



Title	豊平川における砒素化合物の動態
Author(s)	辰巳, 健一; 中埜渡, 丈嘉; 成田, 隆広 他
Description	第9回衛生工学シンポジウム (平成13年11月1日 (木) -2日 (金) 北海道大学学術交流会館) . 5 リスク評価と環境修復 . 5-2
Citation	衛生工学シンポジウム論文集, 9, 229-234
Issue Date	2001-11-01
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/7176
Type	departmental bulletin paper
File Information	9-5-2_p229-234.pdf



豊平川における砒素化合物の動態

辰巳健一、中埜渡丈嘉、成田隆広（（株）ドーコン）
眞柄泰基、橋 治国（北海道大学大学院工学研究科）

1. はじめに

砒素による環境汚染は、人為的起因のみならず自然起因によってもみられる。平成5年の環境基準改正により環境水中の砒素濃度は0.05mg/lから0.01mg/lへと厳しい基準へ変更された。その結果、砒素による微量汚染が問題となり、自然界における動態、機構解析が重要となってきた。

調査対象とした豊平川は、以前から温泉に由来する河川水の砒素が問題となっており、その動態解析は札幌市の水道水源とも関連し、流域管理をする上で重要である。

本研究では豊平川の水道水源あるいは水環境保全としての水質管理を念頭に、温泉湧出水の砒素の動態を中心に、その発生負荷量、流出特性や質変化機構などの動態解析を行った。

本報告では、流況安定時の水質・底質調査結果に基づき砒素の動態を中心に検討した。

2. 研究方法

2.1 調査対象水域の概況

豊平川は流域面積904.8km²、流路延長72.5kmで、源流は小漁岳(1,235m)にある。本川は、豊平峡ダム、定山溪温泉街、簾舞、札幌市街地を経て石狩川へと注いでいる(図1)。上流域は針広混交林及び広葉樹林で覆われ、地質的にはグリーンタフ地域の東側に相当し、新第三紀～第四紀の安山岩からなっている。流域内には、上流域に定山溪温泉と二次支川である白井川の上流に豊羽鉦山があり、また中流域に砂防、発電、上水を目的とした一の沢ダム、砥山ダム、藻岩ダムがあるなど、水は多目的に利用されている。豊平川的主要な汚染源は豊羽鉦山と定山溪温泉にあり、特に定山溪温泉湧出水に含まれる砒素は、水道水基準を超えることもあり、その動態が注目されている¹⁻⁴⁾。

2.2 調査方法

水質調査は図1中に示した9地点で1996年6月～1997年10月に月1回の頻度で実施した。

底質調査は、図1中に示すとおり、砥山ダム、藻岩ダム及び一の沢ダムで行い、特に一の沢ダムは支川流入の影響を考慮して7地点で採泥した。

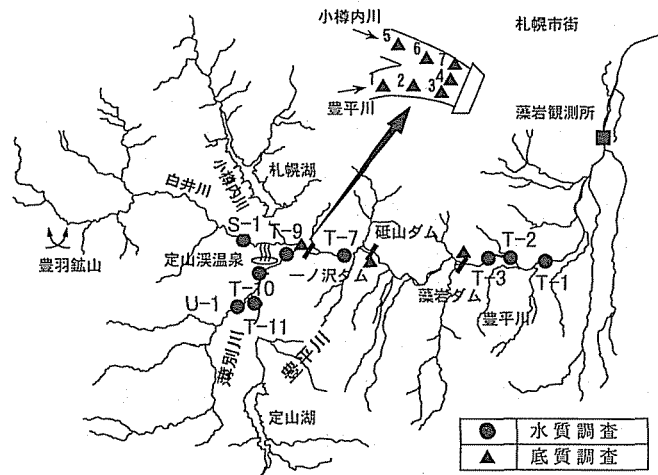


図1 豊平川調査対象水域の概況

2.3 水質及び底質分析項目と方法

現地では採水時に水温、気温を測定し、また流量観測を行った。試料は低温に保ち、可能な限り短時間で実験室へ持ち帰り、分析まで冷蔵して保存した。

水質分析項目は、BOD、COD、TOCの有機成分、T-N、T-Pの栄養塩、 Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 HCO_3^- の主要無機成分、Fe、Mn、As、Pb、Cd等の重金属成分、計約30項目を対象とした。ろ過、未ろ過は項目名に添え字T、Fを付けて区別した。水質分析方法は環境庁告示第59号、工場排水試験方法、上水試験方法に従った。

