

3. 革新的要素技術の開発

3.1 後背地解析技術

3.1.1 背景と目的

日本列島では、過去十万年程度の編年に必要となる地形学的情報（沿岸域では海成段丘、内陸では河成段丘）が多く地域で得られることから、それらの情報に基づき変動傾向や速度を把握し、数万年程度の将来を外挿することは可能と考えられる。しかし、10 万年を超えるような 100 万年、1,000 万年といったより長期の将来においては、プレート運動を含む地殻変動の永続性が保証できなくなり、予測に対する不確実性も著しく増大していくと考えられる（例えば、梅田ほか、2013¹⁾）。特に百万年を超える期間では、山地の形成やそれに伴う侵食速度の増加などの大規模な地形変化が生じると考えられる。山地の形成によっては、地下数百 m 以深の地質環境においても動水勾配や地下水移行経路が大きく変化する可能性がある（尾上ほか、2009²⁾；草野ほか、2011³⁾）。日本の山地では一般的に、隆起に伴う山地高度の増大とともに、侵食速度が増大していくというプロセスが成立する（Ohmori, 1978⁴⁾）。侵食速度が隆起速度と動的平衡状態にある山地では、時間が経っても高度が一定に保たれているため、山地から平野に至るスケールでの地下水の流れには時間変化に伴う大きな変動が生じなくなると考えられる。一方、隆起を開始した時期が新しく、山地高度が低いために侵食速度が隆起速度に比べて小さい地域では、将来も山地高度が増大し、地下水の流れにも変動が生じると考えられる。そのため、現在の山地の発達段階や動的平衡状態を把握しておくことは、将来の地質環境の予測・評価を行う際には重要な情報となる。山地の発達段階を把握するためには、その山地がいつから隆起を開始し、どのように成長してきたかという山地形成プロセスを明らかにすることが重要となる。その解明手法には、山地を形成する岩石・鉱物の熱年代学によって隆起・剝削過程を推定する方法のほか、対象とする山地を供給源として、その下流域に分布する砕屑岩類の堆積学的・岩石学的アプローチによる後背地解析があるが、十万～百万年オーダーの時間スケールでの検討には、後背地解析が特に有効である。

本事業では、山地形成プロセスを把握するための後背地解析技術の開発・体系化とその技術の精度と分解能の向上を目指す。その成果は、信頼性の高い地質環境長期変動モデルの開発、特に地形・地質モデルの構築に反映される。平成 25 年度は、既存の後背地解析技術の情報を整理し、各手法の利点や問題点、技術開発における重要な着眼点の抽出を行った。その結果、堆積物を構成する砕屑粒子と供給源に分布する岩石の地質学的特徴を比較する手法として、主成分化学組成と微量元素を用いた地球化学的手法、石英の電子スピン共鳴（Electron Spin Resonance: 以下、「ESR」という）・光ルミネッセンス（Optically Stimulated Luminescence: 以下、「OSL」という）・熱ルミネッセンス（Thermal Luminescence: 以下、「TL」という）信号を用いた物理化学的手法、ウラン-鉛（以下、「U-Pb」という）法、フィッション・トラック（以下、「FT」という）法、アルゴン-アルゴン（Ar-Ar）法などの放射年代測定法が有効であることが示された。さらに、古流向を把握する帯磁率異方性測定、テフラを用いた堆積時期の決定などが有効であると考えられた。また本事業を行う上で、個々の技術の向上や有効性の確認及びそれらの技術が複合した解析システムの整備が望まれた。これらのことから、本事業において、地球化学特性・物理化学特性・放射年代値などを指標とした砕屑粒子の供給源を推定する手法を導入することにより、山地・丘陵の隆起開始時期と形成プロセスの推定及び古地形の復元に係る精度と分解能の向上に必要な後背地解析手法の開発フローを提示した（図 3.1-1）。平成 26 年度は、このフローに基づいて、後背地解析技術の開発を進めた。

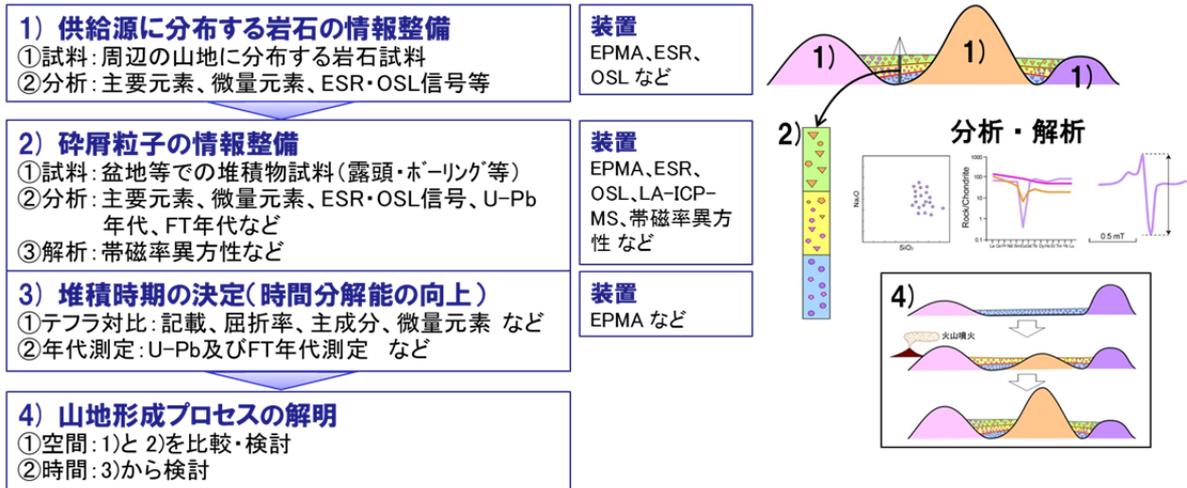


図 3.1-1 山地形成プロセスの解明に適用する後背地解析技術の開発フロー (日本原子力研究開発機構 (2014)⁵⁾ に加筆)

3.1.2 アプローチ

平成 26 年度は、微量成分、ESR・OSL・TL 信号及び放射年代値を用いた碎屑粒子の供給源を特定する手法を構築するため、風化に強い石英やジルコンを用いた各種分析を行い、後背地解析技術の高度化を図る。さらに、堆積時期の把握に有効なテフラ分析技術の検討と日本列島の鮮新世～更新世テフラカタログの整備に着手する。また、それらの分析に必要な各種装置の整備を実施する。これらの実施内容の全体の関係を図 3.1-2 に示す。

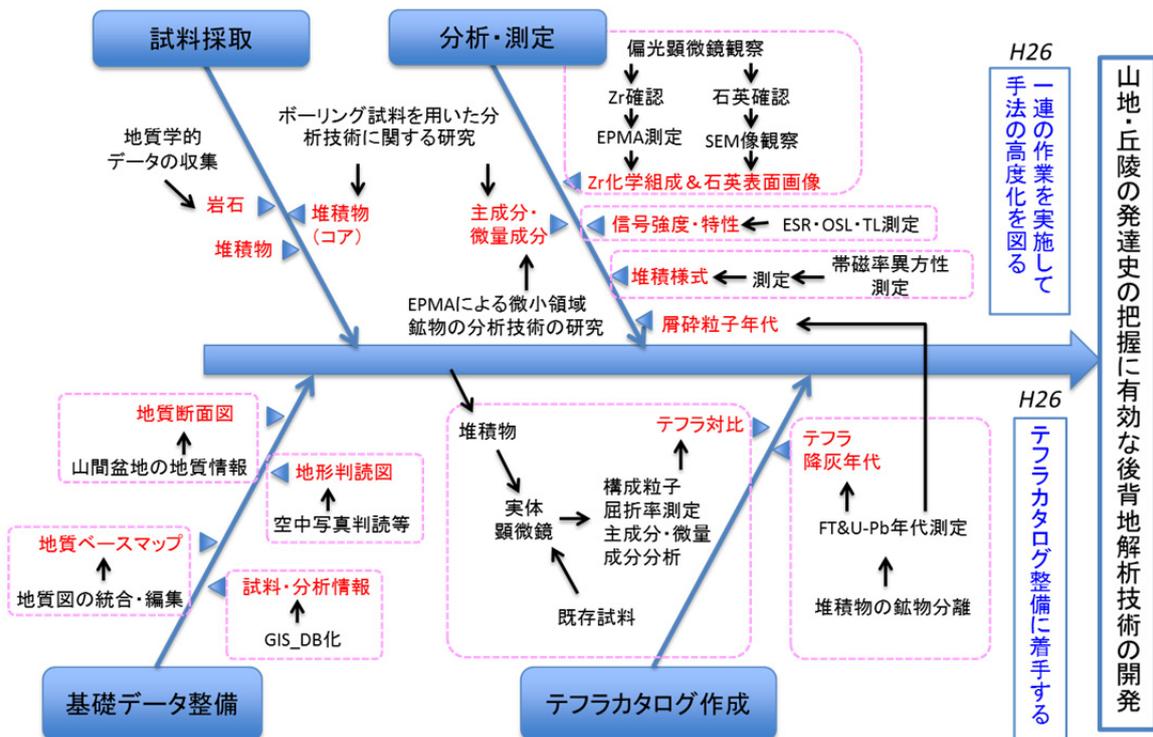


図 3.1-2 後背地解析技術の開発における実施内容

(1) 後背地解析手法の検討

本技術開発は、これまでに礫などを用いた一般的な後背地解析の研究例が多い地域の一つである東濃地域及びその周辺を事例に実施する。分析に使用する試料は、供給源の岩石として主に花崗岩類と濃飛流紋岩類であり、堆積物試料として東海層群及び第四紀の堆積物である。各種分析については、電子線マイクロアナライザ (Electron Probe Micro Analyzer: 以下、「EPMA」という) を用いたジルコンの微量成分分析、石英の ESR・OSL・TL 信号測定、ジルコンの FT・U-Pb 年代測定について適用を試み、手法の有効性を検討する。また、堆積時期の決定においては東海層群中のテフラの対比及び FT・U-Pb 年代測定を実施する。以上の研究開発においては、詳細な地質分布と山地の形成プロセスを踏まえて進めることが効果的と考えられることから、既存資料を統合した地質ベースマップ及び地質断面図を用いて検討を進める。

(2) テフラカタログの整備

これまでの手法で対比や識別が困難なテフラについて、微量成分などを用いて識別する手法の検討を進める。また、これまでデータが少なかった日本列島の鮮新世～中期更新世テフラについて、対比に必要なデータのカタログを作成するため、平成 26 年度は基礎データとして主な鉱物、火山ガラスのタイプと屈折率などの記載・測定に着手する。

(3) 装置整備

平成 25 年度に導入した EPMA 装置を後背地解析に利用するための測定条件を検討して設定する。また、平成 25 年度に導入した OSL/TL 装置については、密封β線源 (ストロンチウム 90) を導入し、蓄積線量の測定を可能にする。さらに、堆積物の古流向を把握する帯磁率異方性測定装置と、石英の物理化学的特徴を把握する ESR・OSL・TL 分析の試料調製に必要な装置及び手法を整備する。

3.1.3 実施結果

(1) 後背地解析手法の検討

東濃地域は、木曾川及び庄内川を挟んで北側に主に美濃帯の中生代付加体堆積岩と濃飛流紋岩が分布し、南側に主に領家帯の花崗岩類が分布することから、礫の供給源を知るには都合がよいところである (貝塚, 1998⁶⁾)。さらに、盆地の堆積物が比較的薄いことから、盆地底の形態を復元しやすく、盆地の発生と発達を明らかにする上で有利な条件が整っている (陶土団体研究グループ, 1994a⁷⁾, 1999⁸⁾)。そのため、この地域は山地発達の研究とその調査手法を例示する上で有効な地域の一つであり、古くから後背地解析の調査や山地形成の研究が行われてきた (例えば、木曾, 1959⁹⁾, 1963¹⁰⁾; 桑原, 1973¹¹⁾; 陶土団体研究グループ, 1985¹²⁾; 森山, 1990¹³⁾; 陶土団体研究グループ, 1994a⁷⁾, b¹⁴⁾)。これらの研究は、この地域に分布する東海層群を対象としている。東海層群は、泥と砂を主体とする下部の土岐口陶土層及び礫を主体とする上部の土岐砂礫層に分けられる。土岐砂礫層の上位には、段丘堆積物や扇状地堆積物が分布する。本事業では、これらの堆積物及びその堆積物を供給した岩体を構成する基盤岩類などを用いて、EPMA によるジルコンの微量成分分析、石英の ESR・OSL・TL 信号測定、砕屑粒子中のジルコンの FT・U-Pb 年代測定について適用を試み、後背地解析技術の高度化について検討した。また、詳細な地形・地質分布と山地形成プロセスを検討するための基礎データとして地質ベースマップと地質断面図を作成した。以下では、図 3.1-1 及び図 3.1-2 に基づいて供給源に分布する岩石の情報整備、堆積物を構成する砕屑粒子の情報整備、堆積時期の決定、山地形成プロセスの解明手法について述べる。

1) 供給源に分布する岩石の情報整備

① 分析試料

供給源の岩石試料の分析結果と下流の堆積物中の碎屑粒子の分析結果を対比する必要がある。そのため、研究範囲において堆積物の供給源として知られている主な岩体を網羅できるように、既存試料の収集及び踏査による試料採取を行った。後述する堆積物試料を採取する際に、堆積物の基底に基盤岩が分布する露頭については、基盤岩からの岩石も分析試料とした。収集・採取した岩石は、濃飛流紋岩、木曾駒花崗閃緑岩、伊奈川花崗岩、苗木-上松花崗岩、花崗斑岩、美濃帯堆積岩である（図 3.1-3）。分析試料の一覧は、表 3.1-1 に示す。

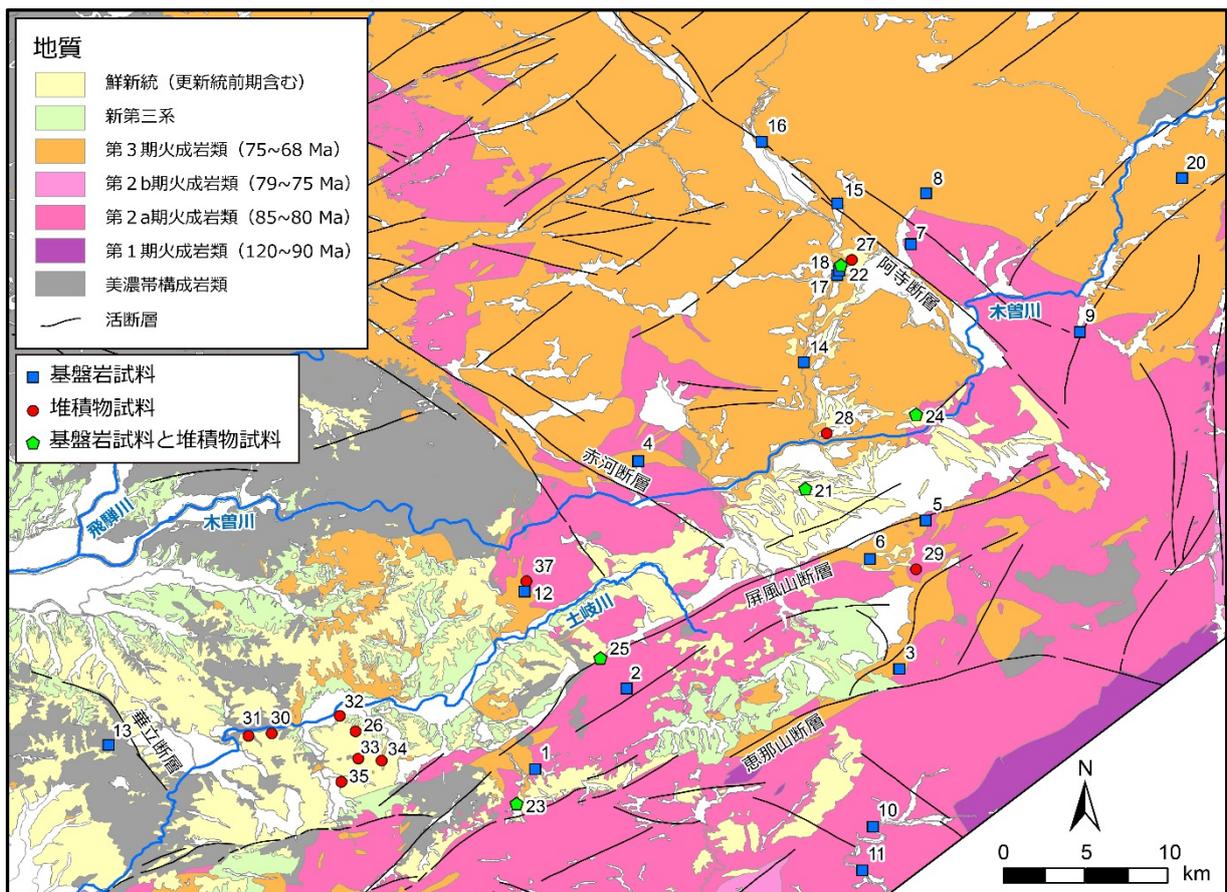


図 3.1-3 後背地解析技術の開発に用いる岩石試料と堆積物試料の分布地点
 地質分布は、岐阜県地学調査会 (2014)¹⁵⁾ 及び 山田ほか (2005)¹⁶⁾ に基づいて作成。断層トレースは活断層研究会編 (1991)¹⁷⁾に基づく。

表 3.1-1 後背地解析技術の開発に用いる岩石試料と堆積物試料
(赤色背景：基盤岩、黄色背景：堆積物)

番号	収集試料	ジルコン抽出	FT	U-Pb	EPMA	石英抽出	ESR	OSL	TL	キューブ
1	苗木・上松花崗岩体	○				○				
2	伊奈川花崗岩	○				○	○	○	○	
3	伊奈川花崗岩	○				○				
4	姫栗花崗岩	○				○	○	○	○	
5	苗木・上松花崗岩体	○				○				
6	苗木・上松花崗岩体	○				○				
7	伊奈川花崗岩or苗木・上松花崗岩	○				○				
8	苗木・上松花崗岩	○			○	○	○	○	○	
9	伊奈川花崗岩	○				○				
10	伊奈川花崗岩									
11	伊奈川花崗岩									
12	苗木・上松花崗岩	○				○	○	○	○	
13	美濃帯堆積岩									
14	花崗斑岩									
15	苗木・上松花崗岩									
16	苗木・上松花崗岩									
17	濃飛流紋岩									
18	濃飛流紋岩									
19	木曾駒花崗岩					○	○	○	○	
20	木曾駒花崗岩					○				
21-a	苗木・上松花崗岩									
21-b	土岐砂礫層									
22-a	濃飛流紋岩	○			○	○	○	○	○	
22-b	土岐砂礫層	○				○	○			○
22-c	土岐砂礫層中の花崗岩礫					○	○	○	○	
23-a	伊奈川花崗岩									
23-b	土岐砂礫層	○				○				○
24-a	細粒花崗岩/アルコース砂岩	○				○				
24-b	土岐砂礫層	○				○				○
25-a	伊奈川花崗岩					○				
25-b	土岐砂礫層	○								○
26	土岐砂礫層、段丘堆積物	○				○				○
27	土岐砂礫層	○				○				
28	段丘面構成層									
29	土岐砂礫層	○	○	○	○					
30-a	陶土層	○	○	○						
30-b	陶土層	○	○	○						
31	陶土層	○	○	○	○					
32	凝灰質砂試料	○	○	○						
33	堆積物試料	○	○	○						
34	土岐砂礫層	○	○	○						
35	陶土層	○	○	○						
36	コア試料(KNGコア)					○	○	○	○	
37	コア試料(OK3コア)					○	○	○	○	

② 観察・分析・測定

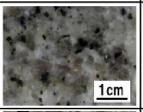
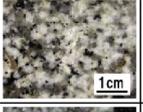
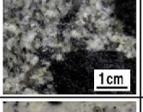
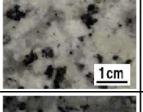
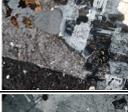
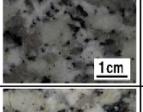
以下に、顕微鏡を用いた岩石試料の観察、EPMA法を用いた後背地解析法の検討、ESR・OSL・TL法を用いた石英のESR・OSL・TL信号測定、CL像観察について記述する。

(a) 顕微鏡観察

肉眼観察では識別が困難な特徴が、顕微鏡観察によって把握できる場合がある。また、後述する各種分析を行う際にも、顕微鏡観察によって把握できる測定試料の特徴を考慮することで、効率的な分析に役立つと考えられる。よって、東濃地域周辺の山地を形成する主要な基盤岩である苗木・上松花崗岩及び伊奈川花崗岩について偏光顕微鏡による観察を実施した(表 3.1-2)。以下では、肉眼観察の結果も合わせて、顕微鏡による観察結果について記述する。

肉眼観察では、伊奈川花崗岩に比べて苗木・上松花崗岩の方が細粒である傾向が認められるが、構成粒子のサイズは場所によって異なることから、粒度によって明瞭に区分することは難しい。その他、カリ長石や斜長石の色なども明瞭な違いは認められない。一方、顕微鏡観察では、有色鉱物として伊奈川花崗岩には角閃石を含むという特徴が認められる。さらに、有色鉱物の含有量も伊奈川花崗岩の方が多い傾向が認められる。

表 3.1-2 苗木・上松花崗岩及び伊奈川花崗岩の肉眼観察と顕微鏡観察の結果

試料番号	岩石名	肉眼観察				顕微鏡観察		岩石写真	薄片写真
		組織	概略の分類	カリ長石	斜長石	有色鉱物含有量	有色鉱物		
1	苗木・上松花崗岩	中粒(径1~5mm主体)半自形等粒状	花崗岩	白濁~淡緑色	やや透明感のある白色(ほとんど含まれない)	極少	黒雲母を主		
3	苗木・上松花崗岩	細粒(径5mm)半自形等粒状	花崗岩	白濁	半透明~淡緑色	5%程度	黒雲母を主 まれにジルコンを含む		
6	苗木・上松花崗岩	細~中粒(径<5mm)半自形等粒状 暗色包有物を含む	花崗岩	白色	緑色変質	5%未満	微細粒の黒雲母を主		
8	苗木・上松花崗岩	粗粒(径最大20mm)半自形等粒状	花崗岩	白濁~やや桃色	淡緑色 比較的斜長石に富む	5%程度	黒雲母を主 不透明鉱物、まれにジルコンを含む		
2	伊奈川花崗岩	粗粒(径最大20mm)斑状	花崗閃緑岩	白濁	淡緑色	5%強	黒雲母を主 角閃石を少し含み、まれにジルコンを含む		
9	伊奈川花崗岩	中~粗粒(径最大30mm)半自形等粒状	花崗閃緑岩	白色	ややオレンジ色を帯びる	10%程度	黒雲母を主 角閃石を含む		

(b) EPMA 分析

平成 25 年度に導入した日本電子株式会社製のフィールドエミッション電子プローブマイクロアナライザー (FE-EPMA : JXA-8530F) を利用した後背地解析法を検討した。

・ジルコンの化学組成

図 3.1-4 に示す丸印のデータは、苗木花崗岩のジルコンの定量分析結果を用いて、Zirconium dioxide (ZrO_2) の重量%を横軸に、その他の 6 成分の重量%を縦軸にプロットしたものである (Suzuki et al., 1990¹⁸)。ジルコンはハフノン($HfSiO_4$)、トーライト($ThSiO_4$)、コフィナイト($USiO_4$)、ゼノタイム(YPO_4)などと同形であり、Zr が Hf、Th、U、Y などにより置換されることから、広い組成変化を示す。日本列島産の花崗岩中のジルコンは、700 °C 以上の高温で形成された流紋岩質岩石中のもので類似して、重希土類元素 (Heavy Rare-Earth Element : 以下、「HREE」という)、Th、U などの微量元素をほとんど固溶しないという傾向を示す。一方、500 °C 以下の低温で形成された熱水起源のジルコンは U、Th、Hf や希土類元素 (Rare Earth Element : 以下、「REE」という) の固容量が多いことが知られている。そのため HREE、U、Th に乏しいジルコンは、700 °C 以上の高温メルトから結晶化し、花崗岩質ペグマタイト中の HREE、U、Th を濃集したジルコンは、500 °C 以下の低温で結晶化したことが示唆される。この特徴を利用して、堆積物中のジルコンの化学組成から、堆積物の供給源の岩体を特定できる可能性がある。

平成 26 年度は、試料番号 8 の花崗岩と試料番号 22-a の濃飛流紋岩から抽出したジルコンを用いて微量成分の分析を行った。図 3.1-4 の結果から Suzuki et al. (1990)¹⁸ の苗木花崗岩のジルコンと比較した場合、試料番号 8 と 22-a から抽出したジルコンは Hf による Zr の置換の割合が高い、すなわち、ハフノンが固溶する割合が高く、他の鉱物の固溶の割合は低いという特徴が見られた。今後、ジルコンの定量値を増やしてデータを充実させていくことにより、それぞれの供給源の岩体の特徴を示すことが可能になると考えられる。

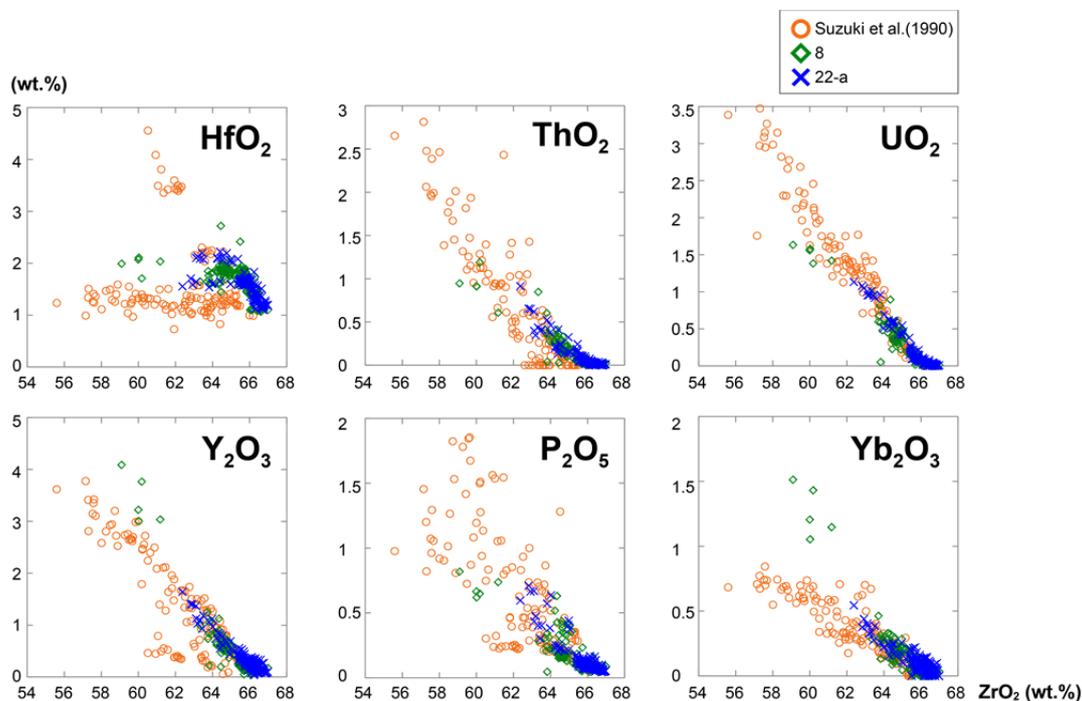


図 3.1-4 苗木花崗岩のジルコンの微量成分と東濃地域周辺の基盤岩から抽出したジルコンの微量成分

苗木花崗岩の微量成分 (橙○) は Suzuki et al. (1990)¹⁸ に基づいて作成。

・ジルコンの CHIME 年代

EPMA を用いた年代測定法に、CHIME 年代測定法がある (Suzuki and Adachi, 1991¹⁹)。CHIME 年代測定法は、天然のウランとトリウムが鉛への放射壊変を利用した高分解能の地質年代測定法であり、EPMA を用いて鉱物粒子の微小部分に少量含まれるウラン・トリウム・鉛を正確に定量分析し、鉱物の形成年代史を決定する。ジルコンの場合、6 千万年より若い試料では、EPMA の定量下限では鉛の定量が困難であるためそれより古い試料を対象とし、鉱物化学組成と併用して、堆積物の供給源の岩体を推定する必要がある。

(c) ESR 測定

3.1.3 (3) 3) に示す工程を用いて石英粒子を抽出し、ESR 信号 (Al 中心信号及び Ti-Li 中心信号) を測定した。ESR 測定は、日本電子製の ESR 装置 (JES-X320) を用いて行った。変調幅は 100 kHz で 0.1 mT とした。Al 及び Ti-Li 中心信号はマイクロ波出力を 5 mW に設定し、77 K (液体窒素温度) で測定した。E_i' 中心信号はマイクロ波出力を 0.01 mW に設定し、室温で測定した。その他の測定条件は、Shimada et al. (2013)²⁰ に従った。ESR 測定では、測定波形を用いて信号の高さを計測した (図 3.1-5)。測定は 3 回実施し、その平均値を信号強度の値とした。信号強度は任意単位である。

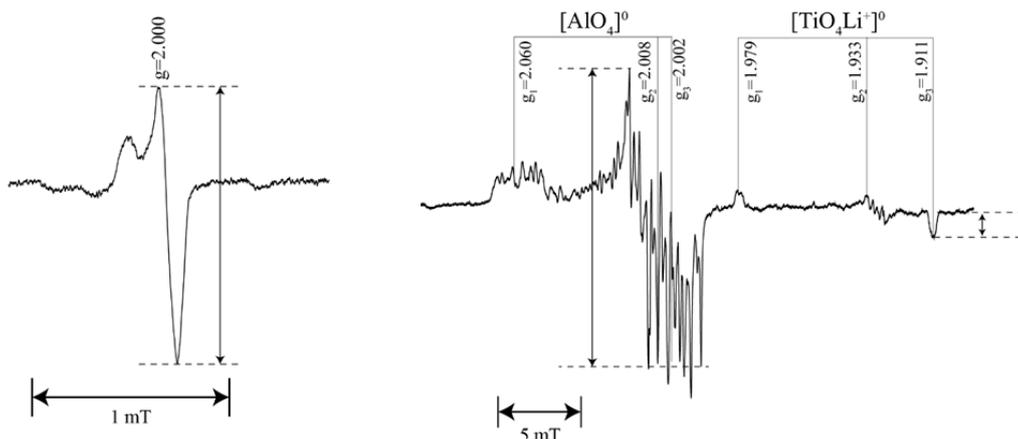


図 3.1-5 ESR 波形における各信号の強度の測定の例
左 : E_i' 中心信号、右 : Al 及び Ti-Li 中心信号

東濃地域周辺に分布する基盤岩中の石英の ESR 信号強度を表 3.1-3 に示す。試料番号 22 については、基盤岩の濃飛流紋岩 (試料番号 22-a) とそれを覆う堆積物中の花崗岩礫 (試料番号 22-c) の石英を測定した。測定の結果、岩体ごとに値が異なることから、ESR 信号が供給源の岩体を識別する指標となる可能性がある。しかし、現時点ではそれぞれの岩体で 1 試料しか測定していないことから、今後は同じ岩体で複数の試料を測定し、データを蓄積して指標としての有効性を検討する必要がある。

表 3.1-3 基盤岩の ESR 測定結果

Sample	E1'					Al					Ti-Li				
	No	signal	Mn signal	S/M	Average error	No	signal	Mn signal	S/M	Average error	No	signal	Mn signal	S/M	Average error
2 伊奈川花崗岩	1	455	834	0.55	0.54 0.01	1	7512	837	8.97	9.25 0.3	1	368	837	0.44	0.45 0.00
	2	448	811	0.55		2	7299	744	9.81		2	334	744	0.45	
	3	418	820	0.51		3	7030	783	8.98		3	357	783	0.46	
4 姫栗花崗岩	1	1883	716	2.63	2.49 0.07	1	25611	787	32.54	32.55 0.1	1	287	787	0.36	0.37 0.01
	2	1918	802	2.39		2	25321	773	32.76		2	278	773	0.36	
	3	1960	802	2.44		3	26063	806	32.34		3	310	806	0.38	
8 苗木・上松花崗岩	1	905	826	1.10	1.14 0.04	1	4908	826	5.94	6.27 0.2	1	422	826	0.51	0.55 0.02
	2	980	797	1.23		2	4565	727	6.28		2	401	727	0.55	
	3	886	806	1.10		3	4554	692	6.58		3	398	692	0.58	
12 苗木・上松花崗岩	1	1994	784	2.54	2.64 0.05	1	10644	799	13.32	14.43 0.6	1	196	799	0.25	0.25 0.01
	2	2059	767	2.68		2	11106	760	14.61		2	186	760	0.24	
	3	2033	759	2.68		3	11017	717	15.37		3	188	717	0.26	
19 木曾駒花崗岩	1	387	753	0.51	0.48 0.02	1	4162	825	5.04	5.28 0.1	1	1391	825	1.69	1.66 0.04
	2	377	781	0.48		2	4310	820	5.26		2	1302	820	1.59	
	3	349	764	0.46		3	4336	784	5.53		3	1338	784	1.71	
22-a 濃飛流紋岩	1	1135	735	1.54	1.52* 0.03	1	7591	724	10.48	10.01* 0.2	1	1001	724	1.38	1.40* 0.03
	2	1122	772	1.45		2	7350	755	9.74		2	1094	755	1.45	
	3	1166	748	1.56		3	8006	816	9.81		3	1111	816	1.36	
22-c 花崗岩礫	1	4345	815	5.33	5.41 0.08	1	19226	782	24.59	25.90 0.7	1	255	782	0.33	0.34 0.01
	2	4242	763	5.56		2	19226	716	26.85		2	266	716	0.37	
	3	4267	801	5.33		3	19916	758	26.27		3	255	758	0.34	

測定重量は全て100mgである。

*ベースラインが取れなかったため、参考値とする

(d) OSL・TL 測定

OSL 及び TL の測定は、Risø 製の TL/OSL DA-20 装置 (Bøtter-Jensen et al., 2010²¹) を用いて行った。測定試料は、ESR 測定と同じ試料であり、OSL 信号及び TL 信号のそれぞれの信号特性について検討した。なお、OSL 信号は光に敏感であり、TL 信号の一部にも光に敏感な信号があるため、堆積物中における状態 (堆積してから光に曝されていない時間など) を知りたい場合は、試料採取、調製、測定まで全て暗室または赤色光下で行う必要がある。本研究では、石英粒子が本来持っている特徴を把握することから、通常の光の環境で実施した。

東濃地域周辺に分布する基盤岩中の石英の TL 信号の特徴を図 3.1-6 に、OSL 信号の特徴を図 3.1-7 に示す。測定の結果、TL 信号については 100 °C 付近で最も強い特徴を示す試料 (例えば、試料番号 12、19) や 350~400 °C 付近で最も強い特徴を示す試料 (例えば、試料番号 21-a、2) など、信号の特性に違いが認められる。OSL 信号については、強い信号を示す試料があるものの多くの試料で同じ特徴を示す傾向が認められた。ESR 信号も含めて、これらの値の特徴を組み合わせることで、供給源の岩体を識別できる可能性があるが、現時点ではそれぞれの岩体で 1 試料しか測定していないことから、今後は同じ岩体で複数の試料を測定し、データを蓄積して指標としての有効性を検討する必要がある。

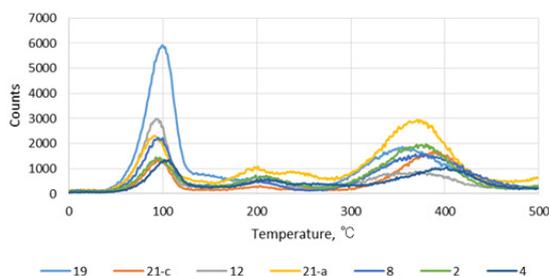


図 3.1-6 TL 信号の特徴

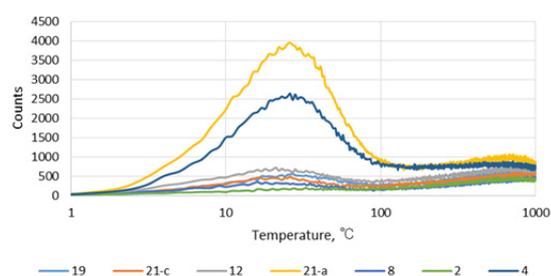


図 3.1-7 OSL 信号の特徴

(e) CL 像観察

試料に電子線を入射したときに発生する近赤外～可視光～近紫外光（Cathode Luminescence：以下、「CL」という）の観察は、試料の結晶構造、微量不純物の分布や格子欠陥等の情報を得るために従来から利用されている手法である（Yacobi and Holt, 1986²²⁾）。例えば、ジルコンの場合、累帯構造のような粒子内の化学組成や放射線量の不均質の様子を容易に観察することができるので、年代測定等における測定位置の検討に利用されている（Nasdala et al., 2002²³⁾）。また、累帯構造の発達するジルコンの量比、あるいは累帯構造の特徴の違いなどが、後背地の原岩の違いに反映されている可能性もある。本事業では、重鉍物を用いた供給源の推定の目的で、EPMA を用いた微小領域の化学組成分析や年代測定を行うための事前検討に資するため、本事業で導入された冷陰極型電子銃を備えたルミノスコープを用いてジルコンの CL 像観察を行った。ルミノスコープの仕様については「3.3.3 3) 微小領域分析のための装置整備」を参照されたい。今回観察したジルコンは、苗木・上松花崗岩から得られたもの（試料番号 8）である。

観察の結果、カソード電圧 15 kV，電流値 200 μ A の条件で累帯構造を伴うジルコンの CL 像を得ることができた（図 3.1-8）。しかし、現状のルミノスコープでは構造上、対物レンズ 10 倍までの観察に制限されるため、粒径数十 μ m 程度のジルコンの CL 像を高解像度で得ることは難しい。SEM/EPMA 付属型の CL 装置を用いれば、より高倍率での観察が容易にできるほか、石英や長石類のような CL 強度が微弱な鉍物に対しても、信号を増幅することにより比較的鮮明な CL 像を得ることができる（塚本, 1994²⁴⁾）。

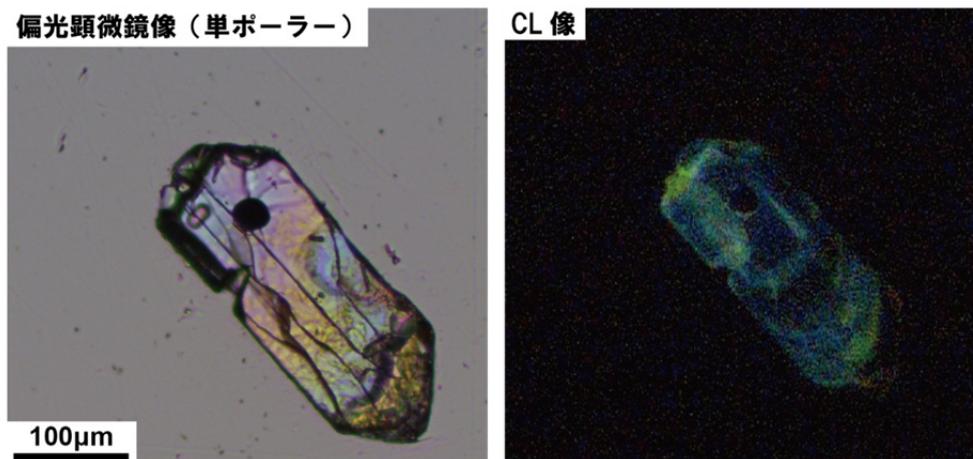


図 3.1-8 冷陰極型電子銃を備えたルミノスコープによるジルコンの CL 像観察の結果

2) 堆積物を構成する碎屑粒子の情報整備

① 分析試料

堆積物試料については、露頭（地表付近）に分布する試料とボーリングコア（地下）に分かれる。露頭に分布する試料は、東濃地域に分布する中新世～更新世にかけて形成したと考えられる堆積物である。ボーリングコアは、北名古屋（KNG コア）と大湫盆地（OK3 コア）の 2 地点で得られた既存コアである。KNG コアは、土岐川（庄内川）下流部の濃尾平野に入って約 20 km 下流に下った地点のコアであり、少なくとも MIS 2 以降の堆積物を記録していると考えられている（野原ほか, 2008²⁵⁾）。一方、OK3 コアは、土岐面上の残丘間に形成された山間閉塞盆地内のコアであり、過去 30 万年間程度の碎屑物の堆積が確認されている（佐々木ほか, 2006²⁶⁾）。

② 観察・分析・測定

以下に、顕微鏡を用いた碎屑粒子の観察、EPMA 法を用いたジルコンの微量成分分析、ESR・OSL・TL 法を用いた石英の ESR・OSL・TL 信号測定、FT 法と U-Pb 法を用いたジルコンの年代測定について記述する。

(a) 顕微鏡観察

肉眼観察では識別が困難な特徴が、顕微鏡観察によって把握できる場合がある。また、後述する各種分析を行う際にも、顕微鏡観察によって把握できる測定試料の特徴を考慮することで、効率的な分析に役立つと考えられる。よって、碎屑粒子について実体顕微鏡による観察を実施した。

試料番号 22-b の堆積物において、下位から順に実体顕微鏡で観察したところ、全体的に石英と長石が多く認められた (図 3.1-9)。さらに、下部の F-1、F-2、F-5、F-7 には雲母片が認められないが、それより上部の F-14、F-11、F-12、F-13 には雲母片が認められる。露頭においては、下部が濃飛流紋岩の礫から構成されているのに対して、上部では濃飛流紋岩礫の他に、所々に花崗岩礫が認められることから、花崗岩に由来した雲母片と考えられる。また、上部ではわずかではあるが玄武岩礫も分布していることから、本露頭は下位から上位に向けて後背地が変化したことが伺える。なお、後述する ESR 分析では、本試料を用いて検討を行った。

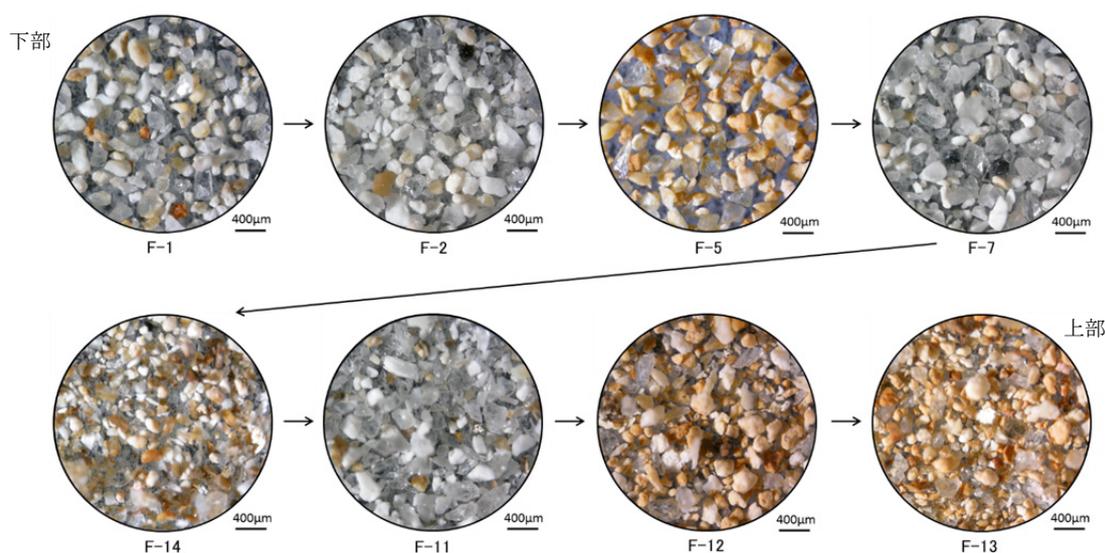


図 3.1-9 堆積物粒子の実体顕微鏡写真

(b) EPMA 分析

FE-EPMA を用いて東海層群中の砂礫層 (試料番号 29) と陶土層 (試料番号 31) から分離したジルコンの定量分析を行い、その結果を苗木花崗岩のジルコンの組成変化 (Suzuki et al., 1990¹⁸) と比較した (図 3.1-10)。上述したようにジルコンは、ハフノン、コフィナイト、トーライト、ゼノタイムなどと同形であり、Zr が Hf、U、Th、Y により置換されることから、広い組成変化を示すことが報告されている (例えば、Speer, 1980²⁷; Johan and Johan, 2005²⁸)。図 3.1-10 の結果から、東濃地域周辺の基盤岩から抽出したジルコンの微量成分組成と同様の傾向を示した。今後、ジルコンの定量値を増やしてデータを充実させていくことにより、供給源の岩体との比較が可能になると考えられる。

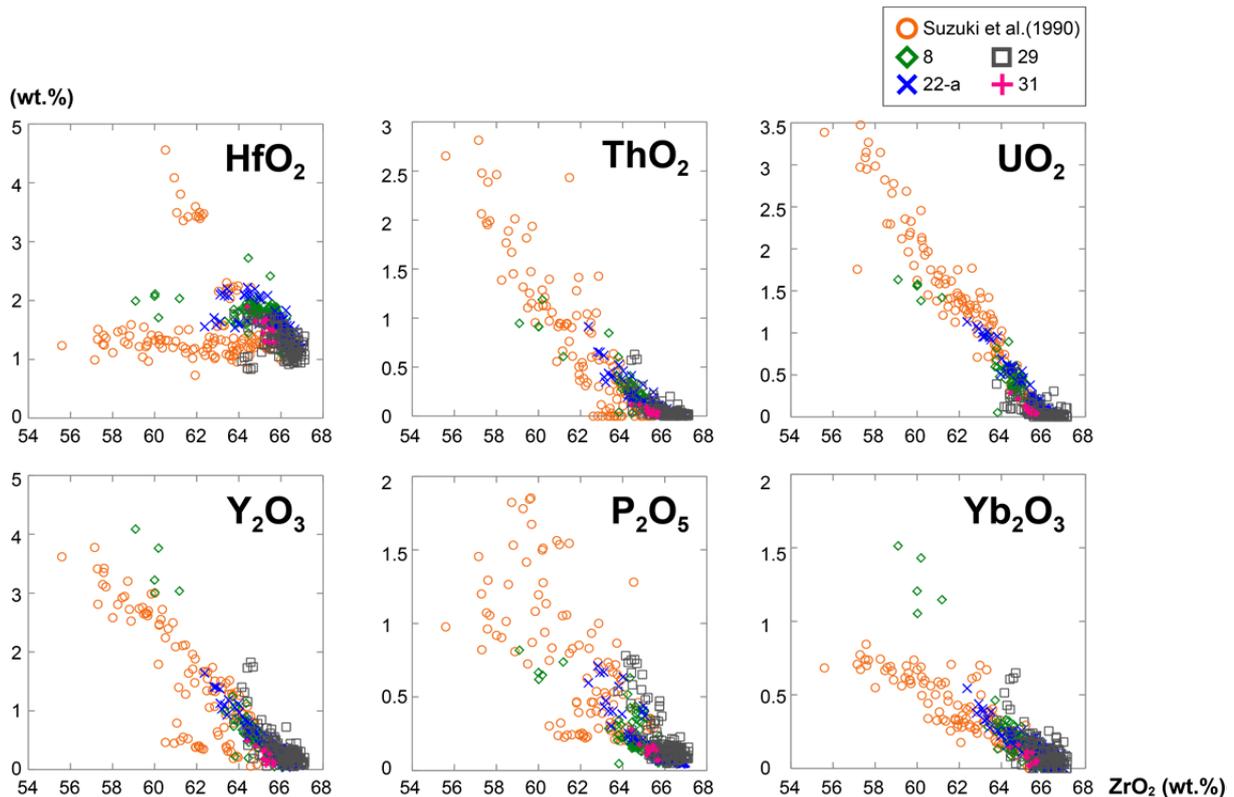


図 3.1-10 苗木花崗岩のジルコンの微量成分と東濃地域周辺の堆積物から抽出したジルコンの微量成分

苗木花崗岩の微量成分（橙○）は、Suzuki et al. (1990)¹⁸⁾ に基づいて作成。

(c) ESR 測定

試料番号 22 について、先述した 3.1.3 (1) 1)②(c) と同様の測定条件において ESR 測定を行った。本試料は、基盤岩（濃飛流紋岩）からほぼ連続で観察することができる砂礫層に挟まれる砂層であり、下位から F1、F2、F5、F7、F14、F11、F12、F13 の 8 試料の石英を測定した（図 3.1-11）。その結果、下部と上部で信号強度が異なる傾向が見られ、上部の方が 2 倍程度の強い信号強度を示す（図 3.1-12）。下部の礫種は基盤岩と同様の濃飛流紋岩だけであるのに対して、上部の礫種は濃飛流紋岩の他に花崗岩や玄武岩を含む（図 3.1-11）。また、3.1.3 (1) 2)②(a)において示したように、下部では雲母片が認められないのに対して、上部では雲母片が認められる。さらに、3.1.3 (1) 1)②(c)の結果から、基盤岩である濃飛流紋岩中の石英と礫層中の花崗岩礫中の石英の ESR 測定結果を合わせて示すと、下部は濃飛流紋岩の ESR 信号強度は同程度を示し、上部は花崗岩礫もしくは花崗岩礫と濃飛流紋岩礫の中間程度の値を示す（図 3.1-12）。

