

パルプ，紙製造工場による環境汚染

——燧灘東部および琵琶湖大津沖における底質汚染の事例——

喜 多 山 繁・片 山 幸 士・石 丸 優

On the environmental pollution by pulp and paper factory waste

—A case study of bottom deposits pollution in the east area

of Sea of Hiuchi and in the off-Ohtsu area of Lake Biwa—

Shigeru KITAYAMA, Yukio KATAYAMA and Yutaka ISHIMARU

目 次

要 旨.....	197	3. 調査結果および考察.....	198
1. はじめに.....	197	引用文献.....	203
2. 調査の概要.....	198	Résumé	204

要 旨

パルプ，紙製造工場の排水による付近の海洋，湖沼の底質に与える影響に関して，燧灘東部および琵琶湖大津沖において，その実態調査をおこなった。その結果

1 燧灘東部においては，紙パ工場地帯沿岸を中心として，底質の COD がきわめて高く，有機物による汚染が顕著である。さらに汚染面積（COD 30mg/g 以上）の拡がりの傾向は，同地域の紙パ生産量の伸びとよく対応している。重金属の蓄積については，特に銅と亜鉛が，工場地帯を中心に高まりがみられた。

2 琵琶湖大津沖においても，板紙工場排水口を中心として，強熱減量値が大きな値をしめし，有機物が大量に沈積している。各種重金属も工場付近で高い蓄積がみられた。原料故紙のなかに含まれる感圧紙によるとみられる PCB 汚染が顕著で，飲料水に対する影響が憂慮される。

1. は じ め に

「紙の消費量は文化のバロメーター」といわれてすでに久しく，パルプ，紙の生産量は拡大の一途をたどってきた。最近数年間をみても，昭和40年度のわが国パルプ生産量：516万t，紙生産量：730万t から昭和46年度では，それぞれ 904万t，1291万t となり，70～80%の飛躍的な伸びをしめしている。このような生産の伸びが我々の生活にいかなる寄与をしてきたか，真の豊かさを保証してきたかという問題は一まず措くとしても，紙パルプ生産量のこのような伸びは，昭和40年代前半にすでに各地で問題となっていた紙パ産業による環境汚染に一層の拍車をかけたというべきではなかろうか。もちろん，排出基準の規制強化，それに伴う除害施設の設置などによ

って、ある程度の効果は上ってきているとしても、環境汚染の着実な進行は否めないところであろう。

筆者らは、紙パ工場の排水による環境汚染を調査するにあたって、それらの変化の結果が累積的に反映するものとして、底質を対象として測定をおこなった。調査地域は、愛媛県伊予三島、川之江地区に展開する紙パルプ工場群の排水による影響を受ける瀬戸内海燧灘東部海域と、一板紙製造工場の排水の流入する琵琶湖大津沖とである。前者は従来から主として漁業被害が問題となってきたところであり、後者は飲料水源としての琵琶湖に対する汚染が憂慮されてきているところである。

燧灘については1972年夏、琵琶湖については琵琶湖汚染総合調査の一環として1973年夏、調査および分析をおこなった。なお、本調査結果の概要は第24回日本木材学会大会（1974年4月、東京）で発表した。

2. 調査の概要

燧灘東部については39地点の、琵琶湖大津沖については13地点の底質を船上よりエックマンバージ型採泥器を用いて採取し、分析に供した。分析項目および分析方法は以下に示すとおりである。

2-1 有機物蓄積状況

有機物の蓄積状況を知るめやすとして、底質の化学的酸素要求量（COD）、および強熱減量値（IL）を測定した。底質のCODは酸化されうる有機物の量をしめすために、酸化に要する酸素量で表わす。底質は湿泥状態で過マンガン酸カリウムで酸化するが、CODをあらわすには乾泥1.0gあたり消費される酸素のmg数で表示する。分析方法は常法²⁾によった。底質のILは底質の全有機物の指標となる。ILの測定は乾泥10.0gを電気炉で800°C、6時間加熱し、減量分を重量百分率であらわす。琵琶湖大津沖では、有機物量が過大であり、ILのみ測定した。

