



活彩あおもり

I S S N 0917-1924

# 青森県環境保健センター研究報告

Bulletin  
of  
Aomori Prefectural Institute of Public Health and Environment

No.14 2003



青森県環境保健センター

## はじめに

本年度は、農産物への無登録農薬使用、牛乳への殺菌剤混入や中国産冷凍食品からの農薬検出等食の安全性問題、更には入浴施設を発生源とするレジオネラ症の集団感染や発生源不明の赤痢菌や小型球形構造ウイルス等による集団健康被害が発生し、健康危機管理のために当センターへの期待が益々高まっております。当センターにおいては、ケミカルハザード防止施設でのダイオキシン類検査がはじまると共に、昨年度来の感染症情報センターの業務も軌道にのり着実に成果をあげてきています。また、EUの査察を終えて今シーズンからむつ湾産ホタテガイのEUへの輸出が解禁されてきましたが、さらに、ホタテガイの貝毒や細菌等の検査に関してISO/IEC17025試験所認定を取得するために認定機関からの審査を受け、平成15年3月末には認定されたところであります。本県で開催され、当センター職員もボランティアとして参加した第5回アジア冬季競技大会は成功裡に終了し、懸念していた食中毒や化学・生物テロも発生せず、まずは安堵しているところであります。

さて、今年度から本県でも研究評価システムが導入され、今後は県民のニーズを念頭に長期的な研究戦略を持ち、その中で個別の研究課題を立ち上げていく必要があると痛感しています。本巻には6報の報文と5報のノートを掲載しておりますが、御一読の上、御意見などお寄せいただければ幸甚に存じます。

2003年3月

青森県環境保健センター

所長 福 彗 寛 二

# 目 次

## I 報 文

ホタテ貝殻焼成粉末の細菌発育抑制要因について 大友 良光 小笠原 和彦 横澤 幸仁 .....	1
青森県におけるウイルス分離状況 (2001.4 ~ 2002.3) 筒井 理華 石川 和子 三上 稔之 安保 亘 .....	5
ホタテ貝殻焼成粉末のホルムアルデヒド吸着・分解作用に関する研究 山本 明美 坂牛美由紀 村上 淳子 横澤 幸仁 古川 寿伯 古川 章子 .....	9
りんご食物繊維の環境ホルモン様物質吸着効果 (第1報) 葛西恵里子 古川 章子 .....	15
青森県における陸水の酸中和能について 三上 一 花石 竜治 米谷 康治 五十嵐 飛鳥 .....	22
十和田湖における鉱山廃水、下水道処理による水質の将来予測 吉田 毅 荒関 治 .....	32

## II ノ ー ト

病原微生物検出情報の週報構築 大友 良光 .....	47
青森県における神経芽細胞腫マス・スクリーニング結果 (平成13年度) 小笠原和彦 金田 量子 .....	49
温泉泉質経年変化 (1989-2001) 村上 淳子 高橋 政教 平出 博昭 高橋ひとみ 安田 徳彦 阪崎 俊璽 .....	53
空間放射線測定器特性試験 竹ヶ原 仁 野田 正志 高橋 秀昭 木村 秀樹 齋藤 稔 岩本 明憲 藤本 敏明 .....	62
鉱山活動による十和田湖の水質変化 (1970) 森田 良美 .....	70

III 他誌投稿抄録 .....	77
------------------	----

IV 学会等発表抄録 .....	79
------------------	----

# CONTENTS

<b>I Original Articles</b>	
Inhibition of Bacterial Growth by Burned Scallop Shell Powder Yoshimitsu Otomo, Kazuhiko Ogasawara and Yukihiro Yokozawa .....	1
Viral Isolation in Aomori Prefecture (April 2001 to March 2002) Rika Tsutsui, Kazuko Ishikawa, Toshiyuki Mikami and Wataru Abo .....	5
Study on the Ability of Burned Scallop Shell Powder to Adsorb and Decompose Formaldehyde Akemi Yamamoto, Miyuki Sakaushi, Atsuko Murakami, Yukihiro Yokozawa, Toshinori Kogawa and Akiko Kogawa .....	9
The Ability of Dietary Fiber of Apples to Adsorb Endocrine Disrupting Chemicals (I) Eriko Kasai and Akiko Kogawa .....	15
Acid Neutralizing Capacity of Inland Water in Aomori Prefecture Hajime Mikami, Ryuji Hanaishi, Kohji Yoneya and Asuka Igarashi .....	22
Perspectives for Water Quality Change Due to Mining Wastewater and Sewage Treatment in Lake Towada Tsuyoshi Yoshida and Osamu Araseki .....	32
<b>II Notes</b>	
Construction of Infectious Agents Surveillance Weekly Report Yoshimitsu Otomo .....	47
Results of Mass Screening for Neuroblastoma in Aomori Prefecture (April 2001 - March 2002) Kazuhiko Ogasawara and Ryoko Kaneda .....	49
Water Quality Change of the Hot Springs with the Lapse of Year Atsuko Murakami, Masanori Takahashi, Hiroaki Hiraide, Hitomi Takahashi, Kokuhiko Yasuda and Shunji Sakazaki .....	53
Characteristic Test of NaI (TI) Scintillation Detector Hitoshi Takegahara, Masashi Noda, Hideaki Takahashi, Hideki Kimura, Minoru Saito, Akinori Iwamoto and Toshiaki Fujimoto .....	62
Estimation of Changes in Water Quality during Mine Drainage and Sewage Disposal in Lake Towada (1970) Yoshimi Morita .....	70
<b>III Summaries of Other Publication</b> .....	77
<b>IV Abstracts of Presentation in Society Meeting</b> .....	79

I 報 文

# ホタテ貝殻焼成粉末の細菌発育抑制要因について

大友 良光 小笠原和彦 横澤 幸仁<sup>1</sup>

抗菌活性があるとされているホタテ貝殻焼成粉末水溶液について、大腸菌、黄色ブドウ球菌、枯草菌（芽胞型）の発育に対する影響を試験した。その結果、ホタテ貝殻焼成粉末および対照の石灰石は焼成温度の上昇に伴い、その飽和水溶液のpHが上昇し、700℃以上の焼成物ではpHが12以上の極めて強度のアルカリ性を示し、大腸菌、黄色ブドウ球菌には殺菌、芽胞型の枯草菌には静菌作用を示した。しかし、各水溶液をpH7.0に調整した場合には、いずれの菌に対しても発育抑制作用は認められなかった。

Key words: Scallop shell powder, Limestone, Antibacterial action, Alkaline solution

## 1. はじめに

わが国の平成12年度におけるホタテ貝生産量は約52万トン、そのうち約15万トンが廃棄物として処理されているが、近年、この有効利用の観点から、焼成粉末水溶液の抗菌作用が注目されている。小山ら<sup>1)</sup>はホタテ貝殻焼成粉末水溶液が大腸菌、真菌類およびメチシリン耐性黄色ブドウ球菌（MRSA）に抗菌活性があり、それは単にアルカリ性だけが影響しているのではないとしている。また、岡ら<sup>2)</sup>はビブリオ属の5菌種についても試験を行い、その抗菌作用を示している。著者らはこれらの抗菌作用の本体を追究する目的で、ホタテ貝殻及びそれと主成分（炭酸カルシウム）が同じである石灰石の微粉末について焼成温度毎の水溶液を作成し、それらに対する大腸菌、黄色ブドウ球菌、そして枯草菌芽胞の発育抑制試験を実施したので報告する。

## 2. 試験材料

### 2.1 検査材料

ホタテ貝殻及び石灰石（炭酸カルシウム）を100℃から1,000℃まで100℃刻みで焼成した各約200gの微粉末を準備した。これらは青森県工業試験場で作成したが、100℃の焼成は環境保健センターで実施した。

### 2.2 菌 株

大腸菌（*Escherichia coli* ATCC 25922）、黄色ブドウ球菌（*Staphylococcus aureus* ATCC 29213）、そして枯

草菌（*Bacillus subtilis* ATCC 6633）を用いた。枯草菌は芽胞を用いた。

### 2.3 培 地

試験菌の培養には感受性測定用ブイヨン（日水）、菌数測定には感受性測定用培地-N（日水）を用いた。また、菌の生死判別用として、大腸菌と黄色ブドウ球菌には乳糖ブイヨン培地（栄研）、枯草菌にはブレインハートインフュージョン培地（DIFCO）を用いた。

### 2.4 pH調整試薬

N/10水酸化ナトリウム溶液（和光）、N/10塩酸（和光）、塩酸（和光）を用いた。

### 2.5 主な器具

pHの測定にはHORIBA pHmeter M-8S（検定済、H18.7まで有効）、遠心には高速遠心機と微量高速遠心器（TOMY, MRX-150）、塩濃度測定には海水濃度屈折計サリニティ（S/mill-E, ATAGO）を用いた。

## 3. 試験方法及び結果

### 3.1 ホタテ貝殻焼成粉末の溶解

ホタテ貝殻焼成粉末を、細菌の発育に影響を与えないように生理的食塩水（0.85% NaCl）に接種し、25℃の環境に静置した。石灰石も同様に処理した。

### 3.2 溶液の除菌

各試験液から雑菌を除去するために、各溶液1.2mLを滅菌マイクロチューブに接種し、これを12,000rpmで5分間遠心後、上澄みの上部1mLを滅菌マイクロチューブに取り出した。

### 3.3 菌液の調整

保存大腸菌を3mLの感受性測定用ブイヨンに接種

1 青森県工業試験場 窯業・化学部

し、35℃で20時間培養後、その1 mLを滅菌チューブに投入して12,000rpmで5分間遠心し、上澄み除去後に滅菌生理的食塩水で2回洗浄し、最後に1 mLの滅菌生理的食塩水に懸濁して菌液とした。菌液は使用時に調整した。

### 3. 4 菌数測定方法

滅菌生理的食塩水90μLに菌液を10μL接種して10倍階段希釈を行い、各希釈段階の菌液20μLずつを感受性測定用培地-N上にスポットしコンラージ棒で塗布し、35℃で20時間培養後菌数を測定した。菌数は計数値を50倍し、これに各希釈倍数を乗じた値の上位3桁目を四捨五入して1 mL当たりの数とした。

### 3. 5 ホタテ貝殻焼成粉末水溶液のpH測定

生理的食塩水200mLにホタテ貝殻と石灰石の各温度別焼成粉末を1 g投入して攪拌し、室温で24時間放置後、上澄みを採取しpHを測定した。その結果、いずれの水溶液も高いpH値を示し、特に600℃以上では、ホタテ貝殻焼成粉末水溶液及び石灰石でも10.5を越え、特に700℃以上ではpH12.0を越え、最高値はホタテ貝殻では900℃で12.63、石灰石では1,000℃で12.77となった。(図1)。

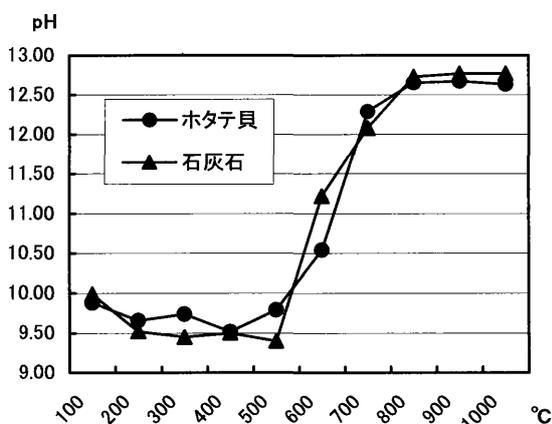


図1 ホタテ貝殻焼成粉末水溶液のpH

### 3. 6 発育抑制試験用細菌の発育条件調整の予備試験

ホタテ貝殻焼成粉末及び石灰石の水溶液は強度のアルカリ性を示し、菌発育に悪影響が予測されたため、細菌発育抑制試験に先立ち、ホタテ貝殻焼成粉末を溶解した生理的食塩水溶液並びに対照として生理的食塩水のpHを12.6と7.0に調整した溶液各1 mLずつを滅菌チューブに投入し、これに870,000細胞/mLの大腸菌を接種し25℃で1, 5, 27時間放置後に菌数を測定した。その結果、大腸菌は高pH域では発育できな

い状態であることが示された(表1)。

表1 ホタテ貝殻粉末水溶液の大腸菌発育抑制試験

No.	検体の種類	pH	接触時間	菌数/mL
1	1,000℃加熱粉未溶解生理的食塩水	11.7	1	<30
			5	<30
			27	<30
2	"	7.0	1	1,200,000
			5	2,100,000
			27	5,400,000
3	pH調整生理的食塩水	12.0	1	<30
			5	<30
			27	<30
4	"	7.0	1	2,900,000
			5	3,100,000
			27	6,100,000

### 3. 7 pH7.0ホタテ貝殻焼成粉末水溶液の大腸菌殺菌試験

ホタテ貝殻焼成粉末及び石灰石の溶解液の大腸菌に対する発育抑制の有無を見るために、各粉末約1gを200mLの生理的食塩水に投入して25℃で24時間放置し3,000rpmで30分間高速遠心し、これを更にペーパーフィルター(ADVANTEC, No.2)でろ過後pH7.0に修正し、除菌後その1 mLを滅菌チューブに投入して試験液とした。この試験液に大腸菌液を10μL接種し、2, 15時間放置後の菌数を測定した。その結果、ホタテ貝殻焼成粉末及び石灰石の水溶液はpH7.0に修正した場合、大腸菌の生残性に大きな影響を与えなかった(表2)。

表2 pH7.0修正ホタテ貝殻焼成粉末水溶液中の大腸菌生残性

検体	焼成温度(°C)	原液pH	塩濃度(0/00)	pH7.0(25°C)	
				菌数(対数)/mL	
				2hr.	15hr.
ホタテ貝殻	100	9.88	8	6.7	6.2
	200	9.66	8	7.0	6.9
	300	9.74	8	6.9	7.0
	400	9.52	8	6.9	6.9
	500	9.79	9	6.8	6.9
	600	10.54	9	6.8	6.9
	700	12.29	9	6.9	7.0
	800	12.65	11	7.0	6.9
	900	12.67	11	6.9	7.0
	1,000	12.63	10	7.0	7.0

	100	9.99	8	7.0	6.5
	200	9.52	8	7.1	6.9
	300	9.45	8	7.0	7.0
	400	9.50	8	7.0	7.1
石灰石	500	9.40	8	7.0	6.8
	600	11.22	8	7.0	7.0
	700	12.08	9	7.0	6.9
	800	12.73	10	7.0	6.9
	900	12.77	11	7.1	6.9
		1,000	12.77	10	7.0
生理的食塩水	7.00		9	7.1	6.9

### 3. 8 pH未修正のホタテ貝殻焼成粉末水溶液の大腸菌発育抑制予備試験

ホタテ貝殻焼成粉末及び石灰石の水溶液のpH未修正溶液での大腸菌発育抑制を見るため、遠心除菌した各液90 $\mu$ Lに、大腸菌液10 $\mu$ L (870,000細胞/mL) を接種し、5分、15分、30分、1時間、2時間、そして15時間放置後に菌接種液10 $\mu$ Lを感受性測定用培地-N上に接種し、35 $^{\circ}$ Cで20時間培養して菌の発育の有無を観察した。その結果、pH12.0以上では5分を越えた場合には大腸菌の発育が抑制された。

### 3. 9 高pHホタテ貝殻焼成(1,000 $^{\circ}$ C)粉末水溶液の大腸菌殺菌試験

ホタテ貝殻焼成粉末及び石灰石の1,000 $^{\circ}$ C焼成粉末水溶液の大腸菌に対する発育抑制が殺菌作用か静菌作用かを見るために、pH未修正の溶液900 $\mu$ L、対照としてpH12.6と7.0に調整した生理的食塩水を準備し、大腸菌液を10 $\mu$ L (7,600,000細胞/mL) 接種し、30秒、1分、2分、3分、4分、5分経過後に10 $\mu$ Lを200 $\mu$ Lの乳糖ブイヨン入りマイクロトレイに接種し35 $^{\circ}$ Cで20時間培養した。その結果、ホタテ貝殻焼成粉末及び石灰石の水溶液の高いpH域では、大腸菌は1分を越えては生存出来ないことが判明した(表3)。

表3 ホタテ貝殻焼成粉末水溶液の大腸菌殺菌試験

検体名	pH	接触時間(分)後の菌生残					
		0.5	1	2	3	4	5
ホタテ貝殻粉末水	12.6	+	+	-	-	-	-
石灰石粉末水	12.8	+	+	-	-	-	-
pH調整生理的食塩水	12.6	-	-	-	-	-	-
生理的食塩水	7.0	+	+	+	+	+	+

### 3. 10 高pHホタテ貝殻焼成(1,000 $^{\circ}$ C)粉末水溶液の黄色ブドウ球菌、芽胞型枯草菌発育抑制試験

大腸菌に関して行った方法で実験した結果、強アルカリ液中では黄色ブドウ球菌(接種数3,300,000細胞/mL)は1時間接触後に死滅したが、芽胞型の枯草菌(接種数3,900,000細胞/mL)は殺菌されなかった。

### 3. 11 ホタテ貝殻焼成粉末溶液の溶解日数による大腸菌発育抑制試験

ホタテ貝殻焼成粉末及び石灰石の溶解当日(即日)及び6日間溶解した水溶液をpH7.0に調整し10 $\mu$ Lの大腸菌液(7,600,000細胞/mL)を接種し2及び15時間後に菌数を測定した。その結果、溶解日数の長短は、大腸菌の生残性に影響を与えなかった(表4)。

表4 ホタテ貝殻焼成粉末水溶液の溶解日数別

検体名	溶解日別	菌数(対数)/mL	
		2hr.	15hr.
ホタテ貝殻粉末水	7.0 6日間	6.8	6.3
"	7.0 即日	6.8	7.3
石灰石粉末水	7.0 6日間	6.8	6.9
"	7.0 即日	6.9	7.0
生理的食塩水	7.0 即日	6.9	7.1

### 3. 12 ホタテ貝殻焼成粉末水溶液の大腸菌の発育途上時に及ぼす影響

pH7.0に修正したホタテ貝殻焼成粉末及び石灰石水溶液が大腸菌の発育途上時に及ぼす影響を見るために、水溶液に所定量の乳糖ブイヨン粉末を投入し、これを除菌し、その1mLに菌を接種し2時間、15時間後に菌数を測定した。その結果、pH7.0に修正したホタテ貝殻焼成粉末及び石灰石の水溶液は大腸菌の発育を抑制しなかった(表5)。

表5 ホタテ貝殻焼成粉末水溶液の大腸菌

検体名	pH	菌数(対数)/mL		
		0hr.	2hr.	15hr.
ホタテ貝殻粉末水	7.00	6.8	7.5	8.9
石灰石粉末水	7.00	6.8	7.5	8.9
生理的食塩水	7.00	6.8	7.3	9.0

### 3. 13 ホタテ貝殻焼成粉末水溶液の黄色ブドウ球菌、枯草菌(芽胞菌)の発育途上時に及ぼす影響

大腸菌に関して行ったと同様に実験した結果、pH7.0に修正したホタテ貝殻焼成粉末及び石灰石の水溶液は、大腸菌の場合と同様に、黄色ブドウ球菌

(900,000細胞/ml) および芽胞型の枯草菌 (6,000,000細胞/ml) の発育を抑制しなかった。

#### 4. 考 察

ホタテ貝殻及び石灰石の微粉末を100℃から1,000℃まで100℃間隔で焼成したところ、両者とも各焼成粉末の水溶液のpHは焼成温度の上昇とともに上昇し、700℃以上ではpH12を越えた。このpHの変化は、ホタテ貝殻及び石灰石の主成分である炭酸カルシウム(CaCO<sub>3</sub>)が焼成によって酸化カルシウム(生石灰, CaO)になるためである。この生石灰を水に溶解することにより水酸化カルシウム(消石灰, Ca(OH)<sub>2</sub>)となり、通常の微生物が発育不可能な強いアルカリ性を示す。本実験で示したとおり、強いアルカリ性の焼成粉末水溶液中では、大腸菌は2分、黄色ブドウ球菌は1時間で死滅した。しかしながら、芽胞型の枯草菌は1時間でも生存した。この芽胞の耐アルカリ性はその形態的特長によるものと思われる。

アルカリ性以外の発育抑制要因を探るために、焼成粉末水溶液のpHを7.0に修正したところ大腸菌数の減少はまったく認められず、また、培地粉末を投入した場合には、大腸菌、黄色ブドウ球菌、そして枯草菌芽胞は十分な発育を示し、アルカリ性以外の発育阻止要因は見出されなかった。

以上のことから、ホタテ貝殻焼成粉末水溶液の発育抑制要因は水溶液の強いアルカリ性によるものと考えられた。

#### Abstract

## Inhibition of Bacterial Growth by Burned Scallop Shell Powder

Yoshimitsu Otomo, Kazuhiko Ogasawara and Yukihiro Yokozawa

A solution of burned scallop shell powder, which is thought to have antibacterial action, was tested for the effect on the growth of *Escherichia coli*, *Staphylococcus aureus* and *Bacillus subtilis* (endospore type). The saturated solution of burned scallop shell powder and limestone, which was used as control, increased in pH as the burning temperature increased. At a burning temperature of 700℃ or more, the saturated solution of burned product showed strong alkalinity with a pH of 12 or more and was bactericidal to *E.coli* and *S.aureus* and bacteriostatic to endospore-type *B.subtilis*. However, it was not inhibitory to the growth of any of the bacterial species when adjusted to a pH of 7.0.

Key words: Scallop shell powder, Limestone, Antibacterial action, Alkaline solution

#### 4. ま と め

- 1) ホタテ貝殻焼成粉末及び石灰石は焼成温度の上昇に伴い、その水溶液のpHが上昇し、700℃以上ではpHが12以上の強アルカリであった。
- 2) pH7.0に調整したホタテ貝殻焼成粉末水溶液には大腸菌に対する殺菌作用及び静菌作用は認められなかった。
- 3) pH12.0以上のホタテ貝殻焼成粉末水溶液は、石灰石水溶液と同様に大腸菌を2分間以上で、黄色ブドウ球菌を1時間以上で殺菌したが、芽胞型の枯草菌に対しては1時間でも殺菌されなかった。

本試験は平成13年度青森県産学官共同研究推進事業(基礎調査事業)の一環として実施されたことを記す。

#### 5. 文 献

- 1) 小山信次, 他: ホタテ貝殻のバイオニックデザイン, 八戸工業大学食品工学研究所紀要, 12, p1, 2001.
- 2) 岡重美, 他: *Vibrio*属細菌に対するホタテガイ貝殻焼成カルシウムの抗菌作用について, 日本食品衛生学会第83回学術講演会講演要旨集, 30, 2002.

# 青森県におけるウイルス分離状況 (2001.4 ~ 2002.3)

筒井 理華 石川 和子 三上 稔之 安保 亘<sup>1</sup>

感染症発生動向調査事業により、2001年4月から2002年3月まで、県内の医療機関より採取された材料からウイルス分離を実施した。その結果、病原体別によるウイルス分離数はインフルエンザウイルスでは(以下, Inf) AH1型10株, AH3型39株, B型19株であった。アデノウイルス(以下, AdV) 1型1株, 2型1株, 3型3株, 4型1株, 6型1株であった。エンテロウイルス群では、コクサッキーウイルスA(以下, CA) 2型1株, コクサッキーウイルスB(以下, CB) 5型2株, エンテロウイルス(以下, EV) 71型1株, 型不明1株, ノーウォークウイルス(以下, NV) 1株, 水痘・帯状疱疹ウイルス(以下, VZV) 1株, 計84株分離され、季節周期に依存しているウイルスと依存していないウイルスに分けられることが推察された。

Key words: Influenzavirus, Adenovirus, Enterovirus

## 1. はじめに

ウイルス感染症は乳幼児・小児において、多様な症を引き起こし、エンテロウイルス(EV)群による感染症では、手足口病、ヘルパンギーナ、無菌性髄膜炎等、AdV感染症では、咽頭結膜炎等を引き起こすことが知られている。また、これらの毎年発生するウイルス感染症は、季節的、あるいは年間を通して、または隔年ごとに血清型の違うウイルスの流行が報告されている。そのため、その疾病の病原体を早期に検出し、流行するウイルスを予測することが望まれる。

今回は、病原体を把握することにより流行予測及び予防対策などの基礎的資料を得ることを目的に、感染症発生動向調査事業により、2001年4月から2002年3月までの県内の医療機関より採取された材料からのウイルス分離を実施し、ウイルスの動向について検討したので報告する。

## 2. 検体及び方法

### 2.1 検 体

2001年4月から2002年3月までに採取された、咽頭ぬぐい液(保存培地: 0.5%BSA, 300 $\mu$ g/mlカナマイシン(以下, KM), 300 $\mu$ g/mlゲンタマイシン(以下, GM)加Hanks') 183検体, 糞便7検体, 髄液4検体, 水泡ぬぐい液1検体, 計195検体を用いた(表1)。

表1 検体内訳

検 体 名	検体数
咽頭ぬぐい液	183検体
糞 便	7検体
髄 液	4検体
水泡ぬぐい液	1検体
計	195検体

### 2.2 検体処理

咽頭ぬぐい液については遠心上清を分離材料とし、糞便についてはEagle's MEM培地(日本製薬)で10%乳剤とし、抗生物質処理後、遠心上清を使用した。髄液及び水泡ぬぐい液についてはそのまま分離材料をした。

### 2.3 使用細胞

ウイルス分離にはVero, Hela, Hep#2, RD, MDCK, B95a細胞を常時3~4種を併用した。

### 2.4 培 地

細胞増殖には、10%FBS加Eagle's MEM培地を、細胞維持には、1%FBS, 100 $\mu$ g/mlKM, 100 $\mu$ g/mlGM加Eagle's MEM培地を使用した。

### 2.5 分 離

各細胞に分離材料を0.2mlずつ接種し、35 $^{\circ}$ C, 1時間吸着後、維持培地を加え、35 $^{\circ}$ C回転培養を行った。細胞変性効果(以下, CPE)を指標に顕微鏡観察を行い、CPE陰性のものについては、3回凍結融解後、継代培養を行った。

### 2.6 同 定

分離ウイルスは、中和試験あるいは、赤血球凝集抑制試験法により行った。

1 青森県立中央病院

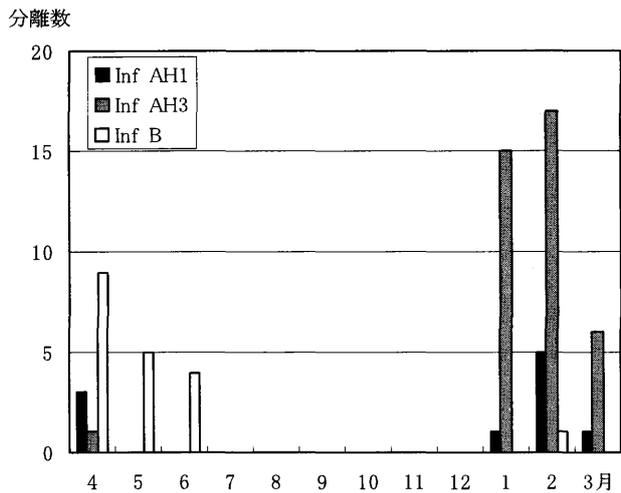


図1 Inf分離状況

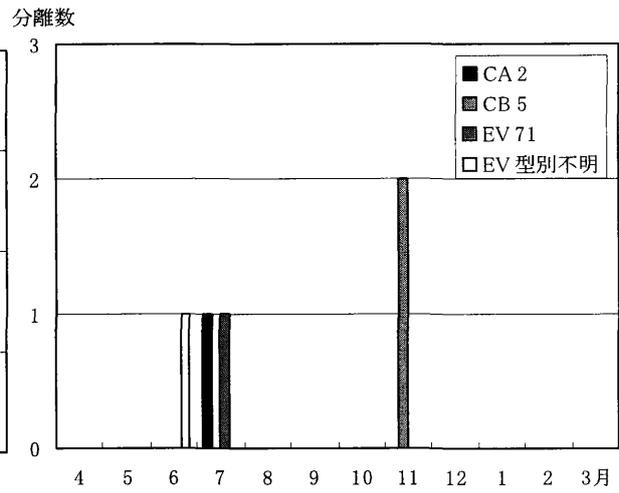


図3 EV分離状況

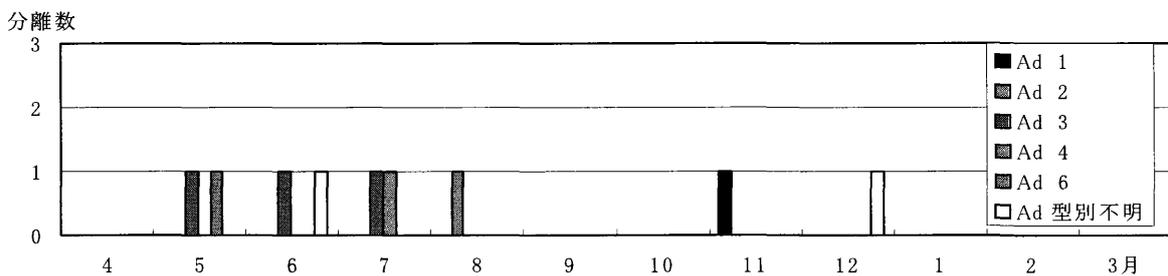


図2 Ad分離状況

### 3. 結 果

2001年4月から2002年3月までに分離されたウイルスは、InfAH1型が10株、AH3型が39株、B型が19株であった(図1)。AdVは、1型が1株、2型が1株、3型が3株、4型が1株、6型が1株であった(図2)。エンテロウイルス群はCA2型が1株、CB5型が2株であった(図3)。その他、NVが1株、水痘帯状疱疹ウイルスが1株であった(表2)。

### 4. 考 察

AdVは1, 2, 3, 4, 6の血清型が5月から12月と季節に関係なく年間を通して分離されていることから、血清型の低い番号のウイルスが毎年流行していることが推察された。EVはCA2, CB5, EV71が夏季を中心に分離され、本県においても全国と同様な傾向がみられた。しかし、これらの感染症は、発生時期や症状により、ある程度流行する血清型を把握する事が可能であると考えられ、そのため、迅速にウイルス分離と血清型を検索し、起因ウイルスを把握することは、

予防対策や臨床現場における資料として重要であると考えられる。

インフルエンザウイルスについては、今シーズンは前シーズンに比較し、1ヶ月早くの1月から分離され始め、A香港型(H3)が先行する形で流行し、次いでAソ連型(H1)が見られ、B型が6月上旬まで検出され、3つの型が入れ代わる形で混合流行した。全国的には11月から分離され始め、Aソ連型(H1)を主流とし、次いでA香港型(H3)が見られ、B型が6月まで検出され、型の流行に順序の違いはあるものの全国同様の状況であった。しかし、1月から6月までの長期の流行状況については3の型の出現によるものと唆された。

以上のことから、よりの確に流行状況を把握するために現行のように一部の医療機関からだけでなく、県内全域における病原体検索を行い、監視体制の強化を進めている状況である。

表2 ウイルス分離状況 (2001年4月～2002年3月)

分離ウイルス	年月		2001								2002			計
	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3		
Inf AH1	3										1	5	1	10
Inf AH3	1										15	17	6	39
Inf B	9	5	4									1		19
Ad 1									1					1
Ad 2					1									1
Ad 3		1	1	1										3
Ad 4				1										1
Ad 6		1												1
Ad 型別不明				1						1				2
CA 2					1									1
CB 5									2					2
EV 71					1									1
EV 型別不明				1										1
NV										1				1
水痘・帯状疱疹ウイルス					1									1
分離ウイルス数	13	7	7	5	1	0	0	3	2	16	23	7		84

## 5. ま と め

感染症発生動向調査事業により、県内の医療機関より採取された材料からウイルス分離状況を基に検討した。その結果、本県においても全国の状況と同様であった。これらの感染症は、発生時期や症状により、ある程度流行する血清型を把握することが可能であると考えられる。そのため、迅速に血清型を検索することは、重要な疾患の予防対策につながり、また、起因ウイルスの流行を把握することは、臨床現場において非常に重要であると考えられる。

本稿を終えるにあたり、ご協力頂いた保健所、医療関係者各位に謝意を表します。

## 文 献

- 1) 佐藤允武他：青森市におけるCoxsackieA群ウイルスの血清疫学一次期侵襲ウイルス型の検討：その追跡調査—。青森県環境保健センター研究報告，1-3，1990

- 2) 三上稔之他：1989年青森県三沢市で流行したCoxsackieB群ウイルスによる無菌性髄膜炎と青森市における侵襲状況。青森県環境保健センター研究報告，7-10，1990
- 3) 三上稔之他：青森におけるエコーウイルス30型・9型による無菌性髄膜炎の流行について（1990～1991）。青森県環境保健センター研究報告，84-90，1992
- 4) 国立感染症研究所厚生労働省健康局結核感染症課，病原微生物検出情報，Vol. 22，(309-336)，2001.

**Abstract**

**Viral Isolation in Aomori Prefecture (April 2001 to March 2002)**

Rika Tsutsui, Kazuko Ishikawa, Toshiyuki Mikami and Wataru Abo

In an infectious disease occurrence survey program, viral isolates were obtained from specimens collected at medical institutions in Aomori Prefecture from April 2001 to March 2002. The number of isolates for influenza virus (hereafter, Inf) AH1, AH3 and B was 10, 39 and 19, respectively. The number for adenovirus (hereafter, AdV) 1, 2, 3, 4 and 6 was 1, 1, 3, 1 and 1, respectively. For the enterovirus group, the number for Coxsackievirus A (hereafter, CA) 2, Coxsackievirus B (hereafter, CB) 5, enterovirus (hereafter, EV) 71, unknown type, Norwalkvirus (hereafter, NV) and varicella-zoster virus (hereafter, VZV) was 1, 2, 1, 1, 1 and 1, respectively. These totaled 84 isolates and were either dependent on or independent of seasonal cycles.

Key words: Influenzavirus, Adenovirus, Enterovirus

# ホタテ貝殻焼成粉末のホルムアルデヒド吸着・分解作用に関する研究

山本 明美      坂牛美由紀      村上 淳子  
横澤 幸仁<sup>1</sup>      古川 寿伯<sup>1</sup>      古川 章子

当県において問題となっている水産廃棄物のホタテ貝殻を付加価値の高い商品に加工する産業の育成を目的とした研究事業の一環として、ホタテ貝殻焼成粉末による揮発性有機化合物（VOC）の吸着・分解等に関する基礎的な調査を行った。シックハウス症候群といわれる健康障害で特に問題となっているホルムアルデヒドの吸着・分解効果について、100℃間隔で焼成したホタテ貝殻焼成粉末と石灰石と比較したところ、300℃以下及び800℃以上で焼成した貝殻と700℃以上焼成石灰石で効果がみられた。特に低温焼成貝殻では一度湿潤させた後も良好な吸着・分解効果が得られ、壁剤等としても適用可能であることが判明した。

Key words: formaldehyde, scallop shell, sick house syndrome, HPLC

## 1. はじめに

新築の住宅等に使用される建材などから発生する化学物質によって、シックハウス症候群といわれる健康障害が生じている。現在までにおいて、厚生労働省からホルムアルデヒド（以下HCHOとする）をはじめ11種類の化学物質に対して室内濃度指針値が示され、今年10月には、学校やホテル、百貨店等の新築時や改修時におけるHCHOの測定が法的に義務付けられた。

また、近年、一民間企業及び県内大学の研究チームにより、ホタテ貝殻の高温焼成粉末を原料とした塗料や壁剤がHCHO等のVOCを吸着分解することが示唆され、産業化が進んでいる。当県においては、陸奥湾におけるホタテガイの養殖に伴い年間約5万トンものホタテ貝殻が廃棄され、そのほとんどは野積みの状態で放置されている。そこで水産廃棄物の有効利用の視点から、ホタテ貝殻焼成粉末のHCHO吸着・分解に関する基礎的な調査を行った。

## 2. 調査方法

### 2・1 試料

0℃（未焼成）～1000℃まで100℃間隔で焼成したホタテ貝殻焼成粉末を使用した。対照として、同じカ

ルサイト型の炭酸カルシウムを主成分とする石灰石の焼成粉末を用いた。各試料の粒径は、ホタテ貝殻が100μm以下で平均約10μm、石灰石粉末が100μm以下で平均約20μmのものを使用した。試料200gを耐熱皿に入れ、各目的温度で1時間保持し電気炉焼成した。これらの焼成粉末は青森県工業試験場が調製した。なお、100℃の焼成は当センターに於いて使用時に行なった。

### 2・2 試薬及び機器

- (1) ホルムアルデヒド（特級）：和光純薬工業株
- (2) ホルムアルデヒド-2,4-ジニトロフェニルヒドラゾン標準液（40μgHCHO/mLアセトニトリル溶液排ガス分析（HPLC）用）：和光純薬工業株
- (3) 2,4-ジニトロフェニルヒドラジン試液（用時調製）：2,4-ジニトロフェニルヒドラジン（特級：和光純薬工業株）2gを2mol/L塩酸250mLに溶解し、ガラスウールでろ過して用いる。
- (4) アセトニトリル（HPLC用）：和光純薬工業株
- (5) Sep-Pak DNPH XpoSureカラム：ウォーターズ株
- (6) Sep-Pak Plus C18カラム：ウォーターズ株
- (7) デシケータ：2方活栓付き（10L）
- (8) ミニポンプ：MP-Σ300（シバタ）
- (9) テドラーバック：50L
- (10) マニホールド装置：ウォーターズ株
- (11) 高速液体クロマトグラフ装置：Shimadzu Class VP（島津製作所）

1 青森県工業試験場

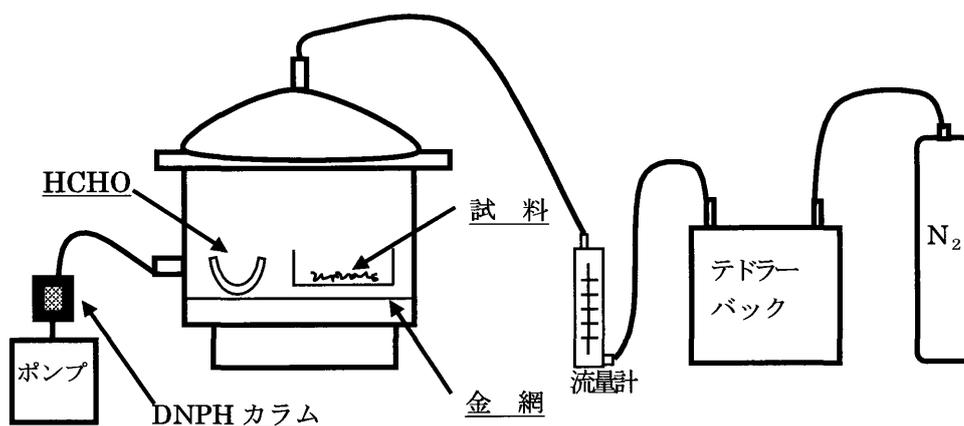


図1 ホルムアルデヒド測定装置

\* デシケータは前日よりふたを開放 使用前に窒素置換(1.0L/min × 10min)

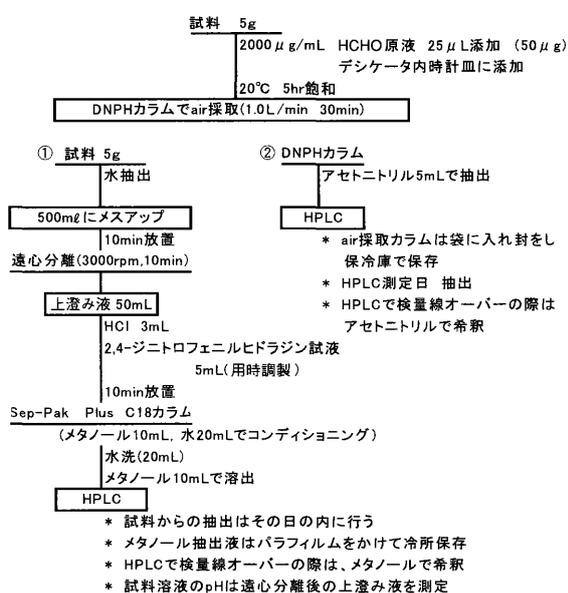


図2 分析方法

### 2・3 分析条件

厚生省通知の標準的測定方法で分析した<sup>1)</sup>。

検出器：UV検出器(島津製SPD-10AV)

カラム：CAPCELL PAK C18 (φ 4.6 × 250mm, 5μm, 資生堂)

移動相：アセトニトリル・水 (6 : 4)

検出波長：360nm

流速：1.0mL/min

カラム温度：40°C

注入量：20μL

### 2・4 試験方法

2方向にコックのある内容量約10Lのデシケータを擬似室内に見立て、この中に試料として焼成したホタテ貝殻又は対照の石灰石粉末5g、及びHCHO 50μg

(時計皿)を入れて、図1のようなホルムアルデヒド測定装置を作成した。恒温恒室(20°C 55%)の部屋で5時間放置後、HCHO捕集用DNPHカラムをつけたポンプにより、流速1L/minで30分間デシケータ内の空気を吸引し、空気中に残ったHCHOを捕集した。試料に吸着されたHCHOは水で抽出し、それぞれHPLCで分析した<sup>2,3)</sup>。

### 2・5 試験溶液の調整

分析方法を図2に示す。

#### (1) デシケータ内空気中のHCHO

捕集用DNPHをアセトニトリル5mLで溶出し、試験溶液とした。(図2②)

#### (2) 試料中のHCHO

試験後の試料に水を加えて500mLとし、激しく攪拌後、10分間放置した。遠心分離後、上澄み液50mLをHCl 3mL、2,4-ジニトロフェニルヒドラジン試液5mLと反応させ、メタノール及び水でコンディショニングしたSep-Pak Plus C18カラムで精製し、試験溶液とした。

## 3. 結果及び考察

### 3・1 焼成温度によるHCHO残留率の違い

HCHO 50μgのみをデシケータ内で5時間放置した後の空気中含有量を100%として、焼成温度毎の残留率、吸着率を求めた結果を図3に示す。図の中の乾燥試料とは工業試験場が調製した試料をそのまま使用したものであり、湿潤試料とは壁剤として使用する事を想定して、試料に10mLの水を加えて湿潤させた後、30°Cで20時間乾燥させたものである。なお、放置時間の5時間は50μgのHCHOが充分デシケータ内に拡

