

### ③ 林内雨の水質からみる都市化の影響 — 自然教育園内の林内雨に含まれる 主要元素と微量元素 —

村 田 智 吉\*

Influence of urbanization on water quality of throughfall -Major and trace elements in throughfall in the Institute for Nature Study

Tomoyoshi Murata\*

#### は じ め に

自然教育園内の林内雨調査については、かつて坂上ほか(1978)、平山・須永(2001)などが園内の代表的植生下(シイ林、ミズキ林、コナラ林、およびマツ林)において実施した例がある。林内雨中に含まれる成分のうち、カルシウム、マグネシウム、カリウムなどの主要元素は、降雨そのものに含まれているというより植物から分泌される成分に含まれていたものと考えられ、いわゆる植物と土壌の間を循環している栄養成分ととらえることができる。したがって、多くの降雨主要成分は、林内の水文環境に影響を及ぼす地形、地質、気象に左右されるほか、植生のタイプによっても大きく変化すると一般的には理解される。

しかし、自然教育園は東京都内の一等地に位置し、絶えず都市化の影響を受けている。おそらく、林内雨の成分にもその影響がおよんでいる可能性がある。そのモニタリング指標には、Takamatsuら(2010)が報告するように、自然界における存在量は希少だが、人間活動に由来していることが明らかなレアメタル類を対象とすることが有効だろうと考えられる。

そこで本調査では、降雨中の主要元素類に加え、レアメタル類の分析を試みたのでその結果について報告する。

#### 調査地点の概要と降雨採取方法

降雨採取は、サンショウウオの沢付近の台地上の比較的植生が共通する同一林内の5か所で行った(図1および写真1)。降雨採取用の装置は、図2に示したとおり、プラスチック製の深型円柱状ロート(φ10cm)とごみや落葉枝の混入を防ぐためのフィルターおよびポリ瓶を連結させたものを作成し、

---

\*国立研究開発法人国立環境研究所, National Institute for Environmental Studies

最も近い樹幹から約1m付近に設置した。調査時に現存していた植物構成はミズキ、イイギリ、ウワミズザクラ、ヒサカキ、シロダモ、アオキ、シュロ等の雑木林である。観測は2009年7月から2010年8月まで行った。また、同区域は著者らが地温の深度別観測を行っている区域でもある(村田ら2012, 2017)。降雨試料はほぼ一ヶ月ごとに回収した。降雨のpHはガラス電極法で測定し、降雨試料の一部は、分析前にメンブランフィルター(アドバンテック製 Dismic, 孔径  $0.45\ \mu\text{m}$ )を通過させたのち、最終背景濃度が1%硝酸溶液となるように希硝酸溶液で適宜希釈して、誘導結合プラズマ発光分光分析法(ICP-AES; model ICPA-750; Nippon Jarrell-Ash Co., Ltd., Kyoto, Japan)を用いてカルシウム(Ca)、カリウム(K)、マグネシウム(Mg)、ナトリウム(Na)、リン(P)、硫黄(S)、ケイ素(Si)を定量し、誘導結合プラズマ質量分析法(ICP-MS; model HP4500; Hewlett Packard, Palo Alto, CA, USA)を用いてヒ素(As)、アンチモン(Sb)をそれぞれ同位体 $^{75}\text{As}$ 、 $^{121}\text{Sb}$ をターゲットとして分析した。なお、元素分析については、国立環境研究所環境計測研究センター基盤計測機器室に依頼した。分析値は希釈に用いた希硝酸溶液中の元素濃度をブランク値として差し引くとともに、検出限界値はブランク溶液(希硝酸)を10回測定した際の標準偏差の3倍値( $3\sigma$ )とした。Ca, K, Mg, Na, P, S, Siの $3\sigma$ 値は0.009, 0.3, 0.006, 0.03, 0.09, 0.06,  $0.015\text{mgL}^{-1}$ , AsおよびSbの $3\sigma$ 値は0.004および $0.001\ \mu\text{gL}^{-1}$ だった。

