

## 福岡県東部，彦山川～城井川流域の地球化学図\*

Geochemical Map of 26 Elements in the Hikosan River – Kii River Basins, the Eastern Part of Fukuoka Prefecture\*

柚原雅樹\*\* 伊藤吉宏\*\*  
 吉本 紋\*\*\* 宮崎桂輔\*\*  
 眞崎求一\*\*

Masaki Yuhara\*, Yoshihiro Ito\*,  
 Aya Yoshimoto\*\*, Keisuke Miyazaki\*  
 and Koichi Masaki\*

平成 22 年 11 月 30 日受理

\*\* 福岡大学理学部地球圏科学科,  
 〒 814-0180 福岡市城南区七隈 8-19-1  
 Department of Earth System Science, Faculty of  
 Science, Fukuoka University, 8-19-1 Nanakuma,  
 Jonan-ku, Fukuoka 814-0180, Japan

\*\*\* 九州大学大学院比較社会文化研究院地球変動講座,  
 〒 814-0395 福岡市西区元岡 744  
 Division of Evolution of Earth Environment,  
 Faculty of Social and Cultural Studies, Kyushu  
 University, 744 Motoooka, Nishi-ku, Fukuoka  
 814-0395, Japan

Corresponding author: M. Yuhara,  
 yuhara@fukuoka-u.ac.jp

## Abstract

We collected stream-sediments from the Hikosan River and Kii River basins in the eastern part of Fukuoka Prefecture, and made geochemical maps in order to make environmental assessment. The Triassic Tagawa metamorphic rocks, Cretaceous granitoids, Paleogene Nogata Group, late Miocene to early Pliocene Kitasakamoto Formation, early Pliocene Hikosan Volcanics and Quaternary system are outcropped in this area. The Cretaceous granitoids are divided into the gabbro and diorite, Asakura Granodiorite, Soeda Granodiorite, Masaki Granite and Yusubaru Granite. Sample collection was performed by the method of Tanaka et al. (2001). The collected samples were analyzed for 27 elements (Si, Ti, Al, Fe, Mn, Mg, Ca, Na, K, P, As, Ba, Co, Cr, Cu, Ga, Nb, Ni, Pb, Rb, S, Sr, Th, V, Y, Zn, Zr) by X-ray fluorescence spectrometry. The distributions of each element on the geochemical maps are explained by the difference of regional geology and the accumulation of rock-forming minerals.

Keywords: geochemical map, arsenic, the Hikosan River basin, the Kii River basin, environmental assessment, Fukuoka Prefecture

## はじめに

地殻表層における元素の濃度分布を示す地球化学図は、環境評価を目的として、全国各地で作成され（たとえば、秋田県：椎川ほか，1984，北関東地域：伊藤ほか，1991，愛知県：Tanaka et al, 1994., 1996；田中ほか，1995；戸上ほか，1997；山本ほか，1998，北海道：官・黒沢，1996，日本海：今井ほか，1997，山形県：今井ほか，2000；太田ほか，2002，宮城県：太田ほか，2003，東北地方：Ujiié-Mikoshiba et al., 2006），それをもとにした地圏環境評価が行われている。これらの地球化学図の多くは，限定された地域で作成されたものであり，その手法は研究者によって若干異なるが，地域地質を良く反映している。我々の研究グループでは，これらの研究と同様に，地域地質を反映する精度での地球化学図の作成を福岡県内で展開している。高本ほか（2005）は，県東部の今川・祓川

流域の地球化学図を，伊藤ほか（2007）は，県西部の室見川・那珂川流域の地球化学図を報告した（Fig. 1）。さらに，柚原ほか（2010）は，伊藤ほか（2007）の調査範囲内の五ヶ山地域において，より試料密度の高い地球化学図を報告した。福岡県内ではこれらの研究がなされるまで，今井ほか（2004）による精度の低い地球化学図しか報告されていなかった。このような精度の高い地球化学図の蓄積は，県内における広域的な元素分布の把握とそれをもとにした環境評価を可能にすると期待される。

本報告では，高本ほか（2005）の調査地域の東側の城井川流域と西側の彦山川流域に調査範囲を広げて作成した地球化学図を報告し，それをもとに地圏環境評価を行う。

## 地質概説

調査地域の地質図を Fig. 2 に示す。本地域は三疊紀の田川変成岩類，白亜紀花崗岩類，始新世の直方層

\* 2010年度日本地球化学会第57回年会にて発表。

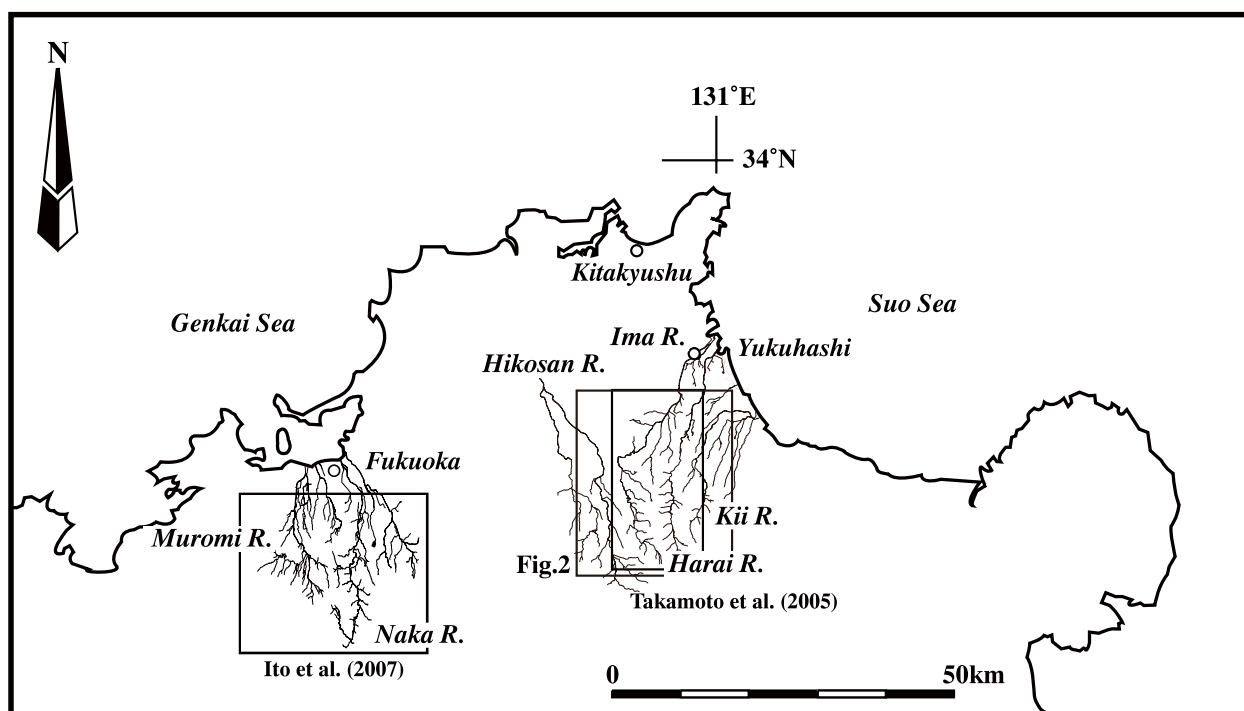


Fig. 1. Location of the Hikosan, Kii rivers and research areas of Takamoto et al. (2005) and Ito et al. (2007).

群，中新世後期～鮮新世初期の北坂本累層，鮮新世前期の英彦山火山岩類，第四系からなる（久保ほか，1993）。田川変成岩類は，主に調査地域中央部～南西部に分布し，そのほか各所に点在している。主に砂質～泥質片岩からなり，わずかに珪質片岩，塩基性片岩をともなう（たとえば，松本，1951）。白亜紀花崗岩類は，斑れい岩ならびに閃緑岩，朝倉花崗閃緑岩，添田花崗閃緑岩，真崎花崗岩，油須原花崗岩からなる。閃緑岩は今川支流や城井川支流に分布する，細粒普通角閃石黒雲母閃緑岩である。朝倉花崗閃緑岩は，調査地域北部と西部に分布する中粒斑状普通角閃石黒雲母花崗閃緑岩である。添田花崗閃緑岩は，調査地域中央部から南西部にかけて分布する中粒塊状普通角閃石黒雲母花崗閃緑岩である。真崎花崗岩は，主に調査地域北半部に広く分布する中粒斑状黒雲母花崗岩であり，ペグマタイトをともなう。油須原花崗岩は，調査地域北部で，真崎花崗岩に密接にともなって分布する細粒黒雲母花崗岩である。直方層群は，調査地域北西端以北に分布し，砂岩，泥岩，礫岩，石炭からなり，凝灰岩をともなう（富田・石橋，1990）。北坂本累層は，調査地域東部から南西部にかけて分布し，田川変成岩類や白亜紀花崗岩類を不整合に覆う。本累層は安山岩～デイサイト質溶岩，凝灰角礫岩および礫岩からなり，基底礫岩をともなう（英彦山団研グループ，1984）。英彦山火山岩類は，調査地域南端部の英彦山

山系の稜線を中心とした地域に分布し，輝石安山岩質溶岩，凝灰角礫岩および礫岩からなる（英彦山団研グループ，1987）。第四系は，調査地域北部の平野部とその周辺部に分布し，更新世後期中位段丘堆積物および阿蘇-4火砕流堆積物と，完新世の沖積層からなる。中位段丘堆積物および沖積層は未固結の砂，泥および礫からなる（久保ほか，1993）。阿蘇-4火砕流堆積物は輝石デイサイト質軽石質火山灰からなり，調査地域西部ならびに北部に小規模に分布する。

### 試料採取方法および分析方法

#### 1. 試料採取方法

地球化学図の作成のため，高本ほか（2005）ならびに伊藤ほか（2007）の試料採取方法と同様に，54試料の河川堆積物を採取した。試料採取地点は Fig. 3 に示した。世界測地系に基づいた試料採取地点の位置情報を Appendix 1 に示す。試料採取は主に 2008 年 3 月と 4 月に行った。河川堆積物試料の採取方法は，田中ほか（2001）に従い，80 メッシュ（180 μm）以下を分析試料とした。なお，本研究の試料採取方法の詳細については，古川ほか（2004）が報告している。採取した試料は実験室内で風乾し，メノウ乳鉢で粉碎した。さらに，調査地域内に分布する岩石も採取した（Fig. 4）。岩石試料の処理は，柚原・田口（2003a）

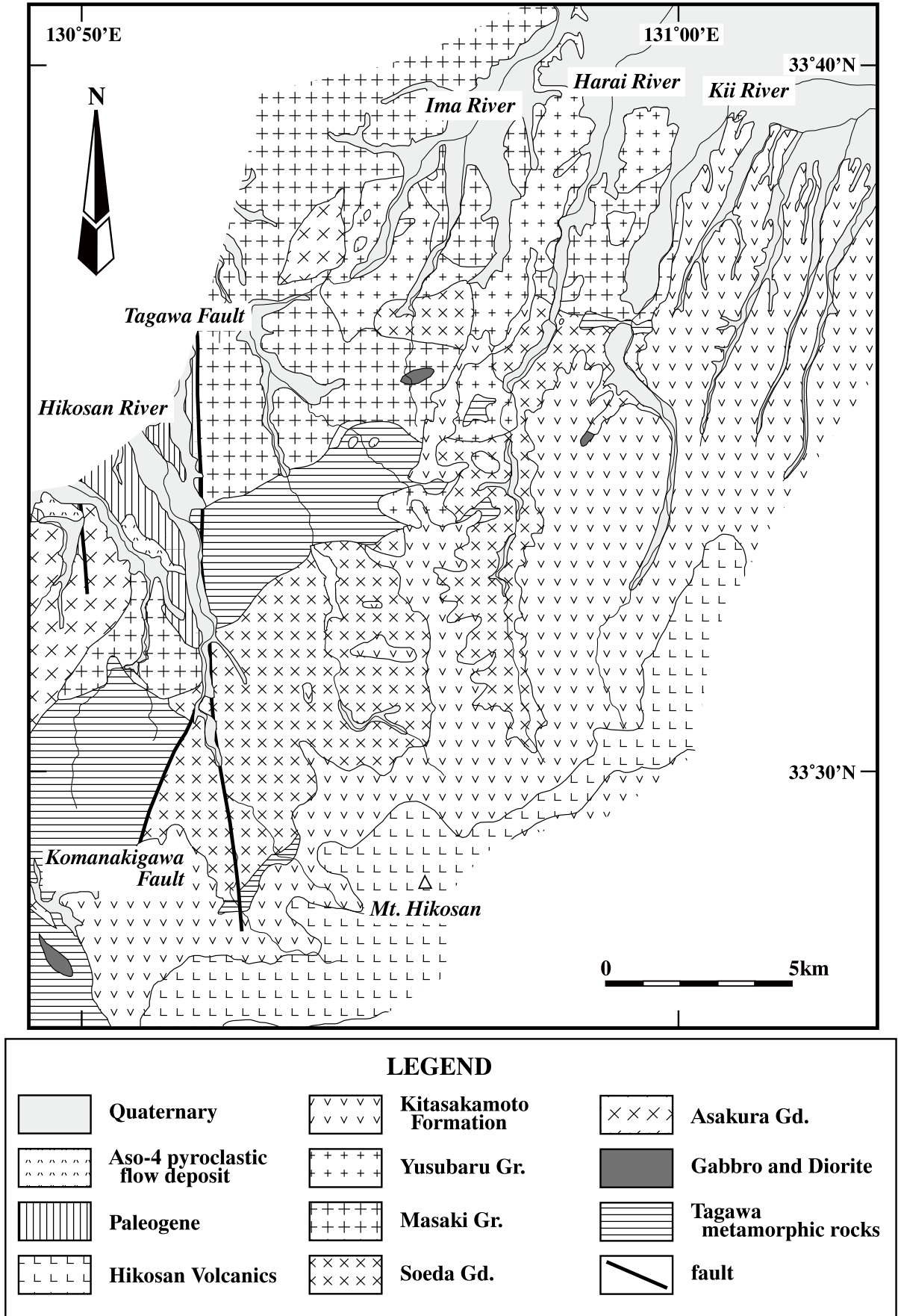


Fig. 2. Geological map of studied area (modified from Kubo et al., 1993).

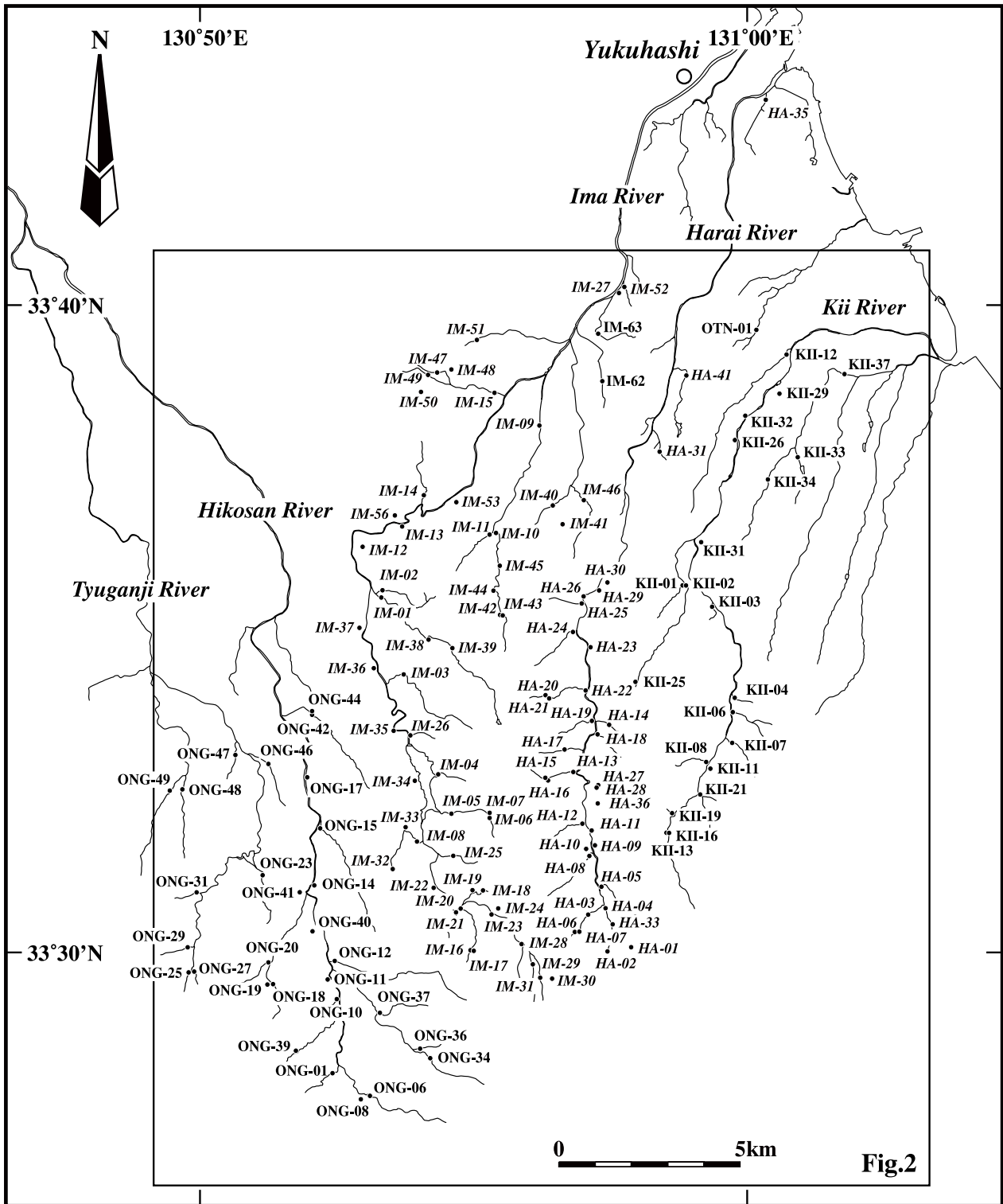


Fig. 3. Sample localities of stream-sediment samples.  
Italic numbers are the samples collected by Takamoto et al. (2005).

