

e211k

ISSN 1340-2676

岐阜県保健環境研究所報

第 3 号
平 成 7 年

Report of Gifu Prefectural Health
and Environment Research Center
No.3, 1995

岐阜県保健環境研究所

Gifu Prefectural Health and Environment Research Center

e211k

ISSN 1340-2676

岐阜県保健環境研究所報

第 3 号

平成 7 年

Report of Gifu Prefectural Health
and Environment Research Center

No.3, 1995

岐阜県保健環境研究所

Gifu Prefectural Health and Environment Research Center

目 次

<調査研究>

- ・高速液体クロマトグラフィーによる尿中3ヒドロキシアントラニル酸の定量 1
今井準三, 村山恭子, 吉田 熊, 山口清次

<資料>

- ・岐阜県女子成人病死亡率と平均寿命との関連性について 6
森 洋隆
 - ・つつが虫患者の凍結血液からのリケッチャ分離について 10
野田伸司
 - ・岐阜県に産する厚朴（ホウノキ樹皮）中のmagnolol及びhonokiol含量 13
坂井至通, 清水英徳, 中川 一
 - ・長期測定による環境騒音評価（第3報） 18
大型ビル建設後の騒音レベル
奥平文雄
 - ・地下水中の硝酸性窒素の生物学的処理に関する研究（第1報） 22
木炭を接触材とした脱窒法について
森 仁
 - ・化学物質の藻類生長阻害試験法における注意点 27
大江章夫, 野村泰之
 - ・人工酸性雨による土壤からの陽イオンの溶脱 30
角田 寛, 野村泰之, 大江章夫
 - ・産業廃棄物の適正処理・処分方法に関する研究（第3報） 34
石灰系地盤固化材の開発と実験室内での評価
安田 裕, 角田 寛, 渡辺憲人, 加藤布久, 光松文雄
- <他誌掲載論文> 39
- <学会報告> 44

CONTENTS

<ORIGINAL ARTICLES>

- Determination of 3-hydroxyanthranilic Acid in Human Urine by High-Performance Liquid Chromatography with Fluorescence Detection 1
Junzo IMAI, Kyoko MURAYAMA, Isao YOSHIDA, Seiji YAMAGUCHI

<REPORTS>

- A Relationship between Age Adjusted Death Rates from Female Adult Diseases and Life Expectancy 6
Hirotaka MORI
 - Isolation of *Rickettsia Tsutsugamushi* from Patient's Blood Frozen for 49 months at -80°C 10
Nobuji NODA
 - Contents of Magnolol and Honokiol in Magnoliae Cortex Produced in Gifu Prefecture 13
Yoshimichi SAKAI, Hidenori SHIMIZU, Hajime NAKAGAWA
 - An Evaluation Method for Environmental sound III, The Change of Noise Level after Big-scale Concrete Building Construction 18
Fumio OKUHIRA
 - Study on Biological Treatment of Nitrate Nitrogen in Groundwater I , Denitrogen of Nitrate Nitrogen using Ethyl Alcohol and Charcoal as Contact Materials 22
Hitoshi MORI
 - Attention to Algal Growth Inhibition Test for Chemicals 27
Akio OHE, Yasuyuki NOMURA
 - Cation Leaching from Soils exposed to Simulated Acid Rains 30
Hiroshi SUMIDA, Yasuyuki NOMURA, Akio OHE
 - Studies on Proper Treatment and Disposal of Industrial Wastes III, Development of a Lime-based Earthen Stabilizer for Ground and its Evaluation in Laboratory 34
Yutaka YASUDA, Hiroshi SUMIDA, Norito WATANABE
- <PUBLICATIONS> 39
- <PRESENTATIONS> 44

高速液体クロマトグラフィーによる尿中 3ヒドロキシアントラニル酸の定量

今井 準三*, 村山 恒子^{**}, 吉田 熊*, 山口 清次**

要旨

高速液体クロマトグラフ法による簡易で高感度な尿中3-ヒドロキシアントラニル酸(HAA)測定法を開発した。

尿を0.03Mリン酸カリウム緩衝液(pH 6.0)で5倍希釈するだけで、ODSカラム(Nucleosil 5C₁₈, 150×4 mmI.D.)で良好な分離が可能であった。移動相は5 mM臭化テトラブチルアンモニウムと0.1 mMエチレンジアミン四酢酸二ナトリウムを含む0.03Mリン酸カリウム緩衝液(pH 6.0)とアセトニトリルの混合液(1000:70, v/v)を使用し、蛍光検出器(励起波長325 nm, 蛍光波長420 nm)で検出した。検出感度は7×10⁻¹⁵モルと高感度であり、正常値把握はもちろんHAA排泄が減少するキサンツレン酸/3-ヒドロキシキヌレニン尿症のようなトリプトファン代謝異常症患者の尿にも適用可能であった。

キーワード: 高速液体クロマトグラフ法, 3-ヒドロキシアントラニル酸, キサンツレン酸/3-ヒドロキシキヌレニン尿症

1 はじめに

トリプトファン代謝の主経路はキヌレニン経路であり、キヌレニン(Kyn), 3-ヒドロキシキヌレニン(HKyn), 3-ヒドロキシアントラニル酸(HAA), キノリン酸(QA)を経てニコチニン酸となり、NAD生合成に組み込まれる唯一の内因性ニコチニン酸生成経路と考えられている(図1)。HKyn→HAAを触媒するキヌレニナーゼはビタミンB₆を補酵素とする酵素であるが、本酵素の先天的活性低下によるキサンツレン酸(XA)/HKyn尿症などでは下流のHAAの生成低下が予測される。HAAは発ガン性が疑われている¹⁾だけでなく、興奮性神経毒として注目されているQA²⁾の前駆物質であり、トリプトファン代謝では重要な位置を占めているので、その測定法研究は意義のあることと考えられる。生体試料中HAA測定法としては高速液体クロマトグラフ法(HPLC)が一般的で、電気化学検出^{3,4)}、蛍光検出⁵⁾があり、ガスクロマトグラフ法⁶⁾もあるが、尿中の測定例は少ない。

著者らはHPLCによるトリプトファン代謝物の測定法を検討しており、今までに尿中N¹メチルニコチ

ン酸アミド⁷⁾、キサンツレン酸-8-メチルエーテル(XA-OMe)⁸⁾、キサンツレン酸(XA)、Kyn, HKyn, 5-ヒドロキシインドール酢酸、キヌレン酸(KA)⁹⁾および血清中XA-OMe¹⁰⁾の測定方法について報告した。今回は、蛍光検出を用いたイオンペアHPLCによる尿中HAAの測定法について検討したので報告する。

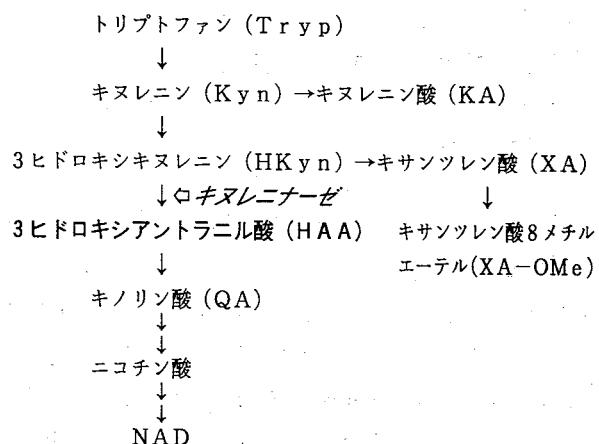


図1 トリプトファン代謝(キヌレニン回路)

* 岐阜県保健環境研究所: 500 岐阜市野一色4丁目6番3号

¹ 現 岐阜県大垣保健所: 503 大垣市江崎町422番地の3

** 島根医科大学小児科: 693 島根県出雲市塩治89番地の1

2 材料および方法

2.1 試薬

HAAはじめトリプトファン代謝物はすべてシグマ社製、クレアチニン (Cre) は和光純薬製、臭化テトラブチルアンモニウム (TBA) はナカライト製、その他は試薬特級を使用した。

2.2 尿試料

XA/HKyn尿症患者3名（患者1, 女1.9才, 患者2, 女8ヶ月, 患者3, 男8ヶ月）、正常乳幼児12名（男4名, 女8名, 1.1~4.0才, 平均2.3才）、正常成人2名（40および50才）の一時尿を試験管に分注し-25°Cに保存し、分析時に水で解凍した。

2.3 測定法

尿0.5mLを試験管にとり、0.03Mリン酸一カリウム(pH 6.0)2.0mLを加えよく混合し、メンブランフィルター（東洋アドバンテック、0.45μm）でろ過した。ろ液5μLについて以下の条件でHPLCによって測定した。別にHAA 10mgを正確に秤量し0.03Mリン酸一カリウム(pH 6.0)を加えて溶かし100mLとした。これを0.03Mリン酸一カリウム(pH 6.0)で段階希釈し、0.1μg/mLとし（標準液）同様に測定した。得られたピーク面積により尿中含量を算出し、Cre補正值¹¹⁾を求めた。

HPLCはポンプは日立655A-11、脱気装置は昭和電工KF-11、カラムオーブンは日立655A-52、オートインジェクターは日本分光851-A Sを使用した。カラムはNucleosil 5C₁₈(4×150mm), 溶離液は5mM TBA, 0.1mM EDTA 2Naを含む0.03Mリン酸一カリウム(pH 6.0)：アセトニトリル(1000+70)を用い、40°C、流速0.7mL/minで操作した。検出は蛍光検出器（日立F-1000、励起波長325nm、蛍光波長420nm、感度5）、データ処理装置は日立D-2000を使用した。

3 結果

3.1 蛍光スペクトル

HAAを2μg/mLとなるようにHPLC移動相に溶解し、自発蛍光スペクトルを調べたところ、励起波長は325nm、蛍光波長は420nm付近に極大が認められた。なお、TBA添加による励起および蛍光波長の移動はみられなかった。

3.2 移動相pHと蛍光強度

HPLC移動相のpH上昇につれ蛍光強度の著しい増加、保持時間の延長傾向が認められた。pH 6の蛍光強度はpH 3の約100倍であった（図2）。

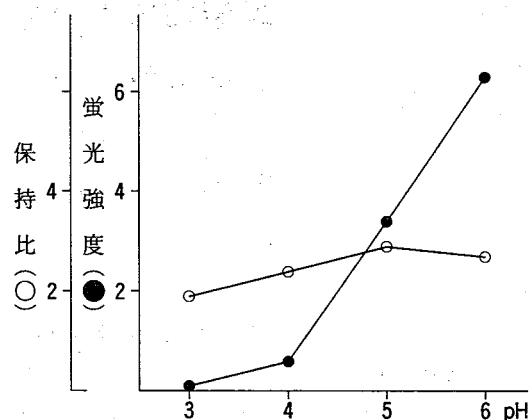


図2 移動相pHと蛍光強度および保持時間

3.3 移動相のアセトニトリル量と保持時間

アセトニトリル量の増加につれ若干の保持時間の短縮傾向が認められた。他成分との分離の点から緩衝液1000mLに対しアセトニトリル量は70mLとした。

3.4 検量線

0.016ng~5.0μg/mLの間で原点を通る良好な直線性が得られた。検出限界は1.05pg (7×10^{-15} モル, S/N=5) であった。

3.5 添加回収率

乳児尿より調製したプール尿にHAAを添加し測定法に従って測定したところ、93~100%（平均97.5%）の回収率が得られた（表1）。

表1 添加回収実験

添加量 (μg)	回収量 (μg)	回収率(%)	
		平均値±標準偏差	
0.125	0.1176	94.11	
	0.1131	90.47	93.51±2.79
	0.1200	95.96	
0.250	0.2302	92.07	
	0.2575	103.0	98.81±5.89
	0.2535	101.3	
0.500	0.5340	106.8	
	0.5086	101.7	100.24±7.41
	0.4610	92.20	

3.6 尿測定結果

XA/HKyn尿症児では0.067~0.153μg/mg Creであり、患者とほぼ同年齢の正常者12名の平均値は0.833μg/mg Cre（範囲0.262~2.062μg/mg Cre）であった（表2）。既報^{8,9)}のXA, HKyn, XA-OMEなどの測定結果も併せて示した。また、正常幼

児およびXA/HKyn尿症児尿のクロマトグラム例を図3に示した。

表2 尿中3-ヒドロキシアントラニル酸およびトリプトファン代謝物測定結果

代謝物	患者	患者	患者	対照者	人数
	1	2	3	平均値(範囲)	
XA	111	40.6	148	2.5(0.0-5.0)	12
HKyn	618	488	553	3.6(0.4-10.4)	12
KA	30.5	17.7	19.6	7.1(0.0-37.1)	12
Kyn	4.1	1.0	7.0	4.7(0.8-10.6)	12
XA-OMe	30.5	17.1	38.2	0.243(0.106-0.422)	10
HAA	0.077	0.153	0.067	0.833(0.262-2.062)	12

XA:キサンツレン酸, HKyn:3-ヒドロキシキヌレン酸, KA:キヌレン酸, Kyn:キヌレンイン, XA-OMe:キサンツレン酸-8-メチルエーテル, HAA:3-ヒドロキシアントラニル酸, 単位 $\mu\text{g}/\text{mg}$ クレアチニン, 患者:XA/HKyn尿症患者, 対照者:正常乳幼児

の上流物質でありトリプトファン代謝物の中でも注目されている物質である。尿中測定法としてはガスクロマトグラフ法⁶⁾, 自発蛍光を利用したHPLC法⁵⁾がある。飯沼ら⁵⁾は溶媒抽出を行い, pH 4.1 の移動相で分離後ポストカラム的に移動相のpHを上げHAAの蛍光を増加させる尿および血清中のHAA測定法を報告している。われわれも追試をしたが尿中のHAA測定には溶媒抽出を省略しても十分測定可能であった。特に溶媒抽出時HAAの酸化防止の目的で添加している2-メルカプトエタノールによりHPLCピーク形状がブロードとなる問題点があった。HAAはアミノ基とカルボキシル基を持つため、陰イオン性、陽イオン性イオンペア剤どちらとも反応するが、蛍光強度がpHが高くなるほど強くなったので陰イオン性のTBAを使用したところ、都合良く十分な分離と満足できる結果が得られた。デシルトリエチルアンモニウムホスフェイトを用いた報告⁴⁾があるが、TBAをしきも尿HAA測定に用いる報告は今までにみられない。

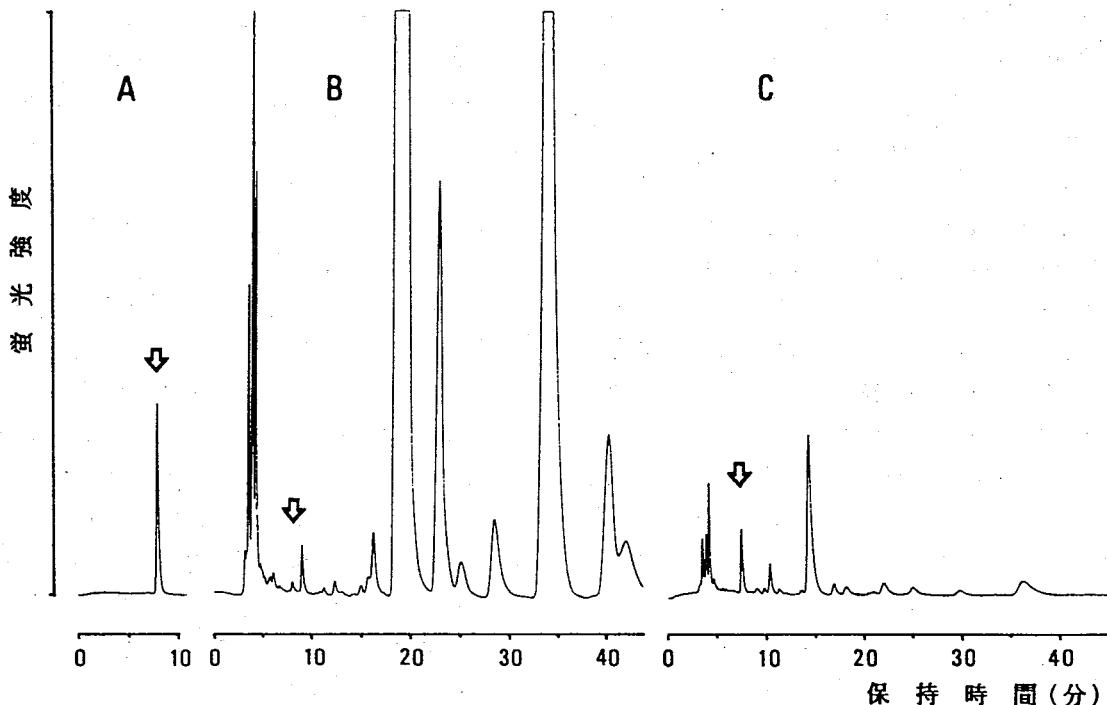


図3 HPLCクロマトグラム例

A : HAA標準液 ($0.1113 \mu\text{g}/\text{mL}$), B : XA/HKyn尿症患者1尿 ($0.0128 \mu\text{g}/\text{mL}$),
C : 正常幼児尿 (男 3.2 才, $0.0344 \mu\text{g}/\text{mL}$)

4 考 察

HAAはキヌレンイン経路のトリプトファン代謝物の中でもXAやHKynとともに発がん性が疑われている¹⁾。また、興奮性神經毒と考えられているQA²⁾

またHAAは0.03 M リン酸一カリウム(pH 6.0)中で遮光下であれば10時間は安定であり、特別の酸化防止措置をとる必要を認めなかった。したがって、尿を単純に通常5倍希釈するだけで前処理は十分であり、尿の他成分との分離も良好であった(図3)。正

常レベル把握の感度も満たしており実用性の高い方法と思われたが、クロマトグラム（図3）に見られるようにHAAより遅れて溶出するピークが正常者でも多数認められ、測定時間が60分を要するのが難点であり、固相抽出による短縮を検討中である。

HAAの正常レベル報告例としては、pollら⁶⁾のオランダ人成人男女（19～43才）各7名の24時間排泄量平均値が男 7.6 μmol (1.163 mg, 著者計算), 女 5.5 μmol (0.842 mg, 同) であったという報告と飯沼ら⁶⁾の成人5名の24時間尿についての2～5日の平均値が336～746 μg/日であったという報告がある。今回の乳児のデータとほぼ同じレベルとみなしてよいと考えるが、われわれも成人男性（2名）では0.130, 0.296 μg/mg Creの値を得ており、成人と乳幼児は同レベルかあるいは乳幼児の方が高いのかもしれない。

3例のXA/HKyn尿症患者は神経芽細胞腫マスクリーニングで全国に先駆けて岐阜県で発見された例であり^{13,14)}、尿中XA, HKyn, キサンツレン酸-8-メチルエーテルの著しい増加^{8,9)}, キヌレニンの増加⁹⁾, 血清中XA-OMe濃度の著しい上昇¹⁰⁾がみられる。リンパ球キヌレニナーゼ活性の著しい低下が認められおり¹⁴⁾、今回の尿中HAA量の低下とよく符号する。本症例のリンパ球キヌレニナーゼ活性はリン酸ピリドキサール添加により上昇することが確認されており¹⁴⁾、Tadaら¹⁵⁾の報告と同様に本症例の本態はキヌレニナーゼアポ酵素とビタミンB₆の結合異常によるものと考えられる。内因性ニコチン酸生成は低下していると思われるが、生理的ニコチン酸不足の兆候は認められず、生育はまったく正常である¹⁶⁾。

このように本法は尿中HAAの簡便かつ高感度測定法であり、トリプトファン代謝の生化学、毒性学、栄養学的研究やトリプトファン代謝異常症の診断学的研究に応用可能と考えられる。

文 献

- 1) G.T.Bryan, R.R.Brown, J.M.Price: Mouse Bladder Carcinogenicity of Certain Tryptophan Metabolites and Other Aromatic Nitrogen Compounds Suspended in Cholesterol, *Cancer Res.*, **24**, 596-602, 1964
- 2) T.N.Stone: Neuropharmacology of quinolinic acid and kynurenic acid, *Pharmacol.Rev.*, **45**, 309-379, 1993
- 3) A.M.Krtulovic, M.J.Friedman, N.Colin, G. Guiochon, M.Gaspar, K.A.Pajer: Analytical methodology for assays of serum tryptophan metabolites in control subjects and newly abstinent alcoholics: Preliminary investigation by liquid chromatography with amperometric detection, *J.Chromatogr.*, **277**, 271-281, 1984
- 4) S.Christen, R.Stocker: Simultaneous determination of 3-hydroxyanthranilic acid and cinnabarinic acid by high-performance liquid chromatography with photometric or electrochemical detection, *Anal.Biochem.*, **200**, 273-279, 1992
- 5) 飯沼文夫, 田原正義, 渡辺光夫: 高速液体クロマトグラフィーによる生体試料中の3-ヒドロキシアントラニル酸の蛍光定量, *分析化学*, **36**, 776-781, 1987
- 6) J.M.Van der Poll, M.Vink, J.Schrijver, J.Odink : Influence of tryptophan loading on urinary excretion of anthranilic acid and 3-hydroxyanthranilic acid by men and women as determined by alkaliflame ionization gas chromatography, *J.Chromatogr.*, **375**, 213-223, 1986
- 7) 村山恭子, 今井準三, 河合信, 山口清次: 尿中N¹メチルニコチノ酸アミドの測定, *岐阜保環研究所報*, **1**, 44-48, 1993
- 8) Junzo IMAI, Kyoko MURAYAMA, Makoto KAWAI, Seiji YAMAGUCHI, Kenji MATSUURA: Determination of 8-Methyl ether of xanthurenic acid in human urine by high-performance liquid chromatography, *J.Chromatogr.B.*, **661**, 149-153, 1994
- 9) 今井準三, 伊藤嘉浩, 後藤喜一, 山口清次: 高速液体クロマトグラフィーによる尿中トリプトファン代謝物の測定, *岐阜保健環境研究所報*, **2**, 8-13, 1994
- 10) 今井準三, 吉田勲, 村山恭子, 山口清次: HPLCによる血中トリプトファン代謝物の測定(第1報) 血清中キサンツレン酸-8-メチルエーテルの定量, 第41回東海公衆衛生学会講演集, 78-79, 1995年(名古屋市)
- 11) 田中久子, 今井準三: 神経芽細胞腫マスクリーニング検査における防腐剤添加ろ紙利用の試み(第2報) クレアチニン定量, *岐阜衛研所報*, **33**, 27-30, 1988

- 12) 今井準三, 岩田久子, 長島久美子, 伊藤嘉浩, 後藤喜一, 河合信, 松川洋子, 山本隆雄, 松浦健二, 竹内千尋, 山口清次: 神経芽細胞腫マススクリーニングで経験したVMA反応偽陽性の原因物質 キサンツレン酸, 医学のあゆみ, 152, 133-134, 1990
- 13) Seiji Yamaguchi, Junzo Imai, Makoto Kawai, Nobuo Sakura, Mochiyuki Hamakawa, Kenji Matsuura, Tadao Orii: Two Inherited Metabolic Diseases Detectable in Mass Screening for Neuroblastoma: Xanthurenic aciduria and Alkaptonuria, Proceedings 3rd Inter. Symposium Neuroblastoma Screening, 169-172, 1994 (Kyoto)
- 14) 山口清次, 今井準三, 折居忠夫: 神経芽細胞腫マススクリーニングで発見されるキヌレニナーゼ欠損症: 酵素診断および家族検索, 日本先天代謝異常学会雑誌, 9(2), 160, 1993
- 15) Keiya Tada, Yoshimasa Yokoyama, Hiroshi Nakagawa, Toshio Yoshida, Tsuneo Arakawa: B_6 dependent xanthurenic aciduria, Tohoku J. Exp. Med., 93, 115-124, 1967
- 16) 山口清次: 私信 (未発表)

Determination of 3-Hydroxyanthranilic Acid in Human Urine by High-performance Liquid Chromatography with Fluorescence Detection

Junzo IMAI, Isao YOSHIDA (*Gifu Prefectural Health and Environment Research Center, 6-3, Noishiki 4 chome, Gifu 500, Japan*)
Kyoko MURAYAMA (*Gifu Prefectural Ohgaki Public Health Center, 422-3, Esaki-cho, Ohgaki 503, Japan*)
Seiji YAMAGUCHI (*Department of Pediatrics, Shimane Medical University, En-ya-cho 89-1, Izumo Shimane 693, Japan*)

Summary

A simple and sensitive assay has been developed for the urinary 3-hydroxyanthranilic acid (HAA) by high-performance liquid chromatography with fluorescence detection (excitation at 325 nm, emission at 420 nm). Urine samples were diluted 5-fold with 0.03 M potassium phosphate buffer (pH 6.0) and applied to an octadecylsilane-bonded column (Nucleosil 5C₁₈, 150×4 mm I.D.). The mobile phase used was a mixture of this same buffer and acetonitrile (1000:70, v/v) containing 5mM tetrabutylammonium bromide and 0.1mM EDTA. The detection limit was 7×10^{-15} mol which was sensitive enough to detect HAA in urine from normal subjects or patients with lower HAA excretion due to a disorder of tryptophan metabolism, xanthurenic acid/3-hydroxykynurenineuria.

