

平水時における河川懸濁物質の元素濃度と年間移動量

蕪木佐衣子 世良耕一郎^{*1} 織田久男^{*2} 川崎 晃^{*2}

末次忠司^{*3} 諏訪義雄^{*4} 二村貴幸^{*3} 田村憲司^{*5} 東 照雄^{*5}

筑波大学院農学研究科
(現 ^{*2} 独立行政法人農業環境技術研究所)

^{*1} 岩手医大サイクロトロンセンター
020-0173 岩手県岩手郡滝沢村滝沢字留が森 348-58

^{*2} 独立行政法人農業環境技術研究所
305-0856 茨城県つくば市観音台 3-1-3

^{*3} 国土交通省国土技術政策総合研究所
305-0804 茨城県つくば市旭 1

^{*4} 国土交通省河川局河川計画課
100-0013 東京都千代田区霞が関 2-1-3

^{*5} 筑波大学応用生物化学系
305-8572 茨城県つくば市天王台 1-1-1

1. はじめに

河川水中の重金属などの元素は、主に懸濁物質として流域を移動する。一般的に、増水時の懸濁物質濃度と重金属濃度の間に負の相関が見出され^{1,2)}、本研究で対象とした涸沼川流域でも、懸濁物質の重金属全含量は増水時と比較して、平水時により高い値を示した³⁾。従って、増水時と平水時では懸濁物質の起源が異なる可能性が大きく、元素の年間移動量に対する平水時の寄与は大きいものと考えられる。しかし、懸濁物質による元素の年間移動量に関する研究例は、窒素・リン、COD など^{4,5)}に比べて非常に少ない。その理由の一つに、平水時の懸濁物質濃度が一般的に数 10 mg L^{-1} 以下と少量であり、元素分析に十分な試料量を得るのが困難であることが挙げられる。PIXE(Particle Induced X-ray Emission) は、ごく微量の試料量を用いた高感度の多元素同時分析が可能で、この点を克服できる分析法であり⁶⁾、平水時の河川水 100 ~ 500 mL を用いて、懸濁物質中の Na, Mg, Al, K, Ca, Ti, Mn, Fe, Cu 濃度が定量できる⁷⁾。そこで、本研究では、涸沼川流域において、平水時における河川水中の懸濁物質の元素濃度を PIXE 分析法により定量し、懸濁物質中の元素の年間移動量を明らかにすることを目的とした。

2. 調査対象流域

涸沼川は、茨城県北西部を源流とし、茨城県中部地域を横断しながら流下し涸沼を介して太平洋

に注ぐ，河川延長約 65 km，流域面積約 459 km² の河川である (fig. 1)。酒沼は，湖面標高 0 m であり，感潮河道を通じて那珂川河口に流入する。流域の地質および土地利用は，河川懸濁物質の量と元素組成に対する影響が大きい。酒沼川流域のそれは，本川上流部および流入河川のサブ流域で，それぞれ異なる。

3. 試料および方法

試料水は，fig.1 に示したように，本川上流から下流にかけての 6 地点 (St.1 ~ St.6) および主要流入 4 河川の 5 地点 (Tb.1a ~ Tb.4)，合計 11 地点において採取した。実験に用いた河川水の採取は，2001 年 6 月から 2002 年 5 月まで，72 時間以上継続して無降水であった期間に，月 1~2 回程度の頻度で，合計 15 回の採水を行った。河川水試料は，河川横断面中央部で表層水をバケツで採取し，約 100 mL から 500 mL をポリプロピレン製容器に保存した。これをニュークレポアフィルター (Wattman No.111106，孔径: 0.2 μm，厚み: 10 μm，濾過面積: 11.7 cm²) を用いて減圧濾過し，フィルター上に分離捕集された懸濁物質を，95 °C で 2 時間乾燥後，供試試料とした。

