



Title	豊平川上流部における無機物質の挙動とそのリスク評価
Author(s)	佐藤, 裕子; 青木, 未知子; 金子, 宗生 他
Description	第7回衛生工学シンポジウム (平成11年11月11日 (木) -12日 (金) 北海道大学学術交流会館) . 5 水環境・リスク評価 . P5-3
Citation	衛生工学シンポジウム論文集, 7, 160-165
Issue Date	1999-11-01
Doc URL	<a href="https://hdl.handle.net/2115/7285">https://hdl.handle.net/2115/7285</a>
Type	departmental bulletin paper
File Information	7-5-3_p160-165.pdf



5-3

豊平川上流部における無機物質の挙動とそのリスク評価

佐藤裕子、青木未知子、金子宗生、○福井将之、田畑彰久、亀井 翼（北海道大学）  
余湖典昭（北海学園大学）、眞柄泰基（北海道大学）

1. はじめに

札幌市の豊平川は 180 万人を超える人口をもつ札幌市の飲料水の約 97%をまかなっており、上流には定山溪温泉、豊羽鉦山が存在している。古くから定山溪の温泉水にはヒ素が含まれることが知られており、また鉦山由来の金属等が河川水等を与える影響についても調査研究が行われてきた。

昨年度本研究室で行った豊平川水系上流部における調査<sup>1)</sup>で、藻岩、白川浄水場の原水を取水している藻岩ダムよりも上流部におけるヒ素濃度についてはある程度把握されたが、物質を濃度だけではなく負荷量として把握すること、ヒ素だけではなくホウ素を含めた他の無機物質の挙動、定山溪の下水処理場で処理されたヒ素の挙動等についてさらに検討する必要があると思われる。そこで本研究では、

- ① 豊平川上流部におけるヒ素、ホウ素、その他の無機物質の挙動を明らかにし、それぞれの物質の相互関係や発生源、負荷量、健康影響等について考察する
- ② 定山溪処理場で除去され下水汚泥に移行したヒ素の挙動を把握する

以上の二つのことから、札幌市全体におけるヒ素のおおよその流れを知ることが目的とし、昨年度の調査に引き続き豊平川上流部における河川水および定山溪処理場の調査を行い、さらに定山溪処理場の下水汚泥が移行する下水処理場、汚泥処理施設について調査を行った。

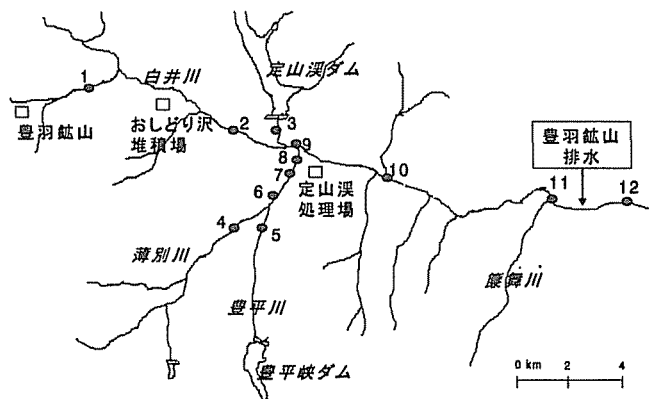


図1 豊平川上流部の概要と調査地点

2. 調査方法

(1) 豊平川上流部

a) 調査地点

豊平川上流部の河川水、温泉湧水、および定山溪処理場の流入水、放流水の試料採取を平成9年12月から月1回行い、調査は現在も継続中である。試料採取地点は以下の通りであり、位置関係を図1に示す。

- 1 山鳥橋：白井川にあり豊羽鉦山の約 3km 下流に位置する。
- 2 白滝橋：豊羽鉦山の排水をためてあるおしどり沢堆積場の下流に位置する。
- 3 紅葉橋：小樽内川の定山溪ダム直下に位置する。
- 4 薄別橋：上流には、くま牧場と薄別温泉(硫化水素泉)が存在する。
- 5 豊橋：上流には豊平峡温泉(ナトリウムカルシウム炭酸水素塩泉)が存在する。
- 6 営林署：豊平川と薄別川の合流地点の下流に位置する。
- 7 玉川橋：定山溪温泉の下流に位置し、この橋よりも下流での温泉の湧出はない。
- 8 錦橋：玉川橋の下流に位置し、発電所の放流口以外に支流の合流はない。

