

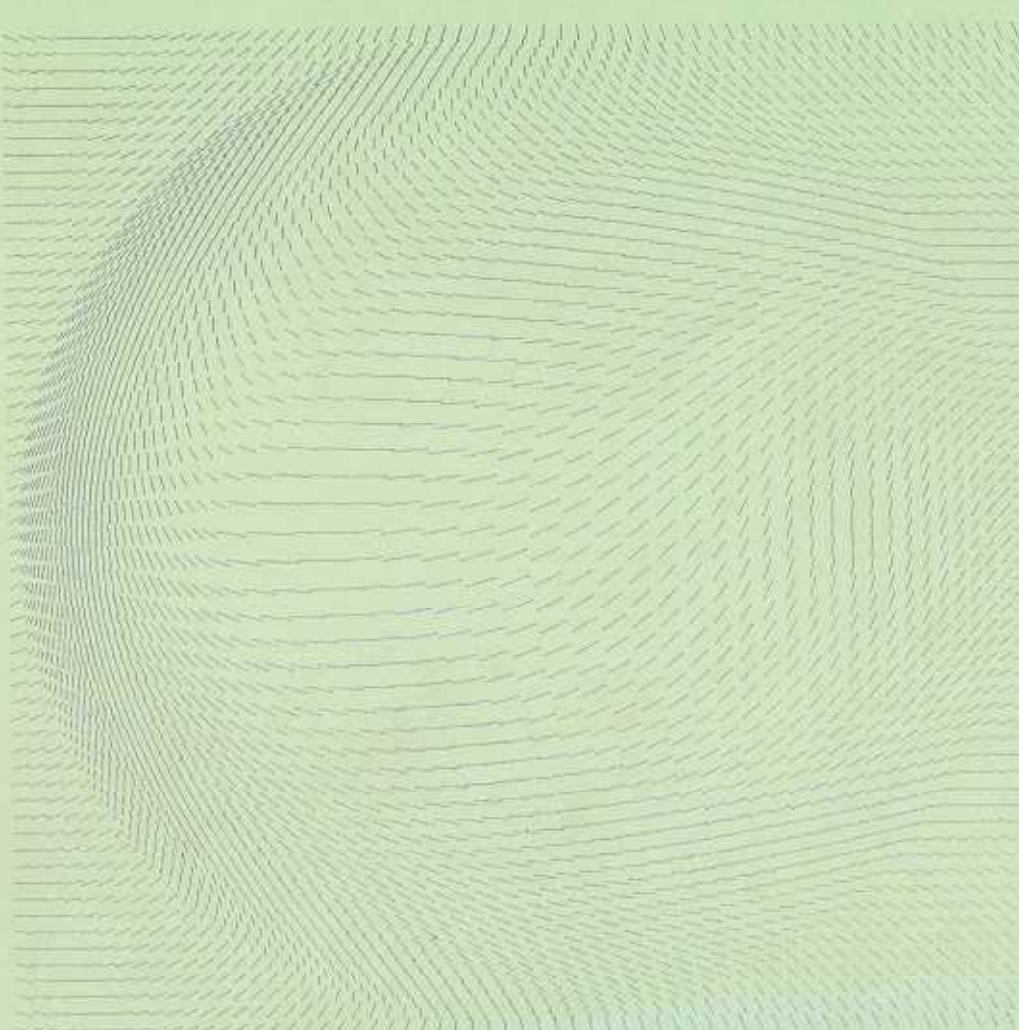
ISSN 0917-3331
CODEN: MEKNEH

宮崎県衛生環境研究所年報

第3号（平成3年度）

Annual Report of
the Miyazaki Prefectural Institute for
Public Health and Environment

No.3 (1991)



宮崎県衛生環境研究所

目 次

I 事業の概要	
1 沿革	1
2 組織機構	2
(1) 組織と業務	2
(2) 庁舎の概要	3
3 職員の異動及び事務分掌	4
(1) 職員の異動	4
(2) 事務分掌	4
4 予算及び決算（平成3年度）	8
(1) 歳入予算及び決算額調	8
(2) 歳出決算額調	8
5 試験検査業務実績	9
6 各部事業概要	10
7 講師派遣及び研修指導	21
8 学会、研修、講習への参加	22
9 研究発表会	23
10 施設見学等	24
11 宮崎県衛生環境研究所職員名簿	25
II 誌上発表・学会発表	
・ 誌上発表・学会発表	29
III 調査研究	
1 新しい百日せき抗体測定法 ELISAポール法の検討	33
2 平成3年度の宮崎県における百日せき調査	35
3 宮崎県における1986～1990年の手足口病の血清疫学	37
4 宮崎県における1991年度のインフルエンザの流行	40
5 鶏肉中に残留するオキソリン酸検出のための簡易なミニカラム抽出法	44
6 高速液体クロマトグラフィーによる鶏肉中・ノシヘプタイドとバージニアマ イシンの定量法	50
7 宮崎県内温泉の化学成分の特徴と経年変化（V）	54
8 イオン選択性電極による温泉水中のヨウ化物イオンの定量	57

9 宮崎県における大気汚染の現状（平成3年度）	61
10 宮崎県における酸性雨調査	69
11 一般家庭の室内空気中の低沸点有機塩素化合物濃度	80
12 ゴルフ場使用農薬による水質汚染（第2報）	84
13 トリクロロエチレン等に係わる水質調査結果	89
14 御池の水質特性（第4報）	92
15 魚類のへい死事故に関する調査	97
16 日本の流行地におけるアカネズミからの紅斑熱群リケッチャの分離	103
17 食物繊維の生理作用と所要量に関する研究	106
18 宮崎県内における環境放射能調査	110
19 宮崎県内における土壤試料の放射能調査	112

新しい百日せき抗体測定法, ELISAボール法, の検討

河野 喜美子・津曲 洋明^{*1}・八木 利喬

Utilization of a New ELISA System, PS-ball ELISA Method, for the Measurement of Antibodies against Pertussis Toxin (PT) and Filamentous Haemagglutinin (FHA) in Human Sera

Kimiko KAWANO, Hiroaki TUMAGARI, and Toshitaka YAGI

A microtiter plate ELISA Method has been used for the measurement of antibodies against pertussis toxin (PT) and filamentous haemagglutinin (FHA) until today. Recently, it has been indicated that nonspecific antibodies are occasionally detected in negative sera by this method. An improved ELISA system, Polystyrene-ball ELISA method, has also been developed. A comparison of both methods was made using 54 human sera. As a result, a significant difference was showed between positive sera and negative sera by PS-ball ELISA in comparison with plate ELISA. The antibodies detected by PS-ball ELISA corresponded well to the histories of vaccination. PS-ball ELISA method may be applicable for the detection of antibodies against PT and FHA.

Key words : *Bordetella pertussis*, polystyrene-ball ELISA method, pertussis toxin, filamentous haemagglutinin

はじめに

昭56年より改良百日せきワクチン(PT, FHAを中心とするHAワクチン)が使用されるに伴い、百日せき防御抗体の測定法も、それまでの凝集法から、PT, FHAに対する抗体を直接測定するELISAプレート法に代わった。しかしELISAプレート法は、陰性と低抗体値の陽性との差がはっきりしないなどの問題が起りやすく、改良が望まれていた。今回新たにELISAボール法が開発され、その評価のための比較試験が、衛生微生物技術協議会レファレンス委員会の依頼で実施された。本事業に参加した施設は流行予測事業-百日せきを行っている施設で、本施設もこれに参加したので、その試験成績を報告する。

方 法

対象とした血清は、予研より配布された盲検用血清10検体と、昨年度(平成2年度)採取されELISAプレート法ですでに抗体値が測定されている血清の中から選

んだ54検体とした。

ELISAボール法の試薬は、武田薬品より提供された“百日せき抗体価測定試薬・Ball法(TH-100)”を用い、測定法は測定マニュアルに従った。

結 果

1 ELISAボール法施設別盲検

盲検用血清10検体をELISAボール法で測定し、予研測定値と比較した結果(Table 1)、陰性・陽性の結果が両施設でよく一致し、またその抗体値も両施設でよく相關した。同時に盲検を行った他の9施設ともよく相關していた。

2 ELISAプレート法とELISAボール法との測定値の比較

Fig.1aに示すように、プレート法でPT抗体値2~15EU/mlを示した10血清はボール法で<1EU/mlとなり、またFig.1bに示すようにプレート法でFHA抗体値1~19EU/mlを示した6血清がボール法では<1EU/mlとなった。

Table 1. Correlation between PS-ball ELISA antibody titers of ten sera determined at the Miyazaki Prefectural Institute for Public Health and Environment and the National Institute of Health.

Sample No.	Anti PT antibody titer (EU/ml)		Anti FHA antibody titer (EU/ml)	
	A*	B**	A*	B**
1	42.0	42.0	65.0	100.0
2	10.0	9.0	37.0	37.0
3	29.0	36.0	68.0	90.0
4	<1.0	<1.0	10.0	7.2
5	44.0	49.0	30.0	36.0
6	10.0	10.0	20.0	15.0
7	<1.0	<1.0	<1.0	<1.0
8	60.0	63.0	128.0	160.0
9	10.0	7.5	33.0	32.0
10	80.0	85.0	36.0	37.0
r***	0.997		0.987	

* : The Miyazaki Prefectural Institute for Public Health and Environment

** : The National Institute of Health

*** : Coefficient of correlation

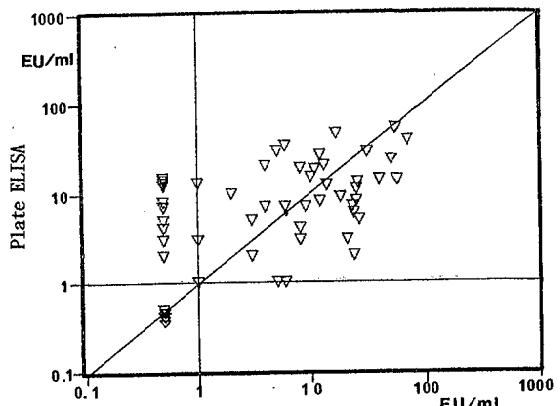
逆にプレート法で<1EU/mlのPT抗体価 (Fig. 1 a) を示した検体5例はボール法でもすべて<1EU/mlを示し、プレート法で<1EU/mlのFHA抗体価 (Fig. 1 b) を示した5検体もそのうち3例は<1EU/mlであったことよりプレート法で陰性の検体はボール法でも陰性とほぼ一致していた。

またボール法での結果はワクチン接種の有無とも良く一致していた。

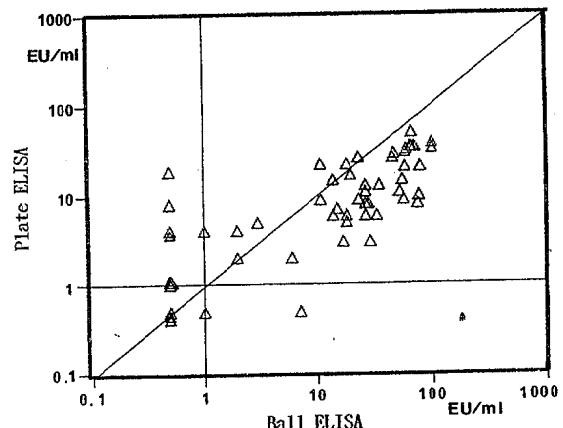
以上のことを考え併せると、ボール法の方が陰性が正しく示されやすく、プレート法で非特異の陽性が出やすいと思われた。

考 察

今回、新しい百日せき抗体測定法であるELISAボール法を検討してみたが、キット化されているため方法が簡便であり、また結果も従来のプレート法に比べ、陰性、陽性が明確に示され、良好な結果が得られたと思われる。また各施設間での相関も良く、百日せき抗体測定法として良いと思われる。



a. Anti PT antibody titers



b. Anti FHA antibody titers

Fig. 1. Correlation between antibody titers of 54 human sera determined by the ball ELISA and the plate ELISA. a: Anti PT antibody titers. b: Anti FHA antibody titers.

平成3年度の宮崎県における百日せき調査

河野 喜美子・津曲 洋明*・八木 利喬

Epidemiological Study of *Bordetella Pertussis* in Miyazaki Prefecture
in Fiscal Year 1991

Kimiko KAWANO, Hiroaki TUMAGARI, and Toshitaka YAGI

Research activities for evaluation of new pertussis vaccines have been done since a research group was formed under the guidance of the Ministry of Public Welfare in 1988. We have participated in this research. The results in Miyazaki Prefecture in fiscal year 1991 were as follows.

Pharyngeal swabs and coughs from 33 patients with pertussis-like symptoms were collected from 3 hospitals in Miyazaki city. *Bordetella pertussis* were isolated from 7 cases. All isolates were classified into 1・3・6 type. The patients confirmed by isolation of bacteria were all non-vaccinees, and no infection to people with histories of pertussis vaccine was observed. This suggested that pertussis vaccine was effective.

Key words : *Bordetella pertussis*, Miyazaki Prefecture, pertussis vaccine

はじめに

改良型百日せきワクチンの有効性を評価するため、昭和63年度に厚生省の指導のもとに研究班が発足し活動が続けられている。当所も研究班に参加し以下のとおり調査研究を行ったので報告する。

材料と方法

本研究班の研究内容は、(1)百日せき患者からの菌分離、(2)患者の血清抗体価測定、臨床症状等の検査、および(3)同居家族の続発状況調査等である。

菌分離のための材料は、咽頭ぬぐい液および咳材料であり、宮崎市内の3小児科より採取された。また家族内感染調査表により臨床症状等の必要事項を調査した。

結果および考察

今年度の宮崎県の百日せき様疾患患者のサーベルアンス臨床定点からの報告は、昨年度と同様、県北の延岡を中心Fig.1のように報告された。また患者からの百日せき菌の分離はFig.1の★で示された7例であり、6月、9月、10月に分離された。ただし、検査の定点病院がサーベルアンス患者報告の少ない宮崎市(Fig.1)にあるため分離が少ないと考えられる。

実際に分離に供した検体は33検体で、その月別、年齢別分離状況はTable 1およびTable 2に示すとおりである。試験件数、分離陽性件数とも6~7月、9~10月に多く、年齢別では0~1歳で70%以上を占めていた。これらの分離陽性例はすべてワクチン未接種であり、ワクチン接種済の兄弟等への伝播もみられなかったことより、ワクチンの有効性が示唆された。

Table 1. Monthly isolation of *Bordetella pertussis* from patients in fiscal year 1991.

	Month												Total	
	(1991)	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	
No. of samples tested		0	0	2	5	0	9	5	2	1	3	1	5	33
No. of positive samples		0	0	1	0	0	4	2	0	0	0	0	0	7

Table 2. Age distribution of isolation-confirmed pertussis patients in fiscal year 1991.

	Age									Total
	0	1	2	3	4	5	6	7	8~14	
No. of samples tested	12	10	4	2	0	1	1	0	3	33
No. of positive samples	2	3	0	1	0	0	1	0	0	7

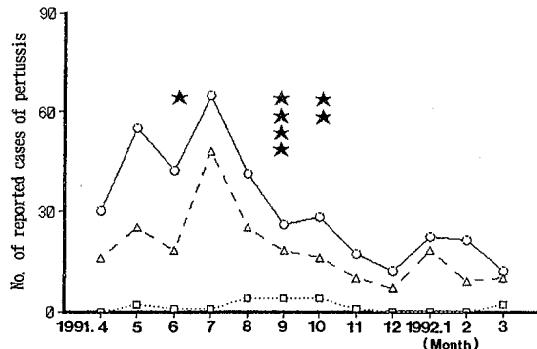


Fig.1. Monthly reported cases of pertussis from surveillance stations, and isolations of *Bordetella pertussis* from patients, in fiscal year 1991.

★ : *Bordetella pertussis* isolated from a patient.

○ — Total reported cases of pertussis in Miyazaki Prefecture (35*)

□···No. of reported cases of pertussis in Miyazaki district (11*)

△—No. of reported cases of pertussis in Nobeoka district (5*)

* : No. of surveillance stations.

宮崎県における1986～1990年の手足口病の血清疫学

大浦恭子・吉野修司・山本正悟
八木利喬

The Serological Epidemiology of Hand Foot and Mouth Disease
in Miyazaki Prefecture, 1986-1990

Kyoko OURAJ, Shuji YOSHINO, Seigo YAMAMOTO and Toshitaka YAGI

Hand foot and mouth disease (HFMD) epidemic is caused by mainly Coxsackievirus A16 (CA16) or Enterovirus71 (EV71), every third or forth years. In Miyazaki Prefecture, HFMD was prevailed in 1987 and 1990. We examined neutralization test (NT) with CA16 and EV71, respectively, in sera of 423 children of age group 0～9, collected in 1986～1990. As antigen, the Kodama strain was used for CA16, and the Nagatomo strain for EV71. Both were isolated from vesicles formed on the hands of clinical HFMD patient in Miyazaki Prefecture, 1990. The geometric means of NT antibody titers measured with the Kodama strain were higher than that with the Nagatomo strain every year from 1986 to 1990. Hence, it was shown that the HFMD epidemic of that period was caused mainly by CA16, in Miyazaki Prefecture. And it was pointed out from the successively conducted serological survey of children that, although there was a HFMD epidemic in 1987, susceptibilities of children to the disease in the following years were relatively high, the rate of children having few antibodies for CA16 and EV71 being more than 40% and 50% of the children examined, respectively.

Key word : serological epidemiology, hand foot and mouth disease, coxsackievirus A16, enterovirus 71

はじめに

手足口病は1970年の日本で初めて流行して以来¹⁾, 主にコクサッキーウィルスA16 (CA16), エンテロウイルス71 (EV71) を原因とし, 2～3年毎に大流行を起こしている。CA16の分離報告はEV71に比し多い傾向にあるが, 1990年はEV71がCA16を上回る分離報告があり, 両ウィルスによる全国的な大流行となつた²⁾。宮崎県における1990年の流行は1987年以来3年ぶりの流行であったが, 今回, 1986～1990年に採取された血清のCA16, EV71に対する中和抗体保有状況を調査したので報告する。

材料と方法

1986～1990年に県立宮崎病院で採取された0～9歳の小児の血清423件について, CA16およびEV71に対する中和抗体を測定した。ウイルス株は, 臨床的に手足口病と診断された宮崎県内の患者の水疱から分離された株を用いた。すなわち, CA16として, 1990年12月に採取された17才男子の手掌水疱から分離された児玉株 (VeroE6で2代継代, TCID₅₀/ml = 10⁶) を, EV71として, 1990年9月に採取された10才女子の水疱から分離された長友株 (VeroE6で2代継代, TCID₅₀/ml = 10⁴) を用いた。中和抗体の測定は原ら³⁾の方法に従つた。まず, 維持培地 (1%FBS加イーグル培地) で4倍に希釈した血清について上記の分離株に対する中和抗体を測定し (スクリーニング), 陽性を示した血清について, タイトレーションを行つた。

結 果

検査を行った0～9才の小児の血清423件の内訳は0～6ヶ月未満：24名、6ヶ月～1才：86名、2～3才：79名、4～6才：114名、7～14才：120名であった。

児玉株(CA16)に対する中和抗体保有状況(Fig.1)：1986、1987年は4才以上に児玉株に対する中和抗体を保有しているものが多く、特に 2^8 倍以上の抗体保有率は1986年が17%、1987年が11%を示し、1985年に起った全国的なCA16の流行の影響が見られた。また、1988年の血清では 2^8 倍以上の抗体保有率が17%で1才以下の乳幼児にも高い中和抗体を示す血清があり1987年の宮崎県内の流行を反映した。1989、1990年の血清の中和抗体はすべて 2^6 倍以下であった。平均中和抗体価は1986年が $2^{6.58}$ 倍、1987年が $2^{6.75}$ 倍と上昇し、そ

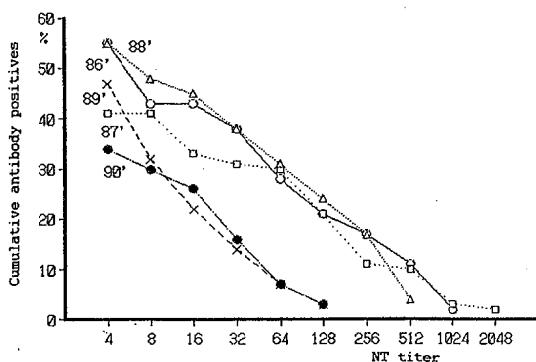


Fig.1 Antibody positive rate at different levels of NT titers anti Kodama strain (CA16) in sera of children.

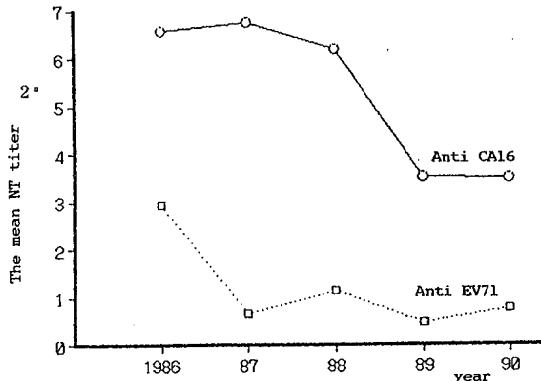


Fig.2 The mean NT titers anti CA16, EV71, respectively in sera of children, by year, 1986～1990.

の後は低くなる傾向にあった(Fig.2)。また、1985、1987年にCA16による手足口病の流行があったにもかかわらず、CA16に感受性のある小児は45～66%と多く、1990年が一番多かった。

長友株(EV71)に対する中和抗体保有状況(Fig.3)：1986年は前年の流行の影響から 2^6 倍の中和抗体を示した血清が一件あったが、平均抗体価は $2^{2.9}$ 倍であった。1987～1990年の血清の中和抗体価はすべて 2^5 倍以下であり、CA16に対する中和抗体保有率に比して有意に低かった。また、EV71に対する感受性は1986

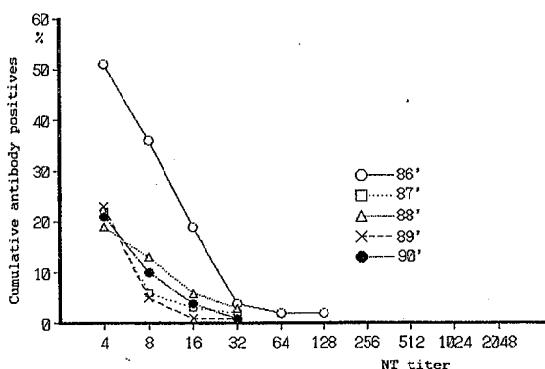


Fig.3 Antibody positive rate at different levels of NT titers anti Nagatomo strain (EV71) in sera of children.

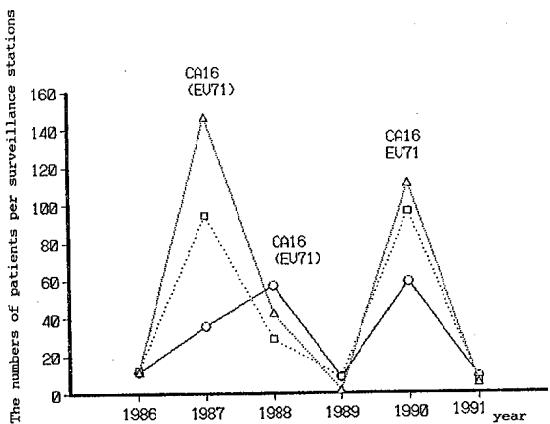


Fig.4 Reported cases of Hand foot and mouth disease patients, by year, 1986～1991

○：The numbers of patients per surveillance stations in Japan, □：The numbers of patients per surveillance stations in Kyusyu island,

△：The numbers of patients per surveillance stations in Miyazaki Prefecture.

年は50%であったが、1987～1990年は77～81%と非常に高かった。

考 察

感染症サーベイランス情報によると、過去5年間の手足口病は宮崎県、九州においては1987、1990年に大きな流行が見られ、全国的には1988、1990年に流行のピークがある（Fig.4）。また、1987、1988年の手足口病の患者から分離されたウイルスはCA16がEV71に比し3～9倍多く主にCA16による流行だったと言える²⁾。今回の調査では、CA16に対する中和抗体保有率がEV71に対するそれよりも有意に高く、宮崎県における手足口病もまた、主にCA16により流行が起きていることが分かった。ただ、今回は1990年の流行を血清で確認することはできなかった。血清は毎年6～8月に採取するので、1990年の血清では反映しきれなかつたと思われる。EV71に対する中和抗体は一件を除いてすべて2⁵倍以下であり、感受性も1986年は50%

であるが、1987～1990年は77～81%と高く、EV71による手足口病はEV71の感染力が小さいのか大きな流行には至っていないことが明らかになった。EV71は無菌性皰膜炎を併発することもあり⁴⁾、また、手足口病の流行が起こったにもかかわらず両ウイルスに対する感受性が40%あることから、今後もさらに追跡する必要があると思われる。

文 献

- 1) TAGAYA, I. and MORITUGU, Y.: Epidemic of hand, foot and mouth diseases in Japan, J. Med. Sci. Biol., 26, 143-147, 1973
- 2) 病原微生物検出情報, Vol.12 No.11, 1991
- 3) 原 稔・萩原昭夫：ウイルス・クラミジア・リケッチャ検査第3版、第2分冊、p148～160、日本公衆衛生協会
- 4) 西野泰生：エンテロウイルス71感染症、臨床とウイルス, 16, 48-53, 1988

宮崎県における1991年度のインフルエンザの流行

大浦恭子・吉野修司・山本正悟
八木利喬

Influenza Epidemic in Miyazaki Prefecture in Fiscal Year 1991

Kyoko OURAYA, Shuji YOSHINO, Seigo YAMAMOTO and Toshitaka YAGI

We reported that influenza epidemic in Miyazaki Prefecture in 1990 was caused by influenza virus type B, which showed antigenic similarity to the influenza virus B/Bangkok/163/90. In April 1991, an influenza virus type A (H3) was isolated from one of the throat swabs sampled at a surveillance station. We anticipated that this virus would cause an influenza epidemic during the following winter. But actually, the influenza epidemic of the season was caused by the both viruses type A (H1) and A (H3).

Key word : influenza epidemic, influenza virus, type A (H1), type A (H3)

はじめに

昨年度の本県におけるインフルエンザの流行はB/バンコク/163/90に近い抗原性を持つB型インフルエンザウイルスにより引き起こされた¹⁾。そして今年度、4月1日に定点において採取された咽頭ぬぐい液(2才、男)からA香港型が分離されたため、今冬の流行株にA香港型を予想した。結果的にはAソ連型(H1)および香港型(H3)インフルエンザウイルスの混合流行がみられたので、以下にその概略を報告する。

方法と材料

ウイルスの分離：1992年1～2月に定点において採取された咽頭ぬぐい液13件と各保健所予防課の協力により採取された集団風邪患者のうがい液60件について、伝染病流行予測検査術式に従ってウイルスの分離を行った。細胞は主にMDCK細胞を使用し、一部孵化鶏卵(9日卵)を併用した。また、分離されたウイルス株について国立予防衛生研究所(予研)より配布されたフェレット感染抗血清(A/山形/32/89,A/北京/352/89,A/滋賀/2/91,B/バンコク/163/90,B/パナマ/45/90)を用いて同定を行った。

血清学的検査：ウイルス分離を行った集団発生患者

のうち対血清の得られた54名の血清108件について、伝染病流行予測検査術式に従い、予研より配布されたウイルス抗原(A/山形/32/89,A/北京/352/89,A/滋賀/2/91,B/バンコク/163/90,B/パナマ/45/90)および分離株に対する赤血球凝集抑制(HI)試験を実施した。

結果と考察

1. 患者と発生状況

平成4年1月中旬から散発的に患者がみられたが、1月下旬に、串間保健所の管内の串間市立北方小学校で今年初のインフルエンザ様患者の集団風邪の届出があり、3月までに15校、445名の患者発生の届け出があった。小学校での患者発生のピークはサーバイランス定点当たりの患者発生のピークと一致していた(Fig. 1)。また、今年度の届け出施設数は昨年の2倍、患者数は昨年度の150%増であった。

2. ウィルス分離と血清学的検査結果

集団発生に先立ち定点からAソ連型、6日遅れてA香港型のインフルエンザが分離され今冬の予想流行型について県民に情報を流すことができた(Table 1, 2)。ウィルスは3病日以内の患者から分離され、4病日の患者からは分離(-)であった。続いて発生した

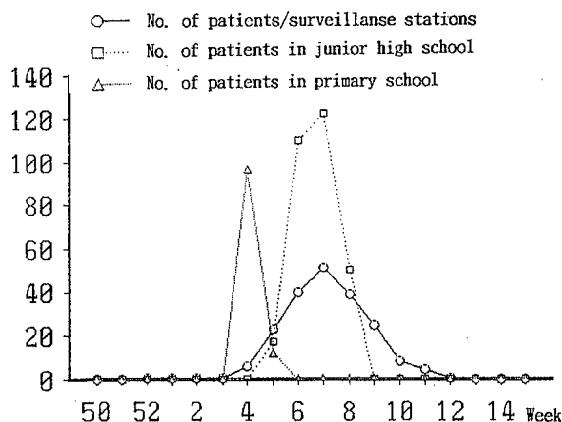


Fig.1 Weekly reported numbers influenza-like disease in 1991 / 1992

集団風邪では、8施設の患者60名から採取したうがい液と対血清について、ウイルス分離および赤血球凝集抑制(HI)試験を実施した。その結果、ウイルスは5施設から9株(A香港型: 延岡市2株、えびの市2株、田野町2株、Aソ連型: 門川町2株、川南町1株) 分離された。また、予研で行った同定試験により、今回分離されたA香港型インフルエンザウイルスはA/滋賀/2/91に近い抗原性を持つことが確認された。

また、血清学的にも54名のうち37名で標準株あるいは分離株に対する有意のHI抗体上昇(Aソ連型: 19名、A香港型: 18名)がみられ、今冬のインフルエンザは両型のA型ウイルスによる混合流行であることが確認された(Table 3, 4, 5)。さらに、対血清で有意のHI抗体の上昇を示した患者37名のうち、12名が

Table 1 Isolation of influenza viruses from throat swabs
(Sporadic case)

Sampling	District	No. of samples	Age	Days of onset	No. of isolates	Type
92.1.14	Miyazaki	5	5~13	1~3	3	A(H1)
1.16	city	1	8	4	0	
1.18		1	6	2	1	A(H1)
1.20		2	10~11	1~2	1	A(H3)
1.24		2	6~14	1~2	1	A(H3)
1.27		1	8	1	1	A(H3)
1.29		1	?	?	1	A(H3)
Total		13			8(62%)	

Table 2 Identification of isolates by influenza hemagglutination inhibition test

antigens	antisera	A/Yamagata/32/89 (HINI)	A/Beijing/352/89 (H3N2)	A/Siga/2/91 (H3N2)	B/BK/163/90	B/Panama/45/90
Reference	A/Yamagata/32/89	512	<32	<32	<32	<32
	A/Beijing/352/89	<32	1024	1024	<32	<32
	A/Siga/2/91	<32	512	1024	<32	<32
	B/BK/163/90	<32	<32	<32	512	64
	B/Panama/45/90	<32	<32	<32	128	512
Isolates (Sporadic case)	A/Miyazaki/ 1/92	64	<32	<32	<32	<32
	A/Miyazaki/ 3/92	64	<32	<32	<32	<32
	A/Miyazaki/ 4/92	64	<32	<32	<32	<32
	A/Miyazaki/ 8/92	64	<32	<32	<32	<32
	A/Miyazaki/10/92	64	256	512	<32	<32
	A/Miyazaki/13/92	64	256	512	<32	<32
	A/Miyazaki/14/92	64	512	512	<32	<32
	A/Miyazaki/15/92	64	256	512	<32	<32

標準株に、3名が分離株に、22名が標準株と分離株の両方に有意の抗体上昇を示した。少ない数ではあるが流行時に分離株も抗原として用いることの必要性を確認した。

3. ワクチン歴からみたHIとウイルス分離

ワクチン未接種者で対血清の得られた40名のうち29

名(73%)で、HI抗体の有意な上昇がみられたが、ワクチン2回接種者でも7名(64%)がHI抗体の有意な上昇を示し、ワクチンによる有意差はみられなかった(Table 6)。また、ワクチン未接種者44名から7株のウイルスが分離されたが、ワクチン1回接種者3名からAソ連型1株、ワクチン2回接種の患者2名からA香

Table 3 Virological and serological examination of patients with influenza-like disease

Sampling	Epidemic case	No. of samples	Virus isolation			No. of Paired sera	HI Test	
			MDCK	Egg	Type		No. of significant increase	A(H1)
92.1.21	K ps* ¹ (Kushima)	10	0	0		10	9	0
1.23	N (Nobeoka)	9	2	2	A(H3)	9	0	9
1.24	I jhs* ² (Miyakonojo)	11	0	nd * ³		11	0	4
1.27	E jhs (Ebino)	6	2	nd	A(H3)	6	0	3
1.27	Z ps (Kadogawa)	9	2	nd	A(H1)	8	8	0
1.31	Y jhs (Nango-cho)	6	0	nd		5	0	1
2.7	H ps (Kawaminami)	3	1	nd	A(H1)	2	2	0
2.14	S ps (Tano)	6	2	nd	A(H1)	3	0	1
Total		60	9	2		54	19	18

* 1:primary school, *2:junior high school, *3:not done

Table 4 Identification of isolates by influenza hemagglutination inhibition test 1992.2.4

antigens	antisera	A/Yamagata/32/89 (HINI)	A/Beijing/352/89 (H3N2)	A/Siga/2/91 (H3N2)	B/BK/163/90	B/Panama/45/90
	A/Yamagata/32/89	512	<32	<32	<32	<32
Reference	A/Beijing/352/89	<32	1024	1024	<32	<32
	A/Siga/2/91	<32	512	1024	<32	<32
	B/BK/163/90	<32	<32	<32	512	64
	B/Panama/45/90	<32	<32	<32	256	1024
	A/Miyazaki/33/92	<32	256	512	<32	<32
Isolates (Epidemic case)	A/Miyazaki/51/92	256	<32	<32	<32	<32
	A/Miyazaki/58/92	<32	256	256	<32	<32
	A/Miyazaki/59/92	<32	128	256	<32	<32

Table 5 Identification of isolates by influenza hemagglutination inhibition test 1992.2.18

antigens	antisera	A/Yamagata/32/89 (HINI)	A/Beijing/352/89 (H3N2)	A/Siga/2/91 (H3N2)	B/BK/163/90	B/Panama/45/90
	A/Yamagata/32/89	512	<32	<32	<32	<32
Reference	A/Beijing/352/89	<32	1024	512	<32	<32
	A/Siga/2/91	<32	256	512	<32	<32
	B/BK/163/90	<32	<32	<32	512	64
	B/Panama/45/90	<32	<32	<32	256	1024
	A/Miyazaki/26/92	32	128	128	<32	<32
Isolates (Epidemic case)	A/Miyazaki/53/92	256	<32	<32	<32	<32
	A/Miyazaki/68/92	256	<32	<32	<32	<32
	A/Miyazaki/70/92	<32	128	256	<32	<32
	A/Miyazaki/74/92	<32	128	256	<32	<32

港型1株が分離されワクチンの有効性は確認されなかった。

4. 患者の臨床症状

定点患者13名の臨床症状は発熱(38.3~40°C), 上気道炎(12名), 関節痛・筋肉痛(9名)などであった。集団発生患者で、血清学的診断によりインフルエ

ンザと確認された37名では発熱(36~40.2°C), 咳, 上気道炎が殆どにみられた。しかし、関節痛・筋肉痛の症状があるものはワクチン接種者にはいなかった。

まとめ

Table 6 Comparison between the history of influenza vaccination and HI titer

History of vaccination in 1991	No. of paired sera	No. of paired sera which showed significant increases with HI titer anti		
		Only reference antigen* ¹	Only isolates antigen* ²	Both reference and isolates antigen
Once	8			1
Twice	11	7		
No history	40	5	3	21
Total	54	12	3	22

* 1:A/Yamagata/32 / 89, A/Beijing/352 / 89, A/Siga/2 / 91

* 2:isolated strains from patients in Miyazaki prefecture

定点および集団風邪患者からのウイルス分離および
血清学的診断により、1991～1992年に宮崎県内で流行
したインフルエンザはAソ連型とA香港型の混合流行
によるものであることを確認した。

文 献
1) 山本正悟, 大浦恭子, 八木利喬: 宮崎県衛生環境研究所年報, 2, 61-62 1991

鶏肉中に残留するオキソリン酸検出のための 簡易なミニカラム抽出法

小野和則・山本雄三・園田恵里
武田攻

A Simple Method for Detecting Oxolinic Acid in Chicken Tissues Using an Extraction Minicolumn

Kazunori ONO, Yuzo YAMAMOTO, Eri SONODA, and Osamu TAKEDA

A simple method for the extraction and clean-up of residual oxolinic acid (OXA) in chicken tissues is presented.

An analytical solution was purified by using a solid phase extraction minicolumn (Bond Elute Certify IITM) instead of liquid partition which is the Japanese official method.

The recoveries of OXA added to chicken tissues at the level of 0.2 µg/g were 60.0±17.4% determined by HPLC at 262nm.

Secondly, OXA and analytical solutions including OXA were methylated with trimethylsilyldiazomethane. They were injected into a GC/MS with SIM mode, at the m/z of 217, 244 and 275. DB-17 capillary column showed a favorable effect.

The presented method for GC/MS enabled us to evaluate OXA more than 2ppm level, but was difficult at below 0.4ppm level at the m/z of 217.

