石川県保健環境センター研究報告書

第 35 号

(平成9年度)

1998

石川県保健環境センター

は　し　が　き

本35号より，これまでの「石川県保健環境センター年報」の編集方針を改め，当センターの活動の実態と調査研究の成果を平易に取りまとめ，行政担当者や一般県民を対象に提供する「石川県保健環境センター業務年報」と，調査研究に関する学術的な成果を収録し，専門的な調査研究機関を対象に提供する「研究報告書」とを別冊で発行することとした。

ここに，新しい編集方針によりとりまとめた「平成９年度研究報告書」をお届けする。より良い冊子とするために，専門的な観点からのご指導，ご助言を賜ることができれば望外の喜びである。

平　成　11　年　3　月

石川県保健環境センター所長　　庄　田　丈　夫

目　　　次

（報　　文）

ムラサキイガイを生物指標とした石川県沿岸域における有機スズ化合物濃度分布 …… 小森　正樹ほか …（1）

石川県沿岸に漂着したナホトカ号流出重油中のn-アルカンとアルキルPAHの組成 … 北野　肇一ほか …（5）

石川県の重油流出汚染域における石油分解細菌の分布 …………………………… 芹川　俊彦ほか …（15）

藻類大量培養加工食品クロレラとスピルリナの品質特性 ………………………… 澤田　道和ほか …（23）

重油汚染指標成分としての多環芳香族炭化水素の分析 …………………………… 大西　道代ほか …（31）

大気浮遊粉じんの化学組成からみた札幌・東京・金沢3都市の大気環境比較 ………… 柿本　　均ほか …（35）

松葉中の放射能調査 …………………………………………………………………… 内田　賢吾 ………（49）

（資　　料）

石川県内の海岸に漂着した重油中のn-アルカンに関する調査結果 ……………………… 平尾真規子 ………（54）

石川県における今冬のインフルエンザ（1997/1998年シーズン） …………………………… 尾西　　一 ………（69）

農産物中の残留農薬実態調査（1994年度～1997年度） …………………………………… 砺波　和子 ………（71）

健康食品に関する共同研究（その3・続報）
　　— 重金属成分について（第2報）— ………………………………………………… 藤澤　明子ほか …（79）

石川県におけるフォールアウト調査結果（平成9年度） ………………………………… 玉井　　徹ほか …（82）

（抄　　録）

妊婦のB型肝炎ウイルス関連マーカー調査成績
　　— 石川県の11年間 — …………………………………………………………… 尾西　　一 ………（85）

石川県保健環境センター研究報告書投稿規定 ……………………………………………………（86）

〔報　文〕

ムラサキイガイを生物指標とした石川県沿岸域における有機スズ化合物濃度分布

石川県保健環境センター化学調査室　小森正樹・加藤充哉

キーワード：Organic Tin Compound (TBT, TPT), *Mytilus galloprovincals*

1 はじめに

有機スズ化合物は，船舶や漁網に防汚剤として広く使用されてきたが，平成2年にトリブチルスズオキシドが「化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律」いわゆる化審法の第1種指定化学物質に，トリブチルスズ化合物，トリフェニルスズ化合物が第2種指定化学物質に指定され，生産禁止，使用中止の措置が講じられた。しかし，有機スズ化合物の難分解性と広範囲にしかも多量にこれまで使用された経緯から，現在までに環境中に広く残留していることが知られ，環境への影響が懸念されている。

有機スズ化合物は海洋生物のうち，特にカキや藻類に対して毒性が認められているが，最近有機スズ化合物は微量であっても巻き貝のイボニシの生殖器官や生殖作用に影響を及ぼすことが分かってきた。このようにこれまで予想もできなかった新たな外因性内分泌攪乱物質（環境ホルモン）の影響が注目されている。[1]

石川県では昭和60年からトリブチル化合物を，平成元年からトリフェニル化合物を追加して，犀川河口部の底質，河川水魚類，能登半島沖のムラサキイガイ等に含まれる濃度の調査を実施し，経年的な変化の把握に努めてきた。[2] しかし最近，指摘されている環境ホルモンの特異的な毒性，長期にわたる残留性，広範囲な使用経緯を考えると新たな汚染影響に関する見直しや上記調査地点だけでは石川県の全体的な有機スズ化合物による汚染状況を認識するには不十分と考えられる。しかし一方で，有機スズ化合物をモニタリングする同一種の生物試料を県下くまなく，網羅したかたちで入手することは容易なことではない。

平成9年1月2日に発生したロシア船籍ナホトカ号の海難事故による重油流出災害に関して県下沿岸域での重油影響の調査が行われ，これに付随して有機スズ化合物の生物モニタリング試料として有効なムラサキイガイを県下を6沿岸海域に区分けし一年を通じて入手出来た。これを用いて県下沿岸における有機スズ化合物の期間的な汚染分布，濃度レベルを把握した。さらに，トリブチルスズ化合物の分解物であるジブチル，モノブチルスズ化合物の濃度についても調査した。

2 調査方法

ムラサキイガイは県下沿岸に広く生息しているが，主として河川水と海水が混じり合う水域を好んで成長する。ここでは，県下を略6海域に分け，海汐域から選定してそれぞれ代表点とし，調査期間は平成9年3月から12月までほぼ2か月毎に5回調査した。調査対象の沿岸地点は図1に，採取場所の状況を表1に示した。

分析法は環境庁環境保健部保健調査室編：昭和63年度及び平成3年度化学物質分析法開発調査報告書，環境庁水質保全局長平成3年11月18日発表「有機スズ化合物に関する水質保全対策」による分析法のトリブチルスズ（以下，TBTと略す。）化合物，トリフェニルブチルスズ（以下，TPTと略す。）化合物の測定法に準拠して行った。

3 調査結果と考察

採取されたムラサキイガイ中の有機スズ化合物濃度を表2に示した。また，TBTについては海域ごとの経時変化を図2に示した。TBTは調査期間中全海域で検出された。一方，TPTは9月を除く調査月で検出された

Organic Tin Compounds Concentration on Ishikawa Prefectural Coast using *Mytilus galloprovincals* as Bioindicator. *by Masaki KOMORI, Mitsuya KATO (Chemicals Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)*

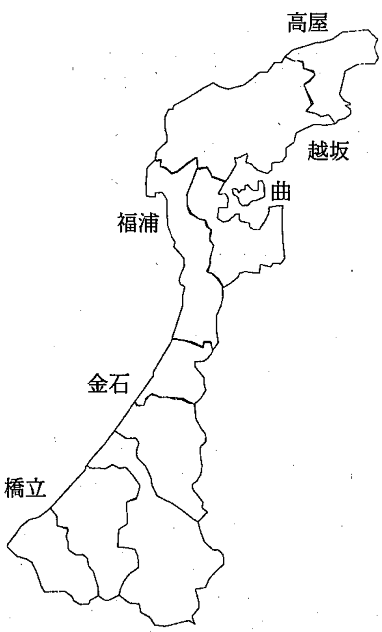


図1　試 料 採 取 地 点

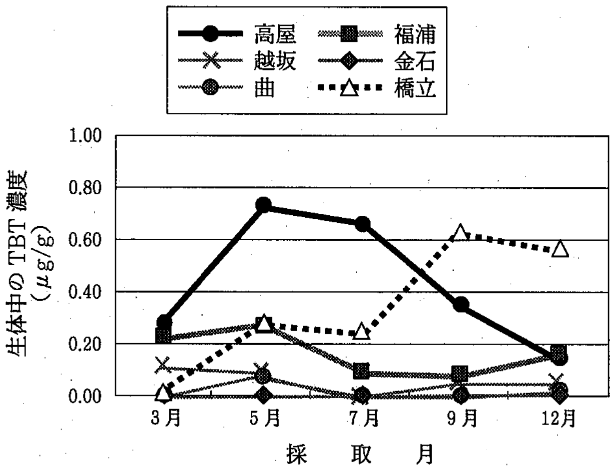


図2　石川県沿岸のムラサキイガイ中の TBT 濃度

が，全海域数の1/6から1/2でしか検出されず，しかもTBTに比べて極めて低濃度であった。このため，本報告ではTBTを中心に議論することとした。TBTの最高濃度は5月に調査した高屋の0.75 μg/gであった。この濃度はこれまで全国で調査されたムラサキイガイ中のTBT濃度の最高値0.78 μg/g（平成5年度岩手県山田湾）[4]に匹敵する濃度となっており，高屋海域はその他の調査月でも他の海域と比べて高かった。高屋地区の近傍である珠洲市沖での環境庁委託生物モニタリング（ムラサキイガイ）調査のこれまででの最高値は0.06 μg/g

表1　ムラサキイガイ採取場所の状況

地　域	採取地点	採 取 場 所 の 状 況
珠 洲 市	高　屋	漁港，岸壁での採取，近くに排水口がある
九十九湾	越　坂	遊覧船の船付き場，岸壁，岩場での採取
能登島町	曲	養殖イカダに付着したものを採取
富 来 町	福　浦	外浦，岩場での採取
金 沢 市	金　石	金沢港防波堤，岸壁での採取
加 賀 市	橋　立	漁港，船着場斜岸での採取

で，現在では0.005 μg/g（報告下限値）以下となっている。このような低濃度範囲の海域の近くに生物蓄積が高濃度で進んでいる海域が存在することは，有機スズ化合物の汚染実態については一見清浄海域とみなされる海域であっても，微量で問題となる化学物質は慎重で詳細，綿密な調査が必要であることを示唆している。この高濃度レベル出現について，本県では有機スズ化合物の使用実態が漁業に関連するものに偏向していると予想され，漁港として歴史ある高屋地区では使用禁止になっても依然有機スズ化合物がかなり残留していることを示している。採取場所が漁港もしくはその近傍である福浦，橋立でも濃度が高くなる傾向を示しており，また，漁港でなくても越坂のような遊覧船の頻繁な運行場所でも高い傾向を示している。これらに比較して外洋に面する金石の防波堤で採取されたムラサキイガイ中の濃度は低くなっている。一方，内湾の能登島曲は金石より2ないし3倍高くなっている。内湾の濃度レベルについて，他の生物種との比較をするために内湾や内海等で養殖される市販カキのTBTを分析した結果，表3に示すように0.015～0.037 μg/gであった。

カキもムラサキイガイと似たような海域環境で生育することからムラサキイガイ濃度とを比較すると同程度かやや高い傾向を示し，カキも有機スズ化合物のモニタリング試料として有効なものと考えられる。カキについてはヨーロッパでの研究でトリブチルスズにより殻肥厚化，生殖不能化，成長不良，死亡等の影響が示され，NOELは海水で20ng/ℓであり，海水のPowは3.54，生物濃縮係数は7,000と報告されている。[4] 生物濃縮係数7,000を用いてカキ濃度から逆計算するとこれらの試料カキの生育海水濃度は2～5 ng/ℓと推定される。さらにムラサキイガイの濃度を用いてカキと同様の生物濃縮係数が7,000と仮定して七尾湾の海水濃度を推算すると0.4～7 ng/ℓとなり，カキの生育海水濃度と同レベルとなっている。

表 2　　石川県沿岸のムラサキイガイ中の有機スズ化合物測定結果

採取場所	TBT 濃度（μg/g）	DBT 濃度（μg/g）	MBT 濃度（μg/g）	TPT 濃度（μg/g）	DBT/TBT	MBT/TBT	MBT/DBT
高屋 3 月	0.2153	0.0089	0.090	<0.0005	0.0381	0.0383	1.0058
高屋 5 月	0.7484	0.0332	0.0104	0.0010	0.0406	0.0127	0.3134
高屋 7 月	0.6138	0.0267	0.1101	<0.0005	0.0398	0.1643	4.1240
高屋 9 月	0.2566	0.0173	0.0154	<0.0005	0.0618	0.0548	0.8869
高屋12月	0.0493	0.0921	0.0153	<0.0005	1.7097	0.2831	0.1656
平　均	0.3767	0.0356	0.0320	<0.0005	0.3780	0.1106	1.2992
標準偏差	0.2924	0.0329	0.0437	<0.0005	0.7445	0.1124	1.6196
越坂 3 月	0.0482	0.0034	0.0060	0.0029	0.0654	0.1141	1.7447
越坂 5 月	0.0540	0.0009	0.0025	<0.0005	0.0152	0.0423	2.7769
越坂 7 月	0.0027	0.0022	0.0116	0.0040	0.7349	3.8803	5.2802
越坂 9 月	0.0517	0.0032	0.0087	<0.0005	0.0570	0.1537	2.6963
越坂12月	0.0456	0.0102	0.0162	<0.0005	0.2051	0.3261	1.5901
平　均	0.0404	0.0040	0.0090	0.0014	0.2155	0.9033	2.8176
標準偏差	0.0213	0.0036	0.0053	0.0019	0.2990	1.6674	1.4781
曲 3 月	0.0119	0.0029	0.0023	<0.0005	0.2260	0.1768	0.7821
曲 5 月	0.0218	0.0010	0.0036	<0.0005	0.0430	0.1500	3.49410
曲 7 月	0.0147	0.0015	0.0019	<0.0005	0.0935	0.1172	1.2542
曲 9 月	0.0086	0.0013	0.0073	<0.0005	0.1375	0.7718	5.6123
曲 12 月	0.0069	0.0040	0.0033	0.0020	0.5331	0.4363	0.8186
平　均	0.0128	0.0022	0.0037	<0.0005	0.2066	0.3304	2.3916
標準偏差	0.0059	0.0013	0.0021	0.0009	0.1945	0.2773	2.1178
福浦 3 月	0.1633	0.0067	0.0066	0.0028	0.0378	0.0369	0.9747
福浦 5 月	0.1828	0.0021	0.0029	<0.0005	0.0103	0.0144	1.3909
福浦 7 月	0.0796	0.0029	0.0150	0.0037	0.0329	0.1723	5.2398
福浦 9 月	0.0865	0.0032	0.0080	<0.0005	0.0338	0.0845	2.4970
福浦12月	0.0569	0.0184	0.0068	0.0014	0.2967	0.1092	0.3679
平　均	0.1138	0.0067	0.0078	0.0016	0.0823	0.0834	2.0941
標準偏差	0.0556	0.0068	0.0044	0.0017	0.1203	0.0622	1.9225
金石 3 月	0.0043	0.0021	0.0065	<0.0005	0.4484	1.3931	3.1071
金石 5 月	0.0058	0.0012	0.0012	<0.0005	0.1956	0.1892	0.9673
金石 7 月	0.0046	0.0017	0.0049	<0.0005	0.3400	0.9906	2.9134
金石 9 月	0.0076	0.0016	0.0060	<0.0005	0.1936	0.7234	3.7370
金石12月	0.0028	0.0121	0.0029	<0.0005	4.0179	0.9703	0.2415
平　均	0.0050	0.0037	0.0043	<0.0005	1.0391	0.8533	2.1932
標準偏差	0.0018	0.0047	0.0022	<0.0005	1.6686	0.4421	1.5041
橋立 3 月	0.0241	0.0028	0.0046	0.0033	0.1046	0.1763	1.6853
橋立 5 月	0.1121	0.0064	0.0016	<0.0005	0.0522	0.0132	0.2524
橋立 7 月	0.1890	0.0033	0.0053	0.0049	0.0158	0.0257	1.6278
橋立 9 月	0.4476	0.0118	0.0109	<0.0005	0.0241	0.0223	0.9252
橋立12月	0.3426	0.0685	0.0212	0.0020	0.1831	0.0566	0.3092
平　均	0.2231	0.0185	0.0087	0.0020	0.0760	0.0588	0.9600
標準偏差	0.1716	0.0281	0.0077	0.0021	0.0692	0.0677	0.6887
全体平均	0.0887	0.0118	0.0109	0.0028	0.3329	0.3900	1.9593
全体偏差	0.1866	0.0208	0.0197	0.0013	0.776	0.7299	1.5821

表３　市販カキの有機スズ化合物の分析結果
（単位：μg/g 新鮮重量）

	TBT	TPT
A　産	0.022	＜0.0005
B　産	0.037	＜0.0005
C　産	0.025	＜0.0005
D　産	0.015	＜0.0005

月別の変化についてはムラサキイガイの個々の大きさ，重量が関係すると考えられるが，試料入手がむき身でしか入手出来なかったため，これらのファクターは考慮出来ず，生体重量当たりの濃度推移となった。海域毎の経時変化が見られるが全体の月毎の特徴は認められない。最高濃度を示した高屋海域は９月まで他の海域から比較すると高濃度レベルを示すが12月に入ると低くなる。逆に橋立の方は９月，12月に入って高くなる傾向を示した。福浦では３月，５月の春期に高い傾向を示したもののその後低くくなっている。他の海域では月毎の大きな増減を伴う変化は余りなく対照的である。このような傾向や濃度推移が今後継続するかどうかは今後の調査課題である。

TBT が分解して，順次アルキル基が抜けて DBT，MBT となっていく過程で生物毒性も低減していくことが知られているが[5] 本調査でのムラサキイガイ中の DBT，MBT 濃度が TBT が体内中で分解して生成したものか，海水から取り込んだものなのか定かではないが，DBT/TBT，MBT/TBT は0.33±0.77,0.38±0.74で MBT/DBT は1.95±1.61であり，何れの濃度も TBT 濃度に比較して低く，また TBT に対するそれぞれ分解物の比はほぼ等しい。有機スズ化合物のアルキル基数が少なくなるにつれて分解しやすく，分解生成物は環境中に残存する割合が小さくなると予想されるが本結果も同様であり，TBT の環境中における残留性の高さを示している。TBT の分解に関しては微生物や藻類の作用に関することが検討されているが貝類の代謝を含めた分解の検討は今後超微量となっても作用影響があると考えられるため重要と思われる。

４　ま　と　め

６つの石川県沿岸海域におけるムラサキイガイ中の有機スズ化合物を調査した結果次のことが判明した。

(1)　有機スズ化合物は使用禁止されたとはいえ，ムラサキイガイを生物モニタリングとした結果では，現在でも広く残存しており，最高濃度で TBT が高屋地区で 0.75μg/g 検出された。

(2)　0.10μg/g を超える濃度が検出された採取場所は，漁港として利用されている地区であった。

(3)　３月，５月，７月，９月，12月の時系列変化の比較では，高屋地区では12月以外全ての月で，橋立地区では３月，５月を除く月でそれぞれ，0.20μg/g を超える濃度が検出されたが，他の地区はほぼ横ばい若しくは同程度のレベルで推移し，時系列変化に一定の規則性は認められなかった。

(4)　TBT の分解生成物である DBT，MBT の濃度比については DBT/TBT，MBT/TBT が平均0.33±0.77，0.38±0.74であり，MBT/DBT は1.95±1.61であった。

文　　献

1)　環境庁リスク対策検討会監修：環境ホルモン，31—51，環境新聞社，東京（1997）
2)　塚林　裕，蔵本和夫，平尾真規子：石川保環年報，32，202—205（1995）
3)　環境庁環境保健部保健調査室：トリブチル錫化合物，環境庁保健調査室資料シリーズ No. 39，17—34（1992）
4)　環境庁環境保健部環境安全課：平成６年版，化学物質と環境，157（1994）
5)　篠田純男，大野木宏：水環境学会誌，15(8)，505—510（1992）

〔報　文〕

石川県沿岸に漂着したナホトカ号流出重油中のn-アルカンとアルキルPAHの組成

石川県保健環境センター化学調査室　北野肇一・泉　広栄・加藤充哉

キーワード：Nakhodka oil spills, alkylated polycyclic aromatic hydrocarbons, n-Alkanes, weathering ratio, source identification

1　はじめに

平成9年1月2日にロシア船籍タンカー「ナホトカ号」（総トン数13,000t，C重油19,000kl搭載）が日本海沖で船体損傷により，船体後部は沈没した。船首部は漂流し，1月7日に石川県境に近い福井県三国町の沖合に座礁した。船首部から推定約6,240klの重油が流出し，福井県から石川県に至る沿岸域の広範囲に重油汚染をもたらす結果となった。

石川県では，加賀から能登に至る沿岸域一帯に漂着した重油による環境汚染の影響を把握するため，沿岸漂着後，各種の調査を実施してきたが，沿岸に漂着した重油がいつまで残存しているかを捉えることは海洋生物等への影響をみるうえで重要なことである。そこで，筆者らは，沿岸砂丘や岩礁等に漂着し，残存している重油の成分に着目してその変化を約1年間追跡してきた。特に，漂着残存油中のn-アルカンとアルキル多環芳香族炭化水素（アルキルPAH）の組成比の変化をみることにより，漂着残存油の分解等による消失の程度，風化作用の進行状況を把握したので報告する。

また，平成9年6月に加賀沿岸に新たな漂着したと思われる重油が打ち上げられたことから，ナホトカ号流出由来の油であるかを識別する検討を行った。

2　調査方法

2・1　調査地域と試料

石川県沿岸の4地域，すなわち，加賀沿岸，金沢沿岸，富来沿岸，珠洲沿岸に漂着した残存油を採取し，分析試料とした。各調査地点は図1に示すとおりである。加賀沿岸は，加賀市塩屋から黒崎に至る砂丘地の多い海岸で福井県三国町に最も近い。金沢沿岸は，金沢市から内灘町に至り，砂丘地形を形成している地域である。富来沿岸は，能登半島外浦に位置し，岩礁が多く海岸は岩場となっている所が大部分である。珠洲沿岸は，能登半島先端に近く，沿岸は岩礁で岩場が険しく人がたやすく近づけない場所が多い地域である。試料は，石川県が実施している石川県ロシアタンカー油流出環境影響調査において平成9年3月から平成10年2月にかけて採取したものを分析に供した。分析に用いた試料は，平成9年3月10

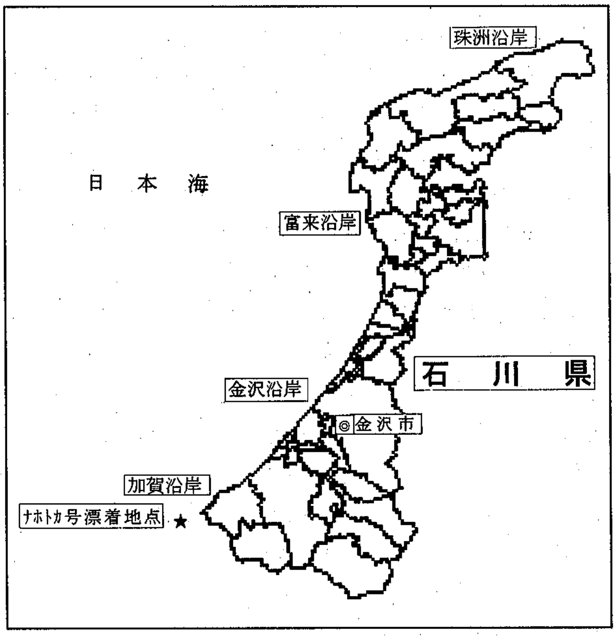


図1　調査地点

n-Alkane and Alkyl PAH Composition in the Nakhodka Oil Spills reached to Ishikawa Coastal Area. *by Keiichi KITANO, Hiroe IZUMI, and Mitsuya KATO* (*Chemicals Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science*)

日～13日，７月１日～11日，平成10年２月３日～18日の３期間に採取したものである。なお，ナホトカ号抜き取りC重油は，粘性が強く黒褐色の臭気を有する油で，福井県三国町海岸に漂着した船首部から平成９年２月10日に抜き取ったものを使用した。加賀沿岸及び金沢沿岸の漂着残存油は，タールボール状で砂が混入しているものが多かった。能登半島の２地域に漂着し岩場等に残存していた油は，海藻や小さな木片などのゴミ類の混入しているものが多かった。

また，平成９年６月に加賀沿岸に漂着した重油の識別には，比較の試料として塩屋海岸残存油（平成９年３月12日採取），片野海岸残存油（平成９年６月12日採取）及び片野海岸漂着油（平成９年６月12日採取）を用いた。

2・2　分析方法

漂着残存油に混入していたゴミや海藻等を事前に取り除き，均一に混合したものをn-ヘキサン抽出物質用と組成分析用に２分し分析試料とした。

n-ヘキサン抽出物質の測定は，ソックスレー抽出法で行った。漂着残存油を１～２g秤量し，これに無水硫酸ナトリウム８～10g程度を加え混和した。よく混ぜたものを円筒ロ紙に入れ，ソックスレー抽出器の抽出管にセットし，約80℃の湯浴上で８～16時間ヘキサンを用いて抽出，定量した。

組成分析は図２に示す方法[1]で行った。漂着残存油を0.2～２g秤量し，これにヘキサン/ジクロロメタン（１/１）20mlを加え超音波振とうを約30分行った。ガラス繊維ろ紙GF/Bでろ過し，さらに残渣にジクロロメタン20mlを加え同様に処理した。ろ液をロータリーエバポレーターで濃縮しヘキサン溶液とした。この溶液をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより脂肪族炭化水素と芳香族炭化水素に分離した。クロマトカラム管にワコーゲルC200（130℃，18時間乾燥）３gを充填し，その上に無水硫酸ナトリウム２gを乗せたものを使用した。このカラムにヘキサン溶液を負荷し，まず，ヘキサン15mlで溶出したもの（F１）を脂肪族炭化水素の分析に，次に，50%ベンゼン含有ヘキサン（V/V）15mlで溶出したもの（F２）を芳香族炭化水素の分析に供した。F１の半量とF２半量を合わせてF３とし，石油系炭化水素の総和とした。この３画分を窒素ガスでそれぞれ0.5mlに濃縮したうえでGC/MSに注入した。GC/MSの測定条件は表１のとおりである。

F１分画からn-アルカン（C_{10}～C_{36}）の成分を，F２分画からは，アルキル多環芳香族炭化水素（アルキルPAH）の成分を分析した。アルキルPAHは，標準品が市販されていないものが多く，また，市販されていても直ちに入手することは可能でなかった。そこで，マスク

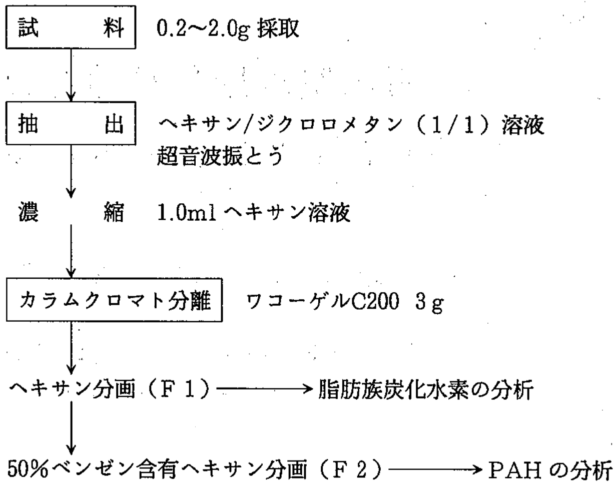


図２　分析方法のフロー

表１　GC/MS測定条件

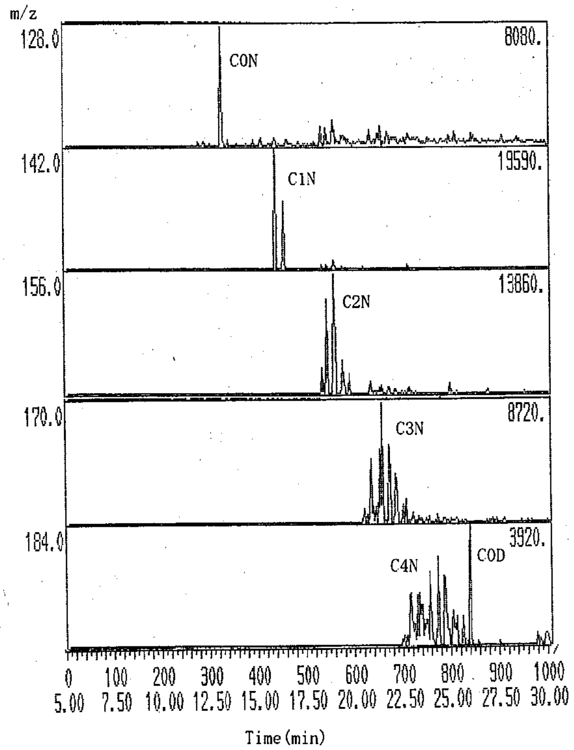
使用機種	:（GC）島津製14A型（MS）島津製QP2000
使用カラム	: DB-5　30m×0.25mm　0.25μm
カラム温度	: 50℃(２min)→６℃/min→300℃
イオン源温度	: 300℃
キャリアーガス	: He，0.6kg/cm²
注入法	: スプレットレス（パージオフ時間１分）
イオン化エネルギー	: 70eV
EM GAIN	: 2.5

ロマトグラムにおけるピーク確認は，マススペクトルライブラリ（NIST/EPA/NIH Mass Spectral Database 1992年版）によりマススペクトラルを比較し，また，文献[1][2]によるクロマトグラムの形状及び保持時間を考慮して行った。また，ナホトカ号抜き取り重油中のアルキルPAH成分のフラグメントクロマトグラム（図３～６）を基準として各物質の確認を行った。漂着残存油等の各試料におけるn-アルカン及びアルキルPAHの成分比は，各成分の濃度比でなく，マスフラグメントグラムが示す各成分の相対ピーク面積比をとった。したがって，試料中の各成分の含有濃度そのものを比較対照したものではないが，試料の相対的な組成変化を追跡することは可能であると考えられる。

3　結果と考察

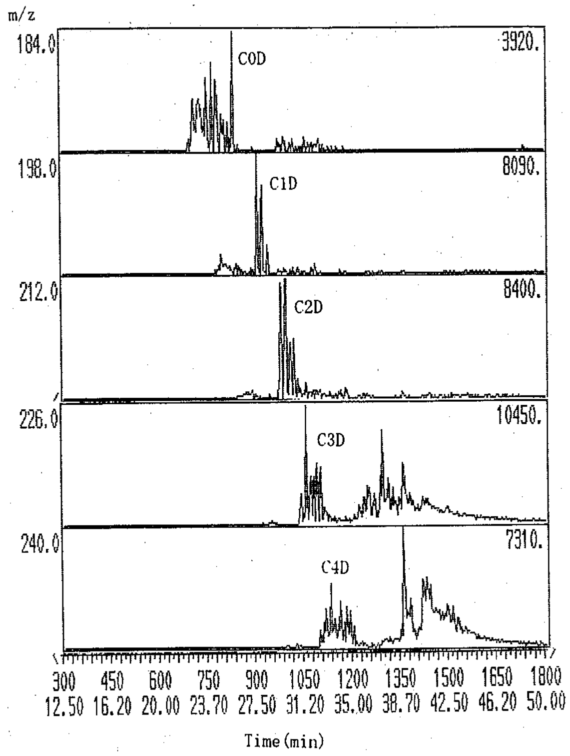
3・1　漂着残存油中の脂肪族炭化水素と多環芳香族炭化水素の含有率

表２に漂着残存油およびナホトカ号抜き取り重油中における脂肪族炭化水素と多環芳香族炭化水素（PAH）の含有率，さらに，漂着残存油中のn-ヘキサン抽出物質の含有率を示した。



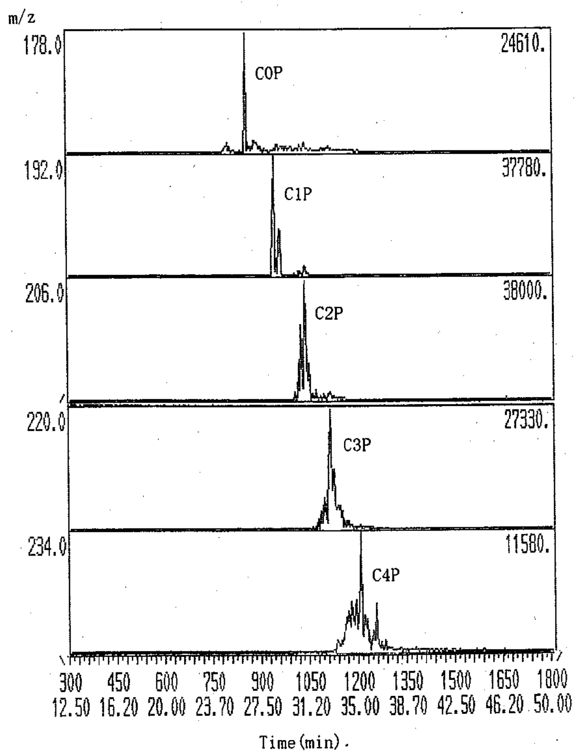
C0～C4：アルキル基の炭素数

図3　　ナホトカ号抜き取りC重油中のアルキルナフタレン類のクロマトグラム



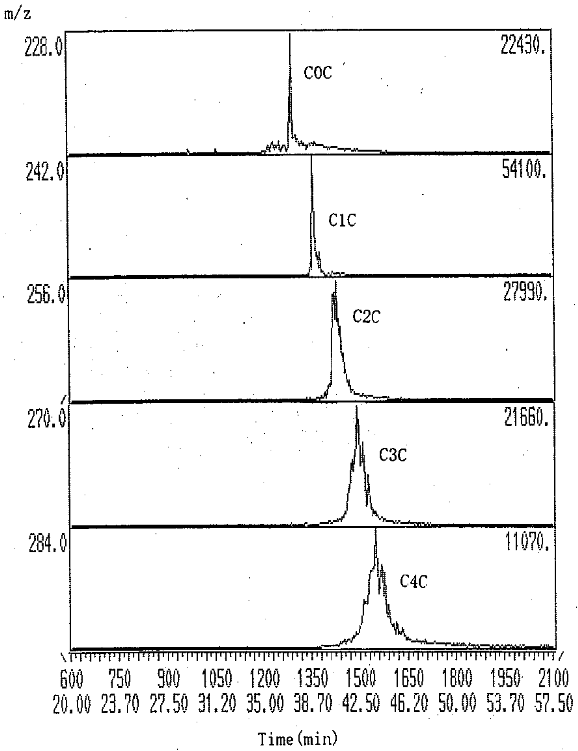
C0～C4：アルキル基の炭素数

図5　　ナホトカ号抜き取りC重油中のアルキルジベンゾチオフェン類のクロマトグラム



C0～C4：アルキル基の炭素数

図4　　ナホトカ号抜き取りC重油中のアルキルフェナンスレン類のクロマトグラム



C0～C4：アルキル基の炭素数

図6　　ナホトカ号抜き取りC重油中のアルキルクリセン類のクロマトグラム

表２　漂着残存油中の脂肪族炭化水素と多環芳香族炭化水素の含有率

試料	n-ヘキサン抽出物質 (%)	脂肪族炭化水素 (%)	多環芳香族炭化水素 (%)
ナホトカ号抜き取りＣ重油	—	43	57
加賀沿岸９年３月	28	52	48
加賀沿岸９年７月	7	43	57
加賀沿岸10年２月	4	36	64
金沢沿岸９年３月	18	45	55
金沢沿岸９年７月	12	42	58
金沢沿岸10年２月	11	37	63
富来沿岸９年３月	35	46	54
富来沿岸９年７月	26	52	48
富来沿岸10年２月	25	38	62
珠洲沿岸９年３月	40	50	50
珠洲沿岸９年７月	22	47	53
珠洲沿岸10年２月	24	51	49

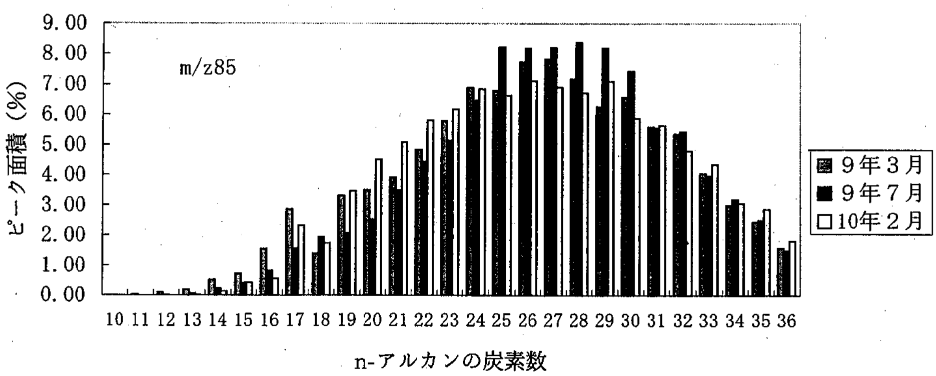


図７　加賀沿岸におけるn-アルカンの経時変化

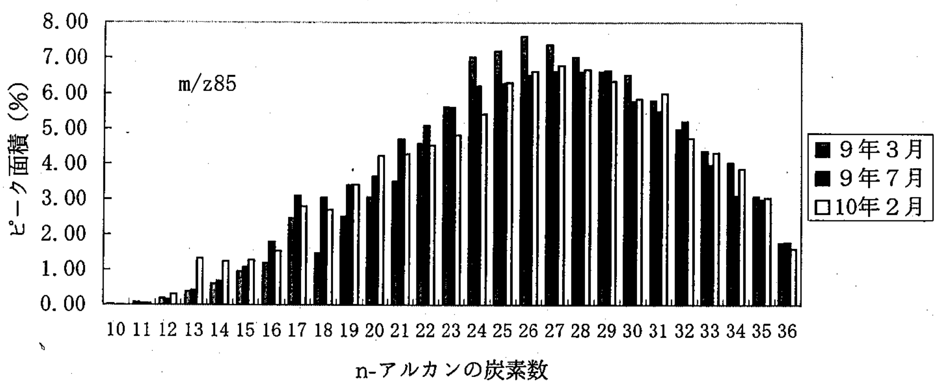


図８　珠洲沿岸におけるn-アルカンの経時変化

珠洲沿岸を除く３地域の試料は，時間の経過とともにn-ヘキサン抽出物質の含有率の減少がみられた。富来沿岸および珠洲沿岸においては，平成10年２月の時点においてもn-ヘキサン抽出物質が約25%と大きいことが注目される。これらの地域では，漂着残存油が岩場などにあるため消失速度が小さく，しかも比較的ゴミ等が少ない試料を採取できたためと思われる。

加賀沿岸及び金沢沿岸において平成９月７月までの時点で，脂肪族炭化水素とPAHの含有率がナホトカ号抜き取り重油中の含有率にほぼ近い値であったのに対して，同時点の富来沿岸及び珠洲沿岸では，脂肪族炭化水素含有率の高い傾向がみられた。平成10年２月の時点における脂肪族炭化水素含有率は，珠洲沿岸で51%と高いのに対し，他の３地域は36〜38%とほぼ類似の含有率になっていた。この３地域では，漂着残存油中の脂肪族炭化水素がPAHより消失，分解などの風化が進行した結果と考えられる。一方，珠洲沿岸では，岩礁，岩場などの地形条件のため風化の進行が抑制されたことが推測される。

3・2　漂着残存油中のn-アルカンの組成比からみた経時変化

n-アルカンは，マスクロマトグラムの中で分子フラグメントの他にm/z85のフラグメントを示すことが特徴的であることから，漂着残存油中のm/z85フラグメントのピーク面積（%）をとって，その組成変化をみた。図７，８に加賀沿岸と珠洲沿岸におけるn-アルカンのピーク面積比をグラフで示した。n-アルカンの総量[3]としては，加賀沿岸で平成９年３月の6.86mg/g湿重から平成10年２月の0.87mg/g湿重へと大きく減少している（表３）ものの，その組成としては高質量側へ幾分シフトしているだけであった。富来沿岸では平成９年３月の3.76mg/g湿重から平成10年２月の4.36mg/g湿重と変化がみられない

表 3　　n-アルカンの風化指標

指　　　標	ナホトカ号抜き取り油	加賀沿岸			金沢沿岸			富来沿岸			珠洲沿岸		
		9年3月	9年7月	10年2月	9年3月	9年7月	10年2月	9年3月	9年7月	10年2月	9年3月	9年7月	10年2月
CPI(total n-alkanes)	1.03	0.99	0.98	1.04	1.01	1.00	0.95	1.02	0.97	0.06	1.00	1.01	1.03
$(C_{12}+C_{14}+C_{16})/(C_{24}+C_{25}+C_{28})$	0.31	0.10	0.05	0.03	0.03	0.03	0.00	0.07	0.04	0.07	0.09	0.14	0.16
$(C_{12}+C_{14}+C_{16}+C_{18})/(C_{24}+C_{25}+C_{28}+C_{30})$	0.44	0.12	0.10	0.09	0.09	0.06	0.12	0.15	0.12	0.13	0.12	0.23	0.23
total n-alkanes (mg/g 湿量)	—	6.86	1.28	0.87	9.01	1.88	0.72	3.76	9.14	4.36	9.23	6.00	6.21

注）CPI：奇数のn-アルカン類の合計を偶数のn-アルカン類の合計で除した指標

（表3）が，組成としては高質量側へより大きくシフトしていることがわかった。

次に，マスフラグメントのピーク面積比から漂着残存油の風化の指標化を試みたのが表3である。炭素数がほぼ10までのn-アルカンは，海上への流出後，数日間で気化と溶解により揮散し，炭素数14前後のn-アルカンは微生物分解を受けやすく，炭素数28前後は分解を受けにくいとされている[4]。そこで，n-アルカンの風化指標（WI）として$WI=(C_{12}+C_{14}+C_{16}+C_{18})/(C_{24}+C_{26}+C_{28}+C_{30})$の比をとった。加賀沿岸では，WIの値が漸減の傾向にあり，風化が進行しているものと考えられる。金沢沿岸及び富来沿岸では，風化があまり進行していなく停滞状態にあり，珠洲沿岸にあっては，ほとんど風化が進んでいないものとみなされる。

3・3　漂着残存油中のアルキル基を有しないPAHの経時変化

重油等の石油系燃料には，多種類のPAHを微量に含有しており，環境中に流出した場合にその毒性を長時間保持しながら影響を及ぼすことが明らかになっている。その分解，消失の進行を把握することは重要なことである。海上に流出した重油成分の中で2環から3環のPAHは，環境中で分解が迅速であるが，4環以上のPAHは，比較的残留性が高いと言われている[4]。そこで，図9に5環を有するベンゾ（a）ピレンの濃度変化[3]を示したが，約1年後にも濃度の減少は余りみられない。図には示さなかったが，5環のベンゾ（k）フルオランテン及び6環のベンゾ（ghi）ペリレンの濃度変化も同様な傾向がみられた。

原油及び精製油の中に含まれ3環のヘテロ環状化合物であるジベンゾチオフェンの経時変化は，図10のとおりであった。加賀沿岸においては，5環のベンゾ（a）ピレンにバラツキがみられるものの濃度はおおよそ一定傾向にあったのに対し，ジベンゾチオフェンにあっては漸減傾向がみられた。珠洲沿岸においては，試料の湿重あたり，また，n-ヘキサン抽出物質あたりにおいても各成分の濃度にバラツキがみられ，減少傾向がみられなかった。この傾向は，前述のn-アルカンの経時変化に類似していた。砂丘地の加賀沿岸と岩場の多い珠洲沿岸との地域の沿岸環境の相違が，PAHの分解，消失の程度に現れた結果と考えられる。

3・4　漂着残存油中のアルキルPAHの成分比

ナホトカ号抜き取り重油の成分を検索したところ，炭素数1から4のアルキル基を有するアルキルPAHが多く検出された[5)6)]のが特徴的であったので，漂着残存油のアルキルPAH成分の変化を捉えることにした。

各地域の漂着残存油に含まれているナフタレン（N），フルオレン（F），フェナンスレン（P），ジベンゾチオフェン（D），クリセン（C）及びそれらのアルキル同族体についてその成分構成比を図11～14に示した。図中のD3は，アルキル基の炭素数が3のアルキルジベンゾチオフェンを表し，以下同様の考えで同族体を表示した。図はアルキル基の炭素数3を有するPAHのクロマトグ

