



活彩あomor

I S S N 0917-1924

青森県環境保健センター研究報告

Bulletin
of
Aomori Prefectural Institute of Public Health and Environment

No.16 2005



青森県環境保健センター

はじめに

当センターは、保健と環境の両面から試験検査と調査研究に取り組んできたところですが、近年我々に求められている課題は、健康危機管理と食の安全への対応であろうと強く認識しているところです。

健康危機管理では、新型インフルエンザに代表される新たな感染症への対応、ダイオキシンやアスベストの環境影響調査等への取り組み、更に食の安全では、ポジティブリスト制導入への対応等、地方衛生・環境行政を支える科学的中核としての役割を担うことができるよう、試験検査体制を整備・強化していかなければならないと考えております。

さて、当センターでは、むつ湾産ホタテガイのEUへの輸出に向けた貝毒試験と細菌試験の項目に関してISO/IEC 17025試験所認定を取得しておりますが、第164回国会での小泉内閣総理大臣の施政方針演説で「青森県のホタテガイ加工業者は5年以上かけEUの厳しい衛生管理審査に合格して輸出を始め・・・・・・・・」と述べられ、当センターの名前こそでなかったものの職員の苦勞が少しでも報われたように思っております。

このように新たな展開への対応を迫られている昨今ですが、このたび青森県環境保健センター研究報告16号を刊行する運びとなりました。ご一読の上、ご意見などお寄せくだされば幸いに存じます。

2006年3月

青森県環境保健センター

所長 竹 内 重 正

目 次

I 報 文

複数のノロウイルス遺伝子型による食中毒 石川 和子 小笠原 和彦 三上 稔之 阿部 幸一 畑山 一郎	1
青森県における2000年から2004年のつつが虫病の発生数と2004, 5年の Orientia tsutsugamushiの検査成績 三上 稔之 石川 和子 熊谷 邦彦 小笠原 和彦 武沼 浩子 阿部 幸一 竹本 啓伸 野村 和夫	7
固相カートリッジ精製による残留農薬一斉分析法の検討 三浦 啓徳 村上 淳子 工藤 志保 対馬 奈津子 古川 章子	10
県産食品における有害物質残留量の経年的推移について 工藤 志保 村上 淳子 三浦 啓徳 古川 章子	18
JR津軽海峡線騒音調査結果の近年の動向 ー新型電気機関車EH500の騒音を 中心としてー 花石 竜治 安田 徳彦 松尾 章	25
黄砂飛来時における有害大気汚染物質の高濃度事例 花石 竜治 対馬 典子 安田 徳彦 秋田谷 礼治 松尾 章	31
中小都市河川の汚濁特性 (Ⅲ) ー赤川における泡の発生事例ー 三上 一 野澤 直史 花石 竜治 清水 友敬	35
中小都市河川の汚濁特性 (Ⅳ) ー沖館橋におけるBODの長期トレンドと 沖館川ー西滝川水系における水質・底質の汚濁特性ー 三上 一 対馬 典子 野澤 直史 工藤 香織 成田 俊 松尾 章	41
みんなでつくる環境学習 (Ⅰ) ー五戸川における新郷中学校の水生生物調査ー 三上 一 対馬 典子 成田 俊 蝦名 憲 五十嵐 正俊 山道 忠郎 奥島 仁志 金田一 淳 附田 経行 竹内 一正 田嶋 千代吉	48

II ノ ー ト

浴槽水からのレジオネラ属菌検出状況 川口 愛 木立 健慈	55
下痢性貝毒のマウス試験法におけるホタテガイ含有カリウム等の影響について 神 毅統 村上 淳子 工藤 志保 小泉 千鶴子 古川 章子	58

水道水質外部精度管理調査結果(平成16年度)	
村上 淳子 古川 章子	62
青森県内における酸性沈着による汚染実態-湿性沈着物およびガス状沈着物の 調査結果から-	
対馬 典子 秋田谷 礼治 吉田 綾子 奥島 文映 松尾 章	66
Ⅲ 他誌投稿抄録	75
Ⅳ 学会等発表抄録	79

CONTENTS

I Original Articles

- Food Poisoning Caused by Some Norovirus Genotypes
Kazuko Ishikawa, Kazuhiko Ogasawara, Toshiyuki Mikami,
Koichi Abe and Ichiro Hatayama 1
- Incidence of Tsutsugamushi Disease in Aomori Prefecture from 2000 to 2004,
and Results of Surveys of *Orientia tsutsugamushi* in 2004 and 2005
Toshiyuki Mikami, Kazuko Ishikawa, Kunihiko Kumagai,
Kazuhiko Ogasawara, Hiroko Takenuma, Koichi Abe, Hironobu Takemoto
and Kazuo Nomura 7
- Study on Simultaneous Analysis of Residual Pesticides by Solid-phase Cartridge
Purification
Hironori Miura, Atsuko Murakami, Shiho Kudoh, Natsuko Tsushima
and Akiko Kogawa 10
- Changes over Years in the Amounts of Harmful Substance Residues in Food
Products Produced in Aomori Prefecture
Shiho Kudoh, Atsuko Murakami, Hironori Miura
and Akiko Kogawa 18
- Recent Trends in Results of the Train Noise of the JR Tsugarukaikyō Line:
A New Type of Electric Locomotive EH500
Ryuji Hanaishi, Tokuhiko Yasuda and Akira Matsuo 25
- High Concentration Cases of a Hazardous Air Pollutant When Yellow Sand Fell
Ryuji Hanaishi, Noriko Tsushima, Tokuhiko Yasuda, Reiji Akitaya
and Akira Matsuo 31
- Pollution in Medium to Small Urban Rivers (III): Foaming Case in the Aka River
Hajime Mikami, Naofumi Nozawa, Ryuji Hanaishi
and Tomotaka Shimizu 35
- Pollution in Medium to Small Urban Rivers (IV): Long-term BOD Trend at
the Okidate Bridge and Water and Sediment Pollution in the Okidate River-
Nishitaki River Water System
Hajime Mikami, Noriko Tsushima, Naofumi Nozawa, Kaori Kudo,
Shun Narita and Akira Matsuo 41
- Cooperative Environmental Education (I): Aquatic Life Surveys in the Gonohe
River Conducted by Shingo Junior High School
Hajime Mikami, Noriko Tsushima, Shun Narita, Ken Ebina,
Masatoshi Igarashi, Tadao Yamamichi, Hitoshi Okushima, Atsushi Kindaichi,
Tsuneyuki Tsukuda, Kazumasa Takeuchi and Chiyokichi Tashima 48

II	Notes	
	Detection of <i>Legionella</i> spp. in Bath Water	
	Megumi Kawaguchi and Kenji Kidachi	55
	Effects of Potassium Contained in Scallops on the Mouse Method for Diarrheal Shellfish Poison	
	Taketo Jin, Atsuko Murakami, Shiho Kudoh, Chizuko Koizumi and Akiko Kogawa	58
	External Accuracy Control Survey Results of Tap Water Quality (Fiscal 2004)	
	Atsuko Murakami and Akiko Kogawa	62
	Pollution from Acid Deposition in Aomori Prefecture: Survey Results of Wet Deposition and Gaseous Deposition	
	Noriko Tsushima, Reiji Akitaya, Ayako Yoshida, Fumie Okushima and Akira Matsuo	66
III	Summaries of Other Publication	75
IV	Abstracts of Presentation in Society Meeting	79

I 報 文

複数のノロウイルス遺伝子型による食中毒

石川 和子 小笠原 和彦¹ 三上 稔之 阿部 幸一 畑山 一郎

2005年1月30日、むつ保健所管内において、嘔吐、腹痛、下痢、発熱などの症状を呈する食中毒疑いの報告があった。病因検索は、発症者便（4検体）、非発症者便（1検体）、調理従事者便（2検体）および殻付き生カキ（5検体）、調理場のふきとり（14検体）について行った。便をRT-PCR法、ふきとり、殻付き生カキをリアルタイムPCR法により実施した。発症者便4検体から*Norovirus* (NV) Genogroup1 (G1) が2株、Genogroup2 (G2) 2株が検出された。非発症者便、調理従事者便からは検出されなかった。ふきとり材料では、リアルタイムPCRでG1（おろし用包丁）、G2（下処理まな板）が陽性となり、RT-PCRではG2（作業台、冷蔵庫内、シンク蛇口）3株が検出された。NV遺伝子解析では、便からのG1の2株はG1/12/SaitamaKU19aG 1/01/JPとG1/11/SaitamaKU8 G 1/99/JPと類似株で、G2の5株ではG2/2/Melksham/89/UK 3株、G2/15/SaitamaKU80aG2/99/JP 1株、G2/4/Lordsdale/93/UK 1株の類似株であった。本事例は生カキの特徴的な感染と汚染であることが推察された。

Key words : *Norovirus*, RT-PCR, real time PCR

1. はじめに

ノロウイルス (*Norovirus* : NV) は、乳幼児から高齢者まで幅広く感染し、嘔吐、腹痛、下痢などの主症状を呈する感染性胃腸炎を引き起こす。また、高齢者施設においては死亡例の報告があるなど、重大な感染症の病原体のひとつであるとともに、食中毒の病因物質でもある。

厚生労働省の平成16年病因物質別食中毒発生状況では、NVは事件数でカンピロバクター・ジェジュニ/コリに次いで2番目であるが、患者数ではサルモネラ菌属の3,788人、腸炎ビブリオの2,773人、カンピロバクター・ジェジュニ/コリが2,485人に対し、NVが12,537人と1番多い報告数となっている¹⁾。NVによる食中毒の感染様式としては、NV汚染カキなどの2枚貝の喫食、NVが混在した便及び吐物がヒトを介して食品を汚染させるなどがあげられる²⁾。しかし、NVの現状における検査では、ウイルス量が多い便と極少量の汚染の食品等では、極少量では検出されないことなどから感染源、感染経路が不明な事例が多い。

今回、むつ市内の飲食店で喫食後、嘔吐、腹痛、下痢、発熱などの症状を呈した食中毒疑い事例において、病因検索の結果、発症者便と飲食店の調理場のふきとりからNV遺伝子が検出され、そのNV遺伝子の解析から分子疫学的検討を行った。

2. 発生概要

2005年1月30日、むつ保健所に自衛隊大湊病院から4名が嘔吐、腹痛、下痢、発熱などの食中毒様症状を呈している旨の連絡が入った。保健所による調査では、4名は1月28日夕方、むつ市内の飲食店で殻付き生カキを喫食していた。4名は2つのグループに属しており、2名のグループで2名が発症し、5名のグループで2名が発症し、3名は無症状で、そのうちの1名は殻付き生カキを食べていなかった。また、当日その他の利用客8名からの苦情は無かった。

3. 材料および方法

3.1 検査材料

発症者便4検体、非発症者便1検体、調理従事者便2検体、喫食残品が無いことから同じ産地の1月31日のカキ5検体、ふきとりは喫食から2日経過した3日目の調理場の肉用まな板、下処理まな板、刺身用まな板、肉用包丁、刺身用包丁、おろし用包丁、作業台、冷蔵庫取っ手、冷蔵庫内、シンク内部、シンク蛇口、作業台(板)、トイレ手洗い、トイレドアノブの14検体であった。

3.2 検体処理

便は滅菌蒸留水で10%乳剤として10,000rpm, 20分間冷却遠心後、遠心上清140 μ lをRNA抽出に使用した。残りの上清に等量のポリエチレングリコール（最終濃度10%）およびNaCl (0.5M) を加え、4℃に一晩静置、10,000rpm, 20分間冷却遠心後、沈渣に滅菌蒸留水を加

1 県保健衛生課（生活衛生グループ）

え、30%ショ糖に重層し、40,000rpm、120分間超遠心し、沈渣を2%リンタンングステン酸 (PTA) 陰性染色により電子顕微鏡 (Electron Microscope : EM) 試料とした。

ふき取りは、ふき取りに使用したスポンジをしぼり、しぼり水を10,000rpm、20分間冷却遠心した。カキは、中腸腺を切り出し、ホモジナイズした後、10%乳剤とし10,000rpm、20分間冷却遠心した。それぞれの上清に等量のポリエチレングリコール(最終濃度10%)およびNaCl (0.5M) を加え、4℃に一晩静置、10,000rpm、20分間冷却遠心後、沈渣に滅菌蒸留水を加え、140 μlをRNA抽出材料とした。

3. 3 RNA抽出およびDNase処理

RNA抽出にはQIAmp Viral RNA Miniキット遠心法 (QIAGEN社製) を用いた。抽出RNAはDNase I (Takara) で37℃、30分間処理された。

3. 4 RT-PCR法

cDNA合成にはrandom hexamer (Amersham社製) およびSuper Script II RT (Invitrogen社製) を用いた。

NV遺伝子キャプシド領域の増幅は、便ではCOG1F/G1SKR, COG2F/G2SKRプライマーを用い、食品およびふき取りではSemiNestedPCRにより1stにCOG1F/G1SKR, COG2F/G2SKR, 2ndにG1SKF/G1SKRとG2SKF/G2SKRプライマーを用いた³⁾。

3. 5 リアルタイムPCR法

リアルタイムPCRは、TaqMan Universal PCR Master Mix (ABI社製) を用いて行った。G1検出にはプライマーCOG1F/COG1R, TaqManプローブRING1-TP (a) およびRING1-TP (b) をG2検出にはプライマーCOG2F/COG2R, TaqManプローブRING2-TPを用い、ABI PRISM7000 (Applied Biosystems) で測定した⁴⁾。

3. 6 遺伝子解析

塩基配列は、患者便のPCR産物、ふき取りのSemiNestedPCR産物をQIAquick PCR Purification Kitで精製し、BigDye Terminator Cycle Sequencing Kit (ABI社)を用いて、オートシーケンサーABI PRISM310 (Applied Biosystems) で決定した。

NV遺伝子の比較は、キャプシド領域のG1は268塩基、

G2は275塩基についてClustal Wで行った。系統樹は標準株の塩基配列がDDBJに登録されている株を使用し、近隣接合 (Neighborjoining:NJ) 法により作成した。

4. 結 果

発症者、非発症者、調理従事者便の検査結果は、表1に示したように、発症者便4検体からNV遺伝子が検出され、発症者853と863はGenogroup2 (G2) が854と855はGenogroup1 (G1) であった。非発症者便、調理従事者便からはNV遺伝子は検出されなかった。

EMによる検索では、発症者2名にNV粒子が確認された。

表1 NV検出 (便)

番号	検体名	PCR	EM
853	発症者便	G 2	+
854	"	G 1	+
855	"	G 1	-
856	非発症者便	-	
863	発症者便	G 2	-
881	調理従事者便	-	
882	"	-	

表2 NV検出 (ふきとり, カキ)

番号	検体名	リアルタイム			
		PCR		RT-PCR	
		G 1	G 2	G 1	G 2
867	肉用まな板	-	-	-	
868	下処理まな板	-	+		+
869	刺身用まな板	-	-		
870	肉用包丁	-	-		
871	刺身用包丁	-	-		
872	おろし用包丁	+	-	-	
873	作業台	-	-		+
874	冷蔵庫取手	-	-		
875	冷蔵庫内	-	-		+
876	シンク内部	-	-		
877	シンク蛇口	-	-		+
878	作業台 (板)	-	-		
879	トイレ手洗い	-	-		
880	トイレドアノブ	-	-		
852	カキ (5)	-	-	-	-

表2にはふきとり、カキの検査結果を示した。リアルタイムPCRでは、10コピー以上を陽性とし、おろし用包丁からG1が19コピー、下処理用まな板からG2が553コピー検出された。カキ5検体からはNV遺伝子は検出

されなかった。また、リアルタイムPCRで10コピー以下の検体についてSemiNestedPCRを実施した。その結果下処理用まな板、作業台、冷蔵庫内、シンク蛇口からG2遺伝子が検出されたが、おろし用包丁、肉用まな板からはG1遺伝子は検出されなかった。

G1が検出された854（発症者便）、855（発症者便）の塩基配列に基づく系統樹を図1に示した。854はG1/12/SaitamaKU19aG1/01/JPと98.8%、855ではG1/11/SaitamaKU8G1/99/JPと98.5%のホモロジーで、2つのグループに分けられた。

図2にG2の系統樹による分類を示した。873（作業台）と877（シンク蛇口）、863（発症者便）がG2-2/Melksham/89/UK株と類似し、ホモロジーは873、877が96.4%、

863が97.5%であった。一方、875（冷蔵庫内）は、G2/15/SaitamaKU80aG2/99/JP株と97.4%、853（発症者便）は、G2/4/Lordsdale/93/UKと96.4%のホモロジーで、3つのグループに分けられた。なお、下処理用まな板からの遺伝子増幅産物は、シーケンスができなかった。

G2/2/Melksham/89/UK株類似株グループの873、877及び863の塩基配列を比較してみたところ、873、877は同じであったが、863とは10塩基の違いがみられた（図3）。さらに推定アミノ酸配列に変換すると（図4）キャプシド領域の78番目のアミノ酸S（セリン）がN（アスパラギン）に置換していた。

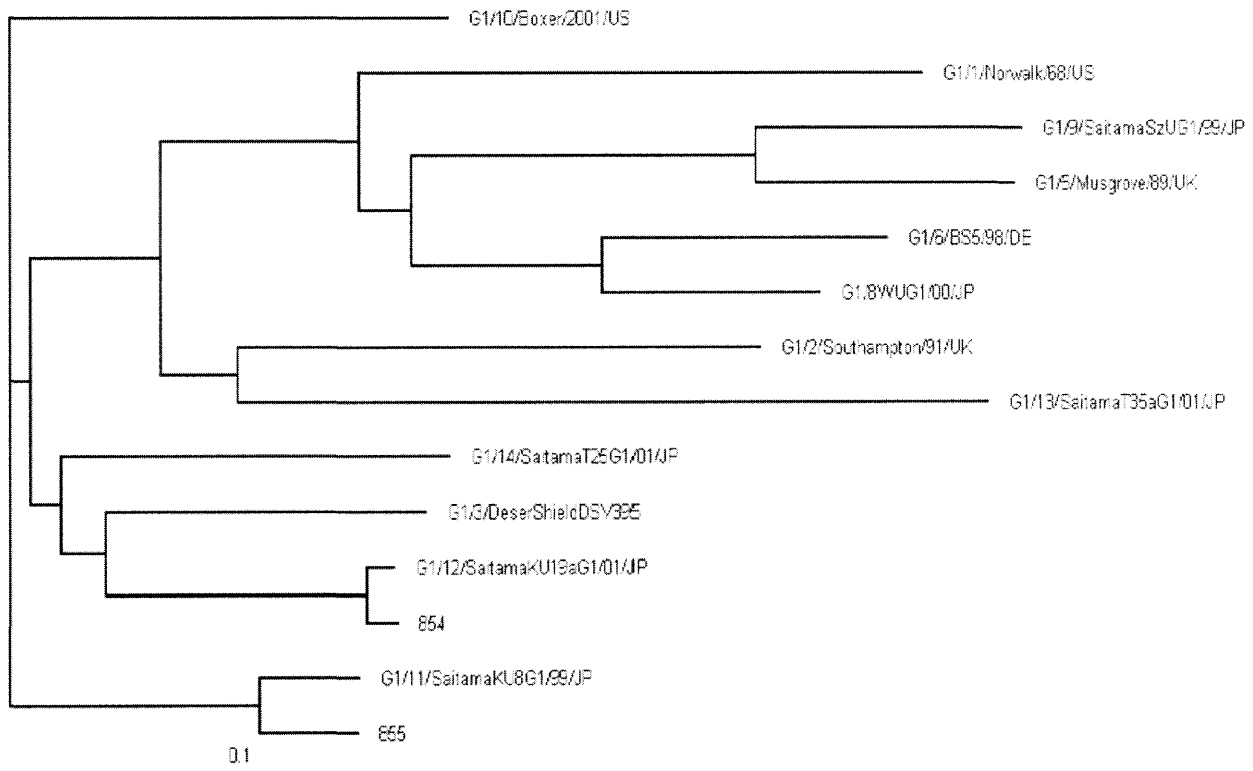


図1 NV (G1) の構造蛋白質をコードする分子系統樹

854：発症者便

855：発症者便

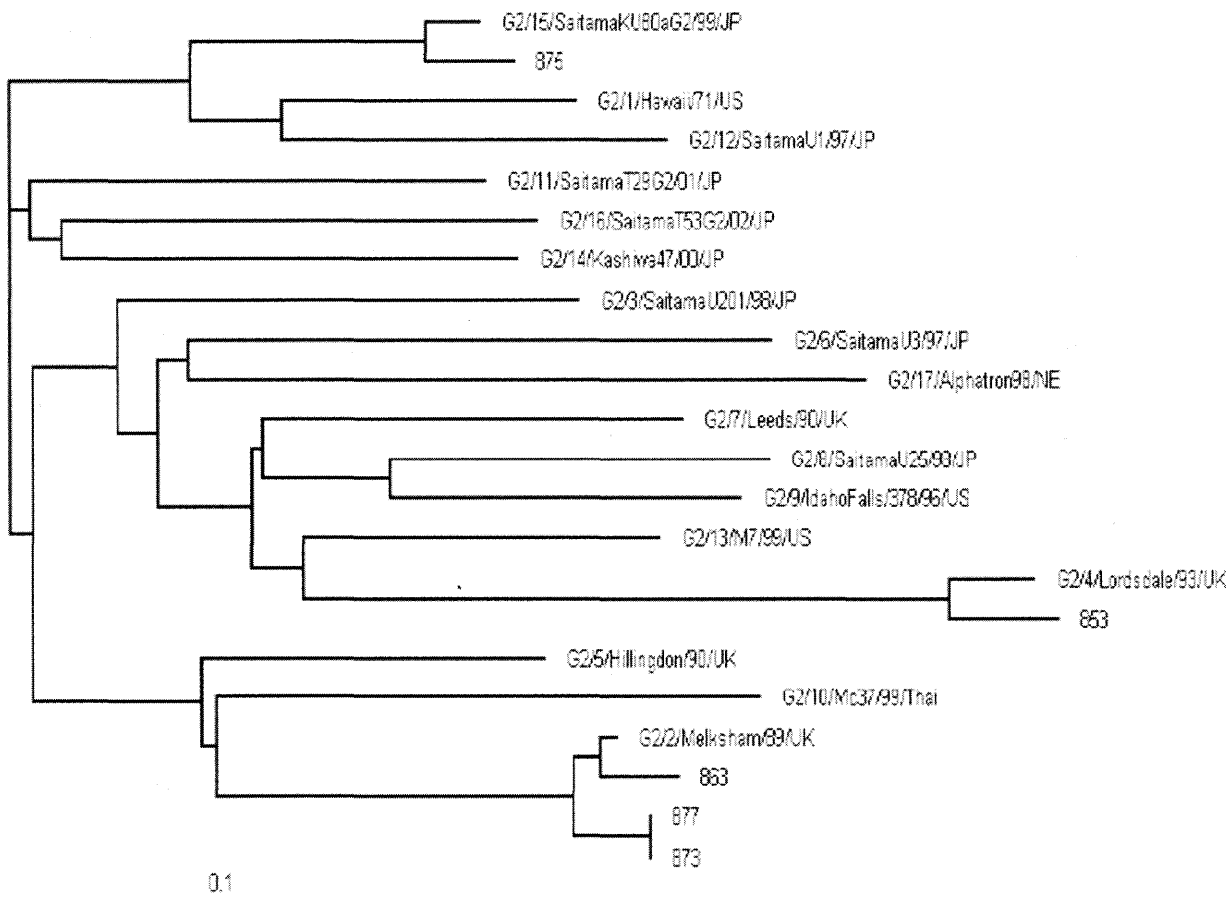


図2 NV (G2) の構造蛋白質をコードする分子系統樹

- | | |
|------------|-------------|
| 853 : 発症者便 | 875 : 冷蔵庫内 |
| 863 : 発症者便 | 877 : シンク蛇口 |
| 873 : 作業台 | |

5. 考 察

本事例における保健所の疫学調査では、殻付き生カキを喫食した6名のうち4名が発症し、2名は非発症であった。また、当日の他の利用客8名は生カキを喫食しておらず食中毒様症状はなかった。そしてこの4名の発症者便からはNVが検出された。さらに、食材からは検出されなかったが、事件発生から2日後ではあるが複数のふきとり材料からNVが検出され、調理場が広範に汚染されていたことが示唆された。

4名の発症者のNV遺伝子解析は、G1がG1/12/SaitamaKU19aG I /01/JP株とG1/11/SaitamaKU8G1/99/JP株、G2がG2/2/Melksham/89/UK株とG2/4/Lordsdale/93/UK株類似であることを示した。

また、調理器具等のふきとり材料のリアルタイムPCR

では、おろし用包丁からG1が、下処理用まな板からG2が検出された。さらに、NV遺伝子の解析から作業台とシンク蛇口のNVはG2-2/Melksham/89/UK株、冷蔵庫内はG2-15/SaitamaKU80aG2/99/JP株類似であることが判明した。このように、発症者および調理場から多様なNV遺伝子が検出され、発症者は複数種のNVに感染した可能性がある。西尾らは、生カキは複数種のNVを中腸腺に濃縮・蓄積していることを報告しており⁵⁾、本事例は生カキの特徴的な感染と汚染であることが推察される。しかし、カキによる複数種のNV感染があったと思われる発症者便からのNVのDNAシーケンシングでは、主体となっているNV種だけの塩基配列が読まれるため、サブクローニングによるより詳細な検討が必要であろう。

NV塩基の系統樹解析から、877 (シンク蛇口)、873

```

877      GCTCCAGTTTTGTGAATGAAGATGGCGTCCAATGACGCCGCTCCATCTACTGATGGTGC
873      GCTCCAGTTTTGTGAATGAAGATGGCGTCCAATGACGCCGCTCCATCTACTGATGGTGC
883      GCTCCAGTCTTGTGAATGAAGATGGCGTCCAATGACGCCGCTCCATCTACTGATGGTGC
*****

877      AGCCGGCCTCGTGCCAGAAAGTAATAATGAGGTCATGGCTCTTGAACCTGTGGCTGGTGC
873      AGCCGGCCTCGTGCCAGAAAGTAATAATGAGGTCATGGCTCTTGAACCTGTGGCTGGTGC
883      AGCCGGCCTCGTGCCAGAAAGTAATAATGAGGTCATGGCTCTTGAACCCGTGGCTGGCGC
*****

877      CGCTTTGGCAGCCCCGGTCACTGGTCAAACAAATATTATAGACCCCTGGATTAGAGCAAA
873      CGCTTTGGCAGCCCCGGTCACTGGTCAAACAAATATTATAGACCCCTGGATTAGAGCAAA
883      CGCTTTGGCAGCCCCGGTCACTGGTCAAACAAATATTATAGACCCCTGGATTAGAGCAAA
***

877      TTTTGTCCAGGCCCTAATGGTGAATTTACAGTTTCTCCCGTAATGCCCTGGTGAAGT
873      TTTTGTCCAGGCCCTAATGGTGAATTTACAGTTTCTCCCGTAATGCCCTGGTGAAGT
883      TTTTGTCCAGGCCCTAATGGTGAATTTACAGTCTCTCCCGTAATGCCCTGGTGAAGT
*****

877      GCTGTTGAGTCTAGAGTTGGGTCCAGAATTAATCCTTATCTGGCACACITTA
873      GCTGTTGAGTCTAGAGTTGGGTCCAGAATTAATCCTTATCTGGCACACITTA
883      GCTATTGAATCTAGAGTTGGGTCCAGAATTAATCCTTATCTGGCACCAITTA
***

```

図3 キャプシド領域の塩基配列アライメント

877 (シンク蛇口)
MKMASNDAAPSTDGAAGLVPESNNEVMALEPVAGAALAAPV
TGQTNIIDPWIRANFVQAPNGEFTVSPRNAPGEVLLSLELGPE

873 (作業台)
MKMASNDAAPSTDGAAGLVPESNNEVMALEPVAGAALAAPV
TGQTNIIDPWIRANFVQAPNGEFTVSPRNAPGEVLLSLELGPE

863 (患者便)
MKMASNDAAPSTDGAAGLVPESNNEVMALEPVAGAALAAPV
TGQTNIIDPWIRANFVQAPNGEFTVSPRNAPGEVLLNLELGPE

図4 アミノ酸配列の比較

変異のあるアミノ酸をアンダーバーで示す

(作業台)と863(発症者便)は同じG2-2/Melksham/89/UK類似株グループに分類された。キャブシド領域275塩基のアライメントの比較は、877と873は100%一致する一方、863とは10塩基(97.1%)の変異を示した。これをアミノ酸配列に変換して比較すると、キャブシド領域の78番目アミノ酸のS(セリン)がN(アスパラギン)に置換していたことから、今後、NV構造たんぱく質の変異の感染性への影響を検討して行く必要があると思われる。また、現状の検査においては、検出効率からカキの中腸腺を対象に実施しているが、調理場の汚染状況から殻付きの場合には、殻の内外側と身そのものにもNVが付着し感染源になる可能性が考えられ、今後の検査の課題と思われる。

6. ま と め

1) 本事例は、むつ市内の飲食店で喫食後、嘔吐、腹痛、下痢、発熱などの症状を呈した食中毒疑い事例において、病因検索の結果、発症者便と飲食店の調理場のふきとりからNV遺伝子が検出された。

2) 発症者便、調理場のふきとりからG1とG2遺伝子が検出され、シークエンス解析の結果、G1が2種類、G2が3種類であった。

本稿を終えるにあたり、疫学調査資料を提供していただきました、むつ保健所各位に謝意を表します。

7. 文 献

- 1) 厚生労働省：平成16年食中毒発生事例。
- 2) 西尾治他：ノーウオーク様ウイルスによる集団発生、日本医事新報、No. 4105, 2002.
- 3) 国立感染症研究所ウイルス第二部：ウイルス下痢症診断マニュアル第3版。
- 4) 影山努他：蛍光プローブを用いたNorwalkvirus(NV)の高感度検出法の開発、Vita18, 42-49, 2001.
- 5) 村田敏夫他：小児下痢症患者と急性胃腸炎の集団発生事例から検出されたNorovirus (NV) の分子疫学、臨床とウイルス、Vol32, 388-393, 2004.

Abstract

Food poisoning caused by some Norovirus genotypes

Kazuko Ishikawa, Kazuhiko Ogasawara, Toshiyuki Mikami, Koichi Abe, and Ichiro Hatayama

In January 30, 2005, suspected food poisoning characterized by vomiting, abdominal pain, diarrhea and fever was reported within the jurisdiction of the Mutsu Health Center. Four fecal specimens from patients, one fecal specimen from a non-patient, two fecal specimens from cooks, five specimens of raw shelled oyster and 14 swabs from cooking places were screened for the presence of pathogens. The fecal specimens were examined by the RT-PCR method, and the swabs and raw shelled oyster specimens by the real-time PCR method. Two isolates of Norovirus (NV) Genogroup 1 (G1) and two isolates of Genogroup 2 (G2) were detected in four fecal specimens from the patients, but no isolate was detected in the feces from the non-patient or the cooks. For swabs, a pruning kitchen knife was positive for G1 and a cutting board was positive for G2 by the real-time PCR method, and three isolates (working table, inside of a refrigerator and sink faucet) of G2 were detected by the RT-PCR method. Analysis of NV genes has revealed that the two G1 isolates from feces are similar to G1/12/SaitamaKU19aG1/01/JP and G1/11/SaitamaKU8 G1/99/JP, and three, one and one isolates of the five G2 isolates are similar to G2/2/Melksham/89/UK, G2/15/SaitamaKU80aG2/99/JP and G2/4/Lordsdale/93/UK, respectively. This case appears to represent an infection and pollution pattern characteristic of raw oysters.

Key words : *Norovirus*, RT-PCR, real time PCR

青森県における2000年から2004年のつつが虫病の発生数と 2004, 5年の*Orientia tsutsugamushi*の検査成績

三上 稔之 石川 和子 熊谷 邦彦 小笠原 和彦¹
武沼 浩子 阿部 幸一 竹本 啓伸² 野村 和夫³

本県の過去5年間(2000年~2004年)におけるつつが虫病の発生数は、6月(22件)と11月(11件)に2峰性のピークを示した。また、地域的に県南地方の八戸(18件)、上十三(13件)で報告数が若干多いが、全県的に報告があり、*O. tsutsugamushi*を保有するダニは県内全域に生息しているものと推察され、春、秋の野山等において感染する危険性のあることが示唆された。当センターでは、つつが虫病の診断にはGilliam, Karp, Katoの標準株を用い、間接免疫ペルオキシダーゼ反応(以下IP: Indirect Immunoperoxidase Test)²⁾により、血清中の特異抗体検出とPCR法により血液中からの*O. tsutsugamushi*遺伝子検出を実施している。2004年と2005年に依頼があった3事例の検査成績は、No3(2005.6)の事例では、判定が困難な低い抗体価を示し、No1(2004.11)とNo2の2回目(2005.5.31)では感染が示唆される抗体価が認められた。遺伝子診断では、2事例についてはKarp株、1事例についてはKawasaki株が検出され*O. tsutsugamushi*に感染したことが確定された。

Key words : *Orientia tsutsugamushi*, indirect immunoperoxidase test (IP), polymerase chain reaction (PCR)

1. はじめに

つつが虫病は、*Orientia tsutsugamushi*(以下*O. tsutsugamushi*)を保有するダニの一種であるつつが虫の幼虫に刺咬されることにより発病する。わが国では古くから秋田、山形、新潟県の一部の河川流域に発生する風土病として知られていた。

病原体である*O. tsutsugamushi*を保有しているダニは、アカツツガムシ、タテツツガムシ、フトゲツツガムシの3種類であり、感染後5~14日の潜伏期間後、頭痛、発熱、全身倦怠等を伴って急激に発症する。治療はテトラサイクリン系抗生剤投与により、著明に症状の軽快がみられる。しかし、的確な治療時期を失ったことによる死亡例も報告されている。

つつが虫病は、1980年以降全国で多発し、年間約500人の患者数と数例の死亡が報告されている。青森県においても毎年10人前後の患者数が報告されている。1999年、2002年には感染者の1名ずつの死亡例も報告されていることから、注意を促すための基礎資料を得るために、本県における2000年~2004年の過去5年間のつつが虫病の発生数、発生地域性等について検討した。また、当センターでは、つつが虫病の診断にはGilliam, Karp, Katoの標準株を用い、間接免疫ペルオキシダーゼ反応(以下IP: Indirect Immunoperoxidase Test)¹⁾により、

血清中の特異抗体検出とPCR法により血液中からの*O. tsutsugamushi*遺伝子検出を実施しており、2004年と2005年に依頼があった3事例の検査成績について報告する。

2. 材料と方法

- (1) 過去5年間(2000~2004年)の発生状況は、感染症法に基づき報告があったものについて集計した。
- (2) 検査材料は、2004年11月、2005年5月、6月の3発症者からの採取血液を用いた。
- (3) 血清診断は、Gilliam, Karp, Katoの3株に対する抗体をIP法により測定した。
- (4) DNA抽出は、全血からDNA Extractor WB Kit(和光純薬)、または、0.2%NaCl溶液による溶血処理後、セパジーンKitによった。
- (5) 遺伝子検出は、Nested PCR法により1st PCRでは各株共通遺伝子領域のprimer34'/55'を用い、2nd PCRではGilliam, Karp, Kato, Kawasaki, Kurokiの各primerと5株共通primer10'/11'の組合わせを用い、増幅DNAサイズにより型別判定を行った²⁾。

3. 結 果

- (1) 発生状況は、表1に示したように過去5年間では、6月(22件)と11月(11件)に2峰性のピークを示した。年間の発生数では、2001年の19件が最も多く、2000年の18件と続き毎年10件前後の発生が確認されている。また、男女比では男25人に対し女36人と女性が11人多

1 青森県健康福祉部保健衛生課
2 青森県立中央病院皮膚科
3 青山のむら皮膚科

表1 月別発生件数 (2000~2004)

年月	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	合計	男	女
2000					2	7	3			2	3	1	18	8	10
2001				4	6	2	1			1	4	1	19	5	14
2002			4	1	1			1	1	2			10	4	6
2003					7		1						8	5	3
2004				1	1				1	3			6	3	3
合計				10	22	7	2	1	5	12	2		61	25	36

く、その原因は不明であった。

地域的な発生件数を保健所別報告数で見ると、八戸地域が18件、青森、上十三地域が13件、五所川原が12件、弘前、むつの順に4件と1件で、県内全域において *O.tsutsugamushi* 感染の危険性はあるものの、八甲田山を挟んで八戸、上十三の太平洋側で多いこ

表2 保健所別届出件数(2000~2004)

保健所	年	年					合計
		00	01	02	03	04	
青森		2	4	3	3	1	13
弘前		1	2	0	1	0	4
八戸		4	9	3	0	2	18
五所川原		7	2	2	1	0	12
上十三		4	1	2	3	3	13
むつ		0	1	0	0	0	1
合計		18	19	10	8	6	61

とが確認された(表2)。

(2) IPおよびIFA(蛍光抗体)法による血清診断では、発症3事例における抗体価は、表3に示すようにNo1

でKarp株IgM 80倍、IgG 160倍であった。No2(IF法)では急性期各株すべてIgM、IgG 10倍で、No2の急性期2回目(IP法)ではKarp株でIgM 320倍、IgG 160倍、No3ではIgM 20倍、IgG 20~40倍であった。No1、No3では若干の抗体が認められたが、感染したことの確定には至らなかった。No2の2回目ではIF法による1回目と比較し、感染を示唆する抗体上昇が認められた。

(3) 遺伝子診断では、*O.tsutsugamushi* 遺伝子がPCRにより、3事例とも事例順にKarp, Kawasaki, Karp株が検出され感染したことが確定された。

4. 考 察

過去5年間の発生状況では、地域的に県南地方の八戸(18件)、上十三(13件)で報告数が若干多く、その原因は不明である。しかし、報告数の差はみられるものの県内全地域から報告があり、*O.tsutsugamushi*を保有するダニは県内全域に分布していることが推察された。しかし、ツツガムシの*O.tsutsugamushi*保有率は、アカツツガムシで1/100、フトゲツツガムシで1/300、タテツツガムシで1/3000の報告がされており³⁾、全てのダニが保有しているわけではないが、ダニが生息する野山等に出かける際は、感染する危険性があり注意が必要である。また、6月(22件)と11月(11件)に2峰性のピークがみられ、このことは、フトゲツツガムシ又は、タテツツガムシが秋に孵化した幼虫が成虫になるために吸血を必要として吸着する。秋に吸着できなかったツツガムシは越冬後の春に吸着する⁴⁾。2峰性は

表3 PCR法およびIP法の結果

採血年月日と事例(No)	病日	時 期	IP法			PCR法	
			抗体	Gilliam	Karp		Kato
2004.11.8(No1)	?	急性期	IgG	80	160	160	+
			IgM	40	80	40	
*2005.5.27(No2)	0	急性期	IgG	10	10	10	
			IgM	10	10	10	
5.31(No2)	4	急性期(2回目)	IgG	80	160	80	+
			IgM	80	320	80	
2005.6.27(No3)	6	急性期	IgG	20	40	40	+
			IgM	20	20	20	

病日は発熱日を0日とする

*No2の5/27採血は民間検査機関におけるIFA(蛍光抗体法)による検査結果

ツツガムシの成長過程における生態系の影響が示唆される。

一方、検査成績では、免疫学的な血清診断は従来から行っているが⁵⁾、発病初期段階の抗体産生前や抗体価の低い場合には判定が困難であり、確定には事例No2のようにペア血清による有意差の確認が必要である。また、PCR法による遺伝子検出は、下山ら⁵⁾は抗体産生前において*O.tsutsugamushi*遺伝子の検出が可能で、抗体産生後の回復期検体からは本遺伝子が検出されないことを報告しており、今回のNo3の事例については、判定困難な低い抗体価を示し、No1とNo2の2回目では感染が示唆される抗体が認められたが、*O.tsutsugamushi*を消失させるだけの抗体産生ではなかったために遺伝子が検出されたと推察される。

治療においては、早期に本症を疑い、テトラサイクリン系抗生物質を投与すると劇的な効果が得られる¹⁾。しかし、基礎疾患を持っていたり、特殊な状況の場合においては、特に早期の確定診断が必要と思われる。今後、本感染症においては、血清診断及び遺伝子検出

法の特徴を考慮して併用することが望まれるところである。

5. 文 献

- 1) 須藤恒久：リケッチア症。臨床とウイルス，23，382-393，1995.
- 2) 片山 丘,他：PCRによる恙虫病患者の遺伝子診断。神奈川衛研報告，22，1-6，1992.
- 3) 川村明義：リケッチア症。特につつが虫病について，モダンメディア，30，310-339，1984.
- 4) 須藤恒久：新ツツガ虫病物語，28-29，無明舎出版，秋田市，1991.
- 5) 下山純子，他：PCR法によるツツガ虫リケッチア遺伝子の検出，青森県環境保健センター研究報告，9，5-8，1998.
- 6) 三上稔之，他：青森県におけるつつが虫病の発生状況，病原微生物検出情報，26(2)，11-12，2005.
- 7) 三上稔之，他：第3回青森県立保健大学学術研究集会抄録，36-37，2005.

