

## 河川・海底堆積物の粒度変化に伴う元素濃度変化

寺島 滋<sup>1</sup>・今井 登<sup>1</sup>・立花好子<sup>1</sup>・池原 研<sup>1</sup>・片山 肇<sup>1</sup>・岡井貴司<sup>1</sup>・御子柴（氏家）真澄<sup>1</sup>・  
太田充恒<sup>1</sup>・久保田蘭<sup>1</sup>

Shigeru Terashima, Noboru Imai, Ken Ikehara, Hajime Katayama, Takashi Okai, Masumi (Ujiie) Mikoshiba, Atsuyuki Ohta and Ran Kubota (2008) Variation of elemental concentrations of river and marine sediments according to the grain size classification. Bull. Geol. Surv. Japan, vol. 59(9/10), p.439-459., 6 figs., 7 tables.

**Abstract:** In order to characterize the variation of elemental concentrations according to the grain size classification, a total of 795 river and marine sediments were analyzed for major and minor constituents. Almost all the constituents of the river sediments are enriched more in the fine fractions than in the coarse ones, but both K and Ba are often abundant in the coarse fraction of sediments. The K and Ba abundant coarse sediments are commonly derived from the felsic rocks containing a large amounts of potassium feldspar. In the case of some muddy river sediments collected in the plain areas, somehow P, Cu, Zn and C are enriched more in the coarse fraction than in the middle fraction of sediments. In this case, the coarse sediment particles consist mainly by the nodules which composed of small clastic materials, clay minerals and biogenic materials. Although most constituents of the marine sediments are also much dominant in the fine fraction than in the coarse one, Ca, Sr and As are generally enriched in the coarse grain sediments distributed in relatively shallower water depth. There is no clear increasing or decreasing tendency in the abundance of Fe, Co, Ce, U and Y according to the grain size classification. High concentrations more than five times over background abundance are found for Mn and Mo in the fine sediments collected in the deeper water depth of the Japan Sea. The significant amounts of Ca and Sr in the coarse marine sediments are derived from the calcareous materials such as shell and coral fragments and/or calcareous algae. The anomalous behavior of As, Fe, Co, Ce, U, Y, Mn or Mo concentration according to the grain size classification may be caused by the process of weathering and diagenesis in the marine environments.

**Keywords:** river sediment, marine sediment, chemical composition, major element, minor element, geochemical behavior, grain size classification

### 要 旨

河川・海域堆積物における粒度と元素濃度の関係を研究するため堆積環境の異なる河川・海域で採取された粒度の異なる堆積物を分析した。河川堆積物中の主・微量元素のほとんどは粒度の細粒化に伴って高濃度になる。しかし、K, Ba にはその傾向がなく、これは珪長質岩類に由来するカリ長石が微細化しにくいためと考えられた。平野部の河川で得られた泥質堆積物では、P, Cu, Zn 等の濃度が中粒部よりも粗粒部で高い試料があった。これら試料における粗粒な粒子は、造岩鉱物由来の碎屑物ではなく微小鉱物や植物片等に粘土質粒子が付着して団塊化したものと考えられた。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、逆に低濃度になる元素 (Ca, Sr, As), 顕著な濃度変化がない元素 (Fe, Co, Ce, U, Y) があり、また日本海深部の粘土質堆積物中には砂質～シルト質堆積物の数倍の

Mn, Mo が含有されている。海底堆積物中の Ca, Sr の濃度変化は貝殻片等の石灰質堆積物の増減に由来しており、As, Fe, Mn, Mo 等の濃度変化は風化・続成作用に伴う溶出、移動、沈殿や新鉱物の生成等が原因と考えられる。

### 1. はじめに

堆積物や堆積岩の粒度と化学組成の関係についてはこれまで多くの研究があり (北野, 1972), その成果の代表例として粗粒な砂質堆積物を起源とする砂岩と、細粒のシルト～粘土の大きさの粒子から構成される頁岩の化学組成がまとめられている (第 1 表, Turekian and Wedepohl, 1961; Bowen, 1979; Levinson, 1980)。第 1 表によれば、Si, Ca, Hf, Zr は頁岩よりも砂岩中で高く、他の多くの元素は砂岩よりも頁岩中で高濃度であり、粗粒な堆積物よりも細粒堆積物に多くの元素が濃集

<sup>1</sup> 地質情報研究部門 (AIST, Geological Survey of Japan, Institute of Geology and Geoinformation, GSJ)

第1表 砂岩・頁岩中の成分濃度の文献値。

Table 1 Reference values of the elemental concentrations for sandstone and shale.

	Sandstone		Shale		
	T & W (1961)	Bowen (1979)	T & W (1961)	Bowen (1979)	Levinson (1980)
Si, %	36.8	32.7	7.3	27.5	n.g.
Ti	0.15	0.35	0.46	0.46	0.46
Al	2.5	4.3	8	8.8	n.g.
Fe	0.98	2.9	4.72	4.8	n.g.
Mn	<0.01	0.046	0.085	0.085	0.085
Mg	0.7	1.15	1.5	1.6	n.g.
Ca	3.91	3.1	2.21	1.6	n.g.
Na	0.33	1.04	0.96	0.59	n.g.
K	1.07	1.5	2.66	2.45	n.g.
P	0.017	0.044	0.07	0.07	n.g.
As, ppm	1	1	13	13	15
Ba	X0	320	580	550	700
Be	0.X	<1	3	3	3
Bi	n.g.	0.18	n.g.	0.48	0.18
Cd	0.0X	0.05	0.3	0.22	0.2
Ce	92	78	59	96	50
Co	0.3	0.3	19	19	20
Cr	35	35	90	90	100
Cs	0.X	0.5	5	5.5	5
Cu	X	30	45	39	50
Ga	12	6	19	23	20
Hf	3.9	3.9	2.8	2.8	3
La	30	42	92	49	20
Li	15	38	66	76	60
Mo	0.2	0.2	2.6	2.6	3
Nb	0.0X	0.05	11	18	20
Ni	2	9	68	68	70
Pb	7	10	20	23	20
Rb	60	46	140	160	140
Sb	0.0X	0.05	1.5	1.5	1
Sc	1	1	13	13	15
Sn	0.X	0.5	6	6	4
Sr	20	20	300	300	300
Ta	0.0X	0.05	0.8	2	2
Th	1.7	3.8	12	12	12
Tl	0.82	0.36	1.4	1.2	0.3
U	0.45	0.45	3.7	3.7	4
V	20	20	130	130	130
Y	40	54	26	41	25
Zn	16	30	95	120	100
Zr	220	220	160	160	160

T &amp; W, Turekian and Wedepohl. n.g., not given.

することを示唆している。しかしながら、Na, Bi, Ce, La, Tl, Y等に関しては文献値がばらついており、砂岩と頁岩のいずれが高濃度であるかの判断ができない状況にある。これは、データが編集された時点においては適切な分析手法が少なく、充分な基礎データが得られていないことを示唆している。

なかったことを示すであろう。また、堆積物の粒度変化に伴って化学組成が変化する場合の河川堆積物と海底堆積物の相違点やその成因について詳細かつ系統的な研究は実施されていない。

本研究では、関東周辺地域で集水域の地質特性が明ら

第2表 河川堆積物の採取地点と集水域の地質.

Table 2 Locality of the river sediments.

Sample no.	River name	Locality	Geology of river basin
1	Hayakawa	Iriikuta, Odawara c., Kanagawa pref.	Andesitic rocks
2	Sirakawa	Minowa, Fujimi v., Gunma pref.	Andesitic rocks
3	Karasugawa	Usami, Ito C., Shizuoka pref.	Basaltic rocks
4	trib. Sakuragawa	Kurumatsubo, Makabe t., Ibaraki pref.	Granitic rocks (Kabasan type)
5	trib. Koisegawa	Negoya, Yasato t., Ibaraki pref.	Granitic rocks (Kabasan type)
6	trib. Sakuragawa	Yamaguchi, Makabe t., Ibaraki pref.	Granitic rocks (Tsukuba type)
7	trib. Koisegawa	Kamine, Yasato t., Ibaraki pref.	Granitic rocks (Tsukuba type)
8	trib. Sakuragawa	Mt. Tsukuba, Makabe t., Ibaraki pref.	Gabbroic rocks
9	trib. Sakuragawa	Kamitsubo, Makabe t., Ibaraki pref.	Gabbroic rocks
10	trib. Sakuragawa	Yamaguchi, Tsukuba c., Ibaraki pref.	Metamorphic rocks
11	Kozakuragawa	Shobusawa, Yasato t., Ibaraki pref.	Metamorphic rocks
12	Nakagawa	Joto, Mito c., Ibaraki pref.	Sedimentary with igneous rocks
13	Nakagawa	Wakamiya, Mito c., Ibaraki pref.	Sedimentary with igneous rocks
14	Sakuragawa	Hamadacho, Mito c., Ibaraki pref.	Diluvium
15	Sakuragawa	Kamitsubo, Mito c., Ibaraki pref.	Diluvium
16	Nakagawa	Kamitsubo, Mito c., Ibaraki pref.	Sedimentary with igneous rocks
17	Nakagawa	Kamitsubo, Mito c., Ibaraki pref.	Sedimentary with igneous rocks
18	Nakagawa	Yoshinumacho, Mito c., Ibaraki pref.	Sedimentary with igneous rocks
19	Nakagawa	Nakaohno, Mito c., Ibaraki pref.	Sedimentary with igneous rocks
20	Nakagawa	Koizumicho, Mito c., Ibaraki pref.	Sedimentary with igneous rocks
21	Kinugawa	Ohwa, Mitsukaido c., Ibaraki pref.	Sedimentary with igneous rocks
22	Sakawagawa	Iizumi, Odawara c., Kanagawa pref.	Igneous rocks
23	Sakawagawa	Minamikamonomiya, Odawara c., Kanagawa pref.	Igneous rocks
24	Sakawagawa	Nishisakawa, Odawara c., Kanagawa pref.	Igneous rocks
25	Sukaigawa	Emi, Kamogawa c., Chiba pref.	Sedimentary rocks
26	Hishikigawa	Inayoshihigashi, Kasumigaura c., Ibaraki Pref.	Diluvium
27	Hishikigawa	Tenjin, Kasumigaura c., Ibaraki Pref.	Diluvium
28	Hishikigawa	Kanekawa, Kasumigaura c., Ibaraki Pref.	Diluvium
29	Hishikigawa	Ogidaira, Kasumigaura c., Ibaraki Pref.	Diluvium
30	Hishikigawa	Kashiwazaki, Kasumigaura c., Ibaraki Pref.	Diluvium

かな河川の堆積物 30 試料を新たに採取し、それを粒度別に篩い分けして得られた 180 試料と、新潟沖、山形～秋田沖、東海沖から得られた種々の粒度を有する海底堆積物 615 試料について主・微量元素を定量し、粒度変化に伴って化学組成が変化する原因としての造岩鉱物の機械的な強度差、生物濃縮や風化・統成作用の影響等について考察した結果を報告する。

## 2. 試 料

### 2.1. 河川堆積物

いずれも関東周辺の大小河川で採取したもので、河川名、採取地点、集水域の地質等を第2表に示した。試料 1～11 は山間部の小河川の堆積物であり、集水域に分布する岩石種が安山岩類（試料 1～2）、玄武岩類（同 3）、

花崗岩類（同 4～7）、斑巖岩類（同 8～9）、変成岩類（同 10～11）のいずれかにほぼ限定される堆積物である。試料 12～30 は、平野部の河川堆積物であり、このうち 12～20 は栃木～茨城県下を流れる那珂川の下流域と、那珂川の支流で水戸市付近を流れる桜川（試料 14、15）で採取した。試料 21 は茨城県下の鬼怒川、22～24 は神奈川県下の酒匂川、25 は千葉県下の洲貝川の堆積物である。那珂川、鬼怒川、酒匂川の上流域には各種の堆積岩類、火成岩類等が分布し、平野部には更新世以降の風化火山灰を主体とする洪積層が分布する。洲貝川の集水域は主として古第三紀以降の堆積岩類である。試料 26～30 は、集水域が平野部の洪積層のみで構成される堆積物であり、茨城県下の霞ヶ浦北部に流入する全長約 14 km の菱木川の最上流部（試料 26）から最下流部（試料 30）にかけて採取した。

## 2.2. 海底堆積物

本邦沿岸海域の海底地質図・表層堆積図の作成を主目的としてこれまでに海洋調査船白嶺丸等による航海で蒐集された試料のうち、新潟沖（231試料、片山ほか、1991, 1994；池原ほか、1994a；中嶋ほか、1995）、山形～秋田沖（169試料、中嶋・片山、1992；池原ほか、1994b；中嶋ほか、1995）、東海沖（217試料、池原ほか、1998；Ikehara et al., 1999）の堆積物を使用した。各採泥点の緯度、経度、水深、堆積物の船上記載等の詳細は上記の報告書に示されているのでここでは割愛する。新潟沖、山形～秋田沖海域では、砂質堆積物よりも泥質（シルト～粘土）堆積物が卓越するが、東海沖では泥質堆積物に比べて砂質堆積物が多い。

## 2.3. 岩石試料

堆積物の粒度変化に伴って化学組成が変化する原因の一つとして、造岩鉱物の機械的な強度の差が考えられる。そこで、幾つかの岩石試料を人為的に粉碎し、粒度別分析を実施することにした。試料としては化学組成や含有鉱物に関する知見が集積されている地球化学的標準試料を用いることにし、岩種や組成を考慮して、JF-1（カリ長石）、JG-2（花崗岩）、JG-3（花崗閃緑岩）、JGb-1（はんれい岩）、JH-1（角閃石岩）、JP-1（かんらん岩）、JR-1（流紋岩）、JA-1（安山岩）、JB-1（玄武岩）を選定した。これら試料の化学組成等の詳細は Imai et al. (1995, 1998) を参照されたい。なお、試料番号は JF-1 が 31 であり、以下上記の順に JB-1 が 39 である。

## 3. 試料処理、粒度区分、分析方法

### 3.1. 河川堆積物

各地点では小石、落葉、ごみ等を除き、約 1kg の試料を採取して実験室に持ち帰り、室温乾燥した。篩を用いて <40, 40–60, 60–80, 80–150, >150 メッシュ部分に篩い分けた。代表的試料については、>150 メッシュ部分を更に 150–250, 250–400, >400 メッシュに篩分けた。なお、粒径 40 メッシュは 0.37mm, 60 メッシュは 0.246mm, 80 メッシュは 0.175mm, 150 メッシュは 0.104mm, 250 メッシュは 0.061mm, 400 メッシュは 0.037mm に相当する（地質調査所、1979）。150 メッシュよりも粗粒部分は石川式めのう粉碎器で約 150 メッシュ以下に粉碎し、分析試料とした。

### 3.2. 海底堆積物

グラブ採泥で得られた試料の最表層部約 2cm をプラスチックケースに入れて持ち帰り、約 20g を分取して乾燥し、石川式めのう粉碎器で約 150 メッシュ以下に粉碎して分析試料とした。細粒な粘土質試料についても試料の均質化のため粉碎器による処理を実施した。試料の粒

