

## 石灰岩タブレットを用いた野外風化実験 －水質が風化速度に与える影響－

Field Experiment on Weathering of Limestone Tablets:  
Effect of Water Chemistry on Weathering Rates

八反地 剛\*・松倉 公憲\*

Tsuyoshi HATTANJI\* and Yukinori MATSUKURA\*

### 1 はじめに

石灰岩は比較的溶解しやすい岩石であり、石灰岩からなる山地では化学的風化作用、とくに溶解によってドリーネなどのカルスト地形が形成される。また、特に日本においては、石灰岩により構成される部分が、周辺の他の岩石からなる部分よりも比高が高くなり、台地として残っている場合が多い（鈴木, 2000, p.905-909）。こうした石灰岩山地特有の地形の形成過程やその速度を議論する上で、石灰岩の化学的風化、特に溶解メカニズムや溶解速度を明らかにすることは重要な課題である。

これまでカルスト台地の流域で、カルシウムイオン濃度や重炭酸イオン濃度を観測し、化学的剝蝕速度を求めた研究は多い（Smith and Atkinson, 1976, 井倉ほか, 1989）。この手法で計算される化学的剝蝕速度から、流域スケールでの侵食速度を知ることができるが、流域内のどこでどの程度石灰岩が溶解したかということは議論できない。

一方、主に地球化学分野において、室内実験により pH や温度条件の異なる溶液中におけるカル

サイト粉末の溶解メカニズムと溶解速度を明らかにする研究が進められてきた（例えば Plummer *et al.*, 1978）。また、地形学分野では粉碎しない石灰岩試料を用いた室内実験が行われてきた（廣瀬ほか, 1995；鈴木ほか, 2000；橋本ほか, 2003, 高屋ほか, 2006）。室内実験では条件を自由にコントロールできるため、カルサイトや石灰岩の溶解メカニズムを明らかにできるという利点がある。しかし、実験室で測定された現象が、実際に野外で観測される現象とどのように関わっているかという点については十分に議論されていない。

室内実験と野外観測の欠点を補う手法として野外風化実験がある。重量が既知であるタブレット型の岩石試料を野外に設置し、ある一定期間経過した後に回収し、重量の欠損量を計測する手法が多い。いくつかの問題点があるものの、野外風化実験は、野外での風化速度をコントロールする要因を直接的に明らかにできるという利点がある（松倉・八反地, 2006）。そのため、多くの研究者が石灰岩タブレットを用いた野外風化実験を実施している（Trudgill, 1977；Jennings, 1981；Crabtree and Trudgill, 1985；Trudgill *et al.*, 1994；Inkpen, 1995；漆原ほか, 1999；Thorn

\* 筑波大学大学院生命環境科学研究科

*et al.*, 2002 ; Plan, 2005). しかし, これらの事例の多くがカルスト台地や山地斜面の土層中を対象としたものであり, 石灰岩の流域とその他の基盤岩石を持つ流域で野外風化実験を実施し, その結果を比較した例は報告されていない.

筆者らは, 阿武隈山地のカコウ閃緑岩流域において石灰岩を含む 8 岩型の岩石タブレットを用いた風化実験を 1992 年から実施している (Matsukura and Hirose, 1999 ; Matsukura *et al.*, 2007). 特に飽和帯に埋設した石灰岩は風化速度が早く, 10 年間で初期重量の 60% まで低下した. しかし, 石灰岩の流域で石灰岩タブレットがどの程度の風化速度を持つかは不明であった. そこで, 阿武隈山地の石灰岩流域の渓流水中に岩石タブレットを設置し, その重量変化を測定した. 本稿では, その結果をもとに, カコウ閃緑岩流域と石灰岩流域という場の条件の違いが, 石灰岩の野外風化速度にどのような影響を与えるかを明らかにすることを試みる.

