

渡良瀬川流域の重金属に関する調査研究

第1報 土壌中の濃度及び分布について

三宅 信・長谷川 秀穂・中野 政行・茂木 惣治
鶴野 慶吉・橋本 俊一・大内 啓三郎

I 緒 言

渡良瀬川上流にある足尾銅山は1610年（慶長15年）に発見採掘されて以来、経営権者の変遷、採掘技術の進歩、新鉱脈の発見等幾多の変遷を経ながら、日本最大の銅山として今日までに70万トン余の銅を産出してきた。

この間に大量のスライムが排出し、鉱山敷地内の沢や溪流ぞいに作られたたい積場に捨てられていたが、1890年（明治23年）の台風によりスライムが流出し、下流の農漁業に被害を及ぼしたことが、その後の長く激しい鉱害闘争の発端となった。その後大洪水のたびに渡良瀬川流域水田に多量のスライムが流入し、またかんがい水中の銅も水田に蓄積されて、被害が増大した。

この鉱害問題に調査研究として最初に取り組んだのは古在・長岡³⁾で、1892年栃木県の委託を受けて、現在の足利市及び佐野市に広がる鉱害地水田及び畑土壤32地点を分析し、被害の原因は銅及び硫酸であり、足尾銅山のスライムから由来するとした。またその鉱毒除害対策を明示した。

その後の鉱毒被害の調査及び対策調査報告は数多いが、県内の鉱害地の土壌調査については1960～1961年経済企画庁の委託を受けて渡良瀬川水質汚濁対策調査を実施し、この一環として栃木県農業試験場が行った土壌調査成績⁹⁾がある。足利市の渡良瀬川南部地域の水田

12か所について調査し、銅については作土及び下層土の全銅について非破壊放射化分析法により農林省農業技術研究所が分析した。

1970年土壤汚染防止法が制定され、特定有害物質としてカドミウム及び銅が指定された。この法律に基づき、本調査研究は環境庁の助成により細密調査として実施したもので、鉱害地土壌の実態が従来点として捕えられていたものが、本調査により初めて地域全域にわたり、細密にしかも広がりとしてはあくすることができた。

II 調 査 方 法

1. 調査対象地域及び面積

過去の渡良瀬川のはんらんにより、土壌中の銅の蓄積が多いとみられる足利市の渡良瀬川南部地域で、渡良瀬川中流の右岸に分布し、その南沿は群馬県境に接する。東西約11km、南北約7kmにわたり、耕地面積は1894ha（1970年）あるが、当地域の西部では急速な都市化にともない耕地のかい廃が著しく、耕地は減少傾向にある。本調査は将来とも耕地として存続するとみられる地区の水田1200haを調査対象とした。

2. 調査年度

1971～1973年

3. 調査密度及び地点の選定

縮尺3千分の1の地図を用い、2.5haに1か

所の割合に調査地点が選べるように方眼を引き、その交点を調査地点とした。地域の上流から毎年160地点づつ合計480地点の水田を調査した。

4. 試料採取の方法

1971, 1972年は水田中央部の地表から地表下15cmまで(耕盤等が地表下15cm以内に出現する場合は耕盤まで)の土壌(以下表層土壌と呼ぶ)及び中央部の地表下15~30cmまで(耕盤等が地表下15cm以内に出現する場合にあっては、耕盤等の上面から地表下30cmまで)の土壌(以下次層土壌と呼ぶ)を採取した。

1973年は水田の水口から水しりの対角線上を3等分し、そのおのおの中央部を水口部、中央部、水しり部として表層土壌を採取した。また水田中央部について次層土壌も採取した。さらに1971, 1972年調査のうち、水田中央部の表層土壌の銅濃度が高い地点について同様な方法で水口部及び水しり部の表層土壌を採取した。

採取時期は入水前の5月下旬から6月上旬の間である。

5. 分析項目及び方法

主に農林水産技術会議資料⁵⁾によったが、その概要は次のとおりである。

1) 0.1 規定塩酸浸出法

風乾細土10gに0.1規定塩酸液50mlを加え、30℃で1時間振とう後乾燥ろ過し、ろ液は直接原子吸光分光光度計(以下原子吸光と呼ぶ)によって、カドミウム、銅、亜鉛の定量を行なった。本文中分析法の記載がない場合は本法によった。

2) 全 銅

風乾細土5gを濃硫酸、濃硝酸及び過塩素酸混合液で分解後、1規定塩酸と熱水を加えて内

溶物を溶解しろ過した。

ろ液の一定量を取り、クエン酸ニアンモニウム溶液を加えてpHを9.5に調節し、1%ジェチルジチオカルバミン酸アンモニウム液及びメチルイソブチルケトン(MIBK)を加えて振とうし、銅をMIBKに移行させてから原子吸光により銅を測定した。

3) 0.05規定塩化カリウム(pH3.2)浸出銅

風乾細土5gに浸出液300mlを加えて30℃で4~5時間振とうし、上澄液をサイフォンで採取後乾燥ろ過し、銅を原子吸光で測定した。

4) 1規定酢酸アンモニウム(pH4.5)浸出銅及び鉛

風乾細土10gに浸出液100mlを加えて30℃で1時間振とう後乾燥ろ過し、ろ液は直接原子吸光で銅及び鉛を測定した。

5) 全ヒ素

5-2)によりえた三混酸分解液の一定量をヒ化水素発生捕集装置にとり、塩酸、ヨウ化カリウム液、塩化第一スズ溶液及び砂状亜鉛を加えてヒ素をヒ化水素として発生させ、酢酸鉛を含んだグラスウールを通過させた後、ジェチルジチオカルバミン酸銀ピリジン溶液に吸収させ、分光光度計でヒ素を測定した。

6) 1規定塩酸浸出ヒ素

風乾細土10gに1規定塩酸50mlを加え、30℃で30分振とう後乾燥ろ過した。ろ液の一定量をとって前項の方法に従いヒ素を測定した。

III 調査地域の概況

1. 地形及び地質

当地域は渡良瀬川の沖積層で、平坦な地形をなしている。渡良瀬川上流の足尾山地は秩父系に属する古生層で、主として砂岩、頁岩、チ

ヤートからなる。足尾町北西部に流紋岩が分布し、銅鉱石を産出する。鉱物は黄銅鉱を主とし、黄鉄鉱、磁硫鉄鉱、鉄せん垂鉛鉱、方鉛鉱等40種以上におよび、銅のほか金、銀、硫化鉄、鉛、スズ、ビスマス等も産出する。

2. 水 利

三栗谷用水と矢場用水があり、いずれも渡良瀬川から取水している。三栗谷用水は現在、渡良瀬川の河水の直接取水のほかに、堤内集水きょからも清透な低銅濃度の水を取水して、かんがい水の銅濃度を低下させている。渡良瀬川と集水きょからの取水量の割合は約1/2づつである。さらに沈砂地を設け土砂を沈でんさせるとともに、水温上昇効果も兼ねている。その沈砂量は年間200立方メートル程度である。受益面積は約1440haで、水量は比較的豊富である。

群馬県境ぞいに矢場用水がある。渡良瀬川の河水の直接取水のみで沈砂地もないが、取水口より6～7km流下して本県に入り、流速も減速され、湧水も混入してくるため、平水時には土砂の流入は少ない。しかし強雨時には用水の濁りがみられる。

両用排水系統を付図1に示したが、特に三栗

谷用水系統はほ場整備により水路を変更しているところが多い。また両用水とも近年工場及び生活排水による汚染がみられる。

3. 土壌条件

当地域は1969年に地力保全基本調査で土壌調査を実施し、下記の5土壌統に分類した。

上文挾統は福居西部地区の西部に、上蒲生統は福居東部地区の東部及び県、羽刈、小曾根地区等の東部に分布する。上川中子統は新宿荒金地区及び福居東部から上渋垂、下渋垂、高松西部地区にかけてと久保田東部地区に分布する。塩山統は矢場地区、梁田、野田、瑞穂野地区及び藤の宮右岸分水から筑波用水にかけて、柳田統は福居西部地区に分布する。