度区分は、船上記載データをそのまま使用し、粗粒砂、中粒砂、細粒砂、極細粒砂、砂質シルト、シルト、シルト質粘土、粘土等に分けた。なお、地学団体研究会 (1996) によれば、粗粒砂の粒径は 1.0–0.5mm、中粒砂と細粒砂の境界粒径が 0.25mm（約 60 メッシュ）、極細粒砂と粗粒シルトのそれが 0.0625mm（約 250 メッシュ）、粘土の粒径は 0.0039mm 以下である。したがって、河川堆積物の <40 メッシュは粗粒砂に、150–250 メッシュは極細粒砂に、>400 メッシュは中粒シルトに近い粒径を有している。そして河川堆積物は粗粒部分の、海底堆積物は細粒部分の粒度がより詳細に区分されていると言える。

### 3.3. 岩石試料

各岩石標準試料の源岩約 100g をハンマーと鉄乳鉢で長径約 2mm 以下に粉碎し、更に石川式めのう粉碎器で 40 メッシュよりも粗粒部分が約 15g になるまで粉碎し、<40, 40–60, 60–80, 80–150, >150 メッシュ部分に篩い分けた。150 メッシュよりも粗粒な各試料は約 150 メッシュ以下になるよう再粉碎し、分析試料とした。

### 3.4. 分析方法

河川堆積物、岩石試料：試料 0.1g をテフロンビーカ（50ml）に採り、フッ化水素酸 4ml、過塩素酸 2ml、硝酸 2ml で加熱分解し、蒸発乾固した後に塩酸（1+1）3 ml と精製水約 5ml を加えて加温・溶解した。メスフラスコ（50ml）に移し入れ、精製水で標線まで希釈した。本溶液中の各成分をセイコー電子工業製の SPS7700 型 ICP 発光分光分析装置を用い、寺島ほか（2004a）の方法で定量した。

海底堆積物：試料 0.2g をテフロンビーカ（50ml）に採り、フッ化水素酸 8ml、過塩素酸 3ml、硝酸 3ml を加え、加熱分解し、蒸発乾固した。硝酸（1+1）5ml を加えて加温溶解した後メスフラスコに移し入れ、精製水で正しく 100ml とした。本溶液中の Al 等の主要成分は日本ジャーレル・アッシュ製 IRIS Advantage/AP 型 ICP 発光分析装置で、その他の微量元素は横川アナリティカシステムズ製 HP-4500ICP 質量分析装置等を用い、今井ほか（2004）の方法で測定した。

## 4. 結 果

### 4.1. 河川堆積物

河川堆積物の粒度組成を第 3 表に示した。概略的には山間部の小河川（試料 1～11）では 60 メッシュよりも粗粒な粒子が卓越する。平野部の河川では、約半数の試料は 60 メッシュよりも細粒な粒子に富み、残りの半数は山間部の小河川と同様に粗粒粒子に富んでいる。平野部の河川で粗粒な粒子が卓越するのは河川水の流速が相対的に速い場所や波浪の影響を受けやすい河岸付近であ

河川・海底堆積物の粒度変化に伴う元素濃度変化（寺島ほか）

第3表 河川堆積物の粒度分布（重量%）。

Table 3 Grain size distribution of the river sediments (wt. %).

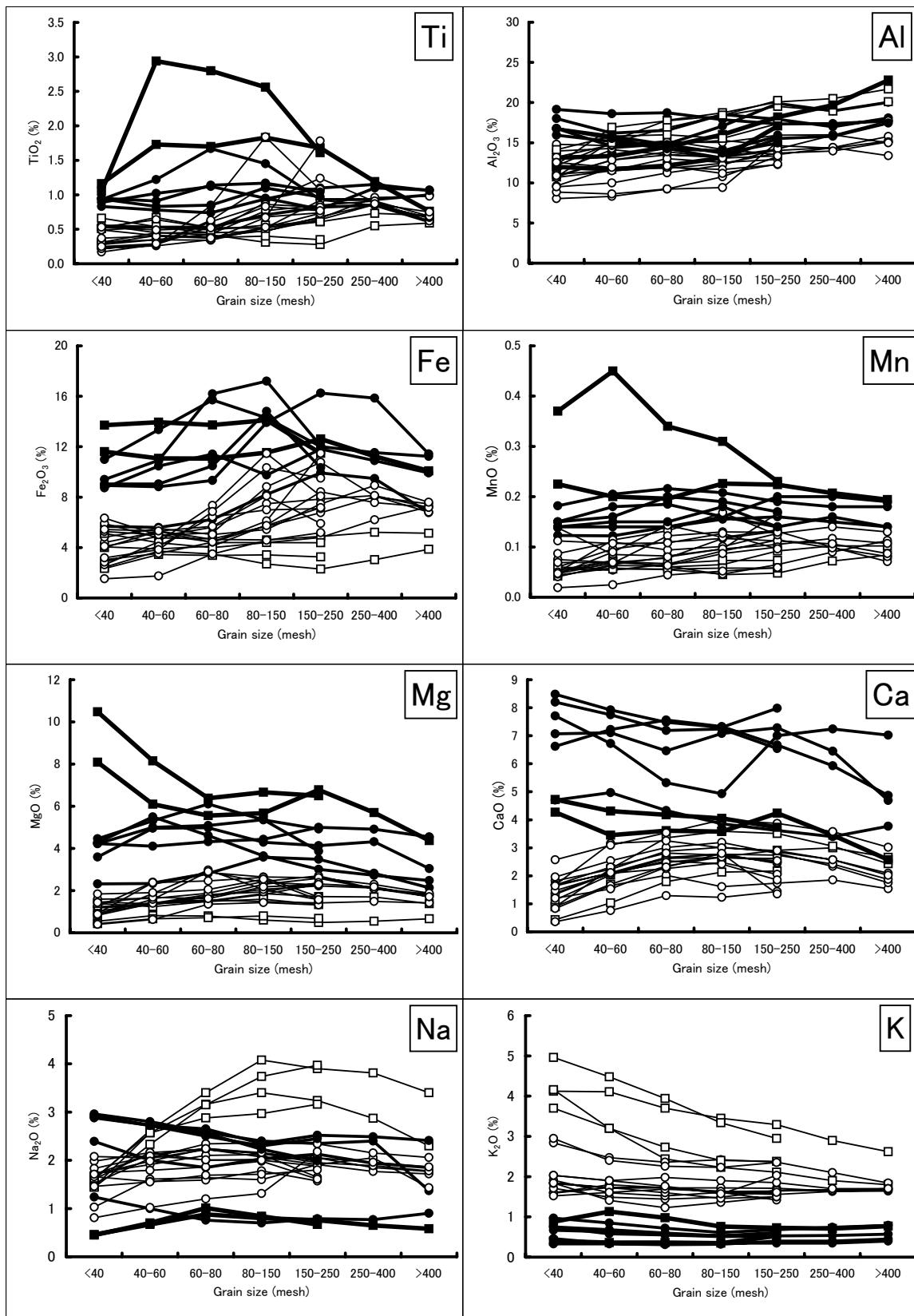
Sample No.	Grain size (mesh)				
	<40	40-60	60-80	80-150	>150
1	40.2	25.9	10.3	14.3	9.3
2	25.1	32.2	19.8	17.6	5.3
3	85.7	8.8	2.4	1.7	1.4
4	46.4	17.6	9.8	16.8	9.4
5	52.3	27.1	11.1	6.6	2.8
6	40.6	26.9	15.3	13.2	4.1
7	25.1	37.3	18.6	15.2	3.8
8	77.7	13.2	4.5	3.3	1.3
9	74.8	14.6	5.1	3.7	1.9
10	65.3	18.3	7.5	6.3	2.7
11	22.6	26.2	21.9	21.2	8.1
12	1.6	13.4	21.5	37.0	26.4
13	1.4	14.2	33.3	39.4	11.6
14	18.5	37.7	24.4	17.6	1.8
15	62.7	25.9	6.5	3.9	0.9
16	49.1	32.9	9.3	6.4	2.2
17	7.5	28.5	25.9	29.5	9.2
18	3.6	11.7	32.7	37.6	14.3
19	2.2	3.6	13.6	61.7	18.9
20	13.8	24.6	22.7	27.1	11.8
21	0.6	11.1	22.5	48.7	17.2
22	61.4	24.1	7.7	5.0	1.9
23	78.5	15.1	4.4	1.6	0.5
24	15.9	19.6	19.4	27.8	17.2
25	52.9	26.6	11.2	7.7	1.6
26	51.1	32.4	10.4	4.8	1.3
27	77.0	14.8	4.4	2.4	1.4
28	63.1	21.5	6.5	5.6	3.2
29	10.1	21.8	28.5	27.8	11.8
30	13.4	16.0	28.7	26.9	15.0
Avg.	38.0	21.5	15.3	17.9	7.3

る。全30試料の平均粒度組成によれば、40メッシュよりも粗粒な部分が38%で最も多く、150メッシュよりも細粒な部分は7.3%のみである（第3表）。

河川堆積物の粒度別分析値を第A-1表に、主成分の結果を図化して第1図に、少量～微量元素のそれを第2図に示した。主成分のうち、Alは粒度の細粒化に伴って高濃度になり、逆にKは低濃度になるが、他の成分では一定の傾向は認められない。やや詳しく検討すると、Feに富む試料の多くは粗粒部分、細粒部分に比べて中粒部分の濃度が高い傾向があり、一部試料のTiやMnに関してはその傾向は存在する（第1図）。少量～微量元素の場合は、概略的には細粒部分で高濃度を示す。例外としてBaに富む試料は粗粒部分が高濃度で、Vは中粒部分で高濃度を示す試料がある。また、那珂川で採取した試料12、13、18、19等におけるT. C濃度は、最も粗粒な

<40メッシュ部分が最も高く、中粒部分で最低値を示し、細粒部分では中間的である（第A-1表）。これらの試料では、P、Cu、Zn、T. S等の濃度も中粒部分で最低値を示す。

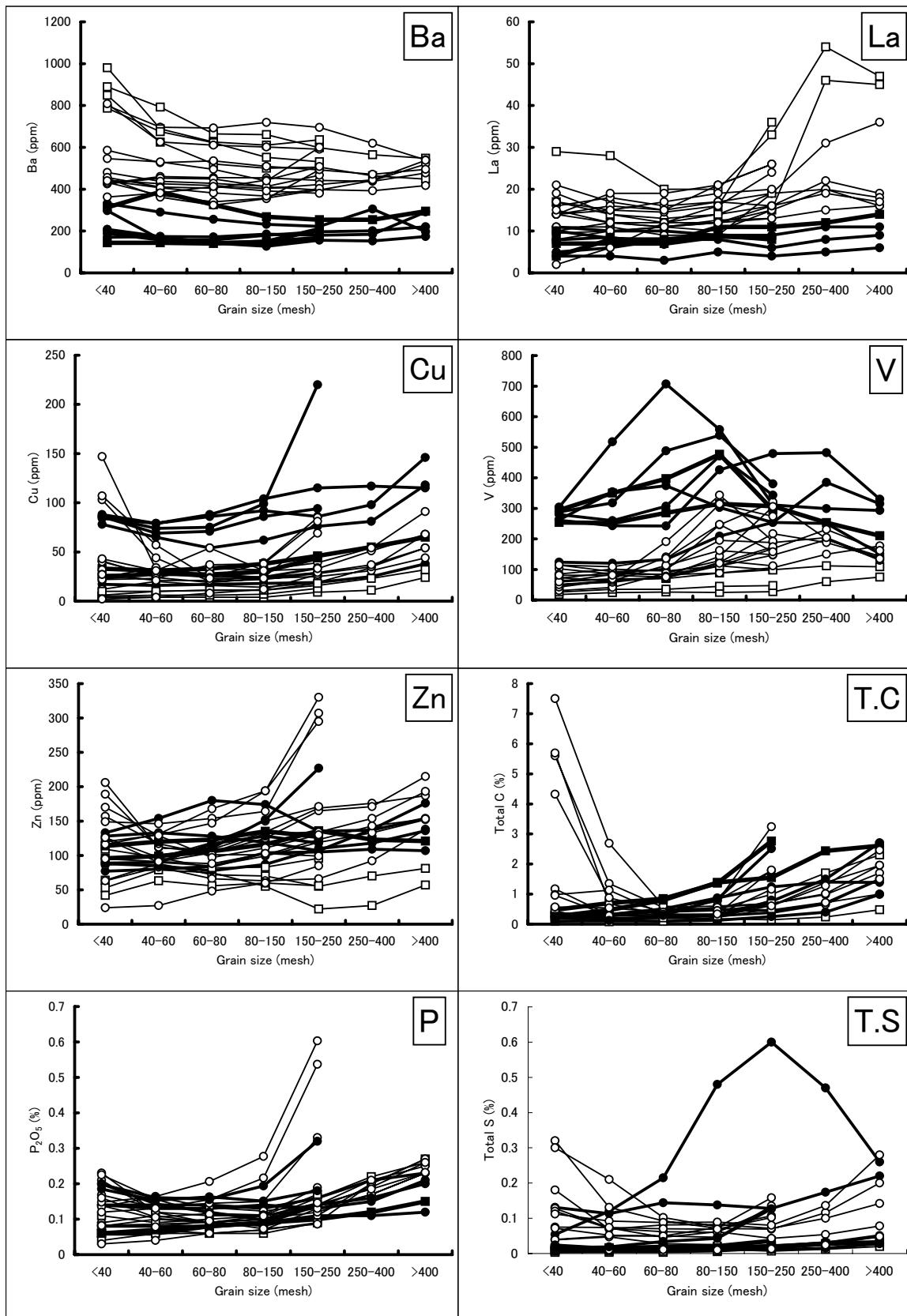
上記のように河川堆積物の粒度組成と成分濃度の関係は複雑であるが、全体的な傾向を把握するため全試料を対象として粒度別の成分濃度平均値を求めて第4表に、更に各粒度別の成分濃度／全粒度の平均成分濃度の関係から粒度変化に伴う成分別濃度比を算出して第3図に示した。第3図からわかるように、Al、Ni、Srは粒度の細粒化に伴って高濃度になり、逆にK、Baは濃度を減じている。その他の成分のうちTi、Fe、Mn、Mg、Ca、Na、Vは細粒化に伴って高濃度になり、80～400メッシュで最高値を示し、更に細粒化すると濃度を減じる傾向がある。P、Cu、La、Zn、T. C、T. Sの場合は、概略的に



第1図 河川堆積物中主成分の粒度別濃度変化。

Fig.1 Variation of major element concentrations of the river sediments according to the grain size classification. The symbols and representative rocks distributed in the river basin are as follows. Solid circles, andesitic (samples 1, 2), basaltic (3), and igneous (22-24) rocks; Solid squares, gabbroic (8, 9) rocks; Open circles, sedimentary with igneous (12, 13, 16-21) rocks; Open squares, granitic (4-7) and metamorphic (10, 11) rocks.

河川・海底堆積物の粒度変化に伴う元素濃度変化（寺島ほか）



第2図 河川堆積物中少量・微量元素の粒度別濃度変化。

Fig.2 Variation of minor and trace element concentrations of the river sediments according to the grain size classification. Symbols are the same as in Fig. 1.

