

松山平野における土地利用別土壌からの水質汚濁 関連物質の挙動に関する基礎的研究

CHARACTERISTICS OF BEHAVIORS OF WATER-RELATED POLLUTANTS IN SOILS DISTRIBUTING IN THE MATSUYAMA PLAIN

西村文武¹・島田高伸²・増田理子³・渡邊政広³

Fumitake NISHIMURA, Takanobu SHIMADA Mihciko MASUDA and Masahiro WATANABE

¹正会員 博士(工学) 愛媛大学助教授 大学院理工学研究科生産環境工学専攻(〒790-8577 愛媛県松山市文京町3番)

²学生会員 愛媛大学大学院理工学研究科 環境建設工学専攻(同上)

³正会員 博士(理学) 名古屋工業大学助教授 工学部社会開発工学科(〒466-8555 名古屋市昭和区御器所町)

⁴正会員 工博 愛媛大学教授 大学院理工学研究科生産環境工学専攻(同上)

Environmental problem caused by pollutants from non-point sources is one of the most significant issues in water environment. In order to control these pollutants, understanding the behaviors on the pollutants in a catchment area is firstly important.

In this study, the Matsuyama plain is selected as an investigation area. There is a medium-size city at the center of the plain, and paddy fields are locating in the suburbs. Citrus fruit groves are also surrounding both the urbanized area and the paddy fields. Therefore, the plenty kinds of pollutants from not only urbanized areas but also agricultural areas can be discharged according to the characteristics of the soils or dusts. Leaching characteristics and its potential are investigated through the soil tests, and it is suggested that load of pollutants to water environments from citrus fruit grove becomes higher than that from the other soils

Key Words : *pollutants from non-point sources, nutrients, metals, road dust, paddy field, citrus fruit grove*

1. はじめに

発生地点の特定が困難である汚濁物質の流出問題、いわゆる面源(ノンポイントソース)に起因する水質汚濁物質の問題は従来から指摘されてきている。近年更に下水道の普及や工場などからの廃水対策が進展し、相対的に点源(ポイントソース)に起因する水質汚濁関連物質の影響が小さくなった。このことから、ますます面源からの汚濁物質の挙動、ならびに制御に関心が持たれるようになってきた。

面源負荷対策として、実際上限られた財源等の状況から、最も効果が期待できるところに焦点を絞り、投資することも選択手段としては重要である。これまでに発生源種別の面源負荷に関する調査研究、たとえば農耕地や市街地等における研究は数多く実施されてきている^{1), 2), 3), 4)}。しかしながら、同様な土地利用においても、地域毎に気象条件や地盤環境などの自然条件、社会経済活動状況も異なり、かつそれらの条件は面源負荷に影響を与える因子となると考えられることから、ある地域で得られた面源負荷の情報が必ずしも他地域で詳細にわたり適用できるとするには些か無理がある。面源負荷は流域単位の問題としても捉えることができること

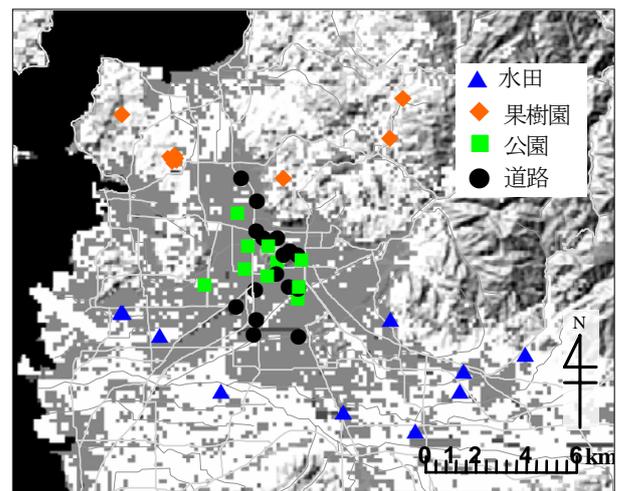


図-1 夏季調査の調査地点

から、単一の土地利用における面源負荷の研究とともに、同一流域における発生種別の面源負荷に関して調査することも、実際に対策を講じる際には同様に必要な事項となってくる。しかし、ある特定の流域における異なる汚濁発生源に対して定性的・定量的比較を行った研究は少なく、多くは単一

