

**粒径別河川堆積物の元素濃度および Sr 同位体比**  
**Grain-size variations in the elemental concentrations and strontium isotope ratios ( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ )**  
**of stream sediments in a granitic drainage basin**

城森由佳<sup>1\*</sup>・南雅代<sup>1</sup>・鈴木和博<sup>1</sup>  
Yuka Jomori, Masayo Minami, Kazuhiro Suzuki

<sup>1</sup>年代測定総合研究センター

<sup>1</sup>Center for Chronological Research, Nagoya University, Chikusa, Nagoya 464-8602, Japan

\*Corresponding author. E-mail: jyomori@nendai.nagoya-u.ac.jp

**Abstract**

We investigate the chemical composition and strontium isotope ratios ( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ) of different grain-size fractions of stream sediments collected from the drainage area containing only granite. The  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  variation exhibited from 0.7099 to 0.7105 according to grain-size with minimum values in the 300–180  $\mu\text{m}$  fraction. The grain-size variation is considered to be potentially caused by different mineral resistance to weathering. Meanwhile, the inter-site mineralogical heterogeneity was smallest in the 180–75  $\mu\text{m}$  fraction, and the  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  inter-site variation was smallest, 0.70992–0.70995, in the 300–180  $\mu\text{m}$  fraction. The results suggest that stream sediments from medium sand size to very fine sand size are approximate the representative chemical features without inter-site mineral and chemical heterogeneities.

**Keywords:** stream sediment; strontium isotope ratio; elemental concentration; grain-size

1. はじめに

河川堆積物は基盤岩から侵食を受けた砕屑物が、河川水により運ばれたものであり、特に下流部においては、氾濫により河川道の外に運び出される。河川道の外で堆積したものは、平野の沖積土壌を形成するため、人間にとり重要な居住環境の基盤となり、また、田畑の土壌にもなる。このような河川堆積物の動態を知るとは、治水や土地利用の面で重要となるため、その物理的特性については河床工学や堆積学において明らかにされてきた。一方で、河川堆積物は地球化学の分野でも試料として扱われてきた。河川堆積物を分析して得られた元素濃度地球化学図は、基本的に地質の分布と対応することが明らかになっており、自然界でのバックグラウンド値を示していると考えられる。その特徴を利用し、地球化学図は古くは鉱床探査、近年では環境影響評価の指標として用いられている。日本でも既に、産業技術総合研究所により全国規模の地球化学図が公表されている(今井ほか, 2010)。一方で、同位体比は地球化学図の分野で扱われることが少なく、基礎的情報が不足している状況にある。特に、本研究で測定対象とする Sr 同位体比 ( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ) は、基盤岩の値のバリエーションにより、湖底堆積物・海底堆積物の起源情報の指標になるが、一地点で採取された堆積物の  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  が、粒径を分けるとどの程度変動するかなどの化学的特徴については、これまで日本において詳細に検討された例はない。そこで本論文では、単一の地質が分布する地域において採取された河川堆積物を粒径別に篩い分け、元素濃度及び  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  の測定を行うことで、粒径別の変動について明らかにする。また、地球化学図の試料として、十分な代表性を示す最も適当な粒径区分につき検討を行うことを目的とした。