Keyword: High-Performance Liquid Chromatography, 3-Hydroxyanthranilic Acid, Xanthurenic Acid/3-Hydroxykynurenineuria

岐阜県女子成人病死亡率と平均寿命との関連性について

森 洋隆

要 旨

岐阜県女子の平均寿命順位は、昭和45年頃までは全国の平均的水準にあったが、昭和50年以降、40位に下落している。そこで、中高年女子成人病死亡がどのように関連しているかを知るために、昭和40年から平成2年における全死因、3大成人病、およびその他の死因の年齢調整死亡率を計算し、その状況を観察するとともに、平均寿命順位との関連性を調べた。

岐阜県女子平均寿命順位の低下に最も寄与していたのは脳血管疾患であり、本県においては昭和50年以降、脳血管疾患死亡の改善が他府県より遅れ、特に65才以上女子の死亡率の改善が遅れたために、今日における女子平均寿命順位の低迷をきたしたものと推察された。

キーワード：平均寿命、成人病、年齢調整死亡率、脳血管疾患

1 はじめに

岐阜県女子の平均寿命は昭和40年では20位、昭和45年では27位と全国における平均的水準にあったが、昭和50年には40位と大きく下落し、平成2年に至っても41位と下位に低迷している。一方、岐阜県男子は昭和40年以降、一貫して全国順位は上位（3～9位、平成2年は3位）にある。このため、男女の平均寿命は接近し、岐阜県は平均寿命の男女差の最も小さい県となっている¹⁾。

平均寿命は年齢別死亡率または年齢・死因別死亡率の大きさによって決定される値であるから、昭和50年以降、本県女子の死亡状況に大きな変化があったことが推察される。

筆者は、平成元年に静岡県女子を対照とし、岐阜県女子との寿命の差の要因分析を行い、45才以上の女子年齢別死亡率および脳血管疾患等の成人病死亡率が岐阜県女子の平均寿命の短縮に関わっていることを報告しているが²⁾、昭和50年以降の死亡状況の大きな変化（平均寿命順位の下落）に、岐阜県女子の成人病死亡状況が、どのように関連しているかは極めて興味深いことのように思われる。

そこで、各年齢・死因別死亡率が大きくなれば、その死因の年齢調整死亡率も大きくなることから、岐阜

県女子の全死因、3大成人病による死因、その他の死因（全死因死亡数から3大成人病死亡数を差し引いたものをその他の死因として括した）について、昭和40年から平成2年までの25年間における40才以上の中高年女子の年齢調整死亡率を計算し、その状況を観察するとともに平均寿命順位との関連を調べた。

2 資料及び方法

2.1 資 料

死亡者数：岐阜県衛生年報（昭和40年～平成2年）

全国年齢階級・死因別死亡率：

昭和40～55年（厚生の指標 特集³⁾）

昭和60年～平成2年（国民衛生の動向⁴⁾）

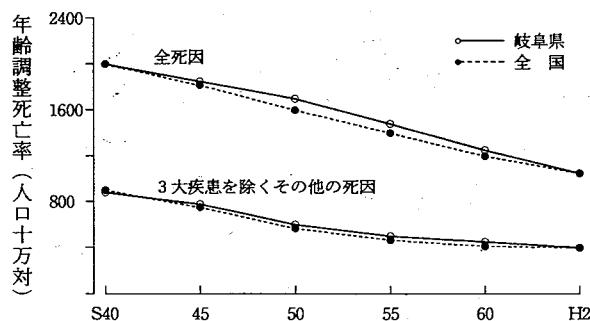
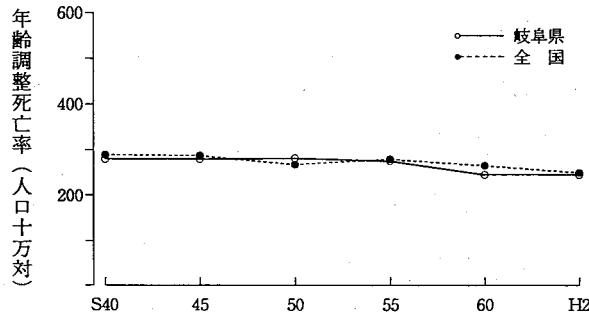
2.2 方 法

昭和60年の基本人口モデルを用いて、40才以上の女子年齢調整死亡率（人口10万対）を計算した。

3 結果および考察

3.1 時系列的観察

全死因および3大成人病を除くその他の死因による40才以上女子年齢調整死亡率は、年次とともに減少する傾向がみられ、岐阜県の全死因は昭和45年～平成2

図1 主要死因年齢調整死亡率の年次推移
(40才以上、女子)図2 主要死因年齢調整死亡率の年次推移
(40才以上、女子、悪性新生物)

年にかけて全国を上回ったが、その他の死因では全国と岐阜県との差があまり大きくなかった（図1）。

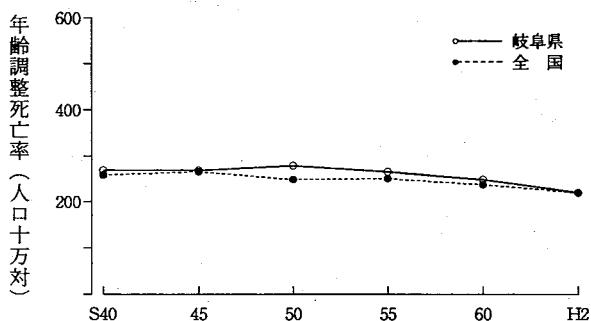
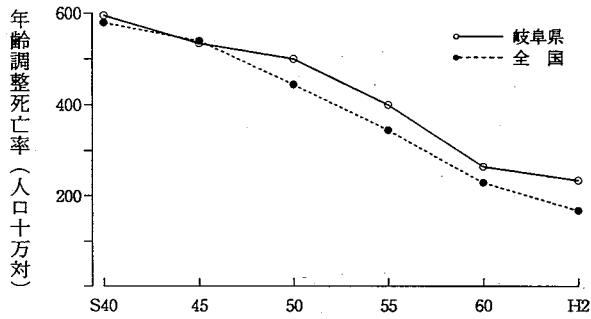
悪性新生物は観察年次の間横ばいに近い状況で推移し、岐阜県は全国と同等または全国より若干低い傾向にある（図2）。

一方、心疾患は僅かな減少をみるも横ばいに近い状態で推移しており、岐阜県は昭和40～60年の間全国を上回っており、平均寿命の低下に寄与したことが窺われる（図3）。

脳血管疾患は観察年次の25年間に全国、岐阜県とも顕著な減少を示し、近年におけるわが国の平均寿命の伸長に貢献したことが分かる。岐阜県の脳血管疾患死亡率は昭和50年以降、全国を明らかに上回っており、平均寿命の順位の低下に寄与したばかりでなく、その後の回復にブレーキをかけていることが推察される（図4）。

そこで、岐阜県における脳血管疾患の諸相を経年的に調べ、図5に示した。岐阜県衛生年報では昭和40年以前は細分化して統計処理されていないので昭和45年からの観察である。

脳血管疾患死亡は年次とともに大幅に改善されているが、それに寄与したのは脳出血の減少であり、脳梗塞およびくも膜下出血等のその他の脳血管疾患は、この20年の間あまり死亡状況が改善されていない。昭和50年には脳出血と脳梗塞が逆転し、昭和60年には脳出血とその他が逆転している。このことは脳出血のリス

図3 主要死因年齢調整死亡率の年次推移
(40才以上、女子、心疾患)図4 主要死因年齢調整死亡率の年次推移
(40才以上、女子、脳血管疾患)

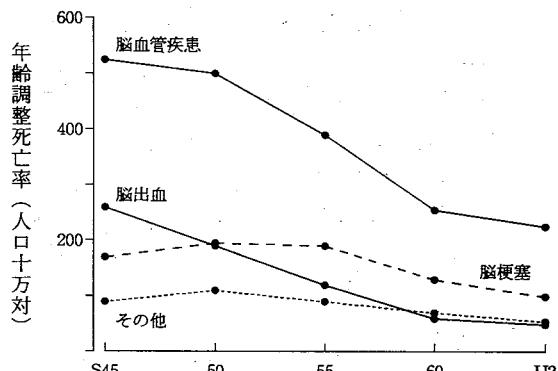
ク要因は、脳梗塞およびその他の脳血管疾患のリスク要因とは異なることを示唆するものであろう。

また、岐阜県女子の脳血管疾患の年齢階級別死亡率（40才以上）の経年変化を調べ、図6に示した。

全ての年齢階級において年次とともに死亡率は低下している。40～49才では岐阜県は全国と大差ないが、50～59才では年次によっては全国を上回っている。

一方、65才以上の年齢階級では、各階級とも平均寿命順位に大きな変化がみられた昭和50年以降、明らかに全国を上回っていることが観察された。従って図4において昭和50年以降、岐阜県女子の脳血管疾患死亡率が全国をかなり上回っているのは、岐阜県女子の65才以上の年齢階級における死亡率が高いことが寄与していると考えられる。

さらに、予防の観点からは脳出血、脳梗塞、その他

図5 岐阜県における脳血管疾患年齢調整死亡率の年次推移
(40才以上、女子)

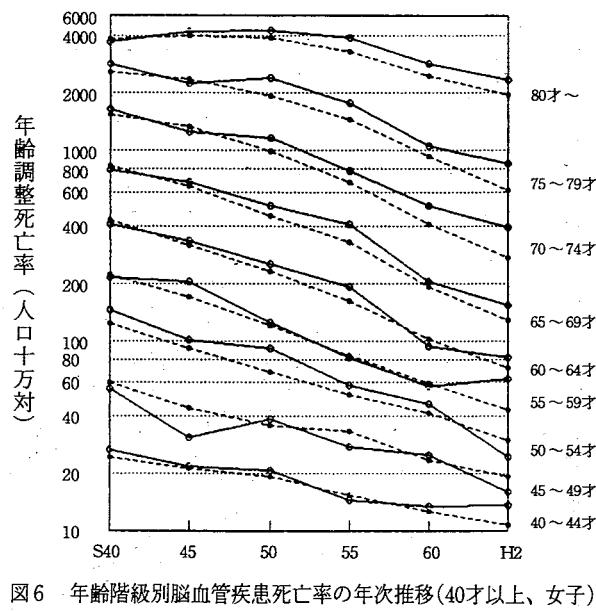


図6 年齢階級別脳血管疾患死亡率の年次推移(40才以上、女子)
—岐阜県 —全 国

の脳血管疾患死亡のうち、どの疾患が岐阜県では全国より高いかを知ることは重要なことと思われる。そこで昭和60年、平成2年、平成4年の3年次について、前記3疾患死亡率の岐阜県と全国との比較を行って表1に示した。

この表によると、各年次において3疾患とも全国より岐阜県の方が高い値を示し、その差(岐阜県-全国)の大きさからみて、脳梗塞>その他>脳出血の順で全国より高いことが認められた。

3.2 平均寿命順位との関連

岐阜県女子成人病死亡状況と平均寿命順位との関連をみる前に、年齢調整死亡率と平均寿命との関係を調べた。

その結果、平成2年都道府県女子年齢調整死亡率(40才以上)と平成2年都道府県女子平均寿命との間

表1 脳血管疾患年齢調整死亡率の年次推移
(40才以上、女子、人口10万対)

年次	脳出血			脳梗塞			その他		
	岐阜	全国	差	岐阜	全国	差	岐阜	全国	差
S 60	61	58	3	124	111	13	71	57	14
H 2	48	38	10	103	82	21	57	42	15
H 4	39	34	5	82	73	9	44	37	7

には高い負の相関がみられた($n=47, r=-0.938$)。従って、全死因の年齢調整死亡率が平均水準である全国と同じならば、その平均寿命順位も平均的水準にある可能性が高いと考えられる。

これらのことから、岐阜県女子の平均寿命順位が全国水準よりかなり低い位置にあるのは、全死因年齢調整死亡率が全国のそれより高いためであり、全死因年齢調整死亡率において岐阜県と全国との差がどのくらいあり、それがどのような死因に由来しているかの分析が必要と思われる。

表2に各死因死亡率の差(岐阜県-全国)および全死因の差に対する各死因の寄与率(%)を示した。

この表によると、全死因の差が(-)となったのは昭和40年のみであり、他の年次はすべて(+)であって、特に昭和50年における差は132.9(人口10万対)と最大を示し、この差に対する各死因の寄与率は、悪性新生物では5%，心疾患は24.5%，脳血管疾患42.7%，その他の死因では27.8%であった。

脳血管疾患は昭和45年を除き、いづれの年次において最も寄与率が高く、平均寿命順位の低下に最も貢献したことが分かる。一方、悪性新生物は(-)に寄与するが多く、平均寿命順位の低下を妨げる傾向を示した。

昭和50年から60年において、全死因の差に対する寄

表2 各死因年齢調整死亡率の差(岐阜県-全国)および全死因の差に対する各死因の寄与率(%)

年 次	全死因		悪性新生物		心疾患		脳血管疾患		その他の死因	
	差	%	差	寄与率	差	寄与率	差	寄与率	差	寄与率
昭 40	-9.5 (100)		-16.8 (-176.8)		13.8 (145.3)		14.6 (153.7)		-21.1 (-222.2)	
45	24.7 (100)		-10.4 (-42.1)		3.4 (13.8)		-3.8 (-15.4)		35.5 (143.7)	
50	132.9 (100)		6.7 (5.0)		32.6 (24.5)		56.8 (42.7)		36.9 (27.8)	
55	93.7 (100)		-1.1 (-1.2)		15.4 (16.4)		55.3 (59.0)		24.1 (25.7)	
60	39.8 (100)		-16.0 (-40.2)		9.4 (23.6)		29.7 (74.6)		16.7 (42.0)	
平成 2	25.4 (100)		-10.7 (-42.1)		-3.5 (-13.8)		43.3 (170.5)		-3.7 (-14.6)	

寄与率% = 各死因の差 ÷ 全死因の差 × 100

与率は、脳血管疾患>その他>心疾患>悪性新生物の順であり、平成2年では全死因の差に寄与したのは脳血管疾患のみであった。このことは40才以上の女子の脳血管疾患死亡を改善（人口10万当たりおよそ25人減少させる）することにより、岐阜県女子の平均寿命を全国水準に近づけうる可能性を示唆するものである。

わが国の死亡率の改善（平均寿命の伸長）は、1960年頃までが主として乳幼児期、青年期の死亡率の低下によるものであり、それ以降は脳血管疾患を中心とする成人病による中高年の死亡率低下によると考えられている^{5,6)}。

昭和40年から平成2年におけるわが国女子の平均寿命の伸長は、図1～4を参考になると、悪性新生物および心疾患死亡の減少が緩慢で、横ばいに近い状況であるに対し、この期間において脳血管疾患死亡がおよそ1/3、その他の死因による死亡がおよそ1/2に減少したことによってもたらされたと考えられる。

このような全国的趨勢の中で、岐阜県においては図4、図6にみるように、昭和50年以後、脳血管疾患死

亡の改善が他府県より遅れ、特に65才以上女子の死亡率の改善が遅れたために、今日における女子平均寿命順位の低迷をきたしたものと推察される。

文 献

- 1) 厚生統計協会：昭和60年、地域別生命表の概要、厚生の指標, 34(16), 9-12, 1987
- 2) 森 洋隆、河合 信：岐阜県女子平均寿命に関する一考察、厚生の指標, 36(2), 21-25, 1989
- 3) 厚生統計協会：年齢別にみた人口動態、厚生の指標, 28(16), 1981
- 4) 厚生統計協会：国民衛生の動向、厚生の指標, 34(9), 1987, 39(9), 1992
- 5) 厚生省大臣官房統計情報部：戦後日本の寿命延長の動向、厚生の指標, 33(1), 57-65, 1986
- 6) 西田茂樹：わが国の1960年以降の50才以上の死亡率低下の死因構造について、公衆衛生院研究報告, 36(2-3), 1987

A Relationship between Age Adjusted Death Rates from Female Adult Diseases and Life Expectancy

Hirotaka MORI (*Gifu Prefectural Health and Environment Research Center, 6-3, Noishiki 4 chome, Gifu 500, Japan*)

つつが虫病患者の凍結血液からのリケッチャ分離について

野田 伸司

要　旨

つつが虫病患者からのリケッチャ分離例の多くは新鮮血液を用いたものであり、凍結材料からの報告はほとんどない。今回、採血後1～2日以内に血清分離した後、血清を同量のSPG液に置換し、-80℃に28～50ヵ月間凍結保存した患者血液12検体より、マウスと培養細胞を使ってリケッチャ分離を試み、29ヵ月と49ヵ月の2検体よりリケッチャを分離した。

キーワード：リケッチャ分離、凍結血液

1 はじめに

つつが虫病患者の確定診断は、病原リケッチャの分離か、血清学的な特異抗体の検出によらなければならぬ¹⁾。この内、リケッチャの分離は長時間を必要とし、且つ分離率も高くないこと等から実施されることは少なく、もっぱら間接蛍光抗体法（IF法）や間接免疫ペルオキシダーゼ法（IP法）による血清診断法が行われている²⁾。

しかし、分離は病原体の型別や毒力の強弱など、詳細な性状を調べるには必須の方法で、現在でもいくつかの機関で実施されている。

分離には、マウスや培養細胞が用いられるが、分離用の患者血液は、リケッチャの物理化学的抵抗力の弱さを考慮して、採血後短時間の内に接種することが奨められ、やむをえない場合には-80℃で保存できるとされている³⁾。このためか分離例のほとんどは、患者の新鮮血液を用いたものであり、凍結材料については高田ら⁴⁾以外の報告はないようである。

そこで、今回つつが虫病血清診断用に血液のまま当所に送付され、-80℃に比較的長期間凍結保存された検体からのリケッチャ分離を試み、2株のリケッチャを分離したので、その概要を報告する。

2 材料と方法

2.1 患者血液

表1に示す様に、1990年～1992年に採取された患者血液12検体を用いた。これらは採血後1～2日以内に

血清分離した後、血清の代わりに同量のSPG液³⁾を加え、-80℃のフリーザーに保存した。保存期間は28～50ヵ月である。なお、採血以前にテトラサイクリン等の抗生物質が投与されたか否かは不明である。

2.2 分離方法

マウス法と培養細胞法を併用した。

マウスは長野らの成績⁵⁾から、マウス弱毒株用にBALB/cヌードマウスを、強毒株用にddYマウスの2種類を用いた。これらは5週齢の雌を購入し、凍結融解した患者血液の0.5mlを腹腔内に接種し、アイソレーター飼育機（日本医科製）の中で観察した。

ヌードマウスは2週間後に、ddYマウスは3週間後に解剖し、脾臓を摘出した。ddYマウスは抗体測定用に血液も採取した。

ヌードマウスの脾臓はSPG液で20%乳剤を作製し、

表1 リケッチャ分離用血液

No.	採 血 日	病 日	-80℃での保存期間 (月数)
1	90.11. 6	8	48
2	90.11. 6	4	48
3	90.11. 8	10	48
4	90.11. 8	14	50
5	90.11.13	8	50
6	90.12. 3	8	49
7	90.12. 7	3	46
8	90.12.11	10	46
9	91.11.25	2	35
10	92.10.28	5	29
11	92.11.24	5	28
12	92.11.27	9	28

表2 リケッチャの分離状況

No.	分離用血液の抗体価 ¹⁾	マウス脾臓の腫脹ヌード ddY	ddYマウスの抗体価 ¹⁾	BS-C-1細胞でのIFA ²⁾
1	640	—	<10	—
2	<10	—	<10	—
3	640	—	<10	—
4	1280	—	<10	—
5	20	+	40	—
6	160	+	160	+
7	<10	—	<10	—
8	1280	—	<10	—
9	<10	—	<10	—
10	<10	—	80	+
11	40	—	<10	—
12	320	—	<10	—

注 1) Karp, Kato, Gilliam, KN-1, KN-2, KN-3, GJ-1 の7株に対するIFAの最高抗体価

2) 間接蛍光抗体によるリケッチャ特異蛍光の有無

BS-C-1細胞に接種した。なお、ddYマウスの脾臓は腫大等の変化を観察した後、-80℃に保存した。

細胞は10日間観察し、CPEが認められない場合は継代した。12検体とも同様にして6代まで継代し、IF法でリケッチャの増殖が認められた場合に、分離陽性と判定した。

2.3 抗体測定

急性期および回復期の患者血清およびddYマウス血清の抗体はIF法で測定した。IF法の抗原は、標準株(Karp, Kato, Gilliam)に岐阜県の代表的分離株(KN-1, KN-2, KN-3, GJ-1)を加えて使用した。

3 結 果

3.1 分離状況

表2に12検体の結果を示した。

12検体は2~14病日に採血され、8病日以上では7株の抗原いずれかに抗体が認められ、1:20~1:1280であった。

マウスの脾臓摘出時の変化は、ヌードマウスではNo.

