

河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の粒径別変動及び地球化学図への応用
(Particle-size dependence of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ in stream sediments and its application to
geochemical mapping)

城森 由佳
(JOMORI, Yuka)

名古屋大学環境学研究科地球環境科学専攻学位論文 博士（理学）

2014 年

要旨

ストロンチウム同位体比 ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) は、物質の動態や起源解析に有効な指標であり、海洋堆積物や風送塵の起源の指標として用いられてきた。近年では、農作物の産地推定や、遺跡出土資料の移動経路推定の指標としても用いられつつある。これらの研究は、場所によって異なる $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ をもつ母岩が分布することを利用したものであり、研究の基盤となるのは、対象地域の母岩地質の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布である。しかし、岩石は元素濃度・同位体比の不均質性が高いこと、多地点採取に膨大な労力を要することから、日本の地表面の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布の全体像はこれまで明らかにされていない。一方、元素濃度については、産業技術総合研究所地質調査総合センターにより、80 メッシュ (180 μm) 以下の粒径の河川堆積物を用いた 53 元素濃度についての全国規模地球化学図が作成され、公表されている。その結果から、河川堆積物の元素濃度分布は、流域に分布する母岩地質の特徴を非常によく反映していることが明らかになっている。そこで、本論文は、全国規模の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 地球化学図を得るために、岩石に代わり得る地質試料として河川堆積物に着目し、地表面の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を忠実に反映した河川堆積物を採取するための条件 (粒径など) を明らかにした上で、実際に河川堆積物と流域地質の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布との比較を行うことにより、これまで明らかでなかった河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の支配要因を明らかにすることを目的とした。

第 1 章では、河川堆積物を篩い分けて $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を測定し、母岩から河川堆積物へ風化する間の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 変動、および粒径による $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 変動について検証を行った。

はじめに、日本に広く分布する花崗岩が単一で分布する地域 (愛知県豊田市矢作川上流域) において、1 mm (1000 μm) 以下の河川堆積物を採取し、1000–500, 500–300, 300–180, 180–75, <75 および <180 μm の粒径別の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を測定した。その結果、1 地点で採取された粒径別 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の変動範囲は概ね 0.001 程度であり、500–75 μm 分画で、採取地点が異なることによる不均質性が最も小さいことが明らかとなった。また、180–75 μm 及び <180 μm 分画が母岩の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値を最も反映していることが明らかとなった。

次に、複数の地質 (花崗岩・堆積岩・安山岩) が分布する地域 (愛媛県松山市重信川流域) において、河川堆積物を 1000–500, 500–300, 300–180, 180–125, 125–75, <75 μm に篩い分け、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を測定した。その結果、流域に複数の地質が分布する地点の河川堆積物でも、粒径別 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の変動範囲は概ね 0.001 程度であり、これは流域地質の違いによる値の変動よりも大きかった。ただし、河川の上流域に複数の地質が分布する地点の河川堆積物では、粒径によって特定の岩体の影響が強く見られ、粒径別 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 変動範囲が 0.001 よ

りも大きくなる場合が見られた。しかし、このような試料においても、 $<180\ \mu\text{m}$ 分画を用いれば、河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は流域の地質の割合を反映した値を示すことが明らかになった。

さらに、石灰岩が分布する地域（山口県美祢市厚東川流域）の河川堆積物を 1000–500, 500–250, 250–125, 125–63, 63–32, $<32\ \mu\text{m}$ 及び $<180\ \mu\text{m}$ に篩い分け $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を測定した。その結果、粗粒分画（1000–125 μm ）では母岩の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ （0.7073–0.7087）に近い値（0.7076–0.7087）を示すが、細粒分画（ $<125\ \mu\text{m}$ ）では、石灰岩以外の母岩の値（0.7102–0.7132）を示すことがわかった。この結果は、上述の花崗岩・堆積岩・火山岩などの基盤岩地質を流域とする河川堆積物から得られた結果とは異なるものであったが、それは、石灰岩が他の岩石に比べ物理的風化に強いため、 $<125\ \mu\text{m}$ 分画中に石灰岩からの方解石粒子が少なく、他の母岩起源の碎屑物粒子の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を反映したためと考えられる。

第2章では、広域の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布図作成にあたり、河川堆積物（ $<180\ \mu\text{m}$ ）の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布が地質の分布とどの程度対応するかを、地質の境界が明瞭な四国・紀伊半島地域について検証した。その結果、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布は地質の分布とよく対応し、河川堆積物は地質構造帯を反映した値を示していることが明らかとなった。また $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布の特徴として、中央構造線以南の外帯（付加体堆積岩が分布する地域）で、河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が堆積岩の形成年代の新しい南側ほど高くなる傾向が見られた。一般的に大陸地殻起源の碎屑物は高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を示すため、この地域の付加体は、現在の日本には存在しない形成年代が古い岩体から供給された碎屑物量が、南ほど多くなる変化を伴って形成されたと考えられた。このことを検証するため、最も高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が得られた四万十帯南帯と比較対象としての北帯、それぞれに属する砂岩を採取し、碎屑性ジルコンを抽出したのち、CHIME 年代測定を行った。その結果、四万十帯南帯・北帯の砂岩には、アジア大陸地殻起源の年代を示すジルコンが含まれること、また、年代分布からは北帯よりも南帯で最も古い年代を示すジルコン（2200–2800 Ma）が多いことが明らかとなった。碎屑性ジルコンの量が碎屑物の量に反映されると仮定すると、南帯由来の河川堆積物が北帯よりも高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を示したのは大陸起源碎屑物をより多く含むためと考えられた。

第3章では、比較的基盤の露出が少ない北海道において、 $<180\ \mu\text{m}$ の河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布と地質の分布を調べた。その結果、中央部の空知–エゾ帯堆積岩由来の河川堆積物が北海道内で最も高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を示すなど、四国・紀伊半島地域と同じく、構造帯により $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が異なることが明らかになった。現在は隣接する空知–エゾ帯と日高帯起源の河川堆積物が $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ – $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 図の異なる領域にプロットされたことから、空知–エゾ帯と日高

帯は異なる碎屑物の供給源を持ち、堆積場が異なっていたことが推測された。

以上の結果から、河川堆積物の粒径別 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の変動の支配要因は地質の違いであること、 $<180\ \mu\text{m}$ の細粒の河川堆積物は、石灰岩地域を除く堆積岩・花崗岩・火山岩等、日本における一般的地質分布地域において、流域の地質の分布割合を反映した代表値としての $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を示し、地質の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 地球化学図を作成する際に有効なツールとなることが明らかになった。さらに、河川堆積物を用いた広域の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布図からは、母岩を構成する碎屑物の起源、ひいては地質帯の構造史に対しての有効な指標の 1 つとなり得ることが明らかとなった。

Abstract

Strontium isotope ratios ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) are often used to identify origin estimation of sediments, atmospheric particles, and so on. Recently, they have also been used to identify food-producing areas and pattern of ancient human migration. The nationwide $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ spatial distribution should be prepared for such purposes of the studies, but $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ distribution map was only prepared in limited area in Japan. Meanwhile, the nationwide geochemical maps of elemental concentrations in Japan were published by the Geological Survey of Japan, AIST, using fine-grained stream sediments (<80 mesh, or <180 μm). Spatial patterns of element concentrations in stream sediments are strongly influenced by the geology and mineral compositions in the catchment basin upstream of the sampling point. The purpose of this study is to elucidate the controlling factor of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ in stream sediments according to particle size by comparison with $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ in basement rock, and to provide a foundation for nationwide $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ geochemical mapping in Japan.

Chapter 1 focuses on the influence of weathering on $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values in stream sediments and the particle-size dependence of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values in stream sediments in three areas.

The stream sediments from the upstream area of the Yahagi River where is covered by granitic rocks were sieved into 1000–500, 500–300, 300–180, 180–75, <75, and <180 μm fractions. The $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ of the six fractions (0.7099–0.7104) was close to the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ in the granitic rocks (0.7101–0.7103). The $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ in stream sediments varied within 0.001 according to particle size, and the inhomogeneity of sample according to sampling sites was smallest in 500–75 μm fraction. The $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ of the 180–75 and <180 μm fractions were consistent to those of granites, and it suggests that 180–75 or <180 μm fractions of stream sediments are best suited to geochemical mapping of areas underlain by granite.

Stream sediments from the Shigenobu River system where is covered by granitic, sedimentary, and andesitic rocks were sieved into 1000–500, 500–300, 300–180, 180–125, 125–75, and <75 μm fractions. Most of the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ in stream sediments also varied within 0.001 according to particle size, which was smaller than the geological variation in the watershed. The stream sediments collected from the area with several geologies in the upper watershed varied over 0.001 because the watershed geology contributing to $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ in stream sediments is different according to particle size. However, the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ of <180 μm fractions in stream sediments from the Shigenobu River system reflect well the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ of mixed detrital materials derived from several source rocks in the Shigenobu River watershed.

Stream sediments from the Kotou River system contained detrital materials derived from limestone blocks in the middle drainage area were sieved into seven particle-size fractions: 1000–500, 500–250, 250–125, 125–63, 63–32, <32, and <180 μm . The particle-size variation in $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ for stream sediment samples from the area of large proportion of limestone was 0.004–0.006, which is larger than that for samples from the other geology area. The 1000–125 μm fraction had the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ value of 0.705–0.708 close to that of the source limestone (0.706–0.708). In contrast, the <125 μm fraction has 0.7102–0.7132, reflecting a $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ of rock other than limestone. The fact indicates that the <125 μm fraction scarcely contains calcite particles formed by physical weathering and strongly reflected the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ of detrital particles derived from other source rock.

Chapter 2 describes the spatial distribution of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ in stream sediments (<180 μm) from Shikoku Island and the Kii Peninsula, compared with the distribution of geology.

The $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ of stream sediments successively increases from northern to southern geological units in Outer Zone, and is highest in the youngest accretionary complex of the Southern Shimanto Belt. Therefore stream sediments reflect differences in detrital material, that is, components of source rock in Shimanto Belt. Samples derived from the Southern Shimanto Belt have the highest $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ value due to detrital materials originating from the Asian continent. This result is consistent with the fact that sandstone of Southern Shimanto Belt contains zircons with 2200–2800 Ma CHIME ages more than sandstone of Northern Shimanto Belt. Therefore, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ in stream sediments can provide information of origin of detrital materials composing sedimentary rocks.

Chapter 3 describes the spatial distribution of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ in stream sediments (<180 μm) from Hokkaido.

In Hokkaido, geological belts formed by plate movement, Sorachi-Yezo Belt and Hidaka Belt, are exposed in central part with a paleo-plate boundary. Most of other geological belts are covered by volcanic rock of post-Miocene. Stream sediments derived from the Sorachi-Yezo Belt had the highest $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ (0.710–0.711) in Hokkaido. The relationship $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ in stream sediments suggests that adjacent tectonic Belts, Sorachi-Yezo Belt and Hidaka Belt, are formed at different localities and had different origin of detrital materials.

The foregoing results demonstrate that the controlling factor of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ of stream sediments is basement rocks, and the <180 μm grain-size fraction of stream sediment reflects $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ of

basement rocks (sedimentary, granitic, and volcanic bedrocks). Therefore $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ in stream sediment (<180 μm) is a suitable for $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ geochemical mapping. Furthermore, because $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ of mineral hardly change by chemical weathering, the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ distribution in the <180 μm fraction of stream sediment is a good indicator for determining the origin of detrital materials composing sedimentary rocks.

目 次

序論	1
第 1 章 河川堆積物の粒径別 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	
第 1 節 愛知県豊田市を流れる矢作川上流域（花崗岩地域）	3
第 1 項 はじめに	3
第 2 項 試料	3
第 3 項 研究地域の地質	6
第 4 項 実験	6
第 5 項 結果	7
1. 粒径別・地点別の元素濃度変動	7
2. 粒径別・地点別の鉱物組成変動	10
3. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の粒径別・地点間変動	13
第 6 項 考察	14
1. 粒径別元素濃度変動の支配要因	14
2. 各粒径分画の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ および $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$	15
3. 180 μm 以下の河川堆積物を用いた $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ・元素濃度の地表面分布	17
第 2 節 愛媛県松山市を流れる重信川流域（花崗岩・堆積岩・安山岩地域）	20
第 1 項 はじめに	20
第 2 項 重信川水系周辺の地質	20
第 3 項 流域解析	22
第 4 項 試料と実験	22
第 5 項 結果と考察	22
1. 粒径別元素濃度変動	22
2. 粒径別 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 変動	27
3. 地球化学図試料と本研究試料の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の比較	29
4. 流域内地質の割合の変化と元素濃度および $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の変動	31
5. 地点 3 の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 変動について	34
第 3 節 山口県美祢市の秋吉台を流れる厚東川流域（石灰岩地域）	36
第 1 項 はじめに	36
第 2 項 秋吉台周辺の地質	36
第 3 項 試料と実験	38
第 4 項 結果と考察	38
1. 炭酸塩成分の重量比とバルク $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 変動幅	38
2. 厚東川水系支流の河川堆積物のバルクおよび炭酸塩成分の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	40
3. 厚東川水系本流の河川堆積物のバルクおよび炭酸塩成分の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	43

第2章 四国・紀伊半島地域の⁸⁷Sr/⁸⁶Sr分布	
第1節 はじめに.....	52
第2節 四国・紀伊半島地域の地質.....	52
第3節 試料と実験.....	55
第4節 結果と考察.....	55
第1項 地質ごとのに見た河川堆積物の ⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Sr分布の特徴.....	55
第2項 地質ごとの河川堆積物の ⁸⁷ Rb/ ⁸⁶ Sr- ⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Sr.....	59
第3項 四万十帯堆積岩中の大陸起源碎屑物の量の違い と河川堆積物の ⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Srへの影響.....	62
第4項 河川の上流から下流にかけての母岩の変化と河川堆積物の ⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Sr及び元素濃度への影響.....	67
第3章 北海道の⁸⁷Sr/⁸⁶Sr分布	
第1節 はじめに.....	77
第2節 北海道の地質.....	77
第3節 試料と実験.....	80
第4節 結果と考察.....	80
第1項 北海道の ⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Srの全体的傾向.....	80
第2項 火山岩地域の河川堆積物の ⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Srの特徴.....	83
第3項 堆積岩地域の河川堆積物の ⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Srの特徴.....	85
第4項 180μm以下の試料の粒度と ⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Srの変動の関係について.....	90
結論	100
参考文献	102
謝辞	110

序論

地表面上の元素濃度分布は、重金属の濃集などを知る環境指標として重要であり、また、鉱床探査にも用いられる。これまでに、元素濃度地球化学図の作成が欧米を中心とした世界各国で行われている（例えば、Webb *et al.*, 1978; Weaver *et al.*, 1983; Fauth *et al.*, 1985; Kautsky and Bølviken, 1986; Thalmann *et al.*, 1988; Gustavsson *et al.*, 2001）。また、近年では、国を超えた範囲や、大陸規模での地球化学図の作成も増えてきている（例えば、Reimann *et al.*, 1998, 2003; Salminen *et al.*, 2005）日本においても、産業技術総合研究所地質調査総合センターにより、80 メッシュ（180 μm ）以下の河川堆積物を用いた日本全国規模の元素濃度地球化学図が作成され、ホームページ上でも公開されている（今井ほか, 2004, 2010）。河川堆積物は河川流域に分布する基盤岩が風化した碎屑物と、それらから形成された土壌が混合された物質であり（Howarth and Thornton, 1983）、流域の元素濃度分布など、平均的元素濃度が必要とされる場合に適する試料である。実際に、河川堆積物を用いた元素濃度地球化学図は、試料採取地点の上流に分布する母岩の元素濃度の特徴を反映しており、その濃度分布は日本の各地域において母岩とよく対応していることが明らかになっている（Ohta *et al.*, 2004a, 2005a, b; 太田ほか, 2004b; Ujiie-Mikoshiha *et al.*, 2006, 2011）。また、地球化学的に重要な情報としては、元素濃度の他に同位体比が挙げられ、中でも $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値は物質の動態や起源解析に有効な指標である。

Sr は、岩石の主成分鉱物である斜長石・カリ長石などに多量に含まれている（例えば、斜長石：500–4000 ppm, カリ長石：200–2000 ppm（倉沢一, 1968））ため、広汎性の高い元素と言える。また、自然界には4種のSrの同位体が存在しており、それぞれの存在比は、 ^{84}Sr : 0.56%, ^{86}Sr : 9.86%, ^{87}Sr : 7.00%, ^{88}Sr : 82.88% である。そのうち、 ^{87}Sr は天然放射性元素で半減期 488 億年である ^{87}Rb が β 線を放出し、放射壊変することにより生成される。この性質を利用して、 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は岩石の年代測定（Rb-Sr 法）の指標として用いられる。一般的に古い鉱物は ^{87}Rb の放射壊変により ^{87}Sr が増加するので $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が高く、さらに鉱物中の Rb 量が多ければ、同じ時間を経た岩石でも、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は高くなる。そのため、世界中の岩石は形成年代の違い、Rb 濃度の違い、また鉱物比の違いを反映し、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ のバリエーションを成していると言える。このことから、おおよその傾向として、比較的古くから存在する大陸地殻は相対的に高い値が地表面に分布するのに対し、大陸地殻より新しく形成された島弧である日本においては、相対的に低い値の分布が予測される。このような $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値の地域による高低差が生じることで、風送塵や堆積物の起源解析の指標として用いることが可能となっている。

さらに、近年では、農学分野における農産物の産地推定や、考古学分野における遺跡出土遺物の移動経路解明等に $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値が用いられつつある(例えば, Price *et al.*, 2004; Rummel *et al.*, 2010; Thornton, 2011; Ariyama *et al.*, 2012). これは、岩石が風化する過程で、水に溶けた Sr が、植物には土壌水を介して、動物には植物と水を介してそれぞれに吸収され、生育地・生息地の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が保存されることを利用したものである.

このような研究に $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を指標とし、起源を利用するには、まず、日本における地表面のバックグラウンド値としての地表面 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布をまず明らかにしなければならない. しかし、日本における地表面の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布について報告された例は、愛知県北東部の<180 μm 分画の河川堆積物を用いた例に限られる. そこで本研究では、元素濃度分布図に用いられている河川堆積物試料を用いて、地表面のバックグラウンド値としての $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布を示すことが可能かどうかを明らかにすることを目的とした. また、いくつかの地域において河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布を調べ、流域の母岩と比較を行い、全国規模の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布図作成のための基礎を固めることを目指した.

第1章 河川堆積物の粒径別の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$

第1節 愛知県豊田市を流れる矢作川上流域（花崗岩地域）

第1項 はじめに

日本全国の地表面の元素濃度地球化学図作成に先立ち、河川堆積物の粒径分画ごとの元素濃度がすでに調べられている。その結果として、粒径 400 メッシュ (37 μm) 以下の分画で Cu, Pb, Zn, Cr などが濃集するが、この分画の割合は、粒径 180 μm 以下の全体分画に比してわずかであり、結果として濃集の影響はほとんど見られないこと、また、粒径 180 μm 以下の河川堆積物は、砕屑物を供給する源岩の化学組成を平均した値を示すことが報告されている (今井, 1987)。また、寺島ほか (2008) は河川堆積物粒のほとんどの主・微量元素濃度は、河川堆積物の細粒化に伴って高くなるが、K, Ba にはその傾向が見られないことを指摘している。その他にも、粒径が河川堆積物の元素濃度に与える影響について検討している例として Chandrajith *et al.* (2001) や Ortiz *et al.* (2006) があり、同様に、細粒分画におけるほとんどの元素の濃集を指摘している。

しかし、河川堆積物の粒径別 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ について検討された例はほとんどなく、その実態については明らかでない。よって、日本全国の河川堆積物を用いた $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布図を作成するにあたり、まず一か所で採取された河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が粒径によりどの程度の変動を示すのか、また、母岩から物理的風化と化学的風化を受け河川堆積物となる際に、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の値にどの程度の変化が生じるかを明らかにすることが基礎的研究として非常に重要と考えられる。

そこで、河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の実態を明らかにするべく、日本において一般的に広く分布している花崗岩分布域で、粒径を区分して河川堆積物を採取し、元素濃度分析および $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 測定を行った。また、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値に変動が生じる際には、鉍物の割合の変動が最も作用する要因と考えられるため、構成鉍物の確認を X 線回折により行った。

第2項 試料

試料採取した河川は、愛知県豊田市足助町の北側の小手沢に位置し、矢作川上流域の小規模支流のひとつである。河川の幅は約 1.5 m で傾斜は約 1% である。水量は基本的に少なく、粗粒の河川堆積物が動きにくいのが、水量が劇的に増える豪雨の際には、数 cm の粒径をもつ比較的大きい河川堆積物が動く状況にある。

Fig. 1 に試料採取地点と周辺の地質図を示した。試料として、U, L 地点から <1 mm の河川堆積物を採取した。さらに、U 地点においては、河床状況（流速）の異なる 2ヶ所からそ

れぞれ試料を採取した。ここでは流れが緩やかな箇所では採取された試料を U1、強い水流がある箇所では採取された試料を U2 とする。一方、試料 L は水深が 50 cm と、U1、U2 と比較し、水の運搬力が弱まる深い箇所では採取された。試料 U1 と L は、粒径 1000–500, 500–300, 300–180, 180–75, <75 および <180 μm の 6 つの分画に篩い分けた。U2 については、粒径 1000–500, 500–300, 300–180, <180 μm の 4 分画に篩い分けた。篩い分けを行った試料は、いずれもメノウ乳鉢を用いてさらに粉砕・均質化処理を行った。

それぞれの分画の重量比は、粒径 1000–500 μm の分画が最も多く、1000 μm 以下の河川堆積物全体のうち、U1 は 50%、U2 は 85%、L は 70% を占める。また、基本的に細粒分画ほど重量比は減少し、500–300 μm は約 6–17%、300–180 μm は約 3–20%、180–75 μm は 2–10%、最も細粒の <75 μm のフラクションでは 1–3% 程度であった。

また、母岩から河川堆積物が形成されるまでの間に受ける風化作用の影響を評価するため、河川に沿った地点の地下で、母岩である新鮮な花崗閃緑岩（試料 IG01）も同時に採取した。岩石試料は、ジョークラッシャー、スタンプミル、メノウ乳鉢を用いて、粉砕・均質化処理を行った。

調査地域を含む愛知県豊田地域においては、すでに山本ほか（1998）によって <180 μm の河川堆積物を用いて作成した元素濃度分布図が報告されている。また、伊奈川花崗岩 III 型の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値を含む化学組成における特徴は、Tsuboi (2005, sample No. 4091 と 4093) や Asahara *et al.* (2006, sample No. R09D05) により調べられている。本研究で採取した河川堆積物と岩石の結果との比較のために、これらの試料についても採取地点を Fig. 1 に示した。4091 の採取地点は、本研究の試料採取領域から約 400 m 上流に位置し、4093 は別の河川に位置する。R09D05 の採取地点は本研究域から、北へ 4 km 程度離れている。

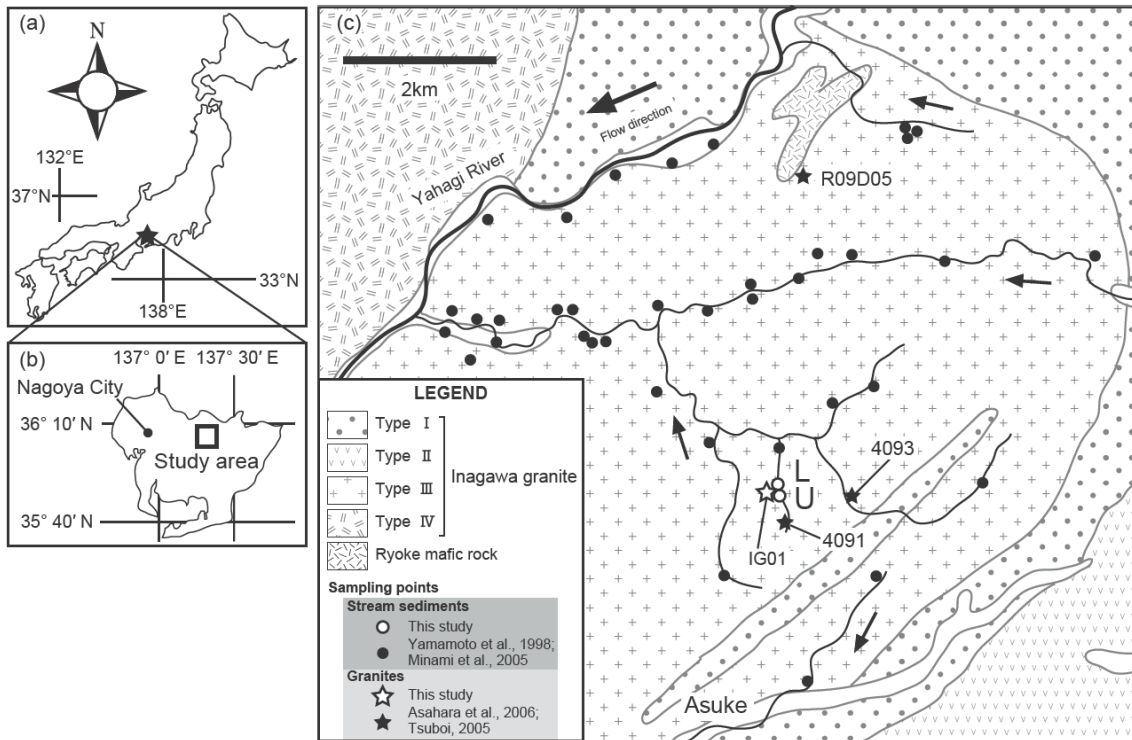


Fig. 1. a) Schematic maps of the study area. b) Study area in Aichi prefecture. c) Geological map around the study area at and sampling points. The map is modified from 1: 200,000 geological map (Yamada *et al.*, 1972; Geological Survey of Japan, AIST, 2012). Open circles: stream sediments in this study; closed circles: stream sediments from Yamamoto *et al.* (1998) and Minami *et al.* (2005); open star: Inagawa granite sample IG01 collected in this study; closed stars: Inagawa granite samples 4091 and 4093 (Tsuboi, 2005) and R09D05 (Asahara *et al.*, 2006).

第3項 研究地域の地質

試料採取地点を含む愛知県北東部は白亜紀後期の花崗岩が分布し、試料を採取した矢作川上流の流域には粗粒角閃石-黒雲母花崗閃緑岩(伊奈川花崗岩 III 型: Nakai, 1976) が 50 km² 以上分布している。また、それに隣接して、小原花崗岩(中粒角閃石-黒雲母花崗閃緑岩) が上流部に分布している。

この河川流域の花崗閃緑岩は 44–45%の斜長石, 30–31%の石英, 14–15%のカリ長石, 6–7%の黒雲母, 3–4%の角閃石と, 副成分鉱物である緑泥石, チタン鉄鉱, アパタイト, ジルコン, イルメナイト, アラナイトからなる。鉱物サイズは, 長軸において, 黒雲母が 1–3 mm, 角閃石が 2–4 mm 程度である。斜長石は最大で 15 mm, 平均的には 3–10 mm であり, カリ長石は最大 8 mm である。

花崗閃緑岩は風化し, 風化残留物が土壌として地表面に 1–10 m 程度の厚さを成している。土壌は花崗閃緑岩の構成鉱物である細粒鉱物と, カオリナイト, ハロイサイト, スメクタイトを含む。地表の新鮮な花崗閃緑岩が土壌になる間, CaO と Na₂O 濃度はそれぞれ 4.4% から 0.4% に, 3.4% から 0.3% に減少するのに対し, K₂O 濃度はほとんど 2.3% から変化しない(鈴木ほか, 1993)。これは風化残留物中の斜長石の優先的溶出を示していると考えられる。

第4項 実験

⁸⁷Sr/⁸⁶Sr 測定は, 河川堆積物の各粒径分画および花崗岩(全岩)について行った。まず, 試料 50–70 mg を測り出し, 石英ビーカーに入れ, 有機物の影響を完全に除くため 950 °C のマッフル炉で 5 時間焼き出した。花崗岩については有機物を含まないため, この処理は行わなかった。その後, テフロンジャーに試料を移し, 過塩素酸 1 ml, フッ化水素酸 2 ml をそれぞれ加えホットプレートで 1–2 日間加熱し, 試料を分解した。分解後はテフロンジャーの蓋をあけ, クリーンベンチ内のホットプレート上で, 赤外線ランプを当てながら乾固し, 完全に乾固させた後, 2.4 M 塩酸を 3 ml 加え溶離液とした。陽イオン交換樹脂(BioRad AG 50W–X8, 200–400 mesh) を詰めた石英カラムを用いて, Sr を他の元素と分離しテフロンビーカーに回収した。Sr を含む溶離液は加熱・乾固した後, 濃硝酸を数滴加え, 再び乾固し硝酸態にした。

⁸⁷Sr/⁸⁶Sr 測定は, 名古屋大学表面電離型磁場型質量分析計(VG Sector 54–30)を用いて行った。試料導入部に Ta フィラメントにリン酸 1 μl を滴下した後, 超純水に Sr フラクションを溶かし, 300 ng 程度の Sr をフィラメントに塗布した。その後フィラメントを加熱し, 水分を飛ばしてから測定機器の真空チャンバー内に設置し, ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr 測定を行った。測定値

は $^{86}\text{Sr}/^{88}\text{Sr} = 0.1194$ で規格化した。標準試料は NBS987 を用い、その平均値は 0.710238 ± 0.000011 (2σ , $n = 5$) であった。測定結果については、第一章末の Table 1 に示した。

また、河川堆積物および花崗岩の蛍光 X 線分析を行い、主成分元素と、一部の微量成分元素について濃度を明らかにした。まず、めのう乳鉢ですりつぶした河川堆積物を $950\text{ }^\circ\text{C}$ で 5 時間加熱したのち、主成分元素用では試料 0.7 g と四ホウ酸リチウム 6 g、微量成分元素用では試料 2 g と四ホウ酸リチウム 3 g を混ぜ、白金るつぼに移して NP1234 型高周波誘導加熱式ガラスビードマシンを用いガラスビード化した。 $1000\text{ }^\circ\text{C}$ において静止状態 5 分、揺動状態 10 分を 1 セットとし、1 試料につき 2–4 セットで試料が完全に溶けるまで行った。測定は名古屋大学の蛍光 X 線分析装置 (Shimadzu XRF1800) により行った。測定条件は、管球電圧が 40 kV、管球電流が主成分元素分析の際は 70 mA、微量成分元素分析の際は 95 mA であった。詳細については、中崎ほか (2004) に示されている。測定結果については、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ と同様に、Table 1 に示した。

また、試料に含まれる鉱物の同定のため、名古屋大学の X 線回折装置 (RIGAKU Miniflex) を用い、粉末 X 線回折強度の測定も行った。線源は $\text{CuK}\alpha$ を用い、印加電圧は 30 kV、電流値 15 mA、走査速度が $2^\circ/\text{min}$ の条件で測定を行った。

第 5 項 結果

1. 粒径別・地点別の元素濃度変動

まず初めに、河川堆積物の化学組成の特徴について述べる。

豊田市の河川堆積物の各粒径分画と、母岩の主要な元素の濃度を Fig. 2 に示した。 SiO_2 の濃度が、粒径区分が小さくなるごとに単調に減少する一方で、 Al_2O_3 、Cr、Pb 濃度は逆に上昇していた。 TiO_2 、FeO、MnO、MgO、 K_2O 、 P_2O_5 、Rb、Zr 濃度は凹型の元素濃度変動を示し、 $300\text{--}180\text{ }\mu\text{m}$ と $180\text{--}75\text{ }\mu\text{m}$ で最小値を示した。全粒径分画の CaO、 Na_2O 、Sr の変動はよく対応しており、 $300\text{--}180\text{ }\mu\text{m}$ と $180\text{--}75\text{ }\mu\text{m}$ で最大値を示した。凹型の濃度変動を示す K_2O と Rb は $<75\text{ }\mu\text{m}$ 分画を除き、変動の傾向がよく対応していた。Rb は $<75\text{ }\mu\text{m}$ 分画で $180\text{--}75\text{ }\mu\text{m}$ 分画の 2 倍の濃度になっているが、 K_2O は 1.2 倍にとどまった。

母岩の化学組成と河川堆積物を比較した結果、 K_2O 濃度は母岩の値よりも明らかに低い特徴を示した。Rb 濃度は $1000\text{--}500\text{ }\mu\text{m}$ および $<75\text{ }\mu\text{m}$ 分画で母岩の値にほぼ等しく、 $300\text{--}180\text{ }\mu\text{m}$ および $180\text{--}75\text{ }\mu\text{m}$ 分画で母岩の値よりも低い傾向を示した。CaO 濃度については、 $300\text{--}180\text{ }\mu\text{m}$ および $180\text{--}75\text{ }\mu\text{m}$ 分画で河川堆積物と母岩の値が近く、Sr についても同様であった。また、 SiO_2 、 Al_2O_3 濃度は $1000\text{--}500\text{ }\mu\text{m}$ で、 $\text{TiO}_2 \cdot \text{FeO}$ 濃度は $500\text{--}300\text{ }\mu\text{m}$ 及び $180\text{--}75\text{ }\mu\text{m}$

分画で、河川堆積物と母岩の値が最も近かった。興味深い特徴として、試料 U1 と L の <75 μ m 分画の Zr 濃度が、それぞれ 1260 ppm, 2700 ppm もの高濃度を示したことが挙げられる。これらの値は母岩の値 (240 ppm) の 5 から 10 倍にあたる。Zr に加え、P₂O₅ でも <75 μ m 分画で著しい濃度上昇が認められた。これらの結果は細粒部でのジルコンとアパタイトの濃集を示していると考えられる。

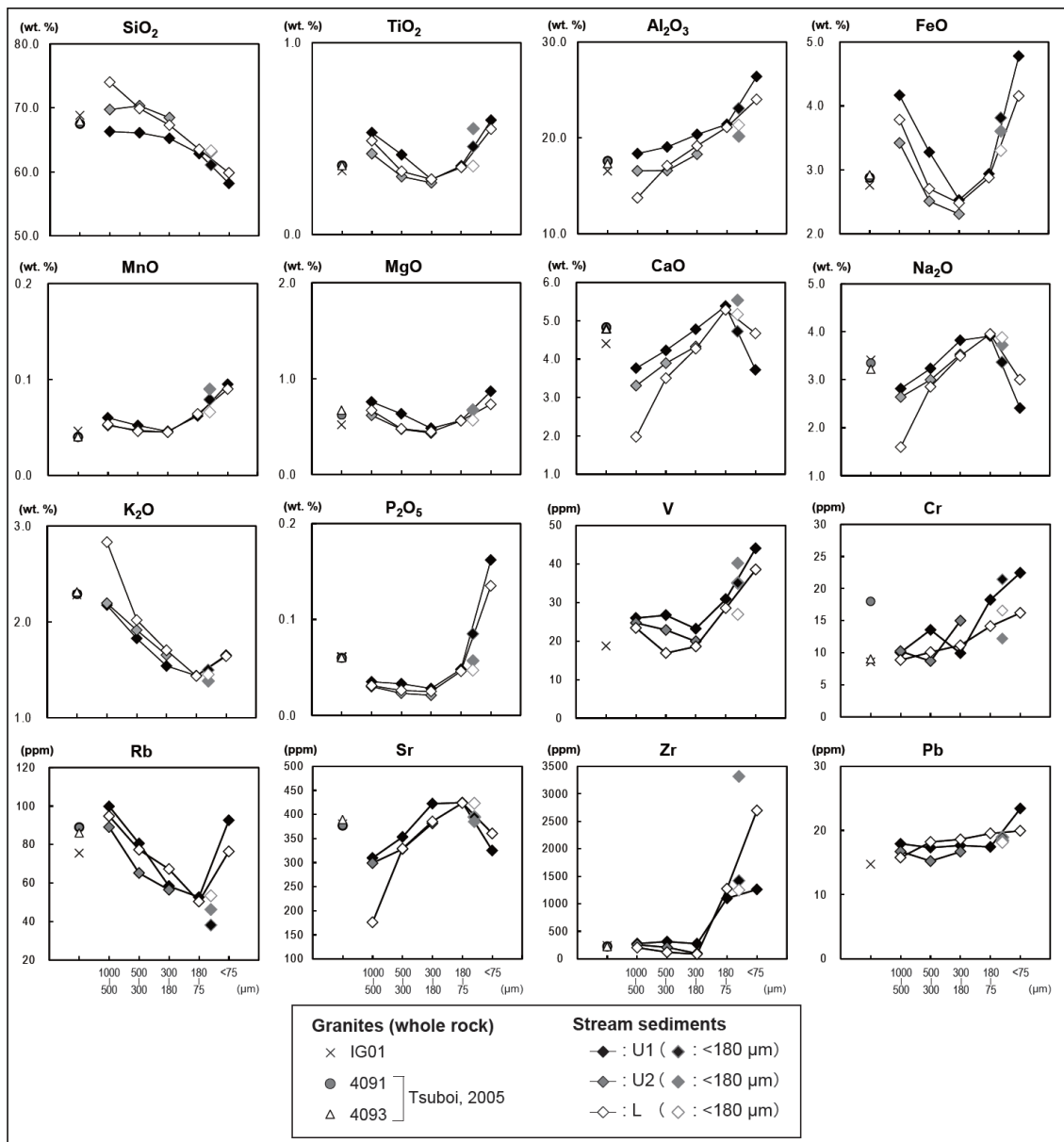


Fig. 2. Elemental concentrations of stream sediments according to grain-size classification, together with data of Inagawa granite samples IG01, 4091, and 4093 (Tsuboi, 2005).

2. 粒径別・地点別の鉱物組成変動

試料 U1 と L について得られた X 線回折パターンを Fig. 3 に示す. $2\theta=26.62^\circ, 27.1^\circ, 28.0^\circ$ でみられる明瞭なピークは, それぞれ石英, カリ長石, 斜長石のものである. 試料 U1 と L 共に, 粒径が小さくなるほどカリ長石と斜長石の cps の比も小さくなっていった. また, $2\theta=10.5^\circ$ に見られるピークは角閃石であり, 試料 U1 の 300–180 μm 分画でのピーク強度は他の 2 つの粒径分画よりも弱かった. 一方で, 試料 L の角閃石のピークは, $<75 \mu\text{m}$ のみで確認できた. $2\theta=6^\circ$ 及び 8° 付近の弱く横幅が広いピークは, 層電荷の高いバーミキュライト優位混層と黒雲母優位混層の底面反射を示す. バーミキュライト優位混層のピークは 300–180 μm 分画で弱まり, $<75 \mu\text{m}$ で増加した. 黒雲母優位混層のピークは 1000–500 μm のみ認められた. $<75 \mu\text{m}$ 分画には $2\theta=6^\circ$ と 12° に関連するピークにより, メタハロイサイト (カオリナイト) の存在が示唆される.

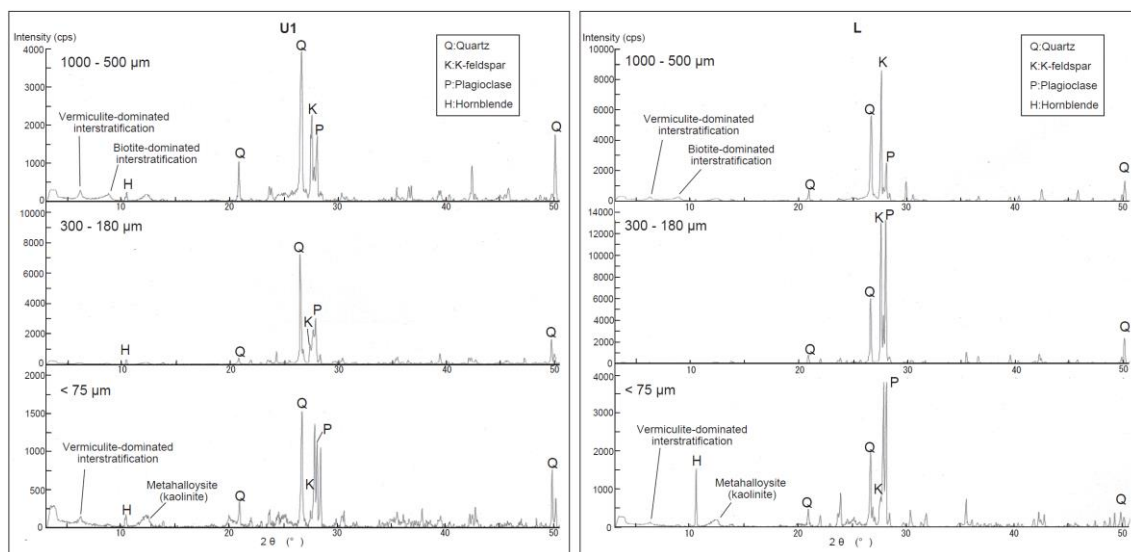


Fig. 3. XRD patterns of stream sediments U1 and L of 1000–500, 300–180, and $<75 \mu\text{m}$ particle-size fractions. Abbreviation Q, K, P, and H indicate quartz, K-feldspar, plagioclase, and hornblende, respectively.

鉱物組成の量的分析をするため、XRF データから河川堆積物と母岩のノルム鉱物比を計算した (Table 1)。試料 U1 は、1000–500 μm から 180–75 μm へ粒径が小さくなるにつれ、ノルム石英が 29.4% から 20.1% に減少、ノルム斜長石が 42.2% から 59.5% に増加、ノルム正長石が 12.8% から 8.5% に減少した。ノルムコランダムは 1000–500 μm から 180–75 μm 分画での変動は小さいが (4.6–3.8%)、<75 μm 分画では 14.3% に急増した。Fig. 4 にはそれぞれの粒径分画について、ノルム比の地点間変動を明らかにするため、試料 U1 で規格化した結果を示した。図から明らかなように、地点間の変動は粗粒部と細粒部で明白である。1000–500 μm および 500–180 μm 分画ではノルム石英と長石類の変動が大きく、<180 μm 分画では黒雲母 (バーミキュライト) と関連するノルムコランダムの変動が大きい。地点間の変動は 300–180 μm および 180–75 μm 分画で最小になっている。母岩のノルム鉱物比は石英が 28.2%、正長石が 13.5%、斜長石が 50.2%、紫蘇輝石が 5.9% であり (Table 1)、モード比は石英が 30–31%、カリ長石 (マイクロクリン) が 14–15%、斜長石が 44–45%、黒雲母が 6–7% と角閃石が 4% と見積もられる。

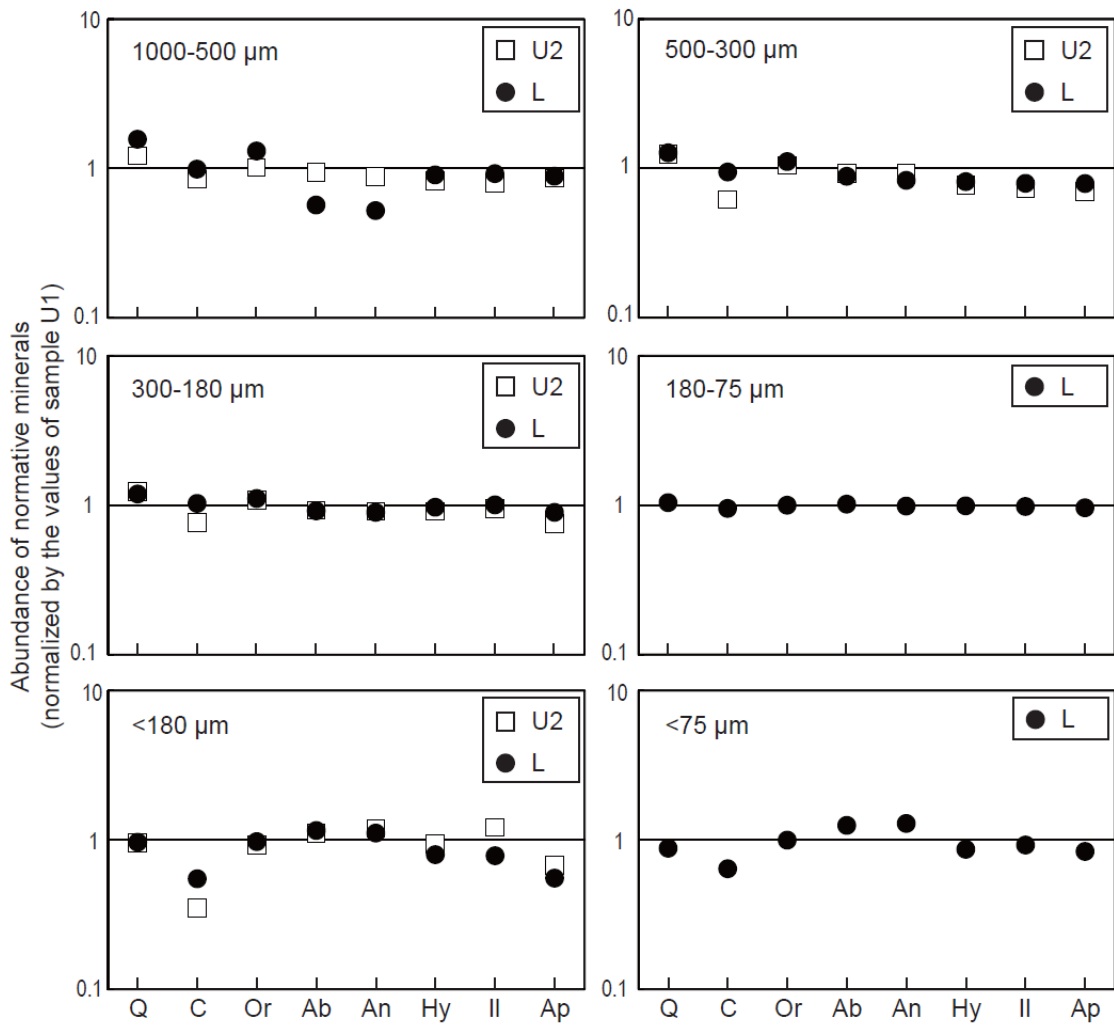


Fig. 4. Abundance of normative minerals of sample U2 and L normalized by the values of sample U1. Q: quartz, C: corundum, Or: orthoclase, Ab: albite, An: anorthite, Hy: hypersthene, Il: ilmenite, Ap: apatite.

3. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の粒径別・地点間変動

最後に、河川堆積物及び母岩について得られた $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値の特徴について述べる。

河川堆積物に対して得られた $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値の範囲は 0.7099–0.7105 であった。粒径別にみると、3 試料 U1, U2, L の 500–300, 300–180, 180–75 μm 分画はいずれも約 0.7100 の非常に近い値を示し 1000–500 μm および <75 μm 分画は、500–75 μm 分画よりも高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を示した (Fig. 5)。粒径別変動は凹型を示し、180–75 μm 分画で最小値となっていた。一方、地点間のばらつきを見てみると、1000–500 μm および <75 μm 分画ではばらつきが大きい、それ以外の分画では 3 試料とも非常に近い値が得られ、ばらつきは小さかった。以上の結果から、地点間の不均質性が最も小さくなるのは 500–75 μm および <180 μm 分画であることが判明した。

Fig. 5 には、比較対象として採取した母岩 IG01 と、R0905 (Asahara *et al.*, 2006) と 4091 (Tsuboi, 2005) の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ も示した。同じ岩体から採取したこれらの 3 つの母岩の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は 0.7101–0.7103 の範囲であるのに対し、河川堆積物で地点間の不均質性が最も小さい 500–75 μm および <180 μm 分画よりも有意に大きい。また、ほとんどの粒径の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は本研究で採取した母岩の値 0.7102 よりも最大で 0.0003 低い値を示した。

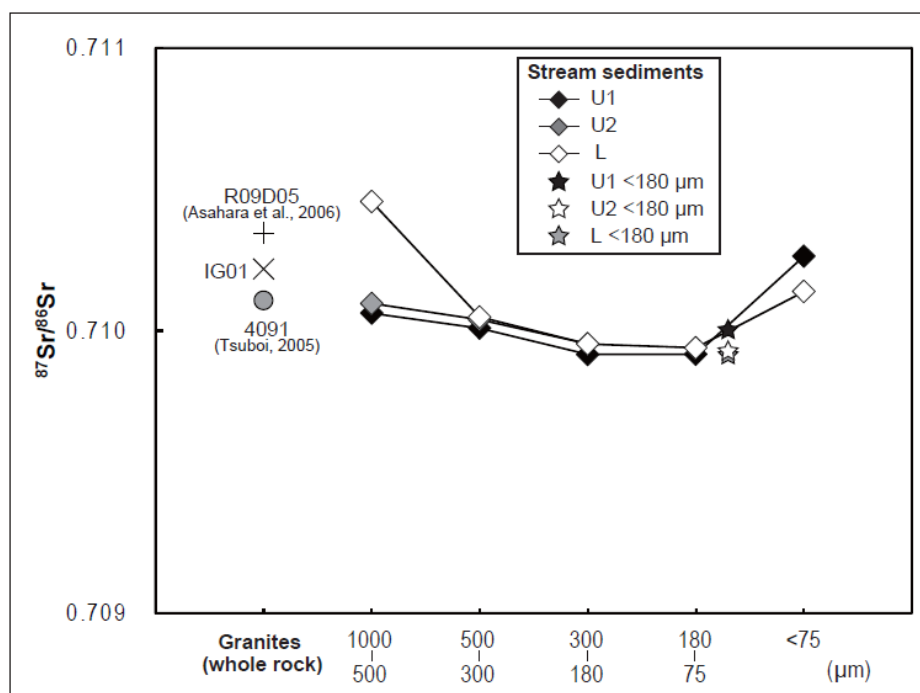


Fig. 5. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values of stream sediments according to grain size classification, together with whole rock data of Inagawa granite samples IG01, 4091 (Tsuboi, 2005), and R09D05 (Asahara *et al.*, 2006).

第6項 考察

1. 粒径別元素濃度変動の支配要因

河川堆積物は、流域の岩石鉱物が風化を受けて細かい碎屑物となったものが主であり、母岩を構成する鉱物は各粒径分画にある程度の割合で存在しているが、その割合は必ずしもすべての粒径分画で一定ではない。例えば、Yagishita *et al.* (2000) は阿武隈帯を流れる高瀬川と北部北上山地を流れる閉伊川の河川砂堆積物について、粒径ごとの各鉱物のモード比が異なることを報告している。このような粒径別の濃度変化は、母岩が一種類であっても生じるものであり、鉱物ごとの風化に対する耐性の差が影響していると考えられる。石英は鉱物の中で最も風化に対する耐性が高いとされており (Goldich, 1938)、流域内の風化残留物と同様に、表層土壌でも残りやすいと考えられる。また、カリ長石も風化に対する耐性が高い、一方で、石英やカリ長石と異なり、斜長石は風化残留物中で多大な溶出をする (鈴木ほか, 1993)。河川堆積物の粒径が小さくなる程 SiO_2 濃度が小さくなるのは、主に石英の減少に起因すると考えられる。また、細粒分画での Na_2O 、 CaO 、 Sr 濃度の増加と K_2O と Rb 濃度の減少は斜長石とカリ長石の割合の変動に連動していると考えられる。実際に、粒径が小さくなるほど、ノルム斜長石 ($\text{Ab}+\text{An}$) 量は増加し、ノルムカリ長石 (Or) 量は減少している。

元素濃度の違いは、試料採取地点による河川堆積物の不均一性も反映している。試料 L の最粗粒分画 (1000–500 μm) の Na_2O 、 CaO 、 Sr 濃度は、試料 U1 と U2 の値よりも低い一方で、 K_2O 濃度と Rb 濃度は試料 U1 と U2 の値よりも高い。粉末 X 線回折データとノルム鉱物比は、試料 L の最粗粒分画 (1000–500 μm) には、試料 U1 よりも多くカリ長石と角閃石が含まれることを示している。この結果から、石英、カリ長石、斜長石の異なる粒径分布は、比重による蓄積と篩い分けによる効果を反映したものと考えられる。試料 L は、地点 U と比較し水の運搬力が弱まる箇所では採取されたため、粗粒分画と細粒分画において鉱物組成の差が現れたと考えられる。一方で、中粒分画である 300–75 μm では 3 試料 (U1, U2, L) 間のノルム鉱物組成は非常によく似ている。

異なる河床環境で採取された河川堆積物中の重鉱物比の変動は、主要鉱物よりも著しい。試料 L の <75 μm の Zr 濃度 (2700 ppm) は試料 U1 の濃度 (1260 ppm) の 2 倍以上であり、<180 μm の試料 U2 でも著しく高い値が得られている。本研究域では Zr 濃度の変動はジルコン含有量の変動に対応しているとみなせる。 Zr 濃度のばらつき (Fig. 2) は、細粒分画の重鉱物量が、河床環境により大きく異なることを示している。異なる河床環境は、堆積物粒子の中でも特に重鉱物粒子の動きと堆積に作用する。強い水流の箇所では採取された試料 U2 の <180 μm 分画の Zr 濃度は、流れが緩やかな箇所では採取された試料 U2 の 2 倍以上であ

ることは、早い流れの領域では、軽い鉱物よりも重い鉱物が堆積しやすいため、結果として細粒分画での河川堆積物の鉱物比の不均一性に繋がったと考えられる。

これまでの結果をまとめると、鉱物組成、元素濃度、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の地点間の変動は、300–180 μm および 180–75 μm で最小であり、かつこれらの二つの分画の元素濃度は、母岩の値に非常に近い。つまり、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ と元素濃度の地球化学図作成の試料として最も適しているのは 300–75 μm 分画である。

2. 各粒径分画の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ および $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$

次に、河川堆積物中の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が母岩の値よりも低く、 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ が母岩の値よりも高くなる原因について考察する。

矢作川の河川堆積物の $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の関係を Fig. 6 に示した。河川堆積物は、伊奈川花崗岩の鉱物アイソクロン (Tsuboi, 2005) よりも $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ が高く $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が低い範囲にプロットされている。1000 μm から 180 μm へと細粒になるに伴い $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ 、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ともに減少する一方、<75 μm の粒径分画においては、 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ 、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ともに増加している。

花崗岩は深成岩であるため、一般的に粗粒鉱物（数 mm 程度）からなっており、大きいものでは 1 cm を超える場合もある。それらが物理的風化を受けた場合、粗粒碎屑粒子から細粒に変化するまでには、鉱物径の小さい火山岩などと比較してより時間を要すると予想される。また、例えば河川水系では、粗粒碎屑粒子は流れのゆるやかな箇所では動きにくいいため、細粒碎屑粒子に比べて同じ場所にとどまる時間が長いであろう。よって河川堆積物の粗粒碎屑粒子は、細粒粒子よりも長時間化学的風化を受けている可能性が高いと考えられる。鉱物が化学的風化を受け続けると、各元素の溶出速度が異なるため、鉱物の元素濃度は変化していく。西村 (1987) によれば、花崗岩の斜長石は風化に伴って各元素が溶出していく際、各元素により溶出速度に違いが見られ、例えば、Na と Ca は風化後期の段階で急に相対的に減少し、Fe と K は相対的に増加することが報告されている。この結果から、斜長石に限らず、すべての鉱物について、Ca に化学的挙動が似ている Sr がより溶出しやすく、K に似る Rb は溶出しにくいことが予想され、風化をよく受けた河川堆積物ほど母岩と比較し Rb/Sr が高くなり、母岩のアイソクロンから離れてプロットされると考えられる。以上のことは Fig. 6 のすべての河川堆積物が伊奈川花崗閃緑岩のアイソクロンの下側にプロットされることと調和的である。Fullagar and Ragland (1975) は、風化した深成岩 (アダメロ岩) が、風化を受けていない母岩の Rb-Sr アイソクロンの下側、加えて全岩の右上の箇所にプロットされる例を報告している。すなわち風化によって生成物の $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が、母岩よりも高くなるということであり、その要因については、黒雲母に含まれ

る ^{87}Sr が選択的に溶出したことと、斜長石の風化による総 Sr の溶出を挙げている。また、柚原ほか (2004) でも、白亜紀花崗岩の風化に伴い、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の減少が見られることが示されており、この要因については斜長石の不均質な溶解と黒雲母の溶解による ^{87}Sr の放出などが挙げられている。本研究においても、特に地点 L の河川堆積物試料の 1000–500 μm 分画のプロットは母岩よりも右上にプロットされることから、Sr の選択的溶出に加え、黒雲母からの ^{87}Sr の溶出も要因となっている可能性もある。また、粗粒分画ほどアイソクロンから離れる傾向が見られるが、粗粒分画では細粒分画と比較し、より長期間風化を受けた比較的古い碎屑物が多いことを反映していると考えられる。

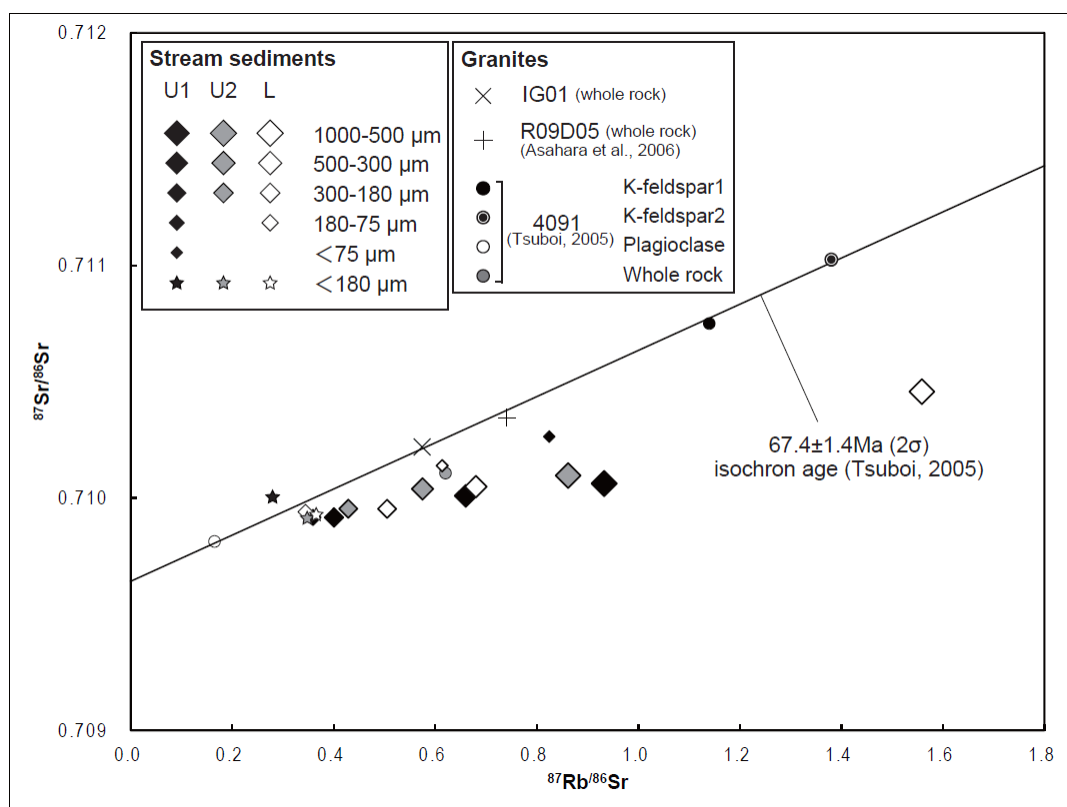


Fig. 6. Plots of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ versus $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ for stream sediments and Inagawa granite samples IG01, 4091 (Tsuboi, 2005), and R09D05 (Asahara *et al.*, 2006). The mineral isochron of $67.4 \pm 1.4 \text{ Ma}$ (2σ) is from Tsuboi (2005).

3. 180 μm 以下の河川堆積物を用いた $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ・元素濃度の地表面分布

豊田市の<180 μm 分画の河川堆積物を用いた主成分元素濃度の地球化学図は、すでに山本ほか (1998) によって作成され、そのデータについては Minami *et al.* (2005) によってまとめられている。Fig. 7a, b には、前述の地球化学図で用いられた試料のうち、本研究地域内で採取された試料の CaO と K₂O の濃度を、本研究のデータの分布図とともに示した。また、Asahara *et al.* (2006) により、地球化学図の一部の試料について、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が測定されているため、そのデータも含め、本研究の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ データ分布を Fig. 7c に示した。

本研究域の母岩は主に伊奈川花崗閃緑岩の III 型 (Nakai, 1976) であることから、河川堆積物の化学組成は場所によらず均質であるはずである。しかし、Fig. 7a, b で示される通り、CaO 濃度は東側の上流部が 5.5% であるのに対し、西側の下流部ほど減少し、2.0% になっている。一方、K₂O 濃度は逆の傾向であり、東側の上流部で 1.4% であるのに対し、西側の下流部では 2.8% である (山本ほか, 1998)。これらの結果から、山本ほか (1998) は III 型花崗閃緑岩から、西側の河川堆積物では、東側よりも斜長石に乏しく、カリ長石と黒雲母に富む可能性を指摘した。これは第 6 項-1. で述べたとおり、河床環境が異なれば、流域内の母岩が同じであっても河川堆積物中の鉱物組成と元素濃度は、試料採取地点により異なることを示している。

次に、河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ と鉱物組成の関係が、Asahara *et al.* (2006) で報告された河川堆積物試料でも成り立つかを検討する。Fig. 8 に、U1, U2, L 各地点及び 09C18, 09D20, 09D23, 09D24, 09D25, 09D26, 09E03, 09F13, 15B08 の<180 μm 河川堆積物 (Asahara *et al.*, 2006)、ならびに 2 つの母岩 4091 (Tsuboi, 2005) と IG01 について、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ とノルム $\text{Or}/(\text{Or}+\text{Ab}+\text{An})$ の関係を示した。ほとんどの<180 μm 河川堆積物はおおよそ 4091 の斜長石とカリ長石の混合直線上、かつ斜長石に近い領域にプロットされている。このことは、河川堆積物中の 0.70984 から 0.71005 という値は、基本的に斜長石の含有量によって決められており、各試料の値の変動は、斜長石と 10–20% 程度のカリ長石の混合比の違いが要因であることを示している。これはカリ長石・斜長石の Sr 含有量が他の鉱物と比較し著しく高いことと調和的である。母岩 IG01 は、河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ よりも高い値を示し、混合直線より上の領域にプロットされた。この理由としては、母岩に含まれる鉱物の中でも高 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を示す黒雲母が、<180 μm 河川堆積物よりも多く含まれるためと考えられる。

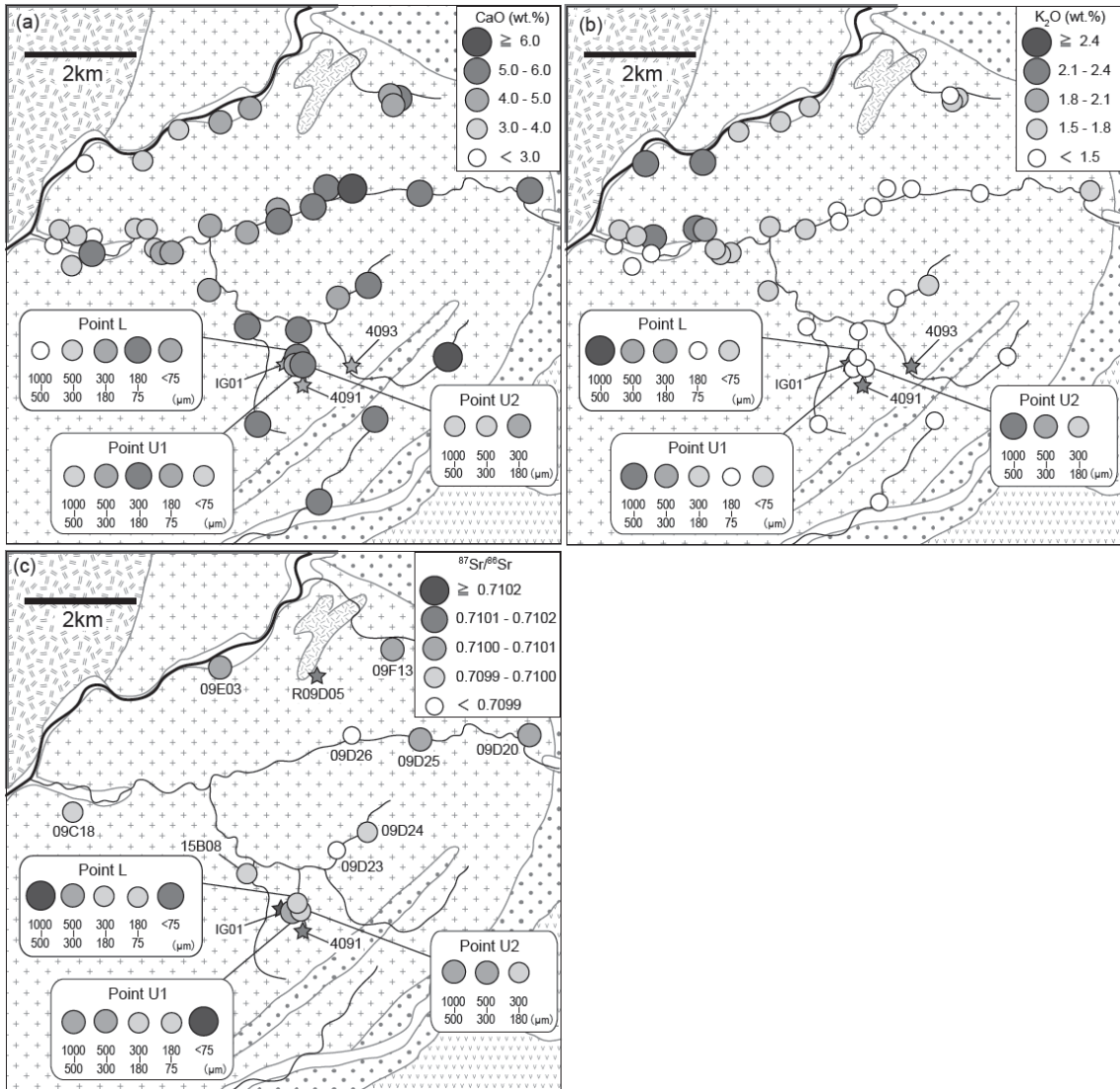


Fig. 7. Spatial distributions of a) CaO concentration, b) K₂O concentration, and c) ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr values in stream sediments. The stars present the values of Inagawa granite samples.

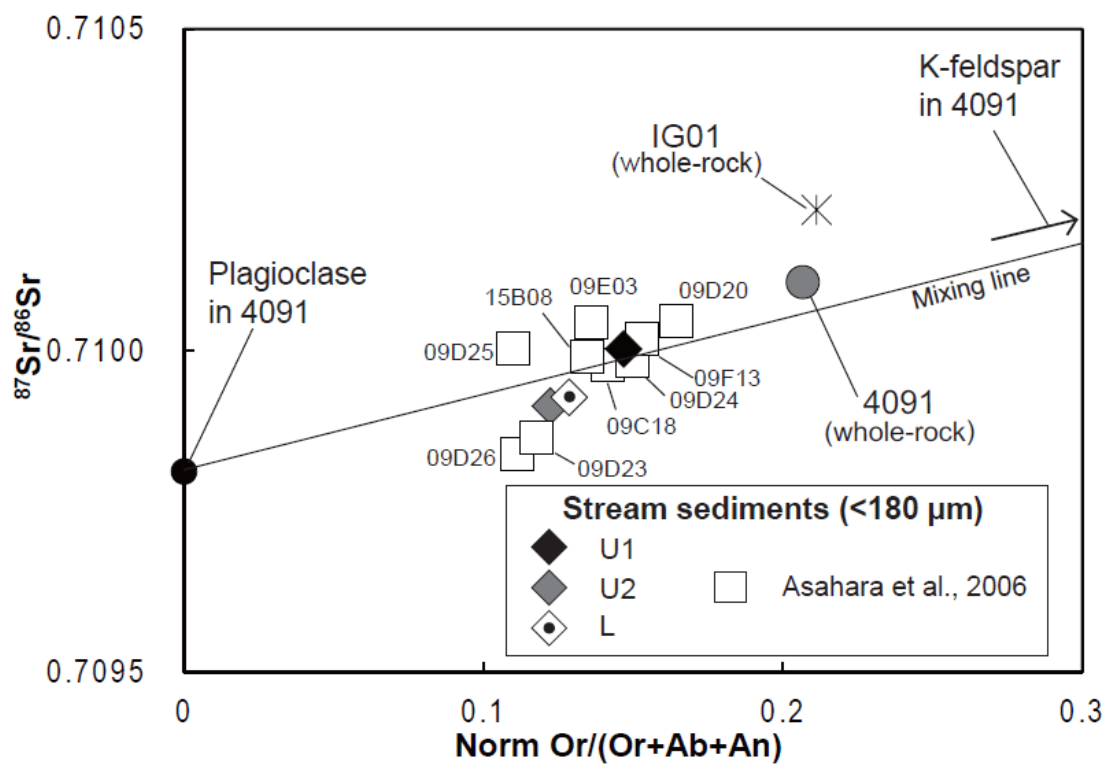


Fig. 8. Norm Or/(Or+Ab+An) and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values of <180 μm stream sediments and Inagawa granite bedrocks. The value of sample 4091 is from Tsuboi (2005). Norm Or/(Or+Ab+An) of open squares is calculated using the data from Yamamoto *et al.* (1998) and Minami *et al.* (2005). $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values of open squares are from Asahara *et al.* (2006).

第2節 愛媛県松山市を流れる重信川流域（花崗岩・堆積岩・安山岩地域）

第1項 はじめに

第1節では花崗岩のみが分布する地域で採取された河川堆積物の粒径別化学組成について検証したが、複雑な地質が分布する日本においては、特定の岩体のみが分布する流域を持つ河川はまれであるため、花崗岩以外の母岩を流域に含む河川堆積物についての考察も必要である。しかし、複数の種類の母岩からの碎屑物が混合された河川堆積物の化学組成について研究された例は限られている。そこで、花崗岩・安山岩・堆積岩など日本においてよくみられる地質が分布する、愛媛県松山市中心部を流れる重信川流域を研究域とし、河川堆積物の分析を行った。松山市の中心を流れる重信川水系は、上流から下流にかけて地質が変遷しているため、複数の地質が関わることで、河川堆積物の粒径の変化が元素濃度や $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値にどのように影響するか、という点について重要な知見が得られることが期待された。以下、重信川水系において河川堆積物を粒径別に採取し、元素濃度と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の分析を行った結果について報告する。

第2項 重信川水系周辺の地質

愛媛県松山市周辺には多様な地質が分布しており、重信川水系（延長約36 km）は複数の岩体を横切って流れている（Fig. 9）。重信川水系の最も北側には、領家変成帯の前-後期白亜紀花崗岩と後期白亜紀変成岩（泥質片麻岩）が、領家変成帯の南側には後期白亜紀海成堆積岩である和泉層群が分布している。そして和泉層群の南側には、三波川変成帯と、それを不整合に覆う下位の始新世堆積岩類の久万層群（Nagai, 1957）、主に中-後期中新世安山岩質火砕流堆積物からなる上位の石鎚層群（永井, 1956）が分布する。また、久万層群は主に和泉層群からの砂岩礫からなる（甲藤・平, 1979; 木原, 1985）。重信川水系の南側では新第三紀の安山岩や酸性火山岩（デイサイト、流紋岩）が貫入している箇所が存在し、砥部川上流の万年地域には原岩の斜方輝石安山岩が変成した万年変質安山岩が分布している（千葉ほか, 2005）。

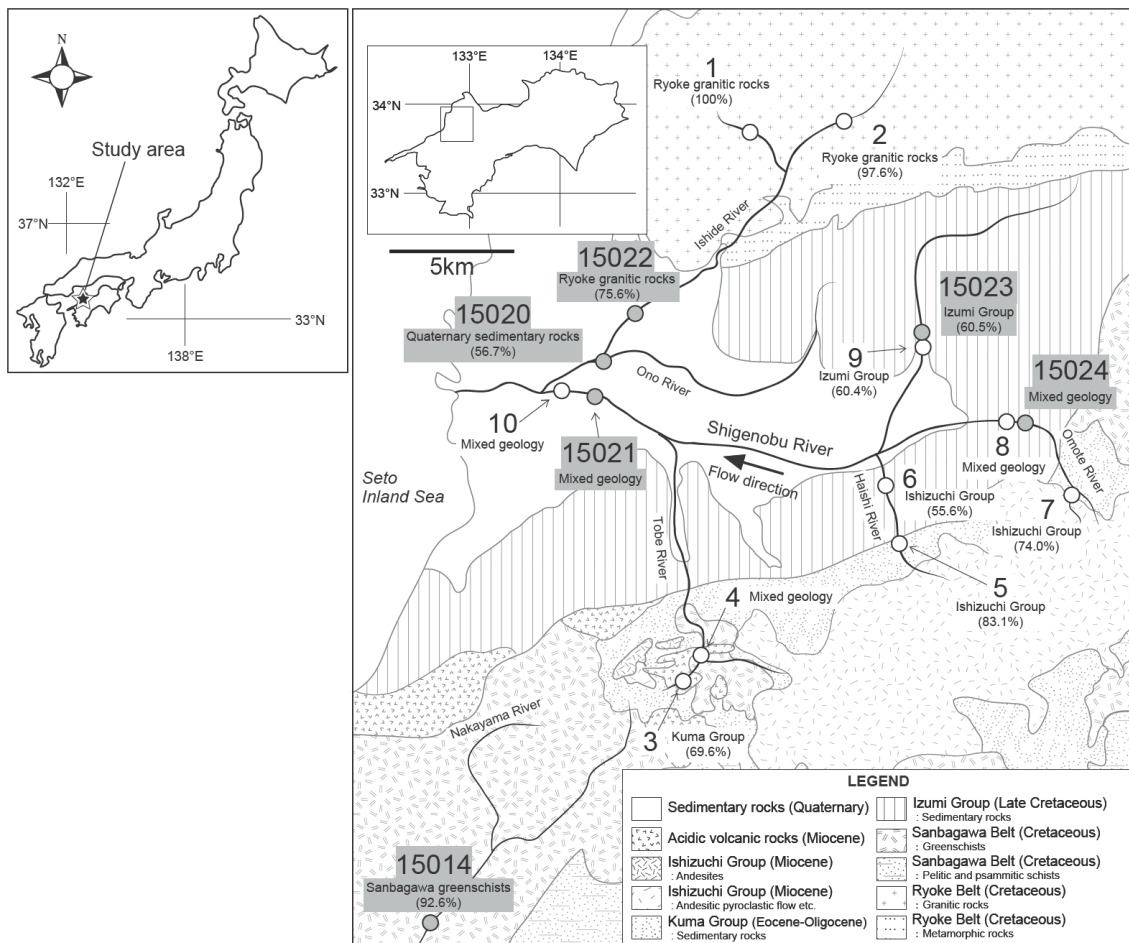


Fig. 9. Sampling points in the Shigenobu River system and the surrounding geology. The geology that accounts for the most significant ratio in the upstream region and its ratio are shown side by side in the sampling point. The map is modified from 1: 200,000 geological map (Geological Survey of Japan, AIST, 2012), Geology of Japan, 1991, and Takahashi, 1986.

第3項 流域解析

河川堆積物に最も強い影響を及ぼす母岩にもとづき考察をするため、試料採取地点の集水域の地表面において各種母岩がどれほどの割合を占めるかを、Geographic Information system (Arc View 10.2; ESRI 社) を用いて求めた。方法の詳細については Ohta *et al.* (2004a) に記載されている。これにより求められた地表面での面積割合が 50%以上を占める母岩が存在する場合、その母岩を集水域の代表地質とした。各地点の代表地質と各地質の割合については Table 2 にまとめている。地点 1, 2 は領家帯花崗岩、地点 9 は和泉層群砂岩、地点 5, 6, 7 は石鎚層群安山岩質火山岩が代表地質である。どの母岩も流域の 50%以上を占めない地点 (3, 4, 8, 10) は、代表地質はないものとしている。

第4項 試料と実験

多様な地質が分布する地域を流れる重信川水系の 10 地点において河川堆積物試料を採取し、1000–500, 500–300, 300–180, 180–125, 125–75, <75 μm の 6 つの分画に篩い分けた。ほとんどの試料で、1000–500 μm 分画の重量比が最も大きく、<1000 μm 全体の河川堆積物のうち、約 40–60%程度を占める。粒径が小さくなる程、一般的には重量比は減少し、500–300 μm では約 20–30%, 300–180 μm では約 10–20%, 180–125 μm では約 3–5%, 125–75 μm では約 2–3%, <75 μm では約 1–3%であった。試料量が十分であった試料 2, 3, 4, 5, 6, 7, 9, 10 では XRF による元素濃度分析と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分析を、試料 1 と 8 では $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分析のみ行った。実験方法は第 1 章第 1 節第 4 項と同様である。

第5項 結果と考察

1. 粒径別元素濃度変動

代表地質が花崗岩、安山岩、堆積岩の地点の試料、ならびに集水域に占める面積割合が 50%を超える母岩が存在しない地点の試料で凡例を変え、粒径変化に伴う元素濃度の変化を示した (Fig. 10) (各試料の詳細な主成分・微量成分元素濃度については Table 3 を参照)。

結果として、 SiO_2 は地質に関わらず、粒径が細くなるに伴い濃度の減少が認められた。また、 K_2O , Na_2O についても流域地質に関わらず、ほとんどの地点で細粒化に伴い濃度減少が見られた。 Si , Na , K は主要鉱物である長石類に含まれる元素であり、特に風化を受けにくいカリ長石類が粗粒部に比較的集中していることを示唆するものである。一方で Al_2O_3 , CaO , P_2O_5 , Cr は地質を問わず細粒化に伴い濃度の上昇が見られた。また Ba , Rb , Sr も僅かに上昇しているが、比較的変動が少ないことが明らかになった。

全体の傾向として、代表地質の違いによって、粒径分画毎の元素濃度の変化の様相に違

いが見られた。安山岩流域の河川堆積物は、 TiO_2 、 Fe_2O_3 、 MgO 、 V の濃度が、細粒分画よりも粒径 300–125 μm の中粒分画で濃度が最も高くなり、125 μm よりも細粒分画では低くなる特徴が見られた。河川堆積物は、流域の岩石鉱物が風化を受けて細かい碎屑物となったものが主であり、母岩を構成する鉱物は基本的に各粒径分画にある程度の割合で存在しているが、その割合は必ずしもすべての粒径分画で一定ではない。寺島ほか (2008) は、河川堆積物の粒度と元素濃度の関係について検討し、 Ti 、 Fe 、 Mg 、 V については、粒径 37 μm 以下の細粒分画よりも粒径 175–37 μm という中粒分画で最高濃度を示す結果を報告している。この原因として、苦鉄質鉱物 (かんらん石・角閃石・磁鉄鉱・チタン鉄鉱など) が粒径 175–37 μm の碎屑物になりやすい可能性が指摘されている。本研究においても、安山岩を代表地質とする 3 地点の試料 5, 6, 7 で同様の傾向が見られることと、安山岩の主要構成鉱物である苦鉄質鉱物に多量に含まれる元素 (TiO_2 、 Fe_2O_3 、 MgO 、 V) が中粒分画で濃度が高いことから、中粒分画により多くの苦鉄質鉱物が集中していることが示唆される。

花崗岩流域の地点 2 においては、豊田市矢作川上流の試料と同様、細粒分画になるにつれて Zr 濃度の顕著な増加が認められた。<125 μm 分画の Zr 濃度は 1000–180 μm 粒径分画中の値に対して、約 10 倍にも達している。細粒分画における Zr 濃度の顕著な増大は、花崗岩に多く含まれる重鉱物であるジルコンの影響と考えられる。これは、石英や長石類が粒径を通して普遍的に含まれるのに対し、ジルコンや角閃石などの比重の大きい鉱物は細粒分画に濃集していることを示す。そこで、地点 2 に近く、地点 2 と同じ花崗岩の流域代表地質をもつ地点 1 の試料を用いて粉末 X 線回折分析を行い、各粒径分画の構成鉱物の確認を行った。その結果、ジルコンのピークは 1000–500, 300–180 μm 分画においては認められず、<75 μm の細粒分画でのみ確認できた (Fig. 11)。また、同様に角閃石のピークも <75 μm 分画でのみ確認できた。これは、石英や長石類が粒径を通して普遍的に含まれるのに対し、ジルコンや角閃石などの比重の大きい鉱物は細粒分画に濃集していることを示す。

堆積岩を流域地質とする地点 3, 9 の粒径に伴う元素濃度変化は、花崗岩や安山岩の流域の河川堆積物で見られる変化と同程度の大きさか、あるいは小さい結果となった。しかし、地点 3 の河川堆積物 Fe_2O_3 、 MnO のみ、<180 μm の粒径分画で濃度が増大している。この地点 3 の粒径に伴う濃度変化に関しては、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を含めて議論する。

以上のように、粒径により濃集しやすい鉱物が異なっていることが、粒径別元素濃度の変動の要因と考えられる。しかし、粒径別の濃度変化以上に、流域の 50%以上を花崗岩が占める地点では Zr が、安山岩地域の地点では TiO_2 、 Fe_2O_3 、 MgO 、 CaO 、 Sr 、 V の濃度が他の地点と比較して高く、堆積岩地域の地点では SiO_2 、 K_2O 、 Rb の濃度が高いという特徴を示し、粒径による濃度変動幅よりも、母岩の違いによる濃度差のほうが大きい。つまり、

河川堆積物を構成する砕屑物の供給源となる母岩の鉱物組成・化学組成の違いが、どの粒径の分画を用いても元素濃度の分布に反映されていると言える。特に、河川堆積物の粒径に伴う Sr 濃度変動は、他の元素と比較しても小さく、一般的に地球化学図の試料として用いられている河川堆積物の<180 μm の粒径分画であれば、流域地質の違いを反映すると言える。

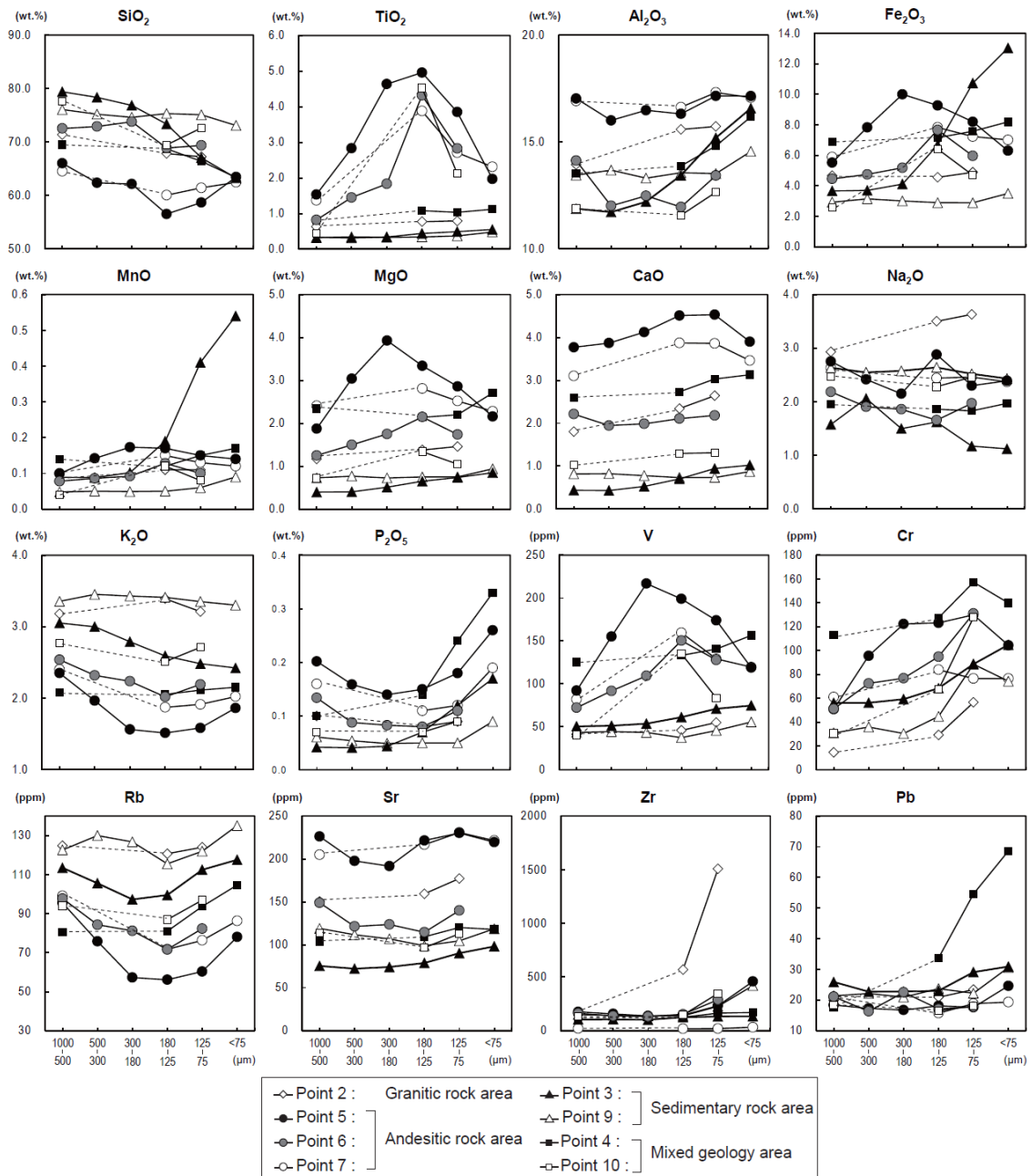


Fig. 10. Major and trace elemental concentrations of stream sediment in Shigenobu River system according to grain size.

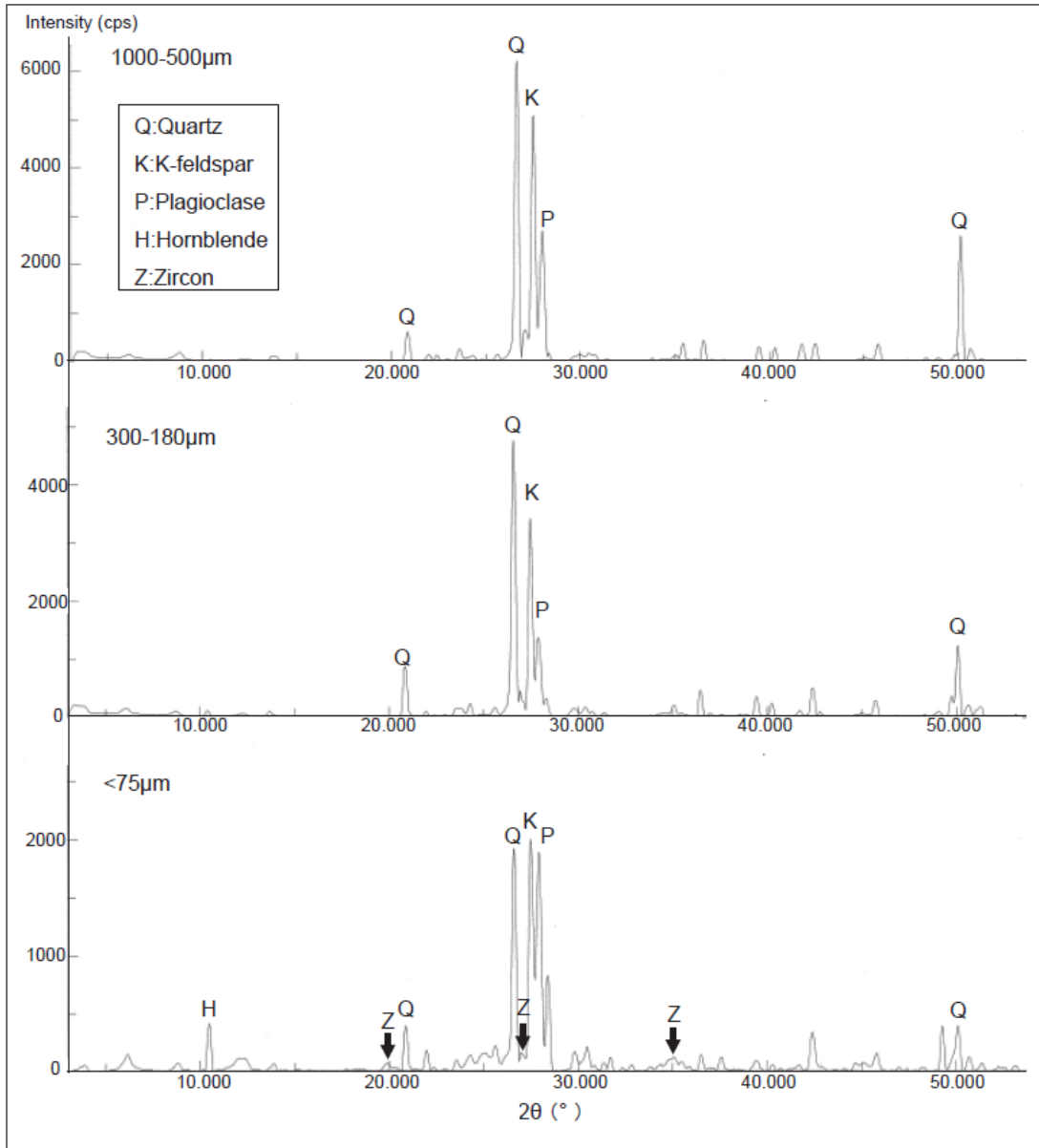


Fig. 11. XRD patterns of 1000–500, 300–180, and <75 μ m fractions at Point 1 (major geology: granite).

