

B. 調 查 研 究

I 論 文

1. 道路交通騒音の予測

— モンテカルロ法による —

加賀谷秀樹 小室 健一 佐藤 春雄
菊地 英男

1. はじめに

昭和57年12月24日、中公審より「環境保全の観点から望ましい物流体系を実現するための方策について」と題して、交通公害対策に対する新たな施策の提言がなされた。

この提言では、物流に伴う大型トラックによる走行が沿道等の特定の地域の住民にもたらす騒音・振動や大気汚染の被害は甚大であり、低公害走行ルートの整備を中心とした抜本的な対策を総合的に行うよう求めている。

一方、われわれ騒音防止の実務に携わる者には、そのような施策の効果を量的に把握すること、すなわち、道路を新增設する際等に行われる環境アセスメントのための予測モデルの構築が求められている。

一般に、道路交通騒音の予測モデルには日本音響学会式が用いられている。このモデルは一車線定常走行で、車頭間隔が等間隔・等パワーという比較的簡単な条件を前提にしている。しかし、日本音響学会式は現実の交通流に比し単純化されすぎており、その適用限界も指摘さ

れている。特に、宮城県のように1時間当り数十～数百台の交通量の道路が多い場合、適用範囲を越えており、アセスメントのモデルとしての適用は難しい。

しかし、道路交通騒音を予測するには、日本音響学会式のような決定論的なモデルの他に、モンテカルロ法(図1)といわれる数値シミュレーションの方法が考えられる。元来、道路交通騒音の要因には不確定性が多いため、これをモデル化する場合にはこの不確定要因をとりこむことが予測精度を高めることになる。そこで、われわれはこのモンテカルロ法により道路交通騒音を予測し、実測結果との比較を行い、その実用性について検討を行った。

2. 予測計算方法

日本音響学会式は等間隔・等パワーモデルとも言われているが、現実の交通流はむしろ車がグループをなしたり、適当な間隔を保ちながら走行している。また、車から発生する騒音も、あるパワーを中心にバラツキを持っている。そこで、予測モデルはこの車と車との間隔が指数分布するという指数分布モデルとし、発生パワーのバラツキは正規分布で表わす。

なお、今回の予測モデルの適用にあたって、障害物の回折による減衰を考慮せずすむよう対象フィールドを開放系とした。また、道路の地形は平坦地とした。表1に測定対象地点の概要として、路線名および交通条件を示す。

2.1 実測調査

図2のシミュレーションの概念図に示すように、受音点として道路中央より直角方向の5地点(6.25, 12.5, 25, 50, 100m)に騒音計を配置した。

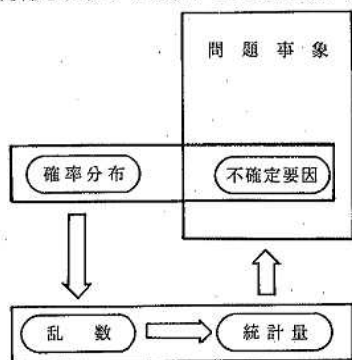


図1 モンテカルロ法とは

表1 測定対象地点の概要

No.	路線名 (地点名)	交通量 (台/時)	平均速度 (km/時)	大型車混 入率 (%)	測定年月日 (時間)
1	国道347号線 (古川市塚目)	636~696	44.7~49.7	4~13	S57.10.14 (16:30~17:30)
2	国道4号線 (蔵王町宮)	942~1,254	41.9~46.3	28~31	S57.11.2 (13:30~14:30)
3	国道6号線 (山元町山寺)	456~684	39.0~42.5	17~26	S57.11.1 (13:00~14:00)
4	国道4号線 (金成町沢辺)	372~540	57.4~59.5	31~44	S57.10.15 (14:00~15:00)
5	県道亘理荒浜線 (亘理町高屋)	228~282	51.0~56.0	10~18	S57.11.1 (14:30~15:30)

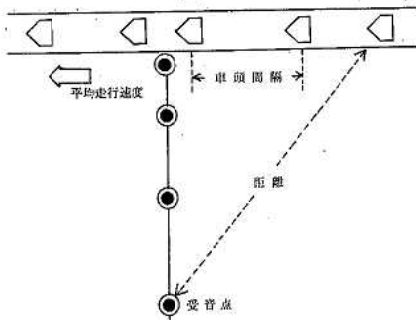


図2 シミュレーションの概念図

測定はリオン社製NB-11A(図3)により行った。この騒音計は騒音レベルを0.2秒間隔でサンプリングし、騒音評価量として、10分間の L_{50} 、 Leq を演算・出力するものである。また、交通条件として走行速度、車種別交通量を計測した。

2.2 モンテカルロ法による予測モデル

モンテカルロ法とは賭博で有名なフランスの都市の名が由来で、賭け事のような確率的要因を含む現象を模擬する方法である。モンテカルロ法を実行するのに必要な道具が乱数であり、この乱数の発生により、あたかも現実を再現するかのように(確率分布に従う)数値が生じ、この数値を利用してシミュレーションを行うものである(図1参照)。

ここでは交通流を現実に近い形でシミュレートすることにし、その他の気象条件については考慮しないこととする。また、地表面等による過剰減衰については距離減衰を含め、減衰係数という形で表出した。減衰係数は岩類¹⁾を参考に、受音点の高さ1.2mとして $K_0 = 20$ 、 $K = 25$ 、 $r_0 = 17.5m$ とした。

2.3 シミュレーションのプロセス

図2にはシミュレーションの概念図、図4には具体的な計算のフローチャートを示す。

最初は初期値の入力である。くり返し数 N 、計算範囲 XL 等をインプットする。次に、計算範囲内に車を配置させる。これには車頭間隔が指数分布すると仮定し、指数乱数の発生により配置パターンを決める。さらに、大型車混入率により一様乱数を用いて、大型車・小型車の2分類をする。2分類された車には表2に従ってパワーを与える。

さて、過剰減衰を含む距離減衰量の算出であるが、図5に示したように、距離 r_0 (=17.5m)により減衰係数に差をつける。

つまり、受音点が音源に近い場合($r \leq r_0$)

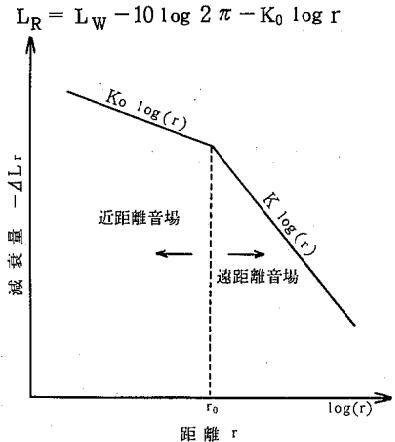


図5 距離と減衰量との関係¹⁾

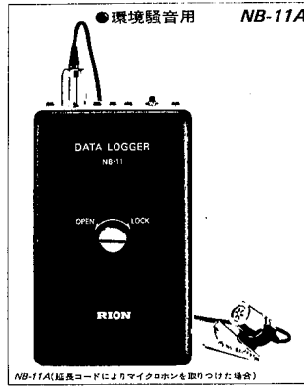


図3 騒音測定器

仕様
 マイクロホン: 1/2インチコンデンサ
 マイクロホン
 周波数補正: A特性
 測定範囲: 30~130dB
 動特性: FAST, SLOW切換
 サンプリング周期: 0.2秒
 レベル分解能: 0.5dB
 実測時間: 最大24時間
 評価量: 10分毎の L_{50} 、 Leq

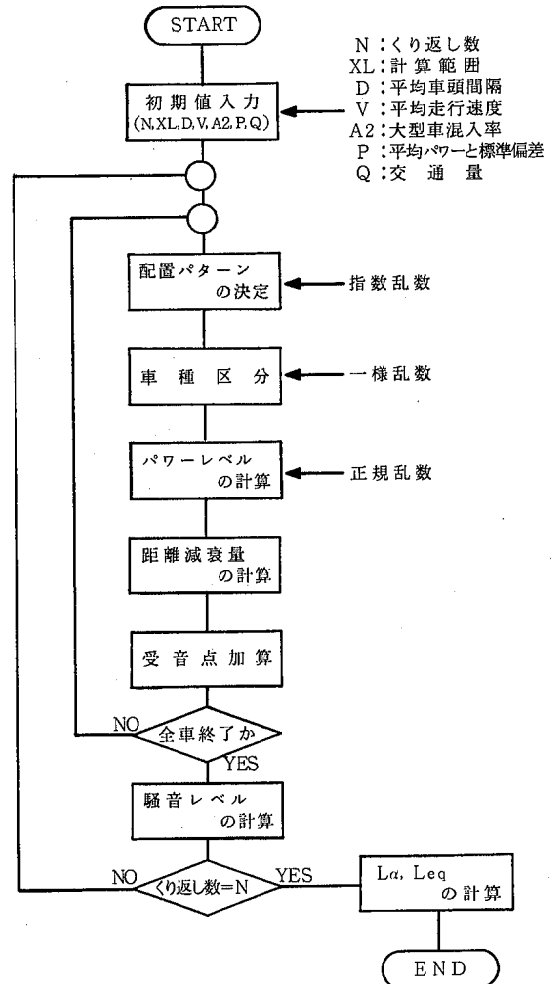


図4 フローチャート

表2 自動車のパワーレベル²⁾ 単位: dB (A)

車種分類	パワーレベル算出式	標準偏差
大型車類	$97 + 0.2V$	3.50
小型車類	$87 + 0.2V$	1.63

V: 平均走行速度 (km/時)

受音点が音源から遠い場合 ($r > r_0$)

$$L_R = L_W - 10 \log 2\pi - K_0 \log r_0 - K \log (r/r_0)$$

L_R : 受音点における騒音レベル (dB (A))

L_W : 車1台から発生するパワーレベル (dB (A))

r_0 : 近距離とみなせる範囲を示す距離

r : 音源と受音点との距離

K_0 : 近距離音場での伝搬特性を表わす定数

K : 遠距離音場での伝搬特性を表わす定数で、過剰減衰を考慮して20以上の値とする。

以上の方法により、1台当りの受音点に及ぼす騒音エネルギーを加算し、1配置パターンにつき、それぞれ騒音レベルを計算する。これを繰り返し実行を行い、騒音レベルの評価量 L_{50} 、 Leq を求め、計算値とするものである。

3. 結果と考察

以上、述べてきた方法で得られた結果は表3のとおりである。また、計算値と実測値との対応関係を L_{50} については図 6.1 ~ 6.4 に、 Leq については図 7.1 ~ 7.4 に示す。図 6.1 は L_{50} の実測値と計算値の散布図であり、実線は対角線を示す。回帰分析を行ってみると、回帰式は $Y = 0.891X + 6.42$ となり、相関係数は 0.907 であった。残差の分散は 6.12、平均値は実測値が 56.7 dB (A)、計算値が 56.9 dB (A) であり、ほぼ満足すべき対応関係を示している。しかし、回帰線の傾きが 1.0 より小さく、高いレベルの値が低く計算される傾向にある。図 6.2 は横軸に実測値、縦軸に誤差 (= 計算値 - 実測値) をとつ

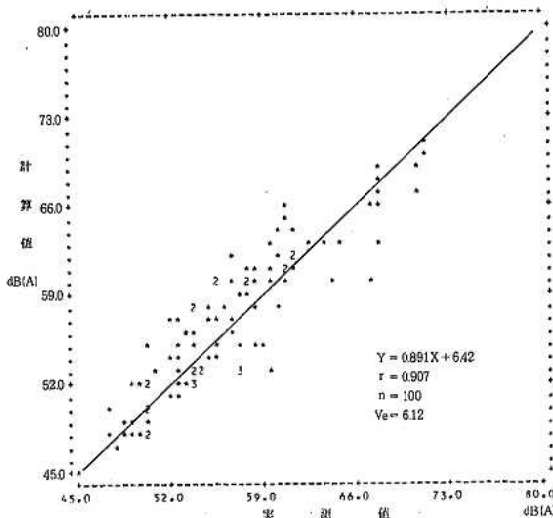


図 6.1 実測値と計算値 (L_{50})

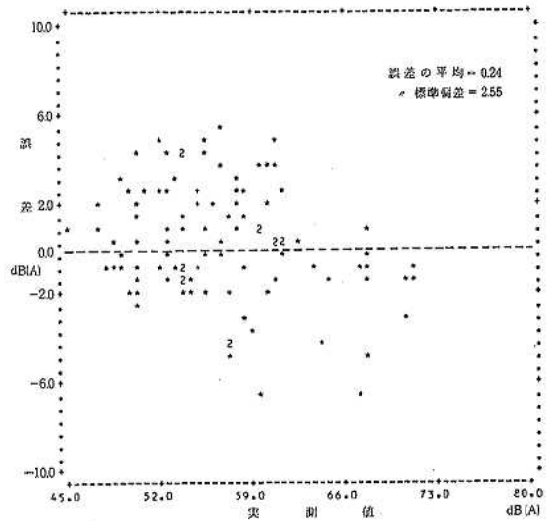


図 6.2 誤差と実測値 (L_{50})

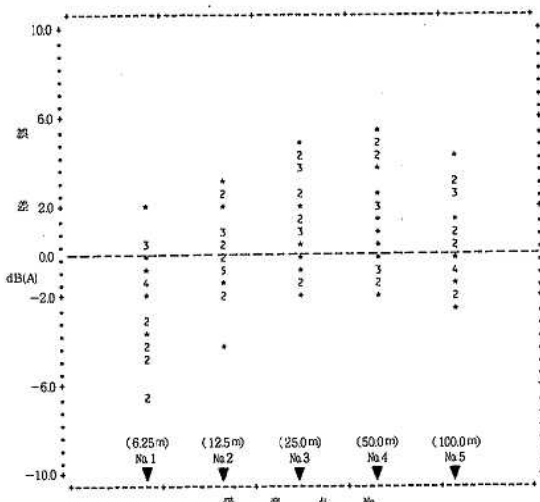


図 6.3 受音点の位置と誤差 (L_{50})

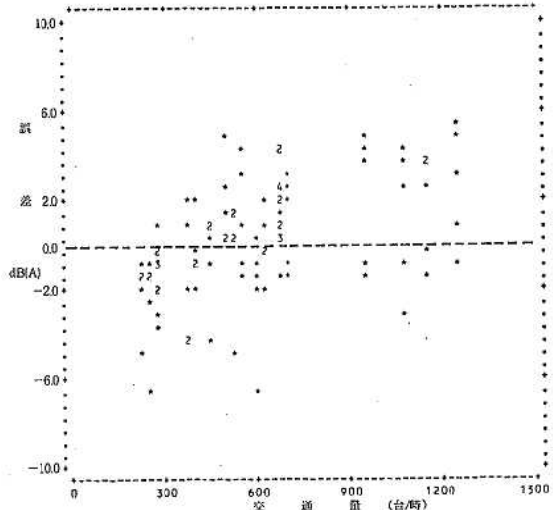


図 6.4 交通量と誤差 (L_{50})

表3 実測およびシミュレーションの結果

No	路線名 地点	L ₅₀ dB(A)										Leq dB(A)										交通量 (台/10分間)			速度 (km/時)	
		実測値					計算値					実測値					計算値					大型	中型	小型		
		1	2	3	4	5	1	2	3	4	5	1	2	3	4	5	1	2	3	4	5					
1	国道347号線 (古川市塚目)	1	61.5	59.5	56.0	55.5	49.0	61.2	60.3	57.9	53.7	48.6	67.6	62.6	58.0	55.9	49.5	70.0	66.4	62.0	57.2	51.7	14	22	70	45.4
		2	60.0	58.0	55.0	54.5	49.0	62.0	61.1	57.7	53.3	48.2	67.6	62.6	58.1	55.8	49.3	69.9	66.7	62.4	57.3	51.7	12	14	90	44.7
		3	61.0	58.0	53.5	52.5	48.5	61.0	60.0	57.7	53.6	48.6	65.6	61.6	56.3	54.0	52.1	69.9	66.3	61.9	57.0	51.4	6	18	90	49.7
		4	60.5	58.0	53.5	51.0	47.5	61.0	60.3	57.8	53.4	48.2	64.8	60.9	55.2	52.9	48.0	68.8	65.4	61.1	56.1	50.5	5	21	86	49.0
2	国道4号線 (蔵王町宮)	1	71.5	68.0	61.0	56.5	52.5	70.1	67.8	64.7	60.4	55.0	77.6	72.7	64.6	59.1	53.6	75.2	71.8	67.5	62.4	56.6	69	41	90	42.6
		2	70.5	67.5	60.0	55.5	50.5	68.8	65.7	63.9	60.1	54.7	77.1	72.3	63.8	57.6	51.6	74.6	71.4	67.1	62.0	56.2	48	30	79	45.3
		3	70.5	67.0	59.5	55.5	52.0	67.5	65.3	63.4	59.6	54.3	76.6	71.3	63.1	57.6	53.7	75.4	71.9	67.4	62.3	56.6	52	38	88	49.5
		4	71.5	68.0	61.0	56.5	53.0	70.5	68.7	65.7	61.7	56.4	77.8	72.1	63.9	58.5	54.1	76.6	73.0	68.5	63.4	57.6	59	39	111	48.4
3	国道6号線 (山元町山寺)	1	67.5	61.5	57.5	54.0	50.0	62.8	61.7	59.2	55.5	50.4	73.0	66.7	61.8	57.4	52.4	72.1	68.9	64.4	59.2	53.4	23	17	49	45.0
		2	67.0	61.0	56.5	53.5	49.5	60.2	59.5	57.0	52.9	47.7	73.2	66.9	62.0	57.8	52.9	68.9	65.9	61.7	56.8	51.2	17	18	63	41.0
		3	67.5	61.5	58.5	55.0	50.5	66.1	64.2	61.0	56.9	51.7	74.3	68.1	62.7	58.1	52.8	72.6	69.4	65.1	59.9	54.1	22	36	56	45.0
		4	64.0	58.0	55.5	52.5	48.5	59.7	59.0	56.6	52.6	47.7	71.0	64.1	59.2	55.0	51.5	69.9	66.3	61.7	56.5	50.9	13	17	46	41.0
4	国道4号線 (金成町沢辺)	1	65.0	63.5	59.5	52.5	49.0	63.4	62.8	60.6	56.9	51.9	77.0	72.0	66.2	58.0	51.1	75.1	71.1	66.5	61.5	55.7	32	13	45	57.5
		2	57.5	57.0	54.0	47.5	44.5	53.1	52.9	52.2	49.5	45.3	72.7	67.4	61.8	54.9	49.5	70.6	67.7	63.4	58.2	52.3	19	13	30	58.0
		3	62.5	61.5	58.5	52.0	49.5	62.8	61.6	60.2	56.7	51.8	76.1	72.5	66.6	59.3	53.2	73.8	70.7	66.5	61.4	55.5	36	14	32	57.4
		4	60.0	58.5	56.5	50.5	48.0	58.0	57.6	56.2	52.4	47.0	74.1	69.1	63.3	56.3	51.2	72.1	69.0	64.5	59.3	53.4	24	10	33	59.5
5	県道巨理-荒浜線 (巨理町高屋)	1	59.0	57.0	55.0	53.0	50.5	55.1	54.9	54.3	52.1	48.7	69.6	62.0	58.6	55.8	52.2	67.6	64.5	60.2	55.4	51.0	6	9	30	60.0
		2	59.5	54.0	53.5	52.5	50.5	53.0	52.9	52.2	50.9	48.2	70.4	61.6	57.7	54.8	51.8	67.2	63.5	59.3	55.2	51.2	4	8	30	56.0
		3	57.5	54.5	53.5	52.0	50.0	52.6	52.6	52.2	51.0	48.3	67.6	62.0	58.3	55.3	51.9	67.2	64.1	60.1	55.9	51.6	7	11	20	56.0
		4	58.5	55.5	54.0	52.5	50.5	55.3	55.2	54.7	52.3	49.8	66.9	61.4	57.8	54.8	52.1	68.8	65.3	60.1	56.8	52.4	7	13	27	54.0

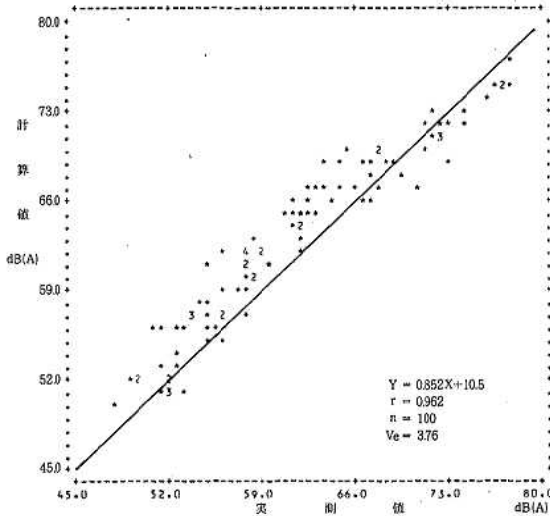


図7.1 計算値と実測値 (Leq)

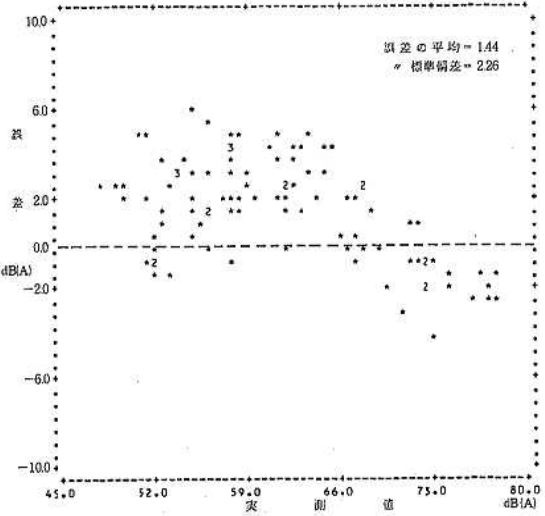


図7.2 誤差と実測値 (Leq)

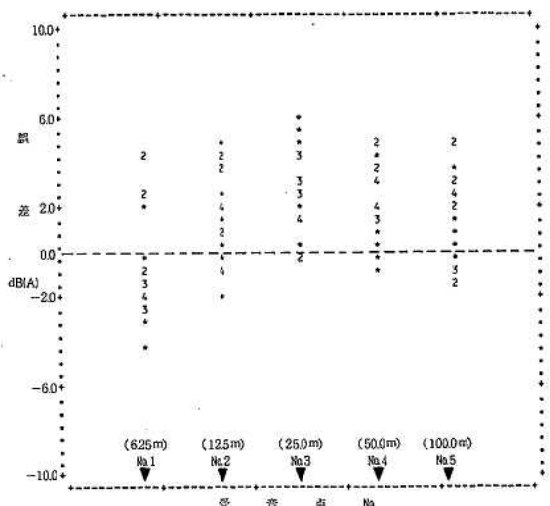


図7.3 受音点の位置と誤差 (Leq)

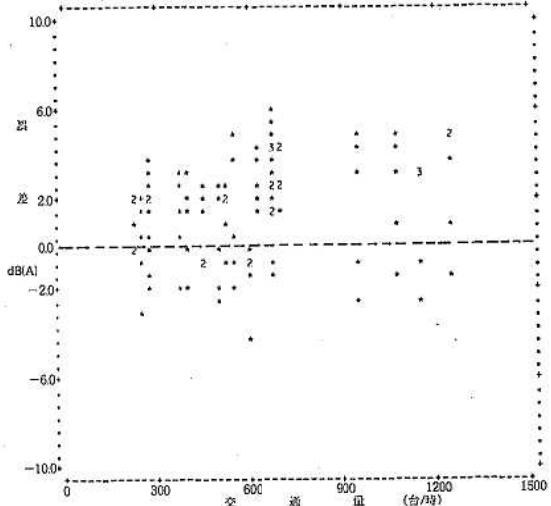


図7.4 交通量と誤差 (Leq)

表4 誤差の外れ値

評価量	±2.5 dB(A)をこえるもの	±5.0 dB(A)をこえるもの
L ₅₀	28 (%)	3.0 (%)
Leq	34	2.0

たもので、おおむね63 dB(A)未満では計算値が高めに、63 dB(A)以上になると計算値が低くなる。誤差について統計をとると、誤差の平均0.24 dB(A)、標準偏差2.25 dB(A)であった。表4に示すように、外れ値の割合は±2.5 dB(A)をこえるものが28%、±5 dB(A)をこえるものが3%であった。結局、全体的には70%以上が±2.5 dB(A)以内で予測できたことになる。

受音点の位置別の誤差の分布は図6.3のとおりであり、騒音レベルの高いと思われる音源に近い地点ほど、計算値が低く算出される傾向にある。

図6.4は交通量のバラツキによる誤差の分布をみたものであり、交通量の少ない地点（巨理町高屋）で計算値がすべて低く算出された。

Leq についての実測値と計算値の散布図は図7.1のとおりであり、L₅₀ とほぼ同様の傾向がうかがわれる。回帰式についてはL₅₀ よりさらに傾きが小さくなるが、残差の分散は小さい。図7.2を見ると、L₅₀ より極端な分

布になり、おおむね70 dB(A)未満では計算値が高く、70 dB(A)以上では低くなっている。誤差の外れ値の割合はL₅₀ より若干増え、±2.5 dB(A)をこえるものが34%、±5 dB(A)をこえるものが2%となっている。

4. ま と め

道路交通騒音の予測モデルの方法として、モンテカルロ法による検討を試みた。騒音はさまざまな要因が複雑にからみあっており、『カオスの世界』を形成している。これらの要因の中でも本質的と思われる部分を取りこみ、あるいは仮定し、モデルを構築したわけであるが結果はまだ十分とはいえない。しかしながら、モンテカルロ法のもつモデルの柔軟性は、今後の家屋がある場合や、道路が曲がっている場合等の予測に応用でき、今回の検討はそのためのベースであり、第1歩になったと考える。

参 考 文 献

- 1) 岩瀬昭雄：日本音響学会誌，38，643（1982）
- 2) 石井聖光：日本音響学会誌，31，507（1975）
- 3) 末岡伸一：東京都公研年報，S56，238（1981）
- 4) 関根智明：シミュレーション，日科技連（1976）

2. 宮城県におけるレプトスピラ症の感受性および感染源調査

遠藤 好喜 佐久間 隆

1. はじめに

本県におけるレプトスピラ症の主流行は昭和34年の大流行時における疫学調査、並びに血清学的、細菌学的調査の結果、黄疸出血性レプトスピラ症（ワイル病）による流行であることを確認している。^{1) 3) 4)}

その後、県内各地において水田のほぼ整備事業による頭田の乾田化、用水路の改修、並びに予防接種の普及、或いは予防衛生に関する啓蒙等により患者の発生は激減しているが、患者未発生の年はなく、昭和47年も12月に患者が発生している。本年も、予防対策の一環として県内3市町の一般住民を対象にレプトスピラ症感受性調査とともに“そ族”のレプトスピラ症感染源保有調査を実施したので報告する。

2. 材料および方法

2.1 感受性調査

感受性調査は、農耕地域として名取市51名、同じく北上川添えに存する津山町54名および農作業と無関係で清掃

事業等に従事する塩釜市の住民50名、計155名の一般住民を対象に10月～11月にかけて採血した。検査は予防接種歴による抗体の消長を把握するため、血清最終希釈5倍より行い溶菌凝集反応により実施した。使用抗原は予研から分与を受けた標準株で、ワクチンに用いられているワイル株として芝蒲株、並びに秋疫系として秋疫A株、秋疫B株、秋疫C株の生菌を抗原として用いた。²⁾

2.2 感染源調査

感染源調査は、名取市、津山町は感受性調査対象住民の居住地、塩釜市は材木置場、水産加工団地より所轄保健所の協力を受け、10月～12月にかけて捕獲したドブネズミ22匹、他のネズミ14匹、計36匹について暗視野法による鏡検を実施するとともに一部についてはレプトスピラ分離を実施した。

3. 結果と考察

3.1 感受性調査

溶菌凝集反応による各抗原に対する抗体保有成績は表1に示すとおりであるが、本県の主流行であるワイルに

表1 レプトスピラ症感受性調査成績

調査地	抗原	例数	予防接種有歴者				予防接種無歴者				罹患有歴者							
			<5	5	10	20	保有数(%)	<5	5	10	20	保有数(%)	<5	5	20	30	保有数(%)	
総数	ワイル	155	22	7	3		10/32 (31.3)	109		6	4		10/119 (8.4)			3	1	4/4 (100)
	秋疫A		28	4			4 (12.5)	114	5				5 (4.2)	1	3			3 (75.0)
	秋疫B		25	7			7 (21.9)	119					0	4				0
	秋疫C		25	7			7 (21.9)	115	1	㊦			4 (3.4)	2	2			2 (50.0)
津山町	ワイル	54					0	50		2	2		4/54 (7.4)					0
	秋疫A						0	53	1				1 (1.9)					0
	秋疫B						0	54					0					0
	秋疫C						0	52	1	㊦			2 (3.7)					0
塩釜市	ワイル	50	12	7	3		10/22 (45.5)	27		1			1/28 (3.6)					0
	秋疫A		19	3			3 (13.6)	27	1				1 (3.6)					0
	秋疫B		16	6			6 (27.3)	28					0					0
	秋疫C		16	6			6 (27.3)	27		㊦			1 (3.6)					0
名取市	ワイル	51	10				0/10 (0)	32		3	2		5/37 (13.5)			3	1	4/4 (100)
	秋疫A		9	1			1 (10.0)	34	3				3 (8.1)	1	3			3 (75.0)
	秋疫B		9	1			1 (10.0)	37					0	4				0
	秋疫C		9	1			1 (10.0)	36		㊦			1 (2.7)	2	2			2 (50.0)

○印は秋疫Cに対する単独抗体保有を示す。

表2 予防接種歴による抗体保有状況

調査地	予防接種年次					例数	ウイルス		秋疫 A		秋疫 B		秋疫 C	
	53	54	55	56	57		+	-	+	-	+	-	+	-
塩釜市	×	×	○	×	×	21	10 (47.6)	11 (52.4)	3 (14.3)	18 (85.7)	6 (28.6)	15 (71.4)	6 (28.6)	15 (71.4)
	×	○	×	×	×	1	0	1 (100)	0	1 (100)	0	1 (100)	0	1 (100)
	合計					22	10 (45.5)	12 (54.5)	3 (13.6)	19 (86.4)	6 (27.3)	16 (72.7)	6 (27.3)	16 (72.7)
名取市	昭和53年以前有歴者					10	0	10 (100)	1 (10.0)	9 (90.0)	1 (10.0)	9 (90.0)	1 (10.0)	9 (90.0)
総数						32	10 (31.3)	22 (68.7)	4 (12.5)	28 (87.5)	7 (21.9)	25 (78.1)	7 (21.9)	25 (78.1)

(+)は抗体価5倍以上の保有を示す。

対する抗体保有率は次のとおりであった。

(1) 予防接種有歴者では塩釜市住民45.5%の保有率であったが、名取市住民では抗体保有が認められなかった。近年、患者発生の激減により、追加接種を含めた予防接種者が減少の傾向を示しており、従って抗体保有率が低下している。いわゆる表2に示すように予防接種歴の内容による抗体保有率は、接種後2年経過している塩釜市住民の47.6%の保有率に対し、接種後5年以上を経過している名取市住民は抗体を認められなかった。また抗体保有者の81.3%が抗体価5倍であった。

(2) 予防接種無歴者119名における抗体保有者はウイルスに対する不顕性感染者が10名(8.4%)、また秋疫C株に対する単独抗体保有者が各調査地に認められ、本県には秋疫レプトスピラ症も存在していることが昭和56年度の調査につづいて確認された。名取市住民のウイルス不顕性感染者が13.5%と他の地区と比して高率を示していることは注目される。

(3) ウイル病の罹患有歴者4名の抗体消長は、有歴全員が抗体を保有しており、罹患後26年以上経過しても20~30倍の抗体を保持していることが判った。

3.2 感染源調査

感染源調査は、従来農耕地域および養豚場等居住地中心のそ族について実施したが、今回は、これらと無関係である都市部として塩釜市を含む3市町より捕獲したドブ

ネズミ22匹、他のネズミ14匹、計36匹について暗視野法による鏡検と、一部はレプトスピラ分離を実施したが、本年も3年つづきの水稻の出穂~成熟期の冷害で収穫期が大幅におくれ、野外における餌が豊富であったこと、更に捕獲を実施した10月~11月は温暖な日が多かったことが原因し捕獲数が少なく12月まで延長して実施した。捕獲そ族の47%が50~100gの幼若ネズミであった。