以上の結果から、露頭試料においても ESR 信号の特性が深度によって異なる傾向があり、その傾向の違いは含まれる碎屑物の違いが影響している可能性が示された。

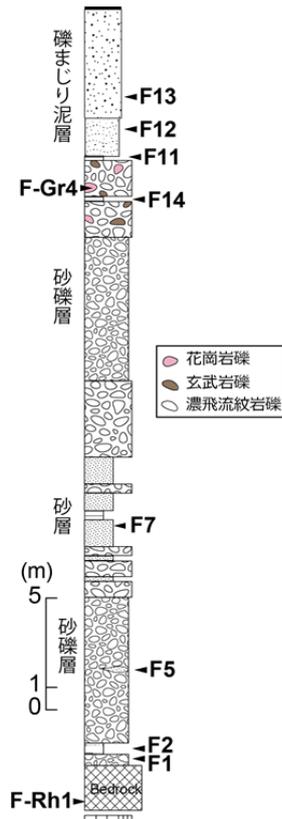


図 3.1-11 測定試料の位置関係 (地質柱状図)

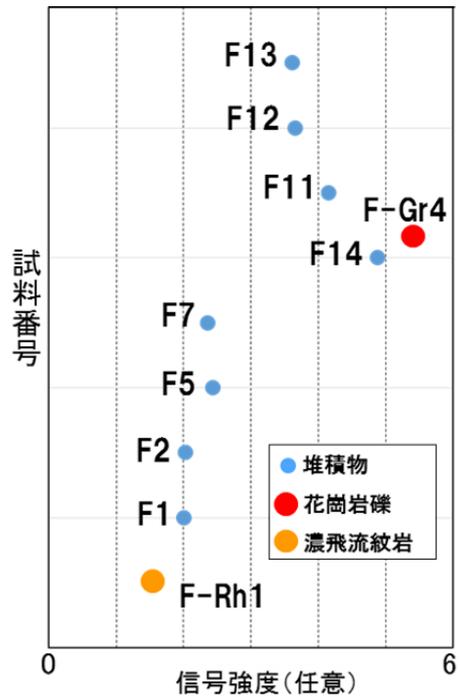


図 3.1-12 ESR の E1' 中心信号強度の比較

次に、コア試料を用いた検討について、試料番号 36 (KNG コア) と試料番号 37 (OK3 コア) のコアを用いて、先述した 3.1.3 (1) 1)②(c)と同様の測定条件において ESR 測定を行った。測定の結果、表 3.1-4 に示す信号強度が得られた。図 3.1-13 は Al 中心信号強度と Ti-Li 信号強度を対比したものである。

10 試料の KNG コアでは、上位の KNG2、4、8 及び 11 は Al 中心信号 6.6-7.6、Ti-Li 中心信号が 0.4-0.8 の領域にプロットされた。その下位層である KNG13 及び 15 は Al 中心信号が 2.8、Ti-Li 中心信号が 0.2-0.5 の領域にプロットされた。さらに下位層である KNG19、21、23 及び 25 は Al 中心信号が 9.0-10.6、Ti-Li 中心信号が 0.4-0.9 の領域にプロットされた。これらの結果より、KNG コアの ESR 信号特性は、層準の違いによって大まかに三つのグループに分類できる。

3 試料の OK3 コアでは、Ti-Li 中心信号が最大で 0.2 と小さく、OK3-8 ではほぼベースラインであった。Al 中心信号は表 3.1-4 に示したように、OK3-8 で 2.5、OK3-15 で 11.1、OK3-28 で 8.6 の値を示し、OK3 コアにおいても層準の違いによって ESR 信号特性に変化がみられる可能性が示された。

E1' 中心信号についても、KNG2-11、KNG13-15、KNG19-25 のグループでそれぞれ類似した値を示した (表 3.1-4、図 3.1-14)。OK3 コアでは OK3-8 と OK3-28 が同等の値を示し、OK3-15 で 6.54 と 3 試料の中で最も大きな値を示した。

以上の結果から、コア試料においても ESR 信号の特性が深度によって異なる傾向が認められた。

表 3.1-4 コア試料の Al 及び Ti-Li 中心信号強度

試料	コア深度(m)	Al 中心 信号強度	Ti-Li 信号強度	E ₁ '中心 信号
KNG2	1.55 - 1.60	6.9	0.74	2.14
KNG4	3.50 - 3.55	7.6	0.79	2.30
KNG8	7.50 - 7.55	7.2	0.69	4.79
KNG11	10.63 - 10.68	6.6	0.36	2.20
KNG13	12.45 - 12.50	2.8	0.22	0.53
KNG15	14.65 - 14.70	2.8	0.47	0.50
KNG19	18.47 - 18.53	10.6	0.44	1.43
KNG21	20.43 - 20.48	9.0	0.38	1.66
KNG23	22.70 - 22.75	9.6	0.78	1.89
KNG25	24.50 - 24.55	10.1	0.91	1.32
OK3-8	8.22 - 8.38	2.5	0.00	2.08
OK3-15	15.40 - 15.53	11.1	0.13	6.54
OK3-28	23.35 - 23.40	8.6	0.17	2.51

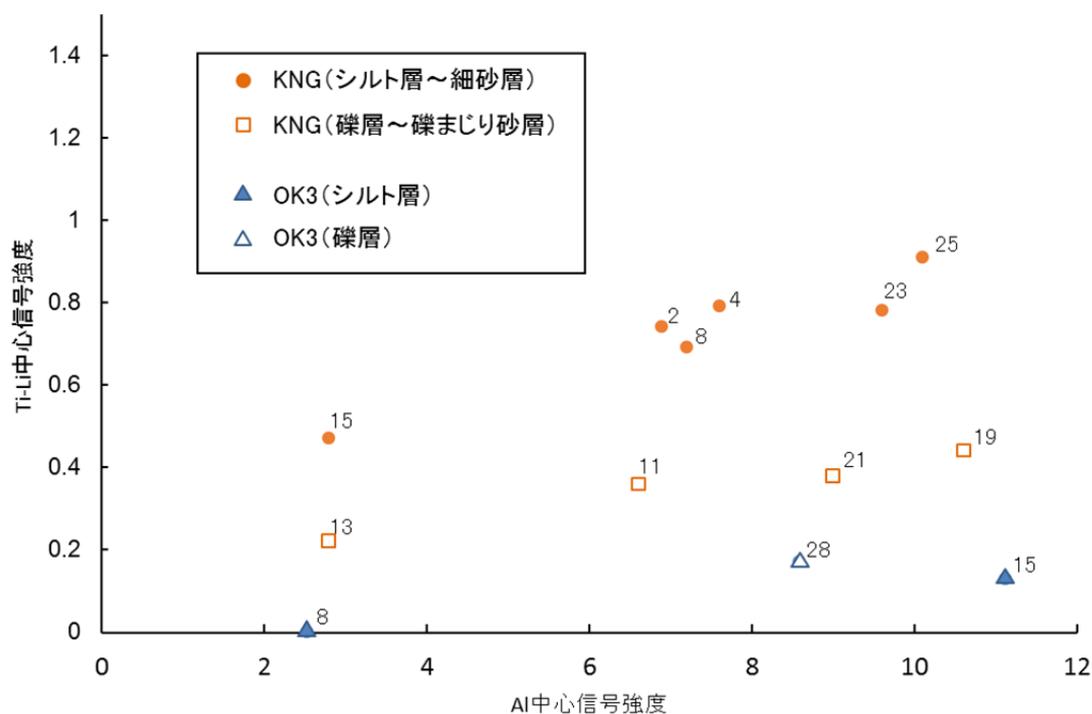


図 3.1-13 コア試料の Al 及び Ti-Li 中心信号強度の対比

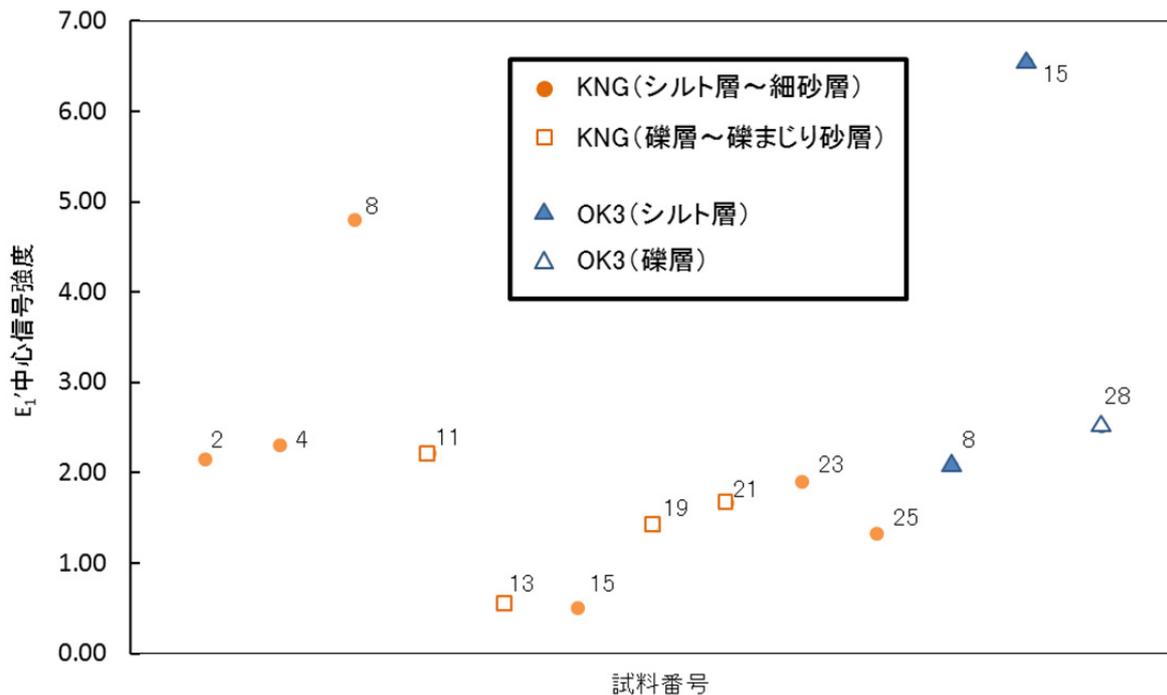


図 3.1-14 コア試料の E_1 中心信号強度

(d) OSL・TL 測定

OSL 及び TL 測定は、Risø 製の TL/OSL DA-20 装置を用いて行った。試料番号 36 (KNG コア) と試料番号 37 (OK3 コア) の OSL 及び TL 信号を測定し、それぞれの信号特性について検討した。

測定によって得られた KNG コアの TL 信号を図 3.1-15-a に示し、150 °C 以上の信号について比較した。350–400 °C 付近にピークを示す試料は、KNG-4、8、19、21、23、25 である。これらの試料は、200–250 °C 付近にも弱いピークを示す。これらの内、KNG-4、19、25 については、160 °C 付近にもピークが見られる。KNG-2 については 220 °C 付近に弱いピークが見られ、それより高温では顕著なピークは見られない。KNG-11 は他の信号と大きく異なり、320 °C 付近にピークが見られ、著しく高い値を示す。KNG-15 は 160 °C 付近に顕著なピークが見られる。

図 3.1-15-b に OK3 コアの TL 信号を示す。2 試料だけであるが、どちらの試料も複数のピークが見られ、それらのピークが出現する温度は 2 試料ともほぼ同じである。また、KNG コアと比べるとピークの分布が明瞭であり、150 °C、220 °C、280 °C 及び 380 °C 付近にピークが見られる。

測定によって得られた KNG コアの OSL 信号を図 3.1-16-a に示す。KNG-25 以外の試料はピークの位置が同じで強度が異なる。ピークが 15,000 カウント以下の比較的弱い強度を示す試料は、KNG-2、4、19、21、23 である。20,000–30,000 カウントの試料は KNG-8、15、25 であり、もっとも強い試料は、50,000 弱のカウントを示す KNG-11 である。

図 3.1-16-b に OK3 コアから採取した 2 試料の OSL 信号を示す。ピークの位置が若干異なるものの 2 試料とも類似の信号特性を示す。

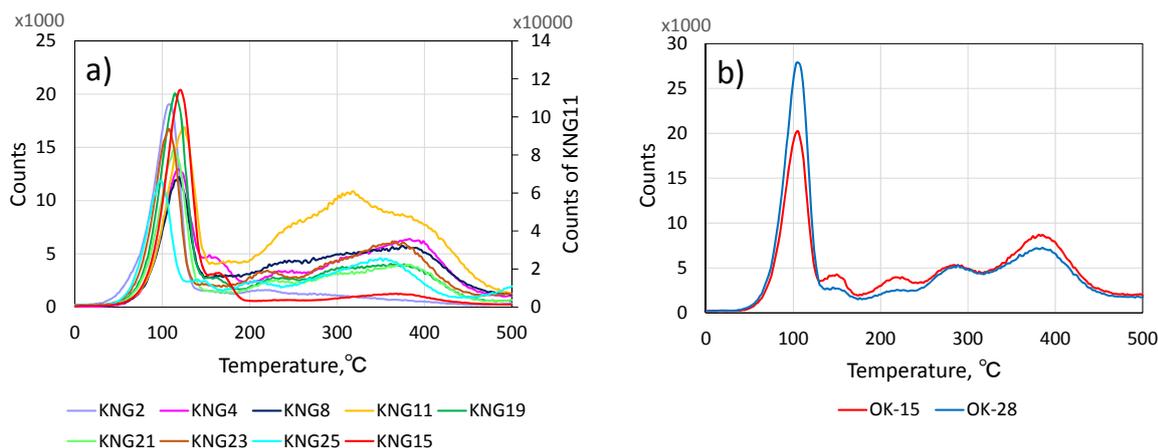


図 3.1-15 コア試料の TL 分析の結果

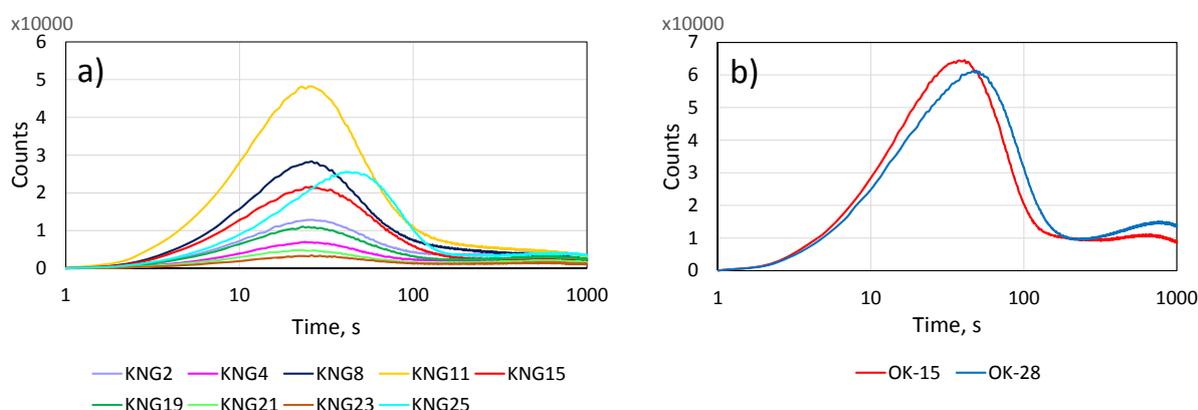


図 3.1-16 コア試料の OSL 分析の結果

(e) FT・U-Pb 年代測定

堆積物中の碎屑粒子の供給源がある程度推定できる場合は、供給源の岩体の年代を測定し、同じ特徴を持つ碎屑粒子が出現する層準を特定することによって、供給源となる岩体が地表に露出した時期を推定することができる（郷津, 2006²⁹⁾。これを堆積時期が異なる複数の層準で検討することで、周辺山地の形成プロセスを空間的に把握することが可能であると考えられる（図 3.1-17）。ただし、これらは鉱物の生成年代であり、碎屑粒子としての堆積年代ではないことに注意が必要である。

本事業では、碎屑粒子の年代測定手法としては、FT 法及び U-Pb 法を適用した。測定試料は、東海層群の土岐口陶土層と土岐砂礫層から採取した碎屑試料中のジルコンであり、一部の試料はテフラ層と考えられる試料もある。測定の結果、全粒子の結果は古い値を示す傾向があり（表 3.1-5）、より古いジルコンの再堆積を含むと考えられる。これらの内、試料番号 29 と試料番号 34 は土岐砂礫層と考えられ、抽出されたジルコンの U-Pb 年代について、測定結果を図 3.1-13 に示す。土岐砂礫層の堆積年代は数 Ma と考えられるが、ジルコンの U-Pb 年代は 20-30 Ma 程度、70-80 Ma 程度の粒子を多く含む。以上のことから、この砂礫層が堆積した当時には、これらの年代を示す地質が後背地に分布していたと考えられる。20-30 Ma 程度は瑞浪層群、70-80 Ma は濃飛流紋岩や花崗岩から供給されたことを示している可能性がある。また、U-Pb 年代については、2000 Ma 程度を示すジルコンが少量認められる（図 3.1-19）。しかし、同じジルコンの FT 年代はそのような古い値を示さず、どれも 100 Ma より若い（図 3.1-19）。このことは、本来

古いジルコンが、FT がリセットされる程度の熱の影響を受けている可能性を示しており、周辺地域におけるそのようなジルコンの供給源としては大規模な火砕流である濃飛流紋岩が考えられる。これらの検討は、年代値だけでなく、他の手法の結果と合わせることで、より詳細に後背地を推定することが可能であると考えられる。

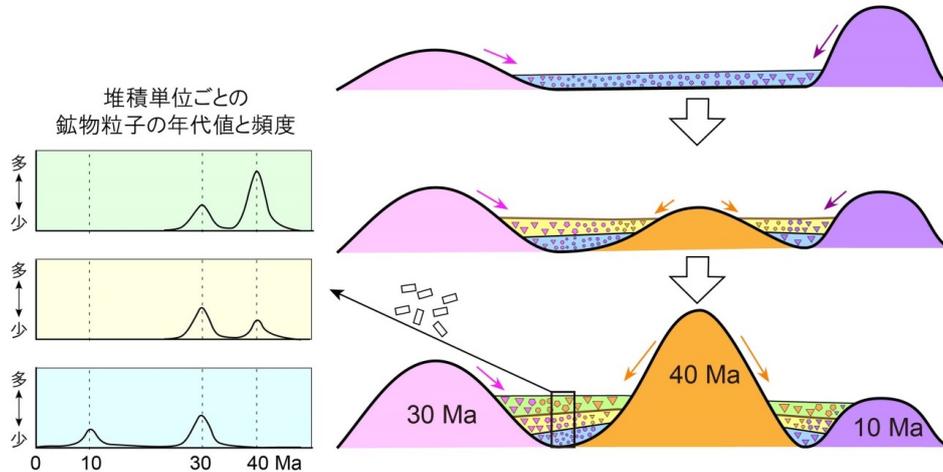


図 3.1-17 碎屑粒子の形成年代を用いた後背地解析のイメージ

表 3.1-5 東海層群の陶土層と土岐砂礫層のジルコンの FT 年代測定と U-Pb 年代測定の結果

試料番号	(1) 測定方法	結晶数 (個)	自発核分裂飛跡		U総計数		(2), (3) Uスタンダード計数		(4) 相関係数 r	(5) χ^2 検定 Pr(χ^2) (%)	ウラン 濃度 (ppm)	(6), (7), (8)	
			ρ_s (cm^{-2})	N_s	ρ_u (cm^{-2})	N_u	ρ_{ustd} ($\times 10^4 \text{ cm}^{-2}$)	N_{ustd}				FT年代値 (Ma) Age $\pm 1 \sigma$	U-Pb年代値 (Ma) Age $\pm 2 \sigma$
29	IS	36	2.08×10^6	692	1.53×10^8	50847	503.400	88906	0.860	0	290	14.0 \pm 0.7	21.4 \pm 0.3
29_全粒子	IS	78	2.24×10^6	1557	1.38×10^9	95765	503.400	88906	0.719	0	260 参)	16.7 \pm 0.7	
30-b	ES	26	6.01×10^6	667	3.77×10^9	418157	1051.0	82470	0.050	0	3380 参)	6.8 \pm 0.4	9.8 \pm 0.1
30-b_全粒子	ES	29	6.05×10^6	792	3.24×10^9	423840	1051.0	82470	0.007	0	2910 参)	8.0 \pm 0.4	
30-a	IS	12	1.86×10^6	132	2.60×10^8	18493	609.7	10768	0.567	0	400	8.9 \pm 0.8	12.8 \pm 0.3
30-a_全粒子	IS	26	3.03×10^6	443	2.02×10^9	29428	609.7	10768	0.124	0	310 参)	18.7 \pm 1.1	
31	IS	44	7.45×10^6	1416	1.86×10^8	35405	609.7	10768	0.475	0	290	49.6 \pm 2.2	68.9 \pm 0.7
32	ES	29	7.22×10^5	392	9.65×10^7	52390	651.3	20452	0.724	92	140	19.8 \pm 1.2	17.6 \pm 0.3
32_全粒子	ES	30	7.66×10^5	431	10.00×10^8	56282	651.3	20452	0.828	86	140 参)	20.2 \pm 1.2	
33	ES	3	9.88×10^5	83	2.16×10^8	18107	651.3	20452	-0.824	0	310	12.1 \pm 1.4	11.8 \pm 0.5
33_全粒子	ES	30	3.02×10^6	2001	1.29×10^8	85177	651.3	20452	0.505	0	190 参)	61.8 \pm 2.7	
34	IS	8	2.78×10^6	164	1.75×10^8	10318	503.4	88906	0.873	0	330	16.3 \pm 1.4	19.8 \pm 0.3
34_全粒子	IS	64	4.74×10^6	2233	1.48×10^8	69765	503.4	88906	0.353	0	280 参)	32.8 \pm 1.3	
35	ES	24	8.62×10^5	526	1.73×10^8	105807	651.3	20452	0.661	6	250	13.1 \pm 0.8	10.6 \pm 0.2
35_全粒子	ES	30	8.16×10^5	596	1.78×10^8	130165	651.3	20452	0.456	0	260 参)	12.1 \pm 0.7	

(1) 測定方法：LA-ICP-MS-FT (内部面:IS, 外部面:ES)

(2) ^{238}U 濃度, U-Pb年代測定用標準試料:91500(Zr),Durango(Ap)

(3) レーザービーム径: 15 μm

(4) r: ρ_s と ρ_u の相関係数

(5) Pr(χ^2): χ^2 値の自由度(n-1)の χ^2 分布における上側確率 (Galbraith, 1981)

(6) 年代値: $T = (1/\lambda D) \cdot \ln[1 + \lambda D \cdot \epsilon \cdot (\rho_s/\rho_u) \cdot \rho_{ustd}]$ (ISは $\rho_s \times 1/2$)

(7) 誤差: $\sigma T = T \times [1/\Sigma N_s + 1/\Sigma N_u + 1/\Sigma N_{ustd} + (\sigma \epsilon / \epsilon)^2]^{1/2}$

(8) ^{238}U の全壊変定数: $\lambda_D = 1.55125 \times 10^{-10} \text{ yr}^{-1}$

参) 外来結晶などの影響により実際の堆積年代と異なる値が計算されている可能性が高い値を参考値とする。

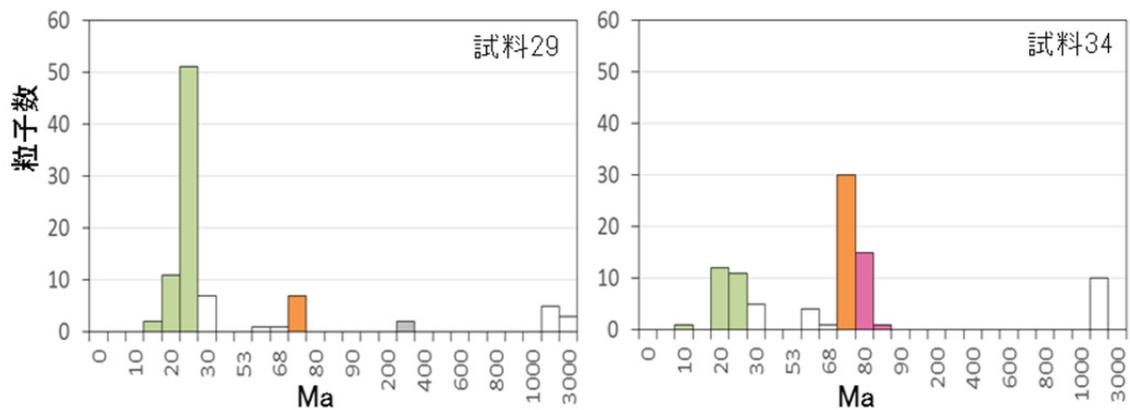


図 3.1-18 土岐砂礫層中のジルコンの U-Pb 年代測定の結果
棒グラフの色は、図 3.1-3 中の地質図と整合するように年代に基づいて着色。

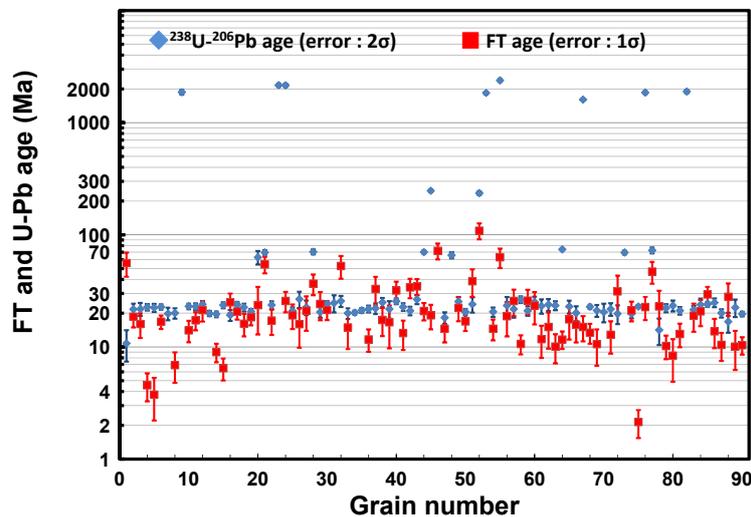


図 3.1-19 試料番号 29 のジルコン粒子ごとの FT 年代と U-Pb 年代

3) 堆積時期の決定

東海層群は、泥と砂を主体とする下部の土岐口陶土層及び礫を主体とする上部の土岐砂礫層に分けられる。土岐口陶土層の堆積時期については、多治見市～土岐市周辺に分布する陶土層上部に挟在する火山灰層から 9.7 ± 0.4 Ma (安藤ほか, 1999³⁰) 及び 10.5 ± 0.4 Ma (吉田ほか, 1997a³¹) の FT 年代値が得られている。土岐砂礫層の堆積時期については、多治見市～土岐市周辺に分布する砂礫層下部に挟在する火山灰から 11.1 ± 0.6 Ma、砂礫層上部に挟在する火山灰層から 3.8 ± 0.3 Ma の FT 年代値 (吉田ほか, 1997a³¹) が得られている。また、中津川市付近において土岐砂礫層に挟在する火山灰から 3.3 ± 0.4 Ma (陶土団体研究グループ, 1985¹²) の FT 年代値が得られているが、吉田ほか(1997b)³²はこの火山灰に対比される大田火山灰層から 4.2 ± 0.2 Ma の FT 年代値を示した。このようにいくつかの絶対年代値が得られているが、火山灰層は風化によって粘土化している場合が多いこともあり (陶土団体研究グループ, 1994a⁷)、対比可能な火山灰が少ない。古澤ほか (2013)³³は、風化に強い石英などのインクルージョンを用いて根の上高原の土岐砂礫層の中部砂泥部層から南谷 I テフラ (2.7 Ma; 富田・黒川, 1999³⁴) に対比されるテフラを見出した。今後、同様の手法を用いて風化した火山灰の対比が望まれる。また、東部の

土岐砂礫層には上野玄武岩の礫を含むことから、1.5 Ma 頃の堆積物と考えられている。しかし、この関係が西側の盆地の土岐砂礫層に対比しうる根拠が無いことから、東濃地域全域の土岐砂礫層の堆積年代を検討するには注意が必要である。また、本地域の侵食面の形成年代を示す年代試料は存在しないが、侵食面と堆積面がほぼ同じ高さに分布することから、侵食面は砂礫層堆積後の河川の側方侵食によって形成されたと考えられている（森山, 1987³⁷⁾）。

平成 26 年度は、3.1.3 (1) 2)②(e) において、土岐口陶土層と土岐砂礫層の碎屑粒子中のジルコンの FT・U-Pb 年代測定を実施した（表 3.1-5）。外来結晶と考えられる粒子を除いた年代値は、9 Ma 程度、12-14 Ma 程度、16 Ma 程度、20 Ma 程度の値を示す。この内、9 Ma 程度と、12-14 Ma 程度の値は、これまでに多治見～土岐市周辺で測定されている陶土層上部や砂礫層下部に挟在する火山灰層の年代と近い値を示す。しかし、それより古い値については、これまでに陶土層や砂礫層からは報告されていない。瑞浪層群やそれからの再堆積の可能性も含めて地層の対比や測定結果の検討が必要である。後背地解析において、土岐砂礫層の堆積年代が重要であるが、現状では礫層中から堆積時期の決定に有効なテフラ層はほとんど認められない。今後は、本事業や古澤ほか（2013）³⁵⁾が行った堆積物に含まれる風化に強い石英やジルコンを用いた多量の分析結果から、テフラ粒子を抽出して堆積時期を検討していくことが有効と考えられる。

4) 山地形成プロセスの解明手法

平成 26 年度は、後背地解析技術の開発フロー（図 3.1-1）に基づいて、研究開発を進めてきた。まずは開発フローで示した手法の見通しを得ることが重要であることから、後背地を検討する上で有効と考えられる堆積物や既存の試料を用いた分析を中心に実施した。石英の ESR 信号については、基盤岩ごとに信号特性の違いが認められることや、堆積物の深度方向での信号特性の違いが認められることから、堆積物の供給源の時間変化を把握できる可能性が高い。また、風化に強く、普遍的に存在する石英を使う点でも有効な手法となる。現時点では、基盤岩、堆積物ともに測定数が少ないことから、今後は測定試料を増やして適用性の確認を進める必要がある。さらに、現在は複数の石英粒子を一緒に測定しているが、今後は一粒の石英粒子の測定も検討する必要がある。OSL・TL 信号については、ESR 測定と同様に普遍的に存在する石英を使うことから、有効な手法になると考えられる。信号特性の違いを示す試料が認められるが、現時点では ESR 信号ほど特徴的な傾向が見られていない。今後、ESR 測定と同様に測定数を増やして検討していく必要がある。EPMA 測定については、平成 26 年度に装置の測定条件の検討と設定を進め、主成分分析とジルコンを対象とした微量成分分析が可能となった。これにより、ジルコンの化学組成変化、元素マッピングが可能となり、今後はこれらを指標として基盤岩と堆積物中のジルコンを比較、検討する取り組みが必要である。また、CL 像もジルコンの特徴を把握する際に適用できる可能性があるが、ルミノスコープではジルコンの CL 像を高解像度で得ることは難しいことから、より高倍率での観察と検討が望まれる。さらに、ジルコンの FT・U-Pb 年代測定の結果から、供給源の推定を考察したが、これについても事例の蓄積が望まれる。その際は、EPMA を用いた CHIME 年代測定も合わせて検討することでより検討の幅が広がると考えられる。

堆積物の供給方向の推定に帯磁率異方性測定の適用を検討しており、平成 26 年度に装置を整備した（後述）。今後は、既に礫や堆積構造などの他の手法で堆積物の流れの方向がわかる試料を用いるなどして、帯磁率異方性測定の適用性を検討する必要がある。

重要な課題の一つとして、堆積物の堆積時期の決定がある。現状では礫層中から堆積時期の決定に有効なテフラ層はほとんど認められない。この特徴は、日本各地の礫層について共通の課題と考えられる。この問題に対しては、礫層中の砂粒から風化に強いテフラ起源の石英やジルコンを抽出して、そこに含まれるガラス包有物やジルコン年代などを用いて、多量の分析結果の統計

解析などから堆積時期を検討していくことが有効と考えられる。

5) 地質ベースマップ及び地質断面図の作成

後背地解析技術の開発を効率的に進めるために必要な基礎データとして、東濃地域及びその周辺の地形と地形面を構成する堆積物の特徴に関する既存情報を整理するとともに、既存資料を統合した地質ベースマップ及び地質断面図を作成した。

① 地形・地質に関する特徴

東濃地域は、標高 1,000 m を超える山地に囲まれて、北東から南西へ連続する盆地が分布する。盆地と山地の主要な地形境界部には断層が認められ、阿寺断層や赤河断層に代表される北西－南東走向の左横ずれ断層と、屏風山断層や恵那山断層に代表される北東－南西走向の南東側隆起の逆断層が分布する。これらの断層を境に地形の高度が変化し、阿寺断層の北東側には阿寺山地（飛騨山地）、屏風山断層より南東側には三河高原、阿寺断層の南西側かつ屏風山断層の北西側には美濃高原が分布する。また、東濃地域の西側には、沈降域に出来た堆積盆に濃尾平野が分布し、中新世以降の厚い堆積物が堆積している。

この地域には、背面に定高性が認められる起伏の小さい山地・丘陵（小起伏面）が広く発達する。この小起伏面には、基盤岩を切って形成された侵食面とともに、鮮新世・更新世にかけて堆積した砂礫層（いわゆる土岐砂礫層）からなる堆積面が発達する（例えば、森山・丹羽, 1985³⁶⁾; 森山, 1987³⁷⁾, 1990¹³⁾）。

なお、東濃地域の地形発達に関する情報については、本章とは別に 2.2.3 (1) 1) に詳しく記されている。

② 地質ベースマップ

後背地解析では、堆積物中に含まれる碎屑物の供給源を特定するために、碎屑物試料と岩体試料それぞれから得られた各種分析データの照合を行う。これら地質試料を採取する地点の選定や、分析データの解釈を行う上で必要となる基礎資料の一つが、後背地解析を行う堆積物及び供給源について統一的に示された地質図である。こうした地質図には、20 万分の 1 シームレス地質図（産業技術総合研究所 地質調査総合センター編, 2007³⁸⁾）を挙げることができる。しかし、本事業における後背地解析技術の開発では、より細分された岩体の分布が重要であることから、そのベースマップは、20 万分の 1 地質図幅ではなく、より大きい縮尺の地質図幅から作成されることが望ましい。そこで、後背地解析技術の開発に有効な地質ベースマップを作成するため、既存の情報に基づいて地質図の統合・編集作業を行った。この地質ベースマップの作成のために留意した点は以下の通りである。

- ・ 基本的に中縮尺地質図（5 万分の 1 もしくはより大縮尺）を用いた
- ・ そうした地質図が存在しない場合は、できるだけ詳しい情報が得られる小縮尺の地質図を使用した
- ・ 岩体の種類については、5 万分の 1 地質図幅の情報においてできるだけ細分した
- ・ 主要な地質断層と活断層の分布を示した
- ・ 堆積物試料中の碎屑物の運搬経路が、現水系か、現在とは異なる古水系によるものかについて検討可能なベースマップの作成に努めた

図 3.1-3 の地質図は、この地質ベースマップを用いて、後背地解析用に地質の年代別に編集した地質図である。

③ 地質断面図

後背地解析では、堆積物中の碎屑物の情報から、その供給源の時間的・空間的変化を検討する。この検討には、削剥域である供給源の古地理変遷を議論する上で、碎屑物が堆積する場の地質学的な背景についての情報は重要である。そうした情報を得るための最も基礎的な資料が、堆積物が堆積する前の谷の地形、堆積物の厚さやその層相の変化、堆積時期、構造運動の有無であり、これらを示す堆積場の地質断面図が前述の地質ベースマップとともに効率的な後背地解析技術の開発に有効な情報となる。そのため、碎屑物の運搬経路となる河川に沿って分布する堆積場において地質断面図を作成した(図 3.1-20)。地質断面図の作成にあたっては、学術調査、防災調査、温泉調査、各種公共事業などによって得られた地下地質の情報について公開資料を収集した。

A-A' 断面は、濃飛流紋岩及び花崗岩を基盤とし、その上に土岐砂礫層と上野玄武岩が重なる。土岐砂礫層の基底の形状は堆積時の地形面と考えられる起伏を埋めるように分布しており層厚変化が大きい。先述した試料番号 22 は、濃飛流紋岩を基盤岩とする付知川沿いの試料である。

B-B' 断面の木曾川右岸には基盤の花崗岩とそれを覆う木曾谷層が露出し、土岐砂礫層は分布しない。左岸では木曾川から屏風山断層までの区間では土岐砂礫層が連続的に分布する。また、屏風山断層上盤側の屏風山山塊稜線部である根ノ上高原地区でも領家花崗岩、濃飛流紋岩、瑞浪層群を基盤岩として土岐砂礫層が分布している。また、根ノ上高原の土岐砂礫層基底標高は約 800 m、一方、断層の北西側の土岐砂礫層基底標高は約 140 m より低いことから、土岐砂礫層基底を基準とした屏風山断層の垂直変位は少なくとも 660 m 以上と見積もられる。

C-C' 断面では、土岐砂礫層が異なる三つの高度帯に分布する。土岐盆地北方の丘陵(Tk-1 面; 標高 320 - 350 m) に分布する土岐砂礫層は、丘陵頂部を一様に覆い、基底部の標高は 280 - 290 m である。土岐盆地南方の丘陵(Tk-3 面; 標高 200 - 250 m) に分布する土岐砂礫層も同様に丘陵頂部を一様に覆い、その基底は標高 180 - 200 m にある。その下位には、層厚 25 m 前後の土岐口陶土層が確認でき、その最上部には下石火山灰層が挟まれる。一方、これらよりも有意に高い位置に分布する土岐砂礫層は、笠原断層南の山地(Ks-1 面) で確認できる。この山地において土岐砂礫層はスポット的に標高約 470 m の面を形成している。

このように、土岐砂礫層は山間盆地に分布し、断層を挟んで分布高度が異なることから、山地の形成以前及び形成中に堆積したものと考えられ、後背地解析技術の開発において重要な堆積物の一つであると言える。

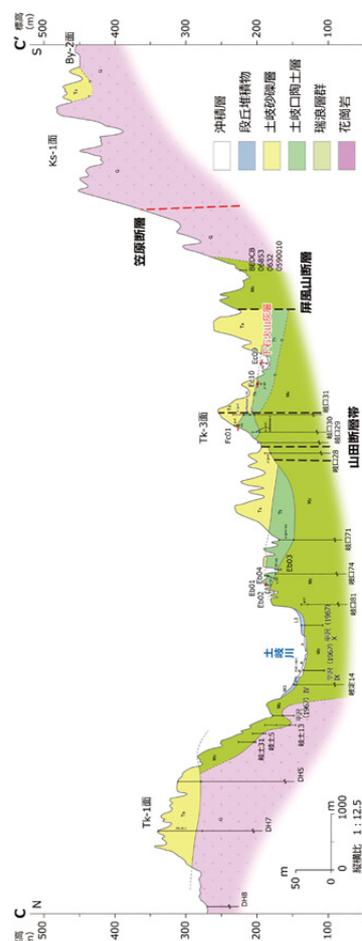
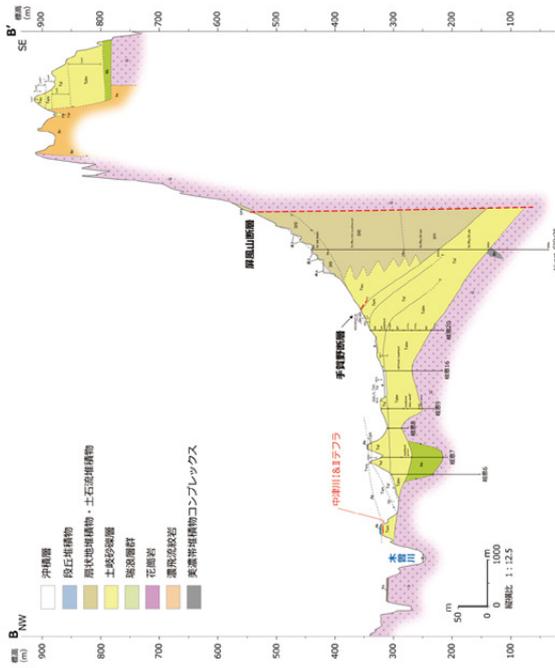
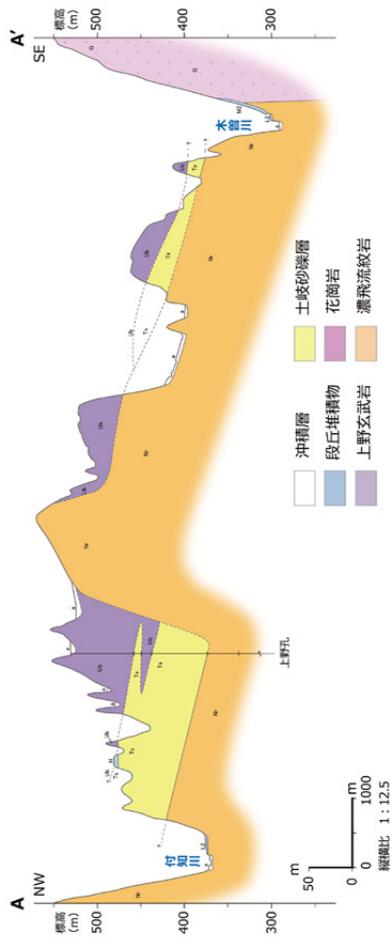
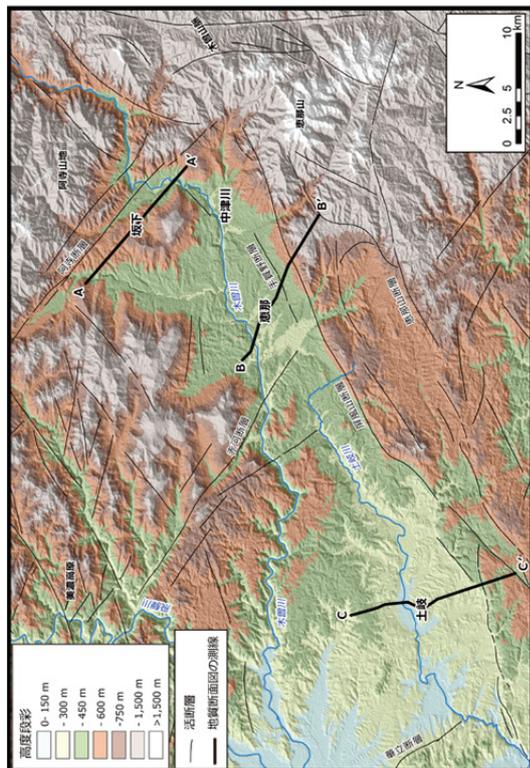


図 3.1-20 後背地解析技術開発に用いる地質断面図

(2) テフラカタログの整備

1) 広域テフラとその意義

地質時代を通して、日本列島の火山は時折、大規模火砕流が流出し、火山灰が広く日本列島を覆うような巨大噴火を繰り返してきた。降下した火山灰は地層の中に挟まって堆積する。火山灰は地質学的に短時間に降下・堆積するので、同一の噴火で堆積した火山灰は過去の同一時間を示す指標となる。これを用いて、後背地の地質構造や山地の隆起時期などの地質学的な情報を得ることができるので、後背地解析技術を開発する上で重要となる。このような意義を持つ広範囲に分布する火山灰は広域火山灰（広域テフラ）と呼ばれ、わが国では、始良-丹沢テフラ（AT: 29-30 ka; 町田・新井, 1976³⁹⁾）や鬼界アカホヤテフラ（K-Ah: 7.8 ka; 町田・新井, 1978⁴⁰⁾）など、1970年代後半から報告されるようになった。

2) テフラの識別と同定

広域テフラは、火山ガラスが大部分を占め、斑晶鉱物は極少量であり、見かけが似ているものが多い。したがって、噴出時のマグマの性質を反映するテフラの鉱物組成、鉱物や火山ガラスの光学的性質や化学的性質などの記載岩石学的特徴を用いて、その異同を識別する。特に火山ガラスの化学的性質は、EPMA 分析装置による主成分元素（Si、Ti、Fe、Al、Mg、Mn、Ca、Na、K）の化学組成を明らかにするもので、比較するパラメータが多いことからテフラ対比に有効であった。しかしながら、テフラ記載データが蓄積されると、近接する層準で、火山ガラスの主成分化学組成が類似したテフラが増加し、識別困難なケースが出てきた。吉川（1990⁴¹⁾）や吉川ほか（1991⁴²⁾）は、火山ガラスの化学成分分析で、主成分が類似するテフラであっても、Ba、La、Sr、Yなどの微量成分の違いから識別できることを示した。これらを受けて、ICP 発光分析による火山ガラスの微量成分の特徴を用いた高精度対比が行われるようになり、より多くの鮮新-更新世の広域テフラが明らかになってきている（水野, 2000⁴³⁾；田村・山崎, 2004⁴⁴⁾；田村ほか, 2005⁴⁵⁾；Tamura et al., 2008⁴⁶⁾など）。

3) 日本列島の鮮新-更新世広域テフラカタログ

近畿、東海から関東、新潟にわたる中央日本を中心とした地域の鮮新-更新世テフラの時間空間分布及び火山ガラスの主成分・微量成分値が明らかにされている（Tamura and Yamazaki, 2010⁴⁷⁾）。およそ 1.5-4.1 Ma の間に、16 層の広域テフラが識別されているが、関東より北方の北海道や東北地域に関しては、大峰テフラ（Omn: 1.65 Ma）、三松-Kd44 テフラ（Mts-Kd44: 1.9 Ma）及び Znp-大田テフラ（Znp-Oht: 3.75-3.90 Ma）以外は見出されておらず、鮮新-更新世の広域テフラ研究が遅れている。また、広域テフラの給源火山を示唆する大規模火砕流についても、存在は多数報告されている（池田・向山, 1983⁴⁸⁾；村岡, 1991⁴⁹⁾など）が、降下火山灰層の有無など広域対比は検討されていない。広域テフラは、日本列島の鮮新-更新世全体に共通な時間面として有用であり、またその分布範囲は日本列島における巨大噴火の規模を明確に示すものである。日本列島のテフラカタログの充実に向けて、北海道や東北地域における広域テフラの同定・識別が大きな課題となっている。そこで、本事業ではこのテフラカタログを整備するため、平成 26 年度は北海道のテフラに関して既存試料を用いて分析を進めた。

① 北海道の鮮新-更新世テフラの分析結果

北海道地域の鮮新-更新世大規模火砕流堆積物及び広域テフラの可能性が高い細粒ガラス質火山灰層の分析に着手した。平成 26 年度は、相模原博物館所蔵のテフラ標本（町田 洋コレクション：相模原市立博物館, 2003⁵⁰⁾）から 9 試料（標本番号：MJB0435-MJB0442）及び町田 洋 東

京都立大学（現首都大学東京）名誉教授から提供をうけた「新編 火山灰アトラス」（町田・新井，2003^{51）} 関連の 13 試料の合計 22 試料の北海道テフラについて分析を開始した。22 試料の内訳は、火砕流堆積物が 15 試料、降下軽石が 1 試料、降下火山灰が 6 試料である（表 3.1-6）。

試料は洗浄・乾燥後、双眼実体顕微鏡及び偏光顕微鏡下で、鉱物組成、火山ガラスの形態を記載した。その後、篩別し、原則として 1/16–1/4 mm の粒径の火山ガラスの屈折率を測定した。屈折率測定は、首都大学東京の温度変化型屈折率測定装置（RIMS2000：京都フィッシュントラック製）を用い、1 試料につき、40 カウント以上の測定値を得るようにした。測定精度は、 $\pm 1 \cdot 2 \times 10^{-4}$ である（壇原，1991^{52）}。分析結果を表 3.1-6 に示す。なお採取地、堆積様式、層厚は町田 洋氏の記載による。

火砕流堆積物は、十勝三又や十勝一大雪が給源と推定され、斑晶鉱物は黒雲母を含むもの、角閃石を含むもの、斜方輝石・単斜輝石を含むものなど、様々な組み合わせであった。火山ガラスの形態は、MJB0438 と MJB0439 以外は、発泡のよいバブルウォール（bw）型の火山ガラスが多く含まれ、これらのテフラは広域分布していることが予想される。火山ガラスの屈折率 n は、1.496-1.505 の範囲で、極端に値の低いものや高いものは見られなかった。

降下火山灰は、試料番号 03-11-5-1 以外はいずれも細粒ガラス質で、瀬棚層（橋本ほか，1963^{53）} に挟在される。瀬棚層は渡島半島中北部に分布する地層で、保存良好な貝化石を多産する。堆積年代に関しては、鮮新世～下部更新世まで見解が分かっている（橋本ほか，1963^{53）}；椿原，1989^{54）} など）。能條ほか（1996^{55）} は、本層中の 2 枚のガラス質テフラ、ST01 及び ST02 火山灰の K-Ar 年代を測定し、それぞれ 0.7 ± 0.2 Ma 及び 1.0 ± 0.2 Ma を報告している。瀬棚層のテフラの斑晶鉱物は、黒雲母・角閃石・斜方輝石・単斜輝石を含み、火山ガラスの形態や屈折率などの特徴もいずれも類似している。1 Ma 前後の広域テフラとして、九州起源の鬼界葛原テフラ（0.95 Ma；K-Tz）が知られている。瀬棚層のテフラと火山ガラスの屈折率のレンジは合うが、斑晶鉱物として黒雲母や角閃石は含まれない。ST01 の 30 cm という層厚を考慮すると、北海道起源のテフラである可能性が高い。今後の化学分析が待たれる。