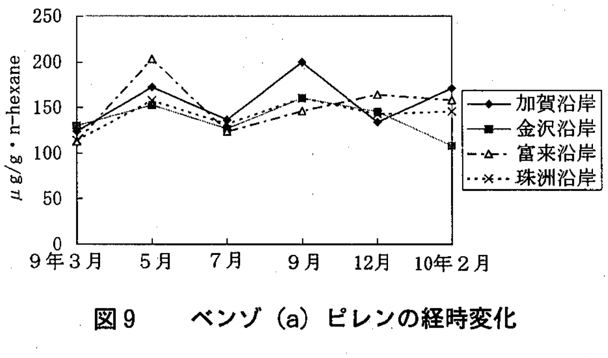


図9　ベンゾ（a）ピレンの経時変化

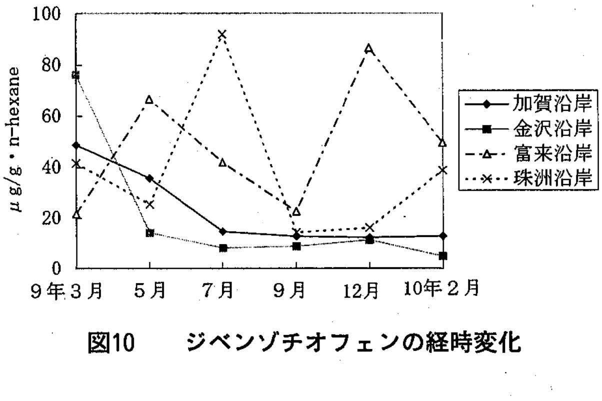


図10　ジベンゾチオフェンの経時変化

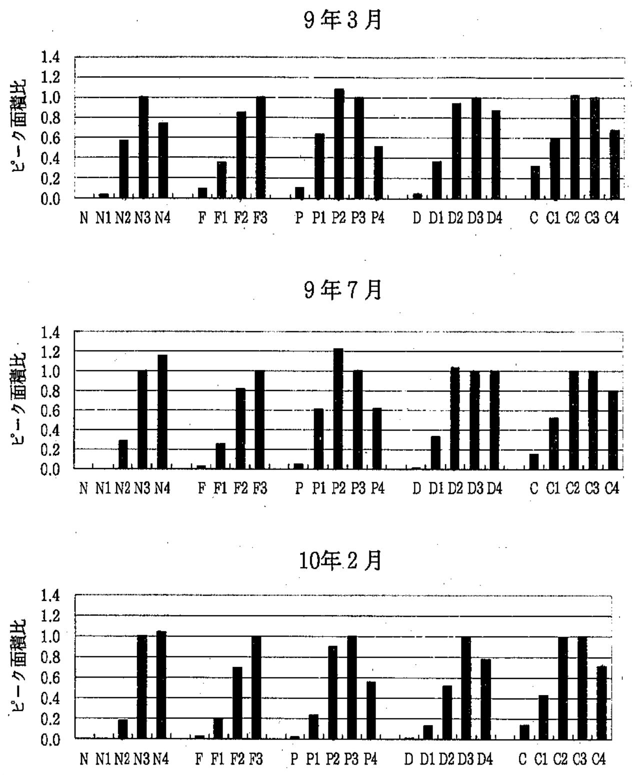


図11　加賀沿岸における漂着残存油の成分比

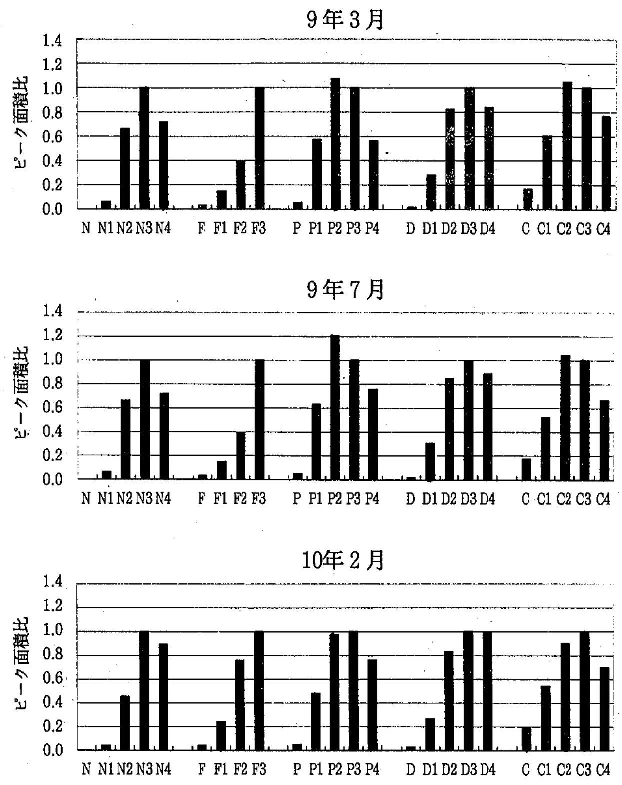


図13　富来沿岸における漂着残存油の成分比

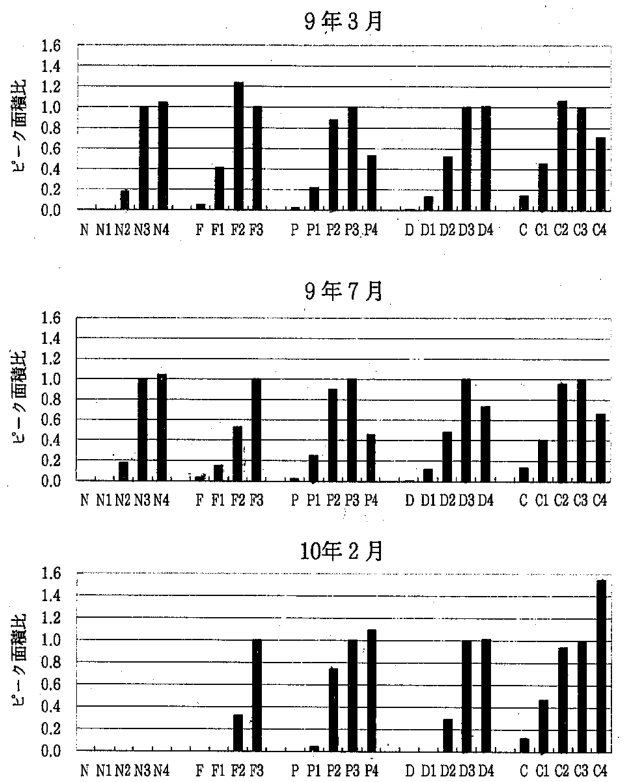


図12　金沢沿岸における漂着残存油の成分比

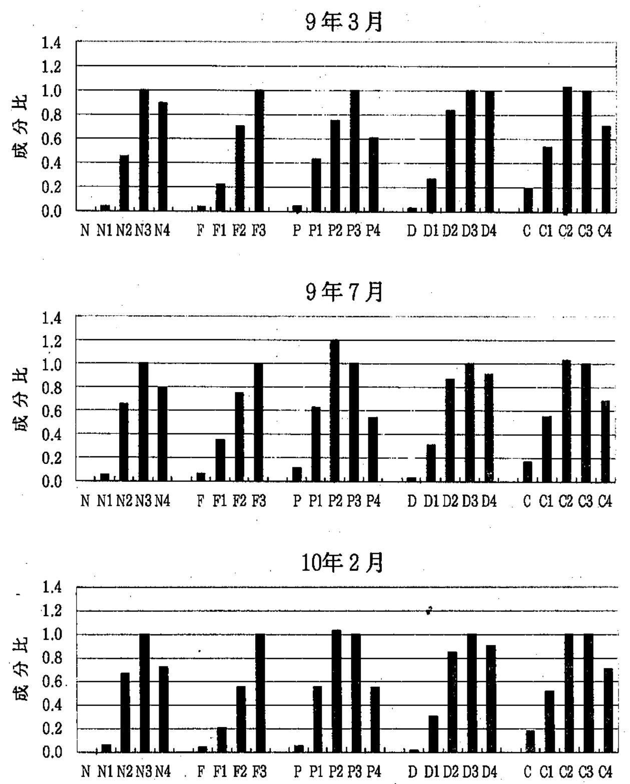


図14　珠洲沿岸における漂着残存油の成分比

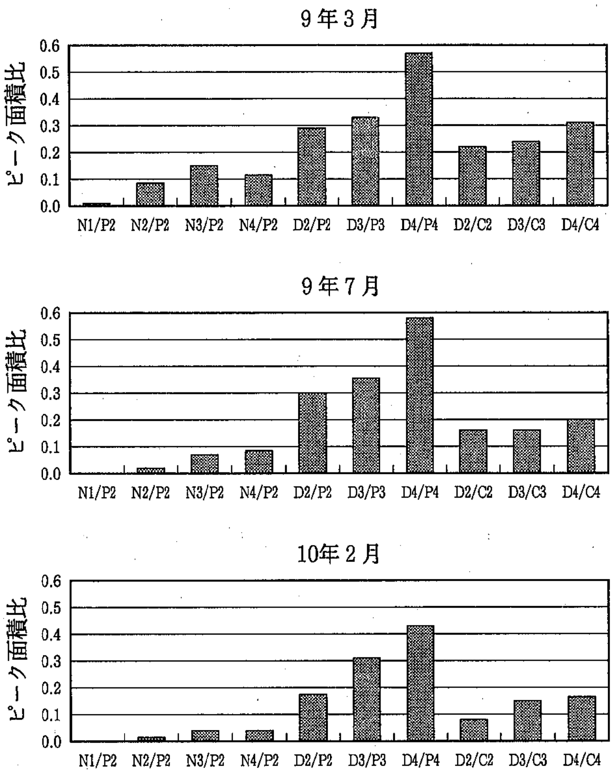


図15　加賀沿岸における漂着残存油の指標成分比

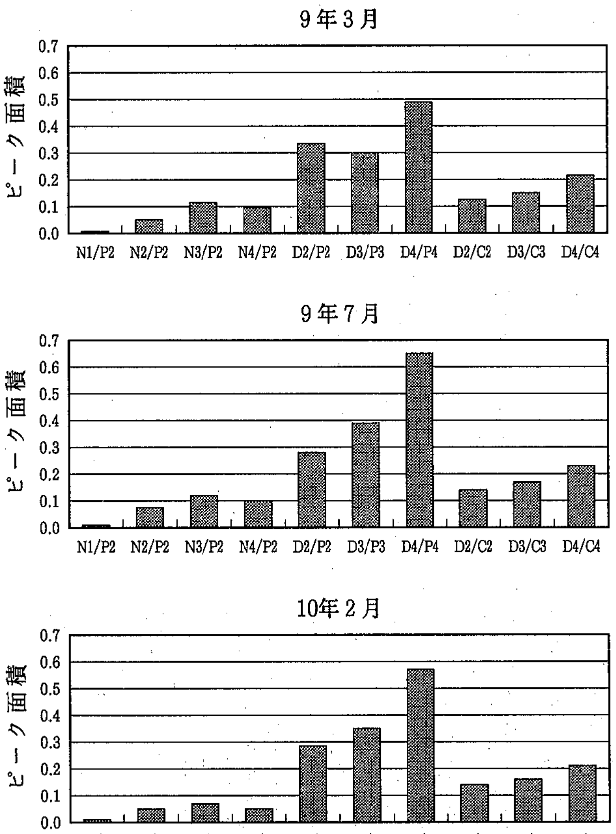


図16　珠洲沿岸における漂着残存油の指標成分比

ラム面積比を1とし，炭素数0から4までのアルキルPAHの同族体の相対的な割合を表したものである。平成9年3月と平成10年2月における成分構成比を比較すると，加賀沿岸及び金沢沿岸では，炭素数2以下のアルキル基を有するナフタレン類の消失が大きい。能登沿岸の2地域では，炭素数2以下のアルキルナフタレン類の構成比に減少がみられない。それに対して，各試料のクリセン類は，構成比にほとんど変化が認められない。ナフタレン，フルオレン，フェナンスレン及びジベンゾチオフェンの3環以下の化合物は，アルキル基の炭素数が小さいほど構成比における減少変化が大きい傾向にあること，すなわち，PAHの同族体では，アルキル基の炭素数が小さいほど風化の進行が速いものと考えられる。

次に，アルキル基の炭素数が2から4のフェナンスレンまたは，同じアルキル基の炭素数を有するクリセンと他のアルキルPAHの成分比を取ったものを図15，16に示した。ナフタレン類とフェナンスレン類の成分比は，ジベンゾチオフェン類とフェナンスレン類またはクリセン類の成分比に比べて小さく，しかも炭素数が少ないほど成分比が小さい傾向にある。これは，ナフタレン類は，フェナンスレン類に比べて消失速度が速いものと考えられる。アルキル基の炭素数が3のジベンゾチオフェン類と同じく炭素数が3のフェナンスレン類の成分比（D3/P3）は，各試料においても変動が小さいことがうかがえられる。これは，両成分の消失速度が同程度であるためと考えられる。アルキル基の炭素数が3のジベンゾチオフェン類と同じ炭素数をもつクリセン類の成分比（D3/C3）は，加賀沿岸において平成9年3月と平成10年2月を対比した場合，次第にその比が減少していることが明らかでである。分解，消失しにくいクリセンに対しジベンゾチオフェンは，漸次，分解，消失が進行していることを示している。従って，D3/C3は，重油の分解，消失の程度を表す指標として有効であると考えられる。珠洲沿岸におけるD3/C3は，経時的な減少が顕著に現れていない。

アルキルPAHは，同族体の中でアルキル基の炭素数

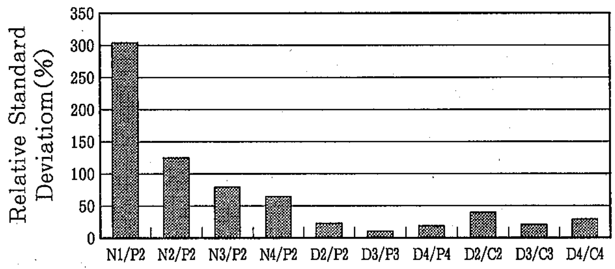


図17　アルキルPAH成分ピーク面積比の変動係数（n=13）

が増すほど分解，消失の速度が減少する傾向がみられ，また，各成分の相対的な分解速度等が異なるためアルキルPAHの成分比に特徴がみられる。各アルキルPAH成分のピーク面積比の変動係数を図17に取ってみた。N 1 /P 2 が303%と最も大きく，それに対しＤ３/Ｐ３が9.8%と最も小さかった。ナフタレン類は分解，消失が速いことが分かっていることから，流出油の風化の初期段階を把握するのに役立つ指標と思われる。成分比の変動が最も小さいＤ３/Ｐ３は，両化合物の分解，消失の速度が同程度で進行しているものと考えられ，環境中に流出し変質した油の発生源指標[1]として有効なものと言える。ジベンゾチオフェン類は，原油あるいは改質油に幅広く含まれており，その起源の足跡をもっていることからもＤ３/Ｐ３は良い指標と考えられる。また，ジベンゾチオフェン類は，環境中で漸減的に風化される化合物である。この化合物と分解，消失の程度の低いクリセン類との比は，風化の進行程度の把握に役立つ指標とされる。特に，アルキル基の炭素数３のクリセンとの成分比（Ｄ３/Ｃ３）は，変動係数19.8%と小さいこともあり有効と思われる。

油の発生源指標であるＤ３/Ｐ３と風化の指標であるＤ３/Ｃ３の関係を図18に示した。この図に各漂着残存油の位置をプロットすると，Ｄ３/Ｐ３値は0.3～0.4の間に入り，ナホトカ号抜き取り重油値の近隣に位置していることから，その起源は同じものと言える。Ｄ３/Ｃ３値をみると，ナホトカ号抜き取り重油は0.22と高い値であるのに対して，他の漂着残存油は，ほとんどが0.15前後に位置している。すなわち，各漂着残存油中のアルキルPAHは，平成９年３月に比べて平成10年２月の時点においても分解，消失があまり進んでいないものと考えられる。また，金沢沿岸地域では，残存油の風化が進行しているが，他の地域ではそれほど風化の進行に差が見られない状況と考えられる。

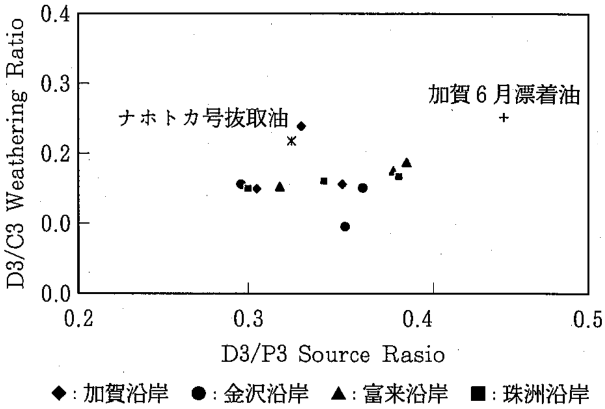


図18　　Ｄ３/Ｐ３とＤ３/Ｃ３の関係

表４　　脂肪族炭化水素と多環芳香族炭化水素の含有率

試　　料	脂肪族炭化水素（%）	多環芳香族炭化水素　（%）
ナホトカ号抜き取りＣ重油	43	57
塩屋海岸残存油（３月）	41	59
片野海岸残存油（６月）	42	58
片野海岸漂着油（６月）	66	34

3・5　ナホトカ号流出油と新たに漂着した油の識別

平成９年６月中旬に加賀沿岸の片野海岸に新たな油の漂着が観察されたので，以前に漂着したナホトカ号流出油由来のものかを識別する検討を行った。

漂着油中のn-アルカンとアルキルPAHの成分比は，前述したようにその起源を特定するのに有用な指標であることがわかったことから，それらを用いることにした。

(1)　脂肪族炭化水素とPAHの含有率

漂着油及び残存油３試料中における脂肪族炭化水素とPAHの含有率を表４に示した。加賀沿岸の塩谷海岸で平成９年３月に採取した残存油と片野海岸で６月に採取した残存油の脂肪族炭化水素とPAHの含有率は，ナホトカ号抜き取り重油の含有率に近い値であった。それに対して，片野海岸の６月に漂着した油は，脂肪族炭化水素の含有率が高く，同日に採取した片野海岸の残存油とは異なるものと考えられる。脂肪族炭化水素を主成分とする油は，アラビア系原油に由来するものが多いと言われるのに対し，ナホトカ号流出油は，PAHをより多く含有していることから６月に漂着した油はその起源は異なるものと推測される。

(2)　n-アルカン

C_{10}からC_{36}のn-アルカンのマスフラグメント（m/z85）による成分比を図19に示した。ナホトカ号抜き取り重油

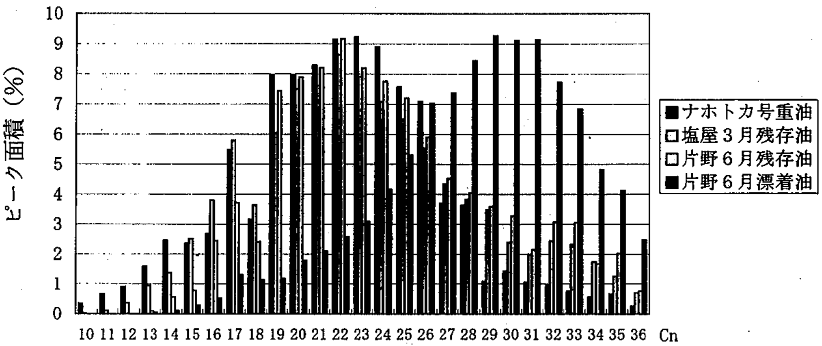


図19　　漂着油等のn-アルカン成分比（m/z85）

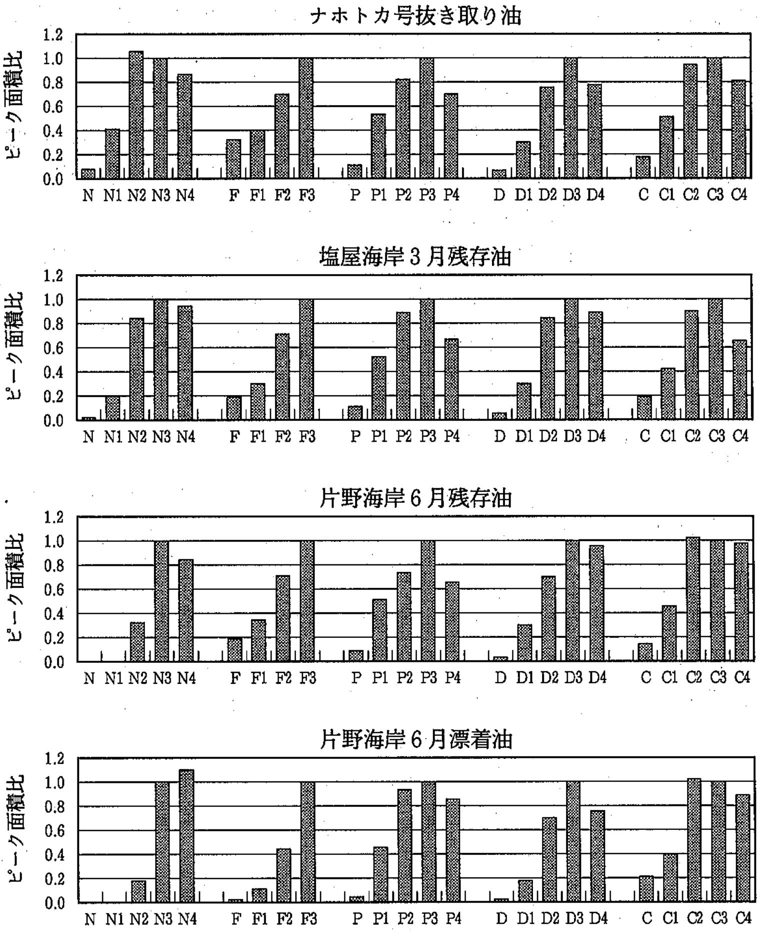


図20　　試料別アルキルPAHの成分比

と塩谷海岸３月の漂着残存油及び片野海岸６月の残存油は，C_{23}をピークとした鎖状の短いアルカン成分を多く含んでいる。それに対し，片野海岸の６月に漂着した油は，C_{29}をピークとした長鎖のアルカン成分を多く含んでいることから，流出してからの時間が余り経過しておらず，変質程度も少ないと考えられる。また，風化指標WIでみると，ナホトカ号抜き取り重油0.44，塩谷海岸３月の残存油0.49，片野海岸６月の残存油0.26，６月漂着油0.06の値を示し，明らかに６月に漂着した油は他の残存油と異なることがわかる。

(3)　アルキルPAH類

図20にナホトカ号抜き取り重油，残存油及び６月の漂着油中のアルキルPAHの成分構成比を示した。６月漂着油中のナフタレン類及びフルオレン類における成分比が特徴的である。すなわち，６月の漂着油は，ナホトカ号抜き取り重油に比べてアルキル基の炭素数が２以下のアルキルPAHの構成比が小さい。また，炭素数が４のアルキルジベンゾチオフェンの成分比は，他の残存油に比して小さいことが特徴的である。

次に，指標成分比を図21に示したが，このうち，発生源指標であるD３/P３は，６月の漂着油において特異的に高い値を示している。また，６月の漂着油のD３/C３は，他の残存油の値に比べて大きいことから風化作用がそれほど進行していないものと推測される。さらに，油の発生源指標（D３/P３）と風化の指標（D３/C３）の関係（図18）からも６月の漂着油はナホトカ号抜き取り重油とその起源は異なるものとみ

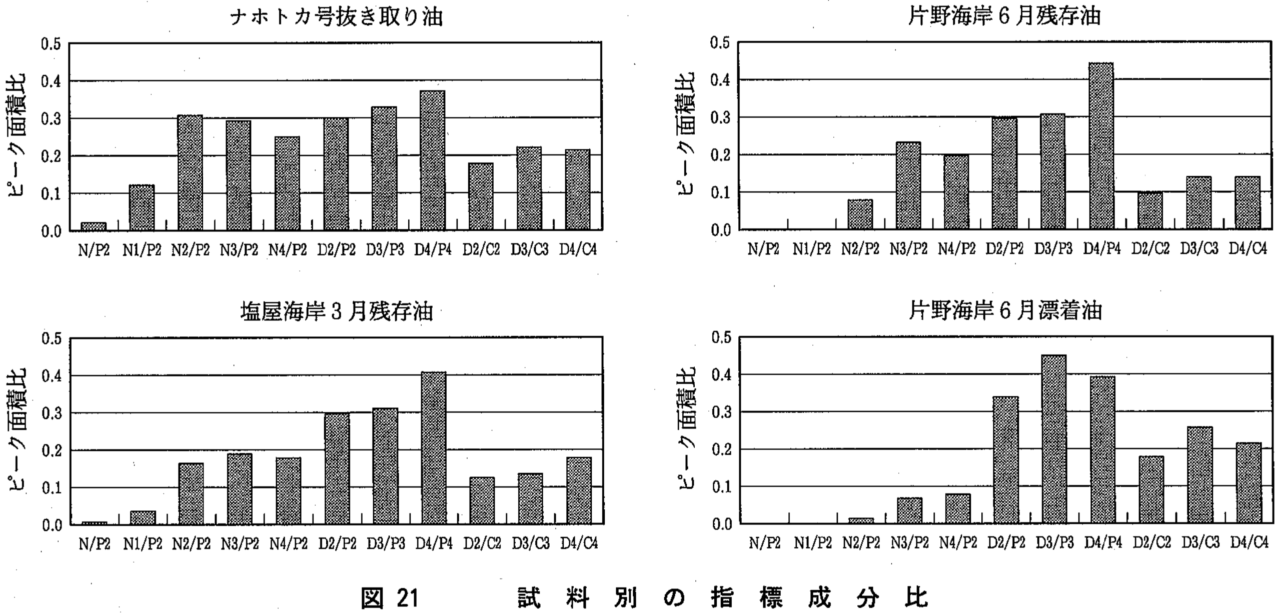


図 21　　試 料 別 の 指 標 成 分 比

られ，６月の漂着油は，潤滑油（D３/P３＝0.41）に近い油と考えられる。

以上のことから，片野海岸の６月に漂着した油は，ナホトカ号抜き取り重油，塩屋海岸の６月の残存油及び片野海岸の６月の残存油とはその起源が異なるものとみなすことができ，その漂着油の風化はそれほど進行していないものと判断される。

４　ま　と　め

平成９年１月に発生したロシア船籍タンカー「ナホトカ号」からの油流出事故により，海洋上に流出した重油は，その後風浪によって移動し，石川県沿岸の加賀から能登に至る一帯に打ち寄せられ，環境への影響が懸念された。そこで，石川県沿岸の４地域に到達した漂着残存油について，その含有成分であるn-アルカン及びアルキル多環芳香族炭化水素（アルキルPAH）を分析することにより分解，消失等の風化作用の進行を追跡した。また，平成９年６月に加賀沿岸に新たな重油の漂着がみられたのでナホトカ号流出由来のものかを識別する方法の検討を行った結果，以下のことが明らかになった。

(1)　ナホトカ号から平成９年２月に抜き取られたC重油は，脂肪族炭化水素より多環芳香族炭化水素を多く含んだ油あったが，石川県沿岸に漂着した残存油は，n-アルカンにあっては低質量成分が，アルキルPAHでは３環以下の化合物が消失，分解した油となり，加賀沿岸地域では次第に多環芳香族炭化水素の含有率が高くなった。

(2)　重油流出事故が発生してから約１年間経過した平成10年２月の時点において，沿岸に残存している油成分のうち，４から６環のPAH及び４環のアルキル同族体は，風化作用をほとんど受けていないようであった。

(3)　砂丘地が多い加賀沿岸地域の漂着残存油は，岩礁や岩場の多い能登沿岸地域に比べて分解等の風化作用が進行している傾向がみられた。

(4)　漂着残存油中のアルキルPAHをGC/MSで測定し，各成分のマスフラグメントのピーク面積比を算出することにより油種の識別と風化の進行程度を推測することができた。

文　　献

1)　WANG, Zhendi, FINGAS, Merv : J. Chromatogr. A, 712(2), 321—343 (1995)
2)　OGATA, Masanaga, FUJISAWA, Kuniyasu : J. Chromatogr. Science, 21, 420—424 (1983)
3)　石川県：平成８，９年度石川県ロシアタンカー油流出環境影響調査<海洋生物調査>報告書，平成10年３月
4)　吉村廣三：水質汚濁研究，11(3)，153—157 (1988)
5)　北野肇一，南　由美子：石川保環年報，**34**，175—180 (1997)
6)　劒持堅志，荻野泰夫，松永和義，森忠繁，緒方正名：環境化学，７(3)，561—576 (1997)
7)　石川県環境部：化学物質による環境汚染調査報告書，昭和59年３月

〔報　文〕

石川県の重油流出汚染域における石油分解細菌の分布

石川県保健環境センター微生物部　芹川 俊彦・本庄 峰夫・川島 栄吉
石川県保健環境センター環境科学部　大西 孝司・橋田 哲郎

キーワード：Distribution, Oil-degrading Bacteria, Oil Spilled Coastline

（本報告は，第57回 日本公衆衛生学会総会で発表した。平成10年10月29日，岐阜市）

1 はじめに

平成9年1月のロシアタンカー「ナホトカ」号の重油流出事故により，日本海沿岸部にC重油が漂着し，海生生物や野生生物に大きな被害を与えた。石川県においても海岸域が重油で汚染され，その除去作業にはボランティアや住民等，多数の人の協力と莫大な費用を要した。

しかし，海浜砂中に浸透したり，海底に沈んだ油を除去することは不可能で，その影響が懸念された。

そこで，自然界における油汚染からの回復程度を測るため，石川県沿岸部の海水及び海浜砂について，油分解細菌数等を経時的に測定するとともに，油分及び有機物の定量分析を行い，両者の相関を調べることにより，自然界の微生物による油分解能を検討した。

表1　海水及び海浜砂の採取場所

No.	検体採取地点	検体名 海水	海浜砂
1	橋立海岸（片野海水浴場）	◎	◎
2	金沢海岸（金　石）	◎	
3	押水羽咋海岸（千里浜海水浴場）	◎	◎
4	富来海岸（福　浦）	◎	
5	富来海岸（増穂浦海水浴場）	◎	◎
6	富来海岸（赤　崎）	◎	
7	珠洲西海海岸（長　橋）	◎	
8	珠洲西海海岸（木ノ浦）	◎	
9	珠洲宮崎海岸（越　坂）	◎	
	計	9検体	3検体

2 試料及び方法

試料は，石川県沿岸部の海水浴場等9地点（表1）から，海水9検体と海浜表層砂3検体を採取し，保冷剤を入れたクーラボックス中に保存して，採取当日または翌日に検査に供した。油分解細菌数の測定は，9 ml のNSW培地[1]にC源としてn-tetradecaneを50 μl加えた培地を用い，MPN法で実施した。即ち，10倍段階希釈した海水の各希釈段階を3本ずつの本培地に1 ml加え，20°C，14日間振盪培養した後，濁度による発育の有無及びBTB添加による酸産生を確認し，MPN表で菌数を算出した。なお，海浜砂の場合は45mlの希釈液（10/9倍濃縮NSW培地）と5gの砂を混合し，その上清液を検液とした。

従属栄養細菌数の測定は，Marine Agar（Difco）を使用し，20，14日間培養後発育した集落を計測した。

n-ヘキサン抽出物質の測定方法は，「新編水質汚濁調査指針」（日本水産資源保護協会編，1980年版）に基づき，ヘキサンで抽出後ヘキサンを揮散させ，残留物の重量を測定した。

油分は，IGOSS法（「海上保安庁油分分析法」に基づく蛍光分光光度法）で測定し，標準物質としては，ロシアタンカー「ナホトカ」号からの抜き取り重油を使用した。なお，9月採取分より検出限界値を下げるため，海水の検水量をそれまでの2 lから5 lに増やして測定を行った。

Distribution of Oil-degrading Bacteria in Oil Spilled Coastline of Ishikawa Prefecture.
by Toshihiko SERIKAWA, Mineo HONZYO, Eikichi KAWASHIMA, Takashi OHNISHI and Tetsuroh HASHIDA* (Microbiology Department and Environmental Science Department*, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)*

TOC (Total Organic Carbon) 及び DOC (Dissolved Organic Carbon) は，「上水試験法」(日本水道協会編) による燃焼一赤外分析法により定量分析した。また，POC (Particulate Organic Carbon) の値は，TOC 値から DOC 値を差し引いて求めた。

油分解細菌数の測定用培地に C 源として添加した n-tetradecane の妥当性を調べるため，9 ml の NSW 培地に，C 源として50 μ l の kerosine または50mg の C 重油 (「ナホトカ」号からの抜き取り重油) を添加した培地，及び n-tetradecane を添加した培地に0.05%の酵母エキスを加えた培地を対照として用い，各培地における油分解細菌数を比較検討した。

3 調 査 結 果

平成9年3月，5月，7月，9月，12月，10年3月，及び6月の計7回，石川県沿岸部から採取した海水計63検体並びに海浜砂計21検体について，油分解細菌数，従属栄養細菌数を測定した結果を図1，2に示した。

海水の油分解細菌数については，採取地点によって菌数の増減の傾向が異なり，一定の季節的な変動は見られなかった。なお，調査期間中に全地点の中で菌数が最も多かったのは，長橋（5月）の1.5×10^5/100 ml，最少は九十九湾（9月）の3.0×10^1/100 ml であった。

平成9年3月～平成10年6月に採取した7回分の油分解細菌数の地点別平均数，及び平成9年9月～平成10年6月に採取した4回分の地点別油分濃度の平均値を表2に示した。菌数は10^2～10^4/100ml の範囲内で，地点による差異が認められた。比較的油分解細菌数が多かった地点は，金石，長橋及び九十九湾で，少なかった地点は，福浦，増穂浦，赤崎及び木ノ浦であった。また，油分濃度の平均値が高かった地点は，金石，長橋であった。

なお，12月に再び6地点（千里浜，増穂浦，赤崎，長橋，木ノ浦，九十九湾）で油分解細菌数が増加したが，九十九湾以外の他の地点では翌年の3月には減少した。

一方，海浜砂の油分解細菌数については，採取地点及び採取時期によって菌数の増減の傾向が異なり，最も菌数が多かったのは片野（7月）の2.4×10^7/100g，少なかったのは増穂浦（平成9年3月）の3.0×10^2/100g であった。また，7回分の平均菌数は10^5～10^6/100g の範囲内であった（表3）。

海水の従属栄養細菌数については，ほとんどの地点で夏期（7月）に最多になり9月には減少した。なお，全地点で翌年の3月には菌数が再び増加したが，6月には5地点（片野，千里浜，福浦，増穂浦，九十九湾）で減少した。調査期間中に菌数が最も多かった地点は，片野（7月）の1.7×10^7/100ml，少なかったのは福浦（12月）の3.3×10^4/100ml であった。

海浜砂の従属栄養細菌数については，5月または7月に最多になり以後減少したが，翌年3月から再び増加した。なお，菌数が最も多かったのは，増穂浦（5月）の9.2×10^7/100g，少なかったのは増穂浦（平成9年3月）の1.6×10^5/100g であった。

n-ヘキサン抽出物質は，7回の調査でいずれの地点の海水及び海浜砂からも検出されなかった（検出限界値；海水：0.5mg/l，海浜砂：0.25mg/g 湿重）。

油分については，海水で3 μ g/l（検水量が2 l の場合

表 2　石川県沿岸部の海水の油分解細菌数及び油分濃度

No.	検体採取地点	油分解細菌数（7回の平均値※）	油分濃度（4回の平均値#）
1	橋立海岸（片野海水浴場）	5.9×10^3/100ml	1.3 μ g/l
2	金沢海岸（金石）	1.2×10^4	1.8
3	押水羽咋海岸（千里浜海水浴場）	4.9×10^3	0.6
4	富来海岸（福浦）	4.3×10^2	0.5
5	富来海岸（増穂浦海水浴場）	1.3×10^3	0.3
6	富来海岸（赤崎）	1.0×10^3	0.8
7	珠洲西海海岸（長橋）	2.5×10^4	8.0
8	珠洲西海海岸（木ノ浦）	9.2×10^2	1.1
9	珠洲宮崎海岸（九十九湾：越坂）	1.3×10^4	0.5

（最多：1.5×10^5/100ml……長　橋；平成9年5月）
（最少：3.0×10^1/100ml……九十九湾；平成9年9月）
※：平成9年3月，5月，7月，9月，12月，10年3月，6月の計7回の平均値。
#：平成9年9月、12月、10年3月、6月の計4回の平均値。

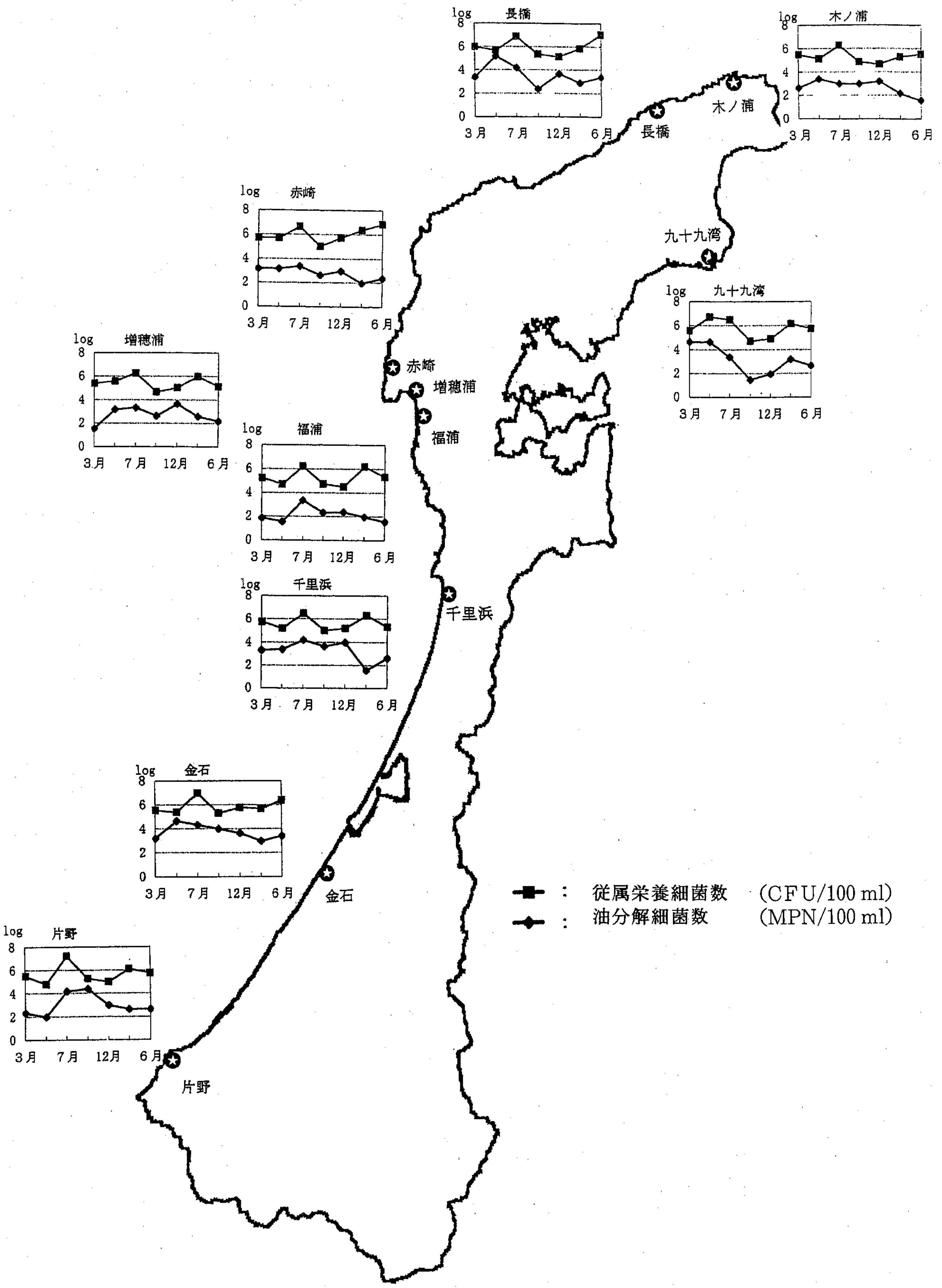


図 1　　石川県沿岸海域の海水中の油分解細菌数及び従属栄養細菌数の分布

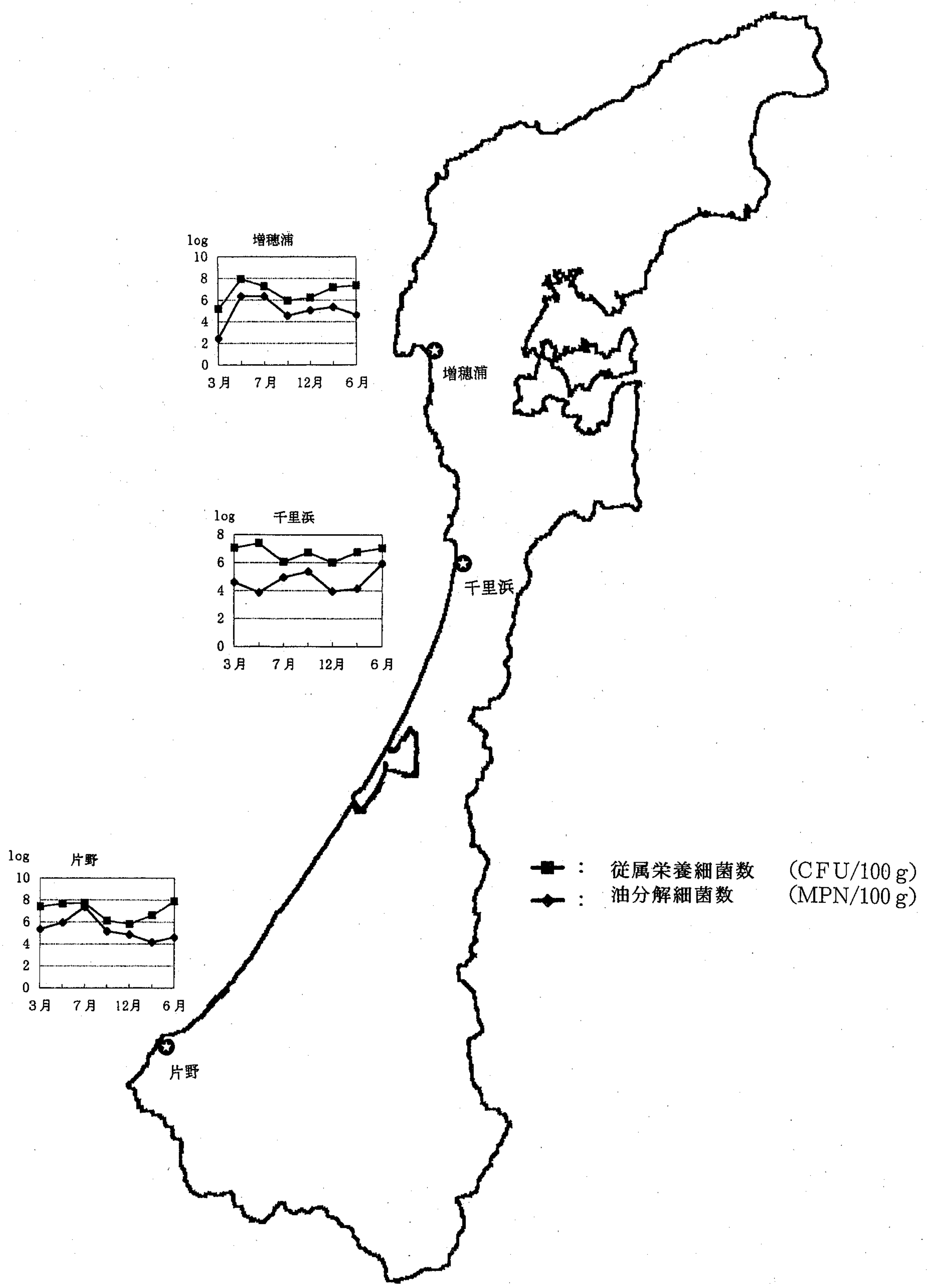


図 2　　石川県沿岸海域の海浜砂中の油分解細菌数及び従属栄養細菌数の分布

表3　石川県沿岸部の海浜砂の油分解細菌数

No.	検体採取地点	油分解細菌数（7回の平均値※）
1	橋立海岸　（片野海水浴場）	3.6×10^{6}/100 g
3	押水羽咋海岸（千里浜海水浴場）	1.9×10^{5}
5	富来海岸　（増穂浦海水浴場）	7.5×10^{5}

（最多：2.4×10^{7}/100 g……片　野；平成9年7月）
（最少：3.0×10^{2}/100 g……増穂浦；平成9年3月）
※：平成9年3月，5月，7月，9月，12月，10年3月，6月の計7回の平均値。