しかし地形が平たんで、排水路の水面が高いため、落水期には乾田的性格を示しても、かんがい期間中の表層土壌は還元状態に経過する水田が多い。

各土壌統ともリン酸、カルシウム、マグネシウム含量は多く、窒素とカリウムは中ない少である。また銅過剰害のおそれがあることで、障害性は2等級となっている。

ほ場整備は矢場地区が未施工地区であるほか

第1表 土壌の分類

土壌統名	分級式	色 層 序	腐 植 層 序	砂れき層 の 位 置	土 性		グライ層 の位置	施肥改善 土壌類型
					表土	次層		
上 蒲 生 統	IIprni	灰かつ～灰 灰かつ～灰	表層腐植層なし	な し	壤質	粘質	50cm 以 下	E 4 2
上 文 挾 統	IIprni	灰 かつ 灰	表層腐植層なし	な し	壤質	壤質	50cm 以 下	E 4 3
上 川 中 子 統	IIrni	灰 かつ 灰 かつ	表層腐植層なし	な し	粘質	粘質	な し	G 6 1
塩 山 統	IIlrni	灰かつ～灰 灰 かつ	表層腐植層なし	な し	壤質	壤質	な し	G 6 2
柳 田 統	IIlrni	灰かつ～灰 灰 かつ	表層腐植層なし	30～50 cm 以下	壤質	壤質	な し	K 9 3

はほとんど施工され、上渋垂地区が1907年に、そのほかの地区は1952～1962年の間に施工された。

4. 過去の渡良瀬川のはんらんの状況

渡良瀬川上流の足尾地方は年平均1925^{mm}の多雨地帯で、山はだの露出した急斜面が多く、過去に幾度も洪水があり、多くの被害を受けてきた。

当地域は1906～1911年に借宿町の借宿決壊、福富新町の神明の決壊、梁田町地内における決壊等相次いで渡良瀬川堤防が決壊し、大きな被害をうけた。借宿の決壊により濁流は福居西部地区を経て矢場川に流入したが、福居西部地区に多量の土砂をたい積した。

神明の決壊時には福居東部地区渡良瀬川の間の水田が流失した。このときたい積した土砂を除去し、1907年に区画整理を行なったため、この地域での鉱毒被害は比較的少なかった。最近ここに工場団地が造成され、水田の面積は半減した。

梁田町地内の決壊も被害は大きく、これより下流の水田は完全にかん水し、決壊付近は砂れきを、その下流は土砂を多量にたい積した。その下流の渡良瀬川と矢場川の合流地域は、洪水のたびに濁水が水田に逆流し、多量の土砂をたい積したため、土砂を河川周辺又は水田の一部に積み上げ、あるいは天地返しにより下層に埋めた。

借宿は1949年まで数度決壊し、そのたびに被害を受けた。その後は渡良瀬川堤防の整備により、また矢場川合流地点を下流に変え、ここに逆流防止用のひ門を設けたため、最近ではこれらの直接の被害はなくなった。

5. 農作物障害に対してとられている対応策

1) 足尾銅山における対策

足尾銅山は1973年2月24日をもって採

掘を中止し、鉱石を他から搬入して粗銅の生産を継続しているが、坑内排水は流出しているため、2か所の浄水場において、中和沈でん法により坑内排水中の溶解物と浮遊物を沈でんさせ、その上澄液を放流している。坑内排水の銅の水質基準は1.5ppmであるが、渡良瀬川の高津戸橋地点における水質は、かんがい期間143日の平均銅濃度0.06ppmを維持することが鉱山側に義務づけられているため、スライムたい積場の整備及び銅山付近の露出した山はだに植生板を張り、侵蝕防止策を講じている。

2) 取水地点におけるかんがい水に対する対策

当地域の90%以上をかんがいしている三栗谷用水幹線に沈砂池を設け、また渡良瀬川堤防内に集水きょを作り伏流水も常時利用し、出水時には足尾銅山から電話連絡をうけて渡良瀬川からの取水口をしめ、濁水の流入を防止している。このため1950年沈砂池建設後は水田への土砂の流入は減少し、特に水口部の被害が軽減されたことが、聞取調査¹¹⁾の結果明らかであった。矢場用水ではこのような処置はとられていない。

3) 水田における対策

う回水路の設置、水口の変更、水口部に沈砂池を掘る等一部にみられるが、沈砂池建設後は少ない。水口部にたい積した洪水時の土砂の排土、排土客土、客土、深耕も行われたが、現在には行われていない。

戦後石灰の施用による土壌酸性のきょう正が行われ、銅も不活性化されたため、銅過剰害は著しく軽減し、特にムギ類に対する効果は大きかった。石灰の施用は現在も引続き行われている。さらにムギ類は銅過剰害に弱いオオムギがほとんどなくなり、コムギの作付に変わったことも被害を軽減するうえで大きな役割を果たして

いる。

IV 調査結果及び考察

1. 土壤中重金属の濃度別分布

1) 銅 (ほ場中央値)

表層の平均は47.1ppmであるが、モードは20~40ppmで全体の1/3を、また40ppm未満が約1/2を占める。100ppm以上は5.4%27地点、120ppm以上は1.4%7地点と急減する。最高値は201ppmであるが、この水田はほ場整備により以前の水口部がほ場中央部となって、中央部が最高値を示したものである。したがって本地域のほ場中央部の銅濃度はおおむね200ppm以下であるとみることができよう。また栃木県¹⁰⁾の非汚染地水田の銅の平均5.5ppmと比較して、当地域の平均濃度は約8倍である。

次層の平均は23.2ppmで表層の1/2の濃度である。20ppm未満が57.5%と過半

を、60ppm未満が94.8%と大部分を占める。100ppm以上が2地点あるが、いずれも洪水時に流入した土砂を下層に埋めた地点である。

2) カドミウム

表層の平均は0.6ppm、モードは0.60~0.79ppmである。1ppm以上は8.1%最高値は1.75ppmである。県の非汚染地水田¹⁰⁾の平均0.54ppmと比較して22%高い。

次層の平均は0.38ppmで0.6ppm未満が94.5%と大部分を占める。1ppm以上は3地点である。

3) 亜鉛

表層の平均は16.3ppmで40ppm未満が約98%を占める。最高値は56.3ppmである。県の非汚染地水田¹⁰⁾の平均14.0ppmと比較して本地域の平均は16%高い。

次層の平均は6.1ppmで20ppm以上は1.5%5地点にすぎない。

第2表 土壤中重金属の濃度別分布割合 (%)

		階級 ppm	0.0~	20.0~	40.0~	60.0~	80.0~	100~	120~	140~	160~	180~	200~
			層位	19.9	39.9	59.9	79.9	99.9	119	139	159	179	199
Cu	表層			16.0	33.0	23.1	13.5	9.0	4.0	0.6	0.4	0.2	0.2
	次層			57.5	26.6	10.7	4.0	0.8	0.2	0.2			
		階級 ppm	0.0~	0.20~	0.40~	0.60~	0.80~	1.00~	1.20~	1.40~	1.60~		
			層位	0.19	0.39	0.59	0.79	0.99	1.19	1.39	1.59	1.79	
Cd	表層				8.1	31.3	40.0	12.5	5.6	2.3	0.2		
	次層			3.1	59.0	32.4	4.0	0.9	0.2	0.4			
		階級 ppm	0.0~	20.0~	40.0~								
			層位	19.9	39.9	59.9							
Zn	表層			73.5	24.4	2.1							
	次層			98.5	1.3	0.2							

土耕試験による作物生育障害試験は多数行われているが、吉池¹⁵⁾はこれらをまとめた結果、銅の被害発生限界濃度は80～150ppmで、現地の鉱害田にもほぼあてはまるようであるとしている。また本調査研究の一環として行った水稲生育の実態調査¹¹⁾及び対策試験¹²⁾結果からみて当地域の銅濃度の高い水田にあっては、水稲の生育障害が発生しうる濃度である。

亜鉛の環境基準は未設定であるが、亜鉛の被害発生濃度について吉池¹⁴⁾は、土壌の性質によって大きく異なるが、150～500ppm程度と推定されるとしている。当地域の最高値は56.3ppmであることから、亜鉛の生育障害のおきるおそれは少ないと考える。

