

(28) 豊平川におけるヒ素の降雨時流出特性

Arsenic Runoff Characteristics following Rainfall in the Toyohira River

辰巳健一*、中埜渡丈嘉*、三浦勝巳*、成田隆広*

神 和夫**、眞柄泰基***、橘 治国***

**Kenichi TATSUMI*, Takeyoshi NAKANOWATARI*, Katsumi MIURA, Takahiro NARITA*,
Kazuo JIN**, Yasumoto MAGARA***, Harukuni TACHIBANA*****

ABSTRACT ; The Toyohira River, the source for Sapporo's waterworks, receives inflow discharged from mines and hot springs. The concentration of potentially hazardous substances in such inflow is high for some flow regimes, which raises concerns related to water quality management. We conducted a water quality survey during and after rainfall (Aug. 21 - 24, 2001). Rainfall totaled 79 mm. This report reviews the movement of arsenic identified from its runoff characteristics based on continuous observation of water quality during the rainfall. Dissolved arsenic was found to show point-type discharge (distilled) whereby the concentration decreased according to the increase in discharge. Suspended arsenic was found to show a non-point-type (outflow) discharge, as was true for suspended solids. Arsenic stored in the silt and clay of bottom sediment at normal times is tracted by the turbulent flow that occurs during rainfall, becomes suspended, and flows down in high concentration.

Keywords; water pollution, basin environment, arsenic, non point source, point source

1. はじめに

ヒ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ヒ素濃度は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、ヒ素による微量汚染が問題となるケースが増え、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ヒ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、流域管理上で重要な検討課題となっている。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、温泉湧出水のヒ素の動態を中心に、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。

著者らは、これまでの平常時における水質調査で、ヒ素が温泉湧出水に高濃度で溶存態として含まれること、豊平川へ流出した後、シルト・粘土分に吸着されダム底質中に蓄積されること、そして河川流下過程で、流出の特性がポイント型（希釈型）からノンポイント型（濃度一定型）へと変化することを明らかにした¹⁾。

本論文では、河川やダム底質中に蓄積されたヒ素の増水時の挙動を明らかにすることを目的として、降雨出水時におけるヒ素の動態を、その流出機構の視点から解析した。

* (株) ドーコン (Docon Co., Ltd.)

** 北海道立衛生研究所 健康科学部 (Department of Health and Environmental Science, Hokkaido Institute of Public Health)

*** 北海道大学大学院工学研究科 (Graduate School of Engineering, Hokkaido University)

2.1 調査対象水域の概況

● 水質調査地点
▲ 底質調査地点
■ 雨量観測所

0 5 10km

図1 豊平川調査対象地域の概況

2.2 調査方法

底質調査は、図1に示す3つのダム湖（一の沢ダム、砥山ダム、藻岩ダム）内で実施した。砥山ダム、藻岩ダムは、ダム湖内の上流部・中流部・下流部の3地点で1997年7月の流量安定時に採泥した。一の沢ダムは支川流入の影響を考慮して7地点で1998年1月の流量安定時に採泥した。

2.3 水質及び底質分析項目と方法

水質分析項目は、化学的酸素要求量 (COD)、全炭素 (TOC) の有機成分、全窒素 (TN)、全リン (TP) の栄養塩、ナトリウムイオン (Na^+)、カリウムイオン (K^+)、カルシウムイオン (Ca^{2+})、塩化物イオン (Cl^-)、アルカリ度 (4.3Bx) 等の主要無機成分、鉄 (Fe)、マンガン (Mn)、ヒ素 (As)、鉛 (Pb) 等の重金属成分、及び懸濁物質 (SS) の計約 30 項目を対象とした。溶存成分については孔径 $0.45\mu\text{m}$ のメンブランフィルターを用いてろ過後、分析を行った。懸濁態を含む試料 (全試料) と溶存態 (ろ過試料) は、汎用されている表示方法の他は、それぞれの分析項目名に付けた添え字の T (全試料)、F (溶存態) によって示した。また、懸濁成分として存在する成分 (全試料としての濃度から溶存成分としての濃度を差し引いたもの) は、添え字を P とした。水質分析方法は、原則として JIS-K0102 工場排水試験方法⁵⁾ に従った。ヒ素は、前処理で有機物を分解した後、水素化物発生—原子吸光光度法⁵⁾ により測定した。

— 258 —

分析結果は、定量下限値未満のものについては不等号を用いて示した。平均値を算出する際は、定量下限値未満のデータについては下限値を用いた（例えば0.001を0.001として取り扱った）。また、主成分分析等の統計処理をする際には、これらを解析対象から外した。

2.4 水文・気象データ

各調査地点（ただしS-1を除く）の流量は、豊平川で測定している北海道開発局石狩川開発建設部定山溪観測所の自動測定による流量データ（T-9）、北海道電力の定山溪取水堰放流量（T-10）、砥山ダム流入量（T-7）、藻岩ダム放流量（T-3）による流量データを用いた。降水量は気象庁（砥山ダム近傍の黄金湯観測所）⁸⁾のデータを用いた。