2. 粒径別 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 変動

重信川水系の河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を粒径分画毎に Fig. 12 に示す (Table 4 に詳細データを記載). 河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は, 流域の代表地質 (集水域に占める面積割合が 50%以上) の違いによって示す $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が異なり, また, 粒径に伴う $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の変化の様子が異なる結果となった. 和泉層群の堆積岩域 (地点 9) では, 最も $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が高く (0.7021–0.7126), 細粒になると $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が低くなる傾向を示した. 領家変成帯の花崗岩域 (地点 1, 2) では, 堆積岩域に次いで $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が高く (0.7102–0.7108), 細粒になると $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が低くなる傾向を示した. 一方, 石鎚層群の安山岩質火山堆積物地域 (地点 5, 7) では, 最も $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が低く (0.7074–0.7083), 細粒になると $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が高くなる傾向を示した. 同じ安山岩域であっても, 地点 6 は地点 5, 7 よりも $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が高く (0.7087–0.7091), また, 細粒になると $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が低くなる傾向を示したが, これは, 地点 6 の流域の安山岩の割合が 56% (堆積岩 25% : 久万層群 25%, 和泉層群 19%) と, 地点 5 (安山岩 83%, 久万層群堆積岩 17%), 地点 7 (安山岩 74%, 久万層群堆積岩 26%) より低く, 堆積岩起源の Sr の寄与が大きいためと考えられる. 最も下流に位置する重信川本流の地点 10 では, 本研究の河川堆積物が示す $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 範囲の中間の値が得られ, この水系の平均値を示していると考えられる. いずれの地質を代表地質とする河川堆積物の場合も, 地点 3 を除き, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の変動幅は 0.001 以内であり, 代表地質別の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の違いに比べて小さいことがわかる. それに対して, 集水域に占める面積割合が 50%以上を占める代表地質がなく, 流域に複数の地質が分布している河川堆積物においては, 粒径による $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の変動幅が比較的大きい傾向が見られるが, それでも 0.001 程度であり (例えば, 地点 4 : 0.7074–0.7085, 地点 8 : 0.7081–0.7094), 本研究域において, 流域地質による $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の違いを議論する上では, 1000 μm 以下の 6 粒径分画いずれの粒径分画を用いてもそれほど大差はないと考えられる. しかし一方で, 地点 3 のように, 細粒化に従い, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が 0.003 も減少する場合もある. 地点 3 は上流域には久万層群堆積岩, 採取地点付近には安山岩が分布し (久万層群堆積岩 70%, 安山岩 30%), 粗粒分画が堆積岩に近い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ (0.7118), 細粒分画が安山岩に近い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ (0.7089) を示している. つまり, 粒径分画によって, 碎屑物の起源が異なっていると推定される.

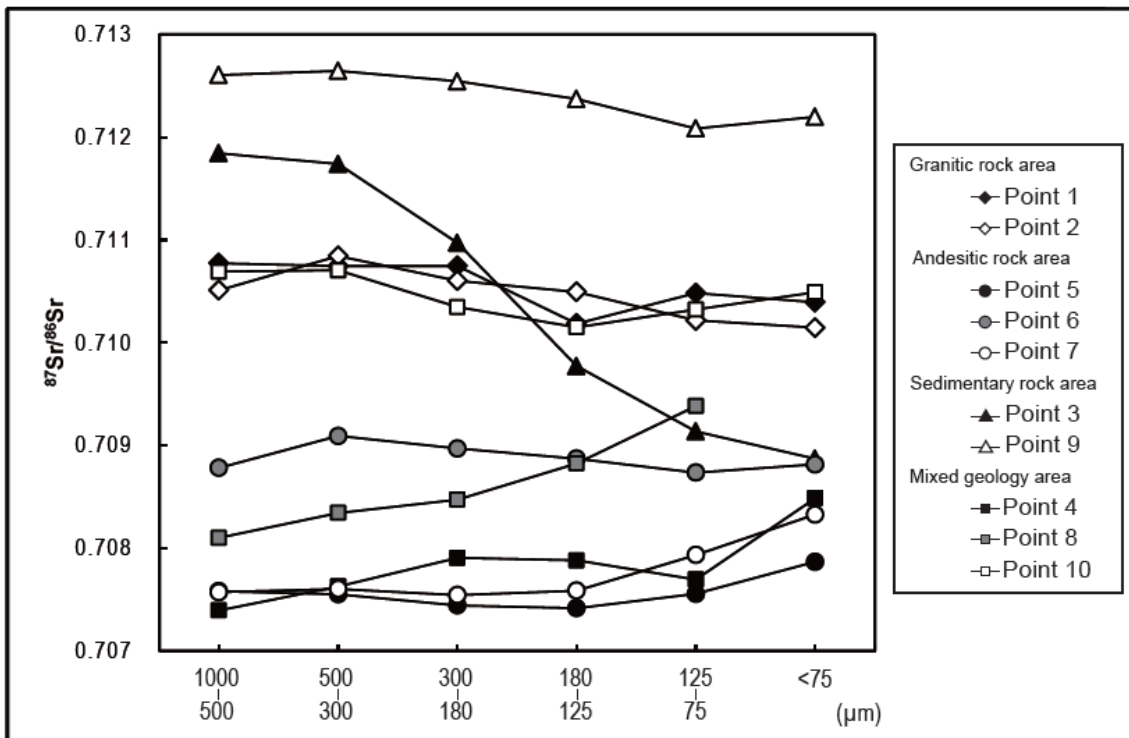


Fig. 12. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values of stream sediment according to particle size. The finest particle-size fraction at Point 8 is <125 μm .

3. 全国地球化学図の試料と本研究試料の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の比較

本研究域内には、産総研が地球化学図のために試料を採取した 5 地点が含まれており、その <180 μm 河川堆積物試料 (15020, 15021, 15022, 15023, 15024) については $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が測定済みである (Jomori *et al.*, 2013). Fig. 13 に、本研究で測定した試料と産総研試料の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布を示した. 本研究では、産総研試料 15023 とほぼ同じ地点 (地点 9) において試料を採取していることから、まずはじめに時間を経て再び採取した河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ がどの程度保持されているのかを検討を行った.

産総研の試料は 180 μm 以下であるため、地点 9 の粒径分画を合わせるために、180–125, 125–75, <75 μm の各粒径分画の重量比 (それぞれ 43.9%, 28.3%, 27.8%) をそれぞれの $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ にかけて計算すると、

$$0.7124 \times 0.439 + 0.7121 \times 0.283 + 0.7122 \times 0.278 = 0.7122$$

となり、これが地点 9 の粒径 180 μm 以下の値と仮定することができる. それに対して産総研試料 15023 の同位体比は 0.7125 (Jomori *et al.*, 2013) であるため、その差が 0.0003 と、地点 9 試料の 180–125, 125–75, <75 μm の粒径分画における変動幅と同程度であった. これにより、産総研の試料採取時から少なくとも 10 数年経過しているが、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ にはほとんど差が生じず、河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は時間を経て採取されても変動は小さいことが明らかとなった.

次に、四国北西部にも重信川水系と同様の地質帯が分布していることから、この地域で採取された河川堆積物試料の既報値と比較を行った. 四国北西部における河川堆積物試料は、花崗岩が流域の 50% 以上を占める地点では 0.708–0.711, 和泉層群が流域の 50% 以上を占める地点では 0.709–0.713 という値が得られている (Jomori *et al.*, 2013). それに対して、本研究における試料は、花崗岩が流域の 50% 以上を占める試料 (地点 1, 2) では、180 μm 以下の河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は 0.710–0.711, 和泉層群地域の試料 (地点 9) では 0.712–0.713 が得られており、50% 以上を同じ地質が占めている場合には同じ範囲の値を示している. また、同じく試料 15021 と 15024 においても、本研究における直近の地点 10, 8 試料の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ と比較してほとんど同じ値と言える (Fig. 13). 同一岩体由来の河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値は、地域が遠く離れていてもよく似た値を持つことが明らかとなった. つまり、粒径 180 μm 以下の河川堆積物は、広域の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布の情報を得る目的に十分に適している.

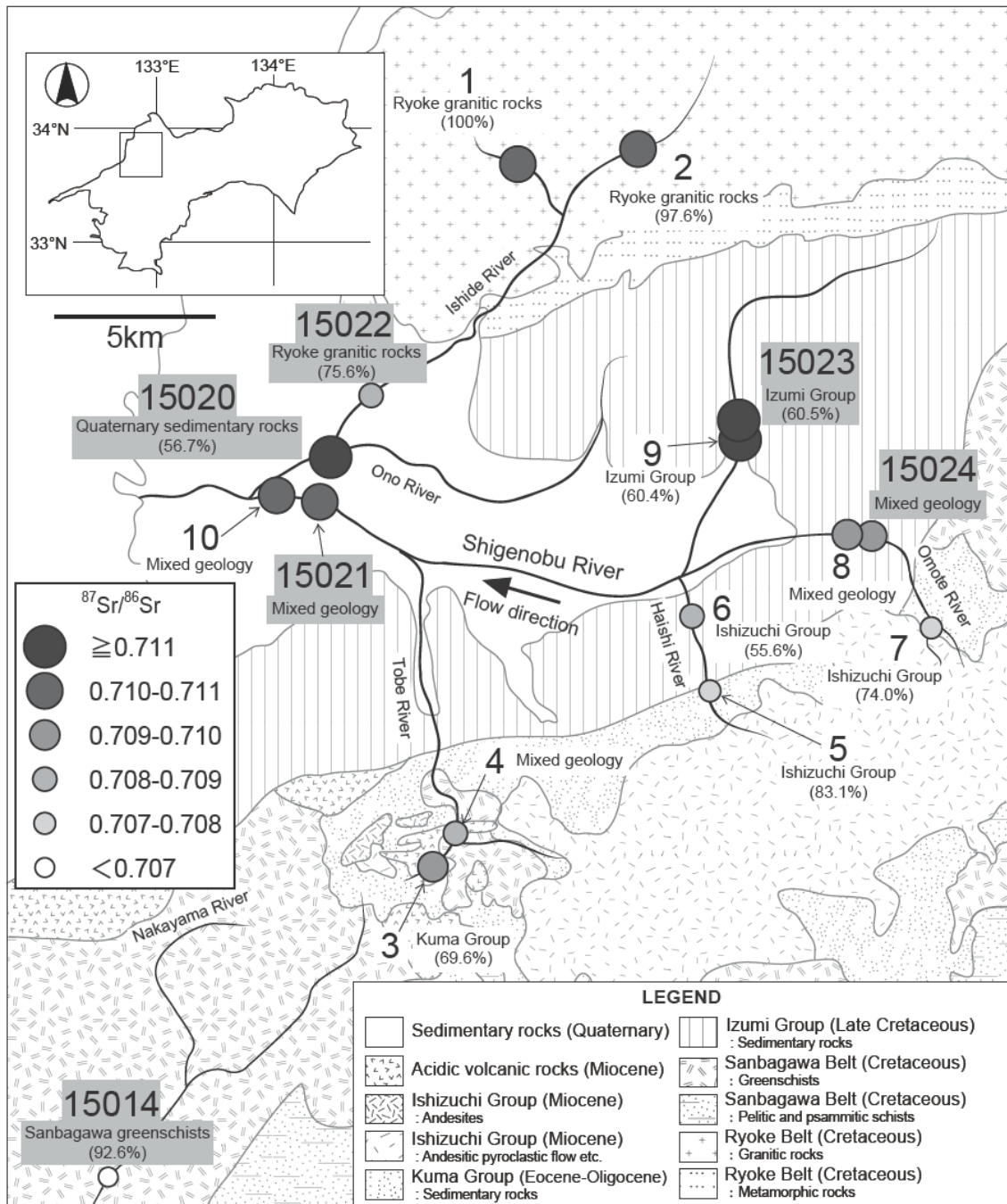


Fig. 13. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ distribution of the stream sediment ($<180\ \mu\text{m}$) in this research and the Geological Survey of Japan, AIST samples.

4. 流域内地質の割合の変化と元素濃度および $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の変動

重信川の南側の支流の上流域から下流域、および重信川本流の下流域にかけ、流域内地質の割合の変化に伴い、どのように河川堆積物中の元素組成や $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が変化するかを検討する。

支流の表川の地点7から8、志川の地点5から6の流域においては、上流域に石鎚層群の安山岩質火砕流堆積物が分布し、下流に向かうにつれ、堆積岩（久万層群、和泉層群）が分布する割合が増加する。堆積岩の割合が増加するのに伴い、地点6の河川堆積物中の元素濃度は、地点5の河川堆積物に比べ、 K_2O や Rb などの元素では増加、 CaO 、 MgO など大半の元素では減少する一方、また、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は高くなっていった。堆積岩を代表地質とする河川堆積物は、安山岩地域の河川堆積物に比べ、 K_2O 、 Rb などの元素濃度が高く、 CaO 、 MgO などの元素濃度が低く、また $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が高いことから (Fig. 10 および Fig. 12)、堆積岩由来の碎屑物の割合が高くなるにつれ、河川堆積物中の元素濃度および $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が変化したと考えられる。よって、河川堆積物の化学組成と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は、流域内に分布する岩体の表面積の割合を反映して変化すると言える。

堆積岩および火成岩が分布する地域の河川堆積物についてより深く考察するため、Fig. 14a には、本研究で採取した河川堆積物の各粒径分画と、産総研が地球化学図に用いた <180 μm 河川堆積物 (15020, 15021, 15022, 15023, 15024) の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ と CaO 濃度の関係を示した。河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が地質ごとに異なる値を示すのに対し、 CaO 濃度においては、安山岩で含有量が多く、堆積岩では含有量が少ないため、それぞれを端成分として異なる領域にプロットされると予想される。一方、Fig. 14b では、同じ試料について、 K_2O 濃度と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を示した。 K は火成岩では含有量が少なく、堆積岩では相対的に高いため、 Ca とは逆の傾向を示すことが予想される。

Fig. 14a, b に示した地点4, 5, 6, 7, 9, 10, および 15020, 15021, 15023, 15024 の河川堆積物の K_2O 濃度あるいは CaO 濃度と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の関係をみると、予想通り、堆積岩の割合が強い地点では相対的に $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が高く K_2O 濃度が高い (あるいは CaO 濃度が低い)、また、安山岩の割合が強い地点では $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が低く K_2O 濃度が低い (あるいは CaO 濃度が高い) というように、上流部から下流部にかけての流域の地質の変化が、河川堆積物の元素組成及び $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ に顕著に表れている。

また、同様の試料について $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の関係を Fig. 14c に示した。各地点の河川堆積物は、大まかな傾向として、代表地質が和泉層群の堆積岩である 15020, 15023, 地点9の試料と、石鎚層群の安山岩質火砕流堆積物である地点5の試料の間にプロットされてい

る。久万層群は、和泉層群の砂岩由来の礫からなることが明らかになっている（甲藤・平, 1979; 木原, 1985）。そのため、代表地質として堆積岩に分布される地質の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は、和泉層群堆積岩の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ (~ 0.712) とほぼ同じ値と仮定できる。この値を用いたとき、地点 5（安山岩質岩 83%, 堆積岩 17%）、6（安山岩質岩 56%, 堆積岩 44%）、7（安山岩質岩 74%, 堆積岩 26%）、代表地質の割合と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値から、安山岩質岩の値は ~ 0.707 と推定される。つまり、 ~ 0.712 の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ をもつ堆積岩と ~ 0.707 の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ をもつ安山岩質岩それぞれの地質の割合に従って、河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が決定されており、河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は、流域を占める各地質の値をよく反映していることがわかる。

また、特徴的なこととしては、地点 5, 7 の河川堆積物は、細粒分画になるにつれ、 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ 、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ とともに増加、また地点 6 の河川堆積物は、細粒分画に伴い、 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ 、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ とともに減少し、 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ では 1.5、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ では 0.708 の辺りに 3 試料の値が近づく傾向が見られることである。地点 5, 6, 7 の河川堆積物は、 $<125 \mu\text{m}$ の細粒分画において、 K_2O 、 Rb が増加する傾向にあることから、細粒分画においてこれらの元素を多量に含む碎屑物中のカリ長石が占める割合が増え、それに伴って、カリ長石が示す $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値に収束する傾向を示した可能性がある。以上の結果から、地点 5, 6, 7 の安山岩質岩域の河川堆積物においては、 $<125 \mu\text{m}$ 分画よりも、 $300\text{--}180 \mu\text{m}$ 分画が、流域の平均的な $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を得るのに適切であると考えられる。

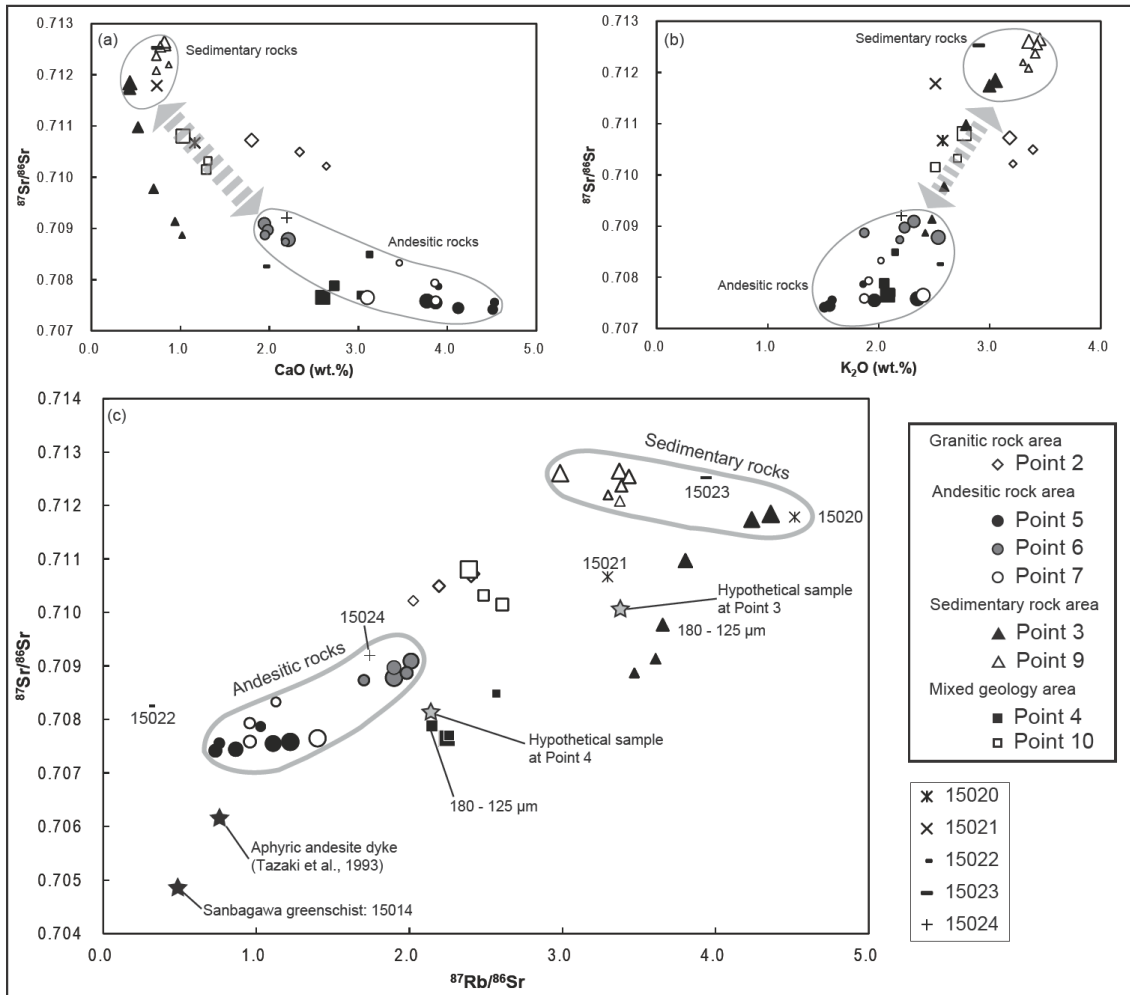


Fig. 14. a) Relationship between the CaO concentration and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ in stream sediment. b) Relationship between K_2O concentration and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ in stream sediment. c) Relationship between $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ in stream sediment. The plot size corresponds to fractions from coarse to fine particles.

5. 地点3の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 変動について

地点3の河川堆積物の粒径別の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は他地点に比べて変動幅が大きく、粒径によって起源の異なる碎屑粒子の混合割合が変動する可能性が考えられる (Fig. 12). 地点3に流れ込む河川流域の中で、上流には久万層群堆積岩 (70%) が、地点3直近には変成した安山岩質火山岩 (21%) が分布している (Fig. 9, Table 2). 前述したように、久万層群を和泉層群と同じ化学組成および同位体組成とみなすことができるため、地点3で得られる河川堆積物は、主に和泉層群堆積岩と安山岩質火山岩由来のもののみとみなすことができる。ここで、地点3の主成分元素濃度を粒径別に見てみると、 Fe_2O_3 , MnO , MgO , CaO 濃度が細粒化に伴い明らかに上昇している (Fig. 15a). この結果は、安山岩の主要構成鉱物である角閃石、輝石が細粒部で多くなることを示している。地点3周辺の変成した安山岩は、熱水作用を受けているため、他の基盤岩よりも物理的風化を受けやすく、また、安山岩が火山岩である特性から、ほとんどの鉱物は $100\ \mu\text{m}$ 以下であるために、細粒部に安山岩起源の鉱物が濃集したと考えられる。さらに、細粒化に伴う K_2O 濃度の減少は、風化に強い鉱物であるカリ長石の割合が減少していることを示すと考えられる。実際に、粉末 X 線回折分析結果においては、 $1000\text{--}500$, $180\text{--}125$, $<75\ \mu\text{m}$ 分画の3つのうち、 $<75\ \mu\text{m}$ 分画でカリ長石のピークは最も小さい結果であった (Fig. 15b).

また、 K_2O および CaO 濃度と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の関係を示した Fig. 14a, b から、地点3の河川堆積物は細粒になるにつれ、和泉層群堆積岩が示す領域から石鎚層群の安山岩が示す領域近傍へ、混合曲線を描くようにプロットされることがわかる。このことは、 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の関係でも同様であり (Fig. 14c), 粗粒分画は、流域地質が堆積岩 (和泉層群: 42.2%, 主に和泉層群形成されたと考えられる第四紀堆積岩: 56.7%) である 15020 近くにプロットされ、細粒化に伴い、 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ が 3.5, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が 0.709 へと変化している。地点3の河川堆積物の粒径別のプロットが、和泉層群堆積岩と石鎚層群安山岩を結んだ直線上からずれるのは、地点3周辺の安山岩は中-後期中新世に貫入した小規模岩体であり、中-後期中新世の石鎚層群の安山岩と形成時期は同じだが供給源のマグマは別で、化学・同位体組成が異なるためと考えられる。

ここで、母岩の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を元に、地点3の流域地質の割合 (堆積岩 70%, 貫入安山岩 21%, 石鎚層群 9%) から、地点3の河川堆積物の持つ $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を推定してみた。堆積岩の値 (試料 15020 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$: 4.5, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$: 0.712), 万年変質安山岩の値として、近傍の貫入安山岩の値 ($^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$: 0.77, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$: 0.706; 田崎ほか, 1993), 石鎚安山岩の値 ($^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$: 0.8, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$: 0.707) と地質の割合から計算された値は Fig. 14c に、Hypothetical sample at Point

3として星印のプロットで示した。この結果から、地点3の河川堆積物の仮想値は、実際の180–125 μm分画の持つ値に最も近く、>180 μmの粗粒分画には堆積岩の影響が強く現れていることが明らかになった。

さらに、地点3に最も近い位置にあり、集水域に分布する母岩の比率が似ている地点4の河川堆積物（石鎚層群安山岩質火砕流堆積物30%、万年変質安山岩23%、久万層群37%、三波川緑色片岩10%）についても同様の計算を行った。計算には、地点3で仮定した堆積岩と安山岩の値に加え、三波川緑色片岩の値として河川堆積物試料15014 ($^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$: 0.5, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$: 0.705; Jomori *et al.*, 2013) も用いた。その結果、得られた仮想値 (Fig. 14c 中の Hypothetical sample at Point 4) も地点3と同様に、180–125 μm分画の持つ値に最も近かった。よって、地点3, 4においては、180–125 μm分画の河川堆積物が、最も代表地質の割合を反映した $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を示すと考えられる。

また、地点3の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が粒径ごとに大きく変動することについては、河川の最上流部に位置していることが原因であると考えられる。つまり、河川系の上流部における河川堆積物は、河川水流における運搬時間が短い、すなわち物理的風化を受ける時間が中・下流部の堆積物に比べて短いために、特定の風化しにくい鉱物が特に粗粒部に残留している可能性がある。日本は起伏に富んだ地形であるために、河川は勾配が急であるものが多く、そのような河川の最上流部で、なおかつ複数の地質が分布しているところであれば、地点3のように粗粒部と細粒部の間で化学・鉱物組成に大きな違いが生じる可能性があることに関して、注意が必要である。

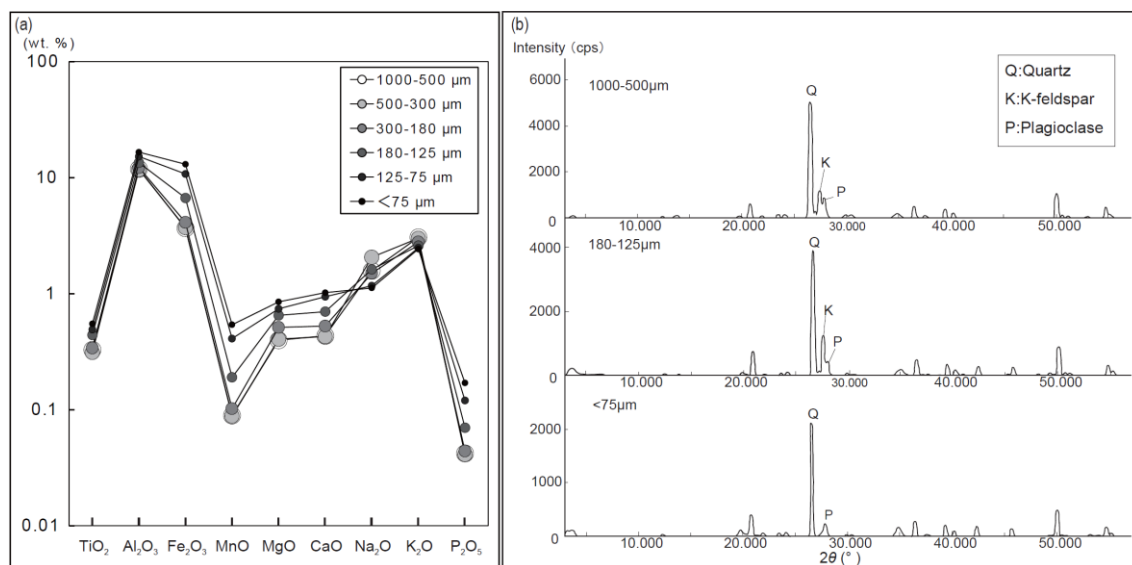


Fig. 15. a) Major elemental concentration by particle size in the sample from Point 3. b) XRD patterns of 1000–500, 180–125, and <75 μm fractions at Point 3.

第3節 山口県美祢市の秋吉台を流れる厚東川流域（石灰岩地域）

第1項 はじめに

先に公表されている<180 μm 河川堆積物を用いた日本の地球化学図では、ほとんどの元素が地質（母岩）と対応した濃度分布を示すことがすでに明らかとなっている。一方で、母岩との対応が見られない場所として、秋吉台地域が挙げられる（太田ほか，2004b）。地球化学図作成に用いられた、石灰岩が露出するこの地域の河川堆積物試料の CaO 濃度は、全国平均の 2.52 wt.% よりも低く（試料 21006: 0.26 wt.%，試料 21017: 0.38 wt.%），母岩である石灰岩の影響が現れていない。そこで，Ohta and Minami（2013）は石灰岩の地域における河川堆積物の実態を明らかにすべく，新たに秋吉台地域で河川堆積物試料を採取し，1000–500，500–250，250–125，125–63，63–32，<32 μm および<180 μm の粒径別に篩い分けた後，元素濃度分析ならびに粉末 X 線回折分析を行った。その結果，石灰岩地域内にて新たに採取した河川堆積物の CaO 濃度は 5–11 wt.% であり，石灰岩の一般的な値 (50 wt.% 以上) と比較して低いものの，有意な CaO の濃集が認められた。また，粉末 X 線回折データにおいても方解石の明瞭なピークが認められた。また，粒度別に CaO 濃度と方解石の X 線回折強度の変化を調べたところ，<125 μm の粒径分画において CaO 濃度が急増し，かつ，方解石のピークが顕著になるなどの傾向が見られた。一方で，Ca と挙動が似た Sr は，細粒分画 (<125 μm) でも濃度は上昇せず，Ca とは別の挙動をしていることが示唆された。これらの特徴から，Ohta and Minami（2013）は，細粒分画の方解石は CaCO_3 に対して過飽和な水から沈殿して二次的に生成されたと指摘している。

第3節においては，全国規模の地球化学図になぜ石灰岩の影響が認められなかったのかを明らかにするために，細粒分画中に二次的に形成された方解石が存在するかどうかの議論を含め，石灰岩地域の河川堆積物のバルクおよび炭酸塩成分の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 測定を行った結果について報告する。

第2項 秋吉台周辺の地質

秋吉台の中心部を南北に流れる厚東川流域には，上流部から非海成堆積岩，安山岩質火山岩，石炭紀–ペルム紀付加体，斑れい岩，花崗岩，泥質片岩などが分布している (Fig. 16)。付加体は陸源碎屑岩相と海洋性岩相からなっており，陸源碎屑岩相は海溝を埋めた砂岩・泥岩を主体としているのに対し，石灰岩層は玄武岩溶岩（緑色岩），チャート，石灰岩などからなっており，両者は海山がプレート運動によって大陸の端に衝突した際に，混合されたと考えられている (Sano and Kanmera, 1988)。

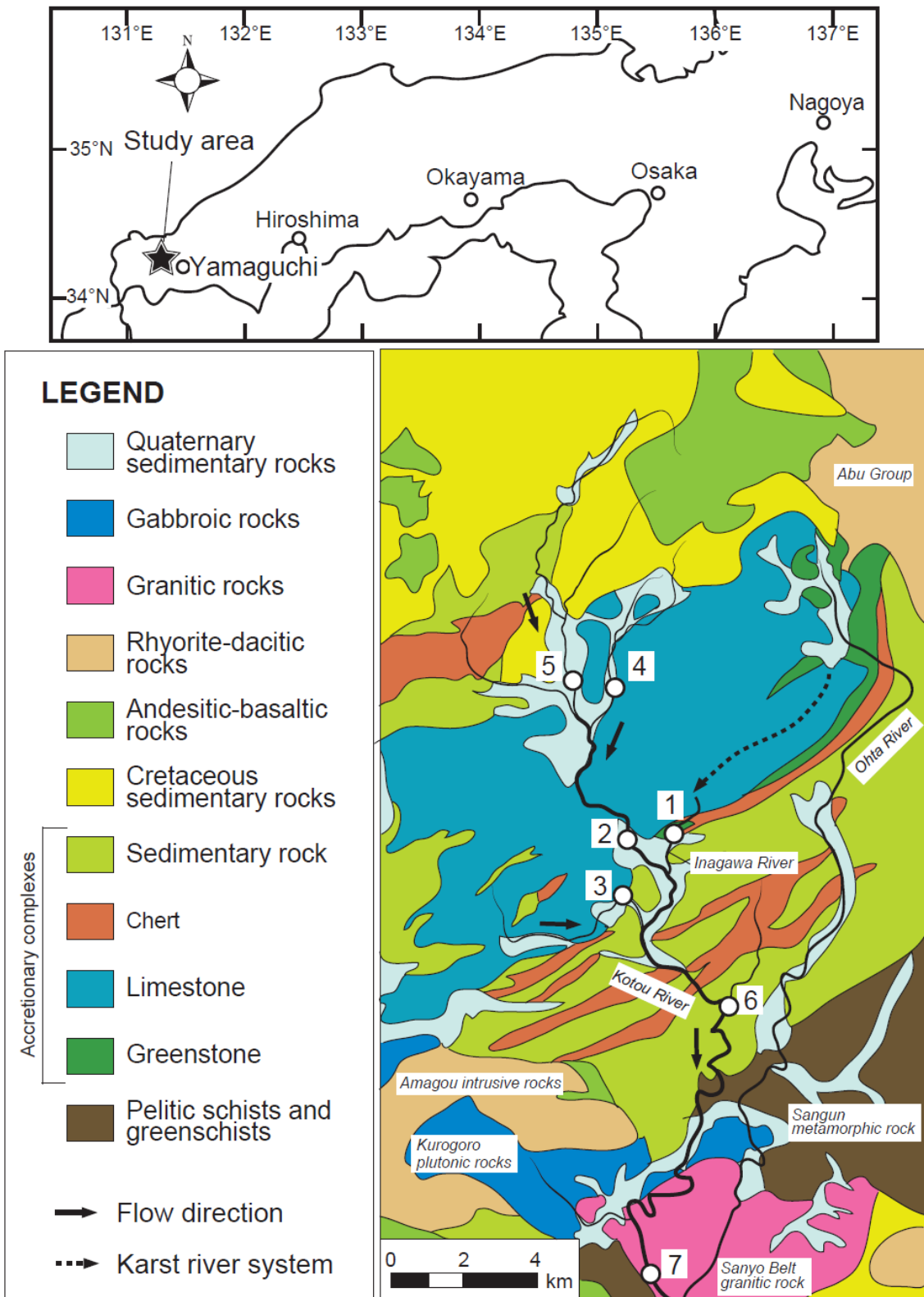


Fig. 16. Geology and sampling points in Akiyoshi limestone bedrock area. The figure is modified from Kishi *et al.*, 2007, Ohta and Minami, 2013, and seamless digital geological map of Japan 1: 200,000 (Geological Survey of Japan, 2012).

第3項 試料と実験

試料は Ohta and Minami (2013) によって、厚東川水系の7地点から採取された河川堆積物を用いた(採取地点については Fig. 16 を参照)。1000–500, 500–250, 250–125, 125–63, 63–32, <32 μm の各分画に篩い分けられた河川堆積物のバルクおよび炭酸塩成分それぞれの $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を測定した。バルクの $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分析の際の前処理から測定までの実験方法は、第1章の第1節第4項と同様である。炭酸塩成分の抽出は、岡井(1998)の1M酢酸リーチングの手順を参考とした。試料約200 mgに1M酢酸10 mlを加え、約15時間放置し、炭酸塩成分を抽出した。その後、遠心分離(3000 rpmで10分間)し、上澄みを回収した。試料溶液は、ホットプレート上で乾固したのちに数回硝酸を滴下し、再び乾固した。乾固した試料に2.4 M塩酸3 mlに溶かし試料溶液とした。その後の分析手順はバルク分析と同様である。

Ohta and Minami (2013)は、各地点の流域の地質の割合を流域解析によって明らかにしている。最も割合が大きい地質は、地点1, 2, 3, 4, 6, 7が石灰岩(それぞれ93%, 30%, 77%, 52%, 35%, 28%)であり、地点5は白亜紀非海成堆積岩(53%)であった。地点2は、より上流で採取された地点4と5の流域を含む。同様に地点6や7は、より上流の地点1–5または1–6の流域を含む。

第4項 結果と考察

1. 炭酸塩成分の重量比とバルクの $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 変動

炭酸塩成分の抽出を行った際、残渣を乾燥させた後に重量を測定し、バルク重量から差し引いて炭酸塩成分の重量を測定した。その結果、細粒分画ほど重量比の増加がみられた。また、Ohta and Minami (2013)により測定された各粒径分画のバルクCaO濃度の変化との非常に強い相関をもつことが明らかとなった(Fig. 17)。よって、酢酸抽出によって溶出するのは石灰岩由来の炭酸塩である方解石が主と考えられるため、酢酸で抽出された炭酸塩分画のCaO濃度は各粒径分画の方解石量の目安となると推測される。

7地点の河川堆積物のバルク $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は0.707–0.714であり(Fig. 18)、堆積岩が流域の大部分を占める地点5と、石灰岩の割合が少ない地点2, 6については粒径による変動が約0.001であった。一方、石灰岩が流域の50%を超える面積を占める地点1, 3, 4(石灰岩の割合それぞれ93%, 77%, 52%)と、地点7の試料については、最大値から最小値までの差が0.002–0.006と、変動が顕著であった。特に最下流部の地点7の1000–63 μm 分画については、変動幅が約0.003であり、豊田市および松山市の花崗岩、堆積岩、安山岩を母岩とする河川堆積物の1000–75 μm 分画の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の変動幅が約0.001に対し、有意に大きい値であった。この

$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 変動は粒径分画ごとに流域内岩石からの碎屑物供給量が異なるためと考えられ、石灰岩地域の特徴である可能性が考えられる。詳細について以下で検討する。

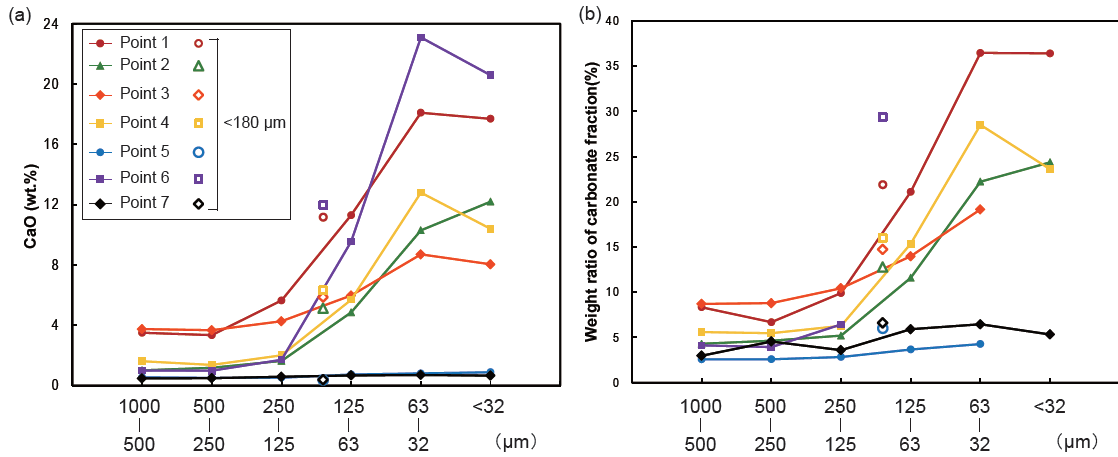


Fig. 17. a) CaO concentrations of bulk fractions according to particle size. b) Weight ratio of carbonate fractions according to particle size in Akiyoshi limestone bedrock area.

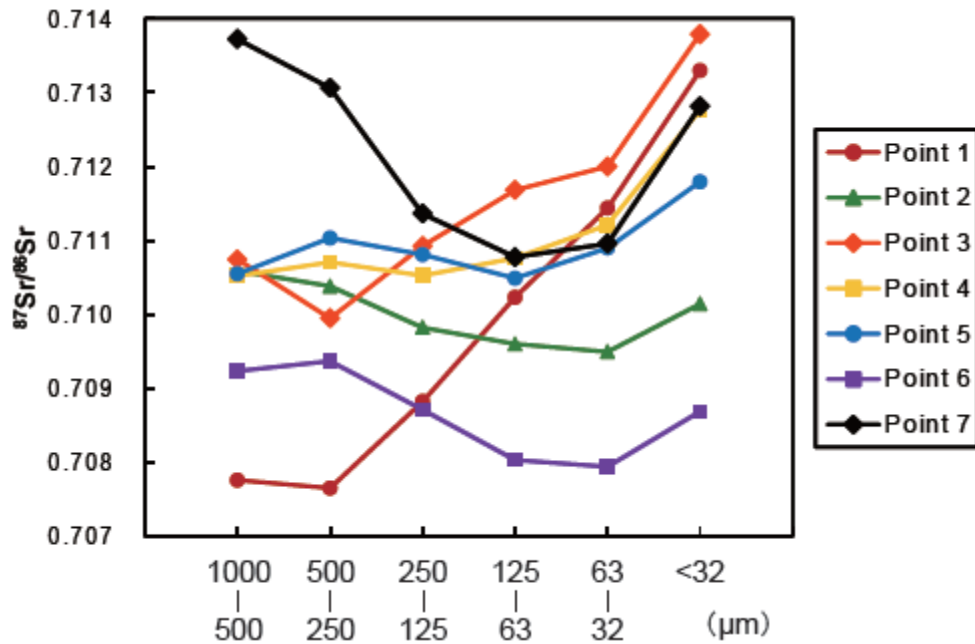


Fig. 18. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ value of bulk stream sediment samples according to particle size in Akiyoshi limestone bedrock area.

2. 厚東川水系支流の河川堆積物のバルクおよび炭酸塩成分の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$

本研究地域とする厚東川水系における試料採取地点は、本流の地点 2, 5, 6, 7 と、支流の地点 1, 3, 4 に分けることができる。特に地点 1, 3, 4 は、流域における秋吉石灰岩の分布割合が大きいので、この地域における特徴的な試料であると言える。

石灰岩分布が 50%以上流域に含まれる、厚東川支流の地点 1, 3, 4(石灰岩の割合それぞれ 93%, 77%, 52%)で採取された河川堆積物の炭酸塩成分の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値は、全粒径分画で秋吉石灰岩の値 0.7068–0.7089 にほぼ等しい値を示しており、各粒径に石灰岩起源の炭酸塩鉱物が存在することを示唆される (Fig. 19)。

一方で、バルク $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ では、93%が石灰岩である地点 1 について、粗粒分画 (1000–125 μm) のみにおいて、秋吉石灰岩の値 0.7068–0.7089 に最も近い値 (0.7076–0.7088) を示した。また、 $<125 \mu\text{m}$ の細粒分画は、バルク $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は石灰岩よりも高い値 (0.7102–0.7132) であり、また、炭酸塩成分とバルクの $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ と重量比から計算した残渣の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ (0.7109–0.7164) でも同様であることから、石灰岩の方解石起源以外の Sr が含まれることを示す。流域解析の結果によれば、地点 1 の流域には、石灰岩の他に、1.4%の緑色岩と、3.2%のチャートの分布域が含まれている。しかし、緑色岩の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は 0.7052 (Nishioka *et al.*, 1991) であり、チャートは二酸化ケイ素 (SiO_2) 主体の岩石で Sr 濃度が非常に低いため (例えば、栃木原足利市の三疊紀～中期ジュラ紀足尾チャートから作成された岩石標準試料 Jch-1: 4.2 ppm (Imai *et al.*, 1996)), $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を 0.7164 ($<32 \mu\text{m}$ 分画) まで高める鉱物がこれらの岩石から河川堆積物中に供給されているとは考えにくい。

一般的な河川においては、河川水は、地表面を流れ下った表層水が大部分を占めるが、地点 1 の河川 (稲川) は、河川水が地表面を流れた表層水よりも、秋芳洞を流れてきた地下水が主体である。そのため、地表面の流域だけでなく、さらに上流の地下水系からもたらされる碎屑物の影響を考える必要がある。藤井 (1980) は、稲川には東隣を流れる大田川流域の表層水の一部が、第四紀系堆積物下の基盤地形から地下水として秋吉台地下に流れ込んでいると報告している。つまり、大田川流域に分布する母岩起源の碎屑物が、地表の流域とは別の経路で流れ込んでいる可能性がある。大田川流域に分布する岩石としては、阿武層群の流紋岩質溶岩があり、その $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は 0.7107–0.7185 と報告されている (弓削ほか, 1998)。 $<32 \mu\text{m}$ 分画の残渣の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は 0.7164 であるので、この値が流紋岩質溶岩から供給された碎屑物と考えると矛盾はない。また、Ohta and Minami (2013) による粉末 X 線回折データによれば、粘土鉱物であるカオリナイトのピークが見られるため、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を高めているのは、流紋岩の構成鉱物である黒雲母が粘土化したカオリナイトである可能性

がある。

地点 3, 4 でも同様に粗粒分画から細粒分画にかけて残渣およびバルクの $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ともに上昇し、 $<32\ \mu\text{m}$ 分画で各地点の試料ごとの最高値を示す。このような細粒分画の高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は、地点 3 は流域内に分布する付加体堆積岩、地点 4 は白亜紀堆積岩からの碎屑物粒子によるものと考えられる。

次に、CaO, Sr 濃度を含めた考察を行う。流域内の石灰岩の割合が高い地点 1, 3, 4 に見られる、細粒部分画での高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は、粗粒分画から細粒分画にかけて CaO 濃度が上昇する傾向 (Fig. 17a) とは一見矛盾する。Ohta and Minami (2013) による粉末 X 線回折データで、細粒分画でも方解石の明瞭なピークが確認され、さらに炭酸塩成分の重量も同様に細粒分画にかけて増加するため (Fig. 17b)、方解石量が増加しているのは明らかである。このことから、物理的風化により細かくなった方解石粒子が、粗粒分画よりも多く細粒分画に含まれている可能性が考えられる。もし、方解石粒子の全てが物理的風化によって生成されたとすれば、Sr 濃度も細粒分画で上昇するはずであるが、実際には減少している ($1000\text{--}500\ \mu\text{m}$ 分画: 115 ppm, $<32\ \mu\text{m}$ 分画: 74 ppm)。さらに、本研究で明らかになったバルクおよび残渣の細粒分画にかけての $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 上昇は、物理的風化により細粒化した方解石が細粒分画で増加するという仮定では説明できない。したがって、Ohta and Minami (2013) が指摘した通り、細粒分画中の方解石は二次的に形成されたものであることが、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 測定結果から支持される。このことは、河川水の Ca^{2+} 濃度からも間接的に考察できる。日本の河川の Ca^{2+} 平均濃度は 8.8 ppm (小林, 1961) 程度であるが、秋吉台の地下水は、石灰岩体中を通過する間に岩体を溶かしているため、43.5–57.4 ppm (吉村・井倉, 1992) と非常に高く、Ca が常に析出しやすい状況であると考えられる。

さらに、炭酸塩成分の粒径別 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を、支流だけでなく厚東川本流の試料採取地点も含め全地点で比較すると、 $>125\ \mu\text{m}$ 分画と $<125\ \mu\text{m}$ 分画で、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の傾向が大きく異なる (Fig. 20)。 $>125\ \mu\text{m}$ 分画では値のばらつきが大きいのに対し、 $<125\ \mu\text{m}$ 分画の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値は、最下流の地点 7 を除き、石灰岩の平均値 0.7079 に収束する傾向を示す。また、CaO 濃度も $125\ \mu\text{m}$ を境に細粒部で著しく上昇することを考慮すると、 $<125\ \mu\text{m}$ 分画において、二次的に形成した方解石の量が増加すると解釈できる。

以上の結果から、石灰岩を流域岩体とする河川堆積物は、特に細粒分画 ($<125\ \mu\text{m}$) においては、物理的風化により生成された石灰岩の碎屑物の値ではなく、石灰岩よりも物理的風化に弱く細粒化しやすい他の岩石起源の鉱物の値を反映することが明らかとなった。

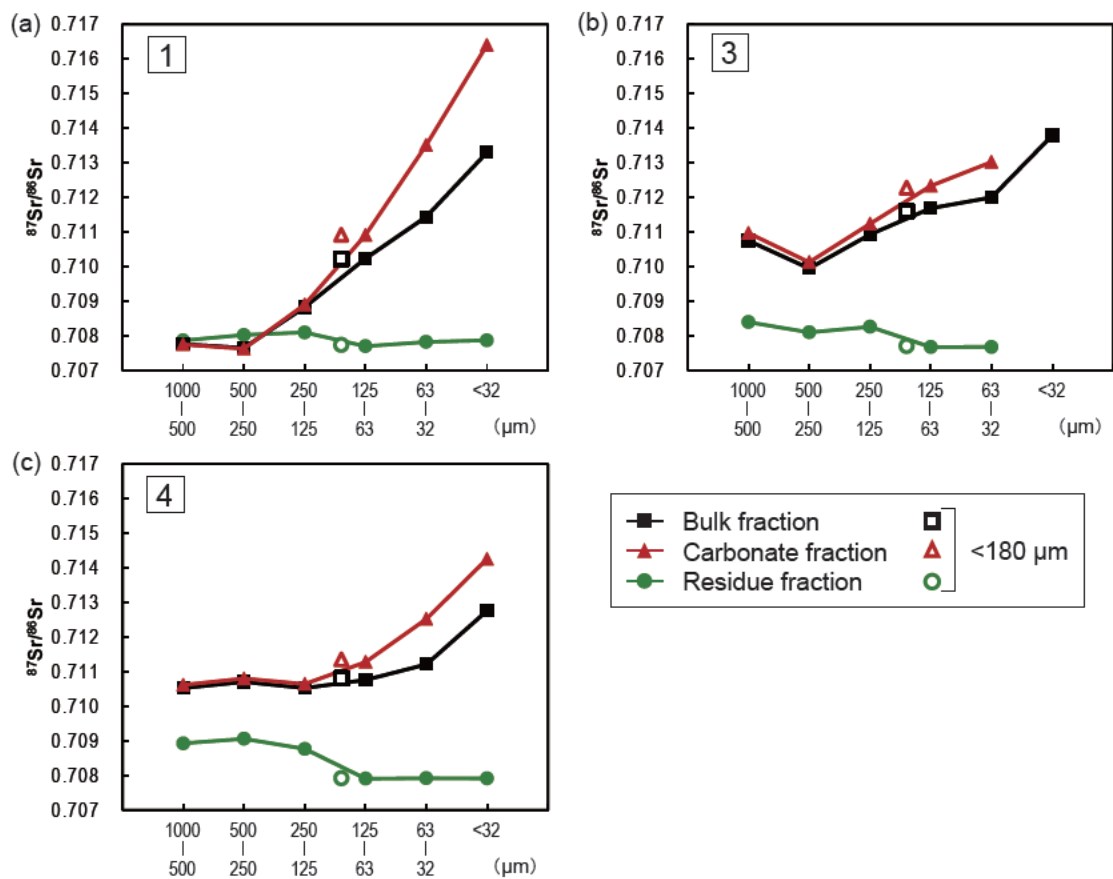


Fig. 19. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values of bulk fraction, carbonate fraction, and residue fraction according to sampling points (Points 1, 3, and 4) in branches of Kotou River system in Akiyoshi limestone bedrock area.

