

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 19 日現在

機関番号：51401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2021～2023

課題番号：21K04325

研究課題名(和文)水生生物の生物応答を用いた玉川-田沢湖水系における毒性物質群の動態解明

研究課題名(英文) Evaluation of the effects of toxic substances in Lake Tazawa-Tamagawa river system using biological responses of aquatic organisms

研究代表者

金 主鉉 (KIM, Juhyun)

秋田工業高等専門学校・その他部局等・教授

研究者番号：20302193

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,100,000円

研究成果の概要(和文)： 田沢湖の酸性化対策として1991年より玉川中和処理施設が稼働しているが、田沢湖のpHは依然として環境基準を下回っており、自立した生態系は機能しない状況にある。そこで本研究では、玉川-田沢湖水系(酸性区間)の玉川中和処理施設、玉川ダム、田沢湖の3地点において3種類の水生生物の生物応答を用いた短期慢性毒性試験を行い、現状及びpH調整後の比較検討を行った。

その結果、玉川中和処理施設、玉川ダム、田沢湖の流下方向における毒性レベルは低下の傾向を示し、特に玉川ダムまでの間で大きく減少した。一方、pH調整効果については玉川中和処理施設において顕著にみられ、毒性レベルの変化にはAl濃度が大きく関与した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により玉川-田沢湖水系の酸性区間における毒性物質群の挙動及び水生生物の生物応答により得られた毒性レベルの変化をpH調整前後で比較検討を行った結果、玉川中和処理施設における中和処理目標の向上は酸性化問題を解決できる他、アルミニウム、フッ素等の毒性物質群の低減効果が同時に期待できるため、クニマスの「里帰り」が可能な玉川-田沢湖水系の水質管理に有効であることを明らかにした。

現状の玉川中和処理施設における目標pH3.5では、毒性物質群の凝集・沈殿効果が小さく、田沢湖のpHが5.2付近で推移していることから、中和処理の目標を上げて田沢湖本来のpH6.2～6.7に戻す中和処理対策が必要と考える。

研究成果の概要(英文)： A strongly acidic spring with a pH 1.2 that gushes out from Tamagawa hot spring in Akita Prefecture flows into Lake Tazawa, aquatic organisms became extinct, including the endemic species of *Oncorhynchus kawamurae*. As a countermeasure, Tamagawa neutralization treatment plant (TNTP) is in operation, but pH value of Lake Tazawa is lower than the water environmental standards.

In this study, we conducted a short-term chronic toxicity test using aquatic organisms at three locations in Lake Tazawa-Tamagawa river system and compared before and after adjusting the pH to 6.7. As a result, the toxicity unit (TU) in the downstream direction of TNTP, Tamagawa Dam, and Lake Tazawa showed a tendency to decrease, and in particular, the decrease in TU value up to Tamagawa Dam and the immediate improvement in toxicity were significant. Regarding the pH adjustment effect, a positive effect was observed in the treated water of TNTP. Al concentration was strongly involved in changes of toxicity unit.

研究分野：土木環境システム

キーワード：短期慢性毒性 水生生物 生物応答 玉川中和処理施設 玉川ダム 田沢湖

様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

田沢湖は最大深度 423.4m と日本で最も深い湖である。1931 年の調査では摩周湖に迫る 31m の透明度があり、水産生物も豊富であったのだが、発電所の貯水池としての役割、また農業振興のために、玉川水系である玉川温泉から pH 1.1 の強酸性の水を導入して以来酸性化が進行した(図 1)。これによって魚類の種類が減少し、固有種であるクニマスなども確認されなくなってしまった。1991 年には抜本的な解決を目指して玉川酸性水中和処理施設が本運転を開始し、湖水表層部は徐々に中性に近づいてきているが、2000 年の調査では深度 200m で pH は 5.14 ~ 5.58 と酸性のままである。現在、田沢湖に生息している魚はウグイがほとんどでコイ、ギンブナ、たまにイワナが見られる程度とされているが、大沢、平杉沢などいくつかの流入河川へ遡上し、産卵してふ化するため、湖内での産卵ではない。すなわち、田沢湖は湖畔の落下昆虫や落葉が餌の供給源となっており、湖沼生態系本来の姿は存在しない。秋田県では「田沢湖再生クニマス里帰りプロジェクト」が進められており、2010 年に山梨県富士河口湖町の西湖で約 70 年ぶりに生息が確認されたクニマスの「里帰り」が行われるなど、田沢湖再生に対する住民の関心は極めて高いが、田沢湖の再生に不可欠な毒性物質群の影響は解明されていない。特に玉川酸性水中和処理の効果、玉川 - 田沢湖水系の酸性区間における水生生物に対する毒性物質群の動態及びその影響は未解明である。



図 1 玉川-田沢湖水系図(酸性区間)

