

福岡県内の地球化学図

Geochemical map of Fukuoka Prefecture

Abstract

柚原雅樹*

*Masaki Yuhara**

* 福岡大学理学部地球圏科学科
Department of Earth System Science,
Fukuoka University, Fukuoka 814-0180, Japan

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

Our research group have collected stream sediments from the eastern and western parts of Fukuoka Prefecture, and made geochemical maps, in order to make environmental assessment. Sample collection was performed by 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. Compared with areal geology and chemical compositions of rocks and minerals, the distributions of each element on the geochemical maps in each area are explained by the difference of areal geology and the accumulation of rock-forming minerals.

Keywords : geochemical map, 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、これまで地表での重金属の局所的な異常濃集帯を発見し、その周辺に存在する鉱床を探索する目的で利用されてきた。これは、大気圏や水圏における元素の拡散に比べて、地圏における元素の拡散が極めて遅いため、鉱床周辺で特定元素の濃集が起こるといった特性を利用したものである。この拡散スピードの違いを反映して、大気圏や水圏の汚染は、その原因が取り除かれればもとの状態への回復が早い。地圏の汚染は一旦発生すると原状回復には長い時間が必要となる(名古屋大学環境学研究科, 2005)。地圏における汚染源には、鉱床などの天然起源のものが多く、これに人為的影響が加わって拡散スピードが加速した結果、広範囲に急速に広がり汚染となることが多い。したがって、汚染を正しく評価するためには、定常状態の元素の地圏環境内における濃度分布の把握が必要である。近年、環境評価を目的として、北アイルランド(Webb et al., 1973, 1978)、米国アラスカ(Weaver et al., 1983)、西ドイツ(現ドイツ)(Fauth et al., 1985)、フィンランド(Koljonen, 1992)、ポーランド(Lis and Pasieczna, 1995)などで全国規模の地球化学図が作成されている。国内では、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(Ujiie-Mikoshihira et al., 2006)などで地球化学図が作

成され、それをもとにした地圏環境評価が行われている。これまでの地球化学図は、いずれも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。最近、産業技術総合研究所地質調査総合センターによって、国土の全域に渡る地球化学図が作成された(今井ほか, 2004, 2010)。このような国土全域に渡る地球化学図は、統一された規格と精度で日本全域を見るという点で、非常に重要であるが、試料採取密度が10×10kmに1試料と精度が粗く、日本のような地質構造が複雑な地域においては、地域地質を反映しにくいと考えられる(今井ほか, 2004)。そこで、我々の研究グループでは、卒業研究として、複雑な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開始した(高本, 2004MS; 伊藤, 2004MS; 古川, 2004MS; 小路, 2006MS; 伊藤, 2009MS)。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(2010a)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。柚原ほか(2010b)は、高本ほか(2005)の調査地域を東西に広げた地球化学図を報告した。その結果の詳細については、現在論文を準備中である(柚原ほか, 2011)。福岡県内ではこれまで、今井ほか(2004)による試料密度の低い地球化学図は報告されていたが、試料密度の高い地球化学図は報告されていなかった。したがって、このような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、これまで我々の研究グループが福岡県内で行ってきた地

地球化学図を用いた地圏環境評価について述べる。

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、河川堆積物を採取した。地球化学図作成のための試料には、河川堆積物のほか、岩石、土壌、湖沼堆積物、氷河堆積物、地下水、河川水なども考えられる。このうち、岩石は地表に分布する元素の主要な供給源であり、基本的な元素濃度分布を支配していると考えられているが、場所による不均質があり、風化などにより化学組成が大きく変化する（今井ほか、2004）。さらに、広範囲にわたり、同程度の試料採取密度を維持することも難しいと考えられる。また、岩石は人為的な汚染に関する情報は全く持っていない（今井ほか、2004）。これに対して、河川堆積物は、その試料を採取した地点より上流域に分布する岩石や堆積物、土壌等が、河川が流下する際に削剥、混合されてきたものである。このため、日本のように山地が多く、河川系の発達した地形においては、広い領域を効率よくカバーする試料として、河川堆積物が最も適しているとされ（上岡ほか、1991）、多くの研究者が河川堆積物を用いて地球化学図を作成している。欧米の地球化学図においても、河川堆積物が使用されている場合が多い（上岡ほか、1991）。このように河川堆積物が広く地球化学図の試料として用いられていること、試料採取方法が比較的簡単（田中ほか、2001）なことから、我々の研究グループでも河川堆積物を取り扱うことにした。その他の試料の長所・短所については、今井ほか（2004）にまとめられているので、そちらを参照されたい。

試料採取は、田中ほか（2001）の手法に従い、80メッシュ（180 μ m）以下の河川堆積物を採取した。以下に、試料採取手順を示す。まず、河床から河川堆積物をバケツに採取する。この際、流路の中央部で、なるべく広い範囲から集めた。採取した河川堆積物を、別のバケツに流水とともに16メッシュ（1 mm）の篩を通して流し入れる。16メッシュを通った試料がバケツの底に相当量溜まったら、水と一緒に80メッシュの篩にかけ、先のバケツに流し込む。篩を通過した細かい試料を再度80メッシュの篩にかける。試料がバケツの底に十分に沈むまで待った後、上澄みを捨て、底に集まった試料を水とともにコーヒーフィルターに流し込む。この採取作業には、最低2名が必要である。

採取した試料は実験室内で風乾し、一部をメノウ乳鉢で粉碎し、分析試料とした。

2. 分析方法

我々の研究グループでは、河川堆積物に含まれる主成分10元素（Si, Ti, Al, Fe, Mn, Mg, Ca, Na, K, P）と微量成分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により測定している。試料調整および測定方法は、柚原・田口（2003a, 2003b, 2006）、柚原ほか（2004）、高本ほか（2005）に従っている。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ている。

各地域の地球化学図

1. 河川堆積物の化学組成の季節変動

河川堆積物の採取は少人数（2～4人程度）で行うため、試料採取に要する期間が、数ヶ月から半年程度かかり、短期間で試料採取を行うことは難しい。さらに、隣接する地域へ試料採取範囲を拡大する際にも、同じ様な季節に採取することも難しい。また、これまでに報告されている地球化学図では、毎年特定の月に集中して試料採取を行っている研究（Tanaka et al., 1994, 1996；田中ほか、1995；山本ほか、1998）もあるが、多くの場合、試料採取時期や期間が明記されていない。したがって、我々の行っている研究間（すなわち、異なる調査地域間あるいは同一調査地域内の採取時期の異なる試料間）だけでなく、地域や研究者の異なる地球化学図の比較を行う際には試料採取時期の違いによる元素含有量の変化の程度を知る必要がある。そこで、古川ほか（2004）、柚原ほか（2006a）は、福岡県西部の室見川の3定点と東部の祓川の4定点（Fig.1）において、2002年11月から2003年11月にかけて、2ヶ月ごとに河川堆積物の採取と化学分析を行い、季節変動の解析を行った。元素濃度の比較には、 H_2O^- が試料の乾燥状態により大きく変化するため、 H_2O^- を除いて各元素の含有量を再計算した値を用いた。また、主成分元素は酸化物としてあつかい、鉄は三価の鉄を全Feとした。

主成分元素と多くの微量元素（Ba, Co, Cr, Cu, Ga, Nb, Ni, Pb, Rb, Sr, V, Zn）は、変動幅が50%以下におさまる。これに対して、S, Th, Zr, Y, C, Nはこの範囲を大きく上回る変動をしている。これらの元素はすべての定点で変動が大きいわけではなく、室見川の飯場でTh, Zr, C, N、西でTh, Zr, C, N、四箇ではTh, Y, Zr, C, Nが、また祓川の中村でZr, S, C, N、光富ではZrが最大240%と大きく変動している。ThやZrはジルコンやモナザイト中に%オーダーで含まれる（戸上ほか、1997）。したがって、試料中のこれらの鉱物の含有量のわずかな変化で、これらの元素濃度は大きく変動する可能性がある。特に、Zr濃度は、流域に分布する岩石中の濃度よりも高く、河川堆積物中にジルコンが濃集していると考えられる（高本ほか、2005）。また、Yはざくろ石に濃集するとされている。したがって、これら重鉱物の含有量の変化によって、Th, Y, Zrの濃度が大きく変動したと考えられる。祓川に比べると室見川の方が大きな変動を示している元素が多い。さらに、

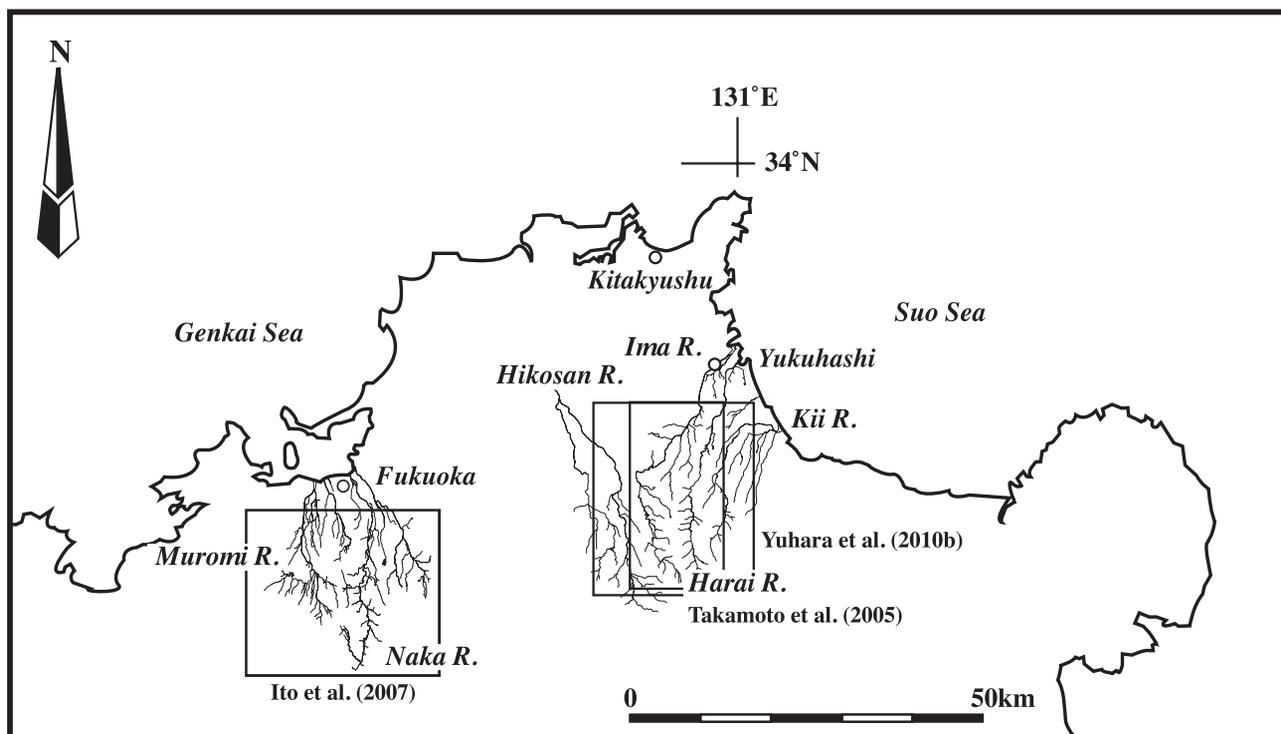


Fig. 1. Location of research areas of Takamoto et al.(2005), Ito et al.(2007), and Yuhara et al.(2010b).

