

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

松本一郎¹

Geochemical characteristics of heavy metals of river sediment from the Hii and Inashi River basins, Shimane prefecture, southwest Japan

Ichiro Matsumoto¹

Abstract: Heavy metal concentrations within Hii and Inashi River sediments were measured uniformly from its headwaters to the coast. Sediment samples were collected at 35 locations along the rivers and lakes course and analyzed for: As, Cd, Cr, Cu, Hg, Ni, Pb, and Zn. Results show a very little influence of human impact upon heavy metal concentrations in river and lake sediments. There is a natural decrease in river sediment-bound heavy metal concentration, due to interaction effect between sediment fragment and river water. And there is a natural increase in lake sediment-bound heavy metal concentration by basin effect that is differentiation by gravity.

Key words: heavy metal, bottom sediment, environmental standard value, Hii River system,

はじめに

大都市周辺を中心として、主に流域の河口域では土壌や堆積物の汚染が 1970 年代後半頃から特に顕在化してきた。人や生態系に影響を与える物質による土壌汚染事例の著しい増加に対して、人類への健康被害の観点から、土壌汚染対策法（環境省、2002）が成立・施行された経緯がある。土壌や堆積物の汚染は、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である。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、本論でも議論する「土壌（や堆積物）」にかかわる汚染のみが統一的な法的規制がなく、わずかに農作物の生産保護の目的に限定されて運用されていた経緯がある。特に 1980 年代以降は、

日本経済の発展に伴う、工場の移転や売買などの再開発事業の増加により重金属類や揮発性有機化合物等の土壌汚染や地下水汚染が日本各地から報告、明らかにされてきたのである。勿論、土地の売買による観点からの土壌汚染対策法では、所有者のある「土地」が対象であり、地表面下の「土壌」の化学組成（含有量及び溶出値）が問題とされる。それに対して公共用地である河川域に堆積する堆積物には、現在、対象となる法的な基準値（含有量及び溶出量）が設定されていない。しかし、主に大都市河口域では、平野の地形的・地質的な形成が基本的に河川堆積物によるものである事から、バックグラウンド値の推定・設定のためには同堆積物の化学的な特徴の記載が重要となる。そのため、ここでは含有量について、「土壌環境基準値」（環境省、2002）を河川堆

¹ 島根大学教育学部 Faculty of Education, Shimane University, 690-8504

積物の一つの目安として議論を行う。また、溶出値については、「水底土砂に係わる判定基準」(総理府, 1973)を参考にする。

なお、同様な観点も手伝って、近年では地球化学図の作製も盛んに行われている(例えば、今井, 2001; 今井ほか, 2001; 太田ほか, 2002; 2003)。また、丸茂ほか(2003)及び丸茂(2007)は、自然由来の重金属類の濃集にかかわる対象元素間の関係や、濃集プロセスについて地質的・地球化学的な見地から異なる地質ごとの特徴や傾向を記載している。また、石賀・道前(2002)、石賀ほか(2003)及び道前・石賀(2002)は河川堆積物の元素組成と流域の環境評価について、先駆的な議論を特にZnと Fe_2O_3 を用いて行っており、流域ごとの組成に違いが表れることを示した。

また、最近では、特に東京、大阪、名古屋という大都市部を流下する河川を中心に、河川堆積物の重金属類に焦点をあて、人的作用と自然負荷量との定量的な判別・評価を目的とした研究も行われている(例えば、Watanabe et al., 2005; Watanabe and Matsumoto, 2008; 伊藤・松本, 2007; Ito and Matsumoto, 2008; Matsumoto, 2007; Matsumoto et al., 2008a; 2008b; 2009)。

今回、斐伊川及び飯梨川の河川堆積物の特に重金属の化学的特徴を記載するが、流域の環境管理という観点から重金属類の含有量変化と、宍道湖・中海

という2つの汽水域堆積盆における濃集効果の度合いを明らかにすることを目指した。本結果が、斐伊川水系の重金属類の含有量を用いた管理指標の一つとなることと合わせて、大都市部流域での土壌や堆積物の重金属含有量の人的及び自然的な付加割合の議論をする際(例えば、松本, 2003)の参考資料となることを期待する。また、宍道湖・中海に代表される河川や汽水域の利用や保全については、多角的な見地から様々な研究が行われている(例えば、高安ほか, 2001; 井内ほか, 1990; 徳岡, 1993; 徳岡ほか, 1993)。

なお、本研究は河川堆積物の特に重金属類の化学的特徴を土壌汚染対策法に基づく分析方法に準じ、その変化を上流から河口(境水道)にいたるまで連続的に記載した斐伊川・飯梨川では初めての報告である。

研究対象の流域と地質

斐伊川は、島根県奥出雲町と鳥取県日南町の県境に位置する標高1,142mの船通山を水源とする一級河川である(図1)。流路延長約153km、流域面積約2,070 km^2 であり、日本の代表的な天井川の一つである。また、斐伊川はその河口域に宍道湖と中海という連続汽水湖を有することが特徴の一つである。宍道湖と中海は、大橋川により連結しており、湖水は境水道を經由して日本海に至る。斐伊川流域に分布する地質は、上流から宍道湖に至る中流にかけては、大部分が古第三紀の花崗岩類と流紋岩質の火砕岩が占める(島根県地質図編集委員会, 1982)。また、宍道湖から中海の両岸にかけては、新第三紀の大森層、布志名層、松江層、及び第四紀の大根島玄武岩が分布している(例えば、鹿野ほか, 1994)。また、花崗岩類は、日本の中で最も帯磁率の高い磁鉄鉱系花崗岩類に属している(例えば、Ishihara, 1977)ことから、その初生的な地質・岩石特性を反映して斐伊川流域では、砂鉄による製鉄(たたら製鉄)が歴史的に行われてきた。その影響から、流域全域において、その堆積構成物中には約数cm~数mm程度の鉄滓がしばしば観察される。また、河川堆積物に存在する礫及び砂粒子の一部には第四紀アルカリ玄武岩が観察されるが、宍道湖以南から広島県境にかけて、しばしばストック状で小規模なアルカリ玄武岩が分布することから、それらを給源しているものと考えられる。