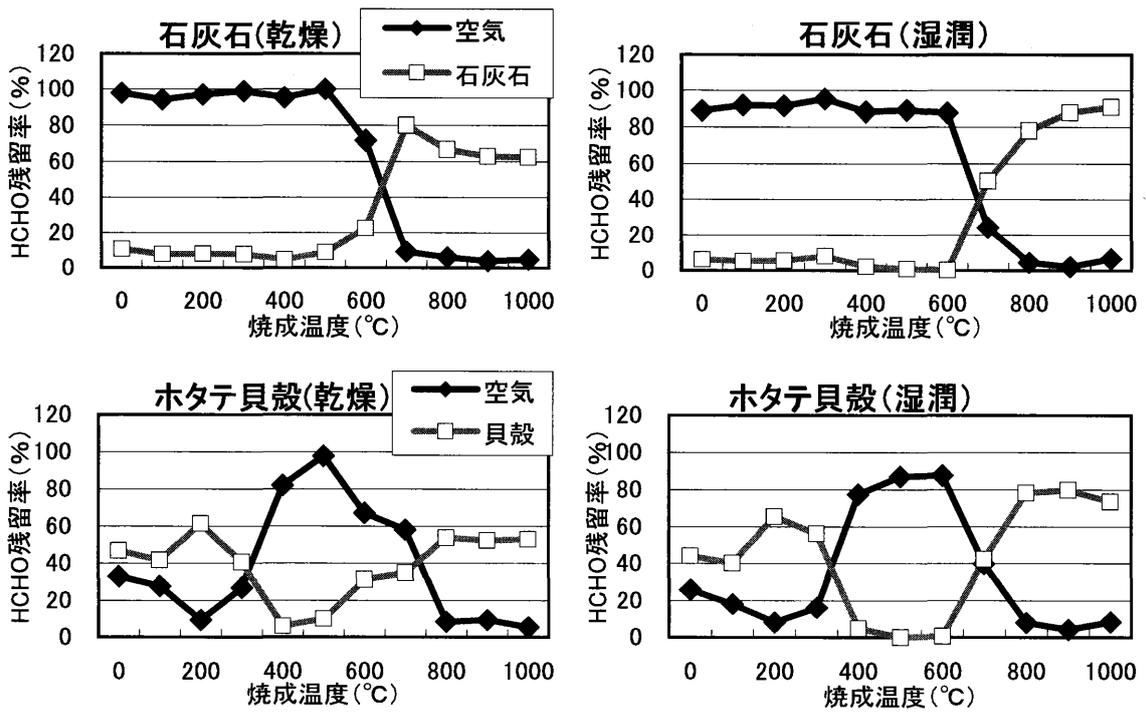


図3 焼成温度による空气中及び試料中及び試料中HCHO残留率の違い

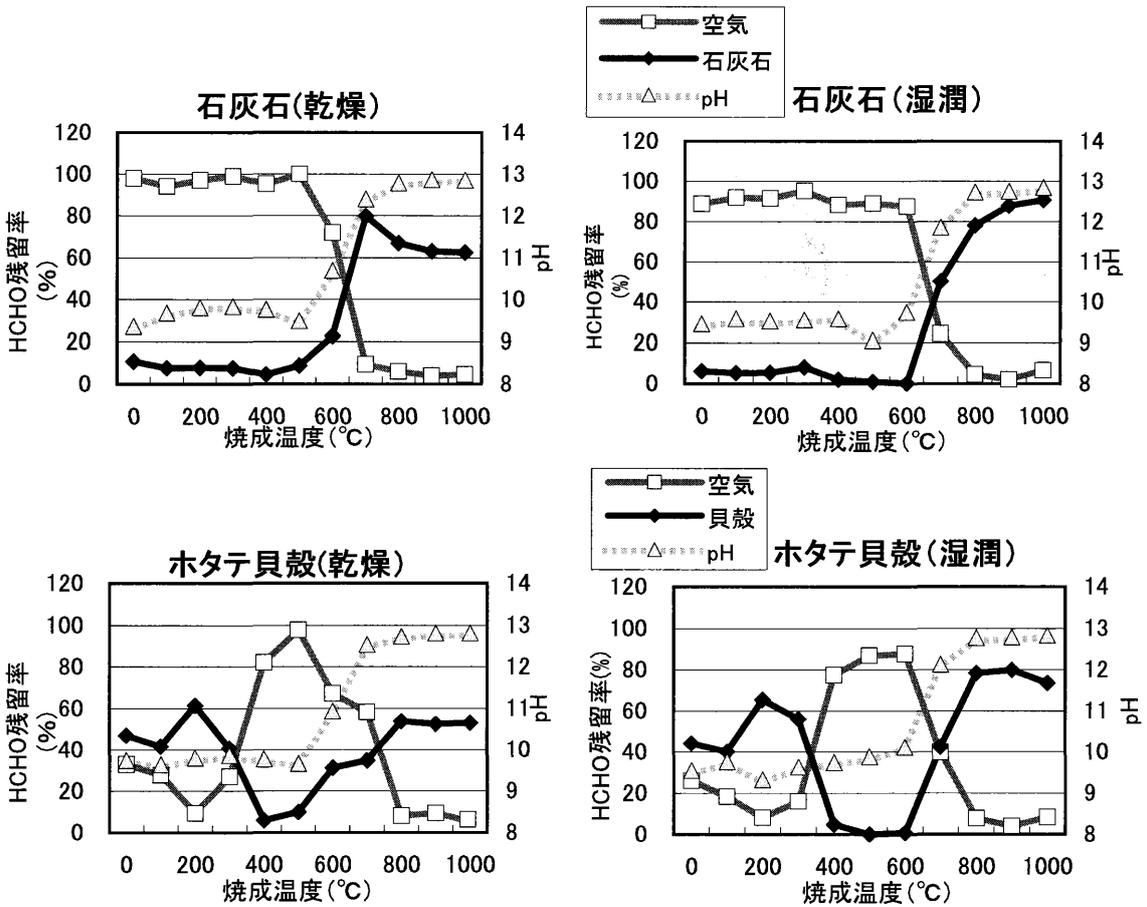


図4 試料pHとHCHO残留率の相関

表1-1 石灰石におけるpHとホルムアルデヒド残留量の相関

乾燥粉末(0~1000°Cの時)			湿潤粉末(0~1000°Cの時)				
	空気	石灰石	pH		空気	石灰石	pH
空気	1			空気	1		
石灰石	-0.98	1		石灰石	-0.98	1	
pH	-0.99	0.96	1	pH	-0.99	0.99	1

表1-2 ホタテ貝殻におけるpHとホルムアルデヒド残留量の相関

乾燥粉末(400°C以上の時)			湿潤粉末(400°C以上の時)				
	空気	貝殻	pH		空気	貝殻	pH
空気	1			空気	1		
貝殻	-0.96	1		貝殻	-1.00	1	
pH	-0.91	0.95	1	pH	-0.98	0.98	1

乾燥粉末(300°C以下の時)			湿潤粉末(300°C以下の時)				
	空気	貝殻	pH		空気	貝殻	pH
空気	1			空気	1		
貝殻	-0.86	1		貝殻	-0.82	1	
pH	-0.27	0.17	1	pH	0.55	-0.82	1

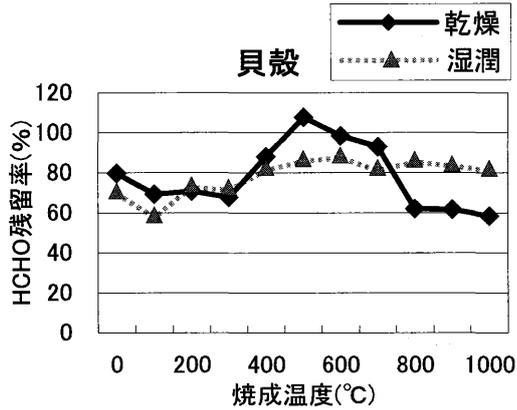
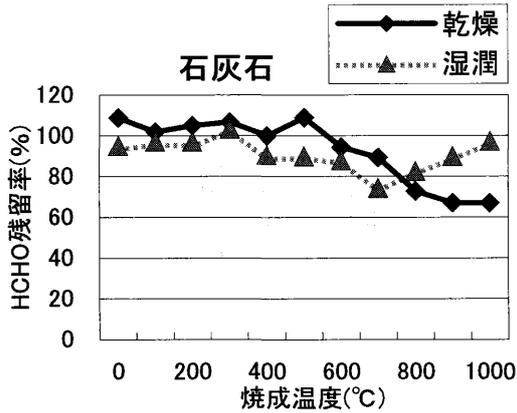
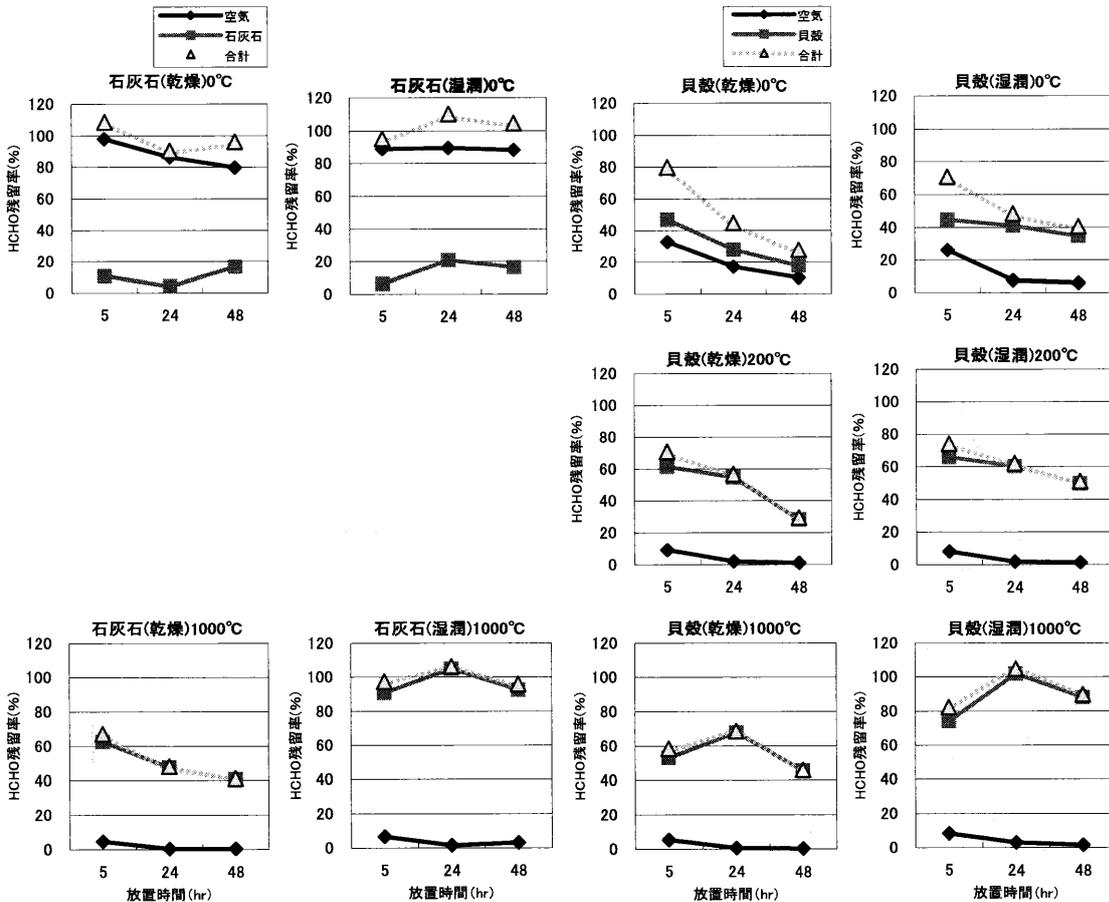


図5 総HCHO (HCHO空气中残留率+試料吸着残留率)



散する最小時間である。

ホタテ貝殻、石灰石ともに空気中のHCHO残留率と試料へのHCHO吸着残留率は逆相関を示した。また、ホタテ貝殻、石灰石とも400℃以上ではほぼ同様の傾向を示し、乾燥試料では600℃以上、湿潤試料では700℃以上の高温で試料への吸着が見られた。これは焼成により炭酸カルシウムが分解して酸化カルシウムが現れてくる温度<sup>4)</sup>とほぼ一致した。

また、ホタテ貝殻では300℃以下の低温でも試料への吸着が見られたが、これは高温時とは別の機構によるものと思われる。

なお、湿潤試料では、ホタテ貝殻、石灰石とも高温焼成の試料のHCHO吸着残留率が乾燥試料より高い傾向を示した。

### 3・2 試料のpHとホルムアルデヒド残留率の相関

試料の水抽出溶液(上澄み液)のpHとHCHO残留率の相関の結果を表1に、グラフを図4に示す。

乾燥試料、湿潤試料ともホタテ貝殻、石灰石両者で同じような結果が得られた。石灰石では、pHと試料中HCHO量には高い正の相関(相関係数:乾燥時0.96,湿潤時0.99)が、pHと空気中HCHO量には高い負の相関(相関係数:乾燥時-0.99,湿潤時-0.99)が見られた。ホタテ貝殻では400℃以上では石灰石とほぼ同様の相関が見られるものの、300℃以下では相関が低く、pH以外の要因によるものと考えられる。

### 3・3 焼成温度による総HCHO(HCHO空気中残留率+試料吸着残留率)の違い

空気中及び試料中HCHO残留率を合計したものを総HCHOとして図5に示す。HCHO 50μgのみをデシケータ内で5時間放置した後の空気中含有量を100%とすると、300℃以下では、ホタテ貝殻で乾燥・湿潤試料とも総HCHOは60~80%に減少した。このことから、300℃以下の貝殻では乾燥・湿潤に関わらずHCHOの分解が進むものと考えられる。800℃以上では、乾燥試料ではホタテ貝殻、石灰石ともに70%以下に減少したが、湿潤試料では80~100%であり大きな減少は見られなかった。高温では、乾燥時のみ、HCHOの分解が進むものと考えられる。

### 3・4 HCHO残留率の経時変化

ホタテ貝殻と石灰石において吸着の違いが見られた焼成温度0, 200, 1000℃について5, 24, 48時間後のHCHO残留率・吸着率を求めた結果を図6に示す。ただし、200℃についてはホタテ貝殻についてのみ行

った。

未焼成の場合、石灰石では効果が明白でなかったが、低温焼成(0, 200℃)の貝殻では空気中、試料中ともに経時的にHCHOは減少した。これに対し、高温焼成の試料では24時間で空気中残留率はほぼ0となったが、試料に吸着されたHCHOの減少は緩やかだった。

また、乾燥試料と湿潤試料では、空気中残留率は同じような傾向を示すものの、試料中の残留率は概して湿潤試料のほうが高くなった。特に1000℃で焼成した試料でこの傾向が強く、湿潤試料では試料中に捕捉されるものの分解はほとんど進まないものと思われる。

## 4. ま と め

- (1) 焼成温度によりHCHOの吸着・分解には違いが見られた。
- (2) 800℃以上では、石灰石、ホタテ貝殻とも乾燥、湿潤にかかわらずHCHOの吸着がみられ、5時間で空気中残留率は10%以下となった。空気中残留率とpHには高い相関が見られた。pH変化は焼成に伴ない鉱物相が変化し、炭酸カルシウムから酸化カルシウムに変わってくるにより起こるものと考えられる。

デシケータ内に拡散させたHCHO量を100%とすると、乾燥試料ではホタテ貝殻、石灰石ともに試料中のHCHO残留率も経時的に70→40%に減少するため、総HCHO量の減少が見られたが、湿潤試料では試料中のHCHO残留率に大きな変化は見られなかった。高温焼成では、HCHOの吸着がみられるものの、HCHOの分解は乾燥時のみ進むものと考えられる。
- (3) 300℃以下では、乾燥・湿潤試料ともホタテ貝殻のみHCHO吸着・分解がみられた。特に5時間放置では200℃焼成のホタテ貝殻で空気中残留率の顕著な減少が見られ、HCHOの吸着が強いと考えられる。また、試料に吸着したHCHOは経時的に減少することから、200℃以下の貝殻では乾燥・湿潤に関わらずHCHOの分解が進むものと考えられる。

さらに、HCHO残留率とpHについても800℃以上の高温時のような高い相関がみられないことから、300℃以下のHCHO吸着・分解は貝殻に含まれる有機物が関与しているものと思われる。

## 文 献

- 1) 厚生省生活衛生局長通知（平成12年6月30日付生衛発第1039号）：室内空气中化学物質の室内濃度指針値及び標準的測定方法について
- 2) 衛生試験法・注解 2000（アセチルアセトン法）  
日本薬学会編
- 3) 吉田政晴,佐喜眞幸：固相抽出法-HPLCによる自然食品中のホルムアルデヒドの定量法について,大阪府立公衛研所報,第37号,平成11年（1999年）
- 4) 平成13年度 青森県産学官共同推進事業 水産加工業から排出されるホタテ貝殻の有効利用に関する研究 青森県工業試験場

### Abstract

## Study on the Ability of Burned Scallop Shell Powder to Adsorb and Decompose Formaldehyde

Akemi Yamamoto, Miyuki Sakaushi, Atsuko Murakami, Yukihiro Yokozawa,  
Toshinori Kogawa and Akiko Kogawa

As part of the research program to foster a scallop shell processing industry, which would alleviate the fishery waste problem in Aomori Prefecture by converting waste scallop shells into value-added products, a basic study was conducted concerning the adsorption and decomposition of volatile organic compounds (VOCs) by burned scallop shell powder. The ability to adsorb and decompose formaldehyde, which has been particularly problematic in the health disorder known as sick house syndrome, was tested in scallop shell powder and limestone that were burned at temperature increments of 100°C. Effectiveness was observed in shell powder burned at 300°C or less and 800°C or more and limestone burned at 700°C or more. Shell powder burned at the lower temperatures showed good adsorption and decomposition effectiveness even after being once moistened, and proved applicable to wall material.

Key words: formaldehyde, scallop shell, sick house syndrome, HPLC

# りんご食物繊維の環境ホルモン様物質吸着効果 (第1報)

葛西恵里子 古川 章子

年間約2万数千トンも生じるりんご加工残渣は、ほとんどが産業廃棄物となっている。そこでりんご加工残渣の有効利用を図るためにも、加工残渣に豊富な食物繊維が含まれていることに着目し、試験管内(in vitro)試験で環境ホルモン様物質の吸着効果を調査した。その結果、PCB、有機スズ化合物、一種の塩素系農薬においては吸着効果が認められ、特にPCB、有機スズでは顕著であった。なお、フタル酸エステル類では効果が見られなかった。

Key words: apple fiber, PCB, organotin, organochlorine pesticides, phtalates

## 1. はじめに

近年食物繊維の生理的作用がさまざまな角度から注目され、血糖値上昇抑制作用、動脈硬化予防、コレステロールの吸収抑制などの効果があることが報告されている<sup>1)</sup>。一方、最近では外因性内分泌かく乱化学物質、いわゆる環境ホルモンの問題が深刻化しているが、脂溶性のものが多く環境ホルモン様物質に対しても同様の吸収抑制効果が期待される。本県主力農産物のりんご生産の約20%は加工用となり、さらにそのうちの約90%がジュース加工になるため、大量の加工残渣が産業廃棄物として排出されている。そこで、このりんご加工残渣の有効利用を図るため、りんご加工残渣に食物繊維が大量に含まれていることを利用して、りんご加工残渣粉末(以下AFと略記する)の環境ホルモン物質吸着効果及び体外排泄効果について基礎的検討を行うこととした。生体内にはさまざまな酵素や代謝経路があるので、AFの環境ホルモン様物質吸着効果の証明は最終的に生体実験により証明すべきであると考え、in vivoによる調査の予備調査としてin vitroにおける調査を行い若干の知見を得たので報告する。

## 2. 調査方法

### 2.1 試料

りんご加工場より供給されたりんご加工残渣を50℃で12時間乾燥後、粉碎器により粉碎し、ふるい(メッシュNo22~30)で分画して、710~500 $\mu$ m画分

の粉末を使用した。なお、測定の前に50℃で1時間乾燥機に入れ、デシケーターで放冷後使用した。

### 2.2 調査項目

PCB、有機スズ化合物2種(トリブチルスズ、トリフェニルスズ)、有機塩素系農薬9~10種(ディルドリン、アルドリン、エンドリン、ヘプタクロル、ヘプタクロルエポキシド、ジコホル、p,p'-DDE、p,p'-DDD、p,p'-DDT、o,p'-DDT)、フタル酸エステル類9種(フタル酸ジエチル、フタル酸ジプロピル、フタル酸ジイソブチル、フタル酸ジブチル、フタル酸ジヘキシル、フタル酸ジペンチル、フタル酸2-エチルヘキシル、フタル酸ブチルベンジル、フタル酸ジシクロヘキサン)

### 2.3 試薬

- (1)標準品: PCB: カネクロールKC300~600ジーエルサイエンス(株)、有機スズ化合物: 東京化成工業、塩素系農薬: 和光純薬(株)、フタル酸エステル: 和光純薬(株)
- (2)標準溶液: 各化合物とも添加用に10ppmのアセトン溶液を調製した。また、検量線用として塩素系農薬、フタル酸エステル類は0.1~1 ppm、有機スズ化合物は0.05~1 ppmのヘキサン溶液とした。PCBはピーク高さ係数法で定量するため、1 ppmのヘキサン溶液を調製した。
- (3)アセトン: 和光純薬(株)の残留農薬試験用

関東化学(株)のフタル酸エステル試験用

(4)ヘキサシ：和光純薬(株)の残留農薬試験用

関東化学(株)のフタル酸エステル試験用

(5)無水硫酸ナトリウム：和光純薬(株)の残留農薬試験用

(6)塩 酸：和光純薬(株)の特級

(7)酢 酸：和光純薬(株)の特級

(8)リン酸二水素カリウム：和光純薬(株)の特級

(9)リン酸水素二ナトリウム：和光純薬(株)の特級

## 2. 4 装 置

(1) ガスクロマトグラフ

島津製作所(株)製 GC-17A

検 出 器：ECD

カ ラ ム：J&W Scientific社製DB-1

(2) ガスクロマトグラフ質量分析計

G C 部：島津製作所(株)製 GC-17A

M S 部：島津製作所(株)製 QP-5050A

カ ラ ム：J&W Scientific社製DB-5ms

## 2. 5 測 定 条 件

(1) ECD測定条件 (PCB測定)

カ ラ ム：DB-1

(内径0.53mm×15m,膜圧0.25 $\mu$ m)

カラム温度：190 $^{\circ}$ C (65min) - 15 $^{\circ}$ C / min -

110 $^{\circ}$ C - 3 $^{\circ}$ C/min - 200 $^{\circ}$ C

気化室温度：250 $^{\circ}$ C

検出器部温度：250 $^{\circ}$ C

キャリアガス：窒素

メイクアップガス：窒素

カラム圧：45kPa

全 流 量：40ml

注入方式：スプリットレス方式

注 入 量：2  $\mu$ l

(2) GC/MS測定条件

ア. 有機スズ化合物

カラム：DB-5ms

(内径0.25mm×30m,膜圧0.25 $\mu$ )

カラム温度：80 $^{\circ}$ C (2 min) - 20 $^{\circ}$ C / min -

260 $^{\circ}$ C (10min)

気化室温度：250 $^{\circ}$ C

インターフェース温度：270 $^{\circ}$ C

キャリアガス：ヘリウム

カラム圧：100kPa (2 min) - 4.5kPa / min -

140kPa (10min)

注入方式：スプリット方式

注 入 量：2  $\mu$ l

モニターイオン(m/z)：

トリブチルスズ291.2,295.0トリフェ

ニルスズ347.0,349.0

イ. 塩素系農薬

カラム：DB-5ms

(内径0.25mm×30m,膜圧0.25 $\mu$ m)

カラム温度：50 $^{\circ}$ C (2min) - 20 $^{\circ}$ C / min - 150 $^{\circ}$ C

- 10 $^{\circ}$ C / min - 270 $^{\circ}$ C

気化室温度：250 $^{\circ}$ C

インターフェース温度：270 $^{\circ}$ C

キャリアガス：ヘリウム

カラム圧：85kPa

注入方式：スプリットレス方式

注 入 量：2  $\mu$ l

モニターイオン(m/z)：表1に示す

表1. 塩素系農薬GC/MS測定イオン

化合物名	RT	定量イオン (m/z)	参照イオン (m/z)
ヘブタクロル	14.8	271.9	273.9
アルドリン	15.6	262.9	264.9
ジコホール	15.6	139.1	250.0
ヘブタクロル	16.4	262.9	260.9
p,p'-DDE	17.5	246.1	248.1
ディルドリン	17.7	262.9	264.9
エンドリン	18.1	262.9	264.9
p,p'-DDD	18.3	235.0	237.1
p,p'-DDT	18.4	235.0	237.1
o,p'-DDT	19.1	235.0	237.1

ウ. フタル酸エステル類<sup>2)</sup>

カ ラ ム：DB-5ms

(内径0.25mm×30m,膜圧0.25 $\mu$ )

カラム温度：50 $^{\circ}$ C (2 min) - 20 $^{\circ}$ C / min -

240 $^{\circ}$ C (8 min) - 20 $^{\circ}$ C / min -

270 $^{\circ}$ C (2 min)

気化室温度：250 $^{\circ}$ C

インターフェース温度：270 $^{\circ}$ C

キャリアガス：ヘリウム

カラム圧：60kPa (10min) - 20kPa / min -

100kPa (10min)

注入方式：スプリット方式

注 入 量：2  $\mu$ l

モニターイオン(m/z)：表2に示す

表 2. フタル酸エステル類のGC/MS測定イオン

化合物名	R.T	定量イオン (m/z)	参照イオン (m/z)
フタル酸ジエチル	10.7	149.1	177.1
フタル酸ジプロピル	11.7	149.0	191.0
フタル酸ジイソブチル	12.2	149.0	223.1
フタル酸ジブチル	12.8	149.0	223.1
フタル酸ジペンチル	14.2	149.1	237.1
フタル酸ジヘキシル	15.7	149.1	206.0
フタル酸ブチルベンジル	16.8	149.1	206.0
フタル酸ジシクロヘキサン	20.0	149.1	167.1
フタル酸 2-エチルヘキシル	20.2	149.1	167.1

## 2. 6 調査方法

図 1 に分析のフローを示す<sup>3) 4)</sup>。まず、50ml 遠沈管に AF を量りとり、一定量の蒸留水または緩衝液を加え浸潤させた後、環境ホルモン様物質を加えて軽く振り混ぜる。ついで 37℃ で 30 分間インキュベートした後、2500rpm で 10 分間遠心分離し、上澄み 2.0ml を 10ml 試験管にとる。これに 2% 硫酸ナトリウム溶液 2 ml 及びヘキサン 4.0ml を加え 1 分間振とうする。上層を無水硫酸ナトリウムで脱水しヘキサンで洗浄した後濃縮し、一定量とする。

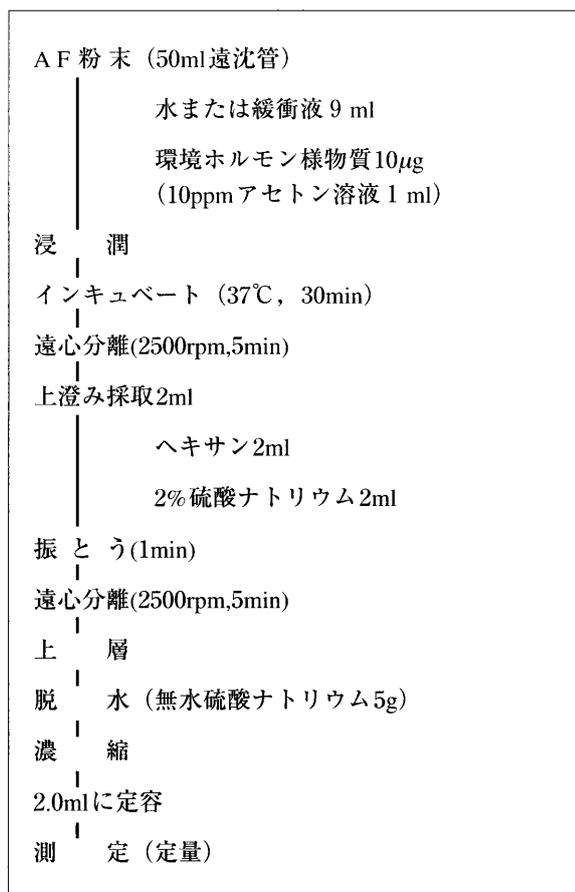


図 1. in vitro 試験方法

## 2. 7 食物繊維の定量

使用 AF について繊維成分を Southgate の変法<sup>5)</sup> に準じて、定量を行った。その結果、水溶性非セルロース (ペクチンに相当) が 9.5%、セルロース 20.0%、不溶性非セルロース (ヘミセルロースに相当) 9.1%、リグニン 1.9% で約 40% が繊維成分であった。

## 3. 結果及び考察

### 3. 1 AF 量と吸着率

AF 量と吸着率の関係について検討を行った。AF 量としては 0.1g, 0.3g, 0.5g を用い、環境ホルモン様物質としては、有機スズ化合物、PCB、塩素系農薬を対象とした。

遠沈管に AF の一定量を入れ、浸潤液として蒸留水 9 ml を加えた後、環境ホルモン様物質 10ppm のアセトン溶液 1 ml を添加し、図 1 の方法に従い定量した。対照として、AF を入れずに、同様の操作を行った。対照と AF 添加の測定値の差を AF に吸着された環境ホルモン様物質の濃度と考え、 $(1 - (\text{AF 添加の濃度} / \text{対照の濃度})) \times 100 (\%)$  で吸着率を算出した。結果を図 2, 図 3 に示す。なお、対照の測定値は理論上はすべて 1 ppm になるはずであるが、今回は抽出方法を図 1 の方法に限定したことから、対象物質ごとに抽出率が異なり、約 0.6~0.8ppm の範囲となっている。図の結果からは AF 投入量が多いほど吸着率も概ね高くなる傾向が示された。0.1 g に比べて 0.3g は明らかに吸着率が高く、その差は 1.7~13.8% で、ドリリン剤、ジコホールにおいて特に顕著であった。しかし 0.3 g と 0.5 g ではドリリン剤、ジコホールにおいては 3% 前後の差が見られたものの、全体としては顕著な差が見られなかった。物質全体では、AF 投入量 0.3g で約 74~94% と良好な吸着率を示し、特に有機スズ化合物、PCB、アルドリリンでは 90% 以上の高い吸着率を示した。

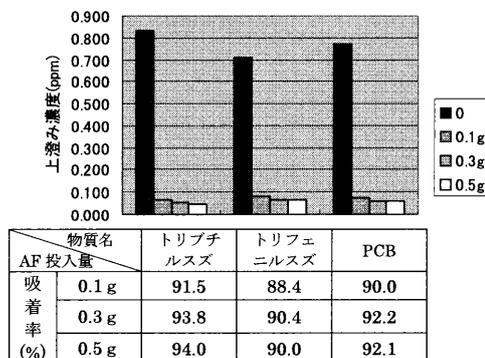


図 2 AF 投入量の違いによる上澄み濃度と吸着率の変化 (有機スズ化合物、PCB)

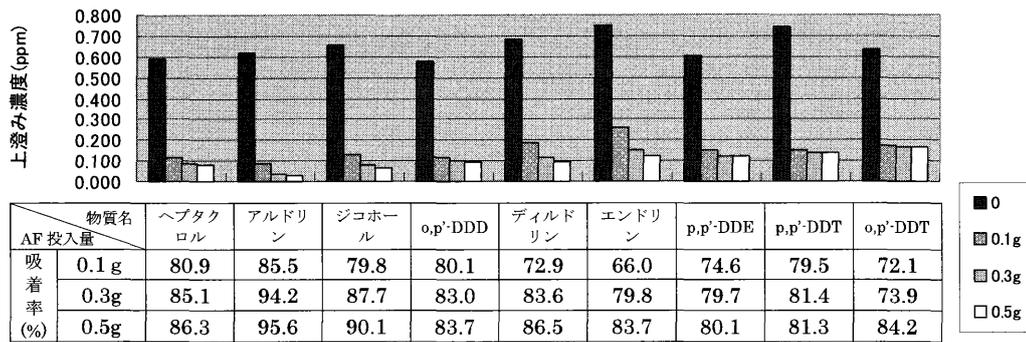


図3 AF投入量の違いによる上澄み濃度と吸着率の変化 (塩素系農薬)

### 3. 2 pHの変化と吸着率

生体内により近い状態の吸着効果を見るために、pHによる吸着の変化を調査した。調査方法は図1と同様であり、浸潤液として緩衝液(pH 1~8)を用い、図1に従って測定・定量した。なお、緩衝液については、緩衝液100mlにAF0.1gを入れて30分攪拌してもpHに変化のないことを確認した。結果を図4~図7に示す。図において、黒棒は対照、つまりりんご加工残渣を入れない場合の上澄み濃度を示しており、また白棒はAF0.3gを投入した時の上澄み濃度を表している。

#### (1) PCB

PCBの結果を図4に示す。各pHとも50%以上の吸着率であり、腸液に近いpH 6~7においては80%以上の高い吸着率を示した。また弱酸性(pH 3~4)では90%以上の吸着率を示したが、胃液に近いpH 1~2では60%前後であった。

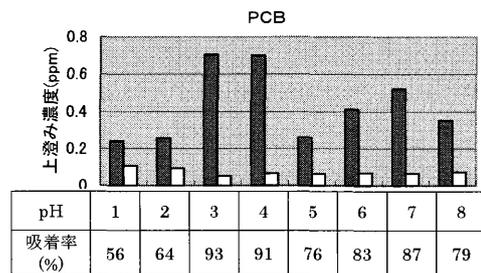


図4 pHの違いによる上澄み濃度と吸着率の変化 (PCB)

#### (2) 有機スズ化合物

ジブチルスズについては、図1の方法では対照、AF添加ともにヘキサソール層に抽出、回収ができなかった。トリブチルスズ及びトリフェニルスズについては良好な吸着率であり、腸液に近いpH 7ではどちらも85%以上の吸着率を示した。pH 3以上ではどちらも70%以上の吸着率を示したが、強酸性(pH 1~2)では40~60%と低下していた。

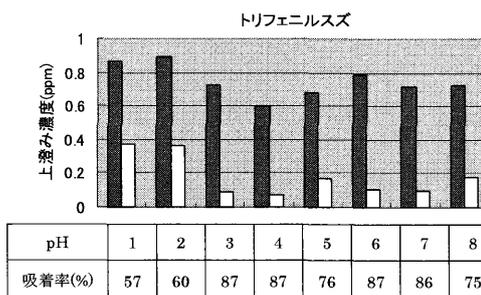
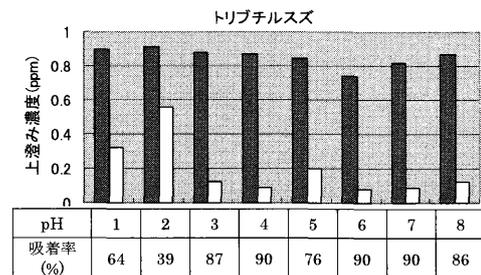


図5 pHの違いによる上澄み濃度と吸着率の変化 (有機スズ化合物)

#### (3) 塩素系農薬

図6に塩素系農薬の結果を示す。

ヘブタクロル、アルドリ、ジコホー、ヘブタクロルエポキシド、ディルドリン、エンドリンでは腸液に近いpH6~7で60%以上の吸着率であったが、DDT類ではp,p'-DDE、p,p'-DDDで40~

60%、p,p'-DDT、o,p'-DDTは40%未満であった。ジコホー、ヘブタクロルエポキシド、ディルドリン、エンドリンではpHにかかわらず60%以上の吸着率を示したが、アルドリ、p,p'-DDE、p,p'-DDT、o,p'-DDTでは強酸性で吸着効果はみら

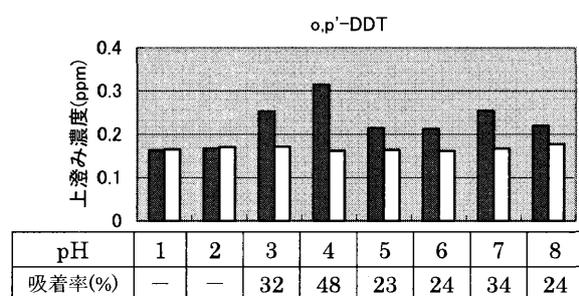
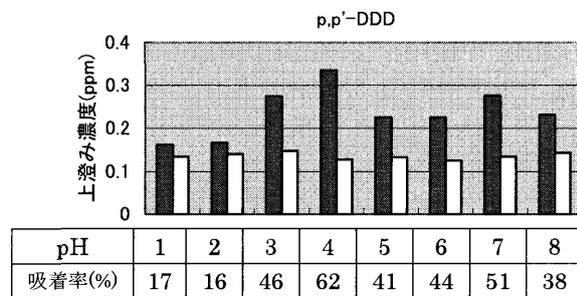
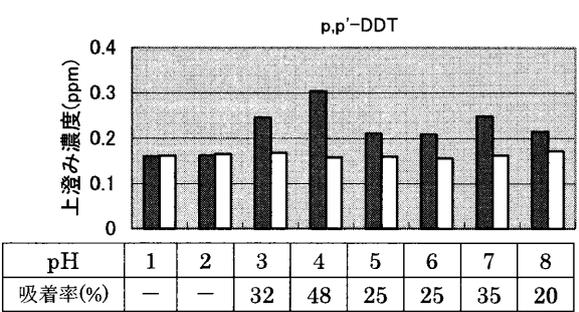
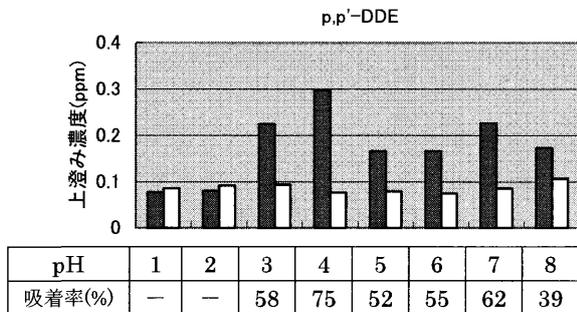
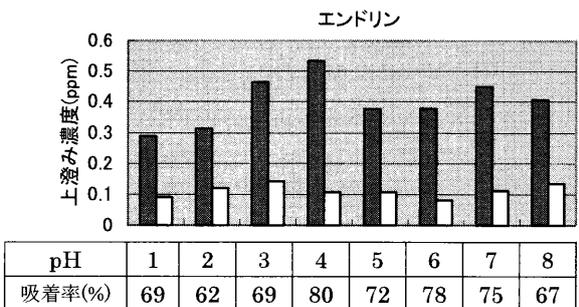
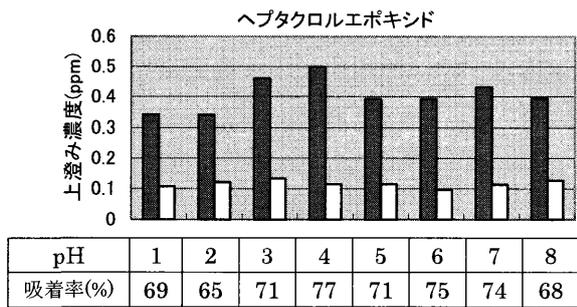
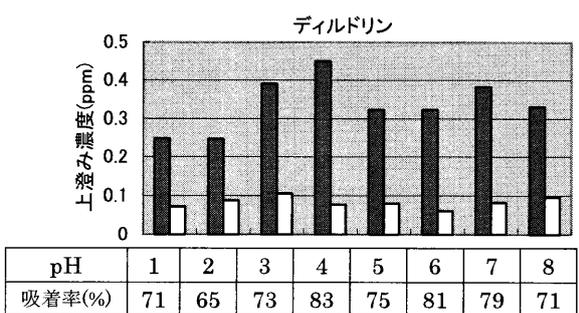
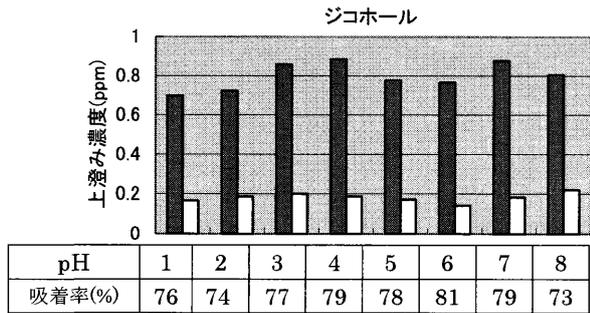
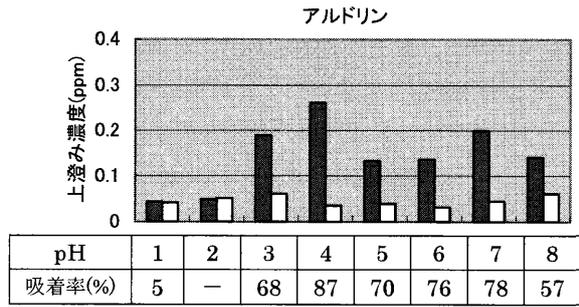
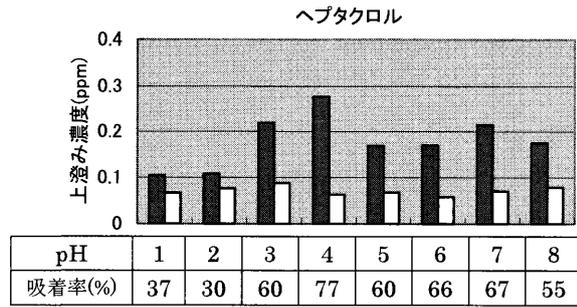
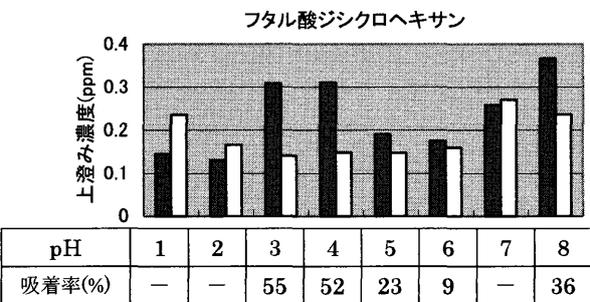
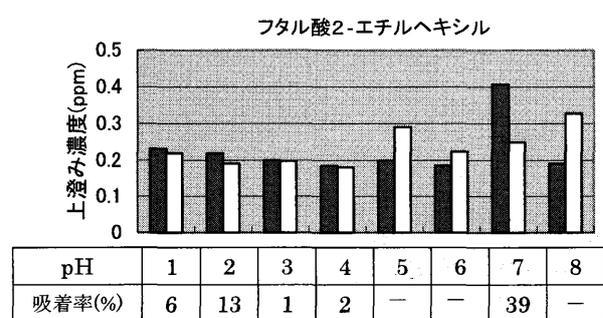
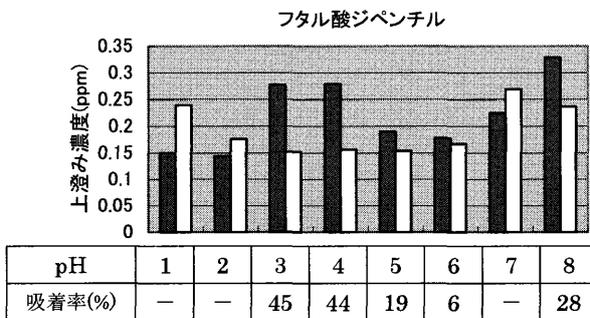
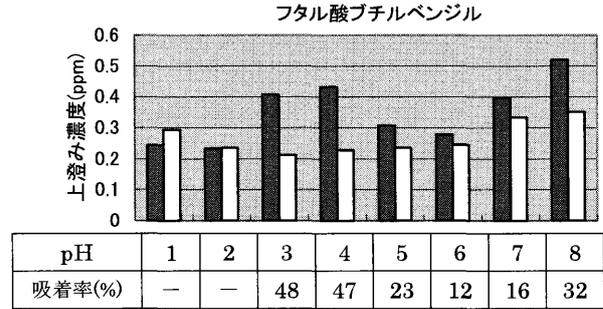
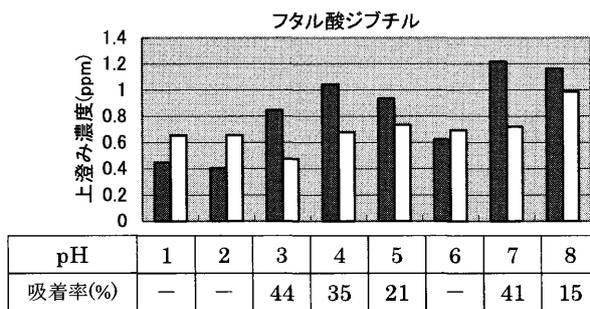
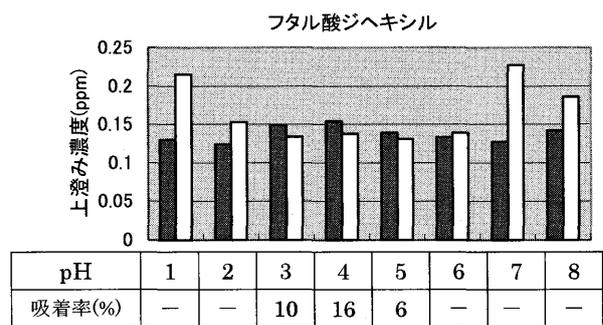
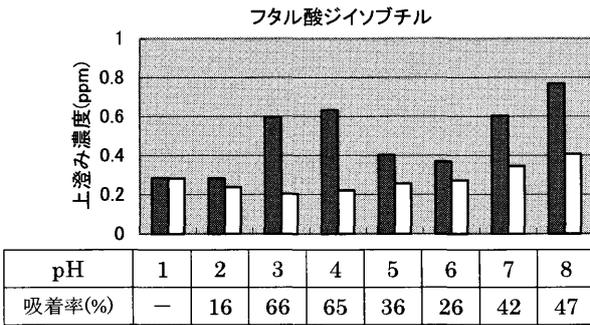
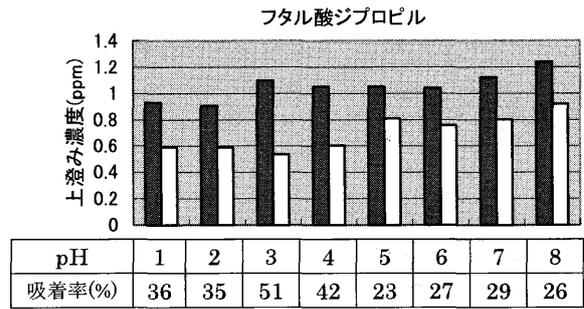
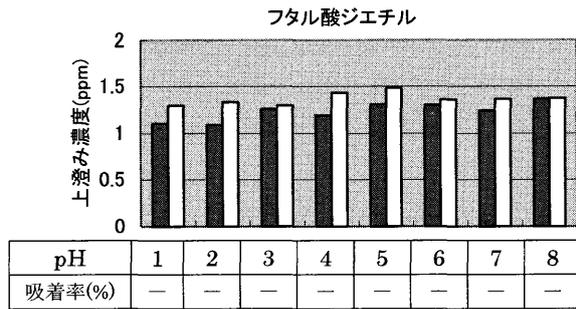