今後は、上記の北海道テフラの火山ガラスを純化し、ICP 発光分析法による化学分析を進め、主成分・微量成分組成をもとに既存研究で報告されている広域テフラとの対比を検討し、北海道も含めた鮮新-更新世テフラ編年が必要である。

表 3.1-6 北海道テフラ（町田 洋コレクション）の記載岩石学的特徴

試料番号*	テフラ名	給源火山	採取地	堆積様式**	層厚	主な鉱物***	火山ガラスのタイプ****	火山ガラスの屈折率(n)	その他
1	MJB0435 0210-5-0	十勝三股	新得 屈足	pfa?	—	bio > ho : qt, pl	str, sb, fib	1.496-1.497, 1.499~	屈足pの下部
2	MJB0435 0210-5-1	十勝三股	新得 屈足	pfl	> 15m	bio >> ho > opx : qt, pl	str, fib > bw	1.496-1.498	ca.0.5Ma (TL), (N)
3	MJB0436 84-8-21(0)	十勝三股	足寄 富士見台	pfl	> 10m	+opx : qt, pl	bw >> str	1.498-1.500	無加と対比
4	MJB0437 84-8-5	十勝三股	留辺蘂 大和	pfl	> 4~5m	bio >> +opx : qt	bw, sb, str	1.497-1.499	屈足と同一噴火輪廻か
5	MJB0438 0210-4-1	十勝-大雪	富良野 上五	pfl	> 80m	bio >> ho > opx : qt, pl	+(sp, sb)	—	(R), pflのtop
6	MJB0439 0210-4-2	十勝-大雪	富良野 上五	pfl	> 80m	bio, ho, opx >> +cpx	sb	1.496-1.497	1.3, 1.4, 1.46Ma (KA) pflのマトリックス
7	MJB0440 0210-2	十勝-大雪	美瑛 川沿い	pfl	> 15m	bio, ho, opx : qt	—	—	1.79-1.95Ma (KA), (N)オールドハイ?
8	MJB0441 060884-84(1)	十勝-大雪	上川 上徳 出草原西方	pfl	数十m	opx ≥ cpx	bw, sb, fib	1.503-1.505	(N)
9	MJB0442 83-9-23	洞爺周辺?	壮瞥 滝下	pfl	かなり厚い	opx >> cpx, ho : qt, pl	bw, str	1.496-1.498	1.59±0.33Ma (TL)
10	03-5-20? 旧JR	—	留寿都	pfl (WT)	かなり厚い	ho >> bio, opx : qt, pl	—	—	層位不明, (N)
11	03-5-25 ST01	—	今金花石	afa	30~35cm	bio > +ho, +opx, +cpx	str, sb	1.497-1.499	凝結層 0.7±0.2Ma (KA)
12	03-5-25 ST	—	今金	afa	30cm	bio, ho, opx > cpx	str, sb, bw	1.497-1.499	凝結層
13	03-5-26-1 ST02下	—	今金	afa	5~7cm	+(opx>cpx, ho, bio)	sb, bw, str	1.497-1.499	凝結層 1.0±0.2Ma (KA)
14	03-5-26-2 ST02上	—	今金	afa	—	ho, opx, bio > cpx	sb, bw, str	1.497-1.499	凝結層 1.0±0.2Ma (KA)
15	03-5-26-3か2 ST02 top	—	今金	afa	—	bio, ho, opx, cpx	bw, str, sb	1.497-1.499 1.501-1.502	凝結層 1.0±0.2Ma (KA)
16	03 5 27	—	黒松内 蔵位	pfl	2.5m	bio, ho >> opx : qt, pl	—	—	知来川層中
17	03 5 29	—	留寿都	pfl	—	ho, opx > cpx, +bio : qt, pl	—	—	—
18	03 7 1	十勝-大雪	美瑛 大久保第一	pfl (WT)	—	ho, opx : qt	—	—	美瑛pfl上部
19	03 7 6	—	北見 訓子府福野	pfl	かなり厚い	opx, cpx : qt, pl	bw,	1.501-1.502	—
20	03-7-6-2	—	北見 訓子府福野	pfl	かなり厚い	opx >> cpx	bw, str	1.502-1.504	—
21	03-7-2(旧84-8-2)	—	愛別 東雲	弱WT	数十m	opx > cpx : qt	—	—	—
22	03-11-5-1	—	長万部 高速道横	afa	1m	ho > opx : pl >> qt	—	—	層位不明

*: MLBで始まる試料はテフラ標本目録(相模原市立博物館資料目録4)掲載のもの。

** : pfa:降下軽石, pfl:火砕流堆積物, afa:降下火山灰, WT:溶結凝灰岩

*** : bio:黒雲母, opx:斜方輝石, cpx:単斜輝石, qt:石英, pl:長石類, +微量, >:2~3倍程度, >>:4~5倍以上。

**** : 火山ガラスの形態は岸・宮脇(1995)による, bw:パブル型ガラス, str:平行型ガラス, sb:スモールパブル型ガラス, fib:繊維型ガラス, sp:スポンジ型ガラス。

(3) 装置整備

1) EPMA 装置

平成 26 年度は、平成 25 年度に導入した FE-EPMA (FE-EPMA: JXA-8530F) を後背地解析に利用するための岩石・鉱物の測定条件に設定した。測定条件の設定は、高い測定精度と可能な限り短時間で測定することに重点を置き、検討を行った。その後、測定条件が適切に設定できていることを確認するため、主要造岩鉱物の定量分析・微量元素分析（ジルコンの定量分析とマッピング）を行った。また、FE-EPMA による SEM 観察の分解能を確認するために、二次電子像による微細構造の観察を行った。

① 測定条件の検討と設定

(a) 分光器及び分光結晶の選定

平成 25 年度に導入した FE-EPMA には、表 3.1-7 に示す通り、エネルギー分散型分光器 1 台と結晶直進タイプの波長分散型 5 台が装着されている。波長分散型分光器のうち 2 台はローランド円半径が 140 mm (XCE 形) であり、3 台はローランド円半径が 100 mm (H 形) である。それぞれの分光器に分光結晶が 2 枚セットされており、その組合せを表 3.1-7 に示した。XCE 形分光器は、波長分解能が高いが計数率が低く、一方 H 形分光器は計数率が高いが分解能は低いという特徴を持っている。分光結晶はその種類（面間隔 d）に応じて回折できる波長範囲が異なり、さらに X 線源から分光結晶までの距離（L 値）によって回折可能な波長領域（測定可能な元素範囲）が制約される。分析に供する特性 X 線は計数率と P/B 比が大きく、かつスペクトルの半値幅が小さくて頂部が平坦であることが望ましい。しかし、天然の鉱物には多数の元素が共存しており、また共存元素の量比は鉱物種ごとに異なっている。したがって、実際のルーチン分析を構築するためには、元素ごとに測定する特性 X 線や分光器及び分光結晶を選定する必要がある。

そこで、標準鉱物 (Astimex Standards Ltd.) を用いて、目的とする測定元素の特性 X 線のスペクトル（以下、「分析線」という）を取得し、目的とする測定元素以外の特性 X 線との干渉の影響や分析線の強度を確認した。これを分光器及び分光結晶の種類を変えて行い、その結果を踏まえて分光器と分光結晶を選定した。また選定の際には、短時間測定についても考慮し、分光器と分光結晶の組み合わせを定めた。

表 3.1-7 FE-EPMA の波長分散型分光器・分光結晶・測定可能元素

CH	分光結晶	B	C	Si	Ti	Zn	Sr	Pb	Xe	Sm	Yb	Pt	Rn
CH1 H形	TAPH		■			■			■				
	LDE2H	■											
CH2 XCE形	TAP		■			■			■				
	LDE1		■										
CH3 XCE形	LiF				■	■			■				
	PET			■				■				■	
CH4 H形	LiFH				■	■			■				
	PETH			■				■				■	
CH5 H形	LiFH				■	■			■				
	PETH			■				■				■	

■ Kα, β

■ La, β

■ Ma, β, γ

(b) バックグラウンドの測定位置の選定

電子線を試料に照射すると元素特有の特性 X 線の他に連続 X 線が発生する。連続 X 線の最短波長は加速電圧によって決まる。強度は最初に急増した後、波長が長くなるほど低下するが、その減少は直線的ではなく指数関数的である。この連続 X 線はバックグラウンドとなり、特性 X 線はバックグラウンドの上に現れる。したがって、本来の特性 X 線のピーク強度を求めるためには、特性 X 線のピーク強度からバックグラウンド強度を差し引かなければならない。そのため、バックグラウンド強度を計測する測定位置をピークの両側で選定する必要がある。通常、バックグラウンドの測定位置は、分析線のピーク位置に近いほうが望ましい。特に JEOL のプログラムではバックグラウンドを直線近似で計算しているので、大きなオフセットをとるとバックグラウンドを過大に見積もることになる。しかし、鉱物試料のように多元素が共存する試料では、分析線付近にさまざまな元素の特性 X 線が検出されることから、バックグラウンドの測定位置の選択は限られてくる。

そこで、標準鉱物 (Astimex Standards Ltd.) を用いて実際の試料に含まれる可能性がある元素のスペクトルを取得し、その上で分析線から最も近く、さらに他の特性 X 線の干渉を受けないバックグラウンドの測定位置を選定した。

(c) 分析線の選択と干渉補正

分析線は、そのエネルギーが強いほど有利であり、軽元素であれば $K\alpha$ 線、重元素であれば La 線又は、 Ma 線を選択するのが一般的である。しかし、前項で述べたバックグラウンドを測定する位置の確保や共存元素の特性 X 線の干渉を避けるために $L\beta$ 線や $M\beta$ 線を使用することもある。そこで、標準鉱物 (Astimex Standards Ltd.) を用いて分析線のピーク強度と実際の試料に含まれることが予想される元素のピーク強度を測定し、干渉の影響が少なくバックグラウンドの測定位置を確保することが可能な分析線を選択した。また、共存元素が干渉する分析線を用いなければならない場合は、干渉量より干渉補正係数を求め、それを装置に入力することにより、干渉補正を行うようにした。主要な造岩鉱物のルーチン分析で顕在化するのは $BaLa$ に対する $TiK\beta$ 、 $VK\alpha$ に対する $TiK\beta$ 、 $CrK\alpha$ に対する $VK\beta$ 、 $MnK\alpha$ に対する $CrK\beta$ の干渉である。

② 主要造岩鉱物の定量分析

試料の基礎データとして、主要造岩鉱物の組成を把握しておく必要がある。そこで、今回設定した表 3.1-8 の測定条件で Na、Mg、F、Si、Al、Fe、Mn、Ni、K、Ca、P、Cl、S、Ti、Ba、Cr、V の標準試料を測定し、各元素の分析線のピーク強度の把握と登録を行った。今後は実試料の測定を行い、その結果を踏まえて、標準試料の見直し、補正計算の導入などを行い測定精度の向上を図っていく。

表 3.1-8 設定した各元素の測定条件

元素	分光器	分光結晶	X線名	ピーク位置(mm)/ 測定時間(s)	BG位置(mm)/測定時間(s) 低角	高角	干渉補正
F	CH1(H形)	TAPH	K α	199.276/30	5.0/15	3.0/15	—
Na	CH1(H形)	TAPH	K α	129.542/30	6.0/15	4.0/15	—
Mg	CH1(H形)	TAPH	K α	107.538/30	7.0/15	5.0/15	—
Al	CH2(XCE形)	TAP	K α	90.650/30	6.0/15	4.0/15	—
Si	CH2(XCE形)	TAP	K α	77.357/30	6.5/15	5.5/15	—
P	CH4(H形)	PETH	K α	197.200/30	7.5/15	5.0/15	—
S	CH4(H形)	PETH	K α	172.030/30	5.0/15	2.0/15	—
Cl	CH4(H形)	PETH	K α	151.451/30	2.0/15	2.0/15	—
K	CH4(H形)	PETH	K α	119.786/30	3.0/15	2.4/15	—
Ca	CH4(H形)	PETH	K α	107.489/30	3.0/15	6.0/15	—
Ti	CH5(H形)	LIFH	K α	191.340/30	3.0/15	3.0/15	—
V	CH5(H形)	LIFH	K α	174.350/30	4.0/15	5.5/15	Tiの干渉補正
Cr	CH5(H形)	LIFH	K α	159.456/30	4.0/15	4.0/15	Vの干渉補正
Mn	CH3(XCE形)	LIF	K α	146.201/30	5.0/15	4.0/15	—
Fe	CH3(XCE形)	LIF	K α	134.665/30	5.0/15	4.0/15	—
Ni	CH3(XCE形)	LIF	K α	115.307/30	5.0/15	4.0/15	—
Ba	CH5(H形)	LIFH	L α	193.199/30	3.0/15	3.0/15	Tiの干渉補正

③ 微量元素分析

ジルコンは、ほぼ全ての火成岩や変成岩に普遍的に存在する副成分鉱物である。ジルコンは変質や風化に対して頑強であるので、堆積岩のなかで後背地の情報を保持している代表的な鉱物である。ジルコンはハフノン、コフィナイト、トーライト、ゼノタイムを%オーダーで固溶し、その割合が火成岩体ごとに異なること、ゼノタイム成分のYを置換して入る重いREEがマグマのREEパターンを保持していること、UやThの壊変で生じた鉛が生成年代を記録していることなど含有する情報量が極めて多い。したがって、ジルコンの化学組成分析によって原岩の推定が可能となると考えられる（例えば、Hoskin and Ireland, 2000⁵⁶⁾）。

ジルコンを構成する元素（Zr、Y、Th、Pb、U、Hf、P）は岩石全体から見ればppmオーダーの微量元素であるが、ジルコンの結晶のなかでは%オーダーの主要成分である。Yを置換して入る重いREEでも100-1000ppm存在する。ジルコンの定量分析とCHIME年代測定(Suzuki and Adachi, 1991¹⁹⁾)のために、上記の元素とLu、Yb、Er、Dy、Gd、Smの分析で使用する特性X線や分光器及び分光結晶を選定した。軽いREEやオドハーキンス則で存在量の少ない重REEは、EPMAでの検出が困難と考えて今回の検討対象からは除外した。

(a) ジルコンの定量分析

後背地解析に利用できる鉱物として、風化に強く、普遍的に存在し、さらに含有する情報量を多く有するジルコンに着目し、表 3.1-9の通り測定条件を設定した。設定した測定条件で標準試料(Astimex Standards Ltd.)を測定し、各元素の分析線のピーク強度の登録を行った。なお、硫黄、カリウム、カルシウムはジルコンには殆ど存在しない元素であり、これらの元素はジルコンが他の鉱物に影響を受けていないかを確認するためのチェック元素となる。主要造岩鉱物と同様に今後は、実試料の測定を行い、その結果を踏まえて、標準試料の見直しや補正計算の導入な

どを行い測定精度の向上を図ることで、組成変化、REE パターン及び年代測定から後背地解析に寄与できると考えられる。

表 3.1-9 ジルコンの定量分析のための設定した測定条件

元素	CH(分光器)	分光結晶	X線名	ピーク位置(mm)/ 測定時間(s)	BG位置(mm)/ 低角	BG位置(mm)/測定時間(s) 高角	干渉補正
Si	CH2(XCE形)	TAP	K α	77.373/40	5.0/20	6.0/20	—
P	CH5(H形)	PETH	K α	197.237/40	8.0/20	5.0/20	—
S	CH5(H形)	PETH	K α	172.104/40	6.0/20	1.5/20	Zrの干渉補正
K	CH3(XCE形)	PET	K α	119.873/40	3.5/20	1.0/20	Uの干渉補正
Ca	CH4(H形)	PETH	K α	107.525/40	3.0/20	3.0/20	—
Y	CH4(H形)	PETH	L α	206.643/40	3.5/20	1.2/20	—
Zr	CH3(XCE形)	PET	L α	194.505/40	5.0/20	8.0/20	—
Hf	CH2(XCE形)	TAP	M α	81.882/100	1.2/50	1.6/50	—
Pb	CH4(H形)	PETH	M β	162.532/300	1.5/150	1.0/150	Uの干渉補正
Sm	CH3(XCE形)	LIF	L α	152.992/80	1.0/40	1.0/40	—
Gd	CH5(H形)	LIFH	L α	142.571/80	1.5/40	1.5/40	—
Dy	CH5(H形)	LIFH	L α	133.063/60	1.0/30	1.5/30	—
Er	CH3(XCE形)	LIF	L α	124.125/80	1.0/40	1.5/40	—
Yb	CH3(XCE形)	LIF	L α	116.299/60	1.0/30	1.6/30	Dyの干渉補正
Lu	CH5(H形)	LIFH	L α	112.824/80	0.8/40	0.8/40	Dyの干渉補正
Th	CH5(H形)	PETH	M α	132.590/100	2.0/50	2.0/50	—
U	CH3(XCE形)	PET	M α	118.984/100	2.5/50	1.8/50	Thの干渉補正

(b) ジルコンの元素分布

堆積物から分離したジルコンについて、元素マッピングを行った結果を図 3.1-21 に示す。ジルコンの主要元素は、ジルコニウムと珪素であるが、他の元素も認められる。この特徴も供給源の岩石と比較する際に有効と考えられる。また、ジルコンの形成年代や形成過程の解明においても、元素分布は重要な情報である。

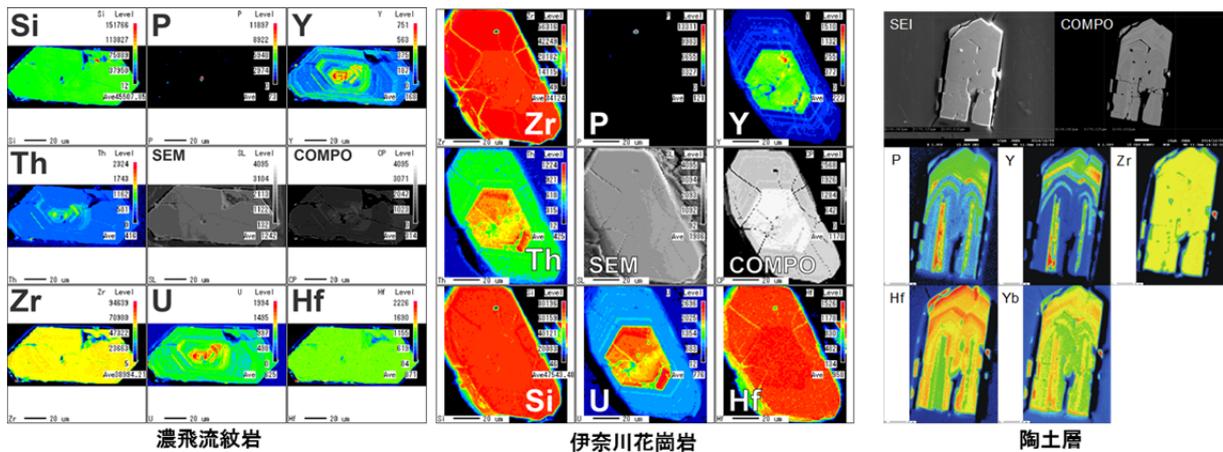


図 3.1-21 ジルコンの元素マッピング
暖色系は濃度が高く、寒色系は濃度が低い。

④ 二次電子像による微細構造の観察

電解放出形 FE 銃を搭載した FE-EPMA は、従来の熱電子放出形電子銃と比較するとプローブ径を 1/2 から 1/10 に絞ることができる。また、それに伴い真空系の精度も向上していることから、高分解能の SEM 観察が可能である（図 3.1-22）。石英粒子の表面の微細な特徴は、供給源の推定の指標になりうる可能性があることから、後背地解析手法としてこの微細構造を観察する技術の適用が有効と考えられる。

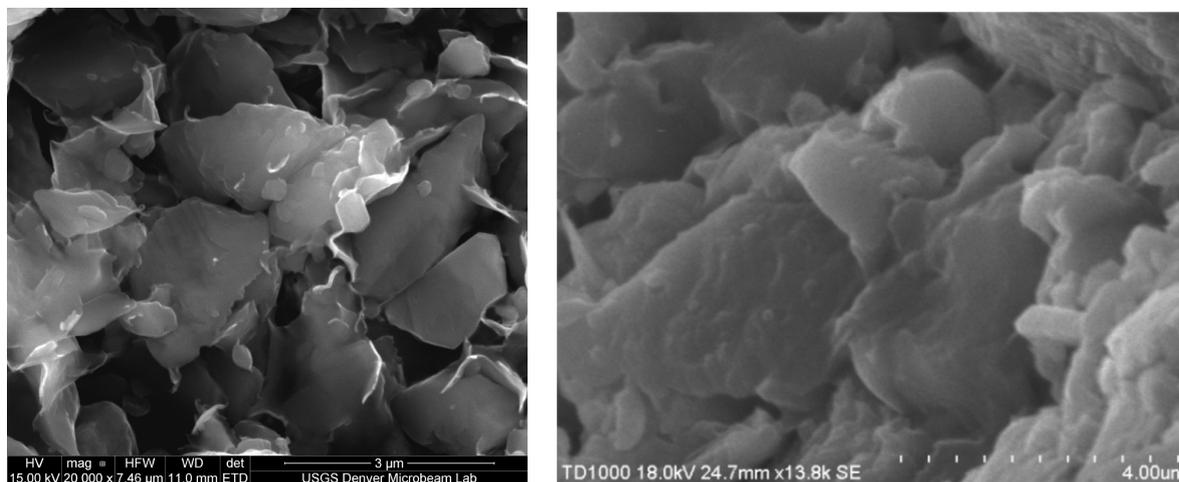


図 3.1-22 粘土鉱物の二次電子像

FE-EPMA による二次電子像（左）、従来の SEM による二次電子像（右）。

⑤ 微小領域鉱物の分析技術

後背地解析技術において重要な岩石分類や火山灰対比を高精度に行うための EPMA 分析技術について、鉱物の微小領域の分析に着目し、最新の知見を踏まえて正確な化学組成を得る測定技術を検討するとともに、得られた成果を長期間にわたり再検証可能にする技術的要件を検討した。特に、現状の分析技術の問題点を分析し、今後解決しなければならない課題を明確にした。

EPMA 定量分析では、用いるモデルやパラメータが分析値の正確さに大きく影響する。メーカーやモデルのみならず、現行モデルにおいても機器の設定などが影響することが明らかとなった。測定機関や測定時期、場合によってはオペレーターなどにより分析値の信頼性が変化しうるため、将来の再検証のため長期にわたる試料及び分析データの保存方法を今後確立させていかなければならない。その際、「もの」としての試料と分析データのリンクが失われないシステムを開発する必要がある。

また、微小領域の化学組成に加えて年代測定も後背地解析において有用な手段であるが、ジルコンのサブグレイン年代測定では鉛の移動について考慮しなければならず、過去の年代測定の信頼性や、正確な年代を得る手法の開発が必要であることが判明した。

2) OSL/TL 装置

密封 β 線源（ストロンチウム 90）の導入については、平成 26 年 8 月に許可使用に係る変更許可を取得した。同年 11 月に放射線管理区域を設定し、許認可申請書に合致するよう TL/OSL 装置の周囲に鉛遮蔽体を設置した（図 3.1-23）。また、同月に線源の装置への据付作業を行い、線源導入に係る作業が全て完了した。線源装備後の装置動作は良好であり、自動で蓄積線量の測定が可能になった。同装置で測定した OSL 信号の例を図 3.1-24 に示す。

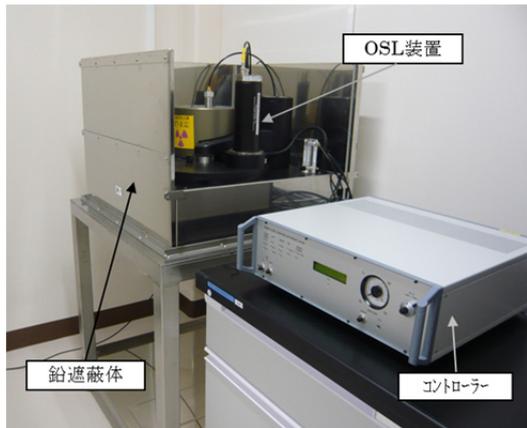


図 3.1-23 OSL 装置

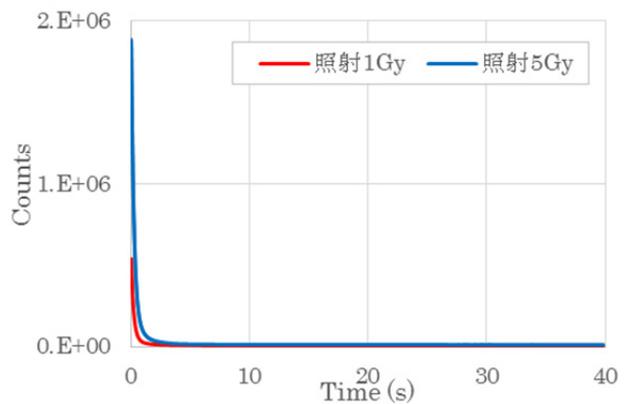


図 3.1-24 OSL 信号データの例

3) ESR 分析における試料調製法

本事業における ESR 測定では、石英を測定することから、堆積物から石英だけを抽出する必要がある。その試料調製法として、幡谷・白井 (2003)⁵⁷⁾を参考に、以下の工程で実施した。また、石英粒子抽出フローを図 3.1-25 に示す。

① 試料洗浄

試料を水道水で洗浄しながら篩い分け、粒径 75~250 μm の粒子を選別する

② 塩酸処理

試料を塩酸 (36 %) に 48 時間浸し、炭酸塩鉱物を取除く

③ 水酸化ナトリウム処理

試料を水酸化ナトリウム (20 %) に 24 時間浸し、有機物を取除く

④ 磁気選鉱

試料に磁性鉱物が多く含まれている場合には、磁気選鉱器などで磁性鉱物を取除く

⑤ 及び⑥ 重液分離

重液 (ポリタングステン酸ナトリウム溶液) を用いて、2.63 ~ 2.68 g/cm^3 の粒子を抽出する

⑦ フッ化水素酸処理

試料をフッ化水素酸 (以下、「フッ酸」という) (23 %) に浸し、混入している長石などを取除くとともに、石英粒子表面を溶かし、 α 線の影響を除去する (なお、フッ酸に浸す時間は、試料の分量により 45 分から最長 2 時間とする)

⑧ 塩酸処理

試料を塩酸 (36 %) に 45 分間浸し、フッ化物を取除く

⑨ 加熱処理

複数ある ESR 信号の内、 E_1' 中心信号については 300 $^{\circ}\text{C}$ で 15 分加熱してから測定する必要がある (豊田, 2006⁵⁸⁾)。

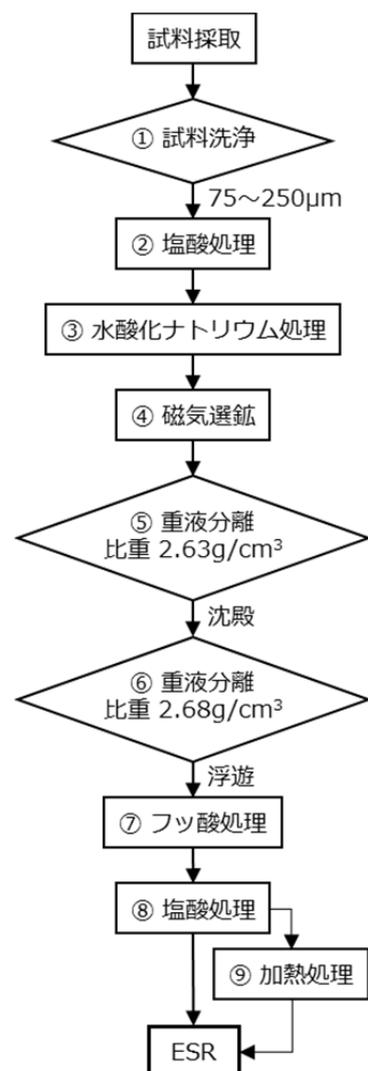


図 3.1-25 石英粒子抽出フロー

平成 26 年度は、上記方法により石英粒子を抽出し、ESR・OSL・TL 信号の測定を行った。また、遠心分離器（図 3.1-26）及び加熱装置であるマッフル炉（図 3.1-27）を整備し、効率的な重液分離と高温で加熱された試料の ESR 測定が可能となった。



図 3.1-26 重液分離で用いる遠心分離器



図 3.1-27 加熱処理用マッフル炉

4) 帯磁率異方性測定装置

帯磁率は、外部磁場をかけたときに得られる磁化の変化率であり、磁場に対する磁化のしやすさをあらわす（中井, 2004⁵⁹⁾）。砕屑物中には様々な磁性鉱物が存在し、これらの形状や配列により三次元的な帯磁率強度の分布に違いが生じる。こうした三次元的な帯磁率強度の偏りが帯磁率異方性と呼ばれる。帯磁率異方性は、長軸・中軸・短軸（ K_{max} 、 K_{int} 、 K_{min} ）の三軸からなる楕円体としてあらわすことができるため、その測定結果から、ファブリック（粒子の空間的配列）を議論することが可能となる。一般的に砕屑物試料中には多くの磁性鉱物が含まれていることから、砕屑物試料を測定して得られる帯磁率異方性は、試料中に含まれる全磁性鉱物粒子の平均的な配列方向を示すものとして解釈できる。そのため、帯磁率異方性の測定から、粒子配列を直接観察・測定することが著しく困難な細粒砕屑粒子に対してファブリック解析を行うことが可能となる（Byrne et al., 1993⁶⁰⁾）。例えば、海底コア中の細粒堆積物からはタービタイトの流下方向（例えば、Taira, 1989⁶¹⁾; 川村ほか, 2002⁶²⁾）が、凝灰質堆積物からは火砕流の流下方向（例えば、金丸ほか, 2008⁶³⁾）が復元されている。

後背地解析では、堆積物中の砕屑物から、その供給源や運搬経路の時間的・空間的変遷について検討する。こうした検討を行うにあたって必要な情報の一つが、砕屑物の流下方向（古流向）である。砕屑物の古流向の復元については、露頭で確認された礫のファブリックや古水理環境を示す特徴的な堆積構造（インプリケーション、カレントリップル、クロスラミナなど）を対象に、野外で直接観察・測定する手法がある（公文・立石編, 1998⁶⁴⁾）。この手法は古典的かつシンプルな古流向の復元手法ではあるが、適用限界がある。例えば、後背地解析において対象となる中期更新世以前の砂礫層は、クサリ礫から構成されることが多く、その場合、礫のファブリック計測が著しく困難になる。さらに、古水理環境を示す堆積構造は、砂礫層や細粒層において確認されない場合もある。しかし、こうした場合においても、細粒層が存在さえすれば、帯磁率異方性の測定から定量的に古流向を復元することが可能となる。そこで、本事業では、後背地解析技術の開発のため、肉眼では古流向を示す堆積構造が不明瞭な細粒層を対象に帯磁率異方性の測定を行い、その結果から古流向を検討する。そのため、平成 26 年度は帯磁率異方性測定装置を整備し、分析対象となる細粒堆積物を採取した。整備した帯磁率異方性測定装置は、Agico 社の MFK1-FA である（図 3.1-28、表 3.1-10）。本装置を用いて、同じ地点から採取した堆積物のキューブ試料をテスト測定した結果、ほぼ同じ値を示すことを確認した（図 3.1-29）。

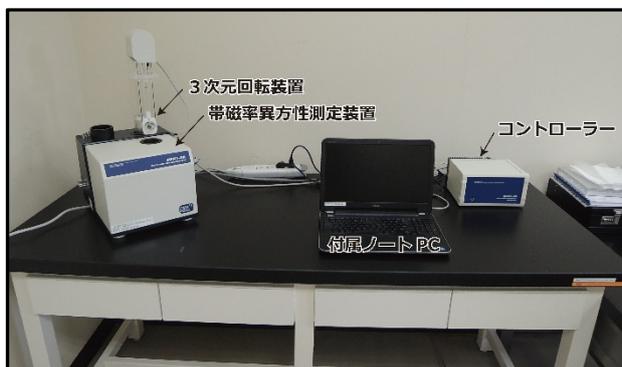


図 3.1-28 整備した帯磁率異方性測定装置

表 3.1-10 帯磁率異方性測定装置の
主な仕様

帯磁率異方性測定装置	
機種	MFK1-FA (AGICO社)
動作周波数	976 Hz, 3904 Hz, 15616 Hz
感度	2×10^{-8} SI
測定レンジの精度	±0.1%
キャリブレーションの誤差	±3%
最大試料寸法	円筒形は、直径25.4 mm x 長さ22.0 mm
	立方体は、20 mm四方
特徴	3次元回転装置
	3つの異なる周波数での測定が可能
	自動測定

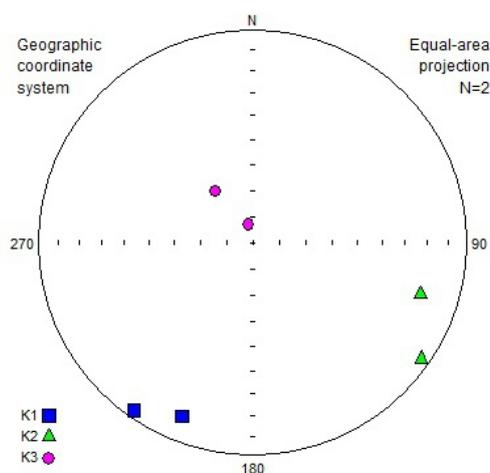


図 3.1-29 堆積物のキューブ試料のテスト測定結果
青四角が最大、緑三角が中間、赤丸が最小を示す。

3.1.4 まとめ

本事業では、信頼性の高い地質環境長期変動モデルの開発、特に地形・地質モデルの構築に反映させるため、山地・丘陵の隆起開始時期と形成過程の推定や古地形の復元に係る精度や分解能を向上させる後背地解析手法の開発を進めている。平成 26 年度は、微量成分、ESR・OSL・TL 信号、U-Pb・FT 年代値を用いた碎屑物の供給源を特定する手法を構築するため、風化に強い石英やジルコンを用いた各種分析を行った。石英の ESR 信号については、基盤岩ごと及び堆積物の深度方向での信号特性の違いが認められたことから、堆積物の供給源の時間変化を把握できる可能性が高い。OSL・TL 信号については、信号特性の違いを示す試料が認められるが、ESR 信号ほど特徴的な傾向が見られていない。これらの手法については、現時点では、測定数が少ないことから、今後は測定試料を増やして適用性の確認を進める必要がある。EPMA を用いた化学組成については、平成 26 年度に装置の測定条件の検討と設定を進め、主成分分析とジルコンを対象とした微量成分分析が可能となった。今後はこれらを指標として基盤岩と堆積物中のジルコンを比較、検討する取り組みが必要である。また、CL 像もジルコンの特徴を把握する際に適用できる可能性があることがわかった。ジルコンの FT・U-Pb 年代値については、測定結果から供給源の推定を試みたが、引き続き事例の蓄積が望まれる。その際は、EPMA を用いた CHIME 年代測定も合わせて検討することでより検討の幅が広がると考えられる。積物の堆積時期の決定につ

いては、テフラ対比が有効であるが、礫層においてテフラ層の観察は困難な場合が多いことから、礫層中の砂粒から風化に強いテフラ起源の石英やジルコンを抽出して、そこに含まれるガラス包有物やジルコン年代などを用いて、多量の分析結果の統計解析などから堆積時期を検討していくことが有効と考えられる。平成 26 年度は、堆積時期の把握に有効なテフラ分析技術の検討と日本列島の鮮新世～更新世テフラカタログの整備を着手した。また、後背地解析技術の効率的な開発に必要な基礎データとして、東濃地域及びその周辺の既存資料を統合した地質ベースマップ及び地質断面図を作成した。さらに、平成 26 年度は、以上の分析に必要な各種装置 (EPMA、OSL、帯磁率異方性) 及び試料調製法 (石英抽出法) の整備とそれらを用いた新たな後背地解析手法の可能性を検討した。

なお、分析を進めるに当たり、町田 洋東京都立大学名誉教授には、北海道のテフラ試料を提供していただき、詳細な情報をご教示いただいた。河尻清和学芸委員をはじめとする相模原博物館においては、博物館所蔵テフラの利用に際し大変お世話いただいた。首都大学東京都市環境学部地理学教室においては、屈折率測定装置を使用させていただいた。愛知教育大学の星 博幸准教授には、帯磁率異方性測定に関する有益な情報と堆積物試料を提供いただいた。以上の方々に深く感謝いたします。

引用文献

- 1) 梅田浩司, 谷川晋一, 安江健一, 地殻変動の一様継続性と将来予測—地層処分の安全評価の視点から—, 地学雑誌, vol.122, 2013, pp.385-397.
- 2) 尾上博則, 笹尾英嗣, 三枝博光, 小坂 寛, 過去から現在までの長期的な地形変化が地下水流動特性に与える影響の解析的評価の試み, 日本原子力学会和文論文誌, vol.8, 2009, pp.40-53.
- 3) 草野友宏, 浅森浩一, 黒澤英樹, 國分 (齋藤) 陽子, 谷川晋一, 根木健之, 花室孝広, 安江健一, 山崎誠子, 山田国見, 石丸恒存, 梅田浩司, 「地質環境の長期安定性に関する研究」第 1 期中期計画期間 (平成 17 年度～平成 21 年度) 報告書 (H22 レポート), JAEA-Research 2010-044, 2011, 153p.
- 4) Ohmori, H., Relief structure of the Japanese mountains and their stages in geomorphic development, *Bulletin of Department of Geography, University of Tokyo*, vol.10, 1978, pp.31-85.
- 5) 日本原子力研究開発機構, 平成 25 年度 地層処分技術調査等事業 地質環境長期安定性評価 確証技術開発 報告書, 2014, 198p.
http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2013/25-3-1.pdf (2015.1.24)
- 6) 貝塚爽平, 発達史地形学, 東京大学出版会, 1998, 286p.
- 7) 陶土団体研究グループ, 岐阜県恵那市周辺の瀬戸層群, 地球科学, vol.48, 1994a, pp.1-15.
- 8) 陶土団体研究グループ, 断層境界を伴う多数の基盤ブロックからなる内陸盆地—岐阜県多治見市周辺の東海層群堆積盆地の例—, 地球科学, vol.53, 1999, pp.291-306.
- 9) 木曾敏行, 恵那盆地の地形発達, 地理学評論, vol.32, 1959, pp.365-373.
- 10) 木曾敏行, 木曾川流域の地形発達, 地理学評論, vol.36, 1963, pp.87-109.
- 11) 桑原 徹, 木曾川中流域の第四系—瀬戸内区の内陸盆地の発達過程, 恵那盆地を例にとって—, 第四紀, vol.19, 1973, pp.28-39.
- 12) 陶土団体研究グループ, 東海湖の東縁部における陥没盆地—岐阜県中津川市付近の瀬戸層群—, 地団研専報, vol.29, 1985, pp.101-117.
- 13) 森山昭雄, 中部山岳地域における山地形成の時代性—山はいつから高くなったか?, 米倉伸之, 岡田篤正, 森山昭雄編「変動地形とテクトニクス」, 古今書院, 1990, pp.87-109.
- 14) 陶土団体研究グループ, 上部新生界第二瀬戸内累層群における堆積盆地のブロック運動—岐

- 岐阜県恵那盆地の例ー, 地球科学, vol.48, 1994b, pp.17-29.
- 15) 岐阜県地学調査会, Web 版岐阜県地質図「ジオランドぎふ」, 2004, <http://www.geo-gifu.org/geoland/> (2015.3.3).
 - 16) 山田直利, 小井土由光, 原山 智, 棚瀬充史, 鹿野勘次, 田辺元祥, 曾根原崇文, 濃飛流紋岩地質図 縮尺 15 万分の 1, 地団研専報告, vol.53, 2005 (付図).
 - 17) 活断層研究会編, 新編日本の活断層ー分布図と資料ー, 東京大学出版会, 1991, 437p.
 - 18) Suzuki, K., Adachi, M., and Yamamoto, K., Possible effects of grain-boundary REE on the REE distribution in felsic melts derived by partial melting, *Geochemical Journal*, vol.24, 1990, pp.57-74.
 - 19) Suzuki, K., and Adachi, M., The chemical Th-U-total Pb isochron ages of zircon and monazite from the Gray Granite of the Hida terrane, Japan. *The Journal of Earth Science, Nagoya University*, vol.38, 1991, pp.11-37.
 - 20) Shimada, A., Takada, M. and Toyoda, S., Characteristics of ESR signals and TLCIs of quartz included in various source rocks and sediments in Japan: a clue to sediment provenance, *Geochronometria*, vol.40, 2013, pp.334-340.
 - 21) Bøtter-Jensen, L., Thomsen, K.J., and Jain, M., Review of optically stimulated luminescence (OSL) instrumental developments for retrospective dosimetry, *Radiation Measurements*, vol.45, 2010, pp.253-257.
 - 22) Yacobi, B.G. and Holt, D.B., Cathodoluminescence scanning electron microscopy of semiconductors, *Journal of Applied Physics*, vol.59, 1986, R1.
 - 23) Nasdala, L., Lengauer, C. L., Hanchar, J. M., Kronz, A., Wirth, R., Blanc, P., Kennedy, A. K. and Seydoux-Guillaume, A., Annealing radiation damage and the recovery of cathodoluminescence, *Chemical Geology*, vol.191, 2002, pp.121-140.
 - 24) 塚本 斉, ルミネッセンス顕微鏡・分光分析を利用した岩石・鉱物の研究, 地質ニュース, vol.474, 1994, pp.46-56.
 - 25) 野原 壯, 梅田浩司, 笹尾英嗣, 花室孝広, 齋藤龍郎, 安江健一, 丹羽正和, 眞島英壽, 島田耕史, 山田国見, ニノ宮 淳, 根木健之, 田力正好, 鎌滝孝信, 草野友宏, 中司 昇, 地質環境の長期安定性に関する研究 年度報告書 (平成 18 年度), JAEA-Research 2008-062, 2008, 61p.
 - 26) 佐々木俊法, 須貝俊彦, 柳田 誠, 守田益宗, 古澤 明, 藤原 治, 守屋俊文, 中川 毅, 宮城豊彦, 濃地方内陸小盆地埋積物の分析による過去 30 万年間の古気候変動, 第四紀研究, vol.45, 2006, 275-286.
 - 27) Speer, J. A., Zircon, *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, vol.5.1, 1980, pp.67-112.
 - 28) Johan, Z. and V. Johan., Accessory minerals of the Cínovec (Zinnwald) granite cupola, Czech Republic: indicators of petrogenetic evolution, *Mineralogy and Petrology*, vol.83.1-2, 2005, pp.113-150.
 - 29) 郷津知太郎, $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代測定の紹介と最近の応用例, 地質技術, 創刊準備号 (蒜山地質年代学研究所創立 10 周年記念特集), 2006, pp.35-41.
 - 30) 安藤善之, 塚腰 実, 中山勝博, 鹿野勘次, 安井謙介, 實吉玄貴, 館野満美子, 中新統土岐口陶土層から産出したオオミツバマツ球果化石の密集層とその保存処理過程, 岐阜県博調査研報, no.20, 1999, pp.17-22.
 - 31) 吉田史郎, 中山勝博, 壇原 徹, 陶土団体研究グループ, 東海層群矢田川累層・土岐砂礫層のフィッシュン・トラック年代, 地質学会第 104 年学術大会講演要旨, 1997a, pp.550.
 - 32) 吉田史郎, 牧野内 猛, 壇原 徹, 知多半島中南部, 東海層群下部のフィッシュン・トラック年代, 地調月報, vol.48, 1997b, pp.497-510.
 - 33) 古澤 明, 安江健一, 中村千怜, 梅田浩司, 根ノ上高原に分布する土岐砂礫層のテフラ層序ー石英中のガラス包有物の主成分化学組成を用いた広域テフラの対比ー, 応用地質, vol.54, 2013, pp.25-38.
 - 34) 富田裕子, 黒川勝己, 中央日本における 2.7Ma 頃の広域火山灰層; 土生滝 I (大阪層群)-MT2 (氷見層群)-Arg-2 (西山層) 火山灰層の対比, 地質学雑誌, vol.105, 1999, pp.64-71.

- 35) 古澤 明, 安江健一, 中村千怜, 梅田浩司, 根ノ上高原に分布する土岐砂礫層のテフラ層序ー石英中のガラス包有物の主成分化学組成を用いた広域テフラの対比ー, 応用地質, vol.54, 2013, pp.25-38.
- 36) 森山昭雄, 丹羽正則, 土岐面・藤岡面の対比と土岐面形成に関する諸問題, 地理学評論, vol.58, 1985, pp.275-294.
- 37) 森山昭雄, 木曾川・矢作川流域の地形と地殻変動, 地理学評論, vol.60, 1987, pp.67-92.
- 38) 産業技術総合研究所 地質調査総合センター編, 20 万分の 1 日本シームレス地質図データベース 2007 年 5 月 12 日版, 産業技術総合研究所研究情報公開データベース, 2007, DB084.
- 39) 町田 洋, 新井房夫, 広域に分布する火山灰ー始良 Tn 火山灰の発見とその意義, 科学, vol.46, 1976, pp.339-347.
- 40) 町田 洋, 新井房夫, 南九州鬼界カルデラから噴出した広域テフラーアカホヤ火山灰, 第四紀研究, vol.17, 1987, pp.143-163.
- 41) 吉川清志, ICP 発光分析を用いたテフラの同定法とその応用, 地学雑誌, vol.99, 1990, pp.743-758.
- 42) 吉川清志, 水野清秀, 杉山雄一, 関東〜九州における前〜中期更新世テフラの広域対比, 月刊地球, vol.13, 1991, 228-234.
- 43) 水野清秀, 火山灰対比に基づく近畿〜東海地域の堆積盆の形成史, 日本地質学会第 107 年学術大会講演要旨, 2000, p.77.
- 44) 田村糸子, 山崎晴雄, 北陸層群のテフロクロノロジーーテフラ層序および広域テフラ層との対比に基づく北陸層群の堆積年代ー, 地質学雑誌, vol.110, 2004, pp.417-436.
- 45) 田村糸子, 山崎晴雄, 水野清秀, 前期鮮新世 4.1Ma 頃の広域テフラ, 坂井火山灰層とその相当層, 地質学雑誌, vol.111, 2005, pp.727-736.
- 46) Tamura, I., Yamazaki, and H., Mizuno, K., Characteristics for the recognition of Pliocene and early Pleistocene marker tephras in central Japan, *Quaternary International*, vol.178, 2008, pp.85-99.
- 47) Tamura, I., Yamazaki, H., Significance of the remarkable unconformity in the Plio-Pleistocene of the Japanese Islands, *Quaternary International*, vol.219, 2010, pp.45-54.
- 48) 池田保夫, 向山 栄, 北海道, 富良野ー旭川地域の火砕流堆積物の層序と対比, 地質学雑誌, vol.89, 1983, pp.163-172.
- 49) 村岡洋文, 八甲田地熱地域の熱源系, 日本の熱資源評価に関する研究, 地質調査所報告, vol.275, 1991, pp.113-134.
- 50) 相模原市立博物館, テフラ標本目録 町田 洋 コレクション, 相模原市立博物館資料目録 4, 2003, 81p.
- 51) 町田 洋, 新井房夫, 新編 火山灰アトラス [日本列島とその周辺], 東京大学出版会, 2003, 336p.
- 52) 壇原 徹, RIMS による屈折率測定とその応用, 月刊地球, vol.13, 1991, pp.193-200.
- 53) 橋本 亘, 菅野三郎, 大島一清, 品田 穰, 北海道渡島半島今金ー国縫ー八雲間の地質, 地質学雑誌, vol.69, 1963, pp.228-238.
- 54) 椿原慎一, 長谷川四郎, 丸山俊明, 西南北海道黒松内地域の上部新生界ーとくに黒松内層の層序と微化石年代についてー, 地質学雑誌, vol.95, 1989, pp.423-438.
- 55) 能條 歩, 鈴木明彦, 都郷義寛, 美利河海牛化石調査研究会, 西南北海道瀬棚層の堆積年代, 今金地域研究, vol.2, 1996, pp.15-22.
- 56) Hoskin, P. W. O., Ireland, T. R., Rare earth element chemistry of zircon and its use as a provenance indicator, *Geology*, vol.28, 2000, pp.627-630.
- 57) 幡谷竜太, 白井正明, 浅海成堆積物の OSL 年代測定, 第四紀研究, vol.42, 2003, pp.347-359.
- 58) 豊田 新, ESR 法, TL 法, OSL 法による第四紀テフラの年代測定と相互比較, 文部科学省科学研究費補助金研究成果報告書, 2006, 131p.
- 59) 中井睦美, ジオロジストのための岩石磁気学 帯磁率・古地磁気から AMS まで, 地学双書

- 34, 地学団体研究会, 2004, 178p.
- 60) Byrne, T., Bruckmann, W., Owens, W., Lallemand, S., and Maltaman, A., Structural synthesis: correlation of structural fabrics, velocity anisotropy, and magnetic susceptibility data. In: Hill, I.A., Taira, A., Firth, J.V., et al. (Eds.), Proc. ODP, Sci. Results, Ocean Drilling Program, College Station, TX, vol.131, 1993, pp.365-378.
 - 61) Taira, A., Magnetic fabrics and depositional processes, Sedimentary Facies in the Active Plate Margine, edited by A. Taira and F. Masuda, 1989, pp.43-77.
 - 62) 川村喜一郎, 池原 研, 金松敏也, 藤岡換太郎, パレスベラ海盆から採取されたタービダイトの帯磁率異方性による古流向解析, 地質学雑誌, vol.108, 2002, pp.207-218.
 - 63) 金丸龍夫, 木村一成, 田結庄良昭, 帯磁率異方性による現世凝灰室堆積物の古流向解析, 日本大学文理学部自然科学研究所研究紀要, vol.43, 2008, pp.145-154.
 - 64) 公文富士夫, 立石雅昭(編), 新版碎屑物の研究法, 地学双書 29, 地学団体研究会, 1998, 399p.

