# 埼玉県西部小森川流域の河床堆積物にみられる化学組成の経年変化

清水隆一\*樋口絢渉\*\*川野良信\*

キーワード:埼玉県、地球化学図、河床堆積物、化学組成、経年変化

# I. はじめに

地球化学図とは、尾根に囲まれた流域ごとの元素分布 を図化したものであり、対象とした地域に分布する岩石 や土壌、すなわち表層地質の平均化学組成(以下、表 層組成)を反映した地図を示す(一國、1991)。今井ら (2004:2010)は日本全土の地球化学図を報告しており、 このほか東北日本 (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(伊藤ら、1991)、愛知県(Tanaka et al., 1994; 1996; 田中ら、1995; 戸上ら、1997; 山本 ら、1998)、福岡県(伊藤ら、2007;柚原、2010;柚原 ら、2010;2011)など各地域の地球化学図が公表されて いる。これらの報告は、地球化学図が表層地質の多元素 含有量のバックグラウンド把握や、重金属汚染の発生源 と拡散状況など環境影響評価を行うための基礎データと して有用であることを示している。立正大学においては、 2000年から埼玉県荒川流域を対象とした地球化学図の作 成に取り組んでおり、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(福岡ら、2005;2006; 2007;2008;2009;新藤ら、2006;青木ら、2009)。

近年、日本の地球化学図においては河床堆積物の化学 組成の時系列における変化が注目されてきている(古川 ら、2004;南ら、2006;樋口ら、2021)。古川ら(2004) は福岡県室見川並びに秡川の計7地点において、豪雨後 に河床堆積物中の元素含有量が変動することを見出した が、一方で主成分元素と微量元素(Th、Y、Zrを除く) は季節変化が認められず、有機物由来のS、C、Nは季 節変化があることを指摘している。また、南ら(2006) は愛知県矢田川の1地点で10年間採取された試料を調 査し、集中豪雨と河床堆積物のMn、P含有量並びに L.O.I.(強熱減量)の増加との関係を議論している。さ らに、多元素において夏から秋にかけて含有量が増大し、 冬にはその中間値となる季節変化を指摘している。

\* 立正大学地球環境科学部

\*\* 立正大学大学院地球環境科学研究科

最近、樋口ら(2021)では埼玉県荒川上流の滝沢ダム 周辺35地点において、2000~2004年実施の第1回調査と、 2018年実施の第2回調査で採取された河床堆積物組成の 変化を検討した。樋口らは複数の地点でSiO。やCr、希 土類元素含有量の経年変化を見出しており、新旧で検討 に使用した分析方法や採取地点の違いはあるものの、そ の影響は少ないことから時系列で河床堆積物が変化した ことを述べている。また経年変化の原因として、主に 2004~2018年の調査期間中に施工された滝沢ダム建設工 事に伴う流域の露出岩の変化を挙げている。このように、 豪雨やダム建設などにより河床堆積物の変化が起こるこ とが認識されつつあるものの、その研究例は依然として 少ない。しかし、地球化学図を表層組成の基礎データと して利活用し、重金属汚染などの環境影響を正しく評価 するためには、豪雨や地質条件など河床堆積物の化学組 成の時系列変化が起こる原因や、組成変化の特性の理解 が重要である。

本報告では、樋口ら(2021)における調査地域の北 部に対象地域を移し、荒川支流の小森川流域において、 2008年(福岡ら、2009)と2019年(本調査)に採取さ れた河床堆積物を用いて化学組成の経年変化を調査した。 本流域は滝沢ダム周辺地域と異なり、最近10年間でダム 建設といった大規模な人為的影響が認められない地域で ある。調査の結果、小森川上流では主に石灰岩の露出す る流域において、いくつかの元素で経年変化が認められ たため報告する。

## Ⅱ. 地質概略

本研究地域には、小森川上流域の左岸のみに両神山 チャートが、また両岸には秩父帯が広く分布し、下流域 は小森川左岸に山中地溝帯が、両岸に秩父盆地の新第三 系が分布している(第1図)。以下、埼玉県地質図編纂 委員会(1999)の区分に基づき、調査地域の地質概略を



第1図 小森川流域の地質概略図

埼玉県地質図編纂委員会(1998)を一部簡略化して作成した。 図中の数字は2019年に採取された試料番号の最終2桁を示す。

述べる。

小森川流域に分布する岩相は、主に砂岩~砂岩泥岩 互層(秩父帯、山中地溝帯、新第三系)、チャート(両 神山チャート、秩父帯、山中地溝帯)、石灰岩(秩父帯、 山中地溝帯)の3種に大別される。

小森川流域の両神山チャートは主に層状チャートから なり、第1図上では表現されないが砂岩、泥岩、苦鉄質 凝灰岩の薄層が挟まれる。また、まれに塊状チャートが 産出し石英脈を含む(埼玉県地質図編纂委員会、1999)。 本層のチャートからはペルム紀前期~後期並びにジュラ 紀前期の年代を示す放散虫化石の産出が報告されている (Hisada et al., 1992)。なお、本層下底部は低角断層があ り、秩父帯の砂岩泥岩互層や砂岩層と接している。

本地域の秩父帯は、主に砂岩泥岩互層からなり厚い砂 岩層が挟まれている。これらの砂岩泥岩互層並びに砂岩 層にはチャートや石灰岩が多く挟まれ、小森川流域には 認められないが西部には泥岩が多く挟まれるほか、北部 にはチャートに伴われて苦鉄質火山岩類が産する(埼玉 県地質図編纂委員会、1999)。秩父帯の地質年代報告は 石灰岩中のフズリナ化石年代(石炭紀後期~ペルム紀後 期;石井、1962)や、泥岩中の放散虫化石年代(ジュ ラ紀前期~中期;指田ら、1982;Sashida et al., 1982; Hisada et al., 1992)がある。このうち、古い年代を示 す石灰岩は泥質岩中の異地性岩塊であり、泥岩が示す ジュラ紀前期~中期が本層の堆積年代と考えられている (埼玉県地質図編纂委員会、1999)。秩父帯は一般に走向 WNW~ESE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;指田ら、1982)。

小森川下流の左岸流域には山中地溝帯の東端が露出し ており、下位より砂岩層、砂岩泥岩互層、泥岩層が分布 している。このうち砂岩層の基底部にはチャート、砂岩、 粘板岩、石灰岩の礫が認められる(武井、1963)。また、 砂岩泥岩互層の下部には多種の堆積岩と火成岩礫(主に 花崗岩)がある(武井、1975)。各層からは二枚貝や放 散虫、アンモナイトの化石が産出し、堆積年代は最下位 から上位の砂岩泥岩互層までが白亜紀前期、最上位の泥 岩層は白亜紀後期と考えられている(武井、1963;松本 ら、1982; Matsukawa, 1983; Takei, 1985)。さらに、砂 岩泥岩互層下部の花崗岩礫からは黒雲母(一部白雲母) K-Ar年代が報告され、182~226Ma(三畳紀後期~ジュ ラ紀前期)と、81~110Ma(白亜紀前期~後期)の年代 範囲を示す2グループの花崗岩類が認められている(高 木ら、1995)。なお、山中地溝帯は秩父帯の一般方向に 沿ってNW~SE方向に延びており、最下位の泥質砂岩 層は先白亜系と高角度の断層で接している(埼玉県地質 図編纂委員会、1999)。

小森川下流は秩父盆地西縁の新第三系が露出し、下位 より礫岩層、砂岩層、泥岩層、砂岩泥岩互層が分布して いる。また、北東部には凝灰岩層が認められるが小森川 流域外のため詳細は割愛する。最下位の礫岩層はチャー ト、砂岩、粘板岩、緑色岩と一部花崗岩礫からなる。砂 岩層は緻密なアルコース質砂岩を主体とし、数cmの円 礫(基盤岩のチャート、砂岩)を含んでいる。また一部 で砂岩泥岩互層や亜炭質シルト岩層を挟んでいる。泥岩 層は数十cmの岩塊を含み、一部にアルコース質砂岩の 薄層を挟む場合がある。砂岩泥岩互層は下部に泥岩が多 く、一部礫岩層と厚い砂岩層を挟んでいる。礫種は基盤 岩由来の砂岩、チャート、粘板岩のほか、新第三系由来 の砂岩・泥岩礫も認められる。本地域における新第三系 の地質年代は、泥岩層における石灰質ナンノ化石層序の CN3-4が(高橋ら、1989)、また凝灰岩中ジルコンのFT 年代として16.0±0.7Maが報告され(大平・秩父盆地団 体研究グループ、2006)、堆積年代は前期~中期中新世 と考えられている。なお、最下層は秩父帯や山中地溝 帯と不整合・断層で接する(埼玉県地質図編纂委員会、 1999)。

## Ⅲ. 試料採取・分析方法

本研究では、2008年(福岡ら、2009)と2019年(本調 査)で報告された河床堆積物試料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併せて記述 する。まず、試料採取方法、採取地点、化学分析方法に 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日で行った。

