

13.8 流域規模での水・物質循環管理支援モデルに関する研究（3）

研究予算：運営費交付金（治水勘定）

研究期間：平 18～平 21

担当チーム：材料地盤研究グループ（リサイクル）

研究担当者：尾崎正明、山下洋正

【要旨】

流域開発で必須元素の河川への供給が減少し水生生態系へ影響していると懸念されており、都市雨水・排水由来の必須元素の負荷量の解明および河川への影響把握と対策の可能性の検討を目標として、関東地方の都市影響河川の流域を調査した。溶解性鉄は都市排水中濃度が河川水中濃度の半分以下程度で、都市排水流入により河川水中濃度が低下、溶解性窒素・リンに対する濃度比も低下するが、レッドフィールド比より大で不足の可能性は低いと考えられた。溶解性ケイ素は都市排水中濃度が河川水中濃度と同程度で、都市排水流入が河川水中濃度へ影響しないが、溶解性窒素・リンが増大して濃度比がレッドフィールド比を下回る場合があり不足が考えられた。
キーワード：溶解性鉄、溶解性ケイ素、シリカ、河川、都市排水

1. はじめに

近年、流域での開発により溶解性の鉄（フミン鉄）やケイ素（シリカ）等の必須元素の河川への供給が減少して、河川や海の生態系に影響を及ぼしているとの報告^{1)~3)}が見られる。都市化した流域では、都市雨水・排水が必須元素の挙動に大きな影響を与えている可能性があるため、その影響を明らかにすることが求められている。

そこで、研究の達成目標を次の通り設定し、都市河川流域における溶解性の鉄およびケイ素の挙動を把握するため、河川水および都市排水の調査を行った。

- (1) 都市雨水・排水由来の必須元素の負荷量の解明
- (2) 河川への影響把握と対策の可能性の検討

2. 調査方法

2.1 調査対象物質

調査対象物質は、前年度と同様に溶解性の鉄およびケイ素（イオン状シリカ）とした。また、窒素およびリンについても同時に調査した。

溶解性の鉄は、表流水中では主にフミン物質等の有機物質と錯体を形成してコロイド状で存在すると考えられており⁴⁾、河川水中濃度は数十 $\mu\text{g/L}$ のオーダーであるが、河口付近で塩類濃度上昇に伴って沈降し、表層海水中ではほぼ枯渇する。近年、沿岸域においてコンブ等の有用藻類が減少して白色小型藻類が増殖する現象（磯焼け）が見られており、その原因の可能性の一つとして藻類に利用可能な溶解性鉄の供給減少が挙げられている。

溶解性のケイ素は、表流水中では主にイオン状シリカ

として存在し、河川水中の濃度は数十 mg/L のオーダーであるが、海域では濃度が低下する。近年、渦鞭毛藻類が珪藻類に卓越して異常増殖して有害な赤潮が発生する原因の一つとして、溶解性ケイ素の不足と他の栄養塩類の過剰が疑われている。

必須元素が藻類等に利用される際の比率（レッドフィールド比）は、モル比で $\text{C:N:P:Si:Fe}=106:16:1:16\sim 50:10^3\sim 10^4$ 程度とされており、必須元素の存在比率の変動は生物バランスに影響を与える。従って、溶解性の鉄やケイ素について論じる際には、絶対濃度のみならず窒素やリンとの存在比率についても把握する必要がある。

2.2 調査対象流域

河川水および都市排水の調査対象は、前年度と同様に以下の通りである。

河川について、鶴見川水系 6 地点、多摩川水系 7 地点、利根川水系 12 地点、荒川水系 18 地点、園部川・巴川・涸沼川・寛政川（霞ヶ浦および涸沼流域）10 地点において流心付近を採水し、湖沼について、手賀沼 6 地点、霞ヶ浦 7 地点において表層水を採水して調査を行った。

