

4. 業務報告

(1) 疫学部・病理細菌部

疫学部、病理細菌部はいずれも調査研究対象がヒトの疾病であることから、相互に密接な連携のもとに業務を遂行している。

疫学部は、疫学科と感染症科の2科によって構成され、病理細菌部は、臨床病理科、細菌科とウイルス科の3科によって構成されている。55年度の検査実施状況は表1に示すとおりであり、総検査数18,625件、総検査項目数23,766を実施した。

疫学科

疫学科は感染症サーベイランス事業に伴う県内感染症発生情報の集計と疫学的統計処理を主な業務としている。54年度から発足した感染症サーベイランス事業は、県内東西南北4地域の定点医療機関16箇所を対象にして、その感染症発生情報を収集してきたが、55年度はさらに情報量の充実化を計るため、各地域の定点医療機関を10箇所増加し、26箇所にした。55年度に収集された対象疾病17種の情報は32,751件に達し、その主な疾病はインフルエンザ様疾患25.2%、嘔吐下痢を主徴とする感冒様疾患21.6%、水痘13.8%であった。

感染症科

感染症科は細菌科が担当している腸内細菌以外の結核菌、ジフテリア菌、百日咳菌、溶血レンサ球菌などの病原菌検査を主な業務とし、その他生物学的製剤及び注射液等の無菌試験及び各種器機類の殺菌効果試験を担当している。55年度は前年度に引き続き、感染症サーベイランス事業に伴う検査の一環として溶血レンサ球菌の群別及び型別試験、血中下抗体測定を実施した。臨床材料から分離された溶血レンサ球菌はA群480件、B群261件で、その他O、G群及びViridans groupが32件計773件であった。

細菌科

細菌科は主にコレラ、赤痢、腸チフス、パラチフス、サルモネラなどの腸管系感染症について、細菌学的、血清学的検査及び疫学的調査研究を分担している。55年度の伝染病関係の検査状況は表2に示すとおりであり、総検査数10,235件に及んだ。そのうち腸管系伝染病の発生は赤痢17件、腸チフス1件、パラチフス1件であった。さらに下水処理場及び河川水などの生活環境の検査353例のうち、チフス菌5例、パラチフスB菌13例が検出された。近年増加している東南アジア方面からの海外旅行帰国者の検査通報によるコレラ菌検査では、636件中コレラ菌は1例も検出されなかったが、NAGビブリオ10例及び腸炎ビブリオ39例が検出された。また、55年度の赤痢17

件のうち15件までが、いずれも海外旅行者であったことを明記したい。

臨床病理科

臨床病理科は臨床生化学検査、血液学的検査及び血清学的検査業務を担当している。55年度の総検査数は表3に示すように5,605件、総検査項目数10,746に及んだ。血清学的検査は1,811件で、梅毒血清反応が1,018件、HB抗原抗体検査732件、トキソプラズマ抗体価測定61件であった。血液学的検査は1,746件でいずれも貧血検査を目的とする血色素量の測定であった。生化学的検査は血清肝炎調査に伴う肝機能検査が主体であり、その他は成人病検診の一環として行われた。

ウイルス科

ウイルス科はインフルエンザ、風疹、日本脳炎、その他のウイルス性疾患の血清学的、ウイルス学的検査並びに調査研究を担当している。55年度に実施したウイルス検査は表4のとおりであり、総検査数2,457件であった。55年度はインフルエンザの流行がここ3年間で最低になり、分離されたウイルスもA(H1N1)型1株、A(H3N2)型4株で、B型は分離されなかった。感染症サーベイランス事業に基づくウイルス分離検査では、手足口病患者からOA16型5株、無菌性髄膜炎患者からECHOH18型1株、急性胃腸炎患者からアデノI型1株、アデノII型1株がそれぞれ分離された。ウイルス性胃腸炎の電子顕微鏡検査では、乳幼児嘔吐下痢症を中心としたウイルス性胃腸炎、疑いの患者238人について糞便の検査を行ったところ、ロタウイルス陽性82例、アデノウイルス陽性13例、SRV陽性17例、カリチウイルス陽性3例であった。また、55年12月久喜市に小学生及びその家族に食中毒様の集団発生(患者55人)があり、その病原体として直径28~32nmのNorwalk様因子を推定することができた。

表1 昭和55年度病理細菌部・疫学部
検査実施状況

区 分	検査件数	検査項目数
伝 染 病	10,235	10,235
一 般 細 菌	313	313
性 病	1,033	2,642
血 液 生 化 学	4,587	8,119
ウ イ ル ス	2,457	2,457
	18,625	23,766

表 2 昭和 55 年度病理細菌部細菌科ならびに疫学部感染症科検査実施状況

区 分	行政検査		依頼検査		調査研究		計	
	件数	項目数	件数	項目数	件数	項目数	件数	項目数
赤痢菌培養検査		1,660		1		650		2,311
“ 同定検査		23				49		72
“ 耐性検査						65		65
チフス・パラチフス菌								
培養検査		470				353		823
同定検査		5				27		32
耐性検査						29		29
コレラ菌								
培養検査		636				353		989
同定検査						49		49
サルモネラ								
培養検査		13				2,065		2,078
同定検査		57				1,183		1,240
耐性検査						1,222		1,222
連サ球菌同定検査						773		773
ジフテリア菌同定検査						1		1
不明下痢症培養検査		93						93
赤痢菌抗体価検査						99		99
ウイダーール反応		29						29
百日咳抗体価検査						6		6
A群溶レン菌抗体価検査						162		162
A S O 価検査						162		162
伝染病関係計		2,986		1		7,248		10,235
一般細菌同定検査						241		241
淋菌同定検査						15		15
結核菌同定検査		6						6
“ 薬剤耐性検査		1						1
無菌試験				40		7		47
滅菌効果試験				13				13
一般細菌検査計		7		53		263		323

表 3 昭和 55 年度臨床病理科検査実施状況

区 分	行政検査		依頼検査		調査研究		計	
	件数	項目数	件数	項目数	件数	項目数	件数	項目数
血清学的検査								
梅毒	31		751		236		1,018	
緒方 法		31		519		114		664
ガラス板 法		31		747		141		919
梅毒凝集 法		31		747		141		919
T P H A 法				9		69		78
F T A - A B S 法				1		46		47
トキソプラズマ				17		44		61
抗体価						17		17
HB抗原抗体検査				115		617		732
H B s 抗原						502		502

(つづき)

区 分	行政検査		依頼検査		調査研究		計	
	件数	項目数	件数	項目数	件数	項目数	件数	項目数
H B s 抗体 (小計)	31	93	883	2,155	897	1,674	1,811	3,922
血液型検査	1		335		555		891	
A B O 式 R h 式 (小計)	1	1	335	335	555	558	891	894
血液学的検査	35		862		849		1,746	
血色素量		35		862		849		1,746
ヘマトクリット値		35		1		13		49
赤血球数		35		1		11		47
白血球数		35		1		11		47
網状赤血球数		35						35
血液像		35		1				36
色素指数		35						35
(小計)	35	245	862	866	849	884	1,746	1,995
生化学的検査	36		28		1,093		1,157	
G O T		36		28		1,087		1,151
G P T		36		28		1,086		1,150
T T T				7		998		1,005
Z T T		36		21		16		73
A L P		36		21		23		80
尿糖						238		238
尿蛋白						238		238
(小計)	36	144	28	105	1,093	3,686	1,157	3,935
合計	103	483	2,108	3,461	3,394	6,802	5,605	10,746

表4 昭和55年度ウイルス科検査実施状況

項 目	一 般 依 頼 検 査	行 政 検 査		計
		衛 生 部	厚 生 省	
		感 染 症 サーベイランス 事 業	伝 流 行 予 測 業	
インフルエンザウイルス	分離試験		62	62
	同定 "		5	5
	H I "	1,049		1,049
	C F "	221		221
風疹ウイルス	H I "	416	150	612
日本脳炎ウイルス	H I "		160	160
	2ME "		21	21
その他のウイルス性疾患	分離 "	57		57
	C F "	32		32
ウイルス性下痢症	電子顕微鏡検査	238		238
計		46	398	2,457

(2) 化学部

化学部は薬剤科と飲料水科の2科で構成されている。薬剤科は医薬品、医療部外品、化粧品、衛生材料、毒劇物及び有害物質を含有する家庭用品などの行政検査、依頼検査及び調査研究を主要業務としており、また飲料水科は水道の原水・浄水、一般飲料水及びプール水などの行政検査、依頼検査及び調査研究を主要業務としている。

薬剤科

昭和55年度に実施した検査・研究は表1のとおりである。

医薬品、医薬部外品、化粧品及び衛生材料などの一斉検査は、前年度とほぼ同様に実施され、不適検体はなかった。

本年度から、災害用備蓄医薬品の行政検査が実施され、絆創膏はすべて不適であった。

有害物質を含有する家庭用品の行政検査は前年度と同様に実施され、不適検体はなかった。

調査研究としては、生薬中の重金属の分析、生薬成分の分析法の検討及び生薬の突然変異性の検討などを実施した。

飲料水科

昭和55年度に実施した検査・研究は表2のとおりである。

行政検査として、飯能、本庄保健所から、6価クロムの検査が前年に引き続いて依頼され、相変わらず検出されるものがみられた。

また、児玉町において井戸水の汚染がみられ、有機塩素系殺虫剤などが検出された(調査研究参照)。

依頼検査は、主として水道法全項目検査であるが、前年度よりやや減少した。

調査研究としては、水道水中のトリハロメタンの生成及び飲料水中の無機成分の分析法の検討などを実施した。

また、51年度から継続している下水処理汚泥の環境汚染に関する研究(住宅都市部)の一部を分担した。

公害センター、水産試験場との共同研究として、河川水の汚染浄化対策に関する衛生的総合調査のうち、河川水のトリハロメタン調査を行った。

さらに、地研全国協議会による共同研究として、健康と飲料水中の無機成分に関する研究の一部を分担した。

表1 医薬品等の検査(昭和55年度)

区 分	行政検査		依頼検査		調査研究		計	
	件数(不適件数)	項目数	件数	項目数	件数	項目数	件数	項目数
薬 品 類								
医 薬 品	113 (9)	579					113	579
衛 生 材 料・化 粧 品	25	75			51	204	76	279
そ の 他	36	36			520	2,080	556	2,116
有 害 物 質								
家庭用品中の有害物質	131	131					131	131
重 金 属					28	56	28	56
毒 劇 物	1 (1)	1					1	1
計	306 (10)	822			599	2,340	905	3,162

表2 飲料水等の検査(昭和55年度)

区 分	行政検査		依 頼 検 査		調査研究		計	
	件数	項目数	件数(不適件数)	項目数	件数	項目数	件数	項目数
水 道 水								
水道法全項目検査			228 (11)	6,219			228	6,219
選択項目の検査			52 (2)	75	74	696	126	771
一般飲料水								
一般飲料水適否検査			6 (3)	70			6	70
選択項目の検査	158	478	7	25			165	503
そ の 他	3	15			180	2,460	183	2,475
計	161	493	293	6,389	254	3,156	708	10,038

(3) 食品衛生部

食品衛生部は、食品化学科と食品微生物科の2科から構成されている。食品化学科は食品等の添加物、化学物質（汚染物）などの検査を行い、食品微生物科は食品等の汚染細菌などの検査を行っている。したがって、食品、食品添加物、容器包装、おもちゃ等の安全性について化学物質面と微生物面の両面から対応し、人体への危害防止に努めている。

業務の内容は、検査業務と研究業務に大別され、検査業務は行政検査と依頼検査に区分される。行政検査は、主に県食品衛生課が計画した取去検体であり、これは年間計画により定期的に検体が搬入されてくる。また、そのほか食中毒発生時の検体、保健所試験検査室からのクロスチェックの検体、高度の技術を要する検体などがある。依頼検査は、食品化学科においてタール色素製剤の検査、かんすいの製品検査、食品微生物科においてアイスクリーム類などがあった。

調査研究は、水産食品および農産食品のPOB・農薬等の残留調査、有害重金属の生物濃縮実態調査、魚介類の有機水銀調査、食品における細菌学的汚染調査、有毒かびの調査、発熱性物質の調査などを本年も引き続き行った。特に、本年度は畜産食品における合成抗菌剤残留の調査研究、弁当類における食中毒予防対策の調査研究を重点的に行った。

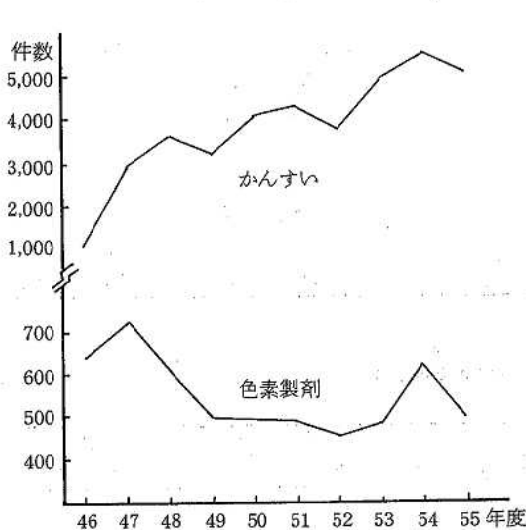
食品化学科

本年度中に行った検査は表に示したとおりである。依頼検査のタール色素製剤およびかんすいの製品検査は昨年をやゝ下まわった。過去10年間の両者の推移について図に示したが、タール色素製剤では47年度までは上昇の一端をたどったが、天然色素への転換されて以来、検査数は下降し、500件前後となっている。一方、かんすいにおいては年々増加してきたが、52年度の石油ショック時に一時的に停滞したが、その後増加し、10年前の5倍にもなった。その他の依頼検査は要求を受け入れられず他の検査機関で行ってもらった。

行政検査としては、大宮保健所の試験検査室が未設置のため、保存料および発色剤について肩代りとして実施した。また、年度途中で過酸化水素の使用基準の改正があり、過酸化水素の検査を実施した。

また、例年行ってきた、魚の水銀、牛乳の残留農薬についても実施し、3年計画で行ってきた母乳中の残留農薬およびPOBについても60件実施した。以上の結果について特に取り上げる程の不適なものはない。

畜産食品中の合成抗菌剤についても3年目を迎えたが、比較的検出されるものが多かった。この詳細については資料に記載してあるので参考にされたい。



年度	色素製剤	かんすい
46年度	(5) 645	(3) 1,087
47年度	(5) 731	(3) 2,893
48年度	(5) 613	(3) 3,654
49年度	(5) 503	(3) 3,204
50年度	(5) 500	(3) 4,191
51年度	(5) 499	(3) 4,356
52年度	(5) 465	(3) 3,820
53年度	(6) 494	(3) 4,959
54年度	(6) 622	(4) 5,586
55年度	(6) 495	(4) 5,090

() メーカー数

図1 過去10年間の色素製剤およびかんすいの検査件数の推移

表1 依 頼 検 査

種別	製 品 検 査			食 品 お よ び 添 加 物 等								総 計
	タール色素製剤	かんすい	合計	農産物の加工品	水産物の加工品	畜産物の加工品	乳製品等	調味料等	菓子類等	容器包装他	合計	
検査件数	459	5,090	5,549	0	0	0	0	0	0	3	3	5,552
検査項目数	3,672	50,900	54,572	0	0	0	0	0	0	3	3	54,575
不良件数	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
不良率(%)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0

表2 行 政 検 査

種別	食 品 類 等									添 加 物 等	容 器 包 装 等	合 計
	農産物の加工品	水産物の加工品	畜産物の加工品	乳製品等	かん詰等	調味料等	清涼飲料水等	菓子類等	その他			
検査件数	244	95	140	61	0	12	49	43	96	0	20	760
検査項目数	720	105	1,004	902	0	12	66	73	1,314	0	40	4,230
不良件数	3	2	12	0	0	0	0	0	0	0	0	17
基準値のあるものでの不良率	1.5%	2.1%	9.2%	0	0	0	0	0	0	0	0	2.2%

表3 検査内容(製品検査を除く)

行政	検査件数	添 加 物	重 金 類	農薬 P C B 等	その他	合 計
		検査項目数	273	142	181	173
依 頼	検査件数	0	0	0	3	3
	検査項目数	0	0	0	3	3

食品微生物科

昭和55年度に実施した検査状況は、表1に示すとおりである。今年度は、戸田・蔵保健所に検査室が設置されたことから南部監視係の検査室が廃止となった。このため、大官保健所検査室が設置されるまでの漸定処置として、この検査分を当所の食品衛生部で分担することになった。

この関係から、食品微生物科においても、従来から行政検査として実施してきた春の行楽時、夏季の一斉検査ならびに年末年始の一斉検査に代えて、年間を通しての検査方式を実施した。

乳および乳製品関係では、行政検査として乳処理場から収去した牛乳136件の成分規格ならびに残留抗生物質の

検査を実施したが、その不適率は5.9%であった。その他、市販の牛乳、加工乳、乳飲料および乳酸菌飲料等122件について規格検査を実施したが、いずれも規格に適合した。

しかし、ソフトクリームでは16.7%から、また冰雪、アイスクリーム類は2.4%から大腸菌群が検出された。

依頼検査の主なものは、昨年同様であり、県アイスクリーム協会ならびにソフトクリーム協会からの自主検査依頼で、その不適率は2.6%および11.9%であった。

一般食品関係では、行政検査として冷凍食品、レトルト食品、魚肉練製品、清涼飲料水、食肉製品等について実施したが、その不適率は0.8%であった。

調査研究としては、昨年度の弁当類の実態調査に引きつづき、白飯にpH調整剤を添加したものを試作し、これについて、製造時と販売時の細菌学的な検出状況等について調査を実施した。

食中毒の関係では、当所に食中毒の疑いとして送付された検体数は、表2に示すとおり1,011件で、昨年より13%の増加であった。

このうち、食中毒事件として届出されたもので、県内に原因施設のあったものは、10件で、その内訳は表3のとおりである。

調理場所別にみると表4に示すように飲食店、家庭等で占められており、その発生状況については表5に示すとおりである。

とくに本年は、7月に久喜市内の小、中学校の学校給食により発生したウェルシュ菌食中毒は、患者数が3,600人を超える大規模なものであった。

表1 食品微生物検査状況

検査区分	検査件数	検査項目数	不適数(%)	
乳および乳製品関係	行政	459	1,669	19(4.1)
	依頼	199	274	17(8.5)
一般食品関係	行政	765	2,716	7(0.9)
	依頼	88	122	2(2.3)
発熱性試験	行政	14	14	0
無菌試験	依頼	3	6	0
殺菌効果試験	依頼	21	21	0
食中毒検査	行政	1,011	2,613	—
調査研究	行政	689	1,038	—
計	行政	2,938	8,050	26(2.1)*
	依頼	311	423	19(6.1)

* 行政検査の不適件数は、食中毒検査および調査研究の件数を除いた数で示す。

表2 食中毒検体の検査状況

検体名	検体数	検査項目数
患者便・吐物	773	1,983
調理関係者の便	65	217
調理関係者の便以外の検体	10	10
容器・その他	39	39
食品	124	364
計	1,011	2,613

表3 食中毒病因物質別の検査状況(県内)

発生件数	10件	
病因物質判明件数	10(100%)	
内訳	病原ブドウ球菌	3(30%)
	サルモネラ	1(10%)
	腸炎ビブリオ	4(40%)
	ウェルシュ菌	1(10%)
動物性自然毒	1(10%)	
病因物質不明件数	0	

表4 食中毒調理場所別の発生状況

調理場所	県内		
	件数	摂食者数	患者数
学校給食施設	0	—	—
工場・事業所施設	0	—	—
仕出し屋	2	125	72
飲食店	5	4,435	3,675
製造所	1	268	191
家庭	2	8	5
その他	0	—	—
計	10	4,837	3,943

表5 昭和55年度食中毒発生状況(県内に原因施設があるもの)

No.	発生月日	発生場所	摂食者数	患者数	死者数	原因食品	病因物質	摂取場所	調理製造場所
1	6.10	上尾市小敷谷	84	61	0	幕の内弁当	腸炎ビブリオ	上尾市小敷谷	飲食店営業(仕出し)
2	7.1	上尾市畔吉	10	10	0	いなりずし	黄色ブドウ球菌	上尾市	飲食店営業
3	7.9	久喜市河井	4,333	3,610	0	めんつけ汁	ウェルシュ菌	久喜市	飲食店営業(学校給食)
4	8.23	三郷市彦倉	5	4	0	鯉のあらい	サルモネラ	三郷市	飲食店営業
5	9.1	所沢市所沢	35	23	0	宴会料理	腸炎ビブリオ	所沢市	"
6	9.12	比企郡鳩山村	52	28	0	昼の定食	"	鳩山村	飲食店営業(給食弁当)
7	9.13	桶川市日出谷	42	11	0	仕出し料理	"	桶川市	"(仕出し)
8	11.30	大沼市蓮沼	268	191	0	醤油だんご	黄色ぶどう球菌	大宮市	菓子製造業
9	1.10	所沢市比岩岡	1	1	0	ふぐ*	テトロドトキシン	所沢市	家庭
10	2.18	東京都本郷	7	4	0	にぎりめし	黄色ブドウ球菌	東京都	家庭
		計	4,837	3,943	0				

備考 * : 医師の診断により決定

(4) 環境衛生部

生物環境科

医動物（寄生虫、衛生動物）に関する行政検査および一般依頼検査のほか、室内環境検査などを実施している。

さらに次の調査研究も行っている。

1) 人畜共通の寄生虫調査研究

2) 中間宿主（魚貝類）の調査研究

3) 衛生動物（蚊、ダニ、ゴキブリなど）の生態調査研究

昭和55年度に実施した件数は表1に示したとおりである。

表1 生物環境関係業務

区 分	行政検査		依頼検査		調査研究		計
	件数	項目数	件数	項目数	件数	項目数	
寄生虫							
寄生虫検査(人)	8	2	0				16
寄生虫検査(犬)	120	2	0		120	5	840
原虫検査	4	3	0				12
中間宿主検査	232	2	0		3,396	2	7,256
その他検査(ヘビ)	1	1	0				1
(小計)	365				3,516		8,125
衛生動物							
衛生害虫検査	13	1	2	1	2,700	5	13,515
食品害虫検査	4	1	22	1			26
室内塵ダニ検査	2	1	21	1			23
蚊の検査研究	200	2	0				400
汚水生物検査	52	11	0				572
その他検査(毛髪)	0		0				0
(小計)	271				2,700		14,536
合計	636		45		6,216		22,661

表2 放射能関係業務

放射能科

昭和55年度に実施した調査件数は表2のとおりである。

- 1) 現状の放射能レベルを知るために、全ベータ、全ガンマー測定
- 2) 長期にわたる放射性降下物水準を把握するためにセシウム-137分析測定。
- 3) 人体における蓄積量を考察するために、ストロンチウム-90分析測定。
- 4) 原乳中のヨウ素-131濃度を知るための器機分析測定。
- 5) 一般人の環境から受けるガンマー線被曝量を推定するため空間線量率測定。

各検体について、前年度と同様な測定結果を得た。

区 分	検体数	測定項目数	測定回数
(全ベータ測定)	(157)	(502)	(517)
定時・定量雨水	98	294	294
陸水	20	60	60
排水	10	30	30
食品	15	60	75
雨水・落下塵	12	36	36
土 壤	2	22	22
(全ガンマー測定)	(44)	(44)	(88)
陸水	20	20	40
排水	12	12	24
雨水・落下塵	12	12	24
(空間線量率測定)	(12)	(12)	(480)
空間線量	12	12	480
(放射性核種分析)	(76)	(182)	(364)
Sr-90分析	38	91	182
Cs-137分析	38	91	182
(器機分析)	(11)	(33)	(22)
I-131分析	11	33	22
総 計	300	773	1,471

注1) 放射能関係業務は全部行政検査である。

2) 検体数は科学技術庁委託調査数を含む。

衛生工学科

昭和55年度に実施した行政検査および一般依頼検査の件数、項目数は表3に示したとおりである。

行政検査のうち、し尿処理施設およびごみ処理施設の件数、項目数は前年度とほぼ同数である。しかし、し尿浄化槽に関しては、今年度は、維持管理の良否を知るための水質検査を行ったので、前年度に比べ、件数で4.2倍、項目数で5.3倍あった。全体では、件数で1.4倍、項目数で1.2倍増であった。

一般依頼検査は、おおむね前年度と同様に維持管理のた

めの水質検査であった。し尿処理施設の件数、項目数は前年度とほぼ同数である。また、ごみ処理施設の依頼検査はなかった。しかし、し尿浄化槽では、前年度の件数および項目数と比べると、それぞれ2.4倍、5.7倍増で年々増加している。

し尿処理施設からの放流水の水質検査結果から、法律に基づく排出基準値以上の割合を求めると、行政検査で23.3%、一般依頼検査で5.9%と不適率が年々減少し、水質がやや良くなっている傾向がうかがわれた。

表3 衛生工学関係業務

区 分	行政検査				一般依頼検査				計			
	検査 件数	検査 項目数	不適 件数	不適 率(%)	検査 件数	検査 項目数	不適 件数	不適 率(%)	検査 件数	検査 項目数	不適 件数	不適 率(%)
し尿処理施設	115	794	27	23.3	34	150	2	5.9	149	944	29	19.5
ごみ処理施設	68	143							68	143		
し尿浄化槽	84	210			110	478			194	688		
その他(河川水等)	12	51			1	11			13	62		
計	279	1,198			145	639			424	1,837		

廃棄物科

昭和55年度に行った検査件数および検査項目数を表4に示した。

最終処分場等、埋立地近辺での環境問題がこのところ増える傾向にあり、それに伴って埋立地からの浸出水や土壌等の検体が著しく増加したのが目についた。また、保管中のタイヤ火災や荒川河川敷へのシアン含有汚泥の不法投棄など、社会的にも大きな関心がよせられた検体が多かった。

行政検査件数は、前年に比べて検査件数で390%、検査項目では330%の大巾な増加をみた。埋立基準値を超

える不適件数は増加の傾向にあり、また埋立地周辺の環境破壊等が憂慮された。

調査研究としては、有害物質含有汚泥広域処理事業の一環として、最適中間処理システム選定のための調査を行った。また、埋立完了地についての環境汚染防止のための適正検査も行った。

さらに、前年に引き続き、下水処理汚泥による環境汚染に関する研究と、本年から新しく共同研究として「水の浄化機能の解明と排水処理技術の開発」についての研究もあわせて行った。

表4 産業廃棄物検査

区分	行政検査								調査研究						総計			
	産業廃棄物				産業廃棄物由来の検査				有害汚泥広域処理事業		埋立完了地適正検査		下水処理汚泥調査		共同研究		検査 件数	検査 項目数
	検査 件数	検査 項目数	不適 件数	不適 率(%)	検査 件数	検査 項目数	不適 件数	不適 率(%)	検査 件数	検査 項目数	検査 件数	検査 項目数	検査 件数	検査 項目数				
汚泥	5	81	1	20.0	33	77	4	12.1										
鉱さい	1	9	0	0.0	2	2	2	100.0	39	681	57	1,874	185	2,490	18	242		
その他	5	39	1	20.0	229	802	32	14.0										
計	11	129	2	18.2	264	881	38	14.4	39	681	57	1,874	185	2,490	18	242	574	6,297

5. 調査研究報告

埼玉県衛生研究所報 15, 15~20 1981

ウイルスに起因する食中毒様集団発生

岡田正次郎 村尾美代子 渡辺 昭宜
徳丸 雅一 溝越 将城* 針谷 進*
荻野 淑郎** 島村 敏郎**

はじめに

食品を感染経路とする急性胃腸炎の集団発生で、病原体としてウイルスが登場して来たのは、数年来のことである。1976年12月から翌年1月にかけて、鳥貝の食中毒が英国に発生し、患者は797人に達する大きな食中毒事件となったが、その病原体は直径25-26nmの小形ウイルスで、cockle因子の名で呼ばれている。¹⁾ また、1978年6-12月にはオーストラリアにおいてカキによる集団食中毒が発生し、患者は少なくとも2,000人に及ぶと推定され、Norwalk 因子がその病因ウイルスと考えられている。^{2,3)} 鳥貝およびカキは二枚貝類に属し、これらの貝類は汚染された水からウイルスを濃縮することができるといわれているが、原因食品となったこれらの貝類から病因ウイルスは検出されていない。³⁾

最近、県内で発生した食中毒で病原細菌不明の集団発生のうち、時期並びに場所を異にして発生した2件から直径28-32nmの小形ウイルス粒子が検出され、これら2つの集団発生から分離されたウイルス粒子は抗原的に関連性のあることが証明されたため、2つの集団発生は同一又は近縁なウイルスに原因するものと推定した。

調査対象並びに発生時期

管轄保健所へ食中毒疑いの届出がなされ、保健所においても食中毒発生処理要領に基づき調査が進められた次の2つの集団発生が調査対象となった。

第1の集団発生(加須保健所管内)は、1980年12月14日久喜市の一地区で子供会の会合があり、その昼食を食べた小学生および家族ら121人の中から患者55人が発生した。

第2の集団発生(川越保健所管内)は、1979年6月

2~4日に大井町大井中学校3年生264人は修学旅行で京都、奈良に行き、帰省後112人に及ぶ患者発生が認められた。

疫学調査

2つの集団発生は小・中学校が主な発生場所であったため、保健所は各学校に赴き、学校内における患者発生状況、環境等を調査する傍ら、事件発生前後のこれに係る情報の収集に努めた。また、アンケートによる調査は、第1の集団発生において子供会の食品喫食者全員に対し、第2の集団発生では旅行に参加した中学生に対し、それぞれ罹病並びに喫食状況について実施された。なお、第1の事件では子供会の昼食(すし)をつくった商店の立入検査が行われ、従業員4人から採便が実施された。第2の事件は感染場所が旅行先であるため、県衛生部を通して旅行先の府県に連絡し、情報の収集を行った。

検査材料並びに方法

1 糞便および血液

第1の集団発生においては、患者15人(小学生14人、中学生1人)から発病後3日目の糞便を採取し、採血は小学生の患者8人から発病後9日目に実施された。

第2の集団発生については、患者49人(中学生)から糞便を採取したが、採便日は発病後2-5日の範囲内であった。なお、これらの患者から採血は実施されなかった。

2 細菌学的検査

糞便中の赤痢菌、サルモネラ、腸炎ビブリオ、病原大腸菌、黄色ブドウ球菌に関する検査は通常行われる検査術式に従って実施された。なお、第1の集団発生においては、ウェルシュ菌、エルシニア、キャンピロバクターの検出も

*加須保健所、**川越保健所

試みられたが、毒素産生性大腸菌に関する検査はいずれの場合にも実施されなかった。

3 電子顕微鏡検査

糞便をPBSに10%の割合に混和させ、これに適量量の1, 1, 2-トリクロロトリフルオロエタンを加えて振とう後、3,800 rpm, 30分冷却遠心する。その上清液を45% (w/v) 蔗糖液のクッション上に重層し、100,000×g, 90分超遠心(日立65P-7型)にかけ、生じたpelletに数滴の蒸留水を加え溶解させたものを電顕用試料とした。これをカーボン強化フォルムバール支持膜上で、3%隣タングステン酸水溶液(pH 7.0)でネガティブ染色し、日立H500H型電顕で観察した。免疫電顕法(IEM)には患者回復血清をPBSで40倍に希釈した液2mlに、上記のpellet溶解液を加え、室温1時間、氷室内に1夜放置後、30,000 rpm, 30分遠心(日立65P-7型)を行い、生じたpelletについて前記同様にネガティブ染色し観察した。

4 ウィルス粒子の浮上密度測定

塩化セシウムで1.2-1.5 g/mlの不連続密度勾配液を作り、その上にウィルス液を重ね、日立RPS65T型ローターで34,000 rpm, 18時間遠心後、液を分画採取し密度及びウィルス粒子の存在を調べた。

5 細胞培養

ウィルス粒子陽性の糞便の一部につき、細胞培養を行った。用いられた細胞はVero, HeLa, Hep-2である。

調査成績

1 第1の集団発生について

1) 発見の動機

1980年12月16日、久喜市江面第一小学校児童に嘔気、嘔吐を主訴とする欠席者および有症者の急増があり、学校当局の調査の結果、これらの患者の多くは、同月14日に催された江面新田の子供会に参加し、会食していることがわかった。よって、子供会食品による食中毒の疑いが濃厚となったため、市教育委員会を経て加須保健所へ通報された。

2) 患者発生状況

前記子供会に出席した小学生は68人で、そのほか役員4人、招待客3人計7人の成人も参加した。当日子供会を欠席した小学生10人に対しては、会場でくばれたと同じ食品が各家庭へ配達された。また、出席した小学生も食べ残した食品を家庭へ持ち帰ったため、家族もそれらの食品を食べた。

子供会の食品を食べた小学生78人のうち、発病者は43人(55.1%)であり、これらの患者発生は各学年別

発生率を表1に示した。患者発生は各学年に認められ、学年別発生率では1,2年がやや低く、3年以上は一般に高く、

表1 子供会関係小学生とその患者発生率

学 年	例 数	患 者		
		例 数	発生率(%)	
1 年	20	9	45.0	
2 年	14	5	35.7	
3 年	13	7	53.8	
4 年	12	9	75.0	
5 年	11	6	54.5	
6 年	8	7	87.5	
計	男	44	22	50.0
	女	34	21	61.8
合 計		78	43	55.1

なかでも6年の発生率が最高の87.5%であった。また、性別発生率は男女間に大差は認められなかった。

小学生を除く子供会食品を食べた家族ら43人のうち、発病者は12人(27.9%)であった。表2に示すように、幼児から高校生までの患者発生率は50%で、小学生の平

表2 子供会食品の喫食者とその患者発生率
(小学生を除く)

年 齢 層	喫食者数	患 者	
		例 数	発生率(%)
幼 児	2	1	50.0
中 学 生	2	1	50.0
高 校 生	2	1	50.0
30 - 59歳	34	9	26.5
60歳以上	3	0	0
計	43	12	27.9

均発生率に近似しているのに対し、30-59歳の発生率26.5%はこれらの約1/2の低率を示していた。また、性別患者発生率では女性は男性の2.9倍であった。

患者55人の発病日別発生度数分布は図1の通りである。

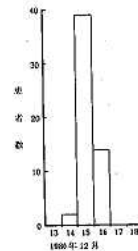


図1 日別患者発生度数分布

この日別度数分布の描く形態は、比較的潜伏期の短い単一暴露の共通経路感染による患者発生時のそれに良く一致している。また、患者55人の喫食時から発病時までの潜伏時間は、最短5時間、最長48時間、平均29.8時間であった。

3) 臨床症状

患者55人の主な症状は、表3に示すように、嘔気、嘔吐、腹痛であり、発熱、下痢は全体の1/4乃至はそれ以上

表3 臨床症状(患者:55人)

症 状	有 症 者 数	有 症 率 (%)
嘔 気	49	89.1
嘔 吐	40	72.7
腹 痛	29	52.7
下 痢	10	18.2
悪 寒	4	7.3
発 熱	14	25.5
頭 痛	11	20.0
倦 怠 感	5	9.1
臥 床	5	9.1

下であった。嘔吐、下痢、発熱の程度も、表4のように比

表4 主要臨床症状の程度

嘔 吐 (40人)	下 痢 (10人)	発 熱 (14人)
1~2回:22人	1回/日:6人	37.0~37.9℃:8人
3~5回:12人	2回/日:3人	38.0~38.4℃:4人
6~10回:6人	3回/日:1人	38.5~38.9℃:2人

較的軽症であり、患者は1-3日でほぼ正常に復していた。

4) 細菌学的検査成績

患者15人(小学生14人、中学生1人)及びすし製造の従業員4人(健康者)の糞便19検体についての細菌学的検査の結果、赤痢菌、サルモネラ、病原大腸菌、腸炎ビブリオ、黄色ブドウ球菌、ウェルシュ菌、エルシニア、キャンピロバクターのうちいずれも起原因となる可能性は否定された。

5) ウィルス学的検査成績

上記細菌学的検査結果に加え、この集団発生の潜伏時間が比較的長く、また、嘔気、嘔吐を主徴とする特異な臨床像から、ウィルスに起因する冬期嘔吐症の疑いが濃厚となったため、患者糞便の電子顕微鏡検査を試みみた。糞便15検体のうち、量不足の4検体を除く11検体を電顕で観察したところ、3検体から直径28-32nmのsmall round virus-like objects (SRVs)を

認めることができた。(写真参照)また、直接法でウィルス粒子陰性の8検体につき、患者(7歳)の回復期血清を用いたIEMにより、更に2検体を陽性に追加することができた。従って、患者11人中のSRVs陽性は5人(検出率45.5%)となった。なお、すし製造従業員4人から同様のSRVsを検出することはできなかった。

6) 感染経路

患者55人の日別発生状況から単一暴露の共通経路感染が推測され、患者全員が子供会食品の喫食と密接に結びついていることから、子供会の食品汚染に原因していることが明白となった。12月14日の子供会に出された食品はすし、飲物、菓子、果物の12品で、これらの食品を食べた小学生78人及び家族等43人計121人につき喫食調査を行ったところ、発病との因果関係が最も濃厚な食品はすし(油あげ、のり巻、卵焼の3種)であった。なかでものり巻が特に注目され、これを裏付ける証拠として、のり巻を1個食べ、48時間後に発症し、医師の治療を受けた小学生1人が報告されている。

問題のすしを製造した久喜市K商店に対しては、保健所食品監視員の立入検査が行われ、店内の衛生設備、衛生状況に改善すべき点はいくつか指摘されたが、すしの材料及び調理過程で糞便汚染を推測させるような事実を発見することはできなかった。なお、同店の使用する上水は市営水道水であり、便所は汲取り式で、従業員4人の健康に異常は認められなかった。

2 第2の集団発生について

1) 発見の動機

1979年6月2日から4日にかけて、大井町大井中学校3年生264人、教職員12人は京都、奈良へ2泊3日の修学旅行へ行き、同月6日の登校日(5日は振替休日)に嘔吐、腹痛等の症状で欠席した生徒43人、また、登校者中にも同様の症状を訴える者52人が認められたので、校医と相談の上、食中毒疑いの患者発生を川越保健所へ通報した。

2) 患者発生状況

大井中学校3年生の旅行日程は、6月2日朝ひかりで京都へ向い、京都見物後同地に1泊、翌3日奈良見物を行い、再び京都へもどり昨夜と同じ旅館に1泊、4日は嵐山見物をした後京都発ひかりにて帰省し、午後6時30分学校で解散した。6月5日は休日であったが、6日の登校日に病欠者43人、7日は最高の62人を数え、8日には27人となり、それ以降は急速に減少した。患者はすべて旅行に参加した3年生に限られ、引率した職員12人から異常者の発生はなかった。6月7日に実施されたアンケート調査により、何等かの症状を有する者が143人抽出されたが、これらの中に胃腸炎以外と思われる有症者も含まれていることがわかり、再度これらの有症者を対象に胃腸症状を中

心としたアンケート調査を行った。その結果、112人(42.4%)を患者として選定し、なお、その選定に当っては、嘔気、嘔吐、腹痛、下痢のうち、いずれか1つ又は2つ以上の症状を有することを規準とした。これらの患者は3年の各クラスに分布し、クラス別患者発生に偏りは認められず、また、その性別は男57人、女55人のほぼ同数であった。患者の発病日時は、6月4日午前6時から7日午前10時までの間で、発病日を以て患者発生の度数分布を描くと、図2のようになる。患者の最も多発したの

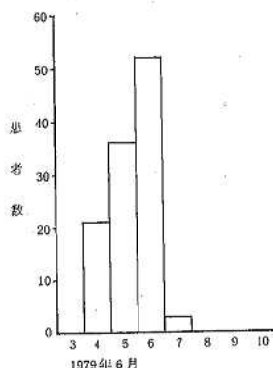


図2 日別患者発生度数分布

は6月6日の52人で、そのうち42人は午前中に集中していた。

3) 臨床症状

患者112人(14-15歳)の症状は表5,6に示した。倦怠感、嘔気、頭痛、腹痛が主要症状で頻度高く、嘔

表5 臨床症状(患者:112人)

症	状	有症者数	有症率(%)
嘔	気	92	82.1
嘔	吐	48	42.9
腹	痛	70	62.5
下	痢	37	33.0
発	熱	51	45.5
頭	痛	87	77.7
倦	怠感	106	94.6
筋	肉痛	12	10.7
関	節痛	12	10.7
咽	頭痛	13	11.6
発	疹	9	8.0

吐は嘔気を訴えた者の約1/2に認められ、その回数は1-2回が大半を占めていた。発熱は約46%に認められたが、その55%は37℃台に留まり、まれに40℃を越す高熱者もあった。下痢は1/3の者にあったが、回数は少な

表6 主要臨床症状の程度

嘔吐 (48人)	下痢 (37人)	発熱 (51人)
人	人	人
1~2回:26	1回/日:16	37.0~37.9℃:28
3~5回:17	2回/日:6	38.0~38.9℃:13
6~10回:2	3回/日:4	39.0~39.9℃:2
不明:3	10回/日:1	40.0~:1
	不明:10	不明:7

く、軟便乃至水様便の程度であった。また、患者の10%前後に筋肉痛、関節痛、咽頭痛、発疹が認められ、単純な急性胃腸炎とはいえない、やや複雑な臨床像を呈していた。しかし、臨床経過は一般に良好で、大部分の者は数日で正常に復した。

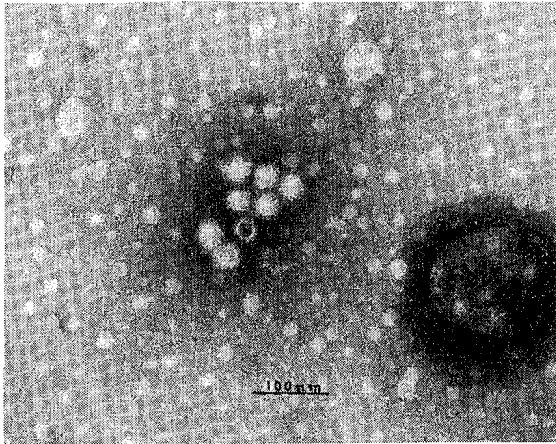
4) 細菌学的検査成績

患者の糞便49検体について細菌学的検査を行ったところ、赤痢菌、サルモネラ、病原大腸菌、腸炎ビブリオ、黄色ブドウ球菌は検出されなかった。

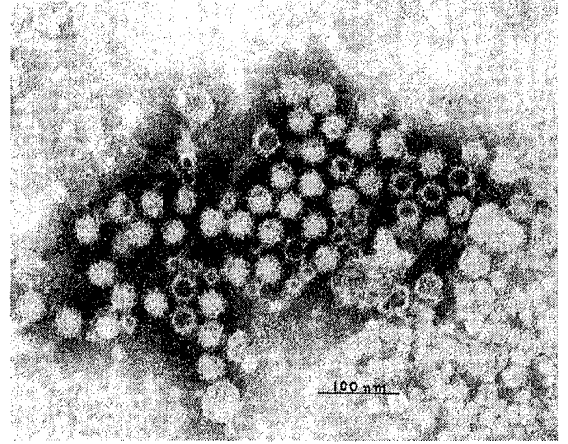
5) ウイルス学的検査成績

病原細菌が発見されなかったので、検体の中から軟便又は水様便を呈する6検体を選び、これらを2検体ずつプールし(便量少ないため)、電子顕微鏡検査を試みた。そのうち、1プールの試料に直径28-32nmのSRVsを認めたと、他の2プールから発見できなかったため、当時はそれ以上の追究を断念した。

1981年7月に至り、上記SRVsの電顕写真を、先に述べた久喜市における集団発生のSRVsの電顕写真と比較したところ、形態が良く一致していることに気づき、幸い患者糞便は冷凍庫(-20℃)に保存してあったので、再調査を始めた。最初、新たに5人の患者糞便(うち2検体は量不足のためプール)を使用し、電顕で観察したところ、4試料とも少数ながら前記SRVsと同じウイルス粒子が認められた。よって、これらのうちの2試料につき、第1の集団発生で使用した患者回復期血清によるIEMを行ったところ、凝集塊の形成と抗体の付着により容易にウイルス粒子が検出できたので、以後の検査はこれらの患者血清を用いたIEM法の併用によって進めた。その結果、21検体(患者25人;量不足のものは2又は3検体をプールした)のうち16検体(陽性率76.2%;患者20人)から直径28-32nmのSRVs(写真参照)を検出し、かつ、その上にこれらのSRVsは第1の集団発生のSRVsと抗原的にも近似していることが明らかとなった。なお、SRVs陽性の16検体のうち7検体(患者10人)には、前記SRVsよりやや小形の直径24-26nm、辺縁が滑らかなウイルス粒子の混在が認められたが、これらのウイルス粒子は前記患者血清に反応しないことが確認された。



写真説明 A 久喜市集団発生の患者(8歳♀)糞便中のウイルス粒子



B 大井町大井中学校集団発生の患者(14歳♀)糞便中のウイルス粒子(免疫電顕法)

塩化セシウム溶液中の浮上密度を測定したところ、直径28-32nmのウイルス粒子は1.37-1.39 ρ /mlであり、直径24-26nmの小形ウイルス粒子は1.38-1.41 ρ /mlであった。

細胞培養は2種のウイルス粒子陽性の糞便2検体について行ったが、いずれの細胞にもCPEを認めることはできなかった。

6) 感染経路

大井中学校における患者発生は修学旅行に参加した3年生に限られ、患者の大部分は帰省直後の短期間に集中して発生していることから、旅行中の感染に疑いをさむ余地はなかった。一方、患者112人の日別発生を見ると、その度数分布は単一暴露の共通経路感染のそれとはかなり異なる形を示していた。また、旅行中に取った6回の食事(朝食, 昼食, 夕食共に各2回)の献立, 飲料水についての調査結果, 及び県衛生部を通して他府県から得られた旅館, 食堂等に関する情報から、原因となる飲食物あるいは感染場所を推測させようとする有力な手がかりを発見することはできなかった。

考 察

非細菌性胃腸炎から検出されるウイルス粒子として、直径30nm前後のものにNorwalk因子, Norwalk様因子, calicivirus, astrovirusがある。ここに報告した2つの非細菌性胃腸炎の集団発生は、時及び場所を異にして発生したものであるが、それらから検出されたウイルス粒子は、形及び大きさにおいて、同一ともいえる類似性を示しており、また、これらの形態はcalicivirus, astrovirusとは明らかに異なり、⁴⁾むしろprototypeのNorwalk因子に近似している。⁵⁾

患者糞便からNorwalk因子あるいはNorwalk様因子を見出すには、単に電顕にて直接観察する方法は決定的でなく、免疫電顕法⁵⁾又は塩化セシウムの密度勾配法⁶⁾を加味した検査法が勧められている。事実、今回の2つの集団発生においても、ウイルス粒子の検出に患者回復期血清を用いた免疫電顕法が優れた成績を上げ、これらのウイルス粒子の病因的意義をほぼ決定的なものとした。また、免疫電顕法は、2つの異なる集団発生から見出されたウイルス粒子が血清学的に同一もしくは近縁のものであるという有力な示唆を与えている。Norwalk因子をprototypeとするNorwalk様因子の血清型は、現在もなお不明な点は残されているが、少なくとも3種類以上の存在が報告⁷⁾されており、わが国にもNorwalk因子の存在は仙台市の発生例⁸⁾で明らかにされている。

Norwalk因子及びNorwalk様因子の分類上の規準として、形態学的要素の外に、塩化セシウム中の浮上密度がある。これらのウイルス粒子は一般に1.37-1.41 ρ /mlの範囲に所属しており、⁹⁾埼玉県における2つの集団発生のうち、大井町中学生の患者糞便から分離された直径28-32nmのウイルス粒子は1.37-1.39 ρ /mlの浮上密度を示していることから、上記規準に該当していた。

Norwalk因子及びNorwalk様因子に原因する急性胃腸炎の集団発生において、感染経路が明確に究明されたケースは少ないが、なかには飲料水、¹⁰⁾貝類^{1, 2)}の汚染に起因すると推定された発生例も報告されている。われわれは久喜市に起きた集団発生例で、ウイルス感染の媒介物としてすしを推定できたことは、食品衛生上意義あることと考えられるが、すしのウイルス汚染の機序を解明するまでには至らなかった。

われわれは県衛生部が実施している感染症サーベイランス事業の一環として、1978年10月から浦和市を中心と

したウイルス性胃腸炎疑いの乳幼児糞便について、電子顕微鏡検査を継続してきた。これらのうち、冬期に嘔吐、下痢を主訴とする乳幼児から、今回報告したウイルス粒子と形態及び抗原が一致するウイルス粒子を10例を超す症例から見出ししている。従って、冬期に嘔気、嘔吐、下痢等を主症状とし、比較的長い潜伏期(24-48時間)を示す急性胃腸炎の集団発生の調査に当って、細菌学的検査と平行して電子顕微鏡検査も実施されることが望ましく、そのためには、なるべく早期に患者から十分な量の糞便を採取すること、及び急性期並びに回復期における採血(患者の一部について)が原因究明の上にも欠くことのできない条件である。

総 括

食中毒疑いの下に調査され、病原細菌が見出されなかった次の2つの集団発生例について、電子顕微鏡検査を行い、それぞれの患者糞便から同じ形態を示す直径28-32nmのウイルス粒子が検出された。

1 1980年12月14日、久喜市の一地区で子供会が催され、その昼食に出されたすしを食べた小学生及び家族121人から、嘔気、嘔吐、腹痛を主訴とする患者55人(発病率45.5%)が発生した。患者回復期血清を用いた免疫電顕法により、患者11人中5人(陽性率45.5%)の糞便から前記ウイルス粒子が見出された。

2 1979年6月初旬、大井町大井中学校3年生264人は2泊3日の修学旅行(京都、奈良)に行き、帰省直後嘔気、腹痛、頭痛を主訴とする患者112人(発病率42.4%)が発生した。前記久喜市の集団発生時に取った患者血清を用いて免疫電顕法を実施したところ、患者糞便21検体中16検体(陽性率76.2%)に前記ウイルス粒子が検出され、また、これらのウイルス粒子は久喜市発生例のウイルス粒子と抗原的に同一もしくは近縁なものであることが証明された。なお、これらのウイルス粒子の塩化セシウム中の浮上密度は1.37-1.39 ρ /mlであった。

文 献

- 1) Appleton, H., Pereira, M.S. (1977): A possible virus aetiology in outbreaks of food poisoning from cockles. *Lancet*, 1, 780-781.
- 2) WHO (1979): Viral gastroenteritis. *Wkly. Epidem. Rec.*, No25, 196-197.
- 3) Editorial (1979): Virus from shellfish. *Lancet*, 2, 1224-1225.
- 4) Madeley, C.R. (1979): Comparison of the features of astroviruses and caliciviruses seen in samples of feces by electron microscopy. *J. Infect. Dis.*, 139, 519-523.
- 5) Kapikian, A.Z., Wyatt, R.G., Dolin, R., Thornhill, T.S., Kalica, A.R., Chanock, R.M. (1972): Visualization by immune electron microscopy of a 27-nm particle associated with acute infectious nonbacterial gastroenteritis. *J. Virol.*, 10, 1075-1081.
- 6) Appleton, H., Buckley, M., Thom, B.T., Cotton, L.J., Henderson, S. (1977): Virus-like particles in winter vomiting disease. *Lancet*, 1, 409-411.
- 7) Oshiro, L.S., Haley, C.E., Roberto, R.R., Riggs, J.L., Croughan, M., Greenberg, H., Kapikian, A.Z. (1981): A 27-nm virus isolated during an outbreak of acute infectious nonbacterial gastroenteritis in a convalescent hospital: a possible new serotype. *J. Infect. Dis.*, 143, 791-795.
- 8) Greenberg, H.B., Valdesuso, J., Yolken, R.H., Gangarosa, E., Gary, W., Wyatt, R.G., Konno, T., Suzuki, H., Chanock, R.M., Kapikian, A.Z. (1979): Role of Norwalk virus in outbreaks of nonbacterial gastroenteritis. *J. Infect. Dis.*, 139, 564-568.
- 9) WHO scientific working group (1980): Rotavirus and viral diarrhoeas. *Bull. Wld Hlth Org.*, 58, 181-198.
- 10) Morens, D.M., Zweighaft, R.M., Vernon, T.M., Gary, G.W., Eslien, J.J., Wood, B.T., Holman, R.C., Dolin, R. (1979): A waterborne outbreak of gastroenteritis with secondary person-to-person spread: association with a viral agent. *Lancet*, 1, 964-966.