第4表 河川堆積物中成分濃度の粒度別平均値の変化.

Table 4  
according to the grain size classification.

	Grain size (mesh)						
	<40	40–60	60–80	80–150	150–250	250–400	>400
TiO <sub>2</sub> (%)	0.54	0.64	0.71	0.87	0.90	0.90	0.78
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	12.89	13.47	13.92	14.07	15.46	16.42	17.39
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	5.69	6.00	6.71	7.97	8.15	8.49	7.67
MnO (%)	0.099	0.111	0.116	0.125	0.131	0.131	0.125
MgO (%)	2.14	2.42	2.59	2.69	2.53	2.48	2.06
CaO (%)	2.70	3.08	3.33	3.39	3.26	3.39	2.86
Na <sub>2</sub> O (%)	1.68	1.93	2.07	2.10	2.03	1.96	1.73
K <sub>2</sub> O (%)	1.90	1.74	1.61	1.51	1.50	1.36	1.34
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> (%)	0.146	0.122	0.119	0.128	0.204	0.195	0.241
Ba (ppm)	477	420	395	385	401	379	395
Cu (ppm)	47	36	34	40	61	52	70
La (ppm)	12	12	11	12	16	21	20
Ni (ppm)	21	22	23	27	29	27	30
Sr (ppm)	157	162	168	167	163	156	171
V (ppm)	124	136	167	218	206	221	178
Zn (ppm)	126	117	117	129	164	154	176
T. C (%)	1.46	0.66	0.50	0.66	1.37	1.25	1.84
T. S (%)	0.074	0.055	0.052	0.062	0.088	0.092	0.108

は細粒部が高濃度であるが、<40 メッシュ部分よりも 40～150 メッシュ部分が低濃度である。

#### 4.2. 海底堆積物

海底堆積物の分析値を検討した結果、新潟沖、山形～秋田沖の堆積速度が遅いと考えられる海域の一部で Ba 濃度が異常に高い試料（最高 1.25%）が認められた。この原因は古い時代の生物活動に由来する可能性があり（Sato et al., 2002），現世表層堆積物の粒度と化学組成の関係を研究するデータとしては不適切なので、Ba 濃度が 1000 ppm 以上の 14 データは除外することにした。また、東海沖では熱水起源と考えられる高濃度の Mn, Cd, Co, Ni, Pb 等を含む 2 試料を除外した。

海底堆積物中 41 成分の分析値から海域別、粒度区別の平均値を算出し、第 5 表に示した（個々の分析値は現在進行中の沿岸海域地球化学図の作成終了時に公表予定である）。CaO, Pb, Sr, V 等の海域別平均値にはかなりの差が認められるものの、粒度変化に伴う成分濃度の増加あるいは減少の傾向は類似している。そこで、河川堆積物の場合と同様に全海底堆積物を対象として成分別濃度比（各粒度の成分濃度／全粒度の平均成分濃度）を算出し、結果を第 4 図に示した。多くの成分は細粒化に伴って高濃度になるが、幾つかの成分は異なる挙動を示している。まず、Mn と Mo は、粗粒砂～シルトではほとんど濃度変化がないが、粘土では砂～シルトの数倍の

高濃度を示す。Fe, Co, Ce, Sc, U, Y は、試料が細粒化しても高濃度にはならず、Ca, Sr, As は細粒化に伴って濃度を減ずる傾向がある（第 4 図）。

#### 4.3. 岩石試料

岩石試料を粉碎し、粒度別に区分して得られた試料について主成分を分析した結果を第 5 図に示した。試料 33 (JG-3), 35 (JH-1) 中の P, 31 (JF-1), 32 (JG-2) 中の Na が細粒部で高濃度を示し、38 (JA-1) 中の Ti, Fe, Mn は粒度の微細化に伴ってわずかに低濃度になるが、その他の成分では顕著な濃度変化は認められない。第 6 表は、分析した全 9 試料中の 15 成分について粒度別平均値を算出した結果である。最高値と最低値の差が最も大きいのは P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>（約 65%）であり、La（約 29%）、Cu（約 19%）もやや大きいが、他の 12 成分における濃度差は 8% 以下である。

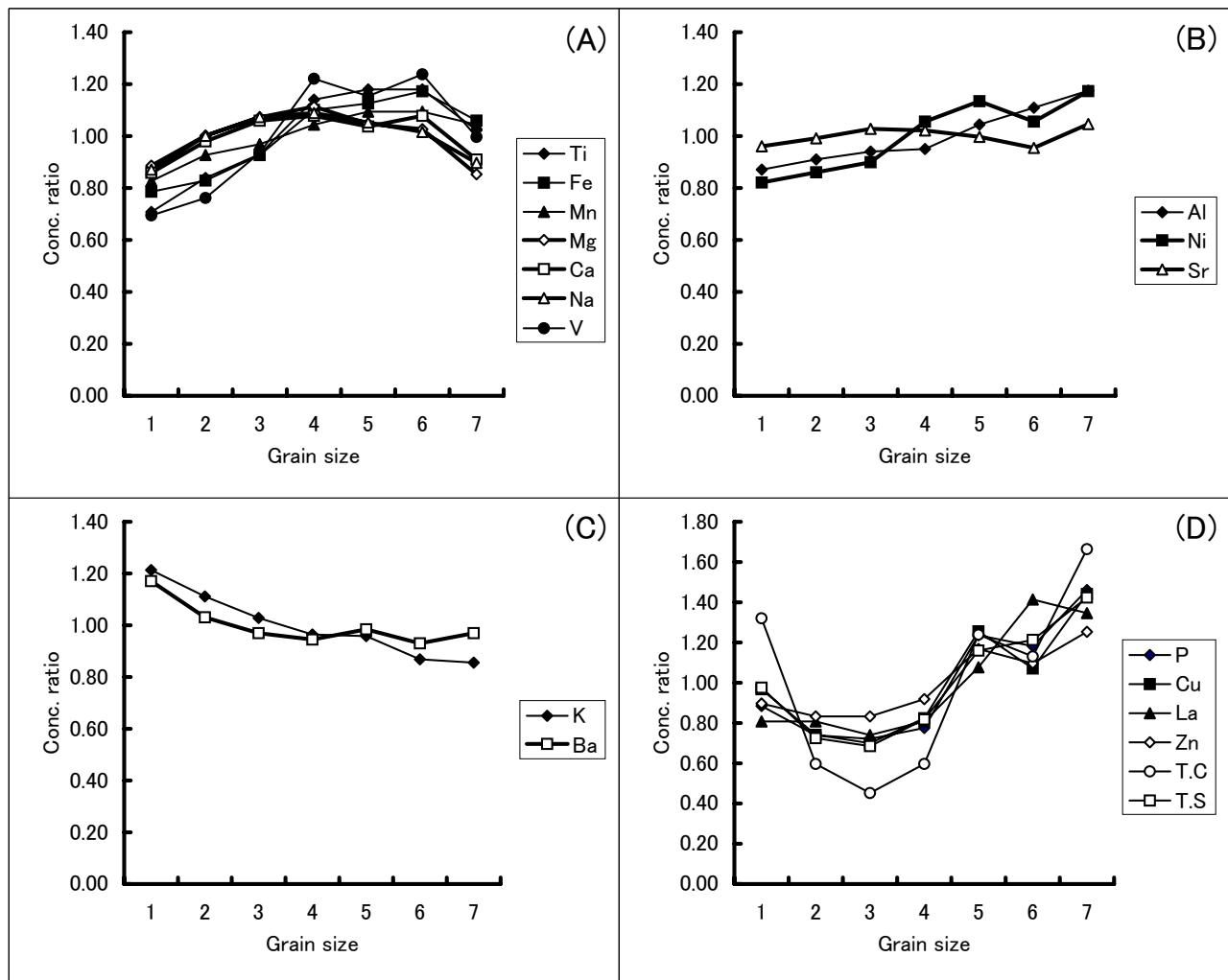
### 5. 考 察

#### 5.1. 粒度と元素濃度の変化を支配する要因

堆積物の粒度と元素濃度の変化を支配する要因としては、造岩鉱物の機械的な強度差、生物濃縮の影響、風化・統成作用の影響が考えられる。

##### 5.1.1. 造岩鉱物の機械的な強度差

造岩鉱物の機械的な強度差の影響は、4.3 で述べた粉



Grain size (mesh): 1, <40; 2, 40–60; 3, 60–80; 4, 80–150; 5, 150–250; 6, 250–400; 7, >400

第3図 河川堆積物中成分の粒度別平均濃度比（各粒度の成分濃度／全粒度の平均成分濃度）変化。

Fig.3

concentration of whole grain size) of the river sediments according to the grain size classification.

碎岩石の粒度別分析の結果から評価が可能であり、粒度の細粒化に伴って  $P_2O_5$  の濃度が増加するのは燐灰石  $[Ca_5(PO_4)_3(F, Cl, OH)]$  が微細化しやすいためと考えられる。また、La, Cu も細粒部分で高濃度を示すが（第6表）、La の一部は燐灰石に伴う可能性がある。Cu は特定鉱物に起因するのではなく、鉱物の境界付近や間隙に存在する部分があり（Soma and Seyama, 1986; Murakami et al., 1991），粉碎時に微細な粒子と行動を共にするためであろう。その他の成分の濃度差は 8% 以下であり、鉱物の機械的な強度差の影響はさほど大きくなないと見える。

#### 5.1.2. 生物濃縮の影響

生物濃縮の影響で最も重要なのは、海底堆積物における石灰質堆積物と珪質堆積物である。日本の沿岸海域では、水深の浅い海域や海底地形の高まりに貝殻とそ

の破片、石灰藻、珊瑚等に由来する石灰質の粗粒堆積物が分布し、珪質堆積物は水深の大きい海域に細粒堆積物として分布する（寺島ほか, 2004b）。4.2 で述べたように、古い時代の堆積物では生物活動に起因する Ba の濃縮も考慮すべきである。生物濃縮の影響のうち陸上植物により濃縮されやすい元素は P, Pb, Zn, Cd, Cu, Ca, K 等であり、影響がないと考えられるのは Ti, Al, Fe, Cr, Ni, V 等である（寺島ほか, 2004a）。4.1 で述べたように、河川堆積物中の T.C 濃度の平均値は 60 ~ 80 メッシュ部分で最も低く、これよりも粗粒部、細粒部では高濃度を示す（第3図、D）。P, Cu, Zn 等の濃度変化も T.C に類似しており、生物濃縮の影響を示唆しているが、P, Cu, Zn 等の濃度変化は T.C の濃度変化よりも明らかに小さく、また Ca, K の濃度変化は T.C とは異なっている。したがって陸上植物による顕著な生物濃縮の影

第5表 海底堆積物の粒度別分析結果.

Table 5 Analytical results of the marine sediments according to the grain size classification.

	TiO <sub>2</sub> (n)	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	MnO (%)	MgO (%)	CaO (%)	Na <sub>2</sub> O (%)	K <sub>2</sub> O (%)	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> (%)	As (ppm)	Ba (ppm)	Be (ppm)	Bi (ppm)	Cd (ppm)
<b>Off Niigata</b>														
Coarse sand	6	0.33	7.66	4.77	0.11	3.40	9.77	2.42	1.63	0.14	37	310	0.96	0.28
Medium sand	19	0.33	7.22	6.59	0.08	3.68	11.62	2.50	1.72	0.13	23	274	1.34	0.34
Fine sand	32	0.44	8.90	6.84	0.07	3.62	4.87	2.71	2.02	0.13	19	397	1.61	0.31
Very fine sand	6	0.44	8.41	4.30	0.05	3.11	1.95	3.00	2.04	0.10	10	403	1.58	0.27
Sandy silt	25	0.42	7.85	6.36	0.07	3.63	2.10	2.85	1.98	0.12	17	323	1.70	0.42
Silt	48	0.52	8.42	4.78	0.07	4.00	1.14	3.57	1.93	0.15	15	348	1.43	0.64
Silty clay	9	0.49	8.69	4.23	0.16	4.30	1.25	4.43	1.97	0.18	15	366	1.37	0.87
Clay	86	0.44	8.14	4.26	0.45	4.35	1.01	4.65	1.89	0.21	18	368	1.33	0.87
Avg.	(231)	0.45	8.21	5.16	0.22	3.98	2.82	3.68	1.91	0.16	18	354	1.43	0.62
<b>Off Yamagata-Akita</b>														
Coarse sand	6	0.26	5.69	3.24	0.07	2.07	1.02	2.39	1.69	0.10	35	329	0.93	0.15
Medium sand	13	0.49	8.99	7.03	0.09	3.89	5.77	2.86	1.71	0.13	15	300	1.43	0.34
Fine sand	16	0.53	8.46	5.13	0.07	3.71	2.81	3.06	1.75	0.10	15	339	1.31	0.31
Sandy silt	14	0.50	8.07	5.26	0.11	3.86	2.14	3.19	1.81	0.13	14	341	1.37	0.48
Silt	14	0.54	7.93	4.47	0.05	4.10	1.06	3.57	1.87	0.13	13	332	1.39	0.63
Sandy clay	6	0.41	6.80	6.55	0.10	3.85	1.13	3.07	1.84	0.14	18	401	1.81	0.51
Silty clay	18	0.51	7.57	4.21	0.10	4.15	0.91	4.19	1.90	0.15	12	359	1.35	0.67
Clay	82	0.47	6.97	3.99	0.30	4.17	0.81	4.14	1.80	0.17	15	354	1.37	0.74
Avg.	(169)	0.48	7.45	4.56	0.19	3.98	1.54	3.72	1.80	0.15	15	348	1.37	0.60
<b>Off Tokai</b>														
Coarse sand	10	0.35	8.12	4.34	0.11	3.44	16.57	2.72	1.25	0.10	n.d.	227	0.71	0.25
Medium-fine sand	12	0.43	9.99	7.80	0.11	3.28	9.89	2.67	1.62	0.12	n.d.	276	1.12	0.31
Fine sand	26	0.33	8.55	5.74	0.09	2.59	9.94	2.74	1.70	0.09	n.d.	327	1.12	0.24
Very fine sand	83	0.41	9.38	4.94	0.08	2.49	5.13	2.79	1.95	0.10	n.d.	386	1.35	0.22
Sandy silt	24	0.52	9.92	5.01	0.08	3.00	3.30	3.40	2.05	0.13	n.d.	376	1.40	0.35
Silt	32	0.55	9.92	5.10	0.08	3.11	3.00	3.64	2.13	0.14	n.d.	378	1.43	0.42
Sandy clay	3	0.47	9.54	4.08	0.06	2.64	3.62	3.29	2.10	0.11	n.d.	417	1.51	0.37
Silty clay	25	0.50	9.68	4.57	0.08	3.02	3.68	3.72	2.13	0.12	n.d.	419	1.49	0.42
Avg.	(215)	0.44	9.43	5.15	0.08	2.80	5.80	3.08	1.93	0.11	n.d.	367	1.31	0.30
All the avg.	(615)	0.45	8.43	4.99	0.16	3.57	3.51	3.48	1.89	0.14	17	357	1.37	0.50
	Ce (n)	Co (ppm)	Cr (ppm)	Cs (ppm)	Cu (ppm)	Ga (ppm)	Hf (ppm)	Hg (ppb)	La (ppm)	Li (ppm)	Mo (ppm)	Nb (ppm)	Ni (ppm)	Pb (ppm)
<b>Off Niigata</b>														
Coarse sand	6	23	11	30	1.64	8	10	0.82	24	11	21	1.24	2.88	15
Medium sand	19	34	11	46	2.44	8	10	0.96	48	16	21	1.04	3.93	19
Fine sand	32	37	12	53	3.33	10	12	1.34	128	17	30	1.06	5.20	19
Very fine sand	6	28	9	41	3.32	13	13	1.35	263	14	33	0.73	5.22	14
Sandy silt	25	36	11	64	3.61	15	13	1.25	76	18	32	0.95	5.27	24
Silt	48	26	10	66	4.16	24	15	1.43	151	14	39	1.19	6.23	30
Silty clay	9	24	10	75	4.81	27	14	1.44	183	15	40	1.63	6.23	41
Clay	86	22	12	66	4.81	31	14	1.30	137	14	40	4.32	5.66	41
Avg.	(231)	28	11	61	4.02	22	13	1.29	127	15	36	2.31	5.47	31
<b>Off Yamagata-Akita</b>														
Coarse sand	6	17	7	18	1.34	8	9	0.68	13	9	23	0.69	2.45	8
Medium sand	13	30	12	48	2.73	13	13	1.48	26	15	27	1.03	4.62	17
Fine sand	16	25	10	41	2.48	19	14	1.52	45	13	31	1.13	5.14	15
Sandy silt	14	27	10	47	3.25	21	14	1.51	41	14	33	1.39	5.40	20
Silt	14	24	10	56	4.03	26	15	1.50	45	14	40	1.28	6.23	25
Sandy clay	6	34	12	66	4.12	20	13	1.38	28	19	31	1.82	5.37	24
Silty clay	18	21	10	55	4.34	28	14	1.43	36	14	40	1.79	5.96	26
Clay	82	20	12	55	4.67	32	14	1.37	26	13	41	4.42	5.87	31
Avg.	(169)	23	11	52	3.97	26	14	1.40	31	14	37	2.83	5.57	25
<b>Off Tokai</b>														
Coarse sand	10	17	13	40	1.20	21	9	0.98	n.d.	8	16	1.47	2.79	24
Medium-fine sand	12	24	17	38	1.93	22	11	1.11	n.d.	11	26	1.75	3.41	25
Fine sand	26	21	13	32	2.12	15	10	1.01	n.d.	10	22	1.57	3.43	17
Very fine sand	83	31	11	49	3.07	20	13	0.94	n.d.	15	36	1.01	5.48	25
Sandy silt	24	32	12	63	4.26	32	15	1.00	n.d.	16	45	1.06	6.95	32
Silt	32	29	12	61	4.83	41	15	1.10	n.d.	15	48	1.24	7.00	33
Sandy clay	3	35	10	68	4.70	28	15	0.99	n.d.	18	49	1.20	7.76	35
Silty clay	25	34	11	70	5.23	38	15	1.00	n.d.	17	52	1.08	7.76	38
Avg.	(215)	29	12	52	3.47	26	13	1.00	n.d.	14	38	1.19	5.68	28
All the avg.	(615)	27	11	55	3.82	24	13	1.22	87	14	37	2.06	5.57	28