Abstract

Incidence of tsutsugamushi disease in Aomori Prefecture from 2000 to 2004, and results of surveys of *Orientia tsutsugamushi* in 2004 and 2005

Toshiyuki Mikami, Kazuko Ishikawa, Kunihiro Kumagai, Kazuhiko Ogasawara, Hiroko Takenuma, Koichi Abe, Hironobu Takemoto, and Kazuo Nomura

The incidence of tsutsugamushi disease in Aomori Prefecture over the five years from 2000 to 2004 showed bimodal peaks in June (22 cases) and November (11 cases). Although slightly more cases have been reported in the southern part of the prefecture, i.e., Hachinohe (18 cases) and Kamitosa (13 cases), the disease has been reported all over the prefecture, and mites carrying *O.tsutsugamushi* are thought to exist in all areas of the prefecture and may transmit the disease to people in hills and fields in spring and autumn. For the diagnosis of tsutsugamushi disease, the Aomori Prefectural Institute of Public Health and Environment detects specific antibodies in serum by indirect immunoperoxidase test (IP)²⁾ and detects *O.tsutsugamushi* genes in blood by the PCR method using the Gilliam's, Karp's and Kato's standard isolates. For the three cases reported in 2004 and 2005, case No. 3 (June 2005) showed an antibody value too low to evaluate, and case No. 1 (November 2004) and the second-time examination of case No. 2 (May 31, 2005) showed antibody values suggesting infection. By gene diagnosis, Karp's isolates were detected in two cases and a Kawasaki's isolate was detected in one case, and infection by *O.tsutsugamushi* was confirmed.

Key words : *Orientia tsutsugamushi*, indirect immunoperoxidase test (IP) , polymerase chain reaction (PCR)

固相カートリッジ精製による残留農薬一斉分析法の検討

三浦 啓徳 村上 淳子 工藤 志保 対馬 奈津子 古川 章子

食品衛生法の一部改正(平成15年度)を受けて、平成18年度から施行されることとなったポジティブリスト制に向け、溶媒使用量が少なく迅速なアセトニトリル抽出/固相カートリッジ精製によるGC/MS(SIM)の一斉分析法を検討した。133農薬を対象に、りんご、にんじん、ほうれん草、玄米について、4種類の固相カートリッジの精製効果を調べた結果、3種類のカートリッジに色素や脂肪除去効果がみられ、これらを用いた添加回収試験では127農薬において良好な結果が得られた。

Key words : pesticide residue, multiresidue analysis, solid phase extraction

1. はじめに

近年、輸入作物の残留農薬問題や無登録農薬の販売・使用が発生し、輸入食品を含めた農産物の安全性が問われている。このような現状から消費者の食の安全に対する懸念を受けて、厚生労働省は平成15年に食品衛生法の一部改正を行った。それに伴い平成18年度までに国際的な基準値などをもとに約460農薬に暫定基準を設定し、基準のない農薬が残留する食品の流通を禁止するポジティブリスト制が導入されることになった。したがって流通農産物の安全性を確保するためにより多くの農薬を迅速に分析するシステムの開発が求められている。

一斉分析については、平成9年に当時の厚生省より残留農薬迅速分析法¹⁾が通知され、その後数多くの多成分一斉分析法が報告されている。特に近年は、精製にゲル浸透クロマトグラフィー(GPC)を用いず、C18、カーボン、PSA、NH₂、ENVI-Carb/LC-NH₂等種々の固相カートリッジによる精製とGC/MS又はLC/MSを組み合わせた多成分一斉分析法の報告が多くみられる。

当センターでは厚生省通知残留農薬迅速分析法をもとに抽出操作を無水硫酸ナトリウム添加脱水抽出法²⁾に変更し、溶媒抽出後、GPC及びフロリジルカートリッジで精製を行い、GC/MS(SIM)、GC(ECD)、HPLC(ポストカラム法)により測定を行ってきた。しかし、GPCを用いて多数の検体を処理するには、大量の有機溶媒および長時間を必要とする。このことからポジティブリスト制の導入に向け、より多くの農薬を対象に多数の検体を迅速に検査するためには種々の検討が必要となった。

そこで、今回、GPCを用いず使用溶媒量の少ないアセトニトリル抽出/固相カートリッジ精製及びこれらを

用いたGC/MS(SIM)一斉分析法を検討したので、結果について報告する。

2. 検査方法

2.1 試料

対象農薬を含んでいないことを事前に確認した、りんご、にんじん、ほうれん草、玄米の4種類を分析に供した。

2.2 試薬

(1) 農薬標準品

ア. 残留農薬試験用農薬混合標準液21(関東化学製)
ジクロロボス、ブチレート、イソプロカルブ、エトプロホス、ベンダイオカルブ、 α -BHC、 β -BHC、テルブホス、 δ -BHC、テフルトリン、エチオフェンカルブ、トリクロホスメチル、メチオカルブ、ピリミホスメチル、マラチオン、ジェットフェンカルブ、メトラクロール、ジメチルビンホス、イソフェンホスP=O、クロフェンビンホス-E、クロフェンビンホス-Z、イソフェンホス、キナルホス、トリアジメノール-1、トリアジメノール-2、キノメチオネート、パクロボトラゾール、フルトラニル、プレチラクロール、p,p'-DDE、フルシラゾール、フェンスルホチオン、レナシル、プロピコナゾール-1、プロピコナゾール-2、テニルクロール、カプタホール、アセタミプリド、ジコホール、ホサロン、メフェナセット、シハロトリン-1、シハロトリン-2、フェナリモル、ピテルタノール-1、ピテルタノール-2、ピリダベン、シペルメトリン、フルシトリネート、ピリミジフェン、フルバリネート、デルタメトリン(GC/MS対応47種)

イ. 残留農薬試験用農薬混合標準液22(関東化学製)
メタミドホス、EPTC、アセフェート、フェノブカルブ、クロルプロファム、カズサホス、チオメトン、

ジメチピン, γ -BHC, ダイアジノン, エトリムホス, ピリミカルブ, ベンフレセート, パラチオンメチル, カルバリル, フェントロチオン, エスプロカルブ, ジクロフルアニド, チオベンカルブ, フェンチオン, クロルピリホス, パラチオン, ホスチアゼート, ペンディメタリン, ピリフェノックス, キャプタン, フェントエート, プロチオホス, トリシクラゾール, ミクロブタニル, シプロコナゾール, クロルベンジレート, p,p'-DDD, メプロニル, エディフェンホス, テブコナゾール, イプロジオン, テブフェンピラド, ピリプロキシフェン, アクリナトリン, ピラクロホス, ペルメトリン, シフルトリン, ハルフェンプロックス, シラフルオフエン, フェンバレレート, ジフェノコナゾール, イミベンコナゾール (GC/MS対応50種)

ウ. その他

ピリメタニル, ジメテナミド, クロルピリホスメチル, シアナジン, プロシミドン, α -エンドスルファン, β -エンドスルファン, ヘキサコナゾール, クロルフェナピル, 硫酸エンドスルファン, ジフルフェニカン, ビフェントリン, フェンプロバトリン, トリフルラリン, ジメトエート, ターバシル, メトリブジン, シメトリン, テトラコナゾール, フェプロニル, ペンコナゾール, メトプレン, ブタクロール, フルジオキソニル, ウニコナゾールP, クレソキシムメチル, トリアゾホス, ビフェノックス, エンドリン (以上, 関東化学製) ピリブチカルブ, アラクロール, エトキサゾール, ブタミホス, カフェンストロール, ヘプタクロール (以上, 和光純薬製), アルドリン, デイルドリン, o,p'-DDT, p,p'-DDT (以上, 林純薬製)

(2) 農薬混合標準溶液

対象133種類の農薬を, 農薬混合標準液21に21種類を加えた66種類のAグループと, 農薬混合標準液22に19種類を加えた67種類のBグループとした。各農薬の濃度は目的に応じてアセトン溶液で一定濃度に調製したが, アルドリン, デイルドリン, エンドリンはこれらの1/10, アセタプリミド, アセフェート, メタミドホスは5倍になるように調製した。なお, 農薬混合標準液に含まれてはいるが, キャプタン, カプタホールは抽出時の分解³⁾, ジクロフルアニドは検体マトリックスによる測定困難, キノメチオネートはカラム吸着, エチオフェンカルブはHPLC測定のために今回分析対象から除いた。

2. 3 固相カートリッジ

- (1) ENVI-Carb500mg/LC-NH₂500mg 6mL tube (SUPELCO製)
- (2) SAX500mg/PSA500mg 6mL Tube (VARIAN製)
- (3) C18 cartridge Sep-Pak 1g Vac 6mL (Waters製)
- (4) Oasia HLB 30mg Vac RC (Waters製)

2. 4 試験溶液の調製

残留農薬一斉分析法としてはFillionらのアセトニトリル抽出法⁴⁾ (図1) に従った。

りんご, にんじん, ほうれん草 (果実, 野菜) についてはアセトニトリル溶液で抽出し, 0.5mol/Lリン酸塩緩衝液 (pH7.0) と塩化ナトリウムを加えて水相を分離し, アセトニトリル相を脱水後, 濃縮乾固した。濃縮物をトルエン・アセトニトリル (1:3) 溶液に溶解し, ENVI-Carb/LC-NH₂で精製した後, GC/MS (SIM) により測定した。

玄米 (穀類) は試料の2倍量の水を添加して1時間放置後, 上記と同様にアセトニトリル抽出し, 0.5mol/Lリン酸塩緩衝液・塩化ナトリウムを加えて水相を分離した。アセトニトリル相をC18又はOasia HLB, 次いでENVI-Carb/LC-NH₂で精製した後, GC/MS (SIM) により測定した。

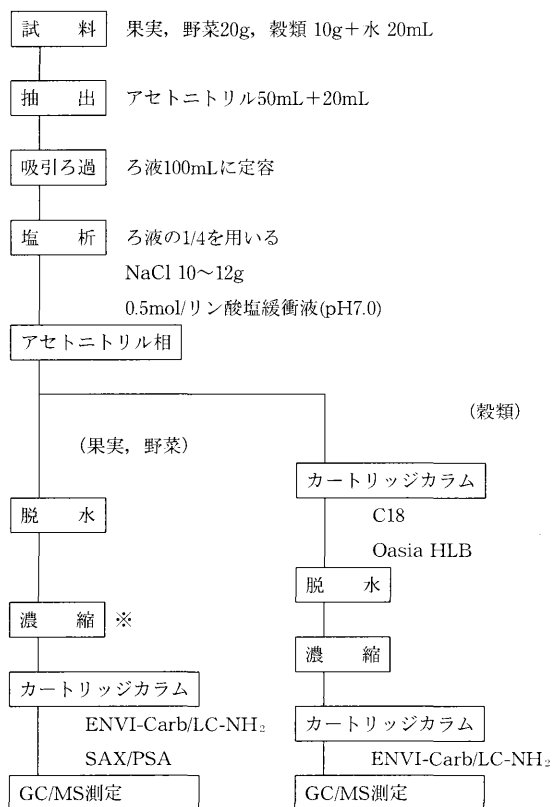


図1 試料溶液の調製および検査法 (固相抽出)

2. 5 装置及びGC/MS測定条件

(1) 装置

GC/MS：島津製作所製 GC/MS-QP5050測定：EI法 (SIM)

カラム：DB-5ms(内径0.25mm,長さ30m,膜厚0.25μm)

(2) 測定条件

カラム温度：50°C(1min)→25°C/min→125°C(0min)
→10°C/min→300°C(13.50min)

注入口温度：250°C

インタフェース温度：280°C

キャリアガス：ヘリウム

キャリアガス流量：2.1mL/min

注入量：2μL (スプリットレス)

3. 結果と考察

3. 1 標準溶液を用いた固相カートリッジの溶出試験

各固相カートリッジにおける溶出量を定めるため、一定量の標準溶液を負荷して各農薬の溶出状況を調べた。結果を表1に示す。なお、残留農薬検査の添加回収率の目標値は、「精度管理の一般ガイドライン」において70~120%とされていることから、目標を70%以上とした。

ENVI-Carb/LC-NH₂はトルエン・アセトニトリル(1:3)溶液による溶出試験の結果、20mL分画で検査対象とする133農薬すべてが溶出された。しかし、EPTC約52%、ピリミジフェン約24%と回収率低く、またピリミジフェンにおいては24mLまで溶出しても約52%しか得られなかった。

SAX/PSAはアセトン・ヘキサシ(2:8)溶液によ

表1 標準溶液を用いた固相カートリッジの溶出試験結果

	ENVI-Carb/LC-NH ₂	SAX/PSA	C18	Oasis HLB
溶出液	トルエン・アセトニトリル(1:3)	アセトン・ヘキサシ(2:8)	アセトニトリル	アセトニトリル
20mL	133/133種類溶出	132/133種類溶出	131/133種類溶出	133/133種類溶出
20~24mL	ピリミジフェン			
回収率70%未満の農薬	EPTC ピリミジフェン (2種類)	EPTC アセタプリミド メタミドホス (3種類)	EPTC ウニコナゾールP クロルフェナピル ジコホール シプロコナゾール テブコナゾール パクロブトラゾール (7種類)	EPTC アセフェート アルドリン エトプロホス ジェットフェンカルブ ジクロロボス ディルドリン テトラコナゾール テルブホス トリフルラン ピラクロホス ブチレート (12種類)
溶出されない農薬		アセフェート	アセフェート ヘキサコナゾール	

る溶出試験の結果、20mL分画に132農薬が溶出された。しかし、EPTC約60%、アセタミプリド約20%、メタミドホス約30%と3農薬の回収率は低く、アセフェートは24mLでも溶出が認められなかった。以上の結果から、ENVI-Carb/LC-NH₂及びSAX/PSAは、溶出液量を20mLとした。

C18, Oasis HLBにおいては一定量の標準溶液を添加したアセトニトリル溶液25mLをカートリッジに負荷した後、同溶液2mLで溶出して全量について回収率を調べた。

その結果、C18ではアセフェート、ヘキサコナゾールを除く131農薬が溶出したが、EPTC約50%、ウニコナゾールP約30%、クロルフェナピル約10%、ジコホール約60%、シプロコナゾール約20%、テブコナゾール約20%パクロブトラゾール約40%と9農薬が回収率70%未満であった。

Oasis HLBの結果は133農薬全てが溶出された。しかし総じて回収率が低く、EPTC約30%、アセフェート66%、アルドリン約60%、エトプロホス66%、ジェットフェンカルブ69%、ジクロロボス約55%、ディルドリン約20%、テトラコナゾール66%、テルブホス66%、トリフルラン65%、ピラクロホス65%、ブチレート約50%と12農薬が回収率70%未満であった。以上の結果から、C18及びOasis HLBの溶出条件は、試験溶液25mL負荷後アセトニトリル2mLで溶出とした。

3. 2 試料溶液を用いた固相カートリッジの溶出試験

実試料に対する固相カートリッジの精製効果及び農薬回収率を確認するため、農産物抽出液を用いて農薬溶出状況を調べた。

りんご、にんじん、ほうれん草については、これら農産物の抽出溶液(図1の※印)に標準溶液を添加し、各カートリッジに2mL(5g相当)負荷した後溶出液20mlを分取し、濃縮後GS/MSにより添加回収率を求めた。結果を表2に示す。

ENVI-Carb/LC-NH₂では、りんご、にんじん、ほうれん草ともに対象農薬全てが溶出された。しかし、EPTC約44~57%、ジクロロボス約59~65%、ピリミジフェン約51~65%、ブチレート約59~70%と4農薬の回収率が低かった。標準溶液による溶出試験ではEPTCとピリミジフェンの2農薬のみが低回収率であることから、ジクロロボス及びブチレートの低回収率の要因としては、マトリックスの影響が考えられる。

また、ENVI-Carb/LC-NH₂では、ほうれん草の場合

表2 試料抽出溶液を用いた固相カートリッジの溶出試験結果

	ENVI-Carb/LC-NH ₂			SAX/PSA	C18	Oasis HLB
	ほうれん草	にんじん	りんご	りんご	玄米	玄米
色素の除去	可	可	可	不可		
回収率70%を超える農業	129/133	129/133	129/133	130/133	129/133	130/133
回収率70%未満の農業	EPTC ジクロロボス ピリミジフェン ブチレート (4種類)	EPTC ジクロロボス ピリミジフェン ブチレート (4種類)	EPTC ジクロロボス ピリミジフェン ブチレート (4種類)	アセタミプリド メタミドホス (2種類)	EPTC ジクロロボス ピリミジフェン ブチレート (4種類)	EPTC ジクロロボス ブチレート (3種類)
溶出されない農業				アセフェート		

色素が若干残ったものの、りんご、にんじんでは殆ど除去された。一方、SAX/PSAでは色素が殆ど除去されなかった。このため、SAX/PSA抽出液を用いたGS/MS測定は色素残留の少ないりんごについてのみ実施した。

りんごを用いたSAX/PSAの溶出試験ではアセフェートは検出されず、アセタミプリドの回収率が約30%、メタミドホス約11%と低かった。その他の農業は70%以上の回収率70%であった。

玄米についても上記と同様に、抽出溶液に標準溶液を添加後、C18及びOasis HLBカートリッジに25mL(2.5g相当)を負荷し、アセトニトリル2mLで溶出した。抽出液を脱水、濃縮後、ENVI-Carb/LC-NH₂でさらに精製し、GS/MSにより回収率を求めた。結果を表2に示す。

C18およびOasis HLBでは対象農業全てが溶出され、129農業が回収率70%以上であった。しかし、EPTC、ジクロロボス、ブチレートの3農業については両カートリッジとも70%以下であった。ピリミジフェンについてはC18で約30%と低く、標準溶液を用いた溶出試験では7~12農業が低回収率であったことから、マトリックス効果により回収率が上昇したと考えられる。さらに、クロマト上においては玄米中の脂肪によるとみられる妨害ピークが認められなかったことから、精製効果は十分にあるとみなされた。

これらの結果から、精製用カートリッジとして、果実・野菜用にはENVI-Carb/LC-NH₂、穀類用にはC18(又はOasis HLB)+ENVI-Carb/LC-NH₂を用いることとした。

3.3 実試料を用いた添加回収試験

りんご、にんじん、ほうれん草及び玄米に農業混合溶液(アルドリン、ディルドリン、エンドリンは0.2 μg/mL、アセタミプリド、アセフェート、メタミドホスは10 μg/mL、その他127農業は2.0 μg/mL) 1mlを添加して30分間放置後、図1のフローシートに従って操作

し、各農業の添加回収率を求めた。結果を表3、表4に示す。

表3 実試料を用いた添加回収試験結果

	ENVI-Carb/LC-NH ₂			C18	Oasis HLB
	ほうれん草	にんじん	りんご	玄米	玄米
回収率70%を超える農業	130/133	127/133	127/133	127/133	129/133
回収率70%未満の農業	EPTC ジクロロボス ブチレート 3種類	EPTC アセフェート ジクロロボス ピリミジフェン ブチレート メタミドホス、 6種類	EPTC アセフェート ジクロロボス ピリミジフェン ブチレート メタミドホス、 6種類	EPTC アセフェート ジクロロボス ピリミジフェン ブチレート メタミドホス、 6種類	EPTC ジクロロボス ブチレート メタミドホス、 4種類
回収率200%を超える農業	アルドリン	アルドリン	アルドリン	アルドリン	アルドリン

検査対象133農業のうち、ほうれん草では130農業、にんじん及びりんごでは127農業が70%以上の良好な回収率を示した。しかし、全ての試料でEPTCは60%以下、ジクロロボス、ブチレートは70%以下であり、アルドリンは逆に200%を越えていた。

また、りんご、にんじんではアセフェート、ピリミジフェン、メタミドホスが60%以下であった。ほうれん草ではピリミジフェンが約105%と高く他の検体と違う傾向を示した。ピリミジフェンは検体の種類によってはもとより、同一検体でも回収率が変動することから本法では検査不可能と考えられる。

玄米については、C18使用の場合は127農業、Oasis HLB使用の場合は129農業が70%以上の良好な回収率を示した。しかし、C18、Oasis HLBともにEPTC、ジクロロボス、ブチレート、メタミドホスの4農業は70%未満であり、アルドリンは200%を越えていた。また、C18ではこの他にアセフェート、ピリミジフェンが50%以下であった。

3.4 考察

3.の結果から、りんご、にんじん、ほうれん草においてENVI-Carb/LC-NH₂はEPTC、アセフェート、ジクロロボス、ブチレート、メタミドホスの回収率が低く、ピリミジフェンは溶出液20mLでは十分な回収が得られなかった。

アルドリンの回収率が本調査では200%を超えているが、通常業務では良好な回収率が得られていることから、インサートの汚れ等も含め要因について精査する必要がある。

SAX/PSAは色素除去が不十分であるが、りんごの場合はENVI-Carb/LC-NH₂に比べて農業の吸着が少なく、

アセフェート、メタミドホス以外の農薬回収率が良好であることから、色素除去の強いカーボンを併用することで精製効果が期待できると思われ、今後の検討課題である。

穀類は残留基準値が低いいため検出下限をクリア出来ない農薬が多いが、カートリッジのキャパシティーが大きいOasis HLBを用い試料量を多くすることによって検出感度を上げることが可能と考えられる。

今回調査したすべての農産物で、EPTC、ジクロロボス、ブチレートが70%未満であったが、これら農薬は揮発性物質で濃縮時に揮散することが知られていることから、濃縮操作を工夫することで改善が図られると思われる。この他、アセフェート、メタミドホスの回収率も低かったが、これらは水溶性が高く極性の低い溶媒には十分に溶解しなかったものと考えられ、同時に試料の違いによる変動も大きいと考えられる。

4. ま と め

(1) 133種類の農薬を対象に、りんご、にんじん、ほう

れん草、玄米に対する固相カートリッジの精製効果を調べた結果、6農薬を除く127農薬について良好な回収率が得られた。

(2) ENVI-Carb/LC-NH₂は色素除去に優れていることが判明し、Oasis HLBではC18と同等の効果が得られた。

(3) Fillionらの方法は多量の溶媒を用いず迅速に測定出来ることから、さらに多くの農産物や農薬に対しても適用可能と考えられる。

5. 参 考 文 献

- 1) 残留農薬迅速分析法開発検討会, 47(6), 27-41, 1997.
- 2) 小川正彦, 坂井亨, 大熊和行, 他, :三重衛研年報, 42, 83-94, 1996.
- 3) 後藤真康, 加藤誠哉, 残留農薬分析法, 192-193, 1980.
- 4) Fillion, J., Sauve, F. and Selwyn, J. J. *AOAC Int.*, 83, 698-713, 2000.

表4 添加回収結果

n = 3 回収率 (%)

No	カートリッジ名 試料名 化合物名	ENVI-Carub/LC-NH ₂						C18		Oasis HLB	
		ほうれん草		にんじん		りんご		玄米			
		回収率	RSD	回収率	RSD	回収率	RSD	回収率	RSD	回収率	RSD
1	EPN	104	1.5	148	6.8	142	11.0	153	3.6	140	3.2
2	EPTC	57	9.9	50	3.9	43	13.3	50	1.3	47	4.8
3	o,p-DDT	76	2.7	108	4.3	89	4.9	87	2.1	77	9.7
4	P,P'-DDD	109	1.2	121	3.0	110	1.3	132	8.0	131	3.1
5	p,p'-DDE	92	0.6	98	1.3	93	5.0	97	2.5	90	8.7
6	p,p'-DDT	91	1.3	109	4.8	117	4.5	108	3.1	96	7.4
7	α-BHC	91	1.8	88	3.2	85	3.9	91	1.1	91	6.8
8	α-エンドスルファン	103	3.6	107	3.9	126	10.9	106	1.4	98	6.6
9	β-BHC	97	1.6	98	2.3	96	4.5	105	1.6	97	6.9
10	β-エンドスルファン	94	2.7	101	3.5	108	7.6	106	2.0	91	8.3
11	γ-BHC	98	1.3	95	6.0	99	8.7	102	5.7	99	7.3
12	δ-BHC	94	1.8	107	30.4	122	5.4	105	0.3	97	6.9
13	アクリナトリン	117	1.1	150	35.3	166	11.1	166	9.8	145	2.0
14	アセタミプリド	100	0.5	109	2.4	112	7.0	108	1.1	96	8.7
15	アセフェート	102	3.4	57	5.0	61	8.6	60	1.2	76	4.0
16	アラクロール	102	0.2	113	1.0	109	9.1	127	10.9	108	4.7
17	アルドリソ	291	1.1	322	3.0	312	5.2	286	3.3	274	6.9
18	イソフェンホス	96	4.6	114	3.1	102	5.9	109	1.8	100	5.4
19	イソフェンホスP=O	108	2.3	112	4.8	128	6.8	117	2.0	102	7.4
20	イソプロカルブ	98	1.1	83	4.5	101	5.5	99	2.0	94	7.0
21	イプロジオン	120	2.0	155	6.3	155	11.3	163	3.4	133	3.0
22	イミベンコナゾール	126	3.9	140	8.1	153	14.4	191	17.3	239	24.6
23	ウニコナゾールP	118	1.1	150	6.0	155	9.0	154	5.2	118	4.1
24	エジフェンホス	116	1.1	155	6.7	145	8.5	154	6.3	131	2.6
25	エスプロカルブ	105	1.0	110	1.8	111	9.1	114	4.6	109	5.5
26	エトキサゾール	116	0.6	140	55.4	120	37.4	138	52.0	140	3.2
27	エトプロホス	108	1.7	97	3.0	106	5.8	102	2.6	96	7.0
28	エトリムホス	101	1.0	107	3.9	111	8.2	112	4.7	103	4.6
29	エンドリン	101	2.3	113	3.4	118	11.2	114	6.4	100	6.4
30	カスサホス	111	0.9	113	3.1	117	7.5	118	3.9	98	3.5
31	カフェンストロール	120	1.5	121	16.8	143	9.2	136	3.1	175	2.0
32	カルバリル	125	1.1	96	39.0	121	8.8	111	9.4	108	7.4
33	キナルホス	102	0.2	111	2.5	108	5.2	113	1.3	104	7.1
34	クレソキシムメチル	110	1.2	182	3.1	111	9.6	142	28.4	93	8.2
35	クロルピリホス	102	1.4	112	1.0	116	9.3	116	6.1	109	6.7
36	クロルピリホスメチル	100	1.1	99	5.4	103	6.2	104	1.4	100	8.2
37	クロルフェナピル	99	3.0	109	1.6	105	7.9	107	4.7	98	6.6
38	クロルフェンペンホス-E	129	6.3	142	2.0	143	6.8	135	3.4	121	7.3
39	クロルフェンペンホス-Z	102	0.7	110	3.9	107	3.7	114	2.4	103	6.7
40	クロルベンジレート	114	1.5	126	2.9	126	9.0	133	5.3	126	1.3
41	クロロプロファミ	114	1.0	111	4.4	118	8.3	119	2.4	108	5.2
42	シアナジン	89	3.5	87	4.8	118	10.1	103	3.0	80	9.2
43	ジエトフェンカルブ	114	1.4	114	5.1	128	7.3	119	2.6	108	6.2
44	ジクロルボス	60	3.7	49	2.6	47	11.4	45	4.4	49	5.9
45	ジコホール分解物	112	1.5	118	1.9	106	5.4	115	2.9	106	5.9
46	シハロトリン	102	3.0	113	7.7	120	4.3	117	2.3	104	6.1
47	ジフェノコナゾール	165	2.4	148	4.9	162	6.4	218	3.9	239	24.6
48	シフルトリン	193	4.8	180	14.4	158	3.9	217	5.6	181	4.8
49	ジフルフェニカン	104	0.6	118	2.5	121	5.8	115	1.4	102	5.4
50	シプロコナゾール	109	0.9	146	2.5	141	8.8	151	4.3	122	13.3

カートリッジ名 試料名		ENVI-Carub/LC-NH ₂						C18		Oasis HLB	
No	化合物名	ほうれん草		にんじん		りんご		玄米			
		回収率	RSD	回収率	RSD	回収率	RSD	回収率	RSD	回収率	RSD
51	シベルメリン	120	0.6	130	9.4	152	9.5	133	5.4	98	3.1
52	ジメチピン	99	1.3	100	2.4	97	9.3	104	5.8	99	7.3
53	ジメチルピルホス	96	0.4	101	4.6	104	5.0	106	0.7	97	6.5
54	ジメテナミド	99	0.3	103	1.4	101	4.1	107	0.8	100	7.2
55	ジメトエート	109	0.1	111	6.7	120	9.2	117	3.1	110	5.2
56	シメリン	117	3.2	119	4.9	129	9.9	127	4.8	108	7.4
57	シラフルオフェン	122	2.6	127	3.8	128	8.2	134	5.0	205	2.5
58	ターバシル	117	1.0	125	6.2	136	10.0	129	4.5	103	4.6
59	ダイアジノン	105	0.6	111	1.5	113	6.8	118	6.8	108	4.7
60	チオベンカルブ	106	0.9	110	1.7	111	8.4	114	5.5	109	6.7
61	チオメトン	74	6.0	90	2.9	104	9.2	83	7.6	98	3.5
62	ディルドリン	95	5.3	99	2.8	99	2.8	101	8.3	84	17.7
63	テトラコナゾール	100	1.0	118	0.6	118	7.6	123	5.9	110	6.0
64	テニクロール	103	1.0	113	2.8	115	5.4	114	1.3	101	6.6
65	テブコナゾール	114	2.7	161	3.6	157	8.0	164	5.3	133	3.0
66	テブフェンピラド	112	1.4	129	4.0	126	8.9	135	5.0	145	30.3
67	テフルトリン	101	1.3	102	1.9	102	4.6	105	1.1	100	7.0
68	デルタメリン	92	5.1	125	44.9	167	12.5	126	5.3	119	8.4
69	テルブホス	101	1.1	98	3.3	108	5.8	106	2.0	99	7.1
70	トリアジメノール	194	6.2	127	5.8	126	31.6	144	3.3	139	11.0
71	トリアゾホス	107	0.4	134	3.8	127	9.7	138	5.7	131	2.6
72	トリクロホスメチル	107	0.7	100	2.4	101	5.3	104	1.6	99	7.7
73	トリシクラゾール	109	1.7	123	2.7	120	8.3	111	12.4	118	9.7
74	トリフルラリン	92	1.8	106	3.9	113	9.1	107	0.9	113	5.7
75	バクプロトラゾール	115	2.1	125	1.7	125	6.0	125	1.1	107	8.2
76	パラチオン	94	1.1	122	3.8	119	9.1	120	5.1	110	6.0
77	パラチオンメチル	96	4.2	118	6.5	138	9.5	119	3.9	108	4.7
78	ハルフェンプロックス	116	3.1	158	5.4	154	11.1	169	2.6	181	4.8
79	ピテルタノール	130	1.3	153	2.8	162	11.3	167	1.5	149	6.8
80	ピフェノックス	89	2.2	131	1.7	117	9.1	146	9.9	145	30.3
81	ピフェントリン	98	0.7	108	3.4	114	5.6	106	2.1	95	7.7
82	ピラクロホス	108	3.0	157	7.6	166	10.6	181	9.8	161	5.0
83	ピリダベン	105	2.0	121	5.3	116	10.0	116	7.5	106	2.7
84	ピリフェノックス-E	118	0.9	102	2.0	113	8.6	124	15.7	115	5.2
85	ピリフェノックス-Z	104	0.9	91	5.7	101	7.1	114	15.1	114	4.7
86	ピリブチカルブ	105	2.1	123	3.5	125	7.6	117	2.1	99	7.1
87	ピリプロキシフェン	121	1.7	126	3.3	132	8.6	134	6.1	145	2.0
88	ピリミカルブ	104	0.5	112	1.9	109	9.2	116	4.8	114	3.4
89	ピリミジフェン	106	7.5	57	11.2	58	16.0	47	31.3	111	16.2
90	ピリミホスメチル	99	2.4	103	2.4	99	3.1	109	1.4	101	7.0
91	ピリメタニル	101	1.4	103	2.1	102	4.8	107	0.6	101	7.3
92	フィプロニル	101	1.6	134	6.8	130	8.8	128	9.9	111	5.5
93	フェナリモル	104	1.1	112	3.1	115	6.6	118	1.1	104	6.4
94	フェントロチオン	98	2.1	118	6.5	128	9.3	123	2.7	109	5.5
95	フェノブカルブ	105	0.6	107	4.7	110	7.7	114	5.0	76	4.0
96	フェンスルホチオン	132	0.9	170	6.1	165	9.0	156	1.7	120	5.3
97	フェンチオン	97	1.1	109	2.2	108	8.6	105	7.3	107	5.1
98	フェントエート (PAP)	102	1.6	118	5.3	118	8.9	118	5.3	114	4.7
99	フェンバレレート	151	2.3	137	18.3	157	9.1	178	4.5	210	16.0
100	フェンプロパトリン	108	6.4	113	2.5	102	6.5	111	2.3	99	5.5
101	ブタクロール	118	1.3	121	3.3	126	9.6	127	4.5	115	4.3
102	ブタミホス	103	2.6	147	4.0	153	10.2	136	11.6	115	4.3
103	ブチレート	67	1.8	52	2.7	50	7.5	55	4.2	61	5.3

No	カートリッジ名 試料名 化合物名	ENVI-Carub/LC-NH ₂						C18		Oasis HLB	
		ほうれん草		にんじん		りんご		玄米			
		回収率	RSD	回収率	RSD	回収率	RSD	回収率	RSD	回収率	RSD
104	フルジオキシソニル	113	1.3	126	9.4	128	8.7	130	4.9	116	6.0
105	フルシトリネート	114	1.5	127	9.8	143	8.3	130	1.8	122	6.3
106	フルシラゾール	107	1.0	127	2.3	116	5.6	121	0.4	106	7.0
107	フルトラニル	106	0.2	123	3.5	120	6.1	123	1.3	107	5.9
108	フルバリネート	117	1.2	127	44.9	189	10.3	137	2.6	129	8.9
109	プレチラクロール	102	1.8	117	2.0	109	3.8	113	1.5	102	6.8
110	プロシモシ	130	13.7	112	7.4	96	48.8	117	4.1	124	10.6
111	プロチオホス	111	1.1	126	1.7	117	7.1	124	5.6	116	6.0
112	プロピコナゾール	117	2.7	132	3.5	138	6.6	132	0.2	113	6.8
113	ヘキサコナゾール	115	1.1	121	1.7	119	7.0	136	0.5	122	8.0
114	ヘブタクロール	99	1.1	95	0.7	94	4.7	100	0.9	95	7.8
115	ヘブタクロルエポキシド	94	0.5	97	3.3	102	7.3	100	1.8	94	7.0
116	ペルメトリン	151	1.6	137	3.8	140	10.5	155	6.4	170	9.2
117	ペンコナゾール	106	0.7	120	2.3	118	8.2	120	6.0	111	5.5
118	ベンダイオカルブ	100	1.9	100	12.2	118	5.4	107	1.0	98	7.1
119	ペンディメタリン	91	0.9	149	2.4	115	10.9	124	19.7	107	6.2
120	ベンフレセート	102	0.7	107	2.0	107	8.8	112	5.8	108	3.5
121	ホサロン	109	1.5	121	7.1	146	5.5	132	1.1	119	6.4
122	ホスチアゼート	121	4.9	140	2.6	136	6.0	134	3.9	110	6.0
123	マラチオン	104	2.0	108	4.8	109	3.9	112	1.5	105	5.9
124	マイクロブタニル	105	0.8	124	2.8	122	7.0	126	5.3	118	4.1
125	メタミドホス	100	3.1	49	0.9	46	7.6	50	3.7	11	1.0
126	メチオカルブ	105	1.3	115	20.6	131	5.1	111	1.1	102	7.4
127	メトブレン	113	0.9	139	3.2	139	1.8	142	3.7	115	5.2
128	メトラクロール	96	1.6	100	0.7	98	5.2	105	1.0	97	7.8
129	メトリブジン	104	0.5	129	2.5	131	8.8	119	10.0	113	4.0
130	メフェナセツ	104	1.6	119	2.5	124	5.3	118	1.8	105	7.4
131	メブロニル	123	0.9	151	2.4	144	8.7	157	5.2	131	3.1
132	レナシル	119	0.5	143	3.9	155	6.4	139	0.4	121	6.6
133	硫酸エンドスルファン	92	0.9	104	20.5	114	4.9	104	1.4	95	5.7

Abstract

Study on simultaneous analysis of residual pesticides by solid-phase cartridge purification

Hironori Miura, Atsuko Murakami, Shiho Kudoh, Natsuko Tsushima, and Akiko Kogawa

To comply with the positive list system to be enforced from fiscal 2006 following the partial amendment to the Food Sanitation Law (2003), simultaneous analysis by GC/MS (SIM) has been studied that uses extraction with acetonitrile/solid-phase cartridge purification to enable rapid analysis using small amounts of solvents. Four types of solid-phase cartridge were examined for their ability to purify 133 pesticides included in apples, carrots, spinach and brown rice. Three types of cartridge were effective in removing pigments and fats, and used in a study to recover pesticides. The results were satisfactory with 127 pesticides.