3.2 地下水涵養量推定技術

3.2.1 背景と目的

わが国において地層処分システムの長期安定性を評価するにあたっては、地質環境の急激な変化を引き起こす可能性のある断層運動や火山活動などの自然現象だけでなく、緩慢ではあるが累積的・広域的な変化を引き起こす隆起・侵食や気候・海水準変動などの現象も重要であるとされている。このうち、気候・海水準変動が地下水流動特性に及ぼす影響としては、地球規模の気候変動に伴う海面変化による動水勾配の変化、塩淡境界面の移動や地下水系の規模、地下水水質の変化が考えられる。また、気候変動に伴う降水量の変化や隆起・沈降・侵食などに伴う地形分布の変化など、地表における水文環境の変化も地下水流動に影響を与えたと考えられる。

地下水流動解析は、地下深部の地下水流動に影響を及ぼすと考えられる地形、地質・地質構造やそれらの水理特性、地下水の涵養量に代表される水文特性などを総合的に考慮することが可能である。特に、広範囲の地下水流動場や三次元的に複雑な地下水流動場を評価するうえでは、有効なツールである。処分事業において実施される調査は限られたものとなることが想定されることから、限られた調査データを活用した地下水流動解析の実施は必要不可欠であると言える。よって、地下水流動解析により長期的な気候変動や地形変化を考慮した地下水流動特性の変化を推定するためには、地下水流動系の上部境界条件となる過去の地下水涵養量について、古気候や古地形の情報から推定する技術が不可欠となる。そこで、本事業では、水収支法による地下水涵養量の推定に必要な降水量・蒸発散量・流出量の時間的・空間的变化を、古気候・古環境（特に水文環境）・古地形などの情報に基づく統計学的手法で推定するとともに、地下水涵養量を推定する技術を開発する。

平成 25 年度は、地下水涵養量の推定技術について既存の研究例などを整理した。その結果、地下水涵養量の推定については水収支法が有効であることを確認した。また、水収支法による推定に必要な降水量と蒸発散量については、推定結果の幅を狭めるための検討が必要であるものの、気温との相関関係から推定可能であるとの見通しを得ることができた。一方、河川流出量に関しては、過去の気候を復元することによって降水量を推定することで、河川流出量と降水量との関連性から、気候変動を考慮した河川流出量を推定できる可能性があるものの、地形変化に伴う影響を考慮した推定手法に課題があることが明らかとなった。この課題の解決方法の一つとして地形特徴に着目した河川流出量の推定方法を適用し、過去の環境と現在の環境の類似性から河川流出量を推定する考え方を提示した。

平成 26 年度は、河川流出量の推定技術について、平成 25 年度提案した河川流出量の推定の考え方にに基づき、地形特徴に着目した河川流出量の推定方法の適用性について検討する。なお、本技術開発について平成 25 年度は「地下水涵養量予測技術」として既存情報の整理と技術開発の検討を行ったが、主に古気候や古地形の情報から地下水涵養量について推定する技術であることから、平成 26 年度は「地下水涵養量推定技術」として技術開発を進めた。

3.2.2 アプローチ

(1) 地形特徴に着目した河川流出量の推定の概要

数十万年から百万年以上に及ぶ時間スケールでは、気候変動に伴う降水量の変化のみならず、地形変化に起因する河川形状や表面流出特性の変化も考慮する必要がある。降水量の変化に伴う河川流出量の変化については、現在における両者の関係（例えば、降水量に対する河川流出量の割合）を用いて考慮できる可能性がある。しかしながら、地形変化が生じた場合、河床勾配や河川流出特性が異なるため、現在の関係性が成立しないと考えられる。したがって、地形変化に伴う河川形状や河川流出特性の変化を考慮した推定方法の確立が課題となる。

景山ほか (2010)¹⁾は、現在の河川流域を対象として、地形特徴量を基にした未観測流域の河川流量推定手法を提案している。この方法は、地形標高モデル (Digital Elevation Model、以下「DEM」という) を用いた地形解析と統計量解析により対象河川流域内の小流域毎に河川流出量に関する指標 (流出指標) を算定し、限られた河川流量観測データと流出指標の関係から、未観測流域の河川流出量を推定するものである。したがって、地形復元により得られる過去の河川流域を未観測流域として景山ほか (2010)¹⁾の手法を適用し、現在の河川流域と過去の河川流域との間で共通の流出指標を算定することができれば、地形特徴を考慮した過去の河川流出量を推定できる可能性がある。さらに、河川流量に関する指標と河川流量と降水量との関係性を表す指標との関係を整理することで、気候変動に伴う降水量の変化も考慮できる可能性がある。本事業における過去の河川流量推定の考え方は次の①～⑨となり、図 3.2-1 にそれらの関係を表す。

- ① 過去の復元地形と現在の地形を対象に流域分割を実施
- ② 分割された小流域を母集団として地形計測を実施
- ③ 地形計測結果に基づく主成分分析、クラスター分析を実施
- ④ クラスター分析結果から過去の地形と類似する現在の小流域を抽出
- ⑤ 抽出された現在の小流域において河川流出量、降水量の測定データを整理
- ⑥ 主成分分析結果から流出指標を算定
- ⑦ 過去の復元気候から、過去の降水量を推定
- ⑧ 現在の小流域での測定結果から、河川流出量、降水量の関係を整理
- ⑨ ⑤～⑧の結果から、過去の河川流出量を推定

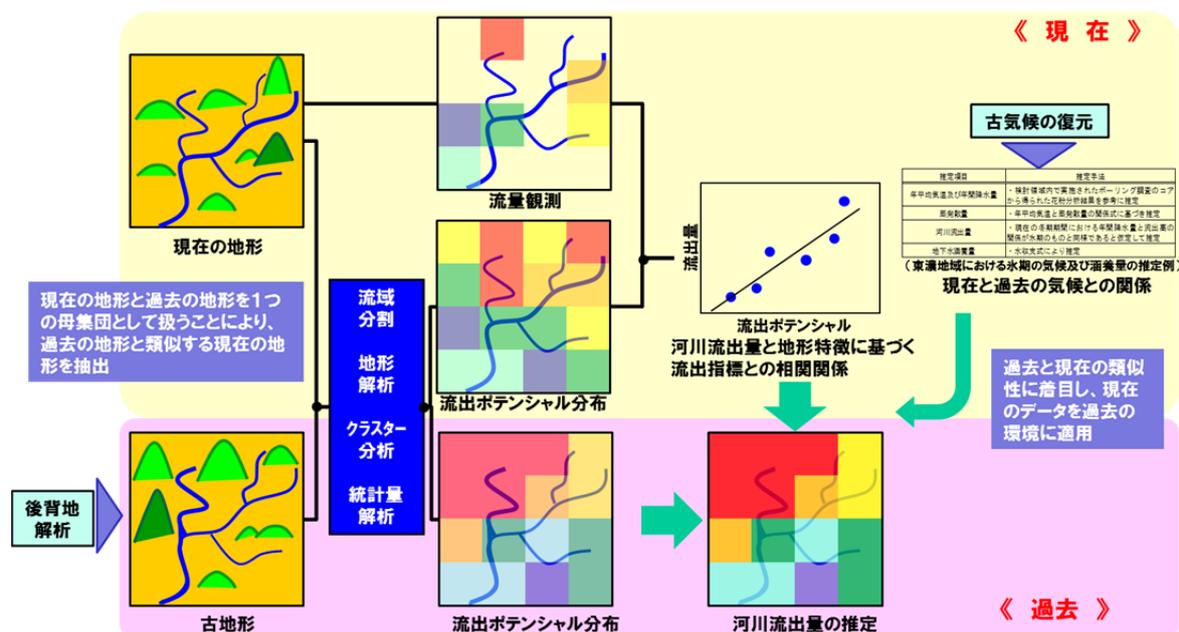


図 3.2-1 過去の河川流量推定の考え方

(2) 地形特徴に着目した河川流出量の推定手法の適用性確認

地形特徴に着目した河川流出量の推定手法の適用性を確認することを目的として、国土交通省水文水質データベースなどの公開情報から河川流量情報が入手可能な庄内川流域 (流域面積約 520 km²) を事例に河川流出量の推定を検討した。この流域の地形情報は、10 mDEM (国土交通省・基盤地図情報) とした。

また、本事業では長期的な気候変動に伴う影響を考慮する必要がある。長期的な気候変動は降

水量の変化をもたらす、降水量の変化は河川流出量の変化をもたらすと考えられる。つまり、気候変動に伴い降水量が増加すれば河川流出量も増加し、降水量が減少すれば河川流出量も減少すると考えられる。したがって、年流出量を年降水量で除した流出率を指標とした推定も試みた。

(3) 地形情報の解像度が推定結果に与える影響に関する検討

本事業で対象とする過去の河川流域は、過去の復元地形に基づき設定されるため、推定される地形情報の解像度は粗いものになると想定される。したがって、地形情報の解像度と河川流量推定結果との関係を整理し、本手法の適用限界を把握する必要がある。そこで、平成 26 年度は、解像度が異なる複数の DEM を用いて河川流量の推定を行い、地形情報の解像度が推定結果に与える影響について検討した。

本検討についても庄内川流域を事例とし、地形情報は、10 m（国土交通省・基盤地図情報）に加え、250 m、500 m、1,000 m（いずれも国土交通省・基盤地図情報 10 m より作成）の四種類の DEM とした。

3.2.3 実施結果

(1) 地形特徴に着目した河川流出量の推定手法の適用性確認

1) 流路の抽出及び流域分割

流路抽出は、対象流域内を Nogami (1995)²⁾による流路網抽出アルゴリズムを適用し、30 mDEM のメッシュに含まれる 10 mDEM の標高の最低値を 30 mDEM の標高とした。また、流域分割は Horton-Strahler 次数 (Strahler, 1952³⁾; Strahler, 1957⁴⁾) を用いて行った (日本地形学連合, 1998⁵⁾)。抽出された流路及び分割された小流域を図 3.2-2 に示す。流域分割にあたっては、竹内ほか (2010)⁶⁾において河川流量が観測されている日吉川流域が一つの小流域となるよう 8~9 次を本流とし、そこに流れ込む 4~7 次の流域を小流域として抽出した。

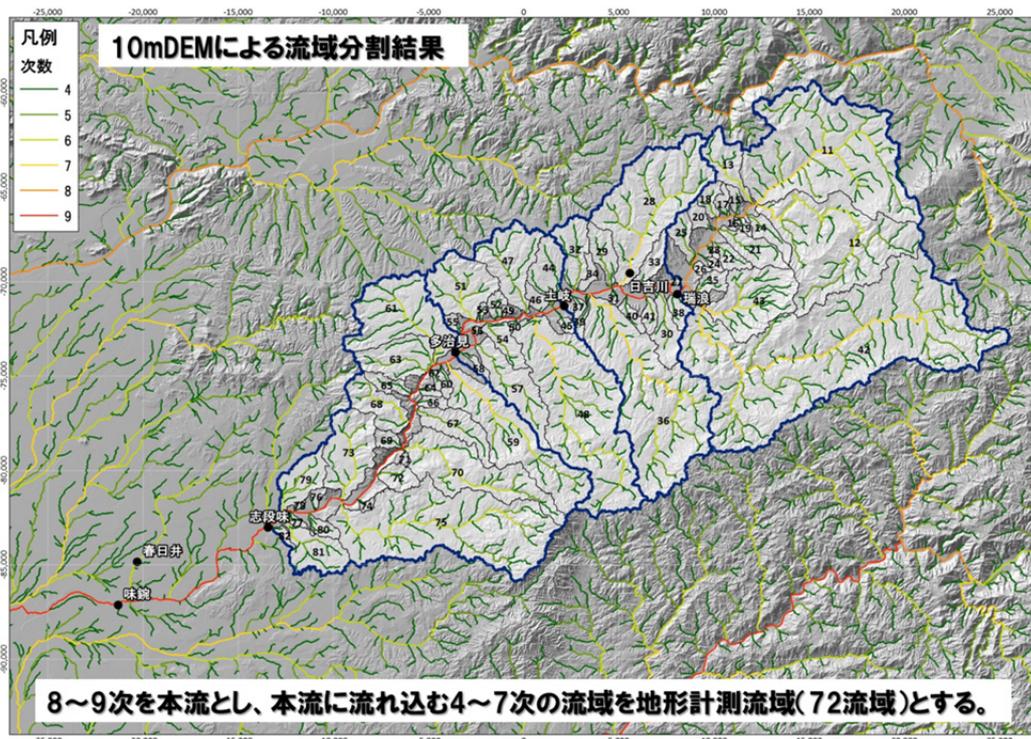


図 3.2-2 流路抽出及び流域分割結果 (10 mDEM)

2) 地形計測

流域分割により抽出された小流域毎に、DEM を用いた地形計測を実施した。計測項目は、竹内ほか (2010)⁶⁾を参考に、以下に表す項目とした。

- ・ 歪度
- ・ 尖度
- ・ 流域形状比
- ・ 流路形状比
- ・ 流路分岐比(1次/2次)
- ・ 流路分岐比(2次/3次)
- ・ 流路頻度
- ・ 地形の煩雑さ
- ・ 流域起伏数
- ・ 流域平均侵食高

3) 統計量解析結果

地形計測結果に対して統計量解析の一つである主成分分析を行い、地形計測結果の集約を行った。本事業においては主成分の解釈を容易にするため、主成分分析によって固有値及び因子負荷量を算出した後、因子負荷量に対して座標軸回転(バリマックス回転)を適用した。なお、ここでは固有値1以上の主成分を評価対象とする。以下に、DEM 毎の主成分分析結果を述べる。

主成分分析結果を表 3.2-1に表す。抽出された主成分のうち、固有値が1以上のものは第1主成分から第4主成分までである。第1主成分は地形の垂直成分を表す流路起伏数、地形の煩雑さ、流域平均侵食高の因子負荷量が高く、その他の分析変数の因子負荷量は小さい。よって、第1主成分は「地形の険しさ」を表す主成分と考えられる。第2主成分は流域の形状を表す流域形状比と、流路形状に対する最大流路長の長さを表す流路形状比の因子負荷量が高く、「流域形状と流路形態」を表す主成分と考えられる。第3主成分は歪度、尖度といった流域形状の歪みを表す分析変数の因子負荷量が大きく、「流域形状の歪み」を表す主成分、第4主成分は流路頻度、流路分岐比といった流路となる谷の発達に係る分析変数の因子負荷量が大きいため、「流路の発達や複雑さ」を表す主成分であると考えられる。

第1主成分が表す「地形の険しさ」は、主成分得点が高いほど地形が険しいため水は流域外へ流れ易くなり、主成分得点が低いほど地形が緩やかなため水は流域外に流れ難いと解釈できる。

第2主成分が表す「流域の形状と流路形態」は、流域形状比と流路形状比が逆相関の関係にあることが特徴的である。流域形状比は高い計測値から低い計測値になるに従い、流域形状は横長形状→円形→縦長形状を表し、計測値と主成分得点とは負の相関にあることから、主成分得点が高いと縦長形状、低いと横長形状となる。流路形状比は計測結果と主成分得点とが正の相関にあることから、主成分得点が高いと最大流路長が長く、主成分得点が小さくなるにつれ最大流路長が短い流域形状を表す。よって、主成分得点が高いほど流域の出口に対して縦長で最大流路長(流域内の本流長)は長くなるため水は流域外へ流れ難いと考えられ、主成分得点が低いほど流域の出口に対して横長で本流長が短くなるため水は流域外に流れ易くなると解釈できる。

表 3.2-1 地形計測項目を分析変数とした主成分分析結果（10 mDEM）

主成分	固有値	累積寄与率	分析変数 (地形計測項目)	因子負荷量			
				第1主成分	第2主成分	第3主成分	第4主成分
1	2.22	22.19	歪度	-0.09	-0.35	0.75	-0.14
2	1.96	41.78	尖度	0.11	0.23	0.78	-0.08
3	1.55	57.32	流域形状比	-0.03	-0.90	0.29	-0.02
4	1.19	69.24	流路形状比	-0.08	0.83	0.39	-0.04
5	0.94	78.64	流路頻度	-0.12	0.36	-0.21	-0.70
6	0.88	87.42	分岐比(1.2)	0.05	-0.03	-0.19	0.46
7	0.59	93.35	分岐比(2.3)	-0.03	0.28	-0.11	0.66
8	0.48	98.15	流域起伏数	0.62	-0.24	-0.16	-0.29
9	0.11	99.27	地形の煩雑さ	0.91	0.09	0.08	0.19
10	0.07	100.00	流域平均侵食高	0.95	0.04	0.07	0.14

第3主成分が表す「流域形状の歪み」は、主成分得点が高いほど流域の歪みが大きく、低いほど歪みが少ない矩形の流域形状となる。流域の歪みが大きいと流域から流れ出る流量のピークが大きく、流域の歪みが小さいと流量のピークは小さいと解釈できる。よって、第3主成分は、流域の水の流れ易さを直接表すものではなく、流域から流れ出る流量の時間変化特性（いわゆる、ハイドログラフ）に関連している主成分と考えられる。

第4主成分が表す「流路の発達や複雑さ」は、主成分得点が高いほど流路網が発達するため流路へ水が集まり易く、低いほど流路の発達が乏しく水が集まり難いと解釈できる。流域内での流路への水の集まりやすさは、流域外への流出に対して間接的な影響を与える主成分と考えられる。

4) 流出指標の推定

既往の研究によれば、勾配や比高など地形の垂直的特徴は流出量や流出形態を支配する要因の一つとされている（新井, 2004⁷⁾; 横尾・沖, 2010⁸⁾; 長岡・向井, 2010⁹⁾; 鈴木, 2000¹⁰⁾）。また、地形の水平的特徴のうち流域の形や流路の形態も河川の流出特性と関連があるとされている（新井, 2004⁷⁾; 鈴木, 2000¹⁰⁾; 金子, 1973¹¹⁾）。さらに、景山ほか (2010)¹⁾、竹内ほか (2010)⁶⁾でも「地形の陰しさ」と「流域の形状と流路形態」は河川の流出特性と強い関係にある。これらのことから、ここでは、第1主成分「地形の陰しさ」と第2主成分「流域の形状と流路形態」を用いて流出指標を算定する。

主成分分析で得られる主成分得点は、それぞれの流域が主成分（地形特徴）をどの程度有しているかを表す尺度であるが、得点の数値自体には意味がない。そこで、主成分得点をランキングし、それぞれの流域が持つ地形特徴を評価した。なお、ランキングについては、最も主成分得点の高いランクを8、最も低いランクを1とする8段階とした。第2主成分については主成分得点の低い流域ほど流れやすいため、9からランクを減算することによって得点の高い流域を低く（流れ難く）、得点の低い流域を高く（流れ易く）評価する。ランキングによる主成分得点の評価結果に基づき、流出指標は以下に示す（式 3.2.3-1）により算定した。各小流域の流出指標を図 3.2-3 に表す。

$$\text{流出指標}_{PC12} = \text{ランク}_{PC1} \times \text{重み}_{PC1} + (9 - \text{ランク}_{PC2}) \times \text{重み}_{PC2} \quad (3.2.3-1)$$

ここで、各ランクに乗ずる重みは、主成分分析より求められる各主成分の寄与率を用いて以下の式により求めた。

$$\text{重み}_{PC1} = \text{寄与率}_{PC1} \div (\text{寄与率}_{PC1} + \text{寄与率}_{PC2}) \quad (3.2.3-2)$$

$$\text{重み}_{PC2} = \text{寄与率}_{PC2} \div (\text{寄与率}_{PC1} + \text{寄与率}_{PC2}) \quad (3.2.3-3)$$

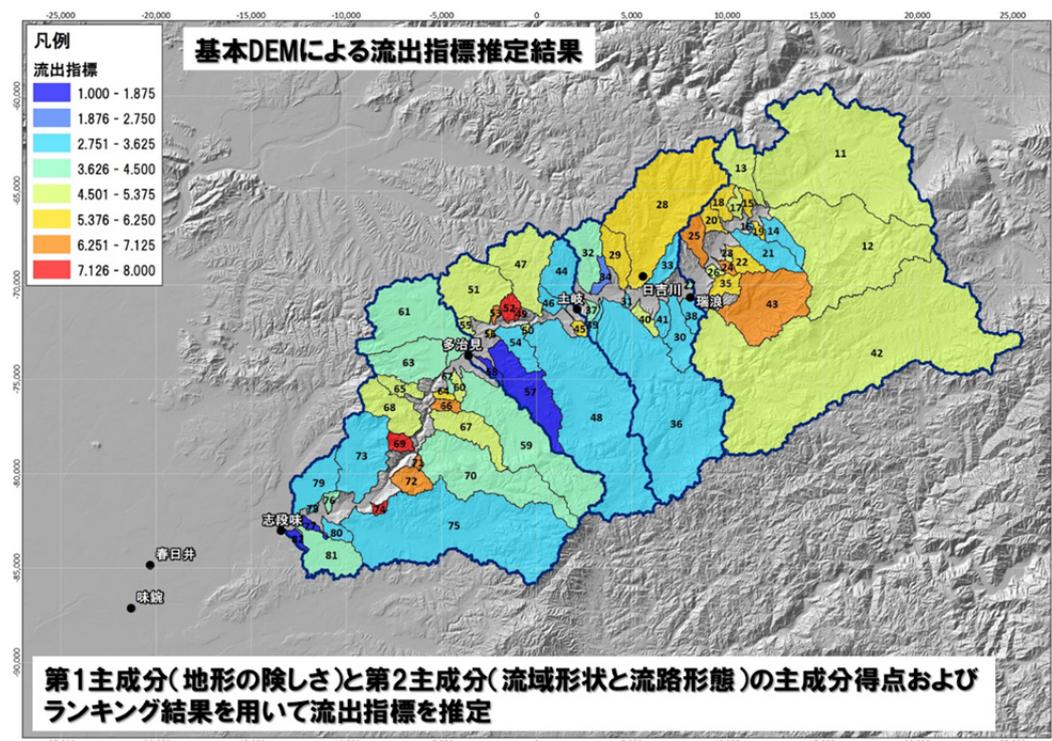


図 3.2-3 流出指標の推定結果

5) 河川流出量データの整備

本事業では、国土交通省水文水質データベースなどの公開されている河川流出量データを用いた。本事業の対象領域では、図 3.2-4 に示す庄内川本流の瑞浪、土岐、多治見、志段味（国土交通省水文水質データベース）、小流域の日吉川（竹内ほか、2010⁶⁾）で河川流出量の観測が行われている。このうち、瑞浪、土岐、多治見、志段味観測所では 2002 年から 2012 年のデータが公開されており（国土交通省水文水質データベース）、多治見観測所のみ 1976 年から 2001 年までの観測データも公開されている（雨量・流量年表データベース）。また、日吉川 2003 年から 2008 年のデータが公開されている（竹内ほか、2010⁶⁾）。本事業では、これらの公開データのうち欠測期間の少ない期間を選定し、瑞浪観測所で 5 年間（2003 年、2007 年、2010 年～2012 年）、土岐観測所及び志段味観測所で 11 年間（2002 年～2012 年）、多治見観測所で 30 年間（1981 年～2010 年）、日吉川で 4 年間（2004 年～2007 年）の河川流出量の平均値を算出し、各観測所の河川流出量とした。

景山ほか（2010）¹⁾、竹内ほか（2010）⁶⁾では、小流域毎に観測された河川流出量と流出指標との相関関係から、未観測流域の河川流出量を推定している。しかしながら、対象流域内では日吉川以外では小流域の河川流出量は観測されていない。そこで、本事業では、各観測点の流量から上流の観測点での流量を減じた区間流量及び日吉川流域の観測結果を流出量データとした。

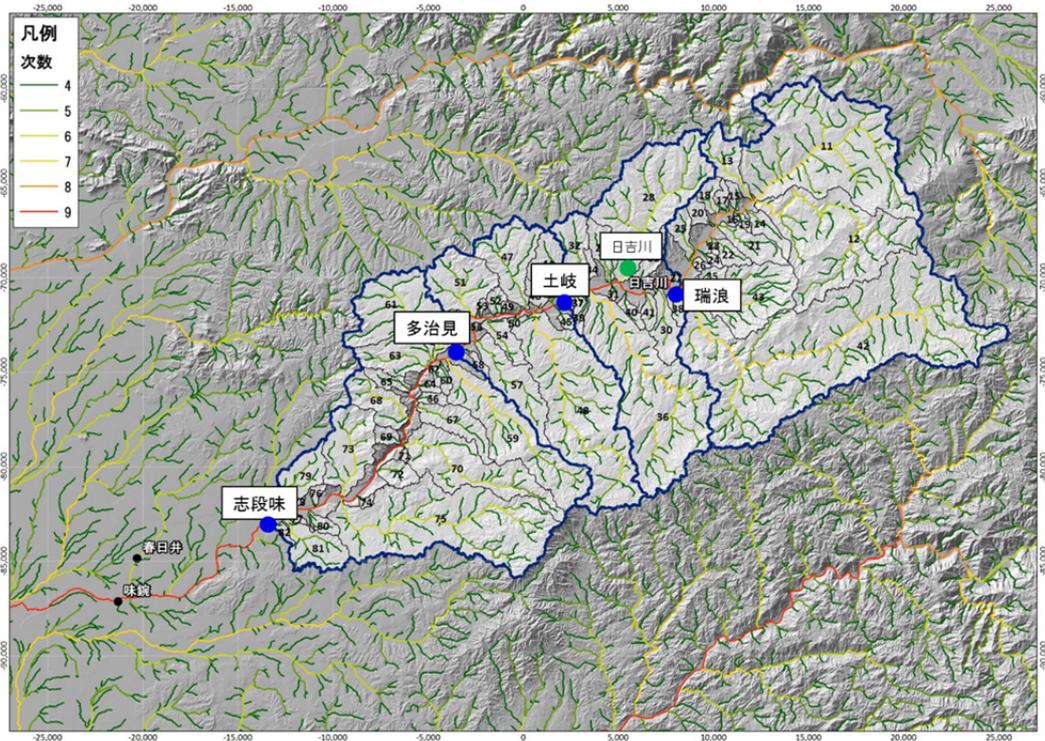


図 3.2-4 河川流量観測地点

6) 河川流出量の推定 (回帰法)

各観測区間流域の流出量データ（比流量）と各区間流域の流出指標との相関を用いて河川流出量を推定することとした。各区間流域の流出指標は、分割された小流域及び本流沿いに分布する平坦地の流出指標を用いて、小流域の面積を考慮した加重平均により算出した。ここで平坦地とは河川本流沿いに分布する地形計測の対象から外れた領域である。平坦地の流出指標は、景山ほか (2010)¹⁾、竹内ほか (2010)⁶⁾に準じて第 1 主成分のランクを 3、第 2 主成分のランクを 4.5 として、式 3.2.3-1 により算出した。表 3.2-2 に推定に用いた各区間流域の区間流出量、比流量及び流出指標を示す。また、図 3.2-5 に区間流域の比流量と流出指標との関係を示す。

表 3.2-2 区間流域の河川流出量及び流出指標

観測所	区間流量(次の上流の観測所まで)				
	流域面積	年平均流出量	年流出量	比流量	流出指標
	(km ²)	(m ³ /s)	(10 ⁶ m ³)	(m ³ /s/100 km ²)	
志段味	151	4.2	133.3	2.8	3.778
多治見	81	2.5	77.4	3.0	3.495
土岐	89	2.6	81.3	2.9	3.950
瑞浪	198	8.9	279.8	4.5	4.862
日吉川	24	1.1	33.6	4.5	5.407

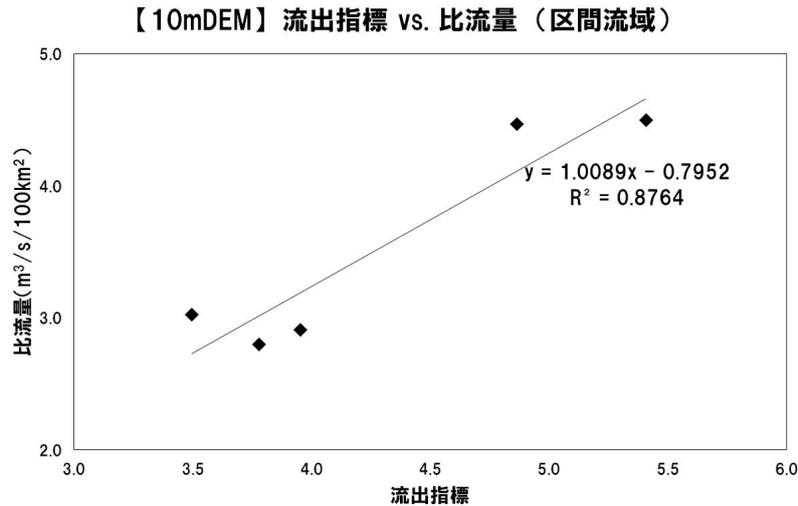


図 3.2-5 比流量と流出指標との関係

図 3.2-5 から区間流域の比流量と流出指標は高い相関が確認できる。この回帰式を用いて、図 3.2-4 の 5 地点で観測された河川流出量を推定した。ここでは、回帰式の決定に用いた各観測地点の区間流出量ではなく、各観測地点で観測された総流出量を推定の対象とした。推定結果を表 3.2-3 に示す。表 3.2-3 から、回帰式による各観測所の流出量の推定結果は、観測値に対して 91.9 - 108.0 %の範囲で再現できることが確認された。

表 3.2-3 河川流出量推定結果（回帰法）

観測所	流域面積	年流出量	推定結果	
	(km^2)	(10^6 m^3)	(10^6 m^3)	(%)
志段味	519	571.7	559.6	97.9
多治見	368	438.4	416.0	94.9
土岐	287	361.0	346.2	95.9
瑞浪	198	279.8	257.1	91.9
日吉川	24	33.6	36.3	108.0

7) 河川流出量の推定（分配法）

国土交通省水文水質データベースなどの公開情報の多くは本流での観測結果であり、観測区間数は河川により異なる。したがって、評価対象となる流域において、観測結果と流出指標との関係を整理するための十分な観測データが入手できないことも考えられる。そこで、ある地点での流出量を本手法で算定する小流域の流出指標の値に応じて分配し、河川流出量を推定した。流出指標と流域面積を指標とした分配法による河川流出量推定の例を図 3.2-6 に示す。

また、対象とする流域内での標高差が大きい場合、降水量は標高に依存して異なる。したがって、各区間流量は降水量に依存する可能性が考えられる。そこで、各区間流域の流出指標と降水量を考慮した指標に応じて流出量を分配した河川流出量の推定も行った。各区間の降水量、河川流出量、流出指標を表 3.2-4 に示す。降水量データは、気象庁が公開しているメッシュ平年値 2010 を用いた。各区間の降水量を比較すると、山間部にあたる上流域の瑞浪、日吉川の降水量は下流域に比べ多い。この傾向は既往の報告（例えば、社団法人日本河川協会編、1997¹²⁾）とも整合的

である。流出指標と降水量を指標とした分配法による河川流出量推定の例を図 3.2-7 に示す。両方法での推定対象は、6) 同様、各観測地点で観測された総流出量とした。推定結果を表 3.2-5 及び表 3.2-6 に示す。

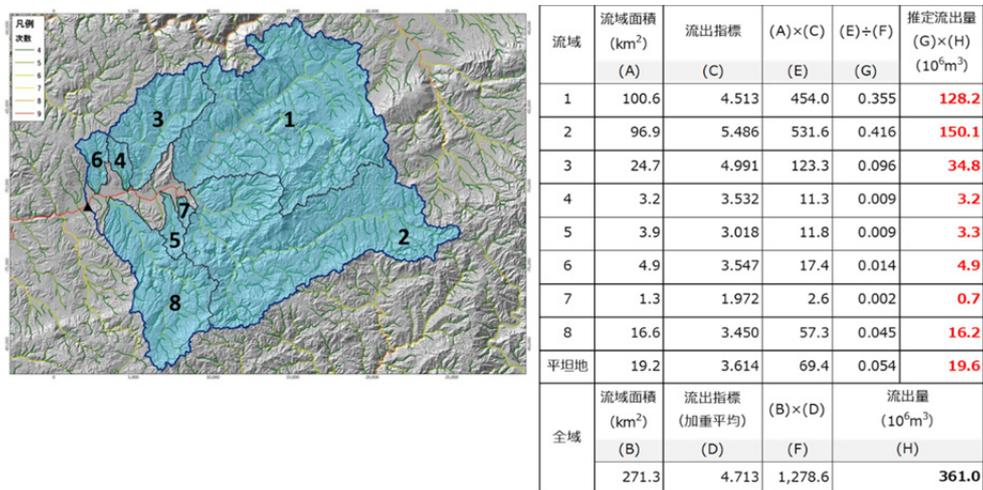


図 3.2-6 分配法（流出指標×面積）による河川流出量推定の例

表 3.2-4 各区間の降水量、流出率、流出指標

観測所	区間流量(次の上流の観測所まで)					
	流域面積	年降水量	年平均降水量	年流出量	流出率	流出指標
	(km ²)	(10 ⁶ m ³)	(mm)	(10 ⁶ m ³)		
志段味	151	251.1	1,664	133.3	0.531	3.778
多治見	81	138.4	1,706	77.4	0.559	3.495
土岐	89	155.1	1,751	81.3	0.524	3.950
瑞浪	198	349.5	1,762	279.8	0.801	4.862
日吉川	24	41.6	1,754	33.6	0.809	5.407

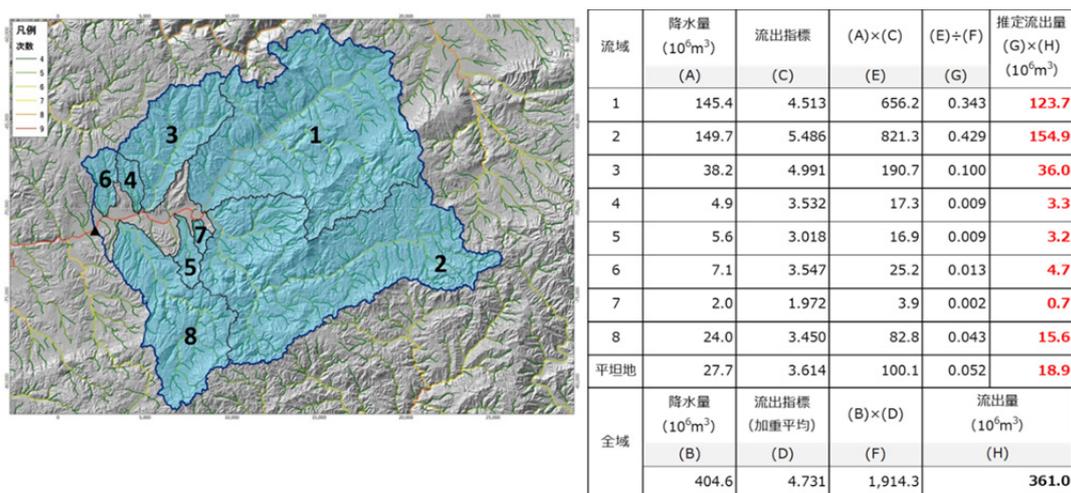


図 3.2-7 分配法（降水量×流出指標）による河川流出量推定の例

表 3.2-5、表 3.2-6 から、分配式による各観測所の流出量の推定結果は、観測値に対して流出指標×流域を分配指標とした方法で 90.9 - 104.8 %、流出指標×降水量を分配指標とした方法で 92.8 - 100.2 % の範囲で再現できることが確認された。

表 3.2-5 河川流出量推定結果（流出指標×流域面積）

観測所	流域面積	年流出量 (10^6 m^3)	推定結果	
	(km^2)		(10^6 m^3)	(%)
志段味	519	571.7	571.7	100.0
多治見	368	438.4	421.3	96.1
土岐	287	361.0	346.5	96.0
瑞浪	198	279.8	254.3	90.9
日吉川	24	33.6	35.2	104.8

表 3.2-6 河川流出量推定結果（流出指標×降水量）

観測所	流域面積	年流出量 (10^6 m^3)	推定結果	
	(km^2)		(10^6 m^3)	(%)
志段味	519	571.7	572.5	100.2
多治見	368	438.4	427.0	97.4
土岐	287	361.0	353.3	97.9
瑞浪	198	279.8	259.7	92.8
日吉川	24	33.6	35.8	106.6

8) 流出率を用いた河川流出量の推定

気候変動に伴う降水量の変化により河川流出量は変化すると考えられる。本事業で求めた流出指標が降水量に対する河川流出量の割合（流出率）との相関関係を有していれば、流出率を指標として気候変動に伴う降水量の変化を考慮した河川流出量の推定が可能となる。そこで、本事業では流出率を用いた河川流出量の推定を試みた。

図 3.2-8 に流出指標と流出率の関係を示す。図 3.2-8 から区間流出量（比流量）同様、高い相関が確認された。このことから、回帰法及び分配法により河川流出量を推定した。なお、流出指標と流出率を指標とした分配法の推定例を図 3.2-9 に示す。

推定対象は、6)及び7)と同様、各観測地点から上流の総流出量とした。推定結果を表 3.2-7 に示す。この結果、流出率を用いた方法においても、92.4 - 107.3 % の範囲で河川流出量を再現できることが確認できた。

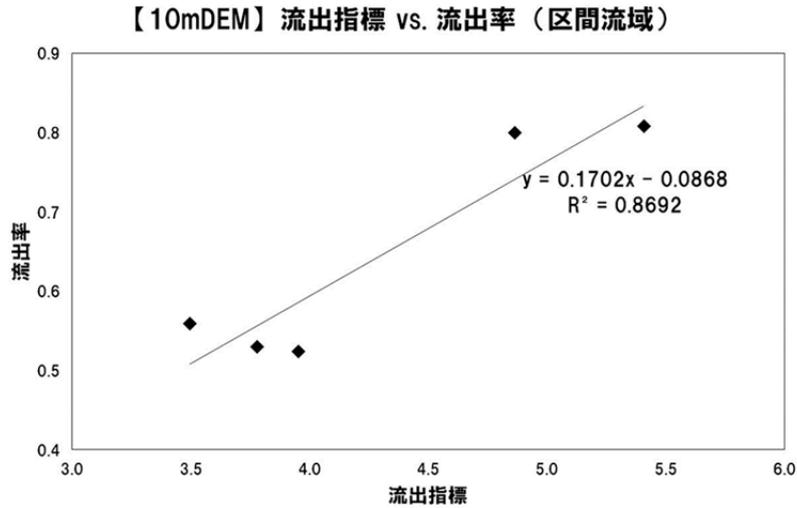


図 3.2-8 流出指標と流出率との関係

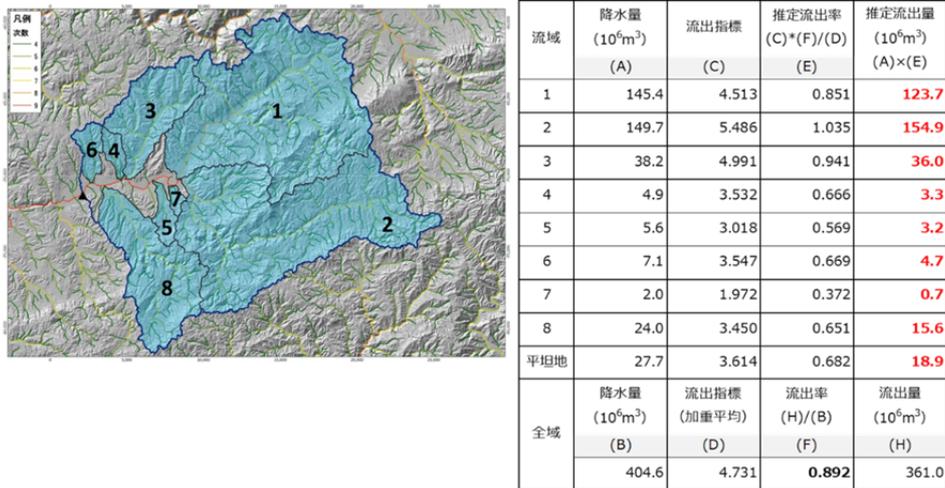


図 3.2-9 分配法（推定流出率）による河川流出量推定の例

表 3.2-7 流出率を用いた河川流量の推定結果

観測所	流域面積	年流出量	推定結果(回帰法)		推定結果(分配法)	
	(km^2)	(10^6m^3)	(10^6m^3)	(%)	(10^6m^3)	(%)
志段味	519	571.7	559.0	97.8	572.5	100.2
多治見	368	438.4	419.1	95.6	427.0	97.4
土岐	287	361.0	349.1	96.7	353.3	97.9
瑞浪	198	279.8	258.5	92.4	259.7	92.8
日吉川	24	33.6	36.1	107.3	35.8	106.6

9) まとめ

これらの結果から、地形特徴を用いた河川流出量の推定については、景山ほか (2010)¹⁾、竹内ほか (2010)²⁾が実施した小流域の河川流出量データを用いた回帰法に加え、本流域の区間流出量データを用いた回帰法、本流域の一箇所の流出量データや降水量データを用いた分配法において

も、河川流出量の推定が可能であることが確認された。また、流出率と流出指標との関係から、回帰法、分配法のそれぞれの方法で河川流出量が推定できることも確認できた。これらのことから、本手法が河川流量の推定に適用可能な手法であることを確認した。

本手法は地形特徴を用いているため、従来の方法（景山ほか, 2010¹⁾; 竹内ほか, 2010⁶⁾）では、地形特徴が少なく流出指標が設定できない平坦地や人工的な土地改変が進む都市部を広く含む領域での推定精度に課題があった。しかしながら、流出率と流出指標との関係から河川流出量の推定が可能であることが確認できたことにより、平坦地や都市部においては下水道施設基準などで設定されている土地の用途に応じた流出率を利用することで、従来の課題を解決できる可能性が得られた。

(2) 地形情報の詳細度が推定結果に与える影響に関する検討

1) 流路の抽出及び流域分割

流路抽出は、3.2.3 (1) 1)と同様の方法で実施した。各解像度の DEM から抽出された流路及び小流域を図 3.2-10～図 3.2-12 に表す。

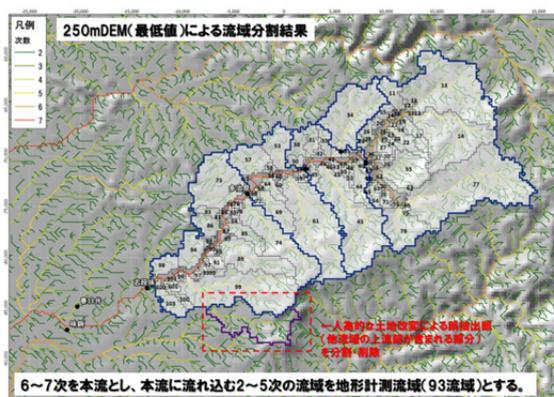


図 3.2-10 流路抽出結果 (250 mDEM)

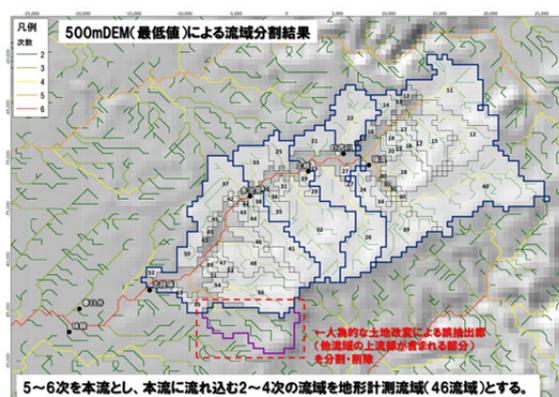


図 3.2-11 流路抽出結果 (500 mDEM)

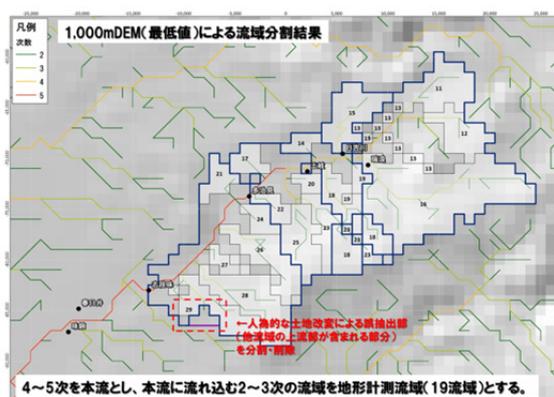


図 3.2-12 流路抽出結果 (1,000 mDEM)

10 mDEM による流路抽出、流域分割結果を基準とした場合、いずれの DEM を用いた結果も、主だった流路が抽出できているが、250 mDEM、500 mDEM、1,000 mDEM では、領域南側の一部で、本来、別の流域に含まれる小流域が抽出された。これは、人為的な土地改変の影響による誤抽出であることが確認されたため、本事業では、この領域を削除して小流域を設定した。流

域分割については、河川流量観測が実施されている日吉川流域が一つの小流域となるよう、各DEM毎に本流、小流域の次数を設定した。

2) 地形計測

流域分割により抽出された小流域毎に、DEMを用いた地形計測を実施した。計測項目は、竹内ほか(2010)⁶⁾を参考に、以下に表す項目とした。但し、粗いDEMでは2次流路のみの小流域が出現することから、流路分岐比については1次/2次のみとした。

- ・歪度
- ・尖度
- ・流域形状比
- ・流路形状比
- ・流路分岐比(1次/2次)
- ・流路頻度
- ・地形の煩雑さ
- ・流域起伏数
- ・流域平均侵食高

3) 統計量解析結果

地形計測結果に対して3.2.3(1)3と同様の方法で主成分分析を行い、地形計測結果の集約を行った。結果を以下に示す。

① 250 mDEM

主成分分析結果を表3.2-8に表す。抽出された主成分のうち、固有値が1以上のものは第1主成分から第3主成分である。

10 mDEMの結果と同じく、第1主成分は流域起伏数、地形の煩雑さ、地域平均侵食高の因子負荷量が大きく「地形の険しさ」を表す。第2主成分は流域形状比、流路形状比といった「流域形状と流路形態」を表す分析変数に加え、流域形状の歪みを表す尖度の因子負荷量が高く、「流域形状と流路形態」及び「流域の歪み」を表す主成分といえる。第3主成分は、流路分岐比、流路頻度といった「流路の発達」を表す分析変数に加え、流域形状やその歪みを表す歪度、流域形状比の因子負荷量が大きくなっている。「流路の発達」と「流域の形状・歪み」の両者の特徴を表す結果となった。

② 500 mDEM

主成分分析結果を表3.2-9に表す。抽出された主成分のうち、固有値が1以上のものは第1主成分から第4主成分である。

第1主成分は流域の形状の歪みを表す歪度、尖度及び流域の形状を表す流域形状比、流路形状比の因子負荷量が大きいため、「流域の形状と流路形態」と「流域形状の歪み」を表す。第2主成分は流域起伏数、地形の煩雑さ、流域平均侵食高の因子負荷量が大きく「流域の険しさ」を表す。第3主成分は流路頻度、流路起伏数、流路形状比とそれぞれ、「流路の発達」、「流路の険しさ」、「流路の形状」を表す因子負荷量が大きく、第4主成分は流域形状比と流路分岐比の因子負荷量が大きく、「流域形状」と「低次流路の発達」を表す結果となり、第3主成分では、10 mDEM、250 mDEMの主成分分析結果では異なる主成分として抽出されていた項目が含まれた。

表 3.2-8 地形計測項目を分析変数とした主成分分析結果（250 mDEM）

主成分	固有値	累積寄与率	分析変数 (地形計測項目)	因子負荷量		
				第1主成分	第2主成分	第3主成分
1	2.62	29.11	歪度	0.20	0.19	0.66
2	1.83	49.41	尖度	0.12	0.70	0.17
3	1.55	66.65	流域形状比	-0.08	-0.81	0.49
4	0.90	76.68	流路形状比	0.01	0.87	0.28
5	0.75	85.06	流路頻度	0.05	0.38	0.40
6	0.50	90.60	分岐比(1/2)	0.14	0.01	-0.77
7	0.39	94.94	流域起伏数	0.81	0.09	0.32
8	0.32	98.45	地形の煩雑さ	0.86	0.14	0.03
9	0.14	100.00	流域平均侵食高	0.85	-0.01	-0.24