第5表 つづき。

Table 5 Continued.

	(n)	Rb (ppm)	Sb (ppm)	Sc (ppm)	Sn (ppm)	Sr (ppm)	Ta (ppm)	Th (ppm)	Tl (ppm)	U (ppm)	V (ppm)	Y (ppm)	Zn (ppm)	Zr (ppm)
<b>Off Niigata</b>														
Coarse sand	6	51	0.50	8	1.08	552	0.26	3.53	0.34	0.94	108	12	55	30
Medium sand	19	54	0.54	8	1.08	522	0.32	4.26	0.31	1.13	116	13	56	37
Fine sand	32	65	0.57	10	1.38	253	0.42	5.07	0.40	1.22	120	14	62	51
Very fine sand	6	61	0.45	8	1.78	160	0.45	5.20	0.49	1.22	136	11	57	50
Sandy silt	25	64	0.55	10	1.76	173	0.43	5.48	0.42	1.29	140	13	68	46
Silt	48	59	0.48	9	2.37	121	0.53	5.04	0.47	1.21	152	13	72	53
Silty clay	9	59	0.79	9	2.32	132	0.54	4.97	0.47	1.17	143	13	76	54
Clay	86	58	0.93	8	2.29	125	0.48	4.41	0.47	0.97	152	12	77	49
Avg.	(231)	60	0.69	9	1.98	192	0.46	4.76	0.44	1.11	141	13	70	48
<b>Off Yamagata-Akita</b>														
Coarse sand	6	46	0.54	4	0.90	117	0.22	2.88	0.35	0.57	49	9	53	26
Medium sand	13	49	0.62	12	1.25	306	0.39	4.81	0.29	1.11	159	17	87	56
Fine sand	16	46	0.54	10	1.67	174	0.44	4.08	0.36	1.03	161	15	113	55
Sandy silt	14	51	0.60	10	1.83	146	0.48	4.40	0.40	1.22	152	14	99	56
Silt	14	54	0.68	9	2.42	108	0.57	4.64	0.46	1.24	155	13	109	54
Sandy clay	6	60	1.09	10	1.80	106	0.49	4.77	0.40	1.33	180	15	91	51
Silty clay	18	55	0.84	8	2.35	104	0.54	4.19	0.46	1.07	152	12	101	52
Clay	82	58	1.08	8	2.33	98	0.53	3.98	0.48	0.96	180	12	101	50
Avg.	(169)	55	0.88	9	2.08	128	0.50	4.15	0.44	1.04	165	13	99	51
<b>Off Tokai</b>														
Coarse sand	10	30	0.42	12	0.97	890	0.32	2.12	0.23	0.96	96	15	52	32
Medium-fine sand	12	48	0.69	13	1.03	540	0.41	3.14	0.30	1.02	119	15	76	38
Fine sand	26	49	0.53	10	1.53	413	0.35	3.14	0.28	1.10	83	13	60	34
Very fine sand	83	66	0.47	10	1.69	243	0.48	5.17	0.41	0.93	85	13	69	32
Sandy silt	24	72	0.66	12	2.35	177	0.61	5.82	0.48	0.99	101	14	85	34
Silt	32	73	0.79	12	2.59	165	0.62	5.26	0.52	1.04	119	13	95	38
Sandy clay	3	76	0.68	10	2.22	185	0.60	6.60	0.50	1.05	75	13	79	34
Silty clay	25	81	0.79	11	2.40	185	0.67	6.73	0.51	1.09	95	14	88	35
Avg.	(215)	65	0.60	11	1.90	284	0.51	4.95	0.42	1.00	95	13	75	34
All the avg.	(615)	60	0.71	10	1.98	206	0.49	4.66	0.43	1.05	132	13	80	44

響は存在しないと考えられる。

### 5.1.3. 風化・続成作用の影響

上述のように、岩石由来碎屑物の粒度変化に伴う元素濃度の変化を支配する要因としての造岩鉱物の機械的な強度差や、生物濃縮の影響は限定的と考えられるため、風化・続成作用に伴う水和・炭酸化・酸化・加水分解・溶解・移動・吸着・沈殿・再結晶等の影響が最も大きいと考えられる。なお、Ohta et al. (2004) が指摘しているように、粒度変化に伴う元素濃度の変化は、源岩の種類や碎屑粒子の供給源からの距離等によっても異なるが、本研究は河川～海底堆積物における全体的な傾向の把握が主目的であるため、この議論は割愛する。

### 5.2. 堆積物の粒度と砂岩・泥岩の化学組成

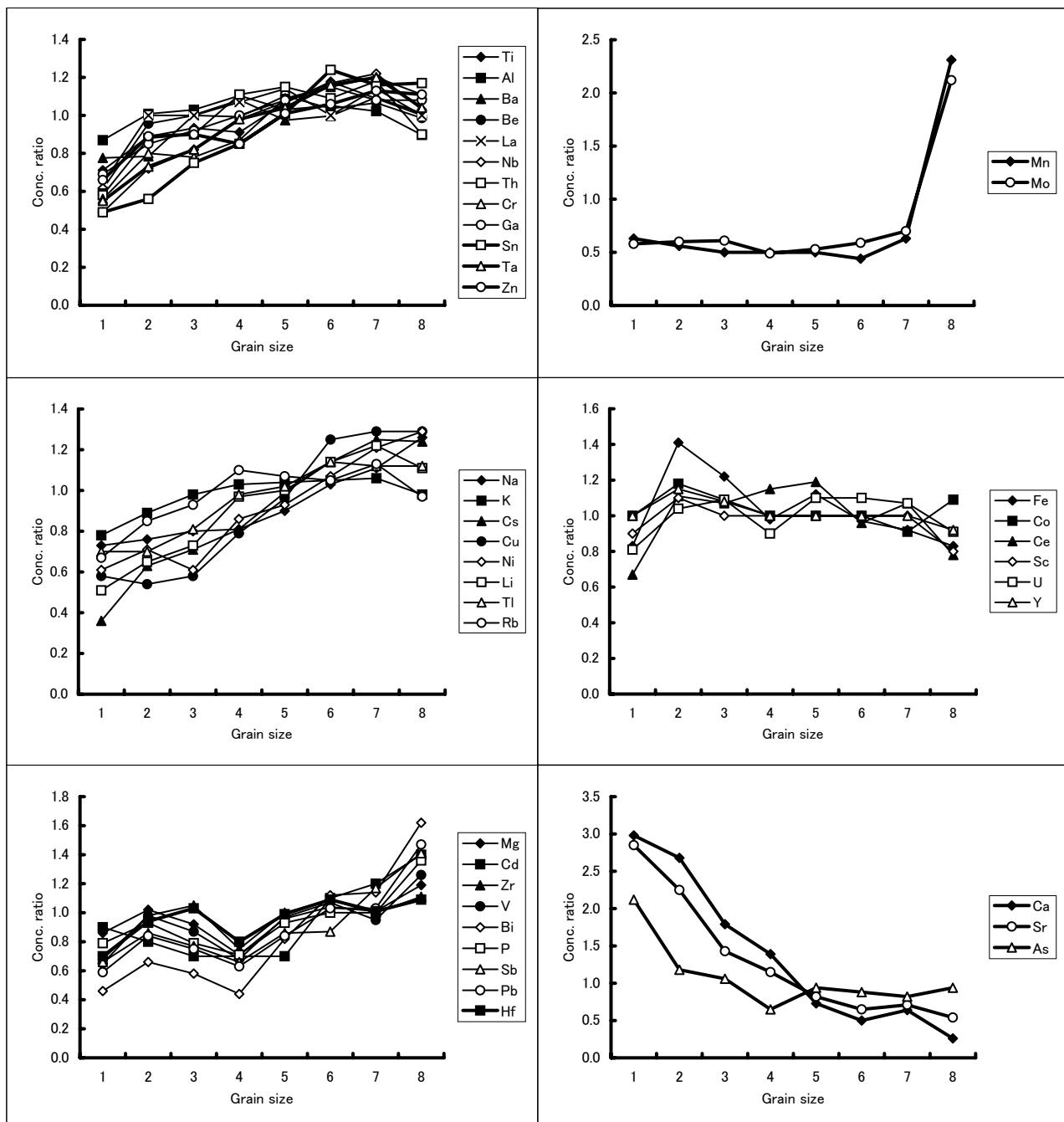
極細粒砂（粒径 0.0625mm, 250 メッシュ）よりも粗粒な砂質粒子から構成される堆積岩が砂岩で、シルト（粒径 0.0625 ~ 約 0.004 mm）及び粘土（粒径約 0.004 mm 以下）の大きな粒子に由来するのが泥岩であり、全堆積岩のうち 40 ~ 60 % が泥岩とされている（地学団体研究会編, 1996）。河川堆積物の平均粒度において 150 メッ

シュよりも細粒な部分は平均 7.3 % であり（第2表）、河川堆積物がそのまま堆積岩になるとすれば大部分は砂岩になると言える。一方、海底堆積物では泥岩に対応する細粒部分の重量百分率は新潟沖 73 %、山形 - 秋田沖 79%、東海沖 39 %（第4表より計算）で海域によりばらつきがあるが、全体の平均は 63 % であり、河川堆積物が粗粒であることを考慮すると全堆積岩の 40 ~ 60 % が泥岩とされていることと調和する。

1. で述べたように、砂岩と頁岩の成分濃度は第1表のようにまとめられており、砂岩に多く含有される成分は Si, Ca, Hf, Zr であり、Ti, Al, Fe, Mg, K, P 等の主成分や多くの微量元素は頁岩中で高濃度を示す。Na, Bi, Ce, La, Tl, Y については文献値にばらつきが認められ、砂岩と頁岩のいずれに濃集するかの結論は得られていない。

### 5.3. 河川堆積物の粒度と化学組成

苦鉄質鉱物に多く含有される Ti, Fe, Mn, Mg, Ca, V と主として斜長石に由来すると考えられる Na は 80 ~ 400 メッシュ部分で高濃度を示す傾向がある（第3図）。これは岩石中の主要な苦鉄質鉱物（かんらん石、輝石、



Grain size: 1, Coarse sand; 2, Medium sand; 3, Fine sand; 4, Very fine sand; 5, Sandy silt; 6, Silt; 7, Sandy-silty clay; 8, Clay

