

B. 調 查 研 究

I 論 文

1 感染症による学校欠席調査

— 第2報* 感染症と学校欠席他 —

山本 仁

1. 感染症と学校欠席

或る小学校における学校欠席は、年間を通してみるとどの様に推移しているだろうか。図1に1980年度の沢辺小学校(No.28), 図2に1981年度の北方小学校(No.30), 図3に1982年度の玉浦小学校(No.14)で調査された日別総欠席率の動向を示す。

いずれの例でも、欠席の指標値を連続して越える期間が観察され、それ等の期間中には何等かの感染症が流行していた。No.28では11月から12月にかけて水痘の, No.30では4月から7月にかけて麻疹と風疹の流行があった。更に、1月から3月にかけては夫々学校で、集団かぜの流行による異常欠席が連続して出現している。

なお、総欠席が急上昇し一過性に欠席の指標値を越えている日が存在するが、詳細に検討してみると、連休明けの最初の日であったり、台風や大雪などの異常気象の日であったり、異常欠席をもたらした要因を指摘するこ

とができる。

夫々の調査校について欠席の推移を各年毎に示すことは、スペースの都合からとても不可能なので、ここでは省略する。代わりに、44校全体および6つの地域毎にまとめた欠席率の動向を、年度別に図4から図7に示す。図中に記入されている2本の折れ線は、上が総欠席率を、下が感染症の罹患により出校停止(またはそれに類する処置)を受けたことによる欠席率を表わす。但し、出校停止にインフルエンザ様疾患(いわゆる集団かぜ)が原因の欠席は含まれていない。

今回の調査結果から、全県的な広がりで見られる患者が発生し、小学校の欠席に相当の影響を及ぼしたと考えられる感染症は、流行性耳下腺炎(Mumps)・水痘(Varicella)・麻疹(Measles)・風疹(Rubella)であった。4つの感染症について、週別の患者発生校数と罹患欠席者数(延人数)を図8, 図9に示した。更に4つの感染に関しては、全調査期間を通しての週別延罹患欠席数を図10に示した。

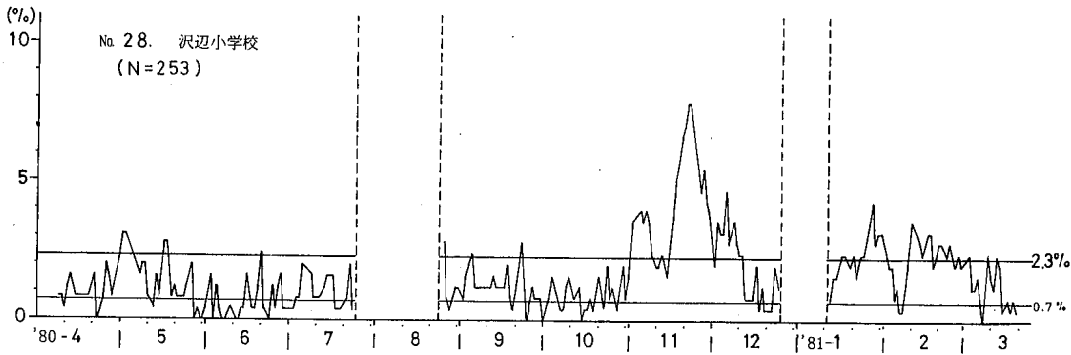


図1 学校欠席の推移 (1)

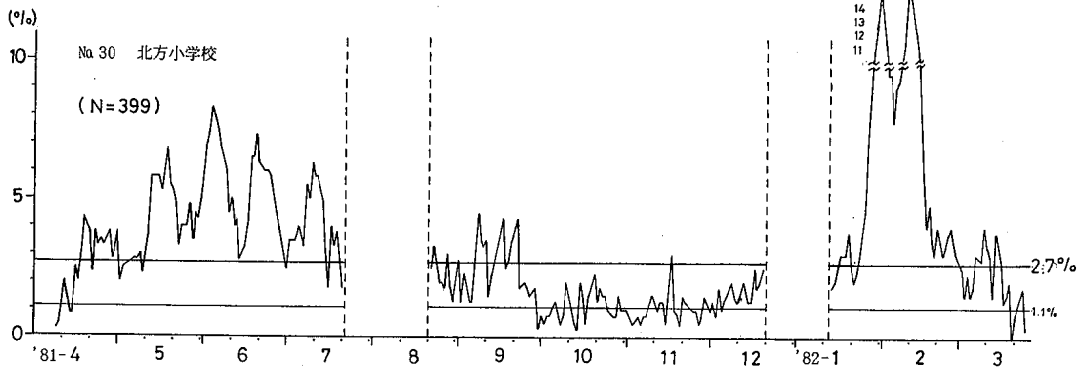


図2 学校欠席の推移 (2)

* (第1報) 山本仁他: 宮城県衛生研究所年報 57 33 (1982)

図13 学校欠席の推移 (2)

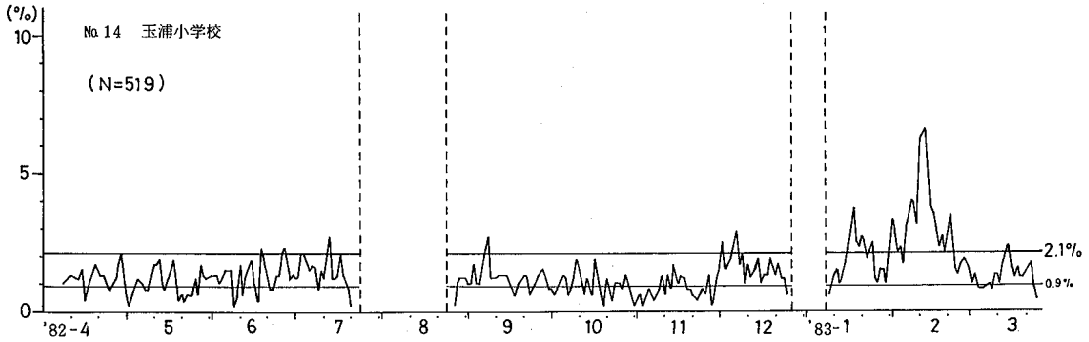


図3 学校欠席の推移 (3)

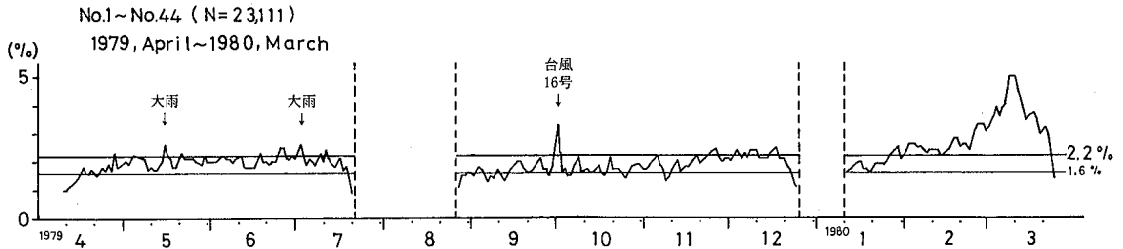


図4-① 地域別にみた学校欠席の推移 (1)

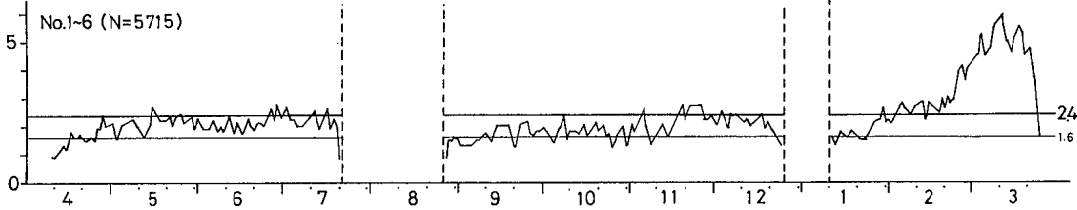


図4-②

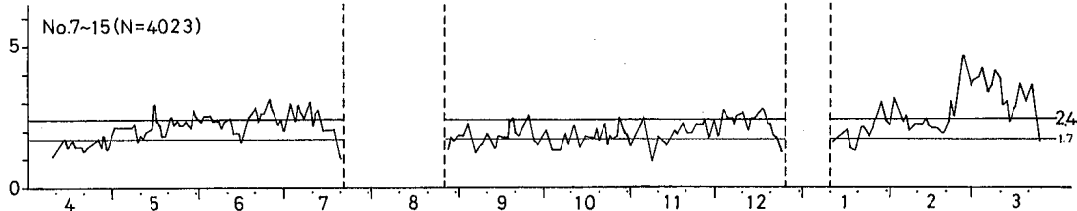


図4-③

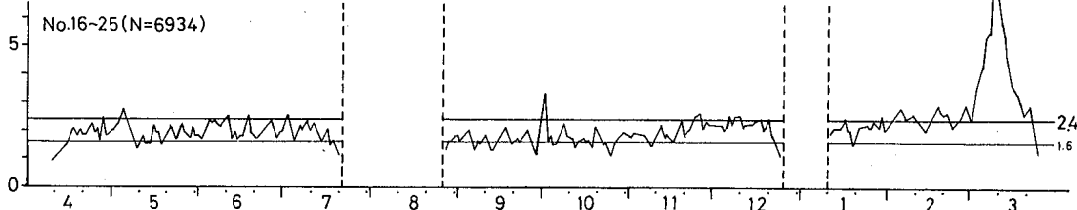


図4-④

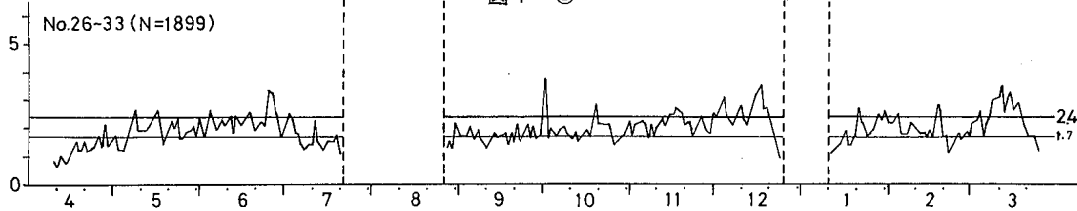


図4-⑤

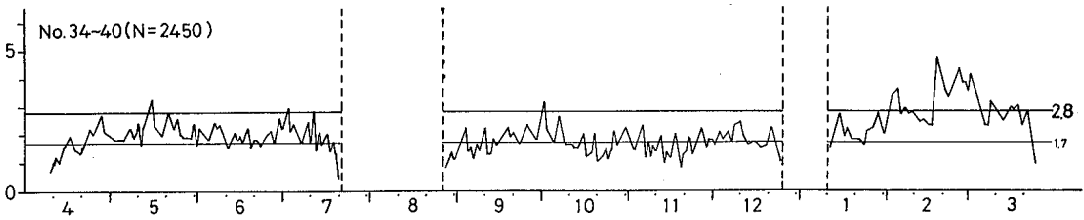


図4-⑥

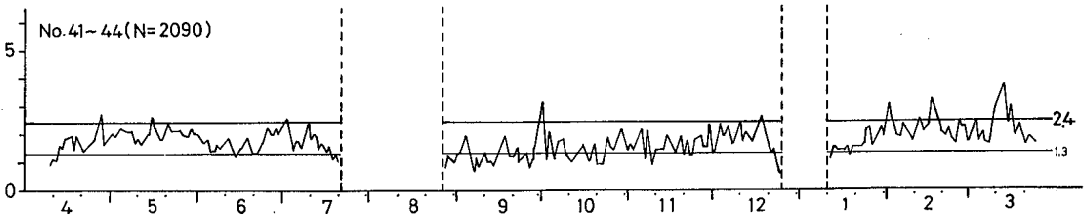


図4-⑦

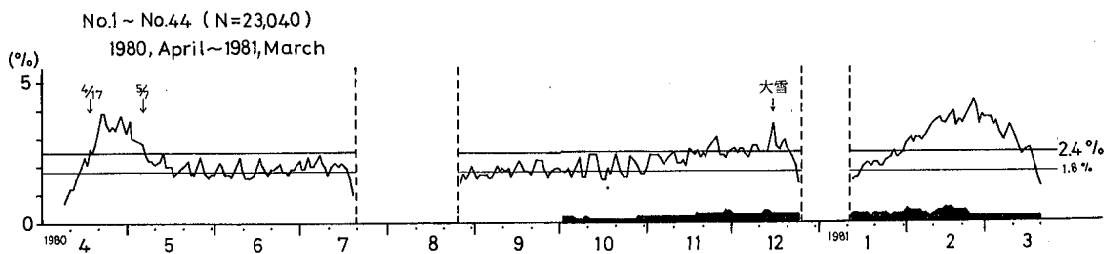


図5-① 地域別にみた学校欠席の推移 (2)

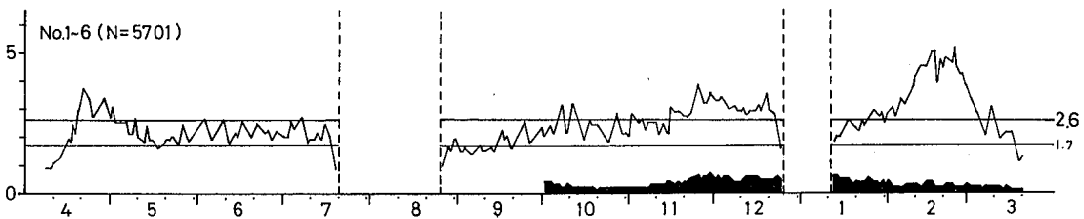


図5-②

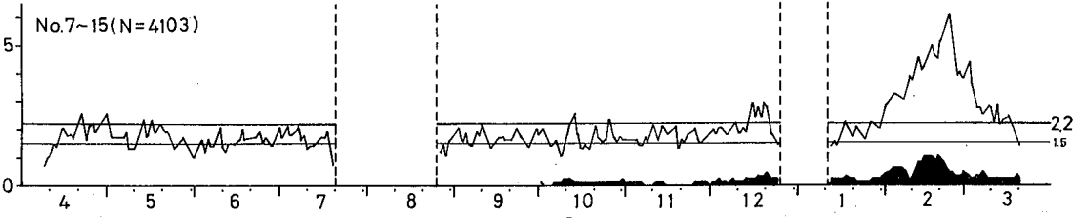


図5-③

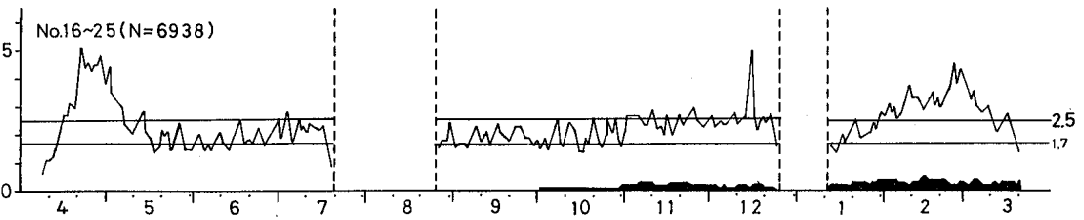
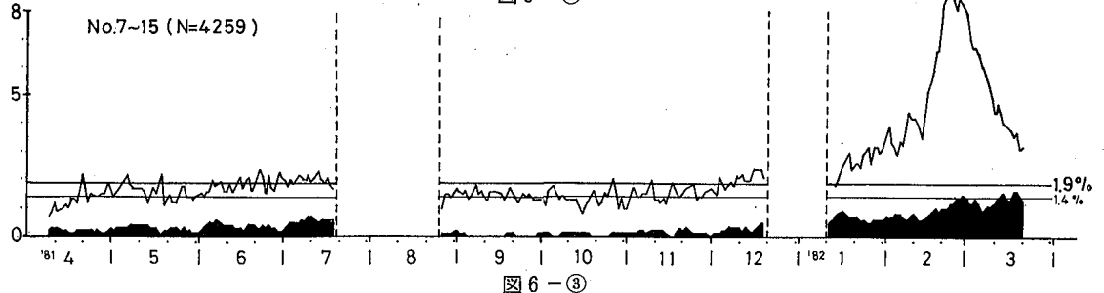
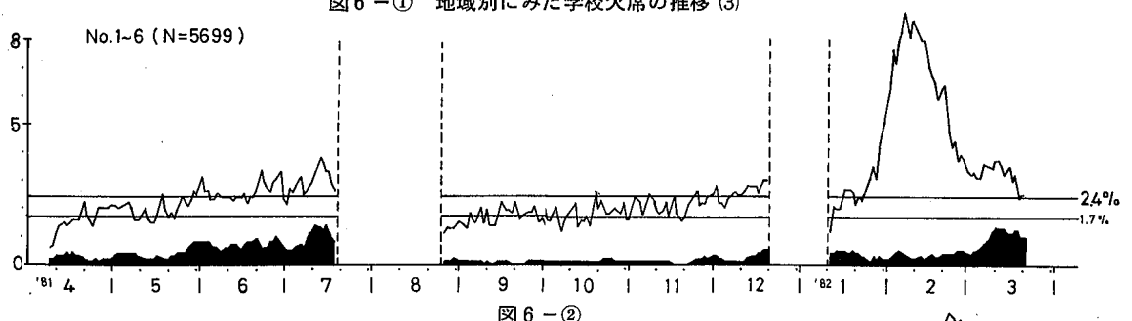
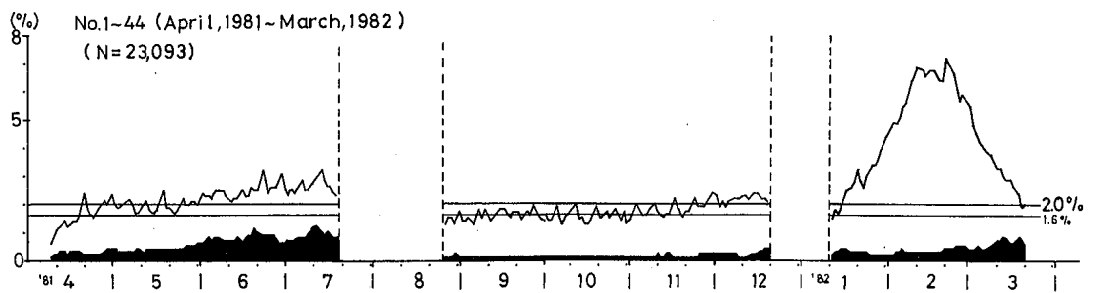
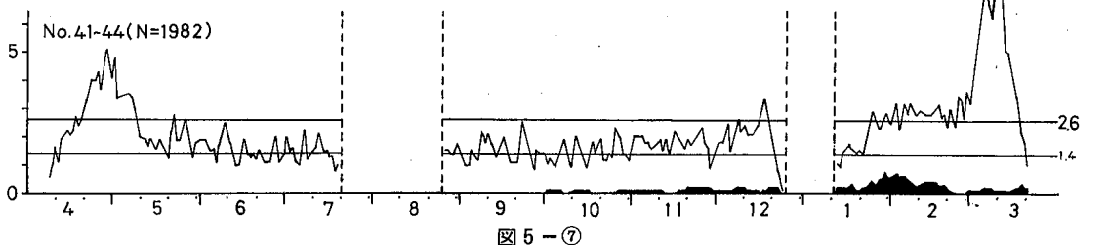
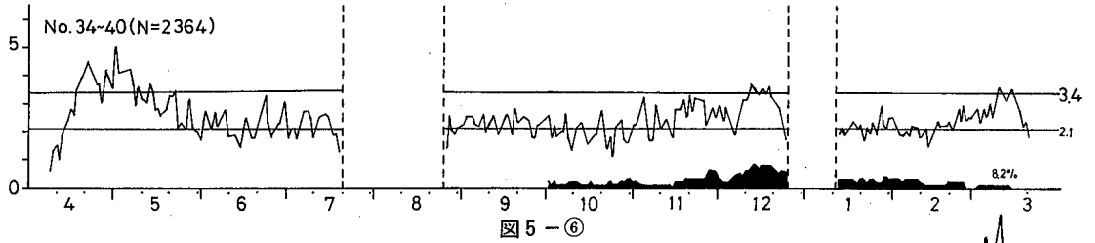
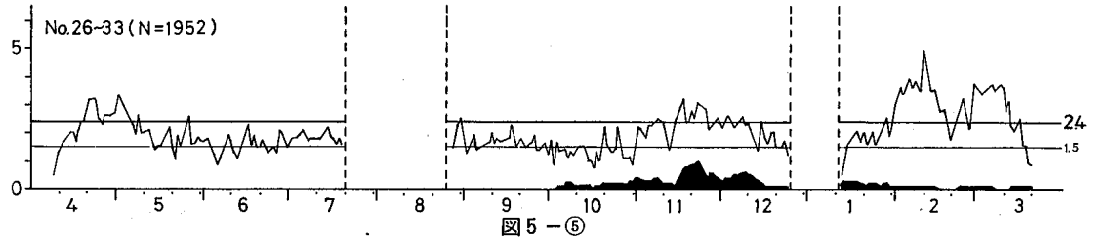


図5-④



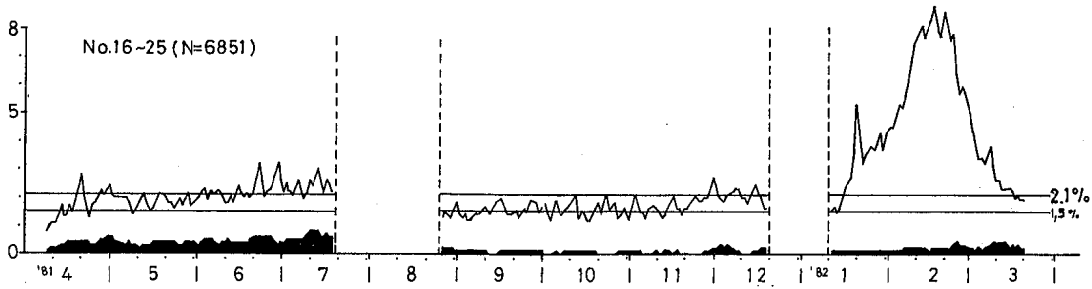


図6-④

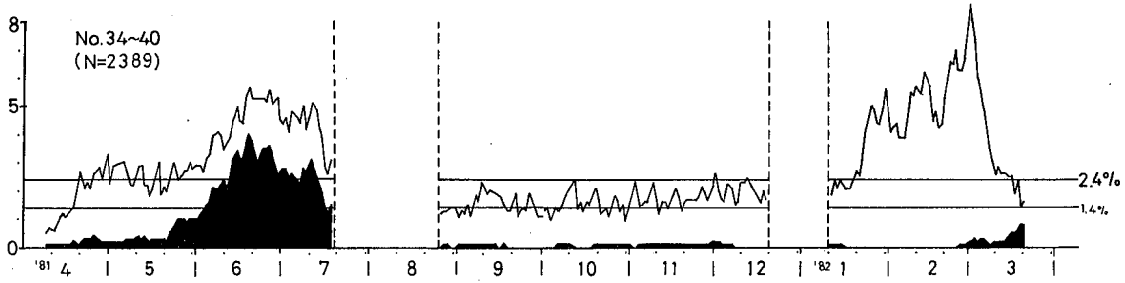


図6-⑤

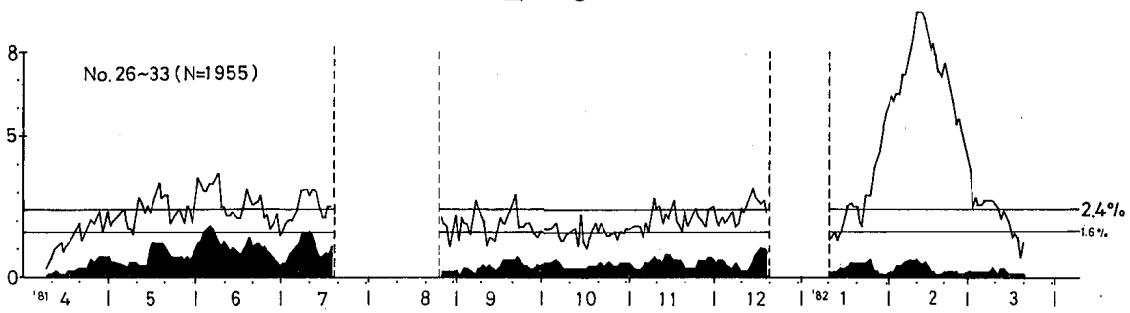


図6-⑥

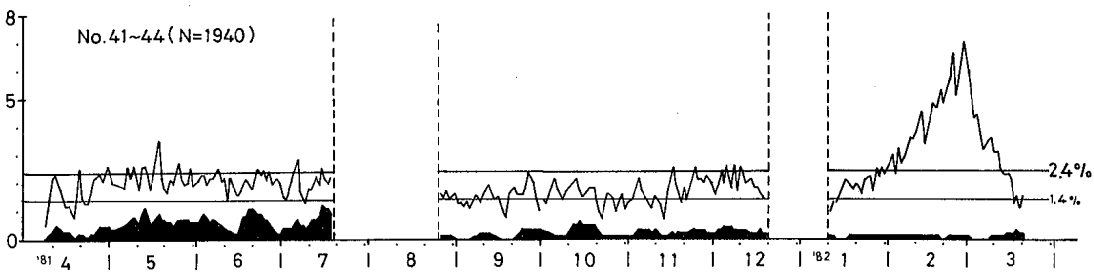


図6-⑦

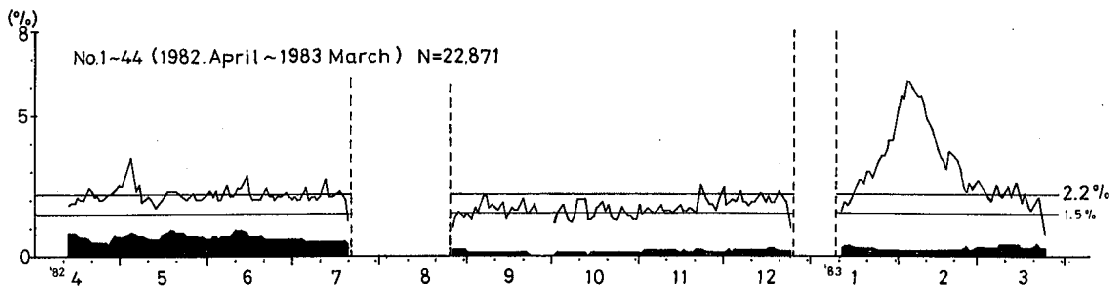
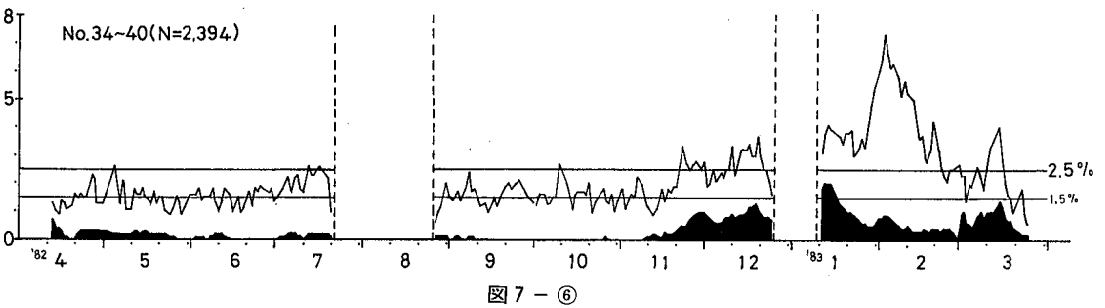
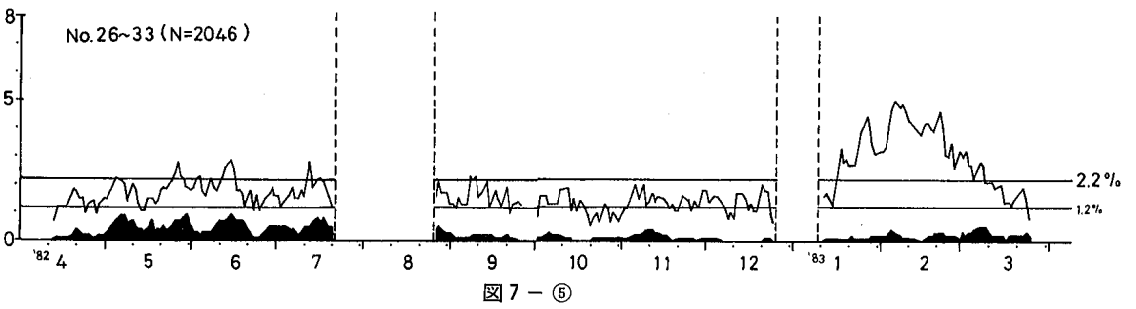
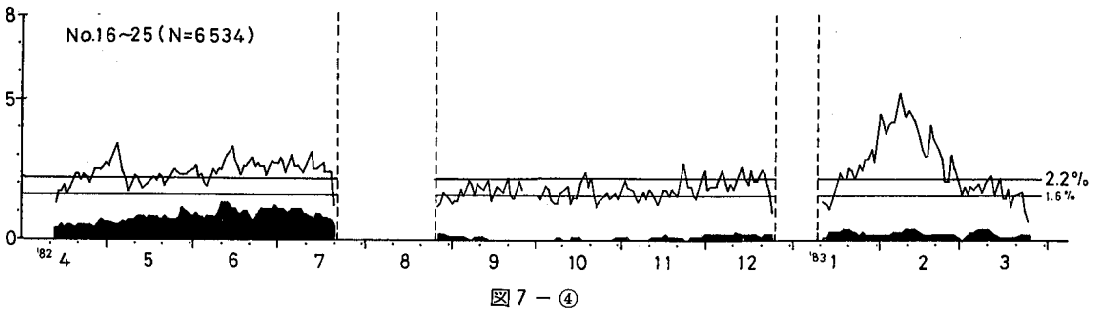
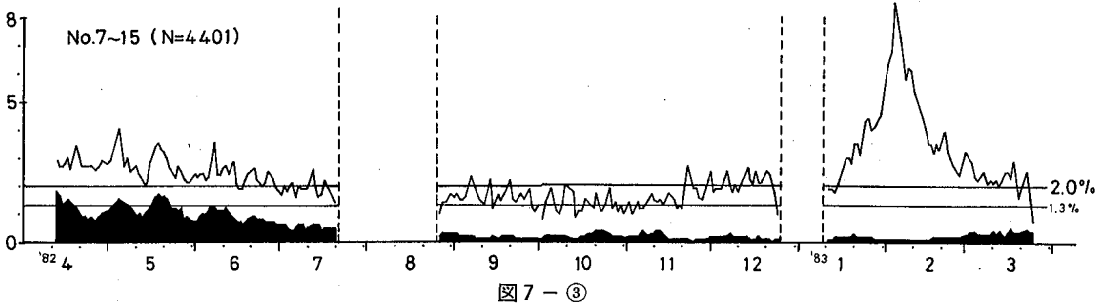
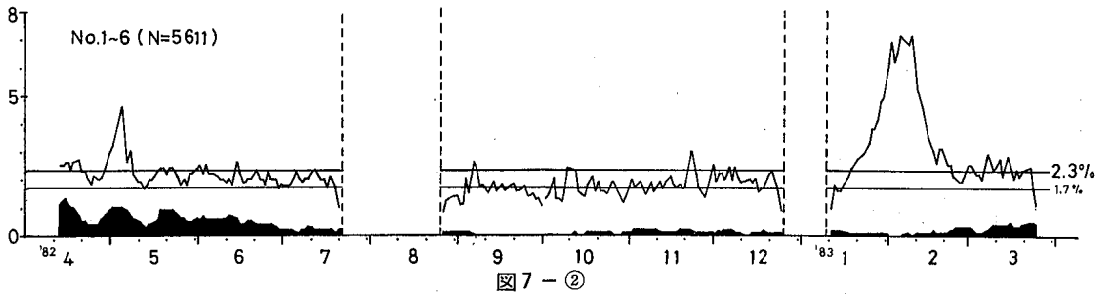


図7-① 地域別にみた学校欠席の推移(4)



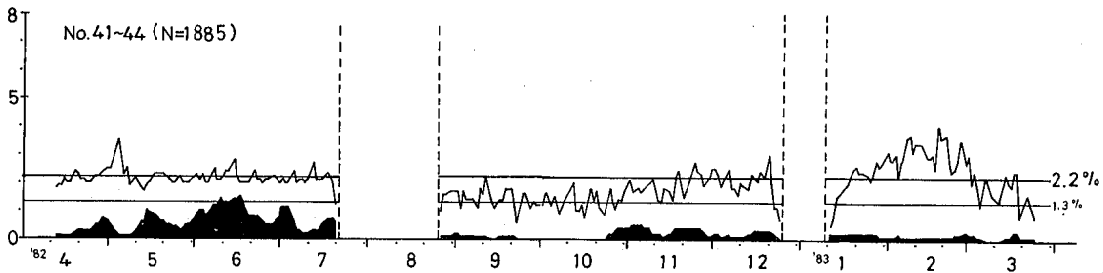


図7-⑦

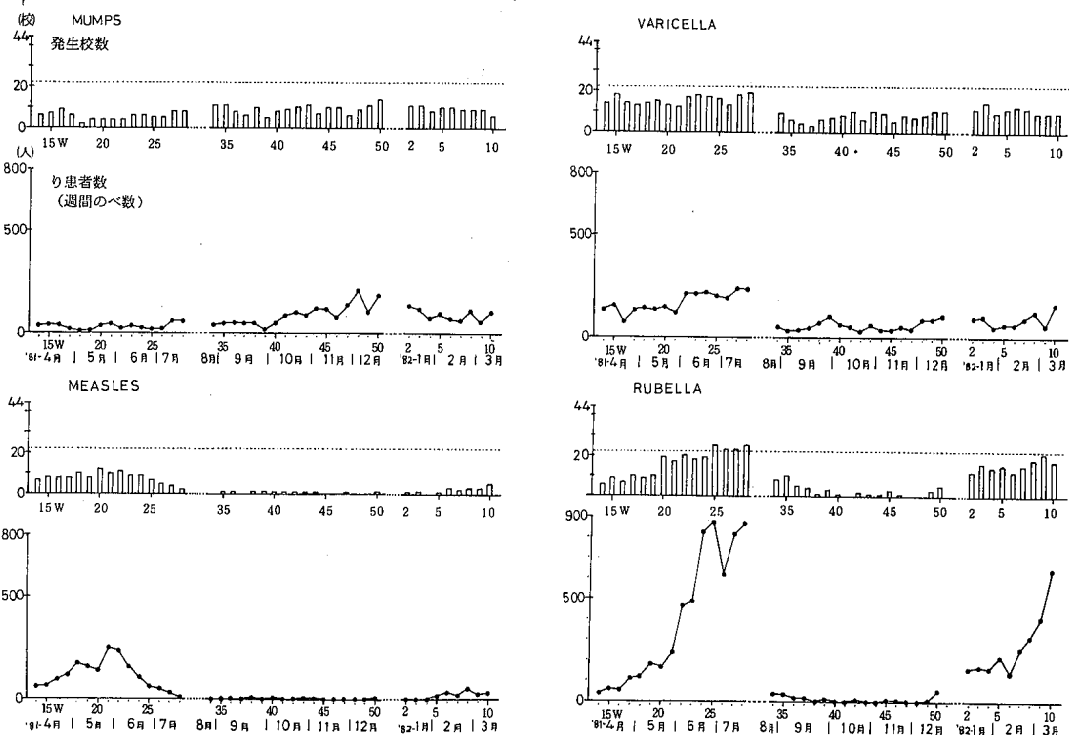


図8 感染症の発生状況 (1981)

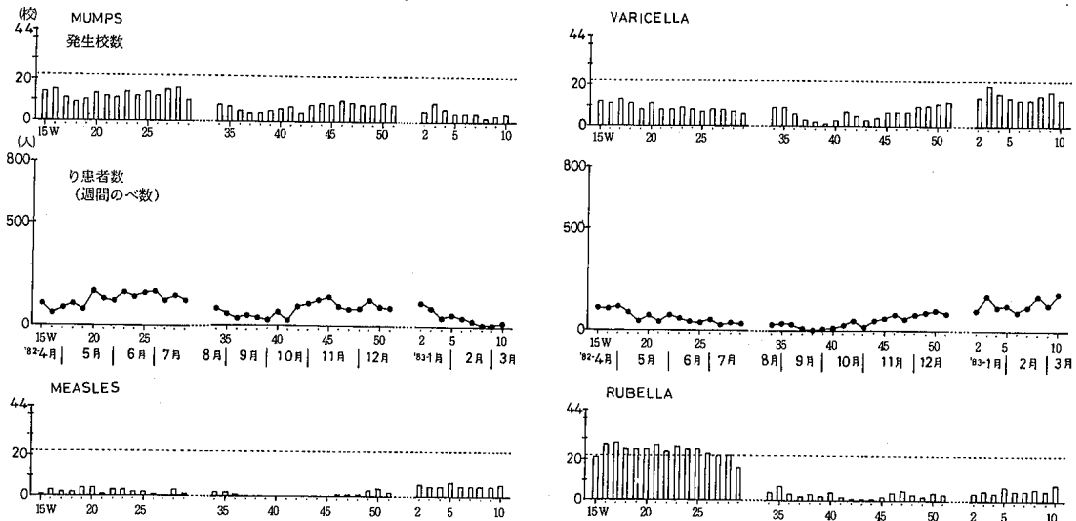


図9 感染症の発生状況 (1982)

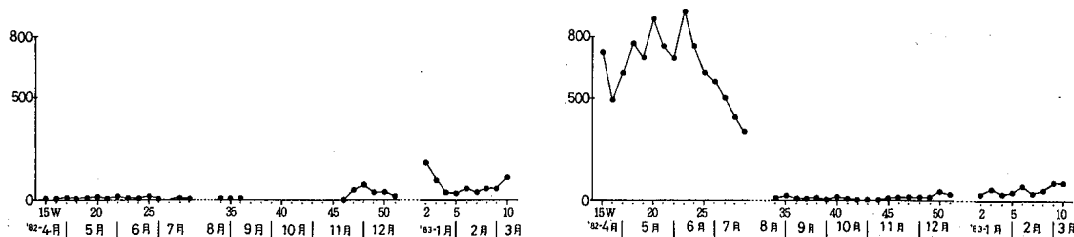


図9 感染症の発生状況 (1982)

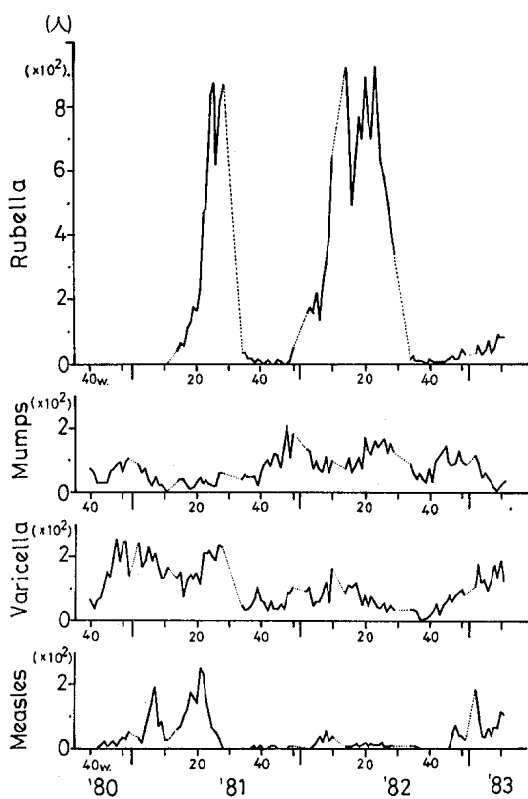


図10 感染症による週別延滞患欠席数 (全県)

