濃尾平野完新統中の重金属元素濃度と分布の特徴

若 林 徹^{*,†} 須 貝 俊 彦^{*}
笹 尾 英 嗣^{**} 大 上 隆 史^{***}

Characteristics of the Contents and Distribution of Heavy Metals of Holocene Alluvial Sediments on the Nobi Plain, Central Japan

Toru WAKABAYASHI^{*,†}, Toshihiko SUGAI^{*},
Eiji SASAO^{**} and Takashi OGAMI^{***}

Abstract

To elucidate the background value and distribution of natural heavy metals in Holocene alluvial sediments, we examined the heavy metal contents (MnO, Fe₂O₃, Ni, Cu, and Zn) of five sediment cores drilled at various locations on the Nobi Plain, central Japan using an XRF analysis. The amounts of heavy metals were in proportion both to the amounts of clay fraction and Al₂O₃ contents of sediments. Ni, Cu, and Zn contents were higher in the clay mineral fraction than in the other fraction when applying the elutriation method. This suggests that Ni, Cu, and Zn are adsorbed onto the clay minerals. MnO was especially enriched in several horizons. This might be affected by its oxidized-reduced state. In addition, there is little difference in the heavy metal contents of terrestrial and marine sediments.

Most of the heavy metal contents of samples studied were lower than those of the modern riverbed sediments from Imai *et al.*, (2004). High concentrations of Cu were observed in subsurface sediment. These anomalous high concentrations of Cu are presumably due mainly to anthropogenic pollutions.

Key words : natural heavy metals, XRF analysis, drilling cores, alluvium, Nobi plain, Holocene
キーワード : 自然起源重金属, XRF 分析, ボーリングコア, 沖積層, 濃尾平野, 完新世

I. はじめに

2010 年に土壤汚染対策法が改正され, ヒトへのリスク回避という観点から, 人為起源に加えて自然起源の重金属であっても高濃度の場合は汚染

土壌として処理の対象に含まれるようになった。このことから, 自然起源の重金属への関心が高まっていると考える。これまで, 自然起源の重金属元素に着目した研究が数多く行われてきた。例えば, 現成の堆積物を対象に有害元素を含む 53

* 東京大学大学院新領域創成科学研究科自然環境学専攻

** 独立行政法人日本原子力研究開発機構地層処分研究開発部門

*** 中央大学理工学部

† 現所属 : 応用地質株式会社中部支社ジオテクニカルセンター

* Department of Natural Environmental Studies, Graduate School of Frontier Science, The University of Tokyo, Chiba, 277-8563, Japan

** Geological Isolation Research and Development Directorate, Japan Atomic Energy Agency, Gifu, 509-5102, Japan

*** Faculty of Science and Engineering, The University of Chuo

† Present address: Geo-technical Center, Chu-bu Office, OYO Corporation, Nagoya, 463-8541, Japan

元素の地球化学図が描かれ（今井ほか, 2004, 2010）、元素の化学形態分析に基づく重金属元素のリスク評価が行われている（Ohta *et al.*, 2007）。また、自然由来の原因に起因する土壤汚染に関する情報整備を目的とした土壤・地質汚染評価基本図が作成され、自然由来の土壤汚染の実態と発生メカニズム、および健康影響へのリスク評価が行われつつある（丸茂, 2007）。しかし、従来の研究は現成の土壤や河川堆積物、少数のボーリング試料に基づくものがほとんどである（今井ほか, 2004; 加田平ほか, 2009 など）。ごく表層堆積物に加えて、やや深部の堆積物を対象とした重金属元素濃度の鉛直分布や地理的な分布が復元されれば、自然起源の重金属元素がどのように分布し、どのような地形に濃集しやすいのかを明らかにするための知見が得られると考えられる。

湿潤変動帯に位置する日本においては、人口や産業が沖積平野に集中することから、沖積平野を形成する沖積層中の重金属元素の研究を行う意義は大きい。河川卓越型の沖積平野の模式地としてとりあげられることの多い濃尾平野では、三次元的な堆積相分布と各堆積相の堆積年代が詳細に明らかにされている（山口ほか, 2006; 大上ほか, 2009）。このため、濃尾平野は、堆積相を考慮した堆積物中に含まれる重金属元素の地理的分布の変遷を理解するのに適している。しかし、濃尾平野を構成する完新統に、重金属元素がどの程度含まれているかを検討した研究はほとんどない。そこで、本研究では、濃尾平野の沖積低地で掘削された5本のオールコアを対象として、約1万年前から現在までの堆積物中に含まれる重金属元素を定量分析して、完新統に含まれる重金属元素の濃度分布を明らかにすることを目的とした。

一般的に粗粒堆積物と比較して、シルトや粘土などの細粒堆積物中の重金属濃度が高い（飯村, 1979 など）。また、大河川の流域において堆積した碎屑物は、山地から遠く離れた地点においては均質化されており、化学組成を支配する要因は主として堆積物の粒度組成であるとされている（寺島ほか, 2004）。さらに、寺島ほか（2008）は、河川堆積物において、Si 以外の主成分および微

量元素は、Cu を除いて概括的には粒度の細粒化に伴って高濃度になること、海底堆積物においても多くの元素は粒度の細粒化に伴って高濃度になるが、海底堆積物のシルト～砂質堆積物には Mn が濃縮されている場合があることを指摘している。今井（1987）は粘板岩地域において河床堆積物を採取分析し、400 メッシュ（0.038 mm）以下に、銅、鉛、亜鉛、クロムが多く、これら重金属に富む微小な不透明鉱物の割合が高いことを報告している。また、Manaka（2006）は、森林土壌に対して、As, Bi, Sb の微量元素が層状ケイ酸塩ではなく非晶質鉱物中に入っている可能性を指摘している。

上記を踏まえ、コア堆積物中に含まれる重金属元素の濃度分布を規定する要因について、堆積物の粒度に着目して検討する。さらに、水ひ法を用い、あらかじめ粘土とそれ以外に分別し両者の重金属の濃度を比較することで、上記の検討結果が正しいかどうか検証する。対象とした重金属元素は、チタン（TiO₂）、マンガン（MnO）、鉄（Fe₂O₃）、ニッケル（Ni）、銅（Cu）、亜鉛（Zn）である。これらは、堆積物中に普遍的に含まれ、後述する波長分散型蛍光 X 線装置によって補正が不要で、比較的簡単に定量測定可能な元素である。なお、元来チタンは重金属に含まれないが、堆積物中に普遍的に含まれる元素であるためチタンも対象とした。

II. 調査地域と対象試料

濃尾平野では沖積低地が卓越し、上流側から、扇状地、自然堤防帯、デルタ地形が配列する（図 1）。濃尾平野は、日本アルプスを後背地にもち、木曽川、長良川、揖斐川などにより、多量の土砂が供給されている。また、濃尾平野は、西側の養老断層の活動に伴い、平均約 1 m/kyr の速さで沈降してきた（須貝・杉山, 1999）。このように堆積作用と沈降運動の活発な平野の堆積物中には、後氷期の海進に伴って堆積した内湾性の泥層が広く挟在している（山口ほか, 2006）。濃尾平野ではこの内湾性の泥層を貫く複数のオールコアボーリングが掘削されている。そのなかから、平

図 1 濃尾平野の位置図，地形分類図（井関，1985）およびコアの位置図。

Fig. 1 Location and topographical division (Iseki, 1985) of the Nobi Plain, and location of drilling cores studied.