調査は、前年度の秋期・冬期（2006 年 10 月～2007 年 3 月）に引き続いて、春期・夏期（2007 年 4 月～2007 年 9 月）に実施し、河川は鶴見川・多摩川・利根川・荒川の最下流地点のみ月 2 回、その他の地点は月 1 回調査した。湖沼については季節毎（3 ヶ月に 1 回）に調査した。

都市排水について、鶴見川および多摩川流域に存在する下水処理場（それぞれ 5 箇所および 8 箇所）の流入下水および放流水を季節毎（3 ヶ月に 1 回）に調査した。

2.3 分析方法

溶解性の定義は、5種Cろ紙（孔径 $1\mu\text{m}$ 相当）を通してのものとした。ICP-MSにより溶解性鉄(D-Fe)および全鉄(T-Fe)を測定し、ICP-AESおよび自動比色分析（モリブデンイエロー法）により溶解性ケイ素(D-Si)を測定した。窒素およびリンは自動比色分析により測定した。

3. 結果および考察

結果および考察は調査対象物質ごとに記述した。

3.1 溶解性鉄について

(1) 都市排水（下水処理場）

下水処理場の放流水中の溶解性鉄の濃度は、年間平均値として、鶴見川流域の5処理場で $18\sim 66\mu\text{g/L}$ であり、1ヶ所の処理場のみ他処理場の3倍程度の濃度であった。多摩川流域の8処理場では $20\sim 32\mu\text{g/L}$ であった。年間の変動係数（各季節1回で計4回測定）はそれぞれ $3.7\sim 15\%$ 、 $8\sim 21\%$ であり、季節変動の明確な傾向は見られなかった。濃度が高い1処理場を除き、放流水中濃度は河川中濃度の半分以下であることが多かった。

(2) 河川水

前年度の調査結果と併せた1年間の調査結果より、季節ごとの河川水中の溶解性鉄の濃度について図-1に示す（河川については各3ヶ月の平均濃度）。また、鶴見川および多摩川の調査地点を図-2に示し、年間濃度変化を図-3に示した。

鶴見川・多摩川の溶解性鉄濃度は冬期および夏期にやや低下する傾向であった。この一因として、下水処理場放流水中の溶解性鉄濃度は晴天時の河川中濃度の平均約 $45\sim 104\mu\text{g/L}$ の半分以下程度の場合が多く、河川流量が低下して下水処理水の占める割合が増加する冬期や夏期に河川水中濃度が低下する可能性が考えられた。

多摩川について、夏期の平均値が多摩川上流（調布橋）で高濃度となっているのは、9月の調査の7日前および1～3日前に上流域で降雨があった影響と考えられ（累加雨量が御岳で 22mm 、小河内で 14mm ）、7月および8月濃度がいずれも $5\mu\text{g/L}$ 程度であったのに対して、9月濃度は $844\mu\text{g/L}$ と急増していた。一方、中流域の支流の浅川では、浅川橋において上流部の降雨（累加雨量が美山で 14mm ）の影響は全く見られず、7～9月濃度はそれぞれ $5\mu\text{g/L}$ 程度であった。

従って、上流域では降雨に伴い溶解性鉄が河川に供給されているのに対して、開発が進んでいる八王子市付近の中流域では降雨があっても溶解性鉄が河川に供給されておらず、流域特性の違いによって降雨による溶解性鉄