5とNo.6の2検体に腫脹が認められ、ddYマウスではNo.6とNo.10における腫大が著しかった。なお、No.5を接種したddYマウスの脾臓もわずかながら腫れが認められた。

脾臓の腫脅が認められたddYマウスは、いずれも血清抗体の上昇が認められ、1:40~1:160を示した。

ヌードマウスの脾臓乳剤を接種したBS-C-1細胞は、CPEを指標に10日間観察した。陰性の場合は細胞ごと搔きとて新しい細胞に植えついだが、各検体とも3代目まではほとんど変化がなかった。しかし、No.6とNo.10の2検体は、4代目から培地pHの上昇とともにCPE様変化が見られ、6代目には細胞のCPEは顕著であった。

これらを含め6代継代した12検体は、BS-C-1細胞の浮遊液を抗原として、IF法でリケッチャの増殖を確認した。No.6とNo.10の2検体は、当所保存の患者血清で特異蛍光が認められ、分離が確認された。他の10検体は特異蛍光が認められず、リケッチャは分離されなかった。

なお、No.5を接種したBS-C-1細胞は、上記2検体と同様に、4代目に培地pHの上昇を認め分離が期待されたが、6代目までCPEは認められず、IF法でも特異蛍光を検出できなかった。

3.2 マウス脾臓の腫脹を認めた3例の抗体価

表3にマウスの脾臓を腫大させたNo.5, No.6, No.10の3検体の抗体価を示した。

No.6の抗体価は、血清、マウスともによく一致し、KN-2株に1:160, KN-1株にも同様な成績で、他の5株には1:10~1:40であった。No.10の血清はどの株にも抗体が認められなかつたが、マウスでの抗体は分離株を中心1:20~1:80であった。

No.5は血清、マウスとも主に分離株に抗体が認められたが、1:10~1:40と低い値であった。

なお、表には示していないが、No.5とNo.6の2検体については回復期血清が送付され、血清学的にもつつ

表3 マウスの脾臓を腫脹させた3検体の抗体価

IF用抗原	No.5 分離用血液 ddYマウス		No.6 分離用血液 ddYマウス		No.10 分離用血液 ddYマウス	
	分離用血液	ddYマウス	分離用血液	ddYマウス	分離用血液	ddYマウス
Karp	—	—	10	10	—	—
Kato	—	20	10	10	—	—
Gilliam	—	—	40	40	—	20
KN-1	10	—	160	160	—	—
KN-2	20	40	160	160	—	20
KN-3	10	10	20	20	—	40
GJ-1	ND	ND	40	40	—	80

注) 抗体価は陽性を示す血清の最高希釈倍数の逆数

—は<10

NDは実施せず

が虫病感染が証明された。しかし、No.10については回復期血清の送付がなく、血清学的な確認はできなかつた。

4 考 察

前述したように、つつが虫病の確定診断には血清診断法が多用され、リケッチャの分離が実施されることはない。このため、分離はもっぱら抗原解析等の目的で実施されるため、分離効率のための検討は行なわれている⁶⁾が、分離材料は新鮮血液以外使われていない。

今回、-80℃に4年以上凍結保存した血液からリケッチャを分離した。我々は培養細胞やマウスで増殖させたリケッチャが、-80℃で何年間も保存可能なことを経験している。しかし、患者血液中のリケッチャが、細胞やマウスで増殖させたよりはるかに少ないとることは明らかで、凍結と融解によるリケッチャのダメージを考慮すれば、凍結した患者血液からのリケッチャ分離は容易ではないのかもしれない。

高田ら⁴⁾は、-40℃に保存した献血血液からリケッチャを分離している。保存期間の記載はなく、文面からは2~3ヵ月と推測されるが、リケッチャの弱抵抗性を考慮しても、短期間であれば-40℃保存からの分離も可能と思われる。また、彼らは論文中で、保存血液中におけるリケッチャの生存率が不明なことから、有症者が献血する可能性は少ないものの混入の危険性を指摘しているが、リケッチャにとっては更により凍結条件とはいえ、4年以上も生存していたことは興味深い。

最近、分離のかわりにPCR法でリケッチャの遺伝子DNAを検出できる様になり、優れた成績が報告されている⁷⁾。今回、分離に用いた血液は、採血前の医療行為が不明のため、血液中のリケッチャ存在の可能性は明らかではないが、PCR法の併用がこの疑問への回答の一つになると思われる。

文 献

- 須藤恒久：本邦における恙虫病の現状とその迅速診断法；メディアサークル, 30, 497-510, 1985
- 須藤恒久：本邦における最近の恙虫病の疫学及び臨床像と病原診断体制の現況について；ウイルス, 36, 55-70, 1986
- 東大医科研学友会編：微生物学実習提要, 94, 丸善, 1988
- 高田伸弘, 大槻典男：献血よりRickettsiaを分離できた福井県の確実な恙虫病第1例；感染症学雑誌, 59, 496-499, 1985
- 長野功, 粕谷志郎, 山下照夫, 大友弘士, 野田伸司：岐阜県で分離された R.tsutsugamushi のマウスに対する病原性；感染症学雑誌, 65, 159, 1991
- 山本正悟：Rickettsia tsutsugamushi (Q熱リケッチャも含む)；臨床と微生物, 15, 603-607, 1988
- 吉田芳哉, 古屋由美子, 片山丘, 海保郁男, 山本正悟：Nested PCRによるRickettsia tsutsugamushi DNAの検出と型別；感染症学雑誌, 68, 601-606, 1994

Isolation of Rickettsia Tsutsugamushi from Patient's Frozen Blood

Nobuji NODA (*Gifu Prefectural Health and Environment Research Center,
6-3, Noishiki 4 chome, Gifu 500, Japan*)

岐阜県に産する厚朴（ホウノキ樹皮）中の magnolol及びhonokiol含量

坂井 至通*, 清水 英徳*, 中川 一**

要　旨

ホウノキの樹皮は、日本薬局方に「厚朴」として収載され、漢方薬に配合される要薬のひとつである。岐阜県内のホウノキの賦存量を検討したところ、長良川及び宮川・庄川流域に多く見られ、生薬資源保有県であることが判明した。

厚朴中成分のmagnolol及びhonokiolに持続性の中枢抑制作用や抗胃潰瘍作用が認められ、これらを指標成分として品質評価が行なわれている。県内産6検体及び市場品7検体について、magnolol及びhonokiolの含量を測定したところ、市場品と同程度の含量を示した。magnololに対するhonokiol含量の比較では、66%及び94%を占める高honokiol含量を示す厚朴を認めた。樹高約20mのホウノキを、地表面から2m間隔で樹皮を採取した試料では、地表面に近い部位に含量が高く、2m以上では含量がほぼ一定していた。また、成分含量と樹皮厚の相関性は特に認められなかった。

キーワード：ホウノキ、厚朴、賦存量調査、magnolol、honokiol

1 はじめに

ホウノキ (*Magnolia obovata* Thunb.) は、日本特産の樹木で、北海道から九州にいたる各地の山地又は平地の林中に生育する。ホウノキの樹皮は、第12改正日本薬局方（以下局方という）に「厚朴（コウボク）」として収載され¹⁾、健胃薬、鎮痛薬など大衆向けの胃腸薬や消化器疾患または精神神経疾患治療を目標とした漢方薬に配合される要薬のひとつである。岐阜県は面積の約70%が森林で覆われホウノキの材積量も多く、貴重な生薬資源を保有している。県内のホウノキ材積量等の調査は岐阜県林政部の報告^{2,3)}から明らかであるが、高品質生薬の生産を図るために、日本の各产地と岐阜県産の厚朴について成分含量等を比較し、生薬資源としての実態を明らかにする必要がある。

厚朴の有効成分としては、 β -eudesmolを主とした精油（約1%含有）やmagnocurarineなどのアルカロイドが知られているが、最近の薬理試験結果では、magnolol及びhonokiolに、鎮静、運動抑制、中枢性筋弛緩など持続性の中中枢抑制作用や抗胃潰瘍作用など

が認められたことから、現在は主にこれらを指標成分として品質評価が行なわれている^{4,5)}。

今回、岐阜県産ホウノキについて、材積量の多い地域の山林から樹皮部（厚朴）をサンプリングし、magnolol及びhonokiolの含量を測定したので報告する。

2 調査方法

2.1 岐阜県に生育するホウノキの調査

岐阜県の山間部に自生するホウノキの分布調査は、岐阜県林政部林業振興課（以下林業振興課）が1981年より1985年度に実施した広葉樹賦存状況調査^{2,3)}を参考にした。岐阜県下の天然林及び人工林における広葉樹と針葉樹の材積量等の調査は、主要5河川を基本に区分した森林計画区（長良川219林分、揖斐川264林分、木曽川110林分、飛驒川220林分および宮庄川290林分であり、以下各森林計画区は河川名に略す）の1103林分で標本調査が行われている。この資料を基にホウノキの森林計画区別材積率を調査した。

2.2 厚朴中のmagnolol及びhonokiol含量

* 岐阜県保健環境研究所：500 岐阜市野一色4丁目6番3号

** 現東濃用水道事務所中津川浄水場：508 岐阜県中津川市中津川字地蔵堂883-5

***岐阜県林業センター：501-37 岐阜県美濃市曾代1128-1

2.2.1 試料

厚朴は、1993年に大阪生薬市場より得た7検体と1995年夏期に揖斐郡坂内村（2検体、8月7日）、郡上郡大和町（2検体）及び大野郡莊川村（2検体、7月21日）の山林中のホウノキから得た樹皮6検体を試料とした。市場品検体はそれぞれ集荷毎にロットを構成しており、入手した抜き取り試料もそれぞれ数枚ずつの樹皮が梱包されていた。分析試料は、各ロットから任意に2枚の樹皮を選出し、そのロットの試料1及び2とした。野生ホウノキの樹皮の採取は、胸高部位（1.2m）の約 $20 \times 20\text{cm}^2$ の面積を基準に、周皮の3分1を越えない幅で相当する面積を採取した。また、1993年6月27日に郡上郡大和町上栗巣及び1995年5月21日に同町牧で、樹高約20mのホウノキから地表面より2m間隔で樹皮を採取し試料とした。採取地については表1に示した。

2.2.2 樹皮厚測定

各試料は、上下各2箇所計4箇所で樹皮厚をノギスを用いて測定し、その平均値を樹皮厚とした。

2.2.3 magnolol及びhonokiol含量測定

各試料は、ミキサーで粉碎して細粉末とし、その約500mgをそれぞれ精密に秤量し、エーテル30mLを加えて30分間加熱還流した。抽出液はろ過し、残渣をエーテルで洗い、メスフラスコで50mLにメスアップし試料溶液とした。また、生薬分析用標準品のmagnolol及びhonokiol（いずれも和光純薬製）の各5mgずつを精密に量り、メタノールで10mLとし標準溶液とした。HPLC測定条件は、送液ユニット（日本分光、880-Pu型ポンプ）、カラム（野村化学、Develosil ODS-5）、移動相（アセトニトリル：水：酢酸、60:40:1、流速1.0mL/min）、検出器（ヒューレットパッカード、フォトダイオードアレイ検出器1040M、検出波長294

nm）をそれぞれ用いて測定した。含量は絶対検量線法によりピーク面積から計算した。

3 結果及び考察

3.1 分布調査結果

岐阜県の面積の約70%は森林で覆われ、その全森林総材積は $6.86 \times 10^8 \text{ m}^3$ に達する。多くは国有林であり、調査対象とした民有林や郡市町村林等での材積は $9.6 \times 10^7 \text{ m}^3$ （全森林総材積の14%）であった。天然及び人工林別の針葉樹と広葉樹の材積占有率を森林計画区毎に見ると、広葉樹の比率が半分を上回るのは宮庄川（59%）と揖斐川（57%）であり、長良川（27%）、木曽川（22%）及び飛騨川（21%）は、針葉樹の人工林（マツ、スギ、ヒノキなど）が優勢となっていた。モクレン科の広葉樹であるホウノキは、広葉樹材積量の上位6番目にあり、材積量は $8.6 \times 10^5 \text{ m}^3$ （広葉樹の約3.4%）であった。

図1に示したように、各森林計画区別のホウノキ材積率を胸高直径毎に見ると、長良川の広葉樹天然林の材積量が揖斐川の約84%と少ないにもかかわらず、ホウノキの材積量は揖斐川の約3.4倍（ $3.35 \times 10^6 \text{ m}^3 / 0.995 \times 10^6 \text{ m}^3$ ）に達し、揖斐川より長良川に多く存在していた。宮庄川と長良川の比較では、ホウノキの材積量はほぼ同じ（ $3.67 \times 10^6 \text{ m}^3$ と $3.35 \times 10^6 \text{ m}^3$ ）であるが、宮庄川に広葉樹が多いだけ（1.8倍）、長良川の方にホウノキが相対的に多く見られる事になる。

中部地方においては岐阜県、長野県、富山県などが厚朴の産地で、野生品採取によって主に大阪市場に供給される。しかしホウノキ樹皮の採取は地元の林業家による計画的なものではなく、その時々の需要に応じて野生品取りが行われているため、安定した価格での生産が望めない状況にある。近年、厚朴を配合した柴朴

表1 ホウノキの採取地及び性状

試 料 ロット番号	採取地	標高 (m)	林相	樹高 (m)	胸高直径 (cm)	年輪数 ^{*1}
SY -1	大野郡莊川村牧戸	780	広葉樹林	10	11.2	—
	大野郡莊川村一色	850		14	22.6	—
GY -1	郡上郡大和町上栗巣	800	広葉樹林	28	39.0	43-45
	郡上郡大和町牧	420		21	24.1	27-32
SK -1	揖斐郡坂内村広瀬	340	広葉樹林	30	38.0	—
	揖斐郡坂内村坂本	380		15	23.1	—

*1 切り株の年輪数を計測した。年輪が方位によって不均一なため幅で示した。

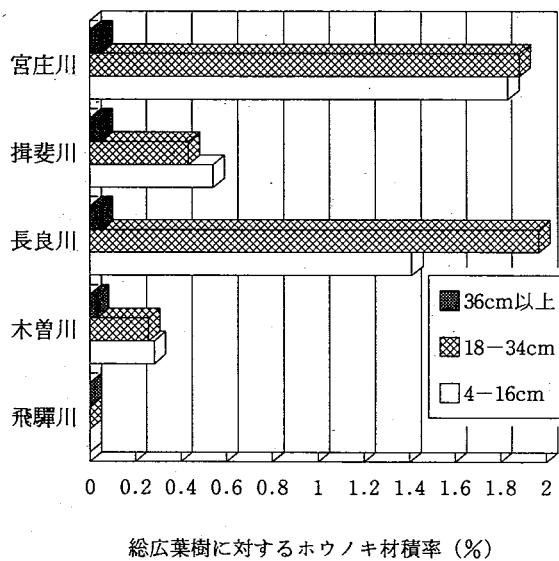


図1 胸高直径別の材積率

湯などの急激な需要増加があり、また漢方薬への配合は日本産の和厚朴に限られていたことから、厚朴の品薄状態が続いた。1990年末の市場価格が約1200円/kgであったのが、1年後の1991年末には2000円/kgまで上昇し、現在までの3年間はこの価格が維持されている⁶⁾。郡上郡の山林で伐採したホウノキ試料(GY-2)については、地表面の部位から10.1mまでの採取した全ての樹皮を3ヵ月間日陰で自然乾燥し、収量を測定したところ、11.9kgの収穫であった。従来は木材チップとして処理される樹皮でも、生薬としての価値を持たせることは、資源確保の点からも重要である。樹木の生長には10年を越える歳月を要し、計画的な生産と安定供給を行うための採取時期、採取方法、調製法等の指導と集荷及び流通の整備が望まれる。

3.2 magnolol及びhonokiol含量測定結果

厚朴成分のmagnolol及びhonokiolは、古くから単離され構造決定されていたが、中枢抑制作用が明らかにされたのは近年のことである。これらはジフェニル構造を有し、フェノール性水酸基の作用によりグラム陽性菌、大腸菌、赤痢菌などに対する抗菌作用も証明されている。藤田ら⁷⁾は、ホウノキ樹皮のメタノールで抽出したエキスをガスクロマトグラフ法によりmagnolol及びhonokiolの定量分析を、桂ら⁸⁾は北海道産の厚朴についてエーテル抽出液を高速液体クロマトグラフ法で、上田ら⁹⁾は、厚朴配合漢方湯液中のmagnolol及びhonokiolの定量をイオンペアクロマトグラフ法で測定する方法をそれぞれ報告している。今回、北海道産の厚朴との比較を行なうため、桂らの方法によりmagnolol及びhonokiolの定量を測定した。試料中のmagnolol及びhonokiolのクロマトグラムの1例を図2に示した。両者とも良好に分離しており、含量測定結果は表2に示した。magnololとhonokiolの合計量では、市場品に4.22%及び5.67%と高含量を示すものが認められた。また、magnololに対するhonokiol含量を比較すると、93.7%及び66.2%と高比率を示すものを認めた他は、県内産の厚朴は市場品とほぼ同程度であり、桂らの北海道産厚朴についての測定例⁸⁾もほぼ同じ含量であった。

郡上の山林で採取したホウノキ2本について地表面から2m間隔で樹皮を採取し、magnolol及びhonokiol含量を測定した結果を表3に示した。GY-1の地表面付近の樹皮は、2m以上の平均含量に比べ9.5倍の含量を示した。GY-2も2倍程度高い値を示した。また、2m以上12mまでの樹皮では両試料ともほぼ一定

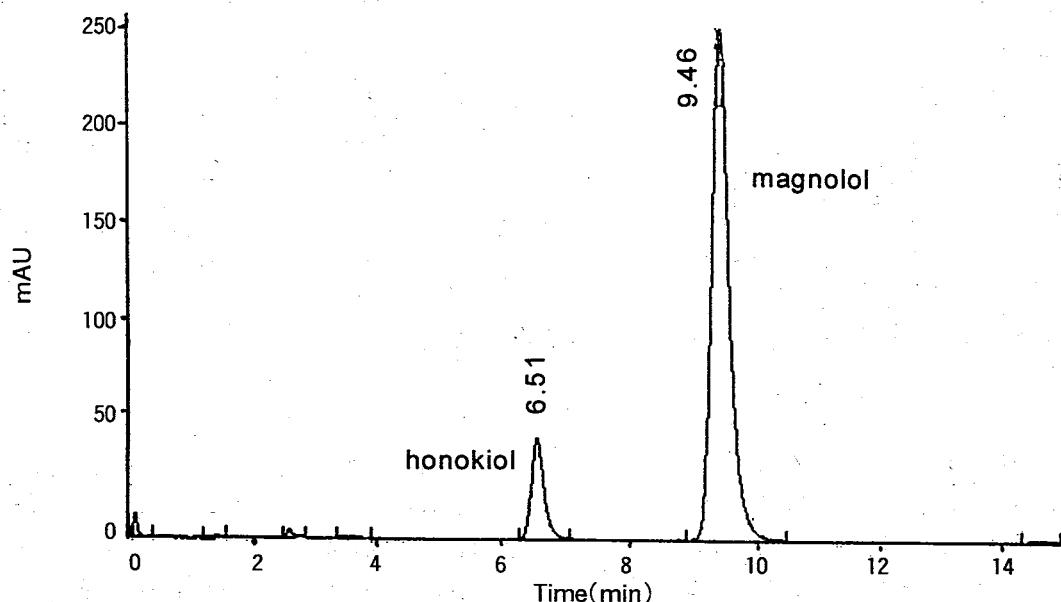


図2 magnolol及びhonokiolのクロマトグラム例

表2 厚朴の市場品及び採取品中のmagnolol及びhonokiol含量

試 料 ロット番号	産 地	honokiol A(%)	magnolol B(%)	total A+B(%)	ratio A/B*100(%)	樹皮厚 (cm)
SL1 -1	長野* ¹	0.14	1.18	1.31	11.2	0.17
-2	長野* ¹	0.31	2.67	2.98	11.6	0.29
SL2 -1	長野* ¹	0.20	1.12	1.32	17.7	0.47
-2	長野* ¹	0.19	1.49	1.67	12.5	0.25
SL3 -1	長野* ¹	0.49	1.85	2.34	26.1	0.43
-2	長野* ¹	0.22	1.06	1.28	21.0	0.46
x708-1	長野* ¹	0.27	0.85	1.11	31.5	0.43
-2	長野* ¹	0.22	0.76	0.98	28.7	0.34
Z0407-1	長野* ¹	1.08	3.15	4.22	34.1	0.30
-2	長野* ¹	2.74	2.93	5.67	93.7	0.52
1608N-1	長野* ¹	0.08	0.57	0.65	13.6	0.59
-2	長野* ¹	0.30	1.43	1.73	20.8	0.44
1608A-1	秋田* ¹	0.71	1.07	1.78	66.2	0.26
-2	秋田* ¹	0.33	0.77	1.10	42.6	0.40
SK -1	岐阜* ²	0.10	0.99	1.09	9.9	0.26
-2	岐阜* ²	0.35	1.90	2.25	18.5	0.45
GY -1	岐阜* ³	0.13	0.80	0.93	16.0	0.39
-2	岐阜* ³	0.10	0.63	0.73	16.6	0.44
SK -1	岐阜* ⁴	0.31	1.75	2.06	17.7	0.51
-2	岐阜* ⁴	0.27	2.06	2.33	13.0	0.34

*1 岐阜以外の産地は推測される産地 *2 大野郡莊川村

*3 郡上大和町 (胸高位でなく 2 m 位置での試料を用いた)