野の広範囲を網羅できるように北から岐阜県大垣市で2004年に掘削されたAN（掘削長44.3 m），愛知県稲沢市で2004年に掘削されたKM（掘削長40 m），愛知県清洲市で2004年に掘削されたNK（掘削長26 m），岐阜県海津市で2003年に掘削されたKZN（掘削長47 m），愛知県弥富市で2006年に掘削されたYM（掘削長49.89 m）の計5本のボーリングコアを本研究の対象とした（図1）。

5本のコアの沖積層は，大上ほか（2009），大上（2009）により岩相，堆積構造，粒度，基底面の形状，化石の特徴をもとに，下部からAからEの5つの堆積相に区分されている（図2）。堆積相Aは陸成層で碎屑物支持の円礫層を主とする河川流路堆積物である。堆積相Bは陸成層で砂泥互層を主とする河口低地堆積物である。堆積相Cは海成層で泥質な内湾堆積物である。堆積相Dは海成層で上方粗粒化を示す砂質なデルタフロント堆積物である。堆積相Eは陸成層で

図 2 コアの柱状図，堆積相，およびサンプリング地点。

Fig. 2 Columnar sections, sampling points and lithofacies of the drilling cores studied.

有機物や植物根を多く含むシルト層を主とし斜交層理が発達する砂層を挟むデルタプレーン堆積物である。各堆積相の粒度，堆積構造，および堆積環境に関して表1にまとめた。なお，堆積相Aの礫種組成に関しては，KZNの近傍で採取されたKZコア（須貝・杉山，1999）に対して礫種分析がなされ，チャート，砂岩，礫岩，濃飛流紋岩が主で，泥岩，花崗岩，安山岩，流紋岩もわずかに含まれる（佐藤ほか，2006）。ただし，本稿で

表 1 各堆積相区分の粒度，堆積構造，堆積環境。

Table 1 Grain size and depositional structure and environment of each sedimentary unit.

Facies Classification	Sedimentary Facies	Geomorphology Stratigraphy
Facies E	Altermation of Sand/Mud	Delta Plain/Flood Plain
Facies D	Well Sorted Sand	Delta Front Platform
	Coarsing Upward Silt-Sand	Delta Front Slope
Facies C	Massive Silt-Sand	Bay
	Massive Mud	
	Finning Upward Sand-Silt	
Facies B	Alternation of Sand/Mud	Estuary/Delta Plain
	Alternation of Sand/Mud	Flood Plain/Delta Plain
Facies A	Gravel	Alluvial Fan/Braided River Channel

対象とする 5 本のコアに関しては，堆積相 A に到達したことが確認できた時点で掘削を終了しているため，堆積相 A のコアの層厚は 1 m 以下にとどまっており，十分な量が採取できていない。また，マトリックスが不攪乱で採取できているコアが限られているため，本稿では堆積相 A は分析対象外とした。

III. 方 法

1) 粒度分析

粒度分析には，鳥津製作所レーザー回折式粒度分析装置 SALD3000S（測定範囲 0.08 ～ 3,000 μm ，受光部素子数 79 素子）を用いた。分析試料はコアの深度方向に 5 ～ 10 cm 間隔でおおむね 2 mm 以上の礫を含まないように採取した。測定は全量分析で行い，中央粒径（ ϕ ），シルト画分（%），粘土画分（%）および淘汰度を算出した。測定試料数は，AN コアが 268 試料，KM コアが 315 試料，NK コアが 173 試料，KZN コアが 896 試料，YM コアが 475 試料である。

2) 鉱物組成分析

2-1) 測定試料の前処理

対象試料は，コア深度 1 m ごとに層厚 5 cm の範囲を採取した（図 2）。堆積相内において層相が著しく変化する場合には，変化する上下の層準からも試料を採取した。測定試料数は，AN コア

が 41 試料，KM コアが 37 試料，NK コアが 23 試料，KZN コアが 45 試料，YM コアが 52 試料の合計 198 試料である（図 2）。試料に含まれる貝殻片や材を可能な限りピンセットでとり除いた後，恒温乾燥器を使用して試料を 110℃ で，48 時間以上加熱乾燥させた。次に，内側がアルミナ製の粉碎ミルと粉碎機を使用して約 6 分間試料を粉碎した。この粉碎試料をガラス製試料ホルダーに詰め，不定方位試料とした。この粉碎試料は，次に述べる XRF 分析にも用いた。

また，粉碎試料に対し，水ひ処理を行った。水ひ処理には，粉碎試料を蒸留水中に懸濁させた懸濁液を 8 時間静置して，懸濁浮遊粒子をとりだす回分式分級法を用いた。採取した試料は粘土であり，微細な碎屑性の石英や長石なども含む可能性が高いが，層状ケイ酸塩鉱物や非晶質ナノ粒子を主体としていると考えられる。そこで，水ひ処理した試料を便宜上，「粘土鉱物画分」と呼びこれ以降，粒度分析で求めた「粘土画分」と区別する。この粘土鉱物画分をスライドガラス上に沈着させ自然乾燥させた後，定方位試料とした。定方位試料作製には，比較的粘土分の多い試料を用いた。すなわち，堆積相 B（AN コアの 35 m，KZN コアの 41 m，YM コアの 39 m），堆積相 C（AN コアの 30 m，KM コアの 24 m，KZN コアの 20 m，YM コアの 20 m，32 m），堆積相 E（AN コ

アの3 m, KZN コアの3 m) である。なお、あまり粘土分が含まれていないNK コアや堆積相Dでは、元素組成分析を行うのに十分な量の試料が採取できなかったため、分析対象外とした。

2-2) 鉱物組成の同定 (XRD 分析)

不定方位試料、および定方位試料に対して、X線回折装置 (リガク製 Multiflex) を使用し、鉱物組成分析を行った。測定条件は、管電圧が40 kv、管電流40 mAで、走査条件は、走査間隔0.02°, 走査速度1°/分とし、走査範囲は、 $2\theta = 2 \sim 70^\circ$ とした。測定試料数は、不定方位試料が合計188試料 (AN コア39試料, KM コア34試料, NK コア20試料, KZN コア45試料, YM コア50試料)、定方位試料が前述した10試料である (AN コア3試料, KM コア1試料, KZN コア3試料, YM コア3試料)。主要鉱物の同定は、測定結果を平滑化し、バックグラウンド除去およびピークサーチを行った後に、ICDD のデータベース pdf2 を用いて行った (若林ほか, 2010)。

3) 元素組成分析

3-1) 測定試料の前処理

XRD 分析に供した粉碎試料を、内径35 mm、高さ5 mmの塩化ビニルリング中に入れ、タングステンカーバイト製のダイスに挟んで、プレス機を使用して200 KNの圧力で、タブレットを加圧成形した。同様に後述する検量線作成のための標準試料に関してもタブレットを加圧成形した。2-1)節で述べた粘土鉱物画分、および水ひ法により沈殿した沈殿物も同様にタブレットを加圧成形した。

