拡散－，白亜書房，202，1992
- 6) 新良宏一郎ら：環境大気概説，環境技術研究会，195，昭和60年3月
- 7) 環境庁大気保全局大気規制課：浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル，398，1997
- 8) 吉田毅ら：疾風型重合汚染における大気汚染濃度の評価に関する検討(2)，7～25，6，1983
- 9) T. J. Overcamp : A General Gaussian Diffusion-Deposition Model for Elevated Point Sources. J. of Appl. met., vol. 15 (11), 1976
- 10) 角田道生：降雨時の地表汚染評価法，日本原子力学会誌，9，4，186～191，1966
- 11) 横山長之ら：沈着を考慮したブルーム，パフ拡散式，公害，15，3，23～31，1980
- 12) 環境庁ダイオキシンのリスク評価研究会：ダイオキシンのリスク評価，174，1997
- 13) 日本環境衛生センター：ダイオキシン入門，410，1990
- 14) 佐藤信也：エアロゾル粒子または蒸気の拡散沈着について，第32回東北ブロック食品衛生環境衛生監視委員研究会，35～38，平成3年10月

Abstract

Characteristics of Gaussian Atmospheric Diffusion Equation in Consideration of the Gravitational Settling and Deposition of Particulate Matters — Estimation of the Deposition Quantity of Dioxines —

Tsuyoshi Yosida, Ryuji Hanaishi

A conventional diffusion formula is insufficient for estimating the deposition quantity of particulate matters like dioxines. The authors solved a Gaussian atmospheric diffusion equation in terms of "dust" by calculating the maximum concentration on the ground (C max) and the maximum concentration spot on the ground (Xmax), and compare the results with the case of gas. In the Gaussian atmospheric diffusion equation, the attenuation of ground concentration due to the gravitational settling and drying deposition of particulate matters was expressed as a decrease in the intensity of an apparent generation source. In addition, the authors applied approximate analysis to the numerical integration in the Gaussian diffusion equation and represented the solution graphically in advance, and compare it with the solution by the conventional diffusion equation of dry deposition. The ratio of the maximum quantity of wet deposition and the maximum quantity of dry deposition can be expressed by the ratio of atmospheric stability. This figure was supposed to be 8 times in neutral condition on the basis of the Sutton's formula in the past. However, it has been clarified that in the case of atmospheric stability "C" of the Pasquill-Gifford Chart, this figure is far enlarged to about 12 times.

II ノ ー ト

神経芽細胞腫マスキリーニング検査に関わるデータベースの作成

武沼 浩子

Production of database Concerning Mass screening of Neuroblastoma

小児慢性特定疾患に認定されている神経芽細胞腫患児について、神経芽細胞腫マスキリーニング開始から1997年までの医療意見書の報告があった分についてデータベースを作成した。その結果データベースを作成することにより保健所、医療機関、保護者からの神経芽細胞腫マスキリーニング検査に関わる問い合わせに迅速に対処することができるとも手書きで行っていたサンプルスケジュール表及び内部精度管理を表計算ソフトを利用することにより業務の迅速化がはかられた。

Key words : neuroblastoma mass screening, quality control, database

1. はじめに

神経芽細胞腫 (neuroblastoma : NB) は、小児の悪性固形腫瘍の中で最も多い疾患であり¹⁾、治療が極めて困難で長期にわたるためわが国では小児慢性特定疾患事業に含まれており、1985年からマスキリーニング (以下、MSと略) が全国的に実施されるようになった。

小児慢性特定疾患事業については、1997年12月26日付の厚生省通達により、審査の適正化を図るため疾患区分ごとに診断等の根拠となる検査項目を示した書式が提示された (以下、現書式と略) が、1997年までは小児慢性特定疾患医療意見書の様式が各疾患毎に定まっていなかったため (以下、旧書式と略)、神経芽細胞腫患者の実態を把握することは困難であった。そこで1997年までの小児慢性疾患に認定されたNB患者について、旧様式を基にデータベースを作成すると共に、ルーチンワークで問題になる項目等も追加して各種の解析を実施した。また、青森県では1984年に定性法によるMS事業開始後、1989年に精度の優れた高速液体クロマトグラフィー (High Performance Liquid Chromatography:HPLC) 法²⁻³⁾ による定量法への切り替えがあり、内部精度管理が必要不可欠となった。そこで、標準化マニュアルを作成し、精密度及び正確度を確保するため濃度既知の2種類の管理試料を元に毎日管理図、及び内部精度管理表の作成を試みたので合わせて報告する。

2. 方 法

2・1 データベースの作成と解析

NBのMSが開始された1984年から1997年までの小児慢性特定疾患に認定されたNB認定患者について、旧様式で回答のあった症例について、MS受検の有無、治療方法など記載のあった13項目について入力し、独自に表計算ソフト (Excel97) を用いてデータベースを作成した。参考に、1998年分の各保健所別の疑陽性数、受検数並びに服薬の有無についてのデータも集計し、検討した。

2・2 内部精度管理の効率化

従来、手書きで管理していた内部精度管理は表計算ソフト (Excel97) を利用した方法に変更し、1998年よりMS検査検体各々について住所、風邪薬等服薬有無の項目を設け、それらをコード入力することにより集計を迅速に行えるものとし、これに基づいて解析した。

3. 結 果

3・1 データベースの作成と解析

小児慢性特定疾患に関わるデータベースでは経過観察、発症年齢、MS受検の有無、型別、治療方法等13項目について表計算ソフト (Excel97) を用いて集計解析した結果、次のことが判明した。

3・1・1 治療方法

青森県内での神経芽細胞腫患児の治療方法の主流は外科的治療方法であり、その他抗がん剤による化学的方法、次いで放射線療法が主流であり、少数例では未

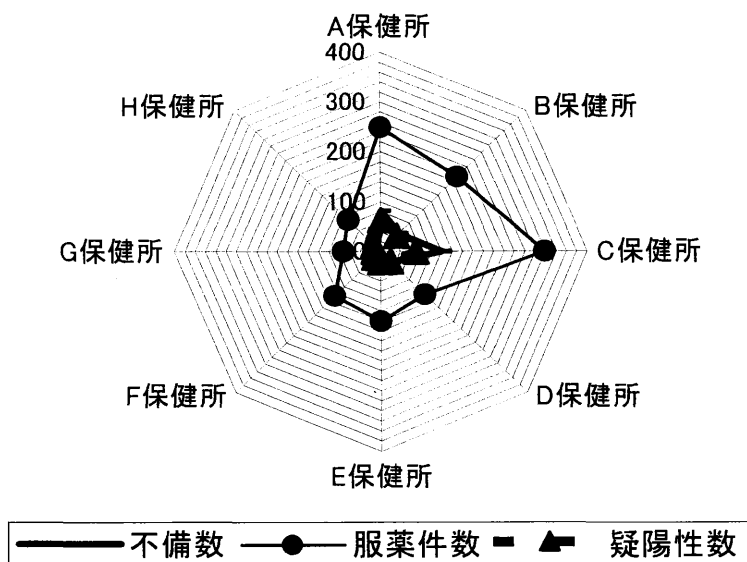


図1 保健所別擬陽性、服薬件数

梢血幹細胞移植，自己骨髄移植施行例も行われた。MS陽性者16例のうち，外科治療をしたものが15例あり，経過観察の後，寛解に至った例が1例認められた。

3・1・2 原発部位

原発部位については，MSで発見された症例及びMS以外で発見された症例共に記入様式が統一化されていないこともあり明確な集計はできなかった。

3・2 データベースによる解析

3・2・1 発見率と症状

MSで見つかった症例は全体の50%であり，症状別では腫瘍による発見が最も多く，その他，発熱，肝障害，関節痛，上気道炎，腹痛，血尿，下痢，眼振，けいれん，目つきの異常，高血圧，貧血，眼球突出，顔色不良など多様な所見が認められた。ルーチンワークにおいては服薬の有無と住所別の項目を設け，それらを集計・解析することにより保健所からの問い合わせ，並びに保護者からの受診病院の問い合わせ等に対し迅速に対処することができた（図1）。

3・2・2 その他

バニリルマンデル酸（VMA），ホモバニリン酸（HVA）の検査値については項目記入欄が設けられていないこともあり，記載のないものが約半数近くあった。

3・2・3 管理図法を用いた内部精度管理

管理図法を用いた内部精度管理⁴⁾及びHPLC測定に

関わる実施表を手書きによる管理からパソコンを利用した方法に切り替えることにより正確性が増し業務の効率化がはかられた（図2）。

4. 考 察

1997年までに認定されたNB患者並びにMS検査のルーチン業務に対する各種項目についてデータベースの作成にあたり，旧様式では具体的な項目欄がないため，データの入力が極めて困難であった。したがって，今回作成した1997年までのデータベースについても空欄が多く，統計的に正確な解析は得がたい状況である。

特にNBの原発部位では通常，副腎と交感神経部位が多いとされているが，単に「腹部」との記載が多く，原発部位の集計では統計的に正確な解析は困難だった。しかしながら，治療方法，発見率と多様な症状の出現等の興味あるデータが集計され，今後の新たなデータの累積により，迅速な治療への情報提供が可能であることが示唆されるとともに，患者の追跡調査等に役立てることが可能と思われる。なお，これらの情報管理についてはセキュリティー対策及びインフォームドコンセントについて最大限に考慮したうえで進める必要がある。

ルーチンワークに関する解析では，保健所からの問い合わせ，保健所が市町村へ尿採取セットを配布する際の資料提供並びに保護者からの受診病院に関する問

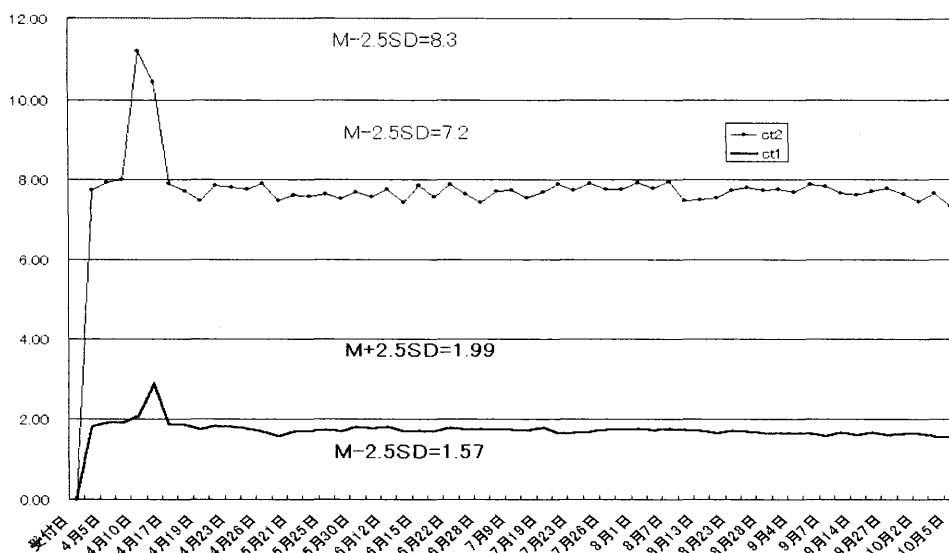


図2 VMA, HVAの \bar{x} 管理図の1例

い合わせ等に対し迅速に対処することが可能となった。一方、MS検査において、患児の服薬の有無が直接影響を及ぼす場合もあり、今回その相関が若干ではあるが認められたことにより、交感神経系に作用する薬剤などの服薬について、今後とも保健所に対して適切な対応を願う情報提供が可能となった。

精度管理についてはHPLC測定に関する実施表の作成、内部精度管理を手書きで行っていた方法からパソコンによる方法に変更することにより、業務の迅速化と正確化が図られ、精度の向上にもつながった。今後、疑陽性者、精密検査者のデータについても集計・解析を行うことにより、小児癌の検査精度の向上、並びにNB事業の推進に寄与するものと考えられる。

5. ま と め

1997年までにNBの小児慢性特定疾患に認定された患者並びに検査のルーチンワーク業務に対する各種項目についてデータベースを作成した結果、迅速な治療への情報提供が可能であることが示唆されるとともに、患者の追跡調査に役立てることが可能と思われた。また、ルーチンワークにおいては保健所からの問い合わせ、保健所が市町村へ尿採取セットを配布する際の資料提供並びに保護者からの受診病院に関する問い合わせ等に対し迅速に対処することが可能となった。さらに、HPLC測定に関する実施表の作成、内部精度管理を手書きで行っていた方法からパソコンを利用した

方法に変更することにより、業務の迅速化と正確化がはかられ、精度の向上にもつながった。

本稿をまとめるにあたり、ご協力をいただいた、こどもみらい課母子保健班の関係各位に深謝いたします。

文 献

- 1) 社会福祉法人、恩賜財団母子愛育会編：改訂版神経芽細胞腫マスキリング，中央出版，東京，26-29，1989.
- 2) Sawada T: Laboratory techniques and neuroblastoma screening. Lancet, 2, 1134-1135, 1988.
- 3) 石川和子，他：青森県における神経芽細胞腫マスキリング実施状況，青森県環境保健センター所報，9，16-20，1998.
- 4) 社会福祉法人，恩賜財団母子愛育会編：神経芽細胞腫マスキリング精度管理，中央出版，東京，39-40，1994.

