

琵琶湖に流入する河川の河床堆積物の meteoric-¹⁰Be Mereoric-¹⁰Be of bed-sediments in rivers flowing to Lake Biwa

藤沢純平^{1*}・南 雅代²・國分(齋藤)陽子³

Jumpei Fujisawa¹, Masayo Minami² and Yoko Saito-Kokubu³

¹名古屋大学理学部地球惑星科学科 (Department of Earth & Planetary Sciences, Nagoya University)

²名古屋大学宇宙地球環境研究所 (DCR, ISEE, Nagoya University)

³日本原子力研究開発機構東濃地科学センター (Tono Geoscience Center, JAEA, Japan)

*Correspondence to: Jumpei Fujisawa; E-mail: fujisawa.jumpei@j.mbox.nagoya-u.ac.jp

Abstract

Cosmogenic ¹⁰Be is produced by nuclear spallation in the atmosphere and falls to Earth's surface. ¹⁰Be is a useful geological tracer for determining soil age and surface erosion rate. Recently, it is reported that denudation rate can be calculated using the ratio of meteoric-¹⁰Be and ⁹Be in river sediments. The purpose of this study is to apply this approach to some Japanese rivers with smaller watersheds. ¹⁰Be/⁹Be ratios of eight bed-sediments in rivers flowing to Lake Biwa and three lake surface sediments were measured.

Denudation rates (t/km²/yr) calculated from ¹⁰Be/⁹Be of river sediments ranged from 50 to 1179 t/km²/yr. The rates were low in rivers flowing through plane, while high in rivers flowing down mountainous area. This trend coincides with the denudation rate calculated from the standard deviation of altitude per unit area. Precipitation rates around each river showed a positive relationship with the denudation rate estimated from ¹⁰Be/⁹Be of river bed-sediments. The results indicate that ¹⁰Be concentration in river bed-sediments can be used as an indicator of precipitation and surface erosion of the catchment area.

Keywords: meteoric-¹⁰Be; stream sediment; denudation rate; precipitation rate

1.はじめに

2次宇宙線(中性子)と窒素原子または酸素原子とが核破砕反応を起こして生成する¹⁰Beは、半減期139万年で壊変する放射性核種である(e.g. Nishiizumi et al., 2007)。¹⁰Beには大気中で生成するmeteoric¹⁰Beと、地表の岩石・土壌中のSiO₂などに含まれるOから生成する*in situ*¹⁰Beがある。¹⁰Beの生成率は地球に入射する宇宙線の強度に依存し、meteoric¹⁰Beの生成率は約1×10⁶ atoms/cm²/yr、*in situ*¹⁰Beは2-20 atoms/g quartz/yrであるとされている(McHargue and Damon, 1991; Gosse and Phillips, 2001)。meteoric-¹⁰Beは大気中で生成後、BeOやBe(OH)₂の形でエアロゾルなどに付着して1年程度大気中に滞留し、降水とともに地表面に沈降する。地表に降下したmeteoric-¹⁰Beは河川などを通じて運搬され、海底や湖底に堆積する。BeはpHが2以下で水に溶解し、pHが5以上になるとほとんどが水酸化物となり土壌や鉱物の粒子表面に吸着する。¹⁰Beが常に生成し地表に降下すること、土壌粒子への親和性が高いこと、また地上ではほとんど生成されない核種であることから、堆積学の分野でトレーサーとして用いられている。たとえばバイカル湖堆積物コアの¹⁰Be濃度の変動に氷期・間氷期のサイクルと一致が見られることから、¹⁰Beが全球的な気候変動の指標となることが示唆されている(Horiuchi et al., 2001)。また土壌への滞留性から、土壌の生成年代の推定にも用いられる(e.g. Maejima et al., 2005)。Brown et al. (1988)やYou et al. (1988)は集水域の¹⁰Beの流入と流出のフラックスのつり合いを仮定し、河川堆積物の¹⁰Be濃度を浸食速度の指標

とした。von Blanckenburg et al. (2012)は天水によってもたらされる ^{10}Be と岩石の風化によって供給される安定同位体 ^9Be の河床堆積物中の比から集水域の母岩の浸食速度を見積もる計算式を考案し、アマゾン川の河床堆積物においてそれが成り立つことを示した。

本研究では、琵琶湖に流入する主要な河川の河床堆積物の ^{10}Be および ^9Be 濃度を分析し、比較的流域面積の小さい日本においても $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ から浸食速度を求めることができるかどうかを検討することを目的とした。

