

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.5 1994

青森県環境保健センター

ま え が き

平成5年度の研究報告をお届けいたします。

報文は12編で、その内訳は微生物・理化学関係各2編、公害関係7編、放射能関係1編となっています。

公害、放射能のフィールド調査、食品残留農薬試験など日常のルーチンワーク及び突発的に発生する食中毒検査に追われる中、職員がそれぞれの関わりの中から課題としてとらえ、まとめあげたものでありますのでご一読を賜れば幸いに存じます。

当所も発足以来5年が経過しようとしていますが、関係各位のご指導のもと、遺伝子に着目した基盤的、先端的な科学技術への取り組み、また、昨年9月には、イタリアで開催されたエルシニア国際シンポジウムにおいて研究成果を発表するなど、徐々にではありますが研究分野における進展が図られつつあります。

保健医療、福祉、生活衛生、環境問題などに対する対応が大きな転換の時期にあるいま、社会のニーズに即した学術成果の達成に向けて研究施設の整備、人材の導入、産学官の研究交流の推進など研究環境の充実に取り組んでいく所存でありますのでご指導、ご鞭撻を賜れば幸甚に存じます。

平成7年3月

青森県環境保健センター

所長 内山 日出夫

目 次

I 報 文

Epidemiology of <i>Yersinia enterocolitica</i> serovar O:8 infection in the Tsugaru area Yoshimitsu OHTOMO, Yasunobu TOYOKAWA, Masaaki SAITO, Mikako YAMAGUCHI, Seiji KANEKO and Tsutomu MARUYAMA	1
エンテロウイルス感染によるアポトーシスの誘導 三上 稔之 木村 淳子 佐藤 允武 畑山 一郎	5
マウス肝化学発癌におけるGlutathione S-transferase II変異発現のグリコーゲンによる抑制 三浦 啓徳 木村 淳子 高橋 政教 高谷 芳明 内沢 秀光 松江 一 一戸 秀隆 畑山 一郎	8
青森県の温泉について (VI) 高橋 政教 桶田 幾代 野村 眞美 小林 英一 村上 淳子 平出 博昭 秋山由美子 木村 淳子 小林 繁樹 石塚 伸一	12
農業集落排水の実態調査 —WQIによる水質評価— 大久保英樹 三上 一 石塚 伸一 阪崎 俊璽 工藤 真哉 工藤 俊明 早狩 敏男 坂上 素一 高柳 和弘	20
GC/MSによる環境水質・底質中有機化合物の検索 石塚 伸一	26
黒石扇状地における地下水質の地球化学的検討 石塚 伸一 工藤 真哉 佐藤真理子	36
六ヶ所村における陸水中トリチウム濃度調査 (I) 外崎久美子 工藤 英嗣 安達 大介 木村 秀樹	45
八戸市における環境大気中有機塩素化合物濃度 —拡散型長期暴露サンプラーによる濃度調査— 岡 典子 工藤 精一 中村 哲夫	51
名久井岳における酸性雨と沢水の調査 工藤 隆治 野田 正志	58

気象条件による降水中化学成分の特性 －青森県南地域における事例－ 工藤 精一 野田 正志 岡 典子 中村 哲夫	66
青森県南地域河川の水質汚濁評価（第1報） －馬淵川水系、奥入瀬川水系－ 神 正志 早狩敏男 小山田久美子 柴田幸伸 工藤精一	73
II ノート	
青森市の海外旅行者に発生したコレラの一事例 大友 良光	79
青森県における貝毒調査結果（平成5年度） 三浦 啓徳 三上 浩二 古川 章子 高橋 政教	81
青森空港騒音調査結果について 今 武純 松尾 章 松山 恒樹	84
正月中における八戸市の大気汚染状況 坂上 素一 秋田谷礼治 工藤 隆治 坂本 正昭	91
III 他誌投稿抄録	93
IV 学会発表抄録	97

CONTENTS

I Original Articles

- Epidemiology of *Yersinia enterocolitica* Serovar O:8 Infection in the Tsugaru area
Yoshimitsu OHTOMO, Yasunobu TOYOKAWA, Masaaki SAITO, Mikako YAMAGUCHI,
Seiji KANEKO and Tsutomu MARUYAMA 1
- Induction of Apoptosis by Infection of Enterovirus
Toshiyuki MIKAMI, Junko KIMURA, Nobutake SATOH and Ichiro HATAYAMA 5
- Suppression of Glycogen on the Induction of Glutathione S-transferase II
Altered Foci during Chemical Hepatocarcinogenesis of Mice
Hironori MIURA, Junko KIMURA, Masanori TAKAHASHI,
Yoshiaki TAKAYA, Hidemitsu UCHIZAWA, Hajime MATSUE,
Hidetaka ICHINOHE and Ichiro HATAYAMA 8
- Hot Springs in Aomori Prefecture (VI)
Masanori TAKAHASHI, Ikuyo OKETA, Masami NOMURA, Eiichi KOBAYASHI
Atsuko MURAKAMI, Hiroaki HIRAIDE, Yumiko AKIYAMA, Junko KIMURA
Sigeki KOBAYASHI and Shin-ichi ISHIZUKA 12
- Field Study on Agriculture Village Waste Water
—Evaluation of Water Quality by WQI—
Hideki OHKUBO, Hajime MIKAMI, Shin-ichi ISHIZUKA, Shunji SAKAZAKI,
Shinya KUDO, Toshiaki KUDO, Toshio HAYAKARI, Motoichi SAKAGAMI
and Kazuhiro TAKAYANAGI 20
- GC/MS Survey on Organic Substances in Environmental Water and Sediment
Shin-ichi ISHIZUKA 26
- Geochemical Study on Groundwater in Kuroishi Alluvial Fan
Shin-ichi ISHIZUKA, Shinya KUDO and Mariko SATO 36
- Tritium Concentrations of Surface Water in Rokkasho Village (I)
Kumiko TONOSAKI, Hideshi KUDOH, Daisuke ADACHI and Hideki KIMURA 45
- Concentration of Chlorinated Hydrocarbons in Environmental Atmosphere in Hachinohe City
—Investigation of Pollutant with Passive Sampler for Long-term—
Noriko OKA, Seiichi KUDO and Tetsuo NAKAMURA 51

Study on Acid Rain and Stream Water in Mount Nakui Ryuji KUDO and Masashi NODA	58
Characteristics of Chemical Components in Precipitation depending on Weather Conditions —Case Study in the Southern District of Aomori Prefecture— Seiichi KUDO, Masashi NODA, Noriko OKA, Ryuji KUDO and Tetsuo NAKAMURA	66
Evaluation of Water Pollution in Southern River in Aomori Prefecture (I) —Mabechi River and Oirase River Systems— Masashi JIN, Toshio HAYAKARI, Kumiko OYAMADA, Yukinobu SHIBATA and Seiichi KUDO	73
II Notes	
Report on Cholera Broken out in Overseas Traveller Living in Aomori City Yoshimitsu OHTOMO	79
Finding on Shellfish Poison in Aomori Prefecture (1993) Hironori MIURA, Kohji MIKAMI, Akiko KOGAWA and Masanori TAKAHASHI.....	81
Research of Jetplane Noise in Aomori Airport Takezumi KON, Akira MATSUO and Kohki MATUYAMA.....	84
Air Pollution during the New Year in Hachinihe City Motoichi SAKAGAMI, Reiji AKITAYA, Ryuji KUDO and Masaaki SAKAMOTO	91
III Summaries of Other Publications	93
IV Abstracts of Presentation in Society Meetings	97

I 報 文

Epidemiology of *Yersinia enterocolitica* Serovar O:8 Infection in the Tsugaru Area

Yoshimitsu OHTOMO¹, Yasunobu TOYOKAWA¹, Masaaki SAITO², Mikako YAMAGUCHI²,
Seiji KANEKO³ and Tsutomu MARUYAMA⁴

From January 1987 to January 1994, *Yersinia enterocolitica* serovar O:8 organisms were isolated from 31 patients exhibiting symptoms of mainly fever, diarrhea, and abdominal pain in 30 sporadic cases in the Tsugaru area of Aomori prefecture, Japan. Of all isolates, twenty-eight were from stool, two from appendix, and one from a hip ulcer. These strains belonged to biovar(Wauters) 1B, harboring 42 megadalton virulence plasmid, positive for autoagglutination and calcium dependency. Twenty cases occurred in summer. Twenty-nine were simple case and one (two patients) was intrafamiliar. Seventeen patients were male, 28 were under 15 years of age and three were over a 45 years. One patient handled raw pork and four ate cooked pork. Most of the patients were living in mountainous areas and kept dogs. Infectious sources were unknown, but it would be supposed that raw pork, dogs, wildlife animals, and stream water might be contaminated by pathogenic *Y. enterocolitica* serovar O:8.

Key words : *Yersinia enterocolitica*,
Yerdinia enterocolitica serovar O:8,
epidemiology, virulence plasmid

1. Introduction

Until now, *Yersinia enterocolitica* serovar O:8 strain from human infection has been found only in limited areas in North America. Isolates were recently reported, however, in Japan^{1,2)} and Europe³⁾. In addition, it was demonstrated that the *Y. enterocolitica* serovar O:8 strain found in the Tsugaru area of Japan was harboring the same virulence plasmid as the "American strain". In the present study, we describe the characterization of *Y. enterocolitica* serovar O:8 strain from humans, which was detected in the Tsugaru area between January 1987 to January 1994 (Fig.1). Further, we discuss about the cause of infection on the base of the clinical aspects and life-styles of the patients.

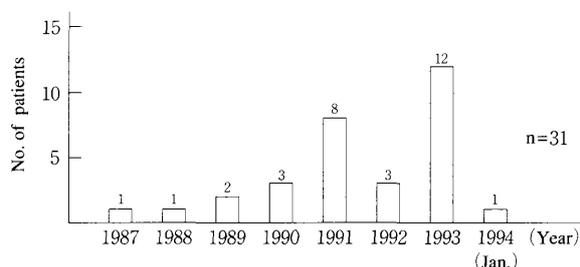


Fig.1 Annual number of patients infected with *Y. enterocolitica* O:8 infection

2. Materials and Methods

Thirty-one isolates of *Y. enterocolitica* serovar O:8 strain were examined. Twenty-eight were from stool, two from appendix, and one from a hip ulcer (Table 1). Biochemical characterization was determined with API20E (bio Mérieux-Vitek Japan). Biotyping and pyrazinamidase activity (Pyz)

Table 1 Source of *Y. enterocolitica* O:8 isolates

Source	Number
Feces	28
Contents in appendix	2
Hip ulcer	1
Total	31

were carried out as described previously^{4,5)}. All strains were serogrouped by slide agglutination with O:7, O:8, O:19 antisera prepared by us. Calcium dependency and autoagglutination were determined as reported previously^{6,7)}. The detection of virulence plasmid and digestion with restriction enzyme *Bam* H1 were carried out according to Kaneko⁸⁾. PCR method was performed to amplify *ail*-chromosomal gene⁹⁾.

- 1 : Aomori Prefectural Institute of Public Health and Environment
2 : Adult Diseases Examination Center, Hirosaki Medical Association
3 : The Tokyo Metropolitan Research Laboratory of Public Health
4 : The Institute of Public Health

3. Results

Phenotypic and Virulence Characterization

All isolates were *Y. enterocolitica* serovar O:8 biovar 1B with negative esculin and inactive pyrazinamidase (Pyz⁻). Except for two isolates from feces and hip ulcer, 29 of 31 isolates exhibited calcium dependency and autoagglutination at 37°C, and harbored 42 MDa of virulence plasmid, which shows an identical pattern in *Bam* HI digestion. The *ail*-gene was detected in all isolates (Table 2).

Table 2 Virulence marker tests of *Y. enterocolitica* O:8 strains isolated

No. of strains	Autoagglutination	Calcium dependency	Virulence plasmid	Pyrazinamidase activity	<i>ail</i> -gene by PCR
29	+	+	+	-	+
2	-	-	-	-	+

Circumstance of Occurrence

Of 31 patients, 29 were sporadic, while one case involving two patients occurred in the same family (Table 3). In 28 of

Table 3 Mode of *Y. enterocolitica* O:8 infection

Mode	No. of cases
Sporadic	29
Familial	1 (2 patients)
Total	30(31 patients)

the patients outbreaks occurred between April and October, and the peak was July (Fig.2). Seventeen patients were male,

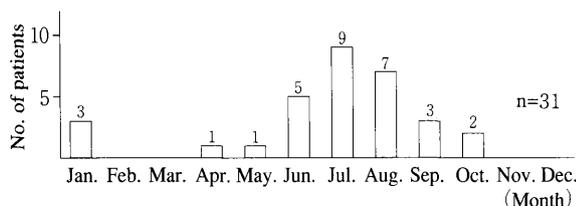


Fig. 2 Monthly numbers of patients infected with *Y. enterocolitica* O:8

28 patients were under 15 years old and three were over 45 years old (Fig. 3).

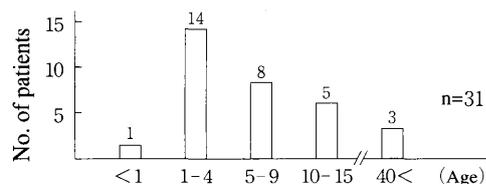


Fig. 3 Age-dependent incidence of *Y. enterocolitica* O:8 infection

Clinical Symptom and Clinical Examination

The main clinical symptom of the 31 patients was severe pain around naval or under the right abdominal region. Twenty-nine had a prolonged fever ranging around 39°C

Table 4 Degree of fever between 31 patients

Body temperature (°C)	No. of patients
Normal temperature	2
38.0-38.4	8
38.5-38.9	3
39.0-39.4	7
39.5-39.9	3
40.0-40.4	7
40.5-40.9	1

(Table 4). Diarrhea, dehydration and nausea were recorded in 27, 10, and 10 patients, respectively (Table 5). Some patients

Table 5 The main clinical symptoms of 31 patients

Symptoms	No. of patient
Abdominal pain	30
Fever	29
Diarrhea	27
Dehydration	10
Nausea	10
Cough	7
Vomiting	7
Pharyngal pain	7
Headache	6
Snivel	3

who changed from their primary hospital to another could not be followed their progress. Blood incubation was not performed, although septicemia suspected in some patients. Of 24 patients, the number of white blood cell in 19 patients was increased to more than 10,000/mm³ (Table 6). Erythrocyte

Table 6 Increase of number of white blood cell (WBC)

WBC (No./mm ³)	No. of patients
7,000-<10,000	5
10,000-<15,000	7
15,000-<20,000	6
20,000-<25,000	4
25,000-<30,000	2
Total	24

(Normal range 4,000-9,000)

sedimentation rate (mm/hr) varied among patients (11 were 21-38, 4 were 73-76), as shown in Fig. 4. C-reactive protein

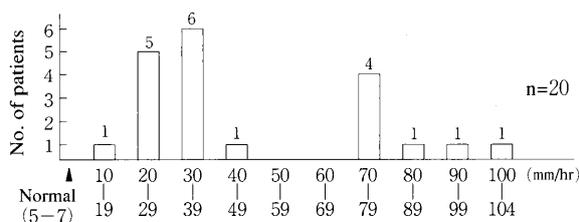


Fig. 4 Erythrocyte sedimentation rate (ESR) in patients

was detected in all 20 patients examined (Table 7). All patients were treated with combinations of antibiotics such as fosfomycin, aspoxicillin and cefaclor (Table 8).

Table 7 Level of C-reactive protein (CRP) in patients

CRP	No. of patients
2+	2
3+	1
4+	4
5+	1
6+	12
Total	20

Table 8 Antibiotics used for treatment

Antibiotics	patients
Fosfomycin	16
Penicillin	8
Cefem	7
Aminoglycosid	4
Piridoncarbonic acid	4
Macroride	3
Tetracycline	3
Oxacefem	1

Ecological Aspect

patients were diffusely distributed in the Tsugaru area, but were in the vicinity of Hirosaki city, Aomori prefecture. Fourteen patients were living in mountain areas, 13 were urban, three resided in plains, and one was near the seashore. Usually, patients had utilized tap water as drinking water. However, six patients living in mountain areas often drank mountain stream water. Further, it should be noted that one patient in the urban area was a four year old daughter of a veterinarian (Table 9).

Table 9 Epidemiological aspect on the infectious route of *Y. enterocolitica* O:8

Habitat of life	Residential area	No. of patients having the habitat/ No. of patients in each area
Drinking mountain stream water	Mountain area	6/14
	Urban area	1/13
Keeping pets	Mountain area	9(Dog)/14
	Plain area	2(Dog)/3
	Urban area	1(veterinarian's child)/13

4. Discussion

Of 31 isolates of *Y. enterocolitica* serovar O:8 strain from human, two did not harbor virulence plasmid. However, the two isolates (feces and hip ulcer) were both *Pyz*⁻ and *ail*⁺. Suggesting that the virulence plasmid was lost during the isolation of the bacteria at 37°C, as this condition is inadequate for maintaining the plasmid. Furthermore, in the case of hip ulcer, the loss may be ascribed to the exposure to body temperature for a long time. The infection source is not clarified, except in the case of raw pork¹⁾. Since we have isolated the strain from the intestinal contents of healthy swine slaughtered in Aomori prefecture (unpublished data), pork may be one of foods contaminated with virulent O:8 strain.

It has been reported that virulent O:8 strains were isolated from free-living rodents in Japan¹⁰⁾. Accordingly, it is supposed that the infection to humans may be attributable to drinking water in mountain streams or springs, contaminated with feces of wild animals carrying the virulent O:8 strain. In addition, it is likely that pets may be one of the reservoirs of virulent O:8 strain, because a veterinarian's daughter was infected. We are now attempting to clarify the pathway of infection by the strain in the Tsugaru area through epidemiological research.

5. Acknowledgments

We thank Dr. I.Hatayama, Aomori Prefectural Institute of Public Health and Environment, for reading the manuscript.

This work was supported in part by a grant from the Daido Life Welfare Foundation, Osaka.

6. References

- 1) Ichinohe, H. et al.: First isolation of *Yersinia enterocolitica* serotype O:8 in Japan. *J. Clin. Microbiol.*, 29, 846-847, 1991.
- 2) Saito, M. et al.: *Yersinia enterocolitica* serotype O:8 infections in the Hirosaki district in Aomori prefecture

- from 1984 to 1991. *J.Japn.Assoc.Infect.Dis.*, 68,960-965, 1994.
- 3) Chiesa,C. et al : Phenotypic characterization and virulence of O:8 *Yersinia* strains isolated in Europe. *Contrib. Microbiol. Immunol., Basel Karger*, 12, 182-191, 1991.
- 4) Wauters,G. et al : Revised biogrouping scheme of *Yersinia enterocolitica*. *Contrib.Microbiol.Immunol., Basel Karger*, 9, 14-21, 1987.
- 5) Kandolo,K. et al : Ryzaminidaze activity in *Yersinia enterocolitica* and related organisms. *J.Clin. Microbiol.*, 21, 980-982, 1985.
- 6) Higuchi,K. et al : Studies on the untrition and physiology of *Pasteurella pestis*. VI. A differential plating medium for the estimation of the mutation rate of avirulence. *J.Bacteriol.*, 81, 605-608, 1961.
- 7) Laird,W.J.et al : Corelation of autoagglutination and virulence of *Yersinia*. *J.Clin.Microbiol.*, 11,430-432,1980.
- 8) Kaneko,S.et al : Relationship between the presence of 44 megadalton plasmid and calcium dependency or autoagglutination to serotype O3 strains of *Yersinia enterocolitica*. *Jpn.J.Vet.Sci.*, 48, 205-210, 1986.
- 9) Wren,B.W.et al : Detection of pathogenic *Yersinia pseudotuberculosis* by the polymerase chain reaction. *Lancet*, 336, 693, 1990.
- 10) Iinuma,Y.et al : Isolation of *Yersinia enterocolitica* serovar O:8 from free-living small rodents in Japan. *J.Clin.Microbiol.*, 30, 240-242., 1992.

津軽地区における *Yersinia enterocolitica* 血清型 O:8 菌感染症の疫学

大友良光¹ 豊川安延¹ 齋藤雅明² 山口美佳子² 金子誠二³ 丸山務⁴

1987年1月から1994年1月にかけて、青森県津軽地区で発熱、下痢、腹痛等の症状を呈する30例の患者31名から *Y. enterocolitica* 血清型 O:8 菌が分離された。分離材料は糞便が28検体、虫垂内容物が2検体、臀部皮膚潰瘍が1検体であった。分離菌は生物型がWautersの1B型、自己凝集性とカルシウム依存性が陽性、そして42メガダルトンの病原性プラスミドを保有していた。20例は夏期に発生した。29例は単独発生例で、1例(患者2名)は家庭内感染例であった。患者の性別は17名は男であり、年齢は15才以下が28名、45才以上が3名であった。感染原因はすべて不明であったが、4名が発病前に生のブタ肉に接触したり、その調理品を摂食していた。また、患者の多くは山間部あるいは山地近接地に居住し、それらはペットとしてイヌを飼育している者が多かった。本菌の感染源としてブタ肉、イヌ、野生動物、そして沢水の関与が推測された。

1 : 青森県環境保健センター
 2 : 弘前市医師会立成人病検診センター
 3 : 東京都立衛生研究所
 4 : 国立公衆衛生院

エンテロウイルス感染によるアポトーシスの誘導

三上 稔之 木村 淳子 佐藤 允武 畑山 一郎

6種のエンテロウイルスによるアポトーシス誘導能を感染細胞DNAの断片化を指標として検討した。エコー9, ポリオウイルスⅢ, エンテロウイルス71, コクサッキーB5, コクサッキーA10, コクサッキーA16は、いずれもGMK細胞にアポトーシスを誘導した。この結果は、エンテロウイルス属に共通したアポトーシス誘導機構の存在を示唆する。

Key words : enterovirus, apoptosis, cytopathic effect

1. はじめに

細胞死にはネクローシス(壊死)とアポトーシス(Apoptosis:自滅死)の2種類の様式が知られている¹⁾。ネクローシスは細胞群が外的要因である火傷や毒物による損傷により死滅するのに対し、アポトーシスの場合は基本的には単一細胞の死であり、ネクローシスとは異なり蛋白合成を伴う。また、細胞内外の刺激によるシグナル伝達機構を介したエンドヌクレアーゼの活性化につづく核の断片化を特徴とする²⁾。発生学的には、アポトーシスは細胞に内在するプログラムが作動することによる死、Programmed cell deathであることが明らかにされている²⁾。アポトーシスは電子顕微鏡で核の断片化として形態的に観察されるほか、電気泳動によりDNAの規則的なラダーとして確認できる。

アポトーシスについてはここ数年、発生学、免疫学、血液学、内分泌学、腫瘍学、神経学など広範囲の分野で急速な研究の進展がみられ、例えば、抗癌剤および熱や放射線などによる刺激でもアポトーシスが生ずることや、Alzheimer病とアポトーシスとの関連性などが指摘されている。微生物分野においてはウイルスの感染増殖に伴う細胞死は、細胞にとって生理的な変化というより病理的な変化による壊死であると考えられていたが、いくつかのウイルスによる細胞死がアポトーシスの様式をとることが指摘されるようになった。アデノウイルス、ヘルペスウイルス、エイズウイルスなどの感染増殖によってアポトーシスの生ずる³⁻⁵⁾ことが証明されているが、我々もまた、エンテロウイルス属であるエコー9(E9)の感染によりアポトーシスが誘導されることを明らかにした⁶⁾。しかし、このアポトーシスは、エンテロウイルス属全般にわたってみられる現象であるかどうかは不明である。そこで今回、無菌性髄膜炎や手足口病等の病因ウイルスである6種のエンテロウイルスおよび1

種のヘルペスウイルスのアポトーシス誘導能を特異的DNAラダーの出現にもとづいて検討した。

2. 材料と方法

2.1 試薬

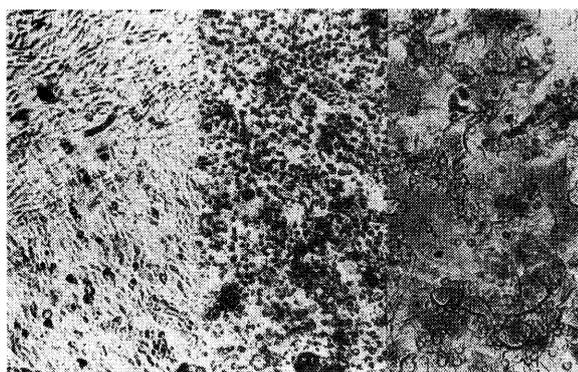
イーグルのMEMは日水製薬、牛胎児血清(FBS)は大日本製薬から入手した。セパジーンは三光純薬、バイオマーカーはフナコシ、アガロースはナカライテスクから購入した。フェニルアルシノキサイドは和光純薬から入手した。

2.2 ウイルス感染

培養面積24cm²のガラスカルチャーボトルに10%FBSを含むイーグルMEMで37℃、2~4日間培養したアフリカミドリザル腎細胞(GMK)を宿主細胞として用いた。ウイルスはエンテロウイルスのE9, ポリオウイルスⅢ, エンテロウイルス71, コクサッキーB5(CoxB5), コクサッキーA10及び16(CoxA10, A16)と単純ヘルペスウイルス-1(HSV-1)の計7種を使用した。感染1日から3日後に細胞を回収し、DNAの抽出に用いた。1%FBSを含むイーグルのMEMをウイルス感染後の維持液とした。

2.3 DNAの抽出および電気泳動

ウイルス感染細胞および未感染細胞をPBSで2回洗浄後セパジーン試薬を用いてDNAを抽出した。泳動液として1xTAEバッファーを用い、1μgのDNAをエチジウムブロミド(5μg/ml)を含む2%アガロースゲルで電気泳動した⁷⁾。泳動終了後、トランスイルミネータでDNAラダーを確認した。DNAサイズマーカーとしてバイオマーカー(フナコシ)を用いた。



未感染細胞 E9 HSV-1
 図1. ウイルス感染増殖によるGMKの細胞形態

3. 結 果

ウイルスの感染増殖にともない、細胞変性効果 (Cytopathic effect : CPE) と称される感染細胞の形態変化が生じ、最終的には細胞の死が観察された。図1にE9およびHSV-1によるCPEのパターンを示す。正常GMK細胞は紡錘形をとるが、E9の感染で顆粒状の細胞崩壊パターンを示す一方、HSV-1の場合は細胞融合を伴う変性であった。E9以外のエンテロウイルスは、いずれもE9同様の変性パターンを示した。アポトーシスの出現時期を調べるため、E9感染後経時的に細胞を集め、DNAのパターンをアガロース電気泳動法で検討した。図2に示すように、感染4時間までは未感染GMK同様のDNAパターンを示し変化は認められなかったが、CPEが未だ顕著ではない24時間で180bpの倍数のラダーが観察された。これはアポトーシスに特徴的なヌクレオゾーム単位のDNAの切断を意味し、アポトーシスはCPE

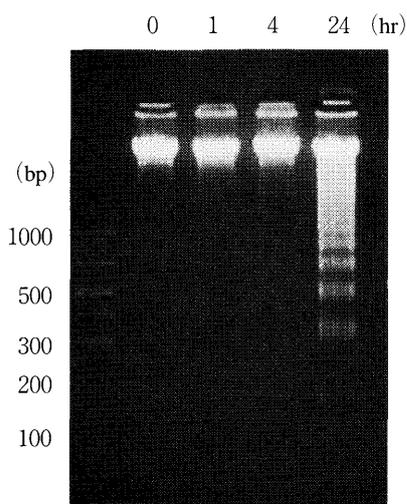


図2 E9の感染によるアポトーシス出現の経時変化

より早期に生ずることを示唆している。また、図3に示すように、強い細胞毒性をもつフェニルアルシノキサイド (PO) によるネクロシスの場合には、DNAの断片化は観察されなかった。E9に加えてエンテロウイルス属のポリオウイルスⅢ、エンテロウイルス71, CoxB5, CoxA10およびCoxA16, さらにHSV-1の感染増殖に伴うアポトーシスの出現を検討した。結果は、図4のように強弱の差はあるが、いずれの場合にもDNAの特異的ラダーが検出され、これらのウイルス感染によりアポトーシスが誘導されることが確認された。これらの結果は、少なくともエンテロウイルス属に共通したアポトーシス誘導機構が存在することを示唆する。

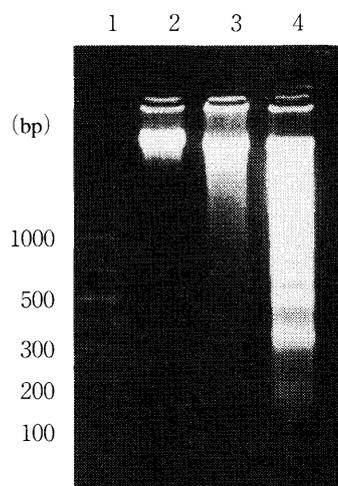


図3 ネクロシスとアポトーシスのDNA泳動パターンによる比較

1. マーカー 2. 未感染細胞 3. PO 4. E9

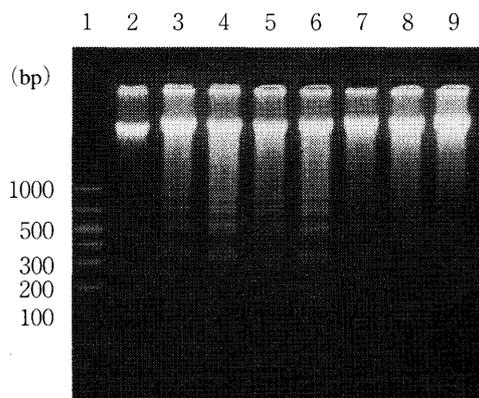


図4 エンテロウイルス群及びHSV-1によるアポトーシス誘導

1. マーカー 2. 未感染細胞 3. E9
 4. ポリオウイルスⅢ 5. エンテロウイルス71
 6. CoxB5 7. CoxA10 8. CoxA16 9. HSV-1

4. 考 察

本研究により、6種のエンテロウイルスの感染はいずれもアポトーシスを誘導することが証明された。

ウイルスの種類によりアポトーシスの誘導機構は異なり、アデノウイルス、ヘルペスウイルスによるアポトーシス誘導は、感染後細胞内でのウイルス遺伝子の複製を必要とし、DNA合成阻害剤によりアポトーシスは抑制される⁸⁾一方、エイズウイルスでは感染に伴いアポトーシスが見られるが、未感染細胞においても生ずることが報告されている。エンテロウイルスにおいてはウイルスのCPEを抑制することによりアポトーシスも抑制されるが⁶⁾、感染のみでアポトーシスは成立するのがあるいは細胞内でのウイルスの遺伝子複製を要するのかが不明である。RNAウイルスであるエンテロウイルスの遺伝子複製は、RNA依存性RNAポリメラーゼ (Replicase) による⁹⁻¹⁰⁾ことから、現在Replicaseのアンチセンスオリゴヌクレオチドによるウイルス増殖の抑制とアポトーシスの関係を検討中である。また、アポトーシスはCPEに先行して生ずると考えられるが、細胞レベルでのアポトーシスの出現を確認する必要がある。

一般的には現在、CPEを指標としてウイルス検査を行っているが、CPEの著明でないものにおいては、指標としてアポトーシスを確認することでウイルスの存在を示唆でき、アポトーシスの検出は今後のウイルス検査に有効な方法であると考えられる。さらにアポトーシスの発生機序解明は今後のウイルス感染予防や治療に大きな期待をもたらすものと思われる。

文 献

- 1) Wyllie, A. H. et al. : Cell death-the significance of apoptosis. *Int. Rev. Cytol.*, **68**, 251-306, 1980.
- 2) 長田重一, 他 : アポトーシス-細胞死の機構. *実験医学*, **11**, 1993.
- 3) White, E. et al. : The 19-kilodalton adenovirus E1B transforming protein inhibits programmed cell death and prevents cytolysis by tumor necrosis factor α . *Mol. Cell. Biol.*, **12**, 2570-2580, 1992.
- 4) Griebel, P. J. et al. : The interaction between bovine herpesvirus type-1 and activated bovine lymphocyte-T. *J. Gen. Virol.*, **71**, 369-377, 1990.
- 5) Terai, C. et al. : Apoptosis as a mechanism of cell death in cultured T lymphoblasts acutely infected with HIV-1. *J. Clin. Invest.*, **87**, 1710-1715, 1991.
- 6) 三上稔之, 他 : Buthionine sulfoximineによるエンテロウイルスの増殖抑制, *臨床とウイルス*, **22**, S38, 1994.
- 7) Maniatis, T. et al. : Molecular cloning. Cold spring harbor Laboratory press, Cold Spring harbor, NY, 1989.
- 8) Chou, J. et al. : The $\gamma_134.5$ gene of herpes simplex virus 1 precludes neuroblastoma cells from triggering total shutoff of protein synthesis characteristic of programmed cell death in neuronal cells. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA.*, **89**, 3266-3270, 1992.
- 9) Koonin, E. V. et al. : The phylogeny of RNA-dependent RNA polymerases of positive-strand RNA viruses. *J. Gen. Virol.*, **72**, 2197-2206, 1991.
- 10) Carr, J. P. et al. : Replicase-mediated resistance. *Seminars Virol.*, **4**, 339-347, 1993.

Abstract

Induction of Apoptosis by Infection of Enterovirus

Toshiyuki MIKAMI¹, Junko KIMURA¹, Nobutake SATOH¹
and Ichiro HATAYAMA¹

Inducibility of apoptosis by six species of enterovirus (echo 9, poliovirus III, enterovirus 71, coxsackievirus B5, coxsackievirus A10 and A16) was investigated using GMK cell as host cell. The occurrence of apoptosis was estimated with distinctive DNA fragmentation on agarose gel electrophoresis. All enterovirus species produced a characteristic 180 bp nucleosomal ladder from the first to third days after viral infection. The result indicates that infection of enterovirus induces apoptosis, and suggests that there is a common mechanism in apoptosis induction by the enterovirus family.

Key words : enterovirus, apoptosis, cytopathic effect

1 : Aomori Prefectural Institute of Public Health and Environment

マウス肝化学発癌におけるGlutathione S-transferase II 変異巢発現のグリコーゲンによる抑制

三浦 啓徳 木村 淳子 高橋 政教 高谷 芳明¹
内沢 秀光¹ 松江 一¹ 一戸 秀隆² 畑山 一郎

DEAE Sephadex A-25で精製したホタテ貝グリコーゲンのマウス肝化学発癌に対する抑制効果を, glutathione S-transferase II (GST-II) 変異巢の出現を指標として免疫組織化学的に検討した。雄B6C3F₁マウスの肝前癌病巣はGST-II陰性巢として, また雌肝では陽性巢として検出された。GST-II変異巢の数および面積はグリコーゲン投与により有意に減少したことから, 本法で調製したグリコーゲンはマウス肝化学発癌を著明に抑制することが判明した。

Key words : glycogen, glutathione S-transferase, chemical carcinogenesis, mouse liver.

1. はじめに

抗腫瘍活性をもつ植物性多糖はレンチナン, シゾフィラン, クレスチンなど数多く報告されている。一方, 1978年にSasaki¹⁾は動物性多糖として, ホタテ貝由来の多糖が強い抗腫瘍活性を持つことを示した。最近, 高谷²⁾はActinase E処理後, DEAE Sephadex A-25陰イオン交換クロマトグラフィーによりホタテ貝から精製した多糖が, 移植性癌細胞Meth-Aに対する抗腫瘍活性を示し, その本体はグリコーゲンである事を明らかにした。しかし, ヒトに対する効果を考える場合には移植性ではなく原発性腫瘍で, また, 発癌予防という点からは実験発癌モデルで検討することが重要である。そこで, 今回diethylnitrosamine (DEN) のマウス肝化学発癌に対する当該グリコーゲンの抑制効果について, 肝前癌病巣のマ

ーカーとしてglutathione S-transferase II (GST-II) を用いて検討した。

2. 材料と方法

2.1 試薬および動物

DENは和光純薬から, ベクタステインABCキットはフナコシから購入した。その他の試薬はすべて特級を使用した。雄C3H/Heマウスと雌C57BL/6マウスはチャールズリバー・ジャパンより入手し, それぞれの交配によりB6C3F₁マウスを得た。

2.2 グリコーゲンの調製

ホタテ貝グリコーゲンは高谷²⁾の方法によって精製され, DEAE Sephadex A-25カラムクロマトグラフィーの非吸着画分を以下の実験に使用した。

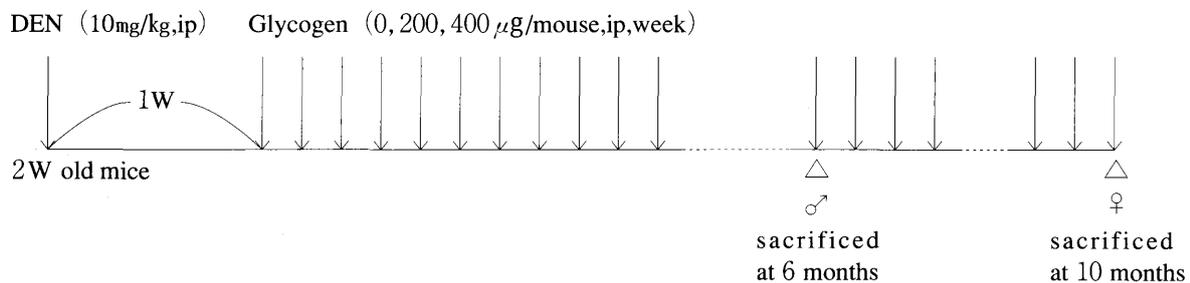


図1 マウス肝化学発癌プロトコール

1 : 青森県産業技術開発センター
2 : 株式会社青森ともや

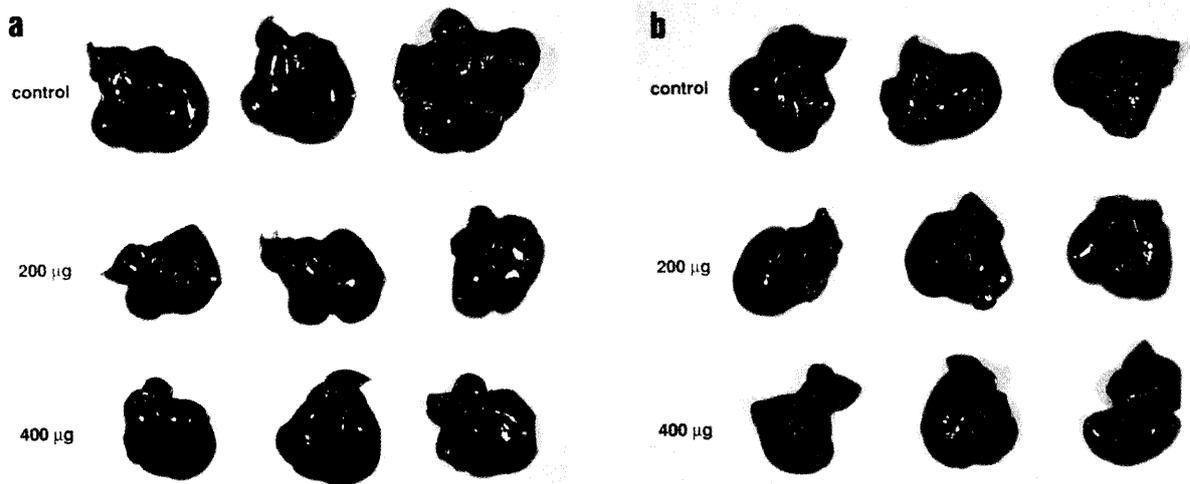


図2 マウス肝アデノーマ誘発に対するグリコーゲンの抑制作用. (a) DEN投与6ヵ月の雄マウス肝. (b) DEN投与10ヵ月の雌マウス肝.

2・3 肝化学発癌およびグリコーゲンの投与

生後15日目の雌雄B6C3F₁マウスに発癌剤DEN (10mg/kg)を一回腹腔内投与した³⁾。その一週後より生理食塩水に溶解したグリコーゲン (200, 400 µg/マウス)を実験終了時まで週一回腹腔内投与し、図1に示すようなステージで屠殺して肝前癌の発生をグリコーゲン非投与群と比較した。給餌、給水は *ad libitum*であった。

2・4 免疫組織化学

摘出した肝の中葉および左葉の厚さ3 mmのスライスを3日間冷アセトンで固定し、ベンゼン置換後パラフィンに包埋した。6 µmのパラフィン切片をABC (avidin-biotin-peroxidase complex) 法⁴⁾による免疫組織化学に用いた。1次抗体として、既報⁵⁾のように作成したGST-II抗体を4,000倍希釈して使用した。顕微鏡下で50ヶ以上の細胞集団をGST-II変異巣として計測した。変異巣の肝に占める面積はイメージアナライズシステムにより測定した。

有意差検定は、Student's *t*-testによった。

3. 結 果

DEN投与後6ヵ月の雄マウスおよび10ヵ月の雌マウスの体重は、グリコーゲン投与により変化を受けなかったが、グリコーゲン投与群の肝重量は非投与群に比較して減少傾向を示した。その時点における前癌 (アデノーマ) の発生は、雄マウス当たりの肝アデノーマ数としてグリコーゲン非投与群の24.8に対し、200 µgグリコーゲン投与群で9.8 (40%)、400 µg投与群で13.8 (56%)と有意の減少を示した。また、雌マウスにおいても非投与群の11.5に対し200 µg投与群の4.5 (40%)、400 µg投与群の5.0 (43%)と半減した (未発表)。アデノーマの径

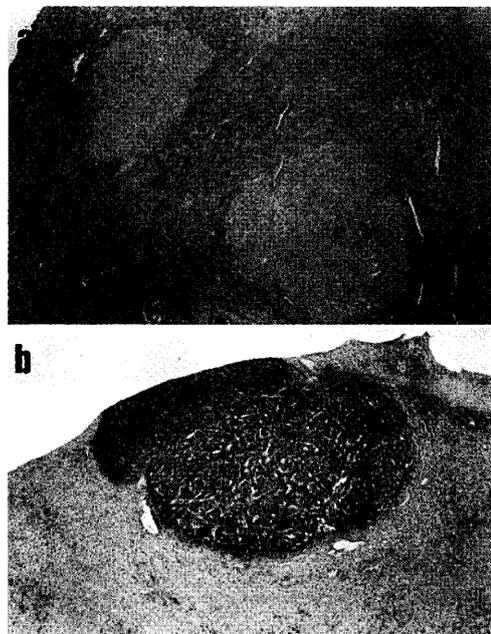


図3 DENによるマウス肝GST-II変異巣の誘発. (a) 雄マウス肝のGST-II陰性巣. (b) 雌マウス肝のGST-II陽性巣.

もグリコーゲン投与により減少傾向を示した。アデノーマの典型的な発生状態を図2に示す。

次に酵素変異巣 (enzyme altered foci : EAF) の発生に対するグリコーゲンの影響を検討した。EAFはGST-IIの免疫組織化学により検出された。図3に示すように、雄マウス肝の正常部には多量のGST-IIが発現する一方、EAFでは発現の低下がみられるためGST-II陰性巣として、雌マウスでは逆に正常部における低い発現量とEAFにおける発現の上昇からGST-II陽性巣としての検出することができる⁶⁾。EAFの数および肝に占める面積に対

表1 雄マウス肝GST-II陰性巣発現に対するグリコーゲンの影響

Glycogen (μg)	n	GST-II negative foci			
		No/cm ²	%	mm ² /cm ²	%
0	5	23.7 \pm 6.4 ^{a)}	100	16.4 \pm 6.2	100
200	4	10.7 \pm 4.4 ^{b)}	45	3.5 \pm 1.7 ^{b)}	21
400	6	14.3 \pm 5.1 ^{c)}	60	4.7 \pm 1.9 ^{b)}	29

^{a)} Mean \pm SD.

^{b)} different from value without glycogen (P<0.01).

^{c)} different from value without glycogen (P<0.05).

表2 雌マウス肝GST-II陽性巣発現に対するグリコーゲンの影響

Glycogen (μg)	n	GST-II positive foci			
		No/cm ²	%	mm ² /cm ²	%
0	6	10.5 \pm 3.2 ^{a)}	100	15.1 \pm 6.9	100
200	8	10.4 \pm 3.6	99	5.1 \pm 2.9 ^{b)}	34
400	5	11.8 \pm 3.9	112	13.9 \pm 3.3	92

^{a)} Mean \pm SD.

^{b)} different from value without glycogen (P<0.01).

するグリコーゲンの効果を表1及び表2に示した。表1のように、雄マウスにおいてはグリコーゲン投与でEAFの数は半減する一方、その面積も非投与群の20-30%に激減した。また、雌マウスにおいては、グリコーゲンはEAFの数には影響を与えなかったが、肝に占めるEAFの面積は200 μg 投与群で34%に減少した。これらのことは、ホタテ貝由来のグリコーゲンはマウス肝化学発癌を顕著に抑制することを示す。

4. 考 察

本研究において、ホタテ貝由来のグリコーゲンはマウスの肝化学発癌を著明に抑制することを明らかにした。従来のトリクロロ酢酸 (TCA) によって調整したグリコーゲンはMeth-Aに対する抗腫瘍活性をもたないこと、また本法で調整したグリコーゲンをTCAあるいは β -アミラーゼ処理することで活性が消失することから、Actinase E, DEAE Sephadex A-25で精製したintactな分岐鎖を有するグリコーゲンが抗腫瘍活性を示すものと考えられる。一方、同様にして精製したカキ、アワビのグリコーゲンはホタテに比較して活性が弱い、あるいは活性が認められないことから、それぞれのグリコーゲンはもともと生体中に分岐鎖の少ない状態で存在しているものと思われる。

発癌抑制の分子機構に関しては、グリコーゲンによる肝臓全体にわたる解毒酵素GSTの誘導が認められない(未発表)ことからWattenberg⁷⁾のchemopreventionには相当せず、培養系においてグリコーゲンの抗腫瘍活性は観察されないことから、インターロイキンなどサイトカ

インの誘導による免疫系活性化を通じた間接的作用によるものと考えられる。このことを明らかにするため現在、グリコーゲンによる血中サイトカイン濃度の定量を検討中である。

これまで、adenosine triphosphataseや γ -glutamyltranspeptidaseはラットの場合と異なりマウス肝前癌病巣のマーカーとはならず、マウスの免疫組織化学的マーカーの開発が望まれてきた。我々は、GST-IIが優れたマウス肝前癌マーカーとなることを見だし⁶⁾今回の実験に用いたが、さらに精度の高いマーカー癌遺伝子産物c-Junによる解析⁸⁾も進行中である。

今回は、腹腔内投与によってグリコーゲンの肝発癌の抑制効果を明らかにしたが、経口、静注、皮下投与など異なった投与方法での検討も要する。また、原発性肝癌に対する抗腫瘍効果や他種での効果、例えば、Solt-Farbar⁹⁾モデルを用いたラットの肝化学発癌に対する影響も検討する必要がある。

謝 辞

弘前大学医学部生化学第二講座・土田成紀教授並びに研究室の諸先生の本研究への御協力、御助言に対し深く感謝致します。

文 献

- 1) Sasaki, T. et al.: Antitumor activity of a boiled scallop extract. *J. Natl. Cancer. Inst.*, **60**, 1499-1500, 1978.
- 2) 高谷芳明, 他: ホタテ煮汁の多糖体の構造と生理作用. *生化学*, **64**, 974, 1992.
- 3) Vesselinovitch, S. D. et al.: Histochemical characterization of focal hepatic lesions induced by single diethylnitrosamine treatment in infant mice. *Cancer Res.*, **45**, 2774-2780, 1985.
- 4) Hsu, S. et al.: Use of avidin-biotin-peroxidase complex (ABC) in immunoperoxidase techniques. A comparison between ABC and unlabeled antibody (PAP) procedures. *J. Histochem. Cytochem.*, **29**, 577-580, 1981.
- 5) Hatayama, I. et al.: Developmental and hormonal regulation of the major form of hepatic glutathione S-transferase in male mice. *Biochem. Biophys. Res. Commun.*, **140**, 581-588, 1986.
- 6) Hatayama, I. et al.: Sex-dependent expression of class pi glutathione S-transferase during chemical hepatocarcinogenesis in B6C3F1 mice. *Carcinogenesis*, **14**, 537-538, 1993.
- 7) Wattenberg, L. W.: Inhibitors of chemical carcinogens.

- Adv. Cancer Res.*, **26**, 197–226, 1978.
- 8) Nakano, H. et al. : c-Jun expression in single cells and preneoplastic foci induced by diethylnitrosamine in B6C3F1 mice : Comparison with the expression of pi-class glutathione S-transferase. *Carcinogenesis*, **15**, 1853–1857, 1994.
- 9) Solt, D. et al. : New principle for analysis of chemical carcinogenesis. *Nature*, **263**, 701–703, 1976.

Abstract

Suppression of Glycogen on the Induction of Glutathione S-transferase II Altered Foci during Chemical Hepatocarcinogenesis of Mice

Hironori MIURA¹, Junko KIMURA¹, Masanori TAKAHASHI¹,
Yoshiaki TAKAYA², Hidemitsu UCHIZAWA², Hajime MATSUE²,
Hidetaka ICHINOHE³, and Ichiro HATAYAMA¹

Effect of scallop glycogen purified by DEAE Sephadex A-25 column chromatography on chemical hepatocarcinogenesis of mice was immunohistochemically investigated. The effect of glycogen was evaluated as the alteration of induction of glutathione S-transferase II (GST-II) altered foci. Diethylnitrosamine-induced preneoplastic hepatic lesions of male B6C3F₁ mice were detected as GST-II positive foci, while those of female were detected as GST-II negative foci. The number and area of GST-II negative foci in male mice were significantly decreased by administration of glycogen (200 μ g and 400 μ g/mouse, ip). In females, the decrease of area was found in the group treated with 200 μ g of glycogen. The result indicates that glycogen prepared from scallop suppress the chemical hepatocarcinogenesis of mice.

Key words : glycogen, glutathione S-transferase, chemical carcinogenesis, mouse liver

1 : Aomori Prefectural Institute of Public Health and Environment
2 : Aomori Advanced Industrial Technology Center
3 : Aomori Tomoya Co., Ltd.