陸奥湾産ホタテガイ中のマウス致死成分・ イエットキシンの周年変動

中谷 実 神 毅統 今井美代子¹⁾ 三浦 啓徳 古川 章子

Yearly fluctuation of yessotoxin in scallops in Mutsu Bay

公定法下痢性貝毒試験に影響を及ぼす恐れのあるマウス致死成分・イエットキシンの陸奥湾産ホタテガイ中の含量を高速液体クロマトグラフ法（HPLC）により測定した。1998年1月～99年3月に採捕された検体を対象に調査を行ったところ、対EUホタテガイ輸出に係る指定生産海域内に位置する野辺地定点での貝毒モニタリング調査時期（12月～3月）の含量は、97年度においては0.20～0.55 μg/g、98年度においては0.51～0.89 μg/gであった。YTX含量は、野内定点と比べ野辺地定点でより高い傾向が観察され、多峰性で推移し、通年で含有されていた。

Key words : scallop, DSP, yessotoxins (YTX) , HPLC, mouse bioassay

1. はじめに

イエットキシンの(YTX)は村田らによって陸奥湾産ホタテガイから初めて発見された、分子内に2つの硫酸エステルを持つポリエテル化合物である¹⁾。マウスに腹腔内投与した場合には高い毒性を示し、2 μgでマウスを死に至らせるが、経口投与の場合にはほとんど害を及ぼさないとされている²⁻⁴⁾。

図1に示すようなアナログの存在が知られるYTX群は、日本以外では、ノルウェー、チリ、イタリア、ニュージーランド産の二枚貝からの検出が報告されている^{1, 5, 6)}。下痢性貝毒試験法で検出されることから、オカダ酸群、ペクテノトキシニン群と共に下痢性貝毒として分類されていたが、現在では、各成分を分離して評価・規制するとの方針が国際的な趨勢となっている⁷⁾。

陸奥湾内ではこれまで下痢性貝毒以外による毒化は報告されていない。通常、陸奥湾内の二枚貝の毒化が観察されるのは春から夏にかけての一時期であり、冬季に毒化が起こることは非常に稀である。

現在のところ、対EUホタテガイ輸出に係る生産海域指定は、青森県陸奥湾東部に対してのみなされており、生産海域モニタリングのうち貝毒項目の検査は12～3月に行われている。この時期のホタテガイの貝毒含有量、特に夏季には毒力の大半を占めることが

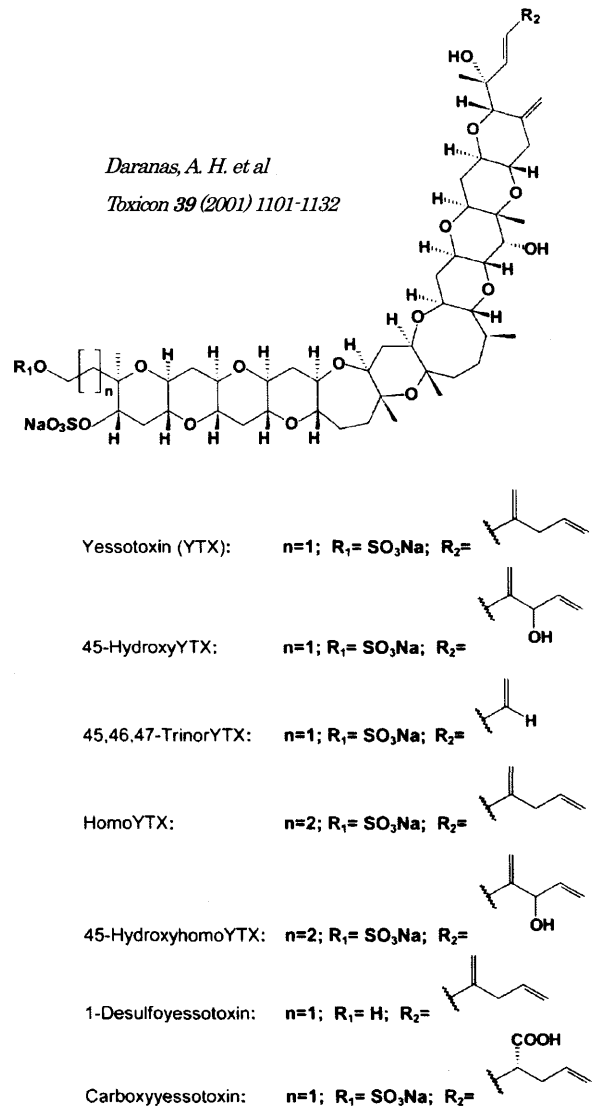


図1 イエットキシニン群の構造式

1) 青森県水産増殖センター

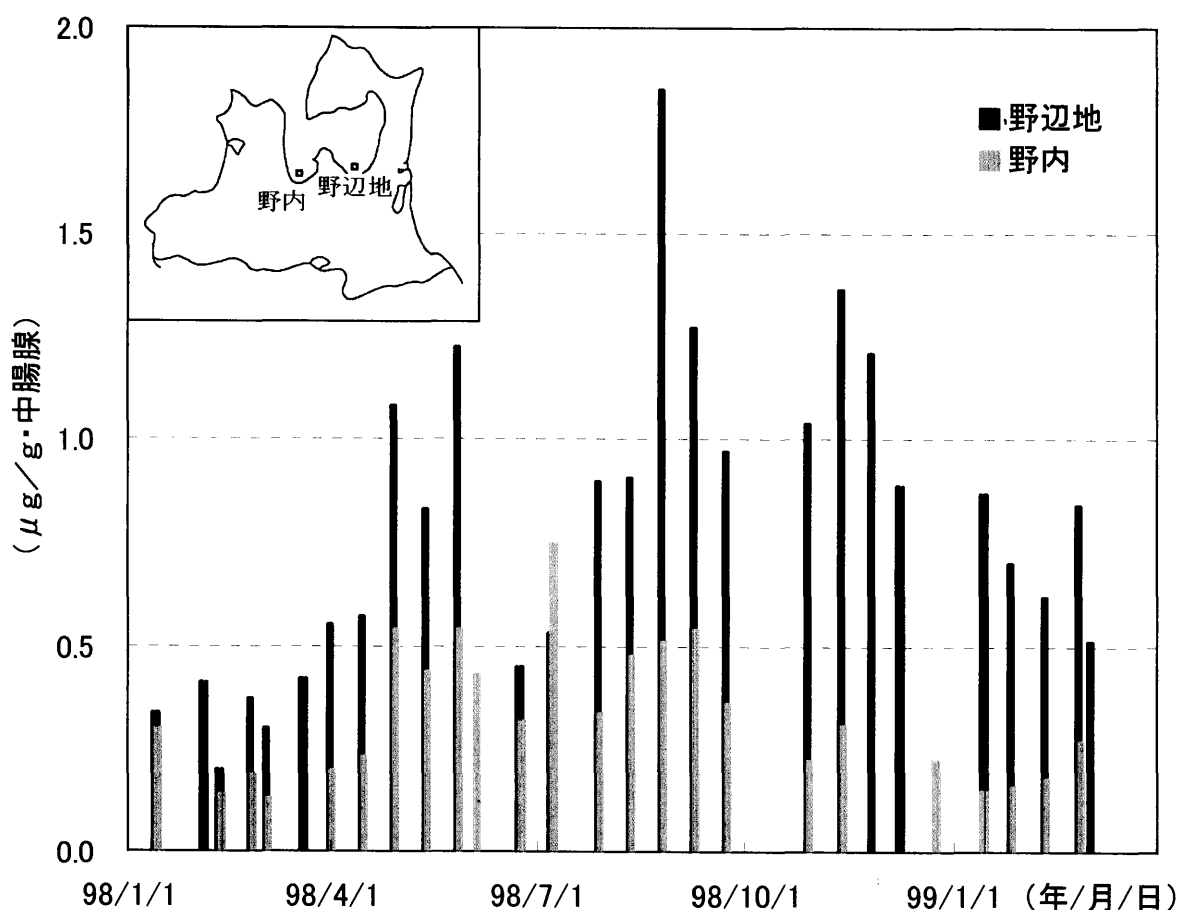


図2 1998年1月～1999年3月にかけてのYTX含有の推移

多いことが知られる^{8, 9)} YTXの含量は非常に重要と考えられる。今回は、冬季を含む周年での養殖ホタテガイ中YTX含量の推移について報告する。

2. 調査方法

陸奥湾内の野内及び野辺地の2定点(図2左上)で採捕したホタテガイの中腸腺を分離し、ホモジナイズ後、 -40°C で冷凍保存した。試薬、装置、測定条件、試料溶液の調製等は前報告と同様とし^{5, 9)}、YTX含量を高速液体クロマトグラフ法(HPLC)により測定した。

3. 結果及び考察

調査結果を図2に示した。調査期間内の1998年1～3月には中腸腺当たりのYTX含量は $0.5\mu\text{g/g}$ 以下と低い濃度で推移し、4～5月に上昇し、6月に下降した後再上昇して、野内では7月、野辺地では9月頃最高濃度に達し、11月に再びピークを迎えた後、緩慢に減少している。このようにYTXは野内、野辺地

の双方で通年で観察され、含量は多峰性の推移を示しているが、この原因がホタテガイの減毒の遅さにあるのかYTX生産プランクトンの出現動態にあるのかは不明である。

対EU貝毒モニタリング調査時期(12月～3月)の野辺地定点での含量は $1\mu\text{g/g}$ 以下である。中腸腺比率を10%程度とすれば $1\mu\text{g/g}$ はマウス試験での可食部当たりの換算値 0.05MU/g つまり検出下限値に相当する。

厚生省告示による公定法下痢性貝毒試験¹⁰⁾は1984年の安元らによる報告¹¹⁾に準じた方法であり、当センターにおいても従来、この試験法が用いられてきた。

これらの試験法に先立って報告された1978年安元法¹²⁾は、3回のアセトン抽出(3, 2, 2倍量)による抽出液を濃縮し、1%Tween60生理食塩水に懸濁してマウスに接種する方法である。1984年安元法では上記の操作の途中に、塩類や麻痺性貝毒の影響を低減する目的でジエチルエーテル-水分配が追加されてい

る。これに従っている日本の下痢性貝毒試験の告示法には、ジエチルエーテル—水分配の工程が含まれている。

YTXは上記の液—液分配精製操作において失われ、また、アセトン抽出における抽出効率も低い場合があることが指摘されているところである^{8, 13)}。EUでの貝毒検査法標準化を図るために設けられているコミュニティリファレンスラボでは、YTXの毒性評価が定まるまではYTXを検査対象とすべきであるとして上記のジエチルエーテル—水分配精製操作を行わないようにEU各国に対し指導していたが、これについては抵抗感を表明している研究者も居る¹⁴⁾。

前回のEUによる青森県に対する査察において、液—液分配精製操作は毒素を洗い流してしまうので問題があることが指摘されたこと、また、今後のEUの進む方向は1978年安元法であるとの言を受けたこと¹⁵⁾及びEUコミュニティリファレンスラボはEU域内でも同様の指導を行っていること¹⁴⁾等の理由により、青森県陸奥湾における平成13年度の生産海域モニタリング下痢性貝毒検査は、分配操作の無い1978年安元法により行われている。

1984年安元法を基にした公定法による分析においては、陸奥湾産ホタテガイで観察されている程度のYTX含量であれば、検査結果に及ぼすYTXの影響はごく小さいと考えられるが⁸⁾、1978年安元法を用いた場合には、他の毒成分と共にYTXも毒性を発揮するため、毒力は高く見積もられることになる。

今回の調査では、12～3月の野辺地定点のホタテガイ中YTX含量は、1978年安元法による下痢性貝毒試験で検出されるレベルに僅かに足りない程度ではあったが、マウス接種による下痢性貝毒試験は遊離脂肪酸等にも影響を受けることを鑑み、また、YTX含量の周年変化の動向がおおよそ毎年同じと仮定するならば、1978年安元法を用いることにより12～3月の冬季に下痢性貝毒が検出されることも起こりうる。

YTXは経口摂取では低毒性であり、Auneらによる調査では10mg/kgもの大容量を与えてもマウスは死に至らず、心筋に急性毒性による障害を与える最小毒性量(LOEL)は2.5mg/kgであったとされている⁴⁾。これらの知見やアザスピロ酸等新奇貝毒の規制の必要から、現在EUでは、新たな規制値・検査法が設けられる方向で検討が進められている¹⁶⁾。新たな試験法は、「可食部からアセトン及びメタノールで抽出、液—液

分配、可食部25g相当量をマウスに投与」とされ、特にYTXについては規制値が大幅に緩和される¹⁷⁾。当センターを始め、YTXの影響が懸念される検体を取り扱う試験所では、今後、最新の試験法を採用してゆく必要があると考えられる。

4. ま と め

- (1) 野内、野辺地の2定点で採捕された陸奥湾産ホタテガイ中のイエットキシシン(YTX)の含量を高速液体クロマトグラフ法(HPLC)により測定した。
- (2) 対EUホタテガイ輸出に係る指定生産海域内に位置する野辺地定点での貝毒モニタリングの時期(12月～3月)のYTX含量は、1997年度においては0.20～0.55 μ g/g、1998年度においては0.51～0.89 μ g/gであった。
- (3) YTX含量は野内定点と比べ野辺地定点でより高い傾向が観察された。
- (4) YTX含量は多峰性の推移を示し、通年で含有されていた。

5. 謝 辞

YTXの分析については、日本食品分析センターの安元健博士、東北大学農学部の佐竹真幸博士、東北区水産研究所の鈴木敏之博士から、有意義な研修や情報提供を受けることができました。厚くお礼申し上げます。

また、貝毒標準品の提供を戴きました日本水産資源保護協会及び日本食品分析センターの担当の方々に感謝いたします。

文 献

- 1) Murata, M. et al.: Isolation and structure of yessotoxin, a novel polyether compound implicated in diarrhetic shellfish poisoning, *Tetrahedron Letters*, **28**, 5869–5872, 1987.
- 2) Terao, K. et al.: Histopathological studies on experimental marine toxin poisoning – 5: the effects in mice of yessotoxin isolated from *Patinopecten yessoensis* and a desulfated derivative, *Toxicon*, **28**, 1095–1104, 1990.
- 3) Ogino H. et al.: Toxicologic evaluation of yessotoxin, *Natural Toxins*, **5**, 255–259, 1997.

- 4) Aune, T. et al. : Comparison of oral and intraperitoneal toxicity of yessotoxin towards mice, *Toxicon*, **40**, 77 – 82, 2002.
- 5) Yasumoto T. and Takizawa A. : Fluorometric determination of yessotoxins in shellfish by high-pressure liquid chromatography, *Biosci. Biotech. Biochem.*, **61**, 1775 – 1777, 1997.
- 6) Daranas, A. H. et al : Toxic marine microalgae, *Toxicon*, **39**, 1101 – 1132, 2001.
- 7) The Intergovernmental Oceanographic Commission of UNESCO : Re-evaluating DSP, *Harmful Algae News*, **16**, 21, 1997.
- 8) 日本食品分析センター：平成11年度二枚貝等貝毒安全対策事業総合検討会資料, 2-6-1, 水産庁, 2000.
- 9) 中谷 実, 他：平成11年度陸奥湾産ホタテガイの下痢性貝毒等成分調査, 青森県環境保健センター研究報告, **11**, 55 – 60, 2000.
- 10) 厚生省環境衛生局乳肉衛生課：昭和56年5月19日付環乳第37号通知.
- 11) Yasumoto, T. : In “Seafood Toxins” Ragelis E. P., ed. ACS: sump. Sr. 262. ACS., 207 – 214, 1984.
- 12) Yasumoto, T. : Bulletin of the Japanese of Scientific Fisheries, **44** (11), 1249 – 1255, 1978.
- 13) Ramstad, H. et al : Repeatability and validity of a fluorimetric HPLC method in the quantification of yessotoxin in blue mussels (*Mytilus edulis*) related to the mouse bioassay, *Toxicon*, **39**, 1393 – 1397, 2001.
- 14) Yessotoxin Overview, The Irish Skipper News, <http://www.irishskipper.net/cgi-bin/news/archives.cgi?category=2&view=4-01>
- 15) 青森県生活衛生課：EUマリントキシシリファレンスラボラトリー所長による県の検査機関等の視察について, 平成9年3月21日.
- 16) WTO文書：G/SPS/N/EEC/142.
- 17) 日本食品分析センター：平成13年度二枚貝等貝毒安全対策事業総合検討会資料, 水産庁, 2002.

