

5. ケイ光灯破損時における環境中への水銀の放出について

理化学課 衛生化学係
椿 美代子

水銀の物理・化学的性質を利用して種々な製品が考案され、我々の暮らしの中にも利用されている。二・三の例をあげると、体温計・温度計・印肉・水銀電池・気圧計がある。また、水銀の気化しやすく、効率のよい放電の性質は螢光灯に応用され、わが国における螢光灯に封入される水銀量は、年間3 t程度といわれている¹⁾。螢光灯に封入された水銀は、家庭においては閉鎖型であるが、破損により開放型となるし、また廃棄物焼却場において開放され、環境へ分散される。そこで、螢光灯破損時に飛散する水銀蒸気量の測定法について検討し、また、家庭で繁用される20W管の螢光灯に封入されている水銀量を測定した。

I 実験方法及び結果

1. 試薬

- 1) 過マンガン酸カリウム／硫酸液(0.5%／1N)
1%過マンガン酸カリウム水溶液と、2N硫酸水溶液を用時等量混合し、水銀の捕集溶媒とする。
- 2) 塩酸ヒドロキシルアミン液 特級塩酸ヒドロキシリジン20gをとり、水を加えて100mlとする。
- 3) 塩化第一スズ液 特級塩化第一スズ($\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$)10gに硫酸(1→20)を加えて溶かし、100mlとする。用時調整する。
- 4) 水銀標準液 塩化第二水銀0.135gに精密分析用硝酸(1.05→100)10mlおよび水を加えて1000mlとし、100 $\mu\text{g Hg}^{2+}/\text{ml}$ を作り、用時希釈して調整する。
- 5) 硫酸 片山化学精密分析用

2. 装置 器具

- 1) 水銀分析計：島津水銀分析計UV-201
- 2) 吸収管：ガラス製、容量250mlの吸収ビン2本

3) 接続管：軟質塩化ビニル管

3. 予備実験一ポリバケツ内での螢光灯破損実験

室内で螢光灯を破損した場合と近い条件を設定するため、バケツ内で螢光灯を破損してみた。使用したバケツは、ポリエチレン製で容積50lのものである。水銀捕集装置の概略を図1に示す。しかし、密封したバケツ内で螢光灯を破損するのは難しく、またバケツの壁に吸着される水銀が多く、飛散した水銀を捕集するには定量誤差を生じる。さらに、バケツ内を密封することは困難である。このため、水銀吸着の少ない軟質塩化ビニル管内で破損する次の方針により、飛散した水銀蒸気量及び螢光灯に封入された総水銀量を測定した。

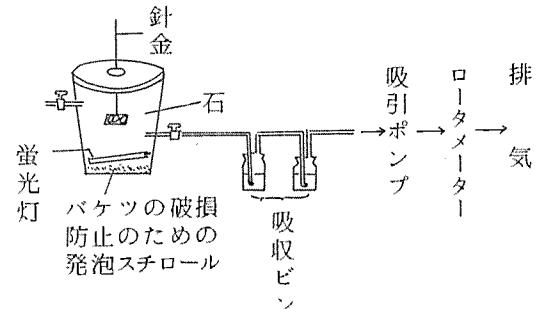


図1. バケツ内で破損した螢光灯の水銀蒸気捕集装置

4. 螢光灯破損により飛散する水銀蒸気量

4-1 融光灯(日立サンラインG, 20W, 直管型)を軟質塩化ビニル管(内径4.5cm, 外径5.1cm, 長さ80cm)内に密封し、塩化ビニル管上を強打することにより融光灯を割る。融光灯内が真空なので、融光灯が破壊されると、塩化ビニル管内が低圧になるので、外圧に等しくなるまで空気を入れる。吸収ビン2本に過マンガ

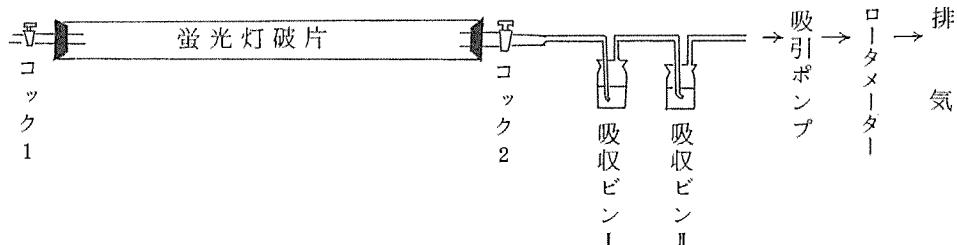


図2. 塩ビ管内で破損した螢光灯の水銀蒸気捕集装置

ン酸カリウム／硫酸液を各 100 ml入れ、図 2 に示すように装置し、コック 1を開き、流速 1 l/minで 30 分吸引する。吸収ビンを変え、続いて 30 分吸引する。これを繰り返し 150 l吸引する。検液の過剰の過マンガン酸カリウムを 20% 塩酸ヒドロキシルアミン液で分解し、その適量をとり、10% 塩化第一スズ液 5 mlを添加し、還元化原子吸光法により定量する。その結果は表 1 のとおりである。

蛍光灯破損後 1 時間以内では、捕集された水銀蒸気量は多いが、初期の吸入では微粉末が吸収され高値になつたものと思われる。上記の方法のように新しい空気を送ると、水銀の気化がおこることがわかる。蛍光灯破損時の塩化ビニル管内の水銀蒸気を定量するには、次の 4-2 の方法が良い。

表 1 空気を送りながら 30 l 每に吸引した時の捕集水銀蒸気量

捕集時間	吸収ビン I の水銀量	吸収ビン II の水銀量	吸収ビン I + II の水銀量
0 - 30 min	247 μg	0.8 μg	248 μg
30 - 60	230	0.8	231
60 - 90	159	2.2	161
90 - 120	151	1.7	153
120 - 150	144	0.4	144

4-2 4-1 と同様にして蛍光灯(日立サンライン G, 20 W, 直管型)を塩化ビニル管内で破損し、図 2 のように装置を組み、コック 1を閉じて、流速 1 l/min で 30 秒吸引する。測定時の室温は 20 °C で、破損して 5 分後に吸引した。塩化ビニル管内に存在する水銀蒸気は、吸収ビンに捕集された水銀量に 1.27 l / 0.5 l を乗することにより求められる。ここで 1.27 l とは内径 4.5 cm, 長さ 80 cm の塩化ビニル管の容積である。結果は表 2 に示す。塩化ビニル管に存在する水銀蒸気は、20 °Cにおいて 6 回測定の平均値で 9.70 μg であった。

一方、理想気体の状態方程式 $PV = nRT$ より求めた塩化ビニル管内に存在する平衡状態における水銀蒸気量は、20 °Cにおいて、16.9 μg, 18 °C で 14.2 μg, 22 °C で 19.8 μg である。但し、 $P = (\text{各温度における水銀の蒸気圧}) \text{ atm}$, $V = 1.27 l$,

$$R = 0.082 l \cdot \text{atm} / \text{deg} \cdot \text{mole}$$

蛍光灯破損後塩化ビニル管内に存在する水銀蒸気は、実測値で 9.70 ± 0.98 μg となり、計算値の 5.7% となつた。この値の差の原因として、第一に蛍光灯破損後 5 分以内に、塩化ビニル管において水銀蒸気が液体と平衡に

達しているかどうかを考えねばならない。次に考えられる原因として、 $PV = nRT$ の関係式が実在気体の挙動を表わすのに充分なものであるかという点である。しかし、本実験の結果から物理現象の説明としては、かなり良好な近似式であることがいえる。