5月から9月にかけて大きく変動している。試料採取期間内の2003年7月19日未明には九州北部を中心として記録的な集中豪雨が起きた。福岡市周辺地域では、この集中豪雨により斜面崩壊とそれに伴う土石流、堤防の決壊などが御笠川を中心に起きたが、室見川においても堤防の崩壊などの被害が少なからず生じている。この集中豪雨と堤防の崩壊の影響により、元素濃度の大きな変動が起きた可能性も否定できない。

C, NならびにS濃度は多くの地点で大きく変動する。これらは3月と5月に高い値を示し、7月に最も低い値を示す傾向がある。これは、この3元素が同様な要因によって濃度が変動していることを示唆する。河川堆積物中のS濃度は岩石の値よりも大きい(高本ほか, 2005)ことから、大部分のSは岩石由来ではなく、C, N同様、有機物由来であると考えられる。この3元素を含んだ河川堆積物中の有機物は、微生物による分解と同化により CO_2 , NO_3^- , SO_4^{2-} となり、河川水に溶解していく(清水ほか, 2001)。そのため、微生物の活動が盛んな夏季には、有機物の分解と同化が大幅に進むため、河川堆積物中のS, C, N濃度は低くなると考えられる。これに対し、秋以降は落ち葉や枯れ草など有機物が多量に河川に供給されるとともに、水温の低下から微生物の活動が低下するため、秋～春季にはS, C, N濃度は高くなると考えられる。竹口・川野(2004)は、佐賀県の嘉瀬川流域の河川水の水質の経年変化を報告しているが、8月には SO_4^{2-} が高くなる傾向が認められる。これは、河川

堆積物のS濃度変化とは逆の傾向であり、このSが河川堆積物中からもたらされている可能性を示唆する。

以上のことから、我々の研究グループが測定している元素のうち、大部分が有機物起源であるSは濃度の季節変動を起こすため、地球化学図作成には使用できないことが分かった。そのため、採取した河川堆積物のS濃度は測定しているが、地球化学図は作成していない。

2. 磁鉄鋳除去による河川堆積物の化学組成の変化

地球化学図作成のために用いた河川堆積物の試料処理として、磁鉄鋳を除去する場合(たとえば太田ほか, 2002, 2003)と、除去しない場合(たとえばTanaka et al., 1994, 1996; 田中ほか, 1995; 戸上ほか, 1997; 山本ほか, 1998)がある。我々の研究グループで行っている研究では、磁鉄鋳除去はしていない。したがって、両者の地球化学図を比較する場合には、磁鉄鋳除去にともなう元素濃度変化の見積もりが必要となるが、そのような検討はこれまでなされていなかった。そこで、古川ほか(2005)は、福岡県西部の室見川と東部の祓川(Fig.1)において採取した季節変動解析用の河川堆積物試料(古川ほか, 2004)を用いて、磁鉄鋳除去に伴う化学組成の変化の解析を行った。

磁鉄鋳除去による元素の濃度の変化を検討するために、元素ごとに磁鉄鋳除去前と除去後の濃度を比較した。磁鉄鋳除去前の濃度は古川ほか(2004)の分析値を用いた。この際、 H_2O^- が試料の乾燥状態により大きく変化するため、 H_2O^- を除いて各元素の含有量を再計算した

値を比較した。また、主成分元素は酸化物としてあつかい、鉄は三価の鉄を全Feとした。

大部分の主成分および微量元素は、多少ばらつくものもあるが、磁鉄鉱除去後も濃度はほとんど変化しない。しかし、全Fe、Co、V濃度は、磁鉄鉱除去により減少している。

磁鉄鉱試料は、全Fe、Co、Cr、V、Zn、Zrに富む傾向がある。このうち、全Fe、Co、Vは河川堆積物における濃度よりも明らかに高い。Sasaki et al. (2003)はCr、Vに富む磁鉄鉱を報告している。また、磁鉄鉱の成分は $Fe^{2+}Fe^{3+}_2O_4$ と表され、Feの一部または全部がMg、Zn、Mn、Niによって置き換えられることがある(木下・小川, 1995)とされる。さらに、Coも磁鉄鉱に濃集するとされる(Rollinson, 1993)。これらの元素については、今回の分析結果と矛盾しない。Zrは磁鉄鉱には濃集しないことから(Rollinson, 1993)、磁鉄鉱試料は、ジルコンといったZrに富む鉱物を含んでいると考えられる。したがって、全Feはもとより、CoやVは、磁鉄鉱除去により減少するといえる。Cr、Zn、Zrの減少が認められないのは、河川堆積物における濃度とほぼ同じレベルであるため、磁鉄鉱除去の影響がでなかったためであると考えられる。

以上のことから、磁鉄鉱を除去した河川堆積物試料によって作成された地球化学図と除去処理をしていない試料によって作成された地球化学図を比較する場合、ほとんどの元素はそのまま比較することができるが、全Fe、Co、Vにおいては磁鉄鉱除去による元素濃度の減少を考慮しなければならないといえる。

3. 室見川および那珂川流域の地球化学図

福岡県西部の室見川および那珂川流域の地球化学図は、伊藤ほか(2007)によって報告されている。

地質: 調査地域の地質図をFig.2に示す。本地域は三畳紀の三郡変成岩類、白亜紀花崗岩類、第四系からなる(唐木田ほか, 1994)。三郡変成岩類は、主に調査地域西部に分布している。主に苦鉄質片岩～角閃岩からなり、泥質～砂質片岩～片麻岩、結晶質石灰岩、蛇紋岩、花崗岩質片麻岩を伴う(唐木田ほか, 1994; 大和田ほか, 2000)。白亜紀花崗岩類は、糸島花崗閃緑岩、早良花崗岩、佐賀花崗岩からなる。糸島花崗閃緑岩は、調査地域南部に分布する粗～中粒の片状普通角閃石黒雲母トータル岩～石英閃緑岩で、花崗閃緑岩を伴う(唐木田ほか, 1994)。早良花崗岩は、調査地域中央に広く分布する。本花崗岩は粗粒岩相(主岩相)と細粒岩相に分けられる(唐木田ほか, 1994)。前者は、岩体の主部を構成しており、後者は主に岩体の周縁部に分布する。主岩相は、粗粒斑状黒雲母花崗岩～花崗閃緑岩で、一般的に塊状であるが、弱い面構造が発達する場合もある。細粒岩相は、細粒～中粒塊状黒雲母花崗岩～花崗閃緑岩である。佐賀花崗岩は、調査地域南西部に分布する細～粗粒含ざ

くろ石両雲母花崗岩である。第四系は、調査地域中部から北部にかけての平野部に分布し、更新世後期中位～低位段丘堆積物および阿蘇-4火砕流堆積物と完新世の住吉層からなる(唐木田ほか, 1994)。段丘堆積物は、仲原礫層(礫層)、須崎層(固結粘土層と粗粒砂岩の互層)、大坪砂礫層(砂礫層)に細分される。阿蘇-4火砕流堆積物は、輝石角閃石デイサイト質軽石質火山灰である。住吉層は、粗粒砂層や砂礫層からなる(唐木田ほか, 1994)。

岩石の化学組成: 調査地域に分布する岩石の化学的特徴を、新たに得られた岩石の化学組成とこれまでに報告されている分析値(井沢ほか, 1994; Kamei, 2002; 矢田・大和田, 2003; 柚原・祐徳, 2005; 川野・柚原, 2005; 柚原ほか, 2006)を用いて検討した。Asはほとんどの岩石で検出限界以下である。

Al_2O_3 、 Na_2O 、Cu、Ga、Nb、Sr、Th、Y、Zn、Zrは、岩石ごとの明瞭な濃度差は認められない。

三郡変成岩類は、他の岩石と比較して、 TiO_2 、total Fe_2O_3 、MnO、MgO、CaO、 P_2O_5 、Cr、Ni、Vに富み、 SiO_2 、 K_2O 、Ba、Pb、Rbに乏しい傾向にある。さらに、苦鉄質片岩および角閃岩は、泥質片岩に比べThに乏しく、苦鉄質片岩は、角閃岩と泥質片岩に比べ Al_2O_3 、 Na_2O 、 P_2O_5 、Nb、Zrに乏しい。

糸島花崗閃緑岩は、三郡変成岩類と早良花崗岩の間的な化学組成を示す。

早良花崗岩は、 SiO_2 、 K_2O 、Ba、Pb、Rbに富み、 TiO_2 、total Fe_2O_3 、MnO、MgO、CaO、 P_2O_5 、Co、Cr、Ni、Vに乏しい。

佐賀花崗岩は、早良花崗岩と類似した化学組成を示す。

地球化学図: 伊藤ほか(2007)によって報告された代表的な地球化学図をFig.3に示す。地球化学図作成の際、 H_2O^- が試料の乾燥状態により大きく変化するため、各元素濃度は H_2O^- 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 (total Fe_2O_3)とした。地球化学図作成の際、逆距離荷重法(Franke, 1982)を用いてデータの補間を行った。逆距離荷重法は、推定を行う点(ノード)からの距離に応じて重み付けを行い、ある領域内での平均化を行う手法であり、伊藤・太田(1999)や稲吉(2005)でも用いられている。距離に関する重み付け平均は、負の指数関数で与えられ、距離の増大に応じて平均に対する重みが減少することになる。本研究では検討領域(経度130.25～130.50度、緯度33.4～33.6度)に対し、経度方向に125点、緯度方向に100点のノードを設け、各点からの重み付け指数を-2とした。実際の補間計算は、Microsoft Excelのマクロプログラムを用いて行った。このような補間の他、流域を考慮した上で適切な補間を行う方法(上岡ほか, 1991; 太田ほか, 2002, 2003)も用いられているが、試料採取密度が比較的高く、均等に