の検出限界値）以上，並びに海浜砂で20 μg/g湿重（海浜砂の検出限界値）以上の値を示した地点は，平成9年3月に海水で2地点（千里浜，長橋），海浜砂で2地点（片野，増穂浦），5月に海水で1地点（長橋），7月に海水で2地点（赤崎，長橋），9月に海水で2地点（金石，長橋），海浜砂で1地点（片野），12月に海水で1地点（長橋），翌年の3月に海水で1地点（長橋），海浜砂1地点（千里浜），6月に海水で1地点（長橋）であった（図3，4）。長橋から採取した7回分の海水すべてから，3 μg/l以上の油分が検出されたが，これは重油流出事故により多量の油汚染を受けた長橋の状況を反映する結果であった。なお，海水の油分濃度の最大値は，16 μg/l（7月；赤崎），海浜砂の最大値は，30 μg/g湿重（平成9年3月；片野，増穂浦）であった。

TOC，DOCについては，海水，海浜砂共に，平成9年3月採取分が最大値（海水：5.4～7.4mg/l，海浜砂：1.5～2.5mg/l）を示し，以後減少した（図3，4）。また，POCについても，ほとんどの地点で平成9年3月採取分の検体が最大値であった。

各調査回数毎に，千里浜から採取した海水及び海浜砂について，油分解細菌数の測定用培地にn-tetradecaneの代わりにkerosineまたはC重油を加え，菌数を測定した（表4）。また，n-tetradecaneを添加した培地に0.05%の酵母エキスを加えた培地についても検討を行った。その結果，n-tetradecaneを添加した培地とkerosineを添加した培地並びに酵母エキス添加の培地では殆ど同じ菌数であったが，C重油添加の培地では菌数は少なかった。この結果，n-tetradecaneを油分解細菌数測定用培地のC源として添加することは妥当であることが確かめられた。

4　考　　察

海水中に分布する油分解細菌数について，東原ら[1)]は東京湾江戸川河口の海水では 2.3×10^{3}/100ml，西部北太平洋，東部インド洋及び南シナ海等の外洋海域の海水では，平均 10^{1}～10^{2}/100mlと報告[2)]している。Kimuraら[3)]は，瀬戸内海の海水で 1.9×10^{3}/100ml（非油濁海域の平均）～3.3×10^{3}/100ml（油濁海域の平均），またVekateswaranら[4)]は，東北沿岸海域の海水で 10^{2}～10^{4}/100mlと報告している。

研究者によって油分解細菌数の測定方法や海水の採取時期が異なることから，一概には比較できないが，これらの測定値と石川県沿岸部海域の海水の菌数を比較すると，平成9年3月～平成10年6月に調査した7回分の地点別平均菌数（表2）は，10^{2}～10^{4}/100mlであることから，東京湾，瀬戸内海及び東北沿岸海域の海水中の油分解細菌数と同レベルであると思われる。なお，外洋海域における分布状況については，今後更に検討する必要

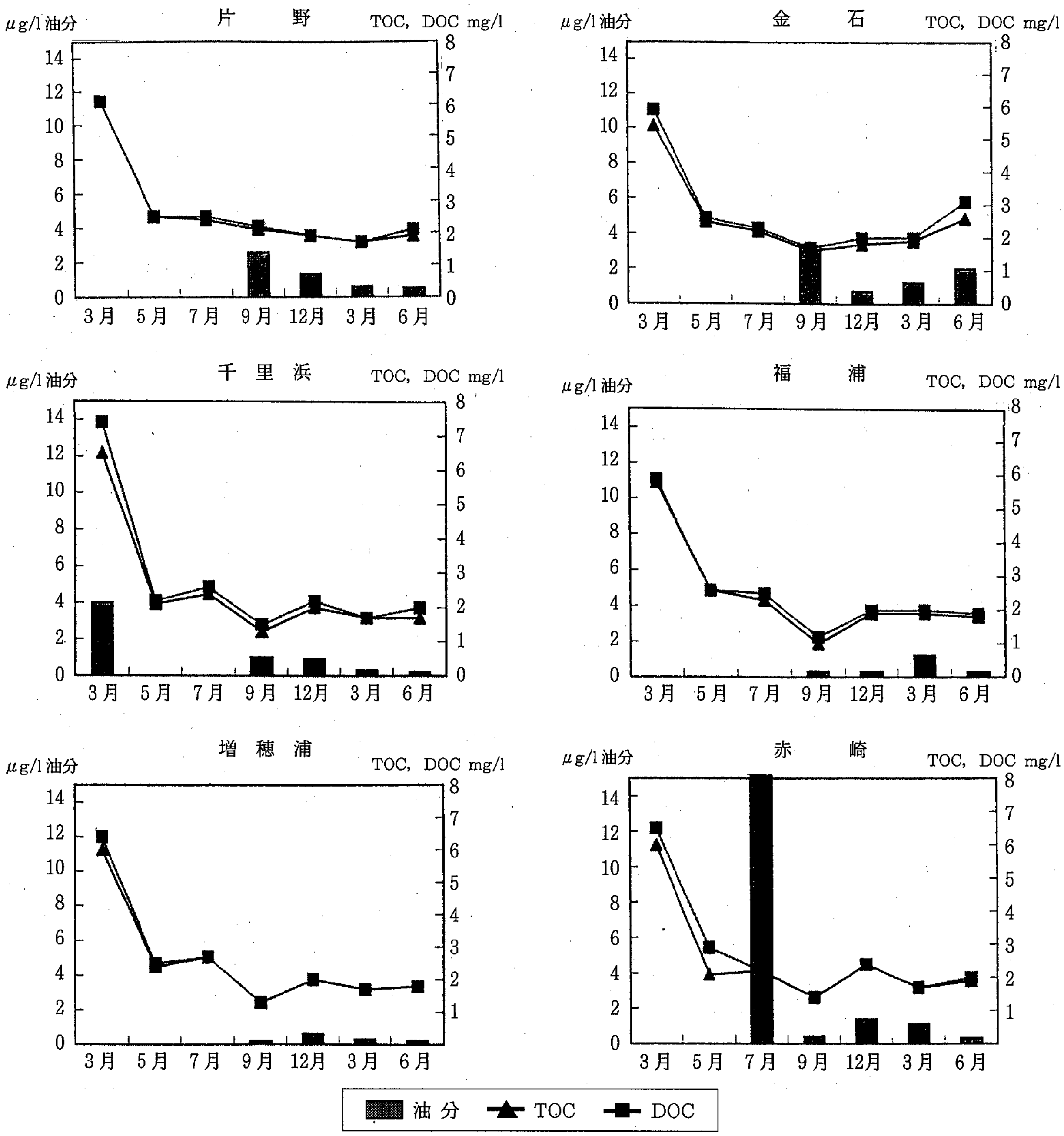
表 4　油分解細菌数測定用培地の炭素源の検討

検体	採取地点	炭素源※及び培地添加物§	油分解細菌数（MPN/100ml又はg）						
			H.9 3.13*	5.13	7.14	9.24	12.5	H.10 3.4	6.12
海水	押水羽咋海岸：千里浜海水浴場	テトラデカン	2.0×10^{3}	2.4×10^{3}	1.5×10^{4}	4.3×10^{3}	9.3×10^{3}	3.6×10^{1}	4.3×10^{2}
		ケロシン	9.3×10^{3}	9.3×10^{3}	2.4×10^{4}	9.3×10^{2}	3.6×10^{1}	7.5×10^{2}	4.3×10^{2}
		C重油	1.5×10^{2}	NT#	NT	3.6×10^{2}	2.1×10^{2}	6.2×10^{1}	3.0×10^{1}
		酵母エキス§	7.5×10^{2}	1.5×10^{3}	1.2×10^{4}	2.7×10^{2}	3.9×10^{2}	7.3×10^{1}	9.3×10^{2}
砂	押水羽咋海岸：千里浜海水浴場	テトラデカン	4.3×10^{4}	7.5×10^{3}	9.3×10^{4}	2.4×10^{5}	9.3×10^{3}	1.5×10^{4}	9.3×10^{5}
		ケロシン	4.6×10^{4}	2.4×10^{4}	2.4×10^{5}	4.3×10^{4}	2.3×10^{3}	2.4×10^{4}	4.3×10^{5}
		C重油	2.1×10^{3}	NT	NT	2.9×10^{4}	1.5×10^{3}	9.3×10^{3}	1.1×10^{3}
		酵母エキス§	2.1×10^{3}	2.3×10^{3}	9.3×10^{4}	9.3×10^{4}	1.5×10^{4}	1.5×10^{4}	9.3×10^{3}

※：炭素源は，NSW培地9mlにテトラデカン，ケロシンは各50 μl，C重油（ナホトカ号からの抜き取りC重油）は50mg添加した。
§：酵母エキス（0.05%）含有のNSW培地に，炭素源としてテトラデカンを添加した。
*：検体の採取年月日。
#：検査実施せず。

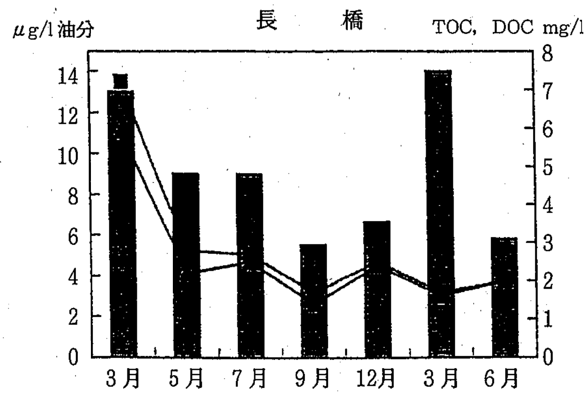
がある。

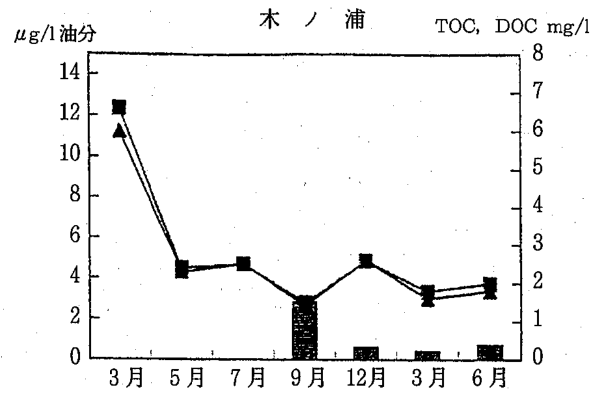
石川県沿岸部の海水中の油分解細菌数は，採取地点により差異が認められた（図１）が，この原因が油汚染に起因するものか，または海域の特性（海流，地形及び流入河川の有無等）によるものかは不明である。しかし，地点別油分解細菌数の平均菌数並びに油分濃度の平均値（表２）が多かった長橋では，「ナホトカ」号の重油流出事故による重油漂着が多く，また菌数及び油分濃度の少なかった福浦では重油漂着も少なかったので，油分解細菌数と漂着重油量との間に相関がみられるように思える。また，菌数に季節的変動がみられたが，これは地点によってその傾向が異なり，且つ12月に６地点で再び菌数が増加した。この原因として，新たな重油の漂着や海底に沈んだ重油の再浮遊なども考えられるが，今後更にデータを集積し，菌の消長に関する種々の要因について解析する必要があろう。

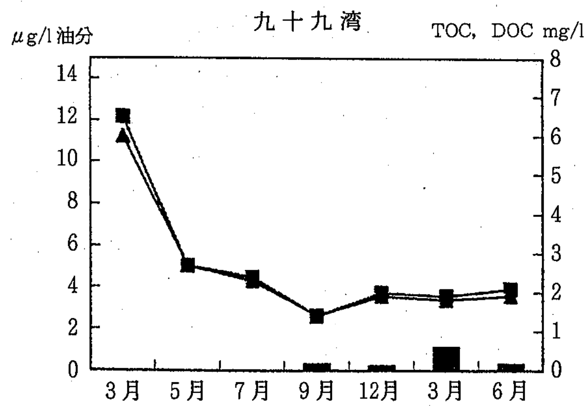


海水の油分の検出限界値
- 平成９年３月～平成９年７月：３μg/l
- 平成９年９月～平成10年６月：0.1μg/l

図３－１　　海水中の油分，TOC及びDOCの量

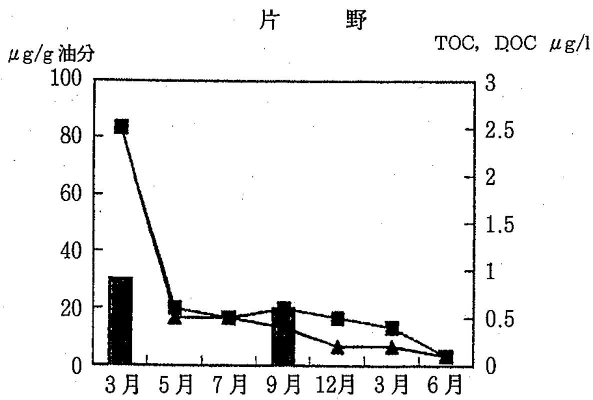


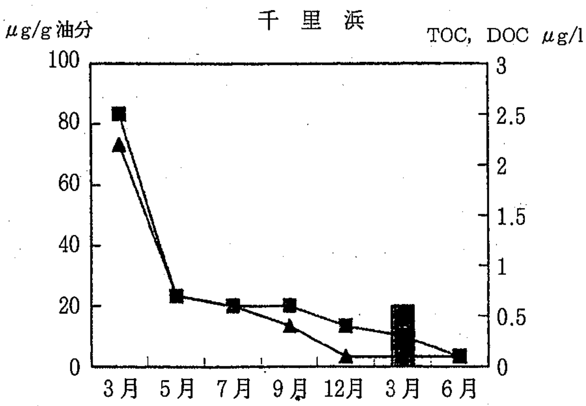


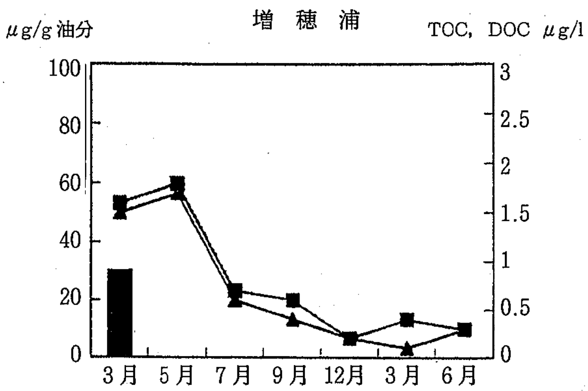


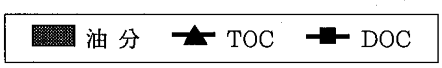
海水の油分の検出限界値
・平成９年３月～平成９年７月：３μg/l
・平成９年９月～平成10年６月：0.1μg/l

図３－２　　海水中の油分，TOC 及び DOC の量









海浜砂の検出限界値
：20μg/g 湿量

図　４　　　海浜砂中の油分，TOC 及び DOC の量

なお，平成９年３月に九十九湾から採取した海水の油分解細菌数は，4.6×10^4/100ml と高い数値を示した。九十九湾は重油漂着がなく，本調査の対照として選定した地点であったが，本地点は漁船や遊覧船の停泊地に近く，これらの船による油汚染が原因で高い数値を示したと考えられた。そこで，５月採取分から採取地点を約200m程移動し，湾の入口付近に変更した。

海浜砂の油分解細菌数は，採取地点及び採取時期によって菌数の増減の傾向が異なり，菌数と重油漂着の明らかな相関は認められなかった（図２）。なお，調査した３地点の７回分の平均菌数（表３）は10^5～10^6/100g の範囲内であり，平均菌数では海水の場合と比べ地点による差異は僅かであった。

一方，海水の従属栄養細菌数は，ほとんどの地点で夏期（７月）に最多になり，９月には減少した（図１）。これは，夏期には海水温の上昇により細菌の増殖が盛んになることや，プランクトンの増加に伴って海水中の窒素，燐の量が増えるためと考えられる。

本調査の対照地点である九十九湾では，平成９年３月採取分を除き，調査期間中油分解細菌数と従属栄養細菌数とがパラレルの相関を示したが，他の地点では相関はみられなかった。一般的に，非油濁海域では両者の間に相関がみられ，油濁海域では油の影響により相関が認められないのか，今後更に検討すべきであろう。

海水の油分については，重油の漂着が多かった長橋から，調査を実施した７回すべてから３μg/l 以上検出され，重油流出事故による油汚染の影響が示唆された。

TOC，DOC，POC については，海水，海浜砂共に，３月採取分が最大値であったことから，重油漂着の影響と思われたが，これらと油分解細菌数及び従属栄養細菌数との間に相関は認められなかった。

今回の調査で，長橋等の一部の地点については，海水中の油分解細菌数と油分濃度との間に相関がみられるように思えた。しかし，他の地点については両者の明らかな相関を認めることはできず，今後もデータを蓄積し更に検討する必要があろう。また油分解細菌の自然界における動態の究明も今後の興味ある課題である。

５　ま　と　め

海水並びに海浜砂の油分解細菌数及び従属栄養細菌数は，採取地点や時期によって大きく異なり，自然界における油分解細菌等の動態に多くの要素が複雑に関与していると考えられた。なお，今回の調査では，油分解細菌数及び従属栄養細菌数と油関連物質の明らかな量的相関は認められなかったが，油分解細菌数と油分濃度の相関を示唆する結果が一部得られた。

終わりに，今回の調査に際して，御指導いただいた工業技術院生命工学工業技術研究所微生物機能部東原孝規博士，丸山明彦博士に深謝いたします。

文　　献

1)　HIGASHIHARA, T., SATO, A. and SHIMIZU, U. : Bull. Jpn. Soc. Sci. Fish., **44**, 1127—1134 (1978)

2)　東原孝規，佐藤昭雄 : Bull. Jpn. Soc. Sci. Fish., **45**, 473—483 (1979)

3)　KIMURA, B., MURAKAMI, M. and FUJISAWA, H. : Nippon Suisan Gakkaishi, **55**, 1091—1095 (1989)

4)　VENKATESWARAN, K., IWABUCHI, T., MATSUI, Y., TOKI, H., HAMADA, E. and TANAKA, H. : FEMS Microbiol. Ecol., **86**, 113—122 (1991)

〔報　　文〕

藻類大量培養加工食品クロレラとスピルリナの品質特性

石川県保健環境センター生活科学部　澤田道和・大西道代・笹木千春
石川県保健環境センター微生物部　芹川俊彦・本庄峰夫

キーワード：健康食品，クロレラ，スピルリナ，フェオフォルバイド，クロロフィラーゼ活性値

1　は　じ　め　に

平成８年度に当センターで実施した“石川県における「いわゆる健康食品」についての意識調査[1)]”によると，健康食品を利用したことのある人や関心のある人が50％を超えていた。

そこで，本県では平成８年度から県内で市販されているいわゆる健康食品を対象に，購入の際の重要な動機の一つと考えられる栄養成分，また，健康食品の安全性で問題となる汚染物質に関して実態調査を実施してきたところである。

本年度は，「緑黄色野菜の摂取の難しい方」，「バランスのとれた食生活が困難な方」，「健康と美容を維持したい方」という宣伝で，ビタミン，ミネラル，タンパク質を補給する補助食品として販売されているクロレラ及びスピルリナについて実態調査を実施した。

緑藻のクロレラと藍藻のスピルリナは，光合成によって速やかに増殖し，タンパク質を効率よく生成することから，将来の食糧資源として注目され，前者は昭和38年頃から，後者は昭和51年頃から企業化されてきた[2,3)]。

クロレラ及びスピルリナの加工食品が販売されてから現在まで，35年から22年を経ているわけであるが，昭和52年には，クロレラの製造段階でクロロフィルがフェオフォルバイドに分解したため，光過敏症皮膚障害を呈するという食中毒が２，３の都府県で発生した[4,5)]。

そこで，厚生省ではクロレラの安全性を確保するために，昭和56年５月，クロレラ加工品のクロロフィル分解物である既存フェオフォルバイド量と総フェオフォルバイド量（それぞれ100mg％以下，160mg％以下），加工方法，製造工程及び保存に関する指導基準を設定した[6)]。

また，㈶日本健康・栄養食品協会（以下「JHFA」と略す。）でも，昭和61年にこれら藻類の加工食品を含む多種多様の健康食品に関し規格基準等を公示し（平成５年一部改正），この基準に適合するものに認定マークを添付するなど，品質について消費者に分かりやすくする等の対策を講じている[2)]。

しかしながら，クロレラ及びスピルリナは，培養株の種，原料生産国，培養方法等が異なり，品質の同じ原材料が常に提供されているわけではない。

特に，屋外大型池培養藻類の原材料は，室内タンク培養池のものと異なり，気温，日射量等自然環境に大きく左右され，月的にも年的にも少なからず品質が変動する。また，培養期間中の衛生状態ばかりでなく，原料に重金属，農薬等の汚染物質が混入し濃縮されないとも限らない。

そこで，市販されているクロレラとスピルリナについて，栄養補助食品としての側面，汚染物質に対する安全性の側面及び栄養表示基準（平成８年５月施行）やJHFAに基づく表示の側面について調査を行うことにした。

2　調　査　方　法

JHFAでは，クロレラ及びスピルリナの品質を保証するために，

① 原末を重量割合で95％以上含む食品，
② 50％以上95％未満含む加工食品

Characteristics and Quality of Cultured Algae Foods-Chlorella and Supirulina-. *by Michikazu SAWADA, Michiyo OHNISHI, Chiharu SASAKI, Toshihiko SERIKAWA* * *and Mineo HONZYO* * *(Environmental Health, Food and Drug Department and Microbiology Department* *, *Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)*

③　30%以上50%未満含む加工複合食品

の3種類に分類し，それぞれに規格基準を定めこの基準に適合するものに認定マークを添付している。

そこで上記のJHFA認定食品と未認定食品を購入することにした。

2・1　調査対象食品の種類

クロレラ及びスピルリナは，平成9年10月～12月に金沢市内で購入した。

しかし，市販されているものはほとんどがJHFA認定食品であり，未認定食品を購入することは困難であった。

(1)　クロレラ

クロレラは，上記①のクロレラ食品7検体（全てJHFA認定食品）と②のクロレラ加工食品1検体（未認定食品）の計8検体を購入した（表1）。

クロレラ食品7検体は，原材料名の表示及び藻類生産地から，国内九州産クロレラ1検体（C-1），国内南方諸島産100%クロレラ粉末3検体（C-2～C-4：以下「グループC-Ⅰ」と略す）及び外国産添加物混入クロレラ原末（添加物：でんぷんとショ糖脂肪酸エステルまたはレシチン）3検体（C-5～C-7：以下「グループC-Ⅱ」と略す）に大きく分類できる。

これらのクロレラは全て屋外大型培養池で培養されたもので，C-6とC-7には室内で培養されたクロレラがブレンドされていた。

(2)　スピルリナ

スピルリナは市販されているものが少いため購入が難しく，購入した3検体は全て上記①のスピルリナ食品（JHFA認定食品）であった（表1）。

原材料名の表示は，外国産100%スピルリナ原末2検体及び外国産添加物混入スピルリナ原末（添加物：ビタミンC）1検体(S-3)であった（これらを「以下グループS」と略す）。

これらのスピルリナは全て南方諸国で屋外培養されたものであった。

そこで，以下の測定データについては，3検体づつグループC-Ⅰ，グループC-Ⅱ及びグループSにそれぞれ分類し，試験項目毎に各グループの平均値を算出し，グループの品質特性を明らかにすることにした。

2・2　試験項目及び試験方法

試験項目及び試験方法は表2に示した。

(1)　栄養成分及びその関連物質

栄養成分及びその関連物質は，タンパク質，水分，ビタミンB_2，カルシウム等8項目とした。

(2)　色素成分

色素成分は，緑色のクロロフィルaとb（油溶性），鮮青色のフィコシアニン（水溶性）及び黄色から赤色のカロチノイドの4項目とした。

表1　藻類培養食品の原材料等

種類	No.	グループ	食品名	原材料名（表示）		藻類生産地	藻類培養法	JHFA認定食品
クロレラ	C-1	—	クロレラ食品	クロレラ	（—）	国内産(九州)	屋外大型培養池	○
	C-2	C-Ⅰ	クロレラ食品	クロレラ粉末	(100%)	国内産(沖縄)	屋外大型培養池	○
	C-3	C-Ⅰ	クロレラ食品	クロレラ粉末	(100%)	国内産(石垣島)	屋外大型培養池	○
	C-4	C-Ⅰ	クロレラ食品	クロレラ粉末	(100%)	国内産(沖縄)	屋外大型培養池	○
	C-5	C-Ⅱ	クロレラ食品	クロレラ粉末	レシチン	外国産(台湾)	屋外大型培養池	○
	C-6	C-Ⅱ	クロレラ食品	クロレラ原末	でんぷん，ショ糖脂肪酸エステル	外国産（台湾，韓国）	屋外大型培養池，室内密閉タンク培養池	○
	C-7	C-Ⅱ	クロレラ食品	クロレラ原末	でんぷん，ショ糖脂肪酸エステル	国内産(九州，南西諸島) 外国産(台湾)	室内密閉タンク培養池，屋外大型培養池	○
	C-8	—	クロレラ加工食品	クロレラ原末	結晶セルローズ，CMC-Ca	外国産(台湾)	屋外大型培養池	—
スピルリナ	S-1	S-Ⅰ	スピルリナ食品	スピルリナ原末	(100%)	外国産（中国，台湾）	屋外大型培養池	○
	S-2	S-Ⅰ	スピルリナ食品	スピルリナ原末	(100%)	外国産（中国）	屋外大型培養池	○
	S-3	S-Ⅰ	スピルリナ食品	スピルリナ原末	ビタミンC	外国産(タイ，アメリカ)	屋外大型培養池	○

表 2　試験検査項目及び試験検査方法

分類	項目	食品名				試験検査方法	備考
		クロレラ		スピルリナ			
		測定項目	JFHA規格	測定項目	JFHA規格		
食品成分等	蛋白質	○	有	○	有	食品衛生検査指針理化学編（1991）	換算係数＝6.25
	ビタミン B_2	○	有	○	無	〃	
	水分	○	有	○	有	〃	
	灰分	○	無	○	無	〃	600°C
	カルシウム	○	無	○	無	〃	ICP 法
	マグネシウム	○	無	○	無	〃	〃
	カリウム	○	無	○	無	〃	〃
	ナトリウム	○	無	○	無	〃	〃
色素成分	総クロロフィル	○	有	○	無	健康食品規格基準集（その1）㈶日本健康・栄養食品協会	Comar, Zscheile 法
	クロロフィルa	○	無	○	有	〃	〃
	クロロフィルb	○	有	○	無	〃	〃
	植物カロチノイド	—	無	○	有	〃	
	フィコシアニン	○	無	○	有	〃	
有害成分	即存フェオホルバイド	○	有	○	有	食品衛生検査指針理化学編（1991）	
	総フェオフォルバイド	○	有	○	有	〃	
	クロロフィラーゼ活性値	○	無	○	無	〃	
	一般細菌	○	有	○	有	食品衛生検査指針微生物編（1990）	
	大腸菌群	○	有	○	有	〃	
その他	pH	○	無	○	無	健康食品規格基準集（その1）㈶日本健康・栄養食品協会	10倍希釈

（備考）○印：試験検査実施項目。
　　　　—印：試験検査未実施項目。

(3) 有害成分とその関連成分

有害成分とその関連成分として，既存フェオフォルバイド，総フェオフォルバイド，クロロフィラーゼ活性値，一般細菌等5項目及びpHとした。

3 結果及び考察

3・1 栄養成分及びその関連成分

試験結果を表3—1—1，3—1—2に示した。

(1) タンパク質

タンパク質の含有量は，クロレラが59.0～86.1%，スピルリナが68.6～79.1%であり，JHFA規格基準（50%以上）を満たしていた。

これらは，タンパク質の塊とも言えるほど豊富な食品であった。

グループ別ではC-Ⅰ＞S＞C-Ⅱ（平均値の比率1.2＞1.1＞1.0）の順に多く，グループ内での変動係数は7.2～10.2%でバラツキが小さかった。

含有量の表示は，全ての商品に記載されており，C-3外は栄養表示基準（表示値の－20～＋20%）を満足していた。

(2) 水　分

水分の含有量は，クロレラが3.6～6.0%，スピルリナが5.0～6.8%で，共にJHFA規格基準（7%以下）を満たしていた。

グループ別ではS＞C-Ⅰ＞C-Ⅱ（1.4＞1.2＞＞1.0）の順に多く，グループ内での変動係数は10.0～17.2%で，外国産のC-Ⅱ，Sにバラッキが大きかった。

この項目の表示はJHFAでは任意表示事項となっているが，クロレラの2商品にのみ記載されていた。

しかし，水分によってクロロフィルの分解が促進されるので，スピルリナ商品の開封後の保存場所に特に注意を払う必要がある[8]。

(3) 灰分及びミネラル分

クロレラとスピルリナの灰分含有量は，それぞれ5.2

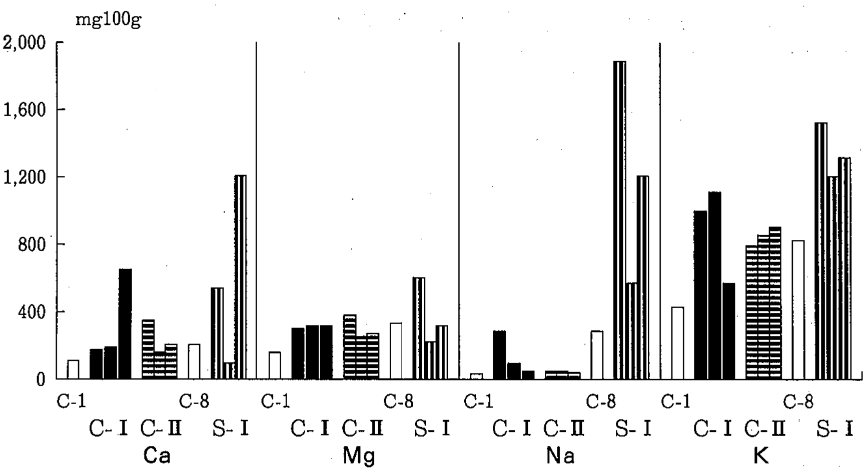


図1　ミネラル分の関連項目

〜7.0%，6.0〜11.0%であった。

ミネラル分としてカルシウム（Ca），マグネシウム（Mg），ナトリウム（Na）及びカリウム（K）の含有量を図1に示した。

グループ別には，全ての項目でS＞C-I＞C-II（Ca：2.6＞1.4＞1.0，Mg：1.2＞1.0≧1.0，Na：30.3＞3.7＞1.0，K：1.7＞1.1＞1.0）の順に多かった。

しかし，特にC-4，C-6及びS-2がグループ内の他の食品と含有量が大きく異なり，変動係数が30.0%を超えてバラツキが大きかった。

含有量がばらつく要因としては，培養株の種，原料の産地，培養に用いる水質等の培養条件等の違いによるものと思われる。

項目別には，クロレラがK＞Mg≧Cs＞Na，スピルリナがK≧Na＞Ca＞Mgの順で，スピルリナにはK，Na及びCaが多く，クロレラにはNaが少い傾向がみられた。クロレラはNaの摂取量が少ない食品，スピルリナはK，NaとCaの摂取量が多い食品といえる。

これらの項目は，JHFA規格基準が定められておらず，任意に表示されていたものはクロレラではCaが5検体，スピルリナではMgとKがそれぞれ2検体であった。栄養表示基準のあるCa（−20〜＋50%）についてはC-4とC-6が基準を満足しなかった。

(4)　ビタミンB_2

ビタミンB_2は，これが欠乏すると動物の成長停止をきたし，皮膚炎をおこすことが知られている。

ビタミンB_2含有量は，クロレラが4.9〜7.1mg%，スピルリナが3.9〜4.3mg%であり，JHFA規格基準（クロレラのみ2mg%以上）を満たしていた。

グループ別では，C-I＞C-II＞S（1.7＞1.4＞1.0）の順で，クロレラにはスピルリナよりビタミンB_2が豊富に含まれていた。グループ内での変動係数は，4.6〜10.4%でバラツキが小さかった。

この項目の表示については，クロレラのみがJHFAの必須表示事項であるが，スピルリナのS-1を除く全ての食品に記載されていた。また，表示のあった食品の全てが栄養表示基準（−20〜＋80%）を満足していた。

3・2　色素成分及び関連成分

試験結果を表3—2に示した。

(1)　クロロフィル

クロレラとスピルリナのクロロフィルa含有量はそれぞれ385〜1,510 mg%，795〜963 mg%，クロロフィルbは113〜590 mg/%，0〜20mg%，総クロロフィルは588〜2,250mg/%，880〜963mg/%であった。

このようにスピルリナにはクロロフィルbがほとんど含まれず，外国産のクロレラにクロロフィルaとクロロフィルbが豊富に含まれていた。

JHFA規格基準は，C-1〜C-4のクロレラ食品の総クロロフィル以外は全て満たしていた。

グループ別には，総クロロフィルとクロロフィルaがC-I＞S＞C-II（前者：2.0＞1.2＞1.0，後者：2.1＞1.7＞1.0），クロロフィルbがC-II＞C-I＞S（49.4＞23.1＞1.0）の順に多かった。

グループ内ではクロレラ関連項目の変動係数が23.3〜38.3%でバラツキが大きかった。

クロレラ食品C-6はクロロフィルaが1,510mg%，クロロフィルbが590mg%で，同じグループ内の他の食品の約1.5〜2倍の含有量であった。

JHFAの必須表示事項は，クロレラが葉緑素とクロロフィルb，スピルリナがクロロフィルaとなっており，クロレラのクロロフィルb及びこれら以外の項目については表示がなかった。

(2)　植物カロチノイド

植物カロチノイドの含有量は，スピルリナが68〜237 mg%で，S-1のみがJHFAの規格基準を満たしていなかった。グループS内の変動係数は60.8%でバラツキが大きかった。

この項目の表示は，JHFAの必須表示事項となっているスピルリナ商品の全てに記載されていた。

(3)　フィコシアニン

フィコシアニンの含有量は，クロレラには全く含まれず0 mg%，スピルリナが3,000〜6,080 mg%で，スピル

表3—1—1　栄養成分測定結果（その1）

種類	No.	グループ	蛋白質(%) (表示値)	蛋白質(%) (実測値)	蛋白質(%) 平均値 標準偏差 変動係数%	蛋白質(%) 総平均値 標準偏差 変動係数%	水分(%) (表示値)	水分(%) (実測値)	水分(%) 平均値 標準偏差 変動係数%	水分(%) 総平均値 標準偏差 変動係数%	灰分(%) (表示値)	灰分(%) (実測値)	灰分(%) 平均値 標準偏差 変動係数%	灰分(%) 総平均値 標準偏差 変動係数%	ビタミンB₂(mg%) (表示値)	ビタミンB₂(mg%) (実測値)	ビタミンB₂(mg%) 平均値 標準偏差 変動係数%	ビタミンB₂(mg%) 総平均値 標準偏差 変動係数%
クロレラ	C-1	—	55～67	72.6	72.6		3～5	6.0	6.0		5～8	6.8	6.8		4～6	6.5	6.5	
	C-2	C-I	60～67	73.9	77.1		3～5	4.4	4.0		—	6.6	6.5		3～8	7.1	6.9	
	C-3	C-I	53～60	86.1	7.90	70.1	3～6	4.0	0.40	4.6	—	7.0	0.50	6.2	3～7	7.5	0.72	6.1
	C-4	C-I	55～65	71.3	10.2	8.31	3～5	3.6	10.0	0.82	—	6.0	7.7	0.71	2～7	6.1	10.5	0.88
	C-5	C-II	55～60	67.3	65.0	11.9	3～5	3.8	4.7	17.8	—	6.6	5.7	11.3	2～5	5.3	5.6	14.4
	C-6	C-II	50～100	59.0	5.21		4.5	5.2	0.81		6.4	5.2	0.76		2.5～7	5.8	0.26	
	C-7	C-II	50～100	68.6	8.0		—	5.2	17.1		—	5.4	13.2		3～8	5.7	4.7	
	C-8	—	55	61.6	61.6		—	4.8	4.8		—	6.2	6.2		4	4.9	4.9	
	規格基準		50%以上				7%以下				—				2以上			
スピルリナ	S-1	S-I	50～70	68.6	73.6	73.6	—	6.8	5.7	5.7	—	11.0	9.1	9.1	—	3.9	4.1	4.1
	S-2	S-I	55～70	79.1	5.27	5.27	—	5.4	0.95	0.95	—	6.0	2.73	2.73	3～5	4.3	0.21	0.21
	S-3	S-I	55～70	73.0	7.2	7.2	—	5.0	16.5	16.5	—	10.4	29.9	29.9	3～5	4.0	5.1	5.1
	規格基準		50%以上				7%以上				—				—			

表3—1—2　栄養成分測定結果（その2）

種類	No.	グループ	Ca (mg/100g) (表示値)	Ca (mg/100g) (実測値)	Ca (mg/100g) 平均値 標準偏差 変動係数%	Ca (mg/100g) 総平均値 標準偏差 変動係数%	Mg (mg/100g) (表示値)	Mg (mg/100g) (実測値)	Mg (mg/100g) 平均値 標準偏差 変動係数%	Mg (mg/100g) 総平均値 標準偏差 変動係数%	Na (mg/100g) (表示値)	Na (mg/100g) (実測値)	Na (mg/100g) 平均値 標準偏差 変動係数%	Na (mg/100g) 総平均値 標準偏差 変動係数%	K (mg/100g) (表示値)	K (mg/100g) (実測値)	K (mg/100g) 平均値 標準偏差 変動係数%	K (mg/100g) 総平均値 標準偏差 変動係数%
クロレラ	C-1	—	—	113	113		—	168	168		—	17.4	17.4		—	432	432	
	C-2	C-I	100～300	175	333.3		—	310	311.7		—	294.0	152.7		—	1,010	903.7	
	C-3	C-I	80～190	178	271.65	252.3	150～500	312	1.53	290.6	—	115.0	126.77	110	600～1,000	1,120	284.80	813
	C-4	C-I	60～200	647	81.5	185.9	—	313	0.5	64.5	—	49.0	83.0	96.9	—	581	31.5	238.4
	C-5	C-II	200～500	343	233.0	73.7	—	373	298.3	22.2	—	44.0	40.8	87.9	—	791	846.0	29.3
	C-6	C-II	292	149	99.58		324	250	65.59		—	41.8	3.80		1,100	848	54.03	
	C-7	C-II	—	207	42.7		—	272	22.0		—	36.6	9.3		—	899	6.4	
	C-8	—	—	206	206			327	327		—	284.0	284		—	826	826.0	
	規格基準		—								—				—			
スピルリナ	S-1	S-I	—	539	610.2	610	—	588	370.0	370	1,000～2,000	1,890	1,234	1,234	—	1,530	1,407	1,407
	S-2	S-I	—	91.6	557.62	557.6	250～450	214	194.56	194.6	—	553	668.87	668.9	1,200～2,000	1,210	172.14	172.1
	S-3	S-I	600～1,200	1,200	91.4	91.4	200～600	308	52.6	52.6	—	1,260	54.2	54.2	1,000～2,000	1,480	12.2	12.2
	規格基準		—				—				—				—			

表3－2　色素成分測定結果

種類	No.	グループ	クロロフィルa (mg%) (表示値)	(実測値)	平均値 標準偏差 変動係数%	総平均値 標準偏差 変動係数%	クロロフィルb (mg%) (表示値)	(実測値)	平均値 標準偏差 変動係数%	総平均値 標準偏差 変動係数%	総カロチノイド (表示値)	植物カロチノイド (mg%) (実測値)	平均値 標準偏差 変動係数%	総平均値 標準偏差 変動係数%	フィコシアニン (mg%) (表示値)	(実測値)	平均値 標準偏差 変動係数%	総平均値 標準偏差 変動係数%
クロレラ	C-1	—	—	528	528		—	210	210		—	—	—		—	0	0	
	C-2	C-I	—	563	527.0		—	210	192.0		—	—			—	0	0.0	
	C-3	C-I	—	385	127.86	791.8	—	113	71.71	295.8	—	—	—		—	0	0.00	0.0
	C-4	C-I	—	633	24.3	353.74	—	253	37.4	142.14	—	—			—	0	0.0	0.00
	C-5	C-II	—	850	1,113.3	44.7	—	340	410.0	48.1	—	—		—	—	0	0.0	0.0
	C-6	C-II	—	1,510	349.62		—	590	157.16		—	—	—		—	0	0.00	
	C-7	C-II	—	980	31.4		—	300	38.3		—	—			—	0	0.0	
	C-8	—	—	885	885		—	350	350		—	—	—		—	0	0	
	規格基準		—				検出されること								—			
スピルリナ	S-1	S-I	500～2,000	795	874.3	874.3	—	20	8.3	8.3	100～200	68	142.3	142.3	2,000～4,000	3,000	4,230.0	4230.0
	S-2	S-I	500～1,000	865	84.39	84.39	—	5	10.41	10.41	150～300	122	86.32	86.32	3,500～7,000	6,080	1,630.92	1,630.92
	S-3	S-I	900～1,500	963	9.7	9.7	—	0	124.9	124.9	240～450	237	60.6	60.6	3,500～7,000	3,610	38.6	38.6
	規格基準		500以上				—				100以上				2,000以上			

表3－3　有害成分及びその関連成分測定結果

種類	No.	グループ	既存フェオホルバイド (mg%) (表示値)	(実測値)	平均値 標準偏差 変動係数%	総平均値 標準偏差 変動係数%	総フェオフォルバイド (mg%) (表示値)	(実測値)	平均値 標準偏差 変動係数%	総平均値 標準偏差 変動係数%	クロロフィラーゼ活性値 (mg%) (表示値)	(実測値)	平均値 標準偏差 変動係数%	総平均値 標準偏差 変動係数%	葉緑素 (表示値)	総クロロフィル (mg%) (実測値)	平均値 標準偏差 変動係数%	総平均値 標準偏差 変動係数%
クロレラ	C-1	—	—	29.5	29.5		—	54.0	54.0		—	24.5	24.5		1,500～4,000	768	768	
	C-2	C-I	—	16.0	16.3		—	16.5	16.2		—	0.5	0.2		2,500～3,500	798	778.7	
	C-3	C-I	—	14.5	2.02	24.8	—	13.5	2.52	31.3	—	0.0	0.29	7.0	1,500～3,000	588	181.77	1,139.3
	C-4	C-I	—	18.5	12.4	9.18	—	18.5	15.6	17.06	—	0.0	173.2	9.15	1,500～3,000	950	23.3	517.45
	C-5	C-II	—	20.0	30.7	37.0	—	24.0	40.9	54.5	—	4.0	10.2	131.4	2,000～4,000	1,200	1,590.0	45.4
	C-6	C-II	—	30.6	10.75		—	43.3	15.88		—	12.7	5.44		1,500～3,000	2,250	574.72	
	C-7	C-II	—	41.5	35.0		—	55.5	38.8		—	14.0	53.1		1,500～3,000	1,320	36.1	
	C-8	—	—	27.7	27.7		—	25.0	25.0		—	0.0	0.0		1,750	1,240	1,240	
	規格基準		60未満				80未満								1,000			
スピルリナ	S-1	S-I	—	10.0	10.8	10.8	—	59.0	92.0	92.0	—	49.0	81.2	81.2		880	926.0	926.0
	S-2	S-I	—	7.0	6.01	4.31	—	97.0	30.81	30.81	—	90.0	28.79	28.79		935	42.23	42.23
	S-3	S-I	—	15.5	55.5	39.8	—	120.0	33.5	33.5	—	104.5	35.5	35.5		963	4.6	4.6
	規格基準		50以下				100以下				—				—			

リナ食品の全てがJHFAの規格基準を満たしていた。

S-2には6,080mg%含まれ，他の食品の約2倍の含有量があった。

この項目の表示は，JHFAの必須表示事項となっているスピルリナの商品全てに記載されていた。

3・3　有害成分及び関連成分

試験結果を表3—3に示した。

クロロフィル分解物のフェオフォルバイド等は光過敏症皮膚障害を引き起こし，これらの生成は温度，湿度，クロロフィラーゼの酵素及び酸性度が関与し，特に湿度に大きく依存する[7,9,10]。