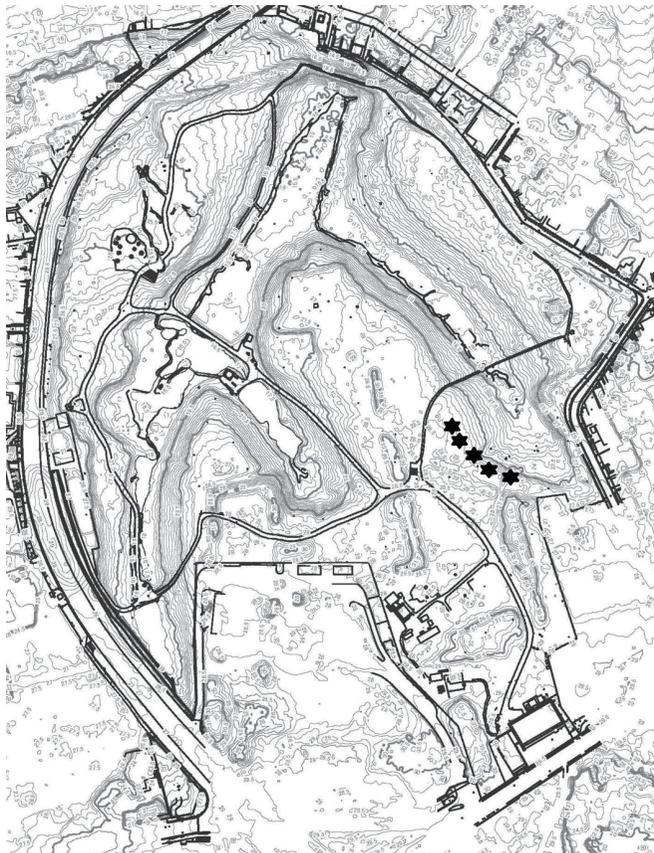


図1 降雨採取地点 (★は降雨採取器の設置箇所; 同一区域で5か所)

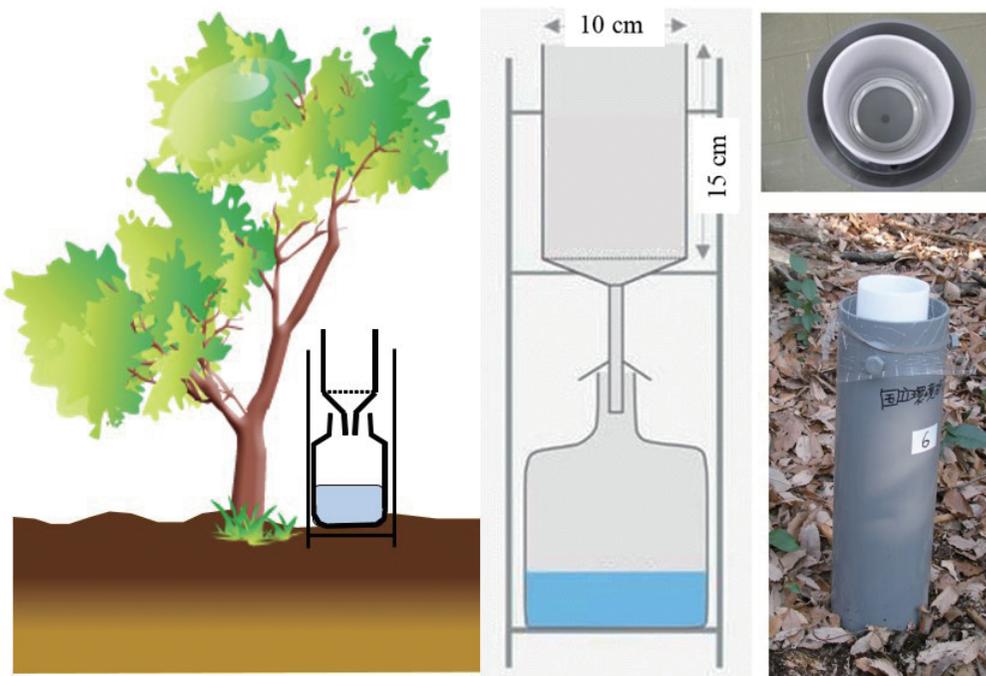


図2 降雨採取器の設置イメージと採取装置

左：降雨採取器の設置イメージ図. 中央：降雨採取器の断面図. 右上：降雨採取器を上方から見た写真. 内部にはフィルターを設置. 右下：降雨採取器の全景.