## II 野外風化実験

### 1. 実験方法

実験で使用した石灰岩は福島県田村市 (旧滝根町) で産出したものである. これを直径 3.45 cm, 厚さ約 1 cm のタブレット状に成形し, 水洗い, 炉乾燥の後, 5 個ずつを 1 つのセットにし, 重量を計測し初期試料とした. 3 セット (計 15 個) をメッシュの袋に入れ, 福島県田村市滝根町神俣 (羽山) の基盤がカコウ閃緑岩からなる小流域内にある湧水点直下の土層 (飽和帯) に 1992 年 12 月 28 日に埋設した. また, 1998 年 4 月 27 日に別の 1 セット (5 個) を福島県田村市大越町 (仙台平) にある石灰岩流域の V ノッチ堰内に設置した. この堰は Hirose *et al.* (1994) による水文観測で使用されたものである. 各設置地点の位置を第 1 図に示す. これ以降, カコウ閃緑岩流域の湧水直下の設置地点を GD 湧水, 石灰岩流域の堰

(溪流) を LS 堰と略称する.

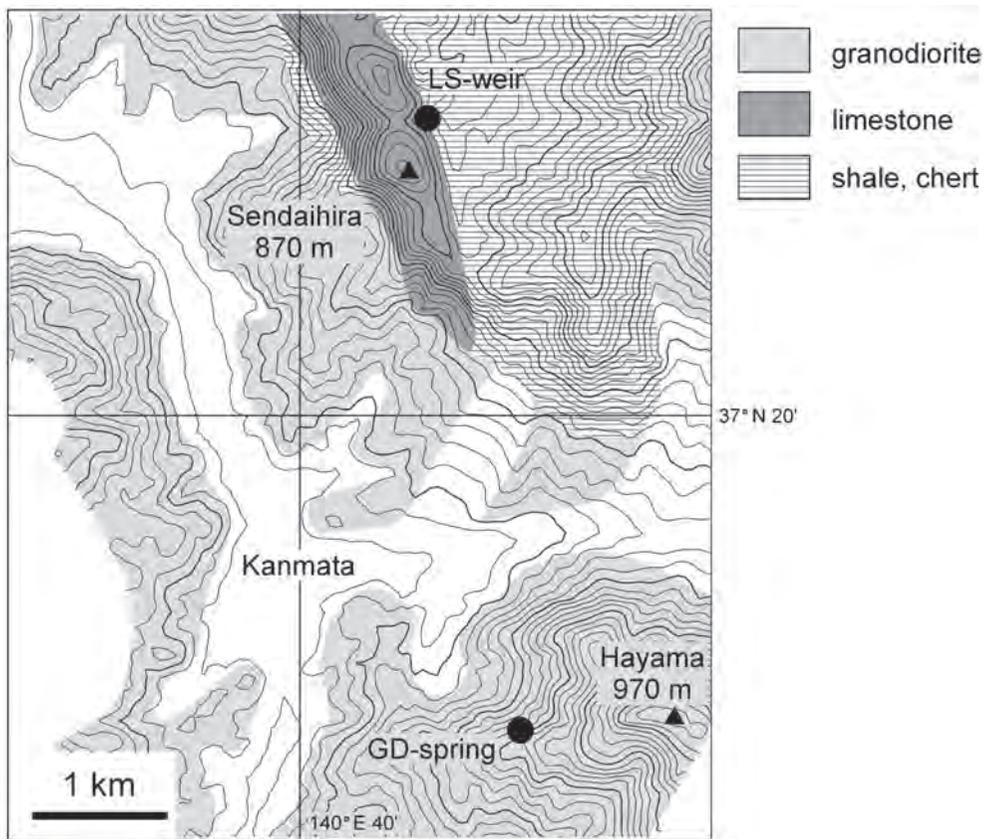
実験開始後, 一定の埋設期間を経過した後にタブレットを回収し, 水洗い, 炉乾燥 (110°C, 24 時間), 重量計測, 埋設の作業を繰り返し実施した. 1992 年 12 月から 1999 年 12 月までの埋設期間は 3 ヶ月, 1999 年 12 月以降の埋設期間は 6 ヶ月である. なお, GD 湧水には, 石灰岩を含む合計 8 岩型の岩石タブレットも同時に埋設しており, その結果の詳細は, Matsukura and Hirose (1999) や Matsukura *et al.* (2007) により報告されている.