2. 試料

河川堆積物試料は、愛知県豊田市矢作川上流部の伊奈川花崗岩 III 型が分布する領域で採取した (図 1)。試料 U1 と U2 は地点 U で採取し、U1 は U2 よりも水流が弱いところで採取された。地点 U, L, O での河川水の流速は 10–30 cm/s 程度であり、普段は 1 mm 以上の河川堆積物は動かないほどの河床環境である。試料 L が採取された地点 L は、50 cm ほどの水深があり、地点 U よりも流速は遅かった。試料 O は地点 U・L の下流側である地点 O で採取され、流速は約 10 cm/s であった。河川堆積物は空气中で乾燥させ、5 つの粒径分画 (1000–500, 500–300, 300–180, 180–75, <75  $\mu\text{m}$ ) に篩い分けた。1 mm より粗粒分画については、複数の鉱物が結着した礫を含み、分析結果のばらつきが大きくなると予想されたため今回は用いなかった。水流の強さが起因となり、試料 U2 は測定に十分な細粒分画の重量が得られなかったため、4 つの分画 (1000–500, 500–300, 300–180, <180  $\mu\text{m}$ ) に分けた。各粒径分画の重量比は、最粗粒分画が最も大きく、粒径が小さくなるほど小さくなる。地点 O の各粒径分画の重量比を例として挙げると、1000–500  $\mu\text{m}$  : 68%, 500–300  $\mu\text{m}$  : 24%, 300–180  $\mu\text{m}$  : 7%, 180–75  $\mu\text{m}$  : 0.8%, <75  $\mu\text{m}$  : 0.1% であった。篩い分けた試料は分析手順上の不均一性が生じないように、メノウ乳鉢で十分にすりつぶした。また、河川堆積物と母岩の化学組成を比較するために、河川の横に分布する花崗閃緑岩の十分に深い部分から新鮮な試料 (IG01) も採取した。

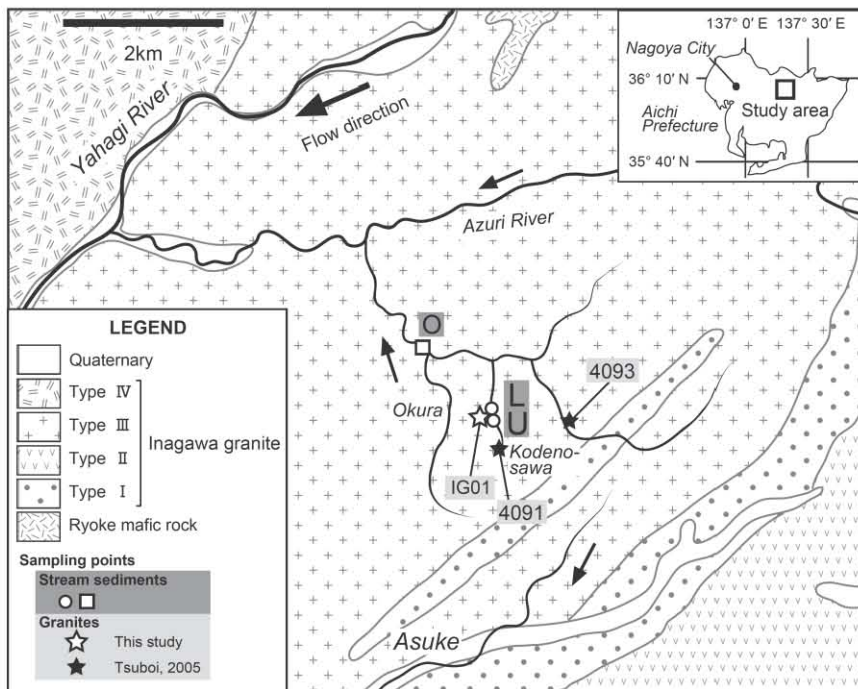


図 1. 試料採取地点と周囲の地質図. 20 万分の 1 地質図 (山田ほか, 1972; 産総研地質調査総合センター, 2012) に基づき作成.

Fig. 1. Geological map of the study area and the sampling points. The map is modified from geological maps with a scale of 1:200,000 (Yamada *et al.*, 1972; Geological Survey of Japan, AIST, 2012).

### 3. 実験

元素濃度測定は、名古屋大学年代測定総合研究センターの蛍光 X 線分析装置 (島津製作所 XRF-1800) を用いて行った。試料は 950°C で 5 時間加熱し、有機物の影響を除いた。その後、四ほう酸リチウムと混ぜ、1000°C で熔融し、ガラスビードを作成した。主成分元素測定は 40 kV, 70 mA, 微量成分元素測定は 40 kV, 95 mA の条件で行った。詳しい手順については、中崎ほか (2004) に従った。また、理学電機の X 線回折分析装置 (RAD-2C) で、X 線回折パターンを得た。Cu 管球を用い、測定時の電圧と電流はそれぞれ 30 kV, 15 mA であった。