Key words : pesticide residue, multiresidue analysis, solid phase extraction

県産食品における有害物質残留量の経年的推移について

工藤 志保 村上 淳子 三浦 啓徳 古川 章子

県産食品における有害物質残存量を継続調査してきた。今回、平成元年度から平成16年度までの魚介類中のポリ塩化ビフェニル、総水銀、クロルデン類、有機スズ化合物、玄米中のカドミウムの経年的推移について取りまとめた。その結果、ポリ塩化ビフェニル、クロルデン類及び有機スズ化合物については、低減化傾向が見られた。総水銀については、蓄積性等の違いから比較的高い濃度が検出された検体もあったが、概ね一定濃度以下で推移し、暫定的規制値を超えた検体はなかった。玄米中のカドミウムについては、年度ごとの濃度分布がばらばらで明白な傾向がみられなかったが、食品衛生法の基準を超えたものはなかった。

Key words : polychlorinated biphenyls, chlordanes, mercury, organic tin compounds, cadmium

1. はじめに

本県では、県産食品の安全性確保のため、有害物質残留量調査を継続して行っている。

今回は、平成元年から平成16年までの16年間における魚介類中のポリ塩化ビフェニル（以下PCBとする）、総水銀、クロルデン類、有機スズ化合物及び玄米中のカドミウム含有量の経年的推移について取りまとめたので報告する。

2. 調査方法

2.1 試料

調査試料は平成元年から平成16年までの16年間に、青森県内で生産、販売された食品で、生産者、市場及び小売店から入手した。

内訳は、魚介類 30種175検体、牛乳 20検体、玄米 80検体、精米 4検体である。

2.2 調査項目

- (1) PCB
- (2) クロルデン類（ヘプタクロル、ヘプタクロルエポキシド、オキシクロルデン、シスクロルデン、トランスクロルデン、トランスノナクロル）
- (3) 総水銀
- (4) 有機スズ化合物（トリブチルスズ化合物、ジブチルスズ化合物、トリフェニルスズ化合物）
- (5) カドミウム

2.3 測定方法

(1) PCB

厚生省通知に示された方法¹⁾に準拠した。

測定機器：電子捕獲型検出器付ガスクロマトグラフ (ECD)

測定条件：カラム DB-1(内径0.53mm×15m,膜厚15 μm)

カラム温度 190°C

注入口温度 250°C

検出器温度 250°C

キャリアガス 窒素 80ml/min

(2) クロルデン類

厚生省通知に示された方法²⁾を一部変更した方法で行った。

測定機器：電子捕獲型検出器付ガスクロマトグラフ (ECD)

測定条件：カラム DB-1(内径0.32mm×30m,膜厚0.25 μm)

カラム温度

(80°C-20°C/min-170°C (2min) -2°C

/min-220°C-15°C/min-280°C)

注入口温度 250°C

検出器温度 300°C

(3) 総水銀

硫硝酸還元法で前処理した後、還元気化-原子吸光度法により測定した。

測定機器：平沼式水銀濃度計 (HG-1)

(4) 有機スズ化合物

厚生省通知に示された方法³⁾を一部変更した方法で行った。

測定機器：炎光光度計付ガスクロマトグラフ (FPD) ガスクロマトグラフ-質量分析計 (島津 GCMS-QP5050A)

測定条件：カラム DB-5ms(内径0.25mm×30m,膜厚0.25 μm)

カラム温度 80°C-20°C/min-260°C(10min)

気化室温度 250°C

インタフェース温度 270°C

(5) カドミウム

硝酸一過塩素酸法により試料を分解後、フレイム原子吸光光度法により測定した。

測定機器：原子吸光光度計(日立 ゼーマン Z-8200)

3. 結果及び考察

3. 1 PCB

平成元年度から平成4年度までは、牛乳についてのみ調査しており、平成5年度からは魚介類について調査している。

(1) 魚介類

平成5年度から平成16年度にかけて23種74検体について調査を行った。年度別濃度分布図を図1に、結果一覧を表1に示した。

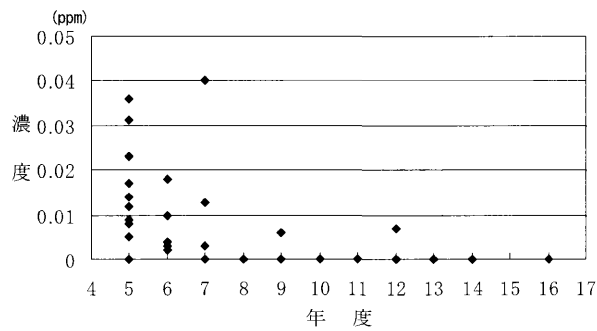


図1 年度別濃度分布 (PCB)

表1 PCB検査結果一覧 (H5～H16年度)

調査年度	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	16
アイナメ	0.036				ND	ND			ND		
アジ			0.04			ND					
イカ									ND		ND
イシダイ						ND					ND
カレイ	0.023 0.017				ND		ND	ND		ND	ND
カワハギ				ND							
サケ				ND				ND			ND
サバ		0.018		ND							
シタヒラメ							ND				
ソイ	0.031	0.008				ND	ND		ND		
タイ類		0.01	0.003	ND	ND	ND	ND				
ヒラメ		0.004									ND
ブリ		0.019	0.04	ND	0.006	ND	ND	ND	0.007	ND	ND
ホタテ	ND 0.005 0.008 0.008 0.009 0.012 0.012	0.002 0.002 0.003 0.004	4検体 ND								
サワラ											ND
アラ			ND								
イワシ											ND
カツオ			0.013								
カナガシラ	0.014										
カンパチ								ND			
メジナ									ND		
メジマクロ									ND		
きす					ND						
検体数	13	9	9	5	5	5	8	5	5	5	5

PCBの残留濃度については経年的に明白な減少傾向が見られた。最高値は、平成7年度のブリ0.04ppm、アジ0.04ppmで、8年度以降は、9、12年度にそれぞれ1検体が0.01ppm未満で検出されたほかはすべてND(0.005ppm未満)で推移している。因みに既報^{4,5)}では、昭和47年～昭和51年の最高値はウグイの0.8ppm、昭和52年～昭和58年の最高値はアイナメの0.08ppmを報告している。

魚種別に見るとアイナメ、アジ、カレイ、サバ、ソイ、ヒラメ、ブリ、カツオ、カナガシラから検出されているが、ブリについては9、12年度にも検出されるなど他の魚種に比べてやや長期に亘り汚染がみられた。しかし、いずれも低い値であり、暫定規制値⁶⁾(遠洋沖合魚介類0.5ppm、内海内湾魚介類3ppm)を超えるものはなかった。また、イカ、イシダイ、サケについては複数検体調査しているが、すべてNDであった。

16年間で比較的継続して検体に選定されているカレイ、ブリ、タイの3魚種について、魚種別年次の推移を図2に示した。いずれも、平成8年度から減少しはじめ、低レベルで推移していた。

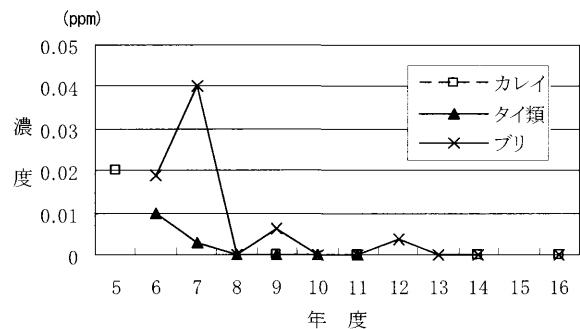


図2 魚種別年次の推移

PCBは、コンデンサーや変圧器の絶縁油などに使用されてきたが、昭和43年のカネミ油症事件からその生体及び環境への影響が問題となり、昭和49年に化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律(以下化審法とする。)の「特定化学物質」に指定され、製造、輸入、使用が禁止された。しかし、難分解性であるため生体濃縮等による食品への残留が危惧されることから、暫定規制値が定められ継続調査しているものである。規制から約30年以上経過し、PCBの食品への残留量は減少してきていると考えられる。

(2) 牛乳

平成元年から平成4年までの4年間で20検体について調査しているが、いずれもND(0.0005ppm未満)であった。

3.2 クロロデン類

平成元年度から平成16年度にかけて23種99検体について調査を行った。結果を表2に示した。

表2 クロロデン類検査結果一覧(H元~H16年度)

調査年度	元	2	3	4	5	6	7	8
アイナメ					ND			
アジ							ND	
カレイ					2検体 ND			
カワハギ								ND
サケ								ND
サバ						cis-クロロデン2 その他はND		ND
ソイ					ND	cis-クロロデン2 その他はND		
タイ類						ND	ND	ND
ヒラメ						ND		
ブリ						cis-クロロデン2 その他はND	ND	ND
ホタテ	5検体 すべて ND	5検体 すべて ND	5検体 すべて ND	5検体 すべて ND	8検体 すべて ND	4検体 すべて ND	4検体 すべて ND	5検体 すべて ND
アラ								ND
カツオ								ND
カナガシラ					ND			
検体数	5	5	5	5	13	9	9	10
ND 定量下限未満	<5	<5	<0.5	<1	<1	<2	<2	<2

調査年度	9	10	11	12	13	14	16
アイナメ	ND		ND		ND		
アジ		ND			ND		ND
イカ					ND		ND
イシダイ		ND					ND
カレイ	ND		2検体 ND				ND
サケ				トランスノナクロル1.8 その他はND			ND
シタヒラメ			ND				
ソイ		ND	ND		ND		
タイ類	ND	ND	ND				
ヒラメ							ND
ブリ	ND	ND	1検体はすべてND ヘプタクロル5.5 オキシクロロデン2.7 シスクロロデン2.2 その他はND	ND ND	ND	トランスノナクロル2.0 その他はND	ND
サワラ							ND
イワシ							ND
カンパチ				ND			
メジナ						ND	
メジマグロ				ND			
きす	ND						
検体数	5	5	8	5	5	5	5
ND 定量下限未満	<1	<2.5	<1.3	<1.3	<1.3	<1.3	<1.3

検出率は約6%であり、経年的に明白な傾向はみられなかった。

魚種別ではブリ、サケ、サバ、ソイから検出され、平成11年度のブリのヘプタクロル5.5ppbが最高値であった。同じブリの検体からは、オキシクロロデン2.7ppb、シスクロロデン2.2ppbも検出されている。ブリにおいてはこの他に平成6及び14年度にも検出されている。ま

た、サケからはトランスノナクロル1.8ppb(平成12年度)、サバ、ソイ、からはcis-クロロデン2ppb(平成6年度)が検出されている。しかし、これらの検出値は、1日許容摂取量(ADI)の0.0005mg/kg体重/日からみて問題となるような値ではなかった。

新山⁷⁾等は、ホタテを貝柱と中腸線を含むその他の部分に分けて分析を行い、貝柱のみではどの項目も検出されず、その他の部分からは微量のシスクロロデン及びトランスノナクロルを検出したと報告しているが、県内産のホタテガイ(むき身)については、すべての項目がNDであった。

クロロデンは、農薬として使用許可されていたが昭和43年に農薬取締法における登録が失効し使用が禁止されている。その後、規制の対象外であった建築用木材のシロアリ駆除剤として使用されたことにより汚染が拡大し、昭和61年に化審法の「特定化学物質」に指定され、製造、販売、使用が禁止された。しかし、難分解性及び残留性の高さ等から現在も継続して調査を実施しているものである。

県産魚介類については、今までの調査結果においては明らかな残留性は認められていないが、ヘプタクロル等は内分泌攪乱物質(環境ホルモン様物質)の疑いもあり、今後も継続して調査する必要があると考えられる。

3.3 総水銀

平成元年度から平成16年度にかけて30種105検体について調査を行った。年度別濃度分布を図3に、結果一覧を表3に示した。

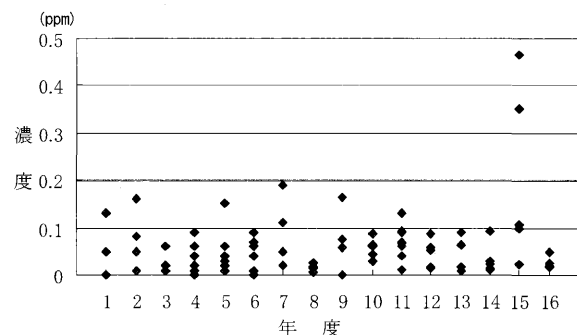


図3 年度別濃度分布(水銀)

高濃度が検出された平成15年度を除き、経年的にはばらつきの少ない一定のレベル内で推移している。因みに検出率は約92%、その中の約88%は0.1ppm未満であった。

表3 水銀検査結果一覧（H元～H16年度）

単位：ppm								
調査年度	元	2	3	4	5	6	7	8
アイナメ	0.13	0.08 0.12	0.06 0.04 0.08	0.04 0.06 0.09	0.06	0.06 0.04		
アジ		0.01		0.01			0.19	
アマダイ		0.05	0.02					
インダイ		0.01	0.01	0.01				
カレイ	0.05	0.03	0.04 0.04 0.08	0.04 0.01	0.03 0.04	0.04 0.01		
カワハギ			0.01	ND 0.02				0.006
サケ								0.017
サバ						0.07		0.026
ソイ			0.02		0.15			
タイ類				0.01		0.09	0.05	0.016
ヒラメ			0.02			0.07		
ブリ							0.02	0.015
ホタテ				0.02 0.02 0.01 0.01				
アラ							0.11	
カツオ							0.02	
カナガシラ					0.15			
タチウオ		0.16						
ナマコ	ND							
ホッキガイ						5検体 ND		
検体数	3	7	11	10	9	12	5	5
ND 定量下限未満	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.005

単位：ppm								
調査年度	9	10	11	12	13	14	15	16
アイナメ	0.164		0.130		0.064			
アジ		0.029						
イカ					0.018			0.049
インダイ		0.086				0.011		
カレイ	0.057		0.060 0.042			0.014	0.024	0.017
サケ				0.016				0.025
サメ							0.464 0.351	
シタビラメ			0.068					
ソイ		0.0364	0.071		0.089			
タイ類	0.075	0.061	0.092					
ヒラメ						0.030		
ブリ	0.077	0.03	0.013 0.091	0.059 0.086	0.017	0.092		0.026
サワラ						0.022		
イワシ								0.019
エイ							0.098	
カンパチ				0.015				
メジナ					0.010			
メジマクロ				0.053				
ホッキ							0.107	
きす	ND							
検体数	5	5	8	5	5	5	5	5
ND 定量下限未満	<0.005	<0.005	<0.005	<0.005	<0.005	<0.005	<0.005	<0.005

魚種別では、サメ、アジ、アイナメが高く、特にサメでは突出していた。

最高値は、平成15年度のサメ（カトザメ）0.464ppmであり、同年度に検査したサメ（アブラザメ）も0.351ppmと高かった。カトザメについては、暫定的規制値⁸⁾の0.4ppmを超えているが、この規制値は、深海性魚介類⁹⁾（メヌケ類、キンメダイ、ギンタラ、サメ類等）には適用されないため、規制の対象にはならない。しかし、サメは厚生労働省の報告¹⁰⁾においても水銀含有量が高い魚介類の一つであり、妊婦が摂取する際に注意すべき魚介類として挙げられているため、摂取の際には摂取量の目安を参考にするなど十分な注意が必要である。

サメの次に含有量が高いのは平成7年度のアジ0.19ppm、

その次はアイナメで、平成2年度0.12ppm、平成9年度0.164ppm、平成11年度0.130ppmが検出されている。

新山等¹¹⁾は、北海道産魚介類で最も高い水銀含有量を示したのはアブラコ（アイナメ）で、湿重量中0.207ppmであったと報告している。また、厚生労働省等の調査結果¹⁰⁾でも、アイナメの平均値0.105ppmが報告されており、どちらも本県と同様の傾向を示していた。

含有量が低い値を示した魚介類はホッキガイ、ホタテ、きす、ナマコであり、これらも新山等¹¹⁾の報告と同様の傾向を示していた。

16年間で比較的継続して検体に選定されているアイナメ、カレイ、タイ類、ブリの4魚種について、魚種別年次の推移を図-4に示した。それぞれ年度間の値の変動はあるが、減少傾向等の有意な変化は見られなかった。これは魚介類の水銀含有量は、環境中の水銀濃度の影響よりも食物連鎖による影響が大きいためと考えられる。

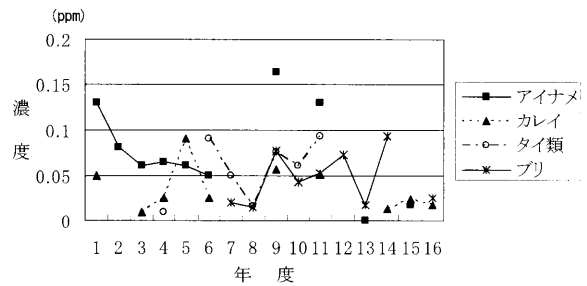


図4 魚種別年次の推移

水銀は天然に存在する成分であるが、一方で人工的に化石燃料の燃焼、硫化鉱の精錬、セメント製造、ごみ焼却などから川や海に流出し、環境中の微生物によりメチル水銀に変化し食物連鎖により魚介類に取り込まれると言われている¹²⁾。よって、食物連鎖の上位にあるサメやカジキなどの大型魚やキンメダイのような深海魚等は比較的多くのメチル水銀を含むこととなる。

したがって、魚種により水銀の蓄積性が高く残留量が多いものがあるため、今後も青森近海産の魚介類について継続調査を実施し残留量の把握をする必要があると考えられる。

3.4 有機スズ化合物

平成元年度から平成16年度にかけてホタテガイ82検体について調査を行った。平成元年度から平成5年度まではビストリブチルスズオキシド（以下TBTOとする）

のみ、平成6年度からはトリブチルスズ化合物（以下TBTとする）、トリフェニルスズ化合物（以下TPTとする）、ジブチルスズ化合物（以下DBTとする）について調査している。TBTとTPTは生物の付着を防ぐ船舶塗料として使用されてきたものであり、DBTはそれらの分解・代謝物である。

TBTとDBTの年度別濃度分布を図5に、TBTの年次の推移（年平均値、最大値、最小値）を図6に示した。なお、平成元年度～平成5年度までのTBTOはTBTに変換した値を使用している。

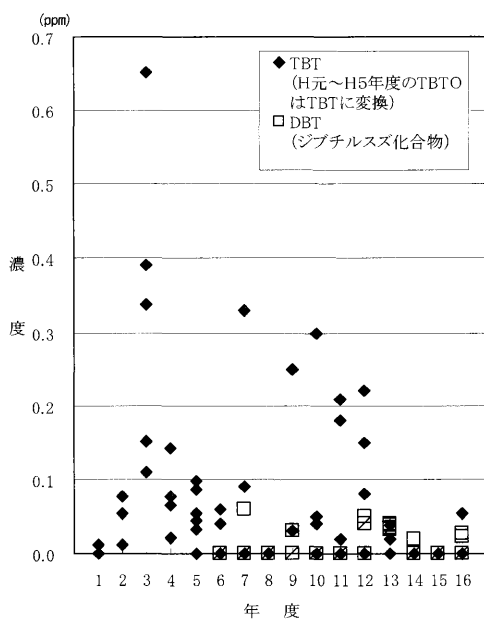


図5 年度別濃度分布

TBT及びDBTについては経年的に減少傾向が見られ、平成13年度以降はいずれも0.1ppm以下の低い値かND（0.02ppm未満）となっている。また、TPTについては、平成6年度から調査を開始しているが、これまでに検出されたことはない。

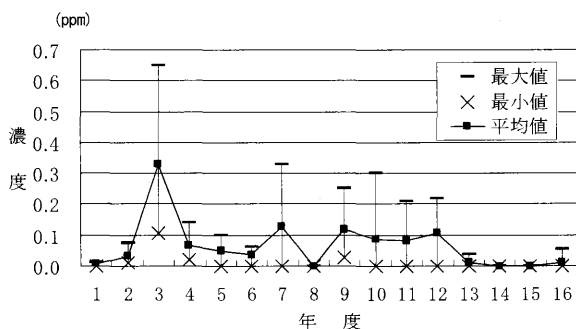


図6 年次の推移 (TBT)

宮崎等¹³⁾は、TBTO及びTPTともに平成2年度から減少しはじめ低濃度での横ばい状態であるという調査結果を報告しているが、本県でも同様の傾向が見られている。

因みにその要因として、我が国においては平成2年にTBTOが化審法の第1種特定化学物質に指定され、製造、輸入、販売が規制されたこと及び国際的にも、有機スズ化合物を含有した船舶用防汚塗料の塗布禁止等使用が自主規制されたことによるものと考えられる。

採取場所による違いについては、総じて検出濃度が低く、高濃度の検体数が少ないため、明確な把握はできなかった。なお、検体濃度の高かった平成3年度の採取場所は陸奥湾、津軽海峡及び根室海峡であった。

TBTO及びTPTについては、厚生省通知^{3,14)}によりそれぞれ暫定的な1日許容摂取量(ADI)の1.6 μg/kg/日及び0.5 μg/kg/日を示されている。この値をもとに体重50kgの人が1日に摂取できるTBTOの量を計算すると80 μg/人/日となるが、平成元年度から平成16年度のうち最高濃度(平成3年度 TBTO 0.60 μg/g)のホタテガイでも毎日約130g摂取しなければADIには達しない。したがって、本県で検出されている濃度は健康上問題となるレベルではないと考えられる。

西村等¹⁵⁾は、貝類では高い数値(0.27ppm)が認められるが、貝類以外では最高値が0.08ppmとなっていることから、貝類にTBTが多く蓄積する傾向があると報告している。

このことから、本県におけるホタテガイを対象とする調査は、有機スズ化合物汚染の指標の一つとして今後も継続していく必要があると考えられる。

3.5 カドミウム

平成元年度から平成16年度にかけて玄米76検体、精米4検体について調査を行った。年度別濃度分布を図7に、年次の推移(年平均値、最大値、最小値)を図8に示した。

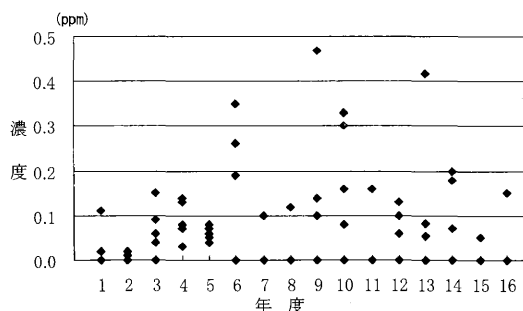


図7 年度別濃度分布 (Cd)

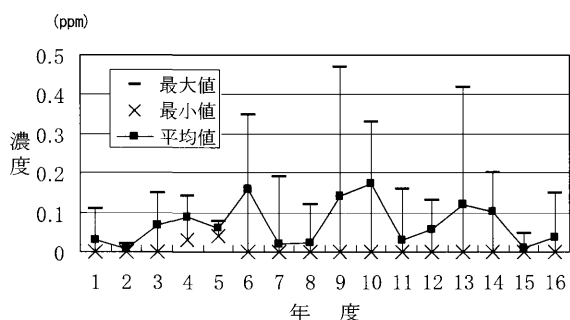


図8 年次的推移 (Cd)

年度ごとの分布がばらばらで経年的には明白な傾向はみられなかった。検出率は46%で、年平均値は0.01ppmから0.17ppmの範囲で推移していた。

厚生労働省¹⁶⁾によれば、日本産のコメ1kg中に含まれるカドミウム量は平均して0.06mg (0.06ppm)と報告されており、それよりは少し高めに推移していた。

また、食品衛生法に基づく基準である1ppmを超えた検体はなかったが、農林水産省において米の流通基準としている0.4ppm~1.0ppmの範囲に含まれる検体が2検体あった。どちらも青森市内で採取された検体ではあったが、採取場所の特定等詳細が把握できないものであった。

カドミウムは鉱物や土壌に天然に存在する重金属であるが、鉱山開発や精錬などの人の活動により環境中に排出され様々な要因により水田などの土壌に蓄積される。このため、栽培中にカドミウムが吸収され、作物に含まれることとなる。我が国では、玄米のカドミウム濃度が1.0ppm以上となる米(玄米)の販売、加工が禁止され、さらに農用地土壌汚染防止法に基づき1.0ppm以上の米が作られる水田については土壌汚染対策が行われている。また、0.4ppm~1.0ppmの米(玄米)は農家から買い上げ、その水田については水稻の吸収抑制対策を実施している。

本県においては、食品衛生法の基準を超えた米は検出されていないが、0.4ppmを超えた検体があることから、今後も継続して調査する必要があると考えられる。

4. ま と め

平成元年度から平成16年度までの魚介類中のポリ塩化ビフェニル、総水銀、クロルデン類、有機スズ化合物、玄米中のカドミウムの経年的推移について取りまとめた。

(1) 魚介類のPCB残留量は低減化傾向を示し、8年度

以降はほぼ定量下限未満で推移していた。

- (2) クロルデン類については、現在までの16年間、どの項目も定量下限未満に近い低レベルで推移しており、県産魚介類への残留性は認められなかった。
- (3) 総水銀については、サメ類が暫定的規制値を超えるなど魚種により水銀の蓄積性が高く残留量が多いものがあるため、今後も継続して残留量を把握していく必要があると考えられる。
- (4) 有機スズ化合物のうち、TBT及びDBTについては減少傾向が見られ、近年はNDが多い。TPTは現在まで、県産ホタテガイから検出されていない。
- (5) PCB、クロルデン、有機スズ化合物については、化審法による法規制等により環境への排出量が規制された結果、魚介類等への蓄積量が年々減少してきていると考えられる。
- (6) 玄米のカドミウムについては、食品衛生法に基づく基準を超えたものはないが、農林水産省による米の流通基準の0.4ppmを超えた検体があった。

5. 文 献

- 1) 厚生省環境衛生局PCB分析研究班：分析方法に関する研究、1972。
- 2) 昭和62年8月27日衛乳第42号、厚生省生活衛生局乳肉衛生課長通知：DDT等の残留する輸入食肉の流通防止について
- 3) 昭和60年4月26日衛乳第18号、厚生省生活衛生局乳肉衛生課長通知：魚介類中のビストリブチルスズオキシド(TBTO)について
- 4) 古川章子,他：食品中のPCB汚染調査結果,青森県衛生研究所報, 14, 29-31, 1976。
- 5) 平出博昭,他：食品中のPCB汚染調査結果,青森県衛生研究所報, 21, 40-41, 1984。
- 6) 昭和47年8月24日環食第442号、厚生省環境衛生局長通知：食品中に残留するPCBの規制について
- 7) 新山, 他：北海道産魚介類中のクロルデン類残留に関する実態調査, 北海道立衛生研究所報, 46, 18-24, 1996。
- 8) 昭和48年7月23日環乳第99号, 厚生省環境衛生局長通知：魚介類の水銀の暫定的規制値について
- 9) 昭和48年10月11日環乳第121号, 厚生省環境衛生局長通知：深海性魚介類等にかかる水銀の暫定的規制値の取扱いについて
- 10) 平成17年11月2日, 厚生労働省医薬食品局食品安全

- 部基準審査課：妊婦への魚介類の摂取と水銀に関する注意事項の見直しについて(概要)別添5「魚介類に含まれる水銀の調査結果(まとめ)」
- 11) 新山,他：北海道産魚介類中の水銀含有量に関する実態調査,北海道立衛生研究所報,49,52-55,1999.
- 12) 平成17年11月2日,厚生労働省医薬食品局食品安全部基準審査課：妊婦への魚介類の摂取の水銀に関する注意事項の見直しについて【Q&A】
- 13) 宮崎,他：魚介類中の有機スズ化合物汚染状況調査結果の推移について,食品衛生研究,Vol.54, No.3, 2004.
- 14) 平成6年2月25日衛乳第20号,厚生省生活衛生局乳肉衛生課長通知：魚介類中の有機スズ化合物について
- 15) 西村,他：北海道近海産魚介類中の有機スズ化合物(ジブチルスズ,トリブチルスズ,トリフェニルスズ)汚染モニタリング調査(平成元年度～平成10年度),北海道立衛生研究所報,49,56-62,1999.
- 16) 厚生労働省医薬食品局食品安全部：「食品に含まれるカドミウム」に関するQ&A(平成16年8月改訂)

Abstract

Changes over years in the amounts of harmful substance residues in food products produced in Aomori Prefecture

Shiho Kudoh, Atsuko Murakami, Hironori Miura, and Akiko Kogawa

The amounts of harmful substance residues in food products produced in Aomori Prefecture have been surveyed on a continuous basis. Changes over the years from 1989 to 2004 in the amounts of polychlorinated biphenyls, total mercury, chlordanes and organic tin compounds in fish and shellfish, and cadmium in brown rice, have been summarized. Results show a decreasing trend in polychlorinated biphenyls, chlordanes and organic tin compounds. For total mercury, although relatively high concentrations were detected in some specimens due to the difference in cumulative tendencies, total mercury generally remained below a certain concentration, and in no specimen did the measured value exceed the tentative regulatory standard. For cadmium in brown rice, no constant tendency was observed, due to the varied distribution of concentrations from year to year, and all cases met the standard specified in the Food Sanitation Law.

Key words : polychlorinated biphenyls, chlordanes, mercury, organic tin compounds, cadmium

JR津軽海峡線騒音調査結果の近年の動向

—新型電気機関車EH500の騒音を中心として—

花石 竜治 安田 徳彦 松尾 章

JR津軽海峡線の貨物列車を中心とした騒音問題に関して、従来の調査に付け加えて行った周波数測定結果までを報告する。周波数測定は、コンデンサーマイクの出力をOPアンプにより増幅し、市販のアナログ-デジタル変換器を経てリアルタイムにパーソナルコンピュータに騒音波形を取り込み、これを数学的に処理することで行った。周波数解析の結果、駅に進入する下り貨物列車と、駅を出発する上り貨物列車とで騒音の周波数特性が異なることなどの知見を得た。

Key words : JR tsugarukaikyo line, noise, freight car, frequency analysis, electric locomotive

1. 緒 言

JR津軽海峡線（正しくは津軽線区間内であるが、走行する列車の大半が北海道方面関係であるので、便宜上、津軽海峡線と称する。）の鉄道騒音・振動問題は過去に防音・防振壁の設置などで沈静化の傾向が見られていた。

ところが近年、ダイヤの大幅な見直しにより、昼間に走行する貨物列車の割合が増えた。さらに昨年度までの調査結果などによれば、関東方面から北海道の五稜郭までを機関車の付け替えなしで走行でき、岩手銀河鉄道線内の奥中山の峠越えや青函トンネル内の急勾配を走破する、3電源（直流、交流50Hz, 60Hz）方式の新型機関車EH500(通称「金太郎」)が大きな騒音を及ぼしていることが明らかになってきた。

通常の鉄道の騒音測定では、周波数A特性のSLOWという時定数設定により騒音を測定する。この方法では、さまざま存在すると考えられる騒音の周波数成分についての知見が得られない。騒音の周波数成分が判明すれば、機関車内外の騒音発生源に関する情報が得られる可能性がある。

本報告では、新型機関車EH500の騒音を実地において波形で採取し、これを数学的に処理し解析することによって、騒音の周波数成分に関する知見を得たので述べる。

2. 調査日時

調査は平成17年10月13日に、外ヶ浜町蟹田の蟹田駅から青森よりの土場踏切近傍で、通常のルーチン測定である騒音・振動調査と、これに付加して周波数測定を行った。周波数測定は、後述するようにノートパーソ

ナルコンピュータ(PC)をバッテリー駆動で動作させてアナログ-デジタル(AD)変換を行いサンプリングしたので、バッテリーの駆動時間を考え、貨物列車が集中する時間帯(10時半ごろから12時ごろまで)に調査を行った。

3. 調査方法

ルーチン測定は、積分型普通騒音計NL-06とレベルレコーダーLR-06、両者の特性は周波数A特性、時定数SLOWで騒音を、振動計VM-52とレベルレコーダーLR-04で振動を測定した。機器はリオン社のものであった。軌道中心から6mと21mの2箇所測定を行った。ただし、振動については6m地点と21m地点は同一線上で測定が行えなかった。

周波数測定は騒音の波形採取は、軌道中心から6mの地点で行った。コンデンサーマイクの出力を汎用OPアンプLF356Nで増幅し、入力電圧範囲が-5V~+5Vまでの12ビットのAD変換装置を経て、PCに付属の専用ソフトで取り込むことによって行った。コンデンサーマイク出力の増幅回路は参考文献(1)、(2)を参考に設計し自作した。AD変換装置は、Pico Technology社のADC-42を用いた。デジタル分解能が12ビットであるので、これは $2^{12}=4096$ により、波形に正負の電圧があることを考慮すると、約33dBのダイナミックレンジである。実際の騒音は、過去のデータを見ると、機関車通過時が85dB程度、貨車通過時が70dB程度であるので、増幅回路の利得を適切に設定すれば、機関車通過時と貨車通過時の両方を十分な精度で測定できることになる。また、サンプリング間隔は約150 μ s、最大記録時間は約25sであった。1回の測定につき、約250000点のサンプリングを行った。実測データが膨大であり、

表計算ソフトが用いられなかったので、Microsoft社Visual Basicのプログラミングにより、データ解析を行った。

騒音波形の周波数解析には、連続する時系列データを窓関数法(Hamming window)によって時間分解し、その時刻周辺で2000点の離散コサイン変換(フーリエ変換の一種)により、列車通過時刻に対して周波数分布がわかるようにした。なお、AD変換器が出力するデジタル値は一定の時間間隔のものではないので、高速フーリエ変換は用いることができない。Hamming windowとは、

$$f(t) = \frac{1}{2} \left\{ 1 - \cos\left(\frac{2\pi t}{T}\right) \right\}$$

ここで、 t コサイン変換開始からの時刻、 T は窓関数が0となる時刻で、コサイン変換終了の時刻である。この $f(t)$ なる関数を時系列データに時間軸で乗じて、その後コサイン変換を行うことにより、時系列データからある時刻付近の周波数を求めるものである。これによって、シンクウイグルなどの、フーリエ変換による人工的な偽の周波数ピークがなくなる。詳細は例えば参考文献(3)に記載がある。

簡単に文献(3)にならってフーリエ変換について述べる。時系列データ $y(t)$ をフーリエ変換する定義式は、周波数を f としたときの角周波数 $\omega = 2\pi f$ について

$$Y(\omega) = \frac{1}{L} \int_{-L/2}^{L/2} y(t) e^{-i\omega t} dt$$

で与えられる。ここで $-L/2 \sim L/2$ は信号の繰り返し1ユニットを表し、

$$e^{-i\omega t} = \cos(\omega t) - i \sin(\omega t)$$

である。もし信号が

$$y(t) = \cos(\omega_0 t)$$

ならば

$$Y(\omega) = \frac{1}{L} \int_{-L/2}^{L/2} \cos(\omega_0 t) \{ \cos(\omega t) - i \sin(\omega t) \} dt$$

となり、虚数の項は偶関数 $\cos(\omega_0 t)$ と奇関数 $\sin(\omega t)$ との積なのでその $-L/2 \sim L/2$ の和はゼロとなる。一方、実数の項は、 ω_0 と ω が異なれば積分をすると0になり、 $\omega = \omega_0$ のときのみ値を持つことになる。すな

わち、

$$Y(\omega) = \frac{1}{L} \int_{-L/2}^{L/2} \cos^2(\omega_0 t) dt = 1 \quad \omega = \omega_0 \text{ のとき}$$

$$Y(\omega) = 0 \quad \omega \neq \omega_0 \text{ のとき}$$

となり、単一周波数信号であることが解析される。もし $y(t)$ がたくさんの周波数を含んでいるとすれば、そのフーリエ変換はそれらの周波数に値を持つものとなる。今までの議論は連続関数に関するものであったが、これを離散データについて定義を拡張し、計算を行ったものが、今回の周波数解析である。

今回の計算では、サンプリング波形が虚部を含まず、フーリエ変換が実関数に対して適応されるので、周波数成分の実部が正負の周波数で対称となり、虚部は反対称となることから、コサイン変換を行うこととした。時刻 $t = t_k$ からの離散波形データ $y(t_{k+i})$ にHamming窓関数 $f(t)$ を乗じた後の離散コサイン変換を

$$Y_k(\omega) \propto \sum_{i=1}^{2000} y(t_{k+i}) f(t_{k+i}) \cos(\omega t_{k+i})$$

ここで、

$$f(t_j) = \frac{1}{2} \left\{ 1 - \cos\left(\frac{2\pi(t_j - t_l)}{T}\right) \right\}$$

t_l : 変換開始時刻

$T=0.26$ s

とした。サンプリング間隔が約150 μ sで、2000点ごとの変換であるから、Hamming窓の完了時刻は幾分早い。しかし、時系列中100点で時間分解したので、得られた結果は十分に時系列データの周波数・時間特性を反映したものと考えられる。

4. JR津軽海峡線の騒音問題の昨今の現況

これについて、平成12年度からの推移を表1に示した。なお、後述する平成17年度の結果も載せてある。環境基準はないが、新幹線騒音と同様の評価をするために、連続する20本の列車の上位半数パワー平均で評価している。

表1 JR津軽海峡線騒音の経年変化（外ヶ浜町蟹田）

測定距離	年度	12	13	14	15	16	17
6 m	上位半数	76	74	/	80	83	83
21m	パワー平均 (dB)	71	71	/	78	82	82