図6 pHの違いによる上澄み濃度と吸着率の変化 (塩素系農薬)

■ 対照  
□ リンゴ繊維



■ 対照  
□ りんご繊維

図7 pHの違いによる上澄み濃度と吸着率の変化 (フタル酸エステル)

れなかった。

#### (4) フタル酸エステル類

図7にフタル酸エステル類の結果を示す。腸液に近いpH7では、ジプロピル、ジイソブチル、ジブチル、ブチルベンジル、2-エチルヘキシルで吸着が見られたものの、高いものでも40%台と概して低く、これら以外の物質については吸着効果がみられなかった。なお、酸性～弱酸性（pH 3～4）ではフタル酸ジイソブチルの60%台の吸着率をはじめ、ジシクロヘキサン、ジプロピル、ブチルベンジル、ジペンチルで比較的高めの吸着率を示した。フタル酸エステルにおいては、酸性やアルカリ性でエステル分解される可能性も高く、吸着率が低いのは抽出段階の液性も原因の一つと考えられる。

#### 4. まとめ（今後の課題）

- (1) in vitro試験において、AFの有害物質吸着効果は腸液に近いpH 6～7で有機スズ化合物、PCBで吸着率80%以上であり、塩素系農薬ではドリン系に吸着効果が認められた。
- (2) フタル酸エステル類においては吸着効果が見られなかった。

- (3) 今回の抽出はすべての項目を同様の抽出条件で測定しているため、項目によっては抽出率が悪いものもあるが、今後in vivo試験を行っていく上で、生体試料からこれらの物質を抽出・測定する方法の検討が必要である。
- (4) 今後の展望としては、in vitro試験で効果のあったものを中心にin vivo試験（ラットを用いた動物実験）を行い、りんご繊維の有害物質吸着効果ならびに体外排泄効果について調査する予定である。

#### 文 献

- 1) 印南敏, 桐山修八: 食物繊維, 第一出版, 1995
- 2) 高橋哲夫他: 食品中のフタル酸エステル類の分析について, 北海道衛生研究所報, 49, 119-122, 1999
- 3) 森田邦正他: 食物繊維のPCB吸着作用, 福岡医学誌, 86, 5, 212-217, 1995
- 4) 森田邦正他: ダイオキシン類の排泄促進に関する研究, 厚生科学研究(生活安全総合研究事業), 2000
- 5) 衛生試験法・注解(1990)

#### Abstract

### The Ability of Dietary Fiber of Apples to Adsorb Endocrine Disrupting Chemicals (I)

Eriko Kasai and Akiko Kogawa

Residue from apple processing amounts to about 20,000 to 30,000 tons annually and most of this is treated as industrial waste. To utilize apple-processing residue, an in vitro study was conducted to evaluate its ability to adsorb endocrine disrupting chemicals because it is known to contain a lot of dietary fiber. The results showed adsorption effectiveness for PCB, organotin compounds and some kinds of organochlorine pesticides, and the effectiveness was especially remarkable for PCB and organotin compounds. No effectiveness was observed for phthalates.

Key words: apple fiber, PCB, organotin, organochlorine pesticides, phthalates

## 青森県における陸水の酸中和能について

三上 一 花石 竜治 米谷 康治 五十嵐 飛鳥

酸性雨が、青森県内の河川、湖沼、ダム湖などの陸水に及ぼす影響をみるため、pH、EC、アルカリ度及び0.1N、0.01N、0.001N硫酸添加試験による酸中和能について検討した。その結果、八甲田山系の渓流水は、pH5.6以下で、酸性化しているとともにEC、アルカリ度ともに低く、降雨に近い性状であった。一部のダム湖では、アルカリ度が0.2meq/L以下で、酸性化されやすい状況にあった。一方、汚濁の進行している都市河川、十二湖湖沼群及び周辺の河川では、pH、アルカリ度、酸中和能ともに高かった。0.01N硫酸添加試験では、下北半島の河内川水系では、サケ科魚類の遡上が抑制される可能性が示唆されたが、0.1N硫酸添加試験では、十二湖湖沼群はpH 6台で、酸性雨の影響を受けにくいと考えられた。pH、段階的酸添加試験のpH、アルカリ度との間には良い相関が認められ、酸性雨によるpH低下を予測することが可能と考えられた。

Key words: acid rain, inland water, alkalinity, acid neutralizing capacity.

### 1. はじめに

1950年代以降、北欧や北米では酸性雨による森林破壊や湖沼の酸性化による生物相（プランクトン、ベントス、水生植物、魚類）の変化が大きな問題<sup>1)</sup>となっている。このうち、湖沼、河川などの陸水が酸性化され易いか否かは、陸水のpHそのものよりも陸水自身がつ酸中和能（緩衝能）の大きさにより決まる。

通例、陸水の酸中和能の指標として、硫酸でpH4.8まで中和滴定するアルカリ度による評価<sup>2)</sup>が確立されている。湖沼では、電気伝導度（EC）が5 mS/cm以下、アルカリ度が200 $\mu$ eq/L以下の湖沼は酸性雨に対する抵抗性が低く、酸性化され易い<sup>1)</sup>湖沼といわれている。

日本の湖沼は、pH4.5前後の酸性雨が降っているにもかかわらず、多くの湖沼ではアルカリ度が高いため酸性雨に対する抵抗性があり、酸性雨により酸性化した湖沼の報告例がないとされている。しかしながら、1991年に青森県が行った湖沼調査では、山岳地帯の一部の湖沼では、アルカリ度が200 $\mu$ eq/Lを下回り、酸性雨の影響を受け易い状況<sup>3)</sup>にあることから、これら湖沼群では酸性雨による生態系影響が懸念される。

酸性雨による生態系への影響として、生田らは、ニジマス、ヒメマスなどのサケ科魚類はpH5.8~6.0の弱酸性では遡上行動が抑制され、pH5では受精卵の発

生率の低下と稚魚の奇形率の上昇など、酸性雨が陸水生態系に及ぼす影響をpHとの関連で論じている<sup>4)</sup>。

このサケ科魚類の例では、酸の影響はアルカリ度の終点のpHである4.8よりも高いpHで起こっていることから、陸水生態系への影響はアルカリ度のみで議論することは妥当性を欠くものといえる。

また、アルカリ度は地下水などの水質調査では古くから測定され、水質の解析に頻用されている項目<sup>5)</sup>であるが、一般の人々にはあまり馴染みがないのが実情である。

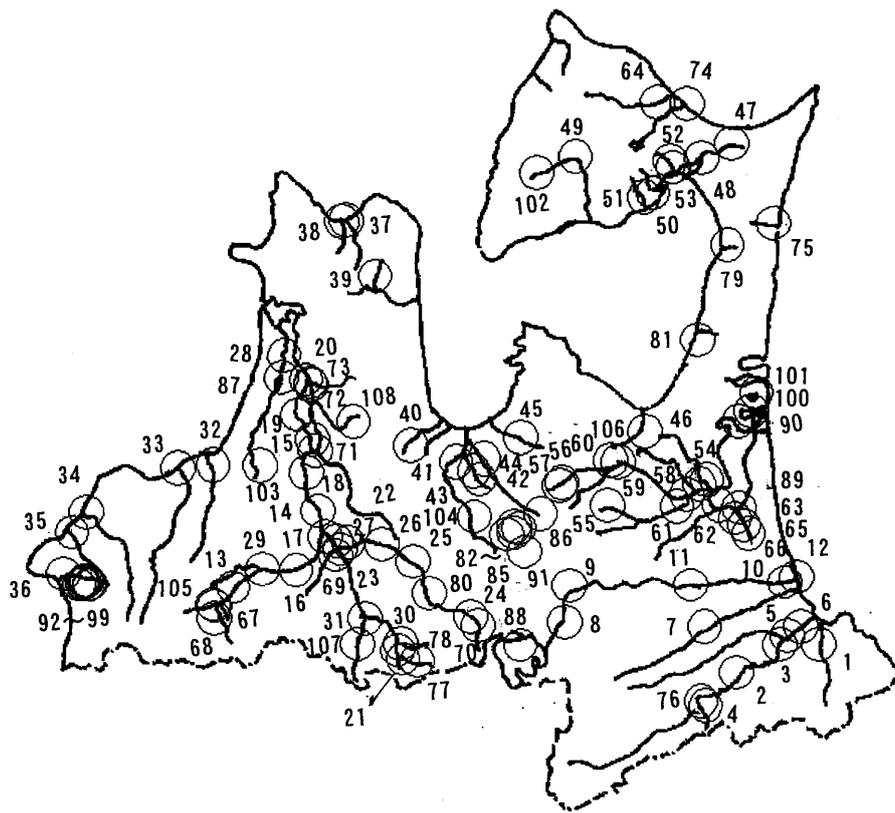
一方、井上は、一定量の酸を添加してpHの変化を求める酸中和能測定手法を提案している。この酸中和能測定法は一定の酸を加えた時のpHを測定するものである。

このため、酸中和能法では、所定のpHの酸性雨が降った後の陸水のpH予測が可能になるとともに、アルカリ度では、酸中和能に関する情報が一つしか得られないが、酸中和能測定手法では添加するpH濃度の数分の情報が得られる利点も有している<sup>6, 7)</sup>。

更に、酸性雨ではpHで議論されることが多いことから、一般の人々にはアルカリ度よりもpHで論ずることは、酸性雨が生態系に及ぼす影響をイメージしやすいという利点を有すると考えられる。

青森県においても、pH4.5前後の酸性雨が降っていること<sup>8)</sup>、一部の湖沼は酸性化されやすい状況にあることなど、酸性雨による生態系影響が懸念される。

このことから、酸性雨の陸水生態系への影響を検討



- |                   |                     |                   |
|-------------------|---------------------|-------------------|
| 1) 長館橋 (新井田川)     | 2) 名久井橋 (馬淵川)       | 3) 櫛引橋 (馬淵川)      |
| 4) 梅泉橋 (馬淵川)      | 5) 尻内橋 (馬淵川)        | 6) 大橋 (馬淵川)       |
| 7) 戊橋 (五戸川)       | 8) 馬門橋 (奥入瀬川)       | 9) 十和田橋 (奥入瀬川)    |
| 10) 幸運橋 (奥入瀬川)    | 11) 御幸橋 (奥入瀬川)      | 12) 開運橋 (奥入瀬川)    |
| 13) 田ノ尻橋 (岩木川)    | 14) 幡竜橋 (岩木川)       | 15) 乾橋 (岩木川)      |
| 16) 上岩木橋 (岩木川)    | 17) 安東橋 (岩木川)       | 18) 鶴寿橋 (岩木川)     |
| 19) 三好橋 (岩木川)     | 20) 神田橋 (岩木川)       | 21) 板沢橋 (平川)      |
| 22) 平川橋 (平川)      | 23) 豊平橋 (平川)        | 24) 四十巻橋 (浅瀬石川)   |
| 25) 中島橋 (浅瀬石川)    | 26) 千年橋 (浅瀬石川)      | 27) 朝日橋 (浅瀬石川)    |
| 28) 車力橋 (山田川)     | 29) 国吉橋 (大秋川)       | 30) 延命橋 (大落前川)    |
| 31) 第二清川橋 (虹貝川)   | 32) 中村橋 (中村川)       | 33) 基橋 (赤石川)      |
| 34) 追良瀬橋 (追良瀬川)   | 35) 板前橋 (吾妻川)       | 36) 笹内橋 (笹内川)     |
| 37) あすなろ橋 (今別川)   | 38) 新長川橋 (長川)       | 39) 高石股橋 (高石川)    |
| 40) 戸建沢橋 (新城川)    | 41) 荒川橋 (堤川)        | 42) 水道取水口上流 (横内川) |
| 43) ねぶたの里入口 (横内川) | 44) 駒込頭首工 (駒込川)     | 45) 滝沢橋 (野内川)     |
| 46) 清水目橋 (野辺地川)   | 47) 荷橋 (田名部川)       | 48) 赤坂橋 (田名部川)    |
| 49) 矢櫃大橋 (川内川)    | 50) 宇曾利川橋 (宇曾利川)    | 51) 永下橋 (永下川)     |
| 52) 中荒川橋 (小荒川)    | 53) 小荒川橋 (小荒川)      | 54) 鳥口橋 (土場川)     |
| 55) 水道取水口上流 (七戸川) | 56) 立石沢 (七戸川)       | 57) 鉦山終 (七戸川)     |
| 58) 榎林橋 (七戸川)     | 59) 小坪川・坪川流入前 (七戸川) | 60) 赤川橋 (七戸川)     |
| 61) 大浦橋 (七戸橋)     | 62) 砂土路橋 (砂土路川)     | 63) 姉沼橋 (姉沼川)     |
| 64) 小目名橋 (大畑川)    | 65) 第二境橋 (古間木川)     | 66) 古間木陸橋下 (古間木川) |
| 67) 湯ノ沢橋 (湯ノ沢川)   | 68) 木戸ヶ沢橋 (木戸ヶ沢)    | 69) 西田橋 (土淵川)     |
| 70) 温川橋 (温川沢)     | 71) 湊橋 (新十川)        | 72) 鳴門橋 (旧十川)     |
| 73) 蒔田橋 (金木川)     | 74) 正津橋 (正津川)       | 75) 小老部橋 (小老部川)   |
| 76) 留ヶ崎橋 (熊原川)    | 77) 鍋倉 (津刈川)        | 78) 二の渡橋 (津刈川)    |
| 79) 境川河口 (境川)     | 80) 一の渡橋 (浅瀬石川)     | 81) 国道下 (小沢川)     |
| 82) 田茂菴 (八甲田山系)   | 83) 上毛無袋 (八甲田山系)    | 84) 下毛無袋 (八甲田山系)  |
| 85) 下毛無袋下 (八甲田山系) | 86) 田代湿原 (八甲田山系)    | 87) 田光沼           |
| 88) 十和田湖          | 89) 姉沼              | 90) 内沼            |
| 91) 睡蓮沼 (八甲田山系)   | 92) 青池 (十二湖)        | 93) 鶏頭場ノ池 (十二湖)   |
| 94) 沸壺ノ池 (十二湖)    | 95) 落口ノ池 (十二湖)      | 96) 越口ノ池 (十二湖)    |
| 97) 王池 (十二湖)      | 98) 日暮ノ池 (十二湖)      | 99) 八景ノ池 (十二湖)    |
| 100) 田面木沼         | 101) 市柳沼            | 102) 湖鏡大橋 (川内ダム)  |
| 103) 新小戸六ダム       | 104) 下湯ダム下          | 105) 砂子瀬橋 (目屋ダム)  |
| 106) 天間ダム         | 107) 新早瀬野橋 (早瀬野ダム)  | 108) 飯詰ダム         |

図1 調査地点

するうえで、陸水の酸中和能の現況を把握しておくことが重要と考えられる。

今回、主に、青森県内の公共用水測定地点<sup>9)</sup>である河川、湖沼、ダム湖を対象に、pH、EC、アルカリ度及び段階別酸添加試験法により陸水の酸中和能を測定し、酸性雨の影響の受けやすさについて検討した。

## 2. 調査方法

調査期間は2001年8月～2002年11月で、河川はNo. 1～86（湿原を含む）、湖沼はNo.87～101、ダム湖はNo.102～108（ダム湖直下を含む）で、晴天時に採水した。

項目はpH、EC、アルカリ度及び段階的酸添加試験である。これら対象とした項目は、重金属に代表される単一物質と異なり、いずれも複数の溶解性成分が関与していることから、これらの項目は総合指標とみなすことができる。

今回、対象とした項目は複雑な操作や高価な機器を必要としない比較的簡便な測定法であることから、多量なサンプル数が得られる広域のモニタリング法やスクリーニング法に適しており、問題となる地域、サンプルが見出された場合、細密調査に移行することが合理的と考えられる。

ここで、測定法について述べると、EC、アルカリ度は、サンプル100mLをビーカーに分取し、EC測定後、1N/20硫酸によりpH4.8まで滴定し、アルカリ度を求めた。

一方、段階的酸添加の中和能測定法は、操作が簡便で、高価な測定機器を必要とせず、あまり訓練を受けていない人でも操作が可能なることを目指して、市販の1規定硫酸を用いた。

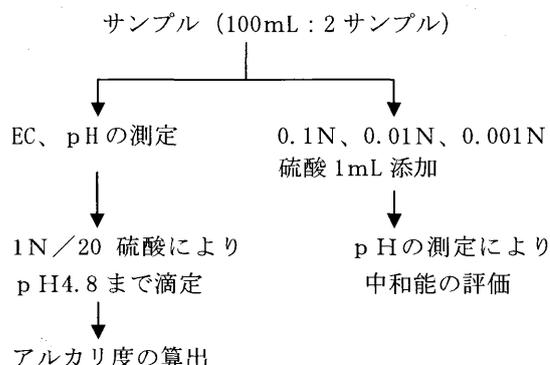
段階的酸中和能試験は、市販の1N硫酸を各々10倍、100倍、1000倍希釈し、0.1N、0.01N、0.001N硫酸の模擬酸性雨を作成した。これは各々pH 1、pH 2、pH 3に相当する。

段階的酸中和能試験の測定は、サンプル100mLをビーカーに分取し、各々0.1N、0.01N、0.001N硫酸1mLを加えて、均一に混合した後、pHを測定した（図2）。なお、0.1N、0.01N、0.001Nの硫酸添加後のpHをpH-1、pH-2、pH-3と表記した。

段階的酸添加試験では、サンプル100mLに対して酸1mLを添加している。酸を100倍希釈し、100mLとするとサンプルと降雨は等しい容量となる。この時

の模擬酸性雨pH 2はpH 4に、模擬酸濃雨pH 3はpH 5に相当し、現状、降り注いでいるpH 4～5の酸性雨が同量の陸水に及ぼすpHを評価していることになる。

図2 分析のフロー



## 3. 結果と考察

### 3.1 pH、EC、アルカリ度の分布状況

pHのヒストグラムをみると、最頻値はpH 7台で、出現率はおよそ75%であった（図3）。

河川、湖沼、ダム湖に区分して、pHの平均値をみ

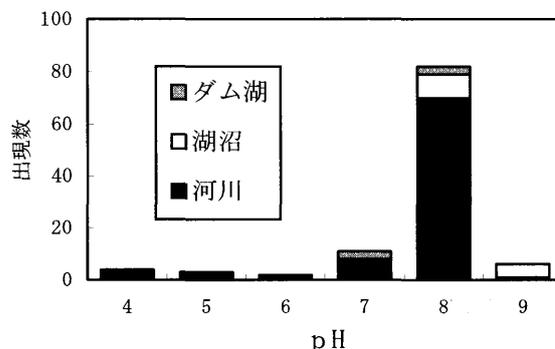


図3 pHのヒストグラム

ると、ダム湖<河川<湖沼の順であった（表1）。

県内におけるpHの分布状況を見ると、pH 3台であったものは、荒川橋（No.41）、駒込川頭首工（No.44）、下湯ダム下（No.104）、田代湿原（No.86）、pH4～5台は田茂菴などの渓流水（No.82～85）、田代湿原（No.86）、睡蓮沼（No.91）で、これらの地点は酸性雨とされるpH5.6を下回っていた。これらは、いずれも八甲田山系にあるか、源流をもつ陸水である。一方、pH8を超えるものは、西田橋（No.69）、内沼（No.90）、鶏頭場ノ池（No.93）、落口ノ池（No.95）、越口ノ池

表1 基礎統計量

項目	区分	平均	最小	最大	n	標準偏差
pH	全体	7.2	3.5	8.7	108	0.961
	河川	7.1	3.5	8.7	86	0.918
	湖沼	7.7	5.3	8.7	15	0.792
	ダム湖	6.6	3.6	7.6	7	1.25
pH-1	全体	3.6	2.9	6.4	108	0.843
	河川	3.5	2.9	6.4	81	0.620
	湖沼	4.7	3.2	6.1	14	1.21
	ダム湖	3.1	2.9	3.5	7	0.175
pH-2	全体	6.6	3.4	8.3	108	1.01
	河川	6.6	3.4	8.0	86	0.967
	湖沼	7.1	3.8	8.3	15	0.967
	ダム湖	5.9	3.4	6.9	7	1.13
pH-3	全体	7.0	3.5	8.6	108	0.933
	河川	7.0	3.5	8.6	86	0.900
	湖沼	7.6	5.5	8.3	15	0.660
	ダム湖	6.5	3.5	7.4	7	1.257
EC ( $\mu\text{S}/\text{cm}$ )	全体	165	13	735	108	109
	河川	172	14	735	86	114
	湖沼	181	13	405	15	84.9
	ダム湖	133	58	280	7	74.0
M-Alk ( $\text{meq}/\text{L}$ )	全体	0.54	0.00	1.46	108	0.334
	河川	0.49	0.00	1.20	86	0.267
	湖沼	0.92	0.00	1.46	15	0.426
	ダム湖	0.25	0.00	0.66	7	0.203

注1) pH-1、pH-2、pH-3は0.1N、0.01N、0.001Nの硫酸を添加した後の各々のpHとした。

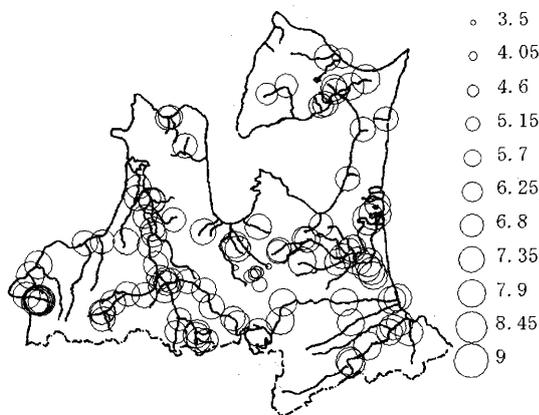


図4 青森県における陸水のpHの分布状況

(No.96), 田面木沼 (No.100) であった (図4)。

ECのヒストグラムをみると、最頻値は100~200 $\mu\text{S}/\text{cm}$ であった。湖沼で酸性化されやすい目安とされているECが50 $\mu\text{S}/\text{cm}$ 以下であるものが、5地点であった (図5)。

ECの分布状況を見ると、既に、酸性化している八甲田山系の渓流水は13~14 $\mu\text{S}/\text{cm}$ と、極めて低いEC値で、これら渓流水は母岩の影響をあまり受けていない降雨に近い性状といえる。これら渓流水と同じ

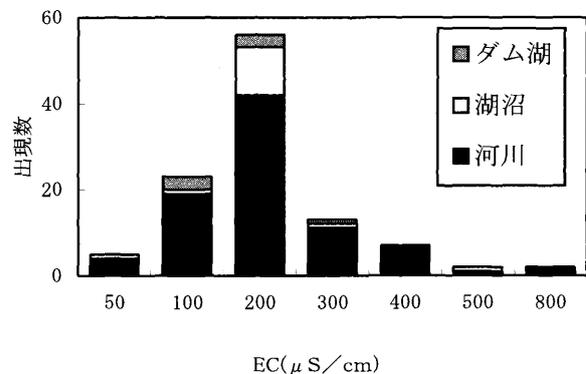


図5 ECのヒストグラム

八甲田山系に属している田代湿原はECが330 $\mu\text{S}/\text{cm}$ と高く、渓流水とは異なる性状を示したが、湿原であることから腐食物質の影響が考えられた。渓流水、湿原と同様に八甲田山系に源流をもち、pH3台である荒川橋、駒込頭首口、下湯ダム下はECが280~400 $\mu\text{S}/\text{cm}$ で、高いEC値であった。これら酸性化した河川、ダム湖は火山活動に起因した水質と考えられた。

一方、砂子瀬橋 (No.105), 湯ノ沢橋 (No.67) 木戸ヶ沢橋 (No.68) の3地点は岩木川上流の同一地区に位置しているが、前2地点ではECが150 $\mu\text{S}/\text{cm}$ 前後で

あったが、木戸ヶ沢橋は $500\mu\text{S}/\text{cm}$ と、高いECであった。これは、上流にある休廃止鉱山処理施設からの排水の影響がうかがえた。青森市内の戸建沢橋 (No. 40) では最も高いECであったが、上流に位置するし尿処理施設の排水に由来すると考えられた (図6)。

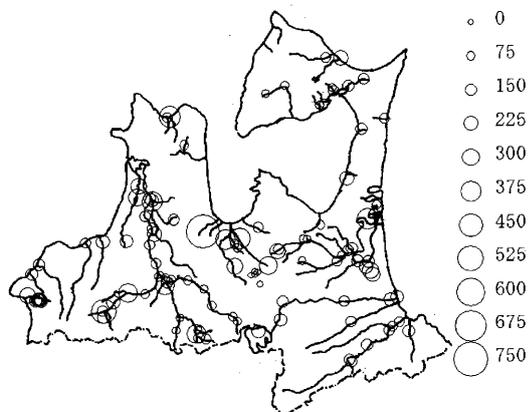


図6 青森県における陸水のECの分布状況 ( $\mu\text{S}/\text{cm}$ )

アルカリ度の最頻値は $0.4\sim 0.6\text{meq}/\text{L}$ であった。pH4.8以下で、アルカリ度が $0\text{meq}/\text{L}$ であるものが9地点、 $0.2\text{meq}/\text{L}$ 以下であるものは9地点、計18地点が既に、酸性化していたか、酸性化されやすい状況にあった。一方、湖沼群はアルカリ度が高く、酸性雨に対する強い抵抗力があることが示唆された (図7)。

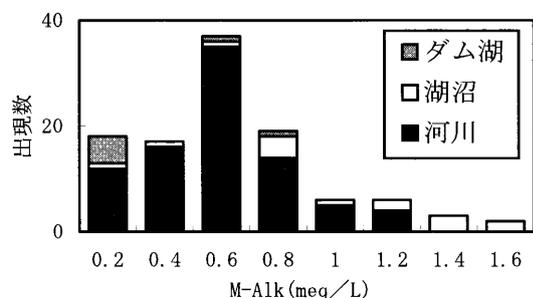


図7 アルカリ度のヒストグラム

アルカリ度の分布状況を見ると、八甲田山系に位置する河川、渓流水、湿原、湖沼はアルカリ度が $0\text{meq}/\text{L}$ であった。このうち、渓流水、睡蓮沼 (No.91) はECも低く、降雨に近い性状であった。また、坪川水系ではアルカリ度が $0.2\text{meq}/\text{L}$ 以下を示すものが点在していた。これらは八甲田火山地に属していることから、地質、火山活動の影響を受けている可能性が示唆された。また、山間部に位置するダム湖のうち、湖鏡大橋 (No.102; 川内ダム)、新早瀬野橋

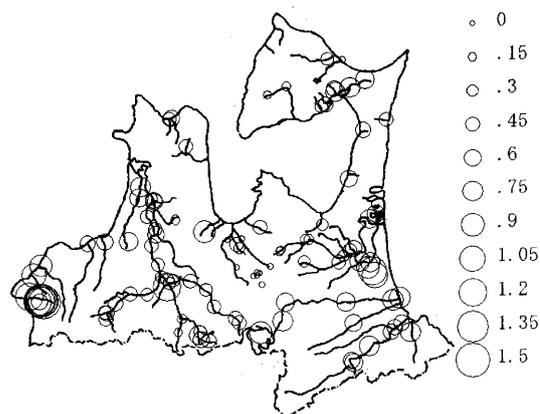


図8 青森県における陸水のアルカリ度の分布状況 ( $\text{meq}/\text{L}$ )

(No.107; 新早瀬野ダム)、天間ダム (No.106)、飯詰ダム (No.108) は中性のpHであるにもかかわらず、EC、アルカリ度の両成分が低く、酸性雨の影響を受け易いと考えられた。

山岳地帯における陸水はEC、アルカリ度の両成分が低い傾向にあり、森林などの植生に係る陸水生態系に及ぼす酸性雨影響が懸念された。窒素、リン、カリウムは生物の棲息に必須な栄養塩類である。十和田湖ふ化場において行った1週間毎の降雨調査では、全窒素が平均 $0.64\text{mg}/\text{L}$  ( $0.14\sim 2.8\text{mg}/\text{L}$ )、全リンが $0.021\text{mg}/\text{L}$  ( $0.003\sim 0.084\text{mg}/\text{L}$ )であったことから、降雨由来の窒素・リン濃度が高いことが予測されるから<sup>10)</sup>、陸水中の窒素・リンが不足したとしても、降雨からの供給が考えられた。一方、EC、アルカリ度ともに低い陸水では、カリウム濃度が低く<sup>11, 12)</sup>、更に、酸性雨により土壌中のカリウム溶脱などの相乗効果による更なるカリウム不足を引き起こし、カリウムが植物成長の制限因子となり得ることが予測された。

このため、これら山間部では植生破壊が進行した場合、カリウム不足により植生の復元が困難であることが考えられた。このことから、八甲田山系や山間部に位置するダム湖周辺地域では、酸性雨による長期的な陸水への影響を把握するため、陸水中のイオン成分、土壌影響予測、土壌・植生モニタリングなどが必要となる。

姉沼橋 (No.63)、古間木陸橋下 (No.66)、西田橋 (No.69) 及び日暮ノ池 (No.98) を除いた十二湖湖沼群 (No.92~99) とその周辺河川では、アルカリ度が高く、酸性雨に強い抵抗力をもつものと考えられた。前3地点は都市河川を形成していることから、人為的な汚濁の影響が示唆された。十二湖周辺地域では人為

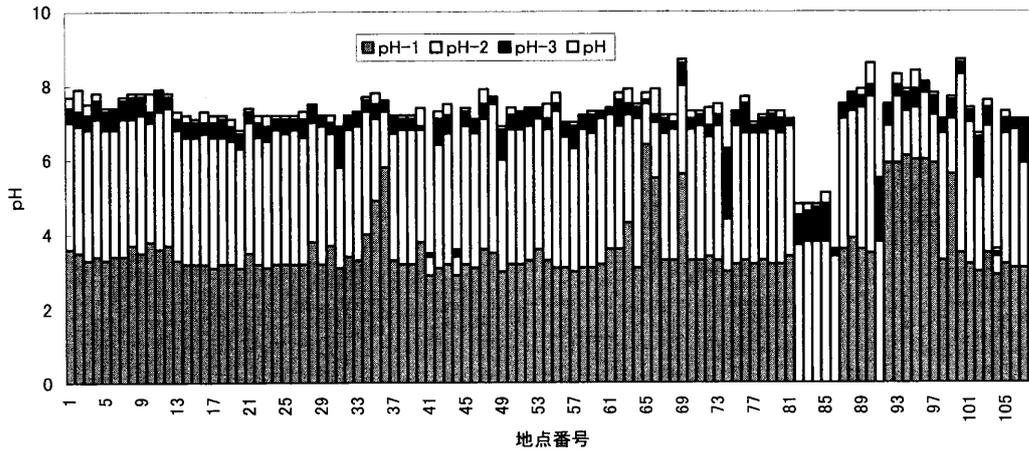


図9 段階的酸添加試験

的な汚濁源が存在しないことから、アルカリ度が高い要因として地質などの自然由来と考えられた。

今回、青森県内における陸水のアルカリ度の分布状況を見ると、八甲田山系の陸水中のアルカリ度が最小で、酸性雨の影響を受け易いが、十二湖湖沼群及び周辺河川では、アルカリ度が最大で、酸性雨に強い抵抗力をもつことが示唆された。

今後、両地域における陸水、岩石、土壌中のイオン成分分析により、地域特性を明らかにすることが必要である。

### 3・2 段階的酸添加試験

酸性雨の陸水への影響をみるため段階的酸添加試験を行った。これは、硫酸によりpH 1, pH 2, pH3の模擬酸性雨を作成し、サンプル100mLに所定のpHに調整した模擬酸性雨1 mLを添加した後のpHを測定するもので、酸性雨降下後の陸水のpHを予測することが出来る。

各々のpHに調整した模擬酸性雨を陸水に添加した後のpHをみると、pH 1の模擬酸性雨添加試験では、No.33, No.66, No.95付近ではpH6前後の高いピークが出現した。これは、この地域の陸水は酸性雨に対して強い抵抗力が有することを示唆するもので、段階的酸添加試験は酸性雨の陸水影響を考えるうえで、有用な手法といえる(図9)。

pH, EC, アルカリ度と同様に、段階的酸添加試験のヒストグラムと分布状況について検討した。

pH 1の模擬酸性雨添加試験におけるpHのヒストグラムをみると、最頻値はpH 3～4で(図10)、pHは3.0～3.6低下した(表1)。

pH 1の模擬酸性雨添加後のpHが、酸性雨とされる

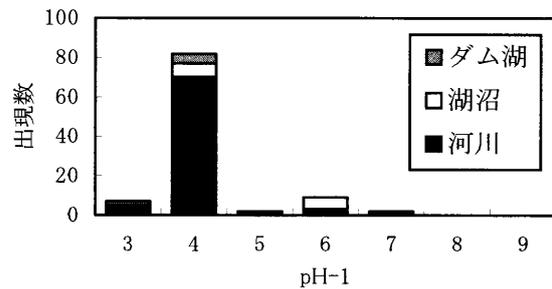


図10 青森県の陸水におけるpH1添加試験後のpHヒストグラム



図11 模擬酸性雨pH1の添加試験後のpHの分布状況

5.6以下を上回ったのは、西田橋 (No.69), 第二境橋 (No.65), 笹内橋 (No.36) 及び日暮ノ池 (No.98) を除いた十二湖湖沼群 (No.92～99) であった。第二境橋と同じ水系に属している古間木陸橋下 (No.66), 姉沼橋 (No.63) も高いpHで、西田橋と同様に都市河川であることから人為的な汚濁に起因すると考えられた。

一方、笹内川、十二湖湖沼群はブナの原生林で覆われている白神山に属していることから、地質、植生などが関与していると考えられた(図11)。

pH 1は強酸性で、通常、想定しにくいpHである。アルカリ度はpH4.8まで滴定する酸量により求められ

るが、アルカリ度が高い陸水、例えば、十二湖の青池、沸壺ノ池は、pH1の添加後のpHは5.9で、アルカリ度の終点pHを上回っていた。今回、対象とした陸水では、アルカリ度が1meq/Lで、pH1の添加後のpHは4.9であった。このことは、高いアルカリ度ではpH1の模擬酸性雨添加よりも多い酸を添加していることになる。段階的酸添加試験はアルカリ度と同様に酸中和能を測定しているが、段階的酸添加試験の利点の一つとして、得られる情報が多いことが指摘されている。アルカリ度が高い陸水への模擬酸性雨pH1の添加試験では、酸性雨に抵抗力をもつ地点が明瞭に抽出されることから、地域特性の把握に意義をもつと考えられた。

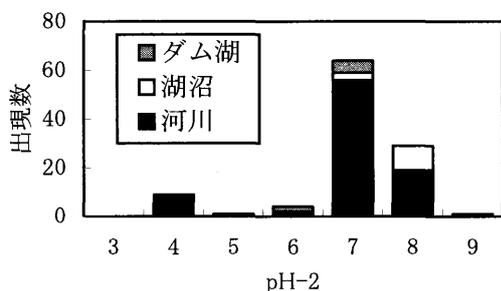


図12 青森県における陸水のpH2添加試験後のpHヒストグラム

pH 2 模擬酸性雨の添加試験におけるpHのヒストグラムをみると、最頻値はpH 6～7で(図12)、pHは0.5～0.6低下した(表1)。

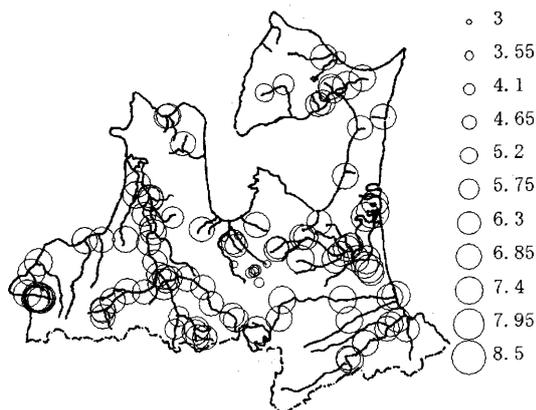


図13 模擬酸性雨pH 2 添加試験後のpHの分布状況

pHが中性である陸水のうち、pH 2 模擬酸性雨添加後のpHがサケ科魚類の遡上行動が抑制されるといわれるpH5.8～6.0の弱酸性となったのは、川内川水系の湖鏡大橋 (No.102; 川内ダム)、矢櫃大橋 (No.49)、虹貝川水系の新早瀬野橋 (No.107; 新早瀬野ダム)、

第二清川 (No.31) であった。虹貝川水系に係る下流の平川水系-岩木川水系をみると、虹貝川水系を除いた河川ではpHがほぼ中性で、下流の岩木川水系においてもほぼ中性であった。一方、閉鎖性水系を形成している川内ダムでは、ECが50 $\mu$ S/cmを越えているものの、アルカリ度が0.2meq/L以下で、緩衝能が低く、酸性化されやすいと考えられた。今回、夏季の晴天時が続く、水質が安定した時期に調査が行われたが、融雪期にはアシッドショックによりpHが低下し、プランクトン、魚類を巡る生態系の攪乱が懸念される。川内川水系では、サケ、サクラマス稚魚放流が行われていることから陸水とともに生態系の長期モニタリングが必要になる。

一方、ヒメマスが重要な水産資源で、ヒメマス-Daphnia優占系による水質改善が期待されている十和田湖 (No.88) では、pH 2 の模擬酸性雨添加後のpHは7.3であったことから、十和田湖は酸性雨に抵抗力があると考えられた(図13)。