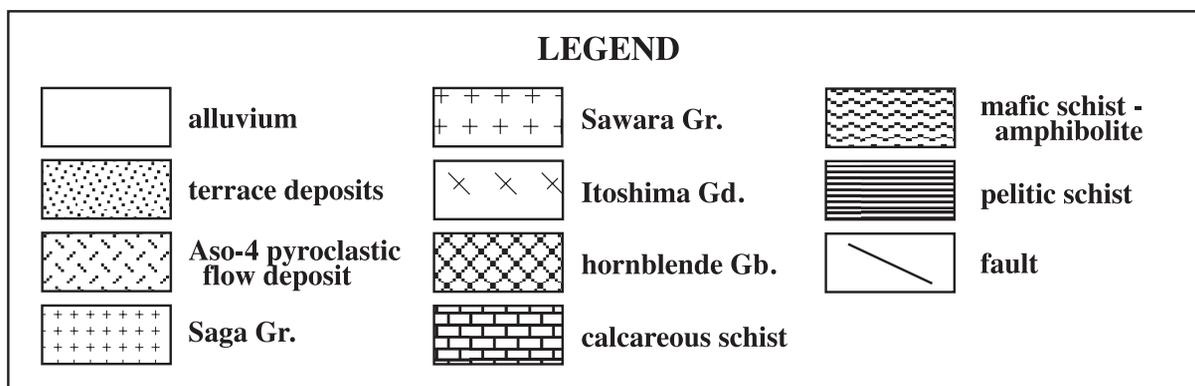
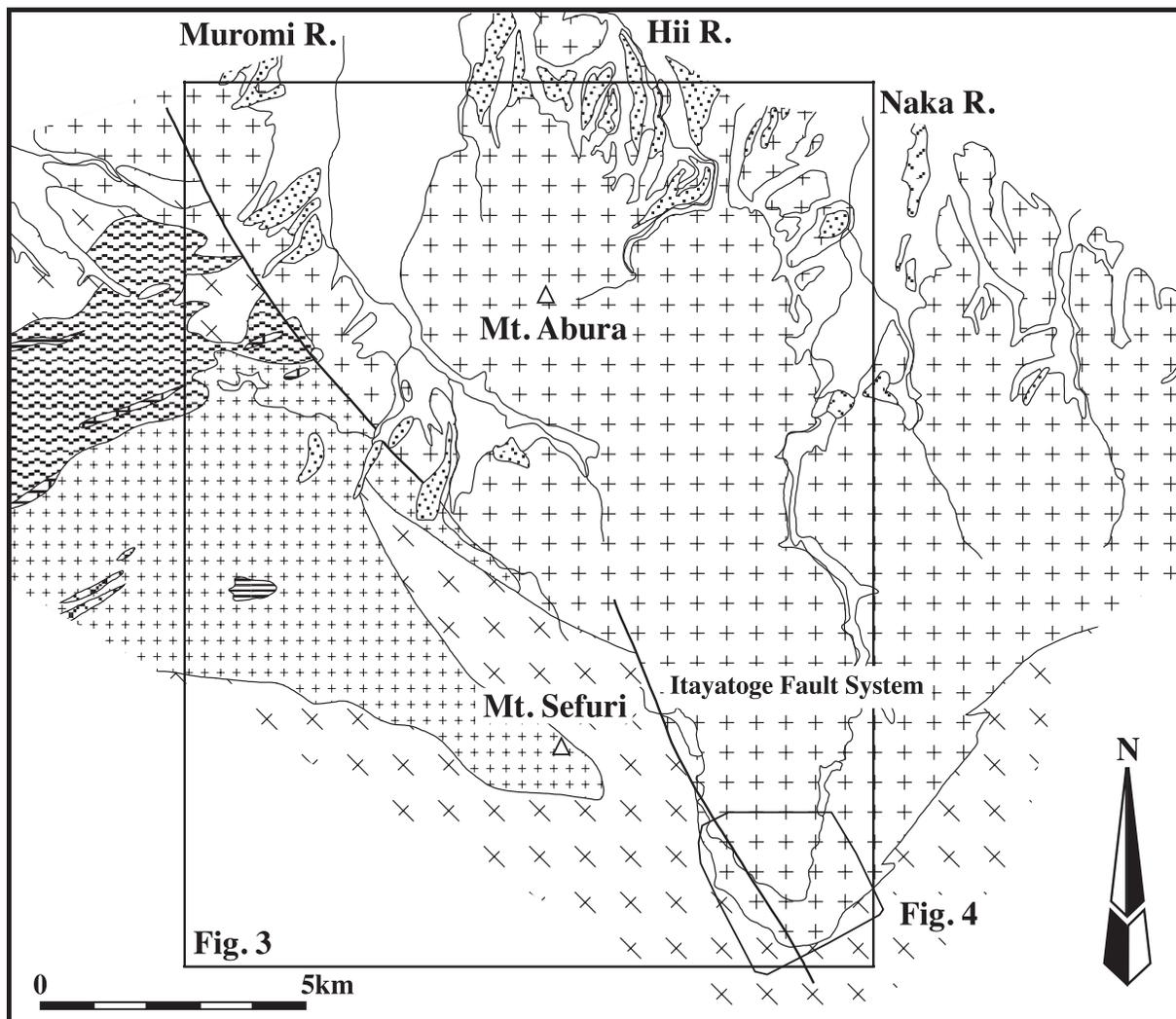


Fig. 2. Geological map of the Muromi river and Naka river basins (modified from Kubo et al., 1993).
Gr.: granite, Gd.: granodiorite, Gb.: gabbro.

試料が採取されている場合は、どちらの方法を用いても大差がないと考えられている（太田ほか，2002）．本研究では、試料採取方法の限界から均等に試料が採取されているわけではないが、試料採取密度は太田ほか（2002，2003）よりも高い．さらに、太田ほか（2002）のような補間方法ではデータ処理がかなり複雑化してしまうため、本研究では流域を考慮せず補間を行った．得られた地球化学図は、試料採取密度から、これまでに限定された地域において作成された地球化学図（たとえば伊藤ほか，1991；Tanaka et al. 1994，1996；田中ほか，1995；戸上ほか，1997；山本ほか，1998）と同程度の精度を有すると考えられる．

地圏環境評価：本調査地域は高本ほか（2005）で地球化学図を報告した福岡県東部の今川・祓川流域に比べると地質は比較的単純であるが、場所によっては複数の地質体からもたらされた堆積物が混在している．したがって、地質との関連を検討する際に、特定の地質体のみの影響を受けている地域を対象とする必要がある．そこで検討対象地域として、三郡変成岩類分布域（A）、糸島花崗閃緑岩分布域（B）、早良花崗岩分布域（C）、佐賀花崗岩分布域（D）を設定した（Fig.3）．

岩石の分布に規制された濃度分布を示す元素

TiO₂，total Fe₂O₃，MnO，MgO，CaO，P₂O₅，Co，Cr，Ni，V濃度は、三郡変成岩類分布域と糸島花崗閃緑岩分布域で高く、佐賀花崗岩分布域および早良花崗岩分布域で低い傾向にある（Fig.3）．さらに糸島花崗閃緑岩分布域よりも三郡変成岩類分布域が高い傾向にある．これに対し、SiO₂，K₂O，Ba，Pb，Rb濃度は、早良花崗岩分布域および佐賀花崗岩分布域で高く、糸島花崗閃緑岩分布域と三郡変成岩類分布域で低い傾向にある．さらに糸島花崗閃緑岩分布域よりも三郡変成岩類分布域が低い傾向にある．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、流域に分布する岩石の化学組成を反映していると考えられる．しかし、total Fe₂O₃，P₂O₅，Pbは、同一分布域内でも濃度変化が大きい．

岩石の分布に規制されない濃度分布を示す元素

Al₂O₃，Na₂O，As，Cu，Ga，Nb，Sr，Th，Y，Zn，Zrは岩石ごとの濃度差はあまり見られないが、地球化学図（Fig.3）上では濃度分布に偏りが見られる．このことは、これらの元素は、流域に分布する岩石の化学組成の違いを反映していないことを示唆する．これらの元素のうち、Al₂O₃とNa₂OとSr，CuとZnは、それぞれ類似した濃度分布を示す．また、ThとZrは河川堆積物中の濃度が岩石よりも高い．

Zrは花崗岩類に普遍的に含まれているジルコンが、Thは本地域の花崗岩類に普遍的に含まれている（唐木田ほか，1994）モナザイトが河川堆積物中に濃集したため高い濃度を示すと考えられる（高本ほか，2005）．

Al₂O₃，Na₂O，Srは類似した濃度分布を示すことから、

同一鉱物が関与している可能性が高い．古川ほか（2005）および高本ほか（2005）によって報告された鉱物の化学組成から、これらの元素を濃集するのは斜長石であると考えられる．したがって、これらの元素の濃度分布は斜長石の濃集によって生じたと考えられる．

CuとZnは類似した濃度分布を示すが、これらの濃度分布は、両元素を濃集する変質黒雲母（高本ほか，2005）の含有量の変化によって生じたと考えられる．また、Yはざくろ石に濃集することから、Yの濃度分布は三郡変成岩類、早良花崗岩、佐賀花崗岩に含まれる（唐木田ほか，1994）ざくろ石の濃集によって説明が可能である．

以上のことから、Al₂O₃，Cu，Ga，Nb，Sr，Th，Y，Zn，Zrの濃度分布を支配する要素は、ジルコン、モナザイト、斜長石、変質黒雲母、ざくろ石の河川堆積物中の含有量の差であると考えられる．

As濃度は岩石中では検出限界以下であるが、那珂川上流域と中流域で若干高く、最大7 ppmを示す．那珂川上流の五ヶ山地域にはAsを最大80ppm以上含む熱水変質早良花崗岩が分布しており（柚原・祐徳，2005；柚原ほか，2006c）．那珂川上流の高い濃度は、Asを高濃度に含む熱水変質早良花崗岩およびそれに含まれる黄鉄鉱によるものと考えられる．また、Asは堆積物中では鉄の酸化・水酸化物（フェリハイドライトや針鉄鉱）の表面に吸着される（丸茂，2003）．熱水変質早良花崗岩中の黄鉄鉱の分解によって放出されたAsが、鉄の酸化物に吸着される現象は、柚原ほか（2006c）によっても確認されている．那珂川中流の高As濃度域は高total Fe₂O₃濃度域と重なることから、この領域でヒ素濃度が高いのは、鉄の酸化・水酸化物にAsが吸着したためであると考えられる．

A～D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することが可能である．以上のことから、これらの元素の濃度分布は、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．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．