の発生源での流出水や、流達過程における評価を行ったものである。そこで本研究では、愛媛県松山市を中心とする松山平野を調査対象とした。松山平野は、一級河川重信川の流域に広がる平野で、中心部に人口50万人近くを有する市街地が広がり、その郊外には水田や畑地が分布している。また、それを取り囲むように丘陵地には柑橘類果樹園地が広がっている。重信川の流域では森林が66%を占め、それに続いて水田11%、果樹園を主体とする農用地が9%、市街地が9%、その他幹線交通用地等が9%を占めている。また瀬戸内海に近い平野部では森林の割合が相対的に小さくなり、市街地や果樹園地の割合が高くなっている。東京や大阪などの都市域が広く存在する地域とは異なり、市街地から周辺農耕地、そしてさらにそれを取り囲む森林域があり、比較的狭い範囲で異なる土地利用がなされている。本研究では、このような異なる面源種からの水質汚濁関連物質の挙動を評価することを目指した。まず汚濁流出のバックグラウンドとしての土壌に着目し、土壌に含有される水質汚濁関連物質の溶出特性を調査することで、異なる汚濁発生源からの負荷特性ならびにそのポテンシャルに関して定性・定量的な評価を試みた。そして、ここでの面源負荷制御に関する検討を行うことを目的とした。

2. 調査対象及び分析方法

(1) 調査対象

調査はこの流域での面積割合等を考慮して柑橘類果樹園地、水田、公園、道路の土壌を対象とした。調査地点数は、2004年1月～2月(以下、冬季調査と称する)には果樹園地9ヶ所、水田8ヶ所、公園8ヶ所、道路21ヶ所の計46ヶ所で行い、2004年8～9月(以下、夏季調査)には樹園地12ヶ所、水田10ヶ所、公園10ヶ所、道路16ヶ所、計48ヶ所で行った。なお、このうち、樹園地8ヶ所、水田7ヶ所、公園8ヶ所、道路8ヶ所は冬季と夏季で同じ地点とした。図-1に夏季調査の調査地点を示す。土壌を採取する際には、表面流出を想定したごく表層の約1～2cm程度と、土壌中への汚濁物質の蓄積を想定した深さ約5cm程度に分けて採取した。ただし、道路、水田土壌と、樹園地の冬季調査ではこのような採取方法は行わず、表層の数cmの土壌を混合したものを採取した。

(2) サンプルの処理・分析方法

採取した土壌は風乾させ、中小礫、木片等を除き、土塊、団粒を粗砕した後、2mmのふるいを通過したものを試料とし、以下の方法で試験を行った。

a) 溶出量試験

全サンプルについて、環境庁告示第46号⁵⁾に準拠して溶出量試験を行った。この方法は、試料と純水を重量体積比10%で混合、常温・常圧で6時間振とうしたものを遠心分離(3000rpm, 20分)し、孔径0.45 μmメンブレンフィルターでろ過したものを検液とするものである。