*4 指斐郡坂内村

表3 ホウノキ樹高別のmagnolol及びhonokiol含量

試料名	樹 高 (m)	honokiol A(%)	magnolol B(%)	total A+B(%)	ratio A/B*100(%)	樹皮厚 (cm)
大和町上栗巣						
G Y1-0	地表	1.01	7.50	8.51	13.4	0.64
-2	2	0.13	0.80	0.93	16.0	0.39
-4	4	0.07	0.54	0.61	13.3	0.42
-6	6	0.06	0.52	0.58	11.7	0.30
-8	8	0.14	0.94	1.08	15.2	0.29
-10	10	0.18	1.15	1.33	15.6	0.25
-12	12	0.15	0.86	1.01	17.4	0.27
平均値* ¹		0.12	0.80	0.92	14.9	0.36
大和町牧						
G Y2-0	地表	0.30	1.37	1.67	22.2	0.44
-2	2	0.10	0.63	0.73	16.6	0.44
-4	4	0.13	0.96	1.09	14.0	0.34
-6	6	0.07	0.57	0.64	12.4	0.35
-8	8	0.09	0.64	0.73	14.3	0.35
-10	10	0.10	0.69	0.79	14.9	0.34
-12	12	0.10	0.72	0.82	14.0	0.34
平均値* ¹		0.10	0.70	0.80	14.4	0.36

*1 地表面に近い試料は含料が高いので除外して平均値を算出した。

含量であり、地表面に近い部分の樹皮が指標成分の高い生薬として利用できることが認められた。

magnolol及びhonokiolの含量と樹皮厚の関連性について、表2のデータを基に相関関係を計算したが、

特に相関性は認められなかった。また、伐採したホウノキの樹皮厚とその部位の幹直径との間には相関性が観察されたが、表3に示したように 2 m 以上 12 m までは、樹皮厚に関係なく一定の含量が認められ、magn-

ololに対するhonokiol含量の比率もほぼ一定していた。この結果は、桂らの北海道産ホウノキの場合と同様の傾向を示した。指標成分を基準に考えると、生薬原料の品質としては、高含量の胸高以下の部分とそれ以上部位と分別して採取するのが望ましいと思われる。

4まとめ

岐阜県の長良川及び宮庄川森林計画区にホウノキが多くみられることが明らかとなった。また、市場品とのmagnolol及びhonokiolの含量比較で、県産厚朴は市場品と同じレベルの品質であることを認めた。また、伐採したホウノキの地表面から2m間隔の試料では、地表に近い部位に含量が高く、2m以上ではほぼ一定していた。漢方薬に利用される厚朴の品質は、局方の規格試験に加え有効成分の含量などで評価されることから、材木としての利用とは異なった観点から生薬資源の確保や安定供給などを図る必要がある。生薬原料の品質としては、高含量の胸高以下の部分とそれ以上部位と分別して採取するのが望ましいことを明らかにした。

謝辞

ホウノキの樹皮採取にご協力いただいた、郡上広域行政組合事務局河合好男氏並びに和田清氏、郡上郡大和町滝日宣志氏、大野郡莊川村役場三島篤農林課長、揖斐郡坂内村役場中矢仲夫助役、の皆様に厚くお礼申し上げます。また、ご助言いただいた岐阜県林業セン

ター育林研究部中村基部長、本研究所生活科学部今井準三部長並びに井口恒男所長に深謝いたします。

文 献

- 日本公定書協会編：第12改正日本薬局方解説書，D310-D312, 広川書店, 1991
- 岐阜県林政部：岐阜県の森林立地一立地環境に基づく施業技術体系, 190, 1988
- 中川 一：岐阜県の民有広葉樹について, 岐阜県林業センター研究報告, 第17号, 1-41, 1989
- 高木敬次郎, 木村正康, 原田正敏, 大塚恭男：和漢薬物, 248-251, 南山堂, 1982
- 原田正敏編集：繁用生薬の成分定量, 145-147, 広川書店, 1989
- 薬事日報社：生薬相場, 薬事日報新聞, 1987年-1995年, 薬事日報
- 藤田路一, 糸川秀治, 指田 豊：ホオノキの成分研究（第2報）樹皮のメタノールエキス成分, 薬学雑誌, 93(4), 422-428, 1973
- 桂英二, 山岸喬, 矢原正二, 西岡五夫：厚朴中のマグノロールおよびホオノキオールの高速液体クロマトグラフィーによる定量, 道衛研所報, 33, 24-27, 1984
- 上田篠二, 間馬則子, 大澤啓助：イオンペーカロマトグラフィーによる厚朴配合漢方湯液中のHonokiol及びMagnololの同時定量, 薬学雑誌, 93(4), 422-428, 1973

Contents of Magnolol and Honokiol in Magnoliae Cortex Produced in Gifu Prefecture

Yoshimichi SAKAI (*Gifu Prefectural Health and Environment Research Center, 6-3, Noishiki 4 chome, Gifu 500, Japan*)

Hidenori SHIMIZU (*Gifu Prefectural Tohno Region Water Supply Office, 883-5, Jizodo, Nakatsugawa City, Gifu 508, Japan*)

Hajime NAKAGAWA (*Gifu Prefectural Forestry Center, 1128-1, Sodai, Mino City, Gifu 501-37, Japan*)

長期測定による環境騒音評価 (第3報)大型ビル建設後の騒音レベル

奥平 文雄

要 旨

大幅に変動する環境騒音は測定値にバラツキが大きく、経年変化を比較するのは困難であるが、長期測定の平均値で示すと、周辺状況に大幅な変化がなければ、その値もほとんど変わらないことを第1～2報で示した。今回、測定地点と隣接して大型ビルが建設され、この地点の騒音レベルは以前と比べて L_5 で 3 dB, L_{50} で 3.5 dB 低下した。これは、主音源の道路騒音をこの大型ビルが遮蔽した結果であると考えられた。また、騒音レベルの日変動は昼夜の差の少ないパターンに変化し、日平均騒音レベルの経時変化の周期は 3.3～3.7 日から約 6 日に変化した。

キーワード：環境騒音、騒音評価

1 はじめに

大幅に変動する環境騒音は、短期的な測定方法ではバラツキが大きいため正しく評価することは難しい。そこで筆者らは、自動測定機の長期測定による評価方法を検討している。

1988年12月から1989年4月までの1年目、及び1989年12月から1990年4月までの2年目の測定を基に報告した第1報¹⁾では、測定期間に測定地点の周辺の状況に変化がないと考えられることから、環境騒音レベルの変動もないことを予測し、長期測定結果で確認した。その後、測定地点に隣接して大型ビルの建設が計画され、その建設作業による騒音レベルの上昇を長期測定により確認し、第2報²⁾で報告した。

今回、大型ビルの建設も終了し、地点周辺の環境も大きく変化したので、環境騒音レベルの変動が予測された。ただ、ビル周辺の付帯工事が1994年2月まで断続して続き、3月と4月の二ヶ月間しか平常的な環境騒音を示していないと考えられたので、第1、2報で行った4～5ヶ月平均による評価法ではなく、二ヶ月間の測定によって検討した結果を報告する。

2 調査方法

測定場所は岐阜県保健環境研究所（旧公害研究所）の建物（5階建、高さ19.4m）の屋上で、マイクロフォ

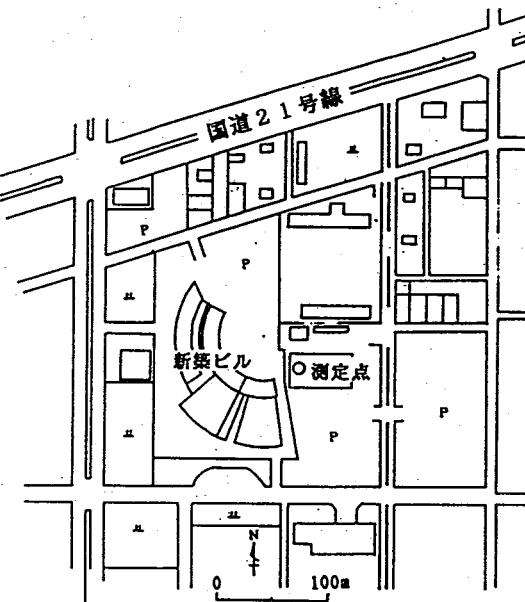


図1 測定点近辺概略図

ンの高さが屋上から2.0mあるので、測定点としての高さは地上高さ21.4mとなり前回と全く同じである。この地域は前にも述べたように航空機及び鉄道騒音の影響がほとんどなく、主音源は道路騒音であり、4車線を有する国道21号線（24時間交通量約63,000台、³⁾；以下国道と略称）が北方約170m離れたところを東西方向に走っている（図1）。

測定は、前回同様デジタル騒音計（リオン社製NA31型）で毎正時1回、5秒間隔500回行い上端値（ L_5 ）、中央値（ L_{50} ）の処理値を出した。

3 測定地点周辺の変化の概要

前回調査時点では、測定地点西側に約20,000m²の空地があった。その空地にビルの建築が1991年11月から始まり、1992年の12月にはほぼ完成した。この建物は3棟で構成される大型ビルで、3階までは共有部分があるがそれ以上の階では独立しており、14階；約67m、9階；約43m、4階；約29mの高さがある。14階及び9階の建物の東側の壁面はほぼ全面ガラスである。

その大型ビル以外の変化としては、測定地点南及び北西にあったビル（いづれも2階建）が取り壊されて道路の拡幅や駐車場になり、南西側の田も駐車場になった。したがって、これらの道路や駐車場を利用する車は、以前よりは増加したと考えられる。

現在の測定地点周辺は図1のとおりであり、測定地点を東側から西に見た概略は図2のとおりである。測定地点の西側を、大型ビルが丁度壁のように取り巻いて建ったことがわかる。

4 結果及び考察

4.1 騒音レベルの経時変化

図3は日平均騒音レベル（ L_5 と L_{50} ）の経時変化を示したものである。図には、89年、92年及び94年の

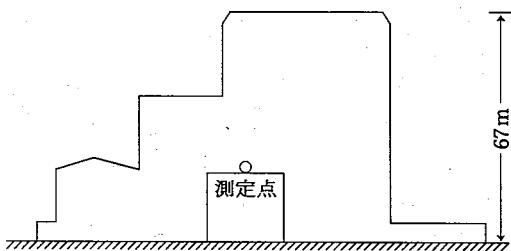


図2 測定地点立面図

3年分を示してある。以下では89年、92年及び94年分をそれぞれ1回目、2回目、3回目測定と略称することにする。したがって、1回目測定は大型ビルがない時点、2回目測定はビル建設工事中、3回目測定は1回目測定から5年後でビル建設終了後を示していることになる。

経時変化を自己回帰式に当てはめてパワースペクトルを求めて、それから周期を求めてみると⁴⁾、1～2回目の L_5 と L_{50} では、3.3～3.7日周期で変動している。これは第1報で述べたように、日曜日の騒音レベルが下がるため、感覚的には一週間周期で変動すると思われたが、平日でも騒音レベルの変動があり、結果として3.3～3.7日周期となっているようである。

一方、3回目の L_{50} では、約6日周期で変動しており、 L_5 では明確な周期はない。ビル建設により周期が変化したと思われるが、その機構は明らかではない。

測定回毎に騒音レベルを見ると、2回目測定が高く、次いで1回目、一番低いのは3回目測定である。2回

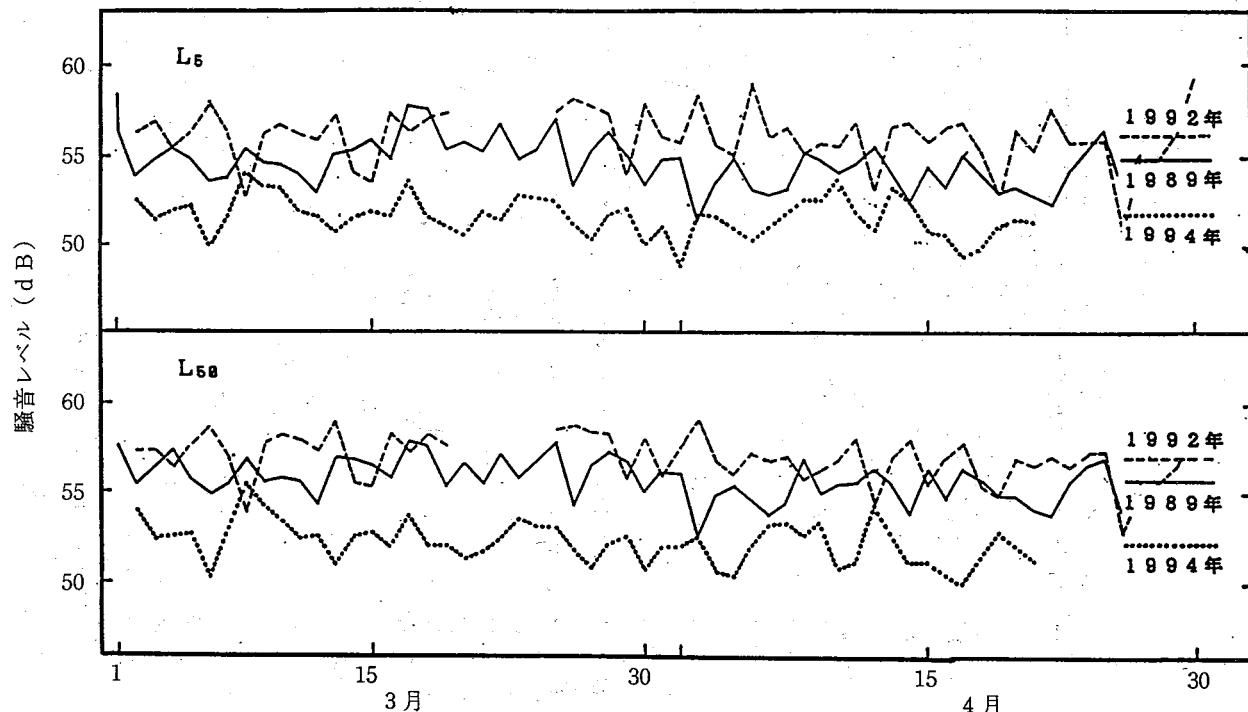


図3 日平均騒音レベルの経時変化

目測定が高いのは、ビル建設工事中であるので、これは当然の事である。

1回目測定から3回目測定までのそれぞれの全平均値は L_5 で59.6dB, 61.1dB, 56.6dBであり、 L_{50} では55.7dB, 56.9dB, 52.2dBである。

1回目測定と2回目測定の全測定値の平均の差は、 L_5 で1.5dB, L_{50} で1.2dBであり、1回目測定と3回目測定では、 L_5 で3dB, L_{50} で3.5dBである。1回目測定を基準と考えれば、ビル建設工事で上昇したレベルより、5年後測定の3回目測定のレベルの下降分が2倍以上あることになる。

3回目測定が1回目測定に比べ、大幅にレベルが下降した原因としては、次のように考えることが出来る。

周辺の騒音源としては、前にも述べたように道路騒音で、その主たるものは測定点北側を東西にのびる国道の交通に由来するものと考えられる。大型ビルが建設される以前は、測定点が高所にあること、また周辺に4階以上のビルもなかったことから、国道の道路騒音を遮るもののがほとんどなかった。しかし、大型ビルの出現により、測定点の西側部分からの国道道路騒音は、丁度ビルが防音壁のような役目でほぼ完全に遮蔽

したと思われる。したがって、3回目測定時の主たる騒音源は測定点東側からだけの半分の国道道路騒音になったと考えられ、そのため音源のパワーも1回目測定より半分に減少し、騒音レベルも前に述べたように約3dB低下したものと思われる。

一方、大型ビルは国道東側の道路騒音を反射し、騒音レベルを引き上げる原因になるが、建設されたビルは湾曲して、その焦点は測定地点の北西方面に位置しているため、反射音は測定点に届きにくい形状となっている。このため、このビルは騒音レベルを低下させるだけに作用したと思われる。

4.2 騒音レベルの日変動

図4は各月の時間毎の平均値で騒音レベル(L_5 と L_{50})の日変動を示したものである。

3回目測定の騒音レベルが1, 2回目測定と比べると大幅に低下していることがより一層はっきりと分かる。

日変動パターンを見ると、 L_5 では1回目測定が3, 4月とも昼間はほぼ一定の高さの騒音レベルで、夜間は騒音レベルが下がるいわゆる一般地域型の日変動パターンを示しているのに反し、3回目測定の日変動は、

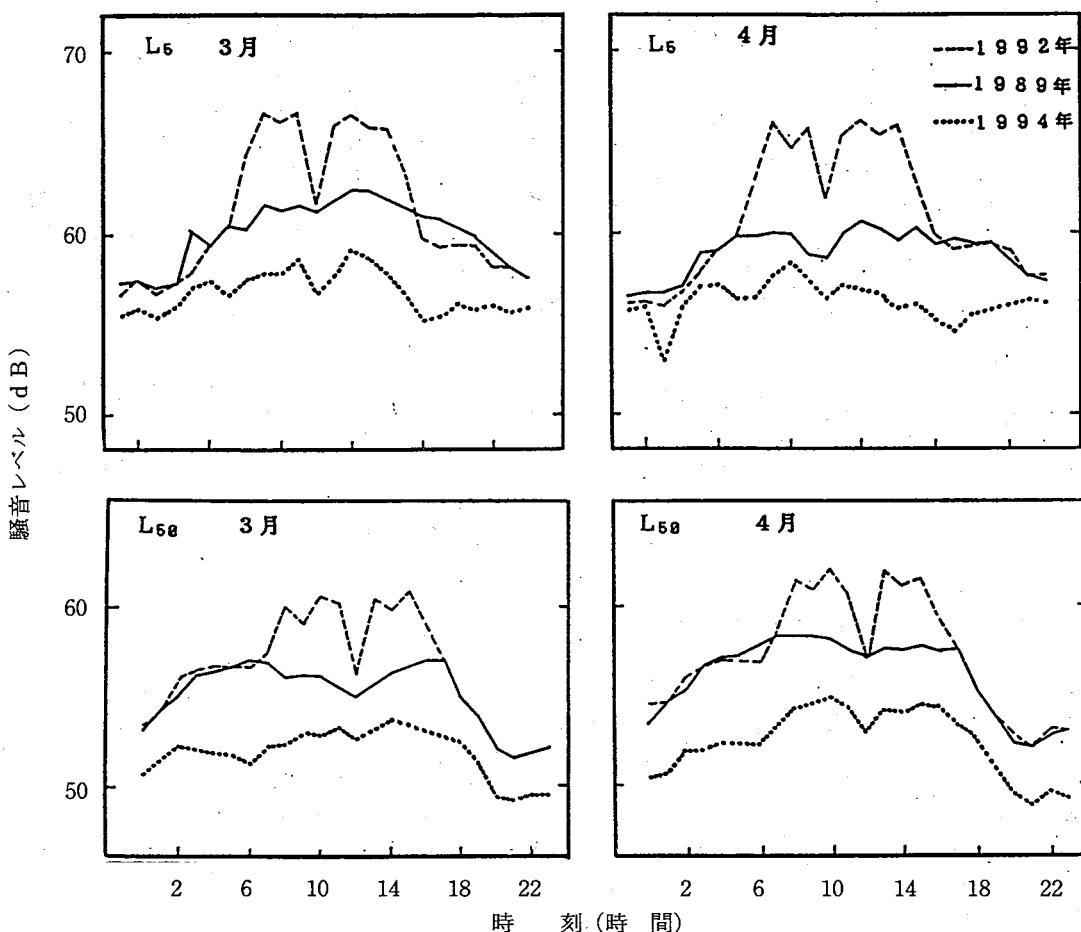


図4 騒音レベルの日変動

昼間と夜間のレベル差が少ないものとなっている。この昼間と夜間のレベル差が少ないので、夜間の騒音レベルが上昇したことによるのではなく、昼間のレベルがより多く低下したことによっている。したがって、この日変動はいわゆる幹線道路型日変動パターンではない。

一方、 L_{50} では、各回とも同じ様な一般地域型のパターンを示していた。つまり、3回目測定では、昼間も夜間も一様に騒音レベルが低下したことになる。

5 まとめ

大幅に変動する一般地域の環境騒音レベルを得る方法として、長期測定による方法が有効であることを確認するため、3年後及び5年後の再測定を実施した。

測定地点の西側に隣接して大型ビルが建設され、その建設基礎工事期間中の3年後の測定では、工事が行われている昼間の時間帯は、騒音レベルの上昇が見られたが、夜間はほとんど変化は見られなかった。このことから、最初の測定から少なくとも3年後までは測定地点周辺の工事騒音を除いた環境騒音レベルは変化しなかったと思われる。

一方、大型ビルが建設された5年後の測定では予期

した以上の環境騒音レベルの変化が見られた。すなわち、上端値(L_5)で3dB、中央値(L_{50})で3.5dBの騒音レベルの低下があった。この原因として主音源と見なされる国道道路騒音のうち、測定地点から西側の国道から放射される騒音が大型ビルにより遮蔽され、音源パワーが半分に減少したためと考えられた。

長期測定によるこの方法では、3~4ヶ月平均で0.5~1dB程度の環境騒音レベルの変化量は捉えられると考えており、今回のように大型ビルの建設による大幅な騒音レベルの低下の場合は、十分過ぎると思っている。次回以降は測定地点を多くして、微少な変化量が検出できる例を得たいと考えている。

文 献

- 1) 奥平文雄, 加藤邦夫: 岐阜県公害研究所年報, 18, 34-37, 1990
- 2) 奥平文雄, 加藤邦夫: 岐阜県公害研究所年報, 20, 44-47, 1992
- 3) 岐阜県: 平成2年度全国道路交通センサス一般交通量総括表
- 4) 赤池弘次, 中川東一郎: ダイナミックシステムの統計的解析と制御, P50-54, サイエンス社(1978)

An Evaluation Method for Environmental sound III, The Change of Noise Level after Big-scale Concrete Building Construction

Fumio OKUHIRAI (Gifu Prefectural Health and Environment Research Center, 14-12, Yabuta Minami 5 chome, Gifu 500, Japan)

地下水中の硝酸性窒素の生物学的処理に関する研究 (第1報)木炭を接触材とした脱窒法について

森 仁

要 旨

地下水中の硝酸性窒素の除去を目的に、木炭を接触材とする実験装置を組み立て生物化学的な脱窒法の検討を実施するとともに、硝酸性窒素の汚染が見られる地下水（井戸水）への適用を試みた。