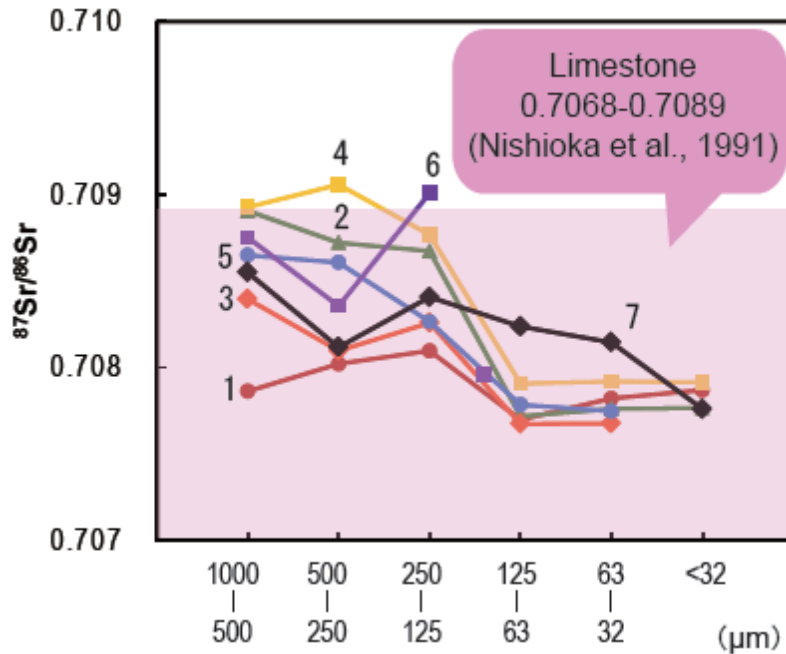


Fig. 20. The $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ value of carbonate fraction of stream sediment samples according to grain size in Akiyoshi limestone bedrock area. The numerals indicate sampling point numbers.

3. 厚東川水系本流の河川堆積物のバルクおよび炭酸塩成分の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$

次に、流域に占める石灰岩の面積割合が少ない4地点の河川堆積物のバルク、炭酸塩成分、酢酸リーチング後の残渣の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 結果を Fig. 21 に示した。地点5は流域に占める堆積岩の面積割合が78%を占めるものの、石灰岩の占める割合は1%である。その下流である地点2では、石灰岩が流域に占める割合が30%に上昇する。地点5のバルクと残渣の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は、全ての粒径においてほとんど差が見られない(0.7105–0.7118)が、地点2のバルクと残渣の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は細粒分画で差が見られる。この差は、細粒分画において、二次的に形成された方解石の量比が増加しているためと考えられる。さらに下流の地点6は、秋吉台ほぼ全域を流域に含むため、そこを流れる河川水は、全域の表層水・地下水が集約されていると考えてよい。このことを反映して、<180 μm 分画の炭酸塩分画の重量比は30%と、非常に高い値を示し、バルク、残渣の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ とともに石灰岩の平均値(0.7079)とほぼ同じ値(0.7079–0.7013)である。最下流部の地点7は、地点6と比較し、著しく高い値(0.7108–0.7137)が得られていること、また、CaO濃度および炭酸塩成分の重量比が地点6と比較し、著しく低いことから、方解石は、石灰岩碎屑物・二次的生成物問わず、河川水との反応により溶けて消失したと考えられる。その為、<32 μm 分画での高いバルクと残渣の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は、試料採取地点直近に分布する古期三郡泥質片岩起源の粘土鉱物の値である可能性がある。泥

質片岩は、粒径が 63 μm 以下のシルト・粘土粒子から構成されており、そこから供給される碎屑粒子は比較的細粒であると考えられる。比較に用いる $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の参考値としては、岡山県に分布する新期三郡変成岩の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値 0.71432 が Kagami *et al.* (1992) によって報告されており、 $<32 \mu\text{m}$ 分画の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値とよく一致している。また、 $>125 \mu\text{m}$ 分画で認められる $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の高い値は、同じく直近に分布し、構成鉱物径が 1 mm を超えることもある花崗岩由来の河川堆積物を反映している可能性がある。実際に、山陽帯花崗岩は 0.7092–0.7128 (Kagami *et al.*, 1992) 及び戸河内花崗岩類は 0.7063–0.7135 (Ishioka and Iizumi, 2003) の値、さらに、斑れい岩の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ としては、黒五郎深成岩の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が 0.705–0.706 (西川ほか, 2007) を示す例があることから、この仮定は妥当である。以上のことから、地点 7 の河川堆積物は、試料採取地点近傍に分布する岩石起源の碎屑物の寄与が、上流からの碎屑物供給量に対してが著しく多い特徴をもつと考えられる。言い換えれば、地点 7 の河川堆積物は、物理的風化をそれほど受けていない碎屑物粒子からなり、それらは岩石の構成鉱物としての粒径とほとんど変わらないため、粗粒鉱物からなる深成岩の影響が粗粒分画で強く、細粒鉱物からなる泥質片岩の影響がは細粒分画で強い、というように、母岩の構成鉱物の大きさがそのまま反映され、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の著しい粒径別変動を示したと考えられる。

これまで議論してきたとおり、河川堆積物の化学組成・同位体比は、流域に分布する地質の面積割合を比較的忠実に反映する。しかし地点 7 のように、流域に石灰岩が広く分布するものの、試料採取地点と石灰岩の分布域に距離がある場合、試料採取地点近傍の岩石の影響が著しく高くなる。つまり石灰岩地域では、地質の面積割合を反映せず、流域を占める他の岩石の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値の影響が強くなる場合があることが明らかとなった。

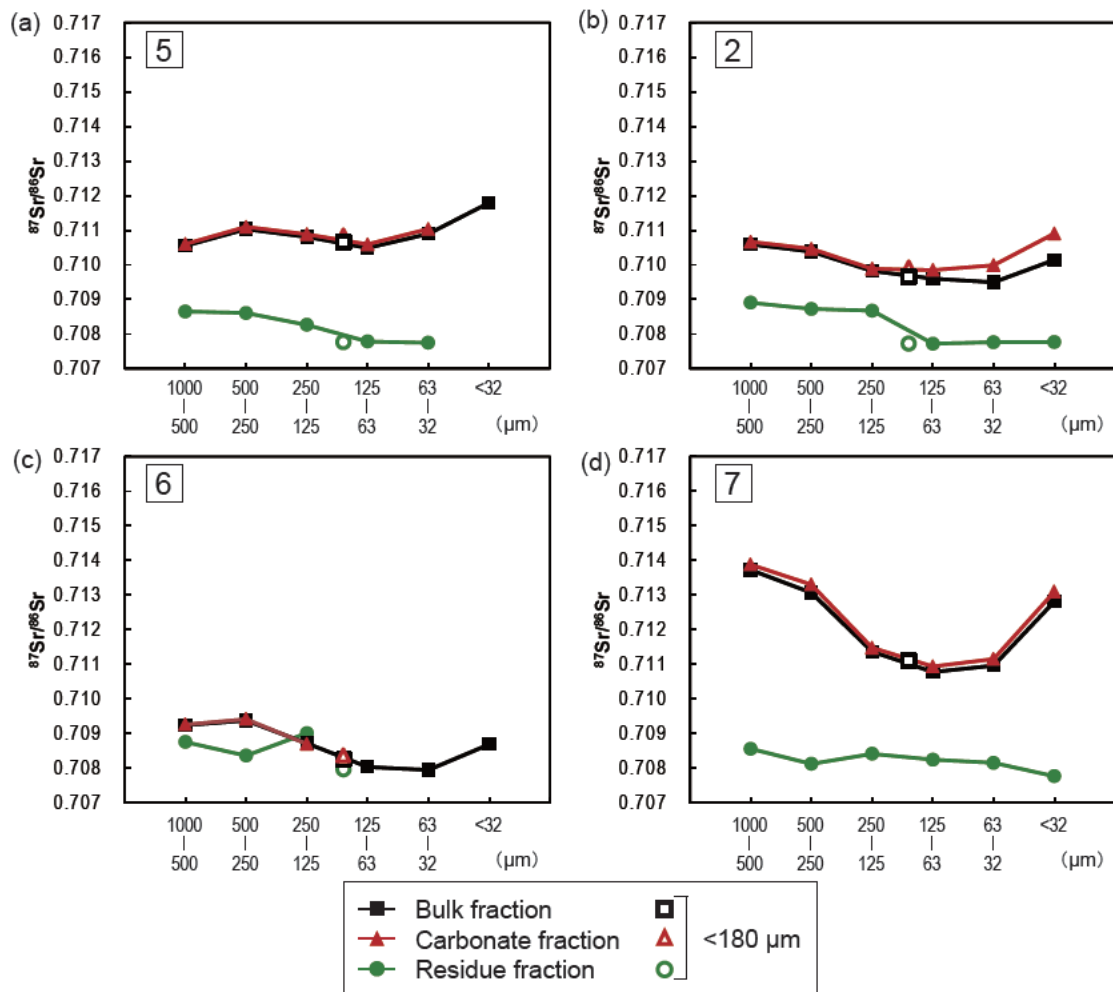


Fig. 21. The $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values of bulk fraction, carbonate fraction, and residue fraction according to sampling points (Points 5, 2, 6, and 7) in the main stream of Kotou River system in Akiyoshi limestone bedrock area.

Table 1. Elemental concentrations, $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values, and norm of individual grain-size fractions in stream sediments of the Yahagi River, Aichi Prefecture.

Grain size (μm)	Sample U1							Sample U2				Sample L				IG01 (bedrock)		
	1000 -500	500 -300	300 -180	180 -75	<180	<75	Altered biotite	1000 -500	500 -300	300 -180	<180	1000 -500	500 -300	300 -180	180 -75		<180	<75
wt.%																		
SiO ₂	66.3	66.1	65.2	62.8	61.1	58.2	37.5	69.7	70.3	68.5	63.2	74.0	69.9	67.3	63.5	63.3	59.8	68.8
TiO ₂	0.53	0.42	0.29	0.36	0.46	0.60	2.58	0.42	0.30	0.27	0.55	0.49	0.33	0.29	0.35	0.36	0.55	0.33
Al ₂ O ₃	18.4	19.1	20.4	21.4	23.1	26.4	18.9	16.6	16.6	18.3	20.2	13.8	17.1	19.2	21.1	21.3	24.0	16.5
FeO*	4.17	3.28	2.53	2.94	3.81	4.78	19.1	3.42	2.51	2.31	3.61	3.78	2.70	2.48	2.88	2.97	4.16	2.76
MnO	0.06	0.05	0.05	0.06	0.08	0.10	0.18	0.05	0.05	0.05	0.09	0.05	0.05	0.05	0.06	0.07	0.09	0.05
MgO	0.76	0.63	0.48	0.56	0.67	0.87	3.58	0.62	0.47	0.43	0.68	0.67	0.48	0.45	0.56	0.57	0.73	0.52
CaO	3.76	4.23	4.78	5.38	4.72	3.72	1.17	3.31	3.89	4.33	5.54	1.97	3.50	4.27	5.29	5.16	4.67	4.40
Na ₂ O	2.82	3.24	3.82	3.91	3.37	2.41	0.18	2.64	3.00	3.53	3.73	1.60	2.85	3.50	3.95	3.88	3.00	3.41
K ₂ O	2.17	1.83	1.54	1.44	1.50	1.65	4.08	2.19	1.91	1.65	1.38	2.83	2.02	1.70	1.44	1.45	1.64	2.28
P ₂ O ₅	0.04	0.03	0.03	0.05	0.09	0.16	0.08	0.03	0.02	0.02	0.06	0.03	0.03	0.03	0.05	0.05	0.14	0.06
Total	99.0	98.9	99.1	98.5	98.8	98.9	87.3	99.0	99.1	99.3	99.0	99.2	98.9	99.2	99.2	99.1	98.8	99.2
(ppm)																		
V	26	27	23	31	35	44	83	25	23	20	40	23	17	19	29	27	39	19
Cr	10	14	10	18	21	22	17	10	9	15	12	9	10	11	14	17	16	9
Co	16	11	6	8	13	18	13	12	7	6	12	14	8	7	8	8	15	9
Ni	—	5	2	3	9	12	0	1	1	1	0	—	1	2	2	2	3	1
Zn	72	59	46	52	72	100	405	58	42	41	58	57	47	45	50	53	79	46
Rb	100	81	58	53	38	93	275	89	65	57	46	95	77	67	50	53	76	75
Sr	310	353	422	425	395	325	37	299	328	382	385	176	329	385	424	423	361	380
Y	23	24	25	41	48	56	68	20	20	21	63	14	13	17	43	42	63	23
Zr	277	313	276	1101	1420	1261	165	257	210	98	3317	204	121	86	1276	1250	2697	237
Ba	794	708	644	665	778	984	945	852	739	672	672	921	759	671	634	669	870	1155
Pb	18	17	18	17	19	23	10	17	15	17	18	16	18	19	20	18	20	15
Th	7	4	6	8	13	22	21	5	5	6	14	4	2	2	7	7	22	11
$^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$	0.933	0.660	0.400	0.359	0.280	0.825		0.862	0.575	0.428	0.348	1.558	0.680	0.505	0.344	0.365	0.613	0.574
$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	0.71006	0.71001	0.70992	0.70992	0.71000	0.71026		0.71010	0.71004	0.70995	0.70991	0.71046	0.71005	0.70995	0.70994	0.70993	0.71014	0.71022
(2 σ)	0.00001	0.00001	0.00001	0.00001	0.00002	0.00001		0.00001	0.00001	0.00001	0.00001	0.00001	0.00001	0.00001	0.00001	0.00001	0.00002	0.00002
norm																		
Q	29.4	27.9	24.3	20.1	22.0	25.4		35.5	34.7	30.0	20.8	45.9	35.4	28.8	20.8	21.1	22.2	28.2
C	4.6	4.1	3.8	3.8	7.5	14.3		3.9	2.6	2.9	2.6	4.6	3.9	3.9	3.6	4.1	9.1	0.6
Or	12.8	10.8	9.1	8.5	8.8	9.8		13.0	11.3	9.8	8.2	16.7	11.9	10.1	8.5	8.6	9.7	13.5
Ab	23.8	27.4	32.3	33.1	28.5	20.4		22.3	25.4	29.8	31.5	13.5	24.1	29.6	33.4	32.8	25.4	28.8
An	18.4	20.8	23.5	26.4	22.9	17.4		16.2	19.2	21.3	27.1	9.6	17.2	21.0	25.9	25.3	22.3	21.4
Hy	8.8	7.0	5.5	6.3	8.1	10.1		7.2	5.4	5.0	7.6	7.9	5.7	5.3	6.2	6.4	8.7	5.9
Il	1.0	0.8	0.5	0.7	0.9	1.1		0.8	0.6	0.5	1.0	0.9	0.6	0.5	0.7	0.7	1.0	0.6
Ap	0.1	0.1	0.1	0.1	0.2	0.4		0.1	0.1	0.0	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.3	0.1

^a Total Fe as FeO.

^b Q: quartz, C: corundum, Or: orthoclase, Ab: albite, An: anorthite, Hy: hypersthene, Il: illite, Ap: apatite.

Table 2. Representative geology and the proportion of geology at individual sampling points in Shigenobu River system.

Sampling point	Representative geology	The proportion of each geology ¹⁾
1	Granitic rock	Gr: 100%
2	Granitic rock	Gr: 97.6%, Me: 2.4%
3	Sedimentary rock	Ku: 69.6%, An: 21.0%, Is: 8.9%, Sg: 0.5%
4	-	Ku: 37.3%, Is: 29.5%, An: 23.5%, Sg: 9.7%
5	Andesitic rock	Is: 83.1%, Ku: 16.9%
6	Andesitic rock	Is: 55.6%, Ku: 25.2%, Iz: 19.2%
7	Andesitic rock	Is: 74.0%, Ku: 26.0%
8	-	Ku: 47.2%, Is: 35.7%, Iz: 9.5%, Qs: 7.0%, Sg: 0.6%
9	Sedimentary rock	Iz: 60.4%, Me: 29.6%, Gr: 10.0%
10	-	Iz: 40.7%, Qs: 21.3%, Ku: 13.7%, Is: 13.2%, Me: 5.4%, Sg: 1.8%, Gr: 1.8%, An: 1.6%, Ac: 0.4%
15014 ²⁾	Greenschist	Sg: 92.6%, An: 3.8%, Ku: 3.5%
15020 ²⁾	Sedimentary rock	Qs: 56.7%, Iz: 42.2%, Me: 1.1%
15021 ²⁾	-	Iz: 42.3%, Qs: 15.4%, Ku: 15.2%, Is: 14.6%, Me: 6.0%, An: 2.2%, Sg: 2.0%, Gr: 2.2%, Ac: 0.4%
15022 ²⁾	Granitic rock	Gr: 75.6%, Me: 12.9%, Iz: 8.7%, Qs: 2.9%
15023 ²⁾	Sedimentary rock	Iz: 60.5%, Me: 29.6%, Gr: 10.0%
15024 ²⁾	-	Ku: 48.0%, Is: 36.8%, Iz: 8.5%, Qs: 6.1%, Sg: 0.6%

1) Gr: Granitic rocks, Me: Ryoke metamorphic rocks, Ku: Kuma Group, Ac: Acidic volcanic rocks, An: Andesites, Sg: Sanbagawa greenschists, Is: Ishizuchi Group, Iz: Izumi Group, Qs: Quaternary sedimentary rocks

2) Samples are collected and analyzed by the Geological Survey of Japan, AIST (Imai *et al.*, 2004 2010).

Table 3. Elemental concentrations of individual grain-size fractions in stream sediments of the Shigenobu River system, Ehime Prefecture, Japan.

Sampling point	Matsuyama																		
	2			3					4				5						
	1000	180	<125	1000	500	300	180	125	<125	1000	180	125	<75	1000	500	300	180	125	<75
Grain size (μm)	-180	-125		-500	-300	-180	-125	-75		-180	-125	-75		-500	-300	-180	-125	-75	
SiO ₂ (wt.%)	71.4	67.8	67.2	79.4	78.3	76.8	73.3	67.0	63.2	69.5	68.7	66.4	63.3	66.0	62.3	62.1	56.5	58.6	63.4
TiO ₂	0.63	0.77	0.79	0.33	0.31	0.34	0.44	0.49	0.55	0.81	1.08	1.03	1.12	1.53	2.83	4.64	4.96	3.85	1.97
Al ₂ O ₃	13.9	15.6	15.7	11.9	11.7	12.2	13.4	15.2	16.6	13.5	13.9	14.8	16.2	17.0	16.0	16.5	16.3	17.2	17.1
Fe ₂ O ₃	4.66	4.56	4.89	3.67	3.70	4.12	6.68	10.7	13.0	6.87	7.16	7.58	8.19	5.52	7.83	10.0	9.27	8.20	6.30
MnO	0.08	0.11	0.11	0.09	0.09	0.10	0.19	0.41	0.54	0.14	0.12	0.15	0.17	0.10	0.14	0.17	0.17	0.15	0.14
MgO	1.17	1.38	1.46	0.40	0.41	0.51	0.65	0.74	0.85	2.34	2.14	2.20	2.71	1.87	3.04	3.93	3.34	2.86	2.16
CaO	1.80	2.34	2.64	0.43	0.43	0.53	0.70	0.94	1.02	2.60	2.73	3.03	3.13	3.77	3.87	4.12	4.51	4.53	3.90
Na ₂ O	2.93	3.50	3.63	1.58	2.06	1.50	1.62	1.17	1.12	1.95	1.86	1.83	1.97	2.75	2.42	2.15	2.88	2.30	2.39
K ₂ O	3.18	3.39	3.21	3.05	3.00	2.79	2.59	2.48	2.42	2.08	2.05	2.11	2.15	2.35	1.96	1.56	1.51	1.58	1.86
P ₂ O ₅	0.10	0.08	0.09	0.04	0.04	0.04	0.07	0.12	0.17	0.10	0.14	0.24	0.33	0.20	0.16	0.14	0.15	0.18	0.26
L.O.I.	2.34	2.62	3.08	3.46	3.79	4.41	7.99	14.6	15.4	4.35	7.94	14.4	26.4	5.02	5.38	5.55	4.90	4.51	8.69
Total	99.8	99.5	99.8	101	100	99.0	99.7	99.3	99.5	99.9	99.9	99.4	99.3	101	101	105	99.6	99.4	99.5
Ba (ppm)	518	521	551	345	332	306	319	350	368	314	336	398	428	461	396	325	331	350	424
Co	19	17	19	21	21	24	51	87	96	39	40	42	45	22	39	50	45	39	29
Cr	15	29	57	56	56	59	68	89	105	113	128	157	140	51	96	122	123	130	104
Cu	—	—	0	27	28	34	85	231	313	61	70	135	165	13	11	7	7	9	16
Ni	2	3	5	41	43	54	71	111	126	47	43	56	67	16	15	14	13	14	19
Pb	21	21	23	26	23	23	23	29	31	18	34	55	69	18	17	17	18	18	25
Rb	125	121	124	113	106	97	100	113	118	81	81	94	105	95	76	57	56	60	78
Sr	150	159	177	75	72	74	79	90	98	104	109	120	118	226	198	192	222	230	220
Th	15	57	37	9	10	9	12	10	16	2	7	5	7	8	5	—	0	2	3
V	41	46	55	51	51	54	61	71	75	125	133	141	157	92	155	217	199	174	119
Y	27	44	48	14	14	14	18	25	30	19	22	29	34	20	17	14	13	17	25
Zn	79	74	86	1476	1539	1927	3523	7470	9995	243	482	756	933	68	90	120	106	98	102
Zr	161	568	1507	104	105	101	124	131	133	109	124	162	169	175	156	136	143	232	458

Table 3. Continued.

Sampling point	Matsuyama																	
	6					7					9					10		
	1000	500	300	180	<125	1000	180	125	<75	1000	500	300	180	125	<75	1000	180	<125
Grain size (μm)	-500	-300	-180	-125		-180	-125	-75		-500	-300	-180	-125	-75		-180	-125	
SiO ₂ (wt.%)	72.5	72.9	73.8	63.0	69.3	64.5	60.0	61.4	62.4	76.1	75.2	74.6	75.3	75.1	73.1	77.6	69.4	72.6
TiO ₂	0.82	1.45	1.83	7.43	2.83	1.37	3.88	2.71	2.31	0.32	0.34	0.33	0.34	0.37	0.48	0.44	4.53	2.12
Al ₂ O ₃	14.1	12.0	12.5	10.9	13.4	16.9	16.6	17.3	17.1	13.4	13.7	13.3	13.6	13.5	14.6	11.9	11.6	12.6
Fe ₂ O ₃	4.46	4.75	5.18	10.5	5.96	5.89	7.83	7.23	7.01	2.93	3.15	3.01	2.90	2.89	3.50	2.59	6.42	4.69
MnO	0.08	0.09	0.09	0.17	0.10	0.10	0.15	0.13	0.12	0.05	0.05	0.05	0.05	0.06	0.09	0.04	0.12	0.08
MgO	1.25	1.50	1.75	2.28	1.74	2.41	2.81	2.52	2.28	0.73	0.77	0.73	0.75	0.75	0.94	0.72	1.34	1.05
CaO	2.21	1.94	1.98	1.95	2.18	3.10	3.87	3.86	3.46	0.81	0.82	0.78	0.73	0.73	0.87	1.03	1.29	1.31
Na ₂ O	2.18	1.91	1.86	1.60	1.97	2.63	2.44	2.46	2.37	2.64	2.55	2.58	2.64	2.52	2.43	2.47	2.28	2.46
K ₂ O	2.54	2.32	2.23	1.87	2.19	2.40	1.87	1.91	2.02	3.35	3.45	3.43	3.41	3.35	3.30	2.77	2.51	2.71
P ₂ O ₅	0.13	0.09	0.08	0.09	0.11	0.16	0.11	0.12	0.19	0.06	0.05	0.05	0.05	0.05	0.09	0.07	0.07	0.09
L.O.I.	4.31	3.44	3.35	2.23	4.29	6.25	5.02	4.87	8.48	2.43	2.70	2.66	2.82	3.31	5.21	1.91	2.03	2.98
Total	100	98.9	101	99.8	99.8	99.5	99.6	99.6	99.3	100	100	98.8	99.7	99.3	99.3	99.6	99.6	99.8
Ba (ppm)	457	415	425	392	425	482	384	410	451	541	565	582	541	629	628	490	482	515
Co	17	20	22	55	27	26	39	33	32	8	9	9	7	8	12	7	35	18
Cr	51	72	77	105	131	61	84	77	77	31	36	30	45	89	74	31	67	128
Cu	10	8	3	7	7	19	7	8	11	3	6	3	3	4	12	4	5	7
Ni	19	17	17	12	17	20	14	14	15	15	14	13	13	15	21	14	12	13
Pb	21	16	23	14	18	21	16	19	19	21	22	21	24	22	31	18	17	18
Rb	98	84	81	66	82	99	72	76	86	123	130	127	116	122	135	94	87	97
Sr	149	121	124	96	140	205	217	231	221	119	112	107	99	105	119	114	97	113
Th	9	7	9	8	6	7	5	5	8	10	12	12	14	12	10	8	12	8
V	72	92	109	259	128	82	160	129	120	43	44	43	37	46	56	41	135	84
Y	19	17	16	16	18	19	17	19	31	20	22	22	21	23	32	15	18	20
Zn	75	74	79	103	86	99	101	99	106	51	60	58	55	61	83	55	100	100
Zr	160	137	131	192	288	179	164	200	673	149	143	136	138	225	419	131	145	346

Table 4. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values of stream sediment according to particle size in Shigenobu River system.

Sampling point	Stream sediments						
	Grain size (μm)						
	1000-500	500-300	300-180	180-125	125-75	less than 75	
Matsuyama	1	0.710773 \pm 14	0.710744 \pm 14	0.710745 \pm 20	0.710185 \pm 16	0.710482 \pm 14	0.710394 \pm 14
	2	0.710501 \pm 16	0.710843 \pm 18	0.710602 \pm 14	0.710494 \pm 16	0.710216 \pm 14	0.710146 \pm 16
	3	0.711844 \pm 14	0.711739 \pm 16	0.710970 \pm 14	0.709772 \pm 14	0.709136 \pm 14	0.708870 \pm 14
	4	0.707394 \pm 16	0.707628 \pm 18	0.707904 \pm 14	0.707881 \pm 14	0.707695 \pm 16	0.708486 \pm 14
	5	0.707582 \pm 14	0.707552 \pm 14	0.707444 \pm 13	0.707417 \pm 16	0.707556 \pm 16	0.707868 \pm 16
	6	0.708781 \pm 14	0.709092 \pm 16	0.708970 \pm 16	0.708871 \pm 16	0.708735 \pm 16	0.708816 \pm 17
	7	0.707572 \pm 18	0.707603 \pm 14	0.707543 \pm 14	0.707587 \pm 16	0.707934 \pm 14	0.708328 \pm 14
	8	0.708100 \pm 16	0.708343 \pm 16	0.708473 \pm 16	0.708825 \pm 24	0.709382 \pm 14 (<125)	
	9	0.712605 \pm 16	0.712644 \pm 26	0.712543 \pm 17	0.712371 \pm 16	0.712084 \pm 14	0.712198 \pm 14
	10	0.710690 \pm 16	0.710703 \pm 18	0.710346 \pm 16	0.710149 \pm 16	0.710321 \pm 16	0.710490 \pm 16

The errors in the final digits are $2\sigma_{\text{mean}}$.

Table 5. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values of stream sediments according to particle size in the Kotou River system, Akiyoshi limestone bedrock area.

	Bulk fraction		Carbonate fraction			Bulk fraction		Carbonate fraction	
Ak01-B	0.707757	±14	0.707862	±16	Ak05-B	0.7105501	±16	0.708649	±16
Ak01-C	0.707649	±14	0.708020	±14	Ak05-C	0.7110328	±16	0.708607	±14
Ak01-D	0.708821	±14	0.708096	±16	Ak05-D	0.7108081	±16	0.708264	±16
Ak01-E	0.711436	±14	0.707697	±16	Ak05-E	0.7104887	±14	0.707785	±17
Ak01-F	0.710230	±14	0.707820	±14	Ak05-F	0.7108958	±14	0.707746	±14
Ak01-G	0.713296	±14	0.707868	±14	Ak05-G	0.711792	±17		
Ak01-<180	0.710219	±14	0.707738	±16	Ak05-<180	0.7106623	±14	0.707769	±14
Ak02-B	0.710590	±14	0.708906	±14	Ak06-B	0.709235	±14	0.708752	±16
Ak02-C	0.710382	±14	0.708722	±17	Ak06-C	0.7093691	±14	0.708356	±14
Ak02-D	0.709821	±14	0.708673	±17	Ak06-D	0.7087118	±14	0.709008	±14
Ak02-E	0.709601	±14	0.707718	±16	Ak06-E	0.7080306	±16		
Ak02-F	0.709494	±14	0.707761	±16	Ak06-F	0.7079395	±14		
Ak02-G	0.710141	±14	0.707766	±16	Ak06-G	0.7086845	±14		
Ak02-<180	0.709643	±14	0.707725	±16	Ak06-<180	0.7082417	±14	0.707962	±16
Ak03-B	0.710744	±13	0.708395	±16	Ak07-B	0.713722	±14	0.708550	±16
Ak03-C	0.709948	±14	0.708097	±16	Ak07-C	0.7130629	±14	0.708117	±16
Ak03-D	0.710925	±16	0.708258	±14	Ak07-D	0.7113626	±17	0.708406	±14
Ak03-E	0.711682	±13	0.707674	±16	Ak07-E	0.7107726	±16	0.708236	±16
Ak03-F	0.711999	±14	0.707675	±16	Ak07-F	0.7109561	±17	0.708144	±16
Ak03-G	0.713789	±13			Ak07-G	0.712812	±14	0.707759	±17
Ak03-<180	0.711602	±14	0.707705	±14	Ak07-<180	0.7111097	±16		
Ak04-B	0.710522	±16	0.708927	±14					
Ak04-C	0.710705	±14	0.709058	±14					
Ak04-D	0.710525	±16	0.708768	±17					
Ak04-E	0.710762	±14	0.707907	±16					
Ak04-F	0.711210	±13	0.707919	±16					
Ak04-G	0.712762	±14	0.707913	±14					
Ak04-<180	0.710804	±14	0.707920	±14					

The errors in the final digits are $2\sigma_{\text{mean}}$

B: 1000–500 μm , C: 500–250 μm , D: 250–125 μm , E: 125–63 μm , F: 63–32 μm , G: < 32 μm

第2章 四国・紀伊半島地域の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布

第1節 はじめに

$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の地球化学図は、すでにヨーロッパ諸国を中心に、いくつかの報告があり (Hodell *et al.*, 2004; Voerkelius *et al.*, 2010; Frei and Frei, 2011 など), 農作物の産地推定の際に基礎データとすることが目的として掲げられている. 一方, 日本においては, 愛知県北東部の $<180\mu\text{m}$ 河川堆積物を用いた詳細な $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 地球化学図 (Asahara *et al.*, 2006) が報告されているが, 広域の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布について報告された例は少ない. この愛知県北東部の研究対象地域の面積は約 $2,400\text{ km}^2$ であり, これは日本列島の地表面積約 $380,000\text{ km}^2$ に対し, 100分の1にも満たない領域である. よって, 日本全体の実態解明には, 依然として絶対的にデータが必要な状況である.

そこで, 本研究は, 少ない試料数で比較的広範囲をカバーすることができる河川堆積物試料を用いて, 全国規模の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布図を作成する事を目指した. 第1章において, $<180\mu\text{m}$ の河川堆積物試料は, 流域に分布する母岩の平均的組成を示しているだけでなく, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 作成においても適当な試料であることが明らかになっており, 例えば, 松山市重信川流域の複数の地質が分布する地域において採取した河川堆積物の分析結果から, 流域内表面積の50%以上の割合を示す地質 (代表地質) の化学組成における特徴を反映し, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ においては, 母岩の割合を反映した混合値を示したことから明らかである. そこで, 次に, 地質の違いがどの程度河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ に反映されるか, 広域の地表面分布図作成を行う前に, 地質の分布が明瞭に地表面に表れている四国・紀伊半島地域の試料を分析し検証を行う.

第2節 四国・紀伊半島地域の地質

四国・紀伊半島地域の地質図と, 特徴的地形を Fig. 22 に示す. 紀伊半島は, 地体構造区画上, 西南日本に属し, 北から領家帯, 三波川帯, 秩父帯, 四万十帯が東西方向に帯状に分布する. 領家帯と三波川帯は中央構造線によって境されている. それぞれの最も標高が高い場所は, 四国では石鎚山 (1982 m) であり, 紀伊半島では八経ヶ岳 (1912 m) である. 主な河川としては, 四国地域では, 四万十川・吉野川があり, 紀伊半島地域には紀ノ川, 熊野川がある.

領家帯は後期白亜紀の領家変成岩, 古期領家花崗岩類, 珪長質火山岩類, 新期領家花崗岩類からなる. 四国から紀伊半島では主として花崗岩類が分布し, 片麻状構造を示す角閃

石黒雲母花崗閃緑岩からトータル岩または黒雲母花崗閃緑岩～花崗岩が卓越する古期領家花崗岩類，花崗岩を主とするが角閃石黒雲母石英閃緑岩～両雲母花崗岩まで幅広い組成を示す新期領家花崗岩類からなり，領家変成岩や古期領家花崗岩類に接触変成作用を与えている（日本の地質「四国地方」編集委員会，1991；日本地質学会，2009）．領家帯南縁部の中央構造線沿いには上部白亜系の砂岩，泥岩を主とする浅海成の和泉層群が領家帯構成岩類を不整合に覆って分布する．

三波川帯は白亜紀後期の変成年代を示し，塩基性岩，泥質岩，砂質岩，小規模の珪質岩を原岩とする低圧・高温型変成岩からなる．それらの構成岩は，ジュラ紀～白亜紀以前に，プレートの沈み込み運動に伴い付加したとされている（例えば，Isozaki and Itaya, 1990）．緑色片岩は四国西部や紀伊半島西部で優勢で，四国中央部では砂質片岩が卓越している（Hara *et al.*, 1992；栗本ほか，1998）．四国の石鎚山付近の三波川帯には粗粒碎屑岩を主とする始新統久万層群（Nagai, 1957）と安山岩質火山碎屑岩からなる中部中新統石鎚層群（Nagai, 1957; Yoshida, 1984）が分布する．四国中央部の泥質・砂質片岩からなる小歩危・川口層群については，四万十帯の北帯とみなす指摘もある（Aoki *et al.*, 2007）．

秩父帯はジュラ紀～白亜紀初期の付加体で，緑色岩，石灰岩，チャート，泥岩，砂岩などからなる．三波川帯と秩父帯の間には低変成度の主として苦鉄質岩からなり，チャートや泥質岩，石灰岩を伴う御荷鉾緑色岩類が分布する．御荷鉾緑色岩類は，現在は秩父帯に属するとされている（日本地質学会，2009）．秩父帯は紀伊半島中央部では分布が一時的に途切れている．秩父帯中には，古生代の三滝花崗岩類，寺野変成岩類，古生代や三畳紀の結晶片岩，蛇紋岩類，浅海成のシルルーデボン系，ペルム系，三畳系，ペルム紀付加体などからなる黒瀬川帯が分布する．

四万十帯は白亜紀後期の付加体からなる北帯と始新世から中新世の付加体からなる南帯に区分される．これらの付加体は砂岩や泥岩を主とし，緑色岩，チャート，酸性凝灰岩，礫岩などを伴う．紀伊半島中央部の中央構造線の南側には弱変成を受けた白亜紀後期の付加体が分布している．また四万十帯を覆う大規模な珪長質火山岩類として，紀伊半島南東部と中央部に熊野酸性岩類や大峰酸性岩類が分布する．

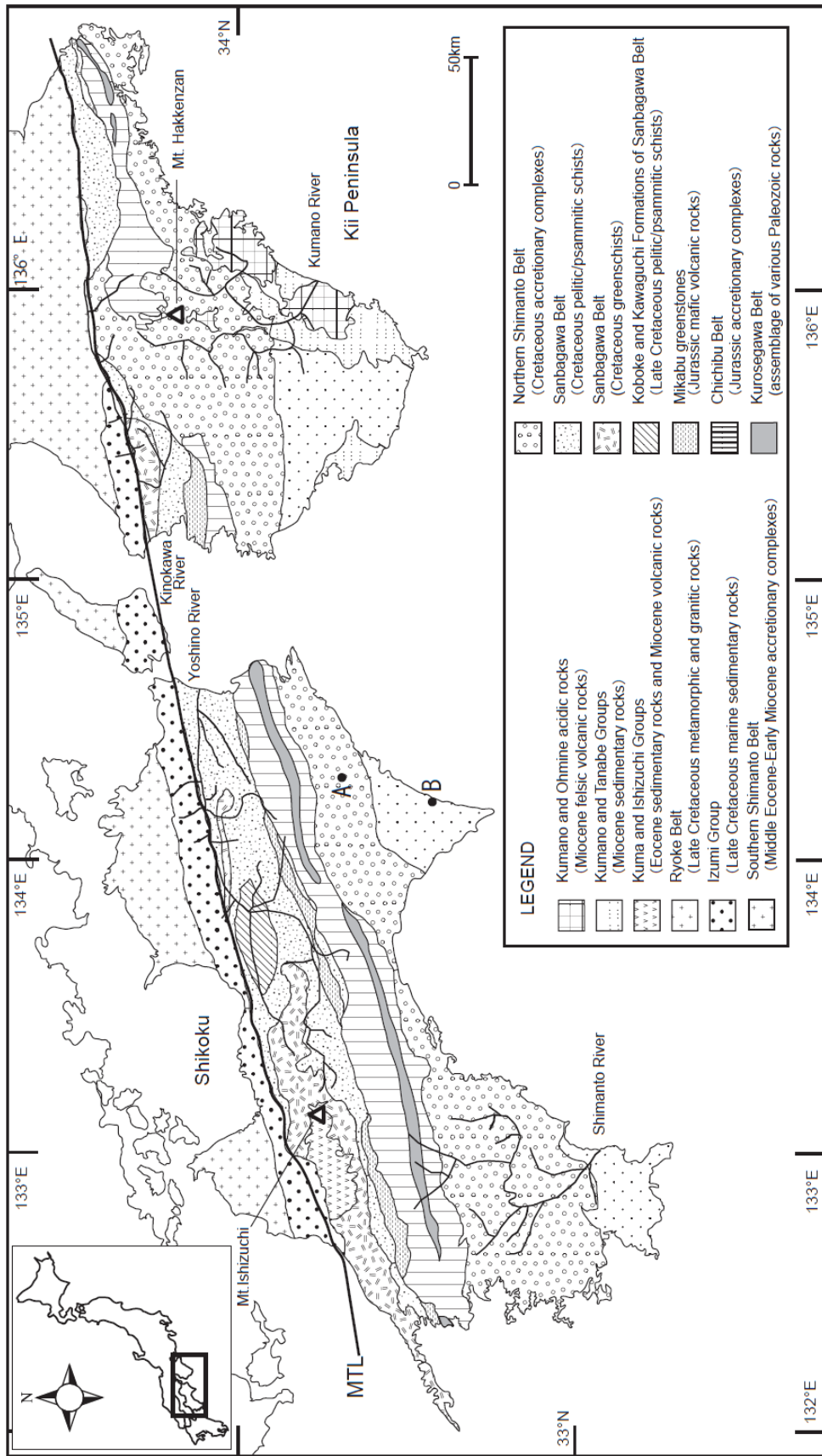


Fig. 22. Bedrock geology of Shikoku and Kii Peninsula. Points A and B are sampling points discussed in section 3.1. The figure is compiled from seamless digital geological map of Japan 1: 200,000 (Geological Survey of Japan, 2010).

