

潮位変動による古綾瀬川河川水のダイオキシン類濃度の変動*

野尻 喜好**, 茂木 守**, 大塚 宜寿**, 荻毛康太郎**
堀井 勇一**, 茂木 亨***, 後藤 政秀***

キーワード ①ダイオキシン類 ②潮位変動 ③流速 ④SS濃度 ⑤指標異性体法

要 旨

感潮河川である古綾瀬川の河川水中ダイオキシン類の挙動に関し、潮汐に伴う水位変動による影響を把握することを目的とする調査を実施した。調査は、河川流量に大きな差がある非かんがい期とかんがい期に各1日行い、約1時間30分ごとに河川水を採取し、河川水中のダイオキシン類濃度、SS濃度を測定した。古綾瀬川の河川水中ダイオキシン類濃度とSS濃度は、満潮から干潮にかけての河川水位の低下とそれに伴う流速の上昇の影響により増加する傾向にあり、流向が順流から逆流に切り替わる時の河川水位の上昇とそれに伴う流速の低下の影響により減少する傾向が示された。また、ダイオキシン類濃度の日内変動は、平均濃度(n=8)に対して非かんがい期に0.5~1.7倍、かんがい期には0.5~1.5倍となった。これから、古綾瀬川のような潮位変動の影響を受ける河川では、ダイオキシン類に関する調査結果に試料採取のタイミングが影響を及ぼすことが示唆された。

1. はじめに

公共用水域の常時監視は「水質調査方法」¹⁾に基づいて実施されており、河川の採水方法について、「感潮域では潮時を考慮し、水質のもっとも悪くなる時刻を含むように採水時刻を決定する。」と記載されている。また、「化学物質環境実態調査の手引き(平成20年度版)」²⁾では、「感潮域にあっては、潮汐等も考慮して採水日時を決め、汽水域では遡上しない時間帯(たとえば、干潮時および引潮時)を選ぶ。」と指示されている。これは都市河川などの感潮域では、浮遊物質(SS濃度)が潮汐の変化に伴って変動したり³⁾、底泥の巻き上げ・沈降によって上・下流方向へ輸送され

たりする⁴⁾ことによる変動を考慮するためと考えられる。

本研究で対象としたダイオキシン類は水に難溶性であることから、河川水中ではほとんどが懸濁物質に吸着している。そのため、河川水のダイオキシン類は、95%前後が懸濁態として計測されると報告されている⁵⁾。これらのことから、底泥が汚染されている河川の感潮域においては、潮汐に伴うSS濃度の変動が河川水のダイオキシン類濃度に影響を与えると予想されるが、ダイオキシン類濃度がどの程度変動するかわかっていない。

埼玉県南東部を流れる古綾瀬川は、草加市で綾瀬川に合流する感潮河川である(図1)。古綾瀬川

*Variations in Dioxin Concentrations in Furuayase River Depending on the Fluctuation in the Tidal Level

**Kiyoshi NOJIRI, Mamoru MOTEKI, Nobutoshi OHTSUKA, Kotaro MINOMO, Yuichi HORII (埼玉県環境科学国際センター) Center for Environmental Science in Saitama

***Tohru MOTEKI, Masahide GOTO (埼玉県環境部水環境課) Water Environment Division, Saitama Prefectural Government

の環境基準点(綾瀬川合流点前)では、2004~2006年度にかけて河川水のダイオキシン類の環境基準(1pg-TEQ/L)を超える濃度(1.1~1.7pg-TEQ/L)のダイオキシン類が検出された⁶⁾。また、2003年度の調査では、環境基準点上流の表層底質から最高で390ng-TEQ/gと底質の環境基準(150pg-TEQ/g)を超えるダイオキシン類が検出されている⁷⁾。また、古綾瀬川の接続河川である綾瀬川の環境基準点(内匠橋、調査地点から下流約5.5km)の河川水からも、2005~2009年度にかけて1.5~2.1pg-TEQ/Lのダイオキシン類が検出され報告されている⁶⁾。国内におけるダイオキシン類の起源として、過去に水田等で使用された除草剤(ペンタクロロフェノール(PCP)とクロルニトロフェン(CNP))が知られており、綾瀬川の河川水では5月から8月のかんがい期にこれら除草剤由来の寄与が増加する⁵⁾。古綾瀬川は、逆流時に綾瀬川の河川水が流入するため、かんがい期には除草剤に由来するダイオキシン類の割合が増加すると予想された。