## 1. 採取地点

第1図の地質図には2019年の試料採取位置も併せて示 した。地球化学図作成では、小森川本流より枝分かれし た支流ごとの表層組成を得るために、尾根に囲まれた 1km<sup>2</sup>程度の支流域において河床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(青木ら、2009)。ま た、本研究では1km<sup>2</sup>を超える広範囲の流域における表 層組成を目的に、小森川本流からも試料採取を行ってお り、一般的な地点(支流)と区別して本流と呼称してい る。2019年は支流と本流を含めて60地点の河床堆積物を 採取したが、①水枯れにより採取不可、②急斜面のため アプローチ困難、③コンクリート等(砂防ダム由来)に よる河床堆積物への汚染回避、などの理由から、やむを 得ず2008年の採取地点とは異なる場所から採取した場合 がある。結果として、60地点中過去の採取地点と同じ場 所から採取できたのは43地点であった。また、採取地点 の変更を余儀なくされたのは11地点であり、新規の採取 地点は6地点であった。第1表には2019年の試料採取番 号と2008年における対応する試料採取番号、そして2019 年と2008年の採取地点の位置関係を示した。なお、2019 年に採取地点を変更した11地点についても、尾根で囲ま れた対象流域は2008年と同じである。

### 2. 試料採取·試料処理法

河床堆積物試料は青木ら(2009)にしたがって採取・ 分析前処理を行った。支流では概ね川幅2~3mの採取 地点から、本流では川幅10mを超える採取地点から河床 堆積物を採取した。まず、スコップを用いて河床堆積物 を採取し、河川水を流して80メッシュ(<180µm)の篩 を通した。篩を通過した河床堆積物と河川水をポリバケ ツ(容量15L)で回収し、篩を通過しない礫や粗粒砂を 適宜捨てながら、さらに河床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河川水を流し続けた後、 手で撹拌しデカンテーションのために5分間静置させ た。静置後、上澄みとともに懸濁物を捨て、ポリバケツ に残った沈殿物中に粗粒砂が残っている可能性を考慮し 再び80メッシュの篩に通し、ポリバケツで回収した。な お、沈殿物を篩にかける際は河床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 た。ポリバケツに水が満ちた後、再び撹拌して5分間静 置し、上澄みを捨てて沈殿物をコーヒーフィルターに回 収し、化学分析用試料とした。2008年と2019年では採取 用のポリバケツの容量や篩の目開き、静置時間、篩を通 す回数などの試料採取条件に変更はなく、採集者が異な ることによる試料への影響はないと考える。採取した試 料は、自然乾燥後に四分法により試料を5g程度に縮分 し、アルミナ製乳鉢を用いて微粉砕した後にスチロール 棒瓶に封入・保管した。

2019年 採取番号	2008年 対応する番号	2008年の採取地点との関係	2019年 採取番号	2008年 対応する番号	2008年の採取地点との関係
1901	0861	同一地点	1931	0833	同一地点
1902	0860	同一地点	1932	0831	同一地点
1903		新規採取地点	1933	0832	砂防ダムを避け100mほど上流 から採取
1904		新規採取地点	1934	0830	同一地点
1905	0859	河川水がないため100m ほど下 流から採取	1935		新規採取地点
1906	0858	同一地点	1936	0829	同一地点
1907		新規採取地点	1937	0828	同一地点
1908	0857	同一地点	1938	0826	同一地点
1909	0856	同一地点	1939	0827	同一地点
1910	0855	同一地点	1940	0825	アプローチ困難(急斜面)の ため200mほど上流から採取
1911	0854	同一地点	1941	0824	同一地点
1912	0853	同一地点	1942	0823	橋を避け500mほど上流から 採取
1913	0852	同一地点	1943	0822	同一地点
1914	0851	河川水がないため50mほど上流 から採取	1944	0821	同一地点
1915	0850	同一地点	1945	0820	同一地点
1916	0849	同一地点	1946	0819	同一地点
1917	0848	砂防ダムを避け100mほど上流 から採取	1947	0818	同一地点
1918	0847	同一地点	1948	0817	同一地点
1919	0846	同一地点	1949	0815	同一地点
1920	0844	同一地点	1950	0816	アプローチ困難(急斜面)の ため200mほど下流から採取
1921	0845	アプローチ困難(急斜面)の ため150mほど下流から採取	1951	0812	同一地点
1922	0843	同一地点	1952	0810	同一地点
1923	0842	同一地点	1953	0809	同一地点
1924	0841	同一地点	1954	0807	砂が少ないため100mほど上流 から採取
1925	0840	同一地点	1955	0806	アプローチ困難(急斜面)の ため100mほど下流から採取
1926	0839	同一地点	1956		新規採取地点
1927	0838	アプローチ困難(急斜面)の ため100mほど下流から採取	1957		新規採取地点
1928	0837	同一地点	1958	0805	同一地点
1929	0836	同一地点	1959	0801	同一地点
1930	0834	同一地点	1960	0802	同一地点

第1表 2019年と2008年採取試料の対比表

2008年の位置情報は福岡ら(2009)から引用。採取番号を斜体とした場合は本流地点であることを示す。

## 3. 化学分析方法

採取した河床堆積物試料の調製方法は2008年以前と 2019年で変更はない。微粉試料は110℃の乾燥炉で24時 間乾燥し、さらに900℃の乾燥炉内にて強熱処理を施し 恒量した。強熱後の試料には融剤(四ホウ酸リチウム) を重量比1:2となるよう添加し、これらをアルミナ乳鉢 で均質化したものを、高周波溶融装置にて溶融し分析用 ガラスビード試料を作製した(青木ら、2009)。

作製したガラスビード試料の化学組成分析は、立正大 学に設置の蛍光X線分析装置(以下、XRF)並びにレー ザーアブレーション・誘導結合プラズマ質量分析装置 (以下、LA-ICP-MS) を用いた。XRF装置はリガク社 製ZSX Primus IIを使用し、主成分並びに微量元素を定 量した (川野、2010)。LA装置はNew Wave Research 社製UP-213、ICP-MS装置はPerkinElmer社製NexION 2000をそれぞれ使用し、希土類元素と一部微量元素 (Nb、Zr、Th、U) を定量した。LA-ICP-MSにおける 分析ではアブレーション効率による試料導入量の差を補 正するためY含有量を基準とする内標準補正を行って おり、Y含有量はXRFで測定された値を使用している (新藤ら、2009;川野・清水、2017)。なお、本研究で は樋口ら(2021)から対象元素を増やし、XRFではCo、 Ga、Pb、Sc、Znの5成分を、またLA-ICP-MSではTh、 Uの2成分を追加で測定している。

2008年実施の分析では主成分~微量元素分析に富士常 葉大学設置のXRF(理学電機工業社製RIX2100; 佐野、 2002)が、希土類元素分析に立正大学設置の LA-ICP-MS(LA装置:CETAC社製LSX-200、ICP-MS装置:セ イコーインスツル社製SPQ9000;新藤ら、2009)が使用 された。これに加え、As、Hgなどの分析を目的に青山 学院大学設置のGe半導体検出器による機器中性子放射化 分析が、Bの分析のために日本原子力開発機構のIRR-3M 原子炉を用いた即発ガンマ線分析が実施された。2008年 はこれらの4つの分析法によって45元素が測定対象とさ れたが(福岡ら、2009)、2019年の分析ではXRFとLA-ICP-MSのみが用いられており一部の測定元素が異なっ ている。さらに、2008年にはXRFによるCo、Cu、Ga、 Sc、Znの測定が実施されていないため、2019年実施の 分析結果と経年変化を比較するために、これら5元素 は2008年当時のガラスビード試料を使用し、立正大学 のXRF装置を用いて新たに定量を行った。結果として、 本研究では主成分元素10成分、微量元素17成分、希土類 元素14成分の合計41元素を対象とした。

#### 4. 分析装置の違いによる測定精度の比較検証

XRF並びにLA-ICP-MSによる分析方法は2019年と 2008年ともに同じであるが、使用した分析装置は異なっ ている。機差に伴う測定精度の違いについては樋口ら (2021)で述べられているが、前述の通り本研究では測定 元素を追加しており、また2008年に用いられた検証用の 標準試料は樋口ら(2021)の検証で使用されたものと異 なるため、今回は装置ごとの測定精度を改めて検証した。