第4図 海底堆積物中成分の粒度別平均濃度比（各粒度の成分濃度／全粒度の平均成分濃度）変化。

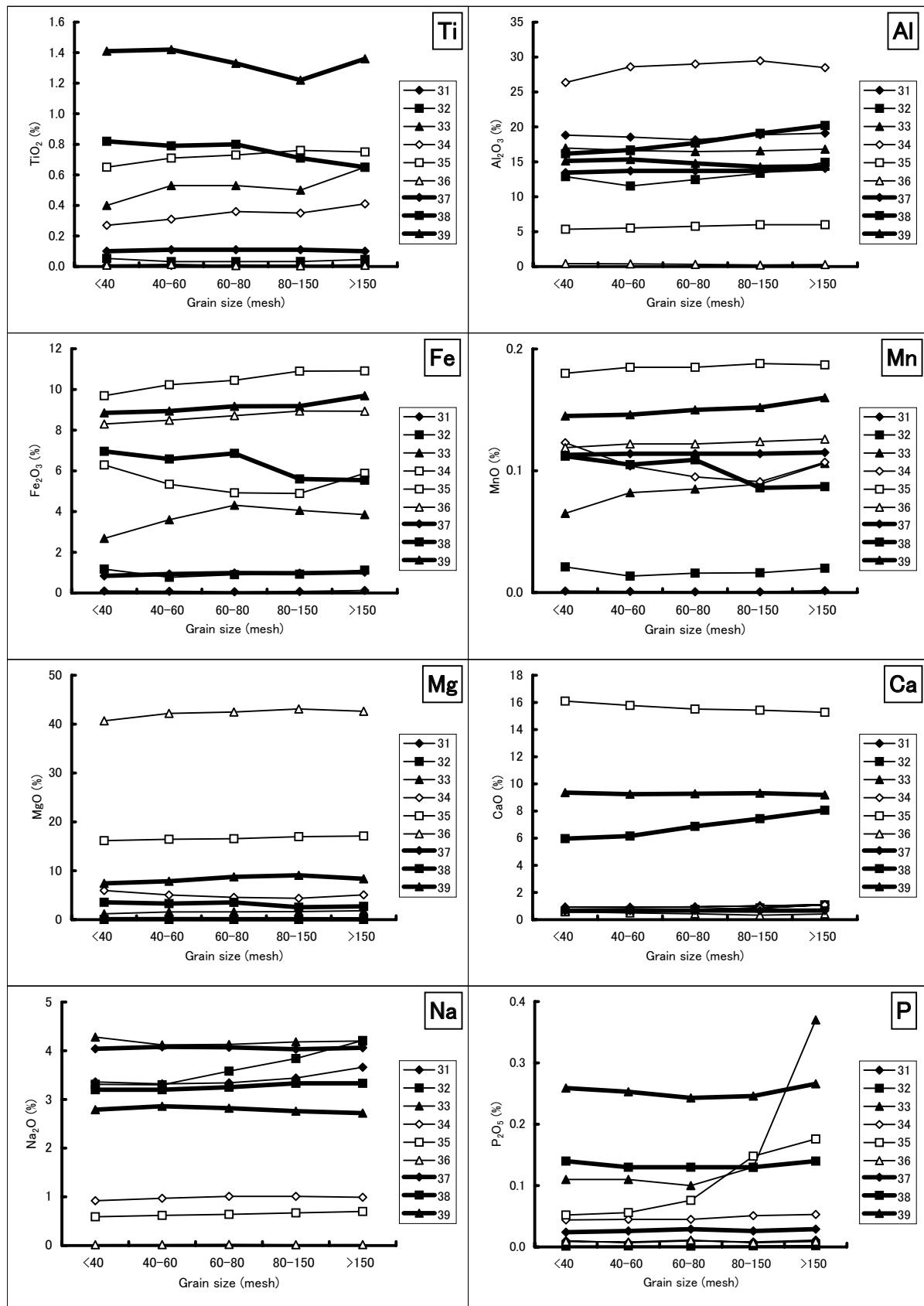
Fig.4

concentration of whole grain size) of the marine sediments according to the grain size classification.

角閃石、磁鐵鉱、チタン鉄鉱等) や斜長石が風化に伴って 80 ~ 400 メッシュの碎屑物になりやすいためであろう。Al, Ni, Sr の濃度は、最も微細な粒度区分 (> 400 メッシュ) で最高値を示す。この場合、岩石の風化に伴って鉱物粒子から溶出した成分が水和酸化物等として再沈殿し、微細な粒子と行動を共にしていることが考えられ

る。K と Ba は、他の成分とは逆に微細化に伴って低濃度になる (第3図, C)。この原因は、主として K に富む花崗岩質岩石において粒度の細粒化に伴って K 濃度が低下するためであり、火山岩類や苦鉄質火成岩の場合は粒度変化に伴う K 濃度の明らかな変化は認められない (第1図)。花崗岩類を母材とする細粒堆積物が K に富ま

河川・海底堆積物の粒度変化に伴う元素濃度変化（寺島ほか）



第5図 岩石標準試料の源岩を粉碎した場合の粒度別成分濃度変化 .

Fig.5

Sample: 31, JF-1; 32, JG-2; 33, JG-3; 34, JGb-1; 35, JH-1; 36, JP-1; 37, JR-1; 38, JA-1 and 39, JB-1.

第6表 岩石標準試料の粒度別分析結果。

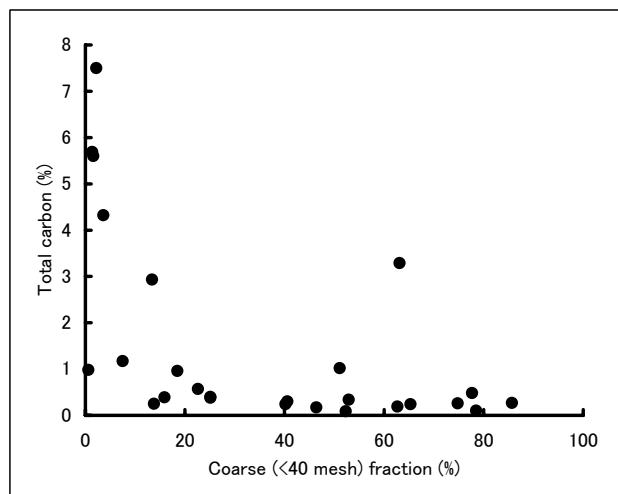
Table 6 Analytical results of the rock reference samples according to the grain size classification.

	Grain size (mesh)				
	<40	40–60	60–80	80–150	>150
TiO <sub>2</sub> (%)	0.41	0.44	0.43	0.41	0.44
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	13.95	14.10	14.26	14.62	14.92
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	4.99	5.00	5.15	5.06	5.23
MnO (%)	0.098	0.097	0.097	0.096	0.101
MgO (%)	8.35	8.51	8.62	8.65	8.65
CaO (%)	3.96	3.95	4.02	4.10	4.22
Na <sub>2</sub> O (%)	2.50	2.50	2.54	2.59	2.65
K <sub>2</sub> O (%)	1.72	1.75	1.74	1.74	1.74
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> (%)	0.072	0.071	0.072	0.083	0.117
Ba (ppm)	423	428	413	411	433
Cu (ppm)	16	16	16	16	19
La (ppm)	15	14	14	15	18
Sr (ppm)	228	227	229	232	238
V (ppm)	105	104	105	98	98
Zn (ppm)	37	37	38	39	39

い原因是、K の主要部分がカリ長石に由来しており、カリ長石は風化抵抗性が大きいため微細粒子になりにくいためと考えられる。マグマの結晶作用において、Ba はカリウム鉱物に含まれることが知られており (Mason, 1966), これが K と Ba の挙動が類似する原因であろう。P, Cu, T.C 等の濃度が中粒部分よりも粗粒部分で高くなる原因を検討した。まず、試料の採取地点に関しては、山間部の小河川ではそのような試料は得られず、平野部の流れのゆるやかな場所で採取された試料に多い傾向があった (第 A-1 表)。第 6 図は、河川堆積物中の 40 メッシュよりも粗粒部分の割合 (第 3 表) と T.C 濃度の関係を示したものである。T.C に富む (4% 以上) 堆積物は粗粒部分の割合が少ない試料 (5% 以下) である。T.C に富む粗粒部の未粉碎試料を観察した結果、岩石由来の碎屑粒子はほとんど含まれず、微小な鉱物や植物片に粘土質の堆積粒子が付着して団塊化したと考えられる粒子であった。しかしながら、本来微細な粒子として存在すべき堆積物が単純に凝集・固結したのであれば、Al, Ni, Sr 等も粗粒部分が高濃度になるはずである。中粒部分よりも粗粒部分が高濃度を示す成分が P, Cu 等に限定される理由としては、前述の生物濃縮の影響に加えて有機物による元素の選択的吸着作用等を考慮すべきであろう。

#### 5.4. 海底堆積物の粒度と化学組成

5.4.1. 粗粒堆積物で濃度が高い元素 : Ca, Sr, As  
粒度の細粒化に伴って Ca, Sr の濃度が低下する (第 4 図) 原因は、この両元素の主要供給源が貝殻片等の石



第6図 河川堆積物中の粗粒部分 (&lt;40 メッシュ) の含有率と全炭素濃度の関係。

Fig. 6 (&lt;40 mesh) abundance of the river sediments.

灰質堆積物であり (Ohta et al., 2004, 2007), 粒度の細粒化に伴って石灰質堆積物が急激に減少するためである。一般的には、As は砂岩よりも頁岩中に多く含まれるが (第 1 表), 本研究結果では Ca, Sr と同様に細粒化に伴って濃度が低下している (第 4 図)。新潟沖海域では、As (31 ~ 141 ppm) に富む砂質堆積物は鉄 ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$  7.19 ~ 18.36%) にも富んでおり、上越市北方の関川の河口周辺海域に分布する。関川の集水域には妙高、黒姫、飯縄等の火山が分布し、それらに伴う多くの温泉もある。今井ほか (2004) によれば、関川の下流域堆積物に含まれる As 濃度は平均 27 ppm (n = 2) で周辺河川よりも明らかに高い。火山・温泉活動に伴って関川からは Fe, As に富む堆積粒子・河川水が供給され、海水との混合により Fe と As に富む砂質堆積物が生成・堆積していることが考えられる。

#### 5.4.2. 粒度変化にともなう濃度変化が小さい元素 : Fe, Co, Ce, Sc, U, Y

Fe, Co, Sc は苦鉄質鉱物に多く含まれ、砂岩よりも頁岩で高濃度を示す (第 1 表) ことから、粒度の細粒化に伴って高濃度になることが期待される。しかし、Ce, U, Y も同様であるが、粒度が細粒化しても元素濃度は増加しない (第 4 図)。新潟～山形～秋田沖の堆積速度が遅い海域の堆積物には海緑石等続成作用に伴って生成した粗粒鉱物の存在が確認されており (寺島ほか, 1995a), 本来ならば細粒粒子と行動を共にする Fe, Co, Ce, Sc, U, Y 等の一部が続成作用に伴って粗粒鉱物に取り込まれ、結果として粒度変化に伴う元素濃度変化が小さくなっていることが考えられる。

#### 5.4.3. 粘土でのみ高濃度を示す元素：Mn, Mo

日本海深部の粘土質堆積物に多量の Mn が含有されていることは浜口・太田（1953）の研究以来多くの報告があり、その高濃度の原因は還元的な堆積層から溶出した Mn イオンが酸化的な環境下で再沈殿する、いわゆる続成作用に伴う濃集である（Lynn and Bonatti, 1965, 木下, 1981,）。Mo に関しても Mn とほぼ同様な濃集機構が考えられており（木下, 1981），筆者らの考えも同様である。ただし、深海底のマンガン団塊の化学組成によれば、Mn, Mo 以外に Cu, Ni, Co, As 等も高濃度になることが期待されるがこれら元素は濃縮されておらず、この原因是低温で高い溶存酸素濃度を有する日本海深層水の影響と考えられるが、詳細は今後の研究課題である。

#### 5.4.4. 細粒堆積物で高濃度を示す元素：Ti, Al, Ba, Be, La, Nb, Th, Cr, Ga, Sn, Ta, Zn, Na, K, Cs, Cu, Ni, Li, Tl, Rb, Mg, Cd, Zr, V, Bi, P, Sb, Pb, Hf

これら元素の大部分は砂岩よりも頁岩中で高濃度を示すとされている元素であり（第1表），従来の研究結果と矛盾しない。Zr, Hf はこれまで砂岩中で高濃度とされているが（第1表），本研究結果では他の元素と同様に細粒堆積物で高い。Hg 濃度と粒度変化の関係は不明瞭である（第5表）。これは主として人為的に供給された Hg が佐渡島の北西海域や阿賀野川の河口付近の堆積物で高濃度を示すためであり、人為的な影響がない海域では他の微量元素と同様に粒度の細粒化に伴って高濃度になる（寺島ほか, 1995b）。本研究では Si は分析しなかったが、濱田（1997）による石狩湾堆積物の例では粗粒堆積物中で高く、細粒化に伴って低濃度になり、金井ほか（1993）による砂漠堆積物でも同様である。また、Si 濃度は頁岩に比べて砂岩中で高い（第1表）ことから、岩石由来の碎屑物を主体とする堆積物では粗粒部分で高く、細粒化に伴って低濃度になると考えられる。したがって石灰質堆積物や珪質堆積物の影響及び続成作用に伴って生成する鉱物や濃集する元素の影響を除外すると、Si 以外のすべての主・微量元素と有機物、水分等は粒度の細粒化に伴って高濃度になり、Si のみが低濃度になると考えられる。

#### 5.5. 河川堆積物と海底堆積物の相違

5.4.3～5.4.4 で述べた河川堆積物と海底堆積物の粒度変化に伴う元素の挙動を比較すると次のような相違点がある。1) Ca, Sr は、河川堆積物では概略的に粒度の細粒化に伴って高濃度になる（第3図）が、海底堆積物では逆に低くなる（第4図）。2) Fe, Mn は、河川堆積物では粗粒部から中粒部にかけて濃度が増加する（第4表）が、海底堆積物では粗粒部～中粒部での顕著な濃度変化はない（第4図）。3) K, Ba は、河川堆積物では粗粒部が高濃度で粒度の細粒化に伴って低くなり（第3

図），海底堆積物では逆にやや増加する（第4図）。

上記1) の Ca, Sr 濃度の相違は、海底堆積物中には貝殻片等の生物起源の粗粒堆積物が存在するのに対して、本研究で分析した河川堆積物には貝殻片等がほとんど含まれないためである。2) の Fe に関しては、海底堆積物では続成作用に伴って海緑石等の粗粒鉱物が生成するのに対して河川堆積物ではこの影響がなく、Mn の場合は河川堆積物では源岩に由来する造岩鉱物中の Mn 濃度の影響が大きいのに対して海底堆積物では続成作用に伴う溶出と濃縮の影響が大きく、粘土質堆積物中でのみ顕著な高濃度を示すためと考えられる。3) の河川堆積物中の K, Rb が粗粒部分で高濃度を示す主な原因是カリ長石の存在である（5.3 参照）が、海底堆積物の粗粒部分ではカリ長石よりも K, Rb に乏しい貝殻片等の生物源堆積物が卓越し、また海底堆積物の細粒部分には海塩由来の K, Rb が含有されるため相対的に細粒部分が高濃度を示すと考えられる。

#### 6.まとめ

堆積物の粒度変化に伴う元素の挙動を明らかにするため、あらかじめ粒度別に篩い分けを行った河川堆積物及び粒度の異なる海底堆積物の化学分析を実施し、以下の結論を得た。

1) 岩石由来碎屑物の粒度変化に伴って元素濃度が変わることとしての造岩鉱物の機械的な強度差、生物濃縮の影響は限定的であり、主として風化・続成作用の影響と考えられた。

2) 河川堆積物中の Si 以外の主・微量元素は、概略的には粒度の微細化に伴って高濃度になる。しかし K, Ba にはその傾向がなく、特に花崗岩類地域の堆積物では粗粒部分の方が高濃度であった。これは花崗岩類の風化変質に伴ってカリ長石が細粒部よりも粗粒部に多く含まれるためと考えられた。

3) 平野部の河川で採取した泥質堆積物では、P, Cu, T.C 等の濃度が中粒部よりも粗粒部で高い場合があった。粗粒部の未粉碎試料を観察した結果、碎屑物粒子は少なく、微小鉱物や植物片に粘土質粒子付着して団塊化したものと考えられた。