4. 那珂川上流、五ヶ山地域の地球化学図

那珂川上流の五ヶ山地域の地球化学図は、柚原ほか（2010a）によって報告された．那珂川上流の五ヶ山地域には、Asを最大80ppm以上含む熱水変質花崗岩が分布している（柚原ほか，2006c）．この変質花崗岩は、金探鉱跡周辺と本地域に発達する断層沿いに認められるが、その分布を完全に把握するには至っていない．Asは、変質花崗岩中の黄鉄鉱に含まれると推定されている（柚原・祐徳，2005；柚原ほか，2006c）．この黄鉄鉱は、酸素濃度の高い地下水中では不安定なため酸化分解され、

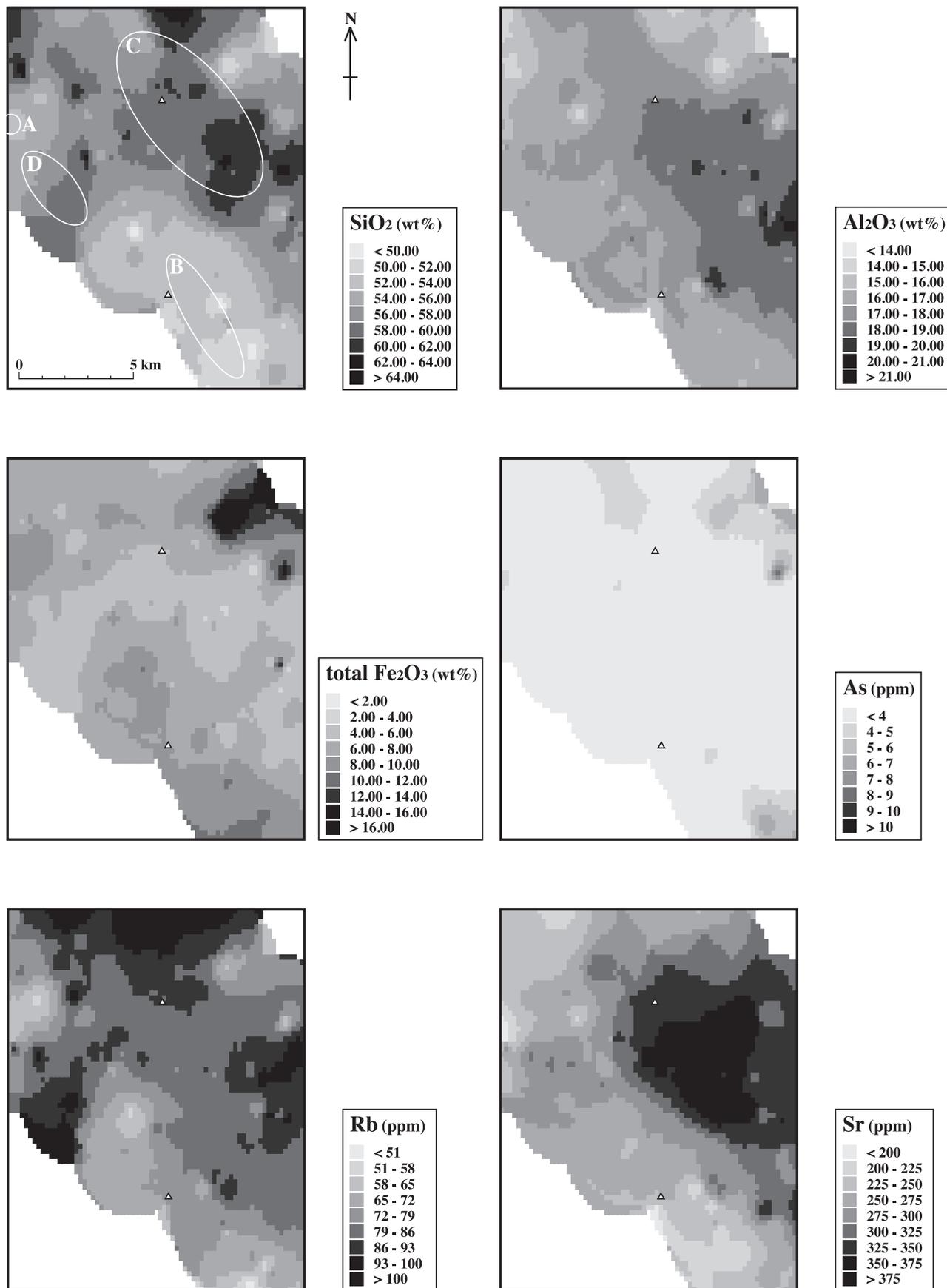


Fig. 3. Geochemical maps of the Muromi river and Naka river basins (Ito et al., 2007).

Asは硫黄とともにわずかながら地下水ならびに地表水中へ溶出していると考えられる。さらに、溶出したヒ素の大部分は褐色化した変質花崗岩中に含まれる鉄の酸化・水酸化物中に再び吸着している。その結果、硫黄は地下水ならびに地表水中へ拡散するが、Asのほとんどは岩石中に固定されると推定される。五ヶ山ダムの建設に伴い、周辺環境の変化が生じた場合、変質花崗岩中や鉄の酸化・水酸化物表面に吸着したAsが、再び溶出し地下水や河川水へ移動・拡散する可能性がある(川野・柚原, 2008a)。したがって、Asを含む岩石の分布の把握は、ダム関連工事の環境への影響を考える上できわめて重要である。特定の元素を高濃度を含む岩石分布の把握には、地球化学図が極めて有効であるが、これまで行ってきた密度の試料採取(高本ほか, 2005;伊藤ほか, 2007)では、本地域のような狭い範囲内での検出は困難である。そこで、柚原ほか(2010a)では試料採取密度が従来よりも高い地球化学図の作成を目指した。また、調査地域は白亜紀花崗岩類に属する糸島花崗閃緑岩と早良花崗岩の境界部にあたり、岩石の化学組成の異なる地質体における地圏環境の元素濃度分布を詳細に検討することが可能である。

地質: 本調査地域には白亜紀花崗岩類が広く分布し、三郡変成岩類が小規模なレンズ状岩体として花崗岩類中に認められる(Fig.4)。白亜紀花崗岩類は糸島花崗閃緑岩と早良花崗岩からなる。そして、これらを覆う河川堆積物が那珂川および大野川に沿って点在する。

糸島花崗閃緑岩は、粗～中粒の面構造の発達した普通角閃石黒雲母トータル岩～石英閃緑岩である。本地域に分布するものは主に花崗閃緑岩からなる(川野・柚原, 2008b)。糸島花崗閃緑岩からは 116 ± 17 MaのRb-Sr全岩アイソクロン年代、 93.4 ± 0.5 Maの鉍物アイソクロン年代(大和田ほか, 1999)、 110 ± 10 MaのジルコンPb- α 年代(Karakida et al., 1965)、 97 ± 6 Maの黒雲母K-Ar年代(Shibata and Karakida, 1965)が既に報告されているが、本地域の岩石からは、 88.9 ± 0.2 Maの全岩-鉍物アイソクロン年代が得られている(川野・柚原, 2008b)。

早良花崗岩は糸島花崗閃緑岩に貫入し、粗粒斑状黒雲母花崗岩～花崗閃緑岩からなる主岩相と細粒～中粒塊状黒雲母花崗岩～花崗閃緑岩からなる細粒相に区分される。本地域では、主岩相は北部域に分布し、細粒相は糸島花崗閃緑岩と主岩相の間に帯状に分布する(Fig.4)。細粒相分布域には2カ所の金探鉍跡が認められる(Fig.4)。金探鉍跡周辺の細粒相は熱水変質作用により変質が進んでいる。柚原・祐徳(2005)はそれらを白色変質花崗閃緑岩と呼び、金鉍床はこの熱水作用による産物であると推定した。同様な白色変質花崗閃緑岩は、北西-南東方向の断層と北北東-南南西方向の断層に沿っても点在する(柚原ほか, 2006c)。早良花崗岩か

らは 114 ± 11 MaのRb-Sr全岩アイソクロン年代、 105.2 ± 2.3 MaのRb-Sr全岩-鉍物アイソクロン年代(大和田ほか, 1999)、 84.3 ± 0.3 Maの黒雲母アイソクロン年代(柳ほか, 1999)、 90 ± 10 MaのジルコンPb- α 年代、 90 ± 10 Ma、 94 ± 10 MaのモナザイトPb- α 年代(Karakida et al., 1965)、 82 ± 7 Maの黒雲母K-Ar年代(Shibata and Karakida, 1965)が報告されており、本地域の花崗岩からは、主岩相について 96.6 ± 5.9 MaのRb-Sr全岩アイソクロン年代、 88.3 ± 0.5 MaのRb-Sr全岩-鉍物アイソクロン年代が、細粒相について 101.2 ± 10.9 MaのRb-Sr全岩アイソクロン年代が得られている(川野・柚原, 2008b)。

本地域には糸島花崗閃緑岩や早良花崗岩に含まれる小規模なレンズ状ブロック岩体として大理石、角閃岩、泥質～苦鉄質片岩が認められる。大理石は小川内集落から北西へ1 kmほど離れた糸島花崗閃緑岩の分布域に幅5 m、長さ15 mほどのブロックとして産する。周囲の糸島花崗閃緑岩との接触部は確認できず、交代作用が生じているのか定かではない。角閃岩および泥質～苦鉄質片岩は大野川や倉谷川上流に厚さが最大25 m、長さは100 m以上のレンズ状岩体として産する。これらの岩石の詳細な岩石記載は川野・柚原(2005, 2008a)で報告されている。

河川堆積物は那珂川・大野川流域に発達し、早良花崗岩、糸島花崗閃緑岩、変成岩、ペグマタイト、アプライト、閃緑岩等の細礫～巨礫を含む砂礫層からなる。礫は亜角礫から亜円礫からなり、大きさは最大数mに達する。

糸島花崗閃緑岩と早良花崗岩との境界部付近では、倉谷から小川内に伸びる北西-南東方向とそれを寸断する北北東-南南西方向の右横ずれ断層が認められ、特に前者は最大幅2 mの破碎帯を伴う(柚原ほか, 2006b)。これらは板屋峠断層系(九州活構造研究会, 1989;久保ほか, 1993)に相当すると考えられる。

岩石ならびに鉍物の化学組成: Na_2O , Cu, Ga, Nb, Sr, Thは糸島花崗閃緑岩と早良花崗岩の間で明瞭な濃度差は認められない(柚原・祐徳, 2005;柚原ほか, 2006c, 2010a;川野・柚原, 2008b)。糸島花崗閃緑岩は早良花崗岩に比べ、 TiO_2 , Al_2O_3 , Fe_2O_3^* , MnO, MgO, CaO, P_2O_5 , Co, Cr, Ni, V, Y, Znに富み、 SiO_2 , K_2O , Ba, Pb, Rb, Zrに乏しい傾向にある。