- 9 一の沢ダム：豊平川本流と支流が合流し、定山溪処理場の放流口がある。
- 10 砥山ダム：一の沢ダムの約 5km 下流に位置する。
- 11 藻岩ダム：藻岩浄水場の取水口がある。
- 12 石山橋：豊羽鉦山の鉦山廃水が流れ込んでいる十五島公園の下流に位置する。
- 13 温泉水：泉源タンクから流れ出ている温泉水(ホウ酸食塩泉)。
- 14 定山溪処理場：流入水および放流水。流入水は、定山溪地域の住宅および温泉旅館、ホテルの排水が入っている。

#### b) 試料採取

ヒ素測定用の試料は溶解性のヒ素を分けて測定するために、 $0.45\mu\text{m}$  のメンブレンフィルターを用いて現場で加圧ろ過を行ったもの(溶解性ヒ素)と、ろ過を行わないもの(総ヒ素)との 2 種類に分けた。さらに懸濁物質に吸着しているヒ素を溶出させ、かつ 3 価、5 価の形態が変化しないように現場で濃硫酸を数滴加えた。重金属測定用の試料は実験室に持ち帰ってから速やかに濃硝酸を添加した。

#### c) 測定

pH、導電率、濁度、溶存酸素、水温、塩分濃度は現場で簡易測定を行った。ヒ素については、総ヒ素と溶解性ヒ素それぞれについて、3 価と 5 価を合わせたトータル(Ⅲ+Ⅴ)ヒ素、3 価(Ⅲ)のヒ素について、水素化物発生-ICP-AES で測定を行った。ホウ素、マンガン、鉄等の金属は ICP-AES で測定を行った。陽イオンは偏光ゼーマン原子吸光光度計を用い、陰イオンはイオンクロマトグラフ法により測定を行った。4.3 アルカリ度は pH メーターを用いた滴定法により測定を行った。また、温泉からの負荷量を求めるため、電磁流速計を用いた 1 点法による流量測定を行った。

### (2) 下水処理場

#### a) 調査地点

定山溪処理場に由来する汚泥の流れを知るために、定山溪処理場については 1998 年 11 月、その他の処理場については 1998 年 12 月に、流入水、放流水、汚泥等の試料採取を行った。処理場の概要を以下に示す。

A 処理場：定山溪処理場および B 処理場の濃縮汚泥を受け入れている。

B 処理場：A 処理場に濃縮汚泥を搬入している。

C 処理場：A 処理場からの圧送汚泥を受け入れている。

D 汚泥焼却センター：最終的な汚泥の行き先である。焼却炉は階段式ストーカ炉で排ガスはマルチサイクロンにより集塵している。焼却灰の冷却等に使用した水は、近郊の下水処理場が受け入れている。4 系統ある焼却炉のうち C 処理場からの汚泥のみを焼却処理している 4 系の脱水ケーキ、焼却灰の試料採取を行った。

#### b) 試料採取

水試料については先に述べた河川水の採取方法と同様に行い、汚泥試料、脱水ケーキ、および焼却灰は試料採取の段階での酸添加等を行わなかった。

#### c) 測定

下水処理場の流入水、放流水のヒ素の測定については 2 章(1) c) のヒ素測定と同様に行った。汚泥、脱水ケーキ、焼却灰については有機物を非常に多く含むので、前処理として過塩素酸を用いた加熱分解を行い、総ヒ素のみを測定した。