表 2 空気を送らず 0.5 l 吸引した時の水銀蒸気量

No.	捕集水銀蒸気量	塩ビ管内の水銀蒸気量
1	3.36 μg	8.53 μg
2	4.24	10.4
3	4.34	11.0
4	3.82	9.70
5	3.93	9.98
6	3.89	8.61
X 平均 値		9.70
C V (%) 变動係数		10.1

5. 蛍光灯の総水銀量

蛍光灯に封入されている水銀量を、20 W直管型について測定した。用いた試料は、日立サンライン G 白色 N L とナショナルハイライト白色 N L である。

蛍光灯を軟質塩化ビニル管に封入し、破壊した後、塩化ビニル管を外圧と等しくし、過マンガン酸カリウム／硫酸液 800 mlを入れ、一夜浸漬する。ろ過後、ろ液の過剰の過マンガン酸カリウムを 20% 塩酸ヒドロキシルアミン液で分解し、水で 1 l とする。この適量をとり、10% 塩化第一スズ液 5 mlを添加し、還元化原子吸光法で測定する(検液 I とする)。ろ過残渣を過マンガン酸カリウム／硫酸液 800 ml で一夜浸漬し、以下同様にして水銀を測定する(検液 II)。ろ過残渣の捕集溶媒への浸漬は 2 回行った。2 回目の残渣の浸漬液を検液 III とする。

4 回測定における結果は、日立サンライン G で 3.5 ± 6.3 mg, ナショナルハイライトで 2.6 ± 7.8 mg であった(表 3, 表 4)。

表 3 蛍光灯の総水銀量(試料: 日立サンライン G)

No.	検液の水銀量			
	I	II	III	I + II + III
1	29.4 mg	1.8 mg	0.7 mg	32 mg
2	23.7	3.4	1.4	29
3	29.9	10.9	1.0	42
4	33.4	1.5	0.2	35

表4 蛍光灯の総水銀量(試料:ナショナルハイライト)

No.	検液の水銀量			
	I	II	III	I+II+III
1	22.7mg	0.7mg	0.1mg	24mg
2	15.3	1.1	0.5	17
3	28.3	4.2	0.6	33
4	27.1	2.5	0.3	30

II 考察

水銀による環境汚染を契機として、魚貝類・河川・底質・工場排水等の水銀について、多くの調査研究がなされている。しかし、生活用品の水銀に関しては報告をみない。蛍光灯は室内あるいは廃棄物焼却場での破損により、環境中へ水銀が分散される。一般に環境大気中の水銀は、90%以上がガス状で存在している²⁾といわれ、紫外線照射による水銀蒸気とアルキル基供与体からのメチル水銀の生成についての報告³⁾もあり、気相中における水銀の挙動が注目されている。このため、蛍光灯破損により飛散する水銀蒸気の測定法について検討した。

室内で蛍光灯を割り、飛散した水銀蒸気をすべて捕集することは困難なため、軟質塩化ビニル管で閉鎖系を作り、その中に飛散した水銀量を測定した。捕集法は、大気中の水銀捕集法の一法である硫酸酸性過マンガン酸カリウム溶液に水銀を溶解吸着させる湿式法⁴⁾により行った。蛍光灯破損により飛散した水銀蒸気量は、20℃において $PV=nRT$ の関係式より求められた計算値の57%であった。

20W管の蛍光灯に封入されている総水銀量の測定は、硫酸酸性過マンガン酸カリウム溶液に蛍光灯破片を浸漬させて行った。喜田村ら¹⁾によれば、20W管で約20mgの水銀を含むと述べているが、2社の蛍光灯を測定した結果は、4回測定の平均では日立製のもので35mg、ナショナル製で26mgであった。

以上の結果より、蛍光灯に封入された水銀は、使用しない時は大部分が金属水銀として存在しているが、使用

(点灯)時にはかなりの水銀が蒸気として存在すると推定される。($PV=nRT$ 式より、容積 0.5 l の 20W 管では、100℃で 1.2mg、80℃で 0.41mg が水銀蒸気として存在する。)

ところで、 $PV=nRT$ 式より 20℃の飽和状態では 1.32 mg/m^3 の水銀蒸気が存在することになる。もし、広さ 6 億、高さ 3 m の部屋(約 26 m^3)において、30mg の水銀が封入された蛍光灯を割ったと想定すると、10% 気化したとしても水銀濃度は $3 \text{ mg}/27 \text{ m}^3=0.11 \text{ mg/m}^3$ となる。ところで、職場内の有害物質発生源位置での濃度は、特定化学物質障害予防規則で水銀は 0.1 mg/m^3 と定められ、また、日本産業衛生学会の「職場環境気中の有害物の許容濃度の勧告」では 0.05 mg/m^3 である。これらの値と比較すれば、先の値はかなり高いことがわかる。

III 結論

蛍光灯破損時に飛散する水銀蒸気量の測定法を検討した結果、硫酸酸性過マンガン酸カリウム溶液を捕集溶媒とすれば、閉鎖系(本実験では軟質塩化ビニル管)ではほぼ完全な捕集が可能であった。また、20W直管型の蛍光灯に封入されている総水銀量を2社の製品について調べた結果は、4回測定の平均で35mgと26mgであった。公衆衛生学的見地からいえば、室内で破損した蛍光灯は速やかに集め、密封して室内から除去すべきである。

文献

- 1) 喜田村正次、他：水銀、33、講談社、1976
- 2) 藤井正美：気圧における水銀、日公衛誌、23(9) 501~508、1976
- 3) 龍沢行雄、他：人間環境における水銀の挙動に関する研究Ⅰ、気相中における光化学メチル化反応、日公衛誌、23(9)、535~538、1976
- 4) 藤井正美、他：湿式捕集法による空気中水銀分析法に関する研究、日公衛誌、23(7)、421~424、1976

6. 「有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律」の規制対象外製品におけるホルムアルデヒドについて

理化学課 衛生化学係
橋 美代子
環境衛生課 環境係
相川 充夫

織維の樹脂加工に起因する遊離ホルムアルデヒドは、抗原性が高く、皮膚障害の原因物質の一つとして重視されている。昭和48年10月12日に公布された「有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律」では、織維製品として、下着・寝衣・手袋・くつ下・たび・おしめ・おしめカバー・よだれ掛け及び出生後24月以内の乳幼児用の中衣・外套・帽子・寝具が規制の対象となっている。しかし、規制対象外織維製品の中には、ワイシャツのように衿部分等が身体に直接かつ長時間接触するので、接触アレルギーを起こす可能性があるので、これらのものについて遊離ホルムアルデヒドを測定した。更にワイシャツ(法規制対象外)から乳幼児用織維製品への接触移染について調べたので、報告する。

I 実験方法

1. 規制対象外製品の遊離ホルムアルデヒド
福岡市内で購入したワイシャツ30点、スカート20点、帽子10点を厚生省令第34号「有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律施行規則」に従い、アセチルアセトン法で定量した。

2. ワイシャツから乳幼児用織維製品への接触移染
移染源：ワイシャツ ポリエステル：綿(65:35)
遊離ホルムアルデヒド濃度14.2 ppm

被移染布：乳幼児用毛布 毛100%
乳幼児用タオルケット 綿100%

移染源6.0 gの間に、ホルムアルデヒドを含まない被移染布6.0 gをはさみ、ポリエチレンの袋に入れ密封し、室温で放置する。1, 2, 7, 14, 21日目に各2.5 gを切りとり、アセチルアセトン法により遊離ホルムアルデヒド濃度を測定した。