そこで本研究では、古綾瀬川において潮汐に伴う河川水のダイオキシン類濃度の変動を把握することを目的とする調査を実施した。

2. 方 法

2.1 調査対象河川

古綾瀬川は河川延長6.4km、流域面積8.64km²の一級河川で、川幅は下流部でおおむね20m、最上流部からすべてコンクリートや矢板で垂直に護岸された都市河川である(図1)。この川の上流域

は主に住宅地域、下流域は草加八潮工業団地となっている。集水域はほとんど分流式下水道区域であるが、わずかに水稻耕作地域を含む。よって、かんがい期には用水路(葛西用水)から水田へ導水され落とし水が生じ、古綾瀬川へ流入する。綾瀬川との合流地点には埼玉県古綾瀬川排水機場があり、この地点の河川水位(荒川工事基準面(A.P.))を計測している。一方、綾瀬川は河川延長49.0km、流域面積165.2km²の一級河川で、東京都葛飾区内で中川に合流する。綾瀬川は埼玉県桶川市を起点とし、水田地帯の農業用水路が源流となっている。上流の集水域は主に水田で、その落とし水も流入する⁵⁾が、中流域では都市化が進行しており、下流域では住宅密集地を流れている。

2.2 試料の採取

河川水は、図1に示した3カ所の調査地点で2010年10月6日(非かんがい期)の午前5時40分から午後4時55分までの間と2011年6月16日(かんがい期)の午前5時55分から午後4時30分までの間に採取した。これらの調査日は潮の干満差の大きい大潮の日を選んだ。採水は古綾瀬川の水位が最高に達して流れが順流になった時から、水位がもっとも低下した後、逆流が観測されるまでの間に実施した。非かんがい期およびかんがい期の調査とも、古綾瀬川の綾瀬川合流点前ではおおむね1時間30分ごとに8回、綾瀬川の松江橋では順流時に1回、綾瀬川の八条大橋では逆流時に1回の採水を実施した。古綾瀬川の環境基準点である綾瀬川合流点前(古綾瀬川 管理橋)は綾瀬川との距離が短いため、おおむね順流時は左岸から1.5m

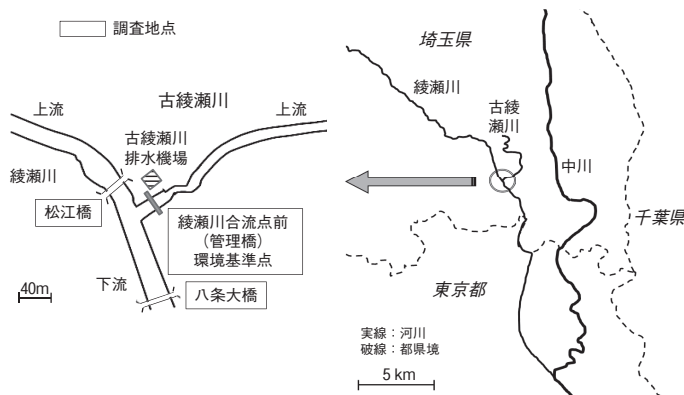


図1 河川の調査地点

付近、逆流時は右岸から1.5m 付近、流向が切り替わった後は中央付近の流速が大きい傾向を示していた。そこで、綾瀬川合流点前では右岸から1.5m、中央、左岸から1.5m の3カ所で水深約10cm の表層流速を電磁式流速計で計測し、流れがもっとも速い位置で表層の河川水を採取した。河川水はステンレス製バケツを用いて採取した。綾瀬川の河川水は、松江橋、八条大橋から流心で採取した。なお、綾瀬川の松江橋から八条大橋の間では古綾瀬川しか流入していない。

2.3 ダイオキシン類等の測定方法

河川水のダイオキシン類の抽出、前処理、測定は既報に従った⁵⁾。ただし、ダイオキシン類の検出には、高分解能ガスクロマトグラフ質量分析計(Agilent 7890A, 日本電子 JMS-800D)を用いた。毒性等量(TEQ)は、世界保健機関が2006年に定めた毒性等価係数(WHO-TEF(2006))を用い算出した。算出に当たり検出下限値未満の各異性体濃度はその1/2の値を使用した。SS濃度は、「工場排水試験方法(JIS K 0102)」により測定した。