青森県における有害大気汚染物質モニタリングの分析方法の確立 —重金属類—

花石 竜治 石塚 伸一

The establishment of analysis methods of heavy metals of hazardous air pollutants in Aomori prefecture

大気汚染防止法で定められている有害大気汚染物質のうちの重金属類の分析・データ解析方法に関して、環境省マニュアルに明記されていないことを検討した。測定元素の種類により、前処理でふっ化水素酸を添加すべきものとそうでないものがあることが分かった。また、ベリリウム電気加熱原子吸光分析にはバックグラウンド信号を補正する方法として、重水素補正法が適切であることが分かった。さらに、標準添加法による電気加熱原子吸光分析でのデータの誤差の見積もりについて考察した。

Key words : hazardous air pollutants, heavy metals, electrothermal atomic absorption spectrometry

1. 緒 言

ニッケル、クロム、ヒ素、マンガン、ベリリウムといった重金属類は、大気汚染防止法でモニタリングすることが決められている有害大気汚染物質である。青森県では、平成11年度からこれらを直営分析によって測定することとなった。環境省からマニュアルが提示されている^{1, 2)}が、細部については更に検討すべき点も多く、いろいろな地方自治体の環境研究所でその分析方法が検討されている^{3, 4)}。著者は青森県における分析方法の確立の検討を行った。本報告では、これら重金属類の分析方法の確立に際して問題となった事項を考察する。

2. 装置、器具および試薬類

原子吸光分析装置は、「偏光ゼーマン装置」として日立Z-8200を用いた。また「重水素補正装置」として日本ジャーレルアッシュ社AA-890を用いた。ヒ素の水素化物発生原子吸光分析には、UNICAM社製Solaar969、水素化物発生装置として日本ジャーレルアッシュ社HYD-10U、HYD-20Uを用いた。

圧力容器は、内部にテフロンつぼの装着された、フロン工業製のF-1029-04S（容量50ml）を用いた。

ベルトポンチは小山刃物の径47mmのもの（BP47）を使用した。

硝酸と過酸化水素水は和光純薬工業製を用い、硝酸は有害金属測定用、過酸化水素水は原子吸光分析

用を用いた。ふっ化水素酸はMerck社のSuprapurグレードのものを用いた。

水は特記がないものは、電気伝導率0.05 μ S/cm以下の超純水を用いた。

ニッケル、クロム、マンガン、ヒ素、ベリリウムの標準溶液は、和光純薬工業製の100mg/lのものを(2 \rightarrow 100)硝酸で希釈して用いた。

石英繊維ろ紙は、東京ダイレック製のTIS-SUQUARTZ2500AT-UP（8 \times 10インチ）を用いた。

3. 重金属類の分析の前処理方法と 機器分析方法の選択

一般に大気中の重金属類は、石英繊維ろ紙などのフィルターに捕集した粉じんを酸分解などの前処理によって処理し、検液を分析する。酸分解にはさまざまな方法があり、一長一短がある。

このような中で、環境省の有害大気汚染物質の分析マニュアルでは、粉じん中の金属を効率よく前処理する方法の一つとして、硝酸・過酸化水素分解の圧力容器法が採用されている。圧力容器法は、従来の常圧での分解法に比べて、酸溶液の温度を高くすることができ、金属の抽出効率が格段に良くなっている。常圧の酸分解では抽出が困難なクロムの抽出も、ふっ化水素酸を添加すれば定量的となる。また、密閉されたテフロン容器の中で検体を取り扱うため、汚染の心配も少ないという利点がある。

環境省のマニュアルでは、捕集フィルターに石英

繊維ろ紙を用いた場合には、ふっ化水素酸を加えて、石英繊維ろ紙を分解するように記述がある。また、クロムについては、粉じん捕集に用いるフィルターが何であっても、ふっ化水素酸を添加して全分解を行うように記述がある。ニッケルとマンガンについては、ケイ素と融合体をつくっている場合があるので、ふっ化水素酸を添加して、分解を行うようにという指針がある。ベリリウムとヒ素については、ふっ化水素酸を添加せよという記述はない。一方、他の地方自治体の環境研究所では、クロム、ニッケル、マンガンはもちろんであるが、ベリリウム、ヒ素でも、ふっ化水素酸を添加した压力容器法で前処理をしているところがあった^{3, 4)}。

以下の検討の結果、当所では、マンガン、クロム、ニッケルの分析には、压力容器中で硝酸・ふっ化水素酸・過酸化水素分解を施して得られた検液を、ヒ素およびベリリウムの分析には、压力容器中での硝酸・過酸化水素分解で得られた検液を用いることにした。

当所で元素によりふっ化水素酸を添加するものとし、ないものの2法を行っている根拠は、以下のとおりである。

八戸市内で平成11年2月に採取した検体について、ふっ化水素酸を添加して前処理したものと添加しなかったものについて、分析値を比較した(表1)。

ふっ化水素酸を添加しないと、分析値がニッケルで70%、クロムで30%、マンガンを70%程度に下がった。クロムについては環境省マニュアルの指示どおり、ふっ化水素酸を添加して前処理を行うべきことは言うまでもない。ニッケルとマンガンについては、ふっ化水素酸を添加しても分析に支障がないことと、前述の回収率低下とを考え合わせて、ふっ化水素酸を添加して前処理を行うべきであると結論された。

ヒ素については、ふっ化水素酸を添加した場合に、測定値が低くなった。これは、ふっ化水素酸を添加した場合には、酸分解が終わった後の蒸発乾固が必須であり、この際に、ヒ素がハロゲン化物などとして揮散してしまうためと考えられる。従って、ふっ化水素酸を添加しないで行うことが必要である。

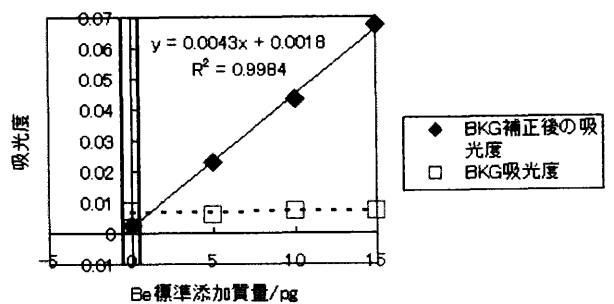
ベリリウムについては、図1に示すように、ふっ化水素酸を添加して前処理を行うと、バックグラウンド吸収が高くなる現象が認められた。バックグラウンド吸収が高いため、重水素補正の原子吸光分析法を用いる場合には、ホローカソードランプ光軸と重水素ラン

プ光軸とを一致させないと、誤差の原因となる。

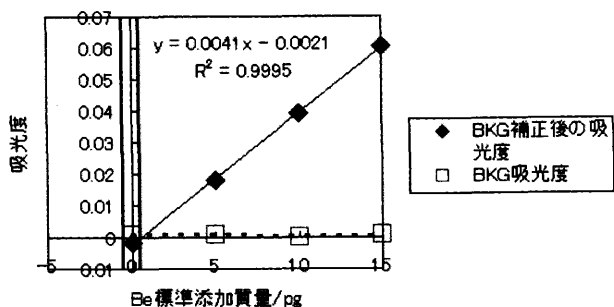
ベリリウムの分析方法の文献を検索したが、電気加熱原子吸光分析におけるバックグラウンド補正法の選択について記したものは見当たらなかった。偏光ゼーマン補正の原子吸光分析法は、ベリリウムに対しては、いわゆるリファレンスモードの吸収(ゼーマン分裂し

表1 ふっ化水素酸を添加して前処理したものと添加しなかったものの分析値の比較。(分析値の単位: ng/m³)

	HF 添加(A)		HF 無添加(B)		B/A(%)	
	検体 1	検体 2	検体 1	検体 2	検体 1	検体 2
Ni	9.9	14	6.8	9.8	69	70
Cr	14	17	5.1	4.7	36	27
Mn	68	63	48	39	71	62
As	1.1	0.56	2	1.4	180	250



(a) HF 添加



(b) HF 無添加

図1 ベリリウムのふっ化水素酸添加、無添加前処理方法の比較(標準添加測定)。検体は平成12年4月に八戸小学校で採取した粉じん。縦線は検出下限。BKGはバックグラウンド吸収の意味。

た原子吸収で、補正に使われる原子吸収を含む)が約40%の強度もあり、単に重水素補正を行うもの比べて感度が悪い。日立の偏光ゼーマン装置のマニュアル⁵⁾には、20 μl注入の場合、検量線法の定量下限は2 μg/l (40pg相当)とある。重水素補正法であれば、0.5 μg/lの溶液20 μl (10pg)に対して、0.05程度(S/N=20)の吸光度が得られる。環境省マニュアルに記載されているベリリウムの目標定量下限値は0.4ng/m³であり、重水素補正法では検量線法に比べて定量下限が高い標準添加法でも、0.09ng/m³の定量下限値を得ることができる。

ベリリウムの標準添加法による分析で目標定量下限をクリアするためには、重水素補正法を用いることが必須であり、前述のように、重水素補正法ではバックグラウンド吸収の少ないことが必要であった。そこで当所では、ベリリウムの分析の前処理にあたっては、バックグラウンド吸収を与える物質が生成しない方法、すなわち、ふっ化水素酸を添加しない前処理を行うこととした。ふっ化水素酸を添加した場合のバックグラウンド吸収の原因は、ふっ化水素酸によって溶け出した物質の、測定波長(紫外部)付近における分子吸収などの干渉と考えられる。

分析操作の簡略化の立場からは、粉じんとして捕集された重金属類元素すべてを一つの前処理方法で分析することが望ましいが、実際上は、分析に使用できる機器の種類と、サンプリングされた粉じんの分析化学的性質によって、前処理方法を工夫する必要がある。当所でサンプリングした試料を、当所の装置で分析する場合、分析の系統的、偶然的誤差を少なくするために、2つの方法の併用が必要であった。以上、検討した結果、当所での重金属類の前処理方法は元素により2法を使い分けることとした。表2に各元素の前処理方法についてまとめた。

4. 分析方法の前処理の概略

(1) 硝酸・ふっ化水素酸・過酸化水素分解

粉じんを捕集した石英繊維ろ紙から、47mm φのベルトポンチでくりぬいた3枚をセラミックはさみで切り刻み、テフロンつぼに入れる。ふっ化水素酸(3 ml)、硝酸(5 ml)、過酸化水素水(1 ml)を加えて、圧力容器のふたを閉め、ホットプレート上で180~200℃で2時間加熱する。室温まで放冷し、テフロンつぼをホットプレートに載せて加熱

して、乾固する。再び室温まで放冷し、(2→100)硝酸5 mlを加えて、時計皿をかぶせて30分間穏やかに沸騰させて、塩類を溶かす。放冷し、ろ紙(5 B)でろ過する。残渣を(2→100)硝酸で洗って、ろ液を25mlに定容し、検液とする。

(2) 硝酸・過酸化水素分解

粉じんを捕集した石英繊維ろ紙から、47mm φのベルトポンチでくりぬいた3枚をセラミックはさみで切り刻み、テフロンつぼに入れる。硝酸(5 ml)、過酸化水素水(1 ml)を加えて、圧力容器のふたを閉め、ホットプレート上で180~200℃で2時間加熱する。室温まで放冷し、ろ紙(5 B)でろ過する。ろ紙上の残渣を水で洗って、ろ液を25mlに定容し、検液とする。

5. 各元素の機器分析方法の概略

各元素の機器分析方法について検討した結果は表3のとおりである。

(1) 電気加熱原子吸光分析の測定の繰り返し回数

一般的に、電気加熱原子吸光分析は、測定値の相対的な偶然誤差がフレーム法に比べて大きい。そのため、例えば、日本工業規格(JIS)の工場排水試験法(JIS K0102)では、鉛などの電気加熱法での

表2 当所における重金属類分析の前処理方法

元素	分解容器	酸の種類
Ni	圧力容器	HNO ₃ /HF/H ₂ O ₂
Cr		
Mn		
As		HNO ₃ /H ₂ O ₂
Be		

表3 各元素の機器分析方法の概要

元素	原子吸光機器の種類	バックグラウンド補正方法	定量方法	検液の定量下限(μg/l)	検液の定量上限(μg/l)
Ni	電気加熱原子吸光	偏光ゼーマン 重水素補正	標準添加	30	100
Cr				20	50
Be				0.3	—
Mn	フレーム原子吸光	偏光ゼーマン	検量線	10	2000
As	水素化物発生原子吸光	なし		0.6	200

分析では標準添加法で3回の繰り返し測定が規定されている。ところが、環境省の有害大気汚染物質測定方法マニュアルの電気加熱原子吸光分析の項には測定の繰り返し回数が見えていない。

繰り返し回数を多く取ると、中央極限定理により、平均化された測定値の誤差は減少する。ところが、電気加熱原子吸光分析は、乾燥、灰化、原子化、クリーンアップ、冷却という一連のサイクルを繰り返すので、フレーム法に比べて時間がかかる。一連の標準添加測定に時間をかけると、装置の感度変動が影響して、測定値に系統的誤差をもたらす可能性がある。

当所では、公定法であるJISの工場排水中の鉛などの分析法の繰り返し回数が3回であることと、前述の相反する2点の兼ね合いを考慮して、有害大気汚染物質調査の電気加熱原子吸光分析では測定の繰り返し回数を2回とした。以下に述べるように、電気加熱原子吸光分析で測定を行うニッケル、クロム及びベリリウムについては、この繰り返し回数から求められた定量下限値は、環境省マニュアルの目標定量下限値をクリアできている。

(2) ニッケル

検液1容積と、4段階の濃度のニッケル標準溶液(0, 25, 50, 75 $\mu\text{g/l}$)1容積とをマイクロピペットを用いて手操作で混合し、標準添加を行う。この溶液の電気加熱原子吸光分析(20 μl 注入)を行い、検液中のニッケル濃度を推定する。なお、オートサンプラーによる標準添加は、ばらつきが大きすぎて用いられなかった。

測定波長、昇温プログラムなどはニッケルの既定値で行う。これを表4に示す。

検液の操作ブランクの値は、30 $\mu\text{g/l}$ 程度である。5回繰り返しの操作ブランク分析から、20 μl の溶液注入での検液の検出下限を求めると10 $\mu\text{g/l}$ 程度である。