II 結果及び考察

1. ワイシャツの遊離ホルムアルデヒド
30検体について、衿(衿表面/芯地面積比=2/1)、芯地を除いた衿、身頃、袖の4部位におけるホルムアルデヒド含量を測定した。いずれの検体もポリエチレンフィルムで包装されていた。各部位における平均ホルムアルデヒド含量は、衿114 ppm、芯地を除いた衿88 ppm、身頃80 ppm、袖76 ppmとなり、いずれの部位も75 ppmを超えていた(表1)。この75 ppmというのは乳幼児用以外の織維製品と、かつら、つけまつげ、つけひげ、くつ下止めに使用される接着剤に対する規制値である。芯地のホルムアルデヒド量は、他の部位よりも高濃度に含まれる傾向があった。衿(芯地を除く)と身頃では、衿の方が有意に高いことが認められた(有意水準1

表1 規制対象外製品の遊離ホルムアルデヒド濃度

品目	件数	採取部位	検査結果		
			検出件数注2)	範囲	平均値
ワイシャツ	30	身頃	30	29—154 ppm	80 ppm
		衿注1)	30	36—206	114
		衿(芯地を除く)	30	36—169	88
		袖	30	22—146	76
スカート	20	裏地	12	14—149	66
		表地	16	5—271	65
帽子	10	クラウンとブリムの境	7	8—32	18

注1) $\frac{\text{衿の表面}}{\text{衿の芯地}} \text{面積比} = \frac{2}{1}$

注2) 検出限界 5 ppm

%)。また、身頃と袖でも、身頃のホルムアルデヒド含量が有意に高いことが認められた。

2 スカートの遊離ホルムアルデヒド

20検体については身体に接触する裏地について検査し、参考に表地も検査した。市販スカートの裏地成分の大部分はレーヨン、ナイロン、ポリエステルであり、実際に防しづわ、防縮の目的でホルムアルデヒド加工が考えられるのは、レーヨンとナイロンであるため、裏地がレーヨンのものとナイロンのものについて各々10検体を検査した。いずれも無包装で販売されているため、移染を考慮しなければならない。

結果は表1、表2のとおりである。裏地については、レーヨンのもので最高149 ppm、ナイロンでは最高50 ppmであり、ナイロンよりレーヨンが高濃度に含まれていた。表地は最高271 ppmで、成分が毛のものはホルムアルデヒド量がやや高い傾向にある。しかし、毛は特に移染され易いため、ホルムアルデヒド加工されたものか、それとも移染によるものかは不明である。

表2 スカートの遊離ホルムアルデヒド濃度

裏 地		表 地	
成 分	HCHO	成 分	HCHO
R 1	149 ppm	R	271 ppm
2	75	W	137
3	47	W	111
4	86	W, N(95:5)	54
5	62	P, R(80:20)	18
6	66	P, R(80:20)	14
7	94	P	ND
8	47	P	ND
9	ND	P	ND
10	81	A	ND
<hr/>			
N 1	50	P, R(65:35)	92
2	ND	W	113
3	ND	W	58
4	ND	W	51
5	ND	W	43
6	ND	W, N(90:10)	43
7	14	A, W(70:30)	18
8	ND	A, W(70:30)	25
9	17	P	5
10	ND	P	7

R: rayon, N: nylon, W: wool

P: polylster, A: acryl

3 帽子の遊離ホルムアルデヒド

10検体について、身体に直接接する部分を採取した。いずれも無包装で販売されていたが、最高3.2 ppmと低値であった。参考に5 ppm以下の2検体について、身体には直接接しないひさしの部分を検査した結果、4.8 ppmと8.0 ppmのホルムアルデヒドが検出された。

4 ワイシャツから乳幼児用繊維製品への接触移染

ホルムアルデヒドは移染され易いため、家庭での衣類の保管状況における規制対象外繊維製品から乳幼児用繊維製品への接触移染が考えられる。このため、移染源であるワイシャツと被移染布の乳幼児用製品を一つのポリエチレン袋に密封し、移染の経日変化を調べた(図1、図2)。ホルムアルデヒドを含まない乳幼児用繊維製品をワイシャツと接触させると、容易に移染され、接触1日目で、乳幼児用繊維製品に対する基準値($A - A_0 = 0.05$ 、約1.5 ppm)を大巾に上まわった。特に繊維の水分率の大きいといわれる毛布で、移染率が高いことがわかった。

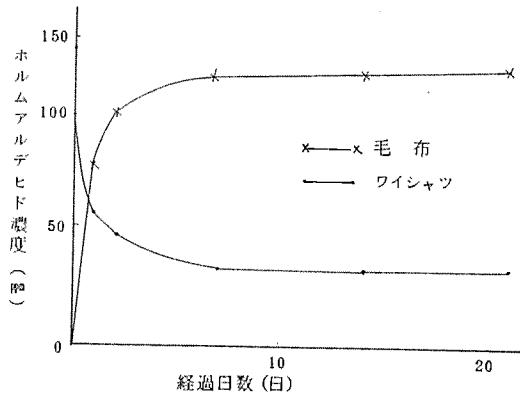


図1. ワイシャツから毛布への移染

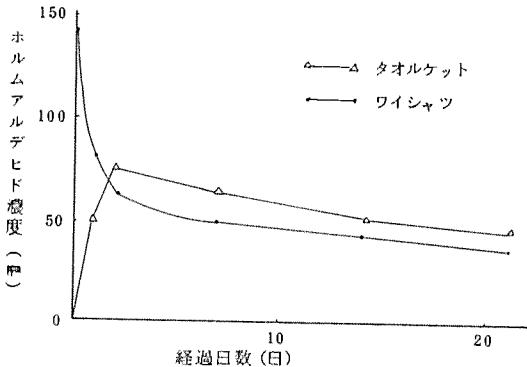


図2. ワイシャツからタオルケットへの移染

III 要 約

「有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律」の規制対象外となっているワイシャツ・スカート・帽子 60 検体について遊離ホルムアルデヒド含量を検査し、次の結果を得た。

- 1) ワイシャツ 30 検体の部位毎の平均含量は、衿、身頃、袖のいずれも 7.5 ppm を超えていた。
- 2) スカート 20 検体中 7.5 ppm を超えたのは、裏地で 4 検体、表地で 5 検体だった。
- 3) 帽子 10 検体では、身体に直接接する部位における最高含量は 3.2 ppm であり、低値であった。

以上のことから、規制対象外であるワイシャツは特に、

身体に接する時間が長いうえ、含まれるホルムアルデヒド量も多いので、下着と同様な規制が必要だと思われる。

また、規制対象外繊維製品から乳幼児用繊維製品への接触移染はかなり大きいので、家庭での保管には注意を要し、特に洗たく前の規制対象外製品を乳幼児用製品と一緒に保管することは、避けることが必要である。

文 献

- 1) 有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律（昭和 48 年 10 月 12 日法律第 112 号）
- 2) 有害物質を含有する家庭用品の規制に関する法律施行規則（昭和 49 年 9 月 26 日厚生省令第 34 号）

7. ばっ気式し尿浄化槽における分離型と全ばっき型の放流水質の比較について

理化学課 衛生化学係

山田 良治・藤本 和司

近藤 久幸・金堂 和生

南保健所 環境係

戸田 幸一・武田 昭

待井 淳一・信国志 治朗

村田 建夫・藤 弘

I はじめに

都市への人口集中により、河川等の水質汚濁が大きな問題となっている。本市においても生活系排水系河川の有機汚濁の大きな部分を占め、その生活系排水の中でし尿浄化槽がかなりのウェイトを持っている。本市におけるし尿浄化槽の設置数¹⁾は、昭和52年3月で約13400基に達しており、そのうちばっき型浄化槽は約6500基である。そこで今回ばっき型浄化槽を分離ばっき型と全ばっき型のものにわけ、その放流水質の比較検討を行なったので報告する。