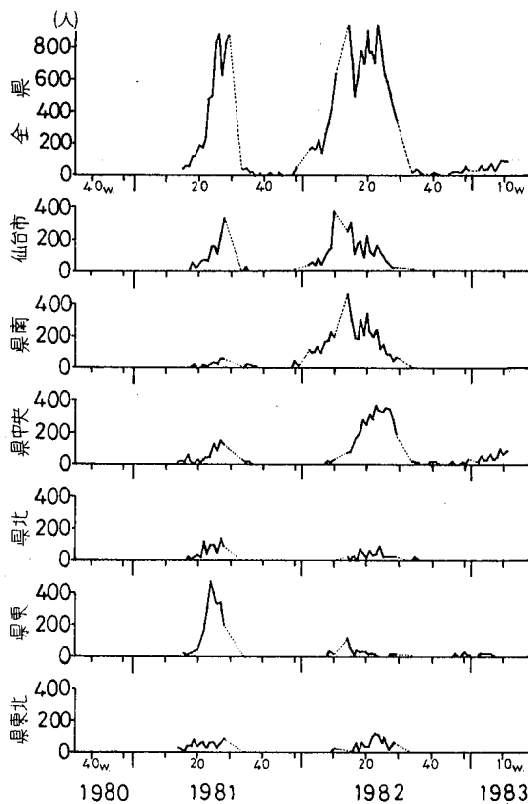


図11 Rubella の罹患状況

1.1 風疹

1975年から1977年にかけて、本県で記録的な風疹の大流行があり、患者の発生はほぼ県内の全域に及んだ。この時の流行によって、風疹に罹患した学童は県内全小学生の大凡42%に相当する約72,000人と見積られた。その後、県内では風疹患者の発生報告は極めて稀となり、血清学的に確認される患者は皆無の状態です3年間経過した。然るに1981年に入り小学校の新学期が始まる頃から、小学生の間でも風疹に罹患する者が目立ちはじめ、1981年・1982年と大きな患者発生を形成し、流行は1983年まで尾を引いた。図11に示した如く、風疹の流行は今回も県内のほぼ全域に及び、1981年に大きな流行のあった地域では、1982年の流行が小規模になっている。県東北部は、前回流行の波及が遅れ、1977

年になって罹患者が多発した地域である。今次の流行で風疹に罹患した学童は、1981年が約1,400人、1982年が約1,900人と見積られる。2カ年間の罹患患者数3,300人は調査の対象とした在籍児童数約23,000人の14%強に相当する。この罹患率をそのまま県内全小学校の在籍児童数に適用すると、今次の流行により宮城県内で風疹に罹患した学童は、約28,000人と計算される。

1.2 流行性耳下腺炎 (ムンプス)

ムンプスの場合は、学童間に爆発的な大流行を起こすことは極めて稀であるが、年間を通して患者の発生が認められる感染症といえよう。図12に地区別のムンプス罹患患者数を週毎の延人数で示した。どの季節にあっても、県内いずれかの地区の小学校でムンプスの流行が起こると考えられる。なお、ムンプスに罹患した学童は44

校で、1980年度下半期約200人、1981年度約500人、1982年度約650人と見積られた。

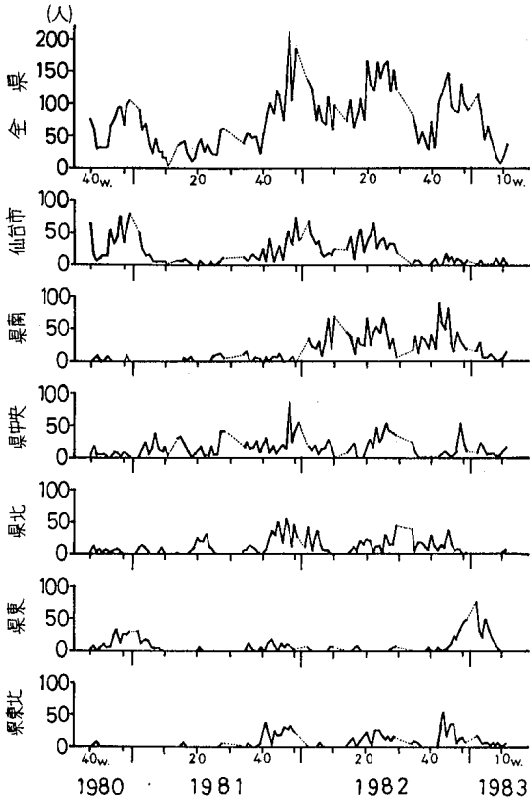


図12 Mumpsの罹患状況

1.3 水痘

小学校における水痘の流行も、ムンプスとよく似た傾向を示すようである。ただ図13に見る如く、1980年後半から1981年前半にかけて、仙台市内や県中央部の小学校を中心に、かなりの流行が認められた。水痘に罹患した学童は、1980年度下半期約600人、1981年度約700人、1982年度約550人と見積られる。

近年、各地で保育所や幼稚園の整備が進んだことに伴って、風疹・ムンプス・水痘も学齢以前の幼児に好発する感染症となっている。小学校の周辺に存在する保育所や幼稚園で、これ等の感染症がどの様に発生しているか知ることは、学童の健康管理という点で極めて重要と考えられる。

1.4 麻疹

図14に示す如く、小学校における麻疹の発生は、年度および地域によって大きな差が認められた。麻疹はより低い年齢層である乳幼児に好発する感染症で、小学校の場合にはある程度感受性者（抗体を保有しない者）が蓄積されるまで、流行が起こらないものと考えられる。麻

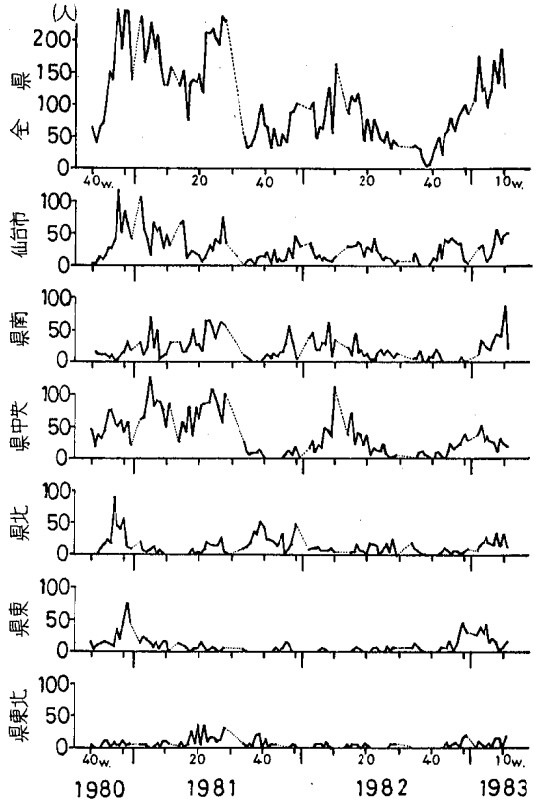


図13 Vari cella の罹患状況

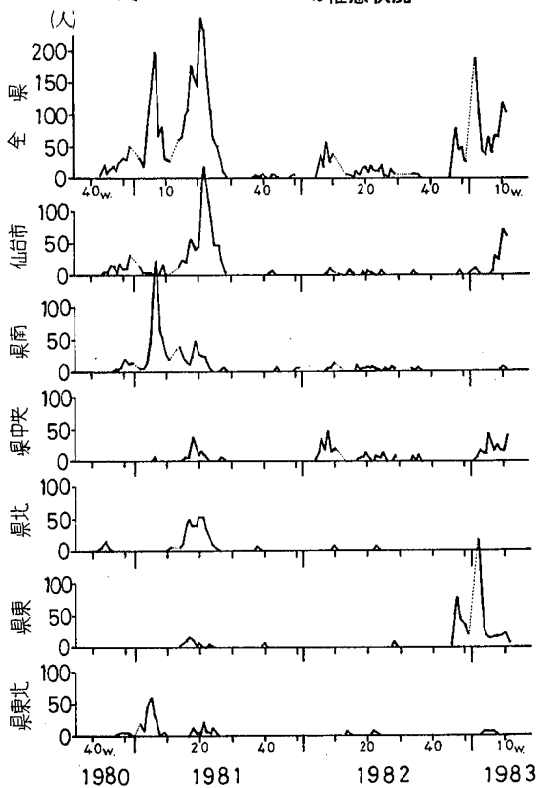


図14 Measlesの罹患状況

疹に罹患した学童は、1980年度下半期約150人、1981年度約300人、1982年度約200人と見積られた。麻疹の場合には数年前から、幼児を対象とする生ワクチンの定期接種が実施されているので、その影響が学童にも反映しているものと予想される。

2. 感染症による欠席のパターン

かつて山司ら⁹⁾は、小学校における感染症の流行を調査した経験から、感染症の種類によって学童の欠席に特徴あるパターンが出現することを指摘した。今回の調査でも、それを裏付ける結果が得られたので、以下にその概略を述べる。

2.1 連鎖感染型の感染症

図15は沢辺小学校(No.28)で発生した水痘流行の経過を示す。総欠席率はほぼ3つの山を描いて推移しており、欠席の指標値を連続して越える期間が明らかに認められる。また夫々のピークの間隔は、大略17日前後であった。水痘の流行がある学年(または学級)から始まり、それが次々と学校内に拡大し、流行波及の積み重ねが学校全体として見れば、幾つかのピークとして観察されるという考え方は、学年別に示した水痘患者の発生状況から完全に否定される。

図16は北方小学校(No.30)で発生した風疹と麻疹の流行経過を示す。麻疹の流行は小規模であり、1981年6

月末までには終息している。各学年別の罹患者は風疹についてのみ示した。北方小学校における風疹の例では、5つあるいはそれ以上の流行の波が認められたが、各学年毎の罹患者発生状況やピークの間隔は、水痘の場合と同様であった。

図には示さなかったが、ムンプスや麻疹の場合にも、水痘・風疹と全く同様のパターンが観察されている。つまり、水痘・風疹・ムンプス・麻疹など呼吸器を介する連鎖感染型の感染症が、全校的な規模で流行するような場合には、罹患者は幾つかのピークを描いて発生し、各ピークの間隔はほぼ17日となっている。ピークの間隔である17日は、従来述べられているこれ等感染症の潜伏期間と奇妙によく一致しているが、真の意味については更に検証を行う必要がある。

2.2 単一曝露型の感染症

1983年1月色麻小学校で突然異常な欠席が出現した(図17)。極めて鋭いピークの異常欠席が僅か7日間に認められる。2月に入ってから異常欠席の山は、インフルエンザ様疾患によるものである。シャープペンシル型とでも呼びたいような欠席のパターンから、この疾病は共通経路単一曝露型で二次感染が無いこと。潜伏期間が極めて短いこと。症状は一過性で予後が良好であること等が推定される。現地調査を行った結果、色麻小学校に発生した疾病は、腹痛・下痢・嘔吐などを主徴とす

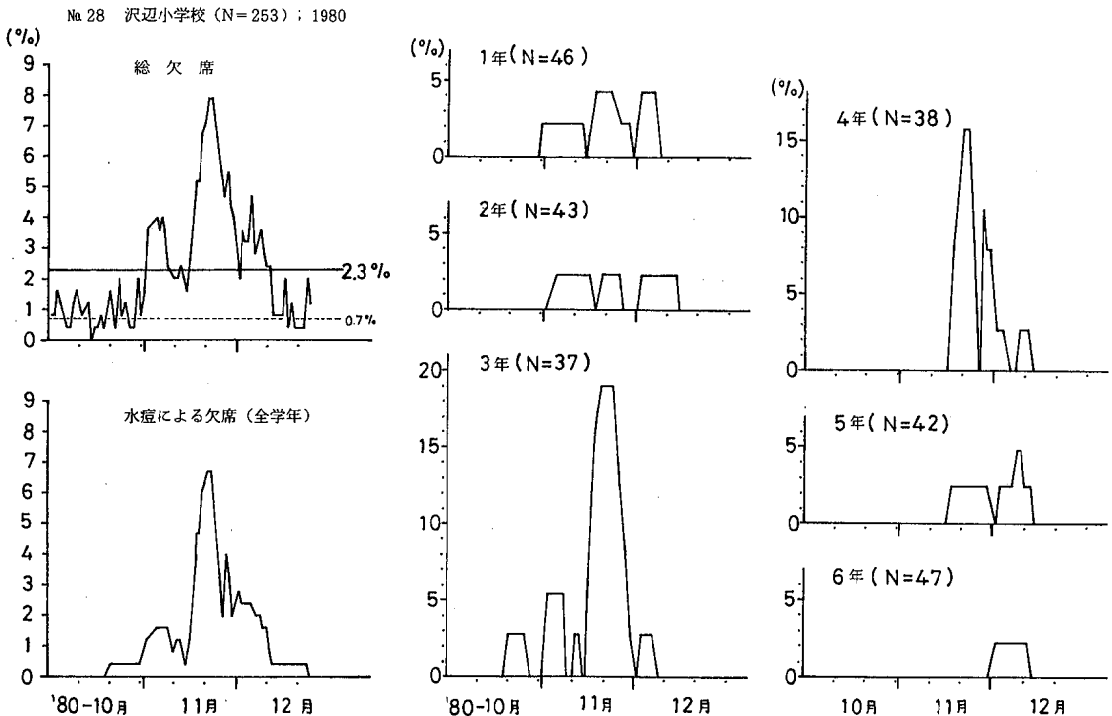


図15 水痘流行のパターン

No. 30 北方小学校 (N = 399) : 1981

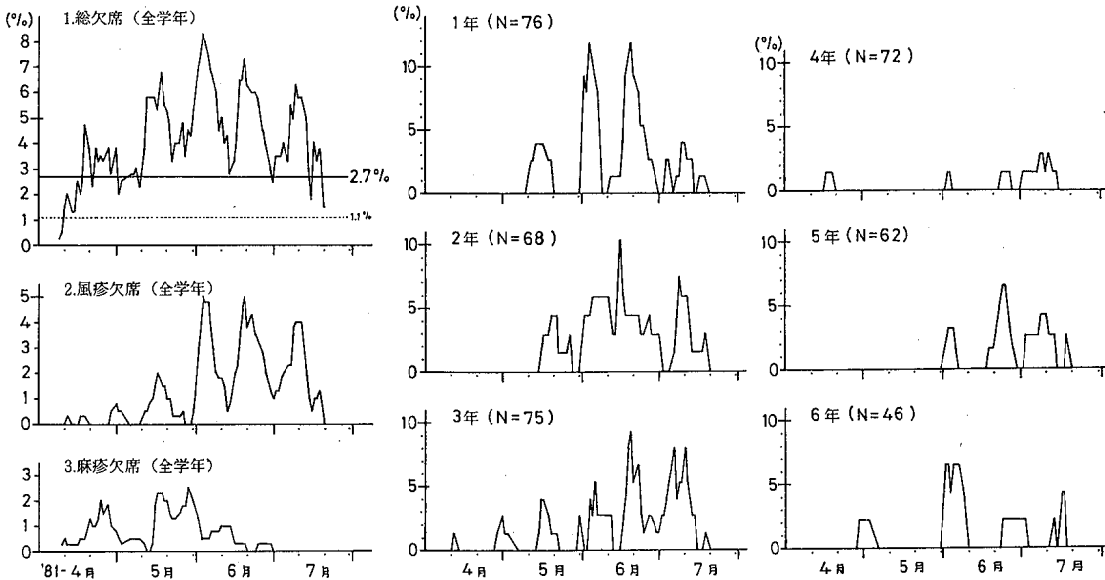


図16 風疹流行のパターン

る典型的な急性胃腸炎で、重大な後遺症等は全く認められなかった。数年来この様な疾病は、しばしば小学校を中心に集団発生しており、多くの場合“食中毒”として届けが出されている。しかし、いずれの場合にも原因となる細菌は検出されず、ウイルスの関与が推定された。色麻小学校の場合にも、音更(おとふけ)群ウイルスが原因である可能性が強く示唆されている。

No. 21 色麻小学校 (N = 488) ; 1983

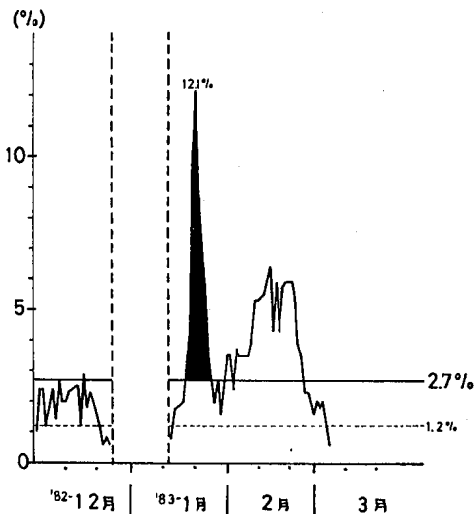


図17 単一曝露型の感染症による欠席

今回の調査期間中に、プール熱(アデノウイルス感染症)の流行は全く認められなかった。しかし、山司ら¹⁰⁾が1966年仙台市内の小中学校で経験したプール熱の大流行では、完全な共通経路・単一曝露型で、凡そ25日間連続する異常欠席の出現が観察されたという。

2.3 インフルエンザ様疾患(集団かぜ)

インフルエンザ様疾患による学校欠席の典型的なパターンを図18、図19に示した。西多賀小学校(No.6)、川渡小学校(No.23)とともに1981年2月から3月にかけてインフルエンザ様疾患の流行が認められた。この年、宮

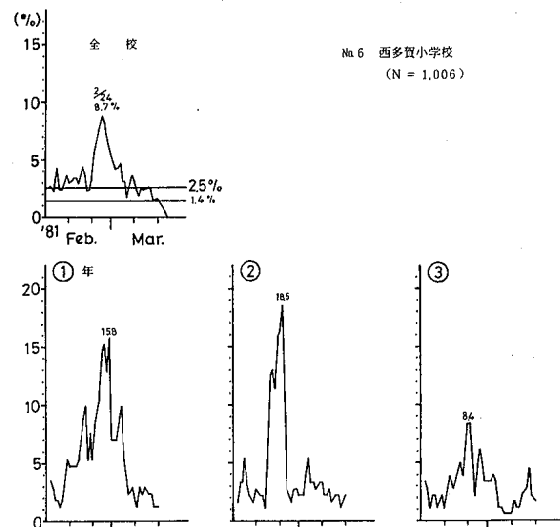
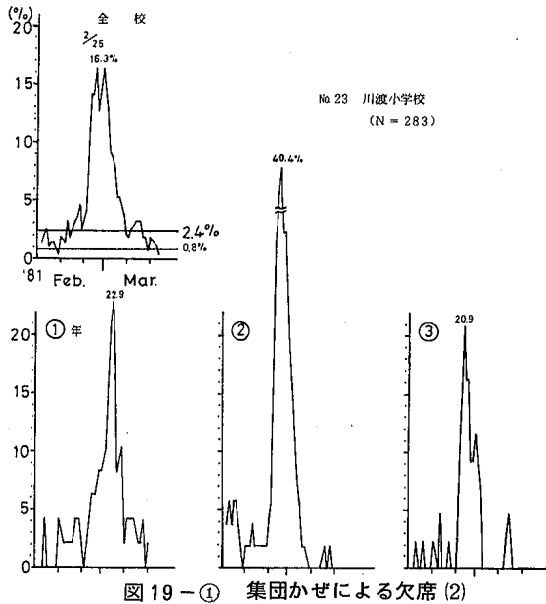


図18-① 集団かぜによる欠席(1)

城県では、A/H₁N₂型ウイルスとA/H₃N₂型ウイルスが混ざって流行した。インフルエンザ様疾患の場合には、学校全体としてみると異常欠席の曲線は一峰性で、指標値を越えている期間はほぼ30日である。



3. 集団かぜによる欠席者数の推定

インフルエンザは、毎冬の如く全県的な規模の流行をくり返しており、私達が罹患する機会の最も多い感染症である。しかし、従来から言われている様に、インフルエンザ様疾患として届けられた数字が、実際の罹患患者数を正確に反映しているとは考え難い。その最大の理由は臨床症状からだけでは、容易にインフルエンザウイルスの感染と決定できないことにある。

今回調査の対象とした44校全体について考察すると、風疹・ムンプス・水痘・麻疹など出校停止若しくはそれに類する処置を受けた感染症による欠席者は、図20でも明らかなように、流行が最も激しかった時期でさえ1.2%程度にすぎない。小学校における学校欠席に最大の影響を及ぼしているのは、何と云っても集団かぜ(インフルエンザ様疾患)の流行である。

集団かぜの流行期には、欠席率が指標値を連続して越える期間が存在する。そこで、指標値を連続して越えている部分は、集団かぜに罹患したことによる欠席であると考えて、罹患学童数の推定を試みた。表1は、1982年1月から3月に関する試算例である。

ここで1人当たりの欠席期間を平均3日としたのは、1973年に集団かぜの流行を調査して、平均欠席日数約2.5日との結果を得たからである。1979年度から1982年度までの流行期について、表1と同様に試算し

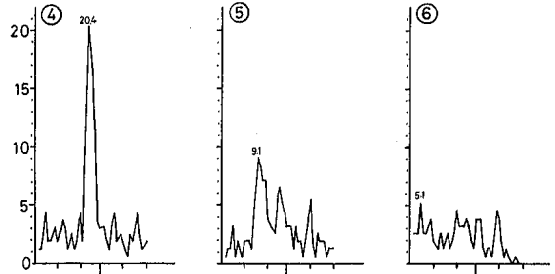


図 18-②

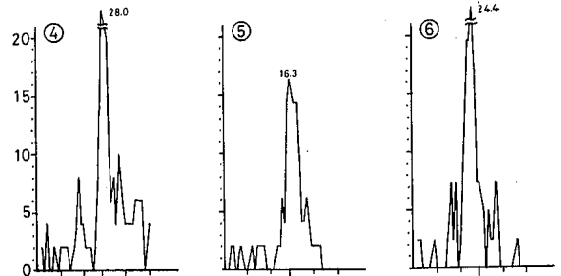


図 19-②

表1 インフルエンザ様疾患罹患欠席者数の推定

対象時期：1982年1月～3月
対象学校：No. 1～No.44(在籍児童総数N= 23,093)
平常欠席数 $m = 360.92$
欠席の指標値 $m + 3\sigma = 467.70 (\doteq 468)$
指標値を連続して越えている期間 1982年1月16日～3月18日(登校日数52日) 52日間の
総欠席者数(A)：55,646
出停等欠席者数(B)：4,802
指標欠席総数(C)：468 × 52 = 24,336
超過欠席者総数 (A) - (B) - (C) = 26,508
1人当たりの欠席期間を平均3日として $26,508 \div 3 = 8,836$ $8,836 \div N = 0.383 (Nの38.3\%)$
県内全小学校(本校)の在籍者総数：197,161人 $197,161 \times 0.383 \doteq 75,500$

た結果を次に示す。

<流行時期>	<調査対象校>	<全 県>
1980年1月～3月	約3,000人	約24,500人
1980年4月～5月	900	7,900
1981年1月～3月	1,900	16,000
1982年1月～3月	8,800	75,500

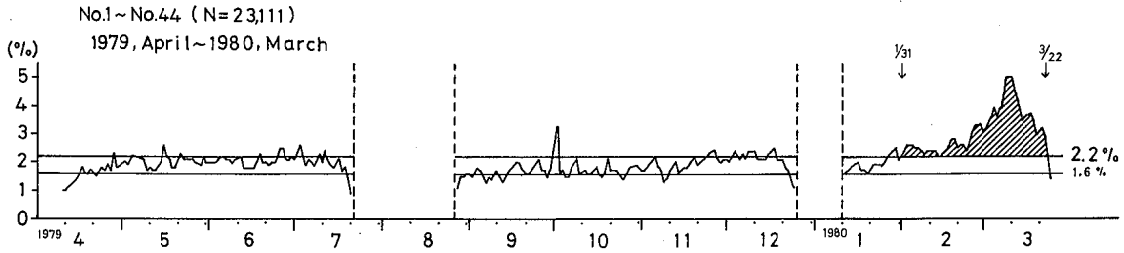


図 20-① 集団かぜによる異常欠席 (3)

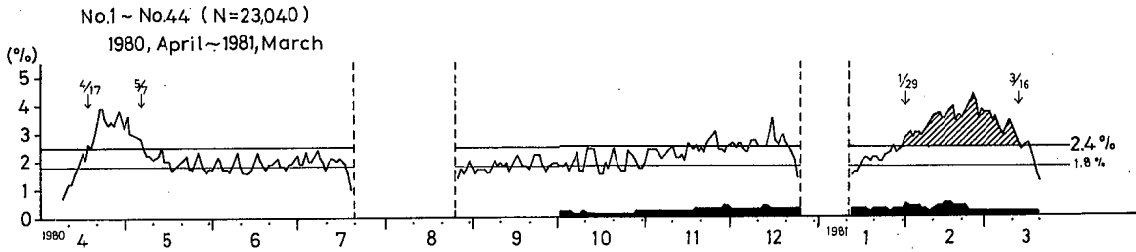


図 20-②

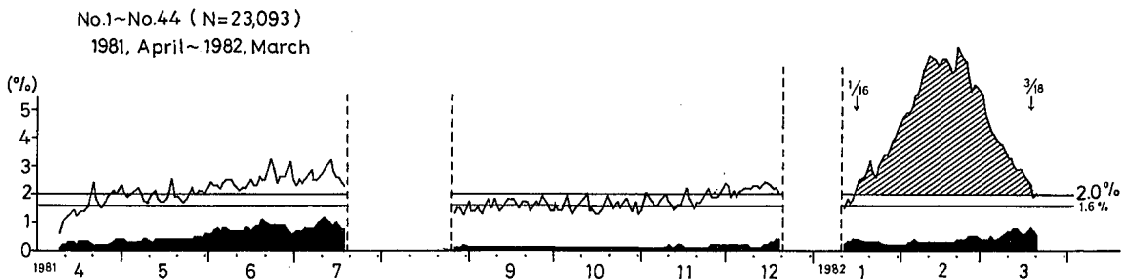


図 20-③

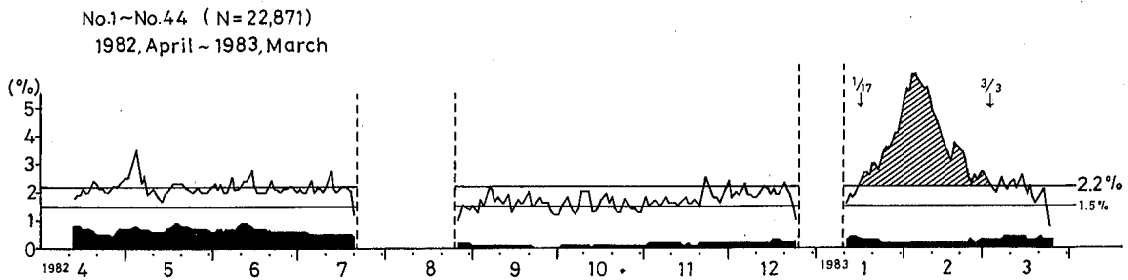


図 20-④

1983年1月~3月 4,000 34,000

1980年1月から3月に関しては、感染症による出校停止について調査していないので、他の年度と計算法が若干異なっている。

集団かぜの原因として、様々な病原体の関与が報告されている。しかし我々が、これまで実施してきた病原体検索や血清学的診断の成績から、全県の規模で集団かぜが流行した場合は、その主たる原因がインフルエンザウイルスであることは間違いない。

表2は宮城県公衆衛生課に届けられたインフルエンザ様患者の発生数と、我々が患者材料から分離したインフルエンザウイルスを、年度別にまとめたものである。前述の試算で得られたのは、集団かぜの罹患欠席児童数であり、表2に示したのはインフルエンザ患者の届出数である。試算には幾つかの仮定も含まれており、当然両者の直接的な比較はできないが、両者間の差が大きいのに驚く。インフルエンザ様疾患の発生数を正しく把握する方法については、今後より詳細な検討が必要である。

表2 宮城県のインフルエンザ様患者発生数
県公衆衛生課調べ

年度 昭和	患者数	分離ウイルス*
1973 (48)	44,426	B/73
1974 (49)	13,253	A/H ₃ N ₂
1975 (50)	80,521	A/H ₃ N ₂
1976 (51)	62,695	B/76
1977 (52)	62,696	A/H ₃ N ₂ →A/H ₁ N ₁
1978 (53)	36,101	A/H ₁ N ₁
1979 (54)	25,350	A/H ₁ N ₁ , A/H ₃ N ₂ →B
1980 (55)	21,689	A/H ₁ N ₁ , A/H ₃ N ₂
1981 (56)	27,177	A/H ₁ N ₁ , B
1982 (57)	10,348	A/H ₃ N ₂
1983 (58)	6,959	A/H ₁ N ₁
1984 (59)	?	?

*宮城県保健環境センターで実施

4. まとめ

- (1) 感染症サーベイランス事業の一環として、小学校を対象に感染症による学校欠席の調査を実施した。
- (2) 調査協力校として、県内全小学校の大略10%に相当する44校を無差別抽出法により選出した。
- (3) 1980年10月から1983年3月まで、週報により日別欠席情報の提供を求めた。
- (4) 調査協力校それぞれについて、年度別に平常欠席率を求め、欠席の指標値を設定した。
- (5) 小学校の学校欠席に最も大きな影響を及ぼしている

のは、集団かぜ(インフルエンザ様疾患)の流行である。

- (6) 臨床的に診断された感染症で、最も罹患者数が多かったのは風疹で、以下は水痘・ムンプス・麻疹の順であった。
- (7) 小学校に感染症が流行すると、感染症の種類によって、学童の欠席に特徴あるパターンが出現する。
- (8) 集団かぜの流行時に観察される異常欠席から、インフルエンザ様疾患に罹患して欠席した学童数の推定を試みた。

この調査をすすめるに際しましては、関係各機関の皆様方から絶大な御協力をいただきました。3年間にわたる調査を中断することなく遂行できたのも、偏に皆様方の就中調査協力校で情報提供の任にあられた先生方の御尽力の賜物であります。ここに衷心より感謝の意を表する次第です。

参考文献 ー 続

- 9) 感染症の発生と学校欠席のパターン
山司男七 他
第25回東北公衆衛生学会口演抄録, 1976年7月28日, 仙台市
- 10) 小・中学校児童生徒の欠席からみたプール熱の疫学
山司男七 他
学校保健研究, 第109号, 昭和44年2月
(76~81)

2 Ldn に関する検討 (第1報)

— Ldn 推定のための基礎的考察*

加賀谷 秀樹 菊地 英男
小室 健一 小野 寺恒之

1. はじめに

宮城県においては、昭和55年度に「快適な県土環境」の形成を目指し、環境管理計画を策定した。本計画での騒音対策については、環境騒音が発生源の質の多様化と数量の増大にある状況から、より良好な環境の創造、地域全体としての快適性(Amenity)まで考慮に入れた幅広い政策を行うこととしている。

そのための騒音公害の施策としては、従来のように発生源を個別にとらえるのではなく、ある空間領域を対象とした騒音エネルギー量全体を環境騒音としてとらえ、制御・誘導し、計画的に管理することが必要となる。

ところで、騒音は悪臭とならんで感覚公害の典型であり、生体的影響というより生理的・心理的影響の側面が強い。このため、種々の個性を持つ人間の感覚を妥当に数量化できるものさし(尺度)により評価されるのがよい。このような尺度として、騒音のうるささとの対応がよいとされるLeqが提案された。

さらに近年になって、国際的にはLeqを基本とした評価尺度が推奨され、米国においては夜間に重みづけされたLdn(昼夜等価騒音レベル)が使用されている。一方、日本においても、現在、JISの改訂作業が進められており、Leqを採用する方向にある。*

このような情勢をふまえ、本県における環境管理計画ではLdnを尺度とする環境保全水準を設定した。

しかしながら、Ldnの概念については理解できるものの、その持つ諸性質についてはまだ研究の段階にある。

そこで本報告では、Leq, Ldnについての基本的特性及びLdn推定のための検討を行った。

2. Leq, Ldn の概念

Leqは変動する騒音レベルをある時間の範囲内で積分し、同じエネルギーをもつ定常音と等価な騒音レベルに置きかえたものである。図1にその考え方を示す。

Leqの算出方法は図1にも示すとおり、理論的には(1)式を用い、音圧の2乗を時間積分し対数変換したものである。

$$Leq = 10 \log_{10} \frac{1}{t_2 - t_1} \int_{t_1}^{t_2} \frac{P^2(t)}{P_0^2} dt \dots\dots (1)$$

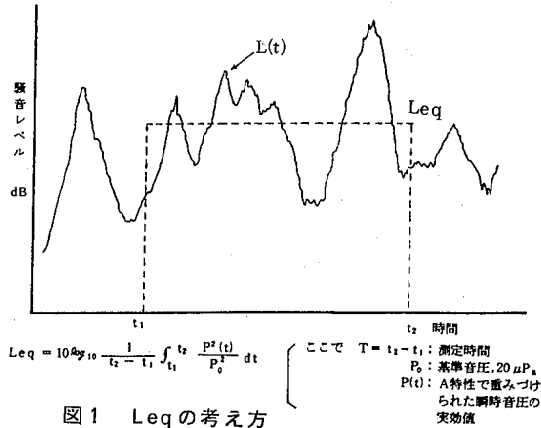


図1 Leqの考え方

しかし、一般的には次に述べる方法によりLeqを算出する。

ある時間を考えた場合、その時間の間を等しい時間間隔で測定したn個の騒音レベルをLi (i = 1, 2, …, n)とすると、Leqは(2)式で表わされる。

$$Leq = 10 \log_{10} \left(\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n 10^{\frac{Li}{10}} \right) \dots\dots (2)$$

一方、Ldnは1973年EPA(米国環境保護庁)より提案された評価尺度である。これは同じレベルの音であっても、種々の活動をしている昼間より就寝する夜間の方がよりうるさく感じられるため、(3)式に示すように、夜間の騒音レベルに10 dB課して24時間のLeqを求めるものである。

$$Ldn = 10 \log_{10} \frac{1}{24} \left[15 \times 10^{\frac{Ld}{10}} + 9 \times 10^{\frac{Ln+10}{10}} \right] \dots\dots (3)$$

ここで、Ld: 昼間 7:00~22:00 の Leq (dB)
Ln: 夜間 22:00~7:00 の Leq (dB)

Leq, Ldn の評価尺度の利点としては、

- (1)主観量との対応がよい……住民の意識調査の結果が反映できる
- (2)物理的に加算性をもつ……時間・空間的に評価できる
- (3)予測が可能である……発生源の変化に対応できるなどの特徴をもっている。¹⁾

3. 調査の考え方と測定方法

Leq, Ldn は L₅₀ などの L_α 型評価尺度に比べると

* 原稿執筆: 昭和57年3月31日 (昭和58年3月JISが改訂され新たにLeqが採用された)

比較的長期間の観測時間を必要とする。しかし、現在用いられている L_a 型データは50回法のように実測時間が5~10分間程度の短時間測定が多い。そこで、従来の方法から L_{eq} , L_{dn} が近似的に求められれば大変都合がよい。

そのため以下に記すような測定を実施した。

3.1 測定方法

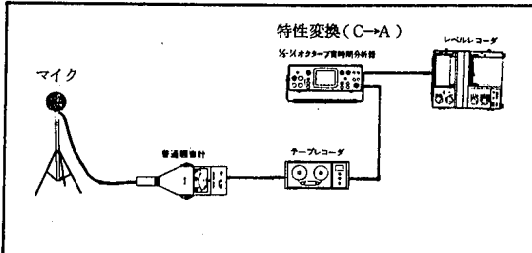
3.1.1 昼間測定

図2に示すように普通騒音計、テープレコーダー等を用い野外（環境騒音）測定を行った。

騒音計の聴感補正回路はC特性、実測時間は約5分間である。 $\frac{1}{3}$ オクターブ分析器及びレベルレコーダーはモニターとして使用した。録音されたデータはデジタル騒音計によりFAST, A特性に変換し、0~2.5Vの直流電圧として出力される。この出力をデータ収録装置により0.1秒間隔でアナログ・デジタル変換をし、フロッピーデスクに記録した。

これを用いてコンピュータによりデータの処理及び解析を行った。

1) 現場測定系



2) データ処理系

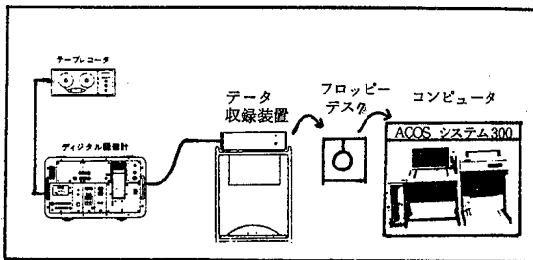


図2 測定及びデータ処理系統図

L_{eq} , L_a 値は0.1秒間隔 2,500個より計算される。測定の時間帯は9:00~12:00, 13:00~17:00の間であり、同一地点で午前、午後各1回測定を行った。図3は道路端における測定例で、デジタルデータにより記録されたものである。

3.1.2 終日測定

終日測定はデジタル騒音計（リオン社製NA-30）を24時間稼働させたものであり、0.5秒間隔500個（約5

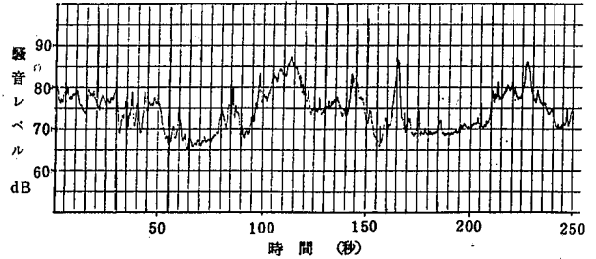


図3 道路端における騒音レベル測定例（250秒）

分間）を測定の1単位とし、1時間12単位、1日288単位の L_{eq} , L_a の値を得た。図4はその測定例である。 L_{dn} 値はこの288単位の L_{eq} 値により、夜間の時間帯にペナルティ10dBを課してエネルギー平均したものである。

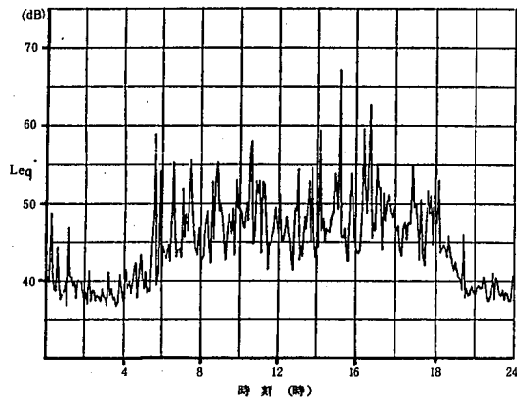


図4 一般住宅地における L_{eq} (5分間) の日変動例

3.2 測定地点の概要

測定地点は表1に示すように終日測定44地点、昼間測定101地点である。測定地点の状況は、交通量、車種、道路からの距離等の様々な要素があり、複雑にからみあっている。ここでは表1の項目として掲げた実状土地利用、道路、全体建ぺい率で小区分し、主たる道路の有無により大区分した。主たる道路は幹線道路のほかに交通量の多い道路も含んでいる。実状土地利用、全体建ぺい率は測定地点を中心に約 100×100 m で囲まれた正方形メッシュを観測したものである。