基礎実験として硝酸性窒素25mg/lの原水に、アルコール100ppmを添加して流量50ml/minの条件で通水した結果、馴化に約15日を必要とし、これ以後は最終処理水で硝酸性窒素除去率が約96%と一定を示した。また、硝酸性窒素の汚染が見られる地下水（井戸水硝酸性窒素約6～30mg/l）を対象として、硝酸性窒素の処理を試みたところ、流量を50～100ml/minと変化させ硝酸性窒素の負荷量をコントロールすることにより90%以上の除去率が得られた。

キーワード：地下水、井戸水、生物学的脱窒、硝酸性窒素、木炭、

1 はじめに

水道水中的硝酸性窒素は、乳児のメトヘモグロビン血症等の障害を起こすため、水道法では飲料水基準が10mg/lと定められている。しかし、環境庁が15都市の1,083箇所の井戸水を調査したところ、その約11%の120箇所の井戸水から飲料水基準を大きく上回る硝酸性窒素が検出され、最高値は80mg/lであったことが報告されている^{1,2)}。

当県においても各務原台地における地下水汚染が過去に問題になったことから、各務原市水道局では汚染地域の水源井の閉鎖、水源井の移動等の対策を講じた³⁾。これらの地下水汚染の原因是、主として窒素肥料の多量施肥によるものと考えられており、地下水汚染を防止するため、現在減肥対策が実施されているが地下水の特徴から一度汚染すると回復には長時間が必要である。

硝酸性窒素の除去法としては、化学的凝聚沈殿法、化学的還元法、イオン交換法、生物学的処理法等が検討されているが、処理に伴う水の質的変化、処理経費等の問題から実用化されているものは少ない。

そこで、処理施設が簡単で維持管理が容易で、かつ処理経費が少ない生物学的処理法に着目し、木炭を接

触材に用いた実験装置を組立て硝酸性窒素の除去条件を検討するとともに実試料への適用を試みたところ良好な結果が得られたので報告する。

2 実験装置及び実験方法

2.1 実験装置の概要及び採水箇所

実験装置を図1に示した。実験装置は、試料供給用のポンプ、エチルアルコール（水素供与体）供給用のポンプ及び混合用の三角フラスコ、接触材を充填した充填筒、沈殿槽、砂ろ過筒で構成されている。

充填筒は、直径90mm、高さ1,000mmのアクリル製で直列に3本を接続し、それぞれの充填筒に木炭（市販の木炭を約1×1×1cmに切断）を900mmの高さまで充填した。なお、充填筒1本当たりの空隙量は1,500mlである。

沈殿槽は15×19×30cmのアクリル製、砂ろ過筒は直径70mm、高さ700mmのアクリル製のカラムに高さ50mmまで砂を詰めて用いた。

ろ層は固定層で、流向は、発生する窒素ガスの排出が容易になるように上向流とした。

処理水等の採水箇所は、原水、第1、第2、第3充填筒出口、沈殿槽出口及び砂ろ過筒出口とした。

*岐阜県保健環境研究所、薮田庁舎：500 岐阜市薮田南5丁目14番12号

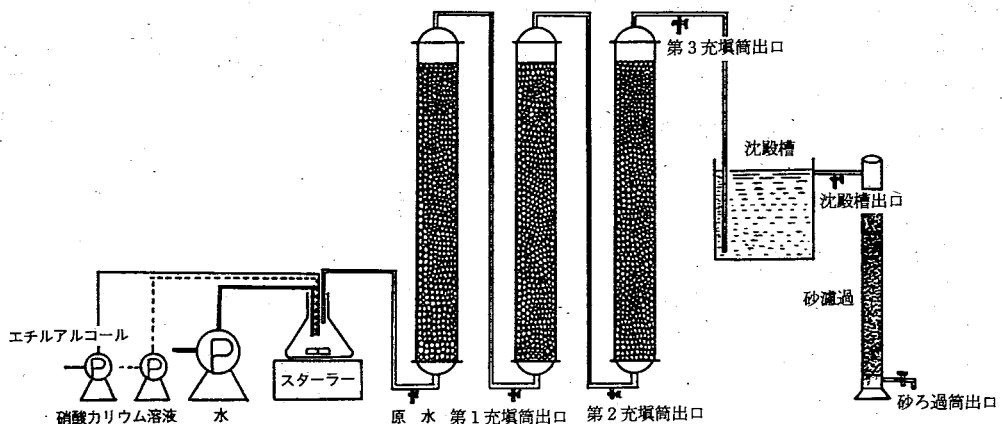


図1 実験装置の概略図

2.2 実試料

次に示す3種類の地下水（井戸水）を用いた。

(A) 保健環境研究所（岐阜市）

[硝酸性窒素 約6mg/l]

(B) ○○スプリング社（各務原市）

[硝酸性窒素 約14mg/l]

(C) ○部○夫宅（各務原市）

[硝酸性窒素約30mg/l]

2.3 測定項目及び分析方法

原水及び各処理工程水のpH、亜硝酸性窒素、硝酸性窒素、一般細菌及び大腸菌群の測定は、上水試験方法⁴⁾に準拠して実施した。

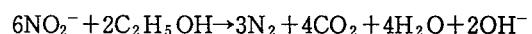
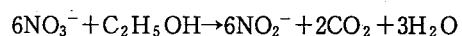
3 結果及び考察

3.1 基礎実験

本装置による地下水中の硝酸性窒素の除去の可能性と馴化に必要な日数等を求めるため、実試料(A)に硝酸カリウムを添加して硝酸性窒素25mg/ml、エチルアルコールの添加量100ppm、流量50ml/minの条件で通水した。通水開始5日後からpH、硝酸性窒素、亜硝酸性窒素を測定し、硝酸性窒素除去率を求めた。その結果を図2～図5に示した。

3.1.1 pHの変化、硝酸性窒素の除去率等

pHの経日変化は、図2に示したように井戸水が6.6前後であったものが、原水では6.7～6.8、第1充填筒出口及び第2充填筒出口では約7.0、第3充填筒出口及び砂ろ過筒出口では約7.2～7.3と上昇した。これは、硝酸性窒素が以下の反応系で窒素ガスに変わるものと思われることから、生成したヒドロ炭酸がpHの上昇に関与していると考えられる。



硝酸性窒素は、図3に示したように井戸水が約6mg/l、原水では25mg/l、第1充填筒出口では12日にかけて徐々に低下し、12日後14mg/lでほぼ一定となった。第2充填筒出口では5日後約21mg/l、12日後4mg/lでほぼ一定の濃度となった。

第3充填筒出口及び砂ろ過筒出口では5日後約19mg/lであったものが急激に減少し、それぞれ11日以後、12日以後0mg/lとなった。

亜硝酸性窒素は、図4に示したように井戸水及び原水では検出されなかったのに対し、第1充填筒出口では5日後約8mg/l、11日後最高の22mg/lとなり、その後徐々に減少し17日以後16mg/lとなった。第2充填筒出口では5日後約6mg/l、8日後15mg/lとなり、その後徐々に減少し11日以後2.5mg/lとなった。第3充填筒出口及び砂ろ過筒出口では5日後約6mg/l、

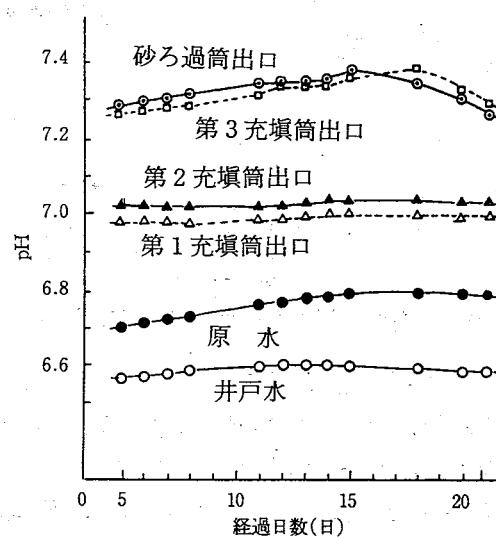


図2 各処理工程のpHの経日変化

6日後 10mg/l となり、その後徐々に減少し12日以後 0.2mg/l となった。

硝酸性窒素の除去率は、図5に示したように第1充填筒出口では15日以後約18%，第2充填筒出口では15日以後約82%，第3充填筒出口及び砂ろ過筒では15日以後約96%であった。

以上のことから、本装置の馴化には約15日間以上必要であり、硝酸性窒素の除去については96%が可能であった。

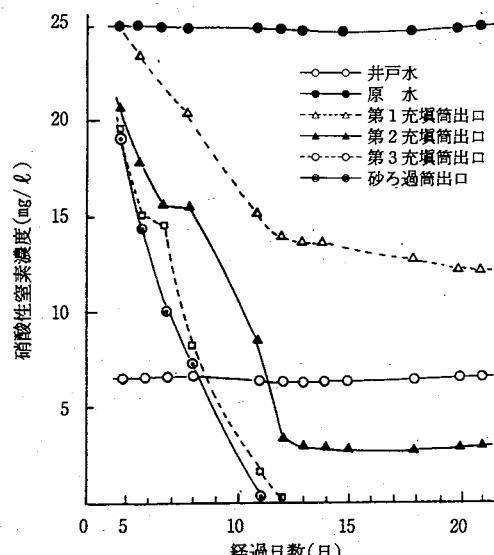


図3 各処理工程の硝酸性窒素の経日変化

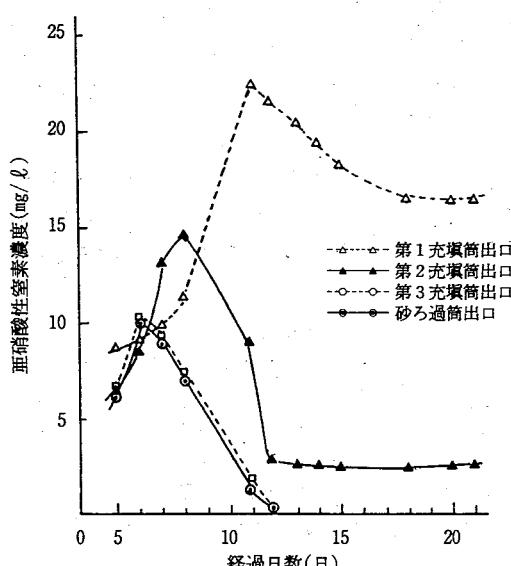


図4 各処理工程の亜硝酸性窒素の経日変化

3.1.2 一般細菌数及び大腸菌数

各処理工程別的一般細菌及び大腸菌群を調べるために、20日間通水後の処理水を対象に測定を行った。

その結果を表1に示した。井戸水からは一般細菌及び大腸菌群はほとんど検出されなかつたのに対し、その

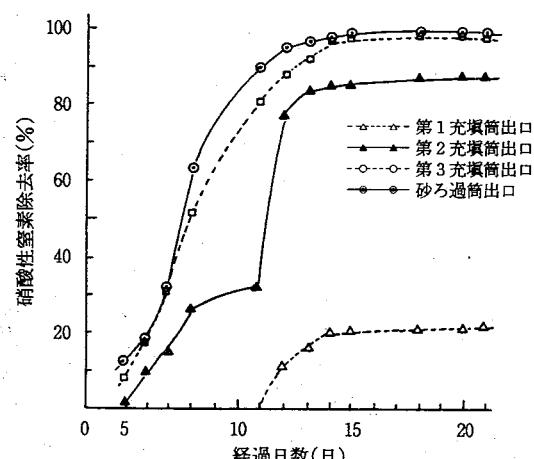


図5 各処理工程の硝酸性窒素除去率の経日変化

後の処理水からは一般細菌が $1.0 \times 10^4 \sim 2.0 \times 10^4$ 個/ ml 、大腸菌群が $1.2 \times 10^2 \sim 2.1 \times 10^2$ 個/ ml 検出された。

そこで、塩素による殺菌効果を調べるために、残留塩素濃度を0.1ppm及び0.2ppmとした場合の、一般細菌及び大腸菌群を測定し、表2に示した。一般細菌が 1.0×10^3 、大腸菌群が 6×10^3 個/ ml であったものが残留塩素濃度が0.1ppmの場合は接触時間が15秒で、それぞれ23, 0個/ ml 、残留塩素濃度が0.2ppmの場合は2, 0個/ ml と減少しており、接触時間が45秒では一般細菌、大腸菌群とも0個/ ml となった。

表1 処理水の一般細菌及び大腸菌群

処理工程種別	標準寒天 (一般細菌数)(個/ ml)	Des寒天 (大腸菌群数)(個/ ml)
井戸水(A)	6	0
原水	2.0×10^4	0
第1カラム出口	1.0×10^4	1.4×10^2
第2カラム出口	1.5×10^4	2.1×10^2
第3カラム出口	1.3×10^4	1.9×10^2
砂濾過後	1.3×10^4	1.2×10^2

表2 処理水の塩素による殺菌効果 (個/ ml)

作用時間 (秒)	残留遊離塩素0.1ppm		残留遊離塩素0.2ppm	
	標準寒天 (一般細菌数)	Des寒天 (大腸菌群数)	標準寒天 (一般細菌数)	Des寒天 (大腸菌群数)
0	7.7×10^3	6×10	7.7×10^3	6×10
15	23	0	2	0
45	0	0	0	0
120	0	0	0	0
300	0	0	0	0
600	0	0	0	0
900	0	0	0	0
1,800	0	0	0	0

3.2 実試料への適用

本装置の実試料への適用の可能性を調べるために、硝酸性窒素濃度が異なる3井戸水を用いて、流量を変えて硝酸性窒素の除去を試みた。その結果を表3～5に

示した。

なお、pH、硝酸性窒素等の測定は、装置を十分馴化した後、5日間通水した後実施した。

実試料(A) [硝酸性窒素 約6mg/l]の場合は、流量50, 75ml/minでは第1充填筒出口以降で約95%以上、100ml/minでは第2充填筒出口以降で約94%以上の硝酸性窒素の除去率を示した。

実試料(B) [硝酸性窒素 約14mg/l]の場合は、流量50ml/minでは第2充填筒出口以降で約97%以上、75ml/minでは第2充填筒出口で約86%，第3充填筒出口以降で約97%以上、100ml/minでは第3充填筒出口で約51%砂ろ過で約73%の硝酸性窒素の除去率を示した。

実試料(C) [硝酸性窒素 約30mg/l]の場合は、流量35ml/minでは第3充填筒出口以降で約99%以上、50ml/minでは第3充填筒出口以降で約93%，75ml/minでは第3充填筒出口で約75%硝酸性窒素の除去率を示した。

以上の結果、本装置による実試料中の硝酸性窒素の除去は、試料の硝酸性窒素濃度によって異なるが硝酸性窒素の負荷量をコントロールすることにより、適切な処理が可能であることが認められた。

4 まとめ

地下水中の硝酸性窒素の処理を目的に、木炭を接触材に利用した実験装置を組み立て、硝酸性窒素の汚染

表3 実試料(A)の各処理工程別の硝酸性窒素含有量及び除去率

流量	項目	井戸水	原水	第1カラム出口	第2カラム出口	第3カラム出口	砂濾過
50 (ml/分)	pH	6.6	6.7	6.8	6.8	6.9	6.9
	NO ₃ -N (mg/l)	6.3	6.3	0.25	0.21	0.25	0.21
	NO ₂ -N (mg/l)	0	0.04	0.03	0	0	0
	NO ₃ -N除去率(%)		0.3	95.7	96.7	96.0	96.7
75 (ml/分)	pH	6.5	6.9	6.7	6.8	6.8	6.9
	NO ₃ -N (mg/l)	6.2	6.0	0.28	0.32	0.28	0.28
	NO ₂ -N (mg/l)	0	0.04	0	0	0	0
	NO ₃ -N除去率(%)		2.8	95.5	94.8	95.5	95.5
100 (ml/分)	pH	6.4	6.5	6.7	6.7	6.9	6.9
	NO ₃ -N (mg/l)	6.0	5.8	1.7	0.35	0.35	0.32
	NO ₂ -N (mg/l)	0	0.04	0.73	0	0	0
	NO ₃ -N除去率(%)		1.0	63.7	94.1	94.1	94.6

表4 実試料(B)の各処理工程別の硝酸性窒素含有量及び除去率

流量	項目	井戸水	原水	第1カラム出口	第2カラム出口	第3カラム出口	砂濾過
50 (ml/分)	pH	6.6	6.6	6.9	7.0	7.0	7.1
	NO ₃ -N (mg/l)	14	13.8	6.0	0.35	0.15	0.20
	NO ₂ -N (mg/l)	0	0	4.1	0.15	0	0
	NO ₃ -N除去率(%)		1.4	39.8	96.9	98.9	98.6
75 (ml/分)	pH	6.6	6.7	6.7	7.0	7.0	7.3
	NO ₃ -N (mg/l)	14	13.8	6.84	1.3	0.45	0.14
	NO ₂ -N (mg/l)	0	0.03	3.6	1.1	0	0
	NO ₃ -N除去率(%)		1.4	33.6	85.7	96.7	99.0
100 (ml/分)	pH	6.6	6.5	6.7	6.9	7.0	7.1
	NO ₃ -N (mg/l)	14	14	10.2	7.7	4.5	2.5
	NO ₂ -N (mg/l)	0	0	2.3	5.3	4.1	2.2
	NO ₃ -N除去率(%)			17.3	22.9	50.9	72.9

表5 実試料(C)の各処理工程別の硝酸性窒素含有量及び除去率

流量	項目	井戸水	原水	第1カラム出口	第2カラム出口	第3カラム出口	砂濾過
35 (ml/分)	pH	6.4	6.4	6.8	7.3	7.3	7.3
	NO ₃ -N (mg/l)	30.3	29.7	12.1	2.0	0.14	0.15
	NO ₂ -N (mg/l)	0	0	7.8	2.0	0	0
	NO ₃ -N除去率(%)		1.9	44.9	89.3	99.5	98.5
50 (ml/分)	pH	6.3	6.3	6.7	6.8	7.4	7.5
	NO ₃ -N (mg/l)	29.7	28.9	18.4	12.7	1.4	0.21
	NO ₂ -N (mg/l)	0	0	5.88	11.0	1.3	0
	NO ₃ -N除去率(%)		2.6	27.8	36.6	92.9	99.3
75 (ml/分)	pH	6.3	6.3	6.6	6.6	7.0	7.2
	NO ₃ -N (mg/l)	30.3	29.3	19.9	17.2	4.9	4.8
	NO ₂ -N (mg/l)	0	0	6.57	14.8	4.8	4.4
	NO ₃ -N除去率(%)		3.3	21.5	14.4	74.5	75.6

がみられる地下水（井戸水）を対象に硝酸性窒素の除去条件の検討を行なったところ、次の結果を得た。

- 1) 実験装置は、硝酸性窒素25mg/ml、流量50ml/minの条件では約15日で馴化し、それ以後は95%以上の安定した硝酸性窒素の除去率が得られることがわかった。
- 2) 処理水中の一般細菌及び大腸菌群は、0.1~0.2mg/mlの塩素濃度で45秒の接触時間で処理が可能であった。
- 3) 本装置を用いて、硝酸性窒素汚染のみられる地下水（井戸水）を対象に硝酸性窒素の処理を試みたところ、硝酸性窒素の負荷量をコントロールすることにより硝酸性窒素の除去が可能であることが認められた。

文 献

- 1) 環境庁水質保全局(1983)：昭和57年度地下水汚染実態調査結果, 30p, (1983)
- 2) 杉戸大作：水道協会雑誌, 10, No.8, 53-61, (1983)
- 3) 各務原市地下水汚染研究会：各務原台地の地下水汚染—その原因究明と将来予測—, 日刊工業新聞名古屋支社(1990)
- 4) 厚生省生活衛生局水道環境部監修：上水試験方法1993年度版(1993)

Study on Biological Treatment of Nitrate Nitrogen in Groundwater I Denitrogen of Nitrate Nitrogen using Ethyl Alcohol and Charcoal as Contact Materials

Hitoshi MORI (*Gifu Prefectural Health and Environment Research Center, 14-12, Yabuta Minami 5 chome, Gifu 500, Japan*)

化学物質の藻類生長阻害試験法における注意点

大江 章夫, 野村 泰之

要 旨

化学物質の生態影響を試験する方法としてOECDガイドラインがあり、その内の藻類生長阻害試験において、ガイドラインに規定されていない部分について検討した結果、細胞数の計数回数は少なくとも4回が望まれ、計数時に長時間（5時間）室内放置しても細胞数が増加することがなく、また培地の高圧蒸気滅菌条件については、120℃、15分間後水で急冷する必要のあることが分かった。

キーワード：生態影響試験, OECDガイドライン, 藻類生長阻害試験, 細胞数の計数, 高圧蒸気滅菌

1 はじめに

近年、社会・経済活動の拡大、高度化によって種々の化学物質が広範囲に使用され、その汚染は複雑多様化している。これらの化学物質の生態系に及ぼす直接あるいは間接的な影響を解明し、評価することは、それらの環境影響を防止するために非常に重要である。化学物質の環境影響評価にかかる作業については、現在、OECDにおいて企画され、高生産量化学物質（HPVCと略す）プロジェクトとして参加国の調査・測定協力により実施されている。当県も環境庁の委託事業として平成2年度からこれに参加し、当所ではOECDガイドラインによるHPVCの藻類生長阻害試験¹⁾を実施してきた。この試験結果が国際的認知されたデータとなるためにも、再現性の良い信頼性のある試験が望まれる。そこで、ガイドラインに規定されていない部分について若干検討したので報告する。

2 試験方法

試験はOECDガイドライン201に示す方法によった。ただし、ガイドラインにおいて、供試藻類として*Selenastrum capricornutum* ATCC 22662または*Chlorella vulgaris* CCAP 211/11bの2種類が明記されていてどちらかを選んだり、藻類増殖試験の照度が4,000lux以上と範囲で示してあったりして試験者の選択事項になっている部分や明記されていない試験事項部分について

は、次のとおりとした。

供試藻類には、国立環境研究所から入手した*Selenastrum capricornutum* ATCC 22662を用いた。

藻類培養装置は、温度及び照度のコントロールできる東京理化器械（株）製アイラトロン FLI-301型を使用し、培養温度は23.0±0.5℃、培養照度は7,000 luxとした。

試験培地はガイドラインの規定培地を用いたが、藻類の保存培地には国立環境研究所発行のNIES-Collection, List of Strains²⁾に記載されているC培地を使用した。藻類増殖試験用の三角フラスコには、容量300mlのものを用いた。

3 結果及び考察

3.1 藻類細胞数の計数回数の検討

同一試験液中の代表的な藻類数を求めるには、計数値のバラツキを考慮して複数回の計数を行い、それらの値を平均する必要があるため、妥当な計数回数を検討した。計数については、1回の試料採取で2回計数できる（株）エルマ製改良ノイバウエル型の血球計算盤を用いて検鏡した。その計数回数と藻類細胞数の平均値・標準偏差の関係を表1に示した。