2019年と2008年の分析精度を検証するため、第2図に は岩石標準試料 IB-1a並びに IR-1を対象に、2019年並び に2008年における分析値と、推奨値(Imai et al., 1995) との関係図を示した。なお、微量元素は1つの関係図に 載せた場合、プロットが重複して検証が困難となるた め2グループに分割した。XRFで測定したすべての主 成分元素含有量は、JB-1aにおいて2019年並びに2008年 の分析値が重複し、推奨値とも良く一致している。一 方、JR-1の主成分のうち、MgOは2019年と2008年の 分析値がそれぞれ0.18wt%と0.31wt%となり、推奨値 0.12wt%に対して1.5~3倍程度の過大評価となっている。 次に、XRF並びにLA-ICP-MSで測定した微量元素1で は、JB-1aの2019年におけるCu分析値が38.9ppmとな り、推奨値56.7ppmに対し0.7倍の過小評価となっている。 JR-1では2019年のCu分析値が21.9ppmに、また2008年 のNi分析値が11.4ppmとなり、推奨値(Cu: 2.7ppm; Ni: 1.7ppm)の7~8倍程度と極端な過大評価となってい る。このほか、JR-1では2019年のCo分析値(0.4ppm) が推奨値(0.8ppm)に対し0.5倍の過小評価に、2008年 のBa分析値(84.6ppm)が推奨値(50.3ppm)に対し1.7 倍程度の過大評価となっている。同様の方法で測定し た微量元素2は、JB-1a並びにJR-1で、2019年と2008年 の分析値がいずれの元素も推奨値と良く一致する。た だし、IR-1における2019年のV分析値は11.2ppmであり、 推奨値(7.0ppm)に対し1.6倍の過大評価となっている。 LA-ICP-MSによる希土類元素分析については、2019年 と2008年における分析値の両方が、JB-1a並びにJR-1の 推奨値と概ね一致する結果となった。

以上の結果から2019年と2008年の分析において、主 成分元素のMgOと、微量元素のNi並びにCuの分析値 からは推奨値との大きな差が確認された。ただし、JR-1 のMgOやNiの2008年における分析値は推奨値から大き く外れるものの、JB-1aにおいては両元素とも分析値と 推奨値とが良く一致している。したがって、JR-1のよう にMgOの含有量が0.1wt%程度の場合や、Niの含有量 が2ppm以下の場合は注意が必要だが、極端に含有量



**第2図 岩石標準試料の推奨値と分析値の関係図 (a) JB-1a、(b) JR-1** 推奨値はImai et al. (1995)、2008年の分析値は福岡ら(2009)より引用。 図中の点線はy = xの直線を示す。

が小さくなければ経年変化の議論に耐え得ると判断した。 しかしながら、Cuについては2種の岩石標準試料の両 方から、分析値と推奨値との差が確認されており、特に JR-1はこの差が非常に大きいことがわかった。本学の XRFによるCu分析の誤差については樋口ら(2021)で も言及されており、河床堆積物の経年変化においては誤 差による影響が懸念されることから、本研究ではCuを 議論から除外することとする。

### Ⅳ. 河床堆積物試料の化学組成と経年変化

2019年に測定した河床堆積物試料の主成分元素組成を 第2表、微量元素組成を第3表、希土類元素組成を第4 表にそれぞれ示した。また、河床堆積物試料における化 学組成の経年変化を調査するため、2019年と2008年に同 じ流域で採取された54地点の試料(第1表)を対象に、 同一の分析手法で測定した元素分析値の関係図を作成し、

第2表 2019年試料の主成分元素組成

Sample	SiO <sub>2</sub>	$\mathrm{TiO}_2$	$\mathrm{Al}_2\mathrm{O}_3$	$\mathrm{Fe}_2\mathrm{O}_3$	MnO	MgO	CaO	Na <sub>2</sub> O	$K_2O$	$P_2O_5$	Total
1001	63.50	0.95	1756	7.03	0.24	9.39	282	2.97	2.00	0.24	100.00
1002	72.42	0.55	12.06	1.00	0.24	1.02	0.06	1.00	2.33	0.24	100.00
1902	75.42	0.70	13.90	4.04	0.09	1.40	0.90	1.99	2.40	0.12	100.00
1903	75.07	0.61	13.09	4.04	0.08	1.22	0.97	2.43	2.39	0.10	100.00
1904	70.64	0.91	14.01	6.64	0.17	1.97	1.73	1.39	2.20	0.35	100.00
1905	69.68	0.94	14.58	7.15	0.21	1.84	1.80	1.25	2.34	0.20	100.00
1906	69.98	0.91	15.00	6.39	0.17	1.89	1.37	1.78	2.30	0.19	100.00
1907	67.04	1.46	14.08	10.20	0.16	2.11	1.25	1.24	2.36	0.10	100.00
1908	69.49	0.97	14.90	7.36	0.19	1.83	1.21	1.43	2.48	0.14	100.00
1909	67.27	0.87	17.39	6.22	0.16	1.85	2.22	1.12	2.55	0.35	100.00
1910	72.12	0.86	14.44	6.00	0.18	1.71	0.96	1.24	2.36	0.13	100.00
1911	64.46	0.96	16.91	6.98	0.23	2.25	2.63	2.42	3.01	0.16	100.00
1012	67.44	0.30	17.15	5.95	0.20	1.80	1.82	1.80	2.70	0.10	100.00
1012	50.08	1.02	17.13	10.64	0.10	2.05	2.20	2.15	2.15	0.21	100.00
1915	59.08	1.92	17.51	10.04	0.20	0.01	2.29	2.15	2.70	0.27	100.00
1914	60.03	1.88	15.65	11.43	0.29	3.91	2.20	2.35	2.07	0.18	100.00
1915	66.56	1.10	16.18	6.90	0.14	2.05	1.16	2.46	3.30	0.14	100.00
1916	64.60	0.94	17.65	6.74	0.13	2.45	1.23	2.56	3.55	0.15	100.00
1917	62.86	1.12	18.40	7.16	0.18	2.29	1.73	2.47	3.55	0.24	100.00
1918	62.63	0.97	18.39	6.79	0.19	2.38	2.15	2.71	3.55	0.25	100.00
1919	67.25	0.76	17.02	5.65	0.17	2.04	1.06	2.35	3.57	0.13	100.00
1920	59.63	1.10	20.59	7.85	0.38	2.52	2.19	1.74	3.71	0.30	100.00
1921	63.56	1.09	17.69	8.08	0.36	2.63	1.36	1.63	3.37	0.22	100.00
1922	65.46	0.86	1853	651	0.32	2.04	1.08	1.48	3.55	0.17	100.00
1922	61.15	1.10	18.00	7.97	0.02	2.53	2.51	1.10	3.50	0.23	100.00
1024	65.94	0.90	17.77	6.59	0.27	2.55	1.05	1.04	2.50	0.25	100.00
1924	00.04	0.09	10.77	0.56	0.30	2.15	1.00	1.75	3.31	0.12	100.00
1925	62.51	0.95	19.52	7.19	0.19	2.45	1.40	1.96	5.79	0.19	100.00
1926	64.66	0.79	16.73	6.06	0.16	2.28	3.79	2.61	2.74	0.17	100.00
1927	66.65	0.78	16.62	6.04	0.16	2.28	1.97	2.72	2.61	0.16	100.00
1928	62.95	0.76	15.26	6.02	0.13	2.52	7.10	2.96	2.11	0.19	100.00
1929	62.58	0.87	19.85	6.41	0.21	2.09	1.40	2.24	4.18	0.17	100.00
1930	66.83	0.78	15.54	6.17	0.13	2.48	2.70	3.03	2.19	0.15	100.00
1931	66.59	0.78	16.83	6.00	0.14	2.16	2.21	2.36	2.76	0.19	100.00
1932	67.20	0.73	15.64	5.81	0.13	2.33	2.79	3.10	2.14	0.14	100.00
1933	66.92	0.78	16.96	5.68	0.12	2.13	1.65	2.18	3.43	0.14	100.00
1934	69.51	0.67	15.57	5.01	0.10	1.80	1 59	2.44	318	0.15	100.00
1935	65.47	0.94	15.63	7.64	0.15	272	2.60	2.59	2.04	0.23	100.00
1936	63.02	113	17.78	7.01	0.10	2.12	1.06	2.03	2.01	0.20	100.00
1027	71.07	0.51	14.70	200	0.23	2.50	1.50	2.03	2.21	0.50	100.00
1937	71.97 C2.01	0.01	14.00	5.00	0.00	1.50	1.40	2.44	0.09	0.11	100.00
1938	68.01	0.69	17.05	5.00	0.12	1.54	1.45	2.19	3.75	0.20	100.00
1939	62.36	0.95	18.64	7.36	0.19	2.76	1.88	2.17	3.46	0.23	100.00
1940	59.62	1.08	19.89	8.09	0.32	2.65	2.19	1.79	4.05	0.32	100.00
1941	59.27	1.23	19.36	8.47	0.29	2.87	2.50	1.91	3.76	0.34	100.00
1942	68.28	0.83	15.23	6.61	0.12	2.47	1.37	1.89	3.07	0.13	100.00
1943	61.98	1.02	19.17	7.33	0.32	2.42	1.66	1.95	3.90	0.26	100.00
1944	62.05	1.16	18.51	7.70	0.37	2.53	2.18	1.33	3.74	0.42	100.00
1945	63.27	1.19	17.38	7.99	0.29	2.79	2.03	1.79	2.96	0.32	100.00
1946	65.27	0.99	16.54	7.08	0.28	2.35	2.15	2.16	2.95	0.23	100.00
1947	59.03	1.39	1815	9.28	0.42	4.30	2.22	1 40	3.45	0.36	100.00
1948	66.35	0.79	16.98	633	0.14	2.41	1 4 4	218	3.22	0.15	100.00
1040	64.63	0.75	17.47	7.26	0.14	2.11	2.11	2.10	0.22	0.10	100.00
1050	60.10	1.60	16.02	7.20 0.7E	0.15	2.50	2.02	2.00	2.00	0.20	100.00
1051	00.10 GE 20	1.00	10.03	9.70	0.49	4.09	0.11 1.00	1.20	0.0Z	0.47	100.00
1951	00.32	0.86	18.07	0.71	0.18	2.43	1.28	1.81	3.17	0.17	100.00
1952	62.07	1.52	18.01	9.48	0.44	2.92	1.26	1.15	2.91	0.27	100.00
1953	65.17	0.87	17.07	6.95	0.20	2.55	1.77	2.22	3.00	0.21	100.00
1954	65.38	0.81	17.24	6.51	0.21	2.34	2.09	2.09	3.07	0.27	100.00
1955	63.86	0.94	17.70	7.28	0.24	2.63	2.12	1.92	3.01	0.30	100.00
1956	63.35	1.43	15.70	8.69	0.31	3.45	2.18	1.48	3.12	0.31	100.00
1957	60.03	1.97	15.00	11.73	0.44	4.55	1.74	1.01	3.20	0.33	100.00
1958	62.54	1.58	16.17	9.76	0.43	3.56	1.06	0.98	3.65	0.27	100.00
1959	61 51	1 57	15.72	10.45	0.35	3.88	1 75	1 24	3 20	0.34	100.00
1960	62.62	1 44	16.23	961	0.32	3.41	1.30	1 13	3.69	0.25	100.00

