埼玉県西部、滝沢ダム周辺の河川堆積物にみられる化学組成の経年変化

樋□ 絢 渉* 関 根 栄 一* 山 下 慶 祐* キーワード:埼玉県, 滝沢ダム, 河川堆積物, 化学組成, 経年変化

I. はじめに

地球化学図とは集水域ごとの元素分布を可視化したも のであり、その地域に分布する岩石や土壌の化学組成を 反映している(一國, 1991), 日本全土の地球化学図は、 今井ほか(2004;2010)によって報告され、地域ごと の地球化学図としては、東北日本(Ujiie-Mikoshiba et al., 2006), 四国 (Ujiie-Mikoshiba et al., 2011), 中部地 方 (Ohta et al., 2005), 北関東地域 (伊藤ほか, 1991), 愛知県 (Tanaka et al., 1994; 1996; 田中ほか, 1995; 戸上ほか、1997;山本ほか、1998)、福岡県(伊藤ほか、 2007; 柚原, 2010; 柚原ほか, 2010; 2011) などが公表 されている、これらの報告は、広範囲の地球化学図を作 成すると共に、地球化学図が環境評価を行う基礎データ として有用であることを明らかにしている. 立正大学で も、2000年から埼玉県荒川流域の地球化学図の作成に取 り組んでおり(福岡ほか, 2005; 2006; 2007; 2008; 新 藤ほか,2006;青木ほか,2009),これまでに埼玉県西 部の山岳地域を中心に調査が進められてきた。

このように地球化学図による環境評価研究は進められ ているが、河川堆積物の化学組成の経年変化について議 論した例は少ない.例えば、古川ほか(2004)は、福岡 県室見川および秡川を対象に季節変化による堆積物の化 学組成を検討し、豪雨後に元素含有量が変動するものの、 年間を通してみると主成分元素とTh, Y, Zr以外の微量 成分元素は季節変化の影響を受けず、有機物由来のS. C, Nは季節変化と共に含有量が変化すると述べている. また、南ほか(2006)は、同一地点で10年間採取され た試料を検討し、集中豪雨の翌年に採取した試料はMn, Pの含有量およびLOI量が際立って高いと述べている. さらに,同一地点の季節変化をみると,多くの元素含有 量が夏から秋にかけて高くなり、冬にその中間を示すと 報告している. これらの研究は、一地点における化学組 成の経年変化や季節変動を対象にしたものであり、流域 全体の河川堆積物の化学組成について、十余年の間隔を

空けた経年変化を議論した報告はまだない.

また、わが国ではダムや堰堤といった河川工作物が砂防や治水、利水を目的として多く建設されている。一方 で河川工作物により流下した土砂がせき止められること で下流への土砂の供給が減少し、運搬量が供給量を上回 ることが原因で、河床低下や粗粒化、露盤化が起こると 報告されている(平野、1971;山本、1976;池田ほか、 1999;辻本、1999).これらの報告では河川工作物の有 無による堆積環境の変化については検討されているが化 学組成の変化についてまでは検討されていない.

そこで、本論では、埼玉県中津川下流の滝沢ダム周辺 (第1図)を対象に行われた2000年~2004年の8月(福 岡ほか、2005;新藤ほか、2006)および2018年8月の分 析結果を比較し、ダム周辺における河川堆積物の主成分 元素、微量成分元素、希土類成分元素の経年変化につい て考察する.なお、2000年~2004年の試料採取は滝沢ダ ム完成前に実施されており(新藤ほか、2006)、滝沢ダ ムの貯水開始前の分析値との違いについても検討した.

Ⅱ. 地質概略

本研究地域には、付加体から構成される秩父帯と 四万十帯が広く分布している.本来その説明には地層ユ ニットという区分を用いるべきであるが、河川堆積物の 化学組成の経年変化を考える上で、岩相分布が極めて重 要であるため、岩相の違いを強調した埼玉県地質図編纂 委員会(1999)の区分に基づき、以下に調査地域の地質 概略を述べる.

本地域には、東西方向の走向をもつ高角な傾斜の白泰 断層(秩父地質研究グループ,1966)をはさんで、北 側に秩父帯、南側に四万十帯が分布している(第1図). また、北西部では、秩父石英閃緑岩体が秩父帯に貫入し ている(通商産業省資源エネルギー庁、1975).第四系 として、中津川流域に河成段丘堆積物が分布し、その他 にテフラ層、地すべり堆積物が点在している(原ほか、



第1図 滝沢ダム周辺の地質概略図

埼玉県地質図編纂委員会(1998)を一部簡略化.図中の数字は2018年に採取された試料番号の最後の2桁を示す.黒 丸は2000~2004年と2018年の採取位置が異なる地点,白丸は両者の採取位置が一致している地点を表している.

2010).

本地域の秩父帯は、主に砂岩層または砂岩泥岩互層か らなり、その堆積年代はジュラ紀中期とされる(指田 ほか、1982).後者の互層には、砂岩、泥岩、チャート、 石灰岩、苦鉄質岩が含まれると報告されている(埼玉 県地質図編纂委員会、1999).本地域の秩父帯は一般に WNW ~ ESEの走向で、北へ50~60°傾斜しており(埼 玉県地質図編纂委員会、1999)、南に行くほど若くなる 覆瓦構造をもっている(日本地質学会、2008).

本地域の四万十帯は,主に泥岩層からなり,苦鉄質 岩,砂岩,チャートが含まれる(埼玉県地質図編纂委員 会,1999).本地域の四万十帯は一般にN50°W~EWの 走向で30~60°Nの傾斜を示す(堀口・松岡,1994).こ の地域における化石の産出の報告がないため,本地域の 四万十帯の堆積年代は不明であるが,本地域南方に位置 する和名倉山付近より白亜紀後期の放散虫化石の産出が 報告されている(高橋ほか, 1989).

秩父石英閃緑岩体は調査地北西域に北部,南部の2つ の岩体に分かれて分布しており,さらに周辺には小規 模な衛星岩体が点在する(通商産業省資源エネルギー 庁,1975).岩石は,完晶質で等粒状組織を呈し,主 として斜長石,石英,黒雲母,角閃石から構成される (埼玉県地質図編纂委員会,1999).秩父石英閃緑岩体 は黒雲母カリウム-アルゴン(K-Ar)年代として5.9, 6.6Ma (Ueno and Shibata, 1986),5.62~6.83Ma (Saito et al, 1996),5.97Ma (松本ほか,2007),角閃石K-Ar 年代は10.5Ma (Ueno and Shibata, 1986),5.96~6.05Ma (Saito et al, 1996),5.25Ma (松本ほか,2007),ジルコ ンフィッション・トラック(FT)年代は8.1Ma (Ueno and Shibata, 1986)という測定値が得られている。中津 峡の衛星岩体では黒雲母K-Ar年代として6.46Ma,角閃 石K-Ar年代は5.88Maが得られている(原ほか,2010). なお,秩父鉱山は秩父帯に貫入したこの石英閃緑岩の接 触変成作用による鉱床である(埼玉県地質図編纂委員会, 1999).

Ⅲ. 試料採取および分析方法

本研究では、福岡ほか(2005)および新藤ほか(2006) にて報告された試料との比較を目的としているため、試 料採取や分析方法の違いについて予め認識しておく必要 がある.採取方法や分析方法が異なれば、結果に差が生 じる可能性があり、直接比較することが難しくなるため である.そこで、まず、試料採取、採取地点、分析方法 について以下に述べる.なお、採取はいずれも大学の夏 季休業期間である8月に3泊4日で行われている.

1. 試料採取・試料処理法

試料は、青木ほか(2009)に従って採取・処理を行っ た.まず.スコップを用いて河川堆積物を80メッシュ (<180 µm)の篩に採取し,河川水を流して篩を通した. 篩を通過した河川堆積物と水をポリバケツ(15リット ル)で回収し、篩を通過しなかったものは適宜捨て、さ らに河川堆積物を追加し篩にかけた.ポリバケツが満水 になるまで水を流し続けた後,手で撹拌し5分間静置さ せた、静置後、上澄みを捨て、沈殿物を80メッシュ(< 180 µm)の篩に再びかけ、ポリバケツで回収した、二 度目は沈殿物を篩にかける際に河川堆積物が追加されな いように、じょうろで汲んだ河川水のみを流して篩を通 しポリバケツで回収した.ポリバケツに水が満ちた後. 再び撹拌し5分間静置させた. その後上澄みを捨て沈殿 物をコーヒーフィルターに回収し、試料とした、スコッ プやじょうろなど一部の道具は劣化のために更新するこ とはあったが、採取用のポリバケツの容量(15リット ル) や篩のメッシュ (80), 静置時間 (5分), 篩を通す 回数(2回)など、2004年以前と2018年の試料採取条件 には変更はない. 採取した試料は, 自然乾燥後, 四分法 により試料を分取し、アルミナ製乳鉢を用いてすりつぶ した後にスチロール棒瓶に入れ保管した.