早良花崗岩の主岩相と細粒相の化学組成は類似しており、主岩相が細粒相に比べてSrにやや富む特徴がある。熱水変質作用を被った白色変質花崗閃緑岩は、早良花崗岩に比べ Fe_2O_3^* , MgO, CaO, Srに乏しく、As, Sに富む(柚原・祐徳, 2005;柚原ほか, 2006c)。

三郡変成岩類の苦鉄質片岩および角閃岩は、糸島花崗閃緑岩や早良花崗岩に比べ、 TiO_2 , Fe_2O_3^* , MnO, MgO, CaO, P_2O_5 , Cr, Ni, Vに富み、 SiO_2 , K_2O , Ba, Pb, Rb, Thに乏しい(伊藤ほか, 2007;柚原ほか,

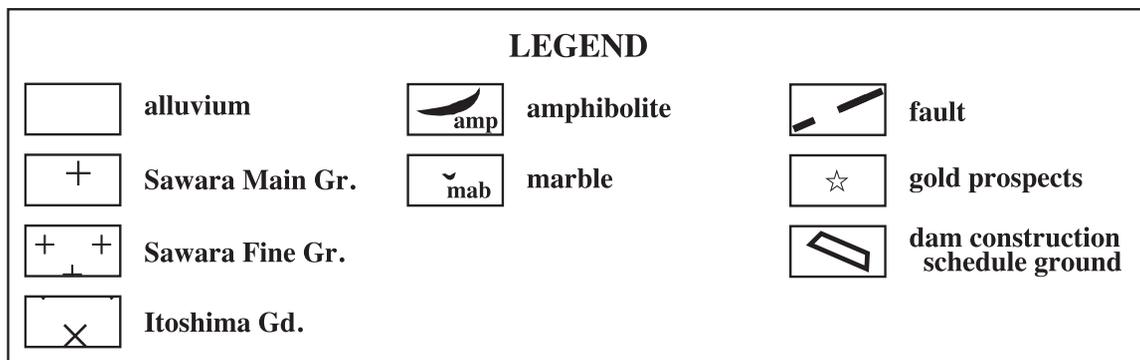
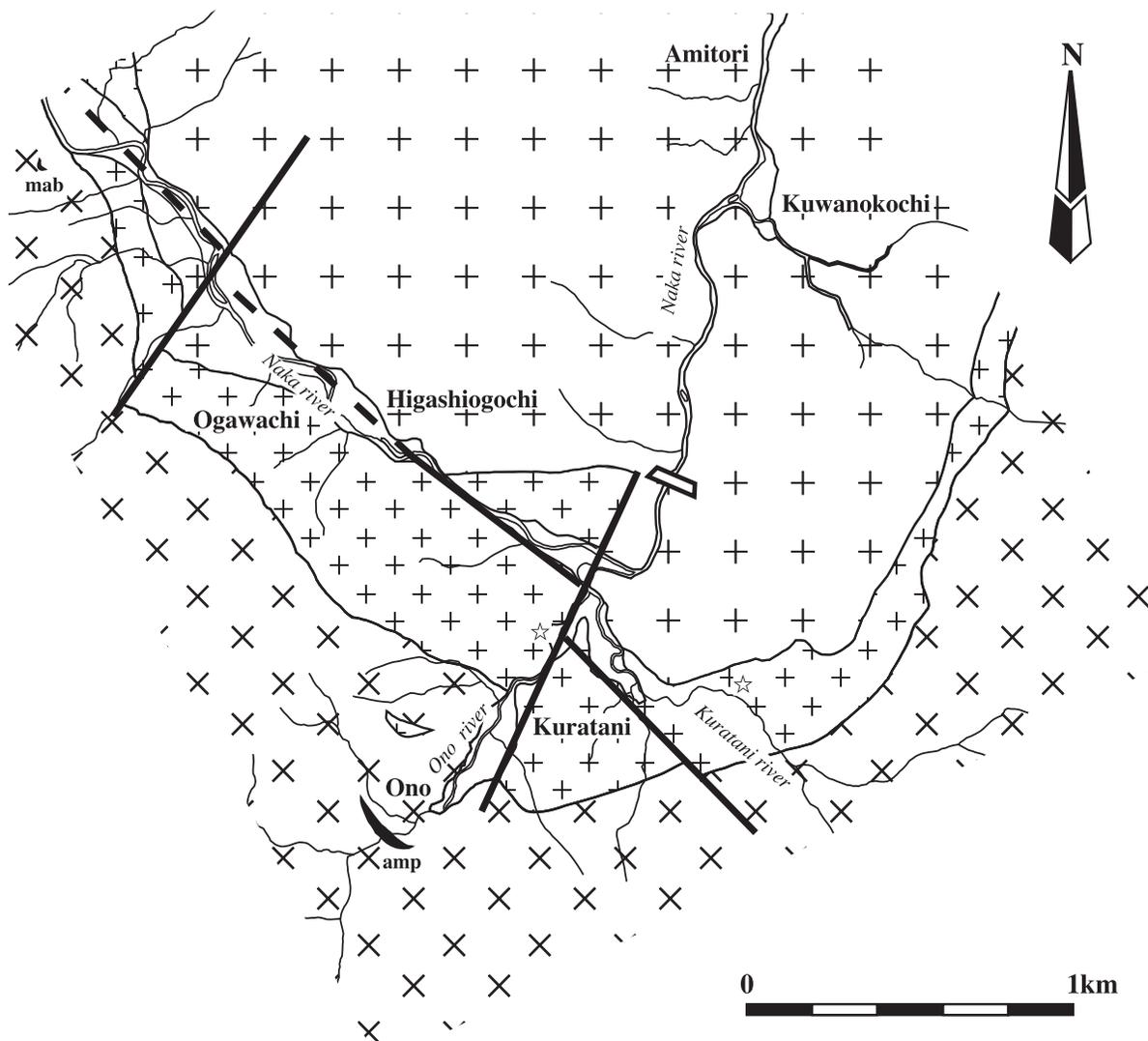


Fig. 4. Geological map of the Gokayama area (Kawano and Yuhara, 2008b).
Gr.: granite, Gd.: granodiorite.

2010a). 結晶質石灰岩は、CaOに極めて富み、Srは他の岩石と同程度であるが、CaOとSr以外の元素に極めて乏しい特徴がある(柚原・田口, 2006; 柚原ほか, 2010a).

斜長石は、他の鉱物と比べて、CaO, Na₂O, Srに、カリ長石はAl₂O₃, K₂O, Ba, Pb, Srに富む。普通角閃石はFe₂O₃^{*}, MnO, MgO, CaO, Co, V, Y, Znに、黒雲母はFe₂O₃^{*}, MgO, K₂O, Ba, Co, Ga, Rb, S, Znに富む傾向がそれぞれ認められる。変質黒雲母は、Al₂O₃, Fe₂O₃^{*}, MgO, Ba, Cr, Cu, Ga, Znに富む。緑泥石はAl₂O₃, Fe₂O₃^{*}, MnO, MgO, Co, Ga, Znに、イライトはAl₂O₃, K₂O, As, Ga, S, Znに、磁鉄鉱はFe₂O₃^{*}, Co, Cr, V, Zrに富む。黄鉄鉱はAsに極端に富み、Cu, Pbに富む。黄鉄鉱がAsに極端に富むことは、柚原・祐徳(2005)および柚原ほか(2006c)の推定を裏付けるものである。

地球化学図：柚原ほか(2010a)によって報告された地球化学図の代表的なものをFig.5に示す。地球化学図作成にはSurfer ver.8.0(Golden Software, Inc.)を用い、最小曲率法でデータの補間を行った。この方法は、ランダムに分布する各データを3次元スプライン関数のなめらかな曲面で補間する方法である。この方法では、データがない領域に、実在しない濃度勾配を形成することがある。このため、隣接する試料採取地点で値に大きな偏りがある場合は、極端に濃度に変化する領域ができることがある。

本研究における試料採取地点は、那珂川本流と大野川、倉谷川沿いに集中している。このような極端に偏在したデータを用いると、極端な濃度勾配を算出してしまい、那珂川本流付近でピークを形成し、それより離れた広い領域で極端に高い値や低い値を示すことになる。したがって、広域を対象とした高本ほか(2005)や伊藤ほか(2007)のような試料密度の場合は問題ないが、本地域の地球化学図には、試料の採取地点の位置情報をそのまま用いることはできない。河川堆積物を用いた地球化学図作成は、河川堆積物が流域の平均的な化学組成値を代表しているという仮定をもとに行われている。このため上岡ほか(1991)、太田ほか(2002, 2003)は、流域を考慮した上で補間を行っている。しかし、いずれの場合でも補間のデータ処理がかなり複雑である。そこで、柚原ほか(2010a)では試料採取地点の位置情報をその河川の集水域の中間標高地点に移し、地球化学図を作成した。

地圏環境評価：本調査地域は糸島花崗閃緑岩と早良花崗岩の境界部にあたり、南から糸島花崗閃緑岩、早良花崗岩細粒相、早良花崗岩主岩相の順に分布している。したがって、この分布傾向と濃度分布を比較した。

岩石の分布に規制された濃度分布を示す元素

TiO₂, Fe₂O₃^{*}, MnO, MgO, CaO, P₂O₅, Co, Cr,

Ni, V, Y濃度は、糸島花崗閃緑岩分布域で高く、早良花崗岩分布域で低い傾向にある(Fig.5)。これに対し、SiO₂, K₂O, Ba, Pb, Rb濃度は、早良花崗岩分布域で高く、糸島花崗閃緑岩分布域で低い傾向にある。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、流域に分布する岩石の化学組成を反映していると考えられる。しかし、多くの場合その境界は、早良花崗岩主岩相側にシフトしている。これは、糸島花崗閃緑岩分布域から流下する小河川が早良花崗岩細粒相分布域内を流下し、早良花崗岩主岩相分布域で那珂川本流に合流しているため、早良花崗岩細粒相分布域内の河川堆積物は、糸島花崗閃緑岩の影響を強く受けているためであると考えられる。

Asは大野金探鉱跡を中心とした領域で極めて高い濃度を示す。これはAsに富む白色変質花崗閃緑岩の分布を反映している。しかし、白色変質花崗閃緑岩の分布を確認していない東小川内北東部においてもやや高い濃度を示す。したがって、東小川内北方に白色変質花崗閃緑岩が存在することが示唆される。該当地域は、五ヶ山ダムの周回道路が通る場所であり、道路の建設工事に伴って白色変質花崗閃緑岩あるいはAsの移動が生じる可能性もあるため、工事に細心の注意が求められる。