### 2. 実験結果

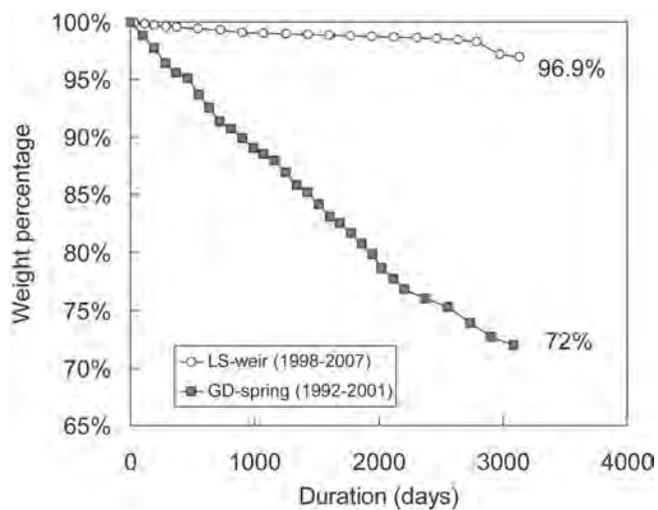
実験開始から約 8.5 年後 (野外埋設積算期間約 3100 日) までのタブレット重量の時間変化を第 2 図に示す. 縦軸は各時点におけるタブレットの重量を初期の重量 (実験開始時点のタブレット重量) で割った値であり, タブレット重量の残存率と呼ぶことにする. なお, GD 湧水での実験は 1992 年 12 月 28 日から開始され, LS 堰では 1999 年 4 月 27 日から開始した. 両者の実験期間はずれていることになるが, これらの期間を通して大きな環境の変化は見られないことから, 実験開始日時の違いは考慮しないこととする.

いずれの流域でも実験開始からタブレット重量がほぼ等速で減少した. GD 湧水での重量減少の傾きは LS 堰でのそれよりも大きく, 重量低下速度が速いことがわかる. GD 湧水では 2000 日前後から傾きがわずかにゆるやかとなっている.

実験開始から約 8.5 年経過後 (正確な埋設期間は GD 湧水で 3086 日, LS 堰で 3135 日) のタブレット重量の残存率は GD 湧水で 72%, LS 堰で 96.9% であった. これらの値から 1 年間 (365 日) のタブレット重量の減少率, すなわち重量低下速度を計算すると, GD 湧水で 3.3%/y, LS 堰で 0.36%/y であった. したがって, GD 湧水では LS 堰の 9.1 倍の速度で重量が低下したことになる.



第1図 調査地域の地形と地質  
等高線の間隔は20 m. 地質図は福島県（1995, 1996）の表層地質図を参照した.



第2図 タブレット重量残存率の時間変化

### III 考察

#### 1. 重量低下速度と水質の関係

石灰岩タブレットの重量低下速度が、GD 湧水と LS 堰の 2 地点で異なっている理由について検討する。一般に、野外での風化作用として、化学的風化以外にも、凍結融解作用などの物理風化がはたらく可能性がある。しかし、GD 湧水、LS 堰では通年で流出が観測され、後述するように年間最低水温は 2～3℃ 程度である。したがって、いずれの設置地点においても凍結融解作用ははたらいっていないと考えられる。タブレットが水中にあることから、石灰岩を構成するカルサイト ( $\text{CaCO}_3$ ) の溶解が重量低下の主な要因であると考えられる。

White (1988, p.119-124) によるとカルサイトの溶解反応は以下のように要約できる。



左辺の二酸化炭素  $\text{CO}_2$  は水中に溶存しているものであり、その供給源は主に土壤空気である。二酸化炭素が水中に溶け込むと以下の反応が起こり炭酸となる。



水中の二酸化炭素の分圧が高くなると、(2) の反応により pH が低下するとともに、(1) で示したカルサイトの溶解も促進される。溶解反応がすすむと、水素イオンが消費されるため pH は上昇する。したがって、pH はカルサイトの溶解において重要な指標の 1 つである。このほか、水温は溶解速度に影響をあたえる。さらに、溶解したイオンがすみやかに除去されるか否かという点で、流速も溶解速度に影響をあたえる (高屋ほか, 2006)。溶解反応がすすみ、カルシウムイオン ( $\text{Ca}^{2+}$ ) や重炭酸イオン ( $\text{HCO}_3^-$ ) の濃度が増加