昭和55年度におけるインフルエンザの血清疫学調査

村尾美代子 戸谷 和男 岡田正次郎
渋谷 修* 白石 久明*

はじめに

1980-1981年の世界におけるインフルエンザの流行は、前年と同様A(H3N2)型とA(H1N1)型およびB型による流行であった。分離株の抗原分析結果からA(H3N2)型では、A/Texas/1/77とA/Bangkok/1/79の両株に抗原的に関係する株が主に分離されており、A(H1N1)型はA/Brazil/11/78と抗原的に僅かに違いのあるA/England/333/80、A/India/6263/80型が主な分離株であった。しかし、B型はprototypeのB/Singapore/222/79と抗原的に同一であることが確認されている。¹⁾

我が国においても1980-1981年には3つの型が流行し、その規模は前年をやや上廻った。全国のウイルス分離状況については、H1N1型が34県6市とほとんど全国的に分離されたのに対してH3N2型は6県2市、B型は11県1市から分離された。これらの分離株は抗原分析の結果、H3N2型はワクチン株のA/Bangkok/1/79と同型であり、H1N1型はその大部分はA/熊本/37/79と同じであるが、10%程度はA/England/333/80型変異株であることが判明し、また、B型はB/Singapore/222/79と同型であることが明らかにされた。^{2, 3)}

埼玉県における昭和55年度のインフルエンザの流行は、昨年と同時期の1981年1月下旬~3月下旬に発生した。しかし流行規模は昨年より小さく、また、分離された株もH3N2型とH1N1型でB型は確認されなかった。

昭和54年度にひきつづき55年度の流行状況を血清疫学的、ウイルス学的に調査したので報告する。

調査方法

1 調査対象及び検体採取時期

1) 昭和55年度インフルエンザ(以下「イ」と略す)血

清疫学調査対象に3市(秩父市、羽生市、浦和市)の小・中学生348人を選び、流行前(1980年10月-1981年1月)と流行後(1981年3月)の2回同一対象者より採血を行った。なお、貧血調査の目的で1980年7月に採血された荒川村の小学生270人も流行前の調査対象に加えた。

2) 「イ」様患者(小学生)8人を対象に1981年1-2月にベア血清および咽頭ぬぐい液を採取した。

3) 厚生省の昭和55年度「イ」流行予測の目的で1980年4月-1981年3月に浦和市T小児科医院において採取された咽頭ぬぐい液51検体をウイルス分離材料とした。

2 かぜ欠席並びにワクチン歴調査

1) 県衛生部が収集した小・中学校における1981年1-3月の「イ」様疾患による学級閉鎖発生届を「イ」流行調査資料とした。

2) 昭和55年度血清疫学調査対象学年に対してワクチン接種(以下ワ接種と略す)時期及び接種回数を個人別に調査した。

昭和55年度に接種されたワクチンは、A/熊本/37/79(H1N1)200CCA、A/Bangkok/1/79(H3N2)200CCA、B/神奈川/3/76300CCA計700CCAである。

3 検査方法

1) HI試験: マイクロタイター法に従った。HA抗原は武田薬品製のA/熊本/37/79(H1N1)、A/Bangkok/1/79(H3N2)、B/神奈川/3/76を用いた。

2) CF試験: マイクロタイター法に従った。

3) RNP抗体検査: 寒天ゲル内沈降反応(AGPテスト)を用い方法は前報⁴⁾に従った。

4) ウイルス分離: 前報⁴⁾に従った。

* 埼玉県衛生部保健予防課

調査成績

1 小・中学校のインフルエンザ様疾患による学級閉鎖発生状況

昭和55年度における「イ」様疾患による学級閉鎖の発生は、1981年1月下旬の神川村渡瀬小、狭山市入間川小、浦和市別所小および木崎小の4校における同時発生が最初である。その後2月上旬に狭山市を中心とした入間教育事務所管内の小学校に目立った発生が認められた。しかし広域にわたる拡がりの様相はほとんどみられず、2月下

旬から3月上旬にかけて漸く県下の各地に学級閉鎖の発生が見受けられた。しかもその数は極めて少なく3月下旬に急激な減少と共に流行は終息した。この間の小・中学校学級閉鎖発生率は0.8%（176）と過去3年間のうち最も低く、その低い発生率の変化は小学校にみられ、昨年の約1/4であった。地域的には入間教育事務所管内の発生が最も高かったが、その発生数（68）も昨年の約1/2の低下であり、今回著明に減少したのは北足立北部及び秩父地区であった（表1）。

表1 昭和55年度インフルエンザ流行による小・中学校の学級閉鎖発生状況

学校	教育事務所	全学級数	閉鎖学級数		56年1月			56年2月			56年3月		
			数	%	上	中	下	上	中	下	上	中	下
小 学 校	北足立南部	4,303	38	0.9			2	8	6	8	6	8	
	北足立北部	2,257	6	0.3					1	3	2		
	入間	3,719	68	1.8			1	27	16	13	4	6	1
	比企	520	2	0.4						1	1		
	秩父	374	2	0.5							2		
	児玉	335	16	4.8			1	1	3	4	5	2	
	大里	926	7	0.8						1	4	1	1
	北埼玉	622		0									
	葛小計	3,483	15	0.4						1	7	5	2
小計	16,539	154	0.9			4	36	27	37	29	19	2	
中 学 校	北足立南部	1,635	3	0.2					2	1			
	北足立北部	837		0									
	入間	1,318	9	0.7				2	3		4		
	比企	182		0									
	秩父	164		0									
	児玉	121	5	4.1					3		2		
	大里	361	5	1.4						3	2		
	北埼玉	232		0									
	葛小計	1,185		0									
中計	6,035	22	0.4				2	8	4	8			
合計	22,574	176	0.8			4	38	35	41	37	19	2	

2 ウイルス分離状況

昭和55年度厚生省の「イ」流行予測事業に基づいて採取された咽頭ぬぐい液51検体についてウイルス分離を試みたところ、4株分離され同定試験の結果4株ともA(H3N2)型であることが確認された。これらの分離株は1981年2月3～17日の流行期中に散発例の保育所、幼稚園児（3～6歳）の咽頭ぬぐい液から分離された。

一方、集団発生例からのウイルス分離は2校について実施した。まず1月30日学級閉鎖の発生した狭山市入間小

3年1組における「イ」様患者5人を対象にウイルス分離を試みたが全例不成功に終わった。しかし血清学的にA(H1N1)型の感染であることが証明された（後述）。次に、2月3日新座市新堀小5年1組に学級閉鎖が発生し、「イ」様患者3人について分離を試みた結果1人からA(H1N1)型株が分離された。今回のふ化鶏卵によるA(H1N1)型株の分離は初代で陰性、2代でHA価1:32, 3代で1:256と過去のA(H3N2)型及びA(H1N1)型株の分離に比べ著しく困難であった。これは今季流行のH1N1型株の特性でないかと思われる。

A (H3N2) 型及び A (H1N1) 型分離株の抗原分析の結果は表 2, 表 3 に示される様にワクチン株の A / Bangkok / 1 / 7 9 (H2N2), A / 熊本 / 3 7 / 7 9 (H1N1) の各株と抗原的に大きい差違は認められなかった。

表 2 1981年AH3N2型分離株の抗原分析

抗 原	フェレット抗血清				
	A / Texas / 1 / 7 7	A / 東 京 / 1 / 7 7	A / Bangkok / 1 / 7 9	A / 愛知 / 1 / 8 0	A / 鹿児島 / 1 1 / 8 1
A / Texas / 1 / 7 7	1,024	2,048	256	512	4,096
A / 東京 / 1 / 7 7	512	1,024	256	256	2,048
A / Bangkok / 1 / 7 9	1,024	1,024	512	1,024	2,048
A / 愛知 / 1 / 8 0	1,024	1,024	512	1,024	2,048
A / 鹿児島 / 1 1 / 8 1	256	512	256	256	2,048
A / 埼玉 / 1 / 8 1	512	1,024	512	512	2,048
A / 埼玉 / 2 / 8 1	512	1,024	512	512	2,048
A / 埼玉 / 3 / 8 1	1,024	1,024	1,024	512	2,048
A / 埼玉 / 5 / 8 1	256	1,024	512	256	1,024

国立予防衛生研究所資料

表 3 1981年AH1N1型分離株の抗原分析

抗 原	フェレット抗血清			
	A / USSR / 1 9 2 / 7 7	A / Brazil / 1 1 / 7 8	A / 熊本 / 1 3 7 / 7 9	A / 京都 / 1 / 8 1
A / USSR / 9 2 / 7 7	512	128	512	256
A / Brazil / 1 1 / 7 8	128	256	512	256
A / 熊本 / 3 7 / 7 9	64	64	512	128
A / 京都 / 1 / 8 1	128	128	512	512
A / 埼玉 / 4 / 8 1	32	32	256	512

国立予防衛生研究所資料

3 小・中学生における流行前のHI抗体保有状況 株に対する6.4倍以上のHI抗体保有状況を表4に示し昭和55年度, 流行前の小・中学生における各ワクチン た。

表 4 昭和55年度, 小・中学生のインフルエンザ流行前におけるHI抗体保有状況

調査対象	採血時期	例数	抗 原	H I 抗 体 価							≥ 6.4 抗体保有率 (%)	平均 H I 抗体価	ワクチン接種率 (%)		
				<32	32	64	128	256	512	1,024				2,048	4,096
秩父市 皆野小 4年生	55.10.8	93	A / 熊本 / 3 7 / 7 9	11	30	32	20					88.2	100.8	80.4	
			A / Bangkok / 1 / 7 9	14	26	17	27	8	1			57.0	60.3		
			B / 神奈川 / 3 / 7 6	15	25	29	23	1				57.0	51.2		
羽生市 千代田中 1-2年生	55.12.4*	116	A / 熊本 / 3 7 / 7 9	1	9	14	20	44	28			91.4	203.6		
			A / Bangkok / 1 / 7 9	2	18	51	35	9	1			98.3	153.7		
			B / 神奈川 / 3 / 7 6	4	25	59	24	4				96.6	127.2		
浦和市 南浦和小 3年生	56.1.18*	139	A / 熊本 / 3 7 / 7 9	3	6	15	31	53	29	2		93.5	202.3	83.2	
			A / Bangkok / 1 / 7 9	3	4	2	19	41	54	8	6	2	95.0		349.3
			B / 神奈川 / 3 / 7 6	4	2	9	49	47	26	1	1		95.7		206.3

*ワクチン接種後

ワ接種後採血対象校の抗体保有率は3株とも90%以上と非常に高く、平均抗体価もいずれの株に対して $\geq 1:128$ と高かった。一方、ワ接種前採血対象校の皆野小はワ接種前にも拘わらずA/熊本/37/79(H1N1)に対し

て88.2%と高く、A/Bangkok/1/79(H3N2)およびB/Singapore/222/79に対しては57%とワ接種後採血対象校に比べるとはるかに低かった。一方、荒川小における流行前(ワ接種前採血)の6.4倍以上

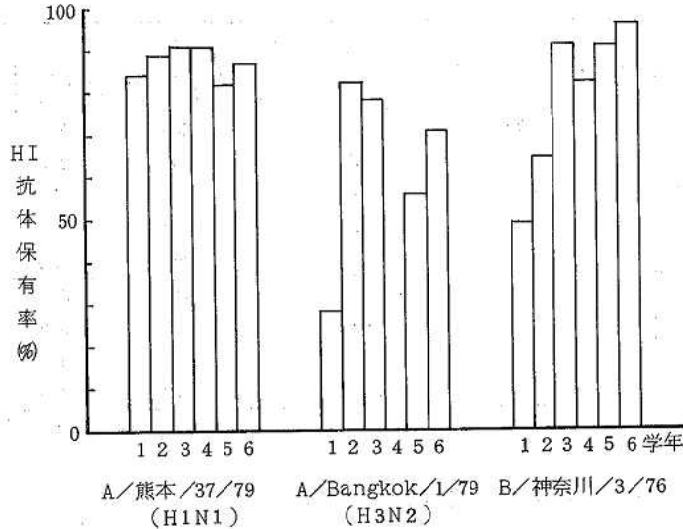


図1 昭和55年度、荒川東小の学年別HI抗体保有状況(HA価 $\geq 1:64$)

抗体保有率を学年別に検討してみた(図1)。A/熊本/37/79(H1N1)に対しては全学年にわたり80%以上と高率であった。しかしA/Bangkok/1/79(H3N2)に対して1年生は28.9%と著しく低かった。B/神奈川/3/76に対しては低学年に低い傾向はみられたが、高学年においてはA(H1N1)型と同様に高かった。これらの結果からA(H3N2)型に対する抗体保有がA(H1N1)型及びB型より全般に低い傾向にあるのは、1977年におけるA(H1N1)型出現直後の1979年にA(H3N2)型の一時消失および最近の散

発的発生などによるものと考えられる。

4 南浦和小学校における流行調査

昭和55年度調査対象校のうち秩父市皆野小および羽生市千代田中においては、各調査対象学年のかぜ様欠席による異常増加ならびに、感染者(血清学的)が1人も確認されなかったことから両校の対象者間に流行がなかったものと理解される。一方、南浦和小においては調査対象学年である3年生にかぜ欠席の増加がみられたので更に詳しい調査を行った。

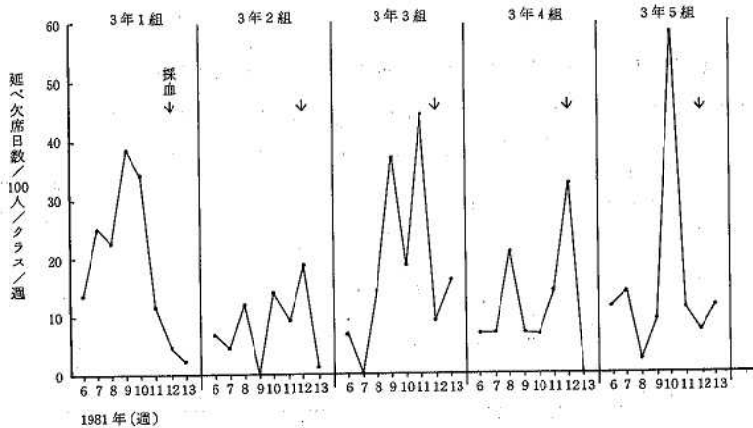


図2 南浦和小学校の週別かぜ欠席状況(1981年第6週一第13週)

1) かぜ欠席状況

クラス別週別かぜ欠席状況を図2に示した。かぜ欠席に異常増加(100人/延べ欠席日数/クラス/週の値:40以上)が認められたのは3組の第11週と5組の第10週であり、最高日別かぜ欠席率もそれぞれ、25.6%、16.3%(異常値15%以上)と高く3組においては第11週内に学級閉鎖が実施された。

2) 流行前のH I抗体保有状況

A/熊本/37/79(H1N1), A/Bangkok/1/79(H3N2)およびB/神奈川/3/76に

対する6.4倍以上のH I抗体保有率をクラス別に調べた結果、A/熊本に対して82.8-100.0%, A/Bangkokに対して86.2-100.0%, B/神奈川に対して93.1-100.0%といずれのクラスも極めて高かった。

3) H I抗体価の変動

流行前と後における各ワクチン株に対するH I価の変動をクラス別に検討した結果、A/熊本/37/79(H1N1)に対するH I抗体分布の変動が1組と3組に僅かにみられたが、他のクラスにおいてはほとんど変動しないかむしろ低いH I価の方へ移動している(図3)。

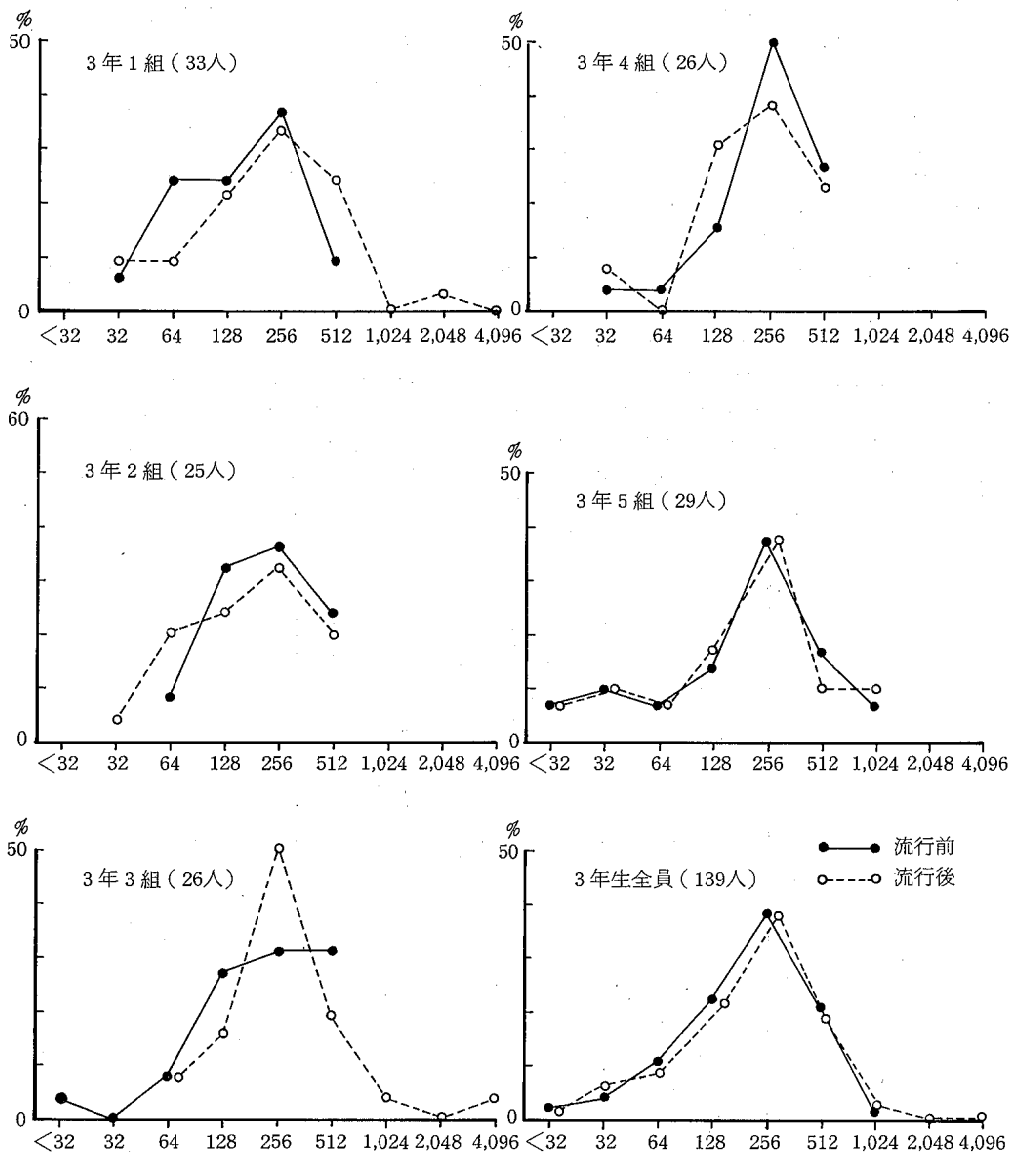


図3 昭和55年度南浦和小学校, クラス別インフルエンザH I抗体分布
抗原: A/熊本/37/79(H1N1)

A/Bangkok/1/79 (H3N2) および B/神奈川/3/76 に対する抗体分布の変動はほとんどみられなかった。次に、各クラス内の「イ」感染者調査を流行前と後の HI 抗体価に 4 倍以上の上昇を示した者を以って行った結果、A/熊本/37/79 (H1N1) に対しては 1 組において 33 人中 6 人 (18.2%)、3 組に 26 人中 5

人 (19.2%) が確認された。しかし、他クラスからは 1 人も検出されなかった。A/Bangkok/1/79 (H3N2) に対しては 2 組にたった 1 人確認されたのみで、B/神奈川/3/76 に対しては 1 人も検出されなかった。

4) 感染者と欠席 感染者と欠席との関係は表 5 に示した。100 人/延べ

表 5 南浦和小 3 年生の感染と欠席状況

学年組	例数	欠 席 状 況		A 熊本/37/79 (H1N1) に対する		感染者と欠席の関係	
		延べ欠席日数 / 100 人 / クラス/週	欠席のピーク (週)	≥ 4 抗体上昇者数 (%)	感 染 者 欠席ピーク週の欠席者数	感染者のピーク週以外の欠席	
3-1	33	38.6	9	6 (18.2)	0/3	5人:第10週 1人:欠席なし	
3-2	25	18.6	12	0			
3-3	26	44.2	11	5* (19.2)	3/6	2人:第9,10週	
3-4	26	32.6	12	0			
3-5	29	58.1	10	0	0/8		

* 5 人中 1 人は A 型 C F 価 ≥ 4 上昇者

欠席日数/クラス/週の価が 40 以上を示したのは、3 組と 5 組である。しかし感染者は 3 組に 5 人、5 組においては 1 人も検出されていない。また 1 組には欠席の異常が認められなかったにも拘わらず 6 人の感染者が証明されている。感染者の欠席が週別欠席のピークと一致しているのは

3 組の 5 人中 3 人においてのみで、1 組の感染者 6 人もすべてピーク時以外の欠席であることが判明された。

5) 感染者の HI 抗体価

A (H1N1) 型感染者の証明された 3 年 1 組と 3 組の流行前と後における A/熊本/37/79 に対する HI 価

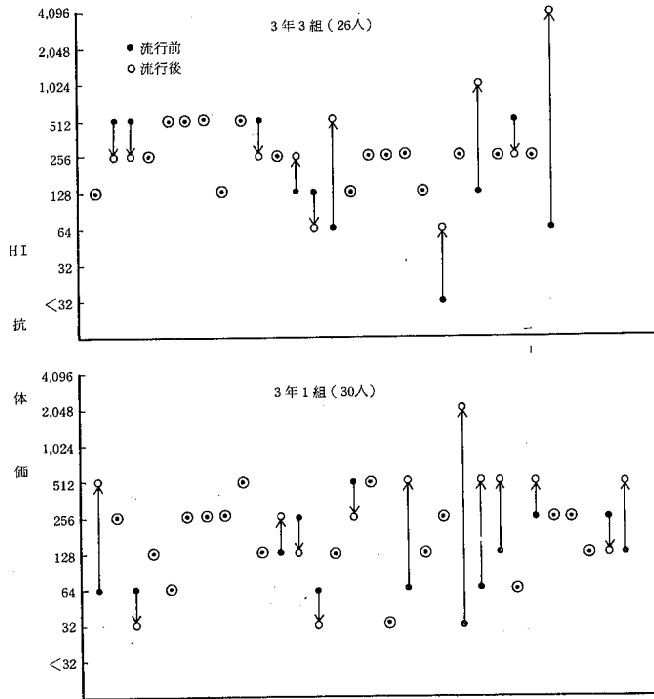


図 4 昭和 55 年度南浦和小における流行前と後の A/熊本/37/79 (H1N1) に対する HI 抗体価の変動

を図4に示した。両クラスにおいて4倍以上の抗体価上昇を示した者(10人)は流行前のHI価がすべて $\leq 1:128$ であった。これをHI価レベル別にみると $1:32$ は $1/1$, $1:32$ は $1/2$, $1:64$ は $5/9$ (55.6%), $1:128$ は $3/15$ (20.0%)とHI価レベルの上昇ともなつて感染者に減少の傾向がみられ、HI価

$1:64$ と $\geq 1:128$ の間に明らかに有意差が認められた($P < 0.05$)。

5 集団発生例

1981年1-2月に集団発生の起きた小学校2校についてウイルス分離および血清学的検索を行った。表6は狭

表6 狭山市入間川小学校のインフルエンザウイルス分離および血清学的成績

患者 No	氏名	学年組	採血 時期	HI抗体価			CF価		AGP		ウイルス 分離
				A/熊本 37/79 (H1N1)	A/Bangkok 1/79 (H3N2)	B/神奈川 3/76	A型	A型	B型		
1	三〇純〇	3-1	1*	64	64	32	< 4	-	-	-	
			2	128	128	32	4	-	-		
2	大〇美〇	3-1	1	32	128	64	< 4	-	-	-	
			2	512	128	64	16	+	-		
3	門〇文〇	3-1	1	32	64	32	< 4	-	-	-	
			2	256	64	64	32	+	-		
4	高〇俊〇	3-1	1	64	256	128	8	-	-	-	
			2	256	128	128	8	+	-		
5	柴〇 繭	3-1	1	32	32	64	< 4	-	-	-	
			2	64	64	64	< 4	+	-		

* 採血時期 ①56. 1. 30 ②56. 2. 10

山市入間川小3年1組の結果である。ウイルス分離は5例とも陰性であった。しかし血清学的にA/熊本/37/79(H1N1)に対して5人中3人の感染者が確認された。

A型CF試験で5人中2人, A型AGPテストで5人中4人のA型感染を証明することが出来た。表7は, 新座市新堀小5年1組の結果である。ウイルス分離を試みた結果4

表7 新座市新堀小学校のインフルエンザウイルス分離および血清学的成績

患者 No	氏名	学年組	採血 時期	HI抗体価			CF価		AGP		ウイルス 分離
				A/熊本 37/79 (H1N1)	A/Bangkok 1/79 (H3N2)	B/神奈川 3/76	A型	A型	B型		
1	村〇直〇	5-1	1*	512	64	64	< 4	-	-	-	
			2	512	128	64	< 4	-	-		
2	荒〇 介	5-1	1	64	64	64	< 4	-	-	+	
			2	128	64	64	16	+	-		
3	荒〇末〇	5-1	1	128	64	32	< 4	-	-	-	
			2	128	128	64	8	+	-		
4	荒〇朋〇	5歳	不能							-	

* 採血時期 ①56. 2. 3 ②56. 2. 20

人中1人からA(H1N1)型株が分離された。先に述べた様に極めて分離が難しかった。一方, HI試験の結果からはA型, B型の感染を確認することが出来なかったが,

CF試験およびAGPテストにおいてA型感染が確認された。これらの成績から両校の集団発生はA(H1N1)型による流行であったことが明らかにされた。

考 察

インフルエンザA型亜型における過去の流行では、新しい亜型の抗原変異株が出現すると旧型株が駆逐され新旧、型の交代がみられて来た。しかし、A(H3N2)型は1977年A(H1N1)型の出現以来現在においてもなおA(H1N1)型と平行して世界的に流行していることは、インフルエンザ流行史上類のない現象として注目されている。過去にも新型の出現後、旧型による感染例について若干の報告^{5,6)}がある。しかし、今回のA(H3N2)型の様に流行の形で発生が持続している例は極めて稀である。ただ、1970-1971年、A(H3N2)型出現の2年後にアマゾンの人里離れた部族集団でA(H2N2)型の流行を血清学的に推定した報告⁷⁾がある。

A(H1N1)型およびA(H3N2)型のこれまでの流行は世界各国においても、また我が国においてもA(H1N1)型の方が優位であり、A(H3N2)型は散发あるいは局地的流行が一般の傾向であった。

埼玉県における昭和54年度、⁴⁾55年度の流行調査においてA(H3N2)型感染が証明されたのは、両年度における幼児の散发例からのウイルス分離と55年度南浦和小における僅か1人の血清学的確認例に過ぎなかった。一方、小・中学生のA(H3N2)型に対するHI抗体保有状況は、今調査における荒川小のワ接種前のA/Bangkok/1/79(H3N2)に対する抗体保有状況から1年生が特に低率であったことが明らかにされ、また、南浦和小3年生および千代田中1、2年生においては、流行前に90%以上の高い抗体保有率(≧1:64)を示していたことから、小学校低学年の一部を除きA(H3N2)型に対する免疫はかなり充足されていたと考えられる。これは1968年以来A香港型の流行が持続したため、現在の小・中学生の年齢ではほとんど全員がこの型の罹患経験をもっており、しかも中学生および小学校高学年はA(H3N2)型の頻回の抗原変異による変異株の反復感染を受け、そのためこの型に対してかなり反応域の広い抗体を保有しているものと推測される。しかし、低年齢層における抗体保有率の低い傾向は、1975年におけるA/Victoria/75型とA/東京/75型の出現以来、これ以上の大きい抗原変異を示した株も現れておらず、また、1977年A(H1N1)型の流行以来A(H3N2)型の一時的消失、そして最近では比較的小規模流行で経過していることなどから、感染の機会が少なくなったためと考えられる。これらのことからA(H3N2)型は就学前の新しい感受性層および小学校低学年が主な感染の対象となる可能性は予測される。

A(H3N2)型ウイルスの特性として抗原変異の頻度が極度に高いこと⁸⁾、他の亜型に比べてA(H3N2)型ウイルスの宿主域が広い⁹⁾ことがあげられる。これらの性

質がA(H3N2)型流行の延命にどのように関与しているか明らかでないが、今後のA型亜型の流行はA型ウイルスの本質を知る上で様々な問題を提示するであろう。

一方、2校の小学校における集団発生の起因ウイルスが本調査によってA(H1N1)型であったことが判明され、また、調査対象校の南浦和小においてもA(H1N1)型の小流行が確認されたことから、今年度の主流はA(H1N1)型によるものと推測される。しかし、その流行規模が過去3年間で最低であったのは、小・中学生の流行前におけるA/熊本/37/79(H3N2)に対する抗体保有率が極めて高かったことと、流行株がワクチン株と一致していた点でワクチンの相乗効果によって免疫が一そう強化されたためと考えられる。また、旧来のA(H3N2)型¹⁰⁾およびこれまで分離されていたA(H1N1)型株における卵胎児に対する増殖性は非常に良く、たやすくウイルスが分離されていた。それに対して今回のA(H1N1)型分離株は、ふ化鶏卵培養の継代3代で漸くHA価1:256に達した。このA(H1N1)型株の卵胎児に対する増殖性の変化は注目される。

インフルエンザB型については、1977年の大流行以来、流行周期から1980年頃の流行は予想されており、事実全国的に1980年および1981年に散見された。しかし、流行規模は1973年、1977年のそれと比べるとはるかに小さい。また、埼玉県におけるB型の発生は、54年度調査において幼児の散发例からのウイルス分離と小学生2人の血清学的確認例に留まり、今回の調査からB型の感染は全く証明されなかった。

南浦和小にみられたかぜ欠席の異常増加の原因が、一部はA(H1N1)型感染によることが証明された。しかし、3年5組については血清学的にインフルエンザの感染が否定されたため、インフルエンザ以外の他の呼吸器系疾患^{11,12)}による可能性が考えられる。今後、インフルエンザと共に冬期流行する呼吸器系疾患の病原を検索し、かぜ様疾患のより正確な流行像のは握に努めねばならない。

要 約

- 1) 埼玉県における昭和55年度インフルエンザの流行は1981年1月下旬-3月下旬に発生し、小・中学校学級閉鎖発生率は0.8%で過去3年のうち最低であった。
- 2) 分離されたウイルス株はA(H1N1)型とA(H3N2)型であり、抗原的にはワクチン株のA/熊本/37/79(H1N1)およびA/Bangkok/1/79(H3N2)と同型であった。
- 3) 1981年のA(H1N1)型分離株はふ化鶏卵培養における増殖が極めて悪かった。
- 4) 調査対象となった小学生の流行前(ワ接種後)におけ

るワクチン株に対するHI抗体保有率(64倍以上)は、いずれの株に対しても90%以上であった。

5) 南浦和小における3年1組と3組にA(H1N1)型の小流行が認められ、それぞれの感染率は18.2%と19.2%であった。

6) 調査対象校においてB型の感染は認められなかった。

文 献

- 1) WHO (1981): Recommended composition of influenza vaccines for use in the 1981-1982 season. *Wkly Epidem. Rec.*, 56, 57-64.
- 2) 武内安恵(1981): 1980年-1981年のインフルエンザの流行について。病原微生物検出情報, 15号, 2-3.
- 3) 厚生省保健情報課(1981): インフルエンザ様疾患発生報告(最終版)。病原微生物検出情報, 18号, 18.
- 4) 村尾美代子, 森永安司, 戸谷和男, 岡田正次郎, 渋谷修, 白石久明(1980): 昭和54年度におけるインフルエンザの血清疫学的調査研究。埼玉県衛生研究所報, 14, 43-53.
- 5) Van Rooyen, C. E., McClelland, L. & Campbell, E. K. (1949): Influenza in Canada during 1949. *Studies on Eskimo. Canad. J. Publ. Hlth*, 40, 447-456.
- 6) Issacs, A., Hart, R. J. C., & Law,

- V. G. (1962): *Influenza Viruses*, 1957-60. *Bull. Wld Hlth Org.*, 21, 253
- 7) Napiorkowski, P. A., & Black, F. L. (1974): Influenza A in an isolated population in the Amazon. *Lancet*, 2, 1390-1391.
- 8) Schild, G. C., Oxford, J. S., Dowdle, W. R., Coleman, M., Pereira, M. S. & Chakraverty, P. (1974): Antigenic variation in current influenza A viruses: evidence for a high frequency of antigenic drift for the Hong Kong virus. *Bull. Wld Hlth Org.*, 51, 1-11.
- 9) Stuart-Harris, C. H. & Schild, G. C. (1976): *Influenza: the viruses and the disease*. 78-95, Edward Arnold.
- 10) Coleman, M. T. & Dowdle, W. R. (1968): Properties of the Hong Kong Influenza. 1. General characteristics of the Hong Kong virus. *Bull. Wld Hlth Org.*, 41, 415-418.
- 11) WHO(1980): *Viral respiratory diseases*. Technical report series, 642.
- 12) Lennette, E. H. (1981): *Viral respiratory diseases: vaccines and antivirals*. *Bull. Wld Hlth Org.*, 59, 305-324.

埼玉県住民の毛髪中の重金属含有量について

野坂 富雄	森本 功	木村 一宏
大沢 尙	石野 正蔵	鈴木 淳子
渡辺 富士雄	興津 知明	

はじめに

毛髪中の重金属含有量を知ることは、生活環境の汚染、栄養の相違、等を知る指標として有用と思われる。

すでに^{1,2)}、本県住民の毛髪中の水銀量について報告した。今回は、銅、鉛、ニッケル、カドミウムの4金属について、埼玉県住民の毛髪中の含有量を、昭和52, 53, 54の3年間にわたって調査した。その結果を報告する。

方 法

1 試料

性別、年齢(20歳以上)、住所の判明している一般県民の毛髪を、理、美容所で採取した。その内訳は次の通りである。

昭和52年度(400名)

与野市 男性100名 女性100名 計200名

吉田町 男性100名 女性100名 計200名

昭和53年度(350名)

与野市 男性100名 女性100名 計200名

吉田町 男性 50名 女性100名 計150名

昭和54年度(450名)

与野市 男性100名 女性100名 計200名

吉田町 男性150名 女性100名 計250名

2 試料の調整

採取した毛髪を、ハサミを用いて、3~5mm程度の長さにて切った。切った毛髪1名分から1gをとり、10名分の毛髪を混和した。次に、この毛髪を、中性洗剤(商品名、ライボンF、液状)の5%水溶液で10分間攪拌し、蒸留水で洗った。ついで1%EDTA水溶液で10分間攪拌し、蒸留水で洗った。さらにアセトンで洗った後、60±5℃に保った熱風乾燥器中で、5時間乾燥し、分析用試料とした。この試料を、デシケーター中に保存した。

3 試薬

硝酸、過塩素酸は、和光純薬製の精密分析用を用いた。銅、鉛、ニッケル、カドミウムの各標準液は、和光純薬製の原子吸光分析用標準液を希釈して用いた。

アセトンは、和光純薬製の(特級)を用いた。

1%EDTA水溶液は、同仁薬化学研究所製のエチレンジアミン4酢酸2ナトリウム2水塩の(特級)を、蒸留水で1%溶液に調整して用いた。

4 定量法

毛髪試料1gを精秤し、硝酸、過塩素酸を用い、常法に従い湿式分解を行った。分解液を蒸留水で正確に25mlとし、これを試験溶液として、日立170-70型ゼーマン原子吸光装置を用いて測定した。

成績および考察

1 分析結果の概要

埼玉県住民の毛髪中の、銅、鉛、ニッケル、カドミウムの含有量を測定した結果を、表1に示した。

毛髪中の含有量は、男性、女性とも、銅>鉛>ニッケル>カドミウムの順であった。

3年間の平均値を、小泉ら³⁾の東京都民の毛髪の平均値、山田ら⁴⁾の京都府民の毛髪の平均値、寺岡ら⁵⁾の日本各地の毛髪の平均値と比較してみると、銅は、男性13μg/g、女性25μg/gであり、これらの報告の値(東京都民、男性16.1μg/g、女性2.6μg/g、京都府民、男性9.9μg/g、女性14.8μg/g、日本各地の毛髪の平均値、男性17μg/g、女性31μg/g)とはほぼ等しかった。鉛は、男性5.7μg/g、女性3.6μg/gであり、京都府民の値(男性6.9μg/g、女性6.9μg/g)とはほぼ等しかった。ニッケルは、男性0.26μg/g、女性1.32μg/gであり、日本各地の毛髪(男性0.50μg/g、女性1.6μg/g)とはほぼ等しかった。カドミウムは、男性0.15μg/g、女性0.28μg/gであり、東京都民の値(男性0.30μg/g、女性0.46μg/g)とはほぼ等しかった。

表1 毛髪中の重金属含有量分析結果

(1) 銅

(単位：μg/g)

年度	地域	男 + 女			男			女		
		例数	最低～最高	平均	例数	最低～最高	平均	例数	最低～最高	平均
昭和52年度	与野市	20	13～60	23	10	13～21	15	10	16～60	30
	吉田町	20	8～24	14	10	8～16	11	10	11～24	17
	総数	40	8～60	19	20	8～21	13	20	11～60	24
昭和53年度	与野市	20	10～83	21	10	10～14	12	10	16～83	30
	吉田町	15	8～32	15	5	8～11	10	10	11～32	19
	総数	35	8～83	18	15	8～14	11	20	11～83	25
昭和54年度	与野市	20	13～65	26	10	13～29	19	10	15～65	33
	吉田町	25	9～36	15	15	9～14	11	10	10～36	18
	総数	45	9～65	21	25	9～29	15	20	10～65	26
昭和52～54年度	与野市	60	10～83	23	30	10～29	15	30	15～83	31
	吉田町	60	8～36	15	30	8～16	11	30	10～36	18
	総数	120	8～83	19	60	8～29	13	60	10～83	25

(2) 鉛

(単位：μg/g)

年度	地域	男 + 女			男			女		
		例数	最低～最高	平均	例数	最低～最高	平均	例数	最低～最高	平均
昭和52年度	与野市	20	2.2～17.0	6.5	10	3.0～17.0	8.9	10	2.2～7.1	4.0
	吉田町	20	2.2～28.0	6.0	10	3.5～28.0	8.8	10	2.2～4.4	3.2
	総数	40	2.2～28.0	6.3	20	3.0～28.0	8.9	20	2.2～7.1	3.6
昭和53年度	与野市	20	1.6～7.4	3.5	10	2.1～7.4	4.1	10	1.6～6.6	2.8
	吉田町	15	1.1～60.0	8.5	5	3.1～29.0	8.9	10	1.1～60.0	8.0
	総数	35	1.1～60.0	6.0	15	2.1～29.0	6.5	20	1.1～60.0	5.4
昭和54年度	与野市	20	0.8～4.1	1.8	10	0.8～4.1	2.0	10	0.8～3.9	1.5
	吉田町	25	0.2～19.0	1.9	15	0.4～4.5	1.5	10	0.2～19.0	2.3
	総数	45	0.2～19.0	1.9	25	0.4～4.5	1.8	20	0.2～19.0	1.9
昭和52～54年度	与野市	60	0.8～17.0	3.9	30	0.8～17.0	5.0	30	0.8～7.1	2.8
	吉田町	60	0.2～60.0	5.5	30	0.4～29.0	6.4	30	0.2～60.0	4.5
	総数	120	0.2～60.0	4.7	60	0.4～29.0	5.7	60	0.2～60.0	3.6

(3) ニッケル

(単位: $\mu\text{g}/\text{g}$)

年度	地域	男+女			男			女		
		例数	最低～最高	平均	例数	最低～最高	平均	例数	最低～最高	平均
昭和52年度	与野市	20	0.09～2.40	0.77	10	0.09～0.45	0.25	10	0.60～2.40	1.29
	吉田町	20	0.07～1.10	0.42	10	0.07～0.23	0.15	10	0.38～1.10	0.68
	総数	40	0.07～2.40	0.60	20	0.07～0.45	0.20	20	0.38～2.40	0.99
昭和53年度	与野市	20	0.05～2.80	0.83	10	0.05～1.70	0.35	10	0.44～2.80	1.30
	吉田町	15	0.07～1.50	0.51	5	0.07～0.44	0.18	10	0.39～1.50	0.84
	総数	35	0.05～2.80	0.67	15	0.05～1.70	0.27	20	0.39～2.80	1.07
昭和54年度	与野市	20	0.16～2.72	1.06	10	0.16～0.44	0.30	10	0.96～2.72	1.81
	吉田町	25	0.02～3.56	1.16	15	0.02～1.94	0.30	10	0.70～3.56	2.01
	総数	45	0.02～3.56	1.11	25	0.02～1.94	0.30	20	0.70～3.56	1.91
昭和52～54年度	与野市	60	0.05～2.80	0.89	30	0.05～1.70	0.30	30	0.44～2.80	1.47
	吉田町	60	0.02～3.56	0.70	30	0.02～1.94	0.21	30	0.38～3.56	1.18
	総数	120	0.02～3.56	0.79	60	0.02～1.94	0.26	60	0.38～3.56	1.32

(4) カドミウム

(単位: $\mu\text{g}/\text{g}$)

年度	地域	男+女			男			女		
		例数	最低～最高	平均	例数	最低～最高	平均	例数	最低～最高	平均
昭和52年度	与野市	20	0.03～0.38	0.14	10	0.03～0.38	0.15	10	0.05～0.19	0.12
	吉田町	20	0.04～0.32	0.16	10	0.05～0.26	0.14	10	0.04～0.32	0.17
	総数	40	0.03～0.38	0.15	20	0.03～0.38	0.15	20	0.04～0.32	0.15
昭和53年度	与野市	20	0.06～0.67	0.19	10	0.07～0.16	0.11	10	0.06～0.67	0.26
	吉田町	15	0.09～1.60	0.37	5	0.09～0.27	0.19	10	0.15～1.60	0.54
	総数	35	0.06～1.60	0.28	15	0.07～0.27	0.15	20	0.06～1.60	0.40
昭和54年度	与野市	20	0.07～0.37	0.15	10	0.07～0.13	0.10	10	0.10～0.37	0.19
	吉田町	25	0.05～1.17	0.30	15	0.05～0.76	0.20	10	0.19～1.17	0.39
	総数	45	0.05～1.17	0.23	25	0.05～0.76	0.15	20	0.10～1.17	0.29
昭和52～54年度	与野市	60	0.03～0.67	0.16	30	0.03～0.38	0.12	30	0.05～0.67	0.19
	吉田町	60	0.04～1.60	0.28	30	0.05～0.76	0.18	30	0.04～1.60	0.37
	総数	120	0.03～1.60	0.22	60	0.03～0.76	0.15	60	0.04～1.60	0.28

