

付 録

- 付録 1 東海層群の堆積機構に関する共同研究
- 付録 2 東濃地域の断層の発達史に関する共同研究
- 付録 3 ボーリング試料を用いた分析技術に関する共同研究
- 付録 4 EPMA による微小領域鉍物の分析技術の研究
- 付録 5 炭酸塩鉍物の LA-ICP-MS による U-Pb 年代測定法の開発
- 付録 6 炭酸塩鉍物の LA-ICP-MS による同位体分析手法の開発
- 付録 7 炭酸塩鉍物の微小領域における化学組成測定手法の開発
- 付録 8 地質環境長期安定性評価に係る知識集約のためのシステムの管理
- 付録 9 「地質環境長期安定性評価確証技術開発委員会」の開催実績

付録 1

東海層群の堆積機構に関する共同研究

平成 26 年度共同研究報告書

平成 27 年 1 月

国立大学法人信州大学

独立行政法人日本原子力研究開発機構

目 次

1. 概要	1
1.1 共同研究件名	1
1.2 研究目的	1
1.3 実施期間	2
2. 研究方法	3
2.1 陶土層に関する情報整理	3
2.2 陶土層の堆積様式に関する現地調査	3
2.2.1 地質調査の内容	4
2.3 陶土層の堆積年代に関する検討	7
2.4 化学分析に関する検討	7
2.4.1 蛍光 X 線全岩分析法	7
2.4.2 ICP-MS 微量元素測定法	9
2.5 風化に関する検討	10
3. 研究成果	11
3.1 陶土層に関する情報整理	11
3.2 陶土層の堆積様式に関する現地調査及び測定試料	12
3.2.1 堆積相区分	12
3.2.2 検討地域における堆積相の分布状況	14
3.2.3 細粒岩の発達層準	14
3.2.4 年代測定の試料とその露出状況	15
3.3 陶土層の堆積年代に関する検討	23
3.3.1 フィッショントラック年代測定の結果	23
3.3.2 U-Pb 年代測定の結果	26
3.4 化学分析に関する検討	28
3.4.1 後背地の岩石構成と風化度評価のための試料選別方法	28
3.4.2 前処理方法の検討	29
3.5 風化に関する検討	30
4. まとめ	34
引用文献	34

図 目 次

図 2.2-1 地質概略図.....	4
図 3.2-1 年代測定試料（140612-32、140612-12、140612-46）の採取層準.....	15
図 3.2-2 サンプル 140612-32 の火山ガラス.....	16
図 3.2-3 サンプル 140612-12 の脱ハリした軽石片.....	16
図 3.2-4 サンプル 140612-12 の火山ガラス.....	17
図 3.2-5 サンプル採取地点（140612-32、140612-12、140612-46）の実測柱状図.....	18
図 3.2-6 サンプル 140716-01 の鏡下写真（Ba; 玄武岩片、Pl; 斜長石、CPX; 単斜輝石）..	19
図 3.2-7 サンプル 140716-01 の火山ガラス.....	19
図 3.2-8 サンプル 140716-02 の鏡下写真.....	20
図 3.2-9 ソーシュライト化した斜長石.....	20
図 3.2-10 サンプル 140716-02 の鏡下写真（Q; 石英、Pl; 斜長石）.....	21
図 3.2-11 サンプル 140716-03 の花崗斑岩片（Po; granite porphyry）.....	21
図 3.2-12 図 3.2-11 の花崗斑岩片を拡大（Mc; Muscovite）.....	22
図 3.2-13 サンプル採取地点（140716-01、140716-02、140716-03）の実測柱状図.....	22
図 3.3-1 鉾山 A で採取した試料のジルコン U-Pb ($^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$) 年代測定結果のダイアグラム.....	27
図 3.3-2 鉾山 B で採取した試料のジルコン U-Pb ($^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$) 年代測定結果のダイアグラム.....	27
図 3.4-1 鉾山 A から採取したシルト-粘土、砂質泥、砂の化学組成スパイダーダイアグラム.....	29
図 3.4-2 鉾山 A より採集した陶土層砂質粘土の化学組成スパイダーダイアグラム.....	30
図 3.5-1 鉾山 A から採取したシルト-粘土、砂質シルト、砂の A-CN-K ダイアグラム.....	33

表 目 次

表 2.2-1 マンセル色名帳による土色と記号表記の関係.....	6
表 2.4-1 蛍光 X 線全岩分析における主要元素の誤差.....	8
表 2.4-2 蛍光 X 線全岩分析における微量元素の誤差.....	9
表 3.3-1 フィッショントラック年代、及び U-Pb 年代測定結果.....	25
表 3.5-1 主要造岩鉱物における CIA 値.....	31
表 3.5-2 鉾山 A にて得られたシルト-粘土、砂質粘土、砂試料の CIA 値.....	32

1. 概要

1.1 共同研究件名

東海層群の堆積機構に関する共同研究

1.2 研究目的

高レベル放射性廃棄物などの地層処分は、人工バリアと天然の地層を適切に組み合わせたシステムによって、数万年以上にも及ぶ極めて長い時間スケールの安全を確保しようとするものである。日本列島は変動帯に位置していることから、諸外国に比べて地殻変動や火成活動などが活発であるため、地層処分事業においては将来の自然現象に伴う地質環境の変動スケールや復元性を把握しておくことが特に重要となる。今後、地層処分の技術的信頼性を更に高めていく上でも、実際の地質環境を構成する様々な要素についての過去の変動の履歴や現象プロセスなどを把握するための調査技術を整備するとともに、これらの科学的知見を統合しつつ、三次元的に表現できる数値モデルを開発することは極めて有効となる。このため、独立行政法人日本原子力研究開発機構（以下、「原子力機構」という）が、経済産業省から受託して実施する「地質環境長期安定性評価確証技術開発」では、将来の自然現象に伴う超長期の地質環境の変動を把握するため、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。

地層処分の安全評価では、地下に埋設した放射性廃棄物が地表の人間環境へどのような影響を及ぼすかについて考慮される。例えば、「わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第 2 次取りまとめ—」においては、地層処分において、放射性核種が処分施設から人間環境に至るメカニズムは、一般に地下水と接触することにより廃棄物中の放射性核種が徐々に地下水に溶出し、地下水の動きに沿って輸送されるというメカニズムが最も現実性が高く、地層処分の安全性を評価するうえで最も重要なものと考えられている（核燃料サイクル開発機構，1999¹⁾。「第 2 次取りまとめ」では、人工バリアから地質環境に放出された放射性核種が断層に沿って上昇して地表環境へもたらされるというシナリオが検討されている。

人類が生活する「地表環境」は地球の表層に限られており、地層処分の対象となる「地質環境」とは空間的な配置が異なる。地球の表面は、大気や生物活動によって擾乱された「風化帯」が存在する。風化帯では、寒暖の差や雨水の浸透による岩石の破壊（物理風化）や鉱物の変質・土壌化（化学風化）などが生じる。したがって、地層処分の安全評価においては、地表環境と地質環境の間に存在する風化帯の理解が必要である。

風化は、現在の地球上でも見られる現象であり、わが国にも多様な風化帯が形成されている。例えば、本事業の平成 25 年度の報告書の図 2.1-53 に掲載された花崗岩の写真（日本原子力研究開発機構，2014²⁾）は、花崗岩の風化帯のものであり、風化によって周囲の花崗岩が砂状になり（マサと呼ばれる）、それが洗い流され、風化核が残存した場所である。一方で、さらに風化が進めば、風化核もマサになり、やがては洗い流されて徐々に平坦な地形が形成されてゆくと思われる。さらに、風化が進むと、砂は粘土に変質していくと推察される。このように、風化は、その場所が置かれた環境条件（気温、降水量、地形、岩盤の割れ目分布など）によって、その様式が異なると考えられる。

「地質環境長期安定性評価確証技術開発」は百万年以上の時間スケールを対象としており、その間には、様々な様式の風化帯が形成された可能性がある。さらに、上述の通り、風化帯は人間圏と地質環境の間に位置することから、地形・地質モデルと生活圏モデルの相互関連を考える上でも重要である。しかし、過去において、風化帯はどの程度の規模で形成されたかについては十