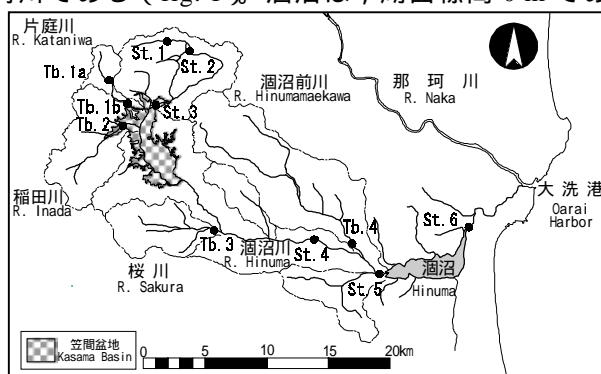


Fig.1 Watershed of the River Hinuma and the location of sampling sites.

4. 結果および考察

1. 河川水質

酒沼川流域における平均 pH，EC，Eh の値の変化は，周囲の地質，土地利用の影響を大きく反映していた (Table 1)。11 地点の平均懸濁物質濃度は，1.4 ~ 12.7 mg L⁻¹ の範囲にあった。

2. 酒沼川における懸濁物質の元素濃度の変化

酒沼川流域の平水時の懸濁物質は，高濃度の Al，Fe，Ca，K，Mg を含有しており，地殻起源の粒子から主として構成されることが示された (Table 2)。支川には，後述のような特徴的な元素組成がみられたが，本川の懸濁物質の元素濃度に対する顕著な影響は確認されなかった。懸濁物質の元素濃度が最も増加するのは，目立った支川を持たない本川上流部の St.1 から St.3 の区間であった。St.6 では，汽水の影響により，K，Mg，Na が高い値を示した。

3. 懸濁物質中の Al 濃度に対する各元素濃度

各地点で特徴的な懸濁物質の元素組成について，水環境中で生物・地球化学的に不活性である Al³⁺ を指標とし，懸濁物質の Al 濃度に対する各元素濃度の濃度比を調べた (fig. 2)。Na は汽水域である St.6 で高い値を示した。Mg および K は，山腹に粘板岩の大規模採掘場があり，流域面積の 10%

Table 1 W.D. (water discharge), pH, EC, Eh and concentrations of SS (suspended solids) from water samples.

Site	W. D. (m ³ sec ⁻¹)	pH	EC (mS cm ⁻¹)	Eh (mV)	SS (mg L ⁻¹)
St.1	-	7.08	0.05	512	1.45
St.2	-	6.94	0.08	471	2.74
St.3	0.86	7.26	0.14	442	4.21
Tb.1a	-	7.21	0.37	498	5.07
Tb.1b	0.57	7.32	0.29	486	2.94
Tb.2	0.31	7.15	0.14	461	7.13
Tb.3	0.85	7.03	0.27	426	7.22
St.4	3.26	7.40	0.21	466	5.76
Tb.4	3.30	7.38	0.24	438	7.55
St.5	7.15	7.36	0.44	477	5.28
St.6	-	8.05	11.93	448	12.71

Table 2 Concentrations of each element of suspended solids(SS) from water samples. (μg L⁻¹)

Site	Al	Fe	Ca	Mg	K	Mn	Ti	Na
St.1	63.4	17	14	1.2	6.6	0.5	2.2	0.0
St.2	116	101	18	7.4	16	5.9	4.4	2.4
St.3	328	267	42	28	44	21	11	2.3
Tb.1a	524	186	32	86	187	6.9	16	42
Tb.1b	177	90	25	31	48	6.2	6.4	10
Tb.2	625	524	99	35	92	43	21	32
Tb.3	401	410	82	45	66	36	17	13
St.4	319	286	56	31	46	24	12	8.5
Tb.4	443	901	86	35	40	37	18	2.9
St.5	290	398	51	31	36	41	9.8	9.7
St.6	801	437	102	141	138	37	26	256