表 3.2-9 地形計測項目を分析変数とした主成分分析結果（500 mDEM）

主成分	固有値	累積寄与率	分析変数 (地形計測項目)	因子負荷量			
				第1主成分	第2主成分	第3主成分	第4主成分
1	3.47	38.60	歪度	0.80	0.09	-0.18	-0.36
2	1.33	53.41	尖度	0.79	0.24	0.13	0.13
3	1.14	66.07	流域形状比	-0.44	-0.38	-0.22	-0.65
4	1.01	77.29	流路形状比	0.67	0.24	0.42	0.20
5	0.73	85.42	流路頻度	0.03	0.00	0.94	-0.08
6	0.48	90.73	分岐比(1/2)	-0.12	-0.12	-0.15	0.85
7	0.36	94.77	流域起伏数	0.31	0.62	0.50	0.01
8	0.27	97.73	地形の煩雑さ	0.07	0.87	-0.01	0.07
9	0.20	100.00	流域平均侵食高	0.26	0.82	0.03	-0.08

③ 1,000 mDEM

主成分分析結果を表 3.2-10 に表す。抽出された主成分のうち、固有値が 1 以上のものは第 1 主成分から第 4 主成分である。

第 1 主成分は、「地形の険しさ」を表す流域起伏数、流域平均侵食高、「流域の形状と流路形態」を表す流域形状比、流路形状比及び「流域形状の歪み」を表す尖度の因子負荷量大きい。第 2 主成分は、「流域形状の歪み」を表す歪度、尖度、「流路形態」を表す流路形状比及び「地形の険しさ」を表す流域起伏量の因子負荷量大きい。第 3 主成分は、「流域形状の歪み」を表す歪度、「流域の形状」を表す流域形状比、「流路の発達」を表す分岐比 (1/2) の因子負荷量大きい。また、第 4 主成分では「流路の発達」を表す流路頻度、「地形の険しさ」を表す流域平均侵食高の因子負荷量大きい。

ここで、第 1 主成分に含まれる分析変数に着目すると「地形の険しさ」については主成分得点が高いほど流出しやすいのに対し、「流域の形状と流域形態」は主成分得点が高いほど流出しやすい。両者は主成分得点に対して相反する分析項目であり、この結果から流出の特徴を解釈することができない。よって、1,000 mDEM から抽出される地形特徴は、対象流域の流出を評価するために必要な地形情報を反映できていないと考えられる。したがって、1,000 mDEM については、河川流出量の推定は不可能と判断した。

表 3.2-10 地形計測項目を分析変数とした主成分分析結果（1,000 mDEM）

主成分	固有値	累積寄与率	分析変数 (地形計測項目)	因子負荷量			
				第1主成分	第2主成分	第3主成分	第4主成分
1	3.44	38.20	歪度	0.13	0.72	0.57	0.20
2	1.67	56.73	尖度	0.40	0.82	-0.09	0.01
3	1.31	71.27	流域形状比	-0.70	-0.25	0.55	0.15
4	1.17	84.27	流路形状比	0.75	0.60	0.15	-0.09
5	0.68	91.82	流路頻度	0.32	0.30	0.07	-0.83
6	0.37	95.98	分岐比(1_2)	-0.10	0.07	-0.83	0.29
7	0.21	98.36	流域起伏数	0.90	-0.08	0.18	0.02
8	0.10	99.48	地形の煩雑さ	-0.18	0.74	-0.25	-0.22
9	0.05	100.00	流域平均侵食高	0.46	0.29	-0.25	0.68

4) 流出指標の推定

主成分分析で得られた主成分得点から、3.2.3 (1) 4)と同様の方法で流出指標を求めた。250 mDEM は、第 1 主成分が「地形の険しさ」、第 2 主成分が「流域の形状と流路形態」を表すことから、3.2.3 (1) 4)の式 3.2.3-1 を用い、500 mDEM は、第 1 主成分が「流域の形状と流路形態」、第 2 主成分が「地形の険しさ」を表す分析変数が主となることから、以下の式を用いた。結果を図 3.2-13、図 3.2-14 に示す。

$$\text{流出指標}_{PC12} = (9 - \text{ランク}_{PC1}) \times \text{重み}_{PC1} + \text{ランク}_{PC2} \times \text{重み}_{PC2} \quad (3.2.3-4)$$

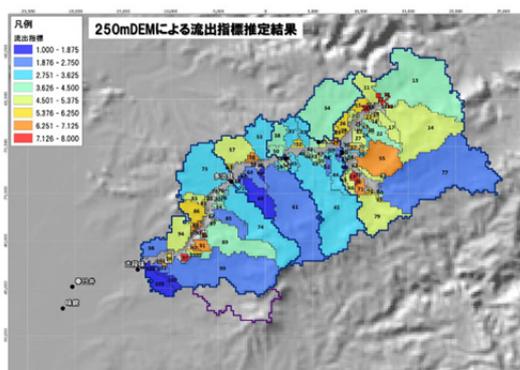


図 3.2-13 流出指標推定結果 (250 mDEM)

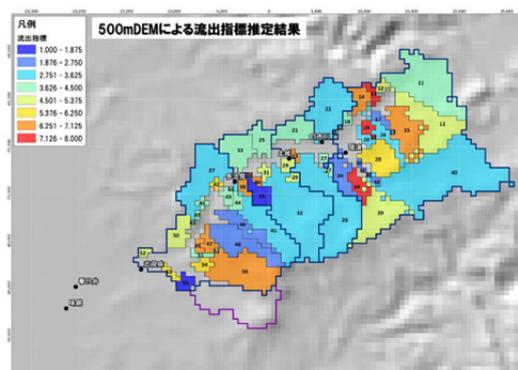


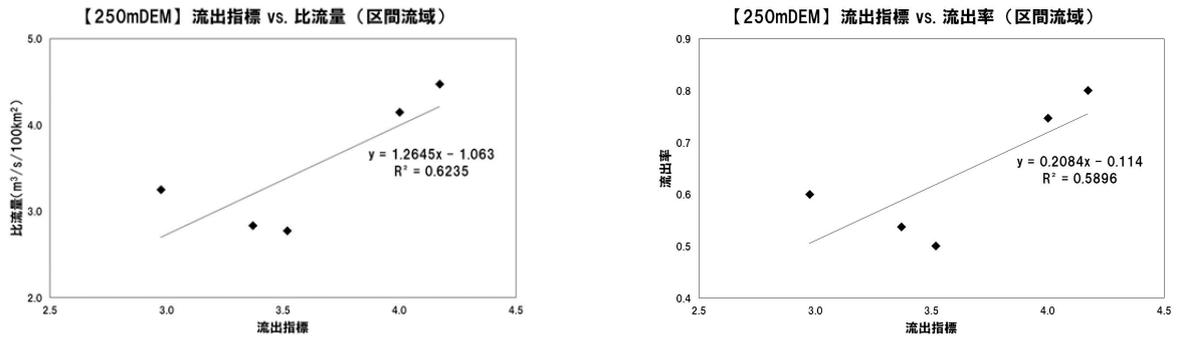
図 3.2-14 流出指標推定結果 (500 mDEM)

5) 河川流出量の推定

各小流域の流出指標と河川流出量を整理し、3.2.3 (1) 6)、7)及び8)と同様の方法で河川流出量を推定した。各 DEM における流出指標と比流量、流出指標と流出率の関係を図 3.2-15、図 3.2-16 に示す。250 mDEM については比流量、流出量とも流出指標との相関が認められ、流出指標を用いた推定が可能である。一方、500 mDEM については、比流量、流出率とも流出指標との弱い負の相関が認められた。これは、1,000 mDEM 同様、500 mDEM の結果についても地形と流出との関係性が認められないことを意味する。したがって、500 mDEM についても河川流量の推定は不可能と判断した。

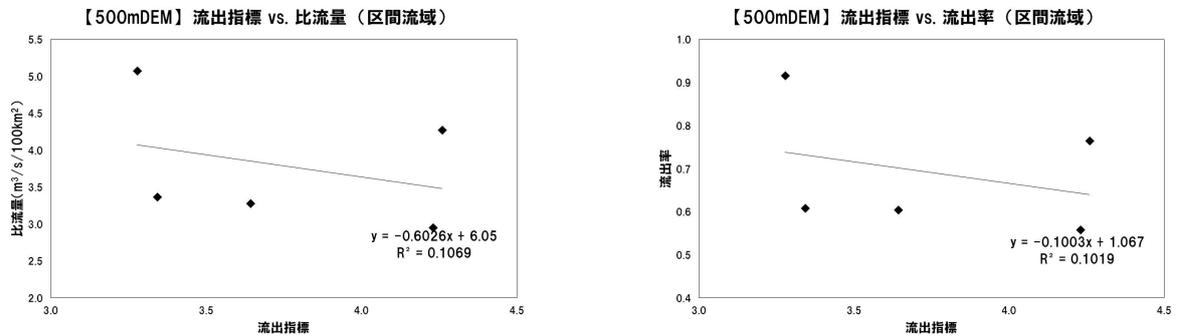
表 3.2-11、表 3.2-12 に 250 mDEM での河川流出量の推定結果を示す。比流量を用いた回帰法または流出量を用いた分配法では 89.2 - 104.7%、流出率を用いた回帰法または分配法では 90.9

- 103.9 %の幅で河川流出量が推定できることを確認できた。



(a) 流出指標と比流量の関係 (b) 流出指標と流出率の関係

図 3.2-15 流出指標と比流量、流出率の関係 (250 mDEM)



(a) 流出指標と比流量の関係 (b) 流出指標と流出率の関係

図 3.2-16 流出指標と比流量、流出率の関係 (500 mDEM)

表 3.2-11 河川流量推定結果 (250 mDEM : 比流量、流出量を用いた推定)

観測所	流域面積	年流出量	推定結果 (回帰法)		推定結果 (分配法)	
	(km ²)	(10 ⁶ m ³)	(10 ⁶ m ³)	(%)	(10 ⁶ m ³)	(%)
志段味	515	571.7	598.6	104.7	571.7	100.0
多治見	366	438.4	440.4	100.4	417.4	95.2
土岐	291	361.0	372.3	103.1	348.2	96.5
瑞浪	198	279.8	270.4	96.6	249.6	89.2
日吉川	26	33.6	33.5	99.6	31.4	93.4

表 3.2-12 河川流量推定結果 (250 mDEM : 流出率を用いた推定)

観測所	流域面積	年流出量	推定結果 (回帰法)		推定結果 (分配法)	
	(km ²)	(10 ⁶ m ³)	(10 ⁶ m ³)	(%)	(10 ⁶ m ³)	(%)
志段味	515	571.7	593.8	103.9	572.0	100.1
多治見	366	438.4	440.5	100.5	422.6	96.4
土岐	291	361.0	372.2	103.1	354.2	98.1
瑞浪	198	279.8	269.4	96.3	254.4	90.9
日吉川	26	33.6	33.4	99.4	31.8	94.8

6) 考察

解像度が異なる DEM を用いた河川流出量の推定の結果、約 520 km²の流域面積に対し、250 mDEM では 10 mDEM とほぼ同様の幅で河川流出量を推定することができた。しかしながら、500 mDEM、1,000 mDEM では、地形の特徴と河川流出量との関係性が得られず、河川流出量の推定は困難であった。したがって、今回の結果からは山間地を流れる数百 km²の流域面積をもつ河川に対しては、250 mDEM の地形情報に基づく推定が望ましいと考えられる。一方で、本手法を適用する際に求められる DEM の解像度は、河川の規模や流域の大きさのみならず、地形の特長によって異なると考えられる。今後は、数百 km²の流域面積をもつなだらかな地形を流れる河川や、異なる流域面積の河川についても本手法を適用し、推定に必要な DEM の解像度を確認することが望まれる。また古地形を対象として本手法を適用する場合には、復元される河川流域に類似する現在の地形情報を用いて推定に必要な DEM の解像度を検討することで、復元される古地形の DEM の解像度を設定できると考える。

3.2.4 まとめ

平成 26 年度は、地下水涵養量の推定に必要な情報のうち、河川流出量の推定手法について検討を行い、地形特徴に着目した河川流出量推定手法の適用性を確認することができた。これにより、本手法を過去の地形に適用することで、過去の地形を対象とした河川流出量を推定できる見通しを得た。また、流出指標と降水量との関係性を考慮した流出指標を設定することにより、気候変動に伴う降水量の変化を考慮した河川流出量を推定できる見通しを得た。これにより、平成 25 年度に実施した気温との相関による降水量、蒸発散量の推定手法と合わせて、長期的な気候変動及び地形変化を考慮した地下水涵養量の推定に必要なパラメータの推定技術を整備することができた。

地下水涵養量の推定に必要な降水量、蒸発散量、河川流出量は、いずれも地表環境と密接な関係があることから、今後は、地表環境モデルとの連携を図り、ここで整備した各推定手法の適用事例を蓄積するとともに、各推定手法の妥当性の確認、高度化を行い、涵養量推定技術の体系化を行うことが重要である。

引用文献

- 1) 景山宗一郎, 池田 誠, 富山眞吾, 北海道下川地域における未観測流域の流出量を考慮した流域水収支の検討, 水文・水資源学会誌, vol.23, 2010, pp.301-311.
- 2) 野上道男, 詳細 DEM の紹介と流域地形計測, 地理学評論, vol.68(7), 1995, pp.465-474.
- 3) Strahler, A. N., Hypsometric (area-altitude) analysis of erosional topology, *Geological Society of America Bulletin*, vol.63(11), 1952, pp.1117-1142.
- 4) Strahler, A. N., Quantitative analysis of watershed geomorphology, *Transactions of the American Geophysical Union*, vol.38(6), 1957, pp.913-920.
- 5) 日本地形学連合, DEM データ処理技術講習会テキスト, 日本地形学連合, 1998.
- 6) 竹内竜史, 小坂 寛, 佐藤敦也, 富山眞吾, 景山宗一郎, 池田 誠, 東濃地域を対象とした数値標高モデルを用いた統計量解析手法による流出量の推定, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Research 2011-008, 2011.
- 7) 新井 正, 地域分析のための熱・水収支水文学, 古今書店, 2004, pp.225-227.
- 8) 横尾善之, 沖 大幹, 流域の気候・地形・土壌・地質・土地利用が河川の流況に与える影響, 水工学論文集, vol.54, 2010, pp.469-474.
- 9) 長岡大輔・向井和之, 流域地形量と河川の流出特性の関係, 全地連「技術フォーラム 2010」, 37, 2010
- 10) 鈴木隆介, 建設技術者のための地形図読図入門第 3 巻段丘・丘陵・山地, 古今書店, 2000, pp.722-730.
- 11) 金子 良, 水文学講座 12 農業水文学, 共立出版株式会社, 1973, pp.61-76.
- 12) 社団法人日本河川協会編, 改定新版建設省河川砂防技術基準(案) 同解説調査編, 山海堂, 1997, pp.86-87.

3.3 炭酸塩鉱物測定技術開発

3.3.1 背景と目的

炭酸塩鉱物は岩種や岩盤の形成過程に依存せずに、岩盤中に広く一般的に産出する鉱物であるため（図 3.3-1）（西本ほか, 2008¹⁾; Nishimoto and Yoshida, 2010²⁾; Iwatsuki and Yoshida, 1999³⁾; Yoshida et al., 2000⁴⁾; 吉田, 2012a⁵⁾; 横田・吉田, 2013⁶⁾）、汎用的な古環境指標物質として利用可能である。炭酸塩鉱物から得られる情報に基づき、現在は直接的に確認することができない過去の地質環境特性の履歴を推測することで、長期的な地質環境変動モデルの構築に利用できると思われる。

長期的な地質環境変動モデルを構築する際は、地下水やガスの通路となり得る高透水性の地質構造（透水性割れ目や断層など；Yoshida et al., 2000⁴⁾; 舟木ほか, 2009⁷⁾）を把握した上で、その長期的な発達過程を推定することが重要となる。数十万年というタイムスケールにおける割れ目の発達過程を推定するためには、割れ目の形成やシーリングなどの形成・発達履歴を明らかにし、割れ目近傍の環境変化を推定する必要がある（吉田, 2012b⁸⁾）。割れ目の形成・発達履歴を解明する上で、その充填鉱物は様々な指標になり得る（石橋ほか, 2014⁹⁾）。例えば、西本ほか（2008）¹⁾ や Nishimoto and Yoshida (2010)²⁾ では、割れ目充填鉱物の産状や晶出温度から、割れ目の形成・発達履歴が議論されている。また、変動シナリオを考慮した安全評価を行う上では、候補地に存在する断層の活動性を評価することが重要な課題であり、断層の活動性評価手法として、炭酸塩鉱物（方解石）などの充填鉱物の年代測定が用いられている（例えば、柴田・高木, 1988¹⁰⁾; Vargas et al., 2011¹¹⁾; Yamasaki et al., 2013¹²⁾; Nuriel et al., 2012¹³⁾）。

一方、長期的な地下水の地球化学特性（pH や酸化還元電位など）の推定は、地質環境の長期変動モデル構築のために重要なだけでなく、長期的な地下水流動解析結果の検証にも有効であると考えられる。しかし、過去の地球化学特性を反映した地下水は、地下水の滞留時間の範囲内でしか直接採取することができない。そのため、過去の地下水の地球化学的特性を復元するためには、地下水の化学特性を反映しながら沈殿した二次鉱物である炭酸塩鉱物を利用する手法が有効である（Blyth et al., 2009¹⁴⁾）。本事業では長期的な地史や地球化学特性の変化を推定するための調査技術の開発として、炭酸塩鉱物の形成年代推定手法と炭酸塩鉱物形成時点の地球化学特性、特に酸化還元電位の推測手法の構築を進める。

平成 25 年度の事業では、炭酸塩鉱物を対象とした放射年代測定法及び酸化還元電位測定技術についての既存情報を整理した。その中で放射年代測定法の開発及び酸化還元電位測定技術の構築について、以下の点が重要課題として抽出された。

<A. 放射年代測定法の開発>

A-1. 炭酸塩鉱物の年代測定技術の構築

A-2. 微小領域での分析手法の構築

A-3. 標準試料の選定・採取

<B. 酸化還元電位測定技術の構築>

B-1. 地下水成分から炭酸塩鉱物組成への分配挙動のカタログ化

B-2. カタログ化に適した標準試料の選定・採取

B-3. 微小領域での分析手法の構築

A-2 と B-3 で示した「微小領域での分析手法の構築」及び A-3 と B-2 で記した「標準試料の選定・採取」の項目は、放射年代測定法の開発及び酸化還元電位測定技術の構築の双方において共通する課題であり、同一の炭酸塩鉱物中の微小領域の複数地点から、鉱物成長方向に年代と化学的データを取得することで、炭酸塩鉱物の形成をもたらす地下水の地球化学的環境の長期的な変遷を時間経過とともに議論することが可能となる（図 3.3-2）。上記のように放射年代測定法の開

発及び酸化還元電位測定技術の構築では取り組むべき共通の課題が多く、平成 25 年度はそれぞれ別々の項目としていたが、平成 26 年度は、「炭酸塩鉱物測定技術開発」として一つにまとめて取り組んだ。

平成 26 年度は、上記の重要課題の解決に向けて、以下の項目を実施した（図 3.3-3）。

- ・ 微小領域の年代測定が可能なレーザーアブレーション付き誘導結合プラズマ質量分析装置（Laser Ablation Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer；以下、「LA-ICP 質量分析計」という）の整備（A-1、A-2）
- ・ LA-ICP 質量分析計を用いた予備測定（A-1）
- ・ 炭酸塩鉱物の微小領域を対象とした分析手法・手順の整備（A-2、B-3）
- ・ カソードルミネッセンス像が観察可能なルミノスコープや、数十 μm スケールの試料採取（分取）が可能なマイクロミルなどの整備（A-2、B-3）
- ・ 年代測定の標準試料となる鍾乳石などの炭酸塩鉱物の採取（A-3）
- ・ カタログ化に向けた試料となる炭酸塩鉱物（スケールなど）と地下水の採取（B-1、B-2）
- ・ 採取した地下水分析（B-1、B-2）
- ・ 希ガス質量分析装置の整備（B-1）

また A-1、A-2 及び A-3 に関連する研究開発として、以下の二件の共同研究を実施した

- ・ 共同研究「炭酸塩鉱物の LA-ICP-MS による U-Pb 年代測定法の研究」（連携先：国立大学法人京都大学・京都フィッション・トラック）
- ・ 共同研究「炭酸塩鉱物の LA-ICP-MS による同位体分析手法の開発」（連携先：独立行政法人海洋研究開発機構）

さらに、A-3 に関連する共同研究として、以下の共同研究「炭酸塩鉱物の微小領域における化学組成測定手法の開発（連携先：美祢市立秋吉台科学博物館・国立大学法人山口大学）」を実施した。

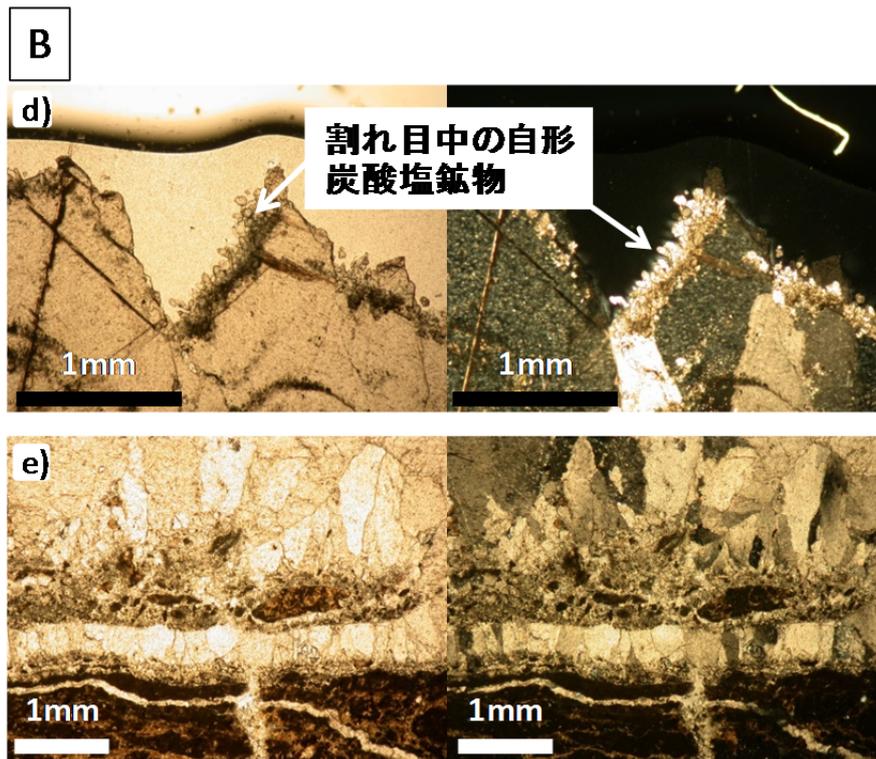
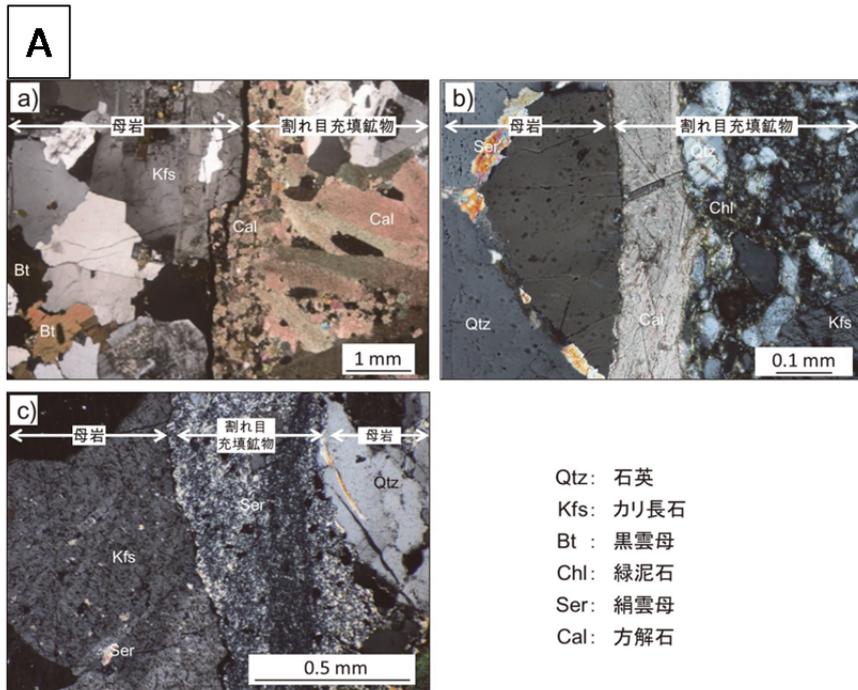


図 3.3-1 花崗岩と堆積岩中の割れ目を充填する炭酸塩鉱物（方解石）

A. 花崗岩の割れ目を充填する炭酸塩鉱物（方解石）の偏光顕微鏡写真（窪島ほか, 2012）¹⁵⁾

a) 割れ目を充填する方解石、b) 石英や長石の岩片を含む割れ目充填鉱物、
c) 未固結充填物（絹雲母）（a)-c) は、いずれもクロスニコル）

B. 堆積岩の割れ目を充填する炭酸塩鉱物（方解石）の偏光顕微鏡写真
（左：オープンニコル、右：クロスニコル）（横田・吉田, 2013）⁶⁾

d) 割れ目内部の晶洞に発達する方解石、e) 方解石脈と基質の泥岩との境界部

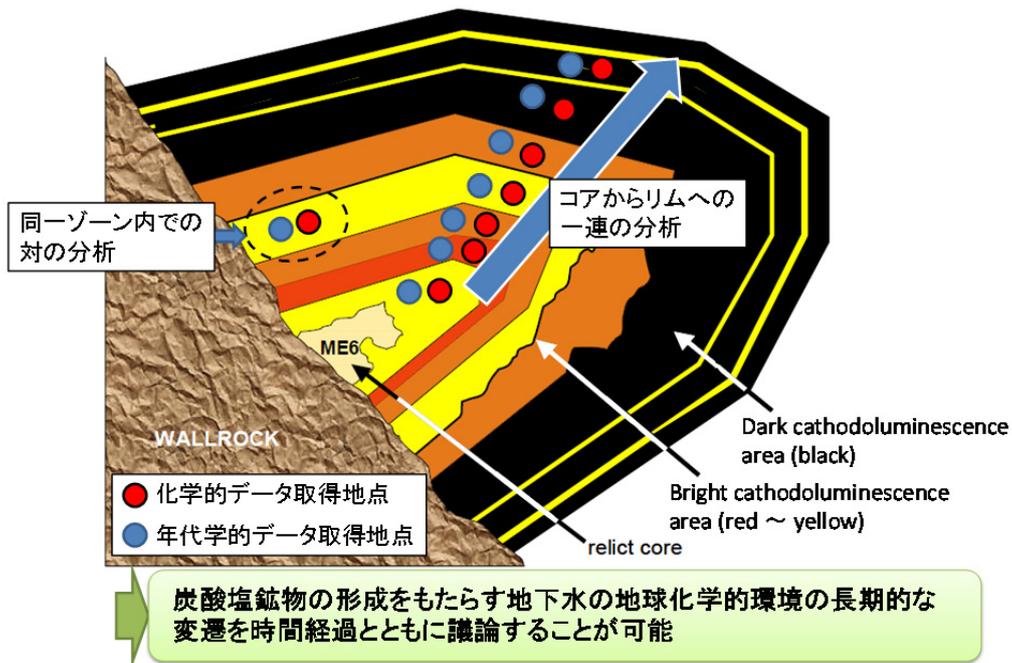


図 3.3-2 炭酸塩鉱物の累帯構造に対する化学的及び年代学的分析点を示した概念図 (Milodowski et al., 2005¹⁶⁾を改定)

抽出した重要課題 → H26年度実施内容

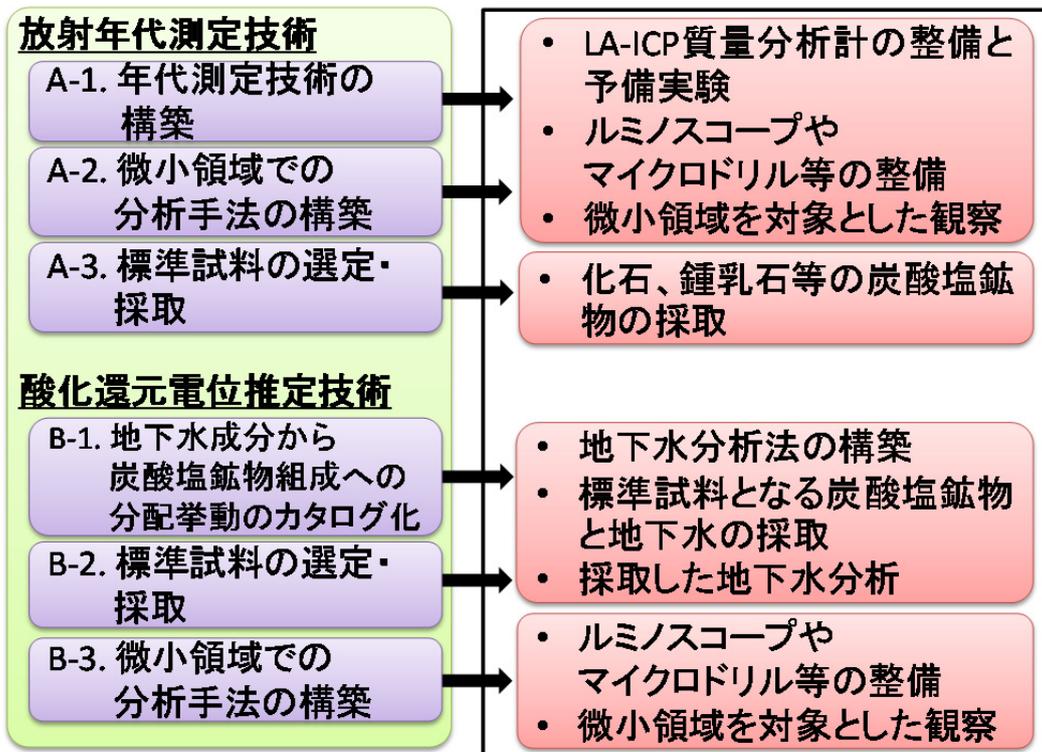


図 3.3-3 既存情報に基づいて抽出した重要課題と平成 26 年度の実施内容

3.3.2 アプローチ

放射年代測定法の開発及び酸化還元電位測定技術の構築について、各アプローチを示す。しかし、最終的には両データを統合させ、炭酸塩鉱物の形成年代や形成過程及び地下水の化学的特徴の時間変化について検討を行う。図 3.3-2 で示したように、化学的データと年代学的データを一対として、同じカソードルミネッセンスで観察されるレイヤーから取得し、これを炭酸塩鉱物の中心部（コア）から最縁部（リム）まで一連のライン分析を行うことにより、炭酸塩鉱物の成長・発達をもたらす地下水の化学的特徴の時間変化を定量的に議論することが可能となる。この際、地史や地下水の流動状態などの古水理地質学的な視点からのアプローチも実施することになる。

(1) 放射年代測定法の開発

放射年代測定法を炭酸塩鉱物に適用する上で重要となる三点の課題を整理し、そのアプローチ方法を記載する。

1) 炭酸塩鉱物の年代測定技術の確立

これまでの炭酸塩鉱物を対象とした年代測定では、放射性炭素 (^{14}C) 年代測定法（例えば、Iwatsuki et al., 2002¹⁷; Hori et al., 2008¹⁸; 北村ほか, 2003¹⁹）やルビジウム-ストロンチウム (Rb-Sr) 年代測定法（例えば、Asahara and Tanaka, 2007²⁰）、熱ルミネッセンス (TL) 法（例えば、Debenham, 1983²¹; Ninagawa et al., 1992²²; Hua et al., 1988²³; Liritzis et al., 1996²⁴）、電子スピン共鳴 (ESR) 法（例えば、Bluszcz et al., 1988²⁵）、鉛-鉛 (Pb-Pb) 法（例えば、可児・福井, 2011²⁶）、そしてウラン系列の放射年代測定法であるウラン-鉛 (U-Pb) 法やウラン-トリウム (U-Th) 法（例えば、Sasaki et al., 2004²⁷; Kitamura et al., 2005²⁸; Watanabe et al., 2008²⁹; Watanabe et al., 2010³⁰）などの適用例がある。また、平成 26 年 12 月に米国で開催された AGU Fall Meeting で、英国地質調査所が近年になり一般化してきた LA-ICP 質量分析計を用いて、亀裂を充填している方解石のカソードルミネッセンス像から判別できる結晶成長過程における結晶化ステージごとの微小領域の酸素同位体比や微量成分分析に関する発表を行っていた。テキサス大学サンアントニオ校も LA-ICP 質量分析計を用いた炭酸塩鉱物結晶化ステージごとの U-Pb 法年代測定及び微量成分分析に関して発表を行っていた。これらの発表では分析データに整合性があることが示されていた。このようにこれまで種々の年代測定法が炭酸塩鉱物に適用されている。表 3.3-1 に各手法の適用可能な年代の範囲と地下環境の炭酸塩鉱物に適用する際の課題及び適用性を評価した結果を示す。その結果、 ^{14}C 法や U-Th 法、TL 法が、炭酸塩鉱物へ適用可能であると考えられる。一方で、後述の 2) に示したように各手法の高い空間分解能での測定や微量試料の分析には課題が残る。U-Pb 法、CHIME 法 (Chemical U-Th Total Pb Isochron Method)、光ルミネッセンス (OSL) 法は、炭酸塩鉱物への利用について潜在的可能性を持つと推察される。また、測定条件の検討や測定データの蓄積を含めた研究事例の拡充が必要となる。それぞれの年代測定法によって、測定可能な年代幅が異なる。これらの年代測定法が確立されれば炭酸塩鉱物の推定可能年代の幅を広げることができ、各手法によるクロスチェックも可能となるため、より正確な年代決定が可能となる。

本事業では、これらの手法の中で、まず U-Pb 法を用いた年代測定技術の構築を目指す。鉱物中に存在するウラン-235 (^{235}U) 及びウラン-238 (^{238}U) は、原子核壊変を繰り返し、最終的に、それぞれ鉛-207 (^{207}Pb) 及び鉛-206 (^{206}Pb) に変化する (兼岡, 1998³¹)。すなわち、U-Pb 法では ^{235}U - ^{207}Pb 年代と ^{238}U - ^{206}Pb 年代の二つの年代を導出可能である。炭酸塩鉱物では、数十万年から数億年の U-Pb 年代値が報告されている例がある (Becker et al., 2002³²; Rasbury and Cole, 2009³³)。一方で、U-Pb 法による年代測定手法が確立しているジルコンと比較すると、炭

酸塩鉱物のウラン及び鉛含有量は低い。このため炭酸塩鉱物に対する精度の良い U-Pb 年代測定は困難であることが指摘されてきた（例えば、Jahn and Cuvellier, 1994³⁴）。しかし、分析機器の検出器における感度の向上や試料導入におけるイオン化効率の上昇など、近年の測定技術の向上により、ウラン及び鉛の定量値とそれぞれの同位体比測定の精度は著しく高くなり、これに伴って測定年代測定範囲の限界も、より若い年代値の決定ができる方向に延びてきている。例えば、U-Pb 法を用いて、百万年より若い年代試料の測定が試みられている（Sano et al., 2002³⁵）。U-Pb 法を用いた年代測定技術の構築により、これまで不確実性の高かった炭酸塩鉱物についての年代測定が可能になると考えられる。

平成 26 年度は、U-Pb 法を用いた年代測定技術の構築のために、LA-ICP 質量分析計の整備及びそれを用いた予備測定を実施した（図 3.3-3）（U-Pb 法に LA-ICP 質量分析計を用いる利点については、②微小領域での分析手法の構築に後述）。平成 25 年度の事業において、炭酸塩鉱物の年代測定を実施するにあたり最適と考えられる LA-ICP 質量分析計の仕様の検討を行った。現在、主流となっている LA-ICP 質量分析計に用いるレーザーは、エキシマレーザーとフェムト秒レーザーの二種類に大別されるが、本受託事業を行うにあたり炭酸塩鉱物への適用性、かつ汎用性を加味し、エキシマレーザーを採用した。LA-ICP 質量分析計は Photon-machines 製 Analyte G2（レーザー装置）及び Thermo Fisher Scientific 製 NEPTUNE-plus（二重収束型誘導結合プラズマ質量分析計）とし、土岐地球年代学研究所に設置した。

また、独立行政法人海洋研究開発機構を共同研究の連携先として、「炭酸塩鉱物の LA-ICP-MS による同位体分析手法の開発」と題した共同研究を実施した。この共同研究は、炭酸塩鉱物に存在するウランを壊変起源とする鉛の同位体比測定をより高精度で測定し、定量分析と U-Pb 年代値の取得を目指したものである。鉛はコンタミネーションを被りやすい成分である。したがって、測定対象の鉱物に外部から混入した鉛（common Pb）を適切に評価する必要がある。

2) 微小領域での分析手法の構築

炭酸塩鉱物は段階的に成長することで内部に累帯構造を形成する。異なる化学組成をもつ地下水から沈殿した場合、各累帯に含有される微量元素の組成に差があり、その差は CL 像で定性的に把握することができる（Witkowski et al., 2000³⁶; Bouch, 2004³⁷; Milodowski et al., 2005¹⁶; 水野・岩月, 2006³⁸; 図 3.3-4）。そのため、累帯構造内のレイヤーごとに地質学的な意味合いが異なる。よって、レイヤーごとの微小領域における精度の高い年代測定手法の確立が課題となる。また、原理的に U-Pb 年代を測定するためには、分析する点に分析装置の定量下限値以上のウランと鉛を含んでいる必要がある。分析点をどこに配置するのかを定めるためには、これらの「地質学的な意味合い」と割れ目の充填鉱物のように微量しか採取できない試料に対する「分析の可否」を踏まえる必要がある。以上のことを踏まえ、微小領域の年代測定を実施するためには、効率的に「観察・分析点の選定」、「採取（分取）」、そして「測定」の手順をたどることが必要となる（図 3.3-5）。

微小領域における空間分解能の高い年代測定を試みる際は、選定した分析点からマイクロドリルやマイクロミルを用いて試料を分取（採取）し、分析が行われてきた（坂井, 2009³⁹）。分取した試料は、表面電離型質量分析を用いた同位体比の測定（例えば、Davidson and Tepley, 1997⁴⁰）やリン酸で分解処理し ¹⁴C 年代測定（例えば、Burgess et al., 2010⁴¹）が実施されてきた。このような手法を用いることで、微小領域の試料を分析することが可能となる。本事業においても、湿式分析に際して試料を分取・処理する方法としては、これらの手法を踏襲する（表 3.3-2）。また、近年ウラン系列の年代測定においては、一次イオンビームのスパッタリングによって微小領域をイオン化させ、測定を行う二次イオン質量分析計（SIMS）や LA-ICP 質量分析計による測

定が行われている。これにより、炭酸塩鉱物の微小領域において、試料採取（分取）からウランなどの同位体測定までを1セットのプロセスで実施する、いわゆる「その場分析」が可能である。例えば、LA-ICP 質量分析計を用いるために必要な測定試料の前処理は研磨・琢磨程度であり、湿式分析で必要な試料の分取、酸分解による溶液化、対象元素の分離などの煩雑な前処理手順は不要となる。すなわち、LA-ICP 質量分析計による分析法（Laser Ablation Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry；以下、「LA-ICP 質量分析法」という）を用いることで迅速かつ簡便に微量の試料の測定が可能となる（表 3.3-2）。ただし、報告例の多いジルコンに対する LA-ICP 質量分析法を用いた研究例と比べ、断層や割れ目に介在する炭酸塩鉱物に対する研究例は少ない。これは、断層や割れ目に介在する炭酸塩鉱物の元素の挙動を把握し、同位体平衡となる閉鎖系がどのタイミングで成立するのかという問題に加え、炭酸塩鉱物に含まれるウランやトリウムが少量であるという問題に起因していると考えられている（伊藤, 2011⁴²⁾）。しかし、表面電離型質量分析を用いて断層岩中の炭酸塩脈の年代値を得た例もあり（Nuriel et al., 2012⁴³⁾）、測定元素が十分含まれる試料であれば、測定は可能である。また、炭酸塩鉱物に適したレーザー照射条件を見出すことにより、低濃度のウランやトリウムも測定できる可能性がある。

以上、表 3.3-2 に示したように、本事業では、二つの分析手順に従った分析法を検討する。まず、「ルミノスコープ」を用いて炭酸塩鉱物のカソードルミネッセンス像（以下、「CL 像」という）の観察を行い、炭酸塩鉱物内の位置ごとの「地質学的な意味合い」を検証する。その後、マイクロドリルやマイクロミルを用いて試料を採取（分取）し、化学処理を実施した後に分析をする手法と、LA-ICP 質量分析計を用いて試料の採取と分析を一つのプロセスで行う手法による炭酸塩鉱物の年代測定を実施する。

平成 26 年度は、炭酸塩鉱物の CL 像の観察が可能な「ルミノスコープ」とルミノスコープにオプションとして装着し、分光分析が可能な「光学スペクトルアナライザ」（以下、「OSA」という）、微量な試料を採取可能な「マイクロミル」、「マイクロ天秤」及び微量（数百 μg 程度）で同位体比測定が可能な「安定同位体比質量分析計用炭酸塩前処理システム」の整備を実施した。ルミノスコープ（Cambridge Image Technology 社製 CL8200 Mk5-2）とマイクロミル（New Wave Research 社製 MicroMill）は、放射年代測定の開発及び酸化還元電位技術の構築の双方で用いる装置である。ルミノスコープ及び OSA は炭酸塩鉱物の CL 像を取得する装置であり、微小領域の分析を実施するための分析点決定の上で重要なツールとなる。また、電子顕微鏡を用いる場合のような蒸着処理が不要のため、その後の分析に影響を与えない。マイクロミルは、数十 μm のドリルにより微小領域から試料の採取（分取）する装置である。また、マイクロ天秤による質量測定はすべての定量分析の基本となる。安定同位体比質量分析計用炭酸塩前処理システムは、炭素同位体測定の前処理に必要なリン酸を用いた自動分解処理を可能にするシステムであり、このシステムの導入により前処理が迅速となる。

上記の装置整備に加えて、独立行政法人海洋研究開発機構との共同研究に基づき LA-ICP 質量分析計を用いた炭酸塩鉱物分析のための予備実験を実施した。また、国立大学法人京都大学及び（株）京都フィッシュン・トラックを共同研究の連携先として「炭酸塩鉱物の LA-ICP-MS による U-Pb 年代測定法の研究」と題した共同研究を実施した。この共同研究は、微小領域における短パルス高エネルギー密度のレーザー照射による元素及び同位体マッピング技術の構築を目指したものである。

3) 標準試料の選定・採取

年代測定手法の適用性の検討については、既往研究により年代が推定されている炭酸塩鉱物試料を標準試料として対象とすることが望ましい。本事業では、「海生化石」及び「炭酸塩岩」を標

準試料として用いる。アプローチの手順としては「海生化石（標準試料）の年代測定」、「炭酸塩岩（標準試料）の年代測定」を行い手法の適用性の確認を実施した後、「割れ目及び断層に介在する炭酸塩鉱物の年代測定」を実施する計画である（図 3.3-6）。

海生化石は示準化石のように比較的年代幅に制限があり、明確に年代指標となる種もある。そこで、第一段階として、まずは炭酸塩鉱物からなる海生化石を対象に年代測定を試みる。海生化石を用いるメリットとして、LA-ICP 質量分析計でウランや鉛を測定する際にストロンチウム (Sr) 同位体比情報も取得し、海水中の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の変動曲線と比較して年代値のクロスチェックを行うことで測定値の信頼性を確認できることが挙げられる。このように年代既知または同位体比既知の（あるいは測定可能な）標準試料の活用が有効となると考えられる。また、続成作用の影響の小さい試料（同位体的に閉鎖系とみなせるもの）を選択することも重要となる。

第二段階として、炭酸塩岩を標準試料として活用する。炭酸塩岩としては、鍾乳石や海成の炭酸塩鉱物である方解石やドロマイトを想定している。その際、前段階と同様に U-Pb 年代値と Sr 同位体比データの取得を同時に行う。特に鍾乳石は年代値が報告されているものが多く、内部の縞状構造が結晶の段階的な成長を示す特徴があることから、最も有効な標準試料となり得る。例えば、山口県美祢市の秋芳洞内で採取された石筍は、表面部から中心部に向かって古くなり、中心部の最も古い場所の年代値は 5.5 ± 0.5 万年であることが報告されている (Miki and Ikeya, 1978⁴⁴)。このような試料に対して CL 像を取得し、中心部から縁部に向けて年代データを取得することで、年代値の妥当性を評価することが可能となる（図 3.3-7）。これらの標準試料への U-Pb 法の適用性の確認を経て、測定技術が確立されたと判断できた後、年代未知試料である割れ目及び断層に介在する炭酸塩鉱物の年代測定へと推移する。

平成 26 年度は、標準試料として用いる海生化石及び鍾乳石の選択・採取を実施する。海生化石の選択・採取は、京都大学及び京都フィッシュン・トラックとの共同研究の中で実施した。一方、鍾乳石などの標準試料として年代が推測可能な岐阜県郡上市の大滝鍾乳洞・縄文鍾乳洞及び山口県美祢市の秋吉台においてサンプリングを実施した。山口県美祢市での鍾乳石の選択・採取は、秋吉台科学博物館及び山口大学との共同研究の中で実施した。

表 3.3-1 割れ目や断層に介在する炭酸塩鉱物を対象とした年代測定法の適用性の検討

手法	対象	適用年代					割れ目を充填する炭酸塩鉱物を対象とした際の課題
		10^3	10^4	10^5	10^6	10^7	
放射(非)平衡	Rb-Sr				——	・対象元素の含有量が少ない可能性が高い
	U-Pb				——	・鉛の蓄積量が少ないと測定不可
	CHIME				——	・炭酸塩への適用例がない ・鉛の蓄積量が少ないと測定不可
	(U-Th)/He			——		・適用例が少ない
	K-Ar			——		・過剰Ar やAr 損失がある可能性が高い
	^{10}Be , ^{26}Al , ^{36}Cl			——		・対象核種が生成されない可能性が高い
	U-Th		——			・異地性のTh の混入 ・最長で50万年まで
	^{14}C	——				・最長で5万年まで
放射線損傷	FT		——			・飛跡が蓄積されない可能性が高い
	ESR	——				・年間線量率の見積もり ・誤差が大きい(数十%程度)
	TL	——				・年間線量率の見積もり ・誤差が大きい(数十%程度)
	OSL	——				・年間線量率の見積もり ・誤差が大きい(数十%程度) ・適用例が少ない

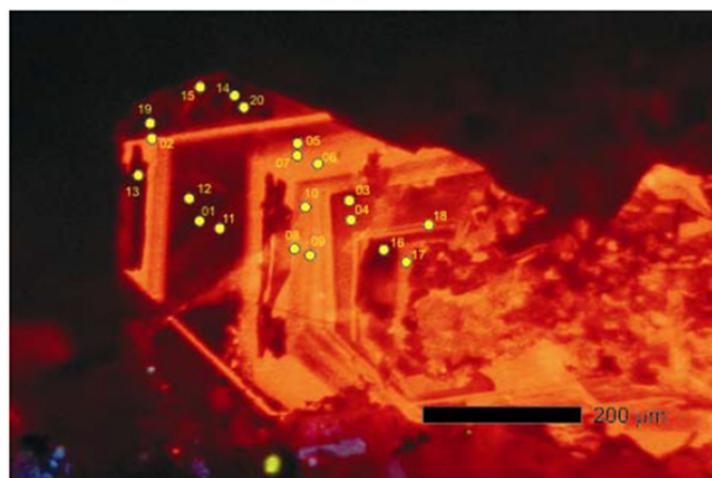


図 3.3-4 炭酸塩鉱物の結晶伸長断面の CL 像 (Milodowski et al., 2005¹⁶⁾)