計数回数2回の平均値と4回の平均値には有意さはないが、4回以上計数した方がより類似した近似値が得られたことから、計数回数は少なくとも4回が望ま

表1 細胞数の計数回数とその平均値・標準偏差の変化

計算盤用試料採取回数	1	2	3	4	5	6
計 数 回 数	1 2	3 4	5 6	7 8	9 10	11 12
細胞数($\times 10^4 \text{ cells/ml}$)	58 51	60 86	88 64	46 61	60 45	65 79
細 胞 数 の 平 均 値 ± 標 準 偏 差	$54.5 \pm 4.9 (n=2)$ $\leftarrow 63.8 \pm 15.3 (n=4) \rightarrow$	$67.8 \pm 15.4 (n=6) \rightarrow$	$64.3 \pm 15.2 (n=8) \rightarrow$	$61.9 \pm 14.7 (n=10) \rightarrow$	$63.6 \pm 14.2 (n=12) \rightarrow$	

しい。そこで、以後の藻類細胞数の計数回数は4回とした。

3.2 長時間室温放置した場合の細胞数の変化

ガイドラインによる藻類生長阻害試験を行う場合に、供試物質濃度として公比1.8で5段階以上の濃度段階を設定し、各濃度区及び対照区について3連以上とすることになっていることから、一試料当たり4回ずつ細胞計数すると、藻類細胞の全計数回数は〔各濃度区及び対照区数〕×〔3連〕×〔4回計数/試料〕=6×3×4=72回以上となる。したがって、藻類カウントに長時間を要するため試験開始に比べて試験終了時には細胞数が増加し、その培養時間の細胞数と異なる値を示す可能性があった。

そこで、長時間室温放置した場合に細胞数が増加するかどうかを調べた。室温21.6~22.5°C下、照度640 luxの実験台上に藻類の入った三角フラスコを5時間放置した場合の細胞数の変化を調べ、表2に示した。

表2 長時間室内放置における細胞の変化

放 置 時 間	0 時間	5 時間
細胞数($\times 10^4 \text{ cells/ml}$)	58, 51, 60, 86	51, 68, 64, 65
平均値±標準偏差(n=4)	63.8 ± 15.3	62.0 ± 7.5

その結果、通常の部屋に5時間放置しても細胞数は増加せず、試験に長時間かかるても細胞数の計数に支障がないことが分かった。

3.3 培地の無菌操作条件の検討

試験は無菌条件下で行うことが明記されており、試験培地も滅菌しなければならない。上水試験方法においては、通常、培地の滅菌は121°C (1.0kg/cm²)

で20分間行い、熱変質しやすい培地については、121°Cで15分間滅菌後流水に浸して速やかに冷却することになっている³⁾。また、培地を高圧加熱滅菌する時、磷酸はカルシウム塩として沈殿することがあると言わされている⁴⁾。

そこで、培地の無菌操作条件を図1に示すように、

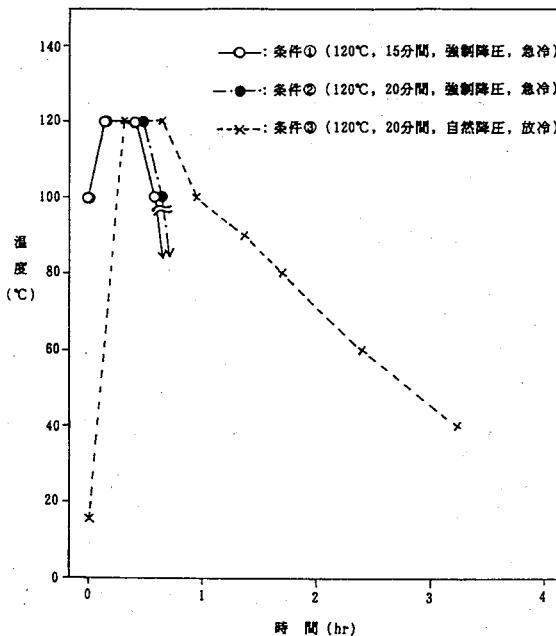


図1 培地の滅菌時におけるオートクレーブ内の温度変化

オートクレーブで120°C、15分間高圧蒸気滅菌し、十分に注意しながら少しづつ水蒸気を排気口から逃し圧力を下げた後、水に浸して速やかに冷却した場合（条件①とする）、高圧蒸気滅菌時間を20分にした以外は条件①と同じ場合（条件②とする）及び120°C、20分間高圧蒸気滅菌後、自然に冷えて内部の圧力が大気圧になるまで放置した場合（条件③とする）の3つの条件を設定した。各条件で滅菌した培地の初期細胞密度が 10^4 cells/ml になるように調製し、それぞれの培地

における経時的な藻類増殖能を調べ、図2に示した。

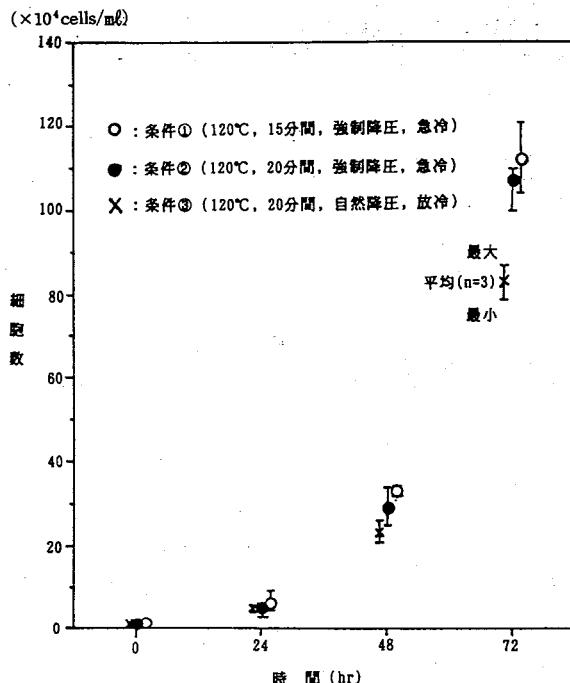


図2 培地の滅菌条件と藻類増殖能

培養の72時間後において、条件③の藻類細胞密度（平均値±標準偏差）は、 $82.7 \pm 4.0 \times 10^4$ cells/mlであり、条件①及び②の藻類細胞密度の $112 \pm 8.5 \times 10^4$ cells/ml、 $106.7 \pm 5.8 \times 10^4$ cells/mlに比べて有意水準1%で有意に低い値であった。したがって、培地の高圧蒸気滅菌時間は15分程度にした方が藻類増殖能低下の影響はないものと推察された。

4 まとめ

OECDガイドラインの藻類生長阻害試験において、試験データの再現性及び信頼性を高めるため、ガイド

ラインに規定されていない試験条件について検討した結果は次のとおりであった。

- 1回の試料採取で2回計数できる改良ノイバウエル型の血球計算盤を用いて藻類数を検鏡する場合、同一試料中の代表的な細胞数を求めるには、少なくとも4回計数した方が信頼度の高い数値が得られた。
- 通常の室内（室温21.6～22.5）で照度640luxの実験台上に試料を5時間放置しても細胞数は増加しなかったことから、藻類細胞の計数回数が増えて試験に長時間要したとしても、藻類細胞数には支障ないと考えられた。
- 高压蒸気滅菌による培地の変質が危惧されたため、その滅菌条件について検討した結果、滅菌時間は15分程度とし、滅菌した試料はなるべく速やかに急冷することが必要であった。

謝 辞

本試験にあたり藻類の *Selenastrum capricornutum* を分与し、ご援助していただいた国立環境研究所の畠山成久先生、笠井文絵先生に深謝いたします。

文 献

- OECD Guideline for Testing of Chemicals, "Alga, Growth Inhibition Test", 1993
- 国立環境研究所編：NIES-Collection, List of Strains, Third Edition, 1991
- 日本水道協会：上水試験方法, 583, 1985
- Janet R. Stein: Phycological Methods, Culture methods and growth measurements, Cambridge University, 1973

Attention to Algal Growth Inhibition Test for Chemicals

Akio OHE, Yasuyuki NOMURA (Gifu Prefectural Health and Environment Research Center, 14-12, Yabuta Minami 5 chome, Gifu 500, Japan)

人工酸性雨による土壤からの陽イオンの溶脱

角田 寛, 野村 泰之, 大江 章夫

要 旨

酸性雨による土壤中のカリウム, マグネシウム, カルシウムなど陽イオンの溶脱過程を明らかにするため, 県内に広く分布する褐色森林土のうち母材の異なる堆積岩, 花崗岩, 熔結凝灰岩の3種類の土壤を対象として, 人工酸性雨(硫酸と硝酸の当量比2:1)を用いて土壤中の陽イオン成分の溶出パターンについて検討した。

土壤中の陽イオン成分のうちナトリウム>マグネシウム=カリウム>カルシウム>アルミニウムの順に溶出しやすい傾向を示した。また, 土壤の耐酸性は熔結凝灰岩>花崗岩>堆積岩の順に強く, 更に交換性のマグネシウムやカルシウム等を多く含む塩基飽和度の高い土壤で耐酸性が強いことが分かった。

土壤の酸性化所要年数を土壤中のアルミニウム濃度が5ppmとなるフラクション数から試算したところ, 堆積岩, 花崗岩, 熔結凝灰岩の土壤でそれぞれ47年, 70年, 120年と推定された。

キーワード: 酸性雨, 褐色森林土, 陽イオン, 塩基飽和度

1 はじめに

近年, 酸性雨による森林, 土壤, 湖沼などの生態系や建造物への影響が, 地球的規模での環境破壊の一つとして大きな社会問題となっている¹⁻⁴⁾。

酸性雨による樹木への影響については, カリウム, カルシウム, マグネシウムなどの樹木の栄養成分やアルミニウムなどの樹木成長阻害成分が土壤の酸性化により溶出することが, 要因の一つになっていると言われている⁶⁾。

このため, 当所においても, 昨年度から県内の有名な神社仏閣のスギの活力度やその周辺土壤の調査を開始した。その結果, スギの活力度は概ね正常であったが, 周辺土壤の一部ではpH4程度の酸性を示すものがあった⁵⁾。

そこで, 県内に広く分布する褐色森林土のうち母材を異にする代表的な堆積岩, 花崗岩, 熔結凝灰岩の3種類の土壤を対象として, 人工酸性雨による土壤からの陽イオンの溶脱過程と土壤の酸性化所要年数を明らかにするため実験室的に検討したので報告する。

2 実験装置及び実験方法

2.1 土壤試料の調製

堆積岩由来の土壤は美山町富永で, 花崗岩由来の土壤は久瀬村日坂で, 熔結凝灰岩由来の土壤は白川町和泉でそれぞれ採取した。採取部位は落葉の層を除いた表層から30cmの深さであり, 樹根と小石を除き土壤試料とした。

採取した土壤試料は, 風乾後目開き2mmの篩である, 2mm以下のものを供試試料とした。

2.2 人工酸性雨の調製

0.2N硫酸と0.1N硝酸(県内における雨水中の硫酸と硝酸の一般的な当量比⁷⁾)それぞれ5mlを2Lのメスフラスコに分取し, メスアップした。この溶液でのpHは3.2であり, 現在岐阜で観測される雨水のpH4.7の約30倍の濃度である。

2.3 土壤カラムを用いた溶出試験

土壤カラム試験の装置を図1に示した。

ガラスカラム(内径2.64cm, 長さ30cm)に, 目開き2mmである風乾土壤40gをつめ, このカラムに定量ポンプを用いて, 人工酸性雨を送液した。カラ

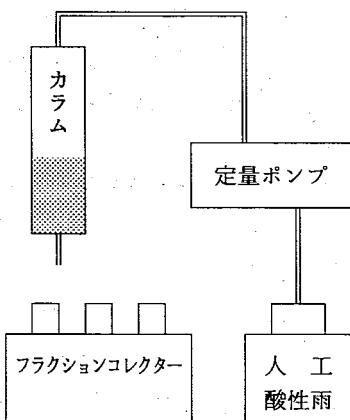


図1 土壤カラム試験の装置

表1 カラム内高さと密度

試料名	高さ(cm)	密度(g/cm³)
堆積岩	11.5	0.64
花崗岩	9.0	0.81
熔結凝灰岩	10.0	0.73

ムからの溶出液（溶出速度0.4mL/分）はフラクションコレクターによって14mLずつ分画採取した。

なお、土壤試料のカラム内高さと密度は表1に示すとおりである。

2.4 分析方法

溶出液中のナトリウム、カリウム、マグネシウム、アルミニウムを分画採取した試験管のまま原子吸光法により最初に分析し、次にpHを測定した。最後に、カルシウムは溶出液5mLを分取し、これに塩化ランタン溶液(0.1%) 0.5mLを加えて、原子吸光法により分析した⁸⁾。

土壤の性状については、土壤試料20gをビーカーに秤り取り、蒸留水50mLを加え、よく攪拌した後、2時間静置した。この上澄液で導電率(EC)とpHを測定した。カチオン交換容量(CEC)、交換性ナトリウム(ex-Na)、交換性カリウム(ex-K)、交換性カルシウム(ex-Ca)、交換性マグネシウム(ex-Mg)、交換性アルミニウム(ex-Al)は、ショーレンベルガー法により分析した⁹⁾。塩基飽和度については、CECに対するex-Na、ex-K、ex-Ca、ex-Mgの和の百分率で求めた。また、強熱減量(I.L.)は、土壤試料を600°Cで約2時間、電気炉内で強熱した後、デシケーター中で放冷し、重量を測定して求めた¹⁰⁾。

土壤の化学組成は、蛍光X線法により分析し、酸化物換算値で示した。

3 結果及び考察

3.1 土壤の性状及び化学組成

今回試料とした3種類の土壤の性状及び化学組成を表2、表3に示した。

土壤pHは4.3~4.7で、一般的な褐色森林土のpH4.0~6.2の範囲³⁾からすれば低い値に偏っていた。

有機物量の指標であるI.L.は10.5~11.5であり、また水素イオンと交換可能なCECは16.9~19.2と、これらの項目では3種類の土壤で大差はなかった。

しかし、水素イオンの中和能力としての交換性の陽イオンのうちex-Ca、ex-Mgについては、熔結凝灰岩でそれぞれ2.78me/100g、0.46me/100gと高く、堆積岩でそれぞれ0.06me/100g、0.08me/100gと極めて低かった。

したがって、土壤の耐酸性の指標である塩基飽和度については、熔結凝灰岩で18.5%とかなり高く、堆積岩で1.6%と低い値を示した。

次に、土壤の化学組成は、3種類の土壤とも一般的な岩石成分であるシリカが60~66%，アルミニウムが13~16.3%と多く、花崗岩ではナトリウム、カリウムの塩基性成分が多いのが特徴であるが、これらが全て交換性のナトリウムやカリウムとは限らず、土壤の耐酸性にかならずしも反映されていなかった。これに対し、熔結凝灰岩については、岩石成分としてのナトリウム、カルシウム、マグネシウムの塩基性成分はそれほど多くないが、交換性としてのものは多く、土壤と

表2 土壤の性状

項目	堆積岩	花崗岩	熔結凝灰岩
pH(H ₂ O)	4.3	4.7	4.5
EC(μS/cm)	38	26	42
I.L. (%)	10.6	10.5	11.5
CEC(me/100g)	18.5	16.9	19.2
ex-Na(me/100g)	0.04	0.06	0.07
ex-K(me/100g)	0.12	0.24	0.24
ex-Ca(me/100g)	0.06	0.91	2.78
ex-Mg(me/100g)	0.08	0.25	0.46
ex-Al(me/100g)	10.6	5.1	5.2
塩基飽和度(%)	1.6	8.6	18.5

表3 土壤成分組成

項目	堆積岩	花崗岩	熔結凝灰岩
SiO ₂ (%)	60.0	64.5	66.0
Al ₂ O ₃ (%)	15.0	16.3	13.0
Fe ₂ O ₃ (%)	5.9	2.2	2.8
TiO ₂ (%)	0.73	0.25	0.38
MnO(%)	0.06	0.05	0.05
Na ₂ O(%)	0.15	2.2	0.50
K ₂ O(%)	1.4	3.4	1.5
CaO(%)	0.07	1.5	0.09
MgO(%)	0.78	0.72	0.54
P ₂ O ₅ (%)	0.06	0.07	0.07

しての耐酸性は強いことが分った。

したがって、土壤の耐酸性は白川町の熔結凝灰岩、久瀬村の花崗岩、美山町の堆積岩の順に強かった。

3.2 土壤からの陽イオンの溶出

土壤中のカリウム、カルシウム、マグネシウムなどの陽イオン成分は、雨水中の水素イオンと置換して土壤から溶出すると考えられることから、人工酸性雨を用いてその過程を検討した。

溶出液のpHの変化を図2に、土壤からの陽イオンの溶出パターンのうち堆積岩を図3に、花崗岩を図4に、熔結凝灰岩を図5にそれぞれ示した。

溶出液のpHの変化は、溶出初期に陽イオン成分の溶出もあってpHは6程度までに上がり、その後徐々

に低下する傾向が認められた。80フラクションのpHは、堆積岩でpH4.1、花崗岩でpH4.2、熔結凝灰岩でpH4.9と前述した土壤の塩基性成分の多い熔結凝灰岩で若干高かった。

各陽イオンの溶出の特徴をみると、ナトリウムについては図中に示さなかったが、いずれの地点とも、極めて初期に溶出し、10フラクション以後では殆ど溶出しなかった。カリウム、カルシウム、マグネシウムについては、3～5フラクションの極めて初期に高い濃度で溶出し、その後徐々に低下する傾向を示し、80～100フラクションでも低濃度ながら溶出が認められた。

しかし、アルミニウムについては、初期に殆ど溶出せず徐々に増加する傾向を示した。

したがって、土壤中の陽イオンの溶出しやすさは、ナトリウム、マグネシウム、カリウム、カルシウム、アルミニウムの順であることが分かった。

これは、雨水中の水素イオンが土壤中の比較的吸着力の弱いナトリウムと置換し、その後マグネシウム、カリウム、カルシウム、アルミニウムと置換していくためと考えらる。

3.3 土壤の酸性化所要年数の試算

雨水中の水素イオンは、土壤中のカリウム、カルシウム、マグネシウム、アルミニウムなどを溶出させることによって樹木の成長を抑制すると言われている。

大羽は、土壤pHとアルミニウム溶出との関係でアルミニウム濃度5ppmを植物の成長阻害濃度の目安としている⁵⁾。また、前川らは、土壤の酸性化所要年数を次式により試算している¹¹⁾。

そこで、今回土壤中のアルミニウム濃度が5ppmとなるフラクション数を次式に代入して、土壤の酸性化所要年数Yを試算した。なお、一般に樹木の細根が表層から30cmの間に根全体の表面積の70から80%が存在正在すると言われていることから、評価する土壤の深さを30cmと仮定した。

$$Y = F \times V \times M \times 30 / (S \times R / 10 \times D)$$

F : アルミニウム濃度が5ppmとなるフラクション数

V : 1フラクションの容量(14mL)

M : 人工酸性雨の濃度倍率(30倍)

30 : 土壤評価深度(cm)

S : カラム断面積(5.47cm²)

R : 年間降水量(2,000mm)

D : カラム実験での土壤の高さ(cm)

この式に、前述の溶出試験結果のアルミニウム濃度が5ppmとなるフラクション数、堆積岩では47フラク

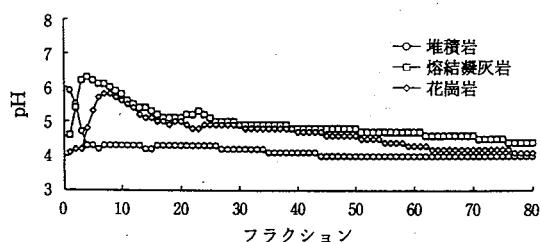


図2 溶出液のpH変化

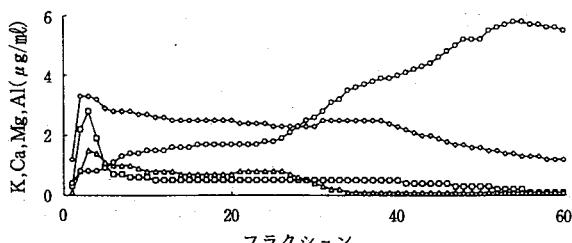


図3 陽イオンの溶出(堆積岩)

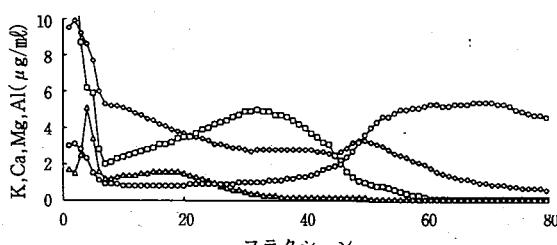


図4 陽イオンの溶出(花崗岩)

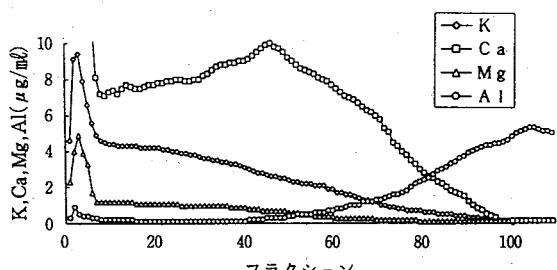


図5 陽イオンの溶出(熔結凝灰岩)

ション, 花崗岩では55フラクション, 熔結凝灰岩では104フラクションの値を代入して求めると, 土壤の酸性化所要年数は美山町の堆積岩では47年, 久瀬村の花崗岩では70年, 白川町の熔結凝灰岩では120年と推定された。

次に, 土壤中のアルミニウム濃度が5 ppmとなるフラクション数から水素イオン降下量を算出し, この値と表2に示した塩基飽和度との関係を図6に示した。

この結果, 土壤中のアルミニウム濃度が5 ppmとなる水素イオン降下量は, 塩基飽和度が高い熔結凝灰岩で大きく, 両者の間には良好な関係が得られた。したがって, 土壤の酸性化所要年数は塩基飽和度からも推定が可能であると考えられる。