2 性差

図1に、男女別の、毛髪中の重金属含有量の平均値の、年度推移を示した。図から明らかなように、銅、ニッケルは各年度とも、女性の平均値が男性の平均値より高く、女性の含有量が男性の含有量より高い傾向が認められた。鉛

は、52、53年度は、男性の平均値が女性の平均値より高く、54年度は、男性、女性が、ほぼ等しい平均値を示した。カドミウムは、52年度は、男性、女性の平均値が等しく、53、54年度は、女性の平均値が男性の平均値より高かった。

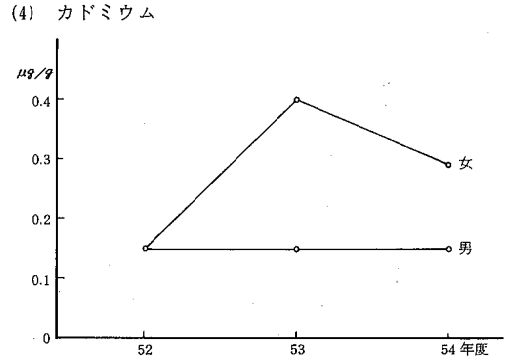
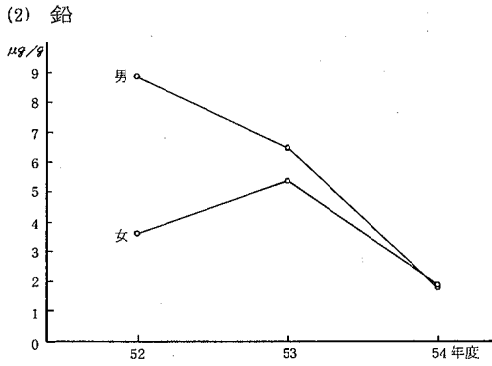
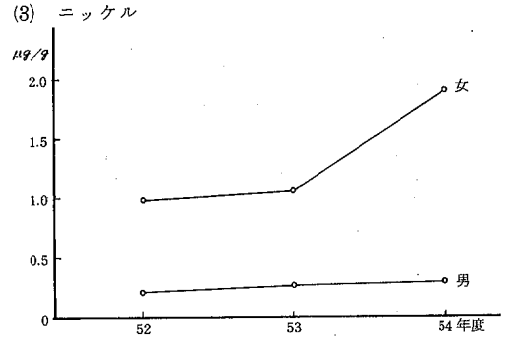
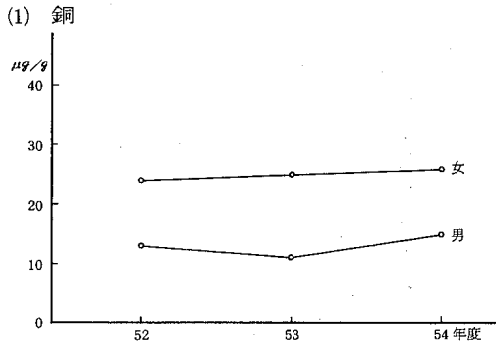


図1 毛髪中重金属含有量平均値の性別年度推移

3 ヒストグラム

図2に、各金属について、毛髪中の含有量に対する出現

度数のヒストグラムを、男女別に作成した。図から明らか
なように、銅、鉛、カドミウムでは、男性、女性とも低含

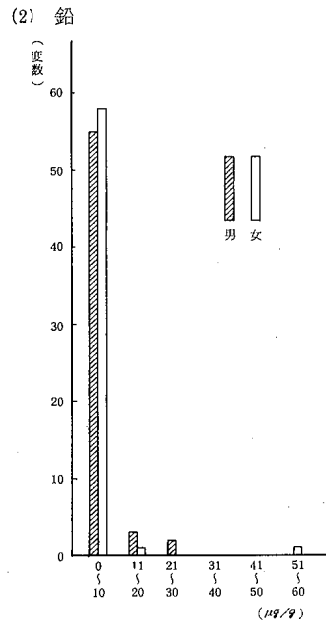
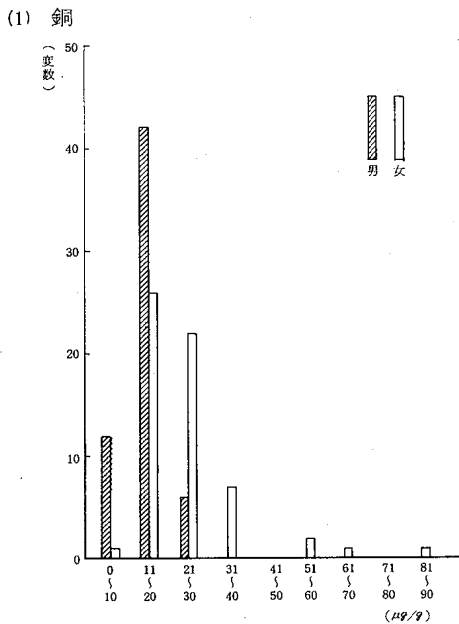
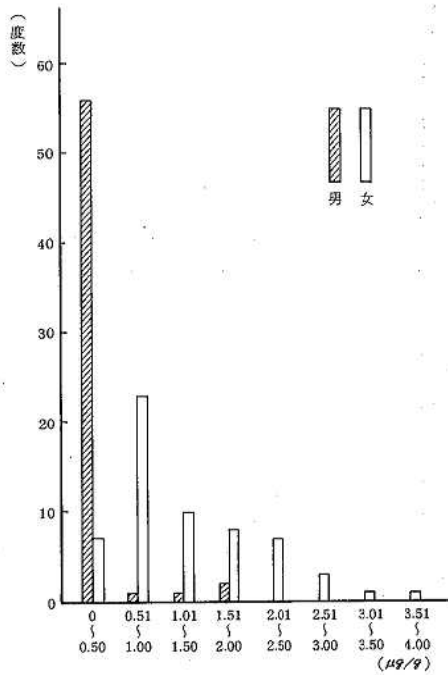


図2 毛髪中の重金属含有量の性別ヒストグラム

(3) ニッケル



(4) カドミウム

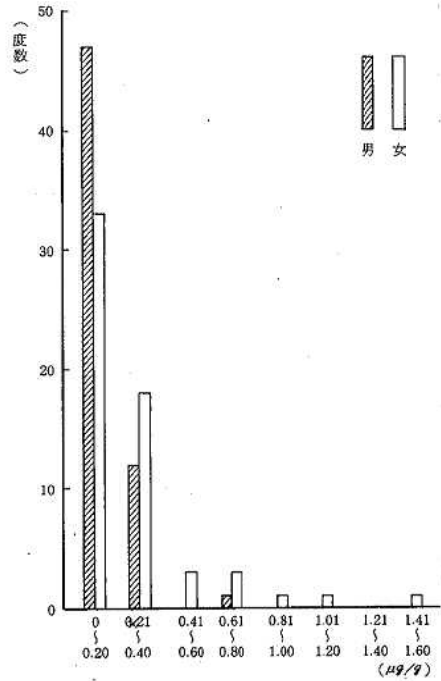


図2 毛髪中の重金属含有量の性別ヒストグラム(つづき)

有量側に出現度数が集中する傾向が認められた。この傾向は、小泉ら³⁾の報告と同様であった。ニッケルでは、男性は低含有量側に出現度数が集中し、女性は低含有量側から高含有量側まで、平均して度数の出現する傾向が認められた。

4) 各金属のヒストグラムは、銅、鉛、カドミウムでは、男性、女性とも低含有量側に出現度数が集中する傾向が認められ、ニッケルでは、男性は低含有量側に出現度数が集中し、女性は低含有量側から高含有量側まで、平均して度数が出現する傾向が認められた。

要 約

埼玉県住民の、毛髪中の重金属含有量のバックグラウンド調査を目的として、与野市および吉田町の、年齢20歳以上の男女計1,200人の毛髪について、銅、鉛、ニッケル、カドミウムの含有量を測定した。

- 1) 毛髪中の重金属含有量は、男性、女性とも、銅>鉛>ニッケル>カドミウムの順であった。
- 2) 毛髪中の重金属含有量の、男女別の、3年間の平均値は、銅は、男性1.3 μg/g、女性2.5 μg/g、鉛は、男性5.7 μg/g、女性3.6 μg/g、ニッケルは、男性0.26 μg/g、女性1.32 μg/g、カドミウムは、男性0.15 μg/g、女性0.28 μg/gであった。既知の報告と比べ、分析結果に著しい差異は認められなかった。
- 3) 性差について検討したところ、銅、ニッケルでは、女性の含有量が男性の含有量より高い傾向が認められた。

文 献

- 1) 高橋秀雄, ほか4名(1975): 埼玉県住民の毛髪中の水銀量(1), 埼玉県衛生研究所報, 9, 64-67.
- 2) 森本功, ほか4名(1976): 埼玉県住民の毛髪中の水銀量(2), 埼玉県衛生研究所報, 10, 63-67.
- 3) 小泉清太郎, ほか5名(1971): 有害性元素に関する衛生化学的研究(第4報), 東京都立衛生研究所研究年報, 23, 101-109.
- 4) 山田秀和, ほか1名(1974): 京都府民の毛髪中の重金属含有量について(第1報), 京都府衛生研究所年報, 19, 42-50.
- 5) 寺岡久之, ほか1名(1977): 頭髪中の無機成分に関する化学的研究, 日本衛生学雑誌, 32, 4, 574-587.

児玉町における井戸水の農薬汚染について

鈴木 敏正 松田 勝彦 広瀬 義文
 鈴木 章 興津 知明

はじめに

埼玉県の水道は昭和54年度で95.2%¹⁾と全国平均を上回る普及率を示しているが、比較的地下水脈に恵まれ、地域によっては清浄な井戸水を利用して健康な生活を営んでいる。しかし、太古から使用してきた井戸でも、浅井戸の場合は周囲の影響を受けやすく、工場および住宅等の進出による排水あるいは事故や廃棄等による有害物質の流出浸透により、地下水の汚染される危険性が高くなってきている。

最近における埼玉県の有害物質による地下水の汚染事例は、昭和50年の飯能市岩沢地区の六価クロム汚染²⁾、53年の日高町田木地区のトリクレン汚染があるが、56年2月児玉町蛭川地区に起きた農薬汚染事件もその一つに挙げられる。

今回の児玉町における井戸水の農薬汚染では、本庄保健所からの依頼により衛生研究所において、井戸水中の異常な刺激臭の汚染物質を追求検索した結果、有機塩素系殺虫剤のBHCが刺激臭の主因物質であることが究明されたので、その水質検査の概要を報告する。

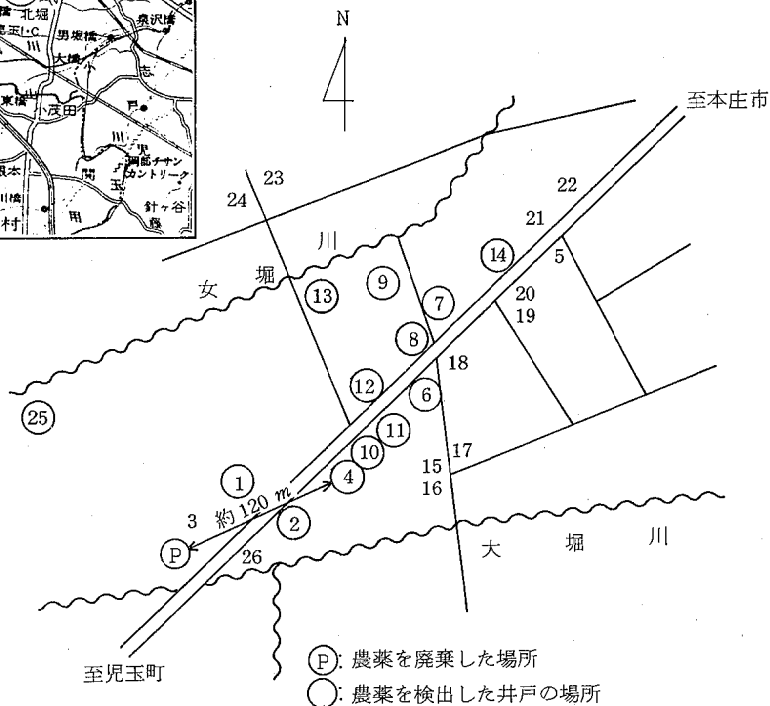
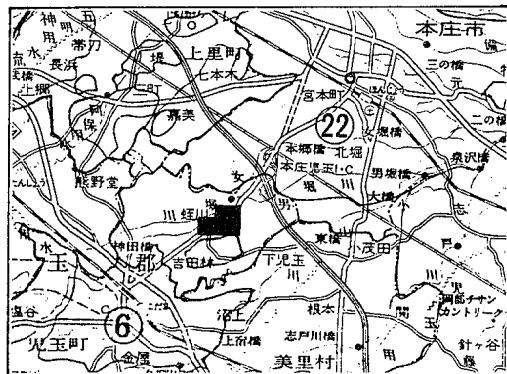


図1 児玉町蛭川地区における採水地点の略図

事件の概況

昭和56年2月9日に児玉町蛸川のA, 同10日に同所Bから, 2月9日頃から飲用にしている井戸水の臭気が異常であり, 味もおかしく, 風呂に沸かすと特異な刺激臭が強くなると本庄保健所に水質検査の依頼が持ち込まれた。保健所の検査結果では大腸菌群は検出されたが, 特異な刺激臭の原因物質は解明されなかった。

その後, 1週間経過後も臭気, 味ともおかしいと連絡から, 2月17日保健所で実地調査するとともに, 図1に示した1から4の地点の井戸水を採水し, 原因物質の解明のため衛生研究所に検体が送付された。さらに, 1カ月経過後も周辺の住民から臭気, 味が異常であるという苦情が相次ぎ, 合計26検体の井戸水の水質検査を行った。一方, 衛生研究所で水質検査の調査中, 2月2日から4日頃, この付近で倉庫に保管してあった古い農薬類およびその空ビン(ホリドールが主)を廃材とともに焼却し, 土中に廃棄したという事実が確認された。保健所としてはこれらの農薬類が流出浸透し, 井戸水を汚染する可能性が十分推察されることから, これ以上の汚染の拡大を防止するため, 農薬類および空ビンの回収作業を実施し, 異常な臭気が感知される井戸水については飲用されないよう指導した。

検査方法

古い農薬類および空ビンを焼却廃棄したという事実から, 先ず水道法における水質基準の項目中農薬に関係すると思われる有機リン, 水銀, ヒ素, フッ素, 鉛, 亜鉛および銅の7項目を選択し, 試験法³⁾に準じて検査した。次いで, ホリドールの空ビンを大量に捨てたという事実から, 衛生試験法⁴⁾のガスクロマトグラフィー(ECD-GC)によるパラチオンの分析を行うとともに, 加熱すると特異的な刺激性の臭気が強く感受されることから推察して, 揮発性のある有機塩素系農薬についても同様の方法で分析を行った。また, ECD-GCで検出されたピークの中で高濃度に測定された物質については, FID-GCおよびGC-MSを用いて同定確認も行った。

装置 GO:4BMPFB型(⁶³Ni, 10mCi)

GC-MS: LKB-9000型

検査結果

刺激臭が最も強いと思われる最初の試料1から4の検体について, 水質基準の7項目について検査したところ, 表1に示すような結果が得られた。これらの検査結果から, 有機水銀あるいは無機水銀剤による水銀, ヒ酸鉛, ヒ酸石灰等によるヒ素および鉛, フッ化剤によるフッ素, リン化亜鉛による亜鉛, 石灰ホルダーあるいは銅水和剤による銅

表1 井戸水の化学分析結果

採水地点	1	2	3	4
有機リン ¹⁾	不検出	不検出	不検出	不検出
水銀 ²⁾	"	"	"	"
ヒ素 ³⁾	"	"	"	"
フッ素 ⁴⁾	"	"	"	"
鉛 ⁵⁾	"	"	"	"
亜鉛 ⁶⁾	"	"	0.025	"
銅 ⁷⁾	"	"	不検出	"

検出限界(ppm): 1) 0.1, 2) 0.0005, 3) 0.005, 4) 0.2, 5) 0.01, 6) 0.005, 7) 0.01.

などについては, 亜鉛が1件0.025ppm検出されたほかはすべて検出されず, これらの農薬による汚染は殆どないことが推定された。また, 有機リンについての水質基準の検査方法は, EPNを標準とする感度の低い比色試験法であるため, P-ニトロフェノール系以外の有機リン農薬の可能性, あるいはパラチオンの臭気が十分感知されても検出できない低感度の点を考慮すれば, この有機リン不検出の結果から有機リン農薬の汚染は無いとの判断は早計過ぎると考えられる。

そこで, 昭和30年代においては, 水稻のメイ虫防除の目的でパラチオン乳剤が大量に使用されており, これらの空ビンを捨てた疑いが極めて高いことから, あるいは微量のパラチオンが検出されるのではないかと推測のもとに, EOD-GCによる高感度検出法の分析を試みた。その結果, 図2のガスクロマトグラムに示すようにパラチオンのピークが検出され, 表2に示したように1と2の井戸水から0.23および0.08ppbのパラチオンが測定された。

表2 井戸水中のパラチオンとBHCの分析結果

採水地点	1	2	3	4
農薬				
パラチオン ¹⁾	0.23	0.08	不検出	不検出
総-BHC ²⁾	71.0	3.4	"	3.4

検出限界(ppb): 1) 0.08, 2) 0.08.

総-BHC: α , γ , β および δ -BHC.

しかし, 4の試料からパラチオンは検出されないにもかかわらず, 異常な臭気が強く感知されることから, 刺激臭の主成分はパラチオンではなく, 大量に存在する物質であることが推察された。そこで図2のガスクロマトグラム上でパラチオンの前に出現する大きなピークについて物質の解析を行った。

古い農薬類としては, パラチオン乳剤とともに昭和30

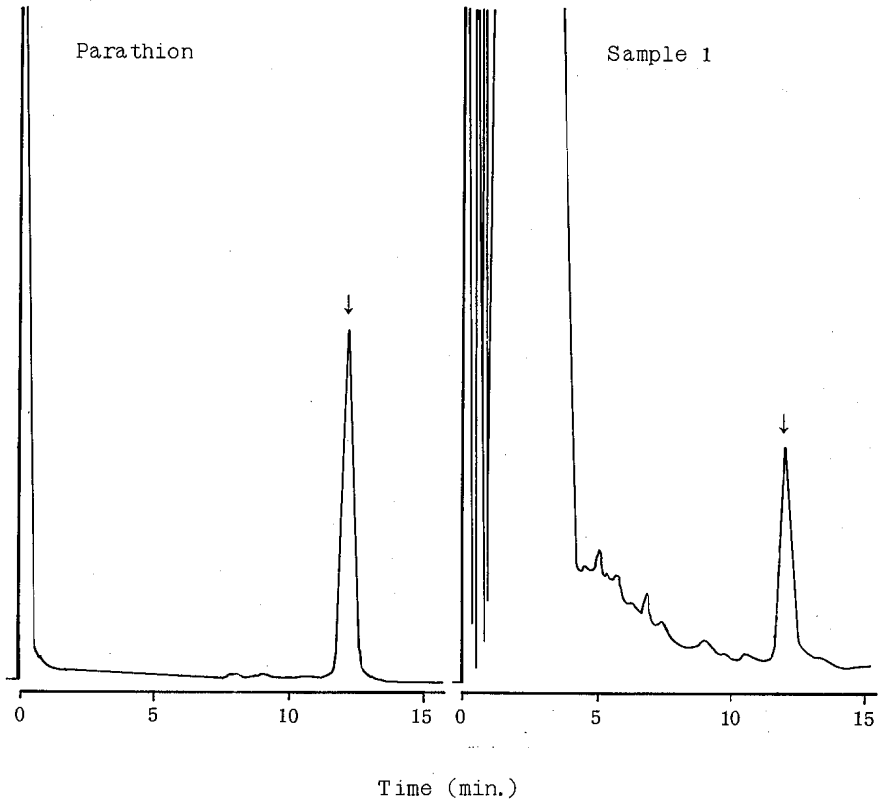


図2 井戸水から抽出したパラチオンのガスクロマトグラム(QF-1カラム)
 パラチオン標準溶液, 1ng; 試料, n-ヘキサン抽出液; 試料注入量, 1 μ l;
 カラム, 5% QF-1/クロモソルブW (AW-DMCS, 80~100メッシュ),
 3mm \times 1.5m; カラム温度, 180 $^{\circ}$ C; キャリヤーガス, 窒素35ml/min.; 感度,
 10² M Ω \times 0.16V.

年から40年代にかけて多用された代表的なものに有機塩素系殺虫剤があり, BHCあるいはDDT等が廃棄され, これらによる汚染の可能性も十分考えられることから, 次いでBHCの定性定量分析を行った。井戸水からのn-ヘキサン抽出液を100倍に希釈し, EOD-GC分析を行ったところ, 図3に示すようにBHCの標準クロマトグラムと良く一致し, β -BHCは検出されなかったが, α , γ および δ -BHCのそれぞれの異性体ピークが明瞭に検出された。また, 有機塩素系殺虫剤のGC分析に通常用いられているDEGS+H₃PO₄のカラムで測定したところ, 図4に示したようにQF-1のカラムの場合と同様にBHCの標準クロマトグラムと全く一致した。BHCの定量値は表2に示したように, α , γ および δ -BHCの合計値(β -BHCは不検出)で表わし, 1の試料で71ppb,

2および3の試料で3.4ppbの測定値が得られた。これら α , γ および δ -BHCの異性体存在比は約1:1.2:1.9の割合を示し, それぞれのピークについてはFID-GCで検出確認を行った。さらに, GC-MSを用いてm/eを測定したところ, 図5に示したようなマススペクトルが得られた。この結果から, 基準ピークのm/e 181および塩素原子による同位体ピークパターンより推定し, α , γ および δ -BHCであることを同定確認した。また, 一カ月経過後周辺の住民から依頼があった5から26の22検体について検査した結果, 表3に示したように10検体の井戸水から0.21から6.0ppbの範囲でBHCが検出され, パラチオンはいずれの検体からも検出されなかった。

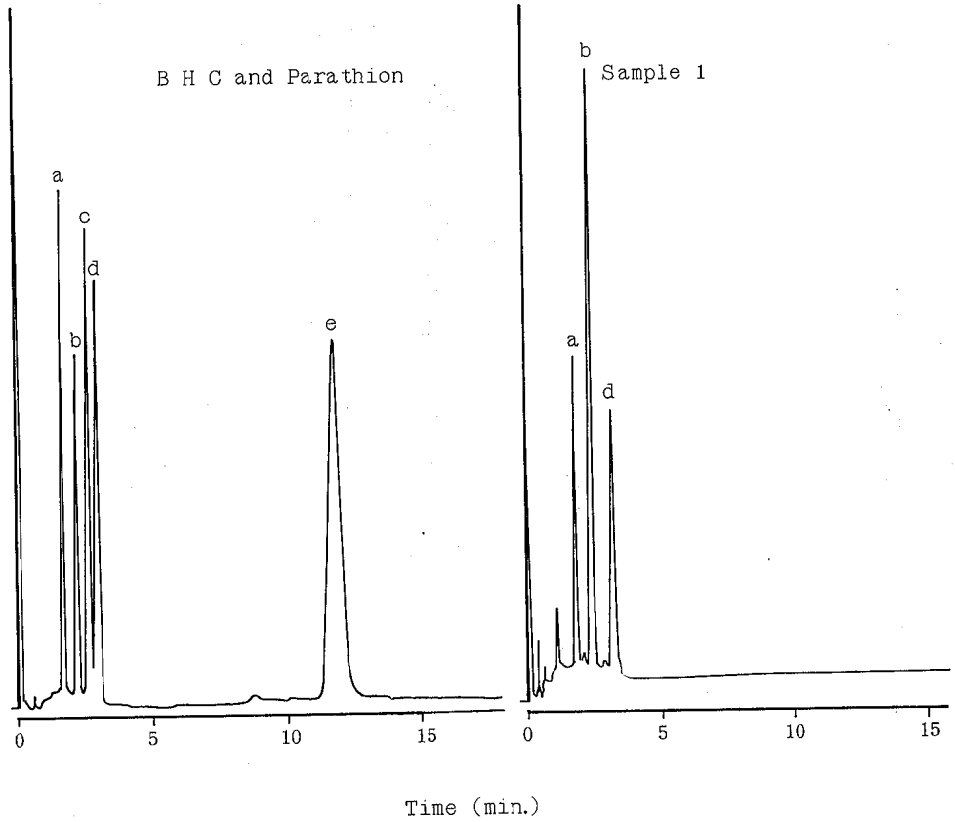


図3 井戸水から抽出したBHCのガスクロマトグラム(QF-1カラム)標準溶液, a) α -BHC 0.05ng, b) γ -BHC 0.05ng, c) β -BHC 0.2ng, d) δ -BHC 0.1ng, e) パラチオン1ng; 試料, n-ヘキサン抽出液; 試料注入量, 1 μ l.

表3 井戸水中のパラチオンおよびBHCの分析結果

採水地点	パラチオン ¹⁾	総-BHC ²⁾	採水地点	パラチオン	総-BHC
5	不検出	不検出	16	不検出	不検出
6	"	0.2	17	"	"
7	"	0.6	18	"	"
8	"	1.8	19	"	"
9	"	0.8	20	"	"
10	"	1.5	21	"	"
11	"	1.0	22	"	"
12	"	1.9	23	"	"
13	"	6.0	24	"	"
14	"	0.2	25	"	0.2
15	"	不検出	26	"	不検出

検出限界 (ppb) : 1) 0.08, 2) 0.08. 総-BHC: α , γ , β および δ -BHC.

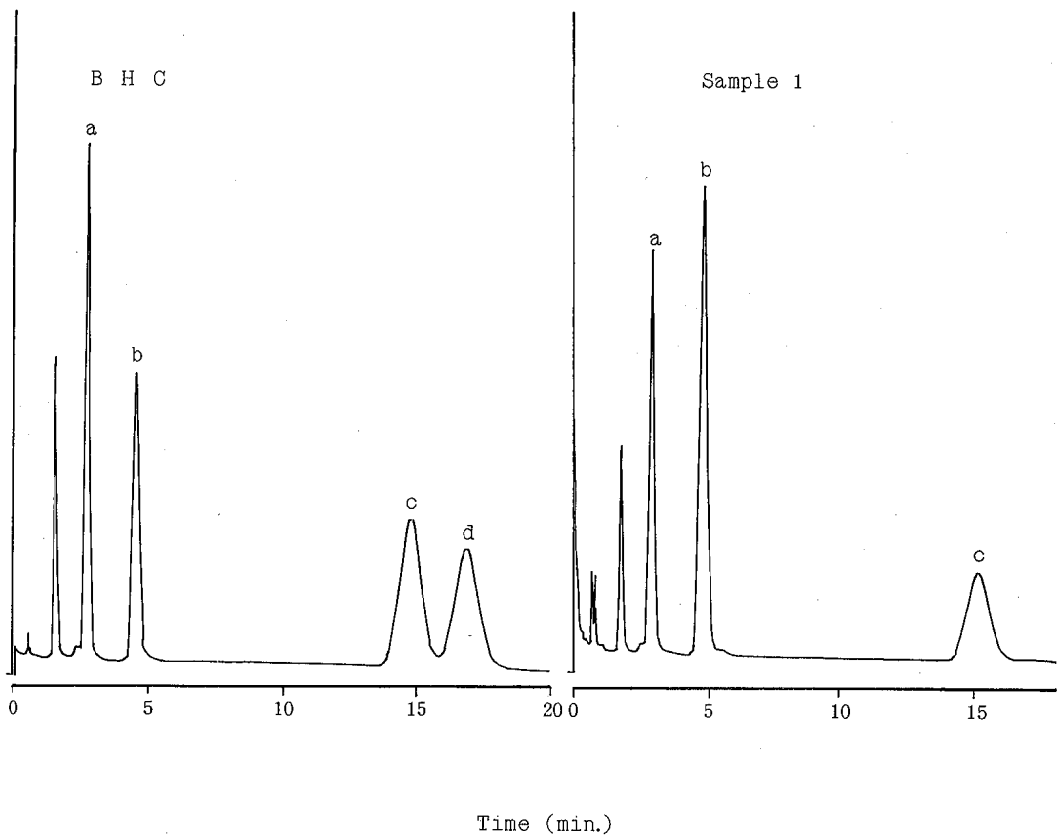


図4 井戸水から抽出したBHCのガスクロマトグラム (DEGS+H₃PO₄カラム)
 標準溶液, a) α-BHC 0.1ng, b) γ-BHC 0.1ng, c) δ-BHC 0.2ng
 d) β-BHC 0.2ng; 試料, n-ヘキサン抽出液; 試料注入量, 1μl;
 カラム, DEGS+H₃PO₄ (2+0.5%) / クロモソルブW (AW-DMCS,
 80~100メッシュ), 3mm×1m; カラム温度, 170℃; キャリヤーガス流量,
 窒素 40 ml/min.; 感度, 10²MΩ×0.16V.

考 察

古い農薬類および空ビンが焼却廃棄された現場から100m以内にある1と2の井戸水から0.23と0.08ppbのパラチオンが検出されたことは、その定量値が極めて微量ではあるが一般の井戸水からは全く検出されないものであることから判断し、この井戸の付近でパラチオンが流出あるいは廃棄されて土壌を汚染し、浅井戸(5~7m)の地下水に浸透した可能性が強く疑われた。また、最短距離(約40m)にある3の井戸水からパラチオンおよびBHCが検出されなかったことは、深井戸であるため汚染から免れたものと推測された。

しかし、4の井戸水からはパラチオンが不検出であるにもかかわらず異常な刺激臭が感知されたことは、臭気の原因を成す主成分はパラチオンでなく、多量に含有される揮発性の高い物質であることが想定された。そして、1, 2および3の井戸水からBHCが7.10, 3.4および3.4ppb検出されたことにより、これらの井戸水の刺激臭の主成分はBHCであると断定された。これらBHCは一般の農薬散布の使用状態では土壌の表層に吸着され、極端な砂質土壌を除けば浸透して地下水を汚染する恐れはないといわれている。⁵⁾ さらに、BHCの殺虫剤は農薬として昭和46年以降使用禁止になっており、今回のように集中した地域の井戸水からBHCが検出されることは、付近の土壌

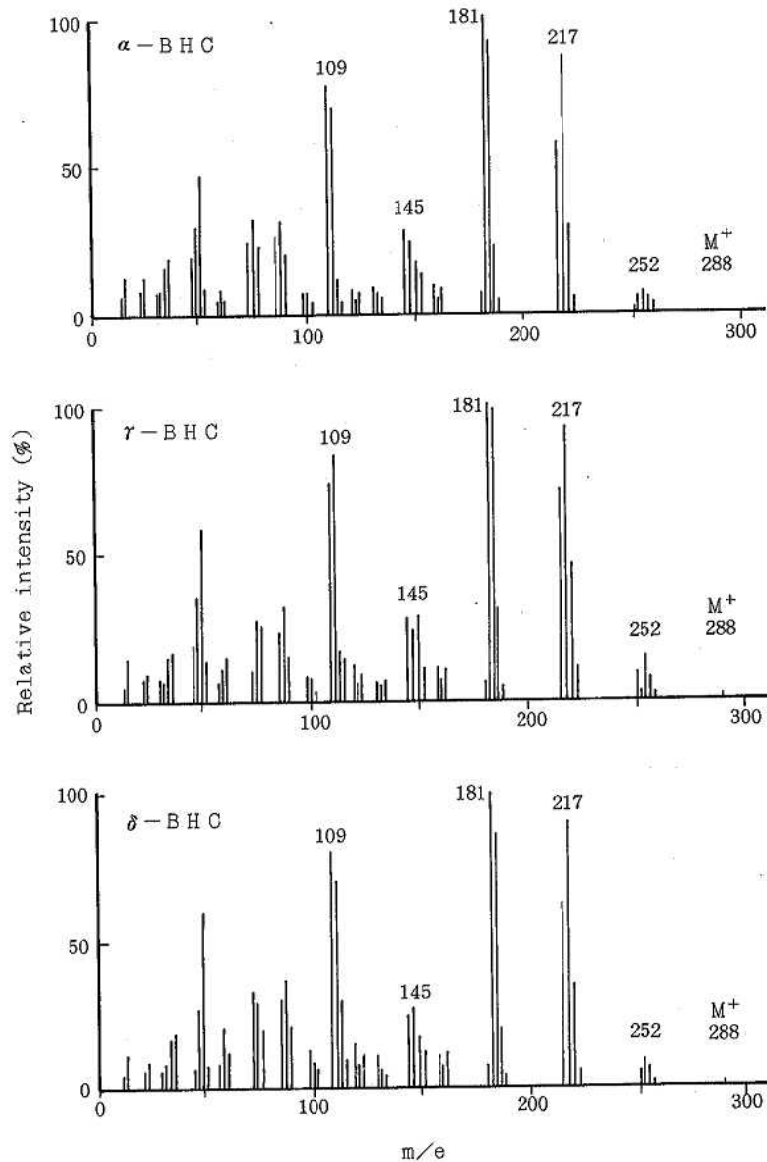


図5 井戸水から抽出した α 、 γ および δ -BHCのマススペクトル
 GC-MS, 島津LKB-9000型; GCカラム, DEGS+H₃PO₄(2+0.5%),
 3mm×1m; カラム温度, 160℃; キャリヤーガス, ヘリウム20ml/min.;
 イオン化電圧, 70eV.

が大量のBHCに汚染され,それが地下水に浸透し混入した可能性を強く示唆している。

過去における地下水中のBHCの自然汚染例^{6,7)}では,東京,愛知などで α 、 γ および δ -BHCが数pptのレベルでまれに検出された程度であり,今回のようにppb

のレベルで検出されることから,人為的な汚染の可能性が極めて高く推察される。また,農業としてのBHCの異性体組成は理論的には α 、 γ 、 β 、 δ -BHCが約65:5:13:6の割合であるが,これらの溶媒に対する溶解度は $\beta < \alpha < \gamma < \delta$ であることから推測し, β が検出され

ずの割合が多く検出されたものと推察される。

今後、農薬あるいはその他の劇毒物等の廃棄処理に関しては、特に劇毒物取締法に従って慎重に処理され、貴重な地下水を汚染したり、保健衛生上住民に危害を生ずる恐れがないよう望まれる。

まとめ

児玉町蜂川地区の井戸水の農薬汚染事件として、農薬類およびその空ビンを焼却廃棄した現場から約300mの範囲に渡り、井戸水に異常な臭気が感知されたので水質検査を行った。その結果、1. 井戸水26検体のうち2検体からパラチオンが0.23ppbと0.08ppb、13検体からBHCが0.21から71.0ppbの範囲で検出された。2. 井戸水中の刺激臭の主成分は、有機塩素系殺虫剤のBHCであることが解明された。3. 井戸水中のパラチオンおよびBHCの汚染原因としては、付近の土壌が人為的にこれらの農薬に汚染され、それが地下水に浸透し混入した可能性が強く示唆された。

文 献

- 1) 埼玉県衛生部環境衛生課(昭和54年度):埼玉県の水道, 3~5.
- 2) 興津知明, 鈴木章, 小山又次郎, 小笠原昭維, 今井栄, 田中修(1976):飯能市岩沢地区における地下水の六価クロム汚染, 埼玉県衛生研究所報告, 10, 94~97.
- 3) 厚生省環境衛生局水道環境部監修(1978):上水試験方法, 457~464, 日本水道協会.
- 4) 日本薬学会編(1980):衛生試験法注解, 90~101, 金原出版.
- 5) 立川涼(1971):農薬による環境の汚染, 化学と生物, 8, 539~547.
- 6) 環境庁土壌農薬課編(1974):農薬汚染, 40~43, 白亜書房.
- 7) 竹下隆三, 武田明治, 土屋輝悦(1974):環境汚染分析法(10)農薬, 128~133, 大日本図書.

硝酸、亜硝酸に関する研究 (第1報)

母乳、牛乳および加工乳の亜硝酸含有量について

田中 章男 菊池 好則 能勢 憲英
岩崎 久夫 渡辺 昭宣*

はじめに

硝酸、亜硝酸は食品添加物として認められているが、近年、これらが、生体内で発ガン性のニトロソアミンを生成する前駆物質であることが数多くの報告により判明し、注目されることとなった。また、亜硝酸は血液中のヘモグロビンをメタヘモグロビンにして、その酸素の運搬能を著しく影響することも知られている。今回、著者らは生体内に取り入れられた硝酸、亜硝酸は血液などから乳汁に移行することが十分考えられるため、母乳、牛乳および加工乳中の亜硝酸含有量について検討した。亜硝酸の測定法としては多くの報告があるが、そのほとんどは比色法によるため、混濁または着色した検体については測定が困難である。一方、生体内における亜硝酸は微量であることが予想され、比色法は感度等の点から問題がある。母乳等の亜硝酸含有量の測定は上記のような問題からその報告例はほとんど見られず、最近では、祐川^{1,2)}らの報告に見られるにすぎない。さきに著者らは亜硝酸の測定法としてガスクロマトグラフィーを利用する方法を報告³⁾したが、今回これを利用することで母乳、牛乳および加工乳合わせて140検体について亜硝酸を測定したので報告する。

実験方法

1 試料

母乳については県内保健所監視員が収去したものについて、加工乳についてはすべて市販品、牛乳については某牧場から提供されたものについてそれぞれ80, 40, 20検体について行った。

2 試薬

亜硝酸標準液：亜硝酸ナトリウム0.493gを1ℓの水に溶解し(NO_2 -Nとして1000 $\mu\text{g}/\text{ml}$)、これを水で1 $\mu\text{g}/\text{ml}$ に調整した。

ヒドララジン(0.1%, w/v)溶液：0.1gのヒドララジン(東京化成製)を水100mlに溶解した。

除たんばく剤A：チオン酸アンモニウム90gと塩化第二水銀80gを1ℓの水に溶解したもの。

除たんばく剤B：酢酸亜鉛125gを1ℓの水に溶解したもの。

3 試験溶液の調整

検液5mlを10mlの試験管(11.5×1.5cm, 内径)に取り、これに除たんばく剤A, Bをそれぞれ1mlずつ入れてよく混和し、水で正確に10mlとする。これを口紙で口過し、最初の1~2mlはすてる。口液の5mlは前と同様の試験管に取り、これに2N塩酸1mlを加え、さらにヒドララジン溶液1mlを加えてよく混和し、これを70℃の水浴中で15分間反応する。反応冷却後、トルエン5mlで2回抽出した。この抽出液は5mlに濃縮後、少量の無水硫酸ナトリウムで脱水後、あらかじめトルエンで湿潤させたアルミナカラム(30cm×1cm内径下端にガラスウールを軽く詰めて、5cmの層を作ったもの)に注ぎ、流通後、ついでヘキサン20mlを注加し、最後にアセトン15mlを取る。アセトンは2mlに濃縮し、これを試験溶液とする。

4 定量法

文献3に準じて行った。

結果および考察

1) 検量線についてはFig 1に示す。亜硝酸性窒素として1~40ng/mlの間で直線性を示した。なお、Fig 1で直線Aは、水のブランク値を含んだ場合である。直線Bは母乳に標準を添加した場合である。なおFig 2に母乳、牛乳および加工乳のガスクロマトグラムを示した。Fig 2のようにいずれも防害物は見られずきれいなピークが得られた。

*埼玉県食肉検査センター

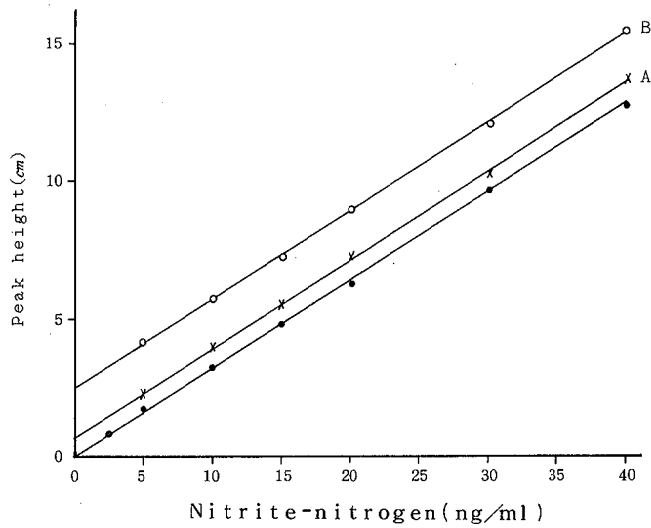


Fig 1. Calibration graphs for nitrite. (A); Containing blank value, (B); the method of standard addition

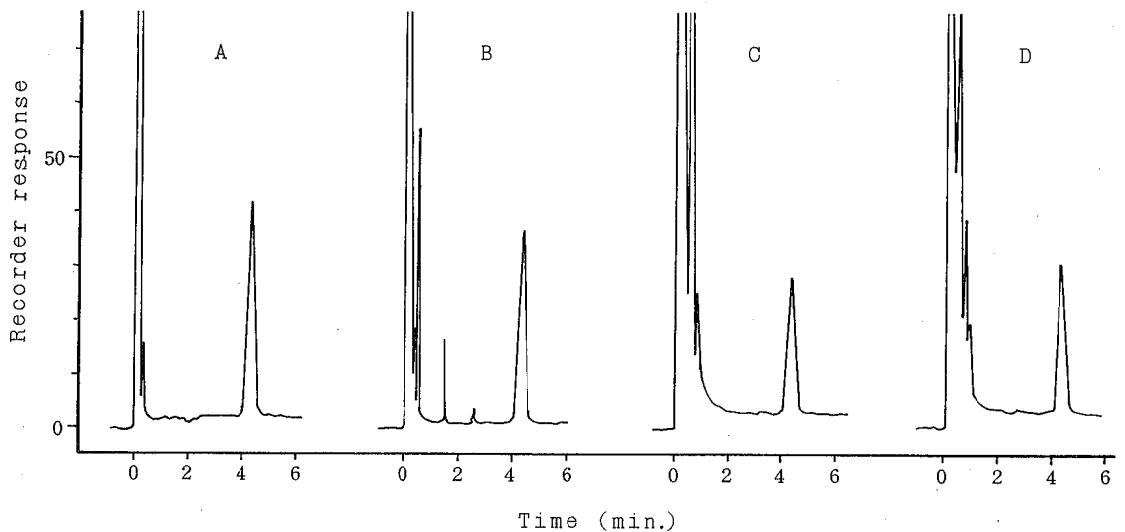


Fig 2. Gas chromatograms of toluene extracts a standard reaction mixture(A), to which nitrite was added at the level of ca. 0.07ppm human milk(B), cow milk(C), and market milk(D).

2) 母乳80 体について亜硝酸を測定した結果を Table 1 に示す。Table 1 より、0.0 2~0.0 3 ppm が多く、最少値として0.0 1ppm, 最大値として0.27ppm であった。平均値としては0.0 4 ppm であった。

3) 牛乳50 検体について亜硝酸を測定した結果を Table 2 に示す。Table 2 より、0.0 2~0.0 3ppm が多く、最

小値として0.0 1 ppm, 最大値として0.0 8 ppm であった。平均値としては0.0 3 ppm であった。

4) 加工乳20 検体について亜硝酸を測定した結果を Table 3 に示す。Table 3 より、0.0 1~0.0 2 ppm が多く、最小値として0.0 1 ppm, 最大値として0.0 7 ppm であった。平均値としては0.0 2 ppm であった。

Table 1. Nitrite levels in human milk

Concentration range of NO ₂ -N (ppm)	Number
0.01 ≦ ~ < 0.02	14
0.02 ≦ ~ < 0.03	27
0.03 ≦ ~ < 0.04	17
0.04 ≦ ~ < 0.05	9
0.05 ≦ ~ < 0.06	4
0.06 ≦ ~ < 0.07	3
0.07 ≦ ~ < 0.08	2
0.08 ≦ ~ < 0.09	1
0.09 ≦ ~ < 0.10	0
0.10 ≦ ~ < 0.20	1
0.20 ≦ ~	2

$\bar{X}=0.04 (n=80)$

Table 2. Nitrite levels in cow milk

Concentration range of NO ₂ -N (ppm)	Number
0.01 ≦ ~ < 0.02	5
0.02 ≦ ~ < 0.03	22
0.03 ≦ ~ < 0.04	10
0.04 ≦ ~ < 0.05	0
0.05 ≦ ~ < 0.06	2
0.06 ≦ ~ < 0.07	0
0.07 ≦ ~ < 0.08	1

$\bar{X}=0.03 (n=40)$

Table 3. Nitrite levels in market milk

Concentration range of NO ₂ -N (ppm)	Number
0.01 ≦ ~ < 0.02	10
0.02 ≦ ~ < 0.03	4
0.03 ≦ ~ < 0.04	3
0.04 ≦ ~ < 0.05	1
0.05 ≦ ~ < 0.06	0
0.06 ≦ ~ < 0.07	1
0.07 ≦ ~ < 0.08	1

$\bar{X}=0.02 (n=20)$

5) 母乳の平均値は、牛乳の平均値に対して1.3倍であり、加工乳の2倍であった。亜硝酸、硝酸を多量に含有していると思われる雑草を主食としている牛から亜硝酸の平均値が、母乳中の亜硝酸の平均値と差があまり見られないのは予想外であった。ヒトの複雑な食生活の要因が1つの原因と思われる。牛乳より加工乳の方が亜硝酸が少ないのは、稀釈されているためと思う。牛乳などは、第2級アミン（ジメムルアミン等）は0.01~0.02 μmol とその含有量はきわめて少ないことも報告されており、本報告程度の亜硝酸濃度から、ニトロソアミン形成という論議はかならずしも言いきれないが、Table 1にも示したように何人かのヒトには高い亜硝酸の含有量を示すヒトがいる以上、その危険性はないとはいえない。いずれにしても、多くの報告にもあるように、乳汁中の亜硝酸は血液から移行することは十分考えられるため、血液中の亜硝酸についても引き続き検討したい。

要 約

母乳、牛乳および加工乳について亜硝酸の含有量について調査した。結果として、母乳80検体の平均値は0.04 ppmで、最大値としては0.27 ppm、最小値としては0.01 ppmであった。牛乳50検体の平均値は0.03 ppmで、最大値としては0.08 ppm、最小値としては0.01 ppmであった。加工乳20検体の平均値は0.02 ppmで、最大値としては0.07 ppm、最小値としては0.01 ppmであった。

文 献

- 1) 祐川金次郎, 松本多計治 (1975): 栄養と食糧, 28, 385.
- 2) 祐川金次郎, 有賀秀子, 西村勝美, 龍富美男, 林友子 (1978): 同上, 31, 215
- 3) AKIO TANAKA, NORIHIDE NOSE, FUMIKO YAMADA, SHIGEO SAITO and AKINOBU WATANABE (1981): J.Chromatography, 206, 531.