3-2) 定量分析 (XRF 分析)

重金属元素および主成分元素分析には波長分散型蛍光X線装置 (リガク製 ZSX-Primus II) を使用した。X線管球はRh管球 (4.0 kW) を用い、測定電圧と電流は50 kV, 60 mAとした。試料ホルダーには、内径30 mmの試料マスクを使用した。対象成分は、酸化物のSiO₂, Al₂O₃, TiO₂, MnO, Fe₂O₃と元素のNi, Cu, Znとした。SiO₂とAl₂O₃の測定には、分光結晶にベンタエリストリトール (PET) を、検出器に比例計数管 (PC) を使用した。その他の成分につい

ては分光結晶にはフッ化リチウム (LiF) を、検出器にはシンチレーション計数管 (SC) を使用した。

検量線作成のための標準試料には、産業技術総合研究所で作製されている岩石標準試料のうち、次に記す16種類を使用した。すなわち、火成岩4種 (JA-3, JF-2, JGb-1, JSy-1)、堆積物・堆積岩10種 (JLs-1, JDo-1, JSI-1, JSI-2, JCh-1, JIk-1, JSd-1, JSd-2, JSd-3, JMS-1)、鉱石2種 (JMn-1, JCu-1) である。これらの標準試料に関しても測定試料と同様の方法によって、タブレットを加圧成形した。なお、各元素について検量線作成に使用した標準試料を表2にまとめた。各試料の標準値 (推奨値および参考値) は、産業技術総合研究所のホームページの岩石標準試料データベース (<http://riodb02.ibase.aist.go.jp/geostand/welcomej.html>) に掲載されている値を用いた。定量分析には、標準試料を測定し各元素の強度を得たのち、理論マトリックス補正を行い標準値を補正して検量線を作成した (図3)。なお、日本原子力研究開発機構東濃地科学センター所有のICP-MSにより、同試料の定量分析を行い、クロスチェック済みである。

IV. 結 果

1) 粒度分析

各コアにおける中央粒径の鉛直変化を図4に示す。中央粒径の測定値は、7.92 ~ 0.78φ (約4 ~ 1,700 μm) の範囲であった。図4に、柱状図、各元素濃度の鉛直変化を示した。砂泥互層である堆積相Bでは粒径変化が大きい。堆積相Cの粒径は細粒ではほぼ一定である。堆積相CとDの境界付近から粒径が上方粗粒化する。堆積相Dは全体的に粗粒であり、層内で上方粗粒化する。堆積相Eは、堆積相Bと同様に砂泥互層を主とする堆積物から構成され、粒径変化が大きい。

堆積相ごとに中央粒径および粘土画分の基礎統計量を表3に示し、平均値に着目して堆積相間の比較を行った。海成層である堆積相C、Dのうち、堆積相Cは、堆積相B ~ Eのなかで中央粒

表 2 元素分析に使用した岩石標準試料.

Table 2 List of rock standard samples used for the XRF calibration curves of each element.

	SiO ₂ (%)	Al ₂ O ₃ (%)	TiO ₂ (%)	MnO (%)	Fe ₂ O ₃ (%)	Ni (ppm)	Cu (ppm)	Zn (ppm)
JA-3	*	*	*	*			*	*
JF-2	*	*	*	*	*	*	*	*
JGb-1	*	*						*
JSy-1			*	*	*	*	*	*
JLs-1	*	*	*	*		*	*	*
JDo-1	*	*	*	*	*	*	*	*
JCh-1		*	*	*	*	*	*	*
JLk-1	*	*	*		*	*	*	*
JSd-2	*	*	*	*				
JSd-3	*		*	*	*	*	*	*
JMS-1	*	*	*	*		*	*	*
JMn-1	*							
JCu-1		*	*

図 3 XRF 分析による岩石標準試料を用いた主成分と重金属の検量線.

Fig. 3 Calibration line for major elements and heavy metals using rock standard samples with an XRF analysis.

径 (ϕ) の平均値が最大で、粘土画分は最多である (表 3)。堆積相 D は、中央粒径の平均値が最小で、粘土画分は最少である (表 3)。一方、陸成層である堆積相 B, E はともに、砂泥互層を主とする堆積物のため、粒径の特徴は類似している (表 3)。堆積相 B, E の中央粒径と粘土画分の平

均値は、細粒な堆積相 C と粗粒な堆積相 D の間の値を示す (表 3)。

2) 鉱物組成分析

堆積相ごとの代表的な XRD チャートを図 5 (左：不定方位試料, 右：定方位試料) に示す。不定方位試料において、強度は異なるものの、

図 4 5 本のコアの柱状図，堆積相，堆積物の中央粒径と元素濃度の鉛直変化。

Fig. 4 Columnar sections, sedimentary facies, and vertical variations in median (ϕ) of grain size and in element concentrations of five drilling cores.

表 3 各堆積相の粒径 (ϕ) と粘土含有率の分析結果.Table 3 Analytical data for median (ϕ) and clay content (%) in each sedimentary facies.

Facies (Number)	Median (ϕ)				Clay (%)			
	E (204)	D (652)	C (827)	B (444)	E (204)	D (652)	C (827)	B (444)
Max	7.82	7.56	7.92	7.94	45.7	40.7	48.2	48.6
Min	-0.78	0.00	1.24	-0.21	0.0	0.0	0.0	0.0
Average	4.29	2.83	6.73	4.05	14.4	5.7	30.8	10.8
Standard Deviation	2.50	1.83	0.87	1.97	13.5	7.6	7.7	10.3
Median	5.41	2.18	6.96	4.33	14.1	0.2	31.9	8.9
Mode	1.10	1.40	7.10	1.70	0.0	0.0	35.0	0.0
Variance	6.26	3.34	0.76	3.87	182.5	57.2	59.3	107.0

XRD チャートのピーク位置はおおむね一致した (図 5)。すなわち、完新統は、石英を多量、長石類を中量、鉄含有鉱物、黄鉄鉱および粘土鉱物類 (緑泥石、雲母類) を少量含む (若林ほか, 2010)。黄鉄鉱は、堆積相 B, C で認められ、堆積相 E では認められない。また、定方位試料は、微細な碎屑性の石英や長石などを主体としつつも、粘土鉱物類 (緑泥石、雲母類) 含むことを明確に示している。さらに、スメクタイトの存在も示唆された (若林ほか, 2010)。

3) 元素組成分析

5 本のコアにおける元素濃度の鉛直変化を図 4 に示す。重金属濃度は細粒な層準で高く、粗粒な層準で低い傾向を示す (図 4)。SiO₂ はこれと逆の関係を示す。MnO は他の重金属元素と類似した濃度分布を示すが、一部異なった傾向を示す。例えば、AN コアの 1 m, 19 m, 35 m, 38 m, KZN コアの 10 m, 32 m, 42 m, 44 m の層準で高濃度を示す (図 4)。

堆積相ごとに各成分濃度の基礎統計量を表 4 に示し、平均値に着目して堆積相間の比較を行った。なお、5 本のコアのうち AN コアのみ、他のコアと比較して Al₂O₃, TiO₂, Fe₂O₃ などの一部の成分に関して異なる濃度範囲を示す。本稿では、コア間の違いよりも堆積相間での濃度の違いが大きいことから、堆積相ごとの濃度の特徴について検討する。

