原 著

フッ素地区地質(北津軽)の層別フッ素濃度分析*

Stratigraphic Analysis of Fluoride Concentration in Soil from
a Fluoride Area (Kitatsugaru)

飯 島 洋 一** 稲 葉 大 輔** 宮 沢 正 人**
田 沢 光 正** 片 山 剛**

Youichi IJIMA**, Daisuke INABA**, Masato MIYAZAWA**,
Mitsumasa TAZAWA** and Tsuyoshi KATAYAMA**

概要: 岩木川流域の3市9町8村の飲料水中のフッ素濃度を測定した。この結果、浅井戸や伏流水あるいは河川の表流水を水源とする場合のフッ素濃度は、無視しうる程度($<0.1\text{ppm}$)であることが示された。これに対して、深層地下水(200~300m)を水源とした飲料水は高いフッ素濃度(0.3~1.1ppm)を示していた。

このように高いフッ素濃度が何に由来するのかを検討するため、歯牙フッ素症が発現する地区の深井戸(250m)掘さく時に採取した地質試料のフッ素濃度を地層ごとに分析した。

total F ならびに ionizable F (Mean $\pm$ S.D.) は、それぞれ $130.3\pm 43.1\text{ppm}$, $37.4\pm 24.8\text{ppm}$ であるが、ionizable F の total F に対する割合は10~70%と地層による変動が大きい。このなかで、40~70%と高い値を示す地層は比較的限られており(全体の1/3程度)、収水を目的としたストレーナー開口部とその周辺には、これらの地層(砂質シルト)が存在していた。また砂質シルトの ionizable F は易溶性であった。これらのことは、飲料水中のフッ素が地質に由来する可能性のあることを示唆している。

索引用語: フッ素地区, 地質, 層別フッ素濃度

結 言

岩木川(青森県)流域に発達した津軽平野のほぼ中央部に位置する板柳町の沿川地区ならびに鶴田町の梅沢地区住民が飲用する飲料水から、天然フッ素が検出されている¹⁻³⁾。出生後より同地区に継続して居住する児童の永久歯の齲蝕有病状況⁴⁾と歯牙フッ素症発現に関する疫学調査^{5,6)}、およびフッ素症歯のエナメル質フッ素濃度の分析結果⁷⁾は、我が国における飲料水中の至適フッ素濃度を検討するうえで重要な知見といえる。

深層地下水を水源とする沿川および梅沢の両地区の飲料水は、深井戸(250~300m)により揚水したのち、簡易水道として給水されている。同地区では水源の位置が相互に近接しているにもかかわらず、含有する飲料水中のフッ素濃度は0.3~3.2ppmと変動が大きい⁸⁾(3.2ppmのフッ素濃度を示す水源の井戸は、昭和52年1月に掘り換えられた。その後のフッ素濃度は約0.6ppmである)。一般には地下水に含まれるフッ素は、地下水脈を形成する付近の土壌・岩石をはじめとした地質に由来する場合と、地下の温泉水が混入する場合の両者が考えられ

* 本論文の一部は第30回日本口腔衛生学会総会において発表した。

** 岩手医科大学歯学部口腔衛生学講座(主任: 片山 剛教授)

** Department of Preventive Dentistry, School of Dentistry, Iwate Medical University (Director: Professor Tsuyoshi KATAYAMA)

昭和60年4月13日受付

る⁹⁾。このようなことから、地下水に含まれる天然フッ素の由来を知るためには、地下水を包蔵する地質のフッ素含有量を分析することと水源および水源周辺の温泉水の水質を分析し、比較することが必要となる。しかしながら、今日まで我が国で実施された歯牙フッ素症の疫学調査では、地質を分析した例は数少なく、大部分は調査地区の地質学的特徴を記載するにとどまっている⁹⁾。

本論文では、各種水源（表流水、伏流水、浅井戸あるいは深井戸）の飲料水中フッ素濃度を測定することにより、岩木川流域を中心とした地区の水源の種類と飲料水中フッ素濃度との関連を確認するとともに、深井戸（250m）の掘さく時に採取・保存されていた地質試料中のフッ素濃度を地層ごとに分析してえた成績から、飲料水中の高いフッ素濃度の由来を推定することを目的として行った研究の結果について報告する。