大気中のニッケル濃度の検出下限値(3 σ)及び定量下限値(10 σ)の算出方法は以下のとおりである。式(1)に、操作ブランクのニッケル濃度測定値を代入して大気中のニッケル濃度に換算し、5回の繰り返し測定の標準偏差(σ)を求めて、3倍、10倍を、それぞれ検出下限値、定量下限値とする。

$$C = \frac{M \times E \times S}{s \times V_{20}} \quad (1)$$

C: 大気中のニッケル濃度 (ng/m³)

M: 検液中のニッケル濃度 ($\mu\text{g/l}$)

E: 検液体積 (ml)

S: 試料を採取したフィルター面積 (cm²)

s: 分析に用いたフィルター面積 (cm²)

V₂₀: 20℃における大気捕集量 (m³)

このようにして大気中のニッケル濃度の定量下限値を求めると、3 ng/m³程度となり、環境省マニュアルの目標定量下限値4 ng/m³をクリアする。

繰り返し誤差との兼ね合いに基づく厳密な統計的考察はしていないが、吸光度プロットのグラフの湾曲の度合いから、検液の定量上限を100 $\mu\text{g/l}$ とした。これから、装置の定量上限は2000pgとなる。

ニッケルの標準添加測定では、最高750pgを添加する。よって、前述の検液の定量上限から、検液に含まれるニッケルの量の上限は、1250pgであり、当所での測定では、検液濃度125 $\mu\text{g/l}$ に相当する。この制限を少し厳しくして、実際は検液濃度が100 $\mu\text{g/l}$ を超えたら、10倍に希釈して測定することとした。

従って、30 $\mu\text{g/l}$ から100 $\mu\text{g/l}$ までが検液の定量範囲となる。

(3) クロム

検液1容積と、4段階の濃度のクロム標準溶液(0, 5, 10, 15 $\mu\text{g/l}$)1容積との混合によって、標準添加を行う。この溶液の電気加熱原子吸光分析(20 μl 注入)を行い、検液中のクロム濃度を推定する。ニッケルと同様、オートサンプラーを用いるこ

表4 ニッケルとクロムの電気加熱原子吸光分析の条件

項目	Ni	Cr	
測定波長(nm)	232.0	359.3	
スリット幅(nm)	0.2	1.3	
キュベット	パイロ化チューブ形		
キャリアガス流量(ml/min)	200		
同上(原子化時)(ml/min)	30		
温度プログラム	乾燥	80℃→140℃ (40 s)	80℃→140℃ (40 s)
	灰化	1400℃(30 s)	700℃(30 s)
	原子化	2700℃(10 s)	2600℃(10 s)
	クリーンアップ	2800℃(4 s)	2700℃(4 s)

とはできなかった。

測定波長、昇温プログラムなどはクロムの既定値で行う。これを表4に示した。

ニッケルではさほど目立たなかったブランク値がクロムでは高い。これは、石英繊維ろ紙1枚に8 μ g程度のクロムが含まれているためである。ブランクが高いので、分析上はこのブランク濃度から定量上限までどれだけ幅があるかが、問題となる。

前述した前処理法で得られた検液の操作ブランク値は40 μ g/l程度である。5回繰り返しの操作ブランク分析から求めた、20 μ lの溶液注入での検液の検出下限は7 μ g/l程度である。大気中のクロム濃度の定量下限値は、ニッケルの場合と同じようにして求めるが、これは4 ng/m³程度となる。

吸光度プロットのグラフの湾曲の度合いから、定量上限を50 μ g/lとした。このとき、吸光度は0.7程度である。装置の定量上限は1000pgとなる。

クロムでは、ニッケルに比べて分光系の感度変動が少ないので、吸光度の値で定量上限を判断し、標準添加測定で吸光度の上限が0.7を超えたら、検液を希釈してもう一度測定を行うようにする。また、クロムの検液のブランクが40 μ g/lで、検液の定量上限が50 μ g/lであるから、検液を希釈しないで測定できるのは、清浄地域の検体だけであることに注意する。

(4) ベリリウム

検液5 μ lと、ベリリウム標準溶液1 μ g/lの0, 5, 10, 15 μ lとを混合した4段階の標準添加溶液の電気加熱原子吸光分析を行う。測定波長、昇温プログラム、時定数などはベリリウムの既定値で行う。表5にこれらの条件を記した。なお、ベリリウムについては、オートサンプラーを用いてもばらつきが小さいため、標準添加測定はオートサンプラーを用いた。

前述した前処理法で得られた検液の5回繰り返しの操作ブランク分析から求めた、5 μ lの検液注入での検液の検出下限は0.1 μ g/l程度である。操作ブランク値は検出下限未満である。大気中のベリリウム濃度の定量下限値は、ニッケルの場合と同様にして求めるが、0.09ng/m³程度となり、目標定量下限値の0.4ng/m³をクリアーする。

定量上限は求めている。平成12年度の測定結果では、すべての検液で定量下限未満の濃度であり、上述の標準添加範囲では希釈しない検液をそのまま使用して問題なかった。

(5) マンガン

0.01mg/lから2 mg/lまでの数段階の濃度の標準溶液を調製する。測定の繰り返し回数は1回とする。

5回繰り返しの操作ブランク分析から求めた検液の検出下限値は、0.003mg/l程度であり、操作ブランク値は検出下限未満である。大気中のマンガン濃度の定量下限値はニッケルの場合と同様にして求めるが、2 ng/m³程度となり、目標定量下限値の15ng/m³をクリアーする。

一般的なフレーム原子吸光でのマンガンの検液の定量上限は2 mg/lであるが、この範囲まで相関係数が1に近く、検量線の直線性が保たれていることが分かった。よって検液の定量上限は2 mg/lとする。表6に分析条件を記した。

(6) ヒ素

検液5 mlに(1→2)塩酸3 ml, 10%よう化カリウム溶液4 mlを添加して室温で1時間以上放置し、予備還元を行う。これに水を加えて20mlに定容する。ヒ素の0.1mg/l標準溶液0, 1, 2, 5, 10mlを取り、それぞれに(1→2)塩酸3 ml, 10%よう化カリウム溶液4 mlを加えて室温で1時間以上放置し、その後、水を加えて20mlに定容する。装

表5 ベリリウムの電気加熱原子吸光分析の条件

項目	Be	
測定波長(nm)	234.9	
スリット幅	2	
キュベット	パイロ化チューブ形	
キャリアガス流量(ml/min)	2000	
温度プログラム	乾燥	rt→170°C (30 s) 170°C(30 s)
	灰化	170°C→700°C(10 s) 700°C(20 s)
	原子化	2500°C(5 s)
	冷却	50°C(30 s)
	クリーンアップ	2200°C(10 s)
	冷却	rt(40 s)

表6 マンガンのフレーム原子吸光分析の条件

項目	Mn
測定波長(nm)	279.6
バーナー	アセチレン/空気
バーナー高さ	7.5 cm

表7 ヒ素の水素化物発生原子吸光分析の条件

項目	As
測定波長(nm)	193.7
バックグラウンド補正	なし
計測時間(s)	5
分析回数	1
キャリアガス流量(ml/min)	0.3
コントロールつまみ	6
加熱石英管温度(°C)	1000
Stabilize delay(s)	60
Baseline delay(s)	60

置に1.5%テトラヒドロほう酸ナトリウム溶液(0.5%水酸化ナトリウムを含む)、(1→2)塩酸、水をセットして、水素化物発生原子吸光分析を行う。検液と同じように予備還元した標準溶液を分析して検量線を作成する。表7に分析条件を記した。

予備還元され定容された検液の測定値が検量線の上限を超えた場合には、その予備還元と定容が終わった検液を水で10倍に希釈して、測定する。この際、希釈は酸で行うのではなく、水で行うのであり、ブランクの差し引き計算のしかたに注意する。

平成12年度の測定では、5回繰り返しの操作ブランク分析から検液の検出下限を求めると、検液5mlに対して検出下限が0.2µg/l程度であった。操作ブランク値は検出下限未満である。大気中のヒ素濃度の定量下限値はニッケルと同様にして求める。平成12年度の調査では、大気中のヒ素濃度の定量下限値は0.4ng/m³程度となり、環境省マニュアルの目標定量下限0.2ng/m³以上となったが、同一桁である。

水素化物発生原子吸光分析でのヒ素の検量線は一般的に2次であり、検量線を2次関数とした場合、前述の範囲内で相関係数が1であった。このことから、この一般的なヒ素の水素化物発生原子吸光分析の定量範囲の上限は、当所での分析でも定量上限としてよいことが分かる。

6. 電気加熱原子吸光分析での標準添加法における測定値の誤差の議論

(1) 吸光度依存の偶然誤差

原子吸光分析での偶然誤差の原因は、検出系の雑音によるものもあると考えられるが、とくに電気加熱法では、試料注入の誤差、グラファイトキューベッ

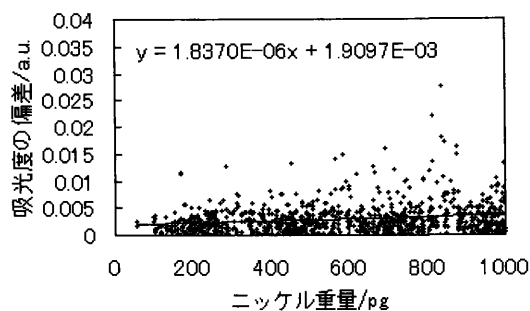


図2 ニッケルの電気加熱原子吸光分析での金属元素重量と吸光度のばらつきとの関係

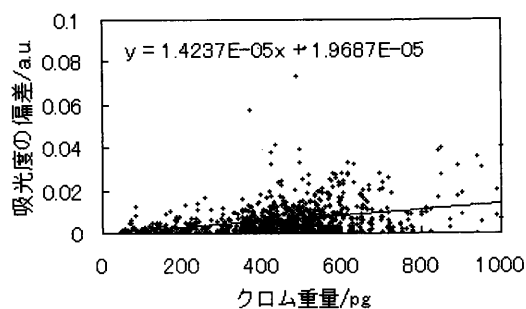


図3 クロムの電気加熱原子吸光分析での金属元素重量と吸光度のばらつきとの関係

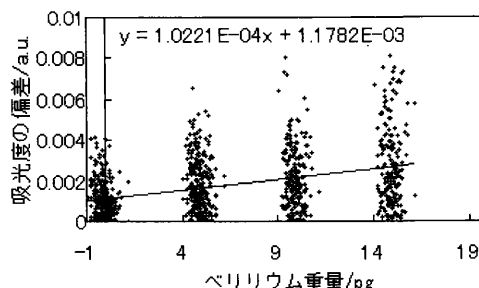


図4 ベリリウムの電気加熱原子吸光分析での金属元素重量と吸光度のばらつきとの関係

ト内での突沸や、原子化された気体の揺らぎによるものもあると考えられる。検出系の雑音は測定元素の重量には依存しないが、後3者の要因は測定元素の重量が多くなるに連れて大きくなっていくと簡単に推測できる。

(2) 測定元素の重量と偶然誤差との関係の解析

このことを、平成12年度の標準添加試験の結果を集計して、定量的に議論してみる。

図2がニッケル、図3がクロムでこれらは偏光ゼーマン装置を用いたものである。図4はベリリウムで重水素補正装置によるものである。標準添加試験

のグラフの近似一次直線から、実測値の吸光度と計算値の吸光度の差を求め、これを吸光度の偏差とし、同時に測定元素の重量を標準添加試験のグラフから求めたものである。当然、測定元素の重量とは、検液に含まれている元素の重量と標準添加した元素の重量との和である。この解析では、検液の中の塩類（マトリクス）の偶然誤差への影響を無視している。

ニッケルが、クロムよりも関係式の切片が大きいのは、ニッケルでは分光系のスリット幅が狭いので、雑音が相対的に大きく、この雑音がニッケルの量に対して一定であるからである。

グラフを見ると分かるように、測定元素の重量が増えるにつれて、偶然誤差が大きくなっていくことがわかる。この原因はやはり、前述したものによるところが大きいのであろう。

(3) 標準添加試験における測定値の誤差の見積もり

前述の解析で、定性的には、測定元素の重量が大きくなるにつれて、誤差も大きくなるということが分かった。よって、標準添加試験で未知試料の濃度が高ければ、未知試料濃度推定のための測定値も高くなり、従って、吸光度に誤差が大きくなる。そうすると、未知試料濃度推定の際の誤差も大きくなると思われる。

このことを定量的に考察すると次のとおりである。前述の解析で、測定元素の重量に対する吸光度

の偏差の関係式を求めた。今、ある標準添加試験を想定する。未知試料の濃度を決め、当所での標準添加測定条件（添加量）を設定する。ついで、上述の求めた関係式によって、測定元素の重量に応じた標準偏差をもつ正規乱数を生成させ、偶然誤差を含んだ吸光度の測定値を生成させる。こうして得た吸光度の測定値から直線近似の最小二乗法で逆に未知試料の濃度を推定する。得られた未知試料濃度の推定値は、偶然誤差を含む。こうして、多数回、この標準添加試験を真似た計算を行い、未知試料濃度推定値の誤差を計算する。未知試料濃度設定値を可変して、それに対する濃度推定値の誤差の関係を算出する。

実際の計算では、標準添加試験を真似た計算を10000回繰り返して、誤差の関係式を得た。添加量、添加段階などは、当所での設定値である。誤差のグラフを以下に示す。

図5のグラフから、ニッケルでは、検液の濃度が100 $\mu\text{g/l}$ ならば、検液の濃度が10 $\mu\text{g/l}$ の場合の10倍よりも小さい誤差をもつことがわかる。従って、ニッケルでは、定量上限値付近の濃度の検液を測定するときには、希釈しないで測定したほうが誤差が少ないことが分かる。このことは、クロムでは対照的である。クロムでは、検出系の雑音に由来する、吸光度に依存しない誤差の割合が低く、図6のとおり誤