(1) 感染源保有率は表3に示すように名取市89.5%、津山町80.0%、塩釜市57.6%平均80.6%で農耕地域の保有率が高い。だが農耕と関係がない都市部である塩釜市で50%を越える保有率を示していることは、都市部における予防対策上注目される。そ族の種別による保有率はドブネズミ90.9%、クマネズミを主とする他のネズミ64.3%で、特にクマネズミの保有率は年々高くなる傾向を示している。また塩釜市のクマネズミより1株、名取市のドブネズミより2株、計3株のレプトスピラを分離し同定中である。

(2) そ族の体重別による感染源保有率は表4に示すとおりであるが、100g以下のネズミ64.2%、100g以上のネズミ94.7%の保有率を示しているが、特に注目されることは100g以下の保有率で、昭和34年~39年の調査時の平均保有率は8.1%と低率で被検材料として重視されなかったが、昭和53年~55年の調査では33.0%と平均保有率が上昇し、更に今回の高率を示していることは、

表3 そ族の感染源調査成績

調査地	実施数	保有数 (%)	ドブネズミ			他のネズミ		
			♂	♀	保有数 (%)	♂	♀	保有数 (%)
総数	36	29 (80.6)	9/11 (81.8)	11/11 (100)	20/22 (90.9)	0	9/14 (64.3)	9/14 (64.3)
津山町	10	8 (80.0)	0	4/4 (100)	4/4 (100)	0	4/6 (66.7)	4/6 (66.7)
塩釜市	7	4 (57.1)	0/1 (0)	1/1 (100)	1/2 (50.0)	0	3/5 (60.0)	3/5 (60.0)
名取市	19	17 (89.5)	9/10 (90.0)	6/6 (100)	15/16 (93.8)	0	2/3 (66.7)	2/3 (66.7)

表4 そ族の体重別保有状況

種 別	ドブネズミ		他のネズミ	
	<100	≥100	<100	≥100
体 重				
保 有 数 (%)	5/6 (83.3)	/16 (93.8)	6/11 (54.5)	3/3 (100)

表5 そ族の捕獲場所による保有状況

種 別	総 数	作業場	畜 舎	物 置	材木置場	水産加工	合 所	屋敷内
例 数	29/36 (80.6)	7/9 (77.8)	8/8 (100)	7/9 (77.8)	3/5 (60.0)	1/2 (50.0)	2/2 (100)	1/1 (100)
ドブネズミ	20/22 (90.9)	6/7 (85.7)	7/7 (100)	4/4 (100)	1/1 (100)	0/1 (0)	2/2 (100)	0
他のネズミ	9/14 (64.3)	1/2 (50.0)	1/1 (100)	3/5 (60.0)	2/4 (50.0)	1/1 (100)	(0)	1/1 (100)

近年、幼若ネズミ間における汚染が進んでいるものと思われる。

(3) 感染源保有ネズミの捕獲場所は、野外におけるそ族の生活環境の変化を考慮し、居住地中心に捕そ器を設置した関係もあるが、表5に示す如く、作業場、畜舎、物置、台所あるいは屋敷内といった家族の日常生活と密接に関係する環境で80.5%が捕獲され、感染源保有率86.2%であった。また都市部である塩釜市では材木置場(輸入材)、水産加工団地で捕獲され57.1%が保有していることは、昭和51年11月に血清学的に患者が確認された実例から、農作業及び季節、職種5) 6) 7) 8)に関係なく患者が発生する可能性を示唆している。

4. ま と め

(1) 本県の主流行であるワイルに対する予防接種有歴者における抗体保有率は塩釜市住民45.5%で、名取市住民では確認できなかった。これを最近5カ年間の予防接種歴と抗体消長との関係を検討すると塩釜市民は接種後2~3年の経過者であるのに反し、名取市住民は接種後5年以上の経過者であった。従って、追加予防接種は抗体保有率50%を割る少なくとも3年目毎に追加接種をするべきと思われる。

(2) 予防接種非歴者で10名(8.4%)がワイル病不顕性感染者で、特に名取市住民では13.5%と高率を示していた。また秋疫C株に対する単独抗体保有者が各調査地に認められたことは、本県には秋疫レプトスピラ症も存在していると思われる。

(3) ワイル病罹患有歴者4名全員が罹患後26年経過した現在でも抗体価20~30倍の抗体を保有し、一度罹患すると長年月にわたり抗体を保有することが判った。

(4) そ族における感染源保有率は農耕地域である名取市89.5%、津山町80.0%と高率を示し、農耕と関係のな

い塩釜市でも57.1%の保有率であった。種別に感染源保有ドブネズミ90.9%、クマネズミを主とする他のネズミは64.3%の保有率であった。またレプトスピラ3株を分離し同定中である。

(5) そ族の体重別による感染源保有は、従来の調査で保有率が低く被検材料として重視していなかった100g以下の幼若ネズミの保有が64.7%と高率であった。

(6) 感染源保有ネズミの捕獲場所をみると、農耕地域では作業場、物置、畜舎、台所等、家族の日常生活と密接な生活環境で、都市部である塩釜市では材木置場、水産加工団地等就業環境と関係する場所で捕獲されており、従って従来の秋の収穫時の発生といった季節に関係なく患者発生を示唆する成績を得た。

参 考 文 献

- 1) 稲田龍吉 他:黄疽出血性レプトスピラ病, 日本医書, (1951)
- 2) 箆弓之助 他:モダンメディア, 7, 52~62 (1961)
- 3) 遠藤好喜 他:宮城県衛生研究所報告, 43, 58 (1963)
- 4) 宮城県衛生部予防課:宮城県におけるワイル病の疫学について(1968)
- 5) 遠藤好喜 他:第13回レプトスピラシンポジウム記録(1976)
- 6) 遠藤好喜 他:宮城県衛生研究所年報, 55, 29 (1980)
- 7) 遠藤好喜 他:宮城県衛生研究所年報, 56, 41 (1981)
- 8) 遠藤好喜 他:宮城県衛生研究所年報, 57, 46 (1982)

3. トキソプラズマ抗体調査について

遠藤 好喜 佐久間 隆 新妻 澤夫
三島 忠男*

1. はじめに

トキソプラズマ症は、1科1属1種とされるトキソプラズマ原虫 (*Toxoplasma Gondii*) による人畜共通感染症である。トキソプラズマ (以下Tpと略) は世界各地に広範な分布を示し、その宿主域も他に類をみない程、人家畜、野生動物、愛玩動物といった哺乳類から鳥類にまでおよぶ宿主特異性の極めて乏しい細胞内生の原虫である。^{1) 2)} 人に対するTp感染は大多数が不顕性感染で終始するが、Tpの特性によって発症をもたらした場合は、その症状は極めて多彩である。また経過も不定で臨床的診断が困難なため、近時、臨床各科、特に産婦人科、眼科領域で診断の対象疾病として関心が高まっている。³⁾

近年、犬、猫、鳥類等の愛玩動物の飼育者の増加、食肉を扱う職種においてTp感染が問題になっている。なかでも、と畜関係従事者とTpに関しては数多くの報告にみられるように公衆衛生面で注目されている。⁴⁾

宮城県においては、と畜に従事する職員について、所管部でTp抗体測定を部分的に実施していたが、昭和55年より、県職員厚生課が県職員の福利厚生事業の一環として、保健環境部および農政部のと畜検査、動物の疾病予防、畜産の試験研究等に従事する職員のTp抗体調査を実施している。昭和57年も県職員のTp抗体調査を実施するとともに、と殺業務を含む食肉加工に従事している食肉流通公社の職員、および産婦人科医院より依頼された妊婦、並びに他の目的で採取した豚、野そについてTp抗体調査を実施したので報告する。

2. 調査方法

2.1 調査対象

県職員については、職員厚生課において下記職域に勤務する201名より昭和58年1月～2月にかけ採血し、血清分離後-20℃に保存した。対象とした職域は次のとおりである。

食肉衛生検査所：と畜検査に現在従事している職員43名

家畜保健衛生所：家畜の疾病予防、防疫に従事している職員41名

畜産試験場：家畜の防疫、試験研究等に従事している職員58名 (岩出山牧場、実践大学職員も含む)

保健所：と畜検査、狂犬病予防に従事している職員30名

一般職員：往年上記職務に従事し、現在行政事務を担当している職員を含む29名

食肉流通公社：と畜(解体)、食肉加工等に従事する職員108名(開設3年)

妊婦：昭和57年度において産婦人科医院より依頼を受けた妊婦112名

動物：日本脳炎感染源調査として昭和57年7月～9月にかけて採取した豚血清299頭、並びにレプトスピラ感染源調査として昭和57年10月～12月にかけて捕獲したそ族30匹(採血濾紙による採血)

2.2 検査方法

人については、マイクロタイター法によるラテックス凝集反応(トキソテストMT法)により実施し、抗体価1:32倍以上をTp抗体保有とした。

動物については、マイクロタイター法によるラテックス凝集反応(動物用トキソチックMT)により実施し、抗体価1:64倍以上をTp抗体保有とした。

県職員については、業務歴、犬猫飼育の有無、肉、モツの嗜好度についてアンケート調査を併せて行った。

3. 結果と考察

3.1 対象別Tp抗体保有状況

各対象別による抗体保有成績は表1に示す如く、県職員では、保健所職員56.7%、一般職員44.8%と他の対象と比して高保有率を示している。これは往年に、と畜検査、狂犬病予防、或いは家畜の防疫、試験研究に永年従事経験を有する職員であって、当時は現在のように予防措置が充分でなかったためと思われる。次いで、と畜検査従事職員34.9%、畜産の防疫、試験研究に従事する職員32.7%、家畜の防疫に従事する職員の29.3%の順でTp抗体保有を示しているが、日常業務において直接に接触する機会が多い職域程Tp抗体保有率が高かった。県職員の平均保有率は37.6%で、抗体価の最高は1:1,024倍であった。

と畜および食肉加工に従事する食肉流通公社職員のTp抗体保有率は23.1%と低率を示しているが、これは開設3年と比較的新しい職域のためで、今後、保有率は急増すると思われる。

妊婦112名のうち、Tp抗体保有者は10名おり、保有率8.9%で抗体価も1:64倍以下であった。健康妊婦に

*職員厚生課

表 1 対象別検査件数と抗体保有率

対 象	例 数	保有数 (≥32)	保有率	抗 体 価							
				< 16	16	32	64	128	256	512	1,024
食肉衛生検査所	43	15	34.9	24 (55.8)	4 (9.3)	4 (9.3)	6 (14.0)	4 (9.3)	1 (2.3)		
家畜保健衛生所	41	12	29.3	24 (58.5)	5 (12.2)	6 (14.6)	1 (2.4)	3 (7.3)	1 (2.4)		1 (2.4)
畜産試験場	58	19	32.7	37 (63.8)	2 (3.4)	5 (8.6)	3 (5.2)	6 (10.3)	4 (6.9)	1 (1.7)	
保 健 所	30	17	56.7	11 (36.7)	2 (6.7)	8 (26.7)	3 (10.0)	4 (13.3)	1 (3.3)	1 (3.3)	
一 般 職 員	29	13	44.8	13 (44.8)	2 (6.9)	4 (13.8)	5 (17.2)	3 (10.3)	1 (3.4)		
食肉流通公社	108	25	23.1	83 (76.9)		5 (4.6)	6 (5.6)	10 (9.2)	3 (2.8)	1 (0.9)	
妊 婦	112	10	8.9	98 (87.5)	4 (3.6)	7 (6.2)	3 (2.7)				

表 2 動物別における抗体保有率

対 象	例 数	保有数 (≥64)	保有率	抗 体 価					
				< 16	16	32	64	128	256
ブ タ	299	4	1.3	279 (93.3)	15 (5.0)	1 (0.3)	1 (0.3)	3 (1.0)	
ネ ズ ミ	30	1	3.3	29 (96.7)			1 (3.3)		

表 3 実務従事年数別による抗体保有率

対 象	例 数	保有数 (≥32)	保有率	実 務 従 事 年 数 区 分							
				< 2	3~5	6~10	11~15	16~20	21~25	> 26	不明
総 数	309	101	32.7	29 (22.0)	10 (26.3)	22 (33.8)	11 (57.9)	10 (52.6)	6 (60.0)	10 (55.6)	3 (37.5)
食肉衛生検査所	43	15	34.9	5/16 (31.3)	3/8 (37.5)	2/11 (18.2)	0/2 (0)	1/2 (50.0)	1/1 (100)	2/2 (100)	1/1 (100)
家畜保健衛生所	41	12	29.3	0/8 (0)	0/4 (0)	5/14 (35.7)	2/4 (50.0)	0/1 (0)	3/6 (50.0)	1/3 (33.3)	1/1 (100)
畜産試験場	58	19	32.7	0/4 (0)	3/13 (21.4)	5/15 (33.3)	3/3 (100)	3/7 (42.9)	0/1 (0)	4/9 (44.4)	1/6 (16.7)
保 健 所	30	17	56.7	1/3 (33.3)	2/5 (40.0)	6/13 (46.2)	4/5 (80.0)	3/3 (100)	1/1 (100)		
一 般 職 員	29	13	44.8	0/3 (0)	2/3 (66.7)	4/10 (40.0)	1/3 (33.3)	2/5 (40.0)	1/1 (100)	3/4 (75.0)	
食肉流通公社	108	25	23.1	23/98 (23.5)	0/5 (0)	0/2 (0)	1/2 (50.0)	1/1 (100)			

における Tp 抗体保有率について、他の報告をみると、(測定は旧法で実施した成績であるが)、10.9~11.4%の保有率であり、今回の妊婦における保有率は、平常値と考えるとよいと思われる。

動物における Tp 抗体保有状況は表 2 に示す如く、月齢 6 カ月前後の経済豚における Tp 抗体保有率は、1.3%と低率であった。またそ族(ドブネズミ、クマネズミ)の Tp 抗体保有率は 3.3%を示しているが、今回の捕獲ネズミは 100 ♀ 以下の幼若ネズミが 47%を占めており 100 ♀ 以上のネズミでは保有率が高くなるとと思われる。

3.2 実務従事年数と Tp 抗体保有状況

県職員の対象別と食肉流通公社職員の実務従事年数による Tp 抗体保有状況は表 3 に示す如く、従事年数 10 年未満では平均 23.0%~33.8%の抗体保有率を示しているが、従事年数 10 年を超えると急激に上昇し 52.6%~60%と高率に保有を示している。特に往年、と畜業務に従事経験を有する保健所職員、一般職員では 10 年未満でも 40%~66.7%を示していることは注目される。現在、と畜検査に従事している食肉衛生検査所職員の抗体保有者の 53%が 5 年以内、食肉流通公社職員の抗体保有者の 92%が 2 年以内に Tp 抗体を保有していることは Tp 感

染予防について示唆するものと思われる。

3.3 年齢別による Tp 抗体保有状況

年齢区分による Tp 抗体保有状況は表4に示す如く、各対象職域とも10歳区分による年齢増加に比例して高保有率を示しており、平均保有率は従事年数との関係もあるが、30代以下14.2%、30代25.0%、40代42.9%、50代63.1%の保有を示し、40代以上になると急激に保有率が高くなっている。

3.4 業務内容、犬猫の飼育、肉類の嗜好度による Tp 抗体保有状況

県職員の Tp 保有を解明するため、調査対象者の業務内容、犬猫飼育の有無、および食生活における焼肉、モツ等の嗜好度についてアンケート調査を併せて行った結果、各項目に対する Tp 抗体保有状況は表4のとおりであった。

業務内容により、と畜検査に従事した職員を1群、家畜の防疫、試験研究に従事している職員を2群、行政事務に従事している職員を3群に分類して保有状況を観察すると、1群の抗体保有は、総保有数に対し51.3%（例数では42.9%）の抗体保有率を示し、2群の職員では総保有数に対し43.4%（例数では35.9%）の抗体保有率で両者に差がみられた。また行政事務従事職員の抗体保有率は18.2%であった。この保有率は他の報告による8.8~14.3%の保有率に比してやや高い保有率を示していた。

Tp の感染については、猫と Tp 感染に関する報告が数多くされているが、今回の犬猫飼育の有無による Tp 抗体保有率は、と畜検査従事職員では41.0%対46.7%で無飼育者が高保有率を示しているが、業務内容による総保有数に対する保有率は64%対35.9%と有飼育者が高率を示していた。また家畜の防疫、試験研究に従事している職員の飼育有無による Tp 抗体保有率は有飼育者37.3%、無飼育者34.1%と差がなかった。平均保有率は有飼育者40.0%、無飼育者34.6%で有飼育者が高い。

だが業務内容による保有率と有飼育者の抗体保有率の関係については今回の調査で解明できなかった。また行政事務従事職員11名のうち2名は犬、猫の飼育者で（抗体価1:128倍）Tp 感染を示唆するものと思われる。

食生活における焼肉、モツの嗜好度による Tp 抗体保有率を観察すると、と畜検査従事職員では60%と高保有率を示していたが、と畜検査に従事しない職域では差はなかった。また総数による保有数に対する嗜好度による保有率に有意の差がなかった。

4. ま と め

(1) 対象別による Tp 抗体保有状況は、県職員37.8%、食肉流通公社職員23.1%、妊婦8.9%の保有率であった。特に往年と畜検査、家畜の防疫、試験研究に永年従事経験を有する保健所、一般職員は56.7%、44.8%と高保有率を示していた。

(2) 豚、そ族における Tp 抗体保有状況は、豚1.3%、そ族3.3%の保有率であった。

(3) 実務従事年数による Tp 抗体保有状況は、従事年数10年未満では22.0%~33.8%であったが、10年以上の従事者は52.6%~60.0%と高保有率を示し、また、と畜に従事している食肉衛生検査所、食肉流通公社職員は従事2年以内で23.5%~31.3%の抗体保有者がみられた。

(4) 年齢別による Tp 抗体保有状況は、各職域とも年齢増加に比例して保有率が高くなり、40代以上になると高率を示している。

(5) 業務内容による Tp 抗体保有状況は、と畜検査に従事している職員の保有率は42.9%、と畜検査に関係のない職域の職員は35.9%の保有率を示し、行政事務従事職員は18.2%の保有率であった。

(6) 犬、猫飼育の有無による Tp 抗体保有状況は、有飼育者、無飼育者間における保有率に大きな差がなかつ

表4 年齢区分による抗体保有率

対 象	例 数	保有数 (≥32)	保有率	年 齢 区 分					不 明
				<30	31~40	41~50	51~60	>61	
総 数	309	101	32.7	17 (14.2)	16 (25.0)	24 (42.9)	41 (63.1)	2 (66.7)	1 (100)
食肉衛生検査所	43	15	34.9	4/16 (25.0)	4/12 (33.3)	1/5 (20.0)	3/7 (42.9)	2/2 (100)	1/1 (100)
家畜保健衛生所	41	12	29.3	0/12 (0)	1/9 (11.1)	3/8 (37.5)	8/12 (66.7)		
畜産試験場	58	19	32.7	1/18 (5.5)	2/6 (33.3)	6/15 (40.0)	10/19 (52.6)		
保 健 所	30	17	56.7	1/3 (33.3)	1/6 (16.7)	6/10 (60.0)	9/11 (81.8)		
一 般 職 員	29	13	44.8	0/2 (0)	2/9 (22.2)	2/6 (33.3)	9/12 (75.0)		
食肉流通公社	108	25	23.1	11/69 (15.9)	6/22 (27.3)	6/12 (50.0)	2/4 (50.0)	0/1 (0)	

表5 業務内容および犬猫の飼育, 肉食嗜好による抗体保有率

と検 査査	狂予 犬病防	家防 畜の疫	試研 験究	行 政	例 数	保有数 (%)	犬猫飼育		焼肉, モツ		
							有	無	たべない	たべる	好んで食べる
総 数					201	76 (37.6)	48 (40.0)	28 (34.6)	4 (44.4)	60 (36.6)	12 (42.9)
○	×	×	×	×	33	8 (24.2)	5/24 (20.8)	3/9 (33.3)	0/3 (0)	6/27 (22.2)	2/3 (66.7)
○	○	×	×	×	27	10 (37.0)	5/18 (27.8)	5/9 (55.6)		8/22 (36.4)	2/5 (40.0)
○	○	×	×	○	14	12 (85.7)	9/10 (90.0)	3/4 (75.0)	1/1 (100)	10/12 (83.3)	1/1 (100)
○	×	○	×	×	5	2 (40.0)	1/2 (50.0)	1/3 (33.3)		2/5 (40.0)	
○	○	○	×	×	4	2 (50.0)	2/4 (50.0)			2/4 (50.0)	
○	×	×	×	○	4	2 (50.0)	2/2 (100)	0/2 (0)	1/1 (100)	0/2 (0)	1/1 (100)
○	○	○	×	○	3	3 (100)	1/1 (100)	2/2 (100)		3/3 (100)	
○	×	×	○	×	1	0 (0)		0/1 (0)		0/1 (0)	
計					91	39 (42.9)	25/61 (41.0)	14/30 (46.7)	2/5 (40.0)	31/76 (40.8)	6/10 (60.0)
×	×	○	×	×	33	9 (27.3)	4/18 (22.2)	5/15 (33.3)	1/1 (100)	7/25 (28.0)	1/7 (14.2)
×	×	×	○	×	24	10 (41.7)	6/13 (46.2)	4/11 (36.4)		9/22 (40.9)	1/2 (50.0)
×	×	○	×	○	13	4 (30.8)	2/5 (40.0)	2/8 (25.0)		3/11 (27.3)	1/2 (50.0)
×	×	○	○	○	12	6 (50.0)	3/7 (42.9)	3/5 (60.0)	1/2 (50.0)	3/5 (60.0)	2/5 (40.0)
×	×	×	○	○	5	2 (40.0)	2/4 (50.0)	0/1 (0)		2/5 (40.0)	
×	×	○	○	×	2	2 (100)	2/2 (100)			2/2 (100)	
×	○	×	×	×	2	0 (0)	0/1 (0)	0/1 (0)		0/2 (0)	
×	○	×	×	○	1	0 (0)	0/1 (0)			0/1 (0)	
計					92	33 (35.9)	19/51 (37.3)	14/41 (34.1)	2/3 (66.7)	26/73 (35.6)	5/16 (31.3)
×	×	×	×	○	11	2 (18.2)	2/3 (66.7)	0/8 (0)		2/10 (20.0)	0/1 (0)
不 明					7	2 (28.6)	2/5 (40.0)	0/2 (0)	0/1 (0)	1/5 (20.0)	1/1 (100)

たが、行政事務従員の抗体保有者2名は犬、猫の飼育者で抗体価は1:128倍であった。

(7) 食生活における焼肉, モツの嗜好度によるTp抗体保有をみると、と畜業務従事者では好んで食べる職員が60%と他の職員に高率を示しているが、総数では嗜好度による有意の差は認められなかった。

参 考 文 献

- 1) 小宮義孝 他: トキソプラズマ文献集, 栄研化学kk
- 2) 常松之典: トキソプラズマ症, 栄研化学kk
- 3) 田中晓暎: 大阪市立大学医学雑誌, 16, 529 (1966)
- 4) 鈴木宏 他: 日本獣医師会雑誌, 27, 272 (1974)

4 昭和57年度日本脳炎疫学調査

宮城県におけるコガタアカイエカの発生 消長と屠場豚におけるHI抗体の動向

山本 仁 遠藤 好喜

1. 序 文

我々は、昭和38年から宮城県における日本脳炎ウイルス伝播の生態学的な調査を継続している。この間、ヒトの患者は昭和42年に10名が確認されたのを最後に、以後は1人の患者も発生していない。然るに、日本脳炎は国内で発生する最も重篤な人畜共通感染症の1つであるとの観点に立てば、宮城県内では、程度の差はあるものの、毎年感受性のある若い豚の集団で日本脳炎ウイルスの伝播が認められており、幸いにしてウイルスの伝播がヒトの患者発生を起こすまでに広がっていないというのが現状である。

我々は昭和57年度も、宮城県における日本脳炎ウイルスの活動状況を把握する目的で、ウイルスの主たる媒介者 (Vector) であるコガタアカイエカの発生消長と、ウイルスの主たる増巾者 (Amplifier) である若い豚 (生後6カ月以内の肥育豚) 集団の感染の推移を調査した。

2. コガタアカイエカの発生消長

2.1 調査方法

調査地点は従来と全く同様に、名取市下余田地区のH氏宅豚舎とした。水田に面した3棟の豚舎には、常時約30頭の繁殖豚が飼育されており、順次仔豚が誕生していた。蚊の採取には、NEC社製BL-6Wブラックライトを装着したノザウ式NH-5型捕虫器を使用し、最南側豚舎の軒下約1.5mの高さに設置した。ライトトラップの運転は週2回の採取日 (原則として火曜日と木曜日) の午後6時から、翌朝6時までとした。

2.2 調査成績

- a) 蚊の採取は、7月13日に開始し9月30日に終了した。
- b) この調査期間中に、7月6回、8月8回、9月10回の合計24回、蚊の採取を行った。
- c) 全調査期間中に採取された蚊の種類および個体数を、調査日毎を表1に示した。
- d) コガタアカイエカの発生消長を、週毎 (2回採取の平均値) に図1に示した。
- e) 全調査期間中に、21,978匹 (うち雄蚊381を含む) の蚊を採取したが、その種類構成を表2に示した。

3. 屠場豚におけるHI抗体の動向

3.1 調査方法

本年度も従来と全く同様に、岩沼市宮屠場を調査地点に選んだ。近隣の市町村の飼育業者によって搬入される生後6カ月未満の肥育豚の頸動脈から採血し、分離した血清を検体とした。日本脳炎HI抗体の測定は、ほぼ予研法に準拠し、市販のJaGA-#01抗原を用いて実施した。また、40倍以上のHI抗体価を示した検体については、2-ME処理を行いHI抗体価が3管以上低下したものを、2-ME感受性抗体と判定した。

3.2 調査結果

屠場豚HI抗体の動向調査は、7月26日に開始し、9月27日に終了した。

調査期間中に、7月1回、8月5回、9月4回の計10回検体採取を行い、のべ299件の血清を入手した。

調査日毎の検査結果を表3に、またHI抗体保有状況の推移と、2-ME感受性抗体の出現状況を図2に示した。

4. 結果の考察

コガタアカイエカの発生消長調査は1970年から、屠場豚のHI抗体動向調査は1965年から、いずれも同一地域でまた可能なかぎり同一の方法で実施してきた。従って宮城県内の成績については、各年度間の比較を行えるものと考えている。

昭和57年度は、全調査期間を通して22,000匹の蚊が採取され、屠場豚におけるHI抗体の保有率も8月30日には50%を越え、9月13日には100%に達した。ここ数年の成績に比較すると、本年度の宮城県内での日本脳炎ウイルスの増巾と伝播は1978年に次ぐ大きさであったと考えられる。1978年は日本脳炎の流行が再燃した年であり、西日本を中心に約90人の確認患者が発生し、秋田県からも確認患者が報告された。

我々はこれらの情勢を考慮して、1982年9月2日、公衆衛生課に対して“今後相当の期間残暑型の気候が続く場合には、日本脳炎ウイルスの感染がヒトに波及する可能性があるから、夜間蚊に刺されないような手段を講ずるなどの十分な注意が必要である”との警報を発した。

しかし図3に示したごとく、宮城県では幸いなことに9月上旬から明らかな早冷現象が起り、平均気温も20

表 1 1982年蚊採取状況(名取市下余田地区)

採取月日	天候	コガタアカイエカ C. tritaen.		アカイエカ C. pipiens		ハマダライエカ C. orientalis		キンイロヤブカ Aedes vexans		シナハマダラカ Anopheles sinensis		アノボクヨブカ Armigeres subalb.		その他 Other species		総計 Total			
		♀	♂	♀	♂	♀	♂	♀	♂	♀	♂	♀	♂	♀	♂	♀	♂		
1982年																			
7月13日~14日	晴	22	0	43	10	53	1	0	1	0	107	2	109	0	0	0	173	12	185
15日~16日	晴	27	0	33	4	37	0	0	2	0	94	1	95	0	0	0	156	5	161
20日~21日	くもり	52	0	73	1	74	0	0	0	0	102	1	103	0	0	0	227	2	229
22日~23日	くもり	145	0	145	39	41	1	0	1	2	74	0	74	0	0	0	261	2	263
27日~28日	雨(低溫)	21	0	25	4	29	0	0	0	0	29	0	29	0	0	0	75	4	79
29日~30日	雨(低溫)	47	1	48	28	11	39	0	0	0	48	4	52	2	0	0	125	16	141
7月小計	(6回)	314	1	315	241	32	273	2	4	0	454	8	462	2	0	0	1,017	41	1,058
8月2日~3日	くもり~小雨	54	0	54	16	0	16	0	0	0	66	10	76	0	0	0	136	10	146
7日~8日	くもり~雨	239	0	239	79	4	83	1	3	0	191	1	192	0	0	0	513	5	518
10日~11日	晴	873	2	875	83	11	94	0	7	0	372	1	373	2	4	0	1,337	16	1,353
12日~13日	くもり~小雨	303	0	303	94	1	95	0	2	0	100	1	101	1	0	0	500	2	502
17日~18日	くもり~雨	327	0	327	27	1	28	0	0	0	82	1	83	0	0	0	436	2	438
19日~20日	くもり~雨	582	0	582	24	3	27	0	2	0	246	3	249	0	1	0	854	7	861
24日~25日	くもり~雨	2,968	3	2,971	82	1	83	0	0	0	966	42	1,008	1	0	0	4,017	46	4,063
26日~27日	くもり~風雨	3,326	1	3,327	91	4	95	0	0	0	735	5	740	0	0	0	4,152	10	4,162
8月小計	(8回)	8,672	6	8,678	496	25	521	1	14	0	2,758	64	2,822	4	3	7	11,945	98	12,043
8月31日~9月1日	くもり~雨	2,444	1	2,445	103	3	106	0	0	0	305	84	389	0	0	0	2,858	88	2,946
9月2日~3日	くもり~雨	2,285	0	2,285	95	1	96	0	14	0	407	121	528	0	1	1	2,801	123	2,924
7日~8日	くもり	907	0	907	18	0	18	0	1	0	134	0	134	6	1	7	1,066	1	1,067
9日~10日	雨	751	2	753	8	1	9	0	0	0	38	1	39	0	0	0	797	4	801
13日~14日	晴	258	3	261	10	12	22	0	2	0	25	0	25	4	1	5	299	16	315
16日~17日	晴	420	0	420	12	1	13	0	2	0	13	0	13	1	2	3	448	3	451
21日~22日	晴	174	0	174	12	3	15	0	0	0	13	0	13	2	0	2	201	3	204
22日~23日	晴	78	0	78	12	2	14	0	0	0	8	2	10	0	0	0	98	4	102
28日~29日	晴	18	0	18	2	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	21	0	21
30日~10月1日	晴	24	0	24	2	0	2	0	0	0	1	0	1	0	0	0	28	0	28
9月小計	(10回)	7,359	6	7,365	274	23	297	0	25	0	944	208	1,152	14	5	19	8,617	242	8,859

表2 1982年採取蚊の内訳

	Culex trit.	Culex pipiens	Culex orient.	Aedes vexans	Anopheles sinen.	Armigeres subalb.	Other species	Whole species	
	♀ (♂) Σ	♀ (♂) Σ	♀ (♂) Σ	♀ (♂) Σ	♀ (♂) Σ	♀ (♂) Σ	♀ (♂) Σ	♀ (♂) Σ	Σ
7月 (6回)	314 (1) 315	241 (32) 273	2 (0) 2	4 (0) 4	454 (8) 462	2 (0) 2	0 (0) 0	1,017 (41)	1,058
8月 (8回)	8,672 (6) 8,678	496 (25) 521	1 (0) 1	14 (0) 14	2,758 (64) 2,822	4 (3) 7	0 (0) 0	11,945 (98)	12,043
9月 (10回)	7,359 (6) 7,365	274 (23) 297	0 (0) 0	25 (0) 25	944 (208) 1,152	14 (5) 19	1 (0) 1	8,617 (242)	8,859
10月 (2回)	15 (0) 15	1 (0) 1	0 (0) 0	0 (0) 0	0 (0) 0	0 (0) 0	2 (0) 2	18 (0)	18
Total (26回)	16,360 (13) 16,373	1,012 (80) 1,092	3 (0) 3	43 (0) 43	4,156 (280) 4,436	20 (8) 28	3 (0) 3	21,597 (381)	21,978

表3 屠場豚 HI 抗体の動向

採血	7-26	8-2	8-9	8-13	8-23	8-30	9-6	9-13	9-20	9-27
HI (%)	1/30 (3.3)	1/30 (3.3)	0/30 (0)	1/30 (3.3)	1/30 (3.3)	15/29 (51.7)	26/30 (86.7)	30/30 (100)	30/30 (100)	30/30 (100)
2ME (%)	1/1*1 (100)	1/1*2 (100)	ND	? *3	ND *4	9/9 (100)	23/23 (100)	20/30 (66.7)	15/30 (50.0)	16/30 (53.3)