II 実験方法

1) 試 料

共同住宅に設置されたし尿浄化槽で、大きさは15～150人槽のものであって、調査基数は分離ばっき型35基、全ばっき型24基であり、いずれも維持管理業者にメンテナンスを委託しているものである。試料採取時間は午前10～12：00で消毒前の放流水を試料とした。調査期間は、昭和53年1月から3月である。

2) 調査項目及び分析方法

(1)外観、(2)水温、(3)pH、(4)透視度、(5)塩素イオン、(6)浮遊物質、(7)BOD、(8)TOC、(9)TOD、(10)NH₄-N、(11)NO₂-N、(12)NO₃-N、(13)O-N、(14)T-N、(15)O-P、(16)PO₄-P、(17)T-P

測定方法は、下水試験方法及びJISK0102に準じて行なった。TOC、TODについては検体を超音波破壊後測定した。

3) 測定機器

TOC：東芝ベックマンModel102型

TOD：湯浅アイオニクス社製225型

P, N：テクニコン社製オートアナライザーⅡ型

III 結 果

放流水の調査結果を型別にわけ表1に示した。

(1) 外観

分離ばっき型、全ばっき型とも淡黄色から濃褐色であり、濃褐色のものがBOD値が高い傾向にあった。

(2) 水温

水温は両型式とも平均11.6℃であった。

(3) pH

分離ばっき型で平均7.1、全ばっき型で6.8であり、分離ばっき型のはうが若干高い傾向であった。

(4) 透視度

分離ばっき型で平均9.0、全ばっき型では平均3.5であり、明らかに有意差が認められた。

(5) 塩素イオン濃度

分離ばっき型では平均127ppm、全ばっき型では、112ppmであり、希釈倍率はし尿中の塩素イオン濃度を5500ppmと仮定するとはば50倍であった。

(6) 浮遊物質 (SS)

分離ばっき型では平均73ppm、全ばっき型では、平均163ppmで両型の間には、明らかな有意差が認められた。

(7) BOD

分離ばっき型では平均65ppm、全ばっき型では、平均127ppmで、両型の間には有意差が認められた。この平均値は対数相加平均値であり、図1は対数変換した中央値及び標準偏差から作った型別BOD値の分布の横式図を標準化してあらわしたものである。これによると分離ばっき型の35%、全ばっき型の67%が90ppm以上であった。

(8) TOC, TOD

分離ばっき型ではそれぞれ平均52ppm、340ppmであり、全ばっき型ではそれぞれ平均108ppm 490

ppmであり両型の間には有意差が認められた。

(9) NH₄-N, NO₂-N, NO₃-N, O-N, T-N
分離ばっき型では平均9.5, 1.5, 2.0, 1.6, 1.46
ppmであり、全ばっき型では平均8.2, 1.4, 1.6, 2.2,
1.33 ppmであり、有意差は認められなかった。

(10) O-P, PO₄-P, T-P
分離ばっき型では平均、1.3, 1.3.6, 1.5 ppmであ
り、全ばっき型では平均2.1, 1.2.7, 1.4.8 ppmであ
り、有意差は認められなかった。

(11) BOD除去率

し尿中のCl⁻ 5500 ppm, BOD 13500 ppmと仮定すると表2に示すように、BOD除去率は分離ばっ
き型で約6.7%, 全ばっき型で約4.4%であった。

(12) T-N, T-Pの除去率

し尿中のT-Nを7000 ppmと仮定すると、分離ばっ
き型、全ばっき型とも除去率はマイナスとなり除去でき
ていなかった。又T-Pを1100 ppmと仮定したとき、
分離ばっき型の除去率は3.5%，全ばっき型の除去率は
2.9%であった。

IV ま と め

全ばっき型浄化槽は分離ばっき型浄化槽にくらべ、同
様の維持管理を行なっても、有機炭素の除去において不
利であり、放流水のBOD値が高い傾向があった。これ
は図2に示すように、分離ばっき型ではばっ室の前に
沈殿分離タンクを設け固形物を除去しているためと思わ
れ、全ばっき型では構造的に問題があるようと思われる。
又N, Pについては両型とも除去率は悪く、大きな差は
なかった。今後河川等の富栄養化に對して、何らかの対
策をたてる必要があるようと思われた。今回は1~3月
の水温の低い時期の調査であり、水温の高い時期に再度
調査を行いたいと思う。

参 考 文 献

- (1) 「下水試験方法(1974年度版)」日本下水道協会
(1974)
- (2) 野中徹一, 鈴生昭一「下水, し尿の分析」講談社
(1973)
- (3) 洞沢勇「排水の生物学的処理」技報堂 1976
- (4) JIS K0102 日本規格協会 1971
- (5) 藤本和司「河川水の保存条件に関する一考察」
福岡市衛生試験所報2 91-99 1976
- (6) 荒木峻, 高橋昭「水質汚濁の自動分析」129-153

1976

表1. 分離ばっき型浄化槽と全ばっき型浄化槽との比較

PH	7.4 6.8
透視度	9.0 3.5
Cl ⁻	127 112
BOD	65 127
TOC	52 108
TOD	840 490
SS	73 168
T-N	159 127
T-P	15.5 14.1
	分離ばっき(n=35) 全ばっき(n=24)

表2 BOD, T-N, T-Pの除去率とBOD不適率

	分離ばっき型	全ばっき型
BOD除去率	6.7	4.4
T-N %	0	0
T-P %	2.4	2.0
BOD不適率	3.5	6.7

し尿中のCl⁻ 5500 ppm, BOD 13500 ppm, T-N
5000 ppm, T-P 1000 ppmと仮定して計算

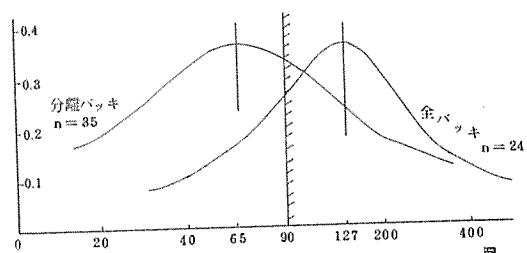


図1. 型別BOD値の分布の模式図

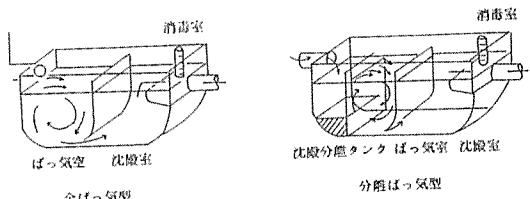


図2. 分離ばっき型と全ばっき型浄化槽の1例

8. 福岡市内河川におけるM B A S の分布と推移について

理化学課 環境化学係
吉 武 和 人

1. まえがき

近年急速な産業の発達、生活水準の向上等により、合成洗剤が広く使用されている。これらの合成洗剤は、水中有機汚濁物質の一成分となるのみならず、自然環境中に残存蓄積し、種々の問題が生じている。水面の泡立ちや魚類の奇形発生、自浄能力の低下等はその代表例であろう。このような現況において、先ごろ行なわれた52年度環境庁委託業務化学物質環境追跡調査でアルキルベンゼンゼンスルホン酸ナトリウム(LAS)の実態調査が17都道府県政令市の参加のもとで行なわれ、長野県衛生研究所で全検体を分析した結果、福岡市那珂川で2.9, 0.63, 1.0 ppmという最も高い値が確認された。

本市では、昭和47年より河川水中のメチレンブルー活性物質(MBAS)の分析調査を他の分析項目と併せて行なっている。ここでは、主要な河川である御笠川および那珂川のMBAS濃度について、過去5年間の分布と推移、月間変動等について検討した。また他の関連項目との相関性を検討し、汚濁防止のための一資料としたい。