2. 試料・実験方法

2-1. 試料

琵琶湖は面積 670km^2 の日本最大の湖である。 3174km^2 の集水域には約 460 の河川が存在し、そのうち 120 本が直接琵琶湖に流入している。流出する河川は人工的な琵琶湖疏水を除けば瀬田川のみである。琵琶湖の北部から西部にかけて花崗岩や付加体コンプレックスの砂岩、泥岩、石灰岩などからなる山地が広がっているのと対照的に、南部から東部にはかつての古琵琶湖の堆積物や河成堆積物が分布し平坦な地形となっている。

試料の採取地点を図 1 に示す。河床堆積物試料は知内川、安曇川、比良川（以上、2003 年 7 月に採取）、野洲川、姉川、日野川（以上、2003 年 11 月に採取）、および草津川、柳川（以上、2009 年 11 月に採取）の河口に近い部分で採取した。試料は河川の中央付近で採取するようにし、現地ですくい分けして、粒径 $<180\ \mu\text{m}$ のものを試料とした。河床堆積物との比較試料として、2002 年 5 月に採取した湖底表層堆積物試料 KAN、KAM、KAS（南ほか, 2004）の分析も行った。KAN は北湖から、KAS は南湖から、KAM は北湖と南湖の境で採取されたものである（図 1）。

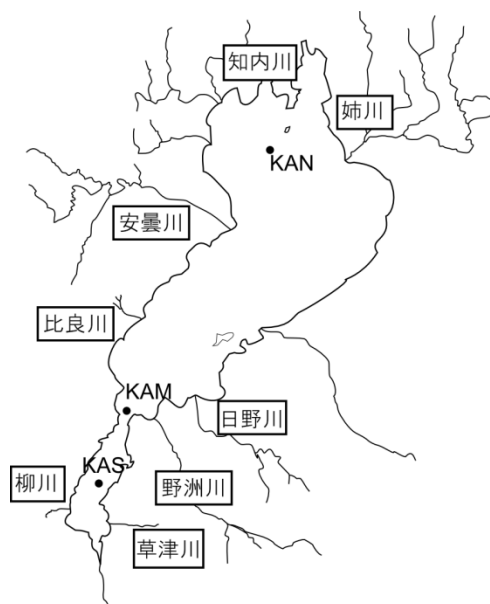


図 1 試料採取地点

2-2. 実験方法

^{10}Be は半減期が長く、存在度が小さいため、放射能測定や ICP-MS 等による定量分析が困難である。そのため、 ^{10}Be 測定には加速器質量分析法 (Accelerator Mass Spectrometry: AMS) が用いられる。本研究では、Kohl and Nishiizumi (1992) および土屋 (2004) を参考に、堆積物試料からイオン交換法により Be フラクシオンを抽出し、AMS 分析のためのターゲットを作成した。

試料を約 1g、テフロンジャーにはかり取り、 $\text{HNO}_3\text{-HF-HClO}_4$ の混酸を加えて密閉し、ホットプレート上で分解した。分解した試料溶液は、 ^9Be 測定用に一部分取した後、残りの溶液に ^9Be キャリアーを 0.1~1 mg 添加して蒸発乾固した。キャリアーには関東化学原子吸光用 Be 標準液 (1000 ppm) を用いた。陰イオン交換カラムは石英ガラス製のカラム (内径 10 mm) に陰イオン交換樹脂 DOWEX 1-X8 (100-200 mesh) を 20 mL、陽イオン交換カラムは陽イオン交換樹脂 DOWEX 50W-X8 (100-200 mesh) を同じ石英カラムに 20 mL 充填して作成した。陰イオン交換を行なうのは鉄イオンを塩化物の錯体にして陰イオン交換樹脂に吸着させるためである。イオン交換法で分離を行なうにあたり、カラムキャリブレーションを行い、その結果から Be の溶離位置を決定した。乾固試料を 9M HCl 4 mL で溶解し、コンディショニング済みの陰イオン交換カラムに吸着させた後、9M HCl を 20 mL 流して Be を含む溶液を全て回収し、再び乾固した。その後 0.5M HCl 4 mL に溶解し、コ