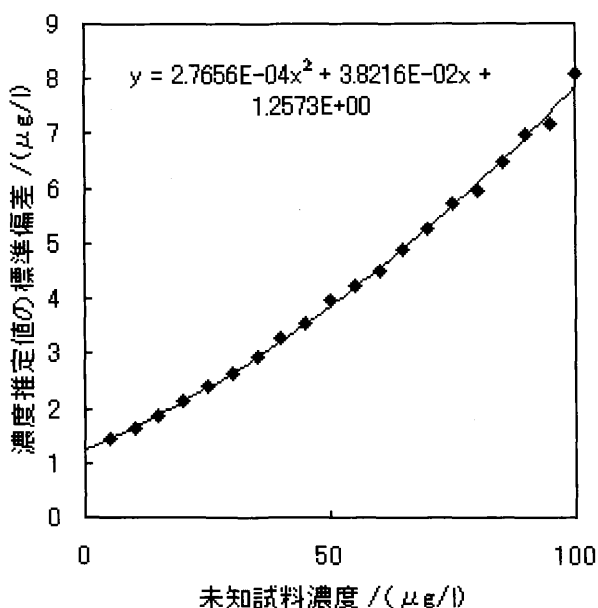


図5 ニッケルの標準添加法の電気加熱原子吸光分析における未知試料濃度とその推定値の標準偏差との関係

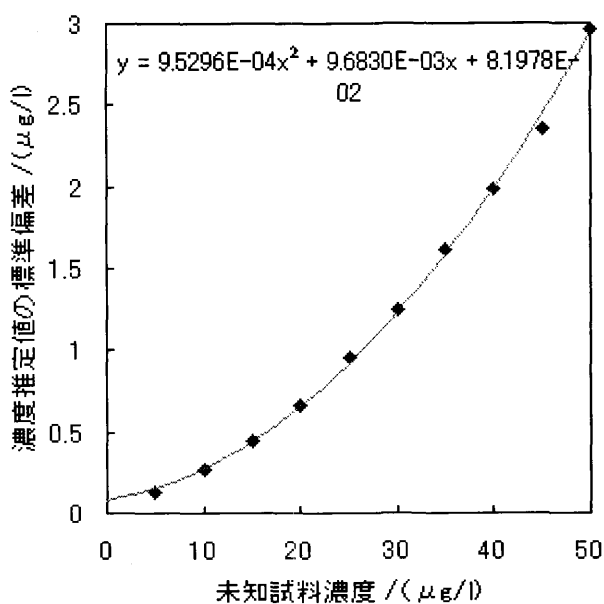


図6 クロムの標準添加法の電気加熱原子吸光分析における未知試料濃度とその推定値の標準偏差との関係

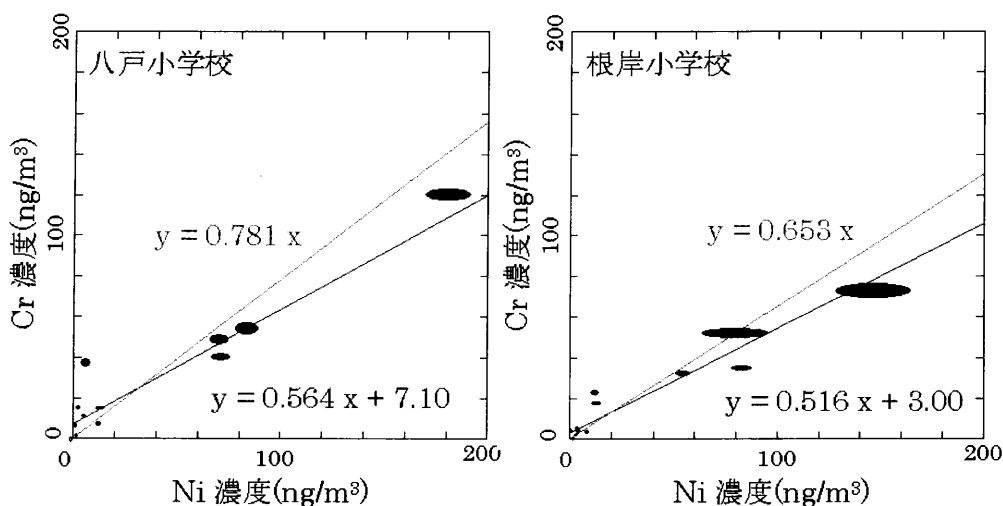


図7 平成12年度の八戸市内の2地点での大気中のニッケルとクロムの濃度の比

差のグラフが著しく下に凸である。クロムの定量上限は $50\mu\text{g/l}$ であるが、これを10倍に希釈して標準添加試験を行うと、誤差は10分の1以下になることが分かる。すなわちクロムは定量上限値付近の濃度ならば希釈して測定するほうがよいことになる。

(4) 誤差の見積もりを応用した環境データ解析

6 (3)の議論は、粉じんの環境濃度推定の誤差の見積もりに応用できる。ブランクを差引くときや希釈して測定したときには、誤差の伝播則に従って、誤差を見積もればよい。

平成12年度の八戸市内の2地点での大気中のニッケルとクロムの濃度の散布図を図7に示す。ここで、大気中濃度の標準偏差は、誤差の伝播則により求め、楕円で表してある。横軸と縦軸双方の誤差を考慮した最小二乗法で近似直線を求め、その傾きなどの違いを5%の危険率で検定したところ、有意差はなかった。従って、これら2地点で、ニッケルとクロムの比率は同一であり、従って、これらの発生源が同一の場所と推定される。

7. 結 論

有害大気汚染物質モニタリングの測定分析方法の検討結果について述べた。測定元素の種類により、前処理でふっ化水素酸を添加すべき元素（クロム、ニッケル、マンガン）と、添加すべきでない元素（ヒ素、ベリリウム）があることが分かり、元素によって2法を使い分ける必要があることが判明した。標準添加法に

よる電気加熱原子吸光分析での測定の繰り返し回数は2回としたが、この回数で、環境省マニュアルの目標定量下限値はクリアできた。ベリリウムの電気加熱原子吸光分析法では、バックグラウンドの補正に関しては、偏光ゼーマン補正法よりも重水素補正法が適当であることが分かった。最後に、標準添加法による電気加熱原子吸光分析結果の誤差の推定について議論した。ニッケルとクロムについて、標準添加測定での未知試料濃度推定に伴う誤差を見積もり、それを八戸市内の2地点の有害大気汚染物質調査結果の解析に応用した。その結果、両元素の発生源が同一の場所であることが推定された。

文 献

- 1) 環境庁大気保全局大気規制課：有害大気汚染物質測定方法マニュアル，平成9年2月
- 2) 環境庁大気保全局大気規制課：有害大気汚染物質測定方法マニュアル，平成9年8月
- 3) 加藤 雅士 他：有害大気汚染物質モニタリング調査に係る神奈川県における標準作業手順，神奈川県環境科学センター研究報告，22，47-53，1999.
- 4) 熊谷 宏之 他：有害大気汚染物質（重金属類）の測定法に関する検討—圧力容器法，ICP発光分析法による多元素同時分析—，福井県環境科学センター年報，28，89-98，1998.
- 5) 日立製作所：ゼーマン原子吸光光度計 分析法解説書 グラファイト炉原子化法，Be-2，1992.

原子燃料サイクル施設周辺地域における 広域的な空間放射線量率調査

竹ヶ原 仁 渡部 陽一¹ 佐々木 守² 工藤 和利³ 工藤 徹¹ 今 武純

Extensive Study of Gamma-ray Dose Rate in Areas around Nuclear Fuel Cycle Facilities

平成10年度から12年度にかけて、六ヶ所村周辺6市町村に設置しているモニタリングポストで空間放射線の連続測定を行った。各測定地点における空間放射線量率の平均値は17~26nGy/hであった。また、冬期間は測定値が低くなっており、これは積雪の影響によるものと考えられる。

Key words : nuclear fuel recycling complex, environmental monitoring, NaI (Tl) scintillation detector, gamma-ray dose

1. はじめに

青森県では、平成元年4月から原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等の調査を実施している。再処理施設本体の操業が平成17年度とされていることから、操業開始前に、これまでの調査より広い地域における空間放射線レベルの変動傾向を調査し、その地域の特性を把握しておくことは、将来の環境放射線モニタリング調査結果を評価するために有用である。

今回、六ヶ所村周辺6市町村（横浜町役場、野辺地町役場、東通村役場、東北町役場、上北町役場及び三沢市役所）に設置しているモニタリングポストを用い空間放射線量率の連続測定を行い、それらの地点における空間放射線レベルの変動傾向及び地域の特性について若干の知見が得られたので報告する。

2. 調査方法

六ヶ所村周辺6市町村に設置したモニタリングポストの測定結果をチャートから1時間ごとに読み取り集計、解析を行った。

2.1 調査地点

モニタリングポストは原子燃料サイクル施設を中心に約15~30kmの範囲に設置されている。図1に六ヶ所村周辺6市町村におけるモニタリングポストの位置

を示す。

2.2 調査時期

平成10年4月~平成13年3月

2.3 調査項目及び調査方法

(1) 空間放射線量率の測定

測定器：NaI (Tl) シンチレーションモニタ

アロカ MAR-R42-238 (温度補償型

2"φ×2"NaI (Tl) シンチレーション検

出器, DBM方式, 測定エネルギー範

囲0.05~3MeV)

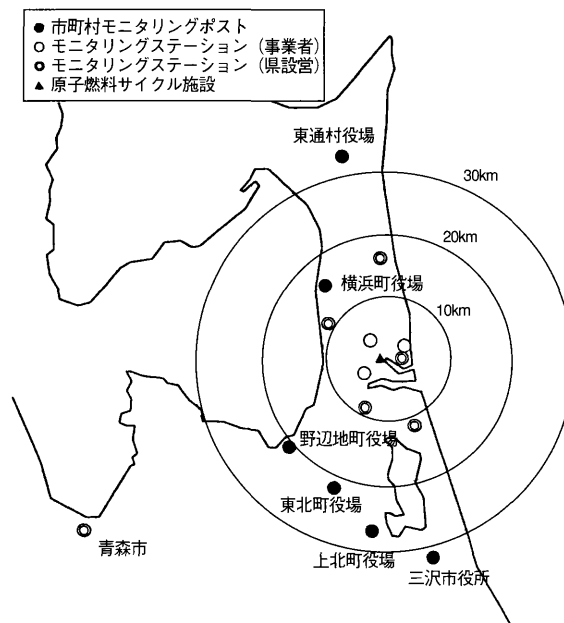


図1 モニタリングポストの位置

1 六ヶ所放射線監視局

2 資源エネルギー課

3 八戸保健所

測定法：科学技術庁編「連続モニタによる環境
γ線測定法」(平成8年改訂)に準拠
連続測定(1時間値)

測定位置：地上1.8m

校正線原： ^{226}Ra , ^{137}Cs , ^{60}Co

3. 結果

(1) 空間放射線量率測定結果

各測定地点における年度ごとの空間放射線量率の

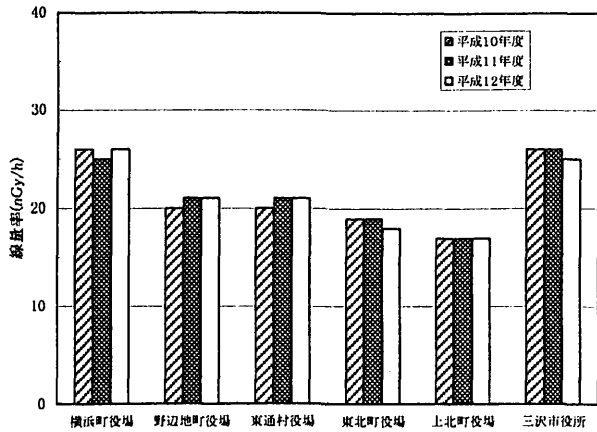


図2 測定地点ごとの空間放射線量率
(平成10~12年度平均値)

平均値は17~26nGy/hであった(図2, 表1, 表3, 表5)。このうち, 空間放射線量率が高めであったのは横浜町役場及び三沢市役所の25~26nGy/hであり, 低めであったのは上北町役場の17nGy/hであった。測定地点ごとに3年間の値を比較すると, 年度ごとの差は1nGy/h程度であり, すべての地点において空間放射線量率に年度による差はみられなかった。

また, 原子燃料サイクル施設環境放射線等調査のモニタリングステーションによる空間放射線量率測定結果と比較すると, モニタリングステーションにおける平成10~12年度の年平均値は18~24nGy/hであり(表2, 表4, 表6), 六ヶ所村周辺6市町村の測定結果と同じレベルであった。

(2) 空間放射線量率の変動

各測定地点ごとに空間放射線量率の月平均値の推移(図3)をみると, 14~28nGy/hの範囲であり, すべての地点において冬期間の測定値が低くなっていることがわかる。これは積雪の影響により大地からの放射線が遮へいされたためと考えられ, 原子燃

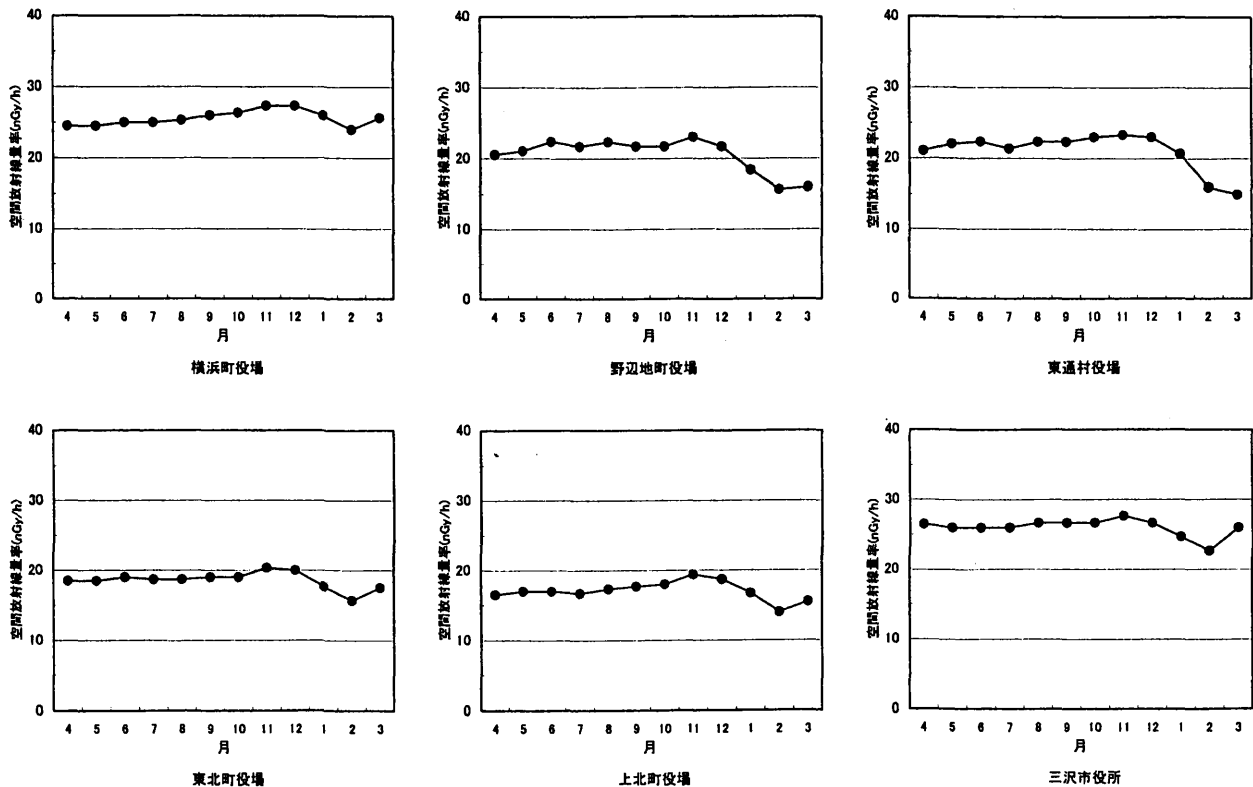


図3 空間放射線量率月平均値の推移(平成10年から12年度)