第3節 試料と実験

産業技術総合研究所地質調査総合センターが採取し、保管する地球化学図作成用の 80 メッシュ (180 μm) 以下の粒度の河川堆積物を試料として用い、四国地域 158 地点、紀伊半島地域 75 地点からの合計 233 試料を分析した。試料の単位面積当たりの密度は、100 km^2 に 1 試料程度である。これらの試料の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 測定における実験方法は、第 1 章の第 1 節第 4 項と同様である。標準試料 NIST-SRM987 のこの間の測定値の平均は 0.710247 ± 0.000016 (2σ , $n = 54$) であった。また、各試料の測定値の考察を行うにあたり、流域内に分布する地表面積における母岩の割合を流域解析により明らかにし、代表地質を求めた (Table 6)。

また、後述するが、碎屑性ジルコンの年代を明らかにするため、四国東部の 2 地点において、四万十帯北帯・南帯の砂岩を地点 A, B からそれぞれ採取した (Fig. 22 参照)。ジルコンの年代は、JEOL JXA-733 マイクロプローブアナライザーを用いた CHIME 法 (Chemical Th-U-total Pb Isochron Method) によって測定をした。測定条件は、加速電圧 15 kV, ビーム径 5 μm , 電流値 0.02–0.1 μA , カウント時間 40–300 秒であった。詳細な CHIME 年代測定法における分析手順については、Suzuki *et al.* (1991) に示されている。

第4節 結果と考察

第1項 地質ごとに見た河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布の特徴

Fig. 23 に $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の分布図を示した。全体の傾向として、東西に帯状に延びた地質帯が南北に連なる構造と一致するように、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布にも帯状の値の変動がみられる (詳細データについては Table 6 を参照)。また、代表地質ごとに試料の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を示し、南北に連なる地図上の配置と同様に、最も北に位置する領家帯から最も南に位置する四十帯南帯を上下に並べて示したところ、中央構造線を境に南北で値の傾向が変わり、中央構造線以南の三波川帯、秩父帯、四万十帯北帯、四万十帯南帯の値の幅、および中央値が高くなっていることが明らかである (Fig. 24)。

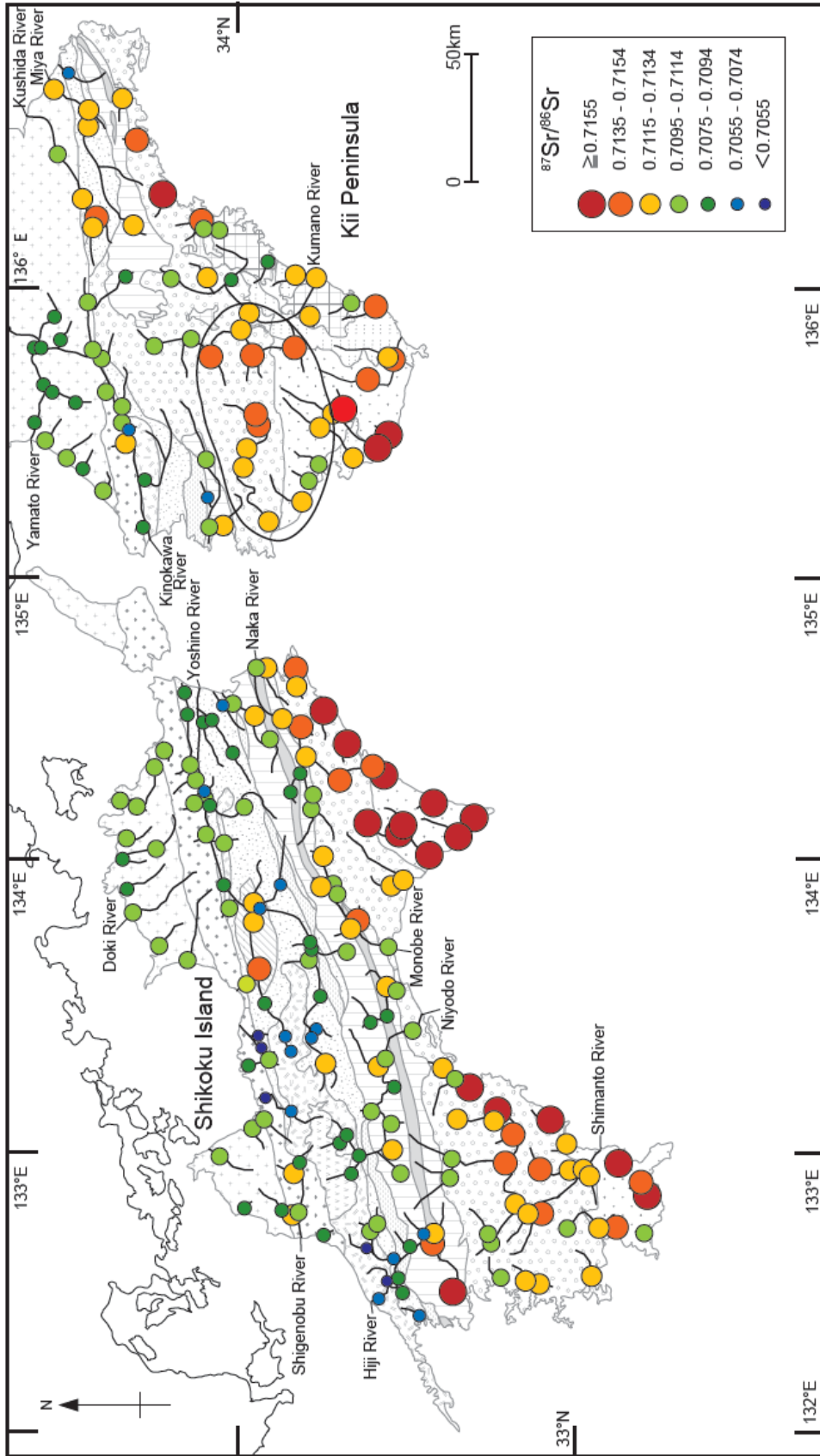


Fig. 23. Spatial distribution of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios of stream sediments in Shikoku Island and the Kii Peninsula area. The plots of the stream sediments with high $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ values are enclosed by solid lines, as shown later in Fig. 27.

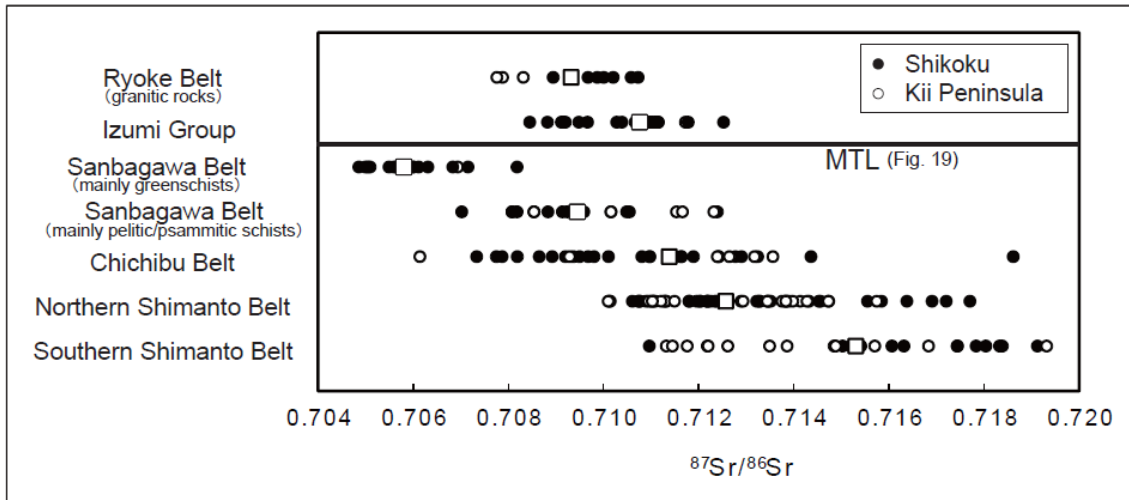


Fig. 24. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values of stream sediments according to major geology of samples. Open squares show median values.

領家帯花崗岩を代表地質とする河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は、0.708–0.711 という値を示した (Fig. 24). これは、四国北部地域の後期白亜紀花崗岩類の全岩 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の範囲 (0.708–0.717) に重なる (Kagami *et al.*, 1988, 1992). 一方、領家帯の南に位置する和泉層群を代表地質とする試料の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は、領家帯の試料よりも少し高い値を示す. Ujiie-Mikoshiha *et al.* (2011) は、領家帯花崗岩起源の河川堆積物試料が、四国地域において、最も高い Na, Ba, Rb 濃度と、最も低い Fe, V, Cr 濃度を持つこと報告している. これらの試料について $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ と Fe, あるいは Rb 濃度の関係図を示したところ, それぞれ負の相関, 正の相関を示した (Fig. 25). このことは、これらの試料が領家帯花崗岩と和泉層群堆積岩から供給された碎屑物の混合からなることを示す.

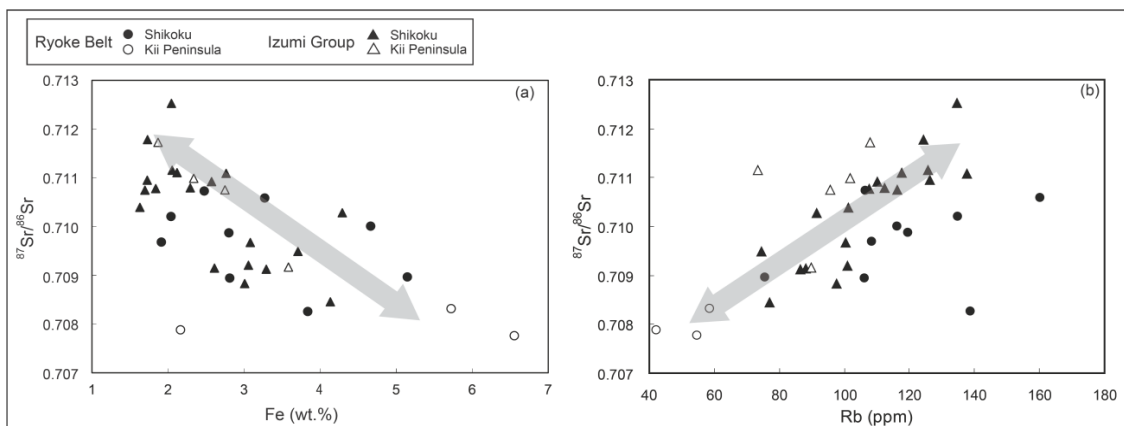


Fig. 25. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values versus (a) Fe and (b) Rb concentrations of stream sediments derived from the Ryoke Belt and Izumi Group. The Fe and Rb data are from Imai *et al.* (2010). The arrows show the mixing trend of granitoids and sedimentary rocks.

三波川帯は化学組成上の特徴がそれぞれ異なる緑色片岩と泥質・砂質片岩からなり、その差はCa濃度の違いとして顕著に表れる。三波川起源の河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ に対してCa濃度を示すと、その傾向は明らかになる (Fig. 26)。緑色片岩が主な源岩の試料は高いCa濃度と低い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ (0.705–0.707)、泥質・砂質片岩が主な源岩の河川堆積物は低いCa濃度と高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ (0.707–0.714) を持ち、これは源岩の性質の違いを反映している。

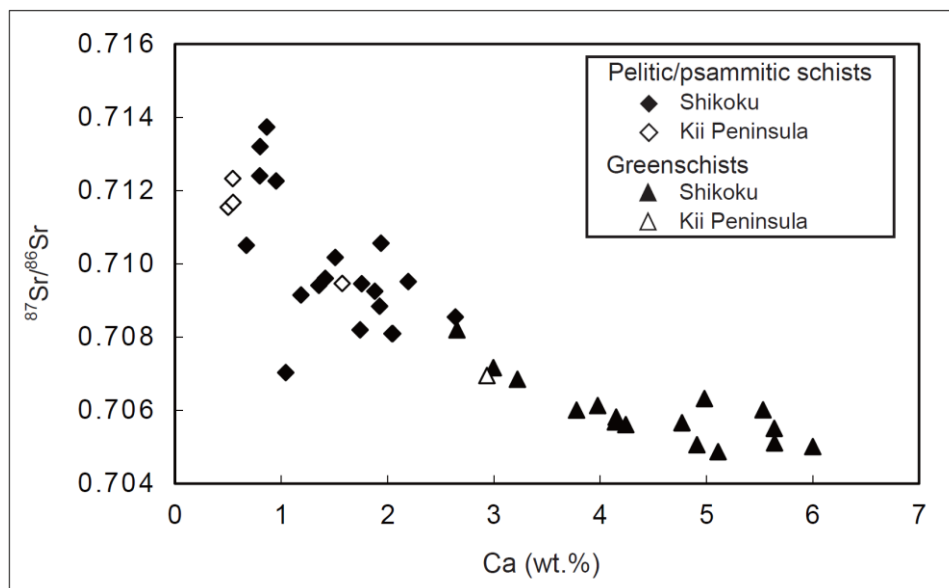


Fig. 26. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values versus Ca contents of stream sediments derived from the Sanbagawa Belt. The Ca data are from Imai *et al.* (2010).

秩父帯は、古生代の花崗岩類や変成岩・シルル紀–デボン紀の堆積岩・蛇紋岩からなる黒瀬川帯を含むなど、石炭紀～白亜紀前期の幅広い年代とさまざまな成因の岩体の複合体であるため、流域の河川堆積物もさまざまな同位体比を示すと考えられる。実際に得られた $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は0.707–0.719とばらついている。

四万十帯は北帯が白亜紀、南帯が始新世～中新世の付加年代を示す地質帯で付加年代は南ほど新しい。そのため、北帯の試料ほど高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ をもつと予想される。しかし、実際には北帯よりも南帯で高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が得られる結果となった。このことについては、後の項で考察する。

第2項 地質ごとの河川堆積物の $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ - $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$

Fig. 23 と Fig. 24 で明らかとなった地質ごとの $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 変動は、流域に分布する様々な起源物質の不均一性を反映したのものである。より詳細な検討を行うために、試料の代表地質ごとに $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ に対して $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ を示した (Fig. 27a-d)。

Fig. 27a には、領家帯起源の河川堆積物試料の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ - $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ を示している。この図上で、15022, 15027, 16039, 22003 の四国北西部の試料による直線が、四国北西部の後期白亜紀 93 Ma の花崗岩の初生値 0.7077 の Rb-Sr 全岩アイソクロン (Kagami *et al.*, 1988) にほとんど重なる。また、一方で、23008, 24018, 24019, 24020 の四国北東部の試料では異なる直線が引け、74–69 Ma 花崗岩の全岩 Rb-Sr 全岩アイソクロン (Yuhara *et al.*, 2000) とほぼ重なる。

白亜紀堆積岩である和泉層群には、領家帯の花崗岩がその起源の一つとして報告されている (Nishimura, 1976)。和泉層群起源の河川堆積物は領家帯花崗岩起源の試料によってひかれた2つのアイソクロンの間に位置しており (Fig. 27a)、これは和泉層群の砂岩のほとんどが、領家帯花崗岩に由来する碎屑物からなることを示唆していると考えられる。この結果から、河川堆積物の $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ - $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は基盤岩の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ による分布図と同等に、試料採取地点の上流域の母岩を反映していることが明らかである。

Fig. 27b で明らかのように、三波川緑色片岩が主に分布する地点の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は約半数が 0.705–0.706 であり、Watanabe *et al.* (1998) による愛媛県における三波川帯の枕状溶岩の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 同位体比測定値 0.704–0.705 とほぼ一致する。また、この枕状溶岩の Rb-Sr 全岩アイソクロン年代 (107 Ma, 初生値は 0.704) は、既報の三波川帯泥質片岩の変成年代と一致している (Yamaguchi and Yanagi, 1970; 南新ほか, 1979)。河川堆積物のプロットは、この枕状溶岩のアイソクロンに近い傾きを持ち、初生値を見積もると約 0.705 である (Fig. 27b)。一方で、泥質・砂質片岩起源の試料のプロットは、緑色片岩起源の試料よりも高い $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ - $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の領域にプロットされ、緑色片岩起源の試料から引かれる仮想アイソクロンとは離れた位置でもある。このことは、泥質・砂質片岩の変成前の原岩が、高い $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比を持つ古い堆積岩と、低い $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を持つ火成岩の混合からなっているとすれば説明できる。

秩父帯起源の試料は Fig. 27c の図上では様々な値を示し、 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ は 0.8–5.4, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は 0.707–0.719 であった。秩父帯北部起源の試料 (実線の円で囲まれたプロット) は三波川帯の泥質・砂質片岩のプロットに近い領域に位置するのに対し、秩父帯南部起源の試料はそれよりも $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が高い領域に位置しており、それぞれの碎屑物の起源が異なることが示唆

される。

四万十帯起源の河川堆積物は 0.710–0.719 の高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を示し、 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ は 1.2–7.5 と範囲が広い (Fig. 27d)。四国四万十帯由来の河川堆積物試料は、秩父帯南部由来の試料とほぼ同じ $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ 、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値を示す。これは、それぞれの源岩である秩父帯南部の堆積岩と四万十帯堆積岩を構成する砕屑物は、その大部分が同一の後背地から供給を受けたものであることを示している結果と考えられる。また、ほとんどの四万十帯由来の試料は、高 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ ・高 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ をもつ古い年代の大陸起源砕屑物と低 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ ・低 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ をもつ砕屑物 (例えば、三波川緑色片岩由来) の混合で説明できる。このことから、四万十帯堆積岩を構成する砕屑物は、そのほとんどが秩父帯と同一の後背地から供給されたものであることに加え、大陸起源の砕屑物秩父帯や三波川帯よりも多く含まれる可能性を示す。

Fig. 27d からは、紀伊半島の四万十帯起源河川堆積物の中でいくつかの試料は、四国の四万十帯起源の試料よりも高い $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ と低い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を持つことが示された。そのような特徴を持つ河川堆積物は、紀伊半島の北帯と南帯の境界部分にて採取された試料であった (Fig. 23 の実線で囲まれた部分)。このことから、高い $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ を持つ母岩の存在が示唆される。

以上の結果は、 $<180\ \mu\text{m}$ 河川堆積物は試料採取地点の上流の母岩の $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ 、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を反映することを示している。これは、 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ – $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 図上で仮想アイソクロンに基づいて、堆積岩の起源についての知見が得られるということの意味する。

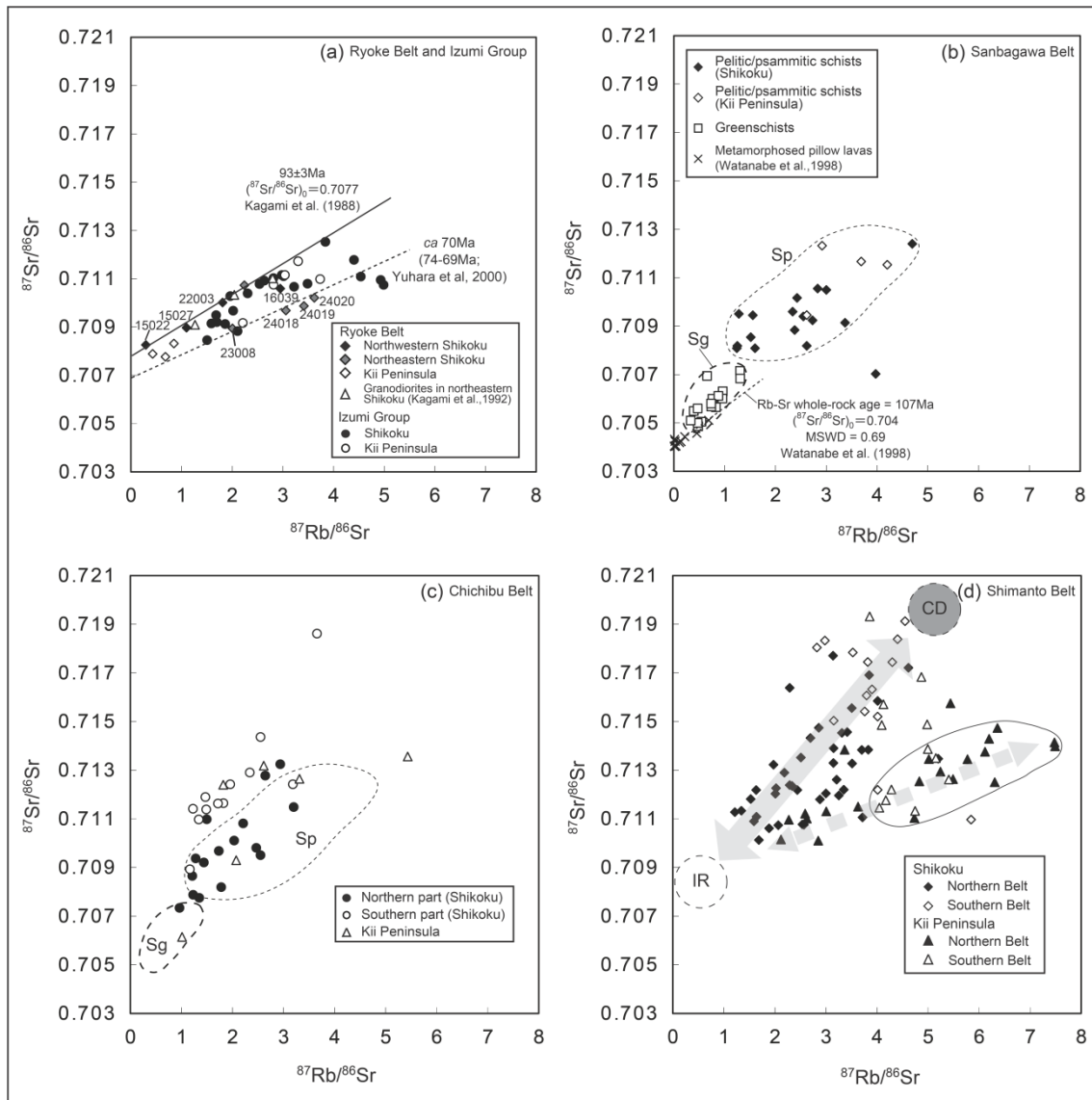


Fig. 27. Plots of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ versus $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ for stream sediments derived from (a) the Ryoke Belt and Izumi Group, (b) the Sanbagawa Belt, (c) the Chichibu Belt, and (d) the Shimanto Belt. The plots of the stream sediments supplied from the pelitic/psammitic schist area in the Sanbagawa Belt in Fig. 6b, are enclosed by short-dashed lines, while those from the green greenschist area are enclosed by long-dashed lines. Figure 6c shows the enclosed lines for comparison with the plots of the stream sediments in the Chichibu Belt. The plots of the stream sediments with high $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ values in Fig. 6d are enclosed by solid lines. The solid arrows in Fig. 6d show the mixing trend of continental detrital materials (abbreviated to CD) and igneous-rock-derived materials (abbreviated to IR) observed in the stream sediments in Shikoku. The dotted arrows in Fig. 6d show a linear array of the stream sediments in the Kii Peninsula.

第3項 四万十帯堆積岩中の大陸起源砕屑物の量の違いと河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ への影響

白亜紀から古第三紀の付加体である四万十帯は、主に西南日本の珪長質から中性岩由来の陸源性砕屑物から構成される（寺岡ほか，1999）。よって、四万十帯南帯由来の河川堆積物が高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を示すのは、母岩である四万十帯砂岩中に高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を示す砕屑物が元々含まれているためと考えられる。四万十帯南帯には、隣接する四万十帯北帯からの砕屑物の供給が考えられるが、四万十帯北帯で得られた値よりも高い値が示されたことから、高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を持つ年代のより古い砕屑物の供給を考えねばならない。現在の地質帯の位置から考えれば四万十帯に砕屑物を供給し、なおかつ $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を高く示す源岩として最も可能性が高いのは四万十帯の北に隣接する秩父帯である。しかし、秩父帯起源の河川堆積物の示す $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は主に 0.707–0.714 であるため、四万十帯南帯起源の河川堆積物が示す 0.714 以上の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値を説明する起源物質としては不適切である。よって、現在の地質構造よりもさかのぼって砕屑物の起源をたどる必要がある。そこで、日本海拡大前までは、日本列島がユーラシア大陸の東端に位置していたことから、ユーラシア大陸起源の砕屑物が、四万十帯の堆積岩中に供給されている可能性がある。つまり、大陸起源の砕屑物の量の違いが、四万十帯北帯と南帯の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値の差を生じさせる要因であると予測した。

まず、大陸起源砕屑物の影響を見る指標である K/Ti を用いて検証を行った。これは K が大陸起源砕屑物であるイライトを構成する主要鉱物であることから、大陸起源砕屑物の寄与が増加するほど K/Ti が増加するのを利用するものである（木村ほか，2003）。四万十帯由来と、秩父帯や三波川帯砂質・泥質片岩起源の河川堆積物について、それぞれ K/Ti の比較を行うと、四万十帯由来の河川堆積物は、三波川帯・秩父帯由来の河川堆積物よりも高い値を示した（Fig. 28a）。また、これまで述べてきたように、 K は長期間の風化を経ても鉱物から溶出しにくいのに対し、 Ca は鉱物から溶出しやすい。その為、 Ca/Ti 比は風化の程度を示すと考えられる。実際に、 Ca/Ti 比を調べたところ、 K/Ti と逆の傾向を示した（Fig. 28b）。これらの結果より、四万十帯堆積岩は、三波川帯・秩父帯と比較し、ユーラシア大陸起源の年代が古く風化過程を長期間受けた砕屑物をより多く含んでいると考えられる。

Fig. 29 には、三波川変成帯の泥質・砂質片岩、秩父帯、四万十帯北帯・南帯地域で採取された河川堆積物の REE 濃度（今井ほか，2010）から平均値を求め、この値をコンドライトの REE 濃度（Masuda *et al.*, 1973; Masuda, 1975）で規格化した REE パターンを示した。この 4 つのパターンの特徴としては、三波川帯、秩父帯、四万十帯北帯、南帯の順に LREE に富み、Eu の負異常を示すことが挙げられる。また、最も南に位置するの四万十帯南帯の試料については、LREE に富んだ大陸地殻に近い特徴を示す一方で、四万十帯北帯、秩父帯、

三波川変成帯の泥質・砂質片岩の順に HREE の減少の割合は下がっていく。大まかな傾向として、海洋性苦鉄質物質は LREE が欠乏し、HREE に富む性質があり、大陸性物質は LREE に富み、HREE が欠乏する特徴がある。四国・紀伊半島地域の付加体起源の河川堆積物の REE パターンは、これらの物質のパターンの混合されたものであると考えられる。よって、最も HREE が欠乏している四万十帯南帯のパターンは、他の地域よりも大陸からの影響が強いと言える。これらのデータは前述の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ・元素濃度の結果と調和的である。

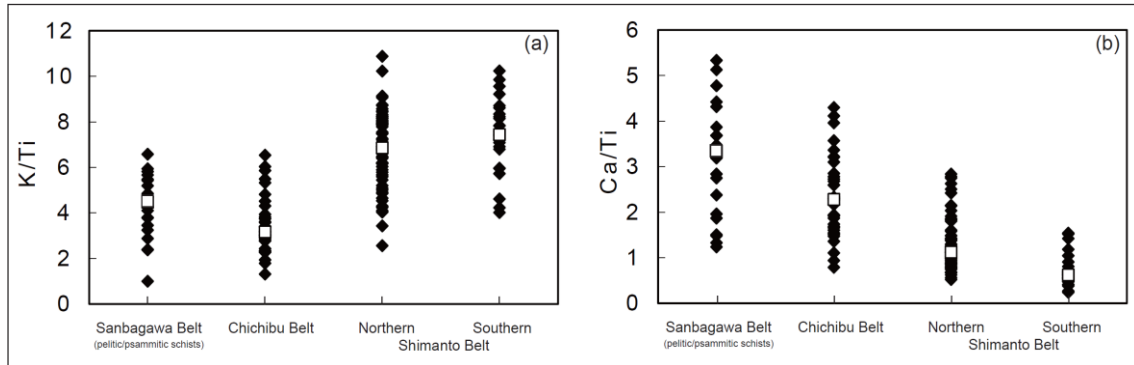


Fig. 28. (a) K/Ti ratios and (b) Ca/Ti ratios of stream sediments derived from the pelitic/psammitic schist area in the Sanbagawa Belt, the Chichibu Belt, and the Northern and Southern Shimanto Belts. Open squares show median values.

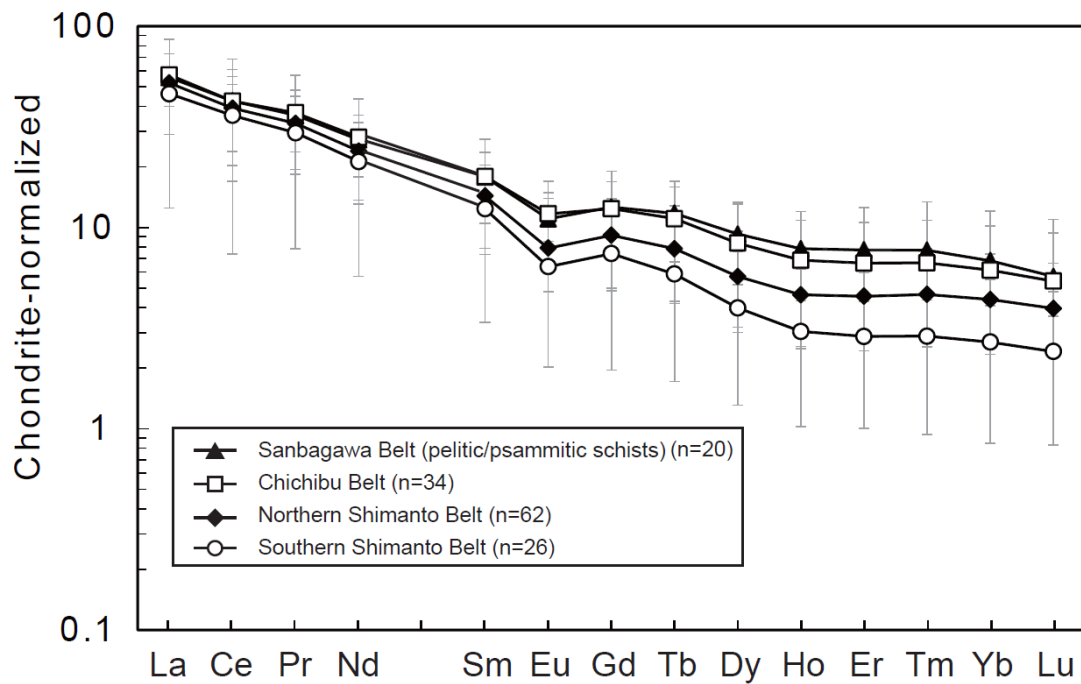


Fig. 29. Chondrite-normalized REE patterns of stream sediments derived from the Sanbagawa, Chichibu, and Shimanto Belts. Averaged REE concentrations for 20, 34, 62, and 26 stream sediment samples in the Sanbagawa, Chichibu, Northern Shimanto, and Southern Shimanto Belts were used to construct the respective REE patterns.

さらに、四万十帯起源の河川堆積物中の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が南北で異なる理由を検討するため、四国東部において、四万十帯北帯砂岩と南帯砂岩をそれぞれ地点 A, B で採取した (Fig. 22). 採取した砂岩を粉末状に粉碎し、ジルコンを分離して、南帯砂岩ジルコンから 55 個、北帯砂岩ジルコンから 23 個選択し CHIME 年代測定で火成年代を得た. その結果、南北両帯において 600–1000 Ma, 1800–2200 Ma などの火成年代をもつジルコンの存在が明らかとなった (Fig. 30a). 西南日本において、そのような火成年代を持つ碎屑物の源岩となりうるものは現在見つかっていないことから、これは、大陸地殻をなす基盤岩からの碎屑物の供給を示唆する証拠である.

また、今回測定したジルコンの各年代の割合において、四万十帯南帯のほうが 2200–2800 Ma を示すジルコンが相対的に多かった (Fig. 30b). CHIME 年代測定の特長上、特に 100 Ma 以前の新しいジルコンが測定に適さないため、今回はそれらのジルコンを測定用には選択しなかった. よって、全体量に対する正確な割合は明らかでないが、顕微鏡下の観察結果では、100–250 Ma ほどの比較的新しいジルコンが全体の約 8 割を占めると考えられる. これを考慮すれば 2200–2800 Ma の年代を示すジルコンは北帯では全体の 0.5–1.1% であり、南帯では全体の 2.2–4.3% と換算でき、両帯の差は約 2% である. 次に、これらジルコンの割合の違いが碎屑物の量比に比例すると仮定し、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ への影響を計算する. まず、四万十帯北帯と南帯の堆積岩を構成する 1 つの起源物質として、 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ が 3, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$: 0.710 の値を持つ一般的花崗岩を仮定する. もう一つの起源物質として、先に仮定した花崗岩が、今回得られた最も古い年代である、28 億年経過した岩石を仮定する. 年代が古い岩石は、計算上 0.823 という非常に高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を持つ. この古い年代の岩石から供給された碎屑物が、一般的な花崗岩由来の物質に対して 2.5% 入り込んだとすれば、堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は 0.713 に増加する. また年代の古い岩石が碎屑物全量に対して 4.5% 混合した場合、堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は 0.715 となり、この値はそれぞれ現在の北帯と南帯の河川堆積物の平均値と一致する. よって非常に高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を持つ、年代の古い岩石由来の碎屑物の供給を考慮することで、わずか 2% の碎屑物供給量の違いであっても、十分に北帯と南帯の河川堆積物に見られる $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の系統的な違いを説明できる. 以上のことから北帯よりも南帯の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が高くなっているのは、特に 2200 Ma 以前の年代を示す碎屑物が南帯中により多く含まれているという仮定と矛盾しない.

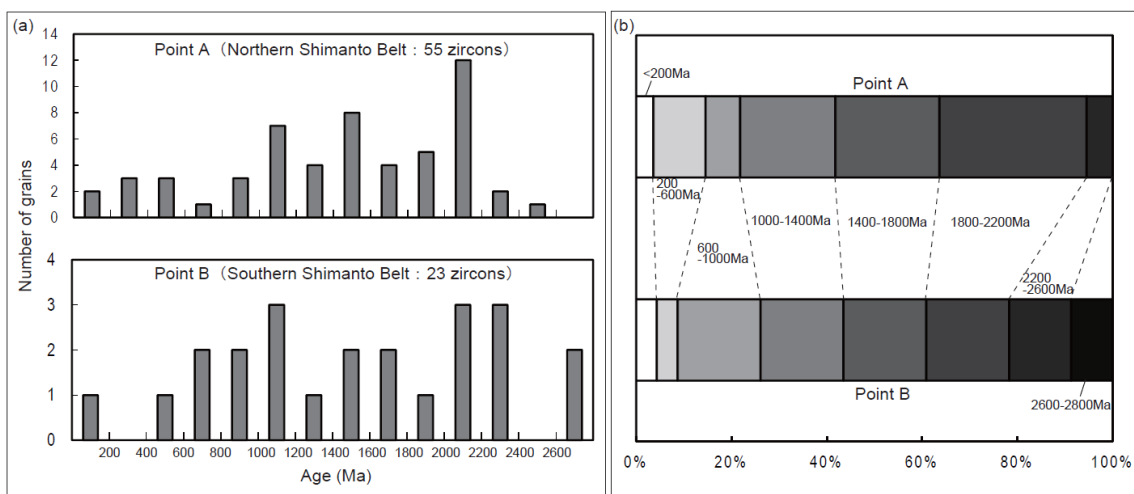


Fig. 30. (a) Frequency and (b) proportion of CHIME ages of zircons collected from the Northern Shimanto Belt (point A in Fig. 22) and the Southern Shimanto Belt (point B in Fig. 22).

第4項 河川の上流から下流にかけての母岩の変化と河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 及び元素濃度への影響

次に、複数の地質上を流れる河川で採取された河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 及び元素濃度の変化について検証を行った。

三波川帯緑色片岩分布または緑色岩が流域に分布する吉野川の試料 16028 と、銅山川の試料 16055, 16056 は 0.706–0.707 という $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を示す (Fig. 31a)。また、泥質・砂質片岩地域の試料 (16027, 16029, 16031, 16032, 16035, 16044) はそれよりも高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値 0.707–0.710 を示している。一方で、小歩危・川口層分布上を流れる吉野川で採取された試料 16046, 16047, 16048 は Fig. 31a の範囲で最も高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値 (0.712–0.714) を示した。これらの試料は、流域に占める地質の割合からは、三波川帯の泥質・砂質片岩が優勢であるにも関わらず、その他の泥質・砂質片岩地域の試料と比較し、明らかに高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を示した。以下、この理由について検討する。

Fig. 31b には、これらの試料を、河川堆積物中の碎屑物量が最も多いと予想される地質ごとに分け、いくつかの主成分元素と微量成分元素濃度を日本の河川堆積物の平均値 (今井ほか, 2010) で規格化した値を示した。その結果、起源となる地質ごとに河川堆積物中の元素濃度の特徴が異なった。例えば、三波川帯緑色片岩地域の河川堆積物は、泥質・砂質片岩地域の試料及び小歩危・川口層地域の試料と比較し、一般的に珪長質岩に多く含まれる元素である K_2O , Ba , Rb , La の濃度が低く、苦鉄質鉱物に多く含まれる元素である Sr , CaO , MgO , V , Sc , Cr の濃度が高い。Ujiiie-Mikoshiha *et al.* (2011) は、産総研地球化学図に用いられた試料のうち、三波川帯地域の河川堆積物の元素濃度の変動が、様々な塩基性–超塩基性岩の特徴と、緑色片岩と泥質・砂質片岩の割合の変動を反映したものであると報告している。よって、16028, 16055, 16056 の低い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値 (0.706–0.707) は緑色片岩起源であり、16027, 16029, 16031, 16032, 16035, 16044 の値 0.707–0.710 は泥質・砂質片岩起源であると考えられる。よってこれらの値に対し、16046, 16047, 16048 の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値 0.712–0.714 は、小歩危・川口層起源を反映した値と言える。さらに、これら3地点の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値は本研究の四万十帯北帯起源の河川堆積物の値の範囲 (0.710–0.718) 内に収まるものであり、Aoki *et al.* (2007) によって指摘された、従来は三波川帯に属するとされていた泥質・砂質片岩である小歩危・川口層が、ジルコンの年代分布の結果からは四万十帯北帯に属すると判断され、上部の三波川帯の削剥によって表出した地域であるとする主張と矛盾しない。

吉野川のように周囲の山地が急峻な地域 (傾斜 20–30 度, 40–60%) では、図には記載さ

れていないが、本流に流れ込む小さな支流からの土砂供給量が大きいためと考えられる。以上のことから、小歩危・川口層の直上の地点で採取された河川堆積物が、流域の大部分を占める三波川変成帯でなく、試料採取地点周辺の小歩危・川口層自体の組成を強く反映したと解釈できる。よって、比較的山地地形に富む四国・紀伊半島地域においては、河川堆積物を採取した近傍の母岩からの再移設物供給量が多いために、流域全体の平均的な値ではなく、結果として地質帯と対応する帯状の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布が得られたと考えられる。

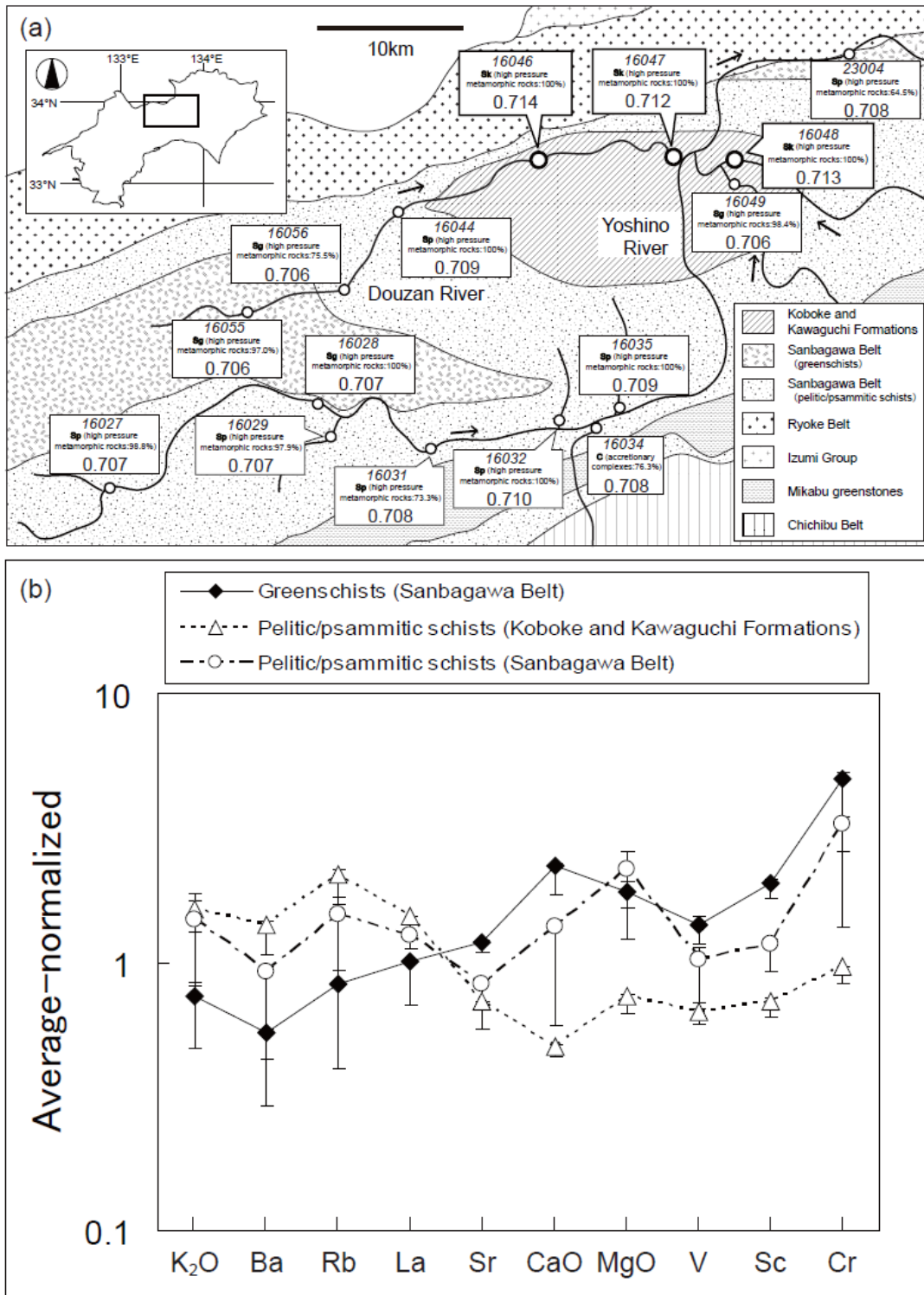


Fig. 31. Stream sediments in the catchment area of the Yoshino and Douzan Rivers. a) Bedrock geology and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values of stream sediments in the area. Sg=Greenschist-distributed area, Sp=Pelitic and psammitic schist-distributed area, and Sk=Koboke and Kawaguchi Formation-distributed area. b) Major and trace element concentrations of stream samples in the area. The data were normalized to the average values of stream sediments in all over Japan.

Table 6. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$, Rb and Sr concentrations, $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$, and major geological units of samples in Shikoku Island and the Kii Peninsula areas.

Sample	Latitude (N)	Longitude (E)	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}^a$	Rb ^b	Sr ^b	$^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}^c$	Major geology ^d
Shikoku Island							
10001	32°47'37"	132°41'13"	0.710964±14	118	57.1	5.84	SS [1 (79.7%), 8 (20.3%)]
10002	32°46'51"	132°50'38"	0.719123±16	92.0	57.0	4.55	SS [1 (99.9%), 4 (0.1%)]
10003	32°47'38"	132°53'46"	0.715200±17	89.7	63.1	4.01	SS [1 (61.3%), 4 (38.7%)]
10004	32°57'39"	132°35'10"	0.711795±14	78.6	77.0	2.88	NS [1 (93.6%), 4 (6.4%)]
10006	32°53'20"	132°43'42"	0.715410±14	91.6	68.7	3.76	SS [1 (99.9%), 3 (0.1%)]
10007	32°57'32"	132°45'4"	0.711963±37	93.9	81.4	3.26	NS [1 (100%)]
10008	32°58'9"	132°54'24"	0.712379±13	98.1	121	2.29	NS [1 (90.5%), 4 (9.5%)]
10009	32°58'43"	132°56'0"	0.712253±16	88.6	124	2.02	NS [1 (97.4%), 4 (2.6%)]
10010	32°51'47"	132°57'16"	0.718383±14	92.6	59.3	4.41	SS [1 (100%)]
10011	33°6'38"	132°31'15"	0.712606±21	104	91.1	3.21	NS [1 (100%)]
10012	33°7'39"	132°31'57"	0.712037±14	101	95.4	3.00	NS [1 (95.5%), 4 (4.5%)]
10013	33°2'53"	132°41'53"	0.711056±16	113	85.7	3.72	NS [1 (90.9%), 8 (9.1%)]
10014	33°5'45"	132°47'33"	0.713830±14	118	90.2	3.71	NS [1 (99.1%), 8 (0.9%)]
10015	33°8'37"	132°47'3"	0.712183±20	90	104	2.44	NS [1 (88.0%), 8 (12.0%)]
10016	33°0'23"	132°55'48"	0.712191±17	112	94.6	3.35	NS [1 (98.2%), 4 (1.2%), 2 (0.6%)]
10017	33°5'58"	132°57'48"	0.714321±14	106	111	2.70	NS [1 (97.3%), 2 (2.7%)]
10018	33°13'52"	132°34'25"	0.710764±18	75.3	83.6	2.54	NS [1 (100%)]
10019	33°14'52"	132°41'57"	0.710610±23	81.5	122	1.89	NS [1 (98.1%), 8 (1.9%)]
10020	33°15'14"	132°42'34"	0.711323±20	74.7	157	1.35	NS [1 (100%)]
10022	33°10'59"	132°47'46"	0.712026±13	83.7	118	2.01	NS [1 (100%)]
10024	33°12'18"	132°58'24"	0.713516±23	105	118	2.51	NS [1 (100%)]
10025	33°20'0"	132°57'43"	0.711272±14	81.2	188	1.22	NS [1 (91.1%), 4 (7.3%), 9 (1.5%)]
11001	33°2'0"	132°1'22"	0.712185±14	125	87.6	4.01	SS [1 (100%)]
11002	33°4'28"	132°6'35"	0.715551±16	116	93.4	3.51	NS [1 (100%)]
11003	33°11'43"	132°5'6"	0.714562±16	116	96.2	3.42	NS [1 (100%)]
11004	33°14'6"	132°7'55"	0.712890±14	101	130	2.19	NS [1 (100%)]
11005	33°13'0"	132°8'30"	0.716906±16	109	79.9	3.85	NS [1 (100%)]
11006	33°16'40"	132°14'35"	0.715845±16	125	87.6	4.01	NS [1 (100%)]
15001	33°27'12"	132°25'52"	0.706016±14	47.4	162	0.83	— [2 (43.8%), 12 (30.8%), 1 (25.4%)]
15002	33°20'47"	132°32'8"	0.718613±14	98.3	75.9	3.66	C [1 (77.0%), 4 (23.0%)]
15003	33°28'58"	132°39'51"	0.707153±17	69.6	151	1.30	Sg [12 (64.4%), 1 (15.4%), 2 (13.2%)]
15004	33°27'7"	132°41'25"	0.707870±16	74.0	170	1.23	C [1 (100%)]
15005	33°24'1"	132°42'19"	0.714361±14	88.6	98.1	2.55	C [1 (91.9%), 11 (3.2%), 4 (2.2%)]
15006	33°24'46"	132°43'17"	0.707335±16	69.0	202	0.96	C [1 (95.1%), 3 (4.9%)]
15007	33°24'16"	132°43'53"	0.712419±14	100	145	1.96	C [1 (75.7%), 4 (17.2%), 11 (4.7%)]
15008	33°21'40"	132°55'15"	0.710895±13	95.9	170	1.59	NS [1 (87.9%), 3 (5.3%), 4 (4.2%)]
15009	33°29'39"	132°57'32"	0.710807±14	98.9	126	2.21	C [1 (83.8%), 3 (15.6%), 5 (0.6%)]

Table 6. Continued.