(*1: 40x → < 10 *3: 20x → < 10)
 (*2: 40x → < 10 *4: 10x (ND))

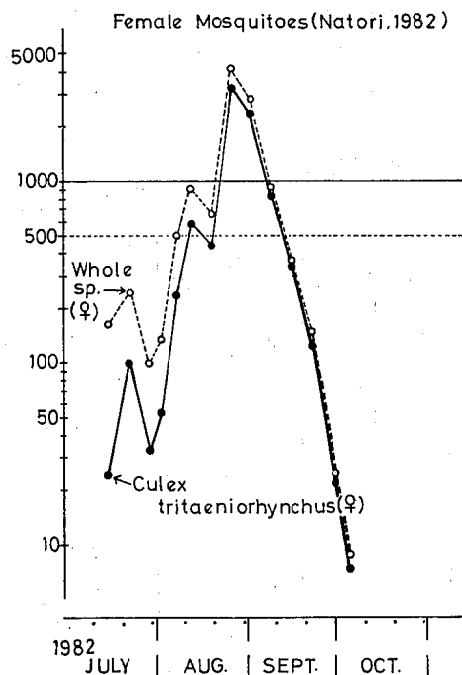


図1 週別雌蚊採取数

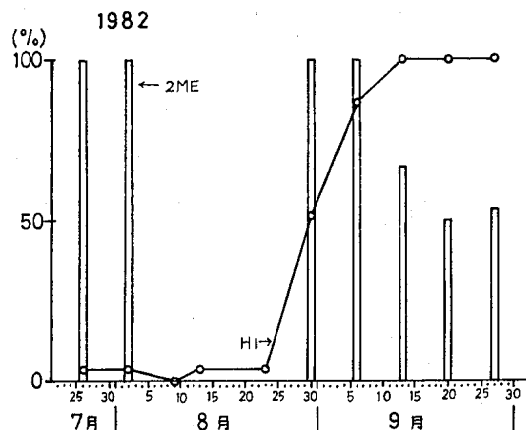


図2 屠場豚 HI 抗体の動向

℃以下となったため、蚊の活動も急激に抑えられたまま、日本脳炎の流行期が経過した。

1982年度、宮城県内の豚集団における日本脳炎ウイルス流行については前述したが、後になって県内各地でいわゆる“黒子”の多発が問題となり、幾つかの家畜保健衛生所から我々のところにデータの問い合わせがあった。

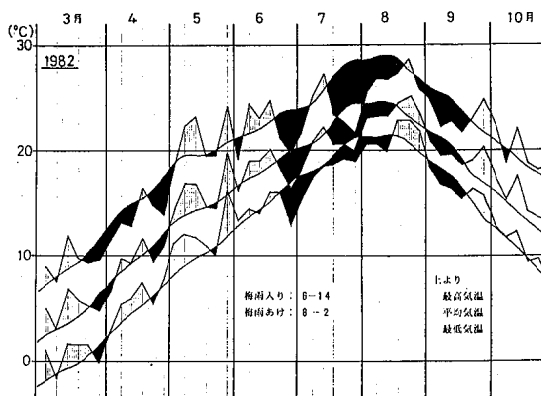


図3 半月気温偏差 (仙台市)

5. 宮城県における風疹感受性調査（昭和57年度）

秋山 和夫 山本 仁

1. はじめに

厚生省からの委託事業である風疹流行予測調査は、昭和45年（1970）より実施され、県内における風疹抗体保有状況を調べてきた。

この間に県内住民の風疹抗体保有状況に影響を及ぼす3つの大きな要因があった。即ち、①50年から52年にかけて、小学生・中学生を中心に発生した風疹の全県に及ぶ大流行。②56年～57年にかけての風疹の小流行。③52年より中学3年生の女子生徒を対象に開始された風疹生ワクチンの定期接種である。本年度は、3つの要因を考慮に入れ調査を実施したので報告する。

2. 調査方法

検体は仙台市内の保育所・幼稚園・育児園・高校および仙台市又は近隣に在住し、大学・事業所に通学、通勤している人を対象に3～54歳まで男女330名について実施した。男子の調査年齢群は、生ワクチン非接種群として15～23歳を選んだ。（表1）

検査方法は、被検者から採血し、血清中の風疹に対する赤血球凝集抑制抗体価（HI価）を予研法に従い測定した。HI価8倍以上を抗体陽性者とした。

3. 結果および考察

年齢群別に抗体保有状況を図1に示した。

3.1 14歳以下の抗体保有状況

3～4歳（保育園児）群は91%の陽性率であった。この年齢群は、50～52年の風疹流行時には出生しておらず、今次の風疹流行においてウイルスに感染し免疫を獲得したと云える。よって平均抗体価も高値を示していた。

5～9歳群は、前回の風疹流行時に大部分の者が乳幼児で風疹罹患の機会は少なかったと推測されるが、92%の抗体陽性率であることから、前群同様に今回の風疹流行による抗体獲得が主であると考えられる。平均抗体価も前群とほぼ同値を示した。

10～14歳群は出生後、2度の風疹の流行に遭遇し、風疹ウイルスの感染を受けたものと考えられ95.5%の高い抗体陽性率を示した。この年齢群は、今年あるいは2～

表1 昭和57年度風しん流行予測調査結果

仙台市 57.7～9

年齢群	性別	件数	HI 抗体価									陽性率 (%)	平均抗体価 2 ⁿ
			<8	8	16	32	64	128	256	512	1024		
Total	—	330	50	6	14	37	64	87	54	15(1)	2	84.8	6.6
3～4	♀	21	2					8	8	2	1	90.5	7.7
5～9	♀	36(1)	3				4	10	16	3(1)		91.7	7.5
10～14	♀	22	1			2	6	7	5	1		95.5	6.9
15～19	♂	40	11			3	9	13	3	1		72.5	6.7
	♀	52	1	1	2	9	16	16	4	3		98.1	6.3
20～21	♂	27	7	1		1	8	4	5	1		74.1	6.7
	♀	23	7			2	2	7	5			69.6	6.9
22～24	♀	37	7			4	7	10	4	4	1	81.1	7.0
25～29	♀	28	7		4	7	3	6	1			75.0	5.7
≥30	♀	36	1	4	8	9	7	5	2			97.2	5.2
22～29	♂	7	3				2	1	1			57.1	6.8

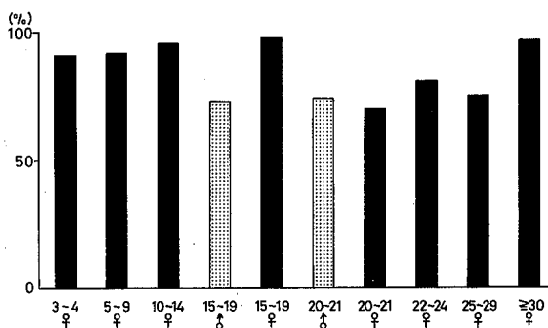


図1 年齢群別風疹抗体陽性率
仙台市 1982.9

4年先にワクチンを接種する年齢である。5%程度の抗体陰性者は存在するが、そのために10~14歳群の全員がワクチン接種を受ける必要があるかどうか、接種時期の問題も含め、検討する余地があろう。

3.2 15~19歳群の抗体保有状況

この年齢群については男女それぞれについて抗体調査を行った。女子においては、中学3年生当時にワクチンの定期接種を経験している。その結果、抗体陰性者は1人(大阪出身で宮城県在住約3年)のみで、98.1%と、他の年齢群よりも高い陽性率を示した。一方、ワクチン非接種群の男子では、女子の陽性率よりは25%ほど低い72.5%の陽性率であった。この差は5%の危険率で有意差が認められ、ワクチンの効果があったと判断される。

3.3 20歳以上の抗体保有状況

20歳以上の女子は結婚適齢期に入り、最も抗体保有状況に関心の高い年齢である。この年齢群の21歳以上は、全くワクチンの定期接種(個別接種は除く)を経験していない。但し、20歳の女子では、52年に定期接種を受けている。

20~21歳での抗体陽性率は女子で69.6%、男子で74.1

%とほぼ同様の値を示し、15~19歳群の男女間に見られた陽性率の開きはなかった。然るに、ワクチン定期接種を受けた20歳では84.5%の陽性率であるのに対し、ワクチン定期接種を受けていない21歳では50%の陽性率で両者間に大きな差が認められた。

22~24歳では、81.1%の抗体陽性率であったが、このうち6名はワクチンの個別接種を受けており、全員が抗体を保有していた。6名を除いた陽性率は77.4%であった。

25~29歳では75.0%と、22~24歳群のワクチン接種者を除いた者の陽性率と同値を示した。30歳以上では、97.2%の抗体陽性率でワクチン接種年齢群と同値であった。

4. まとめ

(1) 14歳以下(今後のワクチン接種対象群)の各年齢群は、いずれも90%以上の高い抗体陽性率を示した。これらの抗体は、前回又は今回の風疹流行でウイルスに感染し獲得したものと考えられる。このような抗体保有状況下の年齢群に全員ワクチンを接種することは、今回の調査対象に限って言えば、定期接種を受ける年齢の問題も含め一考の余地があると思われる。

(2) ワクチン接種経験年齢群(15~19才)の女子は、ワクチンの効果が認められ、非接種群の男子より明らかに高い、ほぼ100%の抗体陽性率を示した。

(3) ワクチン対象経過年齢群(結婚適齢期)においては、ここ3~4年の流行予測事業の調査結果と同じく抗体陰性者が30~50%ほど認められ、妊娠中に風疹に罹患する危険性は十分考えられる。今回の風疹流行も更に1年位は続くと予測されるので、なお警戒が必要と思われる。

(4) 今回は330名について調査したが、定期、個別を問わず風疹ワクチンの接種を受けた33名は、全て抗体を保有していた。

6. RPHA法を用いたヒトロタウイルスの中和抗体測定法

梅津 幸司 白地 良一 千葉 良*
海老名卓三郎** 佐藤 昭夫** 石田名香雄**

1. はじめに

仮性コレラとか白痢とか称されてきた乳幼児の急性胃腸炎の病因ウイルスはヒトロタウイルス (HRV) である事が証明された。その後ロタウイルス群に属するウイルスは哺乳類のみならず鳥類などにも広く分布していることが確認されているが、これらの動物から分離されたロタウイルスは血清学的に2つの亜型に区別できるといふ報告や、HRV もまた2つないし3つの血清型が存在することが報告されているだけで、国際的な分類作業は進んでいない。

ロタウイルス群の分類が遅れている理由の一つにHRVの組織培養が容易でないことがあげられるが、佐藤²⁾はアカゲ猿腎由来MA104細胞 (MA104) を用いHRVをトリプシン処理後トリプシン存在下で廻転培養させることにより組織培養が可能であると報告し血清型決めと中和抗体測定の途を開いた。我々もその方法を追試し同様の結果を得た⁵⁾が細胞変性効果 (CPE) は必ずしも明瞭ではなく中和試験やウイルス力価測定にこのまま応用するにはなお難点があった。

今回我々はHRVと階段希釈した抗血清を反応させ中和試験を行った時、抗血清の希釈末端で中和されずに増殖したウイルス量を測定すること (virus yield reduction method) により中和終末点を明瞭に測定できるのではないかと考え、この目的のために我々が作製したR.PHA試験を利用した。その結果ウイルス力価も中和価も明瞭にしかも鋭敏に測定できた。

2. 材料と方法

2.1 細胞: アカゲ猿腎由来MA104細胞 (MA104) を使用した。細胞培養液は10%牛胎児血清加MEM培地、通常の細胞維持液は血清を加えないMEM培地 (S-MEM) を使用した。細胞は培養2日目にS-MEMと液交換し、3日目に使用した。ウイルス力価測定および中和試験の細胞数は 7×10^4 cells/mlに調整した。

2.2 ウイルス: 1981年1月から3月にかけて乳幼児急性胃腸炎を発症した7カ月から24カ月の乳幼児の糞

便からMA104で分離した4株のウイルスを用いた。⁵⁾

HRV-24 (BA) は攻撃ウイルスおよび免疫源として、HRV-35 (SI) とHRV-52 (HK) は免疫源として使用した。HRV-28 (SA) は攻撃ウイルスとしてのみ使用した。また、今野博士 (東北大, 小児科) より分与されたHRV-Wa, 稲葉博士 (家畜衛生試験所) より分与していただいた仔牛下痢症ウイルス (NCDV, Lincoln株) を用いた。これらのウイルスはMA104細胞で7代継代後、凍結隔解し、10,000 rpm30分遠心した上清を用いた。また、今回の試験に用いたウイルスはすべて“トリプシンによる前処理”^{2,3,5)}を行わずに使用した。

2.3 抗血清: 抗HRV血清は精製ウイルス抗原を完全アジュバントと共に家兎に免疫して作製した。また、抗-Wa血清 (モルモット) と抗-NCDV血清 (モルモット) は国立予防衛生研究所、松野博士より分与された。

2.4 抗HRVグロブリン感作赤血球: ヒツジ赤血球に感作した抗HRV-24ウサギ抗体はDEAE CelluloseでIgGに精製したものを使用した。感作は十字⁷⁾の方法により行った。この感作赤血球は、MA104, Vero, HEL, 初代かにくい猿腎の各細胞およびヒト血清と反応しないことを確認後使用した。また、ウイルス粒子数を約 10^6 /mlに調整した時のR.PHA値はHRV-24, NCDVに対し512倍, Waには256倍であった。

2.5 ウイルス力価測定および中和抗体価の測定: ウイルス力価測定 (力価) は10倍階段希釈したウイルス液をMA104に接種し37°C, 60分吸着後、そのまま廻転培養した。ウイルス中和試験 (中和価) は100 TCID₅₀/mlのウイルスと希釈血清とを等量混合し、37°C2時間、4°C一夜したものをMA104に接種、37°C60分吸着させ、そのまま廻転培養した。希釈液、ウイルス接種後の維持液には7r/ml trypsin (sigma type V)加MEM培地 (T-MEM)を用いた。力価および中和価は培養後5日目にR.PHA法で抗原を測定した価から算出 (Reed-Muench法)した。R.PHA法は4倍以上を陽性とした。中和試験の攻撃ウイルス価は30~300TCID₅₀/mlの範囲を用いた。力価の表示は抗原陽性の最高希釈倍数の対数 (log₁₀)、中和価は抗原陰性の血清最高希釈倍数の逆数で表した。

2.6 乳幼児急性胃腸炎患者血清: 仙台赤十字病院小児科で急性胃腸炎の既応が確認された6名の小児から採血して使用した。

* 仙台赤十字病院小児科

** 東北大医細菌

3. 成績

3.1 CPE法とR.PHA法によるロタウイルス力価の測定：2つの方法で力価を測定するとNCDVではCPE, R.PHA両法とも7.69 (log₁₀, TCID₅₀/ml)であったが, Wa株ではCPE 5.19, R.PHA 5.82と測定された。HRV-24ではCPE 3.66, R.PHA 5.83と測定され, CPEに比しR.PHAは100倍高い価を示した。(表1)

表1 CPEとR.PHAとによるウイルス力価測定の結果

Rotavirus	Detection Method	
	CPE	R.PHA
HRV-24	3.66*	5.83*
Wa	5.19*	5.82*
NCDV (Lincoln)	7.69*	7.69*

* : TCID₅₀/ML (log₁₀)

3.2 検出可能な接種最少ウイルス量：培養後検出可能となる細胞あたりのウイルス量 (moi) はどの希釈までかをR.PHAとCPEで比較したところ (図1), 各ウイルスとも moi 0.0001までR.PHAで検出され平均R.PHA価も128~256倍であった。すなわち, R.PHA法によればmoiに関係なく各ウイルス共培養後のウイルス量はR.PHA価が64~256倍以上に達した。しかし, CPEの発現はウイルス株により大きく相違し, NCDVではmoi 0.0001以上ですべてCPEを認めたもののWaのCPEは約0.001から, HRV-24ではmoi 0.001以上でCPEが確認された。HRVのR.PHA価とCPEの発現するmoiの差は約100倍であった。

3.3 急性胃腸炎既応児の血清中和抗体価：未中和ウイルスの増殖の有無をR.PHAで検定する方法で既応児の中和価を測定したところ, NCDVとWaに対する中和価に大差をみなかったものの, HRV-24に対する中和価はWaの値より4~32倍, NCDVのそれより8~64倍高い中和価であった。

3.4 免疫血清による交差試験：Waに対する抗Wa血清の中和価は12,800倍であったが, 抗NCDV血清には50倍以下, 抗HRV血清には2,400倍から3,200倍であった (表2)。同様にNCDVに対して抗NCDVは

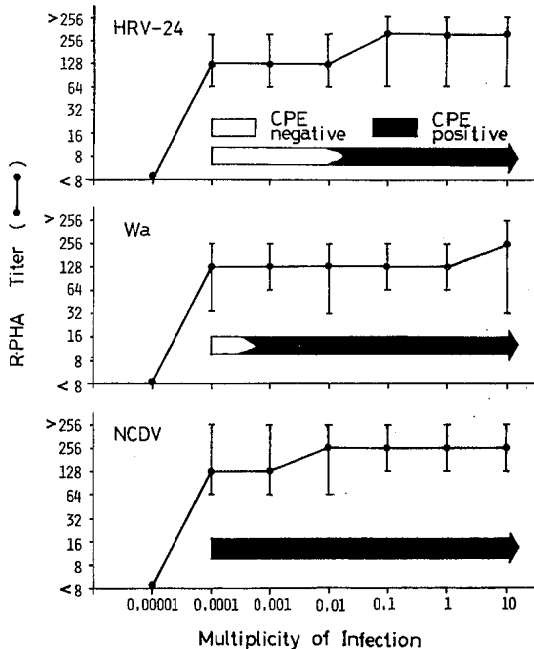


図1 接種ウイルス量とCPEおよびR.PHAとの関係

表2 抗血清によるロタウイルス中和交差試験

Rotavirus	Anti-Rotavirus Antibody				
	HRV-24	HRV-35	HRV-52	Wa	NCDV (Lincoln)
HRV-24	6400	3200	6400	1600	< 50
Wa	3200	3200	2400	12800	< 50
NCDV (Lincoln)	50	160	< 50	< 50	32000

32,000倍, 抗Wa50倍以下, 抗HRVは50倍以下から160倍の中和価であった。HRV-24に対して抗NCDVは50倍以下, 抗Waは1,600倍, 抗HRVは3,200から6,400倍の値を示し, 各ウイルス間に有意な差のあることが明らかとなった。

4. 考察

一般にウイルスの中和抗体価の測定はCPEを指標に行われているが, CPEの明瞭でないウイルスの場合にはこれに変わる別の方法で中和抗体が測定されている。

今回, 我々が用いたHRV (野生株) もCPEが不明瞭だったのでColour change法や干渉法, プラーク減少法, 蛍光抗体法等を用いて中和価の測定を試みてきたが手技が繁雑である上, 明瞭な結果を得ることができなかった。しかし, HRVの増殖は10⁶/ml程度に良好だったのでウイルス増殖の指標をCPEからR.PHAでの抗原検出に変えた。今回用いたR.PHAは培養液中のウイル

ス数が $1 \sim 4 \times 10^4/ml$ 以上あれば検出可能であった。また、HRV のトリプシン処理が感染効果を上げなかったので中和試験も一般のエンテロウイルスに近い形で実施できた。これらの事実を踏まえて HRV のウイルス力価を測定すると R. PHA は CPE より約 150 倍高い力価を示した。この方法による力価の違いは HRV の産生ウイルス量は moi に関係なく 64 ~ 256 倍以上の抗原量を示したことから、総接種ウイルス量に係る現象であり低 moi では CPE の発現しにくいという HRV の性質によるものと考えられる。つぎに、R. PHA 法で既応児の中和価を測定すると HRV に対する中和価が NCDV と Wa に対する値より 4 倍から 64 倍高かった。これは HRV と NCDV や Wa は血清学的に異なるウイルスであることを示す。同様のことは免疫血清による交差試験からも明らかである。しかし、HRV-24 と HRV-28 との間では患児と免疫血清のいずれにも中和価に差を見出せなかったのと同じ Serotype に属すると考えられるが、Kapikian らの提唱する型のいずれに属するかは現在検討中である。

さて、風疹や豚コレラ等の CPE の明瞭でないウイルスの検索は干渉法や plaque reduction ないし Exaltation 効果により抗原、抗体の測定が行われているが、これらのウイルスを含め CPE の明瞭でない、パラインフルエンザやムンプスウイルス、ラブドウイルス群、レトロウイルス群、アレナウイルス群、アルボウイルス群の一部を含め、今後 R. PHA を用いた抗原、抗体の測定が可能になるのではないかと考えている。

5. ま と め

R. PHA 法を応用しヒトロタウイルスの中和抗体を測定し次の結果を得た。

(1) ウイルス力価、中和抗体価の終末点が明瞭に表現できた。(2) HRV と NCDV とは血清型を異にすること、Wa は広い抗原性を有することを確認した。(3) R. PHA 法は他の抗原検出法が不確実なウイルスの抗原検出や抗体測定に今後大いに利用できるものと思われる。

参 考 文 献

- 1) Kapikian, A. Z., Cline, W. L., Greenberg, H. B., Wyatt, R. G., Kalica, A. R., Banks, C. E., James, H. D., Flores, JR. J., Chanock, R. M.: Antigenic Characterization of Human and Animal Rotaviruses by Immune Adherence Hemagglutination Assay (IAHIA): Evidence for Distinctness of IAHA and Neutrolezation Antigens. *Inf. Immu* **33**, 2, 415 ~ 425 (1981)
- 2) Sato, K., Inaba, Y., Shinozaki, T., Fujii, R., Matumoto, M.: Isolation of Human Rotavirus in Cell Cultures. *Arch. virol.* **69**, 155 ~ 160. (1981)
- 3) Urasawa, T., Urasawa, S., Taniguchi, K.: Sequential passages of Human Rota virus in MA-104 Cells. *Microbiol. Immunol.* **25**, 10, 1025 ~ 1035 (1981)
- 4) Kalika, A. R., Greenberg, H. B., Wyatt, R. G., Flores, J., Sereno, M. M., Kapikian, A. Z., Chanock, R. M.: Genes of Human (Strain Wa) and Bovine (Strain U. K.) Rotaviruses that Code for Neutralization & Subgroup Antigens. *Virology* **112**, 385 ~ 390 (1981)
- 5) 梅津幸司, 白地良一, 今野二郎, 千葉良, 永井幸夫, 海老名卓三郎, 石田名香雄: ヒトロタウイルスの分離培養, 医学のあゆみ, **121**, 6, 330 ~ 331. (1982)
- 6) 白地良一, 梅津幸司, 白石広行, 今野二郎: RPHA 法によるロタウイルス抗原および抗体の検出, 臨床とウイルス, **9**, 3, 125 ~ 128 (1981)
- 7) Juji, T., Yokoch, T.: Hemagglutination Technique with Erythrocyte Coated with Specific Antibody for Detection of Australia Antigen, Japan. *J. Exp. Med.* **39**, 6, 615 ~ 620 (1969)
- 8) Kumagai, T., Shimizu, T., Ikeda, S., Matumoto, M.: A new invitro method (END) for detection & measurement of Hog Cholera virus & its antibody by means of effect of HC virus on Newcastle disease virus in Swain tissue Culture, *J. Immunol* **87**, 257 ~ 268 (1961)
- 9) Wyatt, R. G., Greenberg, H. B., James, W. D., Pittman, A. L., Kalica, A. R., Flores, J., Chanock, R. M., Kapikian, A. Z.: Definition of Human Rotavirus Serotype by Plaque Reduction Assay. *Infect. & Immunol.* **37**, 1, 110 ~ 115 (1982)

7. 水田用除草剤の魚介類中の残留

鈴木 滋 佐藤 信俊 加茂えり子
高槻 圭悟 菊地 秀明 牛沢 勇

1. はじめに

農業は各種農産物の安定生産に大きく寄与し、且つ現在は非常に低毒性、低残留性のものが使用されており、過去の BHC や Dieldrin のような深刻な社会問題を引き起こしてはいない。しかし一方では、それら安全性が強調されるあまり安易に大量に使用され、その結果従来とは違った一過性の河川への流出、魚介類（主に淡水産）の汚染が生ずるようになってきた。特に水田に使用する除草剤等は、ほぼ同時期に大量に使用する為、その河川水への流出が問題となる訳である。我々は昭和55年以来これら水田用除草剤の各種魚介類への残留を調査してきたが、今回は昭和56年、57年度の調査結果について報告する。

2. 試料

昭和56年度は5月上旬から6月下旬の期間中県内5カ所の定点でシジミを採取し、2カ所の定点でフナ、1カ所でドジョウを定期的に採取し試料とした。また5月下旬に仙台市内から市販のシジミ（20件）を買い上げ分析を行った。

昭和57年度は6月8日、18日の両日仙台市内で市販されているシジミ23件および5月下旬に県内で採取したコイ5件、スズキ4件、アサリ4件および7月上旬に県内で採取したアユ5件の分析を行った。

3. 分析方法

石川⁶⁾、佐藤⁷⁾の方法に従いアセトニトリル抽出後、10%硝酸銀フロリジルカラムに付しECD-GLCにより CNP, Chlomeoxy-nil, TCNP を、N-P-FID-GLC により molinate, Benthio carb, Butachlor を分析した。

4. 結果と考察

分析した農業は、CNP（商品名 MO）、chlomeoxy-nil (X-52)、Butachlor（マーシェット）等の初期除草剤および Benthio carb（サターン）、molinate（オードラム）の中期除草剤、さらに CNP を合成する際に副産物として生成される TCNP（2,3,4,6-tetrachlorophenyl-4'-nitrophenyl ether）等について行ったが、これらの除草剤で日本で使用されている全除草剤の約6割を占めている。

図1, 2, 3には昭和56年度のシジミ中の CNP および

Benthio carb の経時変化とフナ（2件）とドジョウ中の CNP の経時変化を示した。

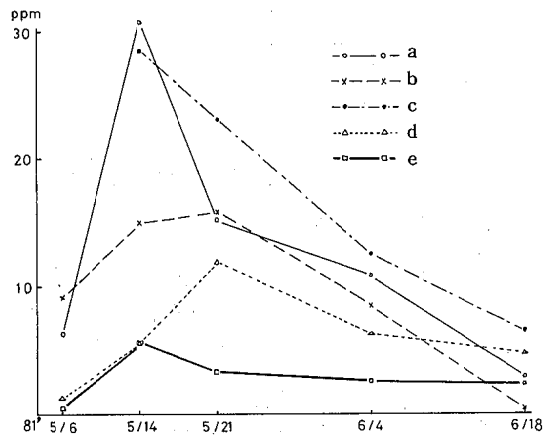


図1 シジミ中 CNP の残留経時変化 (a~e地点)

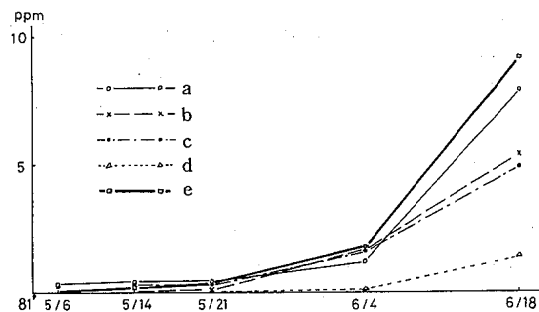


図2 シジミ中ベンチオカーブの残留経時変化 (a~e地点)

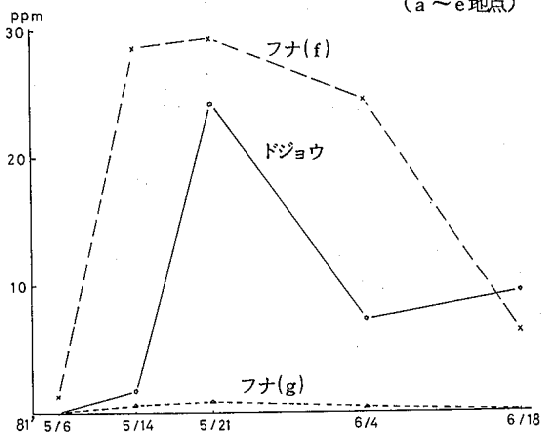


図3 ドジョウ、フナ中の CNP 残留経時変化

表1 市販シジミの除草剤残留値

検体名	採取月日	検体数	CNP			X-52			TCNP			モリネート			ベンチオカーブ			ブタクロール		
			検出数(%)	濃度 ppm	平均 ppm	検出数(%)	濃度 ppm	平均 ppm	検出数(%)	濃度 ppm	平均 ppm	検出数(%)	濃度 ppm	平均 ppm	検出数(%)	濃度 ppm	平均 ppm	検出数(%)	濃度 ppm	平均 ppm
シジミ	S 56 5.21	20	20 (100)	0.03 ~ 23.64	8.26	19 (95)	0.03 ~ 2.46	0.37	13 (65)	0.01 ~ 0.24	0.11	0	—	—	14 (70)	0.1 ~ 1.2	0.3	14 (70)	0.2 ~ 3.1	0.7
シジミ	S 57 6. 8 6.18	23	23 (100)	0.02 ~ 13.31	2.60	11 (48)	0.01 ~ 0.52	0.10	14 (61)	0.01 ~ 0.27	0.10	13 (57)	0.3 ~ 1.8	0.5	18 (78)	0.1 ~ 6.4	2.0	3 (13)	0.1 ~ 0.4	0.2

検出限界 CNP, X-52, TCNP…… 0.01 ppm * ndは除外
 モリネート, ベンチオカーブ, ブタクロール…… 0.1 ppm

表2 昭和57年度魚介類の除草剤残留値 (シジミを除く)

検体名	採取月日	検体数	CNP			X-52			TCNP			モリネート			ベンチオカーブ			ブタクロール		
			検出数(%)	濃度 ppm	平均 ppm	検出数(%)	濃度 ppm	平均 ppm	検出数(%)	濃度 ppm	平均 ppm	検出数(%)	濃度 ppm	平均 ppm	検出数(%)	濃度 ppm	平均 ppm	検出数(%)	濃度 ppm	平均 ppm
コイ	5.22 5.24	5	3 (60)	0.03 ~ 0.09	0.05	2 (40)	0.01 ~ 0.04	0.03	0	—	—	0	—	—	0	—	—	0	—	—
スズキ	5.21 5.24	4	3 (75)	0.01 ~ 0.02	0.02	0	—	—	0	—	—	0	—	—	0	—	—	0	—	—
アサリ	5.21 ~ 5.26	4	3 (75)	0.12 ~ 0.19	0.15	2 (50)	0.02	0.02	0	—	—	0	—	—	0	—	—	0	—	—
アユ	6.25 ~ 7.19	5	5 (100)	0.17 ~ 1.67	0.64	3 (60)	0.05 ~ 0.07	0.06	1 (20)	0.01	0.01	0	—	—	3 (60)	0.2	0.2	0	—	—

検出限界 CNP, X-52, TCNP…… 0.01 ppm * ndは除外
 モリネート, ベンチオカーブ, ブタクロール…… 0.1 ppm

一般に県内では CNP 等初期除草剤は5月上旬~下旬をピークに、Benthiocarb等中期除草剤は6月上~下旬をピークに散布されており、図1~3ともそのピークと一致したパターンを示している。

図1, 2でa, b, c 地点は比較的小さな河川であり、d, e は一級河川である。CNPは明らかに、小さな河川のシジミで高い値を示しており、最高30 ppm近い値を示している。一方、ベンチオカーブは、採取時期の関係でピークは明らかでないが、一級河川のe地点が最も高い値を示していた。またシジミ以外の CNPでは図3よりf地点のフナが1カ月以上(5/6~6/4)の期間25 ppm以上と高い濃度を示しておりg地点のフナと比較すると非常に大きな差が認められた。

表1には56, 57年度市販シジミの分析結果、表2には57年度魚介類(シジミ以外)の分析結果を示す。

表1では、購入時期が56年度は5月下旬であったため、CNP, X-52, ブタクロール等初期除草剤が高めに検出され、57年度は6月と遅らせたため、モリネート、ベンチオカーブの中期除草剤が高く検出されており、明らかに散布時期と相関していた。

表2では CNPが高い頻度で検出されているが、前記シジミ、フナ、ドジョウ等と比較すると低レベルであった。

以上の結果より、5月をピークにシジミ、ドジョウ、フナ等の淡水性魚介類が CNP等、初期除草剤により汚染されており、6月にはベンチオカーブ等中期除草剤が同様に河川を汚染していることが明らかとなった。また我々が調べた除草剤の中では CNPが最も生物濃縮率が高いと考えられ、各種の検体から広範囲に検出された。