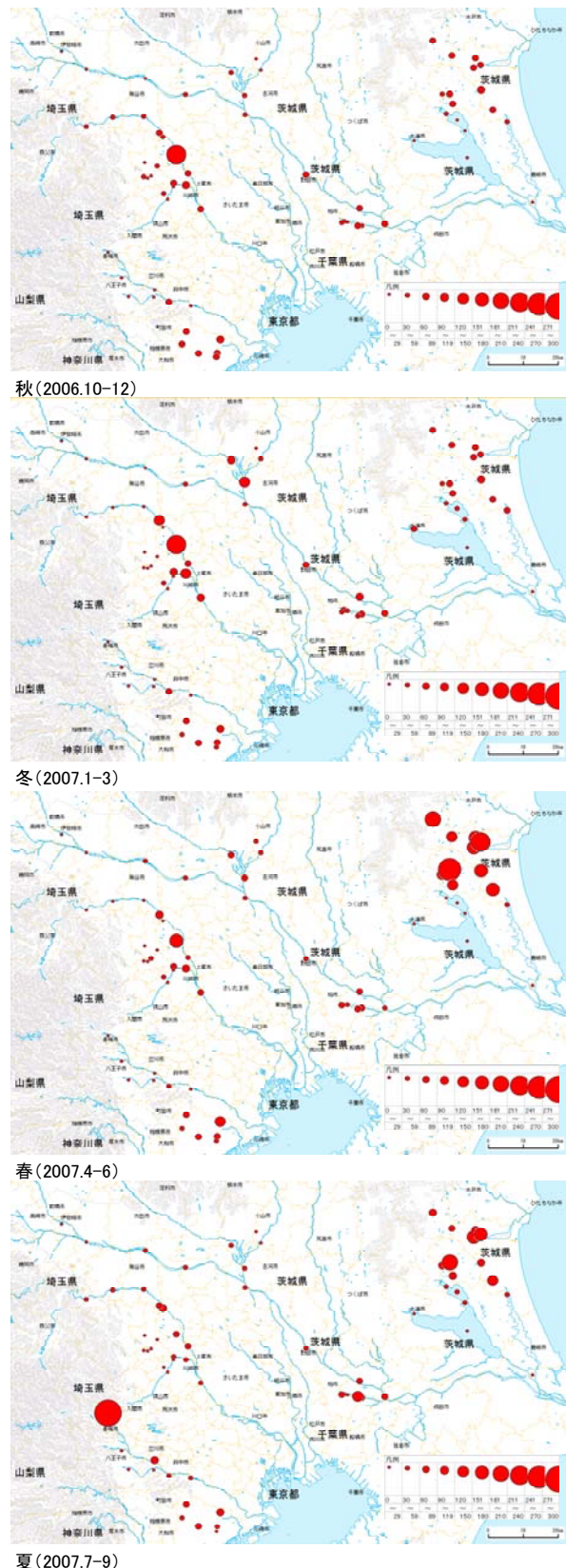


図-1 季節毎の河川水中の溶解性鉄濃度
(2006.10～2007.9、秋・冬・春・夏、単位 $\mu\text{g/L}$)

の流出特性が著しく異なっていると考えられた。溶解性鉄と溶解性窒素・リンのモル比率 Fe/N、Fe/P について、各地点の年間最低値を図-4に示す。Fe/NおよびFe/Pは、全地点でそれぞれレッドフィールド比 $6.3 \times 10^{-5} \sim 6.3 \times 10^{-6}$ の5倍以上、 1.0×10^{-3} の13倍以上であった。よって、河川・湖沼水中では、溶解性鉄は窒素・リンと比較して相対的に不足する可能性は低いと考えられた。

3. 2 溶解性ケイ素について

(1) 都市排水（下水処理場）

下水処理場の放流水中の溶解性ケイ素濃度は、年間平均値として、鶴見川流域の5処理場で8.6~14mg/L、多摩川流域の8処理場で7.5~12mg/Lであった。年間の変動係数(各季節1回で計4回測定)はそれぞれ3.8~8.3%、3.7~19%であり、季節変動の明確な傾向は見られなかった。放流水中の溶解性ケイ素濃度は河川水中濃度と同レベルであった。

(2) 河川水

前年度の調査結果と併せた1年間の調査結果より、季節ごとの河川水中の溶解性ケイ素の濃度について図-5に示す(河川については各3ヶ月の平均濃度)。また、鶴見川および多摩川の年間濃度変化を図-6に示す。