2. 調査水域の概要と調査方法

御笠川水系は、宝満山麓にその源を発し、総延長約20kmにおよび本市を貫流している。上流部は周辺市の上水道源となり、中流部では工業用水源となっている。上中流域は住宅地として最近開発が進み、流域には食料品製造業、洗たく業、メッキ業その他本市の20%をこす特定事業場がある。那珂川水系は、背振山系に源を発し、本市中心部を貫流し、総延長35kmにおよび御笠川同様、博多湾に流入している。流域には、食料品製造業、洗たく業等がある。調査地点は御笠川5地点、那珂川6地点であり、毎月1回、14時、18時に採水した。MBASはJIS K0102により分析を行ない、標準物質としてはn-ドデシルベンゼンゼンスルホン酸ナトリウム試薬特級を用いた。

3. 結果と考察

図1に御笠川水系におけるMBASの経年変化を調査地点別に示した。47年より50年度までは漸増の傾向にある。BODその他の項目で減少あるいは横ばい傾向

である¹⁾のに対し、MBASのこの現象は注目すべき問題と思われるが、51年度にはほぼ48年度なみにMBAS汚染が回復した。これは表1に示したように50年の合成洗剤の生産量が減少したことでも要因であろう。地点別にみると、比恵大橋がどの年度においても最も高く他都市の河川²⁾に比較しても高い汚染度を示している。また比恵大橋から千鳥橋までの約3kmにおけるMBASの減少はABSからLASへのソフト化による生物分解性の増加を反映したものであろうと思われるが、一方MBASが底質に吸着沈殿したことも考えられ、今後、底質悪化に関しての調査が必要であろう。

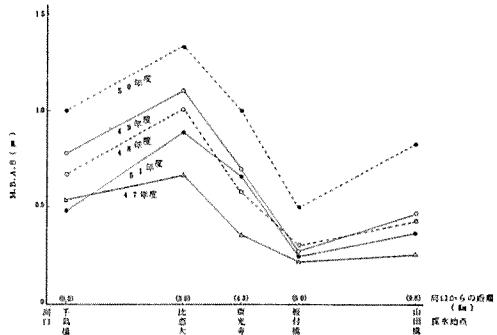


図1. 御笠川におけるM.B.A.Sの経年変化

表1. 家庭用合成洗剤の生産量の推移(日本統計月報)

年	生産量(トン)	前年度比(%)
昭和46	64280	...
47	703,823	8.7
48	765,183	8.7
49	831,411	8.7
50	591,721	△2.8.8

(△はマイナス)

図2に那珂川水系におけるMBASの経年変化を各調査地点別に示した。48年度に急増したMBAS量もその後50年度まではほぼ横ばいの傾向を示し51年度には47年度なみに汚染度が回復した。地点別では河口部より3km地点の住吉橋下がどの年度においても高値を示しており、それより下流するに従い、浄化が進む様相を呈している。住吉橋下の汚染は、そのわずか上流で流入する若久川水質に基因するものであることは他の調査結果より実証されている。

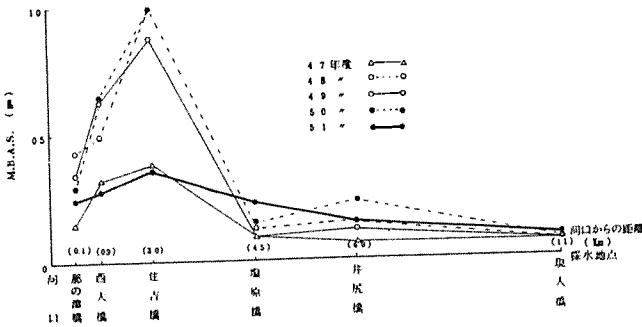


図2. 那珂川におけるM.B.A.Sの経年変化

次に季節変動、水温変化等によるM.B.A.Sの変化について考察した。御笠川東光寺橋および那珂川住吉橋における昭和49年4月より52年1月までの月変動を図3に示す。両橋下水質とも潮の影響はうけない地点であり、安定した流量をもつものと考えられる。14時、18時に採水を行ない、その分析値の平均をプロットしたものである。夏場の7, 8, 9月には水温が30度近くまで上がり生物活性が増加するため、M.B.A.S濃度は最小となり、それ以降徐々に高くなり、1, 2, 1, 2月頃にピークとなる予想されたパターンを示した。このことは、ソフト化された洗剤であり、冬場においては生物分解度は極度に減衰し、M.B.A.Sが残存蓄積することが考えられ、その毒性等が重要視されるであろう。

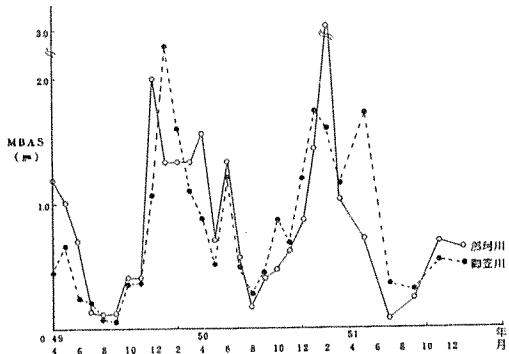


図3. 御笠川(東光寺橋)および那珂川(住吉橋)における月間変動

M.B.A.Sとその関連項目との相関について、太田等は³⁾ A.B.SとC.O.Dとの関連性について、また井原等は、⁴⁾ C.I⁻ NH₄^{-N}との相関性について研究を行なっているが、ここではM.B.A.SとT.O.C(全有機炭素)との相関性をもとめ、福岡市内河川の汚濁が何に起因するかという問題の一考察をした。図4, 5に御笠川および那珂川水系におけるM.B.A.SとT.O.Cとの相関図を示した。両水系とともに回帰直線式には大異なく、相関係数 $r = 0.87$ という高い相関を示した。即ち、この結果より御笠川および

那珂川水系での汚濁の様相は類似しており、しかもT.O.Cとの相関性が高いことにより、同一汚濁源、すなわち、家庭下水による汚染に起因することを示唆している。

また富栄養化と関連して、洗剤中のビルダーとして用いられているトリポリリン酸塩が問題になっている。そこでM.B.A.Sとオルトリン酸との相関を調べた結果を図6に示す。相関係数 $r = 0.88$ という高い関連性がみられ、今後の防止対策、つまり下水道の完備、特に高度処理の普及が望まれる。

最後にM.B.A.Sとして定量される陰イオン界面活性剤の内容を把握するため、JISにも明記されている方法つまり前処理として塩酸による加水分解を行なうことより、スルホン酸形陰イオン界面活性剤のみの定量を行なった。図7に示すように、低濃度域ではらつきがみられるが、M.B.A.Sの約7割以上がスルホン酸形陰イオン界面活性剤つまりリニアアルキルベンゼンスルホン酸ナトリウム(LAS)であることが判明した。