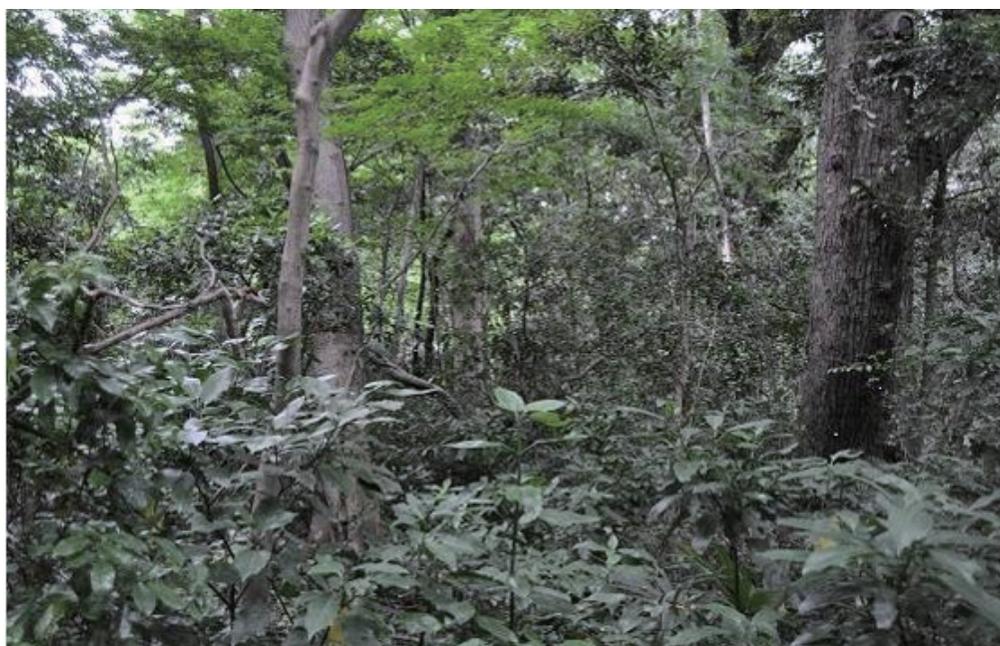


写真1 観測地点の林内風景

## 結果および考察

### 1. 林内の降雨量

調査期間中の降雨量について、東京大手町に設置されている気象庁の観測地点の結果と併記して図3に示した。おおむね林内雨量の年変動は、気象庁観測の東京大手町の降雨量の傾向と類似していたが、園内で観測した林内雨量の方が森林キャノピー上での蒸散量を反映して少なめの値であることが多かった。

### 2. 林内雨の水質およびその変動要因

#### 2-1. 降雨 pH

降水 pH は 4.5 ~ 7.7 と幅広く、落葉が顕著で森林キャノピーが広く開放されているような冬季の

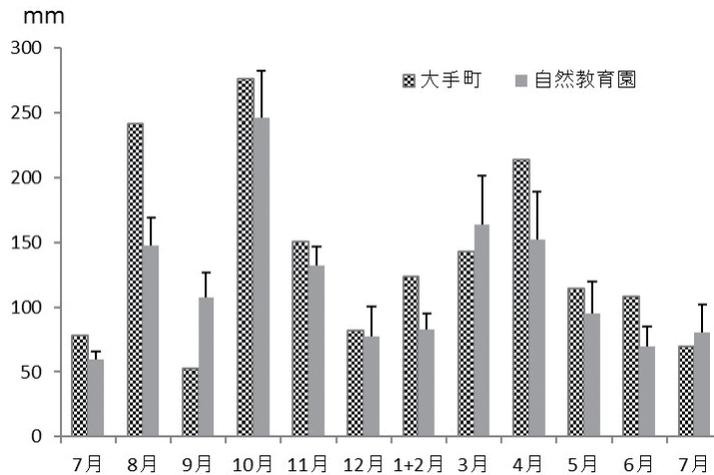


図3 月別林内降雨量 (1月, 2月は合算値. エラーバーは5地点間の標準偏差.)