青森県の温泉について (VI)

高橋 政教 桶田 幾代¹ 野村 眞美 小林 英一²
村上 淳子 平出 博昭³ 秋山由美子⁴ 木村 淳子
小林 繁樹⁵ 石塚 伸一

1978年4月から1989年3月の間に当所で調査した県内399源泉の化学的特性について検討した。温泉による分類では高温泉が70.4%と圧倒的に多かった。pH値は弱アルカリ性が53.6%と過半数を占め、浸透圧による分類では低張性が81.0%であった。また、泉質では塩化物泉が56.4%、単純温泉が26.3%で、この2泉質で全体の82.7%を占めていた。泉質について地域別にみると、塩化物泉は西北五、下北、三八地域に、単純温泉は中弘南黒、上北地域に多く認められた。

Key words : hot springs, temperature of thermal water, pH, osmotic pressure

1. はじめに

本県は、全国でも有数の温泉に恵まれた県である。平成5年度における源泉総数は全国第6位(942本)、湧出量は第4位(160,442ℓ/分)、温泉地数は第3位(124ヶ所)となっている¹⁾。これらの温泉は保養あるいは医学的治療を目的として広く県民に利用されている。

当所では1951年以降、温泉法に基づいて、青森県で湧出した温泉の分析を実施している。1951年6月から1978年3月の間に分析した263源泉については、すでに原子^{2) 3)}小林⁴⁾、桶田^{5) 6)}らにより報告され、本県における温泉の化学的特性が明らかにされつつある。

本調査では前報²⁻⁶⁾に引き続き1978年4月から、1989年3月の12年間に当所で調査した源泉の分析結果について検討し、若干の知見を得たので報告する。

2. 調査方法

2.1 対象源泉

対象源泉は1978年4月から、1989年3月の12年間当所で調査した県内63市町村中54市町村の399源泉。

2.2 分析方法

現地調査および試験室における化学成分の分析は、環境庁自然保護局監修、鉱泉分析法指針⁷⁾(昭和53年5月改訂)に準じて行った。

- 1 : 県環境保全課
- 2 : 樋口ホスピタルサプライ(株)
- 3 : 青森保健所
- 4 : 県水産増殖センター
- 5 : 三沢保健所

3. 調査結果および考察

3.1 源泉の地域分布

各源泉の地域分布を図1に示した。県内を東青(青森市、東津軽郡)、西北五(西津軽郡、北津軽郡、五所川原市)、中弘南黒(中津軽郡、弘前市、南津軽郡、黒石市)、下北(下北郡)、上北(上北郡)、三八(三戸郡、八戸市)地域に分けて検討した。現在温泉のないのは市浦村、階上町、南郷村の3町村である。今回調査した市町村別の源泉数では、市では青森市が51ヶ所と最も多く、ついで弘前市の35ヶ所、黒石市の22ヶ所の順であった。一方、十和田市、むつ市は9ヶ所、7ヶ所と少なかった。町村別では平賀町が29ヶ所と最も多く、ついで岩木町23ヶ所、大鰐町の16ヶ所、碓ヶ関村12ヶ所の順であった。地域的にみると本県の温泉は津軽地方に圧倒的に多く、特に中弘南黒地域に多く分布している。一方、下北、三八および東津軽郡は温泉に恵まれていない地域といえる。

3.2 温泉の化学成分

(1) 温泉について

表1には温泉による分類を示した。本県における温泉の特徴は高温泉(42℃以上)の源泉が多いことである。本調査でも高温泉は70.4%と高い比率であった。図2に地域別による温泉分類を示した。高温泉の比率では西北五地域が80.4%最も高く、ついで中弘南黒地域78.2%、上北地域76.6%の順である。一方、三八地域は12.0%と最も低く、ついで、東青地域59.9%であった。市町村別にみると青森市の酸ヶ湯、浅虫地区、南津軽郡の平賀町、大鰐町、碓ヶ関村等は特に高温泉が多い。一方、泉温の



図1 源泉の地域分布

低い地域としては八戸市、上北郡の野辺地町、三戸郡の三戸町、田子町等であった。泉温の高い源泉としては、青森市の酸ヶ湯温泉（ふかし湯）90.8℃、黒石市の門戸沢温泉78.4℃、平賀町の切明温泉78.1℃、大鰐町の青柳温泉78.0℃等である。

表1 泉温による分析

泉温	源泉数	百分率(%)
冷鉱泉 25℃未満	18	4.5
低温泉 25℃以上34℃未満	41	10.3
温泉 34℃以上42℃未満	59	14.8
高温泉 42℃以上	281	70.4

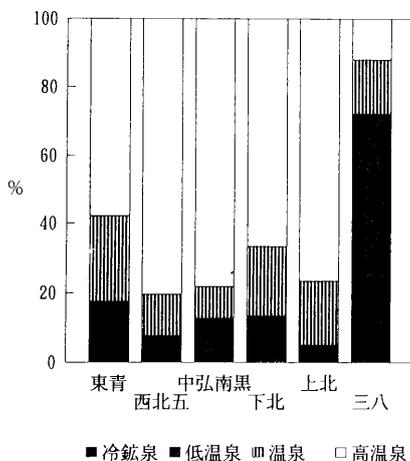


図2 地域別による泉温の分類

(2) pH値について

表2に液性による分類を示した。本調査では源泉のpH値は弱アルカリ性（7.5～8.5）が54.4%と最も多く過半数を占め、ついで中性（6～7.5）25.3%、アルカリ性（8.5%以上）16.8%、酸性（3未満）2.0%、弱酸性（3～6）1.5%の順であった。

水素イオン濃度と主要陰イオンとの間には一般に、酸性温泉では $SO_4 > Cl > HCO_3$ 、中性温泉では $Cl > SO_4 > HCO_3$ 、アルカリ性温泉では $Cl > HCO_3 > SO_4$ という関係があると報告⁸⁾されている。本調査ではアルカリ性の源泉が予想外に多く認められたのは、陰イオン組成が $Cl > HCO_3 > SO_4$ 型の単純温泉が多いためと考えられる。液性がアルカリ性源泉のうち43.7%が $Cl > HCO_3 > SO_4$ 型であった。

図3に地域別液性の分類を示した。アルカリ性源泉の割合についてみると、中弘南黒地域は21.7%であり、ついで上北地域の20.8%と高い割合を示した。一方、西北五地域は2.0%、三八地域は8.0%と低い割合であった。郡別では南津軽郡が34.8%と高い割合を示し、西津軽郡、三戸郡では0%であり、単純温泉の多い地域ほど源泉はアルカリ性の液性を示している。酸性の源泉は8ヶ所認められた。これらは青森市7ヶ所（酸ヶ湯温泉）、岩木町1ヶ所（嶽温泉）であり、火山性温泉の特徴である $SO_4 > Cl > HCO_3$ 型の泉質である。なお、pH値の最高値は大鰐町前田ノ沢温泉の10.2であり、最低値は青森市の酸ヶ湯温泉の1.4であった。

表2 液性による分類

		pH値	源泉数	百分率(%)
酸	性	pH3未満	8	2.0
弱酸	性	pH3以上6未満	6	1.5
中	性	pH6以上7.5未満	101	25.3
弱アルカリ	性	pH7.5以上7.5未満	217	54.4
アルカリ	性	pH8.5以上	67	16.8

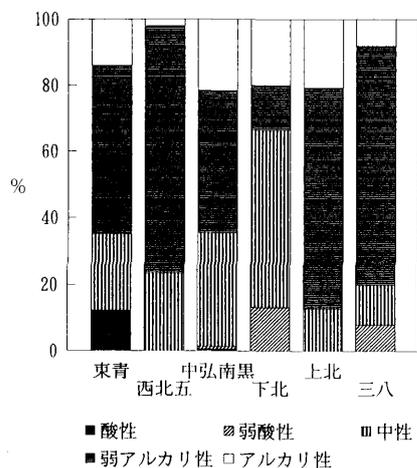


図3 地域別による液性の分類

(3) 溶存物質について

表3に溶存物質総量による浸透圧の分類を示した。低張性源泉(8g/kg未満)が81.0%と圧倒的に多く、次いで高張性源泉(10g/kg以上)14.0%, 等張性源泉(8~10g/kg)5.0%の順であった。図4に地域別浸透圧の分類を示した。地域別でみると、高張性源泉の割合が最も高いのは下北地域の40.0%であり、ついで西北五地域の27.5%であった。一方、三八地域は8.0%, 東青地域は8.8%, 中弘南黒地域は10.3%と低い割合を示した。このことは泉質として、塩化物泉の多い地域は高張性、等張性源泉の比率画高くなり、塩化物泉の少ない地域が低張性源泉の比率は高くなっている。溶存物質の多い源泉としては蓬田村の玉松温泉37.93g/kg, むつ市の関根温泉32.60g/kg, 鱒ヶ沢町の舞戸温泉31.54g/kg, むつ市の小川温泉29.50g/kgなどあり、これらはすべて塩化物泉である。

表3 浸透圧による分類

		溶存物質総量(g/kg)	源泉数	百分率(%)
低張性	8未満		323	81.0
等張性	8以上10未満		20	5.0
高張性	10以上		56	14.0

3.3 泉質について

表4に泉質による分類を示した。本調査では塩化物泉

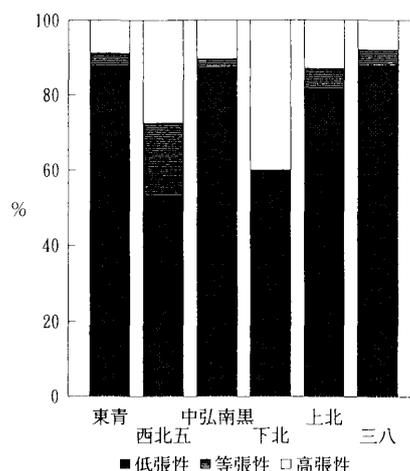


図4 地域別による浸透圧の分類

表4 泉質による分類

泉質	源泉数	百分率(%)
塩化物泉	225	56.4
単純温泉、アルカリ性単純温泉	105	26.3
硫酸塩泉	28	7.0
硫黄泉	13	3.3
炭酸水素塩泉	12	3.0
鉄泉	5	1.2
冷鉱泉	11	2.8

が56.4%と最も多く、ついで単純温泉(アルカリ性単純温泉も含む)の26.3%, 硫酸塩泉7.0%, 硫黄泉3.3%, 炭酸水素塩泉3.0%, 鉄泉1.2%冷鉱泉2.8%であった。なお、泉質が重複するものについては、本調査では、特殊成分および陰イオンの主成分により分類した。(例:Na-Cl泉, Na-Cl・SO₄泉, Na・Ca-Cl・HCO₃泉等は塩化物泉, 含S・Na-Cl泉は硫黄泉)。

(1) 塩化物泉

表5に塩化物泉の分類を示した。塩化物泉225ヶ所のうちナトリウム-塩化物泉(Na-Cl泉)が162ヶ所と圧倒的に多かった。ついでナトリウム-塩化物・炭酸水素塩泉(Na-Cl・HCO₃泉), ナトリウム・カルシウム-塩化物泉(Na・Ca-Cl泉)等になっている。

温泉中の塩素イオンの起源としては、火山性の塩素、海塩起源の塩素の2とおりが考えられるが⁹⁾、個々の温泉中の塩素を判定することは困難な場合もある。海塩起源にしても、地質時代に海水が陸地に閉じ込められた化石海水に由来するものもあるし、海岸近くの温泉によく見られるように、現在の海水が地中に浸透して温泉中に混入しているものもある。

塩化物泉を市別にみると弘前市が24ヶ所と最も多く、ついで青森市および八戸市が16ヶ所、五所川原市15ヶ所

表5 塩化物泉の分類

泉質	件数	旧泉質名	泉質	件数	旧泉質名
Na-Cl泉	162	食塩泉	Na・Mg-Cl・HCO ₃ 泉	3	含土類-食塩泉
Na-Cl・HCO ₃ 泉	19	含重曹-食塩泉	Na・Mg-Cl泉	2	含塩化土類-食塩泉
Na・Ca-Cl泉	15	含塩化土類-食塩泉	Na・Ca・Mg-Cl泉	2	含塩化土類-食塩泉
Na-Cl・SO ₄ 泉	11	含芒硝-食塩泉	含CO ₂ ・Na-Cl泉	1	含炭酸-食塩泉
Na・Ca-Cl・SO ₄ 泉	5	含芒硝-食塩泉	Na-Cl・SO ₄ ・HCO ₃ 泉	1	含芒硝・重曹-食塩泉
Na・Mg・Ca-Cl・HCO ₃ 泉	3	含土類-食塩泉	Ca・Na-Cl泉	1	含塩化土類-食塩泉

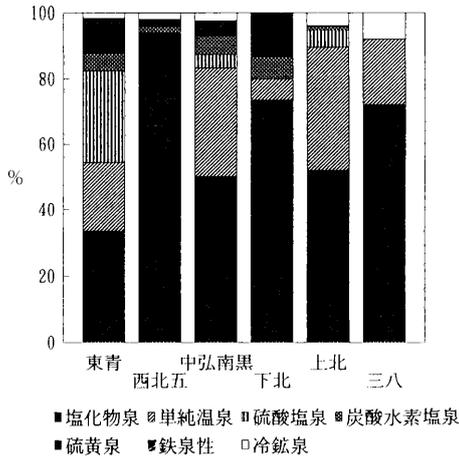


図5 地域別による泉質の分類



図6 塩化物泉分布

の順であった。町村別では平賀町が13ヶ所、岩木町12ヶ所、大鰐町10ヶ所、東北町7ヶ所の順になっている。図5, 6に地域別の泉質を示した。地域別にみると西北五地域が94.1%と最も高い割合であり、ついで下北地域の73.3%, 三八地域の72.0%となっている。一方、東青地域33.3%と最も低い割合であり、ついで、中弘南黒地域50.0%, 上北地域51.9%の順であった。すなわち、五所

表6 青森市周辺地域地層序表¹⁷⁾

地質系統	地層名	主要岩種		
第四系	沖積統	沖積低地堆積物	砂・礫・泥	
	洪積統	扇状地堆積物	砂礫・火山灰	
		湖沼堆積物	シルト・粘土	
		八甲田火山噴出物	浮石質火山灰 安山岩熔岩・集塊岩 熔結凝灰岩	
新第三系	岡町層・前田野目層	泥岩・砂岩		
	鮮新統	鶴ヶ坂層	浮石質凝灰岩	
		大迦加層	中～粗粒砂岩	
	中新統	大滝沢層	石英安山岩質 浮石凝灰岩	
		王余魚沢層	シルト岩	
		都谷森山層	和田川層	黒色頁岩
				硬質頁岩
		金ヶ沢層	四沢層	緑色凝灰岩 流紋岩
			金ヶ沢層	変朽安山岩
	先第三系		花崗岩類 粘板岩・ホルンフェルス 石灰岩	

川原市, 八戸市, 西および北津軽郡, 下北郡の温泉は塩化物泉が主である。

温泉の泉質は湧出地の地質層(岩種類)のよって決定される。青森県の地質は(表6参照), 一般に先第三系(古生界代, 中世界), 新第三系中新統, 鮮新統, 第四系洪積統, 火山噴出物および沖積統に大別される^{10), 17)}。本県の温泉は沖積統を除く各地層から湧出しており, その湧出機構および包蔵状態は多種多様である。青森県の地層の主体をなしているのが中新統で, 温泉も大部分がこの中新統の分布地に湧出している。中新統の温泉は概念的に1. 金属鉱床型(仮称), 2. 石油鉱床型(仮称), 3. 構造性型の3つに型に大別される¹⁰⁾。

石油鉱床型の温泉は, いわゆる石油母層といわれている厚い泥岩層中に包蔵されるもので, 津軽平野全域(小泊村, 中里町, 金木町, 稲垣村, 木造町, 五所川原市, 森田村, 鶴田町, 板柳町, 藤崎町, 弘前市等)をはじめ, 小川原湖周辺(東北町, 上北町, 三沢市, 十和田市等)

およびむつ市等多数の温泉が開発されている^{10)~13)}。本地域の温泉は、いわゆる油田かんすいに熱水が供給され、それに炭酸および硫酸が加わったものと推定される。これらの温泉は塩分を多量に含み、石油の集油機構と同様、地層の褶曲により地下深部に閉じ込められた化石的地下水が主体をなしているものと考えられる。そのため温泉水の補給機能が著しく劣るため、長期間の揚湯による枯渇の可能性がある^{12) 14)}。これら温泉の泉質は塩化物泉である。

第四系の堆積物中に包蔵されている温泉としては、青森平野内の温泉（沖館、浪館、荒川、浪打等）が挙げられる。これらの温泉の熱源および熱供給の機構等については不明な点が多いが、これらの温泉もいわゆる断層、傾動、撓曲運動等による構造的温泉と考えられる¹⁰⁾。青森平野の泉質は大滝沢層、大釈迦層および岡町層に包蔵されている温泉は単純温泉であり、王余魚沢層および都谷森山層に包蔵されている温泉は塩化物泉となっている^{10) 17)}（表6参照）。

(2) 単純温泉およびアルカリ性単純温泉

本調査では単純温泉は42ヶ所、アルカリ性単純温泉（pH8.5以上）は63ヶ所であった。市別にみると黒石市が

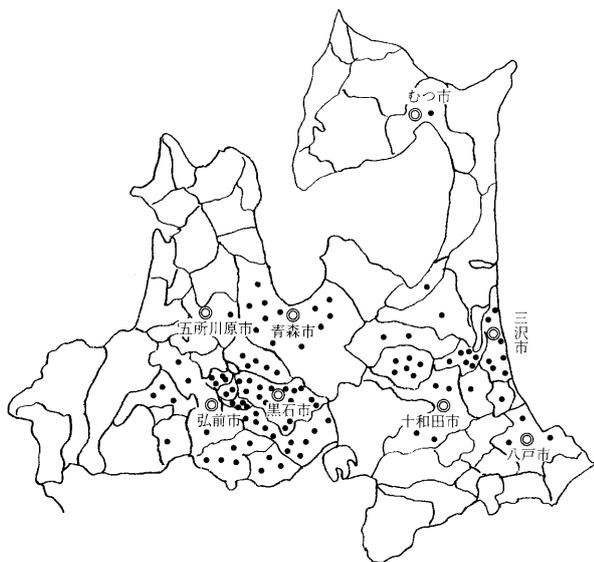


図7 単純温泉分布

16ヶ所と圧倒的に多く、ついで青森市12ヶ所、三沢市7ヶ所の順であった。町村別では平賀町11ヶ所、七戸町および上北町6ヶ所、大鰐町および浪岡町5ヶ所の順になっている。郡別では、南津軽郡35ヶ所と最も多く、ついで上北郡18ヶ所、中津軽郡4ヶ所となっている。地域別泉質を図5、7に示した。地域別にみると、上北地域が37.7%と最も高い割合を示し、ついで中弘南黒地域は33.3%である。一方、西北五地域は0%、下北地域は

6.7%と低い割合であった。単純温泉およびアルカリ性単純温泉は黒石市、南津軽郡、上北郡に多く分布している。

黒石市および黒石市浅瀬石川地域の源泉は構造的な温泉が多いと報告されている¹⁰⁾。構造的な温泉は前記1.2のような特徴のないものの総称で、おそらく断層、撓曲、傾動等のいわゆる構造運動によって生じた地下深部に達する構造線から熱供給が行われて温泉が生成されていると考えられる¹⁰⁾。南津軽郡平川（碓ヶ関）、黒石市浅瀬石川（温川、葛川、切明、沖浦、青荷、二所内、小国、板留、落合、温湯等）流域の大部分がこの型に属すると考えられる。泉質は、黒石地区は単純温泉、温湯地区は塩化物泉、板留、落合地区は硫酸塩泉、塩化物泉、二所内地区は単純温泉、沖浦地区は塩化物泉、硫酸塩泉、青荷地区は単純温泉と変化に富んでいる^{14) 15)}。これらの地域における泉質が多種に亘ることは、温泉水の包蔵帯の地質（岩種）、地下水からの熱源の伝播および地下水の供給等の差異によるものと考えられる。

金属鉱床型の温泉は、いわゆる緑色凝灰岩（グリーン・タフ）と呼ばれる金属鉱床胚胎地層中に包蔵されるものである。浅虫温泉、大鰐温泉、湯の沢温泉、碓ヶ関温泉、湯の川温泉等の自然湧出温泉をはじめ、近年、いわゆる黒鉱探ボーリング等によって開発された南・中津軽郡の遠部、相乗、島田、大坊、唐竹、相馬、久渡寺温泉等、下北郡の安部城、名由川、小倉平温泉等、三戸郡の野沢温泉等多くの温泉がこの型に入る¹⁰⁾。これらの温泉は、いずれも金属鉱床の形成に伴い、地下深部からの熱水路の通路が作られ、その通路から現在も熱源が供給されているものと考えられる^{11) 14)}。泉質としては塩化物泉、単純温泉、硫酸塩泉である。なお、弘前盆地における温泉水包蔵帯の地質からみると、泥岩類中には塩化物泉、緑色凝灰岩中には硫酸塩泉、砂岩および軽石凝灰岩（砂質）には単純温泉となっている¹¹⁾。

一方、青森県のいわゆる地下水包蔵帯となっているのが、新第三系鮮新統の砂岩層である。この鮮新統が地下深部に厚く発達している津軽平野南東部では、その地下水が温泉となって包蔵されている。最近開発された浪岡町、常盤村、田舎館村大袋および弘前市二ツ森、新里温泉等は、いずれも地下500~1000mに発達している鮮新統の砂岩中に包蔵されている¹⁰⁾。被圧性が大きく、すべて自噴状態を示している^{14) 16)}。これらの温泉は地下水の涵養補給が盛んな深層地下水と推察され、いわゆる地下水層をなしていることから相互干渉に対する配慮が必要となる^{14) 16)}。泉質はすべて単純温泉である。熱源は不明であるが、断層、傾動運動によるいわゆる構造的な温泉と考えられる。

第四系の堆積物中に包蔵されている温泉としては、黒石扇状地の温泉（追子の木、尾上等）が挙げられる^{10) 15)}。

表7 硫酸塩泉の分類

泉 質	件数	旧泉質名	泉 質	件数	旧泉質名
Na・Ca-SO ₄ ・Cl泉	9	含食塩-芒硝泉	Na-SO ₄ ・Cl・HCO ₃ 泉	1	含食塩-芒硝泉
Na-SO ₄ ・Cl泉	6	含食塩-芒硝泉	Na・Ca-SO ₄ 泉	1	芒硝泉
Na・Ca-SO ₄ ・HCO ₃ 泉	3	芒硝泉	Ca-SO ₄ 泉	1	石膏泉
Na-SO ₄ ・HCO ₃ ・Cl泉	3	含食塩-芒硝泉	Ca・Na-SO ₄ 泉	1	石膏泉
酸性・Ca-SO ₄ ・Cl泉	3	酸性石膏泉			

これらの温泉の熱源および熱供給の機構等については不明な点が多いが、これらの温泉も、いわゆる断層、傾動、繞曲運動等による構造的な温泉と考えられる。これらの泉質はすべて単純温泉である。

(3) 硫酸塩泉

表7に硫酸塩泉の分類を示した。ナトリウム・カルシウム-硫酸塩・塩化物泉 (Na・Ca-SO₄・Cl泉) が最も多く、ついで、ナトリウム-硫酸塩・塩化物泉 (Na-SO₄・Cl泉)、ナトリウム-硫酸塩・炭酸水素塩・塩化物泉 (Na-SO₄・HCO₃・Cl泉) 等となっている。

硫酸イオンはほとんどすべての温泉水中に存在する。硫酸イオンの生成過程としては、海水起源のもの、火山ガス中のSO₂の酸化によるもの、硫化鉄の酸化によるもの、石膏の溶出によるものなどが考えられる⁹⁾。図5に地域別泉質を示した。地域別では東青地域は28.0%と最も多く、ついで上北地域は5.2%、中弘南黒地域は4.0%であった。一方、その他の地域では存在しなかった。市町村別でみると、青森市が16ヶ所と圧倒的に多く、ついで平賀町、十和田湖町の3ヶ所、黒石市2ヶ所の順になっている。硫酸塩泉は、北八甲田 (田代、酸ヶ湯、八甲田温泉)、南八甲田 (蔦、猿倉) 地域に多く分布し、これらの温泉は火山性由来と考えられる。

火山活動に伴って生じた温泉は、本県では第四系火山噴出物中に湧出する。岩木山火山では嶽、黒森、湯段、百沢および三本柳温泉等、南八甲田火山では酸ヶ湯、新湯、田代、八甲田温泉等、恐山火山では宇曾利湖北東岸温泉等、燧岳火山では下風呂、桑畑温泉等がある¹⁰⁾。これらの初期火山地域にある温泉は、一般的に火山の中心に近い温泉が酸性が強くなり、中心から離れるにしたがってpH値が高くなる性質を示している。第四系火山性温泉の特徴は1. 強酸性であること、2. 遊離成分において

H₂S、CO₂が著量を示すこと、3. SO₄が著量であることである。しかし、火山性温泉でも、八甲田火山温泉群の酸ヶ湯、田代はHCO₃を欠き、Clには乏しいがSO₄を著量に含む。一方、岩木山火山温泉群の嶽はHCO₃を欠き、SO₄には乏しいがClを著量に含む。恐山温泉は酸ヶ湯、嶽温泉とはかなり異なった特性を有し、SO₄には乏しいがClを著量に含む点では嶽温泉に近いが嶽温泉に比してHCO₃を多量に含んでいる¹⁸⁾¹⁹⁾。泉質としては酸性硫化水素泉、塩化物泉、硫酸塩泉、炭酸水素塩泉、単純温泉、鉄泉等多種多様である。

(4) 硫黄泉

表8に硫黄泉の分類を示した。硫黄泉が存在する市町村は青森市 (4ヶ所)、弘前市 (2ヶ所)、平内町 (1ヶ所)、木造町 (1ヶ所)、平賀町 (1ヶ所)、碓ヶ関村 (1ヶ所)、風間浦村 (2ヶ所) の計13ヶ所であった。地域別 (図5) でみると、東青地域は8.8%、下北地域は6.7%、中弘南黒地域は2.3%等である。青森市では酸ヶ湯地区、風間浦村では下風呂地区に分布していた。これらの温泉は火山性由来である。

表8 硫黄泉の分類

泉 質	件数	旧泉質名
含・S・Na-SO ₄ ・Cl泉	3	含食塩-芒硝-硫化水素泉
酸性・含S・Fe(II)・Al-SO ₄ ・Cl泉	3	酸性硫化水素泉
含S・Na-Cl-SO ₄ 泉	2	含食塩-硫黄泉
単純S泉	2	単純硫黄泉
含ホウ酸・S・Na-Cl泉	1	含食塩-硫黄泉
酸性・含・CO ₂ ・S・Fe(II)・Al-SO ₄ ・Cl泉	1	酸性硫化水素泉

(5) 炭酸水素塩泉

表9に炭酸水素塩泉の分類を示した。ナトリウム-炭

表9 炭酸水素塩泉の分類

泉 質	件数	旧泉質名	泉 質	件数	旧泉質名
Na・HCO ₃ ・Cl泉	4	含食塩-重曹泉	Na-HCO ₃ 泉	1	重曹泉
Na・Mg-HCO ₃ ・Cl泉	3	含食塩-重曹泉	Na・Mg・Ca-HCO ₃ Cl泉	1	含食塩-重曹泉
Mg・Na-HCO ₃ ・Cl泉	1	含食塩-重炭酸土類泉	Na・Mg・Ca-HCO ₃ Cl・SO ₄ 泉	1	含食塩-芒硝-重曹泉
Na-HCO ₃ ・SO ₄ 泉	1	含芒硝-重曹泉			

酸水素塩・塩化物泉 (Na-HCO₃・Cl泉) が4ヶ所, ナトリウム・マグネシウム-炭酸水素塩・塩化物泉 (Na・Mg-HCO₃・Cl泉) が3ヶ所等計12ヶ所の炭酸水素塩泉が認められた。

温泉中の炭酸水素イオンの起源は火山ガス中に含まれているCO₂に起因するか, 堆積層中の有機物質の分解によって発生したCO₂に起因するかが考えられてる⁹⁾。

炭酸水素塩泉が存在する市町村は, 弘前市 (4ヶ所), 青森市 (1ヶ所), 岩木町 (5ヶ所), 岩崎村 (1ヶ所), 十和田湖町 (1ヶ所), 東通村 (1ヶ所) の計12ヶ所であった。地域別 (図5) でみると, 下北地域は6.7%, 中弘南黒地域では5.3%等である。炭酸水素塩泉は弘前市, 岩木町に多く認められた。これらの地域におけるHCO₃型の温泉は火山性由来と考えられ, 本来はSO₄型であったのが火山の中心から離れた地域であるため, 温泉水の移動過程においてSO₄に代わって, HCO₃に富む冷地下水が混入したためと考えられる¹⁸⁾。

(6) 鉄 泉

表10に鉄泉の分類を示した。鉄泉が存在する市町村は青森市 (1ヶ所), 岩木町 (2ヶ所), 碓ヶ関村 (2ヶ所) の計5ヶ所であった。地域別 (図5) でみると, 中弘南黒地域は2.3%, 東青地域は2.8%割合であった。その他の地域では認められなかった。

表10 鉄泉の分類

泉 質	件数	旧泉質名
Fe(II)・Na-Cl泉	2	含鉄-食塩泉
酸性・Fe(II)・Al・CaCl泉	1	含明ばん酸性塩化土類泉
単純Fe(II)-HCO ₃ 泉	1	炭酸鉄泉
Fe(II)・Na・Ca・Cl・SO ₄ 泉	1	含食塩泉-緑ばん泉

(7) 冷 鉱 泉

冷鉱泉は11ヶ所であった (表4)。地域別でみると (図5), 冷鉱泉が存在する市町村は青森市 (1ヶ所), 弘前市 (1ヶ所), 黒石市 (2ヶ所), 大鰐町 (1ヶ所), 碓ヶ関村 (1ヶ所), 野辺地町 (2ヶ所), 十和田湖町 (1ヶ所), 田子町 (2ヶ所) であった。三八地域では8.8%が冷鉱泉であった。

以上本県の温泉の化学特性について述べた。本県は非常に温泉に恵まれており, これらの温泉は広く人々の保健休養の場として利用されている。さらに近年, 温泉そのものがエネルギー資源として認識され代替エネルギーとして, 地熱発電, 融雪, 農林漁業等に活用されている。今後はこれらの, 源泉の保護および適正利用を図ることがより重要であると考えられる。

4. ま と め

1978年4月から1989年3月までに行った県内399源泉の化学成分について検討したところ次のとおりであった。

- (1) 温泉による分類では高温泉が70.4%と高い割合を示し, 本県の源泉は高温泉が多いことが認められた。
- (2) 液性による分類では弱アルカリ性が54.4%と最も多く, ついで中性, アルカリ性, 酸性, 弱酸性の順であった。
- (3) 浸透圧による分類では低張性が81.0%と圧倒的に多く, ついで高張性14.0%, 等張性が5.0%であった。
- (4) 泉質による分類では塩化物泉が56.4%と過半数を占め, ついで単純温泉 (アルカリ性単純温泉も含む) 26.3%, 硫酸塩泉7.0%, 硫黄泉3.3%, 炭酸水素塩泉3.0%, 鉄泉1.2%, 冷鉱泉2.8%であった。
- (5) 泉温について地域別にみると, 西北五, 上北, 中弘南黒地域では高温泉の源泉が多く認められた。一方, 三八, 東青地域では高温泉の源泉は少なかった。
- (6) 泉質について地域別にみると, 塩化物泉は西北五および下北地域に多く分布していた。一方, 単純温泉 (アルカリ性単純温泉も含む) は中弘南黒および上北地域に多く認められた。また, 硫酸塩泉, 硫黄泉は青森市に, 炭酸水素泉は弘前市および岩木町に多く認められた。
- (7) 東青, 中弘南黒地域は塩化物泉, 単純温泉, 硫酸塩泉, 硫黄泉, 炭酸水素塩泉, 鉄泉等の種々の泉質に富んでいるが, 上北, 三八地域では殆どが塩化物泉, 単純温泉で泉質の種類には恵まれていない。

謝 辞

本調査に御協力いただいた県自然保護課および各保健所の担当者の方々に深く感謝致します。

文 献

- 1) 環境庁自然保護局施設整備課: 都道府県別温泉利用状況 (平成5年3月末現在)。
- 2) 原子昭, 他: 青森県の温泉(1) 青森県衛生研究所報, **3**, 1-24, 1962.
- 3) 原子昭, 他: 青森県の温泉(III) 青森県衛生研究所報, **10**, 47-68, 1970.
- 4) 小林英一, 他: 青森県の温泉について, 青森県衛生研究所報, **11**, 51-72, 1973.
- 5) 桶田幾代, 他: 青森県の温泉について, 青森県衛生研究所報, **13**, 3-36, 1975.
- 6) 桶田幾代, 他: 青森県の温泉について, 青森県衛生研究所報, **14**, 42-43, 1976.
- 7) 環境庁自然保護局監修: 鉱泉分析法指針 (改訂), 温泉工学会, 1978.

- 8) 岩崎岩次：火山の化学, 50-52, 河出書房, 1948.
- 9) 地下水ハンドブック編集委員会編：地下水ハンドブック, 160-161, 建設産業調査会, 1979.
- 10) 青森県環境保健部自然保護課：青森県における温泉の概況, 6-8, 1981.
- 11) 青森県環境保健部：青森県津軽平野地域における温泉群の研究, 24-25, 1980.
- 12) 青森県環境保健部：温泉ゆう出地基礎調査委託業務報告書(野辺地町・東北町・七戸町), 1-8, 1988.
- 13) 青森県環境保健部：温泉ゆう出地基礎調査委託業務報告書(三沢市・下田町・百石・八戸市), 51-58, 1992.
- 14) 青森県環境保健部：青森県弘前盆地地域における温泉群の研究, 19-27, 1981.
- 15) 青森県環境保健部：温泉ゆう出地基礎調査委託業務報告書(黒石地域), 9-11, 1986.
- 16) 青森県環境保健部：温泉ゆう出地基礎調査委託業務報告書(浪岡町・板柳町・藤崎町・常盤村・田舎館村), 55-57, 1990.
- 17) 青森県環境保健部：青森地区周辺地域の温泉調査報告書, 7-9, 1984.
- 18) 酒井軍治郎, 他：岩木山麓群の研究, 青森県衛生部, 40-49, 1965.
- 19) 酒井軍治郎, 他：恐山地域(薬研地域を含む)における温泉群の研究, 青森県衛生部, 28-46, 1967.

Abstract

Hot Springs in Aomori Prefecture (VI)

Masanori TAKAHASHI¹, Ikuyo OKETA², Masami NOMURA¹,
 Eiichi KOBAYASHI³, Atsuko MURAKAMI¹, Hiroaki HIRAIDE⁴,
 Yumiko AKIYAMA⁵, Junko KIMURA¹, Shigeki KOBAYASHI⁶
 and Shin-ichi ISIZUKA¹

A study on chemical characteristics of thermal water in 399 places of hot springs in Aomori Prefecture was made from April 1978 to May 1989. High temperature thermal water was overwhelmed in the percentage, 70.4%, when classified by the temperature of thermal water. As for the classification by pH value, 54.4%, more than half, was weakly alkaline.

Hypotonicity occupied 81.0% in the classification by osmotic pressure. Chlorides water was 54.6% and simple water was 26.3%; both were 82.7% in the whole. Chlorides water was found mainly in Seihokugo, Simokita, and Sanpachi areas while simple water was found mainly in Chuukounankoku and Kamikita areas.

key words : hot springs, temperature of thermal water, pH, osmotic pressure

1 : Aomori Prefectural Institute of Public Health and Environment

2 : Aomori Prefectural Environmental Preservation Division

3 : Higuchi Hospital Supply Co., Ltd.

4 : Aomori Prefectural Aomori Public Health Center

5 : Aquaculture Research Center of Aomori Prefecture

6 : Aomori Prefectural Misawa Public Health Center

農業集落排水の実態調査 —WQIによる水質評価—

大久保英樹 三上 一 石塚 伸一 阪崎 俊璽 工藤 真哉¹
工藤 俊明 早狩 敏男 坂上 素一 高柳 和弘²

1992年5月から9月の灌漑期における県内30ヶ所の農業集落排水実態調査を実施した。調査は、主として朝方の集落排水の影響について行い、BOD、COD、SS、T-N及びT-Pの5項目に基づく総合指標（WQI）による水質評価の結果、7地点で汚濁が進行しており、水質汚濁マップによる汚濁状況は公共用水域と類似していることから農業集落排水は、河川の水質汚濁要因の一つであることが示唆された。

また、農業集落排水処理施設における水質調査の結果、BOD、COD等の有機汚濁物質の処理効果は75%以上と高いが、T-N、T-Pの処理効果は50%以下と低い傾向にあることから、農業集落排水対策ではT-N、T-Pの栄養塩類の削減が重要な課題であると思われる。

Key words : agricultural village, waste water, WQI (water quality index),
evaluation of water quality, treatment effect

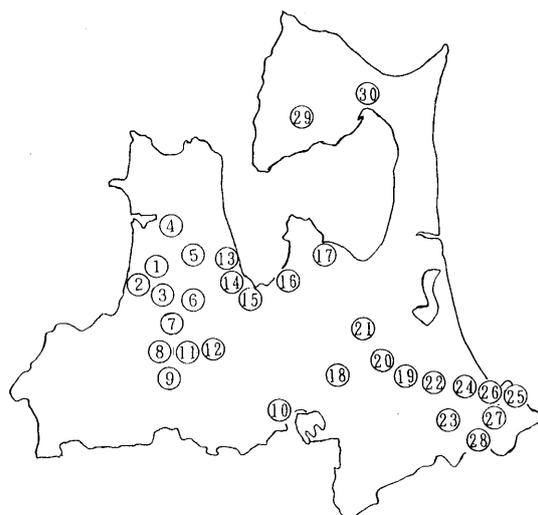
1. はじめに

農業集落はかつて豊かな水と緑にはぐくまれ、水質保全や自然環境の維持に重要な役割を果たしてきた。しかしながら、近年、農業集落では社会構造の変化や生活様式の近代化、多様化に伴い、家庭からの生活雑排水等による河川や用排水路の水質汚濁が問題となっている。

また、農業用水には小河川や用排水路等とおして農業集落排水が流入していることから、農業集落の水質汚濁は水稻の立ち枯れをはじめとする農業被害を引き起こすのみでなく、河川、湖沼、海域等の公共用水域に流入するため水質汚濁の原因となる。このため、農業集落排水の水質状況を適確に把握し、汚濁要因を明らかにすることが必要となっている。

一般に水質は、BODやCOD等の単一項目により評価されることが多いが、各水域の水質特性は種々の項目が密接に関連し、固有の水環境を形成していることから水質の有する多面的な汚濁状況を適確に把握することが望まれる。特に、生活雑排水の流入が多い農業集落排水は汚濁要因が複雑であるため単一項目の評価によって、水質の状況を適確に把握することは難しいと思われる。

著者等は前報¹⁾において主成分分析を用いた総合指標(WQI)による県内河川の水質評価を試みた結果、WQIによる水質評価は単一指標に比べて煩雑さがなく水質を多面的、総合的にとらえようとした場合、有用であることを報告した。本報では、農業被害等が懸念される灌漑



- 1) 稲垣村 2) 木造町 3) 柏村
- 4) 中里町 5) 金木町 6) 五所川原市
- 7) 鶴田町 8) 弘前市高杉 9) 弘前市高杉
- 10) 平賀町 11) 藤崎町 12) 常盤村
- 13) 青森市岡町 14) 青森市細越 15) 青森市金浜
- 16) 青森市宮田 17) 平内町 18) 十和田湖町
- 19) 十和田市糠森 20) 十和田市相坂 21) 七戸町
- 22) 五戸町 23) 福地村 24) 八戸市福永
- 25) 八戸市八幡 26) 八戸市田中 27) 八戸市十日町
- 28) 南郷村 29) 川内町 30) むつ市

図1 調査地点

1 : 原子力環境対策室 2 : 機械金属試験所

期における農業集落地域での水質汚濁状況を総合指標により把握するとともに、農業集落排水対策の一環として取り組まれている農業集落排水処理施設の稼働状況について検討したので報告する。

2. 調査方法

調査については、県農林部農村振興課が主体となり各土地改良事務所が採水を行い、当センターは水質分析を担当した。

調査地点は農業集落排水が流入する小河川や用排水堰で青森県内の22市町村30地点（図1）である。

期間は1992年5～9月の灌漑期に毎月1回採水を行い、対象とした項目はpH、BOD、COD、SS、T-N及びT-Pの6項目である。

3. 結果と考察

3.1 採水時刻

対象とした調査地点は小河川や用排水堰で、いずれも流量が小さいことから排水の流入が水質に大きな影響をもつといえる。一般に生活雑排水による汚濁は朝方と夕方に汚濁のピークをもつ2山型²⁾で、採水時刻が排水による水質汚濁を評価するうえで大きな要素となることから採水時刻の分布を示す（図2）。

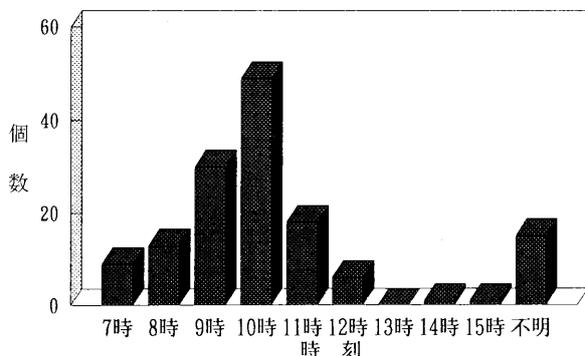


図2 採水時刻の分布

採水は午前6時から午前10時の間にほぼ80%の地点で行ったことから、今回の調査は朝方の生活雑排水による水質汚濁の影響を反映している。

3.2 水質の概要

対象とした6項目について基礎統計量（表1）を求め水質の概要を把握するとともに、各項目ごとに度数分布により水質の状況について検討した。

pHはほとんどの地点でpH6～8の間にあるが、No15（青森市金浜）では温泉排水等に由来するpHの低下がみられた（図3）。

表1 基礎統計量（原データ：n=141）

	平均	最大	最小	標準偏差	変動係数
pH	7.2	8.4	3.8	0.64	8.9
BOD	11	120	<0.5	20.1	178
COD	11	110	1.5	13.5	121
SS	26	330	1	38.8	151
T-N	2.5	16	0.15	2.85	115
T-P	0.3	14	0.008	1.23	315

BODは最頻値0～5mg/l、平均値11mg/lで、BOD10mg/l以上の地点が全体の22%と比較的高くなっており汚濁が進んでいることがうかがえた（図4）。

CODは最頻値5～10mg/lで、BODと同様にCOD10mg/l以上の地点が全体の23%と比較的高かった（図5）。

SSは最頻値0～20、平均値26mg/lで、ほとんどの地点で100mg/l以下であった（図6）。

T-Nは最頻値0～1.0mg/l、平均値2.5mg/lで、5.0mg/l以上の地点が全体の16%となっており、比較的高い傾向にあった（図7）。

T-Pは最頻値0～0.2mg/l、平均値0.3mg/lで、ほとんどは1.0mg/l以下であった（図8）。

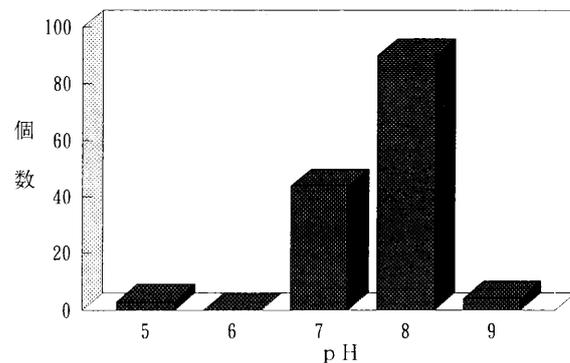


図3 pHの分布

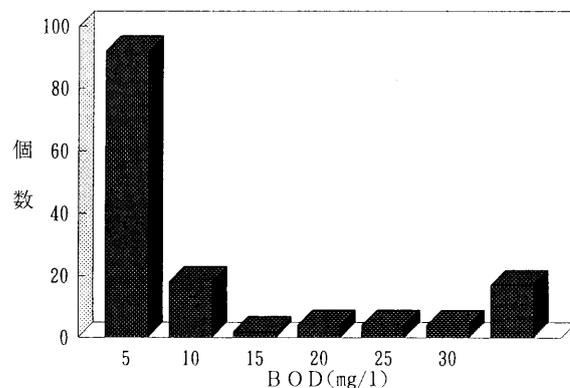


図4 BODの分布

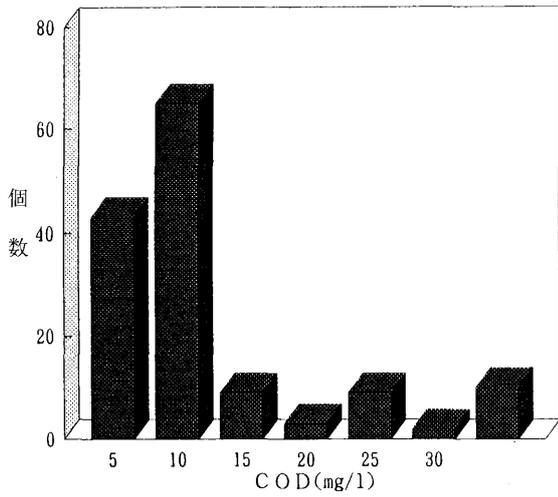


図5 CODの分布

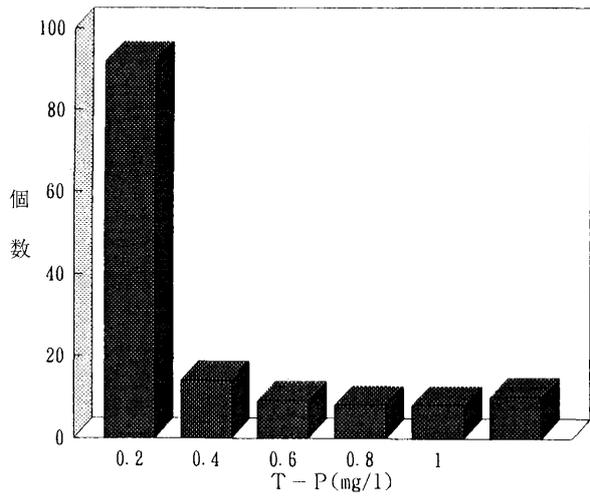


図8 T-Pの分布

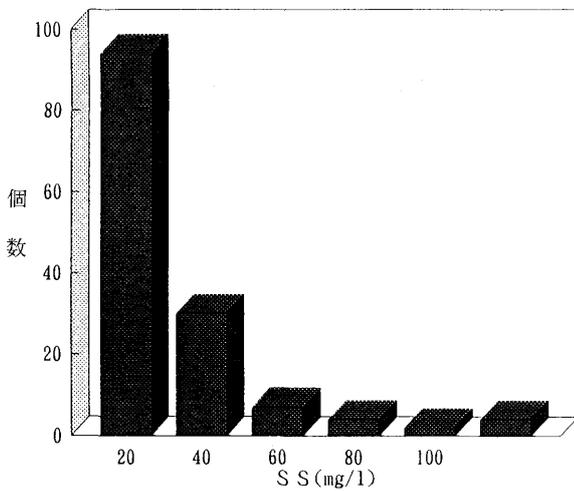


図6 SSの分布

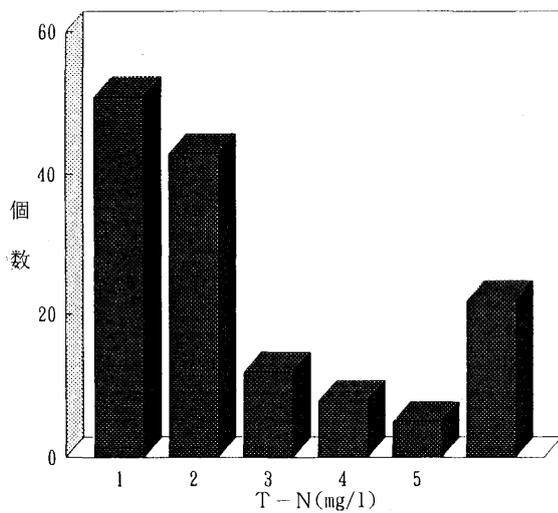


図7 T-Nの分布

3.3 WQIの作成

相関係数行列及び主成分分析により農業集落排水の総合的な水質解析を試みた(表2, 3)。

なお、定量下限値以下のデータについては定量下限値の1/2の値を用いた。また、 χ^2 検定により6項目の分布を検討したところpH以外は対数変換した方が正規分布に近かったので次の変換様式で実施した。

原データ：pH

対数変換：BOD, COD, SS, T-N, T-P

表2 相関図表(変換後)

項目	pH	BOD	COD	SS	T-N	T-P
pH	1.00					
BOD	-0.10	1.00				
COD	-0.10	0.73**	1.00			
SS	0.04	0.30**	0.38**	1.00		
T-N	-0.07	0.76**	0.75**	0.47**	1.00	
T-P	-0.14	0.71**	0.74**	0.57**	0.83**	1.00

(** : $r > 0.21$ は危険率1%で有意)

(* : $r > 0.16$ は危険率5%で有意)

表3 主成分分析結果

成分	合成変数 Z_1	合成変数 Z_2
固有値	3.58	1.03
寄与率	0.596	0.768
pH	-0.074	-0.141
BOD	0.450	0.852
COD	0.460	0.871
SS	0.318	0.603
T-N	0.488	0.923
T-P	0.489	0.926

主成分分析の結果、第1主成分はpHを除いた項目はいずれも因子負荷量は0.5以上であり、特に、栄養塩類であるT-N・T-Pと有機物汚濁の指標であるBODとCODが高い値であることから第1主成分は富栄養化に関する因子と有機物汚濁に関する因子と考えられる。

第2主成分はpHが高い因子負荷量で抽出されたことからpHに関する因子であると考えられる。

主成分分析法によるWQIを作成するために、互いに相関がよく、第1主成分で高い因子負荷量で抽出されたpHを除く5項目により再度、主成分分析を行った(表4)。

表4 主成分分析結果

成分	合成変数 Z ₁		合成変数 Z ₂	
固有値	3.56		0.77	
寄与率	0.710		0.870	
BOD	0.450	0.851	0.386	0.342
COD	0.461	0.871	0.240	0.212
SS	0.322	0.608	-0.880	-0.775
T-N	0.489	0.924	0.085	0.075
T-P	0.490	0.925	-0.090	-0.079

再度行った主成分分析の結果では第1主成分(Z₁)の寄与率は、71%にまで高められた。

以上の結果から前報¹⁾に基づき、第1主成分の固有ベクトルを用いて吉見²⁾による方法によりWQIを作成した。

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

K_i : i 番目の固有ベクトル
 X_i : i 番目の変数の実測値
 M_i : i 番目の変数の平均値
 D_i : i 番目の変数の標準偏差

$$\begin{aligned}
 WQI = & 0.450 \{ \log(BOD) - 0.619 \} / 0.577 \\
 & + 0.461 \{ \log(COD) - 0.883 \} / 0.341 \\
 & + 0.322 \{ \log(SS) - 1.175 \} / 0.436 \\
 & + 0.489 \{ \log(T-N) - 0.167 \} / 0.448 \\
 & + 0.490 \{ \log(T-P) + 0.895 \} / 0.601
 \end{aligned}$$

この式に各項目の実測値を代入することにより総測定回数分のWQI値を求め、WQIの平均値0を中心に標準偏差1.71を1階級の幅としてI(-0.85未満)、II(-0.85以上0.85未満)、III(0.85以上)の3階級に分類した⁴⁾(表5)。

表5 階級別の基礎統計量

階級	個数	平均値	最大値	最小値	標準偏差
全体	141	0.00	5.01	-3.15	1.71
I	49	-1.70	-0.87	-3.15	0.67
II	55	-0.07	0.82	-0.82	0.46
III	37	2.37	5.01	0.96	0.87

これに各地点のWQI平均値をあてはめ、地点間での類似性や相違をみるために水質汚濁マップを作成した(図9)。

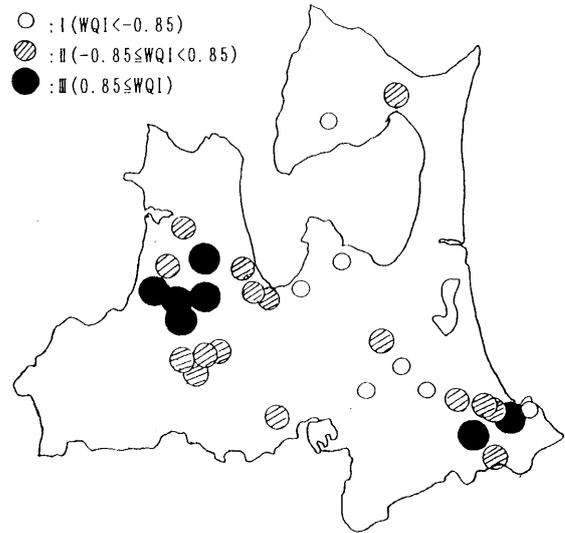


図9 水質汚濁マップ

汚濁マップから五所川原市近傍がIIIにランク分けされた地点が多く集まっている。この結果は、前報で得られた公共用水域(河川)の汚濁の結果とほぼ一致していることから農業集落排水が公共用水域の汚濁要因の一つになっていることが推察された。また、IIIにランクされた7地点のほとんどはWQIを作成するために用いた5項目の値が高いものであったが、八戸市十日市のようにBOD値はそれほど高くないがT-N、T-Pが高い値であったためIIIにランクされたものもあり、単一項目では捉えにくい水質の状況や変化を複数の項目で評価することにより適確に、また平易に示すことが可能であるといえる。

3・4 集落排水処理施設の調査

現在、農業集落では農業用排水の水質保全、公共用水域の水質保全に寄与すること等を目的とする農業集落排水事業が実施されており、その一環として農業集落における生活排水等を処理するための排水処理施設の整備が進められている。これは、水質の浄化への有効な対策⁵⁾として期待されている。

このため処理施設の有用性をみるために既設の3施設(表6)について水質調査を行い、処理状況について検討した。

対象とした項目はBOD、COD、T-N、T-Pの4項目で、原水及び処理水について測定を行い(表7)、各項目の削減率についてみた(図10)。

BODとCODについては、削減率が3施設とも75%以

表6 処理施設の概要

施設	処理方式	対象人員(人)	排水量(m ³ /日)
A	嫌気性ろ性併用接触ばっ気	1,500	405
B	土壤被覆型接触ばっ気	1,000	270
C	嫌気性ろ性併用接触ばっ気	1,400	378

表7 原水及び処理水の測定結果

施設	種類	BOD	COD	T-N	T-P
A	原水	170	110	36	5.4
	処理水	19	22	28	3.8
B	原水	160	97	37	4.2
	処理水	15	24	20	2.1
C	原水	33	110	48	4.6
	処理水	7.0	21	34	3.8

(mg/l)

上であり有機汚濁物質の効果的な削減状況がうかがわれたが、T-N及びT-Pの削減率については、全て50%以下であり栄養塩類については、必ずしも良好な削減状況ではなかった(図10)。

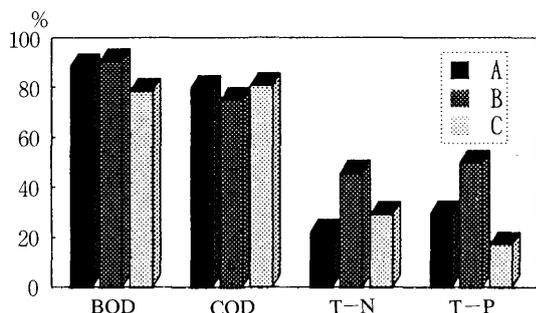


図10 各項目の削減率

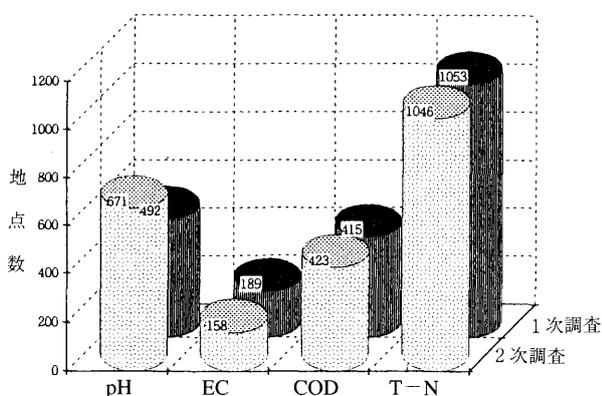


図11 農業(水稲)用水基準未達成地点数
(農林水産省編：農業用水路水質調査結果報告書抜粋)

このことは、汚濁が進んでいると判断された地点において今後、処理施設が整備されることにより有機汚濁物質の削減が期待される。しかし、農林水産省が行った農業用水路水質調査⁶⁾では農業(水稲)用水基準を達成できなかった地点を項目別にみるとT-Nが最も多く全体の約半数が基準を超えているという報告がされており(図11)、さらに上記の結果から、処理施設の栄養塩類についての削減率は50%以下と低いため、処理施設が整備されたとしても栄養塩類については依然として基準を達成できない地点が残る可能性があり、処理効果についての検討が必要であるものと思われる。

4. まとめ

今回、農業集落地域での水質汚濁状況を総合水質指標(WQI)により把握するとともに、農業集落排水処理施設の稼働状況について検討したところ次のとおりであった。

- (1) WQIによる水質汚濁マップでは、五所川原市近傍に汚濁の高い地点が多く、前報で得られた公共用水域(河川)の汚濁の結果とほぼ一致していることから農業集落排水が公共用水域の汚濁要因の一つになっていることが推察された。
- (2) 集落排水処理施設では、有機汚濁物質の効果的な削減状況がうかがわれたが、栄養塩類については必ずしも良好な削減状況ではなかった。
- (3) 農業集落排水対策では今後、栄養塩類の削減が重要な課題になるものと思われる。

文献

- 1) 大久保英樹, 他: 総合指標による河川水質の評価, 青森県環境保健センター研究報告, 4, 67-71, 1993.
- 2) 楠憲一, 他: 生活排水による汚濁および家庭内対策による汚濁削減効果, 全国公害研会誌, 17, 14-20, 1992.
- 3) 吉見洋: 河川水質項目の階級化と総合化指標について, 用水と排水, 27, 247-252, 1985.
- 4) 岩浪春輝, 他: 総合水質指標による河川の水質評価, 新潟県衛生公害研究所報, 8, 125-131, 1992.
- 5) 神谷耕雄: 農業集落排水事業の役割と展望, 水環境学会誌, 24, 224-228, 1992.
- 6) 農林水産省構造改善局計画部資源課農村環境保全室: 農業用水路水質調査結果報告書, 平成6年3月.