(1)　フェオフォルバイド

クロレラとスピルリナの既存フェオフォルバイドの含有量はそれぞれ14.5～41.5mg%，7.0～15.5mg%，総フェオフォルバイドは13.5～55.5mg%，59.0～120mg%，クロロフィラーゼ活性値は0.0～24.5mg%，49.0～105mg%であった（図2）。

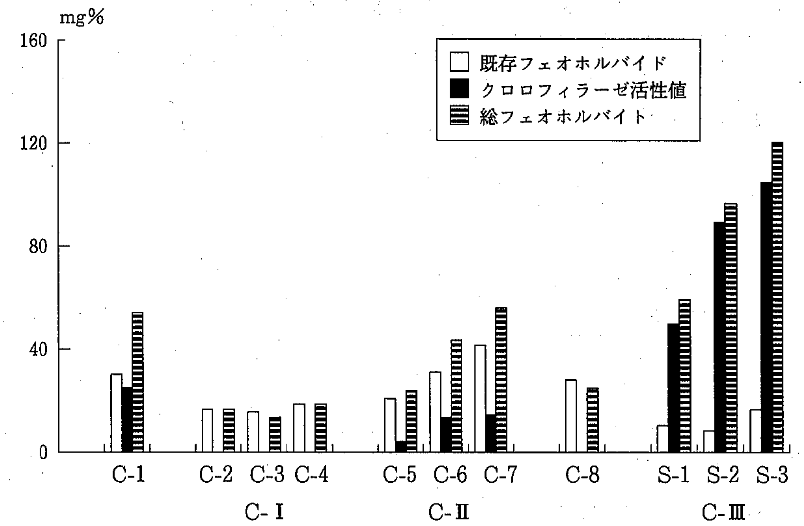


図2　　フェオホルバイド関連項目

既存フェオフォルバイドについてはJHFA規格基準（クロレラ60mg%未満，スピルリナ50mg%以下）を全て満たしていた。総フェオフォルバイドについても全て厚生省の指導基準（160mg%未満）を満たしていたが，S-3だけがJHFAの規格基準（クロレラ：80mg%未満，スピルリナ100mg%以下）を若干越えていた。

昭和52年に食中毒が生じた際のクロレラ中のフェオフォルバイド量は510±150mg%[7]といわれており，現在の含有量はその量の約1/10で，過剰摂取しなければ光過敏症皮膚障害は生じないと思われる。

グループ別では，既存フェオフォルバイドがC-II>C-I>S（比率2.8>1.5>1.0），総フェオフォルバイドとクロロフィラーゼ活性値がS>C-II>C-I（それぞれの比率5.7>2.5>1.0，406>229>1.0）の順に多かった。

グループ内の変動係数はSとC-IIに大きく33.5～55.6%であった。

クロレラは，スピルリナよりも既存フェオフォルバイドの含有量が1.5～2.8倍多いものの，クロロフィラーゼ活性値がほとんど無いかあっても少量であり，しかも商品間のバラツキが小さかった。特にこのような傾向は国産のC-Iに顕著であった。

スピルリナはクロロフィラーゼ活性値が多く，保存方法によってはフェオフォルバイドが生成され増加する危険性が高いので，商品の開封後にはクロレラより保存場所等に配慮する必要があることが分かった。

含有量の表示は全ての食品に示されていなかった。

(2)　一般細菌と大腸菌群

一般細菌は，クロレラが300未満～760個/g，スピルリナが1,300～17,000個/g含まれており，JHFA規格基準（5×10,000個/g以下）を満足していた。

スピルリナの方がクロレラよりも一般細菌の含有量が多かった。これはクロレラとスピルリナの製造工程（前者：加熱処理，後者：熱風乾燥）等が影響していると考えられる。

大腸菌群は，クロレラ及びスピルリナともに陰性であった。

(3)　pH

pHは，クロレラが6.2～6.8，スピルリナが6.4～8.0であった。スピルリナがクロレラより平均値で0.7アルカリ側で，スピルリナは弱アルカリ側で培養されるためと思われる。

S-2のpHはグループS内では最も低い6.4であった。

また，この商品にはグループS内でもタンパク質，フィコシアニン及び一般細菌が多く，ミネラル分と既存フェオフォルバイドが少ないという特異的な商品であった。

4　ま　と　め

藻類大量培養による健康食品のクロレラ及びスピルリナについて，成分及び汚染物質等について実態調査を行った。調査対象とした食品の検体数が十分とはいえないが，以下の品質特性が明らかになった。

(1)　クロレラ及びスピルリナは，タンパク質が約60～80%近く含まれており，ともに高タンパクな食品である。

国産のクロレラ食品に多く含まれる傾向が見られた。

(2)　スピルリナは，商品によりバラツキはあるものの，

表3－4　細菌試験等結果

種類	No.	グループ	一般細菌数（実測値）	大腸菌数（実測値）	pH（実測値）	pH 平均値 標準偏差 変動係数%	pH 総平均値 標準偏差 変動係数%
クロレラ	C-1	—	300未満	陰性	6.3	6.3	
	C-2	C-Ⅰ	760	陰性	6.5	6.5	
	C-3	C-Ⅰ	460	陰性	6.7	0.15	6.5
	C-4	C-Ⅰ	310	陰性	6.4	2.3	0.23
	C-5	C-Ⅱ	300未満	陰性	6.2	6.5	3.5
	C-6	C-Ⅱ	300未満	陰性	6.8	0.31	
	C-7	C-Ⅱ	300未満	陰性	6.6	4.7	
	C-8	—	300未満	陰性	6.2	6.2	
	規格基準		5×10,000個/g以下	陰性	—		
スピルリナ	S-1	S-Ⅰ	1,300	陰性	8.0	7.2	7.2
	S-2	S-Ⅰ	17,000	陰性	6.4	0.80	0.80
	S-3	S-Ⅰ	26,00	陰性	7.2	11.1	11.1
	規格基準		5×10,000個/g以下	陰性	—		

カルシウム，マグネシウム等のミネラル分がクロレラより多量に含まれており，ミネラル分の多い食品である。これは，両者の培養環境等の違いによるものと思われる。

(3)　クロレラにはクロロフィル色素，スピルリナにはフィコシアニン色素が多量に含まれている。

(4)　クロレラの既存フェオフォルバイド含有量は，スピルリナよりも1.5～2.8倍多い。しかし，その含有量は光過敏症皮膚障害を生じる量の約1/10程度である。

(5)　スピルリナのクロロフィラーゼ活性値は高く，保存方法によってはフェオフォルバイドが生成し増加する危険性が高い。スピルリナ商品の開封後の保存場所等については，クロレラより配慮が必要である。

(6)　クロレラの一般細菌数は検出下限値300個/g以下からその約3倍程度で少なく，スピルリナより良好な衛生状態で製品が管理されている。

(7)　スピルリナの一部の食品では，総フェオフォルバイド及び植物カロチノイドが，クロレラでは葉緑素がそれぞれJHFA規格基準を満足していないものがみられた。

(8)　食品成分の表示については，商品によって記載されている項目に整合性がみられなかった。そのため，同種の商品については表示項目を整合させ，消費者の選択時に分かり易くする必要がある。

文　　献

1)　坂本藤夫，桐元俊武，戸田修史郎，田嶋隆俊，大西孝司：石川保環年報，34，76—87（1997）
2)　㈶日本健康・栄養食品協会：JHFA食品便覧，p129（1995）
3)　西沢一俊，千原光雄：藻類研究法，共立出版，p753（1974）
4)　天野立爾，池　慶子，内山　充：食品衛生研究，28—9，739—745（1978）
5)　駒井　嘉明，大貫　憲一，山岸　宏，白鳥　憲行：食品衛生研究，28—9，747—759（1978）
6)　厚生省環境衛生局長通知・環食第99号：フェオフォルバイド等クロロフィル分解物を含有するクロレラによる衛生上の危害防止について（1981）
7)　石原祐治，山浦由郎，宮川あし子，前沢　久：食衛誌，29，423－426（1988）
8)　田村行弘，真木俊夫，嶋村保洋，西垣　進，直井家壽太：食衛誌，20，173—180（1979）
9)　古川章子，宮田淳子，秋山由美子，小鹿　晋：青森衛研所報，19，25—27（1982）
10)　観　公子，田村行弘，真木俊夫，小関正道，直井家壽太：東京衛研年報，33，208—213（1982）

〔報　文〕

重油汚染指標成分としての多環芳香族炭化水素の分析

石川県保健環境センター生活科学部　大西道代・澤田道和
笹木千春・水野和明

キーワード：重油汚染，多環芳香族炭化水素，HPLC

1　は じ め に

平成9年1月2日島根県隠岐島沖で発生したロシア船籍タンカー「ナホトカ号」の破損，沈没による油流出事故に伴い，本県の沿岸における水質，底質等の環境への影響や，野生生物，海生生物の生息状況等の生態系に対する影響の実態と，その後の回復状況を把握し，今後の対策に資することを目的に，石川県ロシアタンカー油流出環境影響調査[1)]がスタートした。

この重油汚染に関する化学分析については多くの報告[2)−5)]が出されている。ここでは多環芳香族炭化水素（PAH）を重油汚染指標成分として残留調査を行うにあたり，蛍光検出器付の高速液体クロマトグラフ（HPLC）の測定条件の検討を行い，今回の油汚染試料に特徴的な成分を検出したので報告する。また，市販魚のPAHも調査したので併せて報告する。

2　試 料 と 方 法

2・1　調査試料

試料は汚染地域（4沿岸：加賀，金沢，富来，珠洲）のイガイ類，ホンダワラ類及び岩しょう付着油，非汚染地域（2沿岸：能都，能登島）のイガイ類及びホンダワラ類で，平成9年3月，5月，7月，9月，12月及び10年2月採取されたものである。また，市販魚介類水産物は平成10年1月金沢市内のスーパーマーケットで購入したものである。

2・2　測定項目

定量対象物質はPAHのうち5環のベンゾ（a）ピレン（B(a)P）とベンゾ（k）フルオランテン（B(k)F），6環のベンゾ（ghi）ペリレン（B(ghi)P）の3物質とした。

定量下限は，生物試料については環境庁の化学物質環境調査[6)]に準じ，B(a)P及びB(k)Fにあっては0.003 μg/g湿重，B(ghi)Pは0.005 μg/g湿重とした。市販魚についてはB(a)P及びB(k)Fにあっては0.01ng/g湿重，B(ghi)Pは0.05ng/g湿重とした。

また，定量対象とはしなかったが，各種のPAHについての同定を試みた。

2・3　試薬及び標準物質

エタノール，ヘキサン，アセトニトリル：HPLC用
無水硫酸ナトリウム：残留農薬試験用
水酸化カリウム：試薬特級
B(a)P，B(k)F：和光純薬工業㈱製
B(ghi)P：Aldrich社製
7-メチルベンゾ（a）ピレン（7-MeB(a)P），9-メチルベンゾ（a）ピレン（9-MeB(a)P），10-メチルベンゾ（a）ピレン（10-MeB(a)P）：Accu Standard社製

2・4　装　置

HPLC：LC-6Aシステム（島津製作所社製）
けい光検出器：RF-10AXL（島津製作所社製）
データ処理器：C-R7Ae plus（島津製作所社製）

2・5　試験溶液の調整

分析は，食品衛生検査指針に基づき，図1に示すように，生物試料をアルカリ分解し，ヘキサン抽出した後，Sep-Pakシリカカートリッジカラムを用いて精製し，HPLCけい光検出器により定量した。付着油についてはヘキサン抽出液をSep-Pakシリカカートリッジカラムを用いて精製し，HPLCけい光検出器により定量した。

Analysis of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons as Heavy Oil Pollution Index. *by Michiyo OHNISHI, Michikazu SAWADA, Chiharu SASAKI, Kazuaki MIZUNO (Environmental Health, Food and Drug Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)*

生物試料　20g
｜ H_2O　10ml
｜ 10%　KOH　エタノール溶液　150ml
アルカリ分解（マントルヒーター加熱還流　2時間）
｜
ろ　過
｜ H_2O　150ml
ヘキサン抽出（100ml　3回）
｜
水　洗（100ml　2回）
｜
脱　水（無水硫酸ナトリウム）
｜
濃　縮（5ml）
｜
シリカゲルカラム（ウオーターズ社製Sep-Pak カートリッジ ヘキサン30ml洗浄処理済）
｜
ヘキサン溶出液（25ml）
｜
濃縮乾固
｜
アセトニトリル転溶（2ml）
｜
HPLC（FL）

図1　分析方法

3　結果及び考察

3・1　HPLC測定条件の検討

検討項目は分離カラムと移動相とした。分離カラムは① TSKgel ODS-80TM (4.6mmi. d×150mm) ② Vydac 201TP (4.6mmi. d×250mm) ③ Wakosil-PAHs (4.6 mmi. d×250mm) の3種について検討した。移動相はアセトニトリル：水＝60：40〜90：10に混合割合を変えたものを検討した。測定波長はB(a)Pに高感度で3物質ともに定量可能で，比較的妨害ピークの検出が少ない励起波長384nm，けい光波長406nmを用いることとした。

B(a)P，B(k)Fの測定には，カラム①②③ともアセトニトリルの混合割合を変えたどの移動相でも定量できた。一方，B(ghi)Pの測定では，特に汚染地域の試料でB(ghi)Pのリテンションタイム付近に多数のピークが検出された。

図2はカラム②③で分離した付着油のクロマトグラムに対し，アセトニトリル比率を変えた移動相を用いた時のB(ghi)Pのピーク位置を示したものである。アセトニトリルの混合割合を小さくする程，B(ghi)Pのピーク位置が前に移動し，妨害ピークA，Bと分離された。

B(ghi)P付近に出現するピークA，Bは標準物質のリテンションタイムから，9-MeB(a)Pと7-MeB(a)Pと推定された。

そこで，表1に示した条件1によるスクリーニング検索ののち，B(a)P，B(k)Fは条件2で定量した。B(ghi)Pは感度が落ちるが，条件3で定量を行うことにした。この条件3では，B(ghi)Pはジベンゾ（a，h）アントラセンと保持時間が近接するが，この波長では選択性があり定量可能であった。3条件でのB(ghi)Pのリテンションタイムは，10分，25分，40分となった。カラム洗浄を含めた分析時間は1検体あたり20分，50分，75分となった。なお，注入量は20 μl とした。

添加回収をみると，生物試料に定量下限値相当量の標準物質を添加したとき，3物質の回収率は76〜92%であった。

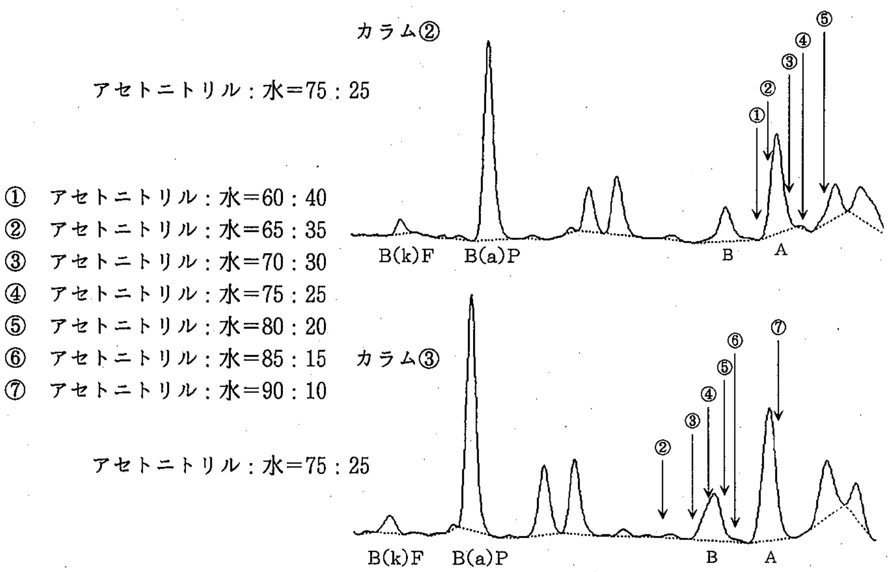


図 2　各移動相に対するB(ghi)Pの溶出位置（付着油）

3・2　汚染地域と非汚染地域のクロマトグラム

平成9年3月の汚染地域（珠洲沿岸）と非汚染地域（能都沿岸）の試料について条件3で測定したクロマトグラムを図3に示した。両者のクロマトグラムを比較すると，30分以降のピークパターンに相違がみられ，汚染地域試料と非汚染地域試料との判別が可能であることが分かった。

3・3　B(a)Pのメチル誘導体

付着油に9-MeB(a)Pと7-MeB(a)Pが検出されたことから，B(a)Pの他のメチル誘導体が検出されないか検索した。入手できた標準物質は10-MeB(a)Pであったが，これは付着

表1　HPLC 測定条件

	条件1	条件2	条件3
測定物質	スクリーニング	B(a)P, B(k)F	B(ghi)p
カラム	① TSKgel ODS—80TM (4.6mmi.d×150mm)	② Vydac 201TP (4.6mmi.d×250mm)	③ Wakosil—PAHs (4.6mmi.d×250mm)
移動相	アセトニトリル：水=70：30	アセトニトリル：水=90：10	アセトニトリル：水=65：35
流速	2.0ml/min	0.4ml/min	1.6ml/min
検出器	けい光（励起波長384nm，けい光波長406nm）		
カラム温度	40℃		

表2　PAH 残留調査結果

（μg/g 湿重）

	付着油	イガイ類 非汚染地域	イガイ類 汚染地域	ホンダワラ類 汚染地域
B(a)P	6.7 ～ 56.8	N.D. ～ 0.003	N.D. ～ 0.039	N.D. ～ 0.016
B(k)F	0.35 ～ 5.3	N.D. ～ 0.006	N.D. ～ 0.010	N.D.
B(ghi)P	3.2 ～ 37.5	N.D. ～ 0.005	N.D. ～ 0.013	N.D. ～ 0.013

N.D.：不検出

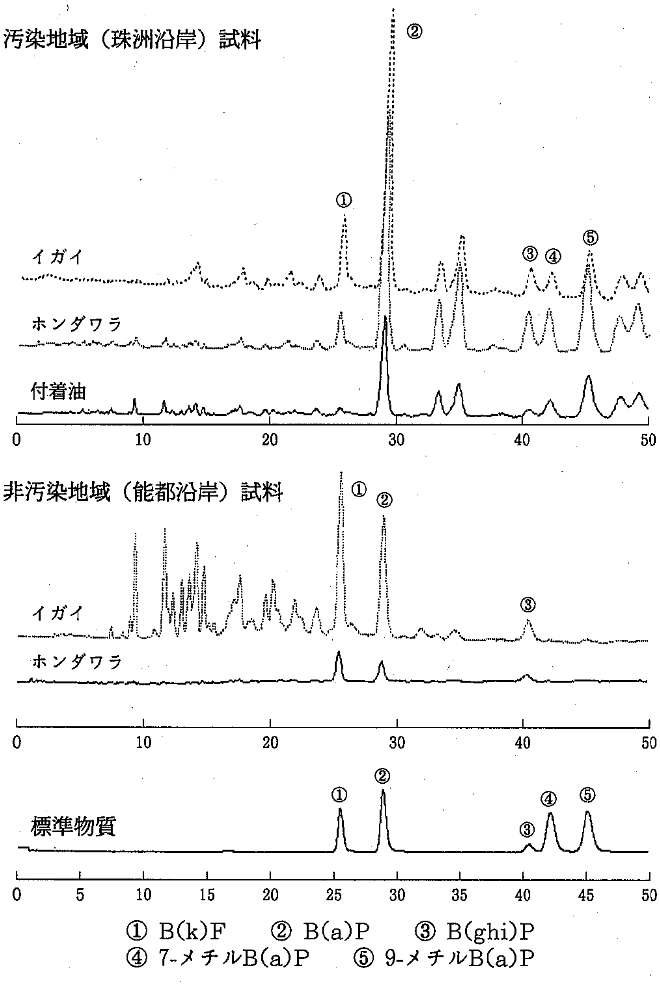


図3　汚染地域試料，非汚染地域試料及び標準物質のクロマトグラム

油に検出されなかった。

9-MeB(a)P と 7-MeB(a)P は汚染指標成分となりうることが分かった。

3・4　PAH 残留調査結果

付着油，汚染地域と非汚染地域のイガイ類及びホンダワラ類の PAH 濃度を表2に示した。

(1)　付着油

付着油の PAH 3物質の濃度は調査時期，場所にかかわらず，B(a)P，B(ghi)P，B(k)F の濃度順で検出され，3物質の濃度比はほぼ同じで約13：6：1の比率であった。また，7-MeB(a)P と 9-MeB(a)P は全ての付着油に検出された。

(2)　イガイ類

イガイ類では B(a)P，B(k)F，B(ghi)P の最高濃度がそれぞれ0.039，0.010，0.013 μg/g 湿重で，平成9年3月の加賀沿岸試料から検出された。B(a)P と B(k)F の濃度を比較すると，非汚染地域では B(k)F のほうが高いのに対し，汚染地域では B(a)P が12月まで高い傾向がみられた（図4）。また，季節的にみるとイガイ類は汚染地域，非汚染地域ともに冬期に高い（汚染後の3月と汚染1年後の2月）傾向がみられるので，継続して調査を行うこととした。

油汚染試料に特徴的な 7-MeB(a)P と 9-MeB(a)P は汚染地域のうち加賀沿岸，富来沿岸，珠洲沿岸の試料では調査期間中全てに検出されたが，金

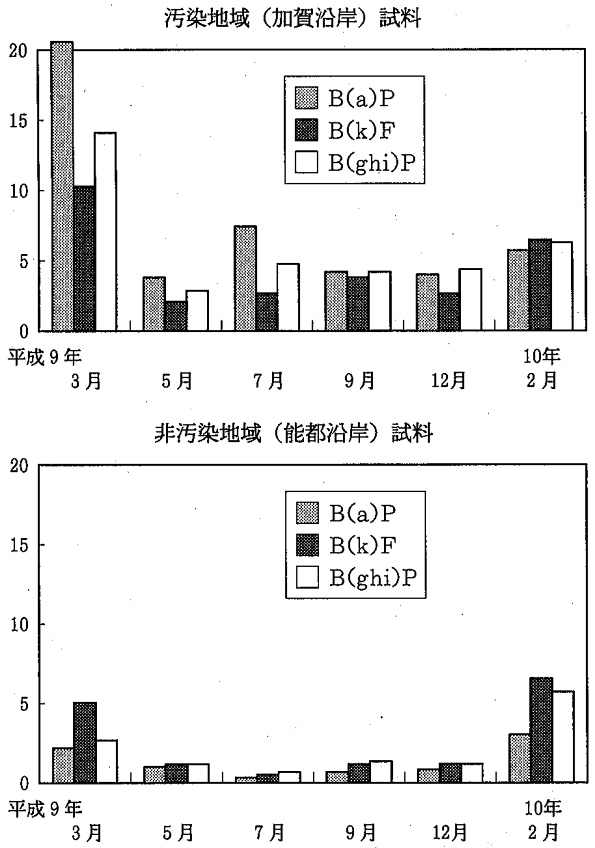


図４　　イガイ類のPAH濃度（ng/g）

沢沿岸では検出されない期間もあった。非汚染地域の能都沿岸及び能登島沿岸のイガイ類には７-MeB(a)Pと９-MeB(a)Pは検出されなかった。

PAH３物質のうちB(a)Pの濃度については，汚染地域のうち，加賀沿岸，富来沿岸，珠洲沿岸では平成10年2月には平成９年３月の１/７～１/３に減少していた。

(3)　ホンダワラ類

ホンダワラ類では，珠洲沿岸でのみB(a)PとB(ghi)Pが検出され，その最高濃度は0.016，0.013μg/g湿重であった。また，比率はいつの時点でもほぼ同じであり，油汚染試料に特徴的な７-MeB(a)Pと９-MeB(a)Pは調査期間中の試料全てに検出された。

3・5　市販魚中の含有量について

一般的な魚のPAH３物質の含有量を知る目的で，市販魚10種類（さけ，まぐろ，かじき，たら，かれい，まあじ，まいわし，さわら，はまち，いか）各１件について調査した。魚は平成10年１月金沢市内のスーパーマーケットにて購入したもので，可食部を分析した。B(a)Pは「いか」で0.03ng/g湿重検出された以外は0.01ng/g湿重以下であった。B(k)Fは「いか」で0.14ng/g湿重検出された以外は0.01ng/g湿重以下であった。B(ghi)Pはすべて0.05ng/g湿重以下であった。

４　ま　と　め

(1)　イガイ類とホンダワラ類については，汚染地域の試料のクロマトグラムは付着油と同様な特徴的なクロマトグラムを示した。

(2)　汚染地域試料のB(ghi)P付近に検出されるピークは７-MeB(a)Pと９-MeB(a)Pと推定された。

(3)　汚染地域の試料についてのみ７-MeB(a)Pと９-MeB(a)Pが検出されることから，試料のクロマトグラム上でこれら２物質のピークを確認することにより，ナホトカ油で汚染されたか否か判定することができた。

(4)　イガイ類のB(a)PとB(k)Fの濃度を比較すると，非汚染地域ではB(k)Fのほうが常に高いのに対し，汚染地域ではB(a)Pが12月まで高い傾向がみられた。

(5)　イガイ類のPAH3物質はともに冬季（汚染後の３月と汚染１年後の２月）が他の季節より高い。この傾向を確認するため，対照地域との比較を行うとともに，継続して調査を行うこととした。

(6)　ホンダワラ類では，B(a)PとB(ghi)Pが汚染地域の珠洲沿岸でのみ検出された。最高濃度は0.016，0.013μg/g湿重であった。

(7)　PAH３物質の市販魚10種類の調査では，「いか」で0.1ng/g湿重程度検出された以外は検出されなかった。

文　　献

1)　石川県：石川県ロシアタンカー油流出環境影響調査（1998）

2)　環境庁，国立環境研究所：日本海重油汚染事故調査資料（1998）

3)　川田邦明，田辺顕子，水戸部英子，坂井正昭，貴船育英：環境化学，7，533—543（1997）

4)　早川和一，木津良一，安藤京子，村橋毅，東成見，山本茂樹，長谷川幸司，中浜慶子，山下克美，松本健，後藤純雄：環境化学，7，545—552（1997）

5)　劔持堅志，荻野泰夫，松永和義，森忠繁，緒方正名：環境化学，7，561—576（1997）

6)　環境庁：平成２年版化学物質と環境，p135—136（1990）

〔報　文〕

大気浮遊粉じんの化学組成からみた札幌・東京・金沢3都市の大気環境比較

石川県保健環境センター環境科学部　柿本　均・横江　斉
石川県保健環境センター情報科学室　北村守次

キーワード：Airborne Particulates, Polycyclic Aromatic Hydrocarbons, Nitropolycyclic Aromatic Hydrocarbons, Benzo [*a*] pyrene, Dinitropyrene, 1-Nitropyrene

1　緒　　言

市街地における大気浮遊粉じんの調査は，都市域の大気汚染状況を評価するための指標として，常時監視項目などとともに各地で継続して行われているが，同時期に複数の都市で採取された試料を統一的な条件の下に分析し，比較・検討した報告は従来例を見ない。今回，都市の規模や気象条件の異なる，札幌，東京及び金沢の3都市において，大気浮遊粉じんを冬季と夏季の昼夜別に同時に採取して各種物質を分析し，これら3都市間の基礎的な大気環境の比較を行うとともに，各種物質の大気内動態の特徴を明らかにする目的で共同調査を実施した。

一方，以前から大気中にはベンゾ［*a*］ピレン（以下BaP）に代表される発がん性や変異原性を有する多環芳香族炭化水素（PAHs）の存在が知られていたが，近年これらのニトロ誘導体で，多環芳香族炭化水素より強い発がん性及び変異原性を有するいくつかのニトロ多環芳香族炭化水素（NPAHs）の存在が明らかにされてきた[2)−4)]。

そこで今回，大気中で粉じんに付着して存在する物質であり，従来各地で測定されてきた重金属元素や，大気酸性化物質である二酸化硫黄（SO_2）や窒素酸化物（NO_x）などのガス状物質から変化した硫酸イオン（SO_4^{2-}），硝酸イオン（NO_3^-）を含む水溶性イオンに加え，発がん性もしくは変異原性を有するいくつかのPAHs及びNPAHsを調査の対象とした。

2　調 査 方 法

2・1　調査の概要

上記3都市の市街地の沿道3地点で，冬季（1995年1月～2月）と夏季（1995年7月～8月）に，昼（午前6時から午後6時まで）夜（午後6時から翌朝6時まで）別に各12時間ずつ，連続する3日間を2回，計6日間にわたり，ハイボリウム・エアサンプラー（紀本電子製MODEL-120）を用いて大気浮遊粉じんを採取した。なお，金沢のみは比較のために郊外の1地点（県保健環境センター庁舎屋上）でも同時期に試料を採取した。捕集流量は約1,500l/min（約2,160m^3/day）である。

採取地点の概要として，車道端からの距離，調査期間中の自動車通過台数及び各都市のガソリン車とディーゼル車の保有台数などをTable 1に示した。自動車の通過台数については，交通管制交通量データの1時間値を昼夜別に平均したものである。なお，金沢（市街地）のみは採取地点が三叉路に面しており，直線状の車道端に位置する他の2都市に比べ，見かけ上約1.5倍の数字になっていると仮定すると，市街地の幹線道路における自動車通過台数は，3都市ともに2,000台/時間程度で，いずれもほぼ飽和状態と考えられる。

調査期間中の気象条件をTable 2に示した。金沢では夏季に比べ冬季に降水量が著しく多く，日照時間が短い。また，東京の日照時間には夏季と冬季の間に大きな差は見られない。さらに，札幌では夏季の調査期間中に集中豪雨が観測されるなど，降水量が非常に多く，日照時間

Comparison of Air Samples of Sapporo, Tokyo and Kanazawa on the Stand Point of Chemical Composition of Airborne Particulates *by Hitoshi KAKIMOTO*, Hitoshi YOKOE* and Moritsugu KITAMURA*** (**Environmental Science Department, **Epidemiology and Information Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science*)

Table 1 Characteristics of the sampling points

City (Population)	Adress	Locationn (Distance from the carriageway, Height from the ground)	Traffic Volume, Vehicles/hr Day time	Night time	Number of resistrated Vehicles (1995) Diesel-engine	Gasoline-engine
Sapporo (1,750,627)	Chuo-ku	Along the Route-12 (4.6m, 1.0m)	2,260	680	493,791	716,323
Tokyo (7,817,332)	Shinjuku-ku	Along the Yamanote str. (2.0m, 1.0m)	2,040	1,250	724,429 *1)	2,913,911 *1)
Kanazawa (434,865)	Katamachi	Downtown area : Face on Korinbo crossing (11.0m, 4.0m)	2,840	1,250	142,155 *2)	376,132 *2)
	Taiyogaoka	Suburban area : (Roof top of Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)	—	—	—	—

*1) 23 wards, Tokyo metropolice
*2) Ishikawa Prefecture

Table 2 Meteorological conditions during sampling experiments

City	Season	Duration of sunshine (hr/day)	Average wind speed (m/sec)	Total amonunt of precipitation durring sampling period (mm)
Sapporo	Winter	4.7 ± 2.1	3.2	8.5
	Summer	0.9 ± 2.0	1.9	75.0
Tokyo	Winter	8.8 ± 0.8	3.2	0.0
	Summer	7.7 ± 2.0	1.7	8.0
Kanazawa	Winter	1.9 ± 1.8	5.0	42.0
	Summer	8.2 ± 3.3	4.6	7.0

Winter : 30 Jan.- 8 Feb., 1995
Summer : 31 July- 9 Aug., 1995

が極端に短かった。

2・2　分析方法及び装置

重金属元素については，硝酸・過酸化水素水処理による溶出の後，フレーム/フレームレス原子吸光光度法（日立製作所製 Z-8200）により銅，亜鉛，鉛，カドミウム，鉄，マンガン，ニッケル，クロム及びバナジウムを分析した。水溶性イオンについては，超純水で超音波抽出の後イオンクロマトグラフ法（横河アナリティカルシステムズ製 IC-7000）によって硫酸イオン（SO_4^{2-}），硝酸イオン（NO_3^-），塩化物イオン（Cl^-），カルシウムイオン（Ca^{2+}），マグネシウムイオン（Mg^{2+}），アンモニウムイオン（NH_4^+），カリウムイオン（K^+）及びナトリウムイオン（Na^+）を分析した。

NPAHs と PAHs については，化学発光検出/HPLC（移動相送液ポンプ：Shimadzu LC-6A，化学発光試薬送液ポンプ：Sanuki DM2M-1006，化学発光検出器：Soma S-3400，カラムオーブン：Shimadzu CTO-6A，NPAHs分析カラム：Shimadzu ODS－II（4.6mm i.d.×250mm））と蛍光検出/HPLC（移動相送液ポンプ：Shimadzu LC-6A，蛍光検出器：Jasco 820-FP，カラムオーブン：Shimadzu CTO-6A，インジェクター：RHEODYNE Model 7125，PAHs分析カラム：VYDAC 201-TP54（4.6mm i.d.×250mm））で構成される，同時分析システム[5,6]を用いる方法によって分析を行った。

測定した7種のPAHs（フルオランテン（Fl），ピレン（Py），ベンツ［*a*］アントラセン（BaA），クリセン（Ch），ベンゾ［*b*］フルオランテン（BbF），ベンゾ［*k*］フルオランテン（BkF）及び BaP は，いずれも米国環境保護庁（EPA）の優先汚染物質リストに含まれている。また，NPAHs（1,3-ジニトロピレン（1,3-DNP），1,6-ジニトロピレン（1,6-DNP），1,8-ジニトロピレン（1,8-DNP）及び1-ニトロピレン（1-NP））も従来変異原性物質として知られている BaP と比較しても，数倍から2,000倍程度強い変異原性を持つことが判明している[6]。なお，分析項目の詳細については Table 3 に示すとおりである。

3　結果と考察

3・1　粉じん量について

単位大気量あたりの粉じん量（単位：$\mu g/m^3$）を，冬季と夏季それぞれの昼夜別の計4カテゴリーごとに Fig. 1 に示す。都市間で比較すると，いずれのカテゴリーでも東京＞札幌＞金沢（市街地）となっており，周囲に幹線道路等の発生源がない金沢の郊外はさらに低く，東京の約1/10のレベルである。昼夜間で比較すると，3都市ともに昼＞夜となっている。一般に沿道大気中の浮遊粉じん量は，自動車の通過台数に依存することが知られている[7]が，本研究でも昼＞夜の結果は自動車通過台数の違いを反映している。一方冬季と夏季を比較すると，金沢では夏＞冬の傾向が見られ，降水量が多く粉じんの発生が抑制されやすい冬季の気象条件（Table 2）を反映していると考えられるが，札幌と東京ではこの傾向は明瞭には見られない。

国設大気測定網（NASN）の大気汚染ならびに環境大気測定所（全国23地点）中の最高濃度地点である川崎（夏季7月に148 $\mu g/m^3$，冬季2月に105 $\mu g/m^3$）[1]と比較しても，今回の東京は夏季，冬季いずれもこれを上回っており，国内最高レベルの汚染状況である。金沢市街地は全国中位程度であった。

3・2　各物質の検出状況

Table 4 に各重金属元素，水溶性イオンの総量（当量濃度），PAHs 及び NPAHs について，3都市の季節別・昼夜別の濃度を示す。

金属元素では鉄の濃度が最大であり，東京と札幌では 1 $\mu g/m^3$ 以上に達している。以下銅，亜鉛，鉛の順で濃度は低くなり，測定した元素の中ではカドミウムとバナジウムの濃度が最も低かった。全国的にみると鉄，マンガン，ニッケル等の元素の濃度は巨大な製鉄工場群を有する川崎や北九州で突出して高く，鉄の年平均値で3～4 $\mu g/m^3$ に達しているが[1]，本研究の東京はそれらに匹敵する高濃度であった。この理由として，採取地点近隣の大規模な建築現場や数百m以内を走る複数の鉄道などから発生する金属性の粉じんの寄与が考えられた。

BaP 等の PAHs の平均濃度は，東京と札幌でほぼ等しく 1 ng/m^3 以上であり，金沢ではその数分の一程度であった。BaP について全国の濃度レベルと比較すると，札幌と東京は NASN の中で最高濃度の北九州（年平均値1.3ng/m^3）[1]と同程度またはそれ以上の汚染状況であった。

3都市に共通して，NPAHs のうち比較的濃度の高い 1-NP は BaP より1桁低い濃度であり，ジニトロピレン類（DNPs）はさらに2桁低く BaP 等より3桁程度低い 1 pg/m^3 あるいはそれ以下の濃度レベルであった。このことは，すでに過去数年間にわたり，金沢の市街地で継続的に観測された NPAHs の濃度レベルに見られた特徴[4,8]と一致しており，都市の沿道大気中の PAHs 及び NPAHs の存在比率に関する普遍的な現象のように思われる。東京における冬季の 1-NP の平均濃度（昼:163 pg/m^3，夜：120pg/m^3）は田辺ら[2]が1986年に環境大気中の NPAHs 濃度を報告したデータ（2月：134pg/m^3）と同程度の値であった。また，DNPs も田辺らの報告値（2月：0.3～ 2.6pg/m^3，8月：ND～2.0$pg/$

Table 3　The substances analyzed in this study

Cathegory	Substances		Method
Heavy Metal Elements	Cu		Flame Atomic absorption Spectrophotometry
	Zn		
	Pb		
	Cd		
	Fe		
	Mn		
	Ni		Flameless Atomic Absorption Spectrophotometry
	Cr		
	V		
Water-Soluble Ions	SO_4^{2-}		Ion Chromatography
	NO_3^-		
	Cl^-		
	Ca^{2+}		
	Mg^{2+}		
	NH_4^+		
	K^+		
	Na^+		
Polycyclic Aromatic Hydrocarbons	Fluoranthene	(Fl)	Fluorescence Detetion HPLC
	Pyrene	(Py)	
	Chrysene	(Ch)	
	Benz [*a*] anthracene	(BaA)	
	Benzo [*b*] fluoranthene	(BbF)	
	Benzo [*k*] fluoranthene	(BkF)	
	Benzo [*a*] pyrene	(BaP)	
Nitropolycyclic Aromatic Hydrocarbons	1-Nitropyrene	(1-NP)	Chemiluminescence Detection HPLC
	1,3-Dinitropyrene	(1,3-DNP)	
	1,6-Dinitropyrene	(1,6-DNP)	
	1,8-Dinitropyrene	(1,8-DNP)	

m^3）と同程度であった。

東京の濃度を基準（1.00）とすると，金属元素は多くの場合札幌で0.20～0.40程度，金沢では0.10～0.20程度と小さくなっているのに対し，有機化合物では札幌で高濃度を示し，東京との順位が逆転している物質が多い。

昼夜による濃度の違いを比較すると，いずれの都市においても金属元素，有機化合物に共通して自動車の通過台数の増減に追従した変動，すなわち昼に高濃度，夜に低濃度となる傾向が見られるが，東京の DNPs と 5 環の多環芳香族炭化水素については明瞭な日内変動は認められなかった。この理由としては，東京の夜間における交通量の減少率が他の 2 都市に比べて小さく（Table 1），夜間においても都市の活動レベルが低下しにくいことや，東京の都市域の範囲が他の 2 都市に比べて著しく広いことから，昼夜による風向きの変化の影響を受けて，周囲からの輸送により夜間においても濃度が減少しにくいことなどが考えられる。

季節による違いをみると，金属元素ではバナジウムとニッケルに夏季>冬季の傾向がみられたが，他の元素に

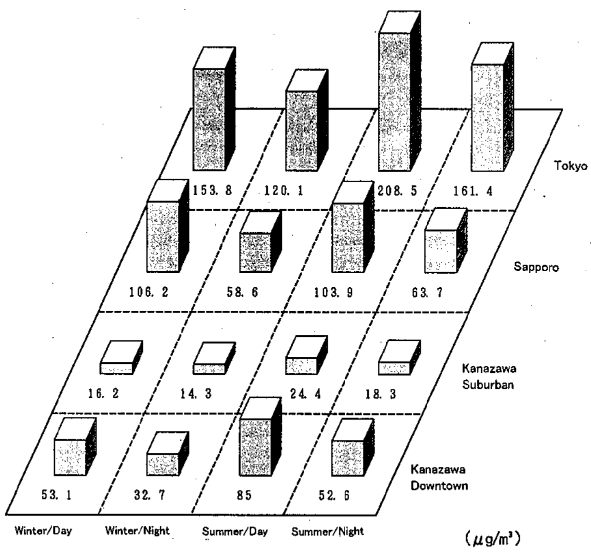


Fig. 1　Mean values of the amount of airborne particulates

Table 4 Concentrations (mean±S.D.) of each substance analyzed in this study

Sample			Airborne Particulates μg/m³	Cu ng/m³	Zn ng/m³	Cd ng/m³	Pb ng/m³	Fe ng/m³	Mn ng/m³	Cr ng/m³	Ni ng/m³	V ng/m³	Water-soluble ions μeq/m³
Kanazawa Downtown	Winter	Day	53.1±28.3	154.1± 91.1	41.5±30.0	0.0±0.0	20.8±11.7	243.9± 233.1	8.7± 6.7	2.9± 3.6	14.5±1.0	1.52±0.71	0.23±0.15
		Night	32.7±18.8	174.0± 25.9	39.6±35.7	0.0±0.0	27.9±25.8	249.7± 307.3	8.9± 7.1	4.1± 3.0	14.2±0.4	1.11±0.43	0.29±0.18
	Summer	Day	85.1±28.7	102.5± 27.3	60.6±20.6	0.0±0.0	25.3±11.6	648.5± 251.6	15.2± 3.8	7.5± 3.6	16.0±0.8	2.50±1.03	0.22±0.10
		Night	52.6±23.1	163.2± 39.6	15.8±10.4	0.0±0.0	17.6± 2.1	246.3± 97.2	6.7± 1.5	3.9± 2.8	14.4±1.7	1.42±0.38	0.11±0.04
Kanazawa Suburban	Winter	Day	16.2±8.7	58.6± 31.1	39.9±48.6	0.0±0.0	11.7± 6.8	92.3± 136.7	9.0±11.9	4.8± 3.2	19.8±2.2	1.59±0.81	0.37±0.17
		Night	14.4±9.0	37.3± 11.4	20.5±29.2	0.0±0.0	15.7±23.3	319.1± 283.1	5.9± 5.6	6.5± 3.0	24.1±6.5	1.06±0.37	0.31±0.15
	Summer	Day	24.4±11.4	46.7± 16.5	17.5±17.2	0.1±0.2	19.9±20.0	430.1± 273.2	8.4± 4.8	10.8± 6.2	17.3±4.0	1.71±0.71	0.22±0.08
		Night	18.3±7.7	28.6± 9.3	10.6±16.6	0.0±0.0	8.1±11.3	158.9± 125.8	3.8± 2.8	5.4± 4.1	16.2±3.1	1.24±0.34	0.19±0.10
Sappro	Winter	Day	106.2±53.9	399.1± 66.8	170.0±152.6	0.0±0.0	31.5±20.7	1,119.1± 856.2	22.8±15.7	10.2± 7.6	21.0±3.9	1.95±1.58	0.56±0.27
		Night	58.6±40.6	183.3± 29.3	64.5±67.7	0.0±0.0	11.8±10.8	602.5± 651.0	11.0±11.4	6.8± 4.0	18.4±2.7	1.24±1.25	0.35±0.17
	Summer	Day	103.9±19.3	155.8± 36.6	129.2±59.6	0.0±0.0	19.3± 5.1	1,466.7± 713.4	26.1±11.2	9.6± 1.3	21.6±3.3	2.31±0.99	0.17±0.06
		Night	63.7±17.1	441.0±145.4	131.7±71.6	0.0±0.0	18.2±11.8	1,058.3± 496.2	20.0±10.8	10.7± 3.9	19.4±2.3	2.46±1.44	0.19±0.14
Tokyo	Winter	Day	177.7±62.2	253.2±101.1	479.1±110.5	0.6±0.8	90.9±13.1	4,880.8±1,989.5	106.3±43.1	32.9± 8.1	44.5±6.6	6.80±3.49	0.47±0.12
		Night	139.4±48.5	288.5± 89.0	603.2±142.7	3.9±1.9	151.0±53.7	4,001.2±1,544.9	75.9±28.1	25.1± 4.9	38.7±5.9	4.87±2.16	0.46±0.15
	Summer	Day	208.5±21.5	268.3± 38.0	509.1±135.9	2.4±1.8	104.4±21.8	4,431.4± 636.9	123.3±21.0	41.2±10.0	54.7±4.2	14.84±3.62	0.96±0.20
		Night	161.4±13.6	294.7± 23.3	404.2± 45.0	5.9±2.4	112.0±29.3	3,210.1± 334.0	82.4±29.1	35.7± 9.1	36.3±4.1	13.70±5.82	0.97±0.13