参 考 文 献

- 1) Yamagishi, T.: J. Environ. Sci. Health, B 13 (4), 417~424 (1978)
- 2) Fred M. Gretch: Bull. Environ. Contam. Toxicol., 23, 165~169 (1979)
- 3) 渡辺信英: 日本農業学会誌, 6, 31~36 (1981)
- 4) Masaaki Imanaka: J. Pesticide Sci., 6, 413~417 (1981)
- 5) 飯塚宏栄: 用水と廃水, 24, 629~635 (1982)
- 6) 石川 潔: 食衛誌, 22, 56~59 (1981)
- 7) 佐藤信俊: 食衛誌, 23, 456~461 (1982)

8. 有機リン系殺菌剤 (IBP) の魚介類中残留

鈴木 滋 佐藤 信俊 百川 滉*
牛沢 勇

1. はじめに

IBP (S-benzyl diisopropyl phosphorothiolate) は水田用の殺菌剤 (いもち病防除剤) として多用されている農薬で、特に我が国は全国の約12%の出荷量 (昭和55年度) を占めている。

これら水田用農薬は、その性質上短期間に集中して使用されるため、それらの一部が農業用水と共に河川水や海に流出する可能性が考えられた。

我々は昭和57年度の日本薬学会東北支部会に於てシジミ等に一時期 IBP が残留していることを報告したが、今回は県内2カ所の定点で4月から11月までの長期間に渡り、河川水およびシジミを採取し、IBPの残留経時変化について調査を行ったので報告する。

2. 試料

県内2カ所 (A, B) の定点でシジミおよび河川水を採取した。A地点は4~11月まで毎月2回、シジミおよび水を、B地点では5~10月までシジミを毎月2回、水を月1回採取した。

3. 分析方法

河川水は試料1ℓに無水硫酸ナトリウム20gを加えn-ヘキサン150mlで抽出しKD濃縮器で濃縮後FPD-GLCにより定量する。

シジミは均一化したむき身10gに無水硫酸ナトリウム15gを加えアセトニトリル20mlで3回抽出する。アセトニトリル層を併せ、水150ml、無水硫酸ナトリウム3gを加え、n-ヘキサン50mlで2回抽出する。n-ヘキサン層を水洗後、5mlに濃縮し、うち2mlを25%含水フロリジルカラム (3g) に付し、10%酢酸エチル/n-ヘキサン100mlで溶出し、KD濃縮器で濃縮後FPD-GLCにより定量する。

4. ガスクロマトグラフィー条件

島津製作所製 GC-4 CMPF
カラム; 2%OV-210/W-HP, 2m×3mmφ, 195°
5%DEGS/W-HP, 2m×3mmφ, 205°
キャリアーガス; N₂
検出器; FPD-P, S

5. 結果と考察

結果を図1, 2に示した。

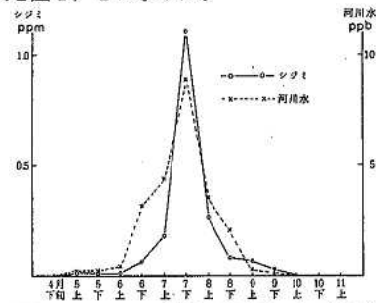


図1 IBPの残留経時変化 (A地点)

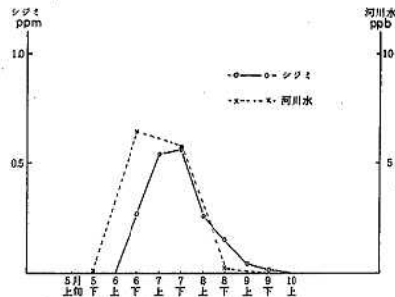


図2 IBPの残留経時変化 (B地点)

両地点ともシジミ、河川水がほぼ一致した経時変化を示しており、その散布時期とも一致していることから、明らかに水田から流出したものがその原因であると考えられる。

シジミ中では7月下旬に1.1 ppm (A), 0.56 ppm (B) が最高値でその後は急激に減少していった。河川水中では8.9 ppb (A), 6.4 ppb (B) が最高値であり、そのシジミ中の濃縮率はCNPと比較すると1/10~1/100のオーダーであると思われる。

環境庁で定めたIBPの農業登録保留基準は米で0.2 ppmである。シジミと米ではその1日摂取量が大きく異なるため、全く同一レベルでは論じられないが、7~8月の期間中は0.2 ppmを超えており、これらの人体に対する影響等も含め、さらに引き続き検討を続けるつもりである。

参考文献

- 1) 第21回, 日本薬学会東北支部大会講演要旨集
P.51 (1982)

*現 宮城県仙南保健所

9. 高速液体クロマトグラフィーによる天然着色料の定量

高槻 圭悟 山田 わか 鈴木 滋
小野 研一 牛沢 勇

1. 序

着色料として天然色素は、近年その使用量が増加しており、生産量は合成着色料の80倍に達している¹⁾。従ってその使用基準の設定および試験法の確立が急がれており、厚生省では54年度から規格基準の検討を行っており²⁾、56年には生鮮食品に対する使用が禁止された³⁾。この分析法についての報告例では、定性を主体としていたり、系統的分析を目的とするため個々の色素についてみると分析操作が長く煩雑になりがちである。

そこで天然着色料を高速液体クロマトグラフを用いて極く簡便な操作で定量することを目的に検討を行った。着色料として使用されている化合物は無極性のものから極性の強いイオン性化合物まで多岐にわたり、これらを網羅した分析法は複雑になりがちであると思われる。そこで個々の着色料について最も簡便かつ精度の良い分析法を確立していくこととした。

今年度は赤色色素カルミン酸および黄色色素クルクミンを対象色素とし、いちごジャムおよびたくあん漬について分析を行った。カルミン酸はアンスラキノン誘導体であるが、カビ代謝物で肝臓毒を示すルテリオスカイリン⁴⁾と構造が類似しており、昆虫(エンジムシ, *Dactylopius coccus* Costa)を原材料としている点で問題がある。又 *Salmonella* を用いた突然変異原性試験で陽性という結果も出されている⁵⁾。クルクミンは古くから香辛料としても用いられて来たが、DNA 修復試験陽性という結果が出されている⁶⁾。

なお今後毎年度新たな着色料について検討を加え、使用されている各種色素について分析法を確立していく方針である。

2. 実験方法

2.1 試 薬

カルミン酸：和光純薬製，化学用，エタノールから再結晶して精製したものを使用

クルクミン：和光純薬製，試薬特級

アセトニトリル：和光純薬製残留農薬試験用メタノール，エタノール，iso-アミルアルコール，エーテル，塩化メチレン，クロロホルム，酢酸，塩酸，水酸化ナトリウム，塩化ナトリウム 以上試薬特級

シリカゲル薄層プレート：メルク製 kieselgel 60 (Art. 5724)

ろ紙：東洋化学製 No.5 C

標準原液：カルミン酸およびクルクミンをそれぞれ100 mg精秤し，カルミン酸はメタノール-水1：1混合溶媒，クルクミンはエタノールに溶かし，それぞれ100 ml溶液とする。(濃度 1000 ppm)

2.2 装 置

ホモジナイザー：パイオトロン製 BT10, 20, 3500

ロータリーエバポレーター：東京理化学器械製 N-1 型

フィルターホルダー：ミリポア製 Swinnex sxoo 01300

フィルター：ミリポア製 HA型 0.45 μ m

高速液体クロマトグラフ

ポンプ：ウォーターズ製 6,000 A型

インジェクター：ウォーターズ製 U 6 K型

加圧モジュール：ウォーターズ製 RCM100 型

紫外外部吸収検出器：日本分光 UVIDEC-100 II 型

蛍光検出器：日立製作所製 204 型，フローセル付

高速液体クロマトグラフ用カラム

Radial Pak C₁₈ (8 mm ϕ \times 100 mm)

μ -Bondapak CN (3.9 mm ϕ \times 300 mm)

以上ウォーターズ製

2.3 試験溶液の調製

① いちごジャム中のカルミン酸

いちごジャム20 gを秤量し，メタノール，水1：2の混合溶媒を加え全量を100 mlとする。完全に混合後2,000 rpmで5分間遠心分離し，上澄液50mlを分取する。これに1 N塩酸1 ml，塩化ナトリウム約1 g加えた後，i-アミルアルコール30mlで色素を抽出する。エーテル10mlを抽出液に加えた後，0.1 N水酸化ナトリウム水溶液10mlで色素を逆抽出，直ちに1 N塩酸1 mlを加えて中和し，ロータリーエバポレーターで減圧下溶媒を完全に溜去する。残渣にメタノール-水1：1混合溶媒2 mlを加え溶解し，0.45 μ mフィルターを通して試験液とする。

② たくあん漬中のクルクミン

細切したたくあん漬20 gを秤量し，エタノール50mlを加え，パイオトロン・ホモジナイザーで完全に粉碎する。ホモジナイザーの刃をエタノール30mlで洗浄し，先のホモジナイトに合わせ，80°Cで約20分加温し抽出を完全にす。室温に冷却後，5 Cろ紙を用いて吸引ろ過し，残渣は更にエタノールで洗う。エタノール抽出液を減圧濃縮して約40mlとし，水30ml，1 N塩酸2 ml，塩化ナトリウム1 gを加え，塩化メチレン30mlで色素を抽出する。抽出液の溶媒を完全に溜去した後，エタノール2 mlに溶

解し、0.45 μm フィルターを通して試験液とする。

2.4 検量線作製のための標準溶液作製

① カルミン酸

カルミン酸標準原液 0.1~1 ml をメタノール-水 1:2, 混合溶媒 50ml に加え, いちごジャム抽出液と同様の操作を加え, メタノール-水 1:1 混合溶媒 10ml 溶液として, 検量線作製用溶液とする。

② クルクミン

水 30ml に 1 N 塩酸 2ml, 塩化ナトリウム約 1g を加え, クルクミン標準原液 0.1~2ml を加え塩化メチレン 30ml で抽出, 抽出液の溶媒を完全に溜去後, エタノール 20ml 溶液として, 検量線作製溶液とする。

2.5 高速液体クロマトグラフィーの条件

① カルミン酸

A カラム: Radial, Pak C₁₈

溶離液: 酢酸-アセトニトリル-水 (1:3:16)

検出器: 紫外外部吸収検出器 280 nm

B カラム: μ -Bondapak CN

溶離液: 酢酸-水 (5:95)

検出器: 紫外外部吸収検出器 280 nm

② クルクミン

カラム: μ -Bondapak CN

溶離液: 酢酸-アセトニトリル-水 (1:7:15)

検出器: 蛍光検出器

励起波長 428 nm

蛍光波長 519 nm

2.6 高速液体クロマトグラフィーによる定量

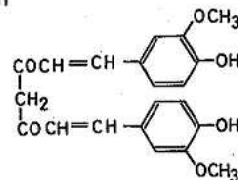
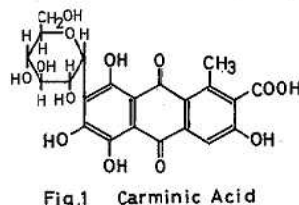
試験液を 5 の条件で分析を行い, 同一条件での標準溶液との比較により, ピークの位置から定性を行い, ピーク高から定量を行う。

3. 実験結果および考察

3.1 抽出法-試験溶液の調製

① いちごジャム中のカルミン酸の抽出は, この化合物が極性の強い酸性化合物であるため (構造式図 1)⁹⁾, メタノール-水 1:2 の混合溶媒を用いた。抽出は完全と思われ, 不溶性の繊維質を残すのみで殆んど溶解した。不溶性の除去には最初ひだ付ろ紙によるろ過を試みたが, 時間がかかるため, 遠心分離を行うことにした。不溶物は沈殿するので, 上澄液 1/2 を分取して後の操作を行った。これは試料 10g 分に相当する。操作をなるべく簡略にするため, 最初はこの抽出液の HPLC 測定を試みたが, 試料濃度の 1/10 に希釈されているため, 検出感度に不足した。そこでこの抽出液の濃縮を行ったが, かなり大量の糖分が共存しているため, 10 倍の濃縮も困難であった。そこでこの糖分を除去するため色素を *i*-アミルアルコールに抽出することを試みた。カルミン酸のメタノール

水溶液から 1/2 量の *i*-アミルアルコールで抽出を行ったところ, 1 回目の抽出で 28.5%, 2 回目で 16.4% しか抽出されず, 効率不十分であった。そこで希塩酸を加え酸性条件とし, 更に塩化ナトリウムを加えた後, *i*-アミルアルコール抽出を行ったところ 1 回の抽出で 96.2% のカルミン酸抽出効率を得られたので, この条件で抽出を行うこととした。なお糖分は水層に残っており除去することができた。メタノール-水抽出液の 1/2 量程度の *i*-アミルアルコールを用いるため, 検出感度を上げるためにはこれを更に濃縮しなければならないが, *i*-アミルアルコールは高沸点かつ悪臭が強く, 取扱困難なため, エーテルを加えた後アルカリ水溶液でカルミン酸を再度水溶液に抽出した。アルカリ性ではカルミン酸が徐々に分解するため直ちに中和した後, 水を溜去して濃縮した。この逆抽出により脂溶性の不純物も除去することができたと思われる。



② たくあん漬中のクルクミン (構造式図 2) の抽出には, 溶解度からエタノールを用いた。細切後エタノールを加えてパイオトロンホモジナイザーにより粉碎した後, 加温抽出を行った。吸引ろ過後, ろ液中のエタノールを溜去して次の塩化メチレン抽出を容易にした。この抽出法では, 抽出残渣にはまだかなりの黄色の着色がみられたが, 定性試験¹⁰⁾の結果各検体に合成着色料黄色 4 号が検出されており, これがエタノールでは充分抽出されず残っているためと考えられる。しかし組織に強く吸着されているクルクミンの抽出不十分ということも考えられ, 酵素分解を行った後色素の抽出を行うことを検討中である。又エタノール抽出液から塩化メチレンに抽出することにより, 濃縮を容易にするとともに, 蛍光性の物質の一部を除去することができた。

なお試験液は 0.45 μm のフィルターを通すことにより微粒子を除去し, HPLC のカラムの目づまりを防いだ。

色素のクリーンアップ法としては, イオン交換樹脂, ポリアミドカラム, エキストレルートカラム等が考えられるが, 以上の抽出法に記したように, 溶媒転溶を用いた極く簡便な操作のみで HPLC の条件の検討により, 妨害ピークなく各色素の定量が可能であった。

3.2 高速液体クロマトグラフィーの条件

① カルミン酸

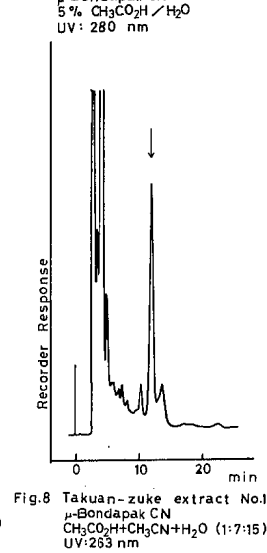
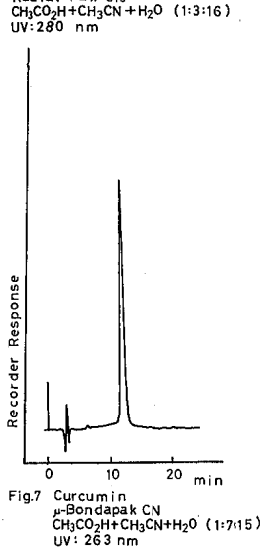
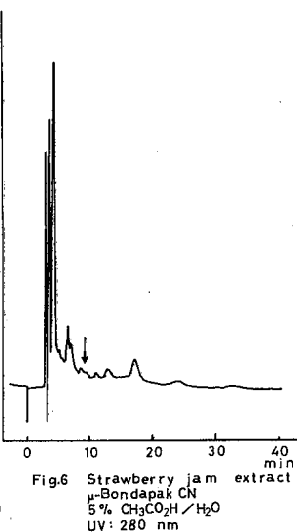
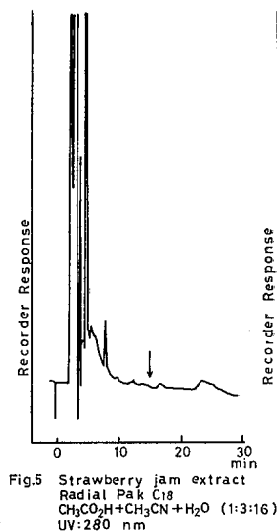
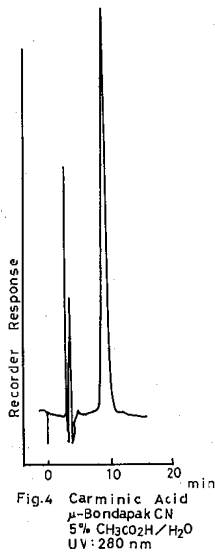
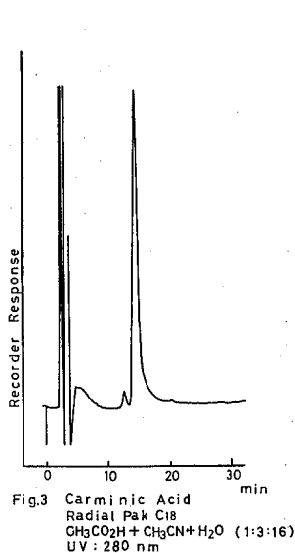
構造式図1に示したようにフェノール性水酸基, カルボキシル基を有する酸性化合物であるため, 最初イオンペアクロマトグラフィーの条件を試みたが, 良好なピークを得ることができなかった。そこで酸性溶離液によるイオン抑制クロマトグラフィーの条件を検討し, 5%酢酸を含むアセトニトリルおよび水の混合溶媒を溶離液としたところアセトニトリル-水 3:16の比率で, Radial Pak C₁₈ カラムを用いて約14分の溶離時間でほぼ適当であった。(図3) しかしピークの形状はややテーリングした非対称形を示したので, 更にμ-Bondapak CNカラムを用いたところ5%酢酸/水の溶離液で約9分の溶離時間で, ピークの形状も左右対称のシャープな更に良好なクロマトグラムを得ることができた。(図4) 極性の強いカルミン酸に対しては, やや極性を有する充てん剤であるμ-Bondapak CNの方が良好なピークを与えたものと思われる。検出は280nmの紫外吸収を用いた。試料抽出液のクロマトグラムでは, どちらの条件でも大きな妨害ピークはみられなかったが(図5,6), 高感度にした場合, ベースラインの小さな突起がみられたので, 確実な分析を行うため, 上記の両条件で測定を行うこととした。図5,6は同一のいちごジャムの抽出液であり, 矢印がカルミン酸の溶離位置を示している。検出限界は試料中濃度で2 ppmである。

② クルクミン

構造式図2に示すように, フェノール性水酸基および1,3-ジケトン構造を有し弱酸性化合物であるが, やはりイオンペアクロマトグラフィーの条件では良好なピークを得ることはできず, 酢酸を含む酸性溶離液によるイオン抑制クロマトグラフィーの条件を検討し, C₁₈

C₁₈ のカラムは不適當であったが, μ-Bondapak CNカラムを用いて良好なクロマトグラムを得ることができた。酢酸-アセトニトリル-水 (1:7:15) の溶離液により約12分にシャープなピークを得ることができた。

(図7) 当初は紫外吸収検出器を用いて263nmの吸収により検出した。クルクミンの吸収は428nmの吸収が最も強いが, 検出器が360nmまでの紫外吸収のみを用いているため, 吸光度はいくらか低い263nmの吸収を用いたが実用上の感度は充分であった。この条件で試料5検体の測定を行ったところ, 5検体全てにクルクミンと完全に一致するシャープなピークがみられた。(図8, 9 矢印) そこで更にクルクミンの定性確認を行うためシリカゲル薄層クロマトグラフをHPLCと同一の試験液について行った。蛍光剤を含まない薄層板を用い, クロロホルム-酢酸 (9:1) の展開溶媒により, クルクミンはR_f 0.7の位置にそれ自体の発する蛍光により確認することができた。しかし検体の試験液を展開したものでは,



HILCの結果とは全く異なり、クルクミンは検出されな
 いか又は極く弱いスポットが観察されたのみであった。
 従ってHPLCの紫外吸収検出器では、クルクミンに全
 く重なる化合物が検出されているものと考えられ、HPLC
 を蛍光検出器に替えて再度分析を行った。励起波長 428
 nmにより最大蛍光波長519nmが得られ、この条件で測定を
 行った。(図10) 感度は蛍光を用いている割合には低く、
 紫外吸収を用いた場合よりも低い位であったが実用上
 は充分であった。蛍光検出器を用いると図8の検体は図
 11のように全くクルクミンを含まないことが示され、図
 9の検体にはクルクミンが含まれているが(図12矢印)
 紫外吸収検出器を用いて定量した値よりは、はるかに
 低濃度であった。以上の結果からクルクミンの定量には
 蛍光検出器付HPLCを用いることとした。なおこの場合
 の検量線も図13に示したように原点を通る良好な直線が
 得られている。検出限界は試料中濃度で1 ppmである。

3.3 添加回収実験

添加回収実験は、いちごジャム20gにカルミン酸2mg
 (100 ppm) およびたくあん漬20gにクルクミン2mg
 (100 ppm) を添加したものをを用いて行った。回収率は
 カルミン酸88.3%, クルクミン92.4%であった。天然
 色素は一般にそれほど安定ではなく分解のおそれがある
 ので操作はなるべく手早く行う必要があると思われた。

3.4 市販品の分析結果

市販品いちごジャム5検体、たくあん漬5検体の分析
 結果は表1のようであった。

表1 市販品分析結果

いちごジャム	1	2	3	4	5
カルミン酸濃度 (ppm)	ND	ND	ND	ND	ND
たくあん漬	1	2	3	4	5
クルクミン濃度 (ppm)	5.85	ND	1.32	ND	ND

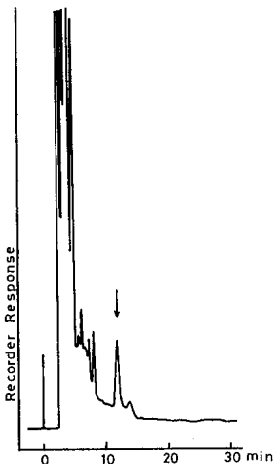


Fig.9 Takuan-zuke extract No.2
 μ -Bondapak CN
 $\text{CH}_3\text{CO}_2\text{H} + \text{CH}_3\text{CN} + \text{H}_2\text{O}$ (1:7:15)
 UV: 263 nm

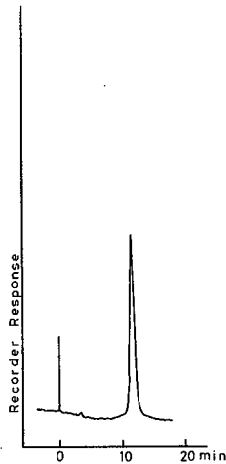


Fig.10 Curcumin
 μ -Bondapak CN
 $\text{CH}_3\text{CO}_2\text{H} + \text{CH}_3\text{CN} + \text{H}_2\text{O}$ (1:7:15)
 Fluor. Det.

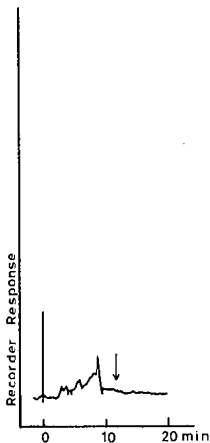


Fig.11 Takuan-zuke extract No.1
 μ -Bondapak CN
 $\text{CH}_3\text{CO}_2\text{H} + \text{CH}_3\text{CN} + \text{H}_2\text{O}$ (1:7:15)
 Fluor. Det

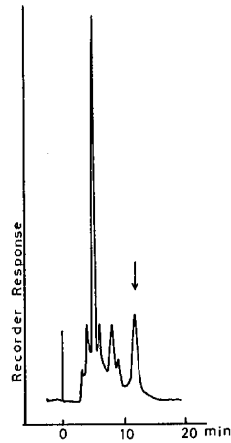


Fig.12 Takuan-zuke extract No.2
 μ -Bondapak CN
 $\text{CH}_3\text{CO}_2\text{H} + \text{CH}_3\text{CN} + \text{H}_2\text{O}$ (1:7:15)
 Fluor. Det

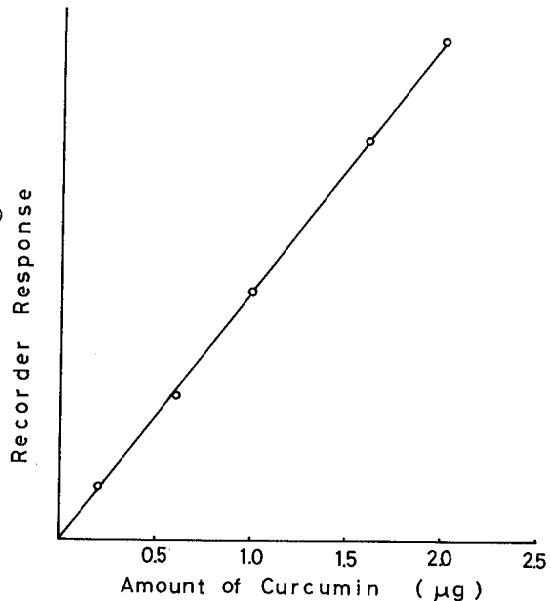


Fig.13 Calibration Curve of Curcumin
 μ -Bondapak CN
 $\text{CH}_3\text{CO}_2\text{H} + \text{CH}_3\text{CN} + \text{H}_2\text{O}$ (1:7:15)
 Fluor. Det

4. ま と め

- (1) 比較的簡便な抽出-溶媒展溶という操作でHPLCによる天然色素2種類(いちごジャム中のカルミン酸, およびたくあん漬中のクルクミン)の定量を行うことができた。操作時間も短く, 大量の検体についても適用可能であると思われる。
- (2) カルミン酸は紫外外部吸収検出器で定量可能であったが, たくあん漬中のクルクミンの定量では紫外外部吸収検出器にはクルクミンと全く重なるピークがみられるため, 蛍光検出器を用いる必要があった。
- (3) 添加回収実験の回収率は良好であったが, たくあん漬では組織に強く吸着されている色素がみられ, 酵素分解後の抽出を検討中である。
- (4) 市販品いちごジャム5件, たくあん漬5件について分析を行った。

参 考 文 献

- 1) 厚生省食品化学レポートシリーズNo 1 (1979)
- 2) 入村和子: 食品衛生研究, **30**, 373 (1980)
- 3) 昭和56年6月10日, 厚生省告示第116号
- 4) 伊藤誉志男 他: 分析化学, **32**, 47 (1983)
- 5) 伊藤誉志男 他: 分析化学, **32**, 55 (1983)
- 6) 平田恵子, 荻原勉, 天川映子, 大西和夫: 食品衛生学雑誌, **24**, 1 (1983)
- 7) J. J. Drake: Toxicol., **5**, 3 (1975)
- 8) 河内卓, 賀田恒夫, 西岡一, 矢作多貴江: 厚生省がん研究助成金による研究報告集(下), 773~789 (1973~1979)
- 9) Merck Index. 9th Ed. P. 235 (1976)
- 10) 衛生試験法・注解, P. 351, 金原出版 (1980)

10. 飲料水中のトリハロメタンに関する研究(第2報)

一 県内水道水中のトリハロメタン 実態調査の統計的解析 一

清野 茂 秋野 正造 木戸 一博
千葉 規 郡山 力

1. はじめに

昭和56年3月、厚生省の通知により、水道水中の総トリハロメタン(以下TTHMと記す)の制御目標値が、年間平均値で0.10mg/l以下とすることになった。

我が国の水道水に関するトリハロメタン(以下THMと記す)の調査については、数多くの報告がなされている。^{1)~10)}

そこで、今回は県内の10浄水場について、これ等の水道水中のTHM濃度の実態を把握することを目的として、THM実態調査を行った。その調査結果をとりまとめ、若干の統計的解析を行い、重回帰分析により、TTHM濃度の推定を試みたので報告する。

2. 調査方法

2.1 調査時期

県内10浄水場について、昭和55年秋季(55年9月30日、10月2~3日)、56年冬季(56年1月26~28日、30日)、春季(56年4月21~24日)および夏季(56年7月23~30日)の計4回にわたり、調査を実施した。

2.2 調査対象

県内の浄水場から、代表的な10浄水場を選定し、調査

対象とした。

10浄水場の概要を表1に示した。

2.3 サンプルング方法と検体数

2.3.1 サンプルング方法

昭和55年7月の厚生省の「水道水中の総トリハロメタン測定方法(案)」¹¹⁾に準じた。

2.3.2 検体数

各浄水場配水系毎に、原水1検体、栓水4検体を採水し、各季節につき1回、年間4回とし、10浄水場についての検体数は原水20、栓水139、計159検体である。

2.3.3 採水箇所

10浄水場毎についての採水箇所の概要を図1に示した。

2.4 測定項目と測定方法

2.4.1 水質の平常項目

栓水採水時の気温、水温および栓水の平常項目すなわちpH値、残留塩素、KMnO₄消費量、一般細菌および大腸菌群であって、これ等の測定方法は上水試験方法によった。

2.4.2 TTHM濃度

原水および栓水中のTHM濃度は厚生省¹¹⁾によるヘッドスペース分析法を用いて測定した。

表1 浄水場の概要

No	浄水場	水源	給水量 m ³ /日	稼働時間 hr	塩素注入量 ppm			浄水工程別滞留時間 hr									
					前	後	計	着水井	混合池	曝気槽	フ形成池	高沈速池	急濾速池	活濾炭池	浄水池	配水池	計
1	A	河川水①	21	24	1.1	-	1.1	0.16	0.04	▲→	→	5.1	0.61	→	→	▲10.0	15.9
2	B	河川水①	55	24	6.5	-	6.5	0.05	0.06	▲→	→	2.3	0.21	→	2.6	4.6	8.8
3	C	河川水②	15	14	2.5	1.5	4.0	▲0.14	→	→	→	0.49	0.32	0.07	0.79	4.7	▲6.6
4	D	河川水②	4.7	18	2.5	1.5	4.0	0.26	▲0.72	→	→	1.7	(ポンプ井) 0.49	0.37	▲1.7	14.0	19.2
5	E	河川水②	10	24	0.03	0.09	0.12	▲0.10	→	→	→	1.6	0.52	→	→	▲8.0	10.3
6	F	河川水③	16.7	16	1.5	1.4	2.9	0.05	▲0.34	→	→	0.78	0.12	→	▲0.97	3.0	5.3
7	G	ダム湖水①	41	24	0.8	0.5	1.3	0.11	▲0.04	→	0.52	0.9	0.58	→	→	▲4.0	6.2
8	H	ダム湖水②	4.2	24	3.0	1.1	4.2	1.0	▲→	→	→	6.7	3.0	→	▲5.3	40.0	56.0
9	I	伏流水	13	24	1.1	0.9	2.0	0.41	→	1.0	▲→	→	0.26	→	0.84	▲15.0	20.1
10	J	深井戸+分水	6	24	1.8	-	1.8	0.15	▲→	→	→	→	1.1	→	2.6 (送水管) 1.2 (深井戸) 1.4 (ポンプ井)	29.9	

▲：塩素注入位置を示す。

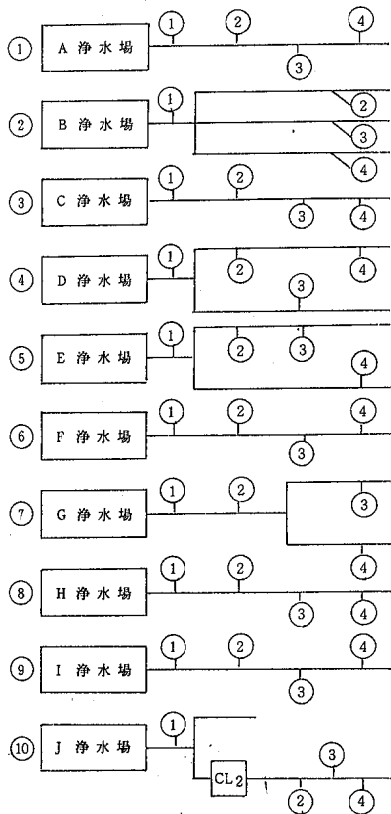


図1 採取箇所の概要

2.5 施設アンケート調査

昭和56年冬季調査時において、10浄水場について、アンケートによる施設調査を行った。

調査項目は、①給水量、②稼働時間、③塩素注入量および④浄水工程図と滞留時間等である。アンケート調査に使用した調査表を表2に示した。

3. 結果と考察

3.1 原水中の TTHM 濃度

原水20検体中夏季の5検体についてのみ、TTHM 0.001 mg/ℓ検出された。

表2 施設アンケート調査用紙

● 期会先：衛生研究所環境衛生部 TEL 0222-57-7181 内53

浄水工程図(例)