米飯に使用されている pH 調整剤の細菌抑制効果について

徳丸 雅一 栗栖 誠 正木 宏幸
 柳川 敏子 岩崎 久夫 渡辺 昭宣*
 池内 俱子**

はじめに

近年、食生活の変化に伴い、市販弁当の需要も増加している。本県内で過去の食中毒発生例のうち弁当を原因とするものが約 20~30% を占めている。(図 1)

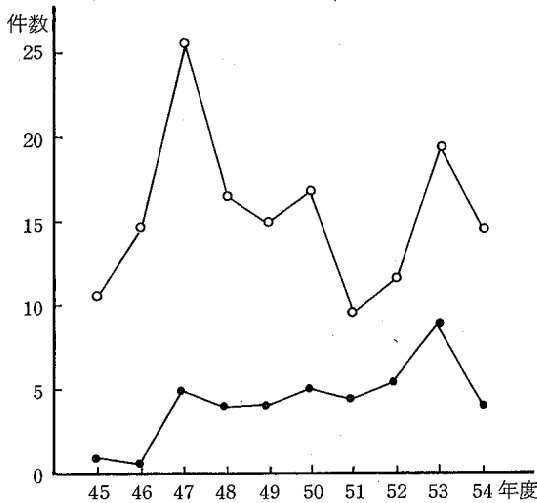


図 1 埼玉県内過去 10 年間の食中毒事件

○—○年間発生件数, ●—●弁当による発生件数

これらのことから本県では昭和 54 年 4 月 1 日から弁当類の販売は、食料品販売業の許可対象施設となった。

この条例の設定にあたり、昭和 54 年度は、弁当類販売施設の実態調査を実施し、前報⁽¹⁾に報告した。

については、これら弁当製造業者の衛生指導を行ってきたなかで比較的良好な弁当を製造しているところでは、おにぎりなどに pH 調整剤を添加していたことから、今年度はこの pH 調整剤の有効性について室内実験を行い、さらに実際に弁当製造施設で米飯に pH 調整剤を添加して野外試験を実施したので、この結果を報告する。

実験材料および方法

1 第 1 部の室内実験

調査期間は昭和 55 年 5 月~6 月まで。検査項目は pH、一般細菌数、大腸菌群、ブドウ球菌とし、検査方法は食品衛生検査指針に準じて行った。

pH 調整剤 (以下 pH 剤と略す) の有効性についての実験方法は、表 1 に示すとおりで、炊飯するとき pH 剤を添加して炊き込む方法と、炊き上ってから pH 剤を混ぜ合わせる方法とに分け、0.3% および 0.5% 量を添加した。

対照は、pH 剤を添加しない無調整の米飯とした。

表 1 試験方法

試験区分	米の重量 kg	水容量 kg	薬剤添加量 g	終末添加濃度 %	試験群
対照 pH 剤無添加	7	9.8	-	0	①試験菌非接種群 ②大腸菌、ブドウ球菌接種群 ↓ 一試験区分ごとにプラスチック容器に米飯 100gずつ秤量 ↓ 25℃保存 ↓ 連日各区分ごとに検査
飲み 込法 pH 剤 0.3%	7	9.8	50.2	0.29	
" 0.5%	7	9.8	84.7	0.50	
混ぜ 合法 " 0.3%	2	-	5.9 (水 20ml ごとく)	0.29	
" 0.5%	2	-	9.9 (水 20ml ごとく)	0.49	

* 埼玉県食肉衛生検査センター

** 春日部保健所

これらの米飯に試験菌として大腸菌およびブドウ球菌を接種した。

使用したpH剤は、氷酢酸、酢酸Na（無水）、ポリリン酸Na、グリシン、その他天然物を成分とするものである。

2 第2部の野外試験

調査期間は、昭和55年7月～昭和56年2月まで。試験項目は第1部の実験と同様である。判定は、一般細菌数 10^5 以上、大腸菌群陽性、ブドウ球菌陽性を不適とした。

試験方法は、弁当製造業11施設を選び年間4回にわたって検査した。すなわち、各製造施設において炊き込み方法でpH剤0.3%量を添加した米飯で弁当を調整した。この弁当を製造直後の時点と販売店へ卸された時点のものをそれぞれ採取し検査に供した。

対照としては、同一種類の弁当を無調整米飯で調整し同一時点において採取し検査に供した。

実験結果および考察

1 第1部の室内実験

この結果は、図2、図3に示すとおりである。すなわち、無調整米飯は急激な菌の増殖を示し、2日目に異臭を感じた。

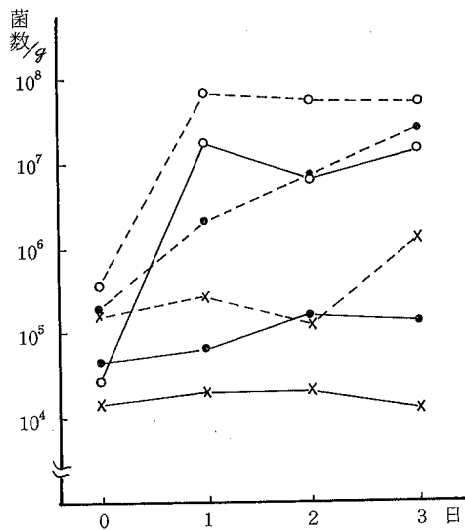


図2 炊き込み法

—— 大腸菌接種, ブドウ球菌接種
○ 無調整米飯, ● 0.3%量添加, × 0.5%量添加

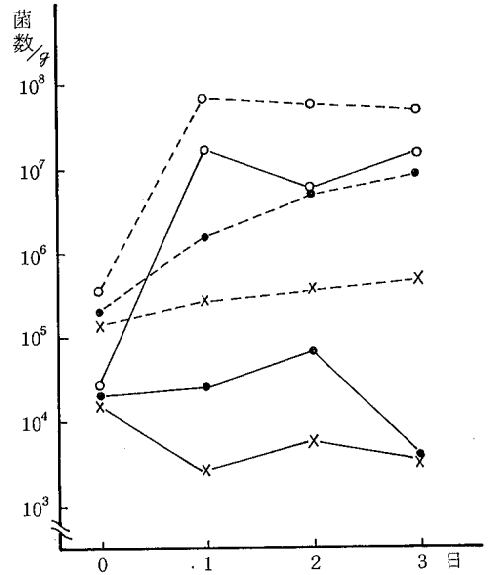


図3 混ぜ合わせ法

—— 大腸菌接種, ブドウ球菌接種
○ 無調整米飯, ● 0.3%量添加, × 0.5%量添加

pH剤を添加した調整米飯では、無調整米飯ほど変化は認められなかった。

本実験でpH0.5%量を添加すると細菌学的には良好であったが、官能的に酸味を感じることから、おにぎり等には不向きと考えられ、また、混ぜ合わせ方法では、pH剤の添加にむらがありpH値が一定でなかったことから炊き込み方法でpH剤0.3%量が適当と思われた。

2 第2部の野外試験

1) 無調整弁当とpH剤添加弁当の細菌汚染状況とpH分布

無調整弁当とpH調整弁当において、各製造直後と販売店での細菌汚染およびpH分布状況は、表2のとおりである。

すなわち、細菌汚染状況は、両者とも販売店のほうが製造直後に比べて汚染菌数が増加しており、かつ不適率も高い傾向にあった。

無調整弁当とpH調整弁当を比較すると、不適率はpH調整弁当のほうが低率であった。

次に、pH分布域についてみると、無調整弁当は6.1～6.7に70%以上が分布し、pH調整弁当では5.6～6.0に60%以上が分布していた。

表2 無調整弁当とpH調整剤添加弁当の細菌汚染状況とpH分布

区分	検査数	一般細菌数/φ		大腸菌群		ブドウ球菌		pH域			
		< 10 ⁵	10 ⁵ ≤	-	+	-	+	≤ 5.5	5.6 ~ 6.0	6.1 ~ 6.7	
無調整弁当	製造所	95	46 (51.6)	49	45 (52.6)	50	91 (4.2)	4	13	6	76 (80.0)
	販売店	94	40 (57.5)	54	43 (54.3)	51	86 (8.5)	8	15	13	66 (70.2)
pH調整弁当	製造所	94	76 (19.1)	18	62 (34.0)	32	89 (5.3)	5	3	59 (62.8)	32
	販売店	94	69 (26.6)	25	59 (37.2)	35	91 (3.2)	3	10	59 (62.8)	25

注：()は百分率

2) 弁当のpH分布域と不適率

pH域からみた弁当の不適率は、表3のとおりである。すなわち、pH剤0.3%量添加したpH域は、5.6~6.0の範囲に大部分が含まれ、無調整弁当における同一pH域と比較すると一般細菌数、大腸菌数とも有意差が認められた。

表3 弁当のpH域からみた不適合数

区分	pH	検査数	一般細菌数		大腸菌群		ブドウ球菌	
			< 10 ⁵	10 ⁵ ≤	-	+	-	+
無調整弁当	5.5以下	28	21	7	21	7	24	4
	5.6~6.0	19	2	17 (89.5)	2	17 (89.5)	16 (15.8)	3
	6.1~6.7	142	63	79 (55.6)	65	77 (54.2)	137 (3.5)	5
pH調整弁当	5.5以下	13	5	8	3	10	13	0
	5.6~6.0	118	92	26 (22.0)	76	42 (35.6)	112 (5.1)	6
	6.1~6.7	57	48	9 (15.8)	42	15 (26.3)	55 (3.5)	2

注：()は百分率

しかし、ブドウ球菌ではその差はあまり認められなかった。

要 約

今回、弁当による食中毒予防対策の検討のなかで、おに

ぎりなどの米飯にpH調整剤を添加し、この有効性について検討したところ次のようであった。

- 1 米飯に添加する場合は、混ぜ合わせ法によりも炊き込み法のほうがpH値が一定していた。
- 2 無調整弁当におけるpH域は6.1~6.7のものが多かったが、pH剤0.3%量を添加するとpH域は5.6~6.0の範囲に分布し官能的にも酸味を感じなかった。
- 3 細菌汚染は、無調整弁当よりpH調整剤を添加した弁当のほうが不適率は低かった。
- 4 pH域を下げることによって一般細菌数、大腸菌群の増殖を抑制することができた。

しかし、pH剤はグラム陰性菌に対して抑制効果はあるが、殺菌作用を期待するものでないことから「弁当又はその菜の衛生規範」に準じて衛生管理を十分に守らせることが必要である。

終りに御協力をいただいた戸田・蔵、深谷、川越、春日部保健所食品監視室および南部地区食品監視係の方々に感謝いたします。

文 献

- 1) 渡辺昭宣, 徳丸雅一, 池内俱子, 栗栖誠, 正木宏幸, 柳川敬子：(1980)：弁当類の細菌学的汚染実態調査, 埼玉県衛生研究所報, 14, 93~98.

各種水における発熱性物質の比較

—高圧蒸気法の滅菌による発熱性変化—

正木 宏幸 岩崎 久夫

はじめに

注射液の発熱問題は古くから論じられてきたが、その問題を解決する目的で我が国では1951年第6改正日本薬局方に発熱性物質試験法(Pyrogen Test)が収載された。

この試験の本来の意義は、発熱性物質の解明にあるが、今日では医薬品のチェックにその重きをなしている。中でも静脈内注射液、特に輸液には欠くべからざる試験とされている。我々は、この試験法を応用することによって、自然界における発熱性物質の分布を調査するべく、まず人間の日常生活の根源となる水を中心に実験を重ねてきた。1979年、河川水および水道水における発熱性物質の比較¹⁾、そして1980年、各種水における発熱性物質の比較²⁾を報告した。今回は前年に続き、各種の水について、さらに高圧蒸気法の滅菌をほどこすことにより、発熱性の変化を追求し、一方、雨水と雪水についても発熱実験を加えたのでここにその概要を報告する。

実験材料および方法

1 実験材料

供試水は埼玉県下の各河川水および浦和、川越地区の水道水と浦和地区で採取された雨水と雪水を用いた。雨水、雪水の採取については前報²⁾と同じくし、なお採取時期は雪水では1981年2月に2回、雨水については同年8月と9月に3回行ったものである。

2 実験方法

1) 発熱性物質試験法(Pyrogen Test)

1981年4月1日、第10改正日本薬局方発熱性物質試験法にしたがい、各種の水をPyrogen freeの生理食塩水で希釈し、ウサギに接種した。体温測定については自動記録サーミスター(飯尾電機EP76-12)を使用した。

2) 高圧蒸気滅菌法

高圧滅菌器(Tomy Seiko Co., LTD. Model

S-90-N)を使用し、121℃、20分間滅菌操作した。

3) 一般細菌数の測定および無菌試験法

滅菌前の供試水の各希釈液1mlについて標準寒天培地(栄研)を用いて混釈し、37℃48時間培養後、発生集落数を算定して1ml中の一般細菌数を換算した。滅菌後の供試水は一般細菌数の測定ならびに無菌試験を併用した。無菌試験については日本薬局方無菌試験法に準じて、細菌検査ではチオグリコレート培地を用い、試料を混和し、30℃~32℃で7日間培養し、細菌の有無を判定した。また、真菌検査では無菌試験用ブドウ糖ペプトン培地(栄研)を用い、試料を混和後25℃で10日間以上培養し、真菌の有無を判定した。

4) Limulus Test

市販カプトガン血球成分の凍結乾燥品プレゲル(帝國臓器製)に、Pyrogen freeの生理食塩水0.1mlを加え、よく溶解したものに供試水の希釈液をそれぞれ0.1mlづつ添加したのち、ゆるやかに混合し、37℃で1時間感作した。その後室温で5分間静置し、ゲル化の状況を判定した。

3 発熱性物質試験判定方法

発熱性物質試験の判定基準は、日本薬局方にしたがい、ウサギに接種後5時間(局方では3時間)以内に0.6℃以上の温度上昇値を示したものを陽性とし、0.6℃未満のものを陰性とした。

実験結果

1 各種水の高圧蒸気滅菌後の発熱性物質試験の関係

前回までは各種の水を生(無滅菌)の状態でウサギに接種し、発熱性物質試験を行ったが、今回はほとんどすべての試料に121℃、20分間の高圧蒸気滅菌をほどこし、同試験を再度試みた。

試料は採取後ただちに標準寒天に培養し、一般細菌数を測定する一方、121℃、20分間高圧滅菌し、滅菌後さらに一般細菌数の測定および無菌試験を行った後、各希釈され発熱性物質試験に供された。

河川水では、1981年1月から10月までに埼玉県内 1 に示すとおりである。
 の各河川より採取したもので、発熱性物質試験の結果は表

表1 河川水における細菌数と発熱性物質試験の結果

No	検体	滅菌前 細菌数/ml	滅菌後 細菌数/ml	発熱性物質試験			
				希釈倍数	接種量ml/kg	判定 FI-5	
1	河川水-A	3.3×10^3	0	10^{-1}	1	-	
	河川水-A	3.3×10^3	0	1	1	+	37.5
2	河川水-C	1.4×10^3	0	10^{-1}	1	-	
	河川水-C	1.4×10^3	0	1	1	+	16.6
3	河川水-D	2.7×10^4	0	10^{-1}	1	-	
	河川水-D	2.7×10^4	0	1	1	+	34.1
4	河川水-E	4.8×10^4	0	10^{-1}	1	-	
	河川水-E	4.8×10^4	0	1	1	+	23.6
5	河川水-F	2.9×10^4	0	10^{-2}	1	-	
	河川水-F	2.9×10^4	0	10^{-1}	1	+	20.5
6	河川水-H	1.5×10^4	0	1	1	-	
	河川水-H	1.5×10^4	0	1	10	+	14.2
7	河川水-J	5.6×10^2	0	1	1	-	
	河川水-J	5.6×10^2	0	1	10	+	22.3
8	河川水-K	2.8×10^3	0	1	1	-	
	河川水-K	2.8×10^3	0	1	10	+	57.8
9	河川水-M	5.4×10^3	0	1	1	-	
	河川水-M	5.4×10^3	0	1	10	+	40.1
10	河川水-O	1.2×10^5	0	1	1	-	
	河川水-O	1.2×10^5	0	1	10	+	15.4

注：滅菌法は121℃、20分の高圧滅菌した。

表2 井戸水等における細菌数と発熱性物質試験の結果

No	検体	滅菌前 細菌数/ml	滅菌後 細菌数/ml	発熱性物質試験			
				希釈倍数	接種量ml/kg	判定 FI-5	
1	井戸水-D	4.4×10	0	1	1	-	
	井戸水-D	4.4×10	0	1	10	-	
2	井戸水-F	0	0	1	10	-	
3	水道水-A	3.0×10^3	0	1	1	-	
	水道水-A	3.0×10^3	0	1	10	+	18.1
4	水道水-B	0	0	1	10	-	
5	雨水-A	2.7×10	0	1	10	-	
	雨水-A	2.7×10	無滅菌	1	10	-	
6	雨水-B	3.2×10	無滅菌	1	10	-	
7	雪水-A	5	無滅菌	1	1	-	
	雪水-A	5	無滅菌	1	10	-	
8	雪水-B	2.4×10	無滅菌	1	1	-	
	雪水-B	2.4×10	無滅菌	1	10	-	

注：滅菌法は121℃、20分の高圧滅菌した。

河川水-Aから河川水-Fまでは1月から4月にかけて採取され、河川水-Hから河川水-Oまでは7月から10月にかけて採取されたものであり、各河川水の最少発熱(0.6℃以上の体温上昇)をおこす量は、原液の1ml/kgの接種かあるいは原液の10ml/kgの接種であり、それ以上の希釈ではほとんど発熱性物質試験は陰性を示したが、河川水-Fでは10倍希釈液の1ml/kgの接種でも陽性を示した。また発熱量FI-5(Fever Index)^{3,4)}については、滅菌前の菌数が10³オーダーの河川水接種のものに30をこす比較的高い値が示された。

なお河川水の一般細菌数については、滅菌前は10²から10⁵の間であったものが、滅菌後では検出されなくなった。また無菌試験も陰性と判定された。

一方、井戸水等についての発熱性物質試験は、ほとんど陰性であり、その詳細は表2に示すとおりである。すなわ

ち、比較的滅菌前の菌数の多い水道水-A(3.0×10³/ml)の原液の10ml/kgの接種の場合のみ陽性を示したが、他の7試料では原液の1ml/kgの接種ならびに同原液の10ml/kgの接種ではすべて陰性となった。なお、雨水-Aを除く、雨水-B、雪水-A、および雪水-Bは無滅菌の原液の試料を用いたが、原液の1ml/kgの接種および同原液10ml/kgの接種でも発熱はおこらず陰性と判定された。

以上のように、滅菌後の各種の水について発熱性物質試験を行ったが、特に河川水では滅菌後でもかなりの発熱性を有することから、滅菌前の菌数との関係に発熱の要因の有無を知るべく、さらに河川水を滅菌前の菌数が10²/ml, 10³/ml, 10⁴/ml, 10⁵/mlの4段階になるように菌数別にかけて滅菌を行い、ウサギの静脈内に接種した。結果は図1のとおりである。

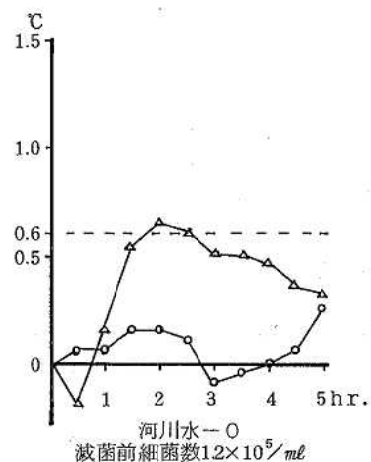
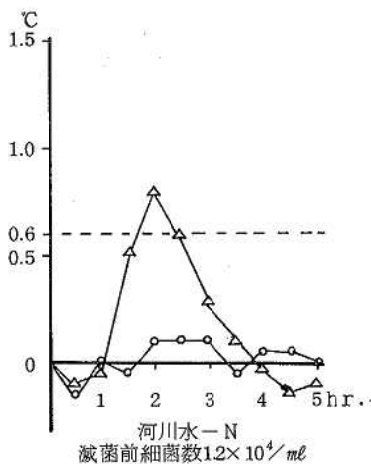
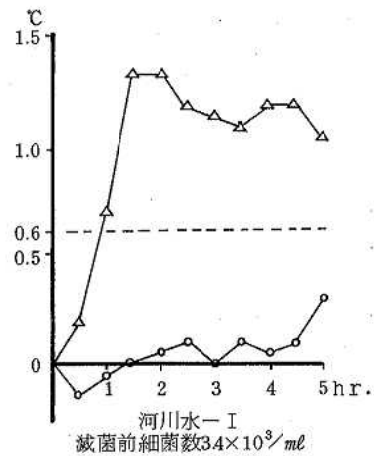
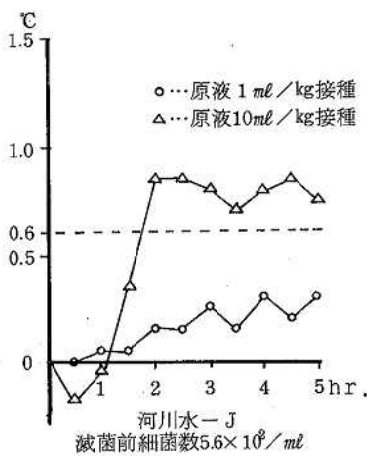


図1 高圧滅菌した河川水の発熱状況

すなわち、河川水-I, -J, -N, -Oの各原液の1 ml/kgの接種では、5時間を通してほとんど発熱は示されず、また同各原液の10 ml/kgの接種では、逆にすべて発熱が示された。その発熱状況は、接種後30分ではわずかに体温は下降をきたすが、1時間30分から2時間にかけて0.6℃をこえ、最高温度上昇値も2時間前後にみられ、全河川水ともFever Indexこそ異にするが、同様なものであった。

つぎに井戸水、雨水、雪水についての発熱性物質試験では、ほとんど陰性で発熱状況も図2に示されるような結果が得られた。

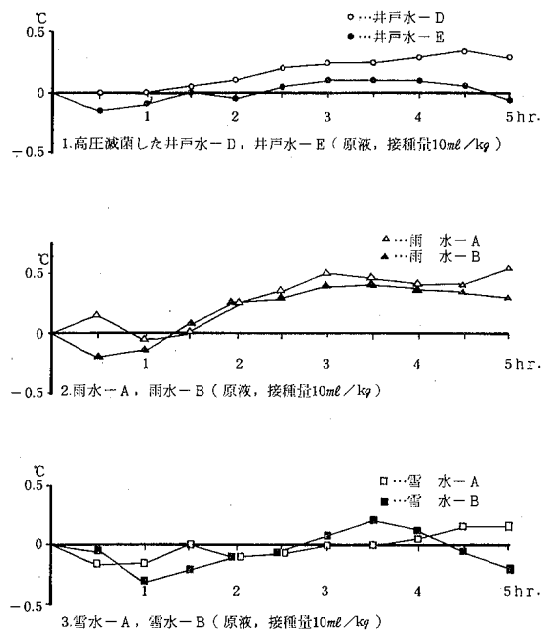


図2 井戸水等の発熱性物質試験結果

すなわち、井戸水では接種後5時間を通して発熱は示されなく、温度曲線も平温に近い状況であった。雨水については、試料は共に無滅菌(雨水-A…細菌数 2.7×10^3 , 雨水-B…細菌数 3.2×10^3)で、各原液の10 ml/kgを接種したものである。その発熱状況は、0.6℃をこえる発熱こそ示されなかったが、接種後2時間あたりからわずかに上昇し、5時間後でもその上昇状態を維持していた。雪水についても雨水と同じく無滅菌の試料(雪水-A…細菌数5/ml, 雪水-B…細菌数 2.4×10^3 /ml)を用いた。温度状況については発熱は示されなく、井戸水、雨水の状況と比較すると、平温あるいは平温以下に下降する傾向が示された。

2 河川水の高圧蒸気滅菌による発熱性物質の影響

河川水を高圧蒸気滅菌(121℃, 20分間)することにより、滅菌前と滅菌後の試料を用いた発熱性物質試験では大きな差異が生じた。結果は図3のごとく、河川水-Gの滅菌前(細菌数 1.3×10^3 /ml)と

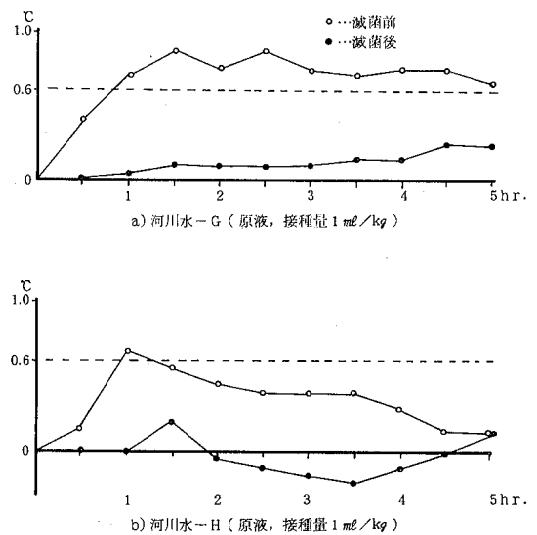


図3 河川水における滅菌前と滅菌後の発熱性物質試験結果

滅菌後(細菌数0/ml)の各原液を1 ml/kgの量を接種したものであるが、滅菌前の試料接種の発熱状況は、接種後30分から1時間にかけて、0.6℃をこえる発熱を示し、5時間後までその上昇を維持した。滅菌後のものでは、接種後1時間30分から2時間にかけてわずかに温度上昇するも、5時間を通して最高上昇値0.25℃であり、ほぼ平温に近い状況であった。

河川水-Hでは、試料は滅菌前(細菌数 1.5×10^3 /ml)と滅菌後(細菌数0/ml)の各原液を1 ml/kgの量になるようにし、接種したもので、滅菌前の試料では、接種後30分から1時間にかけて0.6℃をこえる温度上昇となり、以後下降の傾向を示し、5時間後ではほぼ平温にまで回復した。滅菌後のものではほとんど発熱は示されなかった。

3 各種水のpH測定およびLimulus Testと一般細菌数との関係

各種の水について、滅菌することによりpHに及ぼす影響の有無について調査した。結果は表3に示すがごとく、かなり変動がみられた。なおpH値は、滅菌直前と滅菌2時間後に測定したものである。

表3 各種水のpH測定結果

No	検体	細菌数/ml		pH値	
		滅菌前	滅菌後	滅菌前	滅菌後
1	水道水-B	0	0	7.01	9.07
2	井戸水-D	4.4×10	0	7.07	8.96
3	井戸水-E	0	0	7.67	9.25
4	河川水-P	3.7×10^3	0	7.53	9.28
5	河川水-Q	5.3×10^4	0	7.55	9.12
6	雨水-C	8.7×10	0	4.23	4.54
7	雪水-B	2.4×10	0	4.71	5.05

水道水、井戸水、河川水は滅菌前ではpH値7.0~8.0の中性あるいは弱アルカリ性を示したが、雨水、雪水ではpH値4.0~5.0の酸性を示したのに対し、滅菌2時間後のpH値はすべて上昇し、その上昇値は水道水、井戸水、河川水ではほぼ1.5~2.0上昇し、pH値8.96~9.28を示したが、雨水、雪水では0.3~0.5の上昇となり、pH値4.54、5.05を示した。

一方、Limulus Testは各種の水の滅菌後の試料について行ったが、結果は表4に示すとおりである。

表4 各種水の細菌数とLimulus Testの結果

No	検体	細菌数/ml	Limulus Test希釈倍数		
		滅菌後(滅菌前)	1	10^{-1}	10^{-2}
1	水道水-A	0 (0)	+	-	-
2	井戸水-D	0 (4.4×10)	+	-	-
3	井戸水-E	0 (0)	+	-	-
4	河川水-I	0 (3.4×10^3)	+	+	-
5	河川水-J	0 (5.6×10^2)	+	-	-
6	雨水-A	0 (2.7×10)	±	-	-
7	雨水-C	0 (8.7×10)	-	-	-
8	雪水-A	0 (5)	-	-	-

すなわち、細菌数は滅菌後はすべて0となったにもかかわらず、Limulus Testでは水道水、井戸水、河川水の原液でゲル化反応を示し、河川水-Iでは10倍希釈液でもゲル化反応を示し陽性であったが、雨水、雪水については原液でもゲル化がみられず陰性を示した。

考 察

前報²⁾、前々報¹⁾では各種の水の生(無滅菌)の試料を用いて発熱性物質の自然界での分布を調査してきたが、今回はこの各種の水に滅菌操作を加えることにより、比較的無菌に近い状態にし、それらの発熱性物質の変化を追求した。また、雨水、雪水についても前報より試料数を増し、

再度試験を試みた。

まず河川水については、高圧蒸気滅菌法で標準の滅菌条件である121℃(1kg/cm²)、20分を満了することにより、発熱性が無滅菌の試料の場合よりも1~2オーダー低くなる傾向があらわれた。このことは図3の河川水-G、河川水-Hのウサギ接種実験にみられるがごとく、滅菌前の原液の1ml/kgの接種量では、0.6℃をこえる発熱を示したにもかかわらず、滅菌後の同原液の1ml/kgの接種量では、ほぼ平温を維持し、発熱傾向は示されなかったことからしても、発熱活性が低下することが考えられる。

また、この発熱活性が滅菌前の河川水の細菌数に左右されるか、そして菌体破壊後のEndotoxin、あるいは他の因子の影響であるかを知るべく、河川水を菌数別に滅菌したものに発熱性物質試験を試みた。結果は図1にみられるように、各河川水の滅菌後の原液の1ml/kgの接種量では、すべて陰性結果を示したのに対し、滅菌後の同原液の10ml/kgの接種量ではすべて陽性となった。このことから高圧滅菌後の発熱性は、河川水の 10^2 から 10^5 の範囲の滅菌前の細菌数に影響されないことが考えられるが、一方発熱曲線から判断すると、河川水-I、-J、-Oはわずかながらも接種後2時間前後と4時間前後に発熱のピークがみられ、また最初の0.6℃以上上昇までの潜伏期も滅菌前の河川水(図3aの河川水-G)の発熱曲線と比較すれば、30分から1時間の遅延がみられる。これはE. S. Snellらの人間とウサギに対して種々の発熱性物質の静脈内接種実験⁵⁾の抗原、ウィルス、微粒子等を接種した場合の発熱曲線とかなり類似していることから、不明の他の因子とされている河川水の中の発熱性物質にはEndotoxin以外の物質もかなり含まれているのではないかと推察される。

また、今回の調査で興味深く思われたのは表1に示した発熱性物質試験の結果と採取時期の関係である。No1(河川水-A)から、No5(河川水-F)までは1月から4月にかけて採水し、No6(河川水-H)からNo10(河川水-O)までは7月から10月にかけて採水した。高圧滅菌後はすべて試料が細菌数0/mlとなったが、発熱性物質試験から判定すれば、前者は原液もしくは10倍希釈液の1ml/kgの接種で陽性を示したのに対し、後者は原液の10ml/kgの接種でのみ陽性を示した。この両者の陽性結果を比較すれば、接種量に10倍から100倍の差が生じ、冬から春にかけての季節に採水した河川水の方が、夏から秋にかけての季節に採水した河川水よりも汚染が進んでいると思われる結果となった。これについては、河川水に高圧滅菌をほどこしているために直接の汚染とはいいがたいし、まだまだ試料数も乏しく、また河川水の採水場所を異にしている状況もふまえて、河川も同一河川で、同一場所の採水を年間を通じて実施し、発熱性の変化を追求するのも一方法ではないかと考える。

さて、水道水、井戸水については、この高圧蒸気滅菌法は、発熱活性をなくすのには相当有用であり、水道水の滅菌前の菌数 $3.0 \times 10^3 / \text{ml}$ の試料のもので滅菌後の同原液の $10 \text{ ml} / \text{kg}$ の接種量で発熱性物質試験陽性と判定されたほかは、局方規定に準ずる各原液の $10 \text{ ml} / \text{kg}$ の接種量ではすべて陰性の結果をえた。このことは、水道水、井戸水等に菌数の少ないことも一原因であると思われるが、むしろ河川水に比し、ろ過工程の問題が加味された結果、発熱性物質の除去につながったのではないかと推察される。

雨水、雪水については、高圧滅菌後の試料接種では発熱がみられず、むしろ無滅菌の試料を中心に発熱性物質試験を行ったが、今回の実験ではすべて陰性の結果となった。図2の雨水、雪水の温度曲線から判断すれば、雨水の場合では無滅菌の原液の $10 \text{ ml} / \text{kg}$ の接種で、接種後2時間あたりからわずかに上昇するも5時間の測定時間では 0.6°C をこえる発熱はみられなかったが、温度上昇のきざしがみられ、前報²⁾の結果とほぼ一致する結果がえられた。雪水では、無滅菌の原液の $10 \text{ ml} / \text{kg}$ の接種では、5時間を通して発熱はみられず、温度状況も接種後平温を保つか、あるいはわずかではあるが温度下降の傾向となり、前報²⁾の 0.6°C をこえる発熱状況とはまったく異なった結果となった。このことは、河川水、井戸水、水道水の発熱状況と比較すれば、雨水、雪水はまだまだ汚染が少なく、自然の理にかなっているといえよう。

今回は、以上の発熱性物質試験とは別に、pH測定を行った。表3はその結果を現わしているが、水道水、井戸水、河川水では滅菌前はほぼ中性に近いpH値を示していたのが、滅菌後はアルカリ度を増し、滅菌前に比し、 $1.5 \sim 2.0$ の上昇を示した。しかし、雨水、雪水については逆に酸性に傾き、滅菌前は、 4.23 から 4.71 あったものが、滅菌後はわずかに上昇するもその上昇度は $0.3 \sim 0.5$ であった。以上よりpH値と発熱性と直接の関連は、現段階ではまだ推察することは困難で、さらに実験を重ねていかなければならない。

我々は、発熱性物質試験を水質試験に応用したが、近年 *in vitro* としての *Limulus Test* が同じく水質試験に応用^{6) 7)} されつつある。今回の *Limulus Test* は滅菌後の試料を中心に行ったが、無滅菌の前報²⁾ の *Limulus Test* の結果と比較すれば、滅菌後の試料は1オーダーのゲル化の低下が示された。しかし、この *Limulus Test* はpHとの関係が重要視され、特にゲル化反応の至適pHは約7 (pH $6.25 \sim 7.25$) であり⁸⁾、pH 5.50 以下、pH 7.75 以上ではゲル化反応の著しい低下がみられることが報告されている。我々の実験では10倍以上の希釈では中性付近にpHを補整したが、原液に関しては、あえてpHの補整を行わず、また発熱性物質試験の関係をも考慮したそのままの試料をもちいた事につき問題は残るが、今回はこの点につき検討する予定である。

各種の水につき、種々の方法で調査を行ってきたが、我々は応用面での発熱性物質試験 (*Pyrogen Test*) のありかたに特に注目したい。この試験では現在、主に注射剤の発熱性物質の有無が問題とされている。しかし、今回の実験では自然界の発熱性物質の分布を知るのが第一の目的であり、本来の注射剤の常識からかけはなれていることに問題があるかもしれない。もし、一連の各種の水を注射剤 (静脈性製剤) という観点から考えれば、本実験法はその条件を満たしているわけではない。注射剤としては無菌という条件は満たすが、まだ不溶性異物の混入の問題とか、浸透圧、pH、濃度と種々考えなければならない要素がある。特に不溶性異物は、ろ過工程を必要とし、その工程は注射剤製造工程中で極めて重要なものとみなされている。第一歩の無菌条件は満たされたが、我々は第二歩として不溶性異物除去を目的としたろ過工程の実験をメンブレンフィルター等を使用してさらに行い、研究を深めたいと考えているし、単なる各種水の汚染調査でなく、汚染防止、清浄化を目的としたものでなければならぬと思われる。

要 約

各種の水につき、高圧蒸気滅菌を行い、滅菌後の試料につき、発熱性物質試験と *Limulus Test* を行った結果は次のごとくであった。

- 1 河川水の高圧滅菌後の発熱性物質試験では、1月～4月の採取試料の原液、 $1 \text{ ml} / \text{kg}$ の接種量で陽性を示したのに対して、7月～10月の試料では、原液、 $10 \text{ ml} / \text{kg}$ の接種量で陽性を示し、両者間における発熱作用起因希釈倍数では1オーダーの差がみとめられた。
- 2 河川水の滅菌後の原液、 $10 \text{ ml} / \text{kg}$ の接種の発熱性物質試験陽性例の発熱状況は、無滅菌の試料接種陽性例の発熱状況に比べ、30分から1時間の遅延発現となった。また、高圧滅菌することにより、発熱活性が弱くなる傾向を示した。
- 3 水道水、井戸水の高圧滅菌後の発熱性物質試験は、原液の $10 \text{ ml} / \text{kg}$ の接種量でもほとんど陰性を示し、発熱活性は失われた。
- 4 雨水、雪水については今回の実験では高圧滅菌に関係なく、すべて発熱性物質試験は陰性であった。
- 5 *Limulus Test* では高圧滅菌した試料は、無滅菌の試料よりも1オーダーのゲル化反応は低下した。

文 献

- 1) 正木宏幸、渡辺昭宣 (1979) : 河川水および水道水における発熱性物質の比較、埼玉県衛生研究所報、13、91。
- 2) 正木宏幸、渡辺昭宣 (1980) : 各種水における発

熱性物質の比較, 埼玉県衛生研究所報, 14, 102.

3) Haskins, W. T. et al(1961): Biological properties of parent endotoxins and lipoid fractions, with a kinetic study of acid-hydrolyzed endotoxin, J. Exptl. Med., 114, 665.

4) 加納晴三郎(1966): 大腸菌によるO抗体の形成とその精製Pyrogenによる発熱耐性の関係について, 日薬理誌, 62, 135.

5) E. S. Snell(1971): Microbial Toxins, 5(ed. kadis, Weinbaum, Ajl)298, Academic Press, N. Y.

6) 下平彰男(1977): リムルステストの水質試験への応用, 医薬品, 食品など製造用水の現状と問題点(日本学術研究会), 2-1.

7) T. M. Evans, J. E. Schillinger, and D. G. Stuart(1978): Rapid determination of bacterial water quality by using *Limulus* lysate, Appl. Environ. Microbiol., 35(2), 376.

8) 小林正義, 山元正昭(1974): メチルキサントシン系抗凝集剤による日本産かぶとがに(*Tachypleus tridentatus*)血球プレゲルの抽出(第2報), 薬学雑誌, 94, 298.

中国核実験直後および平常時における原乳の波高分析結果について

(1974年～1980年)

中沢 清明 大沢 尙 藤本 義典

核実験による核分裂生成物のうち、放射性ヨウ素は放射能初期濃度が高く、人体に摂取されたときには特定器官（甲状腺）に集中する傾向がある。放射性ヨウ素は飼料および乳牛を通じて牛乳に移行するので、生牛乳を飲用する機会が非常に多い乳幼児に対して、十分注意をはらわねばならない。放射能緊急事態対策のなかで、放射能対策暫定指標¹⁾の一つとして、生乳中のヨウ素-131濃度が定められている。その濃度が6,000 pCi/lを越えるときは、乳幼児の生牛乳飲用の中止が指示されることになっている。したがって、核実験が行なわれた場合、迅速に放射性ヨウ素の濃度を決める必要があり、その迅速分析には波高分析が適している。

1974年から1980年の間、中国核実験直後ならびに平常時に採取した原乳について、ヨウ素-131、セシウム-137、カリウム-40の3放射性核種の連立方程式法²⁾を適用した。その解析結果を報告するとともに、波高分析および連立方程式法の問題点を検討した。

試験方法

1. 原乳は、県畜産試験場の協力を得て2kg提供してもらい、その内1,700mlを測定に供した。
2. 試料の処理および測定は、科学技術庁の指定による方法（連立方程式法²⁾で行った。また、エネルギー対チャ

ンネルの較正は、測定前にナトリウム-22、コバルト-60で較正し、さらに原乳中のカリウム-40で再較正した。

3. 測定器は、日立505型波高分析器を使用した。高電圧は約900ボルト、測定時間は7,200～60,000秒であった。検出器は日立一堀場製NaI(Tl) 3"×3"である。

4. 試料容器は、塩ビ製の基準マリネリピーカ²⁾を使用した。

5. 測定はすべて常温の測定室で行った。

波高分析および連立方程式法

波高分析に連立方程式法を適用するには、試料中にヨウ素-131、セシウム-137およびカリウム-40の3種の核種が含まれていることが前提となる。分析にあたっては試料容器と同じ容器で、目的とする標準液を測定する必要がある。標準液の波高分析で得られる各エネルギー領域の計数率（ただし、バックグラウンドは除外する）は表1のとおりである。主領域の計数率を1とし、他の寄与領域の割合を算出したが、お互いの寄与係数は表2に、表2の逆マトリックスは表3に示した。表3から、試料中の各核種の計数率は次の連立方程式で与えられる。

表1 標準液の各エネルギー領域の計数率

核種		エネルギー域			
		0.31～0.41MeV	0.59～0.73MeV	1.39～1.53MeV	0.10～2.00MeV
ヨウ素-131	8,048 dps / 1.7ℓ	16,527.7 ± 16.6	1,001.3 ± 4.1	- 0.11 ± 0.36	36,230 ± 25
セシウム-137	2,892 dps / 1.7ℓ	1,351.5 ± 4.1	3,998.3 ± 6.7	- 0.19 ± 0.31	11,386 ± 11
カリウム-40	KCl 100g / 1.7ℓ	61.96 ± 0.40	37.54 ± 0.31	131.92 ± 0.44	686.61 ± 1.26

注、単位：cpm / 1.7ℓ

表2 寄与係数

	MeV 0.31 ~ 0.41	MeV 0.59 ~ 0.73	MeV 1.39 ~ 1.53
ヨウ素-131	1.0000	0.0630	0.000
セシウム-137	0.3380	1.0000	0.000
カリウム-40	0.4370	0.3064	1.000

表3 表2の逆マトリックス

	MeV 0.31~0.41	MeV 0.59~0.73	MeV 1.39~1.53
ヨウ素-131 Ni	1.022	- 0.345	- 0.341
セシウム-137 Ncs	- 0.064	1.022	- 0.245
カリウム-40 Nk	0.000	0.000	1.000

ヨウ素-131

$$N_i = 1.022 N_{s1} - 0.345 N_{scs} - 0.341 N_{sk}$$

セシウム-137

$$N_{cs} = -0.064 N_{s1} + 1.022 N_{scs} - 0.245 N_{sk}$$

カリウム-40

$$N_k = N_{sk}$$

ただし, N_{s1} : 0.31 ~ 0.41 MeV 領域の試料計数

率, N_{scs} : 0.59 ~ 0.73 MeV 領域の試料計数率, N_{sk} : 1.39 ~ 1.53 MeV 領域の試料計数率。

また, 表1の数値からヨウ素-131, セシウム-137およびカリウム-40の計数効率, 放射エネルギーへの換算定数, 全計数率チェック²⁾のための全ガンマ量が算出できる。それらは表4のとおりである。また, 計数誤差計算は統計計算の標準偏差の項にしたがって行う。

表4 計数効率, 換算定数

	計数効率	N → pCi / ℓ	pCi / ℓ → cpm / 1.7 ℓ
ヨウ素-131	4.15 ₁ %	7.784倍	0.2832 ± 0.0002倍
セシウム-137	2.68 ₀ %	11.496倍	0.2477 ± 0.0002倍
カリウム-40	1.23 ₃ %	19.523倍	0.0266 ± 0.00003倍
カリウム	-	* 0.234倍	* 2.2258 ± 0.041倍

注: * N → g / ℓ, g / ℓ → cpm / 1.7 ℓ

結果および考察

1 波高分析によるヨウ素-131とセシウム-137の検出

1974年から1980年の期間内に採取した原乳(104検体)のシンチレーションスペクトルをとった。最初の較正で, カリウム-40の光電ピークが146チャンネルに現れるように較正したが, 実際には144.2 ~ 149.8チャンネルまでの変動が認められた。これは,

NaI(Tl) 検出器の出力が, 温度変化に鋭敏に対応して変化したためと思われる。また, それらの波高分析データについて, 前記の式を適用し, ヨウ素-131, セシウム-137, カリウム-40の濃度を求めた。これらの3種の核種のうちカリウム-40は自然放射性核種であり, 存在比が分かっているのでその値を基にして, 原乳中のカリウム量を計算すると0.48 ~ 1.85 g / ℓであった。他のヨウ素-131やセシウム-137の放射能濃度は検出限界以下のものが多いので, データを検出限界を基準として

表5 原乳についてのヨウ素-131, セシウム-137検出限界分類表(波高分析法による)

	I 検出限界以下		I 検出限界以上		検体数計
	Cs 検出限界以下	Cs 検出限界以上	Cs 検出限界以下	Cs 検出限界以上	
平常時	22 (62.9)	13 (37.1)	0 (0.0)	0 (0.0)	35 (100.0)
核実験直後	39 (56.5)	17 (24.6)	5 (7.3)	8 (11.6)	69 (100.0)
検体数	61	30	5	8	104

注, 1) I : ヨウ素-131, Cs : セシウム-137

2) () の内は%

分類すると表5のようになる。ここで、検出限界以上(検出された)とは、計数値が計数誤差の3倍以上あるときをいい、計数誤差の3倍未満のときは検出限界以下(検出されず)という。

表5から、次のことがわかる。

- (1) 平常時の原乳ではヨウ素-131は検出されなかった。
- (2) 核実験直後の原乳でも、ヨウ素-131、セシウム-137共に検出されない検体が39検体(56.5%)もあった。
- (3) セシウム-137について、検出限界以上のものは平常時で37.1%、核実験直後で36.2%であった。しかし、同期間内における牛乳の核種分析³⁾の結果では、すべて検出限界以上であり、1.9~2.17pCi/l⁴⁾であった。したがって、波高分析による連立方程式法はロー・レベルのセシウム-137の分析には適さないと思われた。

2 中国核実験直後における原乳中のヨウ素-131の動向

期間中の中国核実験は第16回から26回まで行われた。そのうち、第17、20および24回は地下核実験であり、測定対象から除いた。おのおの地上核実験(20キロトン未満から約4メガトンの範囲¹⁾の直後から7~17日間毎日原乳を採取した。第16、18、19、21、23および25回中国核実験直後に採取した原乳では、ヨウ素-131が延べ13検体検出された。しかし、第22回(20キロトン未満)および26回(0.2~1メガトン)中国核実験直後のすべての原乳(延べ14検体)では、ヨウ素-131が検出されなかった。検出限界以上の13検体を表6に示した。この表から次のことがいえる。

- (1) 8回の核実験のうち、第22回および26回では、ヨウ素-131が検出されなかった。したがって、波高分析のみによって、核実験の規模や影響をうんぬんできないこ

とがある。

- (2) 約4メガトンの規模の第21回の核実験の影響が最も強く認められた。核実験後2~12日の間にわたって原乳に影響が認められた。
- (3) 雨水の全ベータの測定⁵⁾では、核実験後、7日経過した時点で検出されないときは、核実験の影響が無いものと推定できた。しかし、原乳に関しては、表6で明らかなように、より長い期間(約14日)調査を続行しなければ、影響の有無についての推定はできない。

3 波高分析法による連立方程式法の適用限界と全計数率チェック

核実験直後の原乳については、3放射性核種の存在を前提にして連立方程式法を適用し、それぞれの量の検出を試みた。しかし、対象としたものが実際に3放射性核種のみであるかどうかを知るために、第21回の核実験直後の原乳を試料として検討した。すなわち、半減期を求めるために第1回目の測定から5~60時間に再測定したが、ヨウ素-131、セシウム-137共に検出限界以下となった。このことは、ヨウ素-131(半減期8.05日)、セシウム-137(半減期30.0年)の半減期とは一致しないこと、さらに、他のガンマ放射線核種が存在することを意味している。NaI(Tl)検出器の半値幅が大きいので、それらの核種は同定することはできなかった。

連立方程式法は、方程式を作成するために使った核種が存在することを前提としているので、当分析結果のように、方程式に関与しない核種があるときは、無条件に方程式を適用できない。このような場合には、通常、全計数率チェック²⁾を行い、そのチェックの合格、不合格によって、連立方程式法で得た値を採用(合格)するか否(不合格)かを決定しなければならない。