3. 結果と考察

3.1 採水時刻と河川の水位、流速、流向

図2に非かんがい期とかんがい期における河川水の採水時刻、古綾瀬川の水位、採取位置の表層流速、流れの方向を示した。流速のマイナス値は逆流時での表層流速とした。非かんがい期は、古

綾瀬川1F1~1F4、綾瀬川1A1を順流時に、古綾瀬川1F5は流れが逆流に切り替わる直前、古綾瀬川1F6~1F8および綾瀬川1A2は逆流時に採水した。かんがい期は、古綾瀬川2F1~2F7、綾瀬川2A1を順流時に、古綾瀬川2F8、綾瀬川2A2は逆流時に採水した。

非かんがい期調査日での古綾瀬川の綾瀬川合流点前の満潮時刻は午前5時頃(水位 A.P. 2.0m)、干潮時刻は午前12時頃(水位 A.P. 0.8m)、再満潮時刻は午後6時頃(水位 A.P. 2.0m)であった。かんがい期調査日での同地点の満潮時刻は午前4時30分頃(水位 A.P. 2.1m)、干潮時刻は午後2時頃(水位 A.P. 0.8m)、再満潮時刻は午後7時頃(水位 A.P. 2.1m)であった。満潮、干潮時刻および水位は古綾瀬川に設置されている水位計での計測値で、古綾瀬川排水機場日報を用いた。順流から逆流への流向の変化は、綾瀬川では干潮後30分、古綾瀬川ではさらに30分から1時間後に始まることを目視により確認した。

綾瀬川合流点前における表層の流速は、両調査日とも満潮時から5~6時間後ぐらいまでは水位の低下に伴い大きくなった。その後、表層の流速は小さくなり、流向が変わった時刻は非かんがい期調査日で13時20分、かんがい期調査日で15時40分であった。

3.2 河川水中ダイオキシン類濃度の変動

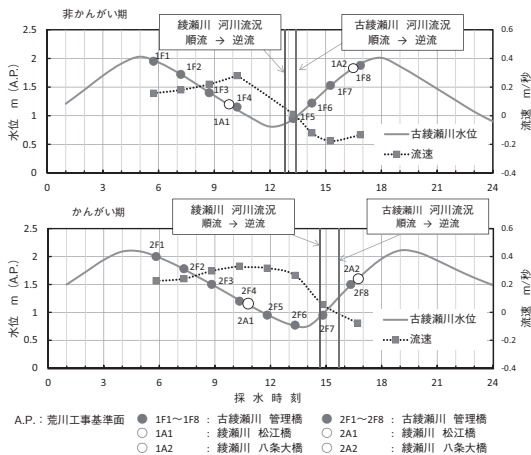


図2 非かんがい期調査(2010年10月6日)、かんがい期調査(2011年6月16日)での採水時刻と古綾瀬川の水位、採水位置の流速および河川流況

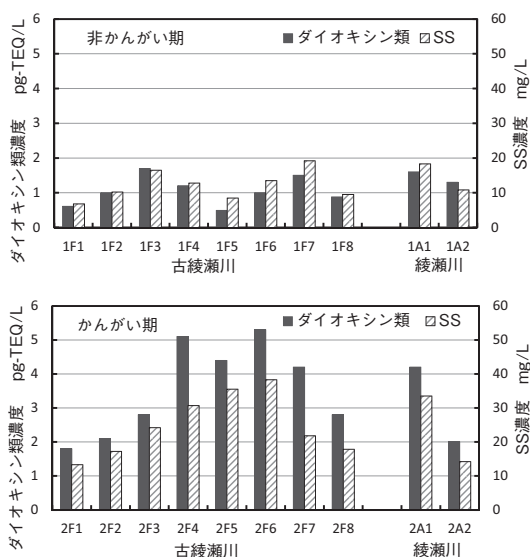


図3 古綾瀬川、綾瀬川のダイオキシン類とSS濃度

図3に古綾瀬川と合流先である綾瀬川の河川水のダイオキシン類濃度とSS濃度を示した。非かんがい期における古綾瀬川河川水(1F1~1F8)のダイオキシン類濃度は、0.49~1.7pg-TEQ/L(平均1.0pg-TEQ/L)の範囲であった。また、SS濃度は、6.8~19mg/L(平均12mg/L)の範囲であった。かんがい期における古綾瀬川河川水(2F1~2F8)のダイオキシン類濃度は、1.8~5.3pg-TEQ/L(平均3.6pg-TEQ/L)の範囲で変動し、非かんがい期の調査よりも高い傾向を示した。また、SS濃度も総じて非かんがい期よりも高く、13~38mg/L(平均25mg/L)の範囲であった。