表1 市町村モニタリングポストによる空間放射線量率測定結果 (平成10年度)

単位 (nGy/h)

測定月	測定地点																	
	横浜町役場			野辺地町役場			東通村役場			東北町役場			上北町役場			三沢市役所		
	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小
4月																		
5月																		
6月	26±2	45	24	23±2	30	20	22±4	41	17	19±3	33	16	17±3	32	14	26±3	40	23
7月	26±1	35	24	22±1	30	20	21±2	36	18	19±2	31	16	16±2	31	14	26±2	41	23
8月	26±3	47	21	23±2	35	20	22±5	61	18	19±4	50	15	18±4	46	14	28±4	57	23
9月				21±1	30	19	21±2	35	18	18±2	29	15	17±2	30	14	26±2	39	23
10月	26±3	40	22	21±2	38	19	23±5	56	19	19±3	46	15	18±3	36	13	26±3	47	23
11月	28±5	53	22	23±5	46	17	22±4	46	18	21±6	50	15	20±6	50	15	28±5	55	24
12月	27±3	43	22	22±3	41	18	23±4	60	19	20±4	54	15	19±4	46	14	27±3	48	24
1月	26±3	44	22	18±5	43	13	20±4	43	15	18±5	48	12	17±5	44	12	25±3	54	21
2月	25±3	42	20	16±4	34	11	16±4	39	10	16±4	38	11	15±4	42	10	25±4	50	18
3月	25±3	41	21	16±3	29	11	16±4	40	12	18±3	34	12	16±3	31	11	27±3	50	21
年間値	26±3	53	20	20±4	46	11	20±5	61	10	19±4	54	11	17±4	50	10	26±4	57	18

※平均値には標準偏差も示した。

表2 モニタリングステーションによる空間放射線量率測定結果 (平成10年度)

単位 (nGy/h)

測定月	測定地点																										
	尾 敷			千 歳 平			平 沼			泊			吹 越			青 森 市			老 部 川			二 叉			室 ノ 久 保		
	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小
年間値	19±5	52	7	21±4	56	10	21±3	44	14	22±3	44	15	20±3	51	13	24±6	52	9	19±4	47	9	20±5	65	9	19±4	45	10

表3 市町村モニタリングポストによる空間放射線量率測定結果 (平成11年度)

単位 (nGy/h)

測定月	測定地点																	
	横浜町役場			野辺地町役場			東通村役場			東北町役場			上北町役場			三沢市役所		
	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小
4月	25±2	36	21	20±2	34	17	20±3	34	15	18±2	27	13	16±2	30	13	26±2	36	21
5月	25±2	39	22	21±2	36	19	22±4	45	19	19±3	36	16	17±3	43	14	26±2	36	23
6月	25±2	57	19	22±1	33	19	22±3	55	20	19±2	32	16	17±2	49	15	26±2	39	24
7月	25±2	39	22	21±2	36	20	21±2	40	18	18±2	41	15	17±3	47	14	26±2	46	22
8月	25±1	34	23	22±1	35	20	23±3	41	20	19±2	34	16	17±3	38	15	26±3	55	21
9月	26±2	50	23	22±2	43	20	23±4	46	20	20±4	43	16	18±4	40	16	27±4	48	23
10月	26±3	54	20	22±2	34	20	23±4	59	20	19±2	36	16	18±2	40	15	27±2	44	24
11月	26±4	58	22	23±4	54	19	24±4	74	15	20±4	58	15	19±4	57	15	27±3	49	23
12月	26±4	44	18	21±6	74	15	23±7	60	16	20±5	62	14	19±7	80	13	27±6	86	21
1月				20±3	46	15	22±6	58	16	19±4	41	14	18±4	45	14	27±4	48	23
2月				18±5	46	12	19±5	41	12	18±6	51	11	16±6	56	10	25±5	54	18
3月	25±4	47	20	16±5	55	11	16±5	48	11	17±5	49	12	15±5	54	10	25±5	60	18
年間値	25±3	58	18	21±4	74	11	21±5	74	11	19±4	62	11	17±4	80	10	26±4	86	18

表4 モニタリングステーションによる空間放射線量率測定結果 (平成11年度)

単位 (nGy/h)

測定月	測定地点																										
	尾 敷			千 歳 平			平 沼			泊			吹 越			青 森 市			老 部 川			二 叉			室 ノ 久 保		
	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小
年間値	20±4	68	9	21±4	81	11	21±3	61	16	21±3	56	13	21±3	59	15	24±4	73	14	19±3	54	11	20±4	62	10	20±4	61	13

料サイクル施設環境放射線等調査のモニタリングステーションによる空間放射線量率の測定結果においても同様のことが確認されている。

り、原子燃料サイクル施設環境放射線等調査のモニタリングステーションによる空間放射線量率の測定結果においても同様のことが確認されている。

4. ま と め

文 献

(1) 平成10年度から12年度にかけて、六ヶ所村周辺6市町村に設置しているモニタリングポストで空間放射線量率の連続測定を行った。測定結果はすべての地点において毎年同じレベルであった。また、測定結果を原子燃料サイクル施設環境放射線等調査のモニタリングステーションによる空間放射線量率の測定結果と比較すると、ほぼ同じ放射線レベルであった。

冬期間の測定結果が低くなっているのは、積雪の影響により大地からの放射線が遮へいされるためである。

- 1) 原子燃料サイクル施設環境放射線等調査報告書 (平成10年度報)
- 2) 原子燃料サイクル施設環境放射線等調査報告書 (平成11年度報)
- 3) 原子燃料サイクル施設環境放射線等調査報告書 (平成12年度報)
- 4) " P131～132
平成12年度第4四半期における空間放射線と積雪の関係

表5 市町村モニタリングポストによる空間放射線量率測定結果 (平成12年度)

単位 (nGy/h)

測定月	測定地点																	
	横浜町役場			野辺地町役場			東通村役場			東北町役場			上北町役場			三沢市役所		
	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小
4月	24±2	36	21	21±2	32	17	22±4	50	17	19±2	31	15	17±2	31	14	27±2	41	24
5月	24±2	43	21	21±2	39	20	22±3	47	20	18±2	32	16	17±2	30	14	26±2	44	24
6月	24±2	43	21	22±1	34	20	23±2	43	20	19±2	38	16	17±2	33	15	26±2	40	23
7月	24±2	41	22	22±2	36	20	22±4	58	20	19±2	36	16	17±3	37	13	26±3	48	22
8月	26±1	37	24	22±1	31	20	22±2	34	20	18±2	47	11	17±1	36	15	26±3	58	22
9月	26±2	36	21	22±2	31	19	23±4	64	18	19±4	42	16	18±3	38	15	27±3	51	23
10月	27±2	45	25	22±2	36	20	23±2	45	20	19±2	38	16	18±2	32	15	27±2	56	24
11月	28±3	52	23	23±4	50	20	24±4	49	20	20±4	46	16	19±4	56	16	28±3	54	24
12月	29±4	57	18	22±6	54	15	23±4	51	16	20±6	52	13	18±7	62	11	26±6	64	19
1月	26±5	72	20	17±5	44	11	20±6	49	12	16±5	46	11	15±6	46	9	22±4	50	17
2月	23±3	38	19	13±4	33	8	13±4	35	8	13±4	36	9	11±4	44	8	18±3	33	14
3月	27±3	52	21				13±5	47	7									
年間値	26±3	72	18	21±4	54	8	21±5	64	7	18±4	52	9	17±4	62	8	25±4	64	14

表6 モニタリングステーションによる空間放射線量率測定結果 (平成12年度)

単位 (nGy/h)

測定月	測定地点																										
	尾 駁			千 歳 平			平 沼			泊			吹 越			青 森 市			老 部 川			二 又			室 ノ 久 保		
	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小	平均	最大	最小
年間値	19±6	58	6	21±5	70	10	21±3	51	13	20±3	53	12	20±4	61	12	23±6	55	9	18±5	54	7	19±5	55	8	19±4	56	9

TLDによる積算線量測定の特徴について

工藤 香織 今 武純

Fading of Cumulative Dose Measurements using Thermoluminescence Dosimeter (TLD)

平成10～11年度にかけてフェーディング調査を行った。その結果、温度がコントロールされた場所では温度とフェーディング補正係数の間に直線関係が認められた。また、TLD素子のロットによってフェーディングの程度に差がみられた。一方、環境モニタリング地点での測定では、温度が高くなるとフェーディング補正係数も高くなる傾向はあるもののばらつきが大きい結果であった。

Key words : TLD, environmental monitoring, fading

1. はじめに

青森県では平成元年4月より原子燃料サイクル施設に係る環境放射線モニタリング調査を実施している。積算線量の測定にはTLDを用いて行っているが、TLDを用いた測定では温度が高くなると測定値が低くなるというフェーディング現象が知られている。TLDによる積算線量測定法である科学技術庁編「熱ルミネセンス線量計を用いた環境 γ 線量測定法」では測定値をフェーディング補正をするとは述べておらず、環境モニタリングにおける測定結果もフェーディング補正をしていない。

今回、モニタリング調査地点の中の3地点において温度によるフェーディングがどの程度あるのか調査を行い、若干の知見が得られたので報告する。

2. 調査方法

2.1 調査地点

(1) 環境モニタリング地点

環境放射線モニタリングで積算線量を測定している中から富ノ沢、むつ小川原石油備蓄基地、八森の3地点を選んでフェーディング調査を行った。(図1)

(2) 環境保健センター内

環境保健センター内で温度変化の少ない場所を選定してフェーディング調査を行った。

3.8℃：冷蔵庫

18.4℃：天秤室

20.1℃：TLD測定室

36.5℃：乾燥機 (35℃設定)

2.2 調査期間

平成10年4月～平成12年3月

2.3 調査方法

TLDによる積算線量の測定を以下のとおり行った。

(1) TLD素子：UD-200 S

素子1：昭和61年製造，第2.4四半期使用

素子2：昭和63年製造，第1.3四半期使用

(2) フェーディング調査用照射線量：130 μ Gy

線源： ^{226}Ra

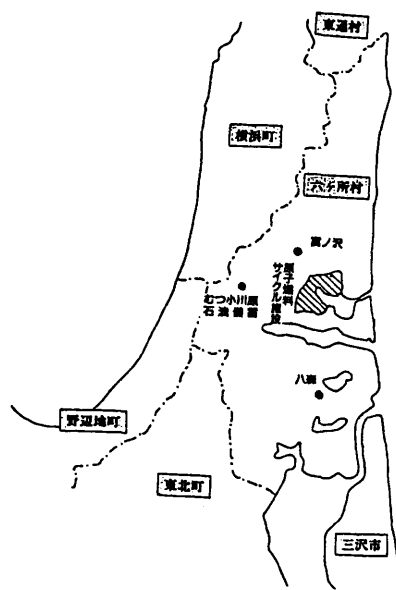


図1 フェーディング調査実施地点

(3) 測定方法：科学技術庁編「熱ルミネセンス線量計を用いた環境 γ 線量測定法」(平成2年改訂)

フェーディング調査は上記測定法に記載している2つの方法のうち設置前照射のみの簡便な方法を用いた。

(4) 温度：Thermo Recorder TR-51Aを使用し、環境モニタリング地点に設置したものは四半期毎に、環境保健センター内に設置したものは測定終了後に回収し、時系列データをパソコンで読み取った。

3. 結果と考察

3.1 TLDによる積算線量の季節変動

県が行っている積算線量測定結果には季節変動がみられ(図2)、第2四半期についてはフェーディングによる影響大、また第4四半期には積雪の影響で測定値が低下すると考えられている。¹⁾

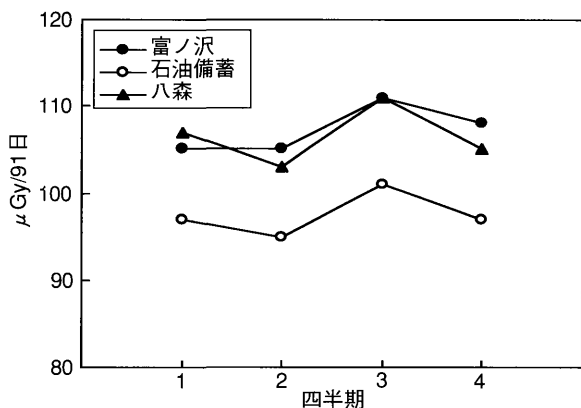


図2 積算線量季節変化(平成7年~11年度の平均値)

3.2 温度がコントロールされた場所におけるフェーディング調査

フェーディング現象は温度の影響が大きいとされていることから、温度変化の少ない場所(以下、恒温場)として環境保健センター内で冷蔵庫(3.8℃)、天秤室(18.4℃)、TLD測定室(20.1℃)、定温乾燥器(36.5℃)を選んで130 μ Gy照射したTLD素子と照射しないTLD素子を並べて約2ヶ月間フェーディング調査を行った。得られたデータをもとに温度とフェーディング補正係数の関係を図3に示した。フェーディング補正係数と温度の間には良好な直線関係が認められ、0℃付

近ではフェーディング現象はみられず、放置日数が約2ヶ月では、20℃付近で2~4%程度となった。また、本県はロットの異なる2種類のTLD素子を用いているが、ロットの違いによる温度とフェーディング補正係数の回帰線の傾きに違いがみられ、素子2の方が素子1に比べ若干フェーディングを受けやすいとみられる。

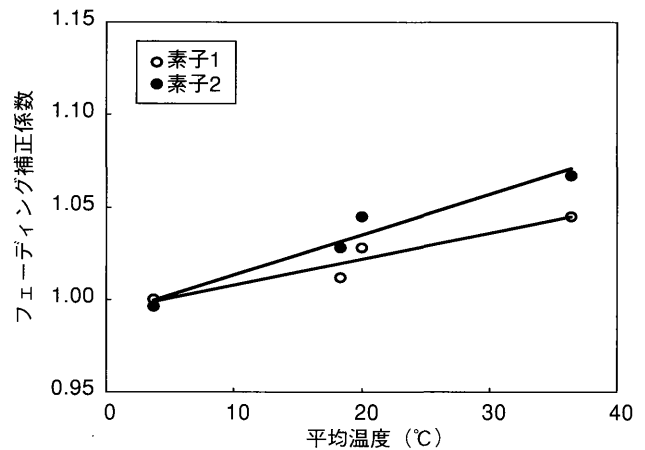


図3 恒温場におけるフェーディング補正係数と平均温度の関係

3.3 モニタリング地点におけるフェーディング調査

環境放射線モニタリングの積算線量測定地点のうち3地点(以下、環境場)において恒温場と同様にフェーディング調査を行った。測定地点における平均気温とフェーディング補正係数の関係を図4に示した。フェーディング補正係数はばらつきが大きいものの恒温場と大体同じような傾向を示している。フェーディングに最も大きく影響を与えると考えられる温度につい