$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  測定は、名古屋大学の表面電離型質量分析計 (VG Sector 54-30) で行った。詳細な手順については Jomori *et al.* (2013) に記載されている。標準試料 (NIST-SRM987) の繰り返し測定結果は  $0.710243 \pm 0.000018$  ( $2\sigma$ ,  $n=7$ ) であった。

## 4. 結果と考察

## 4-1. 元素濃度について

図2には伊奈川花崗岩 IG01 と 4091・4093 (Tsuboi, 2005) と共に、5つの粒径分画ごとの元素濃度変動について示した。基本的には、すべての試料でよく似た変動を示す。これは流域内に分布する花崗閃緑岩の種類がほぼ同一であるためと考えられる。一方で、同じ粒径分画でも各試料の濃度の絶対値は異なっている。次に、元素ごとの特徴を見ると、 $\text{SiO}_2$  濃度は粒径が小さい分画ほど減少するのに対し、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  や  $\text{Cr}$ ,  $\text{Pb}$  濃度は逆の傾向で上昇している。 $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{MnO}$ ,  $\text{MgO}$ ,  $\text{K}_2\text{O}$ ,  $\text{P}_2\text{O}_5$ ,  $\text{V}$ ,  $\text{Rb}$  濃度については、 $300\text{--}180\text{ }\mu\text{m}$  もしくは  $180\text{--}75\text{ }\mu\text{m}$  分画で最小値を示す凹型の変動だった。ただし下流側の試料 O については異なる傾向が見られた。 $\text{CaO}$  と  $\text{Na}_2\text{O}$  と  $\text{Sr}$  については変動パターンがほぼ同じであり、 $180\text{--}75\text{ }\mu\text{m}$  分画で最大値を示す凸型変動であった。