内湾堆積物である堆積相 C では、Cu を除くすべての重金属の平均濃度が最も高い (表 4)。デルタフロント堆積物である堆積相 D では、SiO₂ 濃度が高く、各重金属成分の平均濃度が最も低い (表 4)。また、海成層である堆積相 C, D では各成分濃度の変動が小さい。

一方、河口低地堆積物である堆積相 B やデルタプレーン堆積物である堆積相 E では、重金属の平均濃度は、堆積相 C と D の間の値を示し、重金属濃度の変動が大きい (表 4)。ただし、堆積相 E の Cu 濃度は、AN, NK, YM コアのごく表層付近で高濃度を示し、堆積相 B ~ E のなかで最も高濃度を示す。

また、堆積相 B, D, E には、堆積相 C よりも重金属元素濃度が高い層準が認められる。例えば、AN コアの深度 4 m 付近では Ni および Cu 濃度が、AN コアの 39 m 付近では Cu 濃度が、NK の 2 m 付近では Zn 濃度が、KZN の 4 m 付近では Ni, Cu, Zn 濃度が、KZN コアの 45 m 付近では Cu 濃度が、YM の 2 m 付近では Cu 濃度が高い。これらの層準の多くは、有機質なシルトを含む堆積物である。

4) 堆積物の粒度組成と各元素濃度との関係

堆積物の粒度組成を示すパラメーターを中央粒径 (ϕ)、含泥率 (シルト + 粘土画分の含量) (%) および、粘土画分 (%) とした。堆積物の中央粒径 (ϕ) と各成分濃度との相関関係を図 6a に、

図 5 代表的な XRD チャート (左: 不定方位試料, 右: 定方位試料).

Fig. 5 Typical XRD chart (left: non-oriented samples; right: oriented samples).

表 4 各堆積相の主成分と重金属の分析結果.

Table 4 Analytical data for major elements and heavy metal contents in each sedimentary facies.

Element Facies (Number)	SiO ₂ (%)				Al ₂ O ₃ (%)				TiO ₂ (%)				MnO (%)			
	E (20)	D (63)	C (78)	B (37)	E (20)	D (63)	C (78)	B (37)	E (20)	D (63)	C (78)	B (37)	E (20)	D (63)	C (78)	B (37)
Max	72.1	77.8	72.7	76.5	18.5	16.5	17.3	19.0	1.04	0.74	0.92	0.84	0.28	0.31	0.24	0.33
Min	52.4	53.1	57.2	56.8	11.1	10.8	13.8	12.6	0.34	0.18	0.36	0.21	0.05	0.03	0.07	0.03
Average	62.3	66.0	62.4	66.3	15.8	14.0	16.2	15.5	0.62	0.48	0.64	0.54	0.10	0.08	0.13	0.09
Standard Deviation	5.2	5.2	1.8	4.2	1.8	1.1	0.6	1.4	0.18	0.13	0.07	0.14	0.05	0.04	0.03	0.06
Median	63.1	64.3	62.1	66.2	16.0	14.1	16.1	15.6	0.60	0.49	0.63	0.53	0.08	0.07	0.12	0.07
Mode	61.1	64.2	62.1	67.5	15.2	14.0	15.9	14.5	0.54	0.54	0.61	0.45	0.06	0.06	0.13	0.05
Variance	26.7	27.2	3.2	17.4	3.3	1.3	0.4	1.9	0.03	0.02	0.01	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00

Element Facies (Number)	Fe ₂ O ₃ (%)				Ni (ppm)				Cu (ppm)				Zn (ppm)			
	E (20)	D (63)	C (78)	B (37)	E (20)	D (63)	C (78)	B (37)	E (20)	D (63)	C (78)	B (37)	E (20)	D (63)	C (78)	B (37)
Max	7.00	5.30	6.36	7.93	35	22	34	36	49	52	43	51	147	104	115	114
Min	2.51	1.42	2.79	1.66	4	3	10	4	5	4	9	5	48	28	58	34
Average	4.55	3.63	5.08	3.98	17	11	23	16	25	13	21	21	94	70	100	82
Standard Deviation	1.20	0.93	0.55	1.21	10	6	5	8	13	8	6	11	26	17	11	20
Median	4.80	3.67	5.15	3.92	17	10	23	14	25	11	20	20	100	71	104	84
Mode	4.20	4.20	5.10	3.90	20	5	26	14	18	5	19	31	110	72	109	95
Variance	1.45	0.86	0.30	1.45	92	33	23	67	172	65	34	117	662	293	116	419

堆積物の含泥率 (%) と各元素濃度との相関関係を図 6b に、堆積物の粘土画分と各元素濃度との相関関係を図 6c にそれぞれ示す。なお、図 6 では堆積相ごとにプロットを区別して示した。

堆積物の中央粒径 (ϕ) と各成分濃度との相関関係 (図 6a) から、各成分は以下の 3 つのグループに分けられる。すなわち、粒度と負の相関関係を示すグループ (SiO₂)、正の相関関係を示すもののうちグラフ上でほぼ直線上にプロットされるグループ (Al₂O₃, TiO₂, Fe₂O₃, Zn) と、データのばらつきが大きい粒径が 4ϕ よりも細粒になると濃度が急増するグループ (MnO, Ni, Cu) である。とくに、堆積相 E や D, B では、全体のトレンドから外れて、高濃度を示す試料が認められる。

堆積物の含泥率 (%) と各成分濃度との相関係数は、それぞれ SiO₂ (-0.64), Al₂O₃ (0.74), TiO₂ (0.66), MnO (0.49), Fe₂O₃ (0.79), Ni

(0.68), Cu (0.62), Zn (0.88) である。SiO₂ のみ負の相関関係を示し、その他の成分はすべて正の相関関係を示す (図 6b)。しかし、その傾向は MnO では顕著でない。また、Ni, Cu などではばらつきが大きい。含泥率が 0% でも SiO₂, TiO₂, MnO, Fe₂O₃, Ni, Cu で高い濃度を示す試料が認められる。また、含泥率が 100% 付近で全体のトレンドよりも高い濃度を示す試料が TiO₂, MnO, Ni, Cu で認められる。

堆積物の粘土画分 (%) と各成分濃度との相関係数は、それぞれ SiO₂ (-0.55), Al₂O₃ (0.79), TiO₂ (0.70), MnO (0.57), Fe₂O₃ (0.78), Ni (0.80), Cu (0.63), Zn (0.83) である。SiO₂ のみ負の相関関係を示し、その他の成分はすべて正の相関関係を示す (図 6c)。この相関関係は前述した含泥率との相関関係よりも高くなる傾向がある。また、粘土画分が 0% でも濃度の高い成分が SiO₂, TiO₂, MnO, Fe₂O₃, Ni, Cu で認めら

堆積物の中央粒径と各元素濃度との関係 (左: a), 粘土含有率と各元素濃度との関係 (中央: b), 粘土画分と各元素濃度との関係 (右: c).

Plots of median versus each elemental content (left: a), silt + clay content vs. each elemental content (middle: b) and clay content vs. each elemental content (right: c) of the samples studied.