底質分析項目は、粒度組成（75 μm 以上はふるい分け、それ未満はStokesの法則に基づく沈降分析）、また試料を2mm以下（以下「底質【2mm以下】」）、及び細粒質であるシルト・粘土（以下「底質【シルト・粘土】」）に分け砒素含有量を測定した。そして底質（2mm以下）試料については溶出試験による溶出濃度を測定した。底質分析方法は、土質試験方法、底質調査法、工場排水試験方法に従った。

3. 結果及び考察

3.1 豊平川の流況及び水質の概況

3.1.1 流量変化

藻岩観測所の流量変化を図2に示した。調査時期は図中の●印で示す。流量は融雪期に最大となり、夏に減水後秋季の降雨に対応して流量が増える典型的な積雪地域の流出パターンである。

3.1.2 水質の概況

流程による水質成分濃度の変化の一例を図3に示した。

図3に、SS、COD、EC（電気伝導率）の地点別濃度変化を示した。豊平川の水質汚染の特徴は、中流部以降のCOD、ECの増加にみられるように、温泉水や鉱山活動など地域特性に起因するものと考えられる。

As_T 濃度の地点変化を図4に示した。温泉湧出水中には砒素が高濃度（2.4～2.8mg/lが著者ら、0.82～2.36mg/lが文献値⁵⁾）で含まれ、定山溪市街から流出した後、T-9で最大（平均で0.169mg/l）を示すが、T-7では平均値で0.016mg/lまで低下する。これは白井川と小樽内川が合流したものが豊平川と合流することで十数倍に希釈されるためである。