4) 海底堆積物において多くの元素は粒度の微細化に伴って高濃度になるが、逆に低濃度になる元素（Ca, Sr, As）、顕著な濃度変化を示さない元素（Fe, Co, Ce, U, Y）が存在する。

5) 海底堆積物中の Ca, Sr の主要供給源は貝殻片等の石灰質堆積物であり、粒度が微細化すると石灰質の堆積粒子が急激に減少するためこれらの元素が低濃度になる。

6) 海底粗粒堆積物における As の高濃度や、粒度が変化しても Fe, Co 等の元素濃度に顕著な変化が認められない現象は、風化・続成過程における元素の移動・濃集

や新たな鉱物の生成が原因と考えられた。

7) 日本海深部の粘土堆積物にはシルト～砂質堆積物の数倍程度の Mn, Mo が濃縮されている。Mn については還元的な堆積層から溶出した Mn イオンが酸化的な環境下で再沈殿したものであり、Mo も同様な機構で濃集したと考えられた。

## 文 献

- Bowen, H. J. M. (1979) Environmental chemistry of the elements. Academic Press, London, 333p. 94, 419-431.
- 地学団体研究会編 (1996) 新版地学事典. 平凡社, 東京, 1443p.
- 地質調査所 (1979) 地球科学的試料の化学分析法 3. 地質調査所化学分析法, no.52, 915p.
- 浜口 博・太田直一 (1953) 日本海海底土の化学組成. 日本化学会誌, 74, 761-764.
- 濱田誠一 (1997) 石狩湾沖表層堆積物の粒径別 XRF 成分分析. 井内美郎・駒沢正夫・倉本真一編「北海道西方海域の環境変動に関する総合的研究」. 平成 8 年度研究概要報告書, 205-231.
- 池原 研・片山 肇・中嶋 健 (1994a) 20万分の1 海洋地質図「粟島周辺表層堆積図」. 地質調査所.
- 池原 研・中嶋 健・片山 肇 (1994b) 20万分の1 海洋地質図「秋田西方表層堆積図」. 地質調査所.
- 池原 研・片山 肇・斎藤文紀・湯浅真人・石塚治・古宮正利・仲宗根徹 (1998) 東海沖表層堆積物の特徴. 浅真人・岡村行信編「東海沖海域の海洋地質学的研究及び海域活断層の評価手法に関する研究」. 平成 9 年度研究概要報告書, 地質調査所, 114-135.
- Ikehara, K., Katayama, H., Saito, Y., Komiya, M., Ishizuka, O., Yuasa, M. and Nakasone, T. (1999) Surface sediment characteristics and sedimentology off Tokai region. Geol. Surv. Japan Cruise Rept., 24, 101-125.
- Imai, N., Terashima, S., Itoh, S. and Ando, A. (1995) 1994 compilation of analytical data for monor and trace elements in seventeen geochemical reference samples, "Igneous rock series". Geostandards Newsletter, 19, 135-213.
- Imai, N., Terashima, S., Itoh, S. and Ando, A. (1998) 1998 compilation of analytical data for five GSJ geochemical reference samples: The "Instrumental analysis series". Geostandards Newsletter, 23, 223-250.
- 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. 独立行政法人産業技術総合研究所地質調査総合センター, 209p.
- 金井 豊・寺島 滋・石井武政・宮田雄一郎・水野清秀・磯部一洋・錢 亦兵 (1993) 砂漠堆積物の化学組成と風化機構についての一考察—中国タクラマカン砂漠の一例—. 応用地質, 33, 322-331.
- 片山 肇・中嶋 健・池原 研 (1991) 新潟沖の表層堆積物. 岡村行信編「日本海中部東縁部大陸棚周辺海域の海洋地質学的研究」, 平成 2 年度研究概要報告書—新潟県沖海域—, 地質調査所, 47-73.
- 片山 肇・中嶋 健・池原 研 (1994) 20万分の1 海洋地質図「佐渡島南方表層堆積図」, 地質調査所.
- 木下 貴 (1981) 日本海海底泥質堆積物の微量元素を中心とした地球化学的特徴. 地質学雑誌, 87, 369-381.
- 北野 康 (1972) 浅海堆積物. 三宅泰雄編「堆積物の化学」, 東海大学出版会, 243-335.
- Levinson, A. A. (1980) Introduction of Exploration Geochemistry. 2nd ed., Applied Publishing, Wilmette, Illinois, 614p.
- Lynn, D. C. and Bonatti, E. (1965) Mobility of Manganese in diagenesis of deep-sea sediments. Marine Geol., 3, 457-474.
- Mason, B. (1966) Principles of geochemistry. 3rded., Wiley, New York, 329p.
- Murakami, H., Kimata, M. and Simoda, S. (1991) Native copper included by anorthite from the island of Miyakejima: implications for ark magmatism. J. Min. Econ. Geol., 86, 364-374.
- 中嶋 健・片山 肇 (1992) 酒田・秋田沖の表層堆積物. 岡村行信編「日本海中部東縁部大陸棚周辺海域の海洋地質学的研究」, 平成 3 年度研究概要報告書—山形～秋田県沖海域—, 地質調査所, 105-130.
- 中嶋 健・片山 肇・池原 研 (1995) 20万分の1 海洋地質図「佐渡島北方表層堆積図」, 地質調査所.
- Ohta, A., Imai, N., Terashima, S., Tachibana, Y., Ikehara, K. and Nakajima, T. (2004) Geochemical mapping in Hokuriku, Japan: influence of surface geology, mineral occurrences and mass movement from terrestrial to marine environments. Appl. Geochem., 19, 1453-1469.
- Ohta, A., Imai, N., Terashima, S., Tachibana, Y., Ikehara, K., Okai T., Ujiie-Mikosiba, M., and Kubota, R. (2007) Elemental distribution of coastal sea and stream sediments in the island -arc region of Japan and mass transfer processes from terrestrial to marine environments. Appl. Geochem., 22, 2872-2891.

- Sato, M.M., Narita, H. and Tunogai, S. (2002) Barium increasing prior to opal during the last termination of glacial ages in the Okhotsk Sea sediments. *J. Oceanogr.*, **58**, 461-467.
- Soma, M. and Seyama, H. (1986) Surface composition of powdered rock samples studied by X-ray photoelectron spectroscopy. *Chem. Geol.*, **55**, 97-103.
- 寺島 滋・中嶋 健・片山 肇・池原 研・今井 登・谷口政碩 (1995a) 秋田-山形沖海底堆積物における重金属等の地球化学的研究. 地調月報, **46**, 153-176.
- 寺島 滋・片山 肇・中嶋 健・池原 研 (1995b) 新潟沿岸日本海堆積物における水銀の地球化学的挙動. 地球化学, **29**, 25-36.
- 寺島 滋・今井 登・太田充恒・岡井貴司・御子柴真澄 (2004a) 関東平野南部における土壤の地球化学的研究－土壤地球化学図の基礎研究（第5報）総括－. 地調研報, **55**, 1-18.
- 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 (2004b) 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. 地調研報, **55**, 153-169.
- Turekian, K. K. and Wedepohl, K. H. (1961) Distribution of the elements in some major units of the earth's crust. *Geol. Soc. America Bull.*, **72**, 175-192.

(受付：2008年4月7日；受理：2008年9月16日)

第A-1表 河川堆積物の粒度別分析結果.

Table A-1 Analytical results of the river sediments according to the grain size classification.

	Grain size (mesh)							Grain size (mesh)						
	<40	40-60	60-80	80-150	150-250	250-400	>400	<40	40-60	60-80	80-150	150-250	250-400	>400
Sample 1								Sample 5						
TiO <sub>2</sub> (%)	0.89	1.02	1.12	0.95	0.79	1.1	1.07	0.29	0.41	0.38	0.4	0.35	n.d.	n.d.
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	18.02	16.2	16.55	18.53	17.91	16.99	18.09	12.12	15	16.88	18.42	20.26	n.d.	n.d.
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	8.73	10.46	11.41	9.75	11.82	10.9	9.92	2.34	3.45	3.37	3.42	3.26	n.d.	n.d.
MnO (%)	0.15	0.18	0.185	0.16	0.14	0.16	0.14	0.05	0.071	0.067	0.073	0.073	n.d.	n.d.
MgO (%)	3.59	4.96	4.98	4.29	4.13	4.32	3.04	0.43	0.66	0.72	0.8	0.68	n.d.	n.d.
CaO (%)	7.07	7.11	6.46	7.08	7.28	6.45	4.69	0.43	1.03	1.79	2.13	2.17	n.d.	n.d.
Na <sub>2</sub> O (%)	2.39	2	1.85	2.03	2.13	1.94	1.85	1.44	2.33	3.15	3.74	3.97	n.d.	n.d.
K <sub>2</sub> O (%)	0.46	0.34	0.33	0.35	0.35	0.35	0.4	4.96	4.48	3.94	3.34	2.95	n.d.	n.d.
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> (%)	0.14	0.13	0.13	0.14	0.13	0.15	0.21	0.04	0.06	0.06	0.07	0.09	n.d.	n.d.
Ba (ppm)	208	174	172	185	180	184	291	980	688	626	611	636	n.d.	n.d.
Cu (ppm)	84	79	86	92	86	98	146	5	6	6	7	13	n.d.	n.d.
La (ppm)	4	4	3	5	4	5	6	10	12	12	14	19	n.d.	n.d.
Ni (ppm)	29	36	36	29	29	29	31	8	10	8	9	10	n.d.	n.d.
V (ppm)	262	354	374	303	254	385	315	26	35	35	45	47	n.d.	n.d.
Zn (ppm)	128	133	128	119	107	138	176	42	63	56	60	56	n.d.	n.d.
T.C (%)	0.24	0.28	0.48	0.5	0.45	0.7	1.49	0.09	0.08	0.09	0.23	0.51	n.d.	n.d.
T.S (%)	0.131	0.113	0.144	0.138	0.128	0.174	0.22	0.003	0.003	0.003	0.005	0.013	n.d.	n.d.
Sample 2								Sample 6						
TiO <sub>2</sub> (%)	0.55	0.53	0.53	0.71	0.82	0.85	0.61	0.51	0.67	0.52	0.52	0.61	0.73	0.7
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	19.14	18.62	18.73	17.88	17.34	17.38	17.71	12.26	16.91	17.74	18.35	19.51	18.95	20.09
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	5.68	5.6	6.23	8.22	9.92	9.47	6.77	4	5.31	4.65	4.6	4.88	5.21	5.13
MnO (%)	0.123	0.122	0.14	0.155	0.16	0.15	0.14	0.054	0.073	0.06	0.065	0.092	0.102	0.102
MgO (%)	2.32	2.34	2.81	3.58	3.49	2.82	2.13	0.94	1.37	1.51	1.86	1.72	1.7	1.38
CaO (%)	6.62	7.22	7.56	7.33	6.67	5.93	4.87	0.89	2.25	3.36	3.59	3.51	3.06	2.43
Na <sub>2</sub> O (%)	2.96	2.8	2.58	2.4	2.35	2.4	1.37	1.45	2.57	3.16	3.4	3.24	2.87	2.3
K <sub>2</sub> O (%)	0.97	0.85	0.72	0.61	0.68	0.74	0.79	4.16	3.2	2.44	2.23	2.11	1.9	1.8
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> (%)	0.14	0.14	0.14	0.13	0.16	0.21	0.23	0.08	0.1	0.09	0.1	0.16	0.22	0.26
Ba (ppm)	332	290	256	232	222	305	197	849	625	521	500	506	464	448
Cu (ppm)	17	16	17	18	19	25	38	6	10	11	11	16	23	32
La (ppm)	11	10	10	9	9	11	11	29	28	20	20	33	54	47
Ni (ppm)	9	11	11	19	14	19	19	10	10	16	17	15	15	22
V (ppm)	124	120	133	209	254	251	151	46	66	70	88	99	112	109
Zn (ppm)	77	80	84	104	105	109	107	64	88	72	70	55	70	81
T.C (%)	0.38	0.19	0.22	0.31	0.76	1.5	2.71	0.3	0.37	0.38	0.51	0.99	1.7	2.3
T.S (%)	0.021	0.015	0.012	0.012	0.021	0.03	0.051	0.007	0.01	0.011	0.01	0.019	0.025	0.031
Sample 3								Sample 7						
TiO <sub>2</sub> (%)	0.93	1.22	1.67	1.45	0.93	0.93	1	0.66	0.54	0.49	0.56	0.61	n.d.	n.d.
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	16.77	14.55	14.82	17.07	19.89	18.96	20.02	14.12	15.83	15.98	15.55	17.39	n.d.	n.d.
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	10.98	13.35	15.7	14.29	12	11.53	11.23	5.12	4.38	4	4.39	4.38	n.d.	n.d.
MnO (%)	0.182	0.205	0.216	0.208	0.19	0.18	0.18	0.06	0.056	0.056	0.058	0.058	n.d.	n.d.
MgO (%)	4.28	5.5	4.61	3.65	3.01	2.73	2.48	1.39	1.24	1.49	1.59	1.34	n.d.	n.d.
CaO (%)	4.7	4.97	4.33	3.86	3.62	3.4	3.77	1.14	2.03	2.63	2.64	2.62	n.d.	n.d.
Na <sub>2</sub> O (%)	1.24	1	0.76	0.7	0.79	0.77	0.9	1.63	2.57	2.88	2.97	3.16	n.d.	n.d.
K <sub>2</sub> O (%)	0.33	0.33	0.31	0.32	0.4	0.4	0.45	3.7	3.2	2.73	2.4	2.38	n.d.	n.d.
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> (%)	0.08	0.08	0.08	0.09	0.11	0.11	0.12	0.11	0.09	0.1	0.11	0.17	n.d.	n.d.
Ba (ppm)	188	157	157	180	197	201	221	787	675	622	552	531	n.d.	n.d.
Cu (ppm)	88	79	88	104	115	117	115	10	10	11	11	18	n.d.	n.d.
La (ppm)	5	6	8	8	6	8	9	17	14	12	16	36	n.d.	n.d.
Ni (ppm)	40	56	56	71	35	39	36	13	10	13	18	14	n.d.	n.d.
V (ppm)	304	518	707	558	311	299	293	73	62	73	112	98	n.d.	n.d.
Zn (ppm)	133	154	180	174	135	137	154	109	97	82	83	96	n.d.	n.d.
T.C (%)	0.27	0.32	0.51	0.87	1.24	1.4	1.39	0.4	0.22	0.21	0.27	0.68	n.d.	n.d.
T.S (%)	0.054	0.12	0.215	0.48	0.6	0.47	0.26	0.009	0.007	0.008	0.014	n.d.	n.d.	n.d.
Sample 4								Sample 8						
TiO <sub>2</sub> (%)	0.31	0.45	0.42	0.31	0.28	0.55	0.59	1.05	2.94	2.8	2.56	1.61	n.d.	n.d.
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	10.74	15.24	17.81	18.72	20.08	20.49	21.69	12	11.68	12.15	13.13	17.07	n.d.	n.d.
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	2.45	3.71	3.5	2.69	2.29	3.03	3.86	13.71	13.95	13.72	14.11	11.48	n.d.	n.d.
MnO (%)	0.042	0.063	0.062	0.045	0.048	0.072	0.084	0.37	0.45	0.34	0.31	0.23	n.d.	n.d.
MgO (%)	0.55	0.81	0.8	0.6	0.49	0.55	0.66	10.48	8.15	6.38	6.66	6.5	n.d.	n.d.
CaO (%)	0.9	1.7	2.35	2.68	2.91	3	2.66	4.72	4.31	4.18	4.05	3.73	n.d.	n.d.
Na <sub>2</sub> O (%)	1.6	2.62	3.4	4.08	3.9	3.81	3.4	0.45	0.7	1.01	0.84	0.67	n.d.	n.d.
K <sub>2</sub> O (%)	4.12	4.11	3.7	3.45	3.29	2.9	2.62	0.4	0.36	0.36	0.35	0.53	n.d.	n.d.
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> (%)	0.06	0.07	0.06	0.06	0.09	0.2	0.27	0.06	0.07	0.08	0.09	0.14	n.d.	n.d.
Ba (ppm)	889	792	664	661	598	565	548	144	144	140	149	209	n.d.	n.d.
Cu (ppm)	4	4	4	4	9	11	24	24	28	27	30	44	n.d.	n.d.
La (ppm)	8	10	11	10	15	46	45	4	8	8	9	8	n.d.	n.d.
Ni (ppm)	6	8	6	10	5	8	15	58	50	48	53	44	n.d.	n.d.
V (ppm)	18	24	26	25	27	60	75	294	350	397	477	295	n.d.	n.d.
Zn (ppm)	53	79	75	55	22	27	57	114	120	123	135	127	n.d.	n.d.
T.C (%)	0.17	0.19	0.19	0.18	0.15	0.24	0.48	0.48	0.7	0.85	1.36	2.76	n.d.	n.d.
T.S (%)	0.015	0.016	0.015	0.012	0.007	0.012	0.02	0.01	0.015	0.019	0.021	0.036	n.d.	n.d.