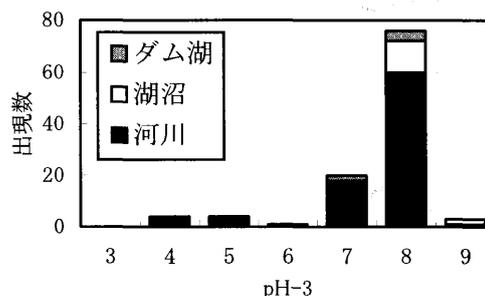


図14 青森県における陸水のpH3添加試験後のpHヒストグラム

模擬酸性雨pH3添加のpHのヒストグラムをみると、最頻値はpH 7～8で(図14)、pHは0～0.2低下した(表1)。

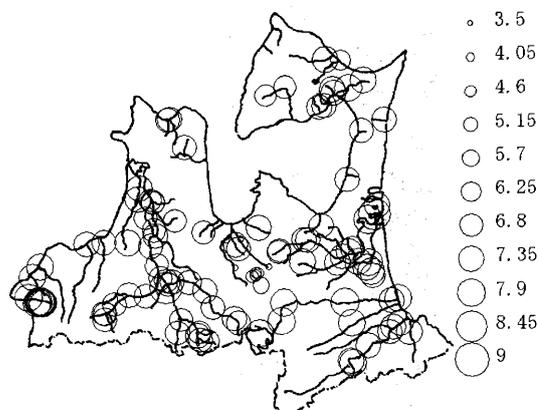


図15 模擬酸性雨pH3添加試験後のpHの分布状況

図16 成分間の関係

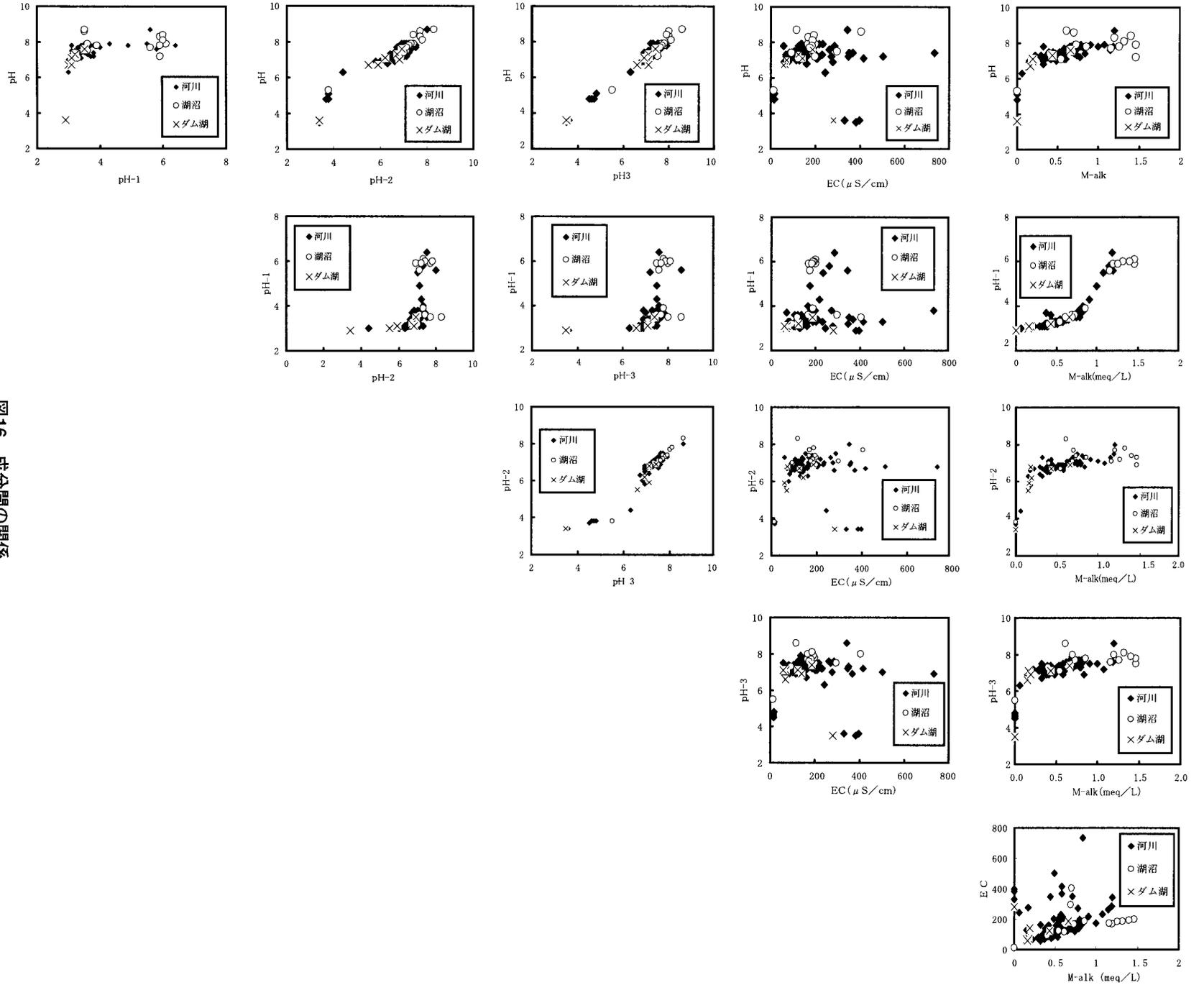


表2 項目間の相関図表

	pH	pH-1	pH-2	pH-3	EC	M-A1 k
pH	1.00	0.38X+5.9	0.91X+1.2	1.0X+0.04	-0.0001X+7.2	2.0X+6.1
pH-1	0.42**	1.00	0.48X+0.38	0.47X+0.23	0.0017X+3.3	2.4X+2.2
pH-2	0.93**	0.43**	1.00	1.04X-0.77	0.00053X+6.5	2.1X+5.5
pH-3	0.98**	0.41**	0.96**	1.00	-0.00033X+7.1	1.9X+6.0
EC	0.01	0.22*	0.06	0.04	1.00	97X+110
M-A1 k	0.68**	0.90**	0.69**	0.67**	0.30**	1.00

注1) \* : 5%有意、\*\* : 1%有意

注2) 相関図表の上段は回帰式で、列のpHと行のpH-1では、 $pH=0.38 \times (pH-1) + 5.9$

模擬酸性雨pH3の添加後の、pHの低下が小さいことからpHの分布状況類似していた(図4, 15)。

段階的酸添加試験は、高価な機器や煩雑な操作が不要な簡易試験である。測定結果は、pHにより評価される。従来、陸水の酸性化され易いか否かは、アルカリ度で評価されているが、一般人々には馴染みがないのが欠点である。これに反して、pHの変化を指標とする段階的酸添加試験では、pHが日常生活において使用される頻度が多く、イメージがわかりやすいという利点をもっている。今回、新たな概念として、井上の提唱する段階的酸添加試験の適用を試みた。この段階的酸添加試験から、酸性雨による魚類への影響が懸念される水系が抽出される可能性が示唆されたことは、今後の新たな進展が期待される。その一例として、多くの河川では、サケの稚魚の放流が行われている。操作の簡便性から、子供たちの環境教育の一環として、更には、広域モニタリングへの利用が考えられる。

### 3・3 成分間の関係

今回、調査対象とした項目間の関係を見ると、ECを除いた項目の間では、多くの場合、良い相関関係が認められた(図16)。特に、pHと模擬酸性雨pH2、pH3では良い一次回帰式が得られた(表2)。

これは、段階的酸添加試験は、酸性雨による陸水のpHに及ぼす影響を予測することが可能であることを示唆するものである。

## 4. ま と め

酸性雨による陸水生態系への影響が懸念されることから公共用水域の測定点である河川、湖沼、ダム湖などの陸水を対象に、pH、EC、アルカリ度、段階的酸添加試験により陸水の酸中和能を測定し、陸水の現状と酸性雨影響の受けやすさについて検討した。

その結果、

- (1) 八甲田山系の渓流水は、pH 4～5で、酸性化しているとともに、EC、アルカリ度ともに極めて低く、降雨に近い性状であった。
- (2) 山間部にあるダム湖では、EC、アルカリ度が低く、酸性化されやすい状況にあった。
- (3) 一部の都市河川、十二湖湖沼群及びその周辺河川は、pH、EC、アルカリ度の3成分ともに高かった。
- (4) 八甲田山系の渓流水、十二湖湖沼群の湖水ともに地質の影響が考えられたことから、岩石、土壌を含めた細密調査が必要と考えられた。
- (5) 一部の都市河川、十二湖湖沼群及びその周辺河川における模擬酸性雨pH1の段階的酸添加試験では、添加後のpHはおよそ6で、酸性雨に強い抵抗性があると考えられた。
- (6) 下北半島の河内川水系における模擬酸性雨pH2の段階的酸添加試験では、添加後のpHは5.5で、サケ科魚類の遡上が抑制される懸念があることから、魚類を含めたモニタリングの必要性が示唆された。
- (7) pHと段階的酸添加試験では良い相関であったことから、段階的酸添加試験による酸性雨影響の予測の可能性が示唆された。

## 文 献

- 1) 環境庁地球環境部監修：地球環境の行方—酸性雨、中央法規出版(株)、平成9年11月。
- 2) 厚生省生活衛生局水道環境部監修：上水試験方法、日本水道協会、94-96、1993。
- 3) 三上一、他：青森県の湖沼(I) 青森県環境保健センター研究報告、3、50-59、1992。
- 4) 生田 和正、他：陸水酸性化の魚類への影響、水環境学会誌、22、181-185、1999。

- 5) 日本地下水学会編：続名水を科学する，技報堂出版，1999.
- 6) 井上隆信，他：酸負荷に伴う陸水のpH低下の測定手法とその評価. (社)環境科学学会997年会講演要旨集，p.70-71，1997.
- 7) 井上隆信，他：酸性雨の陸水への影響（1）- pHを指標とする新しい酸中和能の評価手法-，第32回日本水環境学会年会講演集，p.88，1998.
- 8) 青森県：平成14年度版環境白書，99 - 100，平成14年11月.
- 9) 青森県：平成11年度公共用水域及び地下水の水質測定結果，19 - 21，2001.
- 10) 三上 一，他：十和田湖の水質に及ぼす降水，河川，漁獲の影響（1999～2000年），用水と廃水，43，974-980，2001.
- 11) 永淵修，他：九州山岳地帯の渓流水の化学的性質，第27回日本水環境学会年会講演集，p.442，1993.
- 12) 永淵修，他：屋久島の渓流水の化学的性質，第28回日本水環境学会年会講演集，p.124，1994.
- 13) 青森県史編さん自然部会編集：青森県史 自然編地学，p.19，(株)ぎょうせい，平成13年.

#### Abstract

## Acid Neutralizing Capacity of Inland Water in Aomori Prefecture

Hajime Mikami, Ryuji Hanaishi, Kohji Yonaya and Asuka Igarashi

To elucidate the effect of acid rain on inland water such as rivers, lakes and dam lakes in Aomori Prefecture, acid neutralizing capacity was studied through pH, EC and alkalinity and by adding 0.1N, 0.01N and 0.001N sulfuric acid to water samples. The stream water from the Hakkoda Mountains had a pH of 5.6 or less and low EC and alkalinity values similar to those of rainwater. Water in some dam lakes had an alkalinity of 0.2 meq/l or less and was prone to acidification. Meanwhile, rivers in urban areas with advanced pollution and Juniko lakes and surrounding rivers had high pH, alkalinity and acid neutralizing capacity. In a test of addition of 0.01N sulfuric acid using water from the water system of the Kawauchi River, the possibility of reduction in salmon runs was suggested while in a test of addition of 0.1N sulfuric acid using water from Juniko lakes, the pH was 6-7 and suggested resistance to acidification. Good correlation was observed between pH and the pH measured in the acid addition study and alkalinity and suggested the possibility of predicting pH reduction due to acid rain.

Key words: acid rain, inland water, alkalinity, acid neutralizing capacity.

# 十和田湖における鉱山廃水，下水道処理による水質の将来予測

吉田 毅 荒関 治

最近の十和田湖の水収支を基に，数理モデルを用いて，湖水の重金属濃度とCOD濃度の将来予測を行った。その結果，湖水のZn, Cuの収支量からZn, Cu等の重金属は，一部湖中（中湖の深部を除く）で沈殿していると算定される。湖水のCOD濃度1.2 mg/l とのバランスから，湖水に毎年流入されている汚濁負荷量は約260トン/年と算定され，内訳は，下水道関係約50トン/年（19%），“もどし水”関係約60トン/年（23%），残量分約150トン/年（58%）が推定される。1991年から一部下水道化されたが，湖水のCOD濃度はすぐには改善されず，1.0mg/l 以下になるまでには切替え（1991年）から早くても20年（2010年頃）はかかるだろうと推定される。下水道でのCOD負荷量とほぼ等量の東北電力㈱の青撫からの“もどし水”の浄化対策が急がれる。最近の水収支の値から十和田湖の滞留時間は，いままでの8.5年よりは長く，12年と算定される。

Key words: Lake Towada, mining activity, COD runoff loads, numerical model, sewage disposal

## 1. はじめに

十和田湖は，支笏湖からヒメマスが移殖されてから今年で100年が経った。さらに，水力発電所用の水を青撫の取水口から放流・還流してから約60年，鉛山鉱山が操業を開始し中和処理した鉱山廃水を放流してから約30年が経った。

今までは“神秘の湖・十和田湖”として観光客を迎えてきた湖だが，近年，湖水の汚濁が指摘されはじめ，1991年から湖畔での公共下水道の一部使用が開始され，いよいよ人工的な水質管理の時代に入った。

その中で，森田<sup>1)</sup>は，青森県が十和田湖の継続的な水質調査を行う前の1952年～1970年までの18年間，鉛山鉱山の廃水と十和田湖の水質および重金属調査を継続し，数理モデルを用いて，鉱山廃水の中和処理後における十和田湖の重金属濃度の水質予測を行なった。

本報では，現在まで得られている水収支を整理し，森田が当時行なった研究手法をトレースしながら，数理モデルを応用し，その後の湖水の重金属濃度と，下水道処理による湖水の化学的酸素要求量(COD)濃度の将来予測を行なった。また，なぜ，下水道処理化されてもすぐに湖水のCOD濃度が改善されないか等，十和田湖の水質の汚濁機構を数理的に検討したので報告する。

## 2. 十和田湖の概要

十和田湖は青森・秋田両県にまたがる二重カルデラ湖で，年間約300万人が訪れる国立公園内の観光地である。今から約20万年前に十和田火山の活動が始まり，約1,000年前の火山活動を最後にして，現在の湖形がほぼ固まったとされている。<sup>2)</sup> 図1に，十和田湖と，湖底の地形を示す。

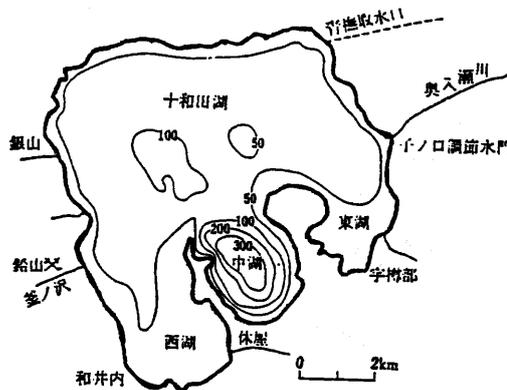


図1 十和田湖の概要 (森田良美<sup>1)</sup>より転載)

湖への流入河川は約8本で，湖からの流出河川は奥入瀬川と東北電力㈱の青撫取水口の2ヶ所のみである。

十和田湖の平均水深は約71mであるが，中湖がカルデラ特有の陥没湖で最深327mある。

夏季には水深10～20mに顕著な水温躍層が発達し，秋季から徐々に解消され，冬季は中湖の最深部以外は

消滅する。しかし、中湖の湖底には湖底湧泉があるため、100m以深に4.0℃よりも高温の水域があり循環が妨げられる。<sup>1)</sup> 冬期でも湖面が全面結水することはない。

1903年に支笏湖からヒメマスを移植し、その後はふ化放流しているが、1983年の60トンピークに減少し、最近ではワカサギの出現に押され毎年の捕獲量は芳しくない。1986年より、湖心でのCOD濃度が湖沼の環境基準の1mg/lを超え、かつ透明度が10mを切って水質汚染が懸念されてきた。<sup>3)</sup>

1991年4月より、湖岸での公共下水道事業(雨水を除く)の一部が供用開始され、処理水は十和田湖から19km下流の奥入瀬川の途中に放流されているが、その後の湖のCOD濃度は期待されたほど回復していない。

### 3. 十和田湖の水収支

十和田湖は、1937年に国、青森・秋田両県、東北電力(株)によって策定された「奥入瀬川河川統制計画」によって、十和田発電所用水、農業用灌漑用水、奥入瀬溪流の観光用水等に活用されており、子の口に制水門を設け風致保存のために湖の利用水深を1.07mに設定したが、1941年には1.67mと見直され現在に至っている。

表1に、十和田湖の諸元、表2に東北電力(株)青森支店の1989年から5年間のデータを基にして算定した水

表1 十和田湖の緒元

湖面積(A)	59.0 km <sup>2</sup>
流域面積	126.0 km <sup>2</sup>
湖容積(V)	4.2×10 <sup>9</sup> m <sup>3</sup>
湖面高度	400.0 m
平均水深	71 m
最大水深	327 m

表2 十和田湖の水収支

年度	降水量 (mm)	流入量 (t/年)×10 <sup>8</sup> (青撫のもどし水)	流出量 (t/年)×10 <sup>8</sup> (子の口) (青撫)
	青撫		
1989	1,249	3.59 (0.33)	2.28 (0.48) (1.80)
1990	(1,300)	3.42 (0.10)	2.10 (0.51) (1.50)
1991	1,301	3.85 (0.33)	2.50 (0.51) (1.99)
1992	1,097	3.17 (0.29)	2.06 (0.52) (1.54)
1993	1,198	3.54 (0.17)	2.29 (0.50) (1.79)
平均	1,229	3.51 (0.24)	2.23 (0.50) (1.72)

収支の諸元を示す。<sup>4), 5)</sup>

十和田湖の集水面積(湖面積も含む)は湖面積の約2.1倍と小さく、周辺が国有林のブナ、かえで等の生い茂る外輪山に囲まれた典型的なカルデラ湖である。

各々の諸元、東北電力(株)のデータには、その後大きな変化は見られない。十和田湖の水収支を概観すると以下ようになる。

#### 3.1 流入水量

湖への流入水量は、湖面も含む集水面積126km<sup>2</sup>内への降水量と約8本の流入河川、さらに東北電力(株)が十和田発電所に取水している湖東岸にある青撫の取水口からの逆流水(いわゆる“もどし水”)が主である。

実際に、十和田湖に流入する複数の河川からの総流入水量の常時観測は不可能なので、東北電力(株)での“流入水量”の算定は、十和田発電所使用水量、子の口放流量、湖水の利用水深差等の実測値を基にした“計算値”を実務に用いている。森田<sup>1)</sup>は、流入水量を4.9×10<sup>8</sup>トン/年と報告し、以後の解析に用いている。

最近の東北電力(株)での“流入水量”の計算値は表2より約3.5×10<sup>8</sup>トン/年である。

三上<sup>6)</sup>は、1999～2000年の詳細な調査に基づいて、湖への流入水量を、降水・晴天時の場合には1.5×10<sup>8</sup>トン/年、雨天・融雪時には5.2×10<sup>7</sup>トン/年、と見積もっている。(ただし、この調査期間での東北電力(株)の青撫取水口からの“もどし水”3.3×10<sup>6</sup>トン/年は、平年の約1/7と少なかった時の調査である。)

#### ○ 降水量

十和田湖畔での降水量の主な観測は、1982年10月からは休屋にある十和田湖小学校(青森地方気象台の地域気象観測所)と、青撫にある十和田発電所取水口(東北電力(株)所管観測所)の2箇所で行われている。

青森地方気象台の観測によると、休屋での降雨量の最大値は1966年の2,434mmで、この年の十和田発電所の年間発電量も最大値を記録している。

一方、最小値は東北電力(株)の青撫での1970年の1,219mmで、翌年9月になっても十和田湖の水位が144cm低下し、棧橋では遊覧船の2階から乗り降りしたという記録(1996.6.9東奥日報)が残っている。

最近では、1985年の休屋での降水量が1,206mmと少なく、9月には湖面が平年より65cmも低下し、恵比

寿大黒島が陸続きになったという記録（1985. 9. 21 東奥日報）がある。

休屋での1960～68年までの平均年間降水量は1,914mmと多かったが、最近の10年間の平均年間降水量は1,514mmである。

#### ○青撫からのいわゆる“もどし水”

十和田湖の水を青撫の取水口から利用する十和田発電所は、1943年12月から24,000kwで開始され、1957年から31,000kwと増設されて毎年5～9月にかけては農業用水として、それ以降は湖の水位回復のため、取水量を調整しながら発電している。なお、十和田発電所の落水をさらに奥入瀬川下流の立石、法量発電所で活用している。

しかし、湖面の水位を海拔400mから最低1.67m（5尺5寸）以内に保つために、春先と秋には、湖の集水域以外にある黄瀬平地区のソスベ沢等11箇所の溪流（集水面積約103km<sup>2</sup>）から十和田湖の集水区域とは植生の異なる沢水を青撫の取水口から湖水に環流する、いわゆる“もどし水”として逆送し、補充している。

“もどし水”のもどし方は、発電所への送水を停止させることにより、青撫の取水口よりも海拔の高い11ヶ所の取水設備から重力によって隧道を逆送させ、湖水に貯水する方法を採っている。特に、毎年6月1日までに湖面を最高水位に戻すよう青森県との協定で義務づけられているため、春先の融雪の青白色の濁り水や、夏から秋の雨水等の汚濁水が“もどし水”として湖水へ直接流入される。そのため、1955年の県の委託調査<sup>7)</sup>で既に、青撫山沖から御門岩の北及び南を通り、中山半島周辺にかけて汚泥が堆積している、と問題視されてきた<sup>8)</sup>。

1972年8月には、国会の衆院公害・環境特別委員会で“もどし水”の濁水が上げられ、9月から東北電力(株)は、濁度計を設置し、濁り水の湖内への“もどし水”の自主規制を開始しているという。

1992年～2001年まで10年間の東北電力(株)の統計での“もどし水”は、平均 $2.02 \times 10^7$ トン/年（ $1.14 \sim 3.29 \times 10^7$ トン/年）で、これは青撫からの取水量 $1.62 \times 10^8$ トン/年の約12.4%を占めており、集水面積を約1.1倍に拡張した効果を持ち、湖面の高さに換算して約37cmの水量に相当する。

“もどし水”に関する今までのおもな統計量は、森田<sup>1)</sup>の $1.8 \times 10^8$ トン/年があり、これは最近での東北

電力(株)の値よりも約8倍ほど大きい。この原因は、1965～1967年まで3年間の東北電力(株)のデータを使用したことによるようだが、この集計値は前述したように、1966年の降水量が過去最大だったこと、十和田発電所の発電量がこの年164,600Mwと最高値を示し、翌年も132,200Mwと多かったこと等から、集計に用いた当時の取水量は平年値よりもかなり大きい値だったことが推察されるが、絶対値の詳細は不明である。

他に、青森県の調査報告書<sup>9)</sup>の $3.7 \times 10^7$ トン/年、東北緑化環境保全(株)の調査報告書<sup>10)</sup>の1988～1990年の年間平均値 $3.2 \times 10^7$ トン/年（ $1.84 \sim 4.97 \times 10^7$ トン/年）等がある。

### 3.2 流出水量

湖からの流出河川は、子の口と青撫からの2ヶ所のみで、途中、観光・発電・灌漑用水に使用され、2級河川の奥入瀬川に注がれ、百石町を経て太平洋に注いでいる。

流出水量は、子の口からは観光・灌漑用に4～11月まで昼と夜の取水量が定められており、青撫からは発電用に最大流量が20トン/秒以下と、いずれもコントロールされていることから、東北電力(株)の集計値のばらつきはほとんどなく、子の口： $5.0 \sim 5.1 \times 10^7$ トン/年、青撫： $1.6 \sim 1.7 \times 10^8$ トン/年でほぼ一定しており、総流出水量は約 $2.2 \times 10^8$ トン/年となる。森田<sup>1)</sup>は、総流出水量を $4.9 \times 10^8$ トン/年（うち青撫： $3.8 \times 10^8$ トン/年、子の口： $5.8 \times 10^7$ トン/年、蒸発量： $5.4 \times 10^7$ トン/年）と報告し解析に用いている。三上<sup>6)</sup>は降水および融雪期を除いた水収支として $2.2 \times 10^8$ トン/年を報告している。

なお、東北電力(株)では1977年1月1日より、流入、流出の内容変更を行い、「以前のデータには湖面蒸発量を含んでいたので約13%大きかったが、以後、湖面蒸発量を含まない」としている。

### 3.3 もう一つの水収支

前章とは別に、降水量をベースにした流入水量の水収支もありうる。

現在、十和田湖の集水面積は湖面積の2.1倍と小さく、降雨から期待される流入水量は、休屋での平均降水量を1,500mmと見ると、年間の湖への流入水量は流域面積×降水量より約 $1.9 \times 10^8$ トン/年程度となる。

また、青撫からの“もどし水”は前章から、約 $2.0 \times 10^7$ トン/年だから、総流入水量はこれらの合計

として、約  $2.1 \times 10^8$  トン/年程度と予想される。一方、流出水量は前章より、約  $2.2 \times 10^8$  トン/年程度であり、蒸散量が考慮されていないものの、ほぼバランスを保ち、前述した森田の当時の水収支は、最近の状態とは大きく異なっていたと考えられる。

塩原<sup>10)</sup> は、十和田湖の水に関して「地表の稜線による集水範囲に比べて、地下水の分水界(嶺)ははるかに広く、ゆっくりと穏やかに水が供給されている」とカルデラ湖の特徴を述べている。

十和田湖の中湖の深層部からの“湖底湧泉”の存在は、水温・水質等の垂直分布からも指摘されてきたが<sup>1), 6), 12)</sup>、原子ら<sup>13)</sup> は、3箇のひ素濃度が100～200mの深度で  $1.2 \mu\text{g/l}$  と比較的濃度部分があり、ゆう水の存在箇所を指摘している。“湖底湧泉”と蒸発散量の数量化は今後の検討を待ちたい。

十和田湖の滞留時間(湖の貯水量/流入水量)は8.5年と言われてから久しい<sup>1), 14)</sup> が、これから逆算される流入水量は  $4.9 \times 10^8$  トン/年になり、森田の流入水量と一致する。しかし、最近の東北電力(株)での“流入水量”の計算値  $3.5 \times 10^7$  トン/年を用いると滞留時間は12年となり、今までの定説よりも長くなる。

#### 4. 鉱山廃水と十和田湖の水質

##### 4.1 鉛山鉱山廃水の概要

十和田湖の西岸では、古くから2つの金属鉱山があり明治以前から粗鉱の採掘が行なわれていた。

十和田鉱山では明治24年代には、最大粗鉱150トン/月を産出し、廃水は銀山川に放流されていた。

森田<sup>1)</sup> は、1953年8月の銀山川で、Cu  $0.16 \text{mg/l}$ 、Pb  $0.1 \text{mg/l}$ 、Zn  $0.85 \text{mg/l}$  と、高い濃度を報告しているが、現在は休止中である。一方、1952年に鉱山活動が活発化した鉛山鉱山からの廃水は釜の沢(鉛山川)へ放流されてきた。

当時の十和田湖をめぐる鉱山廃水の処理、湖水の重金属濃度の分析調査等は、前述したように1952～1970年までの18年間、森田によって調査・記録された。それによると、鉛山鉱山では、1952年の操業以来、鉱石の比重選鉱のみを行い、沈澱池で浮遊物を減らしただけで1968年6月に廃水の石灰中和処理が開始されるまでの間、廃水は未処理のまま釜の沢を通じて湖水に放流されていた。図2に、1952～1969年までの鉛山鉱山の粗鉱産出量(実線)と坑道延長(点線)を転載する。

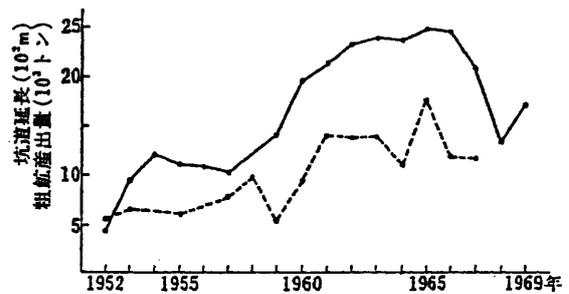


図2 鉛山鉱山の生産活動の経年変化(森田良美<sup>1)</sup>より転載)

鉛山鉱山の廃水の湖への影響について、県の報告書<sup>7)</sup>では「鉛山沖の透明度9mを示すべき地点では、鉱山の廃水により6mの透明度を示すに過ぎなくなり、水は黄褐色に濁る」、「鉛山鉱山の廃水はpH3.4～5.7の強い酸性を示すが、川口から沖合い50m離れた地点では全くその影響が見られない」と、当時の状況が報告されている。

鉛山鉱山は、その後も約2万トン/年の粗鉱を産出したが、1968年～1970年頃に廃水の石灰処理が導入され、1985年9月で産出を終え、現在は、経済産業省関東東北鉱山保安監督部の指導のもとで、廃水の中和処理を継続している。

著者らが現地調査した1994年3月には、鉛山鉱山の坑内廃水は約  $1.5 \text{m}^3/\text{分}$  で、pHは4.2、Zn濃度が  $15 \text{mg/l}$ 、Cu濃度が  $0.11 \text{mg/l}$  あり、これを炭カルと消石灰で中和処理し、さらに硫化ソーダを加えて水酸化物、硫化物として沈殿させ、沈殿池からの上澄み水はさらにpH調整後、釜の沢に放流されていた。

沈殿池では、投入した中和剤とほぼ等量の重金属汚泥が沈殿し、大館市内の産廃処理業者がバキューム車で  $1,500 \sim 2,000 \text{m}^3/\text{年}$  を搬出し、処理していた。

著者らが調査した鉛山鉱山廃水、釜の沢、銀山川のpH、重金属濃度を表3に示す。

鉛山鉱山の重金属濃度が高い廃水は、場内で中和処理され、釜の沢に放流される前に重金属濃度は1/4～

表3 十和田湖へ流入する主な河川での重金属濃度

単位 (mg/l)

流入河川	年月日	pH	Cu	Zn	Pb	Cd
鉛山鉱山の廃水	94. 3.10	4.2	0.11	15	0.088	0.025
釜の沢	94. 3.10		<0.01	0.36	<0.001	0.001
"	95.11.12	7.5	0.02	1.8	0.027	0.003
"	96. 9.12	7.5	0.01	0.81	<0.005	<0.001
銀山川	94. 3.10	7.5	0.01	0.39	<0.001	0.001
大川岱川	95.11.12	7.5	0.01	0.04	<0.005	<0.001

1/8程度に低減されており、銀山川のZn濃度は釜の沢とほぼ同レベルの0.4mg/lであった。大川岱川の重金属濃度はこれらと比較して低かった。

#### 4.2 十和田湖の重金属濃度

十和田湖における湖水の水質、重金属濃度等は、1971年から公共用水域測定計画に基づき、青森・秋田両県の公害センターを中心として4～11月まで、月1回、湖内9地点において、水深0.5mと5mの2層で調査が継続されてきたが、それ以前の、1952～1970年まで18年間、森田が鉛山沖で継続調査した記録を表4に示す。表5に、1971年度から青森県が行なってきた湖心 No. 5 地点での 1982年度までの年間平均値を示す。

表4 十和田湖の重金属含有量の経年変化

(森田良美による)

測定年月日	pH	Cu (ppm)	Zn (ppm)	Pb (ppm)	Cd (ppm)
1952. 8. 2		0.001	0.014		
1953. 8. 22	7.7	0.001	0.014		
1954. 10. 13	7.6	0.001	0.017		
1956. 8. 27	7.7	0.002	0.035		
1958. 8.	7.8	0.002	0.042		
1961. 10.		0.002	0.048		
1964. 5. 19		0.002	0.064		
1967. 9. 3	7.8	0.003	0.075	0.001	
1967. 11. 8		0.003	0.081	0.001	
1968. 9. 13		0.003	0.085	0.001	
1969. 1. 13	7.6	0.003	0.083	0.001	
1969. 12. 15		0.003	0.085	0.001	
1970. 8. 26	7.6	0.003	0.084	0.001	0.0003

表5 十和田湖の重金属濃度の経年変化

測定年度	pH	Cu (ppm)	Zn (ppm)	Pb (ppm)	Cd (ppm)
1971.	7.9	0.003	0.052	0.007	0.005
1972.	7.7	<0.002	0.062	0.006	<0.002
1973.	8.0	<0.004	0.044	<0.01	<0.001
1974.	7.9	<0.004	0.05	<0.01	<0.001
1975.	7.8	<0.004	0.02	<0.01	<0.001
1976.	7.6	<0.004	0.03	<0.01	<0.001
1977.	7.7	<0.005	0.04	<0.05	<0.005
1978.	7.6	<0.005	0.02	<0.05	<0.005
1979.	7.8	<0.005	0.02	<0.05	<0.005
1980.	7.8	0.005	0.01	<0.01	0.005
1981.	7.9	0.010	0.03	<0.01	<0.001
1982.	7.9	0.006	0.03	<0.02	<0.002

これによると、湖水のpHは7.8と経年的にほとんど変わらなかったが、Cu, Zn濃度は鉛山鉱山の操業につれて18年間で各々約3倍の0.003mg/l, 約6倍の0.084mg/lと増加し、その後、1968年頃から廃水の石灰処理が行われ、湖水の重金属濃度が減衰し、1979年頃に

ほぼ鉱山操業前の1952年当時の湖水濃度にまで回復している。現在は、釜の沢、銀山川から、Zn濃度0.4～0.5mg/lの排水が湖に放流されている。最近の湖水濃度は2000年度の調査データ<sup>15)</sup>によるとpH7.2, Cu<0.001mg/l, Zn 0.01mg/l, Pb<0.003mg/l, Cd<0.001mg/lと1982年頃からはほぼ一定しており、1968年頃からは行なわれてきた鉛山鉱山での廃水の石灰中和法の効果によるものと考えられる。

#### 4.3 数値モデルによる重金属濃度の予測

森田<sup>1), 16)</sup>は、十和田湖の水収支と十和田湖へのZnの流入量を用いて、鉛山鉱山がまだ廃水を未処理のまま湖に放流し始めた1952年から、湖水のZn濃度がピークになった1970年までの検証を数値モデルで行なった。

本報では、前章で確認した水収支を基に、同様の手法を用いて廃水の中和処理がほぼ軌道にのったと思われる1971年以降の湖水のZn, Cu濃度の検証も合わせて行なった。

十和田湖に一定の割合で流入される重金属が、1年間で湖水全体に均一に混合された後（一部、沈着されても可）残りが湖外に流出されると仮定すると、容積Vの湖水に対する単位時間あたりの重金属の数値モデルは、図3のように表され、次式の微分方程式で示される。

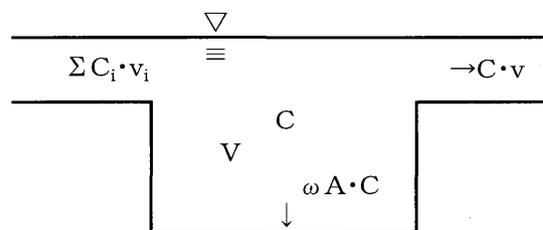


図3 十和田湖の重金属濃度の数値モデル

$$V \frac{dC}{dt} = \sum C_i v_i - C(v + \omega A) \quad (1)$$

(1) 式中の記号は以下の意味をもつ。

V: 十和田湖の湖容積 (m<sup>3</sup>)

C: 湖水の重金属濃度 (mg/l)

v: 十和田湖からの流出水量 (トン/年)

C<sub>i</sub>: 湖への流入河川 i からの重金属濃度 (mg/l)

v<sub>i</sub>: " 流入水量 (トン/年)

ω: 沈降速度 (m/年)

A: 十和田湖の湖面積 (m<sup>2</sup>)

$$R : v_i / (v + \omega A)$$

(1) 式を積分し、 $t = 0$ のときの初期条件として

$$C = C_0, (v + \omega A) / V = E$$

とすると、(1) 式は、

$$C = C_0 \cdot e^{-Et} + \sum R \cdot C_i (1 - e^{-Et}) \quad (2)$$

または、

$$C = C_0 + \sum (1 - e^{-Et}) (R \cdot C_i - C_0) \quad (3)$$

となる。

森田は、釜の沢、銀山川、その他の河川の流量、重金属濃度等を分析し、十和田湖への重金属流入量を表6のように試算した。さらに、湖水からの総流出水量を $4.9 \times 10^8$ トン/年と算定し、うち蒸散量を差引いた $4.4 \times 10^8$ トン/年を流出水量 $v$ とし、 $t$ は1年ごとのステップとして計算している。

表6 十和田湖への流入量とZn流入量 (森田より転載)

	流入水量(t/年)	Zn濃度(ppm)	Zn流入量(t/年)
釜の沢	$1.3 \times 10^6$	35	45 (1952~1970)
銀山川	$4 \times 10^6$	5	6 (1971~)
その他	$4.9 \times 10^8$	—	2
			1

そこで本報では、 $C_0 = 0.014$ ppm (at 1952) とし、 $v = 2.2 \times 10^8$ トン/年、 $4.4 \times 10^8$ トン/年の例と、1952~1970年まで湖に流入されたZnの流入量を48トン/年から1971年からは中和処理の効果をみて9トン/年に減少させた例を組み合わせ、表7の数値を用いて湖水のZn濃度を数理モデルで計算した。

表7 数理モデルで用いた諸元

CASE	$C_i v_i$ (t/年)	$V$ (t/年)
CASE 1	48	$2.2 \times 10^8$ (1952~1970)
	9	$2.2 \times 10^8$ (1971~)
CASE 2	48	$4.4 \times 10^8$ (1952~1970)
	9	$4.4 \times 10^8$ (1971~)

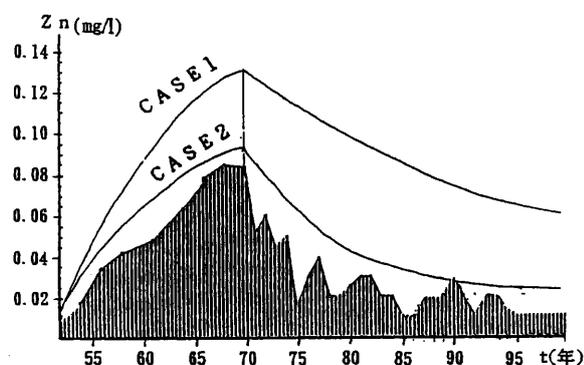


図4 十和田湖のZn濃度の経緯と推定値

図4に、十和田湖のZn濃度(縦太線)の推移と、2つの例の推定値をプロットした。図中の縦太線は、1970年までは森田による鉛山前面での分析値を、1971年以降は青森・秋田両県による湖心No.5での分析値を載せた。なお、この後も調査は継続して行われているが、湖のZn濃度に大きな変化は見られない。

CASEごとには以下のような特徴がある。

#### CASE 1:

流出水量 $v$ を、現在の東北電力(株)での平均的な $2.2 \times 10^8$ トン/年としてZn濃度を計算した例<sup>16)</sup>であるが、ピーク時の1970年の推定値が、実測値の約1.6倍大きい。表6では、1952~1970年までの鉛山鉱山からのZnの流入量を一定値の45トン/年と算定したが、実際には図2から想定されるように、流入量を過大に推定したかもしれない。しかし、当時の確かな流入量の確認はできない。

#### CASE 2:

流出水量 $v$ を、森田が計算に用いた $4.4 \times 10^8$ トン/年で計算した例であるが、推定値が、実測値の増加、減衰の変化とよく一致する。しかし、当時の $v = 4.4 \times 10^8$ トン/年は、前述した通り、最近の東北電力(株)のデータの約2倍大きい値であり、過去にはあったかもしれないが、現状の水収支とは大きく異なる。

#### CASE 2の新しい解釈:

数理モデルでの微分方程式の(1)式において、湖内の重金属の沈降量を $\omega A \cdot C$ で考慮すると、湖心の重金属濃度 $C$ は、流出水量 $v$ と沈降量 $\omega A$ との和の関数として表わされる。

そこで、CASE 2は、例えばCASE 1の $v = 2.2 \times 10^8$ トン/年に、新たに沈降効果の $\omega A = 2.2 \times 10^8$ トン/年を付加した例、と読み替えることも可能になるだろう。

つまり、実測値にあうように逆算すると、 $\omega = 3.7$ m/年のみかけの沈降速度でZnが水酸化物となって湖底に沈澱したと考えると、湖中での重金属収支のバランスが保たれる。そのためには逆算から推定したZnのみかけの沈降速度の妥当性、 $Zn(OH)_2$ の湖底への沈澱を湖の底質の分析結果等から確認する作業等が必要がある。ちなみに、印幡沼でのリンのみかけの沈降速度は30m/年<sup>18)</sup>、阿寒湖でのそれは180~540m/年<sup>19)</sup>とし、各々の沈澱現象を説明している。

#### 4.4 重金属の沈殿現象の検証

##### 4.4.1 溶解度積での溶存限界濃度の算定

森田は、十和田湖に鉱山廃水が18年間流入されても湖水のpH値が7.7と変化しなかったこと（ただし、中湖の水深100m以深ではpH値が7.0以下）に着目し、各種重金属のpH値での溶存限界濃度を計算し、釜の沢の水質と比較して、Cuは約600倍含まれているので、Znは約10倍程度なのであまり沈殿しないだろうと推論している。（表8参照）

表8 pH7.7における重金属の溶存限度濃度と釜の沢の水質との比較（森田良美<sup>1)</sup>より転載）

	水酸化物のK <sub>sp</sub>	pH7.7における溶存限度濃度(ppm)	釜の沢の平均水質(ppm)
Cu <sup>2+</sup>	2.2×10 <sup>-20</sup>	0.005	3
Zn <sup>2+</sup>	1.2×10 <sup>-17</sup>	3.1	35
Cd <sup>2+</sup>	3.9×10 <sup>-15</sup>	1800	0.17
Pb <sup>2+</sup>	1.6×10 <sup>-17</sup>	13	0.2

分析化学のイオン平衡理論によると、水中にある2価の金属イオンのモル濃度を [M<sup>2+</sup>] (mol/l) とすると、

$$[M^{2+}][OH^{-}] = K_{sp} \text{ と表わされ}$$

ここで、K<sub>sp</sub>は水酸化物の溶解度積を表わし、常温では

$$[H^{+}][OH^{-}] = 10^{-14} \text{ であるから、}$$

$$[M^{2+}] = K_{sp} \times 10^{28} \cdot [H^{+}]^2 \text{ となり}$$

$$\log[H^{+}] = -pH \text{ であるから、}$$

$$\log[M^{2+}] = \log K_{sp} + 28 - 2pH \text{ と表わされる。}$$

従って、

$$[M^{2+}] = \{10^{(\log K_{sp} + 28 - 2pH)} \times \text{原子量} \times 10^3\} \text{ (mg/l)}$$

となり、任意のpH値での、水中における各重金属イオンの溶存限界濃度 (mg/l) が計算できる。

つまり、鉱山廃水の重金属濃度がこの計算した溶存限界濃度よりも大きければ、湖水のアルカリで中和されたあと、沈殿を生じることを意味する。

##### 4.4.2 沈降量の試算

もし、前章のように、湖水中で重金属の沈殿が生ずるとすれば、沈降量は (1) 式の  $\omega \cdot A \cdot C$  となり、Znの場合には、図4でのCASE 1とCASE 2の計算値の差として表される。

例えば、1970年を例にとると、Znが湖水のアルカリと反応した後の水酸化物の沈降量は、Znの計算値と実測値との濃度差0.05ppmを湖容積にかけると、湖底には約210トンが沈殿したことになる。ただし、中