表6に示した13検体について、全計数率チェックを行

表6 中国核実験直後においてヨウ素-131が検出限界以上あった原乳

回数*	第15回	第18回	第19回	第21回							第23回	第25回	
	規模	約1Mt	20kt未満	20~200kt	約4Mt							20kt未満	約20kt
核実験年月日	1974.6.17	1976.1.23	1976.9.26	1976.11.17							1978.3.15	1978.12.14	
採取年月日	1974.6.25	1976.2.4	1976.10.7	1976.11.19	11.20	11.22	11.25	11.26	11.27	11.29	1978.3.17	1978.12.17	12.19
カリウム ⁴⁰ /L	1.02±0.06	1.52±0.08	1.20±0.07	1.64±0.07	1.55±0.07	1.69±0.07	1.51±0.08	1.66±0.07	1.74±0.08	1.50±0.07	1.73±0.07	0.85±0.06	1.37±0.06
I-131pCi/L	12.1±3.6	14.3±4.6	15.2±3.9	30.7±4.0	18.8±4.0	14.8±4.0	17.8±4.9	23.8±4.0	14.2±4.4	21.0±4.4	12.6±3.4	13.9±3.7	22.3±3.4
Cs-137pCi/L	7.3±4.1	15.2±5.3	9.3±4.4	43.2±4.6	34.9±4.6	27.5±4.6	33.0±5.6	10.7±4.5	16.7±5.0	25.4±5.9	20.2±4.5	7.5±4.2	25.8±3.9
全計数率チェック	合格	不合格	合格	不合格	合格	不合格	合格	合格	合格	不合格	合格	合格	不合格
試料計数率**	8.22±1.82	16.4±2.45	12.9±2.00	32.9±2.10	24.8±2.07	20.9±2.10	19.4±2.46	15.5±2.08	12.9±2.29	19.6±2.25	10.1±2.08	10.9±1.88	22.5±1.79

注* 回数：中国核実験回数，Mt：メガトン，kt：キロトン
 第17、20および24回は地下核実験，第22および26回は波高分析で検出されず。
 ** 試料計数率：除灰後の cpm/L

った結果、5検体が不合格となった。そのうちの第21回中国核実験直後の原乳については、7検体のうち3検体が不合格となり、これら3検体には他の放射性核種があることになる。しかし、再測定の結果、合格になったものも含めて検体すべてに他の核種の存在が認められた。したがって、異常値が得られた場合、全計数率チェックのみならず、さらにゲルマニウム半導体検出器等を使用して核種を同定する必要がある。

4 全ガンマー量とヨウ素-131およびセシウム-137との関係

ガンマー線エネルギー(0.1~2.0 MeV)の範囲でカリウム-40の影響を除いた全ガンマー(以下全ガンマーという)を検出限界で分類した結果は表7のとおりである。表7から次のことが分かる。

(1) 全ガンマー検出限界以下でヨウ素-131検出限界以上の原乳はない。

(2) 全ガンマー検出限界以下(58検体)であっても、8検体(13.8%)にセシウム-137が検出された。その原乳は表8のとおりである。

(3) 全ガンマー検出限界以上(46検体)であっても、11検体(23.9%)にヨウ素-131とセシウム-137が検出されない。それらの原乳は表9のとおりである。

(4) 全ガンマー検出限界以上の原乳は、ヨウ素-131またはセシウム-137あるいは両方が検出限界以上である。

しかし、表8および表9に示した原乳は種々の問題を含んでいるのでさらに検討した。表8の原乳は同時期の牛乳の核種分析に比べてセシウム-137が高いと思われる。したがって、ガンマー線エネルギー0.66 MeV付近のカウントが何らかの原因または核種によって増大したものと推定される。表9の原乳については、いろいろと原因が考えられるが、未だ明確には分からないので、今後とも原因を追求する必要がある。

表7 原乳についての全ガンマー(Kを除く)検出限界分類表

	全ガンマー(除K)検出限界以下				全ガンマー(除K)検出限界以上				検体数計
	I以下		I以上		I以下		I以上		
	Cs以下	Cs以上	Cs以下	Cs以上	Cs以下	Cs以上	Cs以下	Cs以上	
平常時	19	3	0	0	3	10	0	0	35
核実験直後	31	5	0	0	8	12	5	8	69
検体数計	50	8	0	0	11	22	5	8	104

注 I:ヨウ素-131, Cs:セシウム-137

以下:検出限界以下, 以上:検出限界以上

表8 全ガンマー検出限界以下, セシウム-137検出限界以上の原乳

採取年月日	1974.3.25*	1974.6.20	1974.6.22	1978.3.19	1978.3.22	1979.5.25*	1980.9.24*	1980.11.27
測定時間 sec	43,200	60,000	14,400	10,800	10,800	43,200	27,000	30,600
k-40 ピークチャンネル	146.9	146.0	146.2	146.2	147.0	144.9	147.0	146.0
全ガンマー cpm/1.7ℓ	1.05 ± 1.23	2.01 ± 1.10	5.28 ± 1.84	6.04 ± 2.05	5.80 ± 2.05	1.27 ± 1.21	2.36 ± 1.53	5.77 ± 1.27
カリウム g/ℓ	1.55 ± 0.04	0.80 ± 0.03	1.13 ± 0.05	1.52 ± 2.05	1.59 ± 0.07	1.61 ± 0.04	1.80 ± 0.05	1.62 ± 0.04
Cs-137 pCi/ℓ	9.67 ± 2.77	9.50 ± 2.49	19.76 ± 4.15	15.78 ± 4.44	19.80 ± 4.49	9.53 ± 2.66	14.88 ± 3.39	18.71 ± 2.84
カリウム g/ℓ	1.34	0.873		1.32		1.57	1.85	1.92
Cs-137 pCi/ℓ	8.89 ± 0.49	7.80 ± 0.57		3.89 ± 0.31		2.64 ± 0.20	1.97 ± 0.18	1.73 ± 0.15

注, 1) *:平常時試料

2) 下二段は別試料, 核種分析結果

表9 全ガンマー検出限界以上, ヨウ素-131・セシウム-137検出限界以下の原乳

採取年月日	1974.6.23	1975.9.30*	1976.3.26*	1976.9.28	1976.10.6	1976.10.11	1977.9.25	1977.9.28	1978.12.18	1978.12.21	1980.5.29*
測定時間 秒	14,400	43,200	10,800	10,800	14,400	10,800	10,800	10,800	10,800	10,800	24,000
カリウム-40 ピークチャンネル	148.8	146.8	149.8	149.0	149.4	147.7	147.0	147.0	146.0	146.2	147.0
全ガンマー cpm/1.7ℓ	7.40 ± 1.81	4.29 ± 1.21	8.26 ± 2.10	7.20 ± 1.96	7.30 ± 1.76	6.11 ± 2.00	6.76 ± 2.03	6.75 ± 2.05	11.0 ± 1.98	6.29 ± 1.90	4.47 ± 1.50
カリウム g/ℓ	0.929 ± 0.058	1.39 ± 0.04	1.84 ± 0.07	1.14 ± 0.05	1.19 ± 0.06	1.24 ± 0.07	1.48 ± 0.07	1.57 ± 0.07	1.35 ± 0.07	0.88 ± 0.06	1.61 ± 0.05

注 *:平常時試料

要 約

1. NaI(Tl) 検出器による波高分析に際しては、温度管理に注意を要する。
2. 平常時の原乳ではヨウ素-131は検出されない。
3. 波高分析による連立方程式法は、セシウム-137の分析に適さない。
4. 核実験直後の原乳において、常にヨウ素-131、セシウム-137が検出されるとは限らない。
5. 波高分析法のみによっては核実験規模で原乳中に影響が現れるか否かは判断できない。
6. 第21回中国核実験直後の原乳にヨウ素-131、セシウム-137以外の放射性核種が存在した。
7. 連立方程式で得られた数値は、常に全計数率チェックが必要である。
8. 波高分析による連立方程式法は未だいろいろと検討す

る問題があり、ひき続き測定し、解明する必要がある。

本測定を行うに当たり、原乳を提供していただいた県畜産試験場の皆様に深謝いたします。

文 献

- 1) 放射能対策本部(昭和56年1月):第26回中国核実験関係資料。
- 2) 科学技術庁編(昭和49年):NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータ機器分析法。
- 3) 科学技術庁編(昭和51年):放射性セシウム分析法
- 4) 未発表。
- 5) 中沢清明,日笠司,藤本義典(1977):埼玉県における中国核実験の影響について。埼玉県衛生研究所報. 11, 200-202.

河川水の汚染総合調査 (I)

—荒川、入間川および新河岸川水系 (昭和55年度)—

徳丸 雅一 栗栖 誠 正木 宏幸
 柳川 敬子 池内 俱子 渡辺 昭宣
 武井 伸一 浦辺 研一 稲村 江里
 稲垣 礼子 藤本 義典

従来、河川水の汚染度を表す指標として、BODやCO₂Dあるいは大腸菌群数といった個別的な項目を用いてきた。各項目間の相関や河川の自浄作用に対するモデル的な研究は多くの人々により発表されているが、しかし相関を含めた汚染の総合的把握は、汚染基準等の設定の困難さから一般的なものとなっていない。今回、河川水の汚染を総合的に把握し、さらに河川水の自浄作用を検討するための予備試験を行った。調査対象河川として、荒川、新河岸川および入間川の3水系・13地点を選んだ。なお、これらの水系の水質と生物相については、すでに、埼玉県公害センターによる調査^{2,5)}がある。

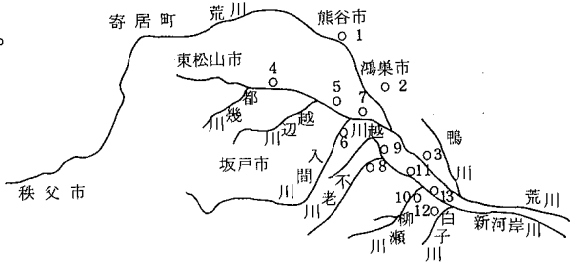


図1 河川水の採水地点

試験方法

試験方法は、下水試験方法⁴⁾ 衛生試験法⁵⁾ 食品衛生検査指針⁶⁾に従った。検査は図1に示す13地点の河川水を使用し、春夏秋冬の年4回検査を実施した。また、対照として荒川左岸南部下水処理センターの生下水を検査した。

結果および考察

1 化学的検査結果

調査結果を表1に示す。汚染度合をBOD, COD, T-NおよびT-PO₄³⁻でみると、各河川毎の四季の差はあま

表1 河川の水質分析結果 (昭和55年度)

水系	番号	採水地点	採水月日	pH	DO (mg/L)	SS (mg/L)	BOD (mg/L)	COD (mg/L)	T-N (mg/L)	T-PO ₄ ³⁻ (mg/L)	Cl ⁻ (mg/L)	
荒川水系	*	荒川	4.21	6.9	10.5	16	2.1	3.1	2.95	0.36	6.04	
			6.30	6.9	8.9	3	1.0	3.2	2.20	0.21	10.1	
			10.13	6.6	9.1	2	0.7	1.7	2.40	0.00	9.08	
			1.19	6.3	14.1	3	1.0	2.8	1.10	0.00	9.15	
	*	荒川	鴻巣御成橋	4.21	7.0	10.0	12	2.7	3.6	3.90	0.63	10.6
				6.30	6.9	9.0	25	1.4	4.1	2.15	0.43	14.8
				10.13	6.7	8.8	8	0.8	2.4	2.85	0.10	18.5
				1.19	6.5	13.6	5	1.1	2.9	2.20	0.24	19.0
	*	荒川	浦和秋ヶ瀬	4.21	7.0	9.6	12	1.6	2.8	4.85	1.10	14.2
				6.30	6.6	5.9	20	2.7	6.1	2.90	0.56	20.4
				10.27	6.7	8.5	11	0.7	2.7	3.74	0.00	16.1
				2.3	6.5	11.6	6	1.3	2.6	2.50	0.35	22.7
入間川水系	*	都幾川	5.6	7.6	11.4	5	3.7	2.8	3.95	0.64	15.7	
			7.14	6.8	7.8	10	0.5	2.8	2.95	0.24	12.8	
			10.13	6.8	8.9	1	0.3	2.0	2.99	0.08	14.4	
			1.19	6.6	13.1	3	1.2	2.4	3.24	0.01	17.4	

水系	番号	採水地点	採水月日	P H	DO (mg/L)	SS (mg/L)	BOD (mg/L)	COD (mg/L)	T-N (mg/L)	T-PO ₄ ³⁻ (mg/L)	Cl- (mg/L)
入間川水系	5	越辺川 釘無橋	5. 6	7. 5	7. 7	16	2. 7	5. 1	7. 25	1. 13	21. 2
			7. 14	6. 7	7. 1	17	1. 3	3. 7	3. 45	0. 63	15. 5
			10. 13	6. 5	7. 2	2	1. 6	3. 4	4. 84	0. 60	19. 3
			1. 19	6. 7	13. 0	6	2. 8	6. 2	6. 84	1. 55	26. 9
	6	入間川 釘無橋	5. 6	7. 6	15. 6	8	3. 3	6. 4	6. 85	1. 13	19. 1
			7. 14	6. 8	8. 6	11	1. 2	3. 4	3. 40	1. 66	16. 7
			10. 13	6. 8	8. 8	2	1. 3	3. 7	4. 44	0. 65	20. 5
			1. 19	7. 0	15. 3	8	3. 9	8. 9	6. 29	2. 55	31. 2
	7	5と6の合流点 出丸冠水橋	5. 6	7. 5	9. 3	14	3. 3	5. 6	7. 65	1. 11	20. 4
			7. 14	6. 9	7. 6	21	1. 5	3. 9	3. 35	0. 54	16. 9
			10. 13	6. 7	8. 2	6	2. 1	3. 7	4. 54	0. 55	20. 2
			1. 19	6. 8	12. 6	11	3. 2	6. 8	6. 74	2. 35	27. 8
新河岸川水系	8	不老川 ごだゝ橋	6. 2	7. 1	5. 9	16	14. 5	19. 6	12. 4	8. 31	50. 3
			7. 14	6. 9	5. 5	30	26. 8	29. 9	13. 0	10. 8	66. 4
			10. 27	6. 8	7. 9	8	7. 1	10. 3	14. 1	1. 53	50. 0
			2. 3	6. 6	6. 3	25	33. 0	28. 2	14. 3	8. 99	115
	9	新河岸川 旭橋	6. 2	6. 6	3. 1	9	8. 0	11. 4	12. 2	4. 45	38. 5
			7. 14	6. 7	3. 6	15	9. 8	20. 7	14. 0	6. 78	48. 6
			10. 27	6. 2	5. 3	8	6. 4	9. 6	12. 8	2. 53	36. 1
			2. 3	6. 2	4. 4	13	11. 1	12. 8	12. 1	4. 30	52. 0
	* 10	柳瀬川 栄橋	6. 2	6. 9	3. 7	58	18. 5	20. 1	10. 6	4. 01	37. 6
			7. 21	7. 2	3. 9	20	7. 9	12. 4	8. 90	4. 70	62. 7
			10. 27	6. 7	6. 0	14	6. 0	9. 1	10. 0	2. 61	37. 1
			2. 3	6. 7	4. 5	50	18. 2	16. 1	14. 1	5. 43	53. 3
* 11	新河岸川 いろは橋	6. 2	6. 8	3. 0	25	7. 9	14. 2	11. 6	3. 56	41. 9	
		7. 21	6. 5	0. 8	28	7. 6	11. 9	8. 35	3. 46	44. 0	
		10. 27	6. 3	2. 5	10	4. 8	9. 1	10. 0	1. 90	37. 2	
		2. 3	6. 4	1. 5	10	7. 1	11. 6	11. 0	3. 94	57. 9	
* 12	白子川 落合橋	6. 2	6. 8	4. 4	65	37. 6	33. 8	10. 7	5. 66	38. 1	
		7. 21	6. 6	2. 4	42	26. 7	24. 5	10. 5	5. 28	52. 6	
		10. 27	6. 6	3. 4	39	28. 2	24. 4	10. 5	0. 86	63. 0	
		2. 3	6. 5	3. 2	92	66. 1	41. 4	19. 0	8. 05	60. 5	
13	新河岸川 芝宮橋	6. 2	6. 9	3. 5	45	12. 9	13. 2	6. 75	2. 59	26. 0	
		7. 21	6. 6	4. 2	39	6. 4	9. 8	6. 25	1. 96	29. 4	
		10. 27	6. 5	5. 8	14	4. 5	7. 4	7. 09	1. 53	27. 7	
		2. 3	6. 5	1. 9	8	10. 2	12. 9	11. 1	5. 25	59. 1	

注：*：公害センターの調査^{2,3)}と同じ採水地点（以下、表2、4および5にも適用）

りない。しかし、全体的に新河岸川水系は、荒川水系や入間川水系に比べ高い値を示しており、汚染が進んでいることがわかる。荒川水系と入間川水系の場合、四季を通じたBOD、COD、T-NおよびT-PO₄³⁻の最高値はそれぞれ3.9、8.9、7.65、2.55であったが、新河岸川水系ではそれぞれ6.61、41.4、19.0、10.8であった。特に、新河岸川に流入している小河川である不老川、

柳瀬川、白子川の汚染は著しく、新河岸川の汚染の原因のひとつとなっている。

2 細菌学的検査結果

1) 河川水の生活排水による汚染状況、特にふん便汚染の状態を、大腸菌群等の汚染指標細菌についてみると、表2に示したような結果となる。季節別にみた場合、春と夏に比べて秋と冬に菌数が減少し、特に大腸菌および腸球菌

表2 河川水の細菌学的調査成績

水系	番号	採水地点	採水月日	一般細菌数 (/100 ml)	大腸菌群 (/100 ml)	大腸菌 (/100 ml)	腸球菌 (/100 ml)	耐性 ウエルシ 菌(定性)	サルモネラ (定性)
荒川水系	* 1	荒川 熊谷久下橋	4.21	3.2×10^5	1.6×10^4	1.2×10^3	1.1×10^2	+	-
			6.30	3.0×10^6	1.0×10^4	3.5×10^2	7.9×10^2	-	-
			10.13	1.4×10^4	1.7×10^3	2.2×10	7.9×10	-	-
			1.19	5.1×10^4	2.3×10	2	2	-	-
	* 2	荒川 鴻巣御成橋	4.21	7.8×10^5	2.1×10^4	1.8×10^3	4.6×10^2	+	+
			6.30	4.3×10^5	1.3×10^4	4.0×10	1.7×10^2	-	-
			10.13	1.1×10^6	4.2×10^3	1.1×10^2	2.4×10^2	+	+
			1.19	7.1×10^4	7.0×10^2	1.1×10	2	-	-
	* 3	荒川 浦和秋ヶ瀬	4.21	6.5×10^4	1.5×10^4	2.0×10^2	8	+	-
			6.30	2.1×10^6	1.1×10^4	9.4×10^2	2.4×10^3	+	+
			10.27	1.3×10^6	5.0×10^3	2.4×10^2	3.5×10^2	-	-
			2.30	1.6×10^5	1.2×10^3	9	1.1×10^2	-	-
入間川水系	* 4	都幾川 東松山橋	5.60	9.6×10^4	1.8×10^3	6	1.3×10	+	-
			7.14	3.5×10^5	5.0×10^3	3.3×10^2	1.6×10^3	-	+
			10.13	2.7×10^5	3.3×10^3	7.9×10	2.4×10^2	-	-
			1.19	1.4×10^5	3.0×10^3	1.3×10^2	2.2×10	-	-
	5	越辺川 釘無橋	5.60	1.5×10^5	2.1×10^4	3.3×10	2	+	-
			7.14	9.3×10^6	2.1×10^4	1.4×10^2	7.9×10	+	-
			10.13	1.5×10^6	2.3×10^4	2.2×10^2	9.2×10^2	+	+
			1.19	1.9×10^5	7.1×10^3	7	8	+	-
	6	入間川 釘無橋	5.60	5.3×10^5	7.1×10^3	2.1×10	3.3×10	+	-
			7.14	4.4×10^5	1.6×10^4	4.6×10^2	5.4×10^2	+	+
			10.13	2.7×10^6	2.5×10^4	3.3×10^2	5.4×10^2	+	+
			1.19	3.1×10^5	2.0×10^3	5	2.7×10	-	-
7	5と6の合流点 出丸冠水橋	5.60	7.5×10^5	2.8×10^4	8	1.7×10^2	+	-	
		7.14	3.0×10^6	1.5×10^4	3.3×10^2	2.4×10^2	+	-	
		10.13	2.8×10^6	1.6×10^4	2.7×10^2	1.6×10^3	+	+	
		1.19	3.1×10^5	6.9×10^3	1.7×10	3.5×10^2	+	-	
新河岸川水系	8	不老川 ごだゝ橋	6.20	3.2×10^7	4.2×10^6	4.0×10^3	9.2×10^3	+	+
			7.14	9.5×10^7	3.1×10^4	3.5×10^4	5.4×10^4	+	+
			10.27	2.4×10^6	1.9×10^5	9.0×10^2	1.1×10^3	-	-
			2.30	2.0×10^7	1.3×10^5	3.5×10^3	1.4×10^3	+	+
	9	新河岸川 旭橋	6.20	7.3×10^6	7.9×10^6	2.8×10^4	3.5×10^3	+	+
			7.14	4.9×10^7	4.9×10^5	3.5×10^4	9.2×10^4	+	+
			10.27	5.9×10^6	6.8×10^4	9.0×10^2	3.3×10^2	+	+
			2.30	5.4×10^5	3.0×10^4	1.7×10^2	1.4×10^2	+	+
	* 10	柳瀬川 栄橋	6.20	4.6×10^7	5.8×10^6	1.8×10^2	1.6×10^4	+	+
			7.21	1.4×10^8	1.1×10^6	2.4×10^2	1.8×10^3	+	-
			10.27	4.9×10^6	7.9×10^4	7.9×10^2	1.3×10^3	+	+
			2.30	1.5×10^7	2.9×10^4	1.7×10^2	7.9×10^2	+	+
* 11	新河岸川 ゐろは橋	6.20	1.6×10^7	4.7×10^6	2.8×10^2	9.2×10^3	+	+	
		7.21	6.1×10^8	5.1×10^5	2.4×10^4	1.7×10^4	+	+	
		10.27	1.0×10^7	1.1×10^5	1.1×10^3	5.4×10^3	-	-	
		2.30	2.7×10^6	4.4×10^4	2.2×10^2	1.7×10^2	+	+	
* 12	白子川 落合橋	6.20	4.5×10^7	1.1×10^7	1.6×10^5	1.6×10^3	+	+	
		7.21	9.0×10^7	7.2×10^5	5.4×10^4	3.5×10^4	+	+	
		10.27	4.5×10^8	7.0×10^5	9.4×10^3	3.9×10^3	+	+	
		2.30	1.3×10^7	5.6×10^5	7.2×10^2	2.4×10^3	+	+	
13	新河岸川 芝宮橋	6.20	3.2×10^7	5.5×10^5	1.8×10^2	5.4×10^3	+	+	
		7.21	3.5×10^8	3.8×10^5	7.9×10^3	3.5×10^3	+	+	
		10.27	5.1×10^7	6.2×10^4	2.1×10^3	1.3×10^3	-	-	
		2.30	4.8×10^7	7.2×10^4	1.1×10^3	2.4×10^3	+	+	

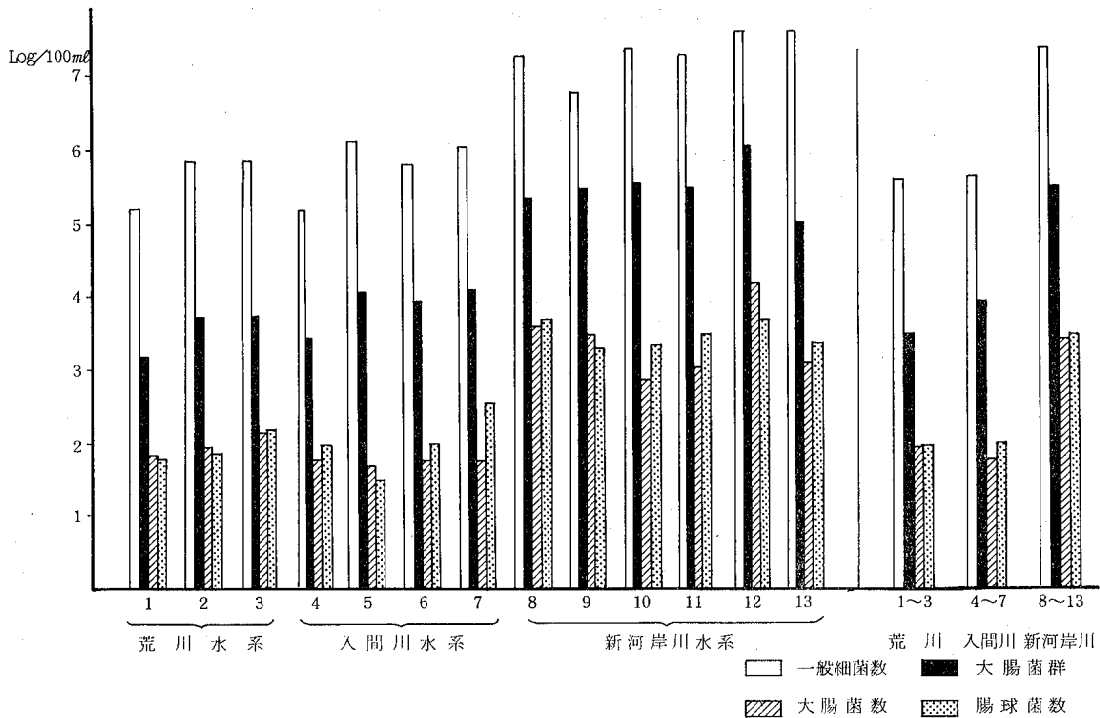


図2 採水地点別および水系別の年間平均値

において顕著な傾向があった。また、各採水地点別に年間の平均値を求め、さらに各水系別の平均値を求めたが、その結果を示したものが図2である。各検査項目別100ml当りの菌数は、一般細菌数 $10^5 \sim 10^7$ 、大腸菌群 $10^3 \sim 10^6$ 、大腸菌 $10^1 \sim 10^4$ および腸球菌 $10^1 \sim 10^3$ のオーダーであった。荒川水系ならびに入間川水系は同様の傾向を示したが、新河岸川水系のみはこれらに比べて1~2オーダー高い結果を示した。

2) 腸管系病原菌としての耐熱性ウェルシュ菌ならびにサルモネラ菌については、表3に示したとおりである。サルモネラ菌の各水系別の検出率は、荒川水系25%、入間川水系31%であったが、新河岸川水系では83%の高率であった。

表3 水系別のウェルシュ菌およびサルモネラ菌検出状況

項目 \ 水系	荒川	入間川	新河岸川
耐熱性ウェルシュ菌	5/12(41.7)*	12/16(75.0)	21/24(87.5)
サルモネラ菌	3/12(25.0)	5/16(31.3)	20/24(83.3)

(注) *: 陽性数/検体数(陽性率)

3) 河川の水利目的に応じて定められた「生活環境の保全に関する環境基準²⁾」にある大腸菌群数の基準値と、各水系別の年間平均値とを比べた。荒川水系ではB類型に適合したが、入間川水系ではB類型よりわずかに超過していた。新河岸川水系は 10^5 オーダーの高い数値を示し、E類型に分類された。荒川、入間川水系を季節別、採水地点別にみた場合、基準値を超えるものもある。これらの水系が、飲料水源として利用されていることから、生活排水等の対策を今後一層強化する必要がある。

3 浮遊生物検査結果

浮遊生物についての調査結果を表4に示したが、種の同定を詳しく判定することが困難であったため、科にとどめた。各水系の傾向については、若干の違いがあることが分かった。ミドリムシ科、ゾウリムシ科、ツリガネムシ科およびユスリカ幼虫は、各水系にはほぼ全季節を通じて生息が認められた。ヒゲマワリ科、ナベカムリ科およびケンミジンコ科は荒川と入間川水系に分布が多く、ホロフリア科は新河岸川水系に多かった。ヒルガタクワムシ科、ワムシ科およびケンミジンコ幼虫期は分布が一定ではなく、判定項目として不適当であることが予想される。以上のことから、各水系に生息する生物相の分布や、季節変化による出現の有無だけで、河川の水質判定をすることは非常に難しい事

表4 浮遊生物(動物性プランクトン)およびユスリカ幼虫の調査成績

月日 地点	ミドリムシ科 Euglenidae	ヒダアワリ科 Volvocidae	ナベカムリ科 Acanthamoebidae	ホロクリヤ科 Holophyidae	ゾウリムシ科 Parameciidae	ツリガネムシ科 Vorticellidae	ヒルガタワムシ科 Philodidae	ワムシ科	ケンミジンコ科 Cyclopidae	ケンミジンコ幼虫期 Nauplius-sp	ユスリカ幼虫
	4 6 10 1 21 30 13 19	4 6 10 1 21 30 13 19	4 6 10 1 21 30 13 19	4 6 10 1 21 30 13 19	4 6 10 1 21 30 13 19	4 6 10 1 21 30 13 19	4 6 10 1 21 30 13 19	4 6 10 1 21 30 13 19	4 6 10 1 21 30 13 19	4 6 10 1 21 30 13 19	10 4 6 1 21 30 13 19
荒川水系	1* 久下橋	+++		+	+++	++++	+++	+			++++
	2* 御成橋	++++	+	+	++	++++	+	++++	++	+	++++
	3* 秋ヶ瀬	+	+		+	++++	+	++++	++	+	
人間川水系	4* 東松山橋	+	+	++	+	++++		++++	++	+	++++
	5 越辺川橋	+++		+	+	++++		++++	++	+	+++
	6 入釘無川橋	++++				++++	+	++++	+	+	+++
	7 5.6合流地点	++++		+		++++	+	++++	++	+	++++
新河岸川水系	8 ござい橋	+++			++	++++	++	++	+	+	++++
	9 旭橋	++++			+	++++	++	++		+	++++
	10* 栄橋	+++			+	++++	+	+	+		++++
	11* いろは橋	++++			++	++++		++++			++++
	12* 落合橋	+	+		+	++++	+	++		+	++++
	13 芝宮橋	+++			++	++++		++		+	++++

が分った。

4 各水系の特徴

以上の結果から、汚染の異なる各水系をパターン化し、視覚的に汚染の状況を判定する方法を試みた。すなわち、化学的ならびに細菌学的な8項目を抽出し、各水系毎の年間平均値を算出したが、その結果は表5に示すとおりであ

る。次にこれらを多角図法⁸⁾により図形化を試み、図3に示した。また対照として生下水についても同様に検査を行い、図式化した。ただし化学的5項目については、測定値に0.1をかけて記入した。すなわち4種の多角図から、細菌学的項目は、3水系とも生下水のパターンに類似しており、差がみられなかったが、化学的項目だけをみると、新

表5 13地点における8項目の年間平均値

項目 地点	SS (mg/L)	BOD (mg/L)	COD (mg/L)	T-N (mg/L)	T-PO ₄ ³⁻ (mg/L)	一般細菌数 (/100ml)	大腸菌群数 (/100ml)	腸球菌数 (/100ml)	
荒川水系	1*	6	1.2	2.7	2.16	0.14	1.6 × 10 ⁵	1.5 × 10 ³	6.0 × 10
	2*	13	1.5	3.3	2.78	0.35	7.1 × 10 ⁵	5.3 × 10 ³	7.8 × 10
	3*	12	1.6	3.6	3.50	0.50	7.2 × 10 ⁵	5.6 × 10 ³	1.6 × 10 ²
	1~3平均	10	1.4	3.2	2.81	0.33	4.3 × 10 ⁵	3.5 × 10 ³	9.1 × 10
人間川水系	4*	5	1.4	2.5	3.28	0.24	1.7 × 10 ⁵	3.0 × 10 ³	1.0 × 10 ²
	5	10	2.1	4.6	5.60	0.98	1.4 × 10 ⁶	1.5 × 10 ⁴	3.2 × 10
	6	7	2.4	5.6	5.25	1.50	6.6 × 10 ⁵	8.6 × 10 ³	1.2 × 10 ²
	7	13	2.5	5.0	5.57	1.14	1.2 × 10 ⁵	1.4 × 10 ⁴	3.8 × 10 ²
	4~7平均	9	2.1	4.4	4.92	0.96	6.6 × 10 ⁵	8.6 × 10 ³	1.1 × 10 ²
新河岸川水系	8	20	20.4	22.0	13.5	7.41	1.9 × 10 ⁷	2.3 × 10 ⁵	5.2 × 10 ³
	9	11	8.8	13.6	12.8	4.52	5.8 × 10 ⁶	3.0 × 10 ⁵	1.9 × 10 ³
	10*	36	12.7	14.4	10.9	4.19	2.6 × 10 ⁷	3.5 × 10 ⁵	2.3 × 10 ³
	11*	18	6.9	11.7	10.2	3.22	2.2 × 10 ⁷	3.2 × 10 ⁵	3.4 × 10 ³
	12*	60	40.0	31.0	12.7	4.96	6.9 × 10 ⁷	1.3 × 10 ⁶	4.7 × 10 ²
	13	27	8.5	10.8	7.80	2.83	7.2 × 10 ⁷	1.1 × 10 ⁵	2.7 × 10 ³
	8~13平均	28	16.1	17.3	11.3	4.52	2.6 × 10 ⁷	3.2 × 10 ⁵	2.1 × 10 ³

注) 一般細菌数, 大腸菌群数, 腸球菌数については, 対数をとって平均したものを, もとの数値にもどした。

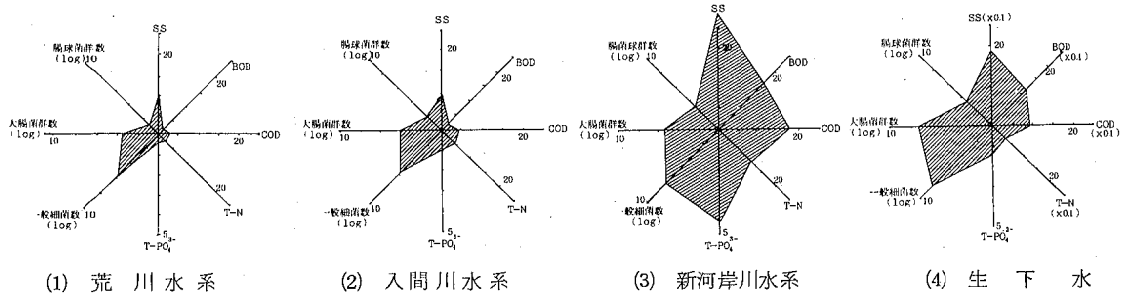


図3 3水系および生下水のパターン分類

河岸川水系と生下水とのパターンは非常によく似ており、他の2水系では類似性はみられなかった。したがって新河岸川水系のパターンは、生下水が単純希釈されたような状態を示していた。さらに河川水質の差は、COD-BOD、T-N-T-PO₄³⁻および一般細菌数-大腸菌群数それぞれの比により特徴づけられていると思われる。すなわち、対照とした生下水におけるそれらの項目間の比に近いものほど、生下水の水質に近いといえるのではないかと思われる。表6にそれぞれの比について示したが、特にCOD-BODの比が汚染度合によりかなりの違いがあることが分かる。比が約1以上では、明らかに汚染が進行しているといえる。

表6 各水系における項目間比

水系	BOD/COD	T-PO ₄ ³⁻ /T-N	log(大腸菌群数)/log(一般細菌数)
荒川水系	0.43	0.12	0.63
入間川水系	0.48	0.20	0.68
新河岸川水系	0.93	0.40	0.74
生下水	1.67	0.64	0.83

5 自浄作用の予備実験

地点12における河川水を使用し、単純沈殿および単純ばっ気による河川水質の経日変化を測定した。その結果を表7に示し、BODとCODの変化を図4に示す。図から、単純沈殿の方が単純ばっ気より見かけの浄化が速いことが分かり、短期間の場合、浄化のためには沈殿がより有効で

表7 地点12の河川水について

日	単純沈殿					単純ばっ気				
	SS	BOD	COD	T-N	T-PO ₄ ³⁻	SS	BOD	COD	T-N	T-PO ₄ ³⁻
0日目	49	21.6	20.3	5.37	2.55	19	24.2	16.6	3.12	3.85
1日目	7	—	10.3	3.06	2.43	34	—	16.2	6.43	3.45
2日目	5	6.5	9.4	3.94	1.75	20	14.1	15.2	5.37	3.05
3日目	4	5.6	9.6	3.37	1.63	12	15.2	14.7	5.30	3.70
4日目	3	3.9	8.7	3.87	1.90	10	15.2	13.4	4.80	3.38
5日目	2	—	8.2	4.18	1.93	—	—	—	—	—
7日目	0	1.7	6.9	3.87	1.55	7	14.0	12.3	4.43	2.65
8日目	0	—	5.9	3.34	2.33	11	—	12.6	3.68	2.68
9日目	0	—	6.7	3.89	2.38	6	9.4	12.6	1.75	2.80

注：水質の単位はmg/L

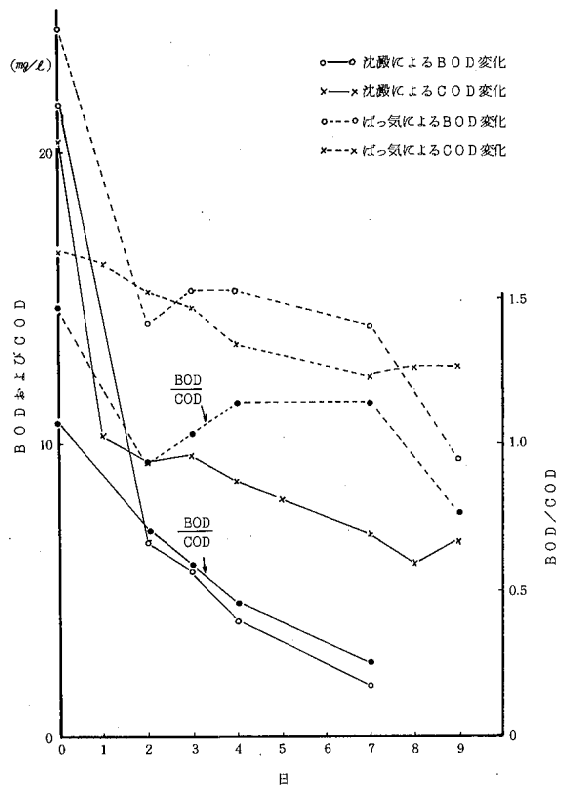


図4 沈殿あるいはばっ気によるBODおよびCODの経日変化

あろうと予想される。次にこれらの予備実験中での水質パターンの変化を化学項目のみの多角図により比較した。それを図5に示す。沈殿による水質パターンの変化は非常に大きいですが、ばっ気による水質パターンの変化はあまりみられない。実際の河川では、大気との接触と沈殿とが同時に起こっているため、自浄パターンは単純に決定できない。しかし、浄化を速やかに行うという目的があるならば、何

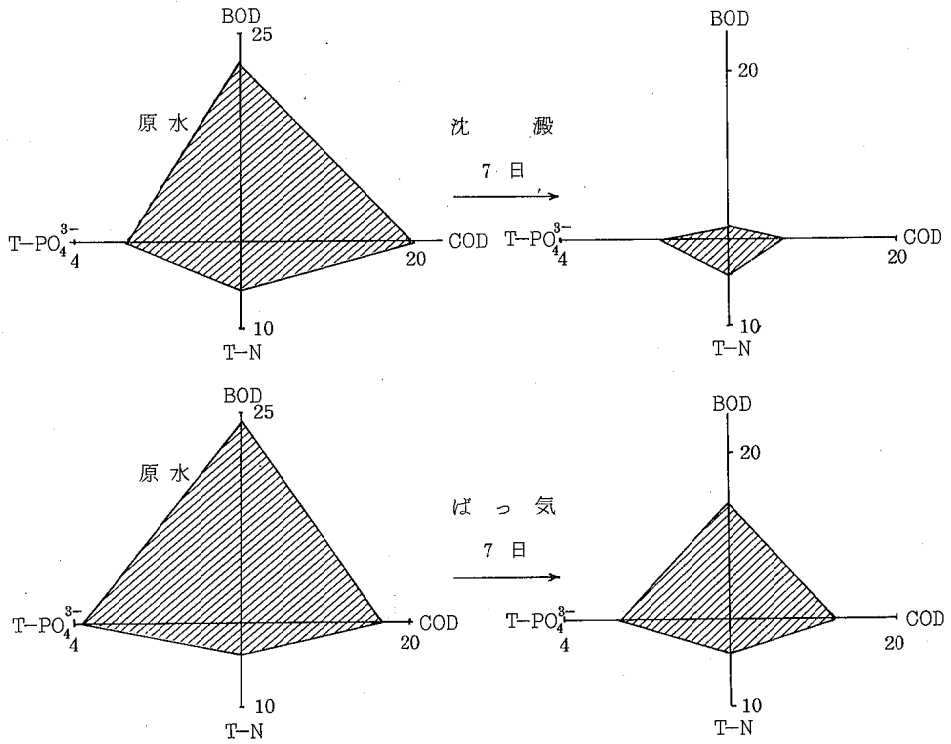


図5 沈殿あるいはばっ気による水質のパターン変化

らかの方法で沈殿を生じせしめれば、有効であろうことは容易に予想できる。

今後は、河川の浄化と下水道の普及との関連を含め、浄化対策の検討を行うとともに、浄化の途中で起こるユスリカの大発生などの問題についても検討する必要がある。

謝 辞

本調査に際し、生下水を提供して下さった、荒川左岸南部下水処理センター、中辻勝氏、今南勝氏、大淵康彦氏に深謝いたします。

文 献

1) 合田健 編(1979):水環境指標, 思考社.

2) 埼玉県公害センター:河川の生物調査報告書, 荒川水系における生物相と水質について, I(昭和48年度) II(昭和51年度), III(昭和54年度).

3) 埼玉県公害センター:河川の生物調査報告書, 入間川・新河岸川水系における生物相と水質について, I(昭和49年度), II(昭和52年度), III(昭和55年度).

4) 日本下水道協会編(1974):下水試験方法.

5) 日本薬学会編(1980):衛生試験法注解, 金原出版.

6) 厚生省環境衛生局監修(1973):食品衛生検査指針 I, 日本食品衛生協会.

7) 水質汚濁に係る環境基準について(昭和46年12月環境庁告示第59号).

8) 半谷高久(1970):水質調査法, P366, 丸善.