2-2 各種重金属蓄積状況

重金属の分析は熱濃塩酸抽出法によった。乾泥10.0gを3倍量の濃塩酸とともに砂浴上で煮沸し、得られた抽出液の重金属濃度を原子吸光光度計をもちいて測定した。この方法では、置換塩基として底質に吸着されたもの、不溶性化合物となって沈澱しているものなどが抽出される。水銀については風乾泥100mgを酸素ガス雰囲気下で燃焼させ、燃焼ガスを過マンガン酸カリウム、硫酸溶液に捕集する。捕集液をジチゾンクロロホルムで抽出し、抽出液を水銀分析計によって、全水銀量を測定した。

2-3 PCB蓄積状況

PCBの分析はアルカリ分解法³⁾により、定量は電子捕捉検出器（ECD）つきガスクロマトグラフによった。なお、測定値の算出方法は鶴川らの方法⁴⁾を採用した。PCBの測定は琵琶湖大津沖でのみおこなった。

3. 調査結果および考察

3-1 燧灘東部における底質の汚染

表-1. 愛媛県紙パルプ生産量
Table 1. Pulp and paper productions in Ehime prefecture

	Number of factories (1970)	Kind of products	Production (ton / year)		Growth rate (%)
			1964	1973	
Paper	113	News print paper	117,024	427,582	326
		Printing paper	15,225	59,083	
		Wrapping paper	47,251	78,488	
		Tissue paper	2,539	9,386	
		Domestic tissue paper	27,058	80,894	
		others	13,943	72,504	
		Total	223,040	727,937	
Board		Corrugated fiber board (Liner board)	64,844	270,681	449
		" (corrugated medium)	5,730	116,195	
		Basepaper for building material	4,995	5,533	
		others	3,784	3,372	
		Total	79,353	395,781	
Pulp	3	Kraft pulp	87,344	399,216	407
		Semi-chemical pulp	24,400	59,071	
		Chemi-ground pulp	16,906	82,189	
		Ground pulp	64,633	205,839	
		Rifiner ground pulp		90,666	
		Trash pulp	1,594	36,512	
		Total	214,377	873,493	

表1に愛媛県におけるパルプ、紙生産量を⁵⁾しめす。愛媛県東部、燐灘東部沿岸特に伊予三島、川之江地区にはパルプ・紙工場が集中して立地しており、伊予三島、川之江地区以外での愛媛県の生産量は僅少である。この地区で、パルプ、紙ともに全国生産量の7～8%をしめており、生産量の伸び率は全国平均のそれを大幅に上回っている。水使用量は昭和40年で34万m³/日であったが、昭和46年には57万m³/日となっている。このうち、それぞれ4万m³/日18万m³/日が回収水でまかなわれている。⁶⁾

図1に底質採取地点をしめし、表2に調査結果をしめす。底質採取海域は工場集中地区沿岸より東西約15km、南北約20kmで、採取地点間距離は約2.5kmである。図2は底質のCODの分布図である。伊予三島、川之江地区で非常に高い値をしめし、北方へ汚染が広がっていることがわかる。底質のCODの高いところでは、底質は黒色又は灰緑色を呈し、硫化水素臭を発生して、還元状態にあることが明らかである。図3は愛媛県のパルプ、紙生産量の経年変化と、汚染泥とみなされるCOD 30mg/g以上の底質の面積の広がりとしめしたものである。⁷⁾昭和47年度の測定値は筆者らの調査によるものであるが、その他のものは村上らの調査報告から引用した。生産量の増大と汚染面積の拡大とがよく対応している。

各種重金属の分析結果をみると、CuとZnが工場集中地帯から等濃度線がえがける。図4はCuの分布を、図5はZnの分布をしめす。CODの場合と同じく、工場集中地帯で高濃度をしめし、北上する傾向が明らかである。Znの場合は伊吹島東方にも蓄積がみとめられる。パルプ・紙製造工場による重金属、特にZn、Cuの蓄積原因はよくわからない。考えられることとしては、

表-2. 釧路東部底質調査結果

Table 2. Results of analysis of bottom deposits in the case of the east area of Sea of Hiuchi