3. 結果及び考察

3.1 豊平川の流況及び一般的水質

(1) 流量変化

降水量と流量の経時変化を図2に示した。調査日時は図に示したように、ほぼ流量変化と対応した水質を把握する採水ができたといえる。調査期間中の総雨量は79mmで、23日3時には時間最大雨量16mmを記録した。各調査地点の流量変化は、豊平川上流のT-10、9では、定山溪取水堰により流量が制御されるため、降雨初期の流量変化は少なく、時間最大雨量（23日3時）を示す頃（調査No.⑩）から急激に増大する。T-7は、その約1km上流の豊平川右岸へ放流される発電放流水の影響を受け降雨前から流量が大きく変動する。T-3は、砥山ダム、藻岩ダムで流量が制御されるため段階的に増水する。降雨後の流量は、各地点で人為的な制御を受け減少する。期間中の各調査地点の最大流量は、T-10（59.0m³/s）、T-9（50.8m³/s）、T-7（109.5m³/s）、T-3（130.2m³/s）である。

(2) 水質の概況

各調査地点における17回の調査結果をもとに、主な水質成分の平均値、最大値、最小値、変動係数（標準偏差を平均値で除したもの）を表1に示した。温泉湧出水が流入するT-9、3つのダムを経たT-3については、水質成分濃度の経時変化の一例として懸濁物質（SS）、有機炭素（POC、DOC）、電気伝導度（EC）を図3に示した。