Key words : oxolinic acid, chicken tissues, solid phase extraction, GC/MS, Bond Elute Certify IITM

はじめに

方 法

平成2年度から、厚生省の指示により畜水産食品中の残留抗生物質のモニタリング検査を実施している¹⁾。本試験法は操作の簡単な多成分分析法である。しかしながら、HPLC測定のとき多数のピークが出現し、しばしば薬剤別個々に分析する必要が生じた。また、抗生物質の残留陽性を疑う検体についてGC/MSあるいはフォトダイオードアレイなどによる分析が必要となることがあり、試料の精製が要求された。

今回、家畜や養殖魚等に広範に用いられ、また、指定休業期間よりも残留が長いと指摘される²⁾オキソリン酸(OXA)について、これはしばしば夾雜ピークとの鑑別が困難となることがあったが、固相抽出ミニカラムによる精製法を検討した。また、OXAをメチル化し、GC/MSによる確認を試みた。

1. 材料

収去食品として当所に搬入された鶏肉

2. 試葉

アセトニトリル、メタノール：片山化学工業(株)製、液体クロマトグラフ用

メタノール：和光純薬工業(株)製、残留農薬試験用
酢酸エチル、アセトン、ヘキサン：片山化学工業(株)製、残留農薬試験用

1-プロパノール：片山化学工業(株)製、試薬特級

酢酸、塩化ナトリウム：和光純薬工業(株)製、試薬特級

酢酸ナトリウム：石津製薬(株)製、試薬特級

トリメチルシリルジアゾメタンヘキサン溶液：ジーエルサイエンス(株)製

オキソリン酸(OXA)：Sigma製

メタノール(5%)含有0.1M酢酸ナトリウム緩衝液：酢酸ナトリウム(3水和物)13.6gを1ℓのメスフラスコで蒸留水900mℓにより溶解し、pH6.9～7.1の範囲内であることを確認した後、蒸留水で1ℓにメスアップした。よく混和させた後、50mℓを除き、代わりにメタノール50mℓを加え混和させた。

OXA標準液：厚生省法¹⁾に従って調製されたOXA標準原液をアセトニトルで適宜希釈して使用した。

固相抽出ミニカラム：Analytichem Bond Elute Certify IITM, Varian Sample Preparation Products製

3. 装置

高速液体クロマトグラフ：LC-6AD型およびLC-9A型、(株)島津製作所製

検出器：紫外－可視分光光度計SPD-6AV型およびフォトダイオードアレイ SPD-M10A型、(株)島津製作所製

ガスクロマトグラフ－質量分析計：HP5890ガスクロマトグラフ、横川ヒューレットパッカード社製、AX505W、日本電子製を接続

ホモジナイザー：Polytron, Kinematica, Switzerland

恒温槽：ドライサーモユニット TAH-1G、大洋科学工業(株)製

4. HPLC測定条件

カラム：TSKgel ODS-80TM (4.6mm I. D. × 15cm), 東ソー(株)製

カラム温度：40°C

移動相：アセトニトリル、水、酢酸(20:80:0.3)
流速：0.9mℓ/分

検出器波長：262nm

試料注入量：10 μℓ

5. GC / MS測定条件

カラム：DB-5 (0.249mm I. D. × 20m) およびDB-17 (0.249mm I. D. × 30m), J&W製

GC注入口温度：290°C

キャリヤガス：ヘリウム 30mℓ/分 スプリットレス

カラム温度：DB-5: 50°C, 保持1分, 升温25°C/分, 265°C, 升温3°C/分, 285°C, 保持5分

DB-17: 50°C, 保持1分, 升温25°C/分, 265°C, 升温3°C/分, 280°C, 保持10分 または, 50°C, 保持1分, 升温25°C/分, 280°C, 保持15分

イオン源温度：280°C

イオン化電圧：70eV

6. 試験溶液の調製

試料を細切したものをミキサーで攪拌した後、5.0gを50mℓ容遠沈管に採り、沸騰水中で8分間加熱した。加熱後アセトニトリル10mℓおよび無水硫酸ナトリウム15gを加えてホモジナイズした。別の遠沈管に採ったアセトニトリル10mℓでホモジナイザの刃を洗い、洗液をホモジナイズ試料と合わせ、3,000rpm.で5分間遠心分離器にかけた。沈渣にアセトニトリル10mℓを加え、超音波洗浄器中で1分間攪拌し、3,000rpm.で5分間遠心分離後上清を合わせ、1-プロパノール10mℓを加えて、溶媒を留去した。残渣をメタノール(5%)含有酢酸ナトリウム緩衝液－酢酸(5:0.2)混液(pH3.8)(溶解液)10mℓに溶解させ、あらかじめメタノール3mℓとメタノール(5%)含有0.1M酢酸ナトリウム緩衝液3mℓでコンディショニングしたBond Elute Certify IITMミニカラム(B. E. II)に負荷し、液の通過終了後5分間放置し、B. E. II内に空気を送って残留液の大部分を追い出した後アセトニトリル3mℓでOXAを溶出させ、溶媒留去後、HPLC用試料はアセトニトリル－水(35:65)1mℓに溶解した。GC/MS用試料は酢酸エチル－メタノール(0.9mℓ+0.1mℓ)に溶解し、トリメチルシリルジアゾメタン溶液20 μℓを加えて40°Cで30分間反応させた。

なお、操作中、遮光器具等は使用しなかった。

7. 添加回収試験

厚生省法でOXA陰性と判定された鶏肉5g当たり1 μgのOXAを添加し、前述の試験溶液の調製の方法により抽出し、HPLCで定量した。

結果および考察

1. 抽出および精製

OXAを含む合成抗菌剤の水畜産物試料からの抽出溶媒としては、厚生省法を初めとするアセトニトリル³⁾やアセトニトリル－メタリン酸混液⁴⁾、酢酸エチル^{2) 5) 6)}などが用いられているが、アセトニトリル抽出が最も簡便であり次の溶媒留去の操作が容易に行えるので、アセトニトリルを選んだ。また、アセトニトリル抽出に先立って試料を煮沸したのは熱凝固によるタンパクの除去、組織を脆弱にしホモジナイズ操作中の障害を軽減させる効果を期待したものであった。堀井ら³⁾はOXA等の分析操作において、試料の加熱後アセトニトリル抽出を行っているが、OXAで81.8～

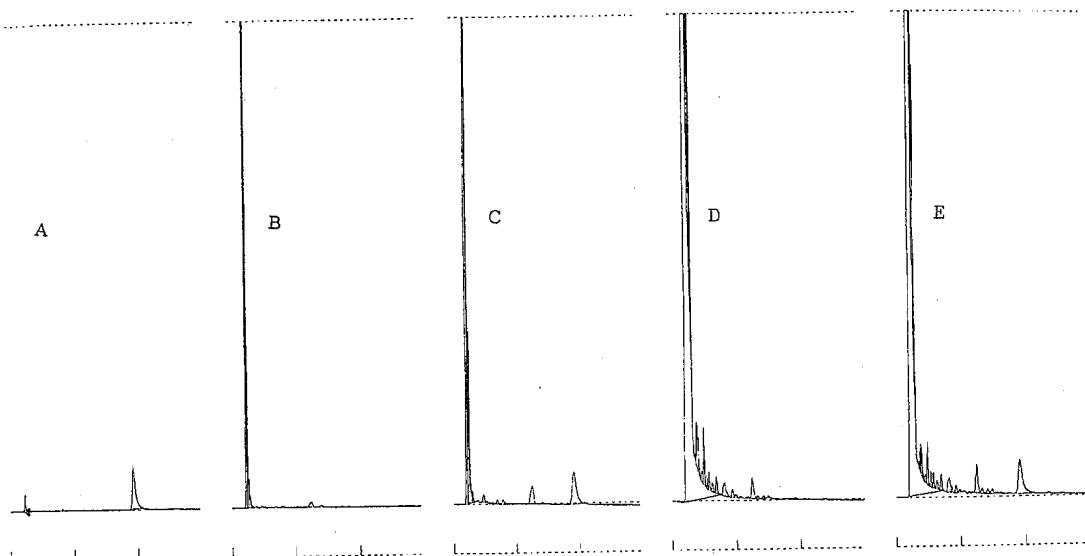


Fig. 1. HPLC chromatograms of the standard and chicken-meat samples at 262nm

A:standard of OXA

B:control sample of solid phase extraction

C:spiked sample of solid phase extraction

D:control sample of liquid partition

E:spiked sample of liquid partition

93.4%の高回収率を上げている。

試料の精製には市販の固相抽出ミニカラムを用いた。OXA分析に用いられた固相抽出ミニカラム類としては、セップパックアルミナN^⑤、ボンドエルートC₁₈^⑥、セップパックシリカ^⑦などが挙げられるが、著者らは、-COOHを持つ化合物に対し選択的である点に興味を持ちB.E. IIによるOXA含有試料の精製抽出を試みた。操作手順はテトラヒドロカンナビノール(THC)-COOHの抽出法^⑧を参考にして行ったところ、概ね満足な結果を得ることができた。溶出液としては初めメタノールを選んだ。メタノール溶出では高回収率(78.9±11.4% N=5)であったが夾雑ピークの除去が不十分だったのでアセトニトリルを試したところ、比較的きれいなクロマトグラムを得た。回収率は厚生省法と比べて高くない(60.0±17.4% N=10)が262nmの波長において夾雑ピークが少なくベースラインの安定したクロマトグラムを得た(Fig.1)。さらに、フォトダイオードアレイによるスペクトルの比較を行ったところFig.2に示すようにいずれも極大波長は268nmのところで一致したが、厚生省法の方が回収率が高かったにも関わらずピークが鈍であり、また376nm

のピークが不明瞭であることが指摘された。

溶出操作前の水洗操作は回収率を高めた。これは、夾雑物の除去によってバックグラウンドを引き下げることができたためと考えられた。但し、1mlの水洗操作を行った3検体の内2検体は洗浄廃液中にOXAの損失があった(3.2%, 2.1%)。洗浄操作による損失の解消と操作行程を簡略化する目的で、水洗操作は省略した。アセトニトリルによる溶出試験では初めの2mlでOXAは溶出し終わり3mlおよび4mlの各分画からは検出しなかった。そこで添加回収試験では、アセトニトリル3mlで溶出することとした。なお、溶解液負荷時のカラム廃液中にOXAは検出されなかった。

以上の点から、本法による精製効果はかなり良好であると思われ、GC/MSによる分析への適応が示唆された。

2. GC / MS 分析への適応

高槻らはOXAをメチル化あるいはブチル化^⑨しGC/MS SIMによる定量を試みたがティリングによる非定量性を指摘し、NaBH₄還元によって良好な結果を得ている^⑩。著者らは松本らの方法^⑪を参考にしてトリメチルシリルジアゾメタン^⑫によるOXAのメチ

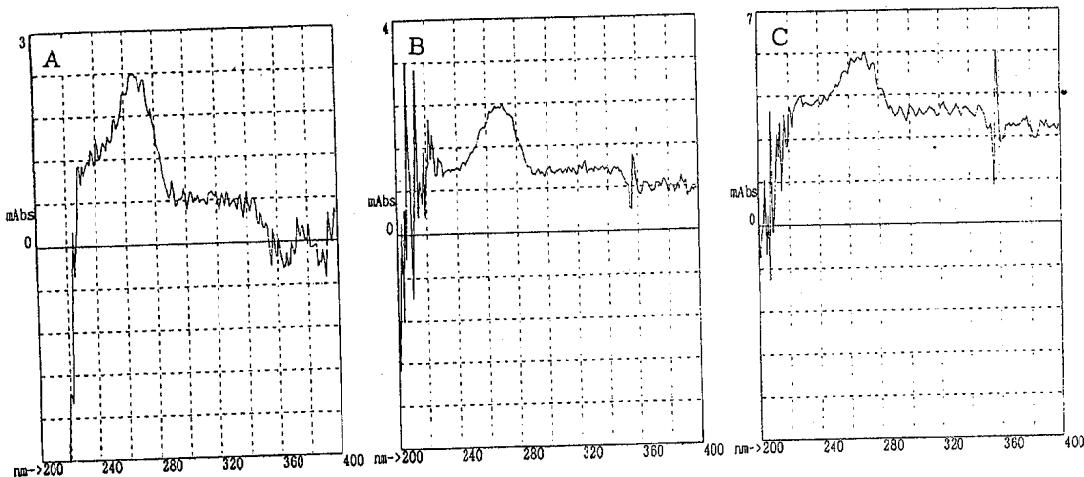


Fig.2. UV-spectrum of OXA of standard and spiked samples

A:standard

B:spiked sample cleaned up with minicolumn

C:spiked sample washed with n-hexane

ル化を行い、2種類のカラムを用いて分析を試みた。まず、100ngのOXAを3種の異なった溶媒（アセトン、メタノール、酢酸エチル）中で反応させたところ、酢酸エチルが最も有効であった（Fig.3）。次に、高槻らの指摘にあったOXA-メチルのテイリングはDB-5において100ngでみられた（TIC:Fig.4）。一方、DB-17では、ほとんどテイリングのないピークをSIMによって確認した（Fig.5）。よって、DB-17を用いて $m/z=217, 244, 275$ によるSIMで添加試料の分析を行った。 $2\mu g/g$ 添加では、いずれの m/z においてもピークの区別はつきそうであったが、0.2あるいは $0.1\mu g/g$ 添加では $m/z=217$ においていずれもピークの判定が不可能であった（Fig.6）。今回は、これらのSIM用添加試料に関してHPLCによる回収量の確認を併用しなかったため、定量下限値を検討することができなかった。

ま　と　め

鶏肉中に残留するOXAの抽出・精製法を検討した。厚生省の液-液分配に代えて市販の固相抽出ミニカラム（Bond Elute Certify II™）を利用し、精製効果を上げることができた。添加回収試験用試験液の測定は厚生省の方法に準じHPLCで行い、回収率は60.0±17.4%（鶏肉に $0.2\mu g/g$ 添加 N=10）であった。ま

た、トリメチルシリルジアゾメタンでOXAをメチル化し、DB-17キャピラリーカラムを用いてGC/MSによる添加試料の測定を試みた。SIM($m/z=217, 244, 275$)測定において、鶏肉中 2ppm 添加試料ではいずれの m/z でもピークを確認できたが、 0.2 および 0.4ppm 添加試料では $m/z=217$ での確認が困難であった。

文　献

- 1) 厚生省生活衛生局乳肉衛生課長：衛乳第105号、平成2年12月21日
- 2) 春日洋二、杉谷哲、山田不二造、荒井真、森川進：食衛誌、25, 512-516, 1984
- 3) 堀井昭三、門間千枝、松本昌雄：東京衛研年報、38, 182-184, 1987
- 4) 星野庸二、堀江正一、徳丸雅一：埼玉衛生研究所報、25, 91-97, 1991
- 5) 高槻圭悟、菊地格：日本食品衛生学会第59回学術講演会講演要旨集, p.53, 1990
- 6) 高槻圭悟、菊地格：宮城県保健環境年報、8, 77-80, 1990
- 7) Varian Sample Preparation Products: Extraction of THC Metabolite from Urine Using Bond Elute Certify™, 1990
- 8) 松本隆二、山崎良成、須賀昌子、御厨良三、田中

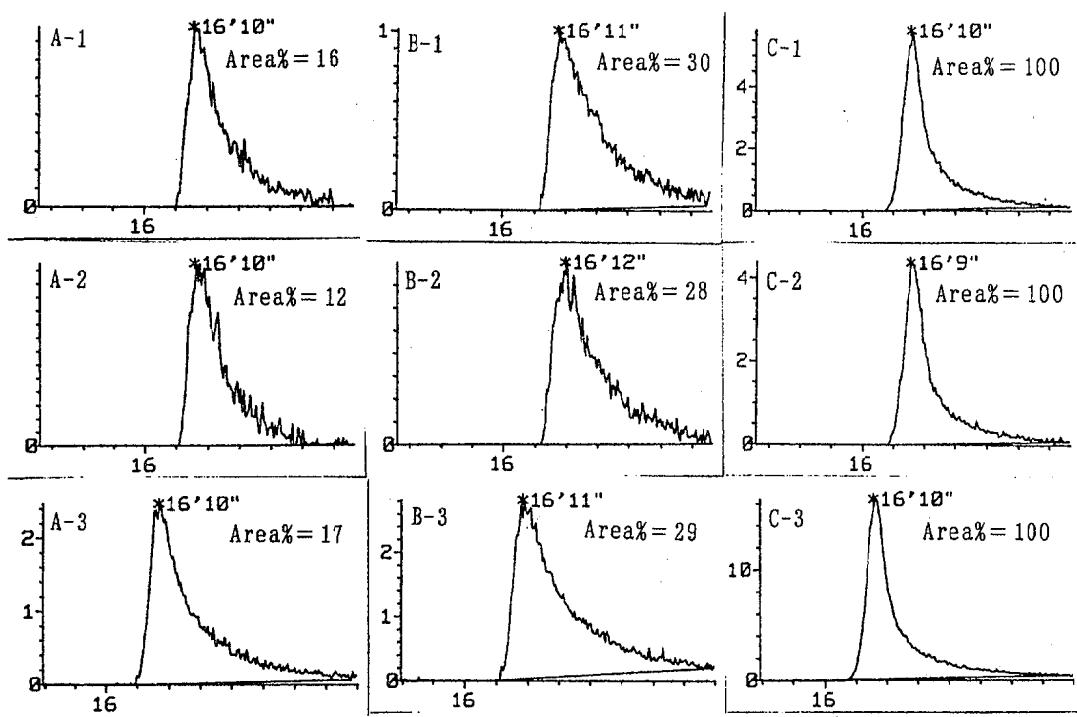


Fig. 3. Reaction of the formation of OXA-methyl in solvent

A:acetone B:methanol C:ethylacetate
at the m/z of 1 : 275: 2 : 244: 3 : 217:

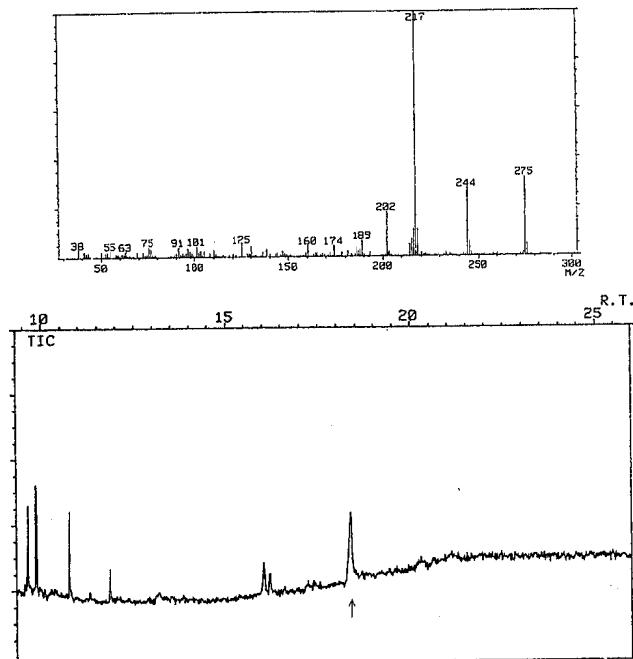


Fig. 4. GC/MS chromatograms of OXA methylated in ethyl acetate and Massspectrum of OXA-methyl

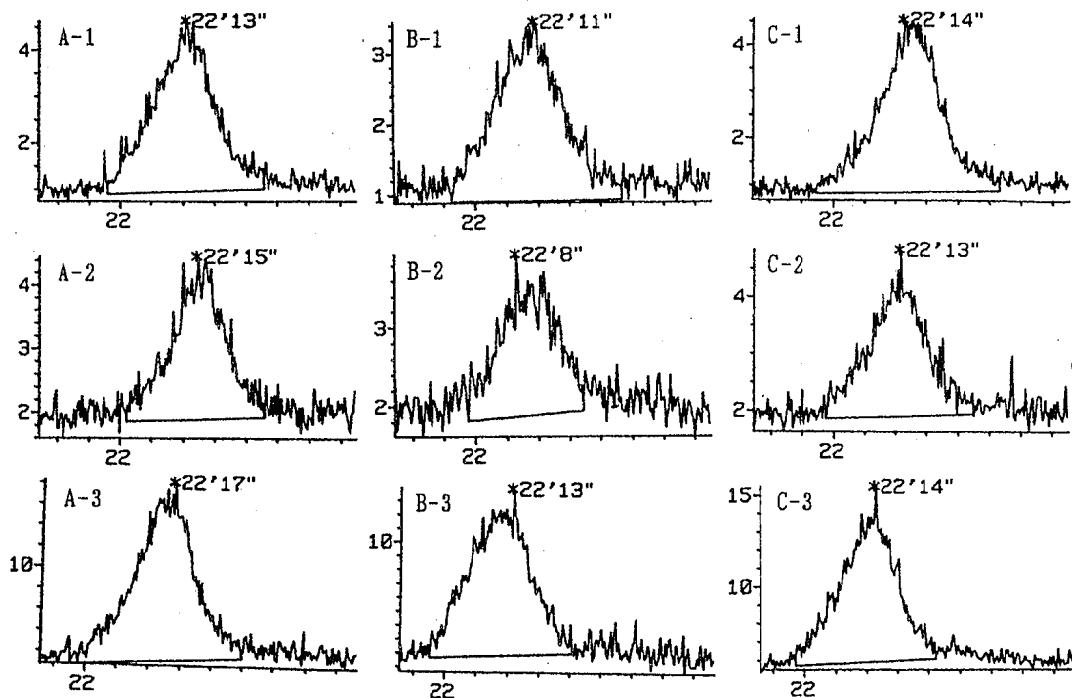


Fig. 5. SIM chromatograms of OXA-methyl in solvent

A:acetone B:methanol C:ethylacetate
at the m/z of 1 : 275 2 : 244 3 : 217

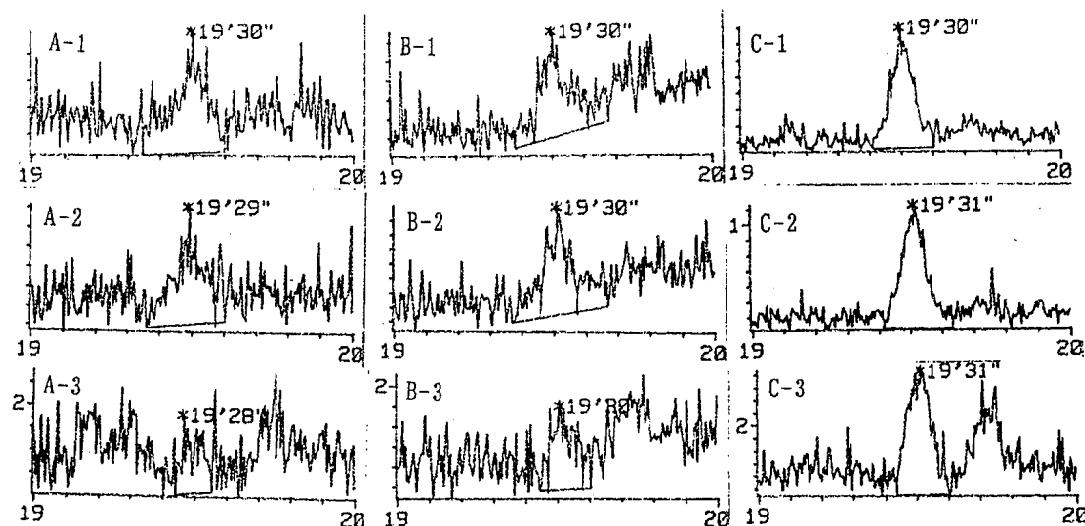


Fig. 6. SIM chromatograms of spiked chicken samples at the concentration

of A:acetone B:methanol C:ethylacetate
at the m/z of 1 : 275 2 : 244 3 : 217

高速液体クロマトグラフィーによる鶏肉中ノシヘプタイン とバージニアマイシンの定量法

山本 雄三・園田 恵里・小野 和則
武田 攻

Determination of Nosiheptide and Virginiamycin in Chicken Tissue by
High Performance Liquid Chromatography

Yuzo YAMAMOTO, Eri SONODA, Kazunori ONO, and Osamu TAKEDA

A high performance liquid chromatographic method (HPLC) is described for determining nosiheptide (NH) and virginiamycin (VGM) residues in chicken tissues.

NH and virginiamycin M₁ (M₁), which is a main component of VGM, were extracted from tissues by homogenization with acetonitrile. The supernatant was washed with n-hexane saturated with acetonitrile. After evaporation of the acetonitrile solution, the residue was dissolved in HPLC mobile phase, which was followed by another partitioning with n-hexane saturated with acetonitrile.

The determinations of NH and M₁ were performed under the same conditions except for the wavelengths of fluorometric detection (NH:excitation and emission wave lengths set at 350 nm and 514 nm, M₁:excitation and emission wavelengths set at 310 nm and 430 nm, respectively). The NH and M₁ were separated on a Wakosil-II 5C18HG column (4.6mm×25cm) by using acetonitrile-0.02M NaH₂PO₄ (45:55) as a mobile phase.

The recovery of NH in chicken muscle at the level of 0.4 μg/g was 80.4±8.3% (n=5) and the lower limit of determination was 0.005 μg/g in chicken muscle. In addition, the recovery of M₁ in chicken muscle at the level of 4.0 μg/g was 89.0±6.7% (n=3) and the lower limit of determination was 0.5 μg/g in chicken muscle.

Key words : nosiheptide, virginiamycin, high performance liquid chromatography

はじめに

近年、輸入畜水産食品中抗菌性物質の残留の問題がしばしば指摘された結果、その安全性確保のため広範な抗生物質と合成抗菌剤の検査が行われるようになってきている。しかし、ポリペプタイド系の抗生物質はプロイラーの飼養において多く使用されているにもかかわらず、その定量が困難であることなどから、鶏肉中の残留試験はほとんど行われていない。

そこで、本年度は、ポリペプタイド系抗生物質の中から、ノシヘプタイン (NH) とバージニアマイシン

(VGM) をとりあげ、定量法の検討を行った。鶏肉中のVGMについては微生物学的試験法¹⁾および高速液体クロマトグラフィー (HPLC) による個別試験法^{2), 3)}があるが、NHについては飼料中の試験法^{4), 5)}はあるものの、日常的な分析に適する鶏肉中の試験法はなく、新たな試験法の確立が望まれている。

アセトニトリルで抽出を行い、アセトニトリル飽和n-ヘキサンで脱脂操作を行った後、蛍光検出高速液体クロマトグラフィーを用いたところ、NHとバージニアマイシンM₁を同時に簡易かつ迅速に定量を行うことができたので報告する。

方 法

1. 試料

添加回収実験には、平成3年5月から平成4年11月にかけて宮崎県下で生産され、あらかじめNHとVGMの残留のないことを確認した鶏肉を用いた。あわせておこなったNHとVGMの残留検査には、平成4年7月から9月にかけて宮崎県下で生産された鶏肉を用いた。

2. 試薬・試液

アセトニトリル：片山化学工業(株)製、液体クロマトグラフ用

ヘキサン：和光純薬工業(株)製、残留農薬試験用

1-プロパノール：和光純薬工業(株)製、特級

ノシヘプタイド(NH)：コーリン化学(株)からの供与品(純度88.7%)を用いた。

バージニアマイシン(VGM)：日本全薬工業(株)製、 $1990 \mu\text{g}$ (力価)/ml

NH標準原液：NHをN,N-ジメチルホルムアミドに溶かして $1000 \mu\text{g}/\text{ml}$ の溶液とした。

VGM標準原液：VGMをアセトニトリルに溶解し、 $1000 \mu\text{g}$ (力価)/mlの溶液とした。

NH標準液：NH標準原液1mlをアセトニトリルに溶かして $2 \mu\text{g}/\text{ml}$ の溶液とした。

VGM標準液：VGM標準原液1mlをアセトニトリルに溶かして、 $20 \mu\text{g}$ (力価)/mlの溶液とした。

3. 装置

高速液体クロマトグラフ：(株)島津製作所製、LC-6A型

検出器：(株)島津製作所製、紫外-可視分光光度計検

出器SPD-6AV型

検出器：(株)島津製作所製、分光蛍光HPLCモニタRF-535型およびRF-550型

ホモジナイザー：Polytron, Kinematica, Switzerland

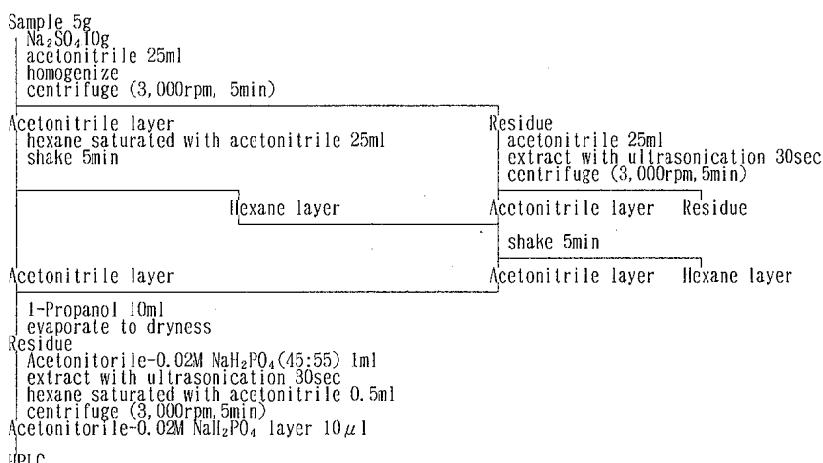
4. 分析操作

1) 試料溶液の調製法

Scheme 1に示す方法⁶⁾により調製を行った。すなわち、試料5.0gを50ml遮光遠沈管にとり、アセトニトリル25mlおよび無水硫酸ナトリウム10gを加えてホモジナイズし、3000rpm、5分間遠心分離する。上清を100ml遮光分液ロートに移し、アセトニトリル飽和ヘキサン25mlを加えて5分間振とうして、アセトニトリル層を100ml遮光メスフラスコにとる。さきに遠心分離した残留物にアセトニトリル25mlを加え、超音波洗浄器中で約30秒間かき混ぜる。3000rpm、5分間遠心分離後、さきに分離したアセトニトリル飽和ヘキサンの入った遮光分液ロートに上清を移し、5分間振とうする。アセトニトリル層をさきのアセトニトリル層と同じ遮光ナスマスコに合わせ入れ、1-プロパノール10mlを加えてロータリーエバボレーターにより減圧乾固する(水浴40°)。残留物をHPLC移動相1mlに溶解する。内容物を10ml遮光遠沈管にとり、アセトニトリル飽和ヘキサン0.5mlを積層し、3000rpm、5分間遠心分離する。ヘキサン層をとり除いた後、HPLCの試料溶液とする。

2) HPLC測定条件

カラム：Wakosil-II 5 C 18 HG (5 μm) 4.6mm i.d. × 25cm



Scheme 1. Analytical procedure for Nosipeptide and Virginiamycin in chicken tissue

カラム温度 : 40°
 移動相 : アセトニトリル - 0.02M リン酸二水素ナトリウム (45 : 55)
 流速 : 1.0 ml/min
 検出器 : FLD ; Ex = 350 nm, Em = 514 nm
 (NH), Ex = 310 nm, Em = 430 nm (M₁)
 試料注入量 : 10 μl

結果及び考察

1. 抽出率について

VGMの主成分であるM₁とVGMとの間には、その抗菌性において良好な相関性があり、M₁を指標としてVGMとしての定量分析が可能である³⁾と報告されていることから、本検討においてもM₁をVGMの指標として定量を行った。

近年、畜水産食品中の多くの合成抗菌剤がアセトニトリルへキサン分配による精製後HPLCによって残留検査が行われるようになってきている⁶⁾ことから、その汎用性を考え、アセトニトリルへキサン分配による精製をまず試みることとした。ポリペプチド系抗生物質の中から紫外部吸収あるいは蛍光を有する薬物エンラマイシンA (ER-A), エンラマイシンB (ER-B), NH, バージニアマイシンM₁, バージニアマイシンS₁のへキサンからアセトニトリルへの分配率を測定したところ、いずれも良好な分配を示したが、ER-AとER-Bは鶏肉中から抽出されず、本検討ではNHとVGMの定量法の検討をすすめることとした。

2. HPLC条件について

1) 移動相の検討

アセトニトリル-メタノール-リン酸緩衝液系について比率とpHをかえて検討を行った。メタノールの比率あるいはpHを上げるとNHのキャパシティーファクターk'がM₁に比して大きくなる傾向がみられた。鶏肉中から抽出した際、M₁の測定波長の条件で夾雜ピークが出現するのでそれらと分離のためアセトニトリル-リン酸二水素ナトリウム系を用いた。

2) 測定波長の検討

NH, VGM各標準液をHPLCに注入し、NHおよびM₁のクロマトピークを波長スキャンすることにより蛍光スペクトルを測定した。その結果、Fig.1に示すように、NHは励起波長350 nm, 蛍光波長514 nm付近にそれぞれ極大が認められたので、NHの測定波長

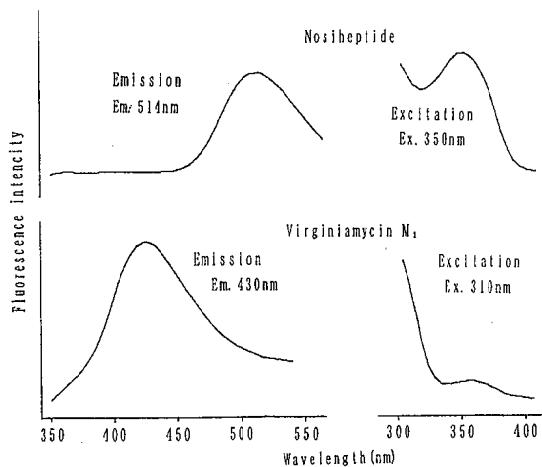


Fig. 1. Fluorescence and excitation spectra of nosiheptide and virginiamycin M₁ in mobile phase

を励起波長350 nm, 蛍光波長514 nmに設定した。M₁は励起波長が300 nm以下にあるが、300 nm以下にするとS/N比が小さくなることから、本法におけるM₁の測定波長の励起波長310 nmとし、蛍光波長は430 nm付近に極大が認められたので測定波長の蛍光波長を430 nmと設定した。

3. 検量線および検出限界

NH標準原液をHPLC溶離液で希釈して0.03~0.3 μg/ml溶液を調製し、ピーク面積により検量線を作成した結果、この範囲で直線性が得られた。また、本法による試料の定量下限は0.005 μg/g (最小検出量0.025 ng、試料採取量5 g、最終液量1 ml) であった。

同じく、VGM標準原液をHPLC溶離液で希釈して3~30 μg/ml溶液を調製し、M₁のピーク面積により検量線を作成した結果、この範囲で直線性が得られた。また、本法による試料中のVGMの定量下限は0.5 μg/g (試料採取量5 g、最終液量1 ml) であった。

4. 添加回収実験

鶏肉5 gにNH2 μg (2 μg/ml溶液1 ml) を添加し、全過程における回収率を求めた (Fig.2)。その結果は、80.4±8.3% (n=5) であった。

鶏肉5 gにVGM20 μg (20 μg/ml溶液1 ml) を添加し、M₁を定量することにより、全過程における回収率を求めた。その結果は、89.0±6.7% (n=3) であった (n=3)。

あわせて、宮崎県下で生産された鶏肉10検体について本法によりNHとVGMの残留検査を行ったところ、

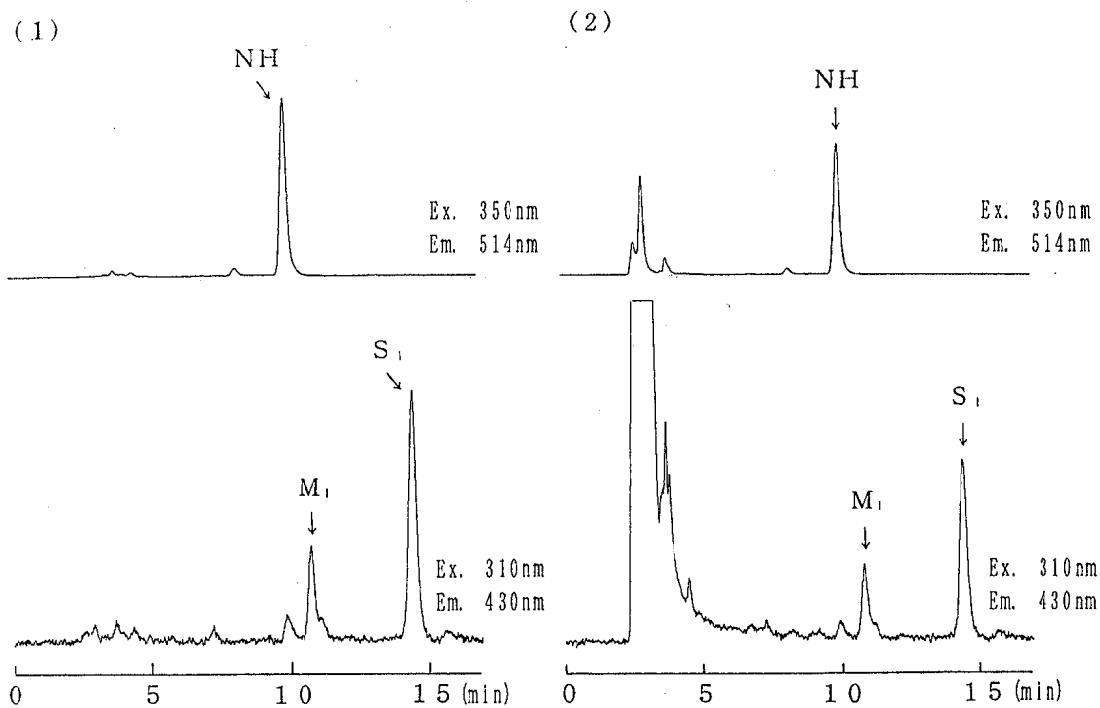


Fig. 2. High performance liquid chromatograms of nosiheptide and virginiamycin standard and extract of chicken

(1):standards [20ng of nosiheptide (NH) and 200ng of virginiamycin (VGM)]
 (2):extract of chicken [spiked with 2 μ g/5g of NH and 20 μ g/5g of VGM]

いずれの検体からも検出されなかった。

に深謝いたします。

ま　と　め

アセトニトリル-ヘキサン分配を用いて抽出し、蛍光検出HPLCに供することにより、NHとVGMを同時に定量することができた。本法によるNHの回収率は $80.4 \pm 8.3\%$ ($n=5$)、VGMの回収率は $89.0 \pm 6.7\%$ ($n=3$) であった。NHの定量下限は $0.005 \mu\text{g/g}$ であり、迅速かつ高感度に定量することができた。

謝　　辞

本実験を行うにあたり、御協力いただいた宮崎県都農食肉衛生検査所の後藤光男所長はじめ職員の皆様方

文　　献

- 1) 厚生省生活衛生局乳肉衛生課：“畜水産食品中の残留物質検査法” p.41, 中央法規出版, 1991
- 2) 永瀬誠, 深町和美: 分析化学. 36, 297-300, 1987
- 3) 斎藤貢一, 堀江正一, 星野備二, 能勢憲英, 中澤裕之, 藤田昌彦: 卫生化学. 35, 63-67, 1989
- 4) 草間豊子, 山谷昭一: 飼料研究報告. 15, 67-80, 1990
- 5) 蔦田秀一: 飼料研究報告. 15, 67-80, 1990
- 6) 村山三徳, 内山貞夫, 斎藤行生: 食衛誌. 32, 155-160, 1991

宮崎県内温泉の化学成分の特徴と経年変化 (V)

—日南市、串間市、南那珂郡の温泉—

平田 泰久・野崎祐司・前田 武

Chemical Compositions and Secular Variations of Hot Springs in Miyazaki Prefecture (V) —Nichinan and Kushima District—

Yasuhisa HIRATA, Yuji NOZAKI, and Takeshi MAEDA

Water samples were collected from hot springs in Nichinan and Kushima districts of Miyazaki Prefecture. Chemical compositions were determined in order to investigate the properties of the waters and to observe the secular variation of each source.