図 7 Al_2O_3 濃度と各元素濃度との関係。

Fig. 7 Relationship between Al_2O_3 content and each elemental content.

れる。さらに、粘土画分が 50% 付近で濃度が頭打ちになる傾向が Al_2O_3 , Fe_2O_3 , Zn で認められる。

Al_2O_3 濃度と各成分濃度との相関係数は、 SiO_2 (-0.44), TiO_2 (0.77), MnO (0.36), Fe_2O_3 (0.66), Ni (0.75), Cu (0.73), Zn (0.76) である。 SiO_2 のみ Al_2O_3 と負の相関関係を示し、 Al_2O_3 と低い正の相関関係を示す MnO を除いて、他のすべての成分は高い正の相関関係を示す (図 7)。 Al_2O_3 濃度が 10 ~ 13% の範囲では、全体のトレンドよりも高い濃度を示す試料が、 MnO , Fe_2O_3 の堆積相 D で認められる。また、 Al_2O_3 濃度が 15 ~ 19% の範囲では、全体のトレンドよりも低い濃度を示す試料が、 MnO , Fe_2O_3 , Zn の堆積相 B で認められる。

5) MnO , Fe_2O_3 と各元素との関係

MnO と Fe_2O_3 は、酸化・還元反応に伴って再移動することが指摘されている (Karabassi and Shankar, 2005)。これら成分濃度と各成分濃度との相関関係を調べた (図 8)。 MnO 濃度と各成分濃度との相関係数は SiO_2 (-0.46), Al_2O_3 (0.35), TiO_2 (0.51), Fe_2O_3 (0.71), Ni (0.58), Cu (0.37), Zn (0.48) である。また、 Fe_2O_3 濃度と各成分濃度との相関係数は、 SiO_2 (-0.80),

Al_2O_3 (0.65), TiO_2 (0.85), MnO (0.71), Ni (0.80), Cu (0.66), Zn (0.82) である。とくに TiO_2 , Zn は Fe_2O_3 と高い正の相関関係を示す (図 8)。

6) 水ひ法による沈殿物と粘土鉱物画分の元素組成分析

堆積相 B, C, E の各試料に対して、各成分ごとに採取した沈殿物の元素濃度を横軸に、粘土鉱物画分の元素濃度を縦軸に示した (図 9)。 SiO_2 は沈殿物中に多く、 TiO_2 は両者に均一、 MnO , Fe_2O_3 も一部試料を除けば両者に均一に含まれる。Ni, Cu, Zn はほぼすべての試料で沈殿物よりも粘土鉱物画分中に含まれる。

7) 各成分の濃度頻度分布

全試料を対象とした各成分の濃度頻度分布グラフを、堆積相別に示した (図 10)。各成分のうち Ni のみ多峰性を示し、他の全元素は単峰性を示す。堆積相別の濃度頻度分布においてもサンプル数の少ない堆積相 E を除けば、堆積相 B, C, D の濃度頻度分布は単峰性を示す場合が多い。堆積相 B や E の濃度頻度分布のばらつきは大きく、堆積相 C, D のばらつきは小さい (表 4)。重金属の最頻値は堆積相 D では低く、堆積相 C では

図 8 Fe_2O_3 濃度, MnO 濃度, それぞれに対する各元素濃度.

Fig. 8 Relationship between Fe_2O_3 (%) and MnO contents for each element content of the samples studied.

高い。堆積相 B では, SiO_2 , MnO, Fe_2O_3 の最頻値は堆積相 D に類似するが, その他の成分ではすべての堆積相の中間的な傾向を示し, 堆積相 B の濃度頻度分布は全試料の濃度頻度分布と比較的類似している。

すべての重金属元素で, 堆積相 D と C の間で, 最頻値を示す濃度に差が認められる。とくに Ni は最頻値の差が最も大きい元素で, 堆積相 D は右に, 堆積相 C は左に歪んだ分布を示す。この

結果は, 図 4 の Ni 濃度が堆積相 C で高く, 堆積相 D や B で比較的低いことと調和的である。粒径が 4ϕ よりも細粒化すると濃度が急増するグループと Ni と違いは, 堆積相 D と C との濃度差が大きいことである (図 6b)。

V. 考 察

1) 重金属元素の存在形態の推定

図 4 の中央粒径と重金属元素濃度の鉛直変化

図 9 水ひ法による粘土鉱物画分と沈殿物中の各元素濃度の比較. 図中に両者の濃度が等しくなる 1 対 1 の線分を示す.

Fig. 9 Comparison of elemental contents of supernatant water and precipitation by elutriation.

図 10 元素濃度頻度分布図.

Fig. 10 Frequency distributions of elemental contents.

から、岩相によらず細粒な層準で重金属元素濃度が高い傾向が読みとれ、重金属元素は細粒な堆積物中に濃集する傾向があると考えられる。図 6a の堆積物の中央粒径と重金属元素濃度との関係でもこの傾向は顕著に認められ、今回対象としたす

べての重金属元素で中央粒径と濃度との間に正の相関関係が認められた。粒径の細粒化に伴う重金属元素濃度の増加は、現成の堆積物を対象とした既往研究でもすでに確認されており、完新統においても同じ傾向があるといえる。とくに、Ni,

Cu は 4φ よりも細粒な堆積物中で高濃度を示す傾向がある。

図 6b の含泥率と重金属元素濃度との関係から、含泥率の増加とともに重金属元素濃度が増加していることから、重金属元素は細粒なシルトや粘土画分に濃集しているといえる。ただし、含泥率が 0% でも高い濃度を示す重金属元素が存在していることから、重金属元素はシルトや粘土にのみ含まれているのではなく、砂サイズの鉱物粒子にも含まれていると考えられる。また、含泥率が 100% 付近で Ni 等の元素で重金属濃度がとくに増加していることから、より細粒な堆積物中で重金属元素が濃集していると考えられる。図 6c の粘土画分と重金属元素濃度との関係は、図 6b の傾向よりも高い正の相関関係を示す。このことから、シルト画分よりも粘土画分中に重金属元素は濃集していることが裏付けされる。

図 7 の粘土鉱物の主成分である Al_2O_3 濃度と重金属元素濃度との関係から、 Al_2O_3 濃度の増加とともに重金属元素濃度が増加している。このことから、重金属元素濃度には細粒な粘土画分、とくに粘土鉱物の存在が関係していると考えられる。ただし、 Al_2O_3 は粘土鉱物に限らず長石などの主要鉱物中にも普遍的に含まれているので、図 6c の粘土画分と重金属元素濃度との相関関係よりも相関が低くなっていると考えられる。

堆積相 D の一部試料で、低い Al_2O_3 濃度に対して、 Fe_2O_3 濃度の高い試料が認められる。これは、粘土鉱物以外の微細な不透明鉱物中に Fe_2O_3 が含まれていることを示していると考えられる。また堆積相 B の一部試料における、高い Al_2O_3 濃度に対して Fe_2O_3 濃度が低い試料は、粘土鉱物からの溶脱を示唆している可能性がある。