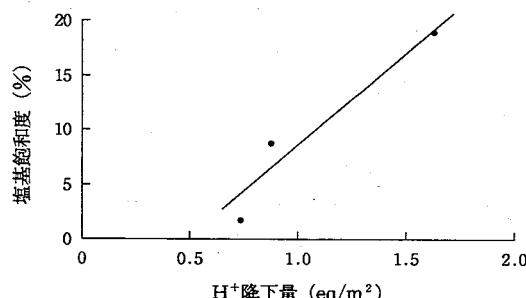


図6 H⁺降下量と塩基飽和度の関係

4 まとめ

県下に広く分布する3種類の褐色森林土を対象として, 人工酸性雨を用いて土壤中の陽イオンの溶出について検討し, 次の結果を得た。

- 1) 土壤の耐酸性は, 塩基飽和度の高い熔結凝灰岩>花崗岩>堆積岩の順であった。
- 2) 土壤中の陽イオンのうちナトリウム>マグネシウム=カリウム>カルシウム>アルミニウムの順に溶出

しやすかった。

- 3) 土壤中のアルミニウム濃度が5 ppmとなるフラクション数, 堆積岩では47フラクション, 花崗岩では55フラクション数から, 土壤の酸性化所要年数を試算した結果, 美山町の堆積岩では47年, 久瀬村の花崗岩では70年, 白川町の熔結凝灰岩では120年と推定された。

謝 辞

本調査にあたり, 試料採取にご協力頂きました林業短期大学校の中川教頭先生に謹んで謝意を表します。

文 献

- 1) 野田 勇: 大気汚染学会誌, 25, 295-312, 1990
- 2) 大羽 裕: 資源環境対策, 29, 621-626, 1993
- 3) 日本国土壤肥料学会: 平成3年度酸性降下物等による土壤・植生影響機構等検討調査, 平成4年3月
- 4) ゴルファーの緑化推進協力会: 酸性雨一生態系に与える影響ー, 平成元年3月
- 5) 角田 寛他: 岐阜県保健環境研究所報, 2, 44-49, 1994
- 6) 文部省「人間環境系」重点領域研究「酸性雨」研究班: 酸性雨が陸域生態系におよぼす影響の事前評価とそれに基づく対策の検討, 113-217, 1990
- 7) 角田 寛他: 岐阜県公害研究所年報, 20, 23-28, 1992
- 8) 環境庁大気保全局: 酸性雨等調査マニュアル, 1990
- 9) 土壤養分分析法委員会: 土壤養分分析法, 1988
- 10) 環境庁水質保全局: 底質調査法, 1975
- 11) 前川 勉他: 福井県環境センター年報, 20, 102-106, 1990

Cation Leaching from Soils exposed to Simulated Acid Rains

Hiroshi SUMIDA, Yasuyuki NOMURA, Akio OHE (Gifu Prefectural Health and Environment Research Center, 14-12, Yabuta Minami 5 chome, Gifu 500, Japan)

産業廃棄物の適正処理・処分方法に関する研究 (第3報)石灰系地盤固化材の開発と実験室内での評価

安田 裕*, 角田 寛*, 渡辺 憲人*
加藤 布久**, 光松 文雄**

要 旨

廃棄物最終処分場の地盤改善と周辺環境の保全を図ることを目的として廃棄物に混合して使用する石灰系の地盤固化材の試作を行うとともに、各種の廃棄物における固化効果、有害金属等の溶出抑制効果、有機物の溶出促進効果などについて実験室内において検討した。

焼却灰と下水汚泥との混合廃棄物を固化対象として地盤固化材の素材と配合比を一軸圧縮強度を指標に検討したところ、軽焼生石灰40~60%、高炉スラグ20~40%、焼石膏20~40%の配合が適当であった。軽焼生石灰、高炉スラグ及び焼石膏から成る地盤固化材(2:2:1の組成)を用いて、実廃棄物に20%混合した場合の固化効果を検証した結果、焼却灰、製紙汚泥、染色汚泥では一軸圧縮強度が1.17~3.84kg/cm²に改善された。また、地盤固化材を10%混合した場合、研究機関汚泥についてはCd, Zn, Fe, Mn, T-Cr, Ni, T-Hgの溶出濃度が1/30~1/2に低減され、下水汚泥では、TOCの溶出濃度が7.6~10.6倍に増加した。

キーワード：廃棄物最終処分場、地盤固化材、一軸圧縮強度、生石灰

1 はじめに

廃棄物埋立地においては、廃棄物中に含まれる無機塩類、重金属類、有機物等が、雨水等の浸入によって溶出し、浸出水となって排出される。このため、管理型廃棄物最終処分場においては、浸出水による地下水汚染等を未然に防止するためにゴムまたは樹脂製の遮水シートが用いられている。しかし、長期間の使用によるシートの劣化やシート施工基盤の不備等によってシートが破損した場合には、浸出水が系外に漏洩し、周辺環境を汚染することが懸念される。また、一般に、埋立終了後の地盤は軟弱であり不等沈下を起こしやすく、安定化するまでに長期間を要するため、跡地の利用にも支障をきたしている。

これらの課題を解決するため、平成5年度は、石灰系遮水型地盤安定材(遮水シート破損時においても浸出水の漏出を防止する)の試作と実験室内での性能評価を行った¹⁾。

平成6年度は、埋立廃棄物に混合して使用すること

により、埋立地の地耐力の向上を図り、併せて埋立廃棄物中に含まれる有害重金属類の溶出抑制及び有機物の早期安定化に効果のある石灰系地盤固化材の試作と実験室内での性能評価を行ったので、その結果について報告する。

2 材料及び調査方法

2.1 使用材料

2.1.1 無機材料

土木の分野で土質の改良に生石灰が汎用されていることを勘案して、反応性の異なる超軽焼生石灰、軽焼生石灰、中焼生石灰、硬焼生石灰の4種の生石灰を焼成し、地盤固化材の主材料とした。また、他の無機材料としてフライアッシュ、微粉碎水碎高炉スラグ(以下、高炉スラグと記述)、ペントナイト、ノルマルポルトランドセメント(以下、N P Cと記述)、焼石膏を用いることとした。なお、使用した生石灰の焼成条件を図1に、無機材料の性状を表1に示した。

* 岐阜県保健環境研究所、薮田庁舎：500 岐阜市薮田南5丁目14番12号

** 岐阜県工業技術センター：501-06 岐阜県羽島郡笠松町北及47

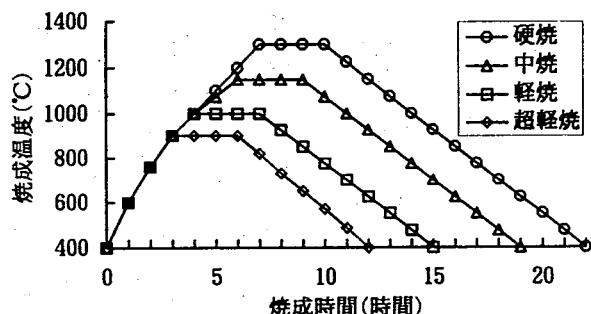


図1 各種生石灰の焼成条件

表1 使用材料の性状

使用材料	形状	強熱減量(%)	主成分
生石灰	微粉末	0.4~0.5	CaO
フライアッシュ	微粉末	2.3	SiO ₂ , Al ₂ O ₃
高炉スラグ	微粉末	1.5	SiO ₂ , CaO
ベントナイト	微粉末	3.8	SiO ₂ , Al ₂ O ₃
焼石膏	微粉末	—	CaSO ₄
NPC	微粉末	1.5	CaO, SiO ₂

2.1.2 供試産業廃棄物

県内の工場、事業場から排出される廃棄物のうち、比較的多量に発生する染色汚泥、製紙汚泥、し尿処理場汚泥の流動床焼却炉における残渣（以下、焼却灰と記述）、下水汚泥及び金属類が溶出しやすい試験研究機関の排水処理汚泥（以下、研究機関汚泥と記述）の5種の廃棄物を用いた。供試廃棄物の性状等については表2に示した。

表2 使用廃棄物の性状

使用廃棄物	外観	強熱減量(%)	含水率(%)
下水汚泥	茶褐色	84	81
染色汚泥	黒紫色	65	77
製紙汚泥	灰白色	50	64
焼却灰	灰黒色	3.8	33
研究機関汚泥	暗褐色	22	57

2.2 試作品の性能評価

2.2.1 廃棄物の地耐力向上効果の測定

各廃棄物に試作した地盤固化材を所定量混合し、供試体を作製して7日間養生後JIS A 1216に基づいて一軸圧縮強度を測定した。

2.2.2 重金属類の安定化効果の測定

下水汚泥、焼却灰及び研究機関汚泥に軽焼生石灰、高炉スラグ、焼石膏から成る地盤固化材(2:2:1の配合比)を10%混合し、3週間養生した後、昭和48年環境庁告示第13号「産業廃棄物に含まれる金属等の検定方法」による溶出試験を行い、得られた溶出液について

原子吸光光度法により重金属濃度を測定した。

2.2.3 有機物の安定化効果の測定

下水汚泥に軽焼生石灰、高炉スラグ、焼石膏から成る地盤固化材(2:2:1の配合比)を10%混合し、1日、2週間、4週間経過後に昭和48年環境庁告示第13号「産業廃棄物に含まれる金属等の検定方法」による溶出試験を行い、得られた溶出液について島津社のTO C-5000型TOC計を用いてTOCを測定した。

3 結果及び考察

3.1 地盤固化材の開発

3.1.1 地盤固化材の素材としての生石灰の選定

超軽焼生石灰、軽焼生石灰、中焼生石灰、硬焼生石灰に高炉スラグを1:1の割合で配合した地盤固化材を焼却灰に10%混合した後、一軸圧縮強度により強度発現効果を検討した。

表3に示すように、各供試体の一軸圧縮強度は0.89~1.02kg/cm²であり、地盤固化材無添加の場合の0.04kg/cm²に比して顕著に上昇した。また、生石灰の種類別に強度を比較すると、超軽焼生石灰≥軽焼生石灰>中焼生石灰≥硬焼生石灰の順となった。これらの結果から、強度が大きかった超軽焼生石灰と軽焼生石灰のうち焼成時の温度管理が容易で、かつ生石灰としての適度な反応性を併せ持つ軽焼生石灰を主材料として用いることとした。

表3 使用した生石灰の種類と一軸圧縮強度

地盤固化材の組成 (重量比1:1)	混合量 (%)	最大強度 (kg/cm ²)
超軽焼生石灰+高炉スラグ	10	1.02
軽焼生石灰+高炉スラグ	10	0.98
中焼生石灰+高炉スラグ	10	0.91
硬焼生石灰+高炉スラグ	10	0.89
なし(対照)	0	0.04

(注)固化対象廃棄物：焼却灰

3.1.2 無機材料の検討

軽焼生石灰にフライアッシュ、高炉スラグ、ベントナイトの3種の無機材料をそれぞれ重量比で1:1の割合で配合した地盤固化材を焼却灰に10%混合した後、試験片を作製して強度発現の効果を検討した。

表4に示すように、無機材料として高炉スラグを使用した場合の一軸圧縮強度は、1.02kg/cm²であり、他の無機材料の0.62~0.85kg/cm²に比して大きかった。

この結果から、地盤固化材に使用する無機材料としては、高炉スラグが適当であると考えられた。

表4 使用した無機材料の種類と一軸圧縮強度

地盤固化材の組成 (重量比1:1)	混合量 (%)	最大強度 (kg/cm ²)
軽焼生石灰+フライアッシュ	10	0.72
軽焼生石灰+高炉スラグ	10	1.02
軽焼生石灰+ペントナイト	10	0.62
軽焼生石灰+焼石膏	10	0.85
なし(対照)	0	0.04

(注)固化対象廃棄物: 焼却灰

3.1.3 強度発現材の検討

軽焼石灰と高炉スラグから成る地盤固化材を焼却灰に0~20%混合した時の強度発現効果を表5に示す。地盤固化材混合量の増加に伴い、一軸圧縮強度は0.04~1.47kg/cm²まで大きくなつたが、得られた強度は、ダンプトラックの自由走行が可能な2kg/cm²には達しなかつた。そこで、軽焼生石灰と高炉スラグから成る地盤固化材に強度発現材としてN P C、焼石膏、苛性ソーダを所定量配合した地盤固化材を新たに試作し、焼却灰に20%混合した時の強度発現効果を検討した。その結果、表6に示すようにN P Cと焼石膏では、強度発現材無添加の場合の一軸圧縮強度1.47kg/cm²に比して強度の増大が認められた。このうち、焼石膏では10.18kg/cm²と突出した強度が得られ、強度発現材として最も有効であった。

表5 地盤固化材の混合量と一軸圧縮強度

地盤固化材の組成 (重量比1:1)	混合量 (%)	最大強度 (kg/cm ²)
なし(対照)	0	0.04
軽焼生石灰+高炉スラグ	2	0.23
軽焼生石灰+高炉スラグ	5	0.35
軽焼生石灰+高炉スラグ	10	1.02
軽焼生石灰+高炉スラグ	20	1.47

(注)固化対象廃棄物: 焼却灰

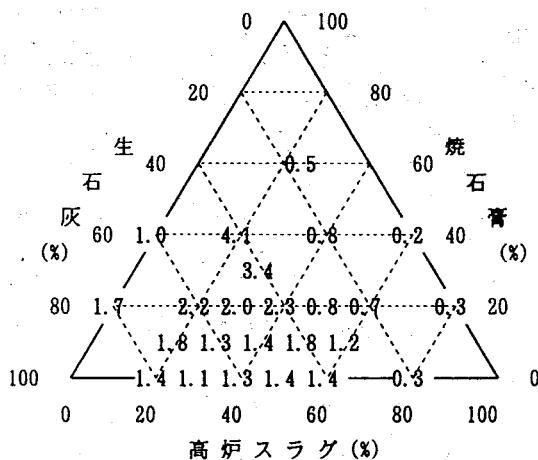
表6 強度発現材添加地盤固化材使用時の一軸圧縮強度

強度発現材を加えた地盤固化材の組成	最大強度 (kg/cm ²)
N P C+軽焼生石灰+高炉スラグ(5:2:2)	3.06
焼石膏+軽焼生石灰+高炉スラグ(1:2:2)	10.18
NaOH+軽焼生石灰+高炉スラグ(1:2:7)	0.96
軽焼生石灰+高炉スラグ(1:1)	1.47

(注)固化対象: 焼却灰、地盤固化材: 20%混合

3.1.4 軽焼生石灰-高炉スラグ-焼石膏の至適配合比

3.1.1~3.1.3までの検討結果から地盤固化材の組成は、軽焼生石灰+高炉スラグ+焼石膏が適当と考えられた。そこで、これら3者の配合比の異なる24種類の地盤固化材を試作し、至適配合比の検討を行つた。すなわち、下水汚泥と焼却灰の1:1混合廃棄物を固化

図2 素材の配合比と一軸圧縮強度(単位: kg/cm²)

対象とし、各地盤固化材を20%混合し、固化の状況を一軸圧縮強度により評価した。その結果、図2に示すように軽焼生石灰40~60%，高炉スラグ20~40%，焼石膏20~40%配合時に一軸圧縮強度で2.0~4.1kg/cm²が得られた。

3.2 地盤固化材の性能評価

3.2.1 実廃棄物における地耐力の向上効果

実廃棄物における地盤固化材の地耐力向上効果を明らかにするため、焼却灰、下水汚泥、製紙汚泥、研究機関汚泥及び染色汚泥の5種類の実廃棄物に、軽焼生石灰、高炉スラグ、焼石膏から成る地盤固化材(2:2:1の配合比)を20%混合して一軸圧縮強度を測定した。表7に示すように焼却灰、製紙汚泥及び染色汚泥の一軸圧縮強度は、3.84~1.17kg/cm²であり、ダンプトラック若しくは中型普通ブルドーザの自由走行に耐えうる強度が得られたが、下水汚泥と研究機関汚泥では、それぞれ0.11kg/cm²及び0.62kg/cm²であり、満足すべき強度が得られなかつた。

そこで、最も大きな強度が得られた焼却灰と他の4種類の廃棄物とをそれぞれ1:1の割合で混ぜ合わせた試料を調製し、これに地盤安定剤を5~20%混合して同様の検討を行つた。表8に示すように、いずれの

表7 固化処理をした実廃棄物の一軸圧縮強度

固化対象廃棄物	地盤固化材 混合量(%)	最大強度 (kg/cm ²)
焼却灰	20	3.84
下水汚泥	20	0.11
製紙汚泥	20	1.17
研究機関汚泥	20	0.62
染色汚泥	20	1.84

表8 固化処理をした混合廃棄物の一軸圧縮強度

固化対象廃棄物	地盤固化材 混合量(%)	最大強度 (kg/cm ²)
焼却灰+下水汚泥	5	0.37
	10	0.58
	20	1.54
焼却灰+製紙汚泥	5	1.13
	10	1.73
	20	1.51
焼却灰+研究機関汚泥	5	0.75
	10	0.98
	20	2.30
焼却灰+染色汚泥	5	1.02
	10	1.57
	20	2.45

廃棄物も焼却灰との混合により一軸圧縮強度が増大した。また、地盤固化材の混合量の多いほど強度が大きい傾向であった。

3.2.2 重金属の安定化効果

下水汚泥、焼却灰及び研究機関汚泥に軽焼生石灰、高炉スラグ、焼石膏から成る地盤固化材(2:2:1の配合比)をそれぞれ10%混合した後、3週間養生して溶出試験を行い、重金属類の溶出抑制効果について検討した。表9に示すように下水汚泥と焼却灰については、もともと重金属類の溶出濃度が低く、溶出抑制効果の確認が困難であったが、地盤固化材無添加の場合に種々の重金属類の溶出が認められた研究機関汚泥では、Cd, Zn, Fe, Mn, T-Cr, Niで1/2~1/6に、T-Hgで1/30程度に溶出濃度が低減され、明らかに重金属類の溶出が抑制された。

3.2.3 有機物の分解促進効果

下水汚泥に軽焼生石灰、高炉スラグ、焼石膏から成る地盤固化材(2:2:1の配合比)を10%混合し、1~4週間室温に放置した後溶出試験を行い、得られた溶出液についてTOCを測定した。表10に示すように、溶出液のTOCは、地盤固化材無添加の場合170~220mg/lであったが、添加した場合には1,300~1,900mg/lとなり、明らかに高値となった。また、TOCの濃度は、経過時間とともに増加する傾向にあった。

次に、溶出液のジクロロメタン抽出物についてGC/MS法により有機物の検索を行ったところ、地盤安定剤無添加の場合に比して、TOCを構成している有機物の組成に変化があることを確認した。このことから、地盤固化材の使用は、処分場における有機物の分解を早め、よって地盤の安定化に寄与するものと推察された。

4 まとめ

廃棄物埋立地の地盤の改善を図ることを主な目的として、生石灰を主材料とした地盤固化材の試作を行うとともに、実廃棄物における固化効果、有害金属類の溶出抑制効果、有機物の分解促進効果などについて実験室内において検討した結果、次の知見を得た。

- 1) 焼却灰を固化対象として地盤固化材の素材及び強度発現材について検索した結果、軽焼生石灰、高炉スラグ、焼石膏を混合した試作品が優れた固化効果を示した。また、下水汚泥と焼却灰の1:1混合廃棄物を固化対象として3者の至適配合比について検討した結果、軽焼生石灰40~60%, 高炉スラグ20~40%, 焼石

表9 実廃棄物における固化処理前後の重金属漏出濃度

(mg/l)

金属の種類	下水汚泥		焼却灰		研究機関汚泥	
	無処理	固化処理	無処理	固化処理	無処理	固化処理
Cd	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	0.16	0.041
Pb	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.02	<0.01
As	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
T-Hg	<0.0005	<0.0005	<0.0005	<0.0005	0.068	0.0020
Cu	0.17	0.11	<0.01	<0.01	0.89	0.78
Zn	0.10	0.30	0.01	0.05	1.8	0.78
Fe	0.15	0.15	0.07	0.03	1.9	0.30
Mn	0.06	0.01	0.02	<0.01	0.79	0.13
T-Cr	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.70	0.30
Ni	0.01	0.01	0.01	<0.01	0.39	0.16

表10 下水汚泥における固化処理前後の溶出液中のTOC

項目	1日経過後		1週間経過後		4週間経過後	
	無処理	固化処理	無処理	固化処理	無処理	固化処理
TOC(mg/l)	170	1,300	220	1,700	180	1,900

膏20~40%の配合比の時に一軸圧縮強度は2.0~4.1 kg/cm²となった。

2) 焼却灰, 下水汚泥, 製紙汚泥, 研究機関汚泥及び染色汚泥に, 軽焼生石灰, 高炉スラグ, 烧石膏から成る地盤固化材(2:2:1の配合比)を20%混合した結果, 焼却灰, 製紙汚泥及び染色汚泥における一軸圧縮強度は, 3.84~1.17kg/cm²となった。次に, 焼却灰と他の廃棄物を等重量で混合した廃棄物について, 地盤固化材を5~20%混合して同様の検討を行ったところ, いずれの場合も一軸圧縮強度が増大した。また, 概ね, 地盤固化材の混合量が多いほど強度が大きい傾向であった。

3) 下水汚泥, 焼却灰及び研究機関汚泥に軽焼生石灰, 高炉スラグ, 烧石膏から成る地盤固化材(2:2:1の配合比)をそれぞれ10%混合した検体について, 重金属類

の溶出抑制効果を検討した結果, 研究機関汚泥では, Cd, Zn, Fe, Mn, T-Cr, Niで1/2~1/6に, T-Hgで1/30程度に溶出濃度が低減された。

4) 軽焼生石灰, 高炉スラグ, 烧石膏から成る地盤固化材(2:2:1の配合比)を下水汚泥に10%混合した後1~14日間養生し, 溶出試験のろ液についてTOCを測定した結果, TOCは, 地盤固化材無添加の場合の170~220mg/lに比して, 1,300~1,900mg/lと明らかに高値となった。また, TOCの濃度は, 経過時間とともに増加する傾向にあった。

文 献

- 1) 安田 裕, 角田 寛, 渡辺憲人, 加藤布久, 光松文雄: 岐阜県保健環境研究所報, 2, 50~54, 1994

Studies on Proper Treatment and Disposal of Industrial Wastes III Development of a Lime-based Earthen Stabilizer for Ground and its Evaluation in Laboratory

Yutaka YASUDA, Hiroshi SUMIDA, Norito WATANABE (*Gifu Prefectural Health and Environment Research Center, 14-12, Yabuta Minami 5 chome, Gifu 500, Japan*)

Nobuhisa KATO, Fumio MITUMATU (*Gifu Prefectural Industrial Research Technical Center, 47, Kitaoyobi, Kasamatsu-cho, Hashi-gun, Gifu-ken 501-06, Japan*)