Station number	Depth of water (m)	Colour	*1 Property	*2 COD (mg/g)	IL (%)	Heavy metals (ppm)				
			Zn	Cu		Cr	Ni	Hg		
1	14.5	d-G	sM	25.6	11.4	160	87.5	48	73	0.15
2	18.5	d-G	M	21.5	13.0	110	67.5	45	63	0.20
3	21.0	g-Gre	M	19.7	13.6	110	77.5	43	45	tr.
4	14.5	d-G	M	21.6	9.4	45	95.0	48	83	0.30
5	19.5	d-Gre	M	43.4	15.2	70	91.5	45	55	0.05
6	21.0	b-Gre	M	20.2	14.6	80	85.0	40	45	tr.
7	22.5	g-Gre	M	22.3	15.7	130	77.5	40	—	0.05
8	23.5	g-Gre	M	23.5	14.8	130	62.5	40	—	tr.
9	22.5	g-Gre	M	18.4	14.5	30	53.0	37	55	tr.
10	22.5	b-Gre	M	20.6	15.5	200	47.5	38	55	tr.
11	22.5	g-Gre	M	18.2	16.1	70	50.0	38	55	tr.
12	23.5	g-Gre	M	17.7	16.2	110	58.0	38	55	tr.
13	23.5	d-Gre	M	18.6	15.6	80	58.0	38	63	tr.
14	23.0	d-Gre	M	23.3	15.0	105	62.5	38	63	0.05
15	21.0	b-Gre	M	34.0	14.7	135	77.5	40	63	0.05
16	16.5	B	sM	64.8	14.5	165	100.0	45	63	0.05
17	9.0	B	S	139.3	38.5	455	111.5	33	—	0.05
18	19.5	g-Gre	sM	30.3	12.2	110	73.0	38	—	tr.
19	23.5	b-Gre	M	23.7	14.6	260	71.5	43	63	tr.
20	23.5	g-Gre	M	25.4	16.6	90	67.5	38	63	tr.
21	22.5	g-Gre	M	26.7	15.3	60	53.0	43	73	tr.
22	23.0	g-Gre	cyM	24.2	15.4	150	47.5	40	55	tr.
23	23.0	g-Gre	M	23.7	16.4	225	47.5	43	55	tr.
24	23.0	g-Gre	M	25.5	15.8	90	32.5	38	45	tr.
25	15.5	d-G	sM	52.8	14.2	180	42.5	38	45	0.40
26	23.5	g-Gre	M	31.0	14.7	235	73.0	43	45	0.30
27	26.0	g-Gre	M	23.6	15.8	150	50.0	40	55	0.05
28	25.0	g-Gre	M	22.0	14.7	135	38.0	37	55	tr.
29	27.0	g-Gre	M	19.4	14.4	300	42.5	37	55	0.05
30	26.5	g-Gre	M	23.9	13.7	145	42.5	38	—	0.15
31	19.5	g-Gre	M	24.9	11.8	105	36.5	33	—	0.15
32	19.0	d-G	sM	21.8	9.6	130	36.5	32	—	0.05
33	19.5	g-Gre	M	15.8	8.6	80	50.0	33	—	0.05
34	18.5	d-G	M	19.1	8.9	135	62.5	33	—	0.05
35	16.0	d-G	sM	31.8	7.5	120	58.0	35	—	0.15
36	5.0	B	M	46.1	14.9	280	120.0	32	—	0.15
37	12.0	d-G	mS	13.8	6.0	80	32.5	25	—	0.15
38	13.0	d-G	mS	19.5	6.1	90	32.5	32	—	0.15
39	13.0	B	S	28.7	5.6	145	36.5	32	45	0.05

*1 d-G : dark gray, g-Gre ; grayish green, d-Gre : dark green, b-Gre : blackish green,
B : black

*2 sM : sandy mud, M : mud, cyM : clayish mud, S : sand, mS : muddy sand

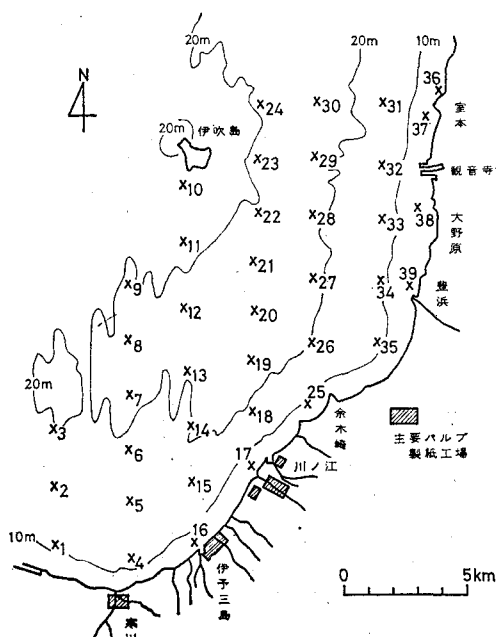


図-1 燧灘東部底質採取地点
Fig. 1 Sampling stations of bottom deposits
in the east area of Sea of Hiuchi