2. 採取地点

本研究は、埼玉県荒川上流の中津川流域で採取を行った(第1図).地球化学図作成のためには、尾根に囲まれた1km²程度の集水域において堆積物が一つに集まる地点を採取地点とする必要がある(青木ほか,2009). 2018年は46試料の河川堆積物を採取したが、地形・天 候・作業人数および人的要因などの理由から2000~2004 年の採取地点とは異なる場所から採取した場合がある。 特に2000~2004年の採取時は滝沢ダムが建設されていな かったため、今では水没してしまった河川から試料を採 取していたが、2018年は支流を遡る他なく、同一地点で の採取はできなかった。結果として、46試料中過去の採 取地点と同じ場所から採取できたのは26カ所であった。 また、採取地点の変更を余儀なくされたのは9地点であ り、新規の採取地点は11地点であった。第1表に2018年 の採取番号と過去の採取番号の対比表および両者の関係 を、第1図に2018年の採取位置と2018年に同一地点で採 取できなかった過去9地点の採取位置をそれぞれ示した。 なお、第1図で示したように、過去の採取地から変更し た9地点であっても尾根線で囲まれた集水域は同じであ る。

3. 分析方法

採取した試料の調整方法について2004年以前と2018年 の間に変更はなく、十分に乾燥させた後900℃で恒量に 達した試料に融剤(四ホウ酸リチウム)を重量比で試料 1:融剤2となるように加え、アルミナ製乳鉢ですりつ ぶした後、高周波炉を用いて溶融し、ガラスビードを作 成した(福岡ほか, 2005).

作成したガラスビードを用いて、蛍光X線分析(以下,XRF)では主成分および微量成分元素を、レー ザーアブレーション誘導結合プラズマ質量分析(以下, LA-ICP-MS)では希土類成分元素の分析を行った.な お、LA-ICP-MSでは、LA効率による試料導入量の差を 補正するためにYを用いた内標準補正を行っており、Y の値にはXRFで測定された値を使用している(新藤ほ か、2009;川野・清水、2017).

2000~2004年に採取した試料は,XRF,LA-ICP-MS, 機器中性子放射化分析,即発ガンマ線分析によって48元 素の濃度を求めているが(福岡ほか,2005;新藤ほか, 2006),2018年に採取した試料は,XRFとLA-ICP-MSの みで34元素の濃度を求めている.比較を行うため,本研 究では2018年に測定された34元素について議論を行う (第2~4表).

Ⅳ. 経年変化

1. 分析装置の比較

分析方法は2000~2004年と2018年共に同じであるが, 分析装置は異なる.2000~2004年での分析に用いられ たXRF装置は理学電機工業社のRIX2100(佐野, 2002), LA装置はCETAC社製LSX-200, ICP-MS装置はセイコーイ ンスツル社製SPQ9000(新藤ほか, 2009)であり, 2018 年での分析で用いられたXRF装置はリガク社製のZSX Primus II (川野, 2010), LA装置はNew Wave Research 社製UP-213, ICP-MS装置はPerkinElmer社製NexION2000で ある.これら分析装置の違いによる影響を確認するため, 2000~2004年に分析した標準試料JB-1とJR-2について, 改めて作成した両試料のガラスビードをZSX Primus II を用いて2020年に分析を行い, 結果を推奨値(Imai et al., 1995)と比較した(第2図).

図の横軸はJB-1とJR-2の推奨値,縦軸に2000~2004年

(福岡ほか,2005:新藤ほか,2006)と現在の分析値を それぞれとっている.図には1:1の点線を示しており, この点線から上下にずれると,推奨値との差が大きいこ とを示している.なお、微量成分元素のうち,Th,Pb, Ga, Znは2000~2004年に測定が行われていない.主成分 元素をみると,JB-1では,P₂O₅を除いて,2000~2004年 と現在の分析値は重複し,推奨値とも良い一致を示す. 一方,JR-2では、P₂O₅やMgO,Fe₂O₃で,2000~2004年 と現在の分析値が一致しておらず,Fe₂O₃とP₂O₅は2000 ~2004年の値が推奨値からずれており,MgOは2000~ 2004年と現在共に大きくずれてしまっている.他の主成 分元素は若干の相違がみられるものの,2000~2004年と

_	2018年 採取番号	2000~2004年 対応する番号	採取地点の関係		2018年 採取番号	2000~2004年 対応する番号	採取地点の関係
	1801	0018	前回と同じ地点から採取		1094	0109	前回から50mほど上流か
	1802	0019	前回と同じ地点から採取		1024	0108	ら採取
	1803	0020	前回と同じ地点から採取		1825	0122	前回と同じ地点から採取
	1804	0001	前回から80mほど下流か ら採取		1826	0111	前回と同じ地点から採取
	1805		新規採取地点		1827	0124	前回と同じ地点から採取
	1806		新規採取地点		1828	0103	前回と同じ地点から採取
	1807	0012	前回から50mほど上流か		1829	0102	前回と同じ地点から採取
1	1007	0012	ら採取		1830		新規採取地点
	1808	0011	前回から150mほど上流 から採取		1831	0112	前回と同じ地点から採取
	1809		新規採取地点		1832	0113	前回から200mほど上流 から採取
	1810	0010	前回から50mほどト流か ら採取		1833		新規採取地点
	1811	0022	前回と同じ地点から採取		1834	0209	前回と同じ地点から採取
	1812	0021	前回と同じ地点から採取		1835	0204	前回と同じ地点から採取
	1813	0014	前回と同じ地点から採取		1836	0202	前回と同じ地占から採取
	1814	0430	前回から250mほど上流 から採取		1837		新規採取地点
	1815	815 0017	前回から200mほど上流		1838		新規採取地点
			から1本収 前回から150mほど上流		1839	0213	前回と同じ地点から採取
	1816	0429	から採取		1840	0218	前回と同じ地点から採取
	1817		新規採取地点		1841		新規採取地点
	1818	0105	前回と同じ地点から採取		1842	0217	前回と同じ地点から採取
	1819	0106	前回と同じ地点から採取		1843	0216	前回と同じ地占から採取
	1820		新規採取地点		1010	0210	前回と同じ地占から採取
	1821	0107	前回と同じ地点から採取		1044	0214	前回こ何し地点から抹取
	1822	0101	前回と同じ地点から採取		1845	0215	則回と同じ地点から採取
	1823	0120	前回と同じ地点から採取		1846		新規採取地点

第1表 2018年と2000~2004年の試料対比表

2000~2004年の位置情報は福岡ほか(2005)および新藤ほか(2006)から引用.