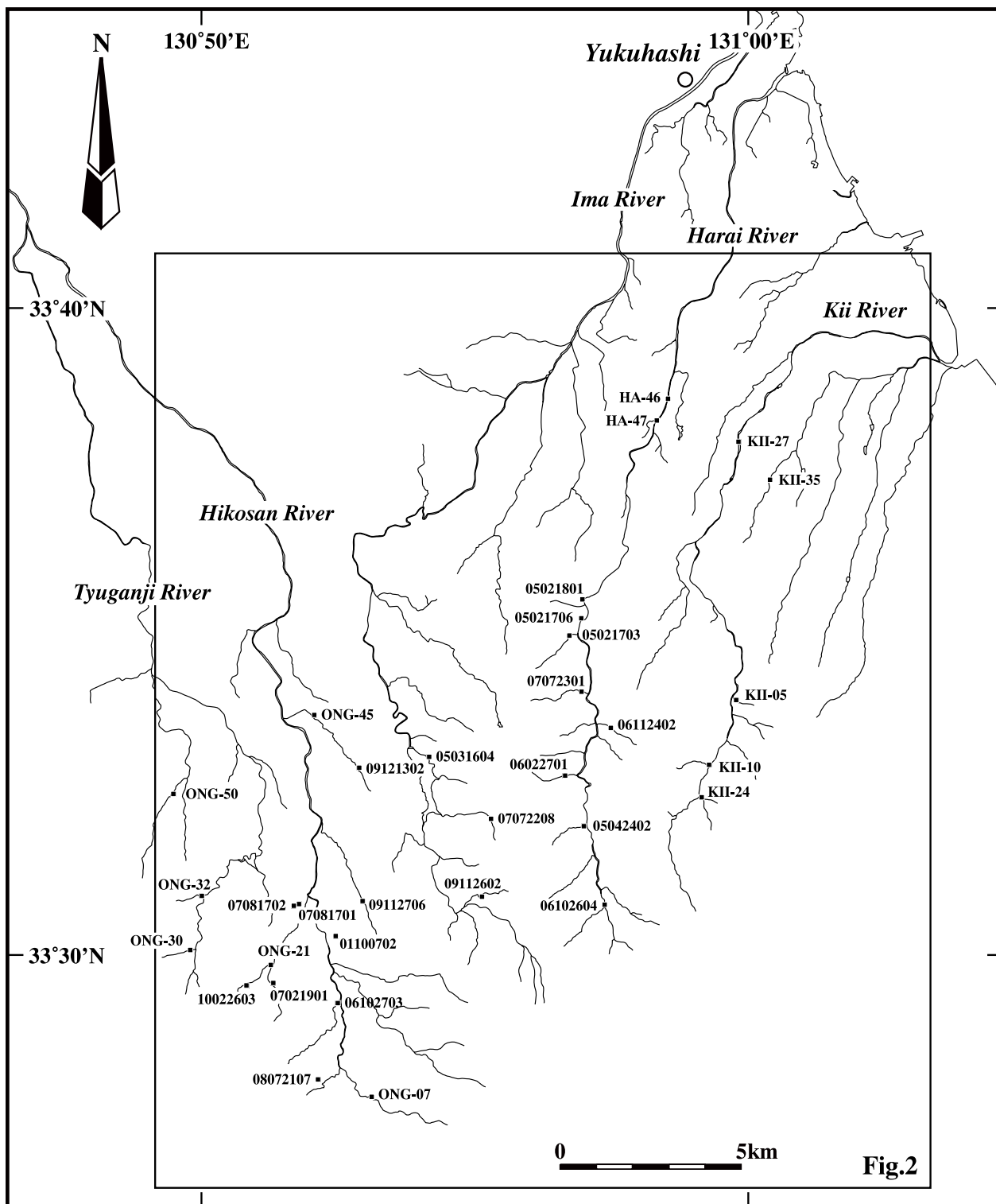


Fig. 4. Sample localities of rock samples.

に従った。採取地点の位置情報を Appendix 2 に示す。

## 2. 分析方法

河川堆積物および岩石に含まれる主成分 10 元素 (Si, Ti, Al, Fe, Mn, Mg, Ca, Na, K, P) と微量元素 17 元素 (As, Ba, Co, Cr, Cu, Ga, Nb, Ni, Pb, Rb, S, Sr, V, Th, Y, Zn, Zr) を、福岡大学理学部に設置の理学電機工業社製蛍光 X 線分析装置 ZSX100e により測定した。試料調整および測定方法は、柚原・田口 (2003a, b), 柚原ほか (2004), 高本ほか (2005) に従った。試料の吸着水 ( $H_2O^-$ ) および構造水 ( $H_2O^+$ ) は強熱減量法, FeO は過マンガン酸カリウム滴定法によりそれぞれ定量した。測定結果を Tables 1, 2 に示す。

## 結果と考察

### 1. 岩石の化学組成の特徴

高本ほか (2005) ならびに本研究で得られた岩石の化学組成を用いて各岩石の化学組成の特徴を検討した。TiO<sub>2</sub>, P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, Ga, Nb, Zr は岩石の違いによる濃度差はあまり明瞭ではない (Figs. 5, 6)。田川変成岩類の主体をなす泥質片岩は、他の岩石と比較して、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>\*, MgO, K<sub>2</sub>O, Ba, Cr, Cu, Ni, Pb, Rb, Th, Y, Zn, Zr に富み、CaO, Na<sub>2</sub>O, Sr に乏しい。朝倉花崗閃緑岩は、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>\*, MgO, MnO, CaO, Cu, V に富み、SiO<sub>2</sub>, K<sub>2</sub>O, Ni に乏しい。添田花崗閃緑岩は、比較的 SiO<sub>2</sub>, Na<sub>2</sub>O, Ba に富み、MgO, Cr, Ni, V に乏しいが、多くの元素で中間的な濃度を有する。真崎花崗岩は、SiO<sub>2</sub>, Na<sub>2</sub>O, K<sub>2</sub>O, Ba, Pb に富み、TiO<sub>2</sub>, MgO, MnO, CaO, Ni, Sr, V に乏しい。油須原花崗岩は、SiO<sub>2</sub>, Na<sub>2</sub>O, K<sub>2</sub>O, Pb, Rb に富み、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>\*, MgO, MnO, CaO, Cu, Ni, Sr, V に乏しい。北坂本累層の溶岩と凝灰角礫岩中の角礫は、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>\*, MgO, CaO, Na<sub>2</sub>O, Cr, Sr, V に富み、K<sub>2</sub>O, Ni, Pb, Rb, Y に乏しい。

### 2. 元素濃度分布と地質の関係

河川堆積物試料の化学分析結果 (Table 1) ならびに高本ほか (2005) の分析値 (Appendix 3) をもとに、各元素の地球化学図を作成した (Fig. 7)。この際、H<sub>2</sub>O<sup>-</sup> が試料の乾燥状態により大きく変化するため、高本ほか (2005), 伊藤ほか (2007) と同様に、各元素濃度は H<sub>2</sub>O<sup>-</sup> を除いて再計算した値を使用した。また、主成分元素は酸化物として扱い、鉄は三価の鉄を全 Fe (Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>\*) とした。S は、室見川や祓川では、大部分が有機物由来で、季節変動が大きい (古川ほか, 2004) ため、地球化学図の作成は行わなかった。高本ほか (2005) では、真崎花崗岩分布域の一地点

(IM-02) において、376ppm という極めて高い Pb 濃度が検出された (Appendix 3) が、2010 年 4 月に再度採取した試料 (IM-02 (2)) では、27ppm と他の河川堆積物中の濃度範囲内の値を示す (Table 1)。したがって、高本ほか (2005) は人為的な影響を検出しており、同地点の定常値は IM-02 (2) の値であると考えられる。このため、IM-02 (2) の値を使用した。地球化学図作成には地球化学図作成プログラム GeoMap1.2 (稲吉, 2005) を使用した。本調査地域は地質が複雑で、場所によっては複数の地質体からの堆積物が混在していると考えられる。したがって、地域地質との関連を検討する際に、特定の地質体からの影響を受けている地域を対象とする必要がある。検討対象とした地域を Fig. 7 に示す。

### 岩石の分布に規制されない濃度分布を示す元素

TiO<sub>2</sub>, MnO, P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, Co, Ga, Nb, Zr は岩石の違いによる明瞭な濃度差は認められない (高本ほか, 2005; Table 2) が、地球化学図上では濃度分布に偏りが認められる。このことは、TiO<sub>2</sub>, MnO, P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, Co, Ga, Nb, Zr の地球化学図は、流域の岩石の化学組成の違いを直接的には反映していないことを示唆する。TiO<sub>2</sub>, Nb, Pb, Zr は河川堆積物中の濃度が岩石よりも高い。さらに、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>\* と Th も岩石中の濃度よりも高い。TiO<sub>2</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>\*, Nb は同様の濃度分布を示す。本地域に分布する岩石にほぼ普遍的に含まれ、TiO<sub>2</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>\*, Nb を濃集する鉱物は、チタン鉄鉱である (高本ほか, 2005)。したがって、チタン鉄鉱の含有量が河川堆積物で増加したため、これらの元素は岩石よりも高い濃度を示したと考えられる。Ga と Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は同様な濃度分布を示し、添田花崗閃緑岩、真崎花崗岩、油須原花崗岩分布域で高い傾向にある。岩石中の Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 濃度はこれとは逆に、朝倉花崗閃緑岩と北坂本累層で高い。Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> と Ga は斜長石やその変質鉱物であるイライトにも濃集する (高本ほか, 2005; 柚原ほか, 2010)。したがって、これらの鉱物の挙動が、Ga と Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の濃度分布の主要な要因であると考えられる。P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> は緑泥石やイライトに濃集する (柚原ほか, 2010) ため、それらの鉱物の濃集によって濃度変化が生じたと考えられるが、燐灰石などの P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> を濃集する鉱物の関与の可能性も高い。MnO は、岩石の分布に関係のない濃度分布を示す。MnO は普通角閃石、輝石、黒雲母、チタン鉄鉱やその変質鉱物である緑泥石に濃集する (高本ほか, 2005; 柚原ほか, 2010) ことから、それらの鉱物の濃集によって濃度変化が生じたと考えられる。Co は、岩石中の濃度を測定しておらず、河川堆積物中の濃度と直接比較することはできないが、朝倉花崗閃緑岩、油須原花崗岩、北坂本累層分布域でやや高く、油須原花崗岩分布域の南

Table 1. Whole-rock chemical compositions of stream-sediments in studied area.

Sample No.	ONG-01	ONG-06	ONG-08	ONG-10	ONG-11	ONG-12	ONG-14	ONG-15	ONG-17	ONG-18	ONG-19	ONG-20
SiO <sub>2</sub> (wt.%)	49.34	49.44	49.10	53.11	54.71	54.20	55.41	56.88	56.28	46.22	51.91	58.01
TiO <sub>2</sub>	1.05	1.17	0.88	2.69	0.58	1.29	0.62	0.56	0.76	1.13	0.89	0.89
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	15.95	16.49	17.73	16.45	18.96	17.29	20.82	18.59	13.99	17.84	16.96	14.62
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.80	3.50	2.27	4.30	3.10	6.21	3.14	2.33	2.02	2.66	4.99	3.98
FeO	3.89	3.55	4.00	3.68	2.29	0.89	2.04	2.59	3.63	4.64	3.08	2.75
MnO	0.15	0.13	0.13	0.17	0.13	0.15	0.11	0.12	0.12	0.18	0.19	0.17
MgO	2.29	3.32	3.12	1.61	0.94	2.22	0.88	1.09	2.23	1.22	1.18	2.52
CaO	3.54	5.60	4.82	3.35	2.32	3.06	1.81	2.45	2.65	2.31	2.23	1.50
Na <sub>2</sub> O	1.90	2.35	2.10	2.37	3.16	2.56	3.06	3.02	1.92	2.00	2.60	1.18
K <sub>2</sub> O	1.20	0.76	0.76	1.63	2.86	2.21	3.09	3.04	2.26	1.94	2.35	2.15
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.12	0.16	0.12	0.12	0.14	0.14	0.08	0.12	0.12	0.22	0.24	0.12
H <sub>2</sub> O <sup>-</sup>	4.84	3.81	4.79	3.03	2.56	2.74	2.20	2.08	3.10	4.74	3.52	2.58
H <sub>2</sub> O <sup>+</sup>	12.94	9.51	9.50	6.69	8.12	6.64	6.48	7.04	11.32	15.01	10.52	9.95
Total	100.01	99.79	99.32	99.20	99.87	99.60	99.74	99.91	100.40	100.11	100.66	100.42
As(ppm)	7	<4	4	8	15	10	7	8	11	37	45	28
Ba	282	274	291	306	510	390	558	572	515	403	416	385
Co	17	19	20	15	10	16	11	10	19	17	18	19
Cr	68	134	148	54	18	84	19	26	112	30	37	137
Cu	24	20	21	17	17	17	10	23	41	43	35	42
Ga	19	18	20	18	20	18	21	20	16	22	21	19
Nb	12	12	10	29	19	20	21	16	9	24	23	13
Ni	21	31	34	10	9	22	10	12	41	14	16	65
Pb	19	14	15	22	25	22	23	24	19	25	24	21
Rb	50	21	25	64	116	89	122	110	85	102	160	107
S	483	344	295	304	247	279	104	250	445	546	453	284
Sr	237	445	389	235	196	217	183	199	197	164	184	120
Th	7	4	4	9	14	15	14	11	8	18	18	10
V	113	170	133	107	64	121	64	65	111	90	104	115
Y	21	13	14	23	31	30	29	29	24	36	40	32
Zn	114	101	88	123	104	112	83	104	104	130	136	128
Zr	195	111	117	726	584	638	731	691	328	413	690	251

Sample No.	ONG-23	ONG-25	ONG-27	ONG-29	ONG-31	ONG-34	ONG-36	ONG-37	ONG-39	ONG-40	ONG-41	ONG-42
SiO <sub>2</sub> (wt.%)	58.50	48.87	53.88	50.27	46.48	49.23	44.99	48.56	44.66	54.29	59.88	57.81
TiO <sub>2</sub>	0.71	0.87	0.85	0.82	1.11	1.02	0.93	0.89	0.68	0.50	0.64	0.85
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	14.08	16.39	15.77	16.28	18.01	16.63	16.78	16.57	15.43	20.02	16.19	17.21
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.71	0.47	1.34	0.46	2.86	2.98	2.99	2.01	2.79	2.64	2.45	2.92
FeO	2.78	6.18	4.87	5.56	4.37	3.46	3.31	4.00	4.77	2.58	2.58	3.04
MnO	0.18	0.28	0.21	0.16	0.19	0.11	0.13	0.13	0.37	0.19	0.13	0.13
MgO	1.90	1.98	2.17	2.12	1.76	2.87	2.83	2.11	0.91	0.95	1.28	1.89
CaO	1.71	1.59	1.69	1.66	1.91	5.10	4.45	3.04	2.67	2.04	1.78	2.11
Na <sub>2</sub> O	1.67	1.40	1.59	1.57	1.17	2.34	1.88	1.74	1.34	3.11	2.79	2.38
K <sub>2</sub> O	2.49	2.72	2.54	2.34	1.42	0.88	0.71	1.26	0.84	2.91	3.08	2.49
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.13	0.15	0.14	0.15	0.10	0.15	0.19	0.18	0.15	0.12	0.08	0.12
H <sub>2</sub> O <sup>-</sup>	2.79	4.36	3.31	4.12	5.22	4.04	5.72	5.48	7.36	2.66	2.05	2.00
H <sub>2</sub> O <sup>+</sup>	11.04	14.89	12.27	15.30	15.48	10.47	13.81	13.07	16.89	7.53	7.02	6.72
Total	100.69	100.15	100.63	100.81	100.08	99.28	98.72	99.04	98.86	99.54	99.95	99.67
As(ppm)	23	92	65	52	29	4	4	8	11	10	22	20
Ba	560	593	562	489	447	301	327	293	270	529	725	486
Co	16	24	21	20	23	20	21	15	17	12	14	16
Cr	109	110	121	106	87	100	99	69	40	48	82	72
Cu	46	58	60	47	32	22	25	31	16	16	23	33
Ga	17	21	20	20	19	18	20	20	18	21	20	21
Nb	11	12	12	12	14	11	10	13	8	17	10	14
Ni	53	54	61	64	33	30	33	32	16	16	36	41
Pb	27	32	27	27	20	14	17	23	19	24	22	23
Rb	106	125	116	109	77	29	26	62	42	120	113	110
S	415	485	341	446	449	396	536	476	619	170	156	301
Sr	159	140	153	161	167	427	388	233	195	185	272	193
Th	9	10	11	10	9	4	5	9	5	17	8	11
V	103	128	118	115	133	155	143	105	77	60	78	98
Y	26	31	30	32	29	14	15	23	20	32	22	32
Zn	123	160	168	125	115	95	103	125	107	84	90	114
Zr	276	237	263	244	298	117	122	199	155	481	334	369

