

奄美大島表層土壌における 高レベル有害元素濃度および生物可給リスク

尾崎 宏和*, 油谷 有紀**, 鈴木 大輔**, 渡邊 泉**

(2011年6月8日受付, 2012年1月20日受理)

High-level harmful elements and their bio-availability risk from top soil in Amami-Oshima, Kagoshima, Japan

Hirokazu OZAKI*, Yuki ABURATANI**,
Daisuke SUZUKI** and Izumi WATANABE**

* Center of Education for Leaders in Environmental Sectors,
Tokyo University of Agriculture and Technology,
3-5-8, Saiwai-cho, Fuchu, 183-8509, Tokyo

** Graduate School of Agriculture, Tokyo University of Agriculture and Technology,
3-5-8, Saiwai-cho, Fuchu, Tokyo 183-8509, Japan

Amami-Oshima, Kagoshima Prefecture, Japan keeps unique and precious natural environment. On the other hand, high level of harmful elements has been detected in higher predators including human. These environmental background calls for further investigation for successive environmental conservation in this area. This study revealed that Cu, Zn, As and Sb primarily, and Hg, Tl and Pb secondarily are abundant harmful elements included in top soil in Amami-Oshima. Geological factor in the region was speculated as its cause. Extractive test indicated an exposure risk via direct inhale of soil dust and uptake to plants and crops. The large concentration and high supplying potential from top soil are suggested to be main factors of their elevated content in higher organisms in Amami-Oshima.

Key words: Amami-Oshima, Heavy metal, Harmful elements, Top soil, Bio-availability

1. 緒 言

1.1 遠隔地域における人為起源物質のモニタリング

離島や山岳は、都市部に比べ人為活動に伴う多様な汚染物質の暴露が少ない。そのため生態系の維持や物質循環のメカニズム解明を目的とした地球化学的研究では、遠隔地域での環境観測が多く行なわれてきた。

遠隔地域は、人為影響の量と種類が少ないため、影響があればそれが明瞭に検出される（岩坂，2001）。したがって環境科学研究においても有効な地域であり、近年では人為汚染の評価を目的とした研究も増えている。隠岐島（山崎ほか，2004）、与那国島や礼文島など（山崎ほか，2009）では、柱状堆積物の測定によりアジア起源の重金属負荷の増加が示され、山岳地域では、自動車走行に伴う道路脇土壌の重金属汚染（尾崎ほか，2005，2009）、首都圏由来の窒素酸化物や光化学オゾンの大気中での存在（畠山，1999）などが明らかとされている。

1.2 奄美大島の希少生態系と環境問題

都市から離れた地域では、多くの場合、貴重な自然

* 東京農工大学環境リーダー育成センター
〒183-8509 東京都府中市幸町3-5-8

** 東京農工大学大学院農学研究院物質循環環境科学部門
〒183-8509 東京都府中市幸町3-5-8

環境が残されている。したがって、それらの地域自体が研究対象として意義をもつ。南西諸島は、生物地理区の移行帯に位置しており、北方系および南方系双方の動植物相が認められる。とくに奄美大島は、第三紀系または第四紀に起源をもつ希少種が独自の進化を遂げ、これら固有種が亜熱帯の照葉樹林で多く棲息する。本地域では、アマミノクロウサギ (*Pentalagus furnessi*) が特別天然記念物および希少野生動植物種に指定され、絶滅危惧IB類 (EN) にも分類されている (WWF ジャパン, 2009)。一方で、ハブ駆逐のために導入されたマングース (*Herpestes* sp.) が、アマミノクロウサギを捕食することは主要な環境問題として知られている。さらに、マングースは個体によっては200 $\mu\text{g/g}$ 湿重を越える Hg が肝臓に検出されるという、人間であれば毒性発現を免れない高濃度を体内に保持していることが明らかとなってきた (Horai *et al.*, 2006)。したがって、本来の地域生態系から逸脱した外来種は、食物網バランスを崩壊させるだけでなく、毒性元素の分布など物質循環もかく乱するといえ、それに伴う他種への新たな生体影響などを誘引する可能性も推測される。また、奄美大島住民の爪には、平均で0.41 $\mu\text{g/g}$ の As が検出され、これは九州の鹿児島県住民と比べ約3倍にあたることも報告されている (Tabata *et al.*, 2006)。このように、奄美大島での重金属・有害微量元素の環境中分布は解明すべき点が多くあり、それに関する基礎的な調査が求められる。

1.3 本研究の目的

奄美大島では貴重な自然が保持されているだけでなく、重金属・有害微量元素 (以下、まとめて有害元素) の分布と循環に特異的傾向が認められ、そこでの元素循環や人為影響を明らかにすることは、現地の環境の保護に貢献するものとなる。しかし奄美大島では、有害元素の環境レベルや循環に関する知見は非常に限られている。そこで本研究では、奄美大島における自然環境の保護と有害元素循環のメカニズム解明を目的として、人々の生活にかかわりの強い表層土壌の有害元素濃度を分析し、それらの環境中レベル、地理的分布および動植物への移行性を検討した。

2. 試料と方法

2.1 採取地点および試料の採取方法

土壌試料の採取地として、島内のほぼ全域を約10 km の等間隔でカバーするよう19地点を設定し、2009

年6月25日および26日、市街地はずれ、海岸近く、山間部の森林内、畑作地帯などから試料を採取した。いずれの場所も、局地影響を回避するため、住居や道路からは数~数十 m 離れた地点、工場などの無い地点を選定した (Table 1, Fig. 1)。各地点では、互いに約1 m 離れた3点の、深さ5 cm までの土壌を採集し、じゅうぶんに混合したものをポリエチレン製ビニール袋に入れて持ち帰り、 -30°C で冷凍保存した。

2.2 試料の調整、分解、抽出

試料を解凍後、礫、木片、夾雑物などを取り除き、常温にて乾燥させ、乳鉢を用いて粉碎した。続いて、口径2.0 mm の非金属性の篩に通し、以下3種の試験に用いる風乾細土とした。

全量試験には、風乾細土約0.100 g をテフロン PFA 製バイアルに精秤し、硝酸2 mL、フッ化水素酸1 mL を添加して、200 W のマイクロウェーブ加熱分解装置で15分間湿式分解を行った。バイアルを常温に戻した後、開封して 100°C の熱板上に置き、スクラバ付きドラフトチャンバー内で酸を蒸発乾固させた。さらに、5%硝酸 (関東化学株式会社製 EL 硝酸) に再溶解し、No. 5C のろ紙に通して約25 mL に定容した。

続いて、土壌中に含まれる有害元素の生物可給性と環境中の挙動を検討するため、1 mol/L 塩酸および純水による振とう抽出試験を行った。1 mol/L 塩酸による抽出は、試料1.02 g に1 mol/L 塩酸を34 mL 添加して、常温常圧で200 rpm、幅4 cm の横振盪を2時間行った。その後30分静置し、3,000 rpm で20分間の遠心分離を行い、No. 5C ろ紙に通した上澄み液を検液とした。この方法は、「農用地の土壌の汚染防止等に関する法律」 (以下、土壌汚染防止法) および「土壌汚染対策法」における含有量試験 (環境省告示第19号) に準じるものである。また純水抽出では、塩酸により pH 5.8~6.3 に調整した超純水30 mL を試料3.00 g に加え、常温常圧で200 rpm、幅4 cm の横振盪を6時間行った。その後30分静置し、3,000 rpm で20分間の遠心分離を行い、No. 5C ろ紙に通した上澄み液を検液とした。この方法は、「土壌汚染対策法」における溶出試験 (環境省告示第18号) に準じるものである。

2.3 元素分析

^{103}Rh を内部標準元素として、誘導結合プラズマ質量分析計 (ICP-MS, Agilent 7500a) により22元素 (^7Li , ^{24}Mg , ^{43}Ca , ^{51}V , ^{53}Cr , ^{55}Mn , ^{57}Fe , ^{59}Co , ^{60}Ni , ^{63}Cu , ^{66}Zn , ^{69}Ga , ^{75}As , ^{82}Se , ^{85}Rb , ^{88}Sr , ^{111}Cd , ^{121}Sb ,

Table 1 Site code, area, satellite position and address of the locations where samples were collected.

Location	Area	Latitude (N)			Longitude (E)			Address	Remarks
		deg.	min.	sec.	deg.	min.	sec.		
A1	North-east area	28	24	54.9	129	41	26.5	Fushida, Kasaricho, Amami-shi	City margin
A2	Southern shore	28	24	26.0	129	38	3.4	Akaogi, Tatsugo-cho	Farm area
A3		28	24	42.7	129	35	20.9	Ura, Tatsugo-cho	City margin
A4		28	22	53.5	129	34	54.2	Oogachi, Tatsugo-cho	Settlement margin
A5	Amami city area	28	23	41.5	129	31	29.7	Naze Asahicho, Amami-shi	City margin
A6		28	23	41.5	129	29	9.6	Naze Asanishimmachi, Amami-shi	City margin
A19		28	21	31.8	129	29	49.4	Naze Hiratacho, Amami-shi	City margin
A7	Central area	28	22	51.0	129	26	4.8	Naze Nesebu, Amami-shi	Small settlement margin
A8	Northern shore	28	21	27.5	129	23	45.4	Yamatohama, Yamato-son	Settlement margin
A9		28	21	43.3	129	21	6.3	Oodana, Yamato-son	Mountainous area
A10		28	19	44.5	129	18	31.8	Naon, Ymamato-son	Coastal mountain
A11	South-central	28	16	51.0	129	17	38.9	Yuwan, Uken-son	Settlement margin
A12	area	28	15	17.2	129	19	46.4	Yuwan, Uken-son	Mountainous area
A13		28	13	41.1	129	20	45.8	Shinokawa, Setouchi-cho	Mountainous area
A14		28	11	47.3	129	21	53.8	Aminoko, Setouchi-cho	Mountainous area
A15		28	14	35.8	129	22	20.9	Sumiyouchou Yakugachi, Amami-shi	Mountainous area
A16	South-central	28	15	20.3	129	24	14.2	Sumiyouchou Yakugachi, Amami-shi	Settlement margin
A17	Southern shore	28	17	18.1	129	26	32.9	Sumiyouchou Mizato, Amami-shi	Settlement margin
A18		28	19	12.5	129	29	21.2	Naze Asato, Amami-shi	Mountainous area

