

# 河川底質物からみた四国地方河川の地球化学的環境影響評価 —四万十川, 加茂川, 吉野川の例—

松本 一郎\*・松浦 和美\*\*・伊藤麻由佳\*\*\*・越智 章光\*\*・亀井 淳志\*\*\*\*

Ichiro MATSUMOTO, Kazumi MATSUURA, Mayuka ITO, Akimitsu OCHI and Atsushi KAMEI  
Geochemical Environmental Assessment of River Sediment from the Shikoku District, Japan.  
— Example for Shimanto, Kamo and Yoshino Rivers —

## ABSTRACT

Shimanto, Kamo and Yoshino Rivers are famous typical rivers which flow in Shikoku Island, Shikoku district, southwest Japan Arc. These three rivers are relatively free from the large city. That is river sediment from these rivers may remain the natural chemical features. The content analysis and elution (liquate out) test on the heavy metals of Cd, CN, Pb, Cr, As, Hg, Ni, Zn and Cu were carried out for environment assessment. The samples were extracted from the river sediment at intervals of several km. We cannot detect human impact by heavy metals from the all sampling points of three rivers. The chemical data of the river sediment from these Shikoku areas is expected to be used widely as standard that estimates about human impact.

【Key words : River sediment, environmental standards value, Shimanto River, Kamo River, Yoshino River】

## I. はじめに

近年, 人体や生態系にとって過度な濃度に達すると有害とされる物質により土壌が汚染され, 特に都市部での人工由来の汚染事例の著しい顕在化が問題視されるようになった. 特に行政側からは, 人類への健康被害の恐れから, 土壌汚染対策法 (環境省, 2002) が成立・公布され, 2003年から施行され現在に至っている. それらのうち甚大なものの多くは, 人類の産業活動の発展による, 多種多様な化学物質の使用が主要因となっている. 典型7公害と呼ばれる大気, 水質, 土壌, 騒音, 振動, 地盤沈下及び悪臭のうち, 土壌汚染についても, 21世紀に入りようやく法的規制のもと, 多くの調査やその対策が講じられるようになってきたといえる. 大都市やその周辺部での土壌汚染については, 汚染発生から発見もしくは発覚までの時間が, その他の汚染に比べて長く, 世代を超えて, また土地の売買を契機に様々な調査や対策の必要に迫られている事例が多い事が特徴である.

ここで, 重要な事は明瞭に高濃度に汚染された土壌を除いて (つまり, 汚染源が明確【ポイント・ソース】なもの), 対象となる有害元素 (物質) の濃度分布が自然状態よりどの程度高くなっているかが問題となる. つまり, 大都市部などでは, 河川を媒体にして河口域堆積物の対象物質の含有量が総じて高くなっている事が想定され, 産業活動を主とした一種の広域汚染源【ノンポイント・ソース】に起源が求められる (例えば, Matsumoto et al., 2008a; 2008b, 2009; 2010). 筆者は, 大都市部での多くの土壌汚染の調査 (例えば, 松本, 2003) から, 汚染物

質の人的負荷部分を定量的に見積もる事が重要であると述べてきた (松本, 2009; Matsumoto et al., 2010). なぜなら, 土壌汚染対策法や政令条例に基づき汚染対象地域を調査・処理をするにあたり, 処理費用を見積もり, また負荷責任を明確にするためには地球化学的な対象地域, 対象河川における自然状態での対象物質の状況【バックグラウンド値】の把握が不可欠であるからである. 土壌や岩石は, それ自体化学的に多様性があり, 法的な一律の基準値では問題解決しない場合も多いからである. また, 同様な理由から基本図としての地球化学図の作成 (例えば, 今井, 2001; 今井ほか, 2001) や地球化学的判別図の考案 (例えば, 石賀ほか, 2003) も行われている.

最近では比較的多くの研究 (例えば, 松本ほか, 2002; 渡部, 2005; Watanabe et al., 2005, 2008; 伊藤・松本, 2007; Ito and Matsumoto, 2008; Matsumoto, 2007; Matsumoto et al., 2008a, 2008b, 2009, 2010) や重点的なプロジェクト研究 (例えば, 島根大学重点研究【流域統合管理G】) により河川底質物の上流から河口に至までの物理化学的な変化の一部が明らかになってきた. 今回の研究では, 主に地質学的に四万十帯～領家帯に属する四国地方の主な河川である, 四万十川及び加茂川についての河川底質の地球化学的な記載を報告する. また, 吉野川についても予察的ではあるが合わせて紹介する.

本研究は, 河川底質物に対する都市活動の影響の比較的少ない河川流域であり, 四万十帯, 三波川変成岩, 及び領家帯に分布する地質体を流下する河川の底質物の基礎データを示すものとして重要である. 同時に, 人的負荷作用の少ないスタンダードとして主に都市部での土壌

\* 島根大学教育学部初等教育開発講座

\*\* 元島根大学教育学部学校教育教員養成課程

\*\*\* 元島根大学大学院教育学研究科

\*\*\*\* 島根大学総合理工学部地球資源環境学科

汚染の調査や対策の際に活用される事を期待している。

なお、本研究は、越智 (2003MS), 妹尾 (2007MS), 伊藤 (2009MS) の基礎研究に新たなデータを加え、整理、議論を加えたものである。

## II. 研究対象地域の地質及び流域特性

### (1) 四国地方の地質特性

四国地方は地質学的に東西に延びる主に3つの構造線、つまり、北側より中央構造線、御荷鉾構造線、及び仏像構造線により異なる地質体が接している。これら地質体は大きくは西南日本外帯としてまとめられている部分にあたる。中央構造線以北は、主に領家帯の主に花崗岩類をはじめとした岩石から構成される。中央構造線と御荷鉾構造線に挟まれた地質体は三波川帯と呼ばれ、主に低温高压型の広域編成作用を受けた変成岩から構成される。御荷鉾構造線と仏像構造線に挟まれた地質体は秩父帯と呼ばれるもので主にジュラ紀の付加体から形成される。仏像構造線以南は四万十帯が分布する。四万十帯は、主に砂岩、泥岩、およびチャートからなる白亜紀から古第三紀に形成された典型的な付加体堆積物であるとされている。

### (2) 四万十川

四万十川は高知県都野町の不入山 (標高1,336m) 付近を源流に、梶原町、中土佐町、四万十町、四万十市を流下し太平洋に注ぐ流路延長196km、流域面積2,270km<sup>2</sup>の一級河川である。四国内では最長の河川であり、清流の一つに数えられる。

源流付近は秩父累帯を、それ以降の大部分が四万十帯の北帯を流下する。流路延長は四国最長ではあるが、流域面積では吉野川が勝る。つまり、四万十川は流路延長に比べて流域面積が比較的小さい事を特徴としている。これは、山間部における蛇行が激しい結果を表している。四万十川は本流も支流も蛇行が著しいが、その原因は流域中流地域の隆起であると考えられている。また、四万十川は流出土砂が比較的多いにも関わらず、三角州の形成が見られない。これは、山地の隆起とは逆に、土佐湾の海底が沈降しつづけたために、三角州のできる浅瀬が形成されなかったためである。