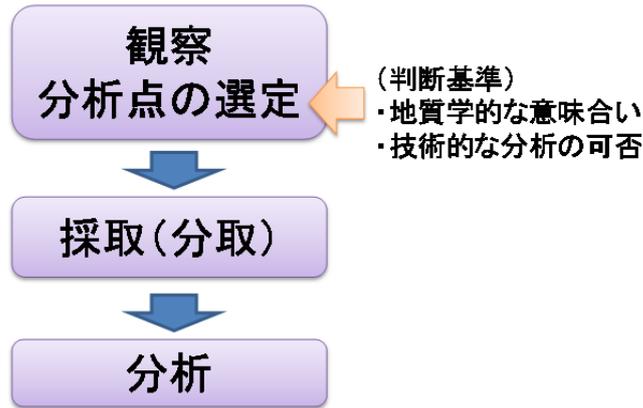


図 3.3-5 炭酸塩鉱物に対する分析手順

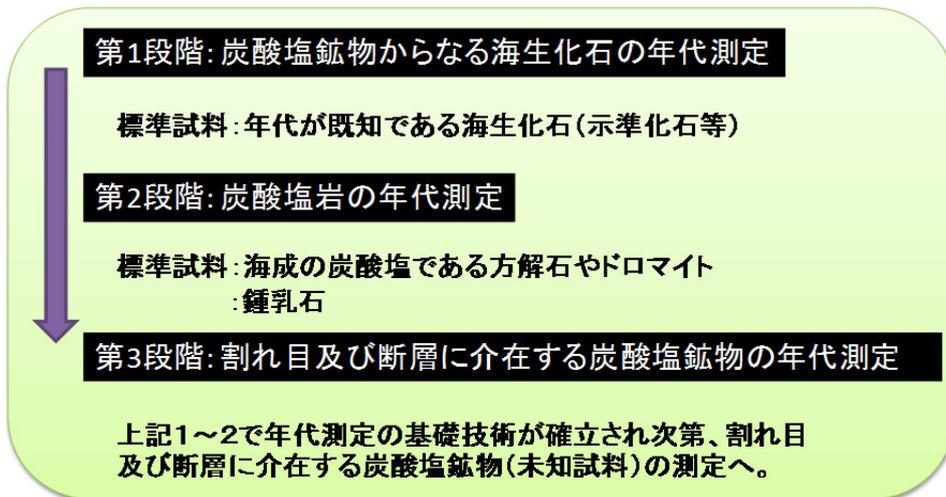
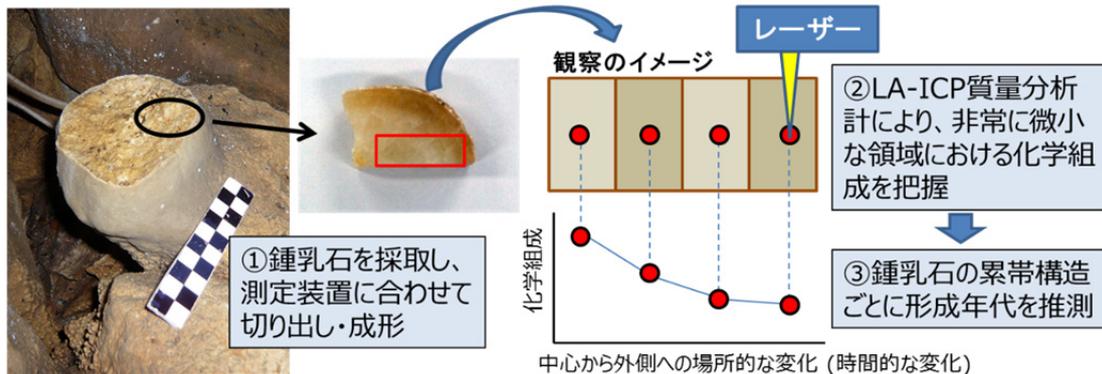


図 3.3-6 標準試料分析から未知試料分析へのアプローチ



鍾乳石の中心から最縁部へと段階的に分析
過去(中心)→現在(外側)にかけての年代変化を把握可能

図 3.3-7 鍾乳石に対する中心部から最縁部へのデータ取得の概念図

表 3.3-2 炭酸塩鉱物の微小領域における年代測定を実施するための分析手順

ルート	『CL像の観察』		『採取』		『分析』
1	ルミノスコープ	⇒	マイクロドリル	⇒ 化学 処理	¹⁴ C年代測定法 等
2	ルミノスコープ	⇒	LA-ICP質量分析法 (元素分析・同位体比分析)		

(2) 酸化還元電位測定技術の構築

酸化還元電位測定技術を構築する上で重要となる三点の課題を整理し、そのアプローチ方法を記載する。

1) 地下水成分から炭酸塩鉱物組成への分配挙動のカタログ化

地下水中での金属元素の挙動は、酸化還元電位の変化を反映する。また、炭酸塩鉱物に含まれる金属元素は、周辺の地下水の組成を反映している。すなわち、炭酸塩鉱物中の金属元素の含有量の変遷は、沈殿過程で酸化還元電位の変遷を記録していることを示す(水野・岩月, 2006³⁸⁾)。よって、炭酸塩鉱物に含まれるマンガンや鉄、ウランなどの酸化還元状態に依存して状態が変化する金属元素の量が、炭酸塩鉱物沈殿時の地下水の酸化還元状態を知るための指標となる(Milodowski et al., 2005¹⁶⁾)。また、炭酸塩鉱物沈殿時における地下水の地球化学特性の変遷を推定するための指標として、希土類元素の有効性が知られている(例えば、Zhong and Mucci, 1995⁴⁵⁾; Tanaka et al., 2004⁴⁶⁾; Arthur et al., 2006⁴⁷⁾)。このように既存研究において、地下水中の酸化還元電位を支配する元素(マンガン、鉄、ウランや希土類元素)から、その地下水から晶出する炭酸塩鉱物中の元素への分配が相関関係を持つことが示されている。この相関関係から得られた式に基づいて、炭酸塩鉱物から地下水の酸化還元電位が熱力学的に推定されてきた(例えば、水野・岩月, 2006³⁸⁾)。しかし、既報において報告された相関式を用いることで、全てのケースで適切な酸化還元電位を導けるわけではない。今後の課題として、この相関式の不確実性を低減させつつ、過去の地下水の酸化還元状態をより定量的に把握する手法の構築が必要となる。本事業では、より普遍的な(不確実性の少ない)相関式を導くために、幅広い産状から地下水成分と炭酸塩鉱物組成の分配挙動データを整理し、カタログとしてまとめる。カタログ化のためには、地下水と炭酸塩鉱物のデータをセットで取得することが最善の手法である。このため、本事業ではまず現世の地下水と、その地下水から晶出した炭酸塩鉱物を採取し、それぞれの酸化還元電位を支配する元素(Mn、Fe、U や希土類元素)の測定し、カタログ化に向けたデータを取得する。

また、地下水に含有される希ガス元素を調べることで、その地下水の滞留時間や年代などの情報を得ることができる。これはカタログ化に際して、地下水の起源を議論する上で重要となる。平成 26 年度は、地下水中に溶存する希ガス元素の中で、特にヘリウム、ネオン、アルゴンの高精度同位体測定可能な「希ガス質量分析装置」の整備を実施した。

2) カタログ化に適した試料の選定・採取

現世の地下水と、その地下水から晶出した炭酸塩鉱物をセットで取得できる環境を検討した結

果、本事業では温泉水（地下水）とそこから晶出する石灰華（スケール）を標準試料とすることとした。試料の選択には、佐々木ほか（2009）⁴⁸⁾で示された温泉と鉱泉から取得した地球化学的データを参考にした。平成 26 年度は、佐々木ほか（2009）⁴⁸⁾が調査を行った地域のうち、晶出する炭酸塩鉱物が方解石であり、地下水の酸化還元電位の値も幅広い山梨県北杜市の増富温泉及び島根県鹿足郡の津和野湧水で、地下水の試料採取及び現地分析と、炭酸塩鉱物の試料採取を実施した。

3) 微小領域での分析手法の構築

3.3.2 (1) 2) で述べたように、炭酸塩鉱物を CL 像で観察すると結晶の成長段階の相違を示す累帯構造や明暗が見られ、その CL 像の明るさは、重金属元素の濃度の変化に依存する(図 3.3-8)。前述したように、炭酸塩鉱物中の金属元素濃度は、周辺の地下水の酸化還元電位を反映している可能性がある。例えば、Machel (2000)⁴⁹⁾は、炭酸塩鉱物の CL 像の明るさから、酸化還元電位の変化を定性的に把握できることを示した。

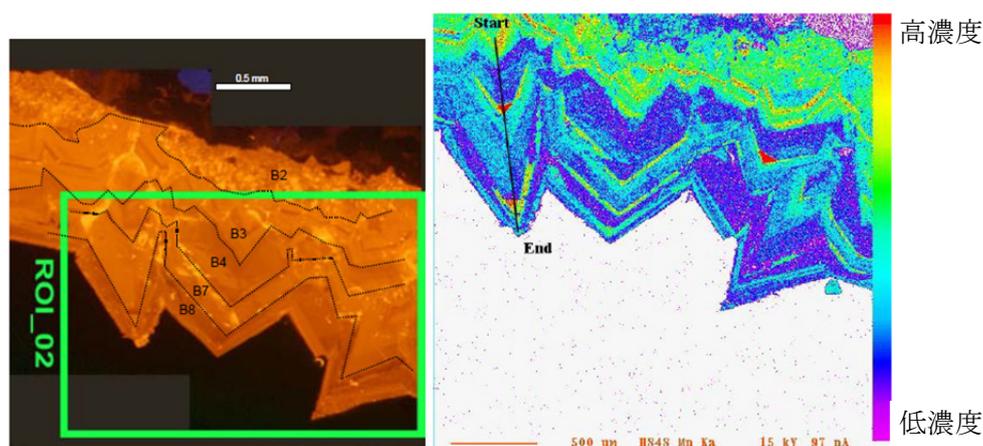


図 3.3-8 炭酸塩鉱物の CL 像（左図）とマンガンの濃度分布（右図）の関連 (Milodowski et al., 2005¹⁶⁾)

つまり、炭酸塩鉱物の累帯構造は、位置ごとに地質学的な意味合いが異なるだけでなく、結晶沈殿時の酸化還元状態も異なる可能性を示している。よって、平成 26 年度は、炭酸塩鉱物の CL 像を取得し、その「地質学的意味」を解釈した上で、空間分解能の高い微小領域の酸化還元電位を把握するために、累帯構造の観察法や各構造中の元素分析に際して重要となるポイントを整理し、その効率的な手法・手順の検討を実施した。

微小領域の酸化還元電位を把握するための元素分析には、年代測定と同様に効率的な「観察・分析点の選定」、「採取」、そして「測定」の手順をたどることが必要となる(図 3.3-5)。この分析手順の一翼を担う装置として、年代測定でも使用する LA-ICP 質量分析計を用いることを検討している(表 3.3-3)。LA-ICP 質量分析計は試料の採取(分取)、酸分解による溶液化、対象元素の分離などの煩雑な前処理手順は不要であり、「採取」と「測定」を一台の装置で実施することが可能となる。

また、電子線マイクロアナライザ (Electron Probe Micro Analyzer ; 以下、「EPMA」という)を用いた分析も可能である(表 3.3-3)。EPMA は LA-ICP 質量分析計のレーザー以上に空間分解能が高いだけでなく(最小ビーム径 2 μm)、迅速な測定が可能である(鈴木, 2005⁵⁰⁾)。さら

に、地球科学の分野では普遍的な装置であることから、汎用性が高いという利点もある。しかし、炭酸塩鉱物に対する適用例は少なく、例えば、サンゴに EPMA のビームを長時間照射すると、試料の融解や分解が生じるなどのダメージを受けてしまうという報告例がある（織田ほか, 2006⁵¹⁾）。特に、微量元素分析に適している波長分散型 X 線分光器 (Wavelength Dispersive X-ray Spectrometer : WDS) を備えた EPMA では、測定に必要な電子ビームの電流は非常に大きいため、試料へのダメージは大きい。したがって、炭酸塩鉱物に EPMA 分析を実施するためには、炭酸塩鉱物に適したビーム電流値やビーム径の設定などの検討が必要となる。

以上、炭酸塩鉱物の微小領域を対象とした分析手順としては、以下のような流れが考えられる。まず、ルミノスコープでの観察に基づいて炭酸塩鉱物の形成時期・形成環境を区分する。その際には、汎用的な偏光顕微鏡や電子顕微鏡による観察や結晶学的な情報が得られるラマン分光分析も有効であると考えられる。次に、この分類に基づき、LA-ICP 質量分析計や EPMA を用いて炭酸塩鉱物の生成時の地下水の化学的特性を推定する（表 3.3-3）。また、既存研究では、炭酸塩形成時の物理的・化学的な条件を明らかにするための手法として、安定炭素同位体比、酸素同位体比、ストロンチウム同位体比など炭酸塩鉱物に微量に含有される元素を利用した研究が行われてきた（例えば、Milodowski et al., 1998⁵²⁾, 2002⁵³⁾, 2005¹⁶⁾; Tullborg et al., 2008⁵⁴⁾）。これらの物理的・化学的なパラメータが、地下水から晶出する炭酸塩鉱物中の元素への分配挙動に影響を与えると推定される場合、誘導結合プラズマ質量分析装置 (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer ; 以下、「ICP 質量分析計」という) での湿式分析、高分解能二次イオン質量分析及びエックス線吸収端近傍構造などの先進的な装置による分析の適用についても、適宜検討を行う必要がある。

表 3.3-3 炭酸塩鉱物の微小領域における酸化還元電位を推定するための分析手順

ルート	『CL像の観察』		『採取』		『分析』
1	ルミノスコープ	⇒	マイクロドリル	⇒ 化学 処理	ICP質量分析法 など(元素分析・ 同位体分析)
2	ルミノスコープ	⇒	LA-ICP質量分析法 (元素分析・同位体比分析)		
3	ルミノスコープ	⇒	EPMA(WDS)分析 (元素分析)		

3.3.3 実施結果

平成 26 年度に実施した「放射年代測定法の開発」及び「酸化還元電位測定技術の構築」に関する研究開発の結果について以下に記す。

(1) 放射年代測定法の開発

1) LA-ICP 質量分析計の整備

平成 26 年度は、炭酸塩鉱物の微小領域の放射年代測定法の技術開発の一環として、平成 26 年 11 月に LA-ICP 質量分析計を導入し、その整備を実施した。ここでは、整備を行った LA-ICP 質量分析計の主な仕様を記し、さらに LA-ICP 質量分析計による U-Pb 年代測定について、平成 26 年度得られた知見と抽出した課題について報告する。

LA-ICP 質量分析計は、試料導入部にレーザーアブレーションシステムを備えた ICP 質量分析計で、特に本事業で整備した ICP 質量分析計は二重収束型高性能 ICP マルチコネクタ質量分析計であり、従来の四重極型 ICP 質量分析計用いた湿式分析で行われる溶液試料の定量的な元素組成分析と簡易的な同位体比分析のみならず、微小領域の高分解能かつ高精度な同位体分析が可能である。現在、主流となっている LA-ICP 質量分析計に用いるレーザーはエキシマレーザーとフェムト秒レーザーの二つの種類に大別される。エキシマレーザーアブレーション装置は、希ガスやハロゲンなどの混合ガスを用いて紫外線レーザーを発生させる装置である。フェムト秒レーザーと比較すると、汎用性が高く、試料をアブレーションする際に平坦な加工面を得られることが最大の特長である。一方で、同位体比分析において近年世界的に取り入れられつつあるフェムト秒レーザーアブレーション装置は、発生させるレーザーのパルス長がフェムト秒 ($fs = 10^{-15} s$) であり、試料をレーザーによって加熱する際にピコ秒 ($ps = 10^{-12} s$) オーダーで生じる熱拡散及び熱伝導よりパルス長が短く、対象とする微小領域の周囲へのダメージを減らすことができるという特長を持つ。また、エキシマレーザーでは困難な金属試料へのアブレーションも可能である。しかし、フェムト秒レーザーは超短パルス高エネルギー密度のため、試料の深さ方向へのダメージが大きく、ICP 質量分析計で検出されるシグナルの安定性は、エキシマレーザーと比べると低いという短所もある。導入する装置を検討した結果、汎用性の高さでシグナル(得られるデータ)の安定性の高さから、本事業ではエキシマレーザーアブレーション装置 (Photo-machines 社製 Analyte G2) を採用することとした (図 3.3-9)。同位体比測定用の ICP 質量分析計は、汎用性が高く、U-Pb 年代測定に際して必要なオーダーのデータが安定的に得られることや、文献値及び他の研究機関の測定データとの比較が可能であるという観点から、Thermo Fisher Scientific 社製の NEPTUNE-plus を採用した。LA-ICP-質量分析計は、炭酸塩鉱物の微小的な分析点選定に必要な二次元元素(同位体)マッピング技術開発及び U-Pb 年代測定のための高精度ウラン・鉛同位体分析に用いる (表 3.3-4)。

LA-ICP 質量分析計は、低濃度のウラン(あるいはトリウム)を定量測定できる潜在性を有する。それには、レーザー照射時間や強度、照射領域を増大させることにより装置への試料の導入量を確保することが必要となる。一方で、照射時間や照射強度が大きすぎると炭酸塩鉱物を破壊してしまう。平成 26 年度は、割れ目及び断層に介在する炭酸塩鉱物に対するビームの照射実験を行った。図 3.3-10 と図 3.3-11 に、独立行政法人海洋研究開発機構において、約 200 μm のビーム径のエキシマレーザーを照射した脈状の炭酸塩鉱物の組成像と二次電子像を示した。これらの図では、レーザークレーターの周囲に放射状にクラックが生じており、用いたレーザーの照射強度等が炭酸塩鉱物への照射条件として適していないことが推察される。また、レーザークレーターの周囲に、レーザー照射により生じたパーティクルが沈積しているのが認められる。つまり、レーザー照射で生じたパーティクルが、全て測定プロセスへ導入されていない。それに加え、元

素分別の発生も考えられ、試料の組成を反映しない分析結果となる可能性があることを示している。さらにレーザーの照射強度等を最適化し、炭酸塩鉱物に適したレーザー照射条件を見出すことが重要な課題であることが把握された。



図 3.3-9 土岐地球年代学研究所に導入した LA-ICP 質量分析計の写真
(左: ICP 質量分析計; 右:レーザーアブレーション装置)

表 3.3-4 土岐地球年代学研究所に導入した LA-ICP 質量分析計の仕様表

ICP 質量分析計名称	Thermo Fisher Scientific 社製 NEPTUNE-plus
質量分解能 (m/Δm)	低分解能(相対透過率 100%)時:450 中分解能(相対透過率 20%)時:6,000 高分解能(相対透過率 10%)時:8,000
分析可能な質量範囲	4 - 310 Da
検出器構成	ファラデーカップ: 9 基 (位置固定 1 基、位置固定 8 基) イオンカウント用二次電子増倍管: 7 基 (U-Pb 年代測定に対応した検出器構成)
ファラデーカップ増幅器構成	10 ¹¹ Ω 抵抗装備の検出器アンプ 9 基、 10 ¹² Ω 抵抗装備の検出器アンプ 1 基が付属
LA 装置名称	Photo-machines 社製 Analyte G2
レーザー仕様	193 nm の超短波 ATLex 300si エキシマレーザー < 4ns のパルス長 1 - 250 μm レーザー径を段階に応じて選択可能
サンプルセル	ANU HelEx 2-ボリュームセル (容積の大きなサンプルセル)

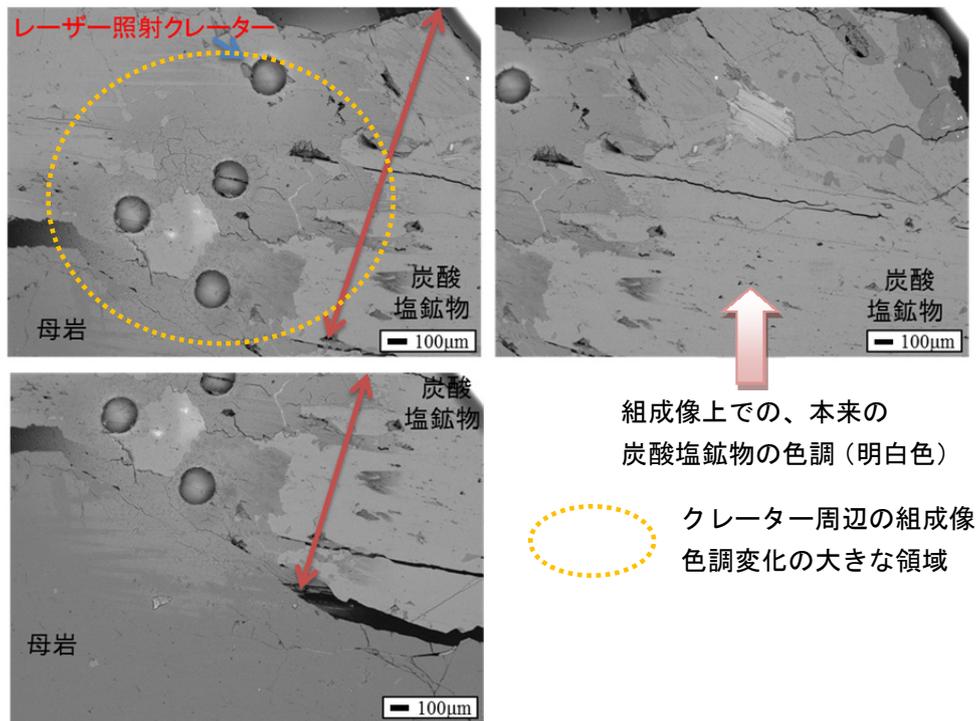


図 3.3-10 エキシマレーザー照射により生成した脈状の炭酸塩鉱物のクレーター（組成像）4カ所のレーザー照射クレーターを組成像上に示している。矢印部分が炭酸塩鉱物の分布域を示しており、組成像では明白色を呈する。しかし、クレーター周囲で本来の明白色から暗色への変化が認められる。

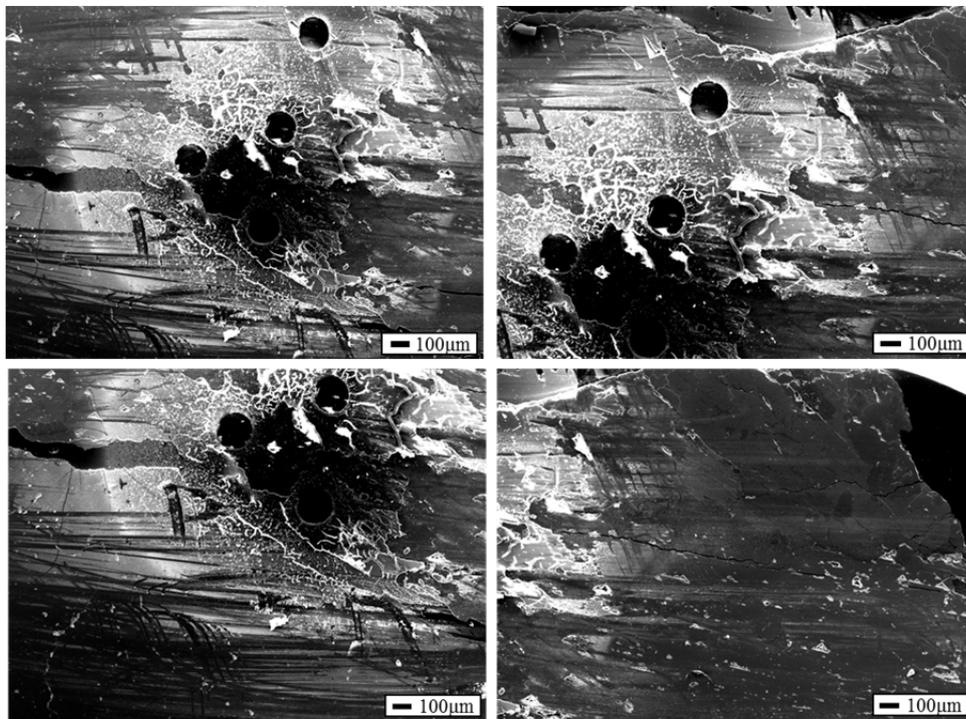


図 3.3-11 エキシマレーザー照射により生成した脈状の炭酸塩鉱物のクレーター（二次電子像）クレーターの周囲で複数のクラックが認められる。またレーザー照射により生じたパーティクルの沈積が認められる。

2) 微小領域分析

割れ目に晶出している炭酸塩鉱物の化学組成は、その起源物質となる地下水の組成を反映している。例えば、地下水が熱水であった場合は、元素の溶解度が高く周囲の鉱物中の元素を取り込むため、地下水の溶存元素は周囲の構成鉱物の組成を反映する。親核種の子孫核種への壊変をとらえる手法を用いる場合の放射年代測定は、必然的に閉鎖系になった時に親核種の存在度が高く子孫核種の存在度が低いものが好ましい。すなわち、U-Pb 年代を求める際には、試料中のウラン濃度が高いものほど高精度な年代値を得ることができ、反対に定量下限値以下のウラン濃度である場合、年代決定は不可能である。さらに、子孫核種（ここでは壊変起源の鉛）を高精度に分析する必要がある。本事業では、炭酸塩鉱物の U-Pb 年代法開発を目指しているが、炭酸塩鉱物中はウラン含有量が低いことから、実現は困難であることが指摘されている (Jahn and Cuvelleur, 1994³⁴⁾)。しかし、近年の分析機器の感度向上やレーザーアブレーションなどによる微小領域に対する分析技術開発の向上によって、炭酸塩鉱物の U-Pb 年代測定には技術開発の可能性を有する。また、一般に行われる全岩試料の年代測定では、対象とする親核種（ここではウラン）の濃度が均質化される。すなわち、全岩分析で定量限界値以下であっても、微小分析においては、必ずしも同様ではなく、測定できる可能性がある。

LA-ICP 質量分析計を用いた U-Pb 年代測定技術開発に先駆けて、2014 年 6 月に米国カリフォルニア州サクラメントで開催された Goldschmidt 2014 において、炭酸塩鉱物に対する U-Pb 法を用いた年代測定技術に関する知見の収集を行った。その中で、「The Small, the Bad and Ugly: U-Pb Dating Buried Spelothems from Archaeological Cave Sites (発表者: Pickering, R. abstract #1961⁵⁵⁾)」において U-Pb 法を炭酸塩鉱物へ適用した最新の知見を得た。この研究は、South Africa Wonderwerk Cave 内で堆積物に埋もれた石筍（年代値 10 万年オーダ）を対象に、U-Pb 年代を LA-ICP 質量分析計を用いて測定したものである。この研究では、炭酸塩鉱物中の「分析の可否」を見分ける手法として、イメージングプレート（以下、「IP」という）を用いた。石筍を成長方向に鉛直に切断し、4 週間 IP 上に置き、ラジオグラフィによる感光度合いによってウラン濃度の高い個所をレーザー照射の対象とした。IP によるラジオグラフィを用いた例として、惑星物質中のアルカリ元素（カリウム）に富む岩片試料に対し、IP を用いて試料を同定し、カリウム量にして約 50 μg 程度の物質の定量を試みた報告 (Yokoyama et al., 2014⁵⁶⁾) もある。これらの報告のように、試料の分析点を検討するため、非破壊・非汚染での元素マッピング取得の手法が用いられている。

年代測定技術開発の第一歩として、分析点を炭酸塩鉱物中のいずれの場所に配置するのは重要な問題である。上記のように IP などを用いる方法も有効ではあるが、時間を要するため、本事業では、レーザー照射を行う場所の選定を行う上で必要な元素の二次元マッピング情報（以下、イメージングという）を LA-ICP 質量分析計を用いて得る技術開発を実施した。このイメージング技術の開発に関して国立大学法人京都大学及び株式会社京都フィッション・トラックを共同研究の連携先として、「炭酸塩鉱物の LA-ICP-MS による U-Pb 年代測定法の研究」と題した共同研究を実施した。また、高精度同位体比測定手法の開発のために、独立行政法人海洋研究開発機構を共同研究の連携先として、「炭酸塩鉱物の LA-ICP-MS による同位体分析手法の開発」と題した共同研究を実施した。

3) 微小領域分析のための装置整備

平成 26 年度は炭酸塩鉱物の微小領域における「放射年代測定」及び「酸化還元電位測定」のため、「安定同位体比質量分析計用炭酸塩前処理システム」、「ルミノスコープ」と「OSA」、「マイクロミル」及び「マイクロ天秤」の導入した。各設備の主な仕様を以下に記す。

・安定同位体比質量分析計用炭酸塩前処理システム

既存の安定同位体比質量分析計に接続できる炭酸塩前処理システムである IsoPrime 製 MultiCarb を導入した (図 3.3-12; 表 3.3-5)。本装置の導入により、数百 μg 以下での微量炭酸塩の安定炭素同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$) 及び安定酸素同位体比 ($\delta^{18}\text{O}$) の自動測定が可能となる。 $\delta^{13}\text{C}$ 及び $\delta^{18}\text{O}$ は炭酸塩鉱物や水中の溶存無機炭素の供給源推定に必要なデータであり、年代測定結果の解釈と酸化還元電位測定技術を構築するための基礎情報となる (Iwatsuki et al., 2002¹⁷); 新井ほか, 2003⁵⁷); Blyth et al., 2004⁵⁸), 2009¹⁴)。特に、地下環境では、炭酸塩鉱物が溶解-沈澱を繰り返すため、炭酸塩鉱物の供給源や挙動は時間的及び空間的に極めて複雑になる可能性が考えられる。しかし、炭酸塩鉱物の化学データを用いて地下環境を復元する際には、供給源と挙動履歴を明らかにする必要がある。

MultiCarb は、 $35 - 100\text{ }^{\circ}\text{C}$ ($\pm 0.1\text{ }^{\circ}\text{C}$ 以内) に設定した恒温槽中で炭酸塩試料とリン酸とを反応させ、同位体比測定用の炭酸ガスを発生させる装置である。恒温サンプルトレイ及びオートサンプラーにより、60 試料の連続測定が可能である。試料瓶中の大気除去、リン酸滴下、生成した炭酸ガスの移動は、一本の二重構造ニードルにより効率的に実施することができる。得られたガス中には水分が含まれるため、付属の冷却式水トラップにより水分を除去し、炭酸ガスの精製を行う。本装置では、コールドフィンガーによる炭酸ガスの濃縮も可能である (液体窒素による微小空間へのガスの移動・濃縮)。また、本装置により生成した炭酸ガスはデュアルインレットシステム (自動ガス圧調整、未知試料と標準試料との交互測定が可能) により既存の安定同位体比質量分析計へ直接導入できる。同じ強度で未知試料と標準試料とを交互測定することにより高精度データが得られる。本装置における $\delta^{13}\text{C}$ 及び $\delta^{18}\text{O}$ の測定精度は、それぞれ、 $\leq 0.2\text{ }_{\text{‰}}$ 、 $\leq 0.4\text{ }_{\text{‰}}$ である。今後は、測定に最低限必要な試料量、酸の滴下量、反応温度及び反応時間の最適化などを検討する必要がある。また高精度の同位体比データを得るためには炭酸塩鉱物の分解に用いる試薬リン酸に含まれる水分をできる限り除去し、100 %リン酸に調製して使用することが求められる。そのため、真空ポンプで試薬リン酸の入ったガラス容器を減圧し、液体窒素で水分をトラップすることで 100 %に近いリン酸を調製することができるシステムの構築を行った。リン酸を使用する直前に、再度、高真空度用のターボ分子ポンプで減圧し、同位体比測定に必要な試薬の純度を維持することが可能である。

・ルミノスコープ及びルミノスコープに装着する OSA

CL 像を観察するためのルミノスコープを導入した (図 3.3-13; 表 3.3-6)。これにより、炭酸塩鉱物の微小領域の構造が観察可能となる。CL 装置には、電子線照射源の様式により、冷陰極型、熱陰極型、SEM / EPMA 付属型がある。平成 26 年度に導入したルミノスコープは冷陰極型電子銃を備えた CL 装置であり、他装置に比べて小型のため顕微鏡に取付け可能である。これにより CL 像と顕微鏡像を容易に対比することができる。これは、マイクロミル (後述) を用いた試料採取 (マイクロサンプリング) に際して大変有用である。

平成 26 年度に導入したルミノスコープ本体は電子銃 ($4\text{ kV} - 30\text{ kV}$, $20\text{ }\mu\text{A} - 2\text{ mA}$) を内蔵したトッププレート、可変試料ステージ、真空チャンバー、コントロールユニット、真空ポンプで構成され、偏光顕微鏡のステージ部分に取付けられている。また、本装置には、最大幅 50 mm、長さ 70 mm、高さ 15 mm の試料ステージが設置可能であり、大型試料の観察ができる。顕微鏡像 (PC モニター画面) から観察位置を設定し、真空条件下 ($< 0.003\text{ mbar}$) で薄片試料に電子線を照射し CL 像を観察する。炭酸塩鉱物のテスト試料を用いて、カソード電圧 15 kV、電流値 200 μA の条件で炭酸塩鉱物の CL 像の観察が適切に実施できることを確認した (図 3.3-15)。ま

た、ルミノスコープに OSA を追加で導入した (図 3.3-14; 表 3.3-7)。OSA を用いることで分光分析が可能となる。本装置を用いた先行研究の例として、例えば Baele et al. (2011)⁵⁹⁾により蛍石の CL 観察と局所分析結果の関係が議論されており、地質試料に対しても有効な装置であるといえる。

今後は、それぞれの天然試料に適した測定条件 (電子銃の出力コントロール、真空度調節、観察試料の調製) の検討が必要である。また、既に採取した炭酸塩試料 (後述の鍾乳石、石灰華) の薄片作製と CL 像観察を進め、試料選別とともに成長段階ごとのマイクロサンプリングに必要なデータを蓄積していくことが重要である。

・マイクロミル

微量固体試料サンプリング装置であるマイクロミルを導入した (図 3.3-16; 表 3.3-8)。マイクロミルは岩石から切り出したチップ状の固体試料から、化学分析や同位体分析に使用する粉体試料を作成する装置である (Yoneda et al., 2004⁶⁰⁾; 坂井, 2009³⁹⁾)。CL 像を観察した結果を基に、マイクロミルを用いて炭酸塩鉱物の微小領域を成長帯ごとに切削することが可能である。マイクロミルは CCD ビデオカメラ、高分解能顕微鏡、高速回転ドリルビット、試料ステージ、制御用コンピューターで構成されている。切削位置及び切削パターンは、顕微鏡像を確認しながら PC モニター上で設定可能であり、専用ジョイスティックを用いて位置制御することもできる。タングステンカーバイド製のドリルビットにより 100 μm スケールで目的位置の切削ができることを確認した。粉末化した微小試料の回収方法として、ピペットで粉体ごと吸い上げる手法を検討している。今後は、実試料を用いて切削後の微量粉体試料の効率的な回収方法を確立させることが必要である。

・マイクロ天秤

マイクロ天秤 (最小表示 0.001 mg) の導入により、炭酸塩鉱物の微小領域から切削した粉末試料の正確な秤量が可能になった (図 3.3-17; 表 3.3-9)。マイクロ天秤は本体外部及び内部の空気対流の影響を防ぐため、二重風防、背面懸架方式の格子状計量皿を備えている。また、静電気による試料の散逸や二次汚染を防ぐため、コンパクトイオナイザーが内蔵されている。秤量した試料は、酸化還元電位測定技術の構築に必要な希土類元素などや軽元素の定量分析、炭素や酸素の安定同位体比分析及び年代測定に使用する。

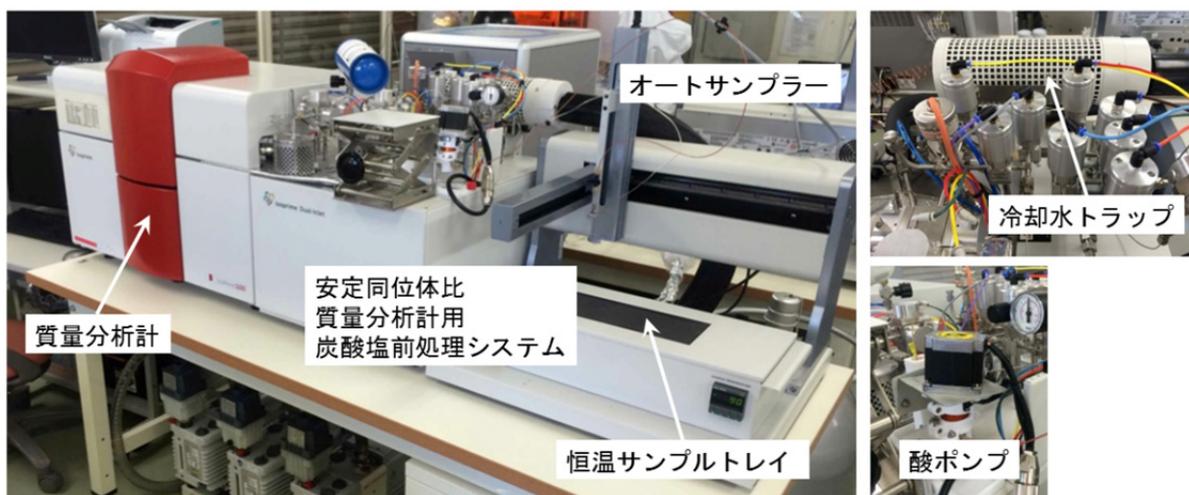


図 3.3-12 土岐地球年代学研究所に導入した安定同位体比質量分析計用炭酸塩前処理システムの写真

表 3.3-5 土岐地球年代学研究所に導入した安定同位体比質量分析計用炭酸塩前処理システムの仕様表

装置名称	IsoPrime 社製炭酸塩前処理装置 (MultiCarb)
本体サイズ	650 mm (横幅) × 700 mm (奥行き) × 1000 mm (高さ)
チラーユニットサイズ	380 mm (横幅) × 510 mm (奥行き) × 530 mm (高さ)
外部精度 (1 σ , 炭酸塩 40 -200 μg , n=10)	$\delta^{13}\text{C} \leq 0.2 \text{ ‰}$ $\delta^{18}\text{O} \leq 0.4 \text{ ‰}$
恒温サンプルトレイ	35 - 100 $^{\circ}\text{C}$, $\pm 1 \text{ }^{\circ}\text{C}$, 60 個サンプルポジション
その他	既存の安定同位体比質量分析計のデュアルインレットに接続 リン酸ポンプによる試料への酸添加 二重構造ニードルによる多段階操作 冷却式水トラップによる水分除去 コールドフィンガーによるサンプルガスの濃縮

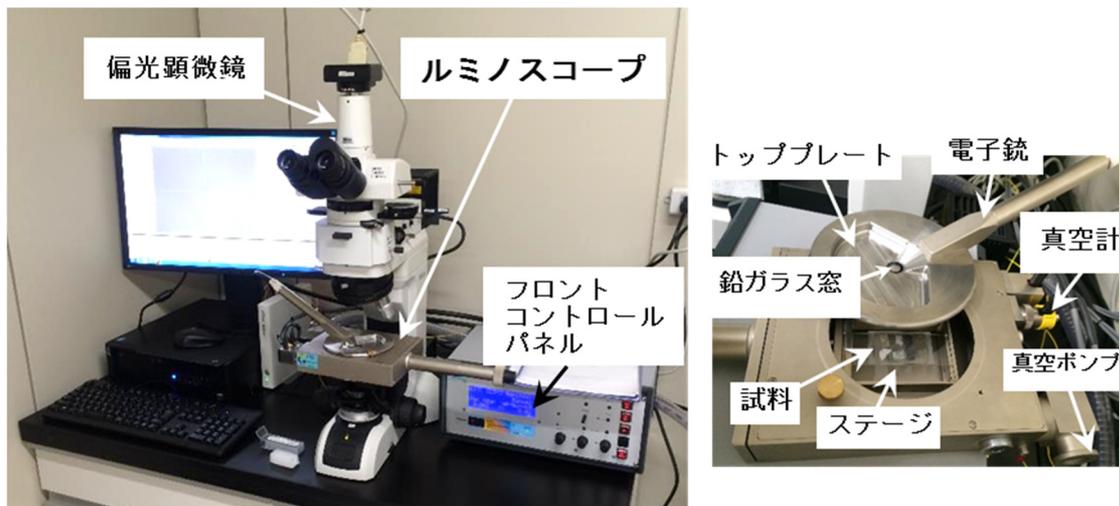


図 3.3-13 土岐地球年代学研究所に導入したルミノスコープの写真

表 3.3-6 土岐地球年代学研究所に導入したルミノスコープの仕様表

装置名称	Cambridge Image Technology 社製ルミノスコープ (CL8200 MK5-2)
本体サイズ	150 mm (横幅) × 400 mm (奥行き) × 40 mm (高さ)
試料ステージ内径	50 mm (横幅) × 70 mm (奥行き) × 15 mm (高さ)
電子銃	CLMK4/5 electron gun long, 4 kV – 30 kV, 20 μ A – 2 mA
真空ポンプ	Edwards RV3 (チャンバー真空度 < 0.003 mbar)
偏光顕微鏡	Nikon Eclipse LV100N POL



図 3.3-14 土岐地球年代学研究所に導入した OSA の写真

表 3.3-7 土岐地球年代学研究所に導入した OSA の仕様表

装置名称	Cambridge Image Technology 社製光学スペクトルアナライザ
分光方法	可視・紫外分光法 (UV/VIS)
使用波長範囲	250-850(nm)

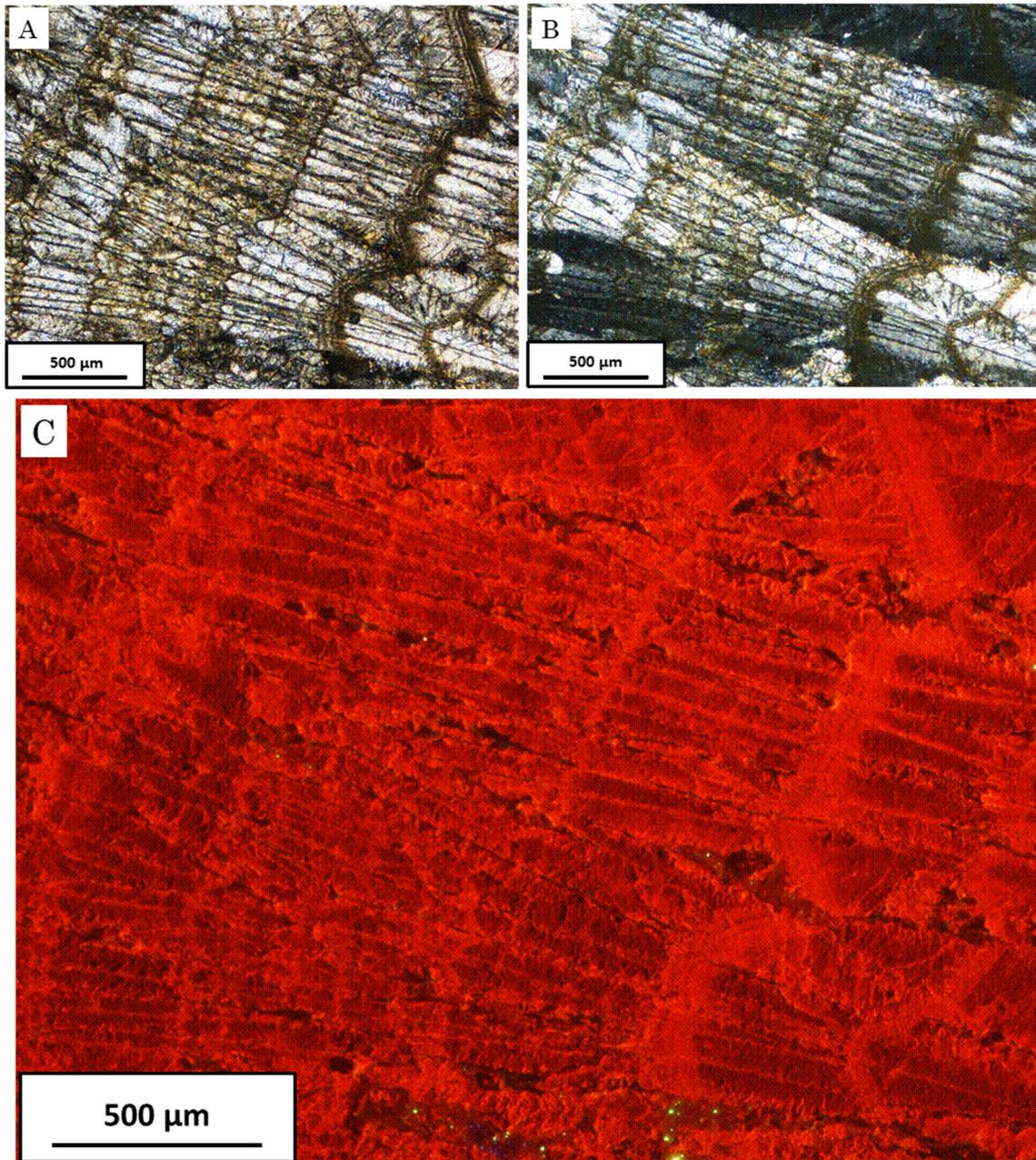


図 3.3-15 ルミノスコープで観察した炭酸塩鉱物の CL 像
炭酸塩鉱物の偏光顕微鏡写真 ((A) オープンニコル、(B) クロスニコル) 及び CL 像 (C)。炭酸塩鉱物の CL 像は、偏光顕微鏡下で観察される組織と対応するコントラストを示す。

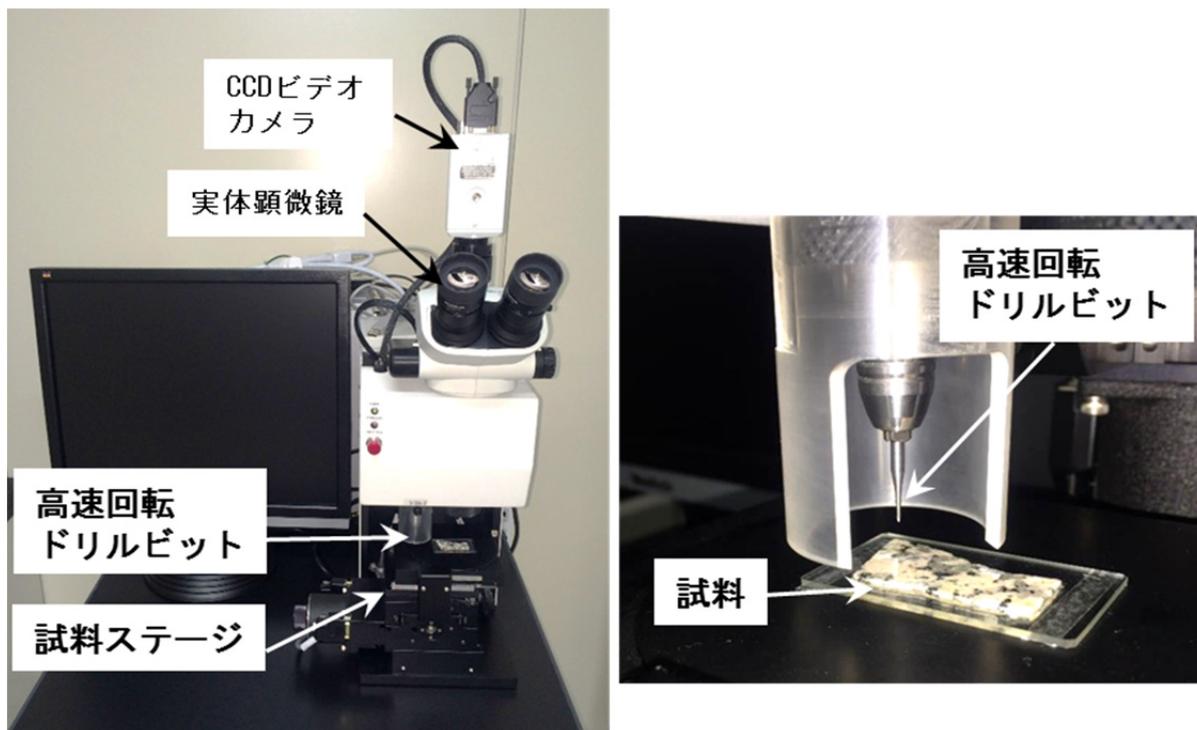


図 3.3-16 土岐地球年代学研究所に導入したマイクロミルの写真

表 3.3-8 土岐地球年代学研究所に導入したマイクロミルの仕様表

装置名称	ESI, New Wave Research 社製マイクロミル (MicroMill)
本体サイズ	305 mm (横幅) × 406 mm (奥行き) × 660 mm (高さ)
ドリルビット	タングステンカーバイド製 (回転数 1,200 - 35,000 rpm)
試料ステージ	移動範囲: 50 mm × 50 mm, サブミクロン精度
CCDビデオカメラ	JAI CV-S3200
顕微鏡	Olympus SZ61, 6.7x - 40x



図 3.3-17 土岐地球年代学研究所に導入したマイクロ天秤の写真

表 3.3-9 土岐地球年代学研究所に導入したマイクロ天秤の仕様表

装置名称	Mettler Toledo 社製マイクロ天秤 (XP56V)
本体サイズ	263 mm (横幅) × 487 mm (奥行き) × 322 mm (高さ)
最大秤量値	52 g
最小表示	0.001 mg
最小計量値 (U=1%, 2SD)	0.140 mg (総重量)
計量皿	背面懸架方式、格子状計量皿、40 mm × 40 mm
その他	コンパクトイオナイザー内蔵、二重風防、全自動校正