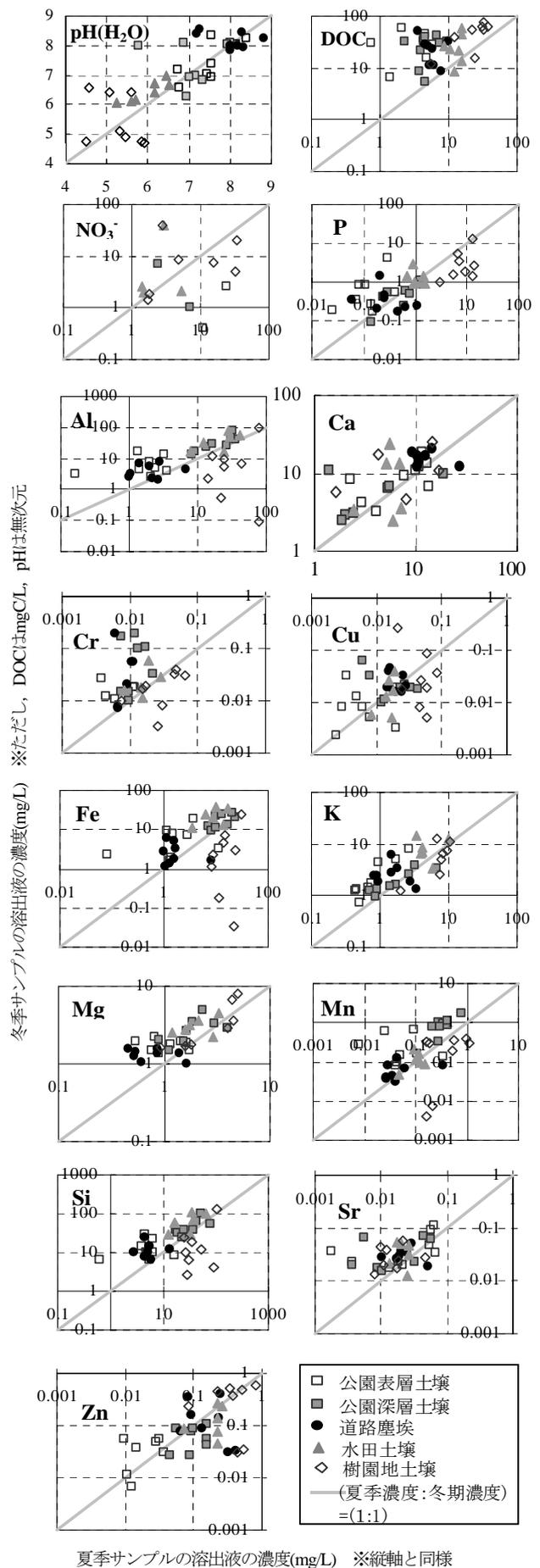


図-2 溶出量試験の検液の濃度

これに加え、夏季の表層土壌については、溶出量試験における試料と溶媒を混合させた直後の溶液を10%採取し、土壌表層から速やかに溶出される成分測定用の検液とした。

さらに、振とうと時間経過に伴う溶出の特徴を調べるために、溶出量試験と同様の条件で、振とう時間の異なる(0, 0.1, 0.5, 1, 2, 6hr)試料と、振とうせずに静置(0, 0.5, 1, 2, 6, 24hr)した試料を作成した。なお、この試料の作成には、土地利用別の代表的土壌として、土地利用ごとのに混合土壌を作成して使用した。

b)含有量試験

夏季調査サンプルについて、環境省告示第19号⁶⁾に準拠して含有量試験を行った。この方法は、試料と1mol/Lの塩酸を重量体積比3%で混合、常温・常圧で2時間振とうし、以下、溶出量試験と同様の操作を行ったものを検液とするものである。

c)分析方法

溶出量試験・含有量試験より得られた検液について、DOCを全有機炭素計(島津製作所 TOC-5000A)にて、溶存イオンをイオンクロマトグラフ(島津製作所 LC-10A)にて、重金属類をICP発光分光分析装置(PERKIN ELMER Optima3000)にて測定した。また、土壌のpHについては土壌環境分析法⁷⁾に準拠し、pH(H₂O)とpH(KCl)双方の測定を行った。

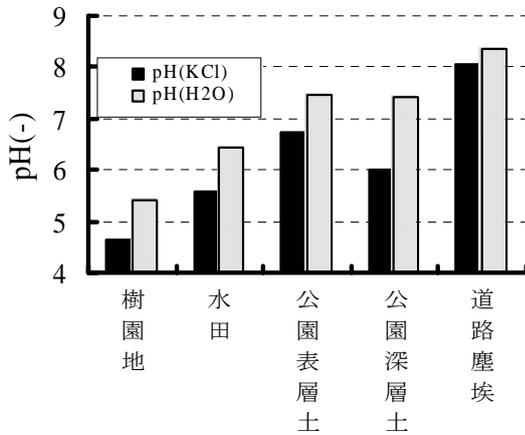


図-3 土壌・塵埃のpH

3. 結果および考察

(1)溶出量試験結果

a)季節変化

図-2に調査地点ごとの、冬季と夏季の溶出量試験結果の一部を示す。また図-3に各塵埃・土壌カテゴリー別のpHの平均値を示す。ここでは縦軸に冬季の濃度、横軸に夏季の濃度をとっている。つまり、冬季と夏季で全く濃度が変わらなければ1:1の線を通ることを示す。pH(H₂O)の結果より、