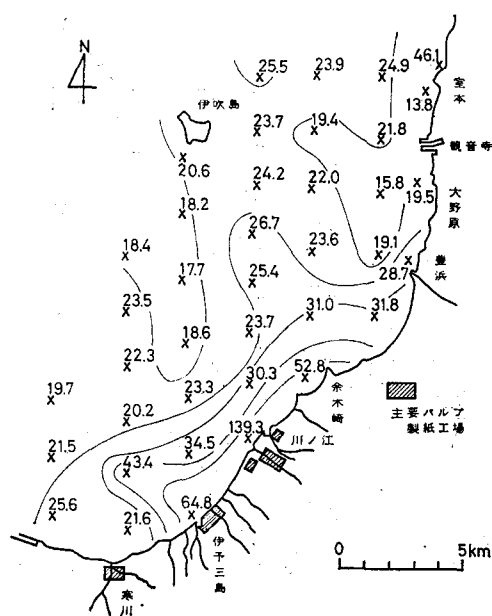


図-2 燧灘東部の底質の COD 分布 (mg/g)
Fig. 2 Distribution of COD values in the
east area of Sea of Hiuchi.

抄紙用ワイヤーなどの摩耗，顔料などの添加剤，あるいは故紙原料による影響などであろう。一方またこの地域は別子銅山を南にひかえ，燧灘西部新居浜地区の工場地帯の影響から，海水中に含まれる重金属イオンが，有機物を多く含む還元状態にある底質によく吸着されるということも考えられよう。他の紙パ工業地帯との比較調査から明らかにしていくべき課題と考えている。

3-2 琵琶湖大津沖における底質の汚染

琵琶湖南端，大津市東部に一板紙製造工場が存在する。この工場では，故紙を原料として板紙を生産している。1日生産量約 300 t，水使用量は約 3万 m^3 /日である。昭和 35年頃より現在のような規模となり，大量の繊維カスを琵琶湖に流出し，それにより浮島が出来るほどになり，深刻な環境汚染問題を引き起したところである。その後，凝集沈澱装置の設置，水面露出部のヘドロ除去などの施策がとられたが水面下にはなお大量のヘドロが沈積している。この地帯は，西方約 1km に京都の飲料水取水水源である琵琶湖疏水取入口があり，東南約 0.5km には大津市膳所浄水場取水口があって，飲料水源として重要なところである。

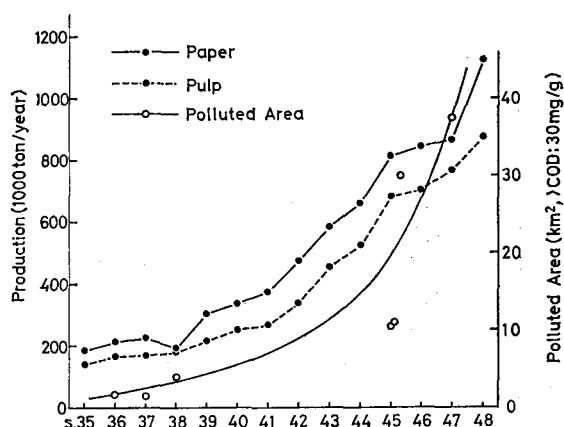


図-3 愛媛県紙，パルプ生産量と汚染面積の変化
Fig. 3 Annual changes of pulp and paper production
in Ehime prefecture and of polluted area.