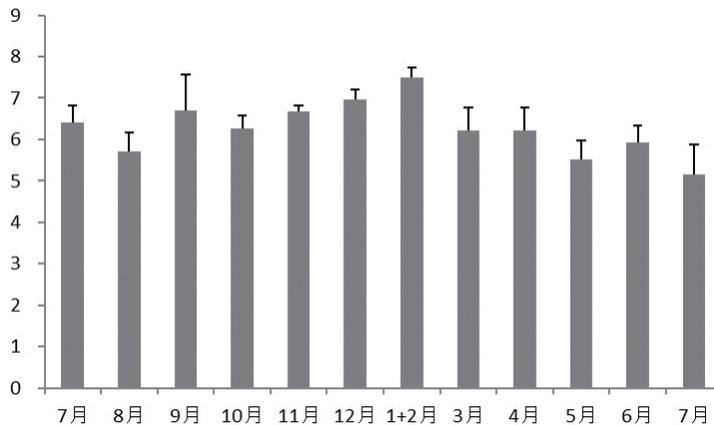


図4 降雨 pH の季節変化

pHが高い傾向にあった。おそらく、自然教育園周辺の都市化により、多くのコンクリート建築物やアスファルト舗装に囲まれていること、それらに由来する粉塵が降雨に含まれることでアルカリ化が進むことが原因と考えられた(図4)。一方、冬季以外はpHが低下することから、枝葉で覆われた森林キャノピーに降雨が接し、植物の分泌成分が混入することで酸性に偏るものと推察される。分析は行っていないが、林内雨の着色具合(褐色～暗褐色)からかなりの有機成分が混入していることが予想され、林内雨中の有機酸類の検証、特に樹木種との関係も興味をもたれるところである。

## 2-2. 主要元素の濃度と負荷量

林内雨中の主要元素濃度について表1に示した。Ca, K, Mg, P, S, Siは、冬季に濃度が低く、春季から夏季に濃度が高くなる傾向が認められることから、林内の枝葉に存在する沈着物や分泌成分に由来しているものと考えられる。一方、Naは季節性に対応していないことから、海塩性などの大気に浮遊して存在していた成分と考えられる。

林内の一定面積に負荷される各元素の総量、すなわち土壤に還元される負荷量(以下、負荷量)を、各月ごとに降雨量と降雨中の元素濃度( $\text{mgL}^{-1}$ ) (表1)を乗じて算出した結果を図5に示した。負荷量の多い元素は、K、次いで、Ca, S, Na, Mg, P, Siの順であった。主に、植物体内、特に枝葉等から溶出しやすい元素が負荷量として反映されているようだった。因みに、Kの年間総負荷量はおよそ $5.5\text{gm}^{-2}$ 程度であり、10aに換算すると $5.5\text{kg}$ となる。これは東京都が示す畑作物(穀類)の施肥基準にも匹敵するほどの量であり、実際には落葉を経由して土壤に還元されるKもかなりの量が存在するはずであり、多くの養分が森林生態系では循環・再利用されていることがわかる。

Ca, K, Naの月別負荷量と林内雨量との相関関係を図6に示す。Naについては上述した通りであり、大気成分に由来していると考えられるため、負荷量は林内雨量に比例しており、両者の間には高い正の相関関係が存在した。ところが、K負荷量と林内雨量の間には相関関係は見いだせず、枝葉の生長、繁茂が盛んな季節に負荷量が多くなる傾向が強かった。Ca負荷量と林内雨量との間には高い相関関係が見いだせたものの、Naほど直線性は高くなく、負荷量は降雨量以外の要因にも影響されていると推察された。本来、CaもK同様に森林生態系内で循環再利用される栄養成分であるが、自然教育園周辺の都市化の影響に伴って、大気中にも相当量のコンクリート等に由来するCaが浮遊しているはずである。本結果は、大気成分由来と森林生態系内の土壤-植物間の循環由来の成分があわさった傾向を示していたと考えられる。