### 3. 結果および考察

#### (1) 豊平川上流部における金属等の挙動

豊平川上流部におけるヒ素、ホウ素、鉄、マンガン、亜鉛の濃度を表1に示す。

##### a) ヒ素

ヒ素濃度は紅葉橋、薄別橋、豊橋、豊羽鉦山下流の山鳥橋、白滝橋では検出限界以下であったが、定山溪温泉下流の玉川橋では測定した河川水のなかで最高の濃度を示した。温泉のヒ素濃度は約3mg/lと非常に高く、各種イオンについても、玉川橋は温泉と同様に塩化物イオンとナトリウムイオンが特徴的な傾向を示したのでヒ素の汚染源は定山溪の温泉水である。また、ヒ素は下流に行くに従って濃度が低下しており、各種イオンについても同様の傾向を示したので、ヒ素は支流の合流により希釈されている。河川中の無機ヒ素の化学形態はほとんどが溶解性ヒ素として存在し、三価と五価の割合は下流にいくほど酸化作用により五価の割合が高くなった。懸濁性のヒ素はほとんど五価で存在していた。三価の懸濁性はほとんど存在しなかった(図2)。

図3にヒ素濃度と流量の関係を示す。流量が少ないとヒ素濃度が高く、流量が多くとヒ素濃度が低くなった。ホウ素についても同様の傾向を示した。渇水期にはかなりの高濃度となるため、注意が必要である。また、雨の降り始めで濃度がどのように変化するか等についてはまだ明らかではなく、今後検討する必要がある。

##### b) ホウ素

豊平川支流の上流の各地点においてホウ素がほとんど存在していなかったことに対し、白井川上流の山鳥橋、白滝橋においてはホウ素が検出されている。これは豊羽鉦山の影響であると推測される。山鳥橋と白滝橋ではホウ素が検出されない調査日もあったが、これは豊羽鉦山の排水の排出方法が間欠的であったためと考えられる。豊羽鉦山の坑内からは鉄・マンガン・亜鉛・カドミウム・ホウ素・ヒ素を含む水が流出しており、この鉦山ではこれらを2系統に分け放流している。山鳥及び白滝橋においてホウ素が検出されなかった月の調査日にはホウ素を含まない坑内水が排出されていたと思われる。

温泉直下の玉川橋でのホウ素濃度が他の地点と比較して、年間を通して高い値を示したのは、温泉上流の営林署でのホウ素濃度が低かったことから温泉の影響と考えられる。

地点別に見ると温泉から下流に行くにしたがって豊平川に合流する支流によってホウ素濃度は希釈され薄くなっている。しかし、藻岩ダムの藻岩・白川浄水場取水口よりも下流にある石山橋では藻岩ダムよりも高いホウ素濃度が検出される場

表1 豊平川上流部の金属濃度(1998年12月16日)

	ヒ素 μg/l	ホウ素 mg/l	マンガン mg/l	鉄 mg/l	亜鉛 mg/l
山鳥橋	ND	0.012	0.214	0.590	0.129
白滝橋	ND	ND	0.056	0.063	0.027
紅葉橋	ND	ND	0.022	0.098	ND
薄別橋	ND	ND	0.035	0.146	ND
豊橋	ND	ND	0.003	0.025	ND
営林署	4.47	0.064	0.027	0.095	ND
玉川橋	202.78	2.015	0.087	0.256	ND
砥山ダム	28.69	0.530	0.058	0.136	ND
藻岩ダム	27.45	0.517	0.053	0.129	ND
石山橋	21.59	0.456	0.148	0.324	0.010
温泉湧水	3382.96	37.394	0.893	1.209	ND

ND : not detected

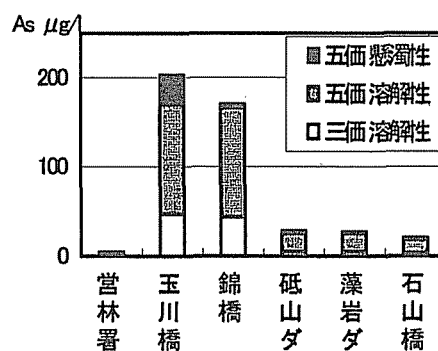


図2 河川中のヒ素の化学形態  
(1998年12月16日)