全鉄はFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>として表示した。分析値は合計100%となるよう規格化している。

Commla		Ca		Cu	Ca	NIL	NI:	Dl	Dl	C	C.,		TT	17	V	7	7
Sample No.	Ba [ppm]	Co	Cr	Cu	Ga	Nb	IN1	Pb	Kb	Sc	Sr	Ih	0	V	Y	Zn	Zr
1901	588	20.6	88.6	53.9	20.2	13.2	39.3	26.4	114	19.0	189	11.0	3.3	152	37.9	136	222
1902	488	9.7	56.6	7.6	17.0	10.9	22.4	19.4	94	10.5	135	8.7	2.3	108	21.9	102	237
1903	588	6.0	55.0	9.6	16.1	10.0	20.8	16.4	84	9.1	135	7.2	2.1	83	20.5	71	267
1904	568	12.7	82.1	56.8	17.8	9.8	29.0	38.0	90	16.7	140	7.4	2.4	164	24.2	286	187
1905	590	15.3	82.4	39.2	19.0	10.1	33.3	27.1	102	14.5	179	8.6	2.4	190	46.3	145	166
1906	542	17.4	85.4	34.0	18.5	11.5	35.8	24.7	90	15.3	152	7.9	2.1	143	27.4	147	210
1907	525	22.4	105.4	12.4	18.9	12.2	28.8	28.4	98	16.4	123	9.9	2.4	333	25.7	174	200
1908	559	18.5	81.2	19.2	19.3	11.5	27.2	28.2	104	16.7	137	9.4	2.4	188	31.3	127	182
1909	623	14.9	79.3	50.1	20.9	11.8	35.3	35.7	114	18.5	138	10.2	3.1	134	38.4	214	191
1910	522	13.0	86.8	19.0	18.4	10.7	32.8	23.8	99	12.8	112	8.0	1.9	154	25.1	117	183
1911	614	20.2	127.8	38.8	20.2	11.5	36.5	25.5	111	15.3	191	11.6	3.1	171	33.0	123	283
1912	486	16.5	63.7	19.7	20.3	12.1	28.5	27.7	117	15.5	179	10.5	2.7	132	33.0	132	218
1913	648	41.4	166.0	32.6	21.1	25.3	94.3	20.1	93	22.1	191	6.7	1.8	221	42.9	162	257
1914	471	42.2	159.4	39.0	19.7	14.4	103.5	17.8	72	20.8	217	5.0	1.9	236	34.3	137	194
1915	586	16.4	68.7	14.0	19.5	13.1	25.8	22.2	119	16.5	126	10.7	2.8	183	28.7	122	327
1916	583	14.3	83.5	18.6	20.8	12.9	29.1	25.1	131	16.4	132	12.1	3.3	157	31.2	117	254
1917	607	18.6	71.9	34.4	21.9	15.2	32.0	26.6	136	17.4	175	12.3	3.7	168	37.6	128	277
1918	687	21.5	80.5	34.7	22.8	13.6	32.5	29.8	135	18.1	172	12.0	4.5	148	42.6	133	238
1919	568	14.1	65.7	18.4	20.2	10.7	26.5	22.9	127	14.6	120	11.3	3.0	130	28.6	109	261
1920	709	30.4	86.7	64.7	24.4	14.8	48.4	37.4	154	24.6	130	14.2	4.7	179	52.1	181	242
1921	602	27.5	91.1	42.5	22.2	14.1	53.2	25.6	131	19.2	115	11.7	3.0	181	39.3	138	236
1922	540	27.0	71.7	44.9	22.1	12.8	44.8	34.6	141	19.1	109	13.2	3.7	147	42.8	126	227
1923	665	25.9	92.3	42.9	22.8	12.3	39.3	32.5	136	20.4	136	11.9	3.3	194	40.3	206	237
1924	521	22.9	83.6	37.9	22.0	11.9	41.9	26.4	132	17.3	113	11.8	3.4	149	36.3	120	260
1925	665	18.8	81.1	35.7	23.7	14.9	37.0	30.7	151	18.5	123	14.4	3.4	156	41.4	149	263
1926	586	16.5	70.9	14.9	19.2	9.5	31.5	20.9	101	15.8	229	9.3	2.6	126	29.9	114	202
1927	494	15.6	72.7	20.2	19.1	9.2	32.1	25.2	97	15.7	208	9.1	2.5	131	29.4	117	210
1928	527	15.9	70.3	12.8	17.4	6.6	30.6	15.5	71	16.7	287	7.1	2.0	128	27.2	104	174
1929	760	19.4	72.2	29.8	24.2	15.0	32.6	30.8	161	17.0	140	15.7	4.0	139	42.1	139	298
1930	519	15.0	70.4	9.0	17.9	6.7	35.3	18.2	72	16.4	272	7.1	2.0	135	25.5	114	185
1931	549	16.3	68.7	15.4	19.5	9.4	30.9	21.5	104	15.6	205	8.9	2.5	121	29.2	108	214
1932	549	12.8	62.2	10.2	17.2	6.5	27.3	19.4	74	14.6	268	6.8	1.9	123	24.4	102	185
1933	574	14.5	69.1	14.6	20.4	11.1	32.8	21.8	125	15.7	146	10.8	2.6	113	30.9	104	236
1934	613	10.8	83.4	5.6	18.3	8.7	29.5	19.9	112	12.9	160	9.3	2.5	106	26.3	89	249
1935	515	17.9	72.5	16.3	18.1	5.8	29.2	21.9	73	19.9	256	6.4	1.7	194	25.2	201	172
1936	669	24.5	119.5	30.0	21.5	14.8	46.5	26.7	126	17.2	168	11.5	2.7	171	41.2	139	242
1937	673	6.0	37.4	0.5	16.8	7.0	11.9	19.4	116	10.8	175	9.2	2.4	84	21.5	77	243
1938	697	12.3	51.8	8.1	20.1	11.7	19.0	24.4	137	13.4	158	11.2	2.5	102	30.5	97	258
1939	625	20.2	85.6	28.6	22.5	11.5	42.2	27.4	135	19.7	150	12.3	2.8	160	40.3	143	226
1940	898	29.8	87.6	46.6	24.5	21.7	46.2	41.3	165	20.6	132	14.8	3.9	163	52.7	185	265
1941	800	30.4	92.3	42.6	23.4	23.3	46.3	34.7	152	21.6	163	12.7	3.4	177	48.5	172	256
1942	562	14.6	66.2	8.4	19.9	9.5	30.3	19.3	124	15.0	155	11.8	2.5	144	25.4	104	230
1943	748	27.3	79.2	35.8	23.2	17.6	38.5	32.2	151	18.1	137	13.1	2.9	154	46.3	151	260
1944	789	30.2	110.4	82.9	23.3	26.6	63.1	43.1	150	23.3	159	13.8	4.2	185	50.9	195	266
1945	673	28.3	122.2	45.2	21.3	17.5	55.6	30.3	119	21.5	157	11.1	3.3	169	43.6	148	218
1946	637	20.8	81.5	22.9	20.1	19.4	37.3	27.5	115	17.6	200	10.1	3.1	153	34.3	126	262
1947	781	40.4	199.0	77.3	22.9	29.9	132.1	32.2	133	25.4	142	11.6	3.4	193	49.1	186	249
1948	582	17.5	69.0	14.1	20.4	11.0	33.6	24.2	129	15.2	185	9.2	2.4	128	29.1	114	195
1949	633	21.1	93.0	23.6	20.3	12.9	40.4	27.8	113	17.2	175	9.2	2.9	147	38.3	127	212
1950	883	41.9	196.2	88.2	21.5	32.7	105.8	33.1	105	23.4	166	8.8	3.3	206	44.3	204	236
1951	530	20.6	72.7	20.5	21.8	11.2	36.0	27.5	129	17.2	146	10.1	2.8	149	35.0	123	217
1952	774	39.8	154.7	72.4	22.0	25.6	68.9	25.1	120	25.7	98	11.1	3.3	220	47.5	158	244
1953	645	20.5	82.1	20.4	20.9	11.5	37.2	24.0	123	18.1	186	9.9	3.0	147	33.3	127	207
1954	618	20.2	66.0	23.9	21.0	11.3	32.1	23.1	133	17.3	192	10.8	3.6	131	36.7	122	194
1955	609	23.0	99.2	27.7	21.5	13.6	46.6	21.6	129	19.2	163	11.5	3.7	151	41.3	121	210
1956	741	31.2	166.8	52.5	20.7	25.0	79.1	11.6	118	21.1	124	10.8	3.9	185	37.9	126	204
1957	861	45.2	370.3	71.7	20.6	34.1	107.1	17.7	111	24.4	92	10.0	3.1	270	40.0	168	220