分に検討されていない。

東濃地方には、窯業原料として利用されてきた陶土層が分布している。陶土層は先行研究によって、強風化した花崗岩から細粒の堆積物が供給されて形成された可能性が指摘されている。しかし、地層から供給源となった後背地の風化の状態を復元するためには、その地層の堆積環境や堆積機構を復元し、供給源の情報を的確に読み取っていくことが必要である。さらに、東濃地域周辺に分布する土岐花崗岩では、現地形において巨大な風化核が造る特徴的な地形が分布するだけでなく、マサや陶土層も認められることから、これらを系統的に研究することによって、過去の風化状態に関する重要なデータが得られることが期待される。

このような背景のもと、本共同研究では、100 万年以上の時間スケールの地形・地質モデル、及び地表環境モデルの構築において重要となる、過去の気候の変動幅を把握するために必要な情報となる岩石の風化について、様々な風化生成物が広く分布する東濃地域を事例として、地質学的なデータに基づいて検討することとした。平成 26 年度は、その端緒として、陶土層の堆積環境、及び堆積機構の復元に重点的に取り組むこととした。併せて、堆積物から後背地の風化の状態を調べるために必要な化学分析手法についても検討した。

1.3 実施期間

平成 26 年 7 月 1 日～平成 27 年 1 月 30 日

2. 研究方法

本共同研究では、花崗岩の風化状態を明らかにするために、東濃地域周辺に分布する花崗岩体、及び陶土層を事例に、地形・地質データと化学分析データを用いて研究を進める。

2.1 で詳述するように、陶土層については、カオリン質資源の出現要因や粘土化時期の特定のために粘土鉱物学的研究が数多く行われてきた。しかし、これら粘土鉱物学的研究では、後背地解析や堆積機構の検討が十分になされていない。化学風化の進行に伴う粘土化には、母材物質と堆積環境の違いが強く反映される。したがって、母岩と堆積環境の復元は、過去の風化状況の把握に必要な、カオリン質粘土の出現要因や粘土化時期の特定に必要不可欠である。

このような背景のもと、研究初年度である平成 26 年度は、既存情報を整理し、調査対象となる陶土層の分布域を抽出した。さらに、調査対象地域での現地調査を実施し、陶土層の堆積様式を明らかにするとともに、分析用試料を採取した。地層の形成年代に関わる年代測定、及び風化状態を解明するための化学分析の実施に先立って、適切な方法を検討するとともに、化学分析については、前処理方法の検討を実施した。採取した試料の一部は、これらの検討にも利用した。

2.1 陶土層に関する情報整理

東海層群は伊勢湾周辺の丘陵地に広く分布する地層で、主に半固結の礫層、砂層、泥層からなり、火山灰層、亜炭層などを挟む、陸水成の中新一更新統である。このうち、東濃地域には、窯業原料として利用されてきた陶土層からなる土岐口陶土層と、その上位に分布する砂礫層からなる土岐砂礫層が分布する（赤嶺，1954³⁾；陶土団体研究グループ，1999⁴⁾）。

陶土層中の粘土は、古くから窯業原料として利用されてきたことから、粘土の成因などに関して、粘土鉱物学的研究が盛んに行われてきた。本共同研究では、主にこれら研究成果を対象とした文献調査を行った。また、風化帯が形成される時期とその時の古環境を特定するために、陶土層の堆積年代、及び化石（主に陶土層に含まれる植物化石）に関する文献についても調査を行うこととした。

2.2 陶土層の堆積様式に関する現地調査

岐阜県土岐市一多治見市の陶土採掘地帯は古くから粘土学的研究が進み、調査地域として最適である。また、現在も稼業中の粘土鉱山がいくつかあり、地層の露出状況が良好である。ここでは、検討地域として、堆積様式を水平方向に連続して観察できることから、岐阜県土岐市と多治見市に所在する鉱山を選定した（本報告書では鉱山 A、鉱山 B、鉱山 C と称する）。調査対象とした鉱山の位置を図 2.2-1 に示す。

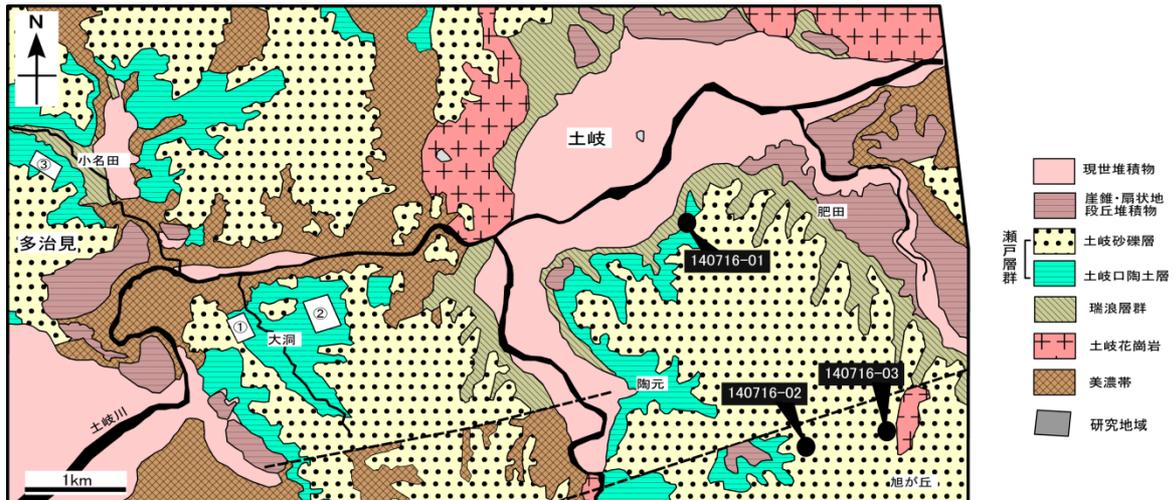


図 2.2-1 地質概略図

検討地域 ①鉱山 A、②鉱山 B、③鉱山 C を示す。年代測定用試料（140716-01、140716-02、140716-03）の採取地点も同時に示してある。

鉱山 A では、土岐口陶土層が層厚約 25 m、土岐砂礫層が 2～5 m 露出する。鉱山 B では、土岐口陶土層が層厚 20～30 m、土岐砂礫層が約 3 m 露出する。この二つの鉱山に露出する土岐口陶土層は、約 1°西に傾斜しているが、ほぼ水平に堆積する。鉱山 C では、土岐口陶土層が層厚約 13 m、土岐砂礫層が層厚約 7 m 露出する。鉱山 C に分布する土岐口陶土層は、ほぼ水平に堆積する。

2.2.1 地質調査の内容

陶土層は、風化花崗岩に由来する物質を大量に含むことが明らかとなっている（例えば、藤井、1967⁵⁾）。しかし、そのような限定的な供給源を持つ層準は非常に少なく、かつ薄層であり、大部分は風化花崗岩由来の物質と、その他の岩石種、例えば、新第三系泥岩や砂岩、先第三系堆積岩や火成岩類の風化物・未風化物を材料としている。そのため、堆積物の堆積機構を明らかにして供給水系や供給時期を区別することで、基盤岩由来の碎屑物が卓越あるいは優越する層準の効果的な識別を行う。

また、材料となる物質の特定のために、それぞれの環境に形成された堆積物の鉱物分析や元素分析が不可欠である。このためには、野外において、堆積物の粒度・堆積構造・色調に着目し、採取試料の効果的な選別を行い、基盤岩の情報を十分含む堆積物を抽出することが必要となる。

そのため、この検討では通常の地質調査に加えて堆積物の堆積相や古風化状態を示す堆積物の色調や植物根などに着目して堆積物を大きく分類した上で、化学分析に供すべき代表的な試料を抽出した。この方法によって、基盤岩情報を把握する上で、効果的に堆積相を識別することが可能となった。以下にその手順を示す。

(1) 岩相の記載・地質柱状図の作成

研究地域である岐阜県土岐市－多治見市陶土採掘地帯の 3 鉱山で 1/100 スケールの実測地質柱状図を作成し、岩相記載から堆積相解析を行った。堆積相解析を行うにあたって、初生的な堆積物の特徴である粒径、層厚、側方への広がり方、堆積構造、地層境界を記載した。また、水平方向に連続的に岩相の変化が観察できる露頭では、露頭スケッチを行った。古流向は、向きの分かるものとして、フォアセット・斜交層理の方向とインブリケーションの方