## 2-3. 微量金属類の濃度と負荷量

今回、As, Sbを人為由来の代表的な微量金属類として扱うこととした。これらの元素は元来天然中では濃度が極めて低く、降雨に含まれるものや枝葉上に存在するものの多くは、人間活動に由来し飛散したのと考えられている。特に、自動車などの輸送系燃料の燃焼やブレーキやタイヤの摩耗から放出されるものに由来していると考えられている(Takamatsuら2010)。月別の負荷量の季節変化をみてみると、やはりNaが示したパターンと類似しており、降雨量の多い月にAs, Sbいずれも負荷量が多い傾向を示し(図7, 図8)、両元素とも林内雨量との間に高い正の相関関係が存在した(図9, 図10)。

これまでの既往の研究から、輸送系は $\text{NO}_x$ や $\text{NO}_3^-$ などの酸性物質および微量金属の発生源であることが知られている。これらは長い間大気中にとどまりながら遠方に拡散していく(Nriagu 1990)。

表 1 林内降雨量と pH および降雨中に含まれる各元素濃度 (5 地点の平均値と標準偏差)

年/月	降雨量		pH		Ca		K		Mg		Na		P		S		Si	
	mm	(n)			mg L <sup>-1</sup>													
2009年7月	59	(6)	6.4	(0.4)	2.8	(0.5)	6.1	(0.2)	1.0	(0.2)	0.9	(0.4)	0.39	(0.17)	2.6	(0.7)	0.36	(0.15)
2009年8月	147	(22)	5.7	(0.4)	2.1	(0.4)	3.2	(1.2)	0.8	(0.3)	0.7	(0.3)	0.46	(0.36)	1.6	(0.4)	0.11	(0.08)
2009年9月	107	(19)	6.7	(0.9)	1.7	(0.1)	2.8	(0.6)	0.6	(0.2)	0.8	(0.4)	0.38	(0.38)	1.3	(0.1)	0.10	(0.06)
2009年10月	247	(35)	6.3	(0.3)	2.0	(0.5)	3.3	(1.6)	0.8	(0.3)	2.2	(1.1)	0.21	(0.11)	1.1	(0.2)	0.14	(0.06)
2009年11月	132	(14)	6.7	(0.1)	2.0	(0.6)	3.7	(1)	0.7	(0.3)	1.6	(0.5)	0.04	(0.08)	1.1	(0.2)	0.23	(0.07)
2009年12月	77	(23)	7.0	(0.3)	3.2	(1.8)	3.8	(0.7)	1.1	(0.5)	1.2	(0.2)	n.d.		1.3	(0.2)	0.17	(0.05)
2010年1-2月	83	(12)	7.5	(0.2)	2.0	(0.5)	2.0	(0.5)	0.6	(0.1)	1.1	(0.3)	0.10	(0.1)	1.5	(0.3)	0.15	(0.03)
2010年3月	164	(37)	6.2	(0.6)	1.3	(0.3)	0.7	(0.2)	0.3	(0)	1.0	(0.3)	0.04	(0.06)	0.8	(0.2)	0.10	(0.01)
2010年4月	152	(37)	6.2	(0.6)	1.4	(0.3)	2.9	(1.4)	0.5	(0)	1.6	(0.3)	0.18	(0.1)	1.1	(0.2)	0.14	(0.05)
2010年5月	95	(24)	5.5	(0.5)	2.6	(1)	14.0	(8.5)	1.1	(0.4)	1.0	(0.1)	0.61	(0.32)	1.9	(0.4)	0.51	(0.4)
2010年6月	69	(15)	5.9	(0.4)	2.8	(0.1)	12.8	(7.5)	1.3	(0.4)	1.1	(0.2)	1.22	(0.56)	2.4	(0.4)	0.38	(0.13)
2010年7月	80	(21)	5.2	(0.7)	4.5	(1.3)	7.6	(2.5)	1.5	(0.3)	1.1	(0.2)	1.07	(0.41)	2.9	(0.4)	0.59	(0.7)