Hot spring waters in Nichinan and Kushima district abound with natural gas, carbon dioxide, metaboric acid, hydrogencarbonate ion and chloride ion. However, they are poor in sulfate ion.

The level of some components were lower when compared to analytical results from a previous examination.

Key words : hot spring, chemical composition, secular variation

はじめに

宮崎県内の温泉の特徴を総合的に把握するとともに、各温泉の経年的な変化を明らかにするため、昭和62年度から県内に湧出する温泉の一斉調査を実施し、結果を本誌により報告している。これまで本県西部の霧島山周辺地域から湧出する、主に火山性の温泉群について調査してきたが^{1)~4)}前年度でこれが終了し、本年度からは引き続き、本県東部の主に化石海水起源と考えられている温泉群について調査を開始した。そのうち今回は南部の日南市、串間市及び南那珂郡から湧出する温泉について調査し、結果を取りまとめたので報告する。

調査方法

1 調査対象温泉及び調査時期

日南市、串間市及び南那珂郡から湧出する温泉について平成2年4月～平成4年4月の間に現地調査し、得られた試料について試験室内で各種の温泉分析を行った。

また、昭和46年11月～昭和63年12月の間に各温泉所

有者から依頼を受け、当所において実施した温泉試験の分析記録を経年変化の比較試料とした。

2 調査項目及び調査方法

泉温、pH等現地試験を含む合計25項目について調査した。各温泉水の分析方法は「鉱泉分析法指針（改訂）」⁵⁾によった。

結果及び考察

今回調査した日南市、串間市及び南那珂郡は本県南端部に位置し、そのほとんどが古第三系の四万十累層群上部で構成される南那珂山地で占められている。調査地域の概要をFig.1に示す。

この地域の日南層群は全般的に構造が複雑で断層・褶曲が多い。この断層破碎帯中に賦存する天然ガスの採取を目的として近年種々の調査・探鉱が行われたが、それに伴い得られた高温のガス付随水が温泉として比較的大規模に利用されるようになった。また最近は観光資源の開発を目的として種々のボーリングが続けられ新たな温泉が発見されている。

これらの温泉のうち今回は実際温泉が利用されてお

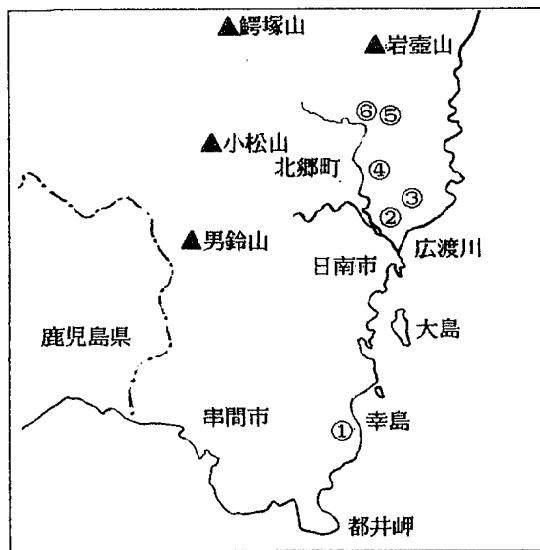


Fig.1 The location of hot springs in Nichinan and Kushima district

り、試料として採取可能な6温泉について調査した。各温泉の成分分析結果をTable 1に示す。

これらの温泉の特徴としてガス成分の多いことをあげることができる。特に串間市市来の幸島対岸にある石波鉱泉は「たぎり荘」と名付けられているとおり湯が沸騰している時の様に気泡が井戸の底部から湧き上がっている。このガス成分のほとんどは天然ガスと遊離二酸化炭素であるが、その割合は温泉によって異なっている。遊離二酸化炭素量は最高で946.2mg/lに達した。

この地域の地下の温度分布は

$$T (\text{°C}) = 17.8 + 0.04666 (D - 11.1)$$

[D: 深度 (m)]

と推定され⁶⁾、これによるとこの地域の地温勾配は100m当たり4.66°Cとなる。これは他の地域と比べて著しく高い。今回の調査でも、ほとんど露頭し、自然湧出しているNo.1の石波鉱泉や、No.3の益安温泉でも調査時の気温17°Cに対し、泉温はそれぞれ23.2°C及び20.9°Cであった。

のことから、この地域一帯の温泉に含まれる二酸化炭素の起源として火成作用が考えられている。火山

Table 1 Chemical composition of hot springs

温泉名	No. 1 石波鉱泉	No. 2 日南温泉	No. 3 益安温泉	No. 4 北郷温泉	No. 5 北郷R3号	No. 6 北郷R5号
調査年月日	92/01/30	92/01/30	92/01/30	91/10/25	90/04/27	92/04/06
泉温	23.2	31.2	20.9	50.7	30.1	33.5
pH	6.68	7.16	8.05	7.16	8.30	8.64
密度	1.0100	1.0062	0.9991	1.0056	0.9986	0.9986
蒸発残留物	15.289	7.678	0.972	0.934	0.561	0.382
ナトリウムイオン	5295	2878	315.3	3338	192.6	116.7
カリウムイオン	105.4	38.1	3.6	70.0	5.3	3.1
アンモニウムイオン	20.4	1.5	0.6	14.2	1.0	1.0
マグネシウムイオン	58.7	19.9	6.4	14.5	1.6	2.3
カルシウムイオン	228.6	114.3	13.1	57.7	3.0	3.6
アルミニウムイオン	0.7	0.8	0.7	0.1	0.9	1.1
マンガンイオン	0.5	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
鉄(Ⅱ)イオン	1.5	0.7	0.1	0.8	0.2	1.9
亜鉛イオン	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
フッ素イオン	1.3	0.3	0.0	0.4	0.4	0.1
塩素イオン	6512	3282	262.5	3465	54.9	16.0
硫酸イオン	1.8	1.8	0.9	2.8	2.6	2.1
リン酸イオン	0.0	0.0	0.1	0.0	0.0	0.0
炭酸水素イオン	3692	2197	549.8	2579	360.0	250.2
炭酸イオン	0.0	0.0	0.0	0.0	54.0	27.0
総ヒ素	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
メタケイ酸	171.1	339.3	18.2	104.7	14.9	39.6
メタホウ酸	143.3	64.7	22.3	95.2	36.3	4.3
遊離二酸化炭素	946.2	136.4	5.7	159.7	15.4	0.0
遊離硫化水素	0.0	0.1	0.0	0.1	0.0	0.1

(単位 蒸発残留物:g/l その他の化学成分:mg/l)

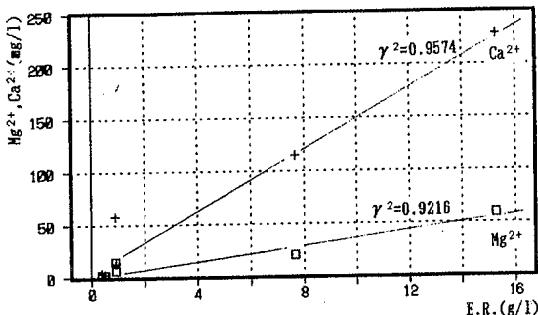


Fig.2 Relation between evaporated residue and magnesium, calcium concentrations

地帯から遠く離れたこの地域に火成作用の産物としての二酸化炭素が豊富に湧出してくれるることは興味深い。この地域の温泉水の起源についてはまだ詳しく調査されたことがなく、温泉水の水素と酸素の同位体比の測定等さらに詳細な調査が必要と考えられる。

これらの温泉のその他の特徴としては

1) メタホウ酸、炭酸水素イオン及び塩化物イオンが豊富であること

2) 硫酸イオンが少ないと

などをあげることができる。これはこの地域の北に広がる宮崎平野から採取されている天然ガス付隨水の化学成分の特徴と一致する。

最近掘削されたNo.5及びNo.6の温泉は泉温が比較的低く、また化学成分も希薄で単純温泉に分類されるが、炭酸水素イオンは他の温泉同様比較的多く、したがって液性はアルカリ性を呈する。

温泉水の蒸発残留物量は0.382～15.29 gと幅があるが、この量はFig.2に示すとおり比較的豊富に含まれているマグネシウムイオン及びカルシウムイオンと高い正の相関を有した。なお、同様に豊富に含まれているナトリウムイオンや塩化物イオンとの相関関係はあまりなかった。

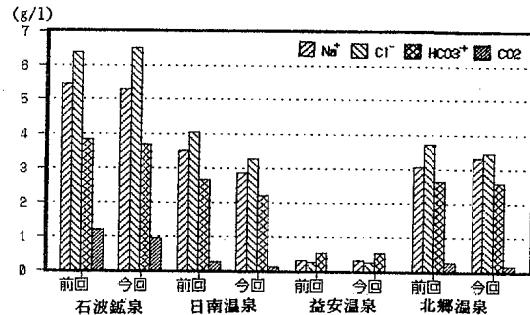


Fig.3 Secular variations of hot springs

最近掘削されたNo.5及びNo.6の温泉を除き他の4温泉は過去に温泉所有者から依頼を受け、当所で温泉試験を行ったことがあり、その結果が残されている。今回の分析結果と過去の記録とを比較するとFig.3のとおりとなった。なお、過去の温泉試験の実施時期は温泉によってまちまちで一定ではなく、厳密に変化の割合を求めるることはできなかった。図によるとこれらの温泉の溶存化学成分は一部を除き減少する傾向にあった。特に温泉水中に豊富に溶存している炭酸水素イオン及び遊離二酸化炭素は全温泉で減少していた。しかしながら、各温泉とも減少している程度はごく僅かで、温泉利用上の影響はないと考えられた。

文 献

- 1) 平田泰久、野崎祐司、前田武：宮崎県衛生研究所報、29, 22-25, 1987
- 2) 平田泰久、野崎祐司、前田武：宮崎県衛生研究所報、30, 55-56, 1988
- 3) 平田泰久、野崎祐司、前田武：宮崎県衛生環境研究所年報、1, 87-89, 1989
- 4) 平田泰久、野崎祐司、前田武：宮崎県衛生環境研究所年報、2, 74-77, 1990
- 5) 環境庁自然保護局：鉱泉分析法指針（改訂）
- 6) 宮崎県：宮崎県地質図説明書（昭和56年3月）

イオン選択性電極による温泉水中のヨウ化物イオンの定量

平田泰久・野崎祐司・前田武

Application of Ion-Selective Electrode Method for the Determination of Iodide Ion in Hot Spring Waters

Yasuhisa HIRATA, Yuji NOZAKI, and Takeshi MAEDA

Ion-selective electrode method has been used for the determination of iodide ion in hot spring waters. The electrode is immersed in the solutions, and the electrode potential is read by use of an ion meter after 5 min. The total ionic strength, the pH and the temperature of the solutions are adjusted throughout the measurements.

The potential response of ion-selective electrode generally shows a slow drift as immersion of the electrode is repeated. To minimize the error due to this type of drift, the following procedure was applied: The electrode potential of sample and standard solution (E_u , E_s) are measured and the difference between E_u and E_s is calculated. The operation is repeated and their average is calculated as a concentration-proportional scale.

The electrode potentials are influenced comparatively by the interfering elements such as pH, chloride ion and thiosulfate ion. This method has also been applied to analysis of well water.

Key words : ion-selective electrode, iodide ion, hot spring

はじめに

溶液中に挿入された2本の電極間に生ずる平衡電位差を測定し、溶液中の化学種の状態を知るポテンシオメトリーは水素イオン濃度の測定をはじめ多方面に利用されている。特に、電極に難溶性金属塩の固体膜等を用い特定イオンのみに選択性をもたせたイオン選択性電極（ISE）は迅速な測定が可能であること、測定が自動化しやすいことなどにより今後ますます重要性を増すものと考えられる。

ところが、この固体膜等を用いたISEは一般にpH測定に用いられているガラス電極に比べればイオン選択性は完全ではなく、共存する他イオンの影響を受けたり、感應膜表面に沈澱物が付着したりするなど注意すべき点は多く、実際の定量分析に応用する際は事前に十分検討しておく必要がある。

本県中部宮崎平野一帯は宮崎ガス田と総称される天然ガス埋蔵地域であり、ガス付随水中には平均70mg/kg前後のヨウ化物イオンが含まれている。温泉水中の

ヨウ化物イオンの定量は現在次亜塩素酸ナトリウム法¹⁾により行っているが、このガス付隨水は有機物（フミン質）を多く含み、これを除くために多くの前処理を必要とする。また有機物の除去が完全でなかった場合誤差を生ずる恐れもある。

今回、宮崎平野一帯から湧出した温泉水中のヨウ化物イオンを迅速に精度良く分析するため、ヨウ化銀を感應膜としたISEを用いる方法について検討した。

また、この方法の実際の応用例として、事故により民家用の井戸に温泉水が混入した苦情事例があり、ISEを用いたこの方法により井戸水中のヨウ化物イオンの定量を行なったところ、相当量のヨウ化物イオンが検出され、温泉水が井戸水中へ混入していたことが確認できたので、あわせてその概要を報告する。

試薬及び装置

・全イオン強度調整用緩衝溶液²⁾ (TISAB) :特級硝酸ナトリウム97g,特級酢酸ナトリウム116g,特級酢酸1

7g, 及び特級クエン酸ナトリウム0.3gを加え蒸留水で1ℓにした。

- ・ヨウ化物イオン標準液：ヨウ化物イオンとして0.1～10mg / ℓとなるように秤量した特級ヨウ化ナトリウムにTISBA 40mℓ及び蒸留水を加えて200mℓにした。

これは全イオン強度0.4, pH5.2となる。

- ・ヨウ化物イオン電極：堀場製作所製 8004-06T
- ・比較電極：堀場製作所製 2535A-06T
- ・電位差計：堀場製作所製 N-8F イオンメータ
- ・記録計：島津製 R-111
- ・恒温槽及び恒温装置:TSC製 DX-100

実験及び結果

1 ISEのコンディショニング

ヨウ化銀を感応膜としたヨウ化物イオン電極の感應膜は僅かではあるが水に溶解し、また光によって褐色に変化して、しばしば電位が不安定になる。そのためISEは通常風乾状態で遮光して保存される。ISEを使用する際は事前に数ppm程度の被検イオンを含む溶液に浸しておく（電極のコンディショニング）のがよいとされているが、このコンディショニング液の組成は応答時間、履歴現象などと関連があり、分析目的に応じて十分検討しておく必要がある。すでにフッ化物イオンについては分析目的溶液の液性・濃度と類似した液を用いてコンディショニングを行う場合が最も良い結果が得られるという報告がある²⁾。

今回はヨウ化物イオン電極の温泉水分析への応用が目的であるので、コンディショニング液のヨウ化物イオン濃度は1mg / ℓとした。この濃度は温泉法に定められた「常水と区別する限界値」であり最も精度の要求されるところと考えたことによる。また、コンディショニング液のイオン強度を測定時の全イオン強度と合わせるため、全量200mℓに対しTISABを40mℓ添加し、全ての測定はこの液にISEを一夜浸漬してから行った。なお、コンディショニング時間を数時間に縮めても分析目的溶液のヨウ化物イオン濃度がコンディショニング液と同程度ならば測定値に大きな影響はなかった。

2 ISE挿入後測定までの時間

ISE電位の応答速度と再現性についてはすでにフッ化物イオン電極等について種々の検討がなされているが³⁾目的イオンの濃度や全イオン強度及びコンディショニングの条件等に大きく影響されると考えられるので、今回の分析条件に合わせてヨウ化物イオン電極

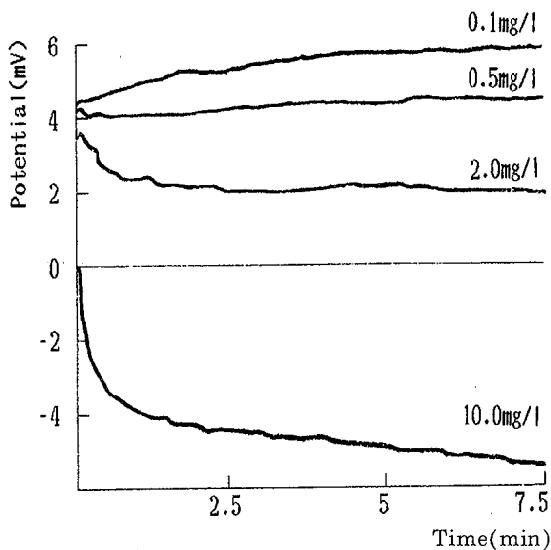


Fig.1 Time tracks of the electrode potentials at different concentrations

の応答特性を改めて測定した。

0.1mg / ℓ I⁻～10.0mg / ℓ I⁻の上記標準溶液中に電極を挿入し、時間とともに変化するISE電位を記録計により記録した。測定溶液は全て恒温槽中に入れ30±0.1℃で一定にした。また恒温槽はプラスチック製のものを使用し、槽の底から測定溶液をマグネチックスターラーを用いて定速で攪拌した。結果をFig.1に示す。

コンディショニング液のヨウ化物イオン濃度（1.0mg / ℓ I⁻）に近い0.5mg / ℓ I⁻及び2.0mg / ℓ I⁻の溶液におけるISE電位は電極挿入直後急激に変化するが、数分経過すると電位は一定になった。これに対し、コンディショニング液濃度と大きく異なった0.1mg / ℓ I⁻の溶液は数10分たっても電位は徐々に増加し、また10mg / ℓ I⁻の溶液は徐々に減少した。

この結果から、以後のISEによる測定は全て電極を挿入してからの時間をストップウォッチで測定し、正確に5分後のISE電位を測定値として記録することにした。

3 ヨウ化物イオンの測定方法

測定には上記イオンメータを使用したが、これにはイオン濃度測定モードがあり、予め濃度既知の2溶液で校正しておけばあとは分析目的溶液にISEを浸漬するだけで電位の測定後自動的にイオン濃度を計算して結果をデジタル表示してくれる。このモードによる測

Table 1 Readings by iodide ion-selective electrode (Unknown solution : 0.5mg/l)

n	Total dipping time(min)	Unknown solution A (mV)	Standard solution B (mV)	A - B (mV)
1	5	1.599		
2	10		-0.400	1.999
3	15	1.919		
4	20		0.840	1.079
5	25	2.639		
6	30		1.719	0.920
7	35	2.599		
8	40		1.639	0.960
9	45	2.919		
10	50		1.839	1.079
Av.		2.519		1.207
S. D.		0.493		0.401

定は平易ではあるが再現性に乏しく、温泉水をこのモードで測定すると同一測定溶液なのに場合によっては倍近いばらつきができる。

このばらつきの原因の一つとしてISE電位のドリフトが考えられる。電極を測定溶液に挿入するとその瞬間に感應膜面の状態が急激に変化しISE電位のドリフトが発生すると考えられる。このドリフトの影響を取り除くため、濃度既知の標準溶液と測定溶液とのISE電位を交互に測定し両液の電位比を算出すると、直接測定した場合に比べ相対標準偏差が大幅に減少したという報告がある⁴⁾。

今回この方法を温泉水中のヨウ化物イオンの定量に応用することにし、標準溶液をコンディショニング液と同濃度の1mg / l I⁻溶液とし、測定溶液を0.5mg / l I⁻、2.0mg / l I⁻及び10mg / l I⁻の3溶液としてISE電位を測定した。測定は標準溶液と測定溶液とを交互に行い、それぞれの溶液にISEを浸漬した後、正確に5分後の電位を上記イオンメータに接続した記録計から読みとった。溶液を変えるときはISEを水洗せずに付着液を濾紙で吸収のみとし、設定温度・攪拌・TISAB添加等その他の測定条件は前項のとおりとした。

得られた測定溶液のISE電位をその次に測定した標準溶液の電位で差引き、これを5回繰返してその平均を求めた。測定結果をTable 1~Table 3に示す。

一般にISEでの電位と濃度との関係はネルンストの式から次のように示される。

$$E_n = E_0 + (pRT/zF) \ln C_u + E_a(n) \quad \dots \dots (1)$$

$$E_{n+1} = E_0 + (pRT/zF) \ln C_s + E_a(n+1) \quad \dots \dots (2)$$

$$E_{n+2} = E_0 + (pRT/zF) \ln C_u + E_a(n+2) \quad \dots \dots (3)$$

.....

Table 2 Readings by iodide ion-selective electrode (Unknown solution : 2.0mg/l)

n	Total dipping time(min)	Unknown solution A (mV)	Standard solution B (mV)	A - B (mV)
1	5	-1.119		
2	10		1.079	-2.199
3	15	-2.599		
4	20		0.520	-3.118
5	25	-2.079		
6	30		0.240	-2.319
7	35	-2.639		
8	40		-0.040	-2.599
9	45	-2.879		
10	50		-0.240	-2.639
Av.		-2.549		-2.575
S. D.		0.628		0.318

Table 3 Readings by iodide ion-selective electrode (Unknown solution : 10mg/l)

n	Total dipping time(min)	Unknown solution A (mV)	Standard solution B (mV)	A - B (mV)
1	5	-22.79		
2	10		-4.598	-18.19
3	15	-27.99		
4	20		-7.876	-20.11
5	25	-30.78		
6	30		-9.835	-20.95
7	35	-32.46		
8	40		-11.19	-21.27
9	45	-32.10		
10	50		-12.03	-20.07
Av.		-30.83		-20.12
S. D.		3.583		1.071

ここで E_n, E_{n+1}, E_{n+2} は全電位, Rは気体定数, Tは絶対温度, zは対象イオンの価数, Fはフアラデー定数, pは実電位勾配のRT/zFに対する割合, rは対象イオンの活量係数, C_u, C_s は測定溶液及び標準溶液の濃度, E_0 は対象イオンの活量が1で不齊電位が0のときの電位, $E_a(n), E_a(n+1), E_a(n+2)$ は不齊電位である。

ISE感應膜面の状態変化により不齊電位は不規則に変化するが, E_n の次に引き続き測定した E_{n+1} ではまだ変化の程度は少ないと考えられる。今回はこの不齊電位の影響を最小限度にする目的で $E_n - E_{n+1}$ を求めた。これにより E_a の項を消去できるとともに $E_a(n)$ の項を0に近づけることができる。

測定した E_n と $E_n - E_{n+1}$ の標準偏差は測定溶液が0.5mg / l I⁻のときは0.493から0.401へ、2.0mg / l I⁻のときは0.628から0.318へ、10mg / l I⁻のときは3.583から1.071へとそれぞれ減少し、この方法が測定精度の向上に有用であることを示した。また、この3種の溶液の濃度と $E_n - E_{n+1}$ の平均とを一次直線に回帰させた場合、相関係数は0.9993となり、この方法が実

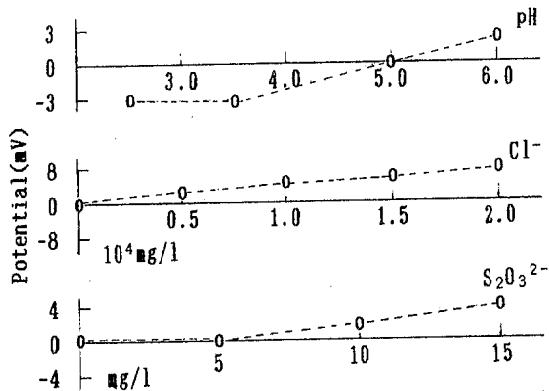


Fig.2 Influence of ph, chloride ion and thiosulfate ion

際の温泉試料の分析に応用可能であることが確認できた。

4 温泉水中の共存イオンの影響

測定する温泉水に溶存する各種妨害イオンの影響を調べるために、TISABを添加した1mg / l I⁻の溶液のpH、塩化物イオン及びチオ硫酸イオン濃度を変化させてISE電位を測定したところFig.2のとおりとなった。測定は前項に記載した方法で行い測定条件も同一とした。

Fig.2によるとISE電位は共存イオンの影響を強く受けるため被測定溶液中のこれらのイオンの存在には注意する必要がある。既に温泉水の化学組成がわかっている場合はそれに合わせて標準溶液を作ることができるが、不明の場合は標準添加法等の分析技術を使う必要があると考えられた。

5 実際の分析応用例

平成4年5月、宮崎保健所管内において温泉水の輸送管を補修した際、漏れた温泉水が近くの民家の飲用の井戸に流入するという事故が発生した。この温泉水は四万十累層群を基盤とし、宮崎層群をガス層とした天然ガス付隨水として得られ、ヨウ化物イオンを豊富に含むという特徴がある。したがって、井戸水へ温泉水が混入したかどうかを確認するためには井戸水中のヨウ化物イオンの分析を行うのが適当と考えられた。

以後の保健所の行政指導を速やかに開始するために、

Table 4 Readings by iodide ion-selective electrode
(Unknown solution : well water)

n	Total dipping time(min)	Unknown solution A (mV)	Standard solution B (mV)	A - B (mV)
1	5	-15.472		
2	10		-9.035	-6.4368
3	15	-14.913		
4	20		-8.596	-6.3168
5	25	-15.472		
6	30		-8.476	-6.9965
7	35	-15.872		
8	40		-8.876	-6.9965
9	45	-16.072		
10	50		-8.796	-7.2764
Av.		-15.582		-6.805
S. D.		0.399		0.366

分析作業はできるだけ迅速に行い結果を報告する必要があったので、ISEを用いたこの方法でヨウ化物イオンの分析を行なうことにした。結果をTable4に示す。

得られた電位差の平均-6.805mVをTable 1～Table 3により作成した検量線上にプロットしヨウ化物イオン濃度を求めたところ、4.0mg / l となった。この井戸は海に近く、井戸水も海水の影響を強く受けていることは十分考えられるが、このヨウ化物イオン濃度は海水のそれに比べて十分に大きく、これで温泉水が井戸水へ混入したことが確認できた。

これらの分析は試料を測定だけなら約1時間、依頼を受けて結果を回答するまででも約半日で終了した。後日確認のため、次亜塩素酸ナトリウム法によりヨウ化物イオン濃度の再分析を行ったが、ほぼ同一の分析値が得られた。

文 献

- 1) 環境庁自然保護局：鉱泉分析法指針（改訂）
- 2) 大島喜美子、柴田則夫：分化、23, 392-395, 1974
- 3) 穂積啓一郎、秋元直茂：分化、20, 467-473, 1971
- 4) 富田与志郎、加藤典一、安藤貞一：分化、33, 420-424, 1984

宮崎県における大気汚染の現状（平成3年度）

藤田芳和・山田音由記・齋藤信弘
迫田勝藏

Present State of Air Pollution in Miyazaki Prefecture

Yoshikazu FUJITA, Otoyuki YAMADA, Nobuhiro SAITO, and Katsuzo SAKODA

In Miyazaki Prefecture, the present telemeter system of air pollution was constructed in 1981. Air pollution substances (for example, sulfur dioxide, nitrogen dioxide and photochemical oxidants) are monitored at 26 stations (17 air pollution monitoring stations, 4 automobile exhaust monitoring stations, 1 inversion zone monitoring station and 4 fixed sources observing stations).

The high concentration of sulfur dioxide observed at many stations at the same time were caused by the volcanic activities of Mt. Sakurajima. Annual 98% value of daily average at Minami-Miyazaki automobile exhaust monitoring station in 1991 exceeded 0.04 ppm depending on traffic congestion.

Although some data exceeded the environmental quality standards, the majority of data shows that there is no concern for the present state of air environment in Miyazaki Prefecture.

Key words : air pollution, sulfur dioxide, nitrogendioxide, photochemical oxidants

はじめに

宮崎県では、大気汚染防止法第22条に基づき、昭和56年4月に現在の大気汚染常時監視テレメーターシステムを設置し、それ以後、大気汚染中央監視局において、大気汚染の状況を常時監視している。

ここでは、平成3年度の測定結果をもとに、宮崎県における大気汚染の現状について報告する。

測定局と測定項目

平成3年4月現在、一般大気測定局17局・自動車排出ガス測定局4局・発生源監視局4局・逆転層観測局1局の合計26局で常時監視を行っている。

測定局配置図をFig.1、測定局と測定項目一覧表をTable1に示す。

大気汚染の状況

大気汚染常時監視測定結果のうち、二酸化硫黄・二

酸化窒素・一酸化炭素・光化学オキシダント及び浮遊粒子状物質の測定結果をTable2、環境基準を超えた回数をTable3に示す。

1 二酸化硫黄

各測定局（18局）の年平均値は、0.001～0.010ppmで前年度と比較して、全局とも横ばいの状況であった。各地区の二酸化硫黄の年平均値の経年変化をFig.2に示す。

日平均値の2%除外値は、0.003～0.025ppmの範囲で、全局とも環境基準の長期的評価（0.04ppm）を満足していた。

1時間値では、門川福祉館（門川町）・大王谷小学校（日向市）・日向保健所（日向市）・細島公民館（日向市）・高鍋保健所（高鍋町）・自治学院（宮崎市）・日南保健所（日南市）・都城自排局（都城市）の8局で、環境基準の短期的評価（0.1ppm）を超過していた。

Fig.3に11月15～16日の県内の二酸化硫黄の濃度図を示す。都城市・宮崎市・高鍋町・日向市・日南市において同時に高濃度の二酸化硫黄が出現しており、火

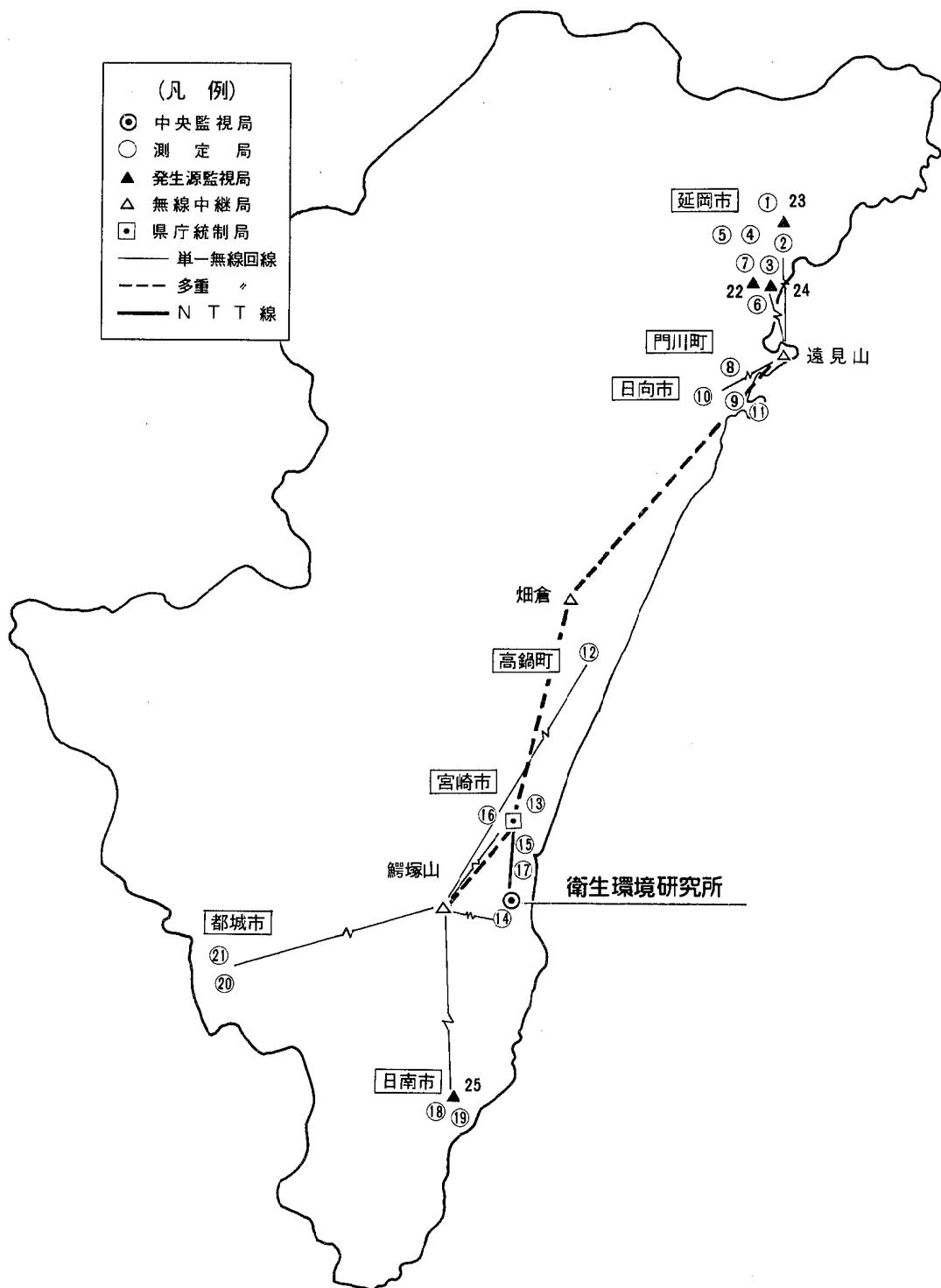


Fig. 1 Position of air pollution monitoring stations

Table 1 Number of stations and monitoring substances

(平成3年4月1日現在)

種別	番号	局名	所在地	測定項目								備考
				SO ₂	SPM	NO _x	Ox	W	CO	HC	TS	
一般大気測定局及び自動車排出ガス測定局	1	延岡商業高校	延岡市桜ヶ丘	○		○	○	○				
	2	アヅマヤ	"幸町	○		○	○	○				
	3	東小学校	"出北町	○		○	○	○				
	4	延岡保健所	"大貫町	○	○	○	○	○		○	○	
	5	延岡植物園	"天下町	○		○		○				
	6	延岡第2高校	"平原町	○		○		○				
	7	新延岡自動車排ガス局	"出北町			○			○	○		
	8	門川福祉館	門川町平城東	○	○	○	○	○				
	9	大王谷小学校	日向市大王谷	○		○	○	○		○		
	10	日向保健所	"春原町	○	○	○		○				○
	11	細島公民館	"細島	○		○	○	○				
	12	高鍋保健所	高鍋町北高鍋	○		○	○	○				
	13	身障者センター	宮崎市大島町	○		○		○				
	14	衛生環境研究所	"学園木花台	○		○		○				
	15	自治学院	"旭町	○	○	○	○	○				
	16	高千穂通自動車排ガス局	"北高松町			○			○	○		○
	17	南宮崎 "	"中村町			○			○	○		○
	18	日南保健所	日南市戸高	○	○	○	○	○				○
	19	油津小学校	"園田町	○		○	○	○				
	20	都城自動車排ガス局	都城市姫城	○		○		○	○	○		○
	21	都城高専	"吉尾町	○		○	○	○				
発生源監視局		局名	所在地	SO _x	NO _x	F	O ₂					
	22	旭化成第1火力	延岡市旭町	○	○	○	○					
	23	旭化成第2火力	"中川原町	○	○	○	○					
	24	旭化成第3火力	"長浜町	○	○	○	○					
	25	王子製紙	日南市戸高	○	○	○	○					
その他		局名	所在地	SO ₂	SPM	NO _x	Ox	W	CO	HC	TS	備考
	26	愛宕山逆転層	延岡市愛宕山									○
		移動監視車		○	○	○	○	○	○	○	○	データロガ

※SO₂ 二酸化いおう Ox 光化学オキシダント TS 湿湿度計及び日射計 SO_x いおう酸化物

SPM 浮遊粒子状物質 CO 一酸化炭素 N デジタル騒音計 F 燃料使用量

NO_x 窒素酸化物 HC 炭化水素 W 風向・風速 O₂ 酸素濃度

Table 2 Results at air pollution monitoring stations

市町名	測定局名	二酸化硫黄		二酸化窒素		一酸化炭素		光化学オキシダント		浮遊粒子状物質	
		年平均値	年間の日平均値の2%除外値	年平均値	日平均値の年間98%値	年平均値	日平均値の年間2%除外値	昼間の日最高1時平均値	昼間の1時間値の年間値の最高値	年平均値	年間の日平均値の2%除外値
		ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	mg/m ³	mg/m ³
延岡市	延岡商業高校	0.004	0.009	0.004	0.009	—	—	0.030	0.075	—	—
	アツマヤ	0.004	0.007	0.010	0.017	—	—	0.016	0.052	—	—
	東小学校	0.003	0.007	0.014	0.027	—	—	0.031	0.065	—	—
	延岡保健所	0.005	0.013	0.007	0.015	—	—	0.016	0.064	0.032	0.088
	延岡植物園	0.001	0.003	0.003	0.006	—	—	—	—	—	—
	延岡第二高校	0.002	0.005	0.005	0.014	—	—	—	—	—	—
	新延岡自排局	—	—	0.015	0.026	0.8	1.7	—	—	—	—
門川町	門川福祉館	0.006	0.012	0.004	0.012	—	—	0.020	0.052	0.024	0.045
日向市	大王谷小学校	0.005	0.012	0.006	0.013	—	—	0.025	0.080	—	—
	日向保健所	0.008	0.025	0.006	0.015	—	—	—	—	0.022	0.059
	細島公民館	0.006	0.014	0.010	0.019	—	—	0.022	0.063	—	—
高鍋町	高鍋保健所	0.005	0.010	0.005	0.012	—	—	0.029	0.073	—	—
宮崎市	身障者センター	0.004	0.012	0.008	0.017	—	—	—	—	—	—
	自治学院	0.005	0.011	0.010	0.023	—	—	0.031	0.100	0.041	0.080
	衛生環境研究所	0.002	0.010	0.004	0.008	—	—	—	—	—	—
	高千穂通自排局	—	—	0.020	0.039	1.7	2.8	—	—	—	—
	南宮崎自排局	—	—	0.025	0.041	2.1	4.0	—	—	—	—
日南市	日南保健所	0.004	0.014	0.005	0.011	—	—	0.028	0.089	0.030	0.067
	油津小学校	0.002	0.008	0.008	0.016	—	—	0.010	0.037	—	—
都城市	都城高専	0.004	0.009	0.005	0.013	—	—	0.028	0.069	—	—
	都城自排局	0.010	0.021	0.022	0.035	2.0	3.6	—	—	—	—