第3表 2019年試料の微量元素組成

1958

1959

1960

930

902

918

37.7

36.4

29.8

195.1

191.0

179.6

71.2

55.6

47.4

21.7

21.1

22.6

32.7

27.4

26.8

80.3

82.3

71.7

24.9

16.7

20.2

141

130

151

24.3

22.0

20.8

75

97

68

14.1

13.0

14.8

4.0

3.5

4.6

217

247

225

43.0

41.8

40.0

168

174

181

236

218

223

第4表 2019年試料の希土類元素組成

Sample No.	La [ppm]	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Но	Er	Tm	Yb	Lu
1901	33.8	76.0	9.6	35.9	7.4	1.7	6.1	1.1	5.5	1.0	3.0	0.4	3.1	0.5
1902	24.3	48.1	6.3	22.8	4.2	1.0	3.4	0.6	3.2	0.6	1.9	0.3	2.0	0.3
1903	22.1	43.3	5.5	19.8	3.8	0.8	3.0	0.5	2.9	0.6	1.7	0.3	1.9	0.3
1904	23.1	44.9	6.0	22.4	4.5	1.0	3.6	0.7	3.4	0.7	2.0	0.3	2.1	0.3
1905	41.5	65.1	12.4	49.2	10.3	2.3	8.7	1.4	6.6	1.1	3.3	0.4	2.8	0.5
1906	26.2	51.7	6.5	25.0	5.1	1.2	4.2	0.8	3.9	0.8	2.3	0.3	2.3	0.4
1907	27.7	53.8	6.5	24.7	5.0	1.1	4.2	0.8	4.1	0.8	2.4	0.4	2.4	0.4
1908	30.2	64.5	8.1	31.9	6.5	1.5	5.5	1.0	4.8	0.9	2.6	0.4	2.6	0.4
1909	35.3	68.8	9.4	35.3	7.3	1.6	6.0	1.0	5.3	1.0	2.9	0.4	2.9	0.5
1910	24.5	46.5	6.5	23.2	4.6	1.0	3.7	0.6	3.5	0.6	2.0	0.3	2.0	0.3
1911	27.7	56.4	7.5	27.7	5.8	1.3	4.7	0.9	4.5	0.8	2.6	0.4	2.7	0.4
1912	31.4	61.3	8.4	31.3	6.5	1.4	5.1	0.9	4.6	0.8	2.4	0.4	2.5	0.4
1913	38.3	71.1	10.7	41.7	8.8	2.2	7.5	1.3	6.2	1.1	3.2	0.4	2.9	0.5
1914	22.4	45.5	6.3	25.4	5.7	1.6	5.3	0.9	4.8	0.9	2.6	0.4	2.5	0.4
1915	27.9	53.4	7.0	25.2	5.0	1.0	4.0	0.7	3.8	0.7	2.2	0.3	2.5	0.4
1916	31.1	61.6	8.0	28.6	5.6	1.2	4.4	0.8	4.1	0.8	2.5	0.4	2.6	0.5
1917	36.6	70.3	9.4	34.5	6.8	1.5	5.6	1.0	5.2	1.0	3.0	0.4	3.1	0.5
1918	43.1	83.2	11.0	40.7	8.1	1.7	6.5	1.1	5.7	1.1	3.2	0.4	3.0	0.5
1919	23.6	51.2	6.2	22.3	4.3	1.0	3.6	0.7	3.8	0.7	2.3	0.4	2.5	0.5
1920	43.9	99.9	11.9	45.0	9.2	2.0	7.8	1.4	7.0	1.3	4.0	0.6	3.8	0.7
1921	31.5	66.9	8.5	32.3	6.7	1.5	5.6	1.0	5.5	1.0	3.1	0.5	3.2	0.5
1922	34.2	75.3	9.0	33.5	6.9	1.4	5.8	1.1	5.6	1.0	3.3	0.5	3.3	0.6
1923	32.9	69.9	8.6	32.5	6.7	1.5	5.7	1.0	5.4	1.0	3.1	0.4	3.1	0.5
1924	28.7	55.7	7.6	28.3	5.9	1.4	5.0	0.9	4.9	0.9	2.9	0.4	3.1	0.5
1925	36.6	78.9	9.7	35.8	7.3	1.5	5.9	1.1	5.9	1.1	3.3	0.5	3.5	0.6
1926	26.2	54.5	7.0	26.7	5.4	1.2	4.6	0.8	4.3	0.8	2.3	0.3	2.4	0.4
1927	25.3	52.9	6.7	25.8	5.2	1.2	4.4	0.8	4.3	0.8	2.3	0.3	2.4	0.4
1928	22.8	45.5	6.2	24.0	4.9	1.3	4.0	0.7	3.9	0.7	2.0	0.3	2.2	0.4
1929	36.5	75.5	9.5	35.2	7.2	1.5	6.3	1.1	5.9	1.1	3.3	0.5	3.5	0.6
1930	21.1	43.2	5.7	21.9	4.7	1.1	3.8	0.7	3.6	0.7	2.0	0.3	2.1	0.3
1931	24.2	48.6	6.3	24.0	4.8	1.1	4.1	0.8	4.0	0.8	2.3	0.3	2.4	0.4
1932	20.6	41.8	5.6	21.5	4.4	1.0	3.8	0.6	3.6	0.6	1.9	0.3	2.0	0.3
1933	27.0	53.6	7.3 C 1	27.3	5.4	1.2	4.0	0.8	4.4	0.8	2.5	0.4	2.0	0.4
1934	24.1	46.Z	6.1	22.9	4.5	0.9	3.7	0.7	3.5	0.7	2.1	0.3	2.2	0.4
1935	19.1 26 E	34.7 60.7	5.0	19.5 25 5	4.1	1.0	3.0 6.0	0.7	3.4 5.5	0.7	1.9	0.3	2.0	0.3
1930	30.3 20.6	09.7 26 5	9.2 1 0	33.3 17.0	1.4	1.0	2.0	1.1	0.0 9.7	1.0	3.0 1.7	0.4	2.9 1.9	0.0
1937	20.0	30.3 52.1	4.8	25.4	3.3 4.0	0.7	3.0	0.5	2.7	0.5	1.7	0.3	1.8	0.5
1930	20.3 22.0	55.1 61.6	0.0	20.4	4.9 6.5	1.1	4.2 5.7	0.0	4.0 5.2	1.0	2.3 2.1	0.3	2.4	0.4
1939	32.9 40.4	01.0	0.4	32.3 45.0	0.5	1.4	0.7 7.0	1.0	0.5 6.0	1.0	0.1 2.7	0.4	3.0 2.6	0.5
1940	49.4	90.0 84 3	10.6	40.9	9.1 8.1	2.0	7.9	1.4	0.9 6.4	1.0	3.7	0.5	3.0	0.0
1942	21.6	367	5.4	20.1	3.0	0.0	3.4	0.6	33	0.6	2.0	0.3	2.4 2.2	0.0
1943	417	79 1	10.3	395	79	17	68	1.2	62	11	3.4	0.5	3.2	0.1
1944	49.3	99.2	12.5	462	9.0	21	76	1.2	6.8	1.1	36	0.5	3.5	0.6
1945	41.3	82.9	10.7	41.8	8.3	2.1	7.3	1.0	6.4	1.2	3.3	0.5	3.0	0.5
1946	35.4	69.2	8.8	32.2	6.2	1.4	5.3	0.9	4.6	0.8	2.5	0.4	2.5	0.4
1947	45.5	95 1	121	45.2	87	21	73	1.3	6.6	12	35	0.5	3.3	0.5
1948	23.6	51.7	6.5	24.0	4.8	1.0	4.0	0.7	3.8	0.7	2.3	0.3	2.3	0.4
1949	31.8	73.8	8.7	33.2	6.7	1.5	5.7	1.0	5.1	0.9	2.7	0.4	2.7	0.5
1950	43.2	89.6	11.3	42.9	8.2	2.2	6.9	1.2	6.1	1.1	3.1	0.4	3.0	0.5
1951	25.9	57.9	7.2	27.0	5.5	1.2	4.8	0.9	4.6	0.8	2.6	0.4	2.7	0.5
1952	39.9	91.0	10.8	41.4	8.3	2.0	7.0	1.2	6.5	1.2	3.5	0.5	3.3	0.6
1953	30.5	62.9	7.9	29.5	5.8	1.3	4.8	0.8	4.3	0.8	2.5	0.4	2.4	0.4
1954	34.4	76.9	9.3	34.2	6.8	1.5	5.7	0.9	5.2	0.9	2.7	0.4	2.6	0.5
1955	40.7	79.5	10.5	39.3	7.7	1.7	6.5	1.1	5.7	1.0	2.9	0.4	2.9	0.5
1956	36.6	75.3	9.8	35.9	7.3	1.7	5.8	1.0	5.4	1.0	2.9	0.4	2.7	0.4
1957	38.3	79.7	10.2	37.9	7.4	1.9	6.0	1.1	5.8	1.0	2.9	0.4	2.9	0.5
1958	44.7	95.9	11.7	43.1	8.5	2.1	7.0	1.2	6.2	1.1	3.3	0.4	3.1	0.5
1959	40.8	84.6	10.7	39.5	7.8	1.9	6.3	1.1	5.8	1.0	3.1	0.4	2.9	0.5
1960	40.8	84.2	10.6	38.9	7.6	1.7	6.1	1.0	5.6	1.0	3.0	0.4	2.9	0.5