n.d.は検出限界以下。

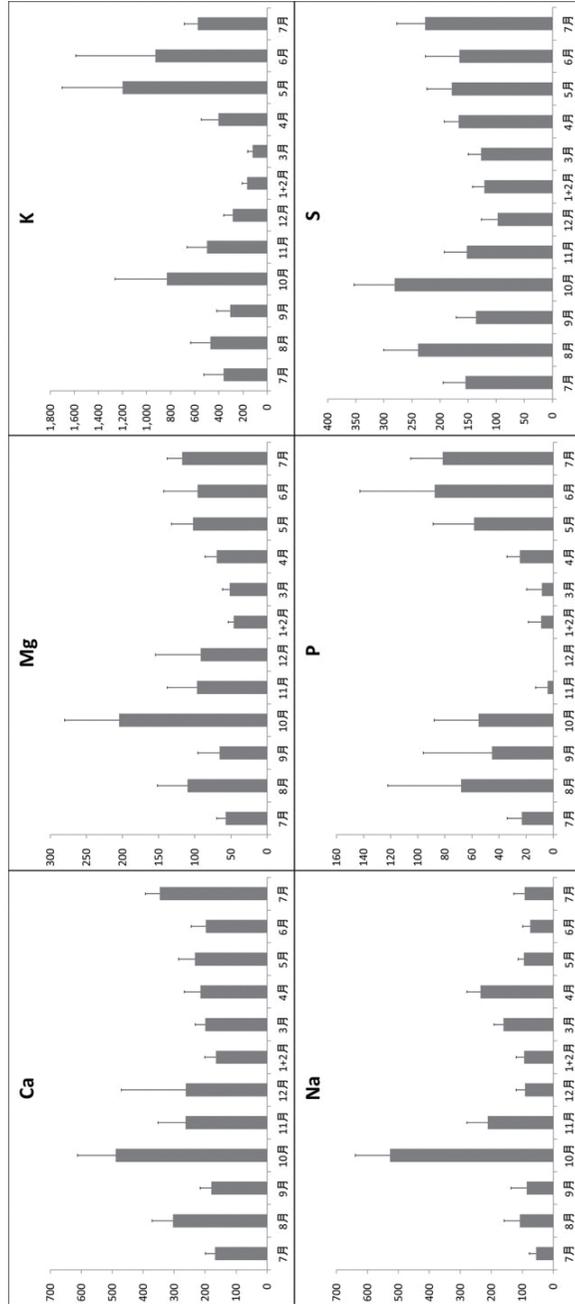


図 5 各元素の月別負荷量変化 (mg m<sup>-2</sup>, エラーバーは 5 地点間の標準偏差)