Table I. (continued)

Sample No.	ONG-44	ONG-46	ONG-47	ONG-48	ONG-49	KII-01	KII-02	KII-03	KII-04	KII-06	KII-07	KII-08
SiO <sub>2</sub> (wt.%)	54.78	50.78	48.35	49.97	48.90	49.84	49.98	50.39	46.84	46.05	45.98	46.59
TiO <sub>2</sub>	0.81	0.76	1.27	1.05	1.06	1.08	1.01	1.56	1.16	0.93	1.15	1.00
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	15.66	17.72	12.51	16.91	16.60	16.96	15.62	14.63	16.93	17.07	15.78	14.38
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3.22	2.21	15.08	5.93	5.34	4.49	0.16	3.73	0.48	0.49	4.15	2.33
FeO	3.15	3.41	4.02	2.84	3.48	3.55	6.33	5.61	6.02	5.76	3.79	4.89
MnO	0.20	0.22	0.23	0.16	0.17	0.33	0.23	0.19	0.15	0.16	0.19	0.16
MgO	2.18	0.96	3.97	2.80	2.81	2.50	2.10	5.06	1.82	2.26	3.74	3.73
CaO	3.15	1.99	4.88	3.95	3.28	3.29	2.75	3.43	2.34	3.24	3.72	3.66
Na <sub>2</sub> O	1.49	1.37	1.78	2.04	1.88	1.54	1.46	1.40	0.99	1.47	1.38	1.50
K <sub>2</sub> O	2.48	2.14	2.05	2.24	2.25	1.18	1.33	0.91	0.80	0.70	0.65	0.78
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.12	0.26	0.23	0.17	0.15	0.15	0.24	0.18	0.14	0.16	0.19	0.16
H <sub>2</sub> O <sup>-</sup>	2.73	4.33	1.12	2.86	3.31	4.22	4.67	3.13	5.71	5.76	5.30	5.03
H <sub>2</sub> O <sup>+</sup>	10.37	13.74	3.78	8.82	11.16	10.72	14.26	9.50	16.32	15.94	14.07	16.78
Total	100.34	99.89	99.27	99.74	100.39	99.85	100.14	99.72	99.70	99.99	100.09	100.99
As(ppm)	17	19	9	14	12	5	5	<4	6	5	4	4
Ba	495	482	319	362	365	411	366	328	367	390	316	290
Co	19	13	33	25	27	21	19	29	21	21	23	22
Cr	91	59	201	60	67	65	52	104	74	60	76	72
Cu	56	48	n.d.	36	25	30	31	18	23	34	21	17
Ga	19	22	15	20	19	19	18	16	19	20	18	17
Nb	13	16	29	19	19	15	16	18	15	12	12	12
Ni	51	25	4	19	19	16	18	22	25	21	23	23
Pb	28	34	10	20	17	22	23	20	18	26	17	18
Rb	113	108	68	103	106	53	63	35	41	30	24	30
S	555	1357	121	403	346	523	834	557	560	589	570	685
Sr	153	147	151	167	172	242	193	224	189	266	270	285
Th	11	16	90	17	20	8	8	6	7	6	5	4
V	114	86	421	174	182	145	115	171	141	112	136	135
Y	34	35	67	44	40	23	24	19	21	18	18	16
Zn	161	312	127	153	129	148	147	163	104	123	118	128
Zr	237	297	2978	723	790	343	269	237	198	158	134	149

Sample No.	KII-11	KII-12	KII-13	KII-16	KII-19	KII-21	KII-25	KII-26	KII-29	KII-31	KII-32	KII-33
SiO <sub>2</sub> (wt.%)	45.51	53.52	42.07	46.31	45.80	44.46	47.09	42.93	49.91	45.29	50.00	47.86
TiO <sub>2</sub>	0.80	1.31	0.93	0.97	1.15	0.82	0.80	1.17	2.47	1.12	0.90	1.38
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	15.49	15.87	15.28	15.57	17.29	15.34	15.83	16.33	15.87	18.52	16.09	18.56
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.66	3.33	0.33	1.41	3.40	1.42	0.79	1.65	6.65	2.83	2.63	4.69
FeO	4.75	3.92	6.17	6.17	4.83	4.81	4.66	4.86	2.97	4.41	3.71	2.63
MnO	0.14	0.19	0.15	0.22	0.18	0.14	0.09	0.15	0.34	0.21	0.19	0.21
MgO	2.05	2.62	3.14	3.76	3.51	3.06	1.98	1.78	2.33	1.50	2.52	0.96
CaO	3.42	2.41	3.81	4.11	3.39	4.04	2.48	2.42	2.11	1.50	2.87	1.17
Na <sub>2</sub> O	1.27	1.37	1.43	1.72	1.33	1.60	1.16	1.05	1.06	0.71	1.48	0.49
K <sub>2</sub> O	0.85	1.75	0.68	0.82	0.79	0.73	1.42	0.78	1.13	1.11	1.46	0.69
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.34	0.25	0.17	0.20	0.13	0.17	0.29	0.16	0.21	0.09	0.23	0.20
H <sub>2</sub> O <sup>-</sup>	6.01	3.26	6.79	5.21	5.26	6.18	6.25	6.89	3.99	6.20	4.75	5.88
H <sub>2</sub> O <sup>+</sup>	19.34	10.49	19.15	13.68	12.26	17.02	16.57	19.39	10.74	15.56	12.95	14.49
Total	100.63	100.29	100.1	100.15	99.32	99.79	99.41	99.56	99.78	99.05	99.78	99.21
As(ppm)	6	6	5	5	6	5	4	6	8	7	5	7
Ba	340	357	310	307	349	321	326	393	331	458	356	382
Co	14	20	22	24	26	19	15	20	24	23	19	20
Cr	44	69	67	65	73	53	56	57	79	82	61	63
Cu	45	38	20	19	21	18	67	23	18	31	39	31
Ga	18	18	17	18	21	18	19	19	19	21	19	21
Nb	11	17	12	12	13	10	14	17	28	15	14	19
Ni	19	18	20	16	19	19	19	20	16	31	20	22
Pb	27	31	16	16	17	17	35	24	26	22	32	25
Rb	37	74	27	28	34	29	72	39	54	69	70	43
S	990	834	581	563	390	601	1055	1099	655	433	875	809
Sr	252	167	283	284	253	319	179	221	143	150	207	88
Th	6	11	6	5	8	5	9	7	11	9	9	9
V	95	126	127	130	145	114	89	126	195	134	102	138
Y	19	25	17	20	19	17	23	20	22	27	24	21
Zn	158	185	105	108	117	103	222	161	155	113	203	156
Zr	149	364	139	138	161	125	210	241	394	232	239	259

n.d.: not detected.



Table 1. (continued)

Sample No.	KII-34	KII-37	IM-62	IM-63	OTN-01	IM-02(2)
SiO <sub>2</sub> (wt.%)	49.61	49.44	52.16	50.37	49.20	52.96
TiO <sub>2</sub>	1.13	2.19	0.50	0.77	1.07	0.67
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	15.92	15.22	16.40	16.57	20.16	18.00
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3.30	4.42	2.80	6.25	2.94	6.15
FeO	3.09	4.58	3.87	3.18	3.49	-
MnO	0.15	0.29	0.36	0.48	0.13	0.21
MgO	1.49	2.52	0.97	1.12	0.83	1.35
CaO	2.26	2.42	1.30	1.45	0.80	2.11
Na <sub>2</sub> O	1.09	1.16	1.30	1.24	0.48	2.40
K <sub>2</sub> O	0.84	0.90	2.49	2.18	1.58	2.57
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.23	0.26	0.40	0.38	0.25	0.18
H <sub>2</sub> O <sup>-</sup>	5.96	4.75	3.82	4.68	4.56	2.79
H <sub>2</sub> O <sup>+</sup>	13.64	11.43	13.58	10.47	14.53	10.71
Total	98.71	99.58	99.95	99.14	100.02	100.11
As(ppm)	4	6	9	16	8	10
Ba	366	312	392	464	379	380
Co	18	26	109	16	19	10
Cr	58	75	25	48	53	32
Cu	30	25	27	24	42	38
Ga	19	18	19	19	24	23
Nb	16	24	15	15	20	16
Ni	19	18	11	14	25	16
Pb	28	26	29	24	33	27
Rb	44	45	121	99	98	125
S	836	758	818	679	1978	565
Sr	179	173	103	124	66	140
Th	7	9	18	13	16	24
V	120	184	61	97	116	84
Y	19	21	44	29	30	44
Zn	164	167	158	135	188	163
Zr	220	285	460	402	331	615

西で最も高い濃度分布を示す。Coは普通角閃石、輝石、黒雲母、チタン鉄鉱やその変質鉱物である緑泥石に濃集する（高本ほか、2005；柚原ほか、2010）。したがって、それらの鉱物がCoの濃度分布を支配していると考えられる。Na<sub>2</sub>O濃度は添田花崗閃緑岩と真崎花崗岩分布域で高い。岩石中では、田川変成岩類で低いものの、他の岩石では明瞭な違いは認められない（高本ほか、2005；Table 2）。Na<sub>2</sub>Oは斜長石やカリ長石に濃集する（高本ほか、2005；柚原ほか、2010）ことから、これらの鉱物の濃集が濃度分布の支配要因であると考えられる。Cr濃度は田川変成岩類、朝倉花崗閃緑岩、北坂本累層分布域で高い。岩石中では、Crは田川変成岩類と北坂本累層の一部で高い。したがって、田川変成岩類と北坂本累層分布域では岩石の化学組成の特徴を反映している。朝倉花崗閃緑岩分布域では、岩石中に含まれ、Crを濃集する輝石（高本ほか、2005）の濃集によって、濃度が高くなったと考えられる。これは、同じく輝石を含む北坂本累層分布域でも影響している可能性が高い。さらにZrはジルコンが、Thはモナザイトが河川堆積物中で増加したため高い濃度を示すと考えられる（高本ほか、2005）。

鏡下観察では、モナザイトは確認していないが、花崗岩類には普遍的に含まれていると考えられる。Pb濃度は田川変成岩類、添田花崗閃緑岩、真崎花崗岩、油須原花崗岩分布域で高い。この濃度分布は、岩石の化学組成と一致している。しかし濃度が岩石中よりも高いことから、岩石の化学組成の違いを反映した濃度分布が、Pbを濃集するカリ長石（高本ほか、2005）の濃集によって強調されたと考えられる。以上のことから、これらの元素は、河川堆積物中の特定の鉱物の濃集に濃度分布が支配されていると考えられる。

岩石の分布に規制された濃度分布を示す元素

SiO<sub>2</sub>、K<sub>2</sub>O、Ba、Rb、Yは比較的同様な濃度分布を示し、田川変成岩類、添田花崗閃緑岩、真崎花崗岩、油須原花崗岩分布域に関連した地域で高く、朝倉花崗閃緑岩および北坂本累層分布域で低い。これらの元素の岩石中の濃度は、田川変成岩類、添田花崗閃緑岩、真崎花崗岩、油須原花崗岩で高く、朝倉花崗閃緑岩および北坂本累層で低い傾向にある。したがって、これらの元素の濃度分布は、岩石の化学組成の特徴を反映していると言える。

MgOとVは同様な濃度分布を示し、田川変成岩類、朝倉花崗閃緑岩、北坂本累層分布域で高い。CaOとSrは同様な濃度分布を示し、朝倉花崗閃緑岩と北坂本累層分布域で高く、添田花崗閃緑岩分布域でやや高い。CuとZnは同様な濃度分布を示し、田川変成岩類と朝倉花崗閃緑岩分布域で高い。Ni濃度は、田川変成岩類分布域で高い。これらの元素の濃度分布は、岩石の化学組成の特徴と一致しており、岩石の化学組成を反映していると考えられる。

As濃度は、調査地域南西域で高い。岩石中では、田川変成岩類で高いほかは、ほとんど検出限界以下である（高本ほか、2005；Table 2）。したがって、Asの濃度分布も岩石の化学組成を反映している。また、調査地域南西部に存在する駒啼川断層（柚原・宮崎、2007）沿いには、熱水変質作用によって白色化した添田花崗閃緑岩と田川変成岩類が存在する。これらの岩石は、Asに富んでいる（柚原・宮崎、2010）。熱水作用により白色化した岩石がAsに富む事は福岡県西部の五ヶ山地域でも知られている（柚原・祐徳、2005；柚原ほか、2006）。したがって、Asの濃度分布は白色化した岩石の分布にも影響されていると考えられる。以上のことから、これらの元素は、流域における岩石の分布を反映した濃度分布を示していると考えられる。

また、これ以外の地域でも、特定の元素が高い濃度や低い濃度を示す場合があるが、これらは、複数の岩体からの碎屑物の供給、特定の鉱物の濃集によって説明が可能である。以上のことから、これらの元素の濃

**Table 2.** Whole-rock chemical compositions of rocks in studied area.

Tagawa metamorphic rocks									
Sample No.	07081701	07081702	ONG-30	ONG-45	09121302	10022603	ONG-32	ONG-21	08072107
	Pelitic Sch.					Mafic Sch.			
SiO <sub>2</sub> (wt.%)	71.32	70.91	63.09	63.44	62.82	54.41	47.12	64.69	67.55
TiO <sub>2</sub>	0.47	0.50	0.65	0.67	0.75	0.98	1.96	0.51	0.49
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	14.27	14.18	17.03	17.58	16.40	22.00	17.05	14.32	13.83
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> *	2.83	3.50	7.38	6.31	6.71	7.30	13.76	4.36	3.96
MnO	0.04	0.05	0.40	0.14	0.07	0.14	0.15	0.08	0.08
MgO	0.96	1.28	2.11	1.69	2.72	2.85	4.39	2.04	1.66
CaO	1.83	2.24	0.60	0.40	1.16	1.09	9.31	5.81	5.24
Na <sub>2</sub> O	3.37	3.63	1.59	1.87	1.66	1.81	3.12	3.43	3.32
K <sub>2</sub> O	3.28	2.59	4.25	4.34	2.99	2.99	0.88	2.72	2.14
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.08	0.10	0.11	0.07	0.14	0.14	0.14	0.10	0.10
L.O.I.	1.37	0.76	2.12	3.29	4.95	3.20	1.10	1.26	1.61
Total	99.82	99.74	99.33	99.80	100.37	96.91	98.98	99.32	99.98
As(ppm)	5	<4	19	36	32	<4	29	4	<4
Ba	655	517	787	730	417	417	23	646	585
Cr	49	52	52	57	82	82	128	33	27
Cu	14	17	52	93	64	64	207	4	<4
Ga	17	16	24	24	21	31	21	17	16
Nb	7	9	12	11	11	11	3	7	7
Ni	19	22	45	50	57	57	32	11	11
Pb	23	21	27	13	8	13	5	12	14
Rb	91	69	152	166	100	182	18	76	60
S	87	635	121	603	1979	101	6289	50	91
Sr	330	351	131	117	106	120	238	453	432
Th	9	10	16	15	11	17	n.d.	8	10
V	59	65	134	138	110	135	305	78	67
Y	19	20	37	32	30	43	42	20	20
Zn	53	59	138	139	95	87	197	60	59
Zr	217	196	188	187	198	303	147	115	149

Asakura Gd. Soeda Gd.									
Sample No.	ONG-50	06102604	KII-27	06112402	07072301	05031606	06102703	07072208	05042402
SiO <sub>2</sub> (wt.%)	64.55	63.28	63.99	64.61	65.01	65.35	65.45	65.57	65.68
TiO <sub>2</sub>	0.65	0.79	0.57	0.59	0.52	0.64	0.50	0.59	0.62
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	15.52	16.74	16.89	16.31	16.08	15.82	16.26	15.77	15.86
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> *	4.91	5.60	4.55	5.34	4.98	4.95	4.71	4.40	4.59
MnO	0.09	0.10	0.09	0.10	0.11	0.11	0.11	0.08	0.09
MgO	2.23	1.89	1.34	1.67	1.56	1.59	1.33	1.41	1.46
CaO	4.33	4.60	4.00	4.37	4.18	4.16	3.61	3.71	4.01
Na <sub>2</sub> O	3.55	3.55	3.77	3.39	3.32	3.87	3.61	3.45	3.68
K <sub>2</sub> O	2.71	2.27	3.01	2.39	2.59	1.86	2.75	2.99	2.38
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.12	0.22	0.14	0.13	0.12	0.17	0.13	0.14	0.16
L.O.I.	0.66	0.83	0.74	0.66	0.60	0.90	1.20	0.65	0.93
Total	99.32	99.87	99.09	99.56	99.07	99.42	99.66	98.76	99.46
As(ppm)	5	n.d.	<4	n.d.	<4	<4	n.d.	<4	n.d.
Ba	408	484	394	396	436	287	422	543	394
Cr	29	17	7	8	8	11	10	11	13
Cu	12	19	n.d.	9	<4	n.d.	<4	7	4
Ga	18	21	21	18	19	20	18	19	20
Nb	10	16	15	14	13	16	17	12	16
Ni	12	8	<4	5	<4	5	4	5	6
Pb	12	12	14	15	17	14	17	13	15
Rb	89	78	131	111	103	83	103	99	85
S	21	239	50	114	99	64	151	102	124
Sr	305	373	271	261	258	289	241	313	313
Th	15	7	17	11	10	12	12	10	11
V	93	86	52	72	67	65	55	58	59
Y	19	17	24	20	19	24	23	14	17
Zn	67	105	73	77	74	95	74	80	84
Zr	135	200	226	142	140	173	148	151	180

\*: total iron as Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, L.O.I.: loss on ignition, n.d.: not detected.