無届出し尿浄化槽放流水の調査

稲村 江里 稲垣 礼子 藤本 義典

し尿浄化槽の設置基数は年々増加し、し尿処理システムに占めるし尿浄化槽の役割は大きいものとなっている。浄化槽は個々の家庭に管理がまかされているため、放流水に関する実態の把握が難しく、水質保全等を考える際、重要な問題となっている。埼玉県では、特に入口急増地帯である県南都市部でも、公共下水道の設置は50%に満たないところが多く、浄化槽によるし尿の処理に大きく依存している。そのため、浄化槽の維持管理状況を十分に把握する事が、環境汚染問題を考える第一段階として極めて重要な事は言うまでもない。そこで、埼玉県では1981年2月に、特に無届出し尿浄化槽50基を選び、放流水の調査を行った。その中で、無届出しの理由として、住居購入の際、建売りのために届出をしたかどうか不明だという浄化槽が41基(82%)あり、業者の無責任さが大きい事がわかった。浄化槽50基についての放流水検査結果を報告する。

結果および考察

1 採水

単独処理浄化槽の場合は、滅菌前の放流水と洗浄水としての水道水を、合併処理浄化槽の場合は、浄化槽への流入水、滅菌前放流水を採水した。単独処理浄化槽は、トイレの洗浄用水を1~2回フラッシュした後採水した。

2 分析及び計算方法

分析項目は、pH、SS、BOD、COD、塩素イオンで、分析は下水試験方法によった。¹⁾ 単独処理浄化槽の場合、下式により、洗浄水(水道水)と放流水の塩素イオンから希釈倍率を求め、それによりBODの除去率を算出した。²⁾ 合併処理浄化槽の場合は、流入水量と流出水量が同等

$$\text{希釈倍率} = \frac{5,500}{\text{放流水 } C\ell - \text{洗浄水 } C\ell}$$

$$\text{BOD除去率}(\%) = 100 - \left(\frac{\text{BOD} \times \frac{\text{希釈倍率}}{1000}}{13} \right) \times 100$$

と仮定し、次式によりBOD除去率を求めた。

$$\text{BOD除去率}(\%) = \frac{\text{流入BOD} - \text{流出BOD}}{\text{流入BOD}} \times 100$$

採水および試験方法

1 処理方式

単独処理浄化槽48基については、長時間ばっ気方式42基、腐敗タンク方式5基、分離ばっ気方式1基であった。また、合併処理浄化槽2基はいずれも長時間ばっ気方式であった。

2 放流水質

浄化槽50基の放流水質および処理方式を表1に示し、

表1 浄化槽の処理方式と放流水質

検番 体号	処理方式	GR (定性)	pH	SS (mg/ℓ)	BOD (mg/ℓ)	COD (mg/ℓ)	Cℓ- (mg/ℓ)	SS Cℓ-	BOD Cℓ-	COD Cℓ-	BOD 除去率 (%)	
単 独 処 理	1	長時間ばっ気	+	7.7	96	200	100	235	0.41	0.85	0.43	58.3
	2	"	-	7.5	228	157	250	228	1.00	0.69	1.10	66.6
	3	"	卍	5.4	117	25.8	145	219	0.53	0.12	0.66	94.3
	4	"	卍	5.6	476	118	341	279	1.71	0.42	1.22	81.1
	5	"	卍	6.6	42	65.8	96.7	123	0.34	0.53	0.79	71.4
	6	"	卍	7.0	60	66.8	73.0	111	0.54	0.60	0.66	66.8
	7	"	+	7.4	278	151	193	137	2.03	1.10	1.41	41.7
	8	"	-	7.5	186	101	148	297	0.63	0.34	0.50	84.1
	9	"	+	6.8	61	34.7	76.7	268	0.23	0.13	0.29	93.9
	10	"	+	7.0	52	46.4	30.8	79.9	0.65	0.58	0.39	64.5
	11	"	+	7.7	26	29.7	38.5	99.8	0.26	0.30	0.39	82.7
	12	"	卍	7.6	217	88.4	238	330	0.66	0.27	0.72	87.5
	13	"	+	8.0	116	31.6	101	233	0.50	0.14	0.43	93.4
	14	"	+	8.1	39	33.7	50.5	104	0.38	0.32	0.49	80.3

	検 番 体 号	処 理 方 式	GR (定性)	pH	SS (mg/L)	BOD (mg/L)	COD (mg/L)	Cℓ ⁻ (mg/L)	SS	BOD	COD	BOD 除 去 率 (%)
									/Cℓ ⁻	/Cℓ ⁻	/Cℓ ⁻	
単 独	15	長時間ばっ気	卍	7.8	50	31.8	144	302	0.17	0.11	0.48	95.0
	16	"	+	7.2	44	22.2	64.6	154	0.29	0.14	0.42	92.3
	17	"	+	6.3	57	54.2	64.1	108	0.53	0.50	0.59	73.1
	18	"	卍	7.3	65	33.4	62.4	109	0.60	0.31	0.57	83.6
	19	"	卍	7.6	89	41.8	158	274	0.32	0.15	0.58	92.8
	20	"	卍	7.5	119	55.9	179	211	0.56	0.26	0.85	86.9
	21	"	+	8.0	114	91.3	127	121	0.94	0.75	1.05	56.8
	22	"	卍	7.5	86	45.6	96.3	126	0.68	0.36	0.76	80.0
	*23	"	卍	6.5	1,240	560	548	291	4.26	1.92	1.88	9.2
	*24	腐敗タンク	+	7.1	436	174	190	98.3	4.44	1.77	1.93	3.5
	25	"	-	7.8	118	89.8	85.8	116	1.02	0.77	0.74	59.7
	26	"	-	7.2	23	114	74.6	80.3	0.29	1.42	0.93	17.0
	27	"	-	7.7	32	127	108	167	0.19	0.76	0.65	62.4
	28	長時間ばっ気	卍	6.7	283	177	157	161	1.76	1.10	0.98	46.8
	29	"	卍	7.4	326	121	210	137	2.38	0.88	1.53	52.2
	*30	"	卍	5.6	2,050	678	1,000	115	17.83	5.90	8.70	-
	31	"	卍	6.0	432	162	225	129	3.35	1.26	1.74	36.7
	32	"	+	7.6	500	255	236	151	3.31	1.69	1.56	15.8
	*33	"	卍	5.4	4,430	1,220	1,720	133	33.31	9.17	12.93	-
	34	"	卍	6.1	64	47.5	87.0	90.5	0.71	0.52	0.96	75.7
	35	"	+	7.3	90	113	157	115	0.78	0.98	1.37	55.6
	36	"	+	7.4	148	94.2	117	117	1.26	0.81	1.00	63.5
	*37	"	卍	6.7	858	1,210	609	190	4.52	6.37	3.21	-
	38	"	+	7.5	57	48.5	86.1	144	0.40	0.34	0.60	85.2
39	"	卍	6.1	98	82.7	161	152	0.64	0.54	1.06	67.7	
40	"	卍	7.0	50	50.0	102	174	0.29	0.29	0.59	86.5	
41	"	-	7.9	37	293	123	159	0.23	1.84	0.77	12.9	
42	"	卍	7.5	47	52.3	66.4	146	0.32	0.36	0.45	83.0	
43	"	卍	7.2	116	66.7	128	161	0.72	0.41	0.80	74.6	
*44	"	卍	6.7	2,110	1,410	995	168	12.56	8.39	5.92	-	
*45	"	-	6.8	4,990	2,630	2,440	186	26.83	14.14	13.12	-	
46	"	卍	7.3	66	76.1	127	232	0.28	0.33	0.55	84.3	
47	分離ばっ気	卍	7.8	221	139	132	282	0.78	0.49	0.47	77.0	
48	腐敗タンク	+	7.3	234	174	112	137	1.71	1.27	0.82	32.7	
合併 処理	1	長時間ばっ気	+	5.6	14	3.6	14.6	68.7	0.20	0.05	0.21	97.4
	2	"	-	6.2	9	6.8	10.6	64.8	0.14	0.10	0.16	96.6

それをもとに、単独処理浄化槽48基について、pH, SS, BOD, CODおよびBOD除去率の分布図をヒストグラムとし、図1~5に示した。pHは7.15~7.65の間に多くあり、7.15以上のものが29基となっている。全体的にやや高目のものが多い。BODとCODの分布図の中で特に汚れているものが7基ずつある。それら7基のうち6基は同じ浄化槽の放流水である。その6基は、SSにおいて特に汚れたもの11基の中に入り、またBOD

除去率10%未満の中にも入っている。その6基を除くと、分布は正規分布に近似させる事が可能である。

前図の計算式では、流入し尿のBODは13,000 ppm、塩素イオンは5,500 ppmと仮定しているが、これらの値から $BOD/Cℓ^- = 2.36$ を得る。大野ら³⁾の報告から算出すれば、収集し尿(ほとんど未分解のもの)の参考値については、 $SS/Cℓ^- = 2.45$, $COD/Cℓ^- = 1.27$ を得るが、これらの値は、浄化槽に投入されるし尿にも適

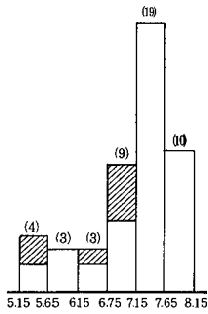


図1 pH値の分布

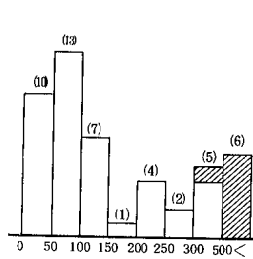


図2 SSの分布

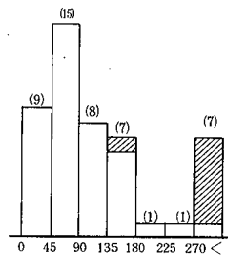


図3 BODの分布

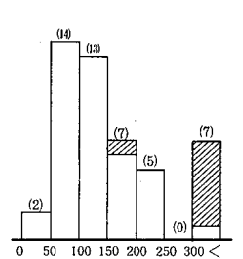


図4 CODの分布

注: 斜線は表1において*印を付したものの分布

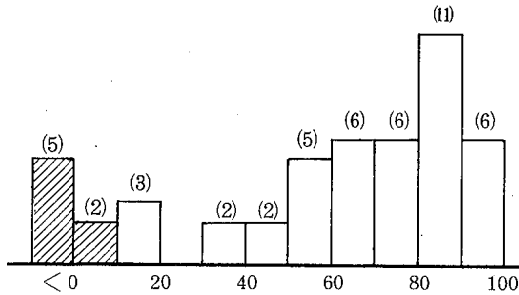


図5 BOD除去率の分布

表2 表1中の*印検体を除いた41検体の各項目間の平均値および分散 (n=41)

	pH	SS	BOD	COD
平均値 \bar{X}	7.2	136	92.9	129
√不偏分散 \sqrt{V}	0.651	123	63.4	65.2
変動係数 C.V. %	9.04	90.4	68.2	50.5

表3 表2に示した41検体の各項目間の相関および回帰線 (n=41)

	BOD	COD
SS	$r = 0.545$ $BOD = 0.28 \times SS + 54.93$	$r = 0.818$ $COD = 0.43 \times SS + 69.63$
COD	$r = 0.453$ $COD = 0.47 \times BOD + 85.31$	

用できると思われる。また、分解の進んだものではこれらの等塩比はおおむね1以下である。他方、腐敗タンク方式や曝気タンク方式の汚泥では、SS、BOD、COD、に比して塩素イオンの濃度が低く(約200 ppm)、SS、BOD、CODの等塩比は、上記の生し尿における対応値をはるかに上回っている。当調査では、SS/Cl⁻の値が4以上のものに表1中の検体番号の項に*印を付したが、これらは7件あり、BOD/Cl⁻、COD/Cl⁻もそれぞれ高い値を示し、また、算出されたBOD除去率も10%以下(図5を参照)である。これは、これら7件の浄化槽放流水が汚泥を高い割合で含有している事を示している。実際には汚泥の引き抜きが充分に行われておらず、維持管理が充分に行われていない事が予想される。これら7基のうち、亜硝酸定性のGR反応がマイナスとなっているものは、NO.45だけである。特に、NO.37は亜硝酸が高濃度で含まれている(67.8 mg/l...未発表データ)。これは、ばっ気が行われている事を示し、SS分、すなわち汚泥を除く事ができれば、水質がかなり良化するだろうと思われる。

3 水質測定値間の相関関係

単独処理浄化槽48基のうち、*印7検体を除いた41基についての各項目の平均値、不偏分散および変動係数は表2に示した。また、SS、BODおよびCODについて、それぞれの項目間の相関を求め、これらを表3に示した。

参考として、48基全体の平均値、不偏分散および変動係数を表4に、SS、BODおよびCOD間の相関関係を表5に示した。表2と表4を比較すると、*印検体が平均値、不偏分散、変動係数を相当引き上げている事がわかる。*印検体を除いた場合、pH以外の項目は変動係数が50~90%であるのに対し、48件全体の場合、すべて100%をはるかに越えている。平均値も、*印検体を除いたものは

表4 各項目の測定値の平均値および分散 (n=48)

	pH	SS	BOD	COD
最大値 max.	8.1	4,990	2,630	2,400
最小値 min.	5.4	23	22.2	30.8
平均値 \bar{X}	7.1	452	244	266
√不偏分散 \sqrt{V}	0.71	1,000	469	439
変動係数 C.V. %	10.0	222	192	165

表5 各項目間の相関および回帰線
(n=48)

	BOD	COD
SS	r=0.911 BOD=0.43×SS+51.24	r=0.988 COD=0.43×SS+70.67
COD	r=0.944 COD=0.88×BOD+50.91	

BOD 9.2.9 mg/l と、建築基準法に示す基準値 90 mg/l に近い値を示しているが、全体の平均値は 24.4 mg/l と、基準値の 3 倍近いかなり高い値を示している。表 3 と表 5 に示した相関関係もかなり興味深いことがみられる。全検体の相関係数はすべて 0.91 ~ 0.99 の間にあり、かなり良い相関を示しているが、*印検体を除いた 41 件の相関係数は 0.45 ~ 0.82 で、低い相関を示している。特に BOD-COD の相関係数は 0.453 とかなり低い。原因のひとつとして亜硝酸イオンの存在が考えられる。⁴⁾ しかし、全検体の相関関係がかなり良いという事は、*印検体が非常に相関が高いため、*印検体以外の相関を引きづるような形をしているといえる。その中では、亜硝酸の影響をかなり消している事も示している。

要 約

無届出し尿浄化槽 50 基について、放流水質を調査した。単独処理浄化槽 48 基のうち、BOD 除去率 10% 未満で、放流水に汚泥がかなり混入している浄化槽は 7 基あった。これら 7 基は、汚泥の引き抜きが充分に行われ、維持管理が適正化すれば、放流水質がかなり良化する事が予想できた。不良浄化槽 7 基を除いた 41 基の浄化槽放流水の項目間相関関係はあまり高くなく、亜硝酸の影響がかなりでている事が予想される。

文 献

- 1) 日本下水道協会編(1974): 下水試験方法。
- 2) 日本建築センター(1970): 尿尿浄化槽の構造基準・同解説。
- 3) 大野茂(1979): し尿処理場に投入される最近のし尿の性状および施設放流水の水質について、用水と廃水, 21, 473-485。
- 4) 吉田江里他(1980): 埼玉県内のし尿処理場放流水の水質(II), 埼玉県衛生研究所報, 14, 173。

K団地・下水処理場への流入水の負荷についての調査

内田 文男 藤本 義典

埼玉県では、東京都に隣接している県南部を中心に住宅団地の開発が著しく、これに伴う人口増加は、河川等の水質汚濁の原因の一つとなっている。対策として5つの流域下水道事業が進められているが、その建設には膨大な建設費がかかり、完成までに至っていないので、暫時の対応策として、大規模な住宅団地にはそれぞれの下水処理場を設置して汚水の処理を行っている。

これらの住宅団地からの汚水排出量は、水の使用時間の集中などによって時間変動がかなり著しいことが既に報告されている。¹⁻⁵⁾ 今回、K団地について1975年6月から7月にかけて、流入水の変動調査を行ったので報告する。

K団地の概要および処理方法

K団地は県西部に位置し、共同住宅、住宅、学校およびその他生活必需施設を有する団地で、計画では最終的に1,949戸、総人口11,612人がみこまれている。表1に示したように、1975年8月現在、入居人口は7,572人で、計画の約65%である。なお、幼稚園および小学校には、生徒の約2割が団地外から通学しているので計画人員より上回っている。

表1 K団地での計画処理対象人員および実績

種別	人員	計画処理対象人員	1975年8月現在の入居人員
共同住宅		7,037人	6,545人
管理事務所		34	20
幼稚園, 小学校		243	730
住宅		3,750	189
ショッピングセンター		305	56
その他		243	32
計		11,612	7,572

団地内の家庭および施設からの汚水量および水質当量計画値は表2に示した。処理場の規模は処理対象人員11,700人、1日当りの平均汚水量を $2,340 \text{ m}^3$ ($200 \text{ l}/\text{人}\cdot\text{day}$)とし、この値を1.5倍した $3,510 \text{ m}^3$ ($300 \text{ l}/\text{人}\cdot\text{day}$)を最大汚水量としている。また、流入汚水

表2 下水処理場の流入水および運転設計値

項目	設計計画値
処理対象人員	11,700人
平均汚水量	$2,340 \text{ m}^3/\text{day}$ ($200 \text{ l}/\text{人}\cdot\text{day}$)
最大汚水量	$3,510 \text{ m}^3/\text{day}$ ($300 \text{ l}/\text{人}\cdot\text{day}$)
時間最大汚水量 (1日量に換算)	$500 \text{ l}/\text{人}\cdot\text{day}$
BOD当量	$40 \text{ g}/\text{人}\cdot\text{day}$
SS当量	$50 \text{ g}/\text{人}\cdot\text{day}$
曝気時間	6.2時間
M L S S	$2,000 \text{ mg}/\text{l}$
送気量	$60 \text{ m}^3/\text{kg BOD}$
BOD負荷 (曝気槽)	$0.8 \text{ kg}/\text{m}^3\cdot\text{day}$
沈殿時間	3.0時間

の水質当量は、BOD： $40 \text{ g}/\text{人}\cdot\text{day}$ 、SS： $50 \text{ g}/\text{人}\cdot\text{day}$ と計画されている。

団地内の汚水はすべて分流式下水道により処理場に送られ、活性汚泥方式により処理されるが、その設計運転条件は表2に示した。計画値では流入水のBOD負荷を $0.8 \text{ kg}/\text{m}^3\cdot\text{day}$ とし、6.2時間曝気処理後、沈殿層をへて最終放流水の水質がBOD： $20 \text{ mg}/\text{l}$ 以下、およびSS： $60 \text{ mg}/\text{l}$ 以下であるようにして河川に放流する。

調査方法および検査法

処理場への汚水の流入量とその水質の日および時間変動ならびに降雨量を調査した。期間は1975年6月25日から7月24日までの30日間であるが、この時期は梅雨から梅雨あけの期間である。流入水量は、処理場の流量積算カウンターから求め、また、団地内の浄水場で水道給水量をも同時に記録した。流入水量、BODおよびSSの時間変動の調査は雨が降らなかった7月18日を選び、午前7時から翌日の午前6時までの24時間行った。流入水量は1時間ごとに測定したが、流入水のBODおよびSSについては、余り変動がないと思われる時間ははぶき、各々14回検査した。流入水のBODおよびSSの検査はJIS

K0102⁶⁾の方法で行った。

結果および考察

1 流入水量の日変動

6月下旬から7月下旬までの一ヶ月間の流入水量、水道給水量および降雨量の日変動、また、これらの期間中における最大、最小および平均値を図1に示した。最大汚水量の計画値(3,510 m³/day)を上回った日数は、30日のうち1日であったが、この前日に多量の雨(65.2 mm)が降っており、この雨水が直接あるいは地下水を通して混入して増加したものと考えられる。また、平均汚水量の計画値(2,340 m³/day)を上回った日数は、全体で5日間(16.7%)であった。

表2に示したように、1人当りの平均汚水量の計画値は200 l/人・dayである。ところで、調査期間中に実測された1人当りの平均汚水量は246 l/人・dayで、計画値のそれよりも高い値であった。しかし、水道給水量から算出した平均汚水量は201 l/人・dayで、計画値とはほぼ同じであることからみて、流入水中には雨水あるいは地下水の混入がかなりあると思われる。現在入居率は65%で、処理場に余裕があるため、雨水や地下水の混入による直接の影響はないが、今後何らかの対策が必要である。

2 時間変動(6月18日に測定)

1) 流入水量

流入水量の時間変動、ならびにこれらの最大、最小および平均値は図2に示した。流入水量は時間、季節などの諸

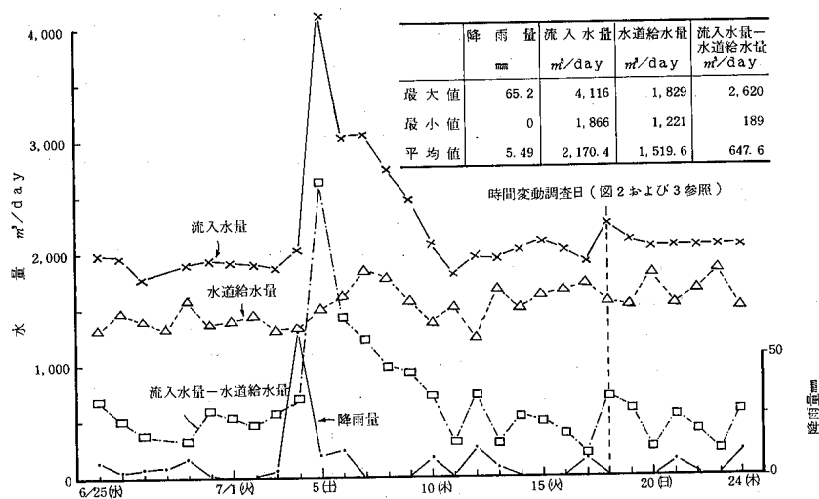


図1 流入水量の日変動(1975年6月~7月)

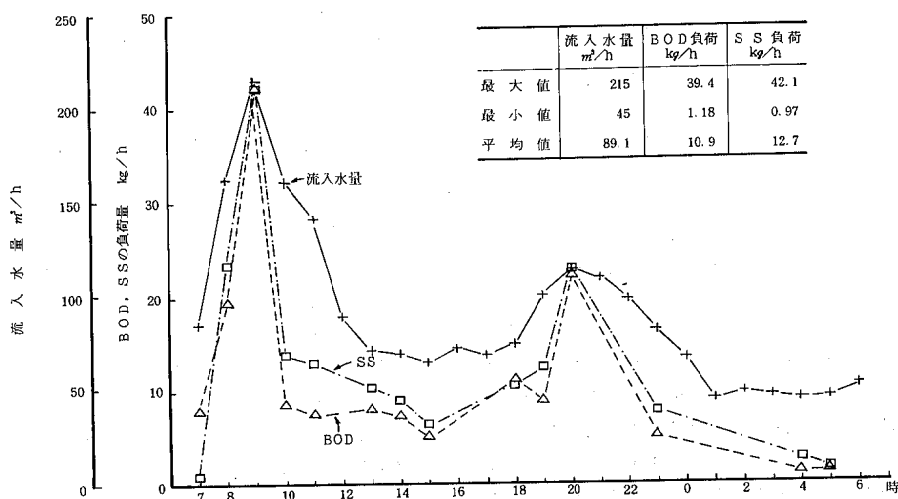


図2 流入水量および負荷量の時間変動

条件によって相当異なるが、一般的には午前と午後それぞれ1回ピークがあり、最大のものは午前中にあらわれる。¹⁻⁵⁾ 第1のピークは8~10時(最大は9時の215 m³/hで、この値を1日単位に換算すると5160m³/dayとなる)に、第2のピークは19~22時(最大は20時の115 m³/h)の時間帯にあるが、両者のピーク比は前者に対し後者は約1/2であった。また、1人当りの時間最大汚水量を算出すると674 l/人・dayで、設計値の500 l/人・dayをやや上回っているが、現在のところ特に目立った支障はないようである。なお、調査日における1日間の全汚水量は2138.4 m³/dayで、時間当りの平均値は89.1 m³/hである。

洞沢は、コミュニティ・プラントにおける実測データに基づいて時間最大汚水量を次式のように推定した。

$$\theta_{AV} \times 1.6 \times a = \theta_{MAX}$$

$$\theta_{AV} = \text{平均汚水量(1日)}$$

$$\theta_{MAX} = \text{時間最大汚水量(1日に換算)}$$

$$a = \text{住宅地の性格により決定される係数}$$

上式の係数1.6は、1日の全汚水量に対する15時間中の汚水量比で、この15時間中に1日の全汚水量が流入すると仮定したときの値である。当調査における7~22時までの15時間中の、流入水量から値を算出すると2139 m³/day / 1620 m³/15 = 1.32となり、洞沢が算出した1.6を若干下回る。また、時間変動データから上式の係数aを求めると、 $a = \theta_{MAX} / (1.32 \times \theta_{AV}) = 5160 \text{ m}^3/\text{day} / 1.32 \times 2138.4 \text{ m}^3/\text{day} = 1.83$ となるが、この値は洞沢が分類した「会社社宅など同質の勤人を主体とした住宅団地」に該当する。これらの数値と、6月15日から7月24日の間のデータから得た日変動平均値(2170.4 m³/day)を代入し求めた時間最大汚水量Q_{MAX}は218.5 m³/hとなるが、この値は計画値

(500 l/人・dayから算出した243.7 m³/h)を下回っているが、これは現在入居率が65%であるためであると考えられる。団地の完成時を想定し、当調査で算出した数値を用いて計算すると時間最大汚水量は294.9 m³/hとなるが、この数値は計画値をかなり上回る結果となる。

2) 流入水の水質

流入水のBODおよびSS濃度は図3に示した。1日の間で、時間を単位にとればBODおよびSS濃度は4つのピークをもち、ほぼ同一変動を示した。9時および20時のピークは際立っているが、これらはほぼ生活パターン変動に一致している。1日を単位にとれば、大雨が降らない限り日曜日を除く他の曜日では、ほぼ同じようなパターンの繰返しがみられる。⁵⁾ 時系列を時間的にもっとも著しく規定するのは傾向変動であるが、当調査を1日単位にとったときには、日曜日以外は傾向変動はないと仮定し得る。したがって、各時間におけるBODおよびSSの2項目の値を定常化したうえで相関係数を求めると0.832を得、2項目間に高い相関関係が認められた。

3) 流入水の負荷量

BODおよびSSの負荷量の時間変動パターン、ならびに最大、最小および平均値は図2に示した。BODおよびSSの負荷の推移は、流入水量とほぼ同じようなパターンであり、図3に示したような水質の推移とは若干異なっている。負荷量のピークは8時から9時の間および18時から23時の間にそれぞれ1回あり、前者のピークに比べ後者の方が低く変動もゆるやかである。また、2つのピークの時間帯は流入水量のそれに一致しており、このような現象は他の文献¹⁾でも既に報告されている。また、SS負荷平均値はBODのそれに比べほぼ同一パターンであるがやや高い。

表2に示したように、流入汚水の入口当量計画値は、

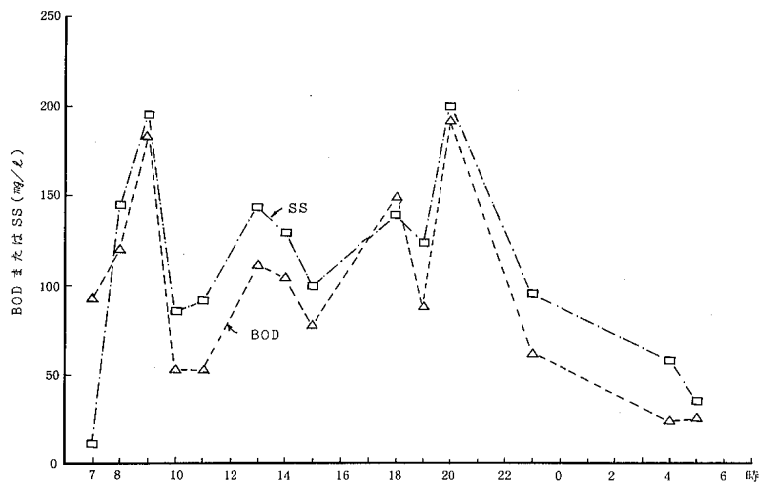


図3 流入水のBODおよびSS濃度の時間変動

BOD: $40 \text{ g}/\text{人} \cdot \text{day}$, SS: $50 \text{ g}/\text{人} \cdot \text{day}$ であるが、表1の入居人員を基に算出すると、BOD: $34.6 \text{ g}/\text{人} \cdot \text{day}$, SS: $40.2 \text{ g}/\text{人} \cdot \text{day}$ となり、両者とも計画値をかなり下回っていた。洞沢は日本人の平均BOD人口当量を $36 \text{ g}/\text{人} \cdot \text{day}$ と推定しているが、当団地のBODについても、ほぼこの値に一致している。このことから、BOD人口当量を洞沢の値に基づいて計画することも可能であると思われる。

要 約

住宅団地下水処理場の流入水の日間および時間変動の調査を行った。当団地の流入水量は平均 $2170.4 \text{ m}^3/\text{day}$ であり、雨水および地下水の混入が推測され、1人当りの計画平均汚水量 ($200 \text{ l}/\text{人} \cdot \text{day}$) をかなり上回り、 $246 \text{ l}/\text{人} \cdot \text{day}$ であった。流入水の水質は、日間一定ではなく、BODおよびSSに関しては朝夕に濃度が際立って高くなり、また、その間にも2回濃度の高い時間帯がみられた。流入水量の時間変動は9時および20時に最大値を示し、1人当りの時間最大汚水量は $674 \text{ l}/\text{人} \cdot \text{day}$ であった。また、負荷変動はBODおよびSSとも同一パターンで9時および20時に最大値となり、流入水

量の変動とほぼ同様であった。BODおよびSSの人口当量は、それぞれ $34.6 \text{ g}/\text{人} \cdot \text{day}$, $40.2 \text{ g}/\text{人} \cdot \text{day}$ となり、設計計画値をかなり下回っていた。

文 献

- 1) 小規模下水処理施設ガイドブック(1967), 産業用水調査会。
- 2) 平岡正勝, 村上忠弘, 山本 功, 堀井安雄, 石丸賢二, 清水 洽(1975): 団地下水処理場の流入水の制御に関する研究. 水処理技術, 19, 851-858.
- 3) 庄司元和, 田中正二郎, 笠井和平(1975): T団地下水処理場における流入水質の経時変化と処理機能について. 山梨県立衛生公害研究年報, 19, 27-34.
- 4) 飯塚貞男, 中川友夫, 沢野俊彦(1975): 住宅団地下水処理場の水質調査. 横浜市衛生研究所年報, 15, 59-64.
- 5) 米本団地汚水処理場調査報告書(1977.7), 千葉泉水質保全研究所。
- 6) 日本工業標準調査会(1974): JIS-K0102, 日本規格協会。

食肉製品製造施設からの排水について

内田 文男 藤本 義典 酒井 淑雄
 稲垣 礼子

埼玉県内には食品工場は数多くあるが、その排水が未処理のまま多量に公共用水域に放流された場合には、河川等の水質汚濁の原因となる。1971年から1974年の4年間にわたって、食肉製品製造施設(23施設)からの排水について水質検査を行い、得たデータを基にして若干の解析を行ったのでその結果を報告する。

試料の採水および検査方法

採水回数は、各施設について1回もしくは2回であり、また、採水月は9~2月までの秋期~冬期である。工場での作業開始1~3時間後の午前10~11時ごろの最終処理水を約2ℓ採水して試料とし、速やかに実験室に搬入して検査を行った。検査項目はpH, SS, BOD, COD, 塩素イオンおよび大腸菌群数の6項目である。検査方法は、JIS-K0102¹⁾および下水試験方法²⁾により行った。

各施設の排水処理法

各施設の排水処理法の細部に関しては不明な点が多いが、おおむね各施設とも活性汚泥法あるいはその変法である。また、処理能力も3.5~200 t/dayまでの広い範囲のものであった。滅菌施設をそなえた施設では次亜塩素酸ナトリウムで消毒しているものが多かった。しかし、全施設の約4割は処理水を滅菌せず直接放流していた。

結果および考察

1 放流水の水質検査結果、およびそれらの平均値と分散度

各施設からの放流水の水質は表1に示した。23調査施設のうち、12施設は2回検査(9月と11月または2月)を行った。2回調査した施設についてはpH値では余り差

表1 食肉製造施設の処理水の水質

施設名	採水年月日		採水時刻	水 温 ℃	pH	SS mg/ℓ	BOD mg/ℓ	COD mg/ℓ	Cl ⁻ mg/ℓ	大腸菌 群数 個/cm ³
	年	月								
IT	1971	9. 7			7.4	<3	6.5	4.8	102	
SH	1971	9. 7			7.3	105	134	43.5	129	
	1973	11.21	10:00	16.0	7.2	58	425	50.6		1.8×10 ³
NH	1971	9. 7			7.2	<3	7.6	6.5	81.6	
	1973	11.21	10:30	15.0	6.6	192	196	61.8		<10
TS	1971	9. 7			7.3	39	102	15.7	17.8	
NG	1971	9. 7			7.1	12	24.7	10.4	17.7	
	1973	11.14	9:20	14.0	7.9	5	26.7	3.6		1.2×10 ³
YA-1	1971	9.16			7.7	65	206	62.3	40.7	
	1973	11.21	11:00	12.0	7.1	9	4.1	2.9		1.6×10 ³
YA-2	1971	9.16			7.6	5	9.3	9.2	123	
KN	1971	9.16			7.4	<3	8.9	4.4	24.3	
TT	1971	9.16			7.6	24	74.7	53.2	470	
TH	1973	11.14	10:20	14.0	7.7	5	65.5	8.2		8.1×10 ⁴
RM	1971	9.28			7.0	25	71.9	29.3	80.6	
	1973	11.21	9:50	14.0	6.5	44	198	33.1		9.2×10 ⁴
TW	1971	9.28			7.0	389	191	44.4	61.0	
	1973	11.14	11:00	14.0	5.7	20	664	79.6		3.5×10 ⁶
NT	1971	9.28			6.7	239	475	140	7,890	
	1973	11.14	9:40	15.5	8.0	112	379	51.2		2.7×10 ⁴
DR	1971	9.28			6.9	75	153	48.2	28.0	

(表1つづき)

施設名	採水年月日			採水時刻	水 温 ℃	pH	SS mg / L	BOD mg / L	COD mg / L	Cl - mg / L	大腸菌数 個 / cm ³
	年	月	日								
IR-1	1974	2.25		10 : 20	15.0	8.1	33	75.1	10.1		< 10
AB	1971	9.28				7.1	161	377	136	39.1	1.1 × 10 ²
	1972	2.13				7.1	12	17.2	3.8		
OH	1971	10.5				7.2	24	75.5	33.1	36.4	9.3 × 10 ²
	1974	2.13	11 : 30		16.5	7.6	45	231	30.0		
SI	1971	10.5				7.0	73	77.5	55.0	78.3	
	1974	2.20	11 : 00		10.0	6.4	53	269	30.7		
SB	1971	10.5				7.4	471	521	298	91.7	< 10
	1974	2.13	10 : 20		12.0	7.0	10	9.9	4.5		
SS	1971	10.5				7.0	63	115	72.9	57.9	1.5 × 10
	1974	2.20	10 : 00		10.0	6.8	21	104	15.5		
TE	1971	10.6				7.3	41	65.2	51.1	46.2	
MZ	1974	2.20	9 : 30		13.7	7.7	37	14.6	2.4		1.8 × 10 ²
IR-2	1974	2.13				7.6	9	17.0	1.6		5.0 × 10

表2 各分析項目の測定値ならびに測定値の対数値の平均値および分散度

統計量	項目	pH	SS mg / L	BOD mg / L	COD mg / L	Cl - * mg / L		大腸菌数 個 / cm ³
n		35	32	35	35	19	18	12
測定値	max	8.1	471	664	298	7890	470	3.5 × 10 ⁶
	min	5.7	5	4.1	1.6	17.7	17.7	1.5 × 10
	\bar{x}	7.21 ± 0.17	77.4 ± 39.7	154.1 ± 58.8	43.07 ± 19.53	495.5 ± 888.1	84.74 ± 52.25	3.09 × 10 ⁵ ± 6.67 × 10 ⁶
	\sqrt{V}	0.484	108	169	56.1	1793	102	1.006 × 10 ⁶
	C. V. (%)	6.7	140	110	130	362	120	326
対数値	max	—	2.673	2.822	2.474	3.897	2.673	6.544
	min	—	0.6990	0.6128	0.2041	1.248	1.248	1.176
	\bar{x}	—	1.5804 ± 0.1943	1.8585 ± 0.2170	1.3254 ± 0.1991	1.8821 ± 0.2947	1.7701 ± 0.1793	3.293 ± 1.064
	\sqrt{V}	—	0.5298	0.6234	0.5719	0.5950	0.3504	1.603
	C. V. (%)	—	33.5	33.5	43.1	31.6	19.8	48.7

注 n : 件数 \bar{x} : 平均値ならびに確率95%の信頼限界 V : 不偏分散 C. V. : 変動係数
* : 右側は異常値と思われる値を除いたときの値

はみられなかったが、SS、BODおよびCODの3項目については1回目と2回目の検査の値に大きな差がみられた。この差は季節によるよりも、処理施設の維持管理の良否によるものと考えられる。全般的に、pHを除く他の5項目でのばらつきは大きかった。大腸菌数も、滅菌施設を有しているにもかかわらず、数施設で高い値を示しており、このことから維持管理が十分行われていないと思われた。各項目の測定値の平均値と分散度は表2に示した。変動

係数は、pHが6.7%で最も小さく、他はいずれも100%以上で、110~362%の範囲である。なお、NT施設の塩素イオンは他の施設の値と比べると極めて大きい値であるため、その値を除いた統計量を右側に示した。

排水に関して、pH値以外は対数正規分布を示すと思われるので、⁴⁾表2では、元の統計量とともに対数値に基づく統計量をも併記した。測定値から求めた変動係数と比べて、対数値に基づくものは、前者の約1/3~1/7で

3 1.6 ~ 4 8.7 %であった。なお、大腸菌群数は件数が少なく、分布形の確定はできないが、測定値よりもそれらの対数値に基づくものの変動係数が小さかった。

2 各項目間の相関関係

各項目の測定値間の相関係数および係数を算出するために用いた件数は表3に示した。2変数間に母単純相関なし($\rho=0$)とする仮説を有意水準1%および5%で検定したが、各有意水準で相関関係があるといえるものは4組であった。全般的にみてSS, BODおよびCODの3項目の相互間の相関係数が高く、pHに関しては、BODとの間で有意水準5%で負の相関関係が認められたが、塩素イオンについては、他の4項目との間には有意水準5%で相関があるとみなされるものはなかった。

表3 各分析項目間の相関係数

	pH	SS	BOD	COD	Cℓ-
pH	-	-0.095 (32)	-0.416 [△] (35)	-0.174 (35)	0.426 (18)
SS	-0.195 (32)	-	0.525 [○] (32)	0.786 [○] (32)	-0.091 (15)
BOD	-0.319 (35)	0.735 [○] (32)	-	0.722 [○] (35)	-0.034 (18)
COD	-0.343 [△] (35)	0.782 [○] (32)	0.868 [○] (35)	-	0.035 (18)
Cℓ-	0.358 (18)	-0.011 (15)	-0.053 (18)	0.165 (18)	-

対数値間(ただし、pHのみは測定値)

注 ()内の数は件数

○印: 1%有意水準で相関関係があるといえるもの。
△印: 1%有意水準で相関関係があるとはいえないが、5%有意水準で相関関係があるといえるもの。

測定値の対数値間の相関係数は表3の下の部分に示したが、1%および5%有意水準で相関関係があるといえるものの数は、それぞれ3組および1組で、前の場合と同数であるが、SS, BODおよびCODの3項目の対数値相互間の相関係数の値は測定値間の場合よりもやや増した。しかし、pHに関して5%有意水準で相関が認められたのは、pHとBODとの組合せではなく、pHとCODとの組合せであった。

3 主成分分析³⁾

数項目の特性値のもつ情報を少数個の総合特性値に要約するため主成分分析を行った。pH, SS, BOD, CODおよび塩素イオンの5項目で欠測値のないものを選んだが、SSの定量限界以下および異常値と思われるNT施設の塩素イオンは対象から外した。したがって、IT, NH, KN, TH, NT, IR-1, MZおよびIR-2の8施設を除いた15施設のデータを基にして計算を行った。このデータ数では測定値の分布形が確定できないが、pHを除く他の4項目に関しては、測定値の対数値が正規分布になることが多いので、⁴⁾ pH以外は測定値の対数値を用いた。また、pHは他の4項目と単位が異なるので、それぞれの項目別にデータを基準化した。15施設のデータに基づき相関係数を求め、この相関行列を出発点として主成分分析を行った。

5項目間の相関行列から求めた固有値(λ)および累積寄与率は表4の(1)に、また、第3主成分までの固有ベクトル、各主成分の因子負荷量および寄与率(ν_3)を表4の(2)に示した。第1, 第2および第3主成分の固有値はそれぞれ2.76, 1.45および0.58で、これらの3つの主成分によって全体の情報の95.8%を表わすことができた。

表4 各項目の測定値の対数値による主成分分析(P=5)

(1)

主成分	Z ₁	Z ₂	Z ₃	Z ₄	Z ₅
固有値 λ	2.76	1.45	0.58	0.15	0.06
累積寄与率 (%)	55.2	84.2	95.8	98.9	100

(2)

主成分 項目	固有ベクトル			各主成分の因子負荷量			軸回転後の因子負荷量			寄与率 ν_3
	Z ₁	Z ₂	Z ₃	Z ₁	Z ₂	Z ₃	F ₁	F ₂	F ₃	
pH	-0.15	0.66	0.72	-0.25	0.80	0.55	-0.10	0.21	0.97	0.99
SS	0.58	-0.04	-0.01	0.96	-0.05	-0.00	0.94	-0.02	-0.19	0.92
BOD	0.58	-0.01	0.23	0.97	-0.01	0.17	0.98	-0.11	-0.03	0.97
COD	0.55	0.21	-0.03	0.92	0.26	-0.02	0.93	0.22	0.01	0.91
Cℓ-	0.01	0.72	-0.65	0.02	0.86	-0.50	0.04	0.97	0.21	0.99

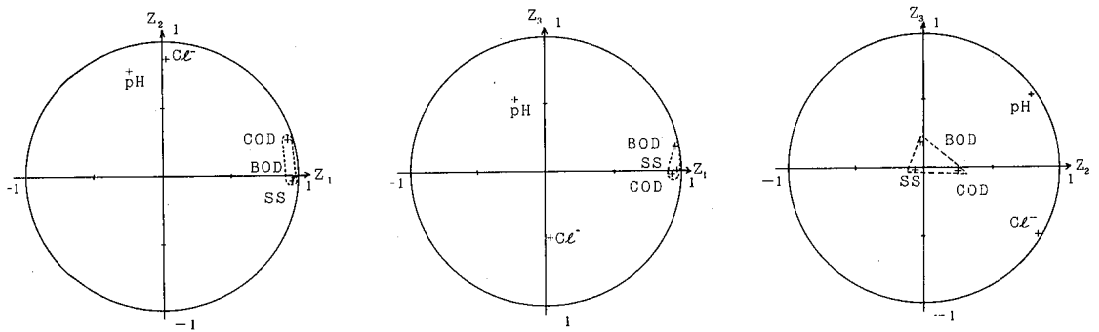


図1 因子負荷量の分布 (P=5)

1) 主成分と項目の分類

第1主成分 Z_1 ではSS, BODおよびCODに対する因子負荷量が何れも0.9以上で、これらの3項目に比べるとpHおよび塩素イオンに対する値は極めて小さい。したがって、第1主成分は汚濁を示す因子とみなされる。第2主成分 Z_2 ではpHおよび塩素イオンに対する因子負荷量が際立って大きくいずれも0.8以上で、他のものは小さいので、この主成分はpHおよび塩素イオンを示す因子とみなされる。第3主成分 Z_3 では、第2主成分と同様にpHおよび塩素イオンに対する因子負荷量が比較的大きく、約0.5で、他のものの値は極めて小さい。したがって、この主成分は第2主成分に準ずるものとみなされる。因子負荷量を (Z_1, Z_2) , (Z_1, Z_3) および (Z_2, Z_3) のそれぞれの組合せプロットしたものが図1である。図上で明らかなように、5項目はSS, BODおよびCODを含む汚濁を示すグループ、pHならびに塩素イオンの3つのグループに分類できる。

2) 各食肉製品製造施設の排水の分類

総合特性値 Z_1, Z_2 および Z_3 のスコアを用いて、各食肉施設の排水の分類を行うには Z_1, Z_2 および Z_3 がそれぞれ際立った特徴をもっていることが前提となる。しかし、前述のように、 Z_3 は Z_2 と同じような特性値であり、しかも両者ともpHと塩素イオンに対する因子負荷量の値が高いことで一致する。したがってpHと塩素イオンという2つの異質の概念を分離するため、バリマックス法により因子軸の回転を試みた。回転の結果得た F_1, F_2 および F_3 因子は表4の(2)に示した。第1因子 F_1 は第1主成分と同じようにSS, BODおよびCODに基づく汚濁因子であり、第2因子 F_2 は塩素イオンに対し、また、第3因子 F_3 はpHに対しいずれも因子負荷量が0.97となって、明確に分離された。したがって、各施設の排水のスコアは、各因子ごとにおおむね次式によって評価される。

$$\text{第1因子(汚濁)} \quad F_1 \doteq 0.94(\text{SS}) + 0.98(\text{BOD}) + 0.93(\text{COD})$$

$$\text{第2因子}(Cl^-) \quad F_2 \doteq 0.97(Cl^-)$$

$$\text{第3因子}(pH) \quad F_3 \doteq 0.97(pH)$$

上式で、(pH), (SS), (BOD), (COD)および (Cl^-) は、いずれも、測定値の対数値を各項目別に基準化したものである。各施設のpH値は6.9~7.7の範囲にあり、特に問題となるような施設はなかった。塩素イオンについては、法規上の規制はないが、汚濁に関連する項目であり、特に、食肉施設では製品の味付や保存性の目的で食塩などが多量に使用される可能性があるため、一応考慮すべき項目であると考えられる。このような見地から、第1および第2因子で求めた各スコアを基準化してプロットしたものが図2である。

図2で明らかなようにSS, BODおよびCODに基づく汚濁に関して、対象とした排水のうちでの平均より悪い

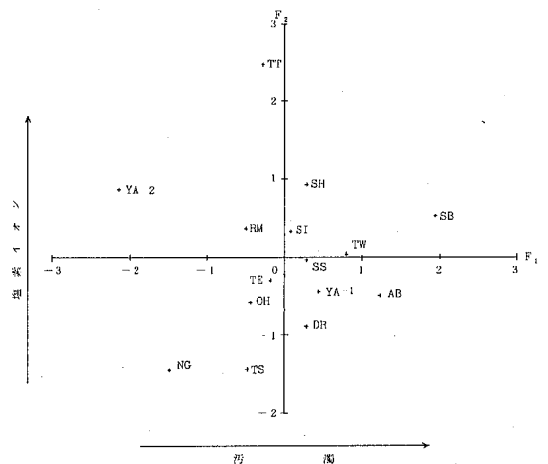


図2 各施設からの排水の F_1 および F_2 因子上のスコア

ものは F_1 軸の+側にあり、また、塩素イオンの著しいものは F_2 軸の+側にある。このような観点からみて、汚濁の著しい施設はSB、ABおよびTWで、反対にYA-2やNG施設は良好な状態にあり、これら以外のものはまずまずの状態といえよう。他方、TT施設は塩素イオンが著しく、NGやTSは塩素イオンが少ないといえよう。たとえば、SB施設は汚濁は際立っているが、塩素イオンはまずまずの状態であり、TT施設は汚濁はほぼ平均的であるが塩素イオンが著しく、また、NG施設は最も良好な排水といえよう。

要 約

食肉製品製造処理施設の維持管理状態を調べるためpH、SS、BOD、COD、塩素イオンおよび大腸菌群数の6項目の検査を行った。pHを除く他の5項目の変動係数は100以上で、管理状態の良くない施設がみられた。大腸菌群数以外の5項目の間で相関関係があるといえる項目はSS、BODおよびCODの3項目間の組合せであった。

測定値の対数値を基にした主成分分析では、第1主成分はSS、BODおよびCODに基づく汚濁因子、第2および第3主成分はpHおよび塩素イオンに関する因子であった。因子軸の回転によって得た F_1 因子は第1主成分と同じように汚濁因子、 F_2 因子は塩素イオン、 F_3 因子はpH因子となり明確に分離できた。さらに、 F_1 および F_2 因子に基づいて、各施設の排水に関するスコアを求め、排水の良否を判定した。

文 献

- 1) 日本工業標準調査会編(1971):工場排水試験法(JIS K0102)。
- 2) 日本下水道協会編(1967):下水試験方法。
- 3) 奥野忠一、久米均、芳賀敏郎、吉沢正(1977):多変量解析法、日科技連。
- 4) 藤本義典、内田文男(1978):埼玉県内のし尿処理場放流水の水質について、用水と廃水、20、56-71。

埼玉県内のへい獣処理場（化製場）の排水の水質についての調査（第2報）

藤本 義典 内田 文男 星野 庸二 吉原 ふみ子*

1969年に公害調査研究委託事業の一端として、埼玉県内の皮革製造施設について45件、油脂、飼料製造施設について28件の排水の水質調査を実施したが、その結果はすでに当研究所報¹⁾で報告した。現在、排水処理施設を設置したものもあるが、当時は、大部分の化製場には処理施設がなく、せいぜい貯留槽でいどであり、そのうち1ヶ所は活性汚泥法で処理していたが、実動していない状態であった。したがって、排水の水質はきわめて悪く、放流先の河川（主として綾瀬川）の汚染の原因の一つとなっていた。

排水について、pH、透視度、浮遊物質（SS）、BODおよび大腸菌群数を検査したが、これらのうち、大腸菌群数以外の項目に関し、統計学的考察を行ったので報告する。

皮革製造施設からの排水

1 水質に関する基本統計量

pH、透視度、SSおよびBODの4項目についての基本統計量は表1に示した。

表1 皮革製造施設からの排水の各分析項目の測定値ならびに測定値の対数値の平均値および分散度

項目		pH	Transparency 度	SS mg/l	BOD mg/l
統計量	n	45	45	45	45
測定値	max.	12.6	22.0	2,040	3,500
	min.	3.9	0.5	24	80.3
	\bar{x}	7.98 ± 0.87	3.05 ± 1.02	377.6 ± 123.9	487.6 ± 169.4
	\sqrt{v}	2.858	3.369	408.1	557.9
	C.V.(%)	35.8	110	108	114
	歪度*	0.179 ^o	4.010	2.246	3.665
	尖度**	0.898	0.566	0.674	0.576
正規性	—	—	—	—	
対数値	max.	—	1.3424	3.3096	3.5441
	min.	—	-0.3010	1.3802	1.9047
	\bar{x}	—	0.3487 ± 0.0996	2.3420 ± 0.1526	2.5378 ± 0.1039
	\sqrt{v}	—	0.3281	0.5026	0.3421
	C.V.(%)	—	94.1	21.5	13.5
	歪度*	—	0.341 ^o	-0.435 ^o	0.459 ^o
	尖度**	—	0.792 [.]	0.788 [.]	0.771 [.]
正規性	—	⊙	⊙	⊙	

- 注 1. n : 件数
 2. \bar{x} : 平均値ならびに確率95%の信頼限界
 3. v : 不偏分散
 4. C.V. : 変動係数
 5. * : $\sqrt{b_1}$, o : $|\sqrt{b_1}| < 0.659$ (5%有意点)のもの。
 +は大きい値の方に、-は小さい値の方にすそを引いているといえる。
 6. ** : Geary 検定値, $.$: $0.741 < G < 0.842$ (5%有意点)のもの。
 7. ⊙ : 5%有意水準で正規分布でないといえないもの。

* : 公害センター

変動係数は、pHが35.8%であったが、他はいずれも100%以上で、ばらつきはかなり大きい。対数値にしたときの変動係数は、透視度が94.1%でかなり大きい、SSおよびBODではやや小さくなって、それぞれ21.5%および13.5%であった。

各項目に関する母分布の正規性については、歪度および尖度によって検定²⁾した。表1に示したように、各項目の測定値の分布で、正規性であると認められるものはなかった。しかし、透視度、SSおよびBODに関しては、5%有意水準で、対数正規分布でないとはいえないという結果を得た。たとえば、BODの対数値のヒストグラムは図1のようになる。