向を測定した。

(2) 堆積物の試料オーダーの記載

地層中において保存されやすく視覚的に認識しやすいとされる土色、植物化石の産状、生物擾乱の有無、鏡下観察における土壌微細構造、土壌層位に着目して記載を行った。

特に、土色の記載は、層位中で代表的な色調の部分の土塊を採取し、湿った状態の試料を用い、新版標準土色帖（農林水産省農林水産技術会議監修；マンセル方式の色名帳）を用いて定性的に記載した。一般的に土色は、土壌中における炭素含有率、鉄化合物（+）の存在、鉱物の結晶状態と関連するとされる（八木, 1993⁶⁾）。褐色味が強いと、風化によって造岩鉱物中の鉄が遊離し加水酸化鉄を形成していることを示し、ある程度の酸化環境を示唆する。灰色系統は、主に停滞水などによる還元環境、もしくは未風化の母材物質の色を反映していることを示している。真下（1973）⁷⁾によると、マンセル方式における明度/彩度の値は炭素含有率と強い関係をもつとされ、2/2、1.7/1 - 2/1 の土色は炭素含有率 12 %以上を示すと定義がなされている。

本共同研究では、マンセル方式で記載した土色を黒色系、暗色系、褐色系、赤褐色－黄褐色系、灰色系、青灰－オリーブ灰色系、白色系の七つに区分する。表 2.2-1 に、マンセル式土色名と、それらの区分を以下に示す。このうち、褐色系、赤褐色－黄褐色系の堆積物に着目して試料採取を行った。また、対照試料として、青灰－オリーブ灰色系、白色系試料についても数試料採取した。

表 2.2-1 マンセル色名帳による土色と記号表記の関係

	黒色系 (black)	暗色系 (dark)	褐色系 (brownish)	赤 - 黄褐色系 (reddish)	灰色系 (gray)	青 - オリーブ灰 色系 (bluish)	白色系 (white)
Hue	Value/Chroma						
7.5R	1.7/1, 2/1, 2/2	3/1, 3/2, 2/3	4/2, 3/3	4/3-8, 5/3, 3/4, 3/6	4-6/1, 5/2, 6/2		7/1
10R	1.7/1, 2/1, 2/2	3/1, 3/2, 2/3	4/2-4, 3/4	5/3, 5/6, 5/4, 5/6, 3-6/6, 4-6/8	4-6/1, 5/2, 6/2		7/1
2.5YR	1.7/1, 2/1, 2/2	3/1-3, 2/3, 2/4	2/4, 3/4, 4/2, 4/3	5/3, 6/3, 5-7/4, 4-7/6, 4-7/8	4-6/1, 5/2, 6/2		7/1-3
5YR	1.7/1, 2/1, 2/2	3/1-4, 4/1, 2/3	4/2, 4/3, 2/4, 3/4	5-7/3, 4-7/4, 4-7/6, 4-7/8	5-7/1, 5-7/2		8/1-4
7.5YR	1.7/1, 2/1, 2/2	3/1, 4/1, 3/2, 2/3, 3/3	4/2-4, 3/4	5-7/3, 5-7/4, 4-8/6, 5-8/8	5-7/1, 5-5/2		8/1-4
10YR	1.7/1, 2/1, 2/2	3/1-3, 2/3	4/2, 4/3, 3/4	5-7/3, 4-7/4, 4-8/6, 5-8/8	4-7/1, 5-7/2		8/1-4
2.5Y	1.7/1, 2/1, 2/2	3/1-3	4/2-6	5-7/3, 4-8/4, 5-8/6, 6-8/8	4-7/1, 5-7/2		8/1-3
5Y	1.7/1, 2/1, 2/2	3/1, 3/2	4/2-4	5-7/3, 5-8/4, 5-8/6, 6-8/8	4-7/1, 5-7/2		8/1-3
7.5Y	1.7/1, 2/1, 2/2	3/1, 3/2	4/2, 4/3		4-7/1, 5-7/2		8/1-3
10Y	1.7/1, 2/1, 2/2	3/1, 3/2			4-7/1	4/2	8/1, 7/2, 8/2
N					6/0, 7/0	3-5/0	8/0
2.5GY	1.7/1, 2/1, 2/2	3/1			6/1, 7/1	4/1, 5/1	8/1
5GY	1.7/1, 2/1, 2/2	3/1			6/1, 7/1	4/1, 5/1	8/1
7.5GY	1.7/1, 2/1, 2/2	3/1			6/1	4/1, 5/1, 7/1	8/1
10GY	1.7/1, 2/1, 2/2	3/1				4-7/1	8/1
5G						3-7/1	
10G						3-7/1	
5GB						3-7/1	
10BG						3-7/1	
5B	1.7/1, 2/1, 2/2					3-7/1	
5PB	1.7/1, 2/1, 2/2	3/1			4-7/1		
5P	1.7/1, 2/1, 2/2	3/1		4/1	5/1, 6/1		7/1
5RP	1.7/1, 2/1, 2/2	3/1		4-6/1			7/1
5R	1.7/1, 2/1, 2/2	3/1		4-6/1			7/1

2.3 陶土層の堆積年代に関する検討

陶土層は後背地（堆積物の供給源）において、強風化で形成された碎屑物で形成されたと考えられる。また、淡水性の地層であり、年代測定に適した火山岩などは含まれていない。このため、陶土層に挟まれる火山灰を試料とした年代測定法、及び碎屑物に含まれる試料を用いた年代測定法について検討し、風化に対して比較的安定性の高い、ジルコンを用いたフィッシュトラック年代測定、及びウラン-鉛年代測定を行い、堆積年代を検討する。

平成 26 年度は、ジルコンを含む可能性が高いと考えられる砂質堆積物を、岐阜県土岐市の鉦山 A と鉦山 B から採取した。

2.4 化学分析に関する検討

堆積物の化学分析値は、堆積物を構成している物質の全体的な性質を反映している。しかし、この堆積物化学組成は、材料となる物質の組み合わせ、堆積時による特定粒子の取捨選別、堆積後の天水・地下水による変質、続成作用による高温環境下での変質、といった様々な改変を受けている。このうち、特に堆積時の粒子の取捨選別作用は、花崗岩に由来する碎屑物質のなかで最も多いと思われる石英粒子の濃集やそれによる他鉱物の希釈を生じさせる。そのため、堆積物の元素構成に最も影響を与える要素と言える。したがって、堆積物の化学組成から得られる情報の解釈には堆積時の粒子分別の効果をもどのように評価するかがポイントとなる。また、石英以外の鉱物粒子に由来する微量元素は、供給源の岩石のよい指標となり得る。

化学組成の検討では堆積物試料を溶融し、均質かつ細粒な条件で分析装置に導入する必要がある。しかし、難溶性物質である石英が大量に存在した場合、堆積物試料の融解度に差違が生じ、不均質な状態となった試料を導入せざるをえない場合が生じる。したがって、化学組成の検討のためには、試料を均質かつ細粒化させる前処理方法の検討が不可欠と言える。

この検討では、陶土層の材料となる物質の特定とその風化度の評価のために、実践的な試料選別方法とそれに対応した前処理方法の策定を行った。検討対象とした分析方法は蛍光 X 線全岩分析法と ICP-MS 微量元素測定法である。それぞれの分析の方法について以下に記載する。

2.4.1 蛍光 X 線全岩分析法

蛍光 X 線法による化学組成の測定は、堆積物全体の主要元素と微量元素について全般的な性質を把握することに最適な方法である。数 g の試料を使用するため、堆積物の粒子単位での微量な変動の影響を最小限に抑えることができ、主要な元素構成を定量化することが可能といえる。一方、例えば REE などの極めて微量な元素の検討には、その測定下限が数十 ppm と高いことから、やや不向きと言える。この検討では、信州大学理学部設置の蛍光 X 線分析装置フィリップス社製 PW2400 を使用し、分析試料の作成は三宅ほか（1996）⁸⁾に従い、四ホウ酸リチウム 3 倍希釈法を用いた。また、化学分析に使用するビードの作成方法は、三宅ほか（1996）⁸⁾に従った。以下にその概略を示す。