カドミウムは食品衛生法により玄米中の濃度が問題となるが、玄米と土壌中の濃度の相関が小さいことから、土壌のカドミウムの環境基準

は未設定である。当地域では玄米中1ppm以上のものは検出されず、また生育障害発生濃度からはるかに低い濃度であるため、土壌中のカドミウム濃度は支障ないものとする。

2. 土壌中重金属の地区別分布

1) 地区別の土壌中重金属の平均濃度

地区の区分は町名区分により行ったが、調査対象水田が1町では少ない場合は数町を統合し多い場合は分割した。

矢場用水系統のうち上流の矢場地区は表層で各成分とも高く偏差も大きい。下流の新宿荒金地区は表層、次層とも低い傾向である。

三栗谷用水系統は上流地区と下流地区で重金属濃度が異なり、上流地区でカドミウムと亜鉛が高く、下流地区では低い。上流地区の中でも藤の宮分水付近の上渋垂及び百頭地区で銅が高い。下流地区では野田及び瑞穂野地区の銅が高

第3表 地区の区分

地区名	該当町名	用水系統	調査対象 水田面積ha	調査点数	調査年度
矢場	南大町里矢場町	矢場用水	35	14	1971
新宿荒金	新宿町藤本町荒金町	矢場用水	48	16	1971
福居西部	堀米町島田町福居町	三栗谷用水	120	46	1971
福居東部	福居町福富町	三栗谷用水	74	26	1971
百頭	百頭町	三栗谷用水	44	22	1971.72
県	県町	三栗谷用水	94	40	1971.72
羽刈	羽刈町	三栗谷用水	60	22	1972
小曾根	小曾根町	三栗谷用水	82	29	1972
上渋垂	上渋垂町	三栗谷用水	70	30	1971.72
下渋垂	上渋垂町	三栗谷用水	114	45	1972
高松西部	高松町	三栗谷用水	61	25	1972
久保田西部	久保田町	三栗谷用水	28	13	1972
梁田	梁田町	三栗谷用水	66	24	1973
久保田東部	久保田町	三栗谷用水	110	46	1973
野田	野田町	三栗谷用水	104	42	1973
瑞穂野	瑞穂野町	三栗谷用水	90	40	1973
計			1,200	480	

第4表 地区別の土壌中重金属濃度と標準偏差 (P P m)

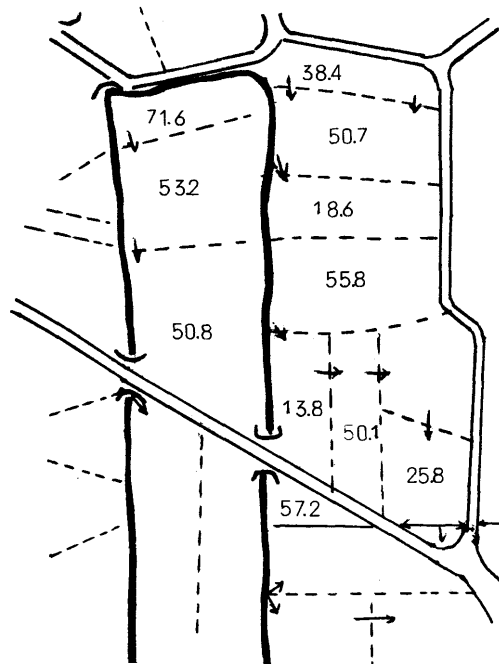
地 区 名	表 層						次 層					
	C u		C d		Z n		C u		C d		Z n	
	平均	偏差	平均	偏差	平均	偏差	平均	偏差	平均	偏差	平均	偏差
矢 場	54.8	47.2	0.98	0.31	28.8	12.0	16.9	24.9	0.37	0.26	7.2	12.1
新 宿 荒 金	33.2	15.3	0.96	0.29	21.2	8.0	8.6	5.9	0.30	0.10	3.1	2.1
福 居 西 部	42.2	10.4	0.64	0.18	16.5	7.1	16.9	14.0	0.45	0.23	6.6	5.0
福 居 東 部	34.1	18.2	0.71	0.17	16.8	7.1	19.2	15.9	0.47	0.17	9.1	8.9
百 頭	54.6	37.6	0.69	0.28	21.0	13.3	18.5	15.6	0.39	0.13	5.9	3.5
県	37.4	29.0	0.73	0.22	20.9	9.1	12.8	9.4	0.36	0.13	7.0	3.9
羽 刈	42.9	22.6	0.66	0.14	20.9	8.2	15.6	10.5	0.35	0.13	7.5	5.2
小 曾 根	37.8	20.5	0.73	0.15	17.9	7.5	16.7	10.2	0.36	0.11	7.4	2.7
上 渋 垂	61.0	27.6	0.79	0.20	24.1	9.0	29.9	21.6	0.37	0.14	7.3	6.2
下 渋 垂	44.0	31.6	0.64	0.21	19.1	8.8	19.3	16.7	0.35	0.16	6.9	6.4
高 松 西 部	28.2	13.7	0.59	0.12	11.0	3.9	14.6	9.8	0.39	0.12	5.7	3.4
久 保 田 西 部	39.5	25.0	0.53	0.11	12.1	5.6	17.0	11.6	0.36	0.13	7.5	4.2
梁 田	43.0	17.8	0.47	0.12	10.4	4.3	22.7	8.4	0.30	0.09	4.2	1.6
久 保 田 東 部	44.1	24.7	0.52	0.15	10.1	2.7	27.7	17.3	0.34	0.12	4.7	1.4
野 田	81.4	20.7	0.56	0.13	11.3	3.7	47.0	21.6	0.41	0.11	5.3	1.6
瑞 穂 野	56.1	19.9	0.58	0.14	9.7	2.6	38.2	22.7	0.40	0.09	5.3	2.1

く、野田地区は地区平均濃度が最高であるが、その偏差は小さい。次層は野田及び瑞穂野地区の銅が高く、上渋垂、梁田及び久保田東部がこれについて高いほかは明らかな差はみられない。

2) 銅

表層の銅濃度の高い地域は(1)矢場地区、(2)福居西部の西寄り、(3)三栗谷用水藤の宮分水付近と筑波用水沿い及び藤の宮左岸分水沿い、(4)梁田地区から渡良瀬川と矢場川の合流地点までである。

(1)の矢場用水は取水口に沈砂池がなく、渡良瀬川の増水時の濁水が直接流入したこと、特に矢場地区はほ場整備が行われていないため用水が蛇行しており、平水時は用水堀が沈砂の役目を果たすとしても、増水時にはかえってこれらがせき付近の水田に流入しやすかったと考えられる。また矢場川本流の底質中の銅は200



第1図 ほ場未整備地区の用水と土壌中銅濃度 (P P m)

p p mを越すが、待矢場用水の末流では120 p p m程度に減少し、水路を流下するにしたがい底質が変化していることが認められるが、依然として銅が多く、水路の底質が水田に流入すれば、水田の銅濃度が高まることは明らかである。

(2)は再三にわたる借宿の決壊時に、やや

低い地形になっているために濁水が滞留し、多量の土砂をたい積したといわれる。厚くたい積した土砂は除去されたところもあるが、除去作業が行われなかった水田も多く、表層に銅が蓄積された原因になったものと推定される。