四万十川は国内でも、自然が豊かに残っている貴重な河川の一つである。大都市や工業地帯から遠くはなれ、流域において産業の開発が比較的活発でなかった事が一因にあげられる。また、四万十市中村周辺を除いては、治水工事もほぼ行われていない。つまり、利水・治水両面でも人的な作用があまり加わっていない河川といえる。水質 (例えばBOD指標など) も現在の日本の河川の中では、良好な方であり、魚類をはじめ生態の多様さでも貴重な流域の一つとなっている。

鉱物資源については、四国全体では、歴史に名を残した様々な鉱種の鉱山が600余りに達する。しかし、四万十川流域を見てみると、鉱床・鉱徴は少なく、アン

チモン鉱床が3箇所が存在する程度である。四万十帯の白亜系・古第三系中の石灰岩体は秩父累帯の石灰岩体と比較すると極めて小規模で、経済的なものではなかったためである。秩父帯に属する源流付近では、銅・硫化鉄鉱床、石灰石鉱床が存在している。

### (3) 加茂川

加茂川は愛媛県を流れる河川である。源流は、高知県との県境近くの西日本最高峰の石鎚山 (1,982m) 付近 (岩黒山) に存在し、唯一西条市のみを流下し瀬戸内海に注ぐ流路延長約28km、流域面積191.8km<sup>2</sup>の二級河川である。中流域には黒瀬ダム (有効貯水量3,400万m<sup>3</sup>) が位置する。

加茂川流域の地質は、最上流域では主として安山岩および玄武岩から構成されるが、上~中流域になると主に三波川変成岩が分布するようになる。下流には沖積層が分布するが、流路延長が比較的小さいために砂と泥の他に中礫以上の礫の存在が目立つのが特徴である。

西条市は市域の約73% (168km<sup>2</sup>) が山地にあたり、流域の市街化率も約12%と比較的自然が多く残されている河川であり、四万十川と同様に一般には「きれいな河川」として知られている。

### (4) 吉野川

吉野川は、高知県と愛媛県の県境高知県の町に位置する瓶ヶ森 (標高1,896m) 付近を源流に、高知県大川村、土佐町、本山町、大豊町、徳島県三好市、みよし町、つるぎ町、美馬市、吉野川市、阿波市、上坂町、石井町、藍住町、徳島市を流下し太平洋に注ぐ流路延長194km、流域面積3,740km<sup>2</sup>の一級河川であり、流域面積では四国で一番広い。

吉野川は、源流から下流域の途中までは結晶片岩類中を、その後の下流域は沖積層中を流れる。また、流路の特徴として、源流から中流途中の四国中央部までは四国山地に沿って東に流れるが、敷岩で穴内川と合流した後は豊永から北に向きを変えて地質構造を斜めに横切るように四国山地を北上横断し、銅山川、祖谷川などを合わせて徳島県池田において再び東に流路を向け、岩津を経て徳島平野に入る。その後、支流を合わせながら旧吉野川を分派して紀伊水道に注いでいる。河口部分は干潟になっている。

吉野川は歴史的に日本の中でもいわゆる「暴れ川」として知られてきた。また、水資源の確保と合わせて本・支流合わせて、大小多数のダムが建設されている。水質については四万十川とならんで清流として扱われる事が多い。