材料と方法

1. 飲料水の採取ならびにフッ素濃度の定量

板柳町を中心とした半径10km ほどの同心円内に位置する岩木川流域の3市9町8村（Fig. 1）の公共水道の水源20カ所（各市町村あたり1カ所）から既法²⁾に準じ昭和56年7月採水した。各市町村の水源は、水源別に表流水、伏流水、浅井戸あるいは深井戸による地下水に区分された¹⁰⁾。飲料水中のフッ素濃度は既法²⁾に従いフッ素イオン電極で測定した。

2. 地質試料

本研究に供試した地質試料は、板柳町の沿川地区に隣接した小阿弥地区の深井戸（250m）の掘さく時（昭和53年5月）に採取・保存されていたものである。なお、同水源の飲料水中のフッ素濃度は0.9 ppm である（水源の位置は図の●に相当）。

3. 地質フッ素の定量

地質試料の分析は、羽田¹¹⁾らの記載に準じて水蒸気蒸留法により行った。すなわち十分に試料を自然乾燥させた後、遠心粉碎機（ball mill 型、平工製作所、東京）で250 mesh 以下に粉碎した。この粉碎地質試料の1gを250 ml 容のクライゼン型蒸留フラスコにガラスビーズ（φ5 mm）5個とともに投入し、あらかじめ精製した濃硫酸（特級、和光）30 ml を徐々に加えた。ついで、試料中に含まれる塩素を除く目的で硫酸銀（特級、和光）1gを加えた。

この蒸留フラスコを水蒸気発生装置と冷却管とに連結したのちフラスコを加熱し、液温が130℃に達したのち水蒸気を通して液温を140±5℃に保ちつつ蒸留する。

Cities	Towns	Villages
1. Hirotsaki	4. Ajigasawa	13. Ikarigaseki
2. Kuroishi	5. Hiraka	14. Inagaki
3. Goshogawara	6. Kizukuri	15. Morita
	7. Onoe	16. Shariki
	8. Owani	17. Shiura
	9. Namioka	18. Tokiwa
	10. Tsuruta	19. Inakadate
	11. Itayanagi	20. Kashiwa
	12. Fuzisaki	

Fig. 1 Geographical location of the Tsuraru Peninsula and the Iwaki River

留出液が250 ml に達した時点で蒸留をやめ、フッ素定量のための試料液とした。分取した試料液の5 ml に等量の緩衝液（TISAB, ORION 社製）を加え、フッ素イオン電極（96-09型, ORION 社製）で測定してえた定量値を総フッ素量（以下 total F）とした。

一方、粉碎試料の1gを100 ml の脱イオン蒸留水（pH 6.8）に投入し、恒温槽（40℃）中で48時間静置することにより溶出するフッ素をイオン型フッ素（以下 ionizable F）とし、フッ素イオン電極で定量した。

結 果

1. 調査地区の地表地質ならびに地質断面の概要

津軽平野は岩木川によって運搬・堆積した、いわゆる沖積世汎濫原堆積物および三角州性堆積物に主として覆われている。平野の周辺部には洪積世の堆積物によって構成される丘陵・台地が広がり、山地には新第三系の堆積岩および火成砕屑岩が厚く堆積している。

調査地区周辺で頻繁に行われている温泉開発によって、近年明らかにされた地質断面の特徴を、津軽平野のほぼ中央部に位置する五所川原市のボーリング地質柱状図を例にとり概説すると以下の通りである。すなわち、

地表より深度70 m までは、しばしば泥炭層が狭在する軟弱な地層で、洪積統に属する。深度120m 前後ならびに200 m 付近には、貝化石がしばしば含まれており、鮮新統に属する。深度 200 m より 370 m 付近までは砂岩 (Sandstone)が狭在する砂質シルト岩 (Sandy siltstone) となっており、中新統である。370 m 以深530 m 付近までは、いわゆる頁岩であり、一部に細粒状の凝灰岩 (Tuff)が狭在している。530 m 以深は砂岩および砂凝灰岩が主体であるが、600 m 付近には玄武岩 (Basalt) も発達している^{12,13)}。