Sample No	SiO_2 (wt%)	TiO_2 (wt%)	Al_2O_3 (wt%)	Fe_2O_3 (wt%)	MnO (wt%)	MgO (wt%)	CaO (wt%)	Na ₂ O (wt%)	K_2O (wt%)	P_2O_5 (wt%)	Total (wt%)
1801	70.16	0.63	15.83	/ 79	012	1.53	0.97	2.20	3.55	012	100.00
1001	60.94	0.00	15.00	т.7 <i>5</i> Б.91	0.12	1.00	1.20	2.25	2.00	0.12	100.00
1002	09.04	0.70	15.50	5.21	0.12	1.05	1.52	2.10	3.39 9.55	0.15	100.00
1803	70.22	0.69	15.49	5.29	0.15	1.51	0.99	1.95	3.55	0.15	100.00
1804	69.68	0.71	13.09	7.60	0.17	1.61	2.58	1.76	2.68	0.12	100.00
1805	68.23	0.81	15.42	5.88	0.16	1.97	2.16	2.02	3.06	0.28	100.00
1806	62.75	0.93	18.57	7.21	0.29	2.04	2.39	1.84	3.66	0.33	100.00
1807	62.48	1.13	17.88	7.73	0.27	1.97	2.78	1.96	3.35	0.47	100.00
1808	63.58	1.04	17.93	7.72	0.28	2.23	1.99	1.82	3.16	0.25	100.00
1809	63.34	0.99	18.63	7.12	0.23	2.30	1.88	1.52	3.77	0.23	100.00
1810	66.22	1.03	15.36	8.15	0.21	2.30	2.02	1.62	2.90	0.19	100.00
1811	65 73	0.80	1745	645	0.21	172	1.55	2.31	3.55	0.23	100.00
1812	63.10	0.86	18.96	6.10	0.19	1.72	2.00	2.01	3.00	0.32	100.00
1012	60.21	1.25	20.10	0.07	0.15	2.20	1 41	1.70	250	0.02	100.00
1013	70.05	1.20	20.19	0.15	0.20	2.29 1.40	1.41	1.79	0.00	0.29	100.00
1814	72.05	0.54	14.70	4.49	0.10	1.43	1.19	2.29	3.12	0.10	100.00
1815	68.07	0.90	16.68	6.42	0.21	1.48	0.87	1.16	4.05	0.17	100.00
1816	68.58	0.80	15.54	6.21	0.12	2.16	1.32	2.12	3.03	0.12	100.00
1817	70.43	0.62	12.61	6.63	0.16	1.58	3.63	1.66	2.57	0.11	100.00
1818	67.90	0.78	17.19	6.05	0.26	1.68	0.69	1.34	3.94	0.17	100.00
1819	69.13	0.68	16.42	6.22	0.25	1.46	0.43	1.33	3.93	0.14	100.00
1820	66.43	0.78	18.60	5.95	0.27	1.73	0.65	1.32	4.10	0.17	100.00
1821	64.49	0.89	19.64	6.44	0.31	1.90	0.77	1.28	4.07	0.20	100.00
1822	69.30	0.69	1253	780	0.18	1.52	373	1.68	245	011	100.00
1823	64 30	1.12	16.66	9.26	0.17	2.28	1 38	1 33	3.40	0.10	100.00
1824	64.00	0.00	18.66	7.11	0.17	2.20	0.76	1.00	3.56	0.15	100.00
1024	04.90	0.99	10.00	0.70	0.22	2.10	1.40	1.47	0.00	0.10	100.00
1825	64.00	1.12	16.90	8.73	0.30	2.79	1.48	1.03	2.80	0.19	100.00
1826	65.49	0.94	17.49	7.08	0.27	1.98	1.40	1.40	3.71	0.24	100.00
1827	67.62	1.07	15.33	7.90	0.14	2.01	1.05	1.78	3.02	0.08	100.00
1828	62.85	0.70	13.07	10.07	0.32	1.74	7.47	1.38	2.26	0.14	100.00
1829	72.06	0.70	13.21	5.90	0.13	1.58	1.46	1.88	2.97	0.12	100.00
1830	67.20	0.83	12.47	11.36	0.22	2.40	2.30	1.28	1.75	0.19	100.00
1831	64.81	0.75	14.85	9.08	0.27	2.44	3.82	1.97	1.80	0.21	100.00
1832	68.43	0.62	13.34	10.65	0.29	1.52	1.46	1.07	2.41	0.22	100.00
1833	66.30	0.99	16.13	7.82	0.28	2.40	1.07	1.23	3.59	0.19	100.00
1834	66.46	0.82	16.19	8.70	0.67	1.83	1.39	0.63	2.95	0.34	100.00
1835	6642	1 04	15.86	817	0.23	246	0.95	112	358	017	100.00
1836	73.63	0.58	1349	4.47	0.11	1.42	1.46	1.62	310	0.11	100.00
1837	61.00	1.04	1/ 8/	9.72	0.22	3.14	5 38	2.02	113	0.11	100.00
1007	67.61	0.05	16.56	6.00	0.22	1.47	0.04	1.46	2.71	0.10	100.00
1000	07.01	0.95	10.00	0.90	0.19	1.47	0.94	1.40	5.71	0.21	100.00
1839	64.02	0.89	18.18	7.92	0.48	2.04	1.13	1.20	3.90	0.25	100.00
1840	68.01	0.80	17.01	5.90	0.23	1.60	0.91	1.33	4.03	0.18	100.00
1841	66.16	0.89	17.96	7.15	0.26	1.52	0.51	0.96	4.46	0.14	100.00
1842	74.87	0.89	12.07	5.50	0.18	1.50	0.98	0.72	3.10	0.19	100.00
1843	68.98	0.81	16.25	6.00	0.21	1.42	1.26	1.05	3.81	0.22	100.00
1844	67.36	0.90	17.69	6.30	0.13	1.49	0.76	1.00	4.19	0.16	100.00
1845	67.60	1.05	16.69	6.20	0.13	1.85	0.94	1.53	3.82	0.17	100.00
1846	73.73	0.59	13.47	4.31	0.10	1.32	1.29	1.63	3.43	0.12	100.00

第2表 2018年試料の主成分元素

全鉄はFe₂O₃として表示.分析値は100%に規格化している.

Sample	Ba	Cr	Cu	Nb	Ni	Rb	Sr	V	Y	Zr
No.	(ppm)									
1801	599	47.4	31.5	10	19.3	122	124	76.6	22.6	243
1802	689	65.9	26	9.5	18	114	136	98.1	23.6	287
1803	555	48.4	40.9	10.5	23.5	126	124	91.7	26.6	275
1804	473	102.8	78.8	10.4	21.4	95	120	109	21.6	215
1805	538	69.7	52	12	34.3	111	149	89.9	29.5	257
1806	730	76.6	113.6	15.4	51	147	198	103.2	44.0	250
1807	693	60	94.7	38.5	51.4	125	203	85.4	47.8	328
1808	649	88.2	121.5	17.5	52.4	119	188	103.7	36.6	231
1809	599	85.2	64.4	14.2	41.9	139	129	107	34.8	260
1810	543	140.8	63.8	11.6	37.2	107	136	128.4	26.8	248
1811	812	55.9	103.7	17.3	47.6	141	133	78.6	39.3	244
1812	775	57.6	112.8	18.4	43.6	150	174	80	45.2	262
1813	798	76.6	97.2	22.8	52.1	146	140	134.1	46.1	291
1814	645	37.9	20.8	7.1	14.7	101	165	78.7	17.6	203
1815	576	71.4	49.8	16.2	35.5	163	99	80.4	32.4	294
1816	489	62.7	31.2	8.8	24.8	110	163	114.1	23.1	293
1817	438	48.2	80.3	8.8	18.6	90	120	84	20.5	178
1818	666	52.4	53.1	13.9	32.4	153	99	95.7	30.2	278
1819	603	44	31.2	10.6	20.2	144	91	87.9	29.3	317
1820	721	55.4	54.4	14.2	31.6	163	95	94.8	31.6	256
1821	811	64.9	63.9	15.4	35.6	168	98	109.7	35.0	287
1822	440	58.9	91.1	8.8	17.6	85	125	105.6	21.0	271
1823	537	76.8	35.8	11.7	27	124	101	195.8	28.3	270
1824	544	80.1	52.4	15.1	37.3	131	104	95.8	30.8	242
1825	538	101.2	66.5	15.5	53.6	106	128	137.7	33.2	260
1826	618	66	54	16.8	36.5	140	124	100.9	34.3	306
1827	513	58	29	9.7	20.1	112	121	165	24.2	318
1828	396	64.4	219.9	7.7	18.5	82	128	105.5	23.3	202
1829	550	60.7	51.6	11.3	22.2	107	118	98.4	21.5	261
1830	326	49.8	207.3	9.1	31.3	61	126	145	22.5	180
1831	449	43.5	144.6	7.6	23.7	61	177	126.5	22.6	183
1832	395	39.9	320.6	9.2	29.4	85	107	78.7	25.9	189
1833	610	105.2	55.9	15	52.1	144	95	87.2	31.5	262
1834	583	64.4	130.8	11	50.1	113	87	118.9	32.4	184
1835	623	123.4	50.9	14.7	49.8	145	90	97.5	31.7	270
1836	541	66.5	42.5	10.9	20.7	116	121	71	21.8	222
1837	323	82.3	161.2	7	22.6	46	180	188.6	22.2	156
1838	542	64.4	43.3	18.2	27.6	135	104	81.3	29.0	319
1839	656	54.7	88.9	13.5	46.7	155	108	107.6	37.6	265
1840	630	60.6	55.3	15	34.5	159	102	84.9	31.5	263
1841	679	49.7	65	15.4	30.6	188	83	112.3	34.6	285
1842	529	72.3	40.5	15.6	31.5	120	66	67.5	23.8	358
1843	723	54.7	58.8	14.3	29.8	161	92	94.9	30.7	256
1844	603	90	30.5	15.8	301	168	80	86	29.3	281
1845	546	86.9	.34	22.6	36.3	139	121	687	27.4	314
1846	556	45.8	30.7	11.3	21.7	124	119	64.1	21.4	216