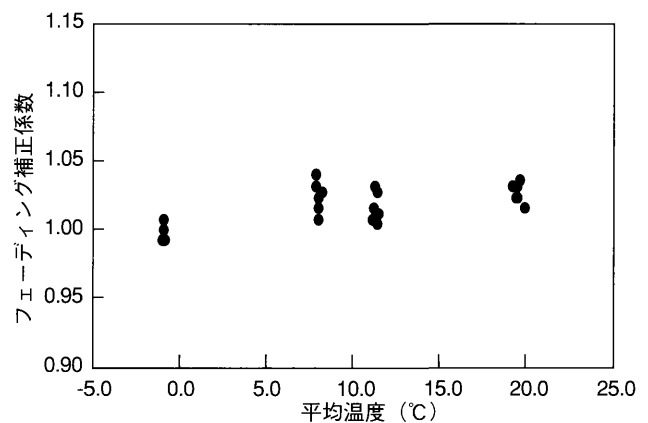


図4 フェーディング補正係数と平均温度

表1 四半期毎の温度とフェーディング補正係数

四半期	温度 (°C)			フェーディング補正係数
	平均	最高	最低	
1 (4~6月)	11.3	30.0	-5.2	1.004~1.032
2 (7~9月)	19.4	31.4	6.9	1.016~1.036
3 (10~12月)	8.0	26.0	-11.4	1.008~1.041
4 (1~3月)	-0.9	14.0	-10.2	0.992~1.008

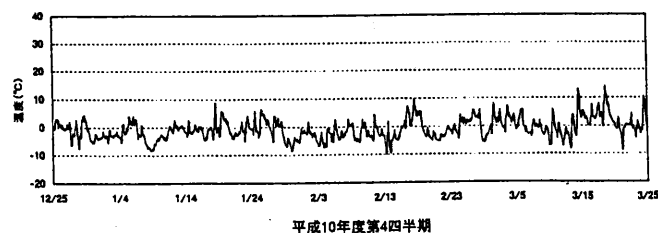
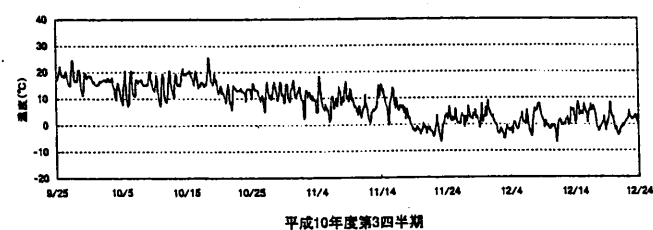
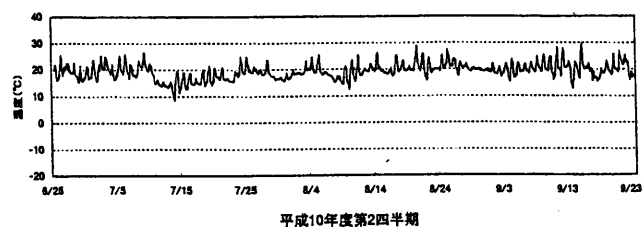
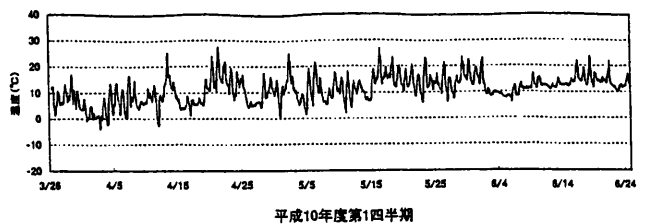


図5 富ノ沢地点における温度測定結果

て、測定地点における温度変化を富ノ沢を例に図5示した。これを見ると環境場における温度の変動は大きく各四半期の平均値に対して±15°C以上の幅を持っていた。このように環境場においては温度変化は大きく、フェーディング補正係数のばらつきも大きい。

4. ま と め

平成10~11年度にTLDによる積算線量測定の影響について検討した。

- (1) 比較的溫度が一定の場所でのフェーディング調査では温度とフェーディング補正係数の間に良好な直線関係が認められたが、ロットの違いによる差も認められた。
- (2) 環境モニタリング地点におけるフェーディング調査では温度が高くなるとフェーディング補正係数も大きくなる傾向はみられるものの温度の変化も大きく、フェーディング補正係数のばらつきも大きい。

文 献

- 1) 原子燃料サイクル施設環境放射線等調査報告書 (平成12年度報) : 青森県, p131-132, 平成12年度第4四半期における空間放射線と積雪の関係
- 2) 日本分析センター: 環境放射能分析研修 TLD (熱ルミネッセンス線量計) を用いた環境γ線量測定法及び解説

Ⅲ 他誌投稿抄録

他誌投稿抄録

イカ菓子食中毒事件におけるサルモネラ汚染実態に関する疫学的考察。

対馬 典子 杉山 猛¹ 大友 良光 品川 邦汎²：日本食品微生物学会雑誌，17（4），225 - 234，2000.

1999年3月，県内の工場で製造されたイカ菓子による集団食中毒事件が発生した。原因菌は，サルモネラ・オラニエンブルグ（S O）とサルモネラ・チェスター（S C）であり，患者は全国46都道府県の1,505名にのぼった。この事件に関連し，原因食品と製造工場，並びに原料イカ輸入港周辺と工場周辺等の環境について検査を行った。分離菌の生化学的性状，薬剤感受性試験，PCR法による病原遺伝子検索，パルスフィールド・ゲル電気泳動法による遺伝子解析，耐熱性，耐乾燥性，食塩耐性試験等を実施し疫学的考察を試みる一方，本事例と県内の散発サルモネラ症との関連を考察した。その結果，工場の高い汚染が判明すると共に，輸入港付近の海面のゴミと海鳥の糞，そして原因工場の下水から，患者，食品由来と同一と考えられるS Oが分離され，本事件との関連性が示唆された。環境からはS Cは分離されなかった。また，分離菌は40℃以下では大きな減少はなく，乾燥には強く，海水中では長期間生存が可能と考えられた。さらに，散発サルモネラ症の監視が潜在的集団発生の発見に有用である可能性が示唆された。

1：青森保健所

2：岩手大学農学部家畜微生物学教室

食衛誌 情報広場 講座 腸炎ビブリオ食中毒の最近の動向。

大友 良光：日本食品衛生学会誌，41（3），228 - 232，2000.

腸炎ビブリオが発見されてから50年を経過するが，その食中毒は一向に減少せず，むしろ増加しているのではないかと危惧されている。国内における最近の腸炎ビブリオ食中毒発生状況，並びに予防に関する問題点等について概説した。

急増している腸炎ビブリオ食中毒について。

大友 良光：日本食品微生物学会誌，17（2），101 - 106，2000.

前述内容に加え，青森県における海域における腸炎ビブリオ血清型O 3；K 6の生態調査，及び散発感染例について言及した。

感染性食中毒 [食中毒：最近の話題] サルモネラ属（病原体を中心に）。

大友 良光：臨床と微生物，27（5），505 - 509，2000.

わが国におけるサルモネラ食中毒の動向と

1999年3月，青森内の1工場で製造されたイカ菓子による*S. Oranienburg*（以下，S O）と*S. Chester*（以下，S C）の集団食中毒事件について，細菌学的検査成績，並びに疫学的な考察を加えて概説し，散発サルモネラ症の監視が潜在的集団発生の発見に有用である可能性を示唆した。

八戸市の乾燥イカ食中毒と最近の食中毒の傾向について。

大友 良光，品川 邦汎¹：東北のコロニー，31，51 - 53，2000.

前記，発表抄録「イカ菓子食中毒事件のサルモネラ汚染実態における疫学的考察」に加えて，わが国における細菌性食中毒の発生状況と予防方法について概説した。

1：岩手大学農学部

介護老人保健施設におけるインフルエンザワクチン接種成績について（1998～1999）。

三上 稔之，筒井 理華，大友 良光，佐藤 孝¹，木村 三生夫²，鈴木 功³，合田 英雄⁴：臨床とウイルス，28（4），219 - 228，2000.

介護老人保健施設における1998～1999年シーズンにインフルエンザワクチンを接種，接種後の抗体上昇，

罹患状況について調査を行った。高齢者では、発熱者、流行時抗体上昇例、入院例はワクチン接種群に少ない傾向はあったが、統計的有意差は認められなかった。

- 1：弘前保健所
- 2：東海大学
- 3：(財) シルバーリハビリテーション協会
- 4：(財) 阪大微生物病研究会

介護老人保健施設におけるインフルエンザワクチン接種に対する前年度ワクチン接種の影響。

木村 三生夫¹，堺 春美¹，鈴木 功²，三上 稔之，筒井 理華，佐藤 孝³，大友 良光，合田 英雄⁴：臨床とウイルス，28 (4)，229-236，2000.

介護老人保健施設におけるインフルエンザワクチン接種に対する前年度ワクチン接種の影響は、前年度ワクチン接種を受けなかったものと比較して有意の差が認められず、ワクチン接種後の抗体保有率、平均抗体価からは、前年度ワクチン接種歴の有無の影響を受けなかった。

- 1：東海大学
- 2：(財) シルバーリハビリテーション協会
- 3：弘前保健所
- 4：(財) 阪大微生物病研究会

Roles of endogenous cytokines in liver apoptosis of mice in lethal *Listeria monocytogenes* infection.

T. Miura¹， S. Nishikawa¹， S. Sasaki¹， K. Yamada¹， S. Hasegawa¹， D. Mizuki¹， M. Mizuki¹， I. Hatayama， K. Sekikawa²， Y. Tagawa³， Y. Iwakura⁴ and A. Nakane¹：FEMS Immunol. Med. Microbiol.， 28,335-341,2000.

種々の病原体はアポトーシスを誘導することが知られている。本研究では *Listeria monocytogenes* のマウスへの感染によるアポトーシスについて検討した。TNF- α のノックアウトマウスを用いた成績から、TNF- α およびIL-6が *L. monocytogenes* 感染で誘導されるアポトーシスへの防御に重要な役割を果たしているものと思われた。

- 1：弘前大学医学部
- 2：動物科学研究所
- 3：信州大学医学部
- 4：東京大学医科学研究所

c-Kit遺伝子変異陰性の単発性肥満細胞腫の1例。

野村 和夫¹，菊池 康¹，松山 麻子¹，畑山 一郎，成田 竹雄²，木村 正方³，貝森 光太¹：臨床皮膚科，54，527-530，2000.

3ヶ月男児左肘部の赤褐色隆起性腫瘍の病理組織は、好酸球が混在した肥満細胞の増殖を示した。血液生化学検査では異常がなく、肝脾腫も認められないことから、indolent typeの単発性肥満細胞腫と診断された。腫瘍および末梢血白血球のDNAについてc-Kit遺伝子の細胞内キナーゼドメインには変異は観察されなかった。肥満細胞増殖症では、c-Kitが重要な働きをしていると指摘されているが、本例は必ずしも関与している訳ではないことを示す。

- 1：青森県立中央病院
- 2：むつ総合病院
- 3：弘前大学医学部

4-Hydroxy-2-nonenal, and end product of lipid peroxidation, is a specific inducer of cyclooxygenase-2 gene expression.

T. Kumagai¹， Y. Kawamoto¹， Y. Nakamura¹， I. Hatayama， K. Satoh²， T. Osawa¹ and K. Uchida¹：Biochem. Biophys. Res. Commun.， 273， 437-441， 2000.

Cyclooxygenase-2 (COX-2) はプロスタグランدين生成に関わる酵素で、多様な細胞刺激に対して早期に発現してくる。本研究では、ラット肝細胞RL34における酸化型脂肪酸代謝物のCOX-2発現について調べた。その結果、4-hydroxy-2-nonenal (4-HNE) は強くCOX-2蛋白及びmRNAを誘導し、酸化的ストレスで発生した脂質過酸化物質で仲介された細胞反応において或るシグナル伝達機構が存在することを示す。

- 1：名古屋大学大学院農学生命科学研究科
- 2：弘前大学医学部

環境データ解析用表計算マクロの紹介と解析例 (I)
—アンダーセン・サンプラー解析アドイン—

早狩 進, 松本 光弘¹, 斉藤 勝美²: 大気環境学会誌, 35 (6) 377-385, 2000.

インターネットの個人用ホームページ (<http://www.jomon.ne.jp~hayakari/index.html>) 上にフリーウェアとして公開しているExcelアドインを解析例を含めて紹介した。アンダーセンサンプラーの測定結果をグラフ化するアドインAndersenAnalyzerは、スプライン関数を用いて粒度分布曲線を描くもので、PM-10, PM-2.5, PM-1.0までの累積濃度とこれらの総粉じん濃度に対する割合を表示できたり、A4サイズに最大横4個x縦8個までのミニグラフとして印刷できるなどの特徴を持つ。

1: 奈良県衛生研究所

2: 秋田県環境センター

環境データ解析用表計算マクロの紹介と解析例 (II)
—CMB法解析マクロ—

早狩 進, 花石 竜治: 大気環境学会誌, 36 (1) 39-45, 2001.

インターネットの個人用ホームページ (<http://www.jomon.ne.jp~hayakari/index.html>) 上にフリーウェアとして公開しているExcelのマクロを解析例も含めて紹介した。CMB (Chemical Mass Balance) 法解析マクロ (CMB8J) は、米国製のフリーウェアをExcelVBAに移植したもので、発生源を絞り込む過程を示す詳細情報と、最適発生源選択のための指標を新たに提案するなどの特徴を有する。

IV 学会等発表抄録

学会等発表抄録

腸炎ビブリオ散発下痢症の発生動向について。

大友 良光：全国衛生微生物技術協議会研究会第20回総会，名古屋市，2000，7，13-14.

腸炎ビブリオによる患者1名の散発下痢症の実態を迅速に把握し，患者発生状況と気温，海水温等の環境要因との関係を追及するため，腸炎ビブリオ食中毒防止のシステム化の構築を試みた。青森県内に7つの定点を設け，毎週FAXで菌分離数 (=患者数)，患者の性別，年齢，入院・外来別，血清型別，さらには青森市の平均気温と降水量，むつ湾東湾海面下1m地点の午前9時の海水温と塩分濃度の情報を収集し，これをEXCELに出力してデータ解析を行い，毎週金曜日に，A4版1枚の「週報」にグラフで示し，インターネットに掲載することとした。本システムの稼動前に1999年のデータを入力した結果，限られた医療機関数ではあるが，年間の腸炎ビブリオ患者数は733名（男380名，女353名）に上ることが判明し，健康被害の実態が窺えた。また，患者の発生状況と海水温等の環境データの間に若干の関連性も示唆された。

イカ菓子食中毒事件のサルモネラ汚染実態における疫学的考察。

大友 良光¹，対馬 典子¹，杉山 猛²，品川 邦汎³：第19回青森感染症研究会，青森市，1999，7，24.

