

環境アセスメントに関する研究 (第2報)¹⁾

土岐川流域におけるフッ素汚染についての環境アセスメント

臼井 正, 小瀬洋喜, 佐藤孝彦, 石川哲也

(岐阜薬科大学環境衛生学教室)

Studies on the Environmental Assessment (II)

Assessment for Florine Pollution in Toki River Basin

TADASHI USUI, YOUKI OSE, TAKAHIKO SATO and TETSUYA ISHIKAWA

Department of Enviromental Hygiene, Gifu Collge of Pharmacy

Since there are many pottery-manufacturing factories in the Toki River basin and effluents discharged from these factories contained high concentration of suspended solids, Toki River water was whitened. The concentration of suspended solid in the effluent was regulated in order to purge the river water. At that time it was supposed that large volume of sludge would be accumulated in the factories and that it would cause the secondary pollution afterwards. The sludge treatment plant was planed to prevent the pollution and to reuse the sludge as the materials of pottery. The main process of the plant was flotation by HF method. The authors were asked to assess the effects of the process to the environments.

Some hazardous points of the process were found by the assessment. The most important one was considered to be the pollution of the river water by HF. The survey of the Toki River water showed that the effluent from the plant contained high concentration of HF. From the further survey it was also found that F^- concentration in ground water of this area was considerably high, and it was supposed to be originated geologically. If the ground water had been used for the industrial water, the effluent would have affected on the F^- concentration of the river water.

On the basis of the above assessment, the flotation process was changed from HF method to H_2SO_4 method, and the plant has been working safely.

1. は し が き

生活環境保全のための環境アセスメントには前報¹⁾に報告したように、開発計画に先立って汚濁排出源の条件を明らかにし、これが環境の現状にどのように影響するかを予測した上で、その汚濁に対する環境保全対策を計画する方法がとられている。この際、保全対策を実施した後の影響の予測をも行うことは、環境保全を実効あらしめるために一層重要である。保全対策をとることによって、ひとつの汚染を防止する目的は達成し得ても、別の面での環境汚染を来たすことがあり、二次公害と称せられる影響を発生する場合があるからである。

岐阜県東濃地方を流れる土岐川は、その流域に陶磁器製造関連工場を多く立地しており、その廃水のために白濁が著しかったが、昭和43年に岐阜県公害防止条令、昭和46年に水質保全法、同年水質汚濁防止法のそれぞれの適用と、排水基準の規制をうけ、その結果、図1に示すように、水質、とくに浮遊物質量(SS)は著しく改善をみるに至った。²⁾