原水 → 取水ポンプ → 凝集池 → 高圧で入池 → 濾過池 → 急速ろ過池 → 配水池 → 配水

取水ポンプ 体積 ℓ 凝集剤投入量 ppm 0.7 1.0 1.0 ppm 濾過剤投入量 ppm 0.8 1.0 ppm 急速ろ過剤投入量 ppm 0.8 1.0 ppm 配水池 体積 ℓ

処理水量 ℓ/日

※処理順序に記入 () は薬品名

市・町 浄水場

3.2 検水中の TTHM 濃度

3.2.1 県下の検水中 TTHM 濃度

検水 139 検体の TTHM 濃度について浄水場毎に表3に示した。

検水中の TTHM 濃度の年間平均値の最高値は 0.024 mg/ℓ、最低値 0.007 mg/ℓ であり、全検体すべて制御目標値以下であった。

3.2.2 季節変動

(1) 全浄水場 季節毎の TTHM 濃度の平均値は、秋季 (0.024 mg/ℓ) が最も高く、次いで夏季 (0.021 mg/ℓ)、春季 (0.012 mg/ℓ) そして冬季 (0.008 mg/ℓ) の順になっていた。

10浄水場の季節別 TTHM 濃度分布を図2に示した。

(2) 浄水場別 各浄水場毎での TTHM 濃度の季節変動パターンをみると、次のように分けることができる。すなわち、

- a. 秋季にピークを示した浄水場……A, C, D, H, I, J の6浄水場。
- b. 夏季にピークを示した浄水場……B の1浄水場。
- c. 秋季と夏季と同じピークを示した浄水場……E, F, G の3浄水場。

また、冬季において、すべての浄水場で最低の TTHM 濃度の値を示していた。

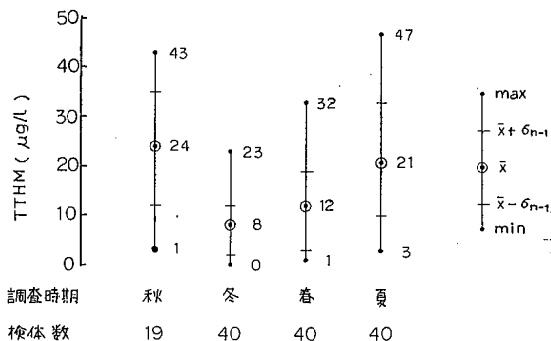


図2 10浄水場の季節別 TTHM 濃度の分布

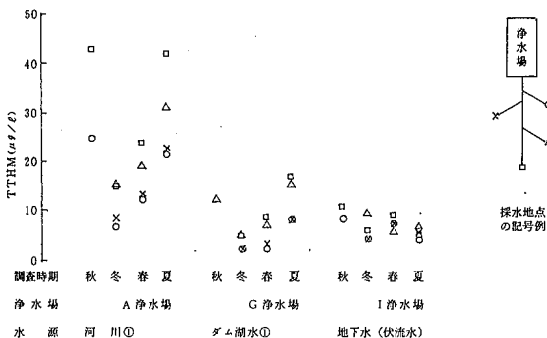


図3 代表的な浄水場の季節別 TTHM 濃度の分布

表3 10浄水場のTTHM濃度

浄水場	TTHM ($\mu\text{g}/\ell$)														
	年間			秋季			冬季			春季			夏季		
	N	平均	範囲	N	平均	範囲	N	平均	範囲	N	平均	範囲	N	平均	範囲
A	14	21	7~43	2	34	25~43	4	12	7~15	4	17	13~24	4	30	22~42
B	14	24	8~47	2	28	25~29	4	12	8~15	4	23	22~32	4	36	27~47
C	14	17	9~29	2	28	26~29	4	10	9~10	4	15	14~15	4	18	13~21
D	14	21	7~40	2	35	29~40	4	9	7~11	4	15	13~16	4	33	26~40
E	14	10	0~38	2	20	11~26	4	2	0~3	4	3	1~4	4	21	3~38
F	14	11	5~20	2	17	12~20	4	6	5~6	4	10	6~11	4	16	8~19
G	13	8	3~17	1	13	—	4	4	3~5	4	7	3~9	4	13	9~17
H	14	23	8~41	2	36	30~41	4	16	8~23	4	17	14~19	4	30	27~35
I	14	11	1~30	2	17	3~30	4	9	2~12	4	9	1~14	4	15	5~23
J	14	7	11~5	2	10	9~11	4	6	5~10	4	8	7~9	4	6	5~7
全	139	13	0~47	19	24	3~43	40	8	0~23	40	12	1~32	40	21	3~47

表4 測定値とTTHM濃度の単相関

No.	浄水場名	N	気温	水温	pH	残留塩素	KMnO ₄ 消費量
1	A	14	0.702 **	0.779 **	0.869 **	0.308	0.666 *
2	B	14	0.822 **	0.790 **	0.007	-0.007	0.871 **
3	C	14	0.725 **	0.657 *	0.664 **	0.289	0.150
4	D	14	0.838 **	0.907 **	0.201	0.312	0.152
5	E	14	0.558 *	0.613 **	0.619 *	-0.073	-0.065
6	F	14	0.659 *	0.798 **	-0.100	0.175	0.515 *
7	G	13	0.795 **	0.863 **	-0.179	0.087	0.563 *
8	H	14	0.747 **	0.863 **	-0.061	0.556 *	0.617 *
9	I	14	-0.010	-0.036	0.480	0.262	-0.672 **
10	J	14	0.339	0.222	0.821 **	0.341	0.412
全浄水場		139	0.486 **	0.553 **	0.295 **	0.227 **	0.514 **

* : $P < 0.05$ 有意** : $P < 0.01$ 有意

3.2.3 水源別

10浄水場を水源別の種類でみると、河川水（6浄水場）、ダム湖水（2浄水場）および地下水（2浄水場）の3つのグループに分けることができる。

河川水を水源とするグループがTTHM濃度が高く、季節的変動が最も大きく且つ検水間の差も大きかった。地下水のグループのTTHM濃度は低く、季節的変動はほとんどなく且つ検水間の差も余りみられなかった。

水源を異にする代表的な浄水場のTTHM濃度の分布を図3に示した。

3.3 施設アンケート調査結果

10浄水場について実施したアンケート調査結果を表1に示した。

- (1) 給水量 1日の給水量が1万 m^3 以上の浄水場は7ヶ所、1万 m^3 未満の浄水場は3ヶ所であった。
- (2) 稼働時間 24時間稼働の浄水場は7ヶ所であった。
- (3) 塩素注入量 塩素注入量は、0.12~6.5 ppmと中広

い範囲になっており、前塩素注入のみはJ浄水場1ヶ所、他の浄水場は前塩素+後塩素注入であった。（ただし、AとB両浄水場は夏季にのみ実施している。）

(4) 滞留時間 着水井から配水池までの滞留時間が10時間以上の浄水場は6ヶ所で、他の浄水場は10時間未満であった。

3.4 TTHM生成におよぼす因子の検討

検水採水時の気温、水温および検水の平常項目検査測定値とその検水中のTTHM濃度との関連性について、相関係数を求めて検討した。その結果を表4に示した。

全浄水場についてみると、気温、水温、pH値、残留塩素およびKMnO₄消費量はTTHM濃度と正の相関がみられ、すべて危険率1%で有意であった。

浄水場毎では、気温と水温はTTHM濃度との間に、地下水を水源とする2浄水場（I、J浄水場）を除く8浄水場で正の相関を示した。pH値とTTHM濃度の間に有意な正の相関が認められた浄水場は、A、C、EおよびJ

の4浄水場であった。残留塩素とTTHM濃度の間に有意な正の相関が認められたのは、H浄水場のみであった。KMnO₄消費量とTTHM濃度の間に有意な正の相関が認められた浄水場は、A、B、F、G、HおよびIの6浄水場であった。

以上のことから、TTHM生成におよぼす因子すなわち気温、水温、pH値、残留塩素およびKMnO₄消費量は、浄水場毎でその影響度合いが異なることが判る。

3.5 浄水処理過程とTTHM生成の統計的解析

3.5.1 塩素注入量とTTHM濃度の関係

各浄水場の冬期における塩素注入量（前塩素+後塩素）とその時のTTHM濃度（1浄水場当りの4栓水の平均値）との関連性について、相関係数を求めて検討した。その結果を図4に示した。

塩素注入量（前塩素+後塩素）とTTHM濃度の間には、相関係数0.875で危険率1%で有意な正の相関が認められた。すなわち、塩素注入量が多い浄水場程その栓水中のTTHM濃度が高いことが判る。

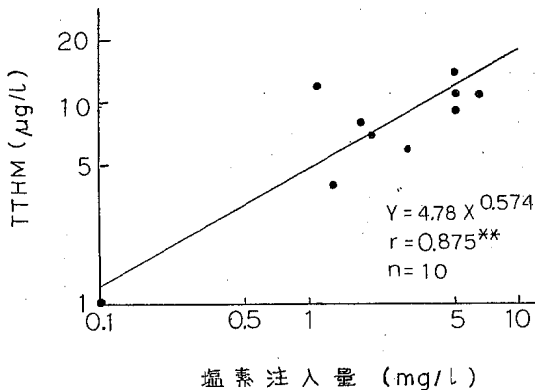


図4 塩素注入量（冬季）とTTHM濃度の関係

3.5.2 滞留時間とTTHM濃度の関係

各浄水場における前塩素注入後から高速沈澱池出口までの滞留時間と年間平均TTHM濃度との関連性について、相関係数を求めて検討した。その結果を図5に示した。

滞留時間と年間平均TTHM濃度の間には、相関係数0.715で危険率5%で有意な正の相関があった。すなわち、塩素注入点から高速沈澱池出口までの滞留時間が長い浄水場程その栓水中のTTHM濃度が高いことが判る。

3.5.3 TTHM濃度の推定

栓水採水時の気温、水温および栓水の平常項目検査の測定値から、TTHM濃度の推定を行うために重回帰分析を行った。すなわち、TTHM濃度を目的変数とし、気温、水温および平常項目検査測定値を説明変数とした次式の線型一次式とする重回帰式を用いて分析した。¹²⁾

$$Y = B_0 + B_1 (X_1) + \dots + B_5 (X_5)$$

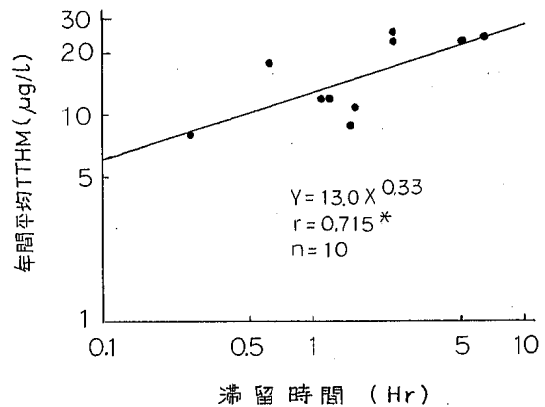


図5 滞留時間と年間平均TTHM濃度の関係

ここで、Y：TTHM濃度の推定値

B₀ ~ B₅：係数

X₁ ~ X₅：説明変量

この結果を表5に示した。

全浄水場でみると、重回帰係数が0.698であり、その寄与率は0.488と低いが、各浄水場毎では重回帰係数0.794~0.993であり、その寄与率は0.631~0.986とかなり高い。

このことから、各浄水場毎の重回帰式を用いて、TTHM濃度の推定を行った。

TTHM濃度の推定値と実測値のプロット図を図6に示した。

全浄水場では、相関係数0.969であり、危険率1%で有意であった。各浄水場毎でも、相関係数は有意に高い。したがって、浄水場毎の重回帰式により、その栓水中のTTHM濃度を推定することが可能であることが判った。

なお、ここで説明変量のうちpH値について、水酸基

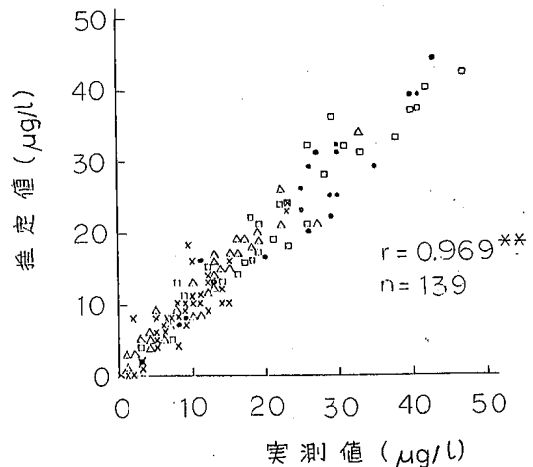


図6 TTHM濃度の推定値と実測値のプロット図

表5 回帰係数

項目	係数	A 浄水場	B 浄水場	C 浄水場	D 浄水場	E 浄水場	F 浄水場	G 浄水場	H 浄水場	I 浄水場	J 浄水場	全浄水場
	B ₀	-82.5	-0.573	96.2	2.818	-139	-70.8	-25.5	-42.2	-10.8	-237	-57.4
気温	B ₁	-0.186	0.240	0.713	0.503	-0.041	-0.686	-0.050	-0.496	-0.019	-0.274	-0.017
水温	B ₂	1.00	0.444	0.468	1.057	1.568	1.810	0.800	2.05	0.237	0.610	0.483
pH	B ₃	12.9	2.119	-12.8	2.451	18.31	9.967	4.22	7.29	2.80	30.18	7.97
残留塩素	B ₄	4.03	-7.743	-6.53	-8.01	-6.733	-1.64	-5.48	5.22	-1.22	7.94	1.57
KMnO ₄ 消費量	B ₅	-2.54	4.428	-1.42	-6.39	2.81	-0.986	-0.116	-4.07	-2.19	0.957	4.02
重相関係数		0.993	0.928	0.794	0.969	0.952	0.908	0.929	0.964	0.865	0.903	0.698
寄与率		0.986	0.862	0.631	0.939	0.906	0.824	0.863	0.928	0.769	0.816	0.488

濃度〔OH⁻〕変換値を用いて、再度重回帰分析を試みたが、pH値そのままと変換値ではほとんど差が認められなかった。

更に、変数増加法による段階式重回帰分析¹³⁾から、TTHM濃度の推定について再検討したところ、前述した重回帰分析と比較して、より少ない説明変数で且つその寄与率がより高い場合が認められた。段階式重回帰分析は、目的変数に対して最良の説明変数を選定する方法であることから、今後TTHM濃度を推定する場合に検討する場合に検討して行きたい。

4. まとめ

県内の10浄水場についての水道水中のTTHM濃度の実態を把握するために調査し、その結果に若干の統計的な解析を行い、また重回帰分析によりTTHM濃度の推定を試みた結果、次のことが判った。

(1) 原水中のTTHM濃度は、20検体中夏季の5検体のみに0.001 mg/l検出された。

(2) 栓水中のTTHM濃度の年間平均値は、最高値0.024 mg/l、最低値0.007 mg/lであり、全検体すべて制御目標値以下であった。

(3) 栓水中のTTHM濃度の季節別平均値は、秋季、夏季、春季そして冬季の順であった。

(4) 栓水中のTTHM濃度は、河川水を水源とする浄水場ではその季節の変動も大きく且つ栓水間の差も大きい、地下水を水源とする浄水場では季節の変動もまた栓水間の差も小さい傾向にあった。

(5) TTHM生成におよぼす因子すなわち気温、水温、pH値、残留塩素およびKMnO₄消費量は、浄水場毎で影響度合いが異なることが判った。

(6) 塩素注入量(冬季)とTTHM濃度の関係は、塩素注入量が多い浄水場程その栓水中のTTHM濃度が高いことが判った。

(7) 滞留時間とTTHM濃度の関係は、前塩素注入後から高速沈澱池出口までの滞留時間が長い程、その栓水中

のTTHM濃度が高いことが判った。

(8) 気温、水温および栓水の平常項目測定値からTTHM濃度を推定する場合、各浄水場毎の重回帰式により推定することが可能であると考えられる。

謝 辞

本研究の稿を終えるにあたり、調査でのサンプリングに御協力をいただいた関係浄水場の方々ならびに水道事業所の方々に感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) 昭和56年3月25日付環水第46号、厚生省水道環境部長通知：水道におけるトリハロメタン対策について
- 2) 加藤龍夫 他：横浜国大環境科学研究センター紀要，3，11（1977）
- 3) 鶴川昌弘 他：大阪府立公衛研究所報，公衆衛生編，15，89（1977）
- 4) 梶野勝司：大阪水道局工務部水質試験所調査報告ならびに試験成績，29，1（1977）
- 5) 広瀬義文 他：埼玉県衛生研究所報，12，52（1978）
- 6) 加藤龍夫 他：横浜国大環境科学研究センター紀要，4，25（1978）
- 7) 小島 俊男 他：香川県衛生研究所報，8，63（1979）
- 8) 小林好郎 他：東京都水道局水質年報，9，468（1980）
- 9) 田中考幸 他：滋賀県立衛生環境センター報，16，114（1981）
- 10) 梶川正勝 他：岐阜県衛生研究所報，26，77（1981）
- 11) 昭和55年7月、厚生省水道環境部水道整備課：水道水中の総トリハロメタン測定方法（案）
- 12) キヤノンBX-30，BX-10-200-13（キヤノン株式会社）
- 13) 「ACOS-4 統計解析システム説明書」，（日本電気株式会社）

11. 飲料水中のトリハロメタンに関する研究 (第3報)

一 浄水処理工程におけるトリハロメタン生成について

戸 一博 秋野 正造 渡辺 丈夫**
 千葉 規 郡山 力 長田 利昭*
 平井 博* 今野 博夫*

1. はじめに

水道水中のトリハロメタン(以下 THM と略す)は、水道水を塩素処理することにより生成される化学物質であるが、近年その発癌性に疑いもたれていることから、その生成をいかに少なくするかという低減化対策が水道維持管理上、重要な課題となっている。

THM低減化対策として、(1)THM前駆物質の除去、(2)塩素注入点の変更、(3)塩素にかわる代替消毒剤の使用などが有効とされている。これら低減化対策を適正に行うためには、前駆物質となる有機物の特性を把握するとともに、浄水処理工程における THM 生成特性を明らかにする必要があると思われる。そこで、我々は県内の一大河川である阿武隈川を水源としており、かつ活性炭処理等の設備を有する岩沼市玉崎浄水場を対象として原水の有機物特性と浄水処理工程における THM 生成特性を明らかにするための基礎的な実験を行ったので報告する。

2. 方 法

2.1 調査時期

夏 昭和56年8月 4～5日
 秋 昭和56年9月 24～25日
 冬 昭和57年1月 11～12日

2.2 採水場所と採水時間

図1に採水場所と採水時間を示した。

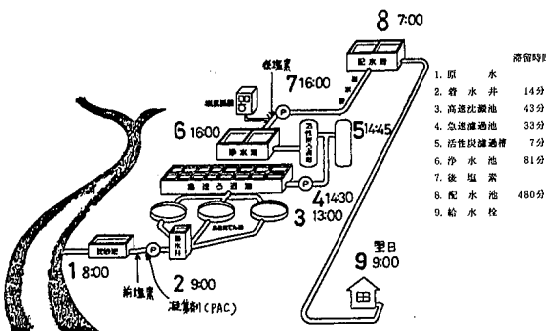


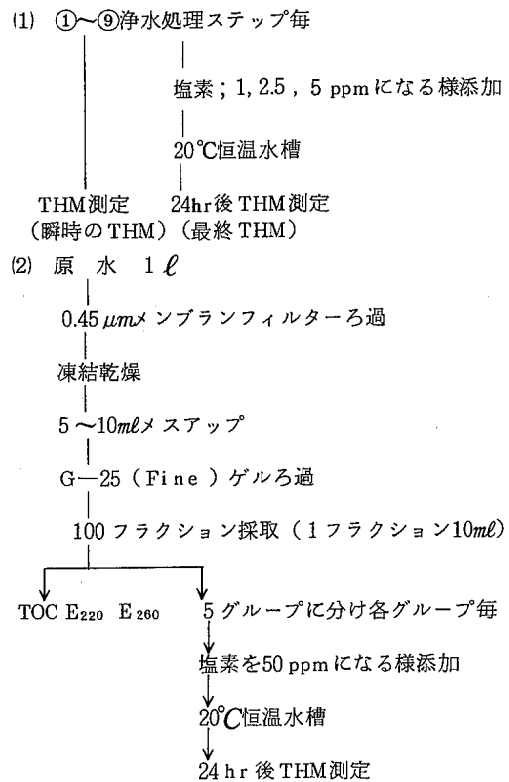
図1 採水場所と採水時間

3. 実験方法

3.1 処理工程毎の THM 生成特性

表1に処理工程毎の THM 生成特性調査の実験方法を示した。試料は図1に示した1～9の場所で採取し、瞬時の THM および最終 THM を測定した。又原水について表2の項目について測定した。

表1 実験方法



3.1.1 瞬時の THM

採取した試料について直ちに厚生省通知の総トリハロメタンの測定法に従って測定した。ガスクロマトグラフの条件は次の通りである。ガスクロマトグラフ：日立 GC163 型 ECD(⁶³Ni) 付、カラム充填剤：20% DC-550 Chromosorb WAW-DMCS 60～80メッシュ、カラム：3mmφ×2m、温度：カラム95℃、検出器 200℃、

* 岩沼市水道事業所

** 現 宮城県原子力センター

キャリアーガス：N₂ ガス60ml/分，試料注入量：200 μl

3.1.2 最終 THM

採取した試料について，有効塩素濃度が1.0，2.5，5 mg/ℓとなる様に塩素水を加え，20℃で24時間放置し，24

時間後に亜硫酸ナトリウムを用いて反応を停止し，残留塩素の濃度が1.0 mg/ℓ前後のものについて THMを測定した。

THM の測定法は瞬時の THMと同じである。

表2 原水の水質および塩素注入量

		気温 C	水温 C	色度	濁度	pH	Cl mg/ℓ	KMnO ₄ mg/ℓ	NH ₃ -N mg/ℓ	M アルカリ度	Fe	Mn
											mg/ℓ	
夏	8/3	24	28	30	20	6.9	14.1	15.1	0.08	32	0.38	0.07
秋	9/24	18	19.7	8	6	7.5	15.2	4.9	0.08	32	0.56	0.05
冬	1/11	-4.5	2.5	10	2	6.9	17.8	3.5	0.03	26	0.28	0.04

3.2 原水の有機物特性調査

表1に原水の有機物特性調査の実験方法を示した。

3.2.1 ゲルクロマトグラフィー

原水1ℓを0.45 μmのメンブランフィルターで濾過した後，凍結乾燥し，残留物を5~10mlの蒸留水で溶解し，セファデックスG-25ゲルを用いてゲル濾過した。カラムは内径2.6cm，長さ100cm(ベッド容積480ml)で，展開液は蒸留水を用い，溶出速度は60ml/時で，溶出液は10mlずつフラクションコレクターで採取し，各フラクションについて全有機態炭素(以下TOCと略す)，および波長220nm，260nmの紫外外部吸光度(以下E₂₂₀，E₂₆₀と略す)を測定し，ゲルクロマトグラムを作製した。

3.2.2 塩素処理

ア)で得られたフラクションを5つのグループに分け，TOCが約1mg/ℓとなる様に希釈調整した後50ml分取し，有効塩素濃度が50mg/ℓとなる様に塩素水を加え，直ちに0.1N NaOHでpH7.0となる様にpH調整した後，生成したTHMを測定した。THMの測定方法は3.1)ア)瞬時のTHMと同じである。

4. 結果と考察

4.1 浄水処理工程における瞬時のTHMと最終THM

図2に夏秋冬の浄水処理工程における瞬時のTHMと最終THMを表わした。白が瞬時のTHM，黒が最終THMを表わしている。

最終THMは季節によって，処理ステップにおける変動はあるが，原水と配水を比較するとほとんど差がなく，このことは，この浄水場の原水中のTHM前駆物質は急速濾過や活性炭処理を行ってもほとんど除去されていないことを表わしているものと思われる。又瞬時のTHMは各季節とも，浄水処理が進むにつれて上昇してくることがわかった。配水池の最終THMと給水栓の瞬時のTHM比較した時，各季節ともほぼ同じ値を示しており，このことは浄水処理工程中において，THM前駆物質のほとんどが，THMに変化することを表わしているもの

塩素注入量と塩素要求量 (mg/ℓ)

	前塩素	後塩素	1時間塩素要求量
8/3	3.0	1.0	2.0
9/24	3.0	1.0	1.8
1/11	3.0	1.0	1.8

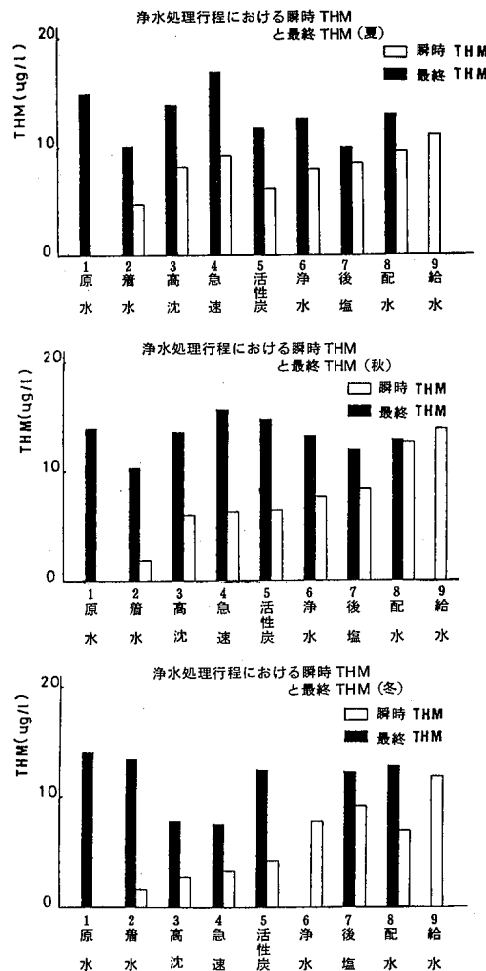


図2 浄水処理工程における瞬時のTHMと最終THM

と思われる。

4.2 原水の有機物特性

4.2.1 各季節のゲルクロマトグラム

原水の有機物特性を把握する目的で原水 1 ℓ を凍結乾燥法を用いて 100 ~ 200 倍に濃縮し、G-25ゲルを用いて展開し、溶出液について、TOC、E₂₂₀、E₂₆₀を測定し、ゲルクロマトグラムを作製した。得られた夏秋冬のゲルクロマトグラムを図3~図5に、これらをついにまとめたものを図6に示した。ゲルクロマトグラムに現われたピークのおおよその分子量を知る目的で、あらかじめ分子量の判明している溶質を使用し、これら溶質の最多溶出位置を求めた。その結果、分子量200万のBlue DextranはフラクションNo (以下Frac Noと略) 21に、分子量1,350のVB₁₂はFrac No 36になることがわかった。これらと比較して各季節のゲルクロマトグラムを見ると、季節により変化がみられ、夏は分子量1,000付近からそれ以下の低分子の占める割合が大きく、秋は分子量5,000以上の高分子の占める割合が多くなり、冬は分子量1,000付近のもの占める割合が多くなることがわかった。

これら各季節のゲルクロマトグラムをついにまとめた

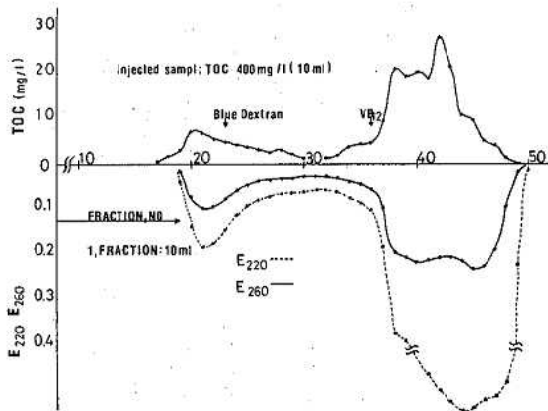


図3 原水のゲルクロマトグラム

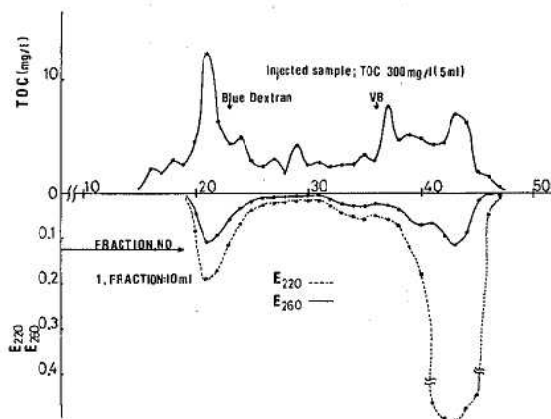


図4 原水のゲルクロマトグラム

ものが図6である。これを見ると大きく分けて分子量5,000以上のもの、5,000~1,000付近のもの、1,000付近からそれ以下のものの3つに分けられるが、更に分け合計5つのグループに分けた。すなわちグループ1はFrac No. 24~30で分子量5,000以上のもの、グループ2はFrac No. 31~36、グループ3はFrac No. 37~39で分子量5,000~1,000付近のもの、グループ4はFrac No. 37~39、グループ5はFrac No. 40~48で分子量が1,000付近からそれ以下のものである。この5つのグループに塩素を添加して、各グループのTHM生産特性を調べた。

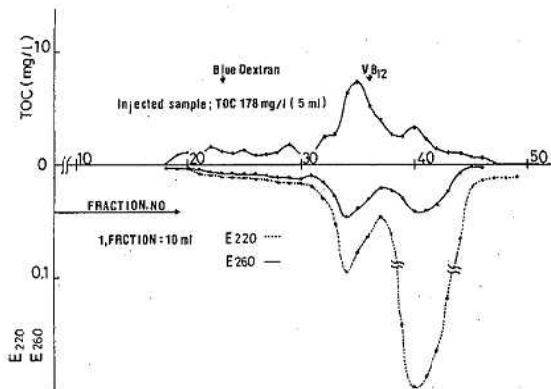


図5 原水中のゲルクロマトグラム

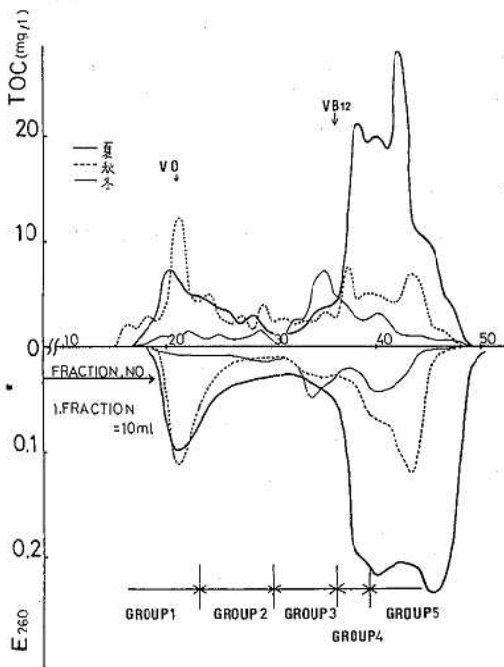


図6 夏, 秋, 冬のゲルクロマトグラム

表3 各グループの Total THM および Total TOC

	Fraction	ml ^①	THM ^② μg/l	①×② total μg	割合	TOC ^③ mg/l	①×③ total mg	割合	
夏	G 1	18~23	60	53	3200	18	4.8	290	12
	G 2	24~30	70	28	2000	11	2.9	200	9
	G 3	31~36	60	8	480	3	2.5	150	7
	G 4	37~39	30	150	4400	25	17	510	22
	G 5	40~48	90	82	7400	42	13	1200	51
秋	G 1	16~23	80	50	4000	24	4.6	370	30
	G 2	24~30	70	13	910	5	3.1	220	18
	G 3	31~36	60	21	1300	8	2.7	160	13
	G 4	37~39	30	29	870	5	5.8	170	14
	G 5	40~47	80	120	9600	58	3.8	300	25
冬	G 1	19~21	50	13	650	11	1.1	55	10
	G 2	24~30	70	10	700	12	1.1	77	13
	G 3	31~36	60	37	2200	37	4.1	250	43
	G 4	37~39	30	37	1100	18	3.1	96	17
	G 5	40~45	60	22	1300	22	1.7	100	17