2. 研究の目的

本研究では上記の背景を踏まえ、玉川-田沢湖水系の酸性区間における毒性物質群の動態及び水生生物に対する影響を解明することを目的とし、栄養段階の異なる3種類の水生生物の生物応答を用いた短期慢性毒性試験から、(1) 玉川中和処理施設における玉川強酸性泉の中和による毒性レベルの低減効果、(2) 玉川ダムおよび田沢湖へ流下するまでの毒性レベルと毒性物質群の変化、(3) 上記の各地点において毒性レベル、毒性物質群の挙動に及ぼすpH調整の影響を検討し、田沢湖の再生に向けた玉川-田沢湖水系の水質管理対策の方向性を示す。

3. 研究の方法

試験水は玉川中和処理水、玉川ダム、田沢湖水、これらの pH 調整水 (1M NaOH 溶液で pH6.7 に調整、玉川中和処理水のみ 0.45µm メンブレンフィルターでろ過) とした。特に pH 調整については玉川温泉水導水前の田沢湖の pH 実測値が 6.2 ~ 6.7 であったため、最大値を採用した。玉川中和処理水に関しては、懸濁物が析出し藻類生長阻害試験を行う際の吸光度測定に支障があると判断したため、別途ろ過処理を行った。また、各試験区の希釈用および対照区としての飼育水は、硬度調整溶液を添加し、硬度約 65mg/L as CaCO₃ とした後、10 日間曝気による脱塩素処理したものを用いた。試験は OECD テストガイドライン NO.201、211、212 及び日本版 WET 法を参考にして行った。供試生物は魚類胚・仔魚短期慢性毒性試験にはゼブラフィッシュ (*Danio rerio*)、ミジンコ繁殖阻害試験にはニセネコゼミジンコ (*Ceriodaphnia dubia*) を用いて試験水濃

表 1 各供試生物の短期慢性毒性試験方法

試験名	魚類胚・仔魚短期慢性毒性試験	ミジンコ繁殖阻害試験	藻類生長阻害試験
供試生物	ゼブラフィッシュ (<i>Danio rerio</i>)	ニセネコゼミジンコ (<i>Ceriodaphnia dubia</i>)	ムレミカヅキモ (<i>Raphidocelis subcapitata</i>)
試験期間	10日間	10日間	3日間
温度	26 ± 1°C	26 ± 1°C	25 ± 1°C
照度	16時間明8時間暗	16時間明8時間暗	5000lx以上で連続照射
試験区	対照区(0%)と6濃度区 (5%,10%,20%,40%,80%,100%)各3連 原水は硬度調整なし、希釈水は飼育水を使用	対照区(0%)と6濃度区 (5%,10%,20%,40%,80%,100%)各10連 原水は硬度調整なし、希釈水は飼育水を使用	対照区(0%)6連と7濃度区 (5%,10%,20%,40%,80%,95%,100%) 各3連、希釈水は培地を使用
初期細胞濃度/生物数	受精卵15個/試験区	10連/試験区	10 ⁴ cells/mL
容器	ペトリ皿(90mL)	50mLのスナップカップ	200mLの三角フラスコ
試験水	pH無調整、pH調整、ろ過処理(0.45µm) 48時間毎45mL換水	pH無調整、pH調整、ろ過処理(0.45µm) 24時間毎25mL換水	pH無調整、pH調整、ろ過処理(0.45µm)
給餌	なし	クロレラ 0.1mgC/(匹・日)	なし

度 0%、20%、40%、80%、100%とした。藻類生長阻害試験ではムレミカツキモ (*Raphidocelis subcapitata*) を用いて試験水濃度 0%、5%、10%、20%、40%、80%、95%とし、必要に応じて濃度区を追加した。各試験結果の統計解析は Ecotox-Statics Ver.3.0 を用いて行い、Dunnett 多重比較検定により生長阻害率、産仔数、孵化率、致死率に対する NOEC (無影響濃度%) とその逆数に 100 をかけて表される毒性単位 TU を算出した。また、生物応答試験に使用した各試験水の水质分析を行い、毒性物質群の濃度を地点ごとに測定した。

4. 研究成果

(1) 玉川強酸性泉の中和による毒性レベルの低減効果について検討した結果、以下のような知見が得られた。

- 1) 玉川中和処理施設におけるムレミカツキモ生長阻害の低減効果は約8倍以上、中和処理水のpHをさらに調整して中性 (pH6.7程度) にした場合、EC50 (半数影響) は著しく大きくなり改善した。
- 2) ニセネコゼミジンコ短期慢性毒性試験では、中和処理による毒性低減効果は約4倍以上、中性で16倍以上改善した。
- 3) ゼブラフィッシュ胚・仔魚を用いた試験では、現状の中和処理により孵化率16倍、致死率2倍の改善効果がみられ、中性の場合は孵化率、致死率への影響はみられなかった。現状の中和処理対策を強化しても藻類、甲殻類への毒性はなくなる可能性が示唆された。