4. L_{eq} 算出方法の検討

4.1 サンプル周期と精度

昼間測定のデータを用い0.1秒間隔2,500個より得られた L_{eq} を基準値とし、サンプル周期0.2, 0.5, 1.0, 2.5, 5.0秒のそれぞれによって得られた L_{eq} との差を求め ΔL_{eq} とする。そして、この ΔL_{eq} の統計量を求めたものが表2である。平均値では0.5秒以下で0.00 dB, 1秒で-0.01 dB, 5秒で-0.12 dB と負の偏

表1 測定地点状況表

項目	区分	終日測定地点 主たる道路		昼間測定地点 主たる道路	
		有	無	有	無
実状 土地利用	住宅主体地区	10	10	25	23
	商業主体地区	14	0	29	0
	工業主体地区	0	3	2	0
	その他	3	4	9	13
道路	面さない	8	15	37	34
	1車線	5	0	13	0
	2車線	8	2	10	2
	4車線以上	6	0	5	0
全体 建ぺい率	0~10%	9	9	17	16
	10~20	9	5	23	13
	20~30	7	3	16	7
	30~	2	0	9	0
主たる 道路から の距離	0~10m	16		19	
	10~20	1		4	
	20~40	5		16	
	40~80	3		16	
	80~160	2		10	
主たる 道路の換 算交通量	0~4,000台/日	0		2	
	4,000~12,000	9		27	
	12,000~30,000	5		8	
	30,000~60,000	4		4	
	60,000~	9		24	
小計		27	17	65	36
計		44		101	

りがでるが、これはエネルギー平均による特性でもある。精度を標準偏差により表わすと0.5秒で0.16dB、5秒で1.00dBとなった。平均値と標準偏差については図5のとうりである。

表2 サンプルング周期の相違によるLeqの誤差 (dB)

サンプリング周期(秒)	△Leq	最大値	平均値	最小値	標準偏差	データ数
0.2		0.68	0.00	-0.81	0.06	404
0.5		1.41	0.00	-1.79	0.16	1010
1.0		3.36	-0.01	-3.25	0.32	2020
2.5		6.72	-0.05	-4.85	0.63	5050
5.0		9.58	-0.12	-6.29	1.00	10100

(注) サンプルング周期0.1秒を基準値とした。

表3 サンプルング周期の相違によるL50の誤差 (dB)

サンプリング周期(秒)	△L50	平均値	標準偏差	データ数
0.2		0.00	0.04	404
0.5		-0.01	0.10	1010
1.0		-0.02	0.16	2020
5.0		-0.08	0.52	10100

(注) サンプルング周期0.1秒を基準値とした。

また、表3はL50のサンプルング周期による精度であり、Leqに比し標準偏差で約1/2であった。これよりL50はLeqより統計的に安定な指標といえる。

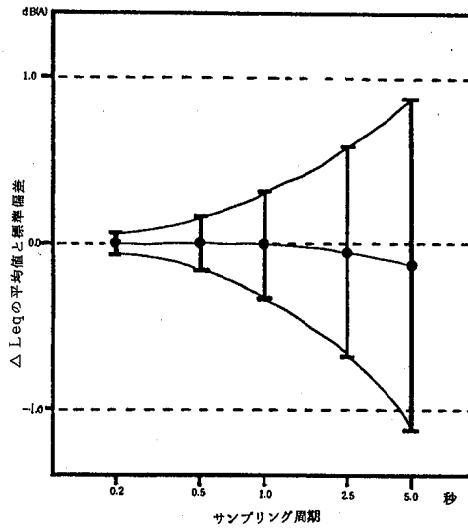


図5 サンプルング周期と△Leqの関係

4.2 LeqとL50の関係

LeqとL50との違いはLeqは測定的全サンプルを用いL50は全サンプルのうち中央値のみ1個を用いるという性格から、Leqの方が騒音レベルの種々の情報をより多く含んでいるということになる。このことから、両者の関係は単純な関数関係で割り切れるものではなく、むしろ、まったく別個のものと考えた方がよい。しかしLeqもL50もそれぞれが同一サンプルからのレベルの代表値であり、何らかの相関関係を持っていると考えられるので、ここでは概括的なLeqとL50との関係を検討してみた。

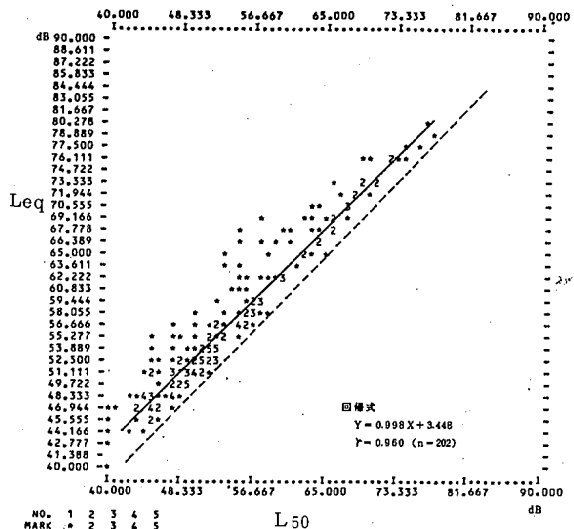


図6.1 L50とLeqの相関図 (昼間測定)

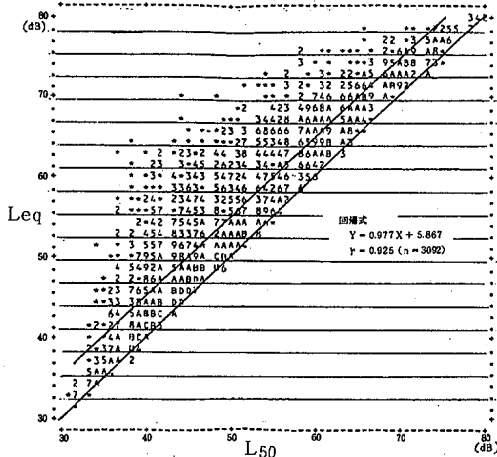


図 6.2 L₅₀と Leq の相関図 (終日測定)

はじめに、昼間測定結果の相関関係を図 6.1 に示す。LeqはL₅₀に対して平均で3.4 dB高かった。バラツキの最大は12.5 dBにもなり、その精度は標準偏差で2.6 dBであった。

表 4 終日測定結果による Leq と L₅₀ の相関関係

地点	項目	時間帯	回 帰 式	相 係 数	デー タ 数	図内の 番号
全 地 点 (42地点)	終日		$Y=0.977X+5.87$	0.925	3092	①
道路交通騒音の影響の少ない地点 (15地点)	終日		$Y=0.954X+4.83$	0.870	1079	②
	朝		$Y=0.775X+13.2$	0.755	90	③
	昼間		$Y=0.823X+11.5$	0.814	495	④
	夕		$Y=0.927X+5.35$	0.794	135	⑤
道路交通騒音の影響を強く受ける地点 (7地点)	夜間		$Y=0.932X+4.89$	0.815	359	⑥
	終日		$Y=0.512X+38.1$	0.851	504	⑦
	朝		$Y=0.456X+42.3$	0.739	42	⑧
	昼間		$Y=0.846X+14.0$	0.923	231	⑨
	夕		$Y=0.820X+16.3$	0.886	63	⑩
夜間		$Y=0.568X+35.6$	0.753	168	⑪	

(注) 時間帯の区分

- 終日 0:00 ~ 24:00
- 朝 6:00 ~ 8:00
- 昼間 8:00 ~ 19:00
- 夕 19:00 ~ 22:00
- 夜間 22:00 ~ 6:00

つぎに、終日測定結果から5分間値の Leq と L₅₀ との相関関係を図 6.2 及び表 4 に示す。図 7.1 ~ 7.2 は回帰直線を表 4 の条件ごとに描いたものであり、図中の① ~ ⑪がそれぞれの区分に対応する。

全地点の終日(図 7.1 の①)については、回帰直線が昼間測定とほぼ同様の傾きであったが、LeqはL₅₀に比べて平均で約 4.7 dB 高く、回帰直線から 20 dB 以上ずれる

場合もあった。このバラツキの原因を調べるため、環境騒音に与える自動車の影響が大きいことを考え、道路交通騒音の影響の少ない地点と影響を受ける地点に分類して、さらに検討を加えた。

図 7.1 の②~⑥が道路交通騒音の影響の少ない地点で、騒音レベルは低レベル側に分布し、LeqはL₅₀に比べて平均で2.8 dB高く、また、騒音レベルが高くなるほどその差は小さくなった。時間帯別にはそれほど大きな差は認められなかった。

図 7.2 の⑦~⑪が道路交通騒音の影響を受ける地点で、全て道路端から10m以内の地点にある。この図より、全地点の終日(図 7.1 の①)の持っていたバラツキの原因はこれらの道路近傍のデータにあると思われる。時間帯

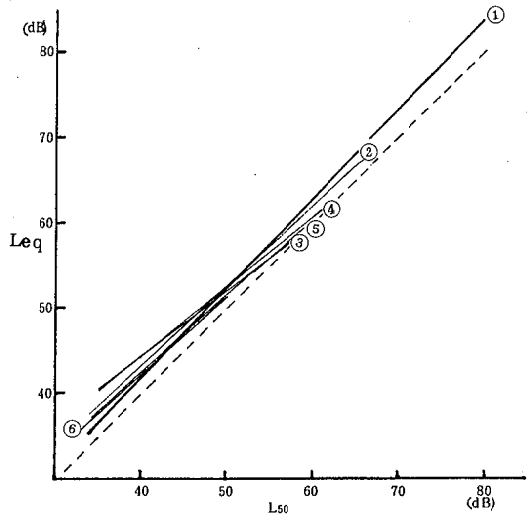


図 7.1 道路交通騒音の影響の少ない地点の L₅₀と Leq の関係

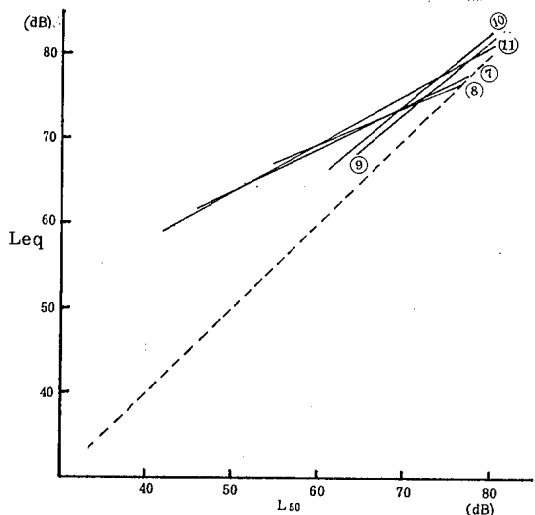


図 7.2 道路交通騒音の影響を受ける地点の L₅₀と Leq の関係

別にみると、朝及び夜間では傾きが 0.5 程度となり、対角線から大きくはずれている。

このように朝及び夜間において、 Leq と L_{50} の差がみられるのは、理論的には分布が高レベル側にスズを引き、その頻度も少ない場合である。このことは道路近傍の場合、この時間帯の現象として交通量がまばらになるからである。

以上より、 Leq の推定にあたって重要なのは騒音レベルの分布であり、現実と一致する分布を仮定できれば正確な推定値が得られる。

4.3 高木式の適用結果

従来測定してきた $L\alpha$ 型データを精度よく Leq に換算できることは、 Leq 、 Ldn などの測定体制が整備されるまでの対応の手段として意義がある。

この換算方法については種々提案されているが、ここでは高木³⁾の提案した歪んだ正規分布を仮定した考え方(高木式)を妥当な方法と考え、現実のデータに適用してその有用性を検討した。

高木式は

$$Leq = 10 \log_{10} \left[\int_{-\infty}^m 10^{\frac{x}{10}} f_1(x) dx + \int_m^{\infty} 10^{\frac{x}{10}} f_2(x) dx \right] \dots (1)$$

で表わされ、 $f_1(x)$ 、 $f_2(x)$ は密度関数で、

$$f_1(x) = \frac{2}{\sqrt{2\pi}(\sigma_1 + \sigma_2)} e^{-\frac{(x-m)^2}{2\sigma_1^2}} (x \leq m) \dots (2)$$

$$f_2(x) = \frac{2}{\sqrt{2\pi}(\sigma_1 + \sigma_2)} e^{-\frac{(x-m)^2}{2\sigma_2^2}} (x \leq m) \dots (3)$$

となる。

(2)、(3)の3つのパラメータ、 σ_1 、 σ_2 、 m (mode)については L_5 、 L_{50} 、 L_{95} より次のように表わされる。

$$\sigma_1 = -0.1144(L_5 - L_{50}) + 0.7671(L_{90} - L_{95}) \dots (4)$$

$$\sigma_2 = 0.7671(L_5 - L_{50}) - 0.1144(L_{60} - L_{95}) \dots (5)$$

$$m = L_{50} - 0.5524(L_5 + L_{90} - 2 \times L_{50}) \dots (6)$$

ただし、(1)式について近似的に

$$Leq = 10 \log_{10} \left\{ \sum_{min}^m 10^{\frac{x}{10}} f_1(x) \Delta x + \sum_m^{max} 10^{\frac{x}{10}} f_2(x) \Delta x \right\} \dots (7)$$

{ Δx : きざみ幅 (dB)
 min, max : 積分範囲のことで σ_1, σ_2 の倍数とする。

終日測定による5分間値の実測 Leq と L_5 、 L_{50} 、 L_{95} に高木式を適用して得られた Leq (計算値)との残差を求め、この残差の統計量より以下の3点について検討した。

- (1) きざみ幅
- (2) 積分範囲
- (3) (2)の場合のカタヨリとバラツキ

表5 高木式のきざみ幅 (ΔL) の検討

積分範囲(σ)	$\Delta L = 0.1$		$\Delta L = 1.0$	
	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差
2.0	-1.80	2.05	-1.98	2.09
2.2	-1.32	1.77	-1.48	1.80
2.4	-0.91	1.59	-1.00	1.63
2.6	-0.58	1.53	-0.67	1.54
2.8	-0.30	1.56	-0.35	1.57
3.0	-0.07	1.66	-0.11	1.67
3.2	0.11	1.80	0.07	1.82
3.4	0.25	1.95	0.22	1.94
3.6	0.37	2.11	0.36	2.09
3.8	0.47	2.26	0.46	2.24
4.0	0.55	2.39	0.55	2.38

(注) 終日測定 38地点の集計である。

まず(1)については表5に示すように、0.1 dBと1.0 dBの2種類計算したが、両者とも大差はなく、計算時間を考えると1.0 dBステップでよいと思われる。

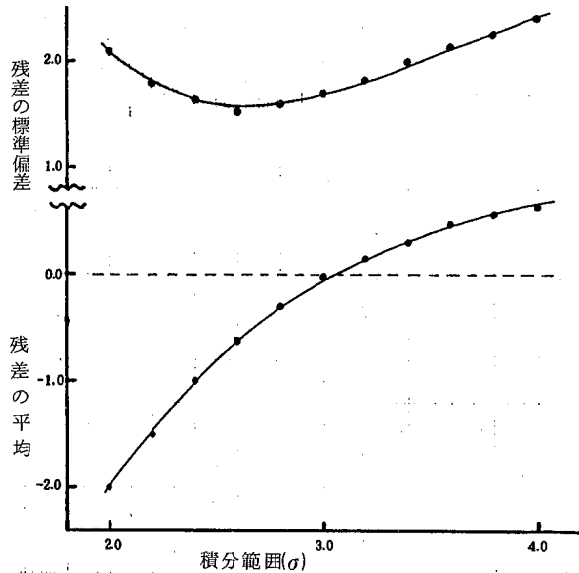


図8 高木式による残差の統計量

(2)、(3)については図8及び表6に示すように、偏りは3.0~3.2 dBの間で平均値が一致し、標準偏差は積分範囲2.6で最小であった。

以上より、高木式を適用する場合の積分範囲は σ_1, σ_2 の3倍が妥当であり、標準偏差1.69 dBで換算できることがわかった。

表 6 高木式の適用結果

			(dB)		
統計量 積分範囲(σ)	平均値	標準 偏差	統計量 積分範囲(σ)	平均値	標準 偏差
2.0	-1.99	2.11	3.2	0.14	1.84
2.2	-1.47	1.82	3.4	0.30	1.97
2.4	-0.98	1.64	3.6	0.45	2.13
2.6	-0.63	1.56	3.8	0.55	2.28
2.8	-0.30	1.59	4.0	0.64	2.42
3.0	-0.05	1.69			

(注) ① きざみ幅 1.0 dB ステップ。
② 終日測定 44 地点

5. Ldn 推定方法の検討

5.1 数値シミュレーション

一般に騒音レベルは人の活動時間帯である日中(9:00~17:00)が他の時間帯に比べレベルが高い。Ldnはエネルギー平均するため、高レベルの値に支配されやすく、日中のレベルがLdn値に与える数値の寄与は大きいと思われる。日中の時間帯におけるLeq値をLeq(8)とすると、LdnとLeq(8)とのレベル間には強い相関関係が想定される。

そこで、以下に述べるような数値シミュレーションを行った。

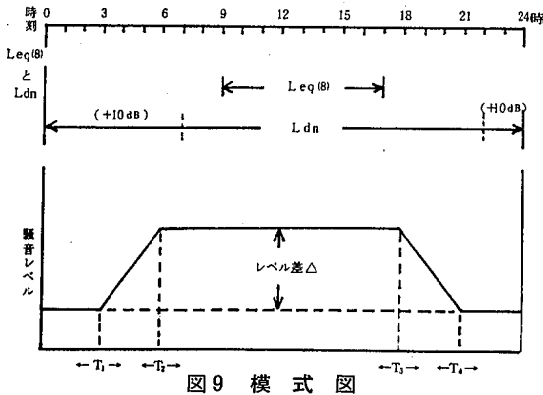


図9 模式図

1日の騒音レベルの日変化パターンを図9に示すような台形パターンにて模擬し、昼のレベルを基準にしてレベル差Δを-25 dBから0 dBまで変化させ、レベルの立ち上がり、立ち下りの始まりと終わりの時間をT₁, T₂, T₃, T₄とし、これらも変化(T₁ = 2~6時, T₂ = 4~8時, T₃ = 17~21時, T₄ = 19~23時)させた。

その変化パターンの総数は約9,400タイプである。

この結果は図10に示すようにLdn - Leq(8)は最小値-3.6 dBとなり、レベル差Δが0 dBの時、最大値6.4 dBとなった。つまり、LdnはLeq(8)を中心に-3.6 dBから+6.4 dBのレンジを持ち、全体の平均では+1.4 dBとなった。

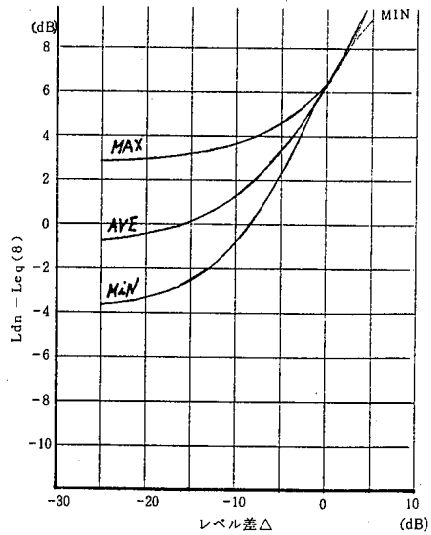


図10 Ldn と Leq(8) との関係

結局、Ldnは近似的に、

$$Ldn = Leq(8) + 1.4$$

で表わされることになる。

5.2 測定回数と実測時間帯によるLdnの推定

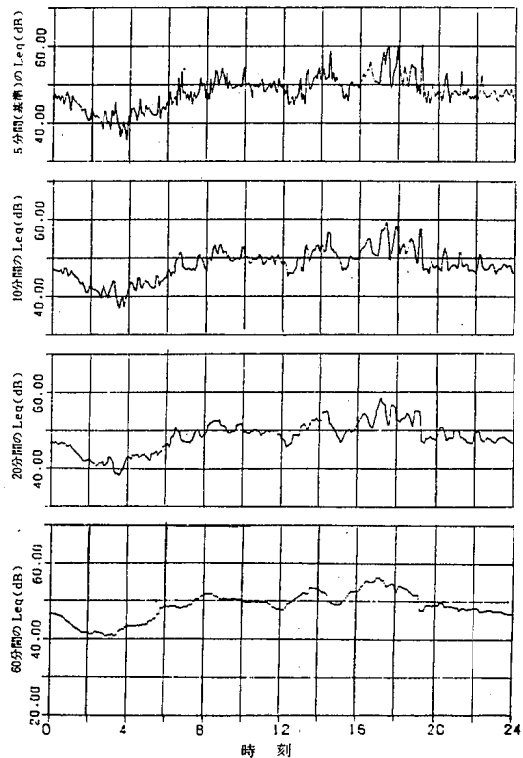


図11 実測時間の違いによるLeqの日変動の変化例

終日測定 of データを用い、Leq の実測時間を 5 分、10 分、20 分、60 分の 4 タイプに分類し (図11 参照)、測定回数については昼間 2 回、昼間 3 回、昼間 2 回夜間 1 回、昼間 2 回夜間 2 回の 4 タイプに分類し、それぞれについて時間率を加味したエネルギー平均により Ldn 実測値と Ldn 推定値の残差を求めた。

この残差の統計量が表 7 であり、標準偏差については図12に示す。

この結果、測定回数が多く実測時間が長ければより良い精度で Ldn の推定ができる。しかし、負の偏りがあるため Ldn を推定するにはこの偏りを補正しなければならない。

表 7 測定回数及び実測時間の違いによる Ldn の精度

No.	測定回数 (回/日)	実測時間(分)				測定時間			
		5	10	20	60	1回目	2回目	3回目	4回目
1	昼間 2 回	2.80	2.63	2.46	2.15	9:00~12:00	13:00~17:00		
		-1.78	-1.62	-1.35	-1.21				
2	昼間 3 回	2.67	2.50	2.27	2.01	9:00~12:00	13:00~15:00	15:00~17:00	
		-1.61	-1.41	-1.26	-1.12				
3	昼間 2 回	2.30	2.12	1.88	1.57	9:00~12:00	13:00~17:00	2:00~5:00	
	夜間 1 回	-1.23	-1.06	-0.91	-0.76				
4	昼間 2 回	2.12	1.92	1.72	1.34	9:00~12:00	13:00~15:00	1:00~3:00	3:00~5:00
	夜間 2 回	-1.04	-0.89	-0.77	-0.67				

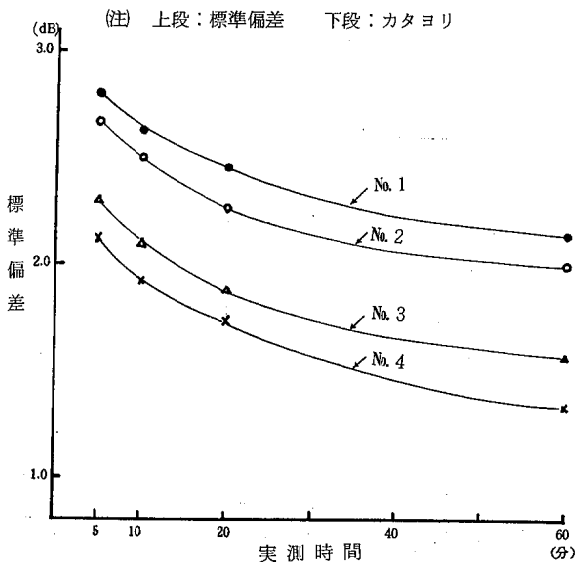


図12 測定回数及び実測時間の違いによる Ldn の精度

5.3 従来の測定方法によるデータからの Ldn の推定

本県の環境騒音測定は、おおむね表 8 の時間帯に 5 分間 (いわゆる 50 回法)、1 日計 5 回測定を行っている。このデータを用いて Ldn を算出したら、どの程度の精度で推定したことになるかを検討する。

終日測定データを用い、5.2 と同様に計算し、Ldn 実測値と Ldn 推定値との残差を求める。計算は

- (1) Leq メータ等により La 値と併せて Leq を実測した場合

表 8 環境騒音測定時間帯

	測定回数	測定時間帯
朝	1	6:00 ~ 8:00
昼間	2	9:00 ~ 12:00
		13:00 ~ 17:00
夕	1	19:00 ~ 22:00
夜間	1	22:00 ~ 24:00

- (2) 50 回法による 50 個のデータをエネルギー平均して Leq を求めた場合
 - (3) 過去の測定データで報告書には La 値しか記載されていないため、その La 値を高木式で Leq に換算した場合
- の 3 タイプについて計算を行った。

残差のカタヨリ及び標準偏差について表 9 に、又、(2)

表 9 従来の環境騒音測定方法によるデータからの Ldn 推定精度

タイプ	5 分間 Leq 値	計算条件 (5 分間値に付加する誤差)		Ldn 推定誤差	
		平均	標準偏差	平均	標準偏差
1	Leq を測定した場合	0.0	0.0	0.0	2.2
2	50 回法 50 個のデータから Leq を求めた場合	-0.1	1.0	0.1	2.3
3	高木式を用いて Leq に換算した場合	-0.1	1.7	0.1	2.4

(注) タイプ 2, 3 の計算条件は 4.1 及び 4.3 で求めたものである。

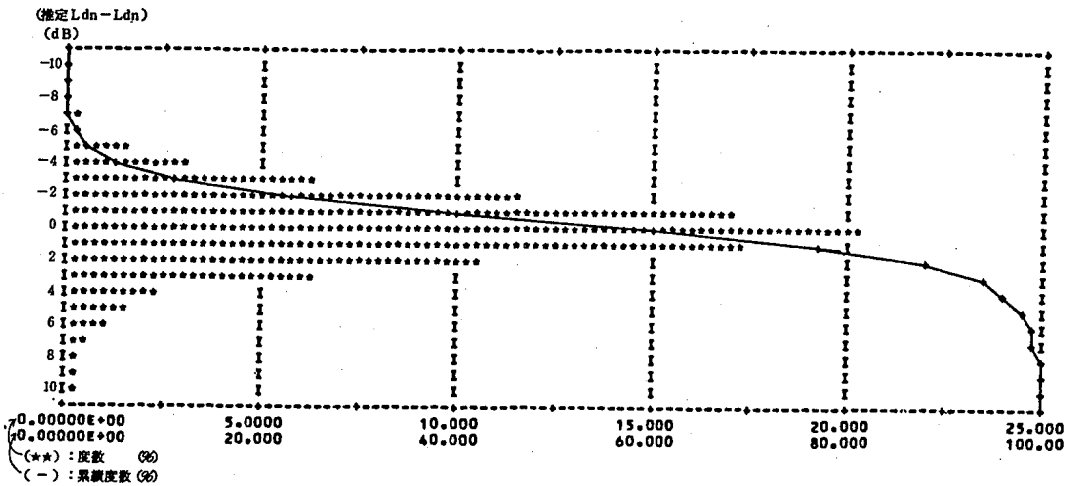


図13 従来の環境騒音データからのLdn 推定誤差の分布

の50個のデータを用いた場合の残差の分布については図13に示す。

表9によると、推定のカタヨリは殆ど無視できるが、推定誤差は標準偏差で2.2～2.4 dB程生じる。以上の3タイプについて計算した結果、5分間値のデータの精度を高めてもLdnの推定精度向上にさほど寄与しないことがわかる。

6. まとめ

時々刻々と変化する騒音レベルを1日を単位として評価するには、それに対応する測定体制が整備されなければならない。

そこで、従来から大量に測定されてきたデータが活用できるようにLdnの推定方法を模索したのであるが、まだ多くの課題があり、今後検討を進める上ではさらに多くのLdn実測値の蓄積が必要である。

今回、Ldnの推定方法を試みた結果、以下に示すいくつかの知見が得られた。

- (1) Leq算出のためのサンプリング周期は、1秒間隔で標準偏差0.32 dBであった。
- (2) LeqとL₅₀には強い相関があるが、バラツキの主たる要因は道路近傍の朝及び夜間のデータであった。
- (3) 高木式の適用にあたっては、きざみ幅1.0 dBステップ、積分範囲3.0σでよく、標準偏差1.69dBの精度でL_α型データをLeqに換算できる。

(4) Ldnと日中のLeq(8)との関係を数値シミュレーションしたところ、下式のような関係があった。

$$Ldn = Leq(8) + 1.4$$

(5) Ldnを推定するための測定回数とその誤差について明らかにした。

最後に、本調査にあたり実測等に御協力いただいた関係市町、保健所の各位、そして、有益な御指導・助言をいただいた東北大学の曾根敏夫教授はじめ研究室の皆様へ深く感謝申し上げます。

参考文献

- 1) 日本建築学会論：騒音の評価法，彰国社（1981）
- 2) 西宮 元：環境騒音評価に関する国際動向（ISO/R 1996の見直しについて，日本音響学会誌，34，2（1980）
- 3) 高木興一：環境騒音の把握に関するいくつかの問題点とその考察，環境技術，8，10（1979）
- 4) 足立義雄他：騒音レベルに関する二、三の基礎的検討，土木技術資料23-12（1981）
- 5) 山本剛夫：Leqから見た騒音評価，日本音響学会誌，38，5（1982）
- 6) 菊地英男：L₅₀及びL₉₅，L₅を用いた道路交通騒音のLeq推定方法について，宮城県公害技術センター報告，9（1980）

3 Ldn に関する検討 (第2報)

— Ldn 予測モデルの実証 —

加賀谷秀樹 小室 健一* 菊地 英男
高橋 宣明 佐藤 春雄

1. はじめに

騒音は各種公害の中で我々の日常生活に関係の深い問題であり、環境の総合指標ともいえるアメニティの構成要素としても重要である。アメニティ、すなわち快適環境づくりが叫ばれている中で、静穏への期待も大きくなっている。このような期待をになって宮城県環境管理計画¹⁾が策定され、その一環境質として騒音も対象項目となった。

騒音公害の防止にあたって、従来は個別音源毎に異なる評価量が用いられ、個々の音源ごとに個別の施策が講じられてきた。しかし、発生源の多様化とその発生エネルギーの増大により、個別の施策だけでは地域全体としては効果を上げられなくなってきた。このような情勢をふまえ、環境管理計画では行政施策としては初のLdn (昼夜等価騒音レベル)による保全水準、環境容量を設定し、地域全体の騒音エネルギーを適正な状態に管理していくこととなった。

各種騒音を統一した評価量としてはLdnがあり、Ldnは米国において既に採用されている評価量で、「うるささ」との対応がよいとされ、日本でも昭和58年3月JISの改訂により、Ldnと同原理のLeqが採用された。

Ldnの特性として、①主観量との対応がよい。②物理的加算性をもつ。③予測が可能。などの利点をもち²⁾、地域全体の音のエネルギーを把える指標として適している。特に発生源の変化に即応できる評価量であるため、環境影響評価などの制度に対応しやすい。

ここではこの環境影響評価など、広く予測に用いる際のモデルの構築と、このモデルを実際の現場で測定したデータにあてはめた結果について述べる。

2. 予測モデル

環境影響評価と環境管理を行う上で、予測モデルは必要不可欠な道具である。それは実測によらなくても(実測は労力や費用のかかることが多い)モデルにより推測可能であること、種々の変化(予測)に対応可能なことなどが大きな利点である。しかし、モデルであるがゆえ

の理想化や単純化を行っていることより、その適用限界にも注意しなければならない。³⁾

従来の予測モデルとしては道路交通騒音の予測モデルである日本音響学会式などの物理モデルに立脚したモデルがある。時間・空間的にミクロのスケールを精度よく予測するには、その現象の本質にせまる物理モデルが有効であるが、時間・空間的にマクロなスケールの場合には、その変動の機構に複雑性、偶然性が入りこみ物理モデルの構築は容易ではない。そこで、ある程度の精度を犠牲にしても、変動の平均的姿を表現する統計モデルが必要となる。

本県における環境騒音を把握するモデルとしては、騒音の評価量として比較的長時間である1日を単位としていること、地域的拡がり(約100m×100mと約500m×500m)を代表する騒音レベルを求めるとのことより、統計モデルに立脚したモデルを作成した。⁴⁾⁵⁾

これらの予測モデルの作成にあたっては音源の質と量を間接的に規定する土地利用などの地域環境情報を用いた。つまり、この地域環境情報が騒音レベルに対し何らかの構造的関連を持つものとし、地域環境騒音を予測しようとするものである。

このような定性的なものを含むものから、騒音レベルのような量的データを推定するものとして、統計数理研究所の林知己夫氏の考案した数量化理論I類がある。

(図1参照)。

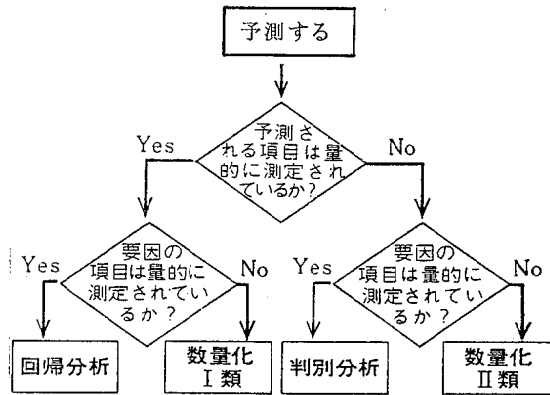


図1 予測手法の分類

* 現 宮城県環境調整課

3. Ldn 予測モデルの作成

3.1 予測モデルの変換

本県においては、昭和53、54年度の2ケ年間にわたり委託調査を行い、既に環境騒音の予測モデルを作成している⁴⁾⁵⁾。このモデルは環境騒音を規定する要因として地域環境情報を用い、日中の9時から18時(12時から13時を除く)の8時間の等価騒音レベル(Leq(8)と記す)を予測するものであった。

しかし、本県における環境騒音に係る保全水準及び環境容量としてLdnが採用されていることから、Ldnを予測するモデルの必要性があった。そこで我々は昭和56年度から3ケ年間にわたり、調査を実施し『Ldnに関する検討(第1報)-Ldn推定のための基礎的考察-』(本年度50ページ参照)の中で以下の知見を得ている。

$$Ldn = Leq(8) + 1.4 \quad (\text{dB})$$

ここで Ldn : 昼夜等価騒音レベル (dB)

Leq(8) : 日中の9:00~18:00のうち12:00~13:00を除いた等価騒音レベル (dB)

この結果により、前述のLeq(8)を目的変数としたモデルが“約1 dB”の補正をすることによって、Ldnを目的変数としたモデルに変換することは可能と推測される。

そこで、この仮説を裏づけることによって、つまりLdnの実測値と推定値のあてはまり具合のよさを検討することにより、このLdn予測モデルが作成されたことと結論づけることにした。

3.2 モデル検証のための実測値は?