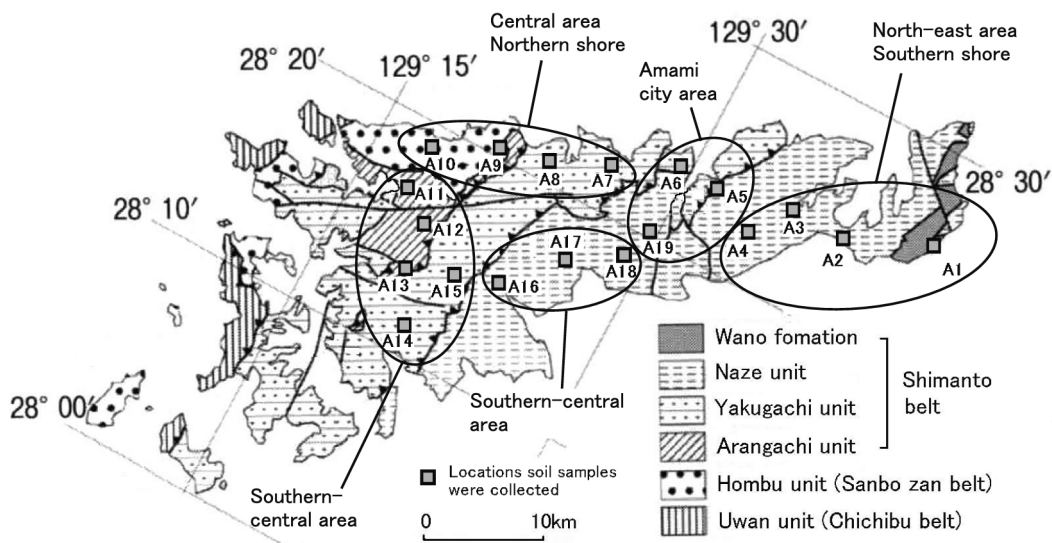


Fig. 1 Map of the 19 locations where top soil was collected and distribution of geology in Amami-Oshima. The geological information was referred from Takeuchi (1994).

^{133}Cs , ^{137}Ba , ^{205}Tl , ^{208}Pb) を定量した。また Hg は、塩化第一スズと硫酸を用いた還元気化原子吸光法により測定した (CVAAS, 平沼 HG-400)。

2.4 土壌 pH の測定

風乾細土 10 g に超純水 25 mL を加えて振盪し、1 時間放置した。測定前に軽く振盪して再懸濁させ、ガラス電極により pH(H₂O) を測定した。

3. 結果と考察

3.1 測定元素の全濃度レベル

本研究で測定した 23 元素の濃度のうち、Cu, Zn, As, Sb は、全量試験による最大濃度はそれぞれ 59.6, 638, 59.7, 4.13 mg/kg, 平均値はそれぞれ 39.3, 234, 17.2, 2.08 mg/kg が認められた (Table 2, Fig. 2)。これらの元素は、浅見 (2010) による土壌中元素濃度の非汚染濃度と比較して、最小—平均—最大濃度はそれぞれ、Cu が 1.16—2.07—3.14 倍, Zn が 1.57—3.91—10.7 倍, As が 0.80—2.53—8.75 倍, Sb が 2.32—5.61—11.2 倍ととくに高いレベルに到達した (Fig. 3)。さらに、試料を採取した 19 地点のうち濃度が非汚染レベルを越えた地点数は、Cu, Zn, Sb が 19, As が 18 とほぼ全てに達した。Cu, Zn, As, Sb の 4 元素は、濃度の平均値が非汚染レベルの 2 倍以上であっただけでなく、最小値 (それぞれ 22.1, 5.42, 94.2, 0.86 mg/kg) も非汚染レベルに近いかそれ以上であり、島内の全域で高い濃度が分布することが示唆

された。

Sr, Hg, Tl, Pb は、平均濃度が 147, 0.10, 0.50, 29.1 mg/kg であった。最小—平均—最大濃度は、非汚染レベルと比較して、Sr は 0.008—1.50—9.96 倍, Hg は 0.29—1.65—2.78 倍, Tl は 0.97—1.60—2.64 倍, Pb は 0.80—1.69—3.45 倍であった (Fig. 3)。また、Sr は 6 地点, Hg は 17 地点, Tl は 18 地点, Pb は 18 地点で非汚染レベル以上の濃度が認められた。Hg, Tl, Pb はほとんどの地点が非汚染レベルを上回ったが、平均値は Sr とともに 1.5 倍程度、最大値は Hg, Tl, Pb の 3 つの有害元素は 3 倍前後の範囲であることから、Cu, Zn, As, Sb に次ぐ濃度範囲にあると認められた。

Ni は 12 地点, Se は 14 地点が、非汚染レベルとされる 0.47 mg/kg および 24 mg/kg を上回ったが (Table 2), 最小—平均—最大濃度は、非汚染レベルに対して Ni は 0.59—1.14—1.69 倍, Se は 0.72—1.26—2.17 倍であり、前述した Cu, Zn, As, Sb, Sr, Hg, Tl, Pb ほどの高い値はみられなかった。Li, Ca, Mn, Cd も、非汚染レベルに対して Li が 0.56—0.87—2.10 倍, Ca が 0.02—1.38—7.89 倍, Mn が 0.37—0.96—2.44 倍, Cd が 0.28—0.67—2.00 倍にとどまった (Fig. 3)。とくに、高い有害性が知られる Cd が非汚染値以上を示したのは、最高濃度地点を含めて 2 地点、同様に Mn は 7 地点であり、全島的な高レベルはみられなかった (Table 2)。これら以外の元素に関し

Table 2 Heavy metal and trace element concentrations (mg/kg dry wt.) extracted by hydrogen fluoride and nitric acid from top soil collected in Amami Oshima. Concentrations are shown in the upper line and its ratio to non-polluted level is in the lower line in italic font.