Sample			1,6-DNP pg/m³	1,8-DNP pg/m³	1,3-DNP pg/m³	1-NP pg/m³	Fl ng/m³	Py ng/m³	B [a] A ng/m³	Ch ng/m³	B [b] F ng/m³	B [k] F ng/m³	B [a] P ng/m³
Kanazawa Downtown	Winter	Day	0.28±0.11	0.35±0.16	0.28±0.11	59.2± 8.8	0.85±0.28	1.14±0.44	0.58±0.23	0.93±0.29	0.87±0.31	0.38±0.12	0.67±0.19
		Night	0.20±0.05	0.24±0.08	0.18±0.05	38.3± 14.6	0.71±0.40	0.88±0.45	0.32±0.19	0.69±0.37	0.71±0.43	0.32±0.22	0.45±0.35
	Summer	Day	0.13±0.06	0.12±0.06	0.14±0.08	26.7± 13.0	0.37±0.12	0.71±0.22	0.21±0.07	0.32±0.13	0.42±0.18	0.18±0.07	0.32±0.13
		Night	0.11±0.03	0.09±0.02	0.09±0.03	11.3± 4.1	0.12±0.05	0.20±0.10	0.07±0.02	0.11±0.04	0.20±0.09	0.09±0.04	0.13±0.06
Kanazawa Suburban	Winter	Day											
		Night											
	Summer	Day											
		Night											
Sappro	Winter	Day	1.88±1.09	2.18±1.37	1.63±0.87	413.0±229.6	3.16±2.37	5.00±4.12	1.90±1.62	2.56±2.08	2.04±1.65	1.07±0.90	2.04±1.70
		Night	0.87±0.74	0.94±0.79	0.82±0.70	197.0±150.9	1.53±1.02	2.14±1.58	0.88±0.84	1.18±1.06	0.87±0.84	0.46±0.48	0.91±1.15
	Summer	Day	0.86±0.29	0.80±0.32	0.74±0.22	205.7± 76.5	1.31±0.46	2.66±1.85	1.21±0.56	1.72±0.83	1.53±0.58	0.74±0.26	1.60±0.56
		Night	0.82±0.15	0.75±0.13	0.76±0.06	149.2± 64.8	1.17±0.98	2.09±2.24	0.81±0.51	1.15±0.74	1.10±0.63	0.54±0.29	1.14±0.66
Tokyo	Winter	Day	0.62±0.26	0.68±0.26	0.72±0.24	162.9± 60.4	2.99±1.98	3.73±1.99	1.29±0.59	1.79±0.66	1.64±0.68	0.76±0.29	1.39±0.63
		Night	0.97±0.36	0.60±0.18	0.65±0.18	120.2± 32.0	2.32±1.27	3.17±1.31	1.47±0.76	2.00±1.09	1.75±1.03	0.85±0.45	1.77±0.93
	Summer	Day	1.14±0.39	0.53±0.08	0.66±0.11	129.5± 25.8	1.44±0.28	2.34±0.44	1.00±0.17	1.69±0.61	2.36±0.60	0.96±0.24	1.65±0.38
		Night	1.30±0.42	0.69±0.16	0.92±0.34	75.3± 21.6	0.98±0.18	1.43±0.16	0.67±0.09	1.24±0.20	1.90±0.38	0.79±0.18	1.48±0.32

は季節による顕著な濃度差は認められなかった。このことは，向井ら[9]が1983年から1988年までの約5年にわたり，人為的な汚染源の少ない隠岐島で連続的に大気粉じんの成分調査を行って得られたバナジウムやニッケルの季節変動の傾向と一致している。ただし，今回は調査期間が短く冬季と夏季に限られていたこともあり，向井らの調査で観測された他の元素に関する季節変動の傾向は必ずしも得られなかった。

一方，今回調査の対象とした有機化合物の多くは，3都市とも冬季に高濃度，夏季に低濃度の明瞭な季節変動が認められた。この理由として，自動車排ガスを主な起源とするPAHs及びNPAHsでは，大気の安定度が高くなる冬季において，沿道大気中に自動車排ガス由来の粉じんが滞留しやすくなることが考えられる。ただし，東京のNPAHs濃度にはこの傾向が見られないことから，日中の日照時間が夏季と冬季で大きく変化しない東京では，大気中でNPAHsが光分解される可能性が考えられた。

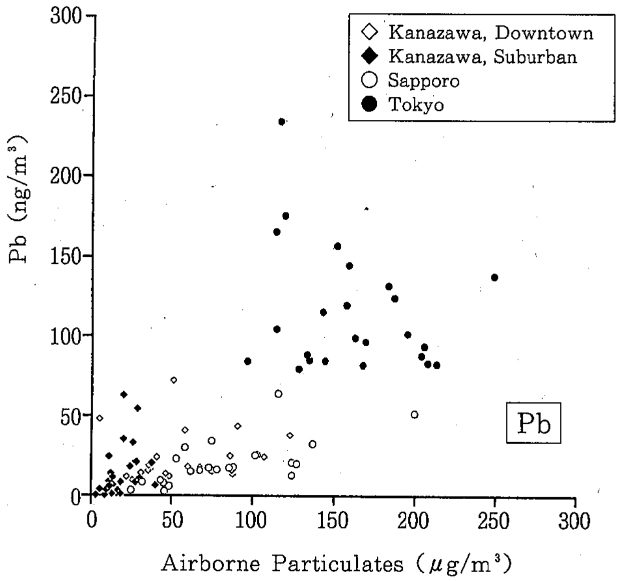
また，水溶性イオンの総量については，冬季に季節風による海塩の影響を強く受けることから，札幌，金沢ともに東京に対する比率が冬季に比較的高く，夏季には極端に低くなっている。ただし，冬季においても，東京≧札幌＞金沢の濃度順位は保たれており，二酸化硫黄（SO_2）や窒素酸化物（NO_x）などから2次的に生成した人為的汚染源由来のイオン成分の濃度も3都市中では東京が最も高いことが明らかとなった。

3・3　各物質濃度の粉じん量との関係

金属元素の濃度は，いずれの元素についても季節によらず粉じん量にほぼ追従する検出傾向が見られるのに対し，PAHsでは札幌が東京と同程度，更にNPAHsでは札幌の濃度が突出して高く，特に1-NPにその傾向が著しかった。Fig. 2に金属元素の例として鉛とマンガン，PAHsの例としてFlとBaP，さらにNPAHsの例として1-NPと総ジニトロピレン（Σ DNP ＝ [1,3-DNP] ＋ [1,6-DNP] ＋ [1,8-DNP]）の検出状況を，それぞれ粉じん量に対して調査地点別にプロットした結果を示す。1-NPやDNPsはディーゼル車の排気ガスが主な発生源と考えられる[3]ことから，Table 1に示したディーゼル車の保有比率の大小関係（札幌（40.8%）＞金沢（27.4%）＞東京（19.9%））を反映して，札幌で粉じんの総量の割に著しい高濃度となっているものと考えられた。

Fig. 2において，地点別に散布図の回帰直線を描いた場合の傾きを比較すると，各物質の粉じんあたりの平均濃度を都市ごとに比較することになる。PAHs及びNPAHsについて，この傾きは，札幌＞東京＞金沢となっており，粉じん量あたりのこれら有機化合物の量は札幌が最大であることを示している。さらに，札幌と東京のこの傾きの差がPAHsに比べてNPAHsでより大きくなっているという事実から，沿道大気中の浮遊粉じん中に占めるディーゼル車排ガス由来のものの比率が札幌で最も高いことが推測される。

一方，金属元素では，この傾きは東京＞札幌≧金沢（市街地）となっており，東京では浮遊粉じんの絶対量は多いが，自動車排ガス以外の起源のものが占める比率が高いと推定される。また，金沢郊外では粉じんの絶対量は他の調査地点に比べて少ないにもかかわらず，この



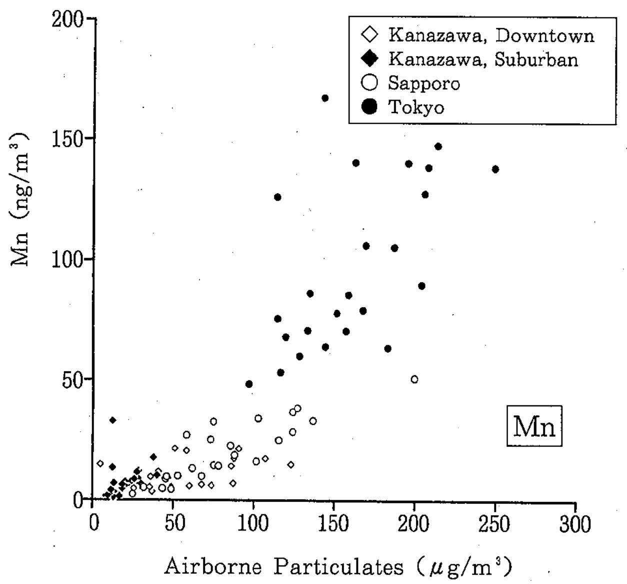


Fig. 2 (a)　Relationships between the amount of airborne particulates and the atmospheric concentrations of heavy metal elements

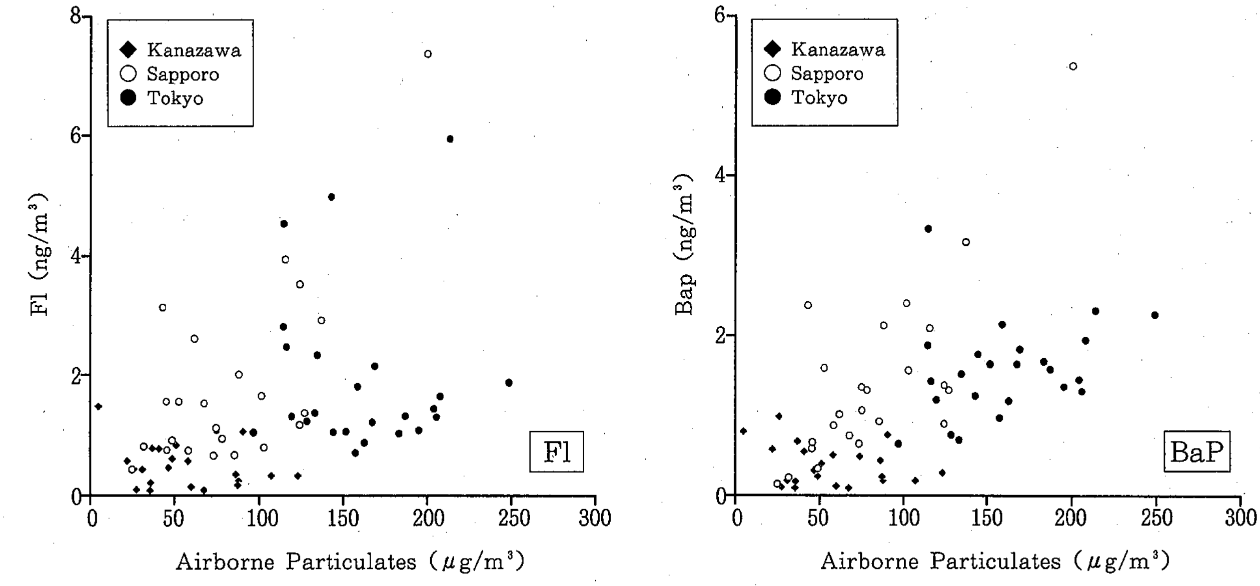


Fig. 2 (b)　Relationships between the amount of airborne particulates and the atmospheric concentrations of PAHs

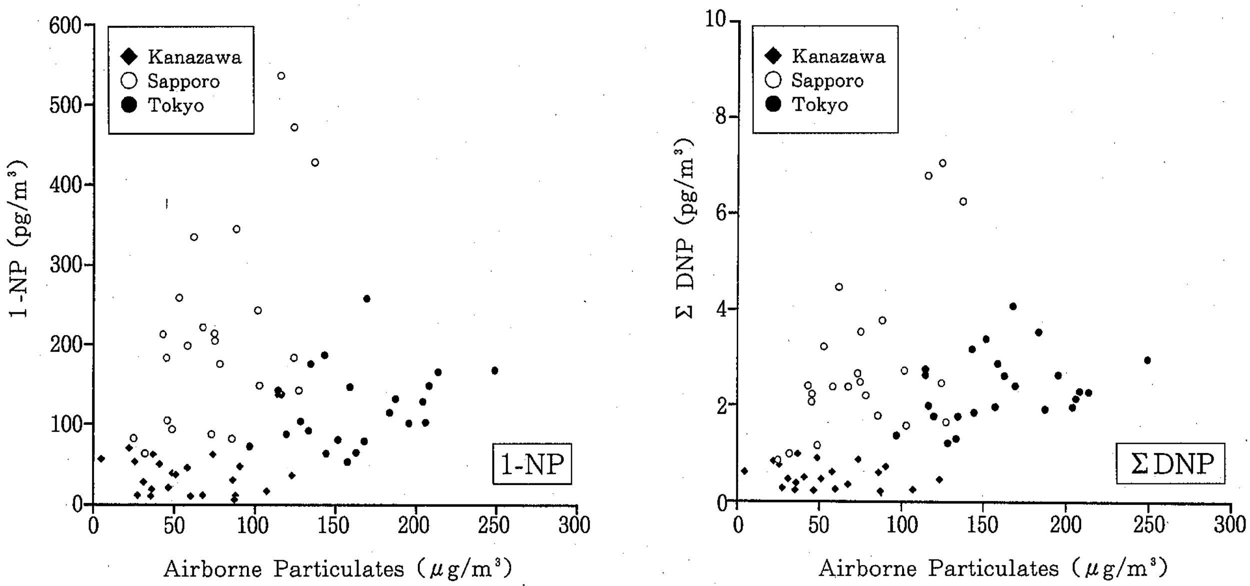


Fig. 2 (c)　Relationships between the amount of airborne particulates and the atmospheric concentrations of NPAHs

傾きが最大となっていることから，都心部の沿道とは明らかに起源の異なる浮遊粉じんを採取したものと思われる。金沢郊外の採取地点の近隣では，この時期大規模な土地の造成工事が行われており，土埃として巻き上げらた土壌由来の金属元素を採取した可能性がある。

3・4　NPAHs 及び PAHs の組成比

NPAHs の大気中濃度への，ディーゼル車とガソリン車の寄与を表す指標として，測定結果から NPAHs の組成比：[ΣDNP] / [1-NP] を計算してみたところ，札幌で0.011±0.003，東京で0.019±0.004，金沢で0.016±0.005であった。それぞれの物質の濃度はばらつきが大きく，標準偏差が平均値の50%以上に達する物質もあるが，この比率のばらつきは相対的に小さく，NPAHs による大気汚染状況を都市ごとに比較する上で有効な指標となる量である。なお，濃度比を計算するために，物質の濃度はすべてmol 単位に換算したものを用いた。

ディーゼル車とガソリン車のアイドリング時の排ガス粉じんのこの組成比は，それぞれ0.013及び0.56と，ガソリン車のほうがはるかに大きな値をとる[10]という文献値と比較すると，3都市の環境大気中の値はいずれも，

Table 5　Composition raito of NPAHs ; [Σ DNPs] / [1-NP]

City	Season	Time of the day Day	Night	Mean± Standard Deviation
Sapporo	Winter	0.012	0.011	0.011 ± 0.003
	Summer	0.010	0.013	
Tokyo	Winter	0.011	0.016	0.019 ± 0.004
	Summer	0.015	0.033	
Kanazawa	Winter	0.013	0.014	0.016 ± 0.005
	Summer	0.012	0.021	

ディーゼル車の排ガスの値に近く，大気中のNPAHsの組成比にはディーゼル車の寄与が大部分を占めることが示された。中でも札幌におけるこの値が最も小さいことは，前述のディーゼル車保有比率が3都市中最大であることや，粉じん量あたりのNPAHs濃度が札幌で最大であることなどと整合している。

また，この組成比を季節間，昼夜間で比較してみるとTable 5のとおりであり，札幌の冬季を除いて昼<夜の傾向がみられる。この理由としては，都市の沿道では，大型のディーゼル車であるバスなどの通行台数が昼に比べて夜に減少することから，ディーゼル車の寄与がより大きい1-NPの濃度がDNPsに比べ，相対的に低下したことが考えられる。さらに前節でもふれたように，日照時間の長い夏季の昼間にDNPsの光分解が進みやすいことから，この昼夜間の差は3都市に共通して夏季に大きく，冬季に小さくなるものと考えられた。なお札幌では，本調査期間の夏季において雨が多く，日照時間が極端に短かったために東京や金沢ほど昼間のDNPsの光分解が進まず，この組成比の昼夜間の差が小さくなったと考えられる。

Fig. 3にPAHs 7種（4環の化合物4種＋5環の化合物3種）の季節別平均濃度を示したが，これら各物質は3都市ともに比較的よく似た存在比率であることが分かる。また，5環のPAHsは季節変動が小さいのに対して，4環のPAHs（中でもFl，Py）は冬季に比べ夏季に濃度が顕著に低い。PAHsについては，一般に環数の少ない化合物ほど蒸気圧が高い[11]。これら7種のPAHsの中ではFl，Pyの蒸気圧が特に高く，気温の高い夏季には粉じんから揮散しやすいものと考えられた。

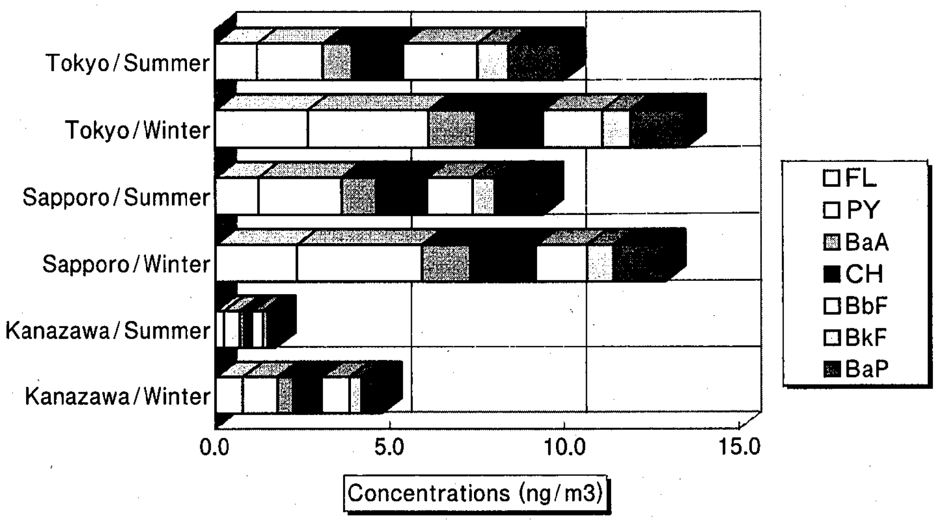


Fig. 3　Mean atmospheric concentrations of 7 PAHs analyzed in this study

3・5　有機汚染と無機汚染との関連性

3都市における大気の有機汚染と無機汚染の関連性を明らかにするために，測定結果を用いて各物質間の相関係数を計算した。なお，ここでは都市ごとの大気環境の違いを示す目的で相関係数は都市別に算出した。

Table 6にPAHs及びNPAHsに対する粉じん量，金属元素及び水溶性イオン等との相関係数を調査地点別に示した。札幌ではいくつかの金属元素やイオン成分との間に有意な相関が認められたのに対し，東京や金沢ではほとんどの物質との間に有意な相関は見いだせなかった。このことは，札幌では同一の大気粉じん試料が有機物と無機物の両方の汚染を同時に受けているのに対し，他の2都市では有機汚染と無機汚染が同時には進行していないことを示唆している。

NPAHsと他の大気汚染物質との関係については，同地点で連続的に自動測定されている一酸化炭素（CO），一酸化窒素（NO）及び浮遊粒子状物質（β線吸収法により粒径10μm未満の粉じんのみを測定したもの：SPM）の濃度の経時変化と比較し，1-NP及びDNPsの濃度がこれら大気汚染物質と同様な日内変動を示し，これらとの間にはそれぞれ0.8以上の高い相関係数を持つことを報告した村橋ら[4]の例がある。それに対し，今回は粉じん量とNPAHs濃度との間に有意な相関が認められたのは札幌だけであった。この違いは，ハイボリウム・エアサンプラーは粒径によるカットオフがなく，全粒径帯にわたって浮遊粉じんを捕集するのに対し，自動

Table 6 Correlation coefficients between organics and inorganics

Organic compounds		A.P	Cu	Zn	Cd	Pb	Fe	Mn	Ni	Cr
5 Ring-PAHs= [BbF+BkF+BaP]	Kanazawa	−0.32	−0.02	0.34	—	0.22	−0.03	0.10	−0.17	−0.11
	Sapporo	0.77**	0.34	0.76**	0.78**	0.68**	0.54*	0.58*	0.50	0.53*
	Tokyo	0.42	0.30	0.23	0.13	0.00	0.41	0.37	0.13	0.40
1-NP	Kanazawa	−0.30	0.13	0.22	—	0.16	−0.17	0.01	−0.21	−0.10
	Sapporo	0.74**	0.34	0.68**	0.68**	0.76**	0.48	0.53*	0.46	0.50
	Tokyo	0.23	0.24	0.45	−0.37	0.03	0.66**	0.41	0.07	0.55*
DNPs= [1,3-DNP+1,6-DNP+1,8-DNP]	Kanazawa	−0.39	−0.02	0.03	—	−0.07**	−0.34	−0.23	−0.37	−0.29
	Sapporo	0.76**	0.38	0.68**	0.71**	0.71	0.50	0.56*	0.47	0.51*
	Tokyo	0.31	0.64**	0.18	0.57	0.16	0.34	0.31	0.25	0.20

Organic compounds		V	SO_4^{2-}	NO_3^-	Cl^-	Ca^{2+}	Mg^{2+}	NH_4^+	K^+	Na^+
5 Ring-PAHs= [BbF+BkF+BaP]	Kanazawa	−0.02	0.02	0.30	−0.05	0.26	−0.01	0.13	−0.18	−0.05
	Sapporo	0.52*	0.59**	0.86**	0.03	0.76**	0.37	0.75**	0.16	−0.27
	Tokyo	0.34	0.29	−0.03	0.06	0.39	0.34	0.21	0.21	0.23
1-NP	Kanazawa	0.00	0.06	0.14	0.14	0.20	0.10	0.18	−0.13	0.10
	Sapporo	0.43	0.67**	0.82**	0.24	0.85**	0.58*	0.81**	0.19	−0.09
	Tokyo	−0.15	−0.26	−0.25	0.37	0.54*	−0.20	−0.35	−0.26	−0.34
DNPs= [1,3-DNP+1,6-DNP+1,8-DNP]	Kanazawa	−0.07	−0.10	−0.02	0.30	−0.03	0.23	0.06	−0.14	0.22
	Sapporo	0.46	0.68**	0.85**	0.22	0.88**	0.59*	0.80**	0.24	−0.11
	Tokyo	0.53*	0.37	0.41	−0.09	0.16	0.53*	0.41	0.38	0.49

Significant level ** : 0.1% * : 1%
A.P. : Airborne Particulates

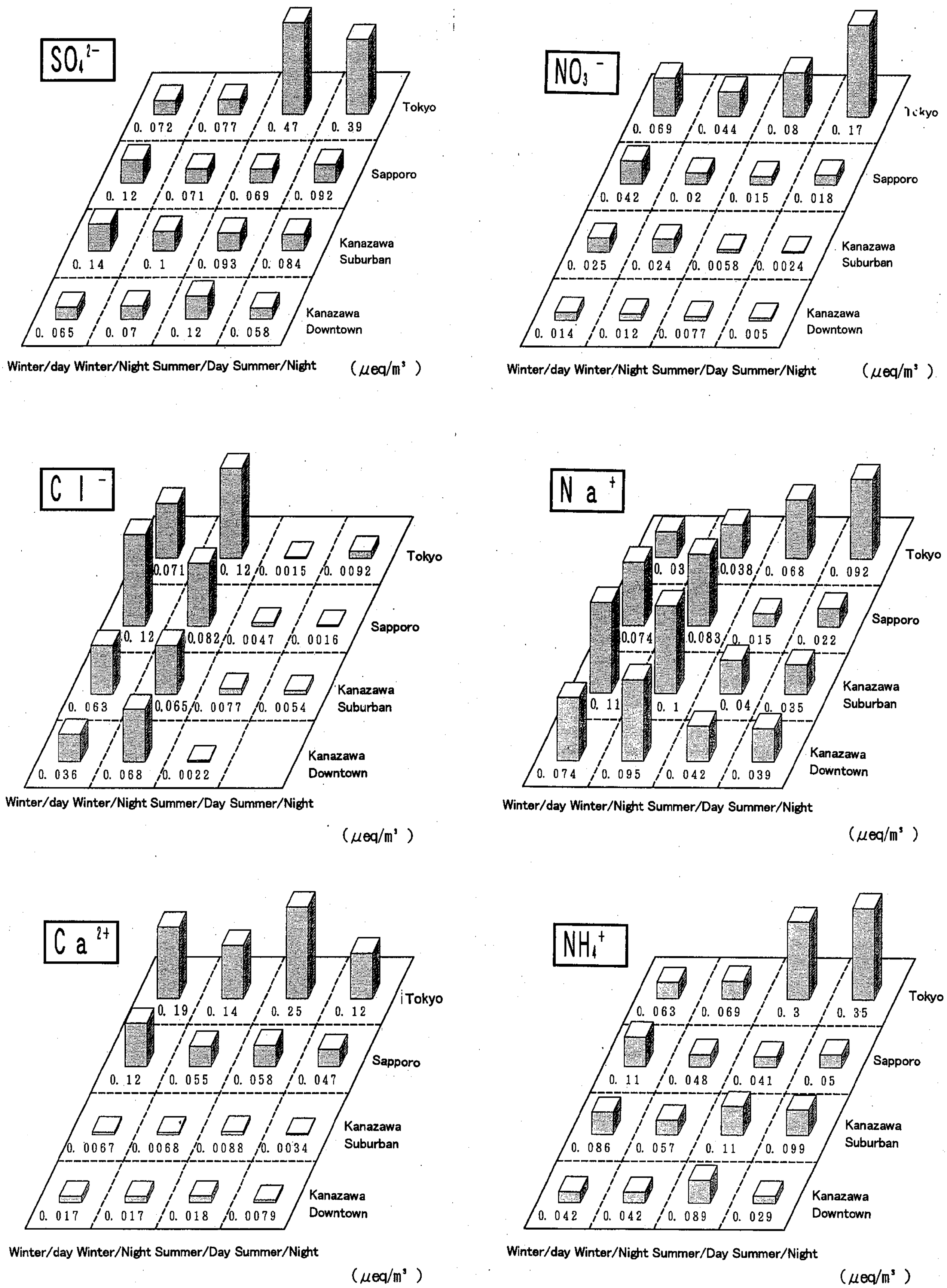


Fig. 4　Mean atmospheric concentrations of water-soluble ions

測定によるSPMは，粒径10μm未満の浮遊粉じんだけを計測したものであることに帰因している。すなわち，土壌あるいはアスファルト粉じん及びタイヤ磨耗物等に由来する粗大粒子を含んでいる今回の試料では，NPAHsと粉じん量との間に強い相関関係は現れにくかったものと考えられる。

しかしその中でも，札幌では全粉じん量との間に有意な相関が認められたことから，札幌の沿道大気では浮遊粉じん中に占める微細な粒子の比率が他2都市に比べ，かなり高いものと推定される。一般に自動車排ガス由来のPAHsやNPAHs，燃焼由来の重金属元素及び二酸化硫黄（SO_2），窒素酸化物（NOx）から2次的に生成される硫酸塩，硝酸塩などは微細粒径の粉じんに付着して大気中に存在しており[12)-14)]，全粉じん中に占める微細粒子の比率が高いと推定される札幌ではこれら各物質の挙動が類似しているために，物質の濃度間に高い相関が得られたものと思われる。

なお，全体として廃棄物の燃焼系の指標[15)]と考えられるカリウムイオン（K^+）と相関を有するものは全くないことから，今回調査した種々の有機化合物は廃棄物燃焼由来ではないものと考えられた。

3・6　水溶性イオンの組成

地点別，季節・昼夜別の陰イオン（塩化物イオン（Cl^-），硫酸イオン（$SO_4{}^{2-}$），硝酸イオン（$NO_3{}^-$））及び陽イオン（カルシウムイオン（Ca^{2+}），ナトリウムイオン（Na^+），アンモニウムイオン（$NH_4{}^+$）の濃度をFig. 4に，同じく地点別，季節・昼夜別の水溶性イオン組成比をFig. 5に示す。金属元素や有機化合物と比較して，いずれのイオンも昼夜の濃度差がそれほど明瞭ではなく，自動車の通過台数に代表される都市活動の時間帯には大きく左右されない量であることが明らかになった。季節による濃度差はいずれの都市でも明瞭で，これは主に気象条件に依存しているものと考えられた。

個々のイオンの特徴としては，(1) 硫酸イオンは夏季の東京において突出した高濃度（他の季節，他の地点の数倍以上）となること，(2) 塩化物イオンは3都市いずれも夏季に比べ冬季の濃度が著しく高い（数倍から数十倍）が，東京だけはナトリウムイオンと検出傾向が異なることから，海塩粒子以外の起源をもつ塩化物イオンと推定されること，(3) カルシウムイオンは季節・昼夜の別によらず東京>札幌>金沢となっており，金沢では酸性化物質の中和にほとんど寄与していないこと，(4) アンモニウムイオンの検出傾向は，硫酸イオンと酷似しており，イオンバランス上のカウンターイオンの関係にあると考えられること，などがあげられる。

近年首都圏で夏季に粒子状の

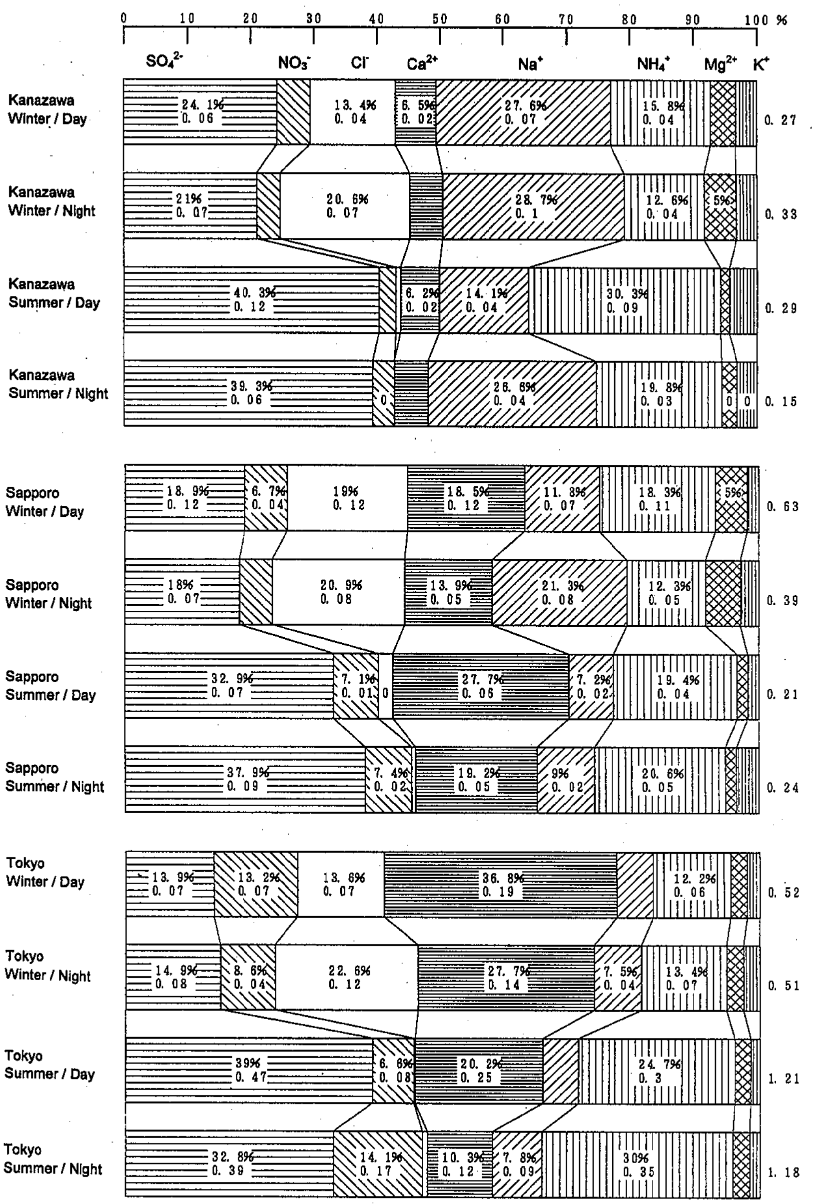


Fig. 5　Composition ratios of water-soluble ions
(Upper : ratios (%), Lower ; mean concentrations (μeq/m^3)

Table 7 Correlation coefficients of water-soluble ions

Substances	Cities	A.P	SO_4^{2-}	NO_3^-	Cl^-	Ca^{2+}	Mg^{2+}	NH_4^+	K^+	Na^+
A.P	Kanazawa	1.00**								
	Sapporo	1.00**								
	Tokyo	1.00**								
SO_4^{2-}	Kanazawa	0.47	1.00**							
	Sapporo	0.60*	1.00**							
	Tokyo	0.67**	1.00**							
NO_3^-	Kanazawa	0.20	0.20	1.00**						
	Sapporo	0.71**	0.75**	1.00**						
	Tokyo	0.26	0.35	1.00**						
Cl^-	Kanazawa	−0.12	−0.17	−0.07	1.00**					
	Sapporo	0.01	0.05	0.14	1.00**					
	Tokyo	−0.64**	−0.78**	−0.45	1.00**					
Ca^{2+}	Kanazawa	0.31	0.66**	0.79**	0.02	1.00**				
	Sapporo	0.85**	0.78**	0.84**	0.26	1.00**				
	Tokyo	0.66**	0.27	−0.14	−0.11	1.00**				
Mg^{2+}	Kanazawa	−0.13	−0.11	0.14	0.95**	0.22	1.00**			
	Sapporo	0.40	0.43	0.51*	0.86**	0.68**	1.00**			
	Tokyo	0.56*	0.75**	0.63**	−0.55*	0.32	1.00**			
NH_4^+	Kanazawa	0.40	0.94**	0.21	−0.23	0.57*	−0.22	1.00**		
	Sapporo	0.62*	0.86**	0.85**	0.13	0.74**	0.44	1.00**		
	Tokyo	0.56*	0.94**	0.53*	−0.76**	0.03	0.70**	1.00**		
K^+	Kanazawa	0.08	0.37	−0.12	0.21	0.32	0.32	0.12	1.00**	
	Sapporo	0.25	0.18	0.26	0.36	0.38	0.54*	−0.02	1.00**	
	Tokyo	0.36	0.55*	0.38	−0.42	0.05	0.49	0.60*	1.00**	
Na^+	Kanazawa	−0.11	−0.13	0.01	0.96**	0.14	0.97**	−0.27	0.36	1.00**
	Sapporo	−0.25	−0.12	−0.12	0.91**	−0.01	0.69**	−0.16	0.46	1.00**
	Tokyo	0.33	0.58*	0.65**	−0.44	0.03	0.91**	0.55*	0.38	1.00**

Significant level ** : 0.1% * : 1%

硫酸イオンが高濃度で検出されることは，すでにいくつかの報告例がある[16)-18)]。これは，高温と強い日射のために，光化学反応によってガスの二酸化硫黄（SO_2）から生成した硫酸あるいは粒子状の硫酸イオンが，冬季に比べて風の弱い夏季の気象条件の下で，長時間にわたり大気中に滞留しやすいからと考えられている。実際，今回の分析データから算出された東京の夏季における非海塩性の硫酸イオンの比率は，昼夜ともに97～98％を占めており，海塩すなわち自然由来の硫酸イオンはほとんど存在しないことが示された。

また，このとき硫酸イオンのカウンターイオンがアンモニウムイオンであることも，すでに各地の浮遊粉じんの調査結果から推定されており[19,20)]，これらと一致する結果であった。実際，都市別に各水溶性イオン間の相関係数を示したTable 7からも，3都市に共通して高い相関を持つイオンのペアはこれら2種のイオンだけである。アンモニウムイオンの起源としては，田畑に散布される窒素系肥料を主な起源とした土壌または植物体由来のものの他，畜産系の糞尿由来のもの，下水道（処理施設）由来のもの，自動車等の燃焼系における触媒など[21)]，いずれもアンモニアガス（NH_3）として発生したものが，大気中の塩化水素ガス（HCl）や硝酸ガス（HNO_3）と反応して粒子状の塩に変化して生成したもの[22)]と考えられるが，今回の測定結果だけからはその起源は特定できない。

4 結　　語

札幌，東京，金沢の3都市で冬季と夏季の同時期に大気浮遊粉じんを採取し，各種物質を分析して比較した結果，以下のことが明らかとなった。

(1) 単位大気あたりの粉じん量の大小関係は，東京＞札幌＞金沢であり，昼夜別では，いずれの都市でも昼＞夜であり，自動車の通過台数など都市の活動時間帯を反映した結果となった。

(2) 重金属類の濃度は概ね粉じん量の多寡に追従した傾向があり，東京＞札幌＞金沢の順であり，東京の大気中濃度を基準とすると，札幌でその20％～40％，金沢で10～20％程度の濃度レベルであった。昼夜別ではいずれの都市でも昼＞夜の日内変動が見られたが，季節別ではバナジウム及びニッケルのみに夏季＞冬季の傾向が見られたほかは明瞭な差は認められなかった。

(3) PAHsの濃度は札幌≧東京＞金沢の順になっており，3都市とも冬季＞夏季の季節変動が認められた。中でも季節変動が著しいのは，4環の化合物（Fl，Py）であったが，これは5環の化合物に比べて蒸気圧が高く，気温の高い夏季には気相に揮散しやすいことがその理由と考えられた。

(4) NPAHsの濃度は，札幌＞東京＞金沢の順であり，粉じん量に追従する金属元素の検出傾向とは全く異なっており，中でも1-NPの濃度が札幌で突出して高かった。このことは，札幌においてディーゼル車の保有比率が他の2都市に比べて高いことを反映した結果と考えられた。

(5) PAHs及びNPAHsの検出傾向と種々の無機物質との相関解析を行ったところ，札幌ではいくつかの金属元素の他，SO_2，NO_x等を起源とする水溶性イオン等とのあいだに有意な相関が得られたのに対し，東京及び金沢では有意な相関はほとんど認められなかった。このことは，札幌の大気は有機汚染と無機汚染を同時に受けているのに対し，東京及び金沢では両者は必ずしも同時進行していないことを示唆している。

(6) 粉じんに吸着した乾性の水溶性イオンの組成からは，東京の夏季に硫酸イオンの濃度が極端に高くなること，3都市の冬季及び夏季に共通して硫酸イオンと挙動が類似しているのはアンモニウムイオンであり，これらはカウンターイオンの関係にあると推定されること，カルシウムイオンの比率は東京と札幌で高いが金沢では低く酸性化物質の中和機構にほとんど寄与していないこと，3都市ともに冬季には塩化物イオンの濃度が高くなる傾向では一致するが，札幌と金沢では冬季の季節風による海塩起源であるのに対し，東京だけは非海塩性であると推定されること，などの特徴が明らかとなった。

本研究は，文部省科学研究費補助金基礎研究（C）研究班（代表：早川和一）の一部として実施されたものである。また本稿をまとめるに当たり，データの提供及びデータの解析方法等について有益な助言をいただいた金沢大学薬学部の早川和一教授，同大学院生の村橋毅氏ならびに阿久津和彦氏に深謝致します。

文　　献

1) 財団法人日本環境衛生センター：平成8年度国設大気測定網（NASN）浮遊粉じん及び浮遊粒子状物質分析結果報告書（1997）

2) 田辺　潔，松下秀鶴，郭錦堂，今宮俊一郎：：大気汚染学会誌，21，535—544（1986）

3) HAYAKAWA, Kazuichi, MURAHASHI, Tsuyoshi, BUTOH, Mizuka and MIYAZAKI, Motoichi : Environ. Sci. Technol., 29, 928—932（1995）

4) MURAHASHI, Tsuyoshi, MIYAZAKI, Motoichi, KAKIZAWA, Ryuichi, YAMAGISHI, Yoshihisa, KITAMURA, Moritsugu and HAYAKAWA,

Kazuichi : Jpn. J. Toxicol. Environ. Health, **41**, 328—333 (1995)
5) 村橋　毅，早川和一，岩本侑子，宮崎元一：分析化学，**43**，1017—1019 (1994)
6) 村橋　毅：学位論文，金沢大学 (1998)
7) 環境庁大気保全局大気規制課監修：浮遊粒子状物質予測マニュアル，第2編第2章『気象及び環境データの解析』53—83，東洋館出版社 (1997)
8) 安藤京子，早川和一：第2回公開シンポジウム，未規制大気汚染物質の挙動と毒性－発がん物質関連－講演要旨集，20—24 (1997)
9) 向井人史，安部喜也，椋　達則，竹下和男，福間常夫，高橋順一，溝田真司：国立公害研究所研究年報，**123**，7—50 (1989)
10) HAYAKAWA, Kazuichi, BUTOH, Mizuka, HIRABAYASHI, Yukio and MIYAZAKI, Motoichi : Jpn. Toxicol. Environ. Health, **40**, 20—25 (1994)
11) 環境庁環境化学物質研究会編：環境化学物質要覧，丸善 (1990)
12) 石川県環境安全部：平成8年度環境大気調査報告書，第4章 35—45 (1996)
13) 環境庁大気保全局大気規制課監修：浮遊粒子状物質予測マニュアル，第1編第1章『気象及び環境データの解析』pp19—31，東洋館出版社 (1997)
14) HAYAKAWA, Kazuichi, KAWAGUCHI, Yoshitatsu, MURAHASHI, Tsuyoshi and MIYAZAKI, Motoichi : Mutation Res., **348**, 57—61 (1995)
15) 鳥山成一，広田　睦，高　茂雄，坂森重治，島田博之：富山県公害センター年報，**20**，56—77 (1992)
16) 松田和秀，中江　茂，三浦和彦：第13回エアロゾル科学・技術研究討論会講演要旨集，72—74 (1996)
17) MATSUDA, Kazuhide, NAKAE, Shigeru and MIURA, Kazuhiko : J. Jpn. Soc. Atmos.Environ., **33**, 201—207 (1998)
18) 小木曽毅，國見　均，高橋克行，皆川直人：第37回大気環境学会講演要旨集，**373** (1996)
19) 森　淳子，宇都宮彬，鵜野伊津志，若松伸司，大原利真：大気環境学会誌，**32**，73—89 (1997)
20) 木戸瑞佳，永田和雄，松永捷司，岩坂泰信，原圭一郎：第13回エアロゾル科学・技術研究討論会講演要旨集，54—56 (1996)
21) WARNECK, Peter ; Chemistry of the Natural Atmosphere, Academic Press. Inc. San Diego, 426—441 (1988)
22) 松本光弘，村野健太郎，溝口次夫：エアロゾル研究，**12**，197—208 (1997)

〔報　文〕

松葉中の放射能調査

石川県保健環境センター環境放射線部　内田 賢吾

キーワード：松葉，ベリリウム-7，セシウム-137，ストロンチウム-90，存在状態

1　はじめに

石川県では，平成2年度より志賀原子力発電所周辺の環境放射線モニタリングを行っている。その中で，指標植物として，陸上では松葉を，海洋ではホンダワラを採取し，モニタリングに供している。松葉については，核実験が行われた時やチェルノブイリ原発事故時には，フォールアウトの人工放射性核種が多く検出され，葉の表面によく吸着することが報告され，モニタリングに適しているとされている[1)2)]。現在では，松葉中の人工放射性核種はセシウム-137，ストロンチウム-90が若干検出される程度となっている。