## III. 試料採取および分析方法

底質物試料の採取は、5万分の1の地勢図を用い、四万十川・加茂川ともに上流から下流にかけて試料採取地点ができるだけ等間隔になるように行った。なお、吉

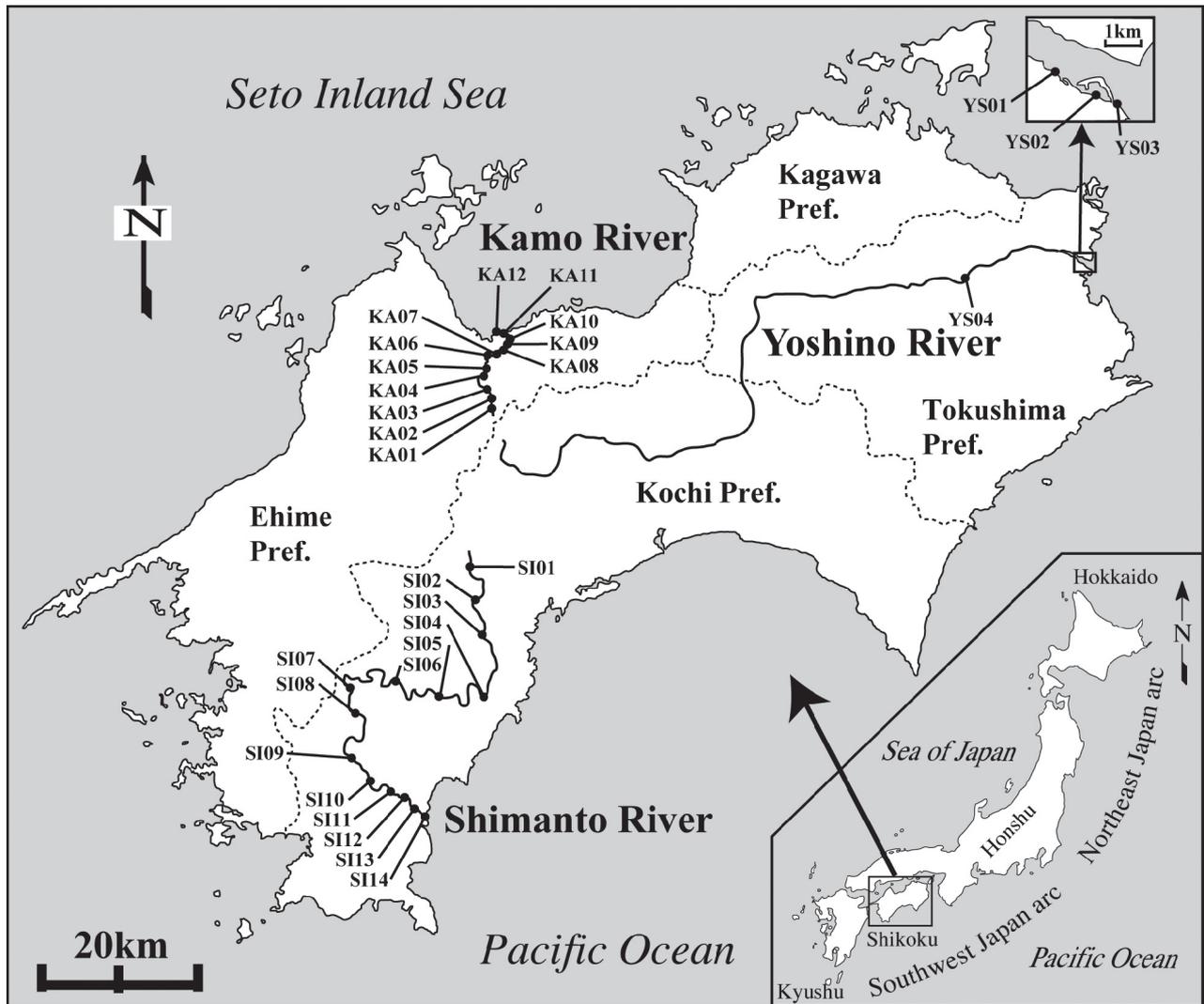


図1 四万十川、加茂川及び吉野川の試料採取位置図

試料採取は、四万十川では2006年3月28～29日、加茂川では2002年9月26～27日、吉野川では2007年6月30日に行った。

野川については河口域を代表させるために3地点で、中流域を代表させるため1地点の試料を採取した。全ての試料採取地点では、できるだけ泥質～砂質の底質を3ヵ所で移植ごてを用いて採取し、四分法を用いて十分に攪拌したものを、その地点での代表試料とした。また、底質物試料採取の際に基礎データとして、河川のpHおよび電気伝導度を測定した(表1)。なお、堆積物の調査では、粒度分析がしばしば重要視されることが多い。これは、堆積物の粒径による元素の選択的な分別効果が働く場合があるため(例えば多田ほか, 1974; 溝渕ほか1980; 安藤ほか, 1984; Ortiz and Roser, 2005; Ito and Matsumoto, 2007; 伊藤, 2009MS))であるが、「堆積物全体の重金属濃度の把握」や「流域の環境トレーサーとしての活用」を主眼においた本研究では、試料を粒度ごとに分別して分析することは採取地点の平均的な堆積物の化学組成を反映しないので行っていない。

試料採取は、四万十川では14地点(試料番号: SI01～SI14)、加茂川では12地点(試料番号: KA01～

KA12)、吉野川では4地点(試料番号: YS01～YS04)で行った(図1)。

各河川の底質物を用いて、研磨薄片を作製し、偏光顕微鏡で観察した。また、含有量分析、溶出量試験を行った。加えて、薄片上で鉍物を鑑定し、鉍物モードの測定を行った。

#### [底質物薄片の作製]

採取した試料は泥質～砂質であり、室内ホットプレート上で乾燥させた後、エポキシ系樹脂で固定したものを薄片作製の試料とした。

なお、作成する底質物薄片に用いる試料は、前述のとおり特に粒度ごとの分別を行わず、採取地点での底質物の粒度分布がある程度保てるようにしている。これは、環境評価という観点に基づき、人的な分別を避けるためであり、採取地点の平均的な河川底質物の地質および化学的性質の全容把握を目指した。この手法は、河川堆積物全体としての地球化学的特徴を把握することを主眼に置いたものである(例えば松本, 2009; Matsumoto et

al., 2010を参照).

#### [偏光顕微鏡での底質物の記載]

構成鉱物の同定と定量化を行うために島根大学教育学部松本研究室の偏光顕微鏡装置一式を用いて底質物薄片試料の鑑定と記載を行った。

#### [底質物の分析]

採取した試料の一部は、同和テクノリサーチにて底質物中の重金属含有量分析および溶出量試験を行った。また、主要成分及び微量成分の分析を島根大学総合理工学部の理学電機社(現(株)リガク)製の蛍光X線分析装置(RIX2000XRF)を用いて行った。

測定した元素を以下に記す。

重金属の含有量分析: Cd, CN, Pb, Cr, As, Hg

重金属の溶出量試験: Cd, CN, Pb, Cr, As, Hg

主要元素分析: SiO<sub>2</sub>, TiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MnO, MgO, CaO, Na<sub>2</sub>O, K<sub>2</sub>O, P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>

微量元素分析: Rb, Sr, Cr, Ni, V, Y, Zr, Nb, Zn, Cu

表1 加茂川、四万十川及び吉野川の源流からの距離及び現地での水質測定結果

四万十川	距離(km)	電気伝導度(μS/cm)	pH	加茂川	距離(km)	電気伝導度(μS/cm)	pH				
SI01	5.35	91	8.4	KA01	3.95	180	8.3				
SI02	24.45	59	7.8	KA02	5.38	210	8.6				
SI03	40.80	57	7.6	KA03	8.28	190	11.9				
SI04	58.85	64	8.5	KA04	12.68	140	9.2				
SI05	80.20	62	7.8	KA05	15.30	80	9.8				
SI06	97.25	71	8.0	KA06	21.46	70	8.2				
SI07	127.55	70	7.8	KA07	24.38	60	8.4				
SI08	138.55	67	7.7	KA08	25.78	90	8.9				
SI09	148.95	73	7.9	KA09	27.95	110	9.1				
SI10	155.85	69	8.2	KA10	29.33	110	9.2				
SI11	164.15	75	7.9	KA11	31.11	14450	8.1				
SI12	168.95	71	7.7	KA12	33.40	>20000	8.6				
SI13	175.40	16270	7.3	吉野川 採取地点 電気伝導度 pH							
SI14	178.90	18550	7.8								
								YS01	下流地点	10350	8.5
								YS02	下流地点	10450	8.7
				YS03	下流地点	10380	8.7				
				YS04	中流地点	326	9.5				

## IV. 結果と考察

### (1) 底質物の顕微鏡記載

四万十川の底質物中を構成する堆積物粒子は、主として、石英、斜長石及び岩片が占め、少量の黒雲母、角閃石、不透明鉱物が認められた。また、他の河川(例えば、伊藤・松本, 2007; 松本ほか, 2008, 松本, 2009)と比較して岩片が多く、有色鉱物が多いのも四万十川の特徴である。四万十川では特に四万十帯に属する堆積岩や石灰岩、緑色岩が比較的広く流域に分布するためであると考えられる。モード測定の結果からは、岩片、長石、石英の順に多いことが明らかになった。また、上流から河口域までの連続した石英及び長石のモード比は、後述する堆積物の主要元素分析の結果と対照的な傾向が認められた。つまり、石英は、上流及び中流では減少傾向を示したが、中流付近のSI08地点から増加し、下流側では安定したモード比を示し、河口付近において増加していることがわ

かった。

加茂川の底質物を構成する堆積物粒子は、主として鉱物粒子よりも石英片岩、緑色片岩起源のいわゆる変成岩起源の粒子が多く含まれる事がわかった。また、鉱物片としては石英、緑泥石、緑レン石、白雲母、及び方解石が認められ、微量ではあるが黒雲母、カリ長石、及び磁鉄鉱が認められた。量的には、石英片岩が多く、緑色片岩及び雲母片岩の順に量比が多いが下流になるにしたがい緑色片岩の割合が少なくなる傾向が認められた。

吉野川については中流にて1地点、下流(河口)付近で3地点の予察・比較試料としたので連続的な底質物の構成量比の変化やその特徴の記載は行っていない。顕微鏡で観察した試料では中流では、岩片(緑色片岩)が多く、下流3地点においては岩片、石英、及び長石粒子が目立った。

### (2) 底質物の重金属含有量・溶出量

法定分析による重金属類の含有量分析、溶出量および主要・微量の組成分析結果を表2、表3および表4に示した。また、図2および図3には主要な元素の含有量の upstream から downstream までの変化を示した。以下、河川ごとに特に重金属類の含有量と溶出量を中心に特徴的な事項について議論する。なお、本研究のように河川を流域として捉え、上流から下流までの含有量の変化を議論した研究は先駆的な研究(De Groot et al., 1971; 多田ほか, 1974, 1984; 柴原ほか, 1975)を除けば国内ではほとんど行われてこなかった。