Abstract

Field Study on Agriculture Village Waste Water — Evaluation of Water Quality by WQI—

Hideki OHKUBO¹, Hajime MIKAMI¹, Shin-ichi ISHIZUKA¹,
Shunji SAKAZAKI¹, Shinya KUDO², Toshiaki KUDO¹,
Toshio HAYAKARI¹, Motoichi SAKAGAMI¹ and
Kazuhiro TAKAYANAGI³

A field study was made on agriculture village waste water in 30 locations in Aomori Prefecture from May 1992 to September 1992, the season of irrigation. The study was made mainly on the effect of village waste water early in the morning by evaluating water quality index (WQI) on the five items : BOD, COD, SS, T-N and T-P. It was found that pollution was progressing in 7 Locations and the situation shown by the water pollution map was similar to that of the public water ; thus, the agriculture village waste water was suggested to be a cause of river water pollution.

Treatment effect in the facilities for agriculture village waste water studied was found 75% or higher with respect to organic pollutant such as BOD and COD, however, was 50% or lower with respect to T-N and T-P. It was judged that reduction of nutrient saits such represented by T-N and T-P is important for the agriculture village waste water.

Key word : agricultre village, waste water, WQI (water quality index),
evaluation of water quality, treatment effect

1 : Aomori Prefectural Institute of Public Health and Environment

2 : Aomori Prefectural Atomic Energy of Environmental Control Office

3 : Aomori Prefectural Institute for Machinery and Metals

GC/MSによる環境水質・底質中有機化合物の検索

石塚 伸一

環境水質、底質からどのような有機化合物が検出されるのかを調べるため、土淵川水質、十三湖底質、陸奥湾底質について、GC/MSによるマススペクトル、PTRIから有機化合物の検索を行った。

その結果、農薬（メプロニル、フルトラニル、ダイアジノン、クロルピリホス）、農薬の分解物（MPP-sulfoxide, p,p'-DDD, p,p'-DDE）、天然化合物（酢酸ボルニル、フィトール、ミリスチン酸、オレイン酸）、医薬品（クロタミトン）、可塑剤（DEP, DBP, DEHP, DOA）、酸化防止剤（BHT）、多環芳香族炭化水素（ベリレン、フルオランテン、ピレン, B(a)A, クリセン, B(b)F, B(j)F, B(k)F, B(e)P, B(a)P, B(ah)A, B(ghi)P）、殺虫剤（p-ジクロロベンゼン）が検出された。

検索にあたっては、マススペクトルライブラリーサーチとPTRIを併用するのが有用であった。

Key words : mass spectra, PTRI, library search, GC/MS, environmental water and sediment

1. はじめに

近年、水質調査における測定対象化合物の大幅な増加、基準値の低濃度化等に伴い、高感度、高精度、一斉分析可能なGC/MSが広く用いられるようになってきた。

GC/MSは分離能の優れたGCと定性、定量能力に優れたMSとを接続したものであり、GC/MS/SIMを用いた定量分析については、これまでゴルフ場排水調査等について報告してきたところである。¹⁻²⁾

また、GC/MSにはマススペクトルから未知物質を検索できるという定性機能があり、これまで、定量分析の際、測定対象物質であることの確認に用いてきた。

今回、環境水質、底質にどのような有機化合物が含まれているかを調べるために、いくつかの環境水質、底質について有機化合物の検索を試みた。

2. 方法

2.1 調査時期 平成4年度～平成5年度

2.2 調査地点

弘前市を貫流する中小都市河川である土淵川（津軽橋付近, H. 4. 8. 21及びH. 5. 7. 13採取）、一級河川岩木川の河口部である十三湖（中央, H. 5. 9. 27採取）、閉鎖性の強い陸奥湾（青森市地先水域, H. 3. 8. 28採取）の3地点について調査した。

2.3 試薬、装置

GC/MS装置は島津QP-1000EXを用いた。試薬は、残農用及び同等品を用いた。キャピラリーカラムは、J&W社製DB-1及びDB-5を用いた。

2.4 分析方法

水質については、ゴルフ場排水中の農薬分析方法に準じ、ジクロロメタン溶媒抽出後GC/MS分析を行った。

底質については水質・底質モニタリングマニュアル³⁾に準じ、アセトニトリル溶媒抽出ーカラムクロマトグラフィーー活性炭クロマトグラフィーーGC/MS分析を行った。

分析方法の詳細は既報のとおりである。⁴⁻⁵⁾

なお、今回はそれぞれの調査地点における化学物質の定量分析にあたり、その抽出液について同時に有機化合物の検索を試みたものであって、未知物質の検索を主目的として分析を行ったものではない。

また、パラフィン類が多く検出されたが、ここでは省略する。

2.5 検索の方法

マススペクトルによるライブラリーサーチ及びPTRIにより検索を行った。

ライブラリーサーチは島津製データ検索システム及び、BenchTop/PBMシステム（Palisade Corporation）を用いた。

マススペクトルデータベースには、NIST及びWILLYを用いた。

ここで、PTRIとは、programmed temperature retention indexのことである。

GC分析における保持時間は、物質ごとに固有のものであるため、物質の同定には重要な情報となるが、同一の液相のカラムを用いても、カラム温度やキャリアーガス流量等により変化する。そこで、昇温分析において、

n-アルカンを内標準として保持時間を規格化したものがPTRIである。

PTRIはGCカラムの液相が同じであれば、GC設定条件が異なっても物質毎にほぼ同じであるので、他機関のデータも活用することができる。

なお、通常、PTRIウインドウには25程度が用いられている。PTRIの()内に液相の種類を示す。DB-1はメチルシリコン系、DB-5は5%フェニルメチルシリコン系である。

標準物質のPTRIは原則として当所で測定したものをを用いたが、一部、文献値¹²⁾を用いたものもある。

3. 結果及び考察

土淵川水質、十三湖底質、陸奥湾底質について有機化合物の検索を行った結果は、次のとおりであった。

3・1 平成4年度土淵川水質の検索

平成4年度土淵川水質抽出液各ピークのマスペクトルを図1(1)~(3)に示す。

(1) MPP-sulfoxide

平成4年度土淵川水質ピーク#T3のマスペクトルについてライブラリーサーチを行ったところ、フェンチオン(MPP)が検索されてきた。

ピーク#T3とMPPのマスペクトルを比較してみると良く似ており、当初この物質をMPPではないかと考え

た。しかし、PTRIを比較すると、実測値(DB-1)2171に対し、MPPの文献値(DB-1)¹²⁾は1927と異なる値であった。

次に、マスペクトルがMPPに似ていることから、MPP関連物質ではないかと考え、MPP関連物質のPTRIについて、文献値¹²⁾を調べると、MPP-sulfoxideが2175、MPP-sulfoneが2187であり、最も近いのがMPP-sulfoxideであった。そこで、もういちどマスペクトルにもどって、よくみると、強度は小さいがm/z294の分子イオンが観測されていた。

NIST, WILLYのデータベースにはMPP-sulfoxideが収録されていなかったため、岡山県環境保健センター測定のマスペクトルと比較したところ、良く一致していた。

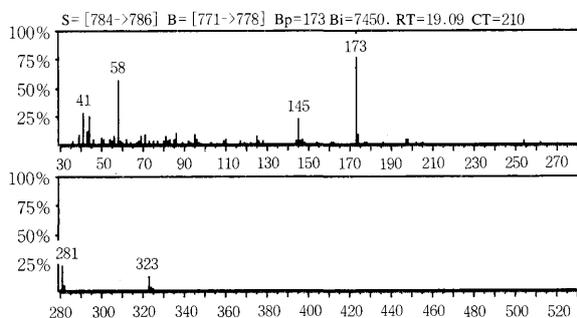
有機リン農薬は一般に塩素処理などの酸化状態で分解がおこることが知られており、MPPは酸化されて、MPP-sulfoxideに変化し、更に分解が進むとoxon-MPP-sulfoxide, oxon-MPP-sulfoneに変化する。⁶⁾

MPP関連物質について表1に示す。

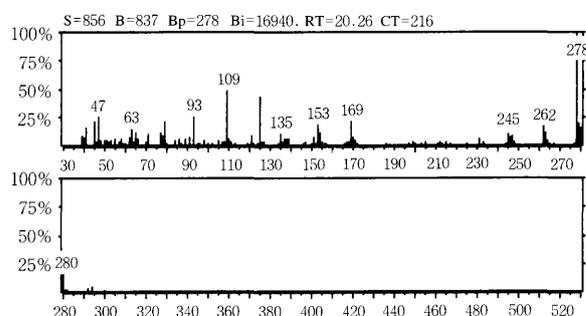
平成4年度土淵川の水質からは、残留塩素が検出されており、農地での分解に加えて、水中でもMPPが塩素と反応しMPP-sulfoxideになったものと思われる。

オキソン体についても調べたが検索されなかった。

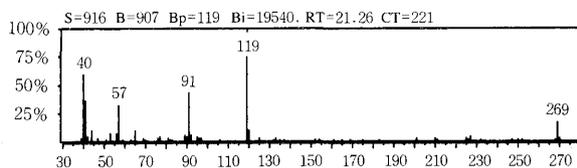
MPPの分解物であるMPP-sulfoxideが環境中から検出されたのは、興味深い結果であった。



(1) ピークT2のマスペクトル



(2) ピークT3のマスペクトル



(3) ピークT4のマスペクトル

図1 土淵川水質(H4年度)のマスペクトル

表1 MPP関連物質

化合物名	分子式	最多同位体分子量	標品PTRI (DB-1)
MPP	C ₁₀ H ₁₅ O ₃ PS ₂	278	1927 ¹²⁾
MPP-sulfone	C ₁₀ H ₁₅ O ₅ PS ₂	310	2187 ¹²⁾
MPP-sulfoxide	C ₁₀ H ₁₅ O ₄ PS ₂	294	2175 ¹²⁾
oxon-MPP-sulfoxide	C ₁₀ H ₁₅ O ₅ PS	278	—
oxon-MPP-sulfone	C ₁₀ H ₁₅ O ₆ PS	294	—

表2 土淵川水質検索物質 (H4.8.21 採取)

ピーク No	Rt (min)	PTRI (DB-1)	標品 PTRI	推定化合物名	化合物の種類	分子式	MW	Cas.No
T1	15.99	1916	1915 ¹²⁾	DBP	可塑剤	C ₁₆ H ₂₂ O ₄	278.35	84-74-2
T2	19.09	2101	2104	Flutolanil	農薬	C ₁₇ H ₁₆ F ₃ NO ₂	323.31	66332-96-5
T3	20.26	2171	2175 ¹²⁾	MPP-Sulfoxide	MPPの分解物	C ₁₀ H ₁₅ O ₄ PS ₂	294.33	—
T4	21.26	2233	2236	Mepronil	農薬	C ₁₇ H ₁₉ NO ₂	269.34	55814-41-0
T5	25.69	2511	2505 ¹²⁾	DEHP	可塑剤	C ₂₄ H ₃₈ O ₄	390.56	117-81-7

(2) 農薬⁷⁾, 可塑剤

ピーク#T1、T2、T4、T5のピークについてはマススペクトルから容易にそれぞれ、フタル酸ジブチル (DBP) フルトラニル、メプロニル、フタル酸ジエチルヘキシル (DEHP) と推定できた。また、PTRI¹²⁾ からもこれらの物質であることが確認された。

平成4年度土淵川水質から検索された物質を表2に示す。

メプロニルはビームバシボン、バシタック等に含まれ、稲の紋枯病、りんご赤星病の防除剤等として使われている。

フルトラニルはモンカット等に含まれ、稲の紋枯病防除剤等に使用されている。

MPPはバイジットなどに含まれ、稲、果樹などのイネニカメイチュウ、ウンカ類の害虫防除に広く用いられている。

土淵川上流には、りんご畑、水田があり、これらから流出してくるなど、流況を反映しているものと思われる。

DBP、DEHPについては後述する。

以上、平成4年度土淵川水質からDBP、MPP-sulfoxide、メプロニル、フルトラニル、DEHPが検索された。

3.2 平成5年度土淵川水質の検索

平成5年度土淵川水質の抽出液各ピークのマススペクトルを図2(1)~(6)に示す。

(1) アジピン酸エステル

平成5年度土淵川水質ピーク#T13のマススペクトルをみると、ベースピークがm/z129であり、この特徴的なマススペクトルから、アジピン酸エステル類ではないかという見当がついた。

マススペクトルのライブラリーサーチからは、Hexandioic acid dioctyl ester (DOA)、Hexanedioic acid mono (2-ethylhexyl) ester、Hexanedioic acid bis (2-ethylhexyl) ester が検索された。

ピーク#T13のマススペクトルとこれら3種の化合物のマススペクトルを比較すると次のとおりであった。

Hexanedioic acid bis (2-ethylhexyl) ester ではベースピークがm/z41であり、また、m/z129とm/z147のピーク強度比などがピーク#T13とは異なっており、この物質ではないことが推定された。

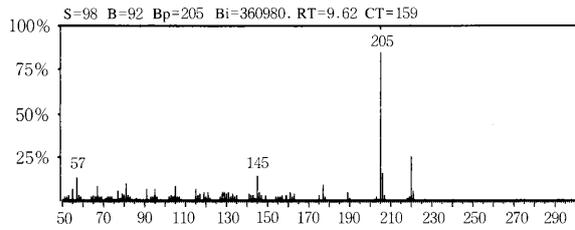
Hexandioic acid dioctyl ester と Hexandioic acid mono (2-ethylhexyl) ester については、これらのマススペクトルは非常に似ており、マススペクトルだけでは判断がつかなかった。

そこで、PTRI (DB-1) についてみると、ピーク#T13は2377であった。Hexandioic acid dioctyl ester の文献値は2371¹²⁾ であり、この物質とほとんど同じであった。

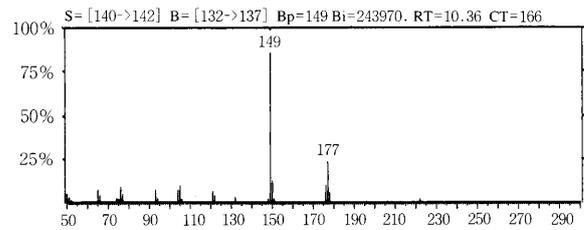
このことから、ピーク#T13については、Hexandioic acid dioctyl ester と推定できた。

表3 土淵川水質検索物質 (H5.7.13 採取)

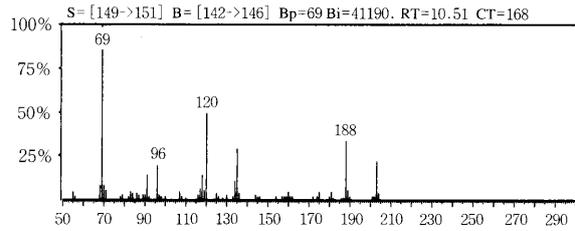
ピーク No	Rt (min)	PTRI (DB-1)	標品 PTRI	推定化合物名	化合物の種類	分子式	MW	Cas.No
T6	9.62	1488	1488 ¹²⁾	BHT	酸化防止剤	C ₁₅ H ₂₄ O	220.36	128-37-0
T7	10.37	1548	1549 ¹²⁾	Diethyl Phthalate	可塑剤	C ₁₂ H ₁₄ O ₄	222.24	84-66-2
T8	10.51	1560	—	Crotamiton	医薬品	C ₁₃ H ₁₇ NO	203.27	483-63-6
T9	13.31	1765	1765	Diazinon	農薬	C ₁₂ H ₂₁ N ₂ O ₃ PS	304.35	333-41-5
T10	15.62	1913	1915 ¹²⁾	DBP	可塑剤	C ₁₆ H ₂₂ O ₄	278.35	84-74-2
T11	16.04	1940	1940	Chlorpyrifos	農薬	C ₉ H ₁₁ Cl ₃ NO ₃ PS	350.58	2921-88-2
T12	20.96	2237	2236	Mepronil	農薬	C ₁₇ H ₁₉ NO ₂	269.34	55814-41-0
T13	23.16	2377	2371 ¹²⁾	Dioctyl Adipate	可塑剤	C ₂₂ H ₄₂ O ₄	370.57	123-79-5



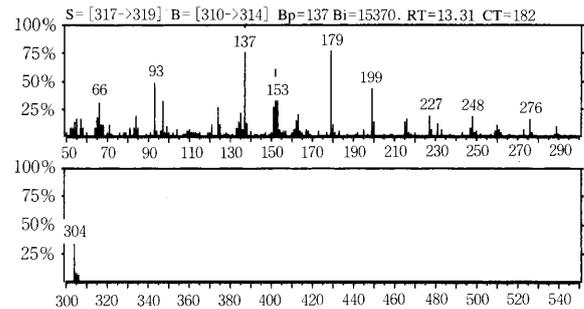
(1) ピークT6のマススペクトル



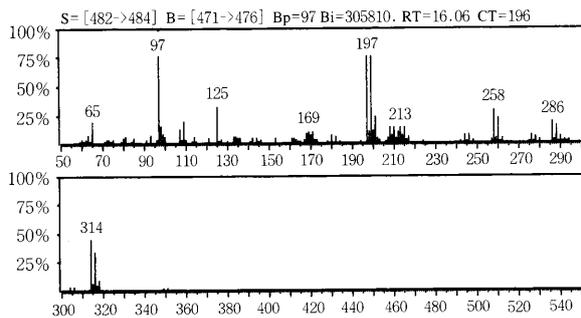
(2) ピークT7のマススペクトル



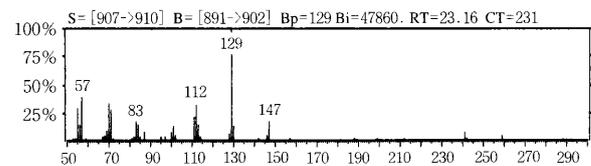
(3) ピークT8のマススペクトル



(4) ピークT9のマススペクトル



(5) ピークT11のマススペクトル



(6) ピークT13のマススペクトル

図2 土淵川水質 (H5年度) のマススペクトル

なお、Hexandioic acid dioctyl esteは耐寒性の可塑剤である。

(2) 農薬、医薬品等

ピーク#T6から#T12については、マススペクトルのみからでも十分推定可能であり、ライブラリーサーチにより、BHT、DEP、クロタミトン、ダイアジノン、DBP、クロルピリホス、メプロニルが検索された。更に、それぞれのPTRIは標準物質及び文献値¹²⁾ともほぼ一致していた。(クロタミトンについては文献値は見当たらなかった。また標準品が入手できず、PTRIの測定はできなかった。)

平成5年度の土淵川水質から検索された物質を表3に示す。

BHTは酸化防止剤である。

クロルピリホスはダズバン、レピスター等の農薬の中に含まれており、リンゴモモクイシング等の防除果樹用殺虫剤として用いられている。

ダイアジノンはエキソジノン、バッサジノン等の農薬に含まれており、稲ニカメイチュウ、野菜ネキリムシ、リンゴモモクイシング等の害虫防除剤として広範囲に使用されている。

クロタミトン⁸⁻⁹⁾はその化学名がN-ethyl-N-(2-methyl phenyl)-2-butenamideであり、かゆみ止めの医薬品(オイラックス)の中に含まれている。また、殺菌作用、ダニの殺虫効果がある。

なお、この物質はH4年度には土淵川水質から検出さ

れていない。

可塑剤のフタル酸ジエチル (DEP), DBPについては後述するが, これらは環境水質, 底質中からしばしば検出されるものである。

以上, 平成5年度土淵川水質からは, 農薬が3種類 (Diazinon, Chlorpyrifos, Mepronil), 医薬品が1種類 (Crotamiton), 可塑剤が3種類 (DEP, DBP, DOA), 酸化防止剤が1種類 (BHT) 検出された。

3.3 十三湖底質の検索

十三湖底質抽出液 (H5年度) 各ピークのマスマスペクトルを図3(1)~(8)に示す。

(1) フタル酸エステル類

十三湖底質のピーク#J3と#J9及び平成4, 5年度土淵川水質のピーク#T1, T5, T7, T10についてあわせて検討したところ次のとおりであった。

これらのマスマスペクトルをみると, ベースピークが m/z 149であり, フタル酸エステル類に特徴的なマスマスペクトルパターンを示していた。

そこで, データベースについて, 代表的なフタル酸エステル類のマスマスペクトルをみた。

ベースピーク m/z 149以外の特徴的なイオンをみると, DBPでは m/z 205と223, DEPでは m/z 177, Di-n-octylphthalate (DnOP) では m/z 168と108, DEHPでは m/z 167と279であった。

これらを手がかりにすると, 十三湖底質のピーク#J3はDBP, #J9はDEHP, 平成4, 5年度土淵川水質のピーク#T1と#T10はDBP, #T7はDEPと推定される。

次に, PTRI (DB-5) についてみると, 十三湖ピーク#J3は1969, #J9は2555であった。標準物質のPTRI (DB-5) はDBPが1975, DEHPが2563であり#J3, #J9とほぼ一致していた。

平成4年度及び5年度土淵川水質#T7のPTRI (DB-1) は1548であり, DEPの文献値¹²⁾は1549であった。ピーク#T5のPTRI (DB-1) は2511であり, DEHPの文献値¹²⁾は2505であった。ピーク#T1と#T10のPTRIは1916, 1913であり, DBP文献値¹²⁾は1915であった。

このように, マスマスペクトルから推定された化合物は, PTRIも文献値と良く一致していた。

(2) p,p'-DDD, p,p'-DDE

ピーク#J6と#J7のマスマスペクトルから, それぞれ, p,p'-DDD, p,p'-DDEと推定でき, また, PTRIも標準品と一致していた。これらは, p,p'-DDTの環境中の分解物である。

(3) 天然化合物¹⁰⁻¹¹⁾

ピーク#J1, #J2, #J4, #J5のピークについては, その特徴的なマスマスペクトルから, 酢酸ボルニル, ミリスチン酸, フィトール, オレイン酸が容易に検索され, また, PTRIも標準品と一致していた。

十三湖底質 (平成5年度) から検索された物質を表4に示す。

ミリスチン酸は, 天然に存在する飽和脂肪酸, オレイン酸は不飽和脂肪酸である。

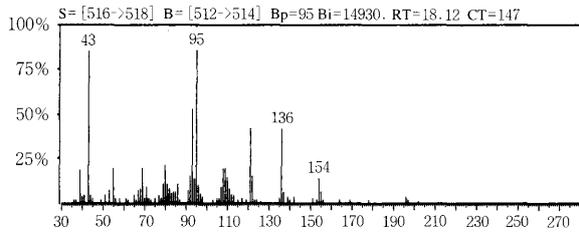
ボルネオールは二環式モノテルペンに属するアルコールであり, 種々の精油中に酢酸エステルとして含まれている。

フィトールは, 非環式ジテルペンのアルコールでクロロフィル a or bの分解物である。十三湖は富栄養湖であり, クロロフィル関連物質が検索されたのは興味深い。

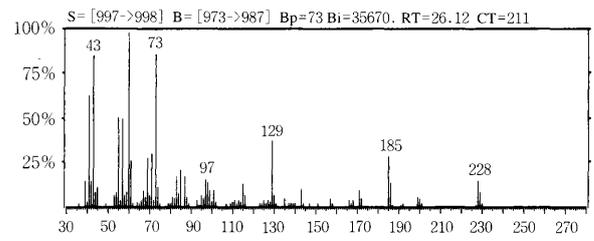
以上, 十三湖から, 天然物の酢酸ボルニル, フィトール, ミリスチン酸, オレイン酸, 可塑剤のDBP, DEHP, DOA, p,p'-DDT分解物のp,p'-DDD及びp,p'-DDE, 多環芳香族炭化水素のペリレンが検出された。

表4 十三湖底質検索物質 (H5.9.27採取)

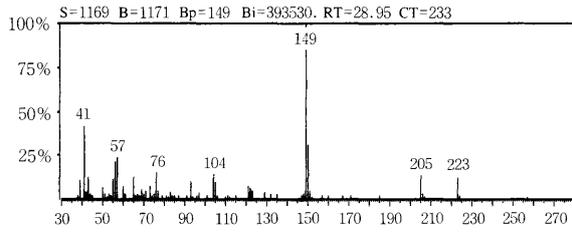
ピーク No	Rt (min)	PTRI (DB-5)	標品 PTRI	推定化合物名	化合物の種類	分子式	MW	Cas.No
J1	18.12	1287	1292	Bornyl Acetate	天然物	C ₁₂ H ₂₀ O ₂	196.29	76-49-3
J2	26.12	1760	1763	Myristic Acid	天然物	C ₁₄ H ₂₈ O	228.38	544-63-8
J3	28.97	1969	1975	DBP	可塑剤	C ₁₆ H ₂₂ O ₄	278.35	84-74-2
J4	30.79	2117	2119	Phytol	天然物	C ₂₀ H ₄₀ O	296.54	150-86-7
J5	31.14	2145	2143	Oleic Acid	天然物	C ₁₈ H ₃₄ O ₂	282.47	112-80-1
J6	31.80	2208	2201	p,p'-DDE	p,p'-DDT分解物	C ₁₄ H ₈ Cl ₄	318.03	72-55-9
J7	32.84	2300	2293	p,p'-DDD	p,p'-DDT分解物	C ₁₄ H ₁₀ Cl ₄	320.05	72-54-8
J8	34.01	2403	2400	Diocetyl Adipate	可塑剤	C ₂₂ H ₄₂ O ₄	370.54	123-79-5
J9	35.69	2555	2563	DEHP	可塑剤	C ₂₄ H ₃₈ O ₄	390.56	117-81-7
J10	41.82	2947	2942	Perylene	燃焼生成物	C ₂₀ H ₁₂	252.31	198-55-0



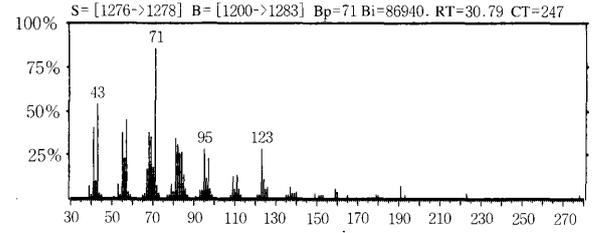
(1) ピークJ1のマススペクトル



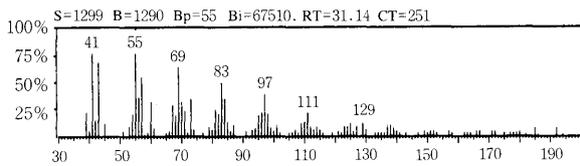
(2) ピークJ2のマススペクトル



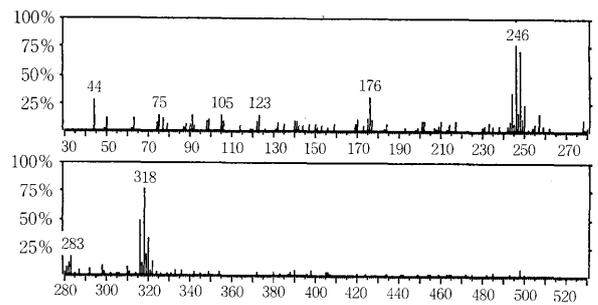
(3) ピークJ3のマススペクトル



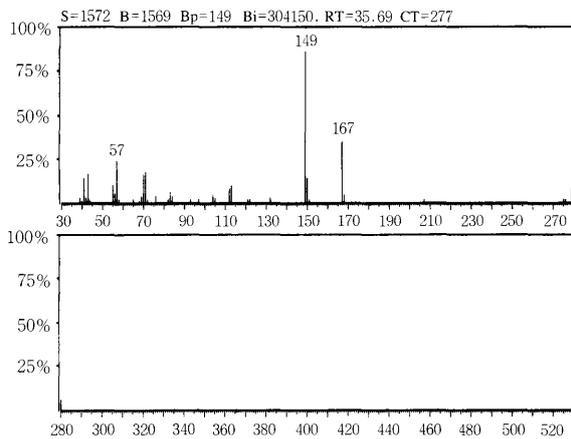
(4) ピークJ4のマススペクトル



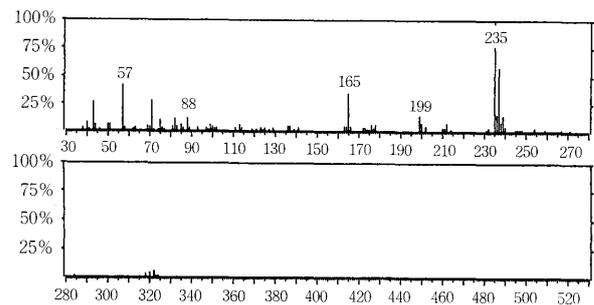
(5) ピークJ5のマススペクトル



(6) ピークJ6のマススペクトル



(7) ピークJ9のマススペクトル



(8) ピークJ7のマススペクトル

図3 十三湖底質 (H5年度) のマススペクトル

3・4 陸奥湾底質（平成3年度）の検索

陸奥湾底質抽出液各ピークのマススペクトルを図4(1)～(6)に示す。

(1) フルオランテンとピレン

陸奥湾底質のピーク#M3と#M4のマススペクトルをみると、ベースピークがm/z202であり、202の1/2のm/z101も観察されている。

このパターンは多環芳香族炭化水素に特徴的なものであり、m/z202からC₁₆H₁₀が予想される。

データベースのライブラリーサーチから、ピレンとフルオランテンが検索されてきたが、両者のマススペクトルは酷似しており、マススペクトルパターンのみからは判断が不可能であった。

そこで、次にPTRIにより検討することとした。ピーク#M3と#M4の実測値(DB-5)は2113、2165であり、標準品のフルオランテンとピレンのPTRI(DB-5)は2104、2160であることから、#M3はフルオランテン、#M4はピレンと推定した。

(2) ベンズ(a)アントラセンとクリセン

ピーク#M5と#M6のマススペクトルをみると、ベースピークはいずれもm/z228であり、228の1/2のm/z114も観察されている。

この、多環芳香族炭化水素に特徴的なマススペクトルからC₁₈H₁₂が想定される。これら両者のマススペクトルは酷似しているため、PTRIを用い、検索を進めることとした。#M5と#M6のPTRI(DB-5)はそれぞれ、2511、2524であった。ベンズ(a)アントラセンとクリセ

ンの標準物質のPTRIと比較することにより、#M5はベンズ(a)アセトラセン、#M6はクリセンと推定された。

(3) C₂₀H₁₂

ピーク#M8から#M13のマススペクトルをみると、ベースピークはいずれもm/z252であり、m/z252の1/2のm/z126のイオンが観察でき、このことから、これらの物質は、C₂₀H₂₀の分子式をもつ多環芳香族炭化水素であると見当をつけることができた。

これらのマススペクトルは酷似しているため、PTRIから検索を進めることとした。

ピーク#M8、M9、M10、M11、M12、M13のPTRI(DB-5)はそれぞれ、2830、2836、2836、2883、2897、2920であり、標準品のPTRIからそれぞれB(b)F、B(j)F、B(k)F、B(e)P、B(a)P、Peryleneであると推定した。

(4) C₂₂H₁₄とC₂₂H₁₂

ピーク#M14と#M15については、マススペクトル及びPTRIからそれぞれB(ah)A、B(ghi)Pと推定した。

(5) ピーク#M1については、その特徴的なマススペクトルからジクロロベンゼン類であることが容易に予想され、次にo-, m-, p-異性体の標準品PTRIとの比較からp-ジクロロベンゼンと推定した。

また、これまでの検討結果からピーク#M2はDBP、#M7はDEHPと推定した。

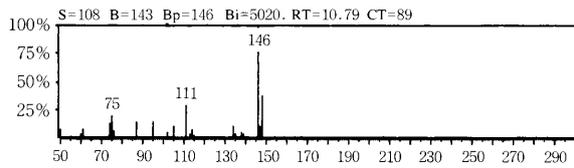
陸奥湾底質から検索された物質を表5に示す。

多環芳香族炭化水素、可塑剤、殺虫剤が検出されている。

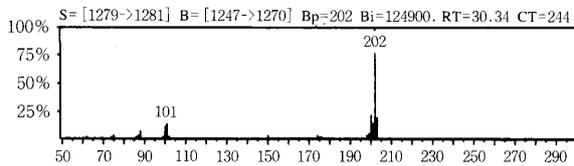
なお、十三湖底質から検索されたDOAは、陸奥湾底質からは検出されなかった。

表5 陸奥湾底質検索物質（H3.8.23採取）

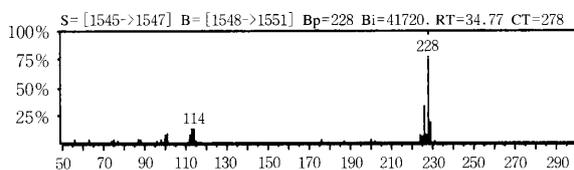
ピーク No	Rt (min)	PTRI (DB-5)	標品 PTRI	推定化合物名	化合物の種類	分子式	MW	Cas.No
M1	10.81	1014	1011	p-Dichlorobenzene	殺虫剤	C ₆ H ₄ Cl ₂	147.00	106-46-7
M2	28.64	1975	1975	Dibutyl Phthalate	可塑剤	C ₁₆ H ₂₂ O ₄	278.35	84-74-2
M3	30.34	2113	2104	Fluoranthene	燃焼生成物	C ₁₆ H ₁₀	202.26	206-44-0
M4	30.97	2165	2160	Pyrene	燃焼生成物	C ₁₆ H ₁₀	202.26	129-00-0
M5	34.77	2511	2504	B(a)A	燃焼生成物	C ₁₈ H ₁₂	228.29	56-55-3
M6	34.91	2524	2516	Chrysene	燃焼生成物	C ₁₈ H ₁₂	228.29	218-01-9
M7	35.34	2563	2563	DEHP	可塑剤	C ₂₄ H ₃₈ O ₄	390.56	117-81-7
M8	38.84	2830	2826	B(b)F	燃焼生成物	C ₂₀ H ₁₂	252.32	205-99-2
M9	38.94	2836	2831	B(j)F	燃焼生成物	C ₂₀ H ₁₂	252.32	205-82-3
M10	38.94	2836	2834	B(k)F	燃焼生成物	C ₂₀ H ₁₂	252.32	207-08-9
M11	40.07	2883	2887	B(e)P	燃焼生成物	C ₂₀ H ₁₂	252.32	192-97-2
M12	40.31	2897	2895	B(a)P	燃焼生成物	C ₂₀ H ₁₂	252.32	50-32-8
M13	40.72	2920	2921	Perylene	燃焼生成物	C ₂₀ H ₁₂	252.32	198-55-0
M14	47.67	3233	3221	B(ah)A	燃焼生成物	C ₂₂ H ₁₄	278.35	53-70-3
M15	48.27	3259	3271	B(ghi)A	燃焼生成物	C ₂₂ H ₁₂	276.34	191-24-2



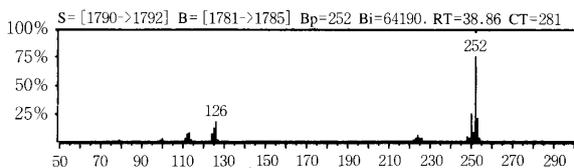
(1) ピークM1のマススペクトル



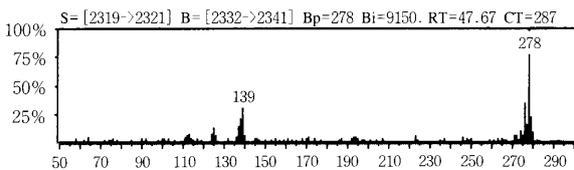
(2) ピークM3のマススペクトル



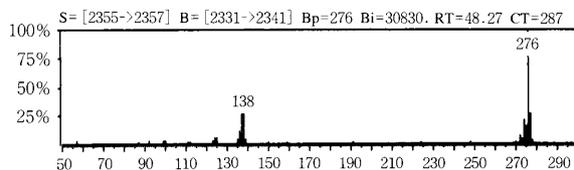
(3) ピークM5のマススペクトル



(4) ピークM8のマススペクトル



(5) ピークM14のマススペクトル



(6) ピークM15のマススペクトル

図4 陸奥湾底質 (H3年度) のマススペクトル

表6 DB-1とDB-5によるPTRI

化合物名	PTRI (DB-1)	PTRI (DB-5)
Etridiazole	1420	1464
DEP	1421	1471
Chloroneb	1469	1518
Pencycuron	1656	1697
Bethrodine	1662	1690
CAT	1685	1752
TPN	1745	1842
Propyzamide	1751	1797
Diazinon	1765	1812
Tolclofosmethyl	1844	1921
Terbucarb	1851	1906
MEP	1889	1965
Chlorpyrifos	1940	2008
Captan	1984	2102
Pendimethalin	2001	2078
Methyldymron	2012	2092
Isofenphos	2024	2094
Isothrothiolane	2087	2192
Butamifos	2094	2180
Napropamide	2094	2184
Flutolanil	2104	2180
Isoxathion	2159	2247
Mepronil	2236	2322
Pyridaphenthion	2375	2478

3.5 液相の違いによるPTRI間の関係

これまで GC/MSデータから有機化合物を検索する場合、PTRIが有用であることをみてきた。特に異性体については、マススペクトルが酷似しているのでPTRIが極めて重要な情報となる。

ところで、カラム液相の種類が異なれば、PTRIも異なるので、液相の違いによるPTRIの関係を検討するため、DB-1とDB-5を用い、いくつかの農薬についてPTRIを測定し、両者の関係をみた。

その結果、両者の間に直線関係がみられ、その回帰式は次式のようなであった。また、両者の関係を表6に示す。

$$\text{PTRI (DB-5)} = 1.066 \times \text{PTRI (DB-1)} - 53.2$$

$$(r=0.998, n=24)$$

従って、DB-1のPTRIよりDB-5のPTRIをある程度推定することが可能である。ただし、液相が異なると物質の溶出順序が異なる場合もあるので、その点について注意が必要である。

4. まとめ

環境水質、底質からどのような有機化合物が検出されるかを調べるため、GC/MSを用いて、土淵川水質 (平成4, 5年度採取)、十三湖底質 (平成5年度採取)、陸

奥湾底質（平成3年度採取）について有機化合物の検索を試みた。

(1) 環境水質・底質から検索された物質

土淵川水質から、DBP, MPP-sulfoxide, メプロニル, フルトラニル, DEHP, ダイアジノン, クロルピリホス, クロタミトン, フタル酸ジエチル, DOA, BHTが検索された。

十三湖底質から酢酸ボルニル, フィトール, ミリスチン酸, オレイン酸, DBP, DEHP, DOA, p,p'-DDD, p,p'-DDE, ペリレンが検索された。

陸奥湾底質から, p-ジクロロベンゼン, DBP, フルオランテン, ピレン, B(a)A, クリセン, DEHP, B(b)F, B(j)F, B(k)F, B(e)P, B(a)P, ペリレン, B(ah)A, B(ghi)Pが検索された。

検索された有機化合物の種類は、農薬、農薬の分解物、天然化合物、医薬品、可塑剤、酸化防止剤、殺虫剤、多環芳香族炭化水素であった。

(2) マススペクトルによるライブラリーサーチ

マススペクトルの質が良好な場合はマススペクトルから容易に物質を検索することが可能であり、MSの優れた定性機能が発揮された。

(3) PTRIの活用

MSは定性機能に優れているものの、異性体についてはマススペクトルが酷似していることから、検索にあたっては、PTRIを併用するのが有効であった。

また、PTRIは規格化された値であるため、標準物質の入手困難な物質についても、文献値との比較ができ、有用であった。

謝 辞

MPP-sulfoxide のマススペクトルを提供して頂いた岡山県環境保健センター 肥塚加奈江氏に深謝します。

文 献

- 1) 石塚伸一, 他: GS/MSを用いた水質・底質中化学物質の測定, 青森県環境保健センター研究報告, 4, 38-46, 1993.
- 2) 石塚伸一, 他: ゴルフ場における農薬の使用状況と排水中濃度, 青森県環境保健センター研究報告, 4, 60-66, 1993.
- 3) 環境庁環境保健部保健調査室: 水質・底質モニタリング調査マニュアル (1991年版), 平成3年7月.
- 4) 石塚伸一: GS/MSによるゴルフ場使用農薬分析方法の検討, 青森県環境保健センター研究報告, 3, 7-48, 1992.
- 5) 石塚伸一: 水質・底質化学物質調査におけるGS/MS分析の基礎的検討, 青森県環境保健センター研究報告, 3, 25-36, 1992.
- 6) 真柄泰基, 他: 浄水処理における農薬の制御, 水質汚濁研究, 14, No8, 30-33, 1991.
- 7) 農薬ハンドブック1989年版編集委員会編: 農薬ハンドブック(1989年版), (社)日本植物防疫協会, 東京, 1989.
- 8) 赤木満州男, 他監修: 薬学大事典, 1, 754-755, 日本工業技術連盟, 東京, 1989.
- 9) Martha Windholtz et al.: The Merck Index, 9th ed, 2589, Merck & Co., Inc., Rahway, 1976.
- 10) 村上孝夫, 他: 天然物化学, 第二改稿版, 廣川書店, 東京, 1979.
- 11) 刈米達夫: 植物成分の化学, 改訂第6版, 南山堂, 東京, 1960.
- 12) 岡山県: 平成3年度 GS/MS環境中化学物質検索データベース検討調査結果報告書, 平成4年3月.

Abstract

GC/MS Survey on Organic Substances in Environmental Water and Sediment

Shin-ichi ISHIZUKA

A survey on organic substances in water of River Tuchibuchi, sediment of Lake Jusan, and bottom material of Mutsu Bay was made by GC/MS mass spectrometry and PTRI for the purpose of studying what kinds of organic substances are detected in environmental water and sediment. As a result, agricultural chemicals (mepronil, flutolanil, diazinon, and chloropyrifos), decomposed agricultural chemicals (MPP-sulfoxide, p,p'-DDD, p,p'-DDE), natural compounds (bornyl acetate, phytol, myristic acid, and oleic acid), a medicine (crotamiton), plasticizers (DEP, DBP, DEHP, and DOA), an antioxidant (BHT), polycyclic aromatic hydrocarbons (perylene, fluoranthene, pyrene, B(a)A, chrysene, B(b)F, B(j)F, B(k)F, B(e)P, B(a)P, B(ah)A, and B(ghi)A), and an insecticide (p-dichlorobenzene) were detected.

In the survey, the combination of mass spectrum library search and PTRI was useful.

Key words : mass spectra, PTRI, library search, GC/MS,
environmental water and sediment

黒石扇状地における地下水質の地球化学的検討

石塚 伸一 工藤 真哉¹ 佐藤 真理子²

黒石扇状地における地下水質について、地球化学的な検討を行った結果は次のとおりであった。

井戸の深度が深い程、pHはアルカリ側になっており、また HCO_3^- 濃度が大きくなっていった。浅井戸は深井戸より、 NO_3^- 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} 濃度が大きかった。深度別の水質組成は、深度が1000m（温泉）で $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型、深度100m（深井戸）で $\text{Ca}-\text{HCO}_3$ 型、深度5～30m（浅井戸）では地域によって異なり、 $\text{Na}-\text{Cl}$ 型や $\text{Ca}-\text{HCO}_3$ 型などであった。

市街地西側の浅井戸で、 Na^+ 、 K^+ 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 濃度が高く、東側で HCO_3^- 濃度が高くなっていった。浅井戸の水質組成は、東側が $\text{Ca}-\text{HCO}_3$ 型、西側が $\text{Na}-\text{Cl}$ 型であった。市街地の南東側から流れてきた地下水は流下に伴い、市街地の地表から NO_3^- 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} の供給を受け、その濃度を増しながら北西側に流下しているものと考えられる。地表からの NO_3^- 等は、深井戸までは達していなかった。河川の近くでは、河川伏流水の影響を受けているものがあった。

Key words : groundwater, alluvial fan, shallow well, deep well, Kuroishi City

1. はじめに

地下水は、空気、土壌、表流水などとともに、大切な環境資源の一つであり、また、一旦汚染されると回復が極めて困難であることから、その水質監視が重要となってきている。

近年、テトラクロロエチレンなど有機塩素化合物による地下水の環境汚染が危惧され、本県においても、測定計画に基づき、平成元年度から、地下水質調査が開始された。

これまでの測定計画に基づく地下水質調査では、汚染物質である有機塩素化合物を中心に調査が進められてきた。地下水は、 Na^+ 、 Ca^{2+} 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 HCO_3^- 等の主要構成成分とその他種々の微量成分とから構成されている。

今回、黒石扇状地の地下水について、これら主要構成成分に着目して調査を行い、地球化学的観点から地下水質の特徴、変容を把握するとともに、これら成分の挙動を中心とした地下水質の水質特性、地域特性、水平濃度分布について検討を行った。

地下水質の基本的な水質特性を把握しておくことは、汚染調査の上での、基礎的な情報となるものである。

2. 方 法

- 2・1 調査時期 平成4年9月～12月
及び平成5年7月～10月
- 2・2 調査対象地域 黒石市の市街地
調査対象地域を図1に示す。
- 2・3 調査項目及び分析方法

調査項目は、pH、導電率（EC）、 Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 HCO_3^- である。

分析は、JISK0101、JISK0102、上水試験法に準じて行った。分析方法の概要は表1のとおりである。

2・4 調査対象井戸

深度5～30mの浅井戸80本及び100m～130mの深井戸5本について調査を行った。なお比較のため、調査対象地域内の温泉（深度1000m程度、単純温泉、泉温36～43℃）及び表流水（浅瀬石川、千歳橋）についても調査

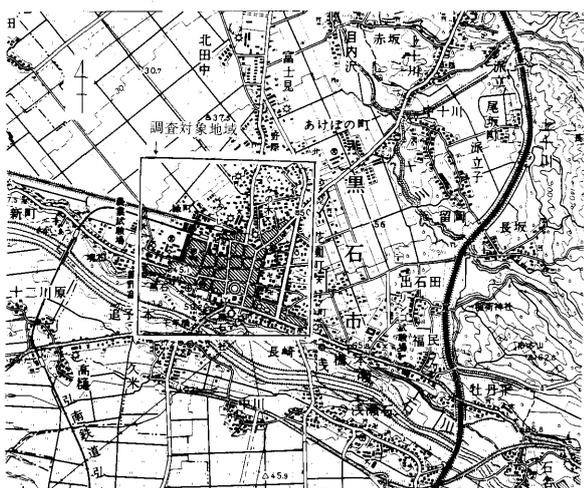


図1 調査対象地域

- 1：原子力環境対策室
2：弘前保健所

表1 分析方法

項目	分析方法
pH	ガラス電極法
導電率	導電率計
Na ⁺ , K ⁺ , Ca ²⁺ , Mg ²⁺	原子吸光光度法
Cl ⁻ , SO ₄ ²⁻	イオンクロマトグラフ法
NO ₃ ⁻	イオンクロマトグラフ法及び Cd-Cuカラム還元法
HCO ₃ ⁻	MR混合指示薬による滴定法

を行った。

一般に、不透水層（粘土層）の上部の帯水層中の地下水を不圧（自由）地下水、下部の地下水を被圧地下水といい、前者を汲み上げる井戸を浅井戸、後者を汲み上げる井戸を深井戸という。

ここでは便宜的に、深度5～30mのものを浅井戸、100m以下のものを深井戸とした。

3. 結果及び考察

3.1 調査地域の概要¹⁾

調査対象地域は黒石市のうち人口の密集している市街地地域である。（約1.5km×1.5km）

黒石市は、津軽平野の南東部に位置し、周囲の平野部には水田、丘陵部にはりんご畑が広がっている。

市街地は商業地域となっており、市街地の南側を浅瀬石川が、また西側を農業用水（宇和堰）が流れている。

市街地は黒石台地上にあり、黒石台地は、北西に流下する浅瀬石川によって南北に分かれるが、南北とも台地の最大傾斜の方向が、浅瀬石川の流下方向と一致し、流路付近が高く、ここから離れるにつれて低くなる開析扇状地である。扇状地の標高は140mから60mを示して、扇状地北西端付近では、標高20mになるところもある。

浅瀬石川沿岸の低地は浅瀬石川谷底平野となっている。

黒石台地及び浅瀬石川谷底平野は、主として、浅瀬石川の営力によって、運搬・堆積した洪積統の黒石扇状地堆積物が表層部分に広く分布し、谷底平野部にわずかに洪積統以降の沖積堆積物が堆積しているところがある。

調査対象地域における各地層は、深度400m付近までは、扇状地堆積物、深度800m～1200m付近までは大積迦層となっている。

扇状地堆積物は、浅瀬石川が山地と平野との遷移部に形成した大規模な黒石扇状地を構成するもので、黒石市浅瀬石付近にその扇頂をもち、北西に緩やかに傾斜している。この扇状地の中央部は、侵食開析されて広い沖積地となっている。

扇状地堆積物は、中礫～細礫が主体をなす砂礫である

が、上部に径数mmの浮石や火山灰質粘土物質を混えている。

沖積低地堆積物は、浅瀬石川沿いの谷底平野部に分布し、砂、礫を主体としている。

大積迦層は砂岩及び軽石質凝灰岩とから構成されている。

3.2 分析精度の確認

水質の検討にあたり、まず分析値の精度をイオンバランス法と導電率法によりチェックした。

イオンバランス法とは、当量単位で表現したとき、陽イオンの総和と陰イオンの総和が等しくなることを利用したものである。

導電率法は、水溶液の各イオンの濃度と各イオンの極限当量導電率を用いて、その水溶液の導電率の値を算出し、この計算値と実測値を比較する方法である。

検討の結果、図2に示したように、導電率、イオンバランスとも計算値と実測値の比が0.9から1.1の間におさまっており、分析値の精度が確保されていることが確認された。また、NO₂⁻、CO₃²⁻、NH₄⁺、遊離CO₂についても分析を行ったが、いずれも検出されなかった。

従って、今回の調査において、地下水の主要構成成分については、もれなく分析されていたものと考えられる。

3.3 地下水の各成分濃度の特徴²⁾

(1) pH

pHについてみると、浅井戸は6.3、深井戸は7.5、温泉水は8.4と深度が深くなるほどpHが高くなっていった。

これは、後述するように、深度の深い地下水程HCO₃⁻濃度が高いことと関連があるものと思われる。

なお、表流水のpHは7.5であった。

(2) 導電率

導電率は水中の溶存イオン量が多くなるほど大きくなるものであり、従って、溶存イオン総量の指標となるものである。

導電率は、河川水が93μS/cm、深井戸の平均値が193μS/cm、温泉水の平均値が200μS/cm、浅井戸の平均値が

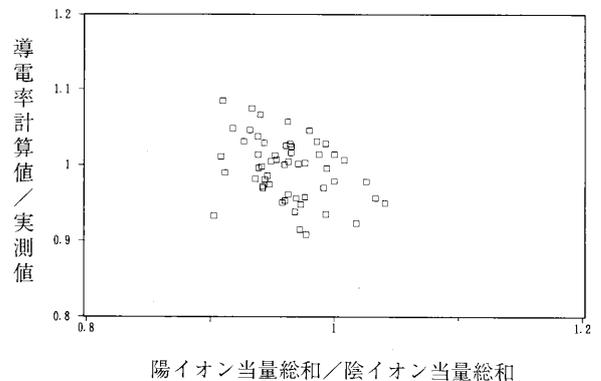


図2 イオンバランス及び電導率の計算値／実測値

250 $\mu\text{S}/\text{cm}$ であり、深井戸と温泉水は河川水の約2倍、浅井戸は河川水の約2.5倍となっていた。

地下水、温泉水は河川水より溶存イオン量が多いことを示している。

次に、浅井戸について導電率の水平分布を検討するため、コンター図及びその3次元分布図を作成したところ、図3及び図4のとおりとなった。

概ね、市街地の西側と北側のほうが東側と南側より大きくなっていた。

導電率の測定結果より、市街地周辺部で水質の変容が窺われたため、地下水の主要構成成分の調査は、市街地周辺部を中心に約50本の井戸について、重点的に行った。

後述するように、市街地の西側と北側で電導率の大きいのは、 Na^+ 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} の濃度が大きいことによるものであり、また、導電率の水平分布は、地下水の流動方向あるいは地表条件を示唆しているものと考えられる。

更に、距離的に近い井戸の間でも導電率に大きなギャップが観測されているところがある。これらの井戸については、後で考察するように、いずれも河川の近くに位置しており、河川近くでは、伏流水の影響を受けている井戸が混在していることによるものと思われる。

(3) 深度別各成分濃度の特徴

まず、浅井戸と深井戸等の各成分濃度を深度別に比較すると表2及び図5のとおりであった。

NO_3^- については、浅井戸は深井戸の約100倍、 Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 K^+ については、浅井戸が深井戸の2倍であった。

HCO_3^- については、深井戸が浅井戸の2倍、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} は浅井戸、深井戸ともほぼ同じ濃度であった。

Na^+ は浅井戸のほうが僅かに多めであった。

これら成分の中で特徴的なものは、 NO_3^- と HCO_3^- であり、 NO_3^- は浅井戸が特に大きく、 HCO_3^- は深井戸の方が大きくなっていた。

一般に、浅井戸はその帯水層の上部に不透水層がないために、地表からの汚染を生じやすく、深井戸の場合は、その帯水層の上部に不透水層があるので、地表から汚染されにくい。