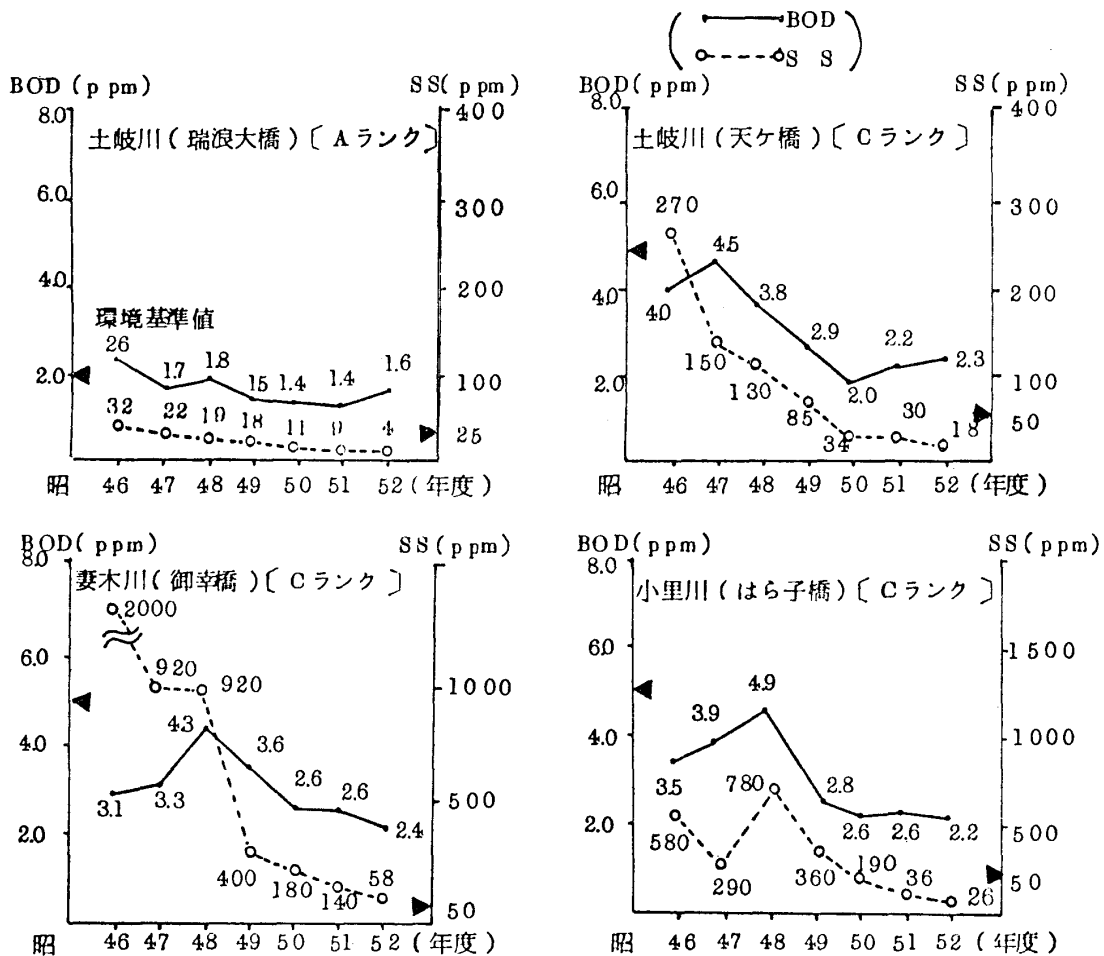


図1 土岐川水系水質の経年変化

この過程で、廃水処理により生ずる大量の廃渣を処理再利用する施設が計画され、著者らはこの施設を利用したときの環境アセスメントを担当した。その結果、この計画を部分的に変更することになり、土岐川に対する二次公害を未然に防止することができたので報告する。

2. 陶磁器関連工場よりの廃渣と対策

土岐川流域における陶磁器関連工場の昭和46年当時の分布状況を図2に示す。

図に示すように、小里川流域は水簾工場が多く、特に廃渣の排出が多いため、下流のはらこ橋(土岐川との合流点まで0.1km)における濁度は400-1120度を示していた。また妻木川も御幸橋(土岐川との合流点まで0.2km)での濁度は700-2200度にも達していた。こうした状況に対処するため、恵那郡山岡町では昭和41年以来、挙町事業として浮遊選鉱事業をとりあげ、約70企業の水簾ケイ砂工業よりの廃渣の共同処理計画をすすめてきた。

水簾工場では原料粘土に水と解膠剤(主としてケイ酸ナトリウム)を加えて攪拌し、粒度によってつぎのように分離する。

- (1) 粘土: 粒径 20μ 以下のもの, 原土の約20%, 陶磁器原料
- (2) ケイ砂: 粒径 0.5mm 以上のもの, 原土の約60%, ガラス原料, 磁器素地
- (3) キラ: 粒径 $20\mu-0.5\text{mm}$ のもの, 原土の約20%, 用途なし