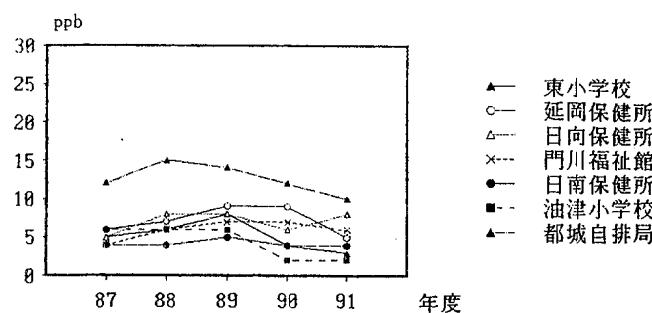


Fig. 2 Changes in annual average concentration of sulfur dioxide

山（桜島）に起因する広域的な大気汚染と思われる。

2 二酸化窒素

各測定局（21局）の年平均値は、0.003～0.025ppmで前年度と比較すると、全局とも横ばいの状況で

Table 3 Compliance with environmental quality standards

市町名	測定局名	二酸化硫黄		二酸化窒素		一酸化炭素		光化学オキシダント		浮遊粒子状物質	
		1時間値 が0.1ppm を超えた 時間数	日平均値 が0.04 ppmを超 えた日数	日平均値 が0.04 ppm以上 0.06ppm 以下の日 数	日平均値 が0.06 ppmを超 えた日数	8時間値 が20ppm を超えた 回数	日平均値 が10ppm を超えた 日数	1時間値 が0.06 ppmを超 えた時間 数	1時間値 が0.12 ppmを超 えた時間 数	1時間値 が0.2mg/ m ³ を超 えた時間 数	日平均値 が0.1mg/ m ³ を超 えた日数
延岡市	延岡商業高校	0	0	0	0	—	—	29	0	—	—
	アヅマヤ	0	0	0	0	—	—	0	0	—	—
	東小学校	0	0	0	0	—	—	4	0	—	—
	延岡保健所	0	0	0	0	—	—	1	0	57	5
	延岡植物園	0	0	0	0	—	—	—	—	—	—
	延岡第二高校	0	0	0	0	—	—	—	—	—	—
	新延岡自排局	—	—	0	0	0	—	—	—	—	—
門川町	門川福祉館	2	0	0	0	—	—	0	0	0	0
日向市	大王谷小学校	3	0	0	0	—	—	9	0	—	—
	日向保健所	2	1	0	0	—	—	—	—	37	1
	細島公民館	1	0	0	0	—	—	2	0	—	—
宮崎市	高鍋保健所	7	1	0	0	—	—	22	0	—	—
	身障者センター	0	0	0	0	—	—	—	—	—	—
	自治学院	2	1	1	0	—	—	68	0	17	0
	衛生環境研究所	0	0	0	0	—	—	—	—	—	—
	高千穂通自排局	—	—	3	0	0	0	—	—	—	—
日南市	南宮崎自排局	—	—	18	0	0	0	—	—	—	—
	日南保健所	8	0	0	0	—	—	1	0	0	0
	油津小学校	0	0	0	0	—	—	0	0	—	—
都城市	都城高専	0	0	0	0	—	—	40	0	—	—
	都城自排局	6	1	0	0	0	0	—	—	—	—

注) 環境基準

二酸化硫黄：1時間値の1日平均値が0.04 ppm以下であり、かつ1時間値が0.1 ppm以下であること。

二酸化窒素：1時間値の1日平均値が0.04 ppmから0.06 ppmまでのゾーン内、又はそれ以下であること。

一酸化炭素：1時間値の1日平均値が10 ppm以下であり、かつ1時間値の8時間平均値が20 ppm以下であること。

光化学オキシダント：1時間値が0.06 ppm以下であること。

浮遊粒子状物質：1時間値の1日平均値が0.1 mg/m³以下であり、かつ1時間値が0.2 mg/m³以下であること。

あった。

日平均値の年間98%値でみると、南宮崎自排局（宮崎市）で0.04 ppmを超過していた。

南宮崎自排局における二酸化窒素の年間98%値と交通量の経年変化をFig.4に示す。交通量の増加にともない二酸化窒素の年間98%値も増加の傾向にある。

また、各自排局の年間98%値の経年変化をFig.5に示す。

3 一酸化炭素

各測定局（4局）の年平均値は、0.8~2.1 ppmで前年度と比較すると、全局とも横ばいの状況であった。

一酸化炭素の年平均値の経年変化Fig.6に示す。

全局で環境基準を満足していた。

4 光化学オキシダント

各測定局（12局）のうち、9局で環境基準（0.06 ppm）を超過していた。

光化学オキシダントの1時間値が、0.06 ppmを超過した時間数の経月変化をFig.7に示す。

3月~7月に超過時間が多い傾向にある。

5 浮遊粒子状物質

各測定局（5局）の年平均値は、0.022~0.041 mg/m³の範囲で、日平均値の2%除外値は、0.045~0.088 mg/m³であった。延岡保健所（延岡市）で、日平均値が0.1 mg/m³を達

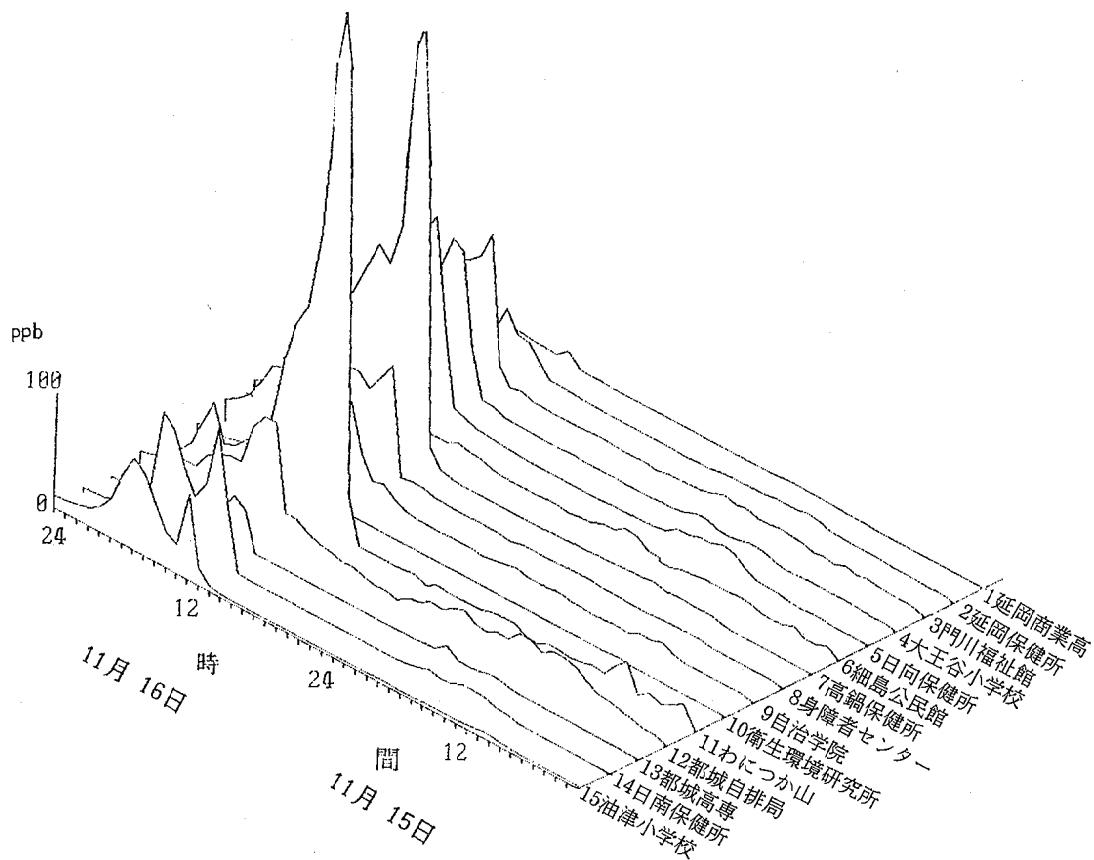


Fig. 3 The concentration of sulfur dioxide in Miyazaki Prefecture on Nobember 15 and 16 in 1991

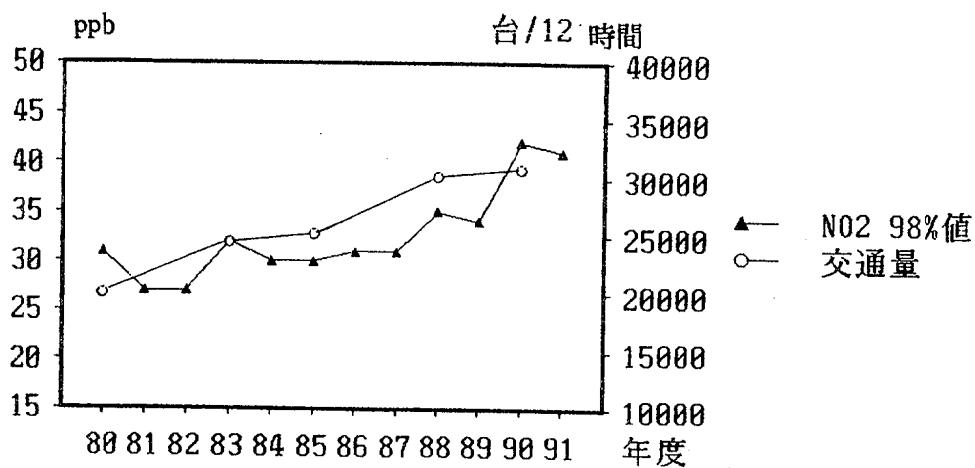


Fig. 4 Changes in annual 98% value of daily average of NO₂ and amount of traffic at Minamimiyazaki station

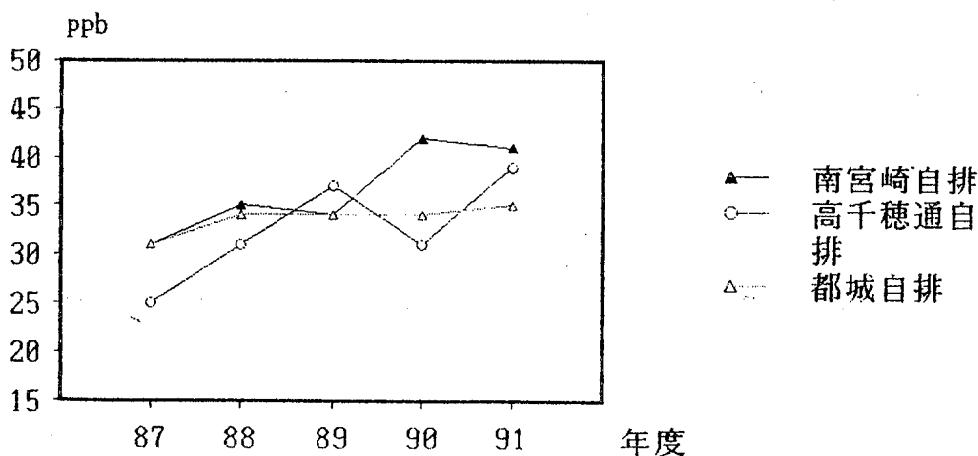


Fig. 5 Changes in 98% value of daily average of nitrogen dioxide

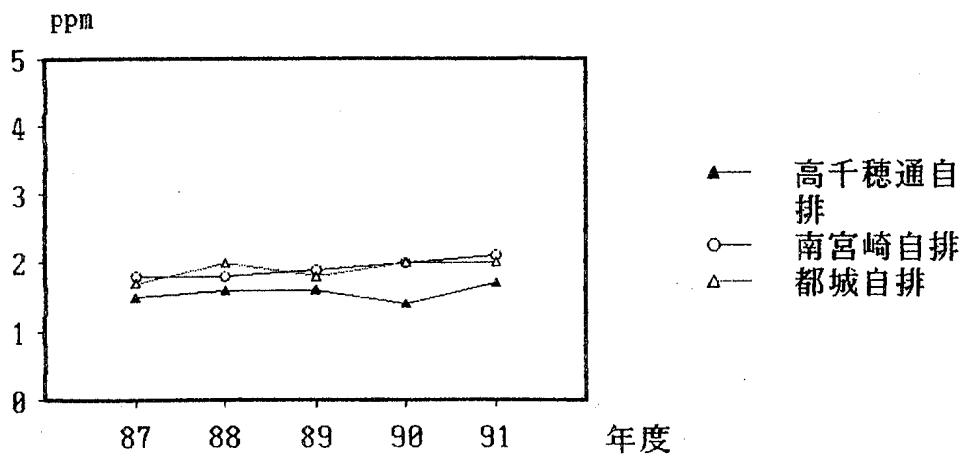


Fig. 6 Changes in annual average concentration of carbon monoxide

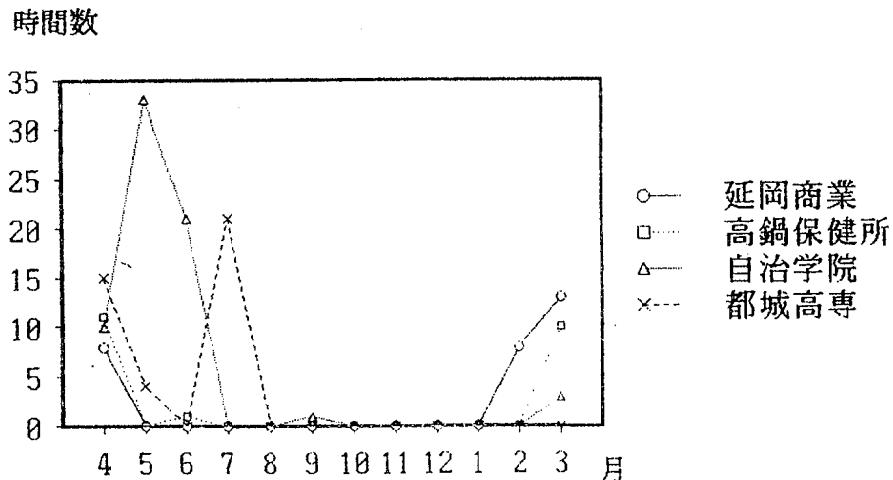


Fig. 7 Number of times recording the photochemical oxidants concentrations over 0.06ppm

統2日以上超過し、また、延岡保健所（延岡市）・日向保健所（日向市）・自治学院（宮崎市）の3局で、1時間値が $0.2\text{mg}/\text{m}^3$ を超過していた。

ま　と　め

各項目とも、前年度と比べて、ほぼ横ばいの状況で

あり、全体的には、おおむね良好な状況と考えられる。

しかしながら、一部の地域で交通量の増加とともにない二酸化窒素濃度の年間98%値が 0.04ppm を超過しており、今後とも注意深く監視していく必要がある。

また、桜島の火山活動に起因すると思われる広域的・高濃度の二酸化硫黄も確認された。

宮崎県における酸性雨調査

山田 音由記・川井田 哲郎^{*1}・齋藤 信弘
藤田 芳和・吉富 堅一郎^{*2}・迫田 勝藏

Investigation of Acid Rain in Miyazaki Prefecture

Otoyuki YAMADA, Tetsuro KAWAIDA, Nobuhiro SAITO, Yoshikazu FUJITA,
Kenichiro YOSHITOMI and Katsuzo SAKODA

Acid rain in Miyazaki Prefecture was investigated. Rain water samples were collected biweekly during eleven months (from May 1991 through March 1992) at eight points in Miyazaki Prefecture. These samples were analyzed for pH, EC (electric conductivity), cations and anions. Spectrophotometer, ionchromatograph and atomic absorption/flame emission spectrophotometer were used for determining the concentrations of ionic components.

The value of pH which indicates the acidity of rain water varied from 4.07 to 5.73, and the average value was 4.54. Monthly and total amounts of each ionic component precipitated were also estimated. The result shows that the amount of precipitation was lowest in Takachiho district.

Key words : acid rain, pH, anion, cation

はじめに

平成2年度に実施した梅雨期における広域的調査をさらに充実させ、また、より全県的な状況を把握するために、新たに高鍋町、小林市、鰐塚山山頂の3地点に濾過式雨水採取器を設置し、一年間にわたり調査を実施したのでその結果を報告する。

調査方法

1 試料採取方法

試料採取装置は、前報¹⁾において図示したものと同一の装置を使用した。濾紙は、ポアサイズが $0.8 \mu\text{m}$ の硝酸セルロースタイプのメンブランフィルターをあらかじめ約 100ml の純水で洗浄したものを装着した。

2 試料採取期間

試料採取期間は2週間とし、原則として月曜日の午前9時に採取装置をセットし、2週間後の午前9時に試料を回収した。

3 分析方法

試料の分析方法は、平成2年3月に示された環境庁大

気保全局の方法²⁾に従った。概要を略記するとTable 1のとおりである。

4 調査地点

平成2年度の地点に高鍋町(高鍋保健所)、小林(小林保健所)および鰐塚山山頂の3地点を加え8地点とし

Table 1 Testing Methods, analytical instruments used and limit of determination

項目	測定・分析方法	精度又は定量限界
• pH	ガラス電極法	0.02
• EC	電気伝導度計	$0.05 \mu\text{S}/\text{cm}$
• F^- , SO_4^{2-} , NO_3^- , Cl^-	イオンクロマトグラフ法	$0.05 \mu\text{g}/\text{ml}$
• NH_4^+	吸光光度法	$0.01 \mu\text{g}/\text{ml}$
• K^+ , Na^+	炎光光度法	$0.01 \mu\text{g}/\text{ml}$
• Ca^{2+} , Mg^{2+}	原子吸光光度法	$0.01 \mu\text{g}/\text{ml}$

環境科学部大気科

*1 現 宮崎県環境保健部環境保全課

*2 現 宮崎県立宮崎病院

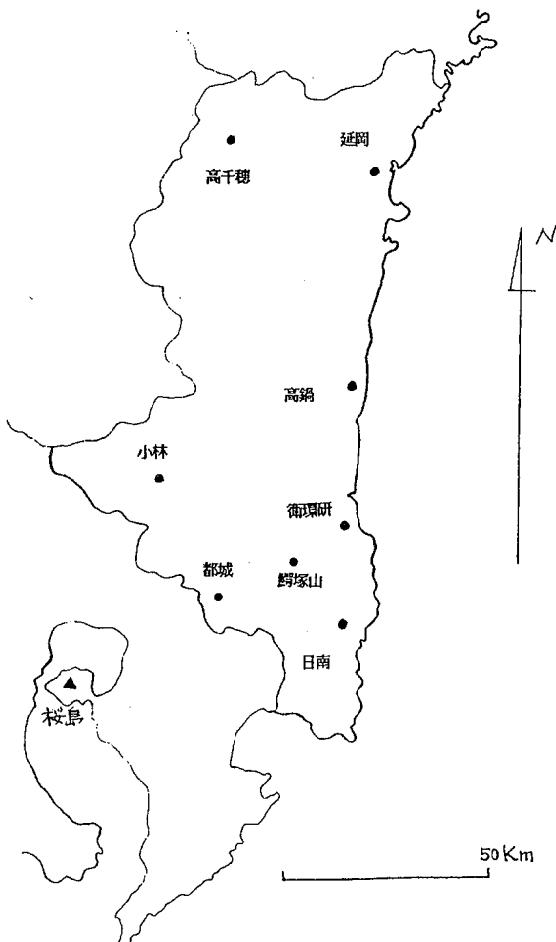


Fig. 1 Location of sampling points in Miyazaki Prefecture

た。配置状況をFig.1に示す。

調査結果および考察

一試料単位の測定結果については、最後に資料として一覧表にして掲載しておいた。ここにおいては、主として月平均値を用いて考察を進めることとする。

Fig.2に示されるように、各調査地点におけるほとんどのpH値が5.6以下の酸性を示し、5.6を超えたものは都城の11月降雨で5.73を観測したのみであった。最も低い値としては、同じく都城の3月降雨で4.07が観測されている。しかし、一試料単位では6月上旬の鷲塚山頂において3.77、7月中旬の日南で3.89など4.0を下回る値も観測されている。年間総降雨量で平均化した値は4.54であった。

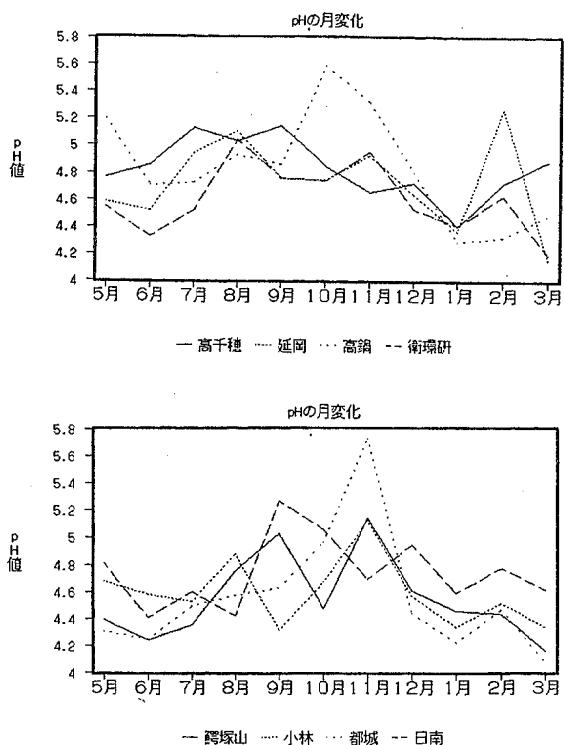


Fig. 2 Monthly change in pH at each sampling point

次に、各サンプリング地点におけるカチオンおよびアニオンの月別降下量の変化と年合計量 (meq/m^2) をTable 2-1および2-2に、また月間変化の様子をFig.3-1およびFig.3-2に示す。グラフからもわかるとおり、カチオンの年間降下量については、高千穂が他の7地点くらべて、格段に少なく $26.36 \text{ meq}/\text{m}^2$ で県内総降下量の5.2%であった。

高千穂以外の地点の割合はいずれも10.5%から16%の範囲内であった。アニオンについてもイオンバランスの関係から同様の割合になっているものと考えられる。

一方、降雨量および各イオン種ごとの県内の年間総降下量に対する各地点における降下量の割合を比較してみると、Table 3に示すとおり降雨量については、小林が15.3%を占めた以外は10.6%~12.7%の範囲内にありそれがほぼ近接した割合であった。

水素イオンについては、高千穂、高鍋、日南が5.2%~8.3%の範囲内にあるほかは、11.9%~18.3%の範囲内であった。このことは量的には、ある程度の差があるようと考えられるが、降雨量で割り、濃度換算後

Table 2-1 Monthly and total amount of ion precipitation at each sampling point

集計表 降下量 meq/m²

採取地点	採取月	雨量 (mm)	pH	降下量 meq/m ²									
				H	Na	NH ₄	K	Ca	Mg	Al	C I	NO ₃	SO ₄
高千穂	4月												
	5月	219.6	4.76	3.77	1.86	3.84	0.29	1.79	0.60		3.26	1.83	7.76
	6月	441.7	4.86	6.15	0.92	4.32	0.29	0.75	0.51		3.79	1.97	11.03
	7月	191.8	5.13	1.43	5.73	2.34	0.25	1.54	1.32		7.16	0.97	5.31
	8月	341.4	5.03	3.21	9.74	1.01	0.31	0.79	2.30		12.59	0.89	7.33
	9月	348.4	5.14	2.52	8.28	0.04	0.33	1.38	2.28		8.42	0.67	7.14
	10月	136.9	4.84	1.96	0.63	0.53	0.10	0.84	0.30		2.00	0.12	3.17
	11月	59.3	4.65	1.32	1.57	0.92	0.05	0.74	0.43		2.33	0.92	2.17
	12月	29.8	4.72	0.57	0.84	1.04	0.07	0.57	0.25		1.46	0.45	1.88
	1月	33.5	4.40	1.33	0.76	0.84	0.05	0.82	0.25		1.57	0.57	2.12
	2月	55.7	4.72	1.07	0.61	1.04	0.05	1.09	0.27		1.03	0.56	1.44
	3月	231.6	4.89	3.01	0.42	2.29	0.07	1.99	0.51		2.14	2.49	6.80
	年合計	2089.7	26.36	31.36	18.22	1.87	12.30	9.04		45.75	11.43	56.15
													0.45

集計表 降下量 meq/m²

採取地点	採取月	雨量 (mm)	pH	降下量 meq/m ²									
				H	Na	NH ₄	K	Ca	Mg	Al	C I	NO ₃	SO ₄
延岡	4月												
	5月	303.9	4.59	7.86	7.50	12.06	0.32	2.64	2.28		11.77	3.28	16.44
	6月	535.7	4.52	10.23	2.27	18.27	0.20	0.76	0.56		6.34	2.35	22.87
	7月	305.7	4.94	3.50	12.49	13.00	0.42	2.28	3.05		17.22	2.03	15.22
	8月	23.4	5.10	0.19	0.37	1.09	0.02	0.30	0.17		0.55	0.22	1.41
	9月	488.2	4.75	8.63	48.58	3.59	1.16	2.99	11.83		63.74	2.32	17.15
	10月	116.4	4.75	2.09	1.77	0.42	0.07	0.99	0.55		2.86	0.67	2.76
	11月	146.5	4.92	1.76	10.06	0.67	0.20	2.24	2.54		12.18	1.45	4.27
	12月	59.5	4.63	1.40	2.90	1.11	0.10	1.87	0.80		4.32	0.81	3.05
	1月	34.6	4.36	1.51	0.75	0.57	0.03	1.04	0.24		1.32	0.56	2.13
	2月	23.6	5.27	0.13	0.51	0.50	0.06	1.47	0.28		0.83	0.31	1.60
	3月	327.3	4.15	23.03	5.66	4.52	0.22	4.15	2.22		7.16	5.79	16.49
	年合計	2164.8	60.30	92.85	55.80	2.82	20.73	24.53		128.30	19.78	103.38
													1.05

集計表 降下量 meq/m²

採取地点	採取月	雨量 (mm)	pH	降下量 meq/m ²									
				H	Na	NH ₄	K	Ca	Mg	Al	C I	NO ₃	SO ₄
高鍋	4月												
	5月	303	5.19	1.94	3.81	7.81	0.28	4.05	1.55		6.27	2.12	10.10
	6月	504	4.70	10.03	6.87	12.61	0.17	1.35	1.98		14.16	3.80	20.22
	7月	218.9	4.72	4.15	13.53	5.34	0.56	2.45	3.37		19.77	1.82	9.96
	8月	305.9	4.93	3.60	32.89	1.48	0.47	2.04	7.35		38.74	2.08	9.29
	9月	253.9	4.86	3.52	58.70	4.01	1.27	4.48	12.94		86.96	2.52	14.17
	10月	97.1	5.59	0.25	2.34	2.40	0.11	1.18	0.72		3.06	0.70	3.09
	11月	86.7	5.32	0.42	6.18	5.34	0.34	1.81	1.70		8.10	1.81	4.81
	12月	100.4	4.80	1.59	4.25	4.45	0.07	1.32	1.10		6.16	1.30	4.97
	1月	24.5	4.29	1.27	0.58	2.25	0.06	0.91	0.29		1.41	0.73	3.60
	2月	29.7	4.32	1.42	0.84	2.57	0.11	1.71	0.46		2.94	0.75	3.61
	3月	317	4.48	10.41	6.83	14.01	0.29	3.50	2.19		11.61	5.62	21.46
	年合計	2241.1	38.62	136.82	62.27	3.74	24.78	33.67		199.18	23.26	105.27
													3.29

集計表 降下量 meq/m²

採取地点	採取月	雨量 (mm)	pH	降下量 meq/m ²									
				H	Na	NH ₄	K	Ca	Mg	Al	C I	NO ₃	SO ₄
衛環研	4月												
	5月	365.6	4.54	10.46	7.02	6.76	0.20	3.20	2.15	0.71	12.02	4.21	15.79
	6月	378.5	4.32	17.94	2.26	3.91	0.17	3.70	1.07	3.16	11.15	2.81	18.41
	7月	194.7	4.52	5.88	19.50	1.89	0.57	7.19	4.72	1.73	26.14	1.27	10.71
	8月	145	5.05	1.31	34.41	0.80	1.02	4.83	8.66	0.21	36.93	1.14	7.61
	9月	386.5	4.75	6.81	36.97	2.09	0.52	2.68	9.14	0.68	48.13	2.74	13.03
	10月	132.3	4.73	2.44	5.89	1.26	0.24	0.71	1.47	0.37	7.60	1.71	3.91
	11月	53.4	4.95	0.60	5.11	0.24	0.15	0.66	1.36	0.19	6.77	0.65	1.44
	12月	157.4	4.53	4.69	8.55	1.90	0.18	2.24	2.32	0.77	11.52	3.01	6.90
	1月	45.9	4.41	1.80	1.54	0.78	0.08	1.61	1.35	0.71	2.74	0.55	4.18
	2月	47.7	4.63	1.13	1.40	1.01	0.11	1.16	0.60	0.45	2.82	0.87	2.88
	3月	329.3	4.19	21.13	12.35	6.48	0.55	8.30	3.77	2.52	22.77	7.20	23.02
	年合計	2236.3	74.19	134.98	27.13	3.79	36.27	36.61	11.50	188.60	26.17	107.88
													4.05

Table 2-2 Monthly and total amount of ion precipitation at each sampling point

集計表 降下量 meq/m²

採取地点	採取月	雨量 (mm)	pH	降下量 meq/m ²										
				H	Na	NH ₄	K	Ca	Mg	Al	C1	NO ₃	SO ₄	F
鰐塚山	4月													
	5月	343.7	4.39	14.02	1.79	5.02	0.13	3.24	0.84	1.57	9.31	2.66	15.19	0.45
	6月	304.7	4.24	17.46	1.42	4.24	0.32	3.61	0.89	12.82	14.63	1.62	19.40	2.81
	7月	338.9	4.35	14.99	20.69	4.23	0.77	10.45	3.81	18.92	36.61	2.44	22.68	4.02
	8月	368.7	4.75	3.50	21.65	2.67	1.19	3.62	5.39	2.89	26.04	2.47	11.04	
	9月	72.8	5.03	0.68	0.54		0.06	0.29	0.12	0.66	0.86		1.04	
	10月	127.7	4.47	4.28	1.61		0.00	1.07	0.38	2.91	3.80	0.06	4.06	
	11月	60.8	5.14	0.44	3.96		0.01	0.21	1.80	1.15	2.06	5.82	0.01	2.87
	12月	141	4.60	3.52	4.85		0.36	0.20	2.87	1.29	5.46	7.50	0.66	6.59
	1月	52.6	4.45	1.85	1.90		0.19	0.12	2.77	0.60	1.14	3.78	0.25	5.22
	2月	45.7	4.43	1.70	2.09		0.96	0.18	2.96	0.84	1.21	5.60	1.00	4.94
	3月	340.8	4.16	23.73	2.71		3.33	0.44	4.92	1.12	4.59	14.34	3.52	18.07
	年合計	2197.4		89.17	63.22		21.01	3.60	37.60	16.42	54.24	128.32	14.68	111.12
														13.18

集計表 降下量 meq/m²

採取地点	採取月	雨量 (mm)	pH	降下量 meq/m ²										
				H	Na	NH ₄	K	Ca	Mg	Al	C1	NO ₃	SO ₄	F
小林	4月													
	5月	306.2	4.67	6.48	1.11	6.59	0.28	1.69	0.70		4.73	2.33	11.58	
	6月	464.8	4.57	12.37	1.87	6.44	0.16	0.48	0.88		8.38	2.24	13.65	0.09
	7月	447.4	4.52	13.39	11.07	3.91	0.15	1.53	2.23		17.45	1.39	9.17	1.42
	8月	245.2	4.87	3.28	15.71	1.44	0.05	1.47	2.63		4.04	1.03	7.66	
	9月	221.6	4.31	10.76	15.87	2.80	0.41	2.24	4.13		26.78	1.19	11.18	1.80
	10月	221.5	4.67	4.71	1.45	0.50		1.07	0.48		4.53	0.37	2.80	0.36
	11月	2.6	5.12	0.02	0.24	0.35	0.03	0.50	0.11		0.58	0.14	0.54	0.11
	12月	141.6	4.56	3.86	3.11	4.47	0.11	2.54	1.01		6.55	1.34	7.46	1.18
	1月	42.4	4.33	1.97	1.73	2.48	0.15	1.56	0.58		2.32	0.74	4.02	0.45
	2月	69.3	4.51	2.12	1.90	2.80	0.10	2.48	0.80		4.38	1.23	4.74	0.52
	3月	554.9	4.33	25.96	2.33	10.81	0.14	5.13	1.47		12.79	6.76	26.81	3.07
	年合計	2717.5		84.91	56.39	42.58	1.58	20.70	15.02		102.54	18.75	99.61	9.00

集計表 降下量 meq/m²

採取地点	採取月	雨量 (mm)	pH	降下量 meq/m ²										
				H	Na	NH ₄	K	Ca	Mg	Al	C1	NO ₃	SO ₄	F
都城	4月													
	5月	285	4.31	14.11	1.51	9.94	0.32	4.03	0.93	3.09	14.45	2.79	19.08	2.76
	6月	441.6	4.25	24.90	3.51	15.82	0.22	3.29	0.83	25.93	29.32	3.33	28.19	5.55
	7月	314.9	4.49	10.22	11.56	9.88	3.73	3.37	2.55	16.35	27.30	2.35	18.53	3.50
	8月	372.6	4.57	10.02	17.32	8.36	1.14	4.36	4.96	1.82	22.89	3.88	19.24	
	9月	158.9	4.62	3.80	11.11	2.84	0.43	2.16	2.34	1.26	14.93	0.96	7.92	0.52
	10月	128.5	4.96	1.40	1.33	2.30	0.17	1.32	0.50	0.95	2.68	0.71	4.69	0.16
	11月	57.8	5.73	0.11	1.68	4.90	0.11	1.45	0.52	1.28	3.85	0.93	4.74	0.62
	12月	80.6	4.44	2.92	1.76	6.15	0.03	1.94	0.56	3.74	7.38	0.84	6.37	1.48
	1月	37.8	4.22	2.27	1.84	1.82	0.15	1.94	0.70	1.88	5.17	0.52	8.54	1.19
	2月	57.8	4.46	1.99	1.55	0.68	0.09	1.82	0.56	0.57	3.13	0.33	3.89	0.48
	3月	248.5	4.07	21.14	2.20	5.07	0.30	4.94	0.88	7.02	23.95	3.13	17.04	5.13
	年合計	2184		92.89	55.37	67.74	6.69	41.61	15.34	63.89	155.07	19.80	138.22	21.39

集計表 降下量 meq/m²

採取地点	採取月	雨量 (mm)	pH	降下量 meq/m ²										
				H	Na	NH ₄	K	Ca	Mg	Al	C1	NO ₃	SO ₄	F
日南	4月													
	5月	316.1	4.81	4.87	12.28	4.29	0.92	10.40	6.21		12.04	3.86	17.91	
	6月	328.8	4.41	12.88	6.75	5.03	0.27	2.89	1.81		14.63	2.80	15.23	0.70
	7月	199.5	4.60	5.06	15.04	1.04	0.47	3.44	3.82		21.83	0.87	10.70	0.88
	8月	159.2	4.42	6.04	2.21	0.97	0.12	1.27	0.65		3.14	1.03	4.63	
	9月	263.8	5.27	1.42	51.00	0.08	1.17	3.19	11.62		66.90	0.81	10.46	
	10月	126	5.05	1.12	4.50	0.13	0.08	1.22	1.19		5.67	0.26	3.07	
	11月	89.6	4.69	1.81	6.96	0.09	0.17	3.09	1.96		9.20	0.64	3.82	0.44
	12月	38.3	4.94	0.44	3.83		0.05	1.43	1.26		5.18	0.03	2.15	0.22
	1月	39	4.58	1.02	1.28	0.20	0.03	2.08	0.44		2.14	0.39	3.30	0.36
	2月	40.2	4.77	0.69	1.32	0.07	0.04	1.15	0.50		2.12	0.17	1.67	0.08
	3月	281.7	4.61	6.92	5.91	1.61	0.19	6.90	2.20		12.61	2.99	19.21	1.97
	年合計	1882.2		42.26	111.09	13.51	3.50	37.07	31.66		155.46	13.84	92.13	4.64

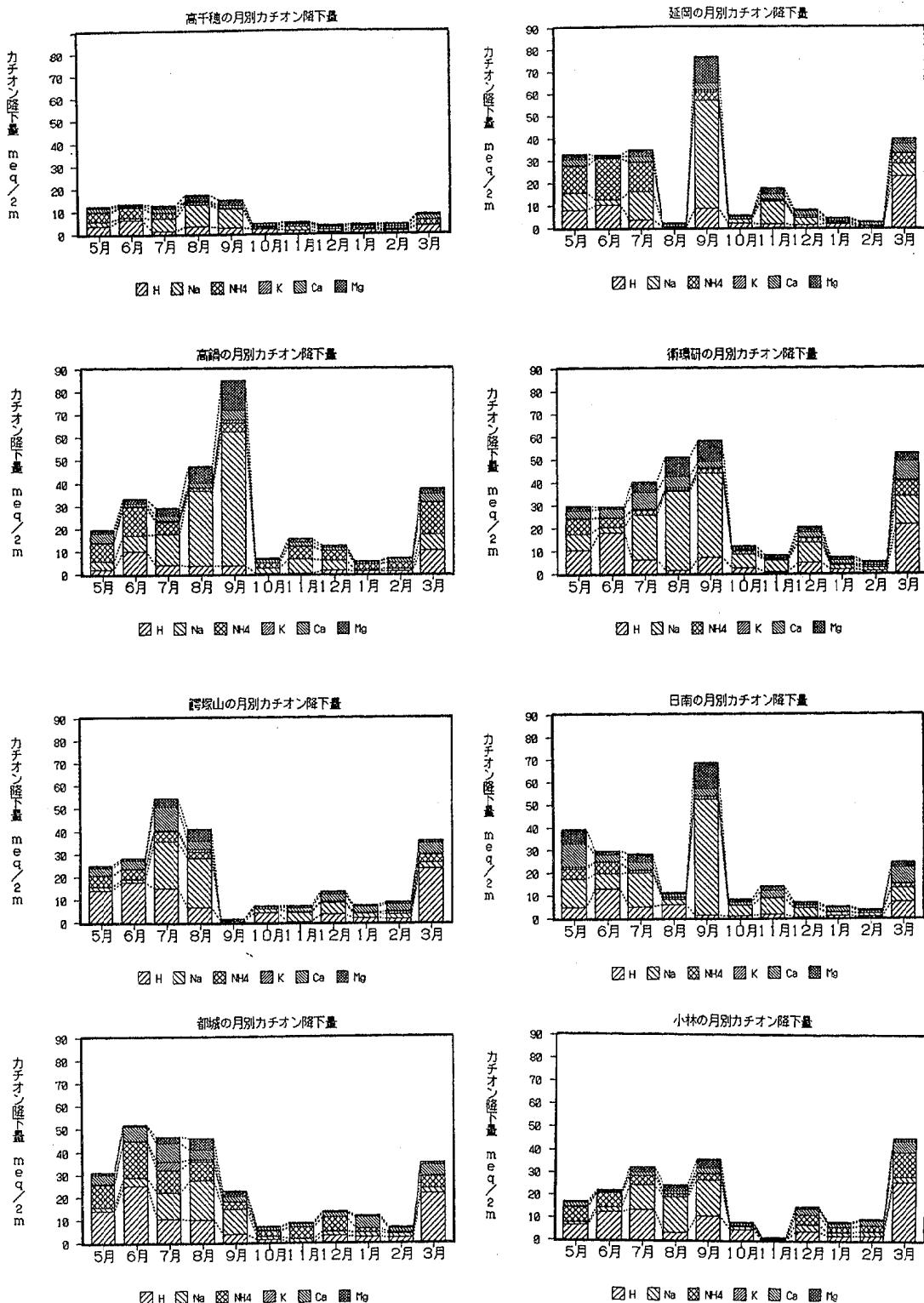


Fig.3-1 Monthly change in the amount of cation precipitation at each sampling point