MnO と Fe_2O_3 は、酸化・還元反応に伴って再移動することが指摘されている (Karabassi and Shankar, 2005)。一般に、内湾は海岸に近く陸から大量の有機物が供給されるため、堆積物中の溶存酸素は消費され、還元状態を生じているとされる。このため、これらの元素は堆積した後に還元状態により溶出し、二次的に酸化相に移動し濃集した可能性がある。MnO はとくに含泥率、粘

土画分との相関が他元素に比べて低い (図 6b, c)。また、MnO が陸成層中でも高濃度を示す原因には以下が考えられる。氾濫原が海に埋没していく段階で、堆積していた有機物を好気性微生物が分解し溶存酸素が消費され還元状態が生じ、2 価に還元された Mn^{2+} が間隙水中に放出される。その後、酸化的な堆積物表層へ拡散した Mn^{2+} は酸化され、沈殿した結果、濃集すると考えられる。図 5 の XRD チャートにおいて堆積相 B, C で黄鉄鉱が認められており、還元状態の存在を強く示唆している。

また、MnO, Fe_2O_3 などの酸化物ナノ粒子は、さまざまな元素を共沈させるスカベンジング作用を有する (例えば, De Carlo *et al.*, 1998)。MnO と高い正の相関関係を示す元素は Fe_2O_3 である (相関係数 $r = 0.71$)。一方、 Fe_2O_3 は、 TiO_2 , Ni, Cu, Zn と高い正の相関関係 (それぞれ、相関係数 $r = 0.85, 0.80, 0.66, 0.82$) を示す (図 8)。MnO について、駒井ほか (1998) は、底質の表層部では嫌気・好气的条件の変動によって脱吸着をしやすい特異な元素であると述べている。図 4 の鉛直変化においても、MnO は Fe_2O_3 と比較的類似した濃度分布を示すが、一部層準で異なった濃度分布を示している。前述したように MnO が高濃度を示す層準は酸化・還元に伴い、 Mn^{2+} が二次的に濃集した可能性がある。一方、図 5 の XRD チャートのバックグラウンド値が高いことから非晶質である ferrihydrite が多量に含まれている可能性もある。 Fe_2O_3 と高い相関を示す Ni, Cu, Zn に関しては、スカベンジャーとしての ferrihydrite $5 (\text{Fe}_2\text{O}_3) \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ に吸着または固溶している可能性が考えられる。

また、Cu は有機物と強く結びついている場合があり (Whally and Grant, 1994)、 Fe_2O_3 との相関関係がやや低くなっていると推察される。堆積相 B, D, E の一部試料で、堆積相 C よりも Cu 濃度の高い層準が認められるが、それらはシルト層でもとくに有機質な層準であり、そうした層準では Cu の多くが有機物に吸着された形態で存在していると考えられる。

水ひ法により採取された粘土鉱物画分と沈殿物

との成分組成を比較した（図9）。 SiO_2 は沈殿物中に多いことから石英や長石などの粗粒な碎屑物中に多く含まれるといえる。 TiO_2 や MnO 、 Fe_2O_3 は一部試料を除けば両者に均一に含まれることから、粗粒な鉄鉱物等に含まれているだけでなく、それらが微細化した鉱物や粘土鉱物中に含まれていると考える。 Ni 、 Cu 、 Zn はほぼすべての試料で沈殿物中よりも粘土鉱物画分中に含まれることから、これら元素は、粗粒な鉱物中よりも、微細な層状ケイ酸塩粘土鉱物中や非晶質ナノ粒子中に含まれていると考える。

完新統の重金属元素の存在形態はおもには細粒な堆積物、粘土画分、そして粘土鉱物に吸着された形であると考えられる。

2) 堆積環境（陸成・海成）の違いによる重金属元素濃度の違い

図4の中央粒径と重金属元素濃度の鉛直変化から、細粒な層準で重金属濃度が高く、その傾向は岩相によらない。堆積相Cは海成の細粒な堆積物であるが、堆積相BやEの陸成の細粒な堆積物中にも重金属濃度の高い層準が存在しており、その濃度は堆積相Cと変わらない。図6aの中央粒径と重金属濃度との関係においても、堆積物が細粒なほど重金属濃度が高い関係は、海成堆積物である堆積相CやD、陸上堆積物である堆積相B、E間でも変わらない。このことから、陸成と海成の堆積環境による重金属濃度の違いは少ないと推測される。

全試料を対象として元素濃度の分布頻度グラフを、堆積相別に示した（図10）。陸成層である堆積相B、Eは互いに類似した濃度頻度分布を示す（図10）。また、海成層である堆積相C、Dの分布範囲をその濃度範囲に含み、標準偏差が大きい（表4）。堆積相BやEに関して各成分濃度のばらつきが大きい原因として、陸上で堆積物が堆積することにより、堆積物の淘汰が悪いことが考えられる。堆積相C、Dに関して、同じ海成層であるが頻度分布の分布範囲と最頻値に差が認められ、堆積相Cで高く堆積相Dで低い（図10）。ただし、堆積相C、Dどちらも濃度のばらつきは小さく（表4）、海成層では海底で堆積すること

により淘汰がよく粒径変化が小さいためと考えられる。以上のことから、完新統の重金属濃度分布に堆積物が陸成層か、海成層かの違いは、堆積物の粒径の違いほどは影響しないと判断できる。

今井ほか（2004, 2010）では現世の陸成と海成の試料を分析している。今井ほか（2004, 2010）では、元素濃度を自然状態で算出しているため、湿分の多い海成の試料では元素濃度が低くでやすい傾向がある。また、本研究の対象試料と関係の深い濃尾平野内の陸成および、伊勢湾内の海成に限定すると、堆積物の粒径は海成の方が小さく、陸成では人為由来と考えられる都市域の局所的な高濃度範囲を含んでいる。陸成と海成を中央値で比較を行った。陸成の中央値（ $n = 18$ ）は、 Al_2O_3 は7.0%、 TiO_2 は0.71%、 MnO は0.09%、 Fe_2O_3 は4.0%、 Ni は21 ppm、 Cu は33 ppm、 Zn は128 ppmである。海成の中央値（ $n = 22$ ）は、 Al_2O_3 は8.0%、 TiO_2 は0.48%、 MnO は0.10%、 Fe_2O_3 は4.2%、 Ni は30 ppm、 Cu は37 ppm、 Zn は159 ppmである。両者の濃度は、サンプル数は少ないが、非常によく一致している。このことから海成か、陸成かによる違いは少ないことが裏付けされる。

3) 現成との比較と完新統の濃度頻度分布

今井ほか（2004）の日本の地球化学図のうち、濃尾平野内のデータに限定して比較した。今井ほか（2004）によれば、各成分の濃度範囲は Al_2O_3 3.7 ~ 10.2%、 TiO_2 0.38 ~ 1.43%、 MnO 0.04 ~ 0.34%、 Fe_2O_3 1.8 ~ 8.8%、 Ni 8 ~ 138 ppm、 Cu 16 ~ 219 ppm、 Zn 73 ~ 697 ppmである。本研究で分析したコア堆積物中の Al_2O_3 濃度は、今井ほか（2004）現成の河床堆積物中の Al_2O_3 濃度よりも高い。これは、今井ほか（2004）の試料では、本研究で扱う試料よりも粗粒な河床砂を対象としており、本試料よりも粘土鉱物が少ないためと考えられる。また、 TiO_2 濃度は、今井ほか（2004）の濃度レンジよりも若干低く、 MnO 、 Fe_2O_3 濃度は、今井ほか（2004）の濃度レンジに含まれる。一方、 Ni 、 Cu 、 Zn 濃度は、今井ほか（2004）の濃度レンジよりも低い。重金属元素は粘土鉱物に多く含まれると考えられる