我々は騒音の評価量としてLdnを用い、これのある領域の環境情報により予測することを考えたが、モデル検証のための実測値として騒音レベルの測定地点が、想定する領域を代表しているか否かという、いわゆる、『代表領域』の問題がある。ここでは、この点に関しては深く考察せず天下りの決めた。

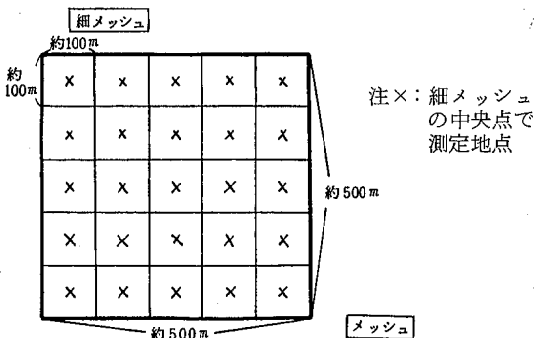


図2 細メッシュとメッシュの大きさ

その想定した領域を図2に示す。図2におけるメッシュとは、総理府統計局で定めた経緯度法に基づく基準地域メッシュ(約1Kmメッシュ)を2分の1に分割した2分の1地域メッシュのことをいう。また、メッシュを25等分したものを細メッシュ(約100mメッシュ)と呼ぶことにする。結局、『代表領域』の最小単位として細メッシュがあり、細メッシュの中央点(図2の×印)がLdnの実測地点となるのである。ただし、中央点が局所的影響により代表性が乏しいと考えられる場合は、測定者の判断により、おおむね妥当と思われる地点で測定を行った。

つぎに、メッシュ(地区)の実測値の代表値として何が適当かである。騒音の面の代表として上空⁶⁾や屋上⁷⁾での測定もあるが、ここでは計算で求めることにした。

具体的には細メッシュの実測値25個のエネルギー平均をメッシュ(地区)の実測値と考えることである。

表1 Ldn 予測モデルの種類

対象領域	予測モデルの種類	環境情報(説明変数)
細メッシュ	Ldn 地点予測モデル	推計式 I 「実状土地利用」「道路」「全体建ぺい率」「主たる道路からの距離と交通量」
		推計式 II 「実状土地利用」「道路」「全体建ぺい率」
メッシュ	Ldn 地区予測モデル	「土地利用率」「人口」「幹線道路道路率」「交通量」

さて、Ldn予測モデルの種類としては表1に示すように、細メッシュを対象領域としたLdn地点予測モデルと、メッシュを予測するLdn地区予測モデルがある。さらにLdn地点予測モデルは、「主たる道路」の有無により、推計式Iと推計式IIとに分かれる。

3.3 Ldn 地点予測モデル

Ldn地点予測モデルは表1のとおり、地域環境情報として細メッシュにおける「実状土地利用」、「道路」、「全体建ぺい率」を求め、さらに測定地点において「主たる道路からの距離」が160m以内か、以上かによって推計式Iと推計式IIに区分される。推計式Iの場合は「主たる道路の換算交通量」も説明変数として加えられる。

表2.1に数量化I類により作成されたLdn地点予測モデルを示す。その精度は推計式Iが重相関係数0.89であり、推計式IIは0.74であった。説明変数の騒音レベルへの寄与度合は、偏相関係数とレンジから「主たる道路からの距離」が最も大きく、つづいて「主たる道路の換算

交通量」, 「道路」, 「実状土地利用」であった。「全体建ぺい率」の寄与は小さかった。これにより, 地点Ldnは次式で表わされる。

$$Ldn = \sum Sij + C$$

Ldn: 地点の昼夜等価騒音レベル (dB)

Sij: i 項目について対象地点が該当する j カテゴリーの値 (dB)

C : 定数項 (dB)

例えば「標準的な住宅地」で「道路に面さない」, 「主たる道路からの距離」が40~80 m, 「主たる道路の換算交通量」が4千~1万2千台/日, 「全体建ぺい率」が10~20%の地点の環境騒音Ldnはカテゴリー値と定数項から

$$Ldn = (-0.551 - 4.050 - 6.818 - 1.396 - 0.553) + 65.02 = 51.65 \text{ (dB)}$$

と推定される。

表 2.1 Ldn 地点予測モデル

(1) 推計式 I サンプル数 ; 140, 重相関係数 ; 0.89

項目	カテゴリー	サンプル数	カテゴリー値 Sij (dB)							
			-8	-5	-2	0	2	5	8	
実状 土地利用	1. 良好な住宅地	15			-0.195					
	2. 標準的な住宅地	51			-0.551					
	3. 密集住宅地	13					-0.146			
	4. 住宅・店舗混在地区	9			(11.034)			3.051		
	5. 事務所, 店舗地区	6						2.717		
	6. 中心商業地区	9			-0.341					
	7. 沿線商業地区	28						1.805		
	8. 準工, 工場地区	8			-3.466					
	9. 田畑, 山林, その他	1			-7.983					
道 路	1. 面さない	24			-4.050					
	2. 1車線	46					-1.029			
	3. 2車線	53						1.218		
	4. 4車線以上	17			(8.754)				4.704	
主たる 道路からの 距離	1. 0~10 m	56							5.500	
	2. 10~20 m	21						2.342		
	3. 20~40 m	18				-1.914				
	4. 40~80 m	36			-6.818				(14.086)	
	5. 80~160 m	9			-8.587					
主たる 道路の換算 交通量	1. 0~4,000台/日	11			-6.523					
	2. 4,000~12,000	36					-1.396		(11.523)	
	3. 12,000~30,000	38					-0.726			
	4. 30,000~60,000	45						2.213		
	5. 60,000~	10								5.000
全体 建ぺい率	1. 0~10 %	21						1.063		
	2. 10~20	49					-0.553			
	3. 20~30	38						0.005		
	4. 30~	32			(1.517)				-0.143	

注 □ : 偏相関係数 ○ : レンジ

定数項 ; 65.02 (dB)

(2) 推計式Ⅱ……………サンプル数；336，重相関係数；0.74

項目	カテゴリー	サンプル数	カテゴリー値					Sij	(dB)
			-8	-5	-2	0	2		
実状 土地利用	1. 良好な住宅地	72	-4.929						
	2. 標準的な住宅地	133				-0.468			
	3. 密集住宅地	30			-1.118				
	4. 住宅・店舗混在地区	19					3.774		
	5. 事務所，店舗地区	8	(10.534)					5.605	
	6. 中心商業地区	13						4.049	
	7. 沿線商業地区	36						4.152	
	8. 準工，工場地区	19					1.383		
	9. 田畑，山林，その他	6		-3.110					
道 路	1. 面さない	64	-6.664						
	2. 1車線	163			-1.743				
	3. 2車線	90	(17.212)					5.669	
	4. 4車線以上	19							
全体 建ぺい率	1. 0～10%	75			1.954				
	2. 10～20	109			-0.339				
	3. 20～30	78	(3.875)				-0.530		
	4. 30～	74					1.921		

注 □：偏相関係数 ○：レンジ 定数項；61.82 (dB)

表 2.2 Ldn 地区予測モデル

サンプル数：100，重相関係数：0.79

項目	カテゴリー	サンプル数	カテゴリー値			Sij	(dB)
			-5	-2	0		
宅地率	1. 0～30%	28				0.808	
	2. 30～60	56			-0.068		(1.983)
	3. 60～	16			-1.175		
商業・ 業務率	1. 0～5%	69			-0.305		
	2. 5～20	25	(1.421)			0.574	
	3. 20～	6					1.116
工業・ 運輸率	1. 0～5%	74			-0.362		
	2. 5～20	18	(1.899)			0.804	
	3. 20～	8					1.537
幹線道路 道路率	1. 0～2%	70			-0.229		
	2. 2～4	25	(2.008)			0.284	
	3. 4～	5					1.780
換算 交通量Ⅱ	1. 0～4,000台Km/日	11					
	2. 4,000～8,000	25			-1.599		
	3. 8,000～16,000	28				0.082	
	4. 16,000～32,000	16	(8.909)				1.962
	5. 32,000～	20					3.364
人 口	1. 0～600人	30			-0.534		
	2. 600～2,500	57	(1.648)			0.027	
	3. 2,500～	13					1.115

注 □：偏相関係数 ○：レンジ 定数項；64.73 (dB)

3.4 Ldn地区予測モデル

Ldn地区予測モデルは地点予測モデルより空間スケールの大きいメッシュの基礎環境情報を用いて予測するものである。基礎環境情報としては地区の形態・特性を表わす要因として、「宅地率」、「商業・業務率」、「工業・運輸率」などの土地利用率と「幹線道路道路率」、「換算交通量」などの主要音源要因と集積度を表わす要因としての「人口」とを用いるものである。これらの6要因により地区の環境騒音が規定されると考え、数量化I類によりモデルが作成されている。その結果を表2.2に示す。このモデルの精度は重相関係数で0.79であった。項目別寄与度合は「換算交通量」が著しく大きく、その他の項目の寄与はほぼ同じくらいであった。これにより、地点予測モデルと同様、地区のLdnは次式で表わされる。

$$Ldn = \sum_{j=1}^6 S_{ij} + C$$

Ldn：地区の昼夜等価騒音レベル (dB)

S_{ij}：地区のi項目のカテゴリーがjのときとる値 (dB)

C：定数項 (dB)

4. Ldn予測モデルの検証(実証結果)

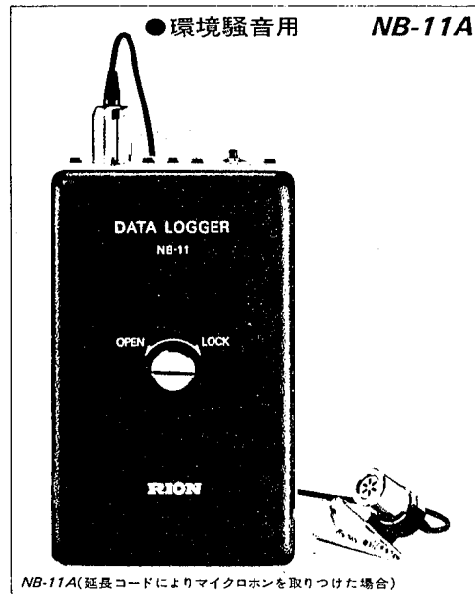
4.1 騒音レベルの測定

Ldnの実測値を求めるための測定は、デジタル騒音計(NA-30)とLeqメータ(NB-11A)の2種類の計器を用いた。図3にはLeqメータの概要図を示す。デジタル騒音計は0.5秒間隔500個の瞬時値により、5分間値のLeq、L₅₀を求めるものである。5分間のLeqを基本単位とし、一時間値及びLdnが計算で求められることになる。また、Leqメータは0.2秒間隔でサンプリングをし、10分間値のLeq、L₅₀を求めるものである。10分間値のLeqを基本単位として、1時間値のLeq及びLdnが求められる。

4.2 Ldn地点予測モデルの結果

Ldn地点予測モデルの実測値と推定値の関係を図4に示す。対象地点は仙台市を中心とした周辺4市1町の83地点と、県内主要地方都市である古川市、白石市、角田市、迫町の20地点の合計103地点である。

図4の相関図に示したように、相関係数は0.912、標準誤差は3.89dBであった。回帰直線の傾きは0.964、対角線との差は50~80dBの範囲で0.81~-0.64dBであり、ほぼ1:1の対応関係があり良好な結果といえる。95%信頼区間は7.8~7.9dBの幅で構成されるが、ここでは信頼幅として±5dB、±2.5dBの2種の固定区間を考え、推定値が実測値に対しこの区間外に出る(外れ



仕様

マイクロホン：1/2インチコンデンサ
マイクロホン

周波数補正：A特性

測定範囲：30~130dB

動特性：FAST, SLOW切替

サンプリング周期：0.2秒

レベル分解能：0.5dB

実測時間：最大24時間

評価量：10分毎のL₅₀, Leq

図3 Leqメータ

値と呼ぶ)割合を求めた。その結果は表3.1に示すとおりであり、±2.5dBを超える割合が53.4%、±5.0dBを超える割合が21.4%である。

さらに図5に実測値と推定値のヒストグラムを示す。階級幅5.0dBで描いたもので、70.0dB以上の度数はほぼ同じであった。

表3.1 地点モデルの外れ値

	個数	割合(%)
±2.5dBを超えるもの	55/103	53.4
±5.0dBを超えるもの	22/103	21.4

*** Ldn 予測モデルの検証結果 (S56, S57, S58) ***

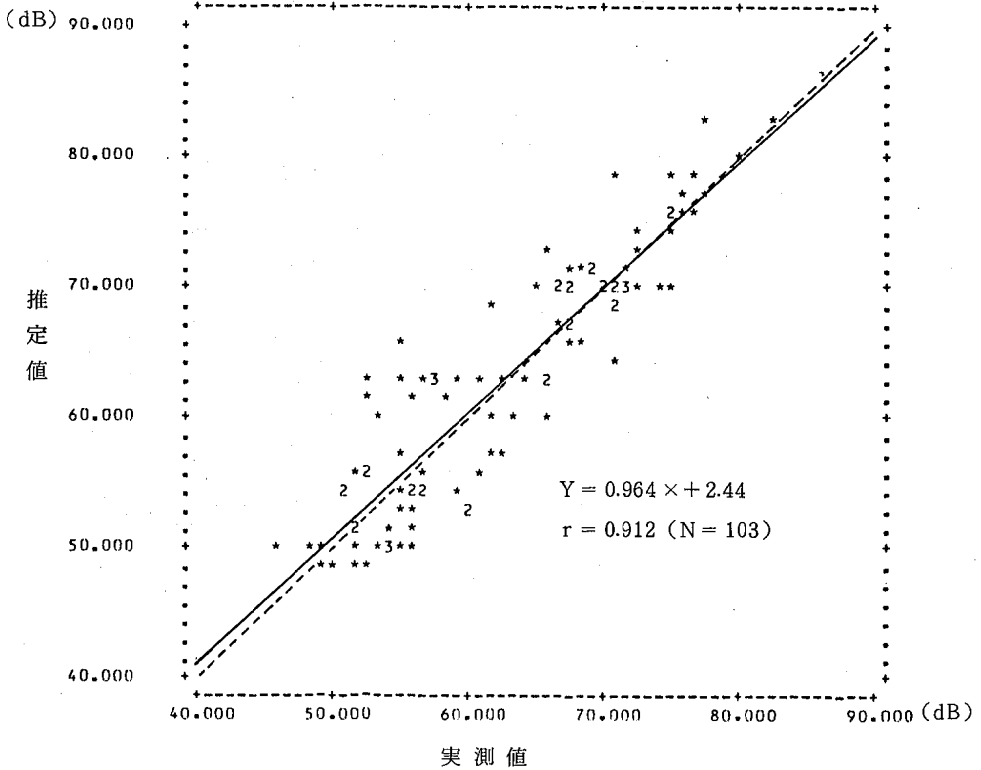


図4 Ldn地点予測モデルの検証結果

*** OBSERVATION DATA HISTOGRAM ***

Bin Range	1	5	10	15	20	25	30	35	40	45	50
45.000 - 50.000	4	I****	I		I		I		I		I
50.000 - 55.000	22	I*****	I*****		I*****		I		I		I
55.000 - 60.000	20	I*****	I*****		I*****	+	I		I		I
60.000 - 65.000	11	I*****	I*****		I		+ I		I		I
65.000 - 70.000	19	I*****	I*****		I*****		I		+ I		I
70.000 - 75.000	16	I*****	I*****		I		I		I	+	I
75.000 - 80.000	9	I*****	I*****		I		I		I		+
80.000 - 85.000	2	I**	I		I		I		I		+
	I	10	20	30	40	50	60	70	80	90	100%

*** ESTIMATION DATA HISTOGRAM ***

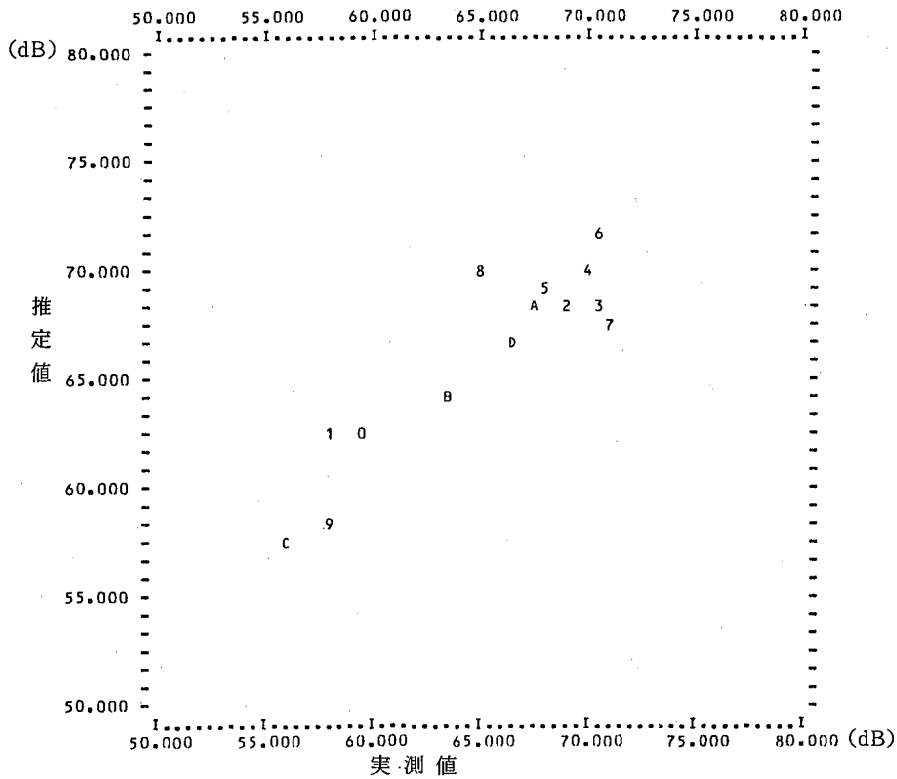
Bin Range	1	5	10	15	20	25	30	35	40	45	50
45.000 - 50.000	9	I*****	I*****		I		I		I		I
50.000 - 55.000	21	I*****	I*****		I*****		I		I		I
55.000 - 60.000	9	I*****	I*****		+ I		I		I		I
60.000 - 65.000	19	I*****	I*****		I*****		+ I		I		I
65.000 - 70.000	16	I*****	I*****		I		I		I		I
70.000 - 75.000	17	I*****	I*****		I		I		I	+	I
75.000 - 80.000	9	I*****	I*****		I		I		I		+ I
80.000 - 85.000	3	I**	I		I		I		I		+
	I	10	20	30	40	50	60	70	80	90	100%

図5 Ldn実測値と推定値のヒストグラム

4.3 Ldn地区予測モデルの結果

Ldn地区予測モデルの結果を図6に示す。相関係数は0.891であり、傾きは0.36で少しねている。バラツキは平均値のズレが1.0 dBで、標準誤差は2.1 dBであった。

外れ値は表3.2に示すように±2.5 dBを超えるものが21.4% (3地区)であり、±5.0 dBを超えるものが7.1% (1地区)であった。



図中の番号	X	Y	Y (EST)	RESIDUAL	T
1	57.8000	62.8000	60.6508	2.1492	1.0346
2	69.1000	68.5000	68.9707	-0.4707	-0.2266
3	70.4000	68.0000	69.9279	-1.9279	-0.9281
4	69.8000	70.2000	69.4861	0.7139	0.3436
5	67.9000	69.5000	68.0872	1.4128	0.6801
6	70.5000	71.5000	70.0015	1.4985	0.7213
7	70.9000	67.1000	70.2960	-3.1960	-1.5385
8	64.8000	70.2000	65.8047	4.3953	2.1158
9	57.8000	58.2000	60.6508	-2.4508	-1.1798
0	59.7000	62.1000	62.0497	0.0503	0.0242
A	67.4000	68.0000	67.7190	0.2810	0.1352
B	63.7000	64.4000	64.9948	-0.5948	-0.2863
C	55.8000	57.7000	59.1782	-1.4782	-0.7116
D	66.4000	66.6000	66.9828	-0.3828	-0.1842
AVERAGE	65.143	66.057			
SIGMA	5.322	4.397	SIG(E)	2.0774	
	LOWER	ESTIM.	UPPER		
R	0.6838	0.8911	0.9653		
A	2.6803	18.0937	33.5071		
B	0.5004	0.7363	0.9722		

図6 Ldn地区予測モデルの検証結果

表 3.2 地区モデルの外れ値

	個 数	割 合 (%)
±2.5dBを超えるもの	3 / 14	21.4
±5.0dBを超えるもの	1 / 14	7.1

5. まとめ

以上述べてきたことをまとめると、最初に予測モデルの必要性を述べ、つぎにモデルとしては平均的姿を表現する統計モデルに立脚したこと、その説明変数として地域の基礎環境情報を用い、目的変数として地点予測モデルには細メッシュの中央点の騒音レベル(Ldn)を、地区予測モデルには細メッシュ25個のLdnエネルギー平均値を用いることとした。

このLdn予測モデルの作成にあたり、Ldnに関する検討(第1報)より『LdnはLeq(8)と1dBの補正により変換可能である』ことから、

- (1) 従前のLeq(8)予測モデルに1dBの補正を加えてLdn予測モデルとした。

このLdn予測モデルを用いて実証を行ったところ、

- (2) 地点予測モデルを検証した結果は、測定地点103地点で相関係数0.912 標準誤差3.89 dBであった。また予測における誤差の検討として±5dBの固定区間を考え、この範囲を超えるものを外れ値と呼び、その割合を算出したところ21.4%であった。

- (3) 同様に地区モデルの検討を14地区について行ったところ、相関係数0.891であり、外れ値の割合は±2.5dBを超える地区が3地区(21.4%)であった。これにより、Ldn予測モデルはほぼ妥当な水準で実証されたと考える。

最後に、本調査にあたり実測等に御協力をいただいた関係市町、保健所の各位、そして有益な御指導・助言をいただいた東北大学の曽根敏夫教授はじめ研究室の皆様へ深く感謝申し上げます。

参 考 文 献

- 1) 宮城県：宮城県環境管理計画—A B C計画—(1980)
- 2) 日本建築学会編：騒音の評価法，76，彰国社(1981)
- 3) 石井 聖光：騒音予測と計測における課題，290，「環境科学」研究報告集B 131(1982)
- 4) 財計量計画研究所：「昭和53年度宮城県委託調査」環境管理計画に係る騒音調査報告書(1979. 3)
- 5) 財計量計画研究所：「昭和54年度宮城県委託調査」環境管理計画に係る環境(複合)騒音容量設定調査報告書(1979. 11)
- 6) 安田正人：都市環境騒音の高所測定方法に関する検討，9，「環境科学」研究報告B 71(1980)
- 7) 川崎市：等価騒音レベル実態調査報告書(1980)

4 Ldn に関する検討 (第3報)

一 クラスター分析による騒音の地点分類 一

加賀谷秀樹 小室 健一* 菊地 英男
高橋 宣明 佐藤 春雄

1. はじめに

我々がある対象から情報あるいは知識を得る場合に、分類ということが最初に行われる。生物の分類におけるリンネの2分法やダーウィンの進化論の如く、分類することによって種々の知見が得られることが多い。

我々は騒音における新たな指標であるLdnについて調査を進めてきたが、騒音のレベルの変動を惹き起こす環境はまさに多次的である(図1)。一般環境騒音を構成する要因には最大発生源である道路交通騒音をはじめ、人々の会話、動物の声、はては風や川、波などの自然界にまでおよぶ。また、騒音を減ずる効果のある発生源からの距離、塀や建築物などの遮蔽物の存在も重要な要因であり、これらの織りなす効果によって騒音のレベルが構成されている。

ここでは騒音レベルの終日変動状況(日変化パターン)を分類することにより、そのパターンの差異を具現する要因について検討を加え、騒音の生成構造について接近するものである。²⁾

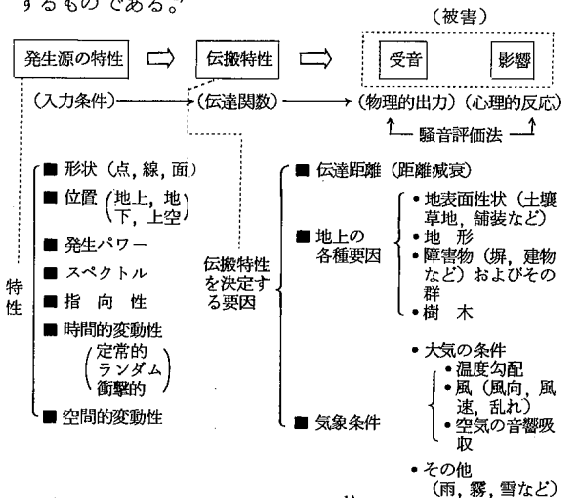


図1 環境騒音の解析¹⁾

2. クラスター分析による分類

騒音の日変化パターンをグラフ化してみるとそのパタ

ーンのの違いに気づくが、いざ分類となるとかなりの困難を伴う。特に境界領域に存在するパターンになると、人によって恣意的にならざるをえない。そこで、これを自動的に分類してくれる道具が必要となり、その道具としてクラスター分析が知られている。

クラスター分析とは何らかの似ている(類似性)、似ていない(非類似性あるいは距離)の目盛りとなる測度を定義し、ある一定のアルゴリズム(算法)のもとに分類していく方法である。その手法は表1に示すように、階層的手法と非階層的手法に大別される。³⁾そして、それぞれの手法がさらに細分され、クラスター分析の手法を分類するためにクラスター分析をしなければならないというジョークもあるくらい手法の数は多い。

表1 クラスター分析手法

◎階層的手法	凝集型 (agglomerative type)	i) グラフ理論的な考え方によるもの(個体あるいはクラスター間の連結性に注目する。ノンメトリックなデータに適する)
		ii) 統計的な基準にもとづくもの(クラスターのセントロイド間距離、平方和などの統計量を使う。メトリックなデータ向き)
◎非階層的手法	分枝型 (divisive type)	i) 変数側の関連性を利用して個体を分類する(相関係数などによる分類、正準相関分析の階層の利用など)
		ii) 数量化I類、重回帰型データの分類
		iii) 統計的基準にもとづくもの
◎非階層的手法…… k-means法など		

ここでは、階層的手法の凝集型であるウォード法を用いることにする。ウォード法は矢島⁴⁾によれば「まいる集中型の塊の分類にもっとも有効であろう」と言われている。距離の測度としてはユークリッド距離を用いる。個体には一般環境として終日測定を実施した103地点の24時間の騒音レベル(L_{eq})である。これに対しクラスター分析を行いグラフ化したところ、ほぼ4つのクラス

* 現 宮城県環境調整課

ター (A, B, C, D) に分類するのが妥当と判断した。
この4分類の変化パターンは図2に示すとおりである。

表2 組合せ的な手法(凝集型のii)の)のパラメータ

手法	α_h	α_l	β	γ	d_{fg} の基準(目的関数)
(1) 最短距離法	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{2}$	0	$-\frac{1}{2}$	$\max_{f, g} d_{fg}$
(2) 最長距離法	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{2}$	0	$\frac{1}{2}$	$\max_{f, g} d_{fg}$
(3) メジアン法	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{4}$	0	セントロイド間のユークリッド距離を最小化
(4) 重心法	$\frac{n_h}{n_g}$	$\frac{n_l}{n_g}$	$-\frac{n_h n_l}{n_g}$	0	上に同じ
(5) 群平均法	$\frac{n_h}{n_g}$	$\frac{n_l}{n_g}$	0	0	$\min \left\{ \frac{1}{n_f n_g} \sum d_{fg} \right\}$
(6) ウォード法	$\frac{n_f + n_h}{n_f + n_g}$	$\frac{n_f + n_l}{n_f + n_g}$	$-\frac{n_f}{n_f + n_g}$	0	重みつきセントロイド間ユークリッド距離を最小化

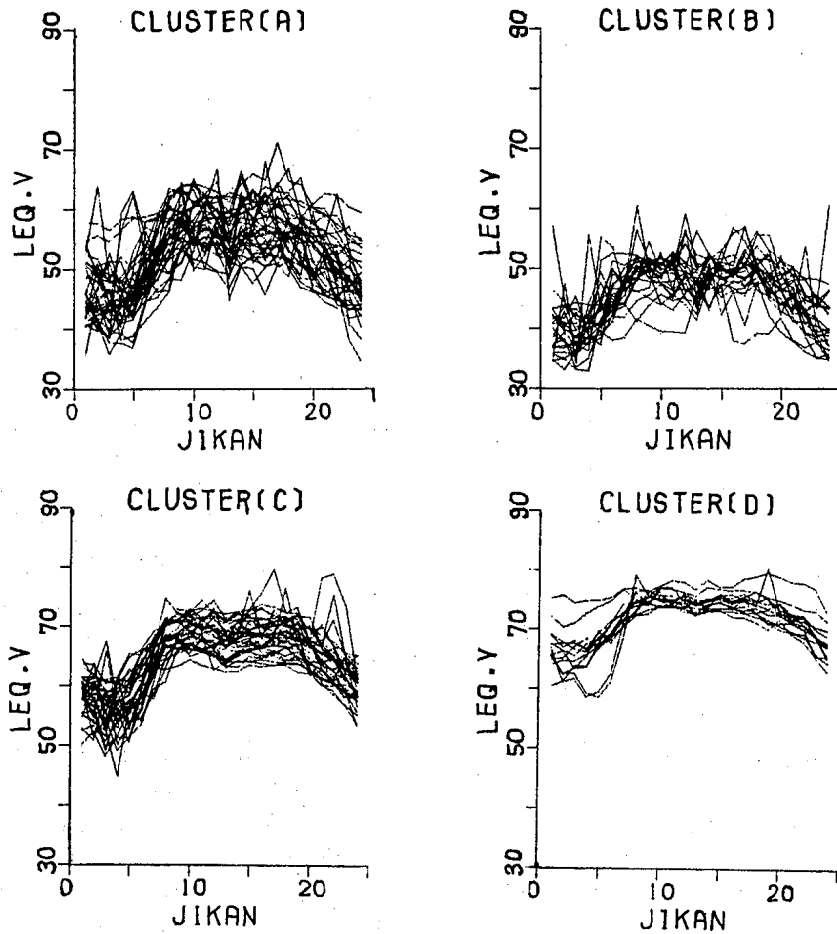


図2 各クラスターの日変化パターン

3. 数量化Ⅲ類による環境要因の考察

日変化パターンをクラスター分析により4分類した。ここではこのパターンの違いをもたらす環境要因について検討を行う。

最初に、我々は103ヶ所の騒音測定地点について、実状的土地利用状況として住宅地区、商業地区など9種のカテゴリーに分類した。さらに主たる道路からの距離やその道路の交通量を測定し、表3に示すように5項目の要因を計27種のカテゴリーに分けた。それぞれの地点は5項目の各カテゴリーのどれかに該当させ、各地点の特徴とした。そして、この27種の環境要因とクラスターによる群がどのような関連を持つかを探るため数量化Ⅲ類により分析した。

数量化Ⅲ類は〔個体×カテゴリー〕という行列を考え、各カテゴリーに反応した反応パターンをもとに、異なったパターン同志が個体側およびカテゴリー側の双方とも、最もよく離れるように置きかえる手法である。これにより似たもの同志が互いに近接することになり、一種の分類手法ともいえる。

その結果は図3のとおりであり、各カテゴリーとクラスターの群の布置が得られた。図3は第2、第3固有値(第2固有値は0.602, 第3固有値は0.423)に対応す

表3 環境要因の区分

項目	カテゴリー	
	番号	内容
実状土地利用	1	良好な住宅地
	2	標準的な住宅地
	3	密集住宅地
	4	住宅・店舗混在地区
	5	事務所、店舗地区
	6	中心商業地区
	7	沿線商業地区
	8	準工、工場地区
	9	田畑、山林、その他
道路	10	面さない
	11	1車線
	12	2 "
	13	4 "
建ぺい率	14	0 ~ 10%
	15	10 ~ 20
	16	20 ~ 30
	17	30 ~
主たる道路からの距離	18	0 ~ 10m
	19	10 ~ 20
	20	20 ~ 40
	21	40 ~ 80
	22	80 ~
主たる道路の交通量	23	~ 4千台/日
	24	4 ~ 12
	25	12 ~ 30
	26	30 ~ 60
	27	60 ~

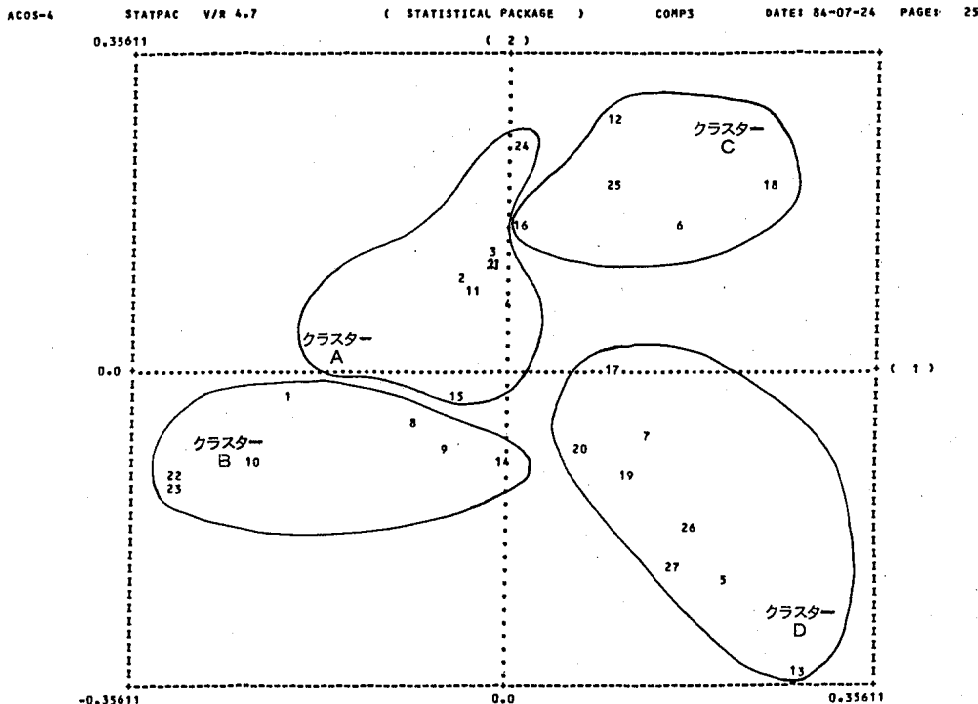


図3 クラスター・カテゴリー間の布置

る固有ベクトルを2次元平面上にプロットしたものである。図中の番号は表3の Kategorie-番号に対応している。図3における Kategorie-の配置をみると、I軸の値の小→大は道路からの距離の大小に反比例していることや、交通量の小→大に対応していることなどより、騒音のうるささの小→大を示していると考えられる。II軸については解釈が困難であった。

表4 クラスタの解釈

要因	A	B	C	D
実状土地利用	標準的な住宅地、密集住宅地、住宅・店舗混在地区	良好な住宅地、準工、準工、工場地区、田畑、山林、その他	中心商業地区	事務所、店舗地区、沿線商業地区
道路	1車線	面さない	2車線	4車線
建ぺい率	10~20%	0~10%	20~30%	30%以上
主たる道路からの距離	40~80m	80m以上	0~10m	10~40m
主たる道路の交通量(千台/日)	4~12	~4	12~30	30以上
総合的解釈	一般的な住宅地のようなところ	近くに道路がなく空地の多いところ	主要道路が走っている地域の中心商業地区	建物が密集した商業地区で、すぐ近くを幹線道路が走っているところ

つぎに各クラスターの特徴を近接する Kategorie-によりまとめたのが表4である。

クラスターDは4車線以上で交通量が多いことから、「建物が密集した商業地区で、すぐ近くを幹線道路が走っているところ」、クラスターCは2車線の道路に面し、その距離も近いことから、「主要道路が走っている地域の中心的商業地区」と言える。さらにクラスターBは実状土地利用や建ぺい率等から、「近くに道路がなく空地の多いところ」であり、クラスターAは「一般的な住宅地のようなところ」と推察される。

4. 判別関数による Kategorie-の寄与

数量化Ⅲ類により各クラスターの群が略説明可能になった。ここでは環境要因について数量的な検討を行う。そのためには各クラスターを最もよく分離する指標(判別関数)を算出することが一つの接近法となる。

判別関数を求めるために外的基準がクラスターの群ということ、説明変数が分類尺度ということから数量化Ⅱ類により分析をした。図4には第1固有値に対する係数等を示す。相関比0.942となり、極めてよく判別されているといえる。偏相関係数やレンジより「主たる道路か

らの距離」が最も大きく寄与しており、つぎに「実状土地利用」や「道路」である。「建ぺい率」についてはその影響は小さい。しかし、「主たる道路の交通量」については Kategorie-・ウェイトが規則的にならなかったのには疑問が残る。今後の検討課題としたい。その他の環境要因については従来の知見とも合致しており、妥当な結果といえる。

図5にサンプルの第1固有値に対する得点の分布状況をクラスター別に示す。クラスターDとA、DとB、CとBは極めてよく分離される。クラスターDとC、CとAもよく分離されるが、クラスターAとBは第1固有値のみでは十分判別されない。第2固有値のサンプルスコアも用いて分離する必要がある。

この結果、測定地点の環境要因を調べることによって図4の Kategorie-・ウェイトからサンプルスコアを求め、どのクラスターに属するか決定できる。クラスターが決まればLdnのレベルと日変化パターンが推測可能となり、環境アセスメント等の予測にも利用できることとなる。

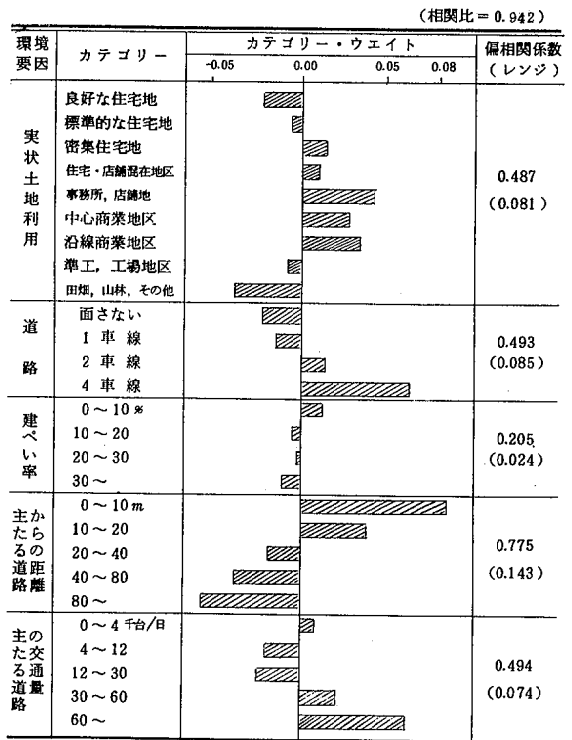


図4 要因分析(数量化Ⅱ類による)

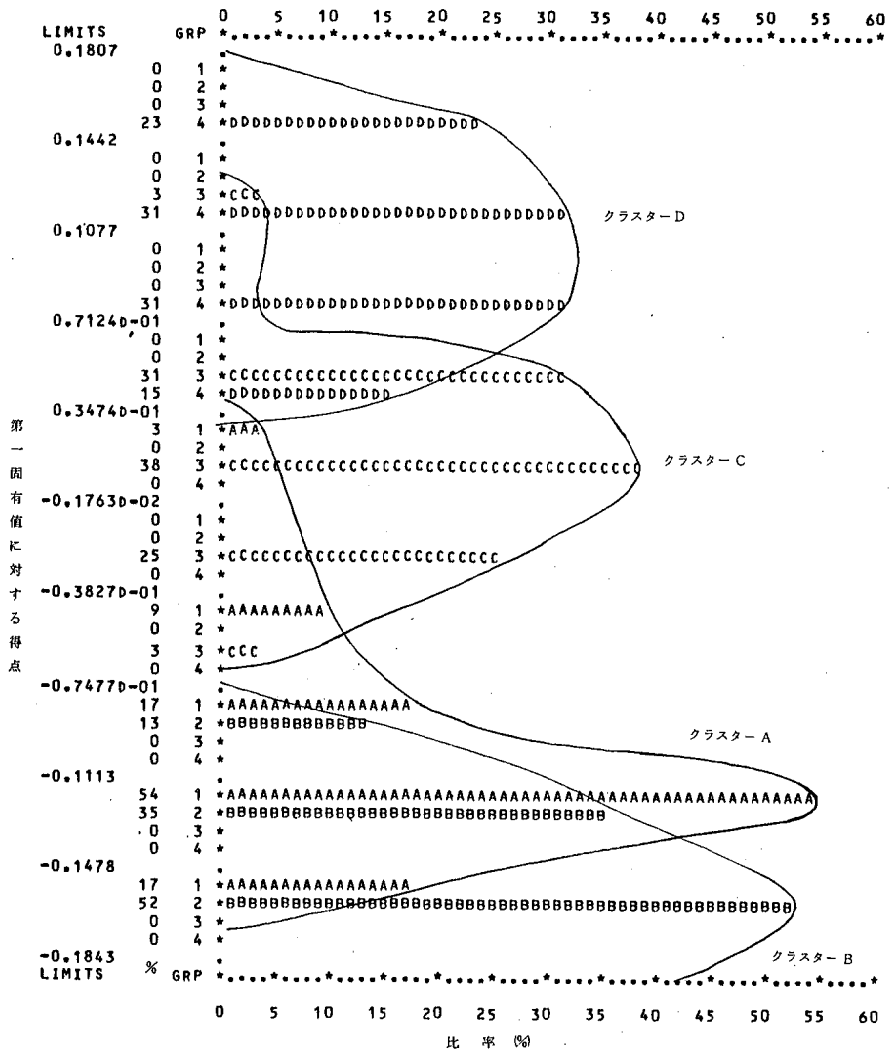


図5 クラスタと第1固有値に対するサンプルスコアの分布

5. クラスタとLdn 保全水準の適合状況

ここでは個体である騒音測定地点の地域類型とクラスタの関係を考察する。

クラスタ毎に地域類型別のLdnの実測値と保全水準との適合状況をみたのが表5.1である。クラスタ-Dは全て「道路に面する地域」で、4車線に面しているのが10地点、2車線に面しているのが3地点であり、さらに地域類型Bということより人間活動の盛んな地域といえる。このためLdn保全水準との適合率はかなり悪く、1地点(7.7%)のみ合格であった。クラスタ-Cもほとんどが「道路に面する地域」で、地域類型Bに指定されている地点の適合率は60%(9/15)であるが地域類型Aの地点は全て不適合であった。

表5.1 地域類型とクラスタ (Ldn保全水準との比較)

クラスタの項目	地域類型	Ldn保全水準	地点総数	適合地点数	適合率 (%)	
クラスタ-A	A	55 ^{dB}	19	4	21.1	45.7
	B	65	5	5	100.0	
	A 2	60	8	4	50.0	
	B 2	70	3	3	100.0	
クラスタ-B	A	55	19	17	89.5	91.3
	B	65	3	3	100.0	
	A 2	60	1	1	100.0	
クラスタ-C	B	65	1	0	0.0	28.1
	A 2	60	15	0	0.0	
	A 4	65	1	0	0.0	
	B 2	70	10	4	40.0	
クラスタ-D	B 4	75	5	5	100.0	7.7
	B 2	70	3	0	0.0	
	B 4	75	10	1	10.0	

表 5.2 地域類型とLdn 保全水準

項目 地域類型	Ldn保全 水 準	適合地点数	地点数	適合率
A	55 dB	21	38	55.3%
B	65	8	9	88.9
A 2	60	5	24	20.8
A 4	65	0	1	0.0
B 2	70	7	16	43.8
B 4	75	6	15	40.0
合 計		47	103	45.6

クラスターAとBは一般の地域に該当する地域が多く、クラスターBの地点は91%の適合率でかなりよく適合しているが、クラスターAのうち、とくに地域類型Aである住宅団地のような地域での適合率が21% (4/19) とかなり悪いのが目立った。

地域類型別の適合状況を表 5.2 に示す。総適合率は46%であり、まだ満足すべき状態とはいえない。一般の地域である地域類型Aについては適合率が55%と低くなっている。

6. まとめ

(1) 騒音レベルの評価量は種々あるが、本県においてはLdnに着目し環境管理計画の中で環境保全水準として採用している。

Ldnはレベルの日変化パターンに依存しており、日変化パターンを考慮した分析が必要である。そこで環境騒音の測定を103地点について実施し、それぞれの地点の騒音レベルの日変化状況をグラフ化した。この日変化パターンを分析するのにクラスター分析の階層的手法(ウォード法)を用い、103地点を4つのクラスターに集約した。