ンディショニング済みの陽イオン交換カラムに吸着させた後、0.5M HCl を 100 mL、1.2M HCl を 10 mL 流した後に 1.2M HCl を 110mL 流して Be フラクシオンを回収し、乾固した。質量分析の際には ^{10}Be の同重体である ^{10}B が妨害となるため、弱アルカリ性で Be だけが水酸化物沈殿をつくる性質を利用して Be を精製した。乾固試料を 3M HNO_3 2 mL に溶かした後、3M NH_3 水を 4 mL 加え $\text{Be}(\text{OH})_2$ の白色沈殿をつくり、2500 rpm で 10 分間遠心分離して上澄み液を捨てた。残った沈殿を 3M HNO_3 4 mL で溶かし、沈殿生成→遠心分離→上澄み除去の作業をもう一度繰り返した。精製した $\text{Be}(\text{OH})_2$ を蒸発乾固し、電子レンジ内で 7 分間 (約 800°C) 加熱して BeO とした。BeO をニオブ粉末 (高純度化学社製、 $<45\mu\text{m}$, 99.9%) と重量比 1 : 4 で混ぜ、Cu カソードに詰めてターゲットとした。

調製した試料の $^{10}\text{Be}/^{9}\text{Be}$ の測定は日本原子力開発機構東濃地科学センターの NEC 社製タンデム型 AMS 15SDH-2 (加速電圧 5MV) で行なった。測定は 1 試料につき 4~9 回行なわれた。標準試料には Nishiizumi *et al.* (2007) によって $^{10}\text{Be}/^{9}\text{Be}$ の値が $2.709\pm 0.030\times 10^{-12}$ と報告されている ICN 01-5-1 を使用した。ブランク試料には Merck (ICP 用) の Be 標準液を用いた。また、 ^9Be 濃度は名古屋大学の ICP-MS (Agilent 7700) で検量線法により濃度を決定した。

一方、試料に含まれる鉱物組成を調べるため、X 線回折 (X-ray diffraction, XRD) を行った。分析には名古屋大学の X 線回折装置 (RIGAKU Miniflex) を用いた。線源は Ni フィルターをかけた $\text{CuK}\alpha$ を用い、印加電圧 30kV、電流値 15mA、走査速度 2° (2 θ /min)、3 回の走査によって X 線強度を出した。

3. 結果・考察

各試料の ^{10}Be 濃度、 ^9Be 濃度、および $^{10}\text{Be}/^{9}\text{Be}$ から計算した浸食速度 D を表 1 に示す。浸食速度 D ($\text{kg}/\text{m}^2/\text{yr}$) の算出には、降水によってもたらされる ^{10}Be と岩石の風化によって供給される ^9Be の集水域における収支バランスから導かれた、以下の近似式を用いた (von Blanckenburg *et al.*, 2012)。

$$\left(\frac{^{10}\text{Be}}{^9\text{Be}}\right) = \frac{F}{D \times [^9\text{Be}]_{\text{parent}}}$$

ここで ($^{10}\text{Be}/^{9}\text{Be}$) は河床堆積物の $^{10}\text{Be}/^{9}\text{Be}$ 測定結果、 F は ^{10}Be の集水域への流入量 ($\text{atoms}/\text{m}^2/\text{yr}$)、 $[^9\text{Be}]_{\text{parent}}$ は流域母岩の ^9Be 濃度 (atoms/g) である。 $[^9\text{Be}]_{\text{parent}}$ の値は、産業技術総合研究所の地球化学標準物質の JG-2 (花崗岩) および JSI-2 (スレート) を参考に、代表的な地質が花崗岩である河川では 3.2 ppm、堆積物である河川では 2.7 ppm とした。また F は Willenbring *et al.* (2010) による大気循環モデルから計算された中部日本付近における値 ($1\times 10^6 \text{ atoms}/\text{cm}^2/\text{yr}$) を用いた。これらの値の誤差をすべてまとめると、浸食速度 D の誤差は 10~20% 程度であると思われる。一般的に、浸食速度は降水量と植生の密度の影響を受けるとされる。日本においては降水量との相関は小さく、単位面積当たりの標高の偏差値 (高度分散量) と相関するという報告がなされている (藤原ほか, 1999)。このことは、標高の高低差の大きい地域ほど浸食速度が大きくなる傾向があることを示している。図 2 は藤原ほか (1999) が高度分散量から求めた琵琶湖周辺の山地の浸食速度である。本研究の $^{10}\text{Be}/^{9}\text{Be}$ から求めた浸食速度は、藤原ほか (1999) の値の範囲よりやや小さいが、北部、西部、南部の順に浸食速度が小さくなる傾向は一致する。しかし、比良川と同じく西部を流れる安曇川は他の河川と比べずっと小さい浸食速度 ($50 \text{ t}/\text{km}^2/\text{yr}$) となった。藤原ほか (1999) による浸食速度はその地点における浸食速度を表すのに対して、河床堆積物の $^{10}\text{Be}/^{9}\text{Be}$ から求めた浸食速度は試料採取地点より上流の流域の平均的な浸食速度を表している。本研究の試料は河口で採取されたものであるため、傾斜の緩やかな河口付近の小さい浸食速度も反映されて藤原ほか (1999) の値よりも小さくなったと考えられる。安曇川の上流は山地を通るが、下流には大きな扇状地が広がっており、平坦な部分の影響をより多く受けた可能性がある。