Area	Location	Li	Mg	Ca	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	As	Se	Rb	Sr	Cd	Sb	Cs	Ba	Hg	Tl	Pb
North-east area Southern shore	A1	14.6 <i>0.56</i>	7770 <i>1.08</i>	40100 <i>6.27</i>	87.2 <i>0.51</i>	28.7 <i>0.51</i>	510 <i>0.55</i>	21900 <i>0.41</i>	12.8 <i>0.65</i>	18.4 <i>0.77</i>	22.5 <i>1.18</i>	284 <i>4.74</i>	18.2 <i>0.87</i>	17.9 <i>2.82</i>	0.851 <i>1.81</i>	45 <i>0.74</i>	850 <i>8.67</i>	0.0816 <i>0.28</i>	1.41 <i>3.81</i>	2.33 <i>0.48</i>	227 <i>0.73</i>	0.0767 <i>1.28</i>	0.301 <i>0.97</i>	13.7 <i>0.80</i>
	A2	22.4 <i>0.66</i>	946 <i>0.13</i>	14300 <i>2.23</i>	81.8 <i>0.48</i>	47.8 <i>0.85</i>	347 <i>0.53</i>	28300 <i>0.53</i>	7.91 <i>0.53</i>	22.9 <i>1.16</i>	22.1 <i>2.37</i>	142 <i>2.37</i>	22.3 <i>1.06</i>	15.7 <i>2.30</i>	0.747 <i>1.59</i>	4.94 <i>0.08</i>	169 <i>0.53</i>	0.156 <i>0.53</i>	2.05 <i>5.54</i>	2.85 <i>0.58</i>	181 <i>0.58</i>	0.147 <i>2.45</i>	0.501 <i>1.62</i>	17.9 <i>1.04</i>
	A3	26.4 <i>1.02</i>	3410 <i>0.47</i>	6230 <i>0.97</i>	114 <i>0.67</i>	80.8 <i>1.44</i>	598 <i>1.44</i>	41300 <i>0.78</i>	18.2 <i>1.21</i>	40.5 <i>1.69</i>	59.6 <i>3.14</i>	158 <i>2.64</i>	26.7 <i>1.27</i>	23.3 <i>3.42</i>	0.538 <i>1.14</i>	5.78 <i>0.09</i>	84.3 <i>0.86</i>	0.122 <i>0.41</i>	1.79 <i>4.84</i>	0.561 <i>0.11</i>	241 <i>0.78</i>	0.138 <i>2.30</i>	0.513 <i>1.65</i>	23.8 <i>1.38</i>
Area mean	A4	16.4 <i>0.63</i>	910 <i>0.13</i>	8090 <i>1.26</i>	82.7 <i>0.49</i>	53.4 <i>0.85</i>	575 <i>0.62</i>	24500 <i>0.46</i>	12.3 <i>0.82</i>	21.1 <i>0.88</i>	31.9 <i>1.68</i>	108 <i>1.80</i>	23.7 <i>1.13</i>	10.6 <i>1.55</i>	0.49 <i>1.04</i>	10.1 <i>0.17</i>	123 <i>1.26</i>	0.0921 <i>0.31</i>	1.2 <i>3.24</i>	1.44 <i>0.29</i>	223 <i>0.72</i>	0.114 <i>1.90</i>	0.424 <i>1.37</i>	23.5 <i>1.97</i>
	Area mean	20.0 <i>0.77</i>	3259 <i>0.45</i>	17180 <i>2.68</i>	91.4 <i>0.54</i>	52.7 <i>0.84</i>	508 <i>0.55</i>	29000 <i>0.55</i>	12.8 <i>0.65</i>	25.7 <i>1.07</i>	34.0 <i>1.79</i>	173 <i>2.89</i>	22.7 <i>1.08</i>	16.9 <i>2.47</i>	0.657 <i>1.40</i>	16.5 <i>0.27</i>	307 <i>3.13</i>	0.113 <i>0.28</i>	1.61 <i>4.38</i>	1.80 <i>0.37</i>	218 <i>0.70</i>	0.119 <i>1.98</i>	0.435 <i>1.40</i>	19.7 <i>1.15</i>
Anami city area	A5	15.4 <i>0.59</i>	1480 <i>0.20</i>	2550 <i>0.40</i>	131 <i>0.77</i>	76.7 <i>1.37</i>	1070 <i>1.15</i>	31600 <i>0.60</i>	28.3 <i>1.89</i>	30.7 <i>1.28</i>	35 <i>1.84</i>	131 <i>2.19</i>	19.8 <i>0.84</i>	14.4 <i>2.11</i>	0.43 <i>0.91</i>	1.94 <i>0.03</i>	21.2 <i>0.22</i>	0.0999 <i>0.34</i>	0.858 <i>2.32</i>	0.603 <i>0.12</i>	74.6 <i>0.24</i>	0.0838 <i>1.40</i>	0.436 <i>1.41</i>	20.5 <i>1.19</i>
	A6	23.1 <i>0.69</i>	747 <i>0.10</i>	3900 <i>0.61</i>	104 <i>0.61</i>	56.1 <i>1.00</i>	737 <i>0.79</i>	21900 <i>0.53</i>	13.6 <i>0.81</i>	26 <i>1.08</i>	49.2 <i>2.59</i>	287 <i>4.48</i>	23.6 <i>1.12</i>	18.4 <i>2.70</i>	0.599 <i>1.27</i>	9.38 <i>0.15</i>	55.1 <i>0.96</i>	0.249 <i>0.84</i>	3.4 <i>9.19</i>	2.11 <i>0.43</i>	171 <i>0.55</i>	0.121 <i>2.02</i>	0.541 <i>1.75</i>	30.2 <i>1.78</i>
	A19	20.4 <i>0.78</i>	3710 <i>0.52</i>	50500 <i>2.89</i>	46.4 <i>0.27</i>	25.2 <i>0.45</i>	1390 <i>1.49</i>	14800 <i>0.28</i>	17.84 <i>0.52</i>	14.2 <i>0.59</i>	24.6 <i>1.29</i>	638 <i>10.65</i>	16.1 <i>0.77</i>	20.1 <i>2.95</i>	0.429 <i>2.17</i>	97.6 <i>0.70</i>	0.18 <i>0.98</i>	1.18 <i>0.61</i>	4.37 <i>3.19</i>	0.0401 <i>0.89</i>	0.325 <i>0.77</i>	0.0401 <i>0.67</i>	0.325 <i>1.05</i>	24.8 <i>1.44</i>
Area mean	Area mean	19.6 <i>0.76</i>	1972 <i>0.27</i>	18983 <i>0.55</i>	93.8 <i>0.47</i>	52.7 <i>0.84</i>	1066 <i>1.11</i>	24767 <i>0.57</i>	16.6 <i>1.11</i>	23.6 <i>1.08</i>	36.3 <i>1.77</i>	345.33333 <i>5.77</i>	19.8 <i>0.84</i>	17.6 <i>2.89</i>	0.683 <i>1.45</i>	18.073333 <i>0.30</i>	351 <i>3.58</i>	0.176 <i>0.60</i>	1.81 <i>4.90</i>	2.36 <i>0.48</i>	162 <i>0.52</i>	0.082 <i>1.36</i>	0.434 <i>1.40</i>	25.2 <i>1.46</i>
	Central area Northern shore	19.9 <i>0.77</i>	790 <i>0.11</i>	6340 <i>0.89</i>	94.9 <i>0.56</i>	60.3 <i>1.08</i>	974 <i>1.05</i>	28000 <i>0.53</i>	16.3 <i>1.09</i>	27.8 <i>1.05</i>	52.5 <i>2.76</i>	360 <i>6.01</i>	24.8 <i>1.18</i>	13.8 <i>2.02</i>	0.684 <i>1.46</i>	6.23 <i>0.10</i>	61.8 <i>0.63</i>	0.279 <i>0.85</i>	2.73 <i>7.38</i>	1.85 <i>0.38</i>	228 <i>0.74</i>	0.0787 <i>1.31</i>	0.53 <i>1.71</i>	59.4 <i>3.45</i>
	A8	21.1 <i>0.81</i>	394 <i>0.05</i>	3880 <i>0.61</i>	77.7 <i>0.46</i>	39.7 <i>0.71</i>	1030 <i>1.11</i>	22300 <i>0.42</i>	10.9 <i>0.73</i>	21.9 <i>0.91</i>	31 <i>1.63</i>	107 <i>1.79</i>	17 <i>0.81</i>	8.11 <i>1.19</i>	0.519 <i>1.10</i>	3.21 <i>0.05</i>	46.5 <i>0.47</i>	0.0857 <i>0.29</i>	0.934 <i>2.52</i>	1.56 <i>0.45</i>	138 <i>1.22</i>	0.0732 <i>1.23</i>	0.382 <i>1.23</i>	21.1 <i>1.23</i>
Area mean	A9	18 <i>0.69</i>	366 <i>0.05</i>	1590 <i>0.25</i>	79 <i>0.46</i>	48.1 <i>0.86</i>	1540 <i>1.66</i>	28900 <i>0.51</i>	20.6 <i>1.37</i>	37.5 <i>1.37</i>	31.9 <i>1.68</i>	579 <i>9.67</i>	27.9 <i>1.33</i>	5.42 <i>0.79</i>	0.429 <i>0.91</i>	3.79 <i>0.08</i>	17.3 <i>0.16</i>	0.592 <i>2.01</i>	1.04 <i>2.81</i>	1.5 <i>0.31</i>	302 <i>0.97</i>	0.112 <i>1.87</i>	0.521 <i>1.68</i>	24.2 <i>1.41</i>
	A10	54.7 <i>2.10</i>	3160 <i>0.44</i>	9420 <i>1.47</i>	91.3 <i>0.54</i>	66 <i>1.18</i>	1730 <i>1.86</i>	35100 <i>0.66</i>	25.6 <i>1.71</i>	38.5 <i>1.63</i>	49.4 <i>2.80</i>	134 <i>2.24</i>	24.5 <i>1.17</i>	15.4 <i>2.26</i>	0.863 <i>1.84</i>	26.8 <i>0.44</i>	126 <i>1.29</i>	0.256 <i>0.87</i>	4.13 <i>11.16</i>	3.48 <i>0.71</i>	225 <i>1.72</i>	0.101 <i>0.73</i>	0.532 <i>1.72</i>	32.6 <i>1.90</i>
	Area mean	28.4 <i>1.09</i>	1178 <i>0.16</i>	5305 <i>0.83</i>	85.7 <i>0.50</i>	53.5 <i>0.86</i>	1319 <i>1.42</i>	28075 <i>0.53</i>	18.4 <i>1.22</i>	31.6 <i>1.07</i>	41.2 <i>2.17</i>	295 <i>4.99</i>	23.6 <i>1.12</i>	10.7 <i>1.57</i>	0.824 <i>1.83</i>	10.0 <i>0.16</i>	62.9 <i>0.64</i>	0.303 <i>1.03</i>	2.21 <i>5.97</i>	2.10 <i>0.43</i>	223 <i>0.72</i>	0.091 <i>1.52</i>	0.491 <i>1.58</i>	34.3 <i>2.00</i>
South-central area	A11	24.8 <i>0.95</i>	344 <i>0.05</i>	143 <i>0.02</i>	118 <i>0.69</i>	48.4 <i>0.86</i>	713 <i>0.77</i>	32300 <i>0.61</i>	19.7 <i>1.31</i>	32.7 <i>1.38</i>	41.8 <i>2.20</i>	94.2 <i>1.57</i>	19.4 <i>0.92</i>	10.9 <i>1.60</i>	0.633 <i>1.35</i>	8.84 <i>0.14</i>	1.8 <i>0.02</i>	0.085 <i>0.28</i>	2.02 <i>5.48</i>	2.51 <i>0.51</i>	35.4 <i>0.11</i>	0.128 <i>2.13</i>	0.654 <i>2.11</i>	25.9 <i>1.51</i>
	A12	21.8 <i>0.84</i>	723 <i>0.10</i>	8400 <i>1.31</i>	94.9 <i>0.58</i>	43.5 <i>0.78</i>	459 <i>0.49</i>	21000 <i>0.51</i>	8.7 <i>0.58</i>	19.4 <i>0.81</i>	28 <i>1.47</i>	115 <i>1.92</i>	20.4 <i>0.97</i>	59.7 <i>8.75</i>	0.479 <i>1.02</i>	8.06 <i>0.13</i>	125 <i>1.28</i>	0.0984 <i>0.33</i>	3.02 <i>8.16</i>	2.75 <i>0.86</i>	146 <i>0.47</i>	0.091 <i>1.35</i>	0.489 <i>1.59</i>	27.9 <i>1.62</i>
	A13	24.1 <i>0.83</i>	561 <i>0.08</i>	286 <i>0.04</i>	101 <i>0.69</i>	56.7 <i>1.01</i>	525 <i>0.56</i>	29200 <i>0.55</i>	14.4 <i>0.96</i>	28.1 <i>0.56</i>	43.7 <i>2.30</i>	315 <i>5.76</i>	19.7 <i>0.84</i>	16 <i>2.35</i>	0.453 <i>0.96</i>	8.61 <i>0.14</i>	3.79 <i>0.04</i>	0.211 <i>0.72</i>	2.22 <i>6.00</i>	1.35 <i>0.28</i>	61.1 <i>0.20</i>	0.117 <i>1.85</i>	0.644 <i>2.08</i>	33.2 <i>1.83</i>
Area mean	A14	24.4 <i>0.94</i>	86.6 <i>0.01</i>	93.8 <i>0.01</i>	79.4 <i>0.47</i>	39.9 <i>0.71</i>	2270 <i>2.44</i>	34000 <i>0.64</i>	19.2 <i>1.28</i>	31 <i>1.29</i>	56.2 <i>2.96</i>	361 <i>6.03</i>	17.1 <i>0.81</i>	17.7 <i>2.60</i>	0.557 <i>1.19</i>	10.5 <i>0.17</i>	0.805 <i>0.01</i>	0.243 <i>0.82</i>	3.11 <i>8.41</i>	3.73 <i>0.76</i>	23.2 <i>0.07</i>	0.167 <i>2.78</i>	0.818 <i>2.64</i>	38.2 <i>2.22</i>
	A15	14.9 <i>0.57</i>	1160 <i>0.16</i>	651 <i>0.10</i>	69.7 <i>0.41</i>	42.1 <i>0.75</i>	409 <i>0.44</i>	22500 <i>0.42</i>	9.18 <i>0.61</i>	21.7 <i>0.80</i>	33.5 <i>1.76</i>	105 <i>1.75</i>	20.2 <i>0.86</i>	11.7 <i>1.72</i>	0.339 <i>0.72</i>	14.9 <i>0.24</i>	22 <i>0.30</i>	0.0879 <i>0.30</i>	1.85 <i>5.00</i>	1.41 <i>0.58</i>	180 <i>1.22</i>	0.0733 <i>1.56</i>	0.485 <i>1.66</i>	19.9 <i>1.16</i>
	Area mean	22.0 <i>0.85</i>	575 <i>0.08</i>	1915 <i>0.30</i>	92.6 <i>0.54</i>	46.1 <i>0.82</i>	875 <i>0.84</i>	29000 <i>0.55</i>	14.2 <i>0.95</i>	26.2 <i>1.09</i>	40.6 <i>2.14</i>	198.04 <i>3.37</i>	19.4 <i>0.92</i>	23.2 <i>3.40</i>	0.492 <i>1.05</i>	10.2 <i>0.31</i>	30.7 <i>0.37</i>	0.144 <i>0.61</i>	2.44 <i>6.61</i>	2.35 <i>0.48</i>	89.1 <i>0.29</i>	0.113 <i>1.89</i>	0.618 <i>1.99</i>	29.0 <i>1.69</i>
South-central area Southern shore	A16	29.3 <i>1.13</i>	274 <i>0.04</i>	1330 <i>0.21</i>	91.4 <i>0.54</i>	56.6 <i>1.01</i>	751 <i>0.81</i>	14700 <i>0.28</i>	16.3 <i>1.09</i>	34.5 <i>1.44</i>	48.6 <i>2.56</i>	193 <i>3.22</i>	15.1 <i>0.72</i>	16.2 <i>2.38</i>	0.574 <i>1.22</i>	1.3 <i>0.02</i>	0.266 <i>0.22</i>	0.243 <i>0.80</i>	2.97 <i>8.01</i>	1.9 <i>0.39</i>	105 <i>0.34</i>	0.0174 <i>0.29</i>	0.433 <i>1.40</i>	44.6 <i>2.59</i>
	A17	15.6 <i>0.60</i>	684 <i>0.10</i>	4170 <i>0.65</i>	77.5 <i>0.46</i>	60.9 <i>1.09</i>	521 <i>0.56</i>	24000 <i>0.45</i>	10.9 <i>0.73</i>	27 <i>1.13</i>	50.1 <i>2.64</i>	232 <i>3.87</i>	18.5 <i>0.88</i>	17.1 <i>2.87</i>	0.43 <i>0.91</i>	8.52 <i>0.14</i>	40.4 <i>0.41</i>	0.248 <i>0.84</i>	154 <i>5.66</i>	0.823 <i>0.17</i>	0.11 <i>0.50</i>	0.141 <i>2.35</i>	0.401 <i>1.29</i>	45.7 <i>2.66</i>
	A18	22.1 <i>0.65</i>	614 <i>0.09</i>	5460 <i>0.85</i>	76.2 <i>0.45</i>	48.2 <i>0.89</i>	721 <i>0.71</i>	24300 <i>0.46</i>	12 <i>0.71</i>	25.6 <i>1.21</i>	34.8 <i>2.34</i>	124 <i>3.06</i>	18.9 <i>0.83</i>	14.7 <i>2.35</i>	0.608 <i>1.14</i>	5.15 <i>0.09</i>	53.7 <i>0.39</i>	0.335 <i>0.96</i>	1.38 <i>5.67</i>	1.7 <i>0.30</i>	154 <i>0.44</i>	0.076 <i>1.30</i>	0.505 <i>1.44</i>	25.8 <i>1.50</i>
Area mean	Area mean	22.3 <i>0.66</i>	524 <i>0.07</i>	3653 <i>0.57</i>	81.7 <i>0.48</i>	55.6 <i>0.89</i>	664 <i>0.71</i>	21000 <i>0.40</i>	13.1 <i>0.71</i>	29.0 <i>1.21</i>	44.5 <i>2.34</i>	183 <i>3.06</i>	17.5 <i>0.83</i>	16.0 <i>2.35</i>	0.537 <i>1.14</i>	4.99 <i>0.09</i>	38.4 <i>0.39</i>	0.283 <i>0.96</i>	2.17 <i>5.67</i>	1.47 <i>0.30</i>	138 <i>0.44</i>	0.078 <i>1.30</i>	0.446 <i>1.44</i>	38.7 <i>2.25</i>
	Entire mean	22.6 <i>0.87</i>	1479 <i>0.21</i>	8812 <i>0.53</i>	89.4 <i>0.53</i>	51.6 <i>0.92</i>	888 <i>0.95</i>	26874 <i>0.51</i>	15.0 <i>1.00</i>	27.3 <i>1.14</i>	39.3 <i>2.07</i>	233.06316 <i>3.91</i>	20.7 <i>0.99</i>	17.2 <i>2.52</i>	0.592 <i>1.26</i>	11.9 <i>0.19</i>	147 <i>1.50</i>	0.198 <i>0.67</i>	2.08 <i>5.61</i>	2.04 <i>0.42</i>	164 <i>0.53</i>	0.099 <i>1.65</i>	0.497 <i>1.60</i>	29.1 <i>1.69</i>
	Non-polluted level (*)	26	7200	6400	170	56	930	53000	15	24	19	59.9	21	6.82	0.47	61	98	0.295	0.37	4.9	310	0.06	0.31	17.2