人間活動は、地表から地下へ Cl^- 、 NO_3^- 、 NO_2^- 、 SO_4^{2-}

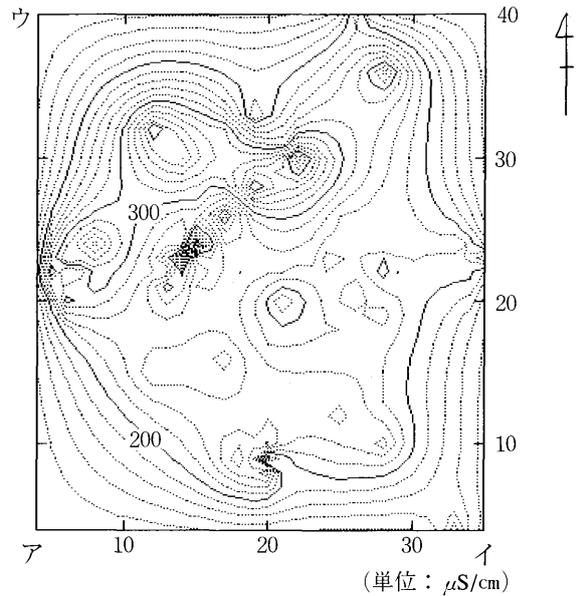


図3 導電率のコンター図

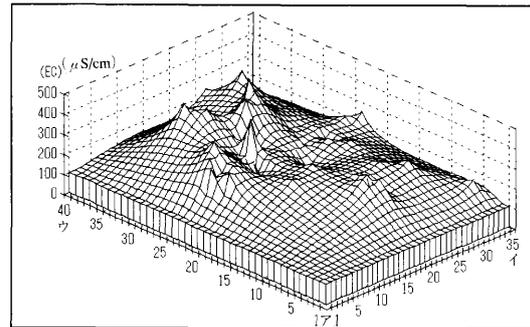


図4 導電率の3次元分布図

表2 深度別各種水質の成分濃度

(単位: mg/ℓ , EC; $\mu\text{S}/\text{cm}$)

水質の種類	Na^+	K^+	Ca^{2+}	Mg^{2+}	Cl^-	NO_3^-	SO_4^{2-}	HCO_3^-	EC
浅井戸 (5~30 m)	18.4	3.7	13.9	5.3	20.9	24.2	22.2	40.5	250
深井戸 (100 m)	14.9	1.5	12.2	5.0	9.2	0.3	10.6	81.3	193
温泉水 (1000 m)	37.7	1.3	5.2	1.0	12.4	0.0	17.3	79.0	—
浅瀬石川	8.7	1.0	4.1	1.6	8.5	1.2	7.8	18.4	93

(浅井戸、深井戸はそれぞれの井戸の平均値であり、温泉水は袋井温泉のデータである。)

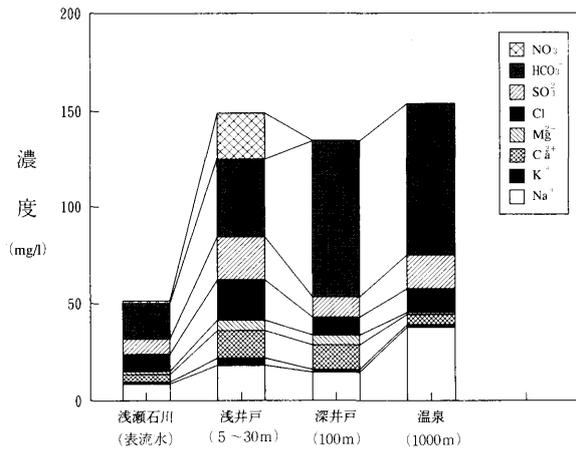


図5 深度別各種水質の成分濃度

等を供給し、地下水のこれら成分濃度を増加させる。

(4) 浅井戸における各成分濃度の水平分布

浅井戸の各成分濃度の水平分布には、次のような特徴がみられた。

Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Cl^- , SO_4^{2-}

：西側と北側が濃度が高く、東側と南側が低い

Ca^{2+} ：北側と東側が高く、南側の河川沿いと西側が低い

NO_3^- ：中央部が高い

HCO_3^- ：河川沿いと東側が大きく、西側が低い

ここで比較を簡単にするため、市街地東側、中央部、西側の3地点を並べてみると表3のとおりであった。

Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Cl^- , SO_4^{2-} は東から西に増加しており、 HCO_3^- は東から西に減少している様子が分かる。また、 NO_3^- は中央部で極大となっていた。

一般に、地下水質の水平分布は地形・地質、流動、地表条件、異質水の混入・存在、断層の存在・単斜・向斜構造によってもたらされる。³⁾

調査対象地域の場合、地形、地質状況等からみて、人間活動による地表条件及び地下水の流動方向と深く関係しているものと思われる。

なお、深井戸についてみると東側のほうが西側より濃度が低くなっており、このことも地下水の流動方向を示唆しているものと思われる。

3.4 偏差値を用いたレーダーチャート

地下水質の特徴を視覚的に比較できるように、多項目データの同時表示を行うこととし、この際、各項目の濃度レベルや単位に左右されないように偏差値を用いて、レーダーチャートを作成した。

$$\text{偏差値} = (X_i - X_{av}) / X_{sd}$$

X_i ：成分iの濃度

X_{av} ：成分iの平均濃度

X_{sd} ：成分iの標準偏差

この図は、各成分の相対的な位置を表していることに留意する必要があるが、レーダーチャートの形から視覚的に水質タイプの分類が可能となった。

典型的なレーダーチャートのタイプを図6に示す。

このレーダーチャートより、各地点の水質を、温泉、深井戸、河川水、西側の浅井戸、中央部の浅井戸、東側の浅井戸、南側の浅井戸、河川近傍の浅井戸というように類型化することができた。

更に、レーダーチャートから河川近傍では、距離的に近い井戸でも、水質の違うものがあることも分かった。

このようにレーダーチャートから、深井戸の特徴、浅井戸の地域別の特徴を概略把握することができた。

各タイプは次のように分類されるものである。

A： Na^+ , HCO_3^- が大きい(温泉)

B： HCO_3^- が大きい(深井戸)

C：全項目とも値が小さい(河川水)

D： SO_4^{2-} , NO_3^- , Cl^- が大きい(西側の浅井戸)

E： NO_3^- が大きい(中央部の浅井戸)

F： Ca^{2+} が大きい(東側及び北側の浅井戸)

G：全項目ともほぼ平均的な値(南側の浅井戸)

H：Dよりも HCO_3^- 以外の項目の値が小さい

(西側の河川近傍の浅井戸)

I：Gよりも K^+ 以外の項目の値が小さい

(南側の河川近傍の浅井戸)

3.5 陽イオン、陰イオンの主成分による水質の分類

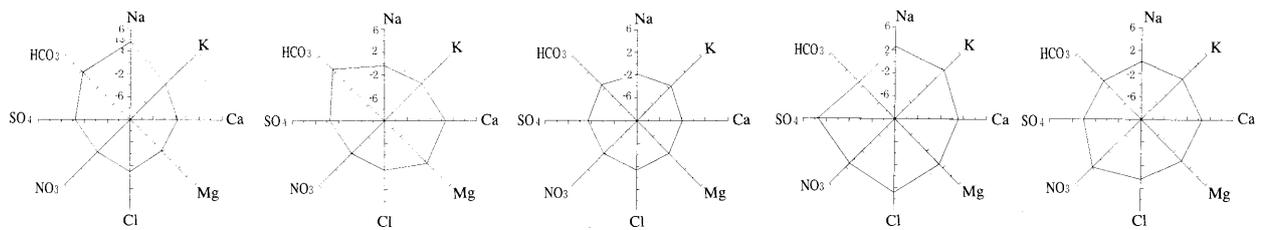
水質の組成タイプをみるため、どのイオンが水質の陽イオン、陰イオンの主成分になっているかを調べた。

あるイオンの当量値が、陽イオン(C)又は陰イオン(A)の当量値の合計量の何%を占めているかを次式によ

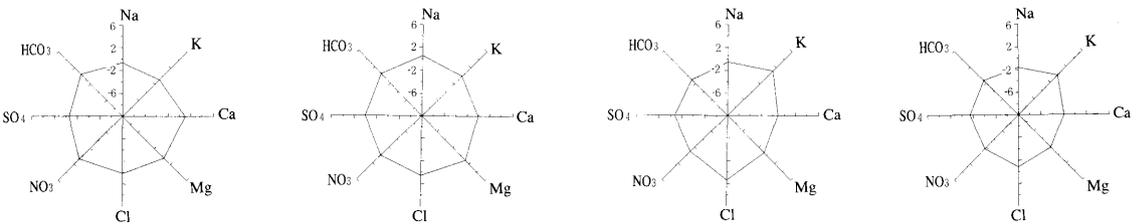
表3 黒石市市街地の地区別水質成分濃度(浅井戸)

(単位：mg/l)

地区名	Na^+	K^+	Ca^{2+}	Mg^{2+}	Cl^-	NO_3^-	SO_4^{2-}	HCO_3^-
市街地東側	13.4	1.4	15.3	4.7	13.8	17.7	14.1	53.2
市街地中央	19.1	3.7	16.2	5.2	23.4	42.7	21.8	30.5
市街地西側	32.2	7.0	18.6	7.1	43.0	33.9	52.9	21.4



(1) A: 温泉 (2) B: 深井戸 (3) C: 河川水 (4) D: 西側の浅井戸 (5) E: 中央部の浅井戸



(6) F: 東側及び北側の浅井戸 (7) G: 南側の浅井戸 (8) H: 西側の河川近傍の浅井戸 (9) I: 南側の河川近傍の浅井戸

図6 偏差値によるレーダーチャート

り計算し、最も当量値%の大きいものをそれぞれ、陽イオン、陰イオンの主成分とした。

$$[C](\text{meq}\%) = [C](\text{meq}) \times 100 / [\text{Na} + \text{K} + \text{Ca} + \text{Mg}](\text{meq})$$

$$[A](\text{meq}\%) = [A](\text{meq}) \times 100 / [\text{Cl} + \text{SO}_4 + \text{HCO}_3 + \text{NO}_3](\text{meq})$$

浅井戸と深井戸について、陽イオン、陰イオンの主成分により水質を組成別に分類したところ、次のようになった。

- Na-HCO₃型 : 19
- Ca-HCO₃型 : 16
- Na-Cl型 : 13
- Ca-Cl型 : 2
- Na-NO₃型 : 2
- Ca-NO₃型 : 1
- Mg-HCO₃型 : 1

一番多いのはNa-HCO₃型、次いでCa-HCO₃型、Na-Cl型であった。特殊なものとしてCa-Cl型、Na-NO₃型、Ca-NO₃型、Mg-HCO₃型があった。

陽イオン、陰イオンの主成分タイプは、深度と次のように密接な関連があることが分かった。

- 深井戸: Ca-HCO₃型 HCO₃のmeq%が大きい
 - 温泉: Na-HCO₃型 NaとHCO₃のmeq%が大きい
 - 河川: Na-HCO₃型 温泉より濃度が低い
 - 浅井戸: 地区によってタイプは異なるが主としてNa-Cl型、Ca-HCO₃型、Na-HCO₃型である
- 次に、浅井戸について、地区別にみるとつぎのような特徴があった。

- 東側: Ca-HCO₃型
- 西側: Na-Cl型

- 北側: Ca-HCO₃型
- 中央: Na or Ca-NO₃ or Cl型
- 南側及び西側の川沿い: Na-HCO₃型

図7に浅井戸の主成分タイプの地域分布を示す。

なお、浅井戸のNO₃⁻の平均meqは0.39meqで、meq%は18.6%であり、中にはNO₃⁻が陰イオンの主成分になっているものさえあった。⁴⁾

3・6 Na meq%とHCO₃ meq%

3・5で陽イオン、陰イオンの主成分をみたが、その中でNa meq%とHCO₃ meq%に着目し、地下水の化学的変

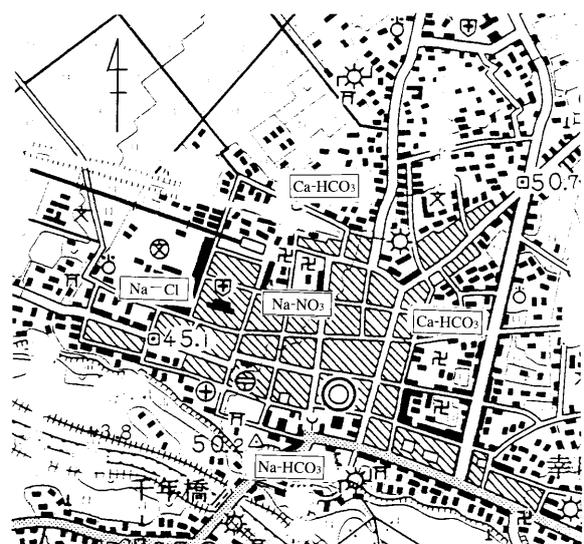


図7 浅井戸の主成分タイプ地域分布

容について更に検討を進めた。

Na meq% とHCO₃ meq%の関係を図8に示す。

図から4つのタイプに大別でき、それぞれのグループは次のように対応していた。

- A：深度1000m程度 単純温泉
- B：深度100m 深井戸
- C：表流水 河川水
- D：深度5～30m 浅井戸

この図から、深度別の特徴を明瞭にとらえることができた。

自然状態では、一般に地下水は地層中を流動する間に、地層からの成分の溶出、酸化環境から還元環境への移行、粘土鉱物との間のイオン交換などによって、水質が化学的に進化していく。

地下水の起源は雨水であり、雨水が土壤に浸透した当初は、水に含まれるCO₂の作用で土壤から炭酸塩が溶出し、水質はCa-HCO₃型となる。水と土壤や岩石との接触時間が長くなるに伴い、水中のCa²⁺やMg²⁺は粘土鉱物中のNa⁺と交換され、Ca²⁺やMg²⁺の濃度は次第に減少する。最終的には、水中のCa²⁺やMg²⁺はほとんどなくなり、地下水の水質はNa-HCO₃型となる。

NO₃⁻、SO₄²⁻は河川からかん養される伏流水を除くと、地下水中にはもともと少ないものであり、たとえ存在しても、地下水が地層中を流動する間に有機物の分解などで、酸素が消費されて、還元状態になり、NO₃⁻はNH₄⁺に、SO₄²⁻はH₂Sに還元されるため、深部の地下水中には少量かあるいはほとんど存在しない。

一方、人家の密集している所では前述したように、人間活動による、ごみ、下水、尿尿などにより、地表からNO₃⁻、SO₄²⁻、Cl⁻などが供給され、これらの地下水中の濃度が増大していく。また、農地における硫安や石灰等の肥料によって、地下水中のNO₃⁻、SO₄²⁻、Ca²⁺が増加するといわれている。

自然的な化学的進化の方向から逸脱する場合は、地表水の混入、火山・温泉・鉱水の混入、塩水化、特殊な地

質条件が考えられるが、調査対象地域の場合、地形、地質条件等を考えれば、地表条件によるものと考えられる。

図9において、地下水が自然状態で化学進化する場合はIからIIへ変化し、地表から生活系、農業系等の負荷を受けた場合は、IからIIIへ変化していくものである。

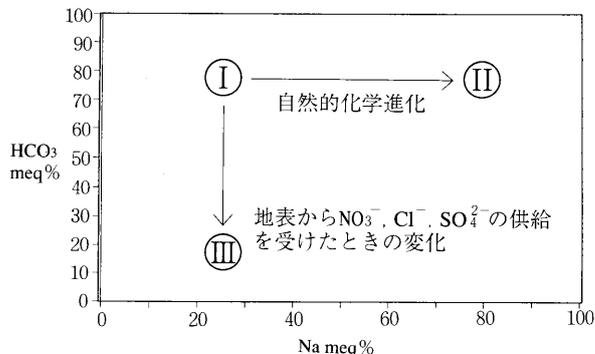


図9 地下水質の変化

3.7 地下水の流動方向⁶⁾

調査対象地域において、浅瀬石川が北西に流下していること及び等高線の低地側への直角方向は北西側であることから、この地域の地下水は南東から北西へ流動していると考えられる。

なお、この地域の井戸は、ほとんど打ち込み井戸のため、地下水位の変動は観測できないが、井戸ボーリング業者からの聞き取り調査によれば、夏期に水位が上がり、冬期に下がるということであった。

これは、雪解けや水田の湛水期、落水期などに関連があるものと思われる。

3.8 成分濃度と水質組成との関係

3.4のレーダーチャートから、河川の近くの浅井戸の中には、河川水の水質によく似た水質、すなわち各成分濃度が薄く、Na meq%の大きい水質のものがあることが分かった。そこで、河川水の影響をみるためにNa meq%とNa濃度(mg/l)の関係をみると図10のとおりであった。

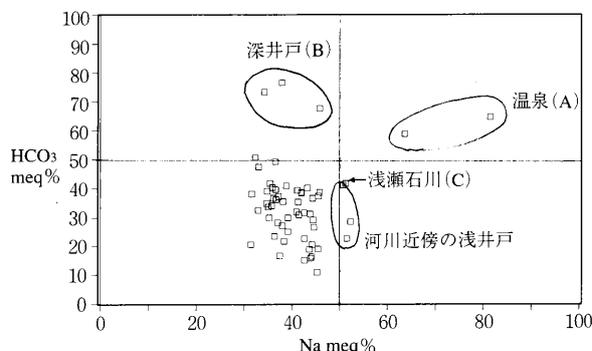


図8 Na meq%とHCO₃ meq%

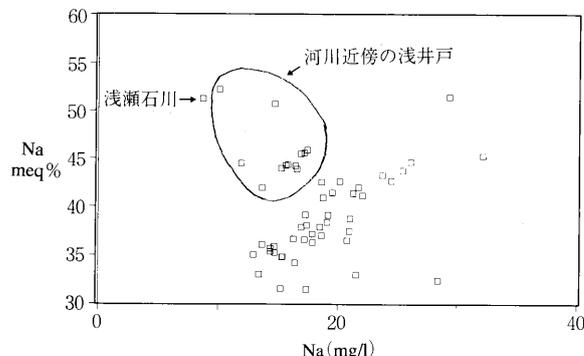


図10 Na濃度とNa meq%

表4 主成分分析結果

成分	合成変数Z1		合成変数Z2		合成変数Z3	
固有値	5.3039		2.3487		0.9921	
累積寄与率	0.5304		0.7653		0.8645	
Na ⁺	-0.3994	-0.9198	-0.0065	-0.0100	-0.2471	-0.2462
K ⁺	-0.2489	-0.5733	-0.3158	-0.4839	-0.5530	-0.5508
Ca ²⁺	-0.3292	-0.7583	0.2431	0.3726	0.4290	0.4273
Mg ²⁺	-0.3300	-0.7599	0.3381	0.5182	-0.0459	-0.0457
Cl ⁻	-0.3114	-0.7172	-0.2822	-0.4324	-0.2473	-0.2464
NO ₃ ⁻	-0.2567	-0.5912	-0.3168	-0.4856	0.5278	0.5257
SO ₄ ²⁻	-0.3866	-0.8903	0.1167	0.1788	-0.0438	-0.0436
HCO ₃ ⁻	-0.1206	-0.2778	0.5918	0.9070	-0.0480	-0.0478
EC	-0.4269	-0.9831	0.0885	0.1356	0.0030	0.0030
pH	0.2282	0.5256	0.4181	0.6412	-0.3210	-0.3197

図10のNa meq%が大きく、Na濃度 (mg/ℓ) の小さい領域では、河川水の水質に近く、河川伏流水の影響が考えられる。

地下水調査の場合、河川近くの浅井戸の中には、このように、河川伏流水の影響を受けた井戸が混在していることに留意する必要があることが分かった。

3・9 主成分分析による検討

地下水質の特性を総合的にみるために、各成分濃度間の相関係数行列を用いて、主成分分析を行った。主成分解析結果を表4に示す。

第3主成分までの累積寄与率は86.5%であり、この第3主成分までで、水質の変動をほぼ説明できると考えられる。

第1と第2主成分に対する因子負荷量を図11に示す。第1主成分 (Z₁) はEC, Na⁺, SO₄²⁻, Mg²⁺, Ca²⁺,

Cl⁻と負の相関があり、pHと正の相関がある。これは、全般的な成分濃度の大きさを示すものと考えられる。

第2主成分 (Z₂) は、HCO₃⁻と正の相関、NO₃⁻, Cl⁻と負の相関があり、自然的要因と人為的要因 (地表条件) を表すものと考えられる。

第3主成分 (Z₃) はCa²⁺と正の相関、K⁺, Na⁺と負の相関があり、地下水の流動の方向性、陽イオン交換と関連があるものと思われる。

次にスコアについてみると次のとおりであった。

Z₁のスコアが小さいほどイオン濃度が大きくなっている。Z₂のスコアが (+) 側程HCO₃⁻濃度が高く、(-) 側程Cl⁻, SO₄²⁻濃度が高くなっている。すなわち、(-) 側程地表からCl⁻, SO₄²⁻が供給されている地点と考えられる。

Z₃のスコアが (+) 側程水質組成の陽イオンの主成分はCaタイプ、(-) 側程Naタイプになっている。

浅井戸の場合は、Z₃が (-) 側に位置している程、地下水の流動方向の上流側に位置している地点か或いは、伏流水の影響を受けている地点と考えられる。

Z₁とZ₂, Z₁とZ₃, Z₂とZ₃の散布図を図12, 13, 14に示す。

Z₁とZ₂のスコア散布図において、地表からCl⁻, NO₃⁻が供給されるにつれて、Z₁スコア, Z₂スコアとも (-) 側になるので、水質は、第1象限から第3象限へ移行することになる。第1象限には市街地東側の浅井戸、第3象限には西側の浅井戸が位置していた。

Z₂とZ₃のスコア散布図は、Z₂軸, Z₃軸がそれぞれ、陽イオン, 陰イオンの主成分を表しているものであり、従って、水質組成のタイプを示していることになる。

第1象限はCa-HCO₃型、第4象限はNa-HCO₃型、第3象限はNa-Cl型、そして第2象限はCa-Cl or NO₃

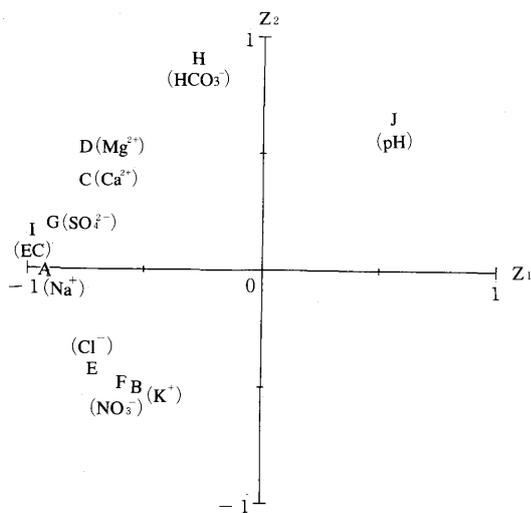


図11 第1, 第2主成分に対する因子負荷量

型に対応するものである。

Z_1 と Z_3 スコア散布図において、 Z_3 が(+)側から(-)側へ移行するに従い、陽イオンの主成分がCaからNaに変容していることから、浅井戸の場合、地下水の上流側が Z_3 (+)側、下流側が Z_3 (-)側になっていると考えられる。

また、深井戸、河川水は、陽イオンの主成分が Na^+ であるから Z_3 が(-)側になっている。

4. ま と め

黒石扇状地における地下水質について、主要成分濃度の水平分布、主成分分析等を用い、地球化学的な検討を行った結果は次のとおりであった。

(1) 地下水の主要成分濃度

調査対象地域における浅井戸水質の主要成分濃度の平均値は、 Na^+ (18.4mg/l)、 Ca^{2+} (13.9)、 Cl^- (20.9)、 NO_3^- (24.2)、 SO_4^{2-} (22.2)、 HCO_3^- (40.5)であり、深井戸水質の平均濃度は、 Na^+ (14.9mg/l)、 Ca^{2+} (12.2)、 Cl^- (9.2)、 NO_3^- (0.3)、 SO_4^{2-} (10.6)、 HCO_3^- (81.3)であった。

(2) 深度毎の水質の特徴

井戸の深度が深い程、pHはアルカリ側になっており、また HCO_3^- 濃度が大きくなっていった。

浅井戸は深井戸より、 NO_3^- 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 K^+ 濃度が大きかった。

深度別の水質組成は、深度が1000m(温泉)でNa-HCO₃型、深度100m(深井戸)でCa-HCO₃型、深度5~30m(浅井戸)では地域によって異なり、Na-Cl型やCa-HCO₃型などであった。

(3) 浅井戸の水質の地域特性

浅井戸の水質については、市街地の西側で Na^+ 、 K^+ 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 濃度が高く、東側で HCO_3^- 濃度が高くなっていった。

浅井戸の水質組成は、東側でCa-HCO₃型、西側がNa-Cl型であった。

市街地の東側から流れてきた浅井戸の地下水は流下に伴い、市街地の地表から NO_3^- 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} の供給を受け、その濃度を増しながら西側に流れて行き、最終的には農業用水(宇和堰)の伏流水に流し去られていくものと考えられる。

結局、浅井戸水質の水平濃度分布は、地下水の流動及び地表からの各種成分の供給により規定されているものと考えられる。

浅井戸の NO_3^- 平均濃度は24mg/lと高く、中には陰イオンの主成分になっているものさえあった。

また、河川の近くでは、河川伏流水の影響を受けている井戸も見受けられた。これらの地下水は、一般に溶存

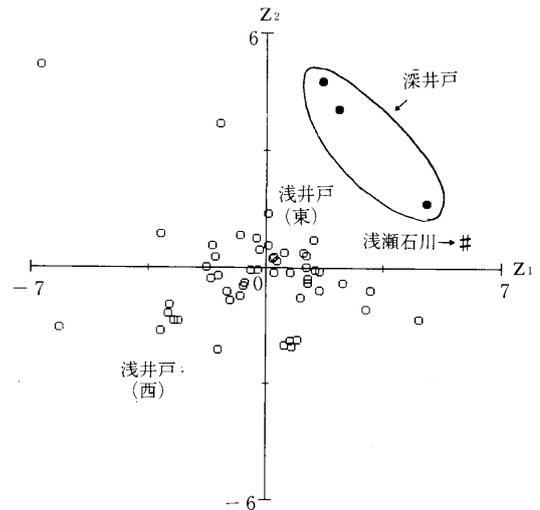


図12 Z_1 と Z_2 間のスコア散布図

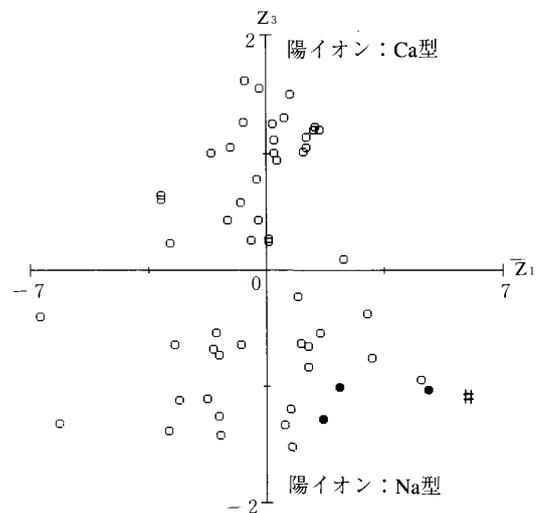


図13 Z_1 と Z_3 間のスコア散布図

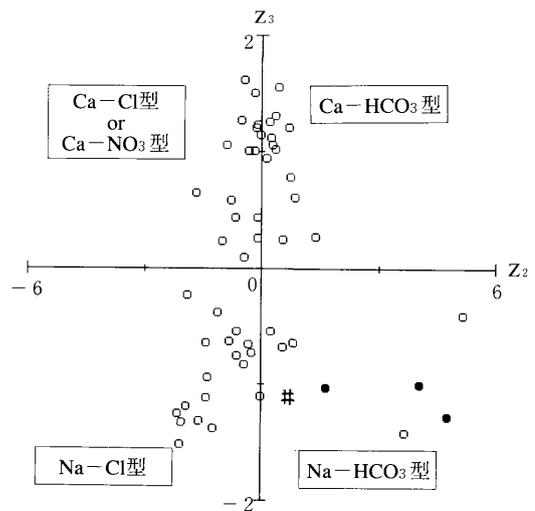


図14 Z_2 と Z_3 間のスコア散布図

物質の濃度が薄く、Na meq%が大きいという特徴を有していた。

(4) NO_3^- , Cl^- , SO_4^{2-} の地表からの供給状況

地表からの NO_3^- , Cl^- , SO_4^{2-} は深度30mまでの浅井戸の水質には影響を及ぼしているが、深度100mの深井戸までには達していなかった。

文 献

- 1) 青森県：温泉湧出地基礎調査（黒石市地域）報告書，昭和61年3月。
- 2) 地下水ハンドブック編集委員会編：地下水調査ハンドブック，建設産業調査会，東京，1989。
- 3) 山本荘毅：新版地下水調査法，400，古今書院，東京，1989。
- 4) 環境庁水質保全局水質管理課監修：硝酸性窒素による地下水汚染対策ハンドブック，公害対策研究センター，東京，1993。
- 5) 酒井軍治郎：地下水学，352-388，朝倉書店，東京，1965。
- 6) 山本荘毅：新版地下水調査法，75-80，古今書院，東京，1989。

Abstract

Geochemical Study on Groundwater in Kuroishi Alluvial Fan

Shin-ichi ISHIZUKA¹ Shinya KUDO²
and Mariko SATO³

A geochemical study on groundwater in Kuroishi alluvial fan was made with the following results.

The deeper a well is, pH of the water became of more alkalinity and HCO_3^- concentration became higher. Shallow wells contain more NO_3^- , Cl^- , and SO_4^{2-} than deep wells. Composition of water depending the depth was classified as : 1000m (hot spring) was Na- HCO_3 type, 100m (deep well) was Ca- HCO_3 type, and 5~30m (shallow well) was mostly Na-Cl type or Ca- HCO_3 type depending on the location.

Shallow wells in the west side of Kuroishi City have higher concentrations of Na^+ , K^+ , Cl^- , SO_4^{2-} and NO_3^- , while HCO_3^- is rich in the east side. The water composition was Ca- HCO_3 type in the east side and Na-Cl type in the west side. The groundwater from the southeast side of the City is understood to flow to the northwest side increasing the concentrations of NO_3^- , Cl^- and SO_4^{2-} by the supply of them from the ground surface. NO_3^- and other from the ground surface did not reach the deep wells. The groundwater near rivers was sometimes influenced by the infiltration water.

key words : groundwater, alluvial fan, shallow well, deep well, Kuroishi City

1 : Aomori Prefectural Institute of Public Health and Environment
2 : Aomori Prefectural Atomic Energy Environmental Control Office
3 : Aomori Prefectural Hirosaki Public Health Center

六ヶ所村における陸水中トリチウム濃度調査 (I)

外崎 久美子 工藤 英嗣 安達 大介 木村 秀樹

^3H について、原子燃料サイクル施設からの影響の評価に資するため、施設周辺地域での ^3H の分布・挙動を把握しておくことは重要である。調査対象として、施設周辺に位置する尾駮沼、鷹架沼およびこれらの湖沼に流入する河川を選定し、湖沼水および河川水中の ^3H 濃度調査を実施した。尾駮沼における湖沼水中 ^3H 濃度は、流入する二又川の河川水より低く、塩分と負の相関が認められた。尾駮沼は海水の流入がある汽水湖であり、比較的 ^3H 濃度の高い河川水が ^3H 濃度の低い海水により希釈されているものと考えられる。鷹架沼における湖沼水中 ^3H 濃度は流入する河川水と同じレベルであった。

Key words : tritium, lake water, river water, nuclear fuel recycling complex, Rokkasho Village

1. はじめに

環境中に存在するトリチウム (^3H , T) には、宇宙線と大気成分との核反応により自然に生成するものに加えて、大気圏における核爆発実験および原子力施設に由来するものがある。その大部分は水 (HTO) の形で存在し、他の放射性核種に比較して、非常に移動しやすい性質がある。

降水中 ^3H 濃度は、1950～60年代に行われた核実験の影響を受けて著しく上昇したが、その後、しだいに減少する傾向にあり、最近では核実験以前の天然レベルに戻りつつある¹⁾。しかし、河川水には核実験に起因する ^3H レベルの高い地下水が流入している場合があるため、一般に河川水中 ^3H 濃度は降水のレベルより高い¹⁾。宮本ら²⁾、井上ら³⁻⁴⁾は、青森県六ヶ所村において、河川水、湖沼水および地下水に関する調査を行い、同地域にフォールアウトレベルが高かった頃の降水を多く含む帯水層があることを報告している。

現在、青森県六ヶ所村では、低レベル放射性廃棄物埋設センターが1992年12月から操業を開始しており、再処理施設は1996年4月の使用済核燃料受入れ・貯蔵を目的に建設中である。県および設置者である日本原燃(株)は、1989年4月から環境モニタリングの一環として、降水、陸水等の ^3H 調査を実施している。特に陸水域での ^3H は複雑な挙動・分布を示すことから、将来施設からの影響を評価するためには、事前に施設周辺地域における ^3H の分布状況とその挙動を把握しておく必要がある。本報では、1993年8～9月に施設周辺の河川水および湖沼水を対象として行った ^3H 濃度調査について報告する。

2. 調査方法

2.1 調査地点および調査時期

原子燃料サイクル施設周辺に位置する湖沼として、尾駮沼および鷹架沼を選定した。調査は、湖沼水が比較的安定し、湖沼水の循環が小さいと考えられる8～9月に、図1に示した尾駮沼10地点、鷹架沼9地点で実施した。また、これらの湖沼に流入する河川についても、図1に示した地点で同じ時期に同様の調査を行った。

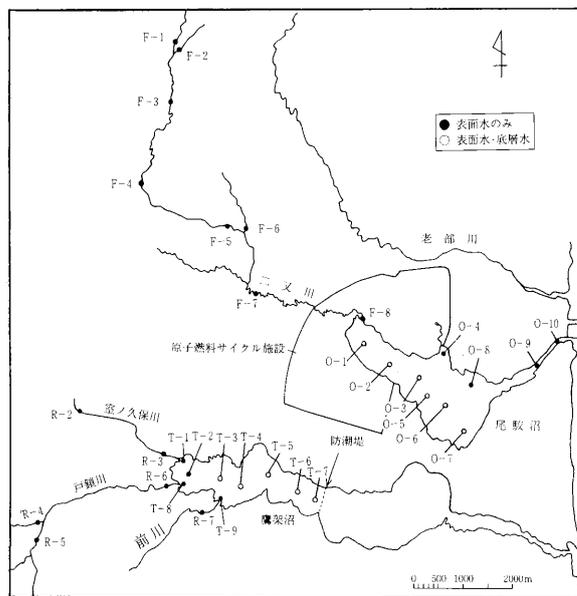


図1 湖沼水および河川水の採取地点

各試料の採取年月日を以下に示す。

湖沼水	尾駁沼	1993年8月10日
	鷹架沼	1993年9月21日
河川水	二又川	1993年8月9～10日
	室ノ久保川	1993年9月14日
	戸鎖川	
	前川	

2・2 試料採取方法

湖沼水は、表面水および湖底から約50cm上の底層水を約3ℓ採取した。底層水の採取は、船上からバンドン採水器を用いて行った。河川水は、表面水を流心から約2ℓ採取した。

2・3 調査内容

調査項目は次のとおりである。

- ① 河川水および湖沼水中³H濃度
- ② 河川水および湖沼水の水温、塩分、pH、溶存酸素

2・4 分析測定方法

³H分析は、¹⁸日本分析センターへ委託した。尾駁沼の湖沼水は電解濃縮後500分測定を、河川水および鷹架沼の湖沼水は蒸留後1000分測定を行った。測定は、試料水40gを分取し、AQUASOL-2 (New England Nuclear社) 60mlと混合後、100mlのテフロンバイアルを用いて液体シンチレーションカウンタ (アロカ¹⁹LSC-LBIII) で実施した。

水温測定は、試料採取時に現地で行った。また、塩分、pHおよび溶存酸素の分析測定は、試料水を実験室へ持ち帰ったのち、それぞれサリノメータ、pHメータおよび滴定 (ウインクラー・アジ化ナトリウム変法)⁵⁾ により行った。

3. 結果と考察

3・1 尾駁沼および流入河川

尾駁沼は、六ヶ所村太平洋沿岸に位置し、面積3.71km²、平均水深2.1mの比較的浅く、湖底の形状も単純な湖である。流入する河川は二又川のみであり、比較的細くなった湖口部をとおして、潮の干満により海水が流入する汽水湖である⁶⁾。

(1) 河川水 (二又川) 中³H濃度

河川水 (二又川) 中³Hの上流から湖沼までの濃度分布を図2に示す。二又川の³H濃度は0.85~1.5Bq/ℓであった。環境モニタリングの一環として、六ヶ所村内の千歳平で採取した降水中³H濃度は約0.6Bq/ℓ (1993年度平均) であり、二又川の³H濃度はこの値より1.5~2.5倍高い。このことから、二又川には、³Hレベルの高い地下水の流入があるものと推測する。水源付近から尾駁沼に至るまでの³H濃度の変化をみると、水源に近いF-1~5ではほぼ同じレベルであったが、F-6では1.2

Bq/ℓとやや高くなり、さらに下流のF-7では1.5Bq/ℓと調査地点の中で最も高い値を示した。

(2) 湖沼水 (尾駁沼) の一般水質特性

尾駁沼は汽水湖であり、湖内における淡水と海水の動きを推定するために、水温、塩分、pHおよび溶存酸素について調査を行った。

塩分は海水の影響をみるための指標となり、その濃度分布は図3に示すとおりである。表面水の塩分は上流部では比較的lowく、中央部から下流部でほぼ一定であった。底層水の塩分は、全般的に表面水より高く、中央部では海水の塩分に近い値が得られている。このことから、水深が大きくなる中央部においては、海水が密度の差により底層へ流入し、弱い塩分躍層が形成されているものと考えられる。水温(図4)、pH(図5)及び溶存酸素(図6)の分布もこのことを裏付けるような結果になっている。特に溶存酸素の分布をみると、中央部の底層水でかなり低くなっていることから、底層部での海水の滞留が考えられる。

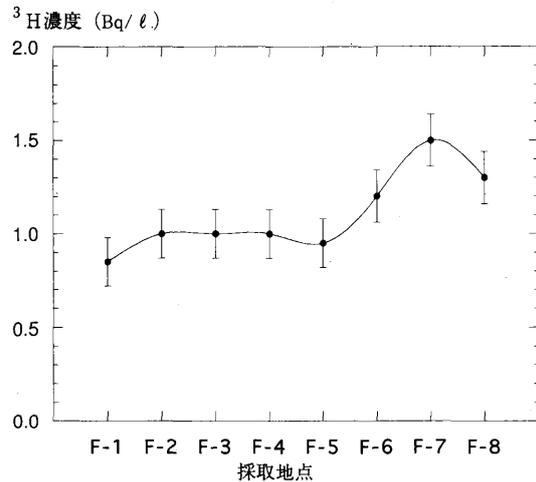


図2 二又川における河川水中³H濃度分布

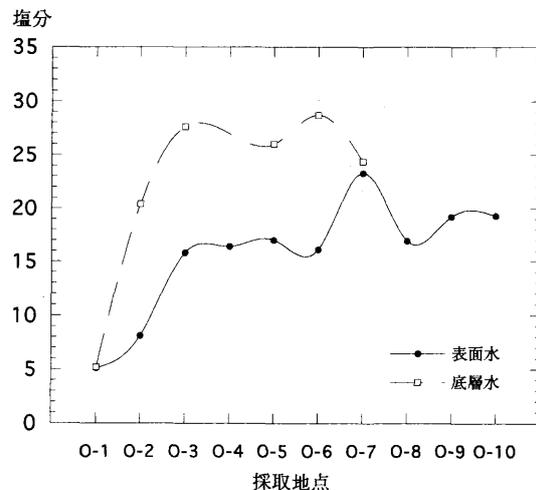


図3 尾駁沼における湖沼水の塩分分布

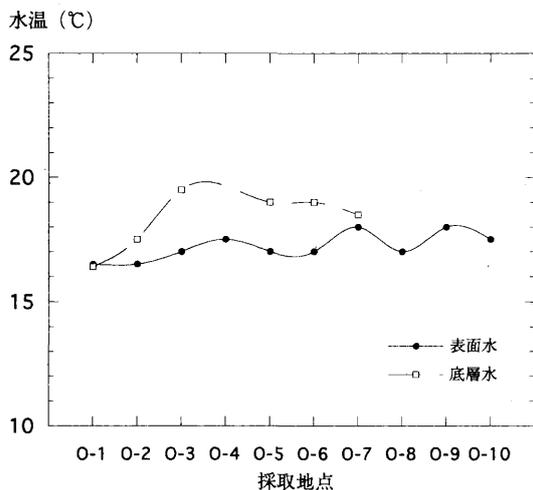


図4 尾駁沼における湖沼水の水温分布

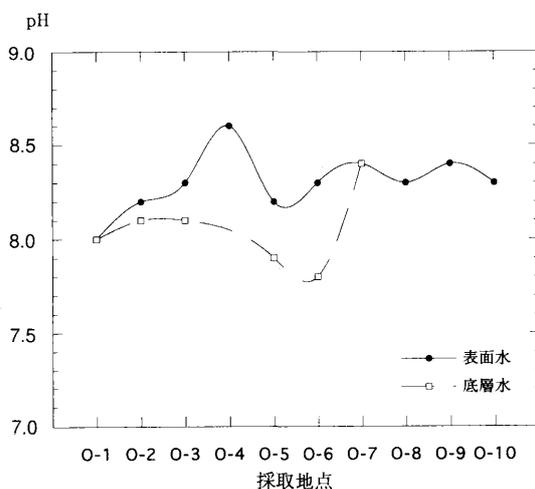


図5 尾駁沼における湖沼水のpH分布

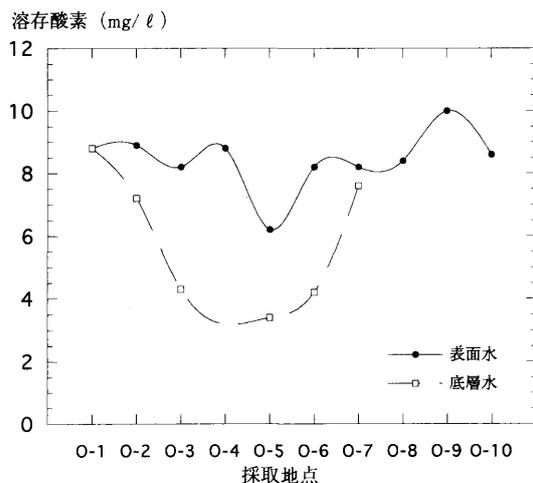


図6 尾駁沼における湖沼水の溶存酸素分布

一方、河川水の流入部に近い0-1と湖沼水の流出部に近い0-7では、表面水と底層水の一般水質特性はほぼ同じ結果であった。これは、河川水の流入部と湖沼水の流出部では、淡水と海水の混合が十分行われているためと推測する。

(3) 湖沼水（尾駁沼）中³H濃度

尾駁沼における湖沼水中³Hの濃度分布を図7に示す。表面水中³H濃度は0.44~0.97Bq/l、底層水中³H濃度は0.36~0.98Bq/lであり、流入する河川水より低い値であった。湖沼水中³H濃度の水平分布は、流入する河川水の³Hレベルを反映して、上部で若干高い傾向があり、中央部から下流部ではほぼ同じレベルであった。また、表面水と底層水中³H濃度を比較すると、底層水が表面水より若干低い傾向にある。尾駁沼に流入する地点での二又川の河川水中³H濃度は1.3Bq/lと比較的高く、これと混合する海水の³H濃度は約0.2Bq/lと低いことから、湖沼水中の³H濃度分布には、海水による影響があるものと推測する。

湖沼水の塩分と³H濃度の関係を見ると、これら間には負の相関があり、特に底層においてその傾向は強い(図8)。尾駁地区において、試料採取前1週間は降水がなく、湖沼に直接降下した降水の影響は小さいと考える。このことから、尾駁沼の湖沼水は二又川の河川水と海水の混合であると仮定して、次のような計算式を用い、各採取地点における³H濃度を求めた。

$$T_i = \{(T_s \times S_i) + T_F \times (S_s - S_i)\} / S_s$$

T_i : 地点*i*における湖沼水中³H濃度

T_s : 海水中³H濃度

S_i : 地点*i*における湖沼水の塩分

T_F : 二又川の河川水中³H濃度

S_s : 海水の塩分

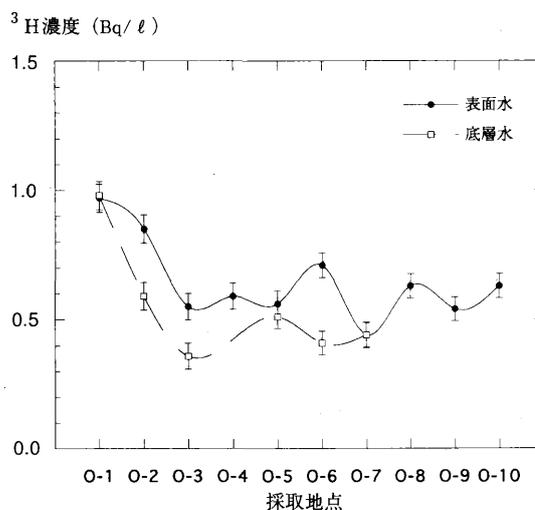


図7 尾駁沼における湖沼水中³H濃度分布

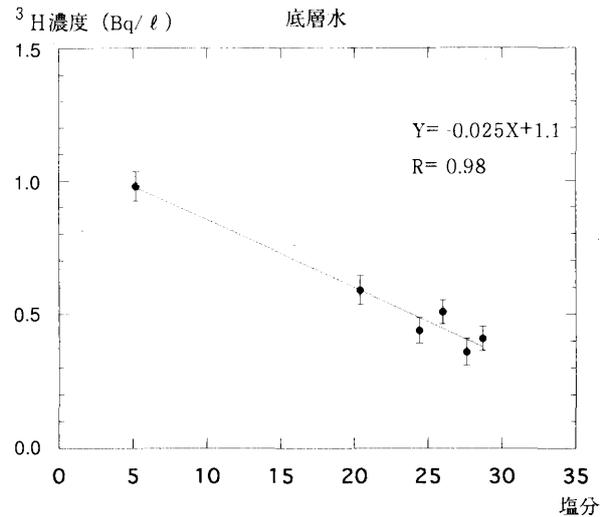
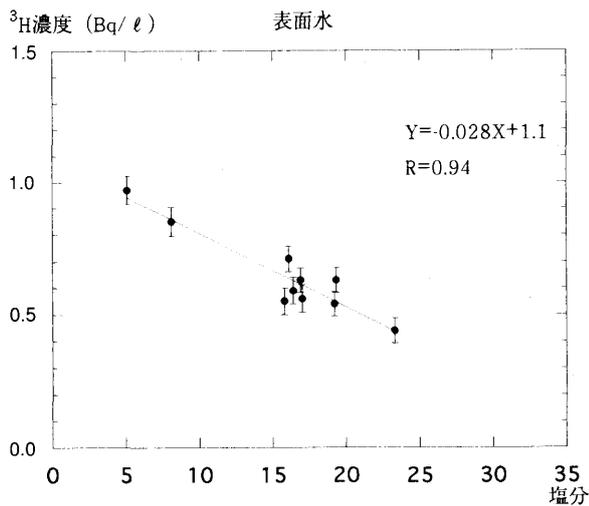


図8 尾駮沼における塩分と³H濃度の関係

表1 尾駮沼における³H濃度（計算値と実測値）

採取地点	表面水		底層水	
	計算値	実測値	計算値	実測値
O-1	1.1	0.97	1.1	0.98
O-2	1.0	0.85	0.64	0.59
O-3	0.79	0.55	0.40	0.36
O-4	0.77	0.59		
O-5	0.75	0.56	0.46	0.51
O-6	0.78	0.71	0.37	0.41
O-7	0.54	0.44	0.51	0.44
O-8	0.75	0.63		
O-9	0.68	0.54		
O-10	0.67	0.63		

海水中³H濃度 (T_s) は、尾駮沼湖口部から沖合い約2.5km地点の海水（1993年10月採取）中³H濃度である0.20Bq/lを用いた。この海水の塩分 (S_s) は33.9であった。また、二又川の河川水中³H濃度 (T_F) は、尾駮沼に流入する直前の地点であるF-8の1.3Bq/lを用いた。

計算値と実測値を表1に示す。両者を比較すると、底層水についてはほぼ一致しているが、表面水については、全ての地点において、実測値が計算値を下回っていた。淡水と海水との混合比は、湖沼水の塩分からほぼ正確に求めることができ、海水中³H濃度には大きなバラツキがないと考えられる。したがって、表面水における計算値と実測値の差は、海水と混合する淡水の濃度設定に起因するものとする。淡水は二又川の河川水と降水から成っており、降水の³Hレベルは平常時の二又川の河川水より低い。このことから、表面水については、降水の影響も考慮する必要があるものと思われる。

3.2 鷹架沼と流入河川

鷹架沼は、尾駮沼の南に位置し、面積5.83km²、平均水深2.7mの一般に浅く、湖底の形状も比較的単純な淡水湖である。流入する河川は、室ノ久保川、戸鎖川および前川の3河川であり、流入量が大いなのは戸鎖川である⁶⁾。ただし、これらのデータは1985年の調査時のものであり、1992年8月には、図1の示す位置に防潮堤が建設され、淡水の部分の面積は半分以下になった。本調査はこの淡水域について実施したが、調査時期には、防潮堤の水門が開かれており、海水が流入している可能性がある。

(1) 河川水中³H濃度

鷹架沼に流入する河川水中³H濃度は、室ノ久保川で0.9~1.2Bq/l、戸鎖川で1.0~1.5Bq/l、前川では2.0Bq/lであった。これらの結果は、千歳平における降水より1.5~3倍高く、二又川の河川水とほぼ同じレベルであった。河川における調査結果は、井上らの報告³⁻⁴⁾とほぼ一致していた。鷹架沼に流入する3河川についても、二又川と同様に³Hレベルの高い地下水の流入があるものと推測する。

(2) 湖沼水（鷹架沼）の一般水質特性

水温は、表面水と底層水でほぼ同じ結果であった。塩分については、各地点とも表面水と底層水の間に大きな違いはみられなかった。また、上流部における表面水の塩分は、流入する河川水とほぼ同じ値であった。中央部では、防潮堤に近づくほど、わずかではあるが底層水の塩分が高くなる傾向があり、海水の流入が考えられた。しかし、これらの結果は、海水の塩分に比べかなり低く、鷹架沼では湖沼水に対する海水の影響は少ない。

(3) 湖沼水（鷹架沼）中³H濃度

鷹架沼における湖沼水中³Hの濃度分布を図9に示す。

表面水中³H濃度は0.8~1.3Bq/lであり、流入する河川水とほぼ同じレベルであった。底層水中³H濃度は0.59~0.99Bq/lであり、表面水に比べ、若干低い傾向にあるが、大きな違いはみられなかった。

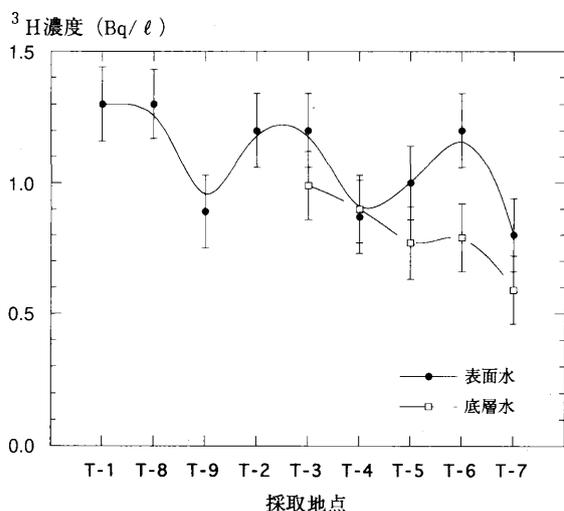


図9 鷹架沼における湖沼水中³H濃度分布

4. ま と め

本調査は、1993年度および1994年度の2年にわたって実施することとしており、今回は1993年度の調査結果についてとりまとめたものである。

六ヶ所村における河川水中³H濃度は、0.85~2.0Bq/lであり、同地域の降水より高いことから、比較的³Hレベルの高い地下水が河川へ流入しているものと考えられる。

尾駁沼における湖沼水中³H濃度は、0.36~0.98Bq/lと流入する河川水より低く、塩分と負の相関が認められることから、海水の影響が考えられる。流入する河川水および海水中³H濃度が一定であると仮定すると、湖沼水中³H濃度はその塩分から推定することが可能である。しかし、表面水ではさらに降水の影響も考慮する必要があるものと考えられる。

鷹架沼は、防潮堤が設置されていることにより、海水の流入が少なく、汽水湖である尾駁沼とは異なった状況にある。鷹架沼における湖沼水中³H濃度は、流入する河川水とほぼ同じレベルであった。

なお、1994年度は、融雪水の流入があり、湖沼水の循環が比較的大きい4月に同様の調査を実施する。

謝 辞

本調査を実施するにあたり、ご指導、ご協力頂いた宮本霧子氏（放射線医学総合研究所）に深謝いたします。

文 献

- 1) 核融合特別研究総合総括班：昭和62年度 文部省科学研究補助金 トリチウム資料集，408-422，1988.
- 2) 広島大学原爆放射能医学研究所病理部門：日本放射線影響学会第36回大会講演要旨集，352，1993.
- 3) 放射線医学総合研究所：放射能調査研究報告書（平成4年度），55-64，1993.
- 4) 科学技術庁：第36回環境放射能調査研究成果論文抄録集（平成5年度），11-12，1994.
- 5) JIS K0102 工場排水試験方法，83，1981.
- 6) 環境庁：第3回 自然環境保全基礎調査 湖沼調査報告書 東北版（I），2・52-2・66，1987.

Abstract

Tritium Concentrations of Surface Water in Rokkasho Village (I)

Kumiko TONOSAKI¹, Hideshi KUDOH¹, Daisuke ADACHI¹ and Hideki KIMURA¹

In order to estimate the influence of a nuclear fuel recycling complex, it is important to know the behavior and distribution of tritium around the site. A survey of tritium concentrations in lake and river water was made in Lakes Obuchi and Takahoko and the rivers flowing into those lakes. The tritium concentrations in Lake Obuchi were lower than those in Futamata River and there was correlation between the tritium concentration and salinity. Seawater flowed into Lake Obuchi, so the tritium concentrations in Lake Obuchi were influenced by seawater whose tritium concentrations were lower level. The tritium concentrations in Lake Takahoko were almost the same as those of the rivers flowing into it.