主成分元素については第3図に、微量元素と希土類元素 については第4図並びに第5図にそれぞれ示した。これ らの関係図では、2019年と2008年の試料位置が同一の場 合と、位置が異なる場合とでプロットのシンボルを区別 した。なお、以降は特定の試料に言及する際は2019年の 試料番号(1901など;第1表)を用いる。

第3図において河床堆積物の主成分元素含有量を2019 年と2008年で比較すると、ほとんどの元素で多くの試料 が1:1の点線付近にプロットされ、極端な経年変化は認 められなかった。しかし、ごく一部の試料では元素含有 量の変化が検出された。まず、TiO<sub>2</sub>では1902と1936の含 有量が1wt%程度減少し、またFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>含有量についても 両試料から5wt%以上の減少が認められた。このうち、 1936についてはAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>含有量にも5wt%の増大がある。

 $K_2$ O含有量では1929並びに1948からそれぞれ2wt% と1wt%の増大が、また1931から1wt%の減少が認め られた。また、この1931については $Na_2$ O含有量が1 wt%減少している。

第4図において微量元素の2019年と2008年分析値を比 較すると、BaやPbは試料全体でばらつきが著しく、Ni、 Nb、Sc、Y、Zn、Uもばらつきがあるため傾向が不明 瞭だが、基本的には1:1の点線周辺にプロットされる特 徴がある。これ以外の元素も概ね1:1の点線に沿って多 くの試料がプロットされるが、Coを除く元素では、ご く一部の試料の元素含有量が比較的大きく変化する場合 がある。まず、Cr含有量は1902、1926並びに1936でそ れぞれ130ppm、150ppm、430ppm減少する特徴がある。 これら3試料からはZr含有量の減少も認められ、減少 量はそれぞれ250ppm、200ppm、500ppmである。この うち、1902と1936ではV含有量がそれぞれ230ppmと 400ppm減少している。

Ga並びにTh含有量は1929において、それぞれ6ppm と9ppmの増大が認められ、逆に同試料のSr含有量は 160ppm減少している。また、Rb含有量については1929 から80ppmの増大が、1931から50ppmの減少が認めら れる。Y含有量は1925で14ppm減少している。

第5図に示した2019年と2008年の希土類元素関係図で は全元素でややばらつきが認められるが、CeとTm、Lu は多くの試料が1:1の直線付近にプロットされる。一方 で、La、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Erの 含有量は全体的に2019年の方が高い傾向を示し、全試料 の変動量平均値はLaとPrで3ppm、Ndで6ppm、Sm とGd、Dy、Erで1ppm、EuとTb、Hoで0.2ppmである。 また、Yb含有量は試料全体でわずかに減少する特徴が





2008年の分析値は福岡ら(2009)より引用。図中に付記した数字は2019年試料番号の最終2桁であり、経年変化の大きな試料のみに付した。図中の点線はy = xの直線を示す。





2008年の分析値は福岡ら(2009)より引用。ただしCo、Cu、Ga、Sc、Znは2008年当時の試料を用いて、2021年に本学のXRFにより測定した。図中のプロットシンボル並びに付記した数字は第3図と同様。 図中の点線はy = xの直線を示す。



第5図 2019年と2008年の希土類成分組成の関係図

2008年の分析値は福岡ら(2009)より引用。図中のプロットシンボル並びに付記した数字は第3図と同様。 図中の点線はy = xの直線を示す。

あり、全試料の変動量平均値は-0.3ppmである。また、 CeとTb、Dy、Luの含有量は、1925のみほかの試料に 比べて時系列で減少する特徴があり、減少量はそれぞれ 50ppm、0.4ppm、2 ppm、0.2ppmである。

## V. 議 論

いくつかの河床堆積物試料では、2019年と2008年の主 成分元素、微量元素、希土類元素含有量に経年変化が 生じていることが明らかになった(第3-5図)。以下、 含有量の経年変化の原因を検討した。

# 1. 機差に伴う定量誤差と試料の経年変化量

経年変化が認められた元素の機差を詳細に検証するた め、第6図には式(1)に基づき、岩石標準試料の2008 年分析値を基準とする、2019年分析値との変化率を示した。

分析値の変化率 [%] =  $(C_{19} - C_{08}) / C_{08} \times 100$  ……式 (1)

C19:2019年分析值、C08:2008年分析值

変化率が正の値を取る場合は、2019年の分析値が系統的 に高いことを意味する。まず、主成分元素で一部の河 床堆積物試料に大きな組成差が認められた成分はTiO<sub>2</sub>、 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Na<sub>2</sub>O、K<sub>2</sub>Oである。これら5成分のうち、 標準試料に基づく変化率はJR-1のFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>における+20% が最大だが、それ以外の元素は変化率±10%未満と極め て差が小さい。

第6図における微量元素の変化率は、2種の標準試 料とも多くの成分で±10%未満に収まっている。ただ しJB-1aではNi (139ppm)とY (24ppm)の変化率が+ 20%程度となっている。また、JR-1ではCr (2.8ppm)と Ni (1.7ppm)、Sr (29.1ppm)、V (7 ppm)で±40%を超 える非常に大きな変化率が認められる(第6図)。ただし、 この4元素のJR-1における推奨値は、今回対象とした河 床堆積物試料の含有量範囲よりも小さいことから(第3 表)、経年変化の議論において必ずしも考慮する必要はな いと考えられる。

第6図における希土類元素のうち、PrのみJB-laと JR-1の変化率が+40%と大きくなっている。またLa、 Nd、Sm、Gd、Tb、Dyは2種の標準試料がどちらも変



化率+2~10%を、HoとErは+10~20%を示し、程度 に差はあるが2019年のほうが系統的に高い分析値を示す 傾向がある。またEuの変化率はJR-1(0.3ppm)で-10% となるのに対し、JB-1a(1.5ppm)は+15%となり変化 傾向が標準試料によって異なっている。TmとYbは2 種の標準試料の分析値より、-5~-15%の変化率が認 められる。CeとLuの変化率は±7%であり系統的な差 は認められない。

これらを踏まえて河床堆積物試料の経年変化が機差に よるものか議論する。まず、主成分元素で組成差を示す 成分(TiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Na<sub>2</sub>O、K<sub>2</sub>O)のうち、含 有量が増大するAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(1936)とK<sub>2</sub>O(1929・1948)は、 該当する試料の経年変化率が式(1)より+35%以上と なり、分析法の変化率を大きく超えている。含有量が減 少するTiO<sub>2</sub>並びにFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(1902・1936)と、Na<sub>2</sub>O(1929) 並びにK<sub>2</sub>O(1931)では、変化率が-25~-54%となり 明らかに分析法の変化率を超えて減少している。した がって主成分元素5成分の経年変化は、分析法による機 差以外に原因があるものと考えられる。