本研究に供した地質の岩相は、砂質シルト岩を主体としている。しかも地下水の収水を目的とした収水層に一致する岩相は、井戸の掘さく業者によって作製された地質柱状図 (Fig. 2) によれば砂質シルトならびに凝灰質中砂 (Tuffaceous sandstone) であった¹⁴⁾ (図の j・k・l に相当)。

2. 水源の種類と飲料水中フッ素濃度

浅井戸 (10~20 m) による地下水、伏流水あるいは河川表流水が水源である場合 (3 市 3 町 5 村) の飲料水中フッ素濃度は、ほとんどが0.1 ppm 未満である (Table 1)。

Fig. 2 Concentrations (ppm) of total F and ionizable F in the rock strata.

Table 1 Variation in natural fluoride concentration (ppm) in drinking water from various water supplies in different areas

Surface water		Subterranean water				Riverbed water	
		Shallow wells		Deep wells			
1. Hirosaki	<0.1	6. Kizukuri	<0.1	18. Tokiwa	0.34	4. Ajigasawa	<0.1
14. Inagaki	<0.1	15. Morita	<0.1	7. Onoe	0.40	5. Hiraka	<0.1
2. Kuroishi	0.12	16. Shariki	<0.1	19. Inakadate	0.41	13. Ikarigaseki	<0.1
3. Goshogawara	0.18	17. Shiura	<0.1	8. Owani	0.52		
				9. Namioka	0.56		
				10. Tsuruta	0.62		
				11. Itayanagi	0.70		
				20. Kashiwa	0.75		
				21. Fuzisaki	1.10		

ただし例外的に有意のフッ素が検出された場合でも、わずかに0.2 ppm 程度であった。一方、深層地下水(200~300 m)が水源の場合(6町3村)は、フッ素濃度が0.3 ppm~1.1 ppm と高い値を示した。

3. 地質の層別フッ素濃度

水蒸気蒸留法により検出された各地層ごとの total F ならびに ionizable F の定量値を一括して Fig. 2 に示した。total F, ionizable F は、それぞれ 130.3 ± 43.1 ppm, 37.4 ± 24.8 ppm (Mean $\pm$ S. D.) であり、ionizable F の変動が total F のそれに比較して著しく大きい。一方、total F と ionizable F の両者間には、total F が多くなれば ionizable F も多くなる傾向を認めたが、地質の地表からの深さとの関連性は認められなかった。

地下水を包蔵する地層は、凝灰質中砂 (Tuffaceous sandstone) ならびに砂質シルト (Sandy siltstone) である (Fig. 2) が、この地層の total F は $124.0 \sim 135.2$ ppm, ionizable F は $20 \sim 92$ ppm であった。この地層のうち、砂質シルトの total F に対する ionizable F の割合が約70%と著しく高く、収水を目的としたストレーナーパイプの開口部は、この地層を含んで設置されていた。またストレーナーパイプ開口部の上方あるいは下方に位置する砂質シルト (Fig. 2) の total F に対する ionizable F の比率も、約40%と高い値を示した。

収水層に位置する地層の凝灰質中砂ならびに砂質シルトのそれぞれから溶出する ionizable F 量を経時的に測定した (Fig. 3)。凝灰質中砂ならびに砂質シルトに含まれる ionizable F は、3時間以内にその80%が溶出した。また、砂質シルトから溶出する ionizable F は、凝灰質中砂に比較して著しく高い傾向を示していた。

Fig. 3 Release of ionizable fluoride from rock stratum correspond to the water-bearing stratum

考 察

歯牙フッ素症とは、エナメル斑のうち明らかにフッ素によるものと判定されたフッ素症歯を有している状態という¹⁵⁾が、軽度の症例では原因が異なる他のエナメル斑との鑑別が必要である^{16,17)}。その際、飲料水中のフッ素濃度の確認が必要となることは論をまたない。ところが飲料水中のフッ素が何に由来するかを明らかにし、かつそれを定量的に分析した報告は極めて少ない。事実、石井ら¹⁸⁾がレビューした文献のなかでも地質を分析した報告はわずかに1編¹⁹⁾あるのみである。それも地表の火山灰を分析したものであり、著者らのように地下水を包蔵する地層を層別に分析した報告ではない。