Table 2. (continued)

Soeda Gd.									
Sample No.	02033101	05031607	09112602	HA-47	05031604	01110202	05031501	09112706	01120204
SiO <sub>2</sub> (wt.%)	66.02	66.53	66.92	67.01	67.12	67.17	67.28	67.41	67.91
TiO <sub>2</sub>	0.50	0.55	0.58	0.46	0.42	0.43	0.54	0.43	0.50
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	16.19	15.45	15.76	15.41	15.83	15.64	15.25	15.51	15.46
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> *	4.83	4.25	4.04	4.15	4.11	4.21	4.10	4.17	3.79
MnO	0.11	0.08	0.07	0.08	0.10	0.10	0.09	0.09	0.08
MgO	1.39	1.40	1.28	1.21	1.20	1.21	1.28	1.20	1.22
CaO	3.86	3.67	3.54	3.25	3.81	3.65	3.21	3.50	3.45
Na <sub>2</sub> O	3.88	3.45	3.53	3.60	3.76	3.51	3.45	3.38	3.72
K <sub>2</sub> O	2.00	3.02	2.36	3.18	2.36	2.68	3.19	2.57	2.74
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.14	0.15	0.13	0.09	0.11	0.12	0.15	0.10	0.14
L.O.I.	0.59	0.84	0.92	0.57	0.54	0.73	0.63	0.95	0.45
Total	99.51	99.39	99.13	99.01	99.36	99.45	99.17	99.31	99.46
As(ppm)	n.d.	<4	<4	n.d.	n.d.	n.d.	<4	<4	n.d.
Ba	229	492	382	502	348	422	489	459	416
Cr	7	13	12	10	8	10	9	10	14
Cu	n.d.	11	19	n.d.	n.d.	9	19	6	n.d.
Ga	20	18	21	19	17	17	18	18	19
Nb	16	13	14	12	13	15	15	15	14
Ni	<4	6	6	<4	<4	5	<4	4	6
Pb	16	17	12	14	18	17	18	15	17
Rb	116	99	77	120	101	103	121	88	102
S	21	175	341	16	14	347	1047	420	39
Sr	231	306	306	217	227	237	268	244	273
Th	15	9	7	16	10	7	13	8	11
V	57	57	60	53	48	45	53	43	53
Y	17	15	14	22	18	19	20	17	14
Zn	80	78	86	72	66	66	85	66	75
Zr	157	137	156	149	130	145	150	143	161
Diorite									
Sample No.	07021901	01100702	HA-46	01120306	05031601	06022712	06022701	05031603	06052107
SiO <sub>2</sub> (wt.%)	67.94	69.08	69.14	69.53	70.47	70.50	71.83	73.26	60.91
TiO <sub>2</sub>	0.41	0.39	0.44	0.42	0.30	0.34	0.28	0.20	0.87
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	15.77	14.90	14.45	14.92	14.68	14.73	14.17	13.76	17.34
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> *	4.03	3.67	3.93	3.13	2.60	2.58	2.20	1.58	6.57
MnO	0.09	0.08	0.08	0.07	0.05	0.06	0.06	0.05	0.12
MgO	1.15	1.07	1.14	1.02	0.83	0.80	0.66	0.51	2.07
CaO	3.25	3.22	3.02	2.80	2.36	2.68	2.48	1.73	5.39
Na <sub>2</sub> O	3.59	3.19	3.48	3.28	3.20	3.44	3.61	3.24	3.56
K <sub>2</sub> O	2.75	3.00	2.94	3.87	4.14	3.74	3.28	4.47	2.10
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.11	0.10	0.09	0.11	0.10	0.08	0.06	0.04	0.20
L.O.I.	0.92	0.80	0.38	0.39	0.54	0.57	0.49	0.42	0.64
Total	100.01	99.50	99.09	99.54	99.27	99.52	99.12	99.26	99.77
As(ppm)	<4	n.d.	<4	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
Ba	406	442	433	673	507	516	328	495	398
Cr	9	10	9	9	6	11	10	9	5
Cu	<4	5	n.d.	<4	<4	<4	<4	<4	n.d.
Ga	17	15	18	17	17	17	17	16	20
Nb	14	13	12	13	12	12	12	7	15
Ni	5	5	<4	5	4	7	8	7	n.d.
Pb	18	20	14	22	21	24	25	24	10
Rb	98	102	115	105	133	111	111	143	84
S	38	98	22	17	7	4	n.d.	3	32
Sr	237	223	198	262	199	240	198	173	323
Th	9	10	13	9	11	7	8	10	7
V	41	45	50	43	35	36	32	23	86
Y	18	17	21	14	15	14	16	10	23
Zn	63	57	67	63	64	52	49	37	95
Zr	142	132	151	116	99	114	121	100	159

\*: total iron as Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, L.O.I.: loss on ignition, n.d.: not detected.

Table 2. (continued)

Sample No.	Yusubaru Gr.			Kitasakamoto F.				
	05021703	05021706	05021801	ONG-07	KII-05	KII-10	KII-24	KII-35
				rubble	lava	rubble	lava	rubble
SiO <sub>2</sub> (wt.%)	75.84	74.79	75.68	62.60	57.23	59.78	55.24	61.99
TiO <sub>2</sub>	0.07	0.13	0.02	0.48	0.88	0.67	1.07	0.71
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	13.15	13.67	13.15	17.22	17.80	17.84	17.84	16.76
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> *	0.85	0.99	0.70	4.47	7.07	5.51	6.87	4.72
MnO	0.02	0.03	0.06	0.10	0.13	0.11	0.11	0.08
MgO	0.15	0.20	0.09	2.14	3.97	3.08	4.10	2.38
CaO	1.21	0.99	1.07	5.33	6.84	6.35	8.31	5.30
Na <sub>2</sub> O	3.56	3.49	3.24	3.22	3.11	3.41	3.23	3.21
K <sub>2</sub> O	4.13	4.88	5.00	1.83	1.33	1.19	1.07	2.46
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.00	0.01	0.00	0.09	0.15	0.16	0.21	0.15
L.O.I.	0.38	0.45	0.33	1.76	0.94	1.62	1.20	1.46
Total	99.36	99.63	99.34	99.24	99.45	99.72	99.25	99.22
As(ppm)	<4	n.d.	n.d.	<4	<4	<4	<4	<4
Ba	721	504	1373	322	344	389	300	494
Cr	3	3	n.d.	29	45	30	161	25
Cu	<4	<4	9	<4	8	6	15	7
Ga	15	19	13	19	20	20	19	20
Nb	8	9	6	7	11	10	15	12
Ni	4	5	5	7	10	8	16	8
Pb	29	27	30	9	7	7	5	10
Rb	107	197	117	54	31	31	29	68
S	73	<3	552	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
Sr	139	126	160	373	417	549	439	394
Th	11	18	4	6	6	4	<4	9
V	6	6	8	63	136	175	152	72
Y	8	11	11	14	19	15	21	19
Zn	30	42	12	60	75	65	85	60
Zr	75	86	36	101	136	116	147	160

\*: total iron as Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, L.O.I.: loss on ignition, n.d.: not detected.

度分布は、流域に分布する岩石の化学組成の違い、もしくは鉱物の濃集の差によって説明される。また、高本ほか（2005）が指摘した特定元素の極端な濃度ピークは認められないため、人為的な影響は検出できなかった。したがって、今回分析を行った元素については、濃度分布は地域地質を反映していると考えられる。

### まとめ

福岡県東部の城井川流域ならびに彦山川流域の河川堆積物の化学分析を行い、高本ほか（2005）のデータとともに、これまで日本各地で作成されている地球化学図と同精度の地球化学図を作成した。その解析の結果、元素の濃度分布は、流域に分布する岩石の化学組成と、河川堆積物における特定の鉱物の濃集によって説明されることがわかった。したがって、これらの元素の濃度分布は地域地質を反映していると考えられる。

### 謝辞

本論文は伊藤吉宏の福岡大学理学部地球圏科学科における平成20年度の卒業研究を発展させたものである。研究を進めるにあたり、福岡大学理学部地球圏科学科の田口幸洋教授、奥野 充准教授、鮎沢 潤博士、石原与四郎博士には様々な御指導、御意見、御討論をいただいた。石原与四郎博士には査読をしていただき、有益な助言をいただいた。以上の方々に、記して感謝の意を表します。

### 文献

- 古川直道・柚原雅樹・伊藤裕之・高本のぞみ・柚原美恵, 2004, 河川堆積物の化学組成の季節変動-室見川および祓川の例-. 福岡大学理学集報, 34(2), 27-44.
- 英彦山団研グループ, 1984, 九州北部, 英彦山地域の後期新生代火山層序および地質構造. 地質学論集, no. 24, 59-76.
- 英彦山団研グループ, 1987, 北部九州英彦山地域の鮮

Tagawa Metamorphic rocks	◇ Diorite	● Masaki Granite
■ Mafic schist	○ Asakura Granodiorite	○ Yusubaru Granite
□ Pelitic schist	● Soeda Granodiorite	△ Kitasakamoto Formation

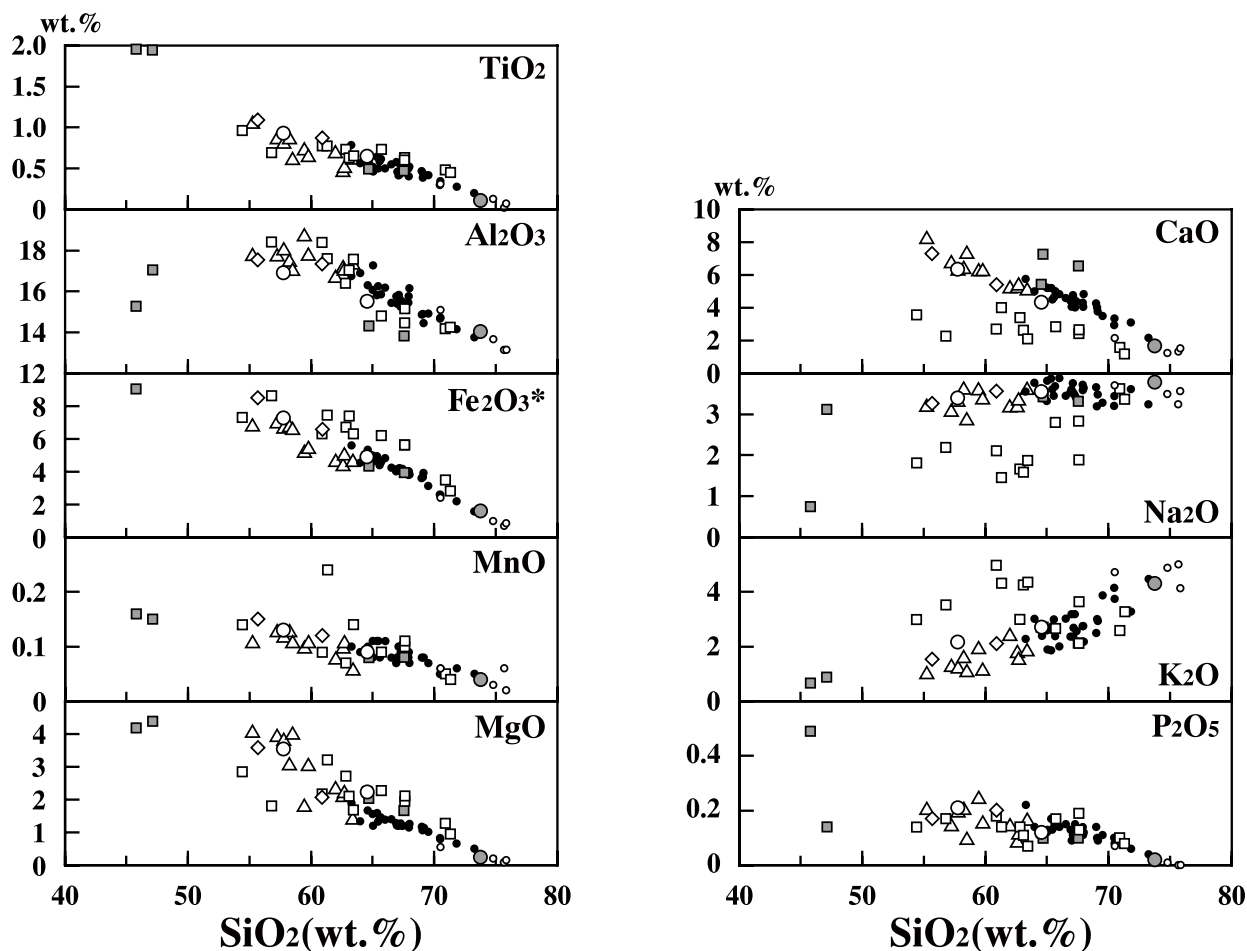


Fig. 5. SiO<sub>2</sub>-oxides diagrams of rock samples.

新世火山活動と構造運動. 地団研専報, no. 33, 87-106.

今井 登・岡井貴司・遠藤秀典・石井武政・田口雄作・上岡 晃, 2000, 山形市周辺地域の地球化学図—地質環境アトラス「山形市周辺地域」—. 地質調査所, 37-40.

今井 登・寺島 滋・片山 肇・中島 健・池原 研・谷口政碩, 1997, 日本海東部沿岸域海底表層堆積物中の重金属の地球化学的挙動. 地調月報, 48, 511-529.

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. 産業技術総合研究所地質調査総合センター,

209p.

稲吉正美, 2005, 地球化学図作成プログラム. 名古屋大学博物館報告, no. 21, 51-56.

伊藤裕之・袖原雅樹・石原与四郎・古川直道・小路泰之, 2007, 福岡県西部, 室見川および那珂川流域の地球化学図. 福岡大学理学集報, 37 (1), 37-56.

伊藤司郎・上岡 晃・田中 剛・富樫茂子・今井 登・金井 豊・寺島 滋・宇都浩三・岡井貴司・氏家真澄・柴田 賢・神谷雅晴・佐藤興平・坂本 亨・安藤 厚, 1991, 地球化学アトラス—北関東—. 地質調査所出版物, 30 図版, 35 p.

官 和哉・黒沢邦彦, 1996, 北海道中央部における土壌元素の地球化学図. 北海道立地下資源調査研究所, 39p.