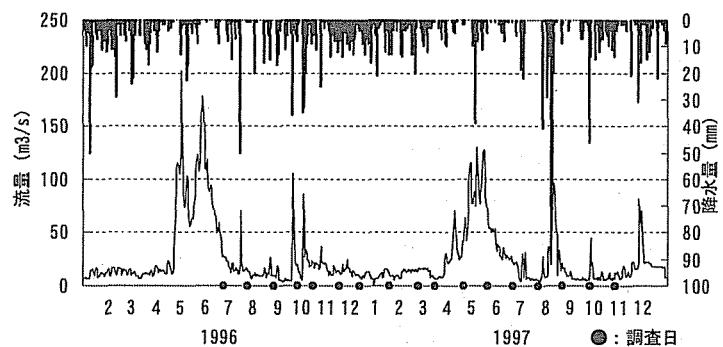


図2 藻岩観測所の流量変化

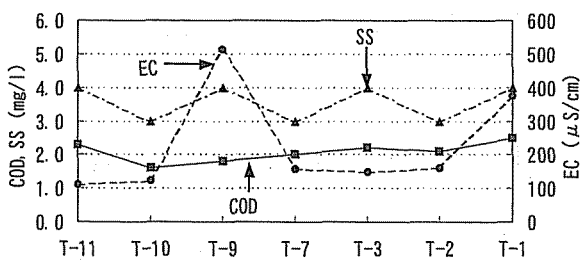


図3 SS, COD, EC濃度の地点変化

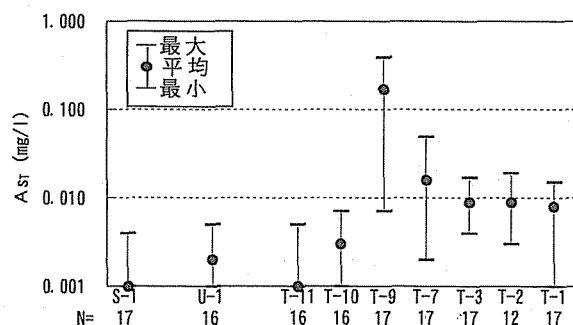


図4 As_T 濃度の地点変化

3.1.3 底質調査

図5に底質（2mm以下）、底質（シルト・粘土）の砒素含有量、及び底質（2mm以下）における溶出試験の砒素溶出濃度、表1に粒度組成（Atterbergの分類による）を示す。底質（2mm以下）の砒素含有量は、一の沢ダムにおいて温泉の影響の少ないNo.5～7（温泉から離れた地点）が10.1～30.7mg/kgであるのに対して、温泉の影響を受けるNo.1～4（温泉寄りの地点）は123～244mg/kgと多く含まれていることがわかる。これより下流の砥山ダム及び藻岩ダムでは、それぞれ15.2～94.7mg/kg、32.6～34.4mg/kgと徐々に低下する。底質（シルト・粘土）の砒素含有量についてみると、一の沢ダムはNo.1～4（温泉寄りの地点）が98.0～225mg/kgで底質（2mm以下）の砒素含有量と同程度であるが、砥山ダム、藻岩ダムはそれぞれ127～154mg/kg、83.0～95.2mg/kgで底質（2mm以下）の砒素含有量と比べ高い値を示す。シルト・粘土のような細粒質区分においては、下流ダムに至るまで高含有量であることがわかる。またダム内のばらつきは、一の沢ダムは温泉の影響の有無で含有量が大きく左右されるが、砥山ダム、藻岩ダムは均質化されるため地点間の差が小さい。

底質（2mm以下）における砒素溶出濃度は、一の沢ダムはNo.5～7（温泉から離れた地点）が全て定量下限値未満（ $<0.01\text{mg/l}$ ）であるのに対し、No.1～4（温泉寄りの地点）では $0.020\sim0.082\text{mg/l}$ と溶出が認められる。また、これより下流の砥山ダム及び藻岩ダムにおいても、 $<0.001\sim0.051\text{mg/l}$ と砒素含有量が高い地点で溶出が認められる。

底質（2mm以下）における砒素含有量と溶出濃度の関係を図6に、シルト・粘土構成比と砒素含有量の関係を図7に示した。砒素含有量と溶出濃度の間には、一の沢ダムのNo.1～4（温泉寄りの地点）、砥山ダム及び藻岩ダムで正の相関関係が認められる。砒素含有量とシルト・粘土の割合の関係をみると、一の沢ダム、砥山ダムでは両者の間に比例関係が認められる。このことからシルト・粘土中には砒素が比較的均質に含まれることがわかる。一方、下流に位置する藻岩ダムにおいては両者の間に関連性が認められず、下流域では流域から支川を通じて懸濁物質が流入するものと考えられる。

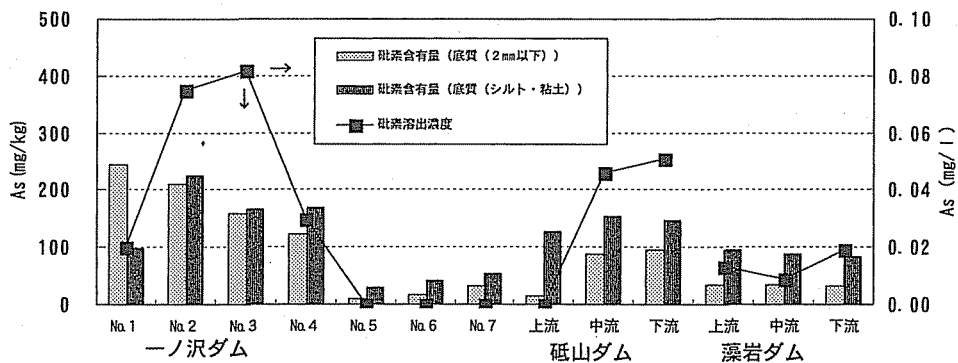


図5 Asの地点変化

表1 底質の粒度組成

単位：%

	一の沢ダム						
	No.1	No.2	No.3	No.4	No.5	No.6	No.7
砂 (0.02-2mm)	91	67	76	81	94	94	92
シルト・粘土 (0-0.02mm)	9	33	24	19	6	6	8
	砥山ダム			藻岩ダム			
	上流	中流	下流	上流	中流	下流	
砂 (0.02-2mm)	98	72	79	66	73	50	
シルト・粘土 (0-0.02mm)	2	28	21	34	27	50	