土岐川白濁の原因はキラを放流していたためであるが、その量は月1万トン以上と推定されていた³⁾。このキラは

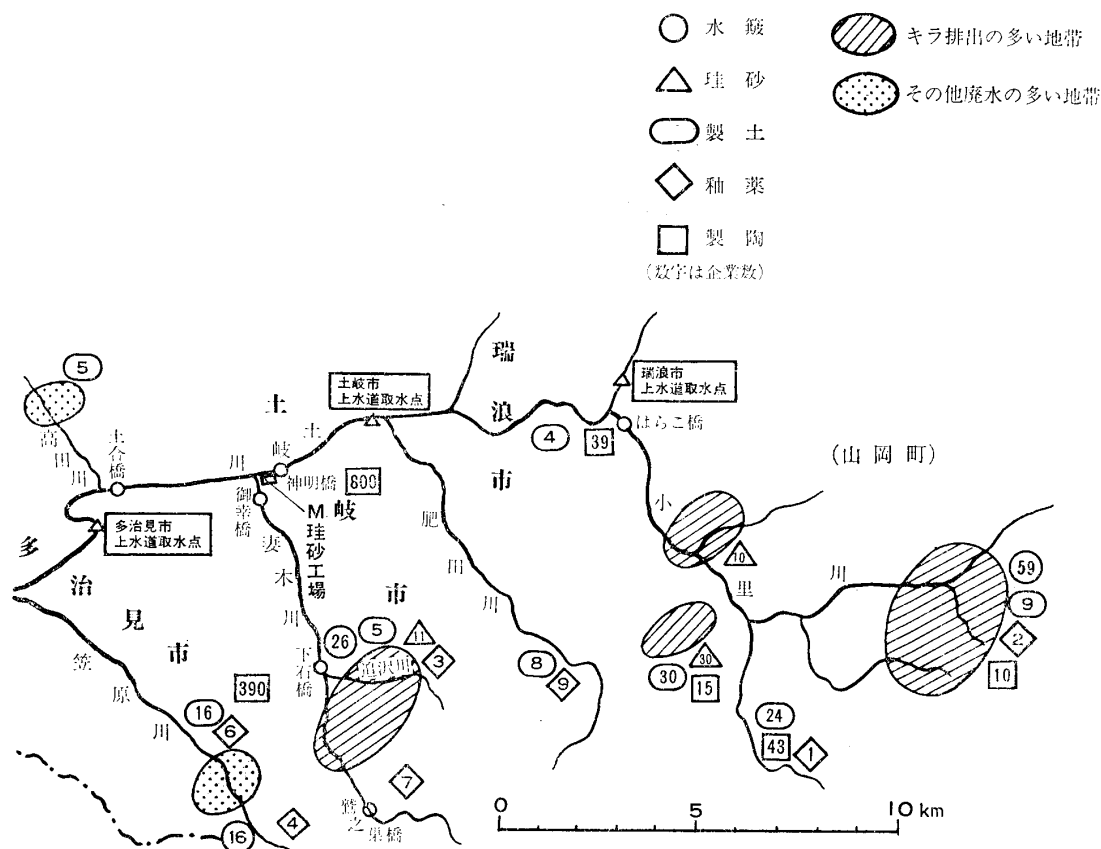


図2 土岐川流域における陶磁器関連工場の分布 (昭46)

不純物約20%，粗粘土約20%，微砂約60%から成っているが，このうち粗粘土は耐火物原料としての使用が可能な物理化学性が知られており，また微砂の粒径40-300 μ 分画は長石20%，ケイ砂40%から成っているので，これを分離すれば，それぞれ硅酸工業原料として使用することができる。

原土の分級はサイクロン，ドラッグベルト，淘汰などの操作によって行なわれているが，微砂をさらに珪砂，長石に分けるためには，浮遊選鉱法による分鉱を行なわなければならない。土岐川白濁水対策として，キラの放流を止めて，固形物を分離することが重要であるが，これによって廃渣量は一層増大することになる。そこで，廃渣処理および資源回収を行い，水質汚濁対策を有効にすすめることを目的として浮遊選鉱法の検討が行なわれた。