そこで，現在，松葉中で見られる人工放射性核種セシウム-137，ストロンチウム-90の存在状態，要因はどのようになっているかの検討を行った。

2　調査方法

石川県では，県が志賀町若葉台（発電所から北東に3 km），富来町三明（発電所から北東に4.8km）で，事業者である北陸電力㈱が発電所敷地内（発電所から東北東に0.8km），志賀町赤住（発電所から南東に1 km）で，松葉を採取している。

採取は年4回で，8，11，2月は1年葉，5月は2年葉を対象としている。また，採取にあたっては，生重量換算を行うため，前日に雨が降らず葉が濡れた状態でない時に採取している。

試料採取後，基礎データとして，30本を任意に選び，1本あたりの平均の長さ，重量を測定，105°C 24時間乾燥後，乾燥重量を測定し，乾燥率を求めた。また，試料は生1 kg程度を450°C 24時間灰化し，U8容器に入れ，Ge半導体検出器で80,000秒γ線測定を行い，セシウム-137を定量した。その後，酸分解を行い，イオン交換法でストロンチウム-90を分離し，β線測定によりストロンチウム-90を定量した。また，この他，安定元素として，カルシウム，ストロンチウムの測定を行っている。

3　調査結果及び考察

3・1　松葉の放射能調査結果

平成2年度～平成9年度までの県，北陸電力㈱の志賀原子力発電所周辺の松葉の放射能調査結果を表1に示す。

県が行っている地点の松葉は人工放射性核種がLTDレベル未満であるのに対し，北陸電力が行っている地点の松葉はセシウム-137がほとんどの試料で検出されている。

松葉中のセシウム-137については，発電所が稼働する以前からも検出されており，若干の濃度変動があるものの，過去の核実験或いはチェルノブイリ発電所事故の起因のセシウム-137であると考えられている。

平成7年8月～平成9年5月までの県が実施している2地点及び富来町谷神の計3地点での松葉についての詳細な調査結果を表2に示す。

松葉の長さについては，任意に選んだ30本から平均値を求めており，8月＜11月＜2月＜5月となるはずであるが，バラバラな結果となった。これは試料採取が同一の木を対象とせず，複数の木を対象にしていること，松の木1本あたりから採取する量も決まっていないことが，原因と考える。同様のことが1本あたりの生重量についても見える。

乾燥率については，8月＜11月＜2月＜5月という傾向が得られ，若葉ほど水分を多く含んでいることが分かる。

カリウム-40濃度については8月＞11月＞2月＞5月となり，若葉ほど多く含んでいる。そのため，乾燥重量あたりで比較すると顕著に傾向が見られる。

ベリリウム-7濃度については，8月が他の季節に比べ，低い傾向にあった。ベリリウム-7は宇宙線生成核

Radioactivity in Pine needles *by Kengo UCHIDA* (*Environmental Radiation Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science*)

表１　　志賀原子力発電所周辺松葉中の Cs-137濃度

単位：Bq/kg 生

	県		事業者	
	志賀町若葉台	富来町三明	志賀町赤住	発電所敷地内
1990年８月	LTD	LTD	LTD	0.58
1990年11月	LTD	LTD	0.34	0.43
1991年２月	LTD	LTD	0.62	0.34
1991年５月	LTD	LTD	0.27	0.48
1991年８月	LTD	LTD	0.25	0.41
1991年11月	LTD	LTD	0.71	0.33
1992年２月	LTD	LTD	0.65	0.22
1992年５月	LTD	LTD	0.41	0.22
1992年８月	LTD	LTD	0.59	0.31
1992年11月	LTD	LTD	LTD	0.37
1993年２月	LTD	LTD	0.39	0.27
1993年５月	LTD	LTD	0.33	0.53
1993年８月	LTD	LTD	0.71	0.58
1993年11月	LTD	LTD	0.51	0.70
1994年２月	LTD	LTD	0.21	0.34
1994年５月	LTD	LTD	0.54	0.61
1994年８月	LTD	LTD	1.08	0.69
1994年11月	LTD	LTD	0.85	0.28
1995年２月	LTD	LTD	0.20	0.25
1995年５月	LTD	LTD	0.20	0.24
1995年８月	LTD	LTD	0.56	0.48
1995年11月	LTD	LTD	0.28	0.35
1996年２月	LTD	LTD	0.53	0.27
1996年５月	LTD	LTD	0.36	0.21
1996年８月	LTD	LTD	0.55	0.65
1996年11月	LTD	LTD	0.68	0.53
1997年２月	LTD	LTD	0.43	0.52
1997年５月	LTD	LTD	0.50	0.31
1997年８月	LTD	LTD	0.77	0.51
1997年11月	LTD	LTD	0.37	0.74
1998年２月	LTD	LTD	0.25	0.30
平　均	LTD	LTD	0.49	0.42

LTD：0.2Bq/kg 生未満

種であり，半減期が53.3日と比較的短い。この傾向は大気中のベリリウム-7濃度が夏低く秋，春に高くなることで裏付けられる。

セシウム-137については，検出限界未満（ND）か，LTD レベル（0.2Bq/kg 生）未満である。

ストロンチウム-90については，全ての試料で検出され，セシウム-137のように検出限界レベルというようなものはなかった。季節的な傾向は８月が他の時期に比べて低くなっている。若葉台に比べ三明，谷神の方が濃度が高い。

カルシウムについては，８月＜11月＜２月＜５月となり，カリウム-40とは逆の傾向となった。濃度は８月が５月の約５割程度であるのに対し，11月，２月は５月の８～９割となっている。

ストロンチウムについても，カルシウム同様８月＜11月＜２月＜５月となった。季節による濃度差もカルシウム同様であった。

カルシウム，ストロンチウムのアルカリ土類金属については，葉齢に従って蓄積される傾向にあるようである。

3・2　松葉の放射性核種の存在状態

過去の研究によると，松葉中の人工放射性核種はフォールアウト等の，表面付着であり，雨水等により50％以上が洗い落とされるとされている[2)3)]。

そこで，以下の方法により，松葉からの溶出を試みた。

10L ビーカーに松葉800g を入れ，

溶出１—蒸留水10L を用いて，５分間撹拌
溶出２—蒸留水10L を用いて，２時間撹拌
溶出３—蒸留水10L を用いて，２時間撹拌
溶出４—１M　HC110L を用いて，２時間撹拌
溶出５—温水10L を用いて，５時間撹拌
溶出６—残査

以上の６段階で溶出を行い，γ線スペクトロメトリー，ストロンチウム-90分析を行った。その結果を図１に示す。分析した試料はセシウム-137が定常的に検出されている発電所敷地内の松葉である。

その結果，溶出１～３までの蒸留水を用いた洗浄ではほとんど何も溶出されなかった。溶出４の塩酸を用いた洗浄では，ベリリウム-7が70％以上溶出された。これはベリリウム-7が酸化物の状態で松葉表面に付着しているためであり，楢崎らの研究[4)]でも別の植物であるが同様の結果が得られている。また，ベリリウム-7の他，カリウム-40，セシウム-137，ストロンチウム-90は５～10％が溶出されている。溶出５の温水での溶出は，溶出後松葉の色が緑色から茶色になるほど，松葉の細胞を壊す溶出

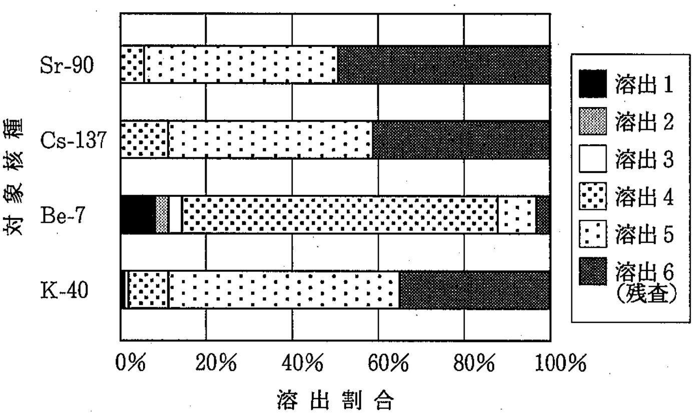


図１　　松葉からの放射性核種の溶出

表 2　　松 葉 の 基 礎 デ ー タ

志賀町若葉台

項　目	平均長さ (cm)	標準偏差 (cm)	生重量 (g)	乾重量 (g)	乾燥率 (%)	K-40 (Bq/kg生)	K-40 (Bq/kg乾)	Be-7 (Bq/kg生)	Be-7 (Bq/kg乾)	Cs-137 (Bq/kg生)	Cs-137 (Bq/kg乾)	Sr-90 (Bq/kg生)	Sr-90 (Bq/kg乾)	Ca (g/kg生)	Ca (g/kg乾)	Sr (mg/kg生)	Sr (mg/kg乾)	Sr-90/Sr (Bq/g)
1994年5月	—	—	—	—	—	74±1	—	46.5±0.4	—	0.07±0.01	—	0.25±0.03	—	1.5	—	3.2	—	78
1994年8月	—	—	—	—	—	109±1	—	5.0±0.2	—	0.05±0.01	—	—	—	—	—	—	—	—
1994年11月	—	—	—	—	—	79±1	—	34.8±0.4	—	ND	—	0.29±0.02	—	1.1	—	3.4	—	86
1995年2月	10.2	0.19	6.44	2.90	45	72±1	161	40.9±0.4	91	0.07±0.01	0.16	0.10±0.01	0.2	1.3	2.8	4.2	9.4	23
1995年5月	9.8	0.29	5.54	2.96	53	65±1	122	44.9±0.4	84	0.07±0.01	0.13	0.12±0.01	0.2	1.6	2.9	4.9	9.1	25
1995年8月	7.4	0.15	4.00	1.60	40	96±1	242	16.4±0.3	41	0.04±0.01	0.11	0.05±0.01	0.1	0.8	2.1	1.4	3.5	37
1995年11月	10.0	0.34	5.95	2.47	41	86±1	207	44.2±0.4	107	ND	ND	0.36±0.02	0.9	1.3	3.1	5.8	13.9	63
1996年2月	8.6	0.14	4.34	1.91	44	82±1	185	37.9±0.4	86	ND	ND	1.25±0.04	2.8	1.5	3.3	2.9	6.5	437
1996年5月	8.1	0.24	2.71	1.42	53	67±1	128	40.5±0.5	77	ND	ND	0.53±0.03	1.0	1.5	2.9	4.7	8.9	113
1996年8月	6.8	0.13	2.31	0.84	36	95±1	261	8.2±0.2	22	0.06±0.01	0.15	0.30±0.02	0.8	0.8	2.1	1.6	4.4	188
1996年12月	7.8	0.23	4.36	1.84	42	89±1	210	82.9±0.7	196	ND	ND	0.15±0.01	0.3	1.3	3.2	5.1	12.0	29
1997年2月	8.7	0.26	4.46	1.91	43	75±1	174	42.9±0.4	100	0.05±0.01	0.11	0.10±0.01	0.2	1.5	3.6	4.8	11.2	22
1997年5月	7.0	1.83	3.36	1.72	51	68±1	133	30.9±0.4	60	0.04±0.01	0.09	0.14±0.02	0.3	1.4	2.7	4.2	8.1	34

富来町三明

項　目	平均長さ (cm)	標準偏差 (cm)	生重量 (g)	乾重量 (g)	乾燥率 (%)	K-40 (Bq/kg生)	K-40 (Bq/kg乾)	Be-7 (Bq/kg生)	Be-7 (Bq/kg乾)	Cs-137 (Bq/kg生)	Cs-137 (Bq/kg乾)	Sr-90 (Bq/kg生)	Sr-90 (Bq/kg乾)	Ca (g/kg生)	Ca (g/kg乾)	Sr (mg/kg生)	Sr (mg/kg乾)	Sr-90/Sr (Bq/g)
1994年5月	—	—	—	—	—	68±1	—	54.9±0.6	—	ND	—	2.38±0.07	—	2.7	—	22	—	106
1994年8月	—	—	—	—	—	93±1	—	5.1±0.2	—	ND	—	0.57±0.03	—	0.7	—	6	—	91
1994年11月	—	—	—	—	—	88±1	—	35.3±0.4	—	ND	—	0.89±0.04	—	1.4	—	13	—	70
1995年2月	9.2	0.23	4.52	2.05	45	70±1	154	90.3±0.7	199	ND	ND	0.75±0.04	1.6	1.8	3.86	16	34	48
1995年5月	14.7	0.39	8.77	4.33	49	60±1	122	56.6±0.5	115	ND	ND	1.45±0.04	2.9	2.9	5.98	12	24	124
1995年8月	8.7	0.30	5.44	2.03	37	94±1	250	15.8±0.3	42	ND	ND	0.62±0.03	1.7	1.3	3.56	10	27	61
1995年11月	11.8	0.35	7.57	2.98	39	90±1	228	41.2±0.4	105	0.04±0.01	0.11	0.90±0.04	2.3	2.3	5.82	18	45	51
1996年2月	12.4	0.57	8.44	3.51	42	73±1	175	57.4±0.5	138	ND	ND	1.56±0.05	3.7	2.4	5.85	19	47	80
1996年5月	11.3	0.47	5.64	3.23	57	68±1	119	70.1±0.9	122	ND	ND	2.38±0.07	4.1	2.7	4.76	22	39	106
1996年8月	7.6	0.20	4.11	1.37	33	86±1	259	6.6±0.2	20	ND	ND	0.58±0.04	1.7	1.1	3.22	9	26	67
1996年12月	9.9	0.23	6.24	2.80	45	97±1	216	77.1±0.6	172	0.04±0.01	0.10	1.74±0.05	3.9	2.0	4.37	14	31	123
1997年2月	11.5	0.26	7.29	3.26	45	65±1	145	71.7±0.7	160	ND	ND	1.03±0.04	2.3	2.5	5.63	18	41	56
1997年5月	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—

富来町和光台，谷神

項　目	平均長さ (cm)	標準偏差 (cm)	生重量 (g)	乾重量 (g)	乾燥率 (%)	K-40 (Bq/kg生)	K-40 (Bq/kg乾)	Be-7 (Bq/kg生)	Be-7 (Bq/kg乾)	Cs-137 (Bq/kg生)	Cs-137 (Bq/kg乾)	Sr-90 (Bq/kg生)	Sr-90 (Bq/kg乾)	Ca (g/kg生)	Ca (g/kg乾)	Sr (mg/kg生)	Sr (mg/kg乾)	Sr-90/Sr (Bq/g)
1994年5月	—	—	—	—	—	69±1	—	48.8±0.5	—	0.05±0.01	—	2.64±0.07	—	1.5	—	3	—	836
1994年8月	—	—	—	—	—	98±1	—	5.7±0.3	—	0.07±0.02	—	1.21±0.06	—	0.7	—	2	—	707
1994年11月	—	—	—	—	—	86±1	—	49.2±0.5	—	ND	—	0.95±0.04	—	1.3	—	2	—	497
1995年2月	9.6	1.90	5.46	2.53	46	73±1	158	62.0±0.5	134	0.13±0.01	0.27	1.13±0.07	2.4	1.5	3.3	3	6	412
1995年5月	12.1	2.47	5.46	2.79	51	60±1	118	58.1±0.5	114	0.04±0.01	0.08	0.99±0.04	1.9	1.2	2.4	10	20	97
1995年8月	7.3	2.30	3.63	1.39	38	71±1	187	19.3±0.3	51	0.04±0.01	0.12	0.52±0.02	1.4	0.7	1.7	6	15	92
1995年11月	9.4	1.84	4.86	2.05	42	79±1	187	54.3±0.6	128	ND	ND	0.96±0.04	2.3	1.3	3.0	10	23	98
1996年2月	10.0	2.80	6.05	2.55	42	64±1	151	57.8±0.5	137	0.06±0.01	0.13	1.43±0.05	3.4	1.3	3.1	13	31	110
1996年5月	7.7	3.90	3.34	1.71	51	55±1	108	51.1±0.5	100	0.06±0.01	0.12	1.57±0.05	3.1	1.5	2.9	17	33	93
1996年8月	6.4	2.01	2.78	1.01	37	113±1	309	7.9±0.3	22	0.09±0.01	0.24	0.40±0.03	1.1	0.7	1.9	7	19	58
1996年12月	8.4	0.29	4.50	1.90	42	88±1	209	72.8±0.6	173	ND	ND	0.94±0.04	2.2	1.1	2.6	9	20	110
1997年2月	9.2	0.33	4.15	1.73	42	57±1	138	47.5±0.5	114	0.05±0.01	0.12	0.82±0.03	2.0	1.2	2.8	9	22	87
1997年5月	8.5	2.74	4.24	2.08	49	77±1	156	41.0±0.5	84	ND	0.00	0.57±0.03	1.2	1.3	2.5	8	16	74

であった。この結果，カリウム-40，セシウム-137，ストロンチウム-90は45～50%が溶出された。溶出6の残査にはカリウム-40，セシウム-137，ストロンチウム-90が30～50%存在していた。

従来から松葉中の人工放射性核種はフォールアウト起因であるため，表面吸着が主であると考えられてきた。今回の結果から，アルカリ金属で溶出しやすいと考えられたセシウムがほとんど溶出されず，ストロンチウム-90と同様の溶出が見られたことから，現在松葉中に見られる人工放射性核種であるセシウム-137，ストロンチウム-90は表面吸着ではなく，松葉の内部に取り込まれているということが分かった。

3・3　土壌中の放射性核種

平成2～9年度までの県，北陸電力㈱の志賀原子力発電所周辺の土壌について，γ線スペクトロメトリーを行った結果を表3に示す。

若葉台の土壌からは，γ線を放出する人工核種は検出されていない。その他の地点で見られるように，一般的に表層土は過去の核実験の影響，チェルノブイリ事故の影響のセシウム-137が検出される。若葉台は造成された土地であり，過去の核実験の影響等がある土壌が取り除かれたか，土壌が混合されたため，セシウム-137が検出されないと考える。

表4には，平成3年度に採取した志賀町若葉台，直海の0～5，5～10，10～15，15～20，20～25 cmの5段階の土壌のセシウム-137，ストロンチウム-90分析結果を示す。直海については，セシウム-137，ストロンチウム-90とも表層（0～5cm）の濃度が最も高く，それより深い層については深くなるほど濃度が低くなっていることが分かる。

若葉台の土壌については，セシウム-137が表層で，ストロンチウム-90については15cmより深い層で若干検出されている。セシウムはアルカリ金属，ストロンチウムはアルカリ土類金属であり，セシウムの方が雨水等により深層に拡散しやすいと考えられること，若葉台は造成地であること等を併せて考えると，表層のセシウム-137は造成後のフォールアウト又は他地区の表層土の舞い上がりによりもたらされたものであり，ストロンチウム-90は造成により深層にもたらされたものであると考える。

表3　志賀原子力発電所周辺土壌（0～5cm）中のCs-137濃度

単位：Bq/kg 乾土

	志賀町若葉台	志賀町直海	発電所敷地内	志賀町赤住
1990年8月	LTD	104	71	59
1990年11月			66	42
1991年2月			59	38
1991年5月			78	83
1991年8月	LTD	121	68	15
1991年11月			63	22
1992年2月			43	15
1992年5月			70	3
1992年8月	LTD	120	88	4
1992年11月			46	5
1993年2月			56	3
1993年5月			50	21
1993年8月	LTD	110	49	46
1993年11月			50	15
1994年2月			63	6
1994年5月			57	13
1994年8月	LTD	113	49	5
1994年11月			55	14
1995年2月			43	17
1995年5月			33	13
1995年8月	LTD	97	38	13
1995年11月			35	15
1996年2月			80	14
1996年5月			35	8
1996年8月	LTD	132	68	17
1996年11月			58	8
1997年2月			29	17
1997年5月			39	12
1997年8月	LTD	95	56	18
1997年11月			41	20
1998年2月			41	11

LTD：2Bq/kg 乾土未満

表4　土壌中放射性核種鬲度分布

単位：Bq/kg 乾土

	志賀町若葉台			志賀町直海		
深度(cm)	K-40	Cs-137	Sr-90	K-40	Cs-137	Sr-90
0～5	74	2	ND	418	134	28
5～10	57	ND	ND	468	62	9
10～15	42	ND	ND	446	16	6
15～20	48	ND	2	450	5	3
20～25	39	ND	1	470	5	3

3・4　松葉中の放射性核種の存在要因

従来から松葉中の人工放射性核種については，土壌の舞い上がり等によりもたらされていると言われている。しかし，舞い上がりやフォールアウトについては，平成2年度以降志賀原子力発電所周辺で降下物の測定や大気浮遊じんの測定を行っているが，ほとんど人工放射性核種が検出されていないのが現状である。

また，若葉台の松葉については，表1に示すように，セシウム-137は検出されず，ストロンチウム-90は検出されている。若葉台の土壌は表4にも見られるようにセ

シウム-137が表層で低いレベルで検出され，ストロンチウム-90については15cmよりも深層で検出されている。また，セシウム-137，ストロンチウム-90は松葉では内部に取り込まれている。

土壌中にセシウム-137濃度の低い若葉台では，松葉中のセシウム-137は検出されておらず，土壌中のセシウム-137濃度の高い志賀町赤住，発電所敷地内では松葉中のセシウム-137の高いレベルが検出されている。

以上のことから，現在では松葉中のセシウム-137，ストロンチウム-90は，舞い上がりによりもたらされたものは少なく，根経由の吸収によりもたらされたと考えるのが妥当である。

4　ま　と　め

石川県では志賀原子力発電所周辺で環境放射線モニタリングを行っている。その中で，松葉中の人工放射性核種については，事業者である北電が行っている2地点でセシウム-137が検出されている。

この要因については従来から舞い上がりが原因であると言われてきた。しかし，溶出実験によって得た松葉中での存在状態及び土壌との関係から，舞い上がり起因のものは少なく根からの吸収された成分が大部分であることが推定された。

引 用 文 献

1) MATSUOKA, N., MOMOSHIMA, N., HIRAI, E., TAKASHIMA, Y.: Radiochem. Radioanal. Letters, **57**(3), 161—168 (1983)

2) TAKASHIMA, Y., MOMOSHIMA, N., HAMIDIAN, M. R : Radiochem. Radioanal. Letters, **36**(1), 69—72 (1978)

3) MOMOSHIMA, N., TAKASHIMA, Y. : Journal of Radioanalytical Chemistry, **67**(2), 385—391 (1981)

4) 楢崎幸範：平成7年度放射能分析確認調査技術検討会資料，p13—22 (1996)

〔資　料〕

石川県内の海岸に漂着した重油中の n-アルカンに関する調査結果

石川県保健環境センター化学調査室　　平尾 真規子

キーワード：流出油，n-アルカン，指標生物

1　はじめに

1997年1月2日，島根県隠岐島沖で発生したロシア船籍タンカー「ナホトカ号」の破損，沈没事故に伴う本県の沿岸においての影響を流出油成分中のうちn-アルカンについて，岩礁への付着油及び指標生物（貝類，海藻類）の残留状況の調査を行った。

今回，1997年2月から1998年3月までの調査結果をまとめたので報告する。

2　調査方法

2・1　試　料

1997年2年から1998年3年までに，加賀沿岸，金沢沿岸，富来沿岸，珠洲沿岸，能都沿岸及び能登島沿岸において採取した付着油，指標生物としてムラサキイガイ及びホンダワラについて調査した。検体の採取場所は図1に示した。

ムラサキイガイはむき身をホモジナイザーにより均一化したもの，ホンダワラは細切して均一化したもの，付着油は夾雑物をのぞき均一化したものをそれぞれ分析に供した。

2・2　試薬及び標準品

試薬は残留農薬試験用又は特級品を用いた。

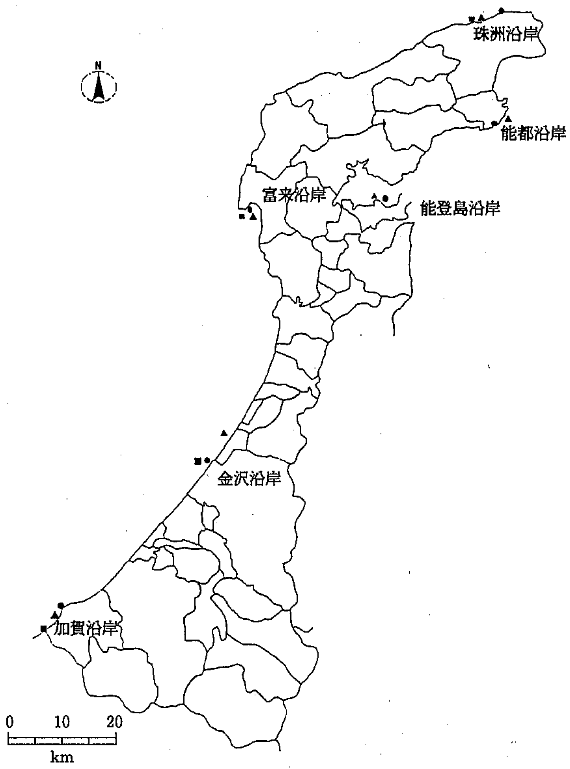
水酸化カリウム以外の試薬及び蒸留水はn-ヘキサンで洗浄後，実験に供した。

標準品はGLサイエンス㈱製を用いた。

シリカゲルは，Merck Art 7734を使用し，130°C 4 hr活性化後，5％含水状態で用いた。

2・3　試料溶液の調製

小川ら[1)]の方法に準じて行った。図2にフローチャー



	地域名	ムラサキイガイ	ホンダワラ	付着油
1	加賀沿岸	●橋立港内	▲黒崎	■塩谷
2	金沢沿岸	●金石港堤防	▲内灘放水路	■金石（3，7月） 内灘放水路（5月） 松任松本（9，12月，2月）
3	富来沿岸	●赤住	▲赤住	■福浦
4	珠洲沿岸	●長橋	▲長橋	■長橋
5	能都沿岸	●越坂	▲越坂	×
6	能登島沿岸	●曲	▲曲	×

図1　　分析用サンプルの採取地点

Sarvey Date on n-Alkanes in Heavy Oils Drifted at Ishikawa Coastal Area. *by Makiko HIRAO* (*Chemicals Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science*)

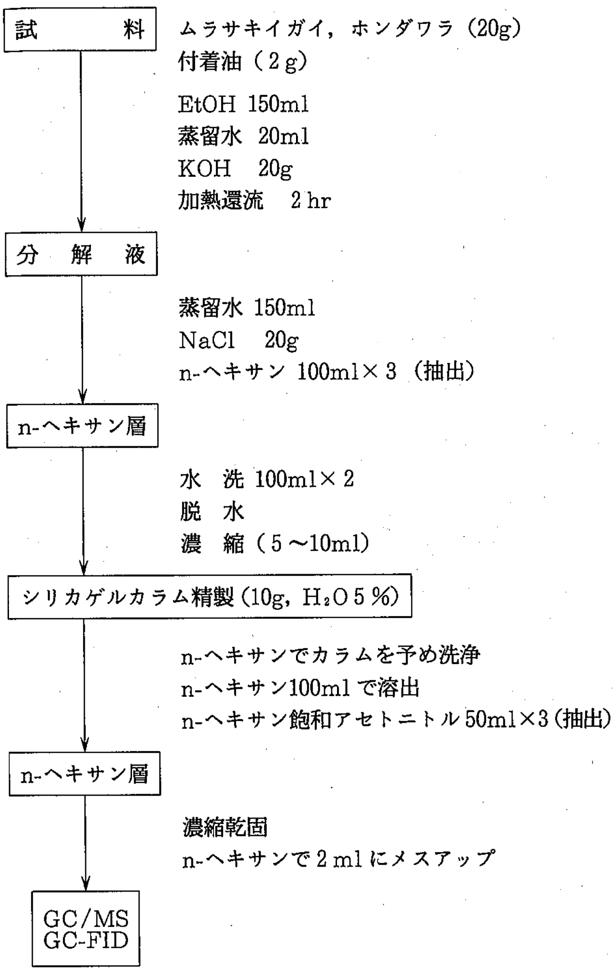


図2　　フローチャート

トを示した。

2・4　装置及び測定条件

測定は，GC-FIDで定量し，GC/MSで確認を行った。装置及び測定条件については表1に示したとおりである。

3　調　査　結　果

3・1　付着油中濃度

調査期間中の付着油中のn-アルカン成分濃度は，表2(1)～(4)のとおりである。採取地点別，採取月別に付着油中のn-アルカン成分濃度を図3に示した。加賀及び金沢沿岸では減少傾向にあったが，富来及び珠洲沿岸では依然として残留していた。

採取地点別，採取月別に総n-アルカン量とn-ヘキサン抽出物質（%）を図4に示した。それらを比較したところ，消長パターンの相関係数が加賀沿岸では0.99，珠洲沿岸では0.95となり，高い相関性がみられた。

また，検出された各n-アルカン成分量の総n-アルカン量に対する割合（%）を採取地点別，採取月別に図5に示した。金沢沿岸の1997年12月の結果を除いて同様の検出パターンがみられた。金沢沿岸の1997年12月に採取された付着油が例外となった原因として，ロシア船籍タンカー「ナホトカ号」の破損，沈没事故由来のものでなかったためであると思われる。

3・2　ムラサキイガイ及びホンダワラ中濃度

ムラサキイガイ及びホンダワラ中のn-アルカン成分濃度を，それぞれ表3(1)～(6)，表4(1)～(6)に示した。

ホンダワラについては，すべての試料で付着油でみられるような油汚染特有の連続した炭素数でのn-アルカン成分の検出はみられず，特定の炭素数のn-アルカン成分のみが検出された。

ムラサキイガイについては，n-アルカン成分が検出された試料の検出状況を図6に示した。n-アルカン成分のムラサキイガイ中の総濃度は，検出限界から75μg/g湿重量の範囲であり，最高値は富来沿岸における1997年5月の試料から検出された。1998年2月の調査では全地点で検出されなかった。

4　ま　と　め

1997年1月2日島根県隠岐島沖で発生したロシア船籍タンカー「ナホトカ号」の破損，沈没事故に伴う流出油に含まれるn-アルカンについての調査を1997年3月から1998年2月にかけて行った。これに伴う影響を本県沿岸において，付着油については4地点（加賀，金沢，富来，珠洲），指標生物としてのムラサキイガイ及びホンダワラについては6地点（加賀，金沢，富来，珠洲，能都，能登島）で採取を行った。

(1)　付着油中のn-アルカン濃度は，加賀及び金沢沿岸では減衰がみられたが，富来及び珠洲沿岸には依然残留していた。

(2)　ムラサキイガイ中には，油汚染の影響と思われるn-アルカンの検出が富来沿岸の1997年5月に最も高い濃度で検出された。その他，加賀沿岸の1997年3月，5月及び7月にも検出されたが1998年2月の調査では全地点で検出されなかった。

(3)　ホンダワラ中には油汚染特有パターンのn-アルカン分布がみられなかった。

文　　献

1)　小川仁志，井部明広，風間栄治，斎藤和夫，観　公子，直井家寿太，木村康夫：東京都衛研年報，27(1)，158—163（1976）

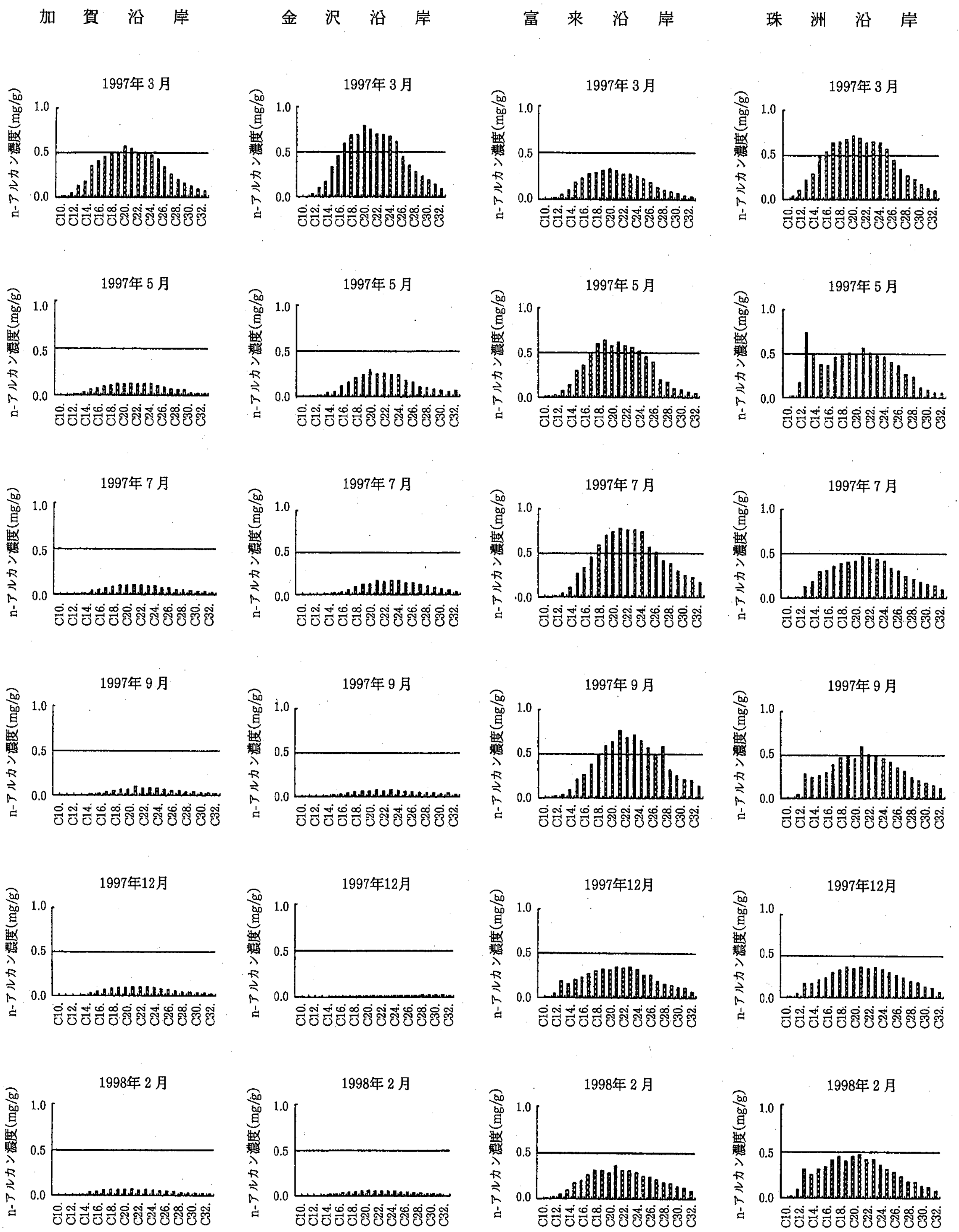


図 3　　付着油中n-アルカンの検出状況（採取地点，採取年月別）

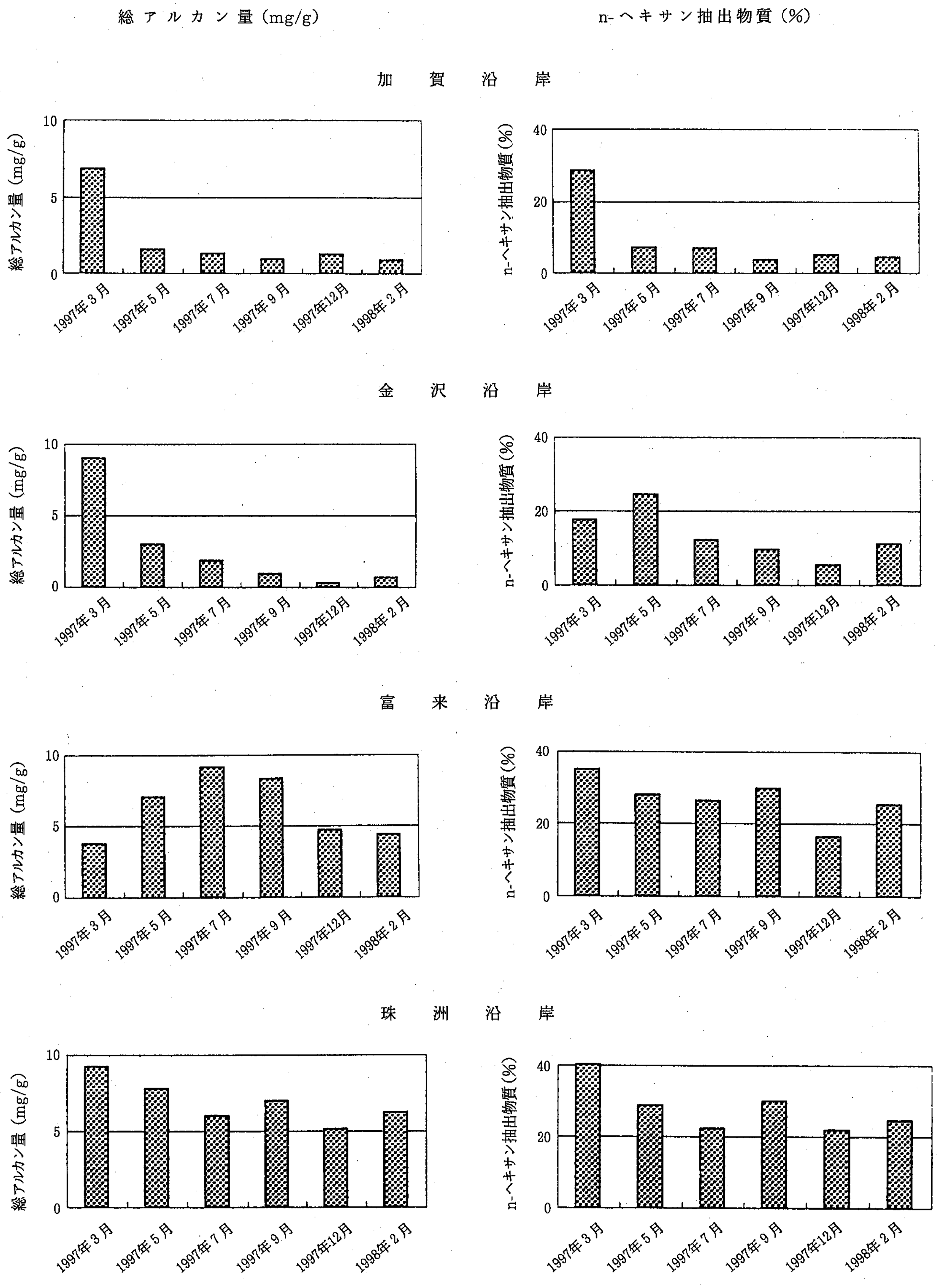
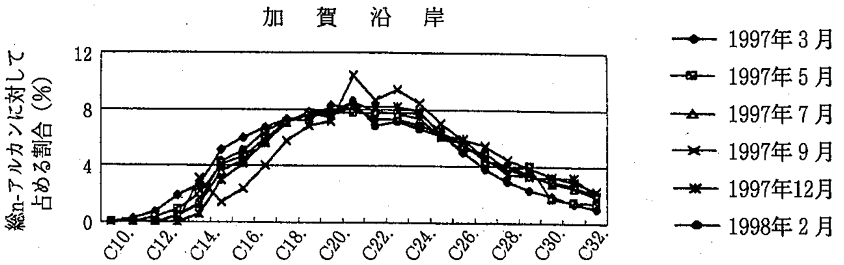
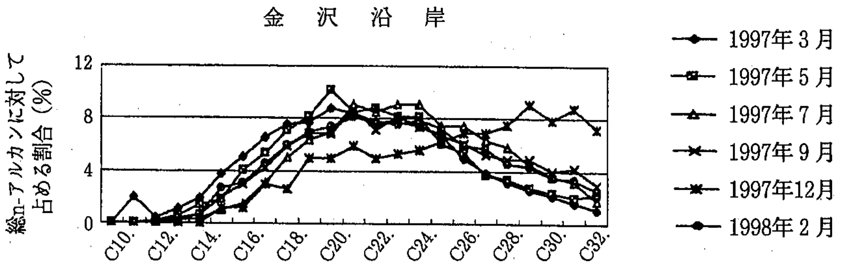
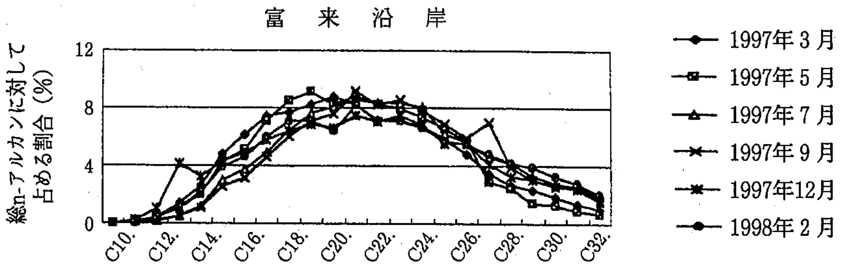


図 4　　付着油の採取地点別の総n-アルカン量とn-ヘキサン抽出物質（%）の比較







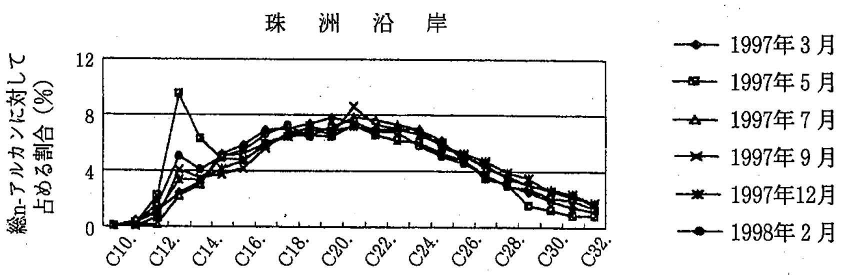


図 5　採取地点別における付着油中のn-アルカン量の総n-アルカン量に対する割合（%）

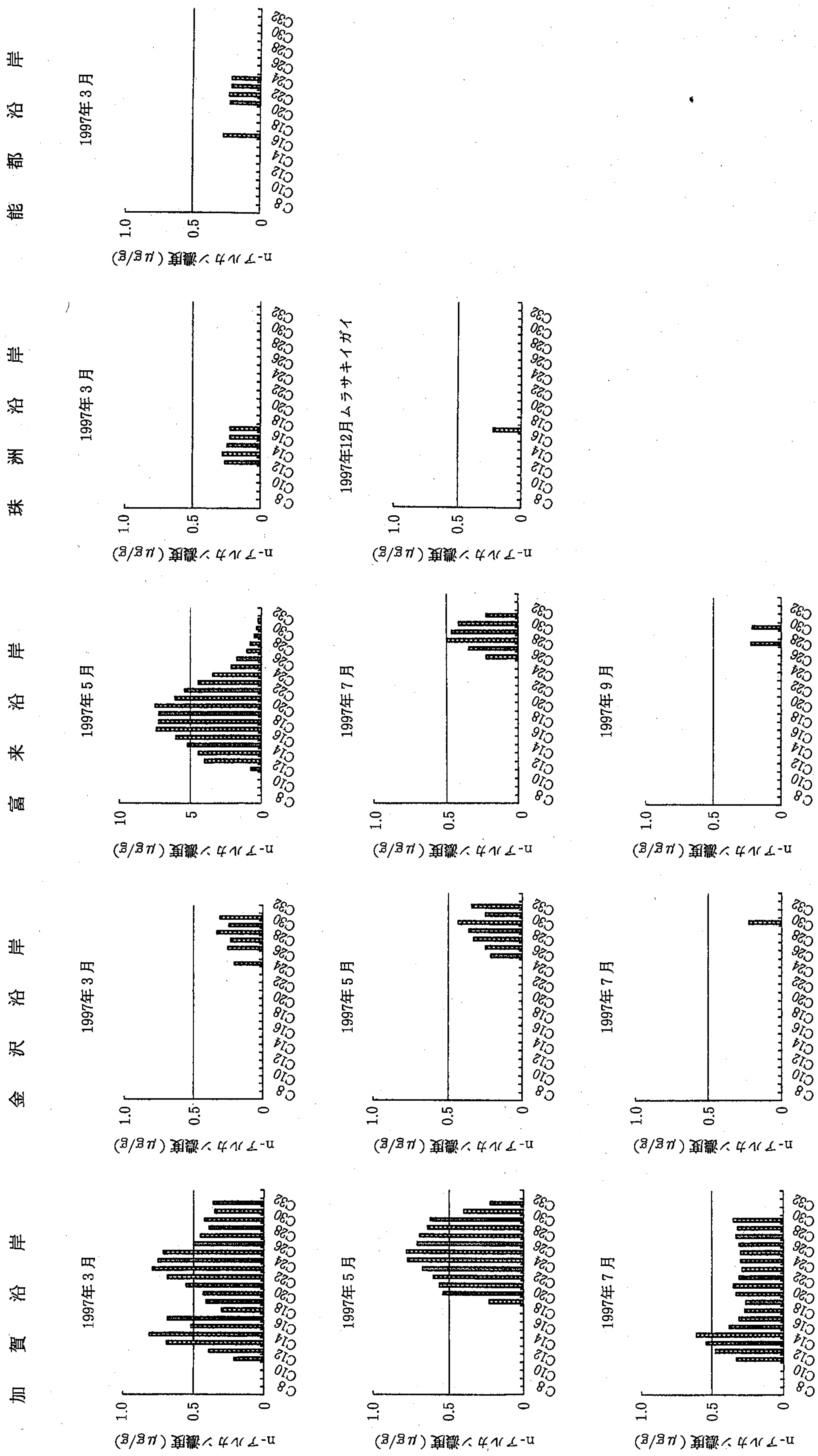


図 6　ムラサキイガイにおける各n-アルカンの検出状況（採取地点，採取年月別）

表1　機器及び測定条件

GC-FID 測定条件

機器	島津 GC-17 AAW
カラム	DB-1 ht（0.32mm φ × 30m，膜厚 0.1 μm）
カラム温度	40℃（5 min）−12℃/min−340℃（2 min）
注入口温度	250℃
検出器温度	350℃
キャリアーガス	ヘリウム
メイクアップガス	窒素
カラムヘッド圧	100 kPa
圧力プログラム	100 kPa（5 min）− 3 kPa/min−175 kPa（0 min）−10kPa/min−200 kPa（0 min）
注入量	2 μl
注入方法	スプリットレス