多摩川について、上述の溶解性鉄と同様に、9月の調布橋で増加しており、上流域の降雨により溶解性ケイ素が河川に供給されているものと考えられる。

鶴見川について、上述の溶解性鉄と同様に、9月の調布橋で増加しており、上流域の降雨により溶解性ケイ素が河川に供給されているものと考えられる。

鶴見川の12月の調査は、降雨開始後4時間~7時間の初期降雨時に実施しており、水位が上昇開始した時点であった。溶解性ケイ素濃度は、前後の11月および1月の平均値と比較して、各地点で27%~64%の範囲であり、降雨初期の流量増加時には低濃度となるものと考えられた。

溶解性ケイ素と溶解性窒素・リンのモル比率 Si/N、Si/P について、各地点の年間の最低値を図-7に示す。Si/Nはレッドフィールド比1~3.1程度を下回る地点が大半であり、Si/Pもレッドフィールド比16~50程度を下回る地点があった。

特に、鶴見川と多摩川で低い傾向がみられたため、それぞれ主要な数地点について、Si/NおよびSi/Pの年間変化を図-8および図-9にそれぞれ示す。鶴見川では、上流の寺家でSi/Nが最も高く、落合橋、亀の子橋と流下するに従いSi/Nが低下し、亀の子橋では1年のほとんど期間Si/Nが1を下回っていることが分かる。また、多摩川でも、上流の調布橋でSi/Nが最も高く、流下して下水処理場放流水が流入した日野橋、石原と流下するに従いSi/Nが低下し、石原では1年のほとんど期間Si/Nが1を下回っていることが分かる。Si/Pについても両河川で

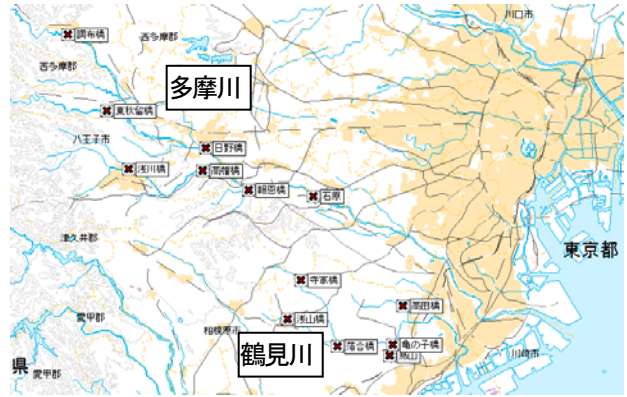


図-2 鶴見川および多摩川の調査地点

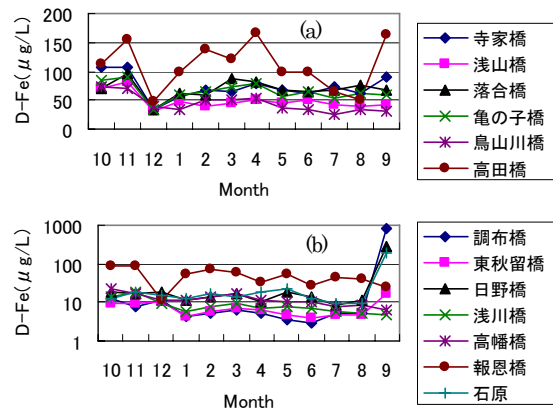


図-3 鶴見川および多摩川の河川水中の溶解性鉄濃度の年間挙動 (a:鶴見川6地点、b:多摩川7地点、多摩川は9月の濃度が高いため縦軸を対数値で示した)