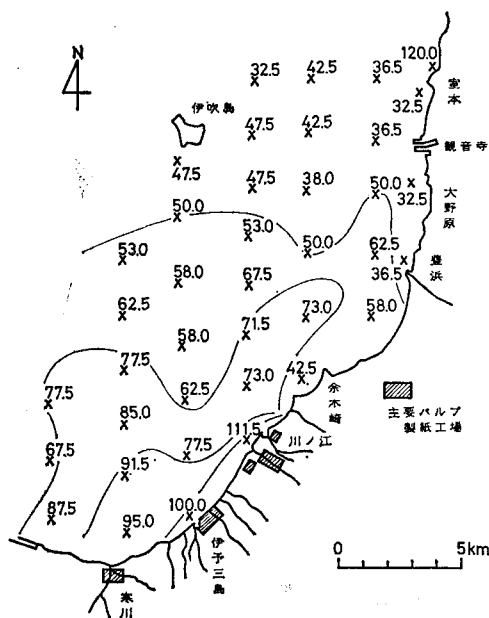


図-4 琵琶湖東部の底質の Cu の分布 (ppm)
Fig. 4 Distribution of copper contents in the east area of Sea of Hiuchi.

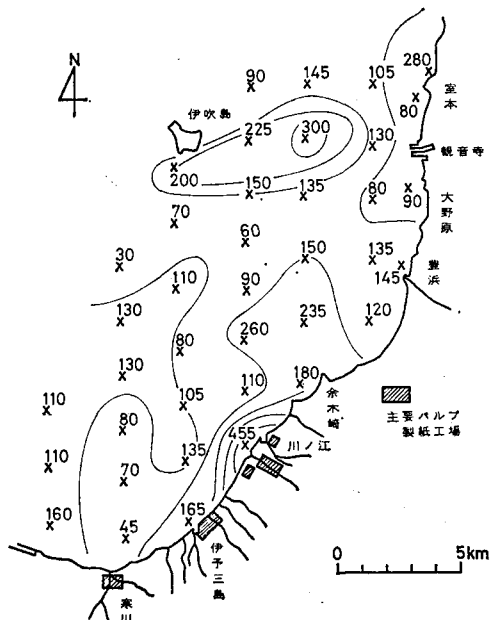


図-5 琵琶湖東部の底質の Zn の分布 (ppm)
Fig. 5 Distribution of zinc contents in the east area of Sea of Hiuchi.

表-3 琵琶湖大津沖底質調査結果

Table. 3 Results of analysis of bottom deposits in the case of the off-Ohtsu area of Lake Biwa

Station number	Depth of Water (m)	Property	IL (%)	Heavy metals (ppm)							PCB (ppm)
				Pb	Cu	Cd	Zn	Ni	Cr	Hg	
1	0.2	S	2.4	3.8	97	0.6	93	7	11	0.07	12.7 62.1
2	0.2	S	3.1	6.7	10	0.5	43	4	5	0.28	
3	2.4	M	16.9	69	69	1.8	314	21	19	5.07	
4	2.5	M	17.3	124	100	2.6	605	24	24	1.41	
5	1.9	M	14.6	98	96	2.1	447	32	28	1.25	
6	2.7	M	17.5	69	67	1.8	420	20	18	1.31	
7	3.1	M	34.5	241	105	3.3	482	23	40	1.46	
8	0.9	M	62.6	171	96	2.0	717	15	24	3.62	
8'	0.9	M									
9	2.8	M	10.6	101	109	1.7	308	29	69	0.48	1.04
10	2.3	S	7.4	48	58	1.0	162	15	14	0.48	
11	1.9	M	18.3	141	111	2.7	487	29	89	1.90	
12	3.5	M	15.1	25	50	2.7	381	30	23	0.33	

図6に底質採取地点を、表3に調査結果をしめす。図7に底質の IL をしめすが、排水口付近で 62.6%, 34.5% にのぼる。琵琶湖沿岸では通常数%から10%程度である。この沿岸一帯は、水道水が着臭するいわゆる「臭い水」の原因物質である geosmin の形成に関連があると考えられる *Synedra rumpens* などの大発生が過去いくたびか観察されたところであり、ヘドロの大量

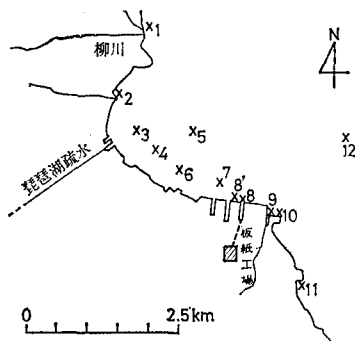


図-6 琵琶湖大津沖底質採取地点
Fig. 6 Sampling stations of bottom deposits in the off-Ohtsu area of Lake Biwa.