(2) 環境騒音の予測を考える場合に、環境という多種多様な特徴と性質をもつ対象をいかに抽象化するかということが重要となる。騒音のレベルを予測するという観点

にたつて、環境要因として「実状土地利用」、「道路」、「主たる道路からの距離」、「主たる道路の交通量」、「建ぺい率」の5要因を27の категорияに分類した。これらのcategoryとクラスターを数量化Ⅲ類により分析したところ、その配置がえられ、各クラスターの特徴がcategoryによって説明可能になった。

(3) 数量化Ⅱ類により各クラスターを分離する判別関数を求めたところ、5要因の中で「主たる道路からの距離」の寄与が大であった。つぎに「実状土地利用」、「道路」の寄与が大きく、「建ぺい率」は寄与が小さかった。「主たる道路の交通量」については従来の知見と異なった結果になり、その原因について再検討を要すると思われる。

(4) クラスターと地域類型もほぼ妥当な対応であった。Ldn保全水準との適合状況についてはクラスターDの適合率がかなり悪く10%弱であった。全体の適合率は46%であったが、一般の地域の地域類型Aの地点には寄与の大きい発生源がないにもかかわらず、不適合地点が多くLdn保全水準の設定値も含め、より詳細な検討を要すると思われる。

参 考 文 献

- 1) 橘 秀樹：“騒音の伝搬性状に関する実験研究”「環境科学」研究報告, B 71 R 15-1 (1980)
- 2) 武田一哉 他：日本音響学会講演論文集, 467 (1983)
- 3) 大隈 昇：“クラスター分析はどう使われるか”, 数理科学, 26, 190 (1979)
- 4) 矢島敬二：“クラスター・アナリシス(4)”オペレーションズ・リサーチ, 60, No. 10 (1971)
- 5) 奥野 他：多変量解析法, 日科技連 (1971)
- 6) 日本電気：統計解析システム説明書
- 7) 日本電気：クラスター分析システム説明書

5 昭和58年度日本脳炎疫学調査

一 宮城県におけるコガタアカイエカの発生消長と屠場豚におけるH1抗体の動向 一

山本 仁 佐久間 隆 遠藤 好喜*

1. 序 文

国内の日本脳炎患者発生数は、1960年代の終り頃から著明な減少傾向をたどり、長く低流行の時代が続いた。この間1977年には、全国の確認患者が5人(死亡者0)にまで減少している。長期に及ぶ日本脳炎の低流行を説明すべく種々の仮説が提唱されたが、最も大きな要因の1つがコガタアカイエカ発生個体数の減少にあることは、研究者達のはぼ一致した見解であった。

しかるに1978年から、国内では日本脳炎患者発生の復活傾向が明らかとなり、特に1982年以降は従来患者発生が極めて稀であった関東以北の地域からも、連続して患者が発生するようになったことは、注目すべき現象と思われた。またこの数年間の調査成績を検討すると、近畿地方や北陸地方ではコガタアカイエカの発生個体数が、低流行時代の数倍から十数倍のレベルにまで増加し、発生のピークも6月から7月・8月へと移行していることが明らかにされている。しかもこれらの地域で採取されたコガタアカイエカは、有機リン系殺虫剤に対して、標準株に比較し数千倍から数万倍の抵抗比を示すという。日本脳炎の発生要因に何等かの変化が起りつつあることは間違いなさそうである。

宮城県では1967年の10名を最後にして、その後は1人の確認患者も発生していない。しかし私達は、日本脳炎が最も重篤な人畜共通感染症の1つであり、宮城県は流行のはぼ北限に位置するとの認識に立ち、毎年県内の日本脳炎ウイルスの活動状況を、ウイルスの媒介者であるコガタアカイエカと増幅者であるブタの両面から追跡調査している。

2. コガタアカイエカの発生消長

2.1 調査方法

コガタアカイエカ発生消長の調査地点は、従来どおり名取市下余田地区のH氏宅豚舎とした。水田に面した3欄の豚舎には約30頭の繁殖用親豚が飼育されており、調査期間を通して次々と仔豚が誕生していた。最南端の豚舎の軒下約1.5mの高さに、ノザワ式NH-5型捕虫器

(NEC社製BL-6Wブラックライト1灯使用)を設置し、午後6時から翌朝6時まで運転し蚊の採取を行った。ライトトラップの運転は、原則として週2夜(火曜日と木曜日)実施した。

2.2 調査成績

2.2.1 蚊の採取は、7月19日に開始し9月28日に終了した。

2.2.2 この調査期間中に、7月4回、8月9回、9月8回の合計21回、蚊の採取を行った。

2.2.3 全調査期間中に採取された蚊の個体数を調査日毎、種類毎にまとめて表1に示した。(次ページ)

2.2.4 コガタアカイエカの発生消長を、週毎の変化として(各週2回採取の平均値)図1に示した。

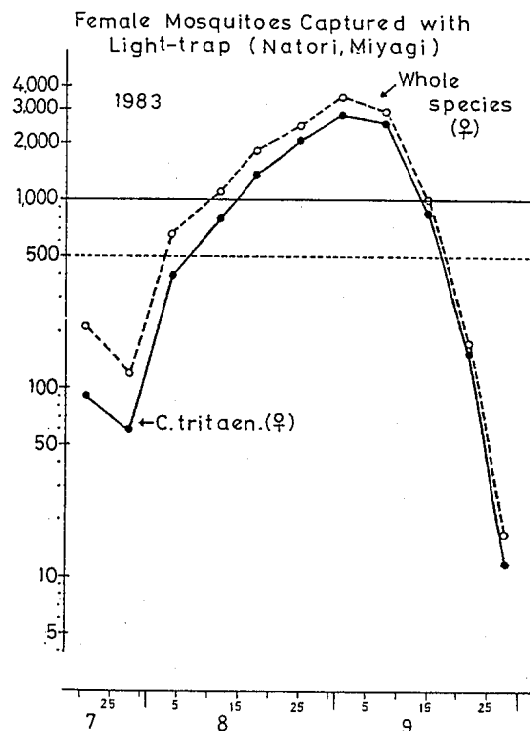


図1 週別雌蚊採取数

2.2.5 全調査期間中の28,218匹(雄蚊213匹を含む)の蚊が採取されたが、その種類構成を表2に示した。

* 現・気仙沼保健所

表2. 1983年採取蚊の内訳

<Female Mosquitoes>

1983年 Natori; Miyagi Prefecture

	7月 (4回)	8月 (9回)	9月 (8回)	合計 (21回)
Culex tritaen	301	12,746	9,259	22,306
Culex pipiens	153	696	528	1,377
Aedes vexans	9	25	15	49
Anopheles sinen.	191	3,061	1,008	4,260
Armigeres subal.	2	0	8	10
others	3	0	0	3
Total (Whole species)	659	16,528	10,818	28,005

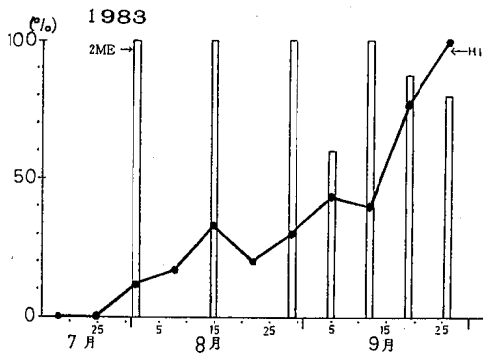
3. 屠場豚におけるH I 抗体の動向

3.1 調査方法

本年度もこれまでと同様に、岩沼市営屠場を調査地点とした。同屠場に近隣市町村の飼育業者が搬入した生後6ヶ月未満の肥育豚を対象に、頸動脈から採血し分離した血清を検体とした。日本脳炎H I 抗体の測定はほぼ予研法に準拠して行い、市販のJaGAR # 01 抗原を使用した。なお40倍以上のH I 抗体価を示した検体については2-ME処理を実施して、H I 抗体価が3管以上低下したものを2-ME感受性抗体と判定した。

3.2 調査結果

- a) 屠場豚のH I 抗体動向調査は、7月18日に開始し9月26日に終了した。
- b) この調査期間中に7月2回、8月5回、9月4回の計11回検体採取を行い、のべ326件の血清を入手した。
- c) 調査日毎の検査結果即ち、H I 抗体保有状況の推移と2-ME感受性抗体の出現状況を図2に示した。



採取月日	7/18	25	8/1	8	15	22	29	9/5	12	19	26
検体数	30	30	26	30	30	30	30	30	30	30	30
H I 陽性 %	0	0	3 (11.5)	5 (16.7)	10 (33.3)	6 (20.0)	9 (30.0)	13 (43.3)	12 (40.0)	23 (76.7)	30 (100.0)
2ME陽性 %	-	-	1/1 (100.0)	-	5/5 (100.0)	-	1/1 (100.0)	3/5 (60.0)	7/7 (100.0)	14/16 (87.5)	20/25 (80.0)

図2 屠場豚における抗体の動向

4. 結果の考察

私達は屠場豚のH I 抗体動向調査は1965年から、またコガタアカイエカの発生消長調査は1970年から、いづれも同一調査地点で、しかも可能なかぎり同一の方法で実施してきた。少なくとも宮城県内の成績については各年度間の比較が可能なものと考えている。宮城県における最近10年間の調査成績を表3に示した。図3は仙台管区気象台で観測された気温を、半月気温偏差としてまとめたものである。

昭和58年度は、コガタアカイエカの発生個体数が多く、屠場豚のH I 抗体保有率も8月上旬には上昇しはじめた。しかし、ブタの抗体保有率が50%以上に達したのは9月中旬と遅く、これは8月中旬から下旬にかけての低温が夜間にコガタアカイエカの活動を抑制した結果と考えられる。

現在の社会環境を考えると、国内である年突如として1,000人を越える日本脳炎患者が発生するとは考え難い。幸い宮城県は日本脳炎流行のほぼ北限に位置することから、九州地方など流行が先行する地域の情勢を見極めながら対策を講ずることが可能である。日本脳炎ウイルスの媒介者であるコガタアカイエカや増幅動物であるブタなど、日本脳炎流行に影響を及ぼすと考えられる諸要因については、今後も継続的に監視していくことは重要であるが、各人がワクチンにより基礎免疫を確立しておいて、緊急時における追加免疫の効果が充分発揮できるよう準備しておくことが必要であろう。

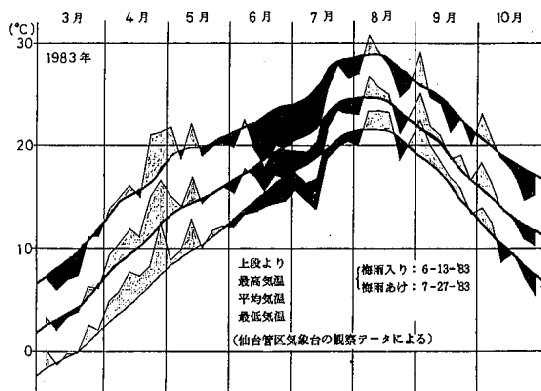


図3 半月気温偏差 (仙台市)

表3 宮城県における日本脳炎の調査成績

年	雌蚊採取数(7~9月)		ブタ血中H I 抗体		全国のヒト感染	
	全 種	コガタアカイエカ	50%到達	最高陽性率	確認患者	死者(再掲)
1974	15,552	5,658	—	30%	6	2
75	33,228	19,624	9-中旬	73	27	6
76	14,885	3,218	—	0	13	9
77	11,060	5,518	—	17	5	0
78	33,979	24,176	8-下旬	100	88	21
79	8,836	3,376	—	43	86	26
80	7,307	1,013	—	3	40	15
81	3,201	517	—	7	23	5
82	21,597	16,360	8-下旬	100	21	4
83	28,005	22,306	9-中旬	100	31	8

6 ポリオ生ワクチン投与後の中和抗体の推移 (同一個人を7年間追跡調査した成績から)

— 第I報 集団免疫の立場から —

梅津 幸司 山本 仁 沖村 容子
秋山 和夫 新妻 沢夫 小室 健一*
白取 剛彦** 今野 二郎***

1. はじめに

多ヶ谷らは¹⁾1961年から開始された日本でのポリオ生ワクチンの一斉投与が奏功し、国内からポリオの野生株ウイルスは駆逐されたと報告した。

即ち、1962年以降に国内で分離されたポリオウイルスの殆んどすべては、ワクチンに由来したと考えられるウイルスで、唯一、1980年長野県で分離されたI型ウイルス²⁾(由来不明)が野生株と同定されただけである。

しかし、一步国外に目を転ずれば、1982年の台湾におけるI型ポリオの激しい流行や、インドをはじめとして近隣の東南アジア諸国等に未だポリオの大きな発生が見られ³⁾、しかもこれらの国々の生ワクチンの投与率は低いと云う⁴⁾。

さて、ポリオの発病阻止、流行撲滅はワクチンの投与によってなされる。日本における生ワクチン投与率は最近でも80~90%を維持してはいる。しかし、生ワクチン投与によって獲得された抗体のうち、I、III型ウイルスに対する抗体の低下、“中だるみ”のある事が指摘されその推移が注目される。我々は1967年から1973年までの7年間生ワクチン投与の明確な60名の小児を毎年採血し追跡調査した。更にこれ等の調査対象について、改めて同一実験系でポリオウイルスに対する中和抗体の推移を調査したので、その概要を集団免疫の観点からの解析と抗体の消長の観点からの解析とに分けて報告する。

2. 材料と方法

2.1 調査対象

宮城県丸森町に居住する小児で1964年から1966年までの間に3混生ポリオワクチン(Sabin)の投与を受けたもののうち、1967年から1973年まで連続して血清の揃っていた60名を対象とした。

被検者からの採血は毎年夏期に行ったが、その期日は年度毎に若干異っている。なお血清は-20℃に保存した。

2.2 使用ウイルス株

中和抗体の測定に用いたウイルスは、I型Mahoney II型MEF-I、III型Sukettの各ウイルス株である。原ウイルスの力価はI型 $10^{7.7}$ TCID₅₀/ml、II型 $10^{7.8}$ 、III型 $10^{7.5}$ であった。今回の試験にはすべて同一ロットのウイルスを使用した。

2.3 使用細胞

Vero細胞を使用した。細胞培養液は10%牛血清加MEM、細胞維持液は血清を加えないMEM培地を使用した。

細胞は培養第2日目に維持液で液交換し培養第3日目に使用した。

2.4 中和抗体測定法

「伝染病流行予測調査実施要領」(厚生省)に準じ、トランスファープレートを用いたマイクロタイター法により実施した。血清の希釈は血清を加えないMEM培地で1:2倍から1:256倍まで行い、同量のウイルス液を加えた後37℃3時間、4℃一夜反応させてから細胞に接種し、最終判定は接種後5日目に行った。

今回の試験は同一人の血清を採血年度順にならべ、3つのウイルスに対する抗体を同時に同一条件下で測定した。又、ウイルスの力価が30~300TCID₅₀/0.025及び陽性標準血清(国立予防衛生研究所から分与)が所定の力価を示さなかった場合の成績はすべて破棄し再試験を行った。

3. 成績

3.1 被検者のワクチン投与歴

被検者60名は、1964年から1966年までにSabinの3混生ワクチンの投与を終了していた。生ワクチン投与終了時の年齢は1964年投与終了者(以下投与群)は満2才までに、1965、1966年投与群は満1才までに投与を終了した(図1)。

今回の調査対象者中にSalkワクチン接種者は存在しなかった。又、調査途中で生ワクチンの再投与を受けたものも存在しなかった。

*現 宮城県環境調整課 ** 宮城県総合衛生学院
***宮城県保健環境部

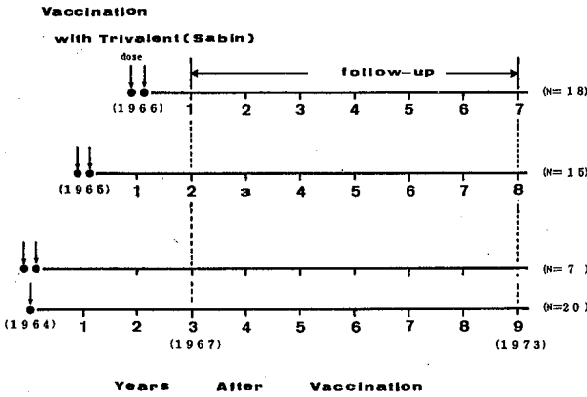


図1 被検者のワクチン歴と生ワクチン投与後の経過年数 (Sabin三混生ワクチン)

被検者の採血は1967年から開始されたので、1964年投与群は生ワクチン投与後3年目から、1965年投与群は2年目、1966年投与群は生ワクチン投与後1年目以後の抗体を調査した事になる。

3.2 平均中和抗体価

図2は全被検者の中和抗体価の幾可平均値を示したものである。I型とIII型はほぼ同様な抗体価と経年変化している。しかしII型ではそれらに比し約4倍高い抗体レベルである。又、抗体価の経年的な低下はIII型で特に著しく、調査初年度の平均抗体価が、 $II > III > I$ であったのが最終年度では、 $II > I > III$ となった。

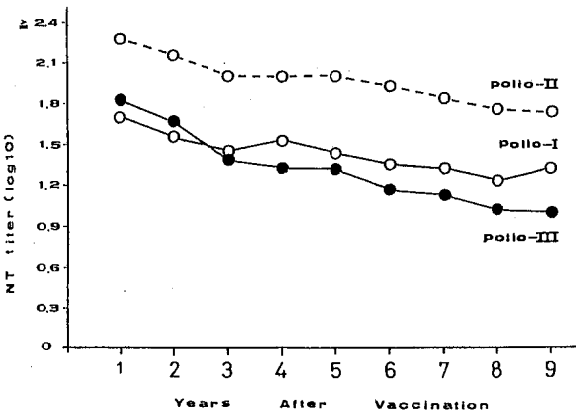


図2 ポリオ型別中和抗体価の推移 (幾可平均値)

3.3 抗体価の分布 (図3)

I型では抗体価分布の巾が広く個人毎の抗体価にバラツキが見られる。経年的にはゆるやかな低下傾向を示す。III型でも全体的にはI型と似た分布を示すが低下傾向はより著明である。これらに比しII型は殆んど個体が16倍以上の抗体価を示し、分布の中もせまく低下傾向も殆

んど見られない。

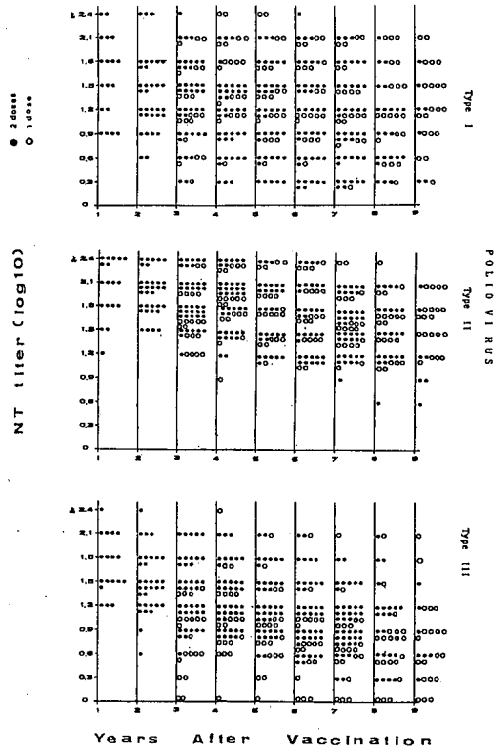


図3 ポリオウイルスに対する中和抗体価の度数分布

3.4 生ワクチン投与回数と抗体価 (図4)

1964年投与群について生ワクチン投与回数と平均抗体価を比較した。II型抗体価は1回、2回投与群とも殆んど同じ抗体価レベルと経年変化を示した。しかし、I、III型を生ワクチンの投与回数により比較すると2回投与群では両型とも同様な抗体レベルと変化を示すものの、III型の1回投与群では2回投与群より獲得する抗体価が約1/4低かった。1965、1966年投与群(2回投与)のI、III型と変化は1964年の2回群と同様であった。

又、1964年1回投与群で、生ワクチン投与後の経過年数3年目と4年目との間で、抗体価の全体的な上昇が認められた。

4. 考 察

ワクチン接種により獲得された抗体の消長と予防効果は、その疾病を予測する上から不可欠で重要な問題である。しかし、特に抗体の推移に関しては実際の調査に要する膨大な時間、労力、費用などの制約のため、連続的な変化を追跡した成績は少ない。

最近、西屋⁶⁾らは10年間に亘るポリオの血清学的調査を報告している。その他、抗体の消長についての報告は多

(Vaccination with Trivalent, Sabin)

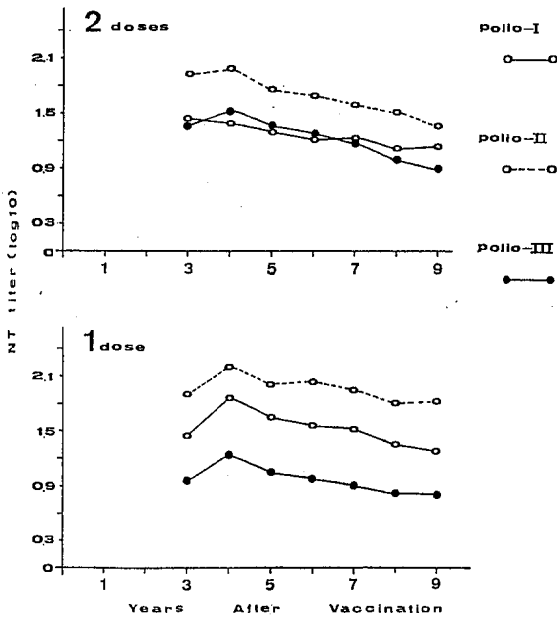


図4 生ワクチンの投与回数と型別中和抗体価

7)8)9) が見られる。

しかし、これらの多くは3ないし4年の所謂「断面調査」であり抗体の連続的な変化を把握すると云う意味では充分とは云いにくい。

今回の我々の報告は「抗体の変化を個体レベルで長期的かつ、連続的に追跡」した点に意義があるものと考えられる。

さて日本に於るSabinの3種生ワクチンによるMass-Vaccination は、1961年から始¹⁾められ劇的な効果をおさめた。これにともなう多ヶ谷らの「野生株ウイルス根絶宣言」は日本におけるポリオサーベイランスのウイルス(抗原)側からの結論といえよう。

一方、抗体側からの調査を連続的に行われており、⁵⁾最近の知見から抗体の持続性について問題が提起されている。即ちI、III型に対する抗体陰性率の上昇である。

この事実は、今回の我々の調査からも裏付けられた。先ず、今回の調査成績を全体的に見るとII型に対する抗体の上昇性、持続性は満足すべきものであり、I型とIII型が互いに同じような抗体価レベル、持続性を示すとは明らかに異っている。各ウイルス毎に検討すると特にIII型について、2、3の問題が指摘される。

1つは抗体の持続性の問題である。図3に示すように度数分布は抗体価の低い方に片寄り、しかも平均値付近の低下傾向は一見して明らかである。

次に他の型と比較して、生ワクチン投与回数により、抗体

価の有意差のある事である。即ち、生ワクチン1回群は2回群より約4倍低い抗体しか獲得出来ない事⁵⁾実で、takeの問題と共に生ワクチン投与のdoseの重要性と、3混生ワクチン使用のむずかしさを指摘出来る。国内における陰転率⁵⁾を見てもIII>I>II型とIII型の陰転率が最も大きい。これは抗体低下速度と合せて、ワクチンを1回しか受けていない群の抗体の低さがこの現象に大いに係っているものと思われる。これは、図2に示した全体的な成績にも影響しているであろう。

1964年1回接種群の経年3と経年4との間で抗体価の上昇が認められた。しかし、他の群には認められてはいないし、再試験でも同様の成績であったので、何等かの抗原刺激を受けたと推定されるが、詳細は不明である。

さて、先にも述べた様に日本に於ては、I、III型の抗体の“中だるみ”が指摘されている。今回の調査でもI、III型の抗体の低下速度がII型のそれより大きい事が明らかになっている。一方、今回の試験で検出された抗体は“Sabinの3混生ワクチン投与”により獲得された抗体と考えられる。その理由は1962年以降、国内で野生株ポリオが分離されなかった事、1964年投与群の出生もこの年以降である事などである。この事は現在のように“自然免疫”が全く期待出来ない環境では、集団免疫の立場から重要な事ではなからうか。

加齢と共に上昇して来た従来の抗体保有のパターンはくずれ、“中だるみ”の年齢層も広がって行くのではないかと考えられる。

さて7ヶ年間のfollow-upを集団として見て来た。各型毎に見ればII型に対する抗体の持続性は良好であったが、I、III型について2、3の問題を指摘した。

Mass Vaccinationの初期に生ワクチンの投与を受けた人達は現在まで約20年を経過している。近隣諸国の状況を考えると“ポリオ”をもう一度考えてみる時期を迎えているのではないだろうか。

5. ま と め

1964年から1966年までにSabinの3混生ワクチンの投与を受けた60名の同一の小児について、1967年から1973年まで連続して採血した血清について改めて同一実験系で中和抗体を測定し解析した。

- ① II型ウイルスに対する抗体の上昇性、持続性は良好であった。
- ② 調査初年度の全体の平均抗体価はII>III>Iであったが最終年度にはII>I>IIIの順になった。
- ③ III型抗体でワクチン1回投与者は2回投与者より約1/4低い抗体価しか獲得出来なかった。

参 考 文 献

- 1) Tagaya I. et al : Bull WHO 48, 547~554 (1973)
- 2) 原稔他 : 臨床とウイルス 9, 122~126, (1981)
- 3) MMWR : Vol 31, No 36 383~386, (1982)
- 4) 甲野禮作 : 臨床とウイルス 11, 230~232 (1983)
- 5) 伝染病流行予測調査, 厚生省 昭和57年12月
- 6) Nishio. O. et al : J. Biological Standarization 12, 1~10 (1984)
- 7) Cabasso J. V. et al : J. Pediat 68 199~203 (1966)
- 8) Örstavik I. et al : Acta Paediat Scand 59, 536~538 (1970)
- 9) Casorio T. C. et et : Am J. Epid 90, 15~161 (1969)

ア ポリオ生ワクチン投与後の中和抗体の推移 (同一個人を7年間追跡調査した成績から)

一 第Ⅱ報 個体としての抗体の変化と推定抗体曲線一

梅津 幸司 山本 仁 沖村 容子
秋山 和夫 新妻 沢夫 小室 健一*
白取 剛彦** 今野 二郎***

1. はじめに

我々は第Ⅰ報でポリオ生ワクチン投与後の抗体の推移を「集団」としてとらえ、その変化を解析して報告した。第Ⅱ報では個々人の抗体変化のパターン、推定抗体曲線等について解析した。

2. 材料及び方法

2.1 調査対象及び実験方法

すでに第一報で報告したものと同一である。

2.2 抗体曲線の推定

2倍階段希釈した血清の希釈倍率の逆数を10の指数に変換した数値を元に、通常の直線回帰式により算出した。但し、個々人の抗体の変化が非常に不規則な例は除外し、

算出に用いた母数はⅠ型252(36 persons)Ⅱ型273(39 persons)Ⅲ型252(36 persons)であった。

3. 結 果

3.1 個々人の抗体変動パターン

3.1.1 調査初年度で抗体を検出できなかった例はⅠ型1例(1964年生ワク2回投与者)とⅢ型1例(1964年生ワク投与者)の計2例であった。

3.1.2 調査途中で抗体価が1:2倍未満となった例はⅠ型2例(共に1966年生ワク2回)Ⅲ型4例(1964年生ワク1回3名, 1964年生ワク2回1名)計6例でⅡ型には見られなかった。

3.1.3 調査途中で抗原刺激を受けたと考えられる例はⅠ型16, Ⅱ型14, Ⅲ型14例であったが(図1), 1964

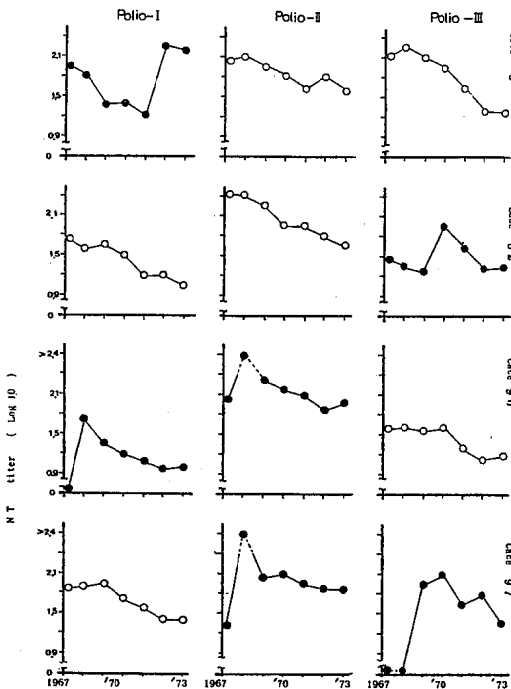


図1 抗原刺激を受けたと考えられる例 (●)

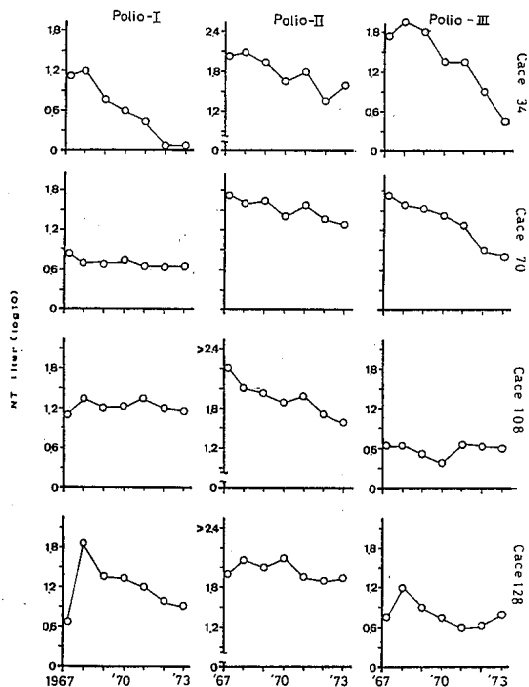


図2 個人における中和抗体価の変動のパターン

* 現宮城県環境調整課

** 宮城県総合衛生学院

*** 宮城県保健環境部

年1回投与者が1967年から翌1968年までの間に受けたと考えられる例はI型9, II型9, III型10で, 他の投与群では各年に数例見られるだけであった。

3.1.4 個人々人, ウイルス型による抗体の減少傾向を調査したが, 特定の個人, ウイルス型による抗体価の減

少傾向に差は見られなかった(図2)。即ちCase 70のように1:8倍のI型抗体価を7年以上保持する例やCase 34のIII型に対する抗体価のように約1:120倍の抗体価が6ケ年で約1:2倍に低下する例などが見られる。

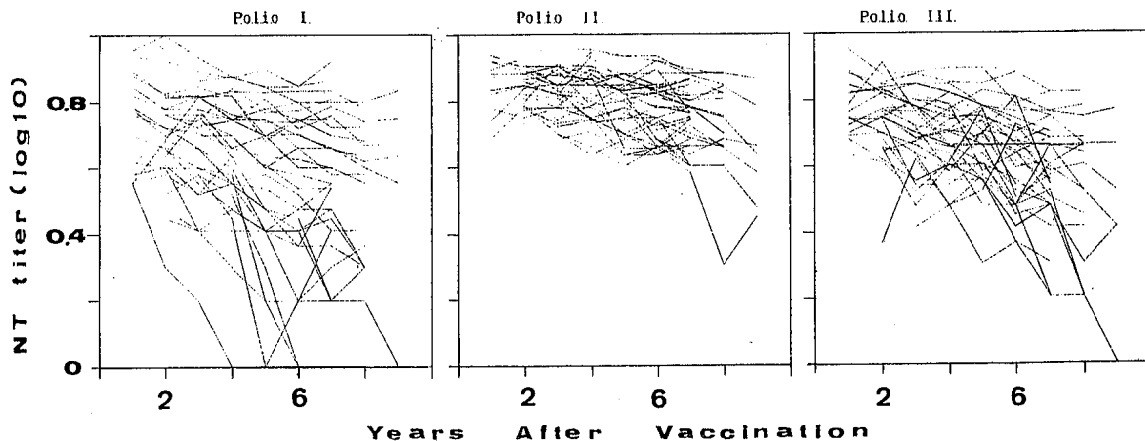


図3 個人々人の中和抗体曲線

3.2 推定抗体曲線

図4に推定抗体曲線を示した。各式は, I型は $Y = 10^{0.7605 - 0.036x}$ ($R = 0.3251$) II型 $Y = 10^{0.8921 - 0.0205x}$ ($R = 0.4546$), III型 $Y = 10^{0.8157 - 0.0339x}$ ($R = 0.4825$)

と計算され, いずれも1%の危険率で有意であった。この結果から, I型抗体価は約20年, II型は約40年, III型の抗体は約25年持続すると計算された。

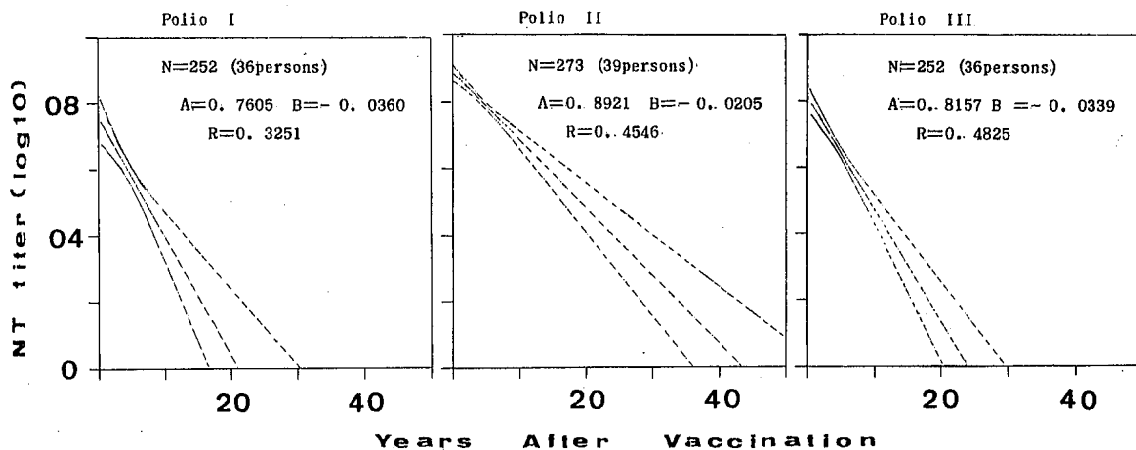


図4 生ポリオワクチン(Sabin)投与後の推定中和抗体曲線

4. 考 察

調査対象となった丸森町は宮城県南端に位置し, 四方を山にかこまれた盆地で, 環境的には比較的閉鎖的な農村であるが, 衛生思想も十分に普及しており, 抗体の

消長を調査するには良いモデル地区ではないかと考えている。

さて, Mass Vaccinationでポリオを撲滅した国のうちで, 日本はポリオの発生率の最も少ない国の一つである¹⁾とされている。これは, Batchとdoseによるの

であろうか。

今回の7ケ年間の追跡調査期間で注目される事は先ず生ワクチンによる抗体陽転率の良きで、I、III型に1例ずつ陰性者があるだけであった。従来、日本では2回投与者でもI、III型で20~30%前後の陰性者²⁾³⁾が存在しており、以前から指摘されていた。

次に、7ケ年間の follow-up でBooster効果の存在が観察された事である。I型で16、II型で14、III型で14例が認められ、その半数以上が1967年から1968年までの間にワクチン投与1回者のみに集中していた。これまで、生ワクチン投与者への波及効果⁴⁾のない事は種々の調査²⁾⁴⁾で証明されている。しかし、総個体数420名の約3%前後に何等から抗原刺激のある事が明らかになった。しかし、その年次が集中していた事に対し、言及出来る資料は今は何も無い。

次に、個体の抗体の動きをプロットしてみると種々の変化のある事がわかり、個人の防御のためにも集団免疫の重要性を印象づけられた。(図3)

さて、抗体の推移を長期的に予測する事が今回の調査の最終目的であった。その結果、I、III型は約20年前後II型は40年以上も抗体を保有していると試算された。

この値は7ケ年間に約3%前後の自然免疫獲得者の存在を加味しても、前報で述べた“抗体の中だるみ”など陰性率の上昇等と比較して、大きくへだたった値ではなく、今回の調査で知りえた妥当な値であろう。

しかし、dataとしては示さなかったが、個々人の抗体を直線回帰に載せて検討した時、当然抗体の高い個人の抗体低下傾向が大きく、抗体価の低い人の低下速度が

小さい印象を受けたが有意差はなかった。又、個人の抗体変動パターンも種々であることが明らかになった。

現在、日本でのポリオ生ワクチンの投与は、3混を2回受ける事になっている。その結果は言を待たない。最近、長野県で分離されたI型野生株ウイルスが、一人の患者発生にとどまった事はその一つの効果であろう。

しかし、Mass Vaccination開始後すでに20年を過ぎ、I、III型抗体の“中だるみ”が指摘されている。又、今回我々はI、III型の抗体の持続を約20~25年と試算した。doseの問題を再考すべきかもしれない。

多ヶ谷らのポリオ生ワクチンの予防効果⁵⁾についての報告が出されて久しい。

一方に抗体の持続性の問題が残されていた。今回の報告がこの問題に何等かの示唆を与えれば幸いである。

終りに、本調査にご協力いただいた丸森町の方々、保健所の各位、又、種々のご助言をいただいた国立予防衛生研究所、宮村紀久子室長を始め関係者の皆様に心から感謝申し上げます。

参 考 文 献

- 1) 多ヶ谷勇他：日医新誌No. 26, 59, 31~34, 昭和50年
- 2) 伝染病流行予測調査報告書, 厚生省 昭和57年12月
- 3) ポリオ生ワクチンの研究報告IV:弱毒生ポリオワクチン研究協議会報告 1963. 3
- 4) Sabin AB: Am. J. Clin Pathol 70, 136, (1978)
- 5) 原 稔他: 臨床とウイルス 9, 122~126, (1981)
- 6) Tagaya, I. et al; Bull WHO 48, 547~554, (1973)

8 インフルエンザウイルスのStreptococcus B群に対する吸着現象の解明

(第2報, アガラクチンの精製とその物理化学的性状)

助野 典義 山本 仁

1. はじめに

細菌が特定の血清蛋白やウイルスに吸着するということが最近多数報告されている。¹⁾²⁾³⁾⁴⁾⁵⁾我々は第1報でB型インフルエンザウイルスがB群溶連菌に特異的に吸着し、しかもその吸着は細菌々体の多糖とインフルエンザウイルスの凝集素(HA)が化学結合して起きる現象であること、さらにこの結合には通常インフルエンザウイルスと赤血球の吸着でみられるようなシアル酸は関与していないことなどを報告した。⁶⁾そこで今回は、このようなシアル酸が関与しない細菌々体の多糖とインフルエンザウイルスの吸着現象を解明するため、B群溶連菌の菌体より多糖を分離精製した。その純品に対し“アガラクチン”と命名し、その生物活性を調べたところ、このアガラクチンはインフルエンザウイルス(以下ウイルス)の赤血球凝集活性や、溶血活性を抑制するだけでなく、ウイルス培養液に加えることによりウイルスの増殖をも阻止することが判った。

2. 材料と方法

2.1 アガラクチンの精製

溶連菌(Streptococcus BII/18RS21株)を使用し、菌の培地を使用した通常の方法で行った。37℃, 16時間培養後、0.1%のホルマリンを加え、ただちに冷却遠心機にて集菌を行った。菌体は-80℃に保存した。

2.2 酵素処理

プロナーゼ(科研製薬株式会社, アクチナーゼE)による酵素処理は百分の一モルのリン酸緩衝液(PB, pH 7.2)を使用し、N-アセチルムラミダーゼSG(生化学工業株式会社)による酵素処理には百分の一モルのトリス緩衝液(pH 7.0)を使用した。その他の酵素の処理には上記濃度のトリス緩衝液を使用し、pHは7.5で行った。

2.3 ゲル内沈降反応

1.0%の濃度のアガロースを使用し、マイクロオクタービー法で行った。

2.4 赤血球凝集抑制試験(HAI)

マイクロプレートを使用し、予研の標準法で行った。

2.5 溶血抑制試験(HLI)

被験検体を上記PB液0.1mlで倍々希釈し、各々の試

験管に0.1mlのウイルス浮遊液を加えた後2.0%の鶏赤血球1.0mlと混合。4℃, 30分間放置後pHを酢酸緩衝液にて5.0に調整し37℃, 60分反応させその遠心上清を540nmの吸光度で測定し、溶血率で表わした。

2.6 インフルエンザウイルスの培養と増殖抑制試験

インフルエンザウイルスはB/神奈川/3/76株を使用し、ふ化鶏卵およびMDCK細胞にて増殖を行った。ウイルス増殖抑制試験はウイルスの培養液中に被験検体を加え37℃48時間から72時間培養後、培養液中のHAの有無を測定した。

2.7 アミノ酸分析および元素分析

検体を4N硫酸を使用し、105℃中24時間、48時間、72時間のそれぞれ加水分解した後、日立の自動アミノ酸分析機を使用して測定した。元素分析はマイクロ法による自動元素分析機で行った。

2.8 糖の分析

中性糖の分析には検体を1N塩酸で100℃中4時間加水分解した後、アビセル薄層クロマトグラムで同定した。一部のアルミ糖はアミノ酸自動分析機で同定した。

2.9 B群溶連菌の抗血清

総て東北大・医・中研の山根博士より分与して戴いたプラハの標準抗血清を使用した。

3. 結果

3.1 アガラクチンの精製

-80℃に保存しておいた菌体を室温で解凍した後、遠心上清が透明になるまでHanks液で菌体を洗浄し最後に超遠心機でペレットに菌体を集める。ペレットを超音波処理しHanks液に再浮遊させた後、1%のプロナーゼによる酵素処理を行う。処理後、再び超遠心機で菌体を集め同様にペレットを超音波処理し、トリス緩衝液に再浮遊させた後、N-アセチルムラミダーゼによる酵素処理を行うと菌体は溶菌し粘性の高い液体となる。この液体を超遠心し、その上清に最終濃度80%になるようにエタノールを攪はんしながらゆっくり加えると上清液は白濁してくる。この上清液のpHを塩酸で2.0に調整し、-20℃に1時間放置後、冷却遠心で白濁した沈殿を集める。この沈殿をPBに再浮遊させDNaseおよびRNase処理を行った後、セファロースCL-6Bによるカラムクロマトグラフィーを行う(図1)。HAI活性分画を集め再

クロマトを行った後、DEAEセルロフィンによるイオン交換クロマトを行う(図2)。このカラムクロマトではHAI活性が有り、かつUV吸収比(OD. 205/OD.