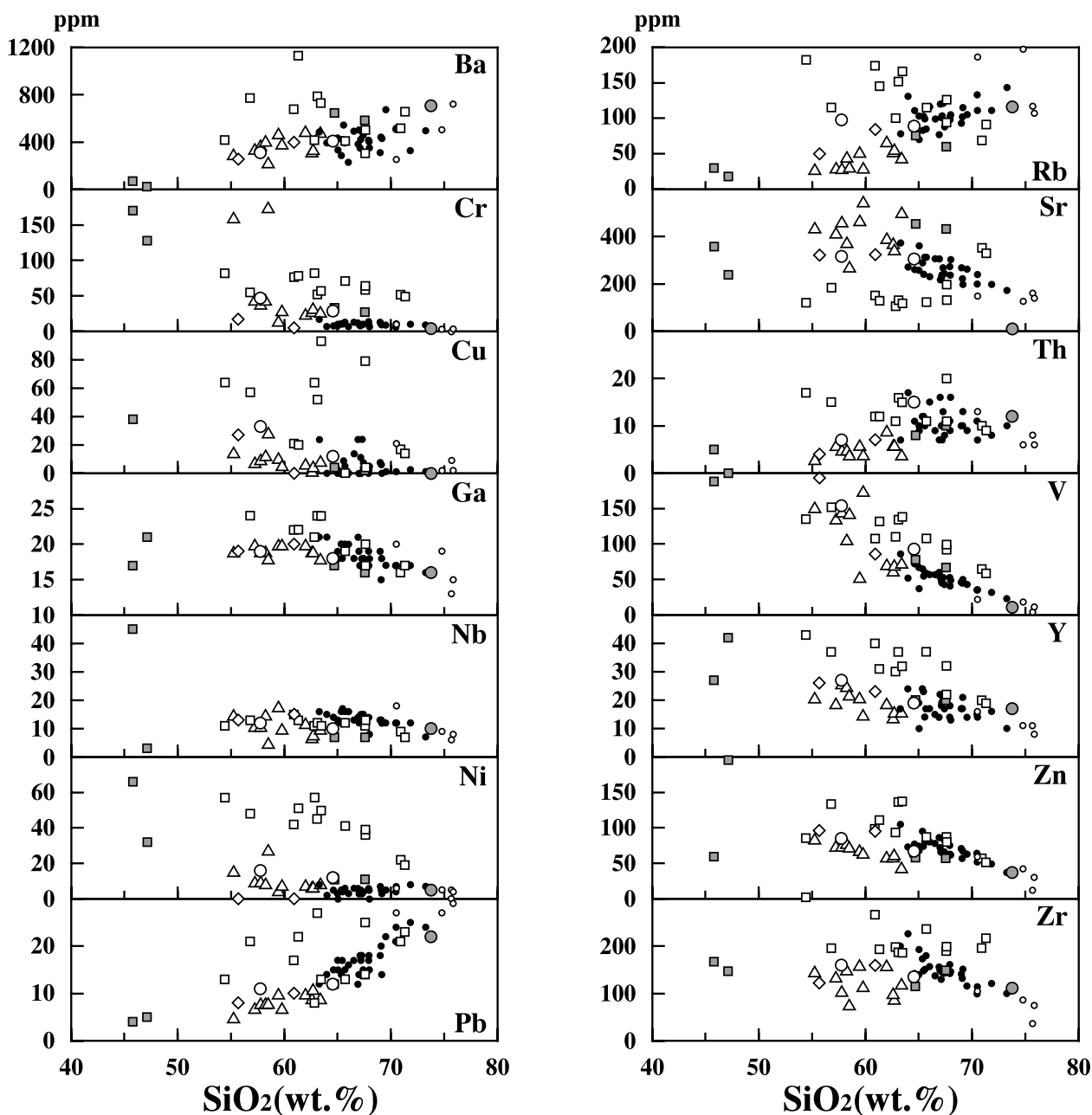


Fig. 6. SiO<sub>2</sub>-trace elements diagrams of rock samples.  
Symbols are the same as those in Figure 5.

久保和也・松浦浩久・尾崎正紀・牧本 博・星住英夫・  
鎌田耕太郎・広島俊男・中島和敏, 1993, 20万  
分の1地質図 福岡. 地質調査所.  
松本達郎, 1951, 北九州・西中国の基盤地質構造概説.  
九大理研報 (地質学), 3, 37-48.  
太田充恒・今井 登・岡井貴司・遠藤秀典・石井武政・  
田口雄作・上岡 晃・御子柴 (氏家) 真澄・寺  
島 滋, 2003, 地球化学図を用いた仙台市周辺地  
域の元素挙動の解明と環境評価. 地球科学, 57,

61-72.  
太田充恒・今井 登・岡井貴司・遠藤秀典・川辺禎久・  
石井武政・田口雄作・上岡 晃, 2002, 山形市周  
辺地域における元素分布の特徴について - 山形盆  
地南部の地球化学図 -. 地球化学, 36, 109-125.  
権川 誠・金山道雄・滝沢行雄 (応用地球化学研究グ  
ループ), 1984, 秋田県の地球化学図. 秋田大教  
育学地学, 29p.  
高本のごみ・柚原雅樹・古川直道, 2005, 福岡県東部,

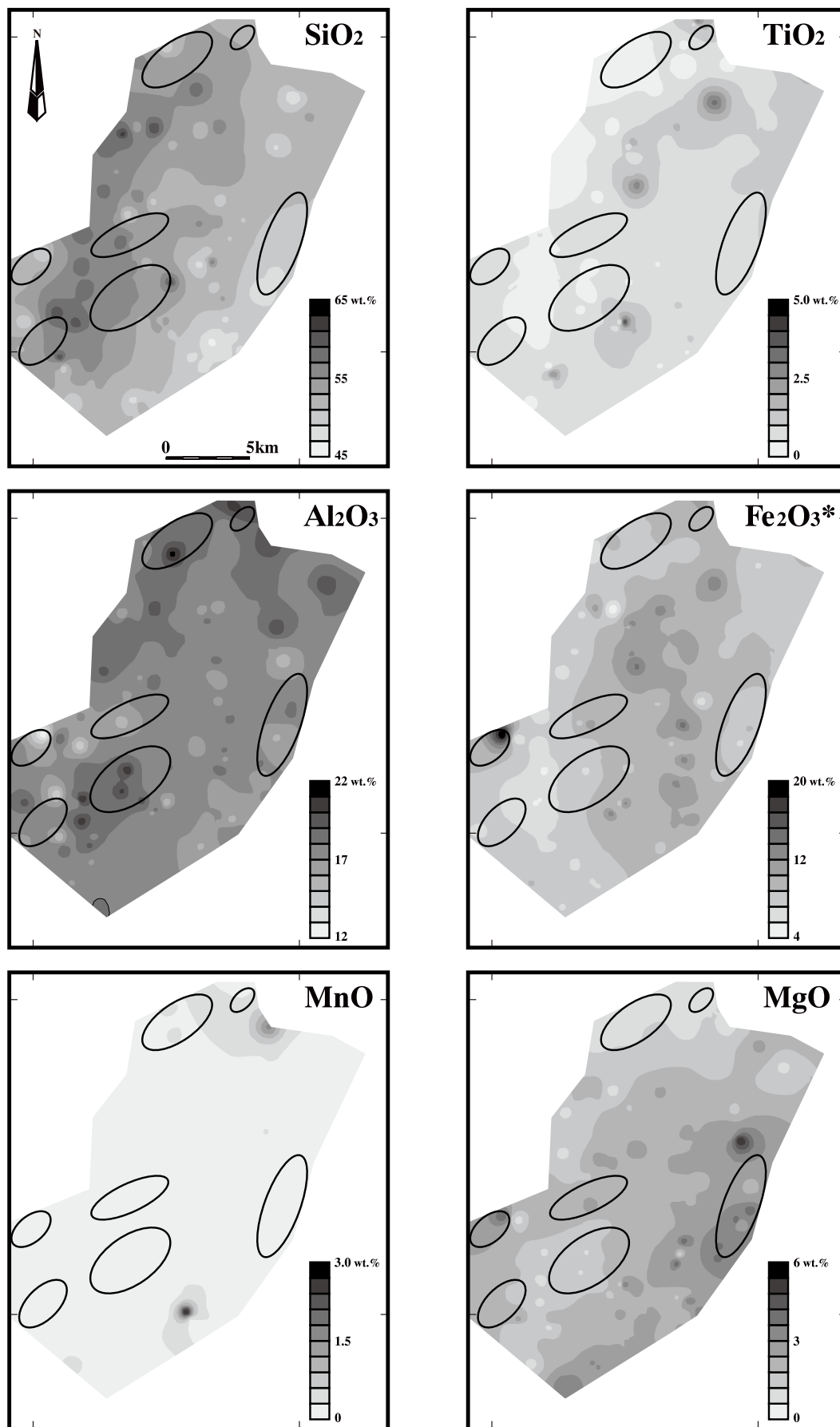


Fig. 7. Geochemical maps of the Hikosan River - Kii River basins.

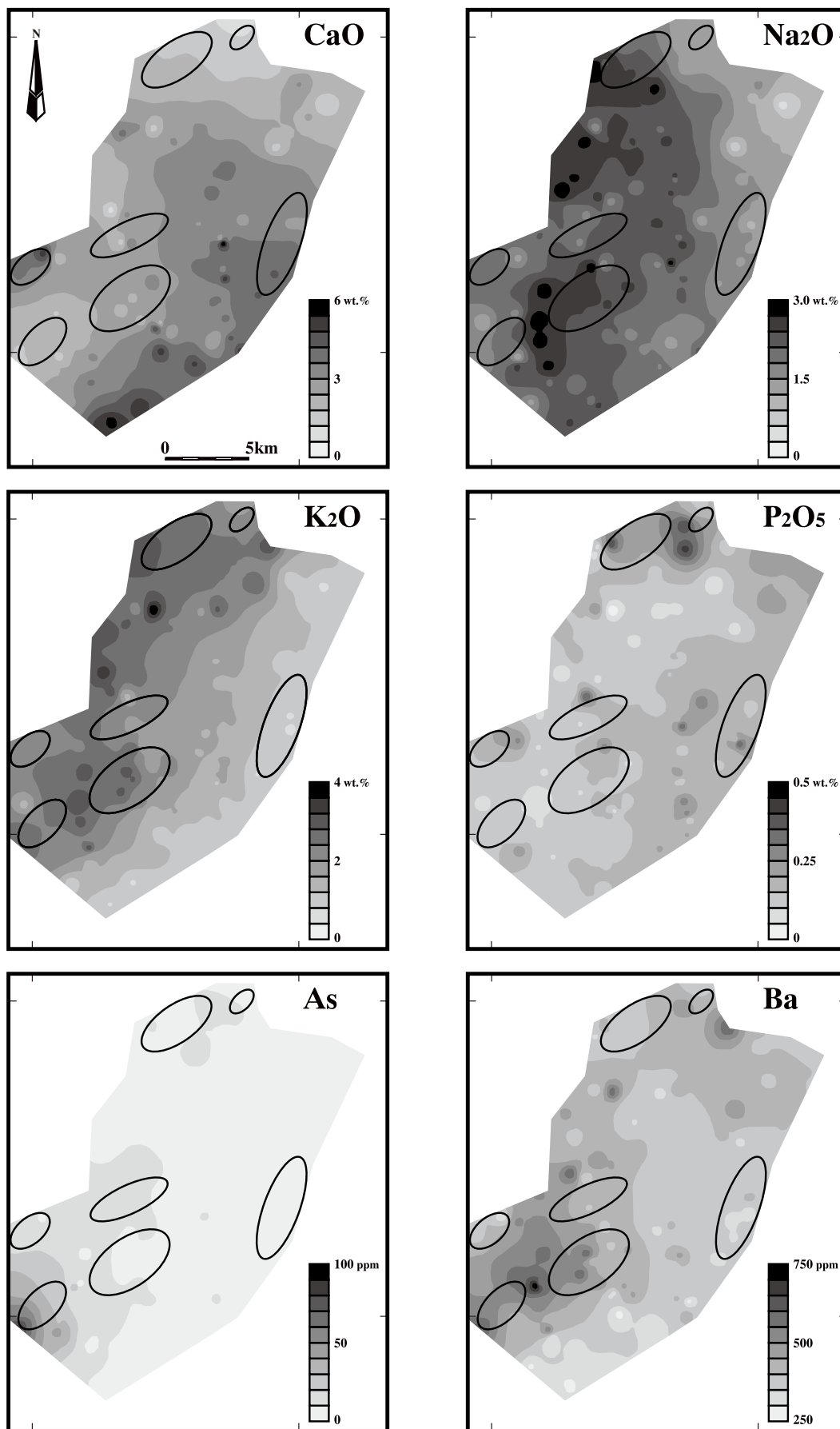


Fig. 7. (continued)



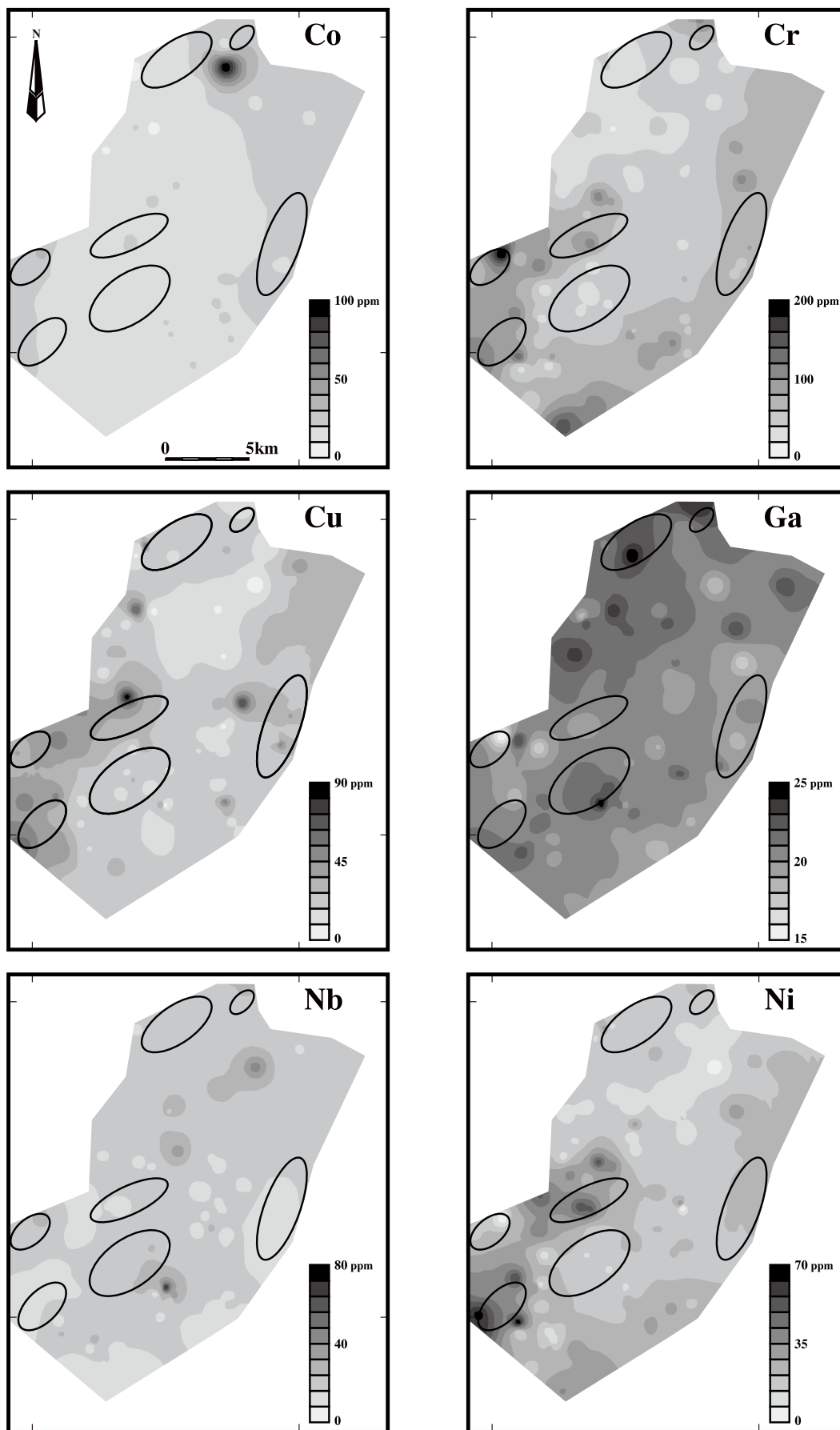


Fig. 7. (continued)