4) 年代測定技術を構築するための炭酸塩鉱物試料の採取

割れ目及び断層を充填する炭酸塩鉱物は脈状及び網状をなし、微小な累帯構造を呈する。このため、LA-ICP 質量分析計を用いた数十 μm 以下の微小領域の同位体比測定技術及び元素分析手法の開発が必要となる。このような微小領域の分析技術の開発の達成には、年代測定の技術的な開発だけでなく、炭酸塩鉱物試料の成因や続成作用が測定年代へ与える影響の評価、あるいは補正技術を確立することが不可欠となる。すなわち、どのような炭酸塩鉱物を標準試料として選定するのかが重要となるが、国内外で現在、ウラン系列の年代測定用の炭酸塩鉱物の標準試料は報告されていない。平成 26 年度は、標準試料となり得る炭酸塩鉱物の選定基準、それとともに、年代測定技術の構築に向けて必要なアプローチ手法を確立した (3.2 章「アプローチ」を参照)。炭酸塩鉱物の年代測定アプローチの手順は、「海生化石の年代測定」、「炭酸塩岩の年代測定」を行い、手法の適用性の確認を実施した後、「割れ目及び断層に介在する炭酸塩鉱物 (未知試料) の年代測定」を実施する計画を提示した (図 3.3-6)。本事業は、国立大学法人京都大学及び株式会社京都フィッシュン・トラックを共同研究の連携先として、「炭酸塩鉱物の LA-ICP-MS による U-Pb 年代測定法の研究」と題した共同研究の一部で実施した。加えて、本共同研究に基づき海生化石の選択・採取を実施した。

また、平成 26 年度は標準試料となる炭酸塩鉱物である鍾乳石を採取した。鍾乳石の多くは縞状構造が発達し (狩野, 2012⁶¹)、縞ごとに形成年代が異なる (Watanabe et al., 2010³⁰)。この性質を利用し、鍾乳石の年代測定を実施することで、同一の分析条件で異なる年代値を持つ試料 (1 つの試料で同じ測定条件の分析が可能/同一試料内での各分析部分の主成分や構造等が類似) の分析や、得た年代値の妥当性について、速やかに検証することが可能となる。平成 26 年度に試料を採取した地点を図 3.3-18 に示す。岐阜県郡上市の「大滝鍾乳洞」及び「縄文鍾乳洞」、山口県美祢市にある秋吉台に分布する鍾乳洞の「北山北の横穴」において鍾乳石を採取した。これに関連し、「炭酸塩鉱物の微小領域における化学組成測定手法の開発」と題し、山口県美祢市の鍾乳石を用いるための共同研究を実施した。

大滝鍾乳洞・縄文鍾乳洞は前期 - 中期ペルム紀に形成された石灰岩、チャート及び石灰岩レンズを伴う緑色岩類からなる安久田岩体 (脇田, 1984⁶²) 内に位置する。大滝鍾乳洞は東西走向の直線型である (梶田ほか, 1971⁶³)。縄文鍾乳洞は多数の階層構造を有し、通路が上下左右で立体的に交差する迷路状をなす (梶田, 1970⁶⁴)。この地域の洞窟の形成には、断層や割れ目を水みちとした地下水の流動が関係していると考えられている (梶田, 1980⁶⁵)。大滝鍾乳洞の鍾乳石は Nakai and Shirai (1978)⁶⁶により ^{14}C 法を用いた年代測定が、曾根ほか (2014)⁶⁷によって U-Th 法を用いた年代測定がそれぞれ実施されている。本事業で開発する手法によって得られた年代値とこれらの既往報告を比較することで、開発した手法の妥当性を速やかに評価できる。

「炭酸塩鉱物の微小領域における化学組成測定手法の開発」共同研究報告書より、北山北の横穴周辺の地質概略を抜粋して記す。北山北の横穴は山口県美祢市の秋吉台上に位置する。秋吉台は厚東川を挟む二つの台地から構成され、100 km^2 程度の面積を有する日本最大規模の石灰岩台地である。秋吉台の石灰岩は前期石炭紀より中期ペルム紀の末期にかけて堆積した生物礁複合体からなり (太田ほか, 1978⁶⁸)、日本列島を形成する古生代後期の付加体として国内外に広く認識されている (藤川, 2010⁶⁹)。秋吉台周辺には、国の特別天然記念物である秋芳洞をはじめ、450 を超える鍾乳洞の存在が報告されており (山口ケイビングクラブ, 2012⁷⁰)、藤井 (2009)⁷¹ などによりこれらの鍾乳洞群の形成年代が議論されている。

鍾乳石を採取した地点の写真を図 3.3-19 に、採取した鍾乳石の写真を図 3.3-20 に示す。大滝鍾乳洞では、転石、折れて床面に転落していた鍾乳石及び自生しているつらら石 (図 3.3-19A) を採取した。縄文鍾乳洞では、折れて床面に転落していた鍾乳石及び転石の上に自生していたと

考えられる折れた鍾乳石（図 3.3-19B）を採取した。また、山口県美祢市の試料を含めた試料リストを表 3.3-10 に示す。

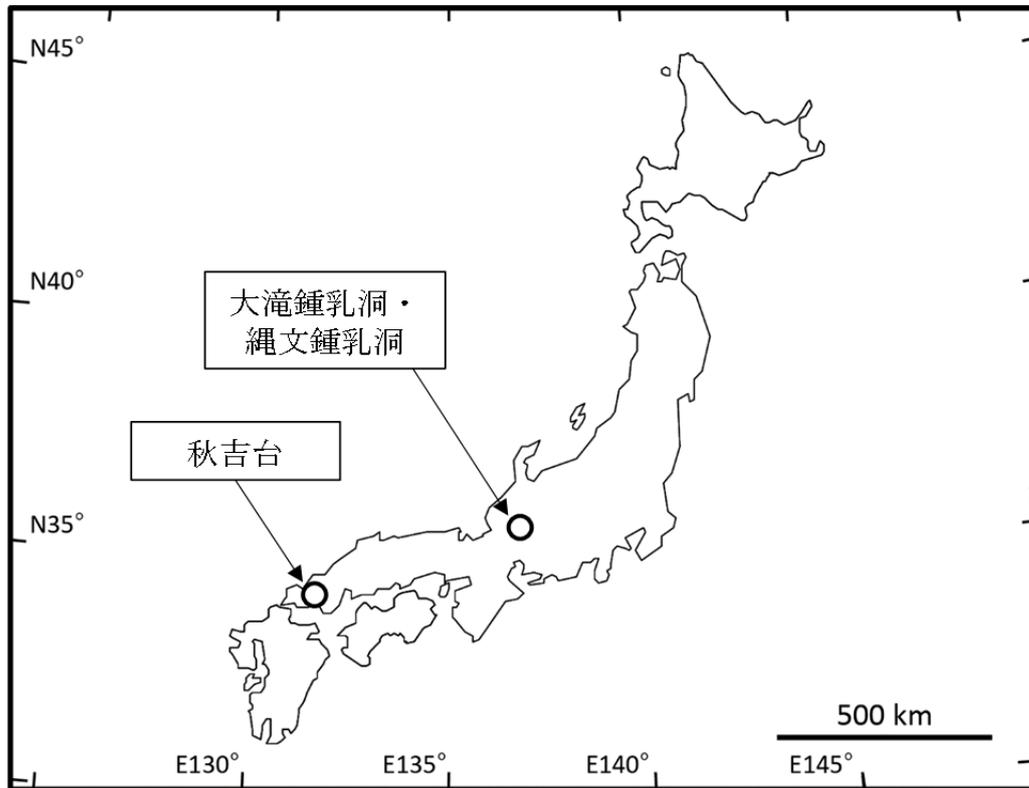


図 3.3-18 「炭酸塩鉱物の年代測定法の開発」に用いる鍾乳石の採取位置図

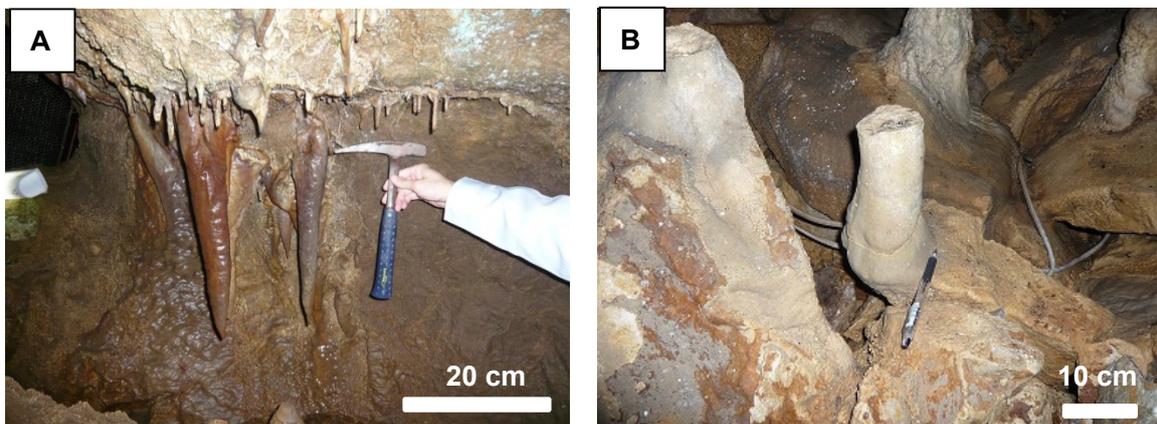


図 3.3-19 鍾乳石の採取現場の写真

A) 大滝鍾乳洞のつらら石、B) 縄文鍾乳洞の鍾乳石



図 3.3-20 縄文鍾乳洞で採取した鍾乳石の写真
(スケールバーの長さは 12 cm)

表 3.3-10 「炭酸塩鉱物の年代測定法の開発」に用いる試料リスト

採取場所	試料No.	採取日時
北山北の横穴 (山口県美祢市)	AK-1	2015/1/19
	AK-2	2015/1/19
	AK-3	2015/1/19
	AK-4	2015/1/19
	AK-5	2015/1/19
	AK-6	2015/1/19
大滝鍾乳洞 (岐阜県郡上市)	OH-1	2014/7/15
	OH-2	2014/7/15
	OH-3	2014/10/20
縄文鍾乳洞 (岐阜県郡上市)	JO-1	2014/10/20
	JO-2	2014/10/20

(2) 酸化還元電位測定技術の構築

1) 炭酸塩鉱物及び地下水の採取・分析

「炭酸塩鉱物の酸化還元電位測定技術の確立」に用いる試料採取地点は、既往調査（例えば、佐々木ほか, 2009⁴⁸⁾など）から、(1) 炭酸塩鉱物として方解石が地下水から直接晶出していること、(2) 晶出している方解石の量が多いこと、(3) 近年、炭酸塩鉱物を採取した実績があり、良好な試料を採取できる可能性が高いことを基に選定した。平成 26 年度にサンプリングを実施した地域は、山梨県北杜市の増富温泉周辺（以下、増富温泉）、島根県鹿足郡津和野町及び吉賀町（以下、津和野湧水）である（図 3.3-21）。

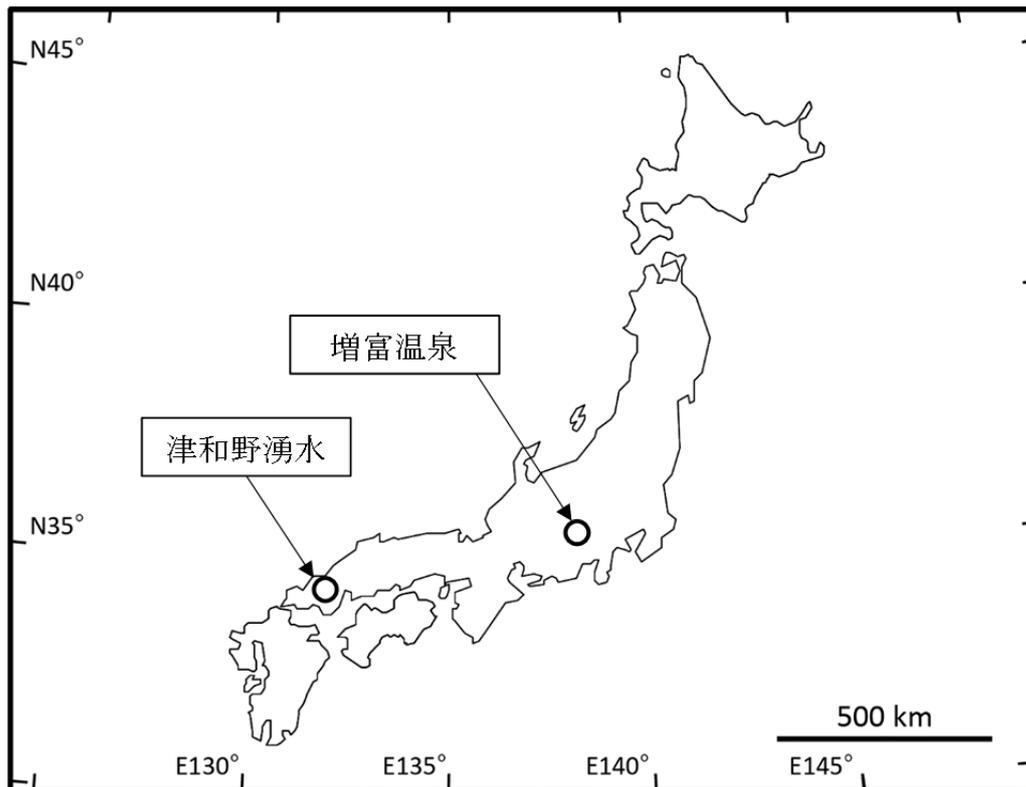


図 3.3-21 「炭酸塩鉱物の酸化還元電位測定技術の構築」に用いる試料の採取位置図

増富温泉は、山梨県北杜市を流れる本谷川上流付近に分布する。増富温泉の周辺には、白亜系四万十層群である砂岩泥岩互層と、それに貫入する第三系の花崗岩類及び第四系の珪長質貫入岩が分布する（尾崎ほか, 2002⁷²⁾。増富温泉の水質は Na^+ と Cl^- に富み、高濃度のラドンやラジウムを含むという特徴がある（Kanai, 1988⁷³⁾。増富温泉の石灰華は、主に鉄質沈殿物と炭酸塩鉱物からなる（金井, 1989⁷⁴⁾。炭酸塩鉱物は、

から構成され、アラゴナイトは含まれない（金井, 1989⁷⁴⁾。また、石灰華の形成には微生物が大きく関与することが指摘されている（田中ほか, 2001⁷⁵⁾。増富温泉の起源について、矢板ほか（1991）⁷⁶⁾は水質組成の特徴から四万十層群に含まれる化石水を由来とする可能性を、佐々木ほか（2009）⁴⁸⁾は深部塩水である有馬型熱水（Matsubaya et al., 1973⁷⁷⁾）が関与する可能性を、それぞれ言及している。

津和野湧水は、島根県鹿足郡津和野町及び吉賀町を流れる津和野川と、津和野町及び吉賀町を流れる高津川の周辺に位置する。津和野湧水の周辺には、ペルム系付加コンプレックスである舞鶴帯に対比される泥質混在岩と秋吉帯に対比される砂岩や泥質混在岩、美濃丹波帯のジュラ系付加コンプレックスである鹿足層群に対比される泥岩、砂岩、泥質混在岩及び周防変成帯の三郡変成岩類に対比される黒色片岩が分布する（福富・磯崎, 1988⁷⁸⁾; 磯崎ほか, 2010⁷⁹⁾。津和野湧水の水質は、増富温泉と同じく Na^+ と Cl^- に富む（安川・田中, 2008⁸⁰⁾。津和野湧水の石灰華は主に鉄質沈殿物と炭酸塩鉱物からなり、炭酸塩鉱物は方解石から構成され、アラゴナイトは含まれない（佐々木ほか, 2009⁴⁸⁾。

石灰華及び地下水試料は、地下水の酸化や微生物の影響を低減させるため、できる限り湧出口付近で採取した。地下水試料は採取後現地にて速やかに吸引瓶を用いてろ過し、室内水質分析用試料とした。また、地下水試料採取時に併せて電極（Horiba 社製ポータブル pH メータ D-74T 型）を用いて物理化学パラメータ（pH、酸化還元電位、電気伝導度、水温）を、吸光光度計（HACH

社製 DR900 型ポータブル吸光光度計)を用いて大気中の酸素の影響を受けやすい Fe^{2+} 、 Fe -Total、 Mn^{2+} 、 S^{2-} の濃度を測定し、滴定 (HACH 社製デジタルタイトレータを使用) にてアルカリ度を測定した。石灰華及び地下水 (温泉水) 採取時の現場写真を図 3.3-22 に、採取した炭酸塩鉱物の写真とリストを図 3.3-23 及び表 3.3-11 にそれぞれ示す。



図 3.3-22 「炭酸塩鉱物の酸化還元電位測定技術の構築」に用いる炭酸塩鉱物及び地下水の試料採取現場の写真

- A) 地下水試料のろ過作業、B) 炭酸塩鉱物試料の採取、
 C)、D) ポータブル吸光光度計を用いた現地分析、E) 自噴する温泉水の採水、
 F) デジタルタイトレータを用いたアルカリ度測定、G) 物理化学パラメータ測定。

増富温泉では、主に温泉施設の湧出口付近に沈殿している石灰華を採取した。増富温泉の石灰華は厚さ数 mm 程度の平板状で、黄褐色～茶褐色を呈する。津和野湧水では、主に野外で湧出する地下水の湧出口付近で石灰華を採取した。津和野湧水の石灰華は、主に河岸の護岸部や岩盤部の上に沈殿しており正確な厚さは不明だが、規模の大きい場所では厚さが 1 m 以上ある。石灰華の表面にはリムストーンが棚田状に形成されている (図 3.3-23A)。石灰華は黄褐色 - 茶褐色を呈すが、内部は明部と暗部が混在する (図 3.3-23B)。石灰華内部の明暗は、数 cm - 数十 cm 程度の周期で繰り返す層状構造をなすものも観察される (図 3.3-23C)。また、増富温泉及び津和野湧水から採取した炭酸塩鉱物の X 線回析 (X-ray diffraction ; 以下、「XRD」という) 測定の結果を図 3.3-24 に示す。XRD 測定は土岐地球年代学研究所に設置されているリガク社製 Ultima IV を用い、測定範囲 ; 3 - 70°、スキャン速度 ; 5.0° /min、サンプリング幅 ; 0.01°、電圧 ; 40 kV、電流 ; 30 mA の条件で実施した。増富温泉で採取した炭酸塩鉱物は全て方解石で構成されている。一方で、津和野湧水で採取した炭酸塩鉱物は方解石とアラゴナイトが共存している。炭酸塩鉱物の結晶形の違いは溶液の水質や沈殿速度等に依存する (北野, 1990)⁸¹⁾ことから、両地点で炭酸塩鉱物の形成メカニズムが異なる可能性がある。

採水した地下水 (温泉水) の一般水質分析のうち、増富温泉の分析結果を図 3.3-25 に、津和野湧水のうち島根県鹿足郡津和野町内の津和野湧水の分析結果を図 3.3-26 に、島根県鹿足郡吉賀町内の津和野湧水の分析結果を図 3.3-27 にそれぞれ示す。また、増富温泉及び津和野湧水のトリリニアダイアグラムを図 3.3-28 に示す。増富温泉と津和野湧水はともに Na⁺及び Cl⁻に富む水質組成を示す。また、地下水 (温泉水) の溶存イオン濃度は、周辺の河川水と比較して著しく高い。ただし河川水の水質は、日本の河川水は一般的に Ca²⁺及び HCO₃⁻に富む傾向がある (山本, 1983⁸²⁾) が、両地域の河川水は採水した地下水 (温泉水) と同じく Na⁺及び Cl⁻に富む水質組成を示すものもある (図 3.3-28)。このことから、増富温泉及び津和野湧水の周辺を流れる河川水の水質は、高塩濃度の地下水 (温泉水) の影響を受けていると示唆される。

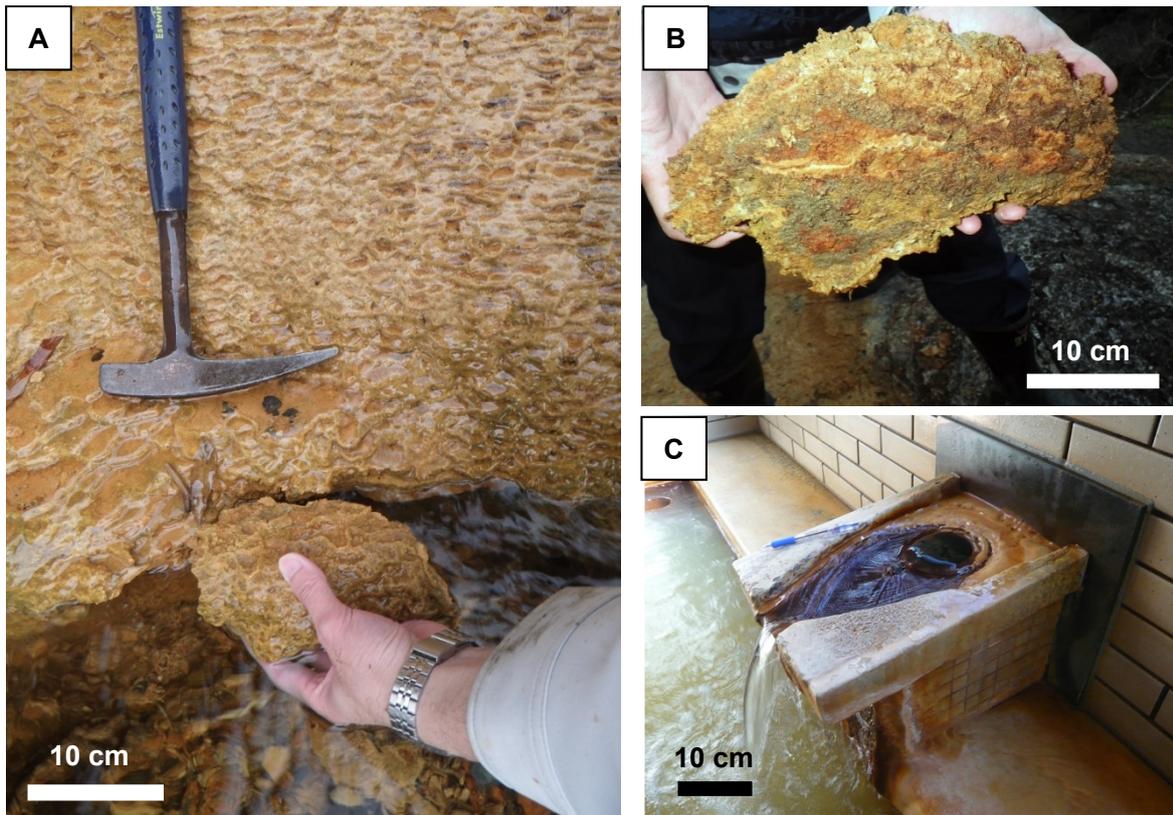


図 3.3-23 採取した炭酸塩鉱物試料の写真
A) 島根県吉賀町の試料、B) 島根県津和野町の試料、C) 山梨県北杜市の試料。
湧出口周辺に沈殿している鉱物を採取した。

表 3.3-11 「炭酸塩鉱物の酸化還元電位測定技術の構築」に用いる試料リスト

採取場所	試料No.	採取日時
増富温泉 (山梨県北杜市)	MS1	2014/10/16
	MS2	2014/10/16
	MS3	2014/10/16
	MS4	2014/10/27
	MS5	2014/10/27
	MS6	2014/10/27
	MS7	2014/10/28
	MS8	2014/10/28
	MS9	2014/10/28
	MS10	2014/11/5
津和野湧水 (島根県鹿足郡津和野町)	TW1	2014/11/21
	TW2	2014/12/1
	TW3	2014/12/1
	TW4	2014/12/2
津和野湧水 (島根県鹿足郡吉賀町)	YS1	2014/12/3
	YS2	2014/12/3
	YS3	2014/12/4
	YS4	2014/12/4

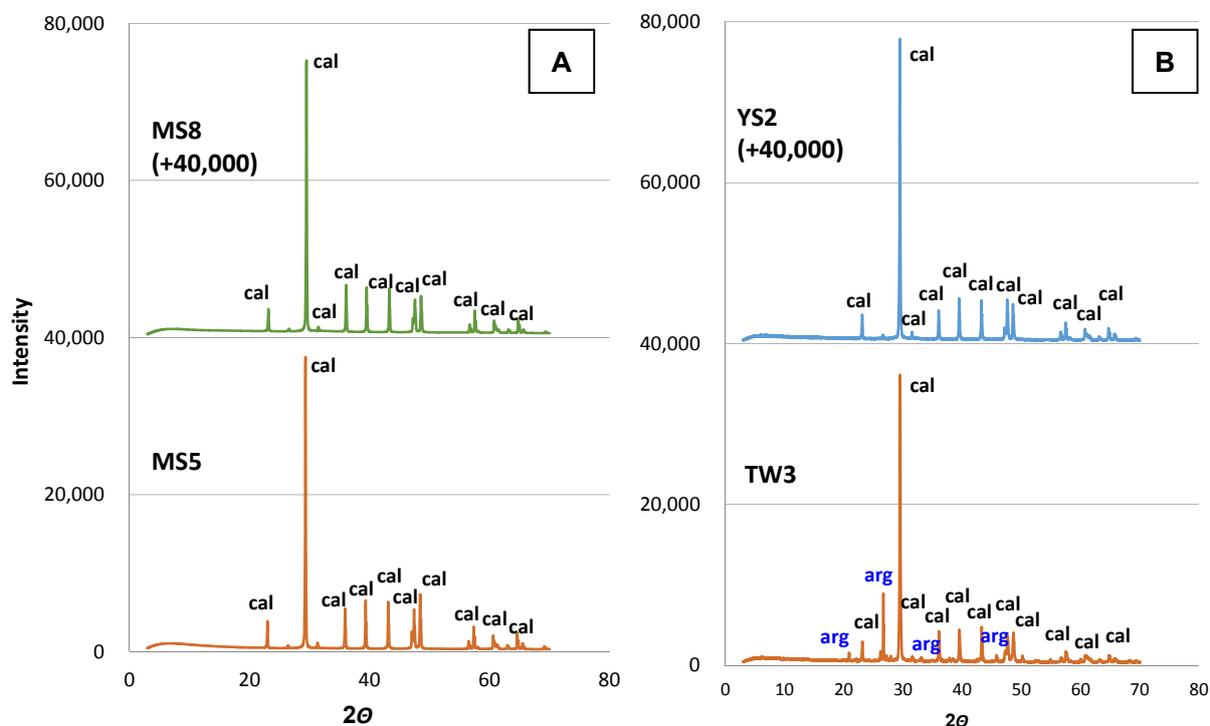


図 3.3-24 採取した炭酸塩鉱物の XRD 測定結果 (A : 増富温泉、B : 津和野湧水)

図中の cal は方解石を、arg はアラゴナイトを示す

本事業で採取した水試料のイオン強度 (I) ⁱ⁾ を地球化学コードの PHREEQC により計算したところ、増富温泉は $I = 0.06 - 0.18$ 、津和野湧水は $I = 0.05 - 0.35$ を示した。炭酸塩鉱物を用いた酸化還元電位の推定に関する既存研究 (例えば、水野・岩月, 2006³⁸⁾) では、イオン強度が低い地下水 ($I < 0.03$) を対象としており、二酸化炭素分圧も低い ($P_{CO_2} = 10^{-6} - 10^{-4}$)。このため、本事業で採取した水試料には既往の手法をそのまま適用することはできない。地下深部には、海水と同程度のイオン強度 ($I = 0.69$; 久保・池田, 2010⁸³⁾) を示す地下水が胚胎していることから (例えば、村松ほか, 2008⁸⁴⁾)、活量係数や二酸化炭素分圧を考慮した手法等を新たに構築するなど、より汎用性のある手法を検討する必要がある。

また、炭酸塩鉱物の「酸化還元電位測定技術の構築」では、現在湧出している地下水と、その地下水から今まさに沈殿している炭酸塩鉱物の酸化還元電位に関するデータをセットで採取する必要がある。そのため、地下水の酸化還元電位、アルカリ度や大気中の酸素の影響を受けやすい元素など分析値の時間変化が著しい試料に関しては、現場にて速やかにデータの測定をしなければならない。その影響を確認するため、今年度採水した津和野湧水の試料を挙げる。図 3.3-29 に示す温泉水 A と温泉水 B は同じ泉源から湧出した温泉水を採取した試料であるが、温泉水 A は湧出口で採水した温泉水、温泉水 B は湧出した後に溜め池を経て水路を十数 m ほど流れた先で採水した温泉水である。酸化還元電位のデータから、温泉水 B は還元的水であるものの、温泉水 A と比較すると酸化還元電位が高く酸化的水であり、温泉水 A が溜め池や水路で酸化したものと推測される。また、温泉水 A と温泉水 B に含まれる全鉄及び二価鉄の濃度は、温泉水 A には多く含まれている (全鉄: 23 mg/L、二価鉄: 21 mg/L) のに対し、温泉水 B にはほとんど含まれておらず (全鉄: 0.02 mg/L、二価鉄: 未検出)、溜め池や水路で温泉水から鉄分が沈殿していると考えられる。

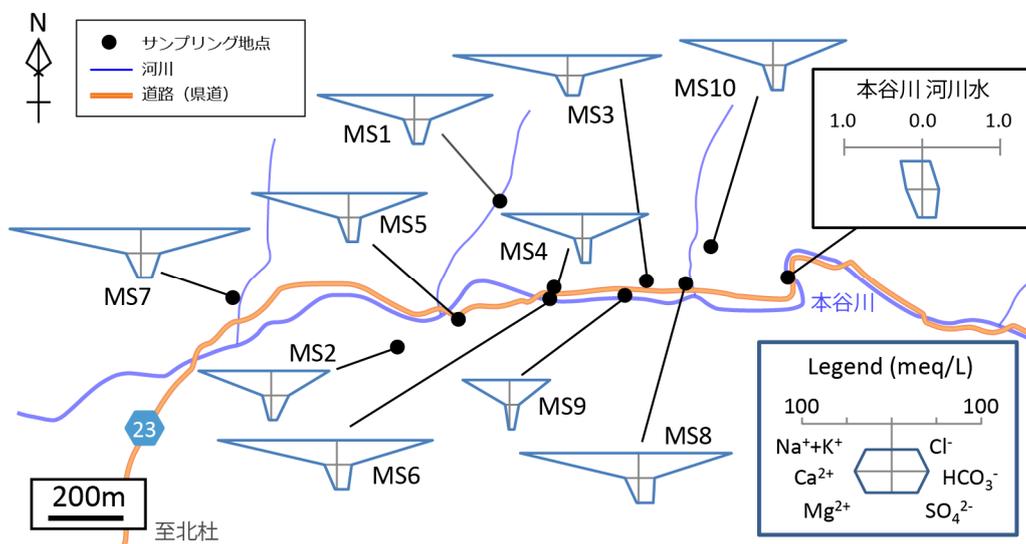


図 3.3-25 増富温泉 (MS1 - 10) の一般水質分析結果
(地下水 (温泉水) の地点 No.は炭酸塩鉱物の試料 No.と同一)

i) イオン強度 $I = \frac{1}{2} \sum_i m_i z_i^2$ ここで、 m_i はイオン i のモル濃度、 z_i はイオン i の電荷を表す。イオン強度は溶液中のイオンの活量に大きな影響を与えるため、化学平衡の計算にはイオン強度を用いる。

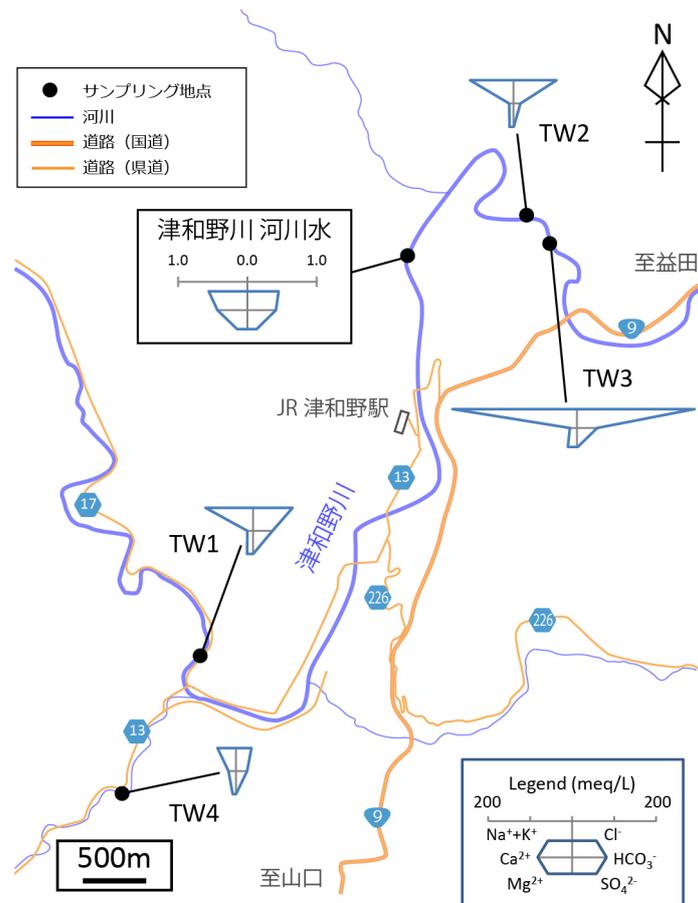


図 3.3-26 津和野湧水（TW1 - 4）の一般水質分析結果
（地下水の地点 No.は炭酸塩鉱物の試料 No.と同一）

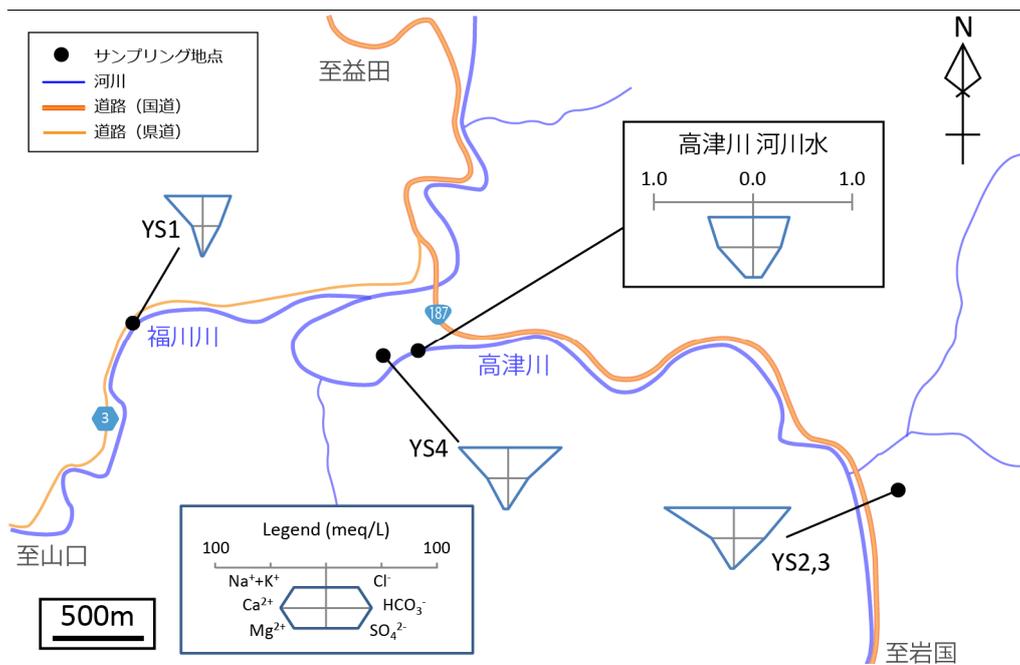


図 3.3-27 津和野湧水（YS1 - 4）の一般水質分析結果
（地下水（温泉水）の地点 No.は炭酸塩鉱物の試料 No.と同一）

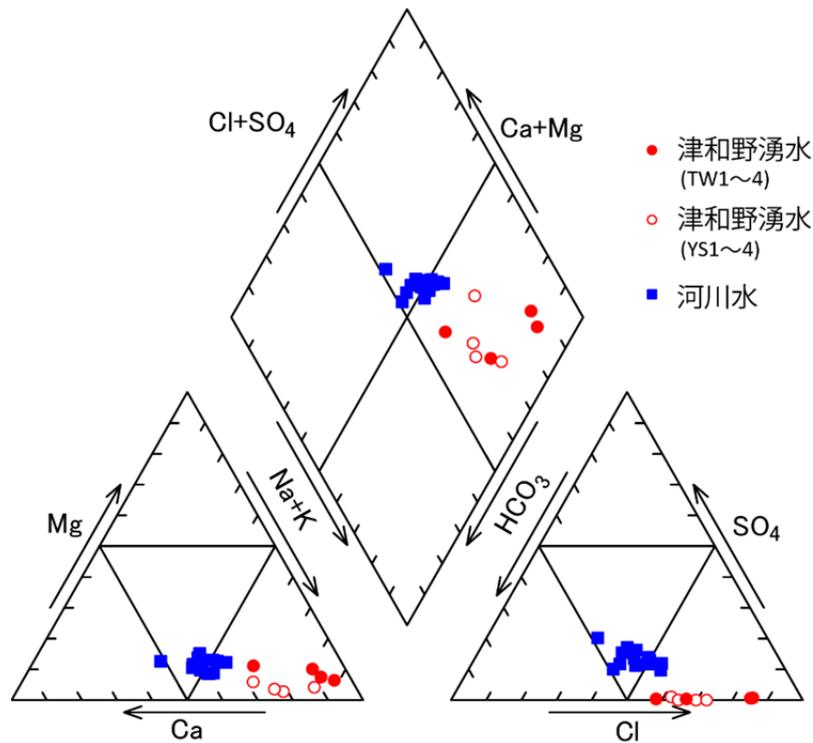
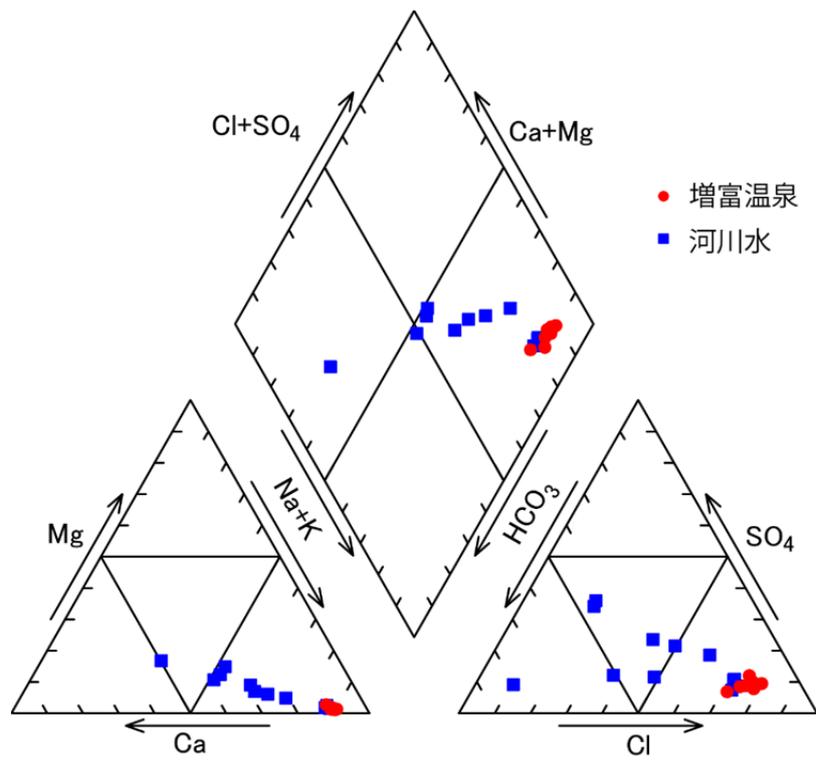


図 3.3-28 増富温泉 (MS-1 - MS10)、津和野湧水 (TW1 - 4、YS1 - 4) 及び河川水のトリリニアダイアグラム

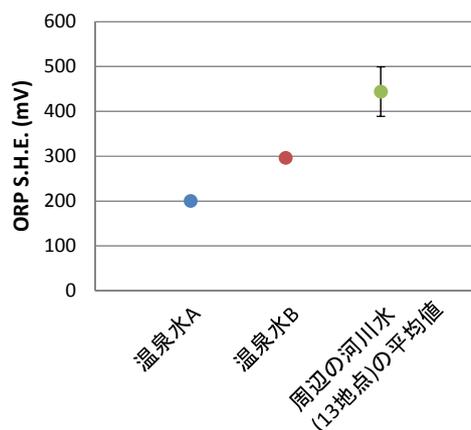


図 3.3-29 温泉水 A、B 及び河川水の酸化還元電位

2) 希土類元素とウランなどの微量元素の濃縮

炭酸塩試料中の希土類元素を含む各微量元素の定量分析技術を確立させることにより、過去における地下水の化学的、物理的な特徴、特に酸化還元電位の復元を可能にする地球化学データを得ることができる (Takahashi et al., 2002⁸⁵); 水野・岩月, 2006³⁸); 土橋・鹿園, 2008⁸⁶)。しかし、定量分析に必要となる十分な試料量の確保が困難であることに加え、希土類元素やウランなどの濃度が低く、定量下限以下となるケースが多い。酸化還元電位測定技術を構築するためには、様々な条件下で、多試料かつ複数箇所でのデータ取得が必須である。したがって、試料回収法などの技術開発とともに、試料前処理の元素濃縮技術の構築も不可欠である。平成 26 年度は、キレート樹脂の中でも特に ICP 質量分析計での測定時に妨害元素となるアルカリ金属とアルカリ土類金属を除去可能とするイミノ二酢酸型のキレートカラムを濃縮操作に適用した。本キレートカラムの特徴は、従来の手法では不可能であったバリウムなどのアルカリ土類金属の除去機能と遷移金属の濃縮機能をもつことである (Sohrin et al., 2008⁸⁷)。バリウムは地下水中にも比較的多く含まれており、特にバリウム酸化物 ($^{135}\text{Ba}^{16}\text{O}$ 、 $^{137}\text{Ba}^{16}\text{O}$ 、 $^{135}\text{Ba}^{18}\text{O}$) の生成によって、ユーロピウム (^{151}Eu 、 ^{153}Eu) 測定の妨害を引き起こす。ICP 質量分析計での酸化物の生成を抑えることにより、バリウムによる妨害はある程度コントロールすることは可能であるが、同時に測定感度の低下を招く。したがって、装置の条件設定のみではなく、前処理による効率的な微量元素の濃縮と妨害元素の除去を行う必要がある。

本事業では、微量元素の濃縮のためにイミノ二酢酸型のキレートカラムとして日立ハイテックフイールディング社製 Nobias Chelate PA1 を用いた。模擬試料として、混合した標準溶液 (XSTC-1 = 1 ppt、XSTC-531 = 10 ppb、SPEX 社製) を濃縮試験に使用した。図 3.3-30 に、濃縮方法を示す。試料通液前に、キレート樹脂のコンディショニングとして、エタノール (10 ml) を用いて樹脂を膨潤させ、3M 硝酸 (10 ml) 及び超純水 (20 ml) により樹脂を洗浄した後、0.1M 酢酸アンモニウムにより pH 調整 (pH = 5 - 6) を行った。次に、ブランク溶液 (超純水) 及び標準溶液を 100 ml 通液させ、超純水 10 ml により樹脂に捕捉されないアルカリ金属及びアルカリ土類金属などを除去した。この過程で、試料に含まれる塩素も除去される。不要成分を除去した後、3M 硝酸を樹脂に通液させ (3 ml)、希土類元素及び他の重金属類を回収した。回収した溶液に内部標準 (インジウム) 及び濃硝酸を添加し、10 ml に定容した。試料中の各元素濃度は ICP 質量分析計 (Agilent 7700) により測定した。測定の結果、希土類元素の 10 倍濃縮試験で高い回収率 (90 - 130 %) を得た (図 3.3-31)。また、妨害元素であるバリウムに加え、ヒ素、ストロンチ

ウムを 99 %以上除去することができた。本実施内容により、ICP 質量分析計による微量の希土類元素分析が可能であることが示された。加えて、サンプリング現場での希土類元素の回収において本キレート樹脂を使用することにより、微量の希土類元素分析を高い精度で効率良く実施できることが出来るものと考えられる。本キレート樹脂は Ca や Mg を大量に含む海水試料への適用例が多く報告されている（経遠ほか, 2009⁸⁸⁾；古庄ほか, 2008⁸⁹⁾）。今後は、実際の試料を用いて、多様なマトリックス成分をもつ温泉試料への適応などを検討する必要がある。

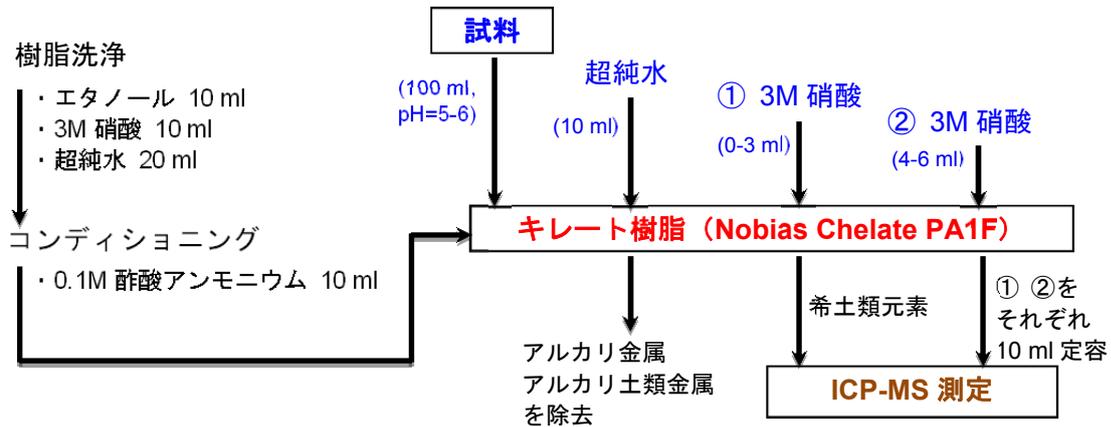


図 3.3-30 キレート樹脂を使用した希土類元素の濃縮方法

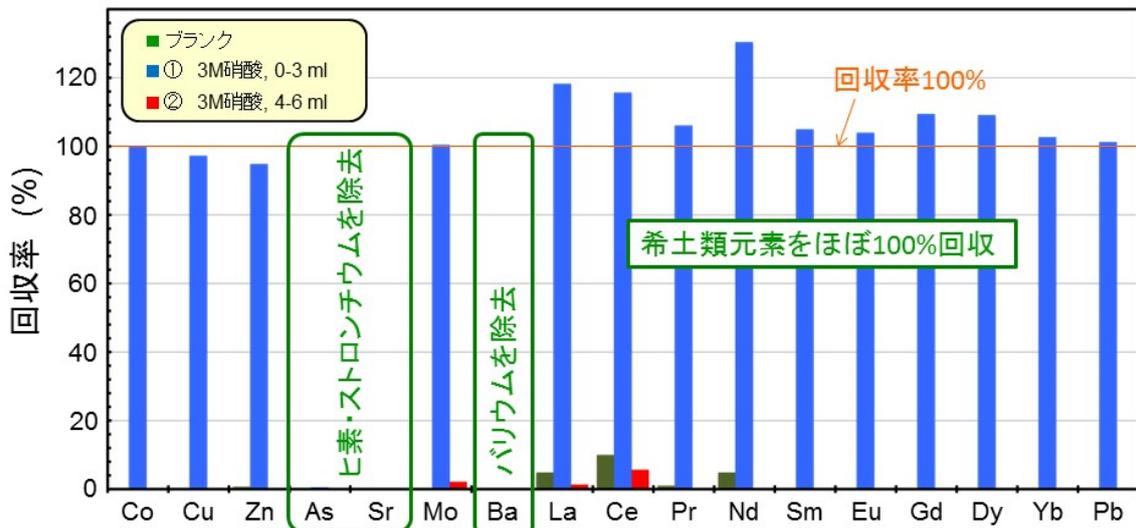


図 3.3-31 キレート樹脂を使用した希土類元素の濃縮試験結果
(XSTC-1=1 ppt; XSTC-531=10 ppb)

3) 地下水年代の推定

採水した地下水の年代を推定するため、希ガス質量分析装置による同位体測定を実施する。地下水中に溶存する希ガス元素（He、Ne、Ar）の高精度同位体分析は、その地下水の滞留時間や年代の情報を得るために有効な手法である（Hama and Metcalfe, 2014⁹⁰⁾）。地下水中に溶存する希ガス同位体のうち ^4He は、大気からの溶解量が少なく、周辺の岩石からの放出によって時間の経過に伴って増加するため、特に花崗岩地域における地下水の滞留年代を示す指標とされる（Kamensky et al., 1991⁹¹⁾）。その基礎データである ^4He 蓄積量を正しく評価するためには、重希ガス元素による地下水涵養温度の推定、マグマ起源のヘリウムの混入量の推定などが必要になる。加えて、花崗岩中でヘリウムの生成に伴ってヘリウム原子核と酸素から生成される ^{21}Ne の増加や（Castro and Jambon, 1998⁹²⁾; 長尾, 2004⁹³⁾）、マグマ起源の希ガスの混入による $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ 比の変動を考慮することにより、 ^4He 蓄積量の検証やマグマ起源の希ガスの混入量の評価が可能となる。このために必要な分析装置は、ヘリウム同位体組成を測定可能であり、かつネオンの同位体組成を高精度で測定でき、アルゴン、クリプトン、キセノンの分析にも対応した希ガス質量分析計である。これらの要求を満たす装置として、IsotopX 社製 NGX（図 3.3-32）を、平成 27 年 2 月に表 3.3-12 の仕様で導入した。