なお、宍道湖と中海を地形的に独立した盆地と

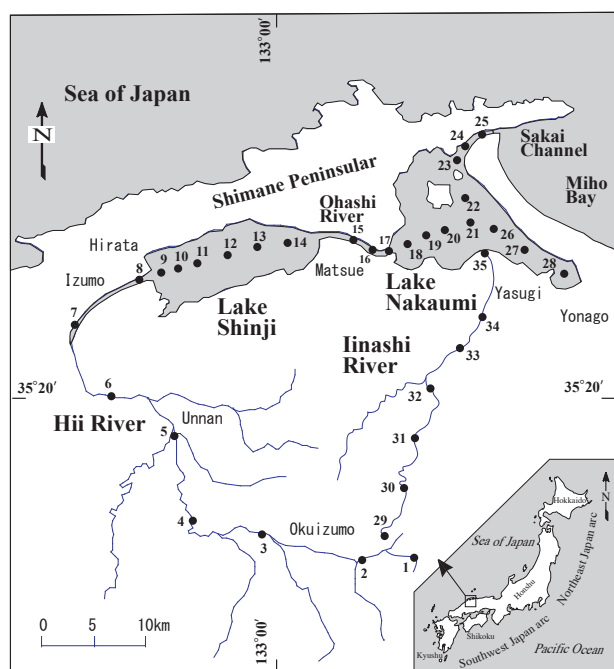


図1. 斐伊川及び飯梨川の試料採取位置図

Fig.1. Sample location map of Hii and Inashi River basins.

して成立させた地質的な要因として、およそ 1000 万年前の松江層中の玄武岩、玄武岩質安山岩、安山岩の活動（例えば、鹿野ほか，1994；坪田・松本，2007；Tsubota and Matsumoto, 2008）と、およそ 500 万年前の和久羅山デイサイトの活動（例えば、佐藤・松本，2008；Sato and Matsumoto, 2008）があり、主に大橋川から下流域にかけては、堆積物への同地質からの化学的な影響が考えられる。

飯梨川は、島根県安来市南部の標高 820 m の玉峰山を水源とする一級河川であり、流路延長約 40 km、流域面積約 208 km² であり中海に注ぐ（図 1）。流域の地質は斐伊川と同様に大部分が古第三紀の花崗岩類から構成され、少量ながら新第三系が分布する。また、流域の一部には小規模な分布ではあるが第四紀のアルカリ玄武岩が認められる。

堆積物の試料採取

堆積物試料の採取は、5 万分の 1 の地勢図を用い、斐伊川・飯梨川ともに上流から下流にかけて採取間隔が 2~5 km の間隔で、試料採取地点ができるだけ等間隔になるように行った。各々の試料採取地点のうち河川部分では、できるだけ泥質~砂質の堆積物を 3カ所で移植ごてを用いて採取し、四分法（円錐四分法）を用いて十分に縮分したものを、分析や試験に供するその地点での代表試料とした。これは、河川堆積物は湖沼や海域の堆積物とは異なり、河川水の流量や流速と地形的な関係から、堆積物が粒径分別されやすく、同一地点においても不均質な堆積環境を示すことが多いためである。つまり、採取地点においては河川堆積物の粒度を肉眼で観察、確認しながらほぼ、平均的な粒径となるように近接する 3カ所で試料を採取した。試料は、河川部分では、河床堆積部分の水面上露出部分にて採取し、また、宍道湖・中海では船上より、Ekman-Birge 型の採泥器を用いておよそ湖底から深度 10~15 cm 程度までの湖底表層部分を採取して試料とした。河川部分での試料採取にあたっては、堆積物表面の 1~2 cm を取り除き、それ以深の深度約 15 cm までを掘削し、深度方向に平均的に堆積物が入るように採取を行った。また、前述のとおり近接する 3カ所で同様の方法で採取した試料を混合して、その地点の代表試料とした。

斐伊川では 8 地点（試料名：HII01~HII08）、宍道湖では 6 地点（試料名：SH01~SH06）、大橋川では 3 地点（試料名：SH07~NS09）、中海では 11 地点（試

料名：SH10~SH20）、飯梨川では 7 地点（試料名：HII00~HII06）で試料採取を行った（図 1）。

堆積物の分析

堆積物の調査では、粒度分析が重要視されることが多い。これは、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；溝淵ほか 1980；安藤ほか，1984；Ortiz and Roser, 2005）であるが、「堆積物の汚染状況の把握」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。なお、河川堆積物についての詳細な粒度分析と含有量分析との対比・関係は Ito and Matsumoto (2008) が明らかにしているので、詳細な議論はそちらに譲るが、流域を通した重金属含有量の変化量の議論には、粒度の変化が与える影響が比較的小さいことが示されている。

採取した試料は、DOWA テクノリサーチにて土壤汚染対策法（公定法）に従い、堆積物中の重金属含有量分析及び溶出量試験を行った。また、微量成分の分析の一部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）を用いて行い分析値のクロスチェックを行った。