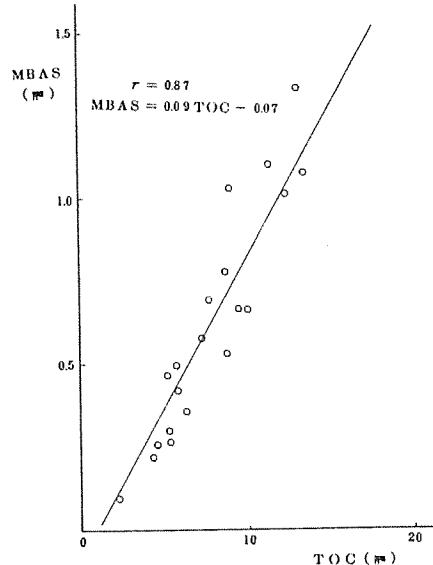


図4. 御笠川水系におけるM.B.A.SとT.O.Cの相関図

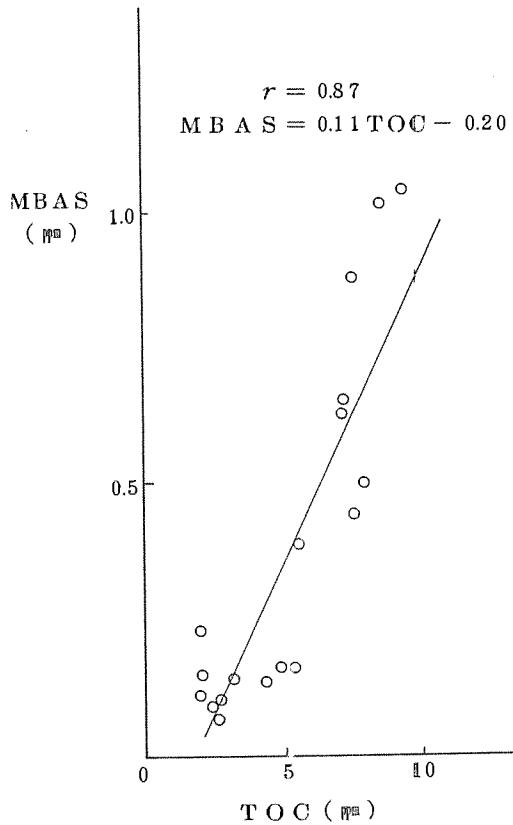


図5. 那珂川水系におけるM.B.A.SとT.O.Cの相関図

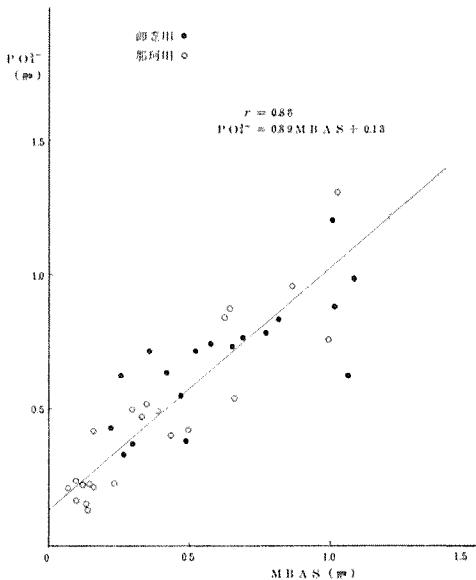


図6. 那珂川、御笠川水系におけるM.B.A.Sとオルトリノ酸の相関図

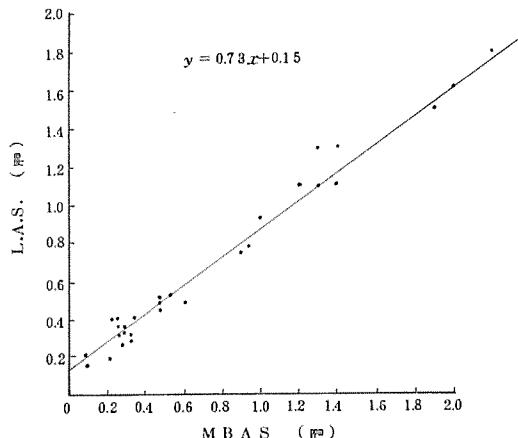


図7. M.B.A.SとL.A.Sの関係図

4. まとめ

1. 御笠川および那珂川水系ともに51年度には47年度なみの汚染まで回復した。
2. 冬場には生分解能力が低下するため、M.B.A.Sの底質悪化等について今後検討を必要とする。
3. M.B.A.SはT.O.Cとの相関性が高く、本市においては家庭下水による河川等の汚濁が進んでいるものと思われる。
4. M.B.A.Sはリン酸イオンとも相関性をもち、富栄養化に対して、洗剤の影響がうかがえる。
5. M.B.A.Sの約7割以上がL.A.Sであることが確認された。

文 献

- 1) 公害の現状と対策 51年度版 福岡市衛生局公害部発行
- 2) 土井章、圓堂穂ほか 旭川におけるM.B.A.Sの分布 水処理技術 18. 937. (1976)
- 3) 太田耕右、青賀喜一ほか 多摩川水中アルキルベンゼンスルホン酸塩(第3報)油化学 16. 366 (1967)
- 4) 井原岩夫、尾崎正義ほか 多摩川水中アルキルベンゼンスルホン酸塩(第5報)油化学 19. 1043 (1970)

IV 資料

1. 福岡市における風疹抗体保有状況 および IgM 抗体調査

微生物課 衛生細菌係

馬場純一・永原公一

I はじめに

1975年に始まった風疹の大流行は、1976年に^{1,2)}は当市においてもみられたが、1977年春から夏にかけて終息したものと思われる。そこで将来における風疹流行予測並びに障害児出生防止の基礎資料にするため HI 抗体保有状況を調べた。更に妊娠の可能性が高いもの及び妊娠初期における風疹罹患による危険性を防ぐ目的から新しい感染の有無を調べる必要があるため、HI 抗体値 6.4 倍以上の血清につき IgM 抗体を測定した。この事は風疹の流行状況把握にも有効な方法と思われる。^{3,4)}

IgM 抗体の測定方法に関しては、2ME 法、Sucrose density gradients、Immunofluorescent technique、Gel filtration technique、Staphylococcus⁵⁾による IgG 吸収法等の報告があるが、これらの中でも Staphylococcus の protein A による IgG 吸収法は比較的手軽に IgM(A) 抗体を測定することが可能であるため、この方法を用いて調査を行なったのでその成績を報告する。

II 材料及び方法

1977年5月から1978年4月までの約1年間に抗体検査の依頼を受けた19才～36才の年令層、一般371件、妊娠15例のペア血清について調査を行なった。

HI 抗体は予研法に準じて測定した。また IgM 抗体¹⁰⁾は吉川らの方法に準じて行なった。IgG 吸収用菌体は次のようにして作成した。Staphylococcus aureus Cowan-I strain(化血研より分与)を 37℃、18～20 時間振盪培養した後遠心沈殿法によって集菌した。これを PBS にて 3 回洗浄し、0.5% ホルマリン PBS に浮遊させて 37℃ 下で 3 時間作用させた。さらに、5.6℃ 1 時間熱処理を行ない、再び PBS にて 3 回洗浄を行なって最終的に PBS にて 10% (w/v) 浮遊液とした。保存に際しては、0.1% に Sodium azide を加えた。IgG の吸収は、上記の菌液 1mL をとり PBS にて洗浄遠心沈殿させた約 0.1 g の菌体に 1:8 のカオリン及び血球処理血清 0.3 mL を混和させて室温に 30～60 分間放置して行ない、これを 8 倍の処理血清として IgM の抗体値を測定した。IgG が吸収されたか否か

は Hyland 社の Immuno-plate にてチェックを行なつた。

III 結果及び考察

年令別 HI 抗体陰性率は、1975 年度伝染病流行予測調査¹¹⁾の全国平均によれば、20 才～24 才において 2.5%，25 才～29 才においては 2.0.6% であったが、当市におけるこの度(1977 年度)の調査結果はそれぞれ 40.2%，28.9% でやや高い傾向がうかがわれた。これは、昭和 51 年度の福岡県における平均陰性率とほぼ一致した。このように流行後においても陰性率がやや高く、また地区別にみた場合、流行のあった西区では陰性率は 18.8% であったのに対して南区では 37.5% (約 2 倍) で地域差がみられ、将来における風疹流行の可能性は未だ残っているものと思われる(表 1, 図 1, 2)。なお、同時に市内の 2 中学女子生徒 40 名について抗体調査を行なったところ、55% の陰性率であった。また妊娠 15 名のペア血清について HI 抗体値を測定した結果、抗体値の変動は全く認められなかった事から妊娠中の罹患はなかったものと思われた。