粉碎した試料をマッフル炉で 12 時間灼熱させた後、 2.0000 ± 0.0002 g を秤量する。量り取った試料と四ホウ酸リチウム 4.0000 ± 0.0002 g をめのう製乳鉢を用いて磨りつぶし、ビードサンプラー（日本フィリップス社製 NP1234）を用いてガラスビードを作成する。なお、試料の燃焼過程で失われる有機炭素、 H_2O 、硫黄酸化物（SOX）及び炭酸塩鉱物といった元素の量を表す灼熱減量（LOI : loss on ignition）は、以下の式で求められる。

$$LOI (\%) = (\text{灼熱処理前重量 (g)} - \text{灼熱処理後重量 (g)}) / \text{灼熱処理前重量 (g)} \times 100$$

分析値の定量には検量線法を用いた。なお、X線強度と元素含有量との相関関係のばらつきであらわされるマトリックス効果の補正は、PHILIPS社製のソフトWINX40J ver.1.5aを使用した。主要元素についての補正には、各元素どうしの吸収と励起効果から決めたファンダメンタルパラメーターを用いて、標準試料の検量線の切片と勾配を補正しながら求める。なお、主要元素の検量線は、すべて産業技術総合研究所地質調査総合センターの岩石標準試料を用いて検量線が作成されている。分析条件と誤差は三宅ほか(1996)⁸⁾に詳しく、標準試料13試料を5回ずつ分析し、繰り返し測定することによって得られる偶然誤差を、含有量に対する標準偏差の割合で計算すると表2.4-1のとおりである。

表 2.4-1 蛍光 X 線全岩分析における主要元素の誤差

物質名	誤差	含有量 0.5 % 以下の場合の誤差
SiO ₂	0.17 % 以下	
TiO ₂	0.4 % 以下	
Al ₂ O ₃	0.2 % 以下	12 % 以下
FeO [*]	0.2 % 以下	0.1 % 以下
MnO	1.2 % 以下	0.06 % 以上
MgO	1.2 % 以下	0.6 % 以上
CaO	0.6 % 以下	0.5 % 以上
Na ₂ O	1 % 以下	1.4 % 以上
K ₂ O	0.3 % 以下	0.3 % 以上
P ₂ O ₅	2 % 以下	0.05 % 以上

なお、主要元素については、LOIの試料間の差によって生じる測定値の増減を考慮するために、各酸化物にLOIを足したTotalが、各酸化物のみのTotalと同じになるように再計算する。微量元素のマトリックス補正は、Niより重い元素(Ni、Cu、Zn、Ga、As、Br、Rb、Sr、Y、Zr、Nb)については、コンプトン散乱線の強度で規格化を行う。V、Cr、Ba、La、Ce、Ndについては自身のバックグラウンド強度で規格化を行う。なお、検量線は、試薬を用いて作成した標準ガラスを用いて作成されている。分析条件と誤差は、津金・三宅(2001)⁹⁾に詳しく、繰り返し測定することによって得られる偶然誤差を、含有量に対する標準偏差の割合で計算すると表2.4-2のとおりである。

表 2.4-2 蛍光 X 線全岩分析における微量元素の誤差

物質名	誤差※	少量の場合の誤差
V	2 %以下 (100 ppm 以上)	5 %以下 (30 ppm 以上)
Cr	2 %以下 (40 ppm 以上)	5 %以下 (10 ppm 以上)
Co	10 %以下 (35 ppm 以上)	30 %以下 (5 ppm 以上)
Ni	2 %以下 (15 ppm 以上)	5 %以下 (5 ppm 以上)
Zn	2 %以下 (30 ppm 以上)	
Ga	2 %以下 (10 ppm 以上)	
Rb	2 %以下 (50 ppm 以上)	10 %以下 (10 ppm 以上)
Sr	1 %以下 (100 ppm 以上)	
Y	2 %以下 (10 ppm 以上)	10 %以下 (5 ppm 以上)
Zr	1 %以下 (40 ppm 以上)	
Nb	2 %以下 (10 ppm 以上)	
Ba	5 %以下 (200 ppm 以上)	10 %以下 (50 ppm 以上)
La	20 %以下 (15 ppm 以上)	
Ce	20 %以下 (20 ppm 以上)	
Nd	20 %以下 (15 ppm 以上)	

※ () 内の濃度以上の場合の誤差

2.4.2 ICP-MS 微量元素測定法

ICP-MS (誘導結合プラズマ質量分析計) による化学組成の測定は、堆積物を構成する微量元素量の定量に最適な方法である。非常に微量な成分であっても定量が可能であるため、粒子単位入りこむ物質の微量な変動を把握することができる。その反面、高濃度で存在する主要元素については希釈率の大幅な変更などが必要であり、微量元素との同時分析には不向きである。この検討では、新潟大学理学部設置の Agilent Technologies 社製 HP7500a によって分析を行った。

試料の分解にはアルカリ溶融法と酸溶融法の両者を比較した。基本的な試料溶解の手順は Roser et al. (2000)¹⁰⁾に従った。その概略は以下の通りである。

アルカリ溶融法の場合は融剤として炭酸ナトリウムを使用した。一方、酸溶融の場合は融剤としてフッ化水素酸によって加熱分解、乾固した後、炭酸ナトリウムによる溶融を行った。その後は、ともに溶融物を硝酸、塩酸にて中和した後、超純水にて 20,000 倍に希釈した溶液を用いた。無水炭酸ナトリウムは和光純薬の試薬特級を、塩酸、硝酸は関東化学社電子工業用超高純度試薬、フッ化水素酸はダイキン工業 電子工業用高純度試薬を用いた。超純水は、逆浸透膜、連続イオン交換で脱イオン化したものを非沸騰型蒸留装置で蒸溜した物を用いた。ボトル、サンプル管は、10% HCl に漬け置きした後、純水・超純水で良くすすぎ乾燥させたものを使用した。

定量は Eggins et al. (1997)¹¹⁾の方法を用い、USGS の標準試料 (BHVO-2) を未知試料と同様に分解・測定し検量線を作成した。BHVO-2 の各元素の含有量は Eggins et al. (1997)¹¹⁾の報告値 (BHVO-1) を用いた。酸化物の干渉を補正するために、未知試料測定後に干渉を起こす元素を添加した溶液を測定し、それぞれの生成比を求め補正を行った。また、ドリフト補正のため、¹¹⁵In、¹⁸⁵Re、²⁰⁹Bi、各 2 ppb を添加し、内標準補正を行った。

2.5 風化に関する検討

2.1～2.4 で得られた結果に基づいて、東濃地域周辺に分布する花崗岩の風化について検討し、その結果を報告書として取りまとめる。その際、過去の風化状態の解明に適応する手法の問題点や課題についても検討する。

3. 研究成果

3.1 陶土層に関する情報整理

東海層群は伊勢湾周辺の丘陵地に広く分布する地層で、主に半固結の礫層、砂層、泥層からなり、火山灰層、亜炭層などを挟む、陸水成の中新一更新統である。このうち、東濃地域には、窯業原料として利用されてきた陶土層からなる土岐口陶土層と、その上位に分布する砂礫層からなる土岐砂礫層が分布する（赤嶺, 1954³⁾; 陶土団体研究グループ, 1999⁴⁾）。

陶土層中の粘土は、古くから窯業原料として利用されてきたことから、粘土の成因などに関して、粘土鉱物学的研究が盛んに行われてきた。この一方で、赤嶺（1954）³⁾は東海層群の堆積学的研究の必要性を主張し、愛知県瀬戸市に分布する東海層群について堆積学的研究を行い、土岐口陶土層の堆積場を湖水中と位置付けた。その後、陶土団体研究グループ（1982¹²⁾, 1985¹³⁾）、中山（1985）¹⁴⁾、中山・陶土団体研究グループ（1989a¹⁵⁾, 1989b¹⁶⁾）は、岐阜県に分布する東海層群の堆積盆地について構造地質学的研究を行い、陶土層の堆積場が各地に散在して分布する小規模な湖沼であることを示した（中山・陶土団体研究グループ, 1989a¹⁵⁾）。