測定した元素を以下に記す。

同和テクノリサーチ

重金属の含有量分析：Cd, Pb, Cr, As, Hg, Ni,
Zn, Cu

重金属の溶出量試験：Cd, Pb, Cr⁶⁺, AsHg
島根大学

微量元素分析：Cr, As, Ni, Zn, Cu

結 果

今回分析した堆積物試料の含有量分析結果を表 1 に、溶出試験値を表 2 に示した。

河川や湖沼の堆積物については、前述したように定まった基準値が設けられていないのが現状ではあるが、含有量基準値については「土壤含有量基準値」（環境省，2002）を、溶出値については「水底土砂に係わる判定基準」（総理府，1973）を参考に、表 1 及び表 2 に合わせて示した。

分析結果からわかるとおり、今回採取分析した全ての試料において参考にした基準値を上回るものは

表 1. 斐伊川及び飯梨川の堆積物含有量分析結果

Table 1. The concentration value of some heavy metals from the Hii and Inashi River sediment, Shimane prefecture, Japan.

	location No.	Sample name	Pb (ppm)	Cr (ppm)	As (ppm)	Ni (ppm)	Zn (ppm)	Cu (ppm)
Hii river	1	HII01	19.7	38.3	4.4	5.9	61.9	6.3
	2	HII02	14.8	28.4	4.0	3.0	48.6	3.4
	3	HII03	15.1	24.2	2.9	2.4	32.0	3.3
	4	HII04	14.1	31.1	2.6	3.9	28.7	4.3
	5	HII05	12.7	28.2	2.4	3.5	15.1	2.7
	6	HII06	13.6	48.8	1.4	2.9	10.8	3.8
	7	HII07	13.9	37.6	2.6	5.9	23.5	2.8
	8	HII08	14.8	29.0	2.7	4.4	24.4	3.3
L. Shinji	9	NS1	7.1	14.1	1.4	4.1	55.0	6.0
	10	NS2	22.2	21.0	2.7	9.0	122.3	18.0
	11	NS3	39.0	40.0	4.0	15.2	134.0	30.1
	12	NS4	42.0	83.2	5.0	18.9	135.0	31.2
	13	NS5	34.1	33.8	6.0	15.0	98.5	28.3
	14	NS6	27.0	15.0	6.1	17.0	104.5	23.0
Ohashi river	15	NS7	13.8	41.0	6.0	18.0	125.0	19.2
	16	NS8	13.0	22.2	2.6	8.2	70.5	12.9
	17	NS9	2.0	5.0	1.4	<1	15.0	2.0
L. Nakaumi	18	NS10	35.0	52.3	7.0	19.9	165.0	40.2
	19	NS11	41.1	56.2	8.0	20.0	164.3	44.3
	20	NS12	41.0	59.1	10.1	19.8	160.0	44.2
	21	NS13	34.0	57.8	10.3	19.0	134.0	39.0
	22	NS17	11.3	34.0	4.0	10.2	74.4	20.1
	(Sakai channel)	23	NS18	11.2	20.0	4.0	5.0	35.0
(Yonago port)	24	NS19	7.8	16.0	5.1	5.1	34.5	9.3
	25	NS20	14.1	17.2	3.9	6.0	55.3	30.9
Inashi river	26	NS14	39.0	67.0	9.2	24.0	134.0	41.1
	27	NS15	34.2	60.1	7.0	21.1	140.0	32.0
	28	NS16	34.1	49.9	8.0	19.0	150.0	41.2
	29	II00	19.3	18.8	3.1	4.7	16.8	2.2
	30	II01	16.1	21.2	2.6	5.6	34.9	4.4
	31	II02	17.5	45.5	2.4	6.8	7.4	3.1
	32	II03	18.3	26.1	4.5	5.3	29.3	3.9
	33	II04	15.5	37.5	2.4	4.7	6.3	1.0
	34	II05	15.3	29.4	1.9	4.6	2.2	<1
	35	II06	16.3	33.6	1.9	4.6	4.7	1.8
Quality standard value for soil of Japan			150	250	150	n.a.	n.a.	n.a.

認められなかった。つまり、斐伊川、飯梨川ともに、調査した堆積物中の重金属濃度や溶出値からは、人体や生態系に「土壌汚染対策法」が示すところの悪影響がない状態（自然状態に近い）であるといえる。ただし、溶出値については若干値の高い地点も認められ、将来に向けては、定期的な観測も必要であるかもしれない。

考 察

本研究では河川堆積物に対して重金属の含有量及び溶出値の「環境基準」という観点でのチェックとともに、流域全体を通じた環境管理という視点から、人的及び自然的な負荷割合のトレーサーとしての重金属の役割に重点をおいた。つまり、本研究では斐伊川及び飯梨川の上流から河口域までの重金属の含有量分布及び変化の状況を記載した。特に、斐伊川水系は河口域に比較的大きな連続する2つの汽水湖（宍道湖及び中海）をもつことが特徴であり、これら汽水湖における堆積物中の重金属元素の濃度や溶出値の詳細が明らかになったことは、地質学的

表 2. 斐伊川及び飯梨川の堆積物溶出試験結果

Table 2. The elution value of some heavy metals from the the Hii and Inashi River sediment, Shimane prefecture, Japan.