湖の深部はpHが7.0以下なので、水酸化物としては沈殿しないだろうと考えられる。

1971年以後は、石灰中和されはじめた後のZnの湖水濃度は急激に減衰しており、それ以後の沈殿量は減衰する。

同様の手法でCuの場合を計算し、先のZnの図4の濃度と比較するため、縦軸を拡大し図5に示す<sup>17)</sup>。図中、Cu濃度（縦太線）が1965年以降増加しているように見えるが、実際には検出下限値（N・D値）の取扱いが年度で異なり、経年的にN・D値のベースが上がっているためである。

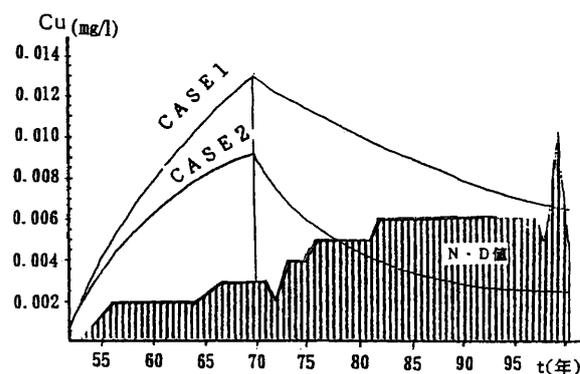


図5 十和田湖のCu濃度の経緯と推定値

もし、Cuが湖水中でZnと同じような沈殿現象を示すと仮定すれば、例えば、図5で1970年の場合、CASE 1とCASE 2との計算値の差で沈殿するはずであるが、実測値はさらに低いためCASE 1と実測値との濃度差0.009ppmから約38トンと推定され、Cuのみかけの沈降速度 $\omega$ はZnの約6倍になる。図4、図5から推定されたZnとCuの沈降量の比は、Zn/Cu  $\approx$  5.5となる。

1952～1970年頃までは鉛山鉱山から未処理のままZn/Cu = 4.3（森田<sup>1)</sup>）の微細な鉱石粒が釜の沢から湖に放流されたこと、鉛山鉱山の廃水からはZn/Cu = 8.3、また石灰処理されている釜の沢での排水はZn/Cu = 10.3（著者らによる1994年3月の分析）と、Zn/Cu比が大きくなっていることが、途中でZnよりもCuが減衰している証拠である。

##### 4.4.3 底質中のZn/Cu比の確認

十和田湖の湖底及び周辺の土壤中に、各種の重金属が高濃度に含まれていることは既に高橋<sup>20)</sup>、関野<sup>21)</sup>らに指摘されてきた。その後、野田<sup>22)</sup>は、十和田湖周辺岩石の重金属調査を行い、周辺土壌や底質に高濃

度の重金属が含まれている原因は構成している岩石以外に要因があること、鉛山川（釜の沢と同じ）や銀山川の影響は休屋前面の底質にまで及んでいること等を指摘している。

さらに野田<sup>23)</sup>は、湖底9地点に5～7cm堆積している底質を柱状採泥して重金属の存在形態を調査し、Cu, Zn, Pbは主に水酸化物、酸化物や酸可溶性硫化物として存在していること、また、大川岱前面や宇樽部前面を除く湖底に、鉛山川、銀山川からの重金属がZn/Cu = 3～8で堆積しており、特に銀山川沖では上記の重金属の他にもPb, Asが高いことを報告している。

林ら<sup>24)</sup>は、十和田湖の底質の重金属調査を行い、<sup>210</sup>Pbでの堆積物層の年代測定から、堆積速度を0.046～0.049cm/年であることを報告している。これは底質の密度を土の2.0と同じと仮定すると、湖底での年間堆積量は約6万トンに相当する。例えば、前章で推定した1970年当時のZn, Cuの沈殿量約210トン、38トンをこれで割ると各々0.35mg/g、0.063mg/gとなり、これらは林らの堆積物の分析結果とオーダー的には一致する。野田の分析結果では、鉛山川や銀山川の影響を受けない大川岱沖の底質の値に類似している。

また、林らは、湖底にある堆積物の重金属の地層分布から、地層の上から深さ17cmまでのZn/Cuは、10から5に減少し、ほぼ5ぐらいで安定することを報告している。

前章での水酸化物としての沈殿量の推定結果からは、Zn/Cu ≒ 5.5であり、一方、鉛山鉾山から未処理の鉾石が流入され堆積したもののZn/Cu ≒ 4.3と、ほぼ類似しておりその由来の判別は今後の調査を待ちたい。また、前述したように中湖の深部はpHが低い<sup>1), 7), 12)</sup>水酸化物としては沈殿しないだろうと考えられる。

なお、Zn, Cu以外のCd, Pb濃度については、いずれも湖水濃度がN・Dに近い<sup>1)</sup>ため、比較を省略した。

## 5. 下水道処理による水質の浄化効果の推定

1968年の7月から3ヶ月間、青森県による十和田湖休屋地区での、湖水、排水路、浄化槽等の水質調査が行なわれた<sup>25)</sup>。それによると、COD濃度の最高値は、休屋前面31地点中で5.8mg/l、排水経路19ヶ所中で316mg/lと高く、また調査した浄化槽12施設中、改善要請をしたものは11施設あった。「現況の汚物に近

い有色の排水が間歇的にも排水路から排出され、それが一旦湖岸の砂場に滞留し異臭を放ち（中略）…。十和田湖休屋地区の水質汚濁を防止するには汚水の集合処理施設の設置以外には解決の方途を見出すことは困難である」と総括されている。

当時、旅館業法では、修学旅行は例外扱いで、客室定員の2～3倍を詰め込むことが許容されていたことから、春、秋の観光客がピーク時での浄化槽の汚濁負荷量は処理能力をはるかにオーバーし、未処理で湖に放流されていた。

青森県は1977年1月に水質汚濁防止法に基づく上乗せ基準を改正し、湖に排水する旅館業に対して規制を強化したが、規制対象が50トン/日以上のため、湖畔にある大小97の旅館・民宿施設のうち1件だけが規制の対象で、あとは規制の対象外であったため規制の効果は上がらなかった。

さらに、1984年10月から十和田湖周辺の事業所等で新・改増設する施設に対しては、し尿浄化槽からの放流を地下浸透方式にするよう、規模別に生物化学的酸素要求量(BOD)の排水指導基準を設定したが焼け石に水であった。

十和田湖では、待望の公共下水道事業が1991年4月より一部供用開始され、すでに10年を経過したが、今後、下水道の完成までに十和田湖の水質がどのように浄化されていくだろうか。

### 5.1 十和田湖の水質変化

本報では、前章で重金属濃度を算定した数理モデルを応用し、下水道化による将来の浄化効果の推定を行った。<sup>4), 5)</sup>

図6に、青森・秋田両県が1972年から共同で調査してきた十和田湖のCOD濃度（75%値）の推移を示す。なお環境基準の当てはめ地点は、定点9地点のうち、湖心、子の口の2地点である。

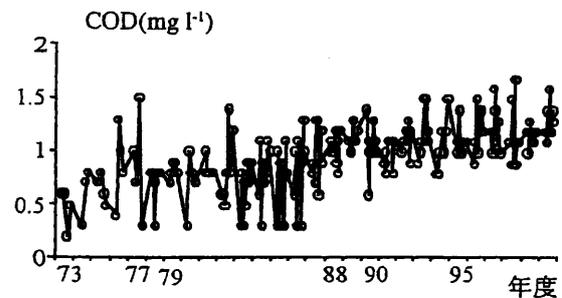


図6 十和田湖のCOD濃度の推移<sup>6)</sup>

湖水のCOD濃度は、1971年に定められた環境基準のAA類型の1.0mg/lを1986年から超えており、2001年度実績で1.4mg/l、透明度は7.0mと1991年の公共下水道の供用開始以降も改善されずに、横ばいを続けている。

## 5.2 数値モデルのあてはめ

十和田湖での最近の9定点でのCOD濃度は、停滞期には0 mよりも5 m下層の方が約0.2mg/l高い現象が見られるものの、おおむね0.9~1.2mg/l前後で、明瞭な季節変化や深度による大きな差は見られない<sup>12)</sup>。そこで、湖畔に面している施設から湖に放流される汚水、流入河川、青撫からの“もどし水”等のCOD負荷量が1年間で湖中に拡散され、一部は沈降し、湖水全体に均一に混合されたのち、2ヶ所の取水口から湖外へ流出される数値モデルを図7のように表わした。

ここで容積Vの湖水に対する単位時間あたりのCOD負荷量の収支は、次式の微分方程式で示される。

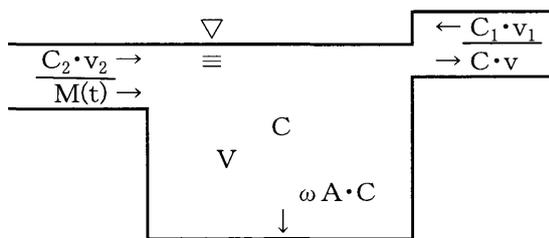


図7 十和田湖のCOD濃度の数値モデル

$$V \frac{dC}{dt} = M(t) + \sum C_i v_i - C(v + \omega A) \quad (4)$$

なお、ここで使用する記号は前章での数値モデルと基本的に変わらないが、(4)式中の記号は以下の意味をもつ。

$M(t)$ : 十和田湖畔の施設等から湖に放流されるCOD負荷量 (トン/年)

$C$ :  $t$  時間後の十和田湖のCOD濃度 (mg/l)

$C_1$ : 青撫からの“もどし水”のCOD濃度 (mg/l)

$v_1$ : “ ” 水量 (トン/年)

$C_2$ : 降雨、流入河川からのCOD濃度 (mg/l)

$v_2$ : “ ” 流入水量 (トン/年)

ここで、

$$M(t) = M_0 (1 + \alpha t) \quad (5)$$

とすると、(4)式の $M(t) + C_1 \cdot v_1 + C_2 \cdot v_2$ は、 $\beta = (C_1 \cdot v_1 + C_2 \cdot v_2) / M_0$ とすれば、 $M(t) = M_0 [(1 + \alpha t) + \beta]$ と変形でき、(4)式はCに関して一階一次線形微分方程式

となるから、(4)式を積分し、 $t=0$ のときの初期条件として、

$$C = C_0, (v + \omega A) / V = E$$

を代入すると(4)式は、

$$C = C_0 \cdot e^{-Et} + \frac{M_0}{v + \omega A} \cdot \left[ \alpha t + \left( 1 + \beta - \frac{\alpha}{E} \right) \cdot (1 - e^{-Et}) \right] \quad (6)$$

となり、 $\alpha = 0$ 、 $\omega = 0$ の場合に(6)式の解は、前章の(2)~(3)式の解と一致する。

### 5.2.1 現在の湖水濃度1.2mg/lへのあてはめ

図6の湖水濃度Cは、ここ数年1.2mg/lとほぼ一定値を示しているの、(4)式において、 $dC/dt = 0$ 。(6)式で $t \rightarrow \infty$ とし、 $v = 2.2 \times 10^8$ トン/年、 $C = 1.2$ mg/l、 $\omega = 0$ を当てはめ、COD負荷量の $M + C_1 \cdot v_1 + C_2 \cdot v_2$ を逆算すると260トン/年になる。つまり、湖中にはすでに5,000トンのCOD負荷量が入っており、さらに、 $M$ 、 $C_1 \cdot v_1$ 、 $C_2 \cdot v_2$ として毎年約260トンが流入し、 $C \cdot v$ として毎年約260トンが流出しながら現在のCOD濃度=1.2mg/lを保っていることになる。

以下、計算から逆算したCOD負荷量の $M$ 、 $C_1 \cdot v_1$ 、 $C_2 \cdot v_2$ 等の妥当な値を検討する。

#### Mについて:

岡ら<sup>26)</sup>、鈴木ら<sup>27)</sup>は、十和田保健所での長年にわたる十和田湖畔の浄化槽のBOD検査結果に基づいて、浄化槽台帳、事業所での生活雑排水のCODへの換算値(COD値/BOD値 $\approx 0.63$ )等を用い、青森・秋田両県の約120の浄化槽施設(処理能力約20,000人規模)から湖畔に流入するMを約29トン/年と算定した。

根岸ら<sup>28)</sup>は、十和田湖畔の青森県側における水質汚濁防止法対象事業場の排水調査から、青森県側から湖畔に流入するMを約21トン/年と推定した。

一方、十和田湖の公共下水道の排水処理を行っている十和田湖浄化センターにおける2001年度の下処理実績では、下水道への切替えが青森県89%(施設数比)、秋田県68%と完了していない状態での下水処理実績量が40万トン/年で、BOD平均濃度は140mg/lであった。

これから、CODへ換算すると約50トン/年と算定される。

$C_1v_1$ について;

東北緑化環境保全(株)<sup>10)</sup>では1988～1990年の負荷量調査から60トン/年、三上ら<sup>6)</sup>の1999～2000年の調査では、1日のスポット調査から年換算値として187トン/年と推定している。

$C_2v_2$ について;

十和田湖への流入河川からのCOD負荷量の調査は天候により大きく変動するため算定がむずかしいが、三上ら<sup>6)</sup>は1999～2000年の詳細な負荷量調査で、降水からの負荷量を陸域、湖面で各々311トン/年、281トン/年、晴天時の流入河川からの負荷量を100トン/年と算定している。しかし、“もどし水”の年換算値が過大なこと、テポジットゲージ等で捕集された降水量がアメダス等の雨量より約1.5倍多いこと、また、検体が付近の粉塵の影響や、捕集中に藻が発生しなかったか等の吟味を要する。

この他、十和田湖へ流入する総COD汚濁負荷量の算定は、東北緑化環境保全(株)<sup>10)</sup>の373トン/年があるが、報告書の中で集水域の溪流からの寄与を205トン/年と見積もっており、積算の詳細は不明である。

### 5.2.2 下水道化による浄化効果の推定

下水道化による湖水の浄化効果を推定するために、 $M$ 、 $C_1 \cdot v_1$ 、 $C_2 \cdot v_2$ の組合わせを、 $M$ の違いと1991年以後 $M$ をカットした場合等4つの例に区分し、表9のように分類した。なお、水温躍層により湖水の上下混合が押さえられた効果として、 $V = V/2$ とした場合をCASE 3)で考慮した。

表9  $M$ 、 $C_1 \cdot v_1$ 、 $C_2 \cdot v_2$  (t/年)

CASE	M	$C_1 \cdot v_1 + C_2 \cdot v_2$
1)	30	230
2)	90	170
3)	90	170 (V=V/2)
4)	0	0(蒸留水だけで希釈)

比較のために、もし下水道化されなかった場合として、旅館業等からのCOD負荷量が観光客の入込数に比例すると仮定し、 $M = M(t)$ を数量化して、1980～1990年までの実績数をもとに10年間で約1.35倍の観光客の増加を見ると、

$$M(t) = M_0(1 + \alpha t) \text{ では } \alpha = 0.035 \text{ となる。}$$

これらを基に、さらに3つのCASE 1)～3)M(t)を表10に示す。これらの計算結果を表11にのせ、図8にグラフ表示する<sup>4), 5)</sup>。

その結果、仮に下水道化されなかった場合を想定したCASE 2) M(t)では、湖水のCOD濃度が20年後(2010年頃)には1.28mg/lと増加することが推定されるが、下水道化の効果が期待される例えばCASE 2)では、湖水のCOD濃度が1.0mg/l以下になるのは、切替えから少なくとも約20年後(2010年頃)と推定される。なお、参考までに、現実では不可能であるが、湖へ流入するすべての負荷量を削減した場合(雨水も蒸留して浄化する)のCASE 4)では4～5年で環境基準をクリアする。

### 5.3 なぜ、下水道化の効果がすぐ現れないのか

十和田湖畔の公共下水道が1991年に一部供用開始してから、既に11年が経過したが、切替え前と比較して大きな改善はみられない。その原因について、次の3つの場合について考察した。

表10  $M_0$ 、 $\alpha$ 、 $\beta$ の組み合わせ

CASE	$M_0$	$\alpha$	$\beta$
1) M(t)	30.	0.035	7.67
2) M(t)	90.	0.035	1.89
3) M(t)	90.	0.035	1.89 (V=V/2)

表11 下水道化後の濃度の変化

経年	単位(mg/l)			
	CASE 1)	2)	3)	4)
1	1.19	1.18	1.18	1.14
5	1.17	1.11	1.04	0.93
10	1.14	1.03	0.94	0.71
20	1.11	0.92	0.82	0.42
30	1.09	0.86	0.79	0.25
40	1.08	0.82	0.78	0.15
50	1.07	0.80	0.77	0.09

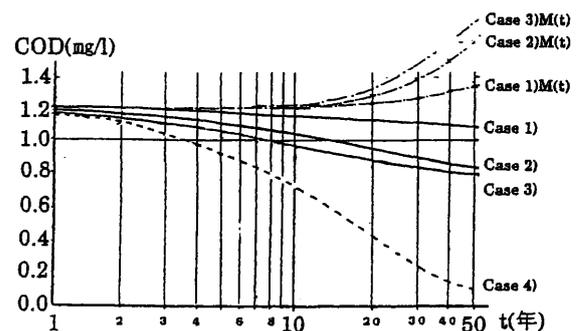


図8 下水道化による湖水の浄化効果の推定

#### 5.3.1 下水道への切替えの遅れの影響

1991年から下水道化された後のCODの削減効果を、前章では翌年の1992年から $M = 0$ と推定したが、実際にはその後5年経過した1997年でも切替え率は約

70%と尾を引き、10年経た2001年度実績でもまだ両県あわせて約80%と、工事の遅れ等から接続には時間を要している。

そこで、(5)式での $M_0$ を

$$M(t) = M_0(e^{mt} + \beta) \quad (7)$$

と減衰関数に置き換え、(4)式を積分すると次式になる。

$$C(t) = C_0 \cdot e^{-Et} + \frac{M_0}{v + \omega A} \left[ \frac{E}{m + E} (e^{mt} - e^{-Et}) + \beta (1 - e^{-Et}) \right] \quad (8)$$

(7)式に、5年間は切替え工事に時間がかかるとして実際の減衰曲線を当てはめ、 $M_0=90$ 、 $\beta=170/90$ 、 $m=-1.00$ 、 $\omega=0$ 、とし、CASE 2”として(8)式よりCを計算して、CASE 2)と比較し、表12に示す。

表12 下水道への切替えの湖水濃度の違い  
単位 (ppm)

経年	CASE 2)	CASE 2”
0	1.20	1.20
5	1.11	1.12
10	1.03	1.04
20	0.92	0.93
30	0.86	0.87
40	0.82	0.83
50	0.80	0.80

この結果、5年間の下水道への切替え工事の遅れは、2～3年後までは影響するが、それ以降の濃度変化にはほとんど影響しないことが分かった。

### 5.3.2 Zn濃度の減衰との違い

前章での、Zn濃度の石灰中和による減衰効果は、湖水にあったZn総量340トンに対し削減量が約40トンと減衰率が1/9だった。一方、COD濃度の場合、すでに湖水にCOD負荷量が約5,000トン入っているため、下水道化による削減量を例えば、CASE 2)の約90トンとしても減衰率が1/60と、Znよりも約6倍少ないことから、水質の改善効果がすぐには現れにくいことが判明した。

### 5.3.3 もう1つのバランス

1995～1997年まで、青森県と国立環境研究所は共同研究「十和田湖水質汚濁機構解明調査」を行い、湖水の100mまでの8層の細密な湖水のプランクトン調査と十和田湖への流入負荷量調査等<sup>29)</sup>を行なった。

その結果、十和田湖での近年の透明度の低下とヒメマス漁の不振の原因が特定され、湖中のプランクトンの増殖と透明度に深い関係があることが初めて明らかにされた。しかし、湖水のCOD濃度の成因はなかなか説明がつけがたい。

三上ら<sup>6)</sup>、東北緑化環境保全<sup>10)</sup>はCODの総負荷量を各々387トン/年、373トン/年と大きい値を推定している。

(6)式において、沈降の影響は、流出水量 $v$ をさらに $\omega A$ だけ増加するのと同じ効果をしているから、CODの総負荷量260トン/年を逆算したときの式は、

$$1.2 \times 10^6 \div (\Sigma m - m') / (v + \omega A) \quad (9)$$

と置き換えることが可能である。

ここで  $\Sigma m$ : COD総負荷量 (トン/年)

$m'$ : 下水道効果, “もどし水”対策, 魚類の湖外への搬出等からのCOD削減量 (トン/年)

$\omega A$ : 湖底への沈降効果 (トン/年)

とすると、COD総負荷量は沈殿量とのバランスで、必ずしも逆算した260トン/年と固定しなくてもいい。

最近、三上ら<sup>30)</sup>は、湖底の砂やシルト、粘土の分析から、総窒素量T-Nは休屋沖のシルト成分に多く水生生物の枯死体由来し、それはクロロフィルaの分解物の分布とも一致するが、湖内43地点での底質と植物プランクトンのC:N:P比は一致せず、したがって沈殿物は、外来性の無機物の流入物であることを報告している。従って、今後、湖底でのCOD負荷量に起因する沈殿現象が確認されれば、それに見合うだけの沈殿量 $\omega A \cdot C$ の数量化が可能となる。

## 6. ま と め

本報で得られたおもな結果は以下のとおりである。

### 十和田湖の水収支

1) 最近の東北電力<sup>株</sup>のデータでは、流入水量は $3.5 \times 10^8$ トン/年、流出水量は $2.2 \times 10^8$ トン/年 (うち、青撫から $1.6 \times 10^8$ トン/年、子の口から $5.0 \times 10^7$ トン/年)、青撫からの“もどし水”量は $2.2 \times 10^7$ トン/年程度と推察される。

しかし、1973年に森田が報告した流入水量は1.4倍、流出水量は2.2倍 (うち、青撫から2.4倍、子の口から1.2倍)、青撫からの“もどし水”量は8.2倍と、最近の東北電力<sup>株</sup>のデータよりは、いずれも大

きかった。

当時と最近の十和田発電所の年間発電量には大幅な変化は見られず、集計当時は降水量が多い年次だったことを考慮しても、この大きな水収支の違いは不明である。

- 2) 十和田湖の滞留時間は、いままで8.5年<sup>1)</sup>、<sup>30)</sup>とされているが、最近の東北電力(株)の“流入水量”で計算しなおすと、12年となり、今までの定説よりも長くなる。

#### 鉾山廃水と十和田湖の水質

- 1) 十和田湖の重金属濃度は、1952年からの鉛山鉾山の操業に伴い汚染が進行し、1970年当時は、例えばZnの重金属濃度は0.084mg/lと高かったが、森田が調査・指摘したように1970年以降は鉛山鉾山の廃水が中和処理されていることにより、現在は鉾山操業前(1952年)の0.02mg/lレベルまで回復した。
- 2) 十和田湖に関するZn、Cuの重金属濃度を最近の水収支を基にして数理モデルで計算しなおすと、Znの沈降速度は3.7m/年程度、CuはZnの6倍の沈降速度とともに一部湖中で沈殿していることが算定された。ただし、中湖の深部はpHが低いため、水酸化物としては沈殿しないだろうと考えられる。しかし、湖中での沈殿物と当時の鉛山鉾山や十和田鉾山からの未処理の粗鋼粒が湖底に流入した沈殿物との判別は今後の調査を待たざるをえない。
- 3) 鉛山鉾山の廃水の中和処理は、休廃止鉾山のため、既存の関係法令での排水規制の摘要は受けないが、現在は、経済産業省の関東東北鉾山保安監督部のもとで、既存の施設に準じた指導をうけ、廃水の中和処理を継続し放流濃度の自己管理をしている。
- 4) 十和田湖のZn濃度が他の湖と比較して高いのは、西岸にある鉛山鉾山の廃水の処理水と、旧十和田鉾山の廃坑からの廃水中のZn濃度がともに0.4~0.5mg/l程度あり現在も湖に流入されている事に由来している。Zn以外の湖水のCu、Cd、Pb等の重金属濃度は、いずれも1952年当時の水質と同程度である。
- 5) 今後も、湖底への重金属の沈降や、逆に底質から湖水への重金属の溶出など、湖底での溶存酸素DOの飽和率の測定と重金属収支の確認調査等が必要である。

#### 下水道処理による水質の浄化効果の推定

- 1) 水収支と汚濁負荷量、湖水のCOD濃度1.2mg/lを

基に数理モデルをあてはめ、湖水に毎年流入されている汚濁負荷量を約260トン/年と算定した。

負荷量の内訳は、下水道関係約50トン/年(19%)、“もどし水”関係約60トン/年(23%)、残量分とし、流入河川、降雨、湖内での内部生産等からの約150トン/年(58%)が推定される。

しかし、流入河川や降雨からの推定量が数倍多い報告<sup>6)</sup>、<sup>10)</sup>もあり、湖底への沈降効果等の確認が必要である。

- 2) 1991年から一部下水道化されたが、下水道でのCOD負荷量が実績でまだ約40トン程度と少ないので、湖水のCOD濃度はすぐには改善されない。下水道への切替えが完了したとしても、湖水のCOD濃度が1.0mg/l以下になるまでには切替え(1991年)から早くても、20年(2010年頃)ぐらいはかかるだろうと推定される。
- 3) 東北電力(株)の青撫の“もどし水”からのCOD負荷量は、すでに下水道化されてきた湖畔の旅館等からのCOD削減量にもほぼ匹敵する量であり、汚濁寄与率が大きいので浄化対策が急がれる。

## 7. 今後の検討事項

本報で得られた知見を基に今後、湖水のCOD削減対策として以下のことがらをさらに検討する必要がある。

### 1) “もどし水”対策

東北緑化環境保全<sup>10)</sup>は、“もどし水”による湖へのCOD負荷量を60トン/年(16%)と見積もっているが、総負荷量の算定に、「集水域の溪流」分として205トン/年をあげているため、“もどし水”による汚染寄与率を低く評価している。1986年には取水口前面のいままで流入した土砂の浚渫が行なわれたが、湖へ“もどす”前に沈砂池を設けるなど、COD負荷量の削減対策が急がれる。あわせて、“もどし水”からのCODの構成成分や栄養塩濃度の分析等も継続して必要である。

### 2) 湖流域からの新たな汚濁流入防止策

湖流域で新たな治山工事・河川改修工事等を行う場合、水質汚濁防止法の現行法を上回る排水上乘せ基準の設定と「十和田湖環境保全会議」による定期的な監視・パトロールが必要である。

さらに、休廃止鉾山の廃水、将来の温泉掘削からの

排水等の下水道への切替え等も視点に入れるべきであろう。

### 3) CODと栄養塩類の機構解析

湖水では、外部から流入されたCODと、栄養塩類の流入によって内部生産されたCODが同一検体として分析されるが、今後の浄化対策としては内部生産量の割合も推定する必要がある。

根岸ら<sup>28)</sup>は、湖畔の青森県側の水質汚濁防止法対象施設からの全窒素量T-Nを4トン/年、全リン量T-Pを0.6トン/年と算定した。一方、三上ら<sup>14), 6)</sup>は、十和田湖のCODの大部分が溶解性CODであると報告し、湖に流入する全窒素量T-Nを89トン/年、全リン量T-Pを4トン/年と算定した。

これらを基に植物プランクトンの生消とCOD濃度との関係の連立微分方程式を解く必要があるが、とりあえず十和田湖では、大気中(降水)からの窒素と、河川から流入されるリンの負荷量から湖内での植物プランクトンの増殖を推定する数理モデル<sup>31)</sup>を活用し、COD濃度との関係を数量化する必要がある。なお、1993年6月には中湖での窒素濃度が0.32mg/lと異常に高く、十和田湖での初の淡水赤潮(?)現象が観測されている。

### 4) 降水からのCOD負荷量の算定

三上ら<sup>6)</sup>は、独自に算定したCOD総負荷量387トン/年のうち湖面への降水による分を281トン/年(73%)と大きく見積もっている。これは、デポジットゲージによる1ヵ月毎の降水のCOD濃度分析結果によるもので、十和田湖周辺2地点でのCOD負荷量を4,580~4,620kg/km<sup>2</sup>/年と推定しており、他には、小川原湖周辺1地点<sup>32)</sup>での2,388kg/km<sup>2</sup>/年がある。

東北緑化環境保全(株)<sup>10)</sup>は、独自に算定したCOD総負荷量373トン/年のうち、78トン/年(21%)を降水からの影響と見積もっている。

これらは、降水からの占める割合が予想以上に大きいことから、今後、詳細な検討を要す。

### 5) 漁獲による湖からのリン等の除去効果

帰山<sup>33)</sup>は、十和田湖におけるヒメマスの親魚の環境収容力は約8,000尾、最大放流数は約160万尾、支笏湖のそれは約4,000尾、最大放流数は約140万尾、と算定している。三上ら<sup>6)</sup>は、湖からのリンの除去効果を試算しているが、最近の漁獲量約44トン/年に相当するCOD削減量の算定が望まれる。

### 6) 湖水の汚染評価

現在の湖水の汚染評価には、COD濃度が用いられているが、汚染度の低い湖の汚濁を計る指標としては、今後、有機炭素TOCや難分解性の溶存有機物DOC等での評価も加えるべきである。

## 8. おわりに

1987年11月に関係機関が集まり「十和田湖環境保全会議」が発足し、「十和田湖憲章」が制定された。その中には“未来の子らに、美しい湖を残そう”と謳われている。それを受けて2001年8月、「十和田湖水質・生態系改善行動指針」が両県で初めてまとめられ、具体的な水質改善目標値を1985年以前のレベルのCOD(75%値)1.0mg/l以下、透明度12m以下とすることを定めている。<sup>3)</sup>

この目標を達成させる上で、さらに次の事項に配慮が必要である。

1) 十和田湖の青森・秋田両県での県境未設定問題は、懸案のまま、約100年もの永い間棚上げになったままである。特に1965年からは毎年1億円を越す地方交付税の配分が宙に浮いたままになっているが、むしろ国内初の“青森・秋田両県が共有する湖”と位置付け直し、両県で交付金を活用して十和田湖の共同管理を提唱すべき時代を迎えている。もはや、利権の主張のみではなく、次世代に継承していく資源保持のために立上がる時がいま、我々の目の前に示されている。

2) 三上ら<sup>6)</sup>は、ヒメマス等の漁獲による湖からのリンの除去効果を報告している。一方、1969年、カナダでは貧栄養湖に対して、継続的に窒素・リンを加え、植物プランクトンを増加させ湖沼の生産力を挙げる施肥実験を開始し成功している例<sup>34)</sup>や、支笏湖でもヒメマスの漁獲量確保の目的で過去2回、硫酸、過リン酸石灰の肥料を投入し効果があったと言われている。<sup>35)</sup>

しかし、十和田湖に関しては、単に漁獲量の増産のみを目的にした安易な魚の導入や、植物プランクトンを増殖するための無定量なリン酸肥料の施肥、また汚濁の改善のための特定微生物菌類の大量投入などは、今後の生態系のバランスを大きく崩す恐れがあり、実験での失敗は許されないだけに、十分な注意を要する。

3) 将来、湖の利水、養殖等を変更するときには、関

係機関での十分な協議のもとで事前に湖水の環境アセスメントが欠かせないし、当然、公開されなければならない。

例えば、洞爺湖や、田沢湖、猪苗代湖等では、いずれも湖に酸性水を導入した後で生態系に大きな異変をきたしてきた<sup>1)</sup>。十和田湖においても、1958年の水力発電の開発計画時には、大湯川及び浅瀬石川よりの導入する計画<sup>7), 36)</sup>もあった。

閉鎖性水域の貧栄養化の十和田湖にとっては、むしろ、現在の“環境収容力”に見合った漁獲量の維持に努めるべきあり、今後、十和田湖の観光事業との連絡調整が必要であり、開かれた場での情報公開が望まれる。

4) 十和田湖は、奥入瀬川溪流の銚子大滝（高さ7m、巾約20m）によって、魚の遡上がはばまれ、昔は魚が全く住んでいなかったといわれている。そこに約100年前、支笏湖からヒメマスが移植された。いまその支笏湖では、湖畔に下水道が完備され、2001年度実績でCOD濃度0.8mg/lを保全しているという。観光と水産資源と環境保全の維持という、共通の問題をかかえるヒメマスの古里・支笏湖の関係機関とのシンポジウムを、「十和田湖環境保全会議」の主催で実現することを提唱したい。

## 謝 辞

関係資料の提供にご協力をいただいた東北電力(株)青森支店、東北緑化環境保全(株)、鉛山鉱山(株)、十和田湖浄化センター、北海道生活部環境室、秋田県生活環境文化政策課、青森県環境生活部環境政策課、さらに、ご指導いただいた故谷澤平八郎北海道大学衛生工学科助教授に深謝いたします。

## 引用文献

- 1) 森田良美：鉱業活動と水質 十和田湖の水質変化, 共立出版 水文学講座 第9巻 12-22, 1973.
- 2) (財)自然公園美化管理財団：十和田—自然観察の手引き, 1-26, 1983.
- 3) 青森・秋田県：十和田湖水質・生態系改善行動指針, 1-12, 2001.
- 4) 吉田 毅, 他：十和田湖の汚濁防止対策(3) — 下水道化による浄化効果の推定, 「あすをひらく」平成5年度環境保健部職員研究発表会 第28集, 68-69, 1994.

- 5) 吉田 毅, 他：十和田湖の汚濁防止対策(4) — 水質汚濁モデルでのCOD濃度の推定, 「あすをひらく」平成6年度環境保健部職員研究発表会 第29集, 76-77, 1995.
- 6) 三上 一, 他：十和田湖の負荷量調査(1999~2000年), 青森県環境保健センター研究報告 11 21-36, 2000.
- 7) 青森県：十和田湖環境調査研究報告書, 1-98, 1958.
- 8) 工藤 健, 他：十和田湖の水質汚濁に関する考察, 青森県公害センター所報第9号, 48-57, 1989.
- 9) 青森県：十和田湖水質汚濁機構解明調査, 1-66, 1988.
- 10) 東北緑化環境保全株式会社：十和田湖発電所逆流水拡散調査報告書(要約版), 1-15, 平成13年2月.
- 11) 塩原鉄郎：火山活動がもたらした豊かな水 八甲田・十和田, (株)青森銀行, 1996.
- 12) 庄司博光, 他：十和田湖の水環境—垂直構造, 青森県公害センター所報 第7号, 90-94, 1985.
- 13) 原子 昭, 他：微量砒素の自然環境下における形態変化例, 青森県公害センター所報第7号, 110-112, 1985.
- 14) 三上 一, 他：十和田湖の水位と流入河川の負荷量(1998), 国立環境研究所研究報告146, 117-125, 1999.
- 15) 青森県：平成12年公共用水域及び地下水の水質測定結果, 149-153, 354-357, 2002.
- 16) 吉田 毅, 他：十和田湖の汚濁防止対策(5) — Zn濃度を用いた水質汚濁モデルの検証, 「あすをひらく」平成7年度環境保健部職員研究発表会 第30集, 60-61, 1996.
- 17) 吉田 毅, 他：十和田湖の汚濁防止対策(6) — 重金属の沈殿現象の検証, 「あすをひらく」平成8年度環境保健部職員研究発表会 第31集, 66-67, 1997.
- 18) 中島 淳, 他：リン負荷モデルの検討と印旛沼への適用, 水質汚濁研究 第11巻 第3号 169-177, 1988.
- 19) 坂田康一, 他：阿寒湖の富栄養化—物質の鉛直輸送, 北海道公害防止研究所報 第14号 47-56, 1987.
- 20) 高橋克雄, 他：十和田湖に関する調査(第2報),

- 青森県公害センター所報 第2号 96-102, 1976.
- 21) 関野正義, 他: 十和田湖に関する調査(第3報, 青森県公害センター所報 第3号 118-125, 1977.
- 22) 野田正志: 十和田湖の底質と周辺土壌及び岩石の関連性, 青森県公害センター所報 第6号 57-62, 1983.
- 23) 野田正志: 十和田湖柱状状態堆積の重金属濃度及びその形態について, 青森県公害センター所報 第6号105-112, 1983.
- 24) 林 義孝, 他: 十和田湖資源対策調査-「底質調査, 昭和59年度青森県内水面水産試験場事業概要, 153-177, 1986.
- 25) 青森県衛生部: 十和田湖休屋地区前面水域水質汚濁調査報告, 1-79, 昭和43年.
- 26) 岡 典子, 他: 十和田湖の汚濁防止対策-浄化槽法に基づくこれまでの監視指導と今後の方策について, 「あすをひらく」平成3年度環境保健部職員研究発表会 第26集, 48-49, 1992.
- 27) 鈴木稲子, 他: 十和田湖の汚濁防止対策(2)-湖畔からのCOD排出負荷量の算定, 「あすをひらく」平成5年度環境保健部職員研究発表会 第28集, 66-67, 1994.
- 28) 根岸勝信, 他: 十和田湖周辺事業場の排水調査, 青森県公害センター所報 8 98-104, 1987.
- 29) 高村典子編: 十和田湖の生態系管理にむけて, II, 国立環境研究所研究報告146-1-218, 1999, 167-1-199, 2001.
- 30) 三上 一, 他: 粒径組成とC, N, Pからみた十和田湖の底質環境(1999年), 青森県環境保健センター研究報告12 21-30, 2001.
- 31) 須藤隆一: 窒素, リンに由来する内部生産の機構と負荷削減効果, 資源環境対策 Vol.38 No.9 854-859, 2002.
- 32) 手代森光仁, 他: 大気降水物の性状と湖沼の富栄養化, 青森県公害センター所報 第7号 101-104, 1985.
- 33) 埴山雅秀: 十和田湖のヒメマス資源管理, 国立環境研究所報告書 第146号 36-40, 1999.
- 34) 安野正之: 湖沼汚染と生物相の変化, 生活と環境 Vol.27 No.3 19-23, 1982.
- 35) 今田和史: 支笏湖の水質環境と漁業の変遷, 国立環境研究所研究報告 第153号 70-82, 2000.
- 36) 十和田電源開発研究会: 十和田電源開発に関する基礎調査, 1-66, 昭和28年.

#### Abstract

## Perspectives for Water Quality Change Due to Mining Wastewater and Sewage Treatment in Lake Towada

Tsuyoshi Yoshida and Osamu Araseki

Future heavy metal and COD concentrations were predicted from the water balance in Lake Towada using a mathematical model. The Zn and Cu balance showed that some pollutants precipitated on the bed (excluding the deep region of Nakako). Yearly pollutant load from surrounding areas was estimated at about 260 tons/year from the COD concentration of the lake water of 1.2 mg/l; 50 tons/year from sewage (19%), 60 tons/year from "return water" (23%) and 150 tons/year from the remainder (58%). Sewerage systems have been introduced in some areas since 1991 but did not result in immediate improvement of the lake water COD. It will probably take at least 20 years (2010) from the introduction of the sewerage systems (1991) to attain a COD level of 1.0 mg/l or less. There is an urgent need to purify the "return water" from Aobuna of Tohoku Electric Power Co., Inc. which is comparable to the COD load from sewerage systems. Retention time in Lake Towada has been estimated at 12 years rather than the conventional 8.5 years from recent measurement of water balance.

Key words: Lake Towada, mining activity, COD runoff loads, numerical model, sewage disposal

# 病原微生物検出情報の週報構築

大友 良光

Construction of infectious agents surveillance weekly report

食中毒起因病原微生物による下痢症患者数の実態把握と患者発生に関する環境要因との関連を明らかにするために、青森県内の10医療機関を定点として週単位でサルモネラ属菌、腸炎ビブリオ、カンピロバクター・ジェジュニー／コリーによる感染者の監視システムを構築した。

Key words: Food poisoning, Infectious agents, Weekly report, Surveillance

## 1. はじめに

わが国の食中毒発生状況は、食品衛生法に基づく発生届出により把握されているが、1996年以降、患者一人の届出数が急増し、これまでの食中毒における疫学統計の連続性と信頼性に大きな問題が生じている<sup>1)</sup>。更に、1998年3月に川崎市で発生した乾燥イカ菓子による散在的集団発生（diffuse outbreak）とも言うべき全国規模の食中毒事件<sup>2)</sup>を教訓に、届出のない患者の監視体制整備の重要性が指摘されている。そこで、週単位で主な食中毒起因微生物であるサルモネラ属菌、腸炎ビブリオ、カンピロバクター・ジェジュニー／コリーによる感染者の監視システムを構築したので報告する。

## 2. 方法

### 2.1 定点医療機関

細菌検査施設を有する医療機関のうち、地域別に、青森県立中央病院、青森市医師会立臨床検査センター、弘前市立市民病院、弘前市医師会成人病検診センター、八戸市立市民病院、八戸市医師会臨床検査センター、五所川原西北中央病院、十和田市立中央病院、むつ総合病院、公立野辺地病院の10医療機関を定点とした。本事業開始に先立ち、各医療機関には、本システムによるデータ収集と食中毒届出との相違について十分理解を得ながら、検査者の業務の支障にならない範囲で実施することとした。

### 2.2 分離菌及び患者データ

各医療機関からは一定の様式により、毎週木曜日の

昼までに、前週の日～土曜日までに検査受付（依頼）のあった下痢患者から分離された菌種と血清型（サルモネラ属菌のみ）データ、検査依頼月日、患者の性別、年齢、入院別データをFAXにより受信した。なお、腸炎ビブリオについては、各医療機関での初発から第3例目までの患者由来菌株の分与を受けて詳細な血清型別と病原性検査を実施し、サルモネラ属菌では、まとまった患者の発生、あるいは通常見られない血清型が出現した場合に分離菌株の送付を受けて詳細な血清型別を実施した。

### 2.3 環境データ

青森市の平均気温（1時間毎の気温の1日平均）と平均降水量、並びにむつ湾の東湾の海面下1mにおける午前9時の海水温と塩分濃度データを収集した。平均気温と平均降水量のデータは青森地方気象台から毎週月曜日にインターネットで受信し（当初は電話受信）、海域データ（海水温、塩分濃度）は青森県水産増殖センターから毎日午前中にFAZX受信した。

### 2.4 データ入力、解析、並びに解析情報提供

毎週木曜日に、作成したソフトのメインメニューに沿って、患者データと環境データを入力し、翌週の金曜日に1週間分のデータをAccessからExcel上にエクスポートし、各種統計処理を実施し、カラー印刷による「週報」（図）を作成した。また、当該週の医療機関毎の「病原体別患者レポート」、「環境情報レポート」を出力し、そのコピーを協力医療機関に郵送した。「週報」は県の関係機関に郵送するとともに、県庁ホームページに掲載した（<http://www.pref.aomori.jp/>）にアクセスし、組織別→環境生活部→環境保健センター→青森

県病原微生物検出情報を順にクリック)。作成したソフトにはマスターメンテナンスメニューを設け、定点医療機関や病原物質の追加等も容易に出来るものとした。

週報には本年及び前年のサルモネラ属菌による週別、地域別患者数の他、腸炎ビブリオ、カンピロバクター・ジェジュニー／コリーについても同様にグラフ化して示してあるが、腸炎ビブリオについては平均気温と海水温もプロットしている。またミニ情報として、その週の特徴等並びに各病原体検出数の累積を前年と本年に分けて記載している。

### 3. 結果及び考察

平成11年度から平成12年度に構築したソフトを使用し、データの収集・解析、そして情報の還元を実施した結果、一週間遅れではあるが、散在的食中毒患者の発生動向の監視が可能となった。1999年分のデータの解析では、腸炎ビブリオ患者が40歳から50歳の年齢層に多いこと、あるいは血清型O3:K6による感染者が多い特徴が把握できたと共に、患者数の増減が環境情報（平均気温、平均海水温）と強い相関のあることが示唆された。また、カンピロバクターは20歳以下に多いことが判明した。サルモネラ患者については、

10歳以下の若年層に集中し、これは全国的に問題となった乾燥イカ菓子食中毒事件によるdiffuse outbreakを反映していたと思われ、本システムの有効性が示された。さらに、本システム化により、医療機関相互の情報交換による検査精度の向上、医療機関・行政・衛生研究所の連携の強化、食害防止に関する行政指導の成果の確認等に繋がること示された。

今後は、本事業で構築したシステムを継続し、地域における患者数の推定あるいは全国規模での患者数の推定、さらには、近年増加傾向にある小型球形構造ウイルス(SRSV)やその他の食中毒起因病原微生物の追加等について考慮し、より一層の食害防止に努めたい。

本事業は平成11年度及び平成12年度の厚生省地域保健推進特別事業の1つとして実施されたことを記す。

### 4. 文 献

- 1) 厚生省生活衛生局食品保健課監視係：平成10年食中毒発生状況，食品衛生研究，49，89－175，1999.
- 2) 青森県：イカ乾製品によるサルモネラ食中毒事件報告書，青森県生活衛生課，p1－32，平成12年3月.
- 3) 対馬典子，他：イカ菓子食中毒事件におけるサルモネラ汚染実態に関する疫学的考察，日本食品衛生学雑誌，17，225－234，2000.