表 1 年令別風疹抗体陰性率

年区分	全国平均 (1975年度)	福岡県平均 (1976年度)	福岡市 (1977年度)
20～24	2.5.0	40.2	40.2
25～29	2.0.6	24.1	28.9
30～39	11.3	18.4	15.1

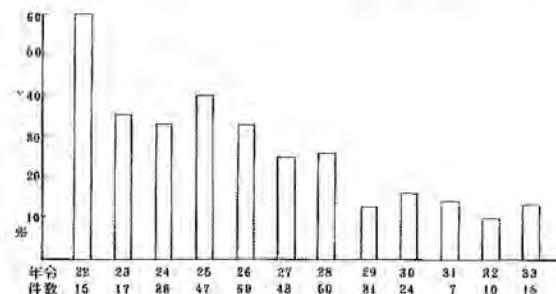


図 1 年令別風疹抗体陰性率

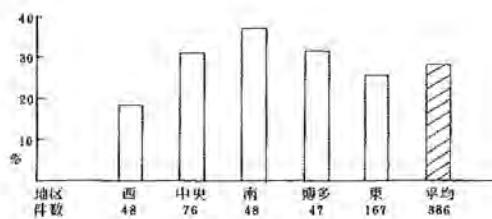


図 2 地区別風疹抗体陰性率

風疹 IgM 抗体の消長については多くの報告があるが、その存在の有無が風疹ウィルス感染の時期を推定するための一つのマーカーとなる。吉川らは I

gM 抗体は発疹出現後 5～10 日で最高値 6.4 倍～25.6 倍に達し、その後病日の経過とともに低下していくと報告している。そこで HI 抗体値 6.4 倍以上を示したもの 132 件（このうち HI 抗体値 12.8 倍のもの 53 件、25.6 倍のもの 11 件、51.2 倍のもの 1 件）について IgM 抗体値を測定した結果、8 倍以上を示したものは 41 件（31%）で、そのうち IgM 抗体の保有が確実と思われる 16 倍以上を示したのは 16 件 1 件、32 倍 1 件、64 倍 1 件の計 3 件（2.3%）であった。これらの 3 例は検出時期がそれぞれ、9 月、11 月、12 月であったことから、1975 年の春以降に感染を受けたものと推定される（表 2、図 3）。

表 2 IgM 抗体保有状況

被 檢 血 清 HI 抗体値(倍)	IgM 抗体被検数	I g M 抗 体 値 (倍)		
		< 8	8	16 ≤
6.4	79	64	14 (17.7)	1 (1.2) 注1)
12.8	41	33	17 (41.7)	1 (24) 注2)
25.6	11	4	6 (54.5)	1 (9.1) 注3)
51.2	1		1	
計	132	101	41 (31.0)	3 (2.3)

注1) 16 倍、注2) 32 倍、注3) 64 倍

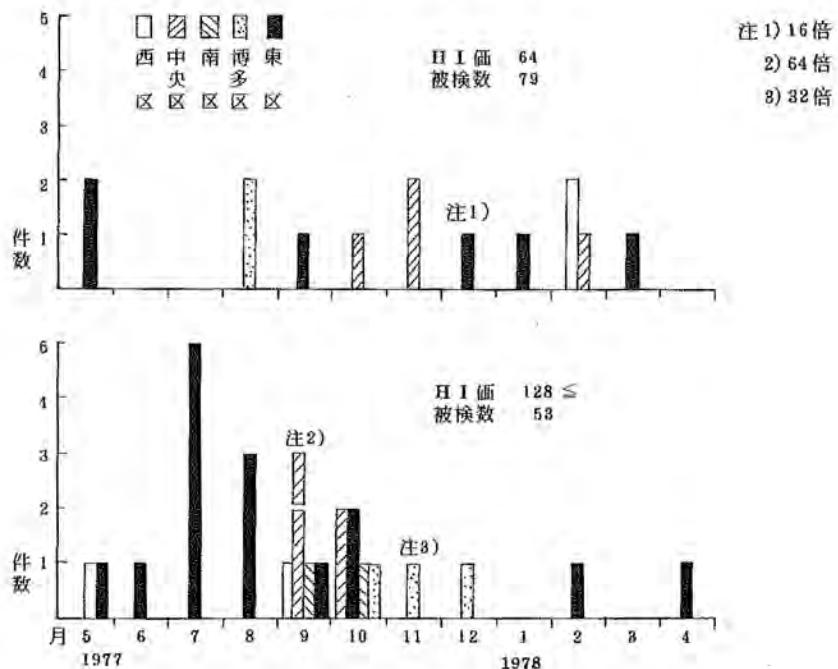


図 3 月別 IgM 抗体検出状況

また、検査依頼時に過去の風疹様疾患罹患歴の記載のあったものについて調査した(表3)。

表3. 最近及び古い過去の風疹様疾患罹患記憶例

	地区	検体 No.	年令	罹患時期	採血年月日	経過期間	HI 抗体価 (倍)	IgM 抗体価 (倍)	自覚症状
最近の罹患例	東	24	29	1976. 5	1977. 6. 8	13月	128	<8	発疹
	西	375	24	1977. 5	1978. 3. 28	10月	128	<8	発疹、リンパ節腫脹
	中央	240	32	1977. 2	1977. 10. 13	8月	64	<8	発疹、発熱
	西	163	28	1977. 4. 4	1977. 8. 30	5月	512	8	発疹、発熱、リンパ節腫脹
	東	160	23	1977. 5. 15	1977. 8. 26	3月	128	<8	同上
	東	135	27	1977. 7. 21	1977. 8. 5	0.5月	8	-	発疹
古い過去の罹患例	東	67	26	1955	1977. 7. 1	22年	16	-	発疹、発熱
	中央	182	27	1958	1977. 9. 8	19年	256	64	同上
	中央	183	24	1958	1977. 9. 8	19年	32	-	同上
	西	12	27	1959	1977. 5. 4	18年	128	8	発疹
	中央	224	22	1959	1977. 10. 6	18年	128	<8	発疹
	南	139	27	1965	1977. 8. 9	12年	<8	-	発疹、発熱
	東	361	23	1967	1978. 2. 17	10年	256	8	同上
	東	399	29	1968	1978. 3. 24	10年	256	8	同上

これらの例のうち最近風疹に罹患したと述べた例では IgM 抗体価はすべて 8 倍かまたはそれ以下であった。

古い過去に風疹に罹患した例のうち No. 182 は 19 年前の罹患記憶例であるが、IgM 抗体価 64 倍を保有していた事から最近罹患したものと推定された。また、No. 139 は 12 年前に罹患した記憶があったにもかかわらず HI 抗体は陰性であり、以前の疾患は風疹以外の疾患であったものと思われる。これらの例のように風疹罹患の記憶はあいまいなものであると思われるので抗体検査やワクチン接種等に際しては十分な配慮が必要であると思われる。今後も IgM 抗体に関しては監視を続けていく必要があろう。

文 献

- 1) 第 51 回、日本感染症学会抄録、シンポジウム「風疹をめぐって」感染症学雑誌、Vol. 51, 460, 1977
- 2) 植田ら：1975～1976年の福岡地方の風疹流行
臨床とウィルス、Vol. 5, 25～26, 1977