SS濃度は、流量の増加とともに高くなり、最大値はT-9で760mg/l、T-3で640mg/lを記

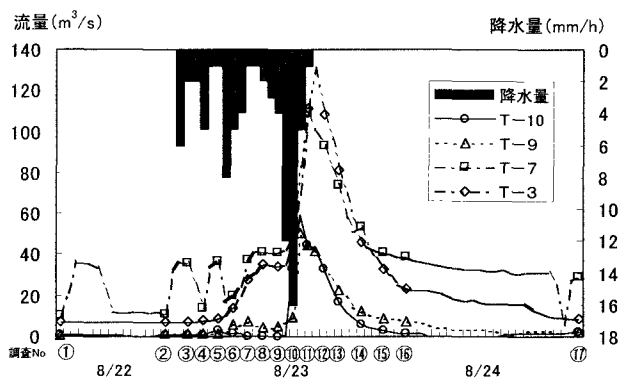


図2 調査期間中の降水量と流量の変化

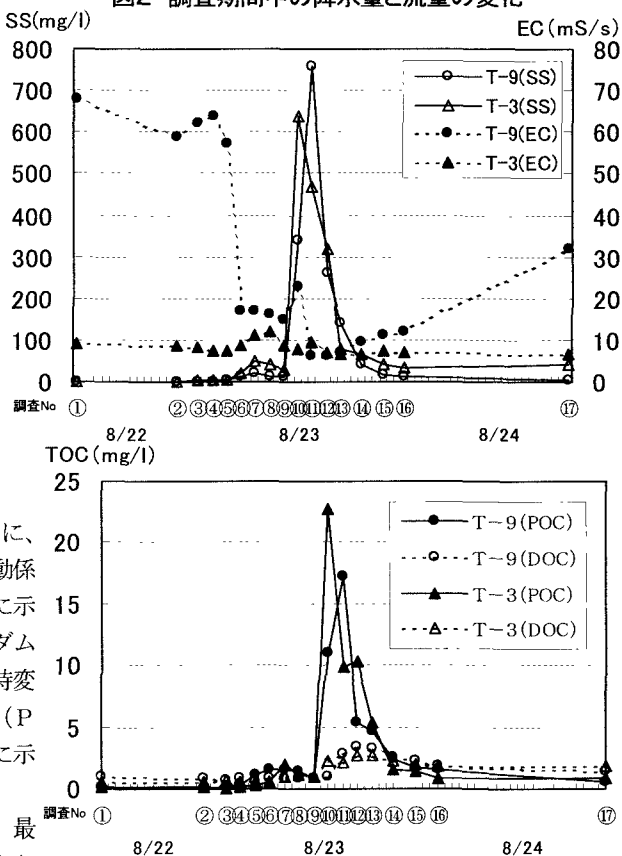


図3 代表水質成分の経時変化

表1 調査期間中の一般水質

No.	流量 m ³ /s	比流量 m ³ /s/km ²	pH	EC mS/m	SS mg/l	DO mg/l	TN mg/l	DN mg/l	PN mg/l	TP mg/l	DP mg/l	PP mg/l	Fe mg/l	Fe ²⁺ mg/l
平均値	T-10 8.9	0.04	7.1	8.6	109	8.6	1.31	0.31	1.00	0.069	0.003	0.066	5.8	0.16
	T-9 11.3	0.05	7.2	24.9	96	8.0	0.89	0.30	0.59	0.114	0.035	0.078	5.5	0.16
	T-7 45.1	0.10	7.1	8.2	52	9.3	0.94	0.22	0.71	0.045	0.004	0.041	2.8	0.12
	T-3 38.0	0.07	7.2	8.2	109	9.8	1.22	0.40	0.81	0.076	0.003	0.073	6.6	0.15
最大値	S-1 -	-	7.3	12.8	55	8.5	1.13	0.52	0.61	0.058	0.005	0.053	2.8	0.15
	T-10 46.3	0.21	7.5	13.0	1000	9.5	0.90	0.80	9.16	0.480	0.004	0.476	59.0	0.27
	T-9 44.5	0.20	7.4	64.0	760	8.5	3.00	0.40	2.69	0.310	0.100	0.306	37.0	0.41
	T-7 109.5	0.25	7.3	18.0	440	9.8	2.90	0.35	2.58	0.280	0.014	0.277	22.0	0.25
	T-3 120.9	0.23	7.3	12.0	640	10.0	3.80	0.97	3.21	0.380	0.004	0.376	36.0	0.27
最小値	S-1 -	-	7.7	32.0	360	8.9	3.30	0.90	2.60	0.210	0.024	0.206	17.0	0.25
	T-10 0.1	0.00	6.5	5.0	1	7.9	0.15	0.15	0.00	0.014	<0.003	0.011	<0.1	0.05
	T-9 1.0	0.00	6.7	6.4	1	7.3	0.31	0.20	0.01	0.038	<0.003	0.020	0.1	0.07
	T-7 14.0	0.03	6.8	5.5	1	8.7	0.19	0.15	0.01	0.009	<0.003	0.006	0.1	0.05
	T-3 7.2	0.01	7.0	6.5	2	9.4	0.23	0.14	0.04	0.004	<0.003	0.001	0.1	0.06
変動係数	S-1 -	-	7.0	6.7	1	8.2	0.31	0.28	0.01	0.009	<0.003	0.006	<0.1	0.04
	T-10 1.72	1.76	0.04	0.28	2.33	0.05	1.78	0.50	2.27	1.70	0.15	1.77	2.51	0.44
	T-9 1.19	1.23	0.03	0.86	2.06	0.04	0.88	0.17	1.31	0.76	1.14	1.17	1.83	0.50
	T-7 0.55	0.58	0.02	0.35	2.08	0.03	1.01	0.25	1.30	1.44	0.67	1.57	1.95	0.52
	T-3 0.95	0.99	0.01	0.19	1.71	0.02	0.87	0.55	1.16	1.42	0.13	1.47	1.63	0.50
	S-1 -	-	0.02	0.55	1.71	0.02	0.78	0.34	1.28	1.03	1.03	1.12	1.56	0.48

No.	TOC mg/l	DOC mg/l	POC mg/l	As ³⁺ mg/l	As ⁵⁺ mg/l	As ⁶⁺ mg/l	Na ⁺ mg/l	K ⁺ mg/l	Ca ²⁺ mg/l	Mg ²⁺ mg/l	Cl ⁻ mg/l	SO ₄ ²⁻ mg/l	HCO ₃ ⁻ mg/l
平均値	T-10 4.9	2.4	2.6	0.012	0.003	0.009	5.6	1.0	8.3	3.0	5.4	21.3	18.3
	T-9 4.5	1.5	3.0	0.154	0.112	0.043	37.5	7.8	13.8	3.1	65.2	23.0	29.7
	T-7 3.2	1.2	2.0	0.015	0.009	0.006	7.2	1.4	6.5	1.7	11.3	13.8	16.7
	T-3 4.9	1.4	3.4	0.019	0.007	0.012	7.8	1.4	7.3	1.9	8.9	13.2	17.8
最大値	S-1 4.9	1.9	3.1	0.003	0.001	0.002	7.1	1.2	16.3	2.4	9.8	29.2	23.5
	T-10 23.0	5.1	19.6	0.080	0.005	0.077	10.3	1.9	11.6	5.7	8.4	33.0	30.7
	T-9 20.0	3.4	17.2	0.400	0.330	0.344	101.8	20.8	26.7	5.0	194.2	36.4	61.8
	T-7 16.0	2.9	14.0	0.062	0.036	0.058	21.6	3.8	12.2	2.2	36.8	21.1	23.4
	T-3 25.0	2.7	22.8	0.067	0.015	0.065	12.3	2.2	9.8	2.3	15.1	18.5	21.7
最小値	S-1 18.0	4.5	15.5	0.016	0.001	0.015	17.2	2.8	42.1	5.0	30.9	80.8	42.7
	T-10 0.6	0.6	0.0	0.002	0.001	0.000	2.7	0.5	4.5	1.2	3.3	13.8	5.1
	T-9 0.8	0.6	0.0	0.026	0.005	0.000	5.1	1.2	5.4	1.4	5.6	11.8	6.9
	T-7 0.7	0.3	0.2	0.003	0.002	0.000	4.3	0.9	3.9	1.4	5.3	9.4	9.7
	T-3 0.7	0.6	0.0	0.006	0.002	0.000	5.0	0.8	6.0	1.5	4.3	8.1	13.1
変動係数	S-1 0.5	0.4	0.0	<0.001	<0.001	0.000	3.9	0.7	7.9	1.4	3.5	11.5	15.9
	T-10 1.15	0.69	1.84	1.63	0.39	2.16	0.41	0.40	0.26	0.47	0.31	0.27	0.46
	T-9 1.13	0.64	1.52	0.94	1.14	1.87	1.02	1.00	0.55	0.39	1.08	0.33	0.68
	T-7 1.23	0.77	1.71	1.01	0.95	2.31	0.54	0.53	0.26	0.12	0.68	0.22	0.68
	T-3 1.31	0.57	1.75	0.98	0.58	1.66	0.32	0.30	0.16	0.13	0.43	0.22	0.14
	S-1 1.09	0.66	1.58	1.25	0.00	1.87	0.52	0.52	0.58	0.40	0.79	0.70	0.25