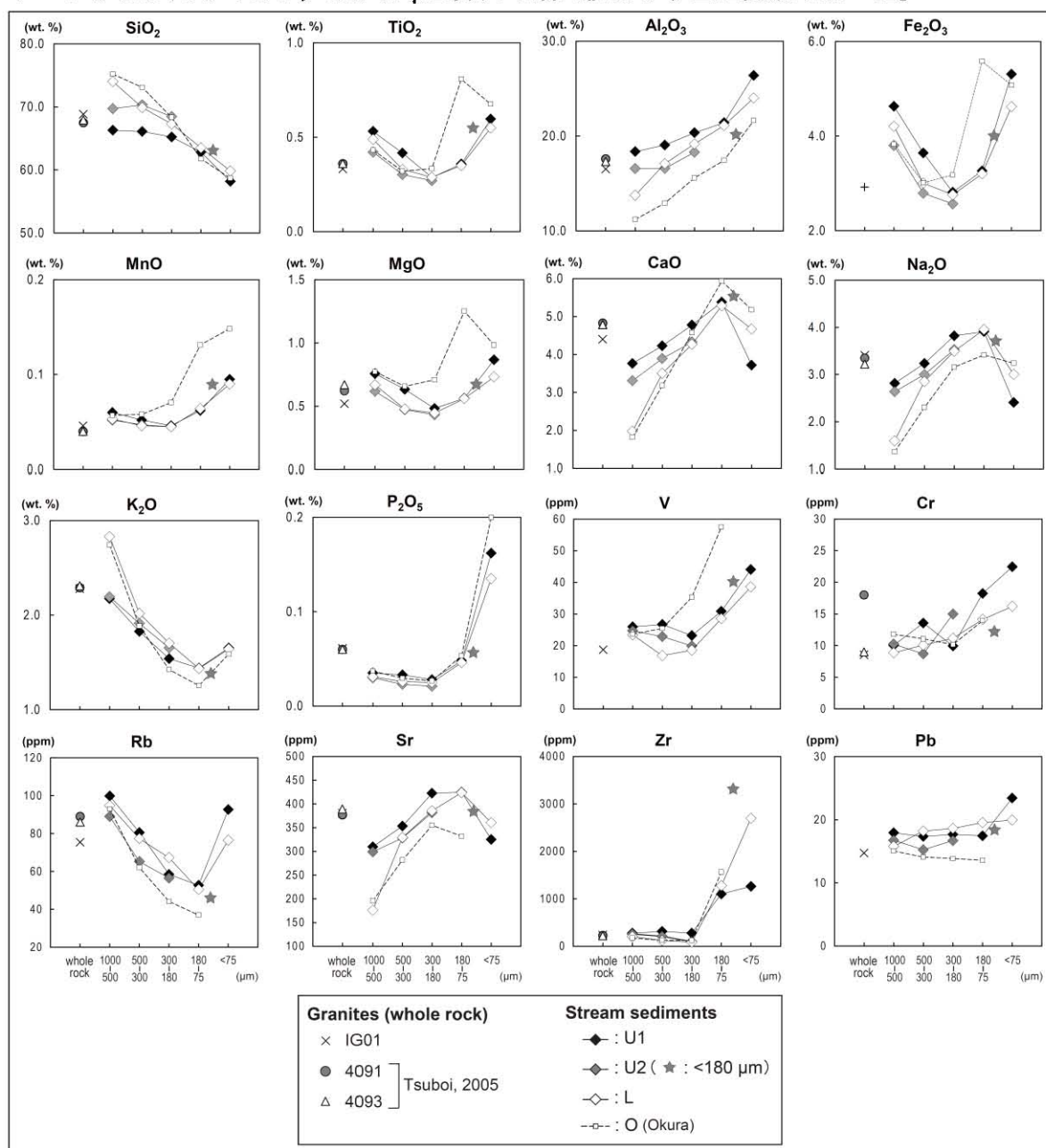


図2 伊奈川花崗岩 IG01, 4091・4093 (Tsuboi, 2005) と河川堆積物の各粒径分画の元素濃度  
 Fig. 2. The elemental concentrations of the stream sediments according to grain-size classification and the data from Inagawa granite samples IG01, 4091, and 4093 (Tsuboi, 2005).



K<sub>2</sub>O と Rb 濃度については、1000–500  $\mu\text{m}$  と <75  $\mu\text{m}$  分画の Rb 濃度はほぼ母岩の値であるが、300–180  $\mu\text{m}$ 、180–75  $\mu\text{m}$  分画は母岩の値よりも低い。このことは、石英とカリ長石は風化に対して高い耐性があるため、粗粒粒子として残りやすいことに起因していると考えられる。一方で、斜長石は石英やカリ長石と異なり、風化の影響を受け細粒化されやすい。それに対応するように、CaO, Na<sub>2</sub>O, Sr は細粒分画で濃度が高くなっている。U1 と L で採取された河川堆積物の XRD パターンからは、1000–500  $\mu\text{m}$  分画ではカリ長石のほう斜長石よりピーク強度が高いが、300–180  $\mu\text{m}$  分画では逆転していることが明らかになり、この結果は元素濃度から予想されることと調和的である。

微量成分元素で最も特徴的な変化が見られたのは、Zr である。試料 U1, L の <75  $\mu\text{m}$  分画の Zr 濃度はそれぞれ約 1260 ppm, 2700 ppm である。試料 U2 も、<180  $\mu\text{m}$  分画は非常に高い Zr 濃度 (3320 ppm) を示している。試料 O は、180–75  $\mu\text{m}$  分画で 1570 ppm である (試料 O の <75  $\mu\text{m}$  分画の微量成分元素濃度は、十分な試料量が得られなかったため測定していない)。U1 と L の <75  $\mu\text{m}$  分画の濃度は母岩 IG01 の値 (240 ppm) よりも、5 倍から 10 倍ほど高い値ということになる。

次に、同じ粒径分画での各試料の元素濃度の違いについて述べる。これは、試料採取地点ごとの鉱物組成の不均質性を反映していると考えられる。例えば、1000–500  $\mu\text{m}$  分画の Na<sub>2</sub>O, CaO, K<sub>2</sub>O, Sr 濃度は試料間の差が著しく大きい。また、試料 O は苦鉄質鉱物に含まれる元素 (TiO<sub>2</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> など) が、他の試料と異なる粒径別変動傾向を示す。よって、採取された河川環境の違いにより、河川堆積物中の鉱物組成の違いが生じていると推測できる。