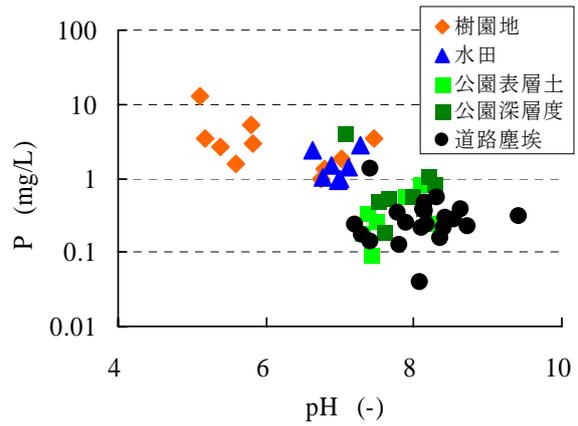


図-4 pHとPの関係

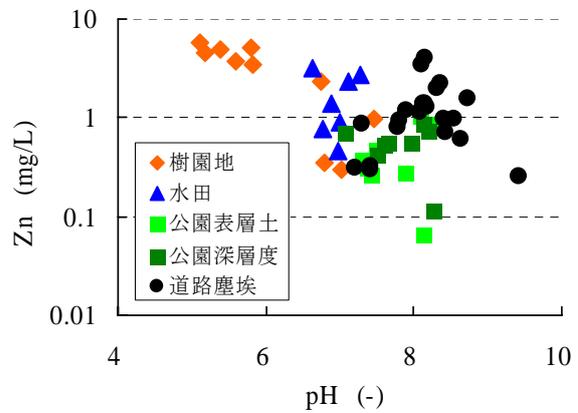


図-5 pHとZnの関係

表-1 土壌種別溶出元素濃度

塵埃・土壌カテゴリー	樹園地	水田	公園表層土	公園深層土	道路塵埃
溶出濃度(mg/kg)					
10 ³ ~			Fe	Fe	
10 ² ~10 ³	Fe>DOC>Si>Al>SO ₄ ²⁻ >NO ₃ ⁻	Si>Al>DOC>SO ₄ ²⁻	Fe>DOC>Si>Ca ²⁺	Si>Al>DOC	Fe>DOC>Ca ²⁺ >Si
10~10 ²	Ca ²⁺ >Na ⁺ >Mg ²⁺ >K ⁺ >Cl>P>Zn>Mn	Ca ²⁺ >K ⁺ >NO ₃ ⁻ >Cl>Mg ²⁺ >Na ⁺ >Zn>P>Mn	SO ₄ ²⁻ >Al>Na ⁺ >K ⁺ >Mg ²⁺ >Cl>Mn>NH ₄ ⁺ >NO ₃ ⁻	Mn>Ca ²⁺ >Na ⁺ >SO ₄ ²⁻ >NO ₃ ⁻ >Mg ²⁺ >Cl	Cl>Al>SO ₄ ²⁻ >Mg ²⁺ >K ⁺ >Zn
1~10	Ba>Cu>Cr>B	Ba>Cr>Cu>B>NH ₄ ⁺ > Pb	P>Zn>Ba>Cu>Cr	Cr>K⁺>Zn>P >Ba>Cu	Mn>NO ₃ ⁻ >NH ₄ ⁺ >P>Cr>Ba>Cu
10 ⁻¹ ~1	NH ₄ ⁺ >Sr>Sb> Cd	Mo>Sr>Sb>As	B> As>Sr>Sb	B>Hg>NH ₄ ⁺ > Sb >Sr>As>Mo>Pb	B>Pb> Hg>Sr >Sb>Mo>As
~10 ⁻¹	As	Hg>Cd>Co	Mo>Co>Cd		Cd

※太字は平均値が塵埃・土壌カテゴリー間で最大のものを示す

道路塵埃や公園土壌はアルカリ性を示すケースが多く、逆に果樹園地ではすべてのケースについてpH(H₂O)=6.7以下の酸性土壌であった。道路塵埃では路肩でのコンクリート片も含有されることから、アルカリ性を示すケースが多かったと考えられた。また柑橘類果樹園地では、従来から土壌が酸性化していることが指摘されている^{8),9)}。今回の調査でも、調査地点は異なるが、同様の状況になっていることが示されている。pH(H₂O)は冬季に高くなる傾向があるが、これは冬季に石灰散布が行われることから¹⁰⁾、その影響もあったと考えられた。

DOCは明らかに1:1の線上の上方にプロットが集まっており、冬季の方が濃度が高いことが分かる。この理由として、冬季には土壌中の有機物の分解速度が低下すること、また、夏季から冬季にかけては、落葉などにより土壌中に有機物が供給されやすいことなどが考えられた。

b)土地利用別濃度

図-2より、ほとんどの物質で、果樹園地や水田といった農耕地土壌が、公園や道路といった市街地土壌の溶出濃度より高い傾向にあることが分かる。

DOCやNO₃-N, Pなどの栄養塩類に着目するとこの傾向が顕著であり、道路塵埃からは、冬季、夏季の双方でNO₃-Nが検出された地点はなかった。これら栄養塩類が農耕地で高くなるのは施肥のためである。Pは土壌への吸着性が強く、土壌に固定されることが知られているが、溶脱しやすいNO₃-Nについても農耕地土壌には残留しており、特に窒素施肥量の多い果樹園地土壌でこの濃度が高い傾向にあった。果樹園地土壌ではFe, Mnなどの金属類の溶出量も高いが、これは土壌pH自身が低いため、低pH条件が金属類の溶出を促進させたと考えられた。