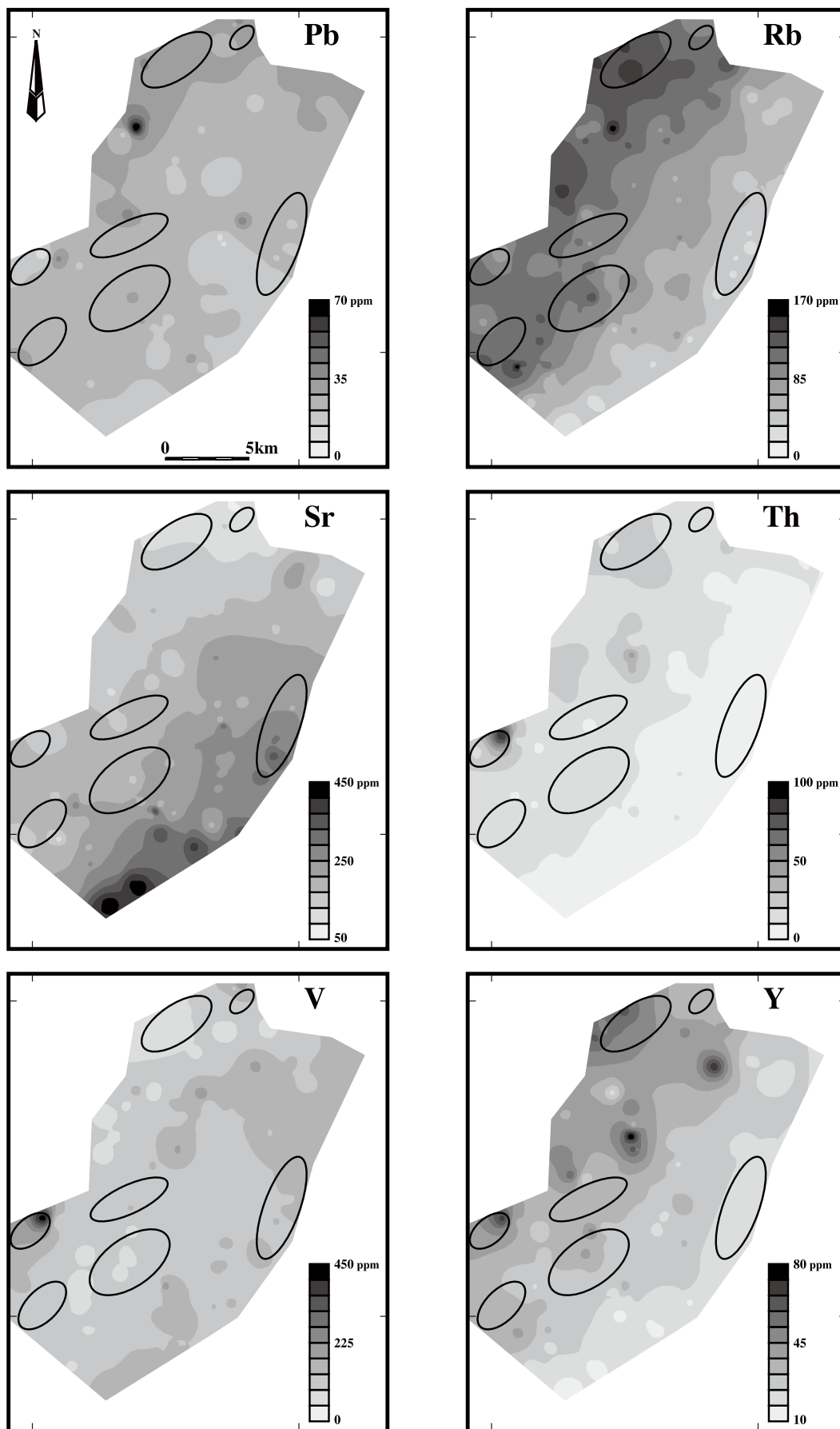


Fig. 7. (continued)

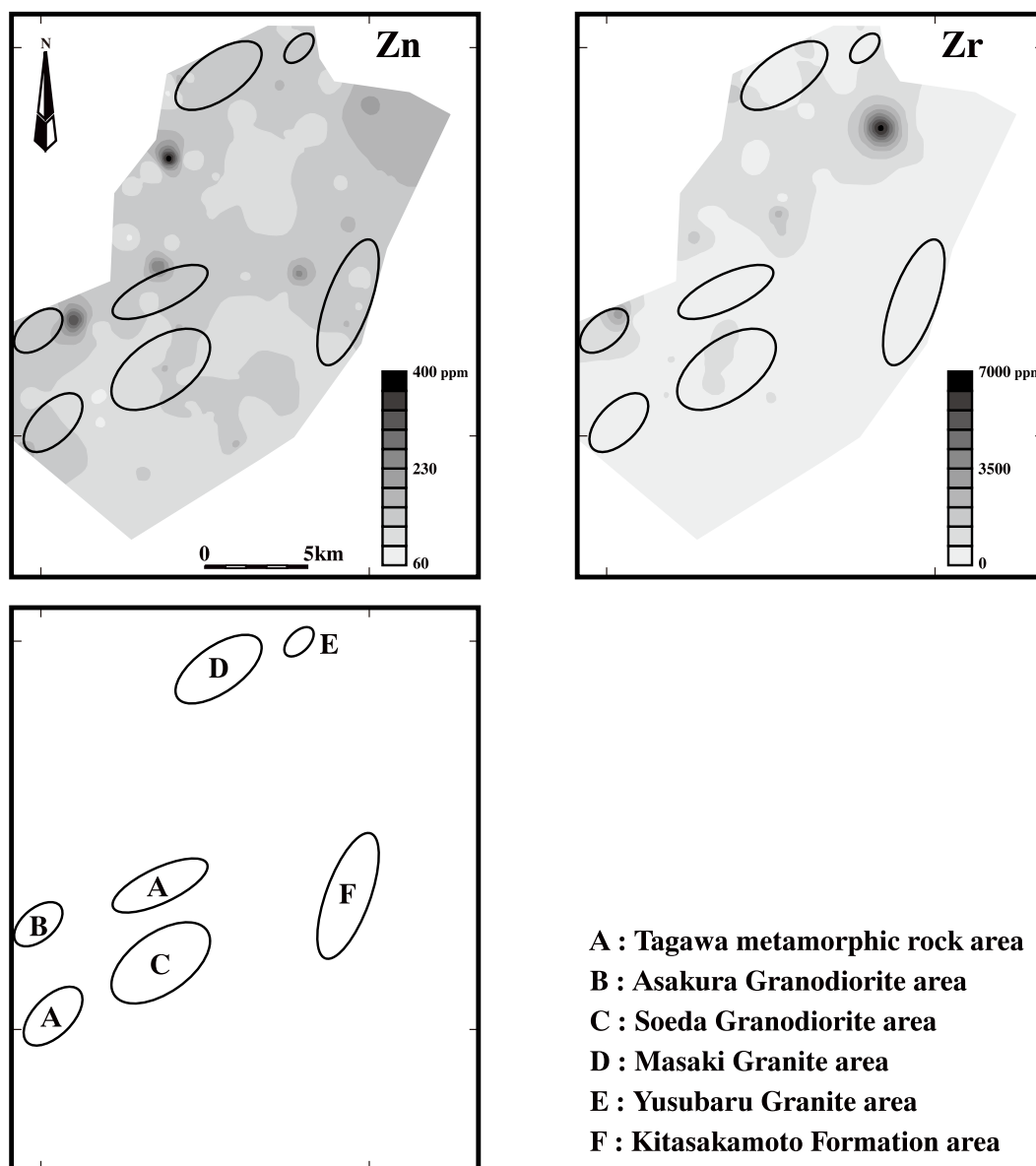


Fig. 7. (continued)

今川・祓川流域の元素濃度分布. 福岡大学理学集報, 35 (2), 41-66.

Tanaka, T., Kawabe, I., Hirahara, Y., Iwamori, H., Mimura, K., Sugisaki, R., Asahara, Y., Ito, T., Yurai, H., Yonezawa, C., Kanda, S., Shimizu, O., Hayashi, M., Miura, N., Mutoh, K., Ohta, A., Sugimura, K., Togami, K., Toriumi, T. and Matsumura, Y., 1994, Geochemical survey of the Sanage-yama area in Aichi Prefecture for environmental assessment. *Jour. Earth Planet. Sci. Nagaya Univ.*, 41, 1-31.

田中 剛・川邊岩夫・山本剛志・岩森 光・平原靖

大・三村耕一・浅原良浩・伊藤貴盛・米澤千夏・ドラグシャヌ クリスチャン・神田 聡・清水乙彦・林 正人・三浦典子・青木 浩・太田充恒・戸上 薫・鳥海貴弘・松村陽子・榊原智康・谷水雅治・水谷嘉一・宮永直澄・村山正樹・大森芙美子, 1995, 愛知県瀬戸市周辺における河川堆積物中の元素分布と地球環境評価の試み. *地球化学*, 29, 113-125.

Tanaka, T., Kawabe, I., Yamamoto, K., Iwamori, H., Hirahara, Y., Mimura, K., Asahara, Y., Minami, M., Ito, T., Dragusanu, C., Miura, N., Aoki, H., Ohta, A., Togami, K., Triumi, T., Matsumura,

- Y., Sakakibara, T., Tanimizu, M., Mizutani, Y., Miyanaga, N., Murayama, M. and Takayanagi, Y., 1996, Geochemical mapping of the northern area of Toyota City, Aichi Prefecture, central Japan : Distinct chemical characteristics of stream sediments between granitic and sedimentary rock areas. *Jour. Earth Planet. Sci. Nagaya Univ.*, **43**, 27-47.
- 田中 剛・川邊岩夫・山本鋼志・三村耕一・浅原良浩・南 雅代, 2001, 地学野外実習としての地球化学図作成. 地質ニュース, **558**, 41-47.
- 戸上 薫・田中 剛・岩森 光, 1997, 愛知県北東部津具地域の元素濃度分布とその規定要因. 資源地質, **47**, 305-318.
- 富田幸臣・石橋 毅, 1990, 北部九州炭田古第三系の地質と化石(概報). 九州大学理学部研究報告(地質学), **16**, 99-142.
- Ujiie-Mikoshihara, M., Imai, N., Terashima, S., Tachibana, Y. and Okai, T., 2006, Geochemical mapping in northern Honshu, Japan. *Appl. Geochem.*, **21**, 492-514.
- 山本鋼志・田中 剛・川邊岩夫・岩森 光・平原靖大・浅原良浩・金 奎 漢・Richardson, C.・伊藤貴盛・Dragusanu, C.・三浦典子・青木 浩・太田充恒・榊原智康・谷水雅治・水谷嘉一・宮永直澄・村山正樹・仙田量子・高柳幸央・井上祐介・川崎啓介・高木真理・根布悟志・稲吉正美, 1998, 愛知県豊田市北東部の領家花崗岩地域の地球化学図. 地質雑, **104**, 688-704.
- 柚原雅樹・古川直道・田口幸洋, 2004, 粉末ペレット法による珪酸塩・炭酸塩岩石の微量元素の蛍光X線分析. 福岡大学理学集報, **34** (1), 43-49.
- 柚原雅樹・宮崎桂輔, 2007, 福岡県添田町, 駒啼川に沿う断層(駒啼川断層)に伴われる断層岩の産状. 日本地質学会西日本支部例会講演要旨集, P12.
- 柚原雅樹・宮崎桂輔, 2010, 駒啼川断層に沿った添田花崗閃緑岩の熱水変質. 日本地質学会西日本支部例会講演要旨集, P-11.
- 柚原雅樹・小路泰之・石原与四郎・宇藤千恵, 2010, 那珂川上流, 五ヶ山地域の地球化学図. 福岡大学理学集報, **40**, 45-70.
- 柚原雅樹・田口幸洋, 2003a, 蛍光X線分析装置ZSX100eによる珪酸塩岩石の主成分および微量元素の定量分析. 福岡大学理学集報, **33** (1), 25-34.
- 柚原雅樹・田口幸洋, 2003b, ガラスビード法による珪酸塩岩石のCoおよびSの蛍光X線分析. 福岡大学理学集報, **33** (2), 77-81.
- 柚原雅樹・祐徳信武, 2005, 那珂川上流, 五ヶ山地域の金探鉱跡周辺に認められる早良花崗岩の変質. 福岡大学理学集報, **35** (1), 49-73.
- 柚原雅樹・祐徳信武・宇藤千恵・小路泰之, 2006, 那珂川上流, 五ヶ山地域の金探鉱跡周辺の熱水変質早良花崗岩のヒ素含有量. 福岡大学理学集報, **36** (1), 43-53.

(要 旨)

柚原雅樹・伊藤吉宏・吉本 紋・宮崎桂輔・眞崎求一, 2011, 福岡県東部, 彦山川~城井川流域の地球化学図. 福岡大学理学集報, **41**, 51-76. (Yuhara, M., Ito, Y., Yoshimoto, A., Miyazaki, K. and Masaki, K., 2011, Geochemical map of 26 elements in the Hikosan River - Kii River Basins, the eastern part of Fukuoka Prefecture. *Fukuoka Univ. Sci. Rep.*, **41**, 51-76.)

地圏環境評価のため, 彦山川および城井川流域の河川堆積物の採取と地球化学図を作成した. 調査地域は, 三疊紀の田川変成岩類, 白亜紀花崗岩類, 始新世の直方層群, 中新世後期~鮮新世初期の北坂本累層, 鮮新世前期の英彦山火山岩類, 第四系からなる. 白亜紀花崗岩類は, 斑れい岩ならびに閃緑岩, 朝倉花崗閃緑岩, 添田花崗閃緑岩, 真崎花崗岩, 油須原花崗岩に区分される. 試料採取は, 田中ほか(2001)の方法に従った. 採取試料に含まれる27元素(Si, Ti, Al, Fe, Mn, Mg, Ca, Na, K, P, As, Ba, Co, Cr, Cu, Ga, Nb, Ni, Pb, Rb, S, Sr, V, Th, Y, Zn, Zr)を, 蛍光X線分析装置により測定した. これらの元素の濃度分布は, 地域地質の違いと河川堆積物における特定の造岩鉱物の濃集によって説明される.

Appendix 1. Location data of sampling points for stream-sediments.

Sample No.	Latitude	Longitude	Sample No.	Latitude	Longitude
ONG-01	33°29'8.9"N	130°52'9.8"E	ONG-48	33°32'40.2"N	130°49'20.6"E
ONG-06	33°27'50.7"N	130°52'52.7"E	ONG-49	33°32'38.6"N	130°49'7.9"E
ONG-08	33°27'46.9"N	130°52'41.0"E	KII-01	33°35'50.4"N	130°58'48.3"E
ONG-10	33°29'21.6"N	130°52'16.0"E	KII-02	33°35'50.7"N	130°58'51.3"E
ONG-11	33°29'39.7"N	130°52'6.2"E	KII-03	33°35'31.4"N	130°59'21.0"E
ONG-12	33°29'55.7"N	130°52'14.5"E	KII-04	33°34'3.6"N	130°59'46.2"E
ONG-14	33°31'8.7"N	130°51'45.7"E	KII-06	33°33'49.9"N	130°59'43.5"E
ONG-15	33°32'2.7"N	130°51'56.0"E	KII-07	33°33'21.7"N	130°59'42.0"E
ONG-17	33°32'49.1"N	130°51'42.3"E	KII-08	33°33'3.8"N	130°59'13.3"E
ONG-18	33°29'34.2"N	130°51'3.3"E	KII-11	33°32'57.3"E	130°59'18.1"E
ONG-19	33°29'36.1"N	130°50'56.3"E	KII-12	33°39'26.9"E	131°0'47.5"E
ONG-20	33°29'55.6"N	130°50'59.0"E	KII-13	33°31'57.7"E	130°58'29.6"E
ONG-23	33°31'17.3"N	130°50'52.7"E	KII-16	33°31'55.4"E	130°58'30.7"E
ONG-25	33°29'45.5"N	130°49'28.3"E	KII-19	33°32'14.6"E	130°58'32.7"E
ONG-27	33°29'48.8"N	130°49'32.7"E	KII-21	33°32'32.4"E	130°59'6.7"E
ONG-29	33°30'9.5"N	130°49'30.0"E	KII-25	33°34'15.3"E	130°57'52.8"E
ONG-31	33°31'1.8"N	130°49'39.6"E	KII-26	33°38'7.7"E	130°59'48.5"E
ONG-34	33°28'26.0"N	130°53'59.5"E	KII-29	33°33'48.2"E	131°0'36.0"E
ONG-36	33°28'34.6"N	130°53'47.0"E	KII-31	33°36'31.1"E	130°59'8.6"E
ONG-37	33°29'7.5"N	130°53'5.0"E	KII-32	33°38'30.2"E	131°0'0.9"E
ONG-39	33°28'30.6"N	130°51'27.7"E	KII-33	33°37'51.8"E	131°0'58.4"E
ONG-40	33°30'25.9"N	130°51'47.6"E	KII-34	33°37'30.8"E	131°0'24.7"E
ONG-41	33°31'1.3"N	130°51'36.3"E	KII-37	33°39'8.2"E	131°1'54.0"E
ONG-42	33°33'48.5"N	130°51'48.3"E	IM-62	33°39'3.8"E	130°57'17.3"E
ONG-44	33°33'51.6"N	130°51'47.4"E	IM-63	33°39'46.5"E	130°57'15.2"E
ONG-46	33°33'3.2"N	130°50'57.1"E	OTN-01	33°39'51.9"E	131°0'12.2"E
ONG-47	33°33'11.5"N	130°50'21.3"E			

Appendix 2. Location data of sampling points for rocks.