平成15年度以降,騒音が増加していることが明らかである。これは,緒言で述べたことが原因と考えられる。

5. 平成17年度の結果

5.1 ルーチン測定の結果

表2にルーチン測定の結果を示す。下りの貨物機関車,わけてもEH500「金太郎」の騒音が大きいが明らかである。

図1に10:54下り貨物と11:56上り貨物列車の騒音のチャートを示した。ピークが機関車通過時のものである。

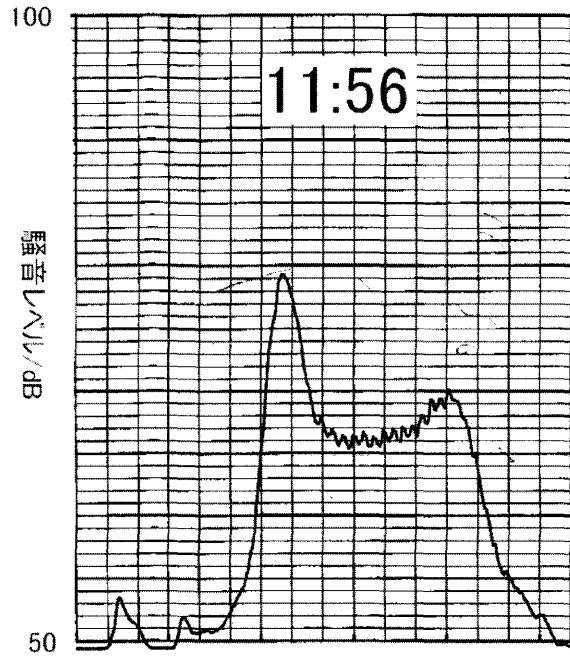


図1(b) 11:56上り貨物列車 (EH500「金太郎」)
軌道中心から6mの地点の騒音チャート

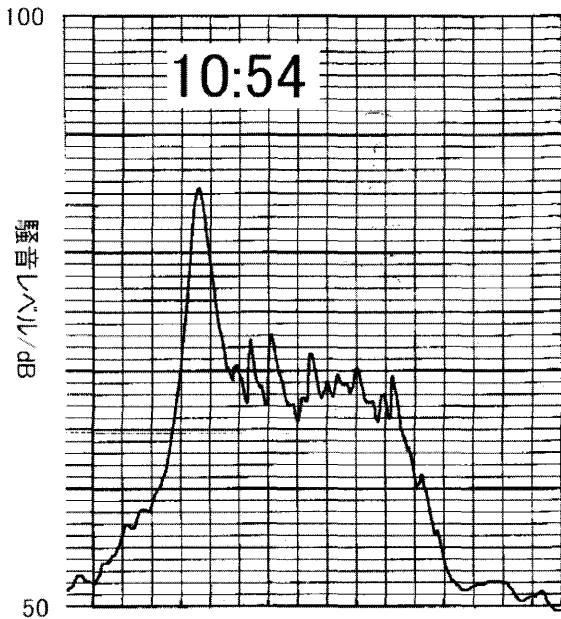


図1(a) 10:54下り貨物列車 (EH500「金太郎」)
軌道中心から6mの地点の騒音チャート

表2 ルーチン測定の結果

測定 番号	列車通 過時刻	上下 の別	列車種別		全車両数 (台)	貨物の場合、機関車が EH500(金太郎)か旧式か	車両通過時間 (sec)	列車速度 (km/h)	騒音 (dB)		振動 (dB)		
			列車	機関車					6 m	21m	6 m	21m	
1	10:23	下	特急	電車	8		14.65	39.3	70.5	67.0	58.5	52.0	
2	10:26	上	特急	電車	5		9.40	38.3	70.5	67.8	62.5	59.4	
3	10:38	下	貨物	電気機関車	2	22	金太郎	33.71	49.7	84.9	84.5	65.9	59.5
4	10:54	下	貨物	電気機関車	2	22	金太郎	38.83	43.1	85.6	85.4	64.1	57.1
5	10:58	上	貨物	電気機関車	2	22	旧式	27.00	62.0	76.7	73.4	65.2	59.0
6	11:20	上	貨物	電気機関車	2	22	金太郎	26.06	64.3	85.0	84.4	66.0	60.0
7	11:36	下	普通	電車	3		5.24	43.9	66.6	64.0	55.0	50.9	
8	11:42	下	特急	電車	5		9.11	39.5	67.9	65.3	56.5	51.0	
9	11:45	上	普通	電車	3		5.14	44.8	66.9	64.4	55.1	51.1	
10	11:56	上	貨物	電気機関車	2	20	金太郎	31.66	48.3	79.4	78.3	62.2	57.1
11	12:12	下	貨物	電気機関車	2	22	金太郎	41.02	40.8	85.8	85.5	62.6	57.5
12	12:17	上	特急	電車	8		10.78	53.4	71.8	68.8	60.8	52.7	
13	12:41	下	特急	電車	6		8.46	51.1	72.4	69.6	59.1	51.0	
14	12:57	下	貨物	電気機関車	2	22	旧式	49.74	33.7	72.6	70.8	64.4	54.9
15	13:04	下	貨物	電気機関車	2	22	旧式	50.34	33.3	72.2	70.6	62.1	55.1
16	13:07	上	特急	電車	8		12.62	45.6	72.1	68.9	60.5	53.9	
17	13:28	上	貨物	電気機関車	2	20	金太郎	24.76	61.7	86.0	85.6	66.6	61.0
18	13:41	下	普通	電車	3		5.80	39.7	68.3	66.8	55.6	51.0	
19	13:45	下	特急	電車	5		7.45	48.3	71.0	68.8	59.6	56.6	
20	13:47	上	普通	電車	3		6.22	37.0	66.9	64.4	56.0	51.0	
								最大	86.0	85.6	66.6	61.0	
								最小	66.6	64.0	55.0	50.9	
								上位半数の算術平均	80.0	78.8	64.1	58.6	
								上位半数のパワー平均	82.9	82.4	64.4	58.4	

5. 2 騒音の周波数解析

5. 2. 1 10:54下り貨物列車 (EH500「金太郎」), 軌道中心から6mの地点

ルーチン測定でのピークレベルは85.6dBであった。図2～図4に周波数解析に供したデータおよびその結果を示した。図2でピーク時が機関車通過時のものである。図3で、機関車「金太郎」の強い騒音が低周波領域(約200Hz)付近にあることがわかる。図4では、機関車に広範な騒音周波数があることがわかる。

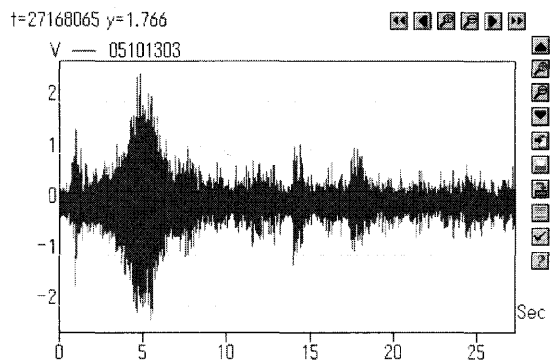


図2 騒音波形

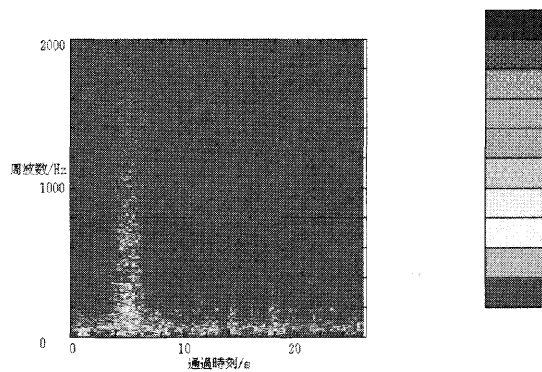
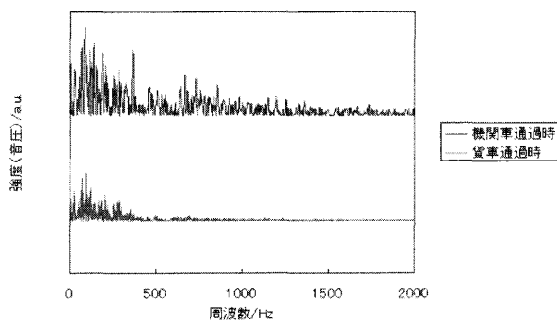


図3 通過時刻対騒音周波数の濃淡表示



EH500(金太郎)の騒音のスペクトル(平成17年10月13日10:54下り)

図4 図3の通過時刻でのスライス

5. 2. 2 11:56上り貨物列車 (EH500「金太郎」), 軌道中心から6mの地点

ルーチン測定でのピークレベルは79.4dBであった。図5～図7に周波数解析に供したデータおよびその結果を示した。図5でピーク時が機関車通過時のものである。図6で、機関車「金太郎」の強い騒音が低周波領域の240Hz付近にピークがあることがわかる。図7では、このことがはっきりと現れている。

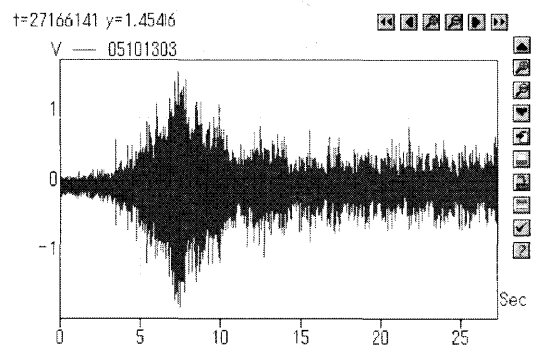


図5 騒音波形

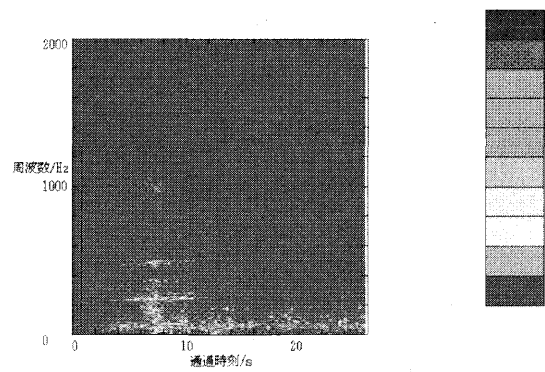
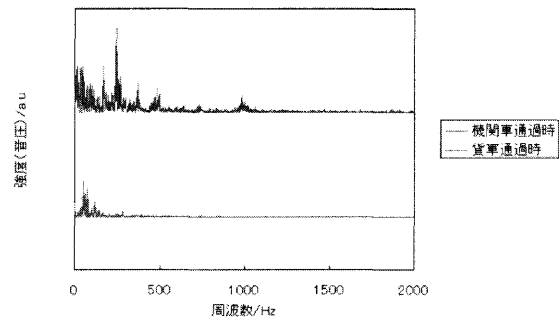


図6 通過時刻対騒音周波数の濃淡表示



EH500(金太郎)の騒音のスペクトル(平成17年10月13日10:54下り)

図7 図6の通過時刻でのスライス

6. 考 察

機関車通過時に騒音波形としても大きな信号が観測された。これを周波数解析し、通過時刻対騒音周波数の濃淡表示にすると状況がよくわかった。機関車および貨車通過時の周波数スペクトルを見ると、まず下り列車のほうでは広範な領域に騒音ピークが観測された。このことは、蟹田駅に侵入する際の減速で、騒音発生源が複数あるか、あるいは広範な範囲の周波数成分を持った発生源箇所が影響しているからと推定された。上り列車のほうでは、240Hz付近に明瞭なピークが見られた。このピークはほかのピークの約2倍の音圧を持っており、 $10\log_{10} 2 = 3$ であるから、約3dB分の騒音に寄与していると考えられる。上り列車は蟹田駅を出発してから加速中であり、この最中には240Hzの周波数成分を持つ騒音発生源がとりわけ大きく寄与していると結論される。

このように周波数解析は、騒音の発生源解明に役立つ

つと考えられ、この手法を利用して、騒音抑制の対策も練ることができるであろう。

7. 結 論

JR津軽海峡線の騒音・振動調査で、ルーチン測定に加えて、新型機関車「金太郎」EH500の騒音の周波数解析を行い、騒音発生箇所の探究に有益な情報が得られた。今後も、この調査を継続し、JR津軽海峡線の騒音対策に資することが重要と考えられる。

8. 参 考 文 献

- 1) トランジスタ技術編集部編：「実用電子回路設計ノート」, 1989年, CQ出版, pp28-29.
- 2) トランジスタ技術編集部編：「パソコン・アダプタの製作&応用」1999年, CQ出版, pp42-57.
- 3) 南 茂夫監修, 河田 聡編著：「科学計測のためのデータ処理入門」, 2002年, CQ出版, pp39-69.

Abstract

Recent Trends in Results of the Train Noise of the JR Tsugarukaikyo Line : a New Type of Electric Locomotive EH500

Ryuji Hanaishi, Tokuhiko Yasuda, and Akira Matsuo

With regard to problems of freight car noise of the JR tsugarukaikyo line, usual investigations to additional frequency analyses are reported. The frequency analyses were carried out by mathematical calculations after amplifying an output of a condenser microphone using an operation amplifier, successive analog-digital conversions and uptake the noise wave into a personal computer. The results of the frequency analyses revealed that frequency components of the noise on the freight cars approaching to the station were different from those departing the station, and so on.

Key words: JR tsugarukaikyo line, noise, freight car, frequency analysis, electric locomotive

黄砂飛来時における有害大気汚染物質の高濃度事例

花石 竜治 対馬 典子 安田 徳彦 秋田谷 礼治 松尾 章

平成17年4月の有害大気汚染物質モニタリングでは、青森県内で高濃度のベリリウムが観測され、その日の気象などを考察したところ、黄砂が飛来していたことが明らかになった。これに付け加えて、常時行っている酸性雨調査で3月から5月初旬にかけて採取した不溶性（乾性）沈着物のベリリウム降下量やその中のベリリウム品位を測定した。その結果、黄砂が飛来してきたときにベリリウム降下量やその品位が高くなっていることが判明した。以上のことから、平成17年4月の有害大気汚染物質モニタリングのベリリウムの高濃度事例は、黄砂によるものであることが判明した。

Key words: beryllium, suspended particulates, yellow sand, acid rain, dry deposition

1. 緒 言

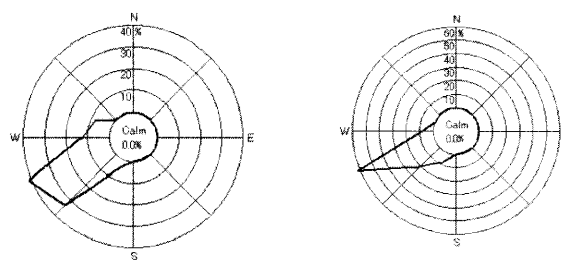
平成17年4月の有害大気汚染物質モニタリングでは、青森市および八戸市で、従来の測定値を1桁程度上回る濃度のベリリウムが観測された。本報告は、その原因を探ることを目的とする。

2. モニタリング期間の気象条件等

平成17年4月の有害大気汚染物質モニタリング期間の気象条件などを表1および図1にまとめた。青森市、八戸市双方で西南西の風が卓越しており、また降水もほとんどなかった。

表1 平成17年4月の有害大気汚染物質モニタリングの気象条件など

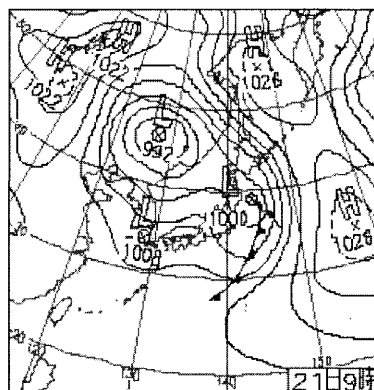
	青森市堤小学校		八戸市八戸小学校	
調査日時	4/21 9:33 ~	4/22 9:33	4/21 11:19 ~	4/22 11:19
天 候	曇り		曇り	
主 風 向	西南西		西南西	
平均風速 (m/s)	4.4		5.7	
平均気圧 (hPa)	1002.7		999.2	
平均気温 (°C)	9.7		9.6	
平均湿度 (%)	58		57	
降 水 量 (mm)	0.0		0.0	



(a) 青森市 (b) 八戸市

図1 平成17年4月の有害大気汚染物質モニタリング調査期間中の風配図

図2に平成17年4月21日9時現在の天気図(気象庁発表)を掲載した。Lは低気圧、Hは高気圧である。解説に出ているように、日本の広い範囲で黄砂が観測された。



21日(木)西日本～東北まで黄砂発達中の低気圧が三陸沖に進み、北日本・山陰は曇りや雨、北海道の一部で雪。その他の東・西日本は概ね晴れ。今年初の黄砂に関する全般気象情報発表。北海道函館市でひょう。

図2 平成17年4月21日の天気図

3. 有害大気汚染物質モニタリングの結果（測定値）

表2に重金属類の測定値を示す。単位は総粉じん濃度以外について ng/m^3 である。

表2 平成17年4月の有害大気汚染物質モニタリング調査結果（重金属類）

項目	平成17年4月の結果		平成16年度年平均値	
	青森市堤小学校	八戸市八戸小学校	青森市堤小学校	八戸市八戸小学校
Ni	19	17	5.6	33
Cr	12	14	1.3	20
Mn	140	100	34	27
As	3.0	2.9	3.1	2.4
Be	0.10	0.11	0.012	0.032
総粉じん濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	190	150		

平成17年4月に青森市堤小学校でベリリウムが前年度年平均値の10倍程度の濃度で検出されていたことがわかる。またニッケル、マンガンは約3倍以上、クロムも10倍近い値であった。

平成17年4月の測定日に石英繊維ろ紙上に捕集された粉じんは黄土色を呈しており、普段の観測時のように灰色や黒色ではなかった。これは、前述の天気図解説に出ているように、また、後述するように黄砂が飛来してきたためと考えられる。また、総粉じん濃度は通常、青森市では数十 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であるが、平成17年4月にはその数倍もの高濃度が観測された。

4. 平成17年5月までの黄砂観測日

4.1 気象台の観測日

- 4/6 盛岡で黄砂観測，青森・秋田では観測なし
- 4/21 青森，盛岡，秋田で黄砂を観測
- 4/22 秋田で黄砂を観測

4.2 インターネットでの検索結果

気象台が発表する「黄砂飛来」は、視程が閾値未満に遮られた場合のみであり、北東北で気象台による黄砂の観測がなかったときにも、視程が閾値以上で黄砂

が飛来してきたこともあると考えられる。そこで、インターネットのウェブサイト検索機能(Yahoo! Japan)で「黄砂 青森 2005」などと検索して得た結果が以下である。気象台が発表していないときにも、黄砂の飛来があったようである。

- 3/19 盛岡で黄砂観測，青森では観測なし
- 4/1 盛岡で黄砂観測，青森では観測なし
- 4/6 盛岡で黄砂観測，青森では観測なし
- 4/21 青森，盛岡，秋田で黄砂を観測

4.3 平成17年4月の有害大気汚染物質モニタリング時の状況

以上の4.1, 4.2から判明するように、平成17年4月の有害大気汚染物質モニタリング測定期間である4月21日から22日にかけては、北東北で黄砂が観測されていた。総粉じん濃度の上昇、ベリリウムなどの重金属類の高濃度現象はこれが原因と判断された。

5. 酸性雨調査での乾性沈着物中のベリリウム濃度の推移

5.1 平成17年3月上旬からの酸性雨調査での乾性沈着物中のベリリウム濃度

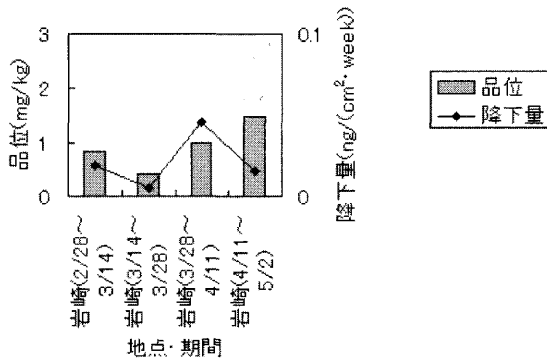
酸性雨の試料採取地点を図3に示す。深浦町岩崎，青森市，名川町であった。青森市と名川町は1週間ごとの採取，岩崎は2週間ごとの採取を行った。



図3 酸性雨調査地点図

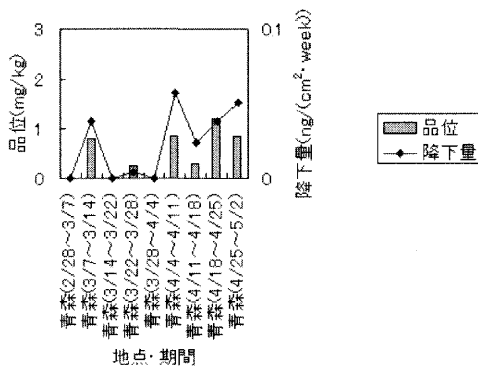
ベリリウムの酸性雨の湿性沈着物中の濃度については、ベリリウムが共有結合性が強く、イオン濃度が低過ぎて分析が困難であり、また、分析方法に関しても公定法がない。そこで、1週間ないし2週間ごとの捕集による酸性雨検体のろ過の際に生じる不溶解性成分に着目し、これを有害大気汚染物質モニタリングと同様の方法で前処理し、分析を行った。ろ過は酢酸セル

ロースのメンブランフィルター（孔径 $0.8\mu\text{m}$ ）を用い、吸引ろ過で行い、ろ過前後の重量を、 105°C 、3時間で乾燥し恒量として測定した。前処理は、 150°C 、2時間でテフロン製圧力容器を用い、硝酸/過酸化水素分解を行って、普通ろ過し、ろ液を定容した。この前処理で、酢酸セルロースフィルターは完全に溶解した。機器分析はICP発光分析によった。結果のグラフを図4に示す。



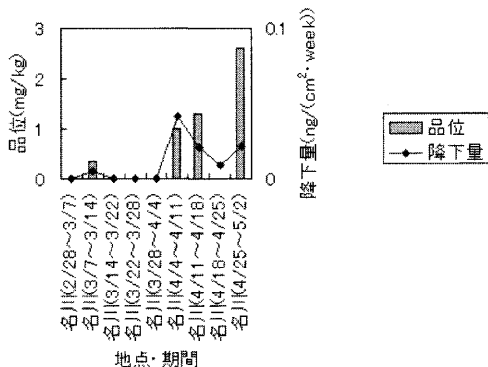
大気降水物中の不溶性Be濃度(岩崎)

図4 (a)



大気降水物中の不溶性Be濃度(青森)

図4 (b)



大気降水物中の不溶性Be濃度(名川)

図4 (c)

時系列が細かい青森, 名川地点で, 3月7日から14日までの間と4月4日から11日までの間, および4月18日から5月2日までの間に降水量が上昇している。このうち, 後2期間については, 黄砂飛来と時期が一致する。前1期間の降水量上昇については, 黄砂観測日としての検索の漏れがある可能性があり, 青森, 岩手, 秋田3県以外で黄砂が観測され青森県に余波があったのかもしれない。

(2) 不溶性成分中のベリリウム品位

この期間中の不溶性成分中のベリリウム品位に関しては, 1mg/kg 程度であり, これを有害大気調査期間のおおよその浮遊粉じん量 $200\mu\text{g}/\text{m}^3$ にかけると $0.2\text{ng}/\text{m}^3$ 度となり, 平成17年4月の有害大気汚染物質調査での堤小学校における観測値 $0.10\text{ng}/\text{m}^3$ と桁が一致する。

6. 過去の有害大気汚染物質モニタリングでのベリリウム濃度

表3に日本での測定値(年平均値など)を示す。

表3 全国での有害大気汚染物質モニタリングでのベリリウム濃度(単位: ng/m^3)

	全国平均	全国最小	全国最大	堤小学校	八戸小学校	根岸小学校
H9	0.15	0.0060	0.70	/	/	/
H10	0.19	0.0055	0.57	/	/	/
H11	0.17	0.0059	2.0	/	/	/
H12	0.072	0.0030	0.70	0.014	0.017	0.020
H13	0.053	0.00039	0.66	0.011	0.021	0.020
H14	0.13	0.0020	5.0	0.014	0.026	0.022
H15	0.044	0.0026	0.61	0.0081	0.030	0.034
H16	0.050	0.00098	2.3	0.012	0.032	0.019
H17年4月				0.10	0.11	/
H17年5月				0.011	0.011	/

全国平均値はおおむね $0.1\text{ng}/\text{m}^3$ 台であり, 平成17年4月の堤小学校の観測値 $0.10\text{ng}/\text{m}^3$ と八戸小学校の観測値 $0.11\text{ng}/\text{m}^3$ が異常に高い測定値であったとは決して言えない。むしろ今まで, 青森県はベリリウムに関しては清浄地域であって, 黄砂飛来時の今回のデータが目立ったと考えられる。

7. 他自治体での大気中のベリリウム濃度に関する調査・研究について

7. 1 中国東北部地域での大気中ベリリウム濃度について(「中国・瀋陽市における浮遊粉じん中の

重金属濃度について（第2報）」)

参考文献(1)によれば、中国東北部工業地帯瀋陽市の平成12年から14年までの過去のデータは、工業地域(24試料)で $0.90\text{ng}/\text{m}^3$ 、住居地域(24試料) $0.62\text{ng}/\text{m}^3$ 、幹線道路近傍(22試料) $0.73\text{ng}/\text{m}^3$ 、郊外(22試料)で $0.38\text{ng}/\text{m}^3$ であり、とくに郊外でも比較的高濃度であった。郊外での濃度は日本全国での有害大気汚染物質モニタリングのデータ範囲を超えないものである。

またこの文献によれば、冬季に大気中のベリリウム濃度が高くなっており、ベリリウムは季節と地点による差が大きい元素と位置付けられている。黄砂中のベリリウムについてはスポットライトが当てられていない。

7. 2 放射性同位体ベリリウム-7について

参考文献(2),(3)などでは放射性同位体のベリリウム-7を測定しているが、この核種は半減期が約50数日程度、天然存在比がわずかであるので、今回の報告の参考にはならないと考えられる。

8. 結 論

平成17年4月のベリリウムを中心とした有害大気汚染物質の高濃度事例を考察した。その結果、

- (1) 平成17年4月の有害大気汚染物質モニタリングでは、ベリリウムに関しては、青森県の過去の年平均値の10倍程度の値が観測された。その他の元素も高濃度で

観測された。

- (2) この現象は黄砂によるものと考えられた。
- (3) 黄砂は3月中旬から認められており、その効果は酸性雨調査の沈着物中のベリリウム濃度に影響していたと考えられ、酸性雨調査でのベリリウムの乾性沈着量は黄砂によって概ね説明された。また、この乾性沈着物中のベリリウム品位から黄砂飛来時の大気中のベリリウム濃度を計算すると桁が一致することが分かった。
- (4) ただし、今回の事例を全国平均と比較すると、青森県は従来、清浄地域であったゆえに高濃度事例となるものであり、決して異常なほどに高濃度であったわけではないことが分かった。

9. 参 考 文 献

- 1) 塚田 進 他：中国・瀋陽市における浮遊粉じん中の重金属濃度について（第2報），三重県保健環境研究センター年報，5，92-97（2003）。
- 2) 橋本 桂輔 他：降下物中のベリリウム-7とカリウム-40について，石川県保健環境センター研究報告書，37，57-68（2000）。
- 3) 鹿内 伸泰 他：青森県における大気浮遊じん及び降下物中Be-7について，Proceeding of the Sixth Workshop on Environmental Radioactivity，53-60，2005年3月8日～10日，つくば市。

Abstract

High Concentration Cases of a Hazardous Air Pollutant when Yellow Sand Fell

Ryuji Hanaishi, Noriko Tsushima, Tokuhiko Yasuda, Reiji Akitaya, and Akira Matsuo

High concentrations of beryllium in the ambient air were observed by investigations of the hazardous air pollutants in April 2005, and then yellow sand turned out to have fallen after consideration of the meteorological condition. Additionally, beryllium concentrations of dry depositions taken by a routine acid rain survey from March to May were measured. As a result, concentrations of beryllium became high when yellow sand fell. Yellow sand caused consequently the high concentration case of beryllium in April 2005.

Key words: beryllium, suspended particulates, yellow sand, acid rain, dry deposition

中小都市河川の汚濁特性（Ⅲ）

—赤川における泡の発生事例—

三上 一 野澤 直史 花石 竜治 清水 友敬

2002年春先に青森市内の赤川において泡が発生したことから、その要因を明らかにするため水質及び泡の構成成分の調査を行った。その結果、泡は酸性河川である駒込川からの用水が流下している赤川中流域で発生していた。泡の発生状況とpHをみると、泡の発生が認められない上流ではほぼ中性で、泡の発生域ではおよそpH5の弱酸性であった。泡の構成成分分析ではアルミニウム、鉄、リン含有量が高く、強酸性では溶解した。このことから、酸性河川である駒込川の用水が赤川に流入し、pH5前後の弱酸性になった時に河川水中の溶解性アルミニウム、鉄、リンの凝集反応によりフロックを形成し、泡となったものと考えられた。赤川で泡の発生した要因として、例年に比べて降水量が少なく、農業用水が不足気味であったことから酸性河川である駒込川の河川水を取水したことにより赤川のpHが弱酸性になったことが考えられた。

Key words: acidic river, foam, water pollution, coagulation

1. はじめに

八甲田山系を源流とし、青森市内を流れる河川のうち、堤川、駒込川はpH3～4の酸性河川である。両河川とも都市部を流れ、陸奥湾に注ぎ込む感潮河川であることから特異な水質汚濁現象が発生することがある。

その一例として、堤川の中流域では春～夏季に泡が発生し、川幅一面を覆い尽くし、景観を損ねることから市民から苦情が寄せられ、その解決が求められていた。

著者等は河川、事業場の水質調査及び泡の構成成分分析から泡は満潮時に海水が遡上し、pH3～4の堤川の河川水がpH5～6になると、河川水中の溶解性の鉄、アルミニウムと事業場から排出された高濃度リン酸態リンとの凝集反応によりフロックを形成し、泡が発生することを明らかにした^{1,2)}。

これを受けて、事業場排水のリン削減対策を行った結果、泡の発生頻度が減少したことから発生機構が証明されたと考えられるとともに、堤川における泡の問題はほぼ終息したものと考えられた。

しかしながら、2002年の春先に中性河川である赤川においても堤川と類似した泡が発生したことから、その発生要因について調査を行ったので報告する。

2. 概 況

赤川は青森市東部の榑木森山(487.1m)山麓付近を水源にし、青森市東部を貫流しながら陸奥湾へ注ぎ込む流域面積13.7km²、流路延長7.7kmの小河川である。上流は森林で、中流域には戸山団地があり、これに水

田地帯が続き下流域には自由ヶ丘団地、旧市街地があり、宅地化が進行した地域である。

駒込川は青森市の南東、八甲田山系の大岳(1584.6m)に水源を発し、青森市街地の桜川橋付近で堤川と合流し、陸奥湾へ注ぎ込む流域面積78.6km²、流路延長31.6kmの2級河川である。駒込川はpH3台の酸性で、藩政時代に群発性地震により地獄沼等の温泉群から強酸性水(pH1.0～2.0)が流入したことにより酸性化したとされ、古くから毒水河川³⁾として知られている。

3. 調査方法

現地調査は2002年5月28日に行った(St-1～11)。同時に、自由ヶ丘団地の側溝及びその上流と下流(St-2～4)、用水路1及びその上流と下流(St-6～8)の6地点において採水を行った。測定項目はpH、BOD、SS、EC、MBAS、TN、TP、T-Fe、T-Alであった。

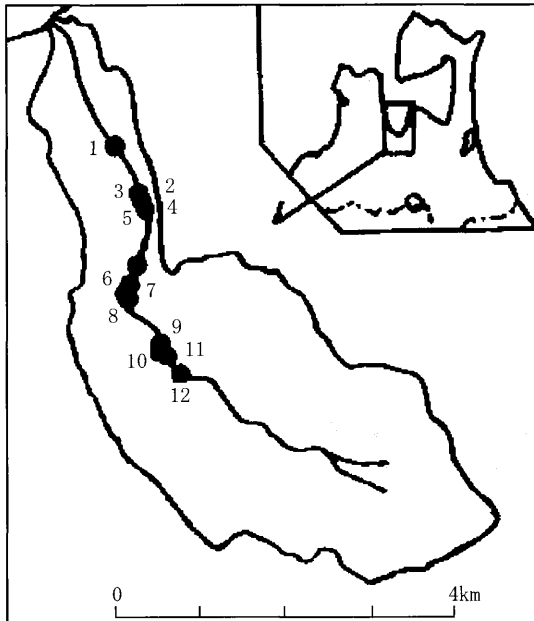
2002年5月30日には、戸山団地が隣接し、し尿処理場排水が流入する蛸沢橋付近の駒込川の河川水が流入する用水路2及びその上流と下流(St-9～11)の水質を採水し、pHを測定した。

2002年6月6日には、赤坂橋(St-12)、用水路1(St-7)及び小柳橋(St-1)の3地点において採水した。測定項目は流量、pH、DO、BOD、SS、TN、TP、PO₄-P、健康項目26項目(重金属、農薬、有機塩素系化合物)、溶解性及び全量の鉄、アルミニウムであった。

2002年6月11～12日には、赤川と駒込川からの用水合流後の戸山橋下流地点(St-5)においてトラップを設置し、6月12日に泡を採取した(写真2, 図1)。

採取した泡(写真3)は、一部、硫酸酸性液(pH1～

6) による溶解性試験に供した。残りは、乾燥後、乳鉢で均一に混合し、強熱減量、鉄、アルミニウム、全リン及び無機態リンは関谷の方法により形態別に定量⁴⁾した。



- 1) 小柳橋 2) 側溝下流 3) 側溝
- 4) 側溝上流 5) 泡採取地点 6) 用水路1-下流
- 7) 用水路1 8) 用水路1-上流 9) 用水路2-下流
- 10) 用水路2 11) 用水路2-上流 12) 赤坂橋

図1 採水地点

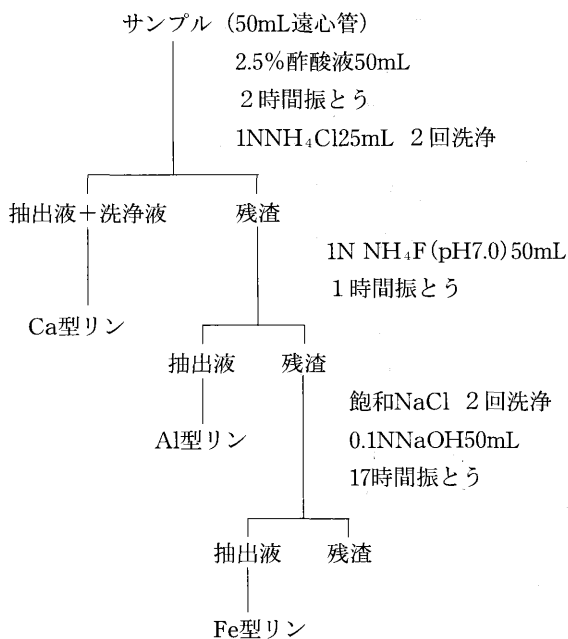


図2 関谷の方法による無機態リンの分別定量法

4. 結果と考察

4. 1 経緯と現地調査の結果

今回の赤川における泡の発生事例は、2002年5月27日の地元夕刊紙への住民から「赤川の汚染で奪われた楽しみ」という投書⁵⁾に端を発したものである。この投書（一部抜粋）は、「……赤川の水質汚濁が進み、付近住民からの苦情が出ている。……今年の春から白鳥、カモの姿が著しく減り、川魚にいたっては全く見えなくなってしまった。原因と思われるのは赤川の上流から毎日のように流れてくる、白い泡立ち状の汚水のようなのである……。川の管理者である県は速やかに排出源を調査し、その結果を本欄で回答してもらいたい。」という趣旨であった。

この投書を受けて、翌5月28日に、青森県、青森市役所の関係機関が合同で現地調査を行った(St-1~11)。その結果、最下流の小柳橋では泡の発生は認められなかった(St-1)。上流の自由ヶ丘団地からの側溝(St-3)は住宅地にあり、側溝上流には特定施設があることから、生活雑排水や事業場排水による泡の発生が疑われたが、側溝からの泡の発生が認められなかった。しかしながら、側溝下流の河床中の水草帯には泡が付着していた。散歩途中の通行人の話では、これまで泡の発生がみられなかったが、今年の春先から朝方に大量の泡が発生していることがしばしばで、危険なものが含まれていないか、不安である旨の談話があった。現地調査当日は、側溝及びその下流地点で泡の発生が認められなかったが、住宅地にあり、泡の発生が目撃されていることから側溝(St-3)及びその上流(St-4)と下流(St-2)の3地点において採水した。その後、上流を遡上した結果、泡の発生は戸山橋上流の用水路1(St-7)から用水が赤川に落下した地点で認められた(写真1)。現地でのpHのパックテストでは用水は強酸性(St-7)、用水が赤川に落下する上流(St-8)では中性、用水が赤川に落下・混合した地点(St-6)では弱酸性を呈した。このpHの変化と泡の発生状況が堤川における泡の発生状況に酷似していることから、その発生機構は堤川との類似性を強く示唆されたことから3地点において採水を行った。また、上流域(St-9~11)では泡の発生が認められなかったことから泡の発生箇所は戸山橋上流の赤川と駒込川用水路の流下点と考えられた。

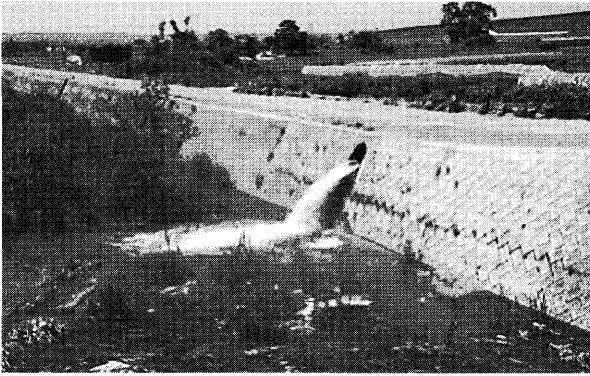


写真1 用水路1 (戸山橋上流; St-7)

4.2 水質調査

pHをみると、用水路1 (St-7)、用水路2 (St-10)では両地点ともにpH4前後の酸性で、酸性河川である駒込川の影響が考えられた。泡の発生が認められた用水路1の下流 (St-6) 域では、pH5の弱酸性であった (図3)。堤川におけるpHの変動要因は酸性河川である堤川に海水が遡上することによって起こったものである。一方、中性河川である赤川では酸性河川の駒込川から流入する用水により起こったものである。pHの変動要因が両河川では異なるものの、赤川と堤川におけるpHの変動パターンと泡の発生状況は極めて類似していた。

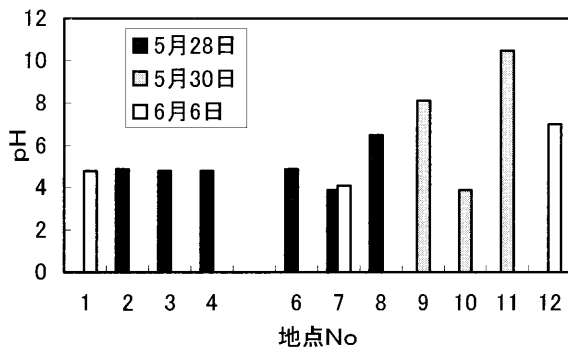


図3 赤川におけるpHの推移

堤川における泡の発生にはリンと鉄及びアルミニウムが関与していたことから、河川水中の3成分について検討した。

全リンをみると、用水中の全リン濃度が低いが、用水路上流域では全リン濃度が高かった (図4)。これは、上流の戸山団地、水産加工場、し尿処理施設の影響のためと考えられた。なお、2施設とも全リン濃度は排水基準値 (16mg/L) 内であった。