1999年3月，青森内の1工場で製造されたイカ菓子による*S. Oranienburg*（以下，SO）と*S. Chester*（以下，SC）の集団食中毒事件が発生し，患者は全国46都道府県の1,634名にのぼった。この事件に関連し，原因食品と製造工場，並びに原料イカ輸入港周辺と工場周辺等の環境についてサルモネラ検査を行い，分離菌の生化学的性状，薬剤感受性試験，PCR法による病原遺伝子検索，PFGEによる遺伝子解析，耐熱性，耐乾燥性，食塩耐性試験等を実施し，疫学的考察を試みる一方，本事件と県内の散発サルモネラ症との関連を考察した。その結果，原因工場での高い汚染が判明すると共に，輸入港付近の海面のゴミと海鳥の糞，原因工場の下水から，患者・食品由来と同一と考えられるSOが分離され，本事件との関連性が示唆された。環境からはSCは分離されなかった。分離菌は40℃以下

では大きな減少はなく，乾燥に強く，海水中での長期生残の可能が考えられた。また，散発サルモネラ症の監視が潜在的集団発生の発見に有用である可能性が示唆された。

- 1：青森県環境保健センター
- 2：青森保健所
- 3：岩手大学農学部

青森県の病原微生物検出情報システムについて。

大友 良光：東北食中毒研究会第13回全体会議及び研修会，西目屋村，2000，9，27-28.

患者1名の散発下痢症の実態を迅速に把握し，患者発生状況と気温，海水温等の環境要因との関係を追及するため，腸炎ビブリオ食中毒防止のシステム化の構築を試みた。青森県内に7つの定点を設け，毎週FAXで菌分離数 (=患者数)，患者の性別，年齢，入院・外来別，血清型別，さらには青森市の平均気温と降水量，むつ湾東湾海面下1m地点の午前9時の海水温と塩分濃度の情報を収集し，これをEXCELに出力してデータ解析を行い，毎週金曜日に，A4版1枚の「週報」にグラフで示し，インターネットに掲載することとした。

イカ菓子食中毒事件に関するサルモネラ汚染実態の疫学的考察。

大友 良光¹ 対馬 典子¹ 杉山 猛² 品川 邦汎³：第54回日本細菌学会東北支部総会，弘前市，2000，9，28-29.

前記「イカ菓子食中毒事件のサルモネラ汚染実態における疫学的考察」参照。

- 1：青森県環境保健センター
- 2：青森保健所
- 3：岩手大学農学部

青森県内の河口底泥からのTDH産生腸炎ビブリオ検出状況。

大友 良光 立崎 明：第34回腸炎ビブリオシンポジウム，泉佐野市，2000，10，13-14.

耐熱性溶血毒産生腸炎ビブリオ（TDH+菌）の汽水領域における生態解明のため，2000年4月より青森

県の陸奥湾に流入する野辺地川、小湊川、赤川、蟹田川の河口上流100m付近の底泥から本菌の分離を行った。検体は月1回採取し、定性試験は食塩ポリミキシンブイヨン（SPB）で1回増菌する従来法と、9月からは刑部等の3回増菌法を併用し、定量試験はSPBで最確数（MPN/100g）3本法を実施した。PCR法で増菌培養液中のTDH+菌の有無を確認し、TCBS培地等で分離培養後、ヒト疫磁気ビーズ法も実施した。その結果、腸炎ビブリオは6月から分離され始め、TDH+菌（O3：K6）が8月に野辺地川（<3）と赤川（460）、9月に野辺地川（<3）と小湊川（<3）から分離された。

イカ菓子食中毒事件に関するサルモネラ汚染実態における疫学的考察。

大友 良光¹ 対馬 典子¹ 杉山 猛² 品川 邦汎³：第4回青森県保健医療・福祉・環境研究発表会、青森市、2000、1、11-12。

前記「イカ菓子食中毒事件のサルモネラ汚染実態における疫学的考察」参照。

- 1：青森県環境保健センター
- 2：青森保健所
- 3：岩手大学農学部

Transcriptional alteration in GSTP1-1 expression in possible precursor initiated cells inducible in female mouse liver by diethylnitrosamine as examined with Nrf2 null mice.

K. Satoh¹, K. Itoh², M. Yamamoto², M. Hayakari¹, S. Tsuchida¹ and I. Hatayama：7th International Conference on Mechanisms of Antimutagenesis and Anticarcinogenesis, Grand Rapid, USA, 2000, 9, 23-27

ラットやマウスのGSTP1-1陽性単一肝細胞は前癌起始細胞とみなされている。GSTP1-1遺伝子発現の転写因子としてのNrf2の可能性を調べるために、同因子のノックアウトマウスを用いて検討した。Nrf2^{-/-}雌マウス肝では抗酸化剤BHA投与でGSTP1-1が誘導される一方、DENによる早期肝発癌過程で+/-同様にGSTP1-1陽性単一肝細胞が検出された。この結果は、Nrf2は正常肝細胞におけるGSTP1-1の発現には強く関与しているが、発癌過程における発現には関与しない

ことを示す。

- 1：弘前大学医学部
- 2：つくば大学

マウス肺における癌の微小転移の検出モデル。

畑山 一郎、三浦 啓徳、木立 由美¹、山口 秀明¹、獺山 一雄¹：第59回日本癌学会、横浜市、2000、10、4-6

定量的かつ早期に肺への癌転移を測定可能なマウスのモデルシステムを開発した。ヒトc-Ha-rasを導入したマウス胎児細胞r/m HM-SFME-1をマウスに接種し、経時的に肺を摘出してヒトc-Ha-rasのPCR-Southern hybridizationを行った。マウス肺当たり103個の転移細胞が検出可能であった。

- 1：青森大学工学部

マウス肝piクラスGSTの性差、誘導及び発癌過程における変化。

畑山 一郎、佐藤 公彦¹、土田成紀¹：第73回日本生化学会、横浜市、2000、10、11-14

マウス肝臓のpiクラスグルタチオンS-トランスフェラーゼ（GSTM II）に関して、発現の性差、抗酸化剤BHAによる誘導、発癌過程における発現の分子機構を概説した。正常マウス肝のGSTM IIの発現は、男性ホルモンにより制御されている。また、Antioxidant response element（ARE）の転写因子Nrf2のノックアウトマウスでの成績から、BHAによる誘導にはNrf2が関与している一方、化学発癌過程におけるGSTM IIの発現には関与しておらず異なる発現機構の存在が示唆された。

- 1：弘前大学医学部

ラットGST-Pの特異機能。

佐藤 公彦¹、早狩 誠¹、大川 恵三¹、土田 成紀¹、内田 浩二²、畑山 一郎：第73回日本生化学会、横浜市、2000、10、11-14

ラットの肝前癌マーカーGlutathione S-transferase P（GST-P）の発現に関し、その生理的意義を検討した。GST-Pは、発癌剤によって生ずる細胞内酸化ストレスによって、発癌剤を除去すべく発現が代償性に亢進す

るところの細胞傷害防御機構の1つであるとの仮説を立てた。この仮説により、大半の発癌機構が説明され得る。

- 1：弘前大学医学部
- 2：名古屋大学大学院農学生命科学研究科

青森県における食中毒起因微生物検出情報。

武沼 浩子, 対馬 典子, 杉山 猛¹, 立崎 明², 大友 良光：平成12年度地研北海道・東北・新潟支部公衆衛生情報研究部会, 秋田市, 2000, 10, 12-13

青森県内の細菌検査を行っている10定点検査機関からサルモネラ属菌, 腸炎ビブリオ, カンピロバクターについての情報を入手し, 週別の検出情報と関連する環境情報を収集, 解析したデータベースシステムの概要を報告した。

- 1：青森保健所
- 2：十和田食肉衛生検査所

青森県における食中毒起因微生物検出情報について。

武沼 浩子, 対馬 典子, 杉山 猛¹, 立崎 明², 大友 良光：第4回青森県保健医療・福祉・環境研究発表会, 青森市, 2001, 1, 11-12

青森県内の細菌検査を行っている10定点検査機関からサルモネラ属菌, 腸炎ビブリオ, カンピロバクターについての情報を入手し, 週別の検出情報と関連する環境情報を収集, 解析したデータベースシステムの概要を報告した。

- 1：青森保健所
- 2：十和田食肉衛生検査所

高齢者施設でのインフルエンザワクチン接種効果。

三上 稔之, 筒井 理華, 大友 良光, 佐藤 孝¹, 木村 三生夫², 鈴木 功³：日本細菌学会第54回東北支部・第68回北海道支部合同学会, 弘前市, 2000, 9, 28-29

高齢者に対するインフルエンザワクチン効果は, 十分には認められなかったが, 感染防御レベルまで抗体を上げる効果はあるのでワクチン接種は勧められるべきであろう。

- 1：弘前保健所
- 2：東海大学
- 3：(財)シルバーリハビリテーション協会

青森県における疾病の地域集積性。

中谷 実, 丹後 敏郎¹：第59回日本公衆衛生学会総会, 前橋市, 2000, 10, 18-20.

1988年から1997までを調査期間とし, 8区分の死因について, 青森県内67市町村の男女別標準化死亡比の経験的ベイズ推定値 (EBSMR) を算出し, 疾病地図を作製した。EBSMRを用いることにより市町村などの少人口集団についても死亡動態の比較・評価が可能となる。また, Tangoの方法及びKulldorffの方法を用いて疾病の地域集積性の検定を行ったところ, 県の東部と西部で異なる死亡傾向が観察された。

- 1：国立公衆衛生院

GC/MSを用いた残留農薬迅速一斉分析法の検討。

清水 友敬, 中谷 実, 三浦 啓徳, 古川 章子：第4回青森県保健医療・福祉・環境研究発表会, 青森市, 2001, 1, 11-12.

農薬の規格基準の改正により, 平成12年4月現在では199種類の農薬について約8300の基準値が告示されており, このような多くの農薬を検査するためには簡易で迅速な多成分一斉分析法が必要である。当所では, 窒素系・有機リン系・有機塩素系・ピレスロイド系農薬について抽出法を一本化しているが, カーバメート系農薬の分析法とは抽出方法が異なっており, 5系統すべての農薬を同時に分析することはできない。そこで, これらの農薬について, 抽出からクリーンアップまでの操作を1本化し, さらにGC/MS (ガスクロマトグラフ質量分析計)を用いることを前提として, 多成分一斉分析法の検討を行った。その結果, りんごでは58農薬について, 長芋では60農薬について, 日常分析に用いる多成分スクリーニング法として十分有用な方法であることが確認された。

ミジンコを用いた産業廃棄物処理施設法流水の評価。

神 毅統, 三上 一：第26回北海道・東北ブロック公害研究連絡会議, 仙台市, 2000, 11, 9-10.

あらゆる化学物質が集積される産業廃棄物処理施設では、その放流水に処理や分解過程で生成された新たな物質が混入する可能性を有するなど、これまでの事業場排水とは異なる問題を抱えている。しかし現行の規制では未知物質や複合汚染による影響は評価できない。そこでそれらによる直接的な毒性を評価しようとミジンコを用いて遊泳阻害試験を行った。その結果、重金属等の検出されている検体と、ミジンコが遊泳阻害を受けた検体には明確な関係が認められず、既知物質以外の物質や複合汚染の影響が懸念された。水生生物への総合的な影響を知る上でBioassayが有効であると考えられた。

回帰主成分分析と特異値打ち切りを応用した有効分散最小自乗法によるCMB法。

花石 竜治，阪崎 俊聖：第7回大気環境学会北海道東北支部総会，盛岡市，2000，10，27。

最小自乗法のCMB (Chemical Mass Balance) 法では、発生源の線形独立性が破られる状況のもとでは、物理的に不可能な負の発生源寄与，計算の結果，与えられる。この問題を解決するために，回帰主成分分析の方法と，特異値分解における特異値打ち切りの方法の可能性を探った。理論の記述を行い，発生源に多重共線性が強い事例への応用を試みた。

八戸市内の降下ばいじん中の重金属：溶解性成分の分析法からCMB法の適用まで。

花石 竜治，齋藤 輝夫，阪崎 俊聖，早狩 進，関野 正義：第4回青森県保健医療・福祉・環境研究発表会，青森市，2001，1，11-12。

八戸市内の工場周辺地域で，降下ばいじん中の溶解性重金属を把握した。分析には，塩酸・過酸化水素分解が適当であり，金属元素によっては，かなりの部分が溶解性重金属となって観測されることが確認された。溶解性重金属は，金属の低酸化状態や硫化物などが，防腐剤の硫酸銅と反応して溶け出したものと考えられた。最後に，降下ばいじん重金属への発生源の寄与をCMB法で求めたところ，夏季に，非鉄金属製錬工場の鉱石の寄与が大きいと判明した。浮遊粉じんの粒径分布の調査からは，粗大粒子の寄与が大きいと結論された。以上から八戸の非鉄金属製錬工場周辺地域での大気中の重金属汚染は，鉱石粉じんや鉱石によって汚染された土壌の舞い上がりによるものが圧倒的であるという結論を得た。

ふんじんの大気拡散式によるダイオキシン類の排出規制。

吉田 毅，花石 竜治：第8回大気環境学会北海道東北支部総会，仙台市，2001，11，16。

粒子の重力沈降と，乾性沈着を考慮したガス体の大気拡散式により，具体的な産業廃棄物焼却炉からのダイオキシン類の年間降下量を算定した。さらに，乾性沈着量と湿性沈着量には，各々最大値が求まり，その比は大気安定度の係数のみで表すことができ，後者のほうが前者の約12倍大きいことが分かった。

編集委員

畑山一郎 和田秀夫 三上稔之
中谷実 五十嵐飛鳥 竹ヶ原仁
葛西正毅 阪崎俊璽 工藤精一
鈴木実 渡部陽一

青森県環境保健センター研究報告

(平成12年度)

平成14年3月発行

編集 〒030-8566 青森市東造道1-1-1
発行 青森県環境保健センター
所長 福寿寛二
電話 (017) 736-5411 FAX (017) 736-5419
印刷 〒030-0802 青森県青森市本町1-2-5
会社名 ワタナベサービス(株)
電話 (017) 777-1388

(環境保護の為、再生紙を使用しています。)