	location No.	Sample name	Cd (mg/l)	Pb (mg/l)	Cr ⁶⁺ (mg/l)	As (mg/l)	Hg (mg/l)
L. Shinji	9	NS1	< 0.001	< 0.005	< 0.02	< 0.001	< 0.0005
	10	NS2	< 0.001	< 0.005	< 0.02	0.001	< 0.0005
	11	NS3	0.010	< 0.005	< 0.02	0.001	< 0.0005
	12	NS4	< 0.001	< 0.005	< 0.02	0.003	< 0.0005
	13	NS5	0.034	0.044	< 0.02	0.008	< 0.0005
	14	NS6	< 0.001	< 0.005	< 0.02	0.001	< 0.0005
Ohashi river	15	NS7	< 0.001	< 0.005	< 0.02	0.001	< 0.0005
	16	NS8	< 0.001	< 0.005	< 0.02	0.002	< 0.0005
	17	NS9	< 0.001	< 0.005	< 0.02	0.001	< 0.0005
L. Nakaumi	18	NS10	< 0.001	< 0.005	< 0.02	0.003	< 0.0005
	19	NS11	0.045	0.029	< 0.02	0.011	< 0.0005
	20	NS12	0.004	< 0.005	< 0.02	0.007	< 0.0005
	21	NS13	< 0.001	< 0.005	< 0.02	0.009	< 0.0005
	22	NS17	< 0.001	< 0.005	< 0.02	0.008	< 0.0005
	(Sakai channel)	23	NS18	0.014	0.005	< 0.02	0.010
(Yonago port)	24	NS19	0.036	0.043	< 0.02	0.018	< 0.0005
	25	NS20	< 0.001	< 0.005	< 0.02	0.008	< 0.0005
Proposal limite value for bottom sediment of Japanese government	26	NS14	< 0.001	< 0.005	< 0.02	0.004	< 0.0005
	27	NS15	< 0.001	< 0.005	< 0.02	0.004	< 0.0005
	28	NS16	< 0.001	< 0.005	< 0.02	0.004	< 0.0005
Proposal limite value for bottom sediment of Japanese government			0.1	0.1	0.5	0.1	0.005

な堆積物における重金属類の挙動を考える上でも重要である。ここでは、斐伊川水系を、斐伊川-宍道湖-大橋川-中海系と飯梨川-中海系の便宜上2つの系に分けて重金属含有量や溶出値の特徴を調べた。それぞれの特徴は以下のとおりである。ただし、これら2つの系は、今回予察的・試行的に設定したものであり、それに基づき議論を行っている。つまり、今後解明される新たなデータや異なる見解と合わせて、さらに議論されるべきものである。

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いないのが現状である。

1) 斐伊川-宍道湖-大橋川-中海系の堆積物重金属の含有量変化

斐伊川-宍道湖-大橋川-中海系の堆積物重金属の含有量の変化を図2に示した。

Pb含有量は斐伊川では13~20ppmの範囲で変化し源流に近い地点1で最高の20ppmを示すが、その後流下に伴う含有量の変化は認められず安定していることがわかった。宍道湖に入るとPb含有量は7~42ppmの範囲で変化し、図2からもわかるとおり宍道湖の中心部ほど高い傾向が認められた。その後、大橋川では2~14ppmと斐伊川堆積物と類似した含有量を示す。中海に入ると11~35ppmの範囲で変化し宍道湖の場合と同様に、やはり湖心に近い地点で比較的高い含有量を示した。その後、境水

道に入ると Pb 含有量は 8~14 ppm と再び低くなる。このことから、宍道湖及び中海では、珪酸塩鉱物や碎屑塊状岩石片を主とする一般的な碎屑粒子に比べて、比重の重い方鉛鉱などの Pb 含有鉱物の単粒子、もしくは珪酸塩鉱物に包有物として存在する Pb 含有鉱物が、ストークスの法則による堆積分別作用を受け、湖中心部付近で若干の濃集作用を受けたものと考えられる。この結果は、井内ほか(1990)や徳岡ほか(1993)が示した元素ごとの宍道湖、中海の堆積物の平面的な濃度分布とも整合的である。また、東京湾やいくつかの河川河口付近でも同様に、河口からある程度離れた底質部分で重金属元素の濃度が高くなっている観察事実(例えば、柴原ほか, 1975)が報告されている。つまり、Pb 含有鉱物や碎屑粒子は細粒でも比重が大きいため、通常時には石英や長石などの珪酸塩鉱物粒子が運搬され河口域での流速の減速に伴い堆積するのに対して、運搬・堆積されにくい。一方、流速の速い降雨時には重金属を含む碎屑粒子は運搬され、比較的粒径の大きな碎屑粒子や珪酸塩鉱物とともに河口より離れた場所まで運搬され、やはり流速の低下とともに堆積すると考えられる。つまり、流速、粒径、及び比重によるストークスの法則に従う分別効果により、中粒の

砂を中心にした珪酸塩碎屑粒子は通常時には河口付近に、一方比重の大きい重金属含有粒子や粒径の大きい碎屑粒子は降雨時(流速の速い時)に運搬され、河口より離れた場所に堆積することが想定される。そのような分別堆積作用により、結果的に Pb を含む碎屑粒子は、宍道湖及び中海の中心部付近に堆積し、斐伊川、大橋川及び境水道の堆積物の約 2~3 倍程度の Pb 含有量を示すに至ったと考えられる。

Cr 含有量は河川全体を通して、含有量のばらつきが他の重金属元素に比べて大きい傾向がある。すなわち、斐伊川では 24~49 ppm の範囲で変化を示すが、宍道湖に入ってから湖心の 1 地点でやや高い 83 ppm を示した。その後、大橋川では 5~41 ppm とここでも比較的含有量にばらつきが認められた。一方、中海に入ると 34~59 ppm と比較的高い含有量を示し、境水道から日本海側にかけて含有量が低くなる傾向が認められた。以上、Cr の含有量の変化をみると、Pb 含有量程、顕著ではないが、宍道湖及び中海で若干の高含有量を示していることがわかる。この事は、Pb 含有量と同様な作用が Cr にも働いていることを示している。一方、含有量の流域を通したばらつきの原因であるが、Cr を主成分とする鉱物が自然界では唯一クロムスピネルのみ