第3表 2018年試料の微量成分元素

第4表 2018年試料の希土類成分元素

Sample	La	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
NO.	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)
1801	24.4	52.1	5.0	20.1	3.82	0.82	3.67	0.56	3.78	0.77	2.35	0.36	2.66	0.41
1802	20.7	53.8	5.2	23.0	4.41	0.90	4.35	0.63	4.23	0.84	2.53	0.33	2.01	0.42
1803	29.2	56.7	6.0	23.7	4.47	0.95	4.33	0.65	4.44	0.89	2.60	0.33	2.60	0.40
1804	24.2	42.4	5.0	19.3	3.50	0.71	3.43	0.45	3.43	0.69	2.01	0.19	1.94	0.29
1805	33.5	60.2	6.7	26.7	5.11	1.00	4.64	0.69	4.68	0.91	2.67	0.31	2.67	0.37
1806	60.4	105.7	12.0	45.9	9.01	1.83	8.66	1.28	8.25	1.59	4.38	0.61	4.38	0.62
1807	80.6	136.7	15.4	54.6	10.35	2.01	9.81	1.38	8.85	1.71	4.69	0.69	4.35	0.65
1808	45.8	84.0	9.1	34.4	7.09	1.56	7.37	1.02	7.07	1.34	3.80	0.56	3.83	0.56
1809	42.7	88.7	9.0	32.8	6.60	1.42	6.88	0.95	6.45	1.35	3.86	0.58	4.06	0.61
1810	28.8	55.5	6.0	26.1	5.37	1.16	5.18	0.74	4.81	0.98	2.85	0.43	3.06	0.44
1811	58.2	108.8	12.2	44.0	8.85	1.73	8.65	1.21	7.60	1.59	4.37	0.70	4.33	0.57
1812	74.3	137.1	15.9	55.6	10.70	2.24	9.70	1.43	8.76	1.69	4.66	0.73	4.82	0.66
1813	65.5	123.8	13.0	50.0	9.68	1.29	8.93	1.14	8.44	1.46	4.61	0.61	4.40	0.52
1814	22.3	41.8	3.5	15.2	2.58		2.64	0.18	2.96	0.40	1.85	0.19	2.20	0.24
1815	46.3	82.2	8.4	32.6	6.06	0.48	5.85	0.64	5.60	0.86	3.22	0.36	3.20	0.40
1816	28.6	51.0	5.2	21.2	3.86	0.28	3.78	0.40	3.93	0.68	2.55	0.26	2.75	0.35
1817	21.0	38.4	4.7	21.5	4.35	0.96	4.50	0.59	3.92	0.83	2.41	0.37	2.72	0.39
1818	31.0	57.6	5.7	21.9	4.00	0.32	3.94	0.40	3.93	0.64	2.34	0.30	2.41	0.28
1819	32.3	59.6	6.7	25.6	5.28	1.12	5.01	0.78	5.21	1.05	3.17	0.49	3.48	0.51
1820	39.3	74.6	8.1	30.3	5.92	1.16	5.82	0.84	5.66	1.18	3.30	0.52	3.64	0.54
1821	41.8	82.3	8.7	33.7	6.57	1.32	6.10	0.94	6.11	1.31	3.80	0.56	3.80	0.59
1822	28.6	52.0	5.4	19.9	3.81	0.78	3.47	0.54	3.49	0.73	2.17	0.33	2.35	0.38
1823	31.7	57.0	6.7	25.4	4.98	1.01	4.87	0.71	4.93	1.00	3.09	0.50	3.31	0.49
1824	34.6	64.2	7.3	28.1	5.62	1.25	5.54	0.82	5.44	1.11	3.29	0.51	3.40	0.55
1825	28.3	54.2	6.1	24.7	5.34	1.27	5.38	0.86	5.66	1.19	3.34	0.51	3.42	0.52
1826	38.2	69.5	8.1	34.0	6.73	1.45	6.16	0.91	5.88	1.20	3.41	0.50	3.47	0.52
1827	31.8	59.3	5.9	21.5	4.15	0.88	3.87	0.60	4.00	0.82	2.50	0.38	2.61	0.42
1828	22.3	39.7	4.9	22.1	4.57	1.04	4.55	0.62	4.11	0.85	2.54	0.39	2.85	0.42
1829	29.3	52.3	6.1	22.3	4.31	0.90	4.13	0.57	3.82	0.84	2.34	0.35	2.60	0.36
1830	26.0	49.2	5.3	23.7	4.85	0.91	4.27	0.56	4.40	0.79	2.34	0.30	2.24	0.32
1831	23.4	47.5	5.1	22.8	4.76	0.91	4.10	0.58	4.06	0.79	2.40	0.33	2.51	0.35
1832	31.1	59.7	6.3	27.8	5.62	0.92	4.86	0.63	4.71	0.85	2.64	0.37	2.47	0.38
1833	36.8	67.5	75	32.1	640	1 15	571	0.76	5 5 9	1 09	318	0.43	312	0.46
1834	33.8	77.8	7.0	27.0	5.33	1 14	4 98	0.75	4.89	0.97	2.87	0.43	2.94	0.47
1835	34.8	62.8	7.1	29.9	5.90	1 1 4	5.09	0.77	4.87	1.01	2.01	0.43	2.51	0.44
1836	27.1	51.0	56	23.3	4.58	0.94	4.27	0.59	3.83	0.79	231	0.10	2.01 2.47	0.38
1837	1/1	27.7	3.0	137	2.96	0.66	2.00	0.51	3/18	0.66	1 99	0.30	2.17	0.34
1838	25.2	61.2	7.9	26.0	2.50 4.81	0.00	4.55	0.66	4.60	0.00	2.61	0.01	2.12 2.77	0.44
1830	30.5 30.4	77.0	8.4	20.0	4.01 6.76	1.33	4.00 6.07	0.00	4.00 5.05	1 10	2.01	0.42	2.11	0.44
18/0	/01	71 A	0.4 Q 2	90 G	5.70	1.55	5.92	0.91	5.16	1.19	2.±7	0.49	3.07	0.52
1040	ч0.1 ЛСБ	01 0	0.0	29.0 29.9	6.00	1.14 1.91	J.23 5 79	0.00	5.10	1.00	∠.୭୭ २.२७	0.44	3.00 3.70	0.50
1041	40.0 24.0	91.U	9.1	02.Z	0.22 1 97	1.21	0.70 4.0E	0.00	0.04 201	1.19	0.00 0.00	0.04	0.1U 0.40	0.04
1842	54.8 41.0	02.2 71.0	0.9	23.U	4.37 5.00	0.94	4.00	0.59	3.84 4.90	U.70	2.29	0.34	2.48 2.00	0.37
1043 1044	41.U	(1.Z	0.0	20.3 20.7	0.03 6.04	1.02	4.ðj	0.13	4.89 5.94	1.01	2.94 2.11	0.40	J.U0	0.49
1045	41.Z	74.0	ð.4	32.1	0.24 E.CO	1.23	0.74 5.10	0.82	0.24	1.00	3.11 9.70	0.42	3.13 2.15	0.48
1845	41.7	76.8	8.7	29.4	5.63	1.26	5.16	0.76	4.85	0.97	2.70	0.41	3.15 0.00	0.48
1846	31.l	56.8	6.4	23.0	4.49	0.91	3.99	0.57	3.79	0.80	2.24	0.33	2.23	0.36





推奨値はImai et al. (1995), 2000~2004年の測定値は福岡ほか(2005)および新藤ほか(2006)からそれぞれ引用.

現在共に推奨値とほぼ同じ値を示している. 続いて微量 成分元素をみると、JB-1ではCuやCoで若干のずれが認 められるが、2000~2004年と現在共に概ね推奨値の値と 一致している. IR-2では、Cu, Cr, V, Baなどずれが顕著 な元素があるが、他の元素はほぼ推奨値と同じである. UP-213とNexION2000を用いて測定した希土類成分元素 と2000~2004年および推奨値との比較をみると、JB-1で は、含有量の少ないHo, Tm, Luで若干差が認められるが、 2000~2004年と現在共に推奨値から大きくずれてはいな い. JR-2では、Eu, Lu, Ho, Ndで2000~2004年と現在に若 干の差異はあるものの、両者共に推奨値とのずれは大き くはない. これらの結果から、JB-1とJR-2の両方でずれ が確認されたのは、主成分元素ではP2O5、微量成分元素 ではCuであったため,経年変化を議論する際,分析機 器の違いによる影響を払拭できないので、以下、検討の 対象にしないこととする.