Sample No.	Latitude	Longitude	Sample No.	Latitude	Longitude
ONG-07	33°27'50.7"N	130°52'52.7"E	05031601	33°30'40.0"N	130°57'0.3"E
ONG-21	33°29'52.1"N	130°51'1.0"E	05031603	33°32'40.6"N	130°56'55.1"E
ONG-30	33°30'9.5"N	130°49'30.0"E	05031604	33°33'11.67"N	130°53'58.57"E
ONG-32	33°31'1.8"N	130°49'39.6"E	05031606	33°32'47.0"N	130°54'44.5"E
ONG-45	33°33'51.6"N	130°51'47.4"E	05031607	33°31'46.2"N	130°54'1.1"E
ONG-50	33°32'38.6"N	130°49'7.9"E	05042402	33°32'5.3"N	130°56'52.1"E
KII-05	33°34'3.6"N	130°59'46.2"E	06022701	33°32'54.2"N	130°56'31.0"E
KII-10	33°33'3.8"N	130°59'13.3"E	06022712	33°32'51.7"N	130°55'60.0"E
KII-24	33°32'32.4"E	130°59'6.7"E	06052107	33°34'27.4"N	130°57'6.7"E
KII-27	33°38'10.2"N	130°59'50.4"E	06102604	33°30'51.6"N	130°57'16.0"E
KII-35	33°37'30.8"E	131°0'24.7"E	06102703	33°29'20.3"N	130°52'14.6"E
HA-46	33°38'49.5"N	130°58'31.1"E	06112402	33°33'38.9"N	130°57'24.2"E
HA-47	33°38'29.5"N	130°58'19.9"E	07021901	33°29'38.2"N	130°50'58.8"E
01100702	33°30'23.59"N	130°52'11.34"E	07072208	33°32'14.5"N	130°55'8.1"E
01110202	33°29'23.52.6"N	130°52'29.0"E	07072301	33°34'13.1"N	130°56'52.0"E
01120204	33°35'25.6"N	130°58'49.1"E	07081701	33°30'53.7"N	130°51'30.1"E
01120306	33°34'42.7"N	130°58'11.0"E	07081702	33°30'51.7"N	130°51'24.0"E
02033101	33°35'45.7"N	130°59'8.2"E	08072107	33°28'7.1"N	130°51'50.9"E
05021703	33°35'6.0"N	130°56'40.0"E	09112602	33°30'59.9"N	130°54'57.7"E
05021706	33°35'20.4"N	130°56'53.0"E	09112706	33°30'56.2"N	130°52'43.4"E
05021801	33°35'38.9"N	130°56'53.4"E	09121302	33°33'1.2"N	130°52'39.1"E
05031501	33°31'24.0"N	130°53'18.5"E	10022603	33°29'36.0"N	130°50'30.9"E

**Appendix 3.** Whole-rock chemical compositions of stream-sediments collected by Takamoto et al.(2005).

Sample No.	IM-01	IM-02	IM-03	IM-04	IM-05	IM-06	IM-07	IM-08	IM-09	IM-10	IM-11	IM-12
SiO <sub>2</sub> (wt.%)	54.35	52.02	46.99	48.31	51.73	53.47	59.18	52.41	56.60	51.96	50.65	56.35
TiO <sub>2</sub>	0.69	0.66	1.03	0.90	1.18	0.91	0.72	0.62	0.71	2.53	0.71	0.56
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	18.41	19.31	15.80	16.08	16.45	18.04	16.37	17.24	17.16	16.21	18.57	18.45
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	4.24	2.78	3.35	3.70	4.66	4.71	2.94	2.94	3.50	6.33	3.40	2.83
FeO	1.99	2.47	2.92	2.57	2.08	1.34	2.91	2.35	2.07	3.30	2.56	2.34
MnO	0.16	0.17	0.17	0.20	0.18	0.13	0.16	0.09	0.20	0.25	0.13	0.24
MgO	1.44	1.09	1.63	1.49	1.95	1.77	1.95	1.33	1.53	2.39	1.40	1.00
CaO	2.06	2.34	2.87	2.59	3.13	3.09	2.05	2.07	2.15	3.47	2.03	2.08
Na <sub>2</sub> O	2.82	2.39	1.56	1.48	2.24	2.66	2.28	2.46	2.73	2.38	2.27	2.62
K <sub>2</sub> O	2.73	2.79	1.34	1.29	1.68	2.24	2.29	2.70	2.69	2.13	2.50	3.07
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.17	0.17	0.33	0.26	0.20	0.16	0.09	0.17	0.16	0.13	0.14	0.19
H <sub>2</sub> O <sup>-</sup>	2.78	2.78	5.14	5.45	3.75	2.72	1.80	4.78	2.27	1.83	2.97	2.25
H <sub>2</sub> O <sup>+</sup>	7.76	11.32	16.75	15.09	10.32	8.83	7.16	12.12	8.32	6.92	13.27	7.81
Total	99.60	100.29	99.88	99.41	99.55	100.07	99.90	101.28	100.09	99.83	100.60	99.79
As(ppm)	6	9	13	17	8	6	7	7	15	5	8	7
Ba	368	548	342	342	366	457	438	397	415	338	351	451
Co	17	10	17	14	13	13	14	12	14	18	13	9
Cr	23	28	54	37	46	35	52	28	48	32	30	24
Cu	16	39	79	31	21	14	22	27	20	11	16	16
Ga	22	21	19	20	19	20	19	21	20	20	23	21
Nb	18	20	17	17	24	22	14	15	17	35	19	16
Ni	11	14	23	18	13	15	29	16	23	6	14	11
Pb	29	376	37	24	22	22	21	29	26	22	29	27
Rb	126	109	67	67	70	87	99	127	122	89	133	124
S	502	484	1096	866	517	351	193	571	375	253	521	410
Sr	155	184	1990	182	222	229	175	143	151	163	138	157
Th	20	12	9	9	10	12	11	16	27	25	20	16
V	86	76	97	91	107	94	98	79	82	177	85	67
Y	40	32	24	25	28	28	29	36	40	50	43	36
Zn	123	252	251	157	133	122	103	164	118	123	129	116
Zr	455	661	353	309	553	555	250	489	630	1626	489	1028

Sample No.	IM-13	IM-14	IM-15	IM-16	IM-17	IM-18	IM-19	IM-20	IM-21	IM-22	IM-23	IM-24
SiO <sub>2</sub> (wt.%)	55.63	52.11	52.36	49.47	50.78	52.67	49.60	53.54	47.16	49.69	46.27	49.62
TiO <sub>2</sub>	0.55	1.07	0.53	1.20	1.50	4.04	0.94	0.89	1.70	1.23	1.35	1.82
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	18.64	16.53	20.49	16.02	17.20	14.32	16.42	17.66	15.60	18.72	16.45	17.34
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3.11	5.58	3.99	3.13	5.45	10.92	5.08	2.21	3.16	4.36	4.67	6.73
FeO	2.14	2.42	1.65	2.63	1.90	0.69	1.32	3.02	4.43	2.42	2.44	1.43
MnO	0.14	0.20	0.35	0.12	0.13	0.22	0.19	0.12	0.21	0.17	0.15	0.15
MgO	1.17	2.29	1.03	1.75	2.94	3.55	1.43	1.91	1.46	1.33	2.01	2.48
CaO	2.43	2.99	1.78	4.10	5.35	3.27	1.76	4.63	2.66	1.88	2.39	2.62
Na <sub>2</sub> O	2.96	1.56	2.33	1.91	2.39	2.06	1.82	2.39	1.67	2.14	1.35	1.74
K <sub>2</sub> O	2.88	2.04	2.64	1.01	0.82	1.69	1.82	1.15	1.23	2.30	1.08	1.68
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.12	0.26	0.21	0.12	0.12	0.12	0.22	0.11	0.18	0.21	0.17	0.18
H <sub>2</sub> O <sup>-</sup>	2.14	2.83	2.84	5.13	3.71	1.63	4.81	3.47	5.59	3.75	5.44	4.04
H <sub>2</sub> O <sup>+</sup>	7.61	10.11	9.55	12.57	6.25	3.58	13.97	5.62	13.68	11.34	15.71	8.63
Total	99.52	99.99	99.75	99.16	98.54	98.76	99.38	96.72	98.73	99.54	99.48	98.46
As(ppm)	6	5	8	9	<4	4	8	5	18	14	8	6
Ba	405	364	361	268	275	458	406	325	319	482	406	442
Co	10	20	11	12	18	23	12	10	16	13	20	18
Cr	19	49	35	49	80	73	42	59	39	38	101	49
Cu	11	62	16	10	8	5	36	18	12	20	18	20
Ga	22	19	24	18	19	19	21	19	19	24	20	21
Nb	17	17	18	13	14	73	22	11	22	27	16	35
Ni	8	20	14	16	22	9	19	20	13	15	28	15
Pb	24	71	31	23	12	16	24	14	21	28	22	21
Rb	122	89	144	43	28	52	80	42	56	102	53	72
S	249	600	479	439	183	116	612	254	561	418	523	314
Sr	174	138	131	284	423	211	166	376	189	179	205	193
Th	14	11	20	6	<4	9	11	7	9	15	8	11
V	71	145	64	104	170	227	79	105	107	100	139	147
Y	41	36	47	14	12	37	25	15	23	30	19	30
Zn	108	369	131	93	90	143	137	101	131	151	116	142
Zr	989	787	351	155	143	1136	433	144	441	651	251	591

## Appendix 3. (continued)

Sample No.	IM-25	IM-26	IM-27	IM-28	IM-29	IM-30	IM-31	IM-32	IM-33	IM-34	IM-35	IM-36
SiO <sub>2</sub> (wt.%)	52.81	52.83	49.45	45.49	44.14	43.42	47.29	54.53	53.78	54.08	56.98	52.51
TiO <sub>2</sub>	1.58	1.02	1.00	1.13	0.97	0.70	1.06	0.75	0.60	0.57	0.86	0.88
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	16.93	15.72	20.00	16.23	15.01	14.31	14.97	19.33	20.11	17.32	14.67	16.14
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	4.66	4.86	4.97	4.41	3.61	2.49	4.54	3.23	3.90	3.02	4.00	3.29
FeO	2.08	2.91	2.22	2.10	2.64	2.46	2.06	1.91	1.26	2.07	2.09	2.35
MnO	0.13	0.17	0.17	2.64	0.12	0.11	0.11	0.14	0.14	0.14	0.14	0.21
MgO	1.79	2.85	0.65	2.19	2.59	1.88	2.38	1.08	1.07	1.26	2.22	1.45
CaO	2.44	3.29	0.74	3.55	4.07	3.95	4.53	2.06	2.38	2.84	1.58	1.04
Na <sub>2</sub> O	2.40	2.27	1.15	1.58	1.71	1.62	1.90	2.32	2.52	2.98	1.60	1.87
K <sub>2</sub> O	2.11	1.68	1.78	0.95	0.85	0.79	0.77	2.87	3.00	2.75	1.99	2.77
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.14	0.14	0.18	0.18	0.19	0.21	0.17	0.11	0.16	0.20	0.12	0.13
H <sub>2</sub> O <sup>-</sup>	3.48	2.62	4.33	6.59	5.82	7.18	6.94	3.85	3.72	2.84	3.40	4.65
H <sub>2</sub> O <sup>+</sup>	8.32	9.64	12.68	13.15	18.05	20.02	12.56	8.27	7.41	8.66	8.48	11.10
Total	98.87	100.00	99.32	100.19	99.77	99.32	99.28	100.45	100.05	98.73	98.13	98.39
As(ppm)	7	13	6	6	5	4	<4	9	7	8	13	14
Ba	403	382	377	325	292	291	288	563	571	460	408	562
Co	13	24	20	17	18	13	20	11	11	11	18	17
Cr	32	114	62	82	94	55	77	34	26	23	89	58
Cu	12	35	12	19	21	17	17	13	15	12	35	31
Ga	22	18	24	18	18	16	17	21	21	19	18	21
Nb	31	16	19	15	11	11	12	19	19	20	12	19
Ni	12	50	21	25	31	22	28	13	12	14	53	36
Pb	21	20	25	22	33	16	21	27	27	26	22	29
Rb	84	81	94	41	33	34	28	99	112	112	101	120
S	260	319	430	543	796	743	538	282	280	262	233	336
Sr	209	179	77	262	323	332	371	174	185	196	142	114
Th	13	7	15	6	5	4	4	12	14	13	10	26
V	106	137	113	132	134	94	145	71	74	74	101	94
Y	28	32	29	18	15	14	15	28	39	46	31	52
Zn	113	125	113	128	163	84	106	100	104	96	109	126
Zr	556	285	352	192	135	110	111	862	1041	1193	262	422

Sample No.	IM-37	IM-38	IM-39	IM-40	IM-41	IM-42	IM-43	IM-44	IM-45	IM-46	IM-47	IM-48
SiO <sub>2</sub> (wt.%)	56.49	54.36	48.40	49.64	49.95	50.25	49.79	51.26	51.94	54.98	52.32	52.22
TiO <sub>2</sub>	0.50	0.69	0.84	1.60	0.97	2.15	3.37	1.63	1.04	1.81	0.63	0.58
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	18.89	16.36	17.88	16.13	17.04	17.93	16.40	17.71	17.75	16.13	15.51	17.70
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3.26	3.29	5.08	8.53	4.12	6.81	7.92	5.08	4.77	5.65	2.73	5.36
FeO	1.33	2.65	2.30	2.08	2.47	2.40	2.95	3.16	2.48	2.09	2.72	2.09
MnO	0.10	0.16	0.16	0.17	0.14	0.21	0.28	0.19	0.16	0.20	0.11	0.13
MgO	0.93	2.66	2.43	2.56	1.94	2.37	2.70	2.17	2.23	1.92	1.16	1.00
CaO	1.85	2.42	2.44	3.04	2.85	3.24	3.39	3.47	3.35	2.55	1.82	1.82
Na <sub>2</sub> O	2.98	2.43	1.61	1.97	2.37	2.09	1.73	2.46	2.52	2.29	2.14	2.43
K <sub>2</sub> O	3.44	2.64	2.15	1.86	2.02	1.97	2.04	2.08	2.02	2.77	2.67	2.83
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.08	0.11	0.14	0.09	0.13	0.16	0.13	0.13	0.10	0.11	0.22	0.39
H <sub>2</sub> O <sup>-</sup>	2.58	2.83	3.60	2.91	5.64	2.44	2.18	2.37	2.93	2.25	4.44	3.55
H <sub>2</sub> O <sup>+</sup>	6.08	8.38	13.14	8.12	10.33	6.97	6.09	7.32	7.60	6.51	12.53	9.86
Total	98.51	98.98	100.17	98.70	99.97	98.99	98.97	99.03	98.89	99.26	99.00	99.96
As(ppm)	7	18	15	5	6	5	6	5	5	6	10	11
Ba	401	479	435	317	329	442	384	378	335	409	414	369
Co	12	17	21	19	14	19	21	17	16	15	13	12
Cr	28	112	81	45	22	32	37	28	56	33	55	31
Cu	11	31	33	16	14	16	12	10	9	7	46	17
Ga	21	19	21	19	22	21	20	20	21	21	19	21
Nb	15	14	14	22	19	28	42	26	18	29	16	17
Ni	12	48	38	14	8	12	13	9	28	10	28	12
Pb	25	23	27	19	24	18	20	19	19	26	37	28
Rb	145	114	105	81	97	79	89	87	96	108	127	130
S	208	264	447	294	316	189	237	220	215	234	734	615
Sr	130	168	151	157	167	150	148	158	188	159	121	123
Th	29	11	11	13	14	44	17	43	13	19	18	17
V	67	107	132	213	110	165	195	145	128	133	82	80
Y	50	32	34	35	32	66	45	76	36	36	42	57
Zn	89	107	137	111	111	145	150	121	104	110	181	112
Zr	1602	280	244	966	395	1527	1326	2232	527	929	479	488

Appendix 3. (continued)