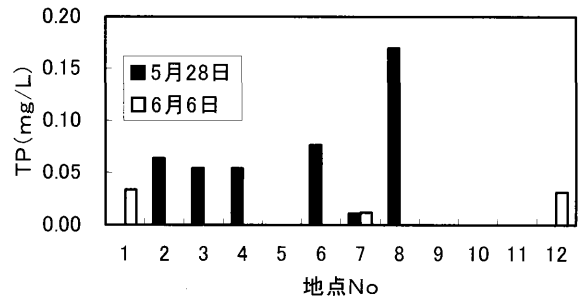


図4 赤川における全リンの推移

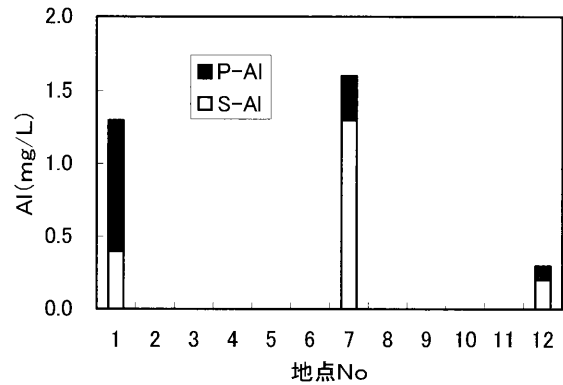


図5 赤川におけるアルミニウムの推移 (2002年6月6日)

アルミニウムをみると、用水路1では溶解性アルミニウム濃度が高かったが、最下流の小柳橋では懸濁態アルミニウム濃度が高くなり、この間ではアルミニウムの不溶化が起こった (図5)。

一方、鉄は3地点ともに溶解性鉄濃度が低く、アルミニウムとは異なっていた (図6)。

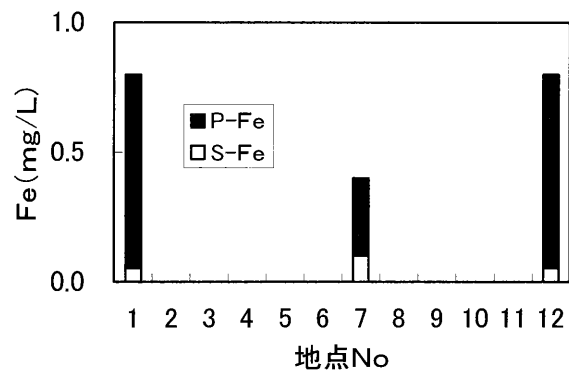


図6 赤川における鉄の推移

なお、2002年5月28日に採水した河川水中のMBAS濃度はいずれも低濃度 (<0.002mg/L) で、泡の発生要因でなかった。また、2005年6月6日に行った重金属

類，農薬，有機塩素系化合物は総て基準値内であった。

4. 2 泡の溶解性及び構成成分

泡の発生要因を明らかにするために行った水質調査では，泡の発生にリンとアルミニウムの関与が強く示唆されたことから戸山橋の下流においてトラップを設置し泡を採取し（St-5，写真2），溶解性試験と構成成分分析を行った。

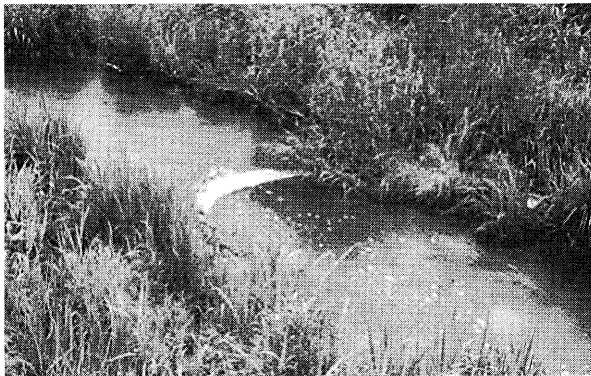


写真2 泡の採取地点 (St-5)



写真3 泡の性状

泡は乳白色～褐色を呈したフロック（写真3）で，pH1～2の硫酸強酸性で溶解し，pH3以上では泡はpH4台を示し，溶解しなかった（表1）。

表1 泡の溶解性に関する定性試験

pH (添加)	pH (添加後)	溶解性
1.0	1.7	◎
2.0	2.7	○
3.0	4.4	×
4.0	4.7	×
5.0	4.8	×
6.0	4.7	×

◎：良く解ける ○：解ける ×：解けない

泡の構成成分をみると，河川水中のリン濃度に比べて，泡には極めて高濃度のリンが含有されていた。泡中のリンを関谷の方法により形態別に定量した結果，無機態リン濃度が高く，リンを形態別にみると，アルミニウム型結合リン濃度が高く，泡中ではアルミニウムとリンの酸化物の形態で存在していると考えられた。堤川において発生した泡中の鉄，アルミニウム含有量を比べると，赤川において発生した泡中のアルミニウム含有量が高く，鉄含有量が低かった。これは，河川水及び泡中のリン，アルミニウム，鉄の存在形態を反映した結果といえる（表2）。

表2 泡の構成成分分析の結果

項目 (単位)	(含有量)
強熱減量 (%)	45
全リン (mg/kg・dry)	7,900
Ca型結合リン (mg/kg・dry)	1,100
Al型結合リン (mg/kg・dry)	3,900
Fe型結合リン (mg/kg・dry)	1,400
残余リン (mg/kg・dry)	1,500
Al (%)	13
Fe (%)	0.15

4. 3 降水量及び積雪量

赤川では，これまでに泡の発生事例が報告されていなかったが，何故，2002年春先に泡が発生したのかが問題となる。赤川の河川水は水田用水と使用されている。ここで，1971～2000年，2001年，2002年の1～5月までの降水量，積雪量をみると，2002年4～5月には降水量，積雪量ともに少なく，例年に比べて赤川の水量が少なかったと考えられた（表3）。例年であれば酸性河川である駒込川から用水として取水することがなかったが，2002年に農業用水の不足が懸念されたことから酸性河川である駒込川から取水したことがpHの変動から推察された。この結果，中性河川である赤川と酸性河川である駒込川から取水した用水が混合し，pH5前後になった時に，堤川と同様に河川水中の溶解性アルミニウム，鉄とリン酸態リンが凝集沈殿反応を引き起こし，フロックを形成し，泡となったものと考えられた。

表3 降水量及び積雪量（青森地方気象台調べ）

	降水量 (mm)			積雪量 (cm)		
	1971-2000	2001	2002	1971-2000	2001	2002
1月	144.9	186	177.5	86	411	259
2月	116	122.5	52.5	111	278	92
3月	69.5	66.5	88.5	84	0	46
4月	60.7	31.5	38.5	16		
5月	78.8	81.5	55			
計	469.9	488	412			

5. ま と め

赤川において2002年春先に泡の発生が認められたことから、その要因を明らかにするため現地調査、水質調査及び泡の構成成分調査を行なった。その結果、

- (1) 泡は酸性河川である駒込川から取水している用水の落下地点において発生していた。
- (2) 泡の発生した上流域ではpHはほぼ中性であったが、用水はpH4の酸性で、泡の発生した下流域ではpH5～6の弱酸性であった。
- (3) 河川水中の全リン濃度をみると、用水は濃度が低く、赤川上流域では高かった。
- (4) 河川水中のアルミニウム濃度をみると、用水では溶解性アルミニウム濃度が高く、最下流の小柳橋では低かった。
- (5) 泡中には高濃度の無機態リン及びアルミニウムが含有されていた。
- (6) 泡中のリンを関谷の方法により形態別に区分すると、アルミニウム型結合リン含有量が高かった。
- (7) 2002年春先の降水量をみると、例年に比べて降水量が少なかったため酸性河川である駒込川から用水を取水したと考えられた。

以上から、春先の赤川での泡の発生は中性河川である赤川と火山性酸性河川である駒込川から取水した用水が混合し、pH5～6の弱酸性になった時に用水中の溶解性アルミニウムとリン酸態リンが凝集反応を起こし、フロックを形成し、泡となったと考えられた。今回と同様の泡の発生事例が酸性河川である堤川でも発生していることから、酸性水域に特有な現象といえる。一方、投書では泡の発生とともに魚、鴨も少なくなったことが指摘されている。これは、赤川の酸性化に伴い、魚や鴨などの忌避行動と考えられた。また、朝方に泡の発生が多く認められたことは戸山団地、自由ヶ丘団地などからの朝方に排出される生活雑排水中のリン酸態リンが関与していることが示唆された。

調査終了後、県環境政策課、河川砂防課長の連名により、今回の泡の発生は酸性化河川に特有な自然現象である旨の回答し、併せて、河川管理への協力⁵⁾をお願いし、今回の調査を終了した。

6. 文 献

- 1) 三上 一，他：堤川水系における泡の発生機構解析（Ⅰ）－水質特性－，青森県環境保健センター研究報告，4，72-80，1993.
- 2) 三上 一，他：堤川水系における泡の発生機構解析（Ⅱ）－泡の構成成分－，青森県環境保健センター研究報告，9，31-35，1998.
- 3) 青森市：堤川水系自然汚濁対策調査報告書，昭和50年3月.
- 4) 土壌分析測定法委員会編：土壌養分分析法，238-239，養賢堂，53.
- 5) 東奥日報－明鏡欄：赤川の汚染で奪われた楽しみ，2002年5月27日（月）付け.
- 6) 東奥日報－明鏡欄：「赤川の汚染で奪われた楽しみ」に，2002年6月24日（月）付け.

Abstract

Pollution in medium to small urban rivers (III)

— Foaming case in the Aka River —

Hajime Mikami, Naofumi Nozawa, Ryuji Hanaishi, and Tomotaka Shimizu

Foaming occurred in early spring of 2002 in the Aka River of the City of Aomori, and surveys of water quality and foam components were conducted to clarify the cause. As a result, foaming was found to occur in the middle part of the Aka River where river water from the acidic Komagome River flows in. Results of pH measurement show that the pH was near neutral in the upstream part without foaming and weak acidic at about pH 5 in the area with foaming. Analysis of foam components shows that the foam contained high concentrations of aluminum, iron and phosphorus, which dissolved in strong acid. This indicates that the river water from the acidic Komagome River flows into the Aka River where the pH becomes about 5, and foams as a result of the flocculation of dissolved aluminum, iron and phosphorus. One possible reason for the foaming in the Aka River is that because there was insufficient agricultural water due to unusually small precipitation, the river water of the acidic Komagome River was used, resulting in the weak acidity of the Aka River.

Key words ; acidic river, foam, water pollution, coagulation.

中小都市河川の汚濁特性 (IV)

—沖館橋におけるBODの長期トレンドと沖館川—西滝川水系における水質・底質の汚濁特性—

三上 一 対馬 典子 野澤 直史 工藤 香織 成田 俊 松尾 章

青森市西部を流れる沖館川は県内有数の水質汚濁が進行した2級河川であったが、近年、水質の改善傾向が認められている。ここでは、1972年以降、沖館橋において公共用水域測定計画により行われているBODの測定結果及び下水道の普及率から水質の長期トレンドについて解析した。その効果、近年の水質浄化は下水道の普及率によることが大きいと考えられた。また、2003～2004年度に行った沖館川—西滝川水系6地点を対象とした水質調査では、西滝橋において水質悪化が著しいことから沖館川の水質改善には西滝橋流域での削減対策が必要である。

Key words : urban river, water, sediment, long-term trend, pollution

1. はじめに

青森市内には大小42の河川が陸奥湾に注ぎ込んでいる。このうち、沖館川は青森空港北部の丘陵を水源とし、三内丸山遺跡の北辺～青森市西部住宅地区を流れる流域面積30.0km²、流路延長11.3kmの2級河川である。

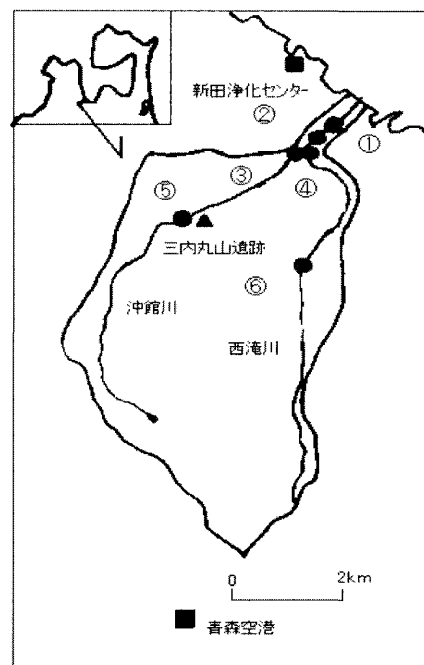
沖館川の最下流の沖館橋では1972年から公共用水域測定計画により水質測定が行われ、1999年にC類型(BOD: 5 mg/L以下)に指定された。沖館川はホタルが生息していたとされる清浄な河川で、住民に最も慣れ親しまれている河川の一つである。かつて、日本全国の宅地化が進行した下水道未整備地区における多くの河川では生活雑排水の放流やゴミの不法投棄によりドブ川と化した。沖館川も家庭からの生活雑排水による汚濁が著しく、BODが10mg/Lを超える県内有数の水質汚濁が進行した都市河川²⁾で、住民の満足度の最も低い河川³⁾でもある。しかしながら、近年、地元町会や小・中・高校生によるゴミ拾いをはじめとする各種清掃活動が実を結び水質改善傾向にあり、西滝川ではサケが遡上するほどにまで水質改善が進んでいる⁴⁾。

ここでは、1972年より公共用水域測定計画により実施している沖館橋におけるBODに係る水質データから沖館橋における水質の長期トレンドと2003～2004年に行われた沖館川—西滝川水系における水質及び底質の精密調査から水質、底質の現況と改善に向けた課題について報告する。

2. 調査方法

沖館橋におけるBOD値の経年変化については公共用

水域測定計画により行われている1972～2004年のデータを用いた。2003年9月～2004年9月には西滝川水系2地点、沖館川水系4地点において1回/月の頻度で採水を行った。底質は沖館橋、工橋及び西滝橋の3地点において採取した(図1)。水質の測定項目は水温、透視度、流量、pH、BOD、COD、SS、EC、大腸菌群数、TN、NH₄-N、NO₃-N、NO₂-N、TP、PO₄-P、MBASの15項目である。底質の測定項目は強熱減量、COD及び硫化物の3項目である。



- 1) 沖館橋 2) 工橋 3) 西滝橋
4) 滝内橋 5) 三内大橋 6) 稲森橋

図1 調査地点図

3. 結果と考察

3.1 沖館橋におけるBODの経年変化(1972~2004)

沖館橋におけるBODの経年変化をみると、測定当初BOD10mg/Lを越えるほど汚濁が進行していたが、ここ数年は環境基準値(BOD; 5mg/L以下)を達成できないもののBODの減少傾向が顕著であった(図2)。

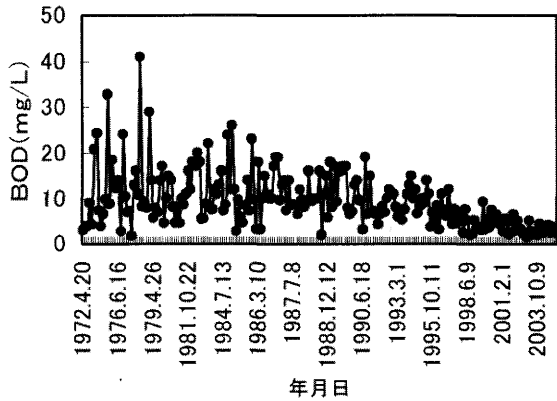


図2 沖館橋におけるBODの経年変化
(1972~2004)

3.2 水質と下水道普及率の関係

西滝川-沖館川水系の下水道処理は新田浄化センターが行っている。この下水処理地区の行政人口はおよそ10万人で、処理能力は2003年4月で26,400m³/日である。下水道の共用開始は1986年11月であるが、1986~2000年度までの年度毎の下水道普及率は不明で、2001年度下水道普及率は45% (水洗化率55.3%), 2002年度は52%

(水洗化率59%)であった。ここでは、1986年11月の下水道共用開始時から下水道普及率を毎年同じとし、沖館橋におけるBODと下水道普及率の経年変化をみると、BODの減少は下水道の普及率に大きく依存していると考えられた(図3)。

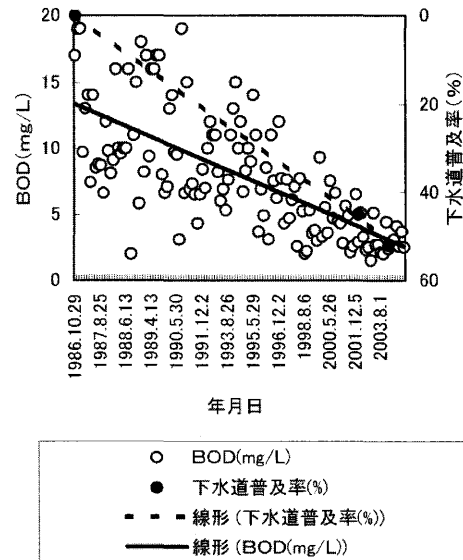


図3 沖館橋におけるBODと下水道普及率の関係
(1986~2002)

3.3 沖館川-西滝川水系における水質の細密調査

3.3.1 水質の概要

水質を概観すると、バラツキが大きく、地点間で汚濁状況、汚濁要因が異なることを示唆された(表1)。

表1 沖館川-西滝川水系における水質の総括表

	項目	単位	平均	最小	最大	n	SD
水質	気温	(°C)	11.8	-5.0	25.0	78	8.89
	水温	(°C)	11.9	0.5	22.0	78	7.15
	透視度	(cm)	67.8	18.0	>100	78	26.5
	流量	(m ³ /s)	1.09	0	5.06	78	1.14
	pH		6.8	4.4	7.5	78	0.675
	DO	(mg/L)	8.8	3.2	13	77	2.42
	BOD	(mg/L)	2.8	<0.5	11	78	2.43
	COD	(mg/L)	5.1	2	9.3	78	1.82
	SS	(mg/L)	13	1	63	78	10.6
	EC	(μS/cm)	1500	83	15400	78	2400
	大腸菌群数	(MPN/100mL)	3.90E+05	2.00E+01	3.30E+06	78	666000
	TN	(mg/L)	1.4	0.43	3.1	78	0.631
	NH ₄ -N	(mg/L)	0.48	0.01	1.6	78	0.347
	NO ₃ -N	(mg/L)	0.5	0.14	1.5	78	0.29
	NO ₂ -N	(mg/L)	0.03	0.003	0.15	78	0.027
	TP	(mg/L)	0.12	0.02	0.38	78	0.073
PO ₄ -P	(mg/L)	0.027	0.0003	0.15	78	0.033	
MBAS	(mg/L)	0.1	0.01	0.73	72	0.11	
塩素イオン	(mg/L)	430	10	5220	78	778	
底質	強熱減量	(%)	5.9	1.5	16	39	2.91
	COD	(mgO/g)	25	2.2	86	39	16.0
	硫化物	(Smg/g)	0.71	0.16	5.0	39	0.775

表2 沖館川—西滝川水系における水質の相関図表

	気温	水温	透視度	流量	pH	DO	BOD	COD	SS	EC	E.coli	TN	NH ₄ -N	NO ₃ -N	NO ₂ -N	TP	PO ₄ -P	MBAS	Cl	
気温	1.00																			
水温	0.95	1.00																		
透視度	0.17	0.17	1.00																	
流量	-0.29	-0.33	-0.24	1.00																
pH	0.42	0.38	0.07	-0.07	1.00															
DO	-0.79	-0.84	-0.03	0.18	-0.42	1.00														
BOD	0.13	0.15	-0.48	-0.12	0.32	-0.34	1.00													
COD	0.43	0.46	-0.50	-0.13	0.34	-0.64	0.80	1.00												
SS	-0.14	-0.12	-0.76	0.10	-0.11	0.06	0.45	0.50	1.00											
EC	-0.09	-0.03	-0.06	0.33	0.08	-0.25	-0.01	0.06	-0.01	1.00										
E.coli	0.39	0.39	-0.1	-0.03	0.22	-0.61	0.47	0.46	-0.03	0.15	1.00									
TN	0.02	0.05	-0.53	-0.02	0.2	-0.36	0.86	0.76	0.38	0.10	0.49	1.00								
NH ₄ -N	-0.03	0.03	-0.41	0.09	0.18	-0.42	0.67	0.67	0.23	0.30	0.47	0.85	1.00							
NO ₃ -N	-0.22	-0.27	-0.35	-0.02	0.05	0.09	0.52	0.28	0.24	-0.04	0.12	0.64	0.27	1.00						
NO ₂ -N	0.30	0.32	-0.36	-0.11	0.30	-0.54	0.76	0.67	0.19	0.10	0.59	0.79	0.68	0.36	1.00					
TP	0.21	0.25	-0.50	-0.16	0.22	-0.49	0.8	0.85	0.53	0.01	0.53	0.79	0.75	0.24	0.68	1.00				
PO ₄ -P	0.32	0.34	0.02	-0.37	0.39	-0.36	0.50	0.48	-0.1	-0.19	0.38	0.43	0.41	0.05	0.45	0.64	1.00			
MBAS	0.11	0.09	-0.28	-0.07	0.20	-0.25	0.62	0.52	0.14	-0.01	0.30	0.68	0.52	0.57	0.51	0.41	0.24	1.00		
Cl	-0.10	-0.04	-0.07	0.34	0.08	-0.23	-0.03	0.05	-0.01	1.00	0.13	0.08	0.29	-0.06	0.08	0.01	-0.19	-0.02	1.00	

表3 沖館川—西滝川水系における水質および底質の相関図表

	気温	水温	透視度	流量	pH	DO	BOD	COD	SS	EC	E.coli	TN	NH ₄ -N	NO ₃ -N	NO ₂ -N	TP	PO ₄ -P	MBAS	Cl	IL	COD	硫化物	
気温	1.00																						
水温	0.97	1.00																					
透視度	0.38	0.36	1.00																				
流量	-0.39	-0.46	-0.03	1.00																			
pH	0.34	0.32	0.08	-0.41	1.00																		
DO	-0.85	-0.9	-0.35	0.46	-0.22	1.00																	
BOD	0.02	0.04	-0.46	-0.46	0.55	-0.02	1.00																
COD	0.29	0.36	-0.43	-0.59	0.44	-0.40	0.82	1.00															
SS	-0.39	-0.37	-0.75	-0.07	-0.03	0.30	0.55	0.47	1.00														
EC	-0.16	-0.1	0.09	0.22	-0.33	-0.07	-0.36	-0.31	-0.07	1.00													
E.coli	0.51	0.48	0.11	-0.24	0.28	-0.57	0.25	0.32	-0.16	-0.07	1.00												
TN	-0.13	-0.09	-0.52	-0.47	0.39	0.03	0.87	0.75	0.53	-0.35	0.24	1.00											
NH ₄ -N	-0.15	-0.03	-0.28	-0.29	0.05	-0.16	0.50	0.55	0.23	-0.02	0.24	0.73	1.00										
NO ₃ -N	-0.35	-0.43	-0.33	-0.23	0.35	0.47	0.50	0.21	0.38	-0.26	-0.16	0.49	-0.07	1.00									
NO ₂ -N	0.35	0.36	-0.32	-0.47	0.42	-0.35	0.66	0.65	0.23	-0.25	0.43	0.69	0.45	0.17	1.00								
TP	0.11	0.18	-0.44	-0.49	0.29	-0.31	0.79	0.87	0.54	-0.29	0.45	0.82	0.71	0.12	0.62	1.00							
PO ₄ -P	0.27	0.32	-0.25	-0.47	0.54	-0.32	0.71	0.76	0.13	-0.41	0.48	0.71	0.57	0.11	0.57	0.81	1.00						
MBAS	-0.11	-0.10	-0.18	-0.32	0.44	0.12	0.69	0.49	0.16	-0.26	0.02	0.59	0.37	0.50	0.38	0.44	0.53	1.00					
Cl	-0.18	-0.11	0.08	0.24	-0.34	-0.06	-0.36	-0.30	-0.05	1.00	-0.07	-0.35	-0.01	-0.27	-0.26	-0.28	-0.4	-0.25	1.00				
IL	0.13	0.13	0.43	0.39	-0.56	-0.22	-0.62	-0.41	-0.34	0.42	0.05	-0.60	-0.17	-0.56	-0.42	-0.39	-0.53	-0.43	0.41	1.00			
COD	0.10	0.11	0.43	0.35	-0.54	-0.20	-0.58	-0.39	-0.33	0.38	0.10	-0.55	-0.15	-0.52	-0.42	-0.34	-0.49	-0.41	0.37	0.99	1.00		
硫化物	0.34	0.33	0.29	0.13	-0.04	-0.34	-0.08	0.05	-0.14	0.08	0.46	-0.14	-0.04	-0.24	0.06	0.00	-0.13	-0.15	0.08	0.67	0.69	1.00	

ここでは、河川水の水質汚濁指標であるBODと各項
目との相関をみると（表2，3），

(1) 正の相関がある項目

pH, COD (水質), SS, 大腸菌群数, TN, NH₄-N,
NO₃-N, NO₂-N, TP, PO₄-P, MBAS

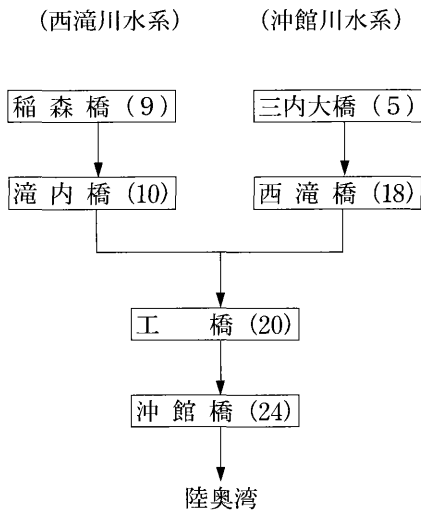
(2) 負の相関がある項目

透視度, 流量, EC, 塩素イオン, 強熱減量, COD (底
質)

(3) 相関が認められない項目

気温, 水温, DO, 硫化物

ここでは、沖館川－西滝川水系は3区間に区分して、BODとの相関がある代表的な項目により水質汚濁特性について検討した(図4)。



() 内の数字は川幅 (m)

図4 沖館川－西滝川水系の区分

流量をみると、最上流の三内大橋、稲森橋を除いた地点は陸奥湾の潮汐の影響を受ける地点で、しばしば滞留になることがあるが、三内大橋～西滝橋の沖館川水系は小河川である(図5)。一方、BODと流量の関係を見ると、概ね、負の相関が認められたが、上流部の三内大橋、稲盛橋を除いた地点は潮汐の影響を受けており、特に、中流域の水質汚濁が著しい西滝橋との関連に注意する必要がある(図6)。

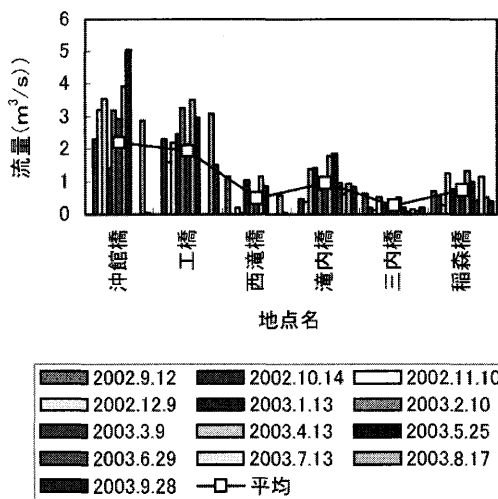


図5 沖館川－西滝川水系における流量の推移

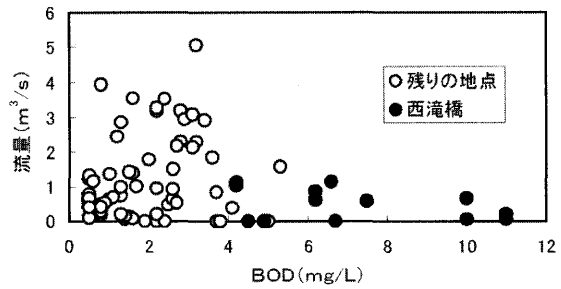


図6 流量とBODの関係

水の清澄さの指標である透視度をみると、最上流の三内大橋では透視度は最も高く、その下流の西滝橋では透視度の低下が著しく、三内大橋～西滝橋の間では水質汚濁の進行が示唆された。なお、透視度100cm以上について100cmと図示した(図7)。

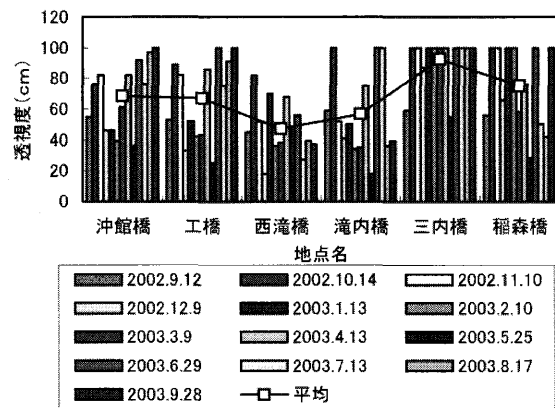


図7 沖館川－西滝川水系における透視度の推移

BODをみると、沖館橋は平均2.2mg/L(0.8～3.7mg/L)で、環境基準値(C類型；BOD 5 mg/L以下)を満たしていた。最上流の三内大橋、稲森橋ではBODは低かったが、下流になるとともにBODは上昇し、西滝橋は平均7.2mg/L(4.2～11.0mg/L)で最も高く、沖館橋の環境基準値を超過する割合が多かった。(図8)。

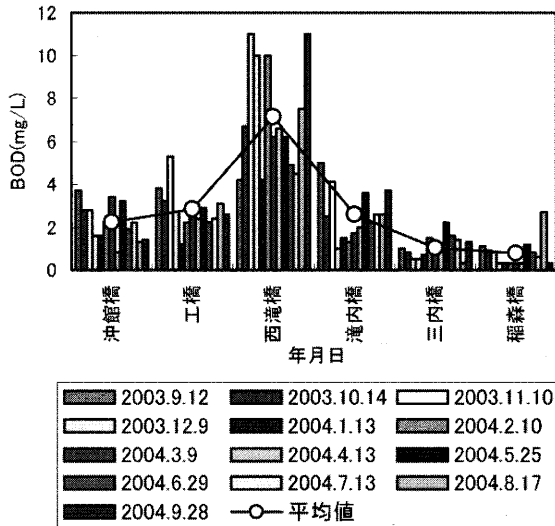


図8 沖館川－西滝川水系におけるBODの経月変化

BOD, CODともに水質の有機物汚濁の指標である。BODは河川水や事業場排水中の易分解性有機物量を、CODは湖沼水、海水中の難分解性有機物量を示すと考えられる。このことから、BOD/COD比は有機物量の分解性と排出源に関係し、BOD/COD比が大きいほど生活雑排水の影響が大きい。一方、BOD/COD比が小さいほど易分解性有機物が少ないか、分解が進行したことを示しており、生活雑排水の影響が小さいと考えられる。

BOD/COD比をみると、BODと同様に西滝橋ではBOD/COD比が最も高くなり、三内大橋～西滝橋の間では生活雑排水の影響が大きいと考えられた(図9)。

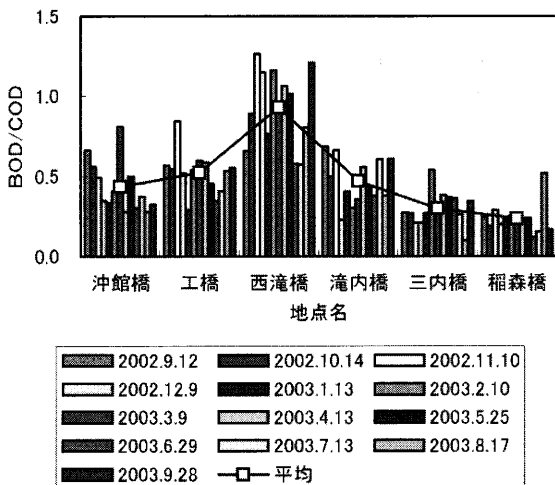


図9 沖館川－西滝川水系におけるBOD/CODの推移

全窒素・全リンともにBODと類似した挙動を示した。しかしながら、窒素・リンを生物利用可能な形態であ

るアンモニア性窒素, 硝酸性窒素, リン酸態リンに区分してみると, アンモニア性窒素, 硝酸性窒素は稲森橋を除いた地点で高い濃度であったが, リン酸態リンは三内大橋～西滝橋では高濃度で推移し, 3成分の挙動に差が認められた(図10, 11)。

沖館川－西滝川水系における水質をみると, 沖館川水系の三内大橋～西滝橋間では, BOD, 窒素・リンをはじめとする汚濁指標成分が高くなることから, この区間での用水路や側溝などを対象とした細密調査による排出源の特定とBOD, 窒素・リンなどを対象とした高度処理による削減対策^{6,7)}が必要になる。

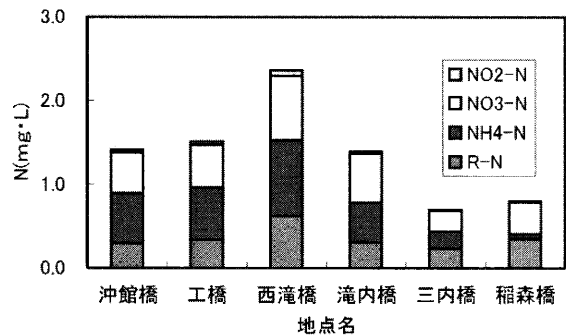


図10 沖館川－西滝川水系における形態別窒素の推移

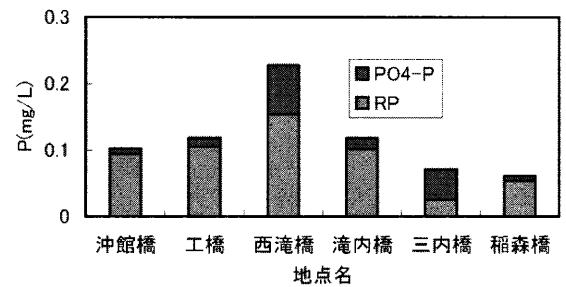


図11 沖館川－西滝川水系における形態別リンの推移

3. 3. 2 沖館川－西滝川水系における底質調査

底質中のCODをみると, BODが最も高かった西滝橋では低く, 水質とは異なる結果となった(図12)。

これは, 底質は西滝橋では多くの場合, 砂質であったが, 工橋, 沖館橋では泥状で, 性状が大きく異なるためである。

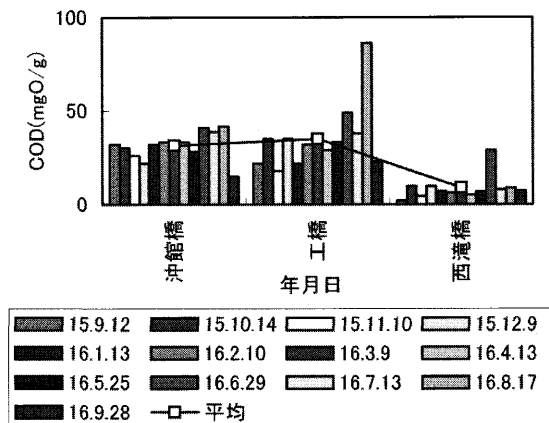


図12 沖館川—西滝川水系における底質中のCODの経月変化

一方、硫化物をみると、工橋では最も高くなる傾向にあり、CODとは一致しなかった(図13)。水質調査では、三内大橋～西滝橋では水質改善対策の必要性が強く示唆された。底質は汚濁物の貯蔵の場であるとともに、供給の場でもあることから、工橋～沖館橋間の底質の浚渫が検討されて良いと考えられた。

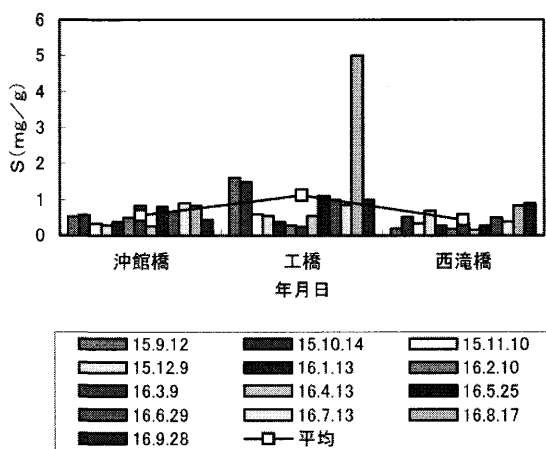


図13 沖館川—西滝川水系における硫化物の推移

4. ま と め

沖館橋において、1972～2004年度公共用水測定計画によるBODの長期トレンドについて検討した。

その結果、

- (1) 近年、沖館橋では環境基準値(C類型：5mg・L以下)を達成できないもののBODの減少傾向が著しかった。
- (2) BODの減少は下水道普及率に大きく依存してい

た。

2003年9月～2004年9月に、沖館川—西滝橋水系において水質および底質の細密調査を行った。

その結果、

- (3) 三内大橋～西滝橋間では、BOD、窒素・リンをはじめとする汚濁成分が高いことから、この区間における細密調査による排出源の特定と高度処理による削減対策が必要である。
- (4) 工橋、沖館橋では底質の有機物汚濁が著しいことから、この区間では浚渫が必要であろう。

文 献

- 1) 江成 啓次郎：日本の水環境2 東北編, 219-225, 技報堂出版, 2000.
- 2) 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.
- 3) 青森県：陸奥湾流域住民水質保全意識調査報告書, 平成12年12月.
- 4) 東奥日報：青森・西滝川でサケ上る, 2004年10月5日付け.
- 5) 設楽 秀弥：水質浄化指標としてのBOD/COD比—生物学的処理施設の実態調査から—, 山形県衛生研究所報, 22, 55-63, 1989.
- 6) 生地 正人, 他：傾斜土層法を用いた富栄養化対策—その1 台所排水および排水路の直接浄化, 用水と廃水, 984-990, 2005.
- 7) 生地 正人, 他：傾斜土層法を用いた富栄養化対策—その2 湖沼対策・資源循環, 用水と廃水, 1066-1072, 2005.

Abstract

Pollution in medium to small urban rivers (IV)
— Long-term BOD trend at the Okidate Bridge and water and
sediment pollution in the Okidate River
-Nishitaki River water system —

Hajime Mikami, Noriko Tsushima, Naofumi Nozawa, Kaori Kudo,
Shun Narita, and Akira Matsuo

The Okidate River running through the western part of the City of Aomori is a second-class river that has been one of the most heavily polluted rivers in Aomori Prefecture. Its water quality, however, has improved in recent years. The long-term trend in water quality has been analyzed from the results of BOD measurement carried out since 1972 at the Okidate Bridge under the public water monitoring plan, and the saturation rate of sewerage systems. Results show that the spread of sewerage systems has largely contributed to recent improvements in water quality. Surveys of water quality conducted in 2003 to 2004 at six points in the Okidate River-Nishitaki River water system indicate that measures to reduce pollution near the Nishitaki Bridge are required to improve the water quality of the Okidate River, since water quality has deteriorated markedly near the Nishitaki Bridge.

Key words : urban river, water, sediment, long-term trend, pollution.

