

52. 森林地域における金属成分の動態

The behavior of metallic components in the forest

平島邦人*, 濱谷基広**, 飛澤拓也***, 深澤達矢*, 橘 治国*, 福澤加里部****, 柴田英昭****, 野村睦****, 高木健太郎****, 藤沼康実****

Kunito HIRAJIMA*, Motohiro HAMAYA**, Takuya TOBISAWA***, Tatsuya FUKAZAWA*, Harukuni TACHIBANA*,

*Karibu FUKUZAWA****, Hideaki SHIBATA****, Mutsu NOMURA****, Kentarou TAKAGI****, Yasumi FUJINUMA****

ABSTRACT: To understand the behavior of metals in forest area, we collected atmospheric aerosol, fallout and river water samples in every two weeks from June of 2002 to December of 2004 in the Teshio Experimental Forest (45°03'N, 142°07'E a.s.l.66m). And all samples were analyzed by ICP-MS for metals, such as Fe, Al, Ti, Ba, Sr, Mn, Zn, Pb.

Atmospheric concentrations of Fe, Al, Pb, Mn and Sr in both aerosols and fallouts increased in winter. However, the atmospheric Zn and Ba in aerosols increased during winter, but in the fallouts.

In the event of rainfall, Ba, Sr and Mn concentrations in river water, those were mainly plant origin, were decreasing with increasing in the flow. On the contrary, Al and Ti concentrations in the water, those were mainly soil origin, were increasing in the same period. As for Fe, also soil origin was decreasing in the period. In thaw season, Fe, Ba and Sr concentrations decreased with increasing in flow, however, Al and Zn concentrations increased. In comparison the annual output from the river water with the annual input from the fallouts. As for Al, Fe, Sr and Ba, the output exceeded the input. As for Zn and Pb, the input exceeded the output. As for Mn and Ti, the input and the output were nearly equal.

KEYWORDS: Metal, Forest river, Atmospheric Deposition, Flow characteristic

1 はじめに¹⁾

森林地域は水源涵養機能を有し、水循環に大きく関わっている。その面積は、わが国においては国土の67%を占め、河川に流れ込む水の量や質に影響を与えている。また裸地に比べて大気汚染物質を取り込みやすく、沈着作用が大きい。これまで、酸性雨の影響や栄養塩のノンポイントソースとしての視点から研究が行われてきたが、金属成分の動態に関する研究は行われてこなかった。そこで本研究では局地的な汚染源のない森林地域において、金属成分の大気からの沈着量や河川からの流出量を定期的に調査し、その収支および流出機構を解明することを目的とした。

2 調査地点²⁾

調査地域は北海道天塩郡幌延町の北海道大学天塩研究林である。現有面積約 22000ha で、林相はトドマツとミズナラの針広混交林である。2003 年 1 月から 3 月にかけての積雪期にトドマツとミズナラの針広混交林を伐採し、カラマツの植栽を行った。また年間降水量は約 1000mm、年平均気温は 5.7℃で最高気温 35℃、最低気温は -35℃の年較差は 70℃にもなる地域である。

* 北海道大学大学院工学研究科 Graduate School of Engineering, Hokkaido University

** (株)伊藤忠商事 ITOCHU Corporation

*** (株)西原衛生工業所 NISHIHARA Engineering Co., Ltd.

**** 北海道大学大学院農学研究科 Graduate School of Agriculture, Hokkaido University

***** 北海道大学北方生物圏フィールド科学センター Field Science for Northern Biosphere, Hokkaido University

***** 国立環境研究所 National Institute for Environmental Studies

採水地点は天塩研究林内 151 林班(45° 03' N, 142° 07' E, a.s.l.66m)を集水域とする小河川であり、通称ヤツメの沢と言われ、本河川の集水面積は約 0.88km²である。