(*) Asami (2010)

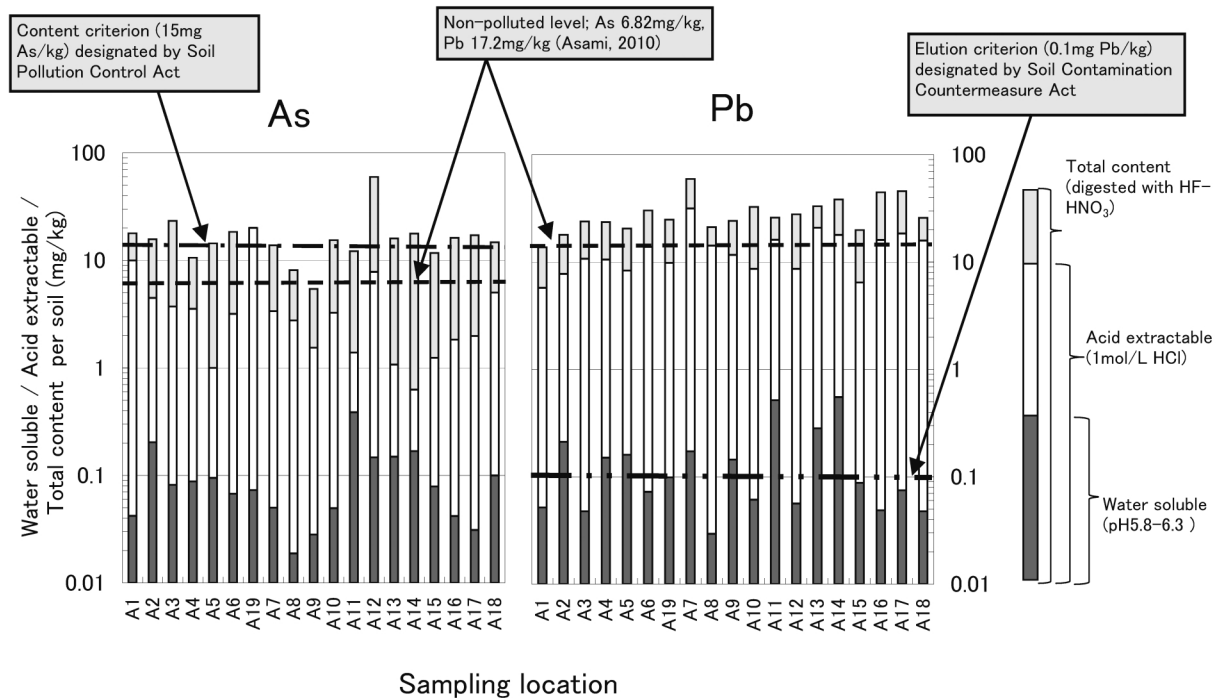


Fig. 2 Total content, acid extractable and water soluble fractions of As and Pb per soil and their comparison with non-polluted and criterion level.

ては、最高濃度も浅見（2010）による非汚染値未満であるか、それ以上の場合も19地点中の半分以下の地点であることが認められた。

以上から、奄美大島表層土壌における有害元素の濃度レベルは、Cu, Zn, As, Sbが全域にわたりとくに高く、Hg, Tl, Pbがそれに次いで注目に値するレベルにあると判断された。そこで以降の考察は、これら7元素に焦点を当てるほか、有害性および土壌からの抽出性の高いCdを主な対象として進めてゆく。

3.2 元素濃度の地域分布

島内における位置や地形との関連、市街地や集落との距離を考慮すると、本研究で試料を採取した19地点は、「北東部南岸」(A1, A2, A3, A4), 「奄美市市街」(A5, A6, A19), 「中部北岸」(A7, A8, A9, A10), 「中南部」(A11, A12, A13, A14, A15), 「中南部南岸」(A16, A17, A18)の5地区に分類できる (Fig. 1)。

「奄美市市街」の3地点は、人為影響が強いと推測される地域である。A6ではSbが3.4 mg/kg, A19ではZnが638 mg/kgを示し、それぞれ浅見（2010）による非汚染土壌の平均値に対して9.2倍および10.7倍と高いレベルであった。他の2地点では、Sbは非汚染値の2.3~3.2倍、Znは2.2~4.5倍であった。一方、人

為影響がより少ないと考えられる「中部北岸」は、A9でZnが579 mg/kg (9.7倍), A10でSbが4.13 mg/kg (11.2倍)だったというように、元素によって高い値を示す地点が異なっていた。Cu, Zn, As, Sbの4元素すべてが非汚染値（浅見, 2010）の2倍以上だったのは、北東部南岸のA3, 奄美市市街のA6, 中部北岸のA7とA10, 中南部のA13とA14, 中南部南岸のA16のA17と山間部を含めて島内の全域にわたっており (Fig. 4), 人口（奄美市ホームページ, 瀬戸内町ホームページ, 龍郷町ホームページ, 宇検村ホームページ, 大和村ホームページ）や交通量（国土交通省, 2006より推定）などの人為影響とは異なる別の要因が濃度分布に関与していると考えられた。

とくに、Asは島の西部で10 mg/kg前後と比較的低い濃度がみられたが、中部から東部は15 mg/kg程度の値が分布する傾向が示された。奄美大島は、中部から東部で四万十帯白亜層が地表に露出するという地質的特徴を有しており（遅沢ほか, 1983; 坂井, 2010）, 四万十帯は高濃度ヒ素分布地域と概ね合致することも知られている（興水・小林, 2004）。また、奄美大島表層土壌ではAsのほかにCu, Zn, Sb, Hg, Tl, Pbでとくに高いレベルがみられたが、後述するように、これら7元素はいずれも親銅元素に分類され、土壌や

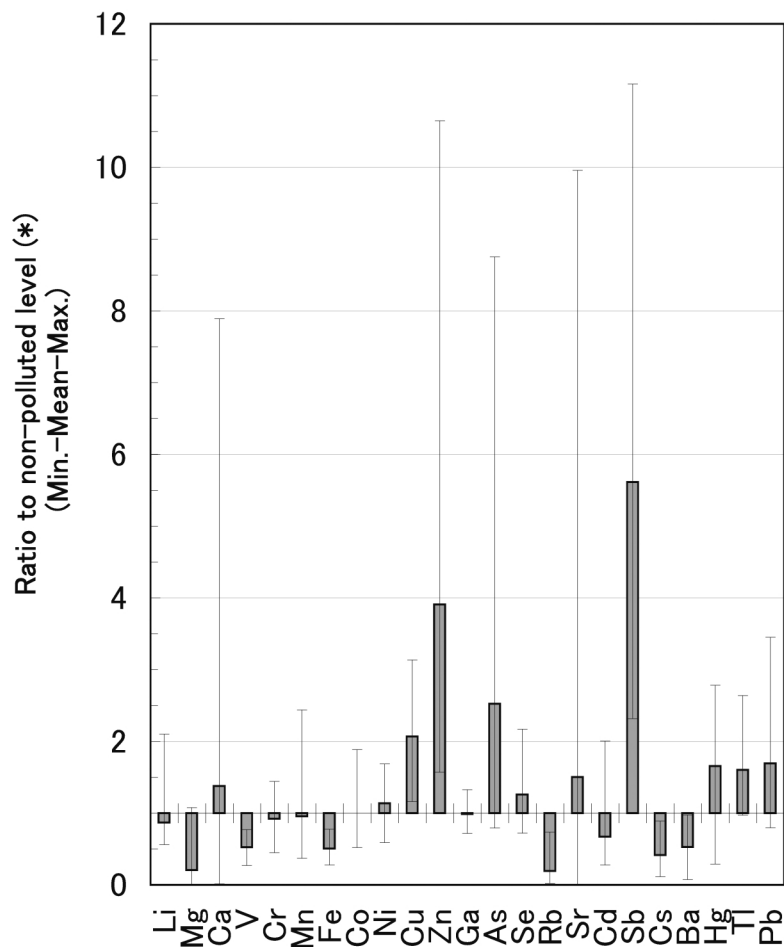


Fig. 3 Concentration ratios of heavy metals and trace elements in top soil collected in Amami-Oshima to the non-polluted level compiled by Asami (2010).