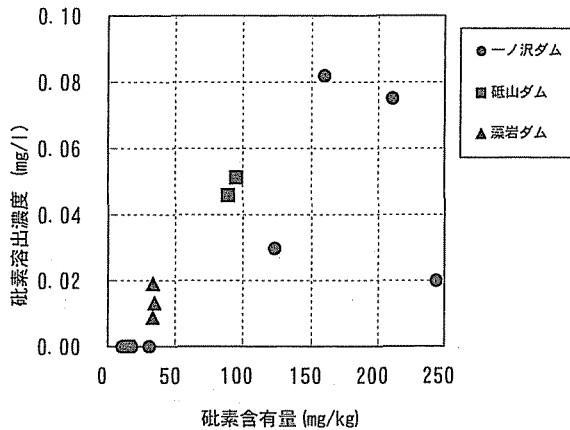


図6 底質(2mm以下)における砒素含有量と溶出濃度の関係

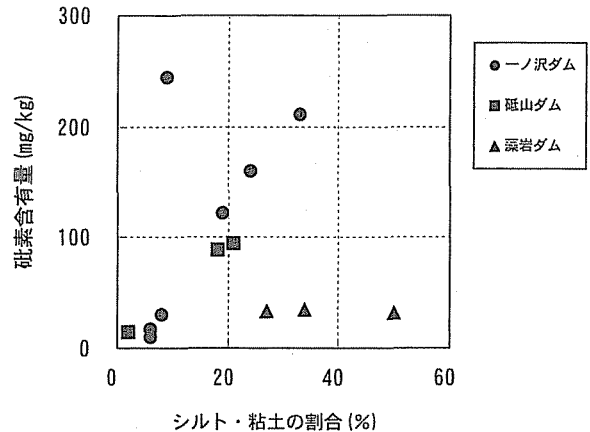


図7 底質(2mm以下)におけるシルト・粘土構成比と砒素含有量の関係

3.2 砒素の流出特性

3.2.1 砒素濃度と流量の相関

温泉湧出水が流入した後のT-9、7、3、2、1における砒素(As_T)濃度と流量の関係を表2に、温泉湧出水が流入した直後のT-9、ダム下流のT-3における関係を図化し図8に示した。T-9、T-7では流量とともに濃度が減少し、明確な負の相関が認められるが、3つのダム下流のT-3、T-2では濃度がかなり低下し、また変動幅も小さく明確な相関関係が認められない。最下流のT-1は、流量が多い支川の希釈作用で負の相関がやや認められ、流況に左右されるようになる。

3.2.2 砒素の流出パターン

図9にT-9とT-3について、 As_T の比流量と比流出負荷量の関係を示した。また、表3にT-9、7、3、2、1について $L=C \cdot Q^n$ 式

(ここでL:比流出負荷量 $g/km^2/s$ 、Q:比流量 $m^3/km^2/s$ 、C、n:係数)で整理した場合の定数n、並びに $\log L$ と $\log Q$ の相関係数rを示した。nの値から流出特性を以下のように分類できる。

- 1) $n > 1$: (洗い出し型)
- 2) $n = 1$: (濃度一定型)
- 3) $n < 1$: (希釈型)

表3 比流量と比成分流出負荷量
($L=C \cdot Q^n$, L: $g/km^2/s$, Q: $m^3/km^2/s$,
C, n:Constant)

St.	n	相関係数	試料数
T-9	0.18	0.31	17
T-7	0.54	0.44	15
T-3	0.93	0.91	16
T-2	0.68	0.90	12
T-1	0.75	0.90	16

表2 As_T 濃度と流量の関係

St.	試料数	相関係数
T-9	17	-0.75 *
T-7	15	-0.56 **
T-3	16	-0.35
T-2	12	-0.53
T-1	16	-0.55 **