*標本数は17

**変動係数は標準偏差を平均値で除したもの

録した。懸濁性有機物の指標であるPOCはSSと同様に増水時に濃度が高くなり、流量と対応して洗い出されていることがわかる。一方、溶存性有機物の指標であるDOCは、大きな濃度変化が認められない。溶存性有機物と懸濁性有機物の濃度変化すなわち挙動には大きな差異があったことになる。

主要無機成分の指標であるECは、温泉湧出水の流入するT-9で降雨初期に高い値を示し、増水時に著しく低下する。変動係数はEC、ナトリウムイオン(Na^+)、カリウムイオン(K^+)、塩化物イオン(Cl^-)で大きい値を示す。この変化の要因は食塩泉を主とする温泉³⁾の自然湧水を含む定山溪地区からの温泉湧出水が点源として流入するためである。これらの成分は増水時に希釈されることがわかる。

(3) ヒ素濃度と形態(懸濁態、溶存態)

各調査地点におけるヒ素濃度の経時変化を図4に示した。降雨初期の As_T 濃度は、定山溪温泉地区の上流部に位置するT-10、支川のS-1では非常に低濃度であるが、温泉地区直下のT-9では、 $0.32\sim 0.35\text{mg/l}$ と著しく高い値を示す。これは、ヒ素濃度の高い温泉湧出水($2.7\sim 3.3$ (平均で 3.0) mg/l が著者らの分析値、 $0.82\sim 2.36\text{mg/l}$ が文献値³⁾)が点源的に流入するためである。T-7、T-3では、支川が合流するため希釈により 0.01mg/l 程度まで低下する。

各調査地点の As_T 濃度は、流量の増加とともに減少するが、最大流量付近では著しく上昇し、各調査地点で期間中の最大値を記録している。T-9の最大値は 0.40mg/l で、これは河川水における環境基準(0.01mg/l)の40倍に相当する。その後は、各地点で減水に伴い濃度の低下が認められる。

図5にT-9とT-3におけるヒ素の形態(懸濁態(As_P)、溶存態(As_F))割合の経時変化を示した。低流量時(調査No①～⑤)は、両地点で溶存態ヒ素の割合が約80%～100%と高い。増水時(調査No⑥～⑨)には、次第に懸濁態の割合が増して溶存態の割合が減り、最大流量付近(調査No⑩～⑫)では懸濁態ヒ素が約80%に達する。ヒ素の流出形態は流況により大きく変化することがわかる。

(4) 底質の概況

表2に底質(2mm以下)、底質(シルト・粘土)のヒ素含有量、表3に粒度組成(Atterbergの分類⁹⁾による)を示す。底質(2mm以下)のヒ素含有量は、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 19.6mg/kg (平均値)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 185mg/kg と多く含まれている。これより下流の砥山ダム及び藻岩ダムでは、それぞれ 66.3mg/kg 、 33.5mg/kg と徐々に低下する。底質(シルト・粘土)のヒ素含有量は、一の沢ダムはNo.1～4(温泉寄りの地点)が 164mg/kg で底質(2mm以下)のヒ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

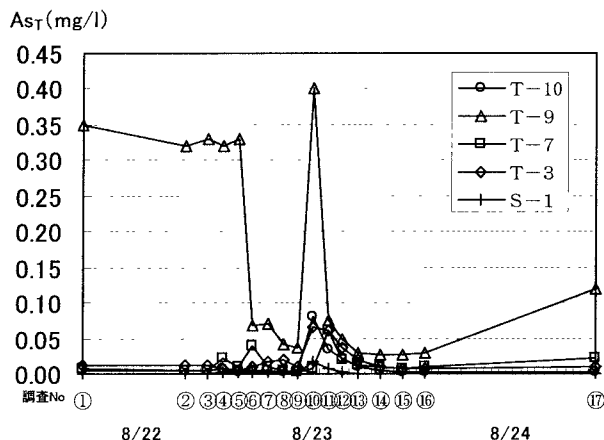


図4 ヒ素濃度の経時変化

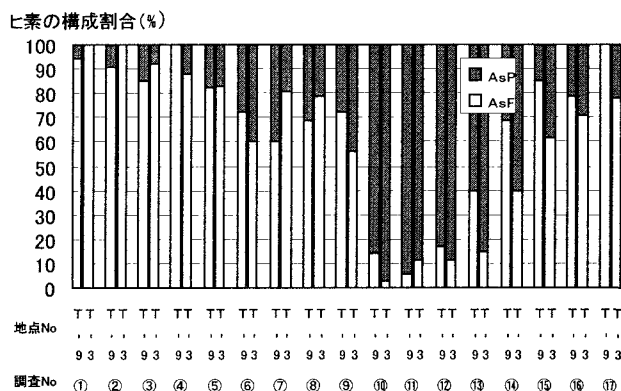


図5 ヒ素の形態(懸濁態、溶存態)割合の経時変化

143mg/kg、88.7mg/kg で底質（2mm 以下）のヒ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、下流の藻岩ダムに至るまで高含有量の状態が維持され、底質のヒ素汚染は、広範囲に及ぶことがわかる。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、藻岩ダムは流入水が均質化されるため地点間の差が小さい。