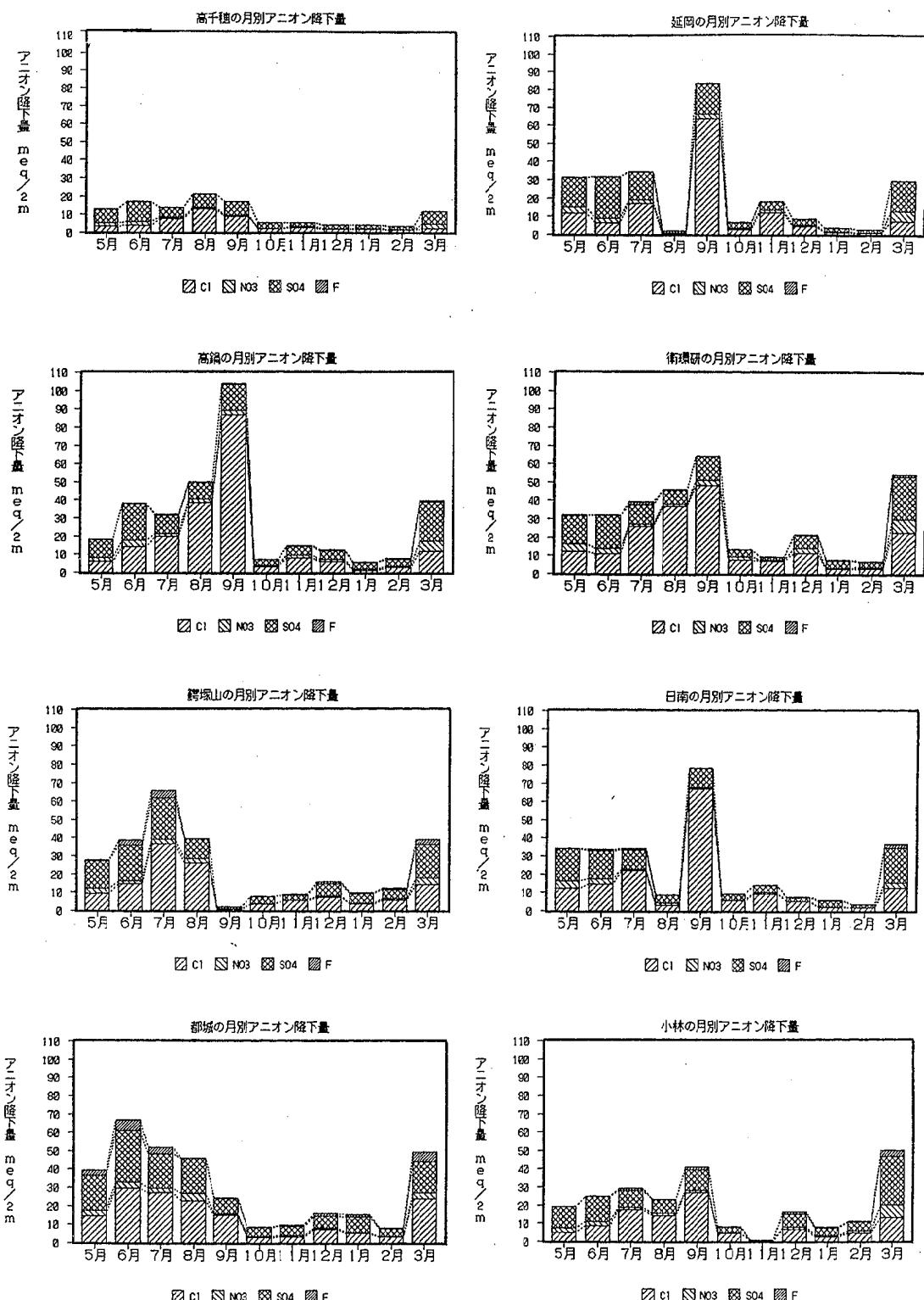


Fig.3-2 Monthly change in the amount of anion precipitation at each sampling point

Table 3 Percentage of rainfall and ion precipitation of each sampling point (%)

	降雨量	Hイオン	Naイオン	NH ₄ イオン	Kイオン	Caイオン	Mgイオン	Clイオン	NO ₃ イオン	SO ₄ イオン	Fイオン
高千穂	11.8	5.2	4.6	5.9	6.8	5.3	5.0	4.1	7.7	6.9	0.8
延岡	12.2	11.9	13.6	18.1	10.2	9.0	13.5	11.6	13.4	12.7	1.8
高鍋	12.7	7.6	20.1	20.2	13.5	10.7	18.5	18.1	15.7	12.9	5.8
衛環研	12.6	14.6	19.8	8.8	13.7	15.7	20.1	17.1	17.7	13.3	7.1
鰐塚山	12.4	17.5	9.3	6.8	13.0	16.3	9.0	11.6	9.9	13.7	23.1
小林	15.3	16.7	8.3	13.8	5.7	9.0	8.2	9.3	12.7	12.2	15.8
都城	12.3	18.3	8.1	22.0	24.3	18.0	8.4	14.1	13.4	17.0	37.5
日南	10.6	8.3	16.3	4.4	12.7	16.0	17.4	14.1	9.4	11.3	8.1

pH値として表示すると数値としては大きな差とはならない。これは、各地点のpHの年間平均値が4.37～4.90の範囲内にあることからもわかる。

NaイオンとMgイオンについては、延岡、高鍋、衛環研、日南がいずれも10%を超えており、これら以外の地点では10%を下回っている。両イオンのはほとんどが海塩由来であること、降水量の割合が非常に類似していること等を考えると両地域の差は、沿岸部と内陸山間部との違いとして理解することができる。

アニオンについては、Fイオンの降水量割合が鰐塚山頂、都城、小林の3地域で約8割近くを占めている。F化合物については、火山性ガスに由来することがすでに指摘されているところであるが、当地域が鹿児島県の桜島火山の北東部の比較的近距離に位置していることを考えると、火山性ガスによるものと考えてよいであろう。

今後、県内の酸性雨の実態を把握するためには、観測地点の変更及び他の共存イオンの分析等も必要になるものと考えられる。

謝 詞

この調査を実施するに当たり、試料の採取および搬入について関係保健所の各担当者の方に御協力いただきましたことに感謝申し上げます。

文 献

- 1) 川井田哲郎、斎藤信弘、藤田芳和、宮崎県における酸性雨調査、宮崎県衛生環境研究所年報、2, 86-98, 1990
- 2) 環境庁大気保全局、酸性雨等調査マニュアル（改訂版）、1990

資料

高千穂 平成3年度

1) 測定データ

月	採取日	雨量(mm)	E. C	pH	測定データ mg/1									
					SO ₄	NO ₃	C 1	F	NH ₄	Na	K	Ca	Mg	A 1
5月	5.13	41.90	15.95	5.44	1.70	0.75	0.98		0.25	0.47	0.10	0.52	0.09	
	5.29	177.70	20.70	4.69	1.70	0.46	0.42		0.33	0.13	0.04	0.08	0.02	
6月	6.10	37.30	26.45	4.72	3.60	1.00	0.68		1.00	0.24	0.20	0.36	0.06	
	6.25	404.40	13.45	4.87	0.98	0.21	0.27		0.10	0.03	0.01	0.00	0.01	
7月	7.20	43.90	15.00	5.89	1.10	0.39	0.40		0.22	0.14	0.05	0.30	0.03	
	8.5	147.90	14.80	5.03	1.40	0.29	1.60		0.22	0.85	0.05	0.12	0.10	
8月	8.19	33.50	14.25	4.80	1.80	0.36	0.47		0.36	0.07		0.20	0.01	
	9.2	307.90	12.55	5.06	0.95	0.14	1.40		0.02	0.72	0.04	0.03	0.09	
9月	9.17	93.60	19.10	4.71	1.90	0.17	0.20		0.01	0.51	0.03	0.16	0.08	
	9.30	254.80	9.70	5.56	0.65	0.10	1.10			0.55	0.04	0.05	0.08	
10月	10.14	121.30	8.35	4.97	0.78	0.06	0.34		0.04	0.03	0.02	0.05	0.02	
	10.28	15.60	35.25	4.37	3.70		1.90	0.09	0.30	0.70	0.10	0.69	0.08	
11月	11.11	21.70	19.00	4.67	1.70	1.10	2.30		0.17	1.20	0.05	0.17	0.14	
	12.9	37.30	26.60	4.64	1.80	0.88	0.87	0.08	0.34	0.27	0.02	0.30	0.06	
12月	12.24	9.00	46.60	4.60	6.10	1.50	3.00	0.13	1.20	1.20	0.30	1.00	0.22	
	1.7	20.80	22.55	4.78	1.70	0.68	1.20		0.38	0.41	0.01	0.12	0.05	
1月	1.20	15.30	40.30	4.17	3.20	0.78	1.50	0.09	0.41	0.24	0.03	0.31	0.06	
	2.3	18.20	29.40	4.78	2.90	1.30	1.80		0.49	0.76	0.08	0.64	0.12	
2月	2.17	17.60	14.25	4.94	0.69	0.64	0.70	0.07	0.26	0.21	0.04	0.36	0.06	
	3.2	38.10	11.30	4.64	1.50	0.61	0.64	0.01	0.37	0.27	0.03	0.41	0.06	
3月	3.16	82.00	16.20	4.64	1.80	0.79	0.47		0.23	0.08	0.03	0.25	0.04	
	3.30	149.60	12.20	5.12	1.20	0.60	0.25		0.15	0.02	0.00	0.13	0.02	
合計		2089.70			2700.8	708.5	1624.1	8.6	327.9	721.3	73.0	247.2	110.3	
平均					4.90	1.29	0.34	0.78	0.00	0.16	0.35	0.03	0.12	0.05

延岡 平成3年度

1) 測定データ

月	採取日	雨量(mm)	E. C	pH	測定データ mg/1									
					SO ₄	NO ₃	C 1	F	NH ₄	Na	K	Ca	Mg	A 1
5月	5.13	126.20	21.35	5.20	1.90	0.40	2.10		0.58	1.00	0.03	0.21	0.15	
	5.29	177.70	29.50	4.40	3.10	0.86	0.86		0.81	0.26	0.05	0.15	0.05	
6月	6.10	56.90	42.45	4.60	6.10	0.94	1.80		2.30	0.82	0.09	0.17	0.07	
	6.24	278.80	25.75	4.50	2.70	0.33	0.44		0.71	0.02	0.01	0.02	0.01	
7月	7.8	99.70	16.65	4.80	3.30	0.51	0.59		1.20	0.18	0.01	0.08	0.02	
	7.22	18.80	39.75	4.40	6.50	1.20	2.50	0.30	2.30	0.38	0.13	0.62	0.08	
8月	8.5	187.20	16.45	5.20	1.50	0.28	2.70		0.38	1.40	0.07	0.14	0.18	
	8.19	23.40	15.90	5.10	2.90	0.59	0.84		0.84	0.36	0.04	0.26	0.09	
9月	9.17	288.90	15.10	4.90	1.20	0.27	1.90		0.12	0.97	0.04	0.07	0.12	
	9.30	199.30	42.85	4.60	2.40	0.33	8.60		0.15	4.20	0.17	0.20	0.55	
10月	10.14	90.40	4.64	5.00	0.46					0.02		0.01		
	10.29	26.00	44.60	4.34	3.50	1.60	3.90	0.17	0.29	1.50	0.11	0.73	0.26	
11月	11.11	119.60	21.55	4.90	1.20	0.46	3.30		0.07	1.80	0.05	0.16	0.23	
	12.9	26.90	19.50	5.02	2.30	1.30	1.40	0.08	0.14	0.60	0.07	0.96	0.13	
12月	12.24	12.70	39.80	5.06	4.20	1.50	4.70	0.20	0.84	1.90	0.17	1.60	0.33	
	1.6	46.80	23.95	4.56	2.00	0.66	2.00		0.20	0.91	0.04	0.37	0.12	
1月	1.20	17.00	24.60	4.42	2.30	0.38	1.10	0.08	0.28	0.38		0.31	0.06	
	2.3	17.60	36.50	4.31	3.60	1.60	1.60	0.10	0.31	0.61	0.06	0.89	0.11	
2月	2.17	12.00	20.35	5.07	3.30	0.89	1.30	0.10	0.36	0.46	0.11	1.20	0.14	
	3.2	11.60	18.60	5.66	3.20	0.73	1.20	0.07	0.40	0.54	0.08	1.30	0.15	
3月	3.16	105.70	29.20	3.89	3.10	1.30	1.40		0.33	0.54	0.04	0.37	0.11	
	3.30	221.60	29.95	4.37	2.10	1.00	0.48		0.21	0.33	0.02	0.20	0.07	
合計		2164.80			4972.5	1226.5	4554.5	19.9	1004.5	2135.7	110.2	416.7	299.3	
平均					4.56	2.30	0.57	2.10	0.01	0.46	0.99	0.05	0.19	0.14

高鍋 平成3年度

1) 測定データ

月	採取日	雨量(mm)	E. C	pH	測定データ mg/l									
					SO ₄	NO ₃	C1	F	NH ₄	Na	K	Ca	Mg	A1
5月	5.13	97.90	16.30	5.91	1.40	0.38	1.50		0.43	0.77	0.05	0.35	0.13	
	5.29	205.10	14.00	5.05	1.70	0.46	0.37		0.48	0.06	0.03	0.23	0.03	
6月	6.10	170.40	16.35	5.20	1.40	0.60	1.60		0.51	0.81	0.04	0.10	0.14	
	6.24	333.60	21.05	4.57	2.20	0.40	0.69		0.42	0.06		0.03	0.00	
7月	7. 8	111.50	17.45	4.81	2.00	0.49	0.73		0.52	0.18	0.02	0.13	0.02	
	7.22	30.60	29.40	4.29	3.10	0.80	1.20	0.15	0.57	0.23	0.11	0.28	0.04	
	8. 5	76.80	35.90	4.95	2.10	0.44	7.60		0.27	3.70	0.21	0.34	0.49	
8月	8.19	61.80	10.60	4.85	1.70	0.55	0.53		0.43	0.39	0.02	0.07	0.03	
	9. 2	244.10	28.55	4.95	1.40	0.39	5.50			3.00	0.07	0.15	0.36	
9月	9.17	111.80	23.35	4.82	1.90	0.75	2.70	0.10	0.29	1.40	0.09	0.22	0.23	
	9.30	142.10	76.90	4.89	3.30	0.51	19.80		0.28	8.40	0.28	0.46	0.93	
10月	10.14	62.10	7.21	5.62	1.10	0.25	0.51		0.24	0.19	0.02	0.14	0.04	
	10.28	35.00	19.80	5.53	2.30	0.79	2.20	0.10	0.81	1.20	0.09	0.43	0.18	
11月	11.11	51.70	23.15	5.55	1.70	0.75	3.80	0.09	0.98	1.80	0.08	0.25	0.26	
	12. 9	35.00	33.85	5.11	4.10	2.10	2.80	0.15	1.30	1.40	0.26	0.67	0.21	
12月	12.24	28.20	39.40	5.36	3.10	1.10	3.40	0.14	1.20	1.60	0.10	0.53	0.22	
	1. 6	72.20	22.05	4.69	2.10	0.69	1.70	0.08	0.64	0.73		0.16	0.10	
1月	1.21	12.10	51.20	4.13	5.70	1.90	2.60	0.16	1.30	0.54	0.10	0.72	0.13	
	2. 3	12.40	43.25	4.52	8.40	1.80	1.50	0.10	2.00	0.54	0.08	0.77	0.16	
2月	2.17	20.50	47.15	4.17	4.70	1.10	3.70	0.22	1.00	0.56	0.11	1.00	0.16	
	3. 2	9.20	43.45	5.37	8.40	2.60	3.10	0.19	2.80	0.86	0.23	1.50	0.26	
3月	3.16	140.10	25.05	4.56	3.20	1.10	1.30		0.84	0.54	0.03	0.25	0.09	
	3.30	176.90	29.30	4.43	3.30	1.10	1.30	0.08	0.76	0.46	0.04	0.20	0.08	
合計		2241.10			5063.6	1442.4	7071.0	62.5	1120.9	3146.9	146.1	498.1	410.7	
平均					4.76	2.26	0.64	3.16	0.08	0.50	1.40	0.07	0.22	0.18

衛環研 平成3年度

1) 測定データ

月	採取日	雨量(mm)	E. C	pH	測定データ mg/l										
					SO ₄	NO ₃	C1	F	NH ₄	Na	K	Ca	Mg	A1	
5月	5.13	82.60	28.15	4.59	2.00	0.59	2.70		0.24	1.20	0.06	0.30	0.18	0.03	
	5.28	289.00	22.40	4.53	2.10	0.75	0.72		0.36	0.22	0.01	0.14	0.04	0.02	
6月	6.10	86.70	21.70	4.46	1.80	0.43	1.20		0.24	0.33	0.01	0.15	0.05	0.04	
	6.24	291.80	30.30	4.29	2.50	0.47	1.00		0.17	0.08	0.02	0.21	0.03	0.09	
7月	7. 8	86.70	32.10	4.28	3.00	0.31	1.40	0.23	0.12	0.31	0.03	0.36	0.04	0.12	
	7.22	18.50	49.35	4.42	4.60	1.20	2.00	0.39	0.65	0.54	0.15	0.32	0.12	0.21	
	8. 5	89.50	41.10	5.15	1.90	0.33	8.60		0.13	4.60	0.19	1.20	0.58	0.02	
8月	8.19	33.80	24.10	4.88	2.60	1.40	2.60		0.36	1.70	0.19	0.80	0.23	0.03	
	9. 2	111.20	58.90	5.11	2.50	0.21	11.00		0.02	6.60	0.30	0.63	0.88	0.01	
9月	9.17	138.10	17.15	4.96	1.30	0.62	2.30		0.20	1.30	0.04	0.12	0.16	0.01	
	9.30	248.40	31.50	4.67	1.80	0.34	5.60		0.04	2.70	0.06	0.15	0.36	0.02	
10月	10.14	79.40	15.75	4.69	1.30	0.60	1.00		0.12	0.44	0.11	0.10	0.06	0.03	
	10.28	52.90	29.55	4.81	1.60	1.10	3.60		0.25	1.90	0.01	0.12	0.25	0.01	
11月	11.11	53.40	27.70	4.95	1.30	0.76	4.50		0.08	2.20	0.11	0.25	0.31	0.03	
12月	12. 9	30.30	42.75	4.38	3.20	3.40	3.30	0.12	0.81	1.70	0.13	0.57	0.26	0.07	
	12.24	39.00	22.25	5.01	1.50		3.40			1.80	0.01	0.28	0.23	0.02	
	1. 6	88.10	28.85	4.46	2.00	0.95	2.00	0.08	0.11	0.85	0.03	0.19	0.13	0.05	
1月	1.20	17.60	29.95	5.25	2.10		1.50	0.11	0.03	0.35		0.41	0.10	0.07	
	2. 3	28.30	44.05	4.22	5.80	1.20	2.50	0.21	0.48	1.03	0.11	0.89	0.52	0.19	
2月	2.17	26.00	30.60	4.56	3.00	1.00	2.10	0.11	0.31	0.63	0.08	0.66	0.14	0.08	
	3. 2	21.70	26.50	4.72	2.80	1.30	2.10	0.14	0.47	0.73	0.11	0.28	0.17	0.09	
3月	3.16	158.90	34.25	4.48	3.00	1.20	2.30	0.02	0.38	0.94	0.06	0.76	0.15	0.05	
	3.30	170.40	51.55	4.03	3.70	1.50	2.60	0.13	0.33	0.79	0.07	0.27	0.13	0.09	
合計		2236.30			5188.8	1622.4	6695.2	76.9	488.4	3104.5	148.2	729.1	446.7	103.5	
平均					4.48	2.32	0.73	2.99	0.08	0.22	1.39	0.07	0.33	0.20	0.05

鶴塚山 平成3年度

1) 測定データ

月	採取日	雨量(mm)	E. C	pH	測定データ mg/l										
					SO ₄	NO ₃	C 1	F	NH ₄	Na	K	Ca	Mg	A 1	
5月	5.13	85.50	27.15	4.45	1.90	0.45	1.60	0.10	0.12	0.36	0.03	0.37	0.06	0.05	
	5.31	258.20	26.30	4.37	2.20	0.49	0.75		0.31	0.04	0.01	0.18	0.02	0.04	
6月	6.10	33.20	102.00	3.77	9.30	1.30	4.20	0.38	1.40	0.33	0.13	0.96	0.08	0.41	
	6.25	271.50	30.40	4.36	2.30	0.21	1.40	0.15	0.11	0.08	0.03	0.15	0.03	0.38	
7月	7. 8	151.70	49.00	4.14	3.80	0.51	3.30	0.32	0.18	0.65	0.07	0.76	0.11	0.71	
	7.22	42.80	55.00	4.22	4.60	0.71	4.50	0.65	0.50	0.72	0.08	1.10	0.29	0.83	
8月	8. 5	144.40	26.80	5.00	2.20	0.30	4.20		0.19	2.40	0.11	0.33	0.12	0.19	
	8.19	88.70	25.90	4.45	2.20	0.97	1.90		0.32	0.88	0.05	0.19	0.11	0.23	
9月	9. 2	280.00	18.52	4.92	1.20	0.24	2.70		0.07	1.50	0.15	0.20	0.20	0.02	
	9.21	72.80	6.65	5.03	0.69		0.42			0.17	0.03	0.08	0.02	0.08	
10月	10.14	83.20	20.05	4.35	1.60		0.98			0.12		0.14	0.01	0.17	
	10.29	44.50	14.20	4.89	1.40	0.08	1.20			0.61	0.00	0.22	0.09	0.26	
11月	11.11	58.60	22.25	5.15	1.70		3.10	0.14		1.40	0.13	0.41	0.21	0.29	
	11.25	2.20	83.50	4.95	17.50	0.17	11.40	1.50	0.10	4.10	0.26	5.54	0.79	0.83	
12月	12. 9	36.10	21.20	5.36	2.40		1.90	0.12		1.10	0.09	0.54	0.16	0.26	
	12.24	34.10	32.30	4.57	2.60	1.20	3.10	0.17	0.13	1.40	0.13	0.54	0.19	0.40	
1月	1. 6	70.80	24.25	4.46	2.00		1.30	0.16	0.03	0.34		0.28	0.05	0.37	
	1.20	21.70	43.00	4.66	3.60	0.62	2.20	0.18	0.13	0.45	0.01	0.71	0.08	0.16	
2月	2. 3	30.90	42.35	4.35	5.60	0.07	2.80	0.24	0.02	1.10	0.14	1.30	0.18	0.22	
	2.17	14.40	38.50	4.53	3.90	1.50	3.60	0.17	0.09	1.04	0.11	1.30	0.23	0.11	
3月	3. 2	31.30	53.85	4.39	5.80	1.30	4.70	0.31	0.51	1.06	0.17	1.30	0.22	0.30	
	3.16	121.30	21.20	4.51	2.10	0.64	0.76	0.08	0.15	0.17	0.05	0.29	0.04	0.06	
	3.30	219.50	44.40	4.04	2.80	0.64	1.90	0.21	0.19	0.19	0.05	0.29	0.04	0.15	
	合計		2197.40			5344.7	910.4	4555.3	250.5	378.1	1454.1	140.6	735.7	200.3	488.2
平均					4.39	2.43	0.41	2.07	0.11	0.17	0.66	0.06	0.34	0.09	0.22

日 南 平成3年度

1) 測定データ

月	採取日	雨量(mm)	E. C	pH	測定データ mg/l										
					SO ₄	NO ₃	C 1	F	NH ₄	Na	K	Ca	Mg	A 1	
5月	5.13	128.80	31.00	6.33	3.20	0.90	2.30		0.12	1.80	0.25	1.10	0.53		
	5.28	187.30	21.50	4.59	2.40	0.66	0.70		0.33	0.27	0.02	0.36	0.04		
6月	6.10	102.00	41.70	4.42	3.40	0.88	3.00	0.13	0.62	1.10	0.06	0.37	0.15		
	6.24	226.80	16.50	4.40	1.70	0.37	0.94		0.12	0.19	0.02	0.09	0.03		
7月	7. 8	127.40	28.70	4.60	2.00	0.21	0.92		0.11	0.29	0.03	0.11	0.05		
	7.22	12.90	74.45	3.89	8.20	1.00	5.10	0.83	0.32	1.00	0.22	1.80	0.18		
8月	8. 5	59.20	40.35	5.45	2.60	0.24	10.00	0.10	0.01	5.00	0.20	0.54	0.64		
	8.19	159.20	12.50	4.42	1.40	0.40	0.70		0.11	0.32	0.03	0.16	0.05		
9月	9.17	138.70	11.95	5.47	0.92	0.18	1.70		0.01	0.88	0.04	0.12	0.12		
	9.30	125.10	75.10	5.12	3.00	0.20	17.10			8.40	0.32	0.38	1.00		
10月	10.14	76.30	8.27	5.06	0.83		0.62		0.03	0.25		0.10	0.04		
	10.28	49.70	21.55	5.04	1.70	0.32	3.10			1.70	0.06	0.34	0.23		
11月	11.11	65.60	29.25	4.80	1.70	0.31	4.10	0.09		2.00	0.08	0.36	0.28		
	12. 9	24.00	22.80	4.49	3.00	0.81	2.40	0.10	0.07	1.20	0.06	1.60	0.23		
12月	12.24	38.30	32.50	4.94	2.70	0.05	4.80	0.11		2.30	0.05	0.75	0.40		
1月	1.20	16.60	22.30	4.95	2.40	0.43	1.20	0.10	0.00	0.52		0.77	0.11		
	2. 3	22.40	53.25	4.43	5.30	0.75	2.50	0.23	0.16	0.93	0.05	1.30	0.16		
2月	2.17	18.80	19.55	5.10	2.10	0.05	2.30	0.08	0.01	0.88	0.04	0.84	0.19		
	3. 2	21.40	35.30	4.60	1.90	0.44	1.50		0.05	0.65	0.03	0.34	0.12		
3月	3.16	106.90	21.05	4.78	3.90	0.10	1.90	0.22	0.01	0.52	0.02	0.84	0.12		
	3.30	174.80	29.95	4.53	2.90	1.00	1.40	0.08	0.16	0.46	0.03	0.28	0.08		
合計			1882.20			4431.6	858.1	5518.8	88.2	243.3	2555.0	136.9	745.1	386.2	
平均					4.65	2.35	0.46	2.93	0.05	0.13	1.36	0.07	0.40	0.21	

都城 平成3年度

1) 測定データ

月	採取日	雨量(mm)	E. C	pH	測定データ mg/1										
					SO ₄	NO ₃	C I	F	NH ₄	Na	K	Ca	Mg	A1	
5月	5.13	57.00	63.10	4.09	2.90	0.68	4.60	0.44	0.78	0.45	0.10	0.50	0.08	0.24	
	5.28	228.00	34.70	4.38	3.30	0.59	1.10	0.12	0.59	0.04	0.03	0.23	0.03	0.06	
6月	6.10	43.00	70.20	4.15	6.50	1.10	3.30	0.32	1.80	0.21	0.11	0.53	0.05	0.33	
	6.24	398.60	41.05	4.26	2.70	0.40	2.30	0.23	0.52	0.18	0.01	0.26	0.02	0.55	
7月	7. 8	153.10	43.60	4.20	3.20	0.41	3.50	0.40	0.47	0.52	0.06	0.53	0.06	0.86	
	7.22	11.60	36.85	4.47	4.80	0.70	2.40	0.46	1.10	0.52	0.14	0.90	0.08	0.92	
	8. 5	150.20	20.45	5.91	2.30	0.50	2.70		0.62	1.20	0.90	0.51	0.14	0.03	
8月	8.19	153.10	23.60	4.20	1.60	0.44	3.30		0.71	0.58	0.09	0.30	0.08	0.09	
	9. 2	219.50	21.70	5.76	3.10	0.79	1.40		0.19	1.41	0.14	0.19	0.22	0.01	
9月	9.17	60.70	14.95	5.94	1.10	0.29	2.10		0.21	0.91	0.08	0.23	0.13	0.03	
	9.30	98.20	41.15	4.42	3.20	0.43	4.10	0.10	0.39	2.04	0.12	0.30	0.21	0.10	
10月	10.14	101.10	12.85	4.95	1.50	0.24	0.59		0.23	0.17	0.04	0.14	0.03	0.06	
	10.28	27.40	20.45	5.01	2.70	0.73	1.30	0.11	0.66	0.49	0.10	0.45	0.11	0.08	
11月	11.11	31.80	20.85	5.58	3.00	0.84	2.60	0.25	1.30	0.75	0.07	0.59	0.11	0.28	
	12. 9	26.00	29.90	6.02	5.10	1.20	1.40	0.15	1.80	0.57	0.08	0.40	0.11	0.10	
12月	12.24	19.10	84.20	4.29	8.00	1.30	7.60	0.67	2.90	1.60	0.07	1.20	0.23	0.73	
	1. 6	61.50	32.55	4.50	2.50	0.44	1.90	0.25	0.90	0.16		0.26	0.04	0.32	
1月	1.20	17.30	51.80	4.26	4.90	0.80	2.90	0.34	0.59	0.55		1.00	0.10	0.22	
	2. 3	20.50	98.75	4.19	15.90	0.91	6.50	0.82	1.10	1.60	0.29	4.00	0.33	0.64	
2月	2.17	26.00	33.50	4.29	3.90	0.48	2.20	0.14	0.35	0.69	0.07	0.60	0.13	0.09	
	3. 2	31.80	22.40	4.68	2.70	0.26	1.70	0.17	0.10	0.56	0.05	0.66	0.11	0.09	
3月	3.16	83.80	28.55	4.43	2.90	0.78	1.50	0.16	0.42	0.23	0.04	0.36	0.05	0.10	
	3.30	164.70	63.85	3.96	3.50	0.78	4.40	0.51	0.34	0.19	0.05	0.42	0.04	0.34	
合計		2184.00			6648.5	1227.8	5504.9	406.5	1219.4	1273.6	261.8	836.4	187.1	575.0	
平均					4.37	3.04	0.56	2.52	0.19	0.56	0.58	0.12	0.38	0.09	0.26

小林 平成3年度

1) 測定データ

月	採取日	雨量(mm)	E. C	pH	測定データ mg/1									
					SO ₄	NO ₃	C I	F	NH ₄	Na	K	Ca	Mg	A1
5月	5.13	29.50	18.05	5.00	2.00	0.67	1.10		0.55	0.40	0.09	0.40	0.10	
	5.29	276.70	20.70	4.65	1.80	0.45	0.49		0.37	0.05	0.03	0.08	0.02	
6月	6.10	14.20	43.00	4.42	5.00	1.20	1.60	0.12	1.50	0.18	0.11	0.55	0.12	
	6.24	450.60	20.25	4.58	1.30	0.27	0.61		0.21	0.09	0.01	0.00	0.02	
7月	7. 8	199.30	2.54	4.63			0.14			0.00				
	7.22	26.00	30.35	4.33	3.30	0.83	1.40	0.18	0.40	0.39	0.05	0.33	0.02	
	8. 5	222.10	24.20	4.47	1.60	0.29	2.50	0.10	0.27	1.10	0.02	0.10	0.12	
8月	8.19	35.80	13.50	4.89	2.10	0.50	0.47		0.49	0.15	0.03	0.24	0.02	
	9. 2	209.40	17.50	4.87	1.40	0.22	2.30		0.04	1.70	0.01	0.10	0.15	
9月	9.17	96.50	39.30	4.23	2.20	0.31	3.50	0.25	0.34	0.80	0.05	0.22	0.12	
	9.30	125.10	38.95	4.39	2.60	0.35	4.90	0.08	0.14	2.30	0.09	0.19	0.13	
10月	10.14	162.90	10.85	4.70	0.18		0.52	0.00	0.03	0.01		0.01		
	11.11	58.60	20.55	4.60	1.80	0.39	1.30	0.11	0.07	0.54		0.34	0.10	
11月	11.25	2.60	73.00	5.12	9.90	3.40	7.90	0.80	2.40	2.10	0.52	3.90	0.51	
12月	12. 9	42.50	30.15	4.47	3.20	1.20	1.60	0.17	0.84	0.52	0.03	0.40	0.09	
	12.24	15.90	62.25	4.21	6.70	0.10	5.70	0.48	1.30	1.80	0.19	1.10	0.27	
	1. 6	83.20	15.30	4.76	1.40	0.37	0.89	0.09	0.29	0.25		0.20	0.05	
1月	1.20	17.00	44.35	4.21	3.90	0.90	2.90	0.22	0.53	0.70	0.08	0.75	0.15	
	2. 3	25.40	44.90	4.44	5.00	1.20	1.30	0.19	1.40	1.10	0.17	0.73	0.18	
2月	2.17	33.50	40.80	4.23	3.50	0.67	2.50	0.20	0.63	0.46	0.03	0.56	0.10	
	3. 2	35.80	23.40	5.37	3.10	1.50	2.00	0.09	0.82	0.79	0.08	0.87	0.18	
3月	3.16	130.90	22.35	4.44	2.40	0.74	0.78	0.09	0.32	0.15	0.01	0.27	0.04	
	3.30	424.00	27.05	4.30	2.30	0.76	0.83	0.11	0.36	0.08	0.01	0.16	0.03	
合計		2717.50			4791.3	1162.7	3640.2	171.0	766.4	1297.0	61.7	416.1	183.2	
平均					4.51	1.76	0.43	1.34	0.06	0.28	0.48	0.02	0.15	0.07

一般家庭の室内空気中の低沸点有機塩素化合物濃度

齋藤信弘・川井田哲郎^{*1}・山田音由記
藤田芳和・吉富堅一郎^{*2}・迫田勝藏

Survey of Volatile Chlorinated Hydrocarbons in the Indoor Air of the Ordinary House

Nobuhiro SAITO, Tetsuro KAWAIDA, Otoyuki YAMADA, Yoshikazu FUJITA, Ken'ichiro YOSHITOMI, and Katsuzo SAKODA

A survey of volatile chlorinated hydrocarbons in the indoor air of the ordinary houses was carried out. Trichloromethane, 1, 1, 1-trichloroethane, carbontetrachloride, trichloroethylene and tetrachloroethylene were measured. These substances were absorbed by carbosieve G through a 24 hour sampling (approximately 150ml/min). They were extracted by toluene and examined by gas chromatography with ECD. The result of this survey showed that the level of trichloromethane was ND~1.35 µg/m³ (average 0.50 µg/m³) ; 1, 1, 1-trichloroethane was 0.38~9.72 (2.0); carbontetrachloride was 0.39~1.11(0.69). Furthermore, we came to the conclusion that tetrachloroethylene 0.11~3.20 (0.76) and that trichloroethylene was not detected. Some of the results showed levels of trichloromethane, 1, 1, 1-trichloroethane and tetrachloroethylene to be higher indoor than outdoor air. It suggests that these substances are derived from indoor materials.