また、重金属汚染が懸念される道路塵埃だが、Al, Fe, Mn溶出濃度については、冬季・夏季通して他の土壌と比較して低い水準にあった。一方で、CuやZn濃度については比較的高い水準にあり、これらの物質については道路固有の特徴が現れているものと考えられた。

以上の結果をまとめて、塵埃・土壌カテゴリー別に単位重量あたりの溶出元素重量の平均値が多いものから順に並べたものを表-1に示す。土壌の種類によって、溶出される元素量の構成は異なっていることが分かる。特に差がみられる

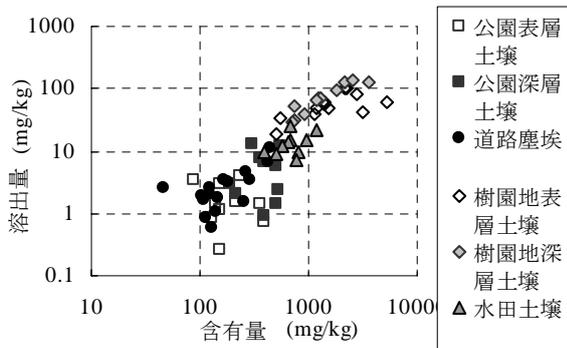


図-6 P含有量と溶出量の関係

ものとしては、NO₃-N, NH₄⁺-N, Pのような栄養塩類と, Al, Cr, Fe, Mn, Si, Zn, K⁺, SO₄²⁻で、平均値の比は最大で5倍以上あった。この理由として、NO₃-N, Pは施肥に由来するものと考えられ、樹園地や水田で特に高かった。また、Al, Fe, Siは水田、公園深層土で高く、道路塵埃は低い傾向にあった。これらの3元素については互いに相関係数が高く、AlとFeで0.86, FeとSiで0.98, SiとAlで0.90であり、溶出濃度比は、塵埃・土壌カテゴリー間で大差はなく、概してAl:Si:Fe=2:3:9であった。これらの成分は人為的に添加されるものではなく、この地域での土壌基盤特性に関連するものと考えられた。

図-3に示されているとおりpHは農耕地では低く、道路塵埃では高い傾向があった。重金属類は、低pHで可溶性となり、流出しやすくなる性質をもつものがあるが、道路塵埃はこのような物質が流出しにくい性質であると考えられる。検液のpHと相関係数が高かったものとしては、PとZnがあった。検液のpHとPの関係を図-4に、Znとの関係を図-5に示す。それぞれ相関係数は-0.65, -0.62で負の相関があった。農耕地の土壌ではpHが低く、かつNO₃-N, Pの溶出量が高くな