#### 4-2. Sr 同位体比について

河川堆積物の <sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Sr は 0.70992 から 0.71048 を示した。粒径別に変動をみると、300–180  $\mu\text{m}$  もしくは 180–75  $\mu\text{m}$  分画で最小値を示す凹型の濃度変動であった。また、各試料の 500–300, 300–180, 180–75  $\mu\text{m}$  分画は、非常に近い値を示した (図 3)。500–75  $\mu\text{m}$  分画の <sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Sr は、母岩の値である 0.71011 (4091) および 0.71022 (IG01) より低い値を示した。

同じ粒径分画の <sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Sr が試料により異なるのは、元素濃度の結果から明らかな通り、河川水の流速などの河床環境の違いが鉱物組成の違いとして反映されていることを示唆している。<sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Sr の地点によるばらつきは 300–180  $\mu\text{m}$  分画 (0.70992–0.70995) で最も小さい。

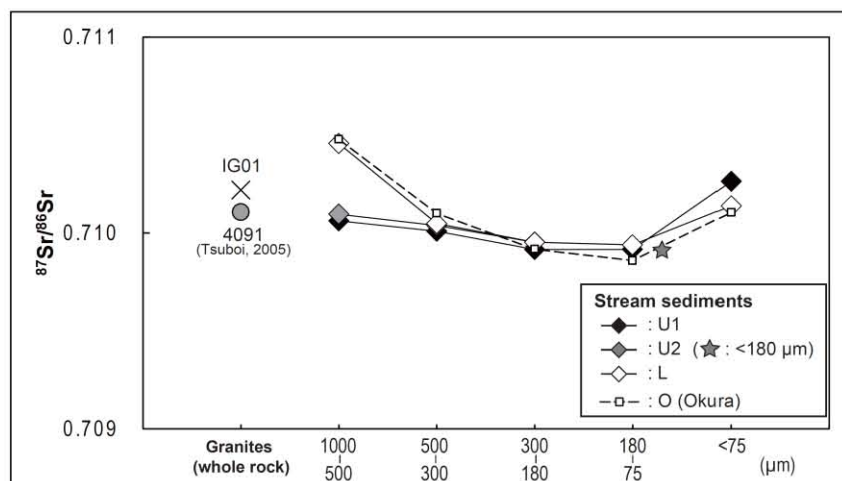


図 3. 伊奈川花崗岩 IG01, 4091 (Tsuboi, 2005) と河川堆積物の各粒径分画の Sr 同位体比。

Fig. 3. The <sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Sr values of stream sediments according to the grain-size classification and the whole-rock data from Inagawa granite samples IG01 and 4091 (Tsuboi, 2005).

Sr は元素の中でも化学的風化により溶出しやすいため、河川堆積物の <sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Sr および Rb/Sr に、化学的風化の程度の違いが反映されることが予測された。そこで、河川堆積物の <sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Sr と算出した <sup>87</sup>Rb/<sup>86</sup>Sr をプロットし、Tsuboi (2005) により報告された 4091 の各鉱物および全岩の値および鉱物アイソクロンとの比較を行った (図 4)。もし化学的風化を全く受けていない試料であれば、母

岩のアイソクロンに乗るか、平行にプロットされるはずであるが、本研究で採取された河川堆積物は、特に粗粒部において、アイソクロンの右下の領域にプロットされており、化学的風化の影響が予想された。この要因としては、 $^{87}\text{Sr}$  の溶出および  $\text{Sr}$  の  $\text{Rb}$  に対する優先的溶出が考えられる。前者については、Stille and Shields (1997) により、黒雲母から溶解の初期段階で  $^{87}\text{Sr}$  が放出されることが報告されており、本研究の試料においてもその影響が現れたものと考えられる。1000–500  $\mu\text{m}$  分画の XRD パターンにおいて、黒雲母が風化して生成したパーミキュライトのピークが確認されるため、これはこの考察を補強するデータと言える。