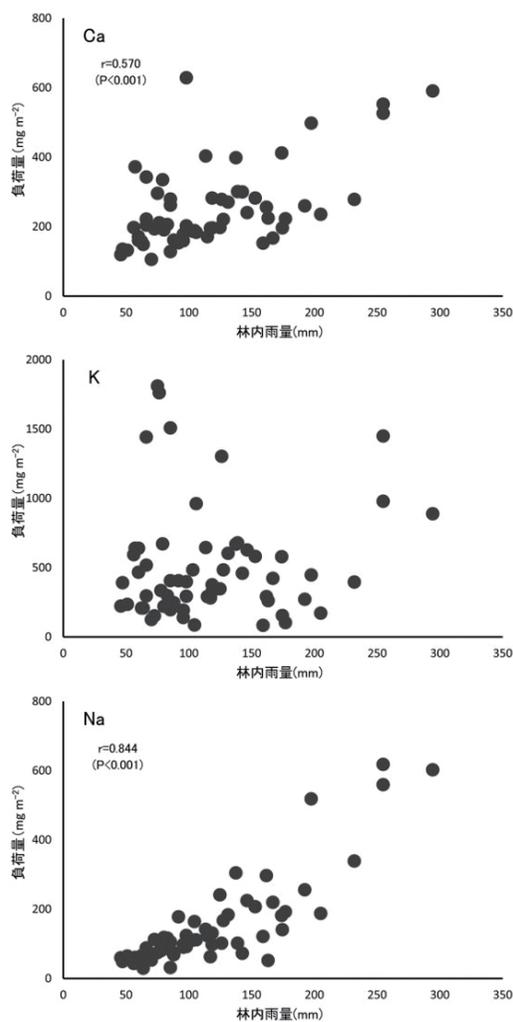


図6 月別の林内降雨量とCa, K, Naの負荷量との関係

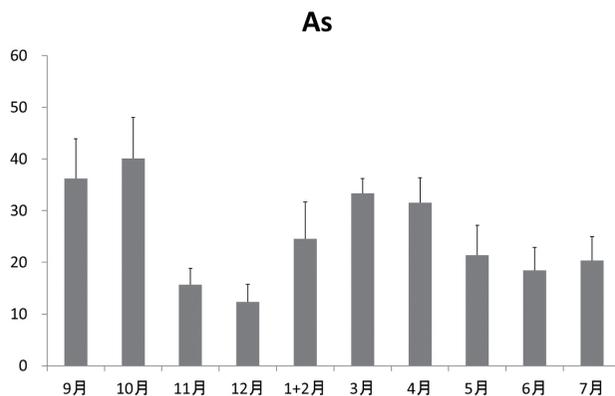


図7 ヒ素の月別負荷量 (単位は  $\mu\text{g m}^{-2}$ , エラーバーは5地点間の標準偏差)

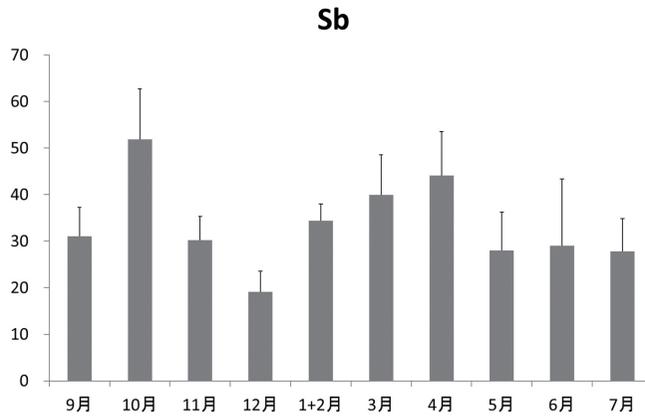


図8 アンチモンの月別負荷量 (単位は  $\mu\text{g m}^{-2}$ , エラーバーは5地点間の標準偏差)