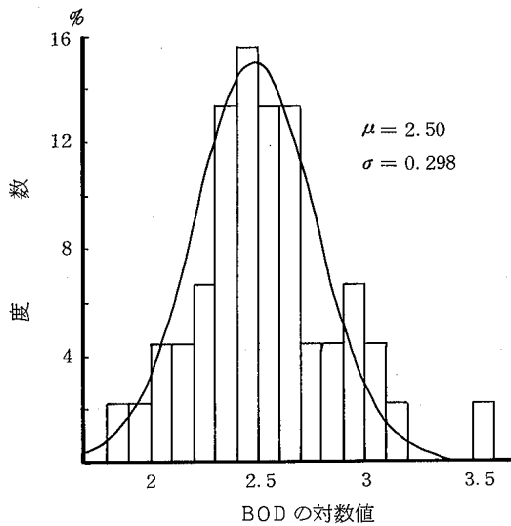


図1 BODの対数値のヒストグラムおよび正規分布曲線

2 各項目間の相関関係

各項目の測定値間の相関係数は表2に示した。

表2 各分析項目間の相関係数

	pH	Trans- parency	SS	BOD	測定 値間
pH		-0.227	0.437 [○]	-0.094	
Trans- parency	-0.232		-0.357 [△]	-0.227	
SS	0.370 [△]	-0.604 [○]		0.120	
BOD	-0.019	-0.422 [○]	0.399 [○]		

対数値間(ただし、pHのみは測定値)

注1. n = 45

2. ○印: 1%有意水準で相関関係があるといえるもの。

3. △印: 1%有意水準で相関関係があるとはいえないが、5%有意水準で相関関係があるといえるもの。

2変数間に母単純相関なし($\rho=0$)とする仮説を有意水準1%および5%で検定したが、各有意水準で相関関係があるといえるものは、SSとpH、およびSSと透視度の間に認められたが、他の場合には有意の相関はなかった。

測定値の対数値間の相関係数は表2の下の部分に示したが、SSは1%あるいは5%有意水準で他の3項目と相関があり、また、透視度とBODとの間にも1%有意水準で相関があった。以上の結果より、元の測定値間よりも、対数値間で、より著しい相関が認められた。

3 主成分分析

各項目について、測定値のままよりは、それらの対数値に基づいたものの方が正規分布となる傾向が著しく、また、各項目間の相関係数も対数値によるものの方が既して高い値を示すことから、pH以外は測定値の対数値を用い、さらに、それぞれの項目別に測定値(対数値)を基準化して解析を行った。項目iの任意の測定値を $x_{\alpha i}$ ($\alpha=1, 2, \dots, n$)とすれば、基準化した値 $x'_{\alpha i}$ は次のようになる。

$$x'_{\alpha i} = \frac{\log x_{\alpha i} - \overline{\log x_i}}{(\log x_i \text{ の } \sqrt{V_i})} \quad (1)$$

主成分分析³⁾は、基準化した値を基にし、表2の相関行列(対数値に基づくもの)を出発点として行った。その結果は表3に示した。

第1、第2および第3主成分の固有値 λ は、それぞれ2.08、1.03および0.52であったが、第2主成分までで、全体の情報の77.8%を表わすことができた。また、各項目の第2主成分までの寄与率は、表3の(2)に示したように、pHは88%、透視度は71%、SSおよびBODはともに76%であった。したがって、第2主成分までの範囲で解析を行った。

1) 主成分と項目の分類

表3 皮革製造施設からの排水についての主成分分析(P=4)

(1)

主成分	Z ₁	Z ₂	Z ₃	Z ₄
固有値 λ	2.08	1.03	0.52	0.37
累積寄与率(%)	52.0	77.8	90.8	100

(2)

主成分 項目	固有ベクトル		主成分の 因子負荷量		軸回転後の 因子負荷量		寄与率 % ₂
	Z ₁	Z ₂	Z ₁	Z ₂	F ₁	F ₂	
pH	0.32	0.80	0.47	0.81	0.06	0.93	0.88
Trans- parency	-0.58	0.10	-0.84	0.10	-0.79	-0.28	0.71
SS	0.60	0.10	0.87	0.10	0.73	0.47	0.76
BOD	0.44	-0.59	0.64	-0.59	0.84	-0.24	0.76

第1主成分 Z_1 では、排水の物理的特性である濁りを表わすSSや透視度に対する因子負荷量がいずれも0.8(ただし透視度は負)以上であるが、BODに対しては0.64、またpHに対しても0.47でやや高い値を示している。したがって、 Z_1 は濁りを主とする汚濁を示す因子とみなされる。第2主成分 Z_2 では、pHに対する因子負荷量が0.81で最も大きく、次いでBODに対して-0.59で、透視度やSSに対する値は小さい。 Z_2 は主としてpHを示すものであり、濁りとは余り関係のない因子とみなされる。

因子負荷量を、 Z_1 および Z_2 を軸とする平面上にプロットしたものが図2である。

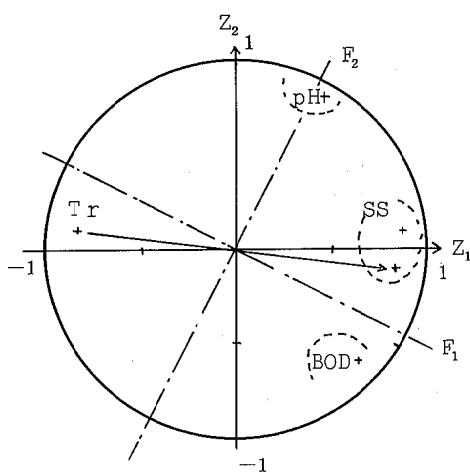


図2 皮革製造施設からの排水についての因子負荷量の分布 ($P=4$)

透視度は、SSやBODとは反対に、汚濁が著しいものほど値が小さくなるので、図上では、実際にプロットされた点と対象をなす位置に移動させて解析した。図上で明らかのように、4項目は、[pH]、[透視度、SS]および[BOD]の3グループに分類された。

2) 主成分による排水の分類についての問題点

各施設からの排水について、 Z_1 および Z_2 のスコアを求めるには、次式を用いることになる。

$$Z_1 = 0.32(\text{pH}) - 0.58(\text{Tr}) + 0.60(\text{SS}) + 0.44(\text{BOD}) \quad (2)$$

$$Z_2 = 0.80(\text{pH}) + 0.10(\text{Tr}) + 0.10(\text{SS}) - 0.59(\text{BOD}) \quad (3)$$

上式で、(pH)、(Tr)、(SS)および(BOD)は、(1)式で示したように、基準化した値である。

前述のように、 Z_1 および Z_2 は、各分析項目の分類に

は有力な手がかりを与えたが、上式から各排水のスコアを求め、排水の分類や良否の順位づけすることは必ずしも適切ではない。その理由として、次の二つの点があげられる。

(1) Z_1 および Z_2 が、各項目に関して際立った特徴を持っていない。 Z_1 では、汚濁に関する項目の係数に比べてpHに関する係数がかなり高い。また、 Z_2 では、pHに関する係数に比べてBODの係数がかなり高く、しかも、pHとBODとは異質の項目である。したがって、 Z_1 および Z_2 のスコアでは明確な解釈がやや困難である。

(2) Z_1 および Z_2 は、pH値の評価を十分に反映していない。(2)式において、透視度の値が大きいほど、また、SSおよびBODの値が小さいほど、 Z_1 のスコアは小さくなり、水質汚濁の指標となる。しかし、pHの値が小さいほど Z_1 のスコアは小さくなるが、排水がアルカリ性である場合には問題がないものの、酸性が強いほど Z_1 の値が小さくなるという結果になる。しかも、当調査でのpH値は、表1に示したように3.9から12.6の間にある。したがって、 Z_1 のスコアによって水質の良否を評価するにはやや難点がある。また、(3)式から算出される Z_2 のスコアに関しては余り効果は期待できない。

3) 回転因子軸に基づく排水の分類

各因子を、より明確にするために、バリマックス法により因子軸の回転を試みたが、その結果は表3の(2)に示した。主成分が2つであるため、回転して新しく得られる F_1 および F_2 軸は、同一平面上にとることができるので、これらを図2に示した。 F_1 因子の寄与率は48.6%で、 Z_1 の52%よりやや小さい。表3の(2)の数値、あるいは図2で明らかのように、 F_1 因子の、透視度、SSおよびBODに対する因子負荷量は、それぞれ-0.79、0.73および0.84で、pHに対するそれは0.06であり、したがって、 F_1 因子は、明らかに汚濁を示す因子とみなされる。 F_2 因子の寄与率は29.1%で、 Z_2 の25.8%よりやや大きい。 F_2 因子のpHに対する因子負荷量は0.93で、際立って大きい。SSに対する値も0.47でかなり大きく、また、透視度やBODに対する値も無視できない。したがって、 F_2 因子は、pHを主として表わす因子とはいえるものの、他の項目との分離は必ずしも良くない。

各施設からの排水の評価を行い、順位づけるためのスコアを得るためには、以上にあげた Z_1 、 Z_2 、あるいは F_1 、 F_2 のうち、 F_1 が最も適していると考えられる。 F_1 因子で、pHに対する因子負荷量は0.06で、他のものに比べて極めて小さいのでpHの項を略すと、 F_1 因子は近似的に次式で表わされる。

$$F_1 \div 0.79(\text{Tr}) + 0.73(\text{SS}) + 0.84(\text{BOD}) \quad (4)$$

上式で、(Tr)、(SS)および(BOD)は、(1)式で示したように、基準化した値である。この式から算出されるスコアによって、透視度、SSおよびBODの3項目に基づく水質の評価が可能となる。

(4) 式で得る各施設からの排水の因子得点を, そのまま比べて水質の良否を判定できるが, より分かり易くするため, 各スコアを基準化し, その値に基づいて6段階の評点をつかった。すなわち, 基準化した値の平均値を \bar{x} , 標準偏差を s とし, \bar{x} , $\bar{x} \pm s$ および $\bar{x} \pm 2s$ の部分で区切った。この場合, 基準化しているので $\bar{x} = 0$, $s = 1$ となり, 評点の区分は表4のようになる。

表4 各排水のスコアに対する区分点と, 各スコアの評点方法

区分点	$\bar{x} - 2s$	$\bar{x} - s$	\bar{x}	$\bar{x} + s$	$\bar{x} + 2s$	
$\frac{x - \bar{x}}{s}$ の範囲	~-2	~-1	~0	~1	~2	~
評点	0	1	2	3	4	5

このような方法で評点した結果を示したものが表5である。

11施設については4回測定したが, M施設のみは1回測定しただけである。表5において評点の小さいものほど, 水質が他のものに比べて良いことを示している。

総得点で最も小さいのはISで, 各回の評点も2, 1, 1, 0で水質も比較的安定している。次いで, SHおよびDは総得点が7で, 各回の評点で1あるいは3のときがある。Nは総得点は8であるが, 4回とも評点は2で, 毎回の水質は安定しているといえよう。MおよびKSでは, 総得点は14で他の施設に比べて悪く, 各回の評点も3もしくは4であることから, 常に悪い水質のものが放流されていると判断された。OおよびSは総得点が11および12でかなり悪く, また, 各回の評点が1もしくは4のときが

表5 各皮革製造施設からの排水の, F₁ 因子に基づく評点

施設名	F ₁ 因子に基づく評点				総得点	順位
	午前	午後	午前	午後		
N	2	2	2	2	8	4
K	3	2	2	2	9	5
I	3	3	2	2	10	6
M	3	4	3	4	14	10
O	1	3	3	4	11	7
I S	2	1	1	0	4	1
Y	3	3	3	2	11	7
M	4	—	—	—	—	—
S	1	3	4	4	12	9
SH	2	1	3	1	7	2
D	3	1	1	2	7	2
KS	4	3	3	4	14	10

あり, このことは排水の質が一定していないことを示す。以上の他の施設のものはまずまずの状態である。Mは1回測定しただけであるが, 評点は4であり, 余り良いとはいえなかった。

油脂, 飼料製造施設からの排水

1 水質に関する基本統計量

pH, 透視度, SSおよびBODの4項目についての基本統計量は表6に示した。

表6 油脂, 飼料製造施設からの排水の各分析項目の測定値ならびに測定値の対数値の平均値および分散度

項目		pH	Transparency 度	SS mg/l	BOD mg/l
統計量	n	28	28	28	28
測定値	max.	8.4	13.0	9,040	13,200
	min.	2.9	0.1	14	108
	\bar{x}	6.75 ± 0.38	2.61 ± 1.16	1,198 ± 728	3,580 ± 1,710
	\sqrt{v}	0.964	2.939	1,843	4,329
	C. V. (%)	14.3	112	154	121
	歪度*	-1.818	1.865	2.812	1.025
	尖度**	0.567	0.722	0.630	0.849
正規性	—	—	—	—	
対数値	max.	—	1.1139	3.9562	4.1206
	min.	—	-1.0000	1.1461	2.0334
	\bar{x}	—	0.1838 ± 0.1882	2.6222 ± 0.2884	3.1348 ± 0.2699
	\sqrt{v}	—	0.4765	0.7303	0.6835
	C. V. (%)	—	259	27.8	21.8
	歪度*	—	0.131 ^o	-0.312 ^o	-0.032 ^o
	尖度**	—	0.773 [.]	0.812 [.]	0.833 [.]
正規性	—	⊙	⊙	⊙	

注 1~4および7は表1のものと同じ

5. * : $\sqrt{b_1}$, o : $|\sqrt{b_1}| < 0.764$ (5%有意点)のもの。

6. ** : Geary 検定値, . : $0.725 < G < 0.851$ (5%有意点)のもの。

変動係数は、pHが14.3%で、この種の排水としてはばらつきは小さい方であったが、他はいずれも100%以上で、特にSSでは154%にも達していた。対数値にしたときの変動係数は、透視度が259%で極めて大きく、SSおよびBODもそれぞれ27.8および21.8%であった。

各項目について、歪度および尖度によって母分布の正規性の検定²⁾を行ったが、表6に示したように、測定値によるものでは、分布が正規性であると認められるものはなかった。しかし、透視度、SSおよびBODについては、5%有意水準で、対数正規分布でないとはいえないという結果を得た。したがって、当調査の統計学処理は、pHを除き、対数値で行った。

2 各項目間の相関関係

各項目の測定値間の相関係数は表7に示した。

pHは他の3項目のいずれとも相関はなかったが、SSと透視度の間では5%有意水準で、また、BODと透視度、

表7 各分析項目の測定値間の相関係数

	pH	Trans- parency	SS	BOD	測定 値間
pH		0.282	-0.190	-0.230	
Trans- parency	0.242		-0.437△	-0.533°	
SS	-0.367	-0.919°		0.791°	
BOD	-0.200	-0.882°	0.887°		

対数値間(ただし、pHのみは測定値)

注1: n = 28

2.および3.: 表2のものと同じ。

表8 油脂、飼料製造施設からの排水についての主成分分析(P=4)

(1)

主成分	Z ₁	Z ₂	Z ₃	Z ₄
固有値λ	2.91	0.90	0.12	0.07
累積寄与率(%)	72.7	95.2	98.3	100

(2)

主成分 項目	固有ベクトル		主成分の 因子負荷量		軸回転後の 因子負荷量		寄与率 ν ₂
	Z ₁	Z ₂	Z ₁	Z ₂	F ₁	F ₂	
pH	-0.24	0.96	-0.41	0.91	-0.14	0.99	0.99
Trans- parency	-0.56	-0.17	-0.96	-0.16	-0.96	0.11	0.94
SS	0.57	0.02	0.97	0.02	0.94	-0.25	0.95
BOD	0.55	0.22	0.94	0.21	0.96	-0.06	0.92

BODとSSの間では1%有意水準で相関があるといえた。

測定値の対数値間の相関係数は、表7の下の部分に示したが、pHは他の3項目のいずれとも相関関係が有意でなかったが、透視度、SSおよびBODの相互の間では1%有意水準で相関が認められた。しかも、いずれの場合も、それらの値はかなり高く、0.88~0.92の間であった。

3 主成分分析

pH以外は測定値の対数値を用い、(1)式に従って各項目別に基準化し、表7の相関行列を基にして主成分分析を行った。その結果は表8に示す。

第1から第4までの主成分の固有値λは、2.91、0.90、0.12および0.07で、第2主成分まででほとんどの情報が集約されている。第1主成分のみですでに72.7%の情報が表わされ、第2主成分までで95.2%に達している。また、第2主成分までで、個々の項目の寄与率は92~99%の間であった。したがって、第2主成分までの範囲で解析を行った。

1) 主成分と項目の分類

第1主成分Z₁では、排水の汚濁に起因する特性値である透視度、SSおよびBODに対する因子負荷量が、それぞれ-0.96、0.97および0.94で極めて高く、この主成分は明らかに汚濁を表わす因子とみなされる。しかし、pHに対する因子負荷量もかなり大きく-0.41である。第2主成分Z₂では、pHに対する因子負荷量が際立って大きく、0.91で、他の因子負荷量はかなり小さい。したがって、Z₂はpHを示す因子とみなされる。

因子負荷量を、Z₁およびZ₂を軸とする平面上にプロットしたものが図3である。

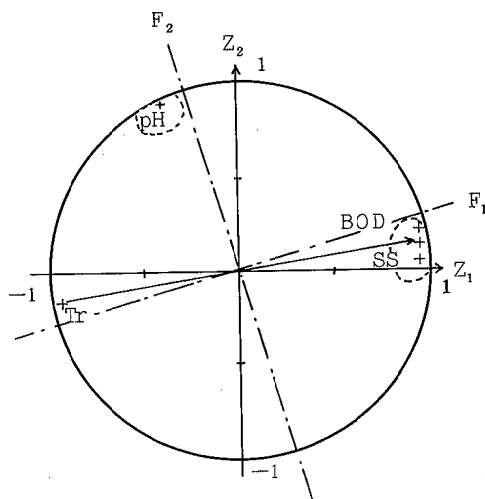


図3 油脂、飼料製造施設からの排水についての因子負荷量の分布(P=4)

透視度を前述のように移動させると、汚濁に関係が深い透視度、SSおよびBODの3項目が1つのグループをつくり、pHのみが明確に分離された。皮革製造施設の場合、透視度とSSの2項目をまとめたグループと、BODのみの2つのグループに分かれていたが、油脂、飼料製造施設の場合は、これら3項目が一つのグループをつくっているのが特徴であるといえよう。

2) 主成分による排水の分類

各施設からの排水について、 Z_1 および Z_2 のスコアを求めるには次式を用いることになる。

$$Z_1 = -0.24(pH) - 0.56(Tr) + 0.57(SS) + 0.55(BOD) \quad (4)$$

$$Z_2 = 0.96(pH) - 0.17(Tr) + 0.02(SS) + 0.22(BOD) \quad (5)$$

上式で、(pH)、(Tr)、(SS)および(BOD)は、(1)式で示したように、基準化した値である。

(4)式が、皮革製造施設からの排水で得た(2)式と著しく異なる点は、(pH)に関する係数が負であり、したがって、pHの値が大きいほど Z_1 の値が小さくなることである。ところで、表6で示したように、油脂、飼料製造施設からの排水のpH値は2.9から8.4の間にある。そのうち、pH値が7を超えるものは28件のうち4件で、しかも水質汚濁防止法で定められた基準値⁴⁾内にある。このような点を考慮すれば、(4)式で得る各施設からの排水のスコアは、pH、透視度、SSおよびBODの4項目を総合した汚濁の指標とみなして差し支えない。(ただし、当調査で、皮革製造施設からの排水のように、強アルカリ性のある場合には、前述の理由により Z_1 は適用できなくなる。)

Z_2 については、pHに関する係数が際立って大きいのでpHの指標として用いられるが、BODに関する係数も無視できない。したがって、(5)式によって得るスコアについては、総合特性値としての意味づけに、若干のあいまいさが伴う。

Z_1 に基づいて算出される各排水のスコアは、前述の理由により、pH、透視度、SSおよびBODの4項目を含めた総合指標として水質の評価に役立てることができる。さらに、皮革製造施設の項で述べたと同様の方法で、(4)式によってスコアを求め、さらに評点を求めて示したものが表9である。

表9 各油脂、飼料製造施設からの排水の、第1主成分 Z_1 に基づく評点

施設名	Z_1 に基づく評点				総得点	順位
	午前	午後	午前	午後		
I	2	1	1	1	5	1
O	3	3	3	3	12	5
Y	4	3	4	4	15	7
S	3	3	3	4	13	6
YS	3	3	2	2	10	4
C	3	1	3	1	8	3
K	2	1	2	2	7	2

7施設のうち、Iの総得点が最も小さくて5であり、各回の評点も2, 1, 1, 1で比較的安定している。次いでKの総得点は7で、各回の評点は2, 1, 2, 2である。これらに反し、Yの総得点は15で、各回の評点も4, 3, 3, 4で、毎回とも水質が不良であった。総得点8のC施設では、各回の評点は3, 1, 3, 1で、午前の排水は悪いが、午後のものはかなり良かった。C施設を除いて、他の施設の排水は、各回の水質の程度はほぼ同じで、比較的良好なI, C, Kのグループと、余り良くないY, S, Oのグループとに分類できた。

3) 回転因子軸に基づく排水の分類

pH以外の透視度、SSおよびBODの3項目で水質を評価するには、 Z_1 および Z_2 は適さないので、バリマックス法により因子軸の回転を試みた。その結果は表8の(2)に、また、新しい F_1 および F_2 軸を図3に示した。 F_1 因子の寄与率は68.8%で、 Z_1 の72.7%よりやや小さい。表8の(2)の数値あるいは図3で明らかなように、 F_1 因子の透視度、SSおよびBODに対する因子負荷量は、それぞれ-0.96, 0.94および0.96で、pHに対するそれは-0.14で、この因子は、汚濁を示す因子とみなされた。 F_2 因子の寄与率は26.4%で、 Z_2 の22.5%よりやや大きい。この因子は主としてpHを示す因子で、その因子負荷量は0.99で際立って大きい、SSに対する因子負荷量も-0.25である。

Z_1 に比べて F_1 因子では、pHに対する因子負荷量が小さいので、pHの項を略し、 F_1 因子を、近似的に、透視度、SSおよびBODを示す因子とみなし、スコアを次式で求めることができる。

$$F_1 = -0.96(Tr) + 0.94(SS) + 0.96(BOD) \quad (6)$$

上式で、(Tr)、(SS)および(BOD)は、すでに述べたように基準化した値である。(6)式から算出されるスコアによって、透視度、SSおよびBODの3項目に基づく水質の評価が可能である。各施設からの排水についてスコアを計算し、評点を求めた結果は表10に示す。

表10 各油脂、飼料製造施設からの排水の、 F_1 因子に基づく評点

施設名	F_1 因子に基づく評点				総得点	順位
	午前	午後	午前	午後		
I	2	1	1	1	5	1
O	3	3	3	3	12	5
Y	4	3	4	4	15	7
S	3	3	4*	4	14*	6
YS	3	3	2	2	10	4
C	3	1	3	1	8	2
K	2	1	3*	2	8*	2

注*: 表9に示した評点と異なる値となったもの

F₁ 因子に基づいて得た得点は、Z₁ に基づいて得た評点とほぼ同じで、表 10 に * 印で示したように S および K の各 1 回の評点が 1 点づつ増加したのみである。すなわち、3 項目の総合評価と、pH を加えた 4 項目による総合評価とは余り差がなかったことになる。これは、Z₁ を示す(4)式で、pH の項の係数が他の 3 項目の項の係数の半分以下であり、また、各施設で、pH 値の差が余りなかったことによると思われる。

要 約

埼玉県内の皮革製造施設について 45 件、油脂、飼料製造施設について 28 件の排水の水質調査を行ったが、そのうち、pH、透視度、SS および BOD の 4 項目を対象として統計学的に解析した。pH を除く 3 項目の母分布は、対数正規分布ではないとはいえないという結果を得、また、透視度、SS および BOD の 3 項目の相互の間には相関関係が認められた。

主成分分析の結果、皮革製造施設では、4 項目は [pH]、[透視度、SS] および [BOD] の 3 グループに分類さ

れ、油脂、飼料製造施設では [pH] および [透視度、SS、BOD] の 2 グループに分類された。皮革製造施設に関しては、4 項目のうち、透視度、SS および BOD の 3 項目が F₁ 因子に集約され、油脂、飼料製造施設に関しては、Z₁ に 4 項目が、また、F₁ 因子に前記の 3 項目が集約されたので、これらの主成分や F₁ 因子を用いて各排水のスコアを求め、各排水の汚濁程度を分類するとともに順位づけをも行った。

文 献

- 1) 藤本 義典, 星野 庸二, 吉原 ふみ子 (1970) : 埼玉県内のへい獣処理場(化製場)の排水の水質についての調査(第 1 報), 埼玉衛研所報, 5, 117~119.
- 2) 統計数値表編集委員会編 (1977) : 簡約統計数値表. P 34, 日本規格協会.
- 3) 奥野 忠一, 久米 均, 芳賀 敏郎, 吉沢 正 (1977) : 多変量解析法, 日科技連.
- 4) 排水基準を定める総理府令(昭和 46 年 6 月, 総理府令第 35 号).

六価クロム汚染地復元調査

小林 進 小野 雄策 丹野 幹雄 藤本 義典

A市における六価クロム汚染地は、1975年8月に付近住民から「黄色の水が流れており、草が生えないので六価クロムによる汚染ではないか」との通報により発覚した。衛生研究所で調査した結果、たまり水で 43 mg/l 、土壌の溶出試験（土壌：蒸留水=1：10）で 180 mg/l および 45 mg/l が検出された。

汚染原因は、面積約 1500 m^2 の水田の埋立の際に用いられたクロム鉱さい、もしくは、クロムを含有した汚泥と考えられた。埋立は、1973年5月から翌年の2月まで埋立業者により行われたが、その後、業者死亡のため搬入元については不明であった。

この汚染地は、1975年8月末から立入禁止措置をとり、還元剤である硫酸第一鉄を3回散布し、さらに同年12月、良質土による覆元作業を行った。

今回の調査目的は、1975年の覆元作業後の汚染地の

状況を把握し、さらに汚染源の遮断方法を検討することである。

調査および分析方法

1 調査地点および調査年月日

調査地点および付近のみとり図を図1に示す。

1) 第1回調査(1979年2月16日)

1975年頃、草が生えていなかった箇所について調査

2) 第2回調査(1979年6月19日)

図1のように、ほぼ 10 m ますに汚染地を区切り、ますの中央を採取点とした。なお、道路際の調査域については、コンクリート等の建築廃材が投棄されていたため調査できなかった。

3) 第3回調査(1980年4月9日)

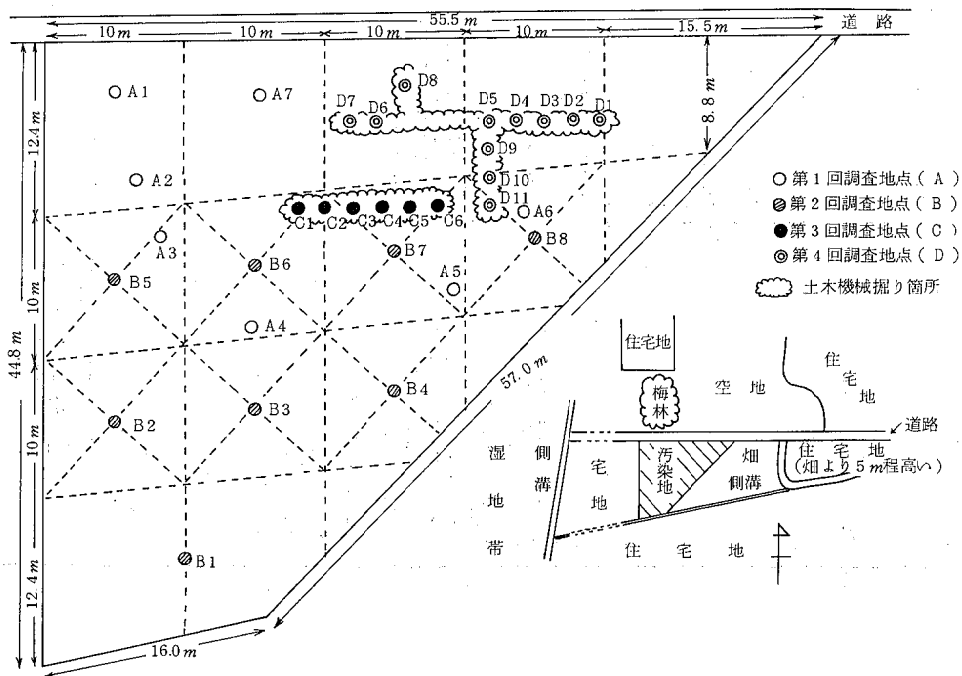


図1 調査地点および現地見取り図

第2回調査で、六価クロムが高濃度で検出された調査地点B7付近を、土木機械のユンボを用い、横1m、たて13mの溝を掘り調査を行った。

4) 第4回調査(1980年4月28日)

まだ調査を行っていない道路際の調査域について、ブルドーザーでコンクリート等の建築廃材を排除し、ユンボにて第3回調査と同様、溝を掘って調査を行った。

2 調査方法

第1回調査については、各調査地点の土壌断面における土壌の色や質、および埋立物の混入等を調査し、土壌断面を分類して各土壌層を採取した。

第2回調査については、第1回と同様、土壌断面調査を行い、表層から20cmごとの土壌層を採取した。

第3回および第4回調査は、第2回と同様の調査を行い、表層から10cmごとの土壌層を採取した。

3 分析方法

前処理方法は、環境庁告示第13号による「産業廃棄物に含まれる有害物質の検定方法」に基づき、各土壌層の溶出試験を行った。この溶出検液について、六価クロムの分析を行ったが、その方法は、JIS-K0102²⁾の規格51.2.1のジフェニルカルバジド法によった。

なお、溶出試験は、土壌：蒸留水=1：10で行っているため、六価クロム値は溶出濃度になるが、便宜上、図表等を含めて、溶液濃度を土壌濃度(mg/Kg生土)に換算して示した。

調査結果

1 クロム含有廃棄物の組成

1980年4月9日採取分のクロム含有廃棄物と思われる検体について、ケイ光X線分析を行った結果、図2のように、Fe, Ca, Cr, Ni, S, Al, Si, Ti等の元素が含まれていることが分かった。

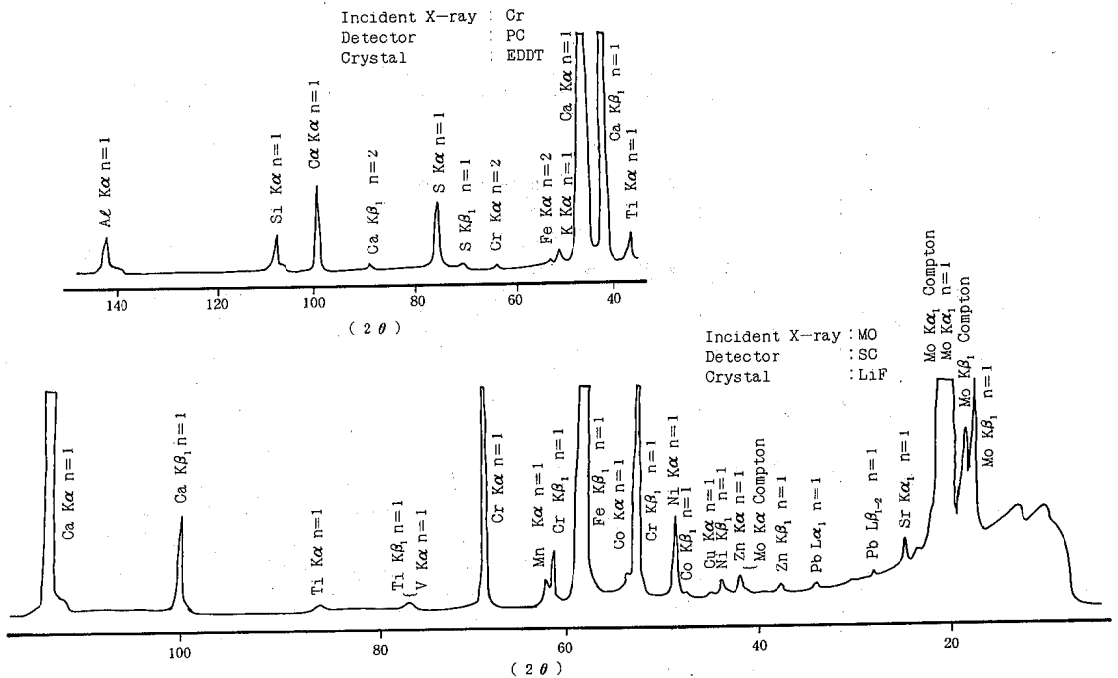


図2 クロム含有廃棄物のケイ光X線分析

さらに、X線回析を行った結果、 $\text{Na}_2\text{Cr}_2\text{O}_7 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 、 CaCO_3 、 $\text{CaSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 等も含まれていることが判明した。

この廃棄物の六価クロム含有量は、 940 mg/Kg であった。このことから六価クロムの全部が $\text{Na}_2\text{Cr}_2\text{O}_7 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ によるものと考えて計算すると、この廃棄物中 $\text{Na}_2\text{Cr}_2\text{O}_7 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ は、 0.27% 含まれていることになる。

2 六価クロム汚染地域および汚染の深さ

第1～4回調査地点の土壌断面の連続性について、図3のような連続線1～9までを想定し、各土壌面の連続断面図を図4（図3の連続線1のみ図示）のようにとると、埋立の際の埋立物の水平、垂直分布ならびに埋立物の連続性や不連続性、さらに埋立順序等が、ある程度広範囲に把握することができた。

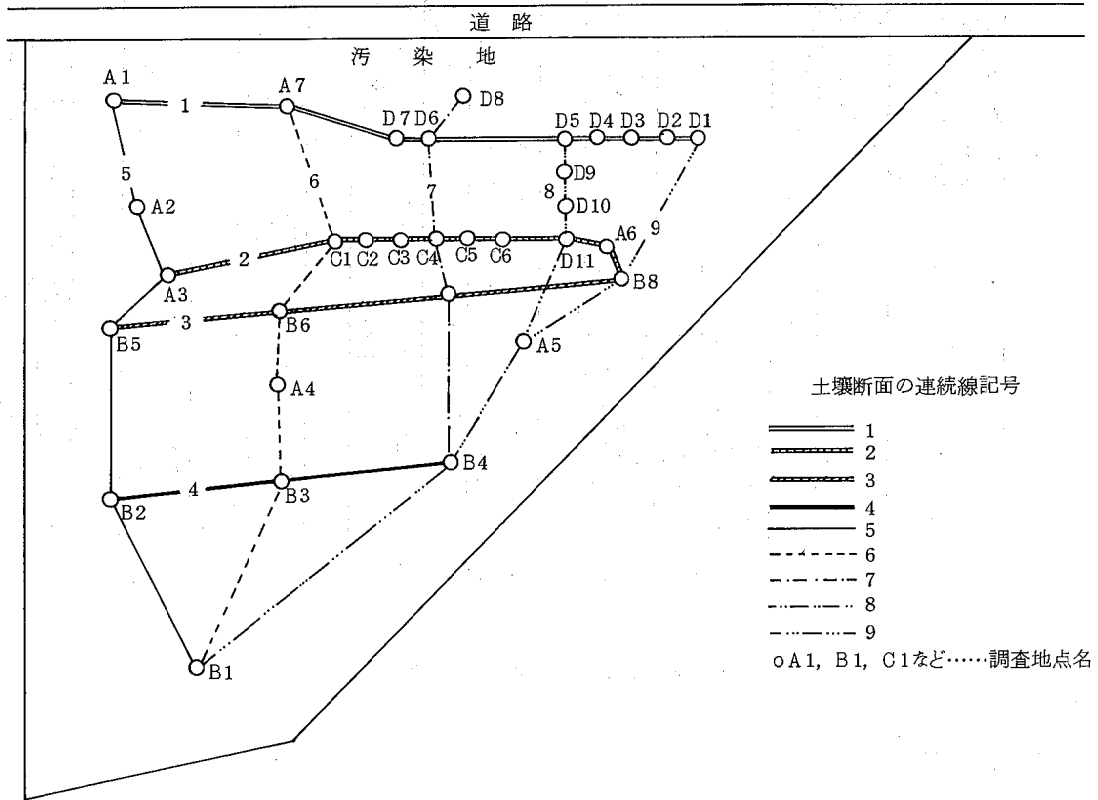


図3 土壌断面の連続線

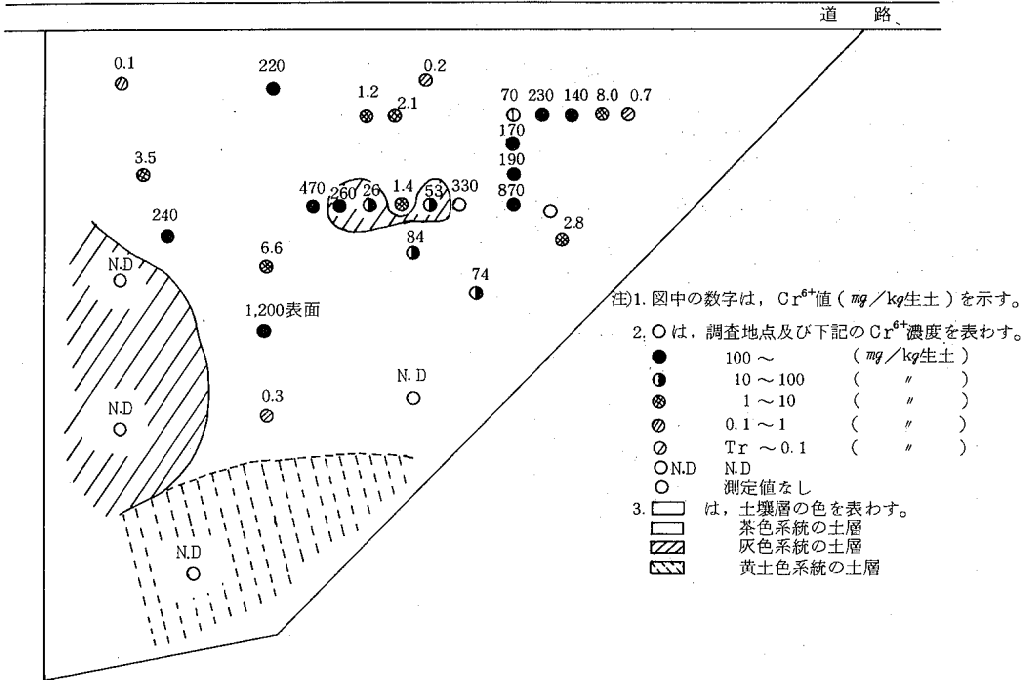


図 5 - 1 土壤層の六価クロム汚染地図 (土層 0 ~ 10 cm)

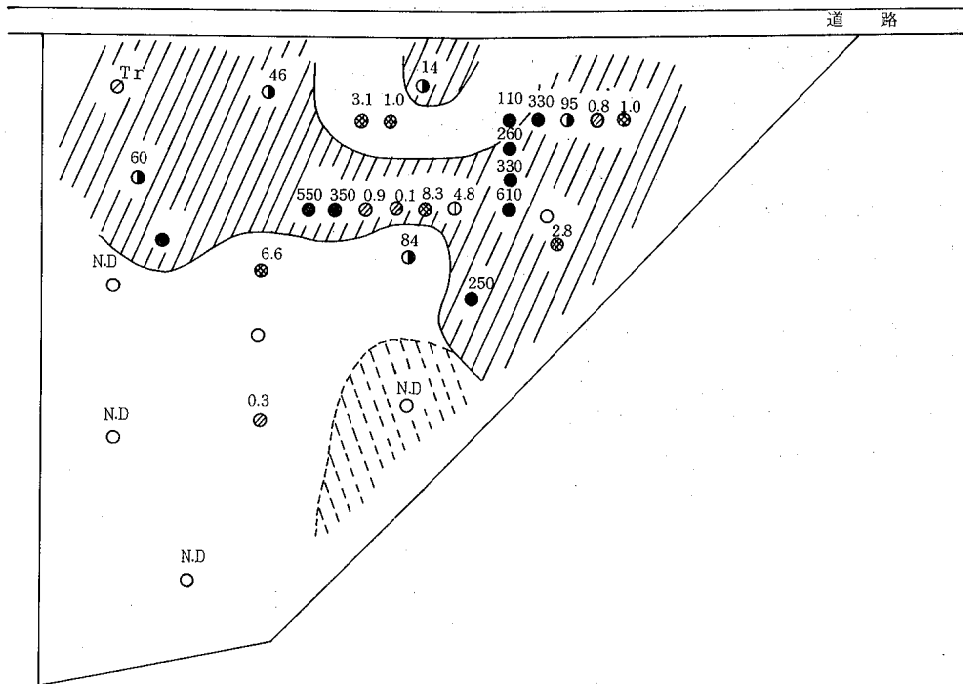


図 5 - 2 土壤層の六価クロム汚染地図 (土層 10 ~ 20 cm)

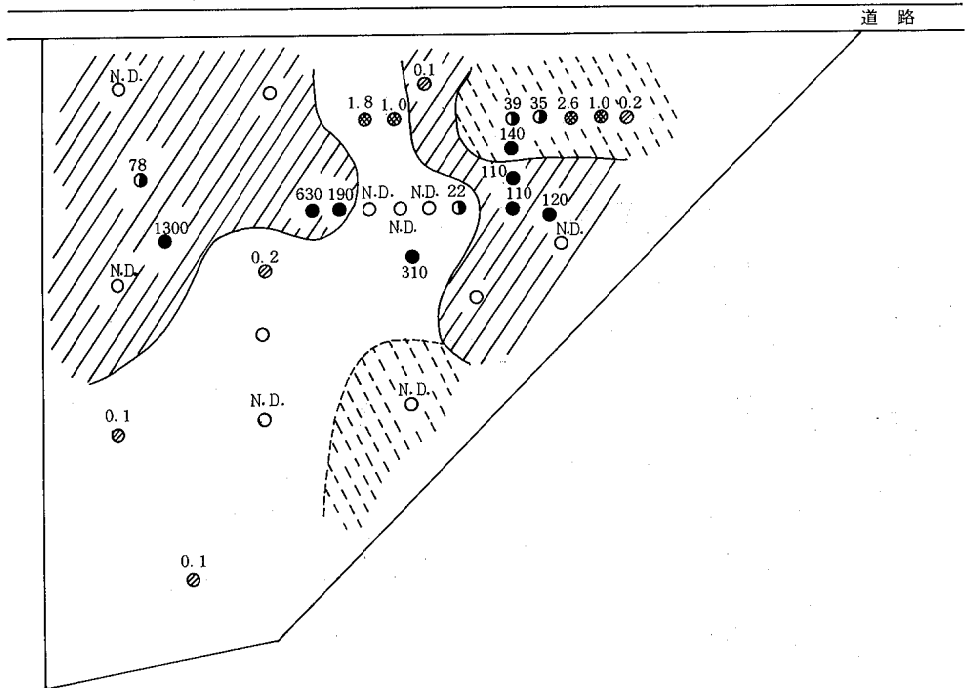


図 5-3 土壤層の六価クロム汚染地図(土層 20~30 cm)

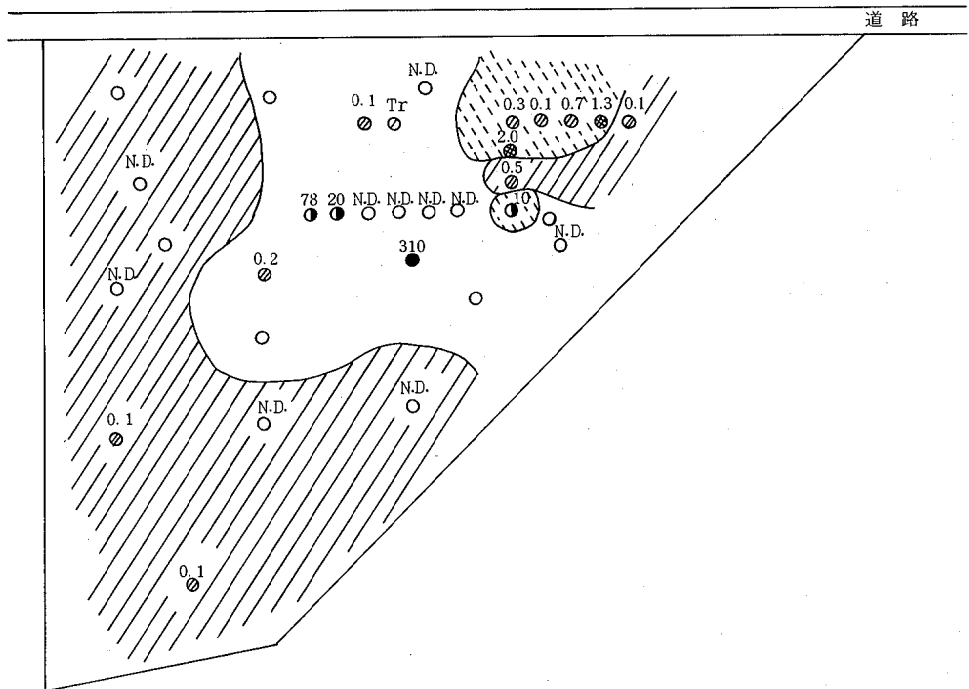


図 5-4 土壤層の六価クロム汚染地図(土層 30~40 cm)

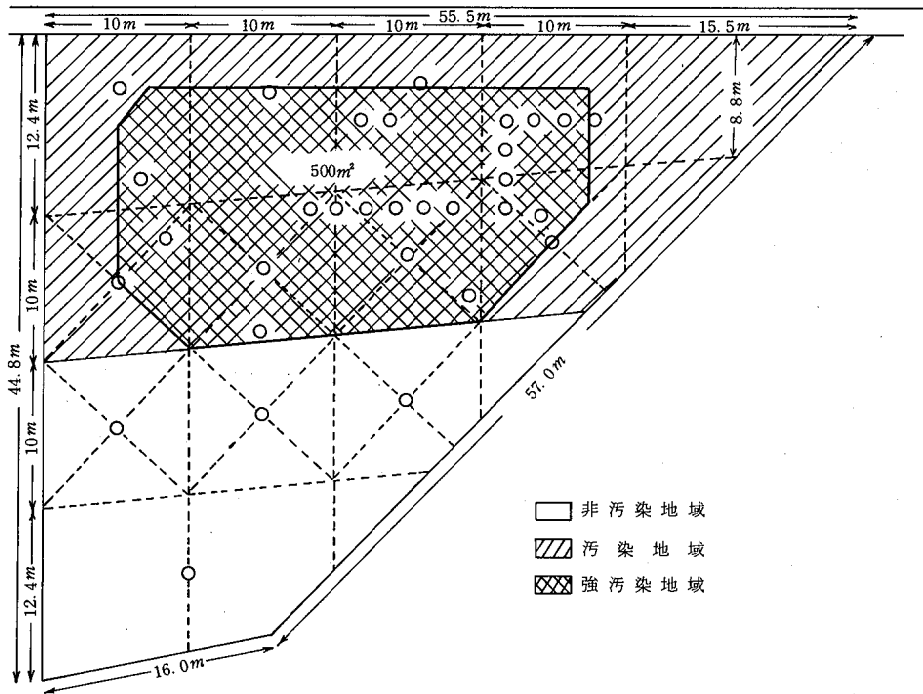


図 6 六価クロム汚染地域

平 面 図

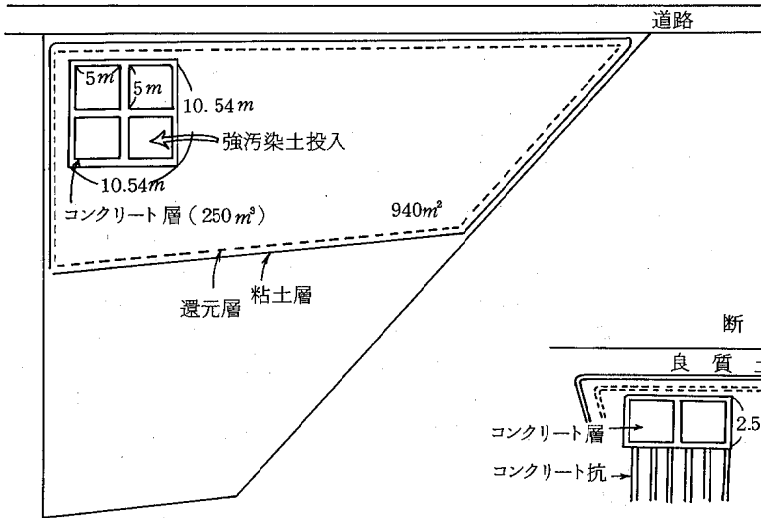


図 7 六価クロム遮断施行計画書

表 1 六価クロム処理方法

処 理 法	目 的	使 用 材 料	そ の 他	
還 元 剤 処 理	六価クロムを三価のクロムにする。	速効性 還元性 還元性 還元性	硫酸第一鉄 亜硫酸ナトリウム ヒドラジン 泥 炭 亜 炭 活 性 炭	水溶液（速効性）、 粉体（やや遅効性） で使用。
		酸性 化剤	過リン酸石灰 硫酸第一鉄 石 灰	フミン酸、腐植酸に よる水酸化クロムの 溶出に注意。
遮 断 処 理	不透水性の物質により六価クロムが溶出、拡散することを防ぐ。	不透水性の物質により六価クロムが溶出、拡散することを防ぐ。	セオライト 酸性白土 ベントナイト	不透水性（透水係数の低いもの）、吸着性（吸着力の大きいもの）がある。
		不透水性の物質により六価クロムが溶出、拡散することを防ぐ。	防水性コンクリート アスファルト シート パイル ビニールシート	地震や劣化による亀裂等に注意すること。

汚 染 土 遮 断 の 対 策

六価クロム汚染土を、現地にて遮断するには、汚染地周辺住民に保健衛生上の問題を残さぬように処理し、さらに遮断後の土地利用に伴う拡散、飛散による人体や生態系の影響をも十分に考慮して施行計画をたてねばならない。

基本的処理の考え方としては、

- (1)六価クロムを三価クロムにすること。
- (2)六価クロムだけでなく三価クロムをも包括的に処理すること。
- (3)地表面、地下水、側壁からクロムが浸出し、拡散することを防ぐこと。
- (4)遮断後の土地利用を考慮すること。

以上のことを考慮し、東京都³⁾やその他の^{4,5)}事例をまとめて、表1に種々の処理方式を示した。

汚染地域940m²と汚染地域の中の強汚染地域500m²について、遮断方法の検討を行い、図7の施行計画をたてた。

この汚染地周辺は、近年、急速に宅地化されており、宅地開発による汚染土の拡散を防止するため、安易に掘りだせない遮断方法として、防水性のコンクリート槽による遮断方法をとることとした。

コンクリート槽は、汚染地の一隅に設置し、その大きさは強汚染地域の汚染土を投入できる容量とする。容量としては、強汚染地域500m²×深さ0.3m=150m³である

が、1部六価クロムが検出されている深い層を考慮し、さらに安全性をみこんで深さ50cmとすると、コンクリート槽の容量は250m³となった。

汚染地は、元湿地帯で地盤が軟弱なため、コンクリート杭により地盤整備を行ったのち、内容量250m³のコンクリート槽を造り、さらに地震やコンクリートの劣化による流出を考え、コンクリート槽内を4槽に分けることにした。

汚染土をコンクリート槽に投入する際には、還元剤として硫酸第一鉄を混合し、投入することにした。六価クロムを還元するための硫酸第一鉄の量は、汚染土の六価クロムの総量38.4Kgの16倍を必要とするが、さらに安全性をみて3倍量強の2tを投入することにした。

汚染土を取り除いたあと地については、若干の六価クロムの残存が予想されるので、還元層として硫酸第一鉄層をもうけ、その上を覆土し、さらにこの還元層を通過した三価クロムを捕捉固定するために粘土層をもうけ、その上に良質土を用いて50cmほど覆土することにした。

粘土層は、クロムの吸着性の高いモンモリロナイト系の粘土⁶⁾を用いることにした。しかし、吸着してもさらに離脱するおそれがあるので、モンモリロナイト系粘土の中でも特に不透性の高いベントナイトを用いることにした。

側壁への浸透は、前記同様、還元層と粘土遮断層により防ぐことにした。また、地下浸透については、現地は元湿地帯のため、約1m下の土層はかなり厚い腐植性の粘土層におおわれているので、下への拡がりは防げるものと考えられる。

要 約

周辺住民からの訴えに基づく調査の結果、六価クロム汚染地と認定された水田埋立地は、還元剤撒布などの覆元作業を施した後、5年間立入禁止措置がとられてきた。

しかし、現地周辺の宅地開発にともない、汚染地のあと地問題が生じてきたため、調査を行った結果、かなりの量の六価クロムが広範囲に残存していることが判明した。

そこで、六価クロムの遮断方法を検討した結果、六価クロムの拡散防止の観点から、汚染土をコンクリート槽に回収し遮断する事とした。あと地については、還元剤層および粘土層によって遮断し、安全を期した。

文 献

- 1) 産業廃棄物に含まれる有害物質の検定方法（昭和48年2月、環境庁告示第13号）。
- 2) 日本工業標準調査会編（1974）：工場排水試験法

- (J I S - K 0 1 0 2) .
- 3) 東京都公害局 (1 9 7 7 , 1 0) : 六価クロム鉱さいによる土壌汚染対策報告書 .
 - 4) 東京都公害局 (1 9 7 7 , 1 0) : 六価クロム鉱さいによる土壌汚染対策報告書 (付属参考資料) .
 - 5) 東京都公害局 (1 9 7 9 , 1 2) : 小松川南北工場及び第 2 工場周辺等の処理工法について .
 - 6) 加藤忠蔵 (1 9 7 8) : 粘土による六価クロム汚染地の無害化 , 日本粘土学会誌 , 1 8 , 3 , 7 5 - 8 4 .