GC-MS 測定条件

機器	島津 GC-14 A，QP2000
カラム	DB-5（0.25mm φ ×30m，膜厚 0.25 μm）
カラム温度	50℃（5 min）−10℃/min−300℃（5 min）
注入口温度	250℃
インターフェース温度	300℃
キャリアーガス	ヘリウム
カラムヘッド圧	0.4kg/m²
イオン化法	EI
イオン化電圧	70eV
測定モード	TIC
モニターイオン(m/Z)	57，71，85
注入量	2 μl
注入方法	スプリットレス

表－2(1)　付着油の分析結果（加賀沿岸）

アルカン類　　（μg/g 湿量）

物質名	加賀沿岸					
	1997年3月	1997年5月	1997年7月	1997年9月	1997年12月	1998年2月
オクタン（C8）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナン（C9）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
デカン（C10）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ウンデカン（C11）	17	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドデカン（C12）	49	5.4	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリデカン（C13）	130	14	5.5	<0.2	<0.2	4.0
テトラデカン（C14）	180	31	16	3.1	7.0	12
ペンタデカン（C15）	350	63	46	13	36	37
ヘキサデカン（C16）	410	72	56	22	50	44
ヘプタデカン（C17）	460	92	72	37	70	56
オクタデカン（C18）	500	110	90	53	86	62
ノナデカン（C19）	490	120	100	63	92	67
エイコサン（C20）	570	120	100	66	92	64
ヘンエイコサン（C21）	550	120	110	96	100	74
ドコサン（C22）	500	120	100	80	100	59
トリコサン（C23）	500	120	98	87	100	62
テトラコサン（C24）	470	120	94	78	96	57
ペンタコサン（C25）	430	100	78	65	76	53
ヘキサコサン（C26）	340	86	72	54	72	45
ヘプタコサン（C27）	260	70	56	50	56	43
オクタコサン（C28）	200	58	52	41	42	33
ノナコサン（C29）	160	62	44	36	40	29
トリアコンタン（C30）	130	26	36	30	39	25
ヘントリアコンタン（C31）	95	23	32	27	39	23
ドトリアコンタン（C32）	69	21	24	21	24	17
総アルカン量（mg/g湿量）	6.9	1.6	1.3	0.9	1.2	0.9

物質名	加賀沿岸					
	1997年3月	1997年5月	1997年7月	1997年9月	1997年12月	1998年2月
n-ヘキサン抽出物質（%）	29	7.0	6.8	3.6	5.0	4.5

表—2(2)　付着油の分析結果（金沢沿岸）

アルカン類　（μg/g 湿量）

物質名	金沢沿岸					
	1997年3月	1997年5月	1997年7月	1997年9月	1997年12月	1998年2月
オクタン（C8）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナン（C9）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
デカン（C10）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ウンデカン（C11）	2.0	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドデカン（C12）	36	5.6	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリデカン（C13）	100	17	2.9	2.2	<0.2	2.5
テトラデカン（C14）	170	42	7.0	6.0	<0.2	4.9
ペンタデカン（C15）	340	54	19	19	3.7	19
ヘキサデカン（C16）	460	120	27	28	3.8	22
ヘプタデカン（C17）	590	160	58	40	9.4	33
オクタデカン（C18）	680	210	95	56	8.3	43
ノナデカン（C19）	690	240	120	65	16	50
エイコサン（C20）	790	300	130	65	16	53
ヘンエイコサン（C21）	750	250	170	82	19	58
ドコサン（C22）	700	260	160	68	16	55
トリコサン（C23）	690	240	170	77	17	54
テトラコサン（C24）	670	240	170	70	18	56
ペンタコサン（C25）	610	180	140	64	20	52
ヘキサコサン（C26）	450	160	140	58	22	43
ヘプタコサン（C27）	350	110	120	50	22	41
オクタコサン（C28）	280	100	110	47	24	33
ノナコサン（C29）	230	80	85	47	29	31
トリアコンタン（C30）	190	68	68	38	25	25
ヘントリアコンタン（C31）	140	58	60	40	28	24
ドトリアコンタン（C32）	95	66	33	28	23	18
総アルカン量（mg/g湿量）	9.0	3.0	1.9	1.0	0.3	0.7

物質名	金沢沿岸					
	1997年3月	1997年5月	1997年7月	1997年9月	1997年12月	1998年2月
n-ヘキサン抽出物質（%）	18	25	12	9.7	5.5	11

表—2(3)　付着油の分析結果（富来沿岸）

アルカン類　（μg/g 湿量）

物質名	富来沿岸					
	1997年3月	1997年5月	1997年7月	1997年9月	1997年12月	1998年2月
オクタン（C8）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナン（C9）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
デカン（C10）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ウンデカン（C11）	<0.2	12	8.0	8.0	9.0	5.5
ドデカン（C12）	17	27	17	18	47	18
トリデカン（C13）	52	72	46	39	190	50
テトラデカン（C14）	98	140	110	91	150	94
ペンタデカン（C15）	180	300	270	210	200	170
ヘキサデカン（C16）	230	360	340	260	230	200
ヘプタデカン（C17）	280	500	450	380	270	260
オクタデカン（C18）	290	600	590	500	300	310
ノナデカン（C19）	310	640	700	590	320	310
エイコサン（C20）	330	580	740	630	310	280
ヘンエイコサン（C21）	310	620	780	760	350	360
ドコサン（C22）	270	580	760	680	330	310
トリコサン（C23）	270	560	760	710	350	310
テトラコサン（C24）	250	520	740	650	320	290
ペンタコサン（C25）	220	460	570	570	260	250
ヘキサコサン（C26）	180	400	510	490	260	240
ヘプタコサン（C27）	130	200	420	580	190	210
オクタコサン（C28）	100	170	380	320	150	180
ノナコサン（C29）	88	100	300	250	140	170
トリアコンタン（C30）	68	80	250	210	120	140
ヘントリアコンタン（C31）	50	59	230	200	110	120
ドトリアコンタン（C32）	37	47	170	140	70	87
総アルカン量（mg/g湿量）	3.8	7.0	9.1	8.3	4.7	4.4

物質名	富来沿岸					
	1997年3月	1997年5月	1997年7月	1997年9月	1997年12月	1998年2月
n-ヘキサン抽出物質（%）	35	28	26	30	16	25

表—2(4)　付着油の分析結果（珠洲沿岸）

アルカン類　（μg/g 湿量）

物質名	珠洲沿岸					
	1997年3月	1997年5月	1997年7月	1997年9月	1997年12月	1998年2月
オクタン（C8）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナン（C9）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
デカン（C10）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	2.5	4.5
ウンデカン（C11）	40	20	5.0	5.5	15	21
ドデカン（C12）	100	170	9.5	47	50	94
トリデカン（C13）	220	740	130	280	170	310
テトラデカン（C14）	290	490	180	240	170	250
ペンタデカン（C15）	480	380	300	260	210	310
ヘキサデカン（C16）	540	370	310	290	240	340
ヘプタデカン（C17）	640	460	360	390	300	410
オクタデカン（C18）	650	500	390	470	330	450
ノナデカン（C19）	680	510	410	490	370	400
エイコサン（C20）	720	500	420	460	350	450
ヘンエイコサン（C21）	690	570	470	600	370	470
ドコサン（C22）	640	510	460	510	350	420
トリコサン（C23）	650	480	440	490	360	420
テトラコサン（C24）	640	470	420	460	340	360
ペンタコサン（C25）	570	410	340	420	300	310
ヘキサコサン（C26）	440	370	310	350	270	280
ヘプタコサン（C27）	340	270	250	310	240	230
オクタコサン（C28）	270	240	220	240	200	180
ノナコサン（C29）	230	120	180	210	180	170
トリアコンタン（C30）	170	92	160	180	130	130
ヘントリアコンタン（C31）	130	64	140	150	120	120
ドトリアコンタン（C32）	99	64	100	120	78	80
総アルカン量（mg/g湿量）	9.2	7.8	6.0	7.0	5.1	6.2

物質名	珠洲沿岸					
	1997年3月	1997年5月	1997年7月	1997年9月	1997年12月	1998年2月
n-ヘキサン抽出物質（%）	40	29	22	30	22	24

表—3(1)　イガイ類の分析結果（加賀沿岸）

アルカン類　（μg/g 湿量）

物質名	加賀沿岸					
	1997年3月	1997年5月	1997年7月	1997年9月	1997年12月	1998年2月
オクタン（C8）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナン（C9）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
デカン（C10）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ウンデカン（C11）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドデカン（C12）	0.21	<0.2	0.33	<0.2	<0.2	<0.2
トリデカン（C13）	0.39	<0.2	0.47	<0.2	<0.2	<0.2
テトラデカン（C14）	0.69	<0.2	0.54	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタデカン（C15）	0.81	<0.2	0.61	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサデカン（C16）	0.52	<0.2	0.38	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタデカン（C17）	0.68	<0.2	0.31	<0.2	<0.2	<0.2
オクタデカン（C18）	0.30	<0.2	0.27	<0.2	<0.2	<0.2
ノナデカン（C19）	0.41	0.23	0.26	<0.2	<0.2	<0.2
エイコサン（C20）	0.43	0.54	0.33	<0.2	<0.2	<0.2
ヘンエイコサン（C21）	0.55	0.56	0.35	<0.2	<0.2	<0.2
ドコサン（C22）	0.68	0.60	0.31	<0.2	<0.2	<0.2
トリコサン（C23）	0.79	0.67	0.29	<0.2	<0.2	<0.2
テトラコサン（C24）	0.75	0.77	0.30	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタコサン（C25）	0.71	0.78	0.30	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサコサン（C26）	0.50	0.71	0.31	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタコサン（C27）	0.45	0.69	0.33	<0.2	<0.2	<0.2
オクタコサン（C28）	0.39	0.64	0.32	<0.2	<0.2	<0.2
ノナコサン（C29）	0.42	0.62	0.35	<0.2	<0.2	<0.2
トリアコンタン（C30）	0.35	0.40	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘントリアコンタン（C31）	0.36	0.22	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドトリアコンタン（C32）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2

表—3(2)　イガイ類の分析結果（金沢沿岸）

アルカン類　　（μg/g 湿量）

物質名	金沢沿岸					
	1997年3月	1997年5月	1997年7月	1997年9月	1997年12月	1998年2月
オクタン（C8）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナン（C9）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
デカン（C10）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ウンデカン（C11）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドデカン（C12）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリデカン（C13）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
テトラデカン（C14）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタデカン（C15）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサデカン（C16）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタデカン（C17）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
オクタデカン（C18）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナデカン（C19）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
エイコサン（C20）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘンエイコサン（C21）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドコサン（C22）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリコサン（C23）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
テトラコサン（C24）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタコサン（C25）	0.20	0.21	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサコサン（C26）	<0.2	0.25	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタコサン（C27）	0.25	0.33	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
オクタコサン（C28）	0.23	0.36	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナコサン（C29）	0.33	0.43	0.22	<0.2	<0.2	<0.2
トリアコンタン（C30）	0.24	0.25	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘントリアコンタン（C31）	0.31	0.34	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドトリアコンタン（C32）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2

表—3(3)　イガイ類の分析結果（富来沿岸）

アルカン類　　（μg/g 湿量）

物質名	富来沿岸					
	1997年3月	1997年5月	1997年7月	1997年9月	1997年12月	1998年2月
オクタン（C8）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナン（C9）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
デカン（C10）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ウンデカン（C11）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドデカン（C12）	<0.2	0.72	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリデカン（C13）	<0.2	4.0	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
テトラデカン（C14）	<0.2	4.4	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタデカン（C15）	<0.2	5.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサデカン（C16）	<0.2	6.0	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタデカン（C17）	<0.2	7.4	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
オクタデカン（C18）	<0.2	7.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナデカン（C19）	<0.2	7.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
エイコサン（C20）	<0.2	7.5	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘンエイコサン（C21）	<0.2	6.1	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドコサン（C22）	<0.2	5.4	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリコサン（C23）	<0.2	4.4	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
テトラコサン（C24）	<0.2	3.4	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタコサン（C25）	<0.2	2.1	0.22	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサコサン（C26）	<0.2	1.7	0.34	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタコサン（C27）	<0.2	1.0	0.49	0.22	<0.2	<0.2
オクタコサン（C28）	<0.2	0.76	0.46	<0.2	<0.2	<0.2
ノナコサン（C29）	<0.2	0.49	0.41	0.21	<0.2	<0.2
トリアコンタン（C30）	<0.2	0.30	0.22	<0.2	<0.2	<0.2
ヘントリアコンタン（C31）	<0.2	0.20	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドトリアコンタン（C32）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2

表ー3(4)　イガイ類の分析結果（珠洲沿岸）

アルカン類　（μg/g 湿量）

物　質　名	珠洲沿岸					
	1997年3月	1997年5月	1997年7月	1997年9月	1997年12月	1998年2月
オクタン（C8）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナン（C9）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
デカン（C10）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ウンデカン（C11）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドデカン（C12）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリデカン（C13）	0.26	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
テトラデカン（C14）	0.28	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタデカン（C15）	0.24	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサデカン（C16）	0.22	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタデカン（C17）	0.22	<0.2	<0.2	<0.2	0.22	<0.2
オクタデカン（C18）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナデカン（C19）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
エイコサン（C20）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘンエイコサン（C21）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドコサン（C22）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリコサン（C23）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
テトラコサン（C24）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタコサン（C25）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサコサン（C26）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタコサン（C27）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
オクタコサン（C28）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナコサン（C29）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリアコンタン（C30）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘントリアコンタン（C31）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドトリアコンタン（C32）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2

表ー3(5)　イガイ類の分析結果（能都沿岸）

アルカン類　（μg/g 湿量）

物　質　名	能都沿岸					
	1997年3月	1997年5月	1997年7月	1997年9月	1997年12月	1998年2月
オクタン（C8）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナン（C9）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
デカン（C10）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ウンデカン（C11）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドデカン（C12）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリデカン（C13）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
テトラデカン（C14）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタデカン（C15）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサデカン（C16）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタデカン（C17）	0.27	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
オクタデカン（C18）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナデカン（C19）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
エイコサン（C20）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘンエイコサン（C21）	0.22	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドコサン（C22）	0.23	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリコサン（C23）	0.21	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
テトラコサン（C24）	0.21	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタコサン（C25）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサコサン（C26）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタコサン（C27）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
オクタコサン（C28）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナコサン（C29）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリアコンタン（C30）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘントリアコンタン（C31）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドトリアコンタン（C32）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2

表—3(6)　イガイ類の分析結果（能登島沿岸）

アルカン類　　（μg/g 湿量）

物質名	能登島沿岸					
	1997年3月	1997年5月	1997年7月	1997年9月	1997年12月	1998年2月
オクタン（C8）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナン（C9）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
デカン（C10）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ウンデカン（C11）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドデカン（C12）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリデカン（C13）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
テトラデカン（C14）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタデカン（C15）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサデカン（C16）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタデカン（C17）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
オクタデカン（C18）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナデカン（C19）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
エイコサン（C20）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘンエイコサン（C21）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドコサン（C22）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリコサン（C23）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
テトラコサン（C24）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタコサン（C25）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサコサン（C26）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタコサン（C27）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
オクタコサン（C28）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナコサン（C29）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリアコンタン（C30）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘントリアコンタン（C31）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドトリアコンタン（C32）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2

表—4(1)　ホンダワラ類の分析結果（加賀沿岸）

アルカン類　　（μg/g 湿量）

物質名	加賀沿岸					
	1997年3月	1997年5月	1997年7月	1997年9月	1997年12月	1998年2月
オクタン（C8）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナン（C9）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
デカン（C10）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ウンデカン（C11）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドデカン（C12）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリデカン（C13）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
テトラデカン（C14）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタデカン（C15）	0.24	<0.2	0.57	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサデカン（C16）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタデカン（C17）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	0.86
オクタデカン（C18）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナデカン（C19）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
エイコサン（C20）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘンエイコサン（C21）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドコサン（C22）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリコサン（C23）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
テトラコサン（C24）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタコサン（C25）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサコサン（C26）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタコサン（C27）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
オクタコサン（C28）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナコサン（C29）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリアコンタン（C30）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘントリアコンタン（C31）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドトリアコンタン（C32）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2

表—4(2)　ホンダワラ類の分析結果（金沢沿岸）

アルカン類　（μg/g 湿量）

物質名	金沢沿岸					
	1997年3月	1997年5月	1997年7月	1997年9月	1997年12月	1998年2月
オクタン（C8）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナン（C9）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
デカン（C10）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ウンデカン（C11）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドデカン（C12）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリデカン（C13）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
テトラデカン（C14）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタデカン（C15）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサデカン（C16）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタデカン（C17）	0.34	0.61	1.4	<0.2	0.42	0.43
オクタデカン（C18）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナデカン（C19）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
エイコサン（C20）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘンエイコサン（C21）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドコサン（C22）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリコサン（C23）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
テトラコサン（C24）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタコサン（C25）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサコサン（C26）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタコサン（C27）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
オクタコサン（C28）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナコサン（C29）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリアコンタン（C30）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘントリアコンタン（C31）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドトリアコンタン（C32）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2

表—4(3)　ホンダワラ類の分析結果（富来沿岸）

アルカン類　（μg/g 湿量）

物質名	富来沿岸					
	1997年3月	1997年5月	1997年7月	1997年9月	1997年12月	1998年2月
オクタン（C8）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナン（C9）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
デカン（C10）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ウンデカン（C11）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドデカン（C12）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリデカン（C13）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
テトラデカン（C14）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタデカン（C15）	<0.2	0.43	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサデカン（C16）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタデカン（C17）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
オクタデカン（C18）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナデカン（C19）	<0.2	<0.2	1.1	<0.2	<0.2	<0.2
エイコサン（C20）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘンエイコサン（C21）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドコサン（C22）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリコサン（C23）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
テトラコサン（C24）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタコサン（C25）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサコサン（C26）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタコサン（C27）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
オクタコサン（C28）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナコサン（C29）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリアコンタン（C30）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘントリアコンタン（C31）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドトリアコンタン（C32）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2

表—4(4)　ホンダワラ類の分析結果（珠洲沿岸）

アルカン類　（μg/g 湿量）

物質名	珠洲沿岸					
	1997年3月	1997年5月	1997年7月	1997年9月	1997年12月	1998年2月
オクタン（C８）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナン（C９）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
デカン（C10）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ウンデカン（C11）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドデカン（C12）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリデカン（C13）	<0.2	1.2	0.37	<0.2	<0.2	<0.2
テトラデカン（C14）	<0.2	0.55	0.21	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタデカン（C15）	0.30	0.38	0.23	<0.2	0.42	<0.2
ヘキサデカン（C16）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタデカン（C17）	<0.2	<0.2	0.22	<0.2	0.24	<0.2
オクタデカン（C18）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナデカン（C19）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
エイコサン（C20）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘンエイコサン（C21）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドコサン（C22）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリコサン（C23）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
テトラコサン（C24）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタコサン（C25）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサコサン（C26）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタコサン（C27）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
オクタコサン（C28）	<0.2	<0.2	0.54	<0.2	<0.2	<0.2
ノナコサン（C29）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリアコンタン（C30）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘントリアコンタン（C31）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドトリアコンタン（C32）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2

表—4(5)　ホンダワラ類の分析結果（能都沿岸）

アルカン類　（μg/g 湿量）

物質名	能都沿岸					
	1997年3月	1997年5月	1997年7月	1997年9月	1997年12月	1998年2月
オクタン（C８）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナン（C９）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
デカン（C10）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ウンデカン（C11）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドデカン（C12）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリデカン（C13）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
テトラデカン（C14）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタデカン（C15）	<0.2	0.45	1.4	<0.2	<0.2	0.39
ヘキサデカン（C16）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタデカン（C17）	<0.2	0.26	1.6	<0.2	0.41	0.73
オクタデカン（C18）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナデカン（C19）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
エイコサン（C20）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘンエイコサン（C21）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドコサン（C22）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリコサン（C23）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
テトラコサン（C24）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタコサン（C25）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサコサン（C26）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタコサン（C27）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
オクタコサン（C28）	<0.2	<0.2	1.0	<0.2	<0.2	<0.2
ノナコサン（C29）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリアコンタン（C30）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘントリアコンタン（C31）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドトリアコンタン（C32）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2

表—4(6)　ホンダワラ類の分析結果（能登島沿岸）

アルカン類　（μg/g 湿量）

物質名	能登島沿岸					
	1997年3月	1997年5月	1997年7月	1997年9月	1997年12月	1998年2月
オクタン（C8）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナン（C9）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
デカン（C10）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ウンデカン（C11）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドデカン（C12）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリデカン（C13）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
テトラデカン（C14）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタデカン（C15）	<0.2	<0.2	0.36	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサデカン（C16）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタデカン（C17）	<0.2	<0.2	0.36	<0.2	0.28	<0.2
オクタデカン（C18）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナデカン（C19）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
エイコサン（C20）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘンエイコサン（C21）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドコサン（C22）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリコサン（C23）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
テトラコサン（C24）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ペンタコサン（C25）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサコサン（C26）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘプタコサン（C27）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
オクタコサン（C28）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ノナコサン（C29）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
トリアコンタン（C30）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘントリアコンタン（C31）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ドトリアコンタン（C32）	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2

〔資　料〕

石川県における今冬のインフルエンザ

（1997/1998年シーズン）

石川県保健環境センター微生物部　尾 西　一

キーワード：インフルエンザウイルス，集団かぜ

（本報告は，第40回　日本感染症学会中日本地方会において発表した。平成９年10月17日，福井市）

1　は じ め に

平成９年度のインフルエンザは４月から５月の集団かぜにみられた小流行と，12月から翌年３月までの冬季に発生した本格的流行に分けられた。

当センターではこれらの時期の集団かぜ及び散発のかぜ患者を対象にウイルス検査を実施し，分離ウイルスの性状等について検討したのでの概要を報告する。

2　集団かぜ発生状況とウイルス分離検査結果

平成９年４月17日に金沢市立花園小学校で集団かぜが発生した。その後も発生は続き５月15日の鶴来町立広陽小学校を最後に終息するまで発生施設数は12（小学校11，中学校１）で，患者数は809人に達した（**表１**）。このうちの５施設の25人についてウイルス分離検査を実施した結果，４施設の11人からB型インフルエンザウイルスが分離された（**表２**）。４施設のうちの２施設（鳥屋小，堀松小）からの分離株はワクチン株のB/三重とは２管程度の差を認める株であった。他の２施設（花園小，明光小）から分離された株はB/三重抗血清とは反応しない株であり，HIによる同定は困難であったが，抗B型インフルエンザウイルス特異抗体による蛍光抗体法で同定できた。またその後のHA抗

表１　集団かぜ施設別患者数

期　間	施設	発生数	患者数	在籍者数	罹患率(%)
H9. 4.11～5.15	小	11	749	4,924	15.2
	中	1	60	256	23.4
	計	12	809	5,180	15.6
H9.12. 9～H10. 3. 3	幼	1	27	135	20.0
	小	156	15,002	5,581	26.9
	中	36	4,966	15,581	31.9
	高	1	73	195	37.4
	計	194	20,068	71,722	28.0

表２　ウイルス分離検査結果（集団かぜ）

検体採取月日	施　設	検体数	陽性数	型	分 離 率
H 9. 4.17	花園小	5	2	B.G	
〃	明光小	5	4	B.G	
4.21	犬丸小	5	0	—	
4.22	鳥屋小	5	2	B	
4.23	堀松小	5	3	B	11/25(44%)
H 9.12.11	御園小	5	0	—	
H10. 1. 9	小木小	5	0	—	
1.19	大海小	6	4	A(H 3)	
〃	南小立野小	5	0	—	
〃	明成小	5	3	A(H 3)	
〃	作見小	5	4	A(H 3)	
〃	土田小	5	3	A(H 3)	
1.20	宮竹小	5	2	A(H 3)	
1.23	諸江小	5	2	A(H 3)	
1.26	大屋小	5	0	—	
〃	久江小	5	0	—	18/56(32.1%)

A Prevalence of Influenza in Ishikawa Prefecture in 1997—1998 Influenza Season. *by Hajime ONISHI (Microbiology Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)*

表 3　1996—1997シーズンに分離されたB型ウイルス抗原分析

ウイルス抗原	HI 価				
	B/Aichi/5/88 (Victoria/2/87-like strain)	B/Mie/1/93 (Harbin/7/94-like strain)	B/Guangdong/8/93 (Victoria/2/87, Osaka/c19/93-like strain)	B/Harbin/7/94	B/Guangdong/5/94
Reference strains					
B/Aichi/5/88	256	<32	512	<32	512
B/Mie/1/93	64	512	128	>4,096	32
B/Guandong/8/93	1,024	64	256	128	256
B/Harbin/7/94	32	256	64	512	32
B/Guangdong/5/94	64	<32	256	NT	512
1996—1997 isolates					
B/Nagoya/2/97	32	<32	1,024	<32	256
B/Gifu/28/97	<32	<32	512	<32	128
B/Gifu/23/97	<32	32	512	<32	64
B/Shiga/56/97	<32	<32	1,024	<32	64
B/Isikawa/9/97	<32	<32	1,024	<32	128
B/Isikawa/10/97	<32	<32	512	<32	128
B/Isikawa/13/97	<32	<32	256	<32	128
B/Isikawa/14/97	<32	<32	512	<32	128
B/Akita/31/97	<32	128	64	128	<32
B/Akita/32/97	<32	<32	256	<32	32
B/Nara/4/97	32	32	512	<32	128
B/Nara/52/97	32	<32	512	<32	256

原分析によりこの株はB/ビクトリア系統に属す株で，B/Guangdong/5/94に近縁のウイルスであることが明らかとなった（国立感染症研究所，WHOインフルエンザ・呼吸器ウイルス協力センターのデータ）（**表3**）。

一方，冬季の流行は平成9年12月9日の野々市町立御園小学校に始まり，翌年の3月3日の能都町立三波小学校の発生まで続いた。この間の発生施設数は194（幼稚園1，小学校156，中学校36，高校1）で，患者数は20,068人であった。これらのうち11校の56人についてウイルス分離検査を実施した。その検査成績は表2に示したとおりA(H3）型インフルエンザウイルスが6校の18人から分離された。これらの分離株のHA抗原性状はすべてワクチン株のA/武漢/359/95とは1～2管程度の差を認めるものであった。

3　定点かぜ患者の検査結果

定点病院小児科などで採取された散発のかぜ患者からのウイルス分離検査は，年間を通じ毎月20～30人を対象とし計260人の患者について実施した。その結果，平成9年4月にBインフルエンザウイルスが2人から，また翌年の1～3月にはA(H3）型インフルエンザウイルスが25人から分離された。分離ウイルス株のHA抗原性状はB型は2株ともワクチン株のB/三重と2管程度の差を示す株であり，A(H3）型はすべてワクチン株のA/武漢/359/95とは1～2管程度の差を認めるものであった。

4　ま　と　め

平成9年度に集団かぜ患者から分離されたインフルエンザウイルスは4～5月の流行ではB型であった。このB型にはワクチン株のB/三重に近縁の株と，B/三重とは反応しないB/Guangdongに近縁の株の2種類のウイルス系統があることが確認された。また12月から翌年3月までの流行ではA(H3）型ウイルスが分離されたが，これらの株の性状はすべてワクチン株のA/武漢/359/95に近縁であった。

一方，定点の散発かぜ患者からは4月にB/三重に近縁のB型インフルエンザウイルスが，12月から翌年3月の間にはA/武漢/359/95に近縁のA(H3）型ウイルスが分離された。

〔資　料〕

農産物中の残留農薬実態調査

（1994年度〜1997年度）

石川県保健環境センター生活科学部　砺波 和子

キーワード：残留農薬，農産物，実態調査

1　はじめに

平成４年10月に告示された食品衛生法における残留農薬基準の大幅な改正[1]以来，逐次，規制対象農薬が追加され，平成９年９月の告示[2]で規制対象農薬は161種類となった。このような背景の中，当センターでは迅速に残留農薬分析業務を遂行するため，平成５年度より簡易な多成分分析法を検討・開発し，その方法を用いて残留農薬分析を行ってきた。

今回，平成６年度〜平成９年度の４年間に実施した残留農薬調査結果をとりまとめたので報告する。

2　調査方法

2・1　試　料

分析に供した試料は，平成６年６月から平成10年３月に収去された農産物及び市場で購入した農産物等177検体（45品目）である。 産地別では，国内産農産物117検体（33品目），輸入農産物60検体（17品目）である（表１）。

2・2　試薬及び標準品

試薬は残留農薬試験用又は特級品を用いた。

標準品は和光純薬㈱又は林純薬㈱製を用いた。

2・3　測定農薬

測定農薬は表２に示した105農薬である。

また，各農薬の定量限界値を表２に併記した。定量限界値未満でその農薬の残留が確認できたものについては，痕跡値（trace）とした。

2・4　試験方法

既報[3)〜5)]の方法及び公定法[6)]に準じた。

3　結果及び考察

3・1　農薬別検出状況

農薬別検出状況を表３に示した。

測定農薬105農薬のうち36農薬（検出率34.3％）が検出された。産地別で検出農薬数をみると，国内産農産物では27農薬，輸入農産物では19農薬と国内産の方が検出農薬数が多かった。これは，輸入農産物の品目が国内産に比べて少なかったことによるものと思われる。

また，検出率の高かった農薬としては，国内産農産物ではフェニトロチオン（13.7%），キャプタン（5.2%），テフルトリン（7.7%），テブフェンピラド（7.1%），エンドスルファン（4.8%）であり，輸入農産物では，イマザリル（36.7%），クロルピリホス（23.3%），ビテルタノール（15.0%），フェニトロチオン（10.0%），エンドスルファン（9.8%）であった。

3・2　農産物別農薬検出状況

農産物別農薬検出状況を表４に示した。

農産物42品目172検体及び冷凍食品３品目５検体を調査したところ，農産物29品目84検体（検出率48.8%），冷凍食品１品目１検体（検出率20.0％）から trace〜1.13ppmの範囲で検出された。

(1)　穀　類

米11検体（玄米10検体，白米１検体）中６検体（検出率54.5%）から規制対象農薬で残留基準値が設定されている農薬４農薬（エディフェンホス，フェニトロチオン，フェノブカルブ，メプロニル）及び基準値未設定農薬１農薬（ジクロフルアニド），未規制農薬フサライドの６農薬が検出された。

Survey of Pesticide Residues in Agricultual Products (April 1994〜March 1998). *by Kazuko TONAMI (Environmental Health, Food and Drug Depertment, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)*

表1　分析試料の内訳

分類	農産物名	総検体数	検体数 国内産	輸入品
穀類	米（玄米）	10	7	3
	米（白米）	1	0	1
野菜	かんしょ	2	2	0
	ながいも	1	1	0
	ばれいしょ	9	9	0
	アスパラガス	2	0	2
	いんげん（未成熟）	1	1	0
	かぼちゃ	7	4	3
	キヌサヤ	1	1	0
	キャベツ	8	8	0
	きゅうり	5	5	0
	ごぼう	1	1	0
	こまつな	1	1	0
	しゅんぎく	1	1	0
	すいか	5	5	0
	だいこん（根）	9	9	0
	だいこん（葉）	1	1	0
	たまねぎ	4	4	0
	チンゲンサイ	1	1	0
	トマト(含ミニトマト)	5	5	0
	なす	4	4	0
	にんじん	5	5	0
	ねぎ	4	4	0
	はくさい	4	4	0
	ピーマン	2	2	0
	ブロッコリー	4	1	3
	ほうれんそう	2	2	0
	みつば	1	1	0
	レタス	6	6	0
	小計	96	88	8
果実	いよかん	2	2	0
	オレンジ	7	0	7
	キウィー	4	0	4
	グレープフルーツ	4	0	4
	スウィーティー	2	0	2
	チェリー	2	0	2
	パイナップル	3	0	3
	バナナ	11	0	11
	ハナエジウメロン	1	0	1
	ぶどう	4	4	0
	みかん	4	4	0
	りんご	8	7	1
	レモン	9	1	8
	日本なし	4	4	0
	小計	65	22	43
冷凍食品	いんげん（未成熟）	2	0	2
	コーン	1	0	1
	フライドポテト	2	0	2
	小計	5	0	5
総計		177	117	60

表2　分析対象農薬と定量限界

農薬名	定量限界(ppm)	農薬名	定量限界(ppm)
BHC	0.005	トラロメトリン	0.005
DCIP	0.02	トリアジメノール	0.02
DDT	0.005	トリクラミド	0.1
EPN	0.005	トリクロルホン	0.005
2, 4, 5-T	0.05	トリフルミゾール	0.1
アルジカルブ	0.02	トルクロホスメチル	0.02
イソフェンホス	0.002	パクロブトラゾール	0.01
イソプロカルブ	0.02	バミドチオン	0.1
イナベンフィド	0.02	パラチオン	0.005
イプロジオン	0.1	パラチオンメチル	0.005
イマザリル	0.02	ハルフェンプロックス	0.01
エスプロカルブ	0.05	ビテルタノール	0.05
エチオフェンカルブ	0.02	ピラクロホス	0.05
エディフェンホス	0.005	ピラゾキシフェン	0.05
エトプロホス	0.005	ピリダベン	0.1
エトリムホス	0.005	ピリフェノックス	0.05
エンドリン	0.005	ピリミカーブ	0.01
オキサミル	0.05	ピリミホスメチル	0.005
カズサホス	0.005	ピレトリン	0.2
カブタホール	0.005	フェナリモル	0.02
カルバリル	0.02	フェニトロチオン	0.005
キナルホス	0.005	フェノブカルブ	0.02
キノメチオネート	0.05	フェンスルホチオン	0.005
キャプタン	0.005	フェンチオン	0.005
グリホサート	0.05	フェントエート	0.005
グルホシネート	0.01	フェンバレレート	0.02
クロフェンテジン	0.05	フェンピロキシメート	0.05
クロルピリホス	0.005	ブタミホス	0.01
クロルフェンビンホス	0.005	フルシトリネート	0.01
クロルフルアズロン	0.05	フルトラニル	0.05
クロルプロファム	0.05	フルバリネート	0.005
クロルベンジレート	0.02	プレチラクロール	0.05
酸化フェンブタスズ	0.05	プロチオホス	0.005
ジエトフェンカルブ	0.05	プロパモカルブ	0.05
ジクロフルアニド	0.005	プロピコナゾール	0.02
ジクロルボス	0.005	ペルメトリン	0.02
ジコホール	0.005	ベンダイオカルブ	0.02
シハロトリン	0.005	ベンタゾン	0.02
ジフェノコナゾール	0.02	ペンディメタリン	0.05
シフルトリン	0.01	ホサロン	0.005
ジフルベンズロン	0.05	ホスチアゼート	0.01
シヘキサチン	0.02	マラチオン	0.005
シペルメトリン	0.02	ミクロブタニル	0.01
ジメチルビンホス	0.02	メチオカルブ	0.05
ジメトエート	0.005	メトプレン	0.5
ダイアジノン	0.005	メトリブジン	0.02
チオベンカルブ	0.02	メフェナセット	0.05
ディルドリン	0.005	メプロニル	0.05
テニルクロール	0.02	レナシル	0.05
テブフェンピラド	0.01	エンドスルファン	0.005
テフルトリン	0.005	クロロタロニル	0.01
デルタメトリン	0.005	フサライド	0.005
テルブホス	0.005		

表3　農薬検出状況

農薬名	国内産農産物 検査検体数	検出数	検出率(%)	最小値(ppm)	最大値(ppm)	輸入農産物 検査検体数	検出数	検出率(%)	最小値(ppm)	最大値(ppm)
BHC	117	0				60	0			
DCIP	57	0				30	0			
DDT	117	2	1.7	trace	0.008	60	2	3.3	trace	trace
EPN	117	0				60	0			
2, 4, 5-T	50	0				26	0			
アルジカルブ	117	0				60	0			
イソフェンホス	59	0				30	0			
イソプロカルブ	117	0				60	0			
イナベンフィド	82	0				33	0			
イプロジオン	81	2	2.5	0.11	0.12	39	2	5.1	0.31	0.56
イマザリル	117	3	2.6	trace	0.03	60	22	36.7	0.03	2.0
エスプロカルブ	117	0				60	0			
エチオフェンカルブ	117	0				60	0			
エディフェンホス	117	1	0.9	0.018	0.018	60	0			
エトプロホス	117	0				60	0			
エトリムホス	117	0				60	0			
エンドリン	117	0				60	2	3.3	trace	0.017
オキサミル	117	0				60	0			
カズサホス	14	0				9	0			
カプタホール	117	0				60	0			
カルバリル	117	0				60	3	5.0	0.10	0.87
キナルホス	117	1	0.9	trace	trace	60	0			
キノメチオネート	117	1	0.9	0.05	0.05	60	0			
キャプタン	116	6	5.2	trace	0.078	60	1	1.7	0.011	0.011
グリホサート	4	0				4	0			
グルホシネート	12	0				9	0			
クロフェンテジン	96	0				58	0			
クロルピリホス	117	2	1.7	trace	0.019	60	14	23.3	trace	0.27
クロルフェンビンホス	117	0				60	0			
クロルフルアズロン	59	0				30	0			
クロルプロファム	117	0				60	0			
クロルベンジレート	117	0				60	0			
酸化フェンブタスズ	50	1	2.0	0.08	0.08	26	0			
ジエトフェンカルブ	117	0				60	0			
ジクロフルアニド	117	3	2.6	0.017	0.020	60	0			
ジクロルボス	117	0				60	0			
ジコホール	117	1	0.9	0.007	0.007	60	1	1.7	trace	trace
シハロトリン	117	0				60	0			
ジフェノコナゾール	14	0				9	0			
シフルトリン	81	0				41	1	2.4	0.01	0.01
ジフルベンズロン	100	1	1.0	trace	trace	54	0			
シヘキサチン	51	0				26	0			
シペルメトリン	117	0				60	0			
ジメチルビンホス	14	0				9	0			
ジメトエート	117	0				60	1	1.7	0.043	0.043
ダイアジノン	117	1	0.9	0.010	0.010	60	0			
チオベンカルブ	117	0				60	0			
ディルドリン	117	3	2.6	trace	0.029	60	1	1.7	0.012	0.012
テニルクロール	14	0				9	0			
テブフェンピラド	14	1	7.1	0.04	0.04	9	0			
テフルトリン	13	1	7.7	trace	trace	6	0			
デルタメトリン	117	0				60	1	1.7	0.007	0.007
テルブホス	117	0				60	0			

表3のつづき

農薬名	国内産農産物					輸入農産物				
	検査検体数	検出数	検出率(%)	最小値(ppm)	最大値(ppm)	検査検体数	検出数	検出率(%)	最小値(ppm)	最大値(ppm)
トラロメトリン	117	0				60	0			
トリアジメノール	117	0				60	0			
トリクラミド	98	0				58	0			
トリクロルホン	117	0				60	0			
トリフルミゾール	80	0				40	2	5.0	0.2	0.2
トルクロホスチメル	56	0				30	0			
パクロブトラゾール	14	0				9	0			
バミドチオン	115	0				60	0			
パラチオン	117	0				60	0			
パラチオンメチル	117	0				60	0			
ハルフェンプロックス	14	0				9	0			
ビテルタノール	117	0				60	9	15.0	0.07	1.13
ピラクロホス	14	0				9	0			
ピラゾキシフェン	114	0				57	0			
ピリダベン	84	0				41	0			
ピリフェノックス	117	0				57	0			
ピリミカーブ	117	0				60	0			
ピリミホスメチル	84	0				41	0			
ピレトリン	117	0				60	0			
フェナリモル	59	0				30	0			
フェニトロチオン	117	16	13.7	trace	0.012	60	6	10.0	trace	0.010
フェノブカルブ	84	2	2.4	trace	trace	41	0			
フェンスルホチオン	117	0				60	0			
フェンチオン	117	0				60	0			
フェントエート	117	0				60	0			
フェンバレレート	85	2	2.4	trace	0.23	41	2	4.9	trace	0.02
フェンピロキシメート	81	0				43	0			
ブタミホス	14	0				9	0			
フルシトリネート	117	0				60	0			
フルトラニル	117	0				60	0			
フルバリネート	117	2	1.7	trace	0.013	60	0			
プレチラクロール	117	0				60	0			
プロチオホス	117	1	0.9	0.046	0.046	60	0			
プロパモカルブ	6	0				4	0			
プロピコナゾール	117	0				60	0			
ペルメトリン	117	3	2.6	0.02	0.07	60	0			
ベンダイオカルブ	117	0				60	0			
ベンタゾン	50	0				30	0			
ペンディメタリン	117	0				60	0			
ホサロン	117	0				60	0			
ホスチアゼート	14	0				9	0			
マラチオン	117	0				60	3	5.0	trace	0.017
ミクロブタニル	84	0				41	3	7.3	trace	0.02
メチオカルブ	84	0				39	0			
メトプレン	7	0				4	0			
メトリブジン	117	1	0.9	trace	trace	60	0			
メフェナセット	117	0				60	0			
メプロニル	117	2	1.7	0.14	0.21	60	0			
レナシル	84	0				41	0			
エンドスルファン	84	4	4.8	trace	0.113	41	4	9.8	trace	0.074
クロロタロニル	59	1	1.7	0.02	0.02	30	0			
フサライド	59	1	1.7	0.054	0.054	30	0			