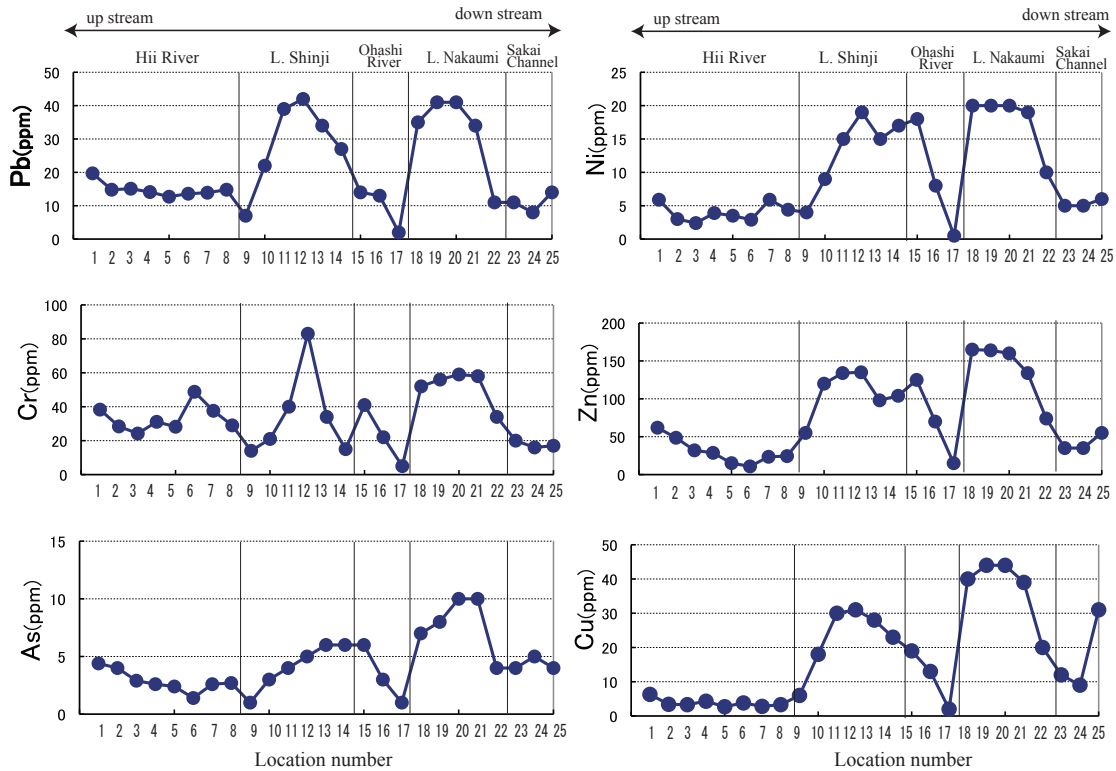


図 2. 斐伊川堆積物の主な重金属含有量の変化

Fig.2. Variation diagram for heavy metal content of sediment vs sample location point from Hii River.

であり、斐伊川流域にはクロムスピネルを含有する超苦鉄質の地質体が存在しない事に加えて、苦鉄質岩石の分布も少なく、流域を通したCrの濃度が比較的低い(今井ほか2001の地球化学図を参照)からだと考えられる。つまり、流域を通して希で不均質に分布する玄武岩などの苦鉄質地質体から河川へのCrの不均質な供給が河川堆積物中のCr含有量の不均質性に表れているものと考えられる。

As, Ni, Zn 及び Cu のそれぞれの含有量の流域を通した変化は、Pb 含有量と同様な傾向が認められた。すなわち、As, Ni, Zn 及び Cu のそれぞれの含有量は、斐伊川で、1~4 ppm (As), 2~6 ppm (Ni), 11~62 ppm (Zn), 3~6 ppm (Cu) と比較的低い含有量を示すのに対して、宍道湖に入るとそれぞれ、1~6 ppm (As), 4~19 ppm (Ni), 55~135 ppm (Zn), 6~30 ppm (Cu) と斐伊川堆積物の含有量の約2~4倍程度に濃集する。その後、大橋川では、1~6 ppm (As), <1~18 ppm (Ni), 15~125 ppm (Zn), 2~19 ppm (Cu) といずれも中海方面に向かって含有量は低下する。中海に入ると、それぞれ4~10 ppm (As), 10~20 ppm (Ni), 74~165 ppm (Zn), 20~44 ppm (Cu) と再び含有量の増加が認められた。その後、境水道から日本海に向かって含有量の低下が認められた。

ただし、Zn 及び Cu については日本海に最も近い地点にて若干ではあるが高い値を示すことがわかった。これら、As, Ni, Zn 及び Cu については、Pb 含有量と同様に、宍道湖及び中海では、重金属を含む鉱物や碎屑粒子がストークスの法則に従い選択的に堆積し、斐伊川、大橋川及び境水道の堆積物の約2~4倍程度の高い含有量を有するに至ったと考えられる。

また、自然状態での重要な記載として、Pb, As, 及び Zn 含有量に注目すると、比較的顕著に斐伊川の上流から宍道湖に流入するまでの間に含有量が徐々に低下していることがわかる(表1及び図2)。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に、河川堆積物の特に重金属含有量の連続的な低下が河川の上流側では認められたと考えられる。

なお、中流域から下流域にかけても本流に流入する支流部分では Pb, As, 及び Zn 含有量は比較的高いことが予想されるが、本流部分に合流すると希釈効果により低くなったものと推定される。