2. 化学組成の経年変化

河川堆積物の化学組成変化を第3~5図に示した.各 図において,点線は2000~2004年と2018年の分析結果が 等しい位置を結んだものであり,この点線から縦方向に ずれて点示されればされるほど,化学組成の経年変化が 大きいことを意味している.

2000~2004年と2018年の主成分元素を比較すると、 SiO2は多くの試料が増加傾向にあるが、その他の元素は 減少傾向となっていた(第3図) 元素ごとにみていく と、SiO₂において、最も増加している試料は1814であり、 2000~2004年の濃度の1.15倍に達している。他に、2000 ~2004年の濃度の1.1倍以上の値をもつ試料は, 1835, 1842, 1843であった. これらの中で, 1814だけは採取地 点が異なっているものの、他の3 試料は2000~2004年と 同じ場所から採取されている。SiO2量が最も減少してい たのは1823であった. TiO2については, ほとんどの試 料が 2000~2004年の濃度よりも減少していたが. 1823 のみ突出してTiO2濃度が増加していた. Al2O3やFe2O3 もTiO₂と同様に、2000~2004年の濃度より減少した試 料が多く認められる. MnOやCaOは組成幅の中で偏り が顕著であり、2000~2004年と2018年共に低濃度側に試 料の集中が認められる. さらに両元素とも、2018年の元 素濃度は2000~2004年と比べて減少している試料が多い. MgOは、1825や1823、1835が2000~2004年の濃度よりも 増加していたが、他の試料のほとんどは減少を示してい る. Na₂OとK₂Oは共にほとんどの試料が2000~2004年 の濃度よりも減少する傾向となっていた.





2000~2004年の測定値は福岡ほか(2005)および新藤ほか(2006)から引用.図中の特徴的な試料や変化の大きな試料に付している数字は、第1図に示した数字と同じく、2018年に採取された試料番号の最後の2桁を表している.黒丸は2000~2004年と2018年の採取位置が異なる地点から、白丸は両者の採取位置が一致している地点からそれぞれ採取された試料を表している.

2000~2004年と2018年の微量成分元素を比較すると、 Crが顕著に増加しており, Sr, Y, Zrでは分散して傾向 が認められないものの、Ba, Nb, Ni, Rb, Vは減少の傾向 が認められる(第4図).元素ごとにみると、Crは、ほ とんどの試料においてCr濃度の増加が認められ。特に 2000~2004年に低濃度であった試料ほど、Cr濃度が著 しく増加していた。特に1810は2倍近く濃度が増加して いる.一方, 1814, 1827, 1845のCr濃度は減少しており, その中でも1814が最も濃度変化が顕著であった.Srは、 濃度変化に明瞭な傾向は認められないが. 1807や1812の 増加と、1831や1834の減少は顕著であった。Yはほとん どの2000~2004年, 2018年の試料共に50ppm以下となっ ており, 1812, 1818, 1821, 1823は増加, 1814と1842は減 少が認められる. なお、1807のみ2000~2004年の分析 で高濃度を示すが、2018年の濃度は中程度である、Zr は、濃度変化に一様な増加・減少傾向がみられなかった が, 1822や1827は増加, 1801や1808, 1810, 1814, 1834は 減少の割合が大きくなっていた。Baは、1821が最も増 加しており、1842の減少が顕著である.全体的に減少す る試料が多いが、採取位置が異なる試料は、2000~2004 年と2018年のBaの経年変化はほとんど認められなかっ

た. Nbは, 20ppm以下の試料には2000~2004年と2018 年のNb濃度がほぼ変化していない特徴が認められるが, 20ppm以上の試料については変化がみられ, 1807や1845 は増加, 1842は減少の割合が比較的大きくなっていた. Niは, Crとは逆に減少の傾向が明瞭に認められ, 目立っ て増加しているのは1825のみであった. RbはNiと類似 した傾向を示すが, 減少の割合はNiよりもやや小さく, 顕著に増加している試料は認められない. Vは, 1823が 極端に増加する特徴を有するものの, 全体的には減少の 傾向が著しい. 特に1810や1845の減少は顕著である.

2000~2004年と2018年の希土類成分元素を比較する と、La, Pr, Sm, Tbは比較的濃度変化が小さく、Ce, Nd, Dy, Ho, Erは増加・減少が目立つようになり、Tm, Yb, Luは顕著な増加・減少傾向を示す(第5図).また、Eu やGdは減少が顕著である(第5図).なお、1 ppm以下 の元素であるTmとLuでは2000~2004年の有効数字が 小数点1位となっている.元素ごとにみると、Laでは、 2000~2004年と2018年度の分析値を比較すると、1811, 1812, 1813の増加と、1804や1814の減少が顕著である が、他の試料は著しい濃度変化はみられなかった、Ce もLaと同じく、1811, 1812, 1813は濃度が増加しており、



第4図 2018年と2000~2004年の微量成分元素の比較

2000~2004年の測定値は福岡ほか(2005)および新藤ほか(2006)から引用. 図中の特徴的な試料や変化の大きな試料に付している数字は,第1図と同じく,2018年に採取された試料番号の最後の2桁を表している. 黒丸は2000~2004年と2018年の採取位置が異なる地点から,白丸は両者の採取位置が一致している地点からそれぞれ採取された試料を表している.

1804や1814では減少している. Prは, 1811と1812の濃 度が2000~2004年の値よりも増加し、1804と1807、1814 は減少している. NdとSmにもPrと同様の濃度変化傾 向が認められた. Euは, 1807の減少と1812の増加が顕 著であり、加えて1804, 1813, 1815, 1816, 1818も減少の 傾向がある. Gdは, 2000~2004年よりも濃度が減少す る傾向にあり、特に1804.1807.1814は顕著に減少して いたが、1811, 1812は増加が認められる。Tbは、1811、 1812, 1821, 1823が2000~2004年の濃度よりも増加して いた一方で, 1804, 1807, 1814は減少が認められ, Ho では、1811と1812に増加、1804と1807は減少する特徴 がある。Erは、濃度変化に一様な増加・減少傾向がみ られなかったが、1811、1812、1821、1823は増加、1801、 1802, 1803, 1804, 1807, 1814は減少が認められる. Tm は, 1811, 1812, 1823, 1825, 1829は増加, 1801, 1802, 1803, 1804, 1814は減少していた. Ybは, 1811や1821, 1823を はじめ、多くの試料が2000~2004年の濃度よりも増加傾 向を示すが、1801, 1802, 1803, 1804, 1807, 1814では減少 している.Luは,Erと同様,一様な濃度変化傾向がみ られなかったが,1808,1823,1824の増加と,1803,1804, 1814の減少が目立っている.

V. 議論

試料によっては、2000~2004年と2018年の主成分元素、 微量成分元素、希土類成分元素に経年変化が生じている ことが明らかである(第3~5図).経年変化が生じた 理由として、1)分析方法や分析機器から生じる測定精 度、2)分析試料を採取した位置、3)河川堆積物の変 化、4)これらの複合作用、などが考えられる、そこで、 以下に経年変化を引き起こした原因について、それぞれ の可能性について検討していく、

1. 測定精度の違い

上述のように分析方法や分析機器については標準試料 の解析を通して検討しているが、具体的に観察できた経 年変化と照らし合わせてもう一度詳しく考えてみる.ま ず、分析の事前処理であるが、これは、2000~2004年と



2000~2004 年分析結果 (ppm)

第5図 2018年と2000~2004年の希土類成分元素の比較

2000~2004年の測定値は福岡ほか(2005)および新藤ほか(2006)から引用.図中の特徴的な試料や変化の大きな試料に付している数字は,第1図と同じく,2018年に採取された試料番号の最後の2桁を表している.黒丸は2000~2004年と2018年の採取位置が異なる地点から,白丸は両者の採取位置が一致している地点からそれぞれ採取された試料を表している.

2018年共に青木ほか(2009)で述べられている手順で実施した.さらに、前述のようにガラスビードを作成する際に使用した融剤も同じ薬品会社から購入した同じ製品であるため、融剤による分析値の変化は考えがたい.