すると、溶液はカルサイトに対して飽和状態に近づくため、溶解速度が遅くなると考えられる。カルシウムイオン ( $\text{Ca}^{2+}$ ) や重炭酸イオン ( $\text{HCO}_3^-$ ) の濃度が高ければ、電気伝導度 (EC) の値も高くなるため、EC は飽和状態に近いかどうかを見る簡便な指標になる。

設置地点 (GD 湧水と LS 堰) の環境条件、特に水質条件を把握するため、2007 年 4 月 28 日に EC, pH, 水温および流量を測定した。同時に採水を行い、実験室において pH4.8 アルカリ度滴定法により重炭酸イオン濃度を測定した。これらの測定結果を第 1 表に示した。なお重炭酸イオン濃度以外の要素は過去、それぞれ別の時期に測定されており、そのデータを収集し第 2 表にまとめて示した。第 1 表および第 2 表によると、GD 湧水は、LS 堰に比べて常に pH, EC が小さかった。流速については測定できなかったが、2 地点とも一定の流量が年間を通して観測されており、溶解されたイオンが十分に交換される条件にある。水温については、2 地点間では顕著な差は見られなかった。したがって、2 地点における風化速度の違いは pH や EC など水質の違いに起因していると考えられる。

LS 堰の渓流水や GD 湧水の水質は、雨水が地下水となり湧出するまでの流出経路と関連している。LS 堰の場合、土壌を通過した雨水は基盤岩中を浸透する過程で石灰岩を溶解し、pH, EC, 重炭酸イオン濃度が上昇する。その結果、渓流水の起源となっている地下水は、カルサイトに対して飽和条件に近づいていることが予想される。GD 湧水の場合も、土層 (マサ) やカコウ閃緑岩の基盤岩に含まれる黒雲母、長石などの鉱物を溶解すると思われるが、含有鉱物にカルサイトが含まれていないため、その溶解がない。その結果、pH, EC, 重炭酸イオン濃度が比較的低いまま流出する。したがって、GD 湧水の渓流水がカルサイトを溶解する能力は LS 堰に比べて格段に高いと考えられる。この溶解能力の差が、タブ

第1表 2007年4月28日に観測された水質と流量

	pH	EC ( $\mu\text{S}/\text{cm}$ )	$\text{HCO}_3^-$ 濃度 ( $\text{mg}/\text{L}$ )	水温 ( $^{\circ}\text{C}$ )	流量 ( $\text{L}/\text{s}$ )
LS堰	7.8	235	136	9.3	0.84
GD湧水	6.8	62	16	8.4	0.026

第2表 過去に各地点で観測された水質と流量

	測定期間	pH	EC ( $\mu\text{S}/\text{cm}$ )	水温 ( $^{\circ}\text{C}$ )	流量 ( $\text{L}/\text{s}$ )
LS堰	1991~1993*	n/a	100~300* (連続)	2~13* ( $N = 18$ )	n/a
LS堰	1998~1999	7.5~7.8 ( $N = 3$ )	198~230 ( $N = 3$ )	n/a	0.01~>15** (avg. 0.68)
GD湧水	2003~2004	n/a	n/a	n/a	0.022~0.036 ( $N = 4$ )
GD湧水	2004~2005	6.0~7.0***	56 ( $N = 1$ )	3~14 (連続)	n/a