* : $P < 0.01$

** : $P < 0.05$

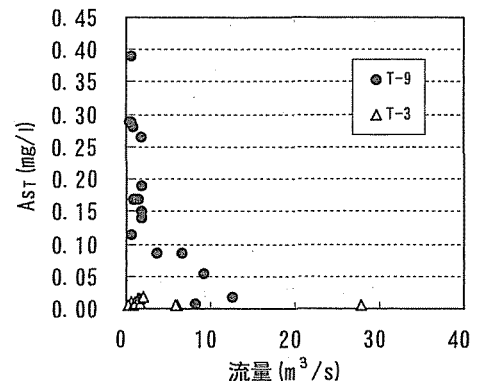


図8 As_T 濃度と流量の関係

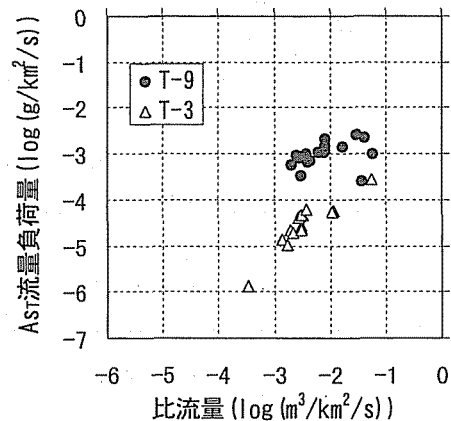


図9 比流量と比成分流出負荷量の関係

温泉湧出水が流入した直後のT-9はnが1以下であり、流出負荷量であり大きな変化が認められない。また相関係数も低く、河川での砒素濃度は温泉街からの排出に支配され、流出がポイント型（希釈型）であることがわかる。一方、ダムを通過したT-3では、nが1付近の値となり、流出負荷量は流量に追従するように増加する。また相関係数も正の高い値を示すことから、砒素の流出が安定した濃度一定型へと変わり、ノンポイント型（流出負荷量増加型）への流出に近づいたことがわかる。その後、支川からの希釈を受けnの値が若干低下するが、正の高い相関関係は維持される。

このような流出パターンの変化には、ダム湖底質と河川水の相互作用が関係するものと考えられる。温泉湧出水として豊平川へ流出した砒素は底質中のシルト・粘土に吸着されてダム湖底質中に蓄積され、流量安定時は溶出によって、また高流量時にはシルト・粘土分の流出、再溶解によって高濃度で流出することが推察される。砒素はこの区間中で堆積し、流量によって底質から洗い出されるタイプに変化したことがわかる。流水によってダム底に搬送され、堆積した細粒質土は高濃度の砒素を含み、河川への新たな供給源として潜在的な汚染源を形成することになる。

3.2.3 主成分分析による流出特性の分類

流出パターンに変化がみられたT-9、T-3において、主要な水質データを基に主成分分析を行った。図10(a)に各水質項目の主成分負荷量を示す。第1主成分（寄与率53.9%）は、ナトリウムイオン（ Na^+ ）、塩化物イオン（ Cl^- ）、砒素（ As_T ）など、温泉起源の項目の主成分負荷量が正に、 COD_P 、 COD_F 、SS、溶存態窒素（DN）、懸濁態窒素（PN）など、主に表面流出に由来する項目の主成分負荷量が負に分布し、発生源による流出特性の差異を示している。第2主成分（寄与率13.0%）は、 COD_F 、DNなど溶存成分が正に、 COD_P 、懸濁態リン（PP）など懸濁成分が負に分布し、流況による流出形態の差異を示している。両地点の主成分得点を図10(b)に示した。図中の括弧内の数字は流量（ m^3/s ）を示す。T-9は、大半が第4象限に分布しており点源としての温泉湧出水の影響が強いことがわかる。T-3は、ほとんどが第2象限または第3象限に分布し、T-9と比較し温泉の影響が弱まり、ノンポイント型の流出傾向が強まることがわかる。また、T-3の流出形態は調査日