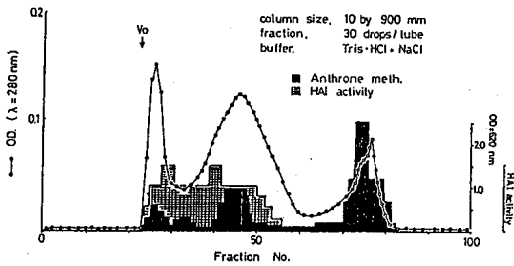


図1 セファローズ CL-6Bによるカラムクロマトグラフィー

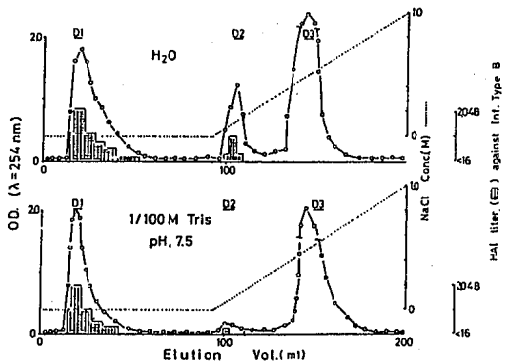


図2 DEAE セルロフィンによるカラムクロマトグラフィー

3.2 アガラクトシンの物理化学的性状

アガラクトシンは10%ないし20%の蛋白を含む糖蛋白である(表1, 2) 蛋白部分のアミノ酸組成は表1に示すようにグルタミン酸, アラニンおよびリジンを多く含んでいた。アガラクトシンに含まれる総蛋白量をアミノ酸分析の結果から計算すると約9%であった。糖組成はガラクトース, ラムノース, ムラミン酸およびヘキソサミンを多数含むがシアル酸やグルコースは含まれていなかった。

元素分析の結果, Cは37.01%, Hは6.09%, Nは2.94%であるがSは検出できなかった。蛋白質のN含量を15%とし, 元素分析の結果を基にアガラクトシンの蛋白量を計算すると約19%であった。

紫外外部吸収のスペクトラムをみたが, 吸収のピークはなく, 短波長付近(λ=205)で最大吸収を示し, 0.1%アガラクトシンの205nmにおける吸収は2.2であった。施光度[α]dは-6°, 分子量はゲルろ過法で約30万と推定された。

3.3 酵素処理および化学処理に対する抵抗性

表3に示すように各種の酵素処理や化学処理, または

280)が50以上になるまで必要に応じて再クロマトを行いアガラクトシンの純品を得た(図3)。

- Streptococcus group BII (5L)
 - wash X5 times with Hank's solution
 - ultracentrifuge (30000 rpm, 2 hr)
- Pellet (dry weight 1.84g)
 - sonic (10')
 - pronase digestion (1% X3, 72 hr)
 - ultracentrifuge (30,000 rpm, 2 hr)
- Pellet
 - sonic (10')
 - NACMuramidase digestion (1mg/1.0g dry weight Str. for 16 hr)
 - ultracentrifuge (30,000 rpm, 2 hr)
- Supernatant (liquid solution)
 - 80% Ethanol in 4°C with stirring
 - 20°C strage (adjust pH 2.0)
- White opaque sediment
 - centrifuge (10,000 rpm, 30min)
- Pellet
 - suspend in PB
 - DNase, RNase digestion (37°C over night)
- Sepharose CL-6B column chromatography
- Rechromatography
- DEAE cellulofine chromatography
- Sephacryl S-300 column chromatography
- Purified (Agalactin)

図3 アガラクトシンの精製法

表1 アガラクトシンのアミノ酸残基

Amino Acid	No. *	Amino Acid	No. *
ASP	5.62	MET	0.00
THR	56.92	ILE	0.00
SER	23.86	LEU	0.00
GLU	162.60	TYR	0.00
PRO	0.00	PHE	0.00
GLY	7.22	LYS	148.55
ALA	348.04	HIS	32.73
mCYS	31.35	ARG	5.00
VAL	3.62		

* No. of Amino Acid Residue

表2 アガラクトシンの元素分析

元 素	含有量(%)	元 素	含有量(%)
C	37.01	N	2.94
H	6.09	S	0.00

熱処理に対して強い抵抗性を示し, これらの処理ではアガラクトシンのHAI活性に変化はみられなかった。

表3 酵素処理および化学的処理に対する耐性試験

Treatment	HA inhibitory activity
Glycosidase	resistance
Neuraminidase	"
Peptidase	"
Trypsin	"
Pronase	"
Periodate	"
ConA	"
2 ME (1%)	"
EDTA (100mM)	"
heated (57°C, 30')	"
SDS (1%)	"

3.4 アガラクトシンの抗原性

B群溶連菌の抗血清 (Ia, Ib, II, III, R, X) を使用してアガラクトシンの抗原性をマイクロオクタロニー法でみたのが図4である。中央の円にはアガラクトシンを置き、周囲の円にB群溶連菌の抗血清を置くとB群溶連菌のII型の抗血清に対してのみ明確な沈降線が出現した。

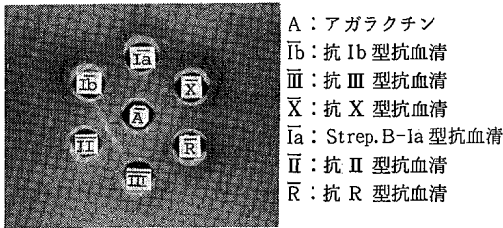


図4 マイクロオクタロニーによるアガラクトシンの検出

3.5 トリ赤血球に対する影響

0.5%トリ血球を種々の濃度のアガラクトシンと混合し4°Cに60分間放置後血球をPBで洗浄する。コントロールとして未洗浄の血球を使用した。結果は図5に示したように未洗浄の血球を使用した場合にはアガラクトシンの濃度が高くなるにつれてHAは抑制されるが、洗浄した血球ではHAの低下はみられなかった。

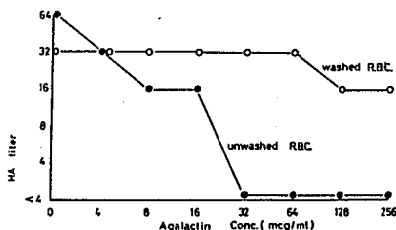


図5 アガラクトシンで前処理をしたトリ血球のウイルス HA価の影響

3.6 インフルエンザウイルスのノイラミダーゼに対する影響

基質にフェチインを使用し、ふ化鶏卵増殖ウイルスやMDCK増殖ウイルスのノイラミダーゼ活性に対するアガラクトシン (1 mg/ml) の作用を調べたのが表4である。ウイルスのノイラミダーゼ活性はアガラクトシンの存在下でもまったく影響を受けていないことが判った。

表4 ウイルスノイラミダーゼに対するアガラクトシンの作用

	ふ化鶏卵ウイルス		MDCKウイルス	
	-	+	-	+
Agalactin	-	+	-	+
O.D. at 549	2.95	2.95	1.73	1.79

3.7 ウイルスの溶血能に対するアガラクトシンの作用

種々の濃度のアガラクトシンとウイルスの混合液に血球を加え4°Cでインキュベートした後溶血系に移し溶血させ、ウイルスの溶血能に対するアガラクトシンの作用をみたのが図6である。アガラクトシン無添加の抑制率を0とした場合、10 ng の濃度のアガラクトシン添加によって溶血は約50%抑制され、40 ng 以上の濃度では、ほぼ完全にウイルスの溶血能を抑制していた。

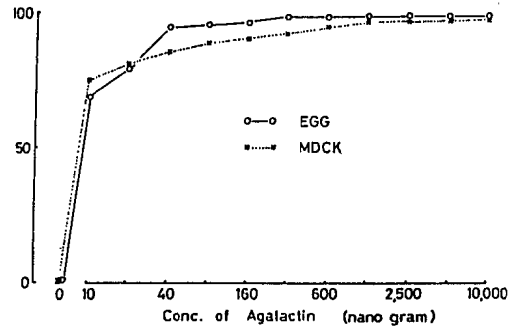


図6 アガラクトシンによる溶血抑制

3.8 アガラクトシンによるウイルスの増殖抑制作用

3.8.1 ふ化鶏卵でのウイルス増殖抑制

ウイルス液を倍々希釈し、それぞれの液に100 μgのアガラクトシンを加え、この混合液をふ化鶏卵に接種する。37°Cで72時間培養後、しょう尿液中のHA価を測定してアガラクトシンのウイルス増殖抑制作用をみた。コントロールとしてアガラクトシンの代わりに滅菌生食を使用した。表5に示すようにアガラクトシン無添加 (Cont.) 群のウイルスは10の7乗から9乗希釈まで継代されるが、アガラクトシン添加群では10の3乗から5乗希釈以上でウイルスは継代されなかった。

3.8.2 アガラクトシンで前処理をしたMDCK細胞でのウイルスの増殖抑制

ウイルスを接種する前にMDCK細胞の培養液にアガラ

表5 アガラクチンによるウイルスの増殖抑制 (ふ化鶏卵を使用)

Virus dilution(10 ⁿ)	N=	2	3	4	5	6	7	8	9
Cont.	a	256	128	256	512	256	128	<4	8
	b	≥512	128	256	128	128	8	<4	<4
	c	128	128	<4	<4	<4	<4	<4	<4
	d	<4	<4	<4	<4	<4	<4	<4	<4
Agalactin (100mcg/ml)	e	16	32	28	32	<4	<4	<4	<4
	f	<4	8	<4	<4	<4	<4	<4	<4
	g	<4	<4	<4	<4	<4	<4	<4	<4
	h	<4	<4	<4	<4	<4	<4	<4	<4

クチン (10 μg/ml) 加え 4 時間培養する。次にアガラクチン無添加の培養液で MDCK 細胞を数回洗浄した後、ウイルスを接種、72 時間培養して培養液中の HA 価を測定した。結果は表 6 の示すように、アガラクチン無添加 (Cont.) 群とアガラクチン添加群との間のウイルス継代には差が認められなかった。

表6 アガラクチンで前処理を行ったMDCK細胞でのウイルスの増殖

n =	Virus dilution(10 ⁻ⁿ)				
	4	5	6	7	8
Control	256	256	256	256	256
Pre-treated(10) ⁿ	256	256	256	256	16

3.8.3 MDCK細胞でのウイルス増殖抑制

ふ化鶏卵の場合と同様に希釈ウイルス液に 20 μg/ml または 2 μg/ml のアガラクチンを加え、この混液を MDCK 細胞に接種する。72 時間培養後、培養液中の HA 価を測りアガラクチンのウイルス増殖抑制作用をみた。

表7 アガラクチンによるウイルスの増殖抑制 (MDCK細胞を使用)

n =	Virus dilution(10 ⁻ⁿ)								
	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Control	≥512	≥512	≥512	≥512	≥512	≥512	≥512	<4	<4
Treated (20mcg)	<4	<4	<4	<4	<4	<4	<4	<4	<4
Treated (2mcg/ml)	4	<4	<4	<4	<4	<4	<4	<4	<4

HA titer after inoculation(72hr)

結果は表 7 に示すように、無添加 (Cont.) 群では 10 の 9 乗希釈までウイルスは継代されるが、20 μ 添加群では 10 の 3 乗以上で、2 μ 添加群では 10 の 4 乗以上の希釈ではウイルスは継代されなかった。

4. まとめと考察

今回我々は N-アセチルムラミダーゼを効果的に使用

することにより、B 群溶連菌の菌体から生物活性を有する糖蛋白を得た。この糖蛋白を“アガラクチン”と名づけその物性および生物活性を調べたところ次のようなことが判った。

すなわち、アガラクチンは 1) 10% から 20% の蛋白を含む分子量約 30 万の糖蛋白である、2) 糖組成はヘキソース、ヘキソサミン、およびラムノーズを含むがシアル酸は含まない。3) B 群溶連菌の II 型の型別抗原を持っている、4) 物理化学的処理に対して非常に安定である、5) ウイルスの血球凝集能や溶血能を抑制するがシアリダーゼ活性は抑制しない、6) ふ化鶏卵や MDC K 細胞でのウイルス増殖を阻止することである。

B 群溶連菌等のグラム陽性菌の細胞壁は N-アシルムラミン酸と N-アセチルグルコサミンがリンクしたペプチドグリカンから成っている。一方、B 群溶連菌の群抗原はガラクトース、N-アセチルグルコサミンおよびラムノーズから成る多糖であることが良く知られている^{8) 9) 10) 11)}。アガラクチンの化学組成や抗原性の結果からみて、アガラクチンは N-アセチルムラミダーゼにより部分分解した B 群溶連菌の細胞壁の一部であるものと思われる。H AI や HLI, 更にウイルスの増殖阻止活性はアガラクチンがウイルスの HA 分子と特異的に吸着 (結合) し、ウイルス HA が血球や細胞のレセプターに吸着するのをブロックするために起る現象と思われる。

今後、アガラクチンがウイルス HA のどの部分にどのように結合するかを検討する予定である。尚この一部は既に第 31 回日本ウイルス学会総会及び第 37 回日本細菌学会東北支部会で発表されたものである。またこれらの一連の仕事に対し、大同生命医学研究優秀賞、厚生大臣賞、朝日生命文化事業団賞を授与されました。関係各位に感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) Sanford, et al J. Inf. Diseases **137**, 176-181 (1978)
- 2) Sanford, et al J. Inf. Diseases **141**, 496-505 (1980)
- 3) Davison, et al Inf. and Imm. **32**, 118-126 (1981)
- 4) Whitehead, et al Nature, **5103**, 915-916 (1965)
- 5) Muller, et al Med. Microbiol Immu. **172**, 33-39 (1983)
- 6) 助野典義他 宮城県衛生研究所年報 **57**, 13-19 (1982)
- 7) 山科郁男他: 生化学実験講座 4, 糖質の化学第 2 刷 日本学生化学会編 (1977)
- 8) Rebecca, et al J. Hyg. **64**, 191-203 (1966)
- 9) Baker, et al J. Inf. Diseases **136**, 137-151 (1976)
- 10) Baker, et al J. Exp. Med. **143**, 258-270 (1976)
- 11) Russel, et al J. Imm. **109**, 90-96 (1972)

9 エンザイム・イムノアッセイ (EIA) によるTSH定量法について

清野 陽子 沖村 容子
白石 広行

1. はじめに

先天性甲状腺機能低下症(クレチン症)とは、甲状腺ホルモンの欠乏により小人症等の著明な発育障害および重度の知能障害をきたす疾患であり、日本人における発生頻度は新生児7,000人に1人と言われている。しかし出生早期に血中TSHを検査しクレチン症であることを早期発見すれば、甲状腺ホルモン剤の補充療法などでこれらの障害の発現を未然に抑えることが出来る。このようにクレチン症は治療が可能であること、又検査法が確立されたことなどからマス・スクリーニングの対象となる疾患である。

厚生省は昭和54年より新生児を対象に、クレチン症のマス・スクリーニングをラジオイムノアッセイ法(RIA)を用いて実施するように各県に指示した。以来3年間(昭和57年末)で全国447万人の新生児のスクリーニング検査を終了し、554例のクレチン症を発見した。しかしRIA法はラジオアイソトープ施設をはじめとして種々高価な備品を必要とするため、必ずしも全ての検査機関で実施可能な検査法ではなく、またヨード-125(¹²⁵I)の放射性廃棄物の処理、検査担当者の健康管理等の安全対策が新たな問題となってきた。

近年、酵素を標識した抗体により二次的にTSH量を測定する酵素抗体法(EIA)が宮井³⁾、成瀬⁴⁾、入江らにより開発され、RIAに匹敵する感度と再現性を有することが明らかにされた。又RIAとの相関もよく、経済的でもあり(昭和59年よりクレチン症検査法として公認)、京都市等実際に検査法として採用した自治体もでてきている。

今回我々はサンドイッチ法によるEIAキットを入手し、TSHの測定の特異性と感度について検討したので報告する。

2 対象と方法

先天性代謝異常およびクレチン症マス・スクリーニングを終えた血液ろ紙176件と、RIAでTSHの異常高値を示し疑陽性となった血液ろ紙12件を使用した。又TSHの測定は栄研化学製クレチン-TSHEIAキットを用いた。蛍光の測定は日立650-10S蛍光分光光度計を使用した。

測定法はキットの標準法に従った(図1)。TSH抗体をコーティングしたチューブに検体(血液ディスク径3mmを2枚)を入れ、家兎IgG液、β-ガラクトシダーゼ標識TSH抗体液を加え、攪拌し25°Cで16時間反応させた。PBS緩衝液で3回洗滌し、基質液を加え、37°C40分反応後、停止液で反応を停止させ蛍光強度を測定した。励起波長は320nm、測定波長は450nmを使用した。

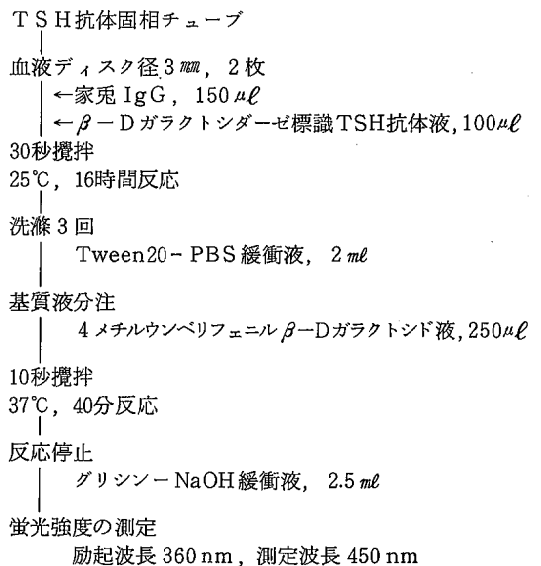


図1 サンドイッチ法EIAの方法

3. 結果

3.1 検量線の作製

EIAキットを入手後、直ちにキットに付属している標準TSHろ紙を用いて検量線を作製した(図2, ●-●)この検量線はキット入手後一週間は比較的再現性がよかったが、1週間以後は値が少し変動した。又キット有効期限がキット入手後1ヶ月程度と表示してあるので、約1ヶ月後同様に検量線を作製した(図2, ○-○)。図から明らかな如く1ヶ月後の検量線は10-30μU/mlの差が判断できず、実際には使用できなかった。キット入手後1週間目から再現が低下する原因は、キットの不良、酵素基質液の不安定性等が考えられるが、現在のところはっきりした結論を得ていない。

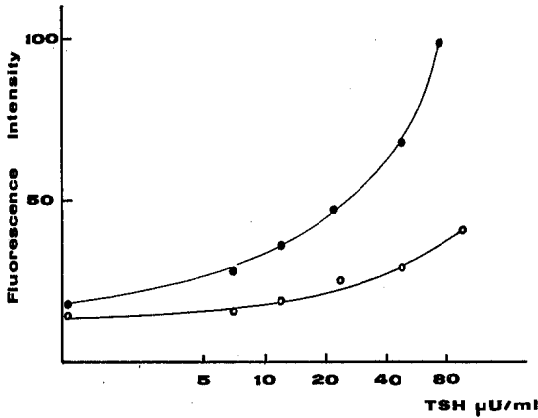


図2 E I A 検査線

3.2 ろ紙血検体の測定結果

マス・スクリーニングの測定を終えた血液ろ紙 176 件を定法に従って E I A で測定した。その結果を図 3 に示した。横軸は 1) の検査線で求めた T S H μ U/ml, 縦軸は検体の % を示している。図から明らかな如く約 97% は標準の最小値 7 μ U/ml 以下に属していた。また図には示していないが、過去においてクレチン症と診断された検体は 61 μ U/ml という高値を示し、E I A で十分判定が可能であった。

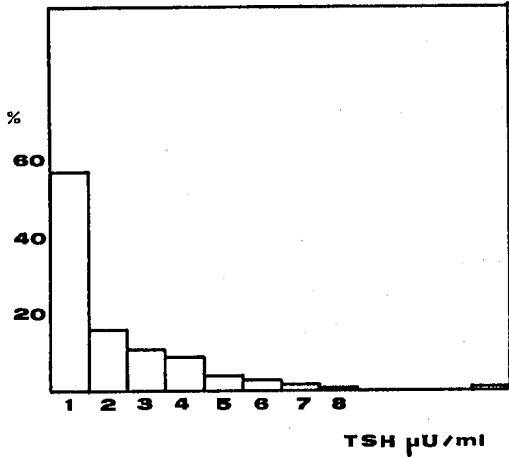


図3 ろ紙血試料での測定値の分布

3.3 R I A 疑陽性検体の E I A による測定

現在宮城県ではクレチン症のマス・スクリーニングを民間の検査機関に依頼しているが、今年 R I A によって疑陽性と判定された検体について E I A により 3 回測定し、R I A との感度の違い、又 E I A 測定値の再現性を調べた(表 1)。その結果一般的に E I A の感度は R I A

に比べて幾分低い傾向を示し、又 3 回測定した E I A の値にかなりの変動があった。E I A 値の変動はキット試薬の不安定さと、今回手動で処理したため No. 1 と No. 100 の検体では取扱いに時間的なズレが生じ、酵素反応にその影響があらわれたためと考えている。

表1 R I A と E I A の比較

	R I A	E I A		
		1	2	3
A	14.3 *	3.4	1 >	4.6
B	14.4	5.6	5.4	4.6
C	15.4	5.8	2.4	6.5
D	46.9	14.0	13.0	4.4
E	17.4	8.4	6.6	1 >
F	12.6	2.9	1 >	5.3
G	19.3	3.6	1 >	3.5
H	17.1	8.4	2.3	3.2
I	14.8	7.4	6.2	1 >
J	16.0	4.6	1 >	8.0
K	13.5	13.0	6.2	3.0
L	20.6	6.1	1 >	9.8

* T S H μ U/ml

4. ま と め

サンドイッチ法 T S H E I A キットを入手し、健常児ろ紙血検体 176 件、R I A で異常値を示した検体 12 件を試料として検討した。検査線の再現性は入手 1 週間後から悪くなり、有効期間の 1 ヶ月後には実際に使用出来る状態ではなかった。又 R I A で異常値を示した 12 件について E I A で測定し比較したが、感度は R I A より低く、測定値の変動も大きかった。健常児検体の E I A による T S H 値は 97% が 7 μ U/ml 以下に属し、又クレチン症患児の T S H 値 61 μ U/ml を明確に判別出来た。

今後測定値の変動が、キット試薬の安定性の問題なのか、操作法を改良することにより改善されるかなどについて検討を重ねたいと考えている。

参 考 文 献

- 1) 厚生省心身障害研究, 慢性甲状腺機能障害の疫学と予後に関する研究, 昭和57年度報告内容より(1982)
- 2) 中島博徳他: 日児誌, 86, 1485 (1982)
- 3) Miyai K. et al: Clin Chem Acta, 67, 263 (1976)
- 4) Miyai K. et al: Clin Chem, 27, 1421 (1981)

10 高速液体クロマトグラフィーによる牛肉中のニコチンアミド、ニコチン酸の分析

高槻 圭悟 鈴木 滋
牛沢 勇 界 敬一*

(和光純薬製)

メンブレンフィルター、ポアサイズ 0.45 μm : HAタイプ

日本ミリポア社

水: イオン交換水を蒸留

1336

溶離液

5 mM PIC-A / 15% メタノール水

5 mM PIC-A / 20% メタノール水

10 mM PIC-B / 水

Extrelute カラム: メルク社, Art. 11737

標準溶液: ニコチン酸, ニコチンアミドそれぞれ 100 mg を精秤し, 水に溶かして 100 ml 溶液として標準原液とする。これを水で希釈して, 5, 10, 15, 20, 25 ppm 溶液としてこれを標準溶液とする。

2.2 装置

高速液体クロマトグラフ

送液ポンプ: 6000 A 型, 日本ウォーターズ社

インジェクター: U 6 K 型, "

紫外検出器: UV IDEC-100-II 型, 日本分光社

記録計: 3066 型, 横河電機

インテグレーター: 3088 A 型, 横河ヒューレット・パッカー社

カラム

μ -Bondapak C₁₈, 3.9mm \times 30 cm

Radial Pak C₈, 8mm \times 10 cm

NOVA Pak C₁₈, 8mm \times 10 cm

以上日本ウォーターズ社

カラム加圧システム

RCM-100型, Zモジュール: 日本ウォーターズ社

ホモジナイザー: バイオトロン

2.3 抽出操作

2.3.1 方法-1

約 2 ~ 300 g の試料を細切して充分均質とし, その 10g を 100 ml ビーカーに精秤する。水 30 ml を加え, バイオトロンによりホモジナイズする。100 ml メスシリンダーに内容物を移し, ビーカー及びバイオトロンを水 20 ml で 2 回洗浄し, 定量的にメスシリンダーに加え, 更に水を加えて 100 ml に定容とする。内容物を充分混和後, 遠心管に移し, 3000 rpm, 5 分間遠心し, 上澄液を綿栓口過する。ロ液 20 ml をメスピペットで分取し 25 ml メスフラスコに移し, 飽和硫酸亜鉛溶液 1 ml, 1 N 水酸化ナトリウ

1. 序 文

牛肉の変色防止, 発色剤としてニコチン酸が使用され¹⁾ その過量添加が原因と考えられる食中毒事例が発生した。これに伴い, 56年7月使用自粛通達²⁾が出され, 続いて57年2月, 食品衛生法改正により食肉及び鮮魚介類に対しては使用禁止となった。³⁾ ニコチン酸類はビタミンB群の一種として重要であり, 1日10~20mgの摂取が必要とされているが, 1日75mg程度摂取すると顔面紅潮, 発汗, 酩酊感などの一過性の副作用が生じるとされている。^{4) 5)} 牛肉中には常成分として3~6mg%のニコチン酸の含有が報告されており,^{1) 6)} 発色目的には10mg%以上の添加が必要とされている。⁷⁾

以上に基づき牛肉, 牛肉製品のニコチン酸, ニコチンアミド含有量を調査するため, 高速液体クロマトグラフィーによる分析法に検討を加え, 56年度から58年度に亘り計40件の分析を行った。

衛生試験法⁸⁾ではアルカリ加水分解後, 全ニコチン酸量としてブロムシアン及びパラアミノアセトフェノンとの呈色反応(ケーニッヒ反応)により比色定量を行っている。又高速液体クロマトグラフを用いて, ニコチン酸⁹⁾及びニコチンアミドを別個に定量する方法も報告された^{7) 9)}がこれらでは双方を同一条件で溶離しており, ニコチンアミドの溶離が速く試料由来のピークと分離不十分な場合がみられた。我々の用いた溶離条件では, PIC-A及びPIC-B試薬による二種類の溶離液によるイオンペアクロマトグラフィー¹⁰⁾の条件によりニコチン酸, ニコチンアミドそれぞれに良好な分離を得ることができた。厚生省食品化学課編の食品添加物分析法¹¹⁾に於ても高速液体クロマトグラフ法が採用されているが, ここで用いられているExtreluteカラムを用いたクリーンアップ法についても検討を加えた。

2. 実験方法

2.1 試薬

ニコチン酸, ニコチンアミド: 国立衛生試験所標準品 (日本薬局方標準品)

PIC-A, PIC-B試薬: 日本ウォーターズ社

硫酸亜鉛, 水酸化ナトリウム, メタノール: 試薬特級

*現 仙台白百合学園短期大学

ム溶液 0.5 ml を加え、水で 25 ml に定容後室温に 30 分間放置する。ヒダ折口紙で口過後、ロ液を 0.45 μ m メンブレンフィルターで口過し、試験液とする。高速液体クロマトグラフィーの溶離液は、ニコチン酸用に PIC-A / 15 ~ 20% メタノール-水、ニコチンアミド用には PIC-B / 水を用いる。

2.3.2 方法-2

Extrelute カラムでのクリーンアップを行う場合には亜鉛で除蛋白を行った溶液 10 ml を Extrelute カラムに添加し、室温で 15 分間放置後、酢酸エチル 200 ml で溶離し Fr-1 とする。続いて 10% 水-アセトン 200 ml を用いて溶離し、Fr-2 とする。それぞれロータリーエバポレーターを用いて溶媒を留去し、残渣を水 8 ml に溶かして溶液とし、0.45 μ m フィルターで口過して試験液とする。Fr-1 はニコチンアミド、Fr-2 はニコチン酸用の試験液であり、ともに高速液体クロマトグラフィーの溶離液は PIC-A / 15 ~ 20% メタノール水を用いて定量できる。

2.4 定性、定量法

試験液及び標準液 20 μ l を高速液体クロマトグラフに注入し、保持時間により定性を行い、ピーク高又はインテグレーターからの積分値から定量する。試料により保持時間が若干変る場合があるので、試験液に標準液を加えたものを注入し、ピークの重なりを確認して定性を行う。紫外検出器は波長 263 nm、感度 0.02 AUFS に設定する。

3. 結果と考察

3.1 高速液体クロマトグラフィーの条件

逆相分配型カラムを用い、PIC-A 試薬のイオンペアクロマトグラフィーの条件では、ニコチンアミド、ニコチン酸の順に溶離するが、この条件で牛肉抽出液を測定するとニコチン酸は充分分離して定量可能であるが、(図1)ニコチンアミドは溶離が速く、牛肉抽出物の妨害ピークと分離が不充分で定量が困難な場合がみられた。そこで塩基性物質と複合体を生成する PIC-B 試薬を用いた溶離液を検討したところ、溶離順序が逆転してニコチン酸、ニコチンアミドとなり、ニコチンアミドのピークは牛肉抽出物からの妨害ピークと充分分離した位置となり、正確な定量が可能となった。(図2)この場合良好な分離を得るために通常の倍の 10 mM の PIC-B 試薬の濃度を用いた。以上のように二種類の溶離液を用いることにより、それぞれ正確な定性定量を行うことが可能となり、この場合、抽出クリーンアップ操作は方法-1 となり、最も簡便迅速である。

その後厚生省編「食品添加物分析法」に於て Extrelute カラムによるクリーンアップ法が用いられており、こ

の方法を試みたところ、ニコチンアミドの試験液では妨害ピークが完全に除去されクリーンアップ効果が非常に大

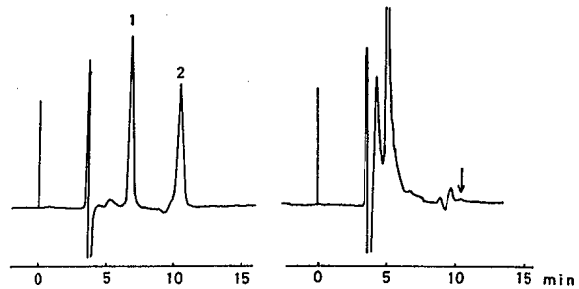


図1 高速液体クロマトグラム

Radial Pak C₈, 5mM PIC-A/20% MeOH-H₂O
UV: 263 nm, Sens: 0.02

左: 標準, 5 ppm, 1:ニコチンアミド, 2:ニコチン酸
右: 牛肉抽出液, 矢印: ニコチン酸

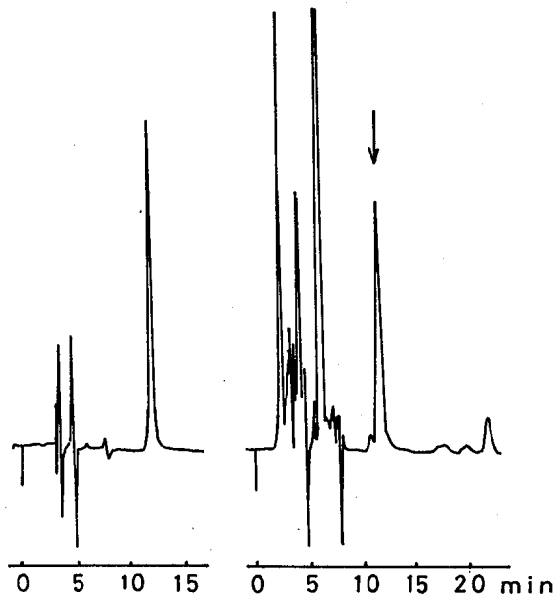


図2 高速液体クロマトグラム

μ -Bondapak C₁₈, 10m MPIC-B/H₂O
UV: 263 nm, Sens: 0.04

左: ニコチンアミド標準, 5 ppm
右: 牛肉抽出液, 矢印: ニコチンアミド

大きく、PIC-A 試薬の溶離液で定量可能であることが分かった(図3)しかしニコチン酸も Extrelute カラムからニコチンアミドと同様に溶離されると記されているが、酢酸エチル 200 ml では全く溶離されず、10% 水-アセトンを用いる必要があった。妨害ピークの除去効果は著しいが有機溶媒の使用量が増大し、操作が繁雑となり時間がか

るのが欠点である。高速液体クロマトグラフのカラムの分離能が充分な場合には、抽出操作の簡便な方法-1で定量可能である。

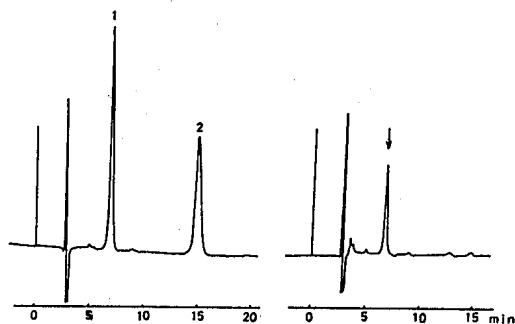


図3 高速液体クロマトグラム

Radial Pak C₃, 5mM PIC-A / 15% MeOH-H₂O

UV: 263nm, Sens: 0.02

左: 標準, 10ppm, 1:ニコチンアミド, 2:ニコチン酸
右: 牛肉抽出液, Extrelute クリーンアップ後, 矢印: ニコチンアミド

なお最近発売された新しい高速液体クロマトグラフ用カラムであるNOVA-PAK C₁₈を用いたところ、ニコチン酸に関してはより良好な分離を得ることができた。(図4)

検出限界は紫外外部検出器の波長263nm, 感度0.02に於て試験液の濃度につき1ppmであり、これは試料中濃度に換算して1mg%に相当する。

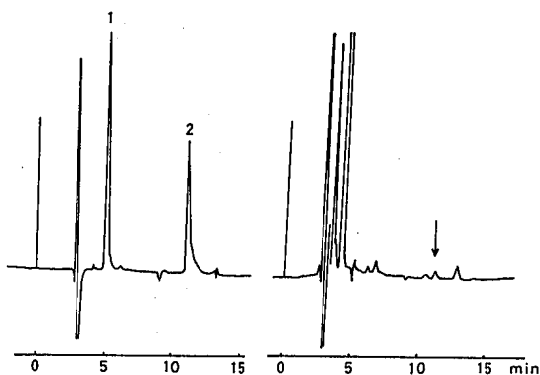


図4 高速液体クロマトグラム

NOVA PAK C₁₈, 5mM PIC-A / 20% MeOH-H₂O

UV: 263nm, Sens: 0.02

左: 標準 5ppm, 1:ニコチンアミド, 2:ニコチン酸
右: 牛肉抽出液, 矢印: ニコチン酸

3.2 添加回収実験

牛肉10gを用いた、ニコチン酸及びニコチンアミドの抽出方法-1による添加回収実験の結果は表1に示したようにほぼ満足できる値であった。

表1 添加回収実験

試料	添加物	回収率(%)
牛肉 10g	ニコチンアミド 5mg	89.2
"	" 10mg	106.7
"	ニコチン酸 5mg	88.8
"	" 10mg	102.4

又Extreluteカラムからの回収実験では、200mlの酢酸エチルによりニコチンアミドを100.7%、10%水-アセトン200mlによりニコチン酸を97.3%と定量的に回収することができた。

3.3 分析結果

56~58年度に亘る計40検体の市販牛肉、牛肉製品の分析結果は表2, 3, 4に示すとおりである。0~7mg%の含有量で文献記載の天然存在量に相当している。発色目的には10mg%以上の添加が必要とされ、中毒例では16.6~92.8mg%及び64.6mg%の含有量が報告されている¹⁾と比較しても、上記の分析結果は天然由来と考えられる量である。

ニコチンアミドはアルカリ条件下ではニコチン酸に加水分解され、水溶液中でも極く緩慢に加水分解されるため、抽出ならびに測定をなるべく迅速に行う必要があると思われる。ことに試料抽出液の場合には共存物質の影響も考えられるので、この点については更に検討中である。