合があった。その原因は石山橋の上流、十五島公園で放流される豊羽鉾山の排水の影響によるものと考えられる。

(2) 下水処理場

a) 下水処理場を含めた札幌市におけるヒ素の収支

図4に河床から湧出している温泉水由来のヒ素、定山溪温泉街の旅館等から排出され札幌市内の下水処理場を経由するヒ素、藻岩ダムで取水され浄水場を経由するヒ素について、

一日あたりの発生量を示す。定山溪処理場の流入水のヒ素濃度は約1mg/lと高いが、これは流入水が汚泥を濃縮した際の越流水を含んでいるためと考えられる。流入水と放流水のヒ素負荷量の差が汚泥に移行すると仮定した場合、汚泥濃縮の越流水によるヒ素負荷量は約6kg/dayと計算され、この量が処理場内を循環していることになる。また、旅館等からの排水によるヒ素の負荷量は約5kg/dayと推定され、これは旅館等で使用された分も含めた温泉湧水由来のヒ素負荷量(約30kg/day)の約18%を占めている。定山溪処理場は塩化第二鉄を用いた処理により、豊平川上流部に与える負荷を約14%削減しており、水道原水に与えるリスクを削減していると言える。

定山溪処理場から搬出された濃縮汚泥中のヒ素は、途中で環境中に放出されることなく市内の各処理場で発生したヒ素を加えながら、最終的にC処理場から汚泥焼却施設まで運ばれる。C処理場から搬出されるヒ素の負荷量とD汚泥焼却施設に搬入されるヒ素の負荷量に差が見られたが、この理由は調査日が異なること、汚泥焼却施設では搬入された脱水ケーキを大容量のピットに一度貯留してから焼却していることなどが考えられる。また汚泥焼却施設では、焼却前の脱水ケーキと焼却灰のヒ素の負荷量に差が見られた。この施設では排ガス処理にマルチサイクロンを使用しているので大気中に放出されるヒ