3) E.O. Caul, et al: A simplified method for the detection of rubella-specific IgM employing sucrose density fractionation and 2-mercaptoethanol.
J. Hyg., Camb., 73, 329～340, 1974

4) Banatvala, J. E., et al: A serological method for demonstrating recent infection by rubella virus.
Br. Med. J., 3, 285～286, 1967

5) Vesikari T., et al: A method for rapid diagnosis of a recent infection by demonstration of the IgM antibodies.
Br. Med. J., 1, 221～223, 1968

6) J. E. Cradock-Watson et al: IgG, IgA and IgM responses in acute rubella determined by the immunofluorescent technique.
J. Hyg., Camb., 70, 473, 1972

- 7) Alford,C.A.,et al:A correlative immunologic,microbiologic and clinical approach to the diagnosis of acute and chronic infections in newborn infants.
N.Engl. J.Med.277,437~449,1967
- 8) J.R.Pattison et al:A simple,inexpensive gel filtration technique for use in diagnostic serology.
J.Clin.Path.,26,309,1973
- 9) Ankerst,J.,et al:A routine diagnostic test for IgA and IgM antibodies to rubella virus:Absorption of IgG with *Staphylococcus aureus*.
J.Infect.Dis.,268~273,1974
- 10) 吉川ひろみら:IgM, IgG分別測定による風疹感染時期の判定
臨床とウィルス, Vol.6, No.2, 51~54, 1978
- 11) 厚生省公衆衛生局保健情報課, 国立予防衛生研究所:
昭和50年度伝染病流行予測調査報告書, 風疹
臨床とウィルス, Vol.5, 100, 1977
- 12) 吉川ら:風疹ウイルス感染症におけるIgM抗体の消長
ウイルス, Vol.26, 39, 1976
- 13) 羅 土易ら:風疹とそのIgM特異抗体
感染症学雑誌, Vol.51, 514, 1977

2. 冷凍食品・生うに・刺身及びふき取りにおける *Clostridium perfringens* の汚染について

微生物課 衛生細菌係

磯野利昭・大久保忠敬
小田隆弘・西本幸一
山本泰寛

Clostridium perfringens (*C. welchii*以下ウ菌と略記) の食中毒は、本菌が芽胞を形成する際に產生するエンテロトキシンによって発症させるといわれている。

そこで本報では、冷凍食品・生うに及び刺身とその調理に使用した包丁・まな板の本菌による汚染状況と、分離されたウ菌の芽胞形成能を調査したので報告する。

I 調査方法

1. 調査材料及び件数

冷凍食品は、材料に獣魚肉及び鶏肉卵を使用しているもの 76 検体。生うには、韓国産 17 検体・香港産 6 検体の計 23 検体。刺身は 40 ~ 50 個を 1 検体とし計 209 検体。ふき取りは、刺身におろす包丁及びまな板を滅菌生理食塩水（以下生食と略記）10 mlを入れた滅菌スタンプ瓶（栄研）にて約 10 cm をふき取ったものを検体とし、包丁は 60 件、まな板は 77 件をそれぞれ供試した。

2. 分離方法

1) 試料調整

冷凍食品・生うには、出来るだけ均一にしその約 1 g を試料とした。刺身は、生食にて約 2 倍に希釈した後十分に混和してその 1 ml を試料とした。ふき取りは、滅菌スタンプ瓶中の生食 1 ml を試料とした。

2) 分離温度及び使用培地

試料を TGC 培地（栄研）3 本に投入し、1 本はそのまま、1 本は 75 °C 20 分恒温槽にて加熱した後、もう 1 本は 100 °C 10 分加熱した後に各々 37 °C 24 ~ 48 h 培養した。培地の混濁とガス產生のみられたものについて、未加熱検体には、カナマイシン含有卵黄加 CW 寒天培地（日水）に一白金耳塗沫し、37 °C 18 ~ 22 h、ガスバッタ法（BBL）によって嫌気培養し、1 平板につき 3 ~ 5 株供試した。

3) ウ菌生菌数の定量

冷凍食品は 6 検体、生うには 7 検体についてウ菌生菌数の定量を行なった。両検体とも 10 倍を計量し、生食にて 10 倍に希釈して原液とした。原液を 3 本の中試験管にとり、1 本はそのまま、1 本は 75 °C 20 分恒温槽にて加熱後、もう 1 本は 100 °C 10 分加熱後それぞれ原液あるいは適宜希釈してその 0.1 ml を、カナマイシン含有あるいは不含の卵黄加 CW 寒天培地に塗沫して定量した。

4) 分離株の同定及び血清型別

分離した菌株について、善養寺³⁾らの方法に従って性状を検査し同定した。Hobbs type の血清型別は、診断用免疫血清（東芝化学）にてスライド凝集反応法により決定した。

5) 大腸菌群及び *E. coli* の検出

冷凍食品は、食品衛生法に従って大腸菌群あるいは *E. coli* を調査した。生うには、2.3) の操作を行ない MPN 法（3 本法）により *E. coli* を定量した。

6) 耐熱性試験

未加熱分離株 37 株、75 °C 20 分加熱分離株 19 株、100 °C 10 分加熱分離株 2 株、昭和 52 年 9 月 5 日に発生したウ菌食中毒患者便由来（100 °C 60 分加熱分離）4 株及び標準株 NCTC 8238, NCTC 823⁴⁾ 各々 1 株を使用した。これらを中津川の方法に従って芽胞を形成させ、100 °C 60 分（耐熱性の有無）と 80 °C 15 分（芽胞の有無）の加熱条件による供試株の耐熱性をみた。

II 調査結果

1. ウ菌の分離状況

冷凍食品は、76 検体中 19 検体（23.7%）からウ菌が分離された。分離温度別では、未加熱で 18 検体（23.7%）、75 °C で 7 検体（9.2%）分離され、100 °C では検出されなかった。

表1 ウ 菌 の 分 離 状 況

検 体 名	検 体 数	陽 性 件 数	分 離 温 度 别 陽 性 件 数		
			未 加 热	75°C ※1	100°C ※2
冷凍食品	76	19(25.0%)	18	7	0
生 う に	23	21(91.3%)	17	14	4
刺 身	209	6(2.9%)	5	1	0
ふき取り	包 丁	60	1(1.7%)	1	0
	ま な 板	77	2(2.6%)	0	2

※1 75°C 20分 加熱後分離

※2 100°C 10分 " "

生うには、23検体中21検体(91.3%)よりウ菌が分離された。分離温度別では、未加熱で17検体(73.9%)・75°Cでは14検体(60.9%)・100°Cで4検体(17.4%)から分離された。

刺身は、209検体中6件体(2.9%)からウ菌が分離され、分離温度別では、未加熱で5検体(2.4%)・75°Cで1検体(1.7%)から分離された。

ふき取りは、まな板が77検体中75°Cから2検体(2.

6%)分離され、包丁が60検体中未加熱検体から1検体(1.7%)分離された。

2. 分離株のHobbs type血清型別

13種血清型、計77株分離された。その内型別された菌株は、20株(26.0%)であった。

冷凍食品では、8種血清型31株が分離され、未加熱検体からの分離株が24/31(77.4%)であった。

表2 分離株の血清型別(Hobbs type)

冷 凍 食 品			血清型	生うに・刺身・ふき取り		
分 離 温 度		未 加 热		75°C ※1	100°C ※2	
1			3			
1			4			
1			5		1	
			7	1	1	
			8		1	
			9		1	
2			10			
			11		2	
2			12			
			13			1
2			15			
	1		16			1
1			17			
14	6		UT※3	20	14	3
24	7	0	計	21	20	5

13種 血清型 77株

※1 75°C 20分 加熱後分離

※2 100°C 10分 " "

※3 型別不能株