恵那郡山岡町における浮遊選鉱の構想はつぎのようであった。

1) 前処理：約80の製土工場から排出されたキラを，各工場で粗粘土分と砂分に分級する。砂分は自動車搬送が可能となるので，共同処理工場に集荷する。

2) 後処理：共同処理工場に集荷し浮遊分鉱を行う。処理量は 5000ton/month，使用薬品は粗粘土類浮選 (pH 3-4) にロジンアミンドデシルアセテート，脱鉄浮選 (pH 4-5) に濃硫酸と石油スルホン酸，長石浮選にフッ化水素酸とアミン系界面活性剤で，その使用量は，集荷砂の物性，長石とケイ砂の混合比によって異なる。

著者らは，この計画がまとまり，工場建設に入る段階において，環境アセスメントを求められて，検討に入った。ところが，建設のために用いていた実験用プラントはすでに解体されており，建設の諸準備に入っていたので，実験装置のないまま，アセスメントを行なわねばならぬこととなった。そこで，設計計画書の仕様を中心に，類似の工程をもつ工場の見学調査を加えて検討し，つぎの問題点が存在することを認めた。

1) 放流水中の残存フッ素量

フッ化水素酸を使用する長石浮選後の廃水は，循環使用するものと，そのまま放流するものが計画されている。放流水は石灰乳中和によりフッ化カルシウムとして沈でん除去してから放流される。放流水中の残存フッ素量は pH によって左右されるが，pH 調整法はどのように行われ，放流水中のフッ素量はどの位になるか。

2) 中和生成スラッジ中のフッ素量

石灰乳によりフッ化カルシウムとして沈でんさせたときに，キラ砂 5000ton/M にフッ化水素酸 5000kg/M を使用し，825kg/M のフッ化カルシウムを生成するが，これが雑砂などと沈降除去されて堆積場に集荷されたとき，どの程度の溶出をおこすか。堆積場への降雨による pH 変化は溶出を促進させることはないか。

3) 浮選中のフッ素飛散について

酸性においてフッ素処理を行うので，空中への飛散が生ずる。労働環境対策を十分に検討する必要がある。

4) 製品となった長石・珪石中のフッ素残留量

製品化される長石，珪石は十分に水洗乾燥されるが，実際の残存量はどれだけか。これらを原料として処理する工程で排ガス中に放散される濃度にどれ程か。

5) フッ化水素酸の運搬，貯蔵中の安全対策

フッ化水素酸を運搬するタンクローリー車の運行について山岡町までの運搬径路は安全か。また貯蔵タンクは安全か。

これらの問題についての検討を行ったが，計画においてはいずれも十分な配慮がなされていないことが明らかになった。そこで，現地調査を実施した。

3. 土岐川水系におけるフッ素濃度調査

土岐川水系においてフッ素浮選を長石浮選法として用いている工場としてM工場があることが判明したので，この工場排水を中心に土岐川水系のフッ素濃度をランタン・アリザリンコンプレクソン法⁴⁾によって測定した。測定点を図1に示す。また測定結果を表1に示す。

工場排水の流入する約30m 上流神明橋地点では 0.1ppm 前後で変動は少ないが，工場排水混入後，その下流20m 地点では最高 6.43ppm を示した。1月1日の採水では 0.22ppm で当日の神明橋 0.14ppm に近い値を示し，操

表1 土岐川水質中フッ素濃度

項目	回	1	2	3	4	5
採	年月日 (曜)	45.11.5 (木)	46.1.1 (金)	46.2.18 (木)	46.3.8 (月)	46.3.24 (木)
水	時 間	AM 7.20-7.50	AM 10.40-11.20	AM 10.10-11.30	PM 3.00-5.00	PM 2.30-4.00
採 水 地 点	神 明 橋	0.16 ^{ppm}	0.14	0.10	0.09	—
	M工場 排水孔排水	—	—	—	27.58	7.23
	M工場 排水孔下流20m	6.43 ^{ppm}	0.22	0.55	2.16	1.09
	土岐川・妻木川 合流点	0.27 ^{ppm}	0.19	0.10	—	—