Key words : indoor air, volatile chlorinated hydrocarbons, ordinary house

はじめに

テトラクロロエチレン、トリクロロエチレン、四塩化炭素などの低沸点有機塩素化合物は、工業用の原料や溶剤として使用されるほかに、衣服のドライクリーニング洗浄剤やしみ抜き、殺虫剤の溶剤など多方面でかつ大量に使用されている。

これら低沸点有機塩素化合物は沸点が低いために大気中に揮散しやすく、大気中からも四塩化炭素、テトラクロロエチレン等が検出され、また、これら物質の廃棄、投棄や排水等による環境中への放出で地下水汚染として顕在化しているなど環境中に広範囲に残留していることが認められている。

低沸点有機塩素化合物のうち、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン、四塩化炭素は、人の健康を損なうおそれがある化学物質として、「化学物質の審査および製造等に関する法律」により、1989年に第二種特定化学物質に指定されており、これらによる環境汚染については、監視が行なわれている。

これら物質の用途によっては、処理されたものを媒体として、日常生活の大部分を営む密閉性の高い一般家庭内に持ち込まれる可能性もあり、これらの室内における環境汚染が懸念される。

本県では、公共水域や地下水、大気環境について、その実態調査が行われているが、今回、室内環境汚染が懸念される1つである低沸点有機塩素化合物について、一般家庭の室内空気中における汚染の実態調査を行ったので報告する。

方 法

1 調査対象

宮崎市内及び延岡市内的一般家庭延9戸を対象に室内延16か所、室外延8か所について調査した。

2 調査項目

低沸点有機塩素化合物として、クロロホルム、1, 1, 1-トリクロロエタン、四塩化炭素、トリクロロエチレン及びテトラクロロエチレンの5項目の分析を行っ

た。

3 試薬

1) 標準品

- クロロホルム 特級 (片山化学製)
1, 1, 1-トリクロロエタン 特級 (和光純薬製)
四塩化炭素 超特級 (関東化学製)
トリクロロエチレン 特級 (和光純薬製)
テトラクロロエチレン 特級 (和光純薬製)

2) 抽出用溶剤¹⁾

- 残留農薬分析用トルエン (和光純薬製)

3) 捕集剤¹⁾

- CarbosieveG (60 / 80) (スペルコ製)

4 捕集管¹⁾

高純度窒素気流中 (約100ml/min) 200°Cで24時間空焼きしたCarbosieveGをFig.1に示すように一端を溶封して、石英ウールを詰めた硬質ガラス管 (内径3mm, 外径5mm, 長さ約100mm) に長さにして30mm (約60mg) を充填し、石英ウールを詰め、もう一端を溶封して使用時まで保管した。使用直前に両端をカットして使用に供した。

5 試料採取¹⁾

1) 室内空気の換気が少ない時期について原則として、屋内2か所と屋外1か所について試料採取を行った。また2戸については、換気の多い時期について、同様の試料採取を行った。

2) 試料採取は、Fig.2に示すような装置で毎分約150mlで約24時間吸引した。装置は、過塩素酸マグネシウムを詰めた脱水管に捕集管の吸引側を接続し、片方に流量計、脈流を防ぐためのバッファータンク及び吸引ポンプをつないだものである。吸引中の捕集管はアルミ箔でくるみ、遮光した。試料を採取した捕集管は、両端をシールフィルムで密封し、アルミ箔で遮光し、分析まで保管した。

6 分析試料作成¹⁾

試料を採取した捕集管をカットし、セプタム付きサンプル瓶に移し、トルエン5mlを添加し、約3分間強く振とうした後、1時間静置したものを分析に供した。

7 分析機器及び条件

ガスクロマトグラフ；島津製作所製 GC-9A (EC D検出器)

カラム；ガラスカラム 3mm i.d × 3m

カラム温度；90°C

カラム充填剤；スクアラン25%, クロモソルブW (A W-DMCS) 60~80mesh

注入口温度；250°C

検出器温度；250°C

キャリアガス；窒素 50ml/min

8 定量方法

標準物質 $2\mu l$ をトルエン50mlに溶解し、標準原液とした。標準原液(1~5μl)を5mlのトルエンに溶解し、標準溶液を作成した。標準溶液をガスクロマトグラフに注入し、求められたクロマトのピーク高さから検量線を作り、試料の濃度(単位 $\mu g/m^3$) 20°C換算を算出した。

調査と考察

1 1, 1, 1-トリクロロエタン

Table 1, 2に示すように室内の全測定値では、最大値 $9.72 \mu g/m^3$ 、最小値 $0.38 \mu g/m^3$ であり、平均値が $2.00 \mu g/m^3$ であった。Table 2に示すように宮崎地区の平均値は、 $2.96 \mu g/m^3$ であり、延岡地区のそれが $0.77 \mu g/m^3$ であった。Table 3に示すように屋外空気の平均値は、宮崎地区 $0.90 \mu g/m^3$ 、延岡地区 $0.64 \mu g/m^3$ と大差はなかった。

宮崎地区の平均値が高くなかったことは、調査対象と

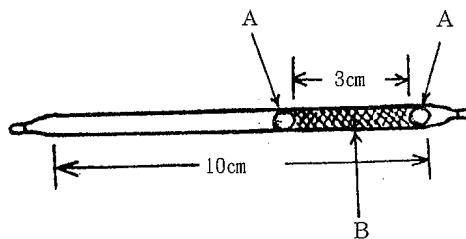


Fig. 1 Absorbent glass tube

A) Quartz wool

B) Carbo sieve G

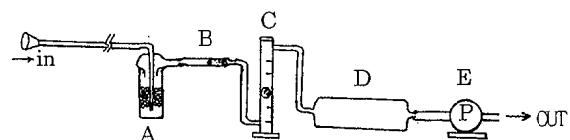


Fig. 2 Sampling equipment

A) Dehydrator (Magnesium Perchlorate)

B) Absorbent glass tube

C) Flow meter

D) Buffer tank

E) Diaphragm pump

なった家屋にかなり高い値が測定されたためである。また、宮崎地区の2家屋について、室内空気の換気の多い時と少ない時での測定結果を比較して示したもののがTable 4である。Table 4に示すように換気の少ない時は、平均値が $4.49 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、多い時の $1.90 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の約2・3倍であった。これは換気の少ない時は、室内空気と室外空気との入れかわりが少ないので、室内で発生した汚染物質が室内に滞留し、高い濃度になるものと考えられる。今回の調査で高い濃度の1, 1, 1-トリクロロエタンが検出された家屋は、建築2年余りであるが、近年各種塗料、接着剤、スプレー用品などのように有機溶剤を含む日用品が広く出回っており、中には、1, 1, 1-トリクロロエタン等が確認されているものもあるとの報告²⁾もあることから、建築中を含め、日常生活に関連する建築材料や日用品からの発生があることを示していると考えられる。

2 テトラクロロエチレン

Table 1, 2に示すように室内の全測定値の平均値は、 $0.76 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、室外の平均値は、 $0.45 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。これは、屋内の測定値に比較的高い濃度で検出された結果があったためで、その原因としては、テトラクロロエチレンによるドライクリーニングが施

された衣類等からの発生など室内での汚染があることを示唆している。

測定方法、測定時期や地点等が異なっているが、藤田³⁾によれば、テトラクロロエチレンの大気及び室内空気の平均濃度は、それぞれ $1.67 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $1.43 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と報告している。今回の調査結果では、これを超える結果もあったが、全体的には、低い濃度であった。

3 クロロホルム

Table 1, 2に示すように室内の全測定値では、最大値 $1.35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、最小値NDであり、平均値が $0.50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。Table 2に示すように宮崎地区での平均値は、 $0.64 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、延岡地区での平均値は、 $0.32 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。2地区の屋外での測定値が $0.27 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $0.28 \mu\text{g}/\text{m}^3$ とほとんど同じであった。これは、地域による違いより、むしろ建築材料や家庭用品等の家屋固有の違いに由来するのではないかと思われるが、今回調査では、原因は推定できなかった。

4 四塩化炭素

Table 1, 2に示すように室内に全測定値の平均値は、 $0.69 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、屋外の平均値は、 $0.60 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。地区や採取時期の相違による測定値の大きな差はなかった。藤田の報告によれば、大気中の平

Table 1. The table of concentration concerning trichloromethane, 1, 1, 1-trichloroethane, carbontetrachloride, trichloroethylene, tetrachloroethylene on survey of indoor air and outdoor air.

area	house	date	point	CHCl_3	CCl_4CH_3	CCl_4	CCl_2CHCl	CCl_2CCl_2
MIYAZAKI	A	92. 3. 12	indoor	0.55	1.11	0.75	ND	0.38
	A	92. 3. 13	indoor	0.99	0.91	0.72	ND	0.45
	B	92. 3. 17	indoor	0.40	6.21	0.46	ND	0.27
	B	92. 3. 16	indoor	0.71	9.72	0.39	ND	0.25
	C	91. 12. 24	indoor	1.35	1.07	0.58	ND	3.20
	A	92. 7. 11	indoor	0.13	0.79	0.64	ND	0.47
	A	92. 7. 10	indoor	0.16	0.84	0.60	ND	0.11
	B	92. 7. 6	indoor	0.87	3.65	1.11	ND	0.22
	B	92. 7. 6	indoor	0.58	2.31	0.56	ND	0.18
	A	92. 2. 5	outdoor	0.13	1.46	0.50	ND	0.11
	B	92. 3. 21	outdoor	0.30	0.65	0.75	ND	0.12
	C	91. 12. 24	outdoor	0.40	0.83	0.56	ND	1.33
NOBEOKA	A	92. 7. 13	outdoor	0.12	1.09	0.75	ND	0.12
	B	92. 7. 11	outdoor	0.41	0.49	0.40	ND	0.08
	D	92. 1. 2	indoor	0.79	0.38	0.65	ND	0.16
	D	92. 1. 2	indoor	0.42	0.95	0.56	ND	2.26
	E	91. 10. 22	indoor	0.15	0.93	0.99	ND	0.27
	E	91. 10. 22	indoor	ND	1.29	0.56	ND	0.20
	E	92. 1. 25	indoor	0.14	0.75	0.74	ND	2.37
	F	92. 1. 13	indoor	0.42	0.59	0.96	ND	0.86
	F	92. 1. 13	indoor	0.31	0.51	0.73	ND	0.57
	E	91. 10. 22	outdoor	0.29	1.10	0.88	ND	0.27
	E	92. 1. 13	outdoor	0.28	0.47	0.45	ND	1.51
	F	92. 1. 25	outdoor	0.28	0.34	0.50	ND	0.09
fixed quantity limited				0.12	0.06	0.01	0.03	0.04

units $\mu\text{g}/\text{m}^3$
 CHCl_3 : trichloromethane CCl_4CH_3 : 1, 1, 1-trichloroethane
 CCl_4 : carbontetrachloride CCl_2CHCl : trichloroethylene
 CCl_2CCl_2 : tetrachloroethylene

Table 2. Summation of the concentration concerning the following substances on the indoor air

	CHCl ₃	CCl ₂ CH ₃	CCl ₄	CCl ₂ CCl ₂		
TOTAL n=16	maximum minimum average	1.35 ND 0.50	9.72 0.38 2.00	1.11 0.39 0.69	3.20 0.11 0.76	
	MIYAZAKI n=9	maximum minimum average	1.35 0.13 0.64	9.72 0.79 2.96	1.11 0.39 0.65	3.20 0.11 0.61
	NOBOKA n=7	maximum minimum average	0.79 ND 0.32	1.29 0.38 0.77	0.99 0.56 0.74	2.37 0.16 0.96
units $\mu\text{g}/\text{m}^3$						

Table 3. Summation of the concentration concerning the following substances on the outdoor air

	CHCl ₃	CCl ₂ CH ₃	CCl ₄	CCl ₂ CCl ₂		
TOTAL n=8	maximum minimum average	0.41 0.12 0.28	1.46 0.34 0.80	0.88 0.40 0.60	1.51 0.08 0.45	
	MIYAZAKI n=5	maximum minimum average	0.41 0.12 0.27	1.46 0.49 0.90	0.75 0.40 0.59	1.33 0.08 0.35
	NOBOKA n=3	maximum minimum average	0.29 0.28 0.28	1.10 0.34 0.64	0.88 0.45 0.61	1.51 0.09 0.62
units $\mu\text{g}/\text{m}^3$						

Table 4. Summation of the making a comparison between a few of ventilation and a lot of ventilation

	CHCl ₃	CCl ₂ CH ₃	CCl ₄	CCl ₂ CCl ₂		
a few of ventila. n=4	maximum minimum average	0.99 0.40 0.66	9.72 0.91 4.49	0.75 0.39 0.58	0.45 0.25 0.34	
	a lot of ventila. n=4	maximum minimum average	0.87 0.13 0.44	3.65 0.79 1.90	1.11 0.56 0.73	0.47 0.11 0.25
	units $\mu\text{g}/\text{m}^3$					

均値は $1.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、室内空気中の濃度の平均値は $0.35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。試料採取方法、時期や地点等が異なっているので一概に比較はできないが、今回の調査結果では、室内空気の平均値は、約2倍と高いが室外のそれは約2分の1と低い結果となっている。

5 トリクロロエチレン

Table 1に示すようにいずれの測定点でも検出されなかった。

ま と め

1 5種類の低沸点有機塩素化合物について調査した

結果、室内の空気中の1, 1, 1-トリクロロエタン、テトラクロロエチレン及びクロロホルムの濃度は、室外の空気中の濃度より比較的高い濃度の例があった。

四塩化炭素の室内の空気中の濃度は室外空気と同程度であった。また、トリクロロエチレンについては検出されなかった。

2 今回の調査結果において、宮崎地区と延岡地区では、室外空気中の濃度の平均値は、1, 1, 1-トリクロロエタンについては、宮崎地区がやや高く、テトラクロロエチレンは延岡地区がやや高いという結果であった。

3 同一家屋における換気の多い時と少ない時の調査結果から、換気が少ないと室内で発生した汚染物質が室内に滞留し、高い濃度になる可能性もあり、日常生活の大半を過ごす室内の環境を清浄に保つには、室内空気汚染防止対策の観点から、換気も有効な手段の一つであるので、暖房期等室内空気の換気が少ない時期には、適切な換気を行うことが必要である。

4 今回の調査において、室内空気中から低沸点有機塩素化合物のうち、高濃度で検出された物質もあり、室内空気汚染防止対策の一環として今後も継続的な調査を行っていく必要があると思われた。

謝 詞

この調査を実施するにあたり、延岡保健所の方々、試料採取の対象とさせていただいた方々には、多大なご協力をいただきました。ここに厚く御礼申し上げます。

参 考 文 献

- 長谷川敦子、矢島 嶽、吸着剤捕集 / 溶媒抽出 / ガスクロマトグラフィーによる大気中有機ハロゲン化合物の定量、分析化学、40, 489-494, 1991
- 松村年郎、室内空気汚染の現状について、大気汚染学会誌、26 (5), A99-A109, 1991
- 藤田昌彦、日本人の低沸点有機塩素化合物の摂取量と生涯危険率の評価、公衆衛生院研究報告、39(4), 149-161, 1990

ゴルフ場使用農薬による水質汚濁（第2報）

野口辰美・河野謙一・関屋幸一
岩切淳・杉本美喜

Water Pollution by Pesticides Used at Golf Links (II)

Tatsumi NOGUCHI, Ken'ichi KOHNO, Koichi SEKIYA, Jun IWAKIRI, and Miki SUGIMOTO

In recent years, we are concerned about water pollution by pesticides used at golf links.

Pesticides in the drain off water from golf links and river water were analyzed by capillary-gas chromatography/mass spectrometry-selected ion monitor (GC/MS-SIM).

As a result, low level concentrations of terbucarb, flutoluanil, isoprothiolane and other pesticides were found in some samples (cf. Table 2). Multi component analyses using GC/MS-SIM satisfied the detection level set by the Ministry of Japan Health and Welfare (cf. Table 1).

Key words : pesticides, golf links, water pollution

はじめに

宮崎県では、「ゴルフ場の排出水及びその周辺公共用水域における水質調査実施要領」を定め、平成元年度からゴルフ場による農薬の水質汚濁を監視している。

ゴルフ場農薬の分析には、ゴルフ場数、調査農薬の多さから従来のガスクロマトグラ法では検出器、試料の前処理等の点で、多大な労力、時間を要し、ガスクロマトグラフ質量分析計 (CAP-GC/MS-SIM) 等による一斉分析の確立が不可欠である。本県では平成3年度からCAP-GC/MS-SIMを用いて一斉分析を行ったので、平成3年度の調査結果も含め、その概要を報告する。なお、調査対象農薬は、環境庁、厚生省から暫定基準値の示された21種類(平成3年7月から30種類)の農薬^{1), 2)}のうちCAP-GC/MS-SIM法で一斉分析可能な16種類及び、県内ゴルフ場で使用頻度の高い2種類の農薬を加えた計18種類である。

実験及び調査方法

1 試薬

農薬標準品：和光純薬工業(株), Nanogen社, 住友化学工業(株), 及び県総合農業試験場より入手

内部標準品(フェナンスレン-d₁₀, フルオランテン

-d₁₀, p-ターフェニル-d₁₄): MSD Isotopes社
ジクロロメタン, n-ヘキサン, アセトン, 無水硫酸ナトリウム: 残留農薬試験用
ジエチレングリコール: 片山化学工業(株), EP印
塩化ナトリウム: 特級 (250°C, 2時間加熱処理)²⁾

2 分析装置

ガスクロマトグラフ: ヒューレット パッカード社製5890 シリーズⅡ

質量分析計: 日本電子(株)製 JMS-AX505W, データ処理装置(MS-DTK2322)付

3 測定条件

1) ガスクロマトグラフの測定条件

カラム: J&W社製 DB-5 (0.25mm I.D. × 25m, 膜厚0.25μm)

キャリアガス: ヘリウム

線速度: 23cm / 秒

温度条件: 50°C (2分) → 30°C / 分 → 150°C → 4°C / 分 → 260°C (2分)

注入口温度: 250°C

注入方法: スプリットレス(ページ開始時間, 2分)

2) 質量分析計の測定条件

検出法: SIM法

イオン化法 : EI法

イオン化電圧 : 70eV

イオン化電流 : 300 μA

セパレーター温度 : 260°C

イオン源温度 : 260°C

モニターイオン(m/z) : Table 1に記載

4 試験操作

1) 前処理

厚生省の方法²⁾に準拠して、前処理を実施したが、以下、詳細を記載した。

検水500mLを分液ロートに採り、ジクロロメタン100mL及び塩化ナトリウム25gを加えて5分間振とうし、静置後、ジクロロメタン層を分取する。更に残留した液に対してジクロロメタン50mLを用いて同様の抽出操作を行い、ジクロロメタン層を分取する。分取したジクロロメタンを合わせ無水硫酸ナトリウムを加えて脱水する。抽出液に0.1%ジエチレングリコール/アセトン溶液1mLを加え、濃縮装置(ロータリーエバボレータ)に移し、減圧濃縮する。溶媒留去後、n-ヘキサンに溶解し、内部標準物質(各々0.1ppm、フェナヌスレン-d₁₀、フルオランテン-d₁₀、p-ターフェニル-d₁₄/n-ヘキサン溶液)1mLを加え、溶媒を留去し、1mLの定容として試験溶液とする。

2) 分析及びデータ処理

試験溶液の2μLをガスクロマトグラフに注入し、測定条件に従い分析した。

データ処理については内部標準法を採用した。

Table 1の農薬No.1～No.7は内部標準物質IS-1、No.8～No.12はIS-2、及びNo.13～No.18についてはIS-3を用いた。

5 調査試料及び調査時期

水質の測定地点は、ゴルフ場(平成3年10月現在20カ所)から排出される排水口付近及びその排出水が公共用水域へ流入する地点から500m下流の地点(以下、河川水と略す)の2ポイントを原則とした。例外として、沿海地帯のゴルフ場で排出水のない場合、ゴルフ場の場内池を、また河川敷のゴルフ場も通常、排出水がないため、隣接している河川2ポイントを測定地点とした。調査試料は1Lのガラス瓶に採取し、分析に供試した。

調査時期は、平成3年7月15日～7月17日及び10月18日～10月23日の2回である。

結果及び考察

1 分析農薬の分離(TIC)及びマススペクトル

分析農薬、内部標準物質のTICを各々Fig.1, Fig.2に、マススペクトルの主要フラグメントイオンを

Table 1 Retention time, relative retention time, measured ions, detection limits and principal fragment ions

No.	農薬名	ゲループNo.	保持時間	相対保持時間	モニターイオンm/z	最小検出量ng	検出限界μg/L	主要フラグメントイオン
1	dichlorvos	1	6' 32"	0.447	109	0.08	0.08	109, 185, 79
2	simazin	2	12' 53"	0.942	201	0.04	0.04	201, 186
IS-1	phenanthrene-d ₁₀	2	13' 41"	1.000	188	—	—	188
3	propyzamide	2	13' 45"	1.005	173	0.04	0.04	173, 175
4	diazinon	2	14' 05"	1.029	179	0.1	0.1	179, 137, 265
5	chlorothalonil	2	14' 28"	1.057	266	0.04	0.04	266, 264, 268
6	terbucarb	3	15' 54"	1.162	205	0.02	0.02	205, 220
7	tolclophosmethyl	3	16' 04"	1.174	265	0.04	0.04	265, 267, 125
8	fenitrothion	3	17' 03"	1.246	277	0.1	0.1	277, 125, 109
9	chlorpyrifos	3	17' 57"	1.312	197	0.08	0.08	314, 199, 197
10	pendimethalin	4	19' 20"	1.413	252	0.06	0.06	252, 162, 281
IS-2	fluoranthene-d ₁₀	4	19' 21"	1.414	212	—	—	212
11	captan	4	19' 38"	1.432	79	0.7	0.7	79, 114, 149
12	isofenphos	4	19' 45"	1.443	213	0.06	0.06	213, 120, 121
13	napropamide	5	21' 26"	1.566	128	0.1	0.1	128, 271, 171
14	butamifos	5	21' 27"	1.568	286	0.08	0.08	286, 200, 232
15	flutoluanil	5	21' 40"	1.583	173	0.03	0.03	173, 323, 145
16	isoprothiolane	5	21' 45"	1.590	118	0.1	0.1	118, 204, 290
IS-3	p-terphenyl-d ₁₄	5	21' 59"	1.607	244	—	—	244
17	isoxathion	6	22' 58"	1.672	105	0.7	0.7	105, 77, 313
18	iprodione	6	27' 25"	2.004	314	0.2	0.2	314, 316, 187

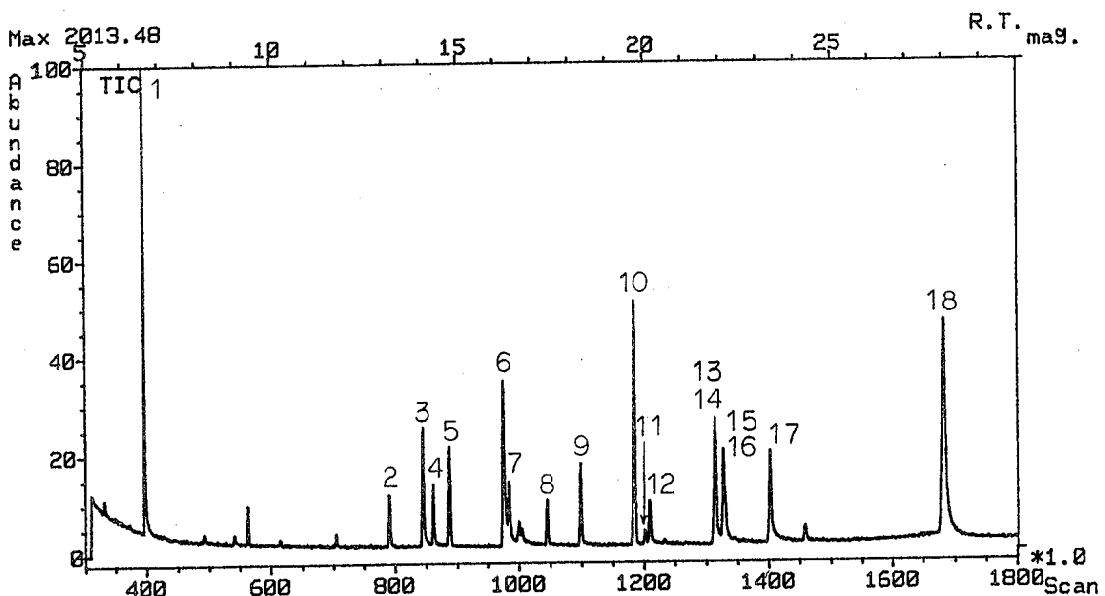


Fig. 1 GC/MS total ion chromatogram(TIC) of mixed standards

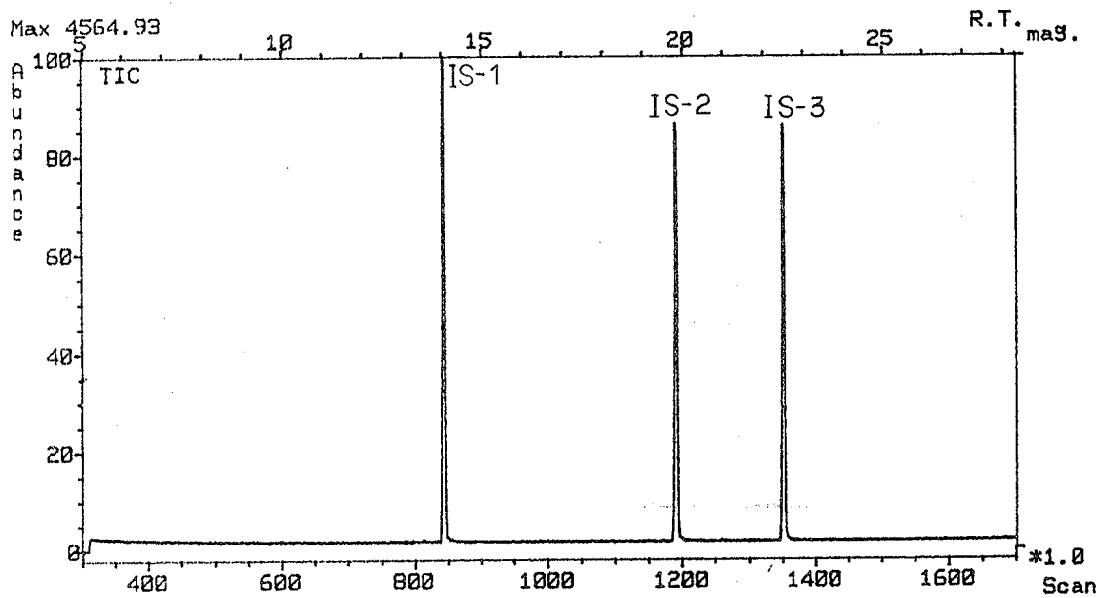


Fig. 2 GC/MS TIC of mixed internal standards

Table 1に示した。

Fig.1に示すように、DB-5は比較的良好な分離を示したが、ナプロパミドとブタミホス、フルトラニルとイソプロチオランはピークが近接ないし、重複した。しかししながら各農薬のマススペクトルパターン、フラグメントイオン強度の相違から定量に支障はなかった。

トリクロルホン、ベンスリドについても検討を行っ

た。トリクロルホンは分析中にジクロルボスに熱分解するため、分析には注入口の温度を下げる等の工夫が必要である。ベンスリドは保持時間が長く感度が低いため、短いカラム条件下の分析が適していると思われる。なお、これら農薬の定量は実施していない。

マススペクトルについては厚生省等が示したデータとほぼ一致した。

Table 2 Maximum concentration of pesticides detected, water solubility, effluent standards and standards for tap water

unit:mg/l

No.	検出農薬名	排出水 (検体数30)	場内池 (検体数12)	河川水 (検体数36)	水溶解度 ^{a)}	暫定指導指針値	水道水の暫定水質目標
1	dichlorvos	0.0012(1)	ND	0.0011(2)	10000	—	—
2	simazin	0.0028(1)	0.0005(1)	0.0011(1)	5	0.03	0.003
3	propyzamide	0.0012(2)	ND	ND	15	0.08	0.008
4	diazinon	0.0004(1)	ND	ND	40	0.05	0.005
5	chlorothalonil	ND	ND	ND	0.6	0.4	0.04
6	terbucarb	0.0125(11)	0.0071(4)	0.0057(11)	6~7	0.2	0.02
7	tolclophosmethyl	ND	ND	ND	0.3	0.8	0.08
8	fenitrothion	0.0009(1)	ND	0.0009(1)	14	0.1	0.01
9	chlorpyrifos	ND	ND	0.0004(1)	2	0.04	0.004
10	pendimethalin	ND	ND	ND	0.05	0.5	0.05
11	captan	ND	ND	ND	3.3	3	0.3
12	isofenphos	ND	ND	ND	23.8	0.01	0.001
13	napropamide	ND	ND	ND	73	0.3	0.03
14	butamifos	0.0009(1)	ND	ND	5.1	0.04	0.004
15	flutolanil	0.0089(12)	ND	0.0019(6)	9.6	2	0.2
16	isoprothiolane	0.0070(4)	0.0003(1)	0.0006(3)	50	0.4	0.04
17	isoxathion	ND	ND	ND	1.9	0.08	0.008
18	iprodione	ND	ND	ND	13	3	0.3

注1：() 内は検出された調査地点数

Table 3 Relation between pesticides detected and pesticides used at golf links

農 薬 No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18
調査ゴルフ場数	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20
農薬使用ゴルフ場数	0	2	1	12	5	0	1	12	3	3	2	1	0	2	12	0	6	16
農薬検出ゴルフ場数	0	2	1	1	0	7	0	1	0	0	0	0	0	1	7	4	0	0

2 農薬の感度

各農薬のマスクロマトグラムよりS/N=5として最小検出量を算出した(Table 1)。各農薬とも、厚生省の示した水質目標の1桁下までは十分測定できる感度が得られた。

3 ゴルフ場排出水等の調査結果

ゴルフ場の排出水、場内池及びその下流の河川水から検出された農薬の最大値をTable 2に示した。検出された農薬のはほとんどは前報³⁾で報告したものと同一であり、排出水から検出された農薬はジクロルボス、シマジン、プロピザミド、ダイアジノン、テルブカルブ、フェニトロチオン、ブタミホス、フルトラニル、イソプロチオランの9種類であったが、濃度は環境庁の暫定指導指針値をいずれも下まわった。場内池から検出された農薬はシマジン、テルブカルブ、イソプロチオランの3種類であったが、濃度は当指針値をいず

れも下まわった。河川水からはジクロルボス、シマジン、テルブカルブ、クロルピリホス、フルトラニル、イソプロチオランの6種類が検出されたが、濃度は水道水の暫定水質目標値(厚生省)をいずれも下まわった。

なお、検出したジクロルボスは、トリクロルホンが環境中で分解した成分であるほか、GCの測定中にトリクロルホンが熱分解したジクロルボスを測定している点が指摘される。

2回目の調査時(10月18日~23日)に排出水及び場内池から検出された農薬と実際にゴルフ場で使用された農薬(調査前3ヵ月間、保健所の聞き取り調査による)との関係を検討した結果(Table 3)、フルトラニルを除いては必ずしも相関はなかった。ただし、農薬の使用量、使用頻度等は考慮していない。調査前3ヵ月間、使用経験のないテルブカルブ、イソプロチオ

ランが高頻度で検出されることは、これらの残留性が高い^{4), 5)}こと及び比較的、水溶解度⁶⁾が高いことに起因するものと推察される。一部のゴルフ場では排出水よりゴルフ場周辺の河川水中のイソプロチオランの濃度が高い結果が得られており、このことは流域の水田（水稻のいもち病等に使用）からの流入があったものと推察される。

おわりに

ゴルフ場使用農薬による水質汚濁は今日的な問題であり、今後とも継続的な調査が必要である。また、一部のゴルフ場では排出水よりゴルフ場周辺の河川水中のイソプロチオランの濃度の方が高い結果が得られており、農耕地からの影響も見逃せない事実である。

今後の課題として、降雨時の調査⁷⁾、及び農薬による水質汚濁の広域的環境調査を実施することが必要である。

謝辞

今回の調査にあたり、採水等にご協力いただいた各保健所の職員に深く感謝いたします。

文献

1) 環境庁水質保全局長：“ゴルフ場で使用される農薬による水質汚濁の防止に係わる暫定指導指針値について”平成2年5月24日、環水土第77号

- 2) 厚生省生活衛生局水道環境部水道整備課長：“ゴルフ場使用農薬に係わる検査方法について”平成3年2月28日、衛水第37号
- 3) 河野謙一、野口辰美、杉本美喜、岩切淳、高橋麻里子：ゴルフ場使用農薬による水質汚濁、宮崎県衛生環境研究所年報、2, 109-114, 1990
- 4) 田中義人、石黒靖尚、大野健治、鳥羽峰樹、北森成治、近藤紘之：第17回九州衛生公害技術協議会資料、27-28, 1991
- 5) 植村振作、河村宏、辻万千子、富田重行、前田静夫：農薬毒性の事典、25、三省堂、1990
- 6) 富澤長次郎、上路雅子、腰岡政二：1989年版最新農薬データブック、ソフトサイエンス社、1989
- 7) “ゴルフ場農薬降雨直後に大量流出”平成4年9月14日、西日本新聞
- 8) 辻正彦、中野武、奥野年秀：ゴルフ場農薬の分析、兵庫県立公害研究所研究報告、22, 45-50, 1990
- 9) 梶野勝司：ゴルフ場使用農薬の検査方法の改正と実際、公害と対策、12, 50-57, 1991
- 10) 山田豊、北野隆一、長澤武夫、森本温威：農薬の分解性に関する検討（I），京都府衛生公害研究所年報、36, 136-143, 1991
- 11) 北野隆一、山田豊、長澤武夫、森本温威：農薬の分解性に関する検討（II），京都府衛生公害研究所年報、36, 151-158, 1991
- 12) 門上希和夫、森本美鈴：第17回九州衛生公害技術協議会資料、29-30, 1991

トリクロロエチレン等に係わる水質調査結果

岩切 淳・関屋 幸一・杉本 美喜
野口辰美・河野 謙一

Investigation of Water Quality Concerning the Trichloroethylene and the Like

Jun IWAKIRI, Koichi SEKIYA, Miki SUGIMOTO, Tatsumi NOGUCHI, and Ken'ichi KOHNO.

A survey of water pollution with volatile halogenated hydrocarbons such as trichloroethylene (TCEs) has been carried out every year in Miyazaki prefecture since fiscal year 1984.

In fiscal year 1991, the same pollution survey of industrial waste water and drinking water was carried out.

The result of this survey showed that there has been a steady yearly decrease in excess TCEs in industrial waste water.

However the rate of detection for TCEs in industrial waste water was still high, raising concerns for environmental pollution.

We suggest that pollution surveys of industrial waste water should be carried out under appropriate administrative guidance in order to maintain water quality.

Key words : trichloroethylene, industrial waste water, water pollution, drinking water

はじめに

調査結果

宮崎県では、トリクロロエチレン等低沸点有機塩素化合物（以下、トリクロロエチレン等と略す。）の汚染状況を把握することを目的として、昭和59年度から調査を実施している。平成3年度も引き続き事業場排水、水道法で規制を受けない飲料水供給施設及び共同給水施設等（以下、飲料水供給施設等と略す。）について調査を実施したので、過去の調査結果も含め、その概要を報告する。

調査方法

分析方法は、日本工業規格、用水・排水中の低分子量ハロゲン化炭化水素試験方法（JIS K 0125）による溶媒抽出法により行った。トリクロロエチレン等を使用している事業場、飲料水供給施設の内から無作為に選んだ事業場排水、飲料水について、トリクロロエチレン（TCE）、テトラクロロエチレン（PCE）、1,1,1-トリクロロエタン（MC）の調査を行った。

1 平成3年度の調査結果

1) 事業場排水

クリーニング業54事業場54検体、その他の事業場38検体の排水を調査した結果をTable1に示した。トリクロロエチレン等が検出された検体数の割合は、10～45%であった。排水基準又は管理目標（Table2）を超過した割合は、PCEは3.3%であり、TCE及びMCは0%であった。

Table 1 Analytical results of industrial waste water in fiscal 1991

項目	事業場数	検体数	検出検体数 (検出率%)	排水基準 超過検体数 (超過率%)
T C E	92	92	9 (10%)	0 (0.0%)
P C E	92	92	36 (39%)	3 (3.3%)
MC	92	92	41 (45%)	0 (0.0%)

MCについては管理目標

Table 2 Water emission standards of waste water into public sewerage

T C E	0.3mg/l
P C E	0.1mg/l
M C	3 mg/l

MCについては管理目標

Table 3 Results of water analysis of drinking water supplies in fiscal 1991

項目	検体数	検出検体数
T C E	55	0
P C E	55	0
M C	55	0

Table 4 Survey of pollution with waste water from laundries

項目	調査年度	62	63	1	2	3
T C E	検出率 %	38	11	14	11	6
	超過率 %	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
P C E	検出率 %	84	67	73	67	59
	超過率 %	4.9	3.0	2.7	1.3	6
M C	検出率 %	24	22	27	46	41
	超過率 %	0.0	3.7	4.5	1.4	0.0

Table 5 Survey of pollution with waste water from other factories and industrial processes

項目	調査年度	62	63	1	2	3
T C E	検出率 %	17	15	23	22	16
	超過率 %	2.1	5.1	2.3	0.0	0.0
P C E	検出率 %	6.3	7.7	11	17	11
	超過率 %	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
M C	検出率 %	17	13	20	26	50
	超過率 %	2.1	0.0	0.0	0.0	0.0

2) 飲料水供給施設等

飲料水55検体を調査した結果をTable3に示した。トリクロロエチレン等3物質はいずれも検出されなかった。

2 過去5年間における調査結果

昭和62年度から平成3年度までの5年間におけるトリクロロエチレン等について、クリーニング業、その他の事業場についての排出状況及び飲料水供給施設等の汚染状況を比較検討した。

1) クリーニング業における排出状況

クリーニング業における排出状況をTable4に示した。PCEが検出率、超過率ともTCE, MCを大きく上

回っており、ドライクリーニングでPCEがよく使用されていることと一致する。調査対象となった事業場、調査時期が同一でないため、5年間の比較は単純にはできないが、排水基準等の超過率は、PCEについては減少傾向、MCについては元年度4.5%、2年度1.4%に対して3年度は0%、TCEは5年間とも0%であった。

2) その他の事業場における排出状況

その他の事業場における排出状況をTable5に示した。3物質の検出率を比較すると、TCE, MCは平成2年度まで同等の検出率であったが、平成3年度MCは50%まで検出率が増加した。PCEは他の2物質に比べ若干低く、県内のその他の事業場で3物質をMC, TCE, PCEの順に多く使用していることとほぼ一致する。排水基準等の超過率は、TCEについては63年度をピークに減少、MCについては62年度に超過検体を認めたが、それ以降は認められなかった。PCEについては超過検体はなかった。

その他の事業場：繊維製品、化学工業、石油石炭製品、ゴム製品、窯業製品、金属製品、電気機械器具、輸送用機械器具、精密機械器具、水道業、廃棄物処理業

3) 飲料水供給施設等汚染状況

昭和62年度から平成3年度までの5年間、トリクロロエチレン等3物質は、いずれも検出されなかった。

おわりに

昭和62年度から平成3年度まで調査した結果では、事業場排水におけるトリクロロエチレン等の排水基準等の超過率は減少傾向にあった。しかしながら、排水からのトリクロロエチレン等の検出率は依然として高く、環境への汚染が懸念される。特に、平成3年度のクリーニング業以外の事業場からのMC検出率は50%と高かった。排水からの地下水汚染などが引き起こされると、元の状態に戻るには、長い年月を要する。今後とも、排水基準等の遵守を徹底させるために、事業場排水の汚染状況調査を継続して行い、適切な行政指導をすることが必要である。

文 献

- 柏田雅徳・小坂妙子・黒木裕一・高橋麻里子・小畠聰子、未規制化学物質実態調査－低沸点有機塩素

- 化合物-, 宮崎県公害センター年報, 10, 72-74, 昭和60年度・61年度
- 2) 杉本美喜・小坂妙子・柏田雅徳・黒木裕一・高橋麻里子, 未規制化学物質実態調査(第2報)-低沸点有機塩素化合物-, 宮崎県公害センター年報, 11, 71-74, 昭和62年度・63年度
- 3) 高橋麻里子・杉本美喜・河野謙一・黒木裕一, トリクロロエチレン等に係わる調査結果, 宮崎県衛生環境研究所年報, 1, 111-112, 平成元年度
- 4) 野口辰美, 高橋麻里子・杉本美喜・岩切淳・河野謙一, トリクロロエチレン等に係わる年報, 2, 115-116, 平成2年度

御池の水質特性（第4報）

杉本美喜・関屋幸一・河野謙一
岩切淳・野口辰美・吉富堅一郎^{*1}

The Characteristic water quality in Lake Miike (the 4th report)

Miki SUGIMOTO, Koichi SEKIYA, Ken'ichi KOHNO, Jun IWAKIRI, Tatsumi NOGUCHI, and Ken'ichiro YOSITOMI

Investigations of water quality in Lake Miike have been carried out annually since the freshwater red tide broke out in the spring of 1988. The results of 1991 and the past four years were as follows:

- 1) This lake is monomictic -- the water circulates in the winter and stratifies in the summer. Below the depth of 30 meters in this lake, the water has nearly no oxygen and has high values of $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ and $\text{PO}_4^{3-} \text{-P}$ all year round.
- 2) The water of this lake can be characterized as being between oligotrophic and mesotrophic, according to results of water quality and plankton investigations.
- 3) The water in this lake has a slight tendency toward eutrophication.
- 4) Dominant species of phytoplankton are Peridinium bipes at the time of freshwater red tide, and Fragilaria crotonensis at all other times.
- 5) One of the causes of eutrophication in this lake is thought to be pollutant substances which flow into this lake from rivers. Investigations reveal particularly high values of pollutants in the lake during rainy weather, compared to times of clear weather.