Key words : tritium, lake water, river water, nuclear fuel recycling complex, Rokkasho Village

1 : Aomori Prefectural Institute of Public Health and Environment

八戸市における環境大気中有機塩素化合物濃度 — 拡散型長期暴露サンプラーによる濃度調査 —

岡 典子 工藤 精一 中村 哲夫

八戸市における環境大気中有機塩素化合物の濃度レベルを把握するため、拡散型長期暴露サンプラーを用い、市内5地点において大気中有機塩素化合物の1ヶ月間平均濃度の実態調査を平成6年2, 6, 8, 11月に実施した。

その結果、1,1,1-トリクロロエタンと四塩化炭素については地域及び時期によらず同程度の汚染状況であった。また、トリクロロエチレンとテトラクロロエチレンについては、工専地域に汚染が偏在しており、特に、テトラクロロエチレンの使用事業場近傍における夏季の汚染が顕著であった。

Key words : volatile chlorinated hydrocarbons (VCH), passive sampler for long-term, air pollution

1. はじめに

低沸点有機塩素化合物（以下、VCHと略す）は、電子部品、金属部品の脱脂洗浄剤やクリーニング溶剤として広く使用されているが、代表的なVCHである1,1,1-トリクロロエタン(MCF)、四塩化炭素(PCM)、トリクロロエチレン(TCE)及びテトラクロロエチレン(PCE)は発ガン性を有することから人体への有害性が懸念されている。また、MCF及びPCMについては、フロン同様オゾン層を破壊し地球温暖化に寄与する物質として指摘されている¹⁾。

VCHは揮発性が高くかなりの量が大気中に放散していると推測され、その環境汚染については各地で様々な報告がなされているが、そのほとんどは真空ビンを用いたガス置換採取や1時間～24時間程度の吸引捕集等のように短時間あるいは短期的な濃度測定であり、長期的な測定例は少ない²⁻⁹⁾。

平成5年4月には、TCE、PCEについて、環境庁が指針値(年平均値)として「大気環境指針(暫定値)」を定めている。このため、長期的な大気環境への影響の監視が重要となっている。

八戸市においてもVCH使用事業場は数ヶ所存在するため、長期的な汚染レベルを把握しておくことは環境保全対策上必要である。

今回、著者らは、横浜市の前田らの開発した拡散型長

期暴露サンプラー²⁾を用い、大気中有機塩素化合物の長期的平均濃度の実態調査を実施したので報告する。

2. 調査方法

2.1 調査期間

平成6年2, 6, 8, 11月(4回/年)

2.2 調査地点

八戸市内5地点

(表1及び図1参照, 但し2月は4地点)

2.3 調査対象物質

1,1,1-トリクロロエタン(MCF)、四塩化炭素(PCM)、トリクロロエチレン(TCE)及びテトラクロロエチレン(PCE)(4物質)

2.4 サンプルング方法

26mmφに打ち抜いた活性炭フェルト(東洋紡績株, KF-1600)を260℃で一昼夜加熱しクリーンアップ後、拡散型長期暴露サンプラー(小川商会株)内に入れ、調査地

表1 調査地点の概要

St.	地 点	用途地域
1	新産都市会館	工業専用
2	馬淵川浄化センター	〃
3	東部終末処理場	〃
4	八戸市庁	商業
5	根城浄水場	第1種住専

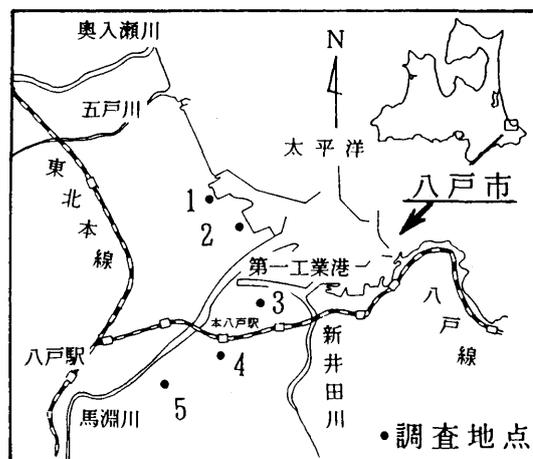


図1 調査地点

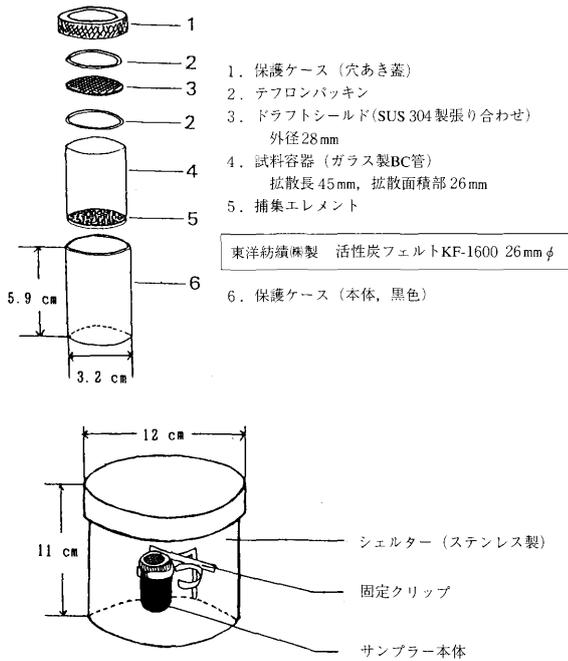


図2 拡散型長期暴露サンプラー
(上：サンプラー本体分解構造図，下：全体図)

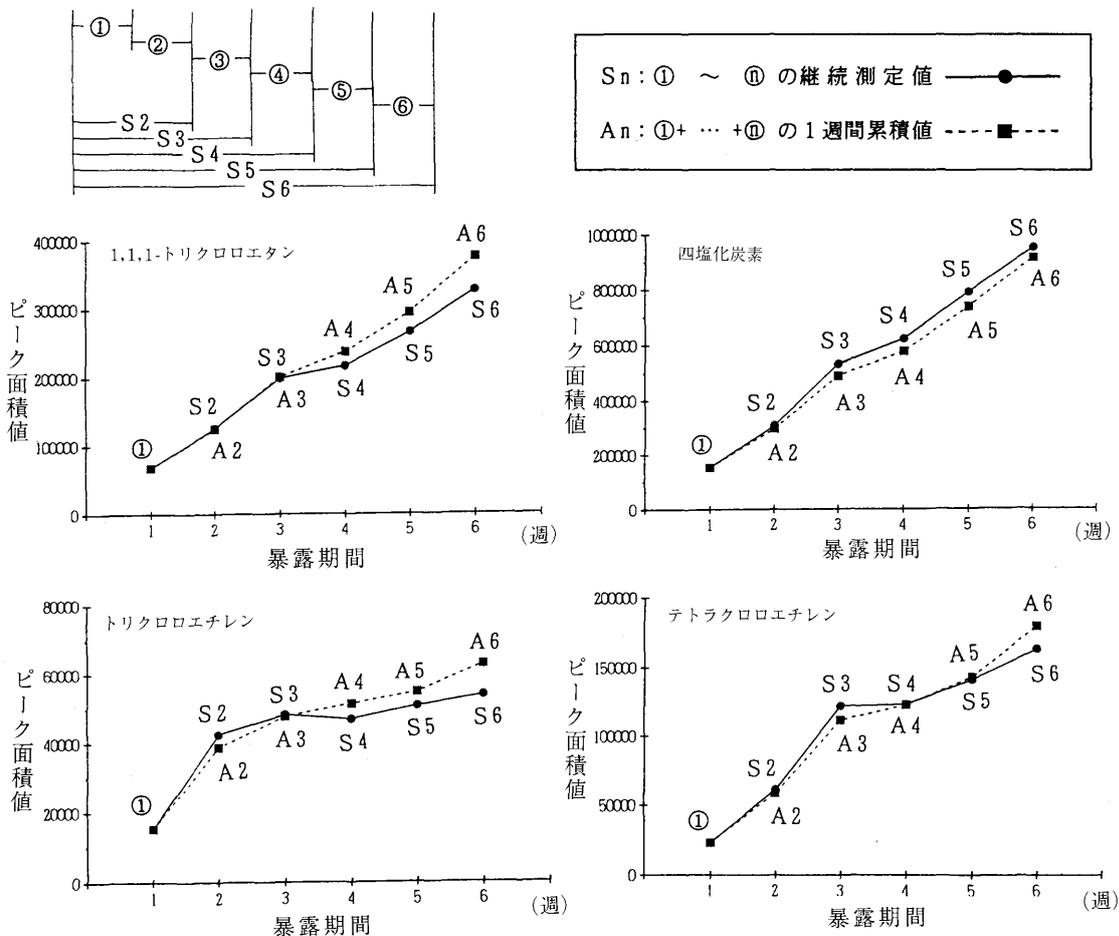


図3 サンプラーによる捕集量の1週間累積値と継続測定値（6週間試験）

点のシェルター内に原則として1ヶ月間セットした(図2)。

2.5 分析方法

サンプラー回収後、活性炭フェルトを取り出し、試験管に入れ、n-ヘキサン(水質試験用) 8 mlを加え、時々振り混ぜながら数時間抽出し、ECD-GCで分析した。

2.6 大気中濃度の算出方法

濃度の算出方法は、以下のとおりである。なお、各物質の捕集係数等は前田らの数値を用いた。

$$C(\text{ppb}) = \{Q(\text{ng}) / (K \times t)\} \times \{(273 + T) / 293\}$$

C: 大気中濃度 (ppb)

Q: 活性炭エレメントへの有機塩素化合物の捕集量 (ng)

K: 捕集係数 ($\text{ng} \cdot \text{ppb}^{-1} \cdot \text{min}^{-1}$)

t: 暴露時間 (min)

T: 1ヶ月平均気温 ($^{\circ}\text{C}$)

3. 結果及び考察

3.1 サンプラーによる捕集量の累積性の検討

著者らは、当所の屋上(調査地点St.1に該当する)において6週間の累積性試験を行った。

その結果、PCMについては実験誤差と思われる継続測

定値が1週間累積値よりも上回ったが、4物質すべてについて3週間まではほぼ一致し、1ヶ月程度は八戸市の環境大気レベルでは平均濃度をモニタリングする上で支障のないことが確認された(図3)。

このことは、前田らの報告²⁾とほぼ同様の結果となった。

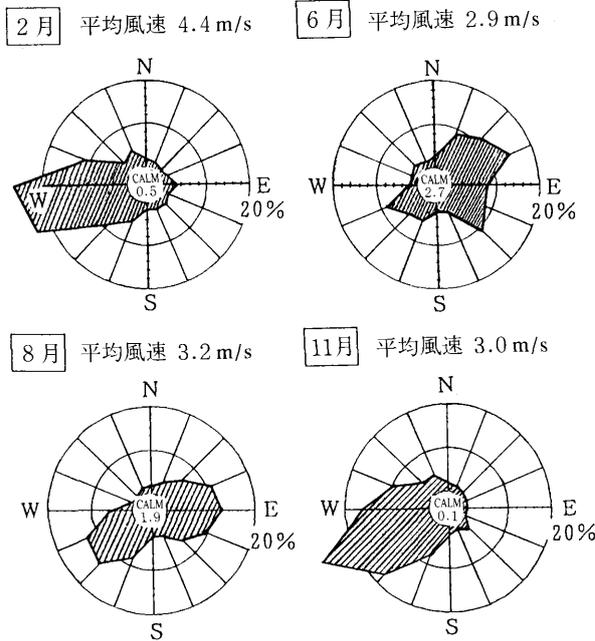


図4 調査期間中の風配図

3.2 サンプラー法による1ヶ月間平均濃度調査

(1) 調査期間中の気象

調査期間中の風向は、2月はW系、6月はNE～SE系、8月はE～SW系、11月はWSW系が主風向であった(図4)。

(2) 物質毎の調査結果

ア. 1,1,1-トリクロロエタン(以下、MCFと略す)

0.034～0.17ppbの濃度範囲にあり、各月とも全地点ではほぼ同程度の濃度であった。8月においては0.04ppb前後と他の月に比べ1/3～1/2の値であったが、その他の月は0.10ppb前後とほぼ同程度の濃度であった(図5, 表2)。

MCF使用事業場は、工専地域側及び郊外に存在し(図9)、調査地点から離れているA事業場(St.1とA事業場間約4.2km)が合計使用量のほとんどを占めており、他の事業場についてはわずかである。

今回の結果は、全地点でバックグラウンドレベルでの濃度変動であり、発生源による顕著な局地的汚染はみられなかったが、B～Dの事業場が立地している周辺のSt.2と3については他よりも若干高い濃度を示している(表2)。また、A事業場の使用量は全体的な濃度に反映していることも考えられる。

MCFのバックグラウンド濃度は、富永により103～476pptと報告されている¹⁾。その中で、例えば、北海道納沙布岬においては112～113pptという値が示されている。

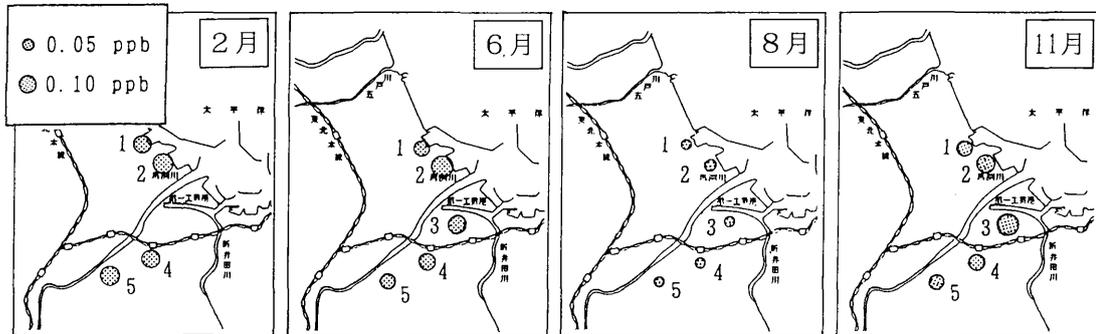


図5 1,1,1-トリクロロエタン(MCF)の濃度分布

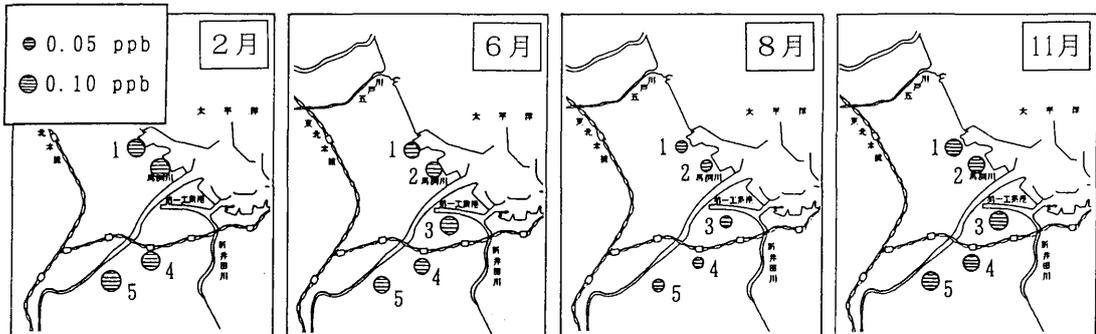


図6 四塩化炭素(PCM)の濃度分布

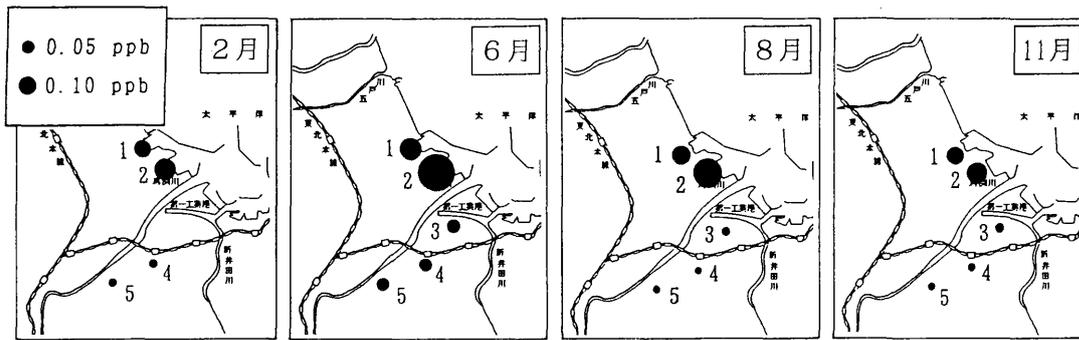


図7 トリクロロエチレン (TCE) の濃度分布

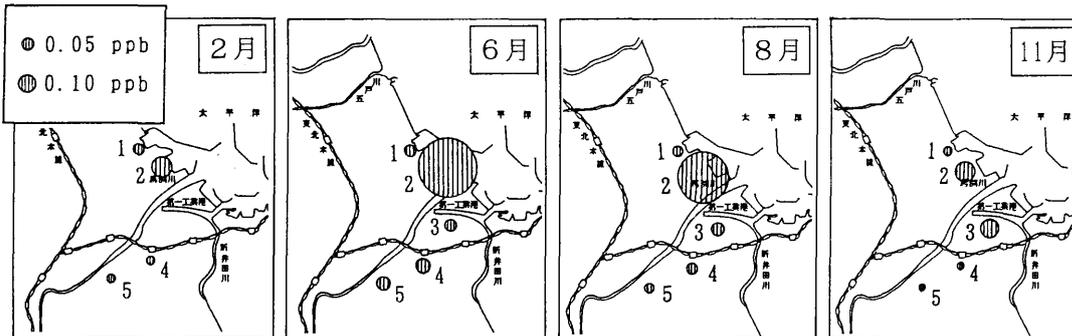


図8 テトラクロロエチレン (PCE) の濃度分布

また、他の自治体による報告^{8), 10)}を参考にしても平均的には0.1ppb程度が下限となっているが、中には0.1ppb未満の報告もされている¹¹⁻¹³⁾。これらに比べ八戸市での濃度は、St.2とSt.3以外は平均値が0.08ppb程度、8月は全地点で0.04ppb前後(表2)と、低い濃度を示している。MCF濃度は他の大気汚染物質と同様、発生源の稼働状況や気象状況等により大きく左右され、また、清浄地域については濃度が低いので、分析誤差等にも留意しなければならないが、長期的平均濃度及び瞬間濃度は厳密にとらえることが重要とされるので、低濃度領域での濃度について検討していきたい。

イ. 四塩化炭素 (以下、PCMと略す)

八戸市においてはPCMの発生源は把握されていない。濃度範囲は0.046~0.14ppbで、各月とも全地点でほぼ同程度の濃度であった。MCFと同様、8月は他の月に比べ全体的に約1/2低い濃度を示したが、その他の月は0.10ppb前後とほぼバックグラウンドレベルでの同程度の濃度であった(図6, 表3)。

ウ. トリクロロエチレン (以下、TCEと略す)

0.014~0.44ppbの濃度範囲にあり、6月は2月に比べ全地点で2~3倍増加し、8月、11月は低下して2月とほぼ同じレベルとなった。地点間の差は、各月とも工専地域であるSt.1,2が他地点と比べ4~8倍高い濃度であった(図7, 表4)。

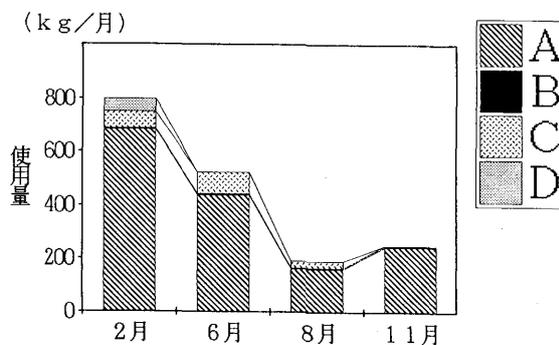
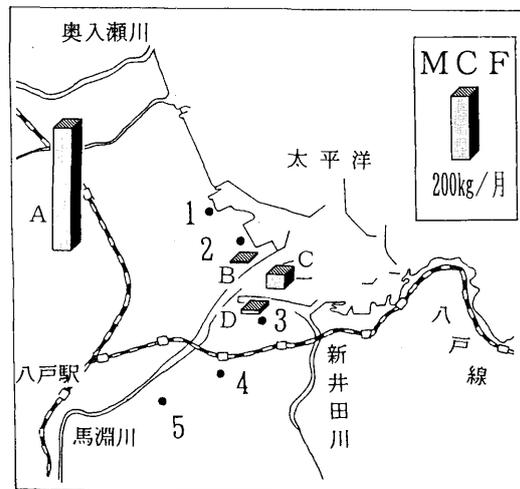
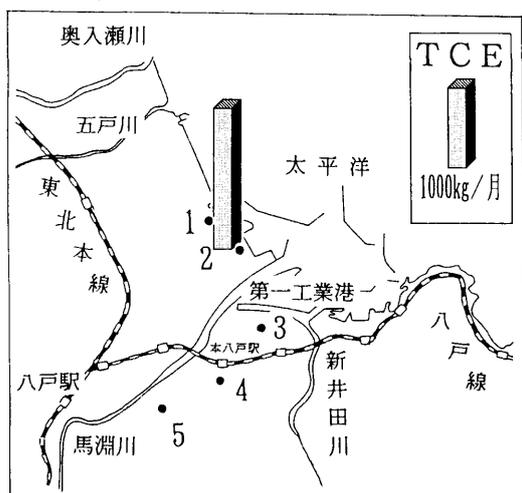


図9 1,1,1-トリクロロエタン使用事業場分布と使用量



(kg/月)

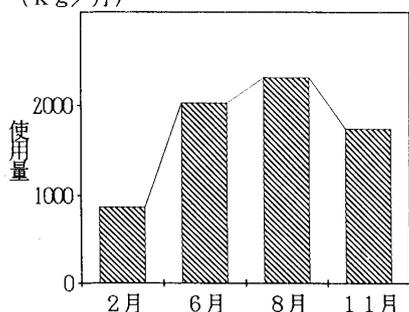


図10 トリクロロエチレン使用事業場分布と使用量

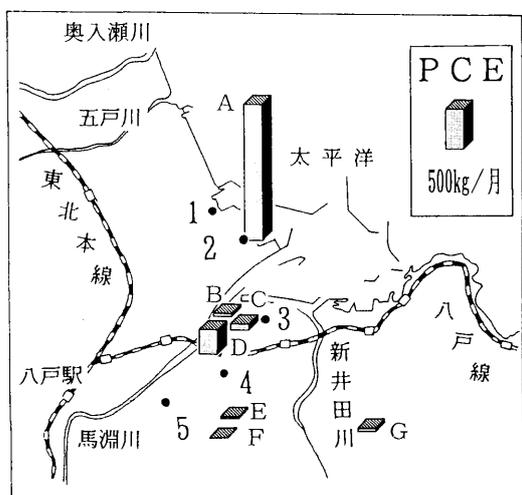


図11 テトラクロロエチレン使用事業場分布と使用量

TCE使用事業場は、St. 1と2の付近に1事業場存在しているが(図10)、汚染が長期的に偏在しているのはこの事業場によるものと考えられる。TCEの濃度レベルは大都市の工業地域よりは低いレベルであった⁸⁾。

St. 3, 4, 5についてはバックグラウンドレベルよりはやや高めではあるものの都市大気よりはかなり低いレベルであった⁸⁾。

表2 MCF濃度調査結果 単位: ppb

月	St. 1	St. 2	St. 3	St. 4	St. 5
2	0.11	0.14	—	0.11	0.12
6	0.090	0.16	0.12	0.097	0.082
8	0.036	0.048	0.037	0.035	0.034
11	0.097	0.12	0.17	0.098	0.087
平均	0.083	0.12	0.11	0.085	0.081

表3 PCM濃度調査結果 単位: ppb

月	St. 1	St. 2	St. 3	St. 4	St. 5
2	0.11	0.13	—	0.12	0.14
6	0.089	0.087	0.11	0.082	0.089
8	0.054	0.049	0.055	0.046	0.053
11	0.11	0.10	0.14	0.10	0.11
平均	0.091	0.092	0.10	0.087	0.098

表4 TCE濃度調査結果 単位: ppb

月	St. 1	St. 2	St. 3	St. 4	St. 5
2	0.089	0.16	—	0.018	0.018
6	0.15	0.44	0.053	0.047	0.051
8	0.11	0.27	0.021	0.014	0.015
11	0.11	0.15	0.028	0.018	0.018
平均	0.11	0.26	0.034	0.024	0.026

表5 PCE濃度調査結果 単位: ppb

月	St. 1	St. 2	St. 3	St. 4	St. 5
2	0.039	0.14	—	0.024	0.024
6	0.046	1.21	0.051	0.070	0.058
8	0.038	0.91	0.061	0.042	0.031
11	0.030	0.15	0.13	0.021	0.017
平均	0.038	0.60	0.081	0.039	0.033

エ. テトラクロロエチレン (以下、PCEと略す)

0.017~1.21ppbと広範囲の濃度分布を示した。6月は2月に比べ全地点で2~8倍であり、8月はやや低い値となったもののほぼ6月と同程度で、11月においては更に全体的に減少し、2月とほぼ同じレベルとなった。

地点差は、St. 2が他地点と比べ2月(冬季)、11月(秋季)は約6倍、6月及び8月(夏季)は約20倍と汚染が偏在していた(図8, 表5)。

発生源として、いくつかのクリーニング所が把握されているが(図11)、合計使用量の大半を占めている比較的大規模なクリーニング所がSt. 2の近く(St. 2とクリーニング所間約0.3km)に存在しているため、この付近に汚染が偏っており、6月と8月は東系の風向が多く使用事業場の風下方向に当たるため(図4)、2月及び11月の冬季に比べて特に汚染の影響が大きかったと考えられる。

ちなみに、調査期間中の溶剤使用量を調べたところ、各月ともほぼ一定と把握されており、今回の結果は主に風向等気象条件に影響されていると考えられる。

St.2以外の地点については、バックグラウンドレベルよりはやや高いが、比較的低濃度であった。

4. ま と め

八戸市内5地点において平成6年の四季にわたり実施した調査結果から以下のことがわかった。

(1) MCFとPCMについては、気象条件や地点によらずほぼ同程度であり、0.10ppb前後と低レベルであった。

TCEは、工専地域であるSt.1,2が、他地点と比べ高く、特にSt.2は6月が濃度が増大していたが、0.014~0.44ppbの濃度範囲であり都市大気と比較してさほど高くはなかった。

(2) 他の都市と八戸市の調査結果を比較すると、MCFについてはかなり低く(0.034~0.17ppb)、PCM(0.046~0.14ppb)、TCE(0.014~0.44ppb)、PCE(0.017~1.21ppb)についてはやや低めの濃度であった。また、大気環境指針(暫定値)のTCE47ppb及びPCE34ppb(標準状態での値)よりかなり低いレベルであることがわかった。

(3) PCEについては、St.2が6月、8月の夏季に0.91~1.21ppbと濃度が増大しており、クリーニング所近傍地点の濃度が高いことがわかった。

(4) 各溶剤の発生源分布及び調査期間毎の使用量との関係を見ると、TCEとPCEについて、発生源分布と汚染の地域分布にはほぼ対応がみられた。また、使用量と濃度との相関はあまり明確ではなかった。風向と濃度との相関はPCEについてのみ見られた。

(5) VCHの測定方法として、サンプラー法は1ヶ月程度は活性炭フェルトへの累積性は非常に優れており、又、設置等も簡易であり、多地点にわたる濃度分布調査及び長期的モニタリングには十分有用な手段であることがわかった。

本調査を行うにあたり、貴重な情報及び御助言を賜りました横浜市環境科学研究所の前田裕行氏並びに仙台市衛生研究所の玉川勝美氏に深く感謝します。

文 献

- 1) 富永 健：大気中のハロカーボンのバックグラウンド濃度，環境技術，**10**，344-348，1981.
- 2) 前田裕行，他：拡散型長期暴露サンプラーによるフロン類・有機塩素化合物の測定法（第1報），横浜市公害研究所報，**15**，13-19，1991.
- 3) 前田裕行，他：拡散型長期暴露サンプラーを用いた横浜市内における大気中のフロン及び有機塩素系物質濃度，横浜市環境科学研究所，**16**，127-130，1992.
- 4) 玉川勝美，他：フロン・低沸点有機ハロゲン化合物による環境大気汚染モニタリング，仙台市衛生研究所，**21**，367-383，1992.
- 5) 浦野紘平，他：低沸点有機塩素化合物の大気中濃度と摂取量評価，公害と対策，**24**，1369-1378，1988.
- 6) 浦野紘平，他：大気中有機汚染物質の長時間モニタリングのための改良型捕集方法，大気汚染学会誌，**27**，258-265，1992.
- 7) 川田邦明，他：大気中の低沸点有機塩素化合物の長時間捕集法の評価—Carbosieve G捕集剤とCargon BPL捕集剤との比較—，全国公害研会誌，**17**，177-181，1992.
- 8) 川田邦明，他：新潟地域における大気中の低沸点有機塩素化合物濃度，衛生化学，**39**，474-479，1993.
- 9) 小田淳子，他：低沸点有機塩素化合物の大気環境中濃度とその挙動，環境化学，**2**，479-491，1992.
- 10) 大野隆史，他：名古屋市域における大気中低沸点有機塩素化合物濃度について，名古屋市環境科学研究所報，**22**，59-68，1992.
- 11) 仲邦照，他：C₁~C₂ハロゲン化炭化水素（主に塩素化炭化水素）の分析法の検討，三重県環境科学センター研究報告，**3**，14-24，1982.
- 12) 富山県公害センター年報，**10**，33-46，1981.
- 13) 西浦貢，他：大気汚染物質の測定方法に関する研究（VI）—環境大気中のハロゲン化C₁~C₂炭化水素—，京都府衛生公害研究所年報，**30**，103-110，1985.

Abstract

**Concentration of Chlorinated Hydrocarbons in Environmental
Atmosphere in Hachinohe City**

**—Investigation of Pollutant with Passive
Sampler for Long-term—**

Noriko OKA¹, Seiichi KUDO¹ and Tetsuo NAKAMURA¹

A field survey on one month average concentration of chlorinated hydrocarbons in environmental atmosphere in Hachinohe City was made in five locations in the City using passive sampler for long-term on February, June, August and November for the purpose of understanding the concentration level of chlorinated hydrocarbons in environmental atmosphere in the City.

In result, nearly same degree of the pollution by 1,1,1-trichloroethane and carbon tetrachloride was observed regardless of the locations and seasons. Trichloroethylene and tetrachloroethylene pollution were found only in the exclusive industrial district, and tetrachloroethylene pollution was notable near a plant using it in summer in particular.

Key words : volatile chlorinated hydrocarbons (VCH), passive sampler for long-term, air pollution

1 : Aomori Prefectural Institute of Public Health and Environment

名久井岳における酸性雨と沢水の調査

工藤 隆治 野田 正志

八戸臨海工業地帯から、20km離れた山間部である名久井岳中腹において、酸性雨と沢水の調査を行った。

その結果、降水の冬季pH加重平均は、平成3年度から3年連続pH4台であり、当地域の降雪は酸性雪ということが明らかになった。また沢水では、春先において硝酸イオン濃度の増加が確認されたが、その影響によるpHの低下は見られなかった。

降水の影響は直に沢水に反映されておらず、また沢水の総アルカリ度は40度(0.8meq/l)と高かったことから、岩石土壌、草木等による緩衝能力が高いと推察され、当沢水は酸性化する恐れはほとんどないと考えられた。

Key words : acid rain, stream water, snow melt acidic shock

1. はじめに

酸性雨は地球規模の環境問題として、社会的に関心が高く、その発生機構、環境に及ぼす影響等について数多くの調査研究がなされている。

当所はこれまで、八戸市内において調査を行ってきたが、臨海工場地帯からのばい煙、スパイクタイヤによる道路粉じんの影響が考えられ、また沿岸地域であることから海塩の影響も大きく、調査結果については地域条件および地理的条件を十分考慮し評価を行う必要があるものと考えられた。

そこで、八戸市から約20km離れた山間部に位置し、都市活動による影響が少ないと考えられる名久井岳中腹名川町法光寺において、酸性雨の実態把握のため、平成3年度より調査を開始した。

平成3年度全国調査結果¹⁾の降水成分濃度・降水量による清浄度評価では、当調査地点は清浄地域とされ、また非海塩由来濃度による評価では全国第3位の清浄度であり、酸性雨調査地点として適当であると考えられた。

平成3年度のpHの加重平均はpH5.2と全国的にみると高めではあったものの、降雪期はpH4台と低く推移し、当地域の降雪は酸性雪ということが明らかになったことから、融雪初期の酸性成分流出について、その実態を把握するため調査を開始した。

今回、平成5年度の調査結果を中心に、名久井岳における降水と沢水の状況およびその関係について検討を加え若干の知見を得たので報告する。

2. 調査方法

2・1 調査期間

平成4年11月2日～6年4月11日

2・2 採取間隔

一週間毎

2・3 採取方法

降水はろ過式採取装置(11月～3月はポリバケツ)によるろ液。沢水は降水回収時に採取した。

2・4 分析方法

表1のとおり。酸性雨等調査マニュアル(改訂版)²⁾、衛生試験法注解³⁾による。

表1 分析項目および分析方法

分析項目	分析方法
pH	ガラス電極法
SO ₄ ²⁻ , NO ₃ ⁻ , Cl ⁻	イオンクロマト法
Na ⁺ , K ⁺ , Ca ²⁺ , Mg ²⁺	原子吸光法
NH ₄ ⁺	インドフェノール法
総アルカリ度	MR混液—硫酸滴定法

3. 調査地点の概要

名久井岳は青森県南の岩手県境付近にあり(図1)、標高は615m、地質は両輝石安山岩などからなる⁴⁾。

雨水採取地点は、名久井岳東斜面中腹標高270m地点(三戸郡名川町法光寺)。

沢水採取地点は標高220m地点であり、雨水採取地点との直線距離は約300m。また上流に民家はない。

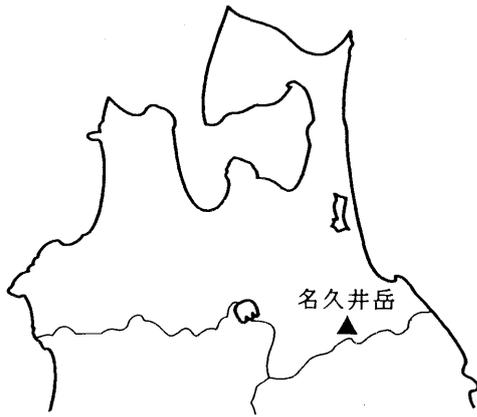


図1 測定地点

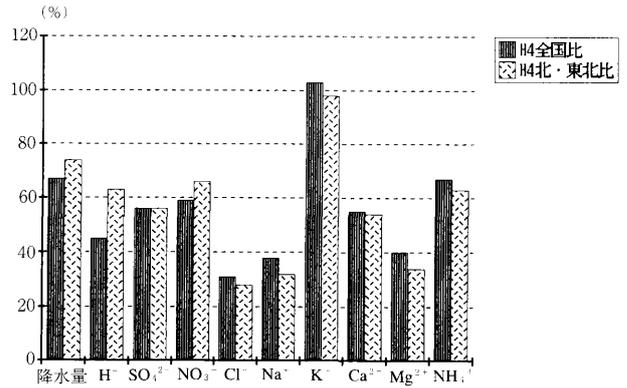


図2 降水成分降下量の比較 (平成4年度)

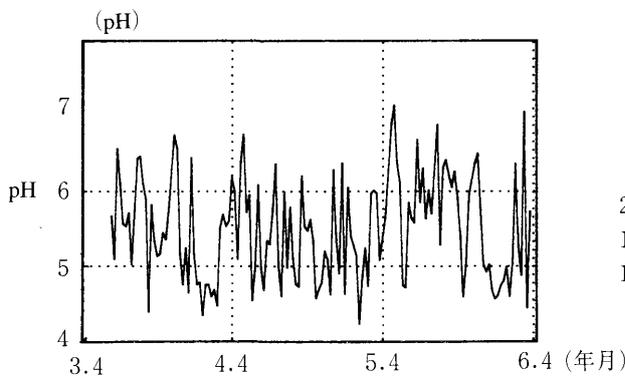


図3 降水 pH 経年変化

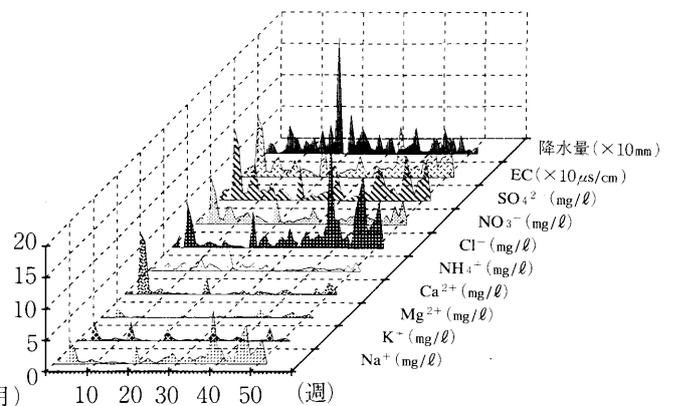


図4 降水成分測定結果 (平成5年度)

4. 結果および考察

4.1 降水の特性

(1) 平成4年度の成分降下量 (全国調査結果との比較)

平成4年度の全国調査結果⁵⁾と比較すると、pHは加重平均でpH4.9であり、全国平均のpH4.7、北海道・東北地域のpH4.8と同レベルであった。

降水量は全国平均の約7割と少なく、また各成分の降下量については、K⁺は全国平均の降下量があるものの、他の成分は降水量の比よりも少なく、とりわけ海塩成分であるCl⁻、Na⁺、Mg²⁺は全国平均の4割以下と少なかった (図2、表2)。

(2) 平成5年度の降水状況

平成5年度のpH加重平均はpH5.3と平成4年度 (pH4.9) より高かった。しかし、降雪期のpHは平成3年度と同様にpH4台と低く推移した (図3)。

また、冬期のpH加重平均は平成3年度 (pH4.9)、4年度 (pH4.6)、平成5年度 (pH4.9) と、いずれの年もpH4台であり、当地域の降雪は酸性雪ということが明らかになった。

a. 降水成分の季節変化

各成分の降下量が最も多かった季節は、

春季：NO₃⁻、Ca²⁺

夏季：K⁺、NH₄⁺、(降水量)

秋季：(なし)

冬季：H⁺、SO₄²⁻、Cl⁻、Na⁺、Mg²⁺

であった (図4、表3)。

また、濃度が最も高かった季節は、K⁺が春季になる他は降下量と同じであった。

b. 降水成分の相関

降水量と他の項目の相関の符号はすべて負であり、降水量が多くなると、各成分濃度は低くなる傾向にあった。

pHは、K⁺とCa²⁺に正の相関が高く、K⁺とCa²⁺の濃度が高くなるとpHは上がる傾向にあった。

EC、SO₄²⁻、NO₃⁻、Cl⁻、Na⁺、K⁺、Ca²⁺、Mg²⁺、NH₄⁺の9項目についてみると、相関の符号はすべて正であった。またNH₄⁺を除くと、すべて危険率5%以下で相関があり、多くは危険率1%以下と相関が高かった (表4)。

c. 変動因子の推定

降水成分の因子分析（反復主因子法）を行った結果は以下のとおりであった（表5）。

なお、非海塩起源の成分（以後nssと表示）は次式⁶¹により算出した。

$$\begin{aligned} \text{nss-SO}_4^{2-} &= \text{SO}_4^{2-} - 0.251 * \text{Na}^+ \\ \text{nss-Ca}^{2+} &= \text{Ca}^{2+} - 0.038 * \text{Na}^+ \\ \text{nss-K}^+ &= \text{K}^+ - 0.036 * \text{Na}^+ \end{aligned}$$

第1因子は、nss-Ca²⁺、NO₃⁻、nss-SO₄²⁻の負荷量が高く、人為起源の汚染因子と考えられた。またMg²⁺も抽出されたが、次の第2因子での関連が高かった。

第2因子は、Cl⁻、Na⁺、Mg²⁺の負荷量が高く、海塩起源の因子と考えられた。

第3因子は、NH₄⁺の負荷量が高く、その他弱いながらもNO₃⁻、nss-SO₄²⁻の負荷があり、硝酸アンモニウム塩、硫酸アンモニウム塩の存在が考えられた。

これらの塩の起源として、八戸市の都市活動の影響が考えられ、今後の検討課題である。

固有値1以上は第1因子～第3因子までで、第3因子までの累積寄与率は91%であった。

d. pHの変動因子

当量濃度により、H⁺を目的変数として変数増減法による重回帰分析を行った。

その結果得られた重回帰式は以下のとおりであった。

$$\begin{aligned} \text{H}^+ &= 1.486 + 0.138 * \text{nss-SO}_4^{2-} + 0.532 * \text{NO}_3^- \\ &\quad - 0.151 * \text{nss-Ca}^{2+} - 0.144 * \text{NH}_4^+ - 0.132 * \text{nss-K}^+ \end{aligned}$$

重相関係数 R=0.787

偏相関係数 nss-SO₄²⁻ : 0.402, NO₃⁻ : 0.531

nss-Ca²⁺ : -0.717, NH₄⁺ : -0.499, nss-K⁺ : -0.326

H⁺当量濃度観測値と上記重解析式による推定値は、一致しているとはいえないが（図5）、H⁺を高める成分はNO₃⁻、nss-SO₄²⁻、中和にはたらく成分はnss-Ca²⁺、NH₄⁺、K⁺であることが分かった。

以上の結果をもとにpH、A：(nss-SO₄²⁻+NO₃⁻)、C：(nss-Ca²⁺+NH₄⁺+nss-K⁺) の関係をみた。

pHとA/(A+C)の関係は相関係数-0.772と相関が高かったものの、散布図ではばらついた（図6）。

pHとA-Cでは、当量差が0より少し小さい時はpH6より高く、当量差が0付近においてpH6からpH5に急激に低下し、当量差が0より少し大きくなると、pH4台が出現していたことが分かった（図7）。

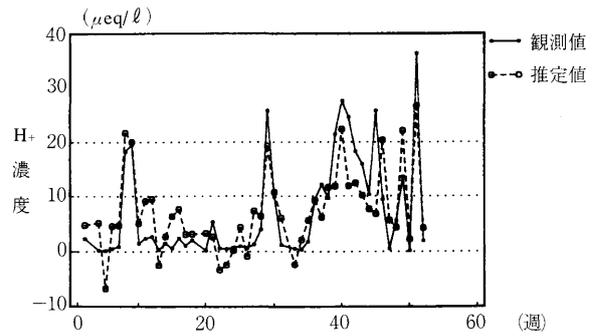


図5 H⁺濃度の観測値と推定値

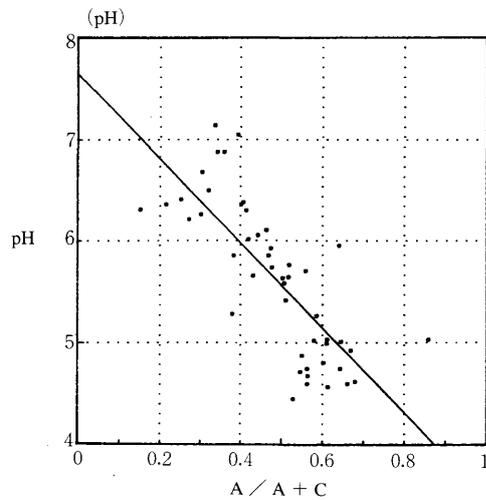


図6 pHとA/A+Cの散布図

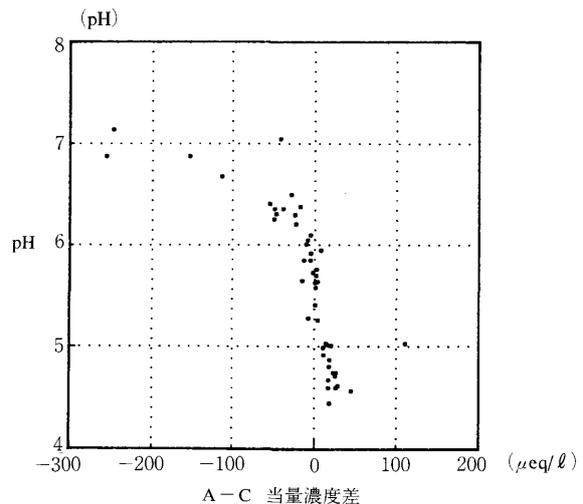


図7 pHとA-Cの散布図

表2 ろ過式ろ液による降下量 (mm, meq/m²/年間)

(平成4年度)

	降水量	pH	H ⁺	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	NH ₄ ⁺
全 国	1449	4.7	29.1	78.4	30.1	136.8	109.9	5.9	40.2	27.6	40.6
北海道・東北	1315	4.8	20.8	78.3	26.9	156.0	128.7	6.2	41.4	32.3	43.3
名久井岳	968	4.9	13.1	44.0	17.8	42.9	41.6	6.1	22.3	11.0	27.1

表3 名久井岳におけるろ過式ろ液による降下量 (mm, meq/m²)

(平成5年度)

	降水量	pH	H ⁺	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	NH ₄ ⁺
名久井岳 (年間)	1033	5.3	5.42	29.63	12.70	38.70	32.86	6.20	13.25	8.61	23.98
(春季:84日)	190	5.4	0.71	8.70	<u>4.46</u>	4.78	4.37	2.01	<u>8.16</u>	1.96	6.48
(夏季:91日)	<u>465</u>	5.7	0.95	6.16	3.24	5.26	3.73	<u>2.15</u>	0.77	0.74	<u>11.09</u>
(秋季:91日)	188	5.2	1.32	5.12	2.32	10.52	9.36	1.27	1.79	2.35	2.92
(冬季:91日)	190	<u>4.9</u>	<u>2.44</u>	<u>9.65</u>	2.68	<u>18.13</u>	<u>15.41</u>	0.77	2.53	<u>3.56</u>	3.49

表4 降水濃度相関 (平成5年度)

	降水量	pH	EC	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	NH ₄ ⁺	nss-SO ₄ ²⁻	H ⁺	nss-K ⁺	nss-Ca ²⁺
降水量															
pH	-0.03														
EC	-0.40**	0.06													
SO ₄ ²⁻	-0.37**	0.03	0.91**												
NO ₃ ⁻	-0.35*	0.14	0.80**	0.87**											
Cl ⁻	-0.32*	-0.14	0.81**	0.59**	0.33*										
Na ⁺	-0.33*	-0.14	0.83**	0.63**	0.36*	0.99**									
K ⁺	-0.28	0.46**	0.50**	0.42**	0.44**	0.31*	0.29*								
Ca ²⁺	-0.22	0.42**	0.74**	0.79**	0.86**	0.30*	0.34*	0.50**							
Mg ²⁺	-0.34*	0.11	0.94**	0.81**	0.67**	0.86**	0.87**	0.53**	0.71**						
NH ₄ ⁺	-0.29*	0.20	0.40**	0.44**	0.56**	0.11	0.10	0.15	0.27	0.16					
nss-SO ₄ ²⁻	-0.34*	0.06	0.84**	0.99**	0.90**	0.46**	0.50**	0.41**	0.81**	0.73**	0.47**				
H ⁺	-0.17	-0.85**	0.31*	0.30*	0.20	0.36*	0.37**	-0.21	-0.12	0.19	0.07	0.26			
nss-K ⁺	-0.26	0.48**	0.43**	0.37**	0.41*	0.22	0.20	1.00**	0.48**	0.46**	0.14	0.38**	-0.25		
nss-Ca ²⁺	-0.21	0.43**	0.72**	0.78**	0.85**	0.26	0.31*	0.49**	1.00**	0.69**	0.27	0.80**	-0.13	0.47**	

(**: r>0.36は, 危険率1%で有意。*: r>0.28は, 危険率5%で有意。)

表5 降水因子分析解析結果 (平成5年度)

(直交回転後の固有値・寄与率・因子負荷量)

成分	因子1	因子2	因子3	因子4	因子5
固有値	2.77	2.74	1.03	0.96	0.53
累積寄与率	0.57	0.79	0.91	0.98	1.00
NO ₃ ⁻	<u>0.85</u>	-0.17	<u>-0.38</u>	-0.17	-0.23
Cl ⁻	0.12	<u>-0.97</u>	-0.06	-0.16	-0.10
NH ₄ ⁺	0.24	-0.02	<u>-0.88</u>	-0.03	-0.03
Mg ²⁺	<u>0.55</u>	<u>-0.78</u>	-0.00	-0.03	-0.28
Na ⁺	0.18	<u>-0.97</u>	-0.04	-0.16	-0.03
nss-SO ₄ ²⁻	<u>0.78</u>	-0.31	<u>-0.30</u>	-0.20	-0.17
nss-K ⁺	0.33	-0.17	-0.05	0.25	-0.57
nss-Ca ²⁺	<u>0.96</u>	-0.17	-0.05	0.21	-0.13
H ⁺	0.03	-0.24	-0.04	<u>-0.86</u>	0.16

4・2 沢水成分の特性

(1) 各成分の濃度変化

全体的に各成分濃度は年間を通して比較的安定していた(図8)。

a. pH: 平均pH7.45, 範囲pH6.93~pH7.85, 変動係数2.8%と安定しており, 秋から冬にかけて若干低くなっていたが, 春先の融雪時においてpHの低下は見られなかった。

b. 電導率: 平均126 μ S/cm, 範囲107~136 μ S/cm, 変動係数5.0%と安定しており, 夏から秋に高く, 春先に低くなる要因があると考えられた。

c. SO_4^{2-} : 平均8.00mg/l, 範囲6.99~9.74mg/l, 変動係数8.3%と比較的安定しているが, 平成6年春先はやや高かった。

これは次に述べる NO_3^- と同様に, 融雪初期において酸性成分が流出していると考えられた。

また, 一般的に SO_4^{2-} は NO_3^- に比べ, 難溶性塩を生成することから, 沢水には NO_3^- ほど顕著な濃度の上昇が現れないことも考えられた。

なお平成5年春先(4/5採取)の濃度は低下していたが, EC, Na^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} も低下しており, これは降雨⁷⁾(4/1,3,4)による影響と考えられた。

d. NO_3^- : 平均4.02mg/l, 範囲2.39~7.08mg/l, 変動係数27.5%と大きな変動があった。春先に高く秋に低いという明確な季節変化があり, 融雪初期において NO_3^- が高濃度になることが確認された。

融雪の際, 酸性成分が高濃度で溶け出すという報告があり, また土壌はマイナスに荷電していることから, NO_3^- は吸着・保持されにくいと言われており⁸⁾, 溶け出した NO_3^- が高濃度で沢水に出現すると考えられた。

また NO_3^- は窒素換算で最高1.6mg/l, また年間の75%値評価では約0.9mg/lと農業用水基準値に近かった。

e. Cl^- : 平均6.16mg/l, 範囲5.35~7.41mg/l, 変動係数6.6%と変動は安定していた。なお平成5年の春先は高めに推移したが, その後は非常に安定しており, 季節変化はないものと思われた。

f. Na^+ : 平均8.51mg/l, 範囲7.16~9.56mg/l, 変動係数5.7%と変動は安定していた。

g. K^+ : 平均1.01mg/l, 範囲0.76~1.21mg/l, 変動係数13.1%と変動があり, 夏に高く冬に低いという季節変化がみられた。

h. Ca^{2+} : 平均11.4mg/l, 範囲7.88~13.1mg/l, 変動係数12.5%と変動があった。平成6年1月中旬までは比較的安定していると思われた Ca^{2+} 濃度はその後低くなった。

その原因は不明であるが, Ca^{2+} 降水量が減少したことが一因と考えられた。

i. Mg^{2+} : 平均2.73mg/l, 範囲2.23~3.06mg/l, 変動係数6.9%であり安定していた。平成6年2月より若干ではあるが, 濃度が高くなったように思われた。

j. NH_4^+ : 平均0.03mg/l, 範囲0.00~0.08mg/l, 変動係数70.8%と非常に大きな変動があるが, 定量下限値付近の数値が多く, 分析誤差によるものが大きいと思われる。

NH_4^+ は NO_3^- に酸化されていると考えられ, 他の成分と関連づける場合には, 注意を要すると考えられた。

k. ECo/ECcal

年間を通じて1.2~1.3であった。

1. イオンバランス

Total-Cation (H^+ , Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , NH_4^+)とTotal-Anion (SO_4^{2-} , NO_3^- , Cl^-)の当量濃度は, T-C: 1.2meq/l, T-A: 0.4meq/lと今回の測定項目のみではT-Cがかなり過剰であった。またT-Cは春先に低く夏場に高く, T-Aは春先に高く, T-C/T-Aは春先に低く, 夏から秋にかけて高くなっていた。

m. 総アルカリ度

平成6年7月~11月の総アルカリ度は40~50度(当量濃度0.8~0.9meq/l)であった。

0.15meq/lのアルカリ度のある河川・湖沼は, 同じ量のpH3.8の雨水を中和でき, また0.1meq/l程度以上のアルカリ度があればその河川はすぐに酸性化する心配はないと言われている。

今回の沢水の調査において, 現状では沢水の酸性化の恐れはほとんどないと考えられた。

(2) 沢水成分の相関

H^+ は, SO_4^{2-} , NO_3^- と負の相関があり, これら酸性成分濃度が増加しても, H^+ は増加していなかった。

ECは, 陽イオン成分と正の相関が高かったことから, ECの変動は, 主に陽イオン濃度が影響しているものと考えられた。

各成分間の相関は, Ca^{2+} と K^+ の相関が最も高く, 次に Na^+ と Mg^{2+} であり, 塩基性成分間での相関が高かった。また酸性成分の SO_4^{2-} と NO_3^- で相関があり, さらに SO_4^{2-} は, Ca^{2+} ・ K^+ と正の相関, Na^+ ・ Mg^{2+} と負の相関があった(表6)。