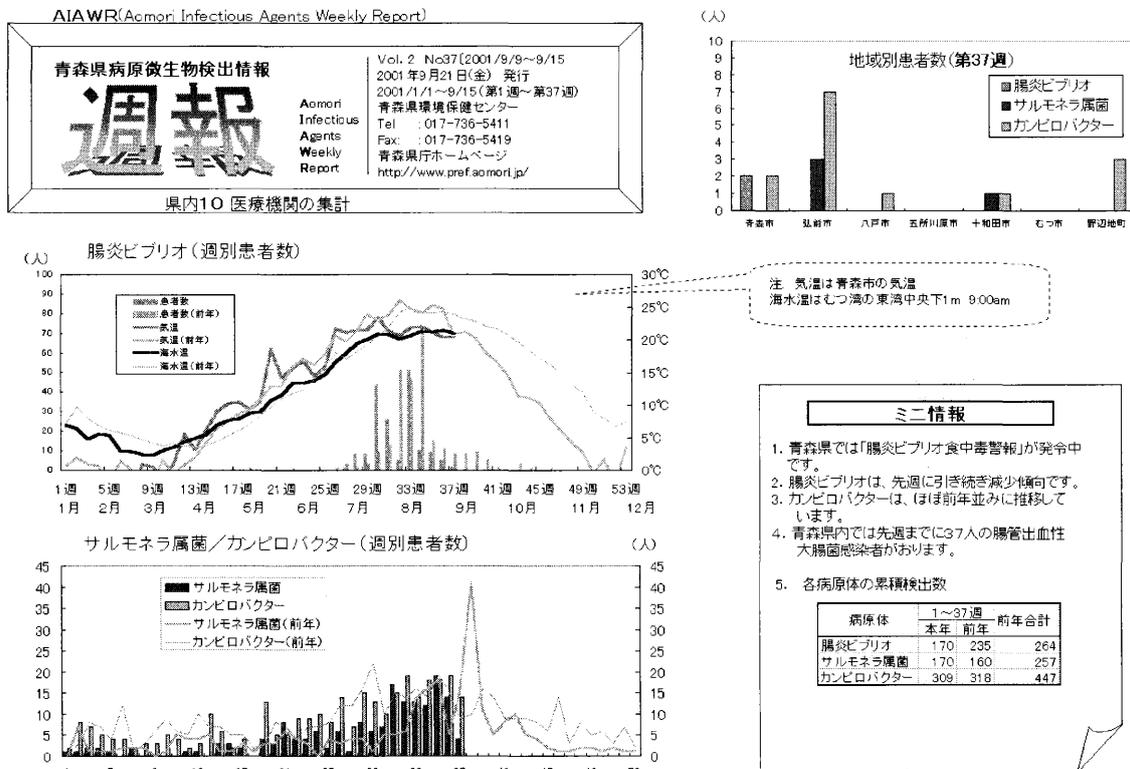


図 青森県病原微生物検出情報週報（2001年9月9日～15日：第37週，原図カラー）週報画面

# 青森県における神経芽細胞腫マス・スクリーニング結果 (平成13年度)

小笠原 和彦 金田 量子

Results of Mass Screening for Neuroblastoma in Aomori Prefecture (April 2001 - March 2002)

本県で実施している生後6～7か月児を対象にした神経芽細胞腫マス・スクリーニング (MS) により、平成13年度には新たに3人の患児を発見した。本県では、昭和59年12月からMSを実施しており、平成14年3月末現在で22万人余りが受検し、発見例は合計で23例となった。これにより、MS開始当初からの患児発見頻度は、9,617人に1例となった。

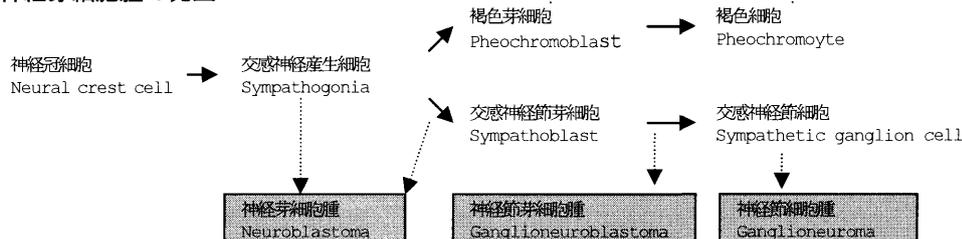
Key words: Neuroblastoma, VMA, HVA, Mass Screening

## 1. はじめに

神経芽細胞腫 (Neuroblastoma: NB) は、小児期の悪性固形腫瘍の中で最も多い疾患である。NBは、組織分類上、細胞の成熟度から神経芽細胞腫、神経節芽細胞腫、神経節細胞腫に分類され、いずれも神経冠細胞が交感神経節細胞へ分化していく途上で発生する腫瘍であるため(図1)、交感神経節細胞と同様、交感神経の働きを調節するホルモンであるカテコールアミン (CA) を産生・分泌する機能を有する。CAは、Dopamine, Norepinephrine, Epinephrine等のカテコール核をもったアミン化合物で、TyrosineからDOPAを経て生成され、細胞内の顆粒内に貯えられ、一部はfreeで、一部はMAOやCOMT等の体内酵素の作用を受けて代謝され、主として終末代謝産物であるバニリルマンデル酸 (Vanillylmandelic acid: VMA) やホモバニリン酸 (Homovanillic acid: HVA) となって(図2)尿中へ排泄される。即ち、NBが大きくなると沢山のCAが産生され、多量の代謝産物が尿中に排泄される原理から、その代謝産物であるVMA, HVAを測定するMSが昭和58年頃から国の事業として全国的に実施されるようになった。

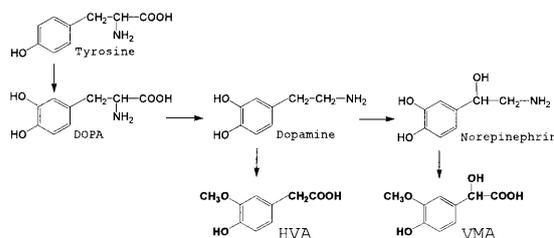
本報では、平成13年度のMS結果とこれまでの年度

図1 神経芽細胞腫の発生<sup>1)</sup>



別検査実施状況及び患児の経過把握のため、小児慢性特定疾患申請状況の概要について報告する。

図2 カテコールアミンの代謝経路



## 2. 検査方法

MS開始当初の検査方法は現在と異なるが、これまでの検査方法は、既報<sup>2)</sup>による。

現在は、VMA, HVA, クレアチニン (Creatinine: CRE) の定量を高速液体クロマトグラフ (HPLC) により同時に測定する方法 (HPLC同時測定法) を用いている。

通常、CREは1日に尿中に排泄される量が一定で変動が少ないことから、VMA及びHVAをCREで補正したVMA/CRE (VMA値) 及びHVA/CRE (HVA値)

を検査値としている。また、カットオフ値は検査方法により異なるが、現在はVMA15, HVA26  $\mu$ g/mgCREとしている。

### 3. 結 果

#### 3. 1 平成13年度検査実施状況

表1に年度別検査実施状況を示した。

平成13年度の初回検査件数及び初回検査率はそれぞれ11,146件, 86.5%で, 平成12年度(11,072件, 85.7%)と比較すると横這い状態といえる。全般的に, 近年の少子化による出生数の減少により初回検査件数の減少傾向が見られるが, 初回検査率としては大きな差異はない。

平成13年度に, 初回検査及び再検査(二次及び三次検査をいう。)を受検した乳幼児のうち24人が医療機関で精密検査を受けたが, そのうち3人が新たにNBと診断された。平成13年度における患児発見頻度は, 3,715人に1例であった。

昭和60年度から平成13年度までの検査総数は, 233,628件(初回検査221,190件, 再検査12,438件)であった。初回検査率は当初増加傾向であったが, 近年では横這い状態となっている。HPLC同時測定法(平成9年度以降)による最近5年間の検査結果では, 最終的に医療機関で精密検査を受けたのは123人で, その結果9人の患児が発見された。この間の患児発見頻度は, 6,465人に1例であった。また, MS開始当初からの発見例は合計で23例となり, 発見頻度は9,617人に1例となった。

#### 3. 2 平成13年度の患児発見例

表2に平成13年度に新たに発見された患児の概要を示した。

平成13年度に新たに発見された3例は, 初回検査及び再検査のいずれにおいても尿中VMA値及びHVA値に差異はなく, 検査値の顕著な上昇も見られなかった。また, いずれも極めて高値でもなかった。

#### 3. 3 精密検査受検者のデータ分布

図3に平成13年度に医療機関で精密検査を受けた乳幼児24人の初回検査から再検査までのデータの分布を示した。

このグラフのX軸, Y軸は, それぞれVMA値, HVA値であり, 各座標軸の交点はそれぞれのカットオフ値(15.0, 26.0)を示す。また, グラフの左上領域がHVA, 右下領域がVMA, 右上領域がVMA及び

HVAのカットオフ値以上のデータ群(いわゆる疑陽性データ群)であり, 左下領域が正常データ群である。さらにグラフ中の楕円で囲まれたデータ群が平成13年度に発見された患児の初回検査から再検査までのデータ分布である。グラフ上では, 患児のデータ群は, VMA値が20以上で, HVA値が26以上であるデータ領域にあった。

#### 3. 4 小児慢性特定疾患申請状況の概要

表3に平成13年度に申請のあった小児慢性特定疾患申請状況の概要を取りまとめた。

この結果では, 延べ届出総数32件, 届出人数としては24人で, 届出のあった患児の年齢は1~16歳, 発病してからの生存年数は0~15年である。患児の所在分布は青森市, 八戸市が多かった。また, MS実施の有無については, 患児の多くが実施している。さらに, 原発部位については, 副腎特に「右副腎」が最も多く, 発見時の病期は, I期及びIV期が多かった。治療方法としては, 腫瘍摘出術と化学療法を併用した例が最も多かったが, 無治療経過観察例も確認された。

### 4. 考 察

- (1) 本県におけるMSは, 検査件数が減少傾向であるものの, 初回検査率としてはMS開始当初から80~90%程度で推移してきている。これに関しては, 10~20%のMS未受検者の中から患児が発見される症例が本県においても過去に確認されていることから, 保護者や市町村等に検査実施を積極的に呼びかけ, 検査率を一層高めていくことが不可欠であると思われる。
- (2) 患児の発見例のフォローアップに関しては, 当所では, 患児を診断した医師に対し精密検査結果の内容を照会しているが, 本県では, MS結果や今後の対策等について行政や医療機関が合同で協議する場がないこと, それに伴う医療機関との連携がうまくとれていないこと等の理由により, 情報がフィードバックされ, さらにそれらの情報が医師側に提供されることにより治療に役立てるといったシステムが確立していない。患児のフォローアップのみならず, MSを円滑に進め, MSの成果を確実に把握するためにも, 行政や医療機関の連携が必須であり, 連絡協議会等の設置が待たれるところであるが, これに関しては現在のところ進展はない。
- (3) 平成13年度に申請のあった小児慢性特定疾患申

請状況においても確認できたが、NB患児の中には、生後6か月児MS（6MS）正常群が見受けられる。現に、札幌市では1991年度から6MSに加えて14MS（1歳2か月児MS）を導入しており、6MS正常群から患児を発見している<sup>3)</sup>（※札幌市・平成13年度実績；数値は、受検者数：精密検査数：患児数の順。（6MS）13,474：17：1。（14MS）11,400：13：

4。14MSで発見された4例の6MS結果はいずれもカットオフ値ぎりぎりか、それを下回る値であった）。6MSでは、40%近くも発見できない症例があることが報告されており、それらの多くが進行例として発見される場合が多々ある。このため、1歳以降に再MSを実施することが有効であり、本県においても早期に導入する必要があると考える。

表1 年度別検査実施状況

年度	初回検査				再検査**			要精検 総数	患児数	適中率	患児発見率
	対象者数*	検査件数	初回検査率	要精検	検査件数	再検査率	要精検				
S60年度～H8年度 小計	187,891	163,006	86.8		9,228	5.7	105	105	14	13.3	1 / 11,643
9年度	13,606	12,222	89.8		663	5.4	24	24	1	4.2	1 / 12,222
10年度	13,595	12,105	89.0	1	623	5.1	16	17	1	5.9	1 / 12,105
11年度	13,147	11,639	88.5	2	666	5.7	37	39	1	2.6	1 / 11,639
12年度	12,921	11,072	85.7	4	559	5.0	15	19	3	15.8	1 / 3,691
13年度	12,889	11,146	86.5	4	699	6.3	20	24	3	12.5	1 / 3,715
H9年度～H13年度 小計	66,158	58,184	87.9	11	3,210	5.5	112	123	9	7.3	1 / 6,465
総計	254,049	221,190	87.1	11	12,438	5.6	217	228	23	10.1	1 / 9,617

\*:対象者数は、人口動態統計の年次出生数。\*\*:再検査は、二次検査及び三次検査をいう。数は、二次と三次の合計。

表2 平成13年度に新たに発見された患児の概要

症例No	性別	MS最終 判定月齢	MS結果（最終）		診断結果	原発部位	病期	手術	化学療法	N-myc増幅
			VMA	HVA						
21	男	9	25.3	26.1	NB	右副腎	I	全摘	施行せず	なし
22	女	8	28.8	41.9	NB	後縦隔	II	全摘	施行せず	不明
23	男	9	25.1	35.2	NB	左副腎	I	全摘	施行せず	なし

※カットオフ値： VMA 15  $\mu$ g/mgCRE、 HVA 26  $\mu$ g/mgCRE

図3 精密検査受検者のデータ分布（※最大値：VMA 98.6, HVA 123.9）

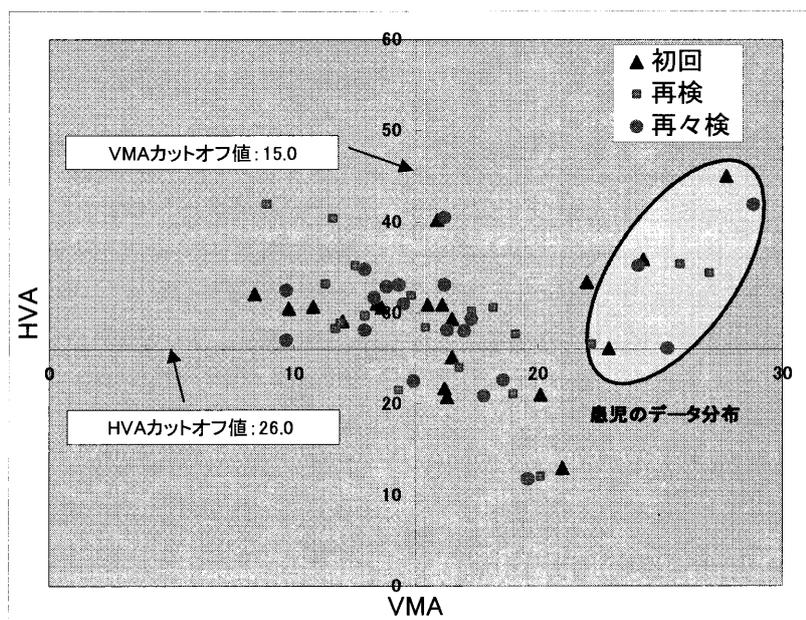


表3 小児慢性特定疾患申請状況の概要（平成13年度申請分）

<b>1. 延べ届出総数</b>				<b>7. MS実施の有無</b>	
32件				実施	19
<b>2. 届出人数</b>				未実施	1
24人（複数届出：7人）				受検月齢前（未実施）	2
<b>3. 患児男女比</b>				不明	2
男=12人，女=12人				<b>8. 原発部位</b>	
<b>4. 現在の年齢（歳）</b>				副腎	15
	男	女	男女計	(内訳：右10，左5)	
<1				後縦膈	3
1-5	4	6	10	後腹膜	2
6-10	7	5	12	仙骨前部	1
11-15	1		1	肝右葉後面	1
16-20		1	1	腹部，右眼窩	1
>=21				未記入	1
<b>5. 生存年数（年）</b>				<b>9. 発見時の病期</b>	
*生存年数とは，発病～現在（本報告では，平成14年3月31日）までの期間をいう。				I	6
	男	女	男女計	II	2
<1		1	1	III	5
1-5	6	5	11	IV（IVs，IVA，IVB含む。）	7
6-10	5	5	10	未記入	2
11-15	1	1	2	他分類記入	1
16-20				精査中	1
>=21				<b>10. 治療方法</b>	
<b>6. 患児所在分布</b>				外科手術+化学療法併用	15
地区総数				外科手術のみ	5
東青地区	8（内訳：青森市8）			化学療法のみ	1
津軽地区	6（内訳：弘前市2，五所川原市2，板柳町1，鶴田町1）			無治療で経過待ち	3
三八地区	10（内訳：八戸市8，三沢市1，南部町1）				

## 5. ま と め

- (1) 平成13年度の初回検査件数及び初回検査率はそれぞれ11,146件，86.5%で，前年度と比較しても横這い状態といえる。
- (2) 初回検査及び再検査を受検した乳幼児のうち24人が医療機関で精密検査を受けたが，そのうち3人が新たにNBと診断された。平成13年度における患児発見頻度は，3,715人に1例であった。
- (3) 本県におけるMS開始当初からの発見例は合計で23例となり，患児発見頻度は9,617人に1例となった。特に，HPLC同時測定法が導入された平成9年度以降の5年間の発見頻度は6,465人に1例であり，

検査精度の向上が示唆された。

## 文 献

- 1) 社会福祉法人 恩賜財団母子愛育会：改訂版・神経芽細胞腫マス・スクリーニング，中央出版，東京，26-29，1989
- 2) 石川和子，他：青森県における神経芽細胞腫マススクリーニング実施状況，青森県環境保健センター研究報告，9，16-20，1998
- 3) 花井潤師，他：札幌市における神経芽細胞腫マススクリーニング結果（2001年度），札幌市衛研年報，29，44-47，2002

## 温泉泉質経年変化 (1989-2001)

村上 淳子 高橋 政教 平出 博昭  
高橋ひとみ<sup>1</sup> 安田 徳彦<sup>2</sup> 阪崎 俊璽<sup>1</sup>

Water quality change of the hot springs with the lapse of year

1989年12月から2001年7月までの12年間に県内116源泉の泉質経年変化調査を実施した。その結果、26源泉に泉質変化が認められた。泉質変化には蒸発残留物、泉温、Na、Kの増減が大きく寄与していることが判明した。また塩化物泉が経年変化する割合が高かった。

Key words: hot springs, lapse of years, evaporated residue

### 1. はじめに

青森県は全国でも有数の温泉県であり、広く県民に利用されている。

温泉は、複雑な湧出機構により泉質が変化する可能性があるため、当所では1980年より温泉の源泉保護と適正利用を図るため、掘削後おおむね10年以上経過した源泉を対象に泉質経年変化調査を継続的に実施し、結果を報告してきた<sup>1-10)</sup>。今回は1989年12月から2001年7月までの12年間に実施した県内116源泉における調査結果を報告する。

### 2. 調査方法

調査対象：県内40市町村116源泉

調査期間：平成2年12月(1989.12)～  
平成13年7月(2001.7)

検体採取場所：各温泉の源泉あるいは貯湯タンク入口

調査項目：pH, 蒸発残留物, 泉温, メタケイ酸,  
メタホウ酸, Na, K, Ca, Mg, Fe,  
Cl, SO<sub>4</sub>, HCO<sub>3</sub>, F, CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>S

分析方法：鉱泉分析法指針に準じた。

### 3. 結果及び考察

#### 1. 泉質経年変化

調査地域ごとの測定源泉数及び泉質が変化した源泉

の割合について表1に示した。

測定源泉数は青森市が13, 弘前市と八戸市がそれぞれ9と3市が多く, 8市で約半数を占めた。郡別では源泉数の多い南津軽郡が最も多く29で, 三戸郡と東津軽郡がそれぞれ2と少なかった。

泉質変化した割合が大きいのには, 北津軽郡と西津軽郡で, 市では青森市が大きかった。

逆に変化した割合が小さいのは三戸郡で0%, 次いで南津軽郡で, 調査源泉が多かったにもかかわらず変化した源泉が少なかった。

全調査116源泉に対して泉質変化した26源泉は22%にあたり先回の報告<sup>10)</sup>の20%より若干増えた結果となった。

泉質変化した源泉の湧出地, 調査年月日, 泉質名を表2に示した。また, 変化した源泉の主要成分のヘブタダイアグラムを図1に, その他の成分変化量を表3に示した。

泉質変化の内訳は, 単純温泉から塩化物泉に変化したもの3 (No.1, 5, 24), 塩化物泉から単純泉になったもの10 (No.3, 4, 6, 8, 11, 13, 14, 15, 23, 25), 単純泉から冷鉱泉になったもの1 (No.22), 温泉に該当しなくなったもの3 (No.9, 10, 12), 特殊成分のガス等が減ったもの3 (No.7, 20, 21), 成分比率が変化したもの6 (No.2, 16, 17, 18, 19, 26)であった。塩化物泉から成分が減少して単純泉や冷鉱泉, 温泉非該当になったものが多かった。

変化の内容を地域別に見ると, 青森, 東津軽郡では単純泉から塩化物泉や硫酸塩泉に変化したもの3, 単純泉や, 温泉に該当しなくなったもの3だが, 八戸,

1 弘前環境管理事務所

2 田舎館食肉衛生検査所

表1 調査源泉数及び泉質変化源泉割合

<市>	11/46	<東津軽郡>	1/2	平賀町	1/5	鱒ヶ沢町	0/1	上北町	0/2
青森市	5/13	平館村	0/1	常盤村	0/1	深浦町	1/1	下田町	0/2
弘前市	2/9	三厩村	1/1	田舎館村	2/5	森田村	0/1	東北町	1/3
八戸市	3/9	<三戸郡>	0/2	碓ヶ関村	1/6	岩崎村	1/2	天間林村	0/1
五所川原市	0/3	五戸町	0/2	<北津軽郡>	3/7	稲垣村	0/1	<下北郡>	1/8
黒石市	0/6	<南津軽郡>	4/29	板柳町	1/1	<上北郡>	3/14	大畑町	0/2
十和田市	0/1	藤崎町	0/3	鶴田町	2/4	野辺地町	2/2	大間町	1/1
三沢市	0/2	大鰐町	0/2	金木町	0/2	六戸町	0/2	風間浦村	1/4
むつ市	1/3	尾上町	0/3	<西津軽郡>	3/8	七戸町	0/1	脇野沢村	0/1
		浪岡町	0/4	木造町	1/2	十和田湖町	0/1	計	26/116

上段: 泉質変化源泉数

下段: 調査源泉数

表2 泉質変化源泉

No.	地域	調査年月日	泉質名	No.	地域	調査年月日	泉質名
1	青森市	S58.08.23 H6.10.31	単純温泉 カルシウム・ナトリウム一塩化物泉	14	田舎館村	S61.04.10 H13.07.05	ナトリウム一塩化物泉 アルカリ性単純温泉
2	青森市	S61.10.30 H7.12.13	カルシウム一硫酸塩泉 カルシウム・ナトリウム一硫酸塩泉	15	田舎館村	S61.04.10 H13.07.05	ナトリウム一塩化物泉 アルカリ性単純温泉
3	青森市	S62.03.03 H7.12.19	ナトリウム一塩化物泉 単純温泉	16	碓ヶ関村	S54.09.06 H9.09.08	ナトリウム・カルシウム一硫酸塩・塩化物泉 ナトリウム・カルシウム一硫酸塩・塩化物・炭酸水素塩泉
4	青森市	S60.12.20 H8.11.22	ナトリウム一塩化物泉 冷鉱泉	17	板柳町	S35.09.29 H6.10.11	ナトリウム・マグネシウム一塩化物泉 ナトリウム一塩化物泉
5	青森市	S58.08.23 H8.11.29	単純温泉 カルシウム一塩化物泉	18	鶴田町	S57.04.12 H6.10.11	ナトリウム一塩化物泉・炭酸水素塩泉 ナトリウム一塩化物泉
6	弘前市	S44.12.10 H4.07.23	弱食塩泉 単純温泉	19	鶴田町	S50.02.28 H6.10.12	ナトリウム一塩化物強塩泉 ナトリウム一塩化物・炭酸水素塩泉
7	弘前市	S54.11.06 H4.07.30	含硫黄一ナトリウム一塩化物泉 ナトリウム一塩化物・炭酸水素塩泉	20	木造町	S55.02.20 H3.11.20	含硫黄一ナトリウム一塩化物泉 ナトリウム一塩化物泉
8	八戸市	S58.10.28 H5.09.08	ナトリウム一塩化物泉 単純温泉	21	深浦町	S56.05.29 H3.11.18	含二酸化炭素一ナトリウム一塩化物泉 ナトリウム一塩化物強塩泉
9	八戸市	S62.04.03 H11.10.12	ナトリウム一塩化物泉 温泉に該当しない	22	岩崎村	S47.11.02 H3.11.15	単純温泉 冷鉱泉
10	八戸市	S59.09.07 H11.10.04	ナトリウム一塩化物泉 温泉に該当しない	23	野辺地町	S45.12.03 H8.12.16	弱食塩泉 冷鉱泉
11	むつ市	S57.08.20 H5.09.09	ナトリウム一塩化物強塩泉 冷鉱泉(メタホウ酸)	24	野辺地町	S45.12.09 H8.12.16	単純温泉 ナトリウム一塩化物・炭酸水素塩泉
12	三厩村	S52.03.09 H7.12.12	ナトリウム一塩化物泉 温泉に該当しない	25	東北町	S52.12.08 H8.12.16	弱食塩泉 単純温泉
13	平賀町	S59.11.28 H13.07.17	含硫黄一ナトリウム一硫酸塩・塩化物泉 単純硫黄泉	26	大間町	S61.12.02 H12.06.13	ナトリウム・カルシウム一塩化物泉 ナトリウム一塩化物泉

三戸郡は元々泉温の低い源泉が多いため、成分の減少は泉質変化を引き起こしやすいということもあるが八戸はいずれも塩化物泉から単純泉や温泉非該当となっていた。西、北、下北地方は特殊成分の減少や、副成分の変化を示し、南津軽郡は単純泉へ変化したものが多く、副成分が変化したものも1あった。このように変化にも地域差が認められた。

調査した116源泉の初回と今回の泉質を主成分毎に示したのが図2である。Na-Cl泉が49%から42%へ、単純泉が34%から38%へ、特殊ガス成分を含むものが12%から7%に変化した。

Na-Cl泉は57源泉中16源泉(28.1%)が、単純泉は40源泉中4源泉(10%)、特殊ガス成分を含む源泉は14源泉中4源泉(28.6%)が泉質変化しており、単

純温泉より特殊ガス成分を含む源泉やNa-Cl泉のほうが泉質変化する割合が高いことが判明した。

地下水の混入等の影響と考えられる温泉の成分減少や温度低下による変化(温泉に該当しなくなったものも含む)が半数以上を占めており、これらは温泉の衰退現象が疑われる。また、今回は泉質変化していないが、成分や蒸発残留物の減少、泉温の低下が著しい源泉も多数認められることから、今後泉質変化の可能性もあり、継続的に調査する必要があると思われる。

さらに単純泉から塩化物泉等、塩化物泉等から単純泉への変化は禁忌、適応症が異なるため温泉利用について注意が必要となり、表示等についての指導も適切に行う必要がある。

表 4 主要成分の経年変化割合

	泉温 5℃以上 変化した源泉	蒸発残留物 20%以上 変化した源泉	Na 20%以上 変化した源泉	K 20%以上 変化した源泉	Ca 20%以上 変化した源泉	Mg 20%以上 変化した源泉	Cl 20%以上 変化した源泉	SO <sub>4</sub> 20%以上 変化した源泉	HCO <sub>3</sub> 20%以上 変化した源泉
増加 (%)	1 0.94	10 8.62	14 12.07	22 18.96	17 14.66	16 13.79	17 14.66	16 13.79	16 13.79
減少 (%)	22 20.75	43 37.07	55 47.41	51 43.96	52 44.83	75 64.65	49 42.24	52 44.83	47 40.52
変化計 (%)	23 21.7	53 45.69	69 59.48	73 62.93	69 59.49	91 78.44	66 56.9	68 58.62	63 54.31

## 2. 項目別変化状況

主要成分で20%以上変化した源泉数と割合を表4に示した。

### (1) pH

pHが1以上変化した源泉は4源泉あり、増加したものの減少したものそれぞれ2源泉ずつであった。そのうち、2源泉は泉質変化していた。(No.6, 10)

### (2) 蒸発残留物

蒸発残留物が20%以上変化した源泉は全調査数の約半数の53源泉で、増加したものが10、減少したものが43で減少したものが8割を占めた。減少したもののうち4割以上の18源泉は1/2以下になり、1/10以下に減少したのも4源泉あった。

増加した源泉で2倍以上になったものは5源泉で、10倍以上になったものも1源泉あった。

増加したことにより単純泉から塩化物泉になったものが3源泉 (No.1, 5, 24)、塩化物泉で変わらないものが5源泉、単純泉のままのものが2源泉あった。減少した43源泉のうち、泉質変化したものは19源泉で、そのうち15源泉は塩化物泉から単純泉あるいは冷鉱泉に変化した。残りの4源泉は成分比率が変化して、副成分が変化したものであった。

変化量は18g減少(20.3→2.27)が最も大きかった。この源泉はまだ塩化物泉のまま泉質変化はしていないが減少量が著しく、今後変化する可能性がある。この他にも蒸発残留物の変化量が20%以下ではあるが200mg以上減少している源泉が11源泉あり継続的に調査をする必要がある。

泉質が変化した26源泉中22源泉が蒸発残留物の変化が20%以上であり、蒸発残留物の変化が泉質変化に大きく寄与していることが裏付けられた<sup>1)</sup>。

また、今回は電気伝導度については、調査対象としなかったが、電気伝導度も各成分と高い相関があるこ

とから、泉質変化の兆候を把握するため、定期的に測定するのも有効と思われる。

### (3) 泉 温

泉温不明の地点が10源泉あるため、判明している106源泉について調査したところ、2℃以上変化した源泉は約半数の50で、上昇したものの10、下降したものの40であった。

5℃以上上昇したものは1だが、5℃以上下降したものは22もあった。

泉温が減少したために冷鉱泉や、温泉に該当しなくなる等の泉質変化したものが6源泉あり (No.4, 10, 11, 12, 22, 23)、泉温の変化も泉質変化の大きな要因となっている。

成分がいずれも規定量に満たず温度のみで温泉となっているものは1源泉だけであったが、これは泉温変化もなく単純温泉のままであった。

### (4) メタケイ酸

メタケイ酸が、初回及び今回とも規定量の50mg/kgに満たない源泉は、6ヶ所しかなかったが、変動は大きく、20mg以上増加した源泉が36、20mg以上減少した源泉が31あった。最大変動は10.8倍増加(14.4→156)の141.6mg、減少は169.8mg(310.5→140.7)が最も大きかった。

メタケイ酸のみで温泉(冷鉱泉)となっているものも1源泉あったがこれは変化がなかった。No.4, 23は食塩泉からメタケイ酸のみの冷鉱泉になった。

### (5) メタホウ酸

初回及び今回とも規定量の5mg/kgに満たない源泉が24あったが、逆に多いものでは100mg以上の源泉が7あった。

2mg以上増加した源泉は13で、2mg以上減少した源泉は81と全調査源泉の約7割が2mg以上減減少していた。10mg以上減少した源泉も約3割の36あり、

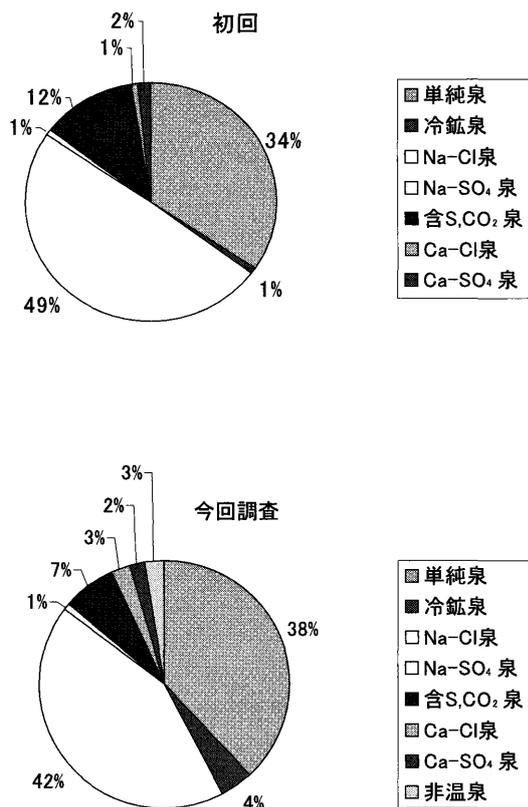


図2 泉質割合

100mg以上減少した源泉もあった。また91mg増加した源泉もあるが、いずれも泉質に変化は認められなかった。10mg以上増加した源泉は6のみであった。ホウ酸は泉質変化に寄与しないがNo.11はNa-Cl泉からメタホウ酸のみの冷鉱泉に変化した。

(6) 遊離炭酸

遊離炭酸は11源泉に検出されていたが、増加したのが8、減少したのが2、変化無しが1であった。

減少したため泉質が変化した源泉が1 (No.21) あったが、増加して泉質変化したものはなかった。

(7) 硫化水素

硫化水素は10源泉に検出されていたが1源泉を除き9源泉で減少しており、1源泉では5.8から0になり含硫黄がとれ泉質が変化した。(No.20)

(8) Na及びClイオン

Naが20%以上変化した源泉は6割の69で、増加したのが14、減少したのが55であった。増加して泉質変化したものは4、減少して泉質変化したものが17あった。増加割合が最も大きかったのは12.7倍 (27.6

→350) で単純泉からCa-Cl泉に変化した (No.5)。

減少割合の大きかったのは1/554 (5880→10.6) でNa-Clから冷鉱泉になった (No.11)。

変化量は増加では1620mg (4000→5620) が最も大きかったが泉質変化はなかった。減少では6676mg (7344→668) が最も大きく、これは成分比率が変化した、泉質が変化していた (No.19)。

Naの増減は蒸発残留物の増減と同様の傾向を示していたため蒸発残留物の変化量との相関を求めたところ0.9665と高い相関を示した。またClイオンの変化量とも0.9743と高い相関を示した。さらに、Clイオンの変化量も蒸発残留物の変化量と0.9873と高い相関を示した。本県の源泉はNa-Cl泉が多いことも関与していると思われるが、蒸発残留物の変化量にはNa-Clの変化量が大きく寄与していることが今回の調査からも裏付けられた。その他の項目についても変化量の相関を求め、あわせて表5に示した。

(9) Kイオン

今回の調査源泉にKが主成分あるいは副成分となっているものはないがKが20%以上変化した源泉は73あり、増加したものの22、減少したものの51で、増加量が最も多かったのは150.6mg (283.5→132.9) で、減少量では273.2mg (309.2→36.0) が最高であった。

Kの変化量はNaとSO<sub>4</sub>に0.7程度と有意な相関が認められたが、Naのように泉質に変化を及ぼしたものはなかった。

(10) Ca及びMgイオン

Mgが20%以上変化した源泉は増加が16、減少が75と全源泉中78%の91が変化しており、変化割合が最も多い成分であった。変化量では564.9mg (565.4→0.5) の減少が最大であった。この源泉は他の成分も大幅に減少しており、その結果蒸発残留物も17.8から0.14gまで減少し、さらに温度も低かったため温泉に該当しなくなった (No.12)。

また、198.5→0.5と大幅に減少し、副成分のMgがとれた源泉もあった (No.17)。

Caは69源泉が20%以上変化した17が増加、52が減少した。変化幅は100倍から1/100まであり、変化量としては、1193mg (1214→20.9) が最大であった。これはMgが565.4→0.5に変化した源泉と同じで、この源泉はNaも4517mg (4536→19.1) 減少している。(No.12)

Caは0.05→5.3に増加したが、Mgが減少してNa・

表5 相関関係数一覧

	蒸発残留物	Na	K	Mg	Ca	Cl	SO <sub>4</sub>	HCO <sub>3</sub>	H <sub>2</sub> SiO <sub>3</sub>	HBO <sub>2</sub>	F
蒸発残留物											
Na	0.9665										
K	0.6920	0.7327									
Mg	0.6693	0.5688	0.3850								
Ca	0.6531	0.5199	0.3422	0.8146							
Cl	0.9873	0.9743	0.6902	0.6540	0.6362						
SO <sub>4</sub>	0.7580	0.7145	0.4394	0.7218	0.7102	0.7442					
HCO <sub>3</sub>	0.2926	0.3379	0.2135	0.1562	0.0860	0.2807	0.1459				
H <sub>2</sub> SiO <sub>3</sub>	0.3000	0.2083	0.0624	0.0000	0.1192	0.2587	0.1025	0.0173			
HBO <sub>2</sub>	0.0583	0.3437	0.4449	0.2540	0.2209	0.3689	0.1895	0.0424	0.1105		
F	0.0400	0.0469	0.1735	0.0173	0.0000	0.0316	0.0557	0.0539	0.0000	0.0469	

Mg-Cl泉からNa-Cl泉に変化した源泉もある (No.17)。また、Caが38.6→535に増加した源泉は単純泉からCa・Na-Clに変化しており (No.1), 49→0.5に減少した源泉はNa-Cl泉から単純温泉に変化した (No.14)。このようにCaの大幅な変化は成分比率に影響を与えNaとともに泉質変化を伴うことが多かった。

#### (11) Fe

Feが1mg以上含まれている源泉は32で、10mg以上含まれているものは2, 最高値は18.8mgだったが2源泉とも10mg以下に減少した。9.4→10.2に増加した源泉も1あった。

1mg以上変化したのは減少が21, 増加したのが7であった。変化量が最も大きかったのは減少が13.7mg (14.8→1.1), 増加は7.1mg (1.0→8.1)であった。しかし泉質変化を伴ったものはなかった。

#### (12) SO<sub>4</sub>イオン

SO<sub>4</sub>イオンが20%以上変化した源泉は増加が16, 減少が52の計68で、変化量では302mg (100→402)の増加, 1561.8mg (1573→11.2)の減少が最大であった。

SO<sub>4</sub>が主成分の源泉は5, 副成分に含まれるものも5あったが、泉質変化したのは陽イオンの成分比が変化したNo.2, 全体的に成分が減少して単純硫黄泉になったNo.13, 陰イオン成分比が変化したNo.16の3源泉であった。

SO<sub>4</sub>の変化量は蒸発残留物, Na, Mg, Ca, Clの変化量といずれも0.7以上の相関があり, 他の項目とは異なる傾向が認められた。

#### (13) HCO<sub>3</sub>イオン

HCO<sub>3</sub>が20%以上変化した源泉は増加が16, 減少が47の計63で, 増加は500→1709の3.4倍, 変化量として1209mg, 減少は533mg (1814→1281)が最大であった。

HCO<sub>3</sub>が主成分の源泉はないが, 副成分になっているものは5源泉ありいずれも塩化物が主成分である。泉質変化したものは1源泉で, HCO<sub>3</sub>が減少して成分比が20%未満となり副成分からHCO<sub>3</sub>が外れた (No.18)。逆にNa-Cl泉から副成分としてHCO<sub>3</sub>が含まれるようになった源泉は2 (No.16, 19), 単純泉からNa-Cl・HCO<sub>3</sub>に変化したのが1 (No.24)あった。

#### (14) Fイオン

Fはほとんどの源泉で検出されているが最高でも14.4mgであるため, 変化量の範囲は狭い。最大で, 4.6→14.4mgの9.8mgの増加, 10.3→0.93mgの9.37mg減少であった。

また, Fの変化量は他の項目との相関はほとんど認められなかった。

## 4. ま と め

1989年12月から2002年7月までの12年間, 当センターで実施した温泉泉質経年変化から, 次のことが判明した。

- (1) 116源泉中26源泉において泉質の変化が認められた。主として蒸発残留物の変化によるものが17源泉と最も多く, 特殊成分の変化によるもの2源泉, 陽イオン比率の変化によるもの3源泉, 陰イオン比率の変化によるもの3源泉, 温度変化のみによる変化1源泉であった。
- (2) 地域別では西北地区の泉質変化の割合が高く, 南黒地区が低かったが, 禁忌, 適応症の変化を伴う泉質変化は青森, 八戸, 南津軽郡が多かった。
- (3) 蒸発残留物が20%以上減少した源泉が全体の1/3以上の43もあり主要成分のNa, K, Mg, Ca, Cl, SO<sub>4</sub>も半数以上が20%以上減少していた。また, 泉

温の低下も多く認められ、地下水等の混入がかなり起きていると考えられた。

- (4) 泉質変化には蒸発残留物、泉温、Na、Clの変化が大きな影響を与えている。
- (5) 蒸発残留物の変化量にはNa、Clの変化量が大きく寄与していた。
- (6) ガス成分はほとんどが減少していた。
- (7) F、Feの変化量は他の項目と相関は認められなかった。