(3)は三栗谷沈砂地が建設されるまで増水時の濁流を藤の宮右岸分水に流し、矢場川に落



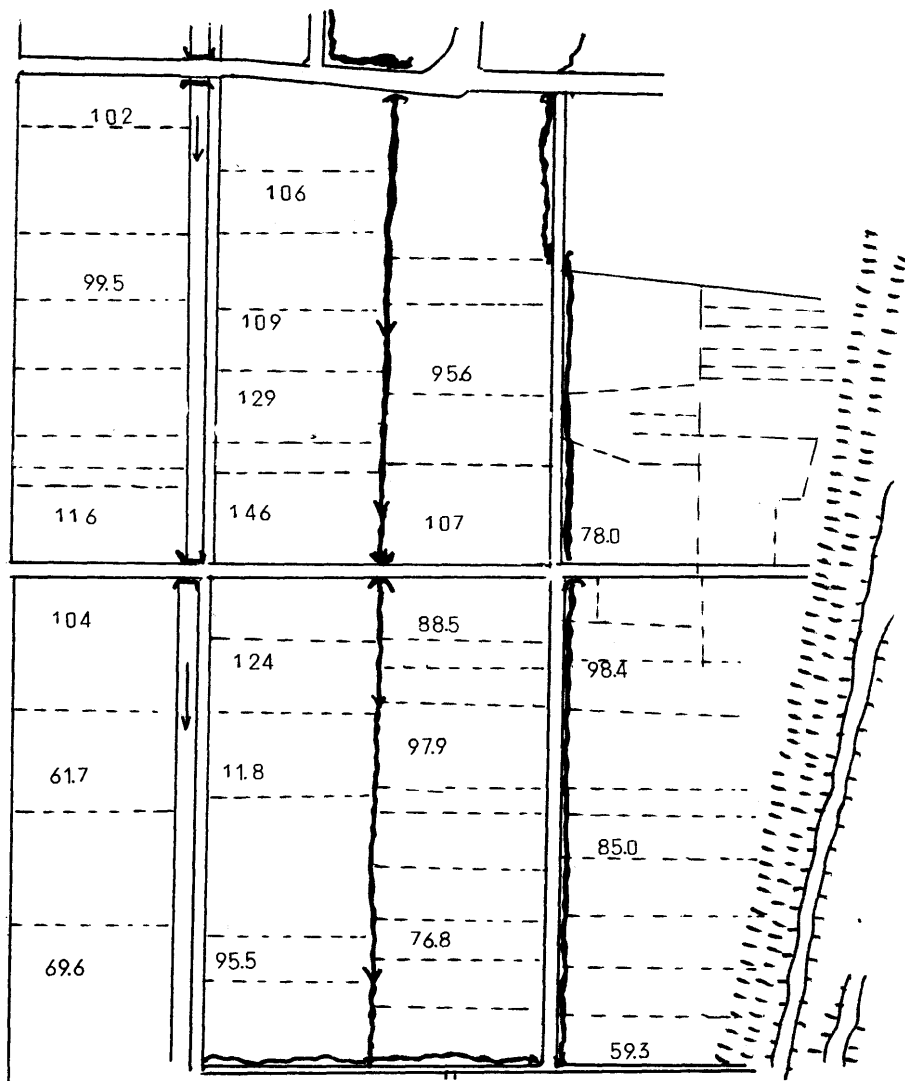
第2図 ほ場整備地区の用水と土壌中銅濃度 (P P m)

--- ほ場整備前の水路
 —■— せき及び水口

した。しかし筑波用水にも流し、用水にある多くのせき付近の水田に直接濁水が流入した。また毎年春に行なう堀ざらいは、底質を用水の土手に堀り上げたままで、これを運搬除去することがなかったため、付近の水田に入ったといわれる。藤の宮左岸分水はほ場整備前は蛇行して流れ、途中多くのせきが張られており、増水時にせき付近の水田に土砂が流入し、また堀ざらい時の底質が水田に入ったことは筑波用水と同様な状況であったようである。したがってこの

付近の水田は当時の取水ぜきからの距離により、底質の流入量が著しく異なったものと思われ、一筆ごとに銅濃度が異なる原因となったと考える。

(4) 地域の先端は1910年の渡良瀬川の決壊部分で、多量の土砂をたい積し、下流部分は矢場川との合流付近であるため、この洪水時に土砂をたい積したばかりでなく、強雨時には矢場川が増水し、又は渡良瀬川から矢場川に逆流して再三にわたり土砂をたい積した。当時こ



第3図 濁水の逆流地域の土壤中銅濃度 (PPM)

の土砂に作物を栽培し、生育が異常ないことを確認したうえで、土砂を除去せずに田面のかさ上げを兼ねて耕起し、表層に混合したといわれる。したがって当地域の銅濃度は水田ごとの差が小さく、水がかりとの関係も明確でなく、また一筆内の濃度変化も小さい特徴がある。

次層は表層の銅濃度が高いところで50ppmを越す水田があるが、いずれも点在していることが多い。しかし最下流部の野田地区では洪水時のたい積物を天地返しにより作土下に埋めた水田があるため、50ppm以上の面積が比較的多い。

2) 出口は渡良瀬川の河川水について調査し、降雨後の濁水が銅害の原因であると指摘しているが、このように銅の分布状況と水がかりまたは洪水との関係は極めて密接で、銅濃度の高い原因は濁水によるたい積物との関係によってほぼ説明することが可能である。

3) カドミウム

表層のカドミウム濃度1ppm以上の分布は矢場用水特に矢場地区に多いほかは藤の宮分水付近に散在する程度で、その他の地区はごく少ない。特に銅濃度の比較的高い野田、久保田幹線周辺のカドミウム濃度は1ppmを越えるものは1地点にすぎない。

次層では1ppm以上の地点は福居西部に1地点あるだけである。

4) 亜鉛

亜鉛とカドミウムの分布状況は類似している。矢場用水の特に上流部の矢場地区と、藤の宮分水周辺に25～50ppm未満の地点が多く、その他の地区は散在する程度である。特に野田、久保田幹線周辺は銅濃度が高いにかかわらず亜鉛濃度が低いことは、カドミウムと同様な傾向である。

次層でもカドミウムと同様に全般に低濃度で、

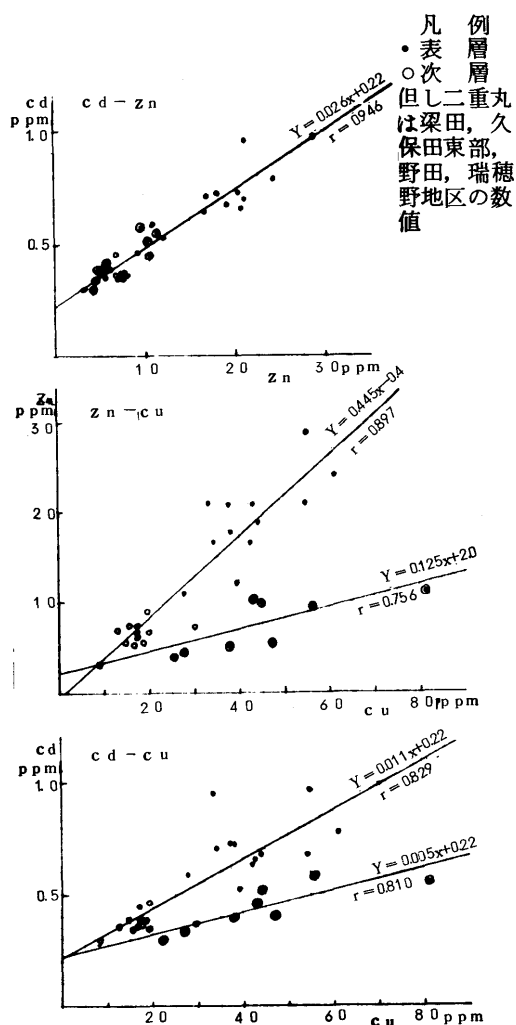
20～25ppm未満の地点はわずかに散在しているにすぎない。

3. 地区別重金属の相互関係

銅、カドミウム、亜鉛濃度の相関を各地点について求めた場合と、地区平均で求めた場合は、傾向が類似しているため、ここでは地区平均値を用いて相関を検討した。

1) 銅とカドミウム

当地域の下流の梁田、久保田東部、野田及び瑞穂野地区と、その上流地域とは傾向を異にし、



第4図 地区別の土壌中重金属平均濃度の相関

第5表 表層土壤中銅の高濃度地点における水口・水尻の銅濃度 (P P M)

調査年度	地点数	表 層			次 層
		水 口	中 央	水 尻	
		(C ₁)	(C ₂)	(C ₃)	中 央
					$\frac{2C_1+C_2+C_3}{4}$
1971	15	138.3	119.3	80.5	121.6
1972	10	140.1	110.6	84.8	116.3
1973	19	94.1	102.6	98.5	97.5
平 均	44	119.6	110.1	89.2	109.1

下流地域は銅濃度に比較してカドミウム濃度が低い。このことは表層、次層ともいえることで、表層と次層は濃度の違いはあっても、重金属間の相関は同一傾向を示している。またこのことは、下流にたい積した土砂は上流にたい積した土砂と質の異なるものであることが推察される。

2) 銅と亜鉛

銅とカドミウムと同様な傾向を示し、下流地域は銅濃度に比較して亜鉛濃度が低く、下流地域の汚染度の内容が異なることを示している。

3) 亜鉛とカドミウム

銅とカドミウム及び銅と亜鉛の間に高い相関が認められるが、亜鉛とカドミウムの間にはさらに高い相関がみられる。ここでは上流、下流及び表層、次層とも同一傾向を示している。