土岐口陶土層は全て小盆地に分かれて分布しており、その形成年代は盆地ごとに異なることが知られている（中山・陶土団体研究グループ, 1989¹⁵⁾）。例えば、土岐市周辺に分布する土岐口陶土層に狭在する火山灰層からは、約 10 Ma のフィッシュトラック年代が得られており（吉田ほか, 1997¹⁷⁾; 安藤ほか, 1999¹⁸⁾; 陶土団体研究グループ, 1999⁴⁾）、さらにオオミツバマツ（*Pinus trifolia*）に代表される植物化石群集の産出が知られている（例えば、Miki, 1939¹⁹⁾; Miki, 1941²⁰⁾; 中山ほか, 1999²¹⁾）。一方で、東濃地域東部の中津川市に分布する陶土層（陶土団体研究グループ, 1985¹³⁾の板橋累層）に狭在される火山灰層からは、3.3 Ma のフィッシュトラック年代が得られており（陶土団体研究グループ, 1985¹³⁾）、中津川市周辺の東海層群にはオオミツバマツを含む植物化石群集よりも新期の植物化石群集が含まれることから（Tsukakoshi and Todo Collaborative Research Group, 1995²²⁾）、中津川市の陶土層の形成年代は新しいと考えられている（中山・陶土団体研究グループ, 1989¹⁵⁾）。

陶土層中の粘土は、古くから窯業原料として利用されてきたことから、粘土の成因などに関して、粘土鉱物学的研究が盛んに行われてきた。陶土層中の粘土の成因としては、古くから陶土層堆積前に風化した花崗岩（マサ）が水流による運搬作用で分別・淘汰され堆積したという説が一般的であった（窯業原料協議会編, 1949²³⁾）。これに対して、北崎・荒木（1952）²⁴⁾は、陶土層中の粘土鉱物の組成が単純であること、及び火山玻璃（はり）を含むことから、粘土が堆積後の風化により生成されたこと、粘土の母岩は凝灰岩が主体であると考えた。また、野沢（1953²⁵⁾, 1955²⁶⁾）は、岐阜県多治見市と岐阜県中津川市に分布する形成時代の異なる陶土層の粘土、及び陶土層の母岩となる風化花崗岩の鉱物組成の検討から、粘土鉱物や粘土化の程度を規制するのは母岩であると考えるとともに、母岩の混合の差によって、蛙目粘土、木節粘土、白粘土など、耐火度や色の異なる粘土が形成されるとした。これに対し、種村（1964）²⁷⁾、藤井（1967）⁵⁾、Fujii（1968）²⁸⁾、藤井・大森（1968）²⁹⁾、長沢・国枝（1970）³⁰⁾は、粘土化の時期と結晶化の進行具合は、各粘土鉱物によって異なることを示した。例えば、藤井・大森（1968）²⁹⁾は、岐阜県大洞地区に分布する木節粘土と白粘土の研究に基づいて、両者の粘土鉱物組成が異なることから、白粘土は凝灰岩由来であり、木節粘土は美濃帯の堆積岩類由来であると結論づけた。これらの研究の結果から、陶土層中の粘土の粘土鉱物は、主にカオリナイトとハロイサイト、モンモリロナイトとイライトから構成されること、陶土層中の粘土や粘土鉱物の種類は、母岩の性質・母岩の粒度と量比・堆積環境に支配されることが示された。

土岐口陶土層堆積時の気候・環境については、土岐口陶土層の大型植物化石群集から、亜熱帯

要素の植物化石が陶土層の全層準で産出することから、当時の気温は一様に温暖であったと考えられている（百原・齋藤，2001³¹⁾）。

3.2 陶土層の堆積様式に関する現地調査及び測定試料

3.2.1 堆積相区分

検討地域の陶土層に関して、岩相、堆積構造、植物化石の産状をもとに 13 の堆積相へ区分を行った。また、陶土層は陸成層であることから、区分において Miall (1996)³²⁾の一般的な河川堆積相の区分に従った。

<堆積相 A：塊状礫層相>

中粒～粗粒砂基質の亜円礫～円礫からなる。特徴として、塊状で、礫径最大 5 cm の礫を含む。層厚は 50～100 cm であり礫径の異なる層が積層する。Miall (1996)³²⁾の堆積相 Gm に相当する礫質チャネルの堆積物と考えられる。

<堆積相 B：トラフ型斜交層理礫質砂層相>

層厚は 30～50 cm、トラフ型斜交層理もしくは不明瞭な斜交層理をなす砂質礫層から構成される。基底部には下位層への侵食構造が認められることがある。斜交層理のセット厚は 5～10 cm である。礫が含まれることが多く、平均礫径は 3～7 mm と多様である。Miall (1996)³²⁾の堆積相 Gt によく似て、浅い河川の高流速～低流速で形成されたバー堆積物と考えられる。

<堆積相 C：炭質葉理を含むチャンネル状トラフ型斜交層理砂層相>

積算層厚は 180 cm に及ぶ。中粒砂～粗粒砂、礫質の中粒砂～細粒砂から構成され、数 10 cm の植物化石をはさむレンズ状の暗褐色中粒砂～粗粒砂層が内部に数枚はさまれる。内部にはトラフ型斜交層理がみられ、偽礫が濃集する。Miall (1996)³²⁾の堆積相 St に類似する。偽礫が濃集することやトラフ型斜交層理を示すことから高流速の定向流で堆積したことが考えられる。

<堆積相 D：カレントリップル平板状斜交層理砂層相>

積算層厚 10～60 cm で、極細粒砂と細粒砂～粗粒砂の互層から構成される。それぞれの層厚は数 cm～30 cm である。内部構造として、波高 5 cm 以内のリップル葉理、小スケールの斜交葉理、ないし平行葉理を含む。Miall (1977)³³⁾、1996³²⁾の岩相 Sr に相当し、低流速の定向流で堆積したと考えられる。

<堆積相 E：膨縮状逆級化砂層・炭質砂質シルト層互層相>

積算層厚 10～60 cm で、数 cm 厚の淘汰の良い極粗粒砂～中粒砂層と、数 cm の炭質物を含む砂質シルト層の互層からなる。砂層は、侵食構造、フォアセット葉理を示し、膨縮状の外形を呈する。また、一部ではコンボリュート層理がみられ、逆級化構造を示す。本堆積相の砂層では、氾濫原における洪水堆積物の特徴である逆級化構造（伊勢屋，1982³⁴⁾）がみられる。また、河川堆積物と考えられる堆積相 B、D に付随することから、自然堤防～河川に近接した氾濫源の堆積物と考えられる。

<堆積相 F：含角礫不淘汰塊状砂質シルト層相>

層厚 20～50 cm で、淘汰の悪いシルト～中粒砂を基質とし、少量の細礫を含む。主に無構造である。本堆積相は、Miall (1996)³²⁾の岩相 Gmm に相当し、デブリフロー堆積物と考えられる。

<堆積相 G：含植物片不淘汰礫質砂 - シルト層相>

層厚は 30～100 cm で、材化石を豊富にはさむ細礫～中礫の礫層、淘汰の悪い砂質シルト層からなる。礫層には角礫～亜角礫が含まれ、円礫もまれに認められる。礫の分布が偏在し、非常に不均質である。これらの特徴は堆積物を運搬した流体内部で十分な攪拌がなされていないことを示しデブリフロー堆積物と考えられる。Miall (1996)³²⁾の岩相 Gci に相当する。

<堆積相 H：偽礫を含む平板状斜交層理砂層・炭質シルト薄層互層相>

層厚 15～50 cm で、数 cm 厚の炭質シルト層、10～20 cm 厚の平行葉理を示す極細粒砂層、10～20 cm 厚の偽礫（最大 2 cm）を豊富に含む暗褐色中粒砂層、淘汰の悪い礫質中粒～粗粒層から構成される。偽礫を豊富に含むことから、高流速の水流によって運搬されている。また、炭質物を多く含むため、氾濫源での堆積物と考えられる。Miall (1977³³⁾, 1996³²⁾の岩相 Fl に類似する。

<堆積相 I：膨縮状逆級化砂層・炭質シルト層互層相>

層厚 20～70 cm で数 cm 厚の中粒砂～極細粒砂層と、数 cm 厚のシルト～粘土層の互層から構成され、泥層が優勢である。泥質物が優勢であることから氾濫源の堆積物と考えられるが、頻繁に砂層を運搬する水流の流入があったと推定される。Miall (1977³³⁾, 1996³²⁾の岩相 Fl に相当する。