表 4　　農産物別農薬検出状況

分類	農産物名	産地	検出農薬目	検出濃度(ppm)				検出頻度（検出数/検査検体数）	残留基準値(ppm)
穀類	米（玄米）	国内	エディフェンホス	0.018				1/7	0.2
			ジクロフルアニド	0.017				1/7	—
			フェニトロチオン	trace	trace	trace		3/7	0.2
			フェノブカルブ	trace				1/4	1.0
			フサライド	0.054				1/4	—
			メプロニル	0.21	0.14			2/7	2.0
野菜	かんしょ	国内	エンドスルファン	0.009				1/1	—
	ばれいしょ	国内	イマザリル	trace				1/9	5.0
			フェニトロチオン	0.005				1/9	0.05
			フェノブカルブ	trace				1/6	—
	アスパラガス	輸入	エンドスルファン	0.074				1/2	—
	かぼちゃ	国内及び輸入	フェニトロチオン	0.008	0.005	0.007		3/7	0.2
			ディルドリン	trace	0.019	0.029	0.012	5/7	—
				trace					
			DDT	trace				1/7	0.2
			エンドリン	trace	0.017			2/7	—
			エンドスルファン	0.006	trace	0.011		3/6	—
			イマザリル	trace				1/7	2.0
	きゅうり	国内	フェンバレレート	trace				1/4	0.20
			フルバリネート	0.013				1/5	1.0
			DDT	0.008				1/5	0.2
			メトリブジン	trace				1/5	0.5
	しゅんぎく	国内	ペルメトリン	0.02				1/1	3.0
	だいこん（根）	国内	テフルトリン	trace				1/2	0.1
	だいこん（葉）	国内	プロチオホス	0.046				1/1	—
	たまねぎ	国内	キャプタン	0.006				1/4	—
			ジクロフルアニド	0.020				1/4	0.1
	チンゲンサイ	国内	ダイアジノン	0.010				1/1	—
	トマト（含ミニトマト）	国内	ペルメトリン	0.07				1/5	1.0
			イプロジオン	0.12				1/4	5.0
			クロロタロニル	0.02				1/3	—
	にんじん	国内	フェンバレレート	0.23				1/4	0.50
			DDT	trace				1/5	—
			フェニトロチオン	trace	0.005			2/5	0.2
	ねぎ	国内	ジクロフルアニド	0.017				1/4	15
			フェニトロチオン	trace				1/4	0.2
	はくさい	国内	フルバリネート	trace				1/4	1.0
	ピーマン	国内	イプロジオン	0.11				1/2	10
			エンドスルファン	0.105	0.113			2/2	—
	ほうれんそう	国内	ペルメトリン	0.02				1/2	2.0
			フェニトロチオン	0.011				1/2	0.2
果実	いよかん	国内	イマザリル	0.03				1/2	5.0
	オレンジ	輸入	イマザリル	1.3	2.0	0.54	1.0	5/7	5.0
				0.25					
			カルバリル	0.34				1/7	—
			クロルピリホス	0.009	0.019	0.27	0.006	4/7	0.3
			シフルトリン	0.01				1/7	2.0
			ジメトエート	0.043				1/7	—
			フェニトロチオン	trace				1/7	2.0
			ミクロブタニル	trace				1/7	—
	キウィー	輸入	フェニトロチオン	0.010	0.009			2/4	—

表4のつづき

分類	農産物名	産地	検出農薬目	検出濃度(ppm)				検出頻度(検出数/検査検体数)	残留基準値(ppm)
果実	グレープフルーツ	輸入	イマザリル	0.29	0.62	0.98	0.11	4/ 4	5.0
			クロルピリホス	0.014				1/ 4	0.3
			マラチオン	trace				1/ 4	4.0
			ミクロブタニル	trace				1/ 4	—
	スウイーティー	輸入	キャプタン	0.011				1/ 2	—
			クロルピリホス	0.034	0.007			2/ 2	0.3
			マラチオン	0.010				1/ 2	4.0
	チェリー	輸入	イプロジオン	0.56	0.31			2/ 2	10
			イマザリル	0.09	trace			2/ 2	—
			フェンバレレート	trace	0.02			2/ 2	2.0
			ミクロブタニル	0.02				1/ 2	4.0
	パイナップル	輸入	イマザリル	trace				1/ 3	2.0
			フェニトロチオン	trace				1/ 3	0.05
	バナナ	輸入	イマザリル	0.19	0.29			2/11	2.0
			クロルピリホス	0.02	0.006	trace		3/11	0.5
			デルタメトリン	0.007				1/11	0.05
			トリフルミゾール	0.2	0.2			2/ 9	2.0
			ビテルタノール	0.24	0.28	0.23	0.07	9/11	0.5
				0.11	1.13	0.16	0.08		
				0.10					
			フェニトロチオン	trace				1/11	0.2
	みかん	国内	フェニトロチオン	trace				1/ 4	0.2
	りんご	国内	キャプタン	trace	0.078	trace		3/ 7	5.0
			クロルピリホス	trace	0.019			2/ 7	1.0
			酸化フェンブタスズ	0.08				1/ 2	5.0
			ジフルベンズロン	trace				1/ 6	1.0
			テブフェンピラド	0.04				1/ 1	0.5
			フェニトロチオン	0.007	0.007	0.008	0.012	4/ 7	0.2
			エンドスルファン	trace				1/ 5	—
	レモン	国内及び輸入	キナルホス	trace				1/ 9	0.8
			キノメチオネート	0.05				1/ 9	0.5
			イマザリル	0.03	1.1	0.04	0.07	8/ 9	5.0
				0.04	0.06	0.04	0.03		
			カルバリル	0.87	0.10			2/ 9	—
			クロルピリホス	0.027	0.042	trace	0.056	4/ 9	0.3
			ジコホール	trace				1/ 9	—
			マラチオン	0.017				1/ 9	4.0
	日本なし	国内	キャプタン	0.024	trace			2/ 4	—
			ジコホール	0.007				1/ 4	3.0
			フェニトロチオン	0.01				1/ 4	0.2
冷凍食品	いんげん(未成熟)	輸入	DDT	trace				1/ 2	—

(備考)　農薬が検出されなかった農産物は掲載していない。

(2)　野菜類

野菜類27品目96検体を調査したところ，16品目32検体(検出率30.7%)から18農薬が検出された。

検出頻度の高かったのは，かぼちゃのディルドリン，ピーマンのエンドスルファンであった。なお，エンドスルファンは規制対象外農薬であり，かぼちゃのディルドリンについては残留基準値が設定されていない農薬である。

(3)　果実類

果実類14品目65検体を調査したところ，12品目46検体(検出率70.8%)から21農薬が検出された。

検出頻度の高かったのは，オレンジのイマザリル，クロルピリホス，グレープフルーツのイマザリル，スウイーティーのクロルピリホス，チェリーのイプロジオン，イマザリル，フェンバレレート，バナナのビテルタノール，レモンのイマザリルであった。これらの農薬は全て

表 5　　複数農薬検出検体

分類	検体名	産地国	検出農薬数	農薬名（ppm）						
				エディフェンホス	フェニトロチオン	フエノブカルブ	メプロニル			
穀類	米（玄米）	日本	2		trace		0.21			
		日本	2		trace		0.14			
		日本	2	0.018		trace				
野菜	かぼちゃ			DDT	イマザリル	エンドリン	ディルドリン	フェニトロチオン	エンドスルファン	
		日本	2				trace	0.005		
		メキシコ	5	trace		0.017	0.012	0.007	0.006	
		メキシコ	3		trace	trace			trace	
	きゅうり			DDT	フェンバレレート	フルバリネート	メトリブジン			
		日本	2		trace	0.013				
		日本	2	0.008			trace			
	たまねぎ			キャプタン	ジクロフルアニド					
		日本	2	0.006	0.020					
	にんじん			DDT	フェニトロチオン					
		日本	2	trace	trace					
	ピーマン			イプロジオン	エンドスルファン					
		日本	2	0.11	0.113					
果実	オレンジ			イマザリル	カルバリル	クロルピリホス	シフルトリン	ジメトエート	フェニトロチオン	ミクロブタニル
		アメリカ	2			0.009			trace	
		アメリカ	3	0.54		0.019				0.01
		アメリカ	2	1.03		0.27				
		アメリカ	3		0.34	0.006		0.043		
		アメリカ	2	0.25			0.01			
	グレープフルーツ			イマザリル	クロルピリホス	マラチオン	ミクロブタニル			
		アメリカ	2	0.62	0.014					
		アメリカ	2	0.98		trace				
		アメリカ	2	0.11			trace			
	スウイーティー			キャプタン	クロルピリホス	マラチオン				
		イスラエル	3	0.011	0.007	0.010				
	チェリー			イプロジオン	イマザリル	フェンバレレート	ミクロブタニル			
		アメリカ	4	0.56	0.09	trace	0.02			
		アメリカ	3	0.31	trace	0.02				
	パイナップル			イマザリル	フェニトロチオン					
		フィリピン	2	trace	trace					
	バナナ			イマザリル	クロルピリホス	デルタメトリン	トリフルミゾール	ビテルタノール	フェニトロチオン	
		フィリピン	2		0.020			0.28		
		フィリピン	2	0.19			0.2			
		フィリピン	3				0.2	0.07	trace	
		フィリピン	2		0.006			0.11		
		エクアドル	2	0.29				1.13		
		フィリピン	2		trace			0.16		
		フィリピン	2			0.007		0.08		
	りんご			キャプタン	クロルピリホス	酸化フェンブタスズ	ジフルベンズロン	テブフェンピラド	フェニトロチオン	エンドスルファン
		日本	3	0.078			trace		0.007	
		日本	2		trace				0.007	
		日本	4		0.019	0.08			0.012	trace
		日本	2	trace				0.04		
	レモン			イマザリル	カルバリル	キナルホス	キノメチオネート	クロルピリホス	ジコホール	マラチオン
		アメリカ	5	0.07	0.87			0.027	trace	0.017
		アメリカ	3	0.04	0.10			0.042		
		アメリカ	2	0.06				trace		
		アメリカ	2	0.04				0.056		
		日本	3	0.03		trace	0.05			
	日本なし			キャプタン	ジコホール	フェニトロチオン				
		日本	2	0.024	0.007					
		日本	2	trace		0.010				

規制対象農薬であり，チェリーのイマザリルを除いて残留基準値も設定されている。今回の調査の中で，バナナの1検体から食品衛生法の残留基準値を超えるビテルタノールが検出された。

また，オレンジ，レモンから残留基準値未設定のカルバリルが検出された。

(4) 冷凍食品

3品目5検体を調査したところ，1品目1検体から1農薬検出されたが，濃度は痕跡程度であった。

3・3 複数農薬残留状況

複数農薬が検出された農産物を表5に示した。

同一検体に2種類以上の農薬が残留していた検体数は41検体で全検体数の23.2%にあたる。残留農薬数が最も多かったのはレモン（アメリカ産）の5農薬で，次いでチェリー（アメリカ産）とりんご（国内産）の4農薬であった。

複数農薬の残留傾向は，米や野菜類より果実類の方がが高い傾向にあった。

4 まとめ

平成6年6月から平成10年3月に収去された農産物及び市場で購入した農産物等177検体（45品目）について，105農薬を対象とした残留実態調査を行った。その結果，有機リン系農薬，有機塩素系農薬，カーバメート系農薬など36農薬が85検体（30品目）から検出された。また農薬が検出された検体の約48%に，2種類以上の農薬が検出され，この傾向は野菜類より果実類の方が高かった。

さらに，比較的広く使用されているが規制対象となっていないエンドスルファン，クロロタロニル，フサライドの3農薬を対象に加えて調査したところ，これらの未規制農薬の残留が確認された。また，規制対象農薬についても残留基準値が未設定の農産物から検出される例もみられた。これらのことから，農薬使用実態と規制基準の整合性が図られることが望まれる。

厚生省では，西暦2,000年までに約200農薬を目標に規制対象農薬の追加を予定をしており，今後，逐次使用実態との適合性が図られるものと思われる。

本調査結果をまとめるにあたり，分析に携わった当センター生活科学部薬品化学担当及び食品毒性担当のスタッフの方々に感謝いたします。

文　献

1) 厚生省告示：第239号，平成4年10月27日
2) 厚生省告示：第179号，平成9年9月1日
3) 砺波和子，瀬戸映子，小川　清：石川保環年報，31，112—119（1994）
4) 砺波和子，小川　清：石川保環年報，32，135—142（1995）
5) 砺波和子，笹木千春，坂本藤夫：石川保環年報，33，95—103（1996）
6) 厚生省生活衛生局食品化学課：第2回食品残留農薬分析法講習会資料 p121—125，p197—204（平成5年12月）

〔資　料〕

健康食品に関する共同研究（その3・続報）

—— 重金属成分について（第2報）——

石川県保健環境センター生活科学部　藤澤明子・瓶　幹夫・柴野　昭

キーワード：健康食品，重金属，ミネラルウォーター，健康茶，クロレラ食品，
スピルリナ食品，プルーンエキス食品

1　はじめに

近年，健康に対する関心の高まりとともに，食を通じた健康づくりに対する欲求が高まっており，様々な機能をうたった健康食品と言われるものが販売されている。平成8年度より健康食品に関する調査を開始し，平成8年度はビタミンC含有食品，蛋白含有食品，健康茶，ミネラルウォーターについて重金属含有量の分析を実施した。平成9年度はミネラルウォーター，健康茶，クロレラ食品，スピルリナ食品，プルーンエキス食品の5種類26検体について重金属含有量の分析を行った。

2　調査方法

2・1　調査対象食品

(1)　ミネラルウォーター　5検体
(2)　健康茶　5検体
(3)　クロレラ食品　8検体
(4)　スピルリナ食品　3検体
(5)　プルーンエキス食品　5検体

2・2　調査項目及び試験方法

(1)　鉄（Fe），マンガン（Mn）：ICP発光分光分析法
(2)　鉛（Pb），銅（Cu），亜鉛(Zn)，総クロム（T-Cr）：ICP発光分光分析法及び電気加熱原子吸光光度法
(3)　カドミウム（Cd），ヒ素（As）：電気加熱原子吸光光度法
(4)　水銀（Hg）：還元気化原子吸光法

(1)(2)(3)の分析においては液状試料は250mlをそのまま湿式分解を行った。個体試料については適量（0.5～5g）を分取し，水銀以外の重金属の測定用として450°Cにて乾式灰化した後，蒸留水100mlと硝酸10mlを加えて湿式分解を行った。分解しないものについてはさらに硝酸，過塩素酸を添加し，乾固直前まで濃縮した後，25mlに定容にしたものを測定に供した。

(4)の分析においては液状試料50mlはそのまま，個体試料適量（0.1～0.5g）を分取し蒸留水50mlを加えて，過マンガン酸カリウムを添加し，溶存有機物の分解を行った後，測定に供した。

今回の試験に用いた試薬は下記の通りである。

標準物質
Fe, Mn, Cu, Zn, Pb, Cd, As：関東化学㈱　100ppm　原子吸光分析用標準液
T-Cr, Hg：和光純薬工業㈱　1,000ppm　原子吸光分析用標準液

使用試薬
硝　　酸：和光純薬工業㈱　有害金属分析用
過塩素酸：和光純薬工業㈱　有害金属分析用
過マンガン酸カリウム：和光純薬工業㈱ 有害金属分析用
硝酸パラジウム溶液：和光純薬工業㈱ 原子吸光分析用

3　調査結果

調査結果は表1～表5及び図1に示した。図中K—23～27はミネラルウォーター，K—28～32は健康茶，33～37はクロレラ食品，K—41～43はスピルリナ食品，K—44～48はプルーンエキス食品である。

3・1　ミネラルウォーター（表1）

鉄は全ての検体から検出され，含有量は0.007～0.012 mg/l（以下ミネラルウォーター，健康茶についてはmg/lで，クロレラ食品，スピルリナ食品及びプルーンエキス食品についてはmg/100g表示とする。）であった。マンガンは2検体から0.003～0.006，銅は全て0.001以下

Cooperative Survey of Health Foods. 3. — Heavy Metals(2) —. *by Akiko FUJISAWA, Mikio ITOH and Akira SHIBANO (Environmental Health, Food and Drug Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmetal Sciene)*

表１　ミネラルウォーター中重金属濃度分布

	濃度範囲（mg/l）	平　均	検出数
Fe	0.007～0.012	0.009	5
Mn	nd ～0.006	0.004	3
Cu	nd	—	0
Zn	0.006～0.007	0.006	5
Pb	nd	—	0
Cd	nd	—	0
T-Cr	nd	—	0
As	nd ～0.013	0.007	2
Hg	nd	—	0

表２　健康茶中重金属濃度分布

	濃度範囲（mg/l）	平　均	検出数
Fe	0.022～0.067	0.039	5
Mn	0.077～0.719	0.353	5
Cu	0.004～0.009	0.006	5
Zn	0.011～0.042	0.022	5
Pb	nd	—	0
Cd	0.0001	0.0001	1
T-Cr	nd	—	0
As	nd	—	0
Hg	nd	—	0

表３　クロレラ含有食品中重金属濃度分布

	濃度範囲（mg/100g）	平　均	検出数
Fe	55.35 ～129.85	103.69	8
Mn	2.99 ～ 16.18	6.97	8
Cu	0.176 ～ 0.576	0.382	8
Zn	0.001 ～ 0.002	0.001	8
Pb	0.015 ～ 0.084	0.043	8
Cd	0.0006～ 0.0036	0.0019	8
T-Cr	nd	—	0
As	nd	—	0
Hg	nd ～ 0.00188	0.00083	8

表４　スピルリナ食品中重金属濃度分布

	濃度範囲（mg/100g）	平　均	検出数
Fe	8.69 ～47.2	29.78	3
Mn	1.07 ～ 2.88	2.23	3
Cu	0.286 ～ 0.502	0.399	3
Zn	0.001 ～ 0.003	0.002	3
Pb	0.004 ～ 0.023	0.011	3
Cd	0.0019 ～ 0.0089	0.0050	3
T-Cr	nd	—	0
As	nd	—	0
Hg	0.00098～ 0.00165	0.00127	3

表５　プルーンエキス食品中重金属濃度分布

	濃度範囲（mg/100g）	平　均	検出数
Fe	1.15 ～1.80	1.39	5
Mn	0.301 ～0.351	0.331	5
Cu	0.093 ～0.377	0.174	5
Zn	nd ～0.001	0.001	3
Pb	0.006 ～0.019	0.011	5
Cd	0.0005～0.0133	0.0038	5
T-Cr	nd	—	0
As	nd	—	0
Hg	nd ～0.00018	0.00011	4

であった。亜鉛は全検体から0.006～0.007の範囲で検出された。鉛は全て0.001以下であった。カドミウムは全て0.0001以下，総クロムは0.001以下，水銀は全て検出されなかった（検出限界0.00001以下)。ヒ素は２検体から0.002～0.013検出された。

3・2　健康茶（表２）

鉄，マンガン，銅，亜鉛は全ての検体から検出された。鉄は0.022～0.067，マンガンは0.077～0.719，銅は0.004～0.009，亜鉛は0.011～0.042の範囲で検出された。カドミウムは全て0.0001以下であった。鉛は全て0.001以下であった。総クロム，ヒ素，水銀は検出されなかった。

3・3　クロレラ食品（表３）

鉄，マンガン，銅，亜鉛，鉛，カドミウム，水銀は全ての検体から検出された。特に鉄の含有量が著しく高く，55.3～129.8の範囲で検出された。ついでマンガンが2.99～16.1であった。銅は0.176～0.576，亜鉛は0.001～0.002，カドミウムは0.0006～0.0036，鉛は0.015～0.084，水銀は0.00015～0.00188であった。総クロムは全て0.001以下であった。ヒ素は0.0005以下であった。

3・4　スピルリナ食品（表４）

鉄，マンガン，銅，亜鉛，鉛，カドミウム，水銀は全ての検体から検出された。鉄は8.69～47.2，マンガンは1.07～2.88，銅は0.286～0.502，亜鉛は0.001～0.003，カドミウムは0.0019～0.0089，鉛は0.004～0.023，水銀は0.00098～0.00165であった。総クロムは全て0.001以下であった。ヒ素は0.0005以下であった。

3・5　プルーンエキス食品（表５）

鉄，マンガン，銅，亜鉛，鉛，カドミウム，水銀は全ての検体から検出された。鉄は1.15～1.80，マンガンは0.301～0.351，銅は0.093～0.377，亜鉛は0.001以下，カドミウムは0.0005～0.0133，鉛は0.006～0.019，水銀は0.00001～0.00018であった。総クロムは全て0.001以下であった。ヒ素は0.0005以下であった。

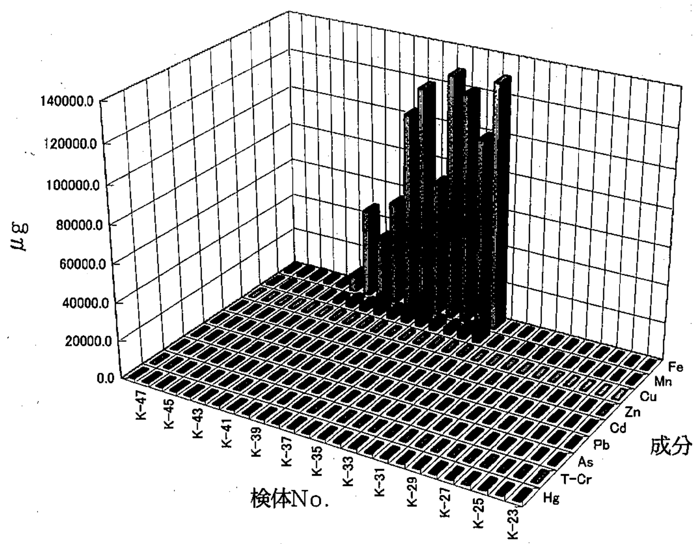


図1　健康食品中の重金属含有量

4　考　　察

ミネラルウォーターは国産3検体，外国産2検体であった。これはもともと水であるために重金属の含有量はきわめて低い。しかし，外国産の2検体についてヒ素が0.002，0.012mg/lと検出された。1検体については日本における水道水の飲用基準（0.01mg/l）を超えており，平成8年度の結果[1]とあわせて，外国産のミネラルウォーターに関して何らかの対策の必要があると考えられる。

健康茶について5検体の内訳は，平成8年度がウーロン茶3検体，杜仲茶2検体と成分的には1種類のものであったが，平成9年度は緑茶，ウーロン茶，紅茶，杜仲茶などにハトムギ，大麦，玄米，ヨモギ，柿の葉，熊笹アマチャヅルなど多くの種類がブレンドされたものであった。重金属濃度はウーロン茶，杜仲茶単独よりもいずれも低い傾向が見られた。健康茶のみ平成8年度の結果と共通していずれもマンガンが鉄より多く含まれていた。

クロレラは緑藻類，スピルリナは藍藻類に属する藻類で，これらの藻類を培養加工した物であり，水中の溶存成分を生物濃縮という形で高濃度に含有しているものをさらに乾燥錠剤化したものであり，鉄，マンガン，銅，鉛が高濃度に検出された。カドミウムもミネラルウォーター，健康茶に比べて高かった。しかし，これは100g中の濃度であり，錠剤化されたものの1日摂取目安量では測定結果からは，鉄がクロレラで1.9～10.3mg/日，スピルリナが0.36～3.8mg/日であった。医薬品としての鉄剤の含有量はおおむね50～100mg/日であり，最高でも10.3mg/日の摂取量は鉄剤の1/10程度の量である。マンガンはクロレラが0.071～0.874mg/日スピルリナが0.048～0.230mg/日であった。銅は最も含有量の高いもので一日の目安量では0.046mg/日であった。

プルーンエキスは果実のプルーンを濃縮したものであり，クロレラ，スピルリナについで鉄，マンガン，銅，鉛，カドミウムの含有量が高かったが，クロレラやスピルリナに比べると低く，鉄では1/9～1/100程度であった。また，一日量の目安等はなく，おおよその取り込み量についても計算できなかった。

5　ま　と　め

今回調査したすべての試料について重金属や無機元素が検出されたが，その含有量は微量であった。

重金属の一日当たりの摂取必要量は定められてはいないが，アメリカ[2]では亜鉛15mg/日，マンガン2.5～5mg/日，銅2～3mg/日，総クロム0.05～0.2mg/日があり，これらと比較すると，ミネラルウォーター及び健康茶では，双方とも1日当たりの摂取量を1～2lと考えると必要量には満たず，本食品群で1日の必要量を取ることは不可能である。プルーンエキスについても指示はないが余程異常な取り方をしない限り同様と考えられる。クロレラ及びスピルリナでは錠剤として1日当たりの目安が示されておりその範囲では1日の必要量を取ることは不可能である。

重金属の一日あたりの必要量については，食品全体からの摂取量から考慮されるものであり，今回の調査結果からは判断できない。しかし，平成8年度，9年度の調査結果を通してみると，これらの健康食品のみで必要とされる微量重金属を摂取する事はかなり困難と考えられる。

いわゆる「健康食品」と呼ばれる食品については今回調査したもの以外にも多くの種類に分類されており，今後これらの分析を通して，その濃度レベルの把握につとめていきたい。

参 考 文 献

1) 桐元俊武，藤澤明子，甑幹夫：石川保環年報，**34**，192—194（1997）
2) Recommended Dietary Intakes Around the World, Nutrition Abstracts and Reviews in Clinical Nutrition, Series A, **53**, No. 11 (1983), U. S. A.

〔資　料〕

石川県におけるフォールアウト調査結果

（平成９年度）

石川県保健環境センター環境放射線部　玉井　徹・内田賢吾・堀　秀朗
深山敏明・山岸喜信・竹野裕治
泉　善博

キーワード：フォールアウト，環境放射能，空間線量率，全β放射能，核種分析

1　は じ め に

全国放射能監視ネットワークの一員として，我が国におけるフォールアウト等による環境放射能の水準を把握するため，ゲルマニウム半導体検出器を用いての核種分析を中心に放射能レベルを調査した。ここでは平成９年度の科学技術庁委託放射能調査の概要を述べる。

2　調 査 方 法

2・1　調査試料

調査試料は定時採取の降水，大型水盤による降下物（１カ月ごと），陸水，土壌，農畜産物，海産生物，日常食及び空間線量率である。

2・2　測定方法

全ベータ測定は科学技術庁放射能測定法シリーズ「全ベータ放射能測定法」（昭和51年改訂）に基づき，測定器は低バックグラウンド自動測定装置 JDC-163（アロカ製）を使用した。校正線源として，科研製 U308(500 dps）を使用した。核種分析は，科学技術庁放射能測定法シリーズ「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」（平成４年改訂）に基づいて，ゲルマニウム半導体検出器（PGT 製）及び波高分析器（東芝製）並びにデータ処理解析システム（DEC製）により測定した。また，サーベイメータによる空間線量率の測定にはTCS-166型シンチレーションサーベイメータ（アロカ製）を用い，DBM 方式により測定した。モニタリングポストによる空間線量率の測定は，MAR-21型（アロカ製）を使用し，科学技術庁放射能測定法シリーズ「連続モニタによる空間γ線測定法」に基づいて行った。

3　調査結果とまとめ

3・1　降水の全ベータ

表１に示すように調査期間（平成９年３月31日～平成10年３月30日）における降水の定時採取試料数は89であり，そのうち全ベータ放射能が検出されたのは４検体であった。月間降下量の最大値は10月の205.8MBq/km² であった。なお，表１の中で，計数誤差の３倍を下回る値については「N. D」（検出されず）と記した。

3・2　降下物

1ヵ月ごとの降下物中の放射能濃度は，カリウム-40が月当たり0.9～6.8MBq/km² であったが，セシウム-137を始めとする人工放射性核種は検出されなかった（表２）。

年間降水量は 2,461.0mmであり，年間降下量はカリウム-40が31.7MBq/km² で，過去の測定値と同程度であったが，セシウム-137等の人工放射性核種は算定できなかった。なお，表２の中で，計数誤差の３倍を下回る値については「N. D」（検出されず）と記した。

3・3　各種試料

表２に示すように陸水（蛇口水），土壌，精米，農畜産物，海産生物，日常食についてはいずれも異常値は認められなかった。今年度はセシウム-137がフクラギで0.22Bq/kg 生，日常食で0.12Bq/人・日～N. D，土壌で19.3Bq/kg 乾土（０～５cm），20.0Bq/kg 乾土（５～20

Survey Data of Fall-out in Ishikawa Prefecture, from April 1997 to March 1998. *by Tohru TAMAI, Kengo UCHIDA, Syuhroh HORI, Toshiaki MIYAMA, Yoshinobu YAMAGISHI, Yuhji TAKENO and Yoshihiro IZUMI (Environmental Radiation Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)* cm）と検出されたほかは，検出限界未満であった。これらの濃度やカリウム-40濃度は，いずれも過去の測定値と同程度であった。

3・4　牛乳中のヨウ素131

表3に示すように，牛乳中のヨウ素-131はいずれも検出されなかった。なお，表3の中で計数誤差の3倍を下回る値については「N.D」（検出されず）と記した。

3・5　空間線量率

表4に示すように，サーベイメータによる空間線量率は94〜104nGy/hで，年平均値は98nGy/hであった。また，モニタリングポストによる空間線量率は34〜87nGy/hで，年平均値は53nGy/hであった。

これらのデータは，科学技術庁の委託を受けて行った環境放射能水準調査の成果の一部である。

表1　　定時降水試料中の全ベータ放射能測定調査結果

採取年月	＊1 降水量 (mm)	放射能濃度（Bq/l）			月間降下量 (MBq/km^2)
		測定数	最低値	最高値	
平成9年4月	88.5	5		N.D	N.D
5月	129.5	9		N.D	N.D
6月	163.0	5		N.D	N.D
7月	420.0	10		N.D	N.D
8月	105.5	6		N.D	N.D
9月	244.0	7		N.D	N.D
10月	159.5	6	N.D	4.47	205.8
11月	301.0	9		N.D	N.D
12月	260.5	9	N.D	2.88	36.0
平成10年1月	282.0	11	N.D	2.57	75.7
2月	123.0	6		N.D	N.D
3月	184.5	6	N.D	3.43	18.9
年間値	2,461.0	89	N.D	4.47	N.D〜205.8
過去3年間の値			N.D	5.85	N.D〜134

＊1）降下物採取期間の降水量。

表2　　ゲルマニウム半導体検出器による核種分析測定調査結果

試料名		採取場所	採取年月	検体数	^{137}Cs		過去3年間の値		他の人工核種	単位
					最低値	最高値	最低値	最高値		
降下物		金沢市太陽が丘	毎月	12		N.D	N.D	0.21	なし	MBq/km^2
陸水	上水（蛇口水）	金沢市太陽が丘	H 9.6 H 9.12	2		N.D		N.D	なし	Bq/l
土壌	0〜5cm	金沢市末町	H 9.8	1		19.3	36.9	45.1	なし	Bq/kg乾土
						873	1,770	2,190	なし	MBq/km^2
	5〜20cm	金沢市末町	H 9.8	1		20.0	21.6	32.4	なし	Bq/kg乾土
						3,170	3,020	5,700	なし	MBq/km^2
精米		金沢市御供田町	H 9.9	1		N.D		N.D	なし	Bq/kg精米
野菜	大根	金沢市西念町	H 9.11	1		N.D	N.D	0.066	なし	Bq/kg生
	ホウレン草	金沢市西念町	H 9.11	1		N.D	N.D	0.058	なし	
牛乳		羽咋郡押水町	H 9.8 H10.2	2		N.D	N.D	0.17	なし	Bq/l
日常食		金沢市及び 石川郡吉野谷村	H 9.6 H 9.12	4	N.D	0.12	N.D	0.10	なし	Bq/人・日
海産生物	ワカメ	鳳至郡門前町	H 9.4	1		N.D		N.D	なし	Bq/kg生
	サザエ	鳳至郡門前町	H 9.4	1		N.D	N.D	0.06	なし	
	フクラギ	鳳至郡門前町	H 9.10	1		0.22	0.16	0.30	なし	

表3　　牛乳中の^{131}I分析結果

採取場所	羽咋郡押水町						過去3年間の値	
採取年月日	H9. 5.20	H9. 7.17	H9. 9. 4	H9.11. 6	H10. 1.12	H10. 3.24	最低値	最高値
放射能濃度（Bq/l）	N.D	N.D	N.D	N.D	N.D	N.D		N.D

表4　空間放射線測定結果

測定年月	モニタリングポスト (nGy/h)			*1 サーベイメータ (nGy/h)
	最低値	最高値	平均値	
平成9年4月	47	69	52	100
5月	47	68	53	98
6月	48	62	56	98
7月	47	67	51	100
8月	48	62	55	100
9月	47	61	54	94
10月	48	74	56	100
11月	48	87	54	104
12月	44	82	51	96
平成10年1月	34	73	48	96
2月	39	86	52	98
3月	45	73	50	96
年間値	34	87	53	94〜104

*1) 宇宙線寄与分30nGy/h を含む。

〔抄　録〕

妊婦のB型肝炎ウイルス関連マーカー調査成績

—— 石川県の11年間 ——

石川県保健環境センター微生物部　尾　西　一

キーワード：B型肝炎ウイルス，妊婦，キャリアー

厚生の指標，44（5），9—14（1997）

B型肝炎ウイルスの母子感染は，児への持続感染をもたらし，その後に肝炎などを惹き起こすとして，その危険性が過去に多く指摘された。しかしながら昭和61年から始まった国のB型肝炎母子感染防止対策事業の実施によって，母子感染の阻止について，大きな成果が得られている。

石川県では全国に先駆けて昭和56（1981）年度より，関係医療機関等の協力を得て，母子感染防止対策事業を進めてきた。その中では，母子感染阻止を目的とした抗HBsヒト免疫グロブリン及びB型肝炎ワクチンの接種対象者を検索するために，多くの妊婦について，血清HBs，及びHBeの抗原と抗体の検査を実施してきた。

そこで今回はその成績を，石川県の事業が本格実施された昭和59（1984）年度から平成6（1994）年度までの11年間について調査，検討し以下の結果を得たので報告する。

1　HBs抗原，抗体

1984年度から1994年度までの11年間に62,407人の妊婦のHBs抗原，HBs抗体陽性率を調査した。

HBs抗原陽性率は1.1%で，年度別では1984年度の1.4%から徐々に低下し，1994年度は0.8%となった。また保健所別では小松保健所1.2%，津幡保健所1.4%，七尾保健所0.9%，輪島保健所1.2%であった。

HBs抗体陽性率は9.7%であったが，年度別では6.7～10.8%で年度による低下傾向はみられなかった。保健所別では小松保健所10.4%，津幡保健9.2%，七尾保健所7.7%，輪島保健所9.4%であった。

2　HBe抗原，抗体

HBs抗原陽性者719人についてHBe抗原，HBe抗体の陽性率を検査年度別，保健所別，年齢階層別，生年階層別に検討し以下の結果を得た。

2・1　HBe抗原陽性率

HBe抗原陽性率は11年間で27.4%であった。検査年度別では1994年度が最低で14.5%，1991年度が最高で38.9%であった。保健所別では小松保健所25.3%，津幡保健所39.1%，七尾保健所29.6%，輪島保健所27.2%であった。年齢階層別では20歳以下では45.8%，21～25歳36.2%，26～30歳27.4%，31～35歳16.8%，36～40歳16.1%，41歳以上では0%で，加齢と共に低下した。同様に生年との関係でも生年が後になる程HBe抗原陽性者の比率は高かった。

またHBe抗原陽性者群の平均年齢は26.38歳であった。

2・2　HBe抗体陽性率

HBe抗体陽性率は11年間平均で69.8%であった。検査年度別ではHBe抗原とは逆に1994年度が最も高く78.2%，1991年度が最低で61.1%であった。保健所別では小松保健所71.7%，津幡保健所57.8%，七尾保健所69.6%，輪島保健所69.1%であった。

また年齢階層別では，20歳以下で54.2%，21～25歳62.2%，26～30歳67.8%，31～35歳82.5%，36～40歳80.6%，41歳以上では100%でHBe抗原とは逆に加齢と共に陽性率は上昇した。生年との関係でも生年が後になる程HBe抗体陽性者の比率は低下した。

またHBe抗体陽性者群の平均年齢は抗原陽性者群よりも1.96歳高い28.34歳で，HBe抗原のセロコンバージョンと年齢との関係を示唆するものであった。

石川県保健環境センター研究報告書投稿規定

石川県保健環境センター（以下「センター」という。）研究報告書の投稿規定を次のとおり定める。

1　編　　集

センター研究報告書の編集は，年報等編集委員会（以下「編集委員会」という。）が行う。

2　編集委員会構成

編集委員会は所長を委員長とし，次長，部長及び室長を委員とする。

3　投稿者の規定

投稿者は原則としてセンター職員とする。

4　報告書の内容

センター職員が行った調査研究で，印刷物として未発表のものとする。ただし，抄録についてはこの限りではない。

5　報告の種類

報告は，総説，報文，資料，短報及び抄録の5種類とする。

(1)　総　　説

複数年にわたる連続した研究報告を総合的にまとめたもの，複数の部門で行われた研究報告を総合的にまとめたものまたはひとつの主題に関する内外の研究報告を総括的にまとめたもののいずれかで，形式は自由とし，英文タイトルを付記する。

(2)　報　　文

新知見を含むまとまった研究報告で，形式はおおむね，はじめに，材料と方法，成績，考察，まとめ，謝辞，付記及び文献の順とし，英文タイトルを付記する。

(3)　資　　料

既知の方法による調査，試験検査の結果又は統計等をまとめたもので，形式は報文に準じ，英文タイトルを付記する。

(4)　短　　報

断片的な研究であっても，新しい事実で価値のあるデータを含む報告で，形式は報文に準ずるが見出しはつけない。

(5)　抄　　録

当該年度に他誌に掲載された論文の抄録で，表題名，著者名，所属名，掲載誌名，巻（号)，始ページ―終ページ，発行年及び紹介文の順に掲載する。

6　投　　稿

本誌に原稿の投稿を希望する者は，その原稿を本投稿規定ならびに「研究報告書原稿執筆要領」に従って作成しなければならない。

投稿原稿の長さは，原則として表1に示すページ数（図，表などを含む刷り上がりページ数）以内とする。ただし，編集委員会が認めた場合は，この限りではない。

表1　　原稿の最大ページ数

原稿の種類	総　説	報　文	資　料	短　報	抄　録
ページ数	12	8	6	3	1

7　原稿の提出及び審査

原稿は所属部長又は室長の校閲を経て，編集委員会に提出する。

提出された原稿は，編集委員会において審議のうえ採否，掲載区分及び掲載順序を決定する。

原稿の審査及び表現，用語等の統一化は編集委員会で行い，必要な場合には投稿者に内容の変更，表現の統一化

のための作業あるいは内容の確認などを求めることがある。

8　校　　正

初校は著者校とし，誤植の訂正に止め，内容の変更をしてはならない。

9　そ の 他

その他必要な事項は編集委員会で協議する。

この投稿規定は，昭和54年4月1日から適用する。

昭和57年4月1日一部改正
昭和62年7月1日一部改正
平成6年6月1日一部改正
平成10年7月2日一部改正

石川県保健環境センター研究報告書原稿執筆要領

研究報告書投稿規定第６項に基づく原稿執筆要領を，次のとおり定める。

〔原稿の執筆〕

原稿はＡ４判でワープロによる左横書き（25字×46行，左詰め，２ページで仕上がり１ページに相当）とする。

なお，手書きの場合はＡ４判で左横書き（25字×23行，４ページで仕上がり１ページに相当）とするが，できるだけワープロによることが望ましい。

〔文　体〕

1　原稿は原則として新仮名遣い，新送り仮名，平仮名混じり国語文とし，簡潔で理解し易い表現にする。止むを得ぬ学術用語，地名，人名などのほかは常用漢字を用いる。

2　欧文はタイプ印字若しくは明瞭なブロック体とする。

〔表　題〕

3　表題はなるべく短くまとめ，本文とは別の用紙に書く。続報の場合は必ず副題を付ける。

4　表題又は副題の下に１行あけて所属名（部室まで）と著者名を連記する。

5　総説，報文，資料には英文の表題，副題，著者名及び所属名を和文の下へ１行あけてタイプ印字する。

6　総説，報文，資料，短報及び抄録には，報告の内容を的確に示す３～５語のキーワードを付記する。

7　報告の一部若しくは全部を学会等に発表した場合には，最下段に発表学会名，発表年月日及び開催地名を明記する。

〔本　文〕

8　本文は表題とは別の用紙に新しく書き出す。

9　本文の構成はおおむね　1　はじめに，2　材料と方法，3　成績，4　考察，5　まとめ　の順とし，１行あけて謝辞及び付記を記載する。文献は別の用紙に書き出す。ただし，総説の形式はこれらにとらわれず自由とする。

10　項目を細別するときの見出し符号は，次の順序で用いる。

1 ―― 1・1 ―― (1) ―― ア ―― (ア)
2 　　 1・2 　　 (2) 　　 イ 　　 (イ)
3 　　 1・3 　　 (3) 　　 ウ 　　 (ウ)

ただし，考察とまとめはポイントシステムをとらず，(1)，(2)，(3)　とする。

11　ポイントシステムとその見出しはゴシック体とする。短報は見出しを付けない。

12　文の書き出しは１字あける。行を改めるときも同じ。

13　句読点は「，」及び「。」，かっこは「（　）」を用いることとし，それぞれ１字に数える。ただし，句読点が行の頭に出る場合は，前の行の右欄外に書く。

14　数字は成語となっているもの以外はアラビア数字を用い，１こま２字とする。小数点，コンマ等の記号も数字に準じて記載する。

15　数量の単位は原則としてメートル法により，慣用されている記号，略号を用いる。

16　物質名，術語等で慣用されているものはそれに従う。物質名には化学式を用いない。

17　生物名（和名）はカタカナ書きとし，その学名はイタリック体とする。

18　外国語の地名，人名は原則として欧語を用いる。

19　本文中の人名は姓のみとする。なお，人名が複数の場合は列記しないで，最初の人名のあとに「ら」を付け，年号は原則として省く。

20　用語を略記するときは，最初に必ず正式な名称を共に示す。

〔書体の指定〕

21　印刷時の書体を原稿中で指定するときは，ゴシック体は必要ある文字の下に 〰〰 線を，イタリック体は ―――― 線を，スモールキャピタル体は ＝＝＝＝ 線をそれぞれ朱書する。

〔表と図〕

22　表と図は重複を避け，本文の論旨展開に必要最小限なものに留める。これ以外の基礎資料となる表や図は，著者の責任において適当な媒体で保管することとし，研究報告書には掲載又は添付をしない。

23　表や図は，本文とは別に１つごとにＡ４判の用紙に書き，番号と表題を付ける。

24　番号と表題は，表では表の上部に，図では図の下部に表示し，説明，注釈は表や図の下部に記載する。

25　番号，表題，説明及び注釈は和文，欧文のいずれでもよいが，欧文の場合は本文での引用にも欧文の番号を用いる。

26　表や図に用いる文字は書体を指定することができる。

27　表や図の本文中への挿入位置は，原稿用紙の右欄外に「←表１」,「←図１」のように朱書する。

28　表や図は原則として，その幅を刷り上り８cm（半ページ幅）又は16.6cm（全ページ幅）とするが，特に大きさを指定したいときは，表や図の原稿の右下に刷り上りの大きさを朱書する。

29　表の周囲は枠で囲まないのを原則とし，縦，横の罫は差し支えのない限り省く。

30　チャートや写真はなるべく用いない。

〔引用文献〕

31　文献は本文の引用個所の右肩に[1)]，[2)3)]，[4)-6)]のように記載し，本文とは別の用紙に一括して引用番号順に１文献ごとに行を改めて記載する。

32　文献の略名は，邦文誌は日本自然科学学術雑誌総覧，欧文誌は，Chemical Abstract 及び Cumurative Indexed Medicus に従って記載する。上記に指示のないものは，原則として略名を用いない。

33　雑誌の場合は，著者名：雑誌名，巻（ゴシック体で記載）（号），始ページ—終ページ（発行年）の順に記載する。

34　単行本の場合は，著者名：書名，版（編者名），p 始ページ—終ページ，発行所名，発行地（発行年）の順に記載する。

35　著者名は姓名を記載する。欧文名はファミリーネームを先にすべて大文字で記載し，ファーストネームは頭文字のみを大文字とする。(例：PAULING, Linus C., DING Yunchung)

36　共著の場合は，原則として全員の姓名を記載する。

37　巻数は，ゴシック体にする。
通巻ページのあるものは，号を省略する。
ページは原則として通巻ページを記載する。

38　重版又は改訂版のない単行本は版の記載を省略する。単行本の全内容を総括的に引用した場合は，ページの記載を省略する。

〔謝辞と付記〕

39　謝辞は本文の最後に１行の余白をあけて書き出す。見出しは付けない。

40　付記は謝辞に引続き行を改めて記載する。見出しは付けない。

石川県保健環境センター研究報告書（第35号）

平 成 11 年 3 月 発 行

金沢市太陽が丘１丁目11番地（〒920-1154）
発 行 所　石川県保健環境センター
☎（076）229－2011

金沢市浅野本町ロ141（〒920-0841）
印 刷 所　徳 野 印 刷 株 式 会 社
☎（076）251－5511