#### [四万十川]

重金属含有量について、全ての地点において環境基準値を超えるものは認められなかった。以下、それぞれの元素の特徴について述べる。As含有量については上流から下流にかけて4~5ppmの含有量を示し全域を通して変化の少ないかつ含有量の少ない事がわかった。これは、後背地質に含まれる岩石中の流域を通じたAs含有量の低さを反映していると考えられる。それに対して、Pb, Hg, Cuについては、上流側で比較的高い含有量を示し、その後、下流にいくにしたがい低下している事が明らかになった。源流・上流域付近の重金属元素含有量の高さは、堆積物の流域構成地質の元来の化学組成を維持・反映したものが多いためであると考えられる。これは、他の河川でもしばしば認められる事象である(例えば、伊藤・松本, 2007, 松本ほか, 2008, 松本, 2009, Matsumoto et al., 2010,等)。Cr含有量については源流・上流側から中流にかけて徐々に低くなり、下流側で再びやや高い値(最高値は90ppm)を示した。これについてはクロムを主成分とする鉱物が自然界では唯一クロムスピネルであることから、比重が重く、風化浸食に対して強い同鉱物が河口付近で重力分別され若干高くなったと考えられる。Cd及びCNは、全ての採取地点において検出限界値以下であることが確認された。

全ての重金属類の溶出量試験については、土壌汚染対策法の指定基準値を超過するものは認められなかった。

これは自然由来の河川底質の構成粒子が多い、つまり人的な負荷作用の少ないと見積もられる河川の値として重要な記載事実である。

#### [加茂川]

重金属含有量について、全ての地点において環境基準値を超えるものは認められなかった。以下、それぞれの元素の特徴について述べる。なお、これから述べる重金属含有量とともに様々な元素において黒瀬ダムを挟んだ地点5 (KA05)と地点6 (KA06)において比較的大きな変動(増減)が認められた。これは、この黒瀬ダムによる堆積物のいわゆる“せき止め効果”によるものをとらえたもので、流域の化学的な変化を捉えるにあたり、ダムの与える影響を見積もる際に重要であり、貴重な記載となった。個別の元素ごとに以下、特徴を述べる。Pbはダムの影響によりその前後で含有量が高くなる事がわかった。逆にAsについてはその前後で含有量が低くなる事がわかった。Hgについては下流に向かって含有量が低下するもののダムの前後では含有量の増加が認められた。一方、Crについてはダムの影響はそれほど認められず、四万十川と同様に、下流付近での若干の上昇が認められた。この原因についても四万十川と同様に、クロムスピネル粒子による河口付近での重力作用による選択的な濃集効果が働いたものと考えられる。

加茂川については、中流地点に人工ダムによる堆積物中の元素の挙動の概要が確認された事に加えて、四万十川と同様に人的な負荷作用の少ないと見積もられる河川の値として重要な記載事実を示す事ができた。

#### [吉野川]

重金属含有量について、予察的に中流付近で1地点、下流(河口)付近で3地点の試料について含有量を調べた。その結果、Cd及びCNは、全ての採取地点において検出限界値以下であることが確認された。また、Pb, Cr, 及びAsは全ての地点で比較的低い含有量であることが確かめられた。吉野川については予察的な報告・考察ではあるが、四万十川、加茂川の底質物の含有量・溶出量と比較することにより、やはり人的負荷作用の低い河川であることが認められるとともに、四国地方の河川底質物の一般的な値として見積もる事ができる。

### (3) 四万十川と加茂川の底質物の主成分元素

#### [四万十川]

四万十川は前述のとおり、流域の途中に大規模なダムがないことから、人的な負荷作用の少ない河川における、主成分元素の流域を通じた変化の概要の把握が期待され、記載する事ができた。以下、それぞれの元素ごとに述べる。Siは全ての元素の中で、上流から下流に向かい含有量が最も増加する元素である。これは、風化・浸食作用において、主要造岩鉱物の中で石英が最も強い事を反映するものである。また、下流・河口地点において、石英や長石粒子が目立つ観察事実とも整合的である。逆に、Al, Fe, Ti, Kについては特に下流域において含有量の低下が認められた。これは、石英粒子の存在度が増加

したことを反映したものあり、苦鉄質鉱物や岩片の河水水との反応・溶解による減少の効果も加わった結果と考えられる。なお、SiとともにNaについても含有量の上昇が若干ではあるが認められるが、その地質学的・河川工学的な解釈については現段階では絞れていない。

#### [加茂川]

加茂川は前述のとおり中流域に黒瀬ダムが位置し、いわゆる“ダムによるせき止め効果”により地点5 (KA05)と地点6 (KA06)において比較的大きな変動(増減)が認められた。SiとKについてはダムの前後で比較的大きな含有量の増加が認められた。またFe, Ti, Caについては逆にダムの前後にて比較的大きな減少が認められた。その一方で、AlとNaについては顕著な増減は認められなかった。これら主要元素では、せき止め効果によってSiがもっとも大きく影響を受けている事がわかった。つまり、ダムにおいて石英粒子の多くが物理的に蓄積したために、一般的な傾向として下流側で蓄積するのと同様な含有量の上昇がダムの前後で確認されたと考えられる。これら、主成分元素の上流から下流までの変化に関わり、その主要因となっているのは、石英粒子の風化・浸食に対する強度の強さであると考えられる。四万十川と同様に、加茂川は人的な付加作用が低い河川だと考えられ、主成分元素の“ダムによるせき止め効果”の概要が明らかになったといえる。

### (4) 四国河川の底質物環境評価

#### [底質物環境評価]

今回、四国の主要河川である四万十川、加茂川についての河川底質物の重金属元素の含有量分析、溶出量試験を実施した。また、予察的ではあるが吉野川についても行った。これは、人的な負荷作用が比較的小さい河川であると予想されることから、自然状態において岩石中に含まれる鉱物や、また岩石・鉱物に含まれる重金属類や主要元素が流域を通してどのような変化を示すかを捉えることを第一の目的とした。また、これら河川において人的な負荷作用を示す化学的な要因のないことを確認することを目指した。加えて、人的負荷作用が認められなかった場合、これら河川底質物の含有量、もしくは含有量の変化をもって「自然状態の河川」の基準値(ただし、四国地方もしくは西南日本内帯に限る)と見なす事ができると考えた。

分析の結果、四万十川、加茂川、および吉野川ともに、重金属含有量の極端な増加や、基準値を越えるか基準値程度の比較的高含有量の底質物は確認できなかった。また、全ての河川底質物の溶出量試験においても、環境基準値を超えるものはなく、ほとんど全ての試料が定量下限値以下であることがわかった。つまり、今回調査を行った河川は、人的な負荷作用が極めて低い自然状態に近い化学的な底質を保った河川であると結論・評価できる。また、これまでは河川の上流から下流に至る、底質物の構成鉱物や含有量について漠然と捉えられていた事象について、本研究は定量的にその概要をはじめて明らかに