Sample No.	IM-49	IM-50	IM-51	IM-52	IM-53	IM-56	HA-01	HA-02	HA-03	HA-04	HA-05	HA-06
SiO <sub>2</sub> (wt.%)	53.64	50.43	45.20	50.12	60.23	60.48	50.21	44.69	44.60	46.38	45.11	40.27
TiO <sub>2</sub>	0.43	0.43	0.49	2.72	0.54	0.80	0.94	0.78	0.78	0.78	1.01	0.77
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	17.16	17.02	16.38	18.17	19.67	15.55	16.56	16.61	16.04	15.73	15.12	14.36
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.23	1.32	2.53	7.95	3.09	3.93	4.06	3.25	3.54	3.58	4.29	2.58
FeO	2.20	2.35	2.63	1.44	1.07	2.48	2.73	2.59	3.19	2.45	3.25	3.27
MnO	0.10	0.09	0.31	0.14	0.08	0.15	0.15	0.16	0.27	0.20	0.28	0.22
MgO	0.73	0.81	0.75	1.08	0.85	2.40	3.22	1.91	1.55	1.88	2.33	1.33
CaO	1.75	2.06	1.41	1.08	1.63	3.89	4.81	3.39	2.34	3.09	3.39	2.00
Na <sub>2</sub> O	2.73	2.78	1.71	1.15	2.50	2.44	2.13	1.62	1.40	1.45	1.53	1.16
K <sub>2</sub> O	2.84	2.89	2.26	1.79	3.94	2.40	0.95	0.83	1.28	1.04	1.03	1.04
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.10	0.10	0.23	0.11	0.04	0.18	0.17	0.20	0.21	0.26	0.28	0.16
H <sub>2</sub> O <sup>-</sup>	3.99	4.44	8.42	3.88	1.41	1.38	4.24	6.38	6.35	5.82	6.04	10.60
H <sub>2</sub> O <sup>+</sup>	12.32	14.71	14.08	8.35	5.32	3.44	9.23	15.90	17.16	16.60	14.79	18.60
Total	99.22	99.43	96.40	97.98	100.37	99.52	99.40	98.31	98.71	99.26	98.45	96.36
As(ppm)	8	5	8	7	4	7	<4	5	12	7	6	9
Ba	360	328	330	326	576	429	336	411	377	350	369	343
Co	9	8	11	22	6	17	19	15	15	15	20	14
Cr	33	26	33	113	18	53	60	48	76	50	50	83
Cu	10	8	17	15	6	25	12	20	19	30	45	19
Ga	21	20	21	22	24	18	18	18	19	19	19	17
Nb	14	15	16	31	19	16	13	13	15	13	18	12
Ni	19	12	17	21	11	18	20	21	24	21	20	27
Pb	31	30	29	37	30	19	15	18	20	21	25	19
Rb	133	126	123	88	157	85	34	37	74	51	48	54
S	479	584	711	258	108	314	347	558	645	804	705	565
Sr	126	135	93	90	171	200	365	291	197	232	252	168
Th	19	24	24	17	16	11	6	6	10	8	7	8
V	44	54	58	221	49	127	113	95	99	94	113	97
Y	53	58	55	30	22	38	18	20	20	21	26	18
Zn	97	87	142	125	92	100	103	90	108	144	127	100
Zr	764	1928	507	751	165	703	152	163	199	214	226	159

Sample No.	HA-07	HA-08	HA-09	HA-10	HA-11	HA-12	HA-13	HA-14	HA-15	HA-16	HA-17	HA-18
SiO <sub>2</sub> (wt.%)	42.64	48.75	52.53	49.75	46.23	53.96	46.96	40.75	46.39	47.11	51.82	49.19
TiO <sub>2</sub>	1.15	1.37	1.24	0.83	0.98	1.20	1.08	0.62	0.95	0.82	1.00	1.24
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	15.63	15.20	17.38	18.17	17.34	17.32	16.96	14.04	15.34	16.29	17.63	15.51
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	4.29	3.92	5.04	2.78	3.39	4.09	3.00	1.23	3.65	3.06	5.62	5.77
FeO	3.11	3.68	2.39	2.82	3.01	2.01	3.70	3.60	2.87	3.66	4.18	3.33
MnO	0.17	0.17	0.16	0.19	0.13	0.13	0.17	0.12	0.15	0.27	0.21	0.19
MgO	2.54	2.65	2.61	1.39	2.33	2.11	1.89	1.59	2.09	2.01	2.98	4.13
CaO	2.47	3.08	3.41	2.88	3.15	3.66	3.18	3.14	3.59	3.22	5.92	4.02
Na <sub>2</sub> O	1.20	1.72	2.33	2.13	1.70	2.70	1.99	1.32	1.90	2.09	2.69	1.82
K <sub>2</sub> O	0.83	1.41	1.74	1.87	1.35	1.75	1.58	1.74	1.19	1.45	1.36	1.02
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.15	0.18	0.14	0.23	0.23	0.17	0.21	0.17	0.17	0.17	0.34	0.15
H <sub>2</sub> O <sup>-</sup>	7.76	4.56	2.75	3.90	4.97	2.62	6.67	9.97	5.80	4.62	1.19	3.57
H <sub>2</sub> O <sup>+</sup>	14.83	11.99	6.63	12.06	13.73	6.83	11.90	20.75	14.33	14.36	3.69	8.58
Total	96.77	98.68	98.35	99.00	98.54	98.55	99.29	99.04	98.42	99.13	98.63	98.52
As(ppm)	8	8	4	5	5	5	5	4	7	13	<4	4
Ba	351	390	405	465	401	406	325	311	293	342	356	308
Co	20	19	17	12	16	12	15	14	15	16	20	22
Cr	108	65	52	36	52	48	42	46	47	43	22	73
Cu	22	16	15	22	25	16	14	18	15	10	5	9
Ga	18	19	20	22	21	20	19	16	19	19	21	19
Nb	14	24	20	21	19	31	19	10	14	13	14	15
Ni	28	18	16	15	23	15	17	21	18	13	3	17
Pb	15	19	19	23	22	19	19	18	19	18	11	16
Rb	41	60	70	83	73	64	72	42	53	63	58	44
S	424	514	312	571	554	253	454	752	510	467	76	340
Sr	190	219	261	222	251	274	198	226	227	233	309	254
Th	6	7	9	11	8	10	9	5	6	7	4	6
V	135	129	141	92	112	112	103	87	108	100	134	147
Y	18	24	25	30	24	29	30	17	22	19	38	24
Zn	101	142	126	149	127	106	115	88	106	113	123	118
Zr	197	337	385	554	315	642	456	135	224	204	219	366



## Appendix 3. (continued)

Sample No.	HA-19	HA-20	HA-21	HA-22	HA-23	HA-24	HA-25	HA-26	HA-27	HA-28	HA-29	HA-30
SiO <sub>2</sub> (wt.%)	49.85	54.76	51.72	52.23	46.21	50.67	48.04	55.68	45.84	51.97	52.14	52.79
TiO <sub>2</sub>	0.88	0.84	0.84	0.91	0.90	0.97	1.06	0.86	0.97	0.64	1.23	1.26
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	17.13	16.39	16.48	16.22	15.45	15.96	18.68	16.11	16.75	17.27	16.74	17.14
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3.05	4.53	3.71	3.64	3.00	3.28	4.34	4.86	4.48	2.94	4.57	4.57
FeO	4.00	1.43	3.30	3.18	3.47	3.56	2.39	1.88	2.92	2.31	3.02	3.02
MnO	0.18	0.15	0.15	0.15	0.13	0.15	0.13	0.16	0.17	0.12	0.15	0.16
MgO	2.12	1.98	2.42	2.14	2.39	2.31	1.70	2.48	3.04	2.11	2.42	2.36
CaO	2.43	2.71	3.20	3.30	3.36	3.77	2.54	4.19	3.80	2.81	3.67	3.72
Na <sub>2</sub> O	1.92	2.59	2.19	2.32	1.87	2.34	1.55	2.74	1.51	2.22	2.30	2.29
K <sub>2</sub> O	1.85	1.99	1.63	1.78	1.29	1.73	1.31	1.75	0.79	1.97	1.62	1.75
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.19	0.13	0.16	0.17	0.20	0.16	0.14	0.19	0.17	0.11	0.15	0.19
H <sub>2</sub> O <sup>-</sup>	3.72	3.02	3.20	2.97	5.04	3.17	5.68	1.98	6.38	4.27	2.98	2.94
H <sub>2</sub> O <sup>+</sup>	12.04	8.44	10.19	10.40	16.37	10.88	11.34	6.34	12.22	9.25	8.11	8.19
Total	99.36	98.96	99.19	99.41	99.68	98.95	98.90	99.22	99.04	97.99	99.10	100.38
As(ppm)	6	<4	8	4	<4	6	7	<4	4	<4	<4	<4
Ba	382	364	371	365	336	350	364	362	325	370	370	364
Co	18	15	18	13	16	16	17	14	21	12	17	17
Cr	57	43	65	43	46	44	58	42	58	33	32	38
Cu	26	16	30	30	18	24	19	12	14	14	7	10
Ga	19	19	19	18	18	18	22	19	19	21	19	20
Nb	14	15	13	15	13	14	20	15	12	13	16	19
Ni	30	18	25	16	15	18	20	12	19	14	9	12
Pb	21	22	20	21	20	20	18	19	15	23	15	19
Rb	85	83	74	77	62	79	60	68	35	90	72	80
S	456	328	601	416	650	586	309	339	417	336	263	264
Sr	182	175	205	198	236	232	208	265	247	224	235	221
Th	10	19	7	12	6	9	8	7	6	10	9	13
V	111	102	118	113	112	121	122	108	141	88	131	127
Y	32	31	27	30	22	32	24	27	21	24	26	30
Zn	126	116	131	138	133	127	103	111	110	98	106	119
Zr	336	316	259	423	251	274	338	252	189	241	450	449

Sample No.	HA-31	HA-33	HA-35	HA-36	HA-41
SiO <sub>2</sub> (wt.%)	50.56	45.22	58.58	51.34	50.67
TiO <sub>2</sub>	3.18	1.36	1.27	0.93	0.62
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	17.90	14.72	15.65	16.23	19.10
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	7.54	4.56	5.46	4.73	6.72
FeO	2.48	3.20	1.97	3.79	1.23
MnO	0.21	0.16	0.14	0.18	1.46
MgO	1.40	3.19	2.85	4.02	0.92
CaO	1.92	4.05	2.99	4.97	1.28
Na <sub>2</sub> O	1.94	1.69	2.40	2.11	1.19
K <sub>2</sub> O	2.73	0.72	1.90	1.72	2.97
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.08	0.13	0.17	0.19	0.14
H <sub>2</sub> O <sup>-</sup>	2.48	5.85	1.90	2.65	3.72
H <sub>2</sub> O <sup>+</sup>	7.56	15.34	4.68	6.10	9.76
Total	99.98	100.19	99.96	98.96	99.78
As(ppm)	6	5	7	<4	10
Ba	436	271	316	344	569
Co	18	20	18	25	27
Cr	33	61	66	61	31
Cu	3	11	25	26	9
Ga	18	17	19	19	21
Nb	42	16	19	15	16
Ni	3	17	18	26	7
Pb	18	17	27	16	26
Rb	106	25	67	73	126
S	218	528	1390	277	421
Sr	134	295	216	220	110
Th	5	5	9	7	21
V	188	145	126	160	63
Y	67	14	25	33	37
Zn	106	114	137	114	106
Zr	6249	196	450	291	796

Appendix 4. Location data of sampling points for stream-sediments collected by Takamoto et al.(2005).

Sample No.	Latitude	Longitude	Sample No.	Latitude	Longitude
IM-01	33°35'39.57"N	130°53'6.71"E	IM-46	33°37'9.38"N	130°56'56.25"E
IM-02	33°35'46.6"N	130°53'6.8"E	IM-47	33°39'11.22"N	130°54'12.11"E
IM-03	33°34'26.50"N	130°53'31.35"E	IM-48	33°39'15.11"N	130°54'27.55"E
IM-04	33°32'53.10"N	130°54'11.15"E	IM-49	33°39'9.79"N	130°54'0.19"E
IM-05	33°32'16.99"N	130°54'29.48"E	IM-50	33°38'53.00"N	130°53'53.42"E
IM-06	33°32'11.05"N	130°55'9.09"E	IM-51	33°39'41.89"N	130°54'57.01"E
IM-07	33°32'15.98"N	130°55'7.28"E	IM-52	33°40'32.49"N	130°57'44.14"E
IM-08	33°31'49.52"N	130°53'47.29"E	IM-53	33°37'7.20"N	130°54'33.08"E
IM-09	33°38'21.00"N	130°56'7.85"E	IM-56	33°36'57.27"N	130°53'23.01"E
IM-10	33°36'40.02"N	130°55'15.60"E	HA-01	33°30'7.43"N	130°57'49.35"E
IM-11	33°36'38.75"N	130°55'10.07"E	HA-02	33°30'5.28"N	130°57'21.13"E
IM-12	33°36'27.23"N	130°52'46.78"E	HA-03	33°30'37.46"N	130°56'56.54"E
IM-13	33°36'45.35"N	130°53'30.35"E	HA-04	33°30'45.09"N	130°57'19.51"E
IM-14	33°37'12.04"N	130°53'53.90"E	HA-05	33°31'6.38"N	130°57'13.41"E
IM-15	33°38'52.47"N	130°55'15.03"E	HA-06	33°30'23.63"N	130°56'44.62"E
IM-16	33°30'7.35"N	130°54'47.07"E	HA-07	33°30'23.80"N	130°56'47.95"E
IM-17	33°30'6.56"N	130°54'49.54"E	HA-08	33°31'34.90"N	130°57'0.82"E
IM-18	33°31'2.88"N	130°54'59.94"E	HA-09	33°31'45.63"N	130°57'6.26"E
IM-19	33°31'3.12"N	130°54'48.50"E	HA-10	33°31'59.21"N	130°57'3.21"E
IM-20	33°30'46.99"N	130°54'35.24"E	HA-11	33°32'6.36"N	130°56'54.63"E
IM-21	33°30'42.86"N	130°54'29.24"E	HA-12	33°32'53.95"N	130°56'45.00"E
IM-22	33°31'5.03"N	130°54'6.54"E	HA-13	33°33'38.29"N	130°57'24.18"E
IM-23	33°30'39.84"N	130°55'12.52"E	HA-14	33°32'48.63"N	130°56'14.40"E
IM-24	33°30'45.24"N	130°55'17.19"E	HA-15	33°32'47.68"N	130°56'15.54"E
IM-25	33°31'35.77"N	130°54'21.70"E	HA-16	33°33'14.53"N	130°56'32.32"E
IM-26	33°33'29.74"N	130°53'39.48"E	HA-17	33°33'30.34"N	130°57'10.26"E
IM-27	33°40'25.66"N	130°57'36.42"E	HA-18	33°31'40.70"N	130°56'56.16"E
IM-28	33°30'10.53"N	130°55'45.13"E	HA-19	33°33'42.26"N	130°57'4.83"E
IM-29	33°29'53.21"N	130°55'56.85"E	HA-20	33°34'6.41"N	130°56'15.16"E
IM-30	33°29'39.62"N	130°56'16.88"E	HA-21	33°34'3.63"N	130°56'13.78"E
IM-31	33°29'42.00"N	130°56'4.57"E	HA-22	33°34'10.94"N	130°56'57.20"E
IM-32	33°31'24.41"N	130°53'18.88"E	HA-23	33°34'54.40"N	130°57'1.11"E
IM-33	33°32'2.47"N	130°53'32.60"E	HA-24	33°35'6.08"N	130°56'43.48"E
IM-34	33°32'46.51"N	130°53'44.48"E	HA-25	33°35'33.28"N	130°56'52.50"E
IM-35	33°33'33.56"N	130°53'19.90"E	HA-26	33°35'36.09"N	130°56'55.50"E
IM-36	33°34'32.58"N	130°52'58.02"E	HA-27	33°32'41.48"N	130°57'9.69"E
IM-37	33°35'9.69"N	130°52'41.32"E	HA-28	33°32'40.45"N	130°57'9.03"E
IM-38	33°34'58.44"N	130°54'0.75"E	HA-29	33°35'43.44"N	130°57'11.44"E
IM-39	33°34'51.25"N	130°54'27.75"E	HA-30	33°35'54.84"N	130°57'21.56"E
IM-40	33°37'6.25"N	130°56'21.94"E	HA-31	33°37'57.03"N	130°58'22.50"E
IM-41	33°36'46.09"N	130°56'33.00"E	HA-33	33°30'31.50"N	130°57'26.19"E
IM-42	33°35'21.77"N	130°55'21.32"E	HA-35	33°43'27.97"N	131°0'27.00"E
IM-43	33°35'21.85"N	130°55'24.95"E	HA-36	33°32'24.72"N	130°57'13.13"E
IM-44	33°35'44.49"N	130°55'14.56"E	HA-41	33°39'8.69"N	130°58'53.55"E
IM-45	33°36'10.39"N	130°55'20.85"E			