分析方法は2000~2004年と2018年では同じであるが, 先に述べたように分析装置そのものは異なる機種を用 いている.装置による分析値の差異に関しては,標準 試料であるJB-1とJR-2を用いて,2000~2004年と現在の 分析値,さらに推奨値とも比較・検討し,主成分元素の P₂O₅, 微量成分元素のCuなど,一部の元素に問題は残 るものの,概ね整合的な結果が得られている(第2図). 実試料の主成分元素については,SiO₂で7.12wt%,Al₂O₃ で4.85wt%,Fe₂O₃で3.29wt%と,JB-1とJR-2の測定結果 で認識された以上の変化が認められ(第3図),分析機

器の違いでは、これらの変化を説明することは困難であ る. 逆に、主成分元素の中でも、1wt%以内の変化は、 分析機器による測定誤差から生じた可能性を否定する ことはできない. 微量成分元素の比較では、JR-2のCr. Ni, Vなど、10ppmを下回る元素で分散がみられ、JR-2 のBaは数十ppmで2000~2004年と2018年の差が大きく なるものの、JB-1のBaは数百ppmになると2000~2004 年と2018年の差は小さくなっている(第2図). すなわ ち,10ppmを下回る微量成分は相対誤差が大きい(44 ~114%)が、20ppm ~ 数百ppmになるとBa以外につい ては相対誤差が小さく(5.5~12%),測定が可能となっ ている.実試料の微量成分元素のうち,10ppm 以下の 濃度を示した元素はNbとNiであるが、両者共に20ppm 以上になると変化が顕著になっている(第4図).また, 全ての試料のBaは300ppm以上を示しており、600ppm 以上で経年変化が目立つようになる(第4図). すなわ ち、主成分元素と同様に微量成分元素でも、分析機器の 違いでは2000~2004年から2018年にみられる経年変化を 説明することは困難であると考えられる.希土類成分元 素については、1ppmを下回る元素で相対誤差(0.2~ 22%)が大きくなり、HoやNdは1ppm以上であっても 9~24%の相対誤差が認められる(第2図).実試料に みられた希土類成分元素の経年変化は、1 ppm以下で顕 著な変化を示したEu, Tb, Tm, Luについては分析機器の 誤差による変化であることを否定できない. また, Nd やHoも標準試料の測定値の差を考慮すれば、分析機器 の誤差によって分散している可能性がある. しかしなが ら、それら以外の希土類成分元素にみられる変化は分 析機器による測定精度の違いでは説明できず、他に原 因を求める必要がある.以上の検討から、SiO₂,Al₂O₃, Fe₂O₃, Nb, Ni, Eu, Tb, Tm, Luなどの元素については分 析機器の影響を受けている可能性があるが、全ての元素 の変化を説明することはできず、他に何らかの原因があ ると推定される.

2. 採取位置の違い

2000~2004年と2018年の経年変化(第3~5図)をみ ると、必ずしも採取位置がずれている試料で、変化が大 きくなっていないことがわかる。例えば、SiO₂では、採 取位置がずれている1814の変化が大きいものの、他の採 取位置が異なる試料と同地点から採取した試料を比較す ると、後者の変化がより大きくなっている。Al₂O₃にお いても、1814の変化は大きいが、同地点から採取された 1835、1842、1843なども変化が大きく、必ずしも採取位 置がずれた試料で変化が大きいということは認められな い. 微量成分元素の経年変化をみると, Ba, Sr, Zrでは, むしろ同地点から採取してきた試料の変化が大きく, 他 の微量成分元素でも採取位置による変化の集中は認めら れない. 希土類成分元素ではこの傾向がさらに顕著に表 れており, La, Ce, Pr, Ybでは同地点から採取された試 料の変化が大きくなっている. Sm, Gd, Tb, Dy, Erでは, 採取位置にずれがある1807の変化が目立つが, それを除 けば採取位置が同じ試料とずれた試料は混在しており, 特に傾向は認められない. 以上のことから, 採取した位 置の違いによって, 経年変化が引き起こされた可能性は 低いと判断される.

3. 河川堆積物の変化

野外で採取してきた試料そのものの性質が変化した結 果. 2000~2004年と2018年の経年変化(第3~5図)が 生じた可能性が考えられる.基本的に過去と現在で集水 域が同じであれば、露出している岩石の種類および集積 する砕屑物や鉱物の量と種類には大きな変化は生じない と推定される、しかしながら、人為的な工事や地すべり など自然現象によって, 集水域内の地質環境に変化が生 じた場合, 集積する砕屑物や鉱物が変化する可能性は十 分に考えられる. 今回, 分析した中で最も変化が顕著な 元素はSiO2であり、2000~2004年に比べて2018年では多 くの試料に増加傾向が認められる(第3図). このこと は、SiO₂が過剰に供給されたか、もしくはSiO₂を除く元 素の供給が減少したことが原因と考えられる、通常、石 灰岩など特殊な岩石を除き, SiO2を主成分としない岩石 は希であり、本調査地域にはそのような特異な岩石は認 められない(第1図).また、もし、石灰岩からの砕屑 物の供給が増えたとすれば、CaOの一様な増加傾向が認 められるはずであるが、そのような傾向は確認できな い(第3図).このことから,SiO2を除く元素の供給の みが減少した可能性は低いと判断される。一方、SiO₂は チャートや石英の主成分としてよく知られており(都 城・久城, 1975), それらは本調査地域にも普遍的に分 布している(第1図).仮に石英脈を含む岩塊やチャー トが試料採取地点より上流において,新たに露出したり, 河川の流れによって粉砕されたとすれば、その集水域内 の河川堆積物にはSiO2が付加されることになる.

先に述べたように、2018年の試料の中で、SiO₂量が 2000~2004年の1.1倍以上の値をもつものは、1814, 1835, 1842, 1843であった.そこで、これらの試料を用いて、 SiO₂の付加について検討を行った.まず、付加された SiO₂の供給源は石英脈やチャートなど,SiO₂を100wt% とし,他の元素を含んでいないと仮定する.次に,2000 ~2004年と2018年のSiO₂量を比較して,差分のSiO₂を全 て石英やチャートから供給されたものと仮定して,その 混入率を算出した.算出された混入率と2000~2004年の 分析結果を元に,2018年のSiO₂以外の主成分元素量を計 算し,実際の分析値と比較した.その結果,計算した4 試料全てにおいて,計算値と実測値の元素がほぼ一致 した(第6図,第5表).若干の差が認められる元素も あるが,それらの差はいずれも1wt%以下であり,測 定精度を考慮すれば誤差の範囲内に収まっている.以上 の検討は,あくまで主成分元素のみを対象としたもので あり、微量成分元素や希土類成分元素については考慮し ていないが、ほとんどの微量成分元素や希土類成分元素 は減少の傾向を示しており、SiO₂の供給が増えたことで、 全体的な組成が希釈されたと考えれば説明できる.また、 増加が確認される一部の微量成分元素や希土類成分元素 については、Crがクロム鉄鉱、ZrやYbはゼノタイムな どの重鉱物から供給され、それら重鉱物が河川堆積物中 に取り残されていたため、増加したと推定される.

このように自然界の中でチャートや石英の付加が引き 起こされた理由として考えられるのは、台風や大雨によ る河川の増水であろう.2018年の試料採取は、8月6日 ~9日に行われたが、10日ほど前である7月28日の日降



第6図 2018年主成分元素の実測値と計算値の比較

主成分元素	0430 (2000~2004年試料)	1814 (2018年試料)	チャート・ 石英	計算值 (混入率25%)	計算値と 実測値の差
SiO ₂	62.78	72.05	100.00	72.05	
TiO_2	0.86	0.54		0.65	-0.10
Al_2O_3	19.55	14.70		14.68	0.02
$\mathrm{Fe}_{2}\mathrm{O}_{3}$	6.74	4.49		5.06	-0.57
MnO	0.23	0.10		0.17	-0.07
MgO	1.87	1.43		1.40	0.03
CaO	2.27	1.19		1.70	-0.52
Na_2O	2.06	2.29		1.55	0.74
K_2O	3.40	3.12		2.55	0.57
P_2O_5	0.25	0.10		0.19	- 0.09
Total	100.01	100.00	100.00	100.01	

ここで, mは混入率

第5表 試料1814のSiO2混入計算過程

 $\mathrm{SiO}_{2}[_{1814}] = \mathrm{SiO}_{2}[_{0430}] \times (1-m) + \mathrm{SiO}_{2}[\texttt{fr-k} \cdot \texttt{TK}] \times m$

 $m = (SiO_2[1814] - SiO_2[0430]) / (SiO_2[f + v - k \cdot \overline{\alpha} \pm] - SiO_2[0430])$

0430の分析値は福岡ほか(2005)から引用.