することができた。

【流域を通じた底質物の含有量変化の一般化】

河川底質物の流域をととした主要元素や重金属類の変化に注目した研究は、数は少ないもののいくつかの研究が行われてきた (De Groot et al., 1971; 多田ほか, 1974; 1984; 柴原ほか, 1975)。しかし、それらは主に都市部での産業活動や山間部の鉱山の影響などを主眼においたものが多く、自然状態に近い河川での上流から下流にかけて調べたものはほとんどない。今回の研究によって、四国地方に分布する地質体という限定条件はつくものの、底質物の重金属元素と主要元素の変化の詳細が明らかとなった。つまり、重金属については、特にPb, Cu, Hgについては上流ほど含有量が高く、下流にいくに従い低くなる傾向が認められた。これは、源流に近いほど、碎屑粒子及び碎屑鉱物が、より源岩である地質の化学的特徴を維持・反映している事が原因として考えられる。これは下流側に向かう程、流水の働き、つまり河川水と碎屑粒子及び鉱物とが接触し続ける (碎屑粒子の浸食・運搬作用) ことによる物理化学的な相互反応に伴う溶出効果が働くためであり、河川堆積物の特に重金属含有量の連続的な低下が流域を通して認められたと考えられる。この結果は、島根県斐伊川水系 (松本, 2009) や関西の淀川, 大和川 (松本ほか, 2008), 愛知県の本曾川, 庄内川 (伊藤・松本, 2007), 関東の多摩川, 江戸川, 荒川, 鶴見川 (Watanabe and Matsumoto, 2008) 米国テキサス州の河川 (Matsumoto et al., 2010) においても予察的に示されていたものであるが、今回の研究対象河川

が上述考察のとおり、人的負荷作用の極めて低い河川であると考えられることから一般的な傾向と概ね結論づけられる。

また、加茂川では中流域に黒瀬ダムが位置し、その“せき止め効果”による重金属類や主要元素の変化も明らかになった。つまり、“せき止め効果”によりダムの前後にて含有量が高くなる元素は、Si及びKであり、含有量が低くなる元素はFe, Ti, Caである事が認められた。

【河川底質物の環境影響評価の標準化】

四万十川, 加茂川, 及び吉野川の河川底質物について、人為的影響による重金属類の高濃度分布域は抽出されず、自然状態に極めて近い化学的状态を表していると期待される。つまり、今回の河川底質物の上流から河口域に至る程、底質物の含有量は他の河川の環境影響を見積もる際の標準【スタンダード】として利用できる事が期待される。ただし、四国に分布する地質体は、西南日本内帯に分布する四万十帯や三波川帯に属するものである。それと同一、もしくは類似の地質体を流下する河川底質物の環境影響評価を行う際に用いる事ができると考えられる。つまり、関東平野を流れる河川 (例えば、多摩川や荒川) については適用可能である事が期待される。最終的には、河川底質物の指標値 (自然付加量/人的付加量) などとして、自然付加量部分の値として今回の四国河川の含有量を用い環境影響評価を行っていく。それらの見積もりや計算方法、また補正方法等については別報を予定している。

表2 加茂川、四万十川及び吉野川の底質物含有量分析結果

四万十川	距離 (km)	Cd (ppm)	CN (ppm)	Pb (ppm)	Cr (ppm)	As (ppm)	Hg (ppm)	加茂川							
								距離 (km)	Cd (ppm)	CN (ppm)	Pb (ppm)	Cr (ppm)	As (ppm)	Hg (ppm)	
SI01	5.35	< 1	< 0.5	14	49	5	0.24	KA01	3.95	< 1	< 0.5	2	92	6	0.06
SI02	24.45	< 1	< 0.5	16	41	5	0.15	KA02	5.38	< 1	< 0.5	4	106	4	0.12
SI03	40.80	< 1	< 0.5	14	41	5	0.12	KA03	8.28	< 1	< 0.5	2	95	4	0.05
SI04	58.85	< 1	< 0.5	13	32	4	0.12	KA04	12.68	< 1	< 0.5	2	104	7	< 0.05
SI05	80.20	< 1	< 0.5	15	44	5	0.14	KA05	15.30	< 1	< 0.5	6	93	3	0.07
SI06	97.25	< 1	< 0.5	13	37	5	0.14	KA06	21.46	< 1	< 0.5	8	108	1	0.05
SI07	127.55	< 1	< 0.5	13	35	4	0.15	KA07	24.38	< 1	< 0.5	5	95	3	0.07
SI08	138.55	< 1	< 0.5	15	48	5	0.15	KA08	25.78	< 1	< 0.5	2	144	4	< 0.05
SI09	148.95	< 1	< 0.5	12	55	5	0.13	KA09	27.95	< 1	< 0.5	1	158	6	< 0.05
SI10	155.85	< 1	< 0.5	12	43	5	0.11	KA10	29.33	< 1	< 0.5	2	141	14	< 0.05
SI11	164.15	< 1	< 0.5	11	90	5	0.11	KA11	31.11	< 1	< 0.5	2	108	5	< 0.05
SI12	168.95	< 1	< 0.5	11	48	5	0.10	KA12	33.40	< 1	< 0.5	< 1	72	4	< 0.05
SI13	175.40	< 1	< 0.5	8	37	5	0.09	吉野川	採取地点	Cd	CN	Pb	Cr	As	Hg
SI14	178.90	< 1	< 0.5	8	42	5	0.09	YS01	下流	—	—	7	129	< 1	< 0.05
								YS02	下流	—	—	6	124	1	< 0.05
								YS03	下流	—	—	6	79	1	< 0.05
								YS04	中流	—	—	8	125	1	< 0.05

表3 加茂川、四万十川及び吉野川の底質物溶出試験結果

四万十川	距離 (km)	Cd (mg/l)	CN (mg/l)	Pb (mg/l)	Cr <sup>6+</sup> (mg/l)	As (mg/l)	Hg (mg/l)	加茂川	距離 (km)	Cd (mg/l)	CN (mg/l)	Pb (mg/l)	Cr <sup>6+</sup> (mg/l)	As (mg/l)	Hg (mg/l)	
																採取地点
SI01	5.35	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	<0.001	<0.005	KA01	3.95	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	0.001	<0.005	
SI02	24.45	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	<0.001	<0.005	KA02	5.38	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	0.001	<0.005	
SI03	40.80	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	<0.001	<0.005	KA03	8.28	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	0.001	<0.005	
SI04	58.85	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	<0.001	<0.005	KA04	12.68	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	0.001	<0.005	
SI05	80.20	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	<0.001	<0.005	KA05	15.30	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	0.001	<0.005	
SI06	97.25	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	<0.001	<0.005	KA06	21.46	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	<0.001	<0.005	
SI07	127.55	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	0.001	<0.005	KA07	24.38	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	0.001	<0.005	
SI08	138.55	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	<0.001	<0.005	KA08	25.78	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	0.001	<0.005	
SI09	148.95	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	<0.001	<0.005	KA09	27.95	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	0.002	<0.005	
SI10	155.85	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	<0.001	<0.005	KA10	29.33	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	0.001	<0.005	
SI11	164.15	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	<0.001	<0.005	KA11	31.11	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	0.002	<0.005	
SI12	168.95	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	<0.001	<0.005	KA12	33.40	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	0.002	<0.005	
SI13	175.40	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	0.002	<0.005	吉野川	採取地点	Cd	CN	Pb	Cr <sup>6+</sup>	As	Hg	
SI14	178.90	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	0.001	<0.005		YS01	下流	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	0.001	<0.005
									YS02	下流	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	0.001	<0.005
									YS03	下流	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	<0.001	<0.005
								YS04	中流	<0.001	<0.1	<0.005	<0.02	<0.001	<0.005	