<堆積相 J1：含植物片シルト層・レンズ状礫質砂層互層相>

層厚 50～150 cm で、炭質物や植物化石が多量に密集した泥層中にレンズ状ないし膨縮状の細粒砂～粗粒砂層を含む。直径 45 cm に達する樹幹や、枝の破片が含まれることがある。時折はさまれる砂層は逆級化構造を示す。これらの点から、氾濫源の中でも炭質物の多い湿地に堆積した泥質岩と、洪水時の堆積物からなると考えられる。これらの特徴は、Miall (1977³³⁾, 1996³²⁾の岩相 Fl と類似する。

<堆積相 J2：含植物片シルト層・レンズ状礫質砂層互層相>

層厚 50～120 cm、炭質物や植物化石が多量に密集した泥質砂層中に、レンズ状の粗粒砂層や細粒砂質礫層を含む。基本的に互層状を呈するが、泥質砂層はやや粗粒である。このような特徴は堆積相 J1 と類似するが、より粗粒なことから河川に近い後背湿地の堆積物と考えられる。

<堆積相 K1：砂質シルト - 粘土層相>

層厚は 20～200 cm で、砂質シルト～粘土から構成される。無構造で、一部に不明瞭な平行葉理がみられる。ただし、大部分は植物根による生物擾乱で葉理が乱されている。主に無構造の砂質シルト～粘土から構成され、一部に平行葉理がみられる点で、Miall (1977³³⁾, 1996³²⁾の岩相 Fsm の特徴に大部分が一致する。静穏な湖や小規模な池の堆積物と考えられる。

<堆積相 K2：淘汰の良い粘土層相>

層厚 40～200 cm で、淘汰の良いシルト～粘土から構成される。一般的に無構造で、一部に不鮮明な平行葉理が見られる。淘汰のよいシルト～粘土から構成されることから、湖の中心域での堆積が考えられる。

<堆積相 K3：平行葉理粘土層相>

層厚 40~200 cm で、淘汰の良いシルト~粘土から構成され、比較的明瞭な平行葉理がみられる。明瞭な葉理が保存されていることから、生物活動に乏しい貧酸素状態になりやすい湖が考えられる。

<堆積相 L：含植物片暗灰色粘土層相>

層厚 40~200 cm で、材化石を豊富にはさむ粘土~シルトから構成される。植物片が集まりやすく、かつ細粒物質が浮遊沈降する場所、例えば、滞水域と近接した湿地などでの堆積が考えられる。Miall (1996)³²⁾の岩相 C に一致する。

<堆積相 M：泥基質亜炭層相>

層厚は 100~200 cm で、基質に乏しい粘土~シルト基質の亜炭層からなる。水流に乏しい沼沢地の堆積物と考えられ、Miall (1996)³²⁾の岩相 C に類似する。

3.2.2 検討地域における堆積相の分布状況

検討地域に分布する陶土層では、大部分が堆積相 J、K、L 及び M で示される後背湿地や湖沼性の細粒な堆積物が卓越する。ただし、地域差も認められ、鉦山 A、鉦山 B 及び鉦山 C の三つの鉦山の地質柱状図を対比すると、このことはいっそう明瞭となる (図 3.2-1)。堆積相 B、D、E、G で示される高密度デブリーフロー堆積物や礫質堆積物は鉦山 A と鉦山 C で卓越する。一方、鉦山 B ではこれらの堆積物を欠くか、発達が貧弱である。このことから、堆積盆地の縁辺部に位置する鉦山 A と鉦山 C で粗粒堆積物が卓越し、堆積盆地の中央部に近い鉦山 B では細粒堆積物が卓越することがわかった。

3.2.3 細粒岩の発達層準

以上の検討から、陶土層を構成する堆積物は後背湿地や湖沼に堆積した細粒岩が卓越することがわかり、粗粒岩の局所的な分布も判明した。また、堆積盆内の位置によってその堆積物の粒度特性が異なる可能性、例えば、堆積盆中央部の鉦山 B では粗粒岩の発達に乏しいなど、も示唆された (図 3.2-1)。粒度特性は堆積物の性質を知る上で、最も重要な要因である。特に地域や層準における粒度特性の偏りは、供給源岩の定量的議論に大きな影響を及ぼすことが推測される。したがって、後背地に分布する基盤岩類の風化状況の定量的把握のためには、次の検討が必要となる。

1. 堆積物の粒度変化の時代的变化の傾向を把握し、同じ時代毎に堆積物を比較する必要がある。この検討が不十分であると、異なる層準の堆積物を比較することになり、後背地の風化状況の変化を誤認することとなる。
2. 陶土層の堆積盆地では、盆地中央部と縁辺部で粒度特性が異なる。盆地縁辺部の堆積物は攪拌や均質化が十分になされていない粗粒な堆積物が卓越する。そのため、その堆積物の示す後背地情報は、局所的な一部の集水域の岩石構成と風化状況を反映したものになり得る。一方、盆地中央部の堆積物は細粒で、均質化がなされていると考えられるが、多様な集水域で形成された堆積物の平均値を示すものとなり、基盤岩に由来する堆積物のシグナルは相対的に希釈され、減衰してしまうことが考えられる。
3. 以上の点から、基盤岩類の全体的な風化状況の把握には堆積盆地中央部に形成された堆積物を検討することが望まれる。一方、それぞれの層準におけるイベント的な風化状況の変動を把握するためには、縁辺域での堆積物の検討が貢献すると考えられる。