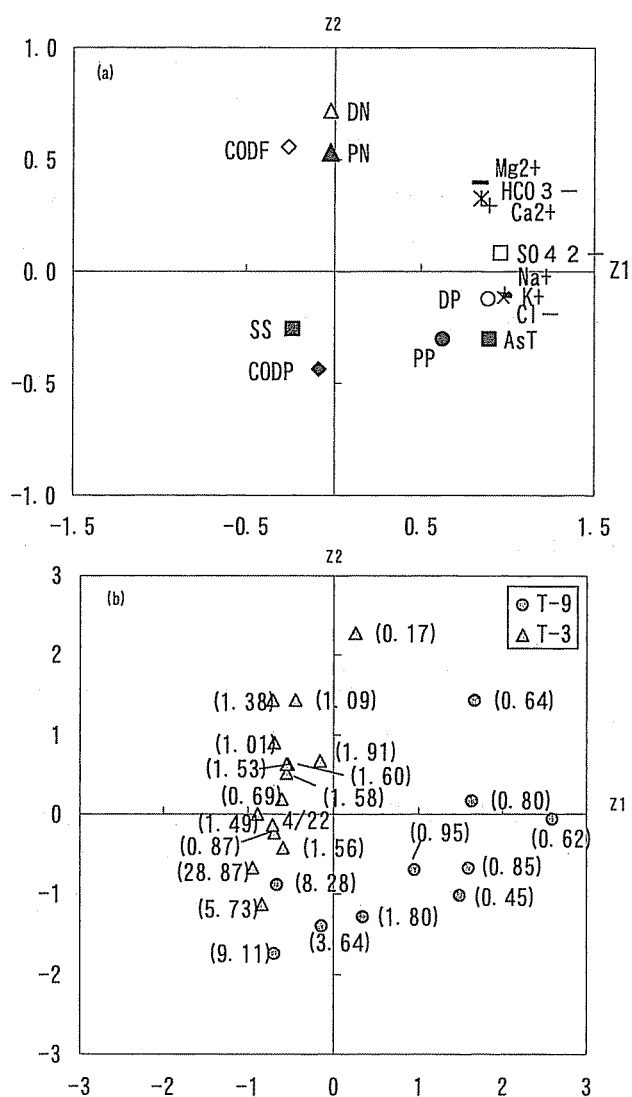


図10 主成分分析の結果
(a) 各水質項目の主成分負荷量
(b) T-9、T-3における主成分得点

によりばらつきがみられ、流量との関連では、流量安定時は溶存態として、増水時は懸濁態として流出する。砒素の分布に着目すると、発生源は Na^+ 、 Cl^- を主体とする温泉湧出水に起因し、流出はT-3において増水時に懸濁態であるSS、PP、 COD_p と似た挙動を示すことがわかる。

主成分分析の結果から、流出特性はダム通過前後で異なり、T-9はポイント型の流出であるが、T-3ではノンポイント型への流出へと変化することがわかった。流出形態はT-3で流量変動が影響し、低水時は溶存態、増水時は懸濁態として流出することが明らかとなった。

4. まとめ

札幌市の水道水源でもある豊平川は、鉱山廃水や温泉湧出水が流入し、これらに含まれている水質成分濃度が流況によって変動するため、今後の水質管理が問題となっている。筆者らは、温泉湧出水中に含まれる砒素化合物の動態に着目し水質調査を実施した。その結果、温泉湧出水に砒素が高濃度で溶存態として含まれること、河川流下過程で、流出の特性がポイント型（希釈型）からノンポイント型（流出負荷量増加型）へと変化することを明らかにした。この変化には、ダムによる貯水の影響が大きく関与し、温泉湧出水として豊平川へ流出した砒素は、シルト・粘土に吸着されてダム底質中に蓄積され、高流量時にはシルト・粘土分の流出、再溶解によって河川に流出回帰することが推察された。ダムの底質は、砒素の潜在的な汚染源を形成することになることがわかった。河川水とダム底質の相互作用等のメカニズムについては、本研究では十分検討できなかったが、砒素の流出機構を解析するうえで残された重要課題の一つといえる。

今後は出水時における懸濁態と溶存態を区分した動態及び流出解析によって、ダムや流水制御など河川管理方法、飲料水源としての評価、生態系への影響について検討したい。

参 考 文 献

- 1) 辰巳健一、中埜渡丈嘉、成田隆広、橘治国（1999）豊平川の流域環境と水質特性、土木学会第54回年次学術講演会講演概要集、第7部、4-5
- 2) 辰巳健一、中埜渡丈嘉、成田隆広、橘治国（2000）豊平川における砒素化合物の動態、第9回環境化学討論会講演要旨集、68-69
- 3) 辰巳健一、中埜渡丈嘉、成田隆広、橘治国（2000）豊平川における砒素の動態と流域環境、土木学会第55回年次学術講演概要集、第7部、VII-80
- 4) 青木未知子、佐藤裕子、田畑彰久、亀井翼、眞柄泰基（2000）札幌市におけるヒ素の流れとその環境リスク評価、第34回日本水環境学会年会講演集、pp. 205
- 5) 北海道の地熱・温泉(B)西北海道北部（1977）北海道地下資源研究所調査研究報告、4、108-124