地殻中で随伴性の高い元素である（梶原・正路，1997）。実際に本地域では、これらの元素間に正の相関がみられており（3.3節）、特異的な元素組成は地質的な因子に由来する可能性が高いと推測された。

3.3 元素濃度間および各地点の元素組成間における関係

19の採取地点すべてを対象として、元素濃度の相関を Spearman の順位相関法で検定した結果（Table 3）、有意な正の相関（ $p < 0.05$ ）を示した元素ペアの大半は、アルカリ金属、アルカリ土類金属に代表される親石元素の相互間、または Cr, Mn, Fe, Ni, Co に代表される親鉄元素の相互間であった。とくに Ca と Sr の間には、相関係数（R）が0.977ときわめて高い正の相関がみられたことから、島内全域にわたって、両元素の濃度を支配する要因が同一であることが示唆された。

一般に人為汚染が顕在化しやすい元素としては、Cu-Sb, Cu-Tl, Cu-Pb, Zn-Cd, Cd-Pb, Sb-Tl, Sb-Pb, Hg-Tl の組み合わせで有意な相関が認められた（ $p < 0.05$ ）。As と Sb は5%水準で有意性はみられなかったが、危険率（ p ）は0.057を示し両元素間の比較的強い関係が伺われた。一方で、Cu, Zn, As, Cd, Sb, Hg, Tl, Pb の8元素の地域分布は人為活動との関係を示しておらず（3.2節）、また、これらはいずれも親銅元素に分類される。したがって、奄美大島表層土壌中で高レベルがみられた有害元素どうしが高い相関を示すのは、各元素が固有にもつ化学的性質により生じる随伴性に起因する可能性が高いと推測された。

Cu, Zn, As, Cd, Sb, Hg, Tl, Pb は人為汚染が生じやすい元素であるが、Li-Cu, Li-Sb, Li-Tl, Mg-Pb, Ca-Tl, Sr-Tl, Cr-Cu, Mn-Cu, Fe-Cu, Ni-Cu, Co-Cu, Mn-Cd, Ni-Cd, Fe-Hg, Fe-Tl, Ni-Tl のよ

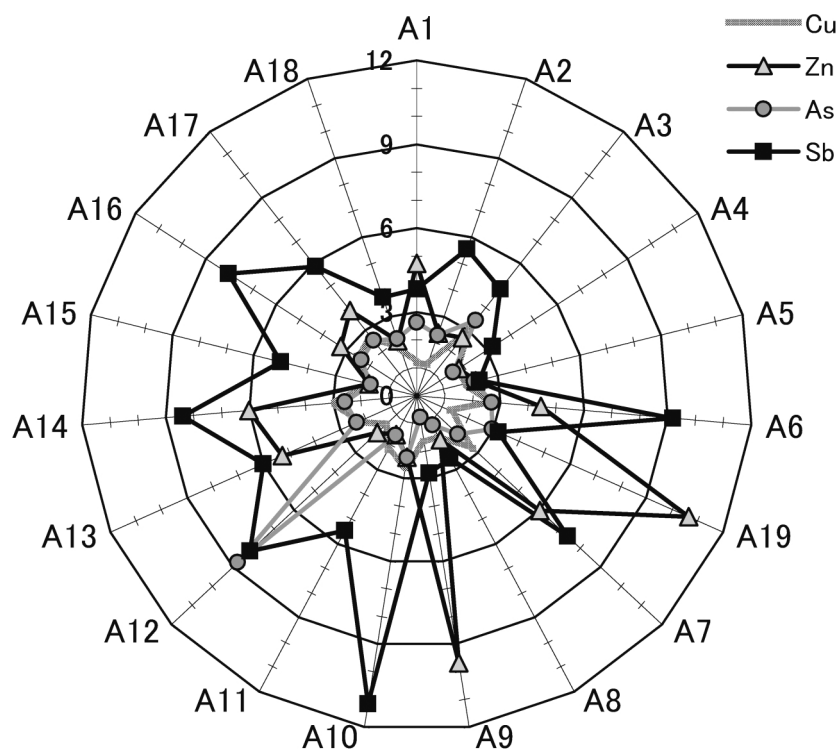


Fig. 4 Ratio of Cu, Zn As and Sb concentrations in top soil collected in the 19 locations in Amami-Oshima to their non-polluted level; the innermost circle indicates the non-polluted level compiled by Asami (2010).

うに、親銅元素以外とも有意な相関が認められた ($p < 0.05$)。ただし、これらと有意に相関した Li, Mg, Ca, Sr, Cr, Mn, Fe, Ni, Co は、前者4元素が親石元素、後者5元素が親鉄元素として土壤中で相互関係が強い元素である (梶原・正路, 1997)。したがって、Cu など8元素も他の元素と同様に、地質的因子に支配されていると考えられた。

3.4 土壌 pH

pH(H₂O) は、奄美大島全域でおおむね6以上が示された (Table 4)。とくに笠利半島を含む北東部南岸 A1~A4 および中部北岸の A8 では7を越える pH 値が認められた。奄美市市街の A5, A6, A19, 中南部南岸の A16~A18 は、pH 6 台後半を中心に、pH 6.38~6.89 が認められた。一方で、島の中部から西部にあたる中南部南岸の A9 と A10, 中南部の A11~A15 は、pH 6 台前半を中心に 5.90~6.75 の値がみられた。

奄美大島や徳之島など、奄美群島における土壌は石灰含量が多い高 pH 土壌が多く分布し、そこに粘板岩質の低 pH 土壌も混在することが知られている (古江, 2009)。土壌 pH に 6 台後半以上がみられた地域

は、A8 を除いて四万十帯和野層または四万十帯名瀬ユニットの地域に該当する (Fig. 1; 竹内, 1994)。このように、土壌 pH の分布も地質要因に影響されていると考えられた。

3.5 他地域との比較

奄美大島表層土壌の Cu, Zn, Sb 濃度は、足尾銅山 (尾崎・福士, 2010) や細倉鉍山 (浅見, 2010) の下流域といった鉍山汚染地域のレベルに匹敵した。また、Zn と As は、中国・天津市の廃水灌漑農地における濃度 (Wang and Zhang, 2005; Wang *et al.*, 2005) を上回った地点も多かった。天津市は、乾燥した気候と急速な工業化に伴う水不足を要因として、近郊農地で廃水灌漑が数十年にわたって行われ、食用作物の栽培が不適切となるレベルの土壌汚染が存在する地域である (Liu *et al.*, 2005)。さらに、As と Sb は都市部道路脇の土壌 (白石ほか, 2002; Ozaki *et al.*, 2004; 稲田ほか, 2009) を明らかに越えるレベルが認められた。都市部道路脇の土壌は自動車走行をはじめとする各種の人為活動に伴って、重金属濃度は非汚染レベルの数~数百倍を示すことが少なくない (浅見,

Table 3 Correlation coefficient and two-tailed probability value between element concentrations in top soil collected in Anami-Oshima calculated by Spearman's rank correlation test.