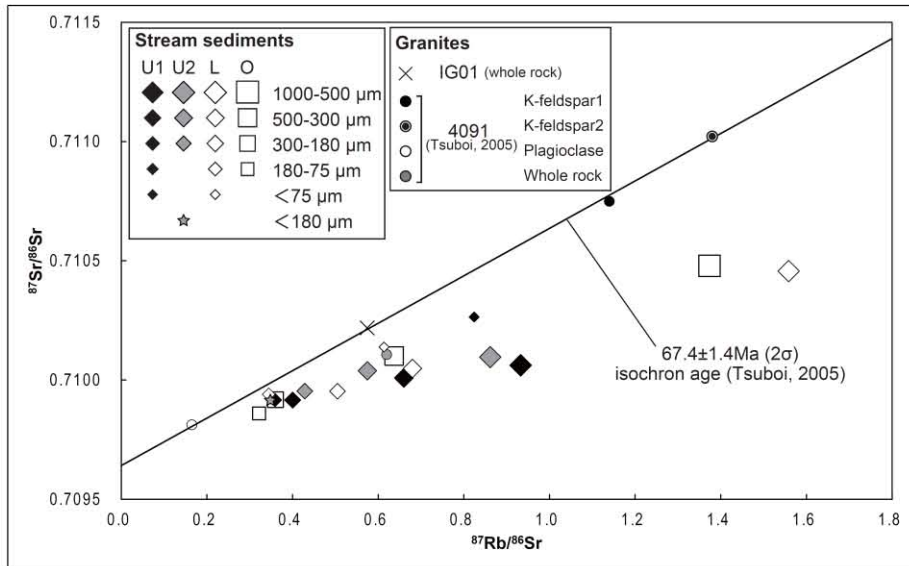


図4 伊奈川花崗岩 IG01, 4091(Tsuboi, 2005) と河川堆積物の  $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ - $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ .  $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$  は元素濃度と同位体組成から算出した値。

Fig. 4. Plots of  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  versus  $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$  for the stream sediments and Inagawa granite samples IG01 and 4091 (Tsuboi, 2005). The  $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$  values were calculated by using the isotopic composition.

そこで、河川堆積物の風化程度の違いを粒径別に判断するため、Nesbit and Young (1982) により提唱された長石の風化度を概略的に評価できる Chemical index of alteration (CIA) を用いて考察した。CIA 値は  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{CaO}$ ,  $\text{Na}_2\text{O}$ ,  $\text{K}_2\text{O}$  から求めることができ、計算式は  $\text{Al}_2\text{O}_3/(\text{Al}_2\text{O}_3 + \text{CaO}^* + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O})$  で示される。 $\text{CaO}^*$  は珪酸塩成分に含まれる  $\text{CaO}$  を指している。また、McLennan (1993) による補正計算に従った。鉱物中の  $\text{Al}_2\text{O}_3$  が移動しにくい為、CIA 値は風化が進むほど増加する。伊奈川花崗岩 IG01 の CIA 値計算結果は 55 であり、これは新鮮な花崗岩の値といわれる 45 から 55 内の値である。それに対し、河川堆積物の CIA 値は母岩よりも高く、58 から 73 を示す。また、3 つの試料の変動パターンは凹型であり、1000–500  $\mu\text{m}$  から 300–180  $\mu\text{m}$  分画にかけて減少し、300–180  $\mu\text{m}$  から <75  $\mu\text{m}$  分画にかけて増加する。このことから、500–75  $\mu\text{m}$  分画が他の分画よりも比較的新鮮であることが予測される。これは、図 4 にいて 1000–500  $\mu\text{m}$  分画が細粒分画と比較し、より化学的風化を受けていると推察されたことと調和的である。

このような粒径分画による化学的風化度の差は、粒子の運ばれやすさが粒径により異なることで生じていると考えられる。碎屑物粒子の流水中の動きやすさはユルストローム図等で明らかにされており、後年 Sundborg (1956) などによってさらに詳細な検証が行われた。Sundborg (1956) によれば、河床に運ばれ一度堆積した河川堆積物粒子は、粗粒砂以上の大きさでは流速が約 50cm/s 以上でなければ動き出さず、シルト・粘土の細粒粒子においても、静電気力が働き粒子同士が結着するため動きにくいとしている。よって、最も動きやすい粒子は中粒砂から極細粒砂であると結論付けられている。つまり、中粒砂から極細粒砂は、他の粒径の粒子と比較し動きやすく、常に河川水によって攪乱されていることになる。このことから、1000–500  $\mu\text{m}$  分画が最も化学的風化を受けているのは、平常時の流速では動かず、その場にとどまり長期間河川水と反応しているためと考察することができる。さらに、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  と元素濃度が 300–180 および 180–75  $\mu\text{m}$  という、中粒砂から極細粒砂の粒径に当たる分画で最も地点間の値の差が小さくなったのは、この粒径の粒子が平常時の