業時の排水混入による影響を明らかに認めた。工場排水は 7.2ppm および 27.6ppm を示し、濃度変動のあることが認められ、下流20m 地点で 6.43ppm を検出したときにはかなり高濃度であったことが推定される。ただし、このときも妻木川との合流後は 0.27ppm であり、1月1日採水値 0.19ppm よりも高いが、2月18日値は 0.10ppm で1月1日測定値より低い。河川水中の濃度は、河川の流量に影響され、また排水流入後の混合均一化状態にも支配される。そこで工場排水が充分混和した下流地点の多治見市上水道水中のフッ素量を測定したところ表2に示すように 0.11-0.37ppm で、最高値は水道水水質基準値 0.8ppm の約2分の1に達していた。

表2 多治見市水道水中のフッ素量

回	1	2	3	4	5
採水日	46.1.8 (金) AM 9.30	46.2.14 (日) AM 9.30	46.2.2 (日) AM 11.30	46.3.12 (金) AM 9.30	46.3.25 (木) PM 0.40
フッ素量	0.19 ^{ppm}	0.29	0.11	0.34	0.37

採水場所：多治見市宮前町1 白井正宅

土岐川流域では、調査対象とした工場以外にはフッ化水素酸による浮遊選鉱を実施している工場は知られていないが、水道水中濃度がこのように変動するのは、流量変動の他に何かの汚染源があるのでないかと推定された。工場排水流入後、上水道取水点までには、妻木川が流入し、この流域には多数の陶磁器関連工場が存在する。そこで妻木川について測定した結果、工場群の存在する地域より上流の鷺之巣橋 0.20ppm、工場群の存在する中流下石橋で 0.31ppm、下流の土岐川合流点前の御幸橋で 0.82ppm と妻木川のフッ素濃度が極めて高いことが認められた。

土岐川の低水流量は県境で 3.6m³/sec、妻木川は 0.84m³/sec と観測されており約4分の1を占める。工場排水量約 0.05m³/sec に比べればその影響は大きく、現状でもこの流域における汚染源の存在が推定された。しかも、山岡町共同処理場からの設計排水量は、直接放流式で 1.2m³/sec (フッ素濃度 20-30ppm)、循環使用方式で 0.003m³/sec (10m³/hr) (フッ素濃度平均25ppm) となっているので、直接放流式においては、県境で約3倍にしか希釈されないため、フッ素濃度は極めて高くなることが予想される。循環使用方式では約1000倍以上の希釈をうける。

土岐川流域には調査対象工場以外にはフッ素浮遊選鉱を行っているものはないが、粘土原料中のフッ素が焼成によって空中に飛散する例は岐阜県下でも報告されており、^{5, 6)} 陶磁器関係工場からの何らかの汚染を推定された。

4. 土岐川流域の地下水フッ素濃度調査

たまたま、この地方の某自噴水の調査を依頼されフッ素量を測定したところ 9.14ppm を検出した。この水は動水炉核燃料開発事業団がウラン探鉱のためボーリングを行ったものである。そこで同事業団がボーリングを行った約700におよぶ試錐孔のうち、自噴あるいはポンプ汲上げによって地下深層から得られた検体34についてフッ素をはじめ主要な項目について水質検査を実施した。その結果を表3に示す。

これらは少数例が池水として鯉などの飼育や風呂水、洗濯、洗車、食器洗いに利用されていたが飲用されているものはなかった。表3に示すように少数の例外を除いて非常に高い値を示し、また pH も高かった。フッ素濃度は pH の高いものに高濃度化する傾向が認められた。

調査対象となったのは東濃地方の土岐市、瑞浪市、御嵩町で、深度は100m 以上のものが多いが、30-70m の数本も1本を除いていずれも高濃度である。この地方の深層地下水中のフッ素濃度はかなり広汎に高濃度に存在すること