ことから、今井ほか（2004）の試料は重金属元素濃度が低いはずである。それにもかかわらず、Ni, Cu, Zn の重金属元素濃度が本研究による値よりも、高い試料が存在する。以上のことから、今井ほか（2004）の試料の重金属元素濃度には、人為による影響が及んでいる可能性がある。また、このことは人為活動に伴って放出される重金属元素がコア中における存在状態とは異なる状態で存在していることを示唆している。

コア堆積物のごく表層付近では、今井ほか（2004）の濃度に及ばないものの、まれに高い重金属濃度を示す。MnO と Cu では、濃度頻度分布図において母集団に対して高濃度の領域で小さなピークが認められる（図 10）。その濃度は本研究で対象とした全試料の平均値+2 σ を超え、+3 σ を超えたものも認められる（図 10）。このような重金属の濃集は、MnO では、AN コアの 1 m および 35 m, KZN コアの 10 m の層準の堆積相 B や D, E に認められる。Cu では、AN コアの 3 m 付近および 39 m, YM コアの 2 m などのおもにごく表層に認められる。MnO は酸化・還元の堆積環境の変化に伴って濃集が生じている可能性があるが、Cu は人為の影響を受けている可能性が考えられる。一方で、これらごく表層付近を除けば、コア堆積物は自然状態での重金属元素の濃度分布を表していると考えられる。これら試料の重金属濃度はすべて平均値+2 σ 以下の領域に含まれる。「平均値+2 σ 」を自然由来の重金属元素濃度の上限と考えると、TiO₂ は 0.85%, MnO は 0.20%, Fe₂O₃ は 6.6%, Ni は 33 ppm, Cu は 38 ppm, Zn は 129 ppm となる。自然状態で堆積した堆積物中に含有される重金属元素濃度の鉛直分布と地理的な分布を把握することによって、人為起源の重金属元素が付加されている地域を空間的に評価することができる可能性がある。この課題については別稿で検討する。

VI. おわりに

濃尾平野完新統を貫く 5 本のオールコア堆積物中に含まれる重金属元素をコア深度 1 m ごとに定量分析し、沖積層に含まれる重金属元素の濃

度分布に関し、以下の知見を得た。

(1) 完新統において重金属元素濃度は堆積物の中央粒径、含泥率、粘土画分、Al₂O₃ 濃度と高い正の相関を示したことから、重金属元素はおもに粘土などの細粒な堆積物中に濃集していることが考えられた。また、水ひ法により粘土鉱物画分のみを採取、分析した結果、Ni, Cu, Zn は粘土鉱物画分に多く含まれていた。このことから Ni, Cu, Zn は、粘土を構成する主成分である層状ケイ酸塩粘土鉱物や非晶質ナノ粒子中に吸着または固溶された状態で存在していることが示唆された。そのほかの存在形態としては、有機物に吸着されている形態が考えられた。MnO は酸化・還元により濃集している可能性がある。

(2) コア堆積物中において、陸成層、海成層の堆積環境の違いは重金属元素濃度に大きな影響を与えていない。

(3) 今井ほか（2004）による現成の河床堆積物の重金属濃度分布と比較した結果、本研究で対象とした試料中の重金属元素濃度は十分に低かった。また、Cu において、全分析値の平均値+2 σ よりも高い濃度を示す層準がコアのごく表層付近に認められた。これらは人為による汚染の影響を受けている可能性が示唆された。

謝 辞

本研究は第一著者が東京大学大学院新領域創成科学研究科自然環境学専攻在学中に行われたものであり、東京大学大学院新領域創成科学研究科自然環境学専攻の諸先生方には終始お世話になった。査読者の一人である名古屋大学名誉教授の田中 剛先生には、粘土鉱物以外の鉱物の検討、XRD による鉱物分析、水ひ法による粘土鉱物画分の重金属濃度分析等、数多くのご指導、助言をいただいた。査読者の一人である産業技術総合研究所の月村勝宏先生には、XRD チャートの見方、非晶質鉱物に関するご指導、助言をいただいた。産業技術総合研究所の藤原治博士には、ボーリング試料の採取・研究手法、結果の解釈について多くのご教示をいただいた。また、東濃地科学センターの各務和彦氏、土居賢一氏（現、島津テクノリサーチ）には、日本原子力研究開発機構の夏季実習生として受け入れていただき、ICP-MS 分析法のご指導、本研究試料の分析お