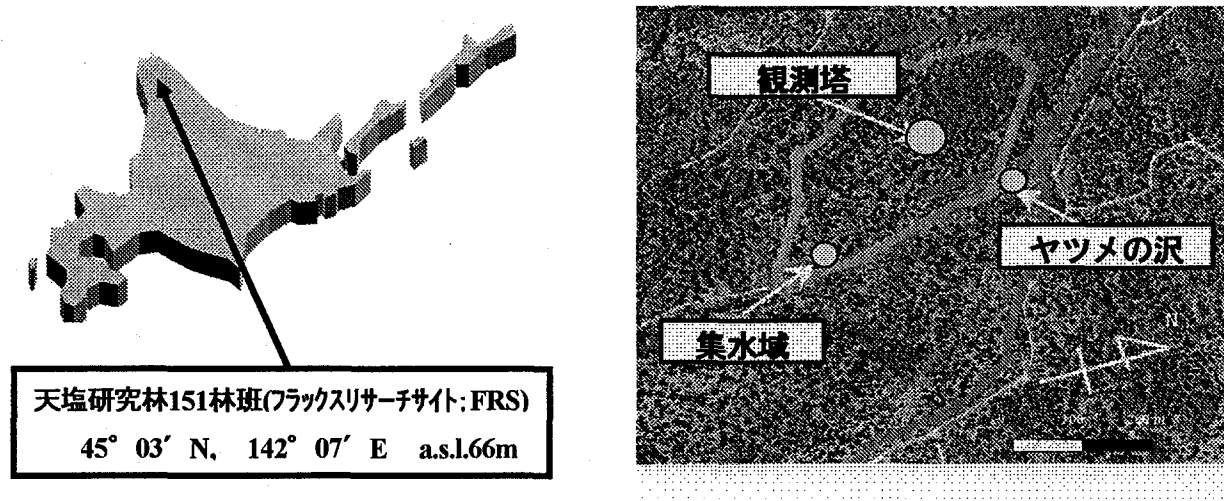


図1 調査地点の概要

3 研究方法

3.1 サンプルング

(A)河川水

2002年6月～2004年12月まで月2回、ヤツメの沢量水堰直上部で定期採水を行った。2003年8月14日17時～8月20日12時には2時間毎に平水時の集中採水を行い、2004年4月5日10時～4月6日10時と4月13日10時～4月14日10時の融雪期には日中1時間毎、夜間2時間毎に集中採水を行った。また2004年9月2日16時～9月9日2時には2時間毎、9月10日14時～9月13日14時には3時間毎に降雨に伴う増水時の集中採水を行った。いずれも現地でpH、電気伝導度を測定し、流量、降雨量などの諸情報は天塩研究林のデータを参照した。

(B)大気降水物(林外雨)

2002年6月～2004年10月(2002年11月～2003年4月は伐採のため中断)にかけて、降雨期は大気降水物全量採取器(SIBATA W-102)、降雪期には降雪採取器(高さ1400mm、開口径395mm)を用いて採取した。採取器は、周囲に障害物がない地点を選んで、開口部分が高さ約2mになるように設置した。

5～11月の降雨期の採取間隔は2週間毎、12～4月の降雪期の採取間隔は4週間毎とした。

(C)大気エアロゾル

タワー横のプレハブ内に流量20L/minのリニアポンプを用いて屋外から空気を導入し、サイクロン式分粒装置により粒径2μm以上の粒子を除去して残った粒子を、テフロンフィルター(住友重工、四フッ化エチレン樹脂製フィルター、WP-500, 47mmφ、ポアサイズ5.00μm)及び石英繊維フィルター(PALLFLEX PRODUCTS, 2500QAT-UP, 47mmφ)を用いて捕集した。テフロンフィルターのバックアップフィルターにポリフロンフィルター(ADVANTEC, PF060, 47mmφ)を入れた。サンプリング間隔は大気降水物と同様に約2週間毎とした。

3.2 金属成分の分析

実験室に持ち帰った河川水試料はポリプロピレン製ろ過器(NALGEN)を用いてポアサイズ0.4μmのメンブレンフィルター(ADVANTEC)により減圧ろ過した。その後、硝酸(関東化学, EL grade, 61%)を約1%になるように添加し、誘導結合プラズマ-質量分析装置(ICP-MS YOKOGAWA HP-4500)により分析した。大気降水物は河川水と同様に減圧ろ過した。ただしポアサイズ5μmの濾紙を通した後に、0.4μmのフィルターでろ過した。その後は河川水と同様に分析した。エアロゾルはJalkanen³⁾の方法に従い、採気後のテフロンフィルターを8分の1に切断し、硝酸1.5mL、フッ化水素酸(ダイキン工業、半導体用50%フッ化水素

酸)0.5mLを入れたふた付きポリプロピレン製試験管(IWAKI 50mL Self-Standing Tube)に入れ, 2日間室温で抽出した後, 超純水で 25 倍希釈して, ICP-MS により分析した. いずれも測定元素は Al,Ti,Mn,Fe,Zn,Sr,Ba,Pb の 8 元素である.