このようにこれら3成分は、地域により傾向を異にするものがあるにせよ相関は高く、特に性質が類似し鉱物中に共存しているカドミウムと亜鉛の相関が高いことは、他の鉱害地と傾向を同じくしている。^{1, 7, 8)}

4. 一筆水田内における重金属濃度の状況

1) 表層土壤中銅の高濃度地点における水口、水しりの銅濃度

表層の銅濃度が90ppm以上の44地点について、その水口、水しり及び環境基準算出法による計算値の銅濃度を調査した。地域の上中

流部である1971、1972年調査地域は、水口から水しりへの銅濃度の傾斜が大きい、下流の1973年調査地域はその差がみられない。しかしいずれもは場中央と計算値とは大差ない値である。または場中央部の銅濃度 (X p p m) と計算値の銅濃度 (Y p p m) との回帰式は

$$Y=0.804X+20.5 \quad (r=0.659)$$

がえられた。

2) 表層土壤中銅、カドミウム、亜鉛の水口、中央、水しりにおける濃度

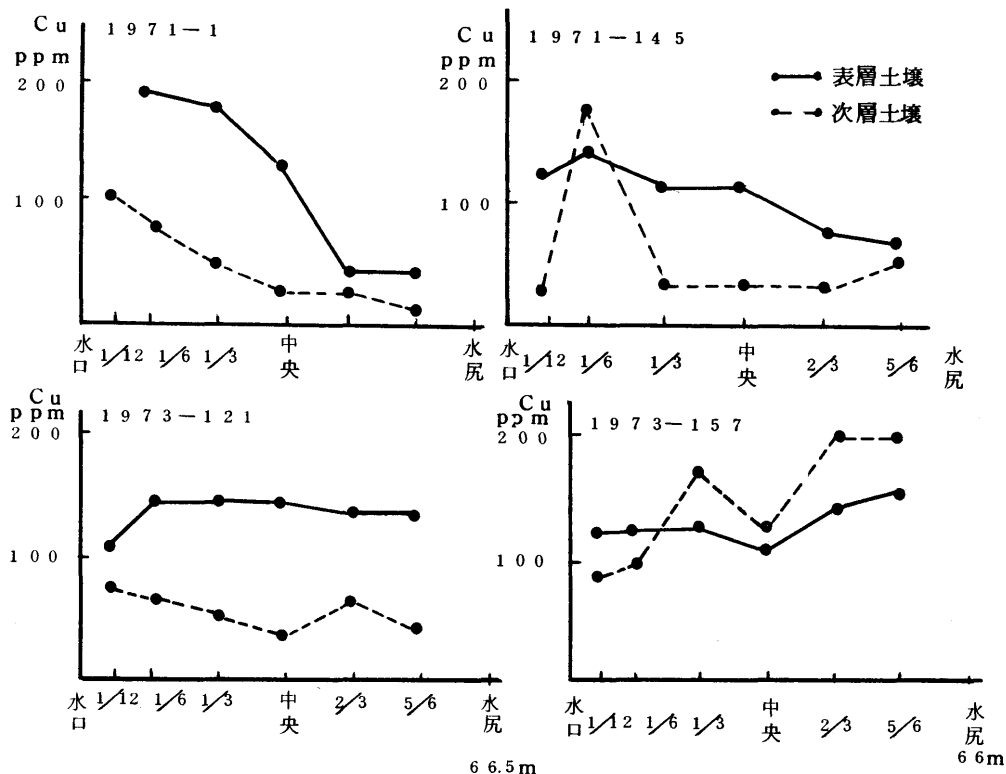
1971年調査地域から15地点について調査した。3成分とも中央と水しりの濃度の差はみられないが、水口は高く、中央に比較して水口の亜鉛は2.3倍、銅は2倍、カドミウムは1.6倍で、亜鉛が最も高い。田口ら⁷⁾及び鈴木ら⁶⁾の、銅は水口部に多く、表層に止りやすいとの報告と異にしている。

第6表 ほ場内の重金属濃度の傾斜 (P P M)

項 目	水 口	中 央	水 尻
C u	98.7	49.1	49.4
C d	1.16	0.72	0.70
Z n	47.1	20.5	21.9

註1) 1971年調査地域の15地点平均値

2) 水口部は水口から、水尻部は水尻からそれぞれ5m入った地点



第5図 ほ場内の水口から水尻までの銅濃度状況

3) 表層及び次層土壌の水口から水しりまでの銅濃度状況

水口から水しりまでののは場の対角線上の等分した地点から、土壌を採取した。調査地域の上中、下流地域から4ほ場について調査したが、次層が水路跡で高い値であったところ(1971-145の1/6の地点)を除けば、(1)表層の銅濃度の水口、水しりの傾斜が大きい場合は次層の銅濃度の水口、水しりの傾斜も大きい。(1971-1)(2)表層の銅濃度の水口、水しりの傾斜が小さい場合は、次層の銅濃度の水口、水しりの傾斜も小さい。(1971-145, 1973-121)(3)ただし洪水

時にたい積した土砂を下層に埋めたところの次層の銅濃度のフレは大きい(1973-157)といえよう。

4) 重金属濃度の垂直分布状況

次層の上部5cmまでの銅濃度が高く、その下は急激に減少している。ただし洪水時にたい積した土砂を天地返しにより埋めた地点(1973-157)では、18~23cmが最も高く、33cmまで高濃度であるが、これは埋立てた深さに関係していると考えられる。カドミウム及び亜鉛についても同様な傾向がみられるが、減少の度合を銅と比較した場合、一定の傾向はみられない。

第7表 重金属濃度の垂直分布状況

調 査 地 点 採 土 の		土 壌 中 濃 度 ppm			調 査 地 点 採 土 の		土 壌 中 濃 度 ppm				
年 度	番 号	深 さ cm	Cd	Cu	Zn	年 度	番 号	深 さ cm	Cd	Cu	Zn
1971	1	0~15	0.95	167.5	41.0	1972	84	0~13	1.46	165	60.4
		15~20	0.52	17.0	9.3			13~18	1.33	165	51.3
		20~25	0.34	7.2	3.1			18~23	0.56	55.0	12.6
		25~30	0.28	5.5	2.2			23~28	0.23	36.5	6.1
		30~35	0.28	4.1	2.0			28~33	0.20	16.4	4.1
		35~40	0.22	3.7	1.6			33~38	0.18	11.2	2.0
		40~45	0.21	3.2	1.2			38~43	0.19	11.5	2.4
1971	145	0~13	1.09	128	30.2	1973	157	0~13	0.48	123	8.0
		13~18	0.78	106	20.1			13~18	0.53	120	14.0
		18~23	0.25	18.5	4.3			18~23	0.28	170	13.2
		23~28	0.20	8.5	1.8			23~28	0.27	140	11.6
		28~33	0.16	8.4	2.3			28~33	0.28	95.0	9.4
		33~38	0.15	4.4	1.9			33~38	0.26	33.1	7.3
		38~43	0.17	4.0	2.2			38~43	0.24	29.0	6.8
		43~48	0.15	3.5	2.5			43~48	0.30	35.5	7.5

第8章 表層土壌と次層土壌

の銅濃度の関係（地点数）

表層Cu ppm	100~	125~	150~	175~
次層Cu ppm	124	149	174	200
0.0~49.9	5	8	1	1
50.0~99.9	6	1	1	
100~150	1	1		

註1) 表層土壌は $\frac{2C_1 + C_2 + C_3}{4}$ による計算

値

2) 次層土壌はほ場中央部の値

5) 表層土壌と次層土壌の銅濃度の関係

表層の銅濃度が高い地点における次層の銅濃度は、対策計画を作成する場合重要な意味をもつので、両者の関係を検討した。表層の銅の計算値が100ppm以上の地点の次層の銅濃度は50ppm未満が多く、特に125ppm以上の地点では、次層の銅濃度50ppm以上あるのは3地点にすぎず、これらはいずれも散

在している。

5. 全銅及び数種の銅溶出法との関係

前項までの分析法はすべて0.1規定塩酸可溶成分であり、最近行われるようになった方法である。したがって既往の成績との対比が困難であるため、従来の銅溶出法との比較検討を行った。