表4 加茂川及び四万十川の主成分及び微量成分分析結果

四万十川	距離 (km)	SiO <sub>2</sub>	TiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	MnO	MgO	CaO	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	Rb	Sr	Cr	Ni	V	Y	Zr	Nb	Zn	Cu
		(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(ppm)								
SI01	5.35	73.06	0.61	13.05	5.41	0.14	1.36	0.87	1.02	2.71	0.09	108	134	64	45	87	22	132	13	89	26
SI02	24.45	73.69	0.52	13.38	4.88	0.08	1.26	0.46	1.22	2.78	0.06	104	121	54	38	75	21	128	11	66	24
SI03	40.80	73.98	0.49	13.29	4.79	0.08	1.21	0.44	1.38	2.73	0.06	102	120	50	37	76	21	143	11	62	24
SI04	58.85	76.35	0.43	12.08	4.41	0.07	1.02	0.37	1.28	2.43	0.06	94	99	43	33	60	20	118	10	66	23
SI05	80.20	74.97	0.46	12.95	4.46	0.06	1.01	0.38	1.20	2.73	0.05	105	100	46	32	64	22	134	11	62	22
SI06	97.25	73.95	0.48	13.32	4.56	0.06	1.08	0.49	1.56	2.80	0.06	104	118	46	36	66	22	131	11	57	21
SI07	127.55	74.13	0.47	13.26	4.49	0.07	1.08	0.51	1.70	2.70	0.06	101	126	41	35	68	22	129	11	57	23
SI08	138.55	73.40	0.53	13.94	4.70	0.06	1.04	0.47	1.37	2.96	0.06	112	112	53	35	71	24	167	12	61	19
SI09	148.95	75.44	0.47	12.59	4.32	0.06	1.06	0.51	1.58	2.53	0.06	94	123	49	38	64	20	126	10	59	19
SI10	155.85	75.41	0.46	12.48	4.43	0.06	1.08	0.50	1.63	2.46	0.06	93	120	53	39	64	20	128	10	54	18
SI11	164.15	76.09	0.46	11.98	4.29	0.06	1.05	0.54	1.61	2.34	0.06	87	123	72	37	61	19	129	10	53	17
SI12	168.95	76.69	0.44	11.64	4.17	0.06	1.05	0.53	1.60	2.25	0.06	84	122	64	39	60	19	127	10	49	16
SI13	175.40	78.73	0.40	10.02	3.84	0.05	1.03	0.59	1.90	1.78	0.06	66	125	43	38	52	15	101	9	48	14
SI14	178.90	78.89	0.37	10.18	2.67	0.05	1.00	0.49	1.83	1.89	0.05	70	122	44	37	54	15	104	9	42	12
加茂川	距離 (km)	SiO <sub>2</sub>	TiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	MnO	MgO	CaO	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	Rb	Sr	Cr	Ni	V	Y	Zr	Nb	Zn	Cu
		(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(ppm)								
KA01	3.95	60.08	1.19	11.82	5.23	0.17	5.51	6.16	3.36	1.06	0.11	13	127	—	60	249	43	97	4	—	—
KA02	5.38	61.14	1.16	12.78	4.92	0.16	4.74	5.25	3.34	1.25	0.12	30	122	—	51	223	44	105	2	—	—
KA03	8.28	58.29	1.30	11.74	6.10	0.18	4.53	6.15	2.86	0.89	0.14	12	143	—	52	258	50	97	<1	—	—
KA04	12.68	60.96	1.26	11.27	6.46	0.18	4.02	6.01	2.92	1.08	0.14	14	147	—	46	227	48	94	<1	—	—
KA05	15.30	66.30	0.82	12.52	3.68	0.14	2.52	3.31	2.76	1.71	0.11	41	119	—	48	152	42	113	4	—	—
KA06	21.46	74.61	0.52	11.48	2.01	0.10	1.32	0.52	2.77	2.18	0.07	96	103	—	24	71	25	118	5	—	—
KA07	24.38	63.56	0.93	12.33	3.65	0.12	2.93	4.35	2.87	1.43	0.11	38	131	—	40	171	45	102	3	—	—
KA08	25.78	54.98	1.27	14.03	4.91	0.16	4.72	7.65	3.36	0.99	0.14	8	161	—	56	247	60	97	1	—	—
KA09	27.95	60.92	1.10	11.74	4.22	0.15	4.35	5.99	3.07	0.96	0.12	20	225	—	54	216	43	75	<1	—	—
KA10	29.33	66.66	0.87	11.33	2.76	0.13	3.46	4.30	3.00	1.08	0.10	16	115	—	48	164	35	83	2	—	—
KA11	31.11	63.78	0.95	12.14	3.39	0.14	3.80	4.86	3.21	1.16	0.11	9	129	—	52	193	39	82	4	—	—
KA12	33.40	70.49	0.72	10.80	2.51	0.10	2.54	3.79	3.04	1.05	0.10	12	120	—	38	156	32	74	3	—	—