4.2.2 各グループの THM 生成特性

表3に夏秋冬の分画した5つのグループのフラクション No. とその合計ml数および塩素を添加して生成した各グループの THM 濃度、又濃度と合計ml数から求めた絶対量と絶対量の合計を100とした時の各グループの占める割合を表わした。TOCについても同様に濃度、絶対量割合を表わしている。

4.2.3 各グループの Total THM および Total TOC にしめる割合

表3をまとめたものを図7に示した。上がTHM, 下はTOCを表わしている。右にTHM, TOCの絶対量の合計およびそれを100としたとき各グループの占める割合を表わしている。

これを見ると、THMの生成量は、夏秋ともグループ4.5すなわち分子量がおよそ1,000からそれ以下の低分子のものが全体の60~70%をしめており、冬も約40%となっている。このことから今回調査した原水のTHM生成には分子量がおよそ1,000からそれ以下の有機物の寄与が大であることがわかった。

TOCは、夏はTHMと同様にグループ4.5が全体の70%をしめ、秋はほぼ平均化し、冬はグループ2.3の分子量がおよそ5,000~1,000付近のものが半分を占めることがわかった。

4.2.4 グループ別の THM と TOC の関係

図8, 9に、グループ別のTHMとTOCの濃度の関係

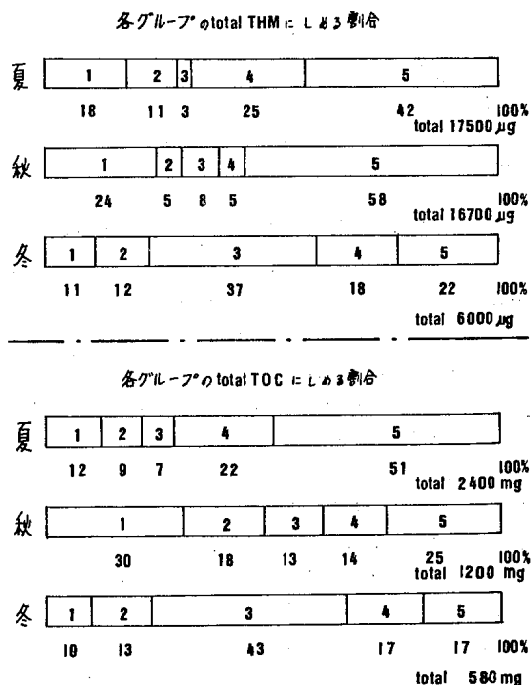


図7 各グループの Total THM および Total TOC にしめる割合

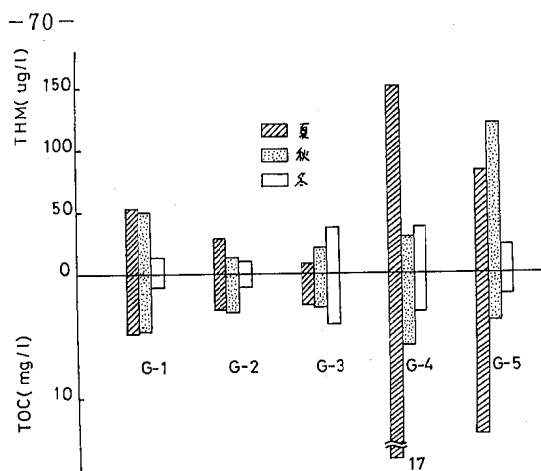


図8 GROUP別 TOCとTHMの関係

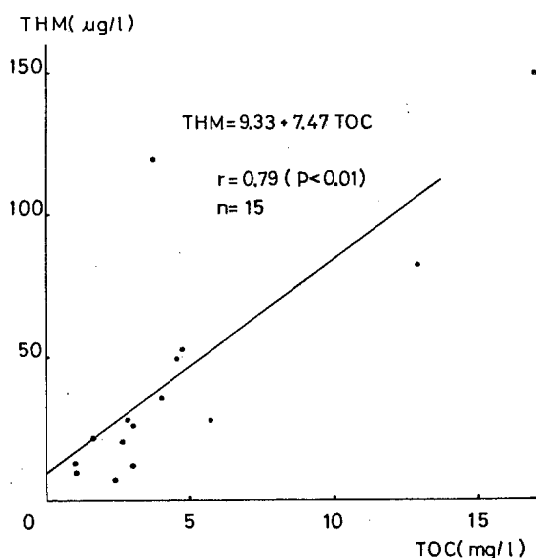


図9 GROUP別 TOCとTHMの関係

を表わした。一般に TOCとTHM生成量には正の相関があるといわれるが、今回の調査をみても季節や分子量にかかわらず、ほぼ同様のことがいえると思われる。

4.2.5 単位 TOC あたりの THM生成量と Total THM 中の各 THM濃度

表4に、グループ別の単位 TOCあたりの THM生成量と、Total THM中の各 THM濃度を表わした。これを見ると各グループの単位 TOCあたりの THM生成量に違いのあることがわかった。又 Total THM中の各 THM濃度はクロロホルムが大部分を占めるが、グループ5は各季節ともブrom体が多く生成し、他のグループとは異なる傾向がみられた。

表4をグループ別に又季節別にまとめて図10、図11に表わした。図10をみると、グループ1の分子量5,000以

上の高分子側では、夏秋冬とも生成能は一定しているが分子量5,000以下のものは、季節により大きく変化することがわかった。

又これを季節別にみると単位 TOCあたりの THM生成量は、夏は高分子側の方が、秋は分子量1,000付近のものが多く、冬はほぼ一定となることがわかった。

5. まとめ

今回調査した岩沼市における給水栓の THMは最大で0.02mg/lで、これは厚生省の制御目標である0.1mg/lの約1/5であった。浄水処理行程ごとに瞬時の THMと最終 THMを測定し、浄水処理行程における THM生成特性をみたところ、この浄水場の処理方法(急速濾過活性炭濾過等)では、THM前駆物質はほとんど除去されてないことがわかった。

又、原水中の有機物の分子特性を把握するためゲル濾過を行い、フラクションを5つのグループに分け、塩素を添加して THM生成量をみたところ、夏秋冬とも分子量1,000付近からそれ以下のものが、THMの生成に大きく寄与していることがわかった。

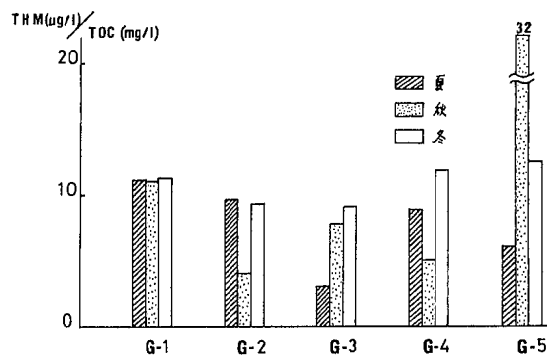


図10 単位TOCあたりの THM生成量

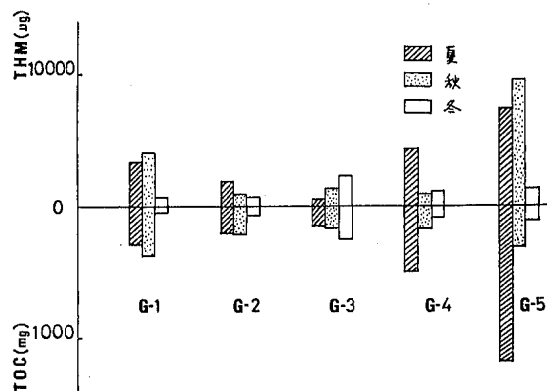


図11 GROUP別 Total THMおよび TOC

表4 単位 TOC あたりの THM生成量と Total THM中の各 THM濃度

	TOC	TTHM	TTHM / TOC	CHCl ₃	CHCl ₂ Br	CHClBr ₂
夏 G1	4.8	53	11	52	0.2	
G2	2.9	28	10	27	0.8	
G3	2.5	8	3	8		
G4	17	150	9	150		
G5	13	82	6	70	12	
秋 G1	4.6	50	11	49	0.6	
G2	3.1	13	4	13	0.2	
G3	2.7	21	8	21		
G4	5.8	29	5	28	1	
G5	3.8	120	32	75	34	10
冬 G1	1.1	13	12	12	0.8	
G2	1.1	10	9	10	0.3	
G3	4.1	37	9	35	2.3	
G4	3.1	37	12	28	9.2	
G5	1.7	22	13	14	6	2
	mg/l	μg/l	μg/l/mg/l	μg/l	μg/l	μg/l

参 考 文 献

- 1) National Cancer Institute : "Report Cancer Carcinogenesis Bioassay of Chloroform "U. S. Department of Health Education and welfare (1976)
- 2) 昭和 56 年 3 月 25 日付 環水第 47 号, 厚生省環境衛生局水道環境部水道整備課長通知: 水道におけるトリハロメタン対策に係る留意事項について

- 3) Symons J. K., Bellar T. A., Carswell J. K., De Marco D. R., Slocum C. J., Smith B. L., Stevens A. A.: National Organics Reconnaissance Survey for Halogenated Organics, J. Am. Water Works Assoc., 67, 634 (1976)

12. パージトラップ法による水中のカビ臭物質の測定について

戸 一博 千葉 規 郡山 力

1. はじめに

近年上水道において異臭味、特にカビ臭の発生が全国的に多発化の傾向にあり、水道維持管理上問題となっている。

現在までカビ臭物質として分離同定されたものとしては、2-メチルイリポルネオール（以下 MIB と略）とジェオスミンの2種類であるが、これらの物質は $0.01 \mu\text{g}/\ell$ あるいはそれ以下の濃度でもカビ臭として感知されるといわれている。この様にカビ臭物質は極微量でもカビ臭として感知されるので直接水から分析することは困難で何らかの濃縮を行うなどの前処理が必要となる。現在まで報告されているカビ臭の測定法はカビ臭を含む水や培養物、藻体などを水蒸気蒸留法²⁾、粒状活性炭法³⁾、合成吸着剤法（アンバーライト XAD-2）法⁴⁾ などにより濃縮し、溶媒で抽出後カラムクロマトなどによりリクーンアップしたものをガスクロマトグラフ（以下 GC と略）又はガスクロマトグラフ質量分析計（以下 GC-MS と略）により分析する方法であるが、これらは多量の試料水を必要としたり、又樹脂のクリーンアップが煩雑であったりあるいは分析まで時間がかかるなどの欠点がある。

今回我々は比較的少ない試料水でしかも短時間でカビ臭物質をカビ臭の閾値といわれる $0.01 \mu\text{g}/\ell$ 以下まで定量できるといわれるパージトラップ法⁵⁾について検討し若干の知見を得たので報告する。

2. 実験方法

2.1 試 薬

MIB；和光純薬製上水試験用，ジェオスミン；和光純薬製水質試験用，メタノール；和光純薬製残留農薬用，水；日本ミリポアリミテド MilliQ 超純水を1日蒸留したもの。

2.2 器具および装置

2.2.1 パージトラップ装置

図1にパージトラップ装置の概要を示した。パージびんは内容 100 ml のものを用いた。濃縮管は島津製悪臭物質測定用濃縮管（アミン用）に TENAX, GC (60/80 メッシュ) を約 0.6 g 充填し窒素ガスを流しながら $250 \sim 300^\circ\text{C}$ で一夜エージングしたものを用いた。

2.2.2 加熱導入装置と分析計

Fig 2 に加熱導入装置の概要を示す。

ガスクロマトグラフ；日立 163 型ガスクロマトグラフ (FID付)

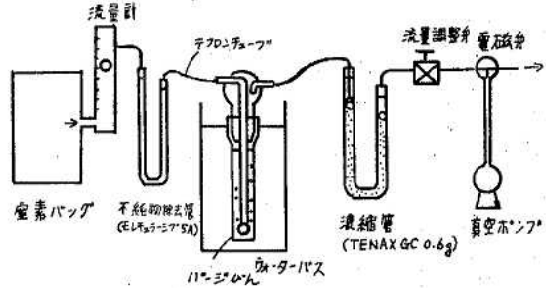


図1 パージトラップ装置

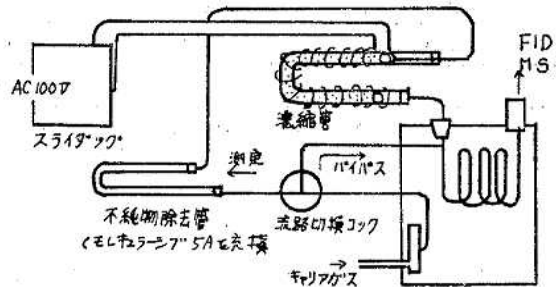


図2 加熱導入装置

ガスクロマトグラフ質量分析計；日本電子 JMS-D 300

3. 実験操作

3.1 パージトラップ法による濃縮操作

図1に示したパージびんに試料 100 ml を採り塩化ナトリウム 20 g を添加し、 40°C 恒温水槽中で窒素ガスを毎分 100 ml の流速でパージし、パージびんの出口には濃縮管をつなぎカビ臭物質の濃縮を行った。

3.2 試料の加熱導入および分析

パージトラップ法による濃縮終了後、Fig 2 に示す様に濃縮管を GC 又は GC-MS に接続しキャリアガスを流しながら濃縮管を 200°C までに急速に加熱して試料を導入し分析を行った。

表1に GC および GC-MS の分析条件を表わした。又 Fig 3 に MIB とジェオスミンの構造式とそのマススペクトルを表わした。

表1 分析条件

GC条件		GC-MS条件	
機種	日立163型GC	機種	日本電子JMSD 300
カラム	ガラス製3mm × 2m	カラム	ガラス製2mm × 2m
充填剤	10%PEG20M/ChromosorbW AWDMCS(60~80mesh)	充填剤	2%OV17/WHP (60~80 mesh)
流量	carrier N ₂ 50ml/min air 0.9kg/cm ² H ₂ 0.6kg/cm ²	流量	carrier He 30ml/min カラム温度 140°C 注入口温度 200°C
検出器	FID	イオン化電圧	70eV(EI)
カラム温度	140°C	多重イオン検出器	Geosmin m/e 112 2-Methyl-iso-bolneol m/e 95
注入口温度	200°C		

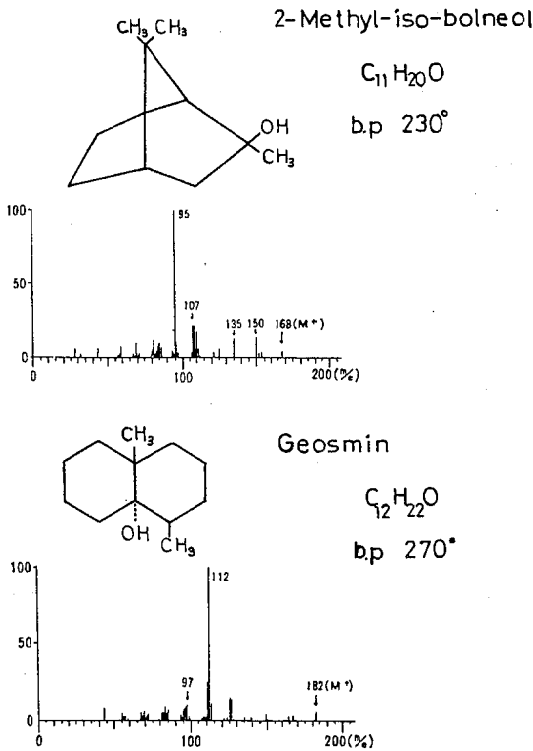


図3 臭気物質とマススペクトル

3.3 標準液の作製

MIBとジェオスミンの100mg/lのメタノール溶液を作り標準原液とする。標準原液から各々10μlを採り水100mlに溶かし10μg/lの溶液を作りこれを標準液とする。

3.4 検量線の作製

水100mlに標準液を段階的に採り、パージトラップ法で濃縮後GC又はGC-MSで分析し検量線を作製する。

4. 結果および考察

4.1 パージ条件の検討

標準液を水に溶かして0.5μg/lとなる様に調整した

溶液を用いパージ条件の検討を行った。検出はGC(FID付)で行った。

4.1.1 水浴温度の検討

図4にパージ時の恒温水槽の温度と検出ピーク高さとの関係を示した。図は20°Cの時のピーク高さを1として表わしている。ピーク高さは温度の上昇とともに増加する傾向がみられるが40°Cでほぼ一定となったので、パージ時の恒温水槽の温度は40°Cとした。

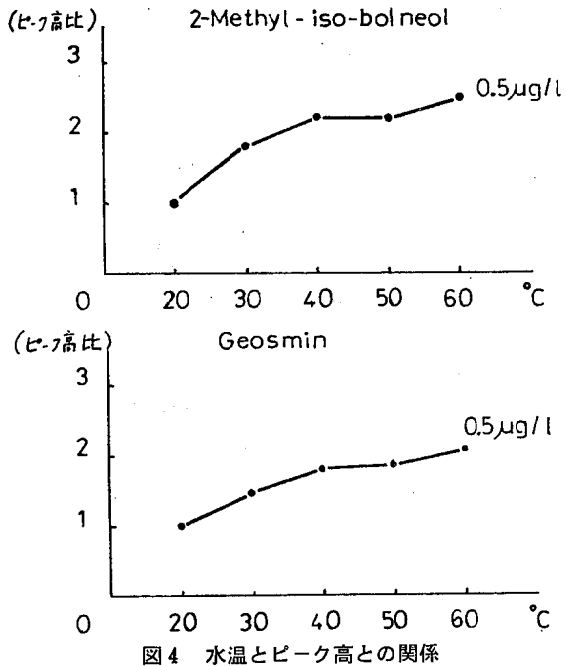


図4 水温とピーク高との関係

(窒素流量 100 ml/min, パージ時間30min)
(NaCl 20g)

4.1.2 パージ時間の検討

図5にパージ時間と検出ピーク高さの関係を示した。図は10分の時のピーク高さを1として表わしている。ピーク高さはパージ時間の経過とともに増大するが30分付近ではほぼ一定となったのでパージ時間は30分とした。

4.1.3 塩析剤(NaCl)添加量の検討

図6にパージ時に塩析の目的で添加するNaClの量と検出ピーク高さの関係について示した。図はNaCl無添加時のピーク高さを1として表わしている。の添加でピーク高さは最大となったのでNaClの添加量は20gとした。

4.1.4 実験結果から得られたパージ条件を表2に示した。

4.2 検量線の作製

2.4で調整した標準液を用い表2の条件でパージトラップ法による濃縮を行った後加熱導入し、GCで得られ

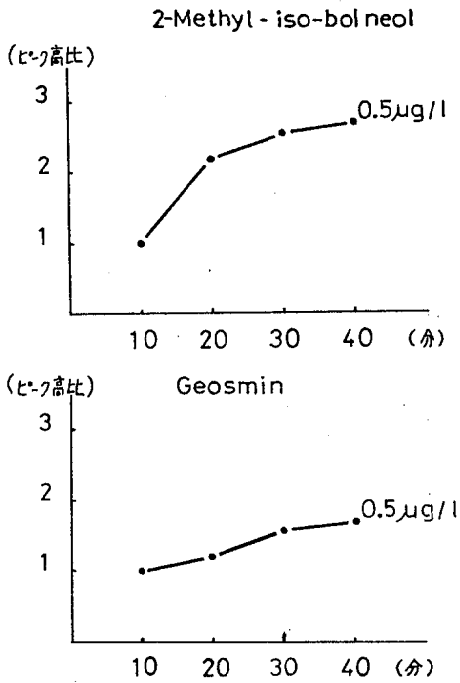


図5 パージ時間とピーク高との関係

(窒素流量 100 ml/min, 水温 40°C, NaCl 20 g)

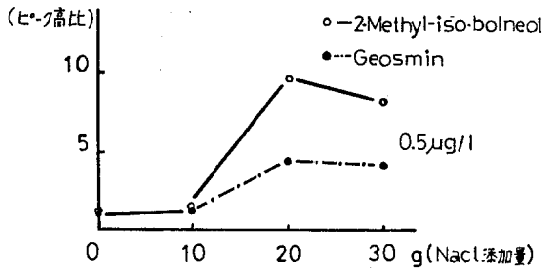


図6 NaCl 添加量とピーク高との関係

(窒素流量 100 ml/min, パージ時間 30 min)
水温 40°C

表2 パージ条件

Sample	100 ml
窒素流量	100 ml/min
パージ時間	30 min
恒温水槽温度	40 °C
NaCl 量	20 g

た検量線を図7に, GC-MS で得られた検量線を図8に示した。なお, 図9, 図10にガスクロマトグラムとマ

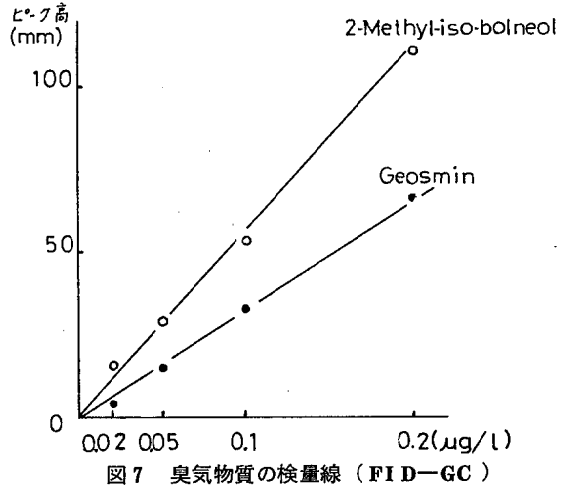


図7 臭気物質の検量線 (FID-GC)

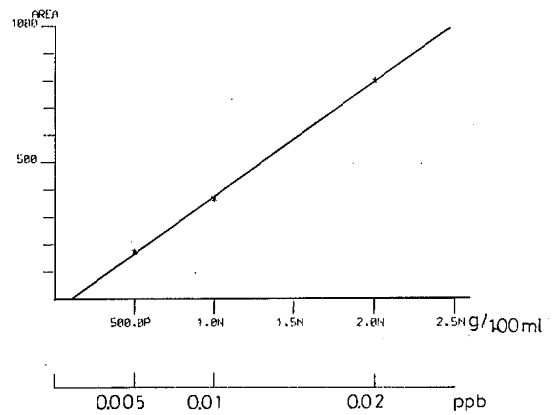


図8.1 マスフラグメントグラフィーによる2-メチルイソボルネオールの検量線

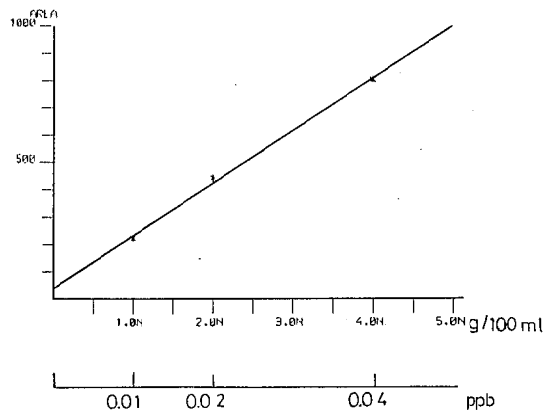


図8.2 マスフラグメントグラフィーによるジェオスミンの検量線

スフラグメントグラムを表わした。

図7よりGCにおいてはMIBジェオスミンとも0.02

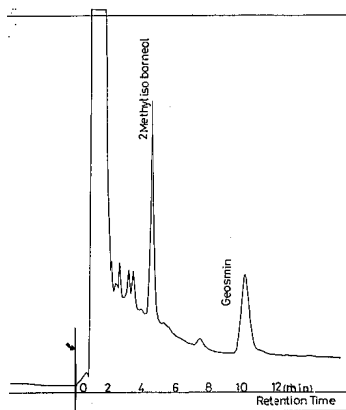


図9 ジェオスミンと2-メチルイソボルネオールのガスクロマトグラム

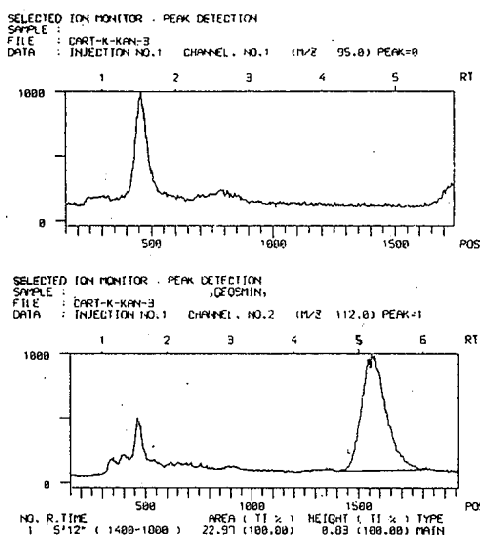


図10 ジェオスミンと2-メチルイソボルネオールのマスフラグメントグラム

μg/l 付近までの定量が可能と思われる。

図8よりGC-MSでは、MIBとジェオスミンの臭いの閾値といわれる0.05μg/lおよび0.01μg/l以下までの定量が十分可能であると思われた。

表3 再現性の検討 (GCによる)

	2MIB	G
繰り返し ピーク高 (mm)	1	64
	2	66
	3	65
	4	67
	5	58
平均 (mm)	64	47.8
標準偏差 (mm)	3.53	1.64
変動係数 (%)	5.5	3.4

添加濃度 0.5 μg/l

4.3 再現性の検討

標準液を水に溶かして0.5 μg/lとなる様に調整した溶液を用い表2のページ条件で5回測定した。検出はGCにより行った。結果を表3に示した。

表4 添加回収実験 (GC-MSによる)

	添加濃度 (μg/l)	測定値 (μg/l)	回収率 (%)
2MIB	0.05	0.038	75
G	0.05	0.055	110

試料：河川水

MIBは変動係数5.5、ジェオスミンは変動係数3.4と比較的良好な精度で測定できた。

4.4 添加回収実験

河川水(阿武隈川)を用いて添加回収実験を行ったがその結果を表4に示した。なお添濃度は、MIB、ジェオスミンが各々0.05 μg/lとなる様に調整した。測定はGC-MSを用いて行った。結果はMIB75%、ジェオスミンは110%であった。

5. まとめ

今回、我々はカビ臭の測定法として、ページトラップ法により濃縮し、GC又はGC-MSにより測定する方法について検討した。ページトラップ法を用いれば少ない試料で比較的短時間で濃縮が可能であり大量の検体の処理が可能であると思われる。又測定においてGC-MSを用いることによりMIB、ジェオスミンともに臭いの閾値以下まで定量することが可能であることがわかった。又一般に水道において苦情が多くなるカビ臭の濃度(水道水のカビ臭の原因と対策によればジェスミ5 μg/lのTOの平均は500(表4.1)、苦情限界FOは表4.3から3.5~20、このときの推定値は0.05~0.25 μg/lとなる)であればGCによる測定も可能であると思われる。

今後はGC-MSによる実試料の測定を試みるとともにGC(FID付)による高感度測定の可能性を確認するつもりである。

おわりに本実験にあたり御指導、御協力をいただきました大阪市水道局、梶野勝司博士に深く感謝します。

参考文献

- 1) 日本水道協会衛生常任委員会報告：水道協会誌, 532, 81 (1979)
- 2) 菊池 他：薬誌, 93, 685 (1973)
- 3) Rosen, et al: Water Treat, Exam, 19, 2, 106 (1970)
- 4) 土屋 他：薬誌, 98, 124 (1978)
- 5) 梶野：私信 (1981)

13. ガスクロマトグラフィーによる水中フェノールおよびフェノール類の定量

菅原 隆一 木戸 一博 千葉 規
郡山 力

1. はじめに

フェノールおよびフェノール類の測定法として水質基準に関する省令および上水試験法で採用されている4-アミノアンチピリン法は感度が劣り、またフェノール類の分離定量ができず、それぞれの誘導体の感度も同一でない欠点がある。

フェノールおよびフェノール類のガスクロマトグラフィーによる分離定量法には多くの報告がある。芦谷¹⁾らはFIDで直接測定したが定量下限は5 ppm程度であり、通常の測定には適用できないと報告している。楠²⁾らはフェノール類をベンゼンで抽出し、濃縮後多重イオン検出器付ガスクロマトグラフ質量分析計(GC-MS)で分析し、0.5 ppbまで測定している。しかしながら、GC-MS分析法は装置が高価であり、濃縮等の操作も必要であり、一般の実験室で手軽に分析するには適さない。

芦谷¹⁾や石橋³⁾らは感度を上げるために臭素と反応させ、生成した臭化物をECD付ガスクロマトグラフで測定する方法を報告している。(以下臭素化法)この方法は4-アミノアンチピリン法に比べ高感度であり、フェノール類の分離定量ができる利点がある。

今回、筆者らは臭素化法について、下記の内容を検討したので、その結果について報告する。

- ① 臭素化法の試薬、条件の検討
- ② 添加回収実験
- ③ 臭素化法と4-アミノアンチピリン法の比較
- ④ フェノール類の相対保持時間、相対感度、最小検出量
- ⑤ フェノールおよびフェノール類の臭素反応過程と反応生成物
- ⑥ 県内の河川水および工場排水の調査

2. 実験方法

2.1 試薬

Hexane, Ethyl Ether, Ethyl Alcohol: 和光純薬 残留農薬分析用。

フェノール標準液: 和光純薬 特級 フェノール 1,000 gをミリポアMilliQ超純水に溶かし1 ℓとし標準原液とする。冷暗所に保存し、用時希釈して標準液を調製する。

フェノール類標準液: 16種類のフェノール類をEthyl Alcoholに溶かし1,000 ppmとして標準原液とする。冷暗

所に保存し、用時ミリポアMilliQ超純水で希釈して標準液を調製する。表1に使用した試薬を示す。

臭素水: 和光純薬 特級 臭素 2 gにミリポアMilliQ超純水を加え10mlとし、かく拌、静置後上澄みを使用する。

0.2 M-亜硫酸ナトリウム溶液: 和光純薬特級 亜硫酸ナトリウム 0.63 gをミリポアMilliQ超純水に溶かし全量を25mlとする。(用時調製)

表1 フェノールおよびフェノール類の試薬

試薬名	規格
Phenol	和光 特級 500 g
O-Cresol	東京化成 GR 25 g
m-Cresol	和光 特級 25 g
P-Cresol	東京化成 GR 25 g
3,5-Dimethyl phenol	関東 GR 25 g
O-Chloro phenol	和光 特級 25 g
m-Chloro phenol	関東 GR 25 g
P-Chloro phenol	関東 GR 25 g
2,3-Dichloro phenol	和光 1級 5 g
2,4-Dichloro phenol	和光 1級 25 g
2,5-Dichloro phenol	和光 特級 5 g
2,6-Dichloro phenol	和光 特級 5 g
3,4-Dichloro phenol	和光 特級 5 g
2,4,5-Trichloro phenol	和光 25 g
2,4,6-Trichloro phenol	和光 特級 25 g
2,3,4,6-Tetra chloro phenol	和光 25 g
2,3,4,5,6-Pentachloro phenol	関東 25 g
2,4,6-Tribromo phenol	和光 特級 25 g

2.2 装置

ガスクロマトグラフィー: 日立 163型 (⁶³N-ECD付)
データ処理装置: 島津クロマトパック C-RIA
MASS SPECTRO METER: 日本電子 JMS-D
300 (MS-DK 400 S付)

3. 測定条件とガスクロマトグラフィーの条件

試料 5 mlを10mlの共栓付試験管に取り、臭素水を加え、フェノール類と反応させた後、亜硫酸ナトリウム溶液で過剰の臭素を除き、生成した2,4,6-トリブロモフェノール(2,4,6-TBP)をHexaneで抽出して上層をガスクロへ注入する。クロマトパックC-RIAでピーク面積を計算する。(図1)

試料 5 ml (10 ml 共栓付試験管)

- 臭素水 20 μ l (20秒かく拌)
 - 0.2 M - Na₂SO₃ 溶液 20 μ l (かく拌)
 - Hexane 5 ml (1分間振る)
- ↓
1分間静置

上層 5 μ l を GC へ注入する。

図1 測定方法

表2 GC測定条件

Column: 5% DEGS + 1% H ₃ PO ₄ on chromosorbw (AW-DMCS), 60~80 mesh, 3 mm i.d. × 2 m glass column
Column temperature: 180 °
Injector temperature: 210 °
N ₂ gass: 50 ml/min, RANG: 10 ² × 8
Chart speed: 5 mm/min

フェノール類については、16種類と数が多く個々の条件は検討できず、フェノールの最適条件でのフェノールに対する相対感度で示すことにした。ガスクロマトグラフィの条件を表2に示す。