表3 東濃地方における井戸水の水質検査成績

No	孔名	所在地	ボーリング深さ m	湧水量 l/m	使用状況	水温 °C	外観 臭味	pH	NH ₃ -N	NO ₂ -N	NO ₃ -N	Cl ⁻ ppm	KMnO ₄ 消費量 ppm	Fe ppm	Mn	硬度		SO ₄ ²⁻	F ⁻ ppm
																総	Ca		
1	鬼岩水井戸	御嵩町次月	90	30	鯉養殖	18.0	澄明 土臭	9.00	+	-	-	8.9	1.0	0.12	-	12.0	11.0	-	11.25
2	岐美-32	美佐野	145	0.5	田へ流入	18.6	澄明 土臭	9.38	+	-	-	5.4	0.6	0.19	-	8.7	7.7	tr	7.92
3	岐美-34	宿	不明	tr	水溜り	18.0	微濁	9.50	+	-	-	8.9	4.8	0.46	-	5.4	3.3	tr	15.26
4	岐口-59	土岐市土岐津	120	5	冷却水池水	18.0	澄明 微土臭	8.20	+	±	-	81.7	1.9	0.15	-	62.6	53.9	tr	2.22
5	岐口-54	上田	120	0.5	フロ水	18.3	澄明 微土臭	9.22	+	-	-	211.0	1.9	0.06	-	40.6	39.6	-	9.31
6	岐口-55	古井	120	5	フロ水 洗濯 食器洗	20.0	澄明 微土臭	9.12	+	±	-	231.4	1.9	0.11	-	43.9	41.8	-	9.62
7	岐口-51	古井	60	1	放流	18.0	澄明 微土臭	9.00	+	-	-	238.2	1.9	0.04	-	53.8	51.7	-	9.31
8	K-2	泉町久尻	60	0.3	放流	16.0	澄明 土臭	8.73	+	-	-	36.0	0.8	0.41	-	21.7	18.7	-	9.56
9	大富水井戸	泉町大富	56	0.2	雑用	18.0	澄明 微土臭	8.80	+	-	-	265.4	1.6	0.06	-	85.7	81.4	-	6.69
10	大原自動車	泉町大富	68	P	飲用	17.0	澄明	6.86	±	±	-	6.8	1.6	0.08	tr	36.2	29.7	tr	0.27
11	一	泉町東窯	93	P	雑用	17.5	澄明 土臭	7.35	+	-	-	31.6	0.9	0.41	tr	27.4	22.0	tr	6.16
12	岐美-7	泉町定林寺戸川	107	1	池水	18.0	澄明	9.52	+	-	-	4.1	1.2	0	-	5.4	4.4	-	9.39
13	岐定-6	泉町定林寺宮	不明	0.3	池水	19.0	澄明	7.20	±	±	+	4.8		0	-	48.3	41.8	tr	0.22
14	J-13	泉町定林寺本郷	99	0.15	放流	18.0	澄明	9.72	+	-	-	23.1	0.8	0.26	-	6.5	4.4	-	12.55
15	岐財-126	泉町定林寺東町	30	P 豊富	冷却水 風呂水 池水	17.5	澄明 土臭	8.98	+	-	-	15.6	0.6	0.10	-	14.2	11.0	-	9.88
16	岐財-121	泉町河合中野	100	30	雑用池水	21.5	澄明	8.75	+	-	-	23.1	0.6	0.21	-	20.8	17.6	-	6.66
17	河合-2	泉町河合上町	不明	10	フロ水池水	18.0	澄明	7.88	+	-	-	2.7	0.6	0.17	tr	51.6	46.2	tr	4.21