岩石の分布に規制されない濃度分布を示す元素

Na₂O, Cu, Ga, Nb, Sr, Thは岩石ごとの濃度差はあまり見られないが、地球化学図(Fig.5)上では濃度分布に偏りが見られる。さらにAl₂O₃とZrは糸島花崗閃緑岩と早良花崗岩の濃度関係とは逆の濃度分布を示す。また、ZnおよびThは両者の分布とは無関係の濃度分布を示す。このことは、これらの元素は、流域に分布する岩石の化学組成の違いを反映していないことを示唆する。

これらの元素のうち、Al₂O₃とGa, Na₂OとSrは、相関が良く、それぞれ類似した濃度分布を示す。CuとNbは、相関の良い元素はない。また、Zrは河川堆積物中の濃度が岩石よりも高い。

Zrは花崗岩類に普遍的に含まれているジルコンが、Thは本地域の花崗岩類に普遍的に含まれている(唐木田ほか, 1994)モナザイトが河川堆積物中に濃集したため高い濃度を示すと考えられる(高本ほか, 2005; 伊藤ほか, 2007)。

Al₂O₃とGaは相関が良く、類似した濃度分布を示すことから、同一鉱物が関与している可能性が高い。本研究および古川ほか(2005)と高本ほか(2005)によって報告された鉱物の化学組成から、これらの元素を濃集するのはイライトであると考えられる。したがって、これらの元素の濃度分布はイライトの濃集によって生じたと考えられる。

Na₂OとSrは相関が良く、類似した濃度分布を示すが、これらの濃度分布は、両元素を濃集する斜長石(高本ほか, 2005; 柚原ほか, 2010a)の含有量の変化によって

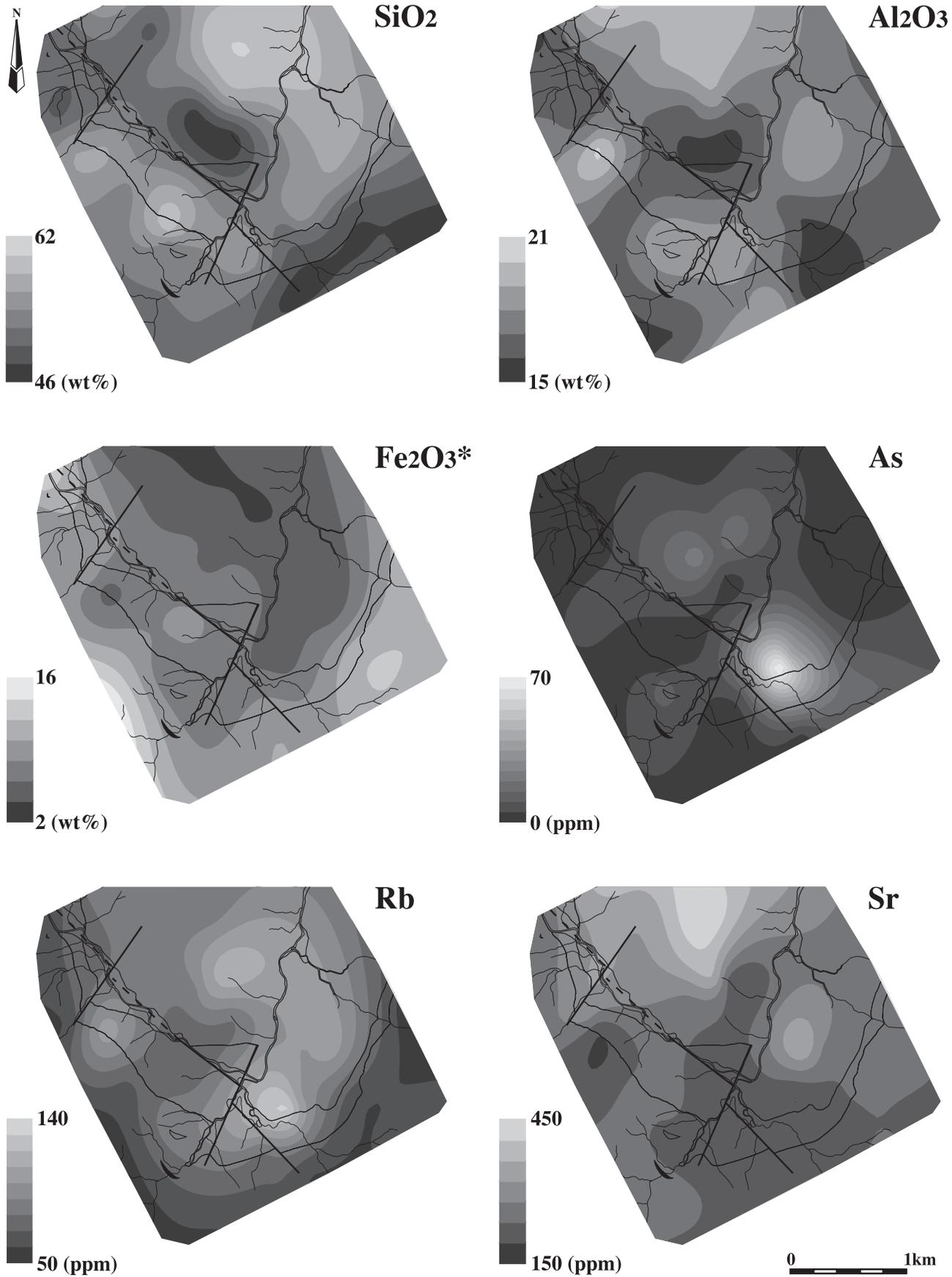


Fig. 5. Geochemical maps of the Gokayama area.

生じたと考えられる。Cuは変質黒雲母や黄鉄鉱に、Nbは黒雲母、イライトに濃集するが、他の元素と相関を示さないことから、複数の鉱物が関与していると考えられる。

以上のことから、 Al_2O_3 、Cu、Ga、Nb、Sr、Th、Y、Zn、Zrの濃度分布を支配する要素は、ジルコン、モナザイト、イライト、斜長石、変質黒雲母、黄鉄鉱の河川堆積物中の含有量の差であると考えられる。

以上のことから、これらの元素の濃度分布は、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。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。

5. 福岡県東部、彦山川～城井川流域の地球化学図

高本ほか(2005)は福岡県東部の今川・祓川流域の元素濃度分布図を報告した。この報告では、伊藤ほか(2007)や柚原ほか(2010a)のような地球化学図ではなく、各試料採取地点における元素濃度を示すのみであった(Fig.6)。そのため、柚原ほか(2010b)は、範囲を彦山川から城井川流域に広げた地球化学図を作成した。詳細については、現在論文を準備中である(柚原ほか, 2011)。

地質: 調査地域の地質図をFig.7に示す。本地域は他地域よりも地質が複雑で、三畳紀の田川変成岩類、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(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(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、更新世後期の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。中位段丘堆積物と沖積層は未固結の砂、泥および礫からなる(久保ほか, 1993)。輝石デイサイト質軽石質火山灰からなる阿蘇-4火砕流堆積物は、調査地域西部と北部に小規模に分布する。調査地域の西部には、小倉-田川構造線の南部にあたる田川断層が南北に通過しており、さらに西側には田川断層の派生断層と考えられる駒啼川断層(柚原・宮崎, 2008)が存在し、添田花崗閃緑岩と田川変成岩類の境界となっている。

岩石の化学組成: 高本ほか(2005)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_2 、 P_2O_5 、Co、Ga、Nb、Znは岩石ごとの濃度差はあまり明瞭ではない。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、MgO、Cr、Cu、Ni、Pb、Y、Zrに富み、CaO、 Na_2O に乏しい。朝倉花崗閃緑岩は、 Al_2O_3 、全Fe、MgO、MnO、CaO、 Na_2O 、Cu、Vに富み、 SiO_2 、 K_2O 、Niに乏しい。添田花崗閃緑岩は、比較的 SiO_2 、Baに富み、MgO、Cr、Ni、Vに乏しい。真崎花崗岩は、 SiO_2 、Ba、Pbに富み、MgO、MnO、CaO、Ni、Srに乏しい。油須原花崗岩は、 SiO_2 、 Na_2O 、 K_2O 、Cu、Rb、Pbに富み、MgO、MnO、CaO、Ba、Ni、Sr、Vに乏しい。北坂本累層の溶岩、凝灰角礫岩中の角礫は、MgO、 Na_2O 、Cr、Srに富み、 K_2O 、Ni、Rb、Yに乏しい。英彦山火山岩類は北坂本累層と同様な傾向を示す。

地球化学図: 柚原ほか(2010b)によって報告された代表的な地球化学図をFig.8に示す。地球化学図作成には地球化学図作図プログラムGeoMap1.2(稲吉, 2005)を使用した。

地圏環境評価: 詳細については、準備中の論文に譲るが、これらの元素の濃度分布は、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によって説明される。したがって、分析を行った元素については、濃度分布が地域地質を反映していると考えられる。

まとめ

我々の研究グループでは、2003年以降、福岡県内において河川堆積物の化学分析を行い、これまで日本各地で作成されている地球化学図と同程度の精度の地球化学図を作成してきた。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、現在のところ、人的な汚染はほとんど検出されておらず、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。しかしながら、地球化学図が作成されている範囲はまだまだ狭く、福岡県全域の元素分布傾向を把握するには至っていない。今後もこの研究を