\*) 加茂川についてのCr, Zn, 及びCuについては未実施

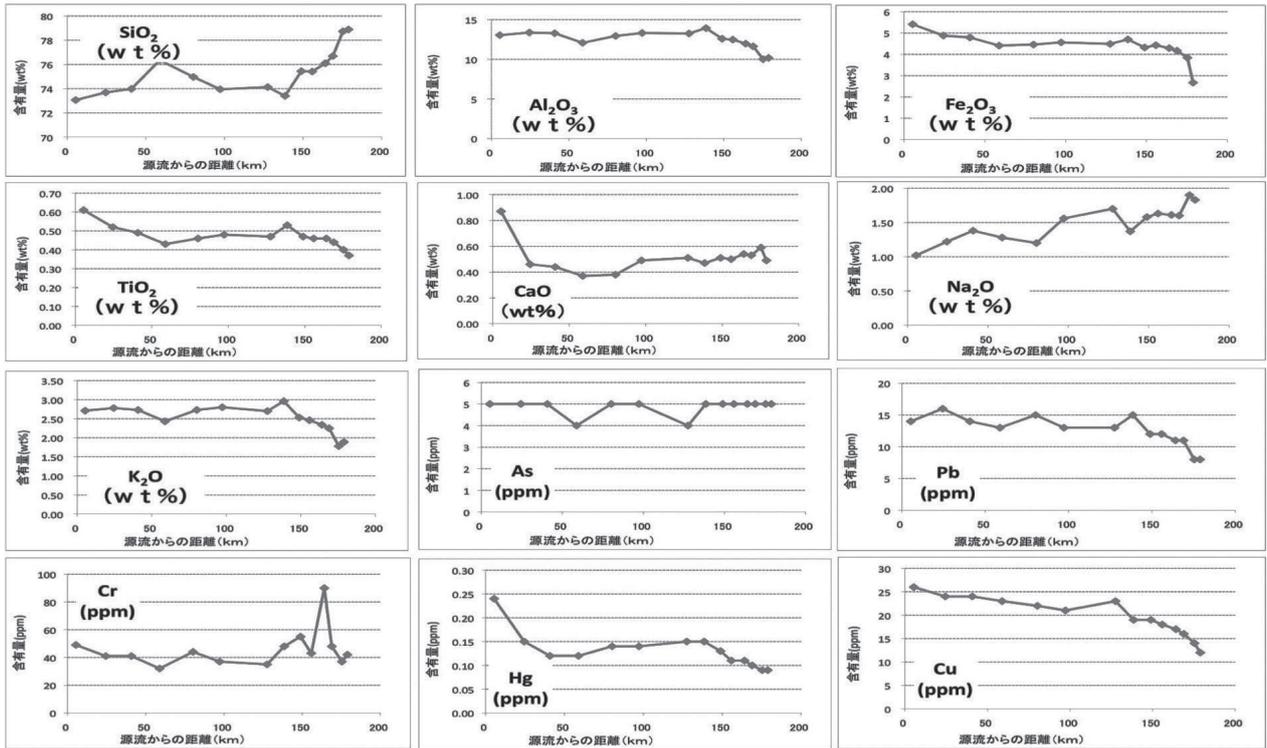


図2 四万十川底質物の主な主成分、微量成分、及び重金属含有量の変化

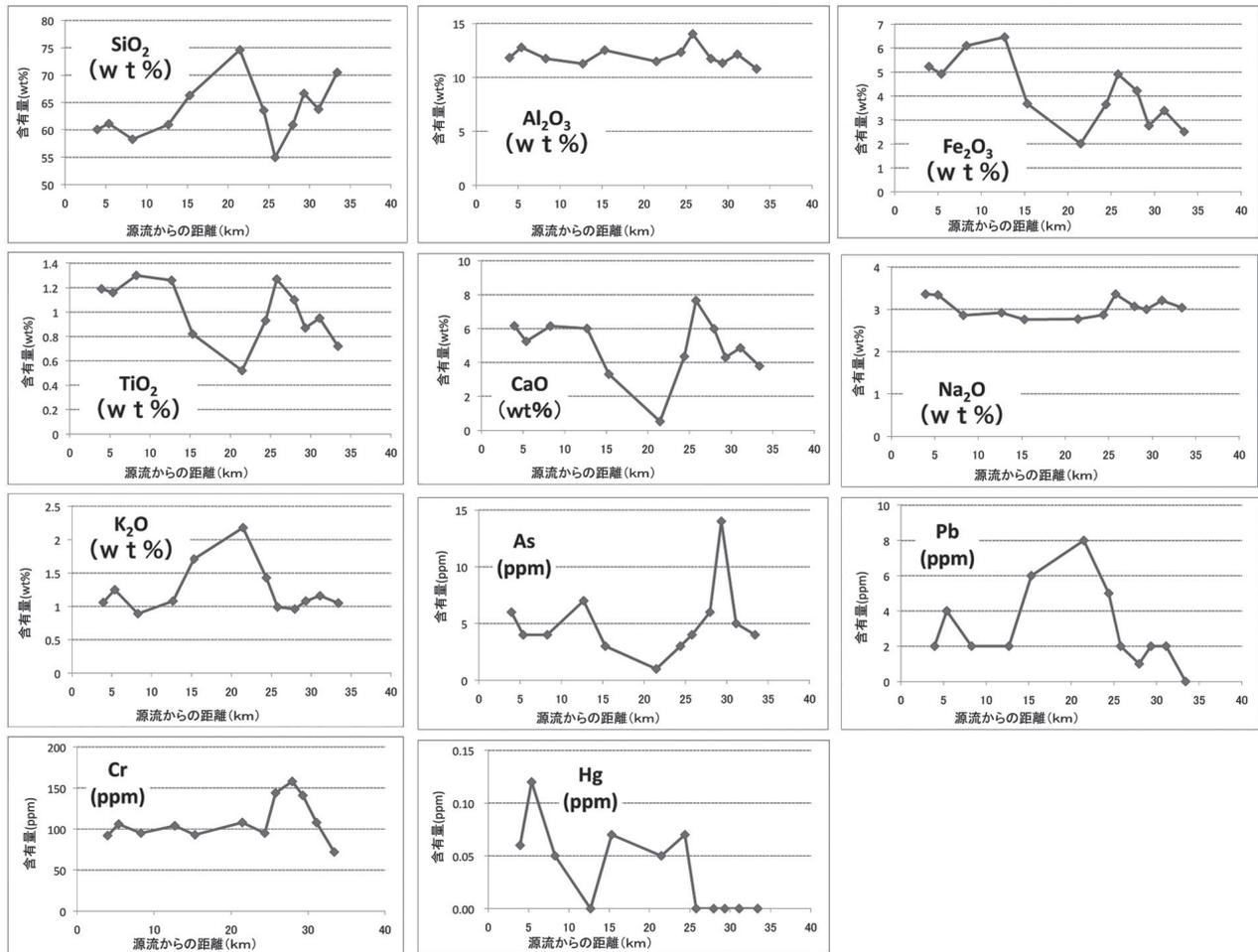


図3 加茂川底質物の主な主成分、微量成分、及び重金属含有量の変化

## V. まとめ

四国地方を流れる四万十川，加茂川及び吉野川の底質物の環境地球化学的研究を行った結果，以下の事が明らかとなった。

- (1) いずれの河川についても重金属類に関して人的負荷作用を認めることはできず，自然状態に近い河川底質であることが示された。
- (2) 重金属については，特にPb, Cu, Hgについては上流ほど含有量が高く，下流程低くなる傾向が認められた。これは，碎屑粒子及び碎屑鉱物が，上流側ではより源岩である地質の化学的特徴を維持・反映している事が原因として考えられる。つまり河川水と碎屑粒子及び鉱物とが接触し続ける（碎屑粒子の浸食・運搬作用）ことによる溶出効果が働くためであり，河川堆積物の特に重金属含有量の連続的な低下が認められた。
- (3) 四万十川，加茂川，及び吉野川の河川底質について，人為的影響による重金属類の高濃度分布域は抽出されない事から，四国地方に分布する地質体と同様の地質状況（例えば関東平野）を流下する河川の環境影響を見積もる際の標準【スタンダード】として利用できる事が期待される。最終的には，河川底質の指標値（自然付加量／人的付加量）として，今回の四国河川の含有量を用いた環境影響評価を行っていく事が可能である。