3. 結果と考察

3.1 標準液および試薬調製に用いた水

標準液および試薬調製は、日本ミリポア・リミテッド MilliQ 超純水をそのまま用いた。この水は 2.4.6-TBP と同じ保持時間に小さなピークが出るが、10 ppb フェノール標準液のピークを1とすると 1/20程度であり、測定上支障はない。このピークはHexane で1時間2回抽出したが除けなかった。

3.2 抽出溶媒

抽出溶媒として Ethyl Ether と Hexane で比較した。Ether は溶媒ピークが振り切れた後基線にもどるまでの時間が長く、多くのフェノール類がフェノールよりも保持時間が短いことからピークの読みやすさを考え抽出溶媒として Hexane を用いることにした。

フェノールの臭素化された物質は GC-MS 分析で 2.4.6-TBP と同定されたが、この 2.4.6-TBP 10 ppb 5 ml の Hexane 5 ml での抽出率は 100% であり、100 ppb 2.4.6-TBP の抽出率は 96% であった。

(n = 3 の平均)

3.3 臭素水の量

10 ppb のフェノール溶液 5 ml に臭素水を 20 μ l 加えた時の値を 1.0 とした相対感度を図2に示す。臭素水は褐色を呈しているが 10 μ l では量が少なく溶液は色がつかない。20 μ l の臭素水を加えた時が最も感度が良くベ-

スラインも安定した。

臭素水の量が増すに従って感度が低下するが、これは過剰の臭素がフェノールの分解を早めるためと思われる。

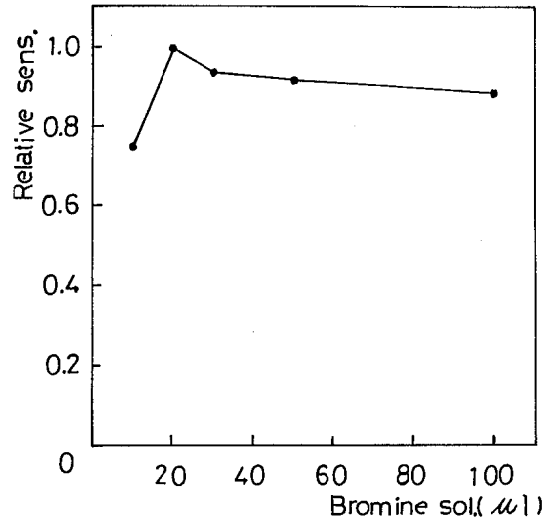


図2 臭素水の量と相対感度

3.4 抽出時の pH の影響

10 ppb フェノールの pH 調製しない時 (pH 5.9) の値を 1.0 とし、フェノール類の pH と感度の関係を調べた。フェノールとクレゾール類の例を図3に示す。今回調査したフェノール類については pH 5~9 で相対感度に差がなく、通常の水道原水や河川水等では pH 調製は不要と思われる。pH 10 付近で相対感度が急に下がるが、これはフェノール類の解離定数が 10 付近であるためと思われる。

なお、pH の調製には H₃PO₄ (1+10) と NaOH を用いた。

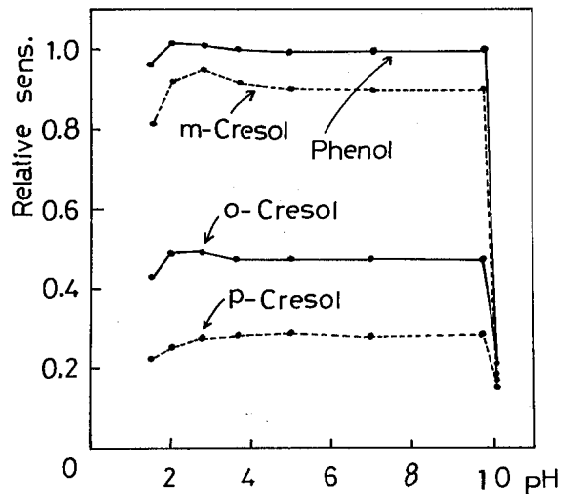


図3 pH と相対感度

3.5 臭素水を加えてからの放置時間

10 ppb フェノール溶液に臭素水 20 μ l を加え、20秒かく拌後の放置時間について検討した。放置しない時の値を 1.0 とした放置時間と相対感度の関係を図 4 に示す。この結果より臭素水を加えかく拌後は直ちに Hexane を加えることにした。

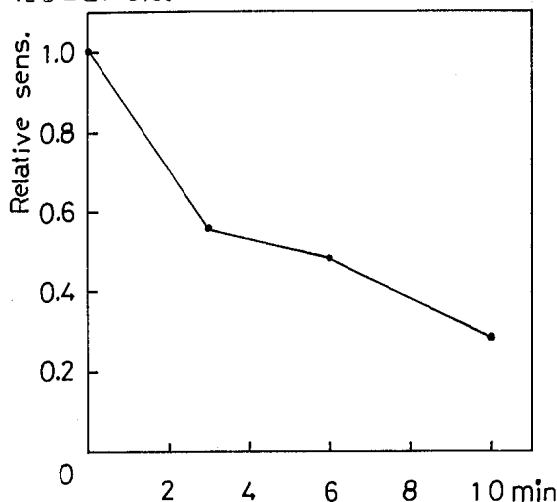


図4 臭素水を加えてからの放置時間と相対感度

3.6 亜硫酸ナトリウム (Na₂SO₃) の効果

石橋らは Na₂SO₃ で過剰の臭素を除き、少量の過剰 Na₂SO₃ は TBP の生成率を高めると報告している。そこで Na₂SO₃ の効果について検討してみた。

10 ppb フェノール溶液に臭素水 20 μ l を加え、20秒かく拌後直ちに Na₂SO₃ を 10, 20, 50, 100 μ l 加え感度の相違を調べた。Na₂SO₃ 溶液は 10 μ l では量が少なく臭素の色がうすく残るが 20 μ l 以上では臭素の色が消えて透明になる。

測定の結果、Na₂SO₃ 溶液 10~100 μ l で感度の差はなく、過剰の Na₂SO₃ 溶液を加えても TBP の生成率が高くなることは認められなかった。また、臭素水を 50 μ l にして過剰の臭素に対し Na₂SO₃ の効果を調べたが感度は変わらなかった。しかしながら図 5 で見られるように Na₂SO₃ 溶液を加えることによりフェノールの前が出るピークを除くことができることから臭素 20 μ l に対し、Na₂SO₃ 溶液を 20 μ l 加えることにした。

フェノールの前が出るピークは TBP の前駆物質または TBP の分解物質と考えられるが、50 ppm のフェノールについて GC-MS 分析を行った結果 $\text{Br-C}_6\text{H}_4\text{OH}$ と $\text{Br}_2\text{-C}_6\text{H}_4\text{OH}$ とは保持時間が違っており、またフェノールの減少が起っても GC-MS 分析ではこの保持時間にピークが現われないことから断定はできなかった。

次に Na₂SO₃ 溶液を加えてからガスクロマトグラフ

イーへ注入するまでの経時変化について検討した。その結果、臭素水 20 μ l に対し Na₂SO₃ 溶液を 20 μ l 加えた場合 4 時間までピークの減少は見られなかった。(以後測定せず) 100 μ l の過剰の Na₂SO₃ 溶液を加えても同様である。これは余分の臭素を除くことによりフェノールの分解がおさえられたためと思われる。



図5 亜硫酸ナトリウムの効果

3.7 検量線と感度

図 6 は臭素化法によるフェノールの検量線である。この時のガスクロマトグラフィーの条件 (RANG 10²×8) では検出限界は 0.5 ppb 程度であるが、これはかなりベースラインが安定した状態であり、ガスクロの感度を上げると 0.1 ppb 程度まで測定可能である。

図 6 は基準値 5 ppb 前後で直線性があることを示しているが、以後 30 ppb まで測定したが同様に直線性を示した。しかしピーク高法では 10 ppb 以後直線性を示さない。

3.8 添加回収実験

河川水と工場排水で添加回収実験を行った。表 3 にそ

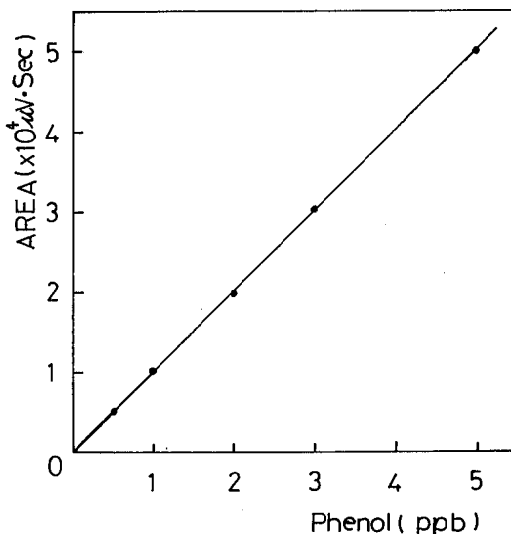


図6 臭素化法によるフェノールの検量線

表3 フェノールの添加回収実験

項目	河川水	工場排水
色度	14°	32°
濁度	10°	20°
KMnO ₄ 消費量(mg/ℓ)	4.5	9.1
回収率(%)	99	105
フェノール10 ppb n = 3		

表4 臭素化法と4-アミノアレチピリン法のくり返し精度比較

測定法	\bar{x}	S. D.	C. V. %
4-AAP	10.0	0.85	8.5
臭素化法	10.0	0.46	4.6
フェノール: 10 ppb n = 10			

の結果を示す。河川水、工場排水のいずれも色度、濁度が高く有機物も多い検体であるがこの程度の水質では蒸留操作をせずに測定可能である。

3.9 臭素化法の精度と4-アミノアレチピリン法の比較

10 ppb フェノール標準液を2法で10回測定しくり返し精度を比較した。4-アミノアレチピリン法は上水試験法に準じた。表4にその結果を示す。数値でみると臭素化法が優れているが、統計的には有意の差は認められない。

3.10 フェノール類の相対保持時間、相対感度および最小検出量

ガスクロマトグラフィーによる分析は測定時の条件による影響を受けやすく、常に一定の保持時間に一定の感度を得ることは困難である。そこでフェノール類の測定においてはそれらの変動を考えフェノールに3~4種類のフェノール類を同時に加え、フェノールを1.00とした時のフェノール類16種類の相対保持時間および相対感度で示した。

表5にその結果を示す。

3.11 フェノールおよびフェノール類の反応生成物

フェノールおよびフェノール類に臭素が附加する位置は、フェノールの-OHがO, P-配向性基であることと、ガスクロの保持時間からある程度推定できる。

原田らはフェノール類を臭素化し、得られた結晶を元素分析とNMRの結果から構造式を推定した。

今回筆者らは、GC-MS分析によりフェノール類の塩素と臭素の附加数と質量数をもとめ構造式を推定した。その結果を表6に示す。原田らが推定した16種類のフェノール化合物と我々が推定した17種類のフェノール化合物のうち、いずれにも含まれるフェノール、O, m, P-クレゾール、P-CP, 2,4,5-TCPの6種は構造式が

表5 フェノール類の相対保持時間および相対感度

	相対保持時間	相対感度	最小検出量 (ppb)
Phenol	1.00	1.00	0.1
O-Cresol	0.29	0.43	0.2
m-Cresol	1.23	0.90	0.1
P-Cresol	0.45	0.24	0.4
3,5-DMP	1.62	0.50	0.2
O-CP	0.69	0.63	0.2
m-CP	2.58	0.51	0.2
P-CP	0.61	0.52	0.2
2,3-DCP	1.82	0.61	0.2
2,4-DCP	0.42	0.39	0.2
2,5-DCP	1.78	0.69	0.1
2,6-DCP	0.47	0.51	0.2
3,4-DCP	1.56	0.54	0.2
2,4,5-TCP	1.08	0.50	0.2
2,4,6-TCP	0.35	0.20	0.5
2,3,4,6-TeCP	0.75	0.28	0.4
2,3,5,6-PentaCP	1.74	0.24	0.4

表6 フェノールおよびフェノール類の臭素反応生成物

Compound	Product	Comp.	Prod.	Comp.	Prod.
Phenol		m-CP		3,4-DCP	
O-Cresol		P-CP		2,4,5-TCP	
P-Cresol		2,3-DCP		2,4,6-TCP	
m-Cresol		2,4-DCP		2,3,4,6-TeCP	
3,5-DMP		2,5-DCP		2,3,4,5,6-PentaCP	
O-CP		2,6-DCP			

一致した。

なお、GC-MS分析は低分解能分析であるため検出感度が低く、フェノールおよびフェノール類の濃度は50 ppmと実際のガスクロ測定時に比べかなり高い条件で行った。GC-MSの測定条件を表7に示す。

表7 GC-MSの測定条件

Column : 5% DEGS + 1% H₃PO₄ on Chromosorb W (AW-DMCS) 60~80 mesh
3mm i.d. × 2m
Column temp. : 180°
Injector temp. : 210°
Separator temp. : 230°
Ion source temp. : 230°
Ion accelerating voltage : 3.5 KV
Ionizing voltage : 70 V
Carrier gas : He 30ml/min

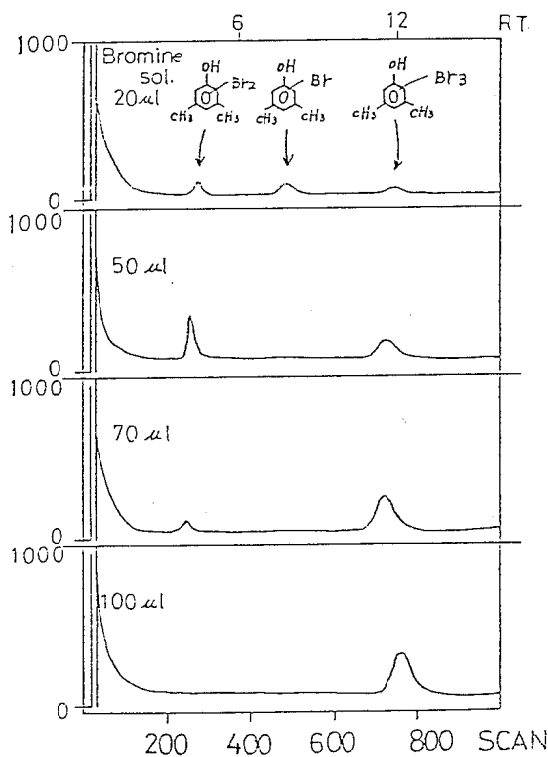


図7 3,5-DMPの反応過程

3.12 フェノールおよびフェノール類の臭素量による反応過程

フェノール、m-クレゾールおよび3,5-DMPの50ppm溶液に臭素水を20~100 μl加え、臭素量と反応生成物の関係をGC-MS分析により検討した。3,5-DMPの例を図7に示す。臭素水20 μlではモノ、ジ、トリの3種類の化合物が生成されるが、50 μlではモノ体が検出されなくなり、ジ、トリ体の生成が多くなる。臭素水を70 μlにするとジ体が少なくなりトリ体が増える。さらに100 μlでは、この状態の溶液は褐色を呈し臭素水が過剰の状態であるのでこの条件ではトリ体のみが検出され

る。この反応はフェノールとm-クレゾールについても同様であった。このようにフェノール類は臭素量によって反応生成物が異なると言える。

3.13 河川水および工場排水中のフェノールおよびフェノール類の測定

河川水9件と工場排水6件の測定結果を表8に示す。河川水からはフェノールのみが工場排水からはフェノールの他にクレゾール類やDCP類が検出された。No.12はナイロン工場排水で、No.13は製紙工場排水である。No.13のガスクロマトグラムを図8に示す。なお、No.13の水質検査結果はCOD: 99 mg/l, SS 38 mg/lであった。

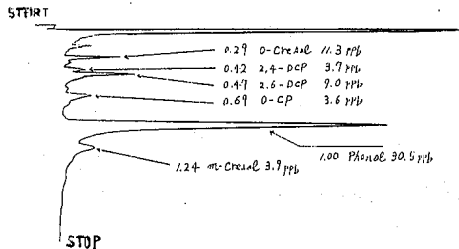


図8 工場排水のガスクロマトグラム

表8 河川水および工場排水の測定結果

		(ppb)							
Sample	No.	Phenol	C-Cresol	m-Cresol	p-Cresol	O-CP	2,4-DCP	2,6-DCP	TeCP
河川水	1	0.78	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
	2	0.64	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
	3	0.50	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
	4	0.30	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
	5	0.47	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
	6	1.6	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
	7	1.0	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
	8	0.30	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
	9	0.30	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
工場排水	10	3.7	nd	nd	5.4	nd	nd	nd	nd
	11	4.8	nd	nd	8.9	nd	nd	nd	19.4
	12	18.3	10.3	4.6	8.9	nd	nd	nd	nd
	13	30.5	11.3	3.9	nd	3.6	3.7	9.0	nd
	14	14.9	5.3	nd	nd	nd	1.7	nd	nd
	15	27.5	96.5	0.5	nd	nd	nd	3.1	nd

nd: < 0.2

4. まとめ

今回、臭素化法を検討したところ感度、精度、分離測定の上で4-アミノアレチピリン法と比べ良好な結果を得た。また、GC-MS分析により反応過程と反応生成物についてもある程度推定することができた。

参考文献

- 1) 芦谷和芳 他：水道協会雑誌, 536 (昭和54年)
- 2) 楠憲一 他：分析化学, 30 (1981)
- 3) 石橋正博 他：第29回全国水道研究発表会講演集, 6, 22 (昭和53年)
- 4) 原田裕文 他：東京都立衛生研究所年報, 22 (1970)
- 5) 舟阪渡 他：最新ガスクロマトグラフィー応用編, P 492, 廣川書店
- 6) STANDARD METHODS 15th Edition, 1980

14 宮城県におけるガン死亡率と水道水等の環境要因との関係における統計的解析 (第1報)

一 ガン死亡率の統計的観察 一

清野 茂 庄司 晃子 千葉 規
郡山 力 一ノ渡義巳*

1. はじめに

我が国の悪性新生物(以下ガンと記す)による死亡者は年々増加し、最近の厚生省の発表によれば、それまで死因の第1位であった脳血管疾患を抜いて、ガン死亡が第1位を占めるに至った。

本県における成人病死亡者の第1位は男女ともに脳血管疾患であるが、昭和45年頃をピークとして下降傾向を示している¹⁾一方、ガンによる死亡者は上昇傾向にあり、本県でも近い将来ガンは脳血管疾患を抜き、死亡原因の第1位となることは確実であると考えられる。

現在、本県では、ガン対策の公衆衛生的立場から、集団検診等の早期発見対策が講じられ、本県のガン検診率²⁾は、年々上昇しており、昭和56年度の胃ガン16.5%、子宮ガン22.6%となっている。また、ガン登録制度が昭和34年から実施されており、本県のガン罹患傾向を把握している。

ところで、ガンの発生原因の探究や高危険群の発見等の疫学的研究は、本県では、伊藤³⁾の報告があるにすぎない。また、市町村別部位別のガン死亡率の地理的分布に関する検討は、瀬木等⁴⁾と平山⁵⁾によって、行われているが、これ等は昭和23年~32年の死亡者を資料としていることから、ガンが死因の第1位を占めようとしている現在では、あらたにガン死亡に関する検討を加える必要があるものとする。

そこで、我々は本県のガン死亡率を算出し、ガン死亡率の地理的分布を把握するとともに、ガン死亡率の推移等について検討を行った。

2. 資料および方法

2.1 資料

宮城県衛生年報¹⁾の昭和44年から53年までの10年間における市町村別・保健所別・性別・5歳階級別ガン部位死亡者を用いた。

2.2 死因

50項目死因分類表(B表)のB19ガンで、部位は、男子8部位(全ガン・食道・胃・肝臓・膵臓・肺・白血病・その他)、女子では、これに乳房・子宮を加えた10部位

を対象とした。

2.3 標準化死亡比の計算

標準化死亡比(以下S.M.Rと記す)の基礎となる基準死亡率は、昭和48年の人口動態統計⁶⁾の性別5歳階級別死亡率を用いた。

S.M.Rは、性別・市町村別・保健所別に次式を用いて人口10万対で算出した⁷⁾

$$S.M.R = \frac{D}{\sum (M_i \times d_i)} \times 100$$

ただし、D=市町村(保健所)の死亡者数

M_i = 基準死亡率(全国5歳階級別死亡率)⁸⁾

d_i = 市町村(保健所)の5歳階級別人口⁹⁾

また、市町村(保健所)の部位別による死亡者dとするS.M.Rの標準誤差(以下誤差率と記す) γ_{SMR} を次式から推定し、S.M.R.の安定性の目安を算出した¹⁰⁾

$$\gamma_{SMR} = \frac{1}{\sqrt{d}} \times 100$$

3. 結果

3.1 市町村別部位別死亡率の分布

本県74市町村の部位別S.M.Rの分布を図1、市町村別部位別S.M.Rの分布を図2~図9そしてガン部位間の単相関を表1に示した。なお、市町村別部位別S.M.Rは紙面の都合により割愛した。

3.1.1 分布型

正規性を示したガン部位は、全ガン(女)、食道ガン(男)、胃ガン(男・女)、肝ガン(男・女)、膵ガン(男・女)、肺ガン(男・女)、乳ガンそして子宮ガンであり、対数正規型は食道ガン(女)のみで、特定の分布型が認められなかった部位には全ガン(男)と白血病(男・女)があった。

3.1.2 地域特性

(1)全ガン 県平均男101.9、女85.6である。男の高SMR市町村は県北部と牡鹿半島に分布し、一方低S.M.R市町村は県南部にみられる。女では男ほど明瞭な分布はみられない。

(2)食道ガン 県平均男151.0、女148.5である。高SMR市町村は、男女ともに県北部に分布し、低S.M.R市町村

*宮城県大崎保健所

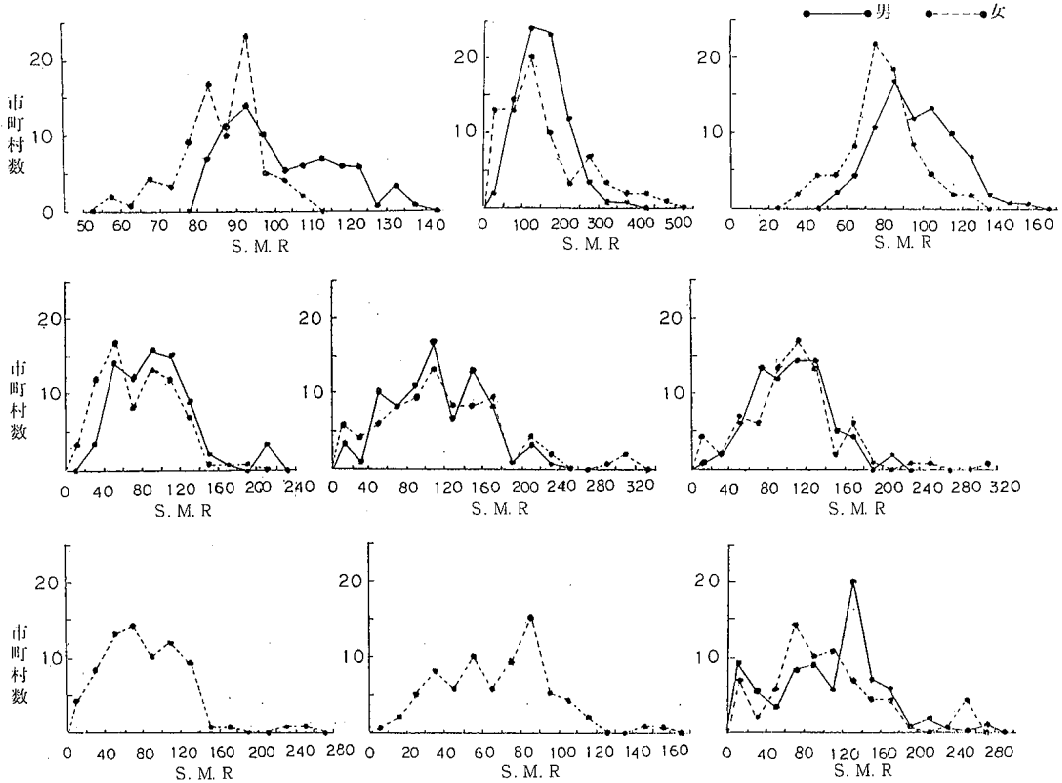


図1 部位別 S.M.R. の度数分布

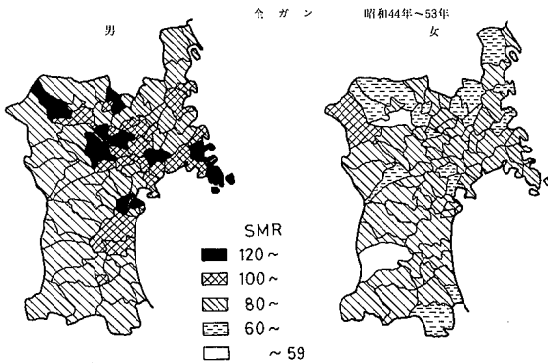


図2 宮城県における市町村別 S.M.R. の分布

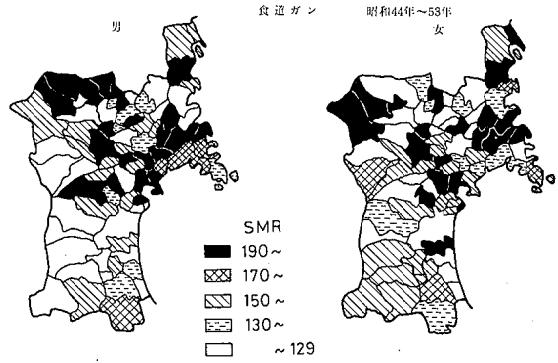


図3 宮城県における市町村別 S.M.R. の分布

は男女ともに県南部に分布している。

(3)胃ガン 県平均男 95.7, 女 80.3である。男女ともに一般に内陸部の市町村に高く、沿岸部で低い。男の高 S.M.R. 市町村は古川市を中心とする周辺市町村に分布し、女のそれは北西部の山間地域に分布している。一方、低 S.M.R. 市町村は男女ともに三陸沿岸部に多く、更に女では北部と南部山間地域にも分布している。

(4)肝ガン 県平均男 89.3, 女 76.3である。男の高 S.M.R. 市町村は北西部、女のそれは北東部に分布している。一方、低 S.M.R. 市町村は、男では南部に分布し、女の場合は男ほど集積性はなく全県に分布している。

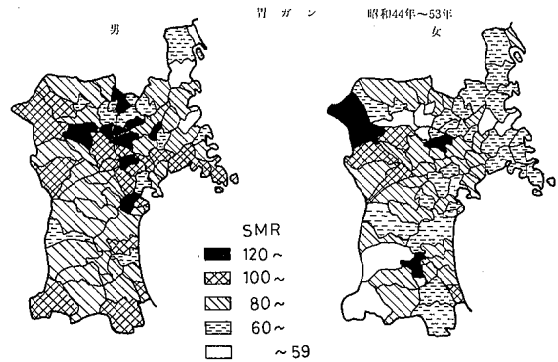


図4 宮城県における市町村別 S.M.R. の分布

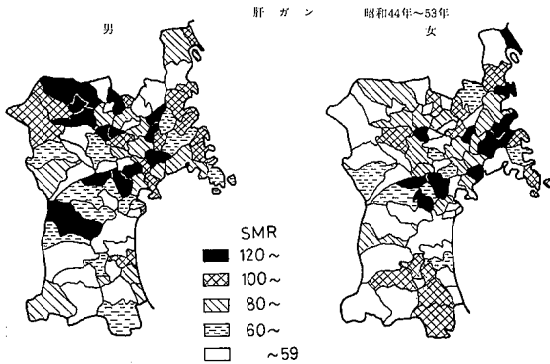


図5 宮城県における市町村別S.M.R.の分布

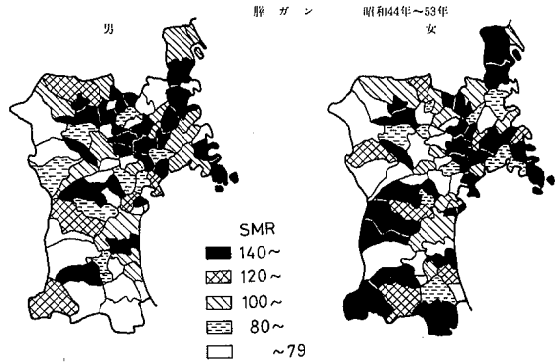


図6 宮城県における市町村別S.M.R.の分布

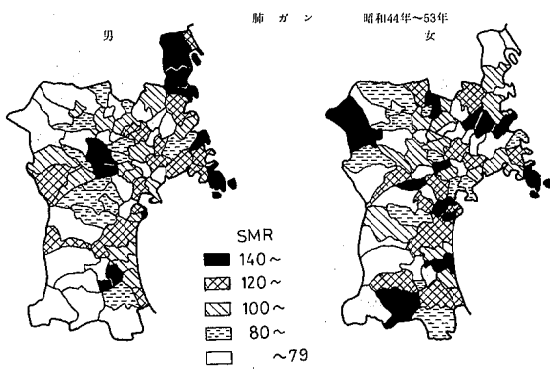


図7 宮城県における市町村別S.M.R.の分布

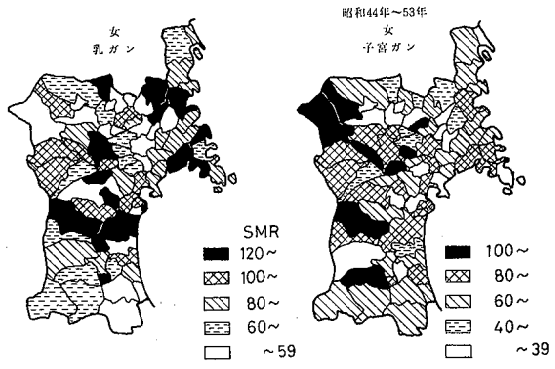


図8 宮城県における市町村別S.M.R.の分布

(5)膵ガン 県平均男 109.8, 女 117.2 である。高 S.M.R.市町村は男女ともに北東部と牡鹿半島に分布しているが、全県に散存する傾向がある。一方、低 S.M.R.市町村も男女ともに全県に散存している。

(6)肺ガン 県平均男 102.6, 女 106.3 である。男の高 S.M.R.市町村は海岸部に沿った市町村に分布し、女は男ほど顕著ではなく、全県的に散存している。一方、低 S.M.R.市町村は男女ともに内陸山間部に多い傾向がある。

(7)乳ガン 県平均 81.0 である。高 S.M.R.市町村は都市部に多い傾向にあり、低 S.M.R.は農山漁村部に分布しているが、著明な分布はみられない。

(8)子宮ガン 県平均 66.9。高 S.M.R.市町村は県北西部の山間地域に存在がみられ、一方、低 S.M.R.市町村は全県的に分布している。

(9)白血病 県平均男 101.1, 女 109.3 である。男の高 S.M.R.市町村は北部、女のそれは牡鹿半島の市町村に分布し、一方、低 S.M.R.市町村は男女ともに山間部に多い傾向がある。

3.1.3 ガン部位間の相関

ガン部位間の相関の中で有意な正の関係は、男では食道と胃、肝臓と膵臓、そして肺と白血病であり、女では食道と肝臓、膵臓と肺、そして乳房と子宮であった。一方、有意な負の関係としては、男では胃と肺で、女は胃

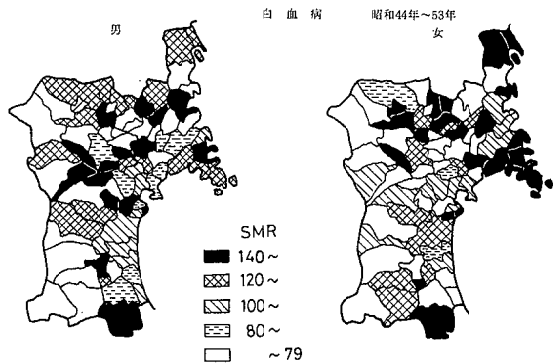


図9 宮城県における市町村別S.M.R.の分布

表1 市町村別ガン部位間の相関

	74市町村								
	全ガン	食道ガン	胃ガン	肝ガン	膵ガン	肺ガン	乳ガン	子宮ガン	白血病
全ガン	1.000	.398**	.611**	.290*	.139	.184	-	-	.012
食道ガン	.070	1.000	.258*	.050	-.001	-.016	-	-	-.208
胃ガン	.414**	-.199	1.000	.056	-.157	-.254*	-	-	-.132
肝ガン	.048	.263*	-.256*	1.000	.270*	-.210	-	-	-.088
膵ガン	.296*	-.081	-.193	.046	1.000	-.080	-	-	.083
肺ガン	.224	-.119	.103	-.037	-.091	1.000	-	-	.234*
乳ガン	.186	.001	.098	-.156	-.127	.173	1.000	-	-
子宮ガン	.385**	-.047	.203	-.326**	.059	-.064	.286*	1.000	-
白血病	.108	.211	-.235*	-.216	.254*	-.062	-.054	-.313	1.000