表2 56年度分析結果

No.	検体名	ニコチンアミド mg%	ニコチン酸 mg%
1	肩ロースすきやき用牛肉	4.4	ND
2	ヒレステーキ(和牛)	1.8	ND
3	牛豚合びき肉	4.3	ND
4	ビーフハンバーグステーキ	2.2	ND
5	(冷凍)ミニハンバーグ	3.3	ND
6	(冷凍)ハンバーグ	3.2	ND
7	牛肉すきやき用	1.8	1.2
8	仙台牛ヒレ肉	0.8	ND
9	スモークビーフ	4.8	1.2
10	スモークビーフ	1.6	ND

表3 57年度分析結果

No.	検体名	ニコチンアミド mg%	ニコチン酸 mg%
1	牛肉(肩バラ)	2.0	1.3
2	"(モモスライス)	6.6	ND
3	"(モモすき焼用)	5.6	ND
4	"(牛肉さしみ)	4.0	ND
5	"(上すき焼用)	2.7	0.7
6	"(小間肉)	3.0	ND
7	"(ヒレ)	3.1	ND
8	"(モモステーキ)	3.8	ND
9	"(カタスライス)	2.5	ND
10	"(ランスステーキ用)	5.6	ND
11	"(肩すき焼用)	1.9	1.3
12	"(モモすき焼用)	7.2	ND
13	"(サーロインステーキ)	3.5	ND
14	"(肩バラ)	2.0	ND
15	"(すきやき用)	0.8	0.9
16	"(肩)	3.6	ND
17	"(もも)	3.5	ND
18	"(ひれ)	1.5	ND
19	"(コース)	2.6	ND
20	"(肩コース)	2.4	ND

表4 58年度分析結果

No.	検体名	ニコチンアミド mg%	ニコチン酸 mg%
1	牛肉(もも)	4.3	ND
2	"(肩)	3.0	ND
3	"(バラ)	2.7	ND
4	"(肩)	3.7	ND
5	"(もも)	5.0	ND
6	"(挽肉)	2.6	ND
7	"(もも)	4.3	ND
8	"(小間切)	3.5	ND
9	"(すき焼用)	3.7	ND
10	"(もも)	4.4	ND

参 考 文 献

- 1) 昭和55年度京都市衛生研究所年報, 第47号 P 78 (1981)
- 2) 環乳第53号, 食化第37号(昭和56年7月1日)
- 3) 厚生省令第4号, 厚生省告示第20号(昭和57年2月16日)
- 4) 食品添加物公定書注解, 第二版, 金原出版(昭和43年)
- 5) 食品添加物公定書解説書, 第四版, 広川書店(昭和54年)
- 6) 食肉・肉製品ハンドブック, 朝倉書店(昭和42年)
- 7) 吉田宏三, 山本行隆, 藤原光雄, 食品衛生学雑誌, **23**, 428-433 (1982)
- 8) 衛生試験法, 注解, P 215, 金原出版(昭和55年)
- 9) 北田善三, 井上雅成, 玉瀬喜久雄, 芋生真子, 蓮谷秋一, 佐々木美智子, 谷川薫, 栄養と食糧, **35**, 121-124 (1982)
- 10) R.B.H. Wills, C.G. Shaw, W.R. Day, J. Chromatogr, Sci., **15**, 262-266 (1977)
- 11) 食品中の食品添加物分析法, 厚生省環境衛生局食品化学課編, 講談社(昭和57年)

11 食品汚染物摂取量調査 (Ⅱ)

— 1981 ~ 1983 —

菊地 秀明	鈴木 滋	百川 和子
佐藤 信俊	山田 わか	高槻 圭悟
中根ミワ子	加茂えり子*	小野 研一
百川 滉**	牛沢 勇	堺 敬一***

1. はじめに

環境汚染物は様々な経路で人体に取り込まれているが、その中でも食品を介する人体汚染の割合は非常に大きい。これら汚染物を日常の食生活の中でどの位摂取しているのかを知ることは、その人体への影響を総合的に評価するためには是非必要なことである。この目的のため我が国では1977年、内山ら¹⁾によりマーケットバスケット方式が導入され、以後全国の衛生研究所数ヶ所では毎年有機塩素系農薬、PCB、有機リン系農薬、金属等の項目について分析を行い、食品による一日摂取量を算出している。

宮城県は本研究に継続して参加しており、1978年から1980年までの結果については前報²⁾で詳細に報告した。

本報では、1981年から1983年までの結果について有機塩素系化合物、有機リン系農薬、重金属に分けて以下に報告する。

2. 実験方法

2.1 試料の調製

前報²⁾に準じ、各食品を14群に分類し、調理は、当地方で行う一般的な方法に従った。年度毎の各群の食品構成は表1のとおりである。調査時期は、1981年9月7~9日、1982年5月10~11日、1983年7月4~5日であった。

2.2 分析方法

2.2.1 重金属分析法

ほぼ前報の方法に準じたが、Hgの分析法において1~3群のテンプン含有の多いサンプルでは、前報のH₂SO₄-H₂O₂-KMnO₄分解系では、炭化しやすく十分な分解が困難である。そこで1981年からは、H₂SO₄-HNO₃系で分解した。

2.2.2 有機塩素系化合物分析法

前報に準じ、n-ヘキサン抽出画分(有機塩素系農薬用)、アルカリ分解画分(PCB, PCT等用)に分別して処理した。なお1982年のジフェニルエーテル系除草剤については、石川ら³⁾の方法に従い、n-ヘキサン抽出画分を硝酸銀フロリジルカラムに負荷後、10%酢酸エチル/n-ヘキサン混液で溶出した。

2.2.3 有機リン系農薬分析法

抽出法は、前報に従ったが、フロリジルカラムクロマトの際に全く回収されない農薬もあり、その検討を行ったところ、20%(w/w)含水フロリジルを用いることで良い結果が得られている。1982年からこのカラムを用いており、エチルチオメトン、PMP、フェンチオン等の分析も可能となった。

3. 結果及び考察

各群ごとの汚染物1日摂取量を表2に、そのヒストグラムを図1に示した。

3.1 重金属

各金属の摂取量及び寄与率の高い食品群は前報の結果とはほぼ同じであった。AsとHgは10群からの摂取が多く、Pb、Cd、Cu、Zn、Mnは1群からの摂取が多かった。以下、各金属について概要を述べる。

Asの1日摂取量は93~216 µg、平均143 µgであり、大部分は8群(23%)と10群(66%)に由来していた。年によって変動が見られるが、これは10群の構成食品にAs含有量の大きい魚介類(かれい、ひらめ、えび等)が含まれるかどうかによるものであった。

Hgの1日の摂取量は6.9~10.4 µg、平均8.1 µgと比較的一定した値であった。寄与率の大きいのは動物性食品からなる10群(74%)と11群(16%)であった。

Pbの一日摂取量は17.6~23.6 µg、平均21.6 µgであった。Pbは各群から平均的に摂取されているが、1群、8群および10群からの寄与率が比較的大きかった。

Cdは一日摂取量が21.5~60.6 µg、平均37.0 µgで、1群の寄与が60%と大きく、次いで8群(15%)であった。8群については、海藻類やしいたけ等に由来するこ

* 現宮城県仙塩流域下水道事務所

** 現仙南保健所

*** 現仙台白百合学園短期大学

表1 食品群分類と一日摂取量

食品群	食品種	1981年		1982年		1983年	
		食品名	一日摂取量	食品名	一日摂取量	食品名	一日摂取量
1	米	精白米, もち	250.2	精白米, しらたま粉	254.5	精白米, 赤飯	255.2
2	穀類	押し麦, 一等薄力粉, 食パン, あんぱん, うどん, かんめん(そば), 即席めん, ポップコーン, ごま, さつまいも, ジャがいも, やまいも, しらたき	169.4	押し麦, 一等薄力粉, 食パン, クリームパン, コゆでうどん, スパゲッティ, 即席中華めん, コーンスターチ, カシューナッツ, さつまいも, ジャがいも, やまいも, ポテトチップ	190.7	押し麦, 一等薄力粉, 食パン, あんぱん, ゆでめん, かんめん, 即席めん, とうもろこし, バターーナッツ, さつまいも, ジャがいも, やまいも, こんぱく	154.0
3	砂糖菓子類	砂糖(上白), いちごジャム, キャラメル, せんべい, ショートケーキ, ビスケット, ドーナツ, もなか	39.7	砂糖(上白), マーマレード, キャラメル, 揚げせんべい, ショートケーキ, クラッカー, ドーナツ, どちら焼き	36.0	砂糖(上白), いちごジャム, キャラメル, せんべい, ショートケーキ, ビスケット, ドーナツ, もなか, チョコレート	40.0
4	油脂類	バター, マーガリン, 植物油, ラード, ドレッシング	17.2	バター, マーガリン, 天ぷら油, ラード, ドレッシング	15.6	バター, マーガリン, 天ぷら油, ラード, マヨネーズ	17.5
5	豆類	甘みそ, 絹ごし豆腐, あぶらあげ, なっとう, さらしあん	89.6	仙台みそ, 絹ごし豆腐, 生あげ, なっとう, 生干り, りんご	78.7	仙台みそ, 絹ごし豆腐, 生あげ, なっとう, あずき	85.4
6	果実類	グレープフルーツ, りんご, パナナ, いちご, ぶどう, みかんジュース	176.1	生干り, りんご, パナナ, いちご, メロン, トマトジュース(缶)	175.1	グレープフルーツ, りんご, パナナ, いちご, ぶどう, すいか, さくらんぼ, みかんジュース	169.4
7	緑色野菜類	にんじん, ほうれん草, ピーマン, セルリー	51.3	にんじん, ほうれん草, ピーマン, アスパラガス(グリーン)	58.5	にんじん, ほうれん草, ピーマン, くら, セルリー, 山東菜	72.1
8	白色野菜海藻類	大根, たまねぎ, トマト, キャベツ, キュウリ, もやし, はくさい, はくさい漬物, キュウリ漬物, 生しいたけ, 塩わかめ	244.8	大根, たまねぎ, トマト, キャベツ, キュウリ, はくさい, さやえんどう, たかな漬物, キュウリ漬物, 生しいたけ, ひじき(生)	247.1	大根, たまねぎ, トマト, キャベツ, キュウリ漬物, 白菜, ごぼう, ねぎ, もやし, たかな漬物, しいたけ, わかめ, ひじき	241.6
9	嗜好飲料類	しょう油, トマトケチャップ, 食塩, 日本酒, ビール, ぶどう酒, コーラ, 緑茶	116.4	しょう油, トンカツソース, 食塩, 日本酒, ビール, ウイスキー, ヤクルト, 緑茶	110.3	しょう油, ウイスキー, コーラ, 緑茶	99.6
10	魚介類	かつお, かれい, あじ, さけ, すずき, たこ, しじみ, 塩ます, しらす干, かつお油つけ(缶詰), とうなご佃煮, ささかまばこ, 魚肉ハム	107.0	まぐろ, かれい, にしん, さけ, はまち, いか, しじみ, 塩ます, 丸干いわし, さば水煮(缶), とうなご佃煮, ささかまばこ, 魚肉ソーセージ	114.0	まぐろ, まかれい, あじ, さけ, はまち, すずき, したびらめ, 大正えび, はたて, 塩ます, 丸干いわし, まぐろ油づけ, しらす佃煮, ささかまばこ, 魚肉ソーセージ	109.3
11	獣肉, 鳥類, 鱈肉, 卵類	牛肉ロース, 豚肉ロース, 鶏肉, 鰹肉(冷凍), 羊肉(ラム), ロースハム, 鶏卵	94.6	牛肉ロース, 豚肉ロース, 鶏肉, 鰹肉, 羊肉, プレスハム, 鶏肉	90.4	牛肉ロース, 豚肉ロース, 鶏肉, 鰹肉, マトロン, プレスハム, 鶏卵	93.7
12	乳類	市乳, プロセスチーズ, アイスクリューム	105.0	市乳, プロセスチーズ, ヨーグルト(脱脂)	103.6	市乳, プロセスチーズ, アイスクリューム	122.2
13	加工食品類	ぎょうざ, しゅうまい(冷凍), コロッケ(コン), サラダ(ミックス), カレールー	11.3	ぎょうざ, しゅうまい, コロッケ, サラダ, カレールー, シチュールー	13.3	ぎょうざ, しゅうまい, コロッケ, サラダ, 酢, カレールー	11.9
14	飲料水	水道水	600.0	水道水	600.0	水道水	600.0

表2 食品群別汚染物摂取量 (1981~1983)

(単位: $\mu\text{g} / \text{day}$)

項目	食品群														計
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	
食品種年	穀類 いも類	砂糖 菓子類	油脂類	豆類	果実類	緑色 野菜類	白色 野菜 海藻類	嗜好 飲料類	魚介類	獸、鳥、鱈 肉、卵類	乳類	加工 食品類	飲料水		
分別量	1981 496.8	1981 177.8	1981 40.5	1981 17.2	1981 95.9	1981 176.1	1981 42.9	1981 234.4	1981 194.4	1981 134.8	1981 86.8	1981 11.3	1981 600	2,414	
	1982 511.0	1982 178.3	1982 36.6	1982 15.6	1982 79.0	1982 175.1	1982 66.6	1982 243.4	1982 188.3	1982 108.3	1982 81.5	1982 16.5	1982 600	2,404	
	1983 516.7	1983 172.7	1983 41.0	1983 17.5	1983 91.3	1983 169.4	1983 53.5	1983 264.0	1983 177.6	1983 95.5	1983 83.3	1983 11.8	1983 600	2,416	
As	1981 6.5	1981 0	1981 0.6	1981 0	1981 0	1981 0	1981 0	1981 38.2	1981 0	1981 74.1	1981 2.1	1981 0	1981 0	121.5	
	1982 6.6	1982 0	1982 0	1982 0	1982 3.0	1982 0	1982 0	1982 13.9	1982 0	1982 69.7	1982 1.8	1982 0	1982 0	93.0	
	1983 21.2	1983 0	1983 0.6	1983 0	1983 0	1983 0	1983 0	1983 48.8	1983 0	1983 143.3	1983 1.8	1983 0	1983 0	215.7	
Hg	1981 6.99	1981 0	1981 0	1981 0	1981 0.19	1981 0	1981 0	1981 0	1981 0	1981 8.22	1981 1.04	1981 0	1981 0	10.4	
	1982 0	1982 0	1982 0.04	1982 0	1982 0	1982 0.13	1982 0.24	1982 0.19	1982 4.33	1982 1.96	1982 0	1982 0.05	1982 0	6.9	
	1983 0	1983 0	1983 0	1983 0	1983 0	1983 0	1983 0	1983 0.71	1983 5.44	1983 0.83	1983 0	1983 0	1983 0	7.0	
Pb	1981 5.0	1981 0	1981 0.8	1981 0	1981 1.9	1981 0	1981 1.7	1981 0	1981 5.4	1981 1.7	1981 0	1981 1.1	1981 0	17.6	
	1982 0	1982 3.6	1982 0.7	1982 0	1982 1.6	1982 3.5	1982 2.0	1982 4.9	1982 3.8	1982 3.3	1982 0	1982 0.2	1982 0	23.6	
	1983 10.3	1983 0	1983 0	1983 0.4	1983 0	1983 0	1983 0	1983 5.3	1983 0	1983 4.8	1983 0	1983 1.7	1983 0.6	23.1	
Cd	1981 9.9	1981 2.3	1981 0.5	1981 0.1	1981 2.7	1981 0.5	1981 1.3	1981 5.2	1981 0.6	1981 4.3	1981 1.2	1981 0.2	1981 0	28.8	
	1982 50.1	1982 1.6	1982 0.3	1982 0	1982 0.9	1982 0.5	1982 0.9	1982 2.9	1982 0.4	1982 2.6	1982 0.2	1982 0.2	1982 0	60.6	
	1983 6.2	1983 1.9	1983 0.5	1983 0	1983 0.9	1983 0	1983 2.0	1983 8.2	1983 0.4	1983 1.2	1983 0	1983 0.2	1983 0	21.5	
Cu	1981 422	1981 142	1981 36.0	1981 2.2	1981 215	1981 82.8	1981 17.2	1981 82.0	1981 19.4	1981 129	1981 66.8	1981 11.9	1981 0.6	1,239	
	1982 419	1982 178	1982 20.9	1982 1.3	1982 203	1982 87.6	1982 61.9	1982 146	1982 32.0	1982 150	1982 46.5	1982 19.5	1982 1.8	1,378	
	1983 258	1983 216	1983 48.8	1983 1.9	1983 188	1983 66.1	1983 35.8	1983 151	1983 30.2	1983 87.9	1983 53.3	1983 14.7	1983 0	1,165	
Mn	1981 1,530	1981 297	1981 112	1981 1.5	1981 575	1981 81.0	1981 146	1981 253	1981 645	1981 94.4	1981 15.6	1981 35.6	1981 1.2	3,794	
	1982 2,085	1982 351	1982 85.3	1982 1.1	1982 487	1982 105	1982 378	1982 397	1982 702	1982 94.2	1982 20.4	1982 50.0	1982 0.6	4,764	
	1983 1,457	1983 259	1983 126	1983 0.9	1983 468	1983 76.2	1983 136	1983 351	1983 613	1983 50.6	1983 15.0	1983 44.5	1983 1.2	3,603	
Zn	1981 2,678	1981 681	1981 213	1981 5.0	1981 1,036	1981 139	1981 146	1981 546	1981 292	1981 1,375	1981 1,858	1981 48.3	1981 42.0	9,408	
	1982 2,724	1982 695	1982 131	1982 3.9	1982 685	1982 161	1982 351	1982 755	1982 363	1982 1,109	1982 1,459	1982 88.0	1982 48.0	8,962	
	1983 2,894	1983 579	1983 217	1983 23.6	1983 803	1983 62.7	1983 190	1983 620	1983 249	1983 836	1983 1,395	1983 46.3	1983 90.0	8,457	

項目	食品群														計	
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14		
食品種	米	穀類 いも類	類 砂 菓子類	油脂類	豆類	果実類	緑色 野菜類	白色野菜 海藻類	嗜好 飲料類	魚介類	獣、鳥、鯨 肉、卵類	乳類	加工 食品類	飲料水		
年																
α-BHC	1981	0	0.09	0.03	0.05	0.43	0	0.13	0.14	0	1.17	0.22	0.23	0.17	0	2.66
	1982	0	0.07	0.01	0.03	0.02	0	0.03	0.02	0	0.56	0	0.06	0.01	0	0.81
	1983	0	0.02	0.01	0.01	0.32	0	0.02	0	0	0.70	0	0.07	0	0	1.15
β-BHC	1981	0	0.05	0.01	0.01	0.03	0	0.19	0	0	0.16	0.42	0.12	0.02	0	1.01
	1982	0	0	0.02	0.01	0	0	0.08	0.07	0	0	0.33	0	0.09	0	0.61
	1983	0	0.09	0	0.03	0	0	0	0.08	0	0.54	0.33	0.06	0.03	0	1.15
γ-BHC	1981	0	0.07	0.01	0	0.04	0	0.03	0.02	0	0.15	0.06	0.01	0.06	0	0.45
	1982	0	0	0	0	0	0	0	0.05	0	0.10	0.02	0	0.01	0	0.17
	1983	0	0.09	0.03	0.03	0.03	0	0	0.13	0	0.16	0	0.10	0	0	0.56
δ-BHC	1981	0	0	0	0	0	0	0.05	0	0	0	0.57	0	0	0	0.62
	1982	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	1983	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Total BHC	1981	0	0.21	0.05	0.06	0.50	0	0.40	0.16	0	1.48	1.27	0.36	0.24	0	4.74
	1982	0	0.07	0.03	0.03	0.02	0	0.11	0.15	0	0.66	0.35	0.06	0.11	0	1.59
	1983	0	0.19	0.04	0.07	0.35	0	0.02	0.21	0	1.39	0.33	0.23	0.04	0	2.86
PP'- DDT	1981	0	0	0.01	0	0	0	0.08	0	0	0.39	0.23	0.01	0.02	0	0.74
	1982	0	0	0.02	0	0	0	0.02	0	0	0.26	0.12	0	0.02	0	0.44
	1983	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0.33	0	0	0	0	0.33
PP'- DDE	1981	0	0	0.04	0.01	0	0.02	0	0	0	0.69	0.38	0.13	0.01	0	1.27
	1982	0	0.04	0.02	0	0	0	0.03	0.07	0	0.66	0.28	0	0.01	0	1.11
	1983	0	0	0	0	0	0	0.01	0	1.31	0.38	0.01	0.05	0	1.76	
PP'- DDD	1981	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0.40	0	0	0	0	0.40
	1982	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0.01	0	0.01	
	1983	0	0	0	0	0	0	0	0	0.33	0	0	0	0	0.33	
PP'- DDT	1981	0	0.04	0	0	0	0	0.02	0	0	0.58	0	0	0	0	0.64
	1982	0	0	0	0	0	0	0	0	0.42	0.02	0	0.02	0	0	0.46
	1983	0	0	0	0	0	0	0	0	0.40	0	0	0	0	0	0.40
Total DDT	1981	0	0.04	0.05	0.01	0	0.02	0.10	0	2.06	0.61	0.14	0.03	0	3.05	
	1982	0	0.04	0.03	0	0	0.05	0.07	0	1.34	0.42	0	0.05	0	2.00	
	1983	0	0	0	0	0	0.01	0	0	2.37	0.38	0.01	0.05	0	2.82	

項目	食品群														計
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	
Dieldrin	1981	0	0.09	0.01	0	0.11	0	0.23	0	0.19	0.09	0	0	0	0.72
	1982	0	0.16	0	0	0.20	0	1.80	0	0.09	0.03	0	0	0	2.32
	1983	0	0	0	0	0.07	0	0.13	0	0.03	0.04	0.01	0.01	0	0.32
Endrin	1981	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	1982	0	0	0	0	0	0	0.10	0	0	0	0	0	0	0.10
	1983	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Total Drin	1981	0	0.09	0.01	0	0.11	0	0.23	0	0.19	0.09	0	0	0	0.72
	1982	0	0.16	0	0	0.20	0	1.90	0	0.09	0.03	0	0	0	2.42
	1983	0	0	0	0	0.07	0	0.13	0	0.03	0.04	0.01	0.01	0	0.32
Heptachlor-epoxide	1981	0	0.05	0	0	0.02	0	0.05	0	0	0.04	0.02	0	0	0.19
	1982	0	0.09	0	0	0.06	0	0.27	0	0.38	0.05	0	0.01	0	0.87
	1983	0	0	0	0	0.04	0	0.08	0	0.01	0.04	0	0.01	0	0.18
HCB	1981	0	0.04	0.02	0.01	0.06	0	0.21	0	0.19	0.05	0.04	0	0	0.62
	1982	0	0	0	0.01	0	0	0	0	0.16	0	0	0	0	0.17
	1983	0	0.26	0	0	0	0	0	0	0.16	0.04	0	0	0	0.47
PCB	1981	0	0	0	0	0	0	0	0	5.93	0.61	0.32	0.06	0	6.91
	1982	0	0	0	0	0	0	0	0	1.70	0.57	0.21	0	0	2.48
	1983	0	0	0	0	0	0	0	0	1.62	0.17	0	0	0	1.79
CNP	1982	0	0	0	0	0	0.08	0	0	8.67	0	0	0	0	8.75
Chlome-thoxyini	1982	0	0	0	0	0	0	0	0	0.12	0	0	0	0	0.12
Malathion	1981	0	1.6	0.202	0	0	0	0	0	0	0	0	0.124	0	1.926
	1982	0	1.2	0.92	0	0	0	0	0	0	0	0	0.15	0	2.3
	1983	0	1.9	0.12	0	0	0	0	0	0	0	0	1.5	0	3.5
MED	1981	0	1.422	0	0	0	0	0	0	0.809	0	0	0.023	0	2.254
	1982	0	1.2	0.11	0	0	0	0	0	0	0	0	0.18	0	1.5
	1983	0	1.2	0	0	0	0.054	0	0	0	0	0	0.15	0	1.4
Diazinon	1981	0	0	0	0	0	0	4.676	0	0	0	0	0	0	4.676
	1982	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	1983	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
EPN	1981	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	1982	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	1983	0	0	0	0	0	0	0.96	0	0	0	0	0	0	0.96

Aldrin, PCN, NIP, Parathion, MPP, PAP, IBP, Prothiofos, Ethylthiometon, Chlorpyrifos, Salithion, methylparathion : nd

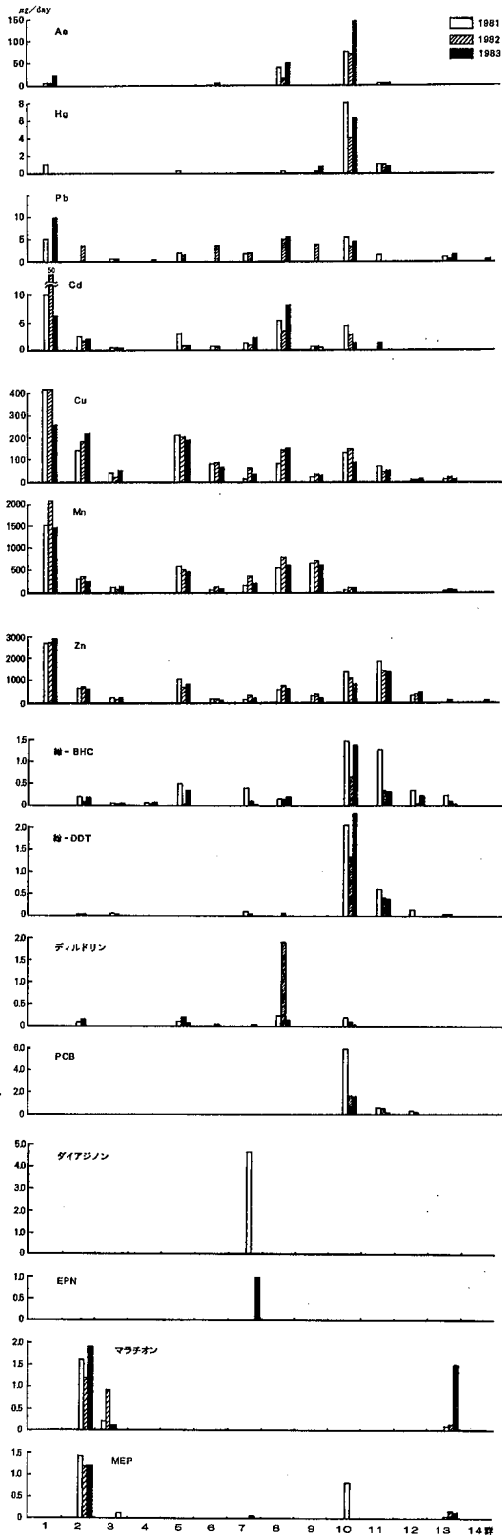


図1 群別汚染物摂取量

とが知られている。

Cu, Mn, Znについては、一日摂取量の平均がそれぞれ 1,300 µg, 4,000 µg, 8,900 µg と前報とはほぼ同じ値が得られ、年毎の変動が少なかった。これらの金属は各群から万遍なく摂取されているが、比較的1群の寄与が大きかった。

3.2 有機塩素系化合物

ディルドリンを除いては、10群, 11群, 12群からの摂取量が大部分を占めていた。この傾向は前報とはほぼ同じであり、脂肪含量の高いこれらの群は今後も監視していく必要がある。

ディルドリンについては、毎年8群の白色野菜類が高い値を示しており、特に1982年は異常に高い値を示した。そこで8群の構成食品を分析した結果、きゅうり漬物から1.2 µgも摂取していることが判明した。きゅうりのディルドリンについては前報でも報告したが、いまだにその汚染経路は不明であり、今後更に調査を要するところである。

1982年は、食品購入時期が県内の除草剤散布時期と同じであったため、県内で使用量の多いジフェニルエーテル除草剤についても調査した。その結果、CNP, クロメトキシニルが10群から検出され、この群に含まれるシジミ由来であることがわかった。我々は1980年から毎年、淡水生の魚介類に残留するCNP等除草剤について調査してきたが、シジミに高濃度に蓄積していることが判明している。⁴⁾

また7群の緑色野菜からも低レベルではあるがCNPが検出されており、その汚染経路は不明であるため今後検討するつもりである。

3.3 有機リン系化合物

前報同様、小麦粉を含む2群, 3群, 13群からマラチオンとMEPが検出され、その一日摂取量は平均でそれぞれ 2.5 µg, 1.7 µgであった。

また、7群の緑黄色野菜からダイアジノン(1981年)及びMEPとEPN(1983年)が検出された。追跡調査の結果、ダイアジノンはセルリーとほうれん草に由来し、MEPはピーマン、セルリー、山東菜に、EPNはピーマンに由来していることがわかった。なおダイアジノンの場合、セルリー寄与率が196%と高かったが、これは追跡調査時には残留量が多い葉部のみを用いたためと思われる。

本調査とは別に、ほうれん草、セルリー、ピーマンについて有機リン系農薬の残留実態調査を行ったところ、ダイアジノン、MEP、EPNは検出されなかったが、ほうれん草からはエチルチオメトン、セルリーからはサリチオン、ピーマンからはパブチオンとプロチオフォスが

検出された^{5) 6)}。

この他、1981年には10群の魚介類からMEPが検出され、追跡調査の結果、大部分(74%)がシジミに由来していることが判明した。このシジミからはこの他IBP(0.377 ppm)、クロルピリフォス(0.207 ppm)及びダイアジノン(0.034 ppm)が検出された。

3.4 全国値及びADI値との比較

1981~1983年までの全国値及びADI(許容1日摂取量)値との比較のため、表3に各汚染物ごとに平均値とその範囲を示した。

表3 宮城県および全国の汚染物一日摂取量とADIの比較

汚染物質	ADI ($\mu\text{g}/\text{day}$ /50kg)	1日摂取量 (μg)			
		宮 城 県		全 国	
		平均	範 囲	平均	範 囲
A s	2,500	143	93 ~ 122	160	54 ~ 300
H g	33	8.1	6.9 ~ 10.4	7.7	1.6 ~ 21
P b	330	21.4	17.6 ~ 23.6	57.4	1.7 ~ 137
C d		37.0	21.5 ~ 60.6	30.6	12 ~ 60
γ -BHC	500	0.39	0.17 ~ 0.56	0.38	0 ~ 2.4
T-DDT	250	2.62	2.00 ~ 3.05	2.9	1.1 ~ 10
ディルドリン	5	1.12	0.32 ~ 2.32	0.47	0 ~ 2.3
HCB	30	0.42	0.17 ~ 0.62	0.13	0 ~ 0.62
PCB	250	3.73	1.79 ~ 6.91	2.7	0.76 ~ 8.4
マラチオン	1,000	2.6	1.9 ~ 3.5	1.4	0 ~ 3.5
MEP	250	1.7	1.4 ~ 2.2	1.7	0 ~ 20
ダイアジノン	100	1.6	0 ~ 4.7	2.7	0 ~ 63
EPN	-	0.32	0 ~ 0.96	0.03	0 ~ 0.96

平均値を比較すると、ディルドリン、HCB、EPNで全国値よりも高く、Pbでは、低い結果となっているが、他はほぼ同一レベルであった。

また、ADI値と比べ、すべての項目で低い値であったが、Hg、ディルドリンについては、平均で $\frac{1}{4}$ ~ $\frac{1}{6}$ と比較的高いレベルであった。

参 考 文 献

- 1) 内山 充：環境科学研究報告集，標準環境試料，B 119-S 507，20(1981)
- 2) 佐藤信俊他：宮城衛研年報，56，64(1981)
- 3) 石川 潔他：食衛誌，22，56(1981)
- 4) 鈴木 滋他：宮城県保健環境センター年報，1，53(1983)
- 5) 菊地秀明他：同上，1，156(1983)
- 6) 百川和子他：同上，2，195(1984)

12 食品中有機塩素系農薬の残留

— ディルドリンの残留を中心に —

小野 研一 佐藤 信俊 鈴木 滋
 山田 わか 牛沢 勇 百川 滉*
 堺 敬一**

1. はじめに

BHC, DDT, ディルドリン等の有機塩素系農薬はその残留性及び毒性のため殆どの国で使用が禁止されている。しかし現在でも依然として環境中に残留しており、低レベルではあるが食品汚染が継続している。

我々はこれら残留農薬の動向を把握するため昭和45年以来キュウリ、パレインョ、生乳等の食品について汚染実態を調査してきた¹⁾。その結果、大部分の食品では検出限界付近まで減少しているが、一部この傾向に逆行する様なものも認められ新たな汚染源も考えられた。

今回はこれらについて昭和55年度から58年度までの4年間の結果をまとめ、最近の汚染動向を考察した。

2. 方法

分析方法は鈴木等の方法²⁾に準じた。即ち、キュウリパレインョは無水硫酸ナトリウムを加えたのちアセトニトリルで抽出する。抽出液に水を加えn-ヘキサンに転溶し、水洗、脱水後濃縮する。濃縮液を硝酸銀フロリジルカラムに負荷し3%ベンゼン/n-ヘキサンの溶出し濃縮後ECD-GCを行う。生乳及び市乳は試料にアセトニトリル及びエタノールを加えた後n-ヘキサンで振とう抽出する。n-ヘキサン層を脱水、濃縮後、硝酸銀フロリジルカラム処理を行いECD-GCで分析する。

3. 結果及び考察

3.1 キュウリ、パレインョ

我々は昭和52年以来厚生省の「食品汚染物摂取量調査」で各種汚染物の一日摂取量について調査を行ってきたがその結果、有機塩素系農薬の中でもディルドリンが最もADI(1日許容摂取量)に近い値を示し、原因となる食品がキュウリであることをつきとめている³⁾⁴⁾。

以上のことは宮城県が独自に行っている調査でも明らかになっており、前報でも報告した¹⁾。

表1には昭和58年度のキュウリ、パレインョの分析結果を示したが、キュウリ1件から低レベル(0.003 ppm)のディルドリンが検出されただけであった。

図1, 図2にはキュウリ, パレインョ中ディルドリンの昭和55年から58年までの残留経年変化を示したが、パレインョは全体に低レベルであるがキュウリは前報と同様、時々高い値を示すものが認められている。宮城県のキュウリのディルドリンは全国的にも最も高いレベルにあり、昭和58年度はたまたま低レベルであったが、過去の経緯から推察すると、その汚染源が除去されたとは考えられず、今後もその監視は必要であると考えている。

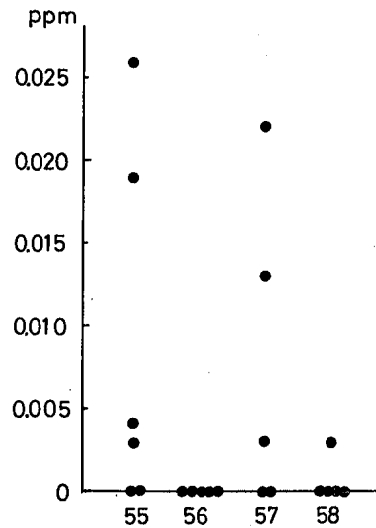


図1 キュウリ中ディルドリンの経年変化

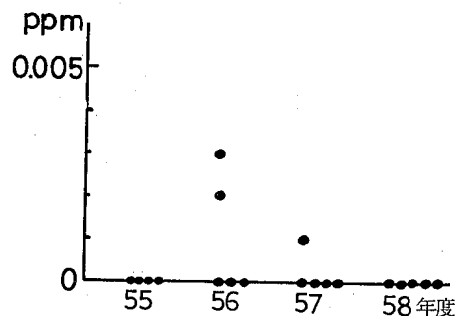


図2 パレインョ中ディルドリンの経年変化

* 現 仙南保健所
 ** 現 仙台白百合学園短期大学

表1 昭和58年度キウリ、パレイシヨ中の有機塩素系農薬

単位：ppm

No.	品名	搬入 月日	B H C				D D T				Drin		Hepta epoxi de	生産地	モニタリング 集計 No.		
			α - BHC	β - BHC	γ - BHC	δ - BHC	Total	pp'- DDT	pp'- DDE	pp'- DDD	op'- DDT	Total Aldrin				Diel drin	Endrin
1	パレイシヨ	8/19	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	栗原郡→迫町大川	83-3201
2	パレイシヨ	"	nd	nd	nd	nd	tr	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	栗原郡→迫町	83-3202
3	パレイシヨ	"	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	tr	nd	tr	nd	nd	涌谷町浦町	83-3203
4	パレイシヨ	"	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	志田郡鹿島台町広町	83-3204
5	パレイシヨ	"	tr	0.0175	nd	nd	nd	0.0175	nd	nd	nd	nd	nd	tr	nd	玉造郡岩出山町	83-3205
6	キウリ	8/24	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	岩沼市寺島字浜里	83-3206
7	キウリ	"	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	tr	nd	tr	nd	nd	岩沼市下野郷	83-3207
8	キウリ	"	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	0.0031	nd	nd	0.0031	nd	大河原町小山田	83-3208
9	キウリ	"	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	大河原町大谷	83-3209
10	キウリ	"	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	大河原町福田	83-3210

nd : 0.0005 ppm未満

tr : 0.0005 ≤ x < 0.001 ppm

表3 昭和58年度生乳中の有機塩素系農薬

単位：ppm

No.	品名	搬入 月日	B H C				D D T				Drin		Hepta epoxi de	生産地	収去地	モニタリング 集計 No.							
			α - BHC	β - BHC	γ - BHC	δ - BHC	Total	pp'- DDT	pp'- DDE	pp'- DDD	op'- DDT	Total Aldrin					Diel drin	Endrin	Total				
1	生乳	S 59 1.23	tr	0.001	nd	nd	tr	nd	0.001	tr	tr	tr	tr	0.004	nd	0.004	0.001	0.004	0.001	河南,矢本,鳴瀬	鳴瀬町	83-5401	
2	生乳	S 59 1.26	0.001	0.02	tr	nd	tr	nd	0.001	tr	tr	tr	tr	0.004	nd	0.004	0.001	0.004	0.001	築館,栗駒,金成 岩瀬	築館町	83-5402	
3	生乳	"	0.001	0.001	nd	nd	0.01	nd	0.05	nd	nd	nd	tr	nd	nd	0.11	0.03	0.11	0.03	柴田郡	大河原町	83-5403	
4	生乳	"	0.003	0.03	tr	nd	0.02	nd	0.06	nd	nd	tr	tr	nd	nd	nd	nd	nd	nd	(Pat 38%)	白石市	83-5404	
5	生乳	"	0.001	0.03	nd	nd	0.02	nd	0.11	nd	nd	tr	tr	nd	nd	nd	nd	nd	nd	(Pat 38%)	鳴子,岩出山	岩出山町	83-5405
			0.001	0.03	nd	nd	0.02	nd	0.03	nd	nd	tr	tr	nd	nd	nd	nd	nd	nd	(Pat 38%)	岩出山町	83-5405	

nd : 0.0005 ppm未満

tr : 0.0005 ≤ x < 0.001 ppm

上段：全乳中 ppm

下段：脂肪中 ppm

表2 昭和58年度市乳中の有機塩素系農薬

単位：ppm

No.	品名	搬入 月日	B H C				D D T				Drin		Hepta epoxi de	脂肪 乳	収去地	モニタリング 集計No.											
			α - BHC	β - BHC	γ - BHC	δ - BHC	Total	pp'- DDT	pp'- DDE	pp'- DDD	pp'- op'- DDT	Total					Aldrin	Diel drin	Endrin	Total							
1	市乳	8/9	0.002	nd	nd	nd	0.002	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	Fat(3.4%) 登米郡登町町	83-3001								
2	市乳	"	0.002	nd	nd	nd	0.002	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	Fat(3.5%) 女川町	83-3002						
3	市乳	"	0.002	nd	nd	nd	0.002	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	Fat(3.4%) 石巻市	83-3003					
4	市乳	"	0.003	nd	nd	nd	0.003	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	tr	nd	nd	nd	nd	nd	nd	Fat(3.5%) 古川市	83-3004				
5	市乳	"	0.003	nd	nd	nd	0.003	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	0.01	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	Fat(3.5%) 小牛田町	83-3005			
6	市乳	"	0.003	nd	nd	nd	0.003	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	Fat(3.6%) 宮崎町	83-3006		
7	市乳	"	0.004	nd	nd	nd	0.004	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	Fat(3.4%) 宮崎町	83-3007	
8	市乳	"	0.002	nd	nd	nd	0.002	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	Fat(3.4%) 塩釜市	83-3008	
9	市乳	8/10	0.002	nd	nd	nd	0.002	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	Fat(3.6%) 宮城町	83-3009
10	市乳	"	tr	nd	nd	nd	tr	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	tr	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	Fat(3.4%) 白石市	83-3010
11	市乳	"	0.03	nd	nd	nd	0.03	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	0.02	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	Fat(3.4%) 白石市	83-3011
12	市乳	"	0.02	nd	nd	nd	0.02	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	Fat(3.4%) 白石市	83-3012
13	市乳	"	0.003	nd	nd	nd	0.003	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	Fat(3.4%) 築館町	83-3013
14	市乳	"	0.003	nd	nd	nd	0.003	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	Fat(3.6%) 名取市	83-3014
15	市乳	"	0.003	nd	nd	nd	0.003	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	Fat(3.5%) 本吉町	83-3015