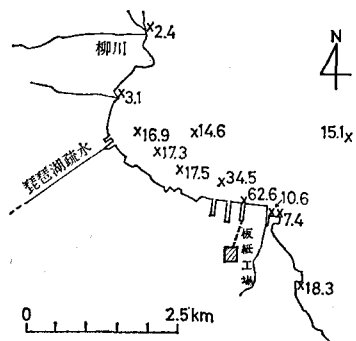


図-7 琵琶湖大津沖の底質の IL 分布(%)
Fig. 7 Distribution of IL values in the off-Ohtsu area of Lake Biwa.

沈積—大量の栄養塩の供給はこのような藻類の大発生と関係があるのではなからうか。

重金属の分析によって、この水域の底質の重金属含有率は琵琶湖の他の沿岸にくらべて一様に高い傾向をしめした。板紙の原料故紙、特に産業用資材の風袋による影響が大きいのではないかと推測されるが、この場合も湖水に含まれる重金属イオンのヘドロへの吸着という面も考えられる。

PCB の蓄積状況をみると、排水口付近で高い値をしめす。琵琶湖における底質では、PCB はトレースとして出てくるかどうかという程度である¹⁾。ガスクロマトグラフのパターンは KC-300 のそれをしめし、原料故紙中に含まれる感圧紙による影響が大きいものと思われる。62.1ppm を検出した測点 8' は昭和45年夏まで使用していた旧排水口近くのもので、12.7ppm を検出した測点 8 は新排水口近くのものである。測定数が少なく推測の域を出ないが、PCB 使用禁止の効果が出てきているのかもしれない。

以上概括的な調査にとどまったが、「排出基準」の強化、「公害対策技術」の開発が叫ばれるにもかかわらず、汚染の拡大傾向は否めず、また汚染されてしまったものに対する顧慮が今なおすいことを、あらためて指摘しておきたい。

本調査にあたって、京都大学農学部、岩坪五郎氏、同医学部川合仁氏、同理学部柳哲雄氏（現愛媛大学工学部）、同防災研究所友沢憲治氏（現 KK. KCS）兵庫県水産試験場真鍋武彦氏に多大の援助をたまわった。厚く御礼申し上げる。

引用文献

- 1) 琵琶湖汚染総合調査団編：琵琶湖汚染総合調査報告書（1973）
- 2) 松江信行編：水質汚濁調査指針，（1961）
- 3) 立川涼：PCB の分析方法—環境汚染調査の手引き— PPM 4 (1) 56—60 (1973)
- 4) 鵜川昌弘，中村彰夫，樫本隆：PCB の数値化方法に関する研究，食品衛生学会誌，14 415—424 (1973)
- 5) 愛媛県紙パルプ工業会編：愛媛県紙パルプ生産実績表，（1964，1973）
- 6) 通産省：工業統計表—用地用水編（1965，1971）
- 7) 村上彰男ら：燧灘東部海域の汚濁状況調査報告，日本水産資源保護協会（1971）
- 8) 根来健一郎：京都・大津両市における水道水のカビ臭とそれに関連した諸問題（後），水，15 (4) 59—63 (1972)

Résumé

This investigation was undertaken to find out the influence of the waste from pulp and paper factories on the bottom deposits in the east area of Sea of Hiuchi and in the off-Ohtsu area of Lake Biwa. The conclusions are as follows.

1. In the east area of Sea of Hiuchi, the COD values of bottom deposits are very high along the coast of the factory region of pulp and paper industries and the polluted area ($\text{COD} > 30\text{mg/g}$) has expanded as wide as 40km^2 . Such expansion of the polluted area corresponds well with the growth of production in the pulp and paper industries. As for the accumulation of heavy metals, higher concentrations of copper and zinc than normal were detected throughout the area investigated with the highest value at the factory region.

2. In the offshore area of Ohtsu of Lake Biwa, increased values of ignition loss were observed with a board factory as the center of the increase. Various heavy metals have also accumulated a great deal in the area close to the factory. An evident PCB pollution was found there and this PCB pollution is thought to have been caused by non-carbon paper contained in the waste paper, the material of the board. The authors are concerned about the influence of this pollution on drinking water.