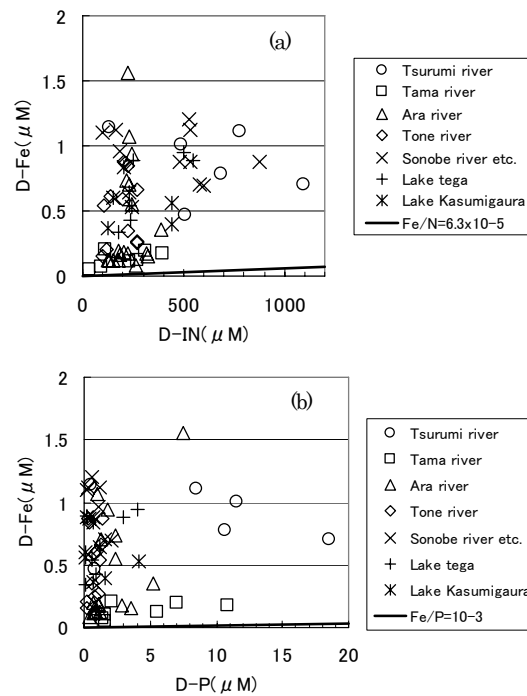


図-4 河川水中の溶解性鉄濃度と溶解性窒素・リン濃度との比率 (a:Fe/N、b:Fe/P)

同様の傾向があり、下流の亀の子橋および石原でSi/Pが低下して20~80程度の値となっている。

以上より、河川・湖沼水中では、溶解性ケイ素は窒素・リンと比較して相対的に不足する傾向があり、特に都市排水の影響を大きく受けている鶴見川および多摩川の下流では1年のほとんどの期間で相対的に不足していると考えられた。この原因としては、都市排水の流入による窒素・リンの増加が考えられた。

4. まとめ

(1) 都市排水中の溶解性鉄濃度は、年間の季節変動の明確な傾向はなく、河川水中濃度の半分以下程度であった。都市排水中の溶解性ケイ素濃度は、年間の季節変動の明確な傾向はなく、河川水中濃度と同程度であった。

(2) 河川水中の溶解性鉄濃度は、夏期および冬期の低流量時にやや低下する傾向がみられた。一因としては、降雨流出由来の供給の減少および河川流量が減少して低濃度の下水処理場放流水の占める割合が増加するためと考えられた。溶解性窒素・リンに対する濃度比Fe/N、Fe/Pがいずれもレッドフィールド比よりも大であり、相対的に不足する可能性は低いと考えられた。

河川水中の溶解性ケイ素濃度は、年間の変動が少なく、溶解性窒素に対する濃度比Si/Nがレッドフィールド比を下回る場合が多く、リンに対する濃度比Si/Pも下回る場合があり、相対的に不足する可能性が考えられた。特に、都市排水の影響を大きく受けている鶴見川および多摩川の下流では1年のほとんどの期間で相対的に不足していると考えられた。

参考文献

- 1) Humborg et al. : Effect of Danube River dam on Black Sea biogeochemistry and ecosystem structure, Nature, Vol. 386, No. 27, pp. 385-388, 1997.
- 2) 原島省, 陸水域のシリカ欠損と海域生態系の変質, 水環境学会誌, 26, 621-625, 2003
- 3) Matsunaga et al. : Riverine input of bioavailable iron supporting phytoplankton growth in Kesennuma Bay (Japan), Water Research, Vol. 32, 1998, pp. 3436-3442.
- 4) Hutchins et al. : Competition among marine phytoplankton for different chelated iron species, Nature, 400, pp. 858-861, 1999