流速でも十分に攪乱され、試料の不均一性が小さくされたためと推測できる。

## 5. まとめ

河川堆積物の粒径別の元素濃度からは、一地点で採取されたものであっても、粒径を篩い分ければ、それぞれの粒径分画で鉱物組成が著しく異なっていることが明らかとなった。一方で、河床環境などの採取条件が異なる試料であっても、地点間の元素濃度差は、180–75 $\mu\text{m}$  分画で最も小さかった。これは、この粒径分画を用いることで、採取状況に依存しない安定した元素濃度を得られることを示している。よって、本研究からは、元素濃度地球化学図に最も適しているのは 180–75 $\mu\text{m}$  分画と言える。粒径別  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  については、主成分鉱物組成の変動があっても、得られた値は 0.70986–0.71048 であり変動幅は非常に小さかった。また、300–180  $\mu\text{m}$  分画での試料間の値のばらつきが最も小さいため、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  地球化学図に用いるには 1000–500, <75  $\mu\text{m}$  分画は避け、中粒分画を用いるのが適していると言える。

## 謝辞

本研究を行うにあたり、Sr 同位体比測定および X 線回折測定については、名古屋大学環境学研究科浅原良浩助教・加藤丈典准教授にそれぞれお世話になりました。ここに記して感謝を申し上げます。また、本研究は JSPS 科研費（基盤研究（B）No.22300308）の助成を受けて行ったものです。

## 引用文献

- 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・金井登・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．209 p.
- Jomori, Y., Minami, M., Takeuchi, M., Ohta, A. (2013) Spatial distribution of  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  ratios of stream sediments in Shikoku Island and the Kii Peninsula. *Geochemical Journal* 47, 321–335.
- McLennan, S. (1993) Weathering and global denudation. *Journal of Geology* 101, 295–303.
- 中崎峰子・壺井基裕・金川和世・加藤丈典・鈴木和博（2004）名古屋大学博物館報告 20, 79–91.
- Nesbitt, H. W., Young, G. M. (1982) Early Proterozoic climates and plate motions inferred from major element chemistry of lutites. *Nature* 299, 715–717.
- 産業技術総合研究所地質調査総合センター（編）（2012）20 万分の 1 シームレス地質図 2012 年 9 月 12 日版, 産業技術総合研究所.
- Stille, P., Shields, G. (1997) Radiogenic isotope geochemistry of sedimentary and aquatic system, p217. Springer-Verlag, Berlin.
- Sundborg, Å. (1956) The river Klaräven, A study of fluvial processes. *Geografiska Annaler* 38, 125–316.
- Tsuboi, M. (2005) The use of apatite as a record of initial  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  ratios and indicator of magma processes in the Inagawa Pluton, Ryoke belt, Japan. *Chemical Geology* 221, 157–169.
- 山田直利・片田正人・坂本亨・松田武雄・須田芳朗（1972）1/200000 地質図，豊橋第 2 版，地質調査所

## 日本語要旨

我々は、粒径別に篩い分けた花崗岩起源河川堆積物の粒径別元素濃度・ $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  変動を明らかにした。ほとんどの元素は粒径分画により濃度が変動し、鉱物組成の違いを反映している。 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  については、全粒径分画の値が 0.7099–0.7105 と変動が小さく、地点別変動が最も小さいのは 300–180  $\mu\text{m}$  分画 (0.70992–0.70995) であった。本研究結果から、河川堆積物により地球化学図の作成を行う場合には、中粒砂から極細粒砂の粒径分画を用いるのが適していると結論付けられる。