全銅と0.1規定塩酸可溶銅とは高い相関が認められ

$$Y = 0.379X - 16.1$$

の回帰式がえられた。これは増島ら⁴⁾の

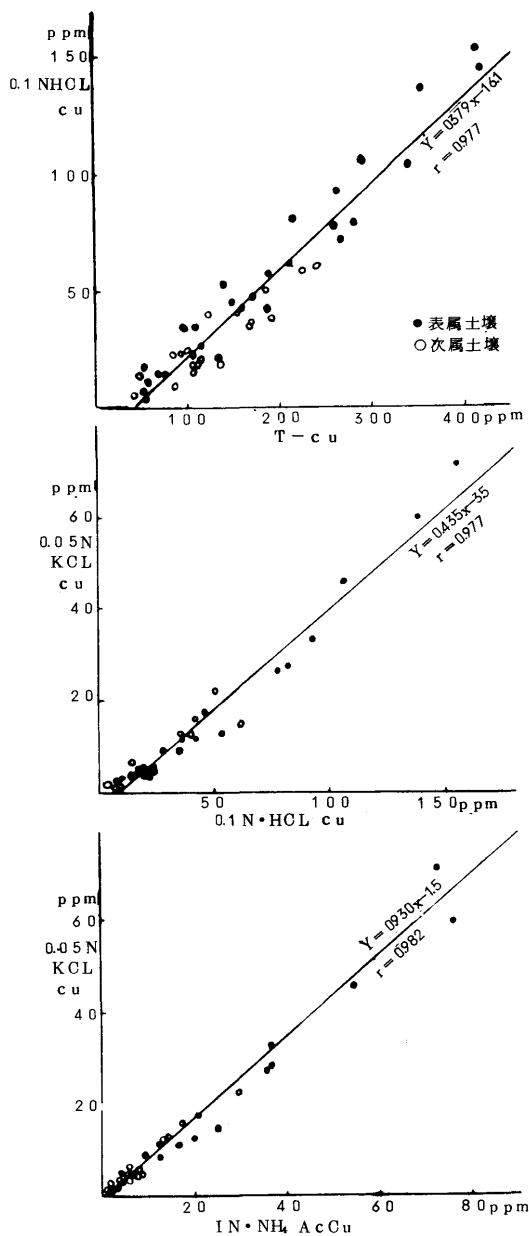
$$\text{Log}Y = 1.122 \text{ Log}X - 0.710$$

その近似式として

$$Y = 0.4X$$

に比較して0.1規定塩酸可溶銅が高いが、近い値であるといえる。

古在ら³⁾は1890年採取土壌について全銅を分析したが、当地域内の作物収量皆無地点の水田作土又は畑表土で、風乾土中900~2280



第6図 全銅及び数種の銅溶出法との関係

ppm, 作物収量微減ないし普通では350~640ppmと報告している。1961年非破壊放射化分析法により⁹⁾ 当地域の水田12か所について土壌の全銅を分析した結果, 作土は

820~1360ppm, 下層土は560~1060ppmであつた。これらの数値と比較すると今回の調査では, 0.1規定塩酸可溶銅はほ場中央は201ppm, 水口は265ppmが最高値であり, これを上記の式にあてはめて全銅を求めると, それぞれ573ppm及び742ppmとなる。また0.1規定塩酸可溶銅は99.6%が160ppm以下で, 全銅に換算すると470ppm以下となり, 上記の成績より明らかに低い。この理由については, 土壌中における変化(溶脱), 作物による吸収等マイナス要因と, かんがい水によるプラス要因, 及び試料採取の方法の違い, 分析法上の問題等不確定要因などが考えられ, そのいずれが主因であるか判断が困難である。

表層と次層を比較すると, 次層の溶出割合が少ない傾向がうかがわれるが, その差は小さい。0.1規定塩酸浸出法は置換性塩基が多いと浸出液のpHが高まり, 銅溶出量が減少するが, 次層土壌の置換性塩基は表層土壌に比較して多く, 浸出液のpHも高いことからこの影響によるものだけであるのか, 次層の銅が溶出しにくい化合形態となっているかについては, さらに検討の必要がある。

従来可溶性銅として多数の浸出法が行われているが, ここではpH4.5の1規定酢酸アンモニウム浸出法及びpH3.2の0.05規定塩化カリウム浸出法と0.1規定塩酸浸出法との関係を検討した。

0.1規定塩酸可溶銅と0.05規定塩化カリウム可溶銅, 及び1規定酢酸アンモニウム可溶銅と0.05規定塩化カリウム可溶銅の間には, いずれも高い相関が認められた。またこれらの間では表層, 次層とも傾向線は同一であつた。

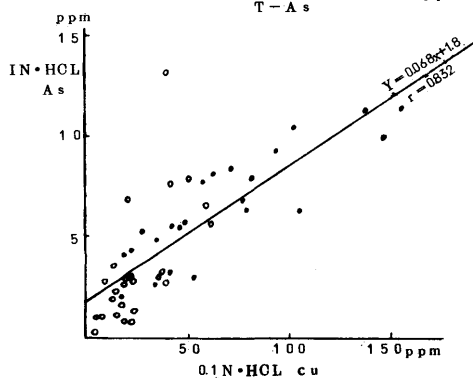
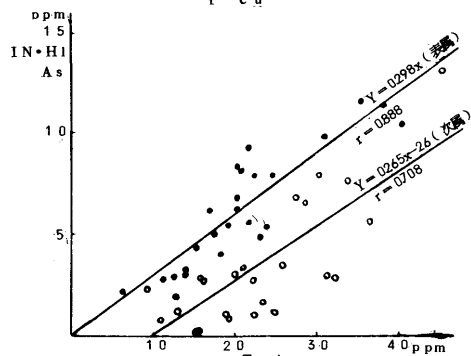
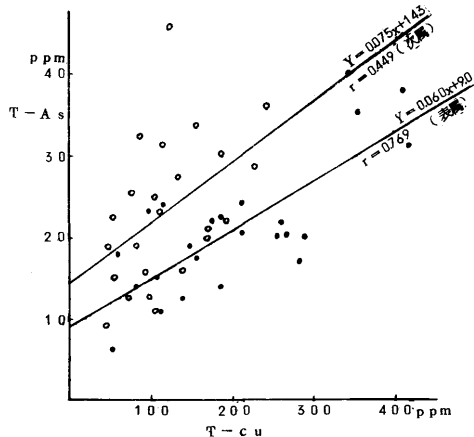
6. ヒ素及び鉛の濃度

調査地域から24地点を選び, その他の重金

属等としてヒ素及び鉛の濃度について検討した。

1) ヒ素

全ヒ素は表層の平均 21.2 ppm, 最高 40.6 ppm, 次層の平均 23.2 ppm, 最高 45.7 ppm で、表層、次層とも大差ないが、全ヒ素と 1 規定塩酸可溶ヒ素との関係は傾向を異にし、次層のヒ素は難溶化の傾向がみられる。また全



第7図 ヒ素と銅の関係

銅と全ヒ素の関係は、表層に比較して次層は明らかに高い。

同一地点の表層と次層のヒ素濃度をみると、次層が高い場合が多い。ヒ素は表層から次層に溶脱し、次層に蓄積して難溶化してゆくことが推定されるが、その点の確認が必要である。

全ヒ素は県の非汚染地水田の平均¹⁰⁾ 11.6 ppm と比較して約 2 倍である。

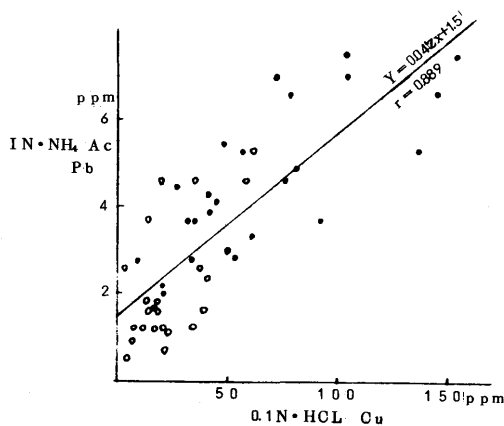
0.1 規定塩酸可溶銅と 1 規定塩酸可溶ヒ素の関係は、表層と次層でその割合がやや異なるようであるが判然としない。