Key words : freshwater red tide, eutrophication, pollutant substances, water pollution

はじめに

御池の水質調査は、淡水赤潮が発生した昭和63年4月以来、毎年実施してきた。今回、平成3年度の当湖沼及び流入河川の調査結果についてとりまとめ、また、過去4年間の調査結果についても併せて報告する。

湖沼の調査方法

- 1 御池及び流域の概要は前報¹⁾のとおり。
- 2 湖沼の調査方法
 - 1) 調査時期
調査は、平成3年5月、7月、9月、12月、そして平成4年1月の計5回行った。
 - 2) 調査地点
調査地点及び深度をFig.1及びTable1に示した。

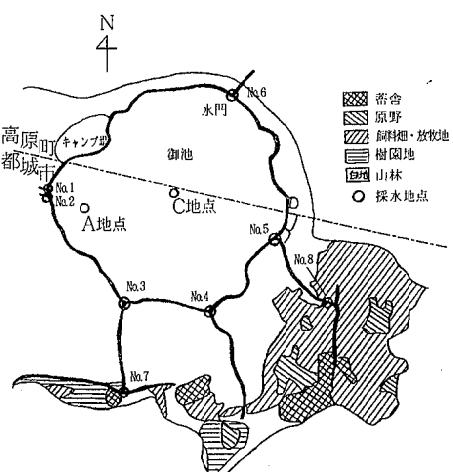


Fig. 1 Observation points in influent rivers and Lake Miike

Table 1 Observation points of Lake Miike

A地点	: 0, 2.5, 5, 10, 30m
C地点	: 0m
流入河川	: No.1, No.2, No.3, No.4, No.5, No.7, No.8
流出河川	: No.6 (水門)

3) 調査項目

調査項目及び分析方法は前報¹⁾のとおり。

湖沼の調査結果及び考察

平成3年度の淡水赤潮は4月に小規模な発生のみが確認されている。

また、水質調査結果は、多少の変動はあるものの、ほぼ前年と同様であった。

以下に、主な調査結果を示す。

1 水温等

当湖は、夏期に成層をなし、冬期に循環する単循環湖であることは前報^{1) 2) 3)}で述べたとおりである。今回の調査でも同様の結果であり、水温及びDO等から、水深30mより上層では、夏期に成層、冬期に循環が認められた。また、水深30mより下層では、年間をとおして、一定の水温及びDOを示していた。

2 窒素及びりん

T-N及びT-Pについても、前年度とほぼ同様の結果であった。T-N, T-Pは循環期には各々約0.25mg/l, 0.006mg/lと一定であるが、成層をなしている夏期には、各々0.35~0.65mg/l, 0.005~0.024mg/lを示し、水深により濃度が異なっていた。深度別では表層よりも水深5m, 10mで高い値を示していた。クロロフィルaも同様で、7月に水深5mで20.5μg/l, 9, 12月では水深10mで各々6.6μg/l, 2.9μg/lであり、夏期に最も高い値を示していた。

当湖がりん制限湖⁴⁾であることは過去²⁾にも述べている。Fig.2に昭和63年度から平成3年度の4年間につ

いて月別に湖水の表層における平均値でN/P比を示した。季節により変動はあるが、N/P比は常に10以上であり、25以上となる月も半数以上で、やはり、りん制限湖であることを示していた。

3 プランクトン

プランクトンは過去に赤潮の集積が認められたA地点において、プランクトンネット(NXX-25号、60μm)を水平に引いて捕集し、ホルマリン固定を行ったものを、検鏡に供した。平成4年度における植物プランクトンの優占3種をTable 2^{5) 6)}に示す。

筆者らが調査した5月に淡水赤潮の発生は認められなかったが、優占3種で比較してみると、5月に *Peridinium bipes* が第1優占種となっており、赤潮を確認する細胞数に達していなかったと考えられる。

その他の月では、*Fragilaria crotonensis* や *Synedra* 属が上位優占種であった。

4 富栄養化度

当湖は、昭和63年度から平成3年度まで4年間調査を行ってきたが、それ以前に行った調査結果と比較した場合、全体的に水質は悪化していた(Table 3)。

湖沼の富栄養化度を表す指標は特には定められていて、慣例として貧栄養湖、中栄養湖、富栄養湖の三段階に分類されるが、本来連続的な栄養状態を評価するには、十分とはいえない。これを0~100の数値で評価したのがカールソン指数である。しかし、透明度が植

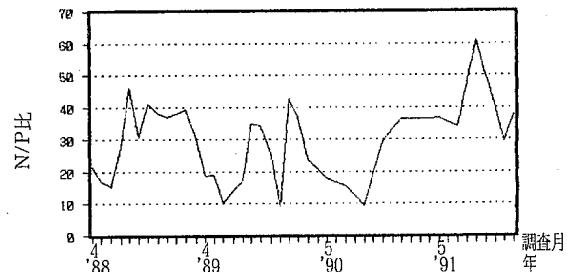


Fig. 2 Monthly variation of N/P value in Lake Miike

Table 2 Dominant species of phytoplankton

	第一優占種	第二優占種	第三優占種
5月13日	<i>Peridinium bipes</i>	<i>Fragilaria crotonensis</i>	<i>Synedra</i> sp.
7月22日	<i>Fragilaria crotonensis</i>	<i>Synedra</i> spp.	<i>Staurastrum dorsidentiferum</i>
9月10日	<i>Scenedesmus</i> sp.	<i>Staurastrum dorsidentiferum</i>	<i>Cyclotella stelligera</i>
12月4日	<i>Cyclotella stelligera</i>	<i>Fragilaria crotonensis</i>	<i>Synedra</i> spp.
1月13日	<i>Synedra</i> spp.	<i>Fragilaria crotonensis</i>	<i>Melosira</i> sp.

Table 3 yearly variation of clearness COD, T-N, T-P in Lake Miike

年度	透明度	(単位mg/l)		
		COD	T-N	T-P
51年 ⁷⁾	4.5	0.8*	0.26**	0.004
59年 ⁸⁾	4.5	2.8	0.19	0.009
63年	4.4	4.4	0.30	0.011
元年	3.2	5.1	0.61	0.020
2年	3.6	3.3	0.24	0.014
3年	4.7	3.0	0.30	0.008

*) COD : 過マンガン酸消費量より換算

**) T-N : カルガール-N, NH₄-N, NO₂-N, NO₃-Nの総和
7, 9, 11, 1月の表層水における平均値

(3年度の11月分は12月に調査)
年によって採水地点、採水地点数の違いがある

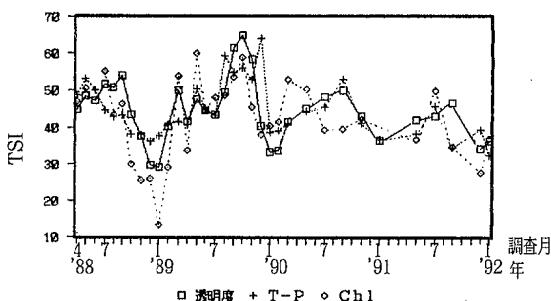


Fig. 3 Monthly variation of TSI in Lake Miike of productive zone

物プランクトン量を正確に表すという仮定によるものであり、御池のように透明度とクロロフィルaとの相関係数が-0.51と余り高くない湖沼では不適当である。そこで相崎等⁹⁾の修正カールソン指数（以下、TSIという）を用いて御池の水質を評価してみた。

月別に透明度、クロロフィルa及びT-PについてTSI指数を算出した。なお、生産層としては、表層照度の1%深度となっているが、照度の測定を行っていないため、透明度の約2.5倍値の水深10mまでの測定結果を平均したものを用いて算出した（Fig.3）。

また、TSI (SD) と TSI (Chl), TSI (SD) と TSI (T-P), TSI (T-P) と TSI (Chl) の相関係数は各々0.70, 0.62, 0.52であり、あまり高くなかった。

流入河川の調査方法

1 調査時期

流入河川の調査は、湖沼調査の実施日に併せて行い、計5回行った。

2 調査地点

調査地点（No.1～No.8の7地点）を、Fig.1に示した。

3 調査項目

調査項目及び分析方法は前報¹⁾のとおり、なお、御池に流入する河川水の流量調査においては、河川の場合、原則として流速と断面積を測定し、その積を求め、滝の場合は、一定容量のバケツ等を用いた簡単な方法により測定を行った。

流入河川の調査結果と考察

当湖の水質は、第2報³⁾で報告したように、平成元年7月から8月にかけてT-N及びT-P等に代表される栄養塩の大きな変動があった。その原因として流入河川等からの汚濁物質の流入があるのではないかと考え、平成2年度には、それぞれの河川の流量とCOD、窒素及びりんのような汚濁負荷の成分について調査を行った。しかし、前報で報告したように、降雨時の調査が十分に実施できなかったために、流量と汚濁物質流入の関係は、つきとめられなかった。今回、晴天時の調査は、湖沼調査の実施日に併せて当所で行い、降雨時の調査は高原町¹⁰⁾で実施した。

以下、平成2年度、3年度及び高原町の調査結果もあわせて考察を行った。

御池へ直接流入する河川はNo.1・2の滝（ほぼ同様の値を示しているので以下、滝とする）、No.3の刈茅港、No.4の黒仁田川、No.5の皇子港の5河川である。これらの河川の中で、當時流入しているのは滝と刈茅港で、雨天時に流入する河川として黒仁田川と皇子港の2河川がある。また、刈茅港の400m上流にNo.7の宮前、皇子港の350m上流にNo.8の片添が位置する。

1 流量と負荷量の関係

流量（Q）と負荷量（L）の関係をCOD、T-N、T-Pについて、経験式 $L=a \cdot Q^{n+1}$ で示したもののがTable 4である。

ほとんどの河川で流量と負荷量の相関は高く、特に相関係数が高いのは、片添であった。COD、T-N、T-Pともに0.97以上を示しており、片添へ流入する水質の汚濁源がこの流域に存在することを示唆するものと考えられる。片添における流量と負荷量との関係について、プロットしたグラフ（Fig.4.1-Fig.4.3）を示した。

1) 滝

滝におけるT-Nは0.15～0.35mg/lと湖水表層の年間平均値0.30mg/lに近い濃度を示すが、T-Pは0.03～

Table 4 Expression by regression ($L = a \cdot Q^n$)
Relationship between flow and T-COD,
T-N, T-P load

流入河川	水質項目	負荷量 (L) の経験式
No. 1 滝	COD	$L = 0.015 \cdot Q^{1.59} (r=0.59)$
	T-N	$L = 0.004 \cdot Q^{1.66} (r=0.69)$
	T-P	$L = 0.013 \cdot Q^{1.22} (r=0.92)$
No. 3 刈茅港	COD	$L = 4.155 \cdot Q^{0.90} (r=0.69)$
	T-N	$L = 0.647 \cdot Q^{1.13} (r=0.88)$
	T-P	$L = 0.022 \cdot Q^{1.08} (r=0.76)$
No. 4 黒仁田川	COD	$L = 4.899 \cdot Q^{1.16} (r=0.72)$
	T-N	$L = 4.961 \cdot Q^{1.15} (r=0.98)$
	T-P	$L = 0.107 \cdot Q^{1.27} (r=0.86)$
No. 5 皇子港	COD	$L = 19.95 \cdot Q^{0.98} (r=0.86)$
	T-N	$L = 9.764 \cdot Q^{0.76} (r=0.85)$
	T-P	$L = 2.964 \cdot Q^{0.76} (r=0.77)$
No. 7 宮前	COD	$L = 3.363 \cdot Q^{0.81} (r=0.66)$
	T-N	$L = 0.332 \cdot Q^{1.16} (r=0.80)$
	T-P	$L = 0.049 \cdot Q^{1.02} (r=0.76)$
No. 8 片添	COD	$L = 4.335 \cdot Q^{1.30} (r=0.99)$
	T-N	$L = 0.611 \cdot Q^{1.32} (r=0.97)$
	T-P	$L = 0.143 \cdot Q^{1.40} (r=0.97)$

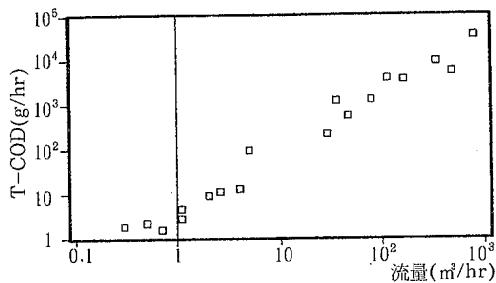


Fig. 4.1 Relationship between flow and T-COD load (No. 8 Katasoe)

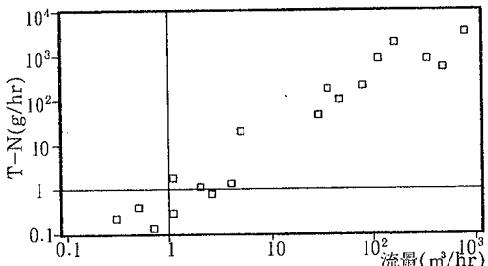


Fig. 4.2 Relationship between flow and T-N load (No. 8 Katasoe)

0.04mg/lと年間を通じて高く、湖水表層の年間平均値の0.008mg/lよりもはるかに高い。また、流量は、平均150m³/hrと多く、また、當時流入しているため、りんの供給源の1つとなっている。経験式でも相関係数が高いのは、りんだけであった。御池周辺が「野鳥

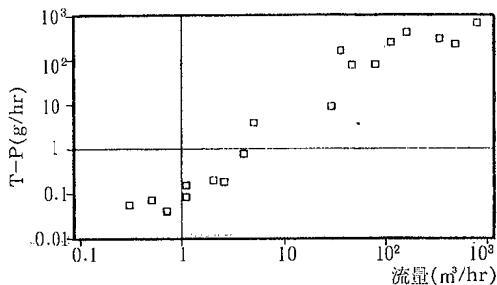


Fig. 4.3 Relationship between flow and T-P load (No. 8 Katasoe)

の森」として、毎年冬には約一万羽の鴨が飛来してくること、あるいは、流量と負荷量の相関が高いことから、上部に位置する小池や周辺の地質との関係も考えられるが、確認はできなかった。

2) 皇子港及び片添

皇子港及び片添は、通常流れではなく、降雨時のみ、水が流れている。

片添は、流域周辺に果樹園、畜産団地及び飼料畑が多く、これらの集水路となっている。片添における流量と負荷量の相関は高く、まとまった降雨があると、牛舎や畑の土壤表面を洗って片添に流れ込み、多量の汚濁物質の供給源となっていると考えられる。

また、この下流の皇子港でも同様の高い相関係数が得られた。しかし、流量に対するn値が片添よりもやや小さく、流量の変化に対して、片添ほどの負荷量変化はみられない。

3) 刈茅港及び宮前

宮前は降雨時のみ流れ、森林、畜舎及び畑からの集水路であり、下流の刈茅港へと流れている。しかし、晴天時において宮前で流れが確認できない時も、刈茅港の流量は約200m³/hrと多く、降雨時においては、刈茅港の流量の方が2倍以上も多い。これは、宮前から刈茅港に流下する途中に複数の湧水があり、天候に左右されない水量を供給しているためである。刈茅港では、常時、当湖に流入しており、平均T-N, T-Pが各々0.86mg/l, 0.029mg/lと湖水表層における平均値より高く、滝と並んでT-N, T-Pの供給源となっている。

今回の流入河川の調査で、流量と汚濁負荷量との間には大きな相関があることが確認できた。当湖が、りん制限湖であることから、滝及び刈茅港から流入する

りんの影響は大きい。また、降雨毎に当湖に流入する汚濁物質の影響も無視できず、今後何らかの対策を講じなければ、当湖の水質の改善は困難だと考えられる。

ま　と　め

1) 御池は冬期に循環し、夏期に成層を形成する単循環湖であり、また、年間を通じて水深30mより深い層では無酸素状態に近く、 NH_4^+-N 及び $\text{PO}_4^{3-}-\text{P}$ が高い値を示した。

2) 御池は水質調査及びプランクトン調査の結果から、貧栄養湖ないし中栄養湖であった。

3) 御池の水質は年によって、大きく変動しているが過去の測定結果と比較してみると、富栄養化の傾向にある。

4) 植物プランクトンの優占種は、淡水赤潮発生時には Peridinium bipes 、その他の大部分の時期には $\text{Flagellaria crotensis}$ が優占種となっていた。

5) 御池の富栄養化の原因の1つとして、御池に流入する河川からの汚濁物質の流入が上げられる。特に、晴天時と較べて、降雨時の汚濁負荷量の流入が高い値を示した。

お　わ　り　に

御池に昭和63年春、淡水赤潮が発生して以来、赤潮発生防止及び富栄養化防止の基礎資料を得る目的で水質調査を毎年行ってきた。淡水赤潮は、平成3年4月に小規模な発生が確認されただけで、過去のような大規模な発生は確認されていないが、水質は全体的に悪化している。また、 Peridinium 属による淡水赤潮は貧栄養もしくは中栄養の水質で発生することが知られており、赤潮発生の直接の原因については、水質汚濁の進行と関連があると思われる。

今回、御池の富栄養化の原因の1つとして、流入河川からの汚濁物質の流入が確認できた。今後、御池の富栄養化が進まないよう、また、水質改善のためには、河川から汚濁物質の流入対策が必要と考えられる。

謝　　辞

これまでの調査にあたり、調査及び採水にご協力いただいた高原町役場総務課、同観光協会の職員の方々に深く感謝いたします。

合わせて、今回の報告をまとめるにあたり、降雨時のデータの提供をいただいた高原町役場に深く感謝いたします。

参　考　文　献

- 1) 杉本美喜、高橋麻里子、河野謙一、岩切淳、野口辰美、後藤英治：御池の水質特性（第3報），宮崎県衛生環境研究所年報，2, 103-108, 1991
- 2) 高橋麻里子、柏田雅徳、黒木裕一、杉本美喜：御池の水質特性（第1報），宮崎県公害センター年報，11, 49-52, 1989
- 3) 杉本美喜、高橋麻里子、河野謙一、黒木裕一、後藤英治：御池の水質特性（第2報），宮崎県衛生環境研究所年報，1, 103-110, 1990
- 4) 日本文庫汚濁研究協会編：湖沼環境調査指針（公害対策技術同友会），1982
- 5) 水野壽彦：日本淡水プランクトン図鑑，保育社，1983
- 6) 福島博：淡水植物プランクトン（ニュー・サイエンス社），1983
- 7) 吉富堅一郎、原田博行、西森義継、谷川博利、前田武、武田攻：国立公園湖沼水質調査結果について、宮崎県衛生研究所報，18, 23-26, 1977
- 8) 小坂妙子、山田音由記、甲斐純男、小畠聰子：御池水質調査、宮崎県公害センター年報，8・9, 88-92, 1985
- 9) 相崎守弘、大槻晃、福島武彦、河合欣、細見正明、村岡浩：修正カールソン富栄養化状態指標の日本湖沼への適用と他の水質項目との関係、国立公害研究所研究報告，23, 13-31, 1981
- 10) 高原町：平成3年度御池流入観測及び水質調査等業務報告書，1992
- 11) 国立公害研究所編：陸水域の富栄養化に関する総合研究（V），国立公害研究所研究報告，21, 7-13, 1981

魚類のへい死事故に関する調査

河野謙一・野口辰美・関屋幸一
岩切淳・杉本美喜

Studies on Incidents of Dead Fish Occurred by Polluted Water

Ken'ichi KOHNO, Tatumi NOGUCHI, Koichi SEKIYA, Jun IWAKIRI, and Miki SUGIMOTO

We compiled data on circumstances of water pollution causing incidents of dead fish from 1987 to 1992 in Miyazaki prefecture. 42 incidents of dead fish happened between April 1987 and March 1992. 69 % of the incidents happened in the center region of the prefecture. 62 % of the total cases happened between May and July. Twice as many incidents happened on Monday than any other day of the week. Causes of the incidents that we have been investigating since 1989 include drugs for prevention of epidemics (pyridaphenthion and DDVP, 2 cases) ; oxygen-poor water (2 cases); organophosphorus insecticide (phenthroate, 1 case) ; herbicide (thiobencarb, 1 case) ; organochlorinated insecticide (endosulfan, 14 cases) ; unknown ones (9 cases).

Key words : water pollution, dead fish, pesticide, endosulfan, phenthroate

はじめに

魚類のへい死事故は、水質汚濁の一指標として重要であり、その原因解明については、住民及び行政関係者の期待が大きい。

事故の発生原因として、工場・事業所、農業関係、土木関係、生活衛生関係、産業廃棄物、密漁及び魚病等があり、又、原因物質として、酸素欠乏から酸、アルカリ、有害金属、シアン、フェノール、残留塩素、農薬等の化学物質及び熱水に至るまで多種類に及ぶことが知られている。

へい死事故の原因解明は、原因物質が非常に数多いことや、事故後、かなりの時間が経過しているため、流亡及び分解していることがあり、きわめて困難な場合が多い。しかし、原因を解明することにより、発生原因者に適切な指導及び対策を行うことができるので、水質汚濁の再発防止が期待できる。

県内における昭和62年度から平成3年度までのへい死事故の傾向及び平成元年度以降、原因の解明できた事故の調査結果について概要を報告する。

調査方法

環境科学部水質科

1 水質の簡易検査

水温*：現地で測定, pH*:ガラス電極法, DO*: ウィンクラー・アジ化ナトリウム変法, フェノール・亜鉛・水銀・鉄・シアン・クロム：迅速に結果を知るため、パックテスト（ヨシテスト）を使用し、異常値が検出された場合、工場排水試験方法により再測定する。

注 *印の項目は、保健所により検査。

2 へい死魚類の生物学的検査

へい死魚類について次の事項を観察し、事故原因の推定資料とする。

- ①口の開閉状況
- ②眼球（色、光沢及びうっ血）
- ③体表（色、粘液の分泌、うっ血、損傷）
- ④鰓（色、粘液の分泌、形状、うっ血）

へい死魚類の特徴的症状から、加藤ら¹⁾の方法等^{2), 3), 4)}を参考に、事故原因の物質等を推定する。

3 水質の農薬分析

現地調査（市町村及び保健所が担当）及び魚類の生物学的検査から、事故の原因として農薬の可能性が考えられる場合に実施する。

1) 農薬の抽出

水500mlに、塩化ナトリウム25gを加え、ジクロロ

メタン (100ml, 50ml) で2回抽出する。脱水、ろ過及び減圧濃縮後, n-ヘキサン5mlに溶解し, GC供試液とする。

2) 測定

a) ガスクロマトグラフ (検出器はECD, FPD, FTD)
(^{5), 6)}

カラムはmethyl silicone 及び50% phenyl methyl silicone (0.53 mmI.D.x 15m 又は0.25mmI.D. x 25m), 昇温条件で測定

b) GC/MS

ガスクロマトグラフで定量された物質について、確認のためにSIM法により測定。カラムは5% phenyl methyl silicone (0.25mmI.D.x 20m)

c) 高速液体クロマトグラフ (紫外検出器付き)

カラムはShim-pack CLC-ODS (4mmI.D.x 150 mm), GC供試液の一部をとり、溶媒留去後、メタノール (1ml) に溶解、ロテノンを対象⁵⁾。

4 細の農薬分析

1) 抽出及び精製

ホモジネート (可食部) 20g をアセトニトリル (100ml×2回) で抽出後、吸引ろ過し、濃縮する。5% 食塩水200mlで希釈後、ジクロロメタン (100ml×2) に転溶する。脱水、ろ過及び濃縮後、溶媒を留去し、n-ヘキサン (30ml) に溶解する。n-ヘキサンとアセトニトリルによる液・液分配の操作を経て、溶媒を留去し、n-ヘキサン (5ml) に溶解する。活性化フロリジルによる精製操作 (5g) を使用、第1分画15% エチルエーテル含有n-ヘキサン50ml、第2分画15% アセトン含有n-ヘキサン50ml、第3分画50% アセトン含有n-ヘキ

サン50mlにより溶出)⁷⁾を実施後、溶媒を留去し、n-ヘキサンに溶解してGC供試液とする。

2) 測定

水質の測定法に同様。

結果及び考察

1 過去5年間のへい死事故の傾向

昭和62年度から平成3年度までの5年間に、住民又は市町村等から保健所に届出があり、県公害課に連絡のあった当事故は、延42件であり、データを整理した結果は次のとおりである。

保健所管轄別の発生件数 (Table1) では、県央部 (宮崎、西都、高鍋保健所) が29件を数え、約69%を占めた。次に県南部 (日南、串間保健所) 9件、県西部 (都城、小林保健所) 4件の順であり、県北部 (延岡、日向、高千穂保健所) からの連絡はなかった。

年度別事故発生件数をFig.1に示した。年度により発生件数に変動がみられるが、過去5年間の年平均発生件数は約8件であった。

Fig.2は、5年間の事故件数を月別に集計した結果を示した。5月から7月 (年間発生件数の62%) が非常に多く、12月から3月は少ないが、年間を通して発生している傾向がみられる。夏期の5~7月は気温の上昇に伴う酸欠によるへい死事故の発生しやすい時期であり、又、早期水稻 (沿海地帯) の生育期間とも重複し、水田等において、農薬を使用する機会が多いことも原因の一つに推定される。

魚類のへい死事故の発生は、従来から月曜日の朝に

Table 1 The number of incidents of dead fish classified according to health center
(A total of 5 years since fiscal 1987)

Health center's name	The number of cases	Main occurrence place
Miyazaki	20	Asahi draining channel(4), the Shinbyu River(3) the Sakura River(2), the Yokoe River(2)
Saito	9	the Horikawa Canal(3), the Todaka River(2)
Nichinan	9	the Hagihara River(1), the Toshimi River(1)
Miyakonojyo	3	the Tozaki River(1)
Kobayashi	1	
Kushima	0	
Takanabe	0	
Hyuga	0	
Nobeoka	0	
Takahashi	0	

Note, () indicate the number of incidents

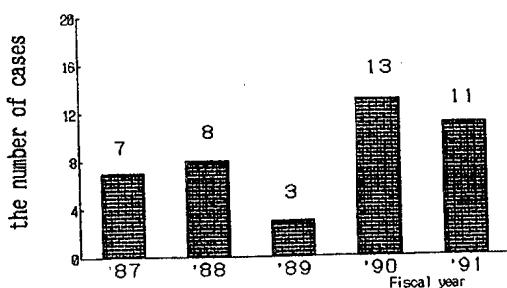


Fig. 1 The number of incidents of dead fish classified according to fiscal year

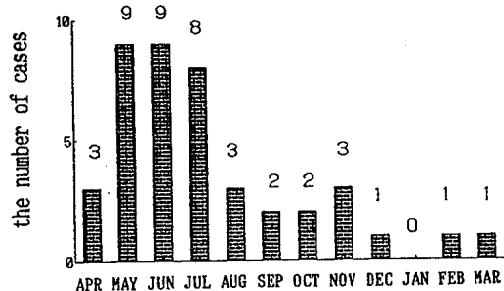


Fig. 2 The number of incidents of dead fish classified according to the month

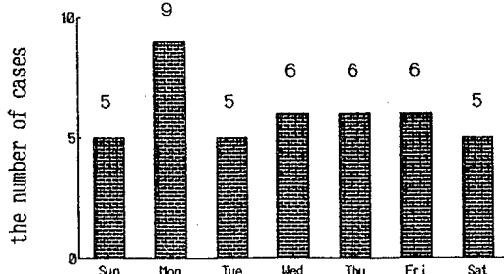


Fig. 3 The number of incidents of dead fish classified according to a day of the week

多いという傾向がみられたので、曜日別に集計した結果 (Fig.3), 月曜日が他の曜日の2倍近い9件 (5年間の集計) を示した。工場・事業所において、日曜日は一般に休業していることが多いことから、その原因の一つとして、兼業農家が日曜日に水田等の農作業を実施している実態と一致することを考慮する必要があると思われる。

2 魚類のへい死事故の調査結果

筆者らが直接、取扱った平成元年度以降のへい死事故 (平成4年8月までを含み、へい死事故40件の73%に相当する29件の中から、事故原因別に分類した結果がTable2である。

衛生害虫の駆除では、平成2年6月4日、南郷町目井

津港において、ボラやメジナ等が大量にへい死する事故が発生した。保健所の調査により、前日の午前中、港湾近くの排水溝にボウフラ等の駆除を目的としてオフナックVP乳剤 (成分はピリダフェンチオン, DDVP) を散布していたことが判明した。

検体採取は、事故2日後であったが、海水からピリダフェンチオン 0.0010mg/l , 魚から 0.01mg/kg , DDVPは水質及び魚ともにNDを示した。DDVPは分解が非常に速い性質があり、検出されなかったものと考えられる。当薬剤の各成分は、有機リン系化合物であり、防疫用のほか、農薬(殺虫剤)等の用途がある。当事故の場合、水質中のピリダフェンチオンは超微量であったが、聴取調査により原因が確定した事例である。

酸欠では、住宅が密集している市街地(宮崎市)の小河川において、富栄養化による溶存酸素の不足による事故及び、油分(成分は不詳)が原因と考えられる事故が各々1件であった。

有機リン系殺虫剤では、汽水域に棲息しているボラが大量死する事故(平成2年7月、南郷町の潟上川、流域は水田が多い)が発生した。河川水中にPAP (IS O名、フェントエート) を比較的、高濃度の 0.0101mg/l (LC_{50} 値の約2分の1に相当, Table 3), ダイアジノン 0.0007mg/l , MPPD 0.00031mg/l を検出したが、事故の原因是PAP剤によると考えられる。ボラは、コイに比較して、有機リン系殺虫剤等の農薬に大変弱いことが知られている。

有機塩素系殺虫剤が原因の場合、ベンゾエピン剤 (IS O名: エンドスルファン、商品名: マリックス等)による事故がほとんどを占めた。

当剤による事故は、平成2年度1件(西都市), 3年度2件(宮崎市、新富町各1件)であったが、4年度(8月までの集計)は11件(宮崎市9件、西都市及び川南町各1件)にのぼり、異常な多発事故であった。

当剤は魚毒性がきわめて高いことから、水質汚濁性農薬に指定されており、乳剤の LC_{50} (コイ, 48h) は $0.0015\text{ppm}^8)$ の超低濃度である。へい死事故後の追跡調査によれば、現場周辺は水田地帯で、ほとんどの水田及び用排水路にスクミリングガイ(俗称ジャンボタニシ)が多数、棲息しており、これらの駆除に使用した可能性が考えられる。ベンゾエピン剤と同時に検出された魚毒性の高い農薬は、有機塩素系殺菌剤のTPN(商品名: ダコニール等)の事例(平成4年4月、宮崎市新別府川、 0.0066mg/l を検出)があり、魚類

Table 2 Analytical results of water caused incidents of dead fish since fiscal 1989

Cause of the incident	Sampling date	Place	Typical kind of dead fish	Analytical results of water mg/l
Drugs for prevention of epidemics	6/6,'90 7/23,'90	the port of Meitu, Nango Town the Todaka River, Nichinan City	gray mullet crucian	pyridaphenthion 0.0010 pyridaphenthion 0.0006
Oxygen-poor water	4/11,'89 5/31,'90	the Komatu River, Miyazaki City the Shinbyu River, Miyazaki City	carp carp	D 0 4.1 Oil 502
Organophosphorus insecticide	7/9,'89	the Katakami River, Nango Town	gray mullet	phentoate 0.0101
Herbicide	4/19,'89	the irrigation canal, Miyazaki City	crucian	thiobencarb 0.012
Organochlorinated insecticide	12/26,'90 10/11,'91 11/29,'91 4/6,'92 4/29,'92 5/9,'92 5/11,'92 5/19,'92 6/10,'92 6/11,'92 6/16,'92 6/20,'92 6/25,'92 6/30,'92	the Yamaji River, Saito City the Furujiyo River, Miyazaki City the Yokoe River, Shintomi Town the Shinbyu River, Miyazaki City the Tenzin River, Miyazaki City the Isuzu River, Miyazaki City the irrigation canal, Miyazaki City the Sakura River, Saito City the Niinazume River, Miyazaki City the Kubo River, Miyazaki City the Maemizo River, Miyazaki City the Niinazume River, Miyazaki City the Ohtani River, Miyazaki City irrigation reservoir, Kawaminami T.	crucian crucian crucian carp carp crucian crucian crucian carp carp crucian crucian crucian crucian	endosulfan 0.0036 endosulfan 0.0084 endosulfan 0.0021 endosulfan 0.0075 endosulfan 0.0030 endosulfan 0.0053 endosulfan 0.0004 endosulfan 0.0061 endosulfan 0.0015 endosulfan 0.0007 endosulfan 0.0006 endosulfan 0.0013 endosulfan 0.0034 endosulfan tr

Table 3 LC₅₀ values for aquatic living things of pesticides^{8), 9)}

unit: ppm

Pesticide's name	Type of pesticide	Water temp. °C	Kind of fish	Testing hours	LC ₅₀ value	Toxicity rank(fish)
pyridaphenthion	dust	25	carp	48	7.6	B
DDVP	emulsion	25	carp	48	10-40	B
DDVP	technical	18	girella punctata	48	0.7	B
phentoate	emulsion	23.5	carp	24	1.2	B-s
phentoate	wettable	21.5-24.8	gray mullet	8	0.024	B
thiobencarb	emulsion	25	carp	48	1.45	B-s
endosulfan	emulsion	25	carp	24	0.0041	D
endosulfan	emulsion	25	carp	48	0.0015	D
TPN	wettable	25	carp	24	0.050	C

に対して大きな影響が考えられる。

3 へい死魚類の生物学的検査

ベンゾエピン剤によるへい死魚類には、有機塩素系農薬が示す一般的な症状のほかに、特有の症状がみられた。魚体の頭部、腹部、尾鰭に赤色のうっ血症状、体表及び鰓に著しい粘液の分泌が見られるほか、眼球部の角膜の部位に円弧状の出血症状 (Fig.4, Fig.5) が観察された。

魚の種類では、コイよりフナにおいて、眼球部から出血する頻度が高い傾向がみられたが、当症状はベンゾエピン剤を判定する有力な手がかりになるとされる。

なお、腹部等のうっ血による赤色の症状は、へい死後も時間の経過と共に拡大することを確認した。

当検査は、事故原因を推定する有力な手段になるが、

死後1日以上経過している場合、体表及び鰓の粘液が失われ、又、眼球も白濁化して、原因の推定ができない点が指摘される。

4 本県におけるへい死事故の特徴

本県におけるへい死事故の件数は、他県に比較して少ないが、発生原因者の自覚及び適切な行政指導があれば、発生を防止できる種類の事故（防疫用薬剤、ベンゾエピン剤等）が多い傾向がみられる。

又、都市特有のへい死事故と考えられるフェノール、シアンや有害金属、酸及びアルカリ等に起因する事故が少ない傾向がみられる。しかし、宮崎市の旭水路（商業及び住宅地域）において、過去5年間に4件の事故が報告（検体が搬入された事故は1件）されており、原因については解明されていない。

今後の対策として、原因の究明については、初動調



Fig. 4 Hemorrhage from eyeballs of a carp killed by river water contain endosulfan



Fig. 5 Hemorrhage from eyeballs of the carp

査における迅速な対応と共に、現地での聞き込み及びへい死魚の漂流している流域等の環境調査を重視した上で、へい死した魚類及び水質の検査が必要であると考えられる。

おわりに

本県における昭和62年度から平成3年度までの魚類のへい死事故（延42件）について、とりまとめた結果、届出件数の約69%を県央部が占めた。月別の発生件数では、5月から7月までの3カ月で年間発生件数の62%、曜日別では、月曜日が他の曜日の約2倍の発生件数を示した。

平成元年度以降の事故原因別の分類では、防疫用薬剤2件（ピリダフェンチオン・DDVP）、酸欠2件、有機リン系殺虫剤（PAP）1件、除草剤（ベンチオカーブ）1件、有機塩素系殺虫剤（ベンゾエピン）14件及

び原因不明9件であった。

魚類のへい死事故の原因究明については、原因物質が多種類に及び、きわめて低濃度であるため困難な場合が多い。しかし、事故原因の多くは、人の生活や生産活動における不注意によるものであり、日頃の適切な指導や啓蒙等により危被害を防止できる場合が多いのが特徴である。

魚類のへい死事故は、魚のみでなく、一般的に魚より毒性に弱い水生昆虫、甲殻類、プランクトン類にも大きな被害を与える、又、住民の飲料水源も汚染する可能性が大きいことを認識し、水質汚濁防止に努める必要があると考えられる。

謝辞

調査にあたり、ご協力いただいた県公害課水質保全係ならびに各保健所の職員に深く感謝いたします。

文献

- 1) 加藤邦夫、村瀬秀也、伊藤啓一、下川洪平：県下における魚類のへい死について（昭和45～52年度），岐公研年報，6，51～57，1977
- 2) 水尾實己、樋口文夫、二宮勝幸：第18回環境保全・公害防止研究発表会講演集，環境庁，20～21，1991
- 3) 水尾實己：酸素欠乏・過多及び残留塩素曝露時におけるコイの鰓の形態学的变化について，横浜市公害研究所報，4，143～152，1979
- 4) 斎藤治子、水尾實己：残留塩素のコイの鰓呼吸に及ぼす影響，横浜市公害研究所報，12，145～146，1987
- 5) 後藤真康、加藤誠哉：残留農薬分析法，ソフトサイエンス社
- 6) 後藤真康、加藤真哉：増補残留農薬分析法，ソフトサイエンス社
- 7) 山上富貴子、今泉則子、前川吉明、加藤誠哉：農薬の環境残留マルチ分析法の検討，第9回農薬残留分析研究会要旨集，日本農薬学会，28～31，1985
- 8) 田中二良編集：水生生物と農薬・急性毒性資料編，サイエンティスト社
- 9) 西内康浩：続・水生生物と農薬・急性毒性資料編，サイエンティスト社
- 10) 農業ハンドブック1992年版編集委員会編：農業

- ハンドブック1992年版, 日本植物防疫協会, 1992
- 11) 富澤長次郎, 上路雅子, 腰岡政二: 1989年版最新農薬データブック, ソフトサイエンス社
- 12) 小坂妙子: 魚類等のへい死事故調査, 宮崎県公害センター年報, 10, 93-94, 1987
- 13) 魚類指標による排水評価のための技術資料: 横浜公害研資料, 36, 1985
- 14) 福岡市環境局環境保全部指導課: 魚のへい死事故調査の手引, 1990
- 15) 水尾實己, 二宮勝幸: 魚類へい死事故に関する調査(第2報), 横浜市公害研所報, 13, 131-137, 1989

日本の流行地におけるアカネズミからの 紅斑熱群リケッチャの分離

山本正悟・森田千春^{*1}・土屋公幸^{*2}

Isolation of Spotted Fever Group Rickettsia from *Apodemus Speciosus*
in an Endemic Area in Japan

Seigo YAMAMOTO, Chiharu MORITA, and Kimiyuki TSUCHIYA

A Spotted fever group rickettsia was isolated from *Apodemus* mice captured near the site where a person had been infected in Miyazaki Prefecture.