No.	孔名	所在地	ボーリング深さ m	湧水量 l/m	使用状況	水温 °C	外観 臭味	pH	NH ₃ -N	NO ₂ -N	NO ₃ -N	Cl ⁻ ppm	KMnO ₄ 消費量 ppm	Fe ppm	Mn	硬度		SO ₄ ²⁻	F ⁻ ppm
																総	Ca		
18	河合 水井戸	土岐市泉町河合上町	40	4	雑用水 池	17.5	澄明	8.03	+	-	-	2.7	0.6	0.21	tr	52.7	46.2	tr	4.41
19	岐財-120	〃	120	1	雑用水	17.0	澄明 土臭	9.08	+	-	-	12.2	0.8	0.32	-	7.6	4.4	-	7.87
20	岐財-115	〃	170	20	雑用水	22.0	澄明 土臭	8.68	+	tr	-	6.8	0.6	0.14	-	19.7	17.6	-	6.28
21	岐財-117	〃	不明	1	養魚池 流入	17.7	澄明	8.21	+	-	-	3.4	0.3	0.08	-	52.7	47.3	tr	3.61
22	岐瑞-3	〃 肥田	不明	2	雑用水	18.5	澄明 土臭	8.87	+	±	-	49.0	1.2	0.07	-	20.8	18.7	-	7.56
23	岐瑞-13	〃 肥田	不明	1.5	養鯉	19.0	澄明 土臭	9.22	+	-	-	55.1	1.2	0.25	-	13.1	9.9	-	9.61
24	岐瑞-40	〃 肥田	160	2	放流	21.3	澄明 土臭	9.05	+	-	-	59.2	1.6	0.17	-	14.2	13.2	-	12.87
25	岐日-69	〃 肥田	250	P 豊富	フロ水 洗濯 食器洗	23.0	澄明 土臭	9.44	+	-	-	112.9	2.2	0.12	-	98	6.6	-	21.11
26	Z-41	〃 肥田	不明	4	放流	22.2	澄明	9.44	+	-	-	83.6	1.6	0.03	-	6.5	4.4	-	19.28
27	岐瑞-31	瑞浪市小田町平瀬	120	1.3	放流	18.7	澄明 土臭	8.80	±	-	-	551.3	4.6	0.15	-	175.9	169.4	-	6.18
28	岐瑞-32	〃 小田町中屋敷	不明	1.5	放流	18.8	澄明	8.98	±	-	-	469.9	3.7	0.22	-	69.2	64.9	-	7.70
29	龍門橋	〃 寺河戸町	150	P 豊富	フロ水 洗車用	19.5	澄明	9.68	+	-	-	59.2	1.5	0.10	-	10.7	6.6	-	13.99
30	とさわ 食堂	〃 上本町	165	P 豊富	食器洗 フロ水 洗濯	22.0	澄明 土臭	8.90	±	±	-	96.0	2.8	0.15	tr	34.0	2.4	-	11.86
31	岐明-96	〃 明世町月吉	不明	tr	放流	11.0	澄明	9.28	+	-	-	1.4	7.6	0.66	-	32.4	25.3	-	0.18
32	日吉 水井戸	〃 日吉町本郷	91	40	雑用水	20.0	澄明	9.90	+	-	-	4.8	1.5	0.21	-	8.7	5.5	-	7.69
33	-	〃 日吉町宿	不明	0.25	放流	9.0	澄明	8.00	+	-	-	2.0	0.3	1.28	+	96.7	86.9	tr	1.14
34	-	〃 寺河戸町	198	自噴 豊富	洗車用 池	23.3	澄明	9.10	+	±	-	197.4	1.5	0.06	-	30.7	27.5	-	10.62

注) tr=痕跡。 P=ポンプ汲上げ。

が推定された。

陶磁器産業では大量の水を用いるが、河川水を用いているものとともに地下水を用いているものもある。妻木川のフッ素汚染には、こうした高濃度のフッ素を含有する地下水を工業用水として用いているものがあり、これが汚染原因となっているものがあるのではないかと推定された。ただし、実際の工場用水調査にまでは及び得なかった。

5. フッ化水素酸浮遊選鉱方式より硫酸法への変更

フッ化水素酸浮遊選鉱法を実施している工場による土岐川への影響調査から、廃水は直接放流方式でなく、循環処理方式を用いなければ、土岐川のフッ素汚染が高濃度化することを認めた。また、この地方の深層地下水にはフッ素濃度が高く、工場用水としての使用に留意すべき点のあること、これによって河川水汚染の生ずるおそれのあることも認めた。そこで建設予定地である山岡町につき、共同処理場よりの放流先である小里川の水質および地下水調査を行うことが環境アセスメントとして求められることになった。