河川・海底堆積物の粒度変化に伴う元素濃度変化（寺島ほか）

第 A-1 表 つづき。

Table A-1 Continued.

	Grain size (mesh)							Grain size (mesh)						
	<40	40–60	60–80	80–150	150–250	250–400	>400	<40	40–60	60–80	80–150	150–250	250–400	>400
Sample 9								Sample 13						
TiO <sub>2</sub> (%)	1.16	1.73	1.7	1.83	1.68	1.19	0.76	0.56	0.45	0.45	0.89	1.24	0.9	0.62
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	13.12	13.33	14.48	16	18.19	19.69	22.8	14.8	14.65	15.24	14.17	13.52	14.39	13.38
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	11.6	11.08	11.06	11.53	12.61	11.24	10.08	6.33	4.98	5.16	8.83	10.76	8.09	6.81
MnO (%)	0.225	0.2	0.196	0.226	0.224	0.207	0.194	0.075	0.069	0.078	0.117	0.131	0.099	0.071
MgO (%)	8.09	6.1	5.56	5.67	6.78	5.7	4.37	1.59	1.63	1.88	2.43	2.7	2.09	1.72
CaO (%)	4.27	3.45	3.61	3.58	4.24	3.45	2.57	1.96	2.54	3.01	3.19	2.8	2.34	1.75
Na <sub>2</sub> O (%)	0.46	0.67	0.88	0.8	0.76	0.65	0.58	1.61	2.16	2.23	2.07	1.91	1.77	1.72
K <sub>2</sub> O (%)	0.88	1.13	0.98	0.76	0.73	0.71	0.77	1.59	1.73	1.74	1.6	1.56	1.63	1.64
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> (%)	0.06	0.06	0.08	0.09	0.1	0.12	0.15	0.23	0.12	0.11	0.11	0.14	0.21	0.25
Ba (ppm)	313	387	326	268	254	254	295	425	453	449	411	396	441	520
Cu (ppm)	33	31	33	38	46	55	65	147	32	27	24	33	51	68
La (ppm)	7	7	7	11	11	12	14	21	17	15	17	19	20	16
Ni (ppm)	43	35	36	42	46	48	48	23	15	20	24	32	26	31
Sr (ppm)	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	135	159	168	153	142	137	125
V (ppm)	254	252	285	315	307	253	210	114	93	98	246	321	200	130
Zn (ppm)	96	99	106	116	136	123	121	206	111	109	134	169	176	187
T.C (%)	0.26	0.47	0.8	1.39	1.55	2.44	2.61	5.69	0.68	0.3	0.25	0.62	1.39	1.95
T.S (%)	0.007	0.009	0.013	0.016	0.02	0.028	0.032	0.32	0.131	0.093	0.071	0.069	0.116	0.2
Sample 10								Sample 14						
TiO <sub>2</sub> (%)	0.22	0.28	0.54	0.68	0.74	n.d.	n.d.	0.23	0.26	0.35	0.67	1.78	n.d.	n.d.
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	8.03	8.32	9.23	9.41	15.13	n.d.	n.d.	11.09	11.55	13.02	12.56	12.92	n.d.	n.d.
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	1.53	1.74	3.5	4.58	5.18	n.d.	n.d.	3.04	3.54	4.43	6.12	11.47	n.d.	n.d.
MnO (%)	0.019	0.025	0.044	0.052	0.059	n.d.	n.d.	0.041	0.065	0.08	0.096	0.167	n.d.	n.d.
MgO (%)	0.4	0.63	1.35	1.43	1.32	n.d.	n.d.	0.83	1.4	1.81	1.94	2.38	n.d.	n.d.
CaO (%)	0.36	0.76	1.29	1.23	1.44	n.d.	n.d.	1.67	2.1	2.62	2.78	2.44	n.d.	n.d.
Na <sub>2</sub> O (%)	0.81	1.02	1.2	1.31	2.18	n.d.	n.d.	1.73	1.91	2.1	2.12	1.65	n.d.	n.d.
K <sub>2</sub> O (%)	2.95	2.4	2.26	2.23	2.35	n.d.	n.d.	1.83	1.72	1.72	1.61	1.42	n.d.	n.d.
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> (%)	0.03	0.04	0.06	0.07	0.13	n.d.	n.d.	0.168	0.133	0.145	0.15	0.33	n.d.	n.d.
Ba (ppm)	808	626	611	602	591	n.d.	n.d.	480	438	428	413	467	n.d.	n.d.
Cu (ppm)	2	4	8	12	27	n.d.	n.d.	40	26	28	24	69	n.d.	n.d.
La (ppm)	2	6	12	12	13	n.d.	n.d.	14	15	14.5	16	24	n.d.	n.d.
Ni (ppm)	3	5	11	17	20	n.d.	n.d.	19	19	22	24	44	n.d.	n.d.
Sr (ppm)	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	142	147	171	175	143	n.d.	n.d.
V (ppm)	31	41	88	129	112	n.d.	n.d.	51	58	78	143	306	n.d.	n.d.
Zn (ppm)	24	27	48	60	85	n.d.	n.d.	149	146	154	164	307	n.d.	n.d.
T.C (%)	0.24	0.34	0.52	0.79	1.78	n.d.	n.d.	0.96	0.28	0.33	0.34	1.8	n.d.	n.d.
T.S (%)	0.01	0.008	0.01	0.013	0.026	n.d.	n.d.	0.072	0.052	0.05	0.046	0.135	n.d.	n.d.
Sample 11								Sample 15						
TiO <sub>2</sub> (%)	0.53	0.64	0.52	0.52	0.66	0.96	0.98	0.17	0.28	0.84	1.84	1.07	n.d.	n.d.
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	11.49	14.13	13.49	13.28	14.22	15.94	17.72	8.85	8.62	9.25	10.76	13.31	n.d.	n.d.
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	4.4	5.29	4.4	4.4	4.8	6.2	7.22	2.63	4.45	7.34	11.46	8.08	n.d.	n.d.
MnO (%)	0.044	0.058	0.055	0.046	0.065	0.09	0.113	0.05	0.114	0.132	0.168	0.124	n.d.	n.d.
MgO (%)	1.02	1.43	1.56	1.48	1.42	1.49	1.42	0.92	2.38	2.46	2.63	1.7	n.d.	n.d.
CaO (%)	0.83	1.65	2.02	1.61	1.74	1.85	1.54	1.34	2.09	2.26	2.48	2.05	n.d.	n.d.
Na <sub>2</sub> O (%)	1.03	1.61	1.64	1.6	1.91	2.05	1.43	1.66	1.56	1.59	1.78	1.57	n.d.	n.d.
K <sub>2</sub> O (%)	2.84	2.47	2.36	2.42	2.36	2.1	1.84	1.84	1.41	1.23	1.36	1.5	n.d.	n.d.
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> (%)	0.09	0.11	0.09	0.08	0.11	0.2	0.27	0.12	0.13	0.155	0.216	0.537	n.d.	n.d.
Ba (ppm)	799	696	693	719	695	619	540	452	362	324	355	493	n.d.	n.d.
Cu (ppm)	12	20	16	14	19	34	68	27	28	24	39	85	n.d.	n.d.
La (ppm)	11	11	9	9	19	31	36	14	16	15	21	26	n.d.	n.d.
Ni (ppm)	10	22	15	18	24	30	42	18	21	29	38	47	n.d.	n.d.
Sr (ppm)	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	123	120	125	144	149	n.d.	n.d.
V (ppm)	71	90	83	88	106	150	177	42	65	191	343	192	n.d.	n.d.
Zn (ppm)	63	83	66	63	66	92	138	120	130	147	194	295	n.d.	n.d.
T.C (%)	0.57	0.54	0.4	0.45	0.61	1.28	2.46	0.19	0.25	0.42	0.76	3.24	n.d.	n.d.
T.S (%)	0.016	0.01	0.011	0.01	0.013	0.024	0.048	0.04	0.05	0.05	0.074	0.158	n.d.	n.d.
Sample 12								Sample 16						
TiO <sub>2</sub> (%)	0.49	0.41	0.39	0.48	0.64	0.86	0.66	0.22	0.28	0.61	0.86	0.82	n.d.	n.d.
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	13.97	14.28	14.77	15.3	14.63	14.31	15.23	9.5	10	11.24	12.23	14.27	n.d.	n.d.
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	5.91	4.77	4.69	5.68	6.76	8.02	7.46	2.84	4.1	6.44	6.99	7.09	n.d.	n.d.
MnO (%)	0.138	0.085	0.082	0.096	0.105	0.117	0.107	0.046	0.09	0.143	0.119	0.134	n.d.	n.d.
MgO (%)	1.46	1.37	1.74	2.06	2.22	2.12	1.82	0.83	1.86	2.97	2.05	1.57	n.d.	n.d.
CaO (%)	1.82	2.23	2.88	3.02	2.85	2.57	2.09	1.47	2.06	2.54	2.42	1.85	n.d.	n.d.
Na <sub>2</sub> O (%)	1.52	2.04	2.22	2.14	2.05	1.85	1.77	1.74	1.79	1.86	1.98	1.61	n.d.	n.d.
K <sub>2</sub> O (%)	1.6	1.8	1.72	1.72	1.71	1.64	1.66	1.91	1.6	1.52	1.61	1.59	n.d.	n.d.
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> (%)	0.21	0.12	0.09	0.11	0.13	0.17	0.23	0.148	0.164	0.206	0.277	0.603	n.d.	n.d.
Ba (ppm)	428	461	455	454	442	438	477	456	410	405	444	508	n.d.	n.d.
Cu (ppm)	41	24	19	23	25	31	44	22	23	37	38	81	n.d.	n.d.
La (ppm)	19	14	13	14	16	22	19	14	19	19	21	26	n.d.	n.d.
Ni (ppm)	18	14	12	17	24	27	28	19	20	28	30	37	n.d.	n.d.
Sr (ppm)	123	148	161	160	153	142	134	128	135	148	159	137	n.d.	n.d.
V (ppm)	102	85	84	111	147	197	143	50	64	113	162	148	n.d.	n.d.
Zn (ppm)	124	90	85	99	119	133	152	116	131	168	194	330	n.d.	n.d.
T.C (%)	5.6	1.35	0.56	0.6	0.69	0.98	1.7	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
T.S (%)	0.128	0.073	0.046	0.062	0.043	0.054	0.078	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.

第 A-1 表 つづき。

Table A-1 Continued.