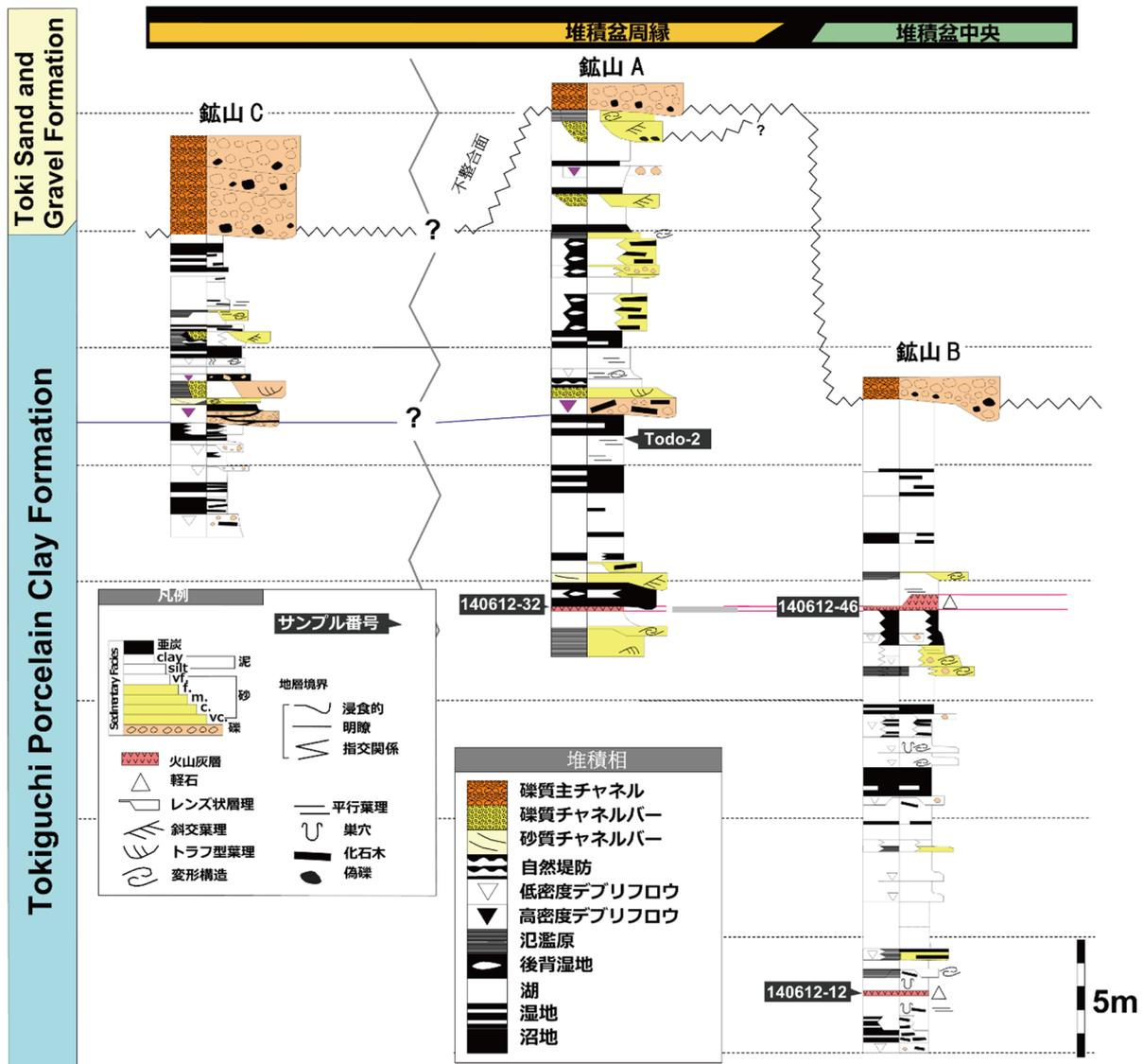


図 3.2-1 年代測定試料（140612-32、140612-12、140612-46）の採取層準

3.2.4 年代測定の試料とその露出状況

a. 土岐口陶土層の試料

① 鉱山 A に認められる火山灰層（サンプル名：140612-32；図 3.2-1 の中央部の柱状図下部）

【層厚】 5 - 20 cm

【層相】 粘土 - シルトサイズの火山灰を主体とする。採取地において土岐砂礫層の基底から 26 - 30 m 下位の土岐口陶土層の粘土 - シルト層中に位置する。野外においては水平距離約 70 m に渡って追跡できる。本層は、灰色（5Y4/1） - 褐灰色（10YR4/1 - 6/1）を呈する。また、炭質物からなる厚さ数 mm の薄層を数層はさみ、部分的に平行葉理を示す。これより、この火山灰層は再堆積したものと判断される。

鏡下において、本火山灰層は比較的淘汰のよいシルト粒子からなる葉理と、大部分を基質が占め細粒砂 - 中粒の砂粒子を含む葉理からなる。砂粒子は、ほとんどが石英からなり、わずかに黒雲母、斜長石、アルカリ長石、白雲母、岩片としてチャート片、泥岩片を含む。石英の大部分は、シルトサイズの単結晶石英であるが、細粒砂 - 中粒砂サイズの粒子では多結晶石英が多い。火山ガラスはシルトサイズで無色透明であり、扁平型火山ガラス（吉川、

1976³⁵⁾) に相当する。随伴鉱物としてアパタイト、ジルコン、ルチル、不透明鉱物を含む。

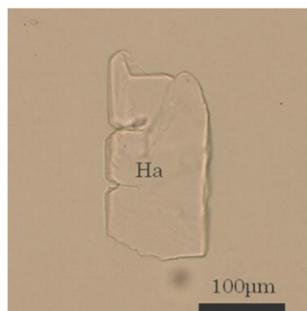


図 3.2-2 サンプル 140612-32 の火山ガラス

(Ha; 平板状で突起のない扁平型火山ガラス; 火山ガラスの分類は、吉川 (1976)³⁵⁾ に基づく。)

② 鉱山 B 下部に認められる軽石質堆積物 (サンプル名 : 140612-12 ; 図 3.2-1 の右側の柱状図下部)

[層厚] 約 20 cm

[層相] 脱ハリした軽石粒子を多数含む火山灰質粘土である。採取地において土岐砂礫層の基底から約 23 m 下位の土岐口陶土層の粘土 - シルト層中に位置する。野外においては水平距離約 60 m に渡って追跡できる。本層はオリーブ灰色 (5GY6/1) と部分的に灰白色 (2.5Y8/2) を呈し、シルト粒子からなる。

鏡下においては、大部分を基質である粘土鉱物が占め、シルト粒子がその中に点在する。碎屑粒子としては、石英、まれに白雲母や緑泥石化した黒雲母を含む。脱ハリした軽石片を多数含む (図 3.2-3)。火山ガラスは、シルトサイズで無色透明であり、扁平型火山ガラス (吉川, 1976³⁵⁾) に相当する (図 3.2-4)。随伴鉱物としてアパタイト、ジルコン、不透明鉱物を含む。

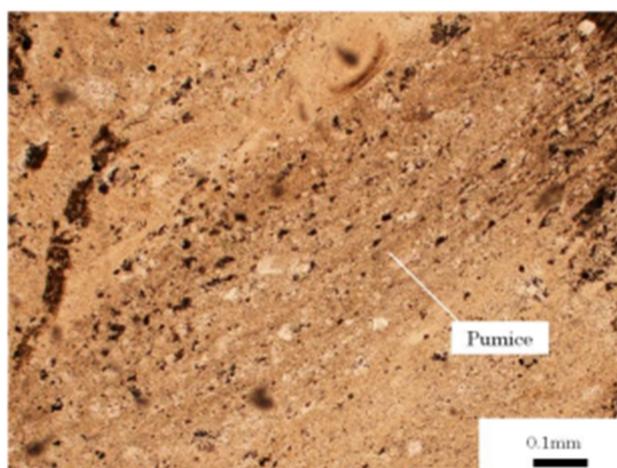


図 3.2-3 サンプル 140612-12 の脱ハリした軽石片

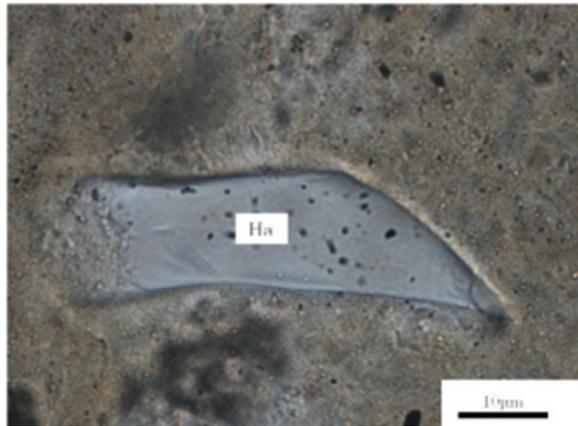


図 3.2-4 サンプル 140612-12 の火山ガラス

(Ha; 平板状で突起のない扁平型火山ガラス; 火山ガラスの分類は、吉川 (1976)³⁵⁾ に基づく。)

③ 鉾山 B 上部に認められる火山灰層 (サンプル名 : 140612-46 ; 図 3.2-1 の右側の柱状図上部)

[層厚] 10 - 60 cm

[層相] この堆積物は火山灰をまじえる泥質堆積物である。本層は、採取地において土岐砂礫層の基底から約 7.2 m 下位の土岐口陶土層の粘土 - シルト層に位置する。水平距離約 280 m に渡って追跡できる。また、層厚は南東から北西に向かって、60 cm から 10 cm へと薄くなる。灰白色 (2.5Y8/1) を呈し、粘土 - シルト粒子からなる。

鏡下においては、大部分を粘土基質が占め、その中にシルト粒子がわずかに点在する。碎屑粒子として石英、微量な白雲母、粘土化した黒雲母を含む。岩片として泥岩片、火山ガラス、脱ハリした軽石片を含む。随伴鉱物として褐れん石、アパタイト、ジルコン、不透明鉱物を含む。