よびクロスチェックをさせていただいた。以上の方々に深く感謝する。

文 献

- De Carlo, E.H., Wen, X-Y. and Irving, M. (1998): The influence of redox reactions on the uptake of dissolved Ce by suspended Fe and Mn oxide particles. *Aquatic Geochemistry*, **3**, 357-389.
- 飯村康二 (1979): 重金属と土壌・粘土: 重金属による土壌汚染をめぐる諸問題. 粘土科学, **19**, 81-90.
- [Iimura, K. (1979): Reaction of heavy metals with soils and clays: Problems on heavy metal pollution of soils. *Clay Science (Nendo Kagaku)*, **19**, 81-90. (in Japanese with English abstract)]
- 今井 登 (1987): 誘導結合プラズマ発光分析法による河川たい積物の分析. 分析化学, **36**, T41-45.
- [Imai, N. (1987): Multielement analysis of stream sediment by ICP-AES. *Bunseki Kagaku*, **36**, T41-45. (in Japanese with English abstract)]
- 今井 登・太田充恒・岡井貴司・上岡 晃・金井 豊・立花好子・谷口政碩・寺島 滋・富樫茂子・松久幸敬・御子柴 (氏家) 真澄 (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, 157-165. [Imai, N., Ohta, A., Okai, T., Kamioka, N., Kanai, Y., Tachibana, Y., Taniguchi, M., Terashima, S., Togashi, S., Matsuhisa, Y. and Mikoshiba (Ujiie), M. (2004): *Geochemical Map of Japan*. Geological Survey of Japan, AIST, 157-165. (in Japanese)]
- 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. 207p. [Imai, N., Terashima, S., Ohta, A., Mikoshiba (Ujiie), M., Okai, T., Tachibana, Y., Ikehara, K., Katayama, H., Noda, A., Togashi, S., Matsuhisa, Y., Kanai, N. and Kamioka, N. (2010): *Geochemical Map of Sea and Land of Japan*. Geological Survey of Japan, AIST, 207p. (in Japanese)]
- 井関弘太郎 (1985): 濃尾平野の自然と社会. 東海三県地盤沈下調査会編: 濃尾平野の地盤沈下と地下水. 名大出版会, 7-34. [Iseki, K. (1985): The nature of the Nobi Plain and society. *Ground Subsidence and Groundwater of the Nobi Plain (Nobi Heiya No Jiban Chinka To Chikasui)* edited by Tokai Three Prefecture Ground Subsidence Investigation Committee (Tokai Sanken Jiban Chinka Chosakai), The University of Nagoya Press, 7-34. (in Japanese)*]
- Karabassi, A.R. and Shankar, R. (2005): Geochemistry of two sediment cores from the west coast of India. *International Journal of Environmental Science & Technology*, **1**, 307-316.
- 加田平賢史・森脇 洋・吉川周作・七山 太・山本 攻 (2009): 大阪平野沖積層の自然由来の重金属等の溶出挙動—ボーリングコア試料を用いた検討—. 地学雑誌, **118**, 261-279. [Katahira, K., Moriwaki, H., Yoshikawa, S., Nanayama, F. and Yamamoto, O. (2009): Leaching behaviors of heavy metals etc. of natural origin in alluvial formation at Osaka plains: Investigation using boring core. *Journal of Geography (Chigaku Zasshi)*, **118**, 261-279. (in Japanese with English abstract)]
- 駒井幸雄・古武家善成・清木 徹・永淵 修・村上和仁・小山武信・蠣灰谷喬 (1998): 瀬戸内海における底質中重金属濃度の分布と変化. 水環境学会誌, **21**, 743-750. [Komai, Y., Kobuke, Y., Seiki, T., Nagafuchi, O., Murakami, K., Koyama, T. and Kakibaya, T. (1998): Distribution of heavy metals and its change in the sediment of the Seto Inland Sea. *Journal of Japan Society on Water Environment*, **21**, 743-750. (in Japanese with English abstract)]
- Manaka, M. (2006): Amount of amorphous materials in relationship to arsenic, antimony, and bismuth concentrations in a brown forest soil. *Geoderma*, **136**, 75-86.
- 丸茂克美 (2007): 自然由来重金属に起因する土壌汚染問題への地球科学的アプローチ. 地学雑誌, **116**, 877-891. [Marumo, K. (2007): Geological approach to soil contamination caused by natural processes. *Journal of Geography (Chigaku Zasshi)*, **116**, 877-891. (in Japanese with English abstract)]
- 大上隆史 (2009): 濃尾平野における最終氷期以降の相対的海水準変動に伴う堆積体発達過程. 東京大学新領域創成科学研究科環境学専攻博士論文, 134p. [Ogami, T. (2009): *The Evolution of Deltaic Coastal Sediment Associated with Sea-level Changes Since the Last Glacial at the Nobi Plain, Central Japan*. PhD Thesis, Department of Natural Environmental Studies, Graduate School of Frontier Science, The University of Tokyo, 134p. (in Japanese)]
- 大上隆史・須貝俊彦・藤原 治・山口正秋・笹尾英嗣 (2009): ボーリングコア解析と14C年代測定にもとづく木曽川デルタの形成プロセス. 地学雑誌, **118**, 665-685. [Ogami, T., Sugai, T., Fujiwara, O., Yamaguchi, M. and Sasao, E. (2009): Development of the Kiso river delta during the Last 10,000 years based on analyses of sedimentary cores and 14C datings. *Journal of Geography (Chigaku Zasshi)*, **118**, 665-685. (in Japanese with English abstract)]
- Ohta, A., Imai, N., Terashima, S. and Tachibana, Y. (2007): Preliminary study for speciation geochemical mapping using a sequential extraction method. *Bulletin of the Geological Survey of Japan*, **58**, 201-237.
- 佐藤壮紀・須貝俊彦・杉山雄一 (2006): 過去90万年間における濃尾平野ボーリングコア中の礫径変化に与えた氷河性海水準変動の影響. 日本地理学会発表要旨集, **70**, 106. [Sato, T., Sugai, T. and Sugiyama, Y. (2006): The influence of the glacial eustasy

- on the gravel size changes of the sedimentary core during the last 900, 000 years in Nobi Plain. *Proceedings of the General Meeting of the Association of Japanese Geographers*, **70**, 106. (in Japanese)]
- 須貝俊彦・杉山雄一 (1999): 深層ボーリング (GS-NB-1) と大深度地震調査に基づく濃尾傾動盆地の沈降・傾動速度総合評価. 地質調査所速報, **EQ/99/3** (平成10年度活断層・古地震研究調査報告書), 77-87. [Sugai, T. and Sugiyama, Y. (1999): Basin Dynamics and Subsidence History of the Nobi Plain, Central Japan Revealed by 600m-deep Core Analyses and Deep Seismic Reflection Survey. *Short Pioneer Paper of Geological Survey*, **70**, 106. (in Japanese)*]
- 寺島 滋・今井 登・池原 研・片山 肇・野田 篤・太田充恒・岡井貴司・御子柴 (氏家) 真澄 (2004): 日本の沿岸海域堆積物における生物・海水起源物質の地球化学的研究. 地質調査研究報告, **55**, 153-169. [Terashima, S., Imai, N., Ikehara, K., Katayama, H., Noda, A., Ohta, A., Okai, T. and Mikoshiba (Ujiie), M. (2004): Geochemistry of biogenic silica, carbonate materials and sea salts in the coastal marine sediments around the Japanese islands. *Bulletin of Geological Survey of Japan*, **55**, 153-169. (in Japanese)]
- 寺島 滋・今井 登・立花好子・池原 研・片山 肇・岡井貴司・御子柴 (氏家) 真澄・太田充恒・久保田 蘭 (2008): 河川・海底堆積物の粒度変化に伴う元素濃度変化. 地質調査研究報告, **59**, 439-459. [Terashima, S., Imai, N., Tachibana, Y., Ikehara, K., Katayama, H., Okai, T., Mikoshiba (Ujiie), M., Ohta, A. and Kubota, R. (2008): Variation of elemental concentrations of river and marine sediments according to the grain size classification. *Bulletin of Geological Survey of Japan*, **59**, 439-459. (in Japanese)]
- 若林 徹・須貝俊彦・笹尾英嗣 (2010): 濃尾平野完新統における重金属濃度と鉱物組成. 第20回環境地質学シンポジウム論文集, 133-138. [Wakabayashi, T., Sugai, T. and Sasao, E. (2010): Relationship of heavy metals and clay mineral content of Holocene alluvial sediments in the Nobi Plain, central Japan. *Proceedings of the 20th Symposium of Environmental Geology*, 133-138. (in Japanese)]
- Whally, C. and Grant, A. (1994): Assessment of the phase selectivity of the European Community Bureau of Reference (BCR) sequential extraction procedure for metals in sediment. *Analytica Chimica Acta*, **291**, 287-295.
- 山口正秋・須貝俊彦・大上隆史・藤原 治・大森博雄 (2006): 高密度ボーリングデータ解析にもとづく濃尾平野沖積層の三次元構造. 地学雑誌, **115**, 41-50. [Yamaguchi, M., Sugai, T., Ogami, T., Fujiwara, O. and Ohmori, H. (2006): Three-dimensional structures of the latest Pleistocene to Holocene sequence at Nobi plain, central Japan. *Journal of Geography (Chigaku Zasshi)*, **115**, 41-50. (in Japanese with English abstract)]

* Title etc. translated by T.W.

(2010年9月21日受付, 2012年2月20日受理)