## 謝 辞

本研究を進めるにあたり，元鳥根大学総合理工学部の澤田順弘先生には全岩化学分析を行うにあたりご支援を頂いた。鳥根大学自然環境教育講座の皆様には有益なご意見・ご討論とともに励ましを頂いた。また河川底質物の化学組成の流域変化についてはTexas A&M大学機構のProf. Dennis Hoffman, Dr. June Wolfe, Mr. Jason MacAlisterから有益なご意見・ご討論を頂いた。以上の皆様に深くお礼申し上げます。

## 参考文献

- 安藤良・成瀬洋児・土山ふみ・松井義雄 (1984) 都市河川底質の粒度組成と重金属分布について。名古屋市公害研究所報, 14, 51-57.
- De Groot A. J., De Goeij J. J. M. and Zegers C. (1971) : Contents and behaviour of mercury as compared with other heavy metals in sediments from the Rhine and Ems. *Geol. Mijnbouw*, 50: 393-398.
- 今井 登 (2001): 世界各国および中国地方の地球化学図, 地質ニュース, 558, 1-1.
- 今井 登, 寺島 滋, 岡井貴司, 金井 豊, 御子柴真澄, 太田充恒, 上岡 晃, 富樫茂子, 松久幸敬, 谷口政碩, 横田節哉 (2001): 中国地方の地球化学図, 地質ニュー

ス, 560, 46-47

- 石賀裕明, 道前香織里, アーメッドファルキ, ハワビビ, 海田学 (2003) : Zn - Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>判別図から堆積環境を評価する. 鳥根大学地球資源環境学研究報告, 22, 15-20.
- 伊藤麻由佳 (2009MS) : 河川底質物を用いた環境影響評価. 鳥根大学大学院教育学研究科修士論文. pp222-.
- 伊藤麻由佳, 松本一郎 (2007) : 河川底質物の地質学的・地球化学的研究 -中部地方木曾川と庄内川の比較-. 鳥根大学教育学部紀要 (自然科学), 41, 179-189.
- Ito M. and Matsumoto I. (2008) : Heavy metal concentration of river sediment in the light of the environmental quality standard value at the Kiso and Syounai Rivers in Nagoya, Japan. *Goldschmidt 2008 (Vancouver, CANADA)*
- 環境省 (2002) : 土壌汚染対策法. 法番号53, 2002.
- 多田 史, 富重久美子, 谷原崇生, 横山功一, 鈴木静夫 (1974) : 河川底質土の重金属分布 (第Ⅱ報) -宮城県細倉鉾山排水が鉛川, 迫川の底質土に及ぼす影響-. *陸水学雑誌*, 35, 99-109.
- 多田 史, 鈴木潤三, 鈴木静夫 (1984) : 都市河川底質中の重金属分布の特性. *陸水学雑誌*, 45, 4 : 296-303.
- 松本一郎, 越智章光, 今野宏秀 (2002) : 関東・鶴見川底質物の地質学的特徴-予察的研究-. 資源地質学会第52回年間講演会 (東京).
- 松本一郎 (2003) : 土壌汚染の効果的調査法. 2003年度資源・素材関連学協会年会 (宇部).
- 松本一郎 (2009) : 斐伊川及び飯梨川堆積物の重金属含有量からみた流域の地球化学的特徴, *LAGUNA*, Vol. 16, 53-62.
- Matsumoto I. (2007) : Heavy metal concentrations of Hii River basin system Shimane Prefecture, Japan. *Abstract of International Symposium Restoration and Sustainability of Estuaries and Coastal Lagoons* : 104-107.
- Matsumoto I., Hofman D., MacAlister J. and Ishiga H. (2008a) : Impact of human population on heavy metal concentration of stream sediments in the Trinity River, Texas, USA. *Goldschmidt 2008 (Vancouver, CANADA)*.
- Matsumoto I., Hofman D., MacAlister J. and Ishiga H. (2008b) : Geochemical characteristics of Heavy metals of river sediment from the main rivers at Texas, USA. *AGU Fall Meeting 2008 (San Francisco, USA)*
- Matsumoto I., Hoffman D., MacAlister J., Wolfe J. and Ishiga H. (2009) : Comparative study of heavy metals concentration of stream sediments on major rivers of Texas, USA and several rivers of Japan. *Goldschmidt 2009 (Davos, Switzerland)*.
- Matsumoto I., Hoffman D., MacAlister J., Wolfe J.

- and Ishiga H. (2010) : Heavy Metal Sediment Concentration Patterns within the Texas River System, USA and Hii River System, Japan. Goldschmidt 2010 (Knoxville, Tennessee, USA).
- Matsumoto I., Hoffman D., McAlister J., Wolfe J. and Ishiga H. (2010) : Heavy metal sediment concentration patterns within the Trinity River, Texas. TEXAS Journal of Sciences. (In press)
- 溝渕膺彦・市村國俊・池田憲広・笠野光夫・兔本文昭・田中 健・板野龍光 (1980) : 粒径別による河川底質中の重金属の挙動. 全国公害研会誌, 5, 81-86.
- 越智章光 (2003) : 河川底質物の地質学的・地球化学的变化－関東鶴見川と四国加茂川の比較－. 島根大学教育学部卒業論文. pp111.
- Ortiz E. and Roser B.P. (2004) : Major and trace element abundances in <180 and 180-2000  $\mu$  m fractions of stream sediments from the Hii River, Shimane Prefecture, Japan. Geoscience Rept. Shimane Univ., 24, 53-58.
- 妹尾和美 (2007) : 河川底質物の地質学的・地球化学的研究－中国地方江の川と四国地方四万十川の比較－. 島根大学教育学部卒業論文. pp237.
- 柴原真理子・山崎理恵子・西田和夫・鈴木潤三・鈴木静夫・西田英郎・多田 史 (1975) : 河川底質土の重金属分布 (第3報)－全国主要河川の河口付近の底質土の重金属分布－. 衛生化学. 21, 173-182.
- 多田 史・富重久美子・谷原崇生・横山功一・鈴木静夫 (1974) : 河川底質土の重金属分布 (第II報)－宮城県細倉鉦山排水が鉛川, 迫川の底質土に及ぼす影響－. 陸水学雑誌. 35, 99-109.
- 多田 史・鈴木潤三・鈴木静夫 (1984) : 都市河川底質中の重金属分布の特性. 陸水学雑誌. 45, 296-303.
- 渡部久美子 (2005) : 河川底質物への自然および人為的影響の評価法. 島根大学大学院教育学研究科修士論文. pp237.
- Watanabe K., Ochi A. and Matsumoto I. (2005) : Characteristics of river sediment in the light of the environmental quality standard value of Japan -A case study at the Tama, the Tsurumi, the Hino and the Kamo rivers in Japan-. 15th Annual meeting, Goldschmidt 2005 (Idaho, USA)
- Watanabe K. and Matsumoto I. (2008) : Heavy metal concentration of river sediment in the light of the environmental quality standard value of Japan from the river in and around the Tokyo Japan - A case study at the Tama, Tsurumi, Edo and Ara rivers - AGU Fall Meeting 2008, San Francisco, 12. 20.