3.3 負荷量の算出

2003 年 5 月 6 日~2004 年 4 月 30 日を対象として負荷量を算出した. 無雪期と積雪期に関しては, 二週間毎の全流出量に溶存金属成分濃度の平均値を乗じる区間代表法を用いた⁴⁾. 融雪期は流出が著しいので, 融雪期の集中採水における日計流出負荷量を算出し, 残りの融雪期における各日の流出負荷量を推定した.

4 結果と考察

4.1 大気中及び大気降下物中の溶存金属成分濃度

大気中の金属成分濃度を図 2 に示す. 大気中の濃度はいずれの元素も夏季に濃度が減少し, 冬季に濃度が上昇していく傾向にあった. 2004 年 3 月に北海道に黄砂が流入した際に, いずれの金属成分濃度も顕著な濃度上昇が見られた. 黄砂を形成する土壌粒子は主に Na, K, Ca, Mg, Al, Ti であるが⁵⁾, 同時に人為起源の金属成分濃度も上昇していた.

大気中降下物中の金属成分濃度を図 3 に示す. 図 3 より Fe, Al, Pb, Mn, Sr は冬季に濃度が上昇する傾向が見られた. Zn, Ba などとは図 2 より冬季に大気中で濃度が上昇していたにもかかわらず大気降下物中の濃度上昇が見られず, 降雨と降雪の大気中物質の捕捉特性の違いによりこのような差が生じた可能性が考えられる. すなわち大気降下物の雪は雨と比較して粒径が大きく形も複雑なために大きな表面積を持ち, 大気中の微粒子を捕集しやすいという性質がある一方で, 降下速度が遅いため粒子とは衝突しづらいという可能性も指摘されており, その性質は雪の粒径や形状などにより異なるとされている⁶⁾. いずれにしても雪は雨とは異なるメカニズムで大気中物質を捕集すると考えられる.

4.2 河川水中の溶存金属成分濃度

(A)溶存金属成分濃度

定期観測における河川水中溶存金属成分濃度の季節変化を図 4 に示す. 河川水の濃度は緩やかではあるが冬季に濃度が減少する傾向にあった. Al,Ti,Zn は融雪期及び降雨の多かった 10 月上旬に濃度が増加する傾向が見られた. Fe,Mn,Ba,Sr は融雪期や降雨の多い時期に濃度が低下し, 夏季の流量が少ない時期に濃度が増加する傾向が見られた. 特に Ba,Sr は著しく挙動が類似していた. また, 2003 年冬季に針広混交林を伐採したが, その前後で顕著な変動は見られなかった. 濃度レベルとしては, 流出濃度が大きかった Al,Ba を代表として, ほとんどの元素に関しては調査期間を通じて環境基準値を下回る濃度レベルであった. 一方, Fe に関しては環境基準値を大幅に上回って流出している時期もあった.