Sample	Latitude (N)	Longitude (E)	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}^a$	Rb ^b	Sr ^b	$^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}^c$	Major geology ^d
15010	33°35'31"	132°30'6"	0.705995±16	52.0	193	0.76	Sg [12 (52.5%), 1 (20.6%), 4 (14.3%)]
15011	33°30'15"	132°31'53"	0.709398±13	95.7	106	2.55	Sp [12 (62.2%), 1 (35.3%), 2 (2.3%)]
15012	33°31'54"	132°35'18"	0.705047±14	39.4	205	0.54	Sg [12 (88.5%), 1 (6.9%), 4 (4.7%)]
15013	33°30'10"	132°35'46"	0.707749±17	64.9	136	1.35	C [1 (78.2%), 2 (12.5%), 4 (8.3%)]
15014	33°36'14"	132°40'59"	0.704859±17	34.4	202	0.48	Sg [12 (92.6%), 6 (3.8%), 4 (3.5%)]
15015	33°34'42"	132°46'34"	0.710548±17	119	119	2.83	Sp [12 (76.7%), 4 (17.4%), 6 (5.9%)]
15016	33°34'2"	132°47'5"	0.709801±16	105	120	2.47	C [1 (53.7%), 2 (30.5%), 12 (15.8%)]
15017	33°36'55"	132°56'35"	0.707717±20	82.9	145	1.61	— [12 (48.8%), 6 (30.1%), 4 (17.7%)]
15018	33°36'59"	132°58'40"	0.708082±17	85.3	151	1.60	Sp [12 (62.5%), 6 (17.9%), 4 (16.8%)]
15019	33°43'47"	132°41'36"	0.708825±17	97.6	131	2.11	IG [4 (56.0%), 6 (26.7%), 12 (17.3%)]
15020	33°48'39"	132°45'17"	0.711780±14	124	79.8	4.40	IG [4 (98.9%), 11 (1.1%)]
15021	33°48'4"	132°45'7"	0.710666±13	129	113	3.22	IG [4 (77.6%), 6 (19.7%), 12 (2.7%)]
15022	33°49'44"	132°46'28"	0.708257±14	139	1321	0.30	R [8 (74.1%), 11 (12.9%), 4 (11.6%)]
15023	33°49'15"	132°54'12"	0.712523±14	135	99.0	3.84	IG [4 (60.5%), 11 (29.6%), 8 (10.0%)]
15024	33°47'31"	132°56'50"	0.709201±14	101	168	1.70	IG [4 (62.6%), 6 (36.8%), 12 (0.6%)]
15027	33°58'25"	132°46'22"	0.708965±16	75.7	194	1.10	R [8 (75.6%), 10 (23.9%), 4 (0.5%)]
16001	33°20'7"	132°8'33"	0.712348±14	95.8	116	2.34	NS [1 (100%)]
16002	33°23'5"	133°16'28"	0.710736±14	87.2	119	2.07	NS [1 (100%)]
16003	33°24'22"	133°18'15"	0.713289±14	89.1	79.9	3.15	NS [1 (100%)]
16005	33°29'25"	133°27'3"	0.710123±14	74.7	125	1.69	NS [1 (100%)]
16006	33°31'55"	133°1'53"	0.712775±16	72.7	77.7	2.64	C [1 (100%)]
16007	33°31'54"	133°7'53"	0.710976±14	73.2	138	1.50	C [1 (71.4%), 4 (28.6%)]
16008	33°34'15"	133°10'10"	0.709504±17	65.1	144	1.28	Sp [12 (63.1%), 1 (33.3%), 2 (3.5%)]
16009	33°32'15"	133°14'44"	0.709368±14	65.7	145	1.28	C [1 (74.7%), 2 (9.9%), 12 (7.8%)]
16011	33°34'46"	133°18'37"	0.713244±13	82.5	79.3	2.94	C [1 (68.2%), 12 (31.7%), 2 (0.1%)]
16012	33°33'34"	133°19'53"	0.709501±13	114	126	2.55	C [1 (71.0%), 4 (26.2%), 9 (2.8%)]
16013	33°37'11"	133°28'49"	0.708652±16	66.2	154	1.22	C [1 (100%)]
16014	33°33'2"	133°30'15"	0.708922±14	58.9	143	1.17	C [1 (95.1%), 4 (2.9%), 5 (2.0%)]
16015	33°32'46"	133°34'16"	0.710828±14	52.9	198	0.75	su [13 (65.0%), 5 (21.6%), 1 (13.4%)]
16016	33°34'8"	133°35'1"	0.711639±14	53.5	82.8	1.82	C [1 (61.0%), 4 (33.6%), 5 (3.2%)]
16017	33°32'15"	133°41'27"	0.711397±13	77.1	108	2.02	— [1 (49.8%), 4 (48.4%), 9 (1.8%)]
16019	33°39'17"	133°46'54"	0.712903±17	81.6	98.5	2.34	C [1 (91.2%), 4 (8.8%)]
16020	33°39'4"	133°47'34"	0.713898±14	82.2	73.7	3.15	NS [1 (82.7%), 4 (17.3%)]
16021	33°33'13"	133°54'16"	0.713272±13	138	111	3.51	NS [1 (100%)]
16023	33°29'32"	133°55'29"	0.713468±14	181	98.4	5.20	NS [1 (96.8%), 2 (2.0%), 4 (1.2%)]
16024	33°41'16"	133°2'10"	0.708187±16	127	160	2.24	— [6 (43.6%), 12 (31.2%), 4 (23.1%)]
16025	33°40'17"	133°3'10"	0.708183±13	137	148	2.62	Sp [12 (65.0%), 6 (23.6%), 8 (6.8%)]
16026	33°50'2"	133°8'53"	0.705648±16	65.1	222	0.83	Sg [12 (73.9%), 4 (20.0%), 6 (6.1%)]
16027	33°43'18"	133°18'43"	0.712394±14	154	92.6	4.70	Sp [12 (98.8%), 4 (1.2%)]
16028	33°47'13"	133°24'29"	0.706832±14	77.6	168	1.31	Sg [12 (100%)]

Table 6. Continued.

Sample	Latitude (N)	Longitude (E)	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}^a$	Rb ^b	Sr ^b	$^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}^c$	Major geology ^d
16029	33°45'15"	133°28'1"	0.707022±14	148	105	3.97	Sp [12 (97.9%), 1 (2.1%)]
16031	33°44'54"	133°34'28"	0.708083±14	67.0	153	1.24	Sp [12 (73.3%), 2 (22.9%), 1 (3.8%)]
16032	33°46'36"	133°40'3"	0.709591±16	102	123	2.34	Sp [12 (100%)]
16033	33°40'47"	133°41'52"	0.711484±26	95.5	84.3	3.20	C [1 (96.4%), 2 (3.6%)]
16034	33°46'47"	133°42'1"	0.708190±18	80.4	127	1.78	C [1 (59.6%), 2 (25.9%), 12 (14.6%)]
16035	33°46'54"	133°43'10"	0.709137±14	136	114	3.37	Sp [12 (100%)]
16036	33°41'56"	133°51'34"	0.710753±14	123	136	2.57	C [1 (76.3%), 4 (21.1%), 2 (2.5%)]
16037	33°41'59"	133°54'24"	0.711083±14	105	181	1.64	NS [1 (100%)]
16038	33°43'37"	133°53'45"	0.712420±16	127	113	3.18	C [1 (76.3%), 4 (18.8%), 2 (5.9%)]
16039	33°56'27"	133°3'13"	0.710585±14	160	153	2.95	R [8 (96.1%), 4 (3.9%)]
16040	33°54'9"	133°6'49"	0.710825±14	129	118	3.09	— [12 (44.8%), 4 (42.5%), 6 (9.5%)]
16041	33°54'2"	133°11'16"	0.704999±14	31.4	189	0.47	Sg [12 (94.7%), 4 (5.3%)]
16042	33°57'6"	133°18'17"	0.709237±14	108	112	2.73	Sp [12 (52.0%), 4 (48.0%)]
16044	33°55'19"	133°31'42"	0.708832±14	108	128	2.38	Sp [12 (100%)]
16045	33°59'15"	133°35'51"	0.711087±13	138	85.6	4.54	IG [4 (72.5%), 12 (27.5%)]
16046	33°57'8"	133°37'59"	0.713724±19	159	117	3.85	Sk [12 (100%)]
16047	33°57'58"	133°44'41"	0.712251±16	115	102	3.19	Sk [12 (100%)]
16048	33°57'33"	133°48'16"	0.713189±16	166	107	4.39	Sk [12 (100%)]
16049	33°57'18"	133°48'9"	0.706310±16	61.4	180	0.96	Sg [12 (78.4%), 2 (14.1%), 1 (7.5%)]
16050	33°51'38"	133°54'14"	0.706002±14	59.3	175	0.96	Sg [12 (56.7%), 2 (25.1%), 1 (18.2%)]
16052	33°55'1"	133°19'11"	0.710490±17	105	98.3	3.00	Sp [12 (96.7%), 2 (3.2%)]
16053	33°55'58"	133°22'39"	0.705493±14	43.1	309	0.39	Sg [12 (73.5%), 5 (14.1%), 2 (12.4%)]
16054	33°56'47"	133°25'5"	0.705097±16	45.3	383	0.33	Sg [12 (87.7%), 2 (12.3%)]
16055	33°50'42"	133°23'12"	0.705594±16	29.2	175	0.47	Sg [12 (97.0%), 2 (3.0%)]
16056	33°51'34"	133°26'51"	0.706116±16	63.5	204	0.88	Sg [12 (75.5%), 2 (12.5%), 5 (12.0%)]
17001	33°17'14"	134°9'22"	0.716317±14	119	85.7	3.90	SS [1 (97.0%), 2 (3.0%)]
17002	33°25'31"	134°1'10"	0.718326±14	112	106	2.98	SS [1 (96.6%), 2 (3.4%)]
17004	33°19'50"	134°5'46"	0.717435±14	127	83.1	4.30	SS [1 (100%)]
17005	33°23'42"	134°12'33"	0.716066±16	126	93.7	3.80	SS [1 (97.6%), 2 (2.4%)]
17006	33°37'56"	134°5'58"	0.717205±14	156	95.2	4.62	NS [1 (100%)]
17007	33°31'26"	134°8'0"	0.717440±14	125	92.3	3.82	SS [1 (100%)]
17008	33°30'9"	134°9'0"	0.717831±16	112	89.6	3.53	SS [1 (100%)]
17010	33°33'31"	134°18'39"	0.718038±17	90.0	90.0	2.82	SS [1 (100%)]
17011	33°35'37"	134°21'29"	0.715028±16	113	101	3.16	SS [1 (95.7%), 4 (4.3%)]
17012	33°44'31"	134°0'8"	0.712179±16	109	188	1.63	NS [1 (92.7%), 4 (7.3%)]
17013	33°47'10"	134°12'41"	0.711409±14	97.6	206	1.34	C [1 (96.1%), 4 (3.9%)]
17014	33°47'3"	134°15'12"	0.711384±14	97.2	185	1.49	C [1 (100%)]
17015	33°42'5"	134°18'21"	0.714737±16	133	131	2.86	NS [1(100%)]
17016	33°48'35"	134°19'25"	0.707912±14	75.3	221	0.96	sr [4 (85.0%), 1 (15.0%)]
17017	33°47'48"	134°21'34"	0.711809±14	94.1	174	1.53	NS [1 (100%)]

Table 6. Continued.

Sample	Latitude (N)	Longitude (E)	⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Sr ^a	Rb ^b	Sr ^b	⁸⁷ Rb/ ⁸⁶ Sr ^c	Major geology ^d
17018	33°40'2"	134°25'25"	0.716379±13	113	139	2.29	NS [1 (100%)]
17019	33°47'39"	134°28'45"	0.713837±14	111	82.2	3.83	NS [1 (95.3%), 2 (4.7%)]
17020	33°43'46"	134°32'11"	0.717700±16	99.4	89.3	3.14	NS [1 (100%)]
17021	33°49'41"	134°40'46"	0.714531±14	120	102	3.31	NS [1 (96.7%), 2 (3.3%)]
17022	33°57'49"	134°13'4"	0.710107±14	105	146	2.03	C [1 (62.2%), 12 (29.5%), 2 (8.3%)]
17023	33°51'29"	134°16'4"	0.709200±16	88.3	173	1.44	C [1 (100%)]
17024	33°59'39"	134°22'22"	0.708742±16	99.5	141	2.00	— [12 (48.3%), 1 (33.1%), 2 (18.7%)]
17025	33°52'51"	134°24'58"	0.709679±18	75.1	122	1.73	C [1 (90.3%), 4 (8.8%), 5 (0.6%)]
17026	33°51'2"	134°29'6"	0.711629±16	101	167	1.72	C [1 (85.4%), 4 (13.3%), 5 (1.4%)]
17027	33°55'37"	134°30'2"	0.711547±16	88.4	118	2.12	sr [4 (63.3%), 1 (32.3%)]
17028	33°50'43"	134°37'42"	0.713221±14	89.4	128	1.97	NS [1 (90.6%), 2 (9.4%)]
17029	33°55'3"	134°39'4"	0.711893±16	90.2	173	1.47	C [1 (87.6%), 4 (12.6%)]
17030	33°56'12"	134°39'0"	0.710973±14	87.7	185	1.34	C [1 (74.8%), 4 (26.6%)]
22003	34°2'46"	132°59'33"	0.710006±14	116	181	1.81	R [8 (87.9%), 10 (11.0%), 4 (1.1%)]
23002	34°7'58"	133°40'6"	0.710390±14	101	124	2.31	IG [4 (80.1%), 8 (19.1%), 6 (0.8%)]
23003	34°2'1"	133°50'26"	0.709669±14	100	140	2.02	IG [4 (100%)]
23004	34°2'5"	133°58'26"	0.708184±14	72.1	163	1.25	Sg [12 (64.5%), 4 (20.6%), 2 (10.5%)]
23005	34°11'56"	133°42'35"	0.710729±14	107	134	2.24	R [8 (50.9%), 4 (48.7%), 6 (0.5%)]
23007	34°16'42"	133°49'22"	0.711020±14	103	103	2.82	IG [4 (82.4%), 8 (17.5%)]
23008	34°19'11"	133°53'35"	0.708943±14	106	149	2.01	R [8 (53.8%), 4 (41.1%), 6 (5.1%)]
24001	34°1'9"	134°4'5"	0.710160±14	109	127	2.43	Sp [12 (91.0%), 2 (8.5%), 1 (0.5%)]
24002	34°3'20"	134°5'37"	0.711151±16	126	119	2.98	IG [4 (100%)]
24003	34°2'21"	134°10'23"	0.709443±14	73.0	133	1.56	Sp [12 (100%)]
24004	34°5'34"	134°10'36"	0.711102±16	118	110	3.01	IG [4 (83.9%), 8 (16.1%)]
24005	34°3'40"	134°11'51"	0.710277±16	91.6	132	1.96	IG [4 (53.5%), 12 (46.5%)]
24006	34°3'16"	134°13'48"	0.705671±14	47.3	181	0.74	Sg [12 (99.3%), 4 (0.7%)]
24007	34°4'48"	134°16'34"	0.710775±16	108	119	2.54	IG [4 (92.6%), 8 (7.4%)]
24008	34°7'7"	134°21'47"	0.710918±14	110	118	2.63	IG [4 (100%)]
24009	34°6'6"	134°29'46"	0.709485±20	74.5	125	1.68	IG [4 (80.7%), 12 (19.3%)]
24010	34°4'8"	134°39'6"	0.708539±16	75.1	140	1.52	Sp [12 (88.8%), 1 (6.3%), 4 (4.8%)]
24011	34°8'14"	134°31'11"	0.709119±16	86.5	131	1.86	IG [4 (100%)]
24012	34°2'21"	134°32'34"	0.705802±17	43.0	165	0.74	Sg [12 (57.2%), 2 (34.1%), 1 (7.6%)]
24013	34°0'46"	134°33'46"	0.710609±14	77.8	104	2.11	— [1 (44.0%), 4 (43.3%), 2 (5.1%)]
24014	34°8'48"	134°35'44"	0.708452±18	77.1	145	1.50	IG [4 (100%)]
24015	34°20'26"	134°0'26"	0.709143±14	88.1	157	1.59	IG [4 (57.4%), 8 (36.5%), 6 (4.7%)]
24016	34°13'21"	134°2'18"	0.710790±14	112	90.9	3.49	IG [4 (57.8%), 8 (42.2%)]
24018	34°19'57"	134°5'54"	0.709680±14	109	100	3.06	R [8 (54.3%), 4 (45.7%)]
24019	34°14'52"	134°10'31"	0.709869±23	120	98.7	3.42	R [8(100%)]
24020	34°19'28"	134°12'34"	0.710205±14	135	105	3.62	R [8 (52.5%), 4 (42.2%), 6 (2.6%)]
24021	34°14'42"	134°21'24"	0.710946±14	126	72.3	4.93	IG [4 (76.1%), 8 (23.9%)]

Table 6. Continued.

Sample	Latitude (N)	Longitude (E)	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}^a$	Rb ^b	Sr ^b	$^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}^c$	Major geology ^d
24022	34°13'0"	134°24'56"	0.710743±14	116	65.8	4.99	IG [4 (100%)]
Kii Peninsula							
18001	33°38'58"	135°24'19"	0.712200±13	104	68.3	4.28	SS [1 (64.2%), 4 (35.8%)]
18002	33°34'42"	135°27'50"	0.715701±13	93.9	64.2	4.13	SS [1 (82.5%), 4 (17.5%)]
18003	33°32'51"	135°29'52"	0.716831±16	109	63.1	4.87	SS [1 (100%)]
18004	33°37'1"	135°42'7"	0.714847±13	48.3	33.3	4.09	SS [1 (78.4%), 4 (21.6%)]
18005	33°32'15"	135°46'10"	0.714879±13	41.2	23.4	4.98	SS [1 (94.8%), 4 (2.9%), 8 (2.3%)]
18006	33°33'6"	135°46'20"	0.713158±14	66.1	32.1	5.81	KG [4 (75.9%), 1 (20.9%), 8 (3.2%)]
18007	33°34'31"	135°55'20"	0.713839±14	57.3	26.3	6.15	KG [4 (91.9%), 8 (8.1%)]
18008	33°38'14"	135°56'8"	0.711321±16	54.6	26.3	5.86	Ka [8 (53.3%), 4 (46.7%)]
18009	33°48'35"	135°15'12"	0.712616±16	114	59.6	5.41	SS [1 (100%)]
18010	33°47'2"	135°19'32"	0.711322±16	102	60.7	4.75	SS [1 (100%)]
18011	33°44'10"	135°22'59"	0.711450±14	79.5	55.4	4.05	SS [1 (96.2%), 4 (3.8%)]
18012	33°45'13"	135°30'4"	0.711758±19	97.6	66.0	4.18	SS [1 (98.9%), 2 (1.1%)]
18013	33°44'0"	135°34'32"	0.713491±14	114	62.5	5.15	SS [1 (100%)]
18014	33°39'37"	135°35'16"	0.719313±14	98.9	72.4	3.86	SS [1 (100%)]
18016	33°48'48"	135°47'10"	0.713862±14	96.2	54.3	5.00	SS [1 (92.0%), 4 (8.0%)]
18017	33°47'39"	135°52'40"	0.712308±16	121	53.7	6.36	KG [4 (57.0%), 8 (25.2%), 1 (15.9%)]
18018	33°43'55"	135°59'26"	0.712375±16	118	59.6	5.59	Ka [8 (57.4%), 4 (29.3%), 2 (8.1%)]
18019	33°53'50"	135°10'42"	0.713450±16	118	66.5	5.02	NS [1 (96.8%), 4 (3.2%)]
18020	33°57'4"	135°22'53"	0.712932±16	114	61.3	5.24	NS [1 (98.1%), 2 (1.9%)]
18021	33°55'53"	135°25'54"	0.713446±14	110	53.7	5.77	NS [1 (99.5%), 2 (0.5%)]
18022	33°53'22"	135°29'33"	0.713754±14	130	60.1	6.12	NS [1 (100%)]
18023	33°53'47"	135°30'11"	0.714140±14	144	54.3	7.48	NS [1 (98.1%), 2 (1.9%)]
18024	33°56'6"	135°45'37"	0.713979±14	130	49.1	7.49	NS [1 (100%)]
18025	33°57'56"	135°48'11"	0.712625±21	133	68.3	5.49	NS [1 (89.1%), 8 (10.5%), 4 (8.9%)]
18027	33°55'39"	135°57'54"	0.712500±16	143	64.2	6.31	NS [1 (69.5%), 8 (16.2%), 4 (8.9%)]
19001	33°47'27"	136°2'29"	0.712292±14	95.6	42.3	6.38	— [1 (32.6%), 4 (32.6%), 8 (24.0%)]
19002	33°53'7"	136°5'55"	0.709306±14	108	61.0	5.00	Ka [8 (77.0%), 7 (21.1%), 1 (1.9%)]
19003	33°58'50"	136°2'21"	0.709367±20	120	70.4	4.80	Ka [8 (88.3%), 7 (5.5%), 1 (5.4%)]
25001	34°4'14"	135°10'36"	0.710277±14	95.0	110	2.45	— [1 (44.9%), 4 (35.8%), 2 (11.7%)]
25002	34°1'25"	135°11'6"	0.712534±16	122	71.2	4.83	NS [1 (90.9%), 4 (9.1%)]
25003	34°3'58"	135°15'51"	0.706981±14	66.7	110	1.71	— [2 (45.0%), 12 (25.1%), 1 (15.8%)]
25004	34°5'22"	135°23'47"	0.710143±16	87.5	116	2.12	NS [1 (83.6%), 4 (13.8%), 2 (0.6%)]
25005	34°2'18"	135°42'41"	0.714728±16	130	57.7	6.36	NS [1 (100%)]
25006	34°7'46"	135°46'4"	0.711302±14	117	110	3.01	NS [1 (100%)]
25007	34°15'11"	135°12'13"	0.709164±16	89.8	115	2.21	IG [4 (85.7%), 12 (13.9%), 5 (0.4%)]
25008	34°13'57"	135°20'21"	0.709451±14	82.1	88.6	2.62	Sp [12 (73.1%), 1 (13.5%), 4 (11.6%)]
25009	34°16'39"	135°27'3"	0.711722±14	108	92.2	3.30	IG [1 (100%)]
25010	34°15'51"	135°28'59"	0.706940±16	31.7	137	0.65	Sg [12 (100%)]

Table 6. Continued.

Sample	Latitude (N)	Longitude (E)	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}^a$	Rb ^b	Sr ^b	$^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}^c$	Major geology ^d
25011	34°17'12"	135°30'2"	0.710749±14	95.8	96.0	2.82	IG [4 (60.1%), 1 (18.5%), 12 (17.1%)]
25012	34°16'32"	135°33'58"	0.710099±14	79.8	79.1	2.85	NS [1 (86.8%), 12 (13.2%)]
25013	34°18'54"	135°36'51"	0.710984±16	102	77.0	3.74	IG [4 (100%)]
25014	34°19'52"	135°42'1"	0.711008±14	69.5	74.8	2.63	NS [1 (97.1%), 4 (2.9%)]
25015	34°12'20"	135°45'6"	0.711210±14	94.6	103	2.59	NS [1 (93.1%), 8 (6.9%)]
25016	34°22'45"	135°17'20"	0.711151±16	73.4	68.2	3.04	IG [4 (88.4%), 7 (11.6%)]
25017	34°26'0"	135°20'58"	0.709007±17	74.8	79.3	2.66	sr [4 (72.1%), 8 (19.7%), 7 (8.2%)]
25018	34°29'32"	135°24'4"	0.710980±16	74.8	79.3	2.66	sr [4 (70.5%), 8 (25.2%), 7 (4.3%)]
25019	34°26'52"	135°34'38"	0.707880±14	42.2	276	0.43	R [8 (52.0%), 4 (42.9%), 10 (1.8%)]
25020	34°21'31"	135°45'6"	0.710180±16	73.5	109	1.90	— [1 (28.6%), 4 (27.5%), 8 (23.3%)]
25021	34°22'50"	135°56'4"	0.711494±14	131	102	3.63	NS [1 (67.4%), 8 (31.9%), 12 (0.4%)]
25023	34°32'56"	135°27'53"	0.710304±17	74.7	74.3	2.84	su [16 (100%)]
25024	34°35'15"	135°31'4"	0.708521±14	75.1	192	1.11	su [16 (88.8%), 6 (7.7%), 8 (3.6%)]
25025	34°33'22"	135°37'26"	0.708026±16	70.9	211	0.95	sr [4 (53.7%), 8 (42.2%), 10 (3.0%)]
25026	34°34'1"	135°38'21"	0.708502±14	74.8	184	1.15	sr [4 (58.1%), 8 (31.9%), 6 (4.6%)]
25027	34°34'50"	135°45'13"	0.707646±14	48.3	220	0.62	sr [4 (57.1%), 8 (42.9%)]
25028	34°35'22"	135°45'52"	0.708784±14	58.6	206	0.80	sr [4 (70.3%), 8 (16.7%), 10 (5.9%)]
25029	34°30'4"	135°47'0"	0.707761±16	54.9	227	0.68	R [8 (92.9%), 4 (7.1%)]
25030	34°30'45"	135°52'9"	0.708314±16	58.6	194	0.85	R [8 (55.6%), 10 (26.5%), 4 (11.2%)]
26001	34°7'48"	136°0'14"	0.710954±16	105	131	2.28	NS [1 (100%)]
26002	34°4'17"	136°5'17"	0.712556±19	120	65.8	5.13	Ka [8 (75.0%), 1 (25.0%)]
26003	34°3'15"	136°12'20"	0.710290±14	129	69.7	5.23	Ka [8 (100%)]
26004	34°6'20"	136°13'22"	0.711027±16	128	76.6	4.73	NS [1 (58.8%), 8 (39.0%), 4 (2.2%)]
26005	34°6'40"	136°13'53"	0.714728±16	134	60.8	6.20	NS [1 (79.7%), 4 (15.5%), 8 (4.8%)]
26006	34°16'15"	136°0'54"	0.709291±17	105	143	2.07	C [1 (99.5%), 8 (0.5%)]
26007	34°16'33"	136°12'37"	0.712396±16	67.1	104	1.82	C [1 (99.5%), 8 (0.5%)]
26008	34°12'22"	136°20'5"	0.715743±16	125	64.7	5.44	NS [1 (100%)]
26009	34°16'52"	136°30'51"	0.713836±14	99.7	83.6	3.37	NS [1 (100%)]
26010	34°23'37"	136°12'17"	0.711534±16	123	82.8	4.20	Sp [12 (55.6%), 8 (25.9%), 1 (15.2%)]
26011	34°22'55"	136°13'37"	0.713560±14	117	60.8	5.43	C [1 (64.3%), 12 (35.7%)]
26012	34°25'26"	136°19'38"	0.711663±14	105	80.5	3.69	Sp [12 (70.2%), 8 (24.0%), 10 (5.9%)]
26015	34°29'37"	136°28'52"	0.709729±16	80.6	131	1.74	— [8 (48.0%), 12 (32.5%), 4 (11.8%)]
26016	34°25'24"	136°35'10"	0.712319±14	81.6	78.9	2.92	Sp [12 (86.0%), 1 (12.4%), 8 (1.4%)]
26017	34°25'4"	136°37'35"	0.713176±14	69.1	74.7	2.61	C [1 (90.4%), 2 (5.2%), 12 (4.4%)]
26018	34°20'31"	136°38'49"	0.712643±17	73.5	62.6	3.31	C [1 (100%)]
26019	34°28'33"	136°44'35"	0.706141±16	36.5	102	1.01	C [1 (71.9%), 2 (15.0%), 5 (8.2%)]
26032	34°30'26"	136°41'44"	0.712458±14	106	92.0	3.24	— [4 (28.9%), 1 (26.1%), 12 (23.8%)]

^a The errors in the final digits are $2\sigma_{\text{mean}}$.

^b Data from Imai et al. (2010).

^c Values calculated by the Rb and Sr concentrations.

^d Major geology, together with the first to third representative lithologies of the catchment area shown in parentheses. The results of the basin analysis.

The abbreviations are: SS=Southern Shimanto Belt, NS=Northern Shimanto Belt, S=Sanbagawa Belt (Sg=Greenschist area, Sp=Pelitic/psammitic schist area, and Sk=Koboke and Kawaguchi Formation area), C=Chichibu Belt, IG=Izumi Group, R=Ryoke Belt, KG=Kumano Group, Ka=Kumano acidic rocks, su=sedimentary rocks in the urban area, and sr=sedimentary rocks. Bars show no representative geologies consisting of geologic units with less than 50%. The numbers in parenthesis show the first to third lithologies occupying the catchment basin: 1=accretionary complexes, 2=igneous rocks in accretionary complexes, 3=limestones in accretionary complexes, 4=sedimentary rocks, 5=ultra basic rocks, 6=non-alkaline mafic volcanic rocks, 7=non-alkaline felsic volcanic rocks, 8=felsic plutonic rocks, 9=felsic-mafic plutonic rocks, 10=mafic plutonic rocks, 11=low-medium-pressure metamorphic rocks, 12=high-pressure metamorphic rocks, and 13=sedimentary rocks in the urban area.

第3章 北海道の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布

第1節 はじめに

前章で述べたとおり，四国・紀伊半島地方の帯状分布する付加体堆積物由来の河川堆積物では，その地質構造と対応する $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布が得られている．よって，プレート運動による地質構造帯の構造が比較的良好に残る北海道においても， $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布に同様の差が地質構造帯に応じて現れると予測される．また，四国・紀伊半島地域がフィリピン海プレートと太平洋プレートの境界で地理的に連続的に形成されているのに対し，北海道は過去のプレート運動によって離れた場所に形成された地質構造帯が現在は隣接して分布しているため，各帯により，供給されている砕屑物の起源が全く異なるため，それが河川堆積物の化学組成や同位体比に反映されることが予想される．一方で，北海道地域の特徴としては，新第三紀以降の活発な火山活動により，大量の火山岩や火山砕屑物が地表へ広く供給されていることが挙げられる．このような地質分布は，基盤岩が地表面のほぼ全域に分布し，地質帯の境界が地表において明瞭である四国・紀伊半島地域とは性質が異なり，河川堆積物中の火山岩の影響が大きい可能性があった．そこで， $<180\ \mu\text{m}$ 分画の河川堆積物を用い，北海道地域という広域の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布において，火山物質に覆われる母岩の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が河川堆積物へどの程度反映されているか，また四国・紀伊半島の例のように堆積岩を構成する砕屑物の違いが，化学組成及び $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ に反映されているかについて検証を行う．

第2節 北海道の地質

北海道は日本列島北端に位置し，本州弧（東北日本弧）と千島弧が会合する場所に形成されている．西側には東北日本弧に属する渡島帯，礼文・樺戸帯が分布し，東側には千島弧に属する日高帯，常呂帯，根室帯が分布している（Fig. 32）．これらの帯区分は，年代や堆積場の違いに基づくものであり，さらにこれまでに数多くの地質調査や研究が行われてきたが，各個人により議論の便宜上境界線が引かれている場合が多く，その定義については，特に中央部において明確でない．

北海道の西端に位置する渡島帯（君波ほか，1986）では，主に泥岩・砂岩などの陸源砕屑物からなる，ジュラ紀前後に形成された付加体が露出している．また，前期白亜紀の花崗岩が小規模に分布している．帯区分においては，白亜紀前期の火山岩・火山砕屑物からなる堆積岩が分布する礼文・樺戸帯を含む場合もある．

空知ーエゾ帯は礼文・樺戸帯の東側に位置する地質帯で，中央部に分布し，ジュラ紀末から白亜紀前期の緑色岩類・火山砕屑岩が主体の下位の空知層群と，陸源砕屑物を主体とする白亜紀前弧堆積盆堆積物の上位の蝦夷層群（例えば，新井田・紀藤，1986）から構成

される。地表面上には、蝦夷層群が大部分に露出している。

日高帯は、主に古第三紀以降の島弧の衝突によって形成された日高変成帯と、前期白亜紀付加体の日高累層群（長谷川ほか，1961）からなる。日高累層群は変成帯の東側に分布する後期白亜紀～古第三紀の陸源砕屑岩・緑色岩・付加体堆積岩である。また、南東部には中の川層群が分布している。日高累層群の最も北部に位置する北見枝幸コンプレックスは、空知ーエゾ帯の亜帯であるイドンナップ帯とする分類（例えば，植田，2006）や、日高帯に含める分類（君波ほか，1986；宮下ほか，1997）があり、北見枝幸地域の空知ーエゾ帯と日高帯の境界線は定義されていない。

常呂帯は、ジュラ紀～白亜紀まで幅広い地質年代の緑色岩類・チャート・石灰岩からなる付加体の仁頃層群と、白亜紀の礫岩・砂岩・泥岩などの砕屑性堆積岩からなる佐呂間層群から構成される。根室帯はそのほとんどが火山岩・火山砕屑物によって覆われているが、後期白亜紀～古第三紀の堆積岩類が北海道東部の南端に分布する。また、北海道においては古第三紀漸新世から現在に至るまで、活発な火成活動が起こっており、特に東部では火山岩と火山砕屑物の分布割合が高い。

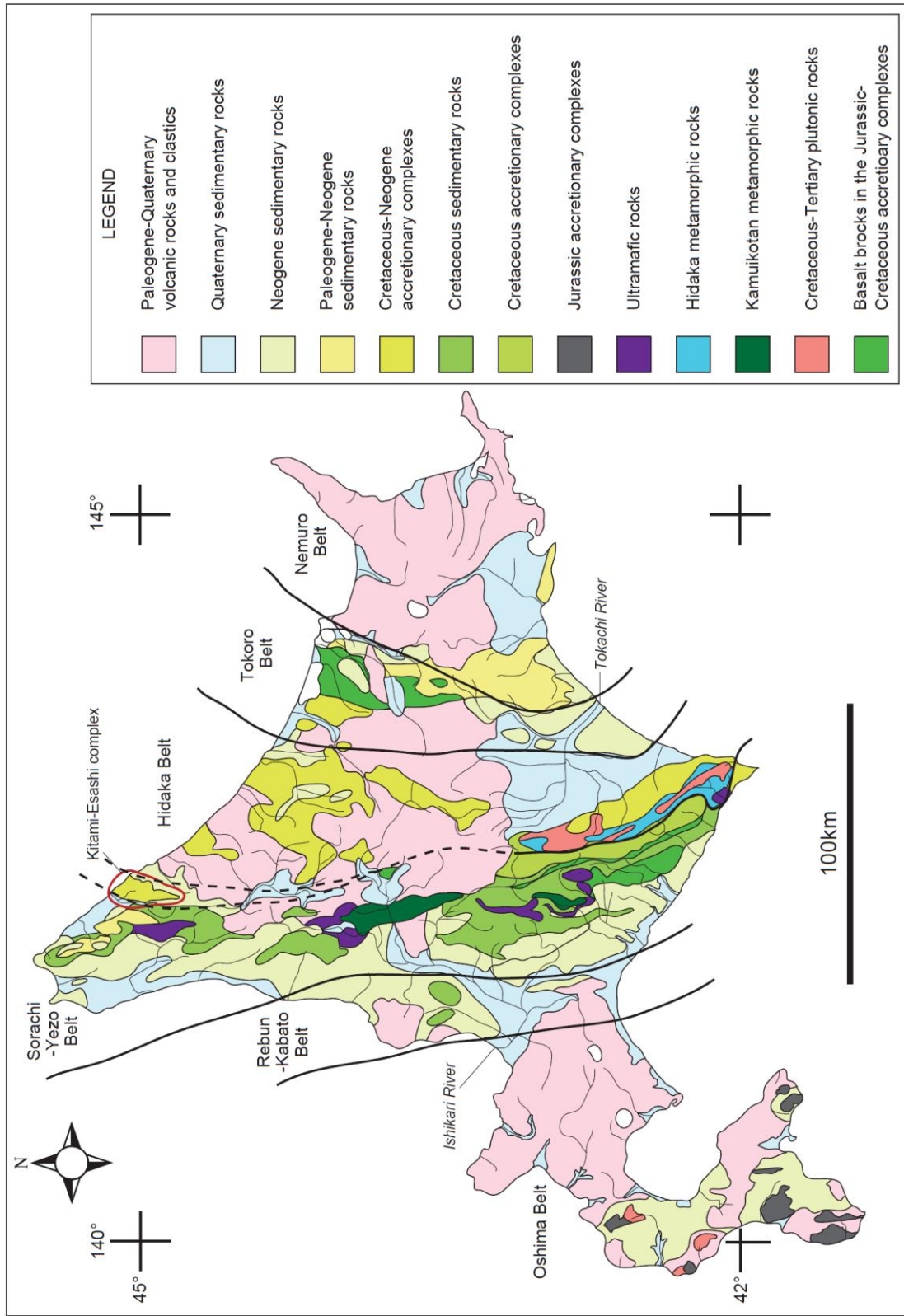


Fig. 32. Geology and main rivers in Hokkaido area. The figure is compiled from seamless digital geological map of Japan 1: 200,000 (Geological Survey of Japan, 2012).

第3節 試料と実験

産総研地質調査総合センターにより採取・保管されている北海道地域の河川堆積物 (<180 μm) 693 試料から 132 試料を選択し、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の測定を行った。試料の前処理から $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分析までの実験方法は、第1章の第1節第4項と同様である。

北海道の地表面積あたりの試料数は、産総研とほぼ同じ密度 (約 100 km^2 に一点) である四国・紀伊半島地域よりも少なく、密度を落している (400–500 km^2 あたり一試料程度)。これは、北海道と同様の帯状の地質構造である四国・紀伊半島において、ある程度密度を下げても、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の分布を明らかにする上では支障がないと判断されたためである。また、中央部周辺の地質の違いが明瞭で新第三紀以降の火山岩に覆われていない地域については密度を上げ (300 km^2 あたり一試料程度)、火山岩の分布が目立ち、一様な $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が得られると予想されるところでは密度を落している (600 km^2 あたり一試料程度) ため、北海道全域を通して一定の試料密度ではなく、地域により差がある。

第4節 結果と考察

第1項 北海道の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の全体的傾向

Table 7 には全試料の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 測定結果を示した。北海道地域の河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値は、0.7032–0.7111 であった。値ごとの数として最も多いのは 0.704–0.705 を示す試料であり、これは、低い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を示す火山岩 (安山岩–流紋岩) で覆われた北海道地域の特徴を反映していると言える。また、Fig. 33 には四国・紀伊半島地域および東北地域の試料と共に、北海道の試料について $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ごとに試料数を示した。この結果から、北海道地域は、四国・紀伊半島地域と比較し、相対的に $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が低く、さらに東北地方の河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ とほぼ同範囲の値を示すことが明らかである。これは、フィリピン海プレートがユーラシアプレート下に沈み込むことで基盤岩が形成された西南日本に位置する四国・紀伊半島地域と、太平洋プレートが北米プレート下に沈み込むことで形成された東北日本に位置する北海道・東北地域では、火山活動により地表に供給されたマグマや基盤岩を構成する砕屑物の性質が全く異なることを示している。

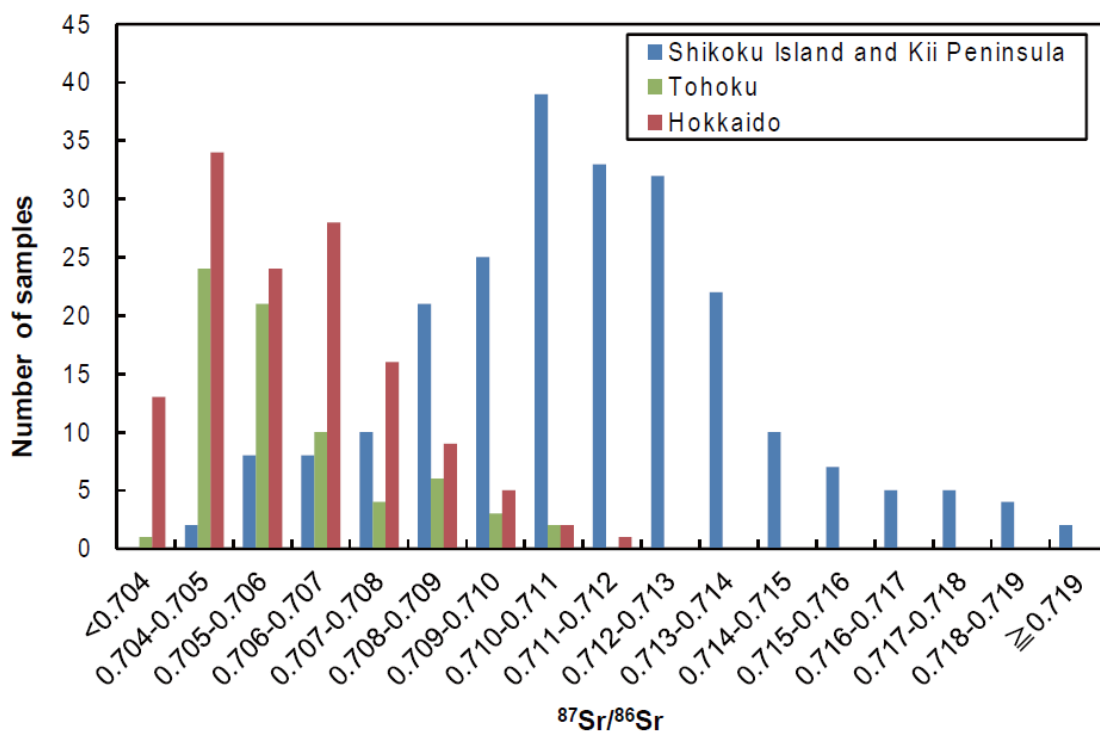


Fig. 33. Distribution of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values according to three regions: Shikoku Island and Kii Peninsula area, Tohoku area, and Hokkaido area. Data of Tohoku area are not published.