上段：全乳中 ppm
下段：脂肪中 ppm

nd : 0.0005 ppm未満
tr : 0.0005 ≤ x < 0.001 ppm

3.2 生乳, 市乳

昭和57年度に行った生乳の調査から, 外国産ビートパ
ルブ由来と考えられるディルドリンが比較的高濃度(全
乳中0.01 ppm)で検出された⁵⁾。

牛乳は乳幼児等の利用度が高く, 社会的影響も大きい
と考えられたので事態を重視し, 昭和58年度は県内産全
ての市販乳を収去し調査した。(表2)

その結果, α -BHCについては低レベルで検出さ
れたがディルドリンは殆ど検出されなかった。しかし今
回の調査は8月に行ったものであり, 生乳の調査時期
(1月)と比べ外国産ビートパルブによる飼育は少ない
と考えられる。前報⁵⁾の市乳(3月採取)では0.002~
0.003 ppmのディルドリンが検出されていることを考え
ると, 今後は試料の採取時期も考慮に入れて調査をする必
要があると考えられる。

表3には昭和58年度生乳の分析結果, 図3では昭和52
年からの生乳中ディルドリンの経年変化を示した。

図3から明らかなように昭和56年からディルドリンの
増加傾向が認められており, 58年はやや下がっているが
今後の動向も注視していく必要がある。

ディルドリンはDDTやBHCに比し, 毒性が強くA
DIを比べてもDDTの1/50, γ -BHCの1/125であ
る。(ADI:ディルドリン0.1 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$, DDT
5 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$, BHC 12.5 $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$)

体重25kgの子供の場合, ディルドリンのADIは2.5
 $\mu\text{g}/\text{day}$ となり, 0.01ppmの牛乳では250ml(牛乳1.25本
分)を飲むとADIを超えてしまう。このことから非
常に重要な問題と考えられ, 早急な汚染防止対策が望ま
れる。

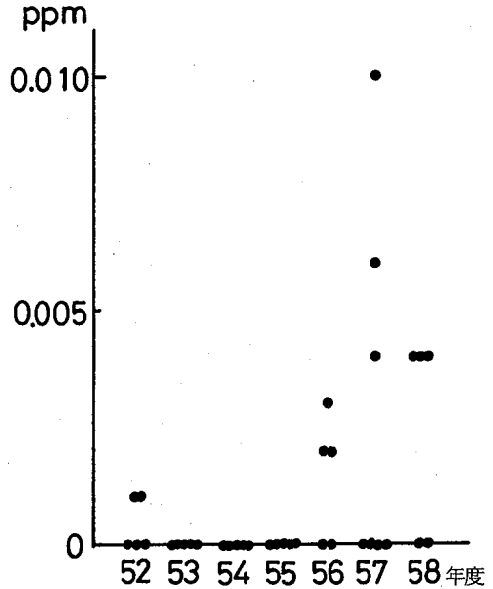


図3 生乳中ディルドリンの経年変化

参 考 文 献

- 1) 鈴木 滋, 他:宮城衛研年報, 56, 53 (1981)
- 2) T.Suzuki et al: J. Assoc. Off. Anal. Chem., 62, 681~694 (1979)
- 3) 佐藤信俊, 他:宮城衛研年報, 56, 64 (1981)
- 4) 菊地秀明, 他:宮城県保健環境センター年報, 2, 93 (1984)
- 5) 小野研一, 他:宮城県保健環境センター年報, 1, 135 (1983)

13 宮城県女川湾産ムラサキイガイのマヒ性貝毒の成分

菊地 秀明 牛沢 勇

1. はじめに

近年、マヒ性および下痢性貝毒による貝の毒化は全国的に起きていることが明らかになってきたが¹⁾²⁾、宮城県においても昭和38年に気仙沼湾で赤血貝がマヒ性貝毒により毒化していることが報告された³⁾のに始まり、マヒ性貝毒による毒化はほぼ毎年のように起きている。

マヒ性貝毒は渦鞭毛藻の*Protogonyaulax catenella*や*P. tamarensis*を貝が摂食することにより生じることが明らかにされており、毒の本体として現在まで

Saxitoxin (STX) の他、Neo STX や Gonyautoxin 群 (GTX 1-8) が存在することが報告されている¹⁾²⁾。

今回、毒化の定点調査を行っている女川湾で昭和56年3月に急激に毒化した⁴⁾際のムラサキイガイを用い、そのマヒ性貝毒成分を分析した。その結果、主成分は GTX 2, GTX 3, GTX 4 であることがわかった。

2. 方法

2.1 試料

昭和56年3月25日、女川湾横浦産ムラサキイガイ中腸腺 (45.2 MU/g 中腸腺) を試料とした。中腸腺は分析まで -20°C に凍結保存した。

2.2 貝毒の抽出

中腸腺 250 g に、塩酸で pH 2.0 に調整した 80% エタノールを倍量加えてホモジナイズ後、遠心分離して上澄液を得た。残留物について同様の操作を 2 回行った。これら上澄液を合わせ、減圧下でエタノールを除去するとともに濃縮した。濃縮液を等量のクロロホルムで 3 回脱脂後、水層を減圧濃縮した。

2.3 貝毒の精製

上記抽出液を 1N NaOH で pH 5.5 に調整した後、クロマトグラフィー用活性炭カラムに加えた。毒が吸着された後、カラムを蒸留水で十分洗浄した。つぎに、1% 酢酸を含む 20% エタノールで毒を溶出させた。

溶出液は減圧濃縮後 pH 5.5 に調整し、水で十分洗浄した Bio-Gel P-2 のカラム (100-200 メッシュ, 2.5 × 35 cm) に付して毒を吸着させた。カラムに蒸留水を流して後、0.05N 酢酸で毒を溶出させた。

有毒画分を濃縮し pH 5.5 に調整した後、Bio Rex 70 (H⁺型, 50-100 メッシュ, 1.5 × 50 cm) のカラムクロマトグラフィーに供した。溶離液として 0.03N 酢酸 250 ml を流した後、0.01N 塩酸に変え 100 ml 溶出し、

各フラクション (4 ml) につき毒量を測定した。

図 1 に精製法の概略を示した。

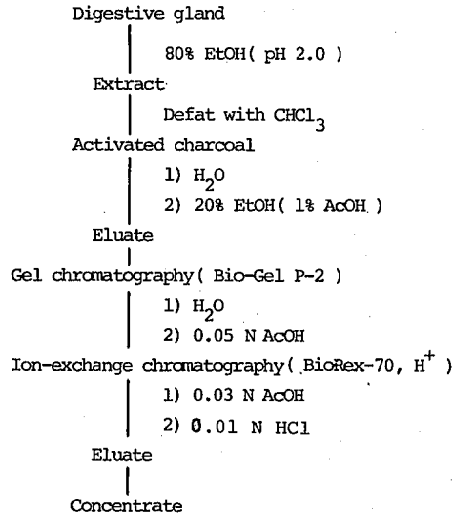


図 1 Isolation of PSP from Mussel, *Mytilus* sp.

2.4 電気泳動

試料液の濃度を 1000 MU/ml 以上とし、あらかじめ 40% メタノール中に浸漬しておいた酢酸セルロース膜 (富士写真フィルム製セパラックス, 6 × 22 cm) に試料液 1 μl を塗布した。緩衝液には 0.08 M トリス・塩酸緩衝液 (pH 8.7) を用い、0.5 mA/cm 幅で約 15 分間泳動を行った。泳動後、膜を乾燥させてから 1% 過酸化水素水をわずかに噴霧し、110°C で 5 分間加熱した。検出は 365 nm の蛍光ランプを用いて行い、STX に対する移動度を表わした。

2.5 薄層クロマトグラフィー

担体にシリカゲル G60 (Merck 製, 20 × 20 cm) を用い、展開溶媒にピリジン・酢酸エチル・水・酢酸 (75 : 25 : 30 : 15) を用いた。展開後風乾し、有毒成分を電気泳動の場合と同様にして検出した。

2.6 貝毒標準品

標準として用いた STX は米国 FDA より、GTX 1-4 は東京大学農学部水産化学研究室橋本周久教授より恵与されたものを用いた。

3. 結果

3.1 毒の抽出および精製

ムラサキイガイ中腸腺からの貝毒の抽出・精製の各段

階における毒量の回収率は、各段階で60%以上であった。図2(a)に Bio Gel P-2 カラムクロマトグラフィーにおける溶出パターンを示した。水溶出画分に約10%の毒成分が検出されたが、大部分は0.05 N酢酸画分に溶出された。0.05 N酢酸画分は若干黄色に着色していた。

図2(b)に Bio Rex-70 カラムクロマトグラフィーにおける溶出パターンを示した。0.03 N酢酸画分に2つのピークがあらわれ、初めのピークをFr I、うしろをFr IIとして毒成分の分析に供した。0.01 N塩酸画分にもわずかに毒成分が検出された。これら画分はほとんど無色透明であった。

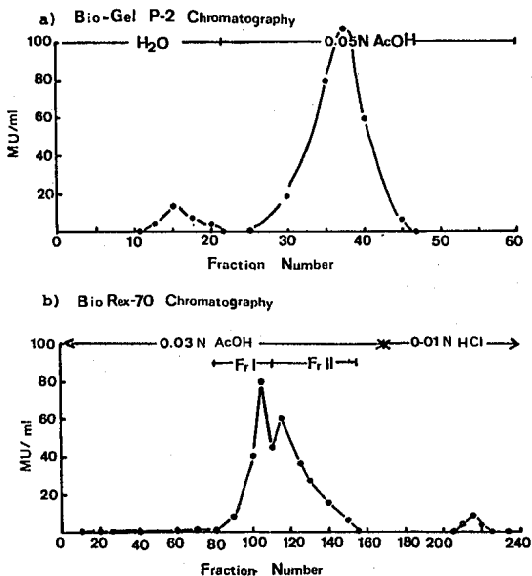


図2 Purification of SPS

3.2 毒成分の同定

試料液の電気泳動図を図3-aに、薄層クロマトグラムを図3-bに示した。Fr IはGTX 1, GTX 2およびGTX 3, Fr IIはGTX 2およびGTX 3を含んでいた。この結果から、女川湾産ムラサキガイの貝毒成分はGTX 1~3を主成分としていることがわかった。

これまで報告された北日本海域におけるホタテおよび原因プランクトンのマヒ性貝毒成分を表1に示したが、大船渡湾⁵⁾および雄勝湾⁶⁾産ホタテの毒成分はGTX 1~4が主成分であり、STXやNeo STXはわずかしか存在せず、今回のわれわれの結果と似ていた。

原因プランクトンの *P. tamarensis* には Neo STX が比較的多く含まれていることから、貝内で代謝されて STX や GTX 2 になると考えられている。⁷⁾

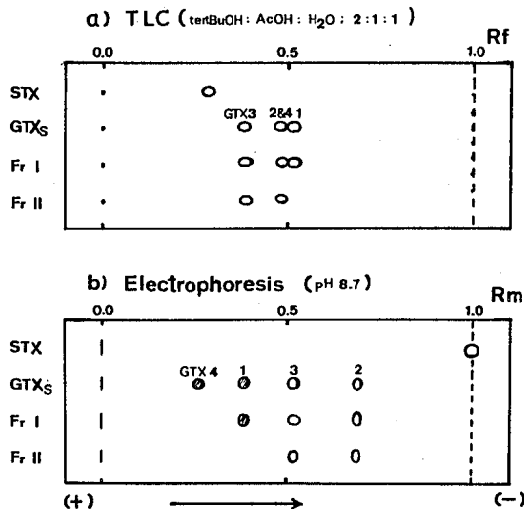


図3 Identification of PSP

表1 Toxic Composition of PSP in Northern-Japan

Bay	Date	Sample	GTX ₁	GTX ₂	GTX ₃	GTX ₄	STX	neoSTX	unknown
Funaka Bay	1978.8	<i>P. tamarensis</i>	++	+	++	+	tr	+	+
	"	Scallop	++	+	++	+	+	+	+
Okkirai *	1979.4	<i>P. tamarensis</i>	+	tr	+	++		+++	+
Ofunato *	1977.6	<i>P. tamarensis</i>	++	tr	++	+	tr	+	+
	1979.3	"	++	tr	++	+		+	+
	1980.3	"	++	tr	++	+		++	+
	1976.5	Scallop	+	+++	+++	+	tr		
	1977.6	"	+	+++	+++	+	tr		
	1978.6	"	+++	++	++	+	tr		+
	1979.3	"	++	++	++	+	tr	+	
Kesen-ruma	1979.6	<i>P. tamarensis</i>	+	tr	+	+		+++	+
Ogatsu *	1979.6	Scallop	++	+	++	++	+	+	++

謝 辞

貝毒標準品を恵与下さった東京大学農学部水産化学研究室橋本周久教授並びに野口玉雄博士、及び米国FDAに感謝申し上げます。

参 考 文 献

- 野口玉雄, 橋本周久: 医学のあゆみ **112**, 861 (1980)
- 野口玉雄: 衛生化学 **29**, P-10 (1983)
- 佐藤良裕 他: 宮城衛研報告 **45**, 99 (1966)
- 菊地秀明 他: 宮城衛研年報 **56**, 58 (1981)
- Y. Oshima et al.: Bull Japan Soc. Sci. Fish. **48**, 851 (1982)
- Y. Ueda et al.: Bull Japan Soc. Sci. Fish. **48**, 455 (1982)
- 清水讓: 化学と生物 **18**, 792 (1980)

14 合成抗菌剤クロピドールの鶏肉中残留(II)

佐藤 信俊 加茂えり子* 百川 滉**
高槻 圭悟 牛沢 勇

1. はじめに

我々は昭和55年から鶏肉中の残留クロピドールの調査を実施して来たが、検出頻度、残留レベルともしだいに低下する傾向にある。¹⁾一方鶏肉は、処理から出荷までの日数は、比較的短いことなどから、例えクロピドールが検出されたとしても、結果が出るころには同一ロットの製品は消費されつくしていることが多い。

以上のことから、行政上迅速かつ微量分析が可能な方法が求められ、これまで高速液体クロマトグラフィー(HPLC)法²⁻⁴⁾や、GC/MS法⁵⁾等が報告されている。

そこで著者らは、スクリーニング法としてHPLC法、定性法としてGC/MS法について追試検討したので報告する。

2. 方法

2.1 試薬

CH₂Cl₂, CH₃I: 和光純薬工業KK, 試薬特級。

相間移動触媒: 臭化四n-ブチルアンモニウム(和光純薬・特級) 0.5gを水100mlで溶解したもの。

その他の試薬は、前報¹⁾に同じ。

2.2 装置

HPLC及びGC/MSの測定条件は、Table 1の通りである。

Table 1 Analytical Condition of HPLC and GC/MS

HPLC

Aparatus; Shimadzu LC-3A/2PD-2A

Column ; Waters Radial Pak C₈

Mobil Phase ; 5mM PIC-B₇/10%CH₃CN/H₂O

Flow Rate ; 2ml/min

GC/MS

Aparatus ; JEOL D300

Column ; 2%OV-17/W, 2m, 180°

Multi. ; 200

Ionization Voltage ; EI, 20 eV

2.3 HPLC法の検討

試料の前処理は、前報同様公定法に準じ、メタノール抽出後、アルミナカラム、次いで陰イオン交換樹脂カラムにより精製した。

HPLCのカラムは、Radial Pak C₈, C₁₈, HP-01(250mm×4mmφ)いずれも逆相系カラムを用いた。溶離液は、アセトニトリル-水系及びペアードイオンクロマトグラフィー用にwaters社製のPIC-B₇を5mM相当添加したものを用いた。

2.4 GC/MS法(相間移動触媒法)によるメチル化

2.3のメタノール抽出液1mlをとり、溶媒留去後2.5N NaOH 2ml; 触媒2ml, CH₂Cl₂ 2ml, CH₃I 200μlを加え40分間振とうする。

水層を除去し、CH₂Cl₂層をGC/MS用試料とする。

3. 結果及び考察

3.1 HPLC法

一般に、クロピドールの分析に使用するHPLCカラムは、逆相系のLichrosorb RP-18, Nucleosil 5 C₁₈等が多く、また移動相はCH₃CN-H₂O系,又はCH₃CN-CH₃COOH-H₂O系が使用されている。²⁻⁴⁾

しかし、クロピドールはピリジン骨格にフェノール性のOH基を有するイオン性の強い化合物であることから、以上の条件では、ピークがテーリングしやすく定量性に欠ける場合が多い。そこで、ペアードイオンクロマトグラフィー法について検討したところRadial Pak C₈カ

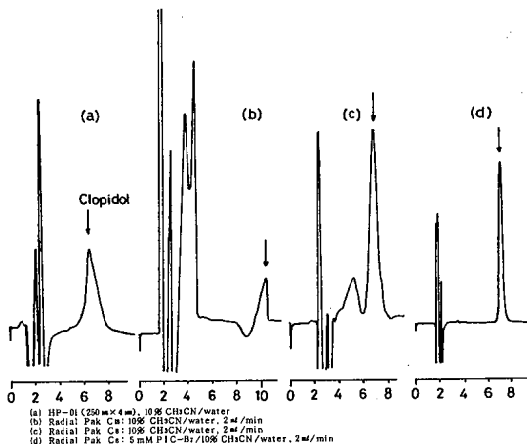


Fig 1 HPLC Chromatograms of Clopidol by Several Conditions

* 現仙塩流域下水道事務所

** 現仙南保健所

ラム, 5 mM PIC-B₇ 10% CH₃CN/H₂O系で Fig.1 (d)の様に対称性の良いピークが得られた。

また, 塩基性アルミナ, 陰イオン交換カラムを用いる精製法をそのまま準用したが, 試料からの妨害ピークは認められなかった。

3.2 相間移動触媒によるメチル化

以上の様にHPLC法による定量測定は, 比較的簡易であるが, 定性試験としては不十分でありGC/MSを用いるのが確実である。

この場合, クロピドールのメチル化など何らかの処理によりGCに適した誘導体を作る必要がある。

公定法では, ジアゾメタンを用いてメチル化後ECD/GCで測定する方法を採用している。しかし, ジアゾメタンは用時に調製しなければならないことや, 爆発などの危険性を伴うことなどから良い方法とは言えない。

そこで, 高槻ら⁶⁾, 岸原ら⁵⁾がそれぞれサッカリン, クロピドールに应用している相間移動触媒法の諸条件を検討した。

3.2.1 アルカリ濃度

種々の濃度のアルカリ液を一定量 (2 ml) 添加してメチル化を行った。NaOH, KOHのいずれの場合でも濃

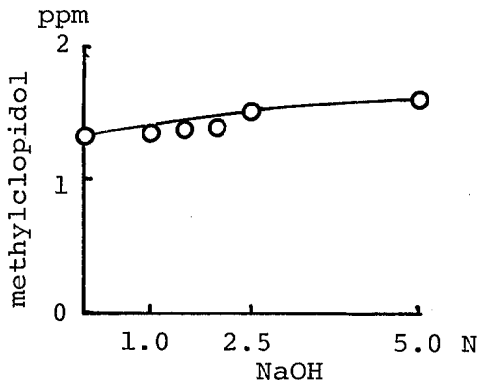


Fig.2 Effect of NaOH Concentration

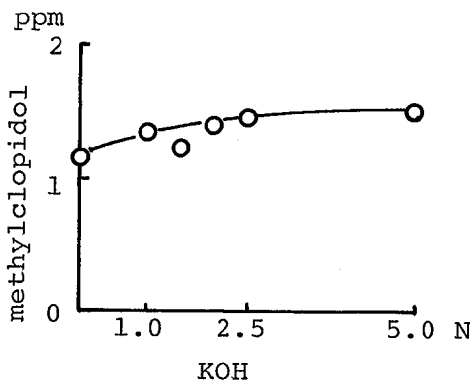


Fig.3 Effect of KOH Concentration

度が増すごとにメチルクロピドールの生成が増し, 約2.5 Nで一定値になっている (Fig. 2, 3)。以上より2.5 NのNaOH水溶液を2 ml加えることとした。

3.2.2 触媒濃度

メチルクロピドール生成と相間移動触媒 (臭化四n-ブチルアンモニウム) 濃度の関係は, Fig.4の様に0.25%以上ではほぼ一定値を示したことから, 0.5%液を2 ml添加することとした。

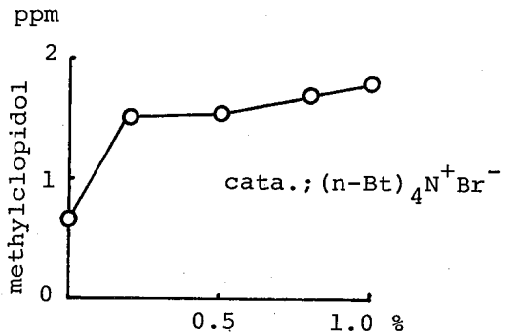


Fig.4 Effect of Catalyst Concentration

3.2.3 ヨウ化メチル量

同様にヨウ化メチル量は, 100 μl以上で一定となったので, 余裕をみて200 μlとした。(Fig. 5)

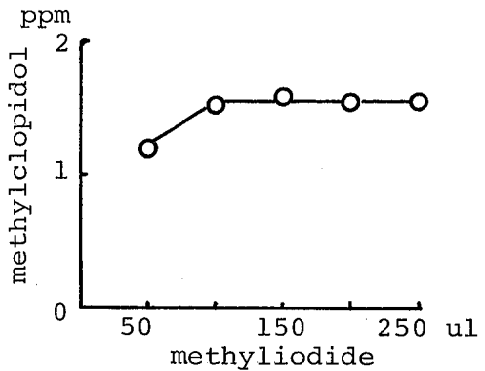


Fig.5 Effect of Amount of Methyl iodide

3.2.4 反応時間 (振とう時間)

反応は, 栓付きの10mlスピッツ管に入れ, 振とう器を用いて行ったが, Fig.6に示した様に, 振とう時間は約40分以上で一定値を示したので振とう時間を40分とした。

以上の各条件の検討結果, 2.4に示した方法でメチル化することとしたが, これらは岸原らの結果とはほぼ一致していた。

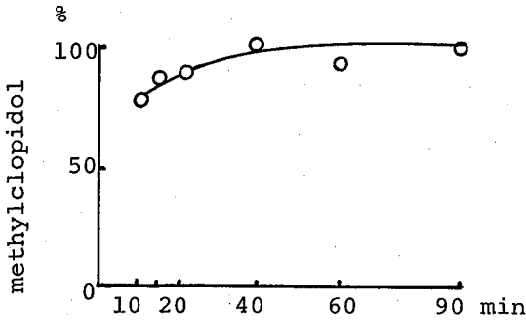


Fig. 6 Effect of Reaction Time

3.2.5 GC/MS

メチルクロピドールのマススペクトルは、Fig7の様に

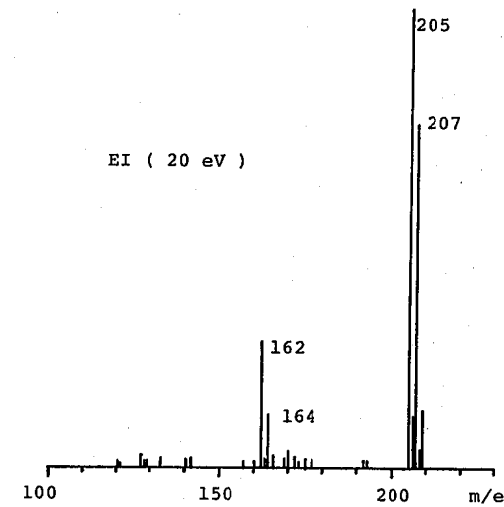


Fig. 7 GC/MS Spectrum of Methylclopidol

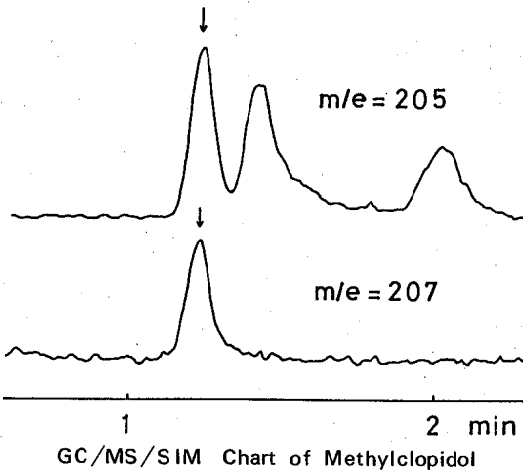


Fig. 8 Gas Chromatograms of Methylclopidol by GC/MS/SIM

ベースピークが m/e 205 (M^+)で、塩素を2個もつことから、 m/e 207にも強いピークをもつ。そこで m/e 205, 207の2つのチャンネルでモニターしたところ、205ではメチルクロピドールの後に妨害ピークがみられたが、207では全くみられないことから、定量する場合は m/e 207で行うのが望ましいと思われた。

3.3 添加回収

市販の鶏肉を用いてHPLC法及びGC/MS法での回収試験結果をTable 2に示した。

それぞれスクリーニング、同定のための方法として検討したが、回収試験の結果から十分に定量法として利用出来るものと思われる。

尚、相関移動触媒法については、メタノール抽出前からの全操作回収試験 (GC/MS(1))と、抽出後に添加したもの (GC/MS(2))では、GC/MS(2)の方が若干良い結果が得られている。また本法による検出限界はHPLC法、GC/MS法でそれぞれ0.01ppm, 0.02ppmであった。

Table. 2 Recovery of Clopidol

conc. (ppm) clopidol	recovery (%)		
	HPLC	GC/MS (1)	GC/MS (2)
0.1	106	77	-
0.5	85	98	105
1.0	94	98	114
2.0	-	-	107

(1); throughout the procedure
(2); after extraction

3.4 鶏肉中の残留試験結果

昭和58年に採取された鶏肉10件について本法を適用したところ、いずれも検出限界以下であった。

参考文献

- 1) 佐藤信俊他：宮城県保健環境センター年報，1，160 (1983)
- 2) 大塚公人他：食衛誌，22，462 (1981)
- 3) 堀義宏：食衛誌，24，447 (1983)
- 4) C. A. Mtema：J. AOAC，67，334 (1984)
- 5) 岸原聡：石川衛公研年報，19，263 (1982)
- 6) 高槻圭悟他：食衛誌，21，476 (1980)

15 水田用殺菌剤の魚介類中残留

鈴木 滋 山田 わか 佐藤 信俊
高槻 圭悟 牛沢 勇

装置及びMS-DK 400S コンピューター

1. はじめに

著者らは昭和55年以来CNP等各種水田用除草剤の魚介類中残留を調査してきた^{1)~5)}。その結果、これら除草剤は散布時期に一致し、5~6月の期間中に農業用水と共に河川に流出し魚介類を汚染していることを明らかにした。

一方、これら除草剤と共に水田に多量に散布される農薬として殺菌剤があり、これらの散布は7~9月までが宮城県内ではピークとなっている。我々は前報でシジミ等に、殺菌剤の中でも最も使用量の多いIBP(S-benzyl diisopropyl phosphorothiolate)が7~8月をピークに残留していることを報告したが⁶⁾、今回はその分析の過程で同様な殺菌剤のイソプロチオラン(diisopropyl 1,3-dithiolan-2-ylidene malonate)を検出したので、その同定法及び、IBP、イソプロチオランの魚介類中残留経時変化についての結果を報告する。

2. 実験方法

2.1 試料

昭和57年度：県内の定点(A)で6月から9月までの期間中に毎月2回シジミ及び水を採取した。

昭和58年度：県内の定点(B)で7月から9月までの期間定期的にドジョウを、他の定点(C)で同期間フナを採取した。

2.2 試薬及び標準品

アセトニトリル、n-ヘキサン、ベンゼン、酢酸エチル；残留農薬試験用(和光純薬工業(株)製)

無水硫酸ナトリウム；残留農薬試験用(和光純薬工業(株)製)

フロリジル；和光純薬工業(株)製60~80メッシュ、フロリジルを650℃で3時間活性化後130℃で3時間放置後密栓して保存

IBP、イソプロチオラン標準品；和光純薬工業(株)製試薬標準品

2.3 装置

ガスクロマトグラフ；(株)島津製作所製ECD(⁶³Ni)型GC-4CM, FPD型GC-4CM

ガスクロマトグラフ, 質量分析計(GC-MS)；日本電子社製JGC-20K型GC, JMS-D300型質量分析

3. 実験操作

3.1 河川水中イソプロチオランの分析

試料1ℓに無水硫酸ナトリウム20gを加えn-ヘキサン150mlで振とう抽出する。抽出液をKD濃縮器で1mlまで濃縮後ECD-GC及びGC-MSに付す。

○ガスクロマトグラフィー条件(ECD)

カラム；2%DEGS+0.5% H_3PO_4 , 2m×3mmφ
カラム温度；180℃

○GC/MS条件

カラム；2%OV-17, 1m

カラム温度；260℃

イオン化電圧；30eV

イオン化電流；200μA

3.2 魚介類中IBP、イソプロチオランの分析

均一化したサンプル10gに無水硫酸ナトリウム15gを加えアセトニトリル20mlで3回抽出する。終了後アセトニトリルに水150ml, 無水硫酸ナトリウム3gを加えn-ヘキサン, ベンゼン混液(1:1)50mlで2回抽出する。n-ヘキサン, ベンゼン層を無水硫酸ナトリウムで脱水後, 濃縮しフロリジルカラム(上部に無水硫酸ナトリウム3gを上積したもの)3gに付す。酢酸エチル, n-ヘキサン混液(2:98)80mlでカラムを洗浄後, 酢酸エチル, n-ヘキサン混液(25:75)100mlで溶出し, 5mlに濃縮後FPD-GCに付す。

○ガスクロマトグラフ条件(FPD)

①カラム；5%DEGS, 2m×3mmφ

カラム温度；220℃

②カラム；5%OV-210, 2m×3mmφ

カラム温度；220℃

4. 結果と考察

4.1 河川水中イソプロチオランの同定

昭和57年度に行ったIBPの分析の過程⁶⁾で河川水のn-ヘキサン抽出物中にECD-GCで8月上旬に最も大きく未知物質が見いだされた。(図1)

本物質をGC-MSで検討した結果(図2), 分子量290であることから, IBPと同様な水田用殺菌剤であるイソプロチオランが推定された。そこで標準品を購入しECD-GC及びGC-MS(図2)で検討した結果その挙

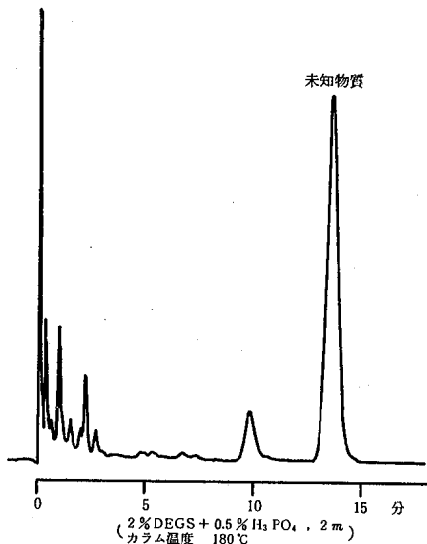


図1 河川水 n-Hex. 抽出物のECD-GC

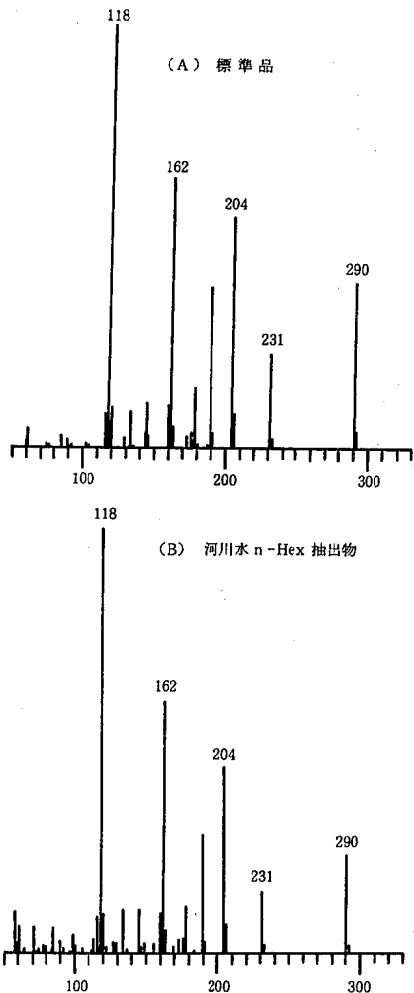


図2 イソプロチオランのGC-MS

動が完全に一致した。以上より、本物質はイソプロチオンと同定された。

4.2 IBP, イソプロチオランの魚介類中残留

前述のように、昭和57年度の河川水からイソプロチオランが検出されたので、同年にIBPを分析したシジミ及び河川水(A地点)⁶⁾での残留経時変化を調べた。(図3)

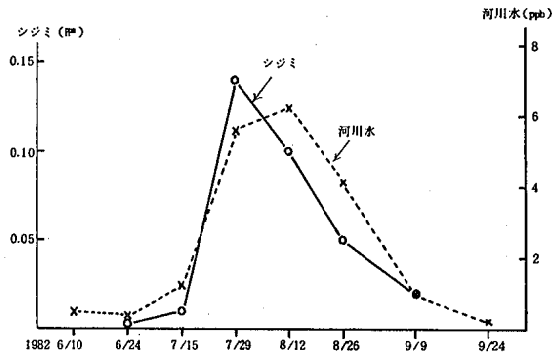


図3 シジミ及び河川中のイソプロチオラン経時変化

図から明らかなように水、シジミともに非常に似たようなパターンを示し7月下旬から8月上旬に最大になり、以後減少している。このピークの時期は前報⁶⁾でのIBPの時期とも一致しており、県内の殺菌剤散布がピークになっている時期と考えられる。またシジミ中と河川水中との濃度の比を調べると約30倍であり(IBPは約

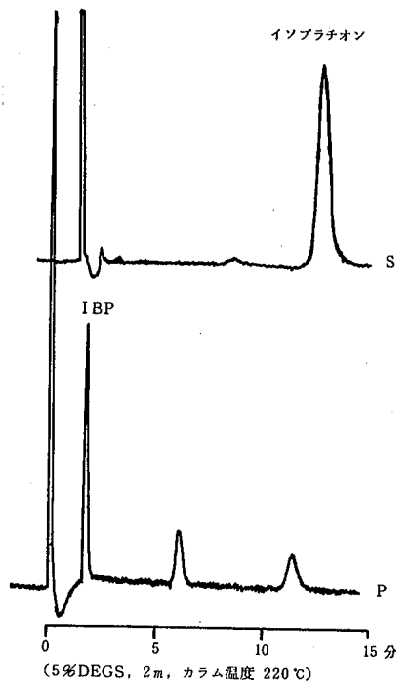


図4 フナ中のイソプロチオラン, IBPのFPD-GC

100倍⁶⁾、シジミでの濃縮率はIBPより低いことがわかる。

昭和58年度は県内の定点で採取したフナ、ドジョウについて、IBP、イソプロチオランの残留経時変化を調べた。(図4、図5)

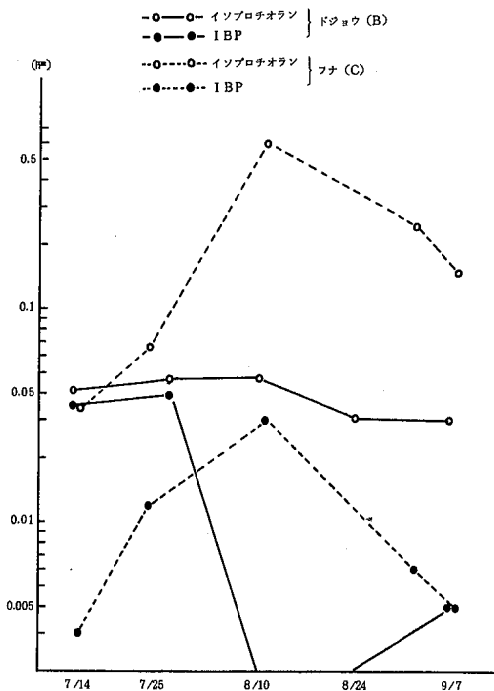


図5 ドジョウ、フナ中のイソプロチオラン、IBPの経時変化

図4にはフナのFPD-GCを示したがバックグラウンドが小さく、明瞭にIBP、イソプロチオランのピークが認められる。

図5にはその経時変化を示したが、C地点のフナでは

イソプロチオランが8月10日に最高0.6ppmを示した。C地点はIBP、イソプロチオランともに8月10日に最高値を示しているが、イソプロチオランの方が高レベルであった。

一方B地点のドジョウではイソプロチオランが7月から9月まではほぼ同レベルであり、顕著なピークは認められなかった。またIBPは8月10日、24日は検出されず低レベルであった。

以上のようにドジョウ、フナではIBPよりイソプロチオランの方が高くシジミとは逆の傾向になった。しかし昭和58年度は河川水の分析を行わなかったため、魚種による違いなのか、又は地域的な差に由来するものなのかは明らかにできなかった。またB地点のIBPについては従来とは全く異った経時変化を示しており、今後さらに検討を要するところである。

また環境庁が農薬取締法に基づき設定した農薬の登録残留基準によると、米でIBPが0.2ppm、イソプロチオランが2.0ppmとなっている。魚類と米の摂取量の違いはあるが、これを一応の安全の目安と考えると今回はすべて基準以下となっている。しかし、農薬中の不純物や農薬の代謝物も含めた総合的な毒性評価についてはまだまだ未知の分野であり、さらに検討する必要があると思われる。

参 考 文 献

- 1) 佐藤信俊 他：食衛誌，22，50～55(1981)
- 2) 石川 潔 他：食衛誌，22，56～59(1981)
- 3) 佐藤信俊 他：食衛誌，23，456～461(1982)
- 4) 鈴木 滋 他：食衛誌，24，187～193(1983)
- 5) 鈴木 滋 他：宮城県保健環境センター年報，1，53～54(1983)
- 6) 鈴木 滋 他：宮城県保健環境センター年報，1，53(1983)