浸食は雨水や流水が地面を削り取る現象である。そこで、各河川に最も近い気象観測所もしくは

雨量観測所で観測された過去 10~30 年間の平均降水量と $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ から求めた浸食速度を比較したところ、安曇川以外の河川で高い相関 ($R^2=0.985$) が見られた (図 3)。このことから、琵琶湖周辺においては地形が降水量に大きく影響し、河床堆積物の $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ は降水量の指標となることが示唆された。

表 1 河床堆積物の ^{10}Be および ^9Be 濃度から算出した浸食速度 D

試料名	$[^{10}\text{Be}]^{1)}$ (10^7 atoms/g)	$[^9\text{Be}]^{2)}$ (ppm)	$[^9\text{Be}]_{\text{parent}}^{3)}$ (ppm)	D ($\text{t}/\text{km}^2/\text{yr}$)
知内川	1.92 ± 0.18	7.25 ± 0.31	3.2	1178.7
安曇川	17.1 ± 0.30	2.33 ± 0.07	2.7	50.3
比良川	6.06 ± 0.31	11.3 ± 0.29	3.2	581.6
柳川	6.57 ± 0.14	3.92 ± 0.06	3.2	186.2
草津川	8.51 ± 0.15	3.01 ± 0.10	2.7	131.1
野洲川	5.77 ± 0.16	2.93 ± 0.09	2.7	188.4
姉川	8.63 ± 0.22	4.71 ± 0.22	2.7	202.1
KAN	20.0 ± 0.65	3.69 ± 0.22	—	—
KAM	18.6 ± 0.22	3.46 ± 0.02	—	—
KAS	20.4 ± 0.29	5.82 ± 0.19	—	—

- 1) AMS による測定結果
- 2) ICP-MS による測定結果
- 3) 計算に用いた母岩の ^9Be 濃度 (本文参照)