が裸地であるTb.1aおよびTb.1bで高い値を示した。Tiは、約0.02から0.04の範囲にあり、各地点間に顕著な差はみられなかった。Feは、鉄の濃集作用がある生物皮膜であるバイオマットが剥離されて河川を流送していた、Tb.4で高い値を示した。Cuは、豚ふんの高いCu含有量(平均31mg kg⁻¹)⁹⁾を反映して、養豚業が盛んであるTb.3で高い値を示した。このように、懸濁物質のAl濃度に対するNa, Mg, K, Ca, Cu濃度の濃度比には、流域の地質および土地利用形態の特徴が表れていると考えられた。なお、Mnは、支川よりも本川下流部のSt.5で高い値を示した。

4. 平水時の河川流量と懸濁物質移動量の関係

一般的に、河川における懸濁物質移動量 L_s ($g \cdot sec^{-1}$) と流量 Q ($m^3 \cdot sec^{-1}$) との関係は、 $L_s = a \cdot Q^b$ で示され、わが国の河川におけるb値はほぼ2に等しいといわれる¹⁰⁾。酒沼川上流部のb値は、山地斜面の土壌侵食の影響により2.916と高い値を示した(Table 3)。支川では、Tb.1bのb値がマイナスを示し、採石場排水が流入する地点では、河川流量が増すほど、懸濁物質濃度が希釈され、懸濁物質移動量が減少することが示された。Tb.2の流域は、流域面積の大部分が山間部の盆地に位置するため、b値は0.4と小さい値を示した。各地点のb値は異なる値を示したことから、流域の斜面傾斜や土地利用などにより、河川流量変化に対する懸濁物質移動量の応答が異なることが明らかとなった。

5. 河川懸濁物質による元素の年間移動量

懸濁物質移動量と同様に、各地点の懸濁物質

Table 3 Values of a and b, and the correlation coefficients of the equation ($L_s = a \cdot Q^b$) between water discharge and mass of suspended solids transfer ($L_s : g \cdot Sec^{-1}$) in the river water of Hinuma river system.

Site	a	b	r
St.3	3.49	2.916	0.969 ^{*****}
St.4	3.02	1.529	0.959 ^{****}
St.5	5.79	0.914	0.897 ^{****}
Tb.1b	1.53	-0.113	0.025
Tb.2	3.17	0.410	0.501 ^{***}
Tb.3	7.73	1.396	0.854 ^{****}
Tb.4	7.73	0.971	0.743 ^{****}

***** p < 0.001, **** < 0.01, *** p < 0.05

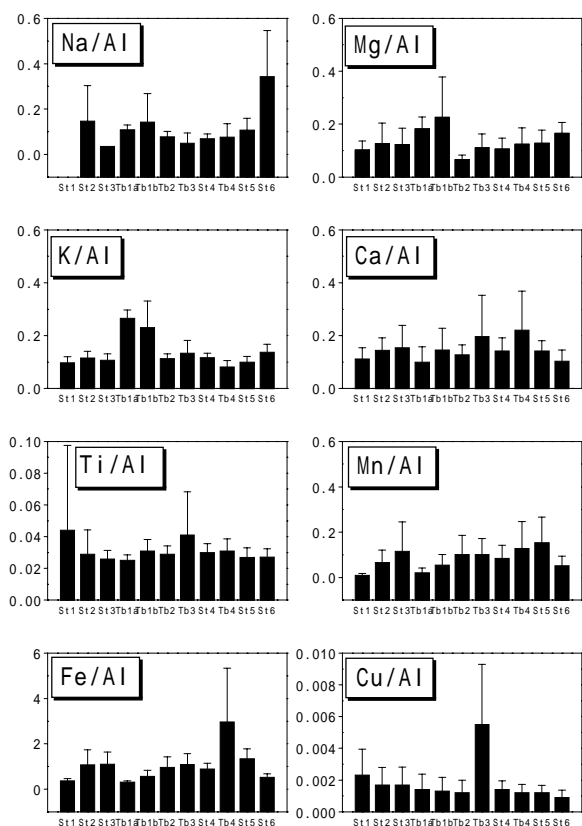


Fig. 2 Elemental ratios (each element / Al) of Suspended Solids from the Hinuma river system.