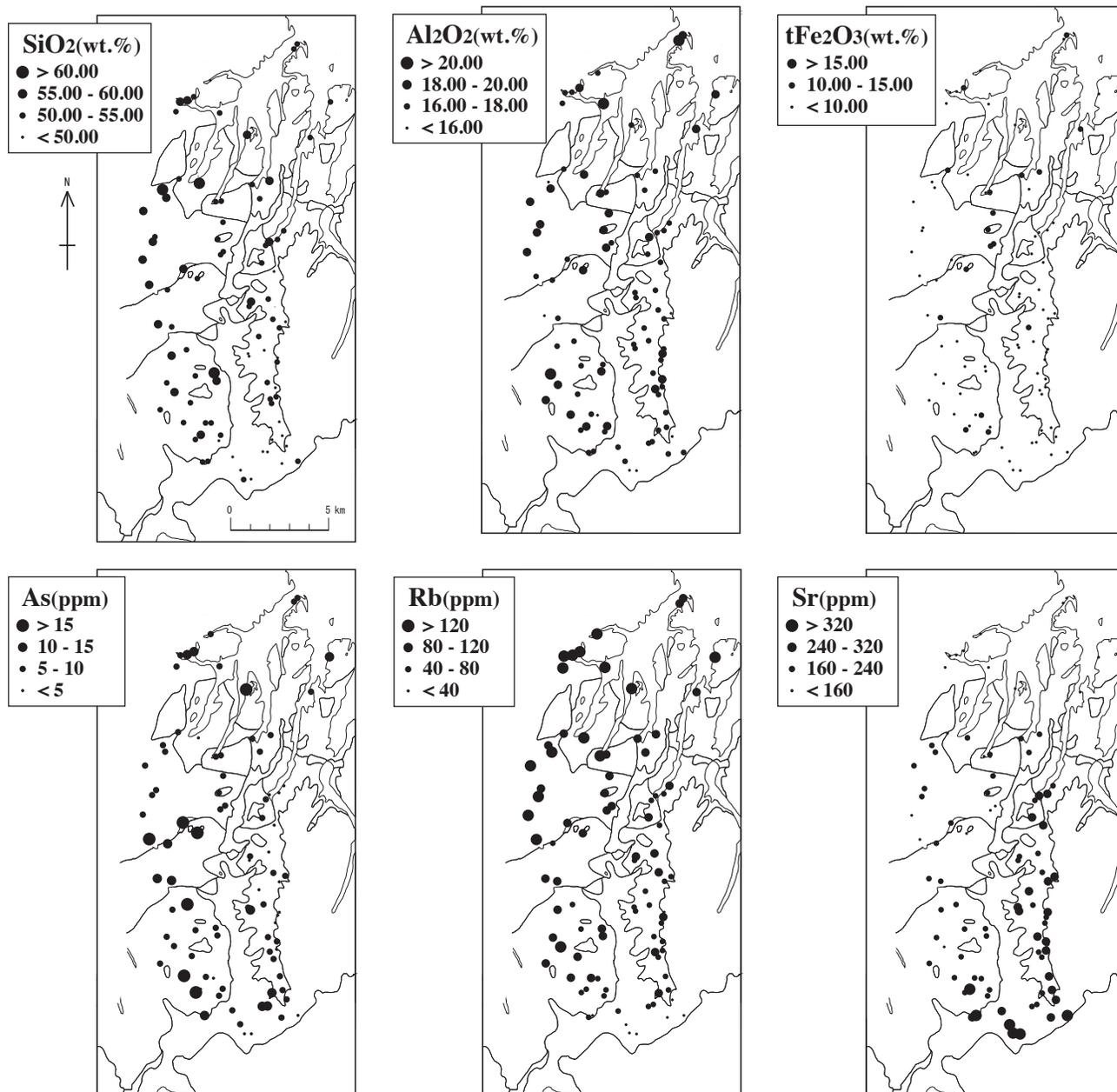


Fig. 6. Geochemical maps of the Ima river and Harai river basins (Takamoto et al., 2005).

進め、県全域を同精度で網羅できるようにしたいと考えている。また、このような研究は、河川による後背地から堆積場への物質移動過程の解析にも有用であると思われる。地球化学図による地圏環境評価では、調査対象地域に分布する岩石・地層の化学組成や鉱物組み合わせのデータが不可欠である。福岡県内に分布する地層・岩石のそれらは十分に得られているとは言い難い。地球化学図作成を通じて、それらのデータの蓄積が期待される。

謝 辞

本論文は我々の研究グループの高本のぞみ (平成15年度)、伊藤裕之 (平成15年度)、古川直道 (平成15年度)、

小路泰之 (平成17年度)、伊藤吉宏 (平成20年度) の福岡大学理学部地球圏科学科における卒業研究を中心とした研究成果をまとめたものである。試料採取には、同研究グループの卒論生にも協力していただいた。卒業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。以上の方々に、記して感謝の意を表します。

文 献

Fauth, H., Hindel, R., Siewers, U. and Zinner, J., 1985, *Geochemischer Atlas Bundesrepublik Deutschland*. Inst.

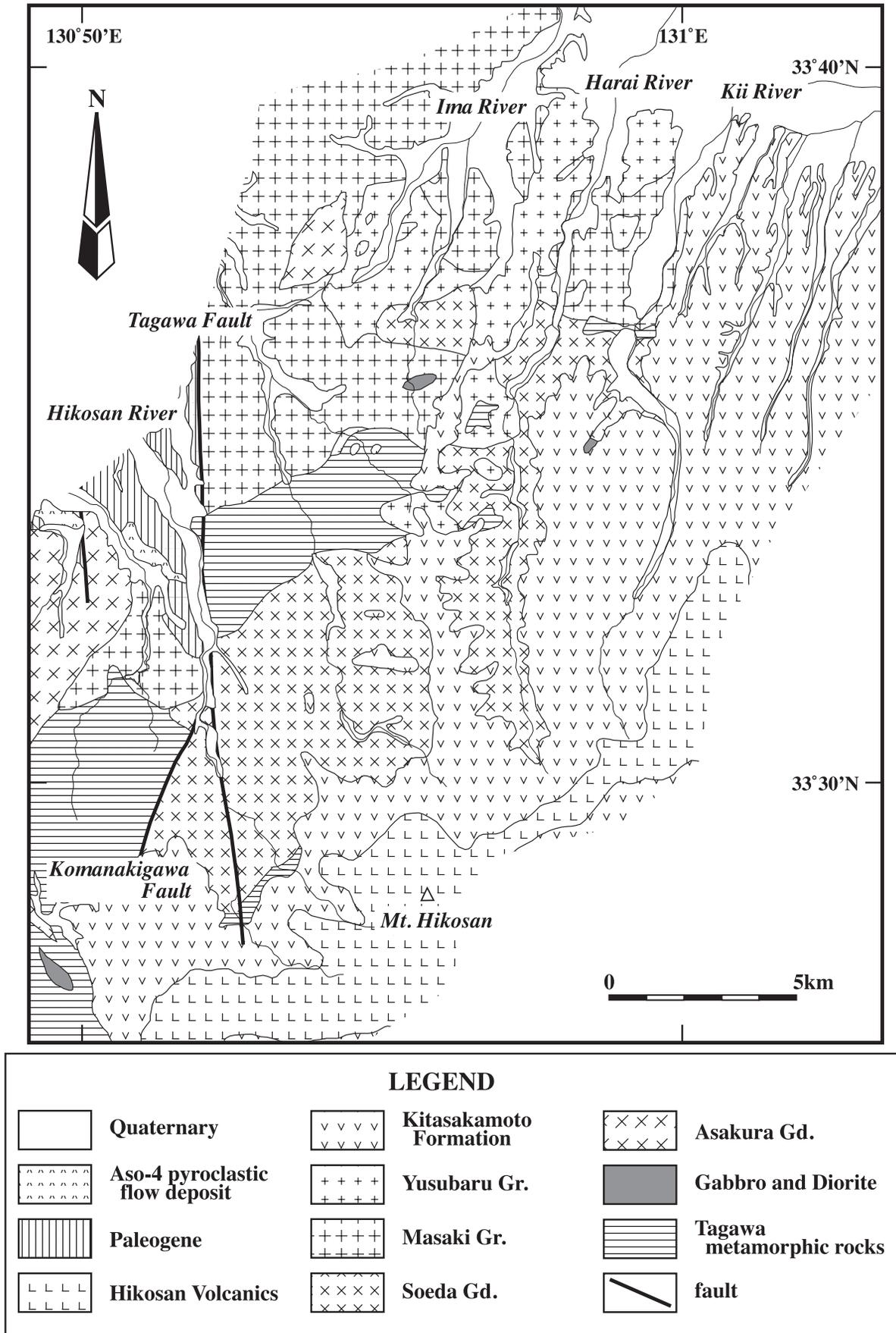


Fig. 7. Geological map of the Hikosan river and Kii river basins (modified from Kubo et al., 1993). Gr.: granite, Gd.: granodiorite.

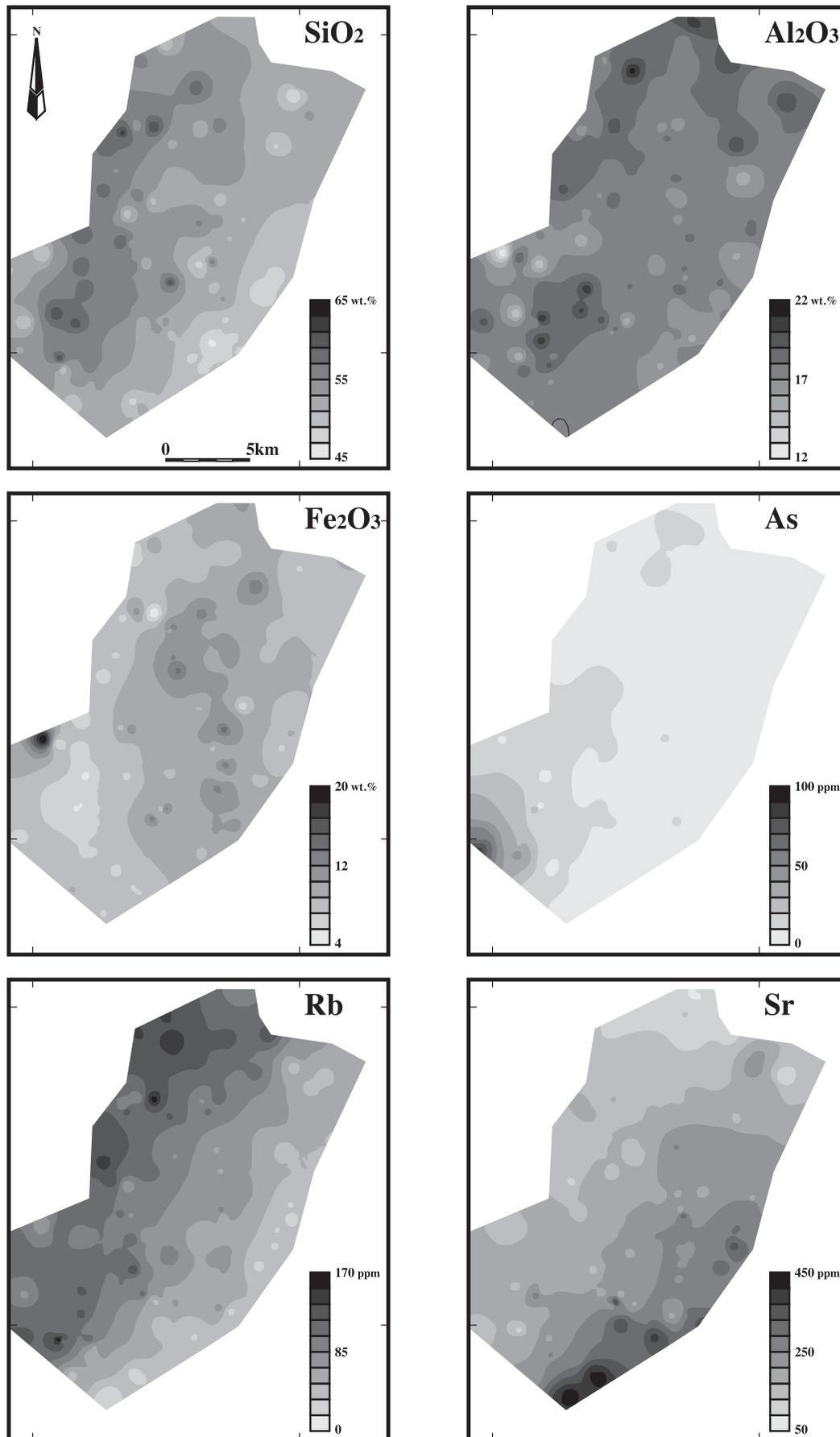


Fig. 8. Geochemical maps of the Hikosan river and Kii river basins (Yuhara et al., 2010b).