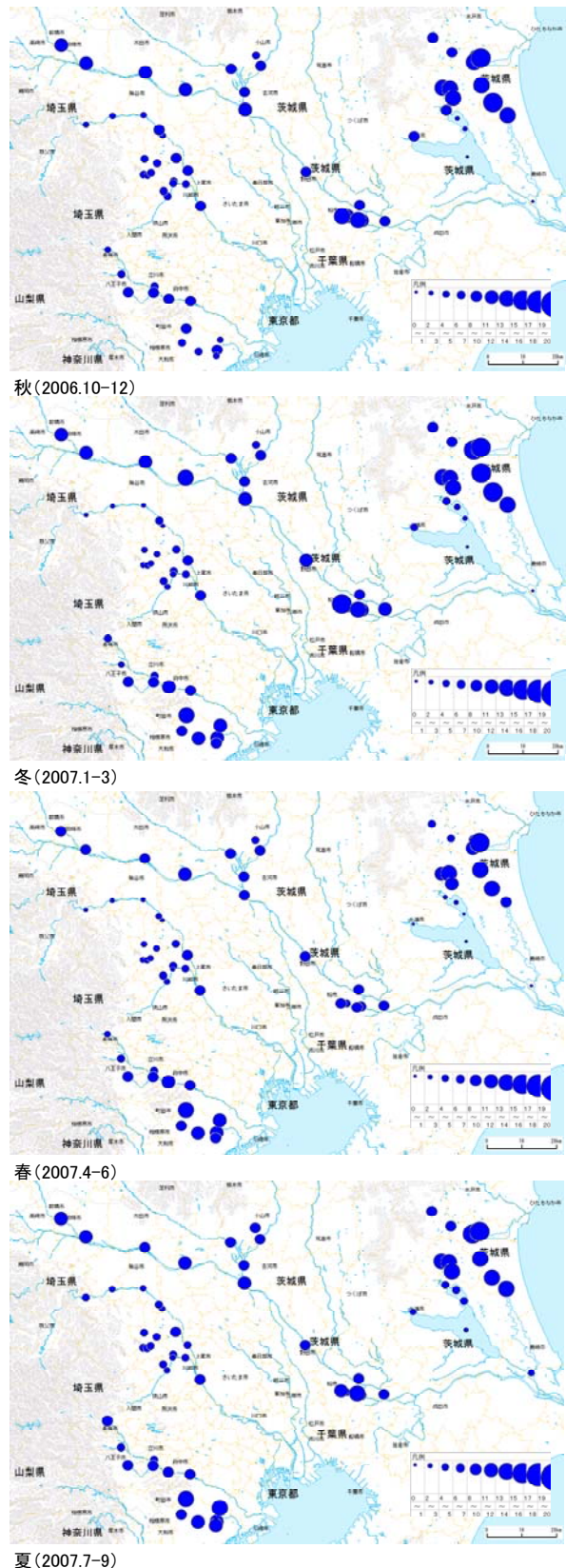


図-5 季節毎の河川水中の溶解性ケイ素濃度 (2006.10~2007.9、秋・冬・春・夏、単位mg/L)

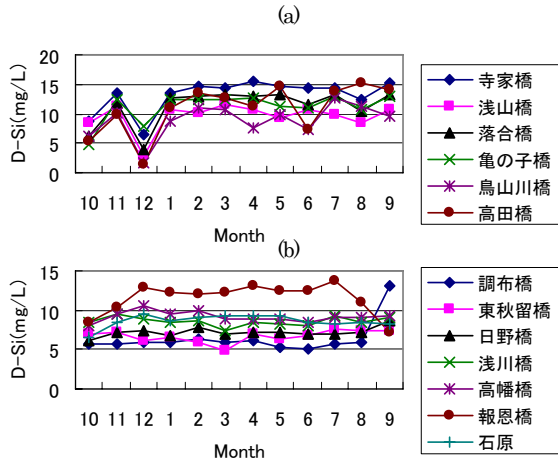


図-6 鶴見川および多摩川の河川水中の溶解性ケイ素濃度の年間挙動 (a: 鶴見川6地点、b: 多摩川7地点)

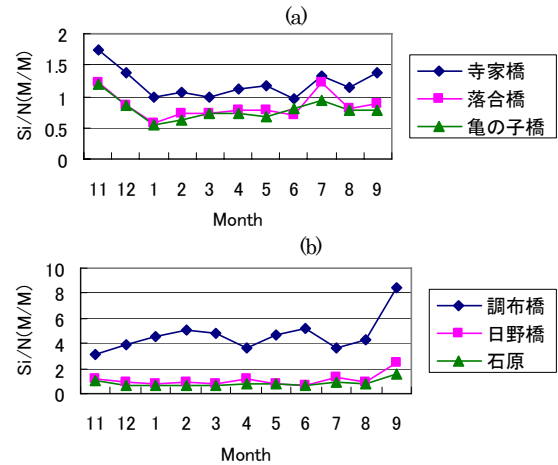


図-8 鶴見川および多摩川のSi/Nの年間変化(a: 鶴見川3地点、b: 多摩川3地点)