終わりに、本調査にご協力いただいた自然保護課並びに各保健所の温泉担当者に深く感謝いたします。

## 文 献

- 1) 高橋政教他：青森県の温泉経年変化について（第1報），青森県衛生研究所報，18，33-37，1981
- 2) 高橋政教他：青森県の温泉経年変化について（第2報），青森県衛生研究所報，19，28-32，1982  
桶田幾代他：青森県における温泉水中の重金属含有量調査，青森県衛生研究所，14，36-41，1976
- 3) 野村真美他：青森県の温泉経年変化について（第3報），青森県衛生研究所報，21，28-33，1984
- 4) 秋山由美子他：青森県の温泉経年変化について（第4報），青森県衛生研究所報，23，22-26，1986
- 5) 小林繁樹他：青森県の温泉経年変化について（第5報）—百沢地域温泉の現状と経年変化—，青森県衛生研究所報，24，18-23，1987
- 6) 小林繁樹他：青森県の温泉経年変化について（第6報）—黒石地域および碓ヶ関地区の温泉群—，青森県衛生研究所報，25，28-33，1988
- 7) 石塚伸一他：青森県の温泉経年変化について（第7報）—多変量解析による八甲田地域温泉群の比較及び経年変化の検討—，青森県衛生研究所報，26，11-34，1989
- 8) 石塚伸一他：青森県の温泉経年変化について（第8報）—小川原湖周辺地域温泉群の泉質経年変化の検討—，青森県環境保健センター研究報告，1，

44-60,1990

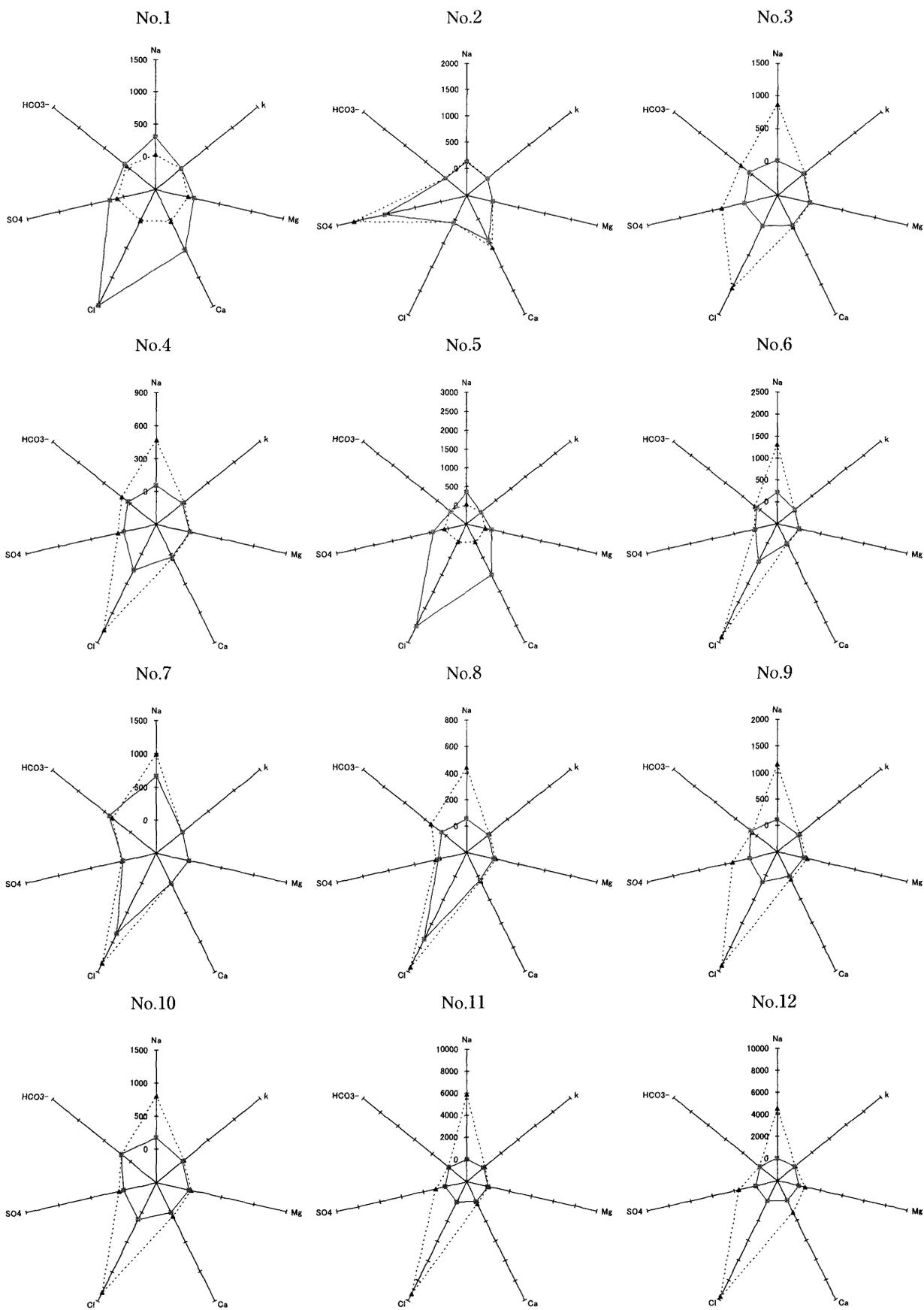
- 9) 高橋政教他：青森県の温泉泉質経年変化（第9報）—津軽地域の温泉群の泉質経年変化について—，青森県環境保健センター研究報告，4，23-37，1993
- 10) 高橋政教他：青森県の温泉泉質経年変化（1980-1989），青森県環境保健センター研究報告，6，27-34，1995

表3 泉質変化した源泉の各成分量

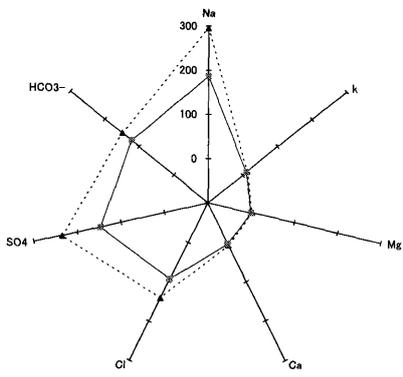
No.	pH	蒸発残留物	泉温	メタケイ酸	メタホウ酸	遊離炭酸
1	7.6	0.31	30	31.9	2.2	-
	7.2	2.66	-	108	2.9	-
2	7.8	2.68	42.6	26	1.1	-
	8.2	2.00	39.5	52.9	0	-
3	7.8	2.59	39.7	114	18.6	-
	7.8	0.15	39	78.8	0.2	-
4	7.3	1.56	34.8	85.8	8.8	-
	6.8	0.41	12.5	66.7	0.2	-
5	7.6	0.31	30	31.9	2.2	-
	7.3	4.68	27.1	37.7	0	-
6	8.8	4.00	37.0	85.4	47.5	-
	7.6	0.97	35.4	143	4.5	-
7	8.4	2.75	44.5	70.7	21	-(H <sub>2</sub> S 5.8)
	8.4	1.92	42.6	29	17.4	-(H <sub>2</sub> S 0)
8	7.8	1.43	27.5	29.6	17.1	-
	7.8	0.53	27.5	105	6.3	-
9	7.8	3.75	16.2	15.6	6.6	-
	8.0	0.39	15.0	25.3	0.6	-
10	8.2	2.56	26.1	43.3	11	-
	9.2	0.47	19.4	11.4	2.5	-
11	7.3	16.5	31.0	160	0.8	-
	7.4	0.15	14.9	48.5	8.8	-
12	7.4	17.8	20.0	30.2	66.3	-
	8.2	0.14	13.4	10	0	3.6
13	8.8	1.01	41.6	163	6.5	-
	8.6	0.69	42.2	164	1.3	-
14	8.7	3.07	50.8	225	7.7	-
	8.9	0.30	44.6	188	0.4	-
15	8.7	1.01	45.0	179	6.6	-
	8.6	0.28	43.7	156	0.6	-
16	7.7	1.18	47.5	52.4	3.5	-
	7.5	0.98	44.6	24.7	3.8	-
17	7.6	1.40	42.0	14.4	8.5	-
	8.2	1.05	-	156	4.4	-
18	8.1	3.95	61.0	226	83.3	-
	8.2	4.83	-	196	57.8	-
19	7.1	20.3	53.5	208	78.8	-
	7.1	2.28	-	137	6.6	-
20	7.8	13.93	65.0	117	83.2	-
	7.4	13.91	59.2	86.3	17	-
21	6.6	21.3	55.5	114	33.3	4004
	7.2	19.5	55.0	122	5.5	82.3
22	7.2	0.23	26.0	141	0.6	-
	7.2	0.22	23.0	102	0	-
23	8.1	1.14	38.0	150	2.65	-
	8.2	0.17	18.8	86.2	0	-
24	8.2	0.70	37.0	70.3	10.2	-
	8.2	1.53	33.0	145	0	-
25	8.4	3.06	39.5	146	11.4	-
	7.8	0.58	44.0	185	3.5	-
26	6.8	12.6	54.5	23	61.4	56.5
	6.8	9.72	54.2	50.4	59.3	339

上段:初回 下段:今回調査

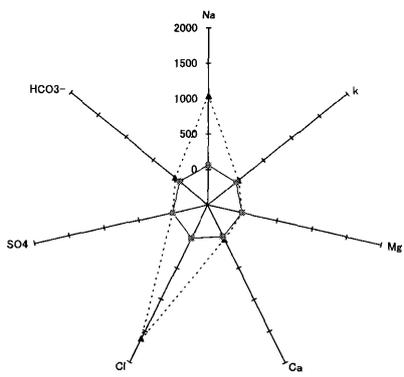
図1 泉質変化した源泉のヘプタダイアグラム



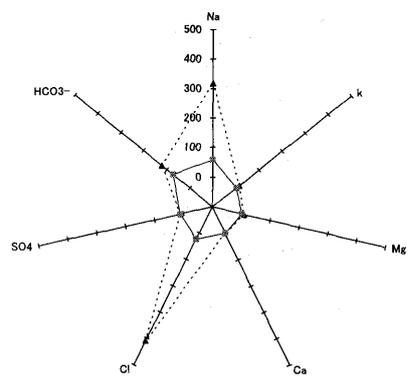
No.13



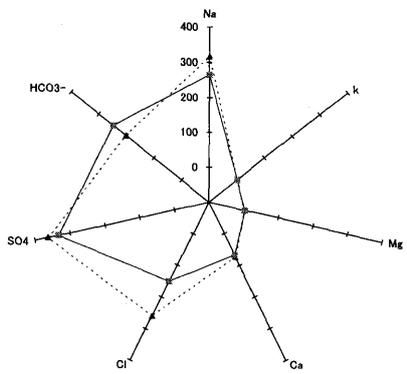
No.14



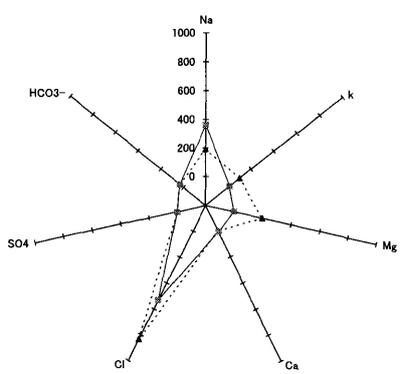
No.15



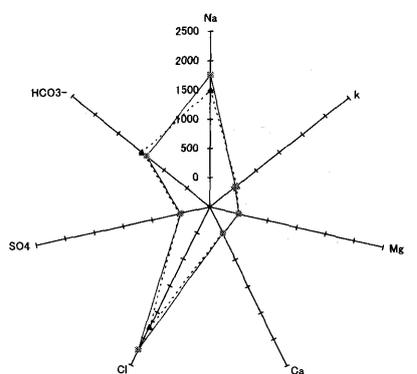
No.16



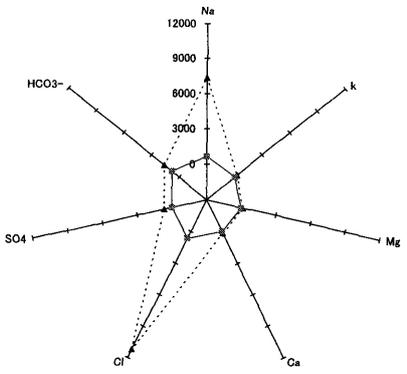
No.17



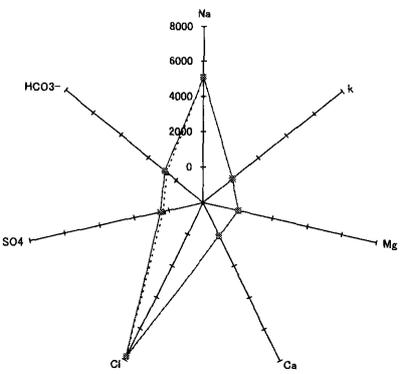
No.18



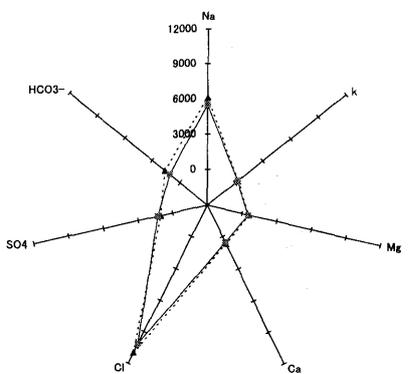
No.19



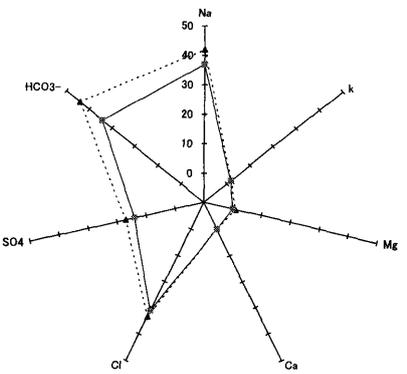
No.20



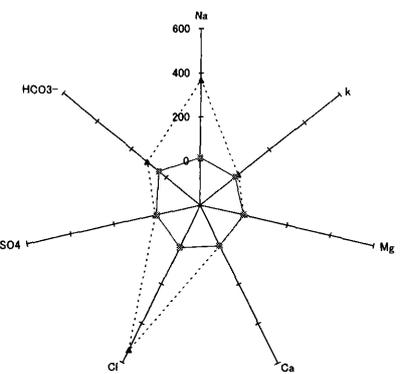
No.21



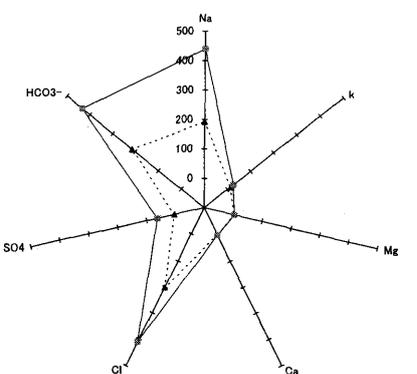
No.22



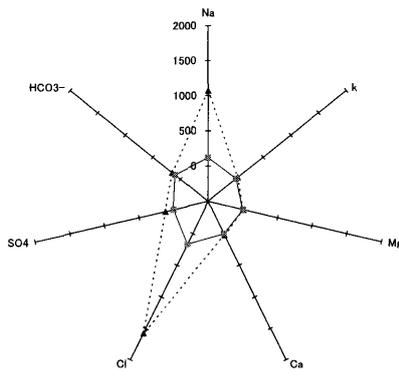
No.23



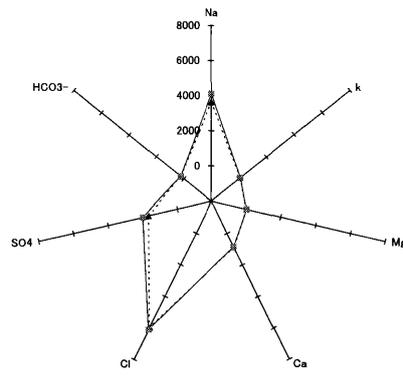
No.24



No.25



No.26



# 空間放射線測定器特性試験

竹ヶ原 仁 野田 正志 高橋 秀昭<sup>1</sup> 木村 秀樹  
 齋藤 稔 岩本 明憲<sup>2</sup> 藤本 敏明<sup>3</sup>

Characteristic test of NaI (Tl) scintillation detector

平成13年3月に、モニタリングステーション（尾駈、千歳平、平沼、泊、吹越及び青森）の空間放射線測定器（低線量率計）の更新を行った。更新後に測定値が高くなったことから検討を行ったところ、測定値の差は更新前後の測定器の自己放射能及び下方向の放射線に対するレスポンスの違いによるものであることがわかった。

Key words: environmental monitoring, NaI (Tl) scintillation detector, gamma-ray dose, energy response, angular response, self dose

## 1. はじめに

青森県では、平成元年4月から原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等の調査を実施している。空間放射線測定器（低線量率計）は原子力施設由来の放射線を常時監視する目的でモニタリングステーション（以下「測定局」という）に設置している。この測定器の特性を把握しておくことは、モニタリング調査結果の評価やこれからの測定器更新作業への有効に活用できると考える。

今回は、平成13年3月に空間放射線測定器（低線量率計）の更新を行ったところ更新後に測定値が高くなったことから、更新前の測定器と更新後の測定器を同じ測定局の敷地に設置し並行測定などを行い、それぞれの空間放射線測定器の特性試験を行った。

## 2. 調査内容及び結果

### 2.1 調査地点

尾駈、千歳平、平沼、泊、吹越及び青森の6測定局

### 2.2 調査方法

更新前後の空間放射線測定器の測定値に差が生ずる要因について検討するため、千歳平、泊及び青森の3測定局において更新後の機器及び仮設した更新前の同型の測定器（以下「仮設器」という。）1台を用いて

表1に示す試験を実施した。なお、測定は文部科学省放射能測定法シリーズ「連続モニタによる環境γ線測定法」に準拠して行った。

表1 試験項目及び実施測定局

試験項目	実施測定局	測定時期
(1) 並行測定 (2) 鉛遮蔽し体内の測定 (3) 方向依存性の測定	千歳平、泊、青森 千歳平、泊、青森 青森	平成14年10月

### (1) 並行測定

原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等調査で行った尾駈、千歳平、平沼、泊、吹越及び青森測定局における平成8～13年度の空間放射線量率（年平均値）を示す<sup>1～6)</sup>(図1)。空間放射線測定器（低線量率計）更新後の平成13年度の測定値は、平成8～12年度（更新前5年間）と比較すると尾駈、千歳平、平沼、吹越及び青森で3～6 nGy/h高くなり、泊では測定値の上昇分が1～2 nGy/hであり他とは違う傾向を示している。なお、泊は平成11年3月に周辺環境が変化し平成11、12年度は平成8～10年度に比べ測定値が1 nGy/h程度低くなった<sup>6)</sup>。

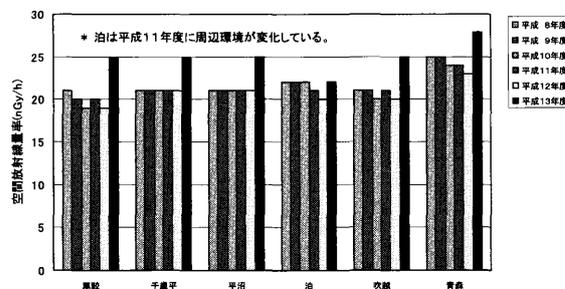


図1 空間放射線量率（年平均値の推移）

上述の測定器更新前後における空間放射線の測定状

1 六ヶ所放射線監視局  
 2 アロカ株式会社  
 3 富士電気株式会社

況を再現するために、更新後の空間放射線測定器の近傍約1 mの場所に仮設器を設置し、同時測定を実施した(写真)。測定値は同様の推移をしており、表2に示す1日を通して降雨の影響のない日の測定値の差はそれぞれの測定局の更新前後の差とほぼ一致していた。一例として青森局における並行測定の結果を示す(図2)。

表2 並行測定の結果 (単位: nGy/h)

測定局	仮設器(①)	更新後の測定器(②)	差(②-①)	備考
千歳平	20.1	24.8	4.7	1日を通して降雨の影響のない日の10分値を平均した
泊	18.9	21.7	2.8	
青森	23.8	28.2	4.4	

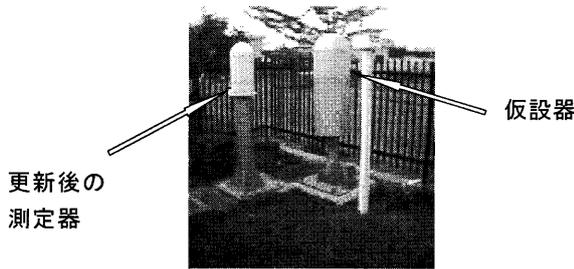


写真 [並行測定の状況(千歳平局)]

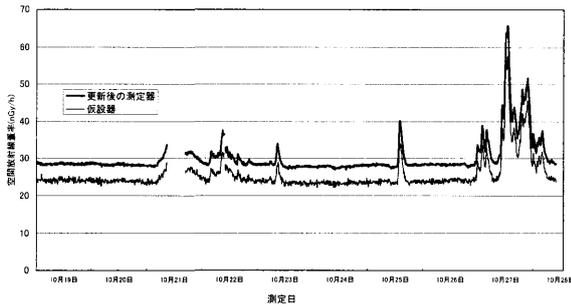


図2 更新後の測定器と仮設器の測定値の推移(青森局)

(2) 鉛遮へい体内測定

検出器に含まれる放射性物質による線量の違いを把握するため、青森県環境保健センター所有の鉛遮へい体内に仮設器及びそれぞれの測定局の検出器のみを設置しスペクトル測定を行い線量率を求めた。求められ

表4 鉛遮へい体内測定結果 (単位: nGy/h)

測定局	仮設器(①)	更新後の測定器(②)	測定値の差(②-①)
千歳平	1.66	3.78	2.12
泊		1.73	0.07
青森		3.63	1.97

鉛遮へい体設置場所: 青森県環境保健センター(鉄筋コンクリート3階建て)  
鉛遮へい体容器: 鉛10cm厚

た線量率は、検出器のNaI(Tl)シンチレーター及びガラス部分に含まれるK-40のγ線及び鉛で遮へいすることができない宇宙線に相当するものである。

仮設器及び更新後の測定器の結果を表3に示す。仮設器と各測定局の差は、千歳平及び青森測定局はそれぞれ2.12, 1.97nGy/h、泊測定局は0.07nGy/hであった。

(3) 方向依存性の測定

空間放射線の測定は、平常時には主に大地からの自然放射線を計測しており、測定器の校正を行う鉛直上方向とは異なる下方向からの放射線を主に測定している。このことから、検出器収納筐体内構造が違う空間放射線測定器では、検出器から見た大地からの放射線を遮る立体角内の構造物の影響による検出器の鉛直上下方向のレスポンスの違いにより測定値に差が生ずることが推測される。

そこで、種々のエネルギーの放射線源を用いて、仮設器と更新後の測定器のそれぞれの検出器の鉛直上下方向のレスポンスを測定した。また、この結果をもとに、それぞれの測定局での大地からの放射線スペクトルから、更新後の測定器の測定値と仮設器である更新前と同型の測定器の測定値の差を試算した。

①方向依存性の比較

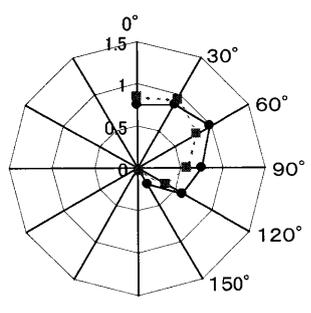
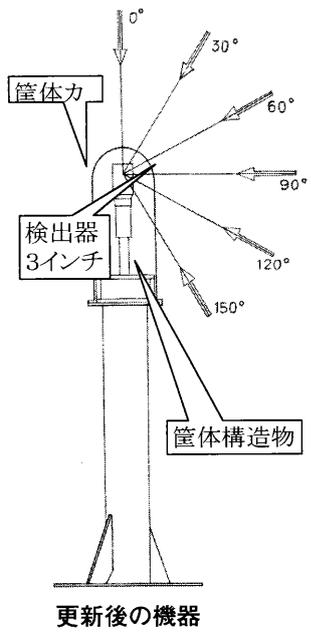
検出器を筐体に取りつけた状態での方向依存性を把握するため、青森測定局において仮設器及び更新後の検出器の鉛直上方向(0°)から150°まで30°毎に種々のエネルギーの違う放射線源を用い、照射試験を行った。更新後の測定器に比べ仮設器の方が下方向からの入射放射線に対するレスポンスが低い結果となった(図3)。

②方向依存性の違いによる測定値の差の試算

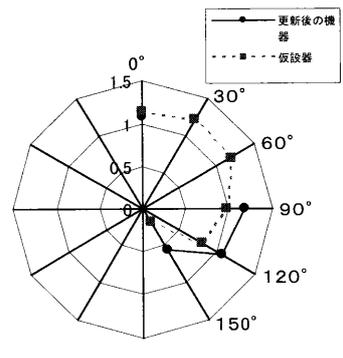
①の結果を用いて、青森県の更新後の測定器(A社製)の測定値と仮設器である更新前と同型の測定器(F社製)の測定値の差を試算した(別紙1)。試算結果を表5に示す。方向依存性の違いによる差は、千歳平、泊及び青森測定局において1.90~2.36nGy/hであった。

表5 方向依存性の違いによる測定値の差の試算結

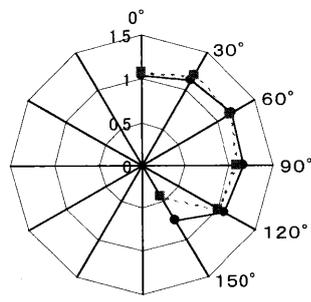
(単位: nGy/h)	
測定局	試算結果
千歳平	2.09
泊	1.90
青森	2.36



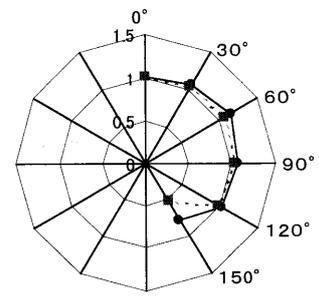
$^{241}\text{Am}(60\text{KeV})$



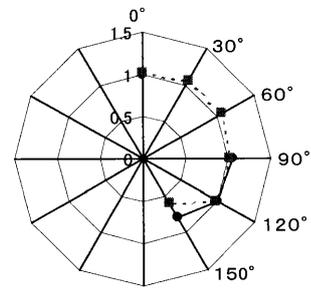
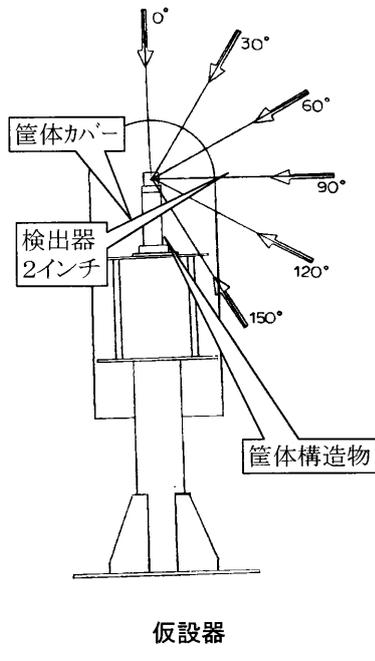
$^{57}\text{Co}(122\text{KeV})$



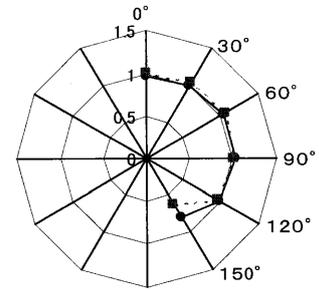
$^{133}\text{Ba}(340\text{KeV})$



$^{137}\text{Cs}(660\text{KeV})$



$^{226}\text{Ra}(830\text{KeV})$



$^{60}\text{Co}(1250\text{KeV})$

※ $^{137}\text{Cs}$ を用いた $0^\circ$ 方向からの照射によるレスポンスを1.0とした。

図3 方向依存性の測定

(1)から(3)までの結果を表6にとりまとめて示す。測定器更新による空間放射線量率の変化の要因は、検出器に含まれる放射性物質の違いと測定器の方向依存性の違いのよるものであると考えられる。

表6 更新前後の空間放射線測定器の測定値の差

(単位：nGy/h)

測定局	鉛遮蔽体内測定結果の差(表4)	方向依存性の違いによる差(表5)	合計	平行測定の違いによる差(表2)
千歳平	2.12	2.09	4.21	4.7
泊	0.07	1.90	1.97	2.8
青森	1.97	2.36	4.33	4.4

### 3. ま と め

空間放射線の測定は、施設からの影響を常時監視することを目的として放射性雲が通過する上方向に主眼を置いて測定していることから、測定器の校正は検出部の鉛直上方向に放射線源を設置し行っている。一方、施設からの影響のない平常時には校正方向とは異なる下方向の放射線である大地からの自然放射線が主に計測されている。このことから、検出器収納筐体内部構造が違う空間放射線測定器では、検出器から見た大地からの放射線を遮る立体角内の構造物の影響による検出器の鉛直上下方向のレスポンスの違いにより測定値に差が生ずることが推測される。また表7に示すとおり、更新に当たっては、検出器の大型化による精度の向上を図り、測定器の仕様を変更した。

以上を踏まえ試験を実施し、検討を行ったところ、更新後に測定値が高くなったのは、次の要因によるものと推定された。

(1) 測定器更新による空間放射線量率の変化の要因は、検出器に含まれる放射性物質の違いと測定器の方向依存性の違いによるものであったと考えられる。

(2) 泊測定局が他の測定局に比べ更新前後の差が小さかったのは、検出器に含まれる放射性物質による放射線量の寄与の差が少なかったためであると考えられる。

表7 更新前後の仕様の概要

項目	更新前	更新後
検出器	NaI(Tl) 2インチ円筒型	NaI(Tl) 3インチ円筒型
エネルギー補償方式	DBM方式	G(E)関数荷重演算方式
測定エネルギー範囲 SCA スペクトル解析装置	50keV~3MeV 1 無	同左 4 有
筐体カバー 断熱材	アルミニウム1mm ネオプレンスポンジ1cm	AAS樹脂 3mm 空気層 2cm ABS樹脂 3mm 発泡スチロール 約2cm
検出器の設置位置	地上1.8m	同左
温度報償回路	有	同左
温度制御装置	加温式	同左
製造メーカー	F社製	A社製

### 文 献

- 1) 原子燃料サイクル施設環境放射線等調査報告書(平成8年度報)
- 2) 原子燃料サイクル施設環境放射線等調査報告書(平成9年度報)
- 3) 原子燃料サイクル施設環境放射線等調査報告書(平成10年度報)
- 4) 原子燃料サイクル施設環境放射線等調査報告書(平成11年度報)
- 5) 原子燃料サイクル施設環境放射線等調査報告書(平成12年度報)
- 6) 原子燃料サイクル施設環境放射線等調査報告書(平成13年度報)

## 仮設器と更新後の測定器における方向依存性の違いによる測定値の差の試算

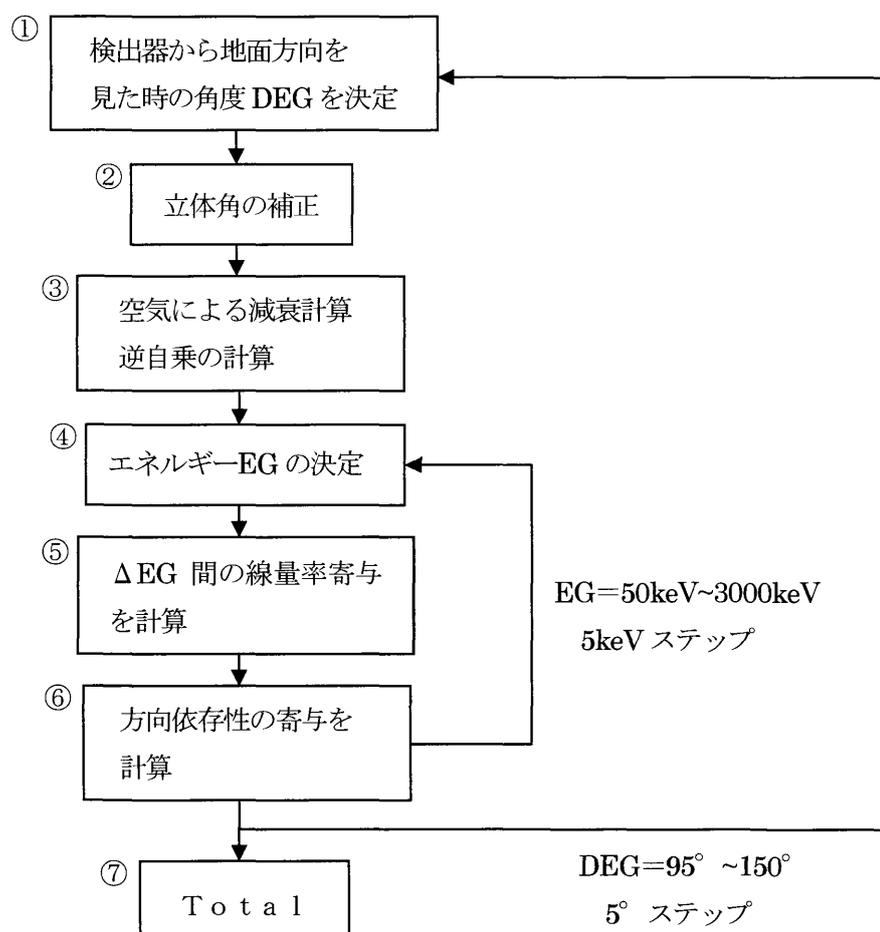
### 1. 概要

仮設器である更新前同型の測定器と更新後の測定器の方向依存性による差を把握するため、青森測定局でそれぞれの検出器を用い、鉛直上方向 ( $0^\circ$ ) から  $150^\circ$  まで  $30^\circ$  毎における種々のエネルギーの違う放射線源に対するレスポンスの測定を行った。また、それぞれの測定局で測定した大地からの放射線スペクトルから、仮設器と更新後の測定器の測定値の差の試算を行った。

### 2. 計算手法のフローチャート

仮説 1. 無限平面上に放射能が均一に分布

仮説 2. スカイシャイン、散乱線の影響は無視



### 3. 計算手法の詳細

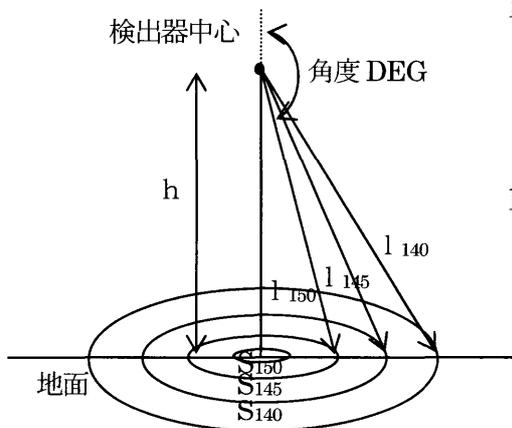
#### ①検出器から地面方向を見た時の角度 DEG の決定

検出器中心から鉛直方向を基準として、 $95^\circ \sim 150^\circ$  の範囲で  $5^\circ$  ピッチの角度 : DEG により地面に形成されるリング状の面積 : S を線量率と考え、リングの半径 : r と検出器中心からリング外周の距離 : l をもとめる。

#### ②立体角の補正

式1により各角度における線量率寄与分 : D(DEG) を求める。

同様に  $5^\circ$  ピッチの角度によって形成される、地面から検出器中心までの距離から、距離の逆二乗則を使って、式2により  $150^\circ$  を基準に各角度 ( $95^\circ \sim 150^\circ$ 、 $5^\circ$  ピッチ) における距離による線量率の強度寄与分 : K(DEG) を求める。



$$D(DEG) = S(DEG) - S(DEG-5)$$

$$= (h \cdot \tan(180-DEG))^2 \cdot \pi - (h \cdot \tan(175-DEG))^2 \cdot \pi$$

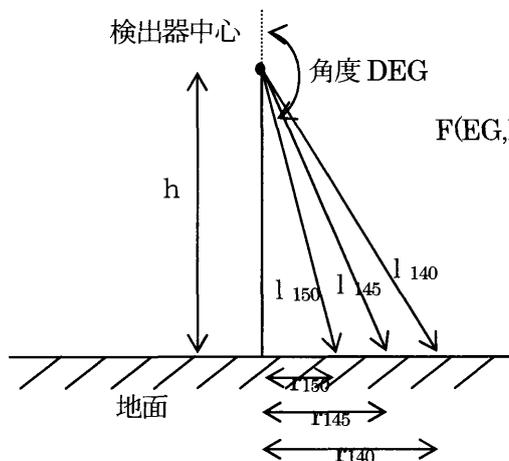
—式1

$$K(DEG) = (l_{150}/l(DEG))^2 \cdot \left( \frac{\sqrt{h^2 + (h \cdot \tan(30))^2}}{\sqrt{h^2 + (h \cdot \tan(180-DEG))^2}} \right)^2$$

—式2

#### ③空気による減衰計算

同様に  $5^\circ$  ピッチの角度によって形成される、地面から検出器中心までの距離から、式3により各角度 ( $95^\circ \sim 150^\circ$ 、 $5^\circ$  ピッチ)、各エネルギー ( $50 \sim 3000 \text{keV}$ 、 $5 \text{keV}$  ピッチ) における空気層による線量率の減衰寄与分 : F (EG,DEG) を算出する。



$$F(EG,DEG) = e^{-\mu(EG) \cdot l(DEG)}$$

$$= e^{-\mu(EG) \cdot \sqrt{h^2 + r^2}}$$

$$= e^{-\mu(EG) \cdot \sqrt{h^2 + (h \cdot \tan(180-DEG))^2}}$$

—式3

④エネルギーEGの決定

50keV～3000keVの間でエネルギー：EGを決定する。

⑤ΔEG間の線量率寄与の計算

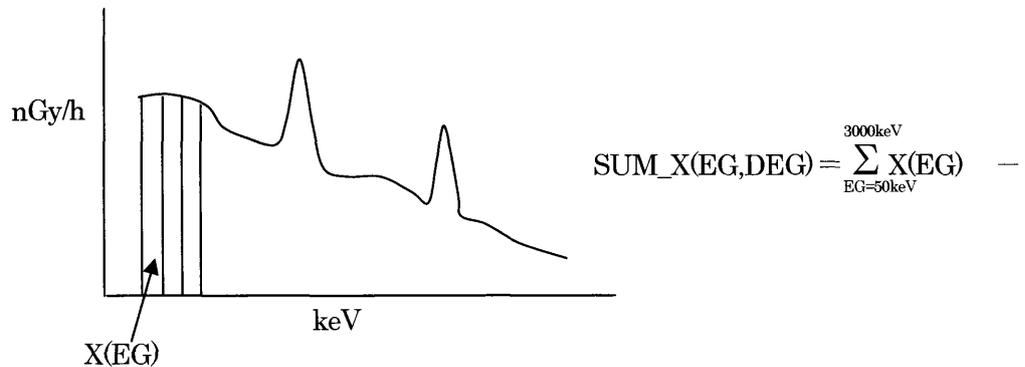
式4によって、各エネルギーについて、(各角度の寄与分) / (全角度の寄与分の合計) として各角度における線量率の重み：W (EG,DEG) を算出する。

$$W(EG,DEG)=F(EG,DEG) \cdot D(DEG) \cdot K(DEG) / \sum_{DEG=150^{\circ}}^{95^{\circ}} (F(EG,DEG) \cdot D(DEG) \cdot K(DEG))$$

—式4

A社製検出器の「設置状態の線量率」から「鉛遮へい体内の線量率（自己放射能+宇宙線分）」を減じて環境線量率のスペクトルを求め、各エネルギー（50～3000keV、5keVピッチ）における線量率：X(EG)を算出する。

このとき、A社製検出器の全線量率：SUM\_X(EG,DEG)は式5となる。



各エネルギーの線量率：X(EG)は、式4で求めた対応するエネルギーの線量率の重み：W (EG,DEG) の全角度分 (95° ～150° ) に相当するので、式6によって線量率：X(EG)を (各角度の寄与分) / (全角度の寄与分の合計) として各角度において重み付けをすることにより、A社製検出器の各エネルギーおよび各角度における線量率 X(EG,DEG)を算出する。

$$X(EG,DEG)=X(EG) \cdot W(EG,DEG) / \sum_{DEG=150^{\circ}}^{95^{\circ}} W(EG,DEG)$$

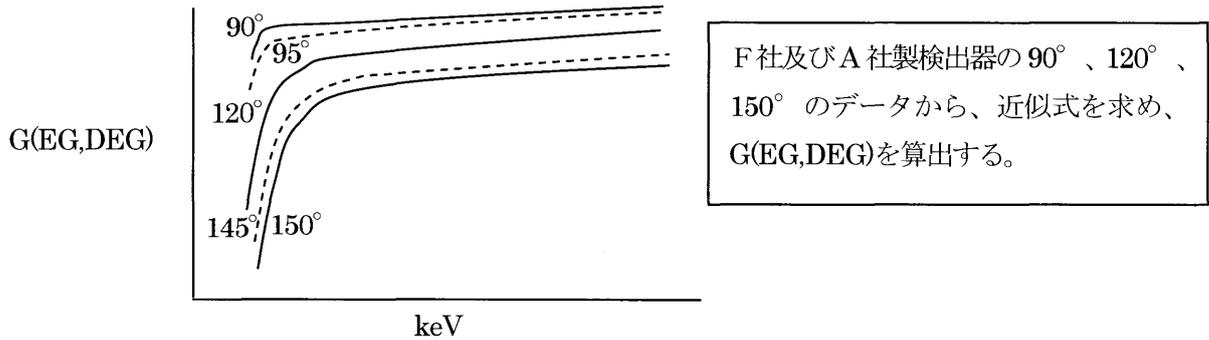
—式6

### ⑥方向依存性の寄与の計算

F社製とA社製各検出器の各核種における方向特性のデータから、核種の平均エネルギーをエネルギーとして、各エネルギーおよび各角度に対する（F社）／（A社）感度比を求める。

感度比の近似式から内挿によって各エネルギー（50～3000keV、5keVピッチ）および各角度（95°～150°、5°ピッチ）における（F社）／（A社）感度比：G(EG,DEG)を算出する。

（算出結果はグラフ5を参照）



式7によって、A社製検出器の各エネルギーおよび各角度における線量率：X(EG,DEG)に、対応する（F社）／（A社）感度比：G(EG,DEG)を乗じることにより、F社製検出器の各エネルギーおよび各角度における線量率：Y(EG,DEG)を算出する。

$$Y(EG,DEG)=X(EG,DEG) \cdot G(EG,DEG) \quad \text{—式7}$$

### ⑦Totalの計算

式8によって、全エネルギー、全角度の線量を加算することにより、F社製検出器の環境線量率：SUM\_Y(EG,DEG)を算出する。

$$SUM\_Y(EG,DEG)=\sum_{DEG=150^{\circ}}^{95^{\circ}} \sum_{EG=50keV}^{3000keV} (X(EG,DEG) \cdot G(EG,DEG)) \quad \text{—式8}$$