Nは期間中の測定回数である。

n/aはデータ欠測を示す。

\* Hirose (1996) による。

\*\* LS堰の流量連続観測は1998年3月~6月, 同年9月~1999年3月まで。

\*\*\* Yokoyama and Matsukura (2006) による。

レット重量低下速度の差に反映されたのであろう。

## 2. 既存の研究で報告された重量低下速度との比較

既存の石灰岩タブレットの風化実験から, 本研究と類似した条件のものを選定し, その結果と本研究の結果を比較する。石灰岩以外の基盤岩からなる流域の土層中で, 石灰岩タブレットの風化実験を行った事例として, Thorn *et al.* (2002) が挙げられる。彼らはスウェーデンの Kärkevagge 地域の谷の土層内に石灰岩タブレットを埋めて, 5年後にその重量を再計測した。この地域の基盤岩は変成岩であり, 地下水の pH は 5.4 と低い (Thorn *et al.*, 2001)。石灰岩タブレットの重量低下速度は平均で 1.10%/y であり, 設置地点によって 0.05 ~ 2.85%/y の差異があった (Thorn *et al.*, 2002: Table II, p.837)。特に, pH が低く, 排水性の悪い土層で溶解がすすんだことが指摘されている。彼らの実験で得られた重量低下速度

の最大値 (2.85%/y) は GD 湧水の重量低下速度 (3.3%/y) に近い。

一方, Jennings (1981) はオーストラリア, Cooleman Plain の鍾乳洞内の水流に 3 セットの石灰岩の方形試料 (40 × 25 × 10 mm) を設置し, 3 年間の重量変化を測定した。その結果, 0.27 ~ 0.47%/y の重量低下速度が得られた。この値は, 本研究の LS 堰の重量低下速度 (0.36%/y) とほぼ一致している。

本研究と Thorn *et al.* (2002) や Jennings (1981) の研究では実験に使用している石灰岩の種類や大きさ, 期間, 気候条件などが異なるため, 厳密な意味では比較できない。しかし, それぞれ類似した環境条件で, 本研究で得られた値とほぼ同様の重量低下速度が観測された点は興味深い。

## IV 結論

阿武隈山地のカコウ閃緑岩流域の湧水 (GD 湧

水)と石灰岩流域の堰(LS堰)において,石灰岩タブレットの野外風化実験を実施した.タブレットを1992年12月にGD湧水に,1998年4月にLS堰に設置した.実験開始から約8.5年経過後のタブレット重量の残存率はGD湧水で72%,LS堰で96.9%であった.この値を重量低下速度に換算すると,GD湧水で3.3%/y,LS堰で0.36%/yとなり,GD湧水ではLS堰の約9倍の速さで風化がすすんでいることが明らかとなった.GD湧水は,LS堰に比べて,pHと電気伝導度(EC)がいずれも小さかった.このことから石灰岩タブレットの重量低下速度は,設置地点の水質条件に支配されることが示唆される.議論を深めるためには,より詳細な水質分析とデータ解析を行う必要がある.特にカルサイトに対する飽和度を計算することにより,石灰岩の野外での風化速度の支配要因をさらに明確にしたい.さらに水文地形学的観点から,石灰岩の野外での風化速度,水循環,カルスト台地の発達の相互関係についても検討していきたい.

## 謝辞

本研究を行うに際し,学術振興会・科学研究費・基盤研究B(課題番号19300305 研究代表者・松倉公憲)を使用した.アルカリ度の測定では,筑波大学・水文学研究室の滴定装置を利用させていただき,その測定方法等は,陸域環境研究センターの藪崎志穂博士(現所属・立正大)にご教示いただいた.

## 文献

井倉洋二・吉村和久・杉村昭弘・配川武彦(1989):秋吉台の地下水およびその溶存物質に関する研究1-秋芳洞の流出量および炭酸カルシウム排出量に基づく石灰岩の溶食速度-.洞窟学雑誌, **14**, 51-61.

漆原和子・鹿島愛彦・榎本浩之・庫本 正・フランツディーター ミオトケ・仲程 正・比嘉正弘(1999):日本における石灰岩溶食率の経年変化とその地域性.地学雑誌, **108**, 45-58.

鈴木隆介(2000):「建設技術者のための地形図読図入門 第3巻 段丘・丘陵・山地」古今書院, 942p.

鈴木麻沙美・高屋康彦・松倉公憲(2000):石灰岩タブレットを用いた溶解実験.筑波大学陸域環境研究センター報告, **1**, 19-25.

高屋康彦・廣瀬 孝・青木 久・松倉公憲(2006):室内実験における石灰岩の溶解特性に関する一考察.地学雑誌, **115**, 136-148.