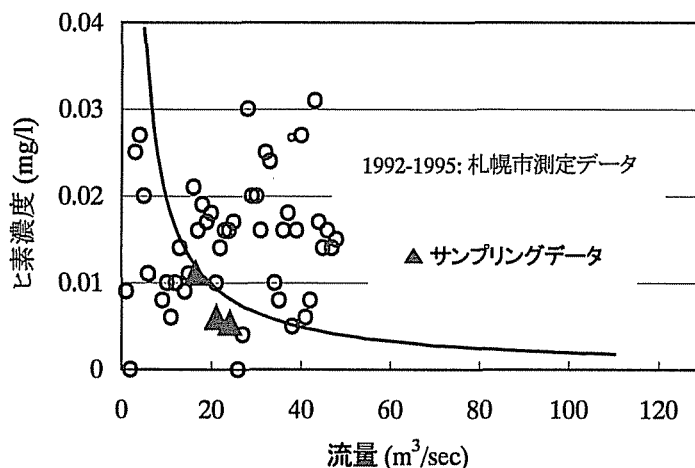


図3 藻岩ダム地点におけるヒ素濃度と流量の関係

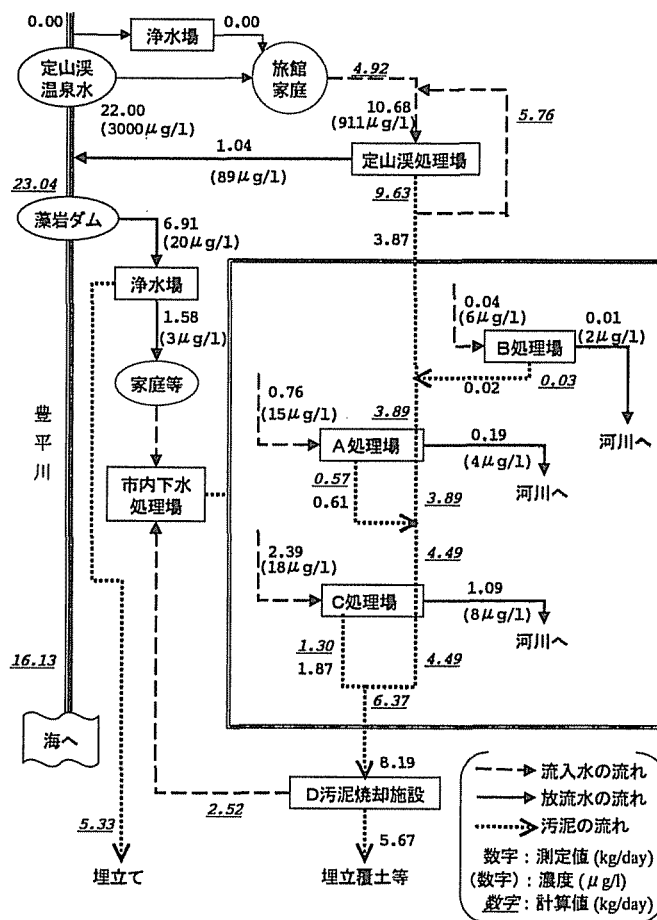


図4 札幌市におけるヒ素の収支(kg/day)

素はほとんど無いと考えられる。従って、焼却灰の冷却等に使用した排水にヒ素が移行している可能性が高い。この排水は近接する下水処理場へ送られているが、今回はこの処理場の調査を行わなかったため、今後確かめる必要がある。

藻岩ダムから取水された水のヒ素の負荷は浄水過程を経て約4分の1に削減されており、削減されたヒ素は浄水汚泥に移行すると考えられる。一方、水道水中に残ったヒ素は家庭等で利用された後、市内の下水処理場へ流入する。水道水中のヒ素濃度は約 $3\mu\text{g/l}$ であるが、汚泥濃縮の越流水が流入水に入らないA、B処理場の流入水のヒ素濃度が、水道水と比較して高い値を示した。従って、下水処理場に流入するヒ素の発生源が水道水以外にもあり、その発生源について今後さらなる調査が必要である。

旅館等で使用された分も含め、定山溪温泉で発生したヒ素は約 $30\text{kg/day}$ であり、本来ならばこれが全て水環境中に放出され河床や海の底泥に蓄積されるはずであるが、札幌市においては、約40%が下水処理および浄水過程により汚泥および焼却灰に移行し、さらに埋立処分等により人の管理下に置かれることになるので、環境に対するリスクを削減していると言える。

#### b) 下水処理場におけるホウ素

定山溪の下水処理場は温泉旅館等の排水を処理するため、その流入水中には多量のホウ素を含む。処理場の流入水と温泉のホウ素濃度を比較してみたところ年間の変動が類似していた。このことから定山溪下水処理場の流入水が温泉の影響を受けることが確認された。流入水中のホウ素は除去されずに残り豊平川に排出される。このことから、豊平川においてホウ素の負荷を与える場所は豊羽鉾山、温泉（河床からの湧出、ホテル・旅館からの直接排水）、定山溪下水処理場の放流水の3つが考えられる。

#### (3) ヒ素、ホウ素の負荷量

ヒ素、ホウ素濃度と流量の測定値から、玉川橋と営林署の負荷量を求めた。これらの差から推定された温泉水による負荷量は、ヒ素が約 $15\sim 22\text{kg/日}$ 、ホウ素が約 $140\sim 215\text{kg/日}$ であり、年間を通してほぼ一定であった。

#### (4) リスク評価

##### a) 水環境中のヒ素

ヒ素の慢性毒性については約 $0.5\sim 1\text{mg/day}$ の長期連続摂取により発症するという報告、また $3\sim 6\text{mg/l}$ の水の長期摂取により発症するという報告<sup>2)</sup>がある。一般には粘膜の炎症に続き筋肉の弱化、食欲減退、さらに皮膚の黒色色素沈着、角化、白斑等の症状が特徴的に見られる。藻岩ダム（これまでの測定での最高濃度 $27\mu\text{g/l}$ を使用）の水を毎日2L長期摂取した場合慢性中毒の危険性は無いと思われる。しかし温泉水については長期摂取により慢性中毒の危険性が高いと思われる。