他地域の例では、日鉄鉱山の影響がある北海道の老老川本川で 10.2～148（mg/kg）¹⁰⁾、ヒ素含有湧水の流入がある兵庫県の猪名川水系で 2.5～32.9（mg/kg）¹¹⁾、温泉水の流入がある神奈川県の箱根早川で 1.3～3.2（mg/kg）¹²⁾などが報告されている。これらの値と比較して、豊平川の底質のヒ素含有量は同程度かそれ以上に高いといえる。

表2 底質と河川水のヒ素含有量の比較

No.		S-1	T-10	T-9	一の沢ダム		T-7	砥山ダム	藻岩ダム	T-3
					(No.1～4)	(No.5～7)				
底質 (2mm以下) ¹⁾	As	mg/kg	—	—	123～244 (185)	10.1～30.7 (19.6)	—	15.2～94.7 (66.3)	32.6～34.4 (33.5)	—
底質 (シルト・粘土) ¹⁾	As	mg/kg	—	—	98.0～225 (164)	29.7～54.7 (42.0)	—	127～154 (143)	83.0～95.2 (88.7)	—
河川水	As _p /SS ²⁾	mg/kg	29～42 (78)	77～83 (274)	95～1012 (274)	—	90～132 (122)	—	—	102～117 (108)

注) 底質の括弧内は算術平均値、河川水の括弧内は流量加重平均値を示す。

1) (2mm以下)は0～2mm、(シルト・粘土)は0～0.02mmの粒径範囲を示す。

2) 算出式: 河川水中のヒ素含有量(mg/kg)=As_p(mg/l)/SS(mg/l)×10⁶

表3 底質の粒度組成

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

3.2 ヒ素の流出特性

(1) ヒ素の流出負荷量

豊平川の各調査地点の代表的な日時（調査No.①、④、⑧、⑪～⑬、⑯）における溶存態（As_F）、懸濁態（As_P）の流出負荷量を図6に示した。河床等からの湧出による温泉水由来の河川への流出負荷量は、定山溪温泉の総湧出量 9500l/min³⁾、温泉としての未利用率60%（旅館等で使用された温泉水（利用率40%）は下水処理される）及び温泉湧出水のヒ素濃度（3.0mg/l）から 0.285g/s

と推定される。溶存態ヒ素の流出負荷量は、温泉湧出水の流入する T-9 では平均値で約 0.252g/s と自然由来の流出負荷量と同程度であり、下流地点を含め期間と通して比較的安定した値で流出する。一方懸濁態ヒ素は、流量ピーク付近（調査No.⑪、⑫）で 0.58～6.65g/s と多量に流出していることがわかる。T-9 では最大で 10.4g/s（調査No.⑩）を示し、これは自然由来の流出負荷量の約 36 倍に相当する。T-10 と T-9 の間では支川の合流がないため、この区間での懸濁態ヒ素の負荷量増加は底泥に由来するものといえる。このようなヒ素の流出特性は、秋の降雨時で河川流量が著しく増加する時には、懸濁態ヒ素としての濃度が高くなり、流出負荷量としては流量と濃度の相乗効果により大きくなることを示唆するもので、これには底

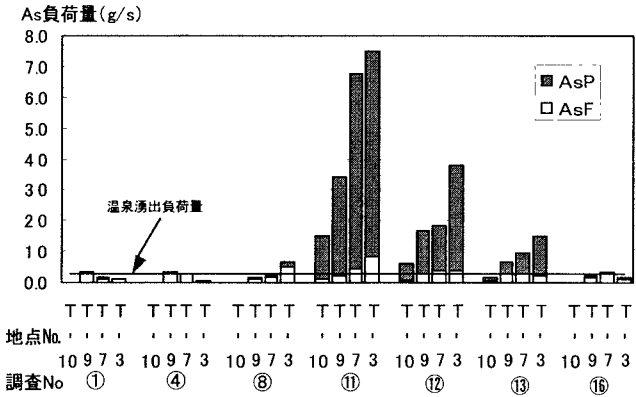


図6 ヒ素流出負荷量の変化

泥の巻上げが大きく関与することが明らかとなった。

(2) ヒ素濃度と流量

温泉湧出水が流入した後のT-9、7、3におけるヒ素濃度 ($\log(\text{As})$) と流量 ($\log(Q)$) の関係を表4に、T-9とT-3について対数表示で図化したものを図7に示した。溶存態ヒ素は、各地点で流量の増加とともに濃度が減少し、有意な負の相関(対数として)が認められる。この相関関係は、温泉地区直下のT-9では強いが、これより下流のT-7、3では低濃度となり、また変動幅も小さくなるため、弱くなる。一方懸濁態ヒ素は、T-7、3では有意な正の相関が認められ、流量変動に応じた濃度変化を示すことがわかる。