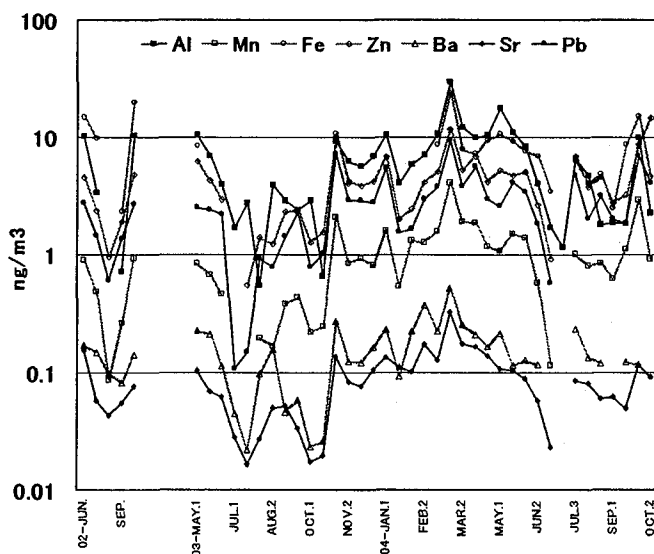


図 2 大気中溶存金属成分濃度

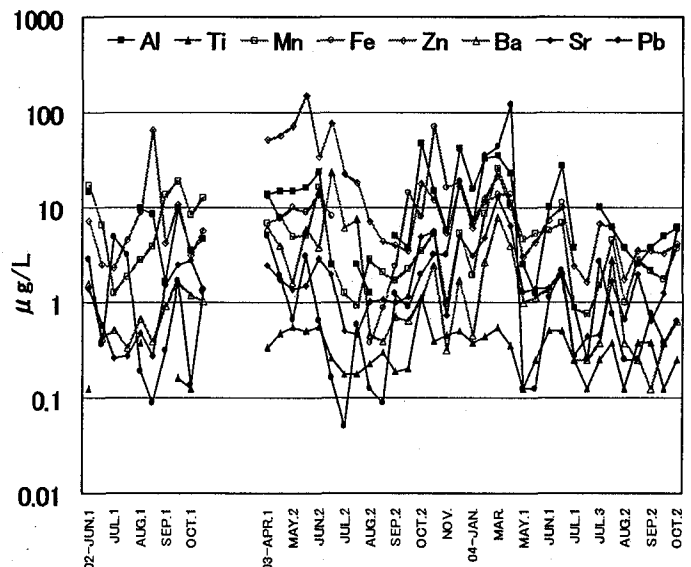


図 3 大気降下物中溶存金属成分濃度

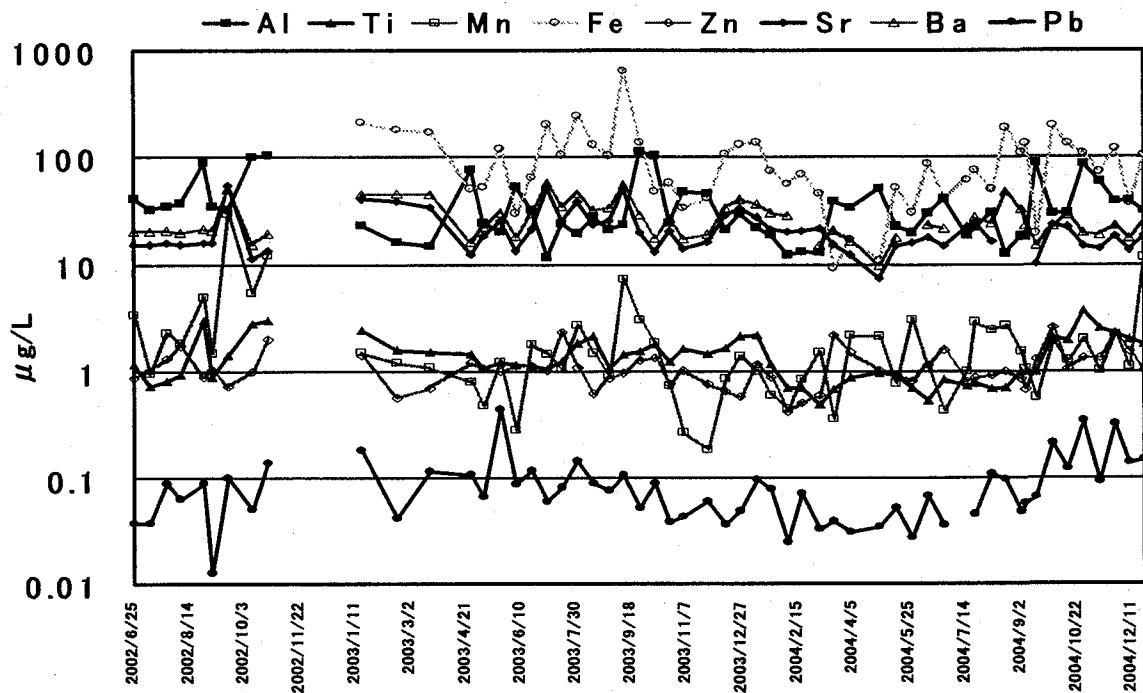


図4 定期観測における溶存金属成分濃度

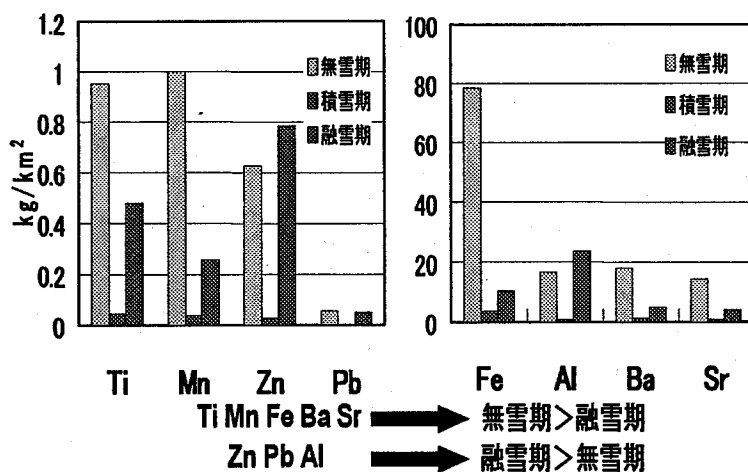


図5 時期毎の溶存金属成分濃度

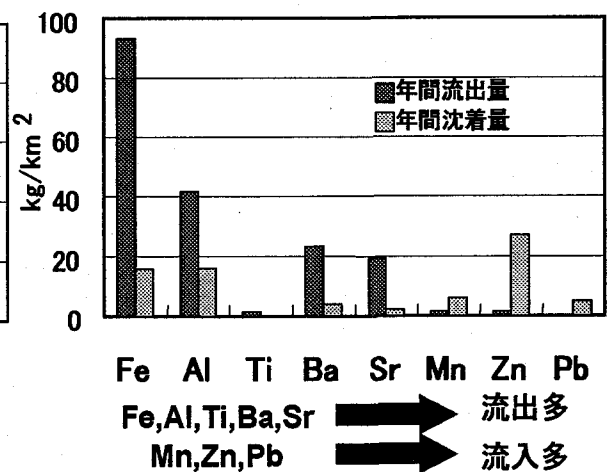


図6 金属成分の年間流出量と年間沈着量

(B)年間負荷量算出

各時期の金属溶存成分の年間負荷量を図5に示す。年間流出負荷量はTi, Mn, Fe, Sr, Baは無雪期に流出する割合が高い一方で、Al, Zn, Pbは融雪期に流出する割合が高かった。積雪期に流出する割合はどの元素においても低かった。

年間沈着負荷量を算出し、年間流出量と年間沈着量を比較したものを図6で示す。Al, Ti, Ba, Srなどの元素は流出量の方が大きく、ZnやPbでは沈着量の方が大きかった。Mnは流出量と沈着量が同程度だった。

4.3 平水時における河川水質

平水時における金属成分濃度とpHとECと流量の関係を図7に示す。調査1週間前の合計降水量は約

9mmであった。調査2日前からは降雨は観測されず、調査期間中の約1週間も全く降雨が無かった。流量減少に伴ってBa,Sr,Mn,Feは濃度増加し、Al,Tiは濃度減少した。またBa,Srなどの元素は流量と同様に日変動を示したが、Al,Ti,Feなどの元素に関してはこのような日変動は見られなかった。

4.4 増水時における河川水質

増水時における金属成分濃度とpHとECと流量の関係を図7に示す。9月3日6:30~22:00に18.7mm, 9月7日23:30~9月8日5:00に8mm, 9月8日12:30~22:30に39.2mmの降雨があった。二度目の降雨量は少なかったため、流量の変動はほとんど見られなかった。