本研究に供試した地質試料の全てを分析した結果、試料中の total F は、すでに報告されている土壌・岩石ならびに鉱物のフッ素量¹⁹⁾の範囲内にある。これに対し ionizable F は岩相による変動が認められた。とりわけ収水層の岩相である砂質シルトの ionizable F の割合は70%以上と高い値を示していた。また収水層の上方あるいは下方に位置する砂質シルトの ionizable F の比率も40%以上と同様に高い傾向を示した。

これらのことは、当該地区の地下水の高いフッ素の由来を推定するうえで重要な知見といえる。事実、本研究において深井戸による深層地下水を水源とした場合には、従来から調査してきた地区と同様に高いフッ素濃度であることが示された。

一方、津軽平野では温泉開発が頻繁に行われている。この際、地下水の遮水施工が不完全な場合は十分な泉温がえられないことも指摘されており²⁰⁾、地下水が温泉水に混入する場合のあることは比較的良好に知られた事実である。その反対に、フッ素を高濃度に含む温泉水が地下水に混入している可能性が考えられる。なぜならば板柳町、鶴田町両町の板柳温泉、高増温泉、鶴田温泉の深度は、それぞれ700 m, 360 m~500 m, 600 m であり²¹⁾、これら温泉よりも浅層に位置する地下水に温泉水が混入する可能性は十分に考えられる。事実、井戸によっては飲料水の水温が $21 \sim 29^{\circ}\text{C}$ と高いこと²¹⁾、ならびにこれら温泉水と飲料水の化学成分がフッ素を含め温泉水と極めて類似していた²²⁾ことなどは、前述の可能性を裏付けるものといえる。

ところで、土壌中の高いフッ素の存在は、大気環境中のフッ化物に由来する可能性があること、つまり産業発生源のフッ素も重要な要因になりうることを考慮しておかなければならない²³⁾。しかしながら、板柳町、鶴田町

ならびにその周辺にはフッ素の発生源となりうるアルミ精錬工場、リン酸肥料製造業あるいは窯業など大規模な大気汚染源は存在しない。したがって本研究で分析した地質試料中のフッ素濃度に産業発生源のフッ素が影響しえたとは考え難い。

結 論

深層地下水を水源とし、深井戸により給水を行っている地区では、飲料水中のフッ素濃度が0.3~1.1 ppm と明らかに高い値を示した。また地質試料を分析した限りでは、収水を目的とした地層の性状 (ionizable F の割合とその溶出性) からフッ素地区 (北津軽) の飲料水中の高いフッ素は、地質に由来する可能性のあることが示された。