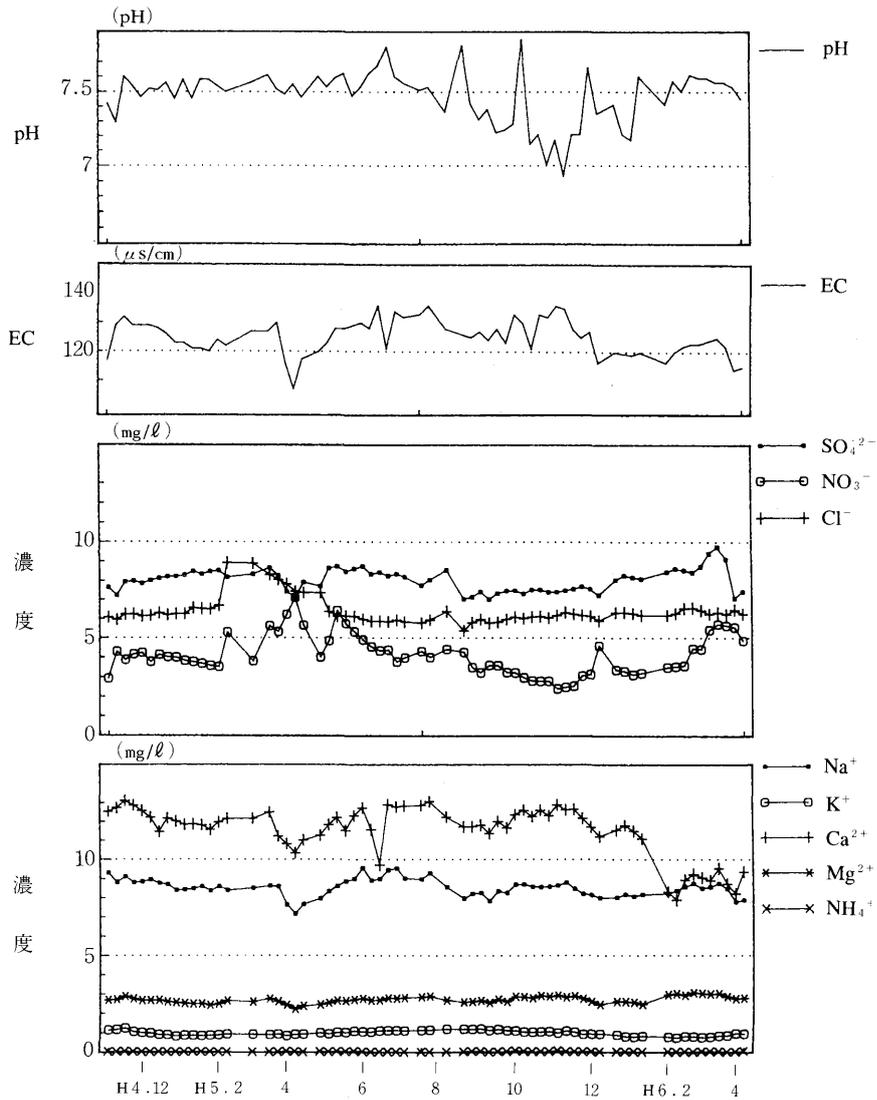


図8 沢水成分測定結果

表6 沢水濃度相関 (平成5年度)

	pH	EC	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	NH ₄ ⁺	H ⁺
pH											
EC	-0.15										
SO ₄ ²⁻	0.37*	-0.03									
NO ₃ ⁻	0.52**	-0.34*	0.50**								
Cl ⁻	-0.02	-0.53**	0.14	0.33*							
Na ⁺	0.17	0.69**	0.42**	-0.04	-0.46**						
K ⁺	-0.11	0.56**	-0.48**	-0.16	-0.48**	0.30*					
Ca ²⁺	-0.27	0.53**	-0.49**	-0.31*	-0.33*	0.31*	0.73**				
Mg ²⁺	-0.06	0.43**	0.42**	-0.26	-0.26	0.57**	-0.22	-0.24			
NH ₄ ⁺	-0.17	0.23	-0.11	-0.13	-0.10	0.07	0.10	0.16	0.20		
H ⁺	-0.96**	0.22	-0.40**	-0.56**	-0.02	-0.10	0.15	0.31*	0.10	0.17	

(** : r > 0.38は、危険率1%で有意。* : r > 0.29は、危険率5%で有意。)

4.3 降水と沢水の関係

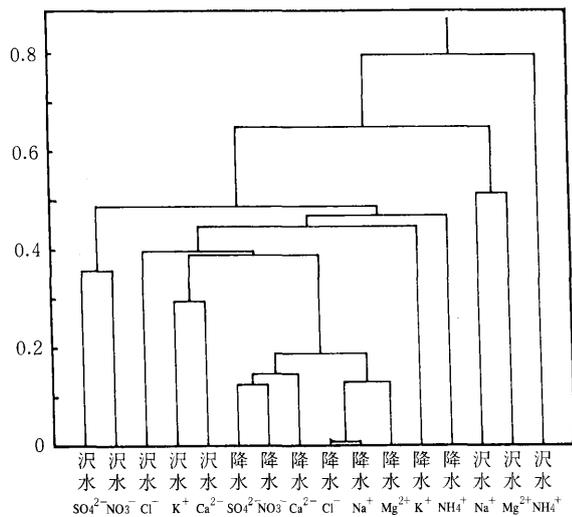
(1) 濃度の変動

各成分の濃度は、降水では検体毎の変動が大きく、降水量と負の相関があるのに対し、沢水では年間を通して比較的安定しているものが多かった。

(2) 相関

降水と沢水の同成分間の相関は SO_4^{2-} と NO_3^- 以外は低かった。また他成分間では、相関が有意と見られた成分はいくつかあった(表7)。

しかし、降水と沢水は前述のとおりの変動があること



サンプル数 = 44
 類似度計算方法 = 1 - (相関係数の絶対値)
 分析手法 = 最短距離法

図9 降水・沢水成分濃度のテンドログラム

から、相関が高いと見られた成分間でも、散布図はばらついており、関係があるとは言えないようであった。

クラスター分析を行った結果、降水成分(SO_4^{2-} , NO_3^- , Ca^{2+} , Cl^- , Na^+ , Mg^{2+})の関連性が高く一群を形成した。また、沢水(SO_4^{2-} , NO_3^-)、沢水(K^+ , Ca^{2+})でそれぞれ群を形成したが、その他は関連性が低く、降水成分濃度と沢水成分濃度の関連性は見いだせなかった(図9)。

(3) 濃縮率

降水に対する沢水の各成分の濃度は、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Cl^- 、 K^+ は6倍前後であるのに対し、 Na^+ は20倍、 Ca^{2+} は155倍、 Mg^{2+} は47倍と、これら陽イオンの増加が著しかった。 NH_4^+ は沢水中にほとんどないため0.08倍と減少した。

次に Na^+ の濃縮率を基準と仮定し検討した。

Na^+ の濃縮率を1とすると、平均で SO_4^{2-} :0.6、 NO_3^- :0.7、 Cl^- :0.4、 K^+ :0.6、 Ca^{2+} :9.3、 Mg^{2+} :2.3であった。また Ca^{2+} 、 Mg^{2+} は最低でも Ca^{2+} :0.4、 Mg^{2+} :0.7と大きく、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} の著しい増加の理由として岩石土壌からの交換性塩基成分の溶出が考えられた。

6. ま と め

名久井岳において、酸性雨と沢水の調査を行った。平成5年度を中心に検討した結果は次のとおりである。

(1) 降水について

pH加重平均はpH5.3であった。また冬季のpH加重平均はpH4.9であり、当地域の降雪は酸性雪ということが明らかになった。

pHの変動要因は、酸性成分($\text{nss-SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-$)と塩基性成分($\text{nss-Ca}^{2+} + \text{NH}_4^+ + \text{nss-K}^+$)の当量濃度差によると考えられた。

(2) 沢水について

春先において、沢水の NO_3^- 濃度が上昇することが確

表7 降水・沢水濃度相関(平成5年度)

	沢 水										
	pH	EC	SO_4^{2-}	NO_3^-	Cl^-	Na^+	K^+	Ca^{2+}	Mg^{2+}	NH_4^+	
降水	pH	-0.04	0.27	-0.11	0.05	0.08	0.04	0.35*	0.18	-0.12	-0.04
	EC	0.07	-0.38*	0.36*	0.06	0.57**	-0.17	-0.44**	-0.31*	-0.00	0.04
	SO_4^{2-}	0.15	-0.30	0.41**	0.17	0.53**	-0.04	-0.36*	-0.24	-0.02	0.06
	NO_3^-	0.17	-0.16	0.32*	0.22	0.52**	0.02	-0.16	-0.03	-0.13	0.17
	Cl^-	-0.03	-0.45**	0.28	-0.10	0.44**	-0.29	-0.57**	-0.46**	0.14	-0.01
	Na^+	0.01	-0.47**	0.31*	-0.07	0.46**	-0.29	-0.60**	-0.48**	0.15	0.01
沢水	K^+	-0.01	0.04	-0.00	-0.13	0.36*	0.07	0.09	0.05	-0.11	0.00
	Ca^{2+}	0.12	-0.20	0.17	0.17	0.53**	-0.17	-0.13	-0.04	-0.26	0.02
	Mg^{2+}	0.02	-0.41**	0.24	-0.03	0.62**	-0.28	-0.44**	-0.32*	-0.03	0.01
	NH_4^+	0.14	0.09	0.25	0.17	-0.03	0.35*	0.18	0.15	-0.01	0.10

(** : $r > 0.39$ は、危険率1%で有意。* : $r > 0.31$ は、危険率5%で有意。)

認された。しかしpHの低下は見られなかった。

沢水の総アルカリ度は40度 (0.8meq/l) と十分に高かったことから、今後とも酸性化の恐れはほとんどないと考えられた。

(3) 降水と沢水の関係について

降水の影響は、直には沢水に反映されていなかった。

Ca²⁺、Mg²⁺は、降水に対する沢水濃度の増加率が高く、岩石土壌からの交換性塩基成分の溶出が考えられた。

当所では前述のとおり、工業都市である八戸市と、清浄地域である名久井岳 (名川町法光寺) ではほぼ同時に測定しており、これら2地点の距離は20kmであることから、汚染質の近中距離輸送について今後検討したい。

文 献

- 1) 全国公害研協議会酸性雨研究部会：平成3年度酸性雨全国調査結果報告書，平成5年3月。
- 2) 環境庁大気保全局：酸性雨等調査マニュアル (改訂版)，平成2年3月。
- 3) 日本薬学会編：衛生試験法・注解，1980。
- 4) 東奥日報社編：青森県百科事典，662，昭和56年3月。
- 5) 全国公害研協議会編集委員会：平成4年度酸性雨全国調査結果報告書，全国公害研会誌，19，1-66，1994。
- 6) 酸性雨調査法研究会：酸性雨調査法，株式会社ぎょうせい，平成5年6月。
- 7) 日本気象協会青森支部：青森県気象月報，平成5年4月。
- 8) 國松孝男：流域からの窒素負荷流出，環境と測定技術，121，51-67，1994。
- 9) 全国公害研協議会北海道・東北支部酸性雨調査部会：北海道・東北ブロック酸性雨合同調査結果解析報告書 (昭和62～平成3年度)，平成5年5月。
- 10) 全国公害研究協議会北海道・東北支部酸性雨調査研究専門部会：北海道・東北ブロック酸性雨合同調査結果 (平成4年度降雪期)，平成6年5月。

Abstract

Study on Acid Rain and Stream Water in Mount Nakui

Ryuji KUDO¹ and Masashi MODA¹

A study on acid rain and stream water was made in a middle location of Mount Nakui, a mountainous region, 20km apart from Hachinohe coastal industrial zone.

The weight average value of pH of precipitation in winter was between 4.6 and 4.9 for continuous three years since 1992 showing the snow in this area is acid snow. The stream water was confirmed that it contained increase nitrate ion in early spring, however the lowering of pH thereby was not observed.

Influence of the precipitation was not directly reflected to the stream water. Total alkalinity of the stream water was as high as 40 degree (0.8meq/l). These suggest that the buffering capacity of stones and rocks, soil trees and plant is large enough and the possibility of acidifying the stream water in this area is very little.

Key words : acid rain, stream water, snow melt acidic shock

1 : Aomori Prefectural Institute of Public Health and Environment

気象条件による降水中化学成分の特性 — 青森県南地域における事例 —

工藤 精一 野田 正志 岡 典子 工藤 隆治 中村 哲夫

青森県南地域の名川、八戸の酸性雨調査の結果をもとに、気象条件と降水中の化学成分との関連をみた結果、名川、八戸の両地点のpH低下の2つの事例は寒冷前線通過時にみられ、降水中の化学成分はNa⁺、Cl⁻、Ca²⁺の成分組成が低く、SO₄²⁻、NO₃⁻が高かった。また、SO₄²⁻、NO₃⁻の降下量も多かった。

さらに、台風の影響は海塩起源のNa⁺及びCl⁻の降下量に顕著に現れ、通過経路により差異があった。

Key words : acid rain, cold front, typhoon, sea salt

1. はじめに

大気汚染物質が長距離輸送されることによって引き起こされる広域的な大気汚染や酸性雨現象が環境問題となっており、全国公害研協議会による酸性雨の調査等多くの報告がなされている¹⁻⁶⁾。

この大気汚染物質の輸送や雨水中への取り込み等は気象条件に影響されることが多いため、降水中の化学成分の解析には気象条件を考慮することが重要である。小山らは降水の低pHをもたらす気象条件について検討を加え⁷⁾、さらに田中ら⁸⁾、矢滝ら⁹⁾により雨水中の化学成分に影響を与える気象条件の検討がなされている。

著者は、青森県南地域の一戸市、名川町における2地点の酸性雨調査の測定結果をもとに、気象条件と降水中の化学成分の特性を地域的に把握することを目的として二、三の事例について解析を行ったので報告する。

2. 調査方法

2.1 調査期間

1991年(平成3年)4月~1993年(平成5年)3月
(名川は、1991年6月~1993年3月)

2.2 調査地点(図1)

八戸圏域水道企業団馬淵営業所法光寺配水場(所在地:三戸郡名川町、名川と略す。)

八戸東運動公園(所在地:八戸市湊高台、八戸と略す。)

なお、名川は全国公害研協議会の調査では清浄地域に、八戸は一般環境地域に区分されている。

2.3 測定方法

降水の採取は、4月から11月はろ過式採取法により、12月から3月はポリバケツにより行った。

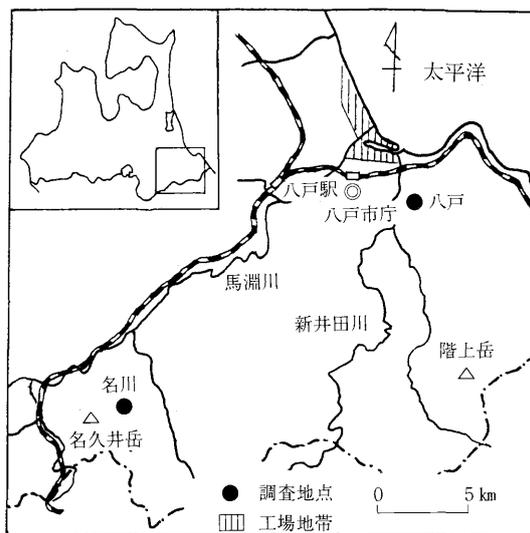


図1 調査地点

表1 測定項目及び分析方法

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

(注) 海塩起源の成分(以下、ssと略す。)及び非海塩起源の成分(以下、nssと略す。)は、次式により算出した¹⁰⁾。ただし、単位はmg/lである。

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

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

表2 年間降水量及び降下量

(単位: mm, meq/m²/年)

地点	降水量	pH	H ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	nss-SO ₄ ²⁻	N/nss-S
名川	968	4.9	13.1	41.6	27.1	6.1	22.3	11.0	42.9	17.8	44.0	39.0	0.46
八戸	844	5.3	4.4	106.2	34.1	5.4	62.2	25.8	126.9	17.6	62.3	49.5	0.36
全国	1449	4.7	29.1	109.9	40.6	5.9	40.2	27.6	136.8	30.1	78.4	65.2	0.46

測定項目及び分析方法は表1のとおりである。

2・4 使用データ

全国公害研協議会の酸性雨調査に従い実施している1週間毎の測定データのうち、可溶性成分のデータを用いた。

風向、風速等の気象データは、八戸は八戸測候所のデータを用い、名川は調査地点に最も近い三戸観測所(三戸中央公民館)のデータを用いた。

3. 結果と考察

3・1 名川と八戸の降水量及び降下量

名川と八戸の平成4年度の年間降水量及び降下量(加重平均)を全国レベル¹⁾と比較すると降水量は少なく、pHはやや高かった。

海塩起源の成分とされるNa⁺、Mg²⁺、Cl⁻の降下量は、沿岸地域の八戸が全国平均に近い値であるが名川は約4割であった。

Ca²⁺は、名川が全国平均の約1/2であり、八戸は1.5倍であった。

また、人為起源の成分のnss-SO₄²⁻は名川が全国平均の約6割であり、八戸が約8割であるが、NO₃⁻は両地点とも約1/2であった。N/nss-S比(NO₃⁻/nss-SO₄²⁻)は名川が全国平均と同じ0.46であり、八戸は0.36でNO₃⁻降下量の割合が低めであった(表2)。

さらに、平成4年度の降水中の平均当量濃度から陽イオン、陰イオン別に化学成分組成を求めたものを図2に示す。名川は八戸に比べCa²⁺及び海塩起源とみられるNa⁺、Cl⁻は低かったが、SO₄²⁻、NO₃⁻の成分組成は高かった。

3・2 貯水量とpHの週変化

平成3～4年度の名川と八戸の各週毎の貯水量とpHの変化を図3、4に示す。

貯水量の最大値は名川が8230ml、八戸が4580mlと両地点とも平成3年10月第2週(10/7～10/14)にみられ、台風による降雨に伴う突出した値であると考えられる。

また、pHの範囲は名川が4.23～6.75であり、八戸が4.37～7.50であった。低いpHは、名川では平成3年9月第1週の4.39、平成4年1月第4週の4.34、平成5年2月第1週の4.23であり、八戸では平成3年9月第1週の4.37、平成5年2月第1週の4.40であった。

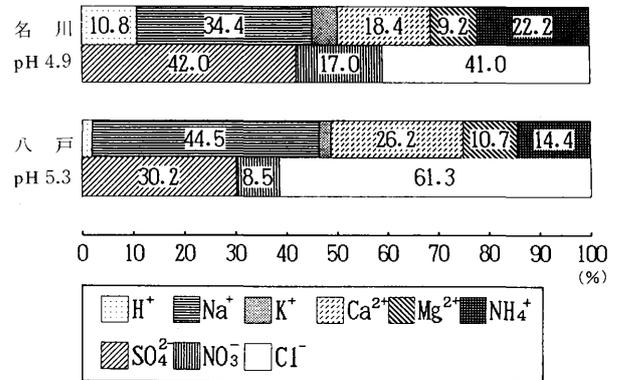


図2 名川、八戸の降水の化学成分組成(平成4年度)

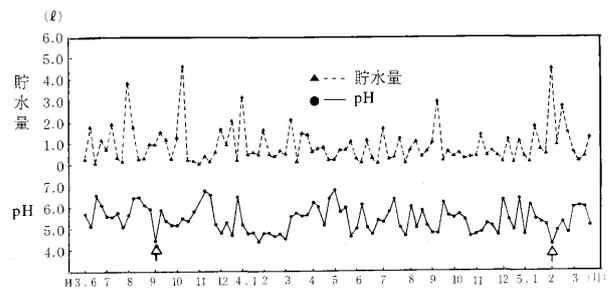


図3 名川のpH及び貯水量の週変化

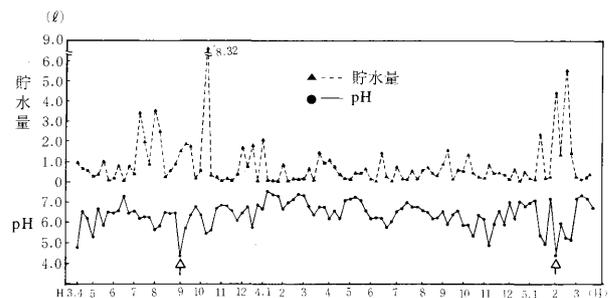


図4 八戸のpH及び貯水量の週変化

名川、八戸の両地点で平成3年9月第1週、平成5年2月第1週とpHの低い週が一致しているが、平成3年9月第1週の降水量は名川945ml、八戸1490ml、平成5年2月第1週は名川4430ml、八戸4480mlと多いことが特徴である。

3.3 低pH時の気象条件

名川，八戸の両地点でともに4.2~4.4の低いpHを示した平成3年9月第1週(9/2~9/9)，平成5年2月第1週(2/1~2/8)の降水量の日変化を最多風向及び平均風速(降雨，降雪時のみ)とともに図6，7，9，10に示す。

平成3年9月第1週の降雨は9月5~7日にみられ，風向は南西系であり6~7日にかけて寒冷前線が北日本を通過している(図5)。

また，平成5年2月第1週の降雪及び降雨は2月2日，6~7日にみられ，6~7日にかけて低気圧の中心から延びる寒冷前線が北日本を通過している。6日の最多風向は南西系であり，7日は北東であるが西系の風向が約半分あり，総体的には西方向からの影響が大きいとみられる(図8)。

約20km離れている名川と八戸の両地点のpHが同じ週に低下している2つの事例は，寒冷前線が通過している

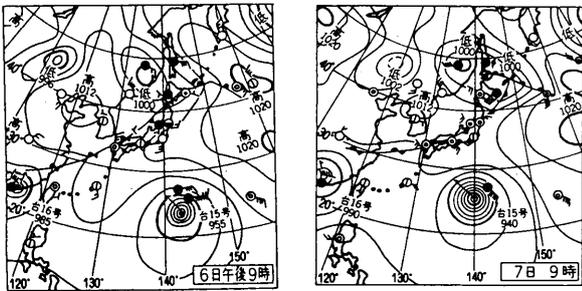


図5 平成3年9月6~7日の天気図
(東奥日報から転載)

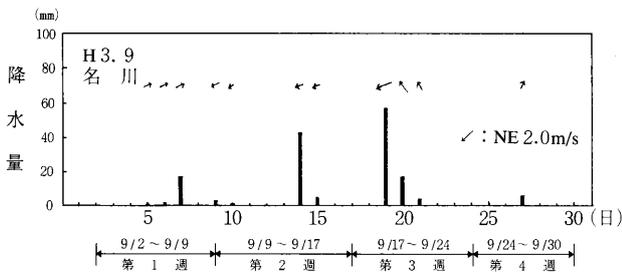


図6 名川の降水量及び風向，風速¹¹⁾

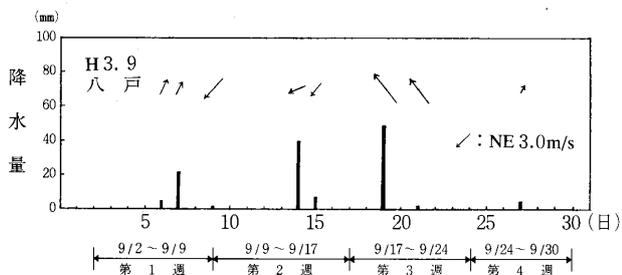


図7 八戸の降水量及び風向，風速¹¹⁾

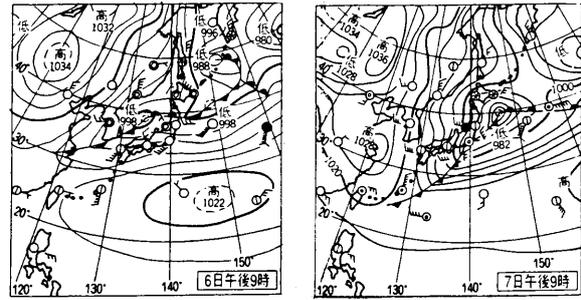


図8 平成5年2月6~7日の天気図
(東奥日報から転載)

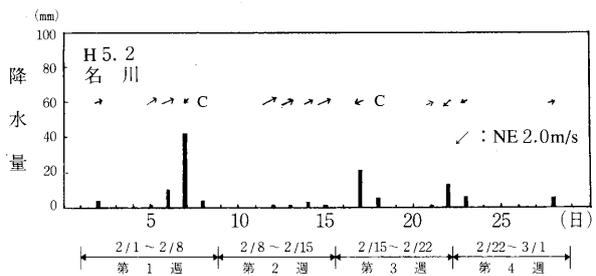


図9 名川の降水量及び風向，風速¹²⁾

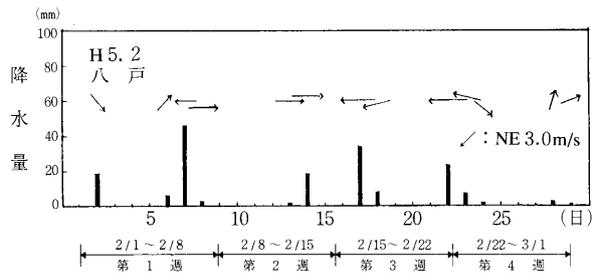


図10 八戸の降水量及び風向，風速¹²⁾

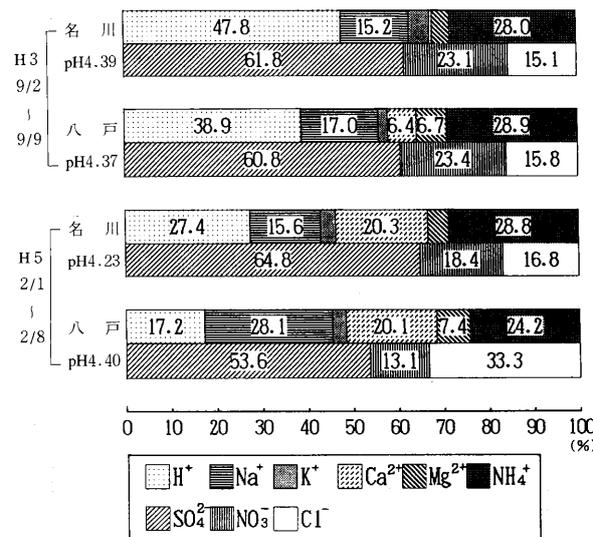


図11 低pH時の降水の化学成分組成

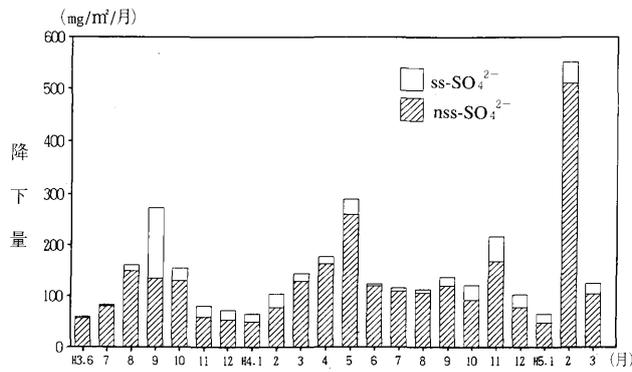


図12 名川のSO₄²⁻降下量の経月変化

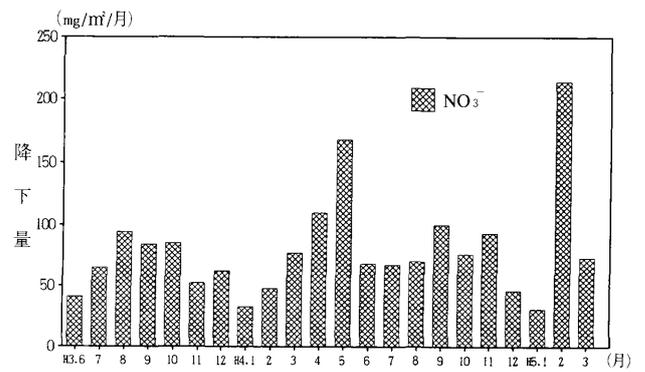


図14 名川のNO₃⁻降下量の経月変化

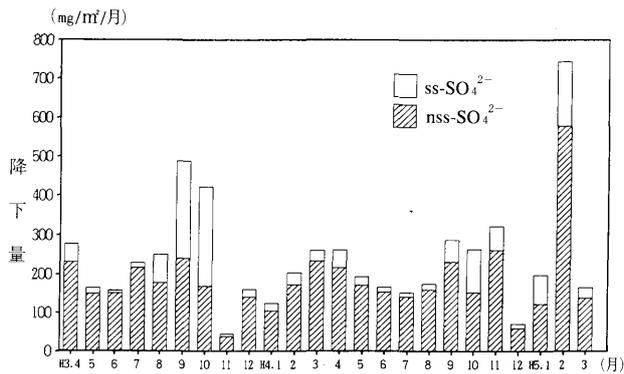


図13 八戸のSO₄²⁻降下量の経月変化

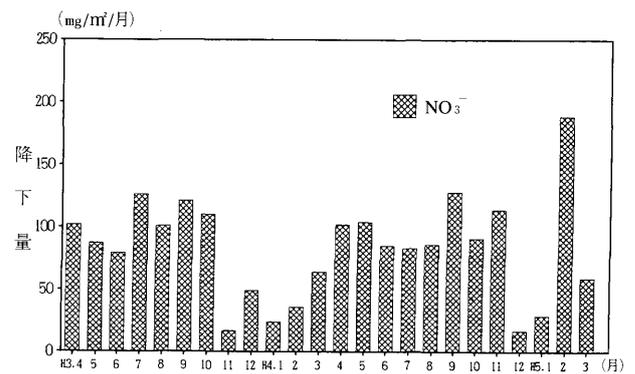


図15 八戸のNO₃⁻降下量の経月変化

時にみられていることからレインアウト³⁾¹³⁾(雲内除去)によるものと考えられ、また、風向が南西系であることから大陸からの広域的な影響であることを窺わせる。

なお、pHの低い両週の陽イオン、陰イオン別の化学組成を図11に示す。図2に示した年間平均の化学組成に比べ両地点のNa⁺、Cl⁻は約3～8割であり、SO₄²⁻は1.5～2.0倍、NO₃⁻は1.4～2.8倍であった。

特に、平成3年9月第1週は両地点のCa²⁺が0.6～6.4%と低く、平成5年2月第1週の名川ではSO₄²⁻が64.8%と高い値を示している特徴があり、pHが低い平成3年9月第1週と平成5年2月第1週の降水とでは化学組成が多少異なっていることがわかる。

3・4 SO₄²⁻及びNO₃⁻の降下量

平成3～4年度のSO₄²⁻及びNO₃⁻の降下量の経月変化を図12～15に示す。

SO₄²⁻の降下量は、平成5年2月に名川、八戸の降下量が突出して多かったが、このほか、名川では平成3年9月、平成4年5月に多く、八戸では平成3年9月、平成3年10月に降下量が多かった。両地点の降下量は12月から1月にかけて低くなる傾向がみられた。

SO₄²⁻降下量のうち人為起源のnss-SO₄²⁻降下量の占める割合は表2に示すように、平成4年度の平均値で名川が9割、八戸が8割であり名川が八戸より多少高い割合を示していた。

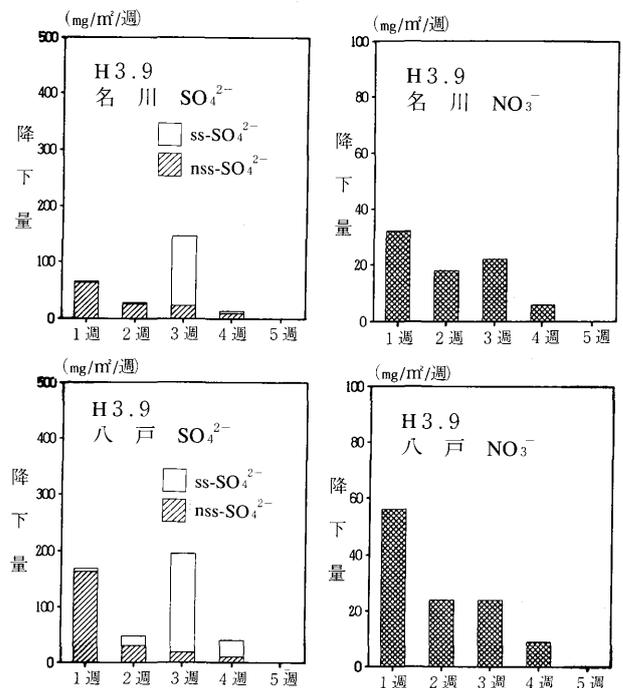


図16 SO₄²⁻、NO₃⁻の週間降下量(平成3年9月)

これは、沿岸地域である八戸では平成3年9月、平成3年10月のss-SO₄²⁻が5割を超えているケースにみられるように、海塩粒子のss-SO₄²⁻の寄

与が大きく、相対的に人為起源の $nss-SO_4^{2-}$ の割合が低くなるためと考えられる(図13)。

NO_3^- の降下量も両地点とも平成5年2月に多く、名川は平成4年5月にも降下量が多かった。両地点の降下量は SO_4^{2-} 降下量と同様に12月から1月にかけて低くなる傾向がみられた。

そこで、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- の月降下量の多い平成3年9月、平成5年2月の週間降下量を図16、17に示す。

平成3年9月第1週、平成5年2月第1週は名川、八戸とも SO_4^{2-} 、 NO_3^- の降下量が多く、前述したpHの低い週と一致しており、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- が降水のpH低下に大きく関与していると考えられる。

しかし、平成3年9月の SO_4^{2-} の週間降下量については、名川、八戸ともpHの低い第1週よりも第3週が更に多かった。これは、海塩起源の $ss-SO_4^{2-}$ 降下量が多いためであり、後述する台風の影響を反映しているものとみられる(図16)。

1.17より多少小さいことから、 Na^+ とともにほとんど海塩起源であるとみられる。

そこで、 Na^+ 、 Cl^- の月間降下量の多い要因をみるため、平成3年9月の週間降下量を図21に示す。

平成3年9月は名川、八戸とも第3週の Na^+ 、 Cl^- の降下量が多いが、降雨は9月19~20日にかけてみられ、特に9月19日は名川が57mm、八戸が49mmの大雨であり



図18 名川の Na^+ 、 Cl^- 降下量の経月変化

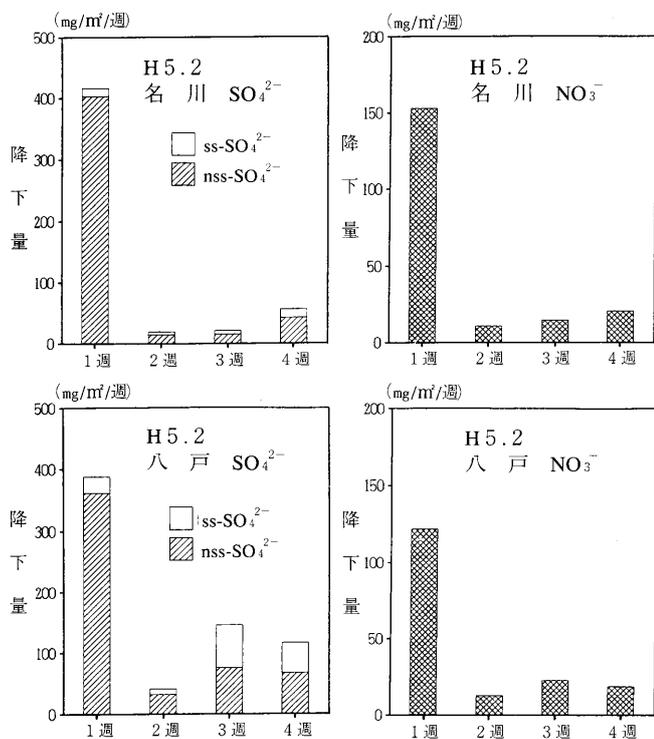


図17 SO_4^{2-} 、 NO_3^- の週間降下量(平成5年2月)

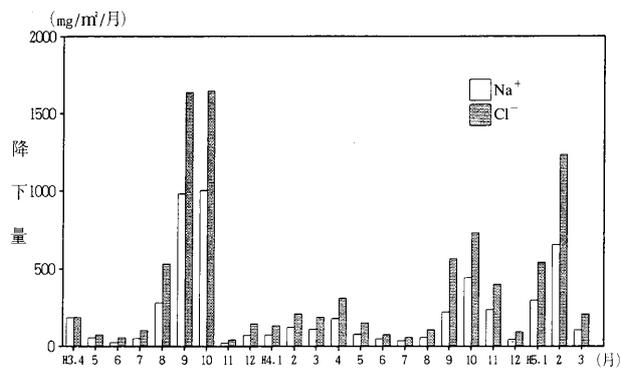


図19 八戸の Na^+ 、 Cl^- 降下量の経月変化

3.5 Na^+ 、 Cl^- の降下量

Na^+ 、 Cl^- の降下量の経月変化を図18、19に示す。

名川では、平成3年9月のみの降下量突出しているが、八戸ではこのほか平成3年10月及び平成5年2月の降下量も突出して多い。名川と八戸の Cl^- は、 $NaCl$ と大気中の NO_2 から生成した HNO_3 との反応により損失する Cl^- も考えられる³⁾が、 Cl^-/Na^+ 当量比が海水組成の

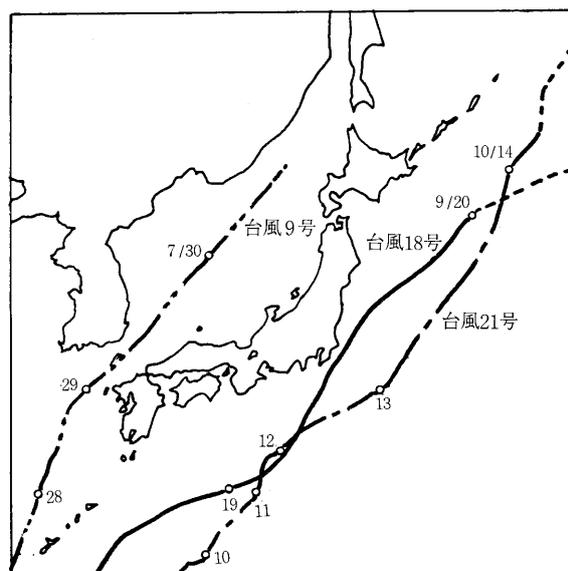


図20 台風9号、18号、21号の経路¹⁴⁾(平成3年)

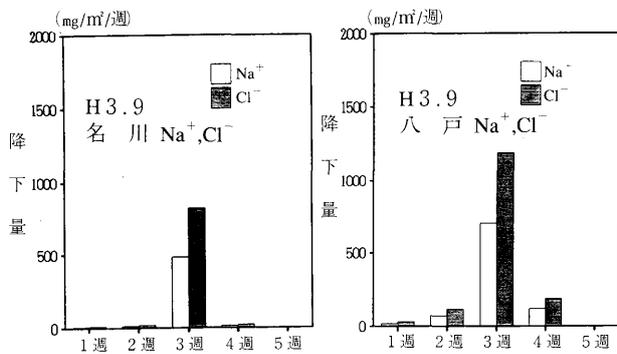


図21 Na⁺, Cl⁻の週間降下量

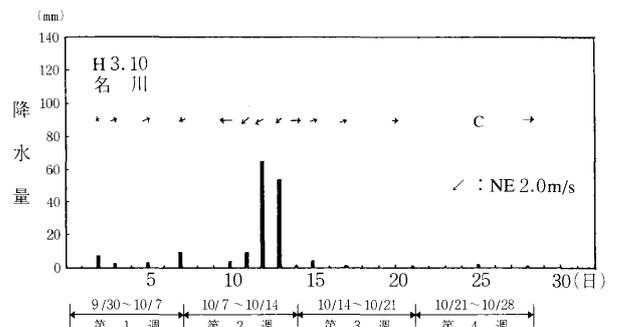


図23 名川の降水量及び風向, 風速¹⁵⁾

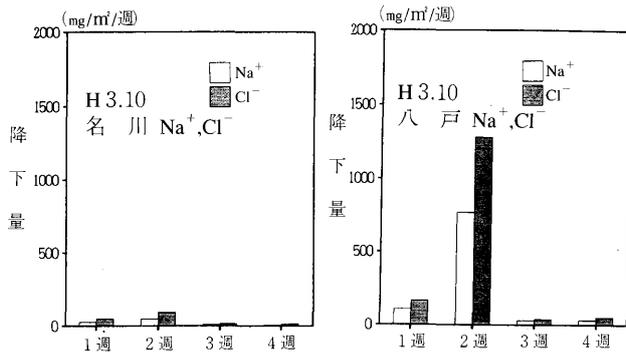


図22 Na⁺, Cl⁻の週間降下量

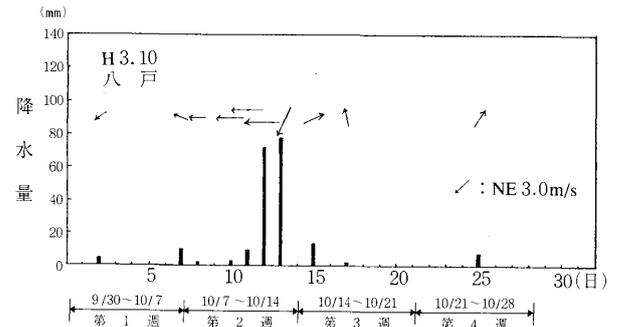


図24 八戸の降水量及び風向, 風速¹⁵⁾

(図6, 7), 台風18号が房総半島をかすめ八戸の東側を通過している。台風が名川, 八戸の東側の経路を通過するケースでは, 太平洋からの強い東寄りの風が吹き込み海洋からの影響が大きくなり, Na⁺, Cl⁻の降下量を増大させていると考えられる(図20)。

一方, 平成3年10月は, 八戸のみでNa⁺, Cl⁻降下量が多く, 第2週の降下量は八戸と名川で大きな差異がみられた(図22)。この週の10月12, 13日には台風21号の影響で八戸72~78mm, 名川54~65mmの降雨を観測しているが, 両日の風向は東系であり, 風速は八戸が約5 m/sに対し名川が約1 m/sと弱い(図23, 24)。このことから, 台風21号のように前述の台風18号より更に東側の経路を通過するケースでは, 東寄りの風で太平洋に近い八戸のみに海洋の影響が及び, 約20km内陸の名川までは海塩粒子が入り込まないとみられる(図20)。

なお, 雨を伴った台風が名川, 八戸の西側を通過している事例は北日本に来るまでに台風が消滅してしまうため少ないが, 平成3~4年度では台風9号が日本海を北上し平成3年7月30日に名川, 八戸の西側を通過している(図20)。しかし, この週(7/29~8/5は8月第1週として採取)の両地点のNa⁺, Cl⁻の降下量は大きな増加はみられていない。これは, 台風が両地点の西側を通過するケースでは主に南寄りの風が吹き, 海洋からの影響を受けにくくなるためと考えられる(図25)。

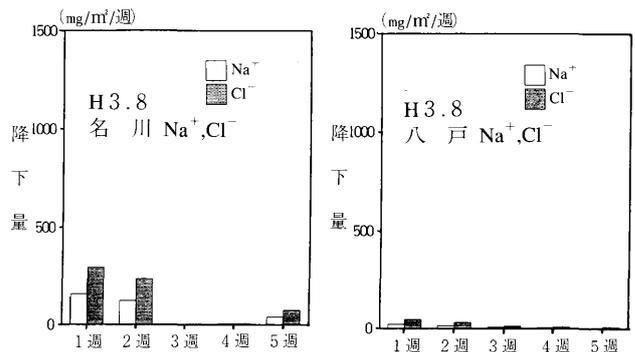


図25 Na⁺, Cl⁻の週間降下量

4. まとめ

青森県南地域の名川, 八戸の酸性雨調査の結果をもとに, 気象条件と降水中の化学成分との関連から次の知見を得た。

- (1) 名川, 八戸の両地点の4.2~4.4の低いpHの降水は, 寒冷前線が通過した平成3年9月第1週と平成5年2月第1週にみられた。
- (2) 両週の低いpHの降水中の化学成分は, Na⁺, Cl⁻, Ca²⁺の成分組成が低く, SO₄²⁻, NO₃⁻が高くなっていた。また, SO₄²⁻, NO₃⁻の降下量も多かった。
- (3) 台風の影響による海塩起源のNa⁺及びCl⁻降下量は通過経路により差異があるが, 名川, 八戸に近い東側を通過するケースでは両地点で大きな降下量のみられた。

(4) 台風の降水中化学成分への影響は Na^+ 及び Cl^- の降水量に顕著に現れることから、週間降水量や、月間降水量から台風の影響を類推することができる。

文 献

- 1) 全国公害研協議会酸性雨調査研究部会：平成4年度酸性雨全国調査結果報告書，全国公害研会誌，**19**，58-122，1994.
- 2) 玉置元則，他：同時調査による酸性雨現象の地域特性，全国公害研会誌，**8**，103-110，1983.
- 3) 玉置元則，他：酸性雨調査手法の確立と降水化学としての酸化機構の解明，環境研究，**91**，30-40，1993.
- 4) 早狩敏男，他：青森県南部における雨水（酸性雨）の実態調査，青森県公害センター所報，**6**，90-94，1983.
- 5) 野田正志，他：八戸市の雨水の実態——降水分取法による考察——，青森県環境保健センター研究報告，**2**，98-104，1991.
- 6) 野田正志，他：臨海工業地帯における湿性沈着量の実態，青森県環境保健センター研究報告，**4**，81-85，1993.
- 7) 小山功，他：降水の低pH化とその気象条件，東京都公害研究所年報，90-93，1985.
- 8) 田中茂，他：首都圏でのネットワーク観測による酸性雨の広域モニタリング，資源環境対策，**28**，691-696，1992.
- 9) 矢滝理恵，他：首都圏における雨水のモニタリングと雨水中の化学成分組成に影響を与える気象条件の検討，資源環境対策，**30**，238-244，1994.
- 10) 酸性雨調査法研究会：酸性雨調査法，ぎょうせい，東京，平成5年6月.
- 11) 日本気象協会青森支部：青森県気象月報，平成3年9月.
- 12) 日本気象協会青森支部：青森県気象月報，平成5年2月.
- 13) 光化学二次生成物質検討会（湿性分科会）：湿性大気汚染調査総合報告書（総括編），45-59，昭和56年3月.
- 14) 日本気象協会，気象年鑑1992年版，大蔵省印刷局，東京，1992.
- 15) 日本気象協会青森支部：青森県気象月報，平成5年10月.

Abstract

Characteristics of Chemical Components in Precipitation depending on Weather Conditions — Case Study in the Southern District of Aomori Prefecture —

Seiichi KUDO¹, Masashi NODA¹, Noriko OKA¹,
Ryuji KUDO¹ and Tetsuo NAKAURA¹

On the basis of study made on acid rain in the area of Nagawa and Hachinohe, the relationship between the weather conditions and chemical components in precipitation was analyzed. Two cases in which pH of the precipitation was lowered in both Nagawa and Hachinohe occurred when cold front passed; the chemical components in the precipitation were poor in Na^+ , Cl^- and Ca^{2+} and rich in SO_4^{2-} and NO_3^- .

Influence of typhoon was significant in the content of Na^+ and Cl^- from sea salt in the precipitation while the degree of the influence varied depending on the passage route.