Al,Ti,Znは流量増加に伴い、濃度は増加した。一度目の降雨では流量のピークと濃度のピークにずれがほぼ生じなかったため、比較的弱い降雨では完全には洗い出されていないことがわかる。最も降雨が強か

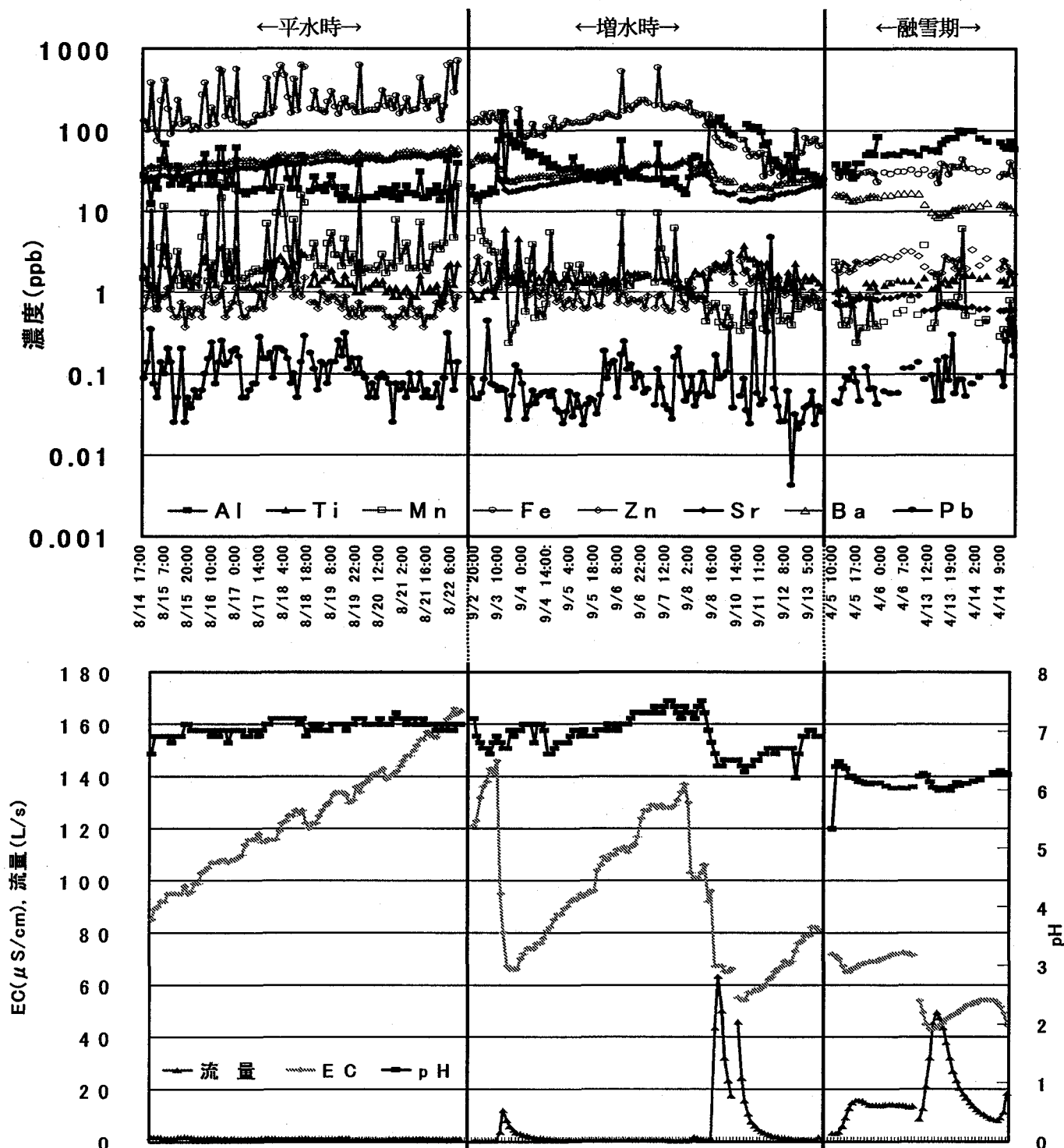


図7 平水時・増水時・融雪期の金属成分濃度(上)と EC, pH, 流量(下)