(3) ヒ素の流出パターン

比流量と比流出負荷量の関係式を用いてヒ素の流出特性について検討した。図8にT-9とT-3について比流量とヒ素の比流出負荷量の関係を示す。また表5にT-9、7、3について $L = c \cdot Q^n$ 式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 を示す。ここで L は比流出負荷量 g/s/km^2 、 Q は比流量 $\text{m}^3/\text{s/km}^2$ 、 c 、 n は係数である。濃度の経時変化や流量との関係を参考に、 n の値から各水質成分の流出特性を以下のように大まかに分類できる^{13,14)}。1) ~ 3) の分類は、流域の特性によって異なり、成分間の比較や季節変動特性の解析に有効である。

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

表4 ヒ素濃度と流量の相関

区分	No.	$r^{1)}$	$N^{2)}$
As_F	T-9	-0.91 **	17
	T-7	-0.64 **	17
	T-3	-0.56 *	17
As_P	T-9	0.14	15
	T-7	0.62 **	16
	T-3	0.92 **	15

1) 相関係数

2) 標本数

*:5%有意水準、**:1%有意水準

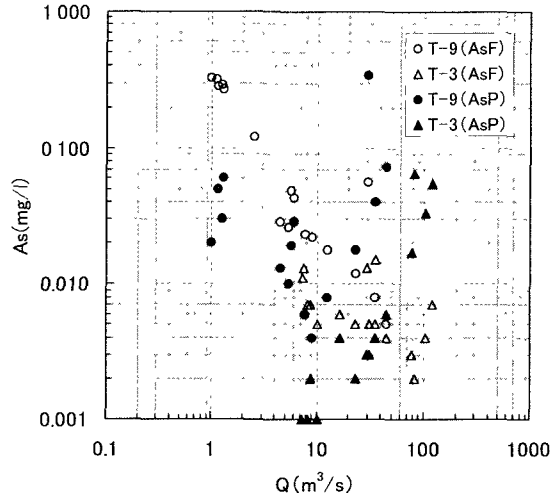


図7 ヒ素濃度と流量の関係

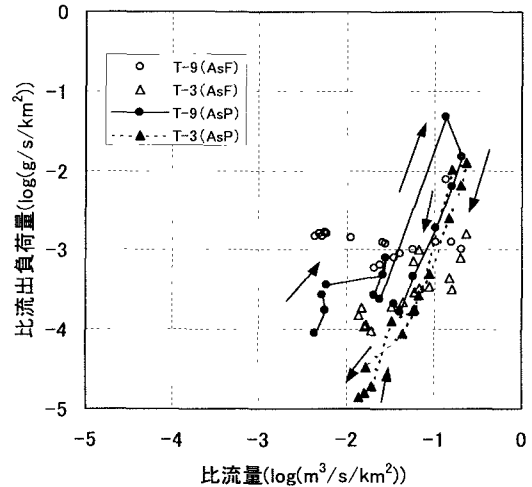


図8 比流量と比成分流出負荷量の関係

表5 比流量と比成分流出負荷量の関係

区分	No.	n	$r^{1)}$	$N^{2)}$
As_F	T-9	0.02	0.05	17
	T-7	0.09	0.08	17
	T-3	0.67	0.81 **	17
As_P	T-9	1.12	0.79 **	15
	T-7	2.36	0.81 **	16
	T-3	2.38	0.97 **	15

関係式 $L = c \cdot Q^n$ (L : g/s/km^2 、 Q : $\text{m}^3/\text{s/km}^2$ 、 c 、 n :

1) 相関係数

2) 標本数

*:5%有意水準、**:1%有意水準

溶存態ヒ素は、各地点で n が1以下であり、流出負荷量であまり大きな変化が認められない。特に温泉湧出水が流入した直後のT-9及びT-7では、 n が0に近いとため相関係数も低く、河川でのヒ素濃度は温泉地区からの排出によって支配され、流出が点源としての希釈型（ポイント型）である。懸濁態ヒ素は、全ての地点で n が1以上となり洗い出し型（ノンポイント型）の流出パターンを示す。T-9における流出負荷量の変化のパターンに着目すると、増水期に流出負荷量が多く減水期に少ないというヒステリシスを示すことがわかる。これは平水時に底泥に高濃度で蓄積されたヒ素が、降雨時の増水期には底泥の巻き上げにより流出するためである。T-7、3では、 n が2以上で高次関数型の流出を示し、増水に対する濃度の増加が著しいことがわかる。特に3つのダムを経たT-3では、流出負荷量の変化はT-9でみられるような明確なヒステリシスを示さず、流量と流出負荷量の間には強い相関関係が認められる。ヒ素を多量に含むダム湖の底質から、ヒ素の安定した供給があるため考えられる。

（4）懸濁物質と懸濁態ヒ素の関係

河川水のSS濃度と懸濁態ヒ素（ As_p ）濃度の関係を表6に、対数表示で図化したものを図9に示した。温泉地区直下のT-9を除く各地点では、SS濃度と As_p 濃度の相関性は非常に高く、懸濁態ヒ素は土砂に由来する懸濁物質に比較的均質に含まれることがわかる。T-9は、これらの地点と異なり、SSが約10mg/l以下の低い時期においても懸濁態ヒ素が0.01~0.06mg/l程度（ヒ素濃度の全体に対する割合としては概ね10~20%以下）と一定濃度で検出される。これは、温泉原水に由来する懸濁態ヒ素が河川中で検出されたもので、降雨初期の低流量時における懸濁態ヒ素の起源は、増水時の土砂による起源とは異なるものである。