みんなで作る環境学習 (I)

—五戸川における新郷中学校の水生物調査—

三上 一 対馬 典子 成田 俊 蝦名 憲¹ 五十嵐 正俊¹ 山道 忠郎¹
奥島 仁志² 金田一 淳² 附田 経行³ 竹内 一正³ 田嶋 千代吉³

環境学習の一環として、新郷中学校、市民団体「やぶなべ会」、三沢航空科学館、青森県環境保健センターの合同で五戸川において水生生物調査を行った。その結果、三沢航空科学館より提供された実態顕微鏡やプラズマテレビにより現場で画像を観察し、専門家による同定と解説は生徒たちが自然の仕組みをより深く理解するのに有効であると考えられた。また、学校、市民団体、行政機関との連携には学校の現場が必要とし、関係団体が参加しやすいプログラムとネットワーク造りが重要と考えられた。

Key words : environmental education, junior high school, public participation, aquatic organism

1. はじめに

21世紀は環境の時代といわれ、持続可能な社会実現のための環境教育・環境学習の重要性が謳われている。環境教育・環境学習が取り扱う内容は、常日頃、耳にする水、大気、廃棄物などの環境問題のみだけでなく文化、歴史など人間活動に係る極めて多岐の分野にわたっている。

ここで、地球規模での水資源を巡る環境をみると、人口爆発により各地で深刻な水不足を招き、水資源を巡る紛争¹⁾が懸念されている。日本では、日常会話のなかで、「水と空気はただ」とか、「湯水のように使う」という言葉が使われ、各地にはお国自慢の名水^{2,3)}が数多くあることから、古来より日本は水が豊かで、水の清澄な国といわれている。

日本における水資源の現状を水資源使用量からみると、一人当たり年間約700m³ (生活用水約130m³, 工業用水約110m³, 農業用水約460m³) で、先進国の一人当たり年間1000m³の水資源使用量に比べると水消費量は少ないといえる。しかしながら、日本は世界有数の農畜産物の輸入国で、これらの生産には一人当たり年間約600m³の水が必要とされる。この農畜産物の輸入は、あたかも水を輸入しているのと同じで、水資源の観点から間接水 (virtual water) とも呼ばれている。これを加えた日本の水資源使用量は一人当たり年間約1300m³で、先進国を上回る使用量⁴⁾となり、私たちの豊かな生活は大量の水の輸入によって支えられているといっ

ても過言ではない。また、このことは水資源問題のみならず、農畜物の長距離輸送は大量の化石燃料を使用することから排気ガスによる大気汚染問題を引き起こすだけでなく、生産国の社会構造をはじめとする様々な問題⁵⁾を内蔵している。

一方、安全な生活と多様な生物を育む水質の現況をみると、かつての工場排水による産業型から家庭生活排水による市民生活型の水質汚濁に移行している。このことは、生活者自身が水質汚濁の主役であることを理解し、自らが水質改善・保全に向けて行動することが求められている。

大人が果たす役割は勿論であるが、21世紀を担う子供たちが小さいときから身近な自然に親しみ、自然の仕組みを理解し、これと共生することを学ぶことは持続可能な社会の実現のための第一歩である。

この様な時代の流れを受けて、1999年12月に、中央環境審議会から「これからの環境教育・環境学習—持続可能な社会をめざして—」が答申⁶⁾された。

この答申のなかで、環境教育・環境学習を実施に当たり、留意すべきポイントととして

- ① 総合的であること
- ② 目的を明確にすること
- ③ 体験を重視すること
- ④ 地域に根ざし、地域から広がるものであることが挙げられている。

今、全国各地では、地方の水環境保全に向けて小・中・高校生やNGOなどの市民による参加体験型の活動^{7,8)}が盛んに行われている。これらの活動では、四つのポイントを満たすことが求められるが、解決すべき問題点が多く内蔵されていると考えられる。

1 なぶなべ会
2 新郷中学校
3 青森県立三沢航空科学館

学校の現場では理科離れが深刻な問題となっている。この要因として、現代科学を学び、理解するためには高度な専門知識が必要であること。科学するためには熟練した技と高価な機器を必要することなどが考えられる。これに対して、「等身大の科学」が提唱⁹⁾されている。これは、例えば、子供たちが身近な川、田んぼなどの水生生物を自分の目、耳、手、足などの五感を使い、観測し、記録し、これをまとめて人に伝えることは科学する楽しさを知り、理科離れを防ぎことになるとともに、読解力を養うのに大きな力を発揮すると考えられる。更に、長年観測記録された資料は貴重な学術的な資料¹⁰⁾としての価値を有するだけでなく、研究の場も提供¹¹⁾している。

また、取り組まれる環境教育の内容が極めて多岐に渡ることからこれを総て網羅する専門知識を有する指導者がいないことや器材・機器、試薬などの不足しているなどの声が聞かれる。地方公共団体の研究者は専門家として参加するだけでなく、地域の各種団体や行政に対するコーディネーターとしての役割を果たすこと^{12,13)}が求められている。ここでは、中学校、市民団体、行政機関の連携による参加体験型の環境学習の取組みを紹介し、今後の課題について述べる。

2. 経 緯

今回、新郷中学校、市民団体「やぶなべ会」及び行政機関が合同で環境学習に取り組んだ経緯は以下のとおりである。

新郷村は青森県のほぼ南端に位置し、山林が80%以上を占め、米と野菜や花き栽培が盛んな純農村地帯にある。新郷中学校では、ふるさと学習における環境コースでは地域の生き物や河川の調査研究を行い、地域の環境改善に努めている。2004年には「合成洗剤や金属イオン等の有害物質が生物に与える影響についての研究—カナダ藻や微小生物を活用して—」により(社)水環境学会東北支部「東北・水すまし賞」を受賞¹⁴⁾した。

(社)水環境学会東北支部では、学会の社会活動の一環として、1992年度から東北地方において「良好にして快適な水環境の創造と保全に貢献する」優れた活動をしている次代を担う小・中・高校生の個人・団体等を表彰している。この賞は「東北・水すまし賞」と呼ばれ、東北6県では各県1校、あるいは、1団体を表彰¹⁵⁾している。

「やぶなべ会」は、1969年に青森高校生物部のOBにより自然環境を考える同好会として結成され、現在、会員数300有余名を擁している。「やぶなべ会」は、青森県の豊かな自然環境を子供たちの心に取り戻し、次世代に伝えるために、極めて多岐にわたる活動¹⁶⁾を行っている。水環境に係る活動として、「ホテルの里作り」や1992年から環境庁(現 環境省)主催の水生生物調査「せせらぎウオッチング」開始当初から、青森県内の小・中・高校生や各種団体を指導している。毎年、調査報告書を提出し、生徒たちや地域住民の水環境への理解を深めるとともに、指導者の育成などに大きく貢献している。この功績により1996年に環境庁より水功労賞、2006年に(社)日本水環境学会より日本水環境文化賞を受賞した。

青森県立三沢航空科学館は2003年8月8日に開館し、青少年の「科学する心」を育むため、科学実験や科学工作の出前講座として「アウトリーチ活動」を行い、無料で試薬、器具・器材の貸し出しや使用法の指導を行っている。

今回、新郷中学校では五戸川において水生生物調査を行うことを知り、関係各位に協力を呼びかけたところ快諾を得たものである。

3. 調査方法

新郷中学校では、3年の選択理科授業の一環として五戸川の水質・水生生物調査を行っている。

2005年6月24日に五戸川源流から河口まで16地点においてpH、EC、パケットテストによるCOD、アンモニア性窒素、硝酸性窒素の水質調査を行い、7月3日、23日、26日には6地点において水生生物調査を行っている。

2005年7月29日に青森県環境保健センターは、五戸川源流から河口の7地点において水質調査を行った。

8月10日、11日の両日には新郷中学校で作成したプログラムに従い、合同で水生生物調査を行った(表1)。8月10日には新郷中学校理科室において事前指導を行い、翌、8月11日に3年生18名が参加し、新郷村役場前の新世紀橋において水生生物調査を行った(図1)。

「やぶなべ会」から3名が参加し、水生生物の分離、同定の指導及び解説を行った。

三沢航空科学館ではデジタル実体顕微鏡12台とプラズマテレビを貸し出し、顕微鏡観察を指導した。

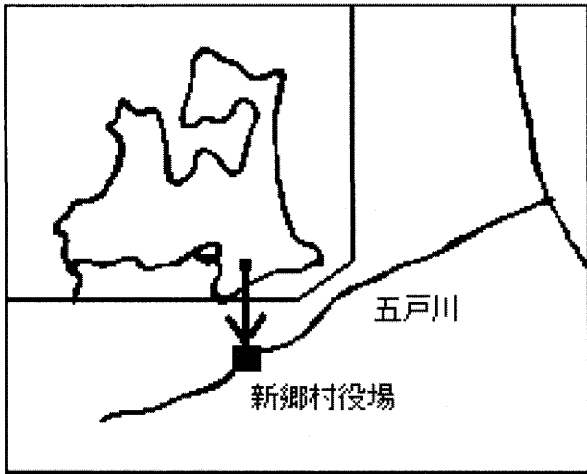


図1 調査地点

表1 新郷中学校の環境学習プログラム

日時・場所	学習内容
8月10日 (水) 13:00~14:00 理科室	<p>事前指導</p> <p>①環境学習のねらい, 日程を知る。 ②水生生物調査の進め方についての学習。</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ビデオ「水から調べる」を見せ, 大まかな調査の進め方, まとめ方を知る。 ・代表的な水生生物の種類や生態を知る。
8月11日 (木) 13:00~16:00 五戸川・役場前	<p>環境学習</p> <p>13:00~13:15 開会式 ・調査概要の説明, 指導者・協力者紹介など</p> <p>13:15~15:15 調査 ・採集準備 (15分) ・採集 (30分) ・分類 (60分) ・水生生物の同定 (15分) ・後片づけ</p> <p>15:15~15:45 まとめ ・五戸川の水生生物から見た水質の解説 ・質疑, 応答</p> <p>15:45~16:00 閉会式 ・お礼のことば, など ・環境学習の感想</p> <p>※時間があれば, 下水処理施設で水を浄化している微生物の観察を行う。</p>

4. 結果と考察

8月10日の理科室での事前指導では, 今回の環境学習のねらい, 日程, 水生生物調査の進め方を説明した。

このなかで, 水質調査は採水時の汚濁程度を知ることができるが, 水生生物調査は長年の水環境に適応して生息している生物を知ることにより, 常日頃の河川の汚染度を知ることができること。また, 今回の五戸川での水生生物調査は最初であり, 今後の調査の貴重な第一歩になることが強調され, 大いに生徒たちは盛り上がった(写真1)。

翌11日, 生徒たちの水生生物調査開始前に, 三沢航空科学館では実験車により観察に必要なデジタル顕微鏡, プラズマテレビを搬入し, 観察場所である都市農村交流センター「美郷館」の前庭に設置した(写真2)。

当日は絶好の天候に恵まれ, 新郷中学校で作成したプログラムに従い, 役場前の新世紀橋付近の川岸において水生生物調査を開始した。生徒たちは, 各々の場所で川の石をひっくり返したりしながら水生生物を採取した(写真3, 4)。新世紀橋は2001年3月に完成した橋長34mの橋で, 村役場と金ヶ沢農村公園を結んでいる。この地域は村役場, 都市農村交流センター「美郷館」などがある村の中心部である。農村公園が親水公園として整備される当たり, 河川改修が行われ, 水生生物相が回復していないが, 隣接する「美郷館」は休憩場所や雨天時の観察会場として利用できることから, 調査地点として最適な場所といえる。

参加した多くの生徒たちにとっては, 水生生物調査は初めての体験であったが, 水生生物採取後, 「美郷館」の前庭で, 生徒たちは先生, 「やぶなべ会」会員, 三沢航空科学館職員の指導のもと, 水生生物を種別に分離した。通例, 水生生物の同定はルーペや実体顕微鏡により観察し, 図鑑などを参考にして行われる。今回, 三沢航空科学館が貸し出したデジタル実態顕微鏡, プラズマテレビにより生きたままで水生生物を観察し, 「やぶなべ会」会員による同定と解説がその場で, 直ちに聞けることが特徴であった。その一例を述べてみよう。写真に示した水生生物はカワゲラ, トビケラなどの「ざぎむし」である(写真5)。「やぶなべ会」会員から信州の伊那地方では, ざぎむしを佃煮にして食べることや高価であることが説明され, 一部の生徒から驚きの声がかかるなど教室とは違った雰囲気であったようである。生徒たちはデジタル顕微鏡により水生生物を観察し(写真6), 同定が難しい種については, 実態顕微鏡の画像をプラズマテレビに大きく映し出して, 「やぶなべ会」会員からの同定と解説が行われた(写真7)。

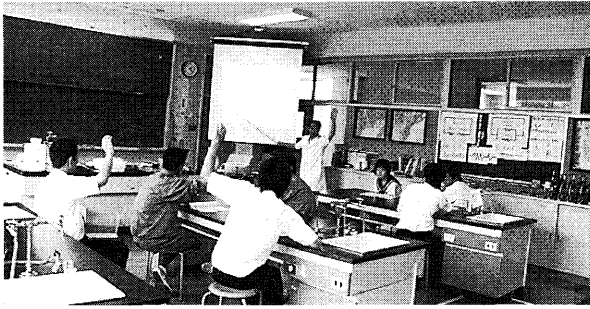


写真1 理科室における事前学習

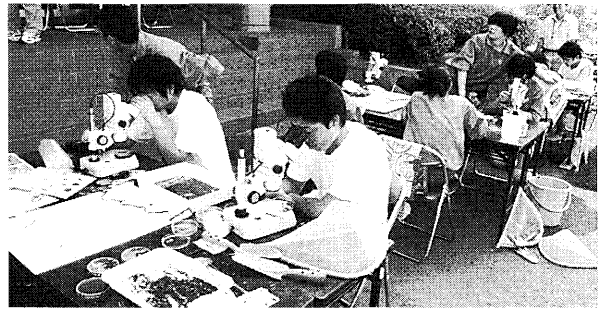


写真6 デジタル実験顕微鏡による同定

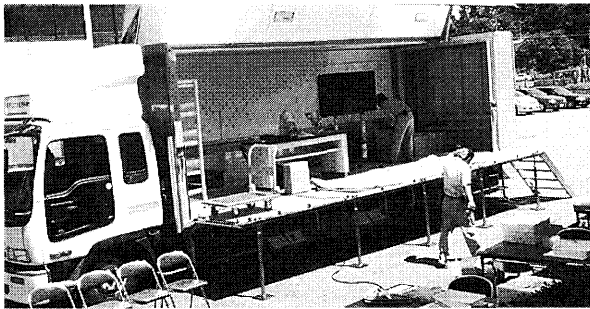


写真2 三沢航空科学館の実験車

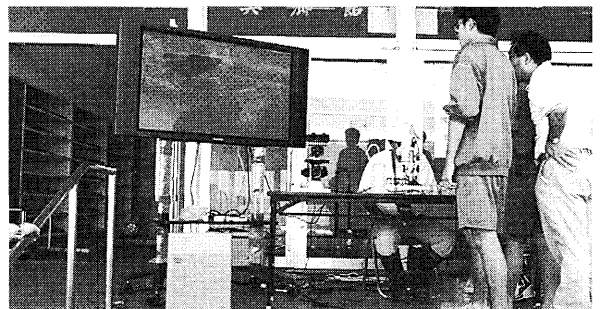


写真7 プラズマテレビによる同定と解説

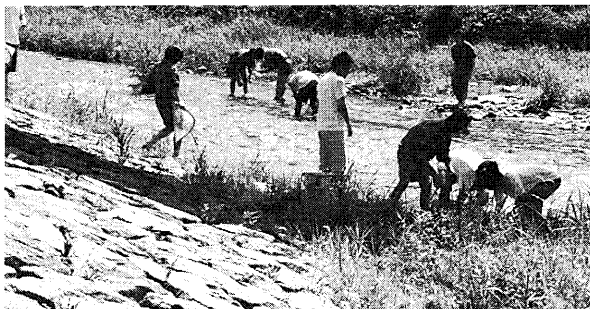


写真3 新世紀橋における採取-1

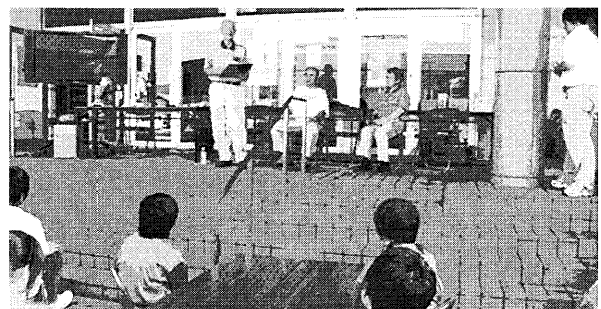


写真8 やぶなべ会による講評



写真4 新世紀橋における採取-2



写真9 校長先生からの講評

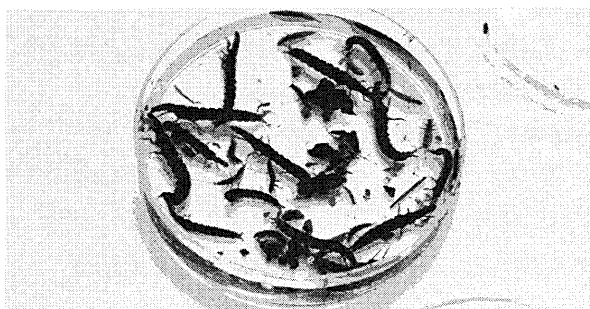


写真5 分離された水生生物



写真10 水生生物の放流

表2 新郷中学校による五戸川新世紀橋における水生生物調査結果(抜粋)(2005年8月11日)

水質階級	No	指標生物		個体数
I	1	ウズムシ	○	18
	2	ヒラタカゲロウ	○	1
	3	ヤマトビケラ	●	27
II	4	オオシマトビケラ	○	19
	5	カワニナ	●	32
	6	コオニヤンマ	○	1
	7	コガタシマトビケラ	○	1
	8	スジエビ	○	2
III	9	ヒル	○	3
	10	ミズムシ	○	1
IV	11	サカマキガイ	○	1
	12	セスジユスリカ	○	7
その他	13	ツツトビケラ		11
	14	コカゲロウ		76
	15	マダラカゲロウ		113
	16	ミットゲマダラカゲロウ		1
	17	ヒゲナガカワトビケラ		19
	18	サナエトンボ		12
	19	ナガレアブ		2
	20	ミミズ		1
	21	イトミミズ		4

中学3年の選択理科では、微生物や土壌を使った水質浄化の授業が取上げられている。水生生物調査終了後、下水道処理施設の活性汚泥中で水処理を行っている微生物を生物顕微鏡—プラズマテレビにより画像を拡大し、三沢航空科学館の職員から解説を受けた。水処理を行っている微生物の姿が直ちに奇麗な画面で観察でき、その場で解説を聞けることは、生徒たちの自然の仕組みを理解するのを深めるうえで大きな力を発揮したと思われる。水生生物調査及び活性汚泥中の微生物観察終了後、講師である「やぶなべ会」の蝦名先生から五戸川は「少し汚れた川」であるが、多様な生物が棲む豊かな川⁷⁾であると判定された(写真8)。また、他の「やぶなべ会」会員からは子供時代の川や生き物の思い出などが語られた。なお、調査終了後の集計では、カワニナ、オオシマトビケラなど20種以上の水生生物が確認された(表2)。これは、親世紀橋で行ったBODは3.0mg/Lで、水質階級IIと判定された今回の水生生物調査を反映した結果となった。

生徒たちからの講師「やぶなべ会」会員へのお礼と、校長先生からは、「今回の水生生物調査では三沢航空科学館から最新の機器を提供してもらい、講師「やぶなべ会」会員から適切なアドバイスを頂いた。これは県

内で最初の取組みであり、貴重な経験を大事にしてもらいたい」旨の講評が行われ(写真9)、最後に水生生物を放流して日程を終了した(写真10)。

5. ま と め

今、全国各地の小・中・高校では、地方の水環境保全、創造に向けた参加体験型の環境学習が行われている。

今回、新郷中学校、市民団体「やぶなべ会」、三沢航空科学館、青森県環境保健センターの合同で、五戸川において水生生物調査による環境学習を行った。その結果、

- (1) 学校の現場のニーズに適い、支援者が参加しやすいプログラム造りが重要である。
- (2) 市民団体、研究者、行政機関の施設・設備、経験の効率的な活用を目指したネットワーク造りが重要である。
- (3) 行政機関は地域の各種団体や行政に対するコーディネータとしての役割を求められている。

一方、生徒たち(13名)の「環境学習に参加して」の感想文では(抜粋)、

- ・指導者の方々のおかげで、自然とヒトとのかかわりがわかりました。
- ・高価な実験機器も使って、たくさんのヒトにも協力していただき、とても貴重な経験をすることができました。次、調べる機会があったら、もっと詳しく調べたいです。
- ・水生生物も顕微鏡でよく観察できたので、とてもおもしろかったです。このような活動を全国でやってほしいと思いました。そうして、「川をきれいにしたい」という気持ちが高まっていけばいいと思いました。

などが述べら、専門家によるアドバイス、最新の設備を用いた環境学習は、生徒たちの水環境への理解と関心を深めるうえで、大きな力を発揮したと考えられた。

今回、環境学習に参加して、多くの学校、市民団体では地域の水環境の保全、創造に向けて多大な努力と多くの実績を有していることを改めて実感した。

しかしながら、例えば、学校現場では、水生生物調査の専門家が必ずしもいないこと、三沢航空科学館の出前講座が知られていないなど克服すべき多くの課題がある。

今回、新郷中学校の取組みを紹介したが、県内の多

くの小・中・高校においても水環境保全、創造の活動が盛んである。また、市民団体による様々な活動も盛んに行われている。青森県では、水生生物調査「せせらぎウォッチング」だけでなく、中学生を対象に酸性雨観測¹⁸⁾を行っている。

この様に多くの地域、団体では多様な取組みを行っていることから、「地域に根ざし、地域に広げる」環境教育・環境学習の実現に向けて学校、市民団体、行政機関との有機的な連携が求められる。

文 献

- 1) P.H.グレイク：特集 しのみ寄る水資源危機 世界規模で崩れる需給バランス，26-33，日経サイエンス，5月号，2001.
- 2) 日本地下水学会編：続 名水を科学する，技報堂出版，1999.
- 3) 南 正時：おいしい水を求めて 名水の旅100選，淡交社，1994.
- 4) 沖 大幹：水の需給の動向 水循環予測—グローバルな水循環予測と世界の水資源，学技術・学術審議会資源調査分科会報告書，平成14年12月.
- 5) 篠原 孝：地産地消・洵産洵消が日本の食を救う，世界，10，147-154，岩波書店，2002.
- 6) 松村 隆：特集 「持続可能な社会」実現のための環境—今求められる環境教育・環境学習とは，
- 7) 小倉 紀男，他：市民環境科学の実践—身近な川の一斉調査10年から学ぶこと—，水環境学会誌，24(22) 16-19，2001.
- 8) 日本水環境学会WE E21編集委員会編著：やってみよう！環境教育—みんなでつくる川の環境白書，環境コミュニケーションズ，2004.
- 9) 池内 了：21世紀は「等身大の科学」の時代，エコノミスト，2003.4.1号，50-53，毎日新聞社.
- 10) 青森県立田名部高校生物部：青苔 18，1982.
- 11) 近藤 祐一郎，他：自由記述式による総合的な学習の評価—環境に対する生徒の意識調査をとおして—，環境教育，13(2) 13-24，2004.
- 12) 橋本 夏次：人と水との関りの再構築を—近木川=ワースト1からの脱却を目指した取り組みから—，水環境学会誌，24(2) 6-10，2001.
- 13) 山田 一裕：水辺観察活動における研究者と地域住民の役割—宮城県での事例—，水環境学会誌，24(2) 11-15，2001.
- 14) 東奥日報：洗剤の環境への影響研究 お見事「東北・水澄まし賞」 新郷中学校3年生 県内で唯一受賞，2005年2月28日付け.
- 15) 河北新報：水を澄ませて—東北・小中高校の活動1〜8，2003年4月19日〜5月1日付け.
- 16) やぶなべ会報第18号，やぶなべ会(青森)，2005年6月.
- 17) 東奥日報：新郷中学校が水生生物調査—きれいな五戸川確認，2005年8月17日付け.
- 18) 青森県：身近な地球環境問題 酸性雨—平成10年度地球環境保全啓発事業—，平成11年3月.

Abstract

Cooperative environmental education (I)

— Aquatic life surveys in the Gonohe River conducted by Shingo Junior High School —

Hajime Mikami, Noriko Tsushima, Shun Narita, Ken Ebina, Masatoshi Igarashi
Tadao Yamamichi, Hitoshi Okushima, Atsushi Kindaichi, Tsuneyuki Tsukuda,
Kazumasa Takeuchi, and Chiyokichi Tashima

As part of environmental education, aquatic life surveys were conducted in the Gonohe River by the cooperation of Shingo Junior High School, the citizens' group "Yabunabe-kai," Misawa Aviation & Science Museum, Aomori and the Aomori Prefectural Institute of Public Health and Environment. Aquatic life was observed on the spot under stereomicroscopes and on plasma displays offered by Misawa Aviation & Science Museum, Aomori. Identification and explanation by specialists appeared to be useful for students in learning natural mechanisms in more detail. For cooperation among schools, citizens' groups and administrative organizations, programs and networks that meet the needs of schools and enable easy participation by related organizations are important.

key words : environmental education, junior high school, public participation, aquatic organism.

II ノ ー ト

浴槽水からのレジオネラ属菌検出状況

川口 愛¹ 木立 健慈¹

2002年10月から12月にかけてレジオネラ症防止対策緊急一斉点検が実施され、当センターでは、青森県内の入浴施設を対象としたレジオネラ属菌 (*Legionella*) 検査を実施した。その結果、53施設の浴槽水 (53検体) のうち、28施設の浴槽水から *Legionella* を検出した。その菌種は *L. pneumophila* が35株、その他菌種不明が10株で、合計45菌株分離され、*L. pneumophila* 血清群の分離数は、5群が7株と最も多く、次いで、4群6株、1群4株、6群3株、3群1株であった。

Key words : *Legionella*, serogroup, Legionnaires' disease, public bath

1. はじめに

Legionella は、淡水や土壌などの自然環境のほか、冷却塔水や浴槽水などの人工水環境に広範囲に生息し、水を介して人に飛沫感染を起こすと考えられている。

レジオネラ症は現在わが国では、「感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律」により4類感染症に分類され、患者の全数把握が義務付けられている。わが国のレジオネラ感染症例は少なく、本県では患者からの菌分離例はまだない。しかし、レジオネラ症は基礎疾患のある患者や高齢者では重症の肺炎に発展し、しばしば致命的である。2002年には、入浴施設を感染源とした集団感染事例が宮崎県と鹿児島県で相次いで発生し、レジオネラ肺炎による死亡例を含む大規模な集団感染があった¹⁾。レジオネラ症防止対策として、入浴施設の適切な衛生管理が重要になっている。

今回、2002年11月に、薬務衛生課 (現在、保健衛生課) の依頼を受けて県内の旅館及び公衆浴場53施設について *Legionella* の検査を行った成績を報告する。

2. 材料と方法

検査方法は、厚生省生活衛生局監修「レジオネラ症防止指針」に準じて実施し、遺伝子学的手法も用いた²⁾。

25%チオ硫酸ナトリウム液を検水量の1/500量にあらかじめ加えた、ねじ栓付きポリプロピレン滅菌瓶 (容量500ml) を用意した³⁾。検水の採取および遊離残留塩素濃度の測定は、DPD法により各施設の所管保健所が行い、検水は採取日または翌日に当センターに搬入された。検査は搬入日に実施した。

検水200mlを冷却遠心し (6,000rpm, 30分)、その上

清を除去後、沈渣に滅菌蒸留水1mlを添加し、200倍濃縮液とした。次に、この濃縮液に同量の0.2M HCl・KCl緩衝液 (pH2.2) を加え、25°Cで4分間処理し、その処理液100 µlをWYO α寒天培地 (栄研化学) に塗布して、37°Cで3~7日間培養した。培養により *Legionella* とと思われるコロニーを釣菌し、B-CYE α寒天培地 (栄研化学) とウマ血液寒天培地 (日水製薬) に塗布し37°Cで培養後、B-CYE α寒天培地にのみ発育した菌株をレジオネラ免疫血清 (デンカ生研) を用い、同定した。同定できないものは、polymerase chain reaction (PCR) 法により *Legionella* と *L. pneumophila* の確認を行った。なお、PCRに用いたプライマーは表1のとおりである。

表1 *Legionella* 検出・同定用DNAプライマーの塩基配列⁴⁾

	LPプライマー : (Stranbach et al.)
LPA	5'-GTCATGAGGAATCTCGCTG-3'
LPB	5'-CTGGCTTCTTCCAGCTTCA-3'
増幅塩基数	800bp
検出対象	<i>L. pneumophila</i> chromosome DNA

	LEGプライマー : (Yamamoto et al.)
LEG448A	5'-GAGGGTTGATAGGTTAAGAGC-3'
LEG448B	5'-CGGTCAACTTATCGCGTTTGCT-3'
増幅塩基数	400bp
検出対象	genus <i>Legionella</i> 16S ribosomal DNA

3. 結果と考察

3.1 *Legionella* の検出率

53施設中、*Legionella* が検出されたのは28施設であり、検出率は52.8%であった。本県の1997年、1998年における温泉浴槽水からの検出率はともに25.0%であるこ

1 田舎館食肉衛生検査所

とから、検出率の増加が認められた⁵⁾。一般に、循環式ろ過装置を使用する入浴施設は *Legionella* が繁殖しやすいことが知られており、注意が必要である。今回の結果は近年、浴槽水からのレジオネラ感染が問題となっていることを裏付けるものであるといえる。

3. 2 *L. pneumophila* の検出率

L. pneumophila は26施設から検出され、*Legionella* 検出施設における *L. pneumophila* の検出率は92.9%と高率であった。

3. 3 *Legionella* 分離菌数別施設割合

分離菌数は、浴槽水100mlあたり10~1.7×10⁴CFUの範囲であり、10~10³CFU/100mlの施設が多かった(表2)。

表2 *Legionella* 分離菌数別施設割合

生菌数 (CFU/100ml)	施設数
不検出*	25 (47.2%)
10以上10 ² 未満	10 (18.9%)
10 ² 以上10 ³ 未満	12 (22.6%)
10 ³ 以上10 ⁴ 未満	4 (7.5%)
10 ⁴ 以上	2 (3.8%)
	53 (100%)

*検出限界：10CFU/100ml

3. 4 分離菌株の同定結果

分離した45菌株のうち、*L. pneumophila* 5群が7株、4群が6株、1群が4株、6群3株、3群1株であり、*L. pneumophila* 群別不能は14株であった。また、今回使用した抗血清に含まれている *L. bozemanii*、*L. micdadei*、*L. gormanii*、*L. dumoffii* は分離されず、型別不能が10株検出された。

L. pneumophila の血清群別の検出頻度については、患者由来株や人工環境水の種類により明瞭な差があることが知られている²⁾。今回の結果においても、浴槽水由来株ではヒト感染症や冷却塔水由来株にみられるような *L. pneumophila* 1群の優勢⁶⁾は認めないことを確認した。本県で1997年、1998年に温泉浴槽水36検体から分離された *L. pneumophila* 1株についても、血清群の占める割合に明らかな偏りが認められなかったことから、浴槽水では、血清群の偏りはないと考えられる(図1)。

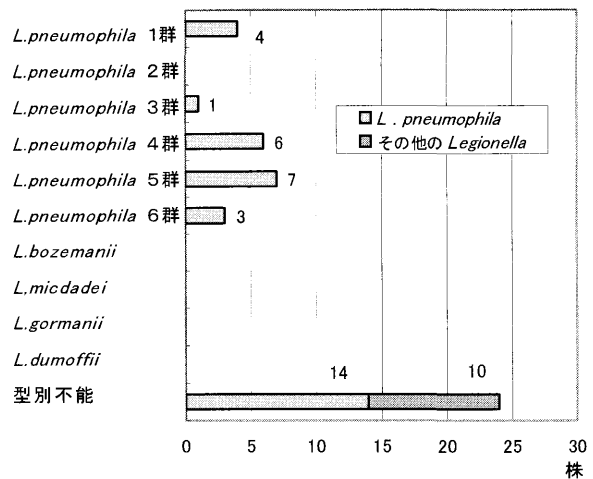


図1 *Legionella* の同定結果 (n=45)

3. 5 浴槽水の遊離残留塩素濃度と *Legionella* 菌数

浴槽水の混濁等により遊離残留塩素濃度の測定不能な施設を除いた34施設について、遊離残留塩素濃度別の菌数を図2に示した。遊離残留塩素濃度が高い施設ほど *Legionella* の検出は少なかった。なお、遊離残留塩素濃度が0.30mg/L以上の施設は14施設あったが、全ての施設において *Legionella* は不検出であった。公衆浴場における衛生管理については、浴槽水中の遊離残留塩素濃度を、通常0.2ないしは0.4mg/L程度に保つよう努めること(平成15年2月14日健発第0214004号厚生労働省健康局長通知)とされており、浴槽の清掃、消毒により水質管理を徹底する必要があると思われる。

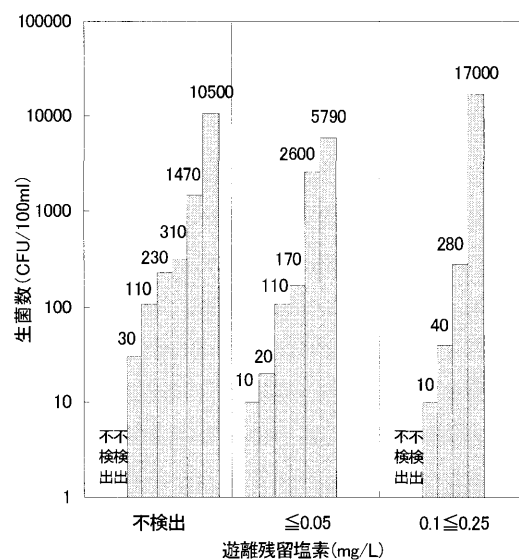


図2 遊離残留塩素濃度と *Legionella* 菌数

4. ま と め

- (1) 入浴施設53施設中28施設から *Legionella* が検出された（検出率52.8%）。
- (2) *Legionella* に占める *L. pneumophila* の割合は92.9%と高率であった。
- (3) *L. pneumophila* 分離株で、血清群の偏りは認められなかった。
- (4) 遊離残留塩素濃度が0.30mg/L以上の施設では *Legionella* が検出されなかった。

文 献

- 1) 国立感染症研究所厚生労働省健康局結核感染症課：病原微生物検出情報，Vol.24，27-32，2003.
- 2) 財団法人ビル管理教育センター（厚生省生活衛生局企画課監修）：新版レジオネラ症防止指針. 初版，85-94，1999.
- 3) (財)全国環境衛生営業指導センター：改訂・レジオネラ属菌防除指針－温泉利用入浴施設用－. 初版，15-27，1999.
- 4) 山本啓之：PCR法による *Legionella* 属細菌の検出・同定. 日本臨床特別号，50，394-399，1992.
- 5) 筒井理華，他：青森県内におけるレジオネラの汚染実態調査. 青森県環境保健センター研究報告，10，49-51，1999.
- 6) 鈴木敦子，他：各種生活環境水からのレジオネラ属菌検出状況. 感染症学雑誌，76，703-709，2002.