試料の経年変化が認められた微量元素8成分(Cr、 Ga、Rb、Sr、Th、V、Y、Zr)について議論する。まず、 Ga(1929)の増大については2019年と2008年の試料を 同一のXRF装置により分析したため(川野、2010)、機 差による影響は考えられない。RbとTh(1929)の経年 変化率は+110%を超え、逆にSr(1929)の変化率は-54%となり分析法の変化率を大幅に上回っている。また Rb含有量が減少する試料(1931)の変化率は-30%で あり、これも分析法の変化率以上に減少している。次に、 Cr並びにZr (1902・1926・1936) とV (1902・1936) に ついては該当する試料の変化率が-47~-74%であり、 JB-1aに基づく分析法の変化率を大きく超えることから、 試料の経年変化を機差で説明することは困難である。Y についても、該当する試料(1925)の変化率が-25%で あるのに対し、IR-1とIB-1aの変化率はそれぞれ±10% 未満と+20%程度であり増減の傾向が一致しない。以上 のことから、微量元素8成分の河床堆積物試料にみられ る含有量の経年変化は、2019年と2008年の分析法の違い によるものではないと考えられる。

希土類元素含有量の経年変化と機差の関係を検討す る。まず、全体的に含有量が増大する希土類元素はLa、 Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Erの10成分で あり、またYbは全体的に含有量が減少している(第5 図)。しかしながら、希土類元素は環境中の元素挙動が 類似する元素群であり、酸化還元環境でイオン価が変化

するEuやCeを除く元素で経年変化の傾向が異なること は考えにくく、元素ごとの変化は機差を原因とする可 能性がある。一方で、試料1925はCe、Tb、Dy、Luの 4成分が減少する特徴があり、ほかの試料とは傾向が異 なっている。第7図には、希土類元素分析の機差と試料 の経年変化の関係を確認するため、2019年と2008年に実 施したJB-1a並びにJR-1の分析値による変化率の平均値 と、試料の経年変化率の関係図を作成した。なお試料の 経年変化率は、試料全体の平均値と1925でそれぞれプ ロットした。試料全体の経年変化率の平均値と、IB-1a 並びにJR-1分析値による変化率の平均値との直線回帰 モデルからは、決定係数(R<sup>2</sup>) 0.90の高い適合度が認め られた。このことから、分析の機差が大きくなるほど試 料全体の経年変化率が大きくなることがわかった。した がって、試料全体で認められる希土類元素含有量の経年 変化は機差による影響が大きく、河床堆積物の変化が 起きた可能性は低いと考えられる。次に、Ce、Tb、Dy、 Lu含有量が時系列で減少する1925については、これら 4元素の経年変化率と、JB-1a並びにJR-1分析値の変化 率平均との直線回帰モデルで決定係数(R<sup>2</sup>)が0.31とな り、高い適合度は得られなかった。また、試料の経年変 化率はすべて負の値を示すのに対し、IB-1a並びにIR-1 の変化率平均値は0から正の値を示しており傾向が一致 しない。したがって、1925におけるCe、Tb、Dy、Lu 含有量の経年変化を機差で説明することは困難である。



## 第7図 標準試料と河床堆積物試料の希土類元素分析値 による経年変化率の関係図

2008年の分析値は福岡ら(2009)より引用。図中の点線 は標準試料と河床堆積物試料における分析値の経年変化 率の回帰直線である。試料1925は第5図において明確な 減少傾向が認められた4成分のみプロットした。

#### 2. 採取位置が異なることによる河床堆積物の組成差

2019年と2008年の試料採取位置は、個々の流域が一致 している全54地点中11地点で新旧の採取位置が異なって いる(第1表)。採取位置の違いが河床堆積物の化学組 成に差を与えている可能性は十分考えられるが、測定し た全41元素の2019年と2008年分析値による関係図からは (第3-5図)、採取位置が異なる試料で経年変化が大き くなるわけではないことが言える。例えば主成分元素で は1902と1936のTiO2含有量が時系列で大きく減少する が、両試料の新旧採取位置に違いはない(第3図)。こ の特徴はほかの主成分元素や微量元素、希土類元素でも 同様である(第3-5図)。また希土類元素はPrをはじ め多くの元素で試料全体の経年変化があるが、この変化 と試料採取位置の違いには特に傾向が認められない(第 5図)。以上のことから、採取した位置の違いによる河 床堆積物の化学組成の経年変化が起きた可能性は低いと 判断される。

# 3. 流域の露出岩の変化などによる河床堆積物の経年変化

流域に露出する岩石や砕屑物(表層地質)が河川工事 によって掘削された場合には、流下する砕屑物や鉱物の 種類が変化することが想定され、採取される河床堆積物 の化学組成にも影響する可能性がある(樋口ら、2021)。 しかし、小森川流域において2008年から2019年の間に大 規模な河川工事は実施されておらず、その影響は考えら れない。

次に、流域の露出岩の違いにより供給される砕屑物 が変化した可能性を検討する。まず、小森川流域に露 出する岩相は大きく分けて砕屑岩類(砂岩泥岩互層な ど)、チャート、石灰岩の3種に大別できる。このうち、 石灰岩については流水による風化速度の検討がなされ ており、石灰岩タブレットを流域内の土層中に埋設した 野外風化実験等により、試料の減量率に基づく風化速 度として0.05~3.3%/vが報告されている(八反地・松 倉、2007; Thorn et al., 2002; Jennings, 1981)。既報の 風化速度は大きな幅があるものの、小森川流域の経過時 間(11年)に当てはめると最大65%の石灰岩が風化によ り失われることになる。期間中の実際の風化量は不明 であるが、風化により露出する石灰岩の岩相が変化した 可能性は否定できない。そこで石灰岩の分布流域に着目 すると、1929、1931、1933、1942、1946の5地点が抽出 されるが、中でも小森川流域で石灰岩の露出面積が最大 となる1929と、次点の1931については複数の元素で含有 量の顕著な経年変化が認められる。1929は時系列による Na<sub>2</sub>O 並びにSr の減少傾向と、K<sub>2</sub>O、Ga、Rb、Thの増 大傾向を有している。そして1931はK2OとRbの減少傾 向が認められる。これらの元素のうち、1929のNa<sub>2</sub>O並 びにSrと、1931のK2O並びにRbの減少傾向については、 これら4元素がアルカリ元素であり石灰岩から溶脱しや すいため、石灰岩の風化とともに河川に溶出したとすれ ば説明できる。しかしながら、1931については逆にK2O とRbが増大しており、溶出による組成変化では説明で きない。一方で、流域内の石灰岩体に組成不均質があっ た場合、風化により表層に露出する石灰岩の組成が変化 し、この結果、河川に供給される砕屑物の組成も変動す る可能性がある。以上のことから、時系列による1929並 びに1931のNa<sub>2</sub>O、K<sub>2</sub>O、Ga、Rb、Sr、Thの増減は、風 化によりそれぞれの流域に露出する石灰岩の組成が変化 したことによると示唆される。なお、K<sub>2</sub>Oは1948にも若 干の増大傾向が認められるが、こちらは流域内に石灰岩 の分布が認められず、近隣では南部に石灰岩の露出が確 認されるのみである。ただし、石灰岩地域では岩体の風 化により地下河川が形成され、地下水のCO2脱ガス過程 で形成された方解石などの二次鉱物が河川に付加するこ とが議論されている(城森ら、2016)。このため、1948 で増大するK<sub>0</sub>Oについては、地下で形成された何らか の二次鉱物に含まれる形で河川に付加されたのかもしれ ない。

経年変化が確認された試料はほかに1902、1925、1926、 1936の4試料がある。これらの流域について岩相分布と の関連性はないが、1925を除く3 試料は変化する元素が 一部共通している特徴がある。1902、1926、1936につい てはCrとZrの減少傾向があり、このうち1902と1936は TiO<sub>2</sub>、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Vの減少傾向が認められる(第2図、第 3図)。なお、1936のみAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の増大傾向が確認されて いる。これらの元素はいずれも金属元素であり、特に TiO<sub>2</sub>とFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が含まれることから、両者を主成分とする 磁鉄鉱との関連が疑われる。また、1926と1936は小森川 全体の表層組成を目的に採取する本流地点の試料でもあ る。本流地点では、川幅2~3mの支流を対象とする一 般的な試料と異なり、川幅10m程度の本流から代表的な 試料を採取しなければならない。しかし、川幅が広いた め砕屑物が拡散して堆積した場合、比重の大きい磁鉄鉱 などは堆積地点に偏りが生じることも考えられる。この ため、1926と1936の2019年と2008年の分析における組成 差は、本流の採取地点のわずかな違いによる堆積物そ のものの組成不均質が表れている可能性がある。なお、 1902については支流域であるが、秩父盆地の礫岩層が

全試料中で最も広く露出する特徴がある(第1図)。こ の礫岩層は基底部に緑色岩や花崗岩礫が見出されてお り、経年変化があるFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>等金属元素の起源としては緑 色岩が、Zrの起源には花崗岩中ジルコンが想定される。 これらの礫については流域内の礫の組成不均質を確認す る必要がある。また、1925は希土類元素のうちCe、Tb、 Dy、Luが減少する傾向をもつが、これは砕屑岩が露出 する一般的な流域であり、ほかに同様の特徴をもつ試料 も認められないことから原因の特定は困難である。今後、 Ce、Tb、Dy、Luの経年変化の原因を明らかにするた めに、これらの元素の起源となる岩相の再調査が必要で ある。