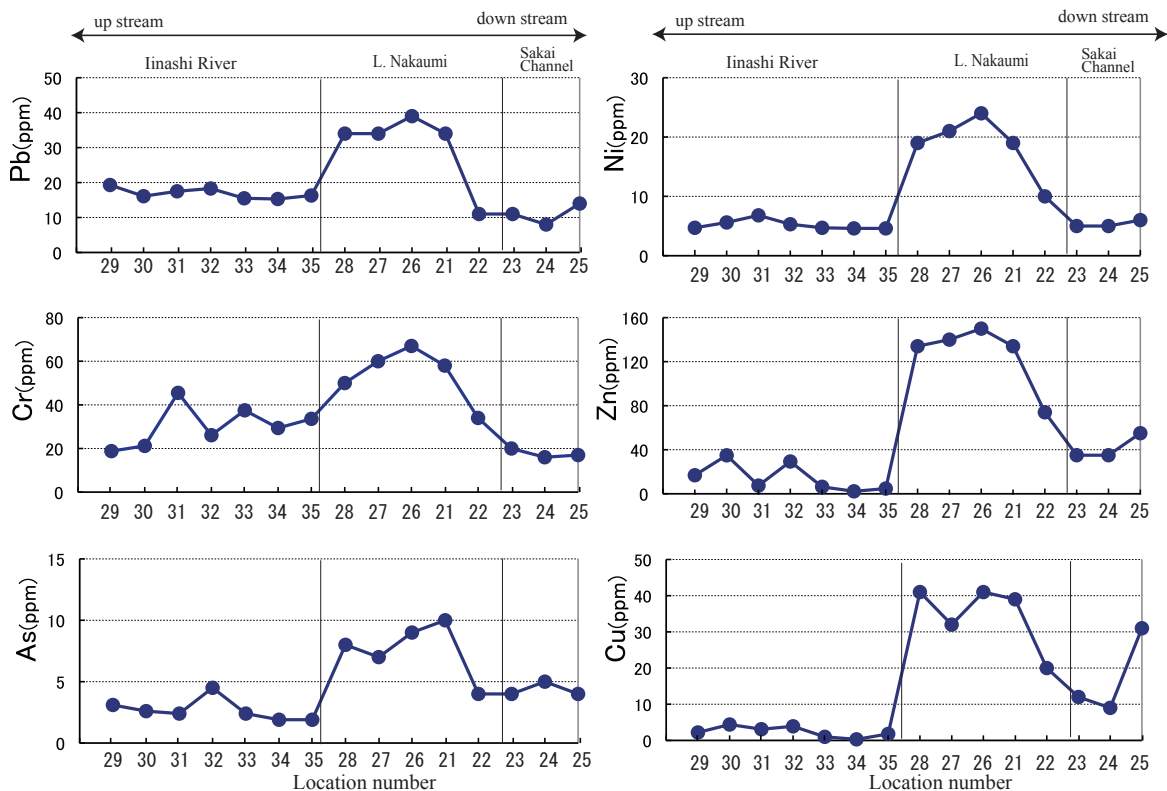


図3. 飯梨川堆積物の主な重金属含有量の変化

Fig.3. Variation diagram for heavy metal content of sediment vs sample location point from Iinashi River.

2) 飯梨川-中海系の堆積物重金属の含有量変化

飯梨川-中海系の堆積物重金属の含有量の変化を図3に示した。なお、中海については斐伊川-宍道湖-大橋川の影響が勿論大きな影響があると考えられるが、飯梨川からの重金属類含有量の連続性を検討するために「飯梨川-中海系」としての議論を試みた。ただし、飯梨川河口と米子港とは連続していない点に留意頂きたい。

Pb含有量は飯梨川では15~19 ppmの範囲で変化し、比較的一定の値を示していることがわかった。中海に入ると地点28、地点27、地点26の米子港から中海湖心付近にかけて34~39 ppmに上昇し、その後は境水道に向けて含有量の低下が認められる。境水道ではPb含有量は8~14 ppm程度を示す。なお、中海湖心付近の地点21以降の地点22、地点23、地点24、地点25は斐伊川-宍道湖-大橋川-中海系で用いた同試料(同分析結果)を用いて議論している。以上のように、飯梨川においてもその堆積物のPb含有量は斐伊川の場合と同程度の含有量を有していることがわかった。また、同様に中海湖心付近でPb含有量は高い値を示すが、宍道湖の場合と同様な理由、つまり流速、粒径及び比重の関係で、Pb含有鉱物及び碎屑粒子が湖心付近に堆積したためと考えられる。

Cr, As, Ni, Zn及びCuのそれぞれの含有量の飯梨川流域を通じた変化は、Pb含有量と同様な傾向が認められた。すなわち、Cr, As, Ni, Zn及びCuのそれぞれの含有量は、飯梨川で、19~46 ppm (Cr), 2~5 ppm (As), 5~7 ppm (Ni), 2~35 ppm (Zn), <1~4 ppm (Cu)と比較的低い含有量を示すのに対して、中海に入るとそれぞれ、16~67 ppm (Cr), 4~10 ppm (As), 5~24 ppm (Ni), 35~165 ppm (Zn), 9~44 ppm (Cu)と飯梨川堆積物の含有量の約2~8倍程度に濃集する。これらの含有量の変化は、概ね斐伊川~宍道湖にかけての状況と同様であり、重金属を含む鉱物や碎屑粒子がストークスの法則に従い選択的に湖心付近に堆積することで、飯梨川及び境水道の堆積物の約2~4倍程度の高い含有量を有するに至ったと考えられる。

なお、Pb, As及びZn含有量についてみると、斐伊川のものと比較して、飯梨川では同元素の堆積物中の含有量が、下流域へ向かって連続する低下が認められないか、顕著ではなかった。また、飯梨川におけるこれらの重金属元素の平均値は斐伊川の河川部分とほぼ同程度である。これらの両河川の含有量や含有量変化の特徴の違いや共通性は両河川の上流