メッキ汚泥に対する溶融・焼結固型化処理の効果

小林 進 丹野 幹雄 小野 雄策 藤本 義典

有害物質含有廃棄物の処分にあたっては、環境保全上、これら無害化・安定化して最終処分することが望ましい。無害化・安定化の処理については、有害汚泥のコンクリート固定化に関する基準¹⁾があるが、要するに汚泥を密閉、固化して周辺に有害物質が漏れしないような方法をとる事である。これらの方法としては、廃棄物をコンクリートやアスファルト等の容器内に密閉する方法、特に大型コンクリートピット中に隔離する方法が一般的にとられるが、保管地の確保難や災害による流出の危険性等の点で問題がある。また、コンクリートやアスファルト等に混入して固型化する方法は現在最も広く実用化されているが、稲垣ら²⁾が報告しているように、シアンや六価クロムの固着が困難であり、有機物含量の多い汚泥では圧縮強度が極端に低くなったり、経年変化による固型物の崩壊など、問題が多い。他方、汚泥そのもの、または汚泥に他の補助剤を添加して溶融・焼結固型化する方法や、廃プラスチック類による溶融固型化等が考えられている。³⁾

今回メッキ汚泥について溶融・焼結処理した処理生成物について、有害物質の挙動や溶出性などについて検討したので、その結果を報告する。

実 験 方 法

1 実験試料

実験試料は、メッキ業や表面処理業の教社が協同で排水を処理しているAメッキ工業団地からの汚泥と、その汚泥の溶融および焼結をメーカーに依頼して処理した処理生成物である。溶融処理は、アーク炉溶融とマイクロ波溶融による2件で、焼結処理が1件であった。

2 試料の調整

有姿のまま採取した試料は、メノウの粉砕器で100メッシュ以下に砕き、溶出および含有量試験を行った。これは、処理生成物が埋立に際し、破碎によって微粉化されることを予想したためである。

3 溶出試験

環境庁告示第13号⁴⁾によって試験した。

4 分析方法

分析は、表1に示したように、環境庁告示第64号⁵⁾やJIS-K0102⁶⁾等の方法によって行った。

表1 分 析 方 法

項 目	前 処 理 方 法		分 析 方 法	検 出 限 界 値	
	溶 出 液 *	含 有 量 **		溶出試験	含有量試験
pH	A	—	ガラス電極法	mg/L	
T-Hg	環境庁告示 64号, 附表第2	環境庁告示 64号, 附表第2	環境庁告示第 64号, 附表第2	0.001	0.1
Cd	B	C + D	DDTC-MIBK抽出後原子吸光法	0.001	0.1
Pb	B	C + D	DDTC-MIBK抽出後原子吸光法	0.01	1
Cr ⁶⁺	A	—	JIS-K 0102規格 51.2.1	0.01	1
As	B	C	48.2.及びGutzeit法	0.01	1
T-CN	JIS-K0102, 規格 29.1.2	JIS-K0102, 規格 29.1.2	29.2	0.01	1
Si	B	C + D	原 子 吸 光 法	10	1000
Al	B	C + D	"	0.1	10
Fe	B	C + D	"	0.01	1
Mn	B	C + D	"	0.01	1
Cu	B	C + D	"	0.01	1
Zn	B	C + D	"	0.01	1
Ni	B	C + D	"	0.01	1
T-Cr	B	C + D	"	0.01	1
Ca	B	C + D	" (La添加)	0.1	10
Mg	B	C + D	" (La添加)	0.01	1

* A…溶出液のまま

B…溶出液を硫酸、過塩素酸、硝酸にて分解後、塩酸を加えてろ過し、供試液とした。

** C…試料を塩酸で溶解後、硫酸、過塩素酸、硝酸で分解し、塩酸を加えてろ過し、供試液とした。

D…Cのろ過残渣を炭酸リチウム、ホウ酸で溶解し、塩酸で溶解後、供試液とした。

メッキ汚泥の性状

表3 メッキ汚泥の溶出試験

1 メッキ汚泥の化学組成

メッキ生汚泥および乾燥汚泥の成分分析結果を表2に示した。

汚泥の成分のうち、Znが最も多く、以下Cr, Al, Si, Ni, Cu, Fe, Caの順で、これら多種類の金属を含有していることは、試料が、各種のメッキ排水からの混合汚泥である事を示している。

表2 メッキ汚泥の化学組成

		生汚泥	乾燥汚泥
含水率	%	85.9	—
T-Hg	mg/Kg	0.011	ND
Cd	mg/Kg	3.2	20
Pb	mg/Kg	63	590
As	mg/Kg	1.6	11
T-CN	mg/Kg	140	400
Si	%	—	3.6
Al	%	0.65	4.4
Ti	%	Tr	Tr
Fe	%	0.28	1.6
Mn	mg/Kg	100	690
Cu	%	+0.35	2.3
Zn	%	2.6	17
Ni	%	0.41	2.9
Cr	%	1.1	6.9
Ca	%	0.16	1.3
Mg	%	0.062	0.4

ND：検出限界以下

Tr：痕跡

2 メッキ汚泥の溶出試験

生汚泥および乾燥汚泥の溶出試験結果を表3に示した。

生汚泥では、「埋立処分に係る判定基準」⁷⁾に定められているPbとCNが検出されたが、いずれも埋立基準値を下回っていた。他方、この汚泥を乾燥(105℃)したのからは、Pbの溶出もやや増えたが(これは水分含量分だけの増加と考えられ、事実溶出率は生汚泥より低い)、六価クロムの溶出が極端に多くなった。溶出しているT-Crのほとんどは六価クロム(83%)となっているが、これは乾燥等によって酸化され、水に溶出し易い六価クロムとなったものと思われる。柏原ら⁸⁾も、一部で行われているドライヤーによるメッキ汚泥の乾燥処理の危険性を予想しており、低温における六価クロムの生成は、不純物として含まれる陰イオンの酸化作用によるものとし、生成する六価クロムはCrO₃であると報告している。このように六価クロムについては、処理条件のわずかな相違で溶出性が高まる場合があるため、汚泥の前処理等については十分な

	生汚泥		乾燥汚泥	
	溶出量 mg/l	溶出率 %	溶出量 mg/l	溶出率 %
pH	8.2		8.3	
T-Hg	ND	0	ND	0
Cd	ND	0	ND	0
Pb	0.02	0.32	0.06	0.1
Cr ⁶⁺	ND	0	4.0	0.06
As	ND	0	ND	0
T-CN	0.60	4.3	—	—
Si	—	—	ND	0
Al	—	—	ND	0
Ti	—	—	ND	0
Fe	—	—	ND	0
Mn	—	—	0.04	0.06
Cu	—	—	0.42	0.02
Zn	—	—	0.42	0.003
Ni	—	—	0.29	0.01
T-Cr	—	—	4.8	0.07
Ca	—	—	1.4	0.11
Mg	—	—	13	0.3

ND：検出限界以下

配慮が必要と思われる。

乾燥汚泥ではMgの溶出量が最も多く、以下T-Cr, Caの順であった。また溶出率もMgが最も高く、次いでCaとPb, T-Cr, 六価クロム, Mnの順であった。

アーク炉溶融

1 アーク炉溶融の概要

通常の单相式アーク炉の中に黒鉛ルツボを入れた炉に、ベースメタルとして鉄を入れておき、電極(アーク棒)の先端からアークを飛ばし、アーク熱でベースメタルを溶融する。溶融したベースメタル中に乾燥汚泥を投入して溶融させた後、冷却する。汚泥によっては生成スラグ(溶融処理生成残渣)の固化対策上、塩基度(CaO/SiO₂)が1以下になるようにSiO₂を添加したり、また、還元雰囲気強化してメタル化を促進するためにカーボン粉を混入する場合もある。

当実験では、表4に示したように、汚泥を溶融する際、ベースメタルのみを用いたものを実験(A)とし、ベースメタルの他に添加物(SiO₂およびカーボン)を加えたものを実験(B)とした。

表4 アーク炉熔融条件と物質収支

条件； 熔融温度：1400℃， 溶融物の冷却方法：自然放冷

実験 №		A		B		
		Kg	%	Kg	%	
溶融物	乾燥汚泥	20	79.7	16.9	73.8	
	添加物	SiO ₂	0	0	0.5	2.2
		カーボン	0	0	0.5	2.2
	ベースメタル	5.1	20.3	5.0	21.8	
	合計	25.1	100	22.9	100	
生成物	スラグ	2.95	15	1.61	9	
	メタル*	1.35	7	1.55	9	
	ダスト	3.20	16	3.68	21	
	ガス	2.50	13	2.61	15	
	水蒸気	10.00	50	8.45	47	
合計	20.00	100	17.9	100		

*生成物中のメタル量はベースメタルの増加分のみの値。

2 アーク炉熔融における物質収支

スラグ、メタル、ダスト等への物質収支についてはメーカーからの報告を参考として表4に示した。生成物中のメタル量は、ベースメタルの増加分のみの値である。

溶融物の9~15%がスラグに、7~9%がメタルとして生成された。

溶融物固型分当たりの溶融生成物の生成割合をみると、スラグでは実験(A)で30%、実験(B)で17%の生成割合を示し、実験(B)では実験(A)に比べ、約 $\frac{1}{2}$ のスラグ化率であった。メタルは実験(A)で14%、実験(B)で16%の生成割合となり、カーボンを添加した実験(B)でわずかに多かった。これはカーボンによる還元効果によるものと思われる。他方、実験(B)ではスラグ化率が悪かった分だけダスト等として排出されるものが多く、実験(A)で56%、実験(B)では67%であった。

3 アーク炉熔融生成物の化学組成

アーク炉熔融処理により生成されたスラグおよびメタルの化学組成を表5に示した。

生成スラグでは、金属が酸化物の状態で存在しているものと思われるが、実験(A)ではSi、Al、Cr、Fe、Caの酸化物が97%あり、実験(B)では110%がこれらの金属で占められており、したがって、これらのものが生成スラグの主成分と思われる。また、ベースメタルは60%以上がFeで占められており、Si、Cu、Ni、Crも数%含まれていた。

カーボンを混入し還元雰囲気中で溶融した実験(B)での生成スラグは、混入しない実験(A)に比べてCa、Al、Fe、Mgが多く、他方、Ni、Cr、Znは少なかった。生成スラグ中のCrは、実験(B)では実験(A)のときより少なく、反対にメタル中のCrは、実験(B)では実験(A)のときより多

表5 アーク炉熔融生成物の化学組成

実験 №	A		B		
	スラグ	メタル	スラグ	メタル	
T-Hg	mg/Kg	ND	ND	ND	ND
Cd	mg/Kg	ND	ND	ND	ND
Pb	mg/Kg	59	54	74	23
As	mg/Kg	ND	31	ND	31
T-CN	mg/Kg	ND	ND	ND	ND
Si	%	19	2.2	19	2.1
Al	%	12	0.50	20	ND
Ti	mg/Kg	480	Tr	440	Tr
Fe	%	4.6	63	7.4	62
Mn	%	0.41	0.34	0.42	0.30
Cu	%	0.44	2.2	0.40	2.4
Zn	%	0.76	0.22	0.081	0.001
Ni	%	0.25	3.0	0.04	3.1
Cr	%	7.8	1.6	2.3	2.4
Ca	%	3.2	0.066	5.6	0.007
Mg	%	1.3	0.45	2.0	0.006

ND：検出限界以下

Tr：痕跡

かった。これは還元剤の影響でメタル化が促進されたものと考えられる。

実験(A)ではSiが添加されていないにもかかわらず、Siが実験(B)とほぼ同量検出されたが、この件に関しては検討中である。

ベースメタル成分については、処理前の物の分析はできなかったが、メーカー側の報告を参照して得た結果では、処理後、Ni、Cr、Cu、Znが顕著に増加していた。

4 重金属等の挙動

表4の物質収支を基にして算出した重金属等成分の挙動は表6に示した。

実験(A)ではCa、Si、Al、Mg、Mnのスラグ化率が高く、ダスト等、系外への移行がCa、Alで若干みられ、また、Mg、Mnのメタルへの移行がみられたが、これら金属はスラグ中に大部分残留するものと思われる。

添加剤を混入した実験(B)では、Caは実験(A)と同じ挙動を示したが、Siでスラグ化率が悪くなり、その分だけダスト等、系外への不明分が多くなった。また、Al、Mgのメタルへの移行がほとんどなくなったが、これは添加剤の影響と思われる。以上のことよりCa、Al、Mg、Mnはダスト等の不明分へ移行するもの、スラグ化するものも多いと考えてさしつかえない。

表6 重金属等の挙動(アーク炉溶融)

(実験 A)

	処理前の メッキ汚 泥 (g)	生成物 (g)			移行割合 (%)		
		スラグ	メタル	ダスト他	スラグ	メタル	ダスト他
重量	10000	2950	1350	5700	30	14	56
Ca	130	94	1	35	72	0.008	27
Si	360	560	30	△ 230	156	8	△ 64
Al	440	350	7	83	80	2	18
Fe	160	140	850	△ 830	88	530	△ 518
Cr	690	230	22	438	33	3	64
Ni	290	7	41	242	2	14	84
Cu	230	13	30	187	6	13	81
Zn	1700	22	3	1675	1	0.2	99
Mg	40	38	6	△ 4	95	15	△ 10
Cd	0.2	0	0	0.2	0	0	100
Pb	6	0.2	0.07	5.73	3	1	96
As	0.11	0	0.04	0.07	0	36	64
Mn	7	12	4.6	△ 9.6	171	66	△ 137

(実験 B)

	処理前の メッキ汚泥 + 添加物 (g)	生成物 (g)			移行割合 (%)		
		スラグ	メタル	ダスト他	スラグ	メタル	ダスト他
重量	9450	1610	1550	6290	17	16	67
Ca	123	90	0.1	33	73	0	27
Si	573	306	33	234	53	6	41
Al	416	322	0	94	77	0	23
Fe	151	120	960	△ 929	79	636	△ 615
Cr	652	37	37	578	6	6	88
Ni	274	0.6	48	225	0.2	18	82
Cu	217	6	37	174	3	17	80
Zn	1600	1.3	0.02	1599	0.1	0	99.9
Mg	38	32	0.1	6	84	0.3	16
Cd	0.19	0	0	0.19	0	0	100
Pb	5.6	0.1	0.04	5.5	2	0.7	98
As	0.10	0	0.05	0.05	0	50	50
Mn	6.5	6.8	4.7	△ 5	105	72	△ 77

△: 負の値を示す。

Fe, Cr, Ni, Cuなどの遷移元素は、メタルへ移行するものと予想されたが、Crではスラグとメタルへの移行はほとんど同程度か、むしろスラグの方へ多く移行した。NiとCuではスラグよりメタルへの移行が多かったが、その程度は実験(A)に比べ実験(B)ではメタルへの移行率がわずかに高かった。溶融炉を用いての占部ら⁹⁾の実験では、

Fe, Cr, Cuはほとんどがスラグ中に残留しており、良い結果を得ている。しかし、アーク炉溶融では、これらの金属、特にCr, Ni, Cuについては、ダストや他の不明分として系外へ排出されるものが極端に多いのではないかと推測され、このことは大気汚染等の二次公害の問題をはらんでいる。なお、鉄についてはベースメタルとして使用されているので、物質収支結果は判明しない点が多かったが、ほとんどメタル分へ移行しているものと思われる。

他方、Zn, Pb, Cdのような低沸点重金属類は、アークの高温で揮散して、ほとんどが系外へ排出され、スラグやメタル中には残留しなかった。また、Asでは約 $\frac{1}{2}$ がメタル中へ残留するが、残り半分はやはり系外へ排出されたものとみられる。したがって、ダストやヒューム等として系外に排出される金属の処置については、本方法は大きな問題をかかえていると言わざるを得ない。

5 溶出試験

生成スラグの溶出試験結果を表7に示した。

埋立処分に係る判定基準⁷⁾が決められている金属に関して、Pbの溶出が見られたが、基準値以下であった。特に六価クロムの生成がなかった点が注目され、占部ら⁹⁾が述べてい

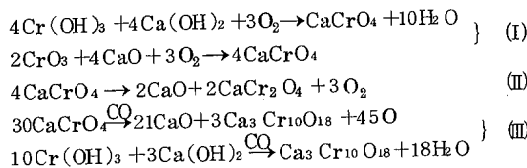
表7 溶出試験結果(アーク炉溶融)

	実験 A		実験 B	
	スラグ	メタル	スラグ	メタル
	溶出量 mg/l	溶出率 %	溶出量 mg/l	溶出率 %
PH	7.2	9.1	8.0	8.4
T-Hg	ND	0	ND	0
Cd	ND	0	ND	0
Pb	0.10	1.7	0.11	1.5
Cr ⁶⁺	ND	0	ND	0
As	ND	0	ND	0
T-CN	ND	0	ND	0
Si	Tr	0	ND	0
Al	4.2	0.04	0.2	0.01
Ti	ND	0	ND	0
Fe	0.83	0.02	ND	0
Mn	0.10	0.02	ND	0.01
Cu	0.26	0.06	Tr	0
Zn	0.41	0.05	0.12	0.14
Ni	Tr	0	ND	0
T-Cr	2.0	0.03	ND	0.01
Ca	0.26	0.008	0.38	0.06
Mg	0.58	0.04	2.7	0.07

ND: 検出限界以下

Tr: 痕跡

るよう、これは低温域で(I)のような反応で水溶性クロム化合物が生成しても、高温、還元状態等のもとでは(II)、(III)のような反応で分解したり、難溶性クロム化合物型が生成されるためであると考えられる。



他方、Pbはほとんどがダスト等として系外に排出され、スラグ中に残留するものが少ないにもかかわらず溶出した事は、スラグ中に残留するPbは溶出しやすい化合型になっているためと考えられ、事実、メッキ汚泥での溶出率は0.1%、熔融生成物では1.5%となった。またスラグからのPbの溶出は、実験(A)あるいは(B)でも、ほぼ同じ程度で、添加剤の影響はみられなかった。

Al, Fe, Mn, CaもPbと同様、元のメッキ汚泥からよりも多く溶出したが、これらの元素も、熔融処理する事により、溶出し易い化合型に変化するものと考えられる。

還元状態で溶融した実験(B)では、一般に溶出量は、実験(A)のときよりも減少しているが、Ca, Mgは反対に実験(B)で多く溶出した。

なお、メタル成分の溶出試験の結果をも参考として表7に示しておく。メタル成分については、埋立処分よりも、有効な再利用を考慮すべきであろう。

マイクロ波溶融

1 マイクロ波溶融の概要

マイクロ波発生装置(マグネトロン仕様、大型装置: 915MHz、小型・実験室: 2450MHz)と溶融炉から成り、乾燥汚泥を溶融炉に入れ、マイクロ波発生装置から導波管を通してマイクロ波を導入する。乾燥汚泥は分子間摩擦によって自己発熱し、溶融点まで昇温していき、汚泥は溶融面を覆って順次溶融され、レットの羽口から流出する。なお、メッキ汚泥のように溶融しにくいものには添加物を混入し、最初に添加物を溶融させ、この溶融物でメッキ汚泥を溶融させる。

2 マイクロ波溶融処理生成物の化学組成

マイクロ波による溶融固化実験における溶融物の混合割合を表8に、処理生成物の化学組成を表9に示した。

処理生成物中には、Si, Al, Ca, Zn, Cr, Feが多く存在していたが、これらは添加物中のSi, Al, Ca、ならびにメッキ汚泥中のZn, Cr, Feから取り込まれたものと思われる。

表8 マイクロ波溶融試験における溶融物の混合割合

物質	組成	混合割合(%)
メッキ汚泥	表 2	40
シラス	SiO ₂	70.0 %
	Al ₂ O ₃	13.4 %
	Na ₂ O	5.4 %
	K ₂ O	
ホウ砂	Na ₂ B ₄ O ₇	15
消石灰	Ca(OH) ₂	10

表9 マイクロ波溶融生成物の化学組成

		含有量
T-Hg	mg/Kg	ND
Cd	mg/Kg	1.1
Pb	mg/Kg	380
As	mg/Kg	6
T-CN	mg/Kg	ND
Si	%	17
Al	%	5.9
Ti	mg/Kg	990
Fe	%	25
Mn	mg/Kg	780
Cu	%	0.89
Zn	%	6.6
Ni	%	0.92
Cr	%	3.4
Ca	%	6.1
Mg	%	1.1

ND: 検出限界以下

3 重金属の挙動

物質の収支については、メーカー側からの報告で、重量減少率が30.8%となっているので、これを基にし、添加物中の微量成分は無視して重金属等の収支を試算したが、その結果を表10に示した。

Ca, Si, Al, Fe, Cr, Mg, Mnの大部分は、溶融生成物中に残留した。しかし、Ca, Fe, Mgは、元のメッキ汚泥中よりもむしろ多かったので、これらは添加物からのものもあると思われる。アーク炉溶融では、Siで約40%、Crで約90%近くも系外へ排出されるという結果を得たが、マイクロ波溶融ではこのようなことはなく、その点、当処理法は有利であると思われる。

Cu, Znは70%近くが、また、Ni, Pb, Asはその約50%が溶融生成物中に残留した。アーク炉溶融ではZn, Pbは100%近くが系外へ排出されており、こ

表 10 重金属等の挙動(マイクロ波溶融)

	処理物(φ)	生成物(φ)		移行割合(%)	
	メッキ汚泥 + 添加物	溶融物	排ガス等	溶融物	排ガス等
重量	10000	6920	3080	69.2	30.8
Ca	100	400	△ 300	400	△ 300
Si	1300	1200	100	92	8
Al	430	410	20	95	5
Fe	60	170	△ 110	280	△ 180
Cr	280	240	40	86	14
Ni	120	60	60	50	50
Cu	90	60	30	67	33
Zn	680	460	220	68	32
Mg	20	80	△ 60	400	△ 300
Cd	0.2	0.008	0.192	4	96
Pb	5.9	2.6	3.3	44	56
As	0.1	0.04	0.06	40	60
Mn	6.9	5.4	1.5	78	22

△:負の値を示す

れら金属においてもマイクロ波溶融が有利であると考えられる。

しかし、Cdはアーク炉溶融の場合と同様、そのほとんどが系外へ排出された。

4 溶出試験

溶融生成物の溶出試験結果を表11に示した。

埋立処分に係る判定基準⁷⁾が決められている金属類は、Pbを除いてすべて溶出しなかった。Pbについては、アーク炉溶融の場合と同様、溶融生成物からの溶出率が、メッキ汚泥からのそれよりも高かった。このことは、溶融処理によってPbの化合型等がより溶出し易い形に変化したものと考えられる。また、Al, Fe, Cu, Zn等もPbと同様の結果を示し、溶融することによってこれら金属は、より溶出し易くなるものと思われ、さらにX線回析等により確かめる必要がある。

Ni, Cr, Ca, Mgの溶出もみられたが、これらはメッキ汚泥のときより溶出しにくくなっており、特にMgが目立った。

六価クロムについても、アーク炉溶融の場合と同様の事がいえる。

アーク炉溶融生成物との溶出性の違いを検討してみると、マイクロ波溶融ではPb, Zn, Mnの溶出性は低くなり、Niで高くなるように思われた。他はアーク炉溶融と同程度の溶出性を示した。

表 11 溶出試験結果(マイクロ波溶融)

	溶出量 mg/l	溶出率 %
pH	9.0	
T-Hg	ND	0
Cd	ND	0
Pd	0.30	0.8
Cr ⁶⁺	ND	0
As	ND	0
T-CN	ND	0
Si	ND	0
Al	1.7	0.03
Ti	ND	0
Fe	0.93	0.04
Mn	Tr	0
Cu	0.52	0.06
Zn	2.5	0.04
Ni	0.22	0.02
T-Cr	0.60	0.02
Ca	1.1	0.02
Mg	0.62	0.06

ND:検出限界以下

Tr:痕跡

焼 結 固 化

1 焼結固型化処理の概要

焼結とは、粉末またはその成形体が、その融点以下の温度で互いに凝着して凝集固体に移り変わる工程で、(1)長さおよび体積の収縮、(2)密度の増加と空孔率の減少、(3)連続した空孔から独立した球状の空孔への変化、(4)再結晶化と結晶の成長、などの形態的变化を起こすことをいう。¹⁰⁾

不溶化の着目点は、二価金属と三価金属の酸化合物とが化学的に安定なスピネル化合物($R'O \cdot R''_2 O_3$ の形をとる合成鉱物)を造る事であるが、生成反応を阻害するCa, Naの影響を抑えるために、場合により焼結助剤を添加する必要がある。助剤は一様な物でなく、処理物の性状等により、適当に調合しなければならない。

2 生成物の組成と重金属の挙動

表12に示した焼結固型化生成物のサンプルは、焼結助剤を乾燥汚泥1に対し、0.0, 0.5および1.0重量部加え、混合し、電気炉で加熱した物で、加熱温度を900℃, 1000℃, 1050℃, 1100℃で30分間保持し、炉外に取り出し放冷した物である。

表 1 2 焼結物の化学組成

混 合 比 (汚泥:添加物)		1 : 0				1 : 0.5				1 : 1			
焼成温度(°C)		900	1000	1050	1100	900	1000	1050	1100	900	1000	1050	1100
T-Hg	mg/Kg	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
Cd	mg/Kg	24	26	24	26	14	14	21	9.8	9.8	10	9.1	9.8
Pb	mg/Kg	700	730	740	770	420	460	480	420	310	350	280	390
As	mg/Kg	29	20	15	17	12	15	16	11	11	12	8	5
T-CN	mg/Kg	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
Si	%	5.7	5.4	5.8	5.6	20	20	20	18	20	25	22	22
Al	%	5.9	6.1	6.2	6.3	6.2	6.9	7.3	7.4	7.2	7.2	7.1	7.0
Ti	mg/Kg	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr
Fe	%	2.4	3.0	2.8	3.0	1.9	2.0	2.6	2.0	1.8	1.7	1.6	1.9
Mn	mg/Kg	990	1100	1000	1000	660	680	670	660	570	580	560	550
Cu	%	3.0	3.1	3.1	3.3	1.7	1.8	2.1	1.4	1.6	1.4	1.2	1.3
Zn	%	21	25	25	25	11	11	11	10	8.2	8.4	7.7	7.9
Ni	%	3.5	3.7	3.8	4.1	1.9	2.0	2.0	2.0	1.5	1.5	1.4	1.4
Cr	%	8.8	9.5	9.7	10	4.6	4.9	5.0	4.9	3.5	3.7	3.8	3.5
Ca	%	1.8	1.6	1.7	1.8	1.2	1.1	1.1	1.1	0.90	0.92	0.88	0.80
Mg	%	0.57	0.58	0.58	0.60	0.96	0.95	0.97	0.94	1.0	1.1	1.1	1.0

ND : 検出限界以下

Tr : 痕 跡

メッキ乾燥汚泥中の金属成分含量と、900°C無添加で処理したものの中のそれとを比較すると、後者での含有量がすべての成分について多かった。これはメッキ汚泥が900°Cに加熱されて減量したためと思われる。加熱による揮散等が考えられるが、すべての成分がそのまま減量したと考えると、高含量のものについて減量率を計算すると17~37% (平均26%)であった。揮散する可能性のある低沸点の金属での減量率がむしろ小さかったことから、金属の揮散はあまり著しくないように考えられる。窯業製品焼成用のトンネル窯を用いた稲垣ら²⁾も、発生ばいじん量は法規制内にあり、ばいじん中の重金属量は少なく、特に加熱処理中にヒュームとなる金属がわずかで、発生源装置に電気集じん機やバグフィルターなど特別な除去設備を設けなくても良いと報告している。また、メッキ汚泥についてのノリタケでのロータリーキルンによる実験¹⁾でも、重金属類の揮散は少なかった。

焼結生成物中の金属含量は、焼結温度にあまり左右されなかった。ただAsは、特に汚泥単味の場合、揮散が起こっているように思われた。大体において、焼結助剤の添加によって増量した分だけ、汚泥に由来する各金属濃度の割合は減少して検出された。

焼結処理生成物中のSi, Al, Mgの量は、処理前よりも増加したが、これらは焼結助剤として添加された物の成分であると考えられ、特にSi成分での増加が大きかっ

た事から、Siが焼結助剤の主成分と思われる。

3 溶出試験

焼結温度、焼結助剤による金属の溶出抑制効果の有無についての溶出試験結果を表13に示した。

溶出液のpHは、焼結温度が高いものほど、また、焼結助剤の混合比が大きいのほど、アルカリ側に移行した。焼結物からはHg, As, Si, Tiは溶出しなかった。しかし、Cdは、900°Cの焼結温度のものでは助剤添加の影響はないが、1000°C以上で配合比が1:1のもので溶出抑制効果が現れた。また、焼結温度が高いものほど、溶出が少なくなる傾向が認められるので、溶出抑制効果を高めるには1050°C位が良好のように思われた。

長屋ら²⁾は、PbはPbOを含む場合、 Pb^{2+} が O^{2-} を強く分極するという特性から、一般に焼結し易く、焼結の範囲も広く、Pbの溶出試験では同じ含量でも、より高温で焼結した方が、溶出率が減少するが、 SiO_2 成分が少なくなると溶出率は増加すると報告している。本実験では、900~1050°Cで汚泥のみを焼結したものの方が、助剤添加したものよりPbが溶出しにくく、1100°Cになって助剤添加の効果があらわれるようである。また、温度の高いものほど、溶出し易くなる傾向にあり、長屋ら²⁾の結果とは必ずしも一致しなかった。

Caが共存する状態で焼結した場合、クロムは焼結中に六価クロムの $CaCrO_4$ を生成するので溶出し易くなり、こ

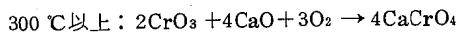
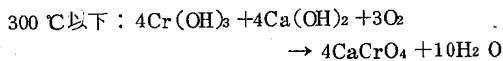
表 1 3 焼結物の溶出試験結果

(溶出量[mg/L], 溶出率[%])

配合比 (汚泥:添加物)	1 : 0						1 : 0.5						1 : 1											
	900		1000		1050		1100		900		1000		1050		1100		900		1000		1050		1100	
	溶出量	溶出率	溶出量	溶出率	溶出量	溶出率	溶出量	溶出率	溶出量	溶出率	溶出量	溶出率	溶出量	溶出率	溶出量	溶出率	溶出量	溶出率	溶出量	溶出率	溶出量	溶出率	溶出量	溶出率
pH	6.9		6.9		7.4		8.9		7.1		7.5		8.0		8.4		7.1		7.6		8.1		8.6	
T-Hg	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0
Cd	0.010	0.4	0.005	0.2	ND	0	0.002	0.08	0.003	0.2	ND	0	0.002	0.2	0.004	0.4	0.004	0.4	ND	0	ND	0	ND	0
Pb	0.05	0.07	0.03	0.04	0.07	0.09	0.66	0.9	0.07	0.2	0.26	0.6	0.27	0.6	0.15	0.4	0.12	0.4	0.07	0.2	0.06	0.2	0.19	0.5
Cr ⁶⁺	0.24	0.003	0.53	0.006	0.35	0.004	ND	0	0.36	0.008	0.48	0.01	0.25	0.005	ND	0	0.77	0.02	0.49	0.01	0.31	0.008	0.06	0.002
As	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0
T-CN	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0
Si	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0
Al	ND	0	ND	0	ND	0	11	0.2	Tr	0	ND	0	3.4	0.05	4.5	0.06	Tr	0	Tr	0	2.1	0.03	8.0	0.1
Ti	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0	ND	0
Fe	0.06	0.003	ND	0	Tr	0	5.5	0.2	ND	0	0.17	0.009	0.90	0.03	1.5	0.08	ND	0	ND	0	0.75	0.05	2.6	0.1
Mn	Tr	0	ND	0	ND	0	0.17	0.2	ND	0	ND	0	Tr	0	0.04	0.06	ND	0	ND	0	ND	0	0.08	0.1
Cu	0.07	0.002	Tr	0	ND	0	6.1	0.2	ND	0	ND	0	0.84	0.04	1.7	0.1	ND	0	ND	0	0.33	0.03	1.9	0.1
Zn	6.1	0.03	1.7	0.007	0.15	0.0006	37	0.1	0.29	0.003	0.09	0.0008	5.8	0.05	9.7	0.1	0.33	0.004	0.08	0.001	2.4	0.03	14	0.2
Ni	3.0	0.09	2.2	0.06	0.13	0.003	7.0	0.2	0.43	0.02	Tr	0	0.85	0.04	1.3	0.07	0.28	0.02	ND	0	0.39	0.03	1.7	0.1
T-Cr	0.24	0.003	0.69	0.007	0.35	0.004	18	0.2	0.36	0.008	0.49	0.01	2.4	0.05	3.5	0.07	0.77	0.02	0.49	0.01	1.2	0.03	0.51	0.01
Ca	320	18	430	27	41	2.4	3.7	0.2	130	11	22	2	1.2	0.1	ND	0	150	17	24	2.6	2.6	0.3	ND	0
Mg	53	9.3	46	7.9	4.7	0.8	1.0	0.2	47	4.9	5.7	0.6	2.3	0.2	1.7	0.2	73	7.3	6.3	0.6	2.4	0.2	3.1	0.3

ND:検出限界以下
Tr:痕跡

の事はクロムを多量に含むメッキ工場の排水処理汚泥を対象とした時に看過できないと長屋ら¹²⁾は報告している。また、柏原ら⁸⁾も、焼結過程における三価クロムから六価クロムへの変換は、Caとの共存下で著しく促進されCr(OH)₃ - Ca(OH)₂系を空气中で焼結すると、次のような二つの機構によって六価クロムが生成すると報告している。



このように、焼結固化で最も問題となるのは、クロムが処理過程で溶出し易い六価クロムに移行し、また、助剤の添加によってこの傾向が助長される可能性があることである。本実験の結果では、無添加汚泥と1:0.5の汚泥で、焼結温度が1000℃までは温度が高いものほど溶出率が高くなり、それ以上の温度ではむしろ減少するようであった。他方、1:1の汚泥では、高温処理されたものほど溶出率は減少し、助剤添加の効果は認められたが、1100℃で処理されたものではなお溶出がみられ、長屋ら¹²⁾が言っているように、1200℃付近まで温度を上げる必要があるものと考えられる。なお、六価クロム定量測定の際の妨害物質であるFeも、温度の上昇と共に高濃度に溶出するので、T-Cr中の六価クロムの占める割合を確定することはやや困難である。

他方、酸化剤としての効果をもつCuが存在すると、六価クロムの溶出が抑制されるように思われ、稲垣ら³⁾もCuと六価クロムについて、同様な報告をしている。また、焼結温度についても、1200℃付近で加熱処理する事によって重金属の溶出が止まると報告している事から、焼結温度等について再検討の必要がある。

焼結固化生成物から溶出し易い金属イオンは、上述のCuの他にZnイオンがある。稲垣ら³⁾は、Znは900℃の加熱でわずかに溶出するだけで問題とはならなかったと報告しているが、本実験では高温となるにしたがい、Znの溶出量が増加する傾向が見られ、また、1050℃では助剤添加によってむしろ溶出量が増加した。平岡ら¹⁰⁾は、焼結温度が高いものの方がCuとZnの溶出量が多くなる傾向があるとしており、この結果は本実験と一致した。

Al, Fe, Mn, Cu, Niも高温になるにしたがって溶出し易くなる傾向があり、焼結温度による影響が認められた。しかし、助剤添加の影響はあまり明確ではなかった。

Ca, Mgは、焼結温度が高いものほど溶出しにくくなる傾向があったが、助剤添加の影響は顕著ではなかった。

考 察

溶融、焼結固化処理は、コンクリート固型化処理とは異なり、容積を減量するような形で有害物質を安定化・無害

化する方法であり、埋立地の確保難等を考えると非常に有利な方法である。また、処理生成物は坩器製品、骨材等としての有効利用も考えられ、優れた点が多い。

しかしながら溶融処理した場合には、金属の一部は高温で揮散、消失し、大気汚染の原因となかなかねない事や、焼結処理したものでは、六価クロムのように水に溶解し易い形になって安定化されない物質がある事などの難点がある。

今回のメッキ汚泥についての実験では、処理生成物から、産業廃棄物の埋立基準値を超えて溶出したものは見られなかった。重金属の溶出は、処理生成物中に含まれる重金属の種類や濃度、および重金属のおかれている状態により変化する。溶融、焼結処理によって、かえって溶出し易くなる成分があり、特にPbにその傾向がみられた。アーク炉溶融ではAl, Fe, Mn, Caが、マイクロ波溶融ではAl, Fe, Cu, Znが、焼結ではFe, Cu, Zn, Ni, Crが、元の汚泥からよりも、処理生成物からの方が溶出し易くなる傾向を示した。

メッキ汚泥は、乾燥等のわずかの処理によっても溶出性が大きく変化する事があり、乾燥処理は六価クロムの溶出の点で問題をはらんでいる。特に、焼結処理した場合、生成物から溶出しているCrのほとんどが六価クロムとなっているようであり、問題があると思われる。

次に、溶融、焼結処理の過程で発生する公害問題も重要な課題であり、大気汚染、水質汚濁、その他騒音、振動などについて十分な配慮が必要である。特に、溶融処理を行う場合、非常に高温となるため、Pb, Cd, Znなど低沸点金属は、加熱によりヒューム状となって大気に放散される。この防止策として電気集じん機等で除去する必要があるが、電気抵抗の関係で、これら金属は乾式電気集じん機では除去されにくく、バグフィルターの使用が必要である。一方、除去されたこれら低沸点重金属の処理は、溶融等の方法で再度処理しても結局は同じ事のくり返しとなるため、他の処理に頼らざるを得ない可能性がある。溶融処理した場合、金属等が系外に飛散する要因として、占部ら⁹⁾は、高温での金属およびその化合物の高い蒸気圧、スラッグの落下、移動等による攪拌、高速乱気流による気化促進、露出部からの未溶融試料の飛散、化学反応等をあげている。

金属類の処理生成物への残留は、蒸気圧の高い元素ほど多い傾向を示している。アーク炉溶融ではCa, Si, Al, Mg, Mnがスラッグ中へ、Fe, Cr, Ni, Cuはメタル中へ封じ込められるものが多い。また、マイクロ波溶融ではCa, Si, Fe, Cr, Mn, Cu, Zn等がスラッグ中へ封じ込められる。他方、アーク炉溶融ではPb, Zn等は100%近く、Cu, Ni, Cr, Asでも60~80%が飛散等により系外に排出されるものと思われる。また、両方法のいずれでも、Cdは100%近く揮散した。しかし、焼結処理では、Asを除いてあまり飛散はないものと思われる。

最終処分としての埋立等では、処理生成物は長期間、自然環境中に放置された状態になり、生化学的および化学的に分解したり、物理的な崩壊等により溶出したり、また、泥状となって流出する事も考えられる。したがって、処理生成物については、pH、酸化還元電位の変化、有機酸との反応による水溶性化合物の生成、錯塩形成、バクテリアの作用、溶出の経時変化などの点について詳細な実験を今後とも行う必要がある。

要 約

メッキ汚泥をアーク炉溶融やマイクロ波溶融、または焼結処理した場合にできる生成物について、有害物質の挙動、重金属の溶出性、安定無害化の効果などを検討した。

溶融処理により、一般に、Pbはかえって溶出しやすくなり、この他、アーク炉溶融ではAl, Fe, Mn, Caに、マイクロ波溶融ではAl, Fe, Cu, Znにこの傾向がみられた。また、焼結処理においても、Pbについては同じような傾向がみられ、他にFe, Mn, Cu, Zn, Ni, Crなどがやはり溶出し易くなった。

金属の溶出で特に問題となる六価クロムは、溶融処理では生成されなかったが、焼結処理での生成は著しかった。また、メッキ汚泥では、乾燥処理によって六価クロムの溶出が多くなり、前処理としての乾燥については、十分な注意が必要と思われる。

次に、処理過程での環境汚染の問題がある。溶融は高温処理であるため、Pb, Cd, Znなどの低沸点金属が、大気中に揮散され、大気汚染など、二次公害を生じることである。特にアーク炉溶融の場合には、系外へ飛散する金属が多かった。他方、焼結処理では、Asを除いてあまり飛散する金属はみられなかった。

以上のように、現在、最も実用可能と思われる溶融あるいは焼結処理については、いろいろな問題があり、有害物質を含有する汚泥の処理方法に関しては、今後とも検討が

必要である。

文 献

- 1) 金属等を含む廃棄物の固型化に関する基準(昭和52年3月, 環境庁告示第5号)。
- 2) 稲垣甲子郎(1979): 重金属含有廃棄物処理の実例, PPM, 10, (2), 24-35。
- 3) 環境技術研究会(1980): 汚泥研究年報, 理工新社。
- 4) 産業廃棄物に含まれる有害物質の検定方法(昭和48年2月, 環境庁告示第13号)。
- 5) 排水基準を定める総理府令の規定に基づき環境庁長官が定める排水基準に係る検定方法(昭和49年9月, 環境庁告示第64号)。
- 6) 日本工業標準調査会編(1974): 工場排水試験法(JIS-K0102)。
- 7) 金属等を含む産業廃棄物に係る判定基準を定める総理府令(昭和48年2月, 総理府令第5号)。
- 8) 柏原太郎(1977): 重金属含有スラッジの処理法, 環境技術, 6, 397-405。
- 9) 占部武生他(1978): 廃棄物の溶融プラント実験, 公害と対策, 14, 412-419。
- 10) 平岡正勝, 武田信生(1974): 重金属その他有害物質を含む汚泥の処理(その1), 環境技術, 3, 409-419。
- 11) 日本陶器機械装置開発室(1978): メッキ汚泥の焼結固型化稼働報告。
- 12) 長屋喜一, 仲田俊之, 服部信(1978): 重金属スラッジの処理に関する研究(1), 水処理技術, 19, (6), 7-11。
- 13) 長屋喜一, 仲田俊之, 服部信(1978): 重金属スラッジの処理に関する研究(2), 水処理技術, 19, (7), 37-41。