一方、この調査の一環として実施した全国のフッ素汚染例調査により、東邦金属(株)田川工場においてフッ素による浮遊選鉱工程から発生するフッ化水素酸による水質公害の発生事例が明らかとなった。

アセスメントのこうした進行によって、建設に着手する段階にあった共同処理施設の計画見直しが行なわれた。そして、浮遊選鉱においてフッ化水素酸に代えて硫酸を用いる方法の可能性が、浮遊選鉱技術の担当者によって示されたので、計画は硫酸法に変更することになった。

その後、硫酸による浮遊選鉱法は完成し、共同処理場は硫酸法によって建設され、稼動をつづけている。

6. ま と め

環境アセスメントは、開発計画に先立って汚濁排出源の条件を明らかにし、これが環境の現況にどのように影響するかを予測し、その汚濁に対する環境保全対策を計画する方法がとられている。しかし、生活環境は、開発計画によってのみ汚染あるいは破壊されるものではない。著者らは、環境保全対策として計画された施設による影響についてのアセスメントを行い、二次公害の発生を防止することができた。

岐阜県東濃地方を流れる土岐川を白濁させている陶磁器関連産業からの廃水対策として SS 除去を行なう結果として、大量の廃渣を生ずるが、この廃渣の処理と資源回収を目的としてフッ化水素酸を用いる浮遊選鉱法が計画された。著者らは、この方法を実施したときの影響についての予測を行う機会を得て、アセスメントを実施した。その結果、土岐川に対するフッ素汚染のおそれを認め、フッ化水素酸液の循環使用方式を採用することが望ましいこと、もし、循環使用を行わなければ、石灰乳によるフッ素除去を行っても放流水量が多いため高濃度汚染を生ずることを認めた。またこの地方の深層地下水のフッ素濃度が高いので、工場用水としてこれを用いたときの影響にも留意すべきことを認めた。その他、廃渣処理場での溶出や大気中への飛散についての調査を指摘していたが、フッ化水素酸を硫酸に代えて行うことの技術的可能性が示されて計画が変更され、これによって施設が建設され、現在も稼動中である。

環境アセスメントを実施したことにより土岐川のフッ素汚染を防止することができた。

実 験 の 部

1. フッ素の定量法⁴⁾

ランタン・アリザリンコンプレクソン法を用い、可溶性フッ素量を測定した。

2. 地下水水質の測定⁷⁾

1) 定性試験

アンモニア性窒素，亜硝酸性窒素，硝酸性窒素，マンガン，硫酸イオンは定性試験を，日本薬学会協定衛生試験法注解，飲料水試験法（1965年版）によって実施した。

2) 定量試験

塩素イオン，過マンガン酸カリウム消費量，鉄，総硬度，カルシウム硬度は定量試験を日本薬学会協定衛生試験法注解，飲料水試験法（1965年版）によって実施した。

謝 辞

本研究を行うに当り御協力を賜った当時岐阜県陶磁器試験場理化学部長太田稔平氏に深謝する。

文 献

- 1) 前報（第1報）：小瀬洋喜，森下正三，佐藤孝彦，石川哲也，岐阜薬大紀要，25，35（1977）。
- 2) 岐阜県，“環境白書”，p.80（昭53）。
- 3) 太田稔平，“岐阜県の公害”，p.133，岐阜日日新聞社刊，昭46
- 4) 日本薬学会編，“衛生試験法注解”，p.684，金原出版刊，東京（1965）。
- 5) 小木曾太郎，松井為三郎，井上裕正，衛生化学，12，156（1966）。
- 6) 小木曾太郎，衛生化学，13，143（1967）。
- 7) 日本薬学会編，“衛生試験法注解”，p.649，金原出版刊，東京（1965）。