域の地形や地質の違いに起因するものかもしれない。つまり、飯梨川の上流域は、斐伊川の場合と異なり比較的大きな溪谷や浸食地形が少なく、また、流域の長さも短い。それらの事から、碎屑粒子が河川水との間で物理化学的な相互反応を行う時間や効果が、比較的小さかった事が考えられる。加えて、斐伊川上流域には磁鉄鉱を多く含み不均質な岩相を呈する大東-横田花崗閃緑岩が分布するが、飯梨川上流の花崗岩類は、比較的均質で優白色であるという地質的な違いがあり、それらも、斐伊川と飯梨川の堆積物の含有量の化学的な特徴を反映している可能性がある。

3) 宍道湖~中海の堆積物の溶出量

宍道湖-大橋川-中海(米子港、境水道を含む)にいたる堆積物試料について行った溶出試験の値を表2に示した。前述のとおり、溶出値については「水底土砂に係わる判定基準」(総理府, 1973)を参考にしたが、同値を超過するような、人体や環境に対する重大な負荷を与える可能性のある状況は確認されなかった。表2からも明らかなように、ほとんどの地点において分析の検出限界値以下か、もしくはその値に近いことが示された。なお、宍道湖では地点11及び地点13、中海では地点19、地点23、地点24において若干高い溶出値を認めた。

4) 斐伊川及び飯梨川の堆積物環境評価

斐伊川、飯梨川、宍道湖、大橋川、中海の堆積物の重金属の含有量・溶出量結果から、次の3点につき、環境影響評価を行った。

4-1) 河川堆積物においては連続する試料採取地点間において比較的連続した含有量の変化(増減)が認められるとともに、土壤汚染対策法(環境省, 2002)の基準値を上回る試料の存在は確認されなかった。さらに、連続する試料採取地点間において、突出し、かつ急激な高含有量を示す地点は認められず、東京、大阪及び名古屋などの大都市部を流下する河川で認められたような顕著で明らかな人為的影響(例えば、伊藤・松本, 2007; 松本ほか, 2008; Watanabe and Matsumoto, 2008; 渡部・松本, 2009)は認められなかった。顕著な人為的影響とは、連続する堆積物試料地点間において、重金属含有量が急激な濃度の上昇や減少(例えば多摩川など(Watanabe and Matsumoto, 2008))が認められたり、連続して環境基準値を超える地点が認められたりする場合(例えば庄内川(伊藤・松本, 2007))を示す。つまり、

斐伊川及び飯梨川では、連続する堆積物試料間において急激な含有量や溶出値の上昇が認められない点、及び環境基準値を超えていない点に加えて、流域に今回調べた重金属類を顕著に排出する鉱山や工場などが存在しない事などから、流域の堆積物中の重金属類の含有量と溶出値は、自然状態に近いものを記載したといえる。

4-2) 宍道湖、及び中海部分では、湖心付近に向かって緩やかな重金属元素の含有量の上昇が認められた。これも、環境基準値を超えるものではなく、また連続する採取地点間においての急激な増減や、ある元素のみの突出値(異常値)も検出されない事から、人為的なこれらの重金属元素の負荷影響はあっても極めて小さいものと判断できる。

ま と め

斐伊川及び飯梨川水系の堆積物の重金属含有量及び溶出量を調べた結果、以下の事が明らかとなった。また、重金属元素の主に濃度分布の要因についての一可能性について議論を行った。詳細は下記に示すとおりである。

1) 全ての河川及び湖の堆積物試料の重金属含有量において、土壤汚染対策法(環境省, 2002)で定められた基準値を超過するものは認められず、重金属類の自然状態を反映した健全な河川堆積物であることがわかった。

2) 宍道湖及び中海では、流速の減退や盆地状の地形特性に起因して重金属類を含む鉱物や碎屑粒子が、選択的に堆積し、流入河川の堆積物重金属含有量の2~4倍程度の濃縮効果を認めた。これは、今後の他の汽水域における堆積物重金属含有量の研究、及び環境評価を行う上で重要な記載である。

3) 斐伊川の上流域では、特に堆積物のPb, As, 及びZn含有量が源流から離れるに従い減少する傾向が認められた。これは、日本の関東、関西、及び中部地方のいくつかの河川でも同様な傾向が報告されており、碎屑粒子が河川水により浸食作用及び運搬作用を被る過程で、溶出作用を受けて含有量が下流側に向かって連続して低下する傾向を捉えたものである。

4) 以上、斐伊川、飯梨川、宍道湖、大橋川、中海における堆積物の重金属含有量の変化を明らかにしたが、今後はこの結果を用いた同流域における環境管理(特に、工業や諸産業に対する監視や測定)、また都市部の河川領域においては斐伊川・飯梨川の

含有量、含有量変化及び湖部分での濃集効果などを非都市型河川のスタンダードとして広く活用されることが期待される。

謝 辞

本研究は、島根大学の重点領域研究プロジェクトとして行っている研究の一環として、平成20年度から実施しているプロジェクト名「地域資源循環型社会の構築」のうち、武田育郎、森也寸志、松本一郎、宗村広昭で行っている「流域管理統合グループ」の成果の一部を報告するものである。プロジェクトのリーダーである島根大学の野中資博教授をはじめ、総合理工学部の石賀裕明教授、テキサスA&M大学機構ブラックランドリサーチセンターのDennis Hoffman博士、June Wolfe博士、Jason MacAlister氏には有益な議論とともに、様々な援助を頂いた。また、元島根大学教育学部の伊藤麻由佳氏、妹尾和美氏には河川堆積物の試料採取に協力いただいた。宍道湖、大橋川、中海の試料採取にあたっては、元島根大学教育学部の江原亮氏、渡部久美子氏の協力を頂いた。島根大学総合理工学部の澤田順弘先生、及び亀井淳志先生には全岩化学分析を行うにあたりご支援を頂いた。また、著名の査読者には有益なコメントとアドバイスを頂いた。以上の皆様に厚くお礼申し上げます。