文 献

- 1) 久米田俊英, 阿部節子, 野田三重子, 鈴木鍾美, 原田 潮, 松田和弘, 飯島洋一, 高江洲義矩: 北津軽地方における斑状歯発現に関する調査報告, 岩手医大歯学雑誌, 1; 27, 1976.
- 2) 松田和弘, 原田 潮, 飯島洋一, 田沢光正, 高江洲義矩: 青森県北津軽郡における斑状歯発生地域の飲料水中化学成分について, 口腔衛生会誌, 27; 8, 1977.
- 3) 松田和弘, 飯島洋一, 田沢光正, 高江洲義矩, 久米田俊英: 北津軽郡の歯牙フッ素症発現地域における飲料水中フッ素濃度の変動について, 口腔衛生会誌, 28; 80, 1978.
- 4) 田沢光正, 飯島洋一, 久米田俊英, 宮沢正人, 蔡 玉清, 高江洲義矩: フッ素地区および非フッ素地区における永久歯の歯種別ウ蝕罹患性についての疫学的分析, 口腔衛生会誌, 29; 328, 1979.
- 5) 飯島洋一, 田沢光正, 松田和弘, 奈良吉剛, 久米田俊英, 高江洲義矩: 北津軽地方における飲料水中フッ素濃度群別歯牙フッ素症発現に関する疫学的研究, 口腔衛生会誌, 28; 285, 1978.
- 6) 宮沢正人, 久米田 哲, 奈良吉剛, 田沢光正, 飯島洋一, 高江洲義矩, 松田和弘, 久米田俊英, 鈴木鍾美: フッ素地区 (北津軽) における歯牙フッ素症発現, ウ蝕罹患並びに CFI に関する疫学的分析, 岩手医大歯学雑誌, 4; 98, 1979.
- 7) 飯島洋一, 松田和弘, 原田 潮, 田沢光正, 高江洲義矩: エナメル質表層におけるフッ素濃度分布 (II) — エナメル質生検法による検討 —, 口腔衛生会誌, 27; 2, 1977.
- 8) 野口喜三雄: 地球における弗素の分布, 口腔衛生会誌, 2; 1, 1953.
- 9) 石井拓男, 加藤一夫, 榊原悠紀田郎: 日本における歯牙フッ素症疫学調査の文献的考察, 口腔衛生会誌, 32; 78, 1982.
- 10) 青森県環境衛生課: 水道統計, 昭和55年度 (水道種類別の現状).
- 11) 羽田美樹子, 角田文男: フッ化物による大気汚染調査のための指標植物について, 日本公衛誌, 19; 449, 1972.
- 12) 地質調査所: 五所川原地域の地質, 地域地質研究報告, 昭和45年.
- 13) 青森県環境保健部: 青森県津軽平野地域における温泉群の研究, 昭和54年.
- 14) 板柳町役場: 地質柱状図並電気検層図, 昭和53年.
- 15) フッ素委員会報告: いわゆる斑状歯について, 口腔衛生会誌, 30; 402, 1980.
- 16) 高江洲義矩, 飯島洋一, 田沢光正, 松田和弘: 斑状歯の疫学的解釈 — 特に Milder form の分類について —, 歯界展望, 50; 1005, 1977.
- 17) Small, B. W. and Murry, J. J.: Enamel opacities: prevalence, classifications and aetiological considerations, J. of Dentistry, 6; 33, 1978.
- 18) 高森時雄, 馬場 博, 川原春幸: 阿蘇火山病に就いて, 四国医学誌, 3; 101, 1952.
- 19) 松浦新之助, 国分信英: フッ素の研究, 東京大学出版会, 東京, 第2刷 1973, p. 17-21.
- 20) 酒井軍治郎: 北津軽郡中里町管内における温泉の開発について, 報告書, 昭和56年.
- 21) 酒井軍治郎: 弘前市高杉地区における温泉の開発について, 報告書, 昭和56年.
- 22) 松田和弘: 津軽平野の歯牙フッ素症 (斑状歯) 発現地域における飲料水と周辺温泉群の水質, 温泉科学, 32; 132, 1982.
- 23) McClenahan, J. R.: Distribution of soil fluorides near an airborne fluoride source, J. Environ. Qual., 5; 472, 1976.

Abstract: Stratigraphic Analysis of Fluoride Concentration in Soil from a Fluoride Area (Kitatsugaru). Youichi IJIMA, Daisuke INABA, Masato MIYAZAWA, Mitsumasa TAZAWA and Tsuyoshi KATAYAMA. Significantly high fluoride concentrations (0.3-1.1 ppm) in drinking water obtained from deep wells ranging 200 to 300 meters in depth were detected. The possible influence of soil fluoride on fluoride concentration in drinking water was investigated.

Soil samples obtained during deep well (250 m) boring from the area where frequent dental fluorosis occurred were employed in determining total soil fluoride concentration using sulfuric acid steam distillation and a fluoride specific ion electrode.

Total and ionizable fluoride concentrations in the soil samples ranged from 59.0 to 211.0 ppm (Mean $\pm$ S.D. : 130.3 ± 43.1 ppm) and from 6.2 to 92.0 ppm (Mean $\pm$ S.D. : 37.4 ± 24.8 ppm). The percentage of ionizable to total fluoride concentration was significantly higher (over 70 %) in the sandy siltstone of the water-bearing stratum than in other rock strata. Much rapid fluoride release from sandy siltstone was found.

These findings strongly imply that soil fluoride influences fluoride concentration in drinking water.

Key words: Fluoride area, Soil sample, Fluoride concentration