最近ヒ素の環境基準が設定され、1 規定塩酸可溶ヒ素が 15～20 ppm の範囲で地域ごとに設定することとなった。当地域のヒ素は表層の平均 6.3 ppm, 最高 11.3 ppm とすべて 15 ppm 以下で、基準設定に該当する地点はないと判断される。

2) 鉛

pH 4.5 の 1 規定酢酸アンモニウム可溶銅は表層の平均 4.7 ppm, 最高 7.5 ppm, 次層の平均 2.2 ppm, 最高 5.3 ppm である。

県の非汚染地水田の平均¹⁰⁾ 5.3 ppm に比較してむしろ低い。



第8図 鉛と銅の関係

0.1 規定塩酸可溶銅と1 規定酢酸アンモニウム可溶鉛の間に相関が認められる。また表層が高い地点は次層も高い傾向がみられた。

V 摘 要

渡良瀬川流域の重金属に関する調査研究を行い、土壌中の重金属濃度及び分布について取まとめ、つぎの結果をえた。

1. 渡良瀬川流域の1200ha、480地点の水田の重金属を調査した。

2. 銅は表層の平均47.1ppm、次層の平均23.2ppmで、表層の100ppm以上の地点は5.4%であった。カドミウムの平均は表層で0.66ppm、次層で0.38ppm、亜鉛の平均は表層で16.3ppm、次層で6.1ppmであった。

3. 表層の銅濃度の高いところは、過去の渡良瀬川堤防の決壊との関係、増水時の矢場川の逆流による土砂のたい積との関係、及び増水時の濁水が用水ぜき付近の水田に流入したため、用水ぜきとの距離の関係に強く影響を受けていた。

4. カドミウム、亜鉛及び銅との関係は、調査地域の上中流地域と下流地域では傾向を異にするが、3成分の相関は高く、特にカドミウムと亜鉛の相関が高かった。

5. は場中央の銅濃度と環境基準算出法による計算値の銅濃度とは大差なく、両者の相関が認められた。

6. 重金属の垂直分布は次層の上部5cmまでの濃度が高く、その下は急激に減少していた。しかし洪水時に流入した土砂を天地返しにより埋立てたところでは、下層が最高値を示した。

7. 表層の銅の計算値が125ppm以上の地点の次層の銅濃度は50ppm未満が多く、50ppm以上の地点は3地点にすぎなかった。

8. 全銅及び数種の銅溶出法とはいずれも高い相関がえられた。

9. 全ヒ素の平均は表層で21.2ppm、次層で23.2ppm、1 規定塩酸可溶ヒ素は表層の平均6.3ppm、最高11.3ppmであった。またヒ素は次層への溶脱と次層での難溶化の傾向がうかがわれた。

10. 1 規定酢酸可溶鉛の表層の平均は4.7ppmで、0.1 規定塩酸可溶銅との相関が認められた。

謝辞 本調査研究の実施にあたり御指導いただいた、環境庁土壌農業課吉池昭夫課長補佐及び土山豊前土壌肥料部長（現在栃木県高等園芸研修所長）に、また御協力いただいた足利市役所、足利市農協、栃木県農務部蚕糸農産課、足利農業指導所並びに足利農業改良普及所の皆様に厚く御礼申しあげます。

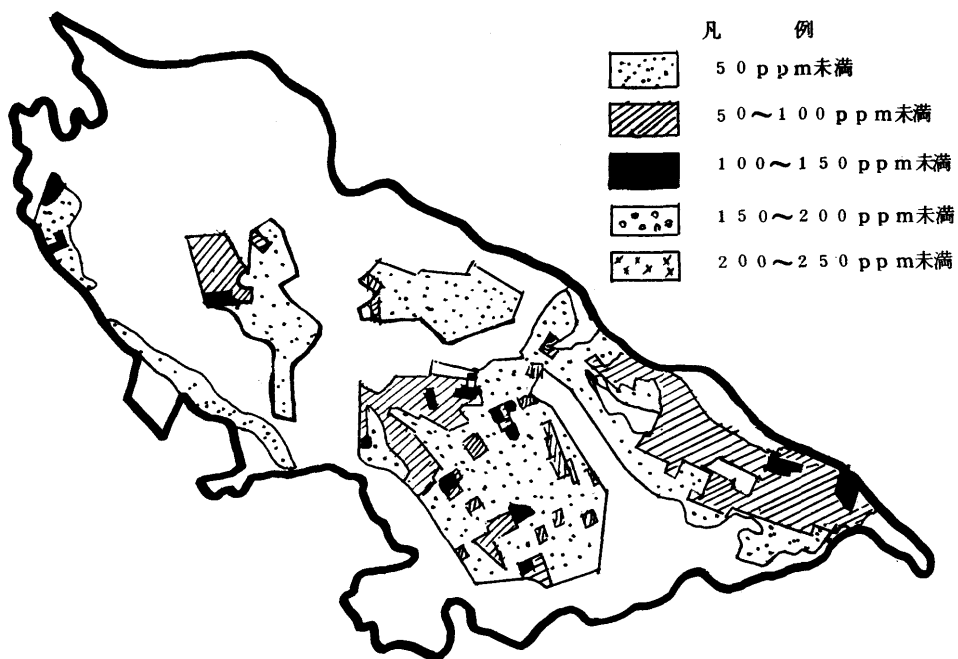
引 用 文 献

1. 青峰重範他（1973）土肥誌講演要旨集19：166。
2. 出口正夫（1955）土肥誌26：81
3. 古在由直・長岡宗好（1892）渡良瀬川沿岸被害原因調査に関する農科大学の報告 栃木県。
4. 増島博池（1971）昭和46年度試験研究成績書。
5. 農林水産技術会議事務局（1971）土壌および作物体中の重金属の分析法。
6. 鈴木正他（1972）土肥誌講演要旨集18 第2部3。
7. 田口喜久治他（1972）土肥誌講演要旨集18 第2部3。
8. 滝嶋康夫他（1973）土肥誌講演要旨集19 第2部84。

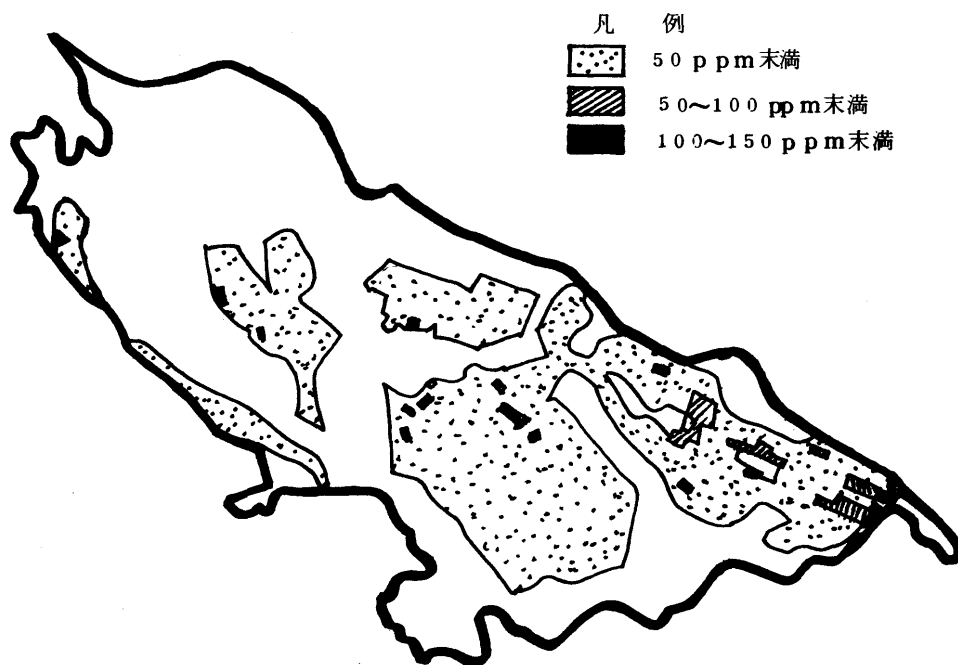
-

[illegible]