** : P < .05 ** : P < .01 男 : 上段 女 : 下段

と肝臓、胃と白血病、そして肝臓と子宮であった。

3.2 保健所別部位別死亡率の分布

前節では、市町村別 S.M.R. を用いて、地域特性をみたが、人口規模の小さい町村では、死亡者が少ないために死亡率にバラツキが大きく、S.M.R. の安定性の目安である γ SMR の数値が大きくなっている場合が多い。そこで、S.M.R. の安定性を高めるために、74 市町村を 1 市（仙台市）14 保健所（以下 15 保健所と記す）に区別し、これ等の S.M.R. を求め、その分布をみた。15 保健所別の部位別 S.M.R. の分布を図 10～図 17 に、ガン各部位間の単相関を表 2 に示した。なお、15 保健所別部位別 S.M.R. および γ SMR（市町村別・保健所別・部位別）は紙面の都合により割愛した。

3.2.1 地域特性

(1) 全ガン 男の高 S.M.R 保健所は、県北部の沿岸から内陸部にかけてみられ、一方、低 S.M.R 保健所は中央部から南部にかけて分布している。女では男とほぼ同様の傾向がみられるが、低 S.M.R 保健所の分布は男ほど明確ではない。また、男女ともに保健所間のバラツキは小さいが、性差は高度に有意で男 > 女であった。

(2) 食道ガン 男の高 S.M.R 保健所は、県北部、中央と三陸沿岸部に集積しているのが認められ、女のそれは男ほど明瞭ではないが、三陸沿岸部に分布している。一方、低 S.M.R 保健所は男女ともに南部山間地域に分布している。

また、男女ともに保健所間のバラツキは大きい（変動係数：男 22%，女 30%），性差は認められなかった。なお、男女間に有意な正の相関関係があった（ $r = 0.608$ ， $P < 0.01$ ）。

(3) 胃ガン 男女ともに内陸部の保健所が高く、沿岸部で低い傾向がある。男の S.M.R 保健所は古川、女のそれは県北西部の山間地域と古川に分布し、一方、低 S.M.R 保健所は男女ともに岩手県との隣接保健所にみられる。また、男女ともに保健所間のバラツキはやや大きく（変動係数：男 11%，女 16%），性差は高度に有意で男 > 女であり、男女間に有意な正の相関関係があった（ $r = 0.623$ ， $P < 0.01$ ）。

(4) 肝ガン 男の高 S.M.R 保健所は県北部の山間地域に分布し、女のそれは北東部に多い傾向がみられる。一方、低 S.M.R 保健所は男女ともに県中央部から南部に分布している。また、男女ともに保健所間のバラツキは大きい（変動係数：男 32%，女 23%）。

(5) 膵ガン 男の高 S.M.R 保健所は県北部、女のそれは三陸沿岸部と南部山間地域の二極化がみられ、一方、低 S.M.R 保健所は南部の大河原保健所にみられる。また、保健所間のバラツキは男女ともに大きい（変動係数：男 23%，女 26%）。

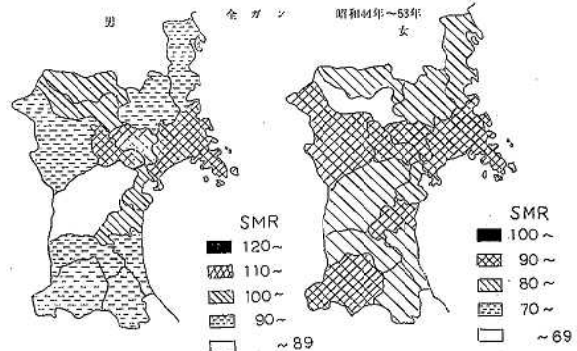


図 10 宮城県における保健所別 S.M.R. の分布 1969～1978

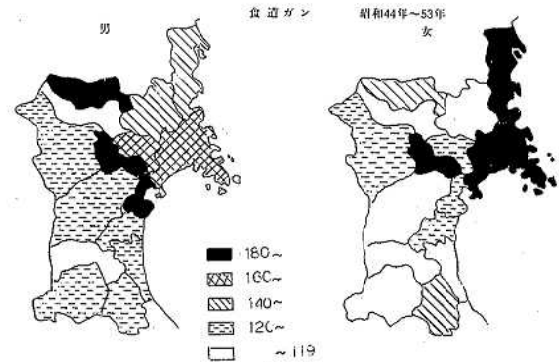


図 11 宮城県における保健所別 S.M.R. の分布 1969～1978

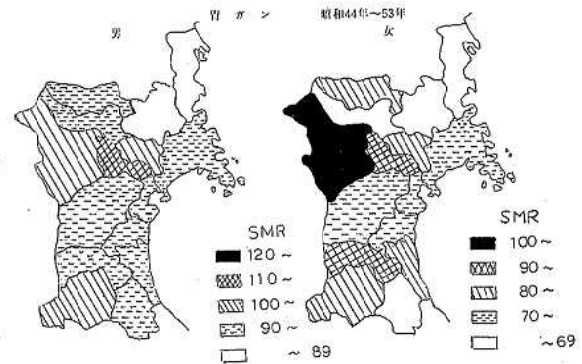


図 12 宮城県における保健所別 S.M.R. の分布 1969～1978

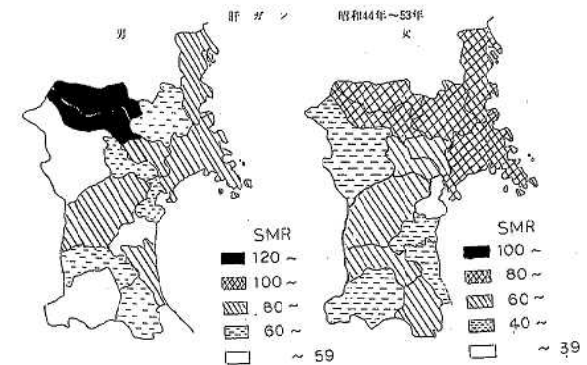


図 13 宮城県における保健所別 S.M.R. の分布 1969～1978

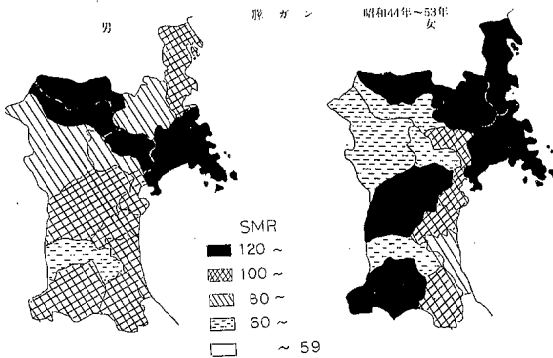


図14 宮城県における保健所別S.M.R.の分布1969~1978

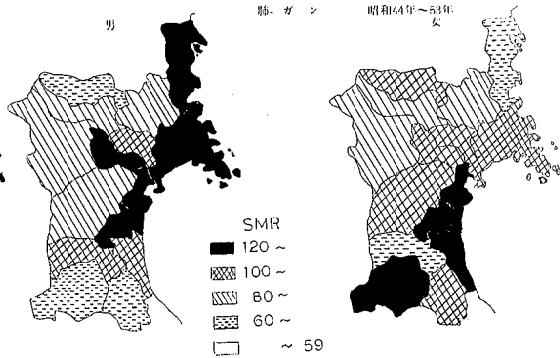


図15 宮城県における保健所別S.M.R.の分布1969~1978

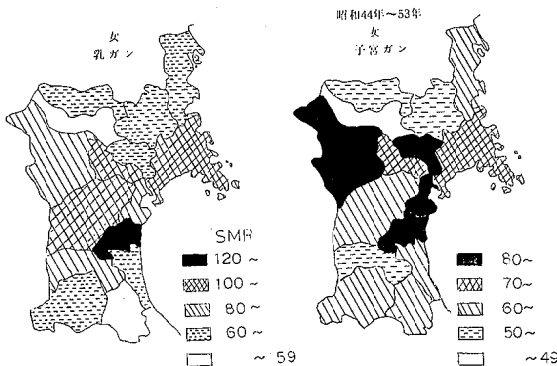


図16 宮城県における保健所別S.M.R.の分布1969~1978

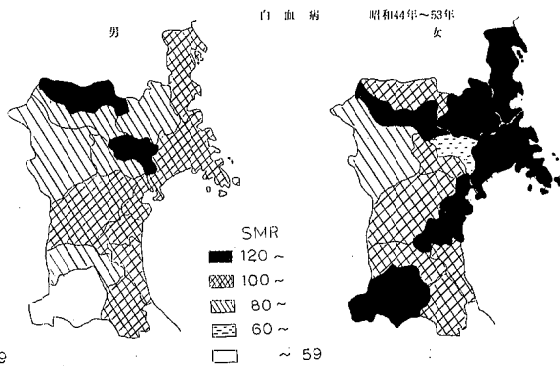


図17 宮城県における保健所別S.M.R.の分布1969~1978

(6)肺ガン 男の高S.M.R.保健所は海岸に沿った保健所にみられ、低S.M.R.保健所は内陸部の保健所にみられる。女の高S.M.R.保健所は県中央部から南部にかけての海岸部の保健所と南部山間地域の保健所に多い傾向がある。一方、低S.M.R.保健所の分布は男ほど顕著ではない。また、保健所間のバラツキは男女ともに大きい(変動係数:男23%,女22%)。

(7)乳ガン 仙台市の高S.M.R.が顕著であり、低S.M.R.保健所は同市を取り囲むように分布している。また、保健所間のバラツキは31%で、かなり大きい。

(8)子宮ガン 高S.M.R.保健所は仙台湾に沿って、中央部を東西に連なるように分布している。一方、低S.M.R.保健所は内陸部にみられる。また、保健所のバラツキは大きい(変動係数22%)。

(9)白血病 女の高S.M.R.保健所は海岸線に沿って北部から南部に縦断するように分布し、男は女ほど明瞭ではないが、ほぼ同じ傾向がみられる。

3.2.2 ガン部位間の相関

ガン部位間の相関の中で、有意な正の関係があったものは、男では肝臓と膵臓および肝臓と白血病であり、女では乳房と子宮であった。一方、有意な負の関係を示したものは、女のみで、肝臓と肺、肝臓と子宮、そして胃と白血病であった。

表2 保健所別ガン部位間の相関

	15保健所								
	全ガン	食道ガン	胃ガン	肝ガン	膵ガン	肺ガン	乳ガン	子宮ガン	白血病
全ガン	1.000	.696**	.397	.433	.498	.423	-	-	.341
食道ガン	.200	1.000	.289	.255	.295	.266	-	-	.318
胃ガン	.675**	-.003	1.000	-.062	-.081	-.181	-	-	-.021
肝ガン	-.390	.305	-.382	1.000	.686**	-.152	-	-	.588*
膵ガン	.230	.074	-.319	.132	1.000	.264	-	-	.423
肺ガン	.382	-.233	.054	-.628*	.304	1.000	-	-	.341
乳ガン	.700**	.260	.353	-.336	-.015	.094	1.000	-	-
子宮ガン	.720**	.196	.450	-.572*	.019	.394	-.531*	1.000	-
白血病	-.246	.212	-.600*	.359	.276	-.100	.153	-.395	1.000

*: P<.05 **: P<.01 男:上段 女:下段

3.3 10歳階級別部位別死亡率の分布

本県における35歳から10歳年齢階級別・部位別S.M.R.の分布を図18に示した。なお、15保健所別部位別S.M.R.は紙面の都合により割愛した。

(1)全ガン 県全体としては、男では加齢と共にS.M.R.値が上昇し、65~74歳に最高を示し、女は35~44歳に最も高く、加齢と共に低下している。

保健所毎では、概ね県全体と同じ傾向を男女ともに示している場合が多い。

(2)食道ガン 県全体として、男女ともに45~54歳が最高S.M.R.を示し、35~44歳の男の約2倍、女は約3倍

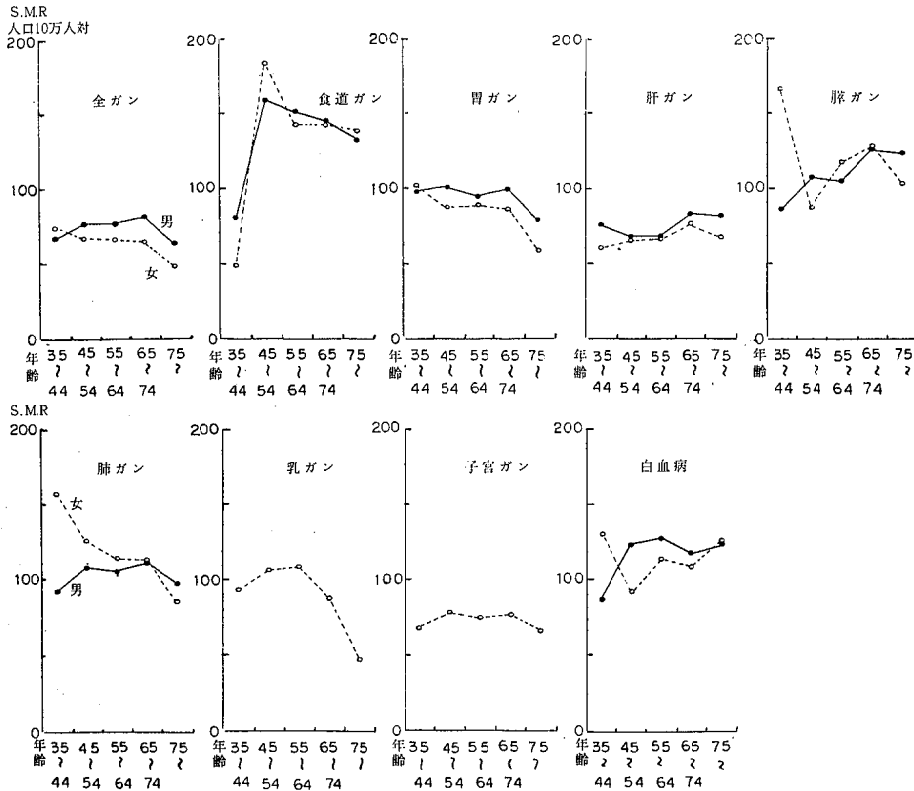


図18 10歳階級別 S.M.R

となっている。

保健所毎でみると、県北部の保健所では、男女ともに35～44歳のS.M.R値が非常に高い傾向にあるが、概ね男女ともに県全体と同じ傾向を示すなかで、古川保健所女の55～64歳と気仙沼保健所女の65～74歳の高S.M.Rが特異的であった。

(3)胃ガン 県全体としては、概ね男女ともに加齢に従って低下し、男は45～54歳、女は35～44歳にそれぞれ最高のS.M.Rを示している。

保健所毎でみると、県北部の保健所では、男女ともに加齢と共にS.M.Rは低下し、一方、県南部では男が加齢と共に上昇傾向がみられた。

(4)肝ガン 県全体としては、女は加齢に従ってS.M.Rが上昇し、65～74歳に最高値を示すが、男の場合は35～44歳と65～74歳に高値を有する二峰性となっている。

保健所毎では、県中央部を除いた保健所の年齢による変動が大きい傾向にあるが、概ね男女ともに加齢に従ってS.M.Rは上昇していた。

(5)膀胱ガン 県全体では、男は加齢と共にS.M.R値が上昇し、65～74歳で最高値を示し、女では35～44歳に最高値、65～74にも高値を示す二峰性であった。

保健所毎にみると、概ね県全体と同じ傾向を示すなか

で、県北部の保健所の男女ともに35～44歳が高S.M.Rであった。

(6)肺ガン 県全体としては、男では加齢と共にS.M.R値が上昇し、65～74歳で最高値を示すが、女は35～44歳に最高値を示し、その後、加齢と共に急激に低下している。

保健所毎でみると、海岸部の保健所では、男女ともに県全体とはほぼ同じ傾向を示すが、内陸部のそれは明瞭ではない。県南部の保健所の女35～44歳での高S.M.Rが特異的であった。

(7)乳ガン 県全体として加齢と共にS.M.R値が上昇し、55～64歳で最高値を示し、その後、急激に低下している。

保健所毎でみると、都市部を管内に有する保健所では、県全体と同じ傾向を示すが、農村部の保健所では65歳以上に比較的高いS.M.Rを示すものが多かった。

(8)子宮ガン 県全体では、45～54歳に最も高いS.M.Rを示すが、年齢による差は小さい。

保健所毎でみると、県全体の傾向とは異なる保健所が多く、都市部を有する保健所では、年齢によるS.M.Rの差はないが、農村部の保健所では年齢による差が比較的大きい傾向がみられた。

(9)白血病 県全体としては、男が年齢と共にS.M.R値が上昇して75歳以上に最高値を示し、女では35～44歳で最高値、75歳以上に高値を示す二峰性である。

保健所毎でみると、仙台市を除いた保健所では、年齢によるS.M.R値の変動が大きく、県全体の傾向とはかなり異なる傾向を示す保健所が多かった。

3.4 昭和23年～32年のガン死亡数等の比較

本県におけるガン死亡統計については、昭和23～32年の10年間の資料⁴⁾があるので、年代的な比較検討を行った。

昭和23～32年(1948～1957)を第Ⅰ期、昭和44～53年(1969～1978)を第Ⅱ期と区分し、両期間の死亡率(粗死亡率)を求めた。基準人口は、それぞれ昭和25年と30年、昭和45年と50年の国勢調査人口の算術平均値を用いた。なお、各年毎の死亡率の算出には、住民基本台帳¹²⁾の各年10月末現在の人口を用いた。

部位別ガン死亡数および総数に対する割合の変化を表3、性比の変化を表4、死亡率の比較を表5そして死亡率の年次変化を図19・1、19・2に示した。

3.4.1 部位別死亡数

第Ⅰ期において、男で最も多い部位は胃ガンであり、死亡数3,868人で全ガン死亡数の53.0%を占めている。次いで、肝ガン11.7%、食道ガン8.2%、肺ガン6.3%、白血病2.9%、膵ガン1.7%等の順であり、女では最も多い部位は男と同様に胃ガンで2,262人総数の35.8%を占め、次いで子宮ガン19.3%、肝ガン10.0%、食道ガンと乳ガンともに3.8%、肺ガン3.7%、白血病2.3%、そして膵ガン1.6%の順となっている。

第Ⅱ期においては、男で最も多いのは胃ガンであり、死亡数5,244人で、全ガン死亡総数の39.0%を占めている。次いで肺ガン13.8%、食道ガン7.7%、肝ガン6.6%、膵ガン4.3%、そして白血病3.0%の順となっている。女では、最も多いのはやはり胃ガンで、死亡数3,260人で、総数の31.2%を占め、次いで子宮ガン8.2%、肺ガン7.3%、食道ガン6.1%、乳ガン5.2%、肝ガン5.0%、膵ガン4.8%、そして白血病3.5%の順となっている。

各部位死亡数のガン死亡総数に対する割合をⅠ期とⅡ期で比較すると、Ⅱ期で増加した部位は、男では肺ガンと膵ガン、女では肺ガン、食道ガン、乳ガン、そして膵ガンであって、特に男女ともに肺ガンと膵ガンはともに2倍以上の著しい増加を示している。一方、減少した部位は、男では胃ガンと肝ガン、女では胃ガン、肝ガン、そして子宮ガンであり、特に男女ともに肝ガンが約1/2となっているのが顕著である。

3.4.2 性 比

女性を1.0とした男性の死亡数について、Ⅰ期とⅡ期で比較すると、Ⅱ期で性比が大きくなった部位は、肺ガ

表3 部位別ガン死亡数および総数に対する割合と昭和23年～32年(第Ⅰ期)と昭和43年～52年(第Ⅱ期)

	男		増減	女		増減
	第Ⅰ期	第Ⅱ期		第Ⅰ期	第Ⅱ期	
全ガン	7,301 (100%)	13,504 (100%)		6,319 (100%)	10,433 (100%)	
食道ガン	600 (8.2)	1,035 (7.7)		241 (3.8)	633 (6.1)	+++
胃ガン	3,868 (53.0)	5,244 (39.0)	---	2,262 (35.8)	3,260 (31.2)	---
肝ガン	853 (11.7)	892 (6.6)	---	634 (10.0)	522 (5.0)	---
膵ガン	123 (1.7)	586 (4.3)	+++	102 (1.6)	501 (4.8)	+++
肺ガン	461 (6.3)	1,860 (13.8)	+++	235 (3.7)	763 (7.3)	+++
乳ガン	1 (0.0)	2 (0.0)		240 (3.8)	538 (5.2)	+++
子宮ガン	(—)	(—)		1,217 (19.3)	853 (8.2)	---
白血病	215 (2.9)	405 (3.0)		145 (2.3)	361 (3.5)	+++
その他	1,180 (16.2)	3,458 (25.5)	+++	1,243 (19.7)	3,002 (28.8)	+++

備考 1) 第Ⅰ期：昭和23年～32年、第Ⅱ期：昭和43年～52年
2) 増減は、第Ⅰ期/第Ⅱ期を示し、+：増、-：減を表わしている。
3) *：P<.05 **：P<.01

表4 性比*の変化

	第Ⅰ期	第Ⅱ期
全ガン	1.16	1.29
食道ガン	2.49	1.64
胃ガン	1.71	1.61
肝ガン	1.35	1.71
膵ガン	1.21	1.17
肺ガン	1.96	2.44
乳ガン	—	—
子宮ガン	—	—
白血病	1.48	1.11

*女性を1.0とした男の死亡数

表5 死亡率*の変化 (人口10万人対)

	男		女	
	第Ⅰ期	第Ⅱ期	第Ⅰ期	第Ⅱ期
全ガン	87.2	143.2	73.7	104.2
食道ガン	7.2	11.0	2.8	3.6
胃ガン	46.2	56.0	26.4	33.5
肝ガン	10.3	9.4	7.4	5.3
膵ガン	1.5	6.4	1.2	4.8
肺ガン	3.3	19.8	1.5	7.8
乳ガン	—	—	2.8	5.5
子宮ガン	—	—	14.2	8.8
白血病	2.6	8.8	1.7	4.3

*粗死亡率：第Ⅰ期、第Ⅱ期の10年間の平均粗死亡率

ン(1.96→2.44)と肝ガン(1.35→1.71)となっている。一方、性差が小さくなった部位は食道ガン(2.49→1.64)と白血病(1.48→1.11)で、食道ガンの性差の縮まり方は著しい。また、性比の変化をほとんど認めない部位は胃ガンと膵ガンであった。

3.4.3 死亡率の推移

- (1)全ガン 全ガンの10年間平均死亡率は、男ではⅡ期がⅠ期に比べて約1.6倍に増加し、女でもⅡ期がⅠ期よりも約1.4倍に増加している。年次的推移をみると、男女ともにⅠ、Ⅱ期を通じて上昇を続けているが、Ⅱ期の上昇傾向はⅠ期に比べて鈍化している。
- (2)食道ガン 食道ガンの10年間平均死亡率は、男がⅠ期に比べてⅡ期で約1.5倍、女でもⅡ期が約1.3倍に増加している。年次推移をみると、男はほぼ上昇傾向を示し、女は年次的な変動が大きいけれども、概ね上昇傾向がみられる。
- (3)胃ガン 胃ガンの10年間平均死亡率は、男女ともにⅡ期がⅠ期よりも増加しており、男約1.2倍、女約1.3倍となっている。年次推移をみると、男女ともにⅠ、Ⅱ期通じて上昇傾向にある。

(4)肝ガン 肝ガンの10年間平均死亡率は、男女ともにⅡ期がⅠ期に比べて低下している。年次的推移をみると、男女ともに年次的変動を繰り返しており、男の場合は昭和49年頃から再び上昇傾向にあるが、女の場合は低下傾向にある。

(5)膵ガン 膵ガンの10年間平均死亡率は、男女ともにⅡ期がⅠ期に比べて男約4.3倍、女4倍となっており、死亡率としては高くはないが、その増加程度は著しい。年次推移をみると、男女ともⅠ期では急激な上昇傾向を示し、Ⅱ期はⅠ期ほどではないが上昇傾向にある。

(6)肺ガン 肺ガンの10年間平均死亡率は、男女ともにⅡ期がⅠ期に比較すると男約6倍、女約5.2倍となっており、膵ガンの増加程度よりも著しく、部位中最も高い増加を示している。年次推移をみても、Ⅰ期後半から男女ともに急激な上昇傾向を示しており、Ⅱ期でもⅠ期ほどではないが概ね上昇傾向にある。

(7)乳ガン 乳ガンの10年間平均死亡率は、Ⅱ期がⅠ期に比べて約1.9倍に増加している。年次推移は、各年次毎の変動が大きいけれども、概ね上昇傾向にある。

(8)子宮ガン 子宮ガンの10年間平均死亡率は、Ⅱ期がⅠ

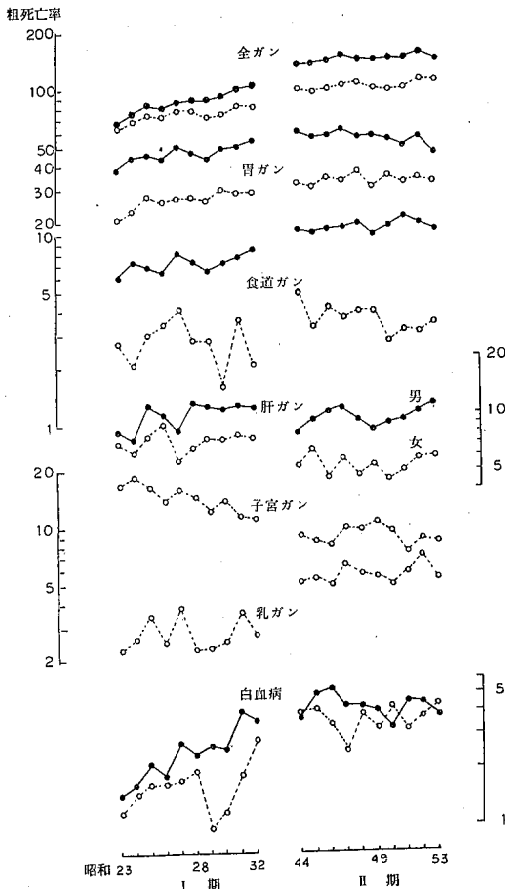


図 19.1 部位別死亡率の年次変化

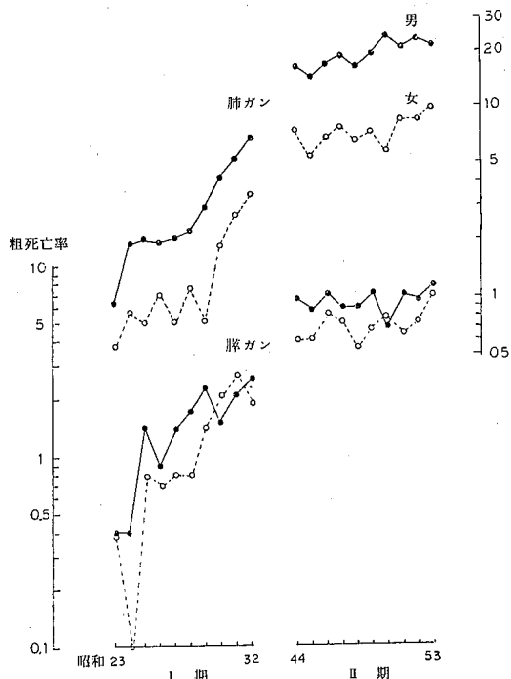


図 19.2 部位別死亡率の年次変化

期に比べて低下し、約2/5となっている。年次的推移をみると、I、II期ともに低下傾向にある。

(9)白血病 白血病の10年間平均死亡率は、男女ともにII期がI期に比較して男約3.4倍、女約2.5倍の増加を示している。年次推移は、I期では女の28年に低下をみたが男女ともに上昇傾向にあり、II期では年次変動がみられるが、男は概ね横ばい、女は概ね上昇傾向にある。

4. ま と め

本県における市町村別保健所別ガン死亡率(昭和44年~53年)を男子8部位、女子10部位に関して標準化死亡比(S.M.R)を算出し、地域特性を検討するとともに、昭和23年~32年のガン死亡数等の比較検討を行った。その結果を部位別に要約すると次のとおりである。

(1)全ガン 男の全ガンは県北部中央と牡鹿半島周辺部に高S.M.Rが集積している傾向がみられる。北部中央部では、全ガン死亡の約40%を占める胃ガンの分布を反映し、一方、牡鹿半島では肺ガンの分布が強く反映しているものと考えられる。女では男と同様な傾向がみられるが、男ほどには明瞭ではない。

(2)食道ガン 食道ガンは、男女ともに全県的に高S.M.Rを示し、本県は食道ガン高率地帯といえる。地域としては、県南部よりも県北部が高率である。年齢では男女ともに45~54歳に高率を示し、年次的には概ね上昇傾向にある。「男にはるかに多いガンに属する」と言われる食道ガンの性差が縮小していることは注目に値する。

(3)胃ガン 胃ガンは男女ともに部位別死亡率の第1位を占めているという全国的な傾向¹³⁾は、本県の場合についてもあてはまる。地域では男女ともに県北部中央から北西部にかけて高S.M.Rがみられ、年齢では加齢と共に低下し、年次的には男女ともに概ね上昇傾向にある。また、性差は変化していない。

(4)肝ガン 肝ガンは肝硬変との関係で論じられることが多いが、本県では男が相関性を認めたと($r = 0.27$, $P < 0.05$)、女では認められなかった。地域としては、男が県北西部、女は北東部に高S.M.Rがみられる。年齢では、男が二峰性、女が加齢と共に高率となる傾向があり、年次的には昭和49年頃から増加傾向を示している。また、性差は大きくなる傾向がみられる。

(5)膵ガン 膵ガンと肝ガンの相関性が男の場合にみられ、地域分布が肝ガンのそれとほぼ同様な傾向を示す。また、年齢では、男が加齢と共に高率、女は二峰性を示す傾向がみられ、年次的には男女ともに増加傾向が続いている。

性差は変化していない。

(6)肺ガン 男の肺ガンは、海岸地帯に高S.M.Rが認められ、女では男ほど顕著ではないが同様の傾向があり、内陸部でも高S.M.Rが存在している。年次的にみると、男女ともに増加傾向を続けている。年齢では、男が加齢と共に高率女は二峰性を示す傾向がみられる。また、性差は著しく大きく、男にはるかに多いガンといえる。

(7)乳ガン 地域としては、仙台市の乳ガン高S.M.Rが著しく、農村部に低S.M.R傾向がみられる。年次的には、ほぼ上昇傾向にある。年齢をみると、都市部と農村部ではズレがみられ、前者55~64歳、後65歳以上のそれぞれ高率となっている。

(8)子宮ガン 女性のガンとしては胃ガンに次いで高い部位で、乳ガンよりも上回っているが、その差は縮小傾向にある。地域としては、都市部の仙台湾に沿って北上し、北部山間地域から海岸地域にかけて横断するように高S.M.Rが分布している。年齢では、その差が小さい。また、年次的には減少傾向にある。

(9)白血病 男女ともに、県北部から県南部にかけての海岸線に沿って高S.M.Rが分布し、この傾向は女の方が男よりも明瞭である。年次的には、男女ともに概ね上昇傾向にある。年齢では、加齢と共に増加傾向にあり、性差はほとんどなくなってきている。

参 考 文 献

- 1) 宮城県衛生部：衛生年報(昭和25年~56年)
- 2) 宮城県対ガン協会：事業年報(昭和56年度)
- 3) 伊藤裕一：日本公衆衛生誌, 11, 689(1960)
- 4) 瀬木三雄 他：東北医誌, 59, 258(1959)
- 5) 平山 光：東北医誌, 59, 286(1959)
- 6) 厚生省統計情報部編：人口動態統計
- 7) 立川 清：新衛生統計学, 第一出版(1975)
- 8) (財)厚生統計協会：厚生の指標, 26, 15(1980)
- 9) 総理府統計局：国勢調査報告(宮城県)昭和45年・昭和50年
- 10) 鈴木雪夫 他：厚生の指標, 27, 15(1980)
- 11) 大崎 純：実践統計学, 講談社サイエンティフィック(1980)
- 12) 宮城県統計課：本県の人口動態(昭和44年~53年)
- 13) (財)健康づくり振興財団：全国市町村別主要疾患死亡率の分布(1981)
- 14) 平山 雄：日本公衆衛生学会誌, 30, 2(1955), 40, 2(1955), 228, 3(1956), 6, 4(1957), 689, 6(1958)