古綾瀬川では非かんがい、かんがい期の調査とも採水時刻の異なる試料で、ダイオキシン類濃度は平均濃度に対してそれぞれ0.5~1.7倍、0.5~1.5倍、SS濃度は平均濃度に対してそれぞれ0.6~1.6倍、0.5~1.5倍と大きな差が示された。これから、採水作業の実施時刻の違いが調査結果に大きな影響を及ぼすことが確認された。

図4に古綾瀬川におけるダイオキシン類濃度とSS濃度との関係を示した。相関係数(R)は非かんがい期で0.885(n=8)、かんがい期で0.905(n=8)と強い正の相関が見られ、ダイオキシン類濃度はSS濃度に依存していると考えられた。ま

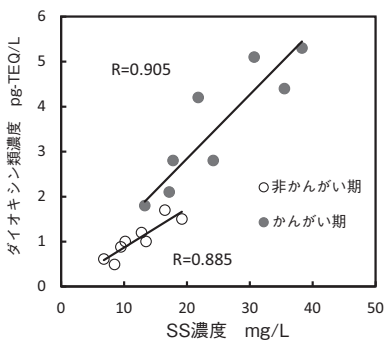


図4 古綾瀬川におけるダイオキシン類濃度とSS濃度との相関

た、図2での採取時の流速変動とダイオキシン類、SSの測定結果の変動を比較すると非かんがい期順流時での1F1から1F3、逆流時での1F6から1F7、かんがい期順流時2F1から2F4で、おおむね流速の上昇に伴いダイオキシン類、SS濃度が高く傾向が認められ、流速の上昇で河川底泥の巻き上げによりSS濃度が増加し、ダイオキシン類濃度が上昇したものと推察された。

3.3 ダイオキシン類の汚染源寄与の割合

綾瀬川河川水のダイオキシン類濃度は、非かんがい期・順流時に合流点上流・松江橋(1A1)で1.6pg-TEQ/L、逆流時に合流点下流・八条大橋(1A2)で1.3pg-TEQ/L、かんがい期の順流時に合流点上流・松江橋(2A1)で4.2pg-TEQ/L、逆流時に合流点下流・八条大橋(2A2)で2.0pg-TEQ/Lであった(図3)。これは、古綾瀬川と同等のレベルであり、ダイオキシン類濃度だけでは綾瀬川河川水の流入による古綾瀬川への影響、古綾瀬川河川水の流入による綾瀬川への影響などを評価することは難しい。

そこで、古綾瀬川、綾瀬川のダイオキシン類測定結果に指標異性体法⁸⁾を適用し、河川水のダイオキシン類濃度の除草剤由来(PCPとCNP)とその他由来(燃焼とPCB製品)の汚染源寄与割合を