河川水におけるSS中のヒ素含有量を算出（算出式：河川水中のヒ素含有量(mg/kg) = As_p (mg/l) / SS (mg/l) $\times 10^6$ ）し表2に示した。算出にあたっては、濁りの著しい試料（SSが100mg/l以上と仮定）を対象とした。温泉湧出水が流入した後のT-9、7、3におけるヒ素含有量は、それぞれ274、122、108mg/kg（流量加重平均値）で、温泉水の影響を受けないT-10の78 mg/kg（流量加重平均値）、S-1の29~42 mg/kgより高く、底質中（シルト・粘土）中のヒ素含有量と同程度の値を示している。この結果は、ヒ素の底泥への移行、シルト・粘土分としての流出を裏付けるものである。濃度のばらつきは、T-9は流出初期に1012 mg/kgと特異的な高値を示し変動が大きい、ダムを経たT-7、T-3では比較的安定した値を示す。これらは、温泉地区直下では懸濁態ヒ素が底泥表層付近に蓄積され降雨初期に高濃度で流出すること、ダム湖が安定したヒ素の供給源となることを示している。

3.3 主成分分析による流出特性の分類

温泉湧出水が流入した後のT-9、7、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（1）に各水質項目の主成分負荷量を示す。第1主成分（寄与率48.7%）は、ナトリウムイオン（Na

表6 SSと As_p の相関

No.	$r^{(1)}$	$N^{(2)}$
T-10	1.00 **	13
T-9	0.44	15
T-7	0.99 **	16
T-3	0.99 **	15
S-1	0.97 **	8

1) 相関係数

2) 標本数

*:5%有意水準、**:1%有意水準

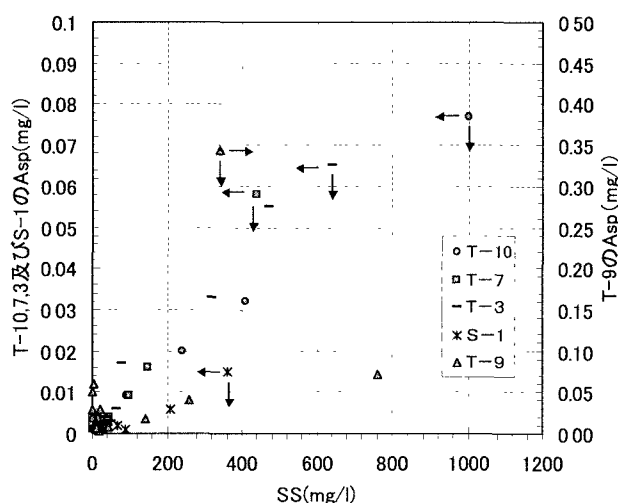


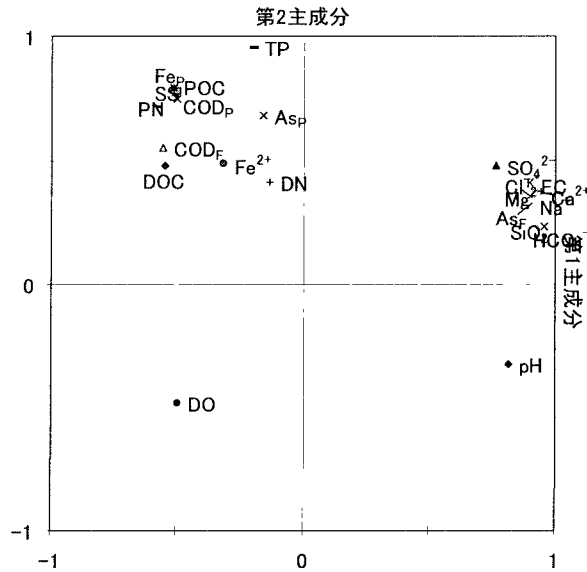
図9 SSと As_p の関係

+)、塩化物イオン (Cl^-)、溶存態ヒ素 (As_F) など、温泉起源の項目の主成分負荷量が正に、POC、DOC、SS、懸濁態窒素 (PN)、懸濁態鉄 (Fe_P)、懸濁態ヒ素 (As_P) など、主に表面流出、底質の巻き上げに由来する項目の主成分負荷量が負に分布し、発生源の差異を示している。第2主成分 (寄与率 29.6%) は、POC、SS、PN、 Fe_P 、 As_P 、 Na^+ 、 Cl^- 、 As_F など流況に対し変動の大きい成分が正に、pH、DOの変動が少ない成分 (変動係数で 0.05 以下) が負に分布し、流量の変動と関連した主成分といえる。各地点の主成分得点を図 10 (2) に示した。図中の数字は調査時点の番号 (調査No.) を示す。T-9 では、降雨初期 (調査No.①~⑤) の流量安定時は第1主成分に対して正に位置し、点源としての温泉湧出水の影響が強く、最大流量付近 (調査No.⑩~⑫) は第2象限に分布し、ノンポイント型の流出傾向が強くなる。また、T-7、3においても、流量ピーク時 (調査No.⑩~⑫) は第2象限に分布し、ノンポイント型 (洗い出し型) の流出を示すことがわかる。ヒ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、流量安定時はT-3において溶存態としてポイント型の流出を示すが、増水時は全地点でノンポイント型 (洗い出し型) の流出となり、懸濁態として他の懸濁成分であるSS、POC等と似た挙動を示すことがわかる。