水量は158.8ミリで,この年最も雨が降った日であった (国土交通省気象庁,2020).例えば,この降水によって 河川が増水したため,新たなチャートや石英脈の露頭 が出現したり,それらの岩塊が河床を転がり粉砕され ることで,結果的にSiO₂の付加が引き起こされた可能性 が考えられる.一方,SiO₂が減少する1823には,TiO₂, Fe₂O₃,Vの増加が認められることから,チャートや石 英の供給量の減少に加え,これらの元素を多く含む磁鉄 鉱やチタン磁鉄鉱などの重鉱物が河川堆積物中に取り残 されたと考えれば説明できる.

一方, 第5図の希土類成分元素の経年変化に注目する と. TmやLuを除く12の希土類成分元素で, 1807, 1808, 1811, 1812, 1813の変化が比較的大きいことがわかる. これら5つの試料はいずれも滝沢ダムの右岸で、四万十 帯を流下する河川から採取されてきた試料である. ちな みに、新規に採取してきた滝沢ダム右岸域の1806の希土 類成分元素濃度も高くなっており(第4表),四万十帯 の河川堆積物の特徴を表していると考えられる。Uiiie-Mikoshiba et al. (2011) は四国地方の地球化学図につ いて報告しており、秩父帯と四万十帯を流下する河川堆 積物の希土類成分元素組成を明らかにした. それによれ ば、四万十帯から採取された河川堆積物の希土類成分元 素組成は、秩父帯のそれに比して乏しい特徴をもってお り (Ujiie-Mikoshiba et al., 2011), 滝沢ダム右岸に認め られる河川堆積物の特徴とは対照的である.ただし、今 回の採取地域は、Uiiie-Mikoshiba et al. (2011)の検討 範囲と比較すると極めて局所的であるため、四万十帯の 地域的な組成変動を捉えているだけかもしれない.ただ. この滝沢ダム右岸域の河川堆積物で希土類成分元素の変 化が顕著に表れた理由として、ダムそのものの建設工事 や周回道路の付け替え作業による可能性が指摘される。 つまり、1808、1811、1812、1813では工事によって新たな 露頭が現れたため、希土類成分元素を含む砕屑物の供給 が増え、結果として濃度が高くなり、逆に1807では今ま で供給源であった露頭よりも上流側に採取位置がずれた ため、2018年の試料で濃度が低くなったものと推定され る.一方、ダム左岸側の秩父帯では、そもそも希土類成 分元素の含有量が少なかったため、工事による人為的な 影響が現れにくかったと考えられる.

4. 複合作用による影響

今まで議論してきた3つの理由は,可能性の大小はあ るものの,いずれも起こりうることであり,それらが複 合的に作用した結果,2000~2004年と2018の分析結果に 違いが生じたことは十分に考えられる.ただし,前述し てきたように,河川堆積物そのものが変化した可能性が 最も高いと考えられ,分析機器や採取位置の違いによる 影響は相対的に僅かであったと推定される.

VI. まとめ

立正大学で2000~2004年に採取された河川堆積物の化 学組成と2018年に同地域で採取された組成を比較した結 果,複数の元素で有意な変化が認められた.この変化の 原因として,1)分析方法や分析機器から生じる測定精 度,2)分析試料を採取した位置,3)河川堆積物の変 化,4)これらの複合作用について検討を行った結果, 河川堆積物そのものが変化した可能性が最も高く,分析 機器や採取位置の違いによる影響は相対的に僅かであっ たと推定された.

謝辞

地球環境科学部の川野良信教授には,論文の骨子とな る考え方を教示していただくなど,日頃から研究に関し て多方面よりご指導いただいた.加えて,地球環境科学 部の下岡順直博士には調査にご参加いただき,準備段階 から様々な方面でご協力賜った.また,2018年の調査で は,当時環境岩石学研究室に所属していた学生・院生に 加え,当該研究室の卒業生である清水隆一氏,鈴木和也 氏,西川晃太郎氏,大井健矢氏にもご協力していただい た.さらに,採取試料の化学分析は当時環境岩石学研究 室に所属していた学部3年生を中心に実施していただい た.なお,XRF装置とLA-ICP-MS装置の保守・管理に あたっては,環境システム学科関係者各位に日頃よりご 協力いただいている.

立正大学における地球化学図の作成は,環境地学分野 の宇宙地球化学研究室,固体地球化学研究室,環境岩石 学研究室の授業の一環として行われており,先輩から後 輩に調査準備,試料採取,分析方法が指導されて継続し ている.今日まで,地球化学図の作成を継続できたのは, これらの研究室に所属してきた先輩方のご指導のおかげ である.以上の方々に心から厚く感謝申し上げる.

引用文献

青木かおり・新藤智子・楠野葉瑠香・福岡孝昭(2009)河床 堆積物の化学分析に基づく地球化学図作成の今後の展望. 地球環境研究, 11, 227-238.

秩父地質研究グループ(1966)秩父演習林付近の地質-栃本

より上流地域について―. 演習林, 16, 73-85.

- 福岡孝昭・栗下勝臣・小林町恵・浦野日峰・新藤智子・杉内 由佳・福士裕輔・加藤直子・楠野葉瑠香・越田千博・杉恵 理子・小暮岳実(2005) 荒川上流中津川・神流川流域の地 球化学図の作成. 立正大学文部科学省学術研究高度化推進 事業オープンリサーチセンター(ORC) 整備事業平成16 年度事業報告書, 128-135.
- 福岡孝昭・新藤智子・楠野葉瑠香・町田尚久・王 丹妮・星 有哉・関根友美・東千亜希・永川由紀・宇野友則・高草木 愛・杉内由佳・小暮岳実・伊藤靖浩・石本光憲(2007)荒 川上流河原沢川・赤平川流域の地球化学図.立正大学文部 科学省学術研究高度化推進事業オープンリサーチセンター (ORC) 整備事業平成18年度事業報告書, 166-175.
- 福岡孝昭・新藤智子・嶋田有里奈・関 美乃・三浦亜由美・ 楠野葉瑠香・字野友則・高草木愛・東千亜希・永川由紀・ 田澤雄二・小暮岳実・石本光憲(2008) 荒川上流薄川流域 の地球化学図.立正大学文部科学省学術研究高度化推進事 業オープンリサーチセンター(ORC) 整備事業平成19年 度事業報告書, 151-160.
- 福岡孝昭・新藤智子・杉内由佳・草野未緒・宮下香織・越田 千博・杉恵理子・加藤直子・楠野葉瑠香・星 有哉・関根 友美・福士裕輔・栗下勝臣・小暮岳実・伊藤靖浩・井上素 子(2006) 荒川上流中津川・神流川・河原沢川流域の地球 化学図.立正大学文部科学省学術研究高度化推進事業オー プンリサーチセンター(ORC) 整備事業平成17年度事業 報告書, 207-214.
- 古川直道・柚原雅樹・伊藤裕之・高本のぞみ・柚原美恵 (2004)河川堆積物の化学組成の季節変動 一室見川および 秡川の例一. 福岡大学理学集報,34(2),27-24.
- 原 英俊・上野 光・角田謙朗・久田健一郎・清水正明・竹 内圭史・尾崎正紀 (2010) 三峰地域の地質.地域地質研究 報告 (5万分の1地質図幅), 産総研地質調査総合センター, 110p.
- 平野宗夫(1971) Armoringをともなう河床低下について. 土木学会論文報告集, 195, 55-65.
- 堀口萬吉・松岡喜久次(1994) 第一編 地形・地質編. 秩父 滝沢ダム水没地域総合調査報告書,上巻自然編,滝沢ダム 水没地域総合調査会編, 27-54.
- 一國雅巳(1991)緒言一地球化学における地球化学図の役割.
 地球化学, 25, 69-71.
- Imai, N., Terashima, S., Itoh, S. and Ando, A. (1995) 1994 compilation of analytical data for minor and trace elements in seventeen GSJ geochemical reference samples, "Igneous rock series". Geostandards Newsletter, 19, 135-213.
- 今井登・寺島滋・太田充恒・御子柴(氏家)真澄・岡井貴 司・立花好子・池原研・片山肇・野田篤・富樫茂子・

松久幸敬・金井 豊・上岡 晃 (2010) 海と陸の地球化学図. 産業技術総合研究所地質調査総合センター, 207p.