		Mg	Ca	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	As	Se	Rb	Sr	Cd	Sb	Cs	Ba	Hg	Tl	Pb	
Li	R	-0.346	-0.198	0.359	0.286	0.275	0.488	0.323	0.570	0.457	0.000	0.016	0.249	0.364	-0.116	-0.168	0.298	0.567	0.337	-0.259	0.258	0.605	0.454	Li
	<i>p</i> (two-tailed)	0.147	0.416	0.131	0.235	0.254	0.034	0.177	0.011	0.049	1.000	0.949	0.304	0.125	0.637	0.491	0.215	0.011	0.158	0.285	0.286	0.006	0.051	
Mg	R		0.733	0.009	0.068	-0.225	0.000	-0.202	-0.328	-0.242	0.021	0.268	0.296	0.306	0.411	0.781	-0.296	-0.207	-0.028	0.622	-0.151	-0.414	-0.500	Mg
	<i>p</i> (two-tailed)		0.000	0.972	0.781	0.355	1.000	0.407	0.170	0.318	0.932	0.267	0.218	0.202	0.081	0.000	0.218	0.395	0.909	0.004	0.538	0.078	0.029	
Ca	R			-0.174	-0.109	-0.193	-0.193	-0.439	-0.454	-0.427	0.112	0.174	0.344	0.556	0.256	0.977	-0.063	-0.075	0.316	0.656	-0.182	-0.489	-0.272	Ca
	<i>p</i> (two-tailed)			0.477	0.658	0.429	0.429	0.060	0.051	0.069	0.647	0.477	0.149	0.014	0.290	0.000	0.797	0.759	0.188	0.002	0.455	0.033	0.260	
V	R				0.573	-0.012	0.606	0.586	0.434	0.362	-0.111	0.340	0.152	0.016	-0.206	-0.166	-0.131	0.263	-0.169	-0.246	0.308	0.434	0.148	V
	<i>p</i> (two-tailed)				0.010	0.980	0.006	0.008	0.063	0.128	0.650	0.155	0.535	0.949	0.397	0.497	0.594	0.276	0.488	0.310	0.199	0.063	0.545	
Cr	R					0.081	0.512	0.547	0.665	0.684	-0.040	0.467	-0.007	-0.181	-0.335	-0.161	0.384	0.223	-0.542	0.005	0.305	0.307	0.391	Cr
	<i>p</i> (two-tailed)					0.743	0.025	0.015	0.002	0.001	0.870	0.044	0.977	0.459	0.161	0.509	0.104	0.359	0.016	0.983	0.204	0.201	0.098	
Mn	R						0.181	0.578	0.465	0.346	0.382	-0.063	-0.181	0.183	-0.077	0.304	0.048	-0.044	0.237	0.003	-0.126	0.251	0.325	Mn
	<i>p</i> (two-tailed)						0.459	0.010	0.045	0.147	0.106	0.797	0.459	0.454	0.753	0.304	0.048	0.858	0.329	0.991	0.606	0.300	0.175	
Fe	R							0.594	0.600	0.520	-0.040	0.547	0.042	0.025	0.000	-0.200	0.067	0.328	-0.021	-0.138	0.707	0.770	0.160	Fe
	<i>p</i> (two-tailed)							0.007	0.007	0.022	0.870	0.015	0.864	0.918	1.000	0.412	0.786	0.170	0.932	0.574	0.001	0.000	0.514	
Co	R								0.824	0.574	0.121	0.310	-0.254	-0.069	-0.165	-0.495	0.261	0.099	-0.172	-0.123	0.251	0.540	0.241	Co
	<i>p</i> (two-tailed)								0.000	0.010	0.621	0.197	0.295	0.779	0.499	0.031	0.281	0.686	0.387	0.783	0.117	0.008	0.319	
Ni	R									0.731	0.119	0.332	-0.147	-0.097	-0.365	-0.509	0.470	0.256	-0.211	-0.068	0.372	0.588	0.416	Ni
	<i>p</i> (two-tailed)									0.000	0.627	0.166	0.547	0.694	0.124	0.026	0.042	0.290	0.387	0.783	0.117	0.008	0.077	
Cu	R										0.190	0.190	0.140	-0.094	-0.035	-0.435	0.435	0.500	-0.257	-0.168	0.380	0.562	0.693	Cu
	<i>p</i> (two-tailed)										0.437	0.437	0.566	0.702	0.887	0.063	0.063	0.029	0.288	0.493	0.109	0.012	0.001	
Zn	R											-0.025	0.372	0.206	0.146	0.035	0.540	0.153	0.198	0.330	0.109	0.111	0.361	Zn
	<i>p</i> (two-tailed)											0.920	0.117	0.397	0.552	0.887	0.017	0.533	0.416	0.168	0.658	0.652	0.128	
Ga	R												-0.195	-0.160	-0.054	0.170	0.219	0.100	-0.258	0.538	0.368	0.411	-0.070	Ga
	<i>p</i> (two-tailed)												0.424	0.514	0.825	0.486	0.367	0.684	0.286	0.018	0.121	0.081	0.775	
As	R													0.279	0.284	0.375	0.009	0.444	0.282	0.034	0.137	-0.051	0.211	As
	<i>p</i> (two-tailed)													0.247	0.238	0.113	0.972	0.057	0.241	0.889	0.576	0.836	0.387	
Se	R														0.341	0.558	0.063	0.240	0.726	0.239	-0.107	0.029	0.066	Se
	<i>p</i> (two-tailed)														0.154	0.013	0.797	0.323	0.000	0.324	0.663	0.906	0.819	
Rb	R															0.326	-0.282	0.267	0.409	0.191	0.077	0.032	-0.021	Rb
	<i>p</i> (two-tailed)															0.173	0.241	0.270	0.082	0.433	0.753	0.898	0.932	
Sr	R																-0.160	-0.037	0.328	0.644	-0.214	-0.481	-0.339	Sr
	<i>p</i> (two-tailed)																0.514	0.881	0.170	0.003	0.379	0.037	0.156	
Cd	R																	0.321	0.042	0.192	0.025	0.363	0.621	Cd
	<i>p</i> (two-tailed)																	0.180	0.864	0.431	0.920	0.126	0.005	
Sb	R																		0.416	-0.225	0.314	0.546	0.670	Sb
	<i>p</i> (two-tailed)																		0.077	0.355	0.190	0.016	0.002	
Cs	R																			-0.021	-0.053	0.146	0.132	Cs
	<i>p</i> (two-tailed)																			0.932	0.831	0.552	0.591	
Ba	R																				-0.142	-0.261	-0.269	Ba
	<i>p</i> (two-tailed)																				0.562	0.281	0.266	
Hg	R																					0.551	0.146	Hg
	<i>p</i> (two-tailed)																					0.015	0.552	
Tl	R																						0.451	Tl
	<i>p</i> (two-tailed)																						0.053	

Letters shown in bold font indicate values related to Cu, Zn, As and Sb which were the most largely enriched in the top soil.

Those shown in italic font indicate values related to Hg, Tl and Pb which were secondarily enriched in the top soil.

Table 4 Hydrogen ion concentration index (pH (H₂O)) of the top soil collected in Amami-Oshima.

Area	Location	pH (H ₂ O)
North-east area	A1	7.13
	-----	-----
Southern shore	A2	7.17
	-----	-----
	A3	7.03
	-----	-----
	A4	7.25
Area mean		7.15
Amami city area	A5	6.38
	-----	-----
	A6	6.79
	-----	-----
	A19	6.89
Area mean		6.69
Central area	A7	6.97
Northern shore	A8	7.16
	-----	-----
	A9	6.54
	-----	-----
	A10	6.51
Area mean		6.80
South-central area	A11	5.90
	-----	-----
	A12	6.75
	-----	-----
	A13	6.33
	-----	-----
	A14	6.13
	-----	-----
	A15	6.26
Area mean		6.27
South-central	A16	6.45
Southern shore	A17	6.78
	-----	-----
	A18	6.49
Area mean		6.57
Entire mean		6.68

2010)。As 濃度は多くの地点で10 mg/kg 前後が認められ、ガンジス河下流域における濃度範囲の上位に達した (Fig. 5)。

ガンジス河下流域における As 汚染では、土壤中濃度が場所によって大きくばらつくこと (Julian *et al.*, 2007; Selim *et al.*, 2010), As 濃度は Mn および Fe の濃度と有意に相関することが知られるが (徳永,

2007), 奄美大島表層土壌で As 濃度のばらつきははるかに小さく (Fig. 5), Mn および Fe との相関もみられていない。このことから、奄美大島でも住民への As 暴露リスクは懸念される一方で、環境中 As レベル上昇のメカニズムは異なることが推察された。

Cu と Pb は、都市部道路脇土壌における濃度と比べ低濃度がみられたが、廃水灌漑農地とは同等かそれ以上であった。Mn, Cd, Fe, Hg も本州山岳地域における濃度 (渡邊ほか, 2002; 尾崎ほか, 2005) より高値を示した。このように、奄美大島の表層土壌における元素レベルを他地域と比べると、数種の元素が本地域では明らかに高いレベルであることが認められた。

3.6 抽出特性と生物可給性

前述したように、奄美大島住民の足の爪には平均 0.41 mg/kg と高濃度の As が検出されている (Tabata *et al.*, 2006)。また本研究では、Cu, As, Sb, Zn のほか、Hg, Tl, Pb でも表層土壌で全量濃度に高い値が認められた。したがって、As だけでなく、各種の元素が農作物や粉塵の直接吸入を通して人へ暴露していることが懸念される。土壌中の有害元素は、1 mol/L 塩酸で抽出される画分は、表層土の巻き上げによる粉塵を人が直接吸入した際に胃から吸収される量に相当する (中央環境審議会, 2002)。また pH を 5.8~6.3 に調整した純水で抽出される画分は、降雨に伴う溶出や、植物や農作物への移行に伴い食物を通じて暴露に至る経路に相当する (中央環境審議会, 2002)。

これら2種の試験の結果、As は A19ですべてが1 mol/L 塩酸で抽出された。それ以外の地点では、1 mol/L 塩酸抽出では10~30%程度、水抽出ではおおむね 0.2~1%が抽出された (Table 5, Fig. 2)。土壌汚染防止法では、1 mol/L 塩酸抽出で、水田土壌中の As 濃度基準を 15 mg/kg と定めている。本結果では、1地点 (A19) がそれを越え、さらに2地点 (A1および A12) は半分の7.5 mg/kg 以上であった。水抽出は、土壌汚染対策法で定める溶出試験に相当するが、As 濃度は沿岸部の1地点 (A2) と内陸部の4地点 (A11, A12, A13, A14) で基準値 (mg/L ベース) 相当量0.1 mg/kg を超過した。Tabata ほか (2006) は、奄美大島住民の足の爪における高い As 濃度は、コメや海藻類など食物の摂取だけでは他地域との差を説明できないと述べている。このことから、高濃度の可給性 As を含有する土壌粉塵を地元住民が吸入することが、爪における As レベルに関与していると考えられる。

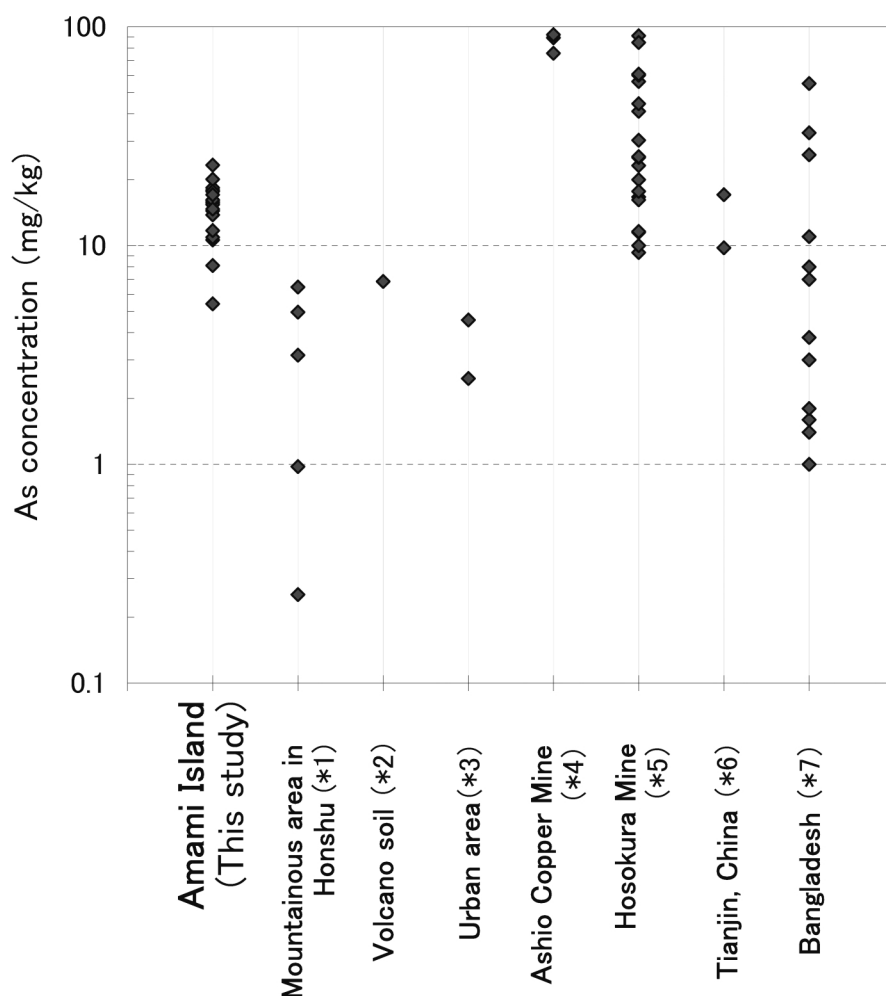


Fig. 5 Inter-regional comparison of soil arsenic concentrations among Amami-Oshima and other concerned areas ^{*1}for clean site (Ozaki *et al.*, 2004) and ^{*2}for volcano (Ozaki *et al.*, 2004) in Japan, ^{*3}for urban road side soil in Nagano and Tokyo (Shiraishi *et al.*, 2002, Ozaki *et al.*, 2004 and Inada *et al.*, 2009), ^{*4}for Ashio Copper Mine area (Ozaki and Fukushima, 2010), ^{*5}for Hosokura Mine area (Asami, 2010), ^{*6}from sewage water irrigated land in Tianjin, China (Wang and Zhang, 2005) and ^{*7}from arsenic polluted area in Bangladesh (Julian *et al.*, 2007; Selim *et al.*, 2010).