発ガン性については、U. S. EPA で使用されている多段階線形発ガン外挿モデルによると $50\mu\text{g/l}$ の水を一日2L生涯飲み続けた時の皮膚癌の発ガンリスク<sup>3)</sup>は $2.5\times 10^{-3}$ である。この多段階線形発ガン外挿モデルを使用して、藻岩ダム( $27\mu\text{g/l}$ )の皮膚癌の発ガンリスク計算すると約 $1.4\times 10^{-3}$ であった。札幌市の飲料水中のヒ素濃度は約 $3\mu\text{g/l}$ であり、これから計算される発ガンリスクが約 $1.5\times 10^{-4}$ であることを考えると、札幌市では浄水過程において大幅に発ガンのリスクを削減していることになる。また、このモデルは台湾における地下水を飲用した事例をもとにし

ているので毒性がより強い3価のヒ素が多いと思われ、札幌市では浄水過程においてヒ素のほとんどが5価に酸化されていることから、この値よりもリスクは低いと思われる。

#### b) 水環境中のホウ素

生涯暴露によるホウ素の影響については、一日受認摂取量を4.8mg-B/dayとし、飲料水の寄与率を40%として新たな指針値1.0mg/l(旧指針値は0.2mg/l)が示されている。藻岩ダムでのホウ素濃度はこれまでの調査で最高でも0.6mg/l以下であるので、長期間の飲用による健康影響は無いと思われる。また藻岩ダムの濃度が1.0mg/lを超えたとしても健康影響が出るとは言えないが、湧水期等に濃度が高くなる可能性があるため今後監視をしていく必要があると思われる。

#### c) 汚泥焼却灰のヒ素

汚泥焼却灰中のヒ素濃度は190~230mg-As/kg-dryであった。汚泥焼却灰は埋立覆土等に利用されているが、農用地の土壌の汚染防止等に関する法律における基準(15mg-As/kg-dry)、肥料取締法での汚泥肥料の規制値(50mg-As/kg-dry)を考えると、ヒ素はかなり高濃度である。汚泥焼却灰はクリンカ状で安定した形態であるので水環境に対するリスクを削減していると言えるが、潜在的に大量のヒ素を蓄積していることになり、管理に注意を払う必要があると思われる。

## 4. おわりに

豊平川上流部の定山溪温泉で発生したヒ素の中で、温泉街を經由したヒ素は定山溪処理場で処理されることにより水環境に与える負荷が軽減され、また、下流では浄水過程を経ることによりさらに水環境に与える負荷が軽減されていることがわかった。また、浄水過程で発ガンリスクが約 $1.4 \times 10^{-3}$ から約 $1.5 \times 10^{-4}$ に削減されており、札幌市において下水処理および浄水過程がヒトおよび環境に対するリスクを考える上で非常に重要な役割を果たしていると思われる。しかし、水道水のリスク値は通常安全とされているリスク値 $10^{-10}$ と比較して高い値であるのでこのリスク値に関して更なる検討が必要である。

定山溪温泉のヒ素は自然由来であるが、約40%が処理により汚泥に移行し、最終的に埋立等の人の管理下に入る。従って、汚泥焼却灰等にヒ素が相当量含まれることを知った上で、埋め立て地等の管理や利用を行う必要があると思われる。

## 参考文献

1. 青木未知子; 豊平川上流部におけるヒ素の挙動とそのリスク評価, 北海道大学工学部衛生工学科卒業論文, 1998
2. R. Eisler ; A Review of Arsenic Hazard to Plants and Animals with Emphasis on Fishery and Wildlife Resources, Environmental Science and Technology, Vol. 127, 185-259, 1994
3. US Environmental Protection Agency ; Proposed Guidelines for Carcinogen Risk Assessment, USEPA, 1996