<他誌掲載論文>

1993年岐阜県におけるエコーウイルス11型による感染症の流行について

三輪智恵子、猿渡 正子（岐阜県保健環境研究所）

日本感染症学雑誌, 68(10), 1251-1255, 1994

1993年1月から9月にかけ、岐阜県でエコーウイルス11型（E-11）の流行がおこった。86症例について疫学的・ウイルス学的に検討した結果、以下のことが判明した。

1. 検査患者からのE-11の分離は、1月から9月まで継続的に分離されたが、最も患者が多く発生したのは7月であった。
2. 検体が採取された地域すべてからE-11は分離できたが、西濃、飛騨地区から多く分離できた。
3. E-11分離患者の年令は0歳から10歳に分布していたが、0歳が9人で全E-11分離患者の20.9%を占めていた。
4. 86症例中51症例（59.3%）より5種類のウイルスが分離されたが、43症例（84.3%）よりE-11が分離された。
5. E-11は種々の疾病患者から分離されたが最も多かったのは、無菌性髄膜炎（AM）の17名（39.5%）であった。AMは3歳以上では高い頻度で発生した。
6. 交差中和試験で、1971年E-11分離株及び1982年E-11分離株と1993年分離株との抗原性には、大差が認められなかった。

岐阜県における1992年のエコーウイルス6型による無菌性髄膜炎の流行について

三輪智恵子、猿渡 正子（岐阜県保健環境研究所）

日本感染症学雑誌, 68(9), 1063-1067, 1994

1992年1月から12月にかけ、岐阜県で無菌性髄膜炎（AM）の流行がおこった。108症例について疫学的・ウイルス学的・血清学的に検討した結果、以下のことが判明した。

1. 患者の年令は、0歳から15歳に分布していたが、3歳から7歳が75.9%を占めていた。
2. 108症例中73症例（67.6%）より6種類のウイルスが分離されたが、68症例（93.2%）よりエコーウィルス6型（E-6）が分離された。
3. 交差中和試験で、1992年E-6分離株と標準株との抗原構造には、大差が認められなかった。
4. E-6流行後（1992～1993），住民（0～9歳）のE-6に対する中和抗体保有率は、1992年分離株で測定すると41.1%であった。年齢別では5歳が最高保有率（82.4%）であった。

Determination of 8-methyl ether of xanthurenic acid in human urine by high-performance liquid chromatography

Junzo Imai, Kyoko Murayama (*Gifu Prefectural Health and Environment Research Center, 6-3, Noishiki 4 chome, Gifu 500, Japan*)

Makoto Kawai (*Gifu Prefectural Center for Health Check-up and Screening, 6-2, Noishiki 4 chome, Gifu 500, Japan*)

Seiji Yamaguchi (*Department of Pediatrics, Shimane Medical University, 89-1, En-ya-cho, Izumo, Shimane 693, Japan*)

Kenji Matsuura (*JEOL Co., 1-2, Musashino 3 chome, Akishima, Tokyo 196, Japan*)

Journal of Chromatography B, 661, 149-153, 1994

A simple and sensitive assay has been developed for the urinary 8-methyl ether of xanthurenic acid(XA-OMe) by high-performance liquid chromatography with fluorescence detection (excitation at 340nm; emission at 450nm). Urine samples were diluted with 0.03 M potassium phosphate buffer (pH6.0) and applied to an octadecylsilane-bonded column (Nucleosil 5C₁₈, 150×4 mm I.D.). The mobile phase used was a mixture of this same buffer and acetonitrile (1000:140, v/v). Both direct injection of urine and solvent extraction prior to HPLC were tested and showed a good correlation and sensitivity. The quantification limit was 5×10^{-14} mol, which was sensitive enough to detect XA-OMe in urine from normal subjects. The method was applied to samples from patients with a deficiency in tryptophan catabolism, xanthurenic acid/3-hydroxykynurenine-uria and showed a striking elevation in urinary XA-OMe excretion.

Relationships between serum saturated fatty acids and serum total cholesterol and HDL-cholesterol in humans

Teruo Nagaya (*Department of Public Health, Gifu University, School of Medicine, 40 Tsukasamachi, Gifu 500, Japan*)

Ken-ichi Nakaya (*Gifu Prefectural Health and Environment Research Center, 6-3, Noishiki 4 chome, Gifu 500, Japan*)

Akemi Takahashi, Yoshinari Okamoto (*Gifu-shi Central Public Health Center, 19 Miyako-Dohri, 2 chome, Gifu 500, Japan*)

Ann Clin Biochem, 31, 240-244 (1994)

To investigate the effects of serum saturated fatty acids(FAs) on human cholesterol metabolism, total-cholesterol(T-C), HDL-cholesterol(HDL-C), T-C/HDL-C ratio, and FA composition [myristic acid(MA,14:0), palmitic acid(PA,16:0) and stearic acid(SA, 18:0)] were determined in serum from 115 men and 120 women (20-70 years old). MA,PA and SA were expressed as percentages of serum total FAs. Using multivariate analysis to account for the conf-

ounding effects of age, body mass index, drinking, and smoking it was found that SA was negatively correlated with T-C and T-C/HDL-C ratio in both men and women. In men MA was negatively correlated with HDL-C, and in women SA was positively correlated with HDL-C. Although PA was the major component of serum saturated FAs, PA had no significant relation to any cholesterol indices in either sex. These results suggest that serum MA may aggravate and serum SA may improve cholesterol metabolism, thereby influencing the risk for ischaemic heart disease.

Differential Inhibitory Effects and Separation of *Melastoma Normale* Extracts on the Activities of HIV Reverse Transcriptase and DNA Polymerase

孟 正木 (中国薬科大学植物化学研究室)

小野 克彦, 中根英雄 (愛知県癌研究所)

小瀬 洋喜 (大垣女子短期大学)

坂井 至通 (岐阜県保健環境研究所)

中国薬科大学学報, 26(2), 103-106 (1995)

The extracts of Y-1, Y-P, Y-A, Y-E, Y-A-1 and Y-3~11 from *Melastoma normale* were tested for ability to inhibit the activities of HIV reverse transcriptase and human deoxyribonucleic acid(DNA) polymerase. Among 15 fractions, Y-1, Y-A, Y-A-1, Y-9 and Y-11 showed very strong inhibition enzyme activities. The 50% inhibition concentrations(IC_{50}) $0.1\sim0.5 \mu g/ml$ for HIV reverse transcriptase and $0.5\sim2.5 \mu g/ml$ for DNA polymerase α . HIV reverse transcriptase was inhibited by 99.37%, 93.35%, 98.24%, 99.92% and 89.68% in the presence of Y-A, Y-A-1($2.5 \mu g/ml$), Y-9, Y-11($2 \mu g/ml$) and Y-1($5 \mu g/ml$) respectively. DNA polymerase α was inhibited by 95.45%, 93.33%, 93.01% and 99.11% in the presence of Y-A, Y-9, Y-11($2.5 \mu g/ml$) and Y-1($5 \mu g/ml$) respectively. These results indicated that the *M. normale* contained as yet unidentified substance which inhibited the activities of HIV reverse transcriptase and cellular DNA polymerase.

Studies of Antivirus Activities of Eight Kinds of Chinese Medicinal Herb

孟 正木 (中国薬科大学植物化学研究室)

小野 克彦, 中根 英雄 (愛知県癌研究所)

小瀬 洋喜 (大垣女子短期大学)

鬼頭 英明 (岐阜薬科大学)

坂井 至通 (岐阜県保健環境研究所)

中国薬科大学学報, 26(1), 33-36 (1995)

The extracts of eight kinds of chinese medicinal herb on antivirus activities were tested for ability to inhibit the HSV-1/KOS, VSV, Influenza A, Adenovirus 3 and HIV reverse transcriptase. The extracts of *Spatholobus suberectus* were found to have very strong antivirus activity on HSV-1/KOS. Its 50% degeneration inhibition concentration(CPIE₅₀), 50% cell lethal concentration(CLE₅₀), and 50% enzyme inhibition concentration(IC₅₀) were 46.0, 630, 0.2 μg/ml respectively, and selection toxicity(ST) was 13.7. But CPIE₅₀, CLE₅₀ and ST of positive contrasts Ara were 14.5, 200 μg/ml and 13.8 respectively, and both of them are of similarity.

Polysaccharides in Fungi. X X X IV. A Polysaccharide from the Fruiting Bodies of *Amanita muscaria* and the Antitumor Activity of Its Carboxymethylated Product

Tadashi Kiho, Masami Katsuragawa, Miho Sakushima, Shigeyuki Usui, Shigeo Ukai

(Gifu Pharmaceutical University, 5-6-1 Mitahora-higashi, Gifu 502, Japan)

Isao Yoshida (Gifu Prefectural Health and Environment Research Center,
6-3, Noishiki 4 chome, Gifu 500, Japan)

Biol. Pharm. Bull., 17(11), 1460-1462(1994)

A water-insoluble, alkali-soluble, glucan (AM-APP), $[\alpha]_D +160^\circ$ in 0.4M NaOH, was isolated from the alkaline extract of the fruiting bodies of *Amanita muscaria*. The results of chemical and spectroscopic investigations indicate that AM-APP is a linear (1→3)- α -D-glucan with a molecular weight estimated by gel chromatography of about 42000. Its carboxymethylated product (AM-APP-CM) showed potent antitumor activity against sarcoma 180 in mice, although the native polysaccharide (AM-APP) had little effect. The distribution of carboxymethyl groups in the molecule was analyzed by gas chromatography and mass spectrometry. The degree of substitution of carboxymethyl groups was 0.95 and the substituents were located at O-2, at O-4, at O-6, at O-2 and O-6, and at O-4 and O-6 on glucose.

ニオイセンサーによる悪臭評価－有機溶剤臭気への適用－

高原 康光 (岐阜県保健環境研究所)

井奈波良一, 岩田 弘敏 (岐阜大学医学部衛生学教室)

資源環境対策, 30, 851-858(1994)

市販のポータブル型ニオイセンサー（合成二分子膜被覆式1機種と金属酸化物熱線半導体式2機種の計3機種）の悪臭環境への適用について、臭気物質、温度、湿度等に対する応答特性及び安定性等の観点から比較検討した。さらに、その最良機種であると判断された金属酸化物熱線半導体式のセンサーの

有機溶剤臭気への適用を検討した。

このセンサーは、温度及び湿度の影響は少なく、安定性にも優れており、有機溶剤系臭気に対して卓越した感度を示した。更に、本センサーによる値と感覚量である臭気濃度との間に整合性があり、且つ、有機溶剤関連臭気の成分濃度との間にウェーバー・フェヒナーの法則が成立すること、臭気濃度とは有意で強い相関関係にあることなどが判明し、塗装業及び薬品業に限定すれば、有力な悪臭評価手段となることが明らかとなった。

多孔質セラミック系農薬除去剤の開発とゴルフ場における実証試験

野村 泰之、大江 章夫、渡辺 憲人（岐阜県保健環境研究所）

岩下 哲志、上村 克己（矢橋工業株式会社）

全国公害研会誌、20、29-33(1995)

ゴルフ場で使用される農薬の流出による水環境の汚染が危惧されたことから、農薬に併せて肥料中の磷酸も効率良く除去できるセラミック系農薬除去剤を開発した。石灰とフライアッシュに真珠岩、黒曜石等の無機発泡剤を加え、焼成して得た多孔質セラミックに活性炭を配合した複合除去剤を用いて、カラム試験により6種類の農薬に対する除去率を求めた結果、76.8～100%の範囲であった。また、この複合除去剤を県内の一つのゴルフ場でパッティンググリーンの芝下に敷設するとともに集水枡、排水管、排水路に設置して農薬使用量の多い4～10月に実証試験を行った結果、パッティンググリーンの芝下敷設試験においては、浸出水中の農薬濃度は平均9 ppbと極めて低かった。また、集水枡内、排水管及び排水路の設置試験における農薬除去率は、それぞれ78%，76%及び67%であった。

石灰系地盤安定材の開発と廃棄物最終処分場における応用研究

渡辺 憲人（岐阜県保健環境研究所）

石灰、No.470、18～24(1995)

産業廃棄物の管理型最終処分場においては、原則として厚さ1.5mm以上のシートが遮水工として整備されているが、建設のさい突起物等により破損し易いこと、また、長期間経過した場合には劣化により遮水性能が低下する可能性がある。そこで、遮水シートの性能を補完する石灰系の遮水材の開発を行った。

石灰石水洗ケーキ90～95%，軽焼生石灰5～10%及び高炉スラグ20%からなる遮水材の透水係数は、 10^{-8} cm/secオーダーであった。また、CBRは70%，1ヶ月水浸後の膨潤比0.02%以下であり、遮水材としての優れた性能を有していた。

<学 報 告>

○岐阜県のそら 一常時監視10年を振り返って-

太田雅賀, 田中 耕, 児玉文夫, 鷲見 徹(岐阜県保健環境研究所), 佐々木隆司(岐阜県大垣保健所)

第27回東海薬剤師学術大会, 1994年10月, 静岡市

○RT-PCR法を用いたSRSVの検出

宇田川悦子, 井上 栄(国立予防衛生研究所), 岩崎 明(山口県衛生公害研究センター), 原田 誠三, 斎藤博之(秋田県衛生科学研究所), 仮屋 圭弘志(北九州市環境衛生研究), 川本尋義(岐阜県保健環境研究所)

第35回日本臨床ウイルス学会, 1994年7月, 大阪市

○食品媒介ウイルス性胃腸炎集団発生実態調査研究班について

川本尋義(岐阜県保健環境研究所)

第42回日本ウイルス学会, 1994年10月, 東京都

○RT-PCR法による小型球形ウイルスの検出についての検討

斎藤邦宏, 村尾美代子, 西尾 治, 牛島廣治(国立公衆衛生院), 川本尋義(岐阜県保健環境研究所), 大瀬戸光明(愛媛県衛生研究所), 財満耕二(東京農業大学)

第42回日本ウイルス学会, 1994年10月, 東京都

○下痢症ウイルス: ウィルス性集団下痢症の全国実態調査について

川本尋義(岐阜県保健環境研究所)

衛生微生物技術協議会第15回研究会, 1994年7月, 山形市

○唾液中分泌型IgAの測定とその意義

渡辺 豊(岐阜県保健環境研究所), 永谷照男(岐阜大学医学部公衆衛生学教室), 奥野雅典(岐阜市北保健所)

第40回東海公衆衛生学会, 1994年7月, 岐阜市

○nested PCRを用いた*Salmonella typhi*検出法の検討

伊藤嘉浩(岐阜県保健環境研究所), 橋本安弘,

山本啓之, 江崎孝行(岐阜大学医学部微生物学教室)

第68回日本感染症学会総会, 1994年4月, 長崎市

○アメーバ症血清学的診断法としての間接蛍光抗体法の評価

長野 功, 野田伸司(岐阜県保健環境研究所)
第68回日本感染症学会総会, 1994年4月, 長崎市

○AP-PCR法による蠕虫のゲノム分析

長野 功(岐阜県保健環境研究所), 高橋優三(岐阜大学医学部寄生虫学教室)
第50回日本寄生虫学会西日本支部大会, 1994年10月, 富山市

○AP-PCR法によるプラストシスチスのATCC登録株と患者分離株のゲノム解析

吉川尚男(奈良女子大学理学部生物学科), 長野功(岐阜県保健環境研究所), 高橋優三(岐阜大学医学部寄生虫学教室)
第50回日本寄生虫学会西日本支部大会, 1994年10月, 富山市

○AP-PCR法による旋毛虫のゲノム分析

高橋優三(岐阜大学医学部寄生虫学教室), 長野功(岐阜県保健環境研究所), 福本宗嗣(鳥取大学医学部医動物学教室)
第50回日本寄生虫学会西日本支部大会, 1994年10月, 富山市

○PHENOTYPE AND GENOTYPE POLYMORPHISMS AMONG BLASTOCYSTIS ISOLATES FROM DIFFERENT SOURCES

H. Yoshikawa(*Department of Biology, Faculty of Science, Nara Women's University*), I. Nagano(*Department of Microbiology, Gifu Prefectural Health and Environment Research Center*), Y. Takahashi(*Department of Parasitology, Gifu University School of Medicine*)

日独原虫症シンポジウム, 1994年9月, 帯広市

○体重減少の血清脂肪酸組成への影響

中屋謙一(岐阜県保健環境研究所), 岸田敏彦,
岡本祥成(岐阜市中央保健所), 永谷照男(岐阜
大学医学部公衆衛生学教室)
第65回日本衛生学会, 1995年3月, 豊明市

1994年度日本地球化学会年会, 1994年10月, 名古屋
市

○食用菌類多糖の研究(第46報) ヤナギマツタケ α -
(1→3)グルカンのCM誘導体の生理活性(その3)

吉田 熨(岐阜県保健環境研究所), 木方 正,
白井茂之, 佐久嶋美穂, 鶴飼茂夫(岐阜薬科大学
衛生化学教室)
日本薬学会第115年会, 1995年3月, 仙台市

○木炭を利用した地下水中の硝酸性窒素の生物学的処
理

森 仁(岐阜県保健環境研究所)
日本地下水学会春季講演会, 1994年5月, 各務原市

○サイコの品質調査について

坂井至通, 清水英徳, 今井準三, 井口恒男(岐阜
県保健環境研究所)
第31回全国衛生化学技術協議会年会, 1994年11月,
東京

○県内水道の富栄養化事例について

梶川正勝, 堀部京子, 寺尾 宏, 村瀬秀也, 南部
敏博, 森 仁, 加藤邦夫, 驚見 徹, 井口恒男
(岐阜県保健環境研究所)

第40回東海公衆衛生学会, 1994年7月, 岐阜市

○High-performance liquid chromatographic
analysis of poisonous drugs

Y.Sakai, H.Shimizu, J.Imai, T.Iguchi (*Gifu
Prefectural Health and Environment Research
Center*), S.Yamaguchi, H.Mori (*Ogaki Municipal
Hospital*), H.Nagase (*Gifu Pharmaceutical
University*)

15TH ASIAN CONGRESS OF PHARMACEUTICAL
SCIENCES, Nov.15-19, 1994, BANGKOK, THAILAND

○開発途上国の都市部におけるし尿・生活排水処理の
段階的改善計画手法の開発に関する研究(2) —ケー
ススタディーによる検討—

小嶋公史, 北脇秀敏, 桜井国俊(東京大学工学部
都市工学科), 大森信慈(国際協力事業団派遣専
門家, 在インドネシア), 南部敏博(岐阜県保健
環境研究所)

土木学会第2回地球環境シンポジウム, 1994年6月,
東京都

○長期測定による環境騒音評価の試み(3) —5年経過
後の騒音レベルの変化—

奥平文雄(岐阜県保健環境研究所)
騒音制御工学会, 1994年10月, 東京都

○農薬吸着・分解剤の開発とゴルフ場における利用に
関する研究

野村泰之, 大江章夫(岐阜県保健環境研究所),
上村克己, 岩下哲志(矢橋工業株式会社)
土木学会第49回年次学術講演会, 1994年9月, 札幌
市

○ニオイセンサーによる臭気の評価—有機溶剤臭気へ
の適用—

高原康光, 加藤邦夫, 井口恒男(岐阜県保健環境
研究所), 井奈波良一, 岩田弘敏(岐阜大学医学
部衛生学教室)
第53回日本公衆衛生学会総会, 1994年10月, 鳥取市

○農薬吸着・分解剤の開発と実用試験結果

野村泰之, 大江章夫, 渡辺憲人(岐阜県保健環境
研究所), 上村克己, 岩下哲志(矢橋工業株式会
社)

第21回環境保全・公害防止研究発表会, 1994年11月,
大阪市

○各務原台地の硝酸性窒素による地下水汚染

寺尾 宏(岐阜県保健環境研究所), 加藤喜久雄
(名古屋大学大気水圈科学研究所), 吉岡龍馬
(富山県立大学)

○化学物質の藻類成長阻害試験結果及び試験法の問題
点について

大江章夫(岐阜県保健環境研究所)
第12回環境科学セミナー, 1995年3月, 所沢市

○廃棄物最終処分場における石灰系地盤安定材の使用
について

井口恒男, 渡辺憲人, 角田 寛, 安田 裕 (岐阜
県保健環境研究所), 岸上慎次郎, 光松文雄, 加
藤布久 (岐阜県工業技術センター)

日本材料学会第1回地盤改良シンポジウム, 1994年
6月, 京都市

○廃棄物最終処分場における石灰系安定材について

渡辺憲人 (岐阜保健環境研究所)
平成6年度石灰工業技術大会, 1994年10月, 仙台市

○廃棄物埋立処分場の浸出水及び廃棄物汚泥の変異原
性に関する研究

渡辺憲人, 井口恒男 (岐阜保健環境研究所), 鈴
木謙一, 永瀬久光, 鬼頭英明, 新川美紀, 仲井修
一, 佐藤孝彦 (岐阜薬科大学)
日本環境変異原学会, 1994年11月, 静岡市

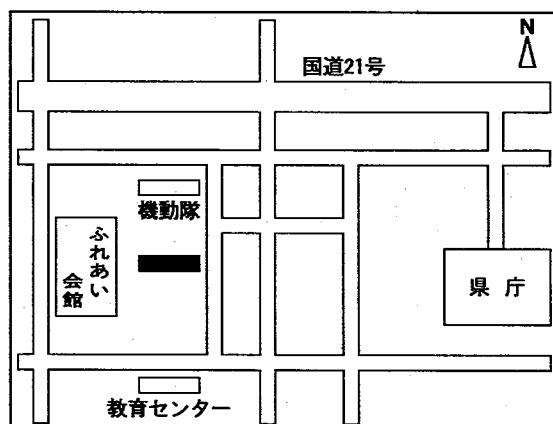
所報第3号編集委員

渡辺憲人(委員長) 太田雅賀
渡辺 豊 大塚公人
角田 寛

岐阜県保健環境研究所 本庁舎



岐阜県保健環境研究所 藪田庁舎



岐阜県保健環境研究所報

第3号(平成7年度)

平成8年1月発行

編集発行 岐阜県保健環境研究所 本庁舎

岐阜県保健環境研究所 藪田庁舎

〒500 岐阜市野一色4丁目6番3号

TEL 058(246)1101

FAX 058(246)1104

〒500 岐阜市薮田南5丁目14番12号

TEL 058(274)0111

FAX 058(276)4307

印刷所 三進社印刷所

〒500 岐阜市石長町6丁目5番地

TEL (058)245-3624

FAX (058)248-3352