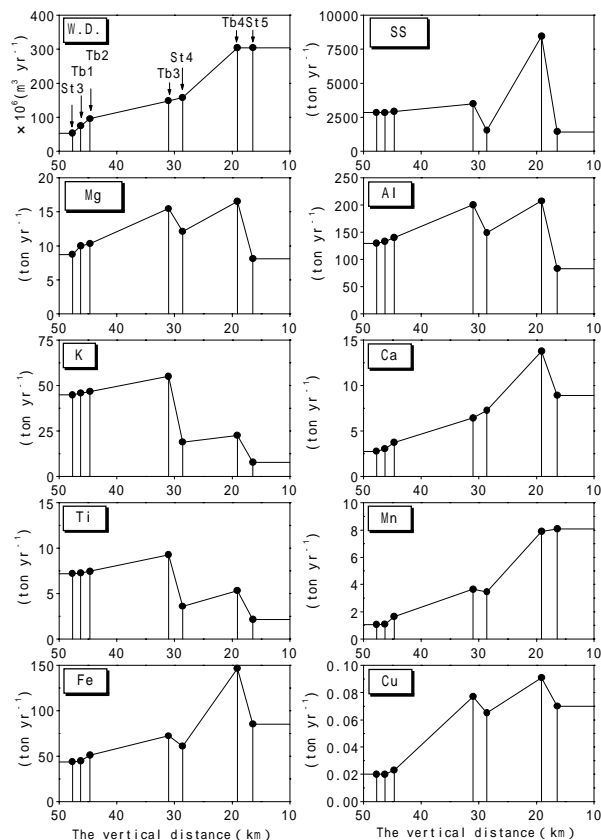


Fig. 3 Annual distribution of the W. D. (water discharge) and elements in SS (suspended solids) loads transported by river Hinuma figures on vertical axis.

による各元素移動量について河川流量との関係式を求め、15分間隔で記録している水位から算出した河川流量にあてはめ、平水時における元素の年間移動量を計算した。河川流量は下流ほど増加するのに対し、懸濁物質および懸濁物質中の元素移動量は、中流や下流部で減少することが明らかとなった。下流部は、河川流速が遅くなるため、懸濁物質が河床に沈降堆積して元素移動量が減少すると考えられた。一方、上流部から中流部にかけては、河床の大部分は基岩が露出し、細粒な堆積物はほとんど確認されないため、この区間では水田への取水などの理由により、懸濁物質が農地に堆積して、元素移動量が減少すると考えられた。ただし Mn は、他の元素とは異なり、下流部で増加することが示された。

謝 辞

本研究は、財団法人日本科学協会 笹川科学研究助成の援助を受けたことを記して謝意を表する。

文 献

- 1) 出口正夫 (1955) 日本土壤肥料学雑誌, 26, 81-87.
- 2) 寺岡久之 (1984) 陸水学雑誌, 45, 111-115.
- 3) 蕪木佐衣子, 東 照雄, 末次忠司, 諏訪義雄, 横山勝英, 平館 治, 田村憲司 (2001) 日本土壤肥料学会 口頭発表.
- 4) Fukushima, T., Aizaki, M. and Ebise, S. (1991) *J. J. Limnol.*, 52, 13-26.
- 5) 橘 治国 (1993) 水環境学会誌, 16, 450-456.
- 6) 千葉 廉、島 邦博 (1984) 日本原子力学会誌, 26, 827-853.
- 7) 蕪木佐衣子, 世良耕一郎, 織田久男, 川崎 晃, 末次忠司, 諏訪義雄, 二村貴幸, 田村憲司, 東 照雄 (2003) *RADIOISOTOPES*, 52, 81-93.
- 8) Brewer, P. G., Nozaki, Y., Spencer, D. W. and Fleer, A. P. (1980) *J. Marine Research*, 38, 703-728.
- 9) 磯部 等, 関本 均 (1999) 日本土壤肥料学雑誌, 70, 39-44.
- 10) 荒巻 孚・高山茂美 (1978) 陸水, 山本莊毅編, 共立出版, 東京, pp. 163-179.