Key words : acid rain, cold front, typhoon, sea salt

1 : Aomori Prefectural Institute of Public Health and Environment

青森県南地域河川の水質汚濁評価 (第1報)

—馬淵川水系, 奥入瀬川水系—

神 正志 早狩 敏男 小山田久美子
柴田 幸伸 工藤 精一

青森県南地域の馬淵川, 奥入瀬川について, BOD等の水質測定結果を用い統計的解析を行い, 水質の総合特性と類似性について検討した。主成分分析の結果, 馬淵川水系では上流域と下流域及び, 支川の浅水川の3グループに分けられ, 上流域で下流域より汚濁度が高く, 浅水川で汚濁度が最も高くなっていた。また, 奥入瀬川では河口付近と上流域のグループに分けられ, 河口付近で汚濁度が高くなっていた。

Key words : Mabechi River, Oirase River, evaluation of water, load amount

1. はじめに

馬淵川, 奥入瀬川はともに青森県南地域を貫流し, 太平洋にそそぐ河川であるが, その流域には八戸市, 十和田市といった都市部を含み, また多数の中小事業場がある。流域市町村の上水道や農業用水等にも利用されており, 流域住民の生活や産業に対する影響は大きく, その水質監視には十分な注意が必要である。

当所では, 今後の基礎資料とするために, 県南河川のBOD等の水質測定結果の経年変化を用い統計的解析を行い, 水質の総合特性と類似性について検討し, 汚濁負荷の点からも考察を行っているところである。

今回は, 昭和59年度から昭和63年度の解析結果について報告する。

2. 調査方法

2.1 調査期間

昭和59年度から昭和63年度

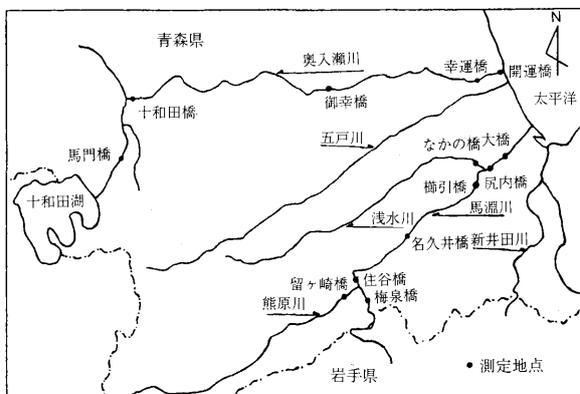


図1 馬淵川・奥入瀬川水系の水質調査地点

2.2 水質測定地点 (図1)

(1) 馬淵川水系

本川の梅泉橋, 住谷橋, 名久井橋, 櫛引橋, 尻内橋, 大橋, 及び支川熊原川の留ヶ崎橋, 支川浅水川のなかの橋の計8地点

(2) 奥入瀬川水系

馬門橋, 十和田橋, 御幸橋, 幸運橋, 開運橋の5地点

2.3 水質の解析方法

- (1) 解析は昭和59年度から昭和63年度までの公共用水域水質測定結果¹⁾を用いて, 地点及び項目ごとに5年間の平均値を求め, 主成分分析及びクラスター分析に供した。
- (2) 解析項目はpH, DO, BOD, SS, 大腸菌群数を使用し, 大腸菌群数は常用対数に変換し用いた。
- (3) 主成分分析の合成変数はZ₃までとした。
- (4) クラスター分析は[1-(相関係数の絶対値)]の最短距離法を用いた。

2.4 分析方法

分析方法は表1のとおり。

表1 分析方法

項目	分析方法
pH	ガラス電極法 (JIS K0102)
DO	ウインクラーアジ化ナトリウム変法 (JIS K0102)
BOD	ウインクラーアジ化ナトリウム変法 (JIS K0102)
SS	GFPろ過法 (JIS K0102)
Coli	BGLB培地による最確数法

奥入瀬川水系

馬淵川水系

馬淵川水系

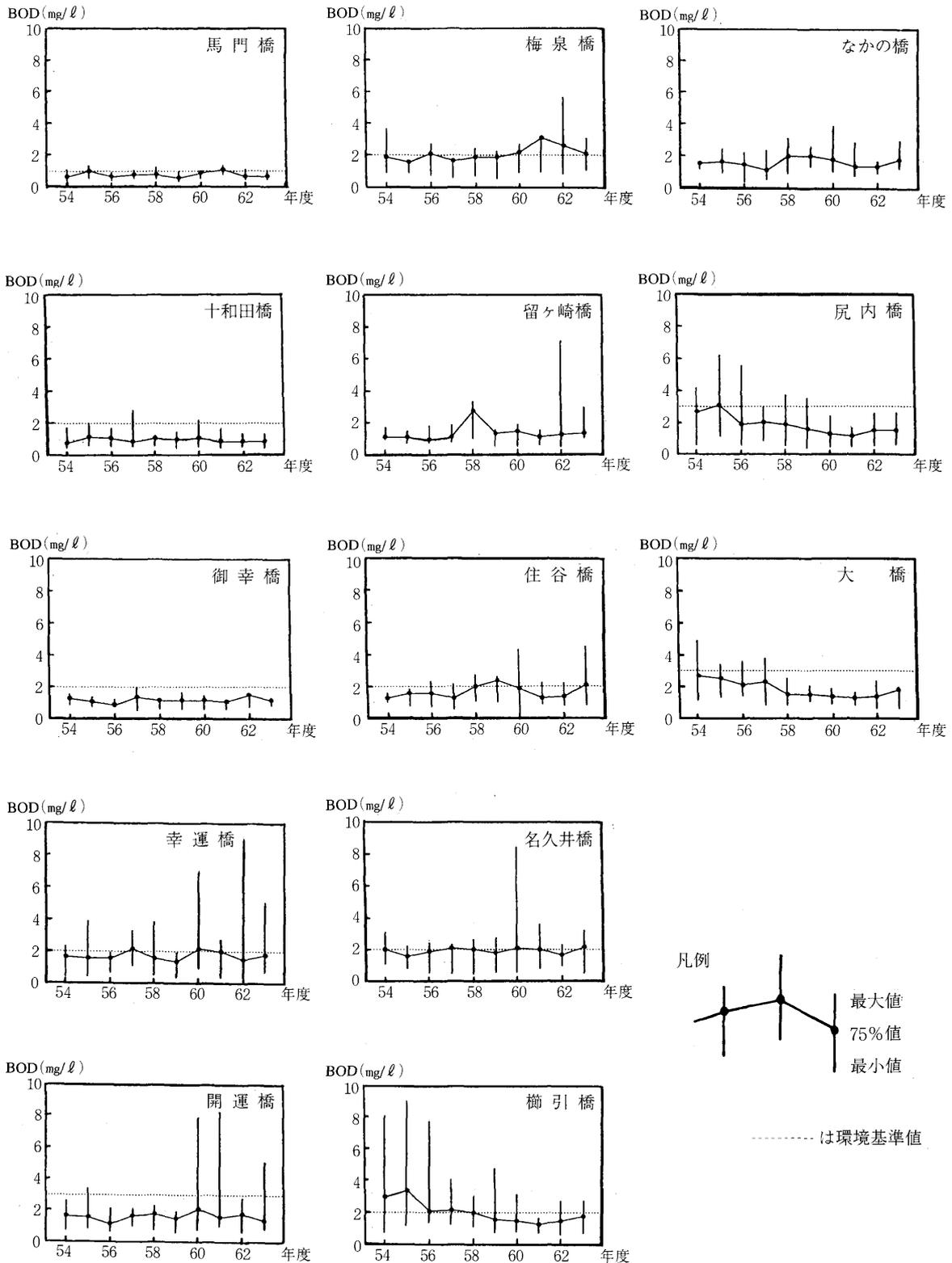


図2 測定地点のBOD経年変化

3. 結果及び考察

3.1 馬淵川水系

(1) 水質の概況

馬淵川は岩手県下閉伊郡・岩手郡郡境の袖山を水源とし、県内では三戸町、南部町、名川町、福地村、八戸市を貫流し八戸市河原木で太平洋に至る流路延長142.4km、流域面積2054.6km²の河川であり、左岸から合流の支川が多く、三戸町で熊原川、八戸市内尻内で浅水川などが合流している。

昭和54～63年度までのBODは上流の梅泉橋、住谷橋、名久井橋で環境基準値付近で横ばい状態になっている。下流の櫛引橋、尻内橋、大橋では昭和58年度頃まで若干の減少傾向がみられるが、それ以降はほぼ横ばい状態で、概ね環境基準値を満たしている。また大腸菌群数はすべての地点で環境基準値を超えており、下流部及び支川ではSSも高い値がみられる（図2）。

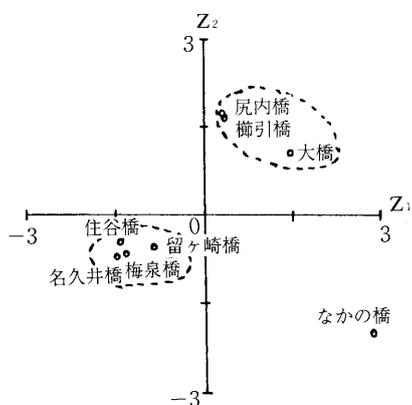
これは、流域に本川、支川を含め日間平均排水量50m³以上の特定事業所が30カ所以上あり、また各々の市町村の中心部を流れているため、事業場排水、生活排水の負荷が水質に影響を与えているものと考えられる。

(2) 主成分分析

Z₁はSSの負荷量が高いことから懸濁性汚濁を表す成分と考えられる。Z₂はBODの負荷量が高いことから有

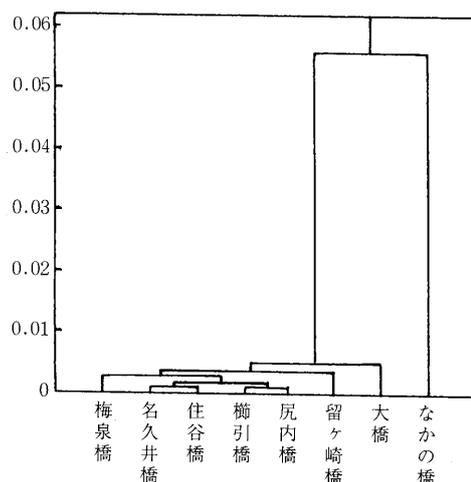
表2 固有値・寄与率・固有ベクトル*・負荷量**

(馬淵川水系)						
成分	合成変数Z ₁		合成変数Z ₂		合成変数Z ₃	
固有値	2.4647		1.7361		0.7140	
寄与率	0.4929		0.8402		0.9830	
1 pH	-0.6224*	-0.9771**	-0.1032	-0.1359	-0.1446	-0.1222
2 DO	-0.5551	-0.8714	-0.3359	-0.4426	-0.1509	-0.1275
3 BOD	-0.1361	-0.2137	-0.6693	-0.8818	0.4705	0.3975
4 SS	0.4641	0.7286	-0.4841	-0.6379	0.2355	0.1990
5 Coli	0.2657	0.4172	-0.4407	-0.5807	-0.8243	-0.6965



[Z₁とZ₂に対するスコア散布図]

図3 主成分分析解析結果（馬淵川水系）



[デンドログラム]

図4 クラスタ分析解析結果（馬淵川水系）

機的汚濁を表す成分と考えられる（表2）。

スコア散布図によると、上流地点の梅泉橋、住谷橋、名久井橋が、下流地点の尻内橋、大橋、櫛引橋より有機的汚濁度が高いことが解る。また、浅水川のなかの橋では有機的汚濁、懸濁性汚濁度の両方が高く生活排水、自然系負荷の両方が原因と推測され、この水系では汚濁度の最も高い水域といえる（図3）。

(3) クラスタ分析

デンドログラムから地点間の結びつきをみると、有機的汚濁度が高めの住谷橋～名久井橋が1グループを形成し、有機的汚濁度の低い尻内橋～櫛引橋が1グループを形成している。これら2グループと梅泉橋で1グループを形成し、支川の熊原川の留ヶ崎橋、懸濁性汚濁度の高い大橋と順次グループを形成する。有機的汚濁度、懸濁性汚濁度がともに高い支川の浅水川のなかの橋が他の地点と大きく離れて分類された（図4）。

(4) 流入負荷量

昭和58年度と昭和63年度の名久井橋より下流のBODの流達負荷量と流入負荷量²⁾を比較すると、流達負荷量は尻内橋以外で増加している。また流入負荷量では、名久井橋～櫛引橋（A→A'）、尻内橋～大橋（C→C'）では増加しているが、櫛引橋～尻内橋（B→B'）、大橋～河口（D→D'）では減少している。流入負荷量の減少している櫛引橋～尻内橋、大橋～河口の2流域では、いずれも工場排水の割合が減少しており、工場の閉鎖や排水の改善が原因と考えられる（図5、図6）。

また、昭和63年度における流入負荷量の割合では、櫛引橋より下流域にあたるB'～D'で生活排水による負荷量が50%以上になっており、この流域の負荷量の減少には生活排水についての対策が必要と考えられる。現在この地域では下水道の整備が進んでおり、今後も水質の動

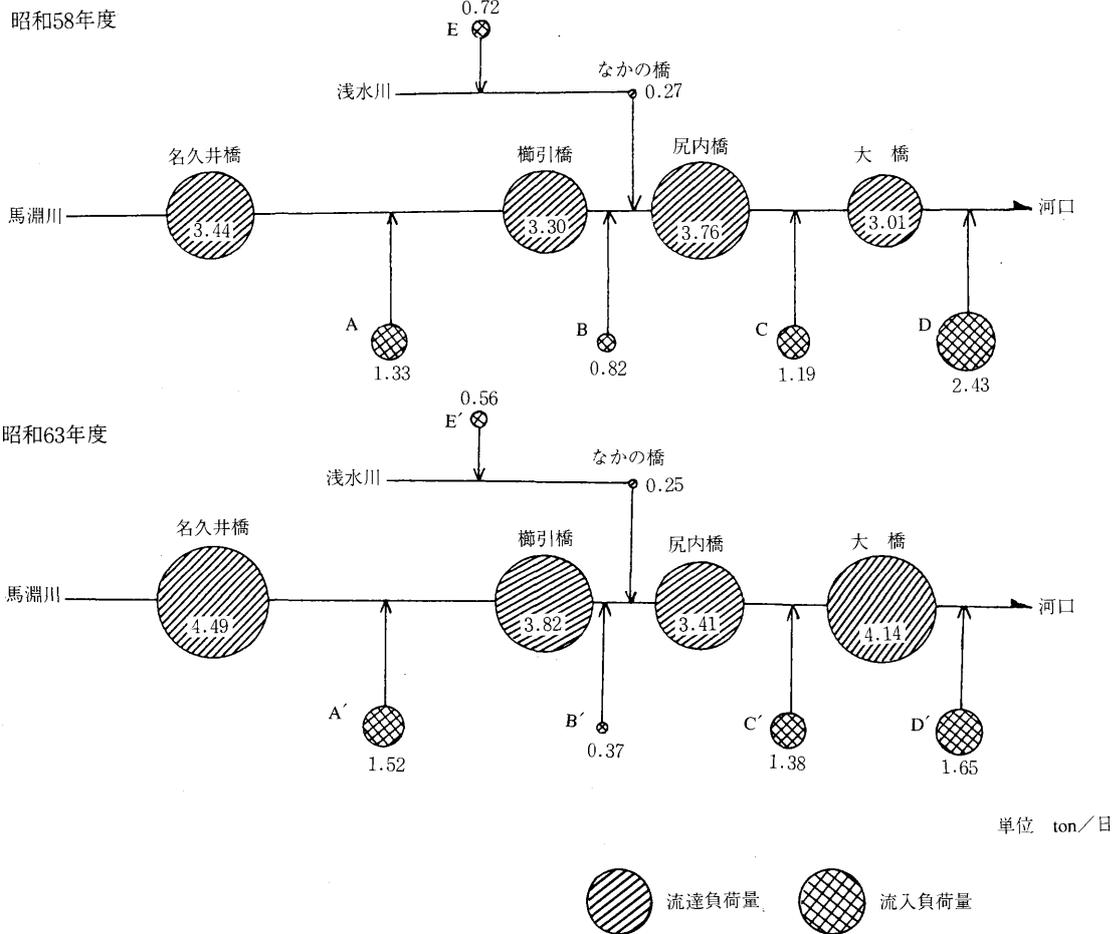


図5 馬淵川の流達負荷量・流入負荷量

向を監視していく必要がある。

櫛引橋より上流域にあたるA'では住宅地が少ないこともあり、工場排水が負荷量の大部分を占めている。この地域の工場はほとんどが小規模のものであり、これらの工場排水の負荷量軽減が望まれる。

主成分分析の結果では上流の名久井橋、住谷橋、梅泉橋が、下流部の櫛引橋、尻内橋、大橋より有機的汚濁度が高くなっているが、昭和63年度の流達負荷量では、同様に名久井橋が最も多くなっている。名久井橋の上流域では事業場、住宅地ともに少なく、岩手県北地域の酪農地帯を貫流する支川にはかなりBODが高いものがあること及び、二戸市周辺からBODが高くなることから³⁾、岩手県内での酪農排水、生活排水等が青森県内上流域の水質汚濁の要因になっているものと推定される。

主成分分析、クラスター分析ともに、他の地点と分類された浅水川では、生活排水の流入負荷量の割合が高くなっている。この地域では下水道の普及が遅れていることから、これまでも水質改善の啓発活動は行われているが、今後もこの事業の継続が必要である。また他の流域に比べSSが高い原因は、自然系負荷の割合が高いため

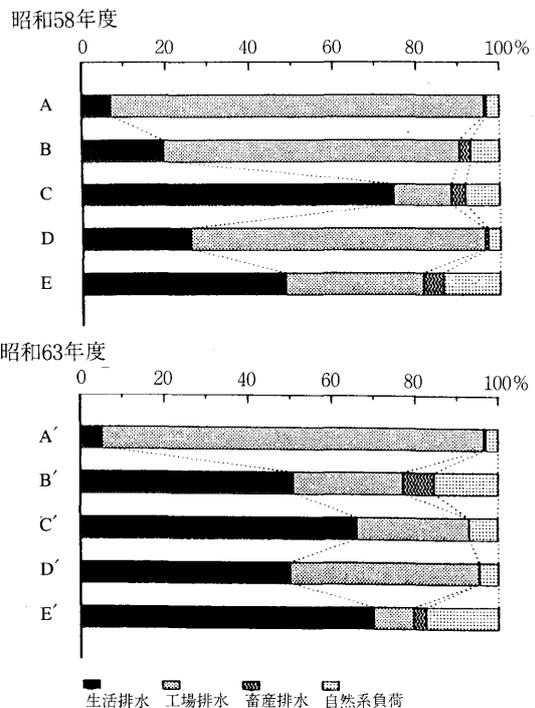


図6 流入負荷量の種類別割合

と考えられる (図6)。

3.2 奥入瀬川水系

(1) 水質の概況

奥入瀬川は十和田湖を水源地とし、湖岸の子ノ口から北流、鳶川合流の焼山辺りから東流し十和田湖町法量に達し、その後十和田市内を貫流し、六戸町、下田町の中心部、百石町と八戸市の境界部を経て河口に至る流路延長70.7km、流域面積819.9km²の河川である。

昭和54~63年度のBODは全ての測定地点でほぼ横ばい状態にあり、概ね環境基準値を満たしているが、河口付近の幸運橋、開運橋では上流域の他の地点に比べ高い値となっている。SSも概ね環境基準値を満たしているものの、大腸菌群数は基準値を超えている。

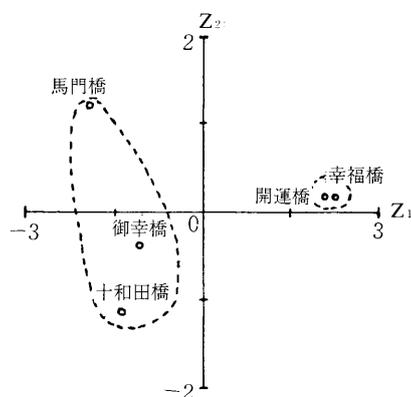
これは、流域に日間平均排水量50m³以上の特定事業場が20ヶ所以上あり、その大部分が御幸橋より下流域にあることや、十和田市内の下流域で下水道の整備が進んでいないこと等から、事業場排水、生活排水がこの水系の水質に影響を与えているものと考えられる。

(2) 主成分分析

Z₁はBOD、SS、大腸菌群数の負荷量が高いことから総合的汚濁度を表す成分と考えられる。寄与率が80%を超えており全変動の大部分が説明される (表3)。

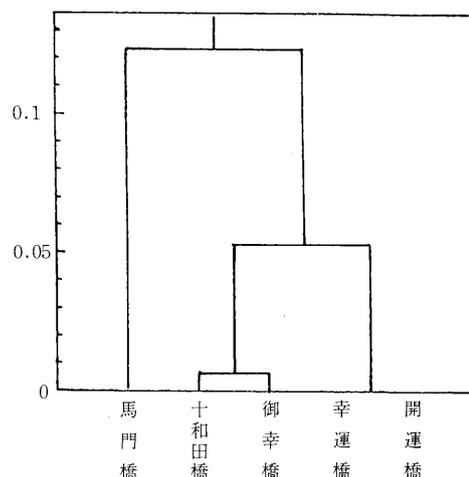
表3 固有値・寄与率・固有ベクトル*・負荷量**

成分	(奥入瀬川水系)					
	合成変数Z ₁	合成変数Z ₂	合成変数Z ₃	合成変数Z ₄	合成変数Z ₅	合成変数Z ₆
固有値	4.0746	0.7201	0.1961			
寄与率	0.8149	0.9590	0.9982			
1 pH	-0.4460*	-0.9003**	-0.3106	-0.2636	-0.7272	-0.3221
2 DO	-0.3327	-0.6716	-0.7495	-0.6361	0.5667	0.2510
3 BOD	0.4926	0.9943	-0.0023	-0.0019	0.1660	0.0735
4 SS	0.4815	0.9720	-0.3553	-0.3015	-0.1446	-0.0640
5 Coli	0.4647	0.9380	-0.4642	-0.3939	-0.3185	-0.1411



[Z₁とZ₂に対するスコア散布図]

図7 主成分分析解析結果 (奥入瀬川水系)



[デンドログラム]

図8 クラスタ分析解析結果 (奥入瀬川水系)

スコア散布図によると、下流地点の幸運橋、開運橋が他の上流地点より汚濁度が高くなっている (図7)。

(3) クラスタ分析

デンドログラムから地点間の結びつきをみると、汚濁度の高い幸運橋、開運橋が1グループを形成し、汚濁度の低い十和田橋、御幸橋が別のグループを形成している。汚濁度の低い最上流部の馬門橋はこれらのグループと離れて分類された (図8)。

主成分分析及び、クラスタ分析の結果から事業場排水や生活排水等による影響が下流域で大きいとみられ、流域市町での下水道整備や事業場排水の負荷軽減が望まれる。また、十和田市周辺では生活排水の流入による水質の悪化が懸念されたが、市部より下流域にある御幸橋で汚濁度は低く、生活排水による影響は少ないと考えられた。

4. ま と め

- (1) 馬淵川、奥入瀬川ともBOD、SSは概ね環境基準値を達成しているが、大腸菌群数は基準値を超えている。
- (2) 馬淵川水系では上流域で下流域より有機的汚濁度が高く、岩手県からの汚染が考えられた。また、支川の浅水川では有機的汚濁、懸濁性汚濁度がともに高いことから、この地域では今後も水質改善の啓発活動の継続が必要である。
- (3) 奥入瀬川水系では上流の水質は良好であるが、下流では総合的汚濁度が高く、生活排水、事業場排水等による影響が考えられ、下水道、浄化槽の整備、促進、事業場排水の負荷軽減が望まれる。

今後、両水系等については、最新のデータを補完し、現況解析を行い今回の結果と比較検討し、現況の把握に努めていきたい。

文 献

- 1) 青森県：公共用水域水質測定結果，昭和58年度～平成4年度.
- 2) 青森県：八戸地域公害防止計画実施状況等調査，昭和58年度，昭和63年度.
- 3) 八戸圏域水道事業団：水質年報.
- 4) 対馬和浩，他：公共用水域の水質評価，青森県環境保健センター研究報告，**1**，84-89，1990.
- 5) 阪崎俊璽，他：新井田川の水質汚濁状況について，青森県環境保健センター研究報告，**2**，90-97，1991.

Abstract

Evaluation of Water Pollution in Southern Rivers in Aomori Prefecture (I) —Mabechi River and Oirase River Systems—

Masashi JIN¹, Toshio HAYAKARI¹, Kumiko OYAMADA¹
Yukinobu SHIBATA¹ and Seiichi KUDO¹

A statistical analysis was made on measurement results of the water quality, such as BOD load amount, of Mabechi River and Oirase River flowing through the southern part of Aomori prefecture for studying overall characteristics and similarity of the water quality. According to the analysis of main components, Mabechi River system was able to be classified into three groups: the upper stream area, the lower stream area, and Asamizu River that is a tributary stream. The upper stream area was more polluted than lower stream area while Asamizu River was highest in the degree of pollution. Oirase River system was able to be classified into the estuary and the upper stream area; the estuary was more polluted.

Key words : Mabechi River, Oirase River, evaluation of water, load amount

1 : Aomori Prefectural Institute of Public Health and Environment

II ノ ー ト

青森市の海外旅行者に発生したコレラの一事例

大友 良光

Report on Cholera Broken out in Overseas Traveller Living in Aomori City

1993年7月、タイ旅行帰りの青森市在住の男性がコレラに罹患した。患者から分離された菌はコレラ毒素産生性のエルトール小川型コレラ菌で、そのMukerjeeのファージ型は4型であった。

Key words : cholera, *Vibrio cholerae*, outbreak of cholera, overseas traveller

1. はじめに

青森県におけるコレラの発生は1922年に患者34名、死者17名を出して以来¹⁾、1983年までまったく報告されていなかった。しかし、1984年に62年ぶりに海外旅行者1名の海外感染例が報告され、その後1990年に1例の国内感染例(患者及び保菌者各1名)、翌1991年にも1例の海外感染例(患者及び保菌者各1名)があり、コレラの発生頻度の増加が懸念されていた²⁾。今回、さらに1例の海外感染例が発生したので、その発生概要と細菌学的検査成績について報告する。

2. 発生概要

患者は青森市に居住する男性(55才)で、1993年7月12日から17日まで本人を含め家族4人とタイのバンコクを旅行し、7月18日にタイ航空便で帰国した。患者は帰国中の機内で腹痛、嘔吐、下痢症状が現れていたが、成田空港での検疫時に申告せず、同日の航空便で帰青した。患者はその後下痢症状が続いたため(一日最高5回の水様性下痢)、7月20日に青森市内の内科医院で受診した。医師は22日に患者の便を採取し、青森市医師会臨床検査センターに細菌検査を依頼した。その結果、コレラ菌が分離され、27日に本菌が小川型コレラ菌であることが判明し、同日担当の医師から青森保健所へコレラ発生の届け出がなされた。その後、患者から排菌は認められず、また、青森保健所で行った患者家族の便及び患者宅の便槽と排水からの菌分離調査でもコレラ菌は分離されなかった。

3. 材料と方法

青森保健所から検査依頼を受けた患者由来のコレラ菌1株について、定法³⁾により確認試験を行う一方、血清

型の確認は市販のコレラ菌診断用免疫血清(デンカ生研(株))で、コレラ毒素産生試験は市販のRPLAキット(デンカ生研(株))で、またコレラ毒素遺伝子の検出は市販のプライマー(島津製作所(株))を用いたPCR法⁴⁾によって行った。

4. 結果

分離菌株は腸内細菌同定キットApi 20E(bio Mérieux-Vitek Japan, Ltd)でコレラ菌と同定され(コードNo. 5147124)、血清型は小川型であった。生物型の試験を行ったが、古典型とエルトール型の判別が明確でなかつ

表1 分離コレラ菌の生物型別

菌種	ヒツジ赤血球 の溶血性	ニワトリ赤血球 の凝集反応	ポリミキシンB (50U)感受性	VP反応
分離菌	+	-	+	+* ¹
エルトール型菌	+* ²	+* ³	-	+
古典(アジア)型菌	-	-* ³	+	-

+:陽性, -:陰性, *¹:弱陽性, *²:検査方法により陰性の場合がある, *³:例外あり

表2 分離コレラ菌の古典(アジア)型コレラ菌ファージに対する感受性試験成績

菌種	古典(アジア)型コレラ菌各種ファージに対する感受性			
	I	II	III	IV
分離菌	.	.	.	-
ファージ1型菌	+	+	+	+
ファージ2型菌	-	+	+	+
ファージ3型菌	+	-	+	+
ファージ4型菌	-	-	+	+
ファージ5型菌	+	+	-	+

表3 分離コレラ菌のエルトール型コレラ菌ファージに対する感受性試験成績(ファージ型別)

菌種	エルトール型コレラ菌各種ファージに対する感受性				
	I	II	III	IV	V
分離菌	+	+	-	-	+
ファージ1型菌	+	+	+	+	+
ファージ2型菌	+	+	+	-	+
ファージ3型菌	+	+	-	+	+
ファージ4型菌	+	+	-	-	+
ファージ5型菌	+	-	-	-	+
ファージ6型菌	-	+	-	-	+

+：感受性あり，-：感受性なし

たため(表1)，本菌株を国立予防衛生研究所に送付し，Mukerjeeのファージに対する感受性試験を行った結果，本菌株は古典(アジア)コレラのファージIVには感受性がなく(表2)，エルトールコレラ菌のファージ4型に相当することが判明し(表3)，本菌の生物型はエルトール型と決定された。また，本菌株は380塩基対のコレラ毒素遺伝子を保有し，コレラ毒素を産生した。以上より，本菌株はコレラ毒素産生性エルトール小川型コレラ菌と同定された。

5. 考 察

わが国におけるコレラの発生は，1974年以前は海外渡航者による輸入例が散見されていたが，1975年からは毎年見られるようになり，特に近年は航空機による海外旅行者の急増も影響し，多数の海外感染例が報告されるようになってきた。患者の感染先の多くはインドネシア，タイ等の東南アジアで，この傾向は年々強まっており，今回の症例があった1993年には，東南アジアでの罹患率が89%と高率であった⁵⁾。今回分離されたコレラ菌のファージ型は4型であるが，この型はわが国で分離される

エルトール型コレラ菌の90%以上を占めており，その他の国々でも同様な傾向が見られるという(国立予防衛生研究所島田博士私信)。青森県でのコレラ発生はこれに呼応するものと考えられるが，1990年から毎年患者の発生が報告されており，今後とも十分な監視が必要である。一方，今回，患者が帰国の航空機内で下痢症状があったにもかかわらず検疫時に申告しておらず，防疫上問題が残った。

近年，航空機による海外旅行者の急増と国内の交通機関の発達により，今回のように空港検疫だけで病原体の侵入を阻止することは非常に困難になっている。したがって，病院等における不断の細菌検査精度の向上はもとより，海外旅行者の防疫に対する意識のさらなる向上が望まれるところである。

謝 辞

分離菌株の各種ファージに対する感受性試験を実施していただいた国立予防衛生研究所細菌部腸管系細菌室長の島田俊雄博士に深謝致します。

文 献

- 1) 青森県衛生民生労働部，公衆衛生課(編集・発行)：防疫事例集，408-412，1960。
- 2) 大友良光：青森県におけるコレラ発生状況について(1984-1991)，弘前医学，45，22-27，1993。
- 3) 厚生省保健医療局疾病対策課結核・感染症対策室長：健医感発第62号，昭和63年9月28日。
- 4) 小林一寛，他：遺伝子増幅法によるコレラ毒素遺伝子の迅速診断法，感染症学雑誌，64，1323-1329，1990。
- 5) 国立予防衛生研究所：特集コレラ，病原微生物検出情報，15，121-122，1994。

青森県における貝毒調査結果 (平成5年)

三浦 啓徳 三上 浩二 古川 章子 高橋 政教

Finding on Shellfish Poison in Aomori Prefecture (1993)

陸奥湾海域のホタテガイについて、下痢性及び麻痺性貝毒の毒力調査を行った。下痢性貝毒は、前年より毒力の検出時期が遅かったものの、規制期間が延長し、毒力最高値についても上昇した。麻痺性貝毒は規制値を超えなかった。流通貝については、21検体中7検体が規制値を超え、依然として、出荷自主規制期間中に中腸腺付きの生ホタテガイが出回っていた。

Key words : scallop, DSP, PSP

1. はじめに

本県では、ホタテガイの毒化状況の把握、毒化機構の解明等を目的として、昭和53年度から、国の委託事業として県水産部を中心に「赤潮情報交換事業」及び「貝毒安全対策事業」を実施している。当所でも、本事業の一環として、昭和53年度から継続して下痢性及び麻痺性貝毒の毒力調査を行ってきた。今回は、平成5年の調査結果について報告する。

2. 調査方法

2・1 試料

陸奥湾海域の定点から採取したホタテガイ及び流通貝を試料とした。

2・2 調査期間

平成5年2月～平成5年10月

2・3 検査方法

下痢性及び麻痺性貝毒検査は、厚生省の定めた公定法¹⁾²⁾に準じて行った。

3. 結果および考察

3・1 陸奥湾定点毒化状況

(1) 下痢性貝毒 (青森定点)

青森定点の毒化状況を、表1に示す。垂下養殖貝(以下、養殖貝とする)は、昨年より³⁾20日遅く3月15日(3/15とする。以下同じ)に初めて毒力0.4MU/gが検出され、4/11に規制値(可食部あたり0.05MU/g)を越えた。5月には毒力が低下し検出されなかった。6/7から8/16まで毒力が検出され、6/7と7/5は毒力1.0MU/gで昨年と同じ高い値を示した。8/30以降は毒力が検出されなかった。

地まき貝は、昨年より20日遅く3/15に規制値未満の

毒力0.4MU/gが検出された。その後4/11に毒力が規制値を越えた以外は検出されなかった。

(2) 下痢性貝毒 (野辺地定点)

野辺地定点の毒化状況を、表1に示す。養殖貝は昨年より約一週間遅く3/15に初めて毒化が検出され、毒力は0.75MU/gで規制値を越えた。4月以降は6/12と7/5を除いて9/29まで毒力が検出された。7/19は陸奥湾で今年最高値の毒力1.5MU/gが検出された。

地まき貝は、昨年より2日早く3/15に毒力が検出され、4/7には毒力0.6MU/gで規制値を越えた。5/24から7/5まで毒力が検出されず、7/12から8/30まで毒力が検出された。8/16には1.0MU/gで地まき貝では今年最高値を示した。

(3) 麻痺性貝毒

陸奥湾2定点の養殖貝及び地まき貝については、表1のとおりすべてND(可食部あたり)であった。

3・2 出荷自主規制解除

陸奥湾における出荷自主規制解除⁴⁾は、養殖貝と地まき貝に区分し、「生産海域の監視地点におけるホタテガイの貝毒の量が、国の規制値以下となり、かつ、一週間後、二週間後の検査において同様な場合」⁴⁾と定められている。平成5年は、養殖貝、地まき貝ともに、規制解除体制に入って3週目で解除できた。

3・3 ホタテガイの出荷自主規制期間

陸奥湾でのホタテガイの出荷自主規制期間を表2に示した。陸奥湾海域養殖貝の規制期間は、3月19日から10月1日までの197日間であった。これは、昨年と比べ規制開始が14日早く、解除が27日遅く、期間全体で40日延長された。

陸奥湾海域地まき貝の規制期間は、4月12日から7月16日までの96日間と8月27日から10月12日までの47日間

表1 陸奥湾定点における貝毒調査結果

(MU/g)									
青森定点					野辺地定点				
調査年月日	垂下養殖貝		地まき貝		調査年月日	垂下養殖貝		地まき貝	
	下痢性貝毒	麻痺性貝毒	下痢性貝毒	麻痺性貝毒		下痢性貝毒	麻痺性貝毒	下痢性貝毒	麻痺性貝毒
平5.2.18	ND(ND)	(ND)	ND(ND)	(ND)	平5.2.17	ND(ND)	(ND)	ND(ND)	(ND)
3. 4	ND(ND)		ND(ND)		3. 4	ND(ND)		ND(ND)	
3. 8	ND(ND)	(ND)	ND(ND)	(ND)	3. 9	ND(ND)	(ND)	ND(ND)	(ND)
3.15	0.4(0.04)		0.4(0.04)		3.15	0.75(0.09)		0.6(0.048)	
3.22			ND(ND)		3.24			0.4(0.04)	
3.29			ND(ND)		3.31	ND(ND)			
4. 5	ND(ND)		ND(ND)		4. 7	ND(ND)		0.6(0.058)	
4.11	0.5(0.07)	(ND)	0.5(0.07)	(ND)	4.12	0.6(0.06)		0.6(0.06)	
4.20	0.3(0.03)				4.20	0.6(0.06)		0.5(0.05)	
4.27	0.3(0.03)				4.27	0.4(0.04)		ND(ND)	
5.10	ND(ND)		ND(ND)		5.10	0.3(0.03)		0.3(0.02)	
5.24	ND(ND)	(ND)	ND(ND)	(ND)	5.24	0.4(0.04)		ND(ND)	
6. 7	1.0(0.09)		ND(ND)		6. 7	0.4(0.04)		ND(ND)	
6.21	0.4(0.03)	(ND)	ND(ND)	(ND)	6.21	ND(ND)		ND(ND)	
7. 5	1.0(0.08)	(ND)	ND(ND)		7. 5	ND(ND)	(ND)	ND(ND)	
7.12			ND(ND)		7.12			0.4(0.03)	
7.19	0.6(0.05)	(ND)			7.19	1.5(0.12)	(ND)		
8.16	0.5(0.04)		ND(ND)		8.16	0.75(0.06)		1.0(0.07)	
8.30	ND(ND)	(ND)	ND(ND)		8.30	0.75(0.06)	(ND)	0.5(0.03)	
9.28	ND(ND)				9.29	0.6(0.04)			
10. 6			ND(ND)					ND(ND)	

ND：下痢性貝毒は0.3MU/g未満（中腸腺）
 麻痺性貝毒は0.875MU/g未満
 ()：可食部

の二回で期間全体は143日間であった。昨年に比べ規制開始が61日早く、二回目の解除が62日遅く、期間全体で81日延長された。

3・4 流通貝の貝毒調査結果（県生活衛生課）

夏季一斉取締りに伴う流通貝の調査結果を表3に示す。

21検体について調査を行ったが、7検体が下痢性貝毒の規制値を超えており、その値は、可食部あたり0.05～0.2MU/gであった。

4. ま と め

(1) 下痢性貝毒について平成5年度は、陸奥湾海域において、昨年より20日遅く3月中旬に毒化が始まり9月下旬まで続いた。そのうち養殖貝では前年より14日早く規制値を越え解除は27日遅く、規制期間は40日延長された。

地まき貝は前年より61日早く規制値を越え、解除は62日遅く規制期間が81日延長された。

(2) 下痢性貝毒の毒力の最高値は、陸奥湾海域の養殖貝において、青森定点1.0MU/g、野辺地定点1.5MU/gであり、野辺地定点では前年の0.75MU/gに比べて二倍に上昇した。

地まき貝は、青森定点0.5MU/g、野辺地定点1.0MU/gであった。

平成5年は、前年に比べて毒力が高く、毒化期間が長かった。

(3) 麻痺性貝毒は、陸奥湾海域においてすべて不検出であった。

(4) 流通貝の調査では、21検体中7検体が下痢性貝毒の規制値を超え、出荷自主規制期間中に中腸腺付きのホタテガイが出回っていることから、関係機関の監視指導等の強化及び徹底が必要であると考えられる。

表2 ホタテガイ出荷自主規制期間

海 域	貝の種類	貝毒の種類	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12 (月)
陸奥湾	垂下養殖	下痢性	3/19 ————— 10/1 (197日間)											
	地まき		4/12 ————— 7/16 8/27 ——— 10/12 (143日間)											

表3 流通貝の貝毒調査結果

No.	貝の種類	ボイル・生貝の別	採捕場所	採捕月日	貝毒の種類	(MU/g)	
						毒 力 可食部あたり	収去先
1	ホタテガイ	ボイル	陸奥湾蟹田	7.9	下痢性	0.05超~0.1未満	青森市
2	ホタテガイ	ボイル	陸奥湾奥内	7.12	下痢性	0.05未満	青森市
3	ホタテガイ	生	陸奥湾平館	7.13	下痢性	0.05未満	青森市
4	ホタテガイ	生	陸奥湾東田沢	7.14	下痢性	0.05超~0.1未満	蟹田町
5	ホタテガイ	生	陸奥湾茂浦	7.14	下痢性	0.05未満	平内町
6	ホタテガイ	ボイル	陸奥湾茂浦	7.14	下痢性	0.1超~0.2未満	平内町
7	ホタテガイ	ボイル	陸奥湾野辺地	7.13	下痢性	0.2超~0.4未満	平内町
8	ホタテガイ	生	山田湾	7.13	下痢性	0.05未満	弘前市
9	ホタテガイ	生	三陸産	7.13	下痢性	0.05未満	弘前市
10	ホタテガイ	ボイル	噴火湾西部	—	下痢性	0.05超~0.1未満	黒石市
11	ホタテガイ	生	宮城県中部沖	—	下痢性	0.05未満	五所川原市
12	ホタテガイ	生	陸奥湾	—	下痢性	0.05未満	五所川原市
13	ホタテガイ	生	—	—	下痢性	0.05超~0.1未満	十和田市
14	ホタテガイ	生	陸奥湾狩場沢	—	下痢性	0.05超~0.1未満	三沢市
15	ホタテガイ	生	山田湾	—	下痢性	0.05未満	三沢市
16	ホタテガイ	生	陸奥湾野辺地	—	下痢性	0.05未満	野辺地町
17	ホタテガイ	生	陸奥湾野辺地	—	下痢性	0.05未満	野辺地町
18	パール貝	—	ニュージーランド	H3.11.28	麻痺性	0.875未満	青森市
19	パール貝	—	ニュージーランド	—	麻痺性	0.875未満	青森市
20	ホタテガイ	生	北海道	—	麻痺性	0.875未満	八戸市
21	ホタテガイ	生	山田湾	—	麻痺性	0.875未満	八戸市

文 献

- 1) 厚生省環境衛生局乳肉衛生課：下痢性貝毒検査法，昭和56年5月。
- 2) 厚生省環境衛生局乳肉衛生課：麻痺性貝毒検査法，昭和55年5月。
- 3) 三上浩二，他：青森県における貝毒調査結果（平成3年），青森県環境保健センター研究報告，4，106-110，1993。
- 4) 青森県：下痢性貝毒により毒化したホタテガイの取り扱い方針，昭和56年4月25日（平成4年6月1日一部改正）。

青森空港騒音調査結果について

今 武純 松尾 章 松山 恒樹¹

Research of Jetplane Noise in Aomori Airport

航空機のジェット化が完了した青森空港について、昭和56年から平成3年までの騒音調査結果をまとめた。ジェット化前後で調査している3地点での測定結果はWECPNL等の増加がみられたが、調査を実施したいづれの地点でも環境基準を超えていなかった。また、予測コンターと実測値の比較ではおおむね実測値の方が低い値を示した。

key words : noise, airport, jetplane

1. はじめに

国内地方空港においては、プロペラ機YS-11の老朽化に伴い、ジェット機の導入が進んでおり、機種の大規模に伴う空港騒音問題の発生が懸念されるところである。このような状況を踏まえ、空港騒音問題の発生を未然に防止するため、最近ジェット機導入が完了した青森空港におけるジェット機導入前後の騒音調査結果をまとめたので報告する。

2. 概況調査

2-1 青森空港設置の経緯

青森空港は昭和37年8月運輸省の空港開設許可を得、昭和39年8月完成、同年11月供用開始、昭和40年6月に

は青森～東京定期便が就航し、昭和51年7月からは青森～東京、青森～千歳その他青森～大阪にもYS-11型により定期便が就航した。しかし、1,400mの滑走路ではジェット機の離発着が不可能であり、また、夏期の霧、冬期の積雪による就航率の低下という問題を抱えていたため、最新の航空保安施設を備えた大型ジェット機就航可能な新空港の建設が求められた。

新空港は建設最適地調査の結果、昭和54年旧青森空港周辺に位置する青森・浪岡地区とし、昭和56年度からの国の第4次空港整備5ヶ年計画に組み入れられ、昭和57年10月第1期工事に着手、昭和62年7月に新青森空港として開港した。平成元年12月には第2期工事が完成し、平成2年7月第3種B級空港として全面開港し、大型ジ

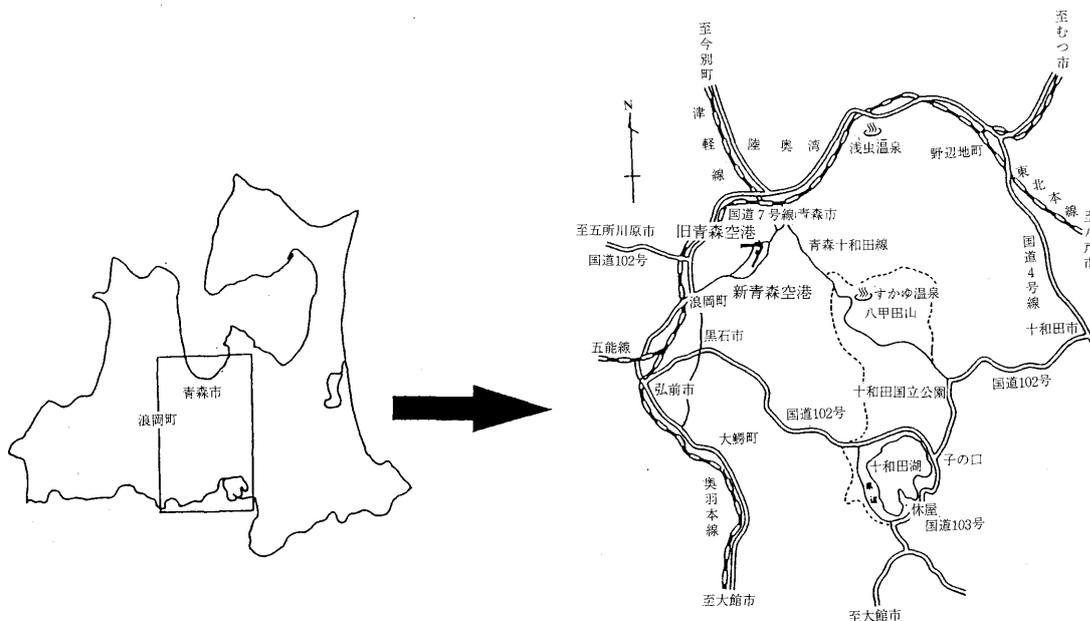


図1 青森空港周辺図

1：青森県環境保全課

ェット機が就航可能となった。(表1)。

2・2 空港利用状況

青森空港における年間の航空機の着陸状況は、ジェット化前は約2,600回前後であったが、ジェット化後の昭和62年度からは年々増加し、平成3年度で約3,900回となっている。定期便その他の内訳で見ると、定期便はジェット化後年々増加し平成3年度で約2,500回となっている。その他の航空機では、固定翼機の単発機は昭和63年度から大幅に減少し、ジェット機、回転翼機の割合が増加している。ジェット化後の昭和62年度からは、国際チャーター便も数も増え、平成3年度では62便運行され、B747、B767等の大型機も就航している。

2・3 定期便就航状況

青森空港を離発着する定期便は、平成3年3月31日現在青森～東京(昭和40年6月より)、青森～札幌(昭和44年7月より)及び青森～大阪(昭和51年7月より)の3路線であり、東京便は一日4往復、札幌便は一日1往復、大阪便は一日2往復就航している。

着陸回数は、ジェット化前の昭和62年度以前は一日あたり約4.4回であったが、昭和62年度以降は一日あたり約5.8回に増便され、平成3年度からは6.8回と更に増便された。また、機種別に見ると、YS-11型機は平成元年度で姿を消しA300型機及びDC-9-87型機が増便している。

定期便の就航率は、ジェット化前では87%前後であったが、ジェット化後の昭和62年度からは約96%となり、欠航便数が減っている。年間の乗降客数は、ジェット化前は13万人前後であったものが、ジェット化後の昭和62年度からは年々増加し、平成3年度では約72万人となっている。

3. 航空機騒音調査結果

3・1 調査方法

(1) 調査地点及び調査期間

青森空港は、青森市の中心部から南方約13kmの地点、

表1 新旧青森空港の概要

	旧空港	新空港
空港の名称	青森空港	青森空港
空港設置者	青森県	青森県
空港管理者	青森県	青森県
空港の種類	第3種空港E級	第3種空港B級
空港の位置	青森市大谷 字山内6	青森市大谷 字小谷1-5
北緯	40°44'22"	40°43'55"
東経	140°42'5"	140°41'40"
標高	196.3m	198.7m
空港の規模		
総面積	406,649㎡	2,299,085㎡
着陸帯	1,520m×150m	2,620m×300m
滑走路	1,400m×45m	2,500m×60m
誘導路	67.25m×18m	2,858.4m×30m
エプロン	10,125㎡	55,147.5㎡
小型機誘導路	-	162.2m×9m
小型機滑走路	-	121m×45.5m
駐車場	5,400㎡	16,700㎡

標高約200mの高台に位置し、南東に八甲田連峰、北に陸奥湾が広がっている。滑走路は、旧青森空港では東西に1,400m走っていたが、新青森空港では北東-南西方向に2,500m走っている。(図1)。

青森空港周辺の航空機騒音調査は青森市・浪岡町において昭和56年度及び昭和61年度から毎年度実施してきた。これまでの青森市・浪岡町での各年度ごとの調査地点及び調査期間をそれぞれ表2に、調査地点の配置図を図2に示した。

(2) 調査方法

各調査地点で1週間(7日間)連続で騒音ピークレベルを測定し、騒音発生回数(日平均)、騒音ピークレベルの

表2 調査地点及び調査年度

調査地点	市町村	調査地区	S56年	S61年	S62年	S63年	H元年	H2年	H3年
①	青森市	金浜地区			○	○			
②	青森市	高田地区			○	○	○	○	○
③	青森市	小館地区1			○	○	○	○	○
④	青森市	小館地区2	○				○	○	○
⑤	青森市	大谷地区	○	○					
⑥	青森市	大別内地区			○	○	○	○	○
⑦	青森市	野沢地区	○	○	○				
⑧	青森市	野木地区			○				
⑨	浪岡町	王余魚沢地区		○	○	○	○	○	○
⑩	浪岡町	相沢地区			○	○	○	○	○

環境基準値：II類型75WECPNL



図2 調査地点配置図

パワー平均値、WECPNLを算出評価した。

3.2 騒音測定結果

各調査地点における調査結果を図3(1)から図3(10)に示した。ジェット化前後に調査を実施している小館地区2及び大谷地区の結果では、WECPNLが増加しているが航空機のジェット化によるものと思われる。一方、騒音発生回数が減少しているのは滑走路の向きが変更になったためと思われる。

(1) 金浜地区

ジェット化後の昭和62, 63年度の2回の調査であり、騒音発生回数が6.9回から6.0回、騒音ピークレベルのパワー平均値が78.1dB(A)から71.8dB(A)、WECPNLが59.9から53.7と全ての項目で減少していた(図3(1))。

(2) 高田地区

ジェット化後毎年度調査を行っている。平成2年度までは全ての項目で減少していたが、平成3年度は騒音発生回数が5.1回、騒音ピークレベルのパワー平均値が76.1dB(A)、WECPNLが58.9と若干増加した(図3(2))。

(3) 小館地区1

ジェット化後毎年度調査を行っている。騒音ピークレベルのパワー平均値は平成3年度に82.7dB(A)から70.1dB(A)に減少したが、WECPNLは64前後で横ばいの傾向にあった(図3(3))。

(4) 小館地区2

ジェット化前の昭和56年度、ジェット化後は平成元年度から調査を行っている。騒音発生回数はジェット化前は約13回であったが、ジェット化後は約9回に減少した。WECPNLは逆に52.3から60.7に増加した(図3(4))。

(5) 大谷地区

ジェット化前の昭和56年度と61年度に調査を行っている。騒音発生回数は13.0回から8.9回に減少したが、

騒音ピークレベルのパワー平均値は86.0dB(A)から90.8dB(A)に、WECPNLは70.2から73.2に増加した(図3(5))。

(6) 大別内地区

ジェット化後毎年度調査を行っている。騒音発生回数は昭和62年度の6.6回から平成3年度の9.1回に増加したが、騒音ピークレベルのパワー平均値は79.1dB(A)から65.2dB(A)に減少した。WECPNLは約59でほぼ横ばいの傾向にあった。(図3(6))。

(7) 野沢地区

ジェット化前の昭和56, 61年度及びジェット化後の昭和62年度に調査を行っている。騒音発生回数は56年度の6.2回から62年度の9.1回に、騒音ピークレベルのパワー平均値は68.1dB(A)から72.6dB(A)に、WECPNLは49.1から56.6と全ての項目でジェット化後増加していた(図3(7))。

(8) 野木地区

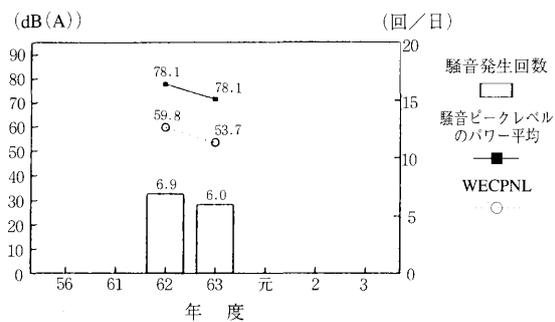
ジェット化後の昭和62年度だけ調査を行っている。騒音発生回数は5.1回、騒音ピークレベルのパワー平均値は77.6dB(A)、WECPNLは58.4であった(図3(8))。

(9) 王余魚沢地区

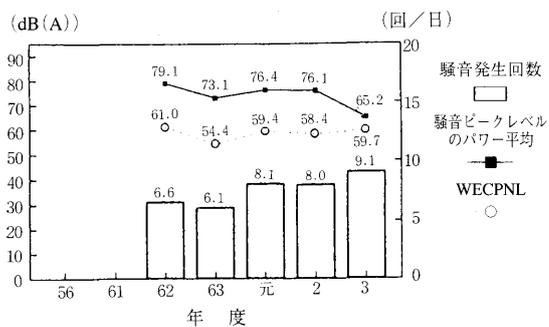
ジェット化前の昭和61年度、ジェット化後は昭和62年度から毎年度調査を行っている。騒音発生回数は61年度の4.2回から平成3年度の9.2回に、騒音ピークレベルのパワー平均値は64.9dB(A)から85.5dB(A)に、WECPNLは44.5から68.4にジェット化後全ての項目で増加した(図3(9))。

(10) 相沢地区

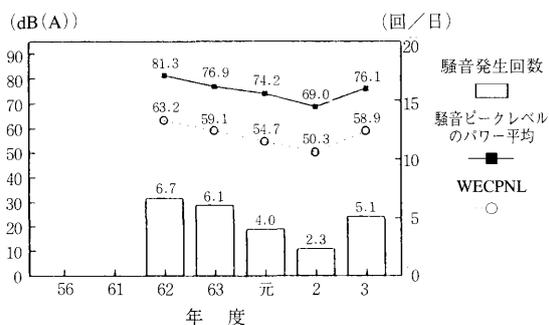
ジェット化後の昭和62年度から毎年度調査を行っている。騒音発生回数は約6回、騒音ピークレベルのパワー平均値は約74dB(A)、WECPNLは約55と全ての項目でほぼ横ばい傾向であった(図3(10))。



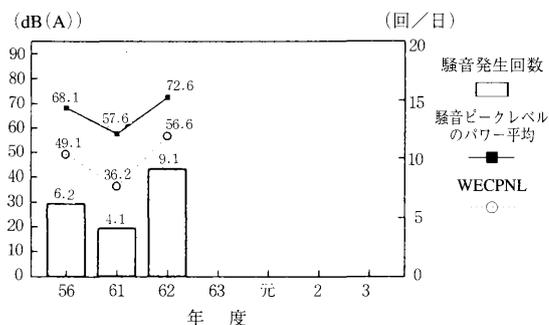
(1) 金浜地区



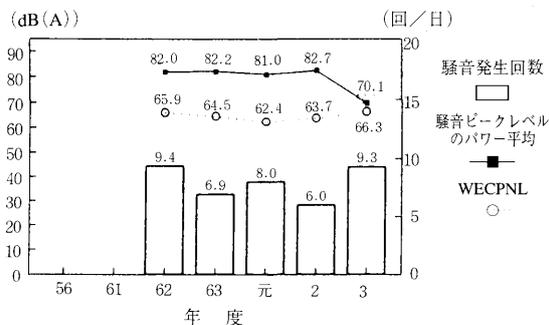
(6) 大別内地区



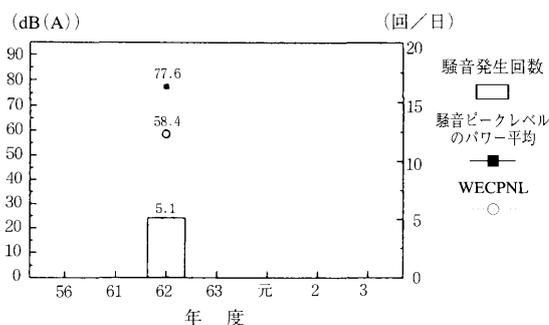
(2) 高田地区



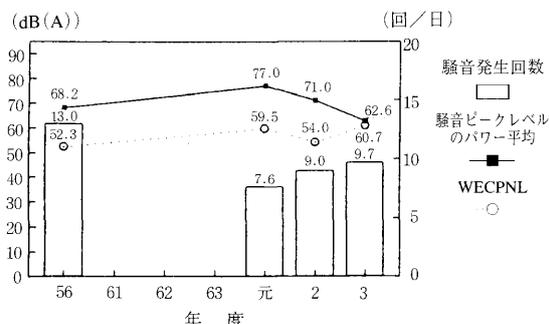
(7) 野沢地区



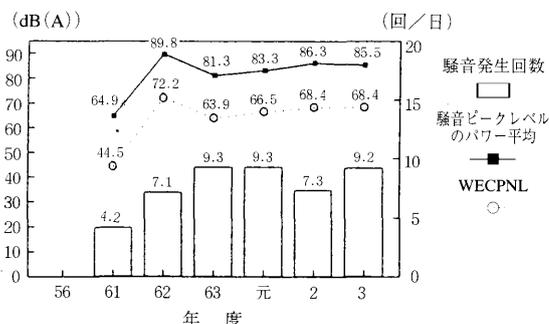
(3) 小館地区1



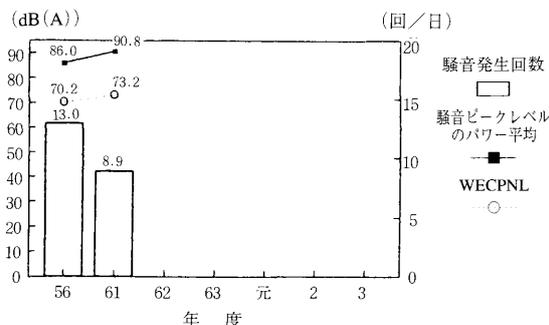
(8) 野木地区



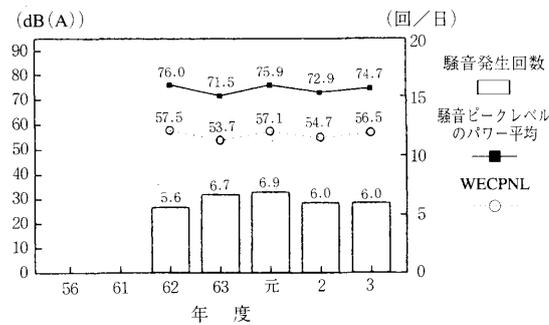
(4) 小館地区2



(9) 王余魚沢地区



(5) 大谷地区



(10) 相沢地区

図3 航空機騒音測定結果

3.2 予測コンターと実測値の比較

旧青森空港について昭和61年度の実測値と予測コンター図との比較を行った。昭和61年度における定期便はYS-11型機のみであるので、その飛行コース毎の離発着数及びYS-11の騒音レベル関数(表3)を用い、旧青森空港の予測コンター図を作成した(図4)。なお、航空機の離着陸の角度は、着陸を3.0°、離陸を4.3°とした。また図4に昭和61年度における調査地点毎のWECPNLの実測値をあわせて表示した。

調査地点⑤の大谷地区におけるWECPNLの実測値は73.2であり、予測コンターよりも高い値を示した。調査地点⑦の野沢地区におけるWECPNLの実測値は36.2であり、予測コンターよりもかなり低い値を示した。調査地点⑨の王余魚沢地区におけるWECPNLの実測値は44.5であり、予測コンターよりも低い値を示した。

次に新青森空港について平成3年度の実測値と予測コンター図との比較を行った。平成3年度における機種毎及び飛行コース毎離発着数及び機種毎(DC-9, A-300)の騒音レベル関数(表3)を用い、新青森空港の予測コンター図を作成した(図5)。なお、航空機の離発着の角度は、着陸を3.0°、離陸を4.3°とした。また、DC-9-41並びにDC-9-87の騒音レベル関数が入手できなかったため、それらをDC-9-81の騒音レベル関数で代用した。また、図5の予測コンター図に平成3年度における調査地点毎のWECPNLの実測値をあわせて示した。