下痢性貝毒のマウス試験法における ホタテガイ含有カリウム等の影響について

神 毅統 村上 淳子 工藤 志保 小泉 千鶴子 古川 章子

当センターでは、平成6年度から対EU輸出ホタテガイ生産海域モニタリング検査を実施しているが、EUにおける新基準値設定を受け、平成14年度からはEUの要件に沿った2種類の分析法を用いて下痢性貝毒の測定を行っている。今回、生殖巣付きホタテガイ貝柱を試験品としてマウス試験を実施した結果、特異な症状を呈してマウスが死亡した。その原因について種々の検査を行った結果、通常ホタテガイに含有されるカリウム等の無機塩類が原因物質であると考えられた。

Key words : scallop, DSP(Diarrhetic Shellfish Poisoning), mouse assay, potassium, mineral salt, false positive

1. はじめに

下痢性貝毒は、化学構造の違いによりオカダ酸(OA)群、ペクテノトキシン(PTX)群及びビエツトキシン(YTX)群の3群に分類される。

わが国の公定法では、これら毒成分をまとめてマウス試験により測定し、許容量は0.05MU/g(むき身あたり)を超えないこと¹⁾と定められている。一方、EUでは平成14年3月に成分ごとの基準値が新たに設定され、OA群、PTX群がOA当量として160 µg/kg (0.04MU/g)、YTX群がYTXとして1mg/kg (0.5MU/g)、アザスピロ酸(AZA)群がAZAとして160 µg/kg (0.04MU/g)を超えないこと²⁻³⁾となっている。

当センターでは、対EU輸出ホタテガイ生産海域モニタリング検査(以下「ホタテガイモニタリング」とする)を担当する試験検査機関として、平成6年度から貝毒(下痢性、麻痺性、記憶喪失性)及び環境汚染物質(PCB、有機塩素系農薬、クロルゲン類、重金属)を対象とした陸奥湾のホタテガイモニタリングを実施してきたところであるが、EUにおける新基準値設定を受け、下痢性貝毒についてはEUの要件に合った2種類の分析法を用いて毒力を測定している。

このような状況の中で、平成14年度に設定した「青森県対EU輸出ホタテガイ管理要領」に基づき、検証を目的に認定加工施設の製造した最終製品(卵付き冷凍貝柱)についても、同様の手法により下痢性貝毒検査を実施しているが、マウス試験の結果、いずれの検体においても特異な症状を呈して数分以内にマウスが死亡した。そこで、種々の検査を行い原因物質の推定を行ったので、その結果を報告する。

2. 方 法

2. 1 試料

試験品：生殖巣付き冷凍ホタテガイ貝柱(陸奥湾産)
比較対照品：市販活ホタテガイの生殖巣付き貝柱(陸奥湾産)

2. 2 分析方法

(1) マウス試験

ア. 下痢性貝毒

方法1：公定法⁴⁾(分析フローを図1に示す。)

方法2：EUの官報に記載された方法(安元バイオアッセイ法⁵⁾、分析フローを図2に示す。)

イ. 麻痺性貝毒

AOAC法⁶⁾(分析フローを図3に示す。)

ウ. 使用マウス

Slc：ICR(雄)

(2) 機器分析法

YTX：既報⁷⁾で報告した蛍光HPLC法の変法。

(3) ELISA法

OA群：既報⁷⁾で報告した方法。(株式会社三菱化学ヤトロン社製OA-Check)

(4) 無機質

カリウム、ナトリウム：原子吸光光度法

リン：モリブデン青吸光光度法

3. 経緯及び結果

3. 1 試験品の下痢性貝毒試験結果

試験品を解凍、ホモジナイズ後、図1(方法1)及び図2(方法2)に準じて下痢性貝毒の検査を行った。

結果を表1に示す。方法1では全てのマウスが生存

したが、方法2では、投与から2～3分で自立歩行が困難となり、軽い跳躍や痙攣を伴って深い呼吸であえぎ、4～7分で全てのマウスが死亡した（定量下限値0.04MU/g）。

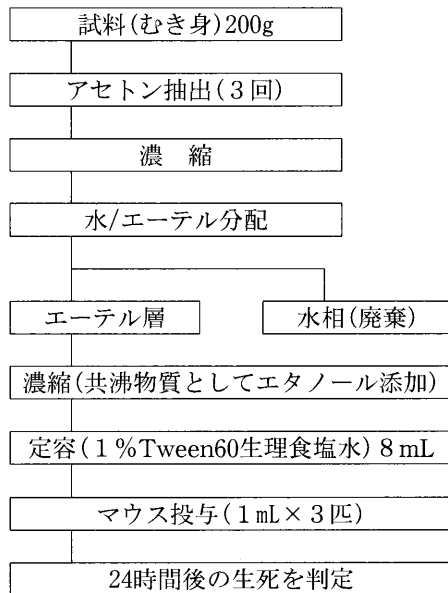


図1 下痢性貝毒 試験方法1

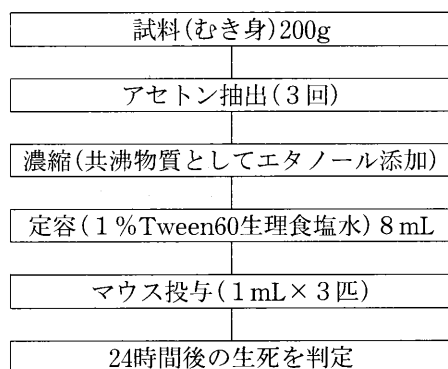


図2 下痢性貝毒 試験方法2

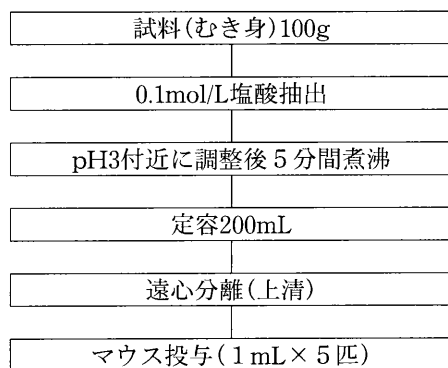


図3 麻痺性貝毒 試験法

表1 下痢性貝毒のマウス試験結果

方法	結果(匹) 死亡数/投与数	水/エーテル 分配の有無	測定対象成分
1	0/3	有	OA群, PTX群, AZA群
2	3/3	無	OA群, PTX群, AZA群, YTX群

3.2 マウス死亡要因の検討

(1) マウス投与時の下痢性貝毒試験溶液の温度等

試験溶液の粘性がかなり高く、通常の注射針（25～26ゲージ）では投与が困難であったため、当初は液温を37～38℃に保温して流動性を高めていた。マウスの保定状態における安定心拍数が保たれるのは25～30℃であり、それ以上になると心拍数が増大し、40℃以上では呼吸数が著しく増加、42℃で死に至るとの報告⁸⁾から、液温も死亡要因の一つと考え、注射液を23±2℃の室温まで戻し、注射針も23ゲージの太いものを使用した。しかし、マウスへ投与した結果、死亡が確認された。

次に高い粘性のため腹腔内で内臓が圧迫され、血行障害等で死に至ったと推定し、試験溶液を1%Tween60生理食塩水で2倍に希釈して腹腔内投与を行った。粘性は低くなったがマウスは死亡し、最終的に0.08～0.16MU/gという結果が得られた。

さらに、本法では、検体から抽出された大量の水分子を濃縮時に除去するために、共沸混合物として約500mLものエタノールを添加していることから、揮発後のエタノール残存成分により死亡した可能性もあると考えられた。そこで、同量のエタノールのみを濃縮乾固し、1%Tween60生理食塩水に溶解後マウスに投与した。その結果、3匹とも生存が確認され、マウスの死亡にエタノールが関与していないことが確認された。

(2) 麻痺性貝毒

マウス死亡時の症状が麻痺性貝毒によるものと似ているため、同一検体を用い、麻痺性貝毒の試験を行った。その結果5匹のマウスは全て生存し、毒力は定量下限値（STX換算で29.1～32.7μg/100mg）未満であった。よって、麻痺性貝毒の影響は否定された。

(3) 油分

試験溶液中に高濃度の油分が存在した場合、血流に脂肪球が入り込んで血栓となり、肺塞栓等を惹き起こしている可能性があるため、市販の食用サラダ油1mL

及び0.5mLをマウス1匹ずつに投与した。投与直後は活動が亢進状態であったが、約5分で平常通りとなり、24時間後も生存が確認された。マウスの死亡に油が関与していないことが確認された。

(4) OA群

ELISAを利用したOA-Checkを用いて、OA群(OA, DTX1, DTX3)の分析を行った。その結果、定量下限(0.01MU/g)未満であった。

(5) YTX

マウス毒性が検出されなかった方法1と検出された方法2の違いが水/エーテル分配操作の有無であることから、死亡要因として水溶性の下痢性貝毒物質であるYTXの存在が考えられた。そこで、YTXについて蛍光HPLC法により測定を行った。比較対照品も同様に測定した。その結果、すべて定量下限(0.1 µg/g)未満であった。

(6) AZA

OA群、YTX以外に可能性のある下痢性貝毒としてAZAが考えられるが、当センターには測定機器であるLC/MSが整備されておらず、標準品も容易に入手できないことから、(財)日本食品分析センター多摩研究所に分析を依頼した。その結果AZAは検出されなかった。

(7) 原貝洗浄用塩素水

貝毒については要因の可能性がほとんど無くなったことから、製品の製造工程で使用される塩素水がマウスに及ぼす影響を調べた。製品の製造工程を図4に示す。比較対照品を用い、製造ラインと同様に処理したものと未処理のものを作成し、方法2のマウス試験を実施した。その結果、どちらの検体においてもマウスの死亡が確認され、明確な差は見られなかった。

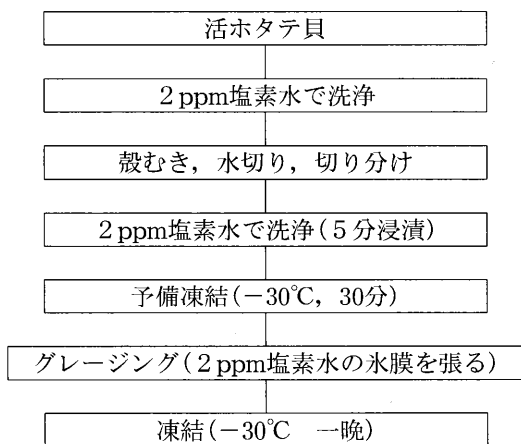


図4 製品製造工程フロー

(8) 液液分配における水相の影響

試験品(200g)の方法1における水/エーテル分配時に廃棄される水相をホットプレートで加熱濃縮し、試験品25gあたりの水相液量がマウス1匹に投与できるよう8 mLに定容した。また比較対照品も同様に処理を行い、マウス腹腔内に投与した。

その結果、両検体ともに0.08MU/g以上と基準値を超えるマウス毒性が検出されたため、原因はホタテガイ成分由来の水溶性物質であると推定された。

(9) 無機物質

水/エーテル分配で水相に分配され、急性毒性のある物質として、ナトリウム(Na)、カリウム(K)などが考えられた。

因みに、Kのマウス急性毒性(マウス腹腔LD50値)は700mg/kg、塩化カリウム(KCl)のそれは552mg/kgであり⁹⁾、試験に用いるマウスの標準体重あたりに換算するとそれぞれ14.0mg/20g; 11.0mg/20gである。これは、塩化ナトリウム(NaCl)の2602mg/kg⁹⁾(52.04mg/20g)に比較すると、約4倍も毒性が強いことを示している。

そこで、試験品及び比較対照品についてNa, K, リン(P)の含有濃度を測定した。結果を表2に示す。試験品、比較対照品ともほぼ類似した値を示し、KはNaの約2倍の含有量であった。含有濃度に大差は見られなかった。

表2 検体中(生殖巣付き貝柱)及び食品成分表(むき身)の無機物質濃度

	Na	K	P
試験品 1	2.443	4.140	2.708
試験品 2	2.329	4.075	2.646
試験品 3	2.506	3.965	2.582
試験品 4	2.456	4.931	2.642
平均	2.434	4.278	2.645
対照品 1	2.112	4.716	2.608
対照品 2	2.083	4.692	2.687
平均	2.098	4.704	2.648
食品成分表 ¹⁰⁾	2.2~2.5	3.1~3.6	0.75~1.7

(mg/g)

(10) Kを用いたマウス試験

Kがマウスに与える影響の度合いを調べた。表2の結果から試験品濃度の低いものを基準として、K濃度を4.0mg/gとした。

今回の試験では、試験溶液1 mLに25g相当の生殖巣

付き貝柱ホモジネート抽出物質が含まれるため、試験に供されたマウスの腹腔内には、理論上、約100mgのKが投与されたこととなり、Kの急性毒性値である14.0mg/20g（マウス1匹あたり）を大幅に上回っていることとなる。同様にNa濃度を2.3mg/gと仮定したところ、試験溶液1mLに57.5mgのNaが含まれていることとなり、これはNaClの急性毒性値52.04mg/20gとほぼ同じ値であった。

そこで、塩化カリウム（KCl）粉末を用い、最終K濃度が100mg/mLとなるように1%Tween60生理食塩水に溶解して試験溶液とし、これをマウスの腹腔内に投与して、投与後の症状及び24時間後の生死を観察した。表3に投与した試験溶液希釈倍数、1匹あたりの投与量及びK投与量、死亡数/投与数を示す。

表3 K溶液の腹腔内投与によるマウス死亡匹数

試験溶液希釈倍数	1	1	4	6	10	20
投与量 (mL)	1	0.5	1	1	1	1
K投与量 (mg)	100	50	25	16.7	10	5
死亡数/投与数	1/1	1/1	1/1	3/3	2/2	0/3

この結果、K投与量が10～100mgの場合、投与後2分ほどで痙攣、軽度の跳躍、あえぎなどが観察され10分以内に全てが死亡した。K投与量が5mgでは投与後24時間以上の生存が確認された。

以上の結果から、生殖巣付きホタテガイ貝柱を対象とした下痢性貝毒試験において、特異な症状を呈して短時間でマウスが死亡した要因としては、通常ホタテガイに含有されているK等の無機塩類の可能性が大きいと考えられた。

4. ま と め

- (1) 生殖巣付きホタテガイ貝柱を対象とした下痢性貝毒試験の結果、特異な症状を呈して短時間でマウスが死亡したことから、その原因について検討を行った。
- (2) 貝毒（OA群、YTX, AZA）、油分、無機物質等に

ついて検査を行った結果、通常ホタテガイに含有されているK等の無機塩類の可能性が大きいことが判明した。

- (3) 今回の事例は、ホタテガイの成分として通常含まれているKやNaが、試験部位と抽出方法によってはマウスを死に至らしめる可能性のある事¹¹⁾を立証したといえる。これは、ホタテガイのみならず、他の二枚貝でも起こりうることであり、過去には海藻類での発生例¹²⁾が報告されている。今後の貝毒検査において十分留意する必要がある。

文 献

- 1) ホタテガイ等の貝毒について（昭和五十四年五月十二日 五四水研第五一九号）
- 2) Official Journal of European Communities. COMMISSION DECISION of 15 March 2002 (2002/225 /EC).
- 3) 「対EU輸出ホタテガイ等二枚貝の取り扱いについて」の一部改定について（平成14年7月15日 食発第0715004号）別添
- 4) 昭和56年5月19日付厚生省通知環乳第37号別添による方法
- 5) 2002/225/EC ANNEX Detection methods, Biological methods
- 6) AOAC Official methods 959.08
- 7) 中谷実, 他：平成11年度陸奥湾産ホタテガイの下痢性貝毒等成分調査, 青森県環境保健センター研究報告, 11, 55-60, 2000.
- 8) 田嶋嘉雄, 実験動物学 総論, 朝倉書店, 1978.
- 9) 化学物質毒性データ総論, 米国国立職業安全衛生研究所編 第7版
- 10) 日本食品成分表, 医歯薬出版株式会社, 1998.
- 11) 財団法人 日本食品分析センター：平成14年度 二枚貝等貝毒安全対策事業報告書, 水産庁, 2003.
- 12) 平成9年度 厚生科学特別研究 報告書 地衛研の連携による危機的健康被害の予知及び対応システムに関する研究 1998.

水道水質外部精度管理調査結果（平成16年度）

村上 淳子 古川 章子

県内10検査施設を対象に、測定値の信頼性確保及び分析技術の向上を目的として、セレン及び鉛について水道水質外部精度管理調査を実施した。X-R管理図を基に各施設の評価を行なったところ、セレン、鉛とも各1施設を除きX及びR管理図では管理限界内にあり、良好な結果であった。

Key words : external quality control, X-R control chart, lead, selenium

1. はじめに

県内で水道水質検査を行なっている事業者や検査機関における測定値の信頼性確保及び分析技術の向上を目的として、平成11年度から国の水道事業者に対する精度管理要領に基づき、当センターが試料を調製、配布し結果をとりまとめる形式の外部精度管理調査を実施してきた。

平成11～15年度の精度管理調査結果は既報^{1)～3)}において報告済みであることから、今回は平成16年度の調査結果を報告する。

2. 方 法

2. 1 実施対象：県内10検査施設
2. 2 実施期間：平成16年11月8日～12月3日
2. 3 実施項目：セレン、鉛
2. 4 実施方法：各項目について5回並行測定を行ない、その結果と平均値及び、分析方法（前処理方法、測定方法、測定条件等を含む分析フロー）、定量方法（検量点数、検量範囲、評価方法等）の報告を求めた。又、分析チャートの提出も求めた。

2. 5 試 料

(1) 試 薬

添加用標準液：和光純薬1000mg/L標準液

硝酸：和光純薬有害金属測定用

(2) 試料作製及び送付方法

セレン及び鉛の標準液（1000mg/L）を100mLメスフラスコにそれぞれ1mLとり、硝酸1mLを加えて精製水で定容した（10mg/L標準液）。この溶液10mLを2Lメスフラスコに取り、精製水で定容した後20Lポリ瓶に入れ、同メスフラスコで精製水18Lを加え、20Lとした。これを十分混合した後2Lポリ瓶10個に分配

し試料とした。試料中のセレン及び鉛の濃度はそれぞれ5µg/Lとなり、これを目標値とした。

作製試料はクール宅配便により各施設に送付あるいは、保冷剤を同封して、直接担当者に配布した。

(3) 作製試料の均一性の確認

作製した試料の均一性はF検定を行ない確認した。すなわち、10個の容器から5個を無作為に選び $n=2$ で各容器の濃度を測定した。その結果F値はセレンが1.17、鉛が1.02で5%水準（ $F_{4/4}=6.39$ ）より小さく、当試料は均一であることを確認した。

2. 6 統計処理の方法

各施設から得られたデータを基にX-R管理図を求め、評価を行なった。

3. 結果及び考察

X管理図において、中心線（実線）は各施設の平均値の平均値であり、上部管理限界（点線）、下部管理限界（二点鎖線）をそれぞれ目標値の110%、90%値とした。

R管理図において、実線は各施設の範囲の平均値であり、上部管理限界（点線）は、平均値に $n=5$ に対応する管理図用係数2.115をかけた値とした。

3. 1 セ レ ン

(1) 測定結果

各施設の分析条件及び測定結果を表1に示す。

10施設中4施設がICP-MS法、4施設がフレームレス原子吸光光度法（以下、フレームレス法とする）、2施設が水素化物発生-原子吸光光度法（以下、水素化物発生法とする）による測定であった。

各施設の測定値の平均値は4.88～5.59µg/L、標準偏差は0.044～0.203µg/L、変動係数は0.89～3.62%であった。

また、全データの最大値は5.76µg/L、最小値は4.78µg/L、平均値は5.07µg/L、標準偏差は0.232µg/L、変動

係数は4.58%であった。

(2) 解析結果

\bar{X} 及びR管理図をそれぞれ図1、図2に示す。

\bar{X} 管理図では、平均値の平均値は5.07 $\mu\text{g/L}$ 、上部管理限界、下部管理限界はそれぞれ5.5 $\mu\text{g/L}$ 、4.5 $\mu\text{g/L}$ で、施設番号2が5.59 $\mu\text{g/L}$ (111.8%)とわずかに上部管理限界を超えた。しかし、他の施設はすべて管理限界内であり、目標値の97.7~105.2%と良好な回収率を示した。

R管理図では、測定値の範囲の平均値は0.276 $\mu\text{g/L}$ 、上部管理限界は0.584 $\mu\text{g/L}$ で、すべての施設が管理限界

内にあり、ばらつきは小さかった。

施設番号2の平均値が上部管理限界を超えた要因としては、検量線が原点を通過していないことからブランク値の影響が考えられる。今後ブランクについても測定する必要があると思われる。

各施設の変動係数はいずれも4%未満と小さいが、測定方法別に比較すると、フレームレス法1.80~3.62%、ICP-MS法0.89~1.64%、水素化物発生法1.89~2.64%で、フレームレス法を用いた4施設のうち3施設が3%を超え、他の2方法に比べばらつきが大きかった。平均

表1 測定結果：セレン

施設No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	平均値	平均値の標準偏差
測定法	ICP-MS	フレームレス	フレームレス	ICP-MS	フレームレス	ICP-MS	水素化物	ICP-MS	水素化物	フレームレス		
測定機器	島津 ICPM-8500	日立 Z-8200	日立 Z-8200	Agilent 7500c	日立 Z-5710	横河 HP-4500	島津 AA-6200HVG-1	島津 ICPM-8500	島津 AA-6200HVG-1	日立 Z-8200		
定量法	内部標準法	検量線法	検量線法	内部標準法	検量線法	内部標準法	検量線法	検量線法	検量線法	検量線法		
濃度評価	ピーク高さ	ピーク高さ	ピーク高さ	ピーク面積	ピーク高さ	強度比	吸光度	イオン強度	吸光度	ピーク高さ		
検量点	5	5	4	3	4	6	4	3	5	6		
定算年月日	11月9日	11月16日	11月24日	11月10日	11月11日	11月22日	11月30日	11月16日	11月29日	11月26日		
測定値1	4.92	5.24	5.48	4.86	4.89	5.05	5.02	4.93	4.98	4.84		
測定値2	4.91	5.63	5.25	5.01	4.84	4.97	4.90	4.91	5.09	4.78		
測定値3	5.00	5.67	5.31	5.06	5.26	5.16	5.23	4.86	4.91	4.97		
測定値4	4.90	5.76	5.01	5.03	5.01	5.11	5.17	4.82	5.11	4.91		
測定値5	4.89	5.66	5.25	4.93	5.09	5.08	5.00	4.90	4.93	4.99		
最大値	5.00	5.76	5.48	5.06	5.26	5.16	5.23	4.93	5.11	4.99		
最小値	4.89	5.24	5.01	4.86	4.84	4.97	4.90	4.82	4.91	4.78		
平均値	4.92	5.59	5.26	4.98	5.02	5.07	5.06	4.88	5.00	4.90	5.07	0.2133
標準偏差	0.04393	0.20266	0.16852	0.08167	0.16724	0.07092	0.13390	0.04393	0.09154	0.08815	0.10925	
変動係数	0.892	3.624	3.204	1.641	3.333	1.398	2.644	0.900	1.829	1.800	2.126	4.21
範囲	0.11	0.52	0.47	0.20	0.42	0.19	0.33	0.11	0.20	0.21	0.276	
誤差	-0.076	0.592	0.260	-0.022	0.018	0.074	0.064	-0.116	0.004	-0.102	0.070	
誤差率	-1.52	11.84	5.20	-0.44	0.36	1.48	1.28	-2.32	0.08	-2.04	1.392	
回収率	98.5	111.8	105.2	99.6	100.4	101.5	101.3	97.7	100.1	98.0	101.4	
Zスコア	-0.682	2.449	0.892	-0.429	-0.242	0.021	-0.026	-0.870	-0.307	-0.804		

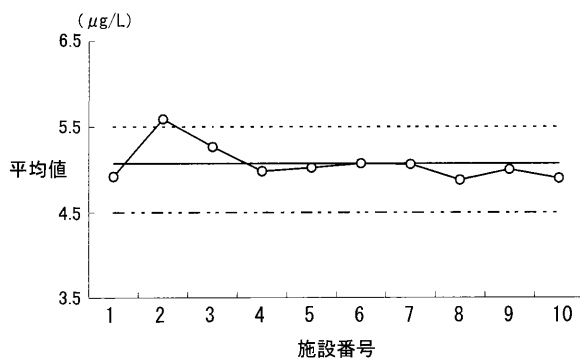


図1 セレン \bar{X} - 管理図

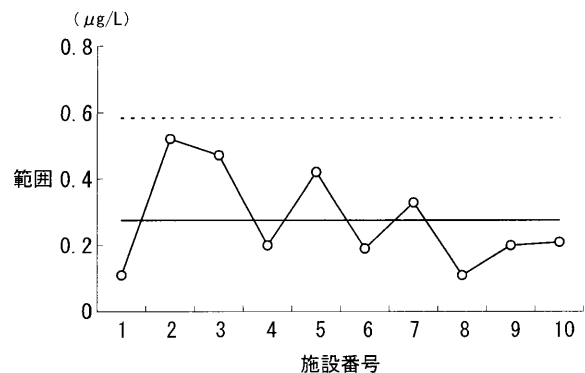


図2 セレン R - 管理図

値についても、フレームレス法が他の2方法より高めの傾向を示した。

定量月日の違いによる有意な差は認められなかった。

3. 2 鉛

(1) 測定結果

各施設の分析条件及び測定結果を表2に示す。10施設中4施設がICP-MS法、6施設がフレームレス法による測定であった。

各施設の測定値の平均値は4.80～5.93 µg/Lで、標準偏差及び変動係数はそれぞれ0.021～0.119 µg/L、0.43～2.32%であった。

また、全データの最大値は6.06 µg/L、最小値は4.72 µg/L、平均値は5.08 µg/L、標準偏差は0.325 µg/L、変動係数は6.40%であった。

(2) 解析結果

\bar{X} 及びR管理図をそれぞれ図3、図4に示す。

\bar{X} 管理図では、平均値の平均値は5.08 µg/L、上部管理限界、下部管理限界はそれぞれ5.5 µg/L、4.5 µg/Lで、管理限界を超えたのは施設番号3 (5.93 µg/L 118.6%)のみであった。他の施設は目標値の96.0～104.4%とすべて管理限界内であった。

R管理図では、測定値の範囲の平均値は0.207 µg/L、上部管理限界は0.438 µg/Lで、すべての施設が管理限界内にあり、ばらつきは小さかった。

施設番号3の平均値が上部管理限界を超えた要因としては、セレン同様ブランクの影響と標準液のファクターが関与しているか、あるいは検液と標準液の作成方法が異なっていることが要因のひとつと考えられる。今後検液の作成方法にも注意する必要があると思われる。

各施設の変動係数はいずれも3%未満と小さいが、測定方法で比較すると、フレームレス法が1.61～2.32%

に対してICP-MS法は0.430～1.62%と小さく、特に4施設中3施設は1%未満と極めてばらつきが小さかった。平均値についても、フレームレス法がICP-MS法よりやや高めの傾向を示した。

この傾向はセレンにおいてもみられ、ICP-MS法の分析精度が高いことが窺われた。

また、セレンと同様、定量月日の違いによる有意な差は認められなかった。

4. ま と め

県内10検査施設を対象として、セレン及び鉛について水道水質外部精度管理調査を実施し、 \bar{X} -R管理図を基に評価を行った。

- (1) \bar{X} 管理図においてセレン、鉛ともそれぞれ1施設が上部管理限界をわずかに超えたが(セレン5.59 µg/L 111.8%、鉛5.93 µg/L 118.6%)、その他の施設はすべて管理限界内にあり良好な回収率であった。
- (2) R管理図ではセレン、鉛ともすべての施設が管理限界内にあり、ばらつきは小さかった。
- (3) 測定方法別では、平均値、変動係数とも、フレームレス法がICP-MSや水素化物発生法に比較し、やや高い傾向を示した。

5. 文 献

- 1) 木村淳子他：水道水質外部精度管理調査結果。青森県環境保健センター研究報告。11, 67-72, 2000.
- 2) 村上淳子他：水質精度管理実施状況(平成12年度～14年度)。青森県環境保健センター研究報告。14, 71-80, 2003.
- 3) 村上淳子他：水質精度管理実施状況(平成15年度)。青森県環境保健センター研究報告。15, 51-54, 2004.

表2 測定結果：鉛

施設 No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	平均値	平均値の標準偏差
測定法	ICP-MS	フレームレス	フレームレス	ICP-MS	フレームレス	ICP-MS	フレームレス	ICP-MS	フレームレス	フレームレス		
測定機器	島津 ICPM-8500	日立 Z-8200	日立 Z-8200	Agilent 7500c	日立 Z-5710	横河 HP-4500	島津 AA-6400G	島津 ICPM-8500	島津 AA-6800	日立 Z-8200		
定量法	内部標準法	検量線法	検量線法	内部標準法	検量線法	内部標準法	検量線法	検量線法	検量線法	検量線法		
濃度評価	ピーク高さ	ピーク高さ	ピーク高さ	ピーク面積	ピーク高さ	強度比	ピーク高さ	イオン強度	吸光度	ピーク高さ		
検量点	6	5	6	3	4	6	4	3	3	6		
定量年月日	11月9日	11月16日	11月25日	11月10日	11月17日	11月22日	12月1日	11月16日	12月2日	11月26日		
測定値1	5.00	4.81	6.06	4.94	5.42	4.91	5.31	4.85	4.78	5.13		
測定値2	4.83	4.79	5.80	5.00	5.17	5.01	5.09	4.84	4.97	5.16		
測定値3	4.87	4.99	5.90	5.06	5.15	4.97	5.20	4.80	4.73	4.95		
測定値4	5.01	4.96	5.92	4.98	5.21	4.96	5.13	4.81	4.80	5.10		
測定値5	4.90	4.86	5.97	5.05	5.15	4.98	5.00	4.82	4.72	5.28		
最大値	5.01	4.99	6.06	5.06	5.42	5.01	5.31	4.85	4.97	5.28		
最小値	4.83	4.79	5.80	4.94	5.15	4.91	5.00	4.80	4.72	4.95		
平均値	4.92	4.88	5.93	5.01	5.22	4.97	5.15	4.82	4.80	5.12	5.08	0.3291
標準偏差	0.07981	0.08927	0.09539	0.04980	0.11446	0.03647	0.11675	0.02074	0.10075	0.11887	0.08223	
変動係数	1.622	1.829	1.609	0.995	2.193	0.734	2.269	0.430	2.099	2.320	1.610	6.48
範囲	0.18	0.20	0.26	0.12	0.27	0.10	0.31	0.05	0.25	0.33	0.207	
誤差	-0.078	-0.118	0.930	0.006	0.220	-0.034	0.146	-0.176	-0.200	0.124	0.082	
誤差率	-1.56	-2.36	18.60	0.12	4.40	-0.68	2.92	-3.52	-4.00	2.48	1.640	
回収率	98.4	97.6	118.6	100.1	104.4	99.3	102.9	96.5	96.0	102.5	101.6	
Zスコア	-0.486	-0.608	2.577	-0.231	0.419	-0.352	0.194	-0.784	-0.857	0.128		

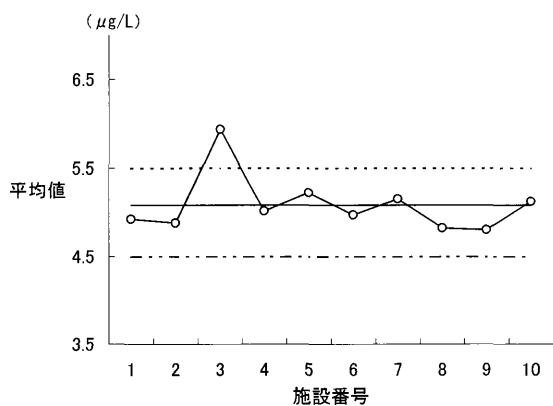


図3 鉛 \bar{X} -管理図

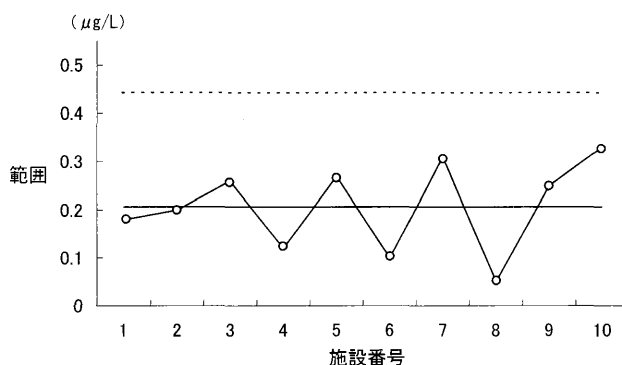


図4 鉛 R -管理図

青森県内における酸性沈着による汚染実態

－湿性沈着物およびガス状沈着物の調査結果から－

対馬 典子 秋田谷 礼治 吉田 綾子¹ 奥島 文映¹ 松尾 章

青森県内における酸性沈着物による汚染実態を把握するため、県内4地点において酸性雨調査を実施しているところであるが、今回、それ以前の調査地点も加え、pH及び降水量の経年変化について考察を行った。また、平成15年度より2地点においてパッシブサンプラー法（以下、パッシブ法と略す）によるガス状物質の濃度調査も実施している。

その結果、pHに関し名川が高く推移している以外は地点間の大きな差はみられなかった。また、名川については湿性及び乾性沈着物の調査結果からも、NH₃が大きく影響していることが示唆された。

Key words : the OGAWA passive sampler, acid rain ,wet, dry

1. はじめに

本県では、酸性雨の実態を把握するため昭和57年度より調査を継続実施¹⁻¹²⁾しているところであり、平成3年度には本県の地域特性を生かすべく日本海側、太平洋側及びその中間点に調査地点を複数配置し、途中、地点の変更を経て現在の4地点に至っている。今回、これまでの調査結果からpHの変動要因について若干の考察を行ったので報告する。併せて、平成15年度より実施しているパッシブ法¹²⁾¹³⁾¹⁷⁾による県内2地点におけるガス状酸性化成分の濃度調査結果も報告する。

2. 方 法

2. 1 調査地点

現調査地点（4地点）を図1に示す（うち、①、②についてはパッシブ法によるガス状酸性化成分調査地点）。また、経年変化対象地点として8地点のデータを用いた（表2参照）。

① 青森県青年の家（青森市）

野営場隅にあり、採取装置南東10m程のところにはキャンプ場、南西には雑木林、北西から北東にかけては窪地となっている。

② 八戸圏域水道企業団馬淵営業所名川配水池（名川町）

町の中心から南に3km程離れた畑作地帯にあり、付近には大きな事業場などの発生源がない。

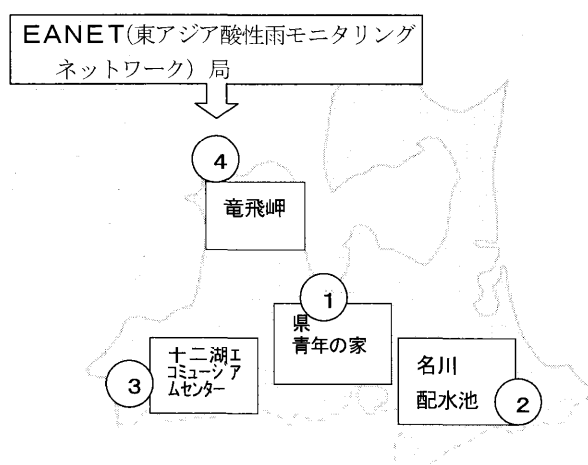


図1 現調査地点

③ 十二湖エコミュージアムセンター（深浦町（旧岩崎村））

十二湖リフレッシュ村から北西約3.5kmの高台に位置し、南東約1kmのところには岩崎村サンタランドがある。採取装置はセンター敷地北西側境界にある。

④ 竜飛岬（外ヶ浜町（旧三厩村））

津軽半島北端に位置し、対岸の北海道白神岬とは津軽海峡を挟んで19kmほどの距離にあり、年間を通じて10m内外の風が吹く国内でも屈指の風力発電の適地。主風向は夏季は東寄り、冬季は西寄り。測定局は日本海および津軽海峡に挟まれ、海岸からは西側約700m、東側約350mに当たる。200m以内には大気汚染源なし。EANET（東アジア酸性雨モニタリングネットワーク）局。

1 環境保健センター八戸環境管理事務所

表1 過去5年間のpH経年変化（重み付け年平均値）

（最小値～最大値）

年度	12	13	14	15	16
青年の家	4.85 (4.31～6.48)	4.66 (4.00～7.54)	4.81 (3.96～6.97)	4.67 (4.07～6.43)	4.79 (4.14～6.83)
名川配水池	5.28 (4.33～6.80)	4.8 (3.96～6.80)	5.06 (4.00～6.46)	5.01 (4.17～7.37)	4.94 (4.25～6.49)
十二湖エコミュージアムセンター	4.82 (4.19～6.80)	4.51 (3.95～7.25)	4.76 (4.21～7.17)	4.65 (4.36～6.47)	4.6 (4.03～6.87)
竜飛岬	4.87 (4.25～6.71)	4.65 (3.56～6.81)	4.71 (3.99～6.35)	4.69 (3.88～6.39)	4.6 (3.83～5.70)

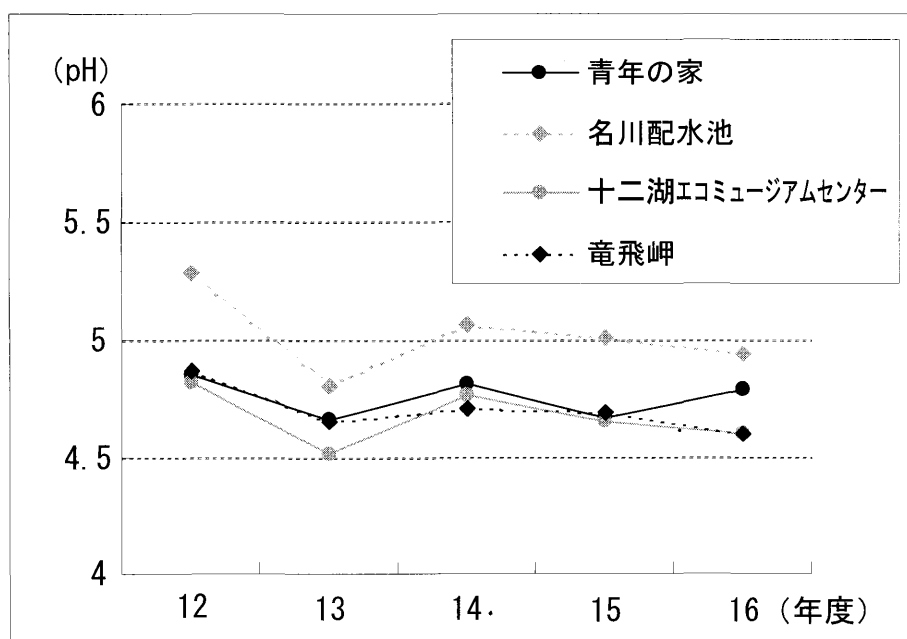


図2 過去5年間のpH経年変化

2. 2 調査期間

2. 2. 1 過去5年間のpH経年変化

平成12～16年度

2. 2. 2 降水量経年変化

平成3～15年度

2. 2. 3 パッシブ法による環境大気中ガス状酸性
物質濃度

平成15・16年度

2. 3 調査項目

2. 3. 1 湿性沈着

pH, EC, SO₄²⁻, NO₃⁻, Cl⁻, NH₄⁺, Na⁺, K⁺,
Ca²⁺, Mg²⁺

2. 3. 2 乾性沈着（パッシブ法O式）

O₃, NH₃, SO₂, NO₂, NO

2. 4 捕集方法

2. 4. 1 湿性沈着

青森, 名川, 岩崎⇒(株)小笠原計器製作所 US-330
型

竜飛岬⇒(株)小笠原計器製作所 US-420型

2. 4. 2 乾性沈着（パッシブ法）

市販の「横浜市環境科学研究所方式THE OGAWA
サンプラー」を用いた。各成分の大気中濃度は、同
マニュアルに示される換算係数を用いて、捕集量か
ら計算される。

3. 結果及び考察

3. 1 過去5年間のpH経年変化

過去5年間のpH推移をみると顕著な変化はみられず

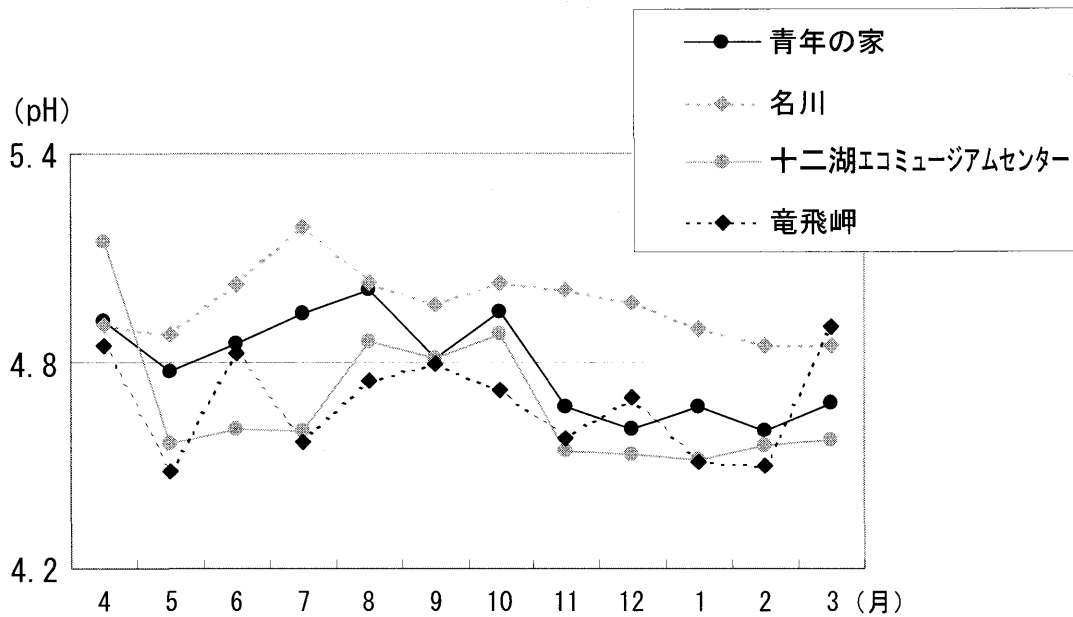


図3 過去5年間 pH (重み付け平均値) 経月変化

表2 pH及び降下量 (mg/m²) 経年変化一時回帰の傾き
(経年変化対象地点およびpH・降下量のトレンド)