Asとともに全域にわたって高濃度を示したCu, Zn, Sbのうち、1 mol/L 塩酸によってZnは5.27～326 mg/kg, Sbは0.118～3.98 mg/kgが抽出され、全量に対しZnは5.6～51.1%, Sbは13.8～96.4%に相当した (Table 5)。Sbは、A1～5, 8で1 mol/L 塩酸抽出割合が50%以上に達した。したがってこれら3元素も、とくに土壌粉塵を多量に吸い込む場合にリスクが生じ得ると考えられた。1 mol/L 塩酸抽出態のSbが50%を越えた地点のうち、A1～4, 8では土壌pH(H₂O)が7以上を示した。またA1～5は、島の北東

部から中央部に位置しており、その地質は四万十帯に分類される (遅沢ほか, 1983; 竹内, 1994; 坂井, 2010)。Sbの抽出は土壌pHが高いほど多くなるとの報告もあり (平田ら, 1999), 本地域土壌中の有害元素の全濃度だけでなく、生物可給性も地質的要因に依存する可能性が示唆された。

Pbは、フッ化水素酸を用いた全分解において非汚染レベルが認められた元素である。また、Pbの1 mol/L 塩酸抽出率は40～60%, 水抽出率はA2, A11, A14の3地点を除き1%未満であった。しかし本元素の

Table5 Content of total (digested with HF-HNO₃), acid extractable (1 mol/L HCl) and water soluble (pH 5.8 ~6.3) V, Mn, Fe, Cu, Zn, As, Cd, Sb, Hg Tl and Pb in top soil samples collected in Amami-Oshima.

Area	Location	V			Mn			Fe			Cu			Zn			As		
		Total content, digested with HF-HNO ₃	1mol/L HCl extraction	pH5.8~6.3 water extraction	Total content, digested with HF-HNO ₃	1mol/L HCl extraction	pH5.8~6.3 water extraction	Total content, digested with HF-HNO ₃	1mol/L HCl extraction	pH5.8~6.3 water extraction	Total content, digested with HF-HNO ₃	1mol/L HCl extraction	pH5.8~6.3 water extraction	Total content, digested with HF-HNO ₃	1mol/L HCl extraction	pH5.8~6.3 water extraction	Total content, digested with HF-HNO ₃	1mol/L HCl extraction	pH5.8~6.3 water extraction
		mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg
North-east area Southern shore	AA1	87.2	11.5	0.264	510	195	1.05	3280	67.0	22.5	6.34	0.103	284	163	1.74	17.9	9.98	0.0418	
	AA2	81.8	2.41	0.813	347	176	1.46	28300	1480	427	22.1	6.76	0.201	142	26.5	1.02	15.7	4.46	0.203
	AA3	114	7.26	0.214	598	312	0.962	41300	1700	86.7	59.6	9.59	0.124	158	23.1	0.243	23.3	3.72	0.0816
	AA4	82.7	4.44	0.513	575	228	2.76	24500	1590	228	31.9	8.39	0.198	108	19.1	0.588	10.6	3.53	0.0877
	AA5	131	9.05	0.511	1070	246	7.07	31600	3140	207	35.0	5.11	0.178	131	10.6	0.498	14.4	0.998	0.0946
Anami city area	AA6	104	2.79	0.116	737	317	1.43	27900	1430	49.2	47.6	0.108	267	83.7	0.434	18.4	3.17	0.0674	
	AA19	46.4	1.21	0.0918	1390	363	1.93	14800	1500	46.7	24.6	5.11	0.122	638	265	2.57	20.1	20.0	0.0727
	AA7	94.9	2.12	0.11	974	576	2.5	28000	1210	55.5	52.5	10.0	0.157	360	105	0.672	13.8	3.36	0.0500
	AA8	77.7	4.38	0.0704	1030	638	0.908	22300	2700	31.5	31.0	8.52	0.0655	107	17.3	0.108	8.11	2.76	0.0187
	AA9	79.0	2.34	0.211	1540	908	7.09	26900	2420	152	31.9	6.31	0.133	579	326	2.18	5.42	1.54	0.0281
South-central area	AA10	91.3	2.15	0.0894	1730	620	3.28	35100	1600	47.3	49.4	10.9	0.146	134	21.9	0.241	15.4	3.25	0.0493
	AA11	118	1.10	2.04	713	298	8.87	32300	400	1240	41.8	1.97	0.607	94.2	5.27	1.42	10.9	0.142	0.386
	AA12	94.9	3.30	0.135	459	221	0.809	27000	1300	75.6	28.0	4.1	0.0776	115	6.58	0.197	59.7	7.79	0.147
	AA13	101	1.78	0.424	525	356	6.93	29200	1630	257	43.7	8.97	0.288	315	133	2.40	16.0	1.07	0.149
	AA14	79.4	1.03	0.575	2270	671	31.2	34000	1010	343	56.2	8.13	0.494	361	139	3.90	17.7	0.625	0.168
South-central Southern shore	AA15	69.7	1.38	0.14	409	166	1.76	22500	1390	71.1	33.5	6.06	0.145	105	17.3	0.523	11.7	1.24	0.0787
	AA16	91.4	3.16	0.0506	751	291	0.821	14700	1700	23.9	48.6	9.52	0.0831	193	49.3	0.312	16.2	1.83	0.0417
	AA17	77.5	2.51	0.0873	521	261	0.893	24000	1510	34.9	50.1	17.8	0.170	232	78.4	0.477	17.1	1.98	0.0309
	AA18	76.2	3.08	0.0482	721	380	1.02	24300	2350	22.2	34.8	12.3	0.0907	124	42.7	0.217	14.7	5.02	0.0994

Area	Location	Cd			Sb			Hg			Tl			Pb		
		Total content, digested with HF-HNO ₃	1mol/L HCl extraction	pH5.8~6.3 water extraction	Total content, digested with HF-HNO ₃	1mol/L HCl extraction	pH5.8~6.3 water extraction	Total content, digested with HF-HNO ₃	1mol/L HCl extraction	pH5.8~6.3 water extraction	Total content, digested with HF-HNO ₃	1mol/L HCl extraction	pH5.8~6.3 water extraction	Total content, digested with HF-HNO ₃	1mol/L HCl extraction	pH5.8~6.3 water extraction
		mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	μg/kg	μg/kg	μg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg
North-east area Southern shore	AA1	0.0816	0.063	<0.002	1.41	3.98	<0.007	76.7	5.64	<0.035	0.301	<0.010	<0.003	13.7	5.73	0.0517
	AA2	0.156	0.0735	<0.002	2.05	1.99	0.01	147	11.3	<0.035	0.501	0.0118	0.0033	17.9	7.72	0.211
	AA3	0.122	0.0667	<0.002	1.79	1.29	<0.007	138	15.0	<0.035	0.513	0.0117	<0.003	23.8	10.7	0.0475
	AA4	0.0921	0.0506	<0.002	1.20	1.02	<0.007	114	16.6	<0.035	0.424	<0.010	<0.003	23.5	10.5	0.150
	AA5	0.0999	0.0519	<0.002	0.858	0.699	<0.007	83.8	19.2	<0.035	0.436	<0.010	<0.003	20.5	8.33	0.160
Anami city area	AA6	0.249	0.125	<0.002	3.40	0.624	<0.007	121	15.8	<0.035	0.541	<0.010	<0.003	30.2	13.8	0.0722
	AA19	0.180	0.106	<0.002	1.18	0.409	<0.007	40.1	8.54	0.0421	0.325	<0.010	<0.003	24.8	9.79	0.0987
	AA7	0.279	0.199	<0.002	2.73	0.598	<0.007	78.7	14.0	0.0516	0.530	<0.010	<0.003	59.4	31.4	0.172
	AA8	0.0857	0.0703	<0.002	0.934	0.518	<0.007	73.2	25.2	<0.035	0.382	0.0104	<0.003	21.1	14.2	0.0293
	AA9	0.592	0.447	<0.002	1.04	0.411	<0.007	112	12.4	0.0714	0.521	<0.010	<0.003	24.2	11.6	0.144
South-central area	AA10	0.256	0.130	<0.002	4.13	0.377	<0.007	101	5.50	0.0919	0.532	0.0195	<0.003	32.6	8.62	0.0609
	AA11	0.0835	0.0615	<0.002	2.02	0.228	0.048	128	23.6	0.115	0.654	0.0238	0.0698	25.9	16.1	0.516
	AA12	0.0964	0.0488	<0.002	3.02	0.336	<0.007	81.0	10.6	<0.035	0.489	0.013	<0.003	27.9	8.60	0.056
	AA13	0.211	0.142	<0.002	2.22	0.267	0.0102	117	22.5	0.0948	0.644	0.0111	<0.003	33.2	20.8	0.282
	AA14	0.243	0.153	<0.002	3.11	0.204	0.0187	167	26.6	0.0560	0.818	0.0174	0.0035	38.2	17.8	0.550
South-central Southern shore	AA15	0.0879	0.0431	<0.002	1.85	0.118	<0.007	73.3	6.03	<0.035	0.485	<0.010	<0.003	19.9	6.43	0.0878
	AA16	0.266	0.175	<0.002	2.97	0.171	<0.007	17.4	13.1	<0.035	0.433	0.0117	<0.003	44.6	16.0	0.0486
	AA17	0.248	0.160	<0.002	2.17	0.233	<0.007	141	7.50	0.0905	0.401	0.0115	<0.003	45.7	18.4	0.0748
	AA18	0.335	0.244	<0.002	1.38	0.197	<0.007	76.0	5.48	<0.035	0.505	0.0273	<0.003	25.8	15.8	0.0476