調査地点②の高田地区におけるWECPNLの実測値は58.9であり、予測コンターよりも若干低い値を示した。調査地点③の小館地区1におけるWECPNLの実測値は66.3であり、予測コンターとほぼ一致した。調査地点④の小館地区2におけるWECPNLの実測値は60.7であり、

予測コンターよりも若干低い値を示した。調査地点⑥の大別内地区におけるWECPNLの実測値は59.7であり、予測コンターよりも低い値を示した。調査地点⑧の王余魚沢地区におけるWECPNLの実測値は68.4であり、予測コンターよりも若干低い値を示した。調査地点⑩の相沢地区におけるWECPNLの実測値は56.5であり、予測コンターよりもかなり低い値を示した。

このように予測コンターよりも実測値の低い傾向を示したが、WECPNLの予測コンターが実測値より高い値を示すのは、空港と調査地点との標高差、エンジンの反対側で騒音レベルの減少をもたらす遮へい効果、地上伝搬減衰効果等の影響を予測コンター作成時考慮しなかったためと考えられる。

4. ま と め

- (1) 旧青森空港の滑走路は東西に1,400mであったが、新青森空港の滑走路は東西南北方向に2,500mとなった。
- (2) 航空機がジェット化された昭和62年からは、航空機の着陸回数が年々増加し、平成3年度では約3,900回となっている。また、ジェット化に伴い国際チャーター便の数も増え、平成3年度では62便が運行された。
- (3) 青森空港周辺の騒音調査は、昭和56年度3地点、61年度3地点、62年度8地点、63年度から平成3年度までは6地点で行ったが、いずれの地点でも環境基準を超えていなかった。
- (4) 旧青森空港の昭和61年度におけるWECPNLの予測コンターと実測値の方が予測コンターより低い値を示した。
- (5) 新青森空港の平成3年度におけるWECPNLの予測コンターと実測値を比較すると、小館地区1を除き、実測値の方が予測コンターより低い値を示した。

表3 航空機種別の騒音レベル関数

機 種	離着の別	騒音レベル関数	SD:スライドディスタンス	SD単位
DC-9-41	離	$dB(A) = -6.7(\text{LOG}(SD))^2 + 23\text{LOG}(SD) + 94 - 13$		ft
DC-9-81	着	$dB(A) = -7.0(\text{LOG}(SD))^2 + 24\text{LOG}(SD) + 83 - 13$		ft
DC-9-87				
A300	離	$dB(A) = -5.6(\text{LOG}(SD))^2 + 14\text{LOG}(SD) + 109 - 13$		ft
	着	$dB(A) = -6.4(\text{LOG}(SD))^2 + 17\text{LOG}(SD) + 105 - 13$		ft
YS-11	離	$dB(A) = 119.0 - 15\text{LOG}(SD)$		m
	着	$dB(A) = 122.5 - 20\text{LOG}(SD)$		m

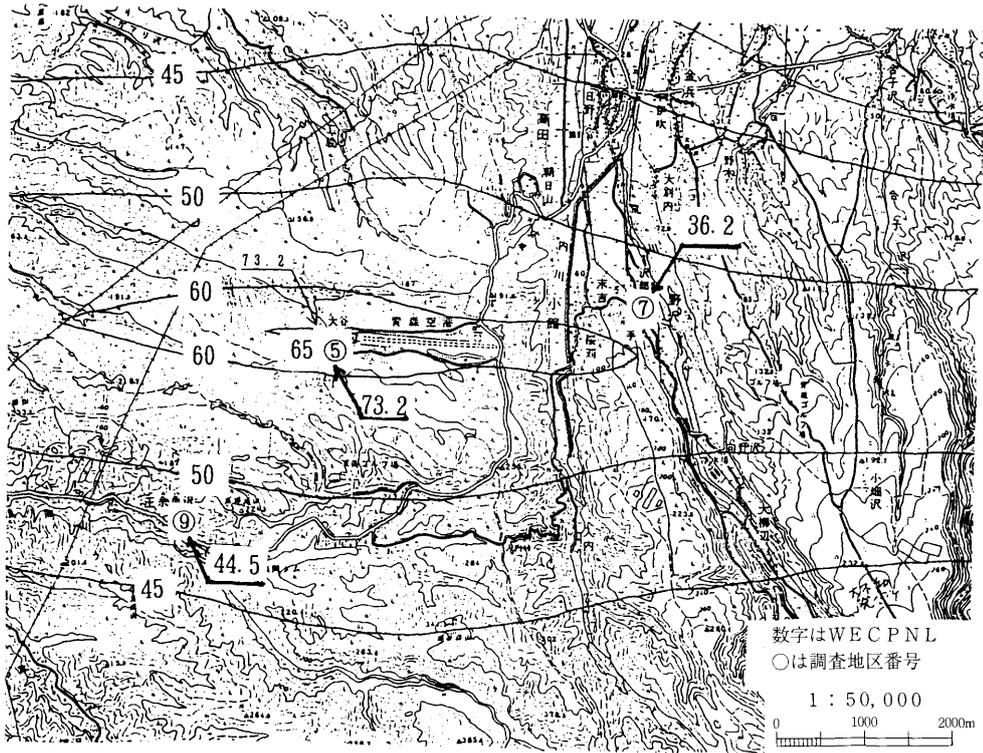


図4 旧青森空港におけるコンター図（昭和61年度）

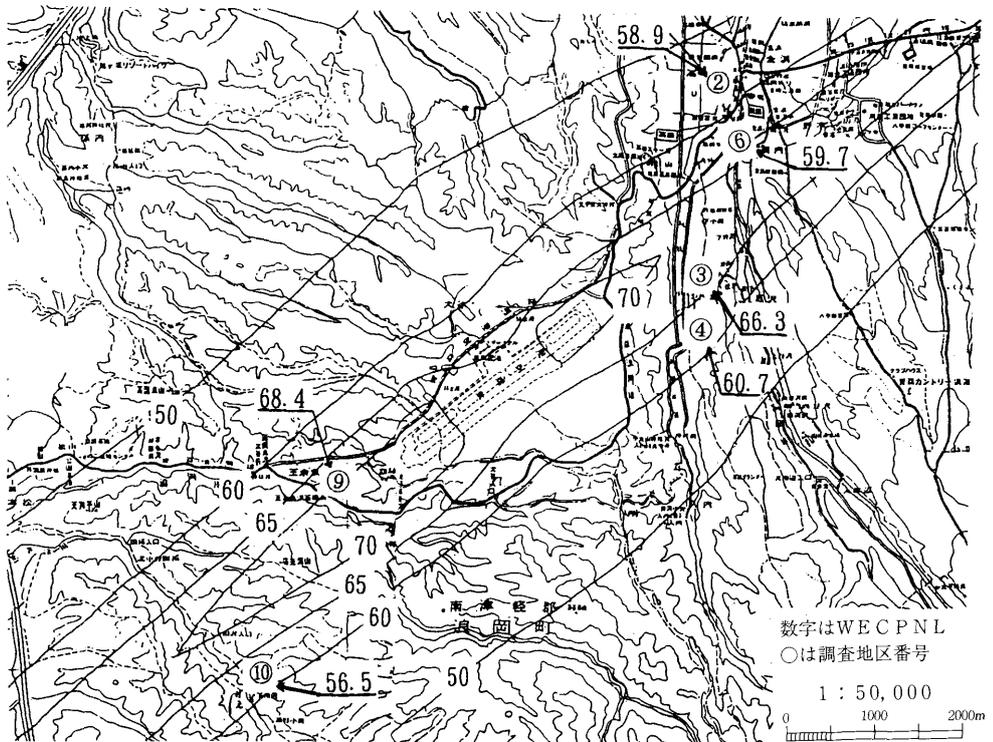


図5 新青森空港におけるコンター図（平成3年度）

正月中における八戸市の大気汚染状況

坂上 素一 秋田谷 礼治 工藤 隆治 坂本 正昭

Air Pollution during the New Year in Hachinohe City

八戸市の大気汚染物質バックグラウンド濃度を把握するため、市内3測定局（八戸市庁局、第二魚市場局、八戸保健所局）の昭和53年度及び平成4年度の正月中におけるSO₂、NO_x、SPM濃度について検討した。その結果、八戸保健所局は、工場発生源の影響が最も少ないと考えられ、その元日の大気汚染物質濃度日平均値が八戸市のバックグラウンド濃度と推測された。

Key words : the New Year, air pollution, SO₂, NO_x, SPM

1. はじめに

中小企業が稼働しない正月期間中の大気汚染物質濃度を把握しておくことは、バックグラウンド濃度の基礎資料として重要である。

今回、著者らは八戸市内の大気汚染常時監視局のうち八戸市庁局、第二魚市場局、八戸保健所局のSO₂、NO_x、SPM測定結果について検討を加え、若干の知見を得たので報告する。

2. 調査方法

2.1 調査期間

昭和53年12月20日～昭和54年1月10日

平成4年12月20日～平成5年1月10日

(調査年度は正月中の風向が類似する年度を選択した)

2.2 調査地点

八戸市庁、第二魚市場、八戸保健所

2.3 調査項目

SO₂、NO_x、SPM

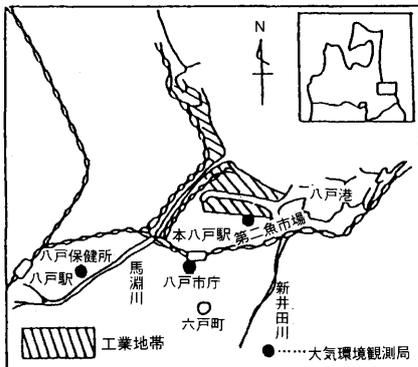


図1 調査地点

3. 結果及び考察

3.1 SO₂濃度

昭和53年度のSO₂濃度経日変化は、第二魚市場で正月中に大きく減少し凹型となっており、工場稼働の影響が明瞭に見られた。また、八戸市庁も正月前は多少高い傾向がみられた。

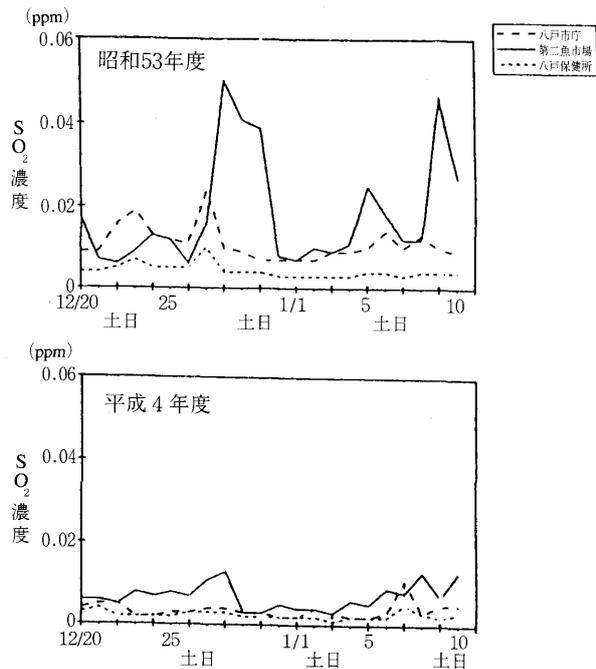


図2 SO₂経日変化 (昭和53年度及び平成4年度)

しかし、第二魚市場の平成4年度正月中の濃度は他の局と比べ若干高かったが、年末年始は昭和53年度よりかなり濃度が低く、凹型も明瞭でなくなっており、SO₂による大気汚染がかなり軽減されたことが分かった(図2)。

八戸保健所の昭和53年度及び平成4年度の元日にお

ける経時変化をみると、両年度とも同じような濃度を示した。

八戸保健所は工場地帯から約6 km離れており、工場等発生源の影響が少ないと考えられることから、元日における日平均値0.002ppmが八戸市のバックグラウンド濃度と考えられた(図3)。

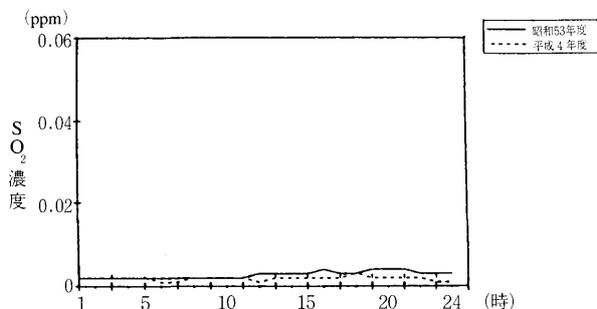


図3 元日における八戸保健所のSO₂濃度経時変化

3・2 NO_x濃度

昭和53年度及び平成4年度のNO_x濃度経日変化は両年度とも正月中に濃度は低くなっていたSO₂に比べると両年度の差は各地点とも小さかった。

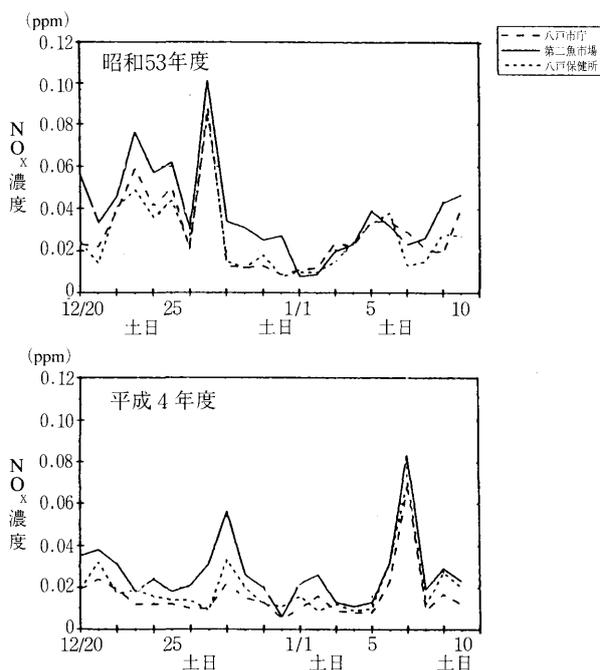


図4 NO_x濃度経日変化
(昭和53年度及び平成4年度)

平成4年度は12月31日に濃度が低くなっているが、1月1日、2日に若干高くなっており、これは車両などの移動発生源の影響によるものと考えられた(図4)。

八戸保健所の元日における経時変化は、1時から16時までには低い値で推移しているが、17時から20時までには若干高い値を示している。この原因として移動発生源の影響が考えられた(図5)。

八戸保健所は発生源の影響が少ないと考えられることから、元日における日平均値約0.016ppmが八戸市のバックグラウンド濃度と考えられた。

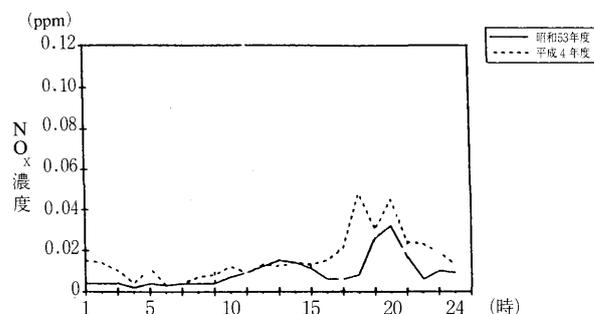


図5 元日における八戸保健所のNO_x濃度経時変化

3・3 SPM濃度

昭和53年度の正月中は濃度が低かったが、年末年始の濃度は高く、平成4年度については年末年始中低い濃度経日変化を示した(図6)。

八戸保健所の昭和53年度及び平成4年度の元日における経時変化をみると、両年度とも同じような濃度を示しており、八戸保健所は発生源の影響が少ないと考えられ

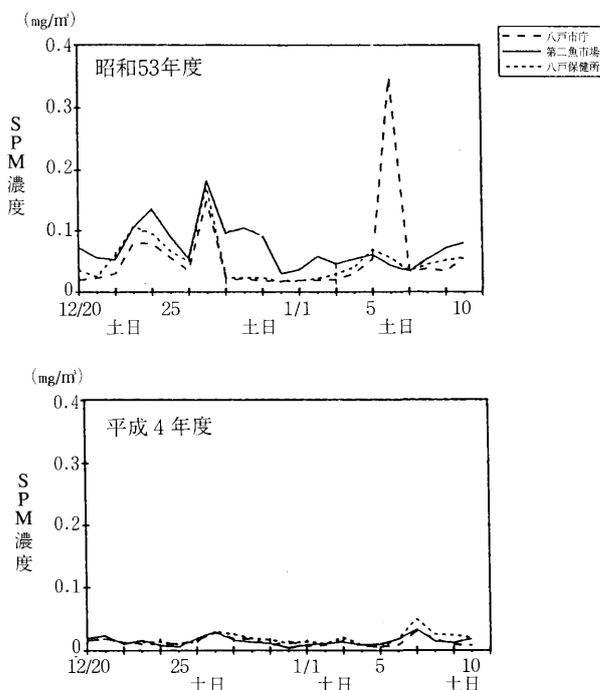


図6 SPM濃度経日変化
(昭和53年度及び平成4年度)

ることから、元日における日平均値約0.014mg/m³が八戸市のバックグラウンド濃度と考えられた(図7)。

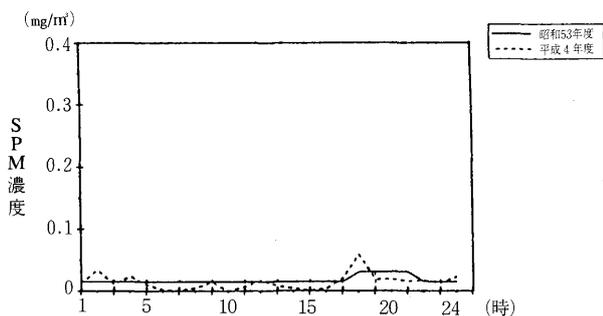


図7 元日における八戸保健所のSPM濃度経時変化

4. ま と め

昭和53年度及び平成4年度の正月中における八戸市の大気汚染状況について検討した結果、次のことが分かった。

(1) 平成4年度は昭和53年度よりSO₂、SPM濃度が大幅に低下した。

これは、工場等の燃料の軽質化などにより、大気汚染物質排出量が減少したことが原因と考えられた。

NO_xに関しては、SO₂やSPMに比べて減少率は低く、これは移動発生源等の人為的影響によるものと考えられた。

(2) 八戸市の大気汚染物質のバックグラウンド濃度は、八戸保健所の元日における日平均値と考えられ、その値はSO₂0.002ppm、NO_x0.016ppm、SPM0.014mg/m³であった。

今後の課題として、工場の稼働状況や車両の通行量なども加味して検討する必要があると思われた。

文 献

- 1) 岡崎淳, 他: 正月三が日と12, 1月平日における窒素酸化物濃度の比較, 第34回大気汚染学会要旨集, 354, 1993.
- 2) 新井久雄, 他: 南関東地域での年末年始時における浮遊粒子状物質の高濃度事例, 第34回大気汚染学会要旨集, 327, 1993.

Ⅲ 他誌投稿抄録

他誌投稿抄録

1 : 弘前大学医学部形成外科

Sex-dependent expression of class Pi glutathione S-transferase during chemical hepatocarcinogenesis in B6C3F1 mice. I. Hatayama, S. Nishimura¹, T. Narita² and K. Sato¹. *Carcinogenesis*, 14 : 537-538, 1993.

クラスPi Glutathione S-transferase (GST-II) のマウス肝化学発癌過程における発現を免疫組織化学的に調べた。GST-IIの肝臓における発現は著明な性差を示し、正常雌肝にはほとんど検出されないのに対し、雄では多量の発現がある。発癌剤DEN投与12週の雌マウスで、正常肝には認められないGST-II陽性細胞が確認された。また、DEN投与24週の雌の肝前癌病巣はGST-IIの強い発現がみられる一方、雄では陰性巣として検出され、病巣における発現の逆転が観察された。現状では、有用なマウス肝前癌マーカーは知られていないが、本研究結果は、GST-IIは有効なマーカーとなることを示す。

1 : 弘前大学医学部第2生化学

2 : 弘前大学医学部第2病理学

Selective high expression of protein phosphatase PP1 α mRNA in rat poorly differentiated ascites hepatomas. K. Kitamura¹, Y. Mizuno¹, I. Hatayama, K. Sato² and K. Kikuchi¹. *International J. Oncology*, 2 : 237-240, 1993.

ラット原発性肝癌および腹水肝癌のPP1 α , PP2A α , PP2CのNorthern blot解析より、これらのmRNAは原発性肝癌では変化なかったが、PP1 α は腹水肝癌AH13, AH66F, AH130で正常肝の10倍以上の増加を示した。また、これら3種のアイソザイムは肝再生に伴って、いづれも10倍程度の上昇が認められた。このことは、細胞増殖のprotein phosphatase発現への関与を示唆する。

1 : 北海道大学医学部免疫研究所

2 : 弘前大学医学部第2生化学

Release of Ofloxacin from silicone gel sheet. Y. Sawada¹, I. Hatayama and K. Sone¹. *British j. Plastic Surgery*, 46 : 576-579, 1993.

シリコンゲル中のOfloxacin (OFLX)の外傷部および血液中への放出に関して、ラットを用いて検討した。外傷部では、0.2%OFLXを用いた場合0.02%よりも2から5倍高かった。しかし、血液中には、微量しか検出されなかった。

Lack of peroxisomal enzyme inducibility in rat hepatic preneoplastic lesions induced by mutagenic carcinogens : contrasted expression of glutathione S-transferase P form and enoyl CoA hydratase. Y. Yokohama¹, S. Tsuchida¹, I. Hatayama and K. Sato¹. *Carcinogenesis*, 14 : 393-398, 1993.

Solt-Farberモデルによるラット肝前癌病巣には、Glutathione S-transferase P (GAT-P)が発現してくる。このモデルにペルオキシゾーム増殖剤 (PP) clofibrataを投与するとEnoyl CoA hydratase (ECH)は病巣周辺部に誘導されるが病巣は陰性となり発現の逆転がみられた。また、ペルオキシゾーム増殖剤 (PP) clofibric acidの初代培養肝細胞への添加はECH mRNA増加と共に癌遺伝子c-junによるGST-Pの誘導を抑制した。このことから、c-JUNとPP受容体の結合によるc-JUNの不活性化に伴うGST-P発現の低下が考えられた。

1 : 弘前大学医学部第2生化学

Menkes病マウス脳におけるチトクローム・オキシダーゼおよびスーパーオキシド・ジスムターゼの活性低下と銅治療の効果. 吉村教暉¹, 畑山一郎, 佐藤清美², 木田和幸³, 臼谷三郎³ : 臨床環境医学, 1, 95-100, 1993.

生後2週で死亡するメンケス病マウスの脳変成と銅治療効果の機序を調べる為、治療前後のBrindled mouse (BM) 脳の銅依存性酵素の活性を検討した。非治療BMのcytochrome oxidaseおよびsuperoxide dismutase活性は、正常対照の各々30%, 80%であったが、銅一回投与で活性は速やかに正常レベルとなり、生後すぐの死亡は解消された。

1 : 弘前大学医学部第2病理学

2 : 弘前大学医学部第2生化学

3 : 弘前大学医学部公衆衛生学

The relationship between time of application of prostaglandin E1 and improved flap survival. Y. Sawada¹, I. Hatayama and K. Sone¹. *British J. Plastic Surgery*, 46 : 580-581, 1993.

弘前ヘアレスラットを用いて、皮膚移植片の生着率とprostaglandin E1 (PGE1)投与時との関連を検討した。皮膚移植と同時に、または3時間後にPGE1を投与した場合、組織の生着率は有意に上昇したが、6時間以降の投与は効果がなかった。

1 : 弘前大学医学部形成外科

A study of topical and systemic prostaglandin E1 and survival of experimental skin flap. Y. Sawada¹, M. Sugawara¹, I. Hatayama and K. Sone¹. *British J. Plastic Surgery*, 46 : 670-671, 1993.

PGE1の投与方法と皮膚移植片の生存率に関して検討した。移植後、PGE1をシリコンゲルとしての皮下連続投与、1時間毎の腹腔内断続投与のいずれにおいても組織の生存率は有意に増加した。

1 : 弘前大学医学部形成外科

Complete recovery of cytochrome oxidase and superoxide dismutase activities in the brain of brindled mice receiving copper therapy. N. Yoshimura¹, I. Hatayama, K. Sato² and M. Nishimura³. *J. Intellectual Disability Research*, 37 : 561-567, 1993.

ヒトのメンケス病のモデル動物であるBrindled mouse (BM)の銅投与による治療とcytochrome oxidase (CO), superoxide dismutase (SOD)活性変動を検討した。生後2週のBM脳のCO活性は正常マウスの30%であったが、銅一回投与8カ月で90%にまで回復した。一方、SODは80%から93%となった。

1 : 弘前大学医学部第2病理学

2 : 弘前大学医学部第2生化学

3 : 浜松医科大学実験動物センター

Phosphatidylcholine peroxidation and liver cancer in mice fed a choline-deficient diet with ethionine. L-S. Yoshida¹, T. Miyazawa¹, I. Hatayama, K. Sato², K. Fijimoto¹ and T. Kaneda³. *Free Radical Biology and Medicine*, 14 : 191-199, 1993.

エチオン添加コリン欠乏食投与して誘発したマウス肝前癌病巣をglutathione S-transferase IIの免疫染色で確認し、病巣部のphosphatidylcholine (PC)の過酸化レベルを化学発光法にて測定した。その結果、肝前癌病巣のPC過酸化は、正常肝に比較して2倍高く、上記食餌による過酸化脂質の発生が、前癌の誘発や癌化の促進に起因していると考えられた。

1 : 東北大学農学部食品学

2 : 弘前大学医学部第2生化学

3 : 郡山女子大学栄養学

Specific expression of glutathione S-transferase Pi forms in (pre) neoplastic tissues: Their properties and functions. K. Sato¹, K. Satoh¹, S. Tsuchida¹, I.

Hatayama, H. Shen¹, Y. Yokoyama¹, Y. Yamada¹ and K. Tamai². *Tohoku J. Experimental Medicine*, 168 : 97-103, 1993

ヒト、ラット、マウスの肝前癌病巣、肝癌におけるPiクラスGlutathione S-transferaseの発現機構、生理的機能、構造に関する総説。

1 : 弘前大学医学部第2生化学

2 : 弘前大学医学部皮膚科

Function of Pi-class glutathione S-transferase: Roles in carcinogenesis and suppression by oxidative stress. S. Tsuchida¹, K. Sato¹, K. Satoh¹, I. Hatayama, Y. Yokoyama¹, Y. Yamada¹, H. Shen¹, S. Nishimura¹, S. Suzuki¹ and H. Nakano¹. In 『Structure and function of glutathione transferase』 K. D. Tew et al., Eds., CRC Press Inc. p221-233, 1993.

PiクラスGlutathione S-transferase解毒機能と癌化における役割、および活性酸素による不活性化機構についての解説。

1 : 弘前大学医学部第2生化学

青森県におけるコレラ発生状況について (1984-1991)
大友良光 : 弘前医学, 45, 22-27, 1993

青森県では1984年から1991年まで3事例のコレラ発生があった。コレラ菌検出者は、海外旅行者2名、接触者1名、食品媒介と思われる国内初発の感染者が2名の計5名(発病者2名、非発病者3名)であった。分離したコレラ菌はすべてコレラ毒素生産性の定型的なエルトル型で、生物化学的性状も同一であった。また、分離菌株は多くの抗生物質に感受性を示し、特にテトラサイクリンとクロラムフェニコールには高かったが、オレアンドマイシンには耐性であった。一方、分離培地の一部には発育抑制力の強いものがあるので、病院外来での菌検査には、適切な培地の選択が必要と思われる。

エルシニア・エンテロコリチカO:8感染症の発生状況について 大友良光 : 食品衛生研究, 43(8), 7-17, 1993

Yersinia enterocolitica 血清型O:8菌の病原性株による感染症は、他の血清型菌に比べ毒性が強く重症の胃腸炎や敗血症などを引き起こすが、ヒトからの分離例は北米に限られていた。ところが、1991年一戸等により青森県でO:8型が分離されて以来、1992年8月まで18例が確認された。患者は津軽地区に局在し、その山間部あるいは

は山が接近する海浜部および平野部に多かった。また、患者は4才以下が8人、7才から12才までが7人、15才以上が3人と低い年齢層に多く見られた。症状は高熱(38.2~40.0℃)が見られ、しかも有熱期間が長く、中には熱性痙攣を併発する重症例もあった。多くが下痢、腹痛を訴え、2例が虫垂切除術を受けていた。多くの症例で白血球増加とCRPの上昇が認められた。

Boticin Eを用いたE型ボツリヌス菌の鑑別同定法に関する研究 大友良光：弘前医学，45，309-316，1994
無毒であるがE型ボツリヌス菌（E型ボ菌）に生物化学的性状の一致するE型ボ菌類似菌（E型類似菌）の一種が生産する耐熱性バクテリオシン，Boticin E（BE）

の抗菌活性を利用したE菌ボ菌の鑑別同定法を考案し、各種保存菌402株および自然材料（砂，魚）428株体から分離したE菌ボ菌様真珠層形成菌1,024株への応用を試みた。BEに対する各種菌株の感受性試験は、BE産生性GB-3株をTPGYブイオン培地で培養後、加熱、遠心、そして濾過して得られた濾液（BE液）と各種菌株をLVG寒天平板培地上で直線状に交差して塗布し、培養後発育阻止帯の有無を観察する方法で行った。その結果、E型ボ菌とBE非産生E型類似菌にはBE液に対して同程度に感受性で両者の鑑別は出来なかったが、自然材料由来の菌株からのE型ボ菌の鑑別同定が少数のマウスでしかも毒素中和試験なしで簡便かつ迅速に行えることが判明した。

IV 学会等発表抄録

学会等発表抄録

ラット、マウスおよびヒトPiクラスグルタチオンS-トランスフェラーゼの生化学的性質 佐藤公彦¹ 畑山一郎 土田成紀¹ 鈴木伸作¹ 西村祥二¹ 中野創¹ 佐藤清美¹：第59回日本生化学会東北支部会，仙台市，1993. 5. 29

PiクラスGSTは、種を越えて遺伝子構造、酵素学的、免疫学的にひとつのファミリーをなす。AlphaやMuクラスと比較して、当該GSTは、総じて広い基質特異性を持ち、阻害剤に対する抵抗性も高い。PiクラスGSTは癌細胞に強い発現をしめすが、GSTは解毒酵素なので、この発現は癌細胞の薬剤の除去をともなう抵抗細胞の一因となっているとおもわれる。

1：弘前大学医学部第2生化学

***Yersinia pseudotuberculosis* 感染症集団発生事例** 豊川安延：衛生微生物技術協議会第14回研究会，横浜市，1993. 7. 9

わが国で1974年から1991年までに発生した15事例の *Yersinia pseudotuberculosis* 感染症集団発生事例について、発生状況、患者の臨床症状、疫学的検査成績等について検討した。本菌による感染症の発生時期は秋から春にかけて多く、患者の発病数は共通経路単一暴露の対数正規型分布を示した。潜伏期間は細菌性食中毒に比べて数日と長く、患者の臨床症状は、胃腸炎に加えて発疹、皮膚の落屑、莓舌等と多彩であった。

Detection of the thermostable direct hemolysin (tdh) gene of *Vibrio parahaemolyticus* by polymerase chain reaction 中野克重¹ 周志江² 佐藤久聡¹ 大友良光 豊川安延 齊藤博¹：第47回日本細菌学会東北支部総会，十和田市，1993. 9. 2

*Vibrio parahaemolyticus*の耐熱性溶血毒遺伝子(tdh)に関係したプライマーを独自に作成し、保存菌株を用いてPCR法を行った。その結果、神奈川現象陽性(KP⁺)の95株は全てtdhが陽性であり、神奈川現象陰性の12株、他のビブリオ9種37菌株(KP⁺のV. mimicusを除く)、グラム陰性菌8種は全て陰性であった。

1：北里大学

2：長春農牧大

青森県内で発生した2事例のE型ボツリヌス食中毒 大友良光 豊川安延：日本食品衛生学会第66回学術講演会，仙台市，1993. 9. 30

1991年青森県内で2事例のボツリヌス食中毒が発生した。両事例とも原因菌はボツリヌスE型菌であった。1事例はウグイしを原因食品とし、摂取者10名中1名が発症したが患者は抗毒素血清治療なしで治癒した。ウグイの漁獲地は以前の調査でボツリヌスE型菌が確認されている小川原湖であった。他の1事例はアユいずしを原因食品とし、摂取者29名中1名が発症したが患者はボツリヌス抗毒素血清治療により治癒した。アユいずしによる事例について起因菌の汚染源調査を行ったところ、アユの漁獲された河川の砂から高率にボツリヌスE型菌が分離された。

エルシニア・エンテロコリチカO:8感染症の発生状況について 大友良光：食品衛生特殊技術講習会，東京都，1993. 10. 1

(要旨省略：食品衛生研究，43(8)，7-17，1993)

ラット、マウス、およびヒトPiクラスグルタチオンS-トランスフェラーゼの非特異的アイソザイムとしての特徴づけ 佐藤公彦¹ 畑山一郎：第13回腫瘍マーカー研究会，仙台市，1993. 10. 4

Glutathione S-transferase (GST)は、多くの親電子性化合物のグルタチオン抱合解毒反応を触媒する酵素である。細胞質GSTは種を越えてAlpha, Mu, Pi, Thetaの4種に分類されるが、その中で、PiクラスGSTは種々の前癌組織や癌組織に発現してくること、幅広い基質特異性を持つこと、ビリルビンなどによる活性阻害をうけにくいことから、発癌剤などを投与したToxicな条件下でも酵素活性を失わないで多機能を発揮する非特異型アイソザイムとみなされた。

1：弘前大学医学部第2生化学

雌雄マウス肝前癌病巣における核内癌遺伝子およびglutathione S-transferase II (GST-II)発現の免疫学的検討 中野創¹ 畑山一郎 鈴木伸作¹ 佐藤公彦¹：第13回腫瘍マーカー研究会，仙台市，1993. 10. 4

マウス肝前癌病巣のマーカーとして良く使用されているのはG6Pase, AFP, であるが、前者は凍結切片を要する点、後者は陽性率の低い点からパラフィン切片でのマーカーの開発が望まれている。DENによるマウス肝化学発癌により誘発した前癌病巣では、Glutathione S-

transferase II (GST-II) が有力なマーカーになることを報告してきたが、今回、核内癌遺伝子産物 c-JUN, c-FOS, c-MYCのうちc-JUNがGST-IIに匹敵あるいはそれより優れたマーカーとなることを証明した。

1: 弘前大学医学部第2生化学

Ah receptorを介さないアゾ色素誘導マウス肝glutathione S-transferase (GST) 分子種の解析 畑山一郎 中野創¹ 鈴木伸作¹ 西村祥二¹ 土田成紀¹ 菊池英明² 渡辺民朗² 佐藤公彦¹: 第52回日本癌学会, 仙台市, 1993. 10. 5-7

β -naphthoflavoneによるAh receptor (AhR)を介したGSTの誘導が最近報告された。一方、アゾ色素スタンII (SII)は、AhRを介してAryl hydrocarbon hydroxylase活性の増加をもたらすことから、アゾ色素によるGSTの誘導はAhRを介して生ずるかどうかが検討した。AhRを有する雌C57BL/6 (B6)マウスでもAhRを有しない雌DBA/2 (D2)マウスでも、SIIと3'MeDAB投与により肝GST-II, -IIIは著明に誘導されGST-Iは不変だった。結果は、アゾ色素はAhRを介さずGSTを誘導することを示す。

1: 弘前大学医学部第2生化学

2: 東北大学加齢研究所

ラット肝前癌病巣におけるグルタチオンS-トランスフェラーゼP型 (GST-P) 遺伝子の発現に関する蛋白因子 鈴木伸作¹ 畑山一郎 佐藤公彦¹ 佐藤清美¹: 第52回日本癌学会, 仙台市, 1993. 10. 5-7

GST-P 遺伝子発現制御に関与すると考えられている蛋白因子c-JUN, c-FOSおよびグルココルチコイドリセプター (GR)のラット肝前癌病巣における発現を免疫学的に調べた。PCR, RT-PCRのproductを発現ベクターpGEX-3Xに組み込み大腸菌に発現させて、蛋白を調製し、ポリクローナル抗体を得た。GST-P陽性の病巣では、c-JUNは弱陽性だったのに対し、GRは正常肝細胞の核が陽性であった。このことは、GST-Pの発現にJUNは促進的に、GRは抑制的に働く事を示す。

1: 弘前大学医学部第2生化学

酸化ストレスによるPiクラスグルタチオンS-トランスフェラーゼの発現抑制 土田成紀¹ 横山良仁¹ 畑山一郎: 第66回日本生化学会, 東京都, 1993. 10. 1-4

ラットへの過酸化水素を発生させるクロフィブレート

投与、ヒト頭頸部癌への活性酸素を発生させる放射線照射、マウスcolon26腫瘍へのレンチナン投与はいずれもPiクラスGSTの発現を抑制した。この事は、PiクラスGSTの遺伝子発現は酸化ストレスにより負の制御を受けていることを示す。

1: 弘前大学医学部第2生化学

グルタチオンS-トランスフェラーゼをキャリアとする6種類の融合蛋白の精製とそれらの生化学的性質 鈴木伸作¹ 畑山一郎 中野創¹ 佐藤公彦¹: 第66回日本生化学会, 東京都, 1993. 10. 1-4

GSTをキャリアとする融合蛋白発現ベクター (pGEX-3X)を用いて癌遺伝子産物c-Jun, c-Fos, c-Myc, c-Ha-Ras, ベルオキシソーム増殖剤受容体, glucocorticoid receptorを大腸菌JM101に発現させた。精製蛋白はSDS-PAGE, HPLC, 二次元電気泳動にて確認し、分子量, 等電点を明らかにした。また、これらの蛋白を家兎、ニワトリに免疫し、特異抗体を得、immunoblotにて特異性を調べた。さらに、当抗体の化学発癌の解析に対する有用性の高いことが判明した。

1: 弘前大学医学部第2生化学

Propylthiouracil (PTU)によるマウス肝 Glutathione S-transferase (GST)の誘導 畑山一郎 中野創¹ 土田成紀¹ 佐藤公彦¹ 西舘篤: 第66回日本生化学会, 東京都, 1993. 10. 1-4

3種のマウス肝GST (GST-I, II, III)のうちクラスPi GST-IIは雄が雌の10倍以上と顕著な性差を示す。その発現はテストステロンによって制御されていることを報告してきたが、他のホルモンの影響に関しては良く知られていない。今回、甲状腺ホルモン (T_3)の低下をもたらすPTUの効果を調べたところ、雌雄マウスでGST-Iには変動がみられなかったが、雌GST-II, 雌雄GST-IIIは顕著な誘導を示した。本結果は、 T_3 投与で得られた結果と逆であることから、生理的にもマウス肝GSTは分子種により T_3 で発現制御を受けていることが判明した。

1: 弘前大学医学部第2生化学

腫瘍マーカー酵素、ラット、マウスおよびヒトPiクラスグルタチオンS-トランスフェラーゼの非特異的アイソザイムとしての特徴づけ 佐藤公彦¹ 畑山一郎: 第52回日本癌学会, 仙台市, 1993. 10. 5-7

Glutathione S-transferase (GST)は種々の毒物のグルタチオン抱合反応を触媒する他、ステロイド、ヘムなどの

運搬蛋白としての機能をもつ酵素である。Alpha, Mu, Pi, Thetaの4種のGST分子種のうち、PiクラスGSTは癌組織に発現するが、広い基質特異性、特異的阻害剤のないことから非特異的アインザイムとして特徴づけられ癌細胞における抵抗性という特質を表しているのもと解釈される。

1：弘前大学医学部第2生化学

レンチナンによるマウス colon 26腫瘍でのグルタチオン S-トランスフェラーゼの発現抑制 土田成紀¹ 畑山一郎 佐藤清美¹：第52回日本癌学会，仙台市，1993. 10. 5-7

PiクラスGlutathione S-Transferase (GST)は、ヒト大腸癌などの腫瘍組織やシスプラチン耐性癌細胞で著しく増加する。ラットPiクラスGST-P遺伝子のサイレンサーに結合する転写因子としてインターロイキン6 (IL-6) 依存性DNA 結合蛋白が同定されているので、IL-6 誘導能が示唆されているレンチナンにより、マウスの移植性大腸癌 colon26のGSTが低下するかどうか検討した。しかし、マウスPiクラスGST (GST-II)は減少せず、IL-6との関連は認められなかった。レンチナン投与に伴うGST-IIの低下は主にIL-6以外の要因によるものと考えられた。

1：弘前大学医学部第2生化学

マウス肝前癌病巣における核内癌遺伝子産物 c-Jun の発現 中野 創¹ 鈴木伸作¹ 佐藤公彦¹ 畑山一郎 佐藤清美¹：第52回日本癌学会，仙台市，1993. 10. 5-7

マウス肝前癌病変の癌遺伝子発現に関しては、点突然変異の有無など主にH-rasについて検討されてきた。そこで、核内癌遺伝子産物c-Junの発現を免疫組織化学的に検討した。発癌剤DEN投与で誘発されたマウス肝前癌病巣の大半は、Jun陽性巣として検出され、また、発癌過程の早期にもJun陽性単一細胞がみられた。

1：弘前大学医学部第2生化学

PCR法によるマダニ由来ボレリアからのライムボレリアDNAの検出 佐藤允武 三上稔之 木村淳子 畑山一郎：平成5年度地研北海道・東北・新潟支部微生物研究部会，仙台，1993. 11. 25

(要旨省略：平成5年度希少感染症診断技術研修会，東京，1994. 2. 24)

日本産ボレリアからのライムボレリアDNAの検出を

目的として県内で分離したマダニの由来ボレリア22株を対象に3組のライムボレリアのプライマーを用いPCR法により検討した。

その結果、プライマーによって検出数、検出株に差異を認めたが、DNAはいずれのプライマーでも検体の半数以上から検出できた。特に鞭毛遺伝子の1組は検出率100%で日本産ボレリアにおけるライムボレリアのDNA検出には極めて有用なプライマーであることが判明した。

神経芽細胞腫マス・スクリーニングで発見された症例について 下山純子 野呂キョウ 金田量子 佐藤允武 立花直樹¹：平成5年度青森県環境保健部職員研究発表会，青森市，1994. 2. 4

神経芽細胞腫は副腎あるいは交感神経節に発生する小児悪性腫瘍である。本県では生後6か月乳児を対象に、昭和59年12月から神経芽細胞腫マス・スクリーニングを実施している。平成5年9月までの約9年間に122,078名が検査を受け、6名の患者が発見された。

6症例の原発部位は副腎5例、後腹膜1例で、病期はStage I (早期例)4例、Stage III (進行例)2例であった。いずれも無症状であったが、1例にリンパ節転移が認められた。治療は手術による腫瘍全摘と化学療法が併用され(極めて早期に発見された1例は化学療法施行せず)、現在のところ全例生存中である。

1：県立中央病院小児科

PCR法によるHIV-1感染細胞からのHIV-1遺伝子の検出について 三上稔之 畑山一郎 木村淳子 大友良光 佐藤允武 西館篤：平成5年度青森県環境保健部職員研究発表会，青森市，1994. 2. 4

HIV (Human Immunodeficiency Virus)感染のスクリーニング検査は、現在ゼラチン凝集(PA)法、ELISA法で、また確認試験は蛍光抗体法(IFA)、ウエスタンブロット(WB)法で行われている。いずれも、HIV抗体の検出を目的としているが、非特異的反応による偽陽性等の問題がある。これらの問題を解決するために、血液中にある微量のHIV遺伝子を迅速に検出するPCR (Polymerase Chain Reaction)法が検討されている。今回はIFA用スライドガラスに乾燥固定してあるHIV-1感染細胞を用いて、Nested PCR法によりHIV-1のgag遺伝子(142塩基対)を特異的に増幅した。本PCR法では、約10³ヶの感染細胞で特異的にDNAの増幅が認められ、血液検査材料から検出の可能性が示唆された。しかし、検出されたDNAが本来、目的としているDNAか確認するため、また、検出感度をより高めるために、特異的プローブによ

るサザンプロット法等を検討している。

青森県における恙虫病の発生状況について 木村淳子
三上稔之 佐藤允武：平成5年度青森県環境保健部職員
研究発表会，青森市，1994. 2. 4

1989年から1993年の過去5年間の青森県内における，
恙虫病の発生状況を明らかにし，本病の予防及び県民に
対する啓蒙を図ることとした。

その結果，届け出患者数は58名で50歳以上が70%であ
った。農林業従事者が53%と最も多く，地域別では，
1989年から1991年は三八，上北，下北地域，1992年，
1993年は津軽地域に多い傾向がみられた。発生時期は3
月から11月であり概ね5月と10月をピークとした2峰性
を示した。また，感染場所及び作業内容は山地における
山作業や農作業中に感染することが多いが，山菜採りや
魚釣り等行楽中にも発生しており注意を促す必要があ
る。臨床所見では刺し口，発熱，発疹がほぼ100%に見
られた。以上のことから県民に対し本病の予防知識の普
及を図り，早期発見，早期治療に努める必要がある。

***Campylobacter jejuni* の発育因子に関する研究** 大友
良光 豊川安延：平成5年度青森県環境保健部職員研究
発表会，青森市，1994. 2. 4

Campylobacter jejuni の発育には不明の点が多く，同一
条件で培養したにも拘らず得られる成績に大きな違いが
見られることから，A1株，CF-1株，NIAH株を用い
本菌の最良の培養条件について基礎的な検討を行った。
その結果，液体培地中における*C. jejuni* の発育は酸素濃
度と温度，pHを適切に調整した場合，含有するNaClの
濃度に大きく依存していることが明らかになった。すな
わちNaClが培地中に無い場合は全く発育せず，1%前
後の濃度で最も発育が良かった。NaCl濃度を1%にし
たinfusion brothで増殖曲線を測定したところ，菌数は24
時間前後でピークに達した。また，本菌の培養には血液
を添加したほうが良いと言われているが，血液の添加が
発育抑制的に働く場合のあることが示され，培地への血
液添加は最小限に止める必要があると考えられた。

**ヒマワリ，エゴマ添加飼料による鶏卵中の脂肪酸経時変
化** 野村眞美 高橋政教 西藤克己¹：第32回日本薬
学会東北支部大会，仙台市，1993. 10. 17

ヒマワリおよびエゴマ添加飼料給餌による卵黄中の多
価不飽和脂肪酸濃度を高めた鶏卵の生産技術を確認する
目的で，卵黄中の脂肪酸の経時変化について調査した。

その結果，ヒマワリ添加飼料ではリノール酸，エゴマ添
加飼料では α -リノレン酸の含有量が増加し，添加割合
による関連性が認められた。卵黄中の脂肪酸のU/S比，
P/S比は，添加割合が高いほど脂肪酸摂取の目標とさ
れている値に近い値が得られた。

1：青森県畜産試験場五戸支場

食品中のネライストキシンの分析 古川章子 高橋政
教：第32回日本薬学会東北大会，仙台市，1993. 10. 17
(要旨省略：平成5年度環境保健部職員研究発表会，
1994. 2. 4)

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

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

調査した農産物96検体のうち，23検体の茶から3農薬
の変換生成物であるネライストキシンの検出された。

エゴマ添加飼料による鶏卵中の脂肪酸経時変化 野村
眞美 高橋政教 西藤克己¹：平成5年度環境保健部職
員研究発表会，1994. 2. 4

県南地方で生産量の多いエゴマは， ω 3系列必須脂肪
酸の α -リノレン酸を多く含有している。このためエゴ
マ添加飼料給餌による卵黄中の含有量を高めた鶏卵の生
産技術を確認する目的で，卵黄中の脂肪酸の経時変化
について調査した。その結果，エゴマ添加量と卵黄中の
 α -リノレン酸との間に相関が認められた。卵黄中の脂
肪酸のU/S比，P/S比， ω 3/ ω 6比は，エゴマの添加
割合が高いほど脂肪酸摂取の目標とされている値に近い
値が得られた。

1：青森県畜産試験場五戸支場

**県内における温泉の飲用等に関する衛生学的調査につい
て(第1報)** 阪崎俊壘 今井美代子 村上淳子 高
橋政教 平出博昭¹：平成5年度環境保健部職員研究發
表会，青森市，1994. 2. 4

県内の温泉(源泉)について，平成2年から平成5年
にかけて40ヶ所について，飲用等に関する衛生学的調査
を行った。

温泉の飲用基準項目(As, Cu, F, Pb, Hg, CO₂)及

び施設の管理等基準項目（一般細菌，大腸菌群，過マンガン酸カリウム消費量）それに汚染指標項目としてpH， Cr^{6+} ， NO_3^- ， NO_2^- -N， NH_4^+ -Nを分析した。

その結果，飲用基準項目において，Fが33源泉にAsが20源泉に認められた。施設の管理等の基準項目では，一般細菌の基準値を越えた施設2ヶ所，過マンガン酸カリウム消費量基準値を越えた施設が1ヶ所あった。汚染指標項目としては，pH値が水道法の基準範囲外の源泉が3ヶ所あった。

1：青森保健所

陸奥湾底質の化学物質調査 石塚伸一 三上 一：第20回環境保全・公害防止研究発表会，広島市，1993. 11. 16

陸奥湾の底質環境を把握するため，底質中化学物質の水平濃度分布について検討を行った。

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

陸奥湾の中で相対的に化学物質濃度の高い水域は，陸奥湾の中央域と主要都市（青森市，むつ市）地先水域であった。前者は，化学物質の集積しやすい地点であり，後者は都市部からの流出負荷の影響を受けている地点と考えられる。底質中化学物質濃度についてクラスター分析を行ったところ，陸奥湾水域は，東湾の中央部，西湾の中央部，西湾の沿岸部，東湾の沿岸部の4つの水域に分類された。

総合指標による河川水質の評価 大久保英樹 三上 一 早狩 進：平成5年度環境保健部職員研究発表会，青森市，1994. 2. 4

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

堤川水系における泡の生成機構解析(1)―水質特性―総合指標による河川水質の評価 三上 一 石塚伸一 工藤真哉¹ 工藤俊明²：平成5年度環境保健部職員研究

発表会，青森市，1994. 2. 4

青森市堤川の中流域では春～夏季に発泡現象が見られ，景観を損うことから，泡の発生機構を解明するため，モニターによる泡の発生状況の把握と河川及び事業場の水質調査を実施した。泡の発生は朝と夕方に多く認められ，昼に消滅する傾向にあった。また，泡の発生は満潮時に認められ，干潮時に少ない傾向にあることから泡の消長は潮汐に関連するようである。特に堤川はpH3.5～4.5の強酸性で，泡は堤川に特有に認められることから酸性河川であることが発生要因の一つと考えられる。泡の発生は問屋橋からラバーダム通過後の堰堤下で常時認められたが，同区間では磷濃度及びその負荷量の増加が顕著であった。また，事業場の調査では水産工場から排出される磷の負荷が大きく影響していた。

1：青森県原子力環境対策室

2：青森県環境保健センター六ヶ所放射線監視局

大気関係届出データベースについて 今 武純 早狩 進：平成5年度環境保健部職員研究発表会，青森市，1994. 2. 4

法及び条例に基づく大気関係の届出データベースを構築するためのシステム作成に着手した。元データに環境庁からMTで提供される施設マスターファイル（平成2年度）を使用し，平成4年度までの不足分については新規に入力した。その結果，市町村等からの問い合わせに対して迅速に答えることが可能になった。

県内降雪期における沈着量調査（ nssSO_4^{2-} と NO_3^- について） 野田正志 松尾 章：平成5年度環境保健部職員研究発表会，青森市，1994. 2. 4

積雪に蓄積された汚染物質の融出による生態系の影響（アシッドショック）が懸念されている。そこで平成3，4年度降雪期（12月～3月）の非海洋由来成分（ nssSO_4^{2-} と NO_3^- ）沈着量を青森県内7地点において調査した。その結果，各地点の沈着量は，降水量と共に増加している。青森市内の2地点は， nssSO_4^{2-} と NO_3^- の沈着量が高かった。八戸市の臨海工業地帯にある1地点は周辺発生源の影響により nssSO_4^{2-} の沈着量が高かった。日本海側（1地点）と太平洋側（3地点）は降水量や nssSO_4^{2-} と NO_3^- の沈着量はほぼ同レベルであった。

青森県南地域における道路粉じん調査 工藤隆治 野田正志 工藤精一：平成5年度環境保健部職員研究発表会，青森市，1994. 2. 4

平成4年度道路粉じん調査を行った結果、スパイクタイヤ装着率はピーク時で4%と低く、降下ばいじん総量のピークは、すべての地点において過去最低となり、十和田市の1地点を除くと、他の地点は20t/km²/月以下となった。冬期間の降下ばいじん総量の平均は、平成3年度の半分程度に減少し、脱スパイクタイヤの効果が顕著に現れた結果となった。

大気中汚染物質の簡易測定法の検討—NO、NO₂同時測定用サンプラーについて— 岡 典子 中道 敬
工藤精一 今 武純：平成5年度環境保健部職員研究発表会，青森市，1994. 2. 4

大気中窒素酸化物（NO、NO₂）濃度の簡易測定方法として開発されたNO、NO₂同時測定用サンプラー（サンプラー法）を用い、環境大気測定局において、自動測定機による測定（自動測定法）との併行試験を行い、両法の比較検討を行ってきた。

その結果、両法の間には非常に良い相関関係がみられ、大気汚染常時監視の補完方法としてはサンプラー法は有用であることがわかった。

編集委員

内山日出夫 木村 淳子 工藤 精一
今 武純 庄司 博光 高橋 政教
畑山 一郎 三浦 啓徳

青森県環境保健センター研究報告

(平成六年度)

平成7年3月発行

編 集 〒030 青 森 市 東 造 道 1 - 1 - 1
発 行 TEL 0177-(36) 5411

青 森 県 環 境 保 健 セ ン タ ー
所 長 内 山 日 出 夫

印 刷 〒038 青 森 市 石 江 字 三 好 120 の 20

(有) こ が わ 印 刷

TEL 0177-(66) 2345(代)

(環境保護の為、再生紙を使用しています。)