橋本亜希子・小口千明・松倉公憲(2003):高濃度の二酸化炭素環境下における石灰岩の溶解実験.筑波大学陸域環境研究センター報告, **4**, 141-148.

廣瀬 孝・八田珠郎・松倉公憲(1995):室内実験における深成岩類と石灰岩の溶解速度.地形, **16**, 43-51.

福島県(1995):土地分類基本調査5万分の1「常葉」.

福島県(1996):土地分類基本調査5万分の1「小野新町」.

松倉公憲・八反地 剛(2006):タブレット野外風化実験にまつわるいくつかの問題点.筑波大学陸域環境研究センター報告, **7**, 41-51.

Crabtree, R. W. and Trudgill, S. T. (1985): Chemical denudation on a Magnesian Limestone hillslope, field evidence and implications for modeling. *Earth Surface Processes and Landforms*, **10**, 331-341.

Hirose, T. (1996): Hydrological characteristics and sediment yield in four small catchments with different bedrock types in a humid temperate region. Ph.D dissertation, University of Tsukuba. 140p.

- Hirose, T., Onda, Y. and Matsukura, Y. (1994): Runoff and solute characteristics in four small catchments with different bedrocks in the Abukuma mountains, Japan. *Transactions, Japanese Geomorphological Union*, **15A**, 31-48.
- Inkpen, R. (1995): Errors in measuring the percentage dry weight change of stone tablets. *Earth Surface Processes and Landforms*, **20**, 783-793.
- Jennings, J. N. (1981): Further results from limestone tablet experiments at Coleman Plain. *Australian Geographical Studies*, **19**, 224-227.
- Matsukura, Y. and Hirose, T. (1999): Five year measurements of rock tablet weathering on a forested hillslope in a humid temperate region. *Engineering Geology*, **55**, 69-76.
- Matsukura, Y., Hattanji, T., Oguchi, C. T. and Hirose, T. (2007): Ten year measurements of weathering rates of rock tablets on a forested hillslope in a humid temperate region, Japan. *Zeitschrift für Geomorphologie, N.F.*, **51**, 27-40.
- Plan, L. (2005): Factors controlling carbonate dissolution rates quantified in a field test in the Austrian alps. *Geomorphology*, **68**, 201-212.
- Plummer, L. N., Wigley, T. M. L. and Parkhurst, D. L. (1978): The kinetics of calcite dissolution in CO<sub>2</sub> - water systems at 5 degrees to 60 degrees C and 0.0 to 1.0 atm CO<sub>2</sub> -. *American Journal of Science*, **278**, 179-216.
- Smith, D. I. and Atkinson, T. C. (1976): Process, landforms, and climate in limestone regions. Derbyshire, E., ed.: *Geomorphology and Climate*, John Wiley and Sons, 367-409.
- Thorn, C. E., Darmody, R. G., Dixon, J. C. and Schlyter, P. (2001): The chemical weathering regime of Kärkevagge, arctic-alpine Sweden. *Geomorphology*, **41**, 37-52.
- Thorn, C. E., Darmody, R. G., Dixon, J. C. and Schlyter, P. (2002): Weathering rates of buried machine-polished rock disks, Kärkevagge, Swedish Lapland. *Earth Surface Processes and Landforms*, **27**, 831-845.
- Trudgill, S. T. (1977): Problems in the estimation of short-term variations in limestone erosion processes. *Earth Surface Processes*, **2**, 251-256.
- Trudgill, S. T., Crabtree, R. W., Ferguson, R. I., Ball, J. and Gent, R. (1994): Ten year remeasurement of chemical denudation on a Magnesian Limestone hillslope. *Earth Surface Processes and Landforms*, **19**, 109-114.
- White, W. B. (1988): *Geomorphology and hydrology of karst terrains*. Oxford University Press, New York, 464p.
- Yokoyama, T. and Matsukura, Y. (2006): Field and laboratory experiments on weathering rates of granodiorite: separation of chemical and physical processes. *Geology*, **34**, 809-812.

(2007年5月31日受付, 2007年8月7日受理)