(2) 田沢湖へ流入するまでの自然緩衝効果による毒性レベルと毒性物質群の変化について検討し、以下のような知見が得られた。

- 1) ムレミカツキモ生長阻害試験による玉川中和処理施設、玉川ダム、田沢湖の流下方向における毒性単位TUは20以上から、10、5に低下した。また、ニセネコゼミジンコ繁殖阻害試験によるTUは20、2.5、2.5、ゼブラフィッシュ仔魚期の短期毒性試験によるTUは10、1.25、1.25に変化し、特に玉川ダムまでのTU値の減少、即ち毒性の改善が大きかった。
- 2) 玉川-田沢湖水系の毒性物質群はAl、B、F、As、Znの5種類で、このうちAs、Znは玉川ダム、田沢湖で定量下限値以下であった。毒性物質群の濃度変化より、玉川中和処理施設から玉川ダムまでの流下と滞留過程において河床またはダム湖底へ沈殿したため、溶存物質としての存在割合は大きく減少したと考えられる。さらに玉川ダムから田沢湖までのAl、B、Fの濃度変化は、玉川ダムまでの変化より小さかった。
- 3) 上記の玉川ダムまでの毒性改善と毒性物質群の挙動が概ね一致した理由は、玉川中和処理施設の石灰処理及び支流との混合等による中和作用に玉川強酸性泉に含まれるAl、Feによる凝集効果が加わり、様々な毒性物質群がAl・Fe水酸化物を含む懸濁物として主に玉川ダム (宝仙湖) へ移動・堆積するためと考えられる。

(3) 玉川ダムや田沢湖に残存する毒性物質群及びpHの影響について検討し、以下のような結果が得られた。

- 1) 玉川ダムの試験水に対するミジンコ繁殖阻害試験の毒性単位TUは、現状 (pH4.3) のTU 2.5からpH調整後 (pH6.7) はTU1.25へと2倍改善されたが、依然としてTU 1に達していなかった。pH7、Al濃度 0mg/L ~ 10mg/Lでのミジンコ繁殖阻害試験(産仔数)の解析では、EC10が1.02mg/L、EC20が1.50mg/L、EC50が1.77mg/Lの結果が得られ、玉川ダムのAl濃度 (1.8mg/L) は繁殖阻害が現れる水準で、毒性物質として作用する可能性が示された。
- 2) 田沢湖ではpH調整前後 (pH5.3、pH6.7) においてミジンコ繁殖阻害試験のTU値は変化しなかった。田沢湖のAl濃度は0.3mg/Lと繁殖阻害を起こす可能性は低く、F、B濃度も玉川ダムより低下していたため、pH以外の要因として複合影響、低硬度の影響が考えられるが、今後の検討が必要である。
- 3) 藻類生長阻害については、玉川ダム、田沢湖ともにpH調整前後のTU値は変化しておらずpH調整による毒性低減効果は見られなかった。田沢湖水のpHを6.7に調整し栄養塩類を添加した結果、藻類生長阻害はなくなったことから、現在の田沢湖は貧栄養状態であることが藻類生長に影響を及ぼしていることが示唆された。

表2 各試験水の毒性物質群の濃度および毒性単位 TU との関係

地点別	毒性物質群の濃度(mg/L)					TUに基づく判定		
	F	B	Al	As	Zn	魚類	ミジンコ	藻類
玉川中和 処理施設	31	6.3	54	<0.01	0.13		×	×
	9.5	6.2	1.9	<0.01	0.11			×
玉川ダム	0.99	0.2	1.8	<0.01	<0.01			
田沢湖	0.8	0.1	0.3	<0.01	<0.01			

...TU = 1、 ...TU 10、 ×...TU>10

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 石川響稀、高橋孝太郎、富野玲奈、増田周平、金主鉉、大友渉平
2. 発表標題 ミジンコ繁殖阻害試験によるアルミニウム、フッ素、ホウ素の複合影響の評価
3. 学会等名 令和5年度土木学会東北支部技術研究発表会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 石川颯、増田周平、金主鉉、大友渉平
2. 発表標題 水生生物の生物応答を用いた玉川-田沢湖水系の酸性区間におけるpHおよび毒性物質群の影響評価
3. 学会等名 令和5年度土木学会東北支部技術研究発表会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 富野玲奈、石川颯、金主鉉、増田周平
2. 発表標題 WET法による玉川中和処理施設での毒性低減効果の評価
3. 学会等名 令和4年度土木学会東北支部技術研究発表会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 石川颯、上野瑞季、鎌田恭輔、佐藤将、金主鉉、増田周平
2. 発表標題 水生生物の生物応答を用いた田沢湖のpH調整効果の検討
3. 学会等名 令和4年度土木学会東北支部技術研究発表会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 渡邊優輔、藤田魁、金主鉉、増田周平
2. 発表標題 藻類生長阻害試験を用いた玉川中和処理施設における毒性低減効果の評価
3. 学会等名 令和3年度土木学会東北支部技術研究発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 富野玲奈、大坂海斗、平晃綺、金主鉉、増田周平
2. 発表標題 ゼブラフィッシュ胚・仔魚を用いた玉川中和処理施設での毒性改善効果の検討
3. 学会等名 令和3年度土木学会東北支部技術研究発表会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関