った3度目のときには、流量のピークよりやや早く濃度のピークが観測された。つまり流量が最大になる前に金属成分が河川に洗い出されていたことになる。降雨による流量増加に伴って Sr,Ba,Mn などの植物起源と考えられる元素は全て濃度が減少した。流量減少時に Ba,Sr,Mn などの植物起源元素濃度が増加する原因として、川へ流れ込む地下水が河畔を経由する際の影響が相対的に大きくなることが考えられた。一方で Al,Ti,Zn は流量の増加に伴って濃度も増加することから河畔部の影響を受けにくいと考えられた。また Fe は土壌中濃度が植物中濃度に比べて著しく高いのにも関わらず、Al や Ti など土壌起源元素の流出機構とは異なっていたのは河畔部の影響を強く受けていると考えられるため、流量の増加に伴って濃度が減少するという Ba,Sr,Mn と類似した挙動を示すと考えられた。

4.5 融雪期における河川水質

融雪期における金属成分濃度と pH と EC と流量の関係を図 7 に示す。4 月 5 日 19:00~23:30 に 3.2mm の降水があったが流量には影響はなかった。4 月 13 日からの集中採水前と採水期間中には降雨は無く、流量の増加は融雪の影響にのみによるものであった。

図 5 で積雪期より融雪期の濃度が高かった元素の Al と Zn は、図 7 で流量の増加と共に濃度も増加する傾向があった。これは水素イオンが土壌を通過する際に Al,Zn などを遊離させる働きがあるため、融雪により一時的に pH のやや低い水が流入したことから Al,Zn の濃度が増加したとも考えられた。一方で Fe や Ba,Sr などの元素は流量の増加と共に濃度が減少する傾向があった。定期観測における年間の濃度変化からもこれらは妥当な結果である。

5 まとめ

Fe, Al, Pb, Mn, Sr の大気中および大気降下物中の金属成分濃度は冬季に上昇し、Zn, Ba などは冬季に大気中濃度が上昇したにもかかわらず、大気降下物中での濃度上昇が見られなかった。これは降雨と降雪の大気中物質の捕捉特性の違いによるものと考えられた。

平水時と増水時の結果より、金属成分のうち Al,Ti は土壌起源元素であり、降雨による洗い出しにより河川水中の濃度が増加した。また Ba,Sr,Mn は植物起源元素であり、河川に流出する際に河畔部の影響を受けていた。Fe は土壌起源元素にも関わらず、河川水中の濃度変化は植物起源元素と同様に、河畔部の影響を受けていると考えられた。

また融雪期では、Fe や Ba,Sr などの元素は流量の増加と共に濃度が減少する傾向にあった。一方 Al,Zn は流量の増加とともに濃度も上昇した。これは水素イオンが土壌を通過する際にこれらの元素を遊離させ、pH の低い水が流入したためと考えられた。

河川からの溶存金属成分の年間流出量と年間沈着量を比較した結果では、Al,Fe,Ba,Sr は流出量が多く、Zn,Pb は大気からの沈着量が多かった。また Mn,Ti は沈着量と流出量はほぼ等しかった。

(参考文献)

- 1)山根登(1977), 微量元素 一環境科学特論一, 産業図書株式会社
- 2)森林圏ステーション - 天塩研究林 - HP, <http://pc3.nrs.unet.ocn.ne.jp/%7Eexfor/FR/>
- 3) L. M. Jalkanen et al.(1996), Simple Method for the Dissolution of Atmospheric Aerosol Samples for Analysis by Inductively Coupled Plasma Spectrometry, Journal of Atomic Spectrometry, Vol.1, pp.365-369
- 4)国松孝男, 須戸幹(1997), 水環境学会誌, Vol.20, No.12
- 5)金森悟, 金森暢子, 西川雅高, 溝口次夫(1991), 黄砂の化学像/名古屋大学水圏科学研究所編, 大気水圏の科学 黄砂, 古今書院: 東京, pp.124-156
- 6)Jochen Tschiersch(2001), Snow Deposition of a Trace Aerosol, Abstracts of the European Aerosol Conference 2001, pp.195-196