- Geosci. Natural Resources, Hannover, 79p.
- Franke, R., 1982. Scattered data interpolation: test of some methods. *Mathematics and Computation*, **38**, 181-200.
- 古川直道, 2004MS, 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—. 福岡大学理学部地球圏科学科卒業論文, 62p.
- 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.
- 古川直道・柚原雅樹・伊藤裕之・高本のぞみ・柚原美恵, 2005, 磁鉄鉱除去による河川堆積物の化学組成の変化. 福岡大学理学集報, **35** (1), 1-10.
- 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新世火山活動と構造運動. 地研専報, 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.
- 今井 登・寺島 滋・太田充恒・御子柴 (氏家) 真澄・岡井貴司・立花好子・池原 研・片山 肇・野田 篤・富樫茂子・松久幸敬・金井 豊・上岡 晃, 2010, 海と陸の地球化学図. 産業技術総合研究所地質調査総合センター, 207p.
- 稲吉正実, 2005, 地球化学図作図プログラム. 名古屋大学博物館報告, no. 21, 51-56.
- 伊藤裕之, 2004MS, 福岡県西部 (室見川・那珂川流域) における地球化学図を用いた地圏環境評価. 福岡大学理学部地球圏科学科卒業論文, 63p.
- 伊藤吉宏, 2009MS, 福岡県東部, 彦山川～城井川流域における地球化学図を用いた地圏環境評価. 福岡大学理学部地球圏科学科卒業論文, 151p.
- 伊藤裕之・柚原雅樹・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, 35p.
- 伊藤貴盛・太田充恒, 1999, 地球化学図作図プログラムの製作. 名古屋大学古川総合研究資料館報告, no. 15, 117-124.
- 井沢英二・唐木田芳文・島田允亮・高橋正好, 1994, 北部九州花崗岩類の化学組成の特徴. 西南学院大学児童教育学論集, **20**, 21-54.
- Kamei, A., 2002, Petrogenesis of Cretaceous peraluminous granite suites with low initial Sr isotopic ratios, Kyushu Island, Southwest Japan arc. *Gondwana Res.*, **5**, 813-822.
- 上岡 晃・田中 剛・伊藤司郎・今井 登, 1991, 元素の地表分布パターンとその解析—北関東の地球化学図. 地球化学, **25**, 81-99.
- 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.
- Karakida, Y., Tomita, T., Gottfried, D., Stern, T. and Rose, H. J., Jr., 1965, Lead-Alpha ages of some granitic rocks from North Kyushu and Central Japan. *Mem. Fac. Sci. Kyushu Univ., Ser. D. (Geol.)*, **16**, 249-263.
- 唐木田芳文・富田宰臣・下山正一・千々和一豊, 1994, 福岡地域の地質, 地域地質研究報告 (5万分の1地質図幅). 地質調査所, 192p.
- 川野良信・柚原雅樹, 2005, 福岡県五ヶ山周辺に分布する花崗岩類. 佐賀大学文化教育学部研究論文集, **10**, 143-149.
- 川野良信・柚原雅樹, 2008a, ii. 地質・鉱物. 福岡県教育委員会編 福岡県営五ヶ山ダム関連文化財調査報告 I 「五ヶ山・小川内」, 福岡県文化財調査報告書, 215, 45-56.
- 川野良信・柚原雅樹, 2008b, 福岡県那珂川上流, 白亜紀花崗岩類の年代学的, 同位体岩石学的研究. 地質雑, **114**, 218-230.
- 木下亀城・小川留太郎, 1995, 岩石鉱物. 保育社, 180p.
- Koljonen, T., 1992, *The geochemical atlas of Finland, Part 2, Till. Geological Survey of Finland*, 218p.
- 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.
- 九州活構造研究会, 1989, 九州の活構造. 東京大学出版会, 553p.
- Lis, J. and Pasieczna, A., 1995, *Geochemical atlas of Poland*. Polish Geological Institute, 125p.
- 丸茂克美, 2003, 鉱物を用いた地質汚染浄化. 資源地質学会編, 資源環境地質学, 393-398.
- 松本達郎, 1951, 北九州・西中国の基盤地質構造概説. 九州大学理学部研究報告 (地質学), **3**, 37-48.
- 名古屋大学環境学研究所, 2005, 環境学研究ソースブック—伊勢湾流域圏の視点から. 藤原書店, 252p.
- 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.
- 大和田正明・亀井淳志・山本耕次・小山内康人・加々美寛雄, 1999, 中・北部九州, 白亜紀花崗岩類の時空分布と起源. 地質学論集, no. 53, 349-363.
- 大和田正明・直原俊介・小山内康人・山本耕次, 2000, 北部九州, 脊振山地雷山周辺の低圧高温型変成岩類とその帰属. 地質学論集, no. 56, 229-240.
- Rollinson, H. R., 1993, *Using Geochemical Data : Evaluation, Presentation, Interpretation*. Logman, 352p.
- Sasaki, K., Nakashima, K. and Kanisawa, S., 2003, Pyrophanite and high Mn ilmenite discovered in the Cretaceous Tono pluton, NE Japan. *N. Jb. Miner. Mh.*, 2003, 302-320.
- Shibata, K. and Karakida, Y., 1965, Potassium-Argon ages of the granitic rocks from the Northern Kyushu. *Bull. Geol. Surv. Japan*, **16**, 443-445.
- 小路泰之, 2006MS, 五ヶ山地域における地球化学図を用いた地圏環境評価. 福岡大学理学部地球圏科学科卒業論文, 214p.
- 椎川 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.
- 清水達雄・藤田正憲・古川憲治・堀内淳一, 2001, 微生物と環境保全. 三共出版, 東京, 140p.
- 竹口聡子・川野良信, 2004, 佐賀県嘉瀬川水系の地球科学的研究. 佐賀大学文化教育学部研究論文集, **8**, 219-228.
- 高本のぞみ, 2004MS, 今川・祓川流域における地球化学図を用いた地圏環境評価. 福岡大学理学部地球圏科学科卒業論文, 145p.
- 高本のぞみ・柚原雅樹・古川直道, 2005, 福岡県東部, 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., Yarai, 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 Sanageyama 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・大森美美子, 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.
- Ujiié-Mikoshiha, M., Imai, N., Terashima, S., Tachibana, Y. and Okai, T., 2006, Geochemical mapping in northern Honshu, Japan. *Appl. Geochem.*, **21**, 492-514.
- Weaver, T.A., Broxton, D.E., Bolivar, S.L. and Freeman, S.H., 1983, *The geochemical atlas of Alaska*. Geochemistry Group, Earth and Space Science Division, Los Alamos National laboratory, GJBX-32, **83**, US DOE, 61p.
- Webb, J.S., Nichol, I., Foster, R., Lowenstein, P.L. and Howarth, R.J., 1973, *Provisional geochemical atlas of Northern Ireland*. Applied Geochemical Research Group, Imperial College, London, 36p.
- Webb, J.S., Thornton, I., Thompson, M., Howarth, R.J. and Lowenstein, P.L., 1978, *The Wolfson geochemical atlas of England and Wales*. Clarendon Press, Oxford, 69p.
- 矢田 純・大和田正明, 2003, 佐賀県中部に分布する白亜紀高Sr トーナル岩 (糸島岩体) とトロニウム岩 (深江岩体) の成因関係: マグマの分化作用による検討. 地質雑, **109**, 518-532.
- 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.
- 柳 哮・浜本礼子・劉 旭東・中村 真, 1999, Rb-Sr法による年代測定の新しい試み. 月刊地球, **21**, 811-816.
- 柚原雅樹・古川直道・伊藤裕之・高本のぞみ・柚原美恵, 2006a, 河川堆積物のヒ素含有量の季節変動—室見川および祓川の例—. 福岡大学理学集報, **36** (1), 69-72.
- 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・伊藤吉宏・吉本 紋・眞崎求一, 2010b, 福岡県東部, 彦山川～城井川流域の地球化学図. 2010年度日本地球化学会年会講演要旨集, 190.
- 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**, 印刷中.
- 柚原雅樹・宮崎桂輔, 2008, 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. 第154回日本地質学会西日本支部例会講演要旨集, P12.
- 柚原雅樹・小路泰之・石原与四郎・宇藤千恵, 2010a, 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・田口幸洋, 2006, ガラスビード法による炭酸塩岩石の主成分および微量元素の蛍光X線分析. 福岡大学理学集報, **36** (2), 29-35.
- 柚原雅樹・宇藤千恵・小路泰之・川野良信, 2006b, 那珂川上流, 五ヶ山地域の白亜紀花崗岩類に発達する断層系. 福岡大学理学集報, **36** (1), 55-67.
- 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, 2006c, 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, 2010, 福岡県内の地球化学図, 福岡大学研究部論集, C: 理工学編, **2**, 91-107.

(Yuhara, M., 2010, Geochemical map of Fukuoka Prefecture. *The Bulletin of Central Research Institute, Fukuoka University, Series C: Science and Technology*, **2**, 91-107.)

我々の研究グループは, 福岡県の東部と西部において地圏環境評価を行うため, 河川堆積物を採取し, 地球化学図を作成した. 試料採取は, 田中ほか (2001) の手法に従った. 採取試料について, 蛍光X線分析法により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) の測定を行った. 地域地質や岩石および鉱物の化学組成との比較を行った結果, 地球化学図における各元素の濃度分布は, 地域地質と造岩鉱物の濃集の違いによって説明される.