Fig. 34 に、北海道全域の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布図を示した。この図において、中央部にあたる空知-エゾ帯の蝦夷層群（白亜紀～古第三紀前弧海盆堆積体）分布域で最も高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ をもつ試料が集中している。空知-エゾ帯の帯区分の西側に分布する礼文-樺戸帯の2地点において $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が高い値を示す。これらの地点については後程考察を行う。また、火山岩の分布が多い東部では低い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布が見られる。

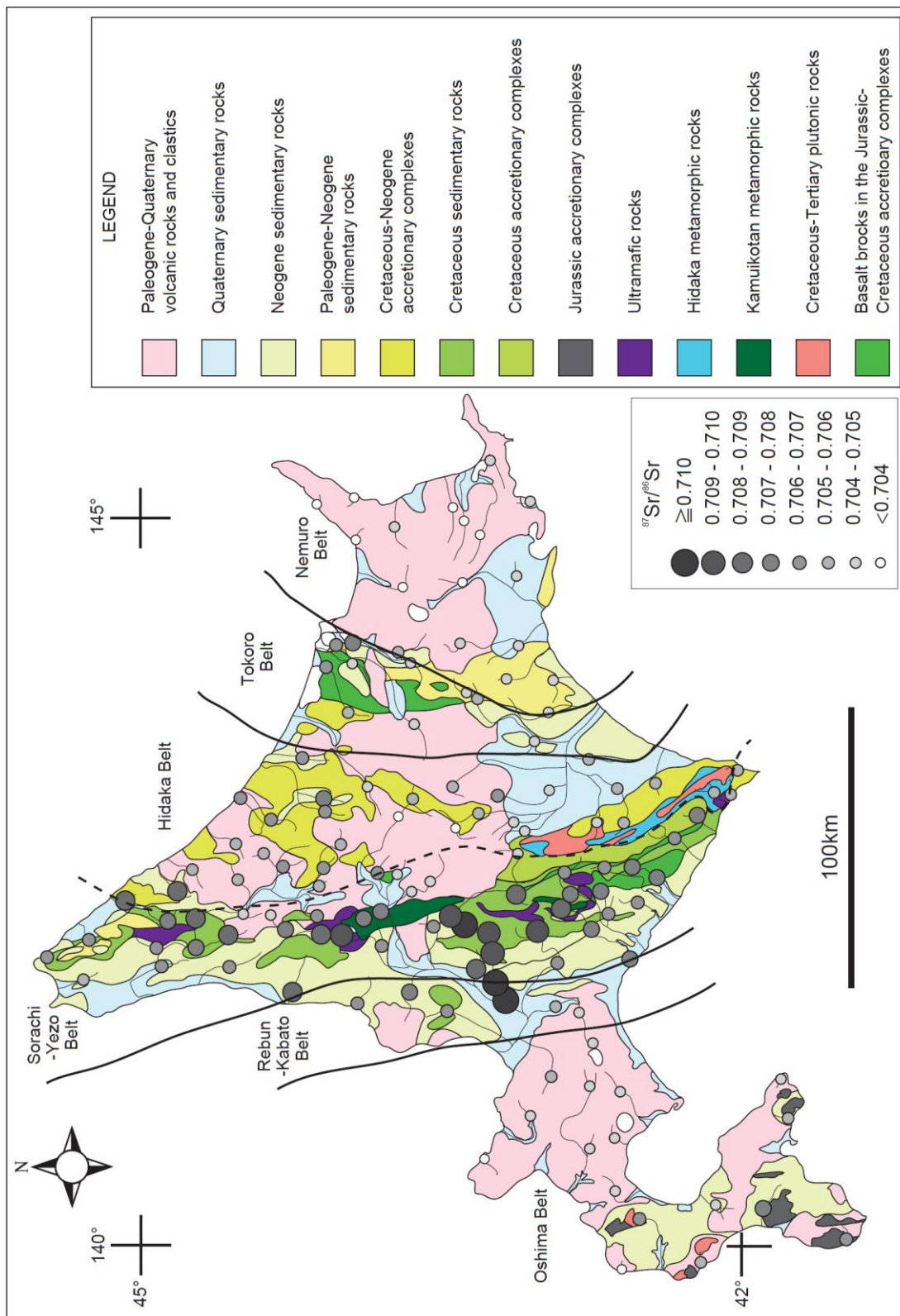


Fig. 34 . Spatial distribution of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values in Hokkaido area.

第2項 火山岩地域の河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の特徴

北海道地域には、火山フロントを中心とした活発な火成活動が、約 19 Ma の新第三紀中新世前期から現在に至るまで続いており、特徴的な地形を作り上げている。特に東部では現在も火山列の活動が活発ということもあり、基盤岩が多くの安山岩—玄武岩質火山岩（小規模だがデイサイト—流紋岩質火山岩の分布も認められる）及びそれに伴う火山砕屑物によって覆われている。現在の地質分布では、北海道全域のうち4割程度が火山岩であるため、河川堆積物のように地表面が削られて生成されるものの組成には、その影響は無視できない。そこで、これらの火山岩と火山砕屑物が、流域の50%以上を占める河川堆積物について考察を行った。

北海道の火山岩の分布域は、大まかに西部・中央部・東部の3地域に区分できる。例えば、広瀬・中川（1999）では、石狩川下流域から太平洋側にかけて広がる石狩低地帯と網走構造線を基準として、北海道を西部・中央部・東部に区分している。よって、ここでも石狩低地帯以西を西部、石狩低地帯以东から網走構造線までを中央部、網走構造線以东を北海道東部として今後の検討を行う。

まず、流域の50%以上を火山岩が占める河川堆積物は、堆積岩が流域の50%以上を占める試料と比較して、主成分元素濃度において、 Al_2O_3 、 Fe_2O_3 、 MgO 、 CaO に富み K_2O に乏しいという特徴を示す（Fig. 35）。また、火山岩が流域に占める割合が50%以上の代表地質とする試料のうち約90%の試料は低い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値（0.703–0.705）を示し、すでに報告されている中新世安山岩—玄武岩質火山岩の値 0.7031–0.7048（Ikeda *et al.*, 1987; Shuto *et al.*, 2004; 古堅ほか, 2010）とよく一致する。火山岩を代表地質とする試料の内、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が 0.705 を超える試料がいくつか認められる。これらの試料はいずれも、火山岩以外の地質（堆積岩）が流域に占める面積割合が比較的高い試料である。また、安山岩—玄武岩質火山岩に多く含まれる CaO 濃度と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ について各地域で比較を行うと、最も地表面での火山岩の分布割合が大きい東部において高 CaO 濃度、低 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を示し、白亜紀—古第三紀堆積岩の分布割合が大きい中央部の試料が低 CaO 濃度・高 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を示し、負の相関がみられる（Fig. 36）。これは試料中の火山岩起源の砕屑物粒子の割合を、化学組成・ $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ともによく反映していることを示す。ただし、 CaO 濃度については、母岩の濃度が 6.3–11.0 wt.% であるのに対し、河川堆積物試料は最大でも 5.7 wt.% であることから、火山岩が風化過程を受けて河川堆積物となる間に、 Ca が相当量溶出していることが示唆される。さらに、 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ についても比較を行うと、ほとんど火山岩に覆われた地域である東部の試料の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は、母岩とほぼ同じ値であるのに対し、 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ は母岩よりも高い結果が得られた（Fig. 37）。これは、鉱物から溶出しやすい Ca とイオン半径が近く、似た挙動を示す Sr も風化過程で溶出しやすいため、河川堆積物中の Rb/Sr が上昇した結果を反映し

ているためと考えられる。

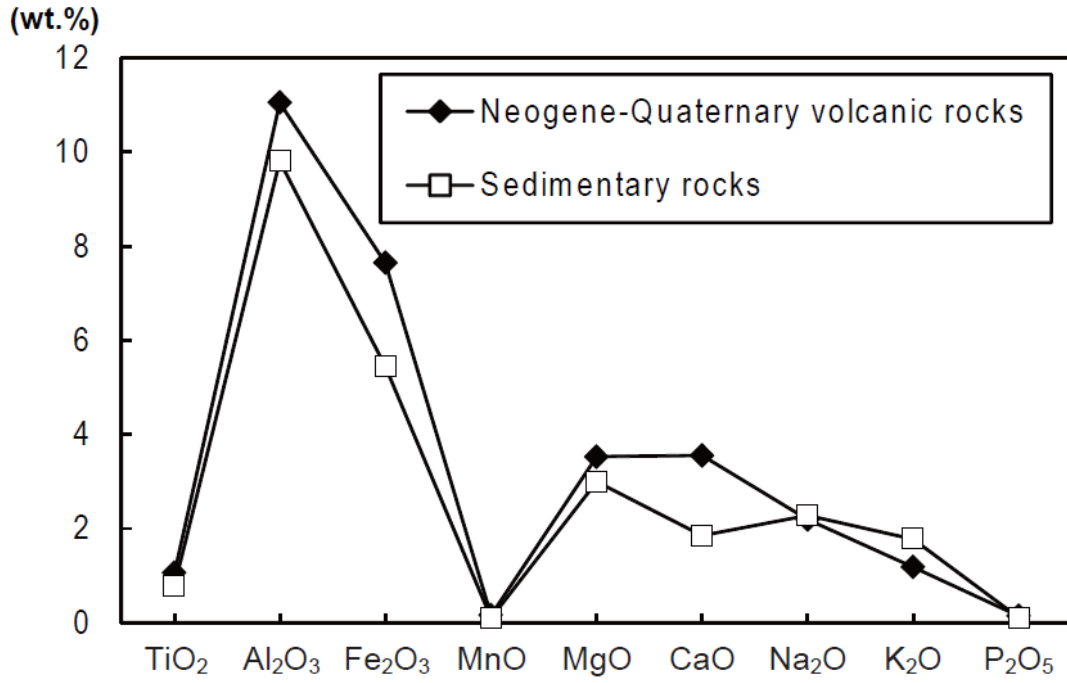


Fig. 35. Major elemental concentrations in stream sediments according to major geology: Neogene-Quaternary volcanic rock and sedimentary rock.

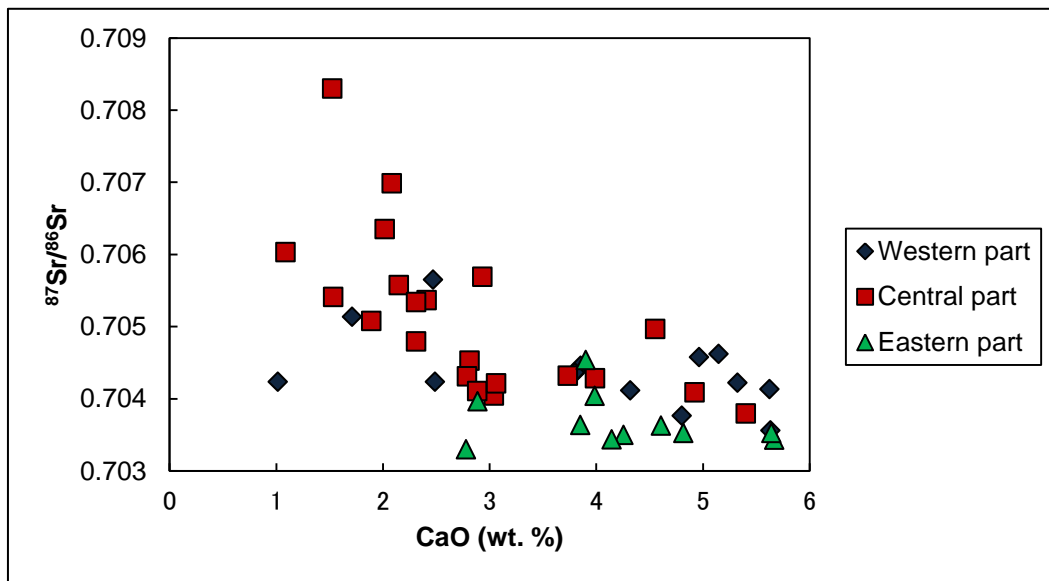


Fig. 36. CaO contents versus ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr value of stream sediments according to representative geology, Neogene-Quaternary volcanic rock and sedimentary rock.

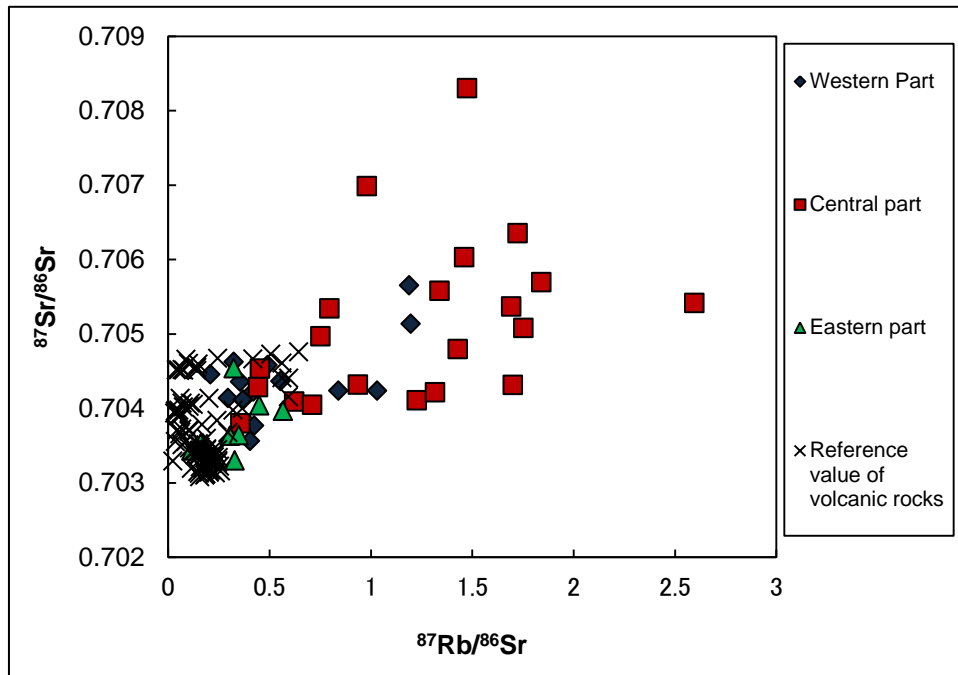


Fig. 37. $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ – $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ of reference values and stream sediments according to major geology: Neogene-Quaternary volcanic rock and pyroclastic materials.

第3項 堆積岩地域の河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の特徴

前章で述べたとおり，四国・紀伊半島地域の中央構造線以南の付加体で同位体比が南ほど高い傾向が見られ，さらに，四万十帯起源の河川堆積物では南帯で $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値が高く (0.711–0.719)，北帯で低い (0.710–0.718) という結果を示した．このことは，南帯の堆積岩には，大陸起源の碎屑物が北帯よりも多く供給されていることを示唆している． $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ – $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 図においても，南帯と北帯で異なる傾向が認められた．つまり，河川堆積物中の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ より，母岩を構成する異なる $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ をもつ碎屑物の起源についての情報を得ることが可能であることを示す．

北海道地域においては，中央部の空知-エゾ帯と日高帯の間には新第三紀までプレート境界が位置していたとされ (Jolivet and Miyashita, 1985)，古東北日本弧と古千島弧が日高衝上断層を境に衝突したとされる．さらに始新世に右横ずれ運動が生じるまで各地質帯が離れて位置していた (Fig. 38)．すなわち，四国・紀伊半島地域で認められたように，碎屑物の供給場が異なる地質帯が隣接する北海道地域においても，河川堆積物の $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ ， $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ に供給源の違いが現れると予測される．また，北海道中央部以北の，日高変成帯の分布が途切れることによる日高帯と空知-エゾ帯の境界が不明瞭な点についても，河川堆積物の $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ ， $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を用いて境界についての示唆が得られる可能性があった．そ

ここで、料採取地点より上流域の 50%以上を占める代表地質 (Table 7 を参照) を基に、帯ごとに河川堆積物試料の $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の比較を行った。ただし、北海道は、四国・紀伊半島地域とは異なり、帯区分の基準となる岩石が後の年代の火山岩や、比較的新しい堆積岩に覆われ、明瞭な境界が存在しないため、以降の議論では、各試料の代表地質の分類は、各帯を構成する堆積岩の流域における面積割合に基づくこととする。また、特に中央部においては複雑な地質構造上を河川が流れているため、流域の 50%以上を占める代表地質がない試料も多い。そこで、100%火山岩起源の試料を除き、採取位置と現在の地質の位置から考慮して、堆積岩もしくは付加体堆積岩から碎屑物が供給されている試料を改めて分類し $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の関係を Fig. 39 に示した。

Fig. 39 の $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ - $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 図において、帯ごとに区別した河川堆積物の特徴として、西側の渡島帯・空知-エゾ帯の影響を受けた試料は見かけの年代が古く、東側の日高帯・常呂帯・根室帯は見かけの年代が若いというように、それぞれの集団が異なる領域にプロットされた。これは、渡島帯・空知-エゾ帯は古東北日本弧に属し、日高帯・常呂帯・根室帯は古千島弧に属しており、現在の位置に移動してくる前までは離れた場所で異なる後背地から碎屑物の供給を受けていたことが、結果として河川堆積物の $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の差に反映されたと考えられる。また、渡島帯・常呂帯・根室帯の 3 つの帯の違いを河川堆積物中の $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ から調べてみたところ、有意な差は認められなかった。この理由として、これらの地質帯が、そのほとんどが現在の位置にほぼ定着した後に形成された新第三紀以降の堆積岩や、火山岩に厚く覆われ、これら 3 つの構造体を構成する堆積岩由来の碎屑物の供給が相対的に少なくなったためと考えられる。一方、空知-エゾ帯と日高帯はプレート衝突以前に形成された地質が比較的良好に露出しているため、それぞれの地質帯を構成する堆積岩のもつ同位体比の違いがはっきりと認められる。以上の結果から、空知-エゾ帯と日高帯の間に物質的境界及び古東北日本弧と古千島弧のプレート境界が河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布図にも認められることが明らかとなった。

次に、西側の渡島帯・空知-エゾ帯の試料が東側の日高帯・常呂帯・根室帯に比べて見かけの年代が古く見えることについて検討を行う。渡島帯のジュラ紀付加体(陸源碎屑岩)については、碎屑性ジルコン粒子についての SHRIMP 年代で約 1800 Ma という年代値が示され、大陸からの碎屑物の供給があったことがすでに報告されている (川村ほか, 2000)。Fig. 40 に、東北日本弧の空知-エゾ帯と千島弧の日高帯について、コンドライトの REE 濃度 (Masuda *et al.*, 1973; Masuda, 1975) で規格化した REE パターンの比較を示す。データとしては、 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ - $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 図でそれぞれ空知-エゾ帯・日高帯に分類した試料の平均 REE 濃度を用いた。その結果、LREE については、両帯の差は見られないが、HREE については、空知-エゾ帯起源の試料の方が、日高帯よりも HREE が欠乏していることが明らかに

なった。これは、空知－エゾ帯が日高帯よりも大陸起源砕屑物に富むことを示している。空知－エゾ帯については、空知層群の堆積岩の岩片組成が渡島帯と似ており、また、蝦夷層群の後背地が渡島帯であったと明らかにされている（高嶋ほか, 2001）。したがって、これらの帯を構成する堆積岩には、大陸起源の砕屑物が含まれているため、千島弧起源の帯と比較し、河川堆積物の見かけの年代が古くなったと考えられる。

また、Fig. 39 における河川堆積物が最も影響を受けていると考えられる地質帯ごとの分類では、Fig. 32 の北海道北部に位置する北見枝幸コンプレックスを便宜的に日高帯に含めて行った。その結果、北見枝幸コンプレックス近傍で採取され、北見枝幸コンプレックスの中でも、特に、石崎（1979）に表記のあるペーチャン層群およびウソタン層群が流域面積のほぼ 100% を占める河川堆積物試料である 102020 が、空知－エゾ帯起源の集団の領域に位置にプロットされた。この北海道北部の日高帯と空知－エゾ帯の境界については、北見枝幸コンプレックスの西側を通るとする説（君波，1986；宮下ほか，1997）と東側を通るとする説（植田，2006）があるが、 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ – $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の結果からは、空知－エゾ帯と日高帯の境界が、北見枝幸コンプレックスの東側を通る可能性が高いと言える。

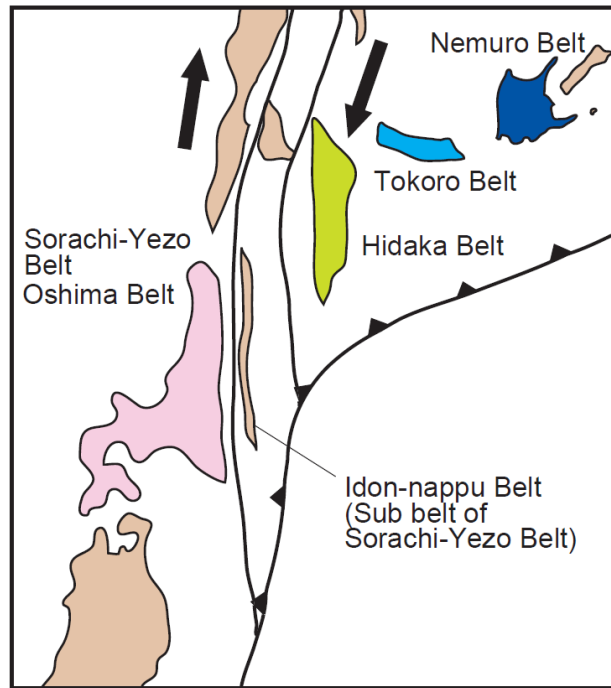


Fig. 38. Distribution of Eocene geology (modified from Kimura and Kusunoki, 1997).

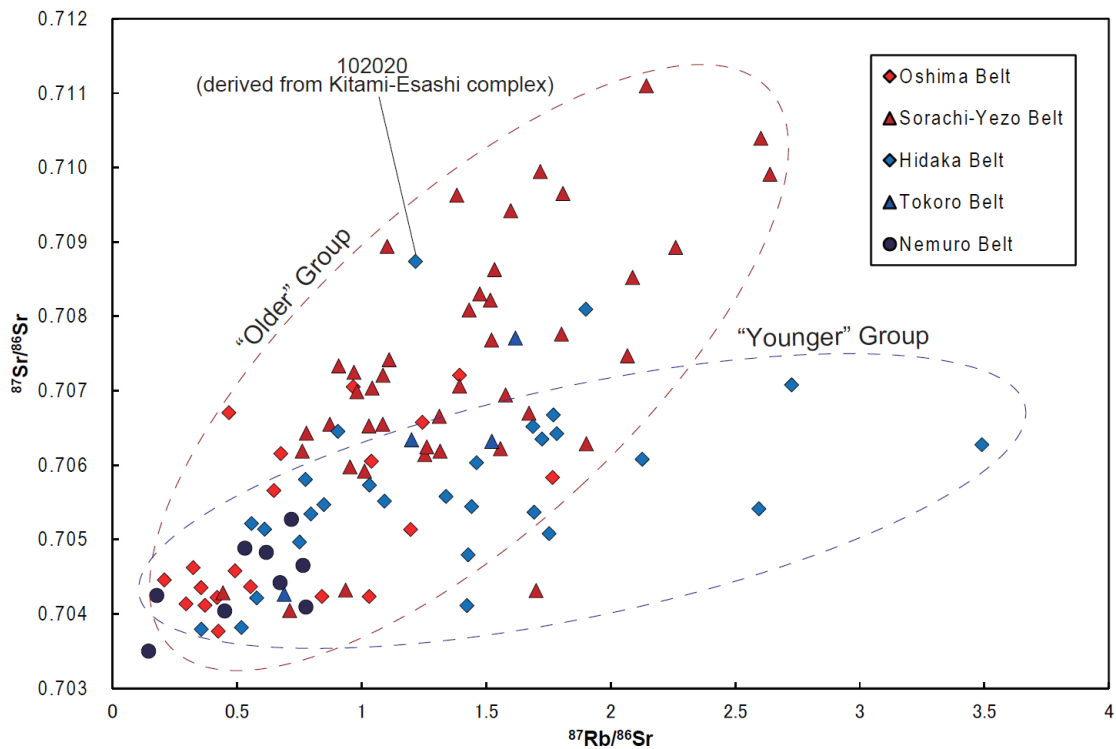


Fig. 39. $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}/-^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ of stream sediments according to most current geological setting. Red plots are samples derived from Oshima and Sorachi-Yezo Belt. Blue plots are samples derived from Hidaka, Tokoro, and Nemuro Belt. The $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ values are calculated from Rb and Sr concentration (Imai *et al.*, 2010).

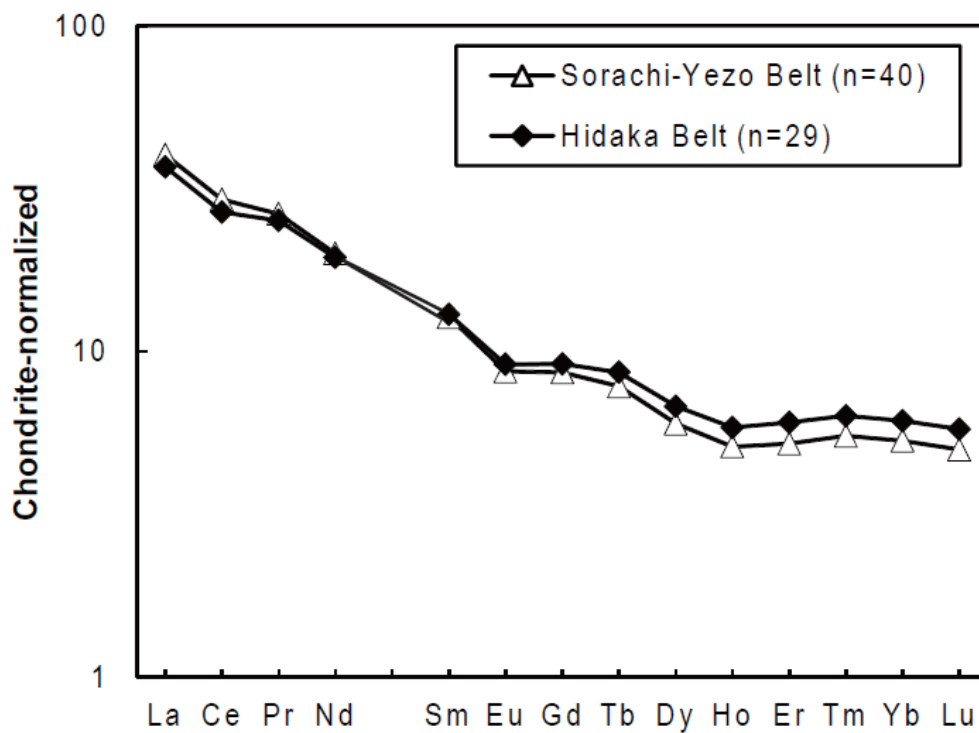


Fig. 40. Chondrite-normalized REE patterns of stream sediments derived from Sorachi-Yezo Belt and Hidaka Belt. Averaged REE concentrations for 40 and 29 stream sediment samples were used to construct the respective REE patterns.

第4項 180 μm 以下の粒度と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 変動の関係について

産総研により採取された河川堆積物試料の粒度は $<180\ \mu\text{m}$ であるが、その範囲の中でも目視で粒度の違いが明らかな場合がある。 $<180\ \mu\text{m}$ の粒度には、Wentworth (1922)の碎屑物における砂(2–0.063 mm)・シルト(0.063–0.004 mm)・粘土(0.004 mm未満)の3つの成分が含まれており、目視での粒度の違いは、これら各成分の量比が異なっていることによる。詳細な区分では、180–125 μm は細粒砂に含まれている。特に砂質粒度が優勢な試料については、サンプル瓶内での不均質性が $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ に影響を与える可能性が考えられる。そこでまず、6つの試料(代表地質がない: 83020, 84004; 代表地質が火山岩: 92020, 97013; 代表地質が堆積岩: 86042, 94020)についてレーザー回折・散乱式粒度分布測定装置によって粒度分布を明らかにした。この結果を基に、細砂が多く粒度が粗い試料と、シルト・粘土が多く、粒度が細かい試料について、粒度の違いによる $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ への影響の違いの検討を行った。それぞれの試料について、量り取りから $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 測定までをそれぞれ独立した作業で5回行った。その結果、砂成分が50%以上である比較的粗粒の試料(83020, 84004, 97013)は、50%以下の細粒の試料(94020, 92020, 86042)よりも、5回繰り返し測定から得られた標準偏差が大きかったが、最も値が大きい試料でも0.0001以下という結果であった(Table 8)。よって、測定誤差が入らない少数点以下第4位までの測定値を基に議論を行っている本研究では、試料容器から取り出す際の試料の不均質性は $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ に影響をほとんど及ぼしていないと考えられる。一方で、180 μm 以下に認められる試料の粒度の差は、河川による運搬距離などによって差が生じると考えられる。

石狩川の支流である幾春別川で採取された試料86042は、シルト成分が多く、産総研のホームページ上の試料情報においても、目視により泥質試料と判断されている。その $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は0.7109であり、この試料採取地点の上流に位置する86043と86045についてもそれぞれ0.7111と0.7099と、いずれも上流に分布する白亜紀堆積岩の蝦夷層群起源と考えられる値が得られている(Fig. 41)。一方で、86042の地点の周囲は第四紀堆積岩であり、白亜紀堆積岩の分布地域からは20 km程度下流となる。上流の地点86045から86042に至るまでには、幾春別川は蝦夷層群に加え、古第三紀・新第三紀・および第四紀堆積岩が分布する流域を有する。これらの堆積岩は、直近の蝦夷層群が風化した碎屑物と、蝦夷層群形成以降の火山活動による火山碎屑物の混合により構成されていると考えられる。とくに新第三紀以降は、広範囲のテフラを内在することが確認されている(洞爺テフラ、支笏第一テフラなど)。そのため、比較的高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を示す蝦夷層群の碎屑物と、低い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を示すテフラなどの火山碎屑物などが混合することにより、下流域の河川堆積物ほど値が低くなると予想される。しかし、ここではその傾向はそれほど見られず、下流の地点86042でも高い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が保たれている。これは、試料採取地点から離れた上流部に分布する蝦夷層群の碎屑物が下流まで運搬されていると考えられる。

夷層群（主に鹿島層）から供給された碎屑物に対して、下流部の堆積岩起源の碎屑物量の供給量が相対的に少ないためと考えられる。これは、一般的に地形の傾斜が急であるほど、碎屑物供給量が大きいことと関連しており、幾春別川の最上流域の平均傾斜が約 20–30% であるのに対し、86043 付近の平均傾斜が最大でも 10% 程度と小さく、そのことが上流部と下流部の碎屑物供給量の差を生じさせる要因と考えられる。また、試料 86042 の主成分元素組成を、岩石が風化を受ける際に比較的溶出しやすい元素 Ca と溶出しにくい Al の比 ($\text{CaO}/\text{Al}_2\text{O}_3$) を、北海道地域における他の堆積岩起源の河川堆積物の組成の平均値 (0.18) と比較してみると、試料 86042 は 0.08 という低い値を示した。そのため試料 86042 に含まれる碎屑物粒子は、化学的風化を強く受けていると考えられる。これは、蝦夷層群鹿島層の岩石が堆積岩の中でも物理的・化学的風化を長期間受けた碎屑粒子である泥（シルト・粘土）を主体とすることと調和的である。蝦夷層群の泥岩については、鱗片状の劈開が発達することがあり、地表に露出すると急速に風化しやすいとの指摘もあり（日本地質学会、2010）、物理的風化を長期間受けていなくとも、 $<63\ \mu\text{m}$ の粘土・シルト粒子として供給されやすい事も原因の 1 つと考えられる。さらに、河川の粒子の挙動を流速と粒径からとらえたユルストローム図によれば、粘土やシルトは砂と比較し、一度河川水中に浮流した後は、動き出したらほとんど流速がなくなるまで堆積せず、水流に流されやすい性質であることがわかる (Fig. 42)。

以上のことから、風化に弱い泥岩が上流に分布する幾春別川では、河川水による運搬作用を受けやすく長距離を移動しやすい粘土・シルトサイズ粒子が供給されやすい環境にあることが、一河川系内でほぼ同一の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を示す原因と考えられる。一律 $180\ \mu\text{m}$ 以下の試料を扱う場合でも、どの粒径フラクションが卓越しているかは試料によって様々であり、粘土・シルトサイズの細粒フラクションが極端に多い試料を採用すると、地質の平均値ではなく上流部の特異的な地質の影響を受けた値が得られる可能性があると考えられる。

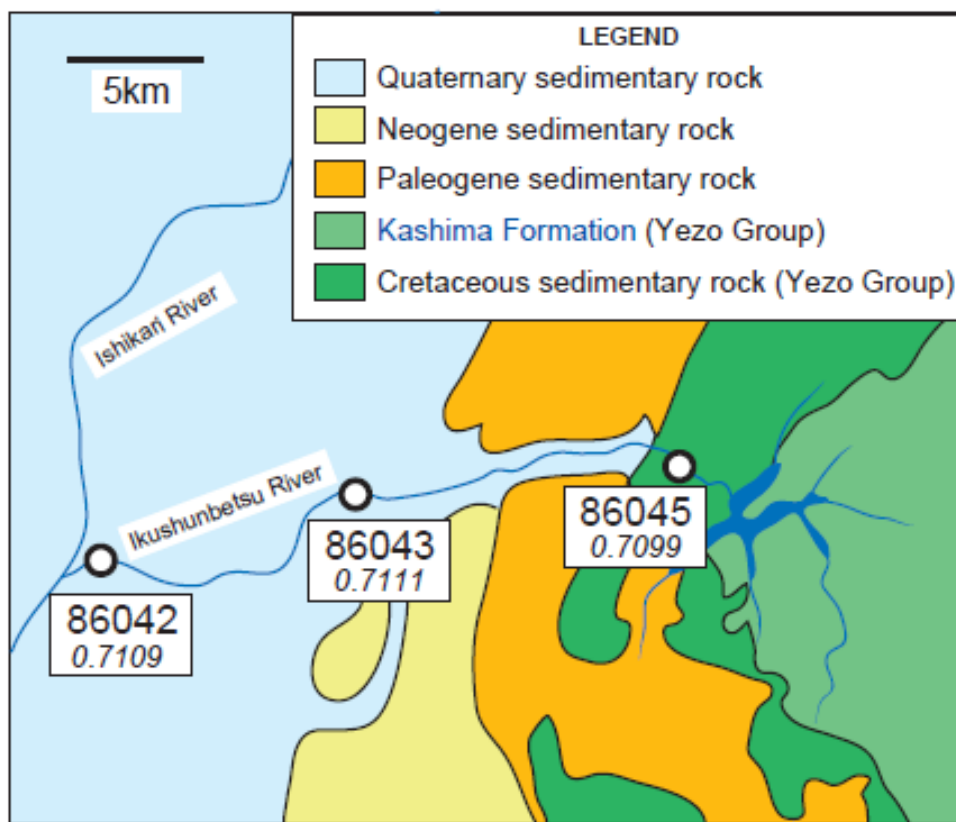


Fig. 41. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values of stream sediments and surrounding geology in Ikushunbetsu River. The figure is modified from Takashima *et al.*, 2004.

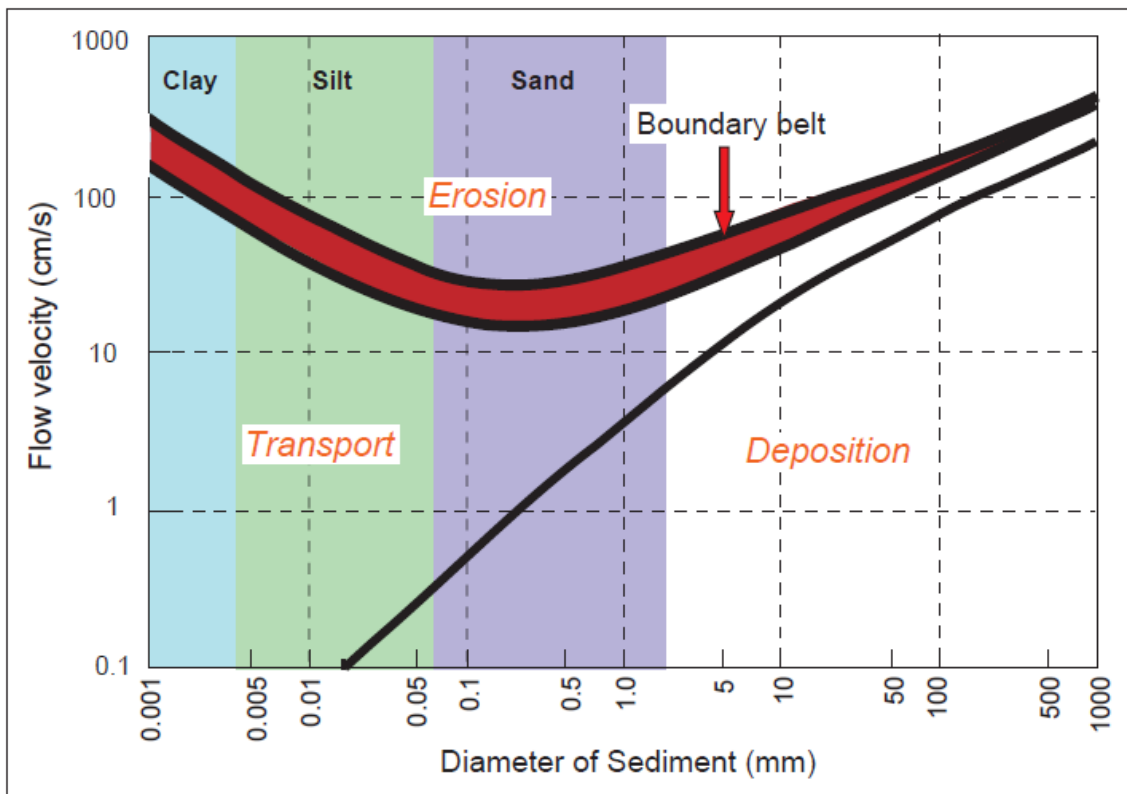


Fig. 42. Relationship between flow velocity and particle transport, erosion, and deposition (modified from Hjulström, 1935).

Table 7. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$, Rb and Sr concentrations, $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$, and major geological units of samples in Hokkaido area.

Sample	Latitude (N)	Longitude (E)	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}^a$	Rb ^b	Sr ^b	$^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}^c$	Representative geology ^d
78 Hakodate							
78002	41°30'0"	140°1'27"	0.706155±14	53.0	227	0.68	J [1(63.9%), 6(32.1%),4(2.0%)]
78015	41°45'34"	140°51'40"	0.705658±16	39.1	175	0.65	—[4(43.1%), 1(31.9%), 6(20.5%)]
78019	41°53'42"	140°15'47"	0.707208±14	66.7	139	1.39	N [4(69.1%), 1(26.9%), 6(2.5%)]
79 Shiriyazaki							
79004	41°50'7"	141°8'45"	0.704456±23	8.458	117	0.21	v [6(69.4%), 4(17.7%), 8(12.9%)]
80 Kuon							
80107	42°12'54"	139°52'18"	0.705832±16	81.3	133	1.77	—[6(44.4%), 4(24.1%), 9(18.7%)]
80110	42°35'58"	139°50'18"	0.703559±14	39.9	286	0.40	v [6(100%)]
81 Muroran							
81001	42°7'5"	140°16'56"	0.704135±14	28.4	278	0.30	v [6(51.2%), 4(48.5%), 1(0.3%)]
81019	42°29'58"	140°11'9"	0.706576±14	80.2	186	1.24	—[9(47.1%), 1(37.3%), 4(8.2%)]
81027	42°38'23"	140°20'52"	0.704114±14	23.6	184	0.37	v [6(60.7%), 4(39.3%)]
81031	42°39'21"	140°45'4"	0.704235±14	32.0	110	0.84	v [8(76.8%), 6(16.7%), 4(6.5%)]
82 Tomakomai							
82004	42°38'49"	141°3'52"	0.704354±14	19.4	158	0.36	v [6(58.7%), 8(28.8%), 4(7.2%)]
82014	42°34'17"	141°56'23"	0.707035±38	55.2	153	1.04	N [4(99.9%), 8(0.1%)]
83 Urakawa							
83012	42°14'26"	142°55'40"	0.707471±17	83.9	117	2.07	Ca [1(75.6%), 4(12.3%), 12(5.6%)]
83020	42°25'18"	142°32'43"	0.707062±16	60.0	125	1.39	—[2(40.4%), 11(31.1%), 4(16.5%)]
83024	42°20'19"	142°47'46"	0.706699±13	80.4	139	1.67	Ca [1(62.3%), 12(25.5%), 2(3.9%)]
83027	42°39'30"	142°16'23"	0.706942±14	74.4	136	1.58	N [4(86.3%), 2(13.7%)]
83028	42°31'38"	142°20'31"	0.706526±14	60.7	171	1.03	N [4(79.3%), 2(20.7%)]
83029	42°32'38"	142°35'47"	0.707247±16	44.0	131	0.97	—[1(44.8%), 2(29.8%), 4(12.5%)]
83030	42°36'54"	142°52'14"	0.705216±14	49.9	259	0.56	—[11(47.2%), 1(24.0%), 9(14.7%)]
84 Hiroo							
84003	42°3'35"	143°4'16"	0.705340±13	42.0	219	0.56	—[11(38.6%), 10(33.8%), 9(26.5%)]
84004	42°8'38"	143°5'40"	0.705052±16	42.9	226	0.55	—[10(34.6%), 9(33.6%), 12(31.8%)]
84005	42°2'14"	143°17'45"	0.705730±13	76.7	215	1.03	—[1(42.1%), 9(40.7%), 12(17.2%)]
84010	42°24'49"	143°9'2"	0.705138±17	58.7	278	0.61	CN [1(67.1%), 9(18.7%), 12(14.2%)]
84015	42°38'27"	143°5'36"	0.705469±14	71.5	244	0.85	CN [1(80.1%), 12(10.8%), 4(8.4%)]
85 Iwauchi							
85012	42°47'29"	140°41'51"	0.704235±15	18.4	51.7	1.03	v [8(68.6%), 6(28.3%), 4(3.1%)]
85023	43°2'51"	140°50'58"	0.704222±15	35.3	243	0.42	v [6(79.7%), 7(13.1%), 4(7.2%)]
85027	43°17'35"	140°36'23"	0.703770±15	40.3	275	0.42	v [6(96.9%), 9(2.1%), 4(1.0%)]
86 Sapporo							
86001	42°43'59"	141°3'44"	0.704366±14	31.3	163	0.55	v [8(55%), 6(42.1%), 4(2.9%)]
86003	42°45'58"	141°25'5"	0.704620±14	19.8	177	0.32	v [6(44.9%), 8(35.7%), 7(16.9%)]
86004	42°48'50"	141°37'39"	0.704579±16	30.9	182	0.49	v [8(66.3%), 4(19.9%), 6(13.8%)]
86009	42°58'29"	141°8'29"	0.705135±14	45.2	109	1.20	v [6(55.1%), 7(34.8%), 4(10.1%)]
86019	42°55'57"	141°39'15"	0.705650±14	48.6	118	1.19	v [8(65.1%), 4(34.9%)]
86021	42°54'56"	141°54'49"	0.706547±14	51.0	169	0.87	—[4(100%)]

Table 7. Continued.

Sample	Latitude (N)	Longitude (E)	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}^a$	Rb ^b	Sr ^b	$^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}^c$	Representative geology ^d
86042	43°12'47"	141°40'30"	0.710893±14	94.4	94.7	2.89	—[4(100%)]
86043	43°13'34"	141°48'08"	0.711098±14	78.2	106	2.14	—[4(100%)]
86044	43°19'31"	141°53'30"	0.708927±16	76.7	98.1	2.26	P [4(100%)]
86045	43°14'27"	141°59'52"	0.709946±16	89.5	151	1.72	Cs [4(100%)]
87 Yuubaridake							
87002	42°45'20"	142°9'26"	0.707680±14	70.3	134	1.52	—[4(69.6%), 5(30.4%)]
87008	42°40'32"	142°23'56"	0.707418±14	50.9	133	1.11	CN [2(61.5%), 4(38.5%)]
87010	42°40'12"	142°35'4"	0.706655±14	55.7	123	1.31	—[1(37.6%), 2(30.0%), 9(16.6%)]
87011	42°44'20"	142°52'51"	0.704468±15	21.3	199	0.31	g [10(82.4%), 9(10.4%), 12(5.6%)]
87014	42°53'4"	142°15'27"	0.708217±17	61.0	116	1.52	Cs [4(83.5%), 5(13.6%), 2(2.9%)]
87016	42°50'53"	142°25'20"	0.707209±14	53.3	142	1.09	Cs [4(59.4%), 2(27.7%), 5(9.1%)]
87017	42°53'3"	142°32'12"	0.706188±14	42.9	163	0.76	—[2(32.1%), 1(20.5%), 4(19.5%)]
87023	43°3'5"	142°7'58"	0.709418±24	65.5	119	1.60	—[4(47.9%), 5(37.8%), 2(14.3%)]
87025	43°8'49"	142°23'55"	0.708629±18	65.9	124	1.53	—[2(38.8%), 5(32.5%), 4(28.0%)]
87029	43°7'36"	142°40'55"	0.704087±15	35.0	163	0.62	v [8(67.4%), 1(13.2%), 6(11.3%)]
87030	43°5'13"	142°50'13"	0.704794±16	74.5	151	1.43	v [8(59.6%), 4(22.6%), 1(9.8%)]
87031	43°9'9"	142°53'55"	0.704530±15	20.5	131	0.45	v [8(100%)]
87035	43°17'22"	142°6'29"	0.709630±14	58.0	122	1.38	Cs [4(87.6%), 2(11.9%), 5(0.5%)]
87044	43°18'6"	142°56'40"	0.705806±18	41.1	154	0.77	CN [1(81.2%), 8(6.9%), 6(5.6%)]
88 Obihiro							
88008	42°46'50"	143°19'49"	0.705791±14	81.0	181	1.29	Q [4(99.7%), 6(0.3%)]
88032	42°59'4"	143°38'17"	0.704815±16	52.6	220	0.69	N [4(100%)]
88036	42°58'21"	143°51'51"	0.704827±16	50.4	236	0.62	P [4(100%)]
88038	42°3'6"	143°5'21"	0.704111±14	74.9	152	1.42	Q [4(89.8%), 8(10.2%)]
88042	43°3'55"	143°28'5"	0.704945±16	69.6	119	1.70	Q [4(100%)]
88048	43°14'0"	143°2'18"	0.706078±16	72.5	98.7	2.13	—[6(46.0%), 4(23.5%), 8(20.0%)]
88054	43°18'18"	143°43'36"	0.705269±14	64.8	261	0.72	P [4(89.8%), 6(8.7%), 2(1.5%)]
88055	43°10'24"	143°53'39"	0.704884±14	50.3	274	0.53	P [4(100%)]
89 Kushiro							
89006	43°7'1"	144°7'26"	0.704420±14	64.1	276	0.67	P [4(99.9%), 8(0.1%)]
89013	43°8'3"	144°34'48"	0.704651±16	44.2	167	0.76	Q [4(98.0%), 6(2.0%)]
89027	43°19'0"	144°50'49"	0.703524±14	11.3	190	0.17	v [4(97.6%), 8(2.4%)]
90 Nemuro							
90001	43°3'16"	145°5'9"	0.704248±15	20.7	336	0.18	Q [4(100%)]
90005	43°15'15"	145°24'31"	0.704538±14	32.5	290	0.32	v [4(100%)]
91 Rumoi							
91002	43°28'19"	141°35'55"	0.706703±16	33.5	207	0.47	N [4(99.5%), 6(0.5%)]
91022	43°40'50"	141°45'8"	0.707053±16	46.0	138	0.97	N [4(53.2%), 6(46.8%)]
91032	43°55'25"	141°40'42"	0.706053±13	56.2	156	1.04	N [4(98.4%), 6(1.6%)]
92 Asahikawa							
92001	43°22'39"	142°10'47"	0.710395±14	79.1	87.9	2.60	Cs [4(100%)]
92004	43°28'30"	142°15'12"	0.709910±17	78.7	86.3	2.64	Cs [4(100%)]

Table 7. Continued.