通常ヘリウム同位体組成を分析するためには、 $^1\text{H}^2\text{D}$ 及び $^1\text{H}_3$ の ^3He に対する影響を除去するために $M/\Delta M > 600$ （10%ピークバレー）の質量分解能が必要である。また、ネオン同位体組成の高精度分析のために、複数の検出器を有するマルチコレクター方式を採用した。従来の質量分析装置では、検出器は一台のみであり、同位体ごとに分析用電磁石の磁場を切り替えて検出していた。それに対してマルチコレクター方式では、分析用電磁石の磁場を正しく設定することで適切な間隔で並んだ検出器に各同位体のビームが入射する。さらに ^{20}Ne 及び ^{22}Ne を安定性の高い検出器であるファラデーカップで測定し、かつ量の少ない同位体である ^{22}Ne については増幅器のゲイン抵抗を従来の十倍の $10^{12} \Omega$ とした上で、通常これに応じて悪化する応答速度を高増幅率高速度増幅器によって改善する。複数の同位体の信号を同時に、安定性の良い信号検出システムで測定することにより、高い分析精度が期待できる。また感度の面でも、マルチコレクター方式の採用により、イオン源の効率（圧力あたりのイオン電流の大きさ）の増大が期待できる。



図 3.3-32 土岐地球年代学研究所に導入した希ガス質量分析計の写真

今後は、性能評価のため、大気を希釈、精製して得られたヘリウム、ネオン及びアルゴンを測定してその感度（イオン源の効率）及び質量分解能を確認し、既知量の試料を多数測定することによる感度（単位試料量あたりの信号強度）の決定、信号検出系の安定性や検出精度の検証、既知同位体組成の試料を異なった装置で分析することによる質量差別の決定などを進めるとともに、クリプトン及びキセノンも含めて、地下水からの試料ガスの抽出や希ガス各元素の分離について適切な条件を求めてゆく必要がある。

表 3.3-12 土岐地球年代学研究所に導入した希ガス質量分析計の仕様表

アルゴン感度	1×10^{-3} A/Torr
質量分解能	M/分解 (10 % ピークバレー) > 600
分析可能な質量範囲	1 ~ 200 Da
検出器構成	ファラデーカップ: 3 基 イオンカウント用二次電子増倍管: 3 基 (ネオン及びアルゴンについて、全ての安定同位体を同時分析可能)
ファラデーカップ増幅器構成	^{20}Ne 及び ^{40}Ar 位置のものについてゲイン抵抗 $10^{11} \Omega$ の標準増幅器、 ^{22}Ne 位置のものについてゲイン抵抗 $10^{12} \Omega$ の高速度仕様増幅器

3.3.4 まとめ

平成 26 年度、炭酸塩鉱物を対象とした放射年代測定法の開発では、LA-ICP 質量分析計を用いた年代測定システムの整備、微小領域での分析手法の構築及び標準試料の選定・採取を行った。

LA-ICP 質量分析計の整備では、土岐地球年代学研究所に真空紫外光 ArF エキシマレーザー (Photon-machines 製 Analyte G2) 及び 2 重収束型誘導結合プラズマ質量分析計 (Thermo Fisher Scientific 社製 NEPTUNE-plus) の整備を行った。さらに、炭酸塩鉱物に対するビームの照射実験を行い、割れ目及び断層に介在する炭酸塩鉱物にとって最適なレーザーの照射条件を見出すための課題を把握した。また共同研究として、国立大学法人京都大学及び株式会社京都フィッシュン・トラックとともに、レーザー照射を行う場所の選定を行う上で必要な元素のイメージング技術の開発を、独立行政法人海洋研究開発機構とともに、高精度で同位体比を測定する手法の開発をそれぞれ進めた。

微小領域での分析手法の構築では、1) 微量での炭酸塩の安定炭素同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$) 及び安定酸素同位体比 ($\delta^{18}\text{O}$) の自動測定を可能とする安定同位体比質量分析計用炭酸塩前処理システムの整備、2) カソードルミネッセンス (CL) 像を観察するためのルミノスコープの整備、3) 元素分析や同位体分析に使用する粉体試料を作製し、正確に秤量するためのマイクロミル及びマイクロ天秤の整備を行った。 $\delta^{13}\text{C}$ 及び $\delta^{18}\text{O}$ は炭酸塩鉱物や水中の溶存無機炭素の供給源推定に必要なデータであり、年代測定結果の解釈のみならず、酸化還元電位測定技術を構築する上でも重要な基礎情報となる。CL 像による微小領域の構造の観察は、炭酸塩鉱物の成長段階ごとのマイクロサンプリングを行う上で必要な情報となる。以上の一連の装置の導入により、炭酸塩鉱物の微小領域を効率的に分析する手法を確立する上で、必要な環境の整備が進んだと言える。

年代測定技術に開発に用いる標準試料の選定・採取としては、標準試料として、年代が推定できる海生化石や無機炭酸塩を用いることとした。そのうち、平成 26 年度は、縞状構造が発達し、縞ごとに年代値が異なるため、同一の分析条件で異なる年代値をもつ試料の分析が可能となる鍾乳石を採取した。具体的には、形成年代に関する既往研究のある岐阜県郡上市の「大滝鍾乳洞」と近隣の「縄文鍾乳洞」及び山口県美祢市の「北山北の横穴」の鍾乳石を採取した。また京都大学及び京都フィッシュン・トラックとの共同研究に基づき海生化石も取得した。これらの取得した試料を活用することにより、今後の炭酸塩鉱物を対象とした U-Pb 年代測定法の開発の進展に資することが期待される。

一方、酸化還元電位測定技術の開発については、カタログ化に適した標準試料としての炭酸塩鉱物及び地下水の採取・分析、希土類元素などの微量元素の定量分析の精度を向上させるための濃縮技術の開発及び酸化還元電位測定を行うための微小領域での分析手法の検討を実施した。

分析のための試料採取は、方解石が地下水から直接かつ多量に晶出している山梨県の増富温泉及び島根県の津和野湧水で行った。採取した石灰華及び地下水は、酸化や微生物の影響を低減するため、できる限り湧出口付近のものとした。地下水は採取後現地にて速やかに、物理化学パラメータ (pH、酸化還元電位、電気伝導度、水温) の取得、 Fe^{2+} 、 T-Fe 、 Mn^{2+} 、 S^{2-} の濃度測定及びアルカリ度の測定を行った。これらの地下水はイオン強度が比較的高く、既往研究で提案された手法を直接適用できないため、新たな手法を構築する必要がある。

濃縮技術の開発では、キレート樹脂の中でも特に ICP 質量分析計での測定時に妨害元素となるアルカリ金属とアルカリ土類金属を除去可能とするイミノ二酢酸型のキレートカラムを対象とした適用試験を行った。その結果、希土類元素の 10 倍濃縮試験で高い回収率を得るとともに、妨害元素であるバリウム、ヒ素、ストロンチウムを 99% 以上除去することに成功した。

また、地下水の年代測定に用いる希ガス質量分析装置の整備を実施した。この装置の導入により、地下水の起源に関する議論が可能となる。

微小領域での酸化還元電位測定手法については、前述の LA-ICP 質量分析計を用いた検討に加え、EPMA の適用性について検討した。EPMA は最少ビーム径が 2 μm と小さく、空間分解能が高いものの、ビームのエネルギーが大きいため試料の融解や分解といったダメージを受けてしまう可能性がある。したがって、炭酸塩鉱物に適した電流値やビーム径の設定などの開発が必要となる。

平成 26 年度の研究開発によって見出した「放射年代測定法の開発」及び「酸化還元電位測定技術の構築」に関する今後の課題を表 3.3-13 及び表 3.3-14 にそれぞれ示す。

表 3.3-13 放射年代測定法の開発に係る実施内容と今後の課題

重要課題	H26年度の実施内容	今後の課題
A-1. 炭酸塩鉱物への年代測定技術の構築	<ul style="list-style-type: none"> ✓ LA-ICP質量分析計の①導入・整備と②予備測定 <ul style="list-style-type: none"> ・炭酸塩鉱物へのレーザー照射 ・炭酸塩鉱物のU, Th, Pb測定 	<ul style="list-style-type: none"> • 年代測定技術の構築(継続) <ul style="list-style-type: none"> ①LA-ICP質量分析計の最適な分析条件の検討(レーザー強度、レーザー径) ②鉛の同位体分析精度の向上
A-2. 微小領域での分析手法の構築	<ul style="list-style-type: none"> ✓ 分析・測定機器の導入・整備(ルミノスコープ、マイクロドリル等) ✓ ルミノスコープを用いた予備測定(CL像の取得) 	<ul style="list-style-type: none"> • 炭酸塩鉱物の観察技術の向上 • 鉱物内の局所ごとの地質学的意義の評価と分析点選定手法の構築 • 同位体マッピング技術向上
A-3. 標準試料の選定	<ul style="list-style-type: none"> ✓ 海生化石や炭酸塩岩を用いた段階的アプローチ手法の検討 ✓ 海生化石及び鍾乳石の選定・採取 	<ul style="list-style-type: none"> • 海生化石及び炭酸塩岩の選定・収集(追加) • 選定試料の予備検討(文献調査や主成分/微量成分分析)

表 3.3-14 酸化還元電位測定技術の構築に係る実施内容と今後の課題

重要課題	H26年度の実施内容	今後の課題
B-1. 地下水成分から炭酸塩鉱物組成への分配挙動のカタログ化	<ul style="list-style-type: none"> ✓ 地下水試料の採取及び現地分析と炭酸塩鉱物(石灰華)の試料採取 <ul style="list-style-type: none"> ①山梨県北杜市の増富温泉 ②島根県鹿足郡の津和野湧水 ✓ 採水した地下水(温泉水)の一般水質分析 	<ul style="list-style-type: none"> • 炭酸塩鉱物及び地下水の採取・分析(継続) <ul style="list-style-type: none"> ①割れ目充填炭酸塩と地下水のセットのサンプリング ②試料の化学分析データの蓄積 ③地下水の化学条件ごとの地下水・炭酸塩鉱物間の微量金属元素含有量の分配挙動の定式化
B-2. カタログ化に適した標準試料の選定・採取	<ul style="list-style-type: none"> ✓ 地下水中の希ガス同位体の高精度測定が可能な「希ガス質量分析装置」の整備 	
B-3. 微小領域での分析手法の構築	<ul style="list-style-type: none"> ✓ 分析・測定機器の導入・整備(ルミノスコープ、マイクロドリル等) ✓ ルミノスコープを用いた予備測定(CL像の取得) 	<ul style="list-style-type: none"> • 炭酸塩鉱物の観察技術の向上 • 鉱物内の局所ごとの地質学的意義の評価と分析点選定手法の構築

これら一連の検討、装置の整備、試験、試料採取、分析の実施により、岩盤中に普遍的に存在する炭酸塩鉱物を対象とした百万年より若いオーダーでの U-Pb 年代測定技術の開発及び妥当性のある地下水シナリオの検討のために必要な酸化還元電位測定技術の構築が大きく進展したと判断できる。

引用文献

- 1) 西本昌司, 鶴飼恵美, 天野健治, 吉田英一, 地下深部花崗岩の変質プロセス解析: 土岐花崗岩を例にして, 応用地質, vol.49, 2008, pp.94-104.
- 2) Nishimoto, S. and Yoshida, H., Hydrothermal alteration of deep fractured granite: Effects of dissolution and precipitation, *Lithos*, vol.115, 2010, pp.153-162.
- 3) Iwatsuki, T. and Yoshida, H., Characterizing the chemical containment properties of the deep geosphere: Water-rock interactions in relation to fracture systems within deep crystalline rock in the Tono area, Japan, *Geological Society of London, Special Publications*, vol.157, 1999, pp.71-84.
- 4) Yoshida, H., Aoki, K., Semba, T., Ota, K., Amano, K., Hama, K., Kawamura, M. and Tsubota, K., Overview of the stability and barrier functions of the granitic geosphere at the Kamaishi mine; Relevance to radioactive waste disposal in Japan, *Engineering Geology*, vol.56, 2000, pp.151-162.
- 5) 吉田英一, 地層処分 脱原発後に残される科学課題, 近未来社, 2012a, 168p.
- 6) 横田秀晴, 吉田英一, 堆積岩中の物質移動経路となり得る割れ目の構造とその特徴—幌延深地層研究所における事例—, 日本地球惑星科学連合 2013 年大会予稿集, 2013, S-CG60-03.
- 7) 舟木泰智, 石井英一, 常盤哲也, 新第三紀堆積岩中の割れ目は主要な水みちとなり得るか?, 応用地質, vol.50, 2009, pp.238-247.
- 8) 吉田英一, 岩盤中の透水性亀裂とその長期的挙動—現状と今後の課題—, 地学雑誌, vol.121, 2012b, pp.68-95.
- 9) 石橋正祐紀, 安藤友美, 笹尾英嗣, 湯口貴史, 西本昌司, 吉田英一, 深部結晶質岩における割れ目の形成・充填過程と透水性割れ目の地質学的特徴—土岐花崗岩を例として—, 応用地質, vol.55, 2014, pp.156-165.
- 10) 柴田 賢, 高木秀雄, 中央構造線沿いの岩石および断層内物質の同位体年代—長野県分杭峠地域の例—, 地質学雑誌, vol.94, 1988, pp.35-50.
- 11) Vargas, G., Palacios, C., Reich, M., Luo, S., Shen, C.-C., González, G. and Wu, Y.-C., U-series dating of co-seismic gypsum and submarine paleoseismology of active faults in Northern Chile (23°S), *Tectonophysics*, vol.497, 2011, pp.34-44.
- 12) Yamasaki, S., Zwingmann, H., Yamada, K., Tagami, T. and Umeda, K., Constraining the timing of brittle deformation and faulting in the Toki granite, central Japan, *Chemical Geology*, vol.351, 2013, pp.168-174.
- 13) Nuriel, P., Rosenbaum, G., Zhao, J.-X., Feng, Y., Golding, S.D., Villemant, B. and Weinberger, R., U-Th dating of striated fault planes, *Geology*, vol.40, 2012, pp.647-650.
- 14) Blyth, A., Frape, S., Ruskeeniemi, T. and Blomqvist, R., Origins, closed system formation and preservation of calcites in glaciated crystalline bedrock: evidence from the Palmottu natural analogue site, Finland, *Applied Geochemistry*, vol.19, 2004, pp.675-686.
- 15) 窪島光志, 石橋正祐紀, 笹尾英嗣, 鶴田忠彦, 田上雅彦, 湯口貴史, 超深地層研究所計画 地質・地質構造に関する調査研究—深度 300m までの地質・地質構造—, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Research 2012-037, 2013, 78p.
- 16) Milodowski, A.E., Tullborg, E.-L., Buil, B., Gómez, P., Turrero, M.-J., Haszeldine, S., England G., Gillespie, M.R., Torres, T., Ortiz, J.E., Zacharias, J., Silar, J., Chvátal, M., Strnad, L., Sebek, O., Bouch, J.E., Chenery, S.R., Chenery, C., Shepherd, T.J. and McKervey, J.A., Application of mineralogical, petrological and geochemical tools for evaluating the palaeohydrogeological evolution of the PADAMOT Study sites, PADAMOT PROJECT Technical Report WP2. EU FP5 Contract No: FIKW-CT2001-20129, 2005, 206p.
- 17) Iwatsuki, T., Satake, H., Metcalfe, R., Yoshida, H. and Hama, K., Isotopic and morphological features of fracture calcite from granitic rocks of the Tono area, Japan: a promising paleohydrogeological tool, *Applied Geochemistry*, vol.17, 2002, pp.1241-1257.

- 18) Hori, M., Hoshino, K., Okumura, K. and Kano, A., Seasonal patterns of carbon chemistry and isotopes in tufa depositing groundwaters of southwestern Japan, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol.72, 2008, pp.480-492.
- 19) 北村晃寿, 加瀬友喜, 大橋秀一, 平本真弓, 阪口佳孝, 田辺晶史, 間藤基之, 沖縄のサンゴ礁にある海底洞窟堆積物の堆積相と堆積速度, 第四紀研究, vol.42, 2003, pp.99-104.
- 20) Asahara, T.M. and Tanaka, T., An attempt to determine the age of geological fractures by applying Rb–Sr mineral isochron dating to fracture-filling minerals, *Geochemical Journal*, vol.41, 2007, pp.165-172.
- 21) Debenham, N.C., Reliability of thermoluminescence dating of stalagmitic calcite, *Nature*, vol.304, 1983, pp.154-156.
- 22) Ninagawa, K., Adachi, K., Uchimura, N., Yamamoto, I., Wada, T., Yamashita, Y., Takashima, I., Sekimoto, K. and Hasegawa, H., Thermoluminescence dating of calcite shells in the pectinidae family, *Quaternary Science Reviews*, vol.11, 1992, pp.121-126.
- 23) Hua, Q., Zoppi, U., Williams, A.A. and Smith, A.M., Small-mass AMS radiocarbon analysis at ANTARES, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, vol.223-224, 2004, pp.284-292.
- 24) Liritzis, I., Guibert, P., Foti, F. and Schvoerer, M., Solar bleaching of thermoluminescence of calcites, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, vol.117, 1996, pp.260-268.
- 25) Bluszcz, A., Goslar, T., Hercman, H., Pazdur, M.F. and Walanus, A., Comparison of TL, ESR and ¹⁴C dates of speleothems, *Quaternary Science Reviews*, vol.7, 1988, pp.417-421.
- 26) 可児智美, 福井真美子, ペルム紀炭酸塩岩の鉛-鉛年代, フィッション・トラック ニュースレター, no.24, 2011, pp.48-49.
- 27) Sasaki, K., Omura, A., Murakami, K., Sagawa, N. and Nakamori, T., Interstadial coral reef terraces and relative sea-level changes during marine oxygen isotope stages 3–4, Kikai Island, central Ryukyus, Japan, *Quaternary International*, vol.120, 2004, pp.51-64.
- 28) Kitamura, A., Omura, A., Tominaga, E., Kameo, K. and Nara, M., U-Series Ages for Solitary Coral Species from the Middle Pleistocene Kunosan Formation in the Udo Hills, Shizuoka, Central Japan, *The Quaternary Research*, vol.44, 2005, pp.177-182.
- 29) Watanabe, Y., Nakai, S. and Lin, A., Attempt to determine U–Th ages of calcite veins in the Nojima fault zone, Japan, *Geochemical Journal*, vol.42, 2008, pp.507-513.
- 30) Watanabe, Y., Matsuoka, H., Sakai, S., Ueda, J., Yamada, M., Ohsawa, S., Kiguchi, M., Satomura, T., Nakai, S., Brahmantyo, B., Maryunani, K.A., Tagami, T., Takemura, K. and Yoden, S., Comparison of stable isotope time series of stalagmite and meteorological data from West Java, Indonesia, *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, vol.293, 2010, pp.90-97.
- 31) 兼岡一郎, 年代測定概論, 東京大学出版会, 1998, 315p.
- 32) Becker, M.L., Rasbury, E.T., Meyers, W.J. and Hanson, G.N., U-Pb calcite age of the Late Permian Castile Formation, Delaware Basin: a constraint on the age of the Permian-Triassic boundary (?), *Earth and Planetary Science Letters*, vol.203, 2002, pp.681-689.
- 33) Rasbury, E.T. and Cole, J.M., Directly dating geologic events: U-Pb dating of carbonates, *Reviews of Geophysics*, vol.47, 2009, RG3001.
- 34) Jahn, B.-M., Cuvellier, H., Pb-Pb and U-Pb geochronology of carbonate rocks: an assessment, *Chemical Geology*, vol.115, 1994, pp.125-151.
- 35) Sano, Y., Tsutsumi, Y., Terada, K. and Kaneoka, I., Ion microprobe U-Pb dating of Quaternary zircon: implication for magma cooling and residence time, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, vol.117, 2002, pp.285-296.
- 36) Witkowski, F.W., Blundell, D.J., Gutteridge, P., Horbury, A.D., Oxtoby, N.H. and Qing, H., Video cathodoluminescence microscopy of diagenetic cements and its applications,

- Marine and Petroleum Geology*, vol.17, 2000, pp.1085-1093.
- 37) Bouch, J.E., Cathodoluminescence petrography and fluid inclusion microthermometry of vein calcites from Laxemar borehole KLX-01, Sweden, British Geological Survey, Commissioned Report, CR/04/161, 2004, 25p.
 - 38) 水野 崇, 岩月輝希, 地下深部における地球化学的環境の長期的変遷—炭酸塩鉱物中の微量元素に基づく解析例—, *地球化学*, vol.40, 2006, pp.33-45.
 - 39) 坂井三郎, 高精度マイクロミル「GEOMILL326」による微小領域切削と極微量粉末回収法. JAMSTEC-R IFREE Special Issue, 2009, pp.35-40.
 - 40) Davidson, J.P. and Tepley III, F.J., Recharge in volcanic systems: evidence from isotope profiles of phenocrysts, *Science*, vol.275, 1997, pp.826-829.
 - 41) Burgess, S.N., Henderson, G.M. and Hall, B.L., Reconstructing Holocene conditions under the McMurdo Ice Shelf using Antarctic barnacle shells, *Earth and Planetary Science Letters*, vol.298, 2010, pp.385-393.
 - 42) 伊藤久敏, 電中研における LA-ICP-MS による U-Pb 年代測定法の取り組み, フィッション・トラック ニュースレター, no.24, 2011, pp.46-47.
 - 43) Nuriel, P., Rosenbaum, G., Zhao, J-X., Feng, Y., Golding, S.D., Villemant, B. and Weinberger, R., U-Th dating of striated fault planes, *Geology*, vol.40, 2012, pp.647-650.
 - 44) Miki, T., Ikeya, M., Thermoluminescence and ESR Dating of Akiyoshi Stalactite, *Japanese Journal of Applied Physics*, vol.17, 1978, pp.1703-1704.
 - 45) Zhong, S. and Mucci, A., Partitioning of rare-earth elements (REEs) between calcite and seawater solutions at 25 °C and 1 atm, and high dissolved REE concentrations, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol.59, 1995, pp.443-453.
 - 46) Tanaka, K., Ohta, A. and Kawabe, I., Experimental REE partitioning between calcite and aqueous solution at 25 °C and 1 atm: Constraints on the incorporation of seawater REE into seamount-type limestones, *Geochemical Journal*, vol.38, 2004, pp.19-32.
 - 47) Arthur, R.C., Iwatsuki, T., Sasao, E., Metcalfe, R., Amano, K. and Ota, K., Geochemical constraints on the origin and stability of the Tono Uranium Deposit, Japan, *Geochemistry: Exploration, Environment, Analysis*, vol.6, 2006, pp.33-48.
 - 48) 佐々木宗健, 徂徠正夫, 奥山康子, 村岡洋文, 本邦の炭酸塩沈殿物を多量に伴う温泉・鉱泉に地化学的特徴—CO₂ 地中貯留に対するナチュラルアナログの可能性—, *岩石鉱物科学*, vol.38, 2009, pp.175-197.
 - 49) Machel, G.H., Application of Cathodoluminescence to Carbonate Diagenesis, In: *Cathodoluminescence in Geoscience*, Springer (ed. Pagel, M.), 2000, pp.271-301.
 - 50) 鈴木和博, 電子プローブマイクロアナライザを用いた CHIME 年代測定, *地質学雑誌*, vol.111, 2005, pp.509-526.
 - 51) 織田志保, 茅根 創, 白井厚太郎, 高畑直人, 佐野有司, サンゴ骨格中の Sr/Ca, Mg/Ca 比測定: ICP-AES, SIMS, EPMA 分析法の評価, *地球化学*, vol.40, 2006, pp.231-238.
 - 52) Milodowski, A.E., Gillespie, M.R., Pearce, J.M. and Metcalfe, R., Collaboration with the SKB EQUIP programme; Petrographic characterisation of calcites from Aspo and Laxemar deep boreholes by scanning electron microscopy, electron microprobe and cathodoluminescence petrography, WG/98/45C, British Geological Survey, Keyworth, Nottingham, 1998.
 - 53) Milodowski, A.E., Fortey, N.J., Gillespie, M.R., Pearce, J.M. and Hyslop, E.K., Synthesis report on the mineralogical characteristics of fractures from the Nirex boreholes in the Sellafield area, British Geological Survey, Technical Report WG/98/8, 2002.
 - 54) Tullborg, E.-L., Drake, H. and Sandström, B., Palaeohydrogeology: A methodology based on fracture mineral studies, *Applied Geochemistry*, vol.23, 2008, pp.1881-1897.
 - 55) Pickering, R., The small, the bad and the ugly: U-Pb dating buried speleothems from archaeological cave sites, Goldschmidt 2014, abstract #1961.
 - 56) Yokoyama, T., Misawa, K., Okano, O., Minowa, H. and Fukuoka, T., Photostimulated luminescence technique applicable to pre-screening of K-rich materials in chondrites, 45th Lunar and Planetary Science Conference 2014, abstract #1692.

- 57) 新井崇史, 塚原弘昭, 森清寿朗, カルサイトの炭素・酸素同位体比から見た野島断層浅部破碎帯のシール過程の解明, 地学雑誌, vol.112, 2003, pp.915-925.
- 58) Blyth, A., Frapé, S., Ruskeeniemi, T. and Blomqvist, R., Origins, closed system formation and preservation of calcites in glaciated crystalline bedrock: evidence from the Palmottu natural analogue site, Finland, *Applied Geochemistry*, vol.19, 2004, pp.675-686.
- 59) Baele, J-M., Monin, L., Navez, J., André, L., Systematic REE partitioning in cubo-dodecahedral fluorite from Belgium revealed by cathodoluminescence spectral imaging and Laser Ablation-ICP-MS, Proceedings of the 10th International Congress for Applied Mineralogy (ICAM), 2011, pp.23-30.
- 60) Yoneda, M., Shibata, Y., Tanaka, A., Uehiro, T., Morita, M., Uchida, M., Kobayashi, T., Kobayashi, C., Suzuki, R., Miyamoto, K., Hancock, B., Dibden, C. and Edmonds, J., AMS ¹⁴C measurement and preparative techniques at NIES-TERRA, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, vol.223-224, 2004, pp.116-123.
- 61) 狩野彰宏, 石筍古気候学の原理と展開, 地質学雑誌, vol.118, 2012, pp.157-171.
- 62) 脇田浩二, 八幡地域の地質, 地域地質研究報告 (5 万分の 1 地質図幅), 地質調査所, 1984, 89p.
- 63) 梶田澄雄, 青山昌三, 北村哲郎, 日々野 実, 岐阜県石灰洞資料 (2)ー郡上郡八幡町安久田・美山地域ー, 岐阜大学教育学部研究報告 自然科学, vol.4, 1971, pp.379-386.
- 64) 梶田澄雄, 岐阜県石灰洞資料 (1)ー郡上郡八幡町 安久田地域ー, 岐阜大学教育学部研究報告 自然科学, vol.4, 1970, pp.302-308.
- 65) 梶田澄雄, 郡上八幡の鍾乳洞, 梶田澄雄編著, 日曜の地学<11>岐阜の地質をめぐって, 築地書館, 1980, pp.77-88.
- 66) Nakai, N. and Shirai, Y., Paleoclimatic features in Central Japan based on the stable isotope compositions of Lake Biwa sediments and speleothems, *Proceedings of the Japan Academy series B*, vol.54, 1978, pp.81-86.
- 67) 曾根知実, 狩野彰宏, 森 大器, 奥村知世, 岐阜県中央部の石筍に記録された数千年スケールの変動, 地球惑星科学連合 2014 年大会, MIS30-14.
- 68) 太田正道, 鳥山隆三, 杉村昭弘, 配川武彦, 秋吉石灰岩層群における逆転構造の再検討, 地質学雑誌, vol.82, 1978, pp. 115-135.
- 69) 藤川将之, カルスト台地と鍾乳洞, 地盤工学会誌, vol.58-7, 2010, pp.4-5.
- 70) 山口ケイビングクラブ, 秋吉台の洞窟位置図, 第 6 版, 山口ケイビングクラブ発行, 2012.
- 71) 藤井厚志, 秋吉台の鍾乳洞とその成立年代 - 厚東川の下刻速度の推定から -, 哺乳類科学, vol.49, 2009, pp.91-95.
- 72) 尾崎正紀, 牧本 博, 杉山雄一, 三村弘二, 酒井 彰, 加藤碩一, 駒沢正夫, 広島俊男, 須藤定久, 1/20 万地質図幅「甲府」, 産業技術総合研究所地質調査総合センター, 2002.
- 73) Kanai Y., Behavior of uranium-238 and its daughter nuclides in the Masutomi spring, Yamanashi Prefecture, central Japan, *Geochemical Journal*, vol.22, 1988, pp.285-292.
- 74) 金井 豊, 山梨県増富温泉における温泉沈殿物の化学組成, 地球化学, vol.23, 1989, pp.77-83.
- 75) 田中義太郎, 山本政儀, 田崎和江, 炭酸塩バイオマットの放射年代測定ー山梨県増富鉱泉を例としてー, 地質学雑誌, vol.107, 2001, pp.673-680.
- 76) 矢板 毅, 大関香織, 木村 幹, 山梨県増富鉱泉およびその周辺に湧出する温泉水の化学組成, 地球化学, vol.25, 1991, pp.49-58.
- 77) Matsubaya, O., Sakai, H., Kusachi, I. and Satake, H., Hydrogen and oxygen isotopic ratios and major element chemistry of Japanese thermal water systems, *Geochemical Journal*, vol.7, 1973, pp.123-151.
- 78) 福富孝義, 磯崎行雄, 島根県西部のジュラ紀コンプレックス (鹿足層群) に南接するペルム紀コンプレックスおよび結晶片岩類, 地質学雑誌, vol.94, 1988, pp.59-62.
- 79) 磯崎行雄, 丸山茂徳, 青木一勝, 中間隆晃, 宮下 敦, 大藤 茂, 日本列島の地体構造区分再

- 訪－太平洋型（都城型）造山帯構成单元および境界の分類・定義－，地質学雑誌，vol.119，2010，pp.999-1053.
- 80) 安川知里，田中和広，山口市湯田温泉の温泉水の地球化学的特徴と起源，山口地学会誌，vol.60，2008，pp.9-20.
- 81) 北野 康，炭酸塩堆積物の地球化学，東海大学出版，1990，391p.
- 82) 山本莊毅，地下水調査法，古今書院，1983，490p.
- 83) 久松純平，池田 進，海水の有効利用－塩の晶析における温度依存性－，日本海水学会誌，vol.64，2010，pp.250-255.
- 84) 村松容一，岡崎公美，大城恵理，安諸政俊，関東平野中央部の非火山性温泉における深部流体の生成機構，地下水学会誌，vol.50，2008，pp.145-162.
- 85) Takahashi, Y., Yoshida, H., Sato, N., Hama, K., Yusa, Y. and Shimizu, H., W- and M-type tetrad effects in REE patterns for water–rock systems in the Tono uranium deposit, central Japan, *Chemical Geology*, vol.184, 2002, pp.311-335.
- 86) 土橋竜太，鹿園直建，東濃ウラン鉱床周辺堆積岩中炭酸塩鉱物の希土類元素に関する地球化学的研究－高レベル放射性廃棄物地層処分に関するナチュラルアナログ研究の例－，地球化学，vol.42，2008，pp.79-98.
- 87) Sohrin, Y., Urushihara, S., Nakatsuka, S., Kono, T., Higo, E., Minami, T., Norisuye, K. and Umetani S., Multielemental determination of GEOTRACES key trace metals in seawater by ICPMS after preconcentration using an ethylenediaminetriacetic acid chelating resin, *Analytical Chemistry*, vol.80, 2008, pp.6267-6273.
- 88) 経遠 篤，鈴木美成，古庄義明，古田直紀，改良型イミノ二酢酸キレート樹脂をオンライン濃縮カラムに用いる海水中希土類元素の ICP-MS 定量法の開発と東京湾海水試料への応用，分析化学，vol.58，2009，pp.623-631.
- 89) 古庄義明，小野壯登，山田政行，大橋和夫，北出 崇，栗山清治，太田誠一，井上嘉則，本水昌二，無機分析のための固相抽出分離剤とその応用，分析化学，vol.57，2008，pp.969-989.
- 90) Hama, K. and Metcalfe, R., Groundwater dating applied for geological disposal of radioactive waste -A review of methods employed worldwide-, *Journal of Japanese Association Hydrological Science*, vol.44 , 2014, pp.39-64.
- 91) Kamensky, I. L., Tokarev, I. V. and Tolstikhin, I. N., ^3H - ^3He Dating: A case for mixing of young and old groundwaters, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol.55, 1991, pp.2895-2899.
- 92) Castro, M. C., Jambon, A., deMarsily, G. and Schlosser, P., Noble gases as natural tracers of water circulation in the Paris Basin: 1. Measurements and discussion of their origin and mechanisms of vertical transport in the basin, *Water Resource Research*, vol.34, 1998, pp.2443-2466.
- 93) 長尾敬介，核燃料サイクル機構公募型研究「ストロンチウム同位体比および希ガスを用いた地球化学的研究手法の確立」，核燃料サイクル機構，JNC TY7400 2004-001，2004，66p.

4. おわりに

本事業では、将来の自然現象に伴う長期の地質環境の変動スケールやそのレジリアンス（復元性）を把握するために必要な百万年以上に及ぶ時間スケールで過去から現在までの地質環境の変化を三次元的に表現できる数値モデルの開発と、モデルの構築に必要な個別要素技術の開発を目的としている。これらをそれぞれ「地質環境長期変動モデルの開発」と「革新的要素技術の開発」として、複数年度にわたって研究開発を進めてきた。

4.1 地質環境長期変動モデルの開発

これまで個別に進められてきていた「地形・地質モデル」、「水理モデル」、「地球科学モデル」及び「地表環境モデル」を統合して、過去から現在までの地質環境の長期的な変化を表現できる三次元地質環境長期変動モデルの開発を進めている。また、「統合数値モデル化、モデル検証及び不確実性の評価」として、先端計算科学技術や先進可視化技術を可能な限り取り込みつつ、個々のモデルの統合化や数値化、可視化を進めるとともに、モデルを検証するための方法論や不確実性を定量化するための技術開発も併せて進めている。

平成 26 年度は、「統合数値モデル化、モデル検証及び不確実性の評価」として、内陸部（東濃地域）と沿岸部（幌延地域）を事例とした分野間の FEP の相互関係を整理するとともに、それらに基づいて統合数値モデルの構築のための作業手順を提示した。また、統合数値モデルを可視化するための技術や不確実性の取り扱いについてレビューを行った。「地形・地質モデル」では、既存情報の整理、割れ目の形成・発達過程に関する情報の収集や革新的要素技術などによる各種調査・分析・解析を実施し、それらの科学的知見に基づき現状モデルの高度化を進めた。不確実性を考慮した地形・地質モデルの検討として、時間スケールに応じた地殻変動の傾向・速度やプロセスを把握するための解析手法について検討した。「水理モデル」では、東濃地域を事例とした地下水流動特性の長期的な時間変化を把握するための地下水流動解析に対し、各 FEP が解析結果に与える影響の程度の違いを整理した。さらに、これまで幌延地域で開発・適用してきた地下水流動解析手法の東濃地域での適用性を確認した。一方、幌延地域では、この解析手法を用いて地下深部の高い間隙水圧の再現性について検討した。「地球化学モデル」では、水理モデルと地球化学モデルの相互関連について確認し、地下水流動解析により得られた長期的な地下水流動特性と、それぞれの流動場における地下水の水質や年代などの地球化学特性について比較し、解析結果の妥当性を評価した。「地表環境モデル」では、地殻変動・気候変動に応じて生じる地形・地質、気温、水収支などの変化が、地表環境の状態設定に与える影響を整理し、これらの変動を考慮した地表環境の状態設定手法を提示した。

4.1.1 統合数値モデル化、モデル検証及び不確実性の評価

FEP 間の相互関係の整理結果から、地質環境特性の長期変遷の評価において考慮すべき FEP とそれらの変動要因について整理した。また、統合モデル構築の汎用的な全体フロー図を用いて、FEP 間の相互関係や、FEP と各分野のモデルとの相互関係、各分野のモデル間の相互関係、さらには、統合モデル構築までの流れを示すことができた。可視化技術については、専門家へのインタビューから、既存技術の範囲で地質環境の長期変遷を可視化できることがわかった。その際、地質環境の持つ高密度な情報や長期的な時間の中で生じる複雑なプロセスから、地質環境の長期的な変動を視覚的に理解するために適切な地質環境要素を可視化の対象として抽出することが課題であることが明らかになった。

4.1.2 地形・地質モデル

東濃地域においては、山地形成と断層の発達史を中心に 3 Ma 以降の地形・地質事象についての既存情報、小起伏面などの地形分布の特徴、後背地解析技術の適用結果、屏風山断層の発達史・破砕帯に関する情報などを用いて、地形・地質の概念モデルを作成した。このモデルから、水理モデルの感度解析には、堆積物を大量に供給する水系の流路変化、断層を境にした南側山地の 2 段階の形成、山地形成以前の断層の存在などを考慮することが重要と考えられた。また、陶土層の堆積様式と風化に関する検討、花崗岩中の割れ目の分布と水理学的特徴の整理を進めた。

幌延地域においては、これまでに整理した 2.6 Ma 以降の地形・地質の変遷及び復元地質構造モデルのインプットデータとその根拠及び仮定などについて確認し、構造運動に伴う地形・地質発達過程に関する複数の仮説を整理した。また、割れ目の形成モデルを検証するための三軸試験を実施した。さらに、永久凍土について既存情報を整理し、その規模や想定される事象並びにモデルへの反映方法などについて検討を行った。それらの結果から、考慮する必要があると考えられる地形・地質の長期変遷シナリオと既存モデルの改良点を検討した。

不確実性を考慮した地形・地質モデルを構築するため、比較的若い時代（第四紀後半頃）に開始し、現在も続いている地殻変動（ネオテクトニクス）について、日本列島における研究を概観し、この地殻変動の特徴やメカニズムを把握するための課題について整理した。さらに、比較的若い時代に開始したと考えられる変動が認められる地域の一つである九州南部を事例に、GPS データ解析、干渉 SAR 解析、古地磁気測定を適用し、時間スケールに応じた地殻変動の特徴を把握するための手法を検討した。

4.1.3 水理モデル

平成 25 年度に抽出した各 FEP が有する不確実性や自然現象に伴う FEP の時間変化を考慮した感度解析を実施し、平成 26 年度に提案した解析結果の統計処理方法を適用することにより、地下水流動特性の長期変遷を評価するうえで重要な FEP、並びにそれらの空間的分布の特定ができる見通しを得た。一方で、既存検討では、モデル化している断層の数やその水理特性の設定方法など、不確実性因子を網羅できていないことから、包括的な感度解析の必要性が明らかになった。

これまで幌延地域で開発・適用してきた地下水流動解析手法（SMS）を適用した検討では、地形的特徴や地質・地質構造の特徴に応じて解析メッシュ作成の考え方などが異なることが明らかとなった。また、幌延を対象とした検討においては、過剰間隙水圧の観測値に着目し、圧密解析や地下水流動・応力連成解析と SMS とを組み合わせた枠組みを構築した。一方、現状の SMS では、複雑な地形的特徴を有する地域への適用は、計算パフォーマンスの観点から制約があり、現実的な計算環境で解析する際には、解析メッシュ数を制限する必要があることが明らかとなった。また、比較的単純な地形的特徴を有する幌延地域を対象とした検討においても SMS を適用した三次元解析の必要性も課題として抽出された。これらのことから、SMS を汎用的なツールとして整備してゆくためには、解析コードの高速化・並列化といった高度化の方向性を明らかにすることができた。

4.1.4 地球化学モデル

化学的指標に基づく地下水の年代測定結果と、古水理地質学的な調査結果を合せて、長期的な地下水の流動状態を推定できることを示した。また、地下水流動解析の結果を、地下水が長期的に滞留する領域の推定という観点で再整理した結果、東濃地域と幌延地域において、長期的に地下水が滞留する領域が存在することが明らかとなった。上記の結果を合せて検討すると、幌延地

域に関しては化学的な視点での滞留域と、水理学的な観点での滞留域が概ね一致し、整合的と言える。これらのことから、地質環境の長期的な変化を考慮した地下水流動解析の結果を検証するために、地下水年代や地下水の形成プロセスが有効であることを示した。

4.1.5 地表環境モデル

地殻変動・気候変動に着目し、それらに応じて生じる地形・地質、気温、水収支などの変化が地表環境の状態設定に与える影響を検討するために、地殻変動・気候変動のパターンについて整理した。また、それらの検討に基づき、地殻変動・気候変動に起因して生じる地質学的プロセスが地表環境の状態設定やそこでの物質移行プロセスに与える影響とその関係を整理した。さらに、長期変遷を考慮した生活圏モデル構築に資する地表環境の状態設定フローを作成し、いくつかの長期安定性研究に関する事例に対して、地表環境の状態設定を試行した。試行の結果、地殻変動の継続性に関する情報の欠如、時間的・空間的変動に関する情報の取扱い及び地質学的プロセスに伴い生じる地表環境の状態変遷に関する定量的な取扱いが課題としてあげられた。また、検討の結果を整理し、長期変遷を考慮した地表環境の状態設定に関するアプローチを提案した。

4.2 革新的要素技術の開発

地質環境長期変動モデルを構築してゆくうえで、個別モデルの作成に必要な科学的知見やモデルの検証に用いるデータを取得するための要素技術として、「後背地解析技術」、「地下水涵養量推定技術」及び「炭酸塩鉱物測定技術」の開発を進めている。

平成 26 年度は、「後背地解析技術」として、石英やジルコンを用いた微量成分、ESR・OSL・TL 信号、放射年代値などの測定結果に基づき堆積物の供給源を特定するための手法を提示した。「地下水涵養量推定技術」では、過去の地形を対象とした河川流出量の推定手法について検討を行い、地形特徴に着目した河川流出量の推定手法を提示した。「炭酸塩鉱物測定技術」では、炭酸塩鉱物を対象とした放射年代測定法の開発において LA-ICP-MS を用いた年代測定システムの整備、微小領域での分析手法の構築及び標準試料の選定・採取を行った。酸化還元電位測定技術の構築においては、微小領域での分析手法の構築、カタログ化に適した標準試料としての炭酸塩鉱物及び地下水の採取・分析、希土類元素などの微量元素の定量分析の精度を向上させるための技術開発及び酸化還元電位測定を行うための微小領域での分析手法の検討を実施した。

4.2.1 後背地解析技術

微量成分、ESR・OSL・TL 信号、FT・U-Pb 年代値を用いた碎屑物の供給源を特定する手法を構築するために、風化に強い石英やジルコンを用いた各種分析を行った。石英の ESR 信号については、基盤岩ごと及び堆積物の深度方向での信号特性の違いが認められたことから、堆積物の供給源の時間変化を把握できる可能性が高いと考えられる。OSL・TL 信号については、信号特性の違いを示す試料が認められるが、ESR 信号ほど特徴的な傾向が見られていない。これらの手法については、現時点では測定数が少ないことから、今後は測定試料を増やして適用性の確認を進める必要がある。EPMA を用いた化学組成については、装置の測定条件の検討と設定を進め、主成分分析とジルコンを対象とした微量成分分析が可能となった。ジルコンの FT・U-Pb 年代値については、測定結果から供給源の推定を試みたが、引き続き事例の蓄積が望まれる。堆積物の堆積時期の決定については、テフラ対比が有効であるが、礫層においてテフラ層の観察は困難な場合が多いことから、礫層中の砂粒から風化に強いテフラ起源の石英やジルコンを抽出して、そこに含まれるガラス包有物やジルコン年代などを用いて、多量の分析結果の統計解析などから堆積時期を検討していくことが有効と考えられる。平成 26 年度は、堆積時期の把握に有効なテフ

ラ分析技術の検討と日本列島の鮮新世～更新世テフラカタログの整備に着手した。また、後背地解析技術の効率的な開発に必要な基礎データとして、東濃地域及びその周辺の既存資料を統合した地質ベースマップ及び地質断面図を作成した。さらに、平成 26 年度は、以上の分析に必要な各種装置（EPMA、OSL、帯磁率異方性）及び試料調製法（石英抽出法）の整備とそれらを用いた新たな後背地解析手法の可能性を検討した。

4.2.2 地下水涵養量推定技術

地下水涵養量の推定に必要な情報のうち、河川流出量の推定手法について検討を行い、地形特徴に着目した河川流出量推定手法の適用性を確認することができた。これにより、本手法を過去の地形に適用することで、過去の地形を対象とした河川流出量を推定できる見通しを得た。また、流出量と降水量との関係性を考慮した流出指標を設定することにより、気候変動に伴う降水量の変化を考慮した河川流出量を推定できる見通しを得た。これにより、平成 25 年度に実施した気温との相関による降水量、蒸発散量の推定手法と合わせて、長期的な気候変動及び地形変化を考慮した地下水涵養量の推定に必要なパラメータの推定技術を整備することができた。

地下水涵養量の推定に必要な降水量、蒸発散量、河川流出量は、いずれも地表環境と密接な関係があることから、今後は、地表環境モデルとの連携を図り、ここで整備した各推定手法の適用事例を蓄積するとともに、各推定手法の妥当性の確認、高度化を図る。

4.2.3 炭酸塩鉱物測定技術

炭酸塩鉱物を対象とした放射年代測定法の開発では、LA-ICP 質量分析計を用いた年代測定システムの整備、微小領域での分析手法の構築及び標準試料の選定・採取を行った。

LA-ICP 質量分析計の整備では、土岐地球年代学研究所に真空紫外光 ArF エキシマレーザー及び 2 重収束型 ICP 質量分析計の整備を行った。さらに、炭酸塩鉱物に対するビームの照射実験を行い、割れ目及び断層に介在する炭酸塩鉱物にとって最適なレーザーの照射条件を見出すための課題を把握した。また、レーザー照射を行う場所の選定を行ううえで必要な元素のイメージング技術と高精度で同位体比を測定する手法の開発を進めた。

微小領域での分析手法の構築では、1) 微量での炭酸塩の安定炭素同位体比及び安定酸素同位体比の自動測定を可能とする安定同位体比質量分析計用炭酸塩前処理システムの整備、2) カソードルミネッセンス像を観察するためのルミノスコープの整備、3) 元素分析や同位体分析に使用する粉体試料を作製し、正確に秤量するためのマイクロミル及びマイクロ天秤の整備を行い、炭酸塩鉱物の微小領域を効率的に分析する手法を確立するうえで、必要な環境の整備を進めた。

年代測定技術に開発に用いる標準試料の選定・採取としては、標準試料として、年代が推定できる海生化石や無機炭酸塩を用いることとした。そのうち、平成 26 年度は、縞状構造が発達し、縞ごとに年代値が異なるため、同一の分析条件で異なる年代値をもつ試料の分析が可能となる鍾乳石を採取した。また共同研究に基づき海生化石も取得した。

酸化還元電位測定技術の開発については、カタログ化に適した標準試料としての炭酸塩鉱物及び地下水の採取・分析、希土類元素などの微量元素の定量分析の精度を向上させるための濃縮技術の開発及び酸化還元電位測定を行うための微小領域での分析手法の検討を実施した。濃縮技術の開発では、キレート樹脂の中でも特に ICP 質量分析計での測定時に妨害元素となるアルカリ金属とアルカリ土類金属を除去可能とするイミノ二酢酸型のキレートカラムを対象とした適用試験を行った。その結果、希土類元素の 10 倍濃縮試験で高い回収率を得るとともに、妨害元素であるバリウム、ヒ素、ストロンチウムを 99 %以上除去することに成功した。また、地下水の年代測定に用いる希ガス質量分析装置の整備を実施した。この装置の導入により、地下水の起源に関す

る議論が可能となる。微小領域での酸化還元電位測定手法については、前述の LA-ICP 質量分析計を用いた検討を行った。

これら一連の検討、装置の整備、試験、試料採取、分析の実施により、岩盤中に普遍的に存在する炭酸塩鉱物を対象とした百万年より若いオーダーでの U-Pb 年代測定技術の開発及び妥当性のある地下水シナリオの検討のために必要な酸化還元電位測定技術の構築が大きく進展したと判断される。

謝 辞

本事業は、平成 26 年度地層処分技術調査等事業（地質環境長期安定性評価確証技術開発）として、経済産業省資源エネルギー庁から独立行政法人日本原子力研究開発機構が受託したものである。

山崎晴雄委員長（首都大学東京 都市環境科学研究科 教授）をはじめ、楮原京子委員（山口大学教育学部 講師）、竹内真司委員（日本大学 文理学部 准教授）、遠田晋次委員（東北大学 災害科学国際研究所 教授）、古市幹人委員（独立行政法人海洋研究開発機構 主任研究員）、吉田英一委員（名古屋大学博物館 教授）（以上、五十音順）には、本事業の実施にあたって設置した「地質環境長期安定性評価確証技術開発委員会」において有益な意見・助言をいただいた。

経済産業省資源エネルギー庁放射性廃棄物等対策室の松井裕哉課長補佐、真田祐幸氏及び横田秀晴氏には、事業全般にわたってご指導をいただいた。

ここに深く感謝いたします。