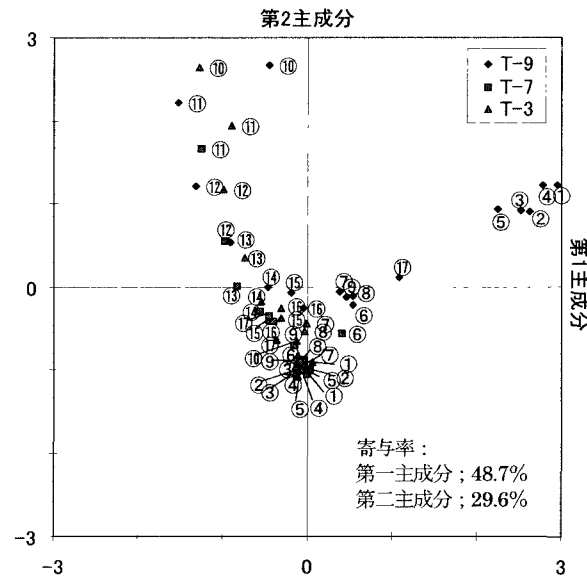
4. 結論

札幌市の水道水源でもある豊平川は、釧山排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、降雨時におけるヒ素の動態を流出機構の観点から解析した。その結果、温泉湧出水に起因する溶存態ヒ素 (As_F) は降雨初期の流量安定時に濃度が高く、増水に伴い希釈されるポイント型 (希釈型) の流出を示すこと、懸濁態ヒ素 (As_P) は最大流量付近で総ヒ素 (As_T) のほとんどを占め、ノンポイント型 (洗い出し型) の流出を示すこと、流出負荷量としては相乗的に大きくなることが明らかになった。この流出機構の変化には、平水時におけるヒ素の底泥への移行が関与しており、温泉直下の底泥表層にはヒ素が高濃度で蓄積され、ダム湖には多量のヒ素が蓄積され安定した供給源となること、降雨時には底泥



(1) 主成分負荷量の分布



(2) 主成分得点の分布

図10 主成分分析の結果

の巻き上げにより懸濁態ヒ素が高濃度で流出することが明らかになった。

今後は通年における懸濁態と溶存態（５価、３価）を区分したヒ素の動態及び流出解析、定量的な評価によって下流域への影響及びダムや流水制御など河川管理方法について検討したい。

謝辞：本研究の遂行に際し、北海道開発局石狩川開発建設部、北海道電力（株）に流量データの提供のご協力を戴いた。ここに記して謝意を表します。

【参考文献】

- 1) 辰巳健一、中埜渡丈嘉、成田隆広、眞柄泰基、橋治国（2002）：豊平川における砒素化合物の動態、水環境学会誌、25 巻 5 号、289－296
- 2) 半谷高久（1973）汚水水質機構：自然科学書協会、東京
- 3) 北海道の地熱・温泉(B) 西南北海道北部（1977）：北海道地下資源研究所調査研究報告、第 4 号、108－124
- 4) 佐藤裕子、大野浩一、亀井翼、眞柄泰基（2002）：豊平川におけるヒ素及びホウ素の挙動と水道水質管理への影響、水道協会雑誌、71 巻 4 号、22－30
- 5) 日本規格協会（1993）：JIS K 0102 工場排水試験方法、東京
- 6) 地盤工学会（1990）：土質試験の方法と解説、東京
- 7) 日本環境測定分析協会（1993）：底質調査方法とその解説、丸善、東京
- 8) (財) 気象業務支援センター（2001）：気象庁月報、2001 年 8 月号
- 9) 小野薫、星埜和、加藤渉、三木五三郎（1961）：土質工学（基礎編）、18pp.、丸善、東京
- 10) 沼辺明博、藤田隆男、小西一夫（1983）：白老川におけるヒ素の挙動、北海道公害防止研究所報、No.10、113－126
- 11) 芦田賢一、山本淳、古武家善成（2001）：猪名川水系におけるヒ素及びその他の重金属の空間的・時間的分布とその要因、水環境学会誌、24 巻 7 号、466－472
- 12) 貝瀬利一（1999）：水環境中の重金属の存在形態－特に水銀とヒ素を中心として－、水環境学会誌、22 巻 5 号、336－340
- 13) 橋治国（1993）：洪水時における水質と水質成分の流出特性－石狩川 1975 年 8 月洪水について－、水文水資源学会誌、6 巻 3 号、254－267
- 14) R.J.Sevens and R.V.Smith（1978）：A Comparison of Discrete and Intensive Samplings for Measuring the Loads of Nitrogen and Phosphorus in the River Main, Country Antrim, Water Reserch, Vol.12, 823-830