式9によって、A社製検出器の空間放射線量率：SUM\_X(EG,DEG)から、算出したF社製検出器の空間放射線量率：SUM\_Y(EG,DEG)を引くことにより、A社とF社の検出器で測定した場合の空間放射線量率の差が求まる。

$$A社とF社製検出器の空間放射線量率の差=SUM\_X(EG,DEG)-SUM\_Y(EG,DEG) \quad \text{—式9}$$

# 鉱山活動による十和田湖の水質変化 (1970)

森田 良美<sup>1</sup>

Estimation of changes in water quality during mine drainage and sewage disposal in Lake Towada

**[解 説]**

この報告書は、青森県が十和田湖の水質調査をする以前の、1952～1970年までの18年間にわたる十和田湖の重金属調査の記録であり、いままで未印刷の手書きのレポートであった。今回著者との連絡で、出典が判明し、当時の十和田湖の重金属調査・研究との関わりについて本報への掲載の了解をいただいた。(八戸環境管理事務所 吉田 毅)

**[要 旨]**

昭和26年に十和田湖西岸に創業した鉛山鉱山の鉱業活動と、十和田湖の重金属の水質変化を1952～1970年まで18年間にわたり調査した。その結果、鉱山活動によって湖水の垂鉛濃度が18年間で6倍高くなったが、鉱山廃水の垂鉛濃度を10ppm、銅濃度を1 ppm以下にするよう石灰中和すれば、湖水濃度をそれぞれ0.03, 0.003ppm以下にすることが可能であることを数理モデルを用いて予測し、排水処理濃度指針を策定して、鉛山鉱山に対し適切な排水処理を行うよう勧告し、改善させた。

Key words: Lake Towada, mining activity, heavy metal concentration, mine drainage, numerical model

## 1. 目 的

昭和26年十和田湖西岸に創業した鉛山鉱山が湖の水質ひいては水産生物に悪影響をおよぼすことを懸念し、創業直後から水質の長期的変化を追跡してきたが、昭和42年から本研究班（文部省科学研究費の特別研究「水文学」）に参加したのを機会に、水質調査を一層詳細かつ頻繁に行なうとともに、鉱業活動と水質変化の因果関係の究明に努め、あわせて将来の水質変化を予測して対策樹立のための指針を得ようとした。

## 2. 十和田湖の概況

十和田湖は青森、秋田両県にまたがるカルデラ湖で、湖面標高401m、面積59.05km<sup>2</sup>、最大深度334m、平均71.0m、体積4.19km<sup>3</sup>、十和田八幡平国立公園の中心をなす観光地として、また和井内貞行によるヒメマスの人工ふ化放流事業によって知られる。ふ化場は昭和27年に国営となったが、35年から青森、秋田両県で作る十和田湖ふ化場協議会により運営されている。湖への流入河川は8本、流出河川は奥入瀬川1本だけであるが、昭和12年以来東北電力株式会社が湖の北東隅青撫に取水口を設けて湖水を発電利用しており、奥

入瀬川へは子の口の調節水門によって観光期の昼間だけ放水し、また奥入瀬川流域の融雪水と両水を取水し水路を利用して湖へ逆流させて貯水している。湖の水収支を東北電力の資料にもとづいて計算した結果を表1に示す。

表1 十和田湖の水収支 (m<sup>3</sup>/y)

流入水量		流出水量	
湖域	3.1×10 <sup>8</sup>	青撫	3.8×10 <sup>8</sup>
青撫	1.8×10 <sup>8</sup>	子の口	5.8×10 <sup>7</sup>
		蒸発	5.4×10 <sup>7</sup>
計	4.9×10 <sup>8</sup>	計	4.9×10 <sup>8</sup>

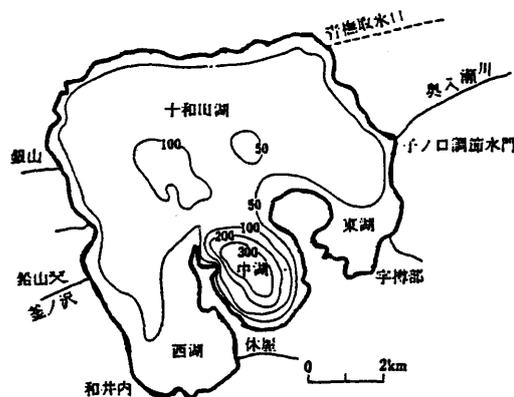


図1 十和田湖の概要

1 東京水産大学 (現名誉教授)

### 3. 鉱業活動の概況

鉛山鉱山は十和田湖の西岸、秋田県鹿角郡小坂町十和田鉱山にある銅、亜鉛、鉛、硫化鉱山で、その発見は江戸時代の寛文6年(1665)といわれるが、本格的に採掘されるようになったのは、昭和26年(1951)10月、日本鉱業の子会社として鉛山鉱業株式会社(資本金4千万円)が設立されて以来のことである。鉱業所の従業員は現在約80名で、その生産活動の推移は表2の通りである。採掘された粗鉱は山許で比重選鉱を行なったのち24km離れた大湯選鉱場へ運ばれ浮選処理にかけられている。従って鉱山排水は主に坑内水で、これが釜の沢という小溪流に放流されて十和田湖に流入している。昭和43年9月以前は排水を沈殿池に通すだけで、特別な処理はしていなかったが、同年10月から通産省の監督指導により石灰乳処理を行なうようになった。しかし管理が不十分なためその効果があまり上がっていない。十和田湖の西岸には鉱山のほかに旧十和田鉱山の廃坑があり、それから出る汚濁水が鉱山川をへて湖に流入している。

表2 鉛山鉱山の生産活動の推移

年次	出粗鉱量 (t)	品位 (%)				探鉱延長 (m)	
		Cu	Pb	Zn	S	坑道	試錐
1952	4,424	3.03	2.96	10.35	14.42	552	—
1953	9,499	1.62	1.79	7.92	11.19	660	—
1954	12,211	1.20	1.43	7.46	11.15	648	—
1955	11,130	1.21	1.51	8.02	11.41	612	156
1956	10,884	1.06	1.23	5.88	9.94	684	444
1957	10,248	1.40	0.95	5.21	11.16	780	108
1958	12,223	1.67	0.87	6.35	12.62	972	—
1959	14,000	1.51	0.69	4.91	12.56	540	—
1960	19,679	1.38	0.62	4.57	12.30	944	51
1961	21,390	1.34	0.66	4.55	12.23	1,404	216
1962	23,155	1.43	0.73	4.08	12.92	1,373	1,030
1963	23,932	1.09	0.75	5.76	11.68	1,388	1,594
1964	23,520	0.76	0.53	4.89	11.19	1,095	1,810
1965	24,746	0.93	0.61	5.85	8.43	1,766	1,828
1966	24,390	1.07	0.41	4.63	8.57	1,179	1,557
1967	22,365	1.16	0.61	4.54	9.34	1,167	2,314
1968	<sup>6ヶ月</sup> 10,778	1.28	0.26	3.31	9.92	518	898
合計	278,584	—	—	—	—	16,282	12,006
平均	—	1.24	0.80	5.32	11.04	—	—

### 4. 釜の沢および銀山川の水質

鉛山鉱山排水が放流されている釜の沢の川口部における水質を表3に示す。鉱山操業初期を除くとpHはおおむね3.0~3.6で、43年10月以降には石灰処理の効果によりpH4以上の時もあるが、全般的にみて排水処理が不十分である。重金属としては亜鉛が多く、

銅はその約1/10、鉛は1/200程度であり、pHが低いほどこれら重金属濃度が高くなっている。釜の沢の流量は2~3 m<sup>3</sup>/sec、年間流量にして約1.3×10<sup>6</sup>m<sup>3</sup>なので、1年間におよそ亜鉛40 t、銅4 t、鉛0.2 tが湖に供給されていることになる。

表3 釜の沢の川口部の水質

年月日	pH	Cu ppm	Pb ppm	Zn ppm	Cd ppm
1952. 8.	6.4	0.36		4.4	
1953. 8. 21	4.8	1.72		8.2	
1956. 8. 27	3.6	3.40		45.0	
1958. 8.	3.15	2.07		35.5	
1961. 1.	3.4	2.15		28.6	
1967. 9. 3	3.0	6.30	0.31	70.0	
1967.11. 9	3.25	2.75		31.5	
1968. 8. 14	3.25	3.35	0.16	33.5	0.17
1968. 9. 13	3.3	3.58	0.22	32.0	0.16
1968.10. 21	3.55	1.60	0.16	16.8	0.07
1968.11. 8	3.45	2.05	0.19	10.9	0.044
1968.12. 18	4.45	0.28	0.04	2.7	0.018
1969. 1. 13	2.95	9.40	0.21	66.5	0.32
1969.12. 15	3.25				0.16
1969.12. 25	3.4				0.13
1969.12. 31	3.5				0.14
1970. 1. 8	4.95				0.056

表4 銀山川の川口部の水質

年月日	pH	Cu ppm	Pb ppm	Zn ppm
1952. 8.	6.8	0.075	0.055	0.56
1953. 8. 21	7.0	0.160	0.10	0.85
1956. 8. 27	7.0	0.050	0.03	0.54
1961. 1.	7.0	0.010	0.007	0.38
1967. 9. 3	7.0	0.058	0.06	0.60
1968. 9. 13	7.0	0.046	0.061	0.45

一方、旧十和田鉱山廃坑汚濁水が流入している銀山川の水質は表4に見られる如くで、流量は釜の沢の数倍あるとはいえ、汚濁負荷量は釜の沢の1/10程度に過ぎない。

### 5. 十和田湖の水質変化

十和田湖の水質調査は鉱山創業直後の昭和27年8月から本研究班結成までの15年間に7回行ったが、本研究班に参加後は昭和42年9月と43年の9月の2回、湖面全体にわたり各層採水して詳細な水質分析を実施し、なお十和田湖ふ化場に表面採水を6回依頼して分析した。紙面の都合でその全結果を示すことができないので、表面水の平均水質の推移だけを表5に示した。

湖水のpHはこの17年間全く変わっておらず、洞爺湖におけるような酸性化はみられない。水平分布を見ても、釜の沢の川口から10mも離れるとpHは他の場所と同じになっている。しかし重金属濃度は逐年増加し、亜鉛は当初の5倍、銅は3倍になった。正常湖水の亜鉛濃度0.005ppm以下、銅濃度0.001ppmとくらべると、現在の十和田湖の亜鉛濃度は約20倍、銅濃度も数倍である。亜鉛濃度が鉛山鉱山創業直後の時期に既に正常値の3倍程度になっているのは、銀山川による汚濁の結果と思われる。43年9月の亜鉛濃度が42年11月の値より低くなっているのは、停滞期に表層水の亜鉛濃度が躍層以深にくらべて低くなるため、躍層以深では0.08ppmである。亜鉛濃度は3年前位からほとんど定常状態になっているように見える。

表5 十和田湖表面水の水質の推移

年月日	pH	Cu ppm	Pb ppm	Zn ppm
1952. 8		0.001	<0.001	0.014
1953. 8	7.7	0.001	<0.001	0.012
1954. 10	7.6	0.001	<0.001	0.017
1956. 8	7.7	0.001	<0.001	0.035
1958. 8	7.8	0.001	<0.001	0.042
1961. 10		0.001	<0.001	0.048
1964. 5.19		0.002	<0.001	0.064
1967. 9. 3	7.8	0.003	<0.001	0.066
1967. 11. 8		0.003	<0.001	0.081
1968. 9. 13		0.003	<0.001	0.066
1969. 1. 13	7.6	0.003	<0.001	0.083

表6 淡水生物に対する怒限濃度 (ppm)

	Cu	Pb	Zn
水産用水基準の限界値	0.01	0.1	0.1
魚に対する極量(Doudroff)	0.004~0.02	0.1~0.5	0.1~0.5
同上(Liebmann)	0.08 ~0.8	0.2~10	0.1~2
サケ幼魚初発致死濃度(Sprague)	0.048	—	0.60
同 嫌忌濃度(同)	0.005	—	0.054
ミジンコの運動停止濃度	0.01	0.9	0.07

## 6. 湖水生物に対する影響

表6に淡水生物に対する銅、鉛、亜鉛の怒限濃度を示す。

近年十和田湖のヒメマスの魚体小型化が問題になっており、その原因調査が淡水区水研や東北大学の人々によって行なわれているが、まだ決定的要因は明らかでないという。その調査報告を見ると湖水の重金属濃度は全く考慮されていない。十和田湖の亜鉛濃度は3年前から0.08ppmでこれは水産用水基準の限界値や

Doudroffらの魚に対する極量よりやや低いが、サケ幼魚の嫌忌濃度やミジンコの運動停止濃度を上回っている。また湖水の銅濃度は0.003ppmで表6中の何れの値よりも低いが、銅と亜鉛が共存すると相乗作用によって毒性が強化されることに注意すべきである。ヒメマスのようなサケ科の魚は汚濁に対し比較的弱いのので、十和田湖の重金属濃度によって長年の間生理的悪影響を受け成長不良になる可能性がないとはいえない。水産生物学者の検討を望みたい。なお43年9月の水質調査の際に湖中のプランクトン、水草、魚3種を採集して持ち帰ったが、学園紛争のため未だ分析を終えていない。

## 7. 水質変化の予測と対策

釜の沢によって十和田湖に供給される重金属が湖中で物理化学的または生物学的原因によって除去されることなく、湖水全体に均一に混合されたのち流出水により運び去られるものと仮定すると次式が成り立つ。

$$V \frac{dC_t}{dt} = C_k Q_k - C_t Q_o$$

ただし、Vは十和田湖の全水量、C<sub>k</sub>、C<sub>t</sub>は釜の沢および十和田湖の重金属濃度、Q<sub>k</sub>、Q<sub>o</sub>は釜の沢および流出水の流量である。上式で、dC<sub>t</sub>/dt=0とおくことにより重金属の流入量と流出量がちょうどつり合っただけで定常状態に達したときの十和田湖の重金属濃度を求める式が得られる。

$$\lim C_t = C_k \frac{Q_k}{Q_o}$$

この式にQ<sub>k</sub>=1.3×10<sup>6</sup>m<sup>3</sup>/y、Q<sub>o</sub>=4.4×10<sup>8</sup>m<sup>3</sup>/yを入れると、

$$\lim C_t = 0.003 C_k$$

釜の沢の重金属濃度は平均Cu 3ppm、Zn 30ppmであるから、

$$\text{Cu: } (\lim C_t) = 0.009 \text{ ppm}$$

$$\text{Zn: } (\lim C_t) = 0.09 \text{ ppm}$$

となり、亜鉛の濃度は既にこの値に近いので定常状態と思われるが、銅の濃度はまだこの値の1/3なので今後なお増大すると考えられる。

対策として鉱山排水の石灰処理を強化して釜の沢川口部における重金属濃度をCu 1ppm、Zn 10ppm以下に保つようにすれば、湖水の銅濃度は現在の0.003ppmより増加せず、亜鉛濃度は現在の0.08ppmから漸減して0.03ppmになるので、湖水生物に対する悪影響の心

配はなくなるが、亜鉛濃度をなるべく速やかに低下させるためには釜の沢の亜鉛を1 ppm程度まで下げる必要があるだろう。

#### [解説] :

2000年6月14日、著者に十和田湖の重金属濃度の水質調査のきっかけと、①この報告書の出典、②この報告書の中で、青撫からの“もどし水”が最近の東北電力株の値よりも約1ケタ大きかった理由等をお尋ねした結果、2000年9月11日付けで以下の様な連絡をいただいた。

#### [著者からの連絡(抜粋)] :

……私が十和田湖の調査研究をはじめたのは今から48年も昔のことであり、最後の現地調査からでも30年たっております。しかも、後述するように、同湖の研究は、ごく初期のものを除き、海洋に関する調査や研究のかたわらに、時間をやりくりして行なった片手間仕事であったこともあって、記憶があいまいになった部分が多いのです。そこで、できるだけ記憶をよびもどすために、1952年の研究の発端にさかのぼり、1970年の終了までの道程を順を追ってたどってみました。以下に、やや長くなりますが私の十和田湖研究の経緯を述べ、おたずねの件についてはその中でお答えしたいと思います。

太平洋戦争末期の1944年9月に東京の大学を繰り上げ卒業した私は、同年10月から54年4月まで、名古屋大学理学部分析化学講座に、はじめの5年間大学院生、あとの4年半は助手として在籍し、主として銅、亜鉛、鉛などの微量重金属元素の地球上における分布の研究を行ないました。講座主任がわが国における陸水化学の草分けの菅原健教授であった関係で、私も研究室の一員として、他のスタッフとともに各地の湖沼の調査研究に参加し、一般的な観測を行なうとともに、湖水や底泥中の微量重金属元素を分析しました。たまたま1952年の夏に北海道大学で開催される地球化学討論会に菅原教授以下研究室の主要メンバー全員が研究発表に出かけることになったとき、片道30時間かけて札幌まで行くのだから(注1)、ついでに北海

道の湖を調査し、さらに往復途中で東北の十和田湖と濁沼にも寄ろうということになりました(注2)。これが私と十和田湖との最初の出会いで、当時私は30歳でした。

---

(注1) 戦後7年しかたっていなかった当時は、日本国内に航空機はほとんど飛んでおらず、新幹線もなく、特急列車さえ東京一大阪間に2往復走っていただけでした。そのため名古屋から札幌へ行くには急行列車と青函連絡船を乗り継いで片道30数時間かかりました。(注2) 北海道の湖として洞爺湖と倶多楽湖の調査を計画しましたが、天候の関係で洞爺湖だけしか調査できませんでした。十和田湖はわが国の代表的な湖なので、皆が一度は是非調査に行きたいと思っていた上に、弘前市出身の小山忠四郎助教授がその風景のすばらしさを熱っぽく語られたので全員が寄ることに賛成、また、濁沼は宮城県鳴子温泉のすぐ近くにある火口湖で、湖底から噴出する硫化水素が酸化してできる硫酸のために世界一の酸性湖として有名だったので、菅原教授が是非寄ってみたいといわれ、私も強酸性湖の重金属濃度を是非知りたかったので大賛成したのでした。

---

さて、はじめて訪れた十和田湖は、私がそれまで調査したどの湖よりもはるかに美しく、その期待していた以上のすばらしさに感激しました。このとき、湖に鉱山廃水が流れ込んでいるとは全く知らなかったので、水の重金属濃度は恐らく極めて低いだらうと予想したのですが、採った水を名古屋の研究室へ送って分析した結果、亜鉛がほかの貧栄養湖の値より1けた高い0.014ppmも含まれていたのでびっくり。いったい何が原因だろうかと思案していたところ、程なくそのなぞがとけました。私どもよりもやや遅れて十和田湖方面の生物調査に行かれた京都大学の上野益三教授から、重金属濃度を調べて欲しいという手紙をそえて2本の河川水試料が送られて来たのです。その手紙によれば、この2本は十和田湖西岸にある新旧二つの金属鉱山の廃水で汚染された流入河川で、一方の川には水生昆虫が全く棲息せず、もう一方の川には棲んではいるが、種類も数もごく少ないということでした。早速分析した結果、銅、亜鉛、鉛が高濃度に含まれていることがわかり、十和田湖の亜鉛含量が異常に高い原因がはっきりしたのです。

私は十和田湖の汚染状況をもっとこまかく調べたい

と思ったので、翌1958年夏、大学院生1名とともに詳しい現地調査を行ないました。先ず鉛山鉱山を訪ねて排水の処理放流状況を視察したところ、単に沈殿池を通し浮遊物を減らしただけで釜の沢に放流しており、同川は鉱山の廃水路同然であることがわかりました。次に湖水中の重金属の水平および鉛直分布を知るために、湖上の数地点で深度別に採水し、名古屋へ送って分析した結果、重金属濃度は場所や深さによる差があまりなく、中湖の最深部まで汚染が及んでいることが確認されました。もちろん、ここでいう汚染は、自然環境とくらべて濃度が異常に高いという地球化学的意味での汚染(contamination)であって、水中生物や人間に害を及ぼすような汚濁(pollution)ではありません。しかし、もしこの状態を放置すれば、湖の重金属濃度が徐々にふえつづけ、やがてヒメマスなどの生物に悪影響を及ぼすようになるのではないかと考えた私は、鉛山鉱山に適切な廃水処理を行なうよう勧告するとともに、毎年少なくとも1回現地調査に行き、重金属濃度の推移を追跡しようと決意したのです。この計画には、湖の汚染の進行を監視するという目的以外に、もう一つ目的がありました。それは十和田湖が自分のテーマである水圏中の重金属元素の挙動を研究するのに絶好のフィールドであると考えたことでした。

ところが、1954年5月に東京水産大学に転勤することになったため、十和田湖研究を計画通り実行することが極めて困難になってしまいました。というのは、東水大では海洋の研究が主な仕事になり、ほとんど毎年大学の研究練習船に乗って太平洋はもとより、遠くインド洋や南極海にまで出かけ、1回の乗船期間が平均3ヶ月、最長6ヶ月にも及んだからです。日本に帰ってからも、乗船中休講にした授業を補うなどのためにとても忙しくて、十和田湖調査に行くひまがなく、止むなく十和田湖ふ化場に湖の表面水と釜の沢の水を採って送ってもらって分析したこともありました。なお、59年から60年にかけての1年2ヶ月間、文部省在外研究員としてイタリアと米国に出張していた期間には、十和田湖調査が中断しました。そんなわけで、1970年までの18年間に自身で現地へ行ったのは7回だけで、当初の計画にはほど遠い甚だ不満足な研究になってしまいましたが、とにかくまがりなりにも18年間の湖水の重金属、とくに亜鉛の濃度の推移を明らかにすることができました。

この間1967年度に、文部省科学研究費の特定研究

「水文学」の中に、半谷高久東京都立大学教授（現名誉教授）を代表者とし、化学、生物、地学関係の研究者が多数参加して、「人類活動による水質変化の研究」という題目で研究班が組織され、私も一員として加わり「鉱業活動と水質」を担当することになりました。この研究は、人間の活動がどのようなメカニズムで水質へ影響を与えるのかを研究することが目的でした。

そこで私は それまでに行なった十和田湖の調査結果を整理する一方、鉛山鉱山の創業以来の生産活動と廃水処理状況の変遷を調べました。また、十和田湖の水収支を計算するのに必要な降水量、蒸発量、流出入水量などのデータを入手するため、1968年9月の現地調査の帰途に、焼山の東北電力十和田発電所を訪問しました。幸にそこには発電所開設以来の毎月の測定値がきちんと整理保存されていましたが、限られた時間内に全部を写すことは不可能なため、最後の3年分(1965-67)だけを写して帰りました。拙稿中に記載してある水収支の年間量はこの3年間の平均値にもとづく値です。お手紙の中で、青撫からのもどし水の値が最近の値と約1けた違う旨のご指摘をいただきましたが、その理由を考えているときに思いあたったのは、1965~68年頃、湖の水位が異常に低下していたことです(注3)。そのため東北電力がもどし水をふやしていたのかもしれません。

---

(注3) 水位低下のため、湖中の恵比須・大黒島などが、ふだん水面下に隠れていた部分まで露出し、珍しい景観だったので写真を撮ったことをおぼえています。また、その頃ヒメマスの魚体小型化が問題になっており、湖の水位低下と関係があるのではないかといわれていました。

---

「人類活動による水質変化の研究」は3年で打切りになりましたが、70年度から特定研究「水資源」の中の「水質変化と水資源に関する基礎研究」に題名を変えて、さらに3年間研究を続けることになりました。この後半の3年間に、私は既に採取して保存してあった水や生物試料の分析、とくにその当時問題になっていたカドミウムの定量を行ったほか、前半期の研究で不十分だった湖の水質変化の解析に力を注ぎました。

さて、文部省の特定研究の場合、毎年度末に代表者が過去1年間の研究成果の概要を報告するほかに、3年間の研究終了時に、全班員が各自の研究成果を書き、

代表者がそれを集めて1冊の研究報告書にして文部省に提出しなければなりません。貴台が入手された私の手書きのリポートは、1970年4月に提出された前半3年間の研究成果報告書に収録されたものです。研究費の残額が不足したために活版印刷にできませんでした。中間報告的な内容で、とくに、水質変化の予測と対策に関する記述は至って粗雑です。この報告書はごく少数の関係者だけに配布されたものなので、貴台が読まれたことを知ってちょっと驚きました。

なお、後半の3年間の報告書(活版印刷)も1973年4月に文部省に提出されたはずですが、私の手許を探しても見つかりませんでした。

これらの報告書とは別に、前後期をあわせて6年間の研究成果の中から、水質汚濁防止業務に従事している人や水質汚濁について勉強している人に役立ちそうなものを選び、解説的に記述した本を出版することになりました。これが水文学講座の中の「汚染水質機構」(1973年7月発行)です。その中の拙稿は欠陥の目立つものですが、それでもいっぺんかお役にたったようで幸いです。

以上で私の十和田湖研究の経緯を終わります。書いている途中で思い違いに気づいたり、忘れていたことをフツ思い出したりして、加除修正をくり返し、何とか書き上げましたが、昔のノート、日誌などが残っていないので、記憶違いによる誤があるかもしれません。貴台が拙稿をていねいに読んでくださったことに感激したため、おたずねの件に関係のない個人的なことまで長々と書いてしまいました。どうかお許しください。

私は1970年8月の現地調査以後は、一度も十和田湖へ行っておりません。お送りいただいた資料を拝見しますと、湖の状況は近年大きく変わり、CODの環境基準値(AA類型)オーバー、透明度の10m以下への低下、ヒメマス漁獲量の落ちこみとワカサギの繁殖など汚染が進んでいる由、透明度が15~20mもあった昔の十和田湖しか知らない私には想像もできないことばかりで、大変残念に思います。関係者のご努力により水質が少しづつでも改善することを願ってやみません。

2000年9月11日 森田 良美

### Ⅲ 他誌投稿抄録

## 東北地方における赤痢事例分離株の解析

大友 良光 : 病原微生物検出情報, 23 (7), 17-18, 2002.

2001年11月下旬から西日本を中心に韓国産カキが感染源と考えられる赤痢患者が相次いで発見された。東北地方でも同時期に赤痢患者の発生があり、菌株を集めてパルスフィールドゲル電気泳動法 (PFGE) 解析と薬剤感受性試験を実施して菌株を比較した結果、東北各地で検出されたソンネ赤痢菌9菌株のうち、2株を除いた7菌株が流行株と同一であることが判明した。

## パルスフィールドゲル電気泳動法 (Pulsed-Field Gel Electrophoresis, PFGE) 標準化及び画像診断を基礎とした分散型システムの有効性に関する研究

対馬 典子 : 平成13年度厚生科学研究費補助金 新興・再興感染症研究事業 総括・分担研究報告書, p51, 2002.

平成13年3月末に発生したO157感染事例に関し患者由来株、豚レバー由来株についてPFGEを行った結果、両者とも同一パターンを示し、感染経路の一端が明らかとなった。

## 介護老人保健施設におけるインフルエンザ対策に関する研究 (1999~2000シーズン)

木村三生夫<sup>1</sup>, 鈴木 功<sup>2</sup>, 三上 稔之, 筒井 理華, 石川 和子, 大友 良光, 堺 春美<sup>1</sup>, 合田 英雄<sup>3</sup> : 臨床とウイルス, 29 (4) 185-200, 2001.

1999-2000年シーズンにインフルエンザワクチンを接種、接種後の抗体上昇、罹患状況について調査を行った。接種前の年齢別HI抗体保有率は高齢者が低く、特にA/北京/262/95 (H1N1) 型が低かった。前年度のワクチン接種の既往のあるものは既往のないものとは比べ、接種保有率、平均抗体価は有意に高く、接種により抗体価は1年後もかなり良く持続していることが認められた。

1 : 東海大学

2 : (財) シルバーリハビリテーション協会

## Phenotypic heterogeneity in bullous congenital ichthyosiform erythroderma: possible somatic mosaicism for keratin gene mutation in the mildly affected mother of the proband.

K.Nomura<sup>1</sup>, K.Umeki<sup>1</sup>, I.Hatayama, T.Kuronuma<sup>1</sup> : Arch. Dermatol., 137, 1192-1195, 2001.

Bullous congenital ichthyosiform erythroderma (BCIE) はkeratin遺伝子の変異に起因し、多様な表現型を示す。本論文では、19才の患者はkeratin K1に変異(N187S)がある一方、軽症である母親ではモザイクとなっていた。この結果は、BCIE表現型は、keratin遺伝子突然変異の次世代へ移転する機構を通して重篤になっていくことを示唆する。

1 : 青森県立中央病院皮膚科

## Lipid peroxidation end products- responded induction of a preneoplastic marker enzyme glutathione S-transferase P-form (GST-P) in rat liver on administration via the portal vein. K.Satoh<sup>1</sup>, M.Hayakari<sup>1</sup>, K.Ookawa<sup>1</sup>, M.Satou<sup>1</sup>, S.Aizawa<sup>1</sup>, M.Tanaka<sup>2</sup>, I.Hatayama, S.Tsuchida<sup>1</sup>, K.Uchida<sup>3</sup> : Mutat. Res., 483, 65-72, 2001.

GST-Pのラット肝におけるprostaglandin (PG) による誘導について検討した。15-deoxy (12,14) PGJ2、PGJ2、(12) PGJ2は経静脈投与24-48時間で門脈周辺の肝細胞に発現することが免疫組織化学的に確認された。また、4-hydroxynonenalやacroleinも同様に誘導能が認められた。このことは、ラット肝におけるGST-Pの発現は発癌物質による脂質過酸化で仲介されることを示唆する。

1 : 弘前大学医学部第2生化学

2 : 弘前大学医学部第2病理学

3 : 名大院農学生命科学

## 十和田湖の負荷量調査 (1999~2000年)

三上 一, 坂崎 俊聖, 工藤 幾代, 野澤 久志, 神毅統, 今 俊夫, 前田 寿哉 : 国立環境研究所研究報告 第167号-十和田湖の生態系管理に向けてII, 1-14, 2001.

青森県環境保健センター研究報告に同じ

十和田湖の水質に及ぼす降水、河川、漁獲量の影響  
(1999～2000年)

三上 一, 石塚 伸一, 工藤 幾代, 野澤 久志, 神  
毅統, 今 俊夫, 前田 寿哉, 高村 典子<sup>1</sup>: 用水と  
廃水, 43 (11) 974-980. 2001.

青森県環境保健センター研究報告「十和田湖の負  
荷量調査」に同じ。

1: 国立環境研究所

## IV 学会等発表抄録

## 学会等発表抄録

### 最近の食中毒動向と食中毒原因菌の情報化

大友 良光：第24回日本プライマリ・ケア学会，青森市，2001，6，9-10。

近年，食生活の多様化及び食品流通の広域化等により，わが国における食中毒の発生状況に大きな変化が見られる。1999年全国規模で発生した乾燥イカ菓子の原因としたサルモネラ集団食中毒事件，あるいは2000年6月末に発生した雪印乳業食中毒事件などは散在的集団発生として注目された。これらの事例をいち早く察知するために，青森県独自で開発した食中毒起因菌による感染症の週報システムは有用であると考えられた（本報告のノートの項を参照）。

### 東北地方の汽水領域からの耐熱性溶血毒産生性腸炎ビブリオの分離

大友 良光：第35回腸炎ビブリオシンポジウム，津市，2001，10，25-26。

1998年6月，青森県内の1地域で腸炎ビブリオO3:K6による食中毒が頻発し，感染源調査を実施したところ河川河口から同一菌が検出され，これら汽水域における腸炎ビブリオの生態がクローズアップされた。これを契機に，1999年から東北地方沿岸の海水・海泥と食品における腸炎ビブリオ調査を実施したところ，TDH<sup>+</sup>，のO3:K6型菌が多くの河川河口から分離され，熊澤らが報告しているように，汽水領域が腸炎ビブリオの好適な生息場所と考えられた。

### 青森県における感染症情報の解析提供

下総 忠夫，三上 稔之，武沼 浩子：第21回青森感染症研究会，青森市，2001，7，28。

「感染症の予防および感染症患者に対する医療に関する法律」の施行に伴って当県でも4月より感染症情報センターが患者情報と病原体情報の一元化の為に当環境保健センター内に設置され，それ等全ての情報の収集，分析について活動を紹介した。

### ラットの肝前癌細胞におけるGST-Pの発現と細胞内ストレス（炎症）の発生関係

佐藤 公彦<sup>1</sup>，畑山 一郎：第21回日本分子腫瘍マーカー研究会，横浜市，2001，9，25

「ラットの肝前癌マーカー酵素，グルタチオンS-トランスフェラーゼP型（GST-P）の活性部位の特徴」の要旨参照

1：弘前大学医学部生体機能

### アップルポリフェノールによるマウスの癌転移および肝発癌抑制

畑山 一郎，三浦 啓徳，木立 由美<sup>1</sup>，山口 秀明<sup>1</sup>，獵山 一雄<sup>1</sup>：第60回日本癌学会，横浜市，2001，9，26-28

DENによるマウスの肝化学発癌と高肺転移性細胞r/mHM-1接種に伴うマウス肺転移に対するアップルポリフェノール（AP）の阻害効果を調べた。0.05% APの混水投与は，DEN発癌を75%程度抑える一方，肺転移を99%抑制した。r/mHM-1を用いたIn vitroの実験から，APの抑制作用はアポトーシスによるものではないと考えられた。

1：青森大学工学部

### ラットの肝前癌マーカー酵素，グルタチオンS-トランスフェラーゼP型（GST-P）の活性部位の特徴

佐藤 公彦<sup>1</sup>，佐藤 剛<sup>1</sup>，早狩 誠<sup>2</sup>，土田 成紀<sup>2</sup>，畑山 一郎：第67回日本生化学会東北支部例会，仙台市，2001，6，16-17

GST-Pは肝前癌細胞およびその前駆細胞と思われる細胞に特異的に多量に発現する。そこで，本酵素の活性部位の疎水性を物理有機化学的に検討したところ，alphaやmuクラスに比べてこのpiクラスGST-Pは活性部位の疎水性が低く，基質GSHに対する親和性が高かった。このことから，発癌過程におけるGST-Pの多量の発現は，細胞内発癌物質の大量蓄積による細胞内ストレスと炎症の発生が示唆された。

1：弘前大学医学部生体機能

2：弘前大学医学部第2生化学

マウス肝発癌起始細胞 (Possible initiated cells) におけるGSTP1-1発現のNrf2転写非依存性

佐藤 公彦<sup>1</sup>, 伊東 健<sup>2</sup>, 山本 雅之<sup>2</sup>, 早狩 誠<sup>3</sup>, 大川 恵三<sup>3</sup>, 土田 成紀<sup>3</sup>, 佐藤 剛<sup>1</sup>, 畑山 一郎: 第60回日本癌学会, 横浜市, 2001, 9. 26 - 28

転写因子Nrf2ノックアウトマウスのDEN肝化学発癌において, Nrf2によりAREを介して遺伝子発現することが明らかにされている解毒酵素GSTP1-1は, Nrf2 wildのマウスと同様に雌の肝前癌細胞に発現した。この結果は, 肝発癌過程におけるGSTP1-1の発現はNrf2に依存しないことを示す。

- 1: 弘前大学医学部生体機能
- 2: つくば大学医学部分子発生生物
- 3: 弘前大学医学部第2生化学

マウス Pi クラスグルタチオン S-トランスフェラーゼ遺伝子の転写調節

池田 由美<sup>1</sup>, Mohamed Serria<sup>1</sup>, 柿崎 育子<sup>2</sup>, 畑山 一郎, 佐藤 公彦<sup>2</sup>, 土田 成紀<sup>2</sup>, 西 信三<sup>1</sup>, 村松 正実<sup>3</sup>, 酒井 正春<sup>1</sup>: 第74回日本生化学会, 京都市, 2001, 10. 25 - 28.

マウスの解毒酵素Pi-class Glutathione S-transferase P (mGSTP1-1)の発現調節に関し, 遺伝子上流および内部のcis-elementを解析した。-58bpには転写因子Nrf2が結合するAREがみられ, gel shift assayで確認された。また, 遺伝子内部にはアンドロゲン受容体が結合する配列もみられた。この結果は, mGSTP1-1はマウス肝において, 発現の性差(雄が雌の10倍発現), および抗酸化剤BHAによる誘導機構の一部を証明する。

- 1: 北大院医学部生化学
- 2: 弘前大学医学部第2生化学
- 3: 埼玉医大

ラットおよびマウス肝前癌前駆細胞におけるGST-Pの発現

佐藤 公彦<sup>1</sup>, 佐藤 剛<sup>1</sup>, 早狩 誠<sup>2</sup>, 土田 成紀<sup>2</sup>, 畑山 一郎: 第74回日本生化学会, 京都市, 2001, 10. 25 - 28

発癌剤DEN投与数日で, ラットおよび雌マウス肝にGST-P陽性細胞が出現する。当該細胞が前癌前駆細胞であるかどうか検討した。陽性細胞の面積は陰性細胞

に比して1.5倍であった。このことは, 細胞内で発生した活性酸素や過酸化物質などの内因性発癌物質へのGST-Pの結合など, 排除機能の亢進による細胞肥大であることを示唆し, 発癌早期の分子機構の解明に重要な知見をもたらすものである。

- 1: 弘前大学医学部生体機能
- 2: 弘前大学医学部第2生化学

十和田湖の水質・生態系管理

三上 一, 石塚 伸一, 高村 典子<sup>1</sup>: 日本陸水学会第66回大会, 仙台市, 2001, 10. 6 - 8.

十和田湖では, 1986年にCODが環境基準値(AA類型; 1mg/L以下)を越えて以降, 透明度の低下とヒメマス漁獲量の落ち込みが問題となっている。十和田湖において, 「良好な水質と安定したヒメマス漁獲量」の双方を満足するためには, 自然景観の保護・育成に考慮した降雨時における土壌流出防止対策とヒメマス-Daphnia優占系をもたらす環境収容力に見合うヒメマス稚魚の放流などの魚類管理が必要である。

- 1: 国立環境研究所

十和田湖の負荷量調査(1998~2000年)

三上 一, 野澤 久志, 神 毅統, 高村 典子<sup>1</sup>: 第35回日本水環境学会, 岐阜市, 2001, 3. 14 - 16. 青森県環境保健センター研究報告に同じ。

- 1: 国立環境研究所

粒径組成とC, N, Pからみた十和田湖の底質環境(1999)

三上 一, 石塚 伸一, 早狩 進, 高村 典子<sup>1</sup>: 第36回日本水環境学会, 岡山市, 2002, 3. 14 - 16.

青森県環境保健センター研究報告に同じ。

- 1: 国立環境研究所

原子燃料サイクル施設周辺の環境放射線モニタリング  
木村 秀樹, 今 武純, 外崎久美子, 竹ヶ原仁, 高橋 秀昭, 嘉山 定伸, 木村 芳伸, 工藤 香織, 津浦 伸次<sup>1</sup>, 中川 博<sup>1</sup>: 放射線影響学会第44回大会, 豊中市, 2001. 10. 29 - 31.

青森県六ヶ所村では, 日本原燃株式会社のウラン濃

縮工場、低レベル放射性廃棄物埋設センター、高レベル放射性廃棄物貯蔵管理センター及び再処理工場の使用済燃料受入れ・貯蔵施設が現在操業中であり、再処理工場本体は、2005年の操業開始に向けて建設が進められている。このため、青森県及び日本原燃株式会社（事業者）は、1989年から原子燃料サイクル施設周辺地域において、環境放射線等のモニタリングを実施している。

本県におけるモニタリングは、県が策定した「原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等モニタリング基本計画（平成13年2月改訂）」に基づき行われているが、県と事業者が合理的に分担し、地域全体として整合がとられるような形になっている。

空間放射線については、県が施設周辺地域と比較対照としての青森市にモニタリングステーション6箇所、六ヶ所村隣接市町村にモニタリングポスト6箇所を、事業者が施設周辺地域にモニタリングステーション3箇所を設置して連続測定を行っている。モニタリングステーションにおいては、空間放射線のほか、大気浮遊じん中の全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能、気体状 $\beta$ 放射能、大気中の気体状フッ素及び気象の連続測定を行っている。また、積算線量の測定を、県が24箇所、事業者が13箇所において行っている。

環境試料中の放射性物質等の分析測定については、大気浮遊じん、土壌、農畜産物、海水、海産生物等について、 $\gamma$ 線放出核種、H-3、C-14、Sr-90、I-129、I-131、Pu、U、F等を対象に、年間で県がのべ約390件、事業者がのべ約440件を実施している。

本ワークショップでは、モニタリング計画策定の考え方のほか、1989年から2000年までに実施した結果の概要について報告した。

1：日本原燃株式会社

#### 蛍光ガラス線量計の低温時における特性試験

工藤 香織，五代儀 貴<sup>1</sup>，竹ヶ原 仁，久松 俊一<sup>1</sup>，木村 秀樹，佐々木（外崎）久美子，齋藤 稔，稲葉次郎<sup>1</sup>：第39回理工学における同位元素・放射線研究発表会，東京都，2002，7. 3-5.

蛍光ガラス線量計（RPLD）は熱ルミネセンス線量計（TLD）と比べ、フェーディングによる影響が少ない、素子間の感度のばらつきが小さい、繰り返し測定が可能であるといった利点を有するため、近年、環境放射線モニタリングにおける積算線量の測定器として注目されている。最近、RPLDの感度が低温時に低下するという報告がなされたため、青森県と（財）環境科学技術研究所は共同で、RPLDの低温時における特性を明らかにするため、温度を変えて放射線照射実験を行った。

環境研の全天候型人工気象実験施設内大型人工気象室（W12×D11×H13m）を使用し、0℃と20℃の温度条件下で、Cs-137（3.3MBq）及びCo-60（1.9MBq）線源により各2回照射実験を行った。素子は、県が同一ロット10素子、環境研が異なる3ロット各10素子、合計40素子を用いた。

環境研のRPLDについては20℃と0℃で差は認められなかったが、県のRPLDについては0℃における測定値の方が20℃より低めの値を示した。現在、温度の幅を広げた照射実験や、各々の機関の素子を交換して測定するなど、RPLDの特性についてさらに検討を行っている。

1：（財）環境科学技術研究所

編集者 畑 山 一 郎

---

---

## 青森県環境保健センター研究報告

(平成13年度)

平成15年3月発行

編 集 〒030-8566 青森市東造道1-1-1  
発 行 青 森 県 環 境 保 健 セ ン タ ー  
所 長 福 寿 寛 二  
電 話 (017) 736-5411 FAX (017) 736-5419  
印 刷 〒030-0802 青森県青森市本町1-2-5  
会社名 ワタナベサービス(株)  
電 話 (017) 777-1388

---

---

(環境保護の為、再生紙を使用しています。)