水抽出量は、これら3地点を含む中南部南岸以外の広範囲 (A2, A4, A5, A7, A9, A11, A13, A14) で溶出基準濃度相当量0.1 mg/kg を超過する, 0.29~1.99 mg/kg が認められた。したがって、農作物への移行や生態系内での移動に関して注意を要すると考えられた (Table 5, Fig. 2)。

Cd は、1 mol/L 塩酸では全量濃度の50~80%にあたる約0.04~0.45 mg/kg が抽出された。A9では、1 mol/L 塩酸抽出量が0.447 mg/kg, 全量濃度が0.592 mg/kg で両者とも最大値を示した (Table 5)。土壌汚染防止法では、玄米中の Cd 濃度上限を0.4 mg/kg と定めており、土壌中における Cd の高い水溶解性を考慮すると、本結果は農作物への移行リスクを示すと懸念された。

Hg は、奄美大島での先行研究において、高次捕食生物体内で高濃度が認められた元素である (Horai *et al.*, 2006)。本研究では、水抽出では多くが検出下限値 (0.035 µg/kg) 未満, 1 mol/L 塩酸抽出量は5~25 µg/kg と、全量に対して概ね20%程度を占めるにとどまった。したがって、高次捕食生物体内の Hg 蓄積は、土壌からの Hg の過剰供給だけでは説明できない。しかし Hg は、食物網を通じた生物濃縮率はとくに大きい元素であり (渡邊ほか, 2011), 全 Hg 濃度レベルが土壌中で比較的高いことは (3.1節), 高次生物における蓄積レベルに関連する一因になると考えられる。

以上から、奄美大島の表層土壌で高濃度に含まれる有害元素のうち、とくに As, Sb, Pb, Cd, 次いで Cu および Hg は、巻き上げ粉塵の吸入について注意を要すると推測された。Pb は、粉塵の直接吸入に加えて溶出による環境中の拡散や、農作物への移行に伴う暴露リスクを有すると考えられた。したがって、本地域の高次生物で有害元素濃度が高レベルがみられた要因に、土壌粉塵の吸入や植物および農作物への移行が関与すると推察された。

4. 結 論

奄美大島の表層土壌には、とくに Cu, Zn, As, Sb が、次いで Hg, Tl, Pb が非汚染土壌と比べて高濃度に含まれる有害元素であることが明らかとされ、生物への元素供給源となることが示唆された。さらに、土壌における高濃度の有害元素レベルは四万十帯の露出という地質要因が関与する可能性が考えられた。土壌中濃度と地質分布の関係は、母岩等の分析により

バックグラウンドを調査した地球化学図と対比させるなど、いっそうの検討が求められ、それによって高濃度の原因がさらに明らかになると期待される。これら基礎的モニタリングを継続し、生物を含む奄美大島の陸上生態系における元素循環を解明してゆくことが、本地域の自然環境の保護に貢献するものと考えられる。

謝 辞

本研究は、科学研究費補助金 (新学術領域研究 No. 20120008 と挑戦的萌芽研究 No. 23651008) および環境省地球環境研究総合推進費 (RF-0908) によって遂行された。

引用文献

- 奄美市ホームページ (2011.5.28) 奄美市の人口 (住民登録月報). <http://www.city.amami.lg.jp/amami03/amami74.asp>
- 浅見輝男 (2010) 改訂増補版データで示す日本土壌の有害金属汚染. アグネ技術センター, pp. 615.
- 中央環境審議会 (2002) 今後の土壌環境保全対策の在り方について (答申), pp. 27.
- 古江広治 (2009) 奄美群島に分布する土壌の特性と生産力向上のための土壌管理, 鹿児島県農業開発総合センター研究報告. 耕種部門, **3**, 147-223.
- 畠山史郎 (1999) 奥日光地方における森林衰退と酸性降下物・酸化性大気汚染物質. 環境科学会誌, **12**, 227-232.
- 平田静子・富永衛・寺島滋 (1999) 模擬汚染土壌からの全アンチモンの溶出挙動. 水環境学会誌, **22**, 288-293.
- Horai, S., Minagawa, M., Ozaki, H., Watanabe, I., Takeda, Y., Yamada, K., Ando, T., Akiba, S., Abe, S. and Kuno, K. (2006) Accumulation of Hg and other heavy metals in the Javan mongoose (*Herpestes javanicus*) captured on Amamioshima Island, Japan. *Chemosphere*, **65**, 657-665.
- 稲田征治・久野勝治・渡邊泉 (2009) 東京都内の主要幹線道路で採取した道路脇堆積粉塵中微量元素の濃度レベル—2000~2003年の調査—. 人間と環境, **35**, 121-130.
- 岩坂泰信 (2001) 地球環境時代に山岳での大気観測が果たす役割. 土器屋由紀子・長田和雄・岩坂泰信・直江寛明, 山の大気環境科学. 養賢堂, pp. 8-9.
- Julian, E. S., Boylana, L. M., Robertson, J. D., Smith, L., Rahmand, M. M., Hooka, J. and Rigdon, R. (2007) Selenium and arsenic content of agricultural soils from Bangladesh and Nepal. *Toxicological and Environmental Chemistry*, **90**, 203-210.
- 梶原良道・正路徹也 (1997) 鉱物資源の分類. エネルギー・資源学会編, エネルギー・資源ハンドブック. オーム社, pp. 1013-1015.
- 国土交通省 (2006) 道路交通センサス平成17年度.
- 興水達司・小林浩 (2004) 甲府盆地およびその周辺域における地下水中のヒ素濃度分布とその起源. 環境地質学シンポジウム論文集, **14**, 141-146.

- Liu, W., Zhao, J., Ouyang, Z., Soderlund, L. and Liu, G. (2005) Impacts of sewage irrigation on heavy metal distribution and contamination in Beijing, China. *Environmental International*, **31**, 805–812.
- 遅沢壮一・相田吉昭・中森亨・新部明郎・蟹沢聰史・中川久夫 (1983) 奄美大島の地質, とくに重力滑動と崩壊による地質の構成について. 地質学論集, **22**, 39–56.
- 尾崎宏和・福士謙介 (2010) 渡良瀬遊水地近傍の沼における底質中の重金属残留. 第19回環境化学討論会講演要旨集, pp. 808–809.
- Ozaki, H., Watanabe, I. and Kuno, K. (2004) As, Sb and Hg distribution and pollution sources in the roadside soil and dust around Kamikochi, Chubu Sangaku National Park, Japan. *Geochemical Journal*, **38**, 473–484.
- 尾崎宏和・渡邊泉・久野勝治 (2005) 上高地周辺の観光道路における土壌および道路わき粉塵の重金属濃度の長期変動. 環境化学, **15**, 287–298.
- 尾崎宏和・渡邊泉・久野勝治 (2009) 山岳地域と都市部の道路脇における土壌および堆積粉塵の理化学的性質の地域分布, 季節変化および相互関係. 環境化学, **19**, 13–23.
- 坂井卓 (2010) 琉球列島の四万十帯白亜紀付加体. 日本地質学会編, 日本地方地質誌 8 九州・沖縄地方, 朝倉書店, pp. 218–222.
- 瀬戸内町ホームページ (2011.5.28) 人口・世帯の推移. <http://www.amami-setouchi.org/node/26>
- Selim Reza, A. H. M., Jean, J., Yang, H., Lee, M., Woodall, B., Liu, C., Lee, J. and Luo, S. (2010) Occurrence of arsenic in core sediments and groundwater in the Chapai-Nawabganj District, northwestern Bangladesh. *Water Research*, **44**, 2021–2037.
- 白石さやか・渡邊泉・久野勝治 (2002) 東京都内の主要道路における道路粉塵, 街路土壌および街路樹葉の重金属蓄積. 環境化学, **12**, 829–837.
- Tabata, H., Anwar, M., Horai S., Ando, T., Nakano A., Wakamiya, J., Koriyama, C., Nakagawa, M., Yamada, K. and Akiba, S. (2006) Toenail Arsenic Levels among Residents in Amami-Oshima Island, Japan. *Environmental Sciences*, **13**, 149–160.
- 竹内誠 (1994) 20万分の1地質図幅「奄美大島」, 地質調査所. 龍郷町ホームページ (2011.5.28) 行政区人口世帯数. <http://www.town.tatsugo.lg.jp/zinkou.pdf>
- 徳永裕司 (2007) バングラデシュの地下水ヒ素汚染地域に住む住民のヒ素暴露について. 国立医薬品食品衛生研究所報告, **125**, 1–16.
- 宇検村ホームページ (2011.5.28) 集落人口・世帯数. <http://www.uken.net/index.php?oid=38&dtype=1006&pid=176>
- Wang, X., Sato, T., Xing, B. and Tao, S. (2005) Health risks of heavy metals to the general public in Tianjin, China via consumption of vegetables and fish. *Science of the Total Environment*, **350**, 28–37.
- Wang, Z. and Zhang, H. (2005) Environmental quality and biological effects of heavy metals in soils in the regions of sewage irrigation in Tianjin. *Ecology and Environment*, **14**, 211–213.
- WWF ジャパン (2009) WWF ジャパン南西諸島生物多様性評価プロジェクト報告書. 財団法人世界自然保護基金ジャパン, pp. 178.
- 渡邊泉・秋山太一・佐野翔一 (2011) 沖縄島北部やんばる地域の生態系における水銀分布と他元素との関係. 地球化学, **45**, 29–42.
- 渡邊泉・前畑亜希子・尾崎宏和・久野勝治 (2002) 日光国立公園尾瀬周辺における道路粉塵の重金属濃度とその地理的分布および季節変動—1999年の調査—. 環境科学会誌, **15**, 113–125.
- 大和村ホームページ (2011.5.28) 人口・世帯数. <http://www.vill.yamato.lg.jp/update/119.asp>
- 山崎秀夫・吉川周作・稲野伸哉 (2004) 隠岐男池堆積物に記録された重金属汚染の歴史トレンドの解析. 分析化学, **53**, 1419–1425.
- 山崎秀夫・阪田健行・阪下誠・辻本彰・村上晶子・吉川周作 (2009) わが国の僻地・離島湖沼堆積物の重金属汚染とその歴史トレンド. 第18回環境化学会討論会講演要旨集, pp. 72–73.