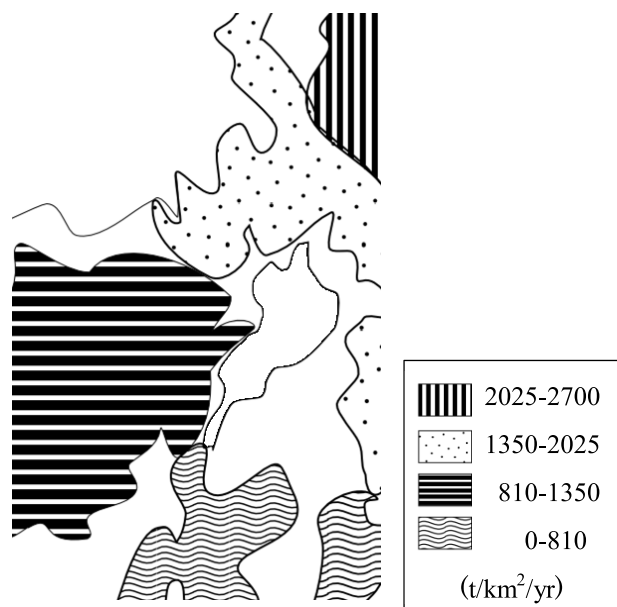


図 2 高度分散量から求められた浸食速度.
藤原ほか (1999) をもとに作成

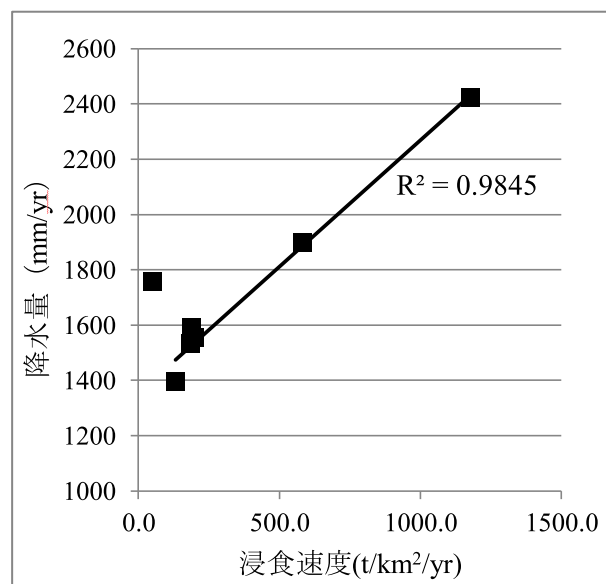


図 3 河床堆積物の $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ から求めた浸食速度と周辺地域の降水量の相関関係

ここで、ほかの河川と比べ ^{10}Be 濃度が高く、浸食速度が小さいという結果が得られた安曇川試料の粒径分布を見ると、粒径 $< 32 \mu\text{m}$ の粒子が 92%と、他と比べて極めて高い (図 4)。また XRD パターンを見ると、 ^{10}Be が高い安曇川や湖底堆積物試料は 1 次鉱物である長石類のピークが弱いことがわかる (図 5)。 $\text{meteoric-}^{10}\text{Be}$ は堆積物粒子の表面に吸着して存在している。粒径が小さくなるほど単位質量あたりの表面積が大きくなり、より多くの ^{10}Be が吸着する。高い ^{10}Be 濃度を示した安曇川や湖底堆積物試料は、風化などによって一次鉱物の割合が減り粒径の小さい粘土鉱物が増えて、その表面に ^{10}Be が吸着したと考えられる。今回、粒径 $< 180 \mu\text{m}$ に揃えた河床堆積物試料を用いたが、 $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ から浸食速度を見積もる際には、さらに細かく分画を分け、粒径を揃えて議論する必要がある。

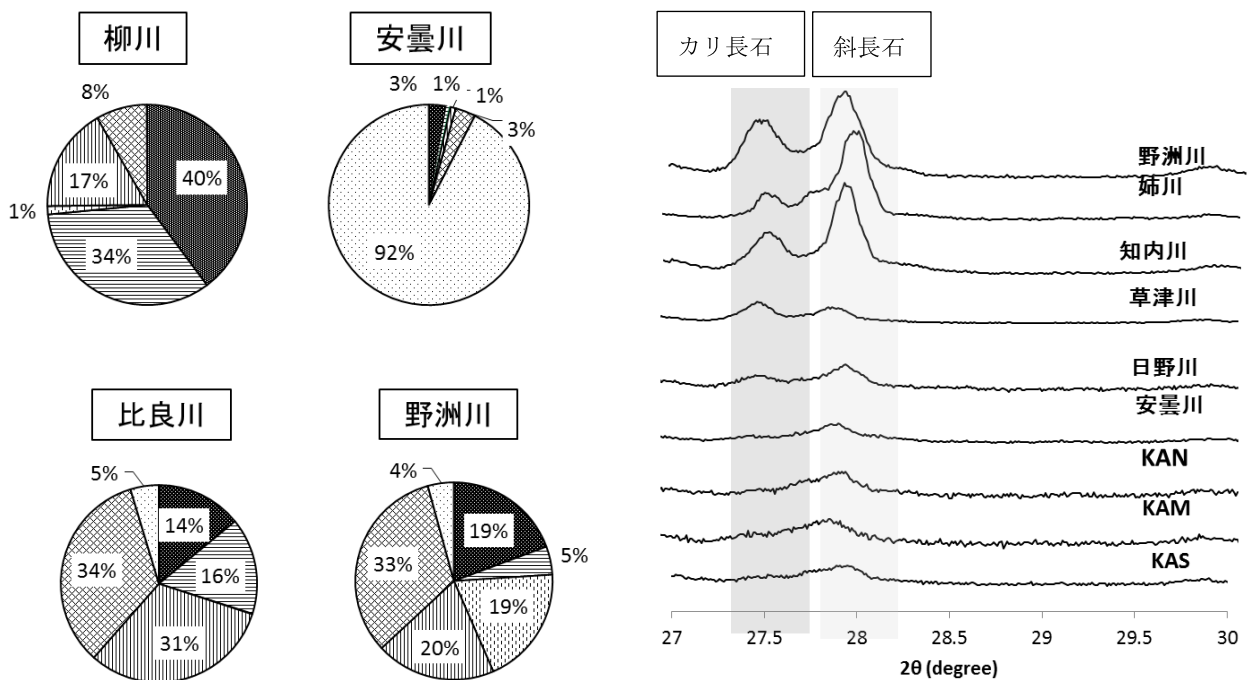


図 5 試料の XRD パターン

■ >150 μm ▨ 125-150 μm ▩ 104-125 μm
 ▪ 63-104 μm ▤ 32-63 μm □ <32 μm

図 4 河床堆積物の粒径別重量比 (%)