	Grain size (mesh)							Grain size (mesh)						
	<40	40–60	60–80	80–150	150–250	250–400	>400	<40	40–60	60–80	80–150	150–250	250–400	>400
Sample 17								Sample 21						
TiO <sub>2</sub> (%)	0.25	0.29	0.63	1.14	1.08	n.d.	n.d.	0.49	0.53	0.45	0.47	0.68	0.87	0.75
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	10.68	11.51	11.93	11.66	12.28	n.d.	n.d.	13.19	14.75	15.07	15.03	15.94	15.99	14.99
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	3.18	3.83	6.86	10.34	9.5	n.d.	n.d.	4.82	5.52	5.03	5.43	7.46	8.92	7.6
MnO (%)	0.047	0.068	0.122	0.13	0.129	n.d.	n.d.	0.087	0.11	0.094	0.101	0.127	0.14	0.13
MgO (%)	0.88	1.58	2.9	2.39	2.27	n.d.	n.d.	1.23	1.39	1.49	1.81	2.32	2.18	1.71
CaO (%)	1.67	2.31	2.81	2.74	2.48	n.d.	n.d.	2.57	3.09	3.54	4	3.87	3.58	3.02
Na <sub>2</sub> O (%)	1.83	2.09	2.01	2	1.88	n.d.	n.d.	2.08	2.05	2.34	2.36	2.34	2.15	2.06
K <sub>2</sub> O (%)	1.84	1.73	1.6	1.46	1.5	n.d.	n.d.	2.03	1.9	1.98	1.9	1.85	1.7	1.7
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> (%)	0.16	0.105	0.116	0.112	0.189	n.d.	n.d.	0.135	0.163	0.133	0.123	0.141	0.185	0.232
Ba (ppm)	440	407	382	367	403	n.d.	n.d.	586	527	536	509	492	471	495
Cu (ppm)	27	21	21	25	34	n.d.	n.d.	24	34	25	24	29	37	54
La (ppm)	17	15	17	19	20	n.d.	n.d.	16	18	16	17	16	19	17
Ni (ppm)	21	20	24	30	29	n.d.	n.d.	16	16	13	17	21	24	28
Sr (ppm)	131	137	142	137	134	n.d.	n.d.	150	168	182	189	202	189	173
V (ppm)	59	69	141	314	274	n.d.	n.d.	85	101	95	112	168	231	162
Zn (ppm)	126	97	119	150	171	n.d.	n.d.	157	117	101	101	123	143	153
T.C (%)	1.17	0.3	0.26	0.32	1.16	n.d.	n.d.	0.98	1.13	0.33	0.29	0.4	0.72	1
T.S (%)	0.12	0.071	0.062	0.06	0.129	n.d.	n.d.	0.039	0.047	0.028	0.025	0.022	0.033	0.046
Sample 18								Sample 22						
TiO <sub>2</sub> (%)	0.31	0.35	0.34	0.52	0.92	0.85	0.67	0.95	0.91	1.14	1.17	1.04	n.d.	n.d.
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	10.76	12.84	13.48	13.17	14.04	14.4	15.78	16.75	15.52	14.24	14	15.8	n.d.	n.d.
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	4.05	3.9	4.12	5.79	8.42	7.57	7.21	9.4	10.93	16.19	17.2	12.06	n.d.	n.d.
MnO (%)	0.056	0.054	0.066	0.092	0.114	0.098	0.081	0.15	0.16	0.2	0.19	0.17	n.d.	n.d.
MgO (%)	1.18	1.33	1.7	2.3	2.58	2.09	1.79	4.46	5.31	6.11	5.35	4.92	n.d.	n.d.
CaO (%)	1.38	2.11	2.66	2.77	2.74	2.42	1.87	8.48	7.92	7.48	7.3	7.98	n.d.	n.d.
Na <sub>2</sub> O (%)	1.71	2.11	2.25	2.14	1.95	1.89	1.78	2.9	2.72	2.5	2.3	2.45	n.d.	n.d.
K <sub>2</sub> O (%)	1.83	1.72	1.73	1.63	1.64	1.68	1.68	0.74	0.58	0.55	0.53	0.61	n.d.	n.d.
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> (%)	0.138	0.102	0.091	0.099	0.135	0.19	0.26	0.185	0.153	0.163	0.151	0.18	n.d.	n.d.
Ba (ppm)	443	426	417	403	423	445	538	297	161	145	152	170	n.d.	n.d.
Cu (ppm)	103	44	20	22	28	35	54	86	69	71	86	94	n.d.	n.d.
La (ppm)	14	12	11	12	15	20	18	10	8.3	7.7	8.7	8.5	n.d.	n.d.
Ni (ppm)	16	11	13	14	26	25	26	40	57	73	65	51	n.d.	n.d.
Sr (ppm)	116	146	154	148	147	142	134	310	275	249	245	276	n.d.	n.d.
V (ppm)	64	68	72	123	217	188	138	288	318	488	539	380	n.d.	n.d.
Zn (ppm)	189	112	104	125	165	171	215	89	90	117	128	118	n.d.	n.d.
T.C (%)	4.32	0.88	0.42	0.56	0.69	1.01	1.96	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
T.S (%)	0.18	0.069	0.081	0.082	0.071	0.1	0.142	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
Sample 19								Sample 23						
TiO <sub>2</sub> (%)	0.37	0.4	0.37	0.53	0.73	n.d.	n.d.	0.94	0.83	0.85	1.1	0.97	n.d.	n.d.
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	10.9	12.82	13.88	13.08	13.36	n.d.	n.d.	16.75	15.83	14.76	13.72	14.96	n.d.	n.d.
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	5.27	5.02	4.44	5.74	7.16	n.d.	n.d.	9.04	9.05	10.48	14.81	10.34	n.d.	n.d.
MnO (%)	0.069	0.069	0.063	0.087	0.1	n.d.	n.d.	0.14	0.15	0.15	0.18	0.14	n.d.	n.d.
MgO (%)	1.43	1.68	1.62	2.18	2.29	n.d.	n.d.	4.22	5	5.09	5.36	3.87	n.d.	n.d.
CaO (%)	1.64	2.11	2.48	2.67	2.54	n.d.	n.d.	8.2	7.75	7.19	7.24	6.54	n.d.	n.d.
Na <sub>2</sub> O (%)	1.71	1.98	2.24	2.16	2.01	n.d.	n.d.	2.93	2.73	2.56	2.23	1.99	n.d.	n.d.
K <sub>2</sub> O (%)	1.52	1.61	1.69	1.63	1.61	n.d.	n.d.	0.75	0.68	0.6	0.53	0.53	n.d.	n.d.
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> (%)	0.225	0.156	0.114	0.109	0.146	n.d.	n.d.	0.198	0.161	0.156	0.194	0.32	n.d.	n.d.
Ba (ppm)	363	382	413	392	380	n.d.	n.d.	201	162	147	136	165	n.d.	n.d.
Cu (ppm)	107	57	23	23	29	n.d.	n.d.	86	74	75	99	220	n.d.	n.d.
La (ppm)	15	12	11	12	16	n.d.	n.d.	7.9	8.5	6.8	8.5	8.1	n.d.	n.d.
Ni (ppm)	17	13	13	15	20	n.d.	n.d.	34	47	53	60	45	n.d.	n.d.
Sr (ppm)	127	146	159	150	143	n.d.	n.d.	308	273	252	232	238	n.d.	n.d.
V (ppm)	81	81	75	120	174	n.d.	n.d.	280	260	307	471	343	n.d.	n.d.
Zn (ppm)	170	129	97	111	130	n.d.	n.d.	95	99	111	152	227	n.d.	n.d.
T.C (%)	7.5	2.69	0.61	0.45	0.67	n.d.	n.d.	0.1	0.12	0.29	0.83	2.51	n.d.	n.d.
T.S (%)	0.3	0.21	0.102	0.076	0.107	n.d.	n.d.	0.017	0.019	0.034	0.043	0.127	n.d.	n.d.
Sample 20								Sample 24						
TiO <sub>2</sub> (%)	0.28	0.35	0.43	0.77	0.85	0.91	0.69	0.83	0.78	0.74	0.94	1.1	1.15	1.06
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	9.62	11.9	11.8	12.44	13.72	13.97	15.1	15.95	15.16	14.26	13.08	15.52	15.8	17.45
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	4.1	4.88	5.61	7.47	7.84	8.13	7.18	8.93	8.83	9.32	13.91	16.26	15.85	11.43
MnO (%)	0.06	0.096	0.11	0.117	0.112	0.106	0.087	0.14	0.14	0.14	0.16	0.2	0.2	0.19
MgO (%)	1.24	2.4	2.86	2.65	2.61	2.29	1.88	4.23	4.11	4.32	4.43	5	4.91	4.55
CaO (%)	1.67	3.16	3.25	3	2.9	2.57	2.02	7.71	6.72	5.32	4.93	7	7.24	7.02
Na <sub>2</sub> O (%)	1.98	2.16	2	2.02	2.05	1.96	1.86	2.88	2.73	2.65	2.35	2.52	2.49	2.41
K <sub>2</sub> O (%)	1.71	1.49	1.44	1.49	1.66	1.66	1.7	0.67	0.63	0.55	0.51	0.53	0.54	0.57
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> (%)	0.083	0.086	0.091	0.101	0.12	0.17	0.23	0.2	0.143	0.12	0.098	0.14	0.16	0.2
Ba (ppm)	432	371	340	357	398	393	417	170	174	142	127	156	153	174
Cu (ppm)	32	31	33	32	39	54	91	78	65	54	62	76	81	118
La (ppm)	9.5	10	11	12.6	13	15	16	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
Ni (ppm)	11	12	15	18	26	26	26	39	40	32	32	55	59	52
Sr (ppm)	110	141	144	141	151	145	138	273	256	225	203	252	255	258
V (ppm)	59	84	104	195	188	204	135	261	243	242	426	479	482	330
Zn (ppm)	86	91	104	132	134	154	193	88	85	78	87	110	118	136
T.C (%)	0.25	0.17	0.21	0.26	0.36	0.66	1.5	0.39	0.12	0.1	0.13	0.25	0.4	0.99
T.S (%)	0.112	0.092	0.088	0.089	0.08	0.136	0.28	0.024	0.015	0.012	0.014	0.011	0.015	0.028

河川・海底堆積物の粒度変化に伴う元素濃度変化（寺島ほか）

第 A-1 表 つづき。

Table A-1 Continued.

	Grain size (mesh)							Grain size (mesh)						
	<40	40–60	60–80	80–150	150–250	250–400	>400	<40	40–60	60–80	80–150	150–250	250–400	>400
Sample 25								Sample 28						
TiO <sub>2</sub> (%)	0.53	0.49	0.52	0.83	0.77	n.d.	n.d.	0.58	0.35	0.47	0.65	0.68	n.d.	n.d.
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	12.54	11.92	12.11	11.17	12.34	n.d.	n.d.	13.04	11.06	12.3	12.37	11.95	n.d.	n.d.
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	5.44	5.31	5.69	8.1	5.91	n.d.	n.d.	6.11	4.13	4.97	5.8	6.31	n.d.	n.d.
MnO (%)	0.112	0.107	0.108	0.127	0.096	n.d.	n.d.	0.129	0.101	0.123	0.153	0.239	n.d.	n.d.
MgO (%)	1.84	1.9	2.05	2.54	1.57	n.d.	n.d.	0.91	1.24	1.56	1.72	1.16	n.d.	n.d.
CaO (%)	1.2	1.53	2.31	2.8	1.35	n.d.	n.d.	1.06	1.45	1.99	2.01	1.31	n.d.	n.d.
Na <sub>2</sub> O (%)	1.46	1.55	1.69	1.71	1.8	n.d.	n.d.	1.15	1.58	1.81	1.86	1.24	n.d.	n.d.
K <sub>2</sub> O (%)	2.03	1.9	1.76	1.57	2.03	n.d.	n.d.	1.57	1.82	1.6	1.53	1.28	n.d.	n.d.
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> (%)	0.082	0.078	0.095	0.073	0.086	n.d.	n.d.	0.259	0.141	0.162	0.197	0.373	n.d.	n.d.
Ba (ppm)	546	530	495	439	600	n.d.	n.d.	427	414	400	399	370	n.d.	n.d.
Cu (ppm)	43	31	54	31	33	n.d.	n.d.	61	39	51	96	131	n.d.	n.d.
La (ppm)	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	8	5	5	7	9	n.d.	n.d.
Ni (ppm)	32	34	22	26	26	n.d.	n.d.	23	15	18	22	28	n.d.	n.d.
Sr (ppm)	132	134	161	160	160	n.d.	n.d.	92	117	146	149	107	n.d.	n.d.
V (ppm)	114	109	136	247	158	n.d.	n.d.	144	83	108	133	144	n.d.	n.d.
Zn (ppm)	95	91	88	103	99	n.d.	n.d.	214	147	172	216	372	n.d.	n.d.
T.C (%)	0.34	0.28	0.28	0.26	0.8	n.d.	n.d.	3.29	1.47	1.91	2.88	5.96	n.d.	n.d.
T.S (%)	0.075	0.074	0.07	0.069	0.102	n.d.	n.d.	0.075	0.049	0.058	0.077	0.148	n.d.	n.d.
Sample 26								Sample 29						
TiO <sub>2</sub> (%)	0.39	0.26	0.27	0.56	0.96	n.d.	n.d.	0.41	0.56	0.53	0.52	1	0.77	0.73
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	12.52	11.72	11.58	11.13	14.33	n.d.	n.d.	10.71	14.26	14.87	14.02	14.11	14.09	14.83
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	3.93	2.91	3.29	6.09	7.35	n.d.	n.d.	4.35	5.72	5.49	4.84	6.28	6.37	6.48
MnO (%)	0.046	0.044	0.062	0.105	0.093	n.d.	n.d.	0.087	0.107	0.093	0.078	0.113	0.125	0.136
MgO (%)	0.82	0.9	1.43	2.52	1.62	n.d.	n.d.	0.72	1.25	1.15	1.2	1.54	1.06	0.94
CaO (%)	1.2	1.76	2.22	2.42	1.8	n.d.	n.d.	1.32	1.49	1.76	1.89	1.88	1.27	1.14
Na <sub>2</sub> O (%)	1.67	1.88	1.97	1.88	1.69	n.d.	n.d.	1.11	1.34	1.63	2.02	1.92	1.26	1.17
K <sub>2</sub> O (%)	2.36	2.12	1.82	1.47	1.46	n.d.	n.d.	1.68	1.47	1.59	1.7	1.5	1.21	1.19
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> (%)	0.216	0.132	0.11	0.144	0.347	n.d.	n.d.	0.248	0.265	0.225	0.179	0.212	0.355	0.379
Ba (ppm)	511	444	401	338	355	n.d.	n.d.	425	400	404	410	400	374	377
Cu (ppm)	35	26	23	33	103	n.d.	n.d.	52	57	44	35	44	79	83
La (ppm)	12	8	7	10	14	n.d.	n.d.	4	10	6	8	10	9	11
Ni (ppm)	12	12	13	24	30	n.d.	n.d.	7	14	15	10	16	16	23
Sr (ppm)	116	141	159	151	139	n.d.	n.d.	100	118	147	169	150	108	286
V (ppm)	89	58	59	130	189	n.d.	n.d.	98	125	122	106	150	157	157
Zn (ppm)	124	99	92	108	178	n.d.	n.d.	317	345	313	251	307	465	486
T.C (%)	1.02	0.7	0.66	0.89	2.5	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
T.S (%)	0.088	0.075	0.062	0.068	0.127	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
Sample 27								Sample 30						
TiO <sub>2</sub> (%)	0.46	0.34	0.58	1.08	0.83	n.d.	n.d.	0.57	0.58	0.51	0.47	0.79	0.88	0.79
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	13.28	10.98	11.4	11.79	14.13	n.d.	n.d.	14.08	14.78	14.44	14.2	15.61	14.91	15.94
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	5.03	4.18	5.21	7.7	6.53	n.d.	n.d.	5.79	5.73	4.86	4.71	6.29	6.79	6.71
MnO (%)	0.094	0.106	0.124	0.173	0.197	n.d.	n.d.	0.085	0.091	0.075	0.074	0.11	0.123	0.114
MgO (%)	0.86	1.56	1.77	2.45	1.42	n.d.	n.d.	0.94	1.07	0.99	1.05	1.19	1.08	0.94
CaO (%)	1.05	1.68	2	2.04	1.53	n.d.	n.d.	1.75	1.85	2.01	2.13	2.05	1.65	1.4
Na <sub>2</sub> O (%)	1.5	1.81	1.84	1.7	1.42	n.d.	n.d.	1.62	1.68	1.96	2.19	1.82	1.47	1.34
K <sub>2</sub> O (%)	2.01	1.89	1.61	1.41	1.29	n.d.	n.d.	1.68	1.5	1.67	1.68	1.45	1.31	1.31
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> (%)	0.256	0.134	0.141	0.202	0.356	n.d.	n.d.	0.238	0.231	0.17	0.155	0.233	0.277	0.326
Ba (ppm)	495	436	394	367	387	n.d.	n.d.	431	402	399	403	395	380	390
Cu (ppm)	61	71	67	134	229	n.d.	n.d.	39	37	26	23	37	44	50
La (ppm)	10	7	8	11	13	n.d.	n.d.	18	14	13	10	16	17	18
Ni (ppm)	17	12	18	28	33	n.d.	n.d.	15	14	11	11	15	19	24
Sr (ppm)	102	127	143	132	113	n.d.	n.d.	262	193	164	171	157	127	119
V (ppm)	111	78	118	191	162	n.d.	n.d.	112	113	96	89	132	153	151
Zn (ppm)	209	152	160	226	344	n.d.	n.d.	211	215	171	160	232	261	282
T.C (%)	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	2.93	3.06	1.71	1.43	2.56	3.08	3.16
T.S (%)	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	0.062	0.066	0.046	0.038	0.057	0.068	0.076