Antigenic characteristics of the isolate designated as strain TO-1 were compared with those of *Rickettsia japonica* (strain YH) and *Rickettsia montana* (ATCCVR611) by the indirect fluorescent antibody test with 14 serum specimens obtained from *Apodemus speciosus* immune rat antisera against the strains TO-1 and YH, and three patients' sera.

The titers of these sera measured with strain TO-1 were identical to those with strain YH, suggesting the antigenic similarity between these two organisms.

It was also suggested that *Apodemus speciosus* is likely to be an important vertebrate host for a spotted fever group rickettsia in Japan.

Key words : spotted fever group rickettsia, *Apodemus speciosus*, strain TO-1

はじめに

日本における人の紅斑熱群リケッチャの存在は1985年に始めて報告され^{1) 2)}、その後患者が幾つかの地域、特に日本の南部で報告されている。

1986年内田らは、四国の患者から病原リケッチャの分離に成功し³⁾、患者の血液から分離された紅斑熱リケッチャの抗原性がそれまで知られていたものと異なることから、新しく分離された株を *Rickettsia (R.) japonica*, YH株と命名することを提唱した。

日本における患者の多くは、野鼠から感染しており、このうち特にアカネズミ (*Apodemus speciosus*) が主であると考えられている。また、最近我々は、流行地のアカネズミが紅斑熱群リケッチャの抗体を高率に保有していることを報告した^{1) 2)}。今回、我々は、ア

カネズミから紅斑熱リケッチャの分離を試みたので報告する。これは、日本における野鼠からの紅斑熱リケッチャ分離の最初の報告である。

材料と方法

1. 使用抗原

使用した紅斑熱群リケッチャは *R. japonica* YH株と *R. montana* ATCC VR-611株を用い、分離株は TO-1と表した。なお、本研究で使用した Vero-E6 細胞は、Dr. J. McCormick, Special Pathogens Branch, CDC, Atlanta, GAより分与されたものを使用した。

2. 使用血清

微生物部ウイルス科 *1 国立予防衛生研究所獣疫部 *2 宮崎医科大学動物実験施設

本文は、Jpn. J. Med. Sci. Biol., 45, 81-86, 1992. で誌上発表したものを、翻訳、一部改変したものである。

R. japonica YH株と*R. montana*ATCC VR-611株との比較は、アカネズミ血清、ラット免疫血清、それと患者血清を用い、間接蛍光抗体法（IFA法）を用いて調べた。

アカネズミ血清：既報^{1,2)}のアカネズミの血清14種を用いた。なお、TO-1株はそのうちの1匹から分離されたものである。

ラット免疫血清：4週齢のWister rats（静岡実験動物センター、静岡県浜松市）に、TO-1あるいは、YH株を皮下接種し、接種後3, 4, 6週で採血した。

患者血清：宮崎県内で紅斑熱様症状を呈した3人の患者の血清を用いた。

3. IFA法

IFAの方法と抗原の調製は、既報の通りである。なお、IFA法にはFITCラベル抗ラットIgGヤギ血清（Cappel Lab., Cochranville, PA）と抗ヒトIgG, IgM (γ 鎖特異的と μ 鎖特異的) ヤギ血清（Tago Inc., Burlingame, CA）を使用した。

4. 分離方法

患者が感染したと思われる場所の近く（Table IIIのBに示した患者）で捕獲した14匹のアカネズミのうち12匹の各脾臓を抗生物質、フェノールレッド不含のEagle's MEM（日本水製）に2%のNCSを加えた培地を用い、乳剤とした。さらに、乳剤をホモジネート後、2000rpm10分遠心した上清を、単層となったVero-E6細胞に接種した。

結果

脾臓をホモジネートして接種した12本のうち1本が、接種後7日目に細胞変性効果（CPE）を示し、さらに、Vero-E6細胞を3代継代するとCPEは接種後4日以内に出現するようになった。また、CPEを示した細胞を抗原として、患者血清を用いてIFAを行なうと約80%の細胞でリケッチャ粒子に特異的な蛍光を示した。なお分離した株はTO-1株と表した。アカネズミの血清抗体価をTable 1に示した。*R. montana*に対する抗体価はTO-1やYH株より低い（P<0.01）が、TO-1やYH株に対する抗体価の間に差はみられなかった。免疫ラット血清に対する抗体価をTable IIに示す。*R. montana*は、TO-1やYH株より低いが、表に示すように、TO-1やYH株との間に抗体価の差はみられない。

Table 1 Antibody titers of *Apodemus speciosus* sera

<i>Apodemus</i>	<i>speciosus</i>	Antibody titer to:		
		TO-1	YH	VR611
TO-1		1280 ¹⁾	1280	320
TO-2		5120	5120	2560
TO-3		2560	2560	640
TO-4		1280	1280	320
TO-5		320	160	160
TO-6		2560	2560	640
TO-7		320	320	160
TO-8		5120	2560	640
TO-9		640	640	320
TO-10		80	80	80
TO-11		5120	2560	2560
TO-12		1280	640	320
TO-13		640	640	320
TO-14		1280	1280	640
Geometric mean		1159	951	430

YH:*Rickettsia japonica*, VR611: *Rickettsia montana*.

¹⁾ Titration was performed by the indirect IFA test and the titers are expressed as the reciprocal of the highest serum dilution that was positive.

Table 2 Antibody titer of immune rat sera

Immune serum against	Weeks after inoculation	Antibody titer to:		
		TO-1	YH	VR611
TO-1	10240 ¹⁾	10240	5120	
	20480	20480	5120	
	10240	10240	5120	
YH	10240	10240	1280	
	10240	10240	2560	
	5120	5120	2560	

¹⁾ The same as Table I.

Table 3 Antibody titers of sera from patients in Miyazaki Prefecture

Patient	Days after onset of disease	Immuno-globulin	Antigen		
			TO-1	YH	VR611
A	8	IgM	<20 ¹⁾	<20	<20
		IgG	<20	<20	<20
	23	IgM	320	320	320
		IgG	640	640	320
B	5	IgM	<20	<20	<20
		IgG	<20	<20	<20
	21	IgM	5120	5120	1280
		IgG	20480	20480	10240
C	6	IgM	80	160	80
		IgG	640	640	160
	19	IgM	320	640	320
		IgG	1280	1280	320

¹⁾ The same as Table I.

かった。次に、Table IIIに示すように3患者の対血清で

TO-1とYH株に対する抗体価はそれぞれ同様に著明な上昇がみられた。

考 察

我々は、流行地である宮崎県と、非流行地である神奈川県での血清疫学調査の結果から、アカネズミが野外脊椎動物での紅斑熱群リケッチャの重要な宿主の一つであろうと報告した^{1,2)}。

今回、我々は、一人の患者が感染したと思われる場所の近くで捕獲したアカネズミより、紅斑熱群リケッチャを分離することができた。また、この分離株TO-1は、日本での人からの分離株である*R. japonica*と同様の抗原性を示した。これらの結果は、アカネズミが日本における紅斑熱群リケッチャの脊椎動物での重要な宿主であることを示唆している。

謝 辞

稿を終えるに当たり、*R. japonica*を分与下さいました徳島大学医学部ウイルス学教室の内田孝宏先生、*R. montana*を分与下さいました国立予防衛生研究所ウイルス、リケッチャ部の坪井義昌先生に深謝いたします。

文 献

1) Funato, T., Kitamura, Y. and Kawamura, A.: Rickettsiosis of spotted fever group encountered in Muroto area of Shikoku, Japan-clinical and epidemiological features of 23 cases. J. Jpn. Assoc. Infect. Dis., 62, 783-791, 1988 (in Japanese).

2) Mahara, F., Koga, K., Sawada, S., Taniguchi, T., Shigemi, F., Suto, T., Tsuboi, Y., Oya, A., Koyama, H., Uchiyama, T. and Uchida, T.: The first report of the rickettsial infections of spotted fever group in Japan; three clinical cases. J. Jpn. Assoc. Infect. Dis., 59, 1165-1172, 1985 (in Japanese)

3) Kaiho, I., Tokieda, M., Ohtawara, M., Uchiyama, T.: Occurrence of rickettsiosis of the spotted fever group in Chiba Prefecture in Japan. Jpn.

J. Med. Sci. Biol., 81, 69-71, 1988

4) Kobayashi, Y., Tange, Y., Kanemitsu, N., Okada, T. and Mahara, F.: The causative agent from a patient with spotted fever group rickettsiosis in Tokushima, Japan. J. Jpn. Assoc. Infect. Dis., 62, 1132-1137, 1988 (in Japanese).

5) Kobayashi, Y., Tange, Y., Okada, T. and Kodama, K.: The causative agent from a patient with spotted fever group rickettsiosis in Japan on Awaji Island, Hyogo. J. Jpn. Assoc. Infect. Dis., 64, 413-418, 1990 (in Japanese).

6) Morita, C., Tsuboi, Y., Iida, A., Mohri, S., Handa, S. and Fukui, M.: Spotted fever group rickettsia in dogs in Japan. Jpn. J. Med. Sci. Biol., 42, 143-147, 1989

7) Uchida, T., Mahara, F., Tsuboi, Y. and Oya, A.: Spotted fever group rickettsiosis in Japan. Jpn. J. Med. Sci. Biol., 38, 151-153, 1985

8) Yamamoto, Y., Kawabata, N., Uchiyama, T. and Uchida, T.: Evidence for infection caused by spotted fever group rickettsia in Kyushu, Japan. Jpn. J. Med. Sci. Biol., 40, 75-78, 1987

9) Uchida, T., Tashiro, F., Funato, T. and Kitamura, Y.: Isolation of a spotted fever group rickettsia from a patient with febrile exanthematous illness in Shikoku, Japan. Microbiol. Immunol., 30, 1323-1326, 1986

10) Uchida, T., Uchiyama, T., Kumano, K. and Walker, D. H. (1992): *Rickettsia japonica* sp. nov., the etiological agent of spotted fever group rickettsiosis in Japan. Int. J. Syst. Bacteriol., 42, issue 2, in press.

11) Tamiya, T. (1962): Rickettsia harboring rodents. In p. 108-112. T. Tamiya (ed.), Recent advances in studies of tsutsugamushi disease in Japan. Medical Culture Inc., Tokyo.

12) Morita, C., Yamamoto, S., Tsuchiya, K., Yoshida, Y., Yabe, T., Kawabata, N. and Fukui, M.: Prevalence of spotted fever group rickettsia antibody in Apodemus speciosus captured in an endemic focus in Miyazaki Prefecture, Japan. Jpn. J. Med. Sci. Biol., 43, 15-18, 1990

食物繊維の生理作用と所要量に関する研究 －食物繊維の血糖値への影響について（宮崎県における実験結果）－

武田 攻・小野 和則・山本 雄三・
園田 恵理・橋口 玲子*†

Studies on the Physiological Function and Admittable Daily Intake of Dietary Fiber.
Effects of Dietary Fiber on Blood Sugar Level in Miyazaki Prefecture.

Osamu TAKEDA, Kazunori ONO, Yuzo YAMAMOTO, Eri SONODA, and Reiko HASHIGUCHI

This study was carried out through the co-operative research of Japan Association of Prefectural and Municipal Public Health Institutes. To investigate the effects of dietary fiber on blood sugar level, 13 volunteers took dietary fiber-containing flakes for 4 weeks, and then the blood sugar level and the concentration of C-peptide and fructosamine in their blood were measured. Dietary fiber given to volunteers were psyllium (water soluble) and bran (water insoluble).

The test results of the blood sugar level and the concentration of C-peptide and fructosamine are shown in Table I, II and III. Since the results of co-operative research including our data is to be reported in detail by the Japan Association of Prefectural and Municipal Public Health Institutes, the present report should be regarded as only preliminary.

Key word : dietary fiber, blood sugar level.

はじめに

地方衛生研究所全国協議会の共同研究として平成元年度から実施した「食物繊維の生理作用と所要量に関する研究」も平成3年度でいよいよ最終年度となった。主任研究者も、平成3年度に大阪府立公衆衛生研究所の国田信治所長から神奈川県衛生研究所の松崎稔所長に交代となった。これまでの2年間の共同研究では、平成元年度は食物繊維量と排便回数の関係、平成2年度は食物繊維の血清コレステロールへの影響について検討してきた。

今回の平成3年度の共同研究では、食物繊維の血糖値への影響を検討した。食物繊維を4週間摂取した後、採血し、その血中の血糖値、フルクトサミン、C-ペプチドを測定し、食物繊維摂取による影響をしらべた。

ところで、フルクトサミンはGlycated Proteinであり、Glycated Hemoglobin (HbA) 同様血糖管理の指標となる。HbAは約1～2ヶ月前の、フルクトサ

ミンは約1～2週間前の血糖値と相関があるといわれているので、フルクトサミンを測定することは、一定期間食物繊維を摂取した後の血糖値の変化が評価できる。またC-ペプチドは、プロインスリンからインスリンが生成されるときに遊離されるので、インスリン量と相関性がある。

今回の共同研究は、全国のデータの統一性を保たせるために、血糖値・フルクトサミン・C-ペプチドの測定は臨床検査機関1ヶ所で実施し、日常の食物繊維の摂取量を求める食事記録の集計は事務局の神奈川県衛研で行った。そしてデータの解析も事務局で行う予定であるので、ここでは宮崎県で担当した実験について、その方法および結果の事実のみを記し、記録に残すことにしたい。

実験方法

1. 食物繊維の摂取実験

*衛生化学部食品科 †現 延岡保健所

実験は、事務局の準備の遅れと当所職員の異動時期にさしかかったために大幅に遅れたが、平成4年4月13日より5月25日までの6週間に行った。最初の2週間は対照となる期間で、第1週は被験者が摂取した1週間の食事の記録を行った。また1週目の最後の日は、空腹状態で採血し、血糖、フルクトサミン、C-ペプタイドの測定用とした。さらに糖を負荷して採血し、血糖値の変化の測定に供した。そしてまた2週目の最後の日は、空腹状態で採血し、血糖、フルクトサミン、C-ペプタイドの測定用とした。さらに指定された食物繊維液を摂取した状態で糖を負荷して採血し、血糖値の変化の測定用とした。第3週～第6週目の4週間は、通常の日常食を摂取しながら指定された食物繊維フレークを毎日2箱（約40g）ずつ食べた。また第3週と第5週は被験者が摂取した1週間分の食事の記録を行った。そして6週目の最後の日（実験最終日）に、空腹状態で採血し、血糖、フルクトサミン、C-ペプタイドの測定用とした。さらに指定された食物繊維液を摂取した状態で糖を負荷して採血し、血糖値の変化の測定用とした。

なお実験は二重盲検法で実施し、与えられた試料の内容は、被験者にはもちろん実験担当者にも実験が終了するまで知らされなかった。

2. 実験材料

1) 試料

被験者に試料として与えられた食物繊維は、A,B,Cの3種類で、A:サイリウム（水溶性食物繊維）、B:ふすま（水不溶性食物繊維）、C:対照（食物繊維を含有しない）である。いずれも日本ケロックKKから事務局が購入したもので、被験者は1箱20g入りのフレーク（A,Bの場合、食物繊維として約3g含有）を毎日2箱ずつ摂取した。

2) 糖液

血糖値の変化をしらべるために、空腹状態で糖を負荷（糖液を摂取）した。それには径口糖忍容力試験用糖質液トレーランG75（清水製薬KK製造）を用いたが、1瓶（225mL）中にデンプン部分加水分解物100g（ブドウ糖に換算して75g）を含有した。

3) 食物繊維液

第2週および第6週の終わりの糖負荷時には、糖液と一緒に試料と同じ種類の食物繊維液を摂取した。その食物繊維液は、試料の食物繊維フレークの原料の食物繊維粉末A,B,Cのいずれか3gを、ガラス製コップにより、熱湯約100mLを加えて溶解し、電子レンジで1分

加熱した後、冷却して調製した。

3. 被験者

被験者は、ボランティアとして当所職員13名に依頼した。全て健康な者で、内訳は、男性12名、女性1名、そして年令別では20代2名、30代3名、40代5名、50代3名である。なお、13名のうちから、試料Aには5名、試料Bには4名、試料Cには4名を、くじにより無作為に割り当てた。

4. 採血

血糖値、フルクトサミン、C-ペプタイドを測定するために、第1週、第2週、第6週の終わりに採血を行った。採血にあたって被験者には予め、前日午後10時以降の飲食は控えること、また当日の朝食は採らないことを依頼した。空腹時の採血では7mLとり、血液から血漿と血清を分離し、血漿は血糖値測定用に、血清はフルクトサミン、C-ペプタイド測定用に用いた。空腹時の採血を済ませると、糖を負荷（第2週と第6週の終わりにあっては同時に食物繊維液を摂取）し、1時間後、2時間後にそれぞれ2mLずつ採血し、血漿を分離して血糖値の測定に供した。

5. 血糖値、フルクトサミン、C-ペプタイドの測定

分離した血漿および血清は、臨床検査機関の株式会社エースアールエルの検査センター（東京都八王子市）に送り、そこで血糖値、フルクトサミン、C-ペプタイドを測定した。

6. 食事記録

この実験で与えられる食物繊維フレークの外に、被験者が日常生活で実際に摂取している食物繊維量を算出する必要がある。そのため被験者には第1週、第3週、第5週について、1週間分実際に食べたものを全て記録してもらった。これらの食事記録は事務局の神奈川県衛研に送付した。現在同所で総食物繊維摂取量を算出中である。

結果

C-ペプタイド、フルクトサミン、血糖値の測定結果をそれぞれ表1、表2、表3に示す。そしてプライバシーを考慮して、被験者が特定されないように、試料Aを採った5名は順不同にA1~A5とし、同じく試料B、試料Cを採った人はそれぞれB1~B4、C1~C4とした。なおこれらは株式会社エースアールエルの測定になるものである。

表1. C-ペプタイドの測定結果 (単位 ng/ml)

ボランティア	1週	2週	6週
	対照	対照	食物繊維摂取後
A 1	2.6	2.2	1.4
A 2	1.7	2.9	1.7
A 3	2.1	2.4	1.8
A 4	3.4	2.6	1.8
A 5	3.3	3.3	2.6
B 1	3.5	1.6	1.8
B 2	3.2	2.6	2.5
B 3	1.6	2.9	2.6
B 4	3.1	3.2	2.2
C 1	5.4	4.5	3.4
C 2	2.7	3.0	2.0
C 3	1.4	1.6	2.0
C 4	2.2	1.9	2.5

表2. フルクトサミンの測定結果 (単位 μmol/l)

ボランティア	1週	2週	6週
	対照	対照	食物繊維摂取後
A 1	262	250	251
A 2	303	287	296
A 3	262	263	269
A 4	227	237	233
A 5	272	277	276
B 1	262	264	260
B 2	271	260	262
B 3	246	238	244
B 4	252	249	258
C 1	237	230	231
C 2	261	260	257
C 3	278	262	270
C 4	269	248	247

表3. 血糖値の測定結果 (単位 mg/dl)

ボランティア	1週			2週			6週		
	対照 (糖液のみ)			対照 (糖液+食物繊維液)			食物繊維摂取後 (糖液+食物繊維液)		
	空腹時	糖負荷	糖負荷	空腹時	糖負荷	糖負荷	空腹時	糖負荷	糖負荷
	1時間後	2時間後		1時間後	2時間後		1時間後	2時間後	
A 1	100	150	110	99	137	102	85	82	84
A 2	105	150	124	102	118	123	95	127	96
A 3	84	76	69	92	81	83	80	81	70
A 4	97	72	81	98	56	103	89	104	93
A 5	95	112	127	97	126	148	99	138	126
B 1	105	110	85	95	147	151	93	139	183
B 2	101	99	115	102	95	96	83	126	90
B 3	84	94	76	92	113	95	84	94	99
B 4	108	93	105	109	103	103	90	83	107
C 1	106	210	160	101	137	130	94	181	146
C 2	106	157	58	105	161	83	87	135	70
C 3	87	140	87	92	104	93	78	125	86
C 4	101	124	99	93	92	130	92	148	93

謝 辞

今回の調査にあたり、食物繊維フレーク摂食、採血、その他で多くの当所職員の協力を得ました。ここに厚く御礼申しあげます。とくにボランティアになっていただいた方には無理なことを多くお願いしましたが、本当にありがとうございました。備考欄に3年間の調査に協力いただいた方の名前を記し感謝に替えたいと存じます。また神奈川県衛生研究所の渡辺重信企画指導室長、大阪府立公衆衛生研究所の西宗高弘食品化学課長には大変お世話になりました。

文 献

- 1) 地方衛生研究所全国協議会：表示栄養成分の分析法と摂取量に関する研究。1987。
- 2) 地方衛生研究所全国協議会：主要食品の食物繊維量測定に関する研究（地研協健康報告1989）

3) 地方衛生研究所全国協議会：食物繊維の生理作用と所要量に関する研究（地研協健康報告1990）

4) 地方衛生研究所全国協議会編首編：食物繊維成分表。第一出版。1990。

5) Takahiro NISIMUNE, Tatsuo SUMIMOTO, Tsumoru YAKUSIJI and Nobuharu KUNITA: Determination of Dietary Fiber in Japanese Foods. J. Assoc. Off. Anal. Chem., 74 (2) 350~359 (1991).

6) 科学技術庁資源調査会編：日本食品標準成分表。四訂版。1982。

7) 科学技術庁資源調査会編：日本食品脂溶性成分表。1989。

8) 印南敏、菅原龍幸、鈴木一正、辻啓介編：食品の食物繊維・無機質・コレステロール・脂肪酸含量表・医歯薬出版。1985。

9) 印南敏：食物繊維の知識。昭和59年度健康・体力づくり事業財団健康情報調査報告書。P. 81~119

(1985)

備 考

1. 平成3年度共同研究参加の地研

神奈川県衛生研究所、千葉県衛生研究所、堺市衛生研究所、尼崎市立衛生研究所、奈良県衛生研究所、和歌山県衛生公害研究センター、岡山県環境保健センター、福岡県保健環境研究所、横浜市衛生研究所、宮崎県衛生環境研究所

2. ボランティア氏名

平成元年度（20名）

斎藤和洋、高橋麻里子、山内幸子、川畑紀彦、川畑輝子、串間奉文、串間公代、串間博希、野崎なおみ、

橋口玲子、長友喜代美、平田泰久、山本順子、福島敦子、山本雄三、河野喜美子、岩切伸子、大浦恭子、安楽葉子、川越ヤス子

平成2年度（20名）

長友喜代美、古賀綾子、井上朱美、八木利喬、津曲洋明、山本正悟、前田武、山本雄三、橋口玲子、武田攻、平田泰久、野崎祐司、加藤妙子、岩切伸子、河野謙一、岩切淳、高橋麻里子、杉本美喜、斎藤信弘、川井田哲郎

平成3年度（13名）

川畑紀彦、八木利喬、城信俊、吉野修司、前田武、平田泰久、野崎祐司、武田攻、山本雄三、迫田勝蔵、斎藤信弘、山田音由記、杉本美喜

宮崎県内における環境放射能調査

野 崎 祐 司・平 田 泰 久・前 田 武

Radioactivity Survey Data in Miyazaki Prefecture

Yuji NOZAKI, Yasuhisa HIRATA, and Takeshi MAEDA

Key words : radioactivity, fall-out, gross β

は じ め に

本県内の平常時における環境放射能レベルについては昭和63年度に当所に機器が配備されて以来、全国調査の一環として調査を続けているが、このたび平成3年度の調査を終了し結果を取りまとめたので、その概要を報告する。

調 査 の 方 法

1 調査対象

降水：降雨を午前9時毎に採取し、担体等 (I^- , Ag^+ , HNO_3) を添加した後濃縮乾固し、全 β 放射能を測定した。

大気浮遊塵：ハイポリウムエアサンプラーで濾紙上に採取した浮遊塵について、そのまま γ 線核種分析を実施した。

降下物：大型水盤に水を張り降下してくる放射性物質を捕集し、担体等を添加した後濃縮乾固し、 γ 線核種分析を実施した。

蛇口水：試験室内の蛇口より上水を採取し降下物と同様に処理した。

土壤：圃場より採取した上層及び下層の土壤を乾燥後粉碎し、 γ 線核種分析を実施した。

精米、牛乳：生産地から採取した試料について、そのまま γ 線核種分析を実施した。

野菜、茶、日常食：生産地から直接採取した野菜（大根、ホウレン草）、煎茶、及び毎回5名のボランティアにより集められた各自1日分の食事等を乾燥炭化後灰化し、 γ 線核種分析を実施した。

空間放射線量率：NaI (Tl) シンチレーション検出器を屋上（地上高20m）に設置し、常時連続して測定

するとともに、サーベイメータにより地表上1mにおける線量率を測定した。

2 測定装置

全 β 放射能：GM式 β 線測定装置（アロカJDC-163）

γ 線核種分析：Ge半導体核種分析装置（SEIKO EG&G MODEL7800）

空間放射線量率：モニタリングポスト（アロカMAR-11）及びシンチレーション式サーベイメータ（アロカTCS-151）

調 査 結 果

降水中の全 β 放射能調査結果を表1に示す。平成3年度は124回、合計3023mmの降雨があり、2月と3月に合計3回検出されたが異常は認めなかった。

表2に γ 線放出核種分析結果を示す。人工放射性核種としては ^{137}Cs が降下物、土壤、野菜（ホウレン草）、茶、牛乳及び日常食から検出されたが、その量は昭和63年度、平成元年度及び平成2年度の本県及び他県の調査結果^{1)~3)}とほぼ同程度であった。その他の人工放射性核種として ^{134}Cs が茶から検出された。

表3にモニタリングポスト及びサーベイメータによる空間放射線量率調査結果を示す。年度間平均はモニタリングポストによる測定結果が11.5cps、サーベイメータによる測定結果が37.9nGy/hであった。いずれも前年度の調査結果と同程度のレベルであった。

なおこれらのデータは、科学技術庁からの環境放射能水準調査の委託により得られた成果の一部である。

文 献

1) 科学技術庁：第31回環境放射能調査研究成果論文

抄録集（昭和63年度）

2) 科学技術庁：第32回環境放射能調査研究成果論文

抄録集（平成2年度）

3) 科学技術庁：第33回環境放射能調査研究成果論文

抄録集（平成2年度）

表1. 定時降水試料中の全β放射能調査結果

採 年	取 月	降 水 量 (mm)	降水の定時採取(定時降水)			月間降水量 (MBq/km ²)
			放射能濃度(Bq/l)	測定数	最低値	
平成3年	4月	228	12	N.D	N.D	N.D
	5月	447	12	N.D	N.D	N.D
	6月	426	16	N.D	N.D	N.D
	7月	197	11	N.D	N.D	N.D
	8月	216	13	N.D	N.D	N.D
	9月	538	11	N.D	N.D	N.D
	10月	196	8	N.D	N.D	N.D
	11月	86	5	N.D	N.D	N.D
	12月	74	7	N.D	N.D	N.D
	平成4年	1月	110	8	N.D	N.D
	2月	38	5	N.D	1.79	4.3
	3月	467	16	N.D	1.53	187.6
	年間値	3023	124	N.D	N.D~1.79	N.D~187.6
前年度までの過去3年間の値			285	N.D	N.D	N.D~N.D
昭和63年7月調査開始			(N.D: 計数値がその計数誤差の3倍未満)			

表2. ゲルマニウム半導体検出器による核種分析測定調査結果

試料名	採取場所	採取年月	検体数	¹³⁷ Cs		前年度までの		その他の検出された人工放射性核種	単位
				平成3年度の値	最低値 最高値	過去3年間の値	最低値 最高値		
大気浮遊塵	宮崎市	3.4~4.3	4	N.D	N.D	N.D	N.D		MBq/m ³
降下物	"	3.3~4.3	13	N.D	0.13	N.D	0.58		MBq/km ²
地下水	蛇口水	3.6, 3.12	2	N.D	N.D	N.D	N.D		MBq/l
土壤	0~5 cm 佐土原町	3.7	1	9.2		11	11		Bq/kg乾土
				680		750	880		MBq/km ²
	5~20 cm "	"	1	7.9		8.8	11		Bq/kg乾土
				1600		1700	2300		MBq/km ²
精米	"	3.8	1	N.D	N.D	N.D	N.D		Bq/kg精米
野菜 大根	高鍋町	3.12	1	N.D	0.025	0.071	0.071		Bq/kg生
茶 カレ草	"	"	1	0.075		0.13	0.33		
牛 乳	川南町, 都城市	3.5, 3.5	2	0.98	3.3	1.1	5.2	¹³⁴ Cs	Bq/kg乾物
日 常 食	高原町	3.8, 4.2	2	0.094	0.20	N.D	1.0		Bq/l
	宮崎市, 高原町	3.6, 3.12	4	0.046	0.17	0.056	0.19		Bq/人・日
昭和63年7月調査開始			(N.D: 計数値がその計数誤差の3倍未満)						

表3. 空間放射線量率測定結果

測定年月	モニタリングポスト(cps)			サーベイメータ (nGy/h)
	最低値	最高値	平均値	
平成3年	4月	10.5	18.0	11.5
	5月	10.2	16.5	11.6
	6月	10.0	16.7	11.4
	7月	10.1	17.7	11.1
	8月	10.3	14.8	11.2
	9月	10.3	15.0	11.3
	10月	10.3	15.4	11.6
	11月	10.5	15.3	11.5
	12月	10.3	16.6	11.5
	平成4年	1月	10.5	17.3
	2月	10.5	16.0	11.4
	3月	10.5	20.4	12.1
	年間値	10.0	20.4	11.5
	前年度までの 過去3年間の値	10.2	23.0	13.0
昭和63年7月調査開始			34~44	
			35~49	

宮崎県内における土壤試料の放射能調査

野崎祐司・平田泰久・前田武

Radioactivity Survey Data of Soil in Miyazaki Prefecture

Yuji NOZAKI, Yasuhisa HIRATA, and Takeshi MAEDA

Key words : radioactivity, soil, tea, γ -survey meter

はじめに

本県は昭和63年度から科学技術庁の委託事業として環境放射能水準調査を実施し、この調査結果から県内の環境放射能レベルに異常がないかを監視している。しかし、海外・国内での原発事故等を考慮すると、県内の平常時における環境放射能レベルについて、より詳細に調査しておく必要がある。平成3年度は、県西部を中心に、土壤試料の γ 線核種分析及びサーベイメータによる空間放射線量率の測定を実施した。

また、放射能水準調査の土壤採取地点と県内の他の土壤採取地との比較を行い、茶畠の土壤と茶の木について ^{137}Cs の核種分析を実施したので、その結果を報告する。

調査の概要

1 試料採取

空間放射線量率は、県西部に位置する10市町村から各1ヶ所（役場）選定し、サーベイメータにより地表上1mにおける線量率を測定した。

土壤試料は、県西部に位置する10市町村から各1ヶ所（公園、グランド）及び水準調査で試料を採取する野菜と茶を栽培している畑地3ヶ所を選定し、ステンレス製円筒型採土器を用い、上層（0～5cm）、下層（5～20cm）の2種層を、6～8点採取し調査を行った。

茶の木は、1本採取し、水洗後3日間陰干して風乾し、葉・幹（枝）・根に分割した。

2 測定方法

試料の前処理及び測定は「放射能測定調査委託実施計画書（平成3年度）」及び科学技術庁放射能測定シリーズ^{1) 2)}に基づいて行った。

3 測定装置

空間放射線量率：シンチレーション式サーベイメータ（アロカTCS-151）

γ 線核種分析:Ge半導体核種分析装置（SEIKO EG&G MODEL7800）

調査結果

表1にサーベイメータによる空間放射線量率調査結果を示す。

平均値では、高城町〔役場〕の62.5nGy/hが最大で、野尻町〔役場〕の54.8nGy/hが最小であった。

表2に土壤試料の ^{137}Cs の核種分析結果を示す。

上層では、小林市〔公園〕の1400MBq/km²が最大で、野尻町〔公園〕の13MBq/km²が最小であった。下層では、高岡町〔公園〕の1800MBq/km²が最大で、山田町〔公園〕の53MBq/km²が最小であった。

表3に茶畠の土壤と茶の ^{137}Cs の核種分析結果を示す。

川南では、250MBq/km²（茶畠上層）、1500MBq/km²（茶畠下層）の ^{137}Cs を含む土壤で栽培した茶から、3.3Bq/kg乾物の ^{137}Cs を検出した。

都城では、27MBq/km²（茶畠上層）、250MBq/km²（茶畠下層）の ^{137}Cs を含む土壤で栽培した茶から、0.98Bq/kg乾物の ^{137}Cs を検出した。

また、高鍋町では、1100MBq/km²（ホウレン草畠上層）、1600MBq/km²（ホウレン草畠下層）で栽培したホウレン草から、0.075Bq/kg生の ^{137}Cs を検出した。

表4に茶の木の部位別 ^{137}Cs の核種分析結果を示す。葉部が2.8Bq/kg乾燥物、幹（枝）部が1.2Bq/kg乾燥物、根部が1.1Bq/kg乾燥物であった。

ま　と　め

今回調査した県西部10地点の空間放射線量率は、47～71nGy/hの範囲であった。これらの地点と比較すると、放射能水準調査の測定地点(高原町畜産試験場)の年間値は34～44nGy/hであり³⁾、低い値であった。

次に県西部10地点の土壤試料の¹³⁷Cs濃度は、上層が13～1400MBq/km²、下層が53～1800MBq/km²と幅広い結果が得られた。これらの地点と比較すると、放射能水準調査の測定地点(佐土原町農業試験場)は、上層が680MBq/km²、下層が1600MBq/km²であり範囲内であった。

茶については、川南のお茶が都城のお茶より高い濃度の¹³⁷Csを検出したが、土壤についても川南の土壤が都城の土壤よりも高い濃度を検出した。

しかし、これらの値はいずれも過去3年間の全国の平均値と比べて特に問題はなかった。

また、茶木の部位別の¹³⁷Cs濃度は、幹(枝)部・根部より葉部が高い値であった。

なおこれらのデータは、科学技術庁からの環境放射能水準調査の委託に関連し行われた調査の成果の一部である。

文　献

- 1) 科学技術庁：放射能測定シリーズ16 環境試料採取法, p.31～62, 日本分析センター, 1989
- 2) 科学技術庁：放射能測定シリーズ7 ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー, 日本分析センター, 1991
- 3) 野崎祐司, 平田泰久, 前田武：宮崎県内における環境放射能調査, 宮崎県衛生環境研究所年報, 3, 112～113, 1991

表1. 空間放射線量率 (nGy/h)

採取場所	測定回数	測定値	平均値	標準偏差
高原町〔役場〕	12	55～66	59.8	3.8
高岡町〔役場〕	12	54～67	61.0	3.3
須木村〔役場〕	12	51～68	61.5	4.9
山田町〔役場〕	12	53～66	57.1	3.3
都城市〔市役所〕	12	57～71	61.8	4.0
高崎町〔役場〕	12	54～70	62.0	5.1
えびの市〔市役所〕	12	51～65	56.0	3.6
野尻町〔役場〕	12	47～62	54.8	3.8
高城町〔役場〕	12	56～71	62.5	4.1
小林市〔市役所〕	12	55～67	58.7	3.6

表2. 土壤のセシウム137 (MBq/km²)

採取場所	採取年月日	上層	下層
高原町〔グランド〕	91/04/05	65	160
高岡町〔公園〕	91/05/23	820	1800
須木村〔公園〕	91/07/15	230	240
山田町〔グランド〕	91/11/05	85	53
都城市〔公園〕	92/02/05	530	530
高崎町〔公園〕	92/02/05	200	180
えびの市〔公園〕	92/02/26	92	250
野尻町〔公園〕	92/02/26	13	140
高城町〔公園〕	92/03/25	1100	680
小林市〔公園〕	92/03/31	1400	800

表3. 土壌, 茶及びホウレン草のセシウム137

採取場所	採取日	土壤MBq/km ²		茶(Bq/kg乾物)	ホウレン草(Bq/kg生)
		上層	下層		
川南町〔茶畑〕	91.05.23	250	1500		
	91.05.06			3.3	
都城市〔茶畑〕	91.08.06	27	250		
	91.05.30			0.98	
高鍋町〔畑〕	91.12.02	1100	1600		
	91.12.02				0.075

表4. 茶木のセシウム137(Bq/kg乾燥物)

採取場所	採取日	葉部	幹(枝)部	根部
川南町	92.5.20	2.8	1.2	1.1

宮崎県衛生環境研究所年報(第3号)

平成4年12月

編集・発行 宮崎県衛生環境研究所

〒889-21

宮崎市学園木花台西2丁目3の2

TEL 宮崎 (0985) 58-1410

FAX 宮崎 (0985) 58-0930

印刷所 有限会社 大淀総合印刷

〒880

宮崎市祇園2丁目92番2

TEL 宮崎 (0985) 29-6655

FAX 宮崎 (0985) 29-6643