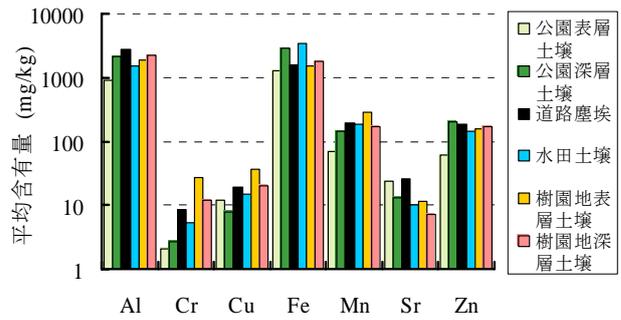


図-7 各土壌の重金属含有量

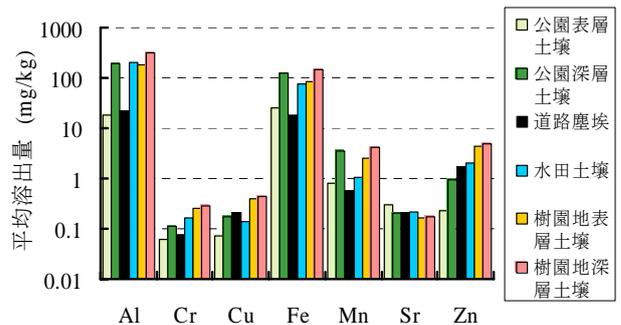


図-8 各土壌の重金属溶出量

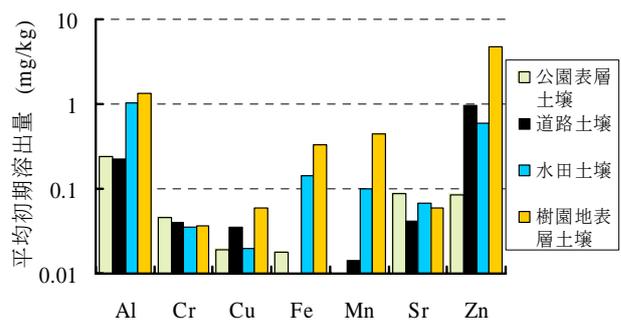


図-9 各土壌の重金属初期溶出量

っていた。このことから、農耕地土壌においては窒素酸化に伴う酸性化が起り、結果として、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 P が流出しやすい状態になっていると考えられた。道路塵埃の pH は高く、溶出する元素量は樹園地や水田の土壌と比較すると、ほとんどの元素において少ない傾向があった。 pH が高いことは、含有重金属類の流出も抑制することになる。面源のひとつと考えられる道路であるが、流域での含有面積割合が高くない場合には、発生負荷量は樹園地や水田と比較すると小さく、水環境等に与えるインパクトは小さくなるものと考えられた。

(2) 含有量試験結果

a) P含有量

P含有量試験の結果を、溶出量試験の結果と併せて図-6に示す。農耕地土壌は 1000mgP/kg 土壌程度のオーダーでリンを含有し、溶出量は $10\sim 100\text{mgP/kg}$ 土壌のオーダーであった。P含有量と溶出量には有意な関係がみられ、P含有量が高い農耕地土壌ほど、P溶出量が高くなっている。このことから、農耕地からのP流出負荷量は、溶解性物質としても粒子状物質としても市街地よりもはるかに高くなることが推察される。

b) 重金属含有量

図-7に含有量試験結果の一部を示す。溶出量試験では、道路塵埃の Al 、 Fe 、 Mn 濃度は低かったが、含有量は比較的高くなっている。溶出量試験における、これらの物質の平均溶出量を図-8に示す。図-7と図-8を比較すると、含有量が高いケースであっても、溶出量が必ずしも高くなるわけではないことが分かる。さらに、土壌と水とを混合した直後の溶出量を図-9に示す。図-8と図-9を比べると、 Al や Fe は含有量が多いため、初期には含有量に対する溶出量は高くなるが、溶出は継続して生じることがわかる。各元素の含有量

が同程度であっても、土壌種により溶出速度や溶出量は異なるケースが見られた。たとえば Zn の含有量は土壌種間でそれほど相違は無いが、果樹園地土壌の初期溶出量は公園土壌や道路塵埃からの初期溶出量よりも多く、6時間後も溶出量は他の土壌種よりも高い結果となった。含有量試験と溶出量試験では設定 pH 条件が異なるが、果樹園土壌は土壌 pH が低いことから、この差が溶出速度や溶出量に影響したものと考えられた。また、ある土壌における含有量が同程度の元素間でも溶出速度は異なる。元素自身の溶解度や土壌との親和性にも影響を受けると考えられる。いずれにせよ、含有量の多いものや、溶出しにくいものは、降雨継続時間が長い雨に遭遇するほど、溶出量は相対的に高くなると考えられた。降雨パターンによっても、溶出挙動は異なると思われるが、実際のフィールド調査に加え、このような土壌溶出試験からの情報も現象を理解・解釈する上では有用であると考えられる。松山平野では、果樹園地土壌が、栄養塩類や金属含有量も高く、加えて土壌 pH も低いために、流域に与える影響が大きくなる可能性があると考えられた。

(3) クラスタ分析

夏季サンプルの表層土壌に対してクラスタ分析を行った。表層土壌に限定して分析を行った理由は、土壌の移動による各表装土壌相互の関連を考慮したためである。統計分析には、安定した測定結果が得られた DOC 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 P 、 Al 、 Ca 、 Cu 、 Fe 、 K 、 Mg 、 Mn 、 Na 、 Si 、 Sr 、 Zn の各濃度データを用い、これらを標準化したものを原データとした。データ間の距離計算にはユークリッド距離を用い、クラスタ間の結合にはウォード法を採用した。分析結果を図-10に示す。

図-10の樹形図は、大きくA、B、C、D、Eの5つのクラスタに分けることができる。このうち、A、Bのクラスタのほとんどは公園、道路といった市街地の土壌であり、Aは公園