+: 増加傾向, -: 低下傾向を示す

No.	地点名	市町村	区分	調査期間	pH	H ⁺	nss-SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	nss-Ca ²⁺	NH ₄ ⁺
1	県環境保健センター	青森市	市街地	H 3~11	-	+	+	+	-	+
2	八甲田田茂苞岳山頂		遠隔地	H 3~10	-	+	+	+	+	+
3	県青年の家	岩崎村	田園	H11~15	-	+	-	+	-	-
4	十二湖リフレッシュ村			H 9~13	(+)	-	-	-	-	-
	十二湖エコミュージアムセンター			H13~15						
5	法光寺	名川町	田園	H 3~11	+	+	+	+	-	-
6	名川配水池			H11~15	-	-	-	-	-	-
7	国設竜飛岬測定所	三厩村	遠隔地	H 6~15	(+)	+	-	+	-	+

ほぼ全国平均のレベルといえる(全国値年平均値¹⁵⁾(H12年度)→pH4.72(表1及び図2参照)。また、4地点の中では太平洋寄りである名川配水池が他の地点と比べてやや高い値で推移している。神成らの報告によると¹⁴⁾、東北地方の太平洋側において家畜排泄物などの農業起源によるNH₃の排出が高いとの推計がなされており、このことが名川におけるpHの低下を抑制させる主要因となっているものと推測される。

また、H13年度のpHが特に名川と十二湖エコミュージアムセンターにおいて落ち込んでいるように見受けられるが、名川については、降下量に関し酸性成分で

あるnss-SO₄²⁻が前年度に比べ増加、また、中和成分であるNH₄⁺が減少したことにより結果的にpHの減少につながり、十二湖エコミュージアムセンターについては、前年度に中和成分であるnss-Ca²⁺、NH₄⁺が高かったため、結果的にそのようなpHの経年的挙動を示しているものと考えられる。

また、過去5年間における降水量重み付け平均による月別pHの挙動については、概ね青森、名川は夏高く、冬低い、十二湖エコミュージアムセンター、竜飛岬は春(3~4月)高いように見受けられる(図3参照)。このことは、日本海側である十二湖エコミュージアム

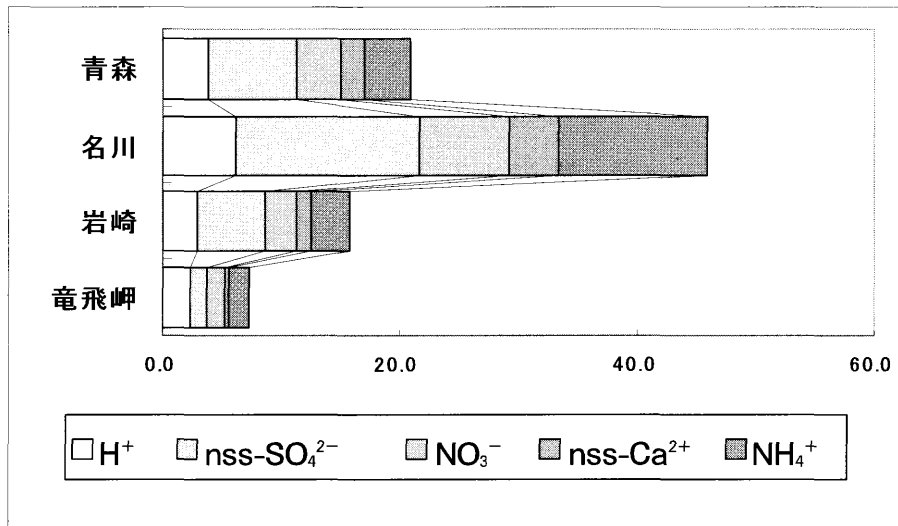


図4 イオン成分当量濃度組成比 (%) (平成16年度)
 (H⁺, ss-SO₄²⁻, NO₃⁻, Cl⁻, NH₄⁺, ss-Ca²⁺, Mg²⁺, K⁺, Na⁺, nss-SO₄²⁻, nss-Ca²⁺) の総和に占める5成分 (H⁺, nss-SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺, nss-Ca²⁺) の割合を示している。

センター、竜飛岬においては青森や名川の地点に比べ、春季に中国から飛来してくる黄砂粒子の影響を受けやすく、黄砂粒子に多く含まれているアルカリ性の(nss-Ca²⁺) などにより酸性雨が中和されることを示唆している。

3. 2 降水成分

酸性沈着の側面から重要とされている非海塩由来成分5イオン種 (H⁺, nss-SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺, nss-Ca²⁺) についてイオン成分組成比を算出したところ(図4参照)、名川以外、海岸から比較的距離がないことから海塩粒子の影響を受けていることにより非海塩由来成分の割合は20%以下、そして名川については酸性成分の働きをアルカリ成分(ことにNH₄⁺)で中和(抑制)する割合が高いことが推察された。

3. 3 pH, 降水量経年変化(表2, 図5参照)

長期的な傾向をみるために、pH, 非海塩性硫酸イオン(nss-SO₄²⁻), 非海塩性カルシウムイオン(nss-Ca²⁺), 硝酸イオン, アンモニウムイオンの降水量の経年変化をみると、pHについては青森市内で低下傾向そして日本海側(岩崎村)において(ほとんど横ばいではあるが)増加傾向が認められた。

付近に学校、公的な建物、住宅地などが存在する青森市街地東側に位置する県環境保健センター(No.1)の地点については、酸性化成分であるnss-SO₄²⁻とNO₃⁻の降水量が増加し、またアルカリ成分であるnss-Ca²⁺が減少(平成5年にスパイクタイヤ禁止となったこと

によりアスファルト粉じんの影響が減少したものと考えられる)していることから、H⁺の降下量が増加し、そしてpHがやや低下傾向となったものと推察される。

青森県西南部に位置し、西側は日本海、背後は世界自然遺産に登録された白神山地が連なる岩崎村(No.4)についてはnss-SO₄²⁻, NO₃⁻の降水量(ことにnss-SO₄²⁻)の減少がH⁺の降下量の低下の要因となり、ほぼ横ばいではあるものの結果的にpHの若干の増加傾向をもたらしたものと考えられる。

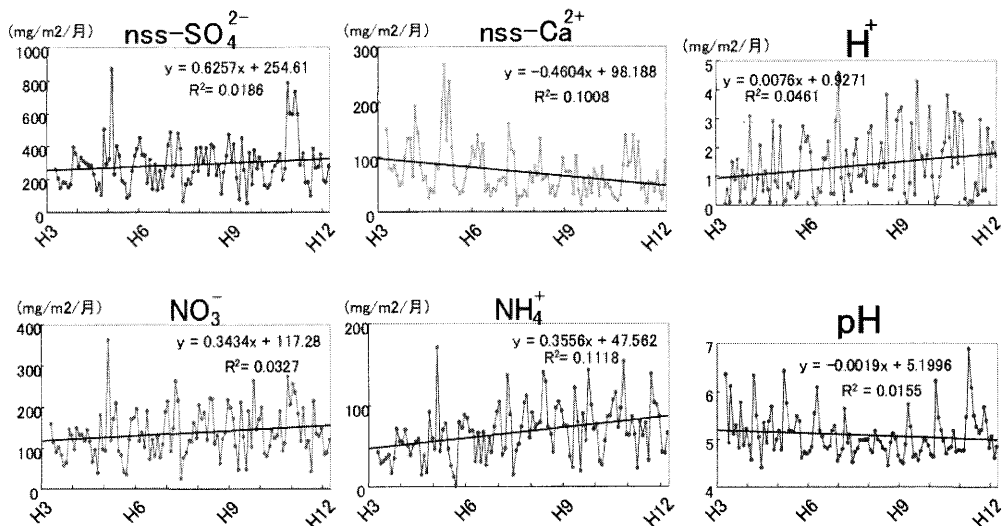
また、竜飛岬(No.7)については半径10km以内に主要固定発生源のないバックグラウンド地域であり、東アジア酸性雨ネットワークの国内モニタリング地点として位置付けられているが、平成6年度からの経年変化を見ると他の地点ほどnss-SO₄²⁻, NO₃⁻, nss-Ca²⁺などの降水量の顕著な増減は認められず、全県的な傾向と同様にNO₃⁻の増加およびnss-Ca²⁺の降下量の若干の減少が認められた。

また、硝酸イオンの増加傾向にある地点が大半を占め、更にnss-Ca²⁺については1地点を除くほとんどの地点で減少傾向にあった。nss-SO₄²⁻, NH₄⁺については全体としての傾向は特に認められなかった。

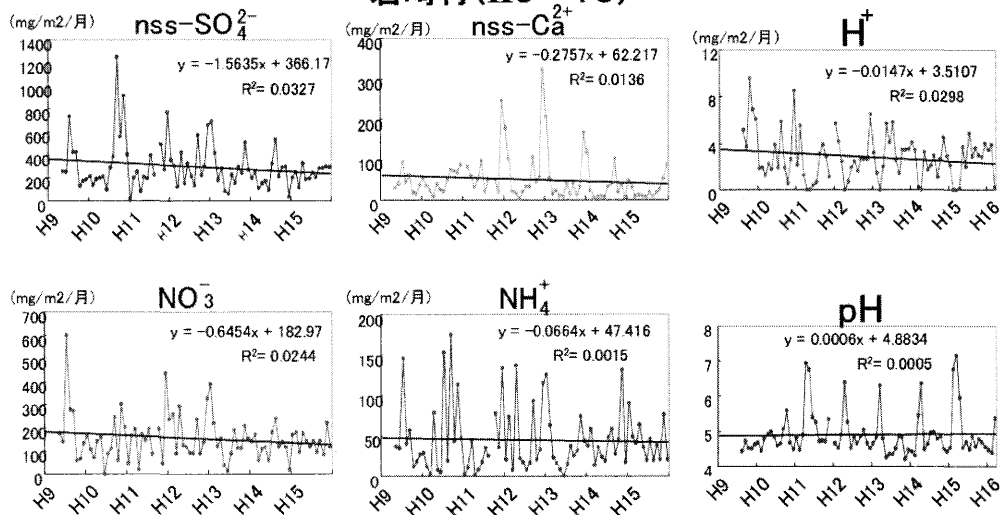
3. 4 パッシブ法による環境大気中ガス状酸性物質濃度

全環研北海道・東北ブロックでは、乾性沈着物による森林等への影響評価を目的として、北海道・東北におけるガス状酸性化成分等の濃度分布を明らかにする

環境保健センター(H3~11)



岩崎村(H9~15)



竜飛岬(H6~15)

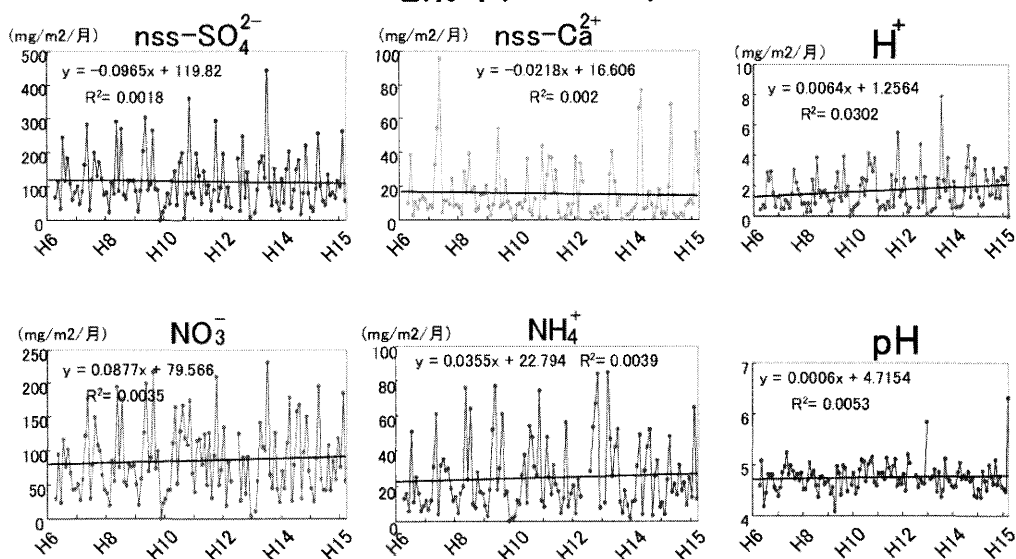


図5 pH, 降下量 (mg/m²) トレンド

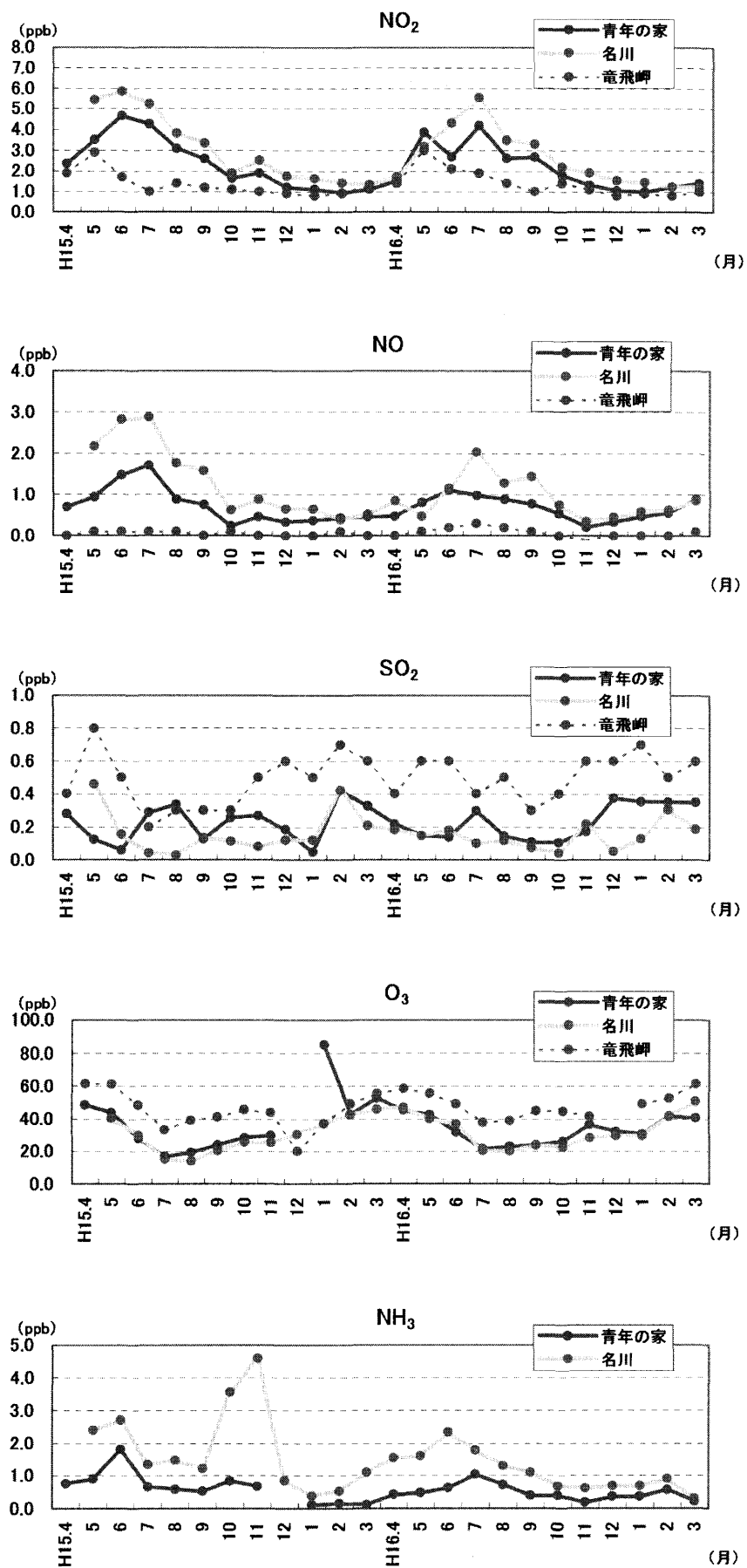


図6 パッシブサンプラー法による環境大気中ガス状成分濃度（平成15・16年度）

ため、パッシブ法を用いた広域的なガス状酸性化成分等の測定を汚染レベルの低く信頼できるデータが極めて少ない山間部等を主な対象地域として平成14年10月～18年3月で実施している。平成14年度の予備調査では27ヶ所、そして平成15年度からの本調査では32ヶ所の地点において共同実施されているところである。

この分子拡散を原理としたパッシブ法は、電源設備等を必要としない、多地点でのモニタリングが可能、測定精度、信頼性が高い、といったことで本県においても横浜市の前田らが開発したパッシブサンプラーを用い、道路沿道における自動車排ガス調査¹²⁾や環境大気中有機塩素化合物濃度調査¹³⁾に活用し、その有用性を認識しているところであるが、今回、北海道・東北ブロックにおける共同調査として本県もその中で県青年の家（森林）と名川（農地）の2地点において参加実施しているところである。

今回の報告では、平成15・16年度の結果を示す。

3. 4. 1 地点間の差

5項目全体の推移については（図6参照）、窒素酸化物（NO₂, NO）についてはやや名川が高め、NH₃については2倍あるいはそれ以上名川が青森より高めであり、O₃については2地点ほぼ同程度、そしてSO₂については多少の入れ替わりはあるものの青森が概して高い濃度を示している。

なお、参考として、国設竜飛岬酸性雨測定所にて測定している大気汚染自動測定機によるガス状物質濃度結果（NH₃除く）についてもグラフに載せた。3地点間の比較を行った結果、NOについては竜飛岬は青森、名川に比べかなり低濃度であること、そして、SO₂については竜飛岬は青森、名川に比べほぼ2倍程度高い値で推移している。

3. 4. 2 経月変化

NO₂, NOとも低濃度で推移しているものの春から夏にかけて増加し、秋から冬にかけて減少している。ブロック全体としての平成15年度分のとりまとめ¹⁸⁾より、NOは都市部では暖房施設からの排煙や自動車排気ガスの影響でおよそ秋から冬に増加する傾向にあるが、本県の2地点に関してはそういった人為的影響は全く見受けられない。

SO₂については、ブロックとしては低濃度で推移しているが、冬期に都市部で比較的高くなる傾向があり、「日本海側」の都市部で12月頃から増加するのに対し、「太平洋側」の都市部では徐々に増加する傾向がみら

れた。本県の2地点については、概して夏期よりも冬期において高い傾向が見られたものの、検出濃度自体が低いいため、精度に若干の疑問がみられるため、安易に高低の比較はできないと思われ、平成17年度は感度を4倍に高めての調査を実施中である。

O₃についてはブロックでは2月頃から5月頃に高い傾向があるが、本県においても同様であった。

NH₃については低濃度で推移しているが、やや春から夏にかけて増加する傾向が見受けられた。なお、平成15年度の名川の10～11月にかけての突出は、平成16年度の同時期には見られていないことから、何らかの人為的影響が考えられる。

4. ま と め

今回の調査から以下のことがわかった。

- (1) pHについては名川以外全国平均レベルであるが、現調査地点4地点中、名川が他の地点と比べpHがやや高く推移しているのは、pHを低下させる因子であるNO₃⁻、nss-SO₄²⁻の働きがNH₄⁺によって抑制されているものと推察される。
また、全体的にやや低下か横ばい傾向にある（青森市内で低下、日本海側でやや増加傾向）。
- (2) 名川以外の地点ではNa⁺とCl⁻が組成の6～7割を占め海塩粒子の影響を強く受けている。
- (3) 青森市街地における降水のpHはCa²⁺の減少の影響を受け酸性化の傾向が見られる。
- (4) 全県的に硝酸イオンの増加、非海塩性カルシウムイオンの減少が認められた。
- (5) 酸性化成分（nss-SO₄²⁻・NO₃⁻）の沈着量については、冬季に青森市、岩崎村で高く、名川（太平洋側）で低く、夏季は目立った傾向みられず、このことは「北海道・東北7県における広域連携事業」¹⁶⁾と同様の傾向を示した。
- (6) パッシブ法による環境大気中ガス状酸性化物質濃度調査の結果、2地点とも汚染レベルの低い地点であることから似たような挙動を示してはいるが、NH₃に関しては、農業起源による排出が高いと推計されている太平洋側の名川が青森よりも年間通じて高い濃度を示した。

謝 辞

本調査にあたり、降水試料採取に御協力いただいた岩崎村（現深浦町）に謝意を表します。

文 献

- 1) 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, 6, 90-94, 1983.
- 2) 庄司博光, 他: 青森市における降水の溶解性成分について. 青森県公害調査事務所, 9, 53-60, 1988.
- 3) 野田正志, 他: 八戸地区の酸性雨の実態—梅雨期の一降水の化学特性—. 青森県公害センター, 9, 42-47, 1989.
- 4) 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, 98-103, 1991.
- 5) 野田正志, 他: 臨界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.
- 6) 工藤隆治, 他: 名久井岳における酸性雨と沢水の調査. 青森県環境保健センター研究報告, 5, 58-65, 1994.
- 7) 工藤精一, 他: 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—. 青森県環境保健センター研究報告, 5, 66-72, 1994.
- 8) 早狩進, 他: 青森県における酸性雨降下物の特徴. 青森県環境保健センター研究報告, 6, 51-58, 1995.
- 9) 工藤隆治, 他: 清浄地域と都市域の降水特性—名久井岳と八戸市の比較—. 青森県環境保健センター研究報告, 6, 109-111, 1995.
- 10) 早狩進: 酸性雨解析におけるイオン組成の表現方法の検討—トリリニア・ダイアグラムの応用—. 青森県環境保健センター研究報告, 6, 59-64, 1995.
- 11) 松尾章, 他: ろ過式及び自動採取装置による降水のpH値の比較検討—水素イオン濃度に対する化学成分の影響—. 平成6年度青森県環境保健部職員研究発表会, 平成7年2月3日
- 12) 岡典子, 他: 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—. 青森県環境保健センター研究報告, 4, 91-96, 1993.
- 13) 岡典子, 他: 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. 青森県環境保健センター研究報告, 5, 51-57, 1994.
- 14) 神成陽容, 他: 日本におけるアンモニア排出の推計. 大気環境学会誌, 36, 29-38, 2001.
- 15) 『第4次酸性雨対策調査取りまとめ(平成14年9月)』(環境省酸性雨対策検討会)
- 16) 北海道・東北7県における広域連携事業報告書『酸性雨の調査研究—北海道・東北地方における酸性雨の状況と特徴の整理—』(平成16年3月), 北海道東北自治協議会
- 17) 齊藤勝美(秋田県環境センター), 平野耕一郎(横浜市環境科学研究所): 『短期暴露用拡散型サンプラーを用いた環境大気中のNO, NO₂, SO₂, O₃およびNH₃濃度の測定方法(平成14年8月)』
- 18) 『北海道・東北におけるガス状酸性化成分等の濃度分布調査結果報告書(平成15年度)』(平成17年3月), 全国環境研協議会北海道・東北支部酸性雨調査研究専門部会

Ⅲ 他誌投稿抄録

他誌投稿抄録

Enzymatic detection of precursor cell populations of preneoplastic foci positive for γ -glutamyl transpeptidase in rat liver

Satoh Kimihiko¹, Takahashi Gen¹, Miura Tomisato¹, Hayakari Makoto¹ and Ichiro Hatayama :

Int. J. Cancer, 115, 711-716, 2005.

肝癌のマーカーである γ -glutamyl transpeptidase (GGT) の Vibratome を使用した改良型活性染色と glutathione S-transferase P 型 (GST-P) の免疫染色で、ラット肝化学発癌過程を経時的に比較観察した。結果は、前癌細胞集団は、GGT⁺/GST-P⁺ と GGT⁻/GST-P⁺ の 2 つのグループに大別され得ることを示した。GST-P は毒物の解毒機能、GGT は毒物の排泄機能に関与していることから、これらの集団の生物学的意義について論じた。

1 : 弘前大学医学部保健学科

国内産食用カキのノロウイルス汚染状況

西田知子¹, 岡本玲子¹, 野田 衛², 福田伸治³, 三上稔之, 篠原美千代⁴, 大瀬戸光明⁵, 山下育孝⁵, 入谷展弘⁶, 植木 洋⁷, 秋山美穂⁸, 愛木智香子⁸, 西尾 治⁸ :
病原微生物検出情報, 26(12)12, 2005.

市販食用カキのノロウイルス (NV) 汚染状況について、4 シーズンにわたり調査を行い、検出した NV の分子疫学的解析を行った。4 シーズンで Genogroup (G) I は 8 種類、G II は 10 種類の遺伝子タイプが検出され、G I と G II の検出率はほぼ同程度であった。

1 : 山口県環境保健研究センター

2 : 広島市衛生研究所

3 : 広島県保健環境センター

4 : 埼玉県衛生研究所

5 : 愛媛県立衛生環境研究所

6 : 大阪市立環境科学研究所

7 : 宮城県保健環境センター

8 : 国立感染症研究所

IV 学会等発表抄録

学会等発表抄録

講演会「今、食の安全と安心を考える」

竹内重正：4. 20. 2005（十和田市）

食品の安全確保については、輸入食品の増加や農薬問題、健康意識の高まりなどから消費者の関心が高まる一方である。そうした中であらためて「安全」や「安心」について学び、食品衛生の確保の観点に立ち、いかに安全な食材を選び出すか、また輸入食品の流通過程を知り安全確保のための正しい食品衛生の知識を習得して貰い、賢い消費者になることが肝要である。

ラット肝における2種類の前癌前駆細胞の検出とそれらの増殖過程

佐藤公彦¹、三浦富智¹、早狩 誠²、畑山一郎：第64回日本癌学会、9. 14-16. 2005（札幌）

他誌投稿抄録「Enzymatic detection of precursor cell populations of preneoplastic foci positive for γ -glutamyl transpeptidase in rat liver」を参照。

1：弘前大学医学部保健学科

2：弘前大学医学部脳神経血管研究所

Menkes disease, an inborn error of copper metabolism: pathogenetic mechanism and therapeutic strategy

吉村教暉¹、畑山一郎、木田和幸²：第3回青森県立保健大学学術研究集会、9. 22. 2005（青森市）

ヒトMenkes病のモデル動物であるBrindledマウスは、生後数週以内に死亡する。しかし、生後1-2週に銅の一回腹腔内投与は長期生存を可能にする。これは、銅の投与で、低下していた脳のCytochrome oxidaseとSuperoxide dismutaseの活性が正常レベルに回復することによる。これらの酵素機能の正常化に関する機構の解明は、Menkes病の克服につながるものである。

1：青森県立保健大学

2：弘前大医学部保健学科

Identification of two precursor cell populations of preneoplastic foci in rat liver

Satoh Kimihiko¹、Takahashi Gen¹、Miura Tomisato¹、Hayakari Makoto¹ and Ichiro Hatayama：弘前癌国際フォーラム、11. 10-11. 2005（弘前市）

他誌投稿抄録「Enzymatic detection of precursor cell populations of preneoplastic foci positive for γ -glutamyl transpeptidase in rat liver」を参照。

1：弘前大医学部保健学科

食中毒疑い及び感染性胃腸炎からのNorovirus検出と分子疫学的検討

三上稔之、石川和子、阿部幸一、畑山一郎、小笠原和彦¹、西尾 治²、秋山美穂²、篠原美千代³、河内暁一⁴、葛西幹雄⁵、北澤淳一⁶：第32回青森県医学検査学会、5. 28. 2005（八戸市）

2003年10月の同時期に発生した食中毒疑い集団事例と感染性胃腸炎発症者検査材料便からNorovirus Genogroup II型が検出され、ダイレクトシークエンスにより解析した結果、Snowmountainvirus類似株であることが判明し、同一地域内において同一ウイルスが流行していたことが想定された。

1：青森県健康福祉部保健衛生課

2：国立感染症研究所

3：埼玉県衛生研究所

4：河内小児科内科クリニック

5：弘前市立病院小児科

6：黒石市国民健康保険黒石病院小児科

ナガイモ成分によるインフルエンザウイルスの感染抑制

三上稔之、小笠原和彦¹、筒井理華²、石川和子、阿部幸一、畑山一郎、加藤陽治³、伊藤聖子³：第1回ヘルシーフード創造研究会、9. 6. 2005（青森市）

ナガイモ成分は、インフルエンザウイルスAH1N1、AH3N2、B型に対して抗ウイルス活性を示した。50°C、70°C 5分間の熱処理では抗ウイルス活性は認められたが、100°C 5分間では活性成分は失活した。分子量は1,000以上であり、酸性の蛋白質であると推測された。また、エコーウイルス9型、単純ヘルペスウイルス1型、アデノウイルス6型では、抗ウイルス活性は認められなかった。

1：青森県健康福祉部保健衛生課

2：東地方健康福祉こどもセンター保健部

3：弘前大学教育学部

青森県における過去5年間のつつが虫病の発生状況とOrientia tsutsugamushi 遺伝子検出の有用性

三上稔之, 石川和子, 小笠原和彦¹, 武沼浩子, 阿部幸一, 竹本啓伸², 野村和夫³: 第3回青森県立保健大学学術研究集会, 9. 22. 2005 (青森市)

過去5年間のつつが虫病の発生状況は, 地域的に八戸, 上十三での報告数が多いものの, 県内全域から報告があり, 県内全域に *Orientia tsutsugamushi* は分布し, 感染する危険性が推察された。血清診断では抗体が低い場合, 確定にはペア血清による有意差の確認が必要である。PCRによる遺伝子検出では抗体産生前が検出されやすい。

- 1: 青森県健康福祉部保健衛生課
- 2: 青森県立中央病院皮膚科
- 3: 青山のむら皮膚科

エンテロウイルス感染誘導アポトーシスの細胞内酸化による制御

三上稔之, 畑山一郎: 平成17年度地方衛生研究所全国協議会北海道・東北・新潟支部微生物研究部会総会, 10. 13-14. 2005 (秋田市)

細胞内グルタチオン (GSH) 濃度を低下させ細胞内酸化状態を引き起こすButhionine sulfoximine (BSO) が乳幼児等に, 無菌性髄膜炎を誘発するエコーウイルス9の増殖やアポトーシスを抑制する。しかし, エンテロウイルス71では抑制されないことを明らかにした。

ながいも成分のインフルエンザウイルスに対する作用

三上稔之, 小笠原和彦¹, 筒井理華², 石川和子, 阿部幸一, 畑山一郎, 加藤陽治³, 伊藤聖子³: 平成17年度日本食品科学工学会東北支部会市民フォーラム, 10. 22. 2005 (青森市)

青森県生産の農水産物12品目について抗インフルエンザウイルス活性を調べた結果, ニンニクとナガイモに抗ウイルス活性あることを明らかにした。ナガイモ成分は, インフルエンザウイルスAH1N1, AH3N2, B型に対して抗ウイルス活性を示した。50°C, 70°C 5分間の熱処理では抗ウイルス活性は認められたが, 100°C 5分間では活性成分は失活した。分子量は1,000以上であり, 酸性の蛋白質であると推測された。また, エコーウイルス9型, 単純ヘルペスウイルス1型, アデノウイルス6型では, 抗ウイルス活性は認められなかった。

- 1: 青森県健康福祉部保健衛生課
- 2: 東地方健康福祉こどもセンター保健部

3: 弘前大学教育学部

食中毒事例で分離された *Campylobacter jejuni* の遺伝子解析結果について

川口 愛, 和栗 敦, 澤田 謙, 三上 稔之, 阿部幸一, 畑山 一郎: 第3回青森県立保健大学学術研究集会, 9. 22. 2005 (青森市)

分子疫学マーカーにおける *lpxA* 領域塩基配列解析の有用性を検討するため, 2005年4月に三沢市で発生した食中毒事例から分離された *C. jejuni* 11株及び, 散発感染例から分離された *C. jejuni* 3株のPenner血清型別, パルスフィールドゲル電気泳動 (PFGE) 法, 塩基配列解析を実施した。塩基配列型別は, PFGEパターン, 血清型による菌株の型別結果と一致することが判明した。

青森県内で分離されたサルモネラ属菌の分子疫学的検討

和栗 敦, 川口 愛, 阿部 幸一, 大野 譲治¹: 第25回青森感染症研究会, 7. 23. 2005 (青森市)

細菌検査施設を有する医療機関及び民間臨床検査センターのうち地域性を考慮し定めた10定点機関で分離された *Salmonella enteritidis* (以下SE) 及び食中毒事例で分離されたSEについて, 相互の遺伝子的関連性を把握し, 原因食品究明の一助とするためにパルスフィールド・ゲル電気泳動法 (PFGE) による分子疫学的解析を行った。

その結果, 県内のSEによる散発下痢症患者の発生は少なくとも4種類の由来の異なるSEにより発生し, 集団食中毒事例では由来の異なる3種のSEに汚染された食品が原因で発生したことが推測された。

- 1: 青森保健所

県内流通大豆の組換え遺伝子分析

工藤志保, 古川章子: 第3回青森県立保健大学学術研究集会, 9. 22. 2005 (青森市)

県内に流通している豆腐等の原材料となる大豆穀粒について, 表示が適正に行われているかどうかの確認のため, 定量PCR法による組換え遺伝子 (Roundup Ready Soy系統) 混入率の検査を行った。10検体中2検体から組換え遺伝子が検出されたが, どちらも5%未満であったため, 「遺伝子組換え食品含有」等の表示義務は生じず, 分別流通管理 (IPハンドリング) が適正に行われていると考えられた。

むつ湾の下痢性貝毒発生に関する新たなモニタリング手法の開発

神 毅¹, 高坂 祐樹¹, 鈴木 敏之²: 平成16年度貝毒安全対策事業検討会(貝毒安全対策課題), 3. 17. 2005 (東京都)

むつ湾における下痢性貝毒モニタリングは, 採水プランクトン調査(採水調査)とマウス試験法によって行われている。しかし本法では原因プランクトンの毒性が把握できないため実用的な毒化予察手法が確立できていない。そこで, ネットプランクトン調査手法(ネット調査)を採用して同時実施した採水調査と比較した結果, その的確性, 実用性を確認すると共に, 単位海水あたりのプランクトン出現密度を把握できた。

またネット調査で得られた懸濁物中のプランクトン出現動向を調査し, 毒成分のLC/MS分析を行った。同時に採水調査由来懸濁物, ホタテガイ中腸腺の毒成分も分析し, マウス試験結果も含めて比較検討を行った。その結果, 懸濁物1~20 μ m画分からは毒成分はほとんど検出されなかった。20~100 μ m画分からは毒成分が検出され, *D. fortii*はPTX2及びDTX1の, *D. acuminata*はPTX2の, *P. reticulatum*はYTXの原因種であることが確認された。また, YTX除外総毒力値が0.7MU/g(中腸腺)を超えるとマウス試験で毒力が検出されやすいことが分かった。更に, *D. fortii*とDTX1の動向把握によって, マウス試験における毒化予察の可能性が示唆された。

- 1: 青森県水産総合研究センター増養殖研究所
- 2: 水産総合研究センター東北区水産研究所

むつ湾における新たな下痢性貝毒モニタリング手法の開発(平成16年度調査結果を中心に)

神 毅¹, 高坂 祐樹¹, 鈴木 敏之²: 平成17年度東北ブロック水産業関係試験研究推進会議 海区水産業部会員毒研究分科会, 11. 21-22. 2005 (塩釜市)

むつ湾における下痢性貝毒モニタリングは, 採水プランクトン調査とマウス試験法によって行われている。しかし本法では原因プランクトンの毒性が把握できないため実用的な毒化予察手法が確立できていない。そこで, ネットプランクトン調査手法を採用して同時実施した採水プランクトン調査と比較した結果, その的確性, 実用性を確認すると共に, 単位海水あたりのプランクトン出現密度を把握できた。

またネット調査で得られた懸濁物中のプランクトン

出現動向を調査し, 毒成分のLC/MS分析を行った。同時に採水調査由来懸濁物, ホタテガイ中腸腺の毒成分も分析し, マウス試験結果も含めて比較検討を行った。その結果, 懸濁物1~20 μ m画分からは毒成分はほとんど検出されなかった。20~100 μ m画分からは毒成分が検出され, *D. fortii*はPTX2及びDTX1の, *D. acuminata*はPTX2の, *P. reticulatum*はYTXの原因種であることが確認され, 細胞単位毒量も把握できた。また, YTXはマウス試験にほとんど反映されていないことが分かり, YTX除外総毒力値が0.7MU/g(中腸腺)を超えるとマウス試験で毒力が検出されやすいことが分かった。更に, 水深15m付近の*D. fortii*とDTX1の動向を把握することにより, マウス試験における毒化予察の可能性が示唆された。

- 1: 青森県水産総合研究センター増養殖研究所
- 2: 水産総合研究センター東北区水産研究所

農産物の安全性確保のための残留農薬分析

三浦啓徳, 村上淳子, 工藤志保, 対馬奈津子, 古川章子: 第3回青森県立保健大学学術研究集会, 9. 22. 2005 (青森市)

食品衛生法の一部改正(平成15年度)を受けて, 平成18年度から施行されることとなったポジティブリスト制に向け, 溶媒使用量が少なく迅速なアセトニトリル抽出/固相カートリッジ精製によるGC/MS(SIM)の一斉分析法を検討した。133農薬を対象に, りんご, にんじん, ほうれん草, 玄米について, 4種類の固相カートリッジの精製効果を調べた結果, 3種類のカートリッジに色素や脂肪除去効果がみられ, これらを用いた添加回収試験では127農薬において良好な結果が得られた。

みんなでつくる環境学習—五戸川における新郷中学校の水生物調査—

三上 一, 蝦名 憲¹, 奥島 仁志², 附田 経行³: 第40回日本水環境学会年会, 3. 15-3. 17. 2006 (仙台市)

環境学習の一環として, 新郷中学校, 市民団体「やぶなべ会」, 三沢航空科学館, 青森県環境保健センターの合同で五戸川において水生物を行った。その結果, 三沢航空科学館より提供された実態顕微鏡やプラズマテレビにより現場で画像を観察し, 専門家による同定と解説は生徒たちが自然の仕組みをより深く理解するのに有効であると考えられた。また, 学校, 市民団体, 行

政機関との連携には学校の現場が必要とし、関係団体が参加しやすいプログラムとネットワーク造りが重要と考えられた。

1：やぶなべ会

2：新郷中学校

3：青森県立三沢航空科学館

編集者 畑 山 一 郎

青森県環境保健センター研究報告

(平成17年度)

平成18年3月発行

編 集 〒030-8566 青森市東造道1-1-1
発 行 青 森 県 環 境 保 健 セ ン タ ー
所 長 竹 内 重 正
電 話 (017)736-5411 FAX (017)736-5419
印 刷 〒038-0003 青森市大字石江字三好119-39
会社名 有限会社 ステップ
電 話 (017)783-2992

(環境保護の為、再生紙を使用しています。)