謝辞

日本原子力研究開発機構東濃地科学センターの松原章浩氏、西尾智博氏には、 ^{10}Be 測定において大変お世話になりました。また、名古屋大学大学院環境学研究科の北川浩之氏には、 ^{10}Be に関するいろいろご教授いただきました。ここに、記して感謝を申し上げます。

引用文献

- Brown, E.T., Edmond, J.M., Raisbeck, G.M., Bourles, D., Yiou, F., Measure, C.I., 1992, Beryllium isotope geochemistry in tropical river basins. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 56, 1606-1624
- 藤原 治・三筒智二・大森博雄, 1999, 日本列島における浸食速度の分布. *サイクル機構技報*, 5, 85-93
- Horiuchi, K., Goldberg, E.L., Kobayashi, K., Oda, T., Nakamura, T., Kawai, T., 2001, Climate-induced variations of cosmogenic beryllium-10 in the sediments of Lake Baikal of the last 150 ky from AMS, SRXRF and NAA data. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B*, 470, 396-404
- Gosse, J.C., Phillips, F.M., 2001, Terrestrial in situ cosmogenic nuclides: theory and application. *Quaternary Science Reviews*, 20, 1475-1560
- Kohl, C.P., Nishiizumi, K., 1992, Chemical isolation of quartz for measurement of in-situ -produced cosmogenic nuclides. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 56, 3583-3587
- Maejima, Y., Matsuzaki, H., Higashi, T., 2005, Application of cosmogenic ^{10}Be to dating soils on the raised coral reef terraces of Kikai island, southwest Japan. *Geoderma*, 126, 389-399
- McHargue, L.R., Damon, P.E., 1991, The global beryllium-10 cycle. *Reviews of Geophysics*, 29, 141-158
- 南 雅代・平野靖幸・小田寛貴・横田喜一郎, 2004, 琵琶湖湖底堆積物の化学的特徴. *名古屋大学加速器質量分析計業績報告書*, XV, 181-198
- 土屋理恵, 2004, 過去43万年間の ^{10}Be 変動 —琵琶湖堆積物からの解読—, 名古屋大学環境学研究科地球環境科学専攻修士論文
- von Blanckenburg, F., Bouchez, J., Wittmann, H., 2012, Earth surface erosion and weathering from the ^{10}Be (meteoric)/ ^9Be ratio. *Earth and Planetary Science Letters*, 351-352, 295-305
- Willenbring, J.K., von Blanckenburg, F., 2010, Meteoric cosmogenic Beryllium-10 adsorbed to river sediment and soil: Applications for Earth-surface dynamics. *Earth-Science Reviews*, 98, 105-122
- You, C.F., Lee, T., Brown, L., Shen, J.J., Chen, J.-C., 1988, ^{10}Be study of rapid erosion in Taiwan. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 52, 2687-2691

日本語要旨

琵琶湖に流入する河川および琵琶湖湖底の表層堆積物の ^{10}Be および ^9Be 濃度の分析を行ない、河床堆積物の $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ から河川流域母岩の浸食速度を求めた。堆積物試料はバルクで分解し、 ^{10}Be はAMS、 ^9Be はICP-MSにより測定した。 $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ から計算された河川流域母岩の浸食速度は、流域が山岳地帯であるほど大きく、平野部では小さい値となった。この傾向は、高度分散量から求められた浸食速度と調和的であった。また、河床堆積物の $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ から求められた浸食速度は河川周辺の降水量と正の相関が見られた。これらの結果から、河川堆積物の ^{10}Be 濃度は集水域の降水量および風化浸食状態を考えるうえで一つの指標にできることが明らかになった。一方、試料の粒径分布とXRD分析から、粒径が際立って小さい試料は ^{10}Be 濃度が高く、 $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ を浸食速度の指標とするには粒径を揃えて議論する必要がある。