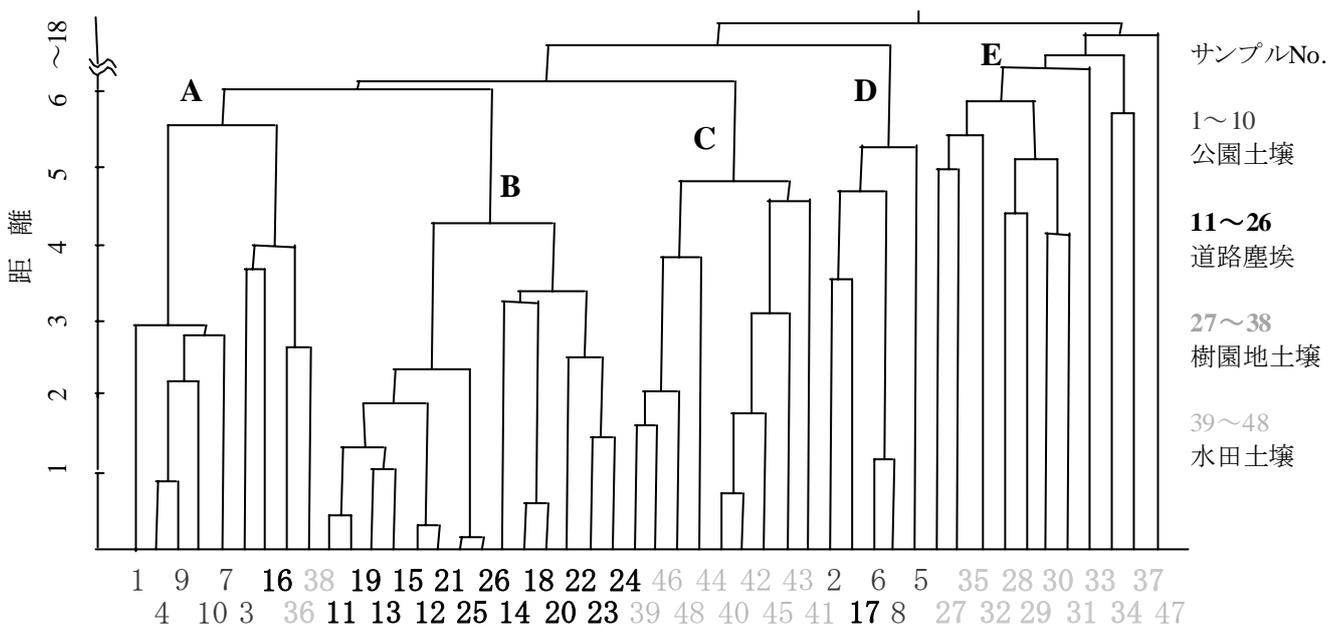


図-10 表層土壌のクラスタ樹形図

クラスター, Bは道路クラスターとみることができる。また, C, Eのクラスターはそれぞれ水田, 樹園地がほとんどを占めており, Cは水田のクラスター, Eは樹園地のクラスターとみることができる。

同カテゴリーの土壌種であっても, 採取地点は松山平野内を分散しているために, むしろ地点位置での類似度は小さい。しかしながら, サンプル間での溶出水質パターンに関するクラスター分析結果では, 土壌種ごとに分類される結果となった。同じ土壌種内では, 道路塵埃の各サンプル間の類似度が最も高く, 続いて公園土壌, 水田土壌の順になった。一方で, 果樹園地土壌の各サンプル間では, お互いのユークリッド距離は, 他の土壌種サンプルとの間の距離より小さいものの, お互いの距離は短いものでも4を示している。果樹園地土壌サンプル間での類似度は, 他の土壌種内のサンプル間の類似度に比べると低い結果となった。道路塵埃などは, 舗装状況に特に大きな差があるとは考えにくく, また同一車両がサンプリング地点間を往来する可能性もある。交通量により含有する物質濃度が変わるとしても, 含有物質の濃度構成パターン等は類似すると考えられる。これに対して, 果樹園地土壌の各サンプリング地点間で共通すると考えられるものには, 市販の肥料等があるが, 所有者も異なることから, 栽培方法や管理方法にも差がある可能性がある。これらの相違が類似度にも関連しているものと考えられる。