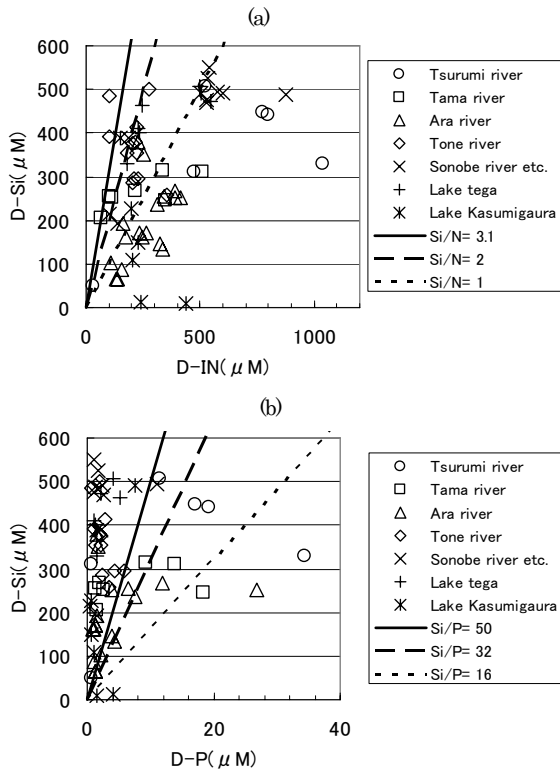


図-7 河川水中の溶解性ケイ素濃度と溶解性窒素・リン濃度との比率 (a: Si/N、b: Si/P)

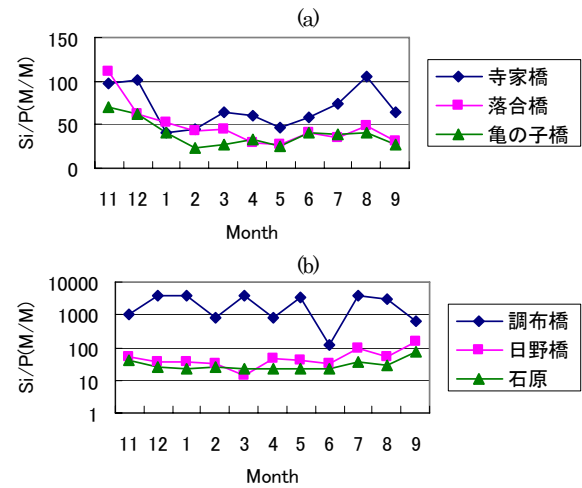


図-9 鶴見川および多摩川のSi/Pの年間変化(a: 鶴見川3地点、b: 多摩川3地点、多摩川は縦軸の範囲が大であるため対数値で示した)

STUDY ON WATER AND NUTRIENT CIRCULATION MODEL ON BASIN SCALE (3)

Abstract: This research examined the impacts of wastewater treatment plants (WTPs) and storm-water discharge on the fate of essential elements in an urbanized watershed. Dissolved iron (D-Fe) concentration in WTPs discharges was approximately half or less of that in rivers. The concentration was high compared to dissolved nitrogen (D-N) and phosphorous (D-P) concentrations in rivers. Dissolved silicon (D-Si) concentration in WTPs discharges was almost equal to that in rivers, but the ratio D-Si/D-N and D-Si/D-P may be lower than the Redfield ratio in rivers.

Key words: dissolved iron, dissolved silicon, silica, river, wastewater