Sample	Latitude (N)	Longitude (E)	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}^{\text{a}}$	Rb ^b	Sr ^b	$^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}^{\text{c}}$	Representative geology ^d
92010	43°24'28"	142°52'19"	0.703795±18	30.3	246	0.36	—[6(46.0%), 8(45.1%), 2(7.5%)
92012	43°32'44"	142°8'51"	0.706219±14	68.8	128	1.56	P [4(50.6%), 11(22.1%), 6(21.3%)]
92017	43°39'46"	142°24'36"	0.704312±14	81.8	139	1.70	v [8(76.5%), 4(23.5%)]
92020	43°34'21"	142°29'53"	0.704046±17	38.5	157	0.71	v [6(55.3%), 8(34.2%), 4(18.6%)]
92025	43°48'5"	142°1'38"	0.706288±14	70.0	106	1.90	N [4(60.4%), 11(39.6%)]
92026	43°47'26"	142°17'5"	0.707586±17	63.8	100	1.84	k [11(98.4%), 5(1.6%)]
92035	43°49'4"	142°33'1"	0.706350±14	72.3	121	1.72	v [6(74.4%), 1(21.0%), 2(2.5%)]
92036	43°43'3"	142°32'6"	0.704107±14	63.8	151	1.23	v [8(63.9%), 6(27.4%), 4(8.7%)]
92039	43°43'32"	142°57'1"	0.703817±14	36.7	205	0.52	—[6(35.9%), 1(30.7%), 4(20.7%)]
92041	43°58'53"	142°7'32"	0.709650±14 ^c	99.8	160	1.81	Cs [4(50.0%), 11(23.5%), 5(21.0%)]
92042	43°52'28"	142°15'21"	0.707343±16	54.1	78.4	2.00	k [11(95.9%), 5(4.1%)]
92048	43°58'28"	142°46'1"	0.705412±16	75.5	84.1	2.60	v [6(58.5%), 7(24.1%), 4(17.4%)]
93 Kitami							
93001	43°25'41"	142°7'49"	0.705078±16	76.4	126	1.75	—[6(41.4%), 7(21.6%), 8(15.9%)]
93010	43°21'49"	143°48'10"	0.704091±17	36.6	136	0.78	P [4(55.9%), 6(28.7%), 8(12.1%)]
93013	43°38'34"	143°4'12"	0.705442±17	76.1	153	1.44	CN [1(69.7%), 4(30.3%)]
93017	43°37'48"	143°31'5"	0.704214±18	73.1	161	1.32	v [6(75.4%), 4(20.3%), 8(0.3%)]
93019	43°38'19"	143°59'21"	0.704534±14	38.2	176	0.63	N [4(63.9%), 2(19.8%), 8(10.3%)]
93029	43°52'43"	143°10'45"	0.704213±15	41.7	208	0.58	—[1(35.8%), 6(29.7%), 4(22.3%)]
93035	43°57'45"	143°40'28"	0.705516±14	60.0	159	1.09	CN [1(63.6%), 4(14.6%), 2(13.0%)]
93036	43°56'2"	143°57'39"	0.704265±15	46.5	195	0.69	—[4(43.0%), 2(26.8%), 11(19.1%)]
94 Shari							
94002	43°25'37"	144°8'41"	0.704038±14	41.2	264	0.45	v [6(80.6%), 4(12.1%), 8(7.3%)]
94005	43°23'0"	144°32'54"	0.703498±14	7.91	157	0.15	v [8(64.3%), 4(28.8%), 6(4.9%)]
94009	43°22'11"	144°59'11"	0.703438±14	10.7	166	0.19	v [4(80.8%), 8(19.2%)]
94020	43°42'1"	144°1'41"	0.705119±21	43.3	174	0.72	N [4(58.8%), 6(40.4%), 8(0.9%)]
94026	43°42'22"	144°32'13"	0.703431±14	8.42	211	0.12	v [6(56.0%), 8(35.3%), 4(8.7%)]
94027	43°44'55"	144°53'28"	0.703963±17	21.0	107	0.57	—[4(41.4%), 6(37.0%), 7(12.2%)]
94028	43°54'37"	144°7'16"	0.707708±16	74.1	133	1.62	N [4(54.8%), 8(28.1%), 6(17.1%)]
94039	43°56'14"	144°48'55"	0.703627±14	19.5	185	0.30	v [6(57.4%), 4(40.6%), 8(2.0%)]
95 Shibetsu							
95001	43°25'13"	145°2'51"	0.703638±14	20.7	171	0.35	v [4(95.4%), 8(4.6%)]
95016	43°56'10"	145°7'45"	0.703526±14	12.1	217	0.16	v [6(60.8%), 4(26.0%), 8(13.2%)]
96 Hahoro							
96009	44°15'36"	141°44'37"	0.708523±17	96.5	134	2.09	N [4(100%)]
96020	44°33'53"	141°57'48"	0.705975±16	50.5	153	0.95	N [4(70.3%), 6(29.7%)]
97 Nayoro							
97001	44°7'30"	142°10'13"	0.708084±13	80.1	162	1.43	Cs [4(92.6%), 5(6.2%), 6(1.2%)]
97002	44°7'15"	142°15'24"	0.706428±14	25.5	94.6	0.78	—[2(26.4%), 6(25.7%), 4(25.2%)]
97007	44°7'10"	142°28'46"	0.705693±17	76.8	121	1.84	v [6(50.7%), 5(30.0%), 9(9.2%)]
97009	44°5'15"	142°37'21"	0.706674±16	81.4	133	1.77	—[1(49.8%), 6(27.7%), 4(15.8%)]
97012	44°3'54"	142°59'7"	0.706518±14	58.1	99.5	1.69	CN [1(68.1%), 7(25.4%), 6(3.2%)]

Table 7. Continued.

Sample	Latitude (N)	Longitude (E)	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}^a$	Rb ^b	Sr ^b	$^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}^c$	Representative geology ^d
97013	44°17'2"	142°10'12"	0.706985±14	58.3	172	0.98	v[6(62.8%), 4(37.2%)]
97018	44°18'9"	142°37'18"	0.706452±14	34.4	110	0.91	—[1(32.9%), 4(32.1%), 6(30.1%)]
97021	44°19'59"	142°59'21"	0.706424±14	75.6	123	1.78	CN[1(78.1%), 4(21.9%)]
97024	44°21'43"	142°15'51"	0.704319±14	55.2	171	0.94	v[6(94.7%), 4(5.3%)]
97025	44°29'44"	142°19'40"	0.704283±15	36.8	240	0.44	v[6(59.4%), 4(40.6%)]
97027	44°23'54"	142°42'15"	0.705366±14	69.9	119	1.69	v[7(53.5%), 6(45.7%), 4(0.9%)]
97029	44°37'15"	142°5'43"	0.708301±16	75.1	147	1.47	v[6(51.6%), 4(47.9%), 2(0.5%)]
97032	44°31'39"	142°32'52"	0.705577±14	68.4	148	1.34	v[6(65.8%), 4(28.2%), 1(6.0%)]
97034	44°31'54"	142°45'18"	0.704966±16	31.6	122	0.75	v[6(54.3%), 4(25.0%), 1(17.4%)]
98 Monbetsu							
98001	44°3'14"	143°3'38"	0.707079±16	108	114	2.73	N[4(51.5%), 1(48.0%), 6(0.5%)]
98009	44°4'38"	143°56'28"	0.706339±16	54.2	131	1.20	—[4(58.0%), 2(23.2%), 11(14.3%)]
98016	44°10'58"	143°20'17"	0.706274±16	86.7	71.9	3.49	N[4(69.0%), 6(18.5%), 1(8.3%)]
98021	44°28'24"	143°7'18"	0.706031±14	78.0	154	1.46	v[6(51.2%), 4(34.4%), 1(14.4%)]
99 Abashiri							
99002	44°0'32"	144°7'15"	0.706321±17	65.4	124	1.52	N[4(88.6%), 8(9.0%), 11(2.3%)]
100 Shiretokomisaki							
100002	44°7'13"	145°6'26"	0.703298±14	24.3	214	0.33	v[6(83.9%), 8(16.0%)]
101 Teshio							
101007	44°53'41"	141°55'38"	0.706243±16	73.3	168	1.26	N[4(100%)]
101017	45°14'35"	141°50'58"	0.705919±14	74.3	212	1.01	N[4(100%)]
102 Esashi							
102001	44°43'42"	142°2'31"	0.707335±14	61.9	197	0.91	Cs[4(95.6%), 6(3.0), 2(1.5%)]
102003	44°43'26"	142°13'17"	0.708941±14	56.1	147	1.10	Cs[4(81.1%), 2(15.7%), 5(3.2%)]
102007	44°49'9"	142°26'53"	0.708097±16	76.6	117	1.90	N[4(81.7%), 6(17.3%), 2(1.0%)]
102008	44°45'28"	142°36'47"	0.705342±14	48.4	176	0.80	v[6(59.4%), 4(40.6%)]
102012	44°54'58"	142°1'14"	0.706549±16	60.5	161	1.08	N[4(79.0%), 5(21.0%)]
102013	44°52'18"	142°13'32"	0.707762±14	85.1	137	1.80	Cs[4(91.7%), 2(6.3%), 7(1.3%)]
102020	45°3'48"	142°20'55"	0.708737±14	54.6	130	1.22	CN[1(81.7%), 2(17.2%), 4(1.1%)]
102023	45°13'39"	142°7'24"	0.706140±14	84.0	194	1.25	—[4(100%)]
103 Wakkanai							
103005	45°26'59"	142°0'32"	0.706187±16	85.7	188	1.32	N[4(100%)]

^a The errors in the final digits are $2\sigma_{\text{mean}}$.

^b Data from Imai et al. (2010).

^c Values calculated by the Rb and Sr concentrations.

^d Major geology, together with the first to third representative lithologies of the catchment area shown in parentheses. The results of the basin analysis. The abbreviations are: v=Neogene-Quaternary igneous rock, Q=Quaternary sedimentary rock, N=Neogene sedimentary rock, P=Paleogene-Neogene sedimentary rock, CN=Cretaceous-Neogene accretionary complex, Cs= Cretaceous sedimentary rock, Ca=Cretaceous accretionary complex, J=Jurassic accretionary complex, b=Basalt block in Jurassic accretionary complex, g=gabbro, k=Kamuikotan metamorphic rock. The numbers in parenthesis show the first to third lithologies occupying the catchment basin: 1=accretionary complexes, 2=igneous rocks in accretionary complexes, 3=limestones in accretionary complexes, 4=sedimentary rocks, 5=ultra basic rocks, 6=non-alkaline mafic volcanic rocks, 7=non-alkaline felsic volcanic rocks, 8=pyroclastic flow, 9=felsic plutonic rocks, 10=mafic plutonic rocks, 12=high-pressure metamorphic rocks, and 11=low-medium-pressure metamorphic rocks

Table 8. Particle composition, major geology and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values with standard deviation of stream sediments.

Sampling point	Particle composition	Major geology	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio	Standard deviation
83020	Sand 71% Silt 22% Clay 7%	—	0.707062±0.000017	0.000046
			0.707004±0.000014	
			0.707107±0.000016	
			0.707092±0.000014	
			0.706992±0.000014	
84004	Sand 67% Silt 30% Clay 4%	—	0.705052±0.000016	0.000013
			0.705053±0.000017	
			0.705048±0.000014	
			0.705019±0.000016	
			0.705054±0.000017	
97013	Sand 53% Silt 32% Clay 15%	Volcanic rock	0.706985±0.000014	0.000066
			0.706802±0.000014	
			0.706920±0.000016	
			0.706948±0.000014	
			0.706973±0.000016	
94020	Sand 44% Silt 49% Clay 7%	Sedimentary rock	0.705119±0.000021	0.000032
			0.705087±0.000016	
			0.705153±0.000014	
			0.705140±0.000016	
			0.705183±0.000014	
92020	Sand 22% Silt 70% Clay 9%	Volcanic rock	0.704046±0.000017	0.000013
			0.704068±0.000015	
			0.704059±0.000014	
			0.704031±0.000015	
			0.704058±0.000015	
86042	Sand -% Silt 70% Clay 30%	Sedimentary rock	0.710893±0.000014	0.000022
			0.710866±0.000016	
			0.710934±0.000014	
			0.710898±0.000014	
			0.710909±0.000014	

結論

愛知県豊田市の伊奈川花崗岩が分布する矢作川上流の粒径 1 mm 以下の河川堆積物は、粒径により異なる元素濃度を示した。例えば SiO_2 の濃度は、最も粗粒の 1000–500 μm 分画で高く、粉末 X 線回折パターンでも粗粒分画で石英のピークが最も強いなどの結果から、各粒径分画の元素濃度の差は、鉱物組成の違いから生じている。花崗岩の主要な構成鉱物である斜長石は 300–75 μm に多く含まれ、細粒部の <125 μm 分画でジルコンや角閃石などの重鉱物の濃集が認められた。さらに、採取地点間のノルム鉱物比の比較から、元素濃度の違いは、試料採取地点の河川の流れや、河床環境にも影響を受けることが明らかとなった。一方で、試料採取地点間の元素濃度の差は、300–75 μm で最も小さいことが明らかになった。 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ – $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 図において、180–75 μm 及び <180 μm 分画で最も母岩に近い $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ 及び $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値が得られた。さらに、母岩の各鉱物と全岩 Rb–Sr アイソクロンと比較した所、特に 1000–500 μm の粗粒分画の持つ値は、アイソクロンからはずれた領域にプロットされ、風化を受けていない母岩の各鉱物の値の混合では説明できなかった。以上のことから、花崗岩が分布する流域において、母岩をより直接的に反映した $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を得るには、180–75 μm もしくは <180 μm の粒径分画の河川堆積物が最も適切であることが判明した。

複数の地質が分布する地域（花崗岩・堆積岩・安山岩）である愛媛県松山市重信川水系の河川堆積物においても、粒径ごとに鉱物組成に変化がみられ、それに応じて元素濃度にも変化が生じていた。粒径別元素濃度における特徴としては、例えば、花崗岩地域の試料で細は、ジルコンを含む重鉱物の細粒分画への濃集を反映し、細粒分画に Zr や P_2O_5 の濃集が認められた。また、安山岩地域の試料では TiO_2 、 Fe_2O_3 、 MgO 、V の最高濃度が中粒分画 (300–75 μm) に見られることが挙げられる。また、一地点の試料の粒径分画別 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は、流域の地質に関わらず 0.001 以内の非常に小さい変動幅であった。河川の上流部で複数の地質が分布している地域において河川堆積物を採取する場合 >180 μm の粗粒分画では、試料採取地点近傍の特定の岩体の影響が強く現れるなど偏った情報が得られる場合が認められた。しかし、比較的細粒である <180 μm の試料を用いれば、流域に分布する地質の平均的な値を得られることが明らかとなった。

石灰岩地域を流れる厚東川水系の河川堆積物は、石灰岩が物理的風化に強く、化学的風化に弱い性質を反映し、<125 μm 分画では物理的風化により生成した方解石粒子は少なく、他の母岩起源の碎屑物粒子の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を反映することが示された。よって、試料採取地点の近傍ではなく上流域にのみ石灰岩が分布している場合、日本の地球化学図で用いられて

いる<180 μm 分画の河川堆積物は、物理的風化を受けた碎屑物粒子としての方解石を含まないため、流域の母岩の面積割合から推測される $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を示さない。

以上のことから、石灰岩地域を除く花崗岩・堆積岩・安山岩などの日本列島を構成する主要な岩石が分布する地域においては、供給源となる母岩の鉱物組成および化学組成の違いは、どの粒径分画を用いても元素濃度に反映されているため、河川堆積物の元素濃度に最も影響を与える主な要因は地質の違いであることが明らかになった。また、河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は地質ごとに特徴的な値を示し、流域の母岩の種類・割合によっても値が変化することから、地質を非常によく反映している。 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ においては、粒径別変動よりも、試料間の母岩の割合の違いの方が、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値に大きく影響した。最終的に、地表面の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布図を作成するには、<180 μm 分画を用いることで、特定の地質や、鉱物の濃集に左右されず、流域の平均値が得られることが明らかとなった。

次に、広域の河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布がどの程度地質分布を反映するかを確かめるために、四国・紀伊半島地域の<180 μm 分画の河川堆積物試料を分析した結果、地質帯の分布に良く対応した $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布を得られることが明らかになった。さらに、付加体堆積岩地域の河川堆積物中の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が、形成年代が新しくなるほど高くなった点について検証を進めた結果、母岩に含まれる大陸起源碎屑物の量が、南ほど多いことが示唆され、河川堆積物から、堆積岩を構成する碎屑物の起源の情報を間接的に得るための良い指標になり得ることが明らかになった。

さらに、四国・紀伊半島地域よりも広域な北海道地域の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 分布図を用いて、母岩である堆積岩を構成する碎屑物の起源の違いを調べた。堆積岩起源の河川堆積物の $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ — $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値は、西側の構造体である渡島帯・空知—エゾ帯と、東側の構造体である日高帯・常呂帯・根室帯で、それぞれ見かけの年代が古い碎屑物の領域と新しい碎屑物の領域にプロットされた。このことから、日高帯と空知—エゾ帯の間に構造体の境界、ここでは異なる堆積場であった古東北日本弧と古千島弧の境界が存在することを間接的に示すことに成功した。また、粘土・シルトサイズの粒子の割合が多い試料の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の特徴についても考察した。泥質粒子が多いのは、上流部に泥質粒子を供給しやすい母岩が分布しているのに加え、上流部と比較し、河川中流部から下流部にかけての傾斜が平坦であることから、斜面からの削剥量が少なく、粗粒碎屑物の供給が少ないことが要因と考えられた。このことから、<180 μm 分画のうち、粘土・シルトサイズの粒子の割合が多い試料流域内の母岩の割合を反映しない例があることが明らかになった。

以上のことから、<180 μm の細粒分画河川堆積物が、広域の元素濃度地球化学図だけでなく、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 地球化学図に作成に最も適した試料であることが明らかとなった。鉱物の

$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は、風化によってほとんど変化しないため、河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 変動には粒径分画の違いで見られたような、鉱物組成の差の方が作用する。ただし、その差は 1 mm 以下の異なる粒径分画間で多くの場合 0.001 程度と小さく、河川堆積物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の変動を最も支配する要因は、母岩となる地質の違いであることが明らかになった。また、作成した $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 地球化学図から、母岩である堆積岩を構成する碎屑物の起源の情報を得ることも可能であり、地質帯の構造史に対しての有力な指標の一つとなり得ることも明らかとなった。

参考文献

- Aoki, K., Iizuka, T., Hirata, T., Maruyama, S., Terabayashi, M., 2007. Tectonic boundary between the Sanbagawa belt and the Shimanto belt in central Shikoku, Japan. *Jour. Geol. Soc. Japan*, 113, 171–183.
- Ariyama, K., Shinozaki, M. and Kawasaki, A., 2012. Determination of the geographic origin of rice by chemometrics with strontium and lead isotope ratios and multielement concentrations. *J. Agric. Food Chem.*, 60 (7), 1628–1634.
- Asahara, Y., Ishiguro, H., Tanaka, T., Yamamoto, K., Mimura, K., Minami, M. and Yoshida, H., 2006. Application of Sr isotopes to geochemical mapping and provenance analysis: the case of Aichi Prefecture, central Japan. *Applied Geochem.*, 21, 419–436.
- Chandrajith, R., Dissanayake, C. B. and Tobschall, H. J., 2001. Application of multi-element relationships in stream sediments to mineral exploration: a case study of Walawe Ganga Basin, Sri Lanka. *Appl. Geochem.*, 16, 339–350.
- 千葉悦子, 榎原正幸, 佐野栄, 堀利栄, 中井芳恵, 2005. 愛媛大学理学部紀要, 11, 39-46.
- Fauth, H., Hindel, R., Siewers, U. and Zinner, J., 1985. *Geochemischer Atlas Bundesrepublik Deutschland*, BGR., Hannover, 79p.
- Frei, K.M. and Frei, R., 2011. The geographic distribution of strontium isotopes in Danish surface waters-A base for provenance studies in archaeology, hydrology and agriculture. *Appl. Geochem.*, 26, 326–340.
- 藤井厚志, 1980. 秋吉台の地下水と石灰洞. 河野通弘編「秋吉台の鍾乳洞－石灰洞の科学－」. 帰水会, 255p.
- Fullagar, P. D. and Ragland, C., 1975. Chemical weathering and Rb-Sr whole rock ages. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 39, 1245–1252.
- 古堅千絵, 中川光弘, 廣瀬亘, 足立佳子, 2010. 前期～中期中新世の北海道中央部における火山岩の地球化学的特徴: 背弧拡大に伴う火成活動縁辺部のマグマの特徴, *地質学雑誌*, 116, 199–228.
- Geological Survey of Japan, AIST (Ed.), 2012. Seamless digital geological map of Japan 1: 200,000. September 12, 2012 version. Research Information Database DB084, Geological Survey of Japan, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology.
- Goldich, S. S. 1938. A study in rock-weathering. *Jour. Geol.*, 46, 17–58.
- Gustavsson, N., Bølviken, B., Smith, D. B. and Severson, R. C., 2001. Geochemical landscapes of the conterminous United States – new map presentation for 22 elements. USGS Prof. Paper

1648.

Hara, I., Shiota, T., Hide, K., Kanai, K., Goto, M., Seki, S., Kaikiri, K., Takeda, K., Hayasaka, Y., Miyamoto, T., Skurai, Y. and Ohtomo, Y., 1992. Tectonic evolution of the Sambagawa Schists and its implications in convergent margin process. *Jour. Sci. Hiroshima, Univ., ser. C*, 9, 495–595.

長谷川潔, 高橋俊正, 松井公平, 1961. 5万分の1地質図幅「上支湧別」および同説明書. 北海道開発庁, 44p.

広瀬亘, 中川光弘, 1999. 北海道中央部～東部の新第三紀火山活動: 火山学的データおよび全岩化学組成からみた島弧火山活動の成立と変遷. *地質学雑誌*, 105 (4), 247–265.

Hodell, D. A., Quinn, R. L., Brenner, M., Kamenov, G., 2004. Spatial variation of strontium isotopes ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) in the Maya region: a tool for tracking ancient human migration. *Journal of Archaeological science*, 31, 585–601.

Howarth, R.I. and Thornton, I., 1983. Regional geochemical mapping and its application to environmental studies, in: Thornton, I. (Ed.), *Applied Environmental Geochemistry*. Academic Press, London, UK., 41–73.

Hjulström, F., 1935. The morphological Activity of Rivers as Illustrated by River Fyris. *Bulltein of the Geological Institute*, 5 (2), 43–84.

Ikeda, Y., Katsui, Y. and Kurasawa, H., 1987. Origin of Lateral variation in $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ Ratios of Quaternary Volcanic rocks from Kurile Arc in Hokkaido, Japan. *Journal of the Faculty of Science, Hokkaido University* 4, *Geology and mineralogy*, 22 (2), 325–335.

今井登, 1987. 誘導結合プラズマ発光分析法による河川たい積物の分析, *分析化学*, 36, T41–45.

Imai, N., Terashima, S., Itoh, S. and Ando, A., 1996. 1996 compilation of analytical data on nine GSJ geochemical reference samples, “sedimentary rock series”. *Geostandards Newsletter*, 20, 165–216.

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, 富樫茂子, 松久幸敬, 金井豊, 上岡晃, 谷口政碩, 2010. 日本全国の地球化学図 (<https://gbank.gsj.jp/geochemmap/>).

Ishioka, J. and Iizumi, S., 2003. Petrochemical and Sr-Nd isotope investigations of Cretaceous

- intrusive rocks and their enclaves in the Togouchi-Yoshiwa district, northwest Hiroshima prefecture, SW Japan. *Geochem J.*, 37, 449–470.
- 石崎俊一, 1979. 北海道枝幸山地の先エゾ層群より三疊紀コケムシ化石の発見とその意義. *地球科学*, 33, 355–359.
- Isozaki, Y. and Itaya, T., 1990. Chronology of Sanbagawa metamorphism. *Jour. Metam. Geol.*, 8, 401–411.
- Jolivet, L., Miyashita, S., 1985. The Hidaka shear zone (Hokkaido, Japan): Genesis during a right-lateral strike-slip movement. *Tectonics*, 4, 289–302.
- Jomori, Y., Minami, M., Takeuchi, M. and Ohta, A., 2013. Spatial distribution of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios of stream sediments in Shikoku Island and the Kii Peninsula. *Geochem. J.*, 47, 321–335.
- Kagami, H., Honma, H., Shirahase, T. and Nureki, T., 1988. Rb-Sr whole rock isochron ages of granites from northern Shikoku and Okayama, Southwest Japan: Implications for the migration of the Late Cretaceous to Paleogene igneous activity in space and time. *Geochem. J.*, 22, 69–79.
- Kagami, H., Iizumi, S., Tainosho, Y. and Owada, M., 1992. Spatial variations of Sr and Nd isotope ratios of Cretaceous-Paleogene granitoid rocks, Southwest Japan Arc, *Contrib Mineral Petrol*, 112, 165–177.
- 甲藤次郎, 平朝彦, 1979. 久万層群の新観察, *地質ニュース*, 293, 12–21.
- Kautsky, G. and Bølviken, B., 1986. *Geochemical Atlas of Northern Fennoscandia Nordkalott Project*. Geol. Surv. Sweden. 19p. with 144 maps.
- 川村信人, 安田直樹, 渡辺暉夫, Mark Fanning., 寺田剛, 2000. 渡島帯ジュラ紀石英長石質砂岩の組成と供給地質帯. *地質学論集*, 57, 63–72.
- Kawasaki, A., Oda, H. and Hirata, T., 2002. Determination of strontium isotope ratio of brown rice for estimating its provenance. *Soil Science and Plant Nutrition*, 48 (5), 635–640.
- 木原茂樹, 1985. 久万町周辺の始新統久万層群の層序と堆積環境. シンポジウム“スランプリング”の形成とテクトニクス論文集, 133–144.
- 君波和雄, 小松正幸, 新井田清信, 紀藤典夫, 1986. 北海道中生界の構造区分と層序, *地質学論集*, 31, 1–15.
- 木村学, 楠香織, 1997. 日高造山運動と島弧会合部のテクトニクス, *地質学論集*, 47, 295–305.
- 木村進一, 鹿園直建, 野原昌人, 2003. 堆積岩の化学組成及び同位体組成より推定した古日本海海洋環境. *地学雑誌*, 112 (4), 586–607.

- 岸司, 今岡照喜, 東風平宏, 西村裕二郎, 板谷徹丸, 2007. 山口県における白亜紀吉部コールドロンおよび関連岩類の K-Ar 年代: 西中国地域における白亜紀火山-深成活動の時空変遷. 地質学雑誌, 113 (9), 479-491.
- 小林純, 1961. 日本の河川の平均水質とその特徴に関する研究. 農学研究, 48 (2), 63-106.
- 小松正幸, 1985. 北海道中軸部の構造帯-その構造, 性格および構造運動-. 地質学論集, 25, 137-155.
- 倉沢一, 1968. 地球化学の話⑧ 同位体地質学④とくに U・Th・Pb および Rb・Sr について. 地質ニュース, 167, 32-39.
- 栗本史雄, 牧本 博, 吉田史郎, 高橋裕平, 駒澤正夫, 1998. 20 万分の 1 地質図幅「和歌山」. 地質調査所.
- Masuda, A., Nakamura, N. and Tanaka, T., 1973. Fine structures of mutually normalized rare-earth patterns of chondrites. *Geochim. Cosmochim. Acta.*, 37, 239-248.
- Masuda, A., 1975. Abundances of monoisotopic REE, consistent with the Leedeey chondrite values. *Geochem. J.*, 9, 183-184.
- Minami, M., Tanaka, T., Yamamoto, K., Mimura, K., Asahara, Y., Takeuchi, M., Yoshida, H. and Yogo, S., 2005. Database for geochemical mapping of the northeastern areas of Aichi Prefecture, central Japan -XRF major element data of stream sediments collected in 1994 to 2004-. *J. Earth Planet. Sci. Nagoya Univ.*, 52, 25-67.
- 南新真裕, 柳哮, 山口勝, 1979. 四国中央部三波川変成岩類の Rb-Sr 全岩年代. 日本列島の同位体地球科学, 68-79.
- 宮下純夫, 新井孝志, 長橋徹, 1997. 日高帯の緑色岩の意義: 海嶺の多重衝突. 地質学論集, 47, 307-323.
- Nakai, Y., 1976. Petrographical and petrochemical studies of the Ryoke granites in the Mikawa-Tono district, central Japan, *Bull. Aichi Univ. Educ., (Nat. Sci.)*, 25, 97-112.
- 永井浩三, 1956. 石鎚山第三紀層の地質時代と西部日本古第三紀の古地理. 愛媛大紀要, 第 II 部 (科学), 2 (3), 145-154.
- Nagai, K., 1957, The Upper Eocene Flora of the Kuma Group, in the Ishizuchi Range, Shikoku, *Japan. Mem. Ehime Univ., sect. 2*, 2 (4), 73-82.
- 中崎峰子, 壺井基裕, 金川和世, 加藤丈典, 鈴木和博, 2004. X 線分析装置 XRF-1800 による岩石の定量化学分析, 名古屋大学博物館報告, 20, 79-91.
- 日本地質学会 (編), 2009. 日本地方地質誌 5 「近畿地方」, 朝倉書店, 453p.
- 日本地質学会 (編), 2010. 日本地方地質誌 1 「北海道」, 朝倉書店, 631p.

- 日本の地質「四国地方」編集委員会（編），1991．日本の地質 8，四国地方，共立出版，266p.
- 新井田清信，紀藤典夫，1986．北海道における白亜紀島弧-海溝系－その地質構成と構造史
－．地団研専報，31，379–402.
- 西川裕輔，今岡照喜，岸司，亀井淳志，加々美寛雄，2007．日本地質学会学術講演会要旨，
p161.
- Nishimura, T., 1976. Petrography of the Izumi sandstones in the east of the Sanuki Mountain Range,
Shikoku, Japan. *Jour. Geol. Soc. Japan*, 82, 231–240.
- 西村年晴，1987．風化作用による斜長石の変質：人形峠地域の花崗岩の例．兵庫教育大学
紀要，8，107–115.
- Nishioka, S., Arakawa, Y. and Kobayashi, Y., 1991. Strontium isotope profile of
Carboniferous-Permian Akiyoshi Limestone in southwest Japan. *Geochemical Journal*, 25,
137–146.
- Ohta, A., Imai, N., Terashima, S., Tachibana, Y., Ikehara, K. and Nakajima, T., 2004a. Geochemical
mapping in Hokuriku, Japan: Influence of surface geology, mineral occurrences and mass
movement from terrestrial to marine environments. *Appl. Geochem.*, 19, 1453–1469.
- 太田充恒，今井登，寺島滋，立花好子，2004b．河川堆積物を用いた中国地方の地球化学図
による元素濃度のバックグラウンド評価．地球化学，38，203–222.
- Ohta, A., Imai, N., Terashima, S. and Tachibana, Y. (2005a) Application of multi-element statistical
analysis for regional geochemical mapping in Central Japan. *Appl. Geochem.* 20, 1017–1037.
- Ohta, A., Imai, N., Terashima, S. and Tachibana, Y., 2005b. Influence of surface geology and
mineral deposits on the spatial distributions of elemental concentrations in the stream
sediments of Hokkaido, Japan. *J. Geochem. Explor.* 86, 86–108.
- Ohta, A. and Minami, M., 2013. Less impact of limestone bedrock on elemental concentrations in
stream sediments –Akiyoshi limestone bedrock area-. *Bulletin of the Geological Survey of
Japan*, 64 (5), 121–138.
- 岡井貴司，1998．分別溶解/誘導結合プラズマ発光分析法による炭酸塩岩石標準試料中の炭
酸塩態成分の定量，分析化学，47（7），455–458.
- Ortiz, E. and Roser, B. 2006. Geochemistry of stream sediments from the Hino River, SW Japan:
source rock signatures, downstream compositional variations and influence of sorting and
weathering. *Earth Science (Chikyu Kagaku)*, 60, 131–146.
- Price, T.D., Knipper, C., Grupe, G. and Smrcka, V., 2004. Strontium Isotope and Prehistoric Human
Migration: The Bell Beaker Period in Central Europe. *European Journal of Archaeology.* 7 (1),

9–40.

- Reimann, C., Äyräs, M., Chekushin, V. A., Bogatyrev, I., Boyd, R., Caritat, P. de, Dutter, R., Finne, T. E., Halleraker, J. H., Jæger, Ø., Kashulina, G., Lehto, O., Niskavaara, H., Pavlov, V. A., Räsänen, M. L., Strand, T. and Volden, T., 1998. Environmental Geochemical Atlas of the Central Barents Region. Geological Survey of Norway, Trondheim, Norway.
- Reimann, C., Siewers, U., Tarvainen, T., Bityukova, L., Eriksson, J., Gilucis, A., Gregorauskiene, V., Lukashev, V. K., Matinian, N. N. and Pasieczna, A., 2003. Agricultural Soils in Northern Europe: A Geochemical Atlas. Geologisches Jahrbuch, Sonderhefte, Reihe D, Heft SD 5, Schweizerbart'sche Verlagsbuchhandlung, Stuttgart.
- Rummel, S., Hoelzl, S., Horn, P., Rossmann, A., Schlicht, C., 2010. The combination of stable isotope abundance ratios of H, C, N and S with $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ for geographical origin assignment of orange juices. Food Chemistry, 118, 890–990.
- Salminen, R., Batista, M. J., Bidovec, M., Demetriades, A., De Vivo, B., De Vos, W., Duris, M., Gilucis, A., Gregorauskiene, V., Halamic, J., Heitzmann, P., Lima, A., Jordan, G., Klaver, G., Klein, P., Lis, J., Locutura, J., Marsina, K., Mazreku, A., O'Connor, P. J., Olsson, S. Å., Ottesen, R. T., Petersell, V., Plant, J. A., Reeder, S., Salpeteur, I., Sandström, H., Siewers, U., Steinfeld, A. and Tarvainen, T., 2005. FOREGS Geochemical Atlas of Europe, Part 1: Background Information, Methodology and Maps. Geological Survey of Finland, Espoo, 526p.
- 産業技術総合研究所地質調査総合センター (編), 2010. 20 万分の 1 日本シームレス地質図データベース, 産業技術総合研究所地質調査総合センター.
- Sano, H. and Kanmera, K., 1988. Paleogeographic reconstruction of accreted oceanic rocks, Akiyoshi, southwest Japan. Geology, 16, 600–603.
- Shuto, K., Hirahara, Y., Ishimoto, H., Aoki, A., Jinbo, A. and Goto, Y., 2004. Sr and Nd isotopic compositions off the magma source beneath north Hokkaido, Japan: comparison with the back-arc side in the NE Japan Arc. Journal of volcanology and geothermal research., 134, 57–75.
- Suzuki, K., Adachi, M. and Tanaka, T., 1991. Middle Precambrian provenance of Jurassic sandstone in the Mino Terrane, central Japan: Th-U-total Pb evidence from an electron microprobe monazite study. Sediment. Geol., 75, 141–147.
- 鈴木和博, 林田悦子, 梶塚和泉, 長澤敬之助, 1993. 愛知県足助町地域の風化黒雲母の化学組成変化. 名古屋大学古川研究資料館報告, 9, 59–76.

- 高橋治郎, 1986. 愛媛県松山市周辺地域の“中央構造線”. 愛媛大学教育学部紀要, 第Ⅲ部, 自然科学. 6. 1-44.
- Takashima, R., Kawabe, F., Nishi, H., Moriya, K., Wani, R. and Ando, H., 2004. Geology and stratigraphy of forearc basin sediments in Hokkaido, Japan: Cretaceous environmental events on the Northwest Pacific margin. *Cretaceous Research*, 25, 365-390.
- 高嶋礼詞, 吉田武義, 西弘嗣, 2001. 北海道夕張一芦別地域に分布する空知層群・蝦夷層群の層序と堆積環境. *地質学雑誌*, 103, 489-492.
- 田崎耕市, 加々美寛雄, 板谷徹丸, 永尾隆志, 1993. 四国北西部の中央構造線に沿う酸性火山岩の起源と K-Ar 年代. *地質学論集*, 42, 267-278.
- 寺岡易司, 奥村公男, 鈴木盛久, 川上久美, 1999. 四万十累層群の碎屑性堆積物. *地質調査所月報*, 50 (9), 559-590.
- 寺島滋, 今井登, 立花好子, 池原研, 片山肇, 岡井貴司, 御子柴 (氏家) 真澄, 太田充恒, 久保田蘭, 2008. 河川・海底堆積物の粒度変化に伴う元素濃度変化. *地質調査研究報告*, 59, 9/10, 439-459.
- Thalman, F., Schemann, O., Schroll, E. and Hausberger, G., 1988. *Geochemical Atlas of the Republic of Austria*. Geological Survey of Austria.
- Thornton, E., K., 2011. Reconstructing ancient Maya animal trade through strontium isotope ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) analysis. *Journal of Archaeological Science*, 38, 3254-3263.
- Tsuboi, M. 2005. The use of apatite as a record of initial $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios and indicator of magma processes in the Inagawa Pluton, Ryoke belt, Japan. *Chem. Geol.* 221, 157-169.
- 植田勇人, 2006. 日高衝突帯前縁部における白亜紀付加体の地質構造. *地質学雑誌*, 112, 699-717.
- Ujiie-Mikoshiba, M., Imai, N. and Tachibana, Y., 2006. Geochemical mapping in northern Honshu, Japan. *Appl. Geochem.*, 21, 492-514.
- Ujiie-Mikoshiba, M., Imai, N. and Tachibana, Y., 2011. Geochemical mapping in Shikoku southwest Japan. *Appl. Geochem.*, 26, 1549-1568.
- Voerkelius, S., Lorenz, G. D., Rummel, S., Quélet C. R., Heiss, G., Baxter, M., Brach-Papa, C., Deters-Itzelberger, P., Hoewel, S., Hoogewerff, J., Ponzevera, E., Van Bocxstele, M., and Ueckermann, H., 2010. Strontium isotopic signatures of mineral natural waters, the reference to a simple geological map and its potential for authentication of food. *Food Chemistry*, 118, 933-940.
- Watanabe, M., Hoshino, K., Kagami, H., Nishido, H. and Sugiyama, M., 1998. Rb-Sr, Sm-Nd,

- K-Ar, systematics of metamorphosed pillowed basalts and associated Besshi-type deposits in the Sanbagawa Belt. *Japan Mineralium Deposita.*, 34, 113–120.
- Weaver, T.A., Broxton, D.E., Bolivar, S.L. and Freeman, S.H., 1983. *The Geochemical Atlas of Alaska*. Geochemical Group, Earth and Space Science Division, Los Alamos Nat. Lab., GJBX-32(83) US DOE.
- Webb, J.S., Thornton, I., Thompson, M., Howarth, R.J. and Lowenstein, P.L., 1978. *The Wolfson Geochemical Atlas of England and Wales*. Oxford Univ. Press, 74p.
- Wentworth, C. K., 1922. A Scale of Grade and Class Terms for Clastic sediments. *Journal of Geology*, 30 (5), 377–392.
- Yagishita, K., Nirasawa, M., Saito, K. and Terui, K., 2000. Compositional characteristics of Holocene sands in a mature magmatic arc belt: a case study of river sands derived from plutonic and accretionary complexes, northeast Japan. *Mem. Geol. Soc. Japan*, 57, 19–28.
- 山田直利・片田正一・坂本享・松田武雄・須田芳朗, 1972. 1: 200,000 地質図 豊橋 (第二版), 地質調査所.
- Yamaguchi, M. and Yanagi, T., 1970. Geochronology of some metamorphic rocks in Japan. *Ecologiae Geol. Helv.*, 63, 371–388.
- 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, Chris Richardson, 伊藤貴盛, Christian Dragusanu, 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, 井上裕介, 川崎啓介, 高木真理, 根布悟志, 稲吉正実, 1998. 愛知県豊田市北東部の領家花崗岩地域の地球化学図. *地質学雑誌*, 104 (10), 688–704.
- Yoshida, T., 1984. Tertiary Ishizuchi Cauldron, southwestern Japan Arc: Formation by ring fracture subsidence. *Jour. Geophys. Res.*, 89, b10, 8501–8510.
- 吉村和久, 井倉洋二, 1992. 石灰岩地域秋吉台における水循環と地下水水質の形成, *地下水学会誌* 34 (3), 183–194.
- 弓削智子, 今岡照喜, 飯泉滋, 1998. 山口県阿武地域における白亜紀流紋岩類と花崗岩類の全岩化学組成及び Sr, Nd 同位体比. *地質学雑誌*, 104 (3), 159–170.
- Yuhara, M., Kagami, H. and Nagao, K., 2000. Geochronological characterization and petrogenesis of granitoids in the Ryoke Belt, southwest Japan Arc: constraints from K-Ar, Rb-Sr and Sm-Nd systematics. *The Islands Arc*, 9, 64–80.
- 柚原雅樹, 宮崎隆, 高橋俊郎, 加々美寛雄, 2004. 白亜紀花崗岩類の風化にともなう化学組成および Sr・Nd 同位体比組成の変化. *岩石鉱物科学*, 33, 185–196.

謝辞

本研究を進めるにあたり、多くの方々に様々な場面で大変お世話になりました。ここに記して深く感謝申し上げます。

まず、名古屋大学年代測定総合研究センター南雅代准教授には、指導教官として博士前期課程から五年にわたり指導していただき、学会参加・フィールドワークなど様々な機会を与えていただきました。未熟な自分にとって、そのすべてが大変貴重な経験となりました。最大の感謝を申し上げます。

また、名古屋大学大学院環境学研究科地球化学講座浅原良浩助教には、実験の前準備から表面電離型質量分析計の操作までの実務、さらには研究に関してご指導いただきました。産業技術総合研究所の太田充恒博士には、産総研での試料入手の際から、論文に関するご指導まで、あらゆる場面で大変お世話になりました。金沢大学の後藤（櫻井）晶子博士には、実験の手法について丁寧に教えて頂くだけでなく、フィールドワークでもご協力頂きました。海洋研究開発高知コアセンターの谷水雅治准教授には、試料測定の際にお世話になり、研究についてのアドバイスを頂きました。名古屋大学大学院環境学研究科地質・地球生物学講座竹内誠教授には、徳島・高知のサンプリングでご協力いただき、論文の内容につきご指導頂くなど、大変お世話になりました。同研究科地球化学講座の山本鋼志教授をはじめ、諸先生方にも、様々な折にご指導を賜りました。

また、年代測定総合研究センターの皆さまにもお世話になりました。現名誉教授であられる鈴木和博教授には、ジルコンの CHIME 年代測定や、XRF により元素濃度を測定していただき、また論文についてのご指導も賜りました。同じく名誉教授であられる田中剛教授には、研究につき様々な折にご助言を頂きました。センター長の中村俊夫教授には、セミナーにおいて研究に関する有益なご意見を頂きました。加藤丈典准教授には、粉末 X 線回折分析など測定機器に対してご指導いただきました。小田寛貴助教には、セミナーの際に有益なご助言を頂きました。榎並正樹教授には、様々な折に研究についてご助言を頂きました。また、センター所属の研究員である一木絵理博士、箱崎真隆博士には、研究に関するアドバイスをいただきました。

学生の皆さまにも大変お世話になりました。地球化学講座の菅原春菜さん、安田友紀さん、清水美早さんには、実験の便宜をはかっていただくなど、さまざまな場面でお世話になりました。また、同じ院生室所属の後輩である加藤ともみさん、早田葵さん、長谷和磨さん、富山慎二さん、國田圭佑さんにも、セミナーでご助言を頂くなど、お世話になりました。皆さまのお力添えが無ければ、これまで研究を続けることも、本論文を書きあげることもできませんでした。重ねて深く感謝を申し上げます。