松山平野では道路塵埃などは類似度が高く, また栄養塩類や金属類などの溶出ポテンシャルも高くないことから, これらの物質に関しては, 面源として流域に与えるインパクトは比較的小さく, モニタリングする際にも地点数を比較的小なくして実施できると考えられる。それに対して, 柑橘類果樹園では, 比較的類似度が低く, また溶出ポテンシャルも高いことから, 面源として与えるインパクトは大きいものと考えられ, いくつかの地点でモニタリングを実施して, 面源負荷特性を把握するとともに, 管理について検討する必要があると考えられる。

4. 結論

本研究では, 市街地域や農耕地などが混在する松山平野を対象として, 異なる面源種の土壌に含有される水質汚濁関連物質の溶出特性を調査し, 流域内汚濁発生源からの負荷特性ならびにそのポテンシャルに関して考察を加えた。以下に得られた知見をまとめる。

- 1) 冬季の土壌は夏季の土壌よりも溶出するDOC濃度は高くなっている。この理由として, 有機物の分解速度の低下や落葉などによる有機物の土壌への供給が考えられた。
- 2) 土壌より溶出するDOCやNO₃-N, Pといった栄養塩類は, 農耕地の方が市街地と比較して高く, 特に, Pでこの傾向が顕著であった。また, P含有量でも同じことが言え, 農耕地からのP流出負荷量は, 溶解性物質としても粒子状物質として

も市街地よりもはるかに高くなることが推察された。

- 3) 土壌や塵埃中での含有量の多い物質や, 溶出しにくい物質は, 溶出可能全量付近の物質質量が溶出するまでに時間がかかることから, 降雨継続時間が長い雨に遭遇するほど, 溶出量は相対的に高くなると考えられた。降雨パターンによっても, 溶出挙動は異なると思われるが, 実際のフィールド調査に加え, このような土壌溶出試験からの情報も現象を理解・解釈の上では有用であると考えられる。松山平野では, 果樹園地土壌が, 栄養塩類や金属含有量も高く, 加えて土壌pHも低いために, 流域に大きな影響を与えている可能性があると考えられた。
- 4) 溶出水質パターンをもとにクラスター分析を行い土壌分類を行った結果, 土地利用別の土壌分類と同様な分類結果が得られた。それぞれの土壌が固有の溶出特性を持っていることが確かめられた。道路塵埃は比較的類似度が高く, また栄養塩類や金属類の溶出ポテンシャルは比較的小さいと考えられるが, 柑橘類果樹園土壌では, 比較的類似度が低い結果となった。柑橘類果樹園が面源として流域に与えるインパクトは大きいものと考えられ, いくつかの地点でモニタリングを実施して, 面源負荷特性を把握するとともに, 管理について検討する必要があると考えられた。

参考文献

- 1) 山本富久, 中曾根英雄, 松沢康宏, 黒田久雄, 加藤亮: 流出水の連続測定による静岡県牧ノ原茶園地帯からの肥料成分の流出負荷量, 水環境学会誌, Vol.27, No.5, pp.329-336, 2004.
- 2) 井伊博行, 平田健正, 田中豊和, 西川雅高, 中島二夫, 梅原鏡: 静岡県中部地域での茶園由来の湧水・池水・河川水の水質について, 水工学論文集, 第44巻, pp.1155-1160, 2000.
- 3) 海老瀬潜一, 三木一克: 高頻度調査による淀川本川およびその支川の重金属の流出特性評価, 水環境学会誌, 第24巻, 第11号, pp.715-723, 2001.
- 4) 和田彦彦, 三浦浩之: 都市域ノンポイント汚染源負荷の堆積・流出挙動モデルと流出制御に関する研究, 土木学会論文集, No.559/VII-2, pp.61-71, 1997.
- 5) 環境庁: 「土壌の汚染に係る環境基準について」環境庁告示第46号付表, <http://www.env.go.jp/kijun/dt1-1.html>
- 6) 環境省告示第19号, <http://www.env.go.jp/water/dojo/law/kokuji/04.pdf>
- 7) 土壌環境分析法編集委員会編: 土壌環境分析法, 博友社, 1997.
- 8) 松本和夫: 柑橘園芸新書, 養賢堂, 1973.
- 9) 西村文武, 赤瀬孝也, 川端善一郎: 人工酸性雨を用いた柑橘類樹園地土壌溶出水の水質特性とその湖沼微生物の増殖に及ぼす影響, 水環境学会誌, 第23巻, 第8号, pp.510-515, 2000.
- 10) えひめ中央農業協同組合: えひめ中央栽培指針, 平成15年度, 2003.

(2006. 9. 30受付)