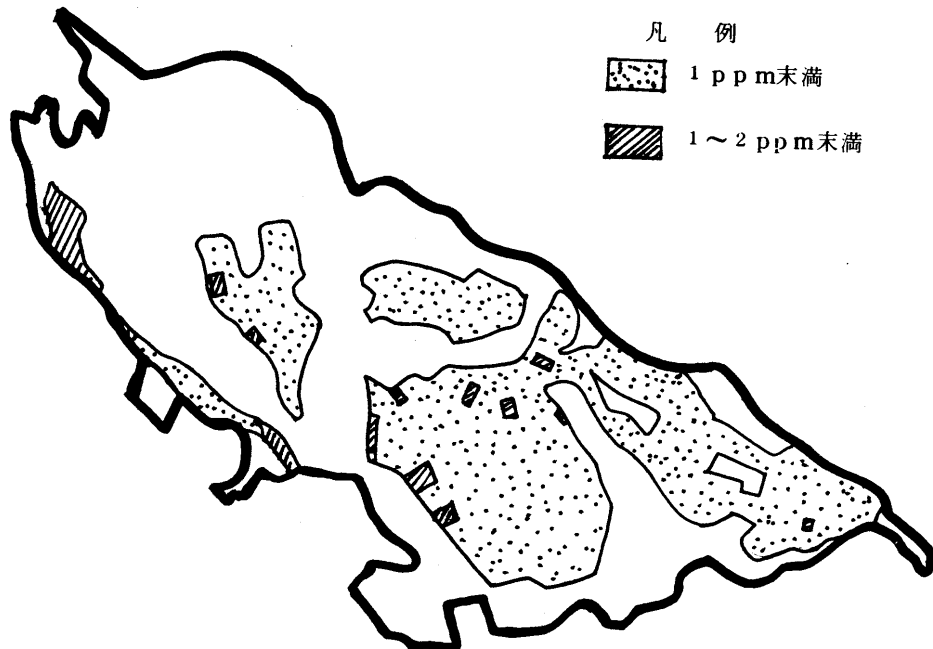
- 51 -



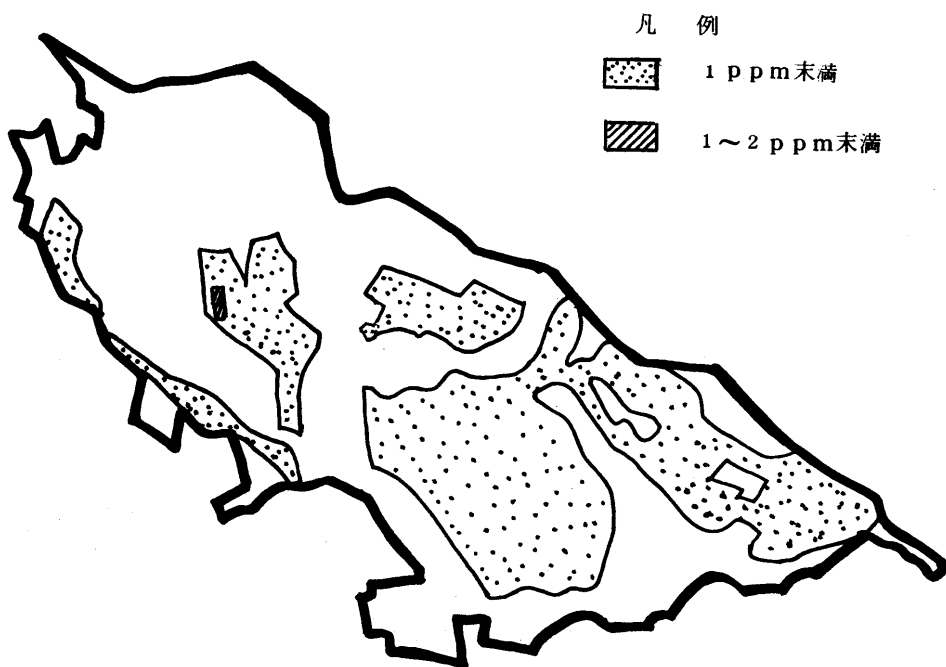
付図3 土壌中の銅分布状況図（表属のほ場中央部）



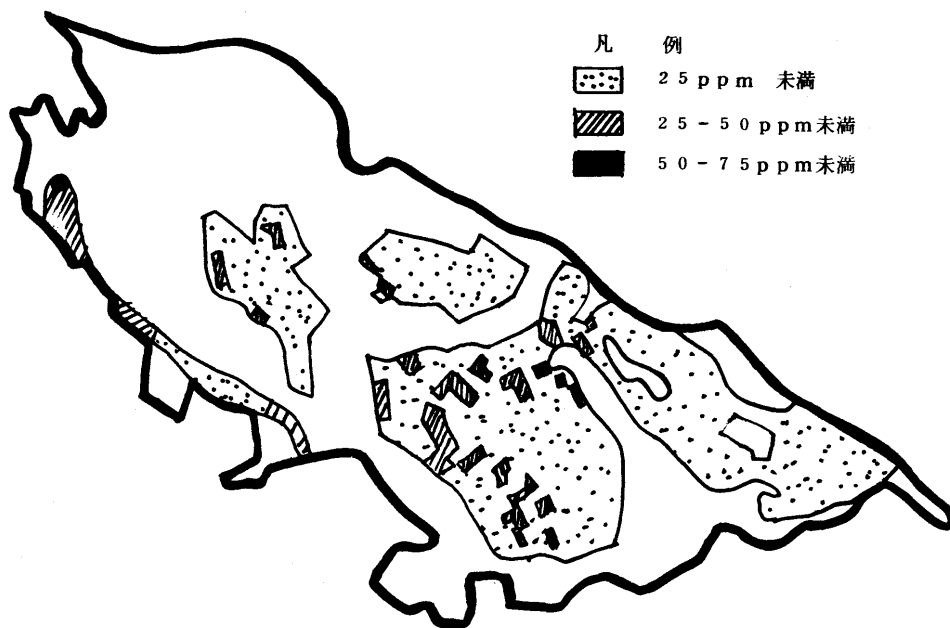
付図4 土壌中の銅分布状況図（次属のほ場中央部）



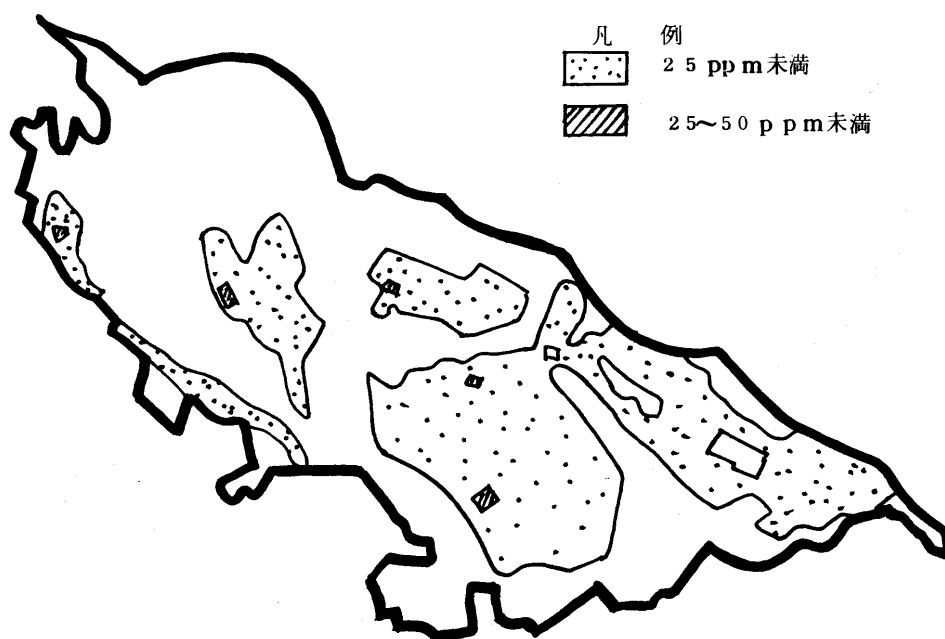
付図 5 土壌中のカドミウム分布状況図 (表属のほ場中央部)



付図 6 土壌中のカドミウム分布状況図 (次属のほ場中央部)



付図7 土壤中の亜鉛分布状況図（表属のほ場中央部）



付図8 土壤中の亜鉛分布状況図（次属のほ場中央部）