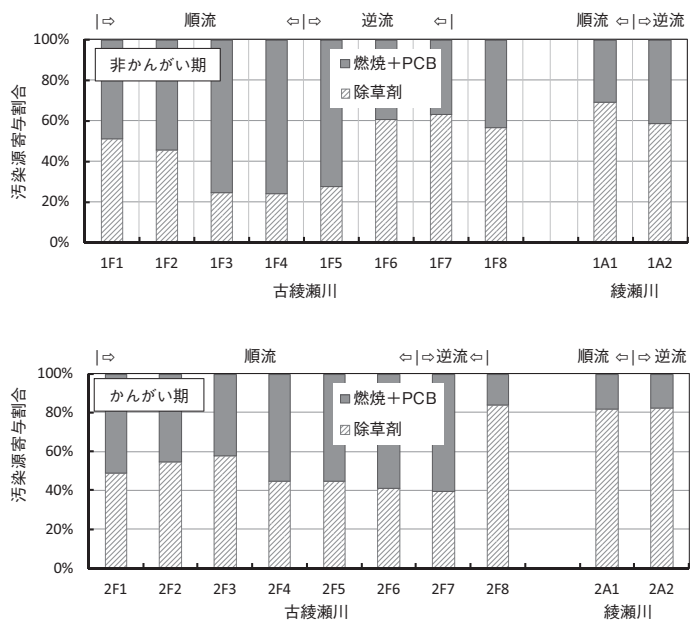


図5 古綾瀬川、綾瀬川でのダイオキシン類汚染源寄与割合

推算した(図5)。古綾瀬川河川水の除草剤由来寄与割合は、非かんがい期の流向が変わる直前(1F5)の28%が逆流時(1F6)で60%、かんがい期の順流時(2F7)の40%が逆流時(2F8)で84%となり、大きく変動している。この時の、綾瀬川河川水の除草剤由来割合は非かんがい期(1A1~1A2)で59~69%、かんがい期(2A1~2A2)で82~83%であり、逆流時の古綾瀬川河川水の寄与割合とほぼ同等であった。このことから、逆流時に古綾瀬川の管理橋(環境基準点 綾瀬川合流点前)では、綾瀬川由来の河川水にほぼ置き換わることが推測された。また、綾瀬川では、順流時、逆流時で寄与割合にあまり差が無いことから、古綾瀬川の流入による綾瀬川への影響は少ないと考えられる。

また、古綾瀬川河川水のダイオキシン類濃度の除草剤由来寄与割合は、非かんがい期の順流時で51%(1F1)から24%(1F4)へ大きく減少したが、かんがい期の順流時は58%(2F3)から40%(2F7)と減少幅が非かんがい期よりも少ない。これは、かんがい期において古綾瀬川自体が流域からの水田の落とし水等の影響を受けているためか、綾瀬川河川水から除草剤由来の影響を継続して反映しているためと推察される。

4. ま と め

埼玉県内の感潮河川である古綾瀬川において、水位変動と河川表層流速、河川水のダイオキシン類濃度等との関係を調査した結果を以下に要約した。

- (1) 古綾瀬川の環境基準点(綾瀬川合流点前)では、非かんがい、かんがい期の調査とも採水時刻の異なる試料でダイオキシン類濃度、SS濃度に大きな違いがあることが確認できた。
- (2) 古綾瀬川河川水のダイオキシン類濃度は非

かんがい期よりもかんがい期に高く、順流時および逆流時の流速の上昇に伴って高くなる傾向が見られた。

- (3) 古綾瀬川河川水のダイオキシン類濃度とSS濃度は高い相関が認められ、同様な変動傾向を示したことから、河川流速の上昇によって河川底質の巻き上げが起り、ダイオキシン類濃度を増加させると推察された。
- (4) 古綾瀬川は逆流時に綾瀬川の河川水が流入するため、除草剤に由来するダイオキシン類の割合が増加した。

本研究では、古綾瀬川の流速とダイオキシン類濃度の関係を調べた。おおむね河川流速が上がるとダイオキシン類濃度が高くなる傾向が見られた。ただし、定量的な解析を行う場合には、水深別流速測定や河川流量の把握なども合わせて実施する必要があると考えられる。

一 文 献

- 1) 環境庁水質保全局：水質調査方法(環水管第30号)、1971
- 2) 環境省総合環境政策局環境保健部環境安全課：化学物質環境実態調査実施の手引き(平成20年度版)、2009
- 3) 高橋忠勝、杉原大介、岩屋隆夫：都内中小河川感潮域の流量変化と水質特性。都土木技術センター年報、171-178、2008
- 4) 二渡了、楠田哲也、粟谷陽一、古賀憲一、古本勝弘：六角川感潮部における水質変動特性。第13回環境問題シンポジウム講演論文集、38-43、1985
- 5) Minomo, K., Ohtsuka N., Hosono, S., Kawamura, K.: Seasonal change of PCDDs/PCDFs/DL-PCBs in the waters of Ayase River, Japan: Pollution sources and their contributions to TEQ. *Chemosphere*, **85**, 188-194, 2011
- 6) 埼玉県環境部水環境課：<http://www.pref.saitama.lg.jp/page/901-20091217-7.html>(2015年2月時点)
- 7) 細野繁雄、大塚宜寿、蓑毛康太郎、王効拳、杉崎三男：古綾瀬川における底質中ダイオキシン類の濃度分布と汚染の特徴。環境化学、**22**、89-96、2012
- 8) 大塚宜寿、蓑毛康太郎、野尻喜好：指標異性体を用いた総TEQの推算方法とダイオキシン類測定における品質管理への利用。環境化学、**21**、79-84、2011