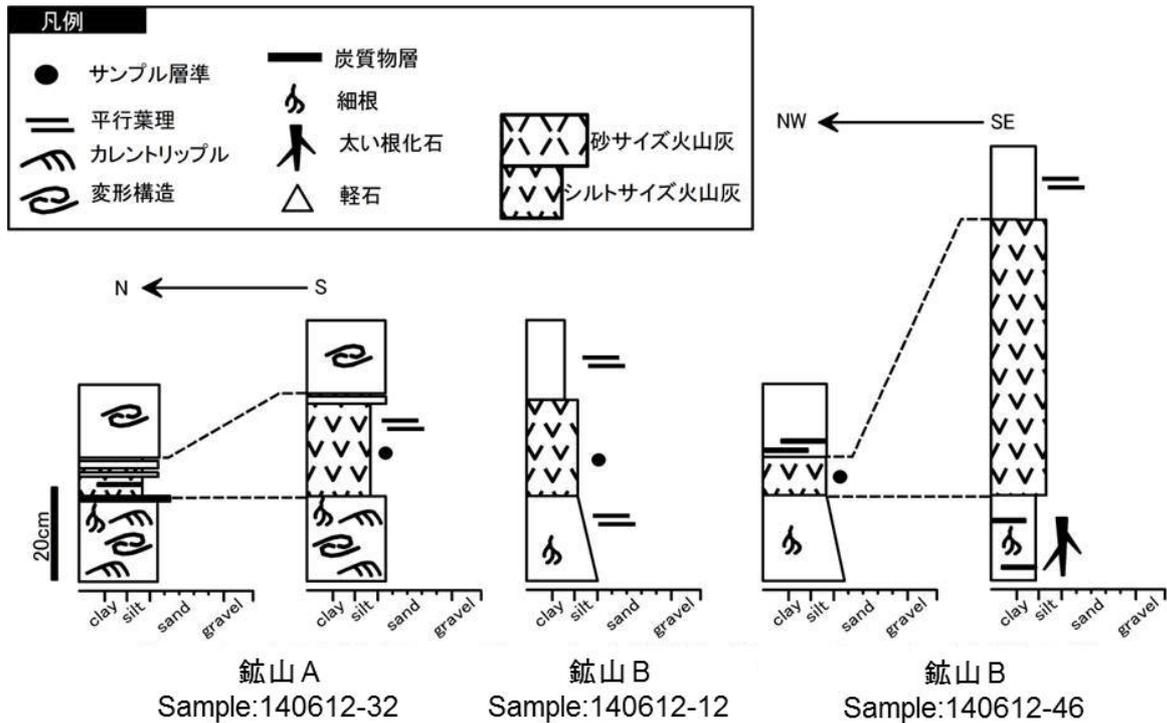


図 3.2-5 サンプル採取地点（140612-32、140612-12、140612-46）の実測柱状図

④サンプル 140716-01（火山灰層）

[層厚] 110 cm 以上

[層相] 陶土団体研究グループ（1985）¹³⁾の「下石火山灰層」に相当する。灰オリーブ色（7.5Y6/2）を呈し、淘汰が比較的良好である。下位より、中粒砂 - 粗粒砂サイズの粒子からなる塊状灰部（層厚約 40 cm）、極粗粒砂から中粒砂への級化構造を示す級化部（層厚約 40 cm）、粗粒砂 - 極粗粒砂の塊状部（層厚約 40 cm）の順に累重する。また、軽石片が卓越する層準が認められる。

鏡下においては、基質は、粒子として単斜輝石、斜長石、火山ガラス、まれに石英を含む。岩片として軽石片、玄武岩片、玄武岩片、まれに花崗岩片を含む。玄武岩片は、塊間状の石基をもち、斜長石、単斜輝石、不透明鉱物、仮像化したかんらん石、斜方輝石を含む。また、ガラス部が赤褐色不透明に変質している玄武岩片も認められる。単斜輝石は、細粒砂 - 中粒砂サイズの単独の粒子として含まれ、淡緑色の多色性をもつ。斜長石は中粒砂 - 粗粒砂サイズの粒子として含まれ、内部にガラスを含むものが多く認められる。また、融食形を示す斜長石も認められる。石英は、融食形を示す。花崗岩片は典型的な花崗岩状を示さず、バイモータルな粒径からなる長石と石英からなり、緑泥石化した黒雲母を含む。随伴鉱物としてジルコン、アパタイト、不透明鉱物を含む。火山ガラス破片は、無色透明であるが、まれに淡褐色透明を呈する。またこれらの形状は、扁平型火山ガラス、中間型火山ガラス、多孔質型火山ガラス（吉川，1976³⁵⁾）に相当する。また繊維状・チューブ状や、球状の発泡組織の両者が認められる。

陶土団体研究グループ（1999）⁴⁾は、岐阜県南部地域の露頭柱状対比図（陶土団体研究グループ，1999⁴⁾；第 3 図；Eb01）において本凝灰岩を陶土団体研究グループ（1985）¹³⁾の命名した下石火山灰層として示している。下石火山灰層は、火山ガラス、軽鉱物、角閃石、斜方輝石、極少量の黒雲母、斜方輝石、ジルコンからなる。

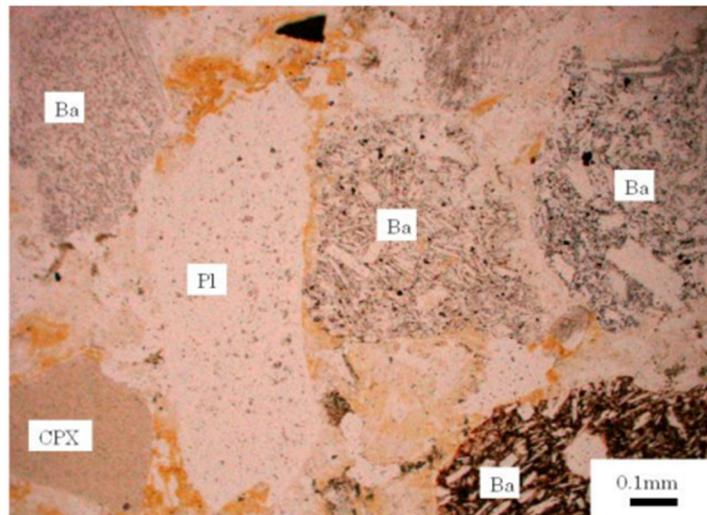


図 3.2-6 サンプル 140716-01 の鏡下写真 (Ba; 玄武岩片、Pl; 斜長石、CPX; 単斜輝石)

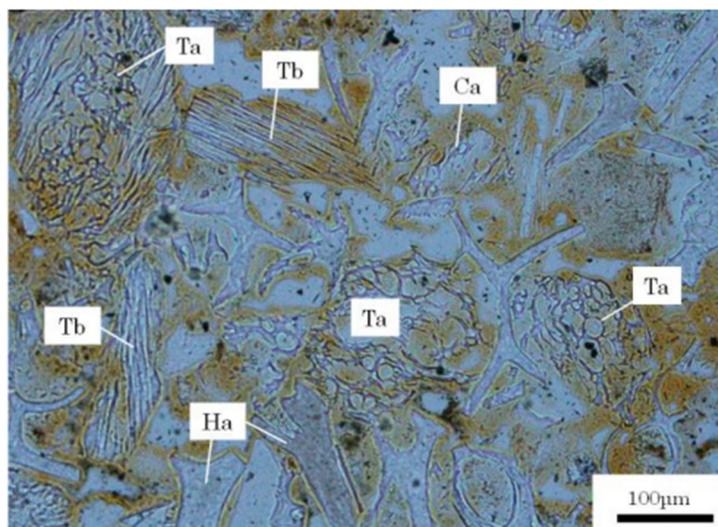


図 3.2-7 サンプル 140716-01 の火山ガラス

(Ta; 不規則な多角形で、曲線状の突起が密に生じる多孔質型火山ガラス、Ca; 中間型火山ガラス、Ha; 平板状で突起のない扁平型火山ガラス; 火山ガラスの分類は、吉川 (1976)³⁵⁾ に基づく。)

⑤ サンプル 140716-02 (堆積物)

[層厚] 70 cm 以上

[層相] 本堆積物は、黄褐色 (10YR5/6) を呈し、極粗粒砂 - 細礫サイズの粒子からなる。塊状をなし、粒径 2 cm の軽石片を含む。また、淘汰の良好な礫支持礫層の上位に位置する。

鏡下においては、わずかにガラス質の火山灰からなる基質を含む。碎屑粒子として石英、黒雲母、斜長石を含む。岩片としては、チャート片、砂岩片、まれにソーシュライト化した斜長石岩片を含む。石英は、粒径 1.5-2.2 mm で円磨度は低く、融食形の石英と多結晶石英が認められる。多結晶石英は縫合構造をもつものや割れ目が発達するものがある。また、著しく円磨度と球形度の高い石英粒子が認められる。黒雲母のほとんどは緑泥石化