- 今井登・寺島滋・太田充恒・御子柴(氏家) 真澄・岡井貴 司・立花好子・富樫茂子・松久幸敬・金井豊・上岡晃・ 谷口政碩(2004)日本の地球化学図.産業技術総合研究所 地質調査総合センター,209p.
- 伊藤裕之・柚原雅樹・石原与四郎・古川直道・小路泰之 (2007)福岡県西部,室見川および那珂川流域の地球化学 図.福岡大学理学集報,37(1),37-56.
- 伊藤司郎・上岡 晃・田中 剛・富樫茂子・今井 登・金井 豊・ 寺島 滋・字都浩三・岡井貴司・氏家真澄・柴田 賢・神谷 雅晴・佐藤興平・坂本 享・安藤 厚(1991)地球化学アト ラス―北関東―.地質調査所出版物, 35p.
- 川野良信(2010) 蛍光X線装置による珪酸塩岩石および堆積 物の定量化学分析. 地球環境研究, 12, 85-97.
- 川野良信・清水隆一(2017)レーザーアブレーションICP-MS分析法によるガラスビード試料定量分析条件の再検討. 地球環境研究, 19, 11-19.
- 国土交通省気象庁(2020)各種データ・資料 http://www. data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/view/annually_s.php(参照 2020.12.01).
- 松本哲一・太田 靖・星住英夫・高橋 浩・西岡芳晴・三宅康 幸・角田謙朗・清水正明(2007)日本列島における年代未 詳岩石のK-Ar 年代測定一地質図幅作成地域の火山岩・深 成岩(平成17年度分)一.地質調査研究報告, 58, 33-43.
- 南雅代・伊藤知子・田中 剛(2006)河床堆積物の化学組成 の年・季節変動 一矢田川の例一.日本地球化学会第53回 年会講演要旨集,53,116.
- 都城秋穂・久城育夫(1975)岩石学II 岩石の性質と分類. 共 立出版, 186p.
- 日本地質学会(2008)日本地方地質誌3関東地方.朝倉書店, 570p.
- Ohta, A., Imai, N., Terashima, S. and Tachibana, Y. (2005) Application of multi-element statistical analysis for regional geochemical mapping in Central Japan. Applied Geochemistry, 20, 1017–1037.
- 埼玉県地質図編纂委員会(1998)埼玉県地質図(山地・丘陵 地).埼玉県農林部林務課.
- 埼玉県地質図編纂委員会(1999)埼玉県地質図(山地・丘陵 地)解説書. 埼玉県農林部林務課, 242p.
- Saito, K., Takahashi, M. and Onozuka, N. (1996) A K-Ar investigation of the Chichibu quartz diorite and some discussions on its cooling history. Jour. Geomag. Geoelectr., 48, 1103-1109.
- 佐野貴司(2002) 蛍光X線分析装置を用いた火成岩中の主成 分および微量成分の定量. 富士常葉大学研究紀要, 2,43-59.
- 指田勝男・猪郷久治・猪郷久義・滝沢 茂・久田健一郎・柴 田知則・塚田邦治・西村はるみ(1982)関東地方のジュラ 系放散虫化石について.大阪微化石研究会誌, 5,51-66.

- 新藤智子・福岡孝昭・立正大学地球環境科学部宇宙地球化学 研究室(2006)荒川上流中津川・神流川・河原沢川流域の 地球化学図.日本地球化学会第53回年会講演要旨集,53, 126.
- 新藤智子・杉内由佳・嶋田有里奈・福岡孝昭(2009) レー ザーアブレーション誘導結合プラズマ質量分析(LA-ICP-MS)法によるガラスビード試料の定量分析.地球環境研究, 11, 103-119.
- 高橋 修・今井秀男・石井 醇(1989)関東山地大滝層群から 白亜紀放散虫化石の産出.地質学雑誌, 95, 483-485.
- 高本のぞみ・柚原雅樹・古川直道(2005)福岡県東部,今 川・祓川流域の元素濃度分布.福岡大学理学集報,35(2), 41-66.
- Tanaka, T., Kawabe, I., Hirahara, Y., Iwamori, H., Mimura, K., Sugisaki, R., Asahara, Y., Ito, T., Yarai, H., Yonezawa, C., Kanda, S., Shimizu, O., Hayashi, M., Miura, N., Mutoh, K., Ohta, A., Sugimura, K., Togami., K., Toriumi, T. and Matsumura, Y. (1994) Geochemical survey of the Sanage-yama area in Aichi Prefecture for environmental assessment. Jour. Earth Planet.Sci. Nagoya Univ., 41, 1-31.
- 田中 剛・川邊岩夫・山本剛志・岩森 光・平原靖大・三村耕 ー・浅原良浩・伊藤貴盛・米澤千夏・ドラグシャヌ クリ スチャン・神田 聡・清水乙彦・林 正人・三浦典子・青木 浩・太田充恒・戸上 薫・鳥海貴弘・松村陽子・榊原智康・ 谷水雅治・水谷嘉一・宮永直澄・村山正樹・大森芙美子 (1995) 愛知県瀬戸市周辺における河川堆積物中の元素分 布と地圏環境評価の試み.地球化学, 29, 113-125.
- Tanaka, T., Kawabe, I., Yamamoto, K., Iwamori, H., Hirahara, Y., Mimura, K., Asahara, Y., Minami, M., Ito, T., Dragusanu, C., Miura, N., Aoki, H., Ohta, A., Togami, K., Toriumi, T., Matsumura, Y., Sakakibara, T., Tanimizu, M., Mizutani, Y., Miyanaga, N., Murayama, M. and Takayanagi, Y. (1996) Geochemical mapping of the northern area of Toyota City, Aichi Prefecture, central Japan: Distinct chemical characteristics of stream sediments between granitic and sedimentary rock areas.

Jour. Earth Planet. Sci. Nagoya Univ., 43, 27-47.

- 戸上 薫・田中 剛・岩森 光(1997)愛知県北東部津具地域の 元素濃度分布とその規定要因.資源地質,47,305-318.
- 辻本哲郎(1999)ダムが河川の物理的環境に与える影響―河 川工学及び水理学的視点から―.応用生態工学,2,103-112.
- 通商産業省資源エネルギー庁(1975)昭和49年度広域調査報 告書 秩父地域.通商産業省資源エネルギー庁,56p.
- Ueno, H. and Shibata, K. (1986) Radiometric ages of quartz diorite bodies related to the Chichibu pyrometasomatic deposits and their relevance to the metallogenetic epoch. Jour. Japan. Assoc.Min. Petr. Econ. Geol., 81, 77-82.
- Ujiie-Mikoshiba, M., Imai, N., Terashima, S., Tachibana, Y. and Okai, T. (2006) Geochemical mapping in northern Honshu, Japan. Applied Geochemistry, 21, 492-514.
- Ujiie-Mikoshiba, M., Imai, N. and Tachibana, Y. (2011) Geochemical mapping in Shikoku, southwest Japan. Applied Geochemistry, 26, 1549-1568.
- 山本晃一(1976)ダム下流の河床低下について. 土木研究所 報告, 164, 1-13.
- 山本鋼志・田中 剛・川邊岩夫・岩森 光・平原靖大・浅原良 浩・金 奎 漢・Richardson, C. ・伊藤貴盛・Dragusanu, C・ 三浦典子・青木 浩・太田充恒・榊原智康・谷水雅治・水 谷嘉一・宮永直澄・村山正樹・仙田量子・高柳幸央・井上 裕介・川崎啓介・高木真理・根布悟志・稲吉正実(1998) 愛知県豊田市北東部の領家花崗岩地域の地球化学図. 地質 学雑誌, 104, 688-704.
- 柚原雅樹(2010)福岡県内の地球化学図.福岡大学研究部論 集C:理工学編,2,91-107.
- 柚原雅樹・伊藤吉宏・吉本 紋・宮崎佳輔・眞崎求一 (2011) 福岡県東部, 彦山川〜城井川流域の地球化学図. 福岡大学 理学集報, 41(1), 51-76.
- 柚原雅樹・小路泰之・石原与四郎・宇藤千恵(2010)那珂川 上流,五ヶ山地域の地球化学図.福岡大学理学集報,40 (1),45-70.

Temporal changes of chemical compositions in stream sediments around the Takizawa Dam, western part of the Saitama Prefecture, central Japan

HIGUCHI, K.* · SEKINE, E.* and YAMASHITA, K.*

* Graduate School of Geo-Environmental Science, Rissho University

Abstract :

As a result of comparing the chemical compositions of stream sediments collected around the Takizawa Dam during 2000 to 2004 with those in the same area at 2018, clear differences were found in multiple elements. The causes of these differences are considered 1) the measurement accuracy generated from the analytical methods and analytical equipment, 2) the position where the analytical sample was taken, 3) the change in stream deposits, and 4) the combined action of these. As a result, it was presumed that the differences were caused by multiple reason. It is most likely that stream sediments have changed, and the influence of the difference in analysis accuracy and sampling position is relatively small.

Key words : Temporal change, Takizawa Dam, stream sediment, chemical composition, Saitama Prefecture