## Ⅵ. まとめと今後の課題

埼玉県西部小森川流域を対象に、2019年と2008年に同 一地点で河床堆積物試料を採取し、その化学組成の経年 変化を調査した。この結果、複数の元素で経年変化が認 められたが、試料全体で検出された希土類元素の増減傾 向については、2019年と2008年で実施された分析におけ る機差によるものと判断された。

小森川流域において石灰岩の露出流域(1929、1931) では、アルカリやGa、Thの増減が認められ、石灰岩の 組成不均質と風化によって、河川に供給される砕屑物の 化学組成が変動したと推定された。また、流域内に石灰 岩が認められないものの、石灰岩体付近に分布する流域 (1948)ではK<sub>2</sub>Oの増大傾向があることから、石灰岩体 で形成された地下河川に由来する二次鉱物の付加が示唆 された。小森川流域全体の表層組成を対象とする本流地 点(1926、1936)からは、磁鉄鉱に関連する金属元素の 減少が考えられた。秩父盆地の緑色岩礫や花崗岩礫が露 出する流域(1902)では、これらの礫種の組成不均質を 暗示する金属元素とZrの減少が認められた。

今後は、小森川流域の石灰岩体において、流域ごとに 露出する石灰岩組成の差異を調査するとともに、地下河 川から河床堆積物への供給が想定される二次鉱物の同定 が重要となる。また、本流や緑色岩礫~花崗岩礫が露出 する流域では、地点ごとの河床堆積物並びに流域の礫の 化学組成の均質性に対する検証が求められる。なお、一 部の希土類元素の減少がみられる唯一の流域(1925)に ついては経年変化の原因がわからなかったが、河床堆積 物の化学組成が変化する機構の理解のため、流域の露出 岩相の再調査を含むさらなる検討が必要である。

#### 謝 辞

地球環境科学部の下岡順直准教授には調査にご参加い ただき、準備段階から実習時の学生指導まで様々なご協 力を賜った。また、2019年の小森川調査では、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鈴木和也氏、西川晃太郎氏、大井健 矢氏、井田恵利香氏、小谷野瑞希氏にもご参加いただい た。さらに、河床堆積物試料の化学分析は同研究室に所 属していた当時の学部3年生を中心に実施していただい た。なお、XRF装置並びにLA-ICP-MS装置の保守・管 理にあたっては、環境システム学科の関係者各位に日頃 よりご協力をいただいている。

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、そして現 在の環境岩石学研究室における授業の一環として行われ ており、上級生から下級生へ調査準備、現地調査並びに 試料採取、化学分析手法が指導され継承されてきている。 今日まで地球化学図の作成を継続できたことは、これら の研究室に所属してきた学生・院生の方々のご指導なく ては成立しないものである。以上の方々に心から厚く感 謝を申し上げる。

### 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— 地球化学図作成のための準備と分析方法を中心に—.地球 環境研究, 11, 227-238.
- 福岡孝昭・青木かおり・楠野葉瑠香・青木 優・薄葉祐介・ 管野稔洋・谷 淳平・嶋田有里奈・関 美乃・三浦亜由美・ 石本光憲・田澤雄二・小暮岳実・越田千博(2009) 荒川上 流小森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20年度事業報告書, 193-202.
- 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・宇野友則・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, 27-44.
- 八反地 剛・松倉公憲(2007)石灰岩タブレットを用いた野 外風化実験一水質が風化速度に与える影響一. 筑波大学陸 域環境研究センター報告, 8, 41-47.
- 樋口絢渉・関根栄一・山下慶祐(2021)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. 地球 環境研究, 23, 9-25.
- Hisada, K., Ueno, H. and Igo, H. (1992) Geology of the Upper Paleozoic and Mesozoic sedimentary complex of the Mt. Ryokami area in the Kanto Mountains, central Japan. Science reports of the Institute of Geoscience, University of Tsukuba, Section B, Geological sciences, 13, 127-151.
- 一國雅已(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―元素の分布から何が わかるか?―. 産業技術総合研究所地質調査総合センター, 209p.
- 石井 醇(1962)関東山地奥秩父中津川地域の上部古生層. 秩父科博研報, 11, 1-21.
- 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,37,37-56.
- 伊藤司郎・上岡晃・田中剛・富樫茂子・今井登・金井豊・ 寺島滋・宇都浩三・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.

- Jennings, J. N. (1981) Further results from limestone tablet experiments at Cooleman Plain. Australian Geographical Studies, 19, 224-227.
- 城森由佳・太田充恒・南雅代(2016)秋吉石灰岩岩体が河 川堆積物の元素濃度およびSr同位体比に与える影響.地 球化学,50,11-27.
- 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.
- Matsukawa, M. (1983) Stratigraphy and sedimentary environments of the Sanchu Cretaceous, Japan. Memoirs of the Ehime University, Natural Science, Series D, 9, 131-178.
- 松本達郎・小畠郁生・田代正之・太田喜久・田村 実・松川 正樹・田中 均(1982)本邦白亜系における海成・非海成 層の対比. 化石, 31, 1-26.
- 南 雅代・伊藤知子・田中 剛(2006)河床堆積物の化学組成 の経年・季節変動 — 矢田川の例 —. 日本地球化学会第53 回年会講演要旨集, 53, 98.
- 日本地質学会(2008)日本地方地質誌3 関東地方. 朝倉書店, 570p.
- 大平寛人・秩父盆地団体研究グループ(2006)秩父堆積盆 地北縁における新第三系下部層のFT年代.地球科学, 60, 325-331.
- 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.
- 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,特別号,5, 51-66.
- Sashida, K., Igo, H., Igo, H., Takizawa, S. and Hisada, K. (1982) On the occurrence of Jurassic radiolarians from the Kanto Region and Hida mountains, central Japan. Ann. Rep., Inst. Geosci., Univ. Tsukuba, 8, 74-77.
- 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.

- 高木秀雄・朴 容世・益子竜行・田中秀実・小泉雅一・板谷徹 丸・坂 幸恭(1995)関東山地,山中地溝帯三山層中の花崗 岩礫のK-Ar年代.地質雑,101,648-658.
- 高橋雅紀・長濱裕幸・田中裕一郎(1989)石灰質ナンノ化石 からみた秩父盆地新第三系最下部の地質時代.化石,46, 1-9.
- 武井晛朔(1963)山中地溝帯東部白亜系の層序と構造.地質 雑, 69, 130-146.
- 武井晛朔(1975)山中地溝帯白亜系中の火成岩礫,変成岩礫, および酸性凝灰岩礫,地質雑,81,247-254.
- Takei, K. (1985) Development of the Cretaceous Sedimentary Basin of the Sanchu Graben, Kanto Mountains, Japan. Journal of geosciences, Osaka City University, 28, 1-44.
- 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. J. Earth Planet. Sci. Nagoya Univ., 41, 1-31.
- 田中 剛・川邊岩夫・山本鋼志・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・大森扶美子 (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. J. Earth Planet. Sci. Nagoya Univ., 43, 27-47.

- Thorn, C. E., Darmody, R. G., Dixon, J. C. and Schlyter, P. (2002) Weathering rates of buried machine-polished rock disks, Kärkevagge, Swedish Lapland. Earth Surface Processes and Landforms, 27, 831-845.
- 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.
- 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 雑, 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・宮崎桂輔・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, 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, 45-70.

# Temporal changes of chemical compositions in stream sediments around the Komorigawa River, western part of the Saitama Prefecture, central Japan

SHIMIZU Ryuichi\*, HIGUCHI Kensyo\*\*, KAWANO Yoshinobu\*

\* Faculty of Geo-Environmental Science, Rissho University \*\* Graduate School of Geo-Environmental Science, Rissho University

## Abstract :

Geochemical maps can be used as basic data for the chemical composition of surface rocks. In order to utilize the map, it is necessary to investigate the temporal changes of chemical composition in stream sediments.

In this study, we compared chemical composition in stream sediments collected in 2008 and 2019 around the Komorigawa River in western part of Saitama Prefecture, central Japan. In the limestone area, increases and decreases in alkaline elements, Ga and Th in the sediments occurred over time. The variation in these elemental contents is attributed to the chemical heterogeneity of the limestone that are the source of the stream sediments. Moreover, the increase of  $K_2O$  content in the sediments was suggested to be due to the addition of secondary minerals generated from the underground river formed by the erosion of limestone. The sediments collected from the mainstream of the Komorigawa River showed a decrease in the content of the major elements in magnetite. The cause of the decrease was suggested to be the large river width leading to heterogeneity in the composition of the sediments.

Key words : Saitama Prefecture, Geochemical map, Stream sediment, Chemical composition, Temporal change