引用文献

- 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 Goeiji, 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.
- 道前香織里・石賀裕明(2002) 堆積物の元素組成から見た球磨川, 川辺川流域の環境評価. 島根大学地球資源環境学研究報告, 21, 17-29.
- 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(2002) 九州球磨川, 川辺川

- の堆積物の組成から見た環境評価. 地球惑星科学関連学会 2002 年合同大会, 地質ハザード・地質環境 Y028-008.
- 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-Fe₂O₃ 判別図から堆積環境を評価する. 島根大学地球資源環境学研究報告, 22, 15-20.
- Ishihara, S. (1977) The magnetite-series and ilmenite-series granitic rocks. *Mining Geology*, 27, 293-305.
- 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 - 島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)*, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, Vol. 72, Issue 12, p. A415.
- 井内美郎・徳岡隆夫・高安克己・安間 恵・牧野泰彦・楡井久 編 (1990) 湖沼の成因と環境・地質. 地質学論集, 36, pp 262.
- 鹿野和彦・山内靖喜・高安克己・松浦浩久・豊 遙秋 (1994) 松江地域の地質. 地域地質研究報告, 1-69.
- 環境省 (2002) 土壤汚染対策法. 法番号 53, 2002.
- 松本一郎 (2003) 土壤汚染の効果的調査法. 2003 年度資源・素材関連学協会年会 (字部), Vol. C/D, 153-156.
- 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.
- 松本一郎・小松真理子・亀井淳志 (2008) 河川底質物からみた流域の地球化学的環境影響評価 - 近畿地方淀川と大和川の例 -. 島根大学教育学部紀要 (自然科学), 42, 97-105.
- Matsumoto, I., Hoffman, 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)*, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, Vol. 72, Issue 12, p. A604.
- Matsumoto, I., Hoffman, 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)*, Abstract #GC43B-0727.
- 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)*, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, Vol. 73, Issue 13, p. A847.
- 丸茂克美 (2007) 自然由来の重金属に起因する土壤汚染問題への地球科学的アプローチ. 地学雑誌, 116, 877-891.
- 丸茂克美・江橋俊臣・氏家 亨 (2003) 日本各地の土壤中の重金属含有量と鉛同位体組成. *資源地質*, 53, 125-146.
- 溝渕鷹彦・市村國俊・池田憲広・笠野光夫・兎本文昭・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.
- 太田充恒・今井 登・岡井貴司・遠藤秀典・川辺禎久・石井武政・田口雄作・上岡 晃 (2002) 山形市周辺地域における元素分布の特徴について - 山形盆地南部地域の地球化学図 -. *地球化学*, 36, 109-125.
- 太田充恒・今井 登・岡井貴司・遠藤秀典・石井武政・田口雄作・上岡晃・御子柴 (氏家) 真澄・寺島滋 (2003) 地球化学図を用いた仙台市周辺地域の元素挙動の解明と環境評価. *地球科学*, 57, 61-72.
- Ortiz, E. and Roser, B.P. (2004) Major and trace element abundances in <180 and 180-2000 μm fractions of stream sediments from the Hii River, Shimane Prefecture, Japan. *Geoscience Rept. Shimane Univ.*, 24, 53-58.
- 佐藤大介・松本一郎 (2008) 和久羅山デイサイトの記載岩石学的研究. 島根大学教育学部紀要 (自然科学), 42, 87-95.
- Sato, D. and Matsumoto, I. (2008) Wakurayama dacite as a possible adakites from the Matsue city, inner zone of Southwest Japan Arc. *Goldschmidt 2008 (Vancouver, CANADA)*, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, Vol. 72, Issue 12, p. A824.
- 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.
- 島根県地質図編集委員会 (1982) 「20 万分の 1 島根県

- 地質図」および「島根県の地質－昭和 60 年 8 月」.
島根県, 640 pp.
- 総理府 (1973) 海洋汚染等及び海上災害の防止に関する法律施行令第五条第一項に規定する埋立場所等に排出しようとする金属等を含む廃棄物に係る判定基準を定める省令. 昭和四十八年二月十七日総理府令第六号.
- 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.
- 高安克巳 編「汽水域の科学」講師グループ (2001) 汽水域の科学－宍道湖・中海を例として－. たたら書房, 184 pp.
- 徳岡隆夫 (1993) 汽水域の環境地質学－中海・宍道湖を礼として－, 環境問題からみた地球環境の諸問題. 日本地質学会環境地質学研究委員会編, 東海大学出版会, 61-88.
- 徳岡隆夫・安間 恵・井内美郎 編 (1993) 続湖沼の成因と環境・地質. 地質学論集, 39, 189 pp.
- 坪田智行・松本一郎 (2007) 松江層玄武岩類の記載岩石学的研究. 島根大学教育学部紀要(自然科学), 41, 171-177.
- Tsubota, T. and Matsumoto, I. (2008) Geochemical study of chromian spinel bearing alkaline Matsue Basalt in the Shimane Prefecture, southwest Japan arc. Goldschmidt 2008 (Vancouver, CANADA), *Geochimica et Cosmochimica Acta*, Vol. 72, Issue 12, p. A960.
- 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), *Geochimica et Cosmochimica Acta*, Vol. 69, Issue 10, p. A607.
- 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, USA), Abstract #GC43B-0736.
- 渡部久美子・松本一郎 (2009) 河川底質物中の重金属含有量に対する人為的影響の新しい評価法. 第 15 回地下水・土壤汚染とその防止対策に関する研究集会講演集, 2009, 432-437.