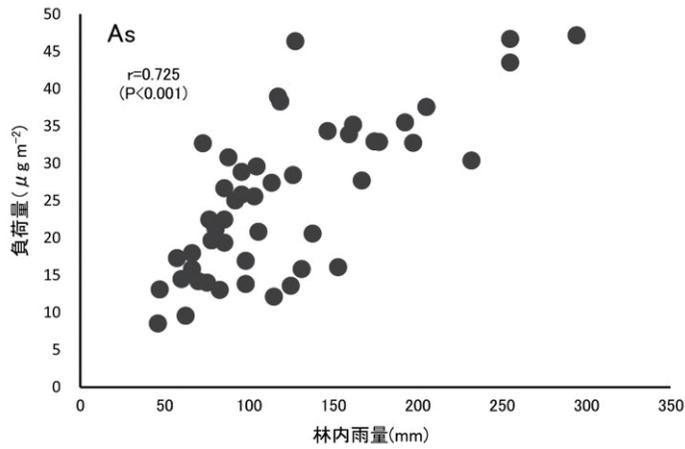


図9 月別林内雨量とヒ素負荷量との関係

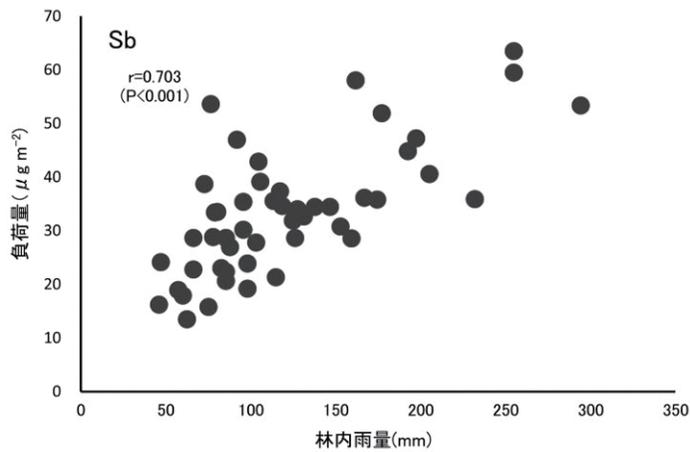


図10 月別林内雨量とアンチモン負荷量との関係

また、降雨中の  $\text{NO}_3^-$  と Sb 濃度が非常に高い正の相関関係にあることも報告されている (Takamatsu ら 2010)。しかし、 $\text{NO}_3^-$  は土壌に到達すると吸着力が弱いために土壌断面内を下方へ速やかに移動してしまうが、Sb は土壌に強く吸着されてしまう。このような関係を利用して、Takamatsu ら (2010) は、土壌表層に蓄積する Sb 量から、過去に降下した  $\text{NO}_3^-$  の総量を見積もることを試みている。自然教育園内では、これまでに坂上ら (2001) によって銅や亜鉛、鉛などの土壌蓄積量に関する調査が実施されている。これらは純粋に汚染物質としての蓄積量の評価であった。しかし、Sb などの微量金属は、蓄積量自体は少量であるものの、 $\text{NO}_3^-$  などの酸性降下物の累積負荷量を間接的に評価できることから、都市化の傾向やその累積傾向を定量的に評価する際の有効な指標にもなる (Takamatsu ら 2000, 2010)。園の周辺には大規模な道路網に加え、高架式の首都高速道路網も発達し、多くの建造物で土地も埋め尽くされている。自然教育園には、様々な土地利用の歴史があり、表土も複雑に攪乱されている区域がみられるものの (川井ら 2013, 2016)、園内を有効に調査することにより、このような周辺の都市化の傾向や酸性降下物の累積量など、都市化にともなう様々な傾向を観測することができるかもしれない。

## 謝 辞

国立科学博物館附属自然教育園からはこのような調査に対し、常日頃よりご協力いただき心より感謝いたします。

## 引 用 文 献

- 平山良治・山崎美津子・坂上寛一・浜田龍之介. 1978. 自然教育園の土壌図. 自然教育園報告. 8 : 39-59.
- 平山良治・須永薫子. 2001. 自然教育園の代表的植生の土壌水分環境変化. 自然教育園報告. 33 : 437-444.
- 川井伸郎・村田智吉・田中治夫. 2013. 自然教育園における歴史的な人為からの土壌の自然再生. 自然教育園報告. 44 : 25-36.
- 川井伸郎・村田智吉・渡邊眞紀子・田中治夫. 2016. 自然教育園における土壌有機物の炭素安定同位体比とメラニクインデックスからみる人為改変の歴史. 自然教育園報告. 47 : 53-60.
- 村田智吉・田中治夫・川井伸郎・矢野 亮・渡邊眞紀子. 2012. 自然教育園内における深度別地温の変動. 自然教育園報告. 43 : 1-10.
- 村田智吉・川井伸郎・渡邊眞紀子. 2017. 自然教育園内の深度別地温観測 (2010 年～2016 年). 自然教育園報告. 48 : 47-53.
- Nriagu J.O. 1990. Global metal pollution - poisoning the biosphere. Environment, 32 : 28-33.
- 坂上寛一・山崎美津子・平山良治・浜田龍之介. 1978. 自然教育園の代表的植生の土壌と水分環境. 自然教育園報告. 8 : 20-38.
- 坂上寛一・水沢靖弥・菅原十一. 2001. 都市公園土壌にみる重金属集積とその影響. 自然教育園報告. 33 : 425-435.

- Takamatsu T., Takada J., Matsushita R., Sase H.2000. Aerosol elements on tree leaves -antimony as a possible indicator of air pollution. *Glob. Environ. Res.*, 4 : 49-60.
- Takamatsu T., Watanabe M., Koshikawa-K.M., Murata T., Yamamura S., Hayashi S. 2010. Pollution of montane soil with Cu, Zn, As, Sb, Pb, and nitrate in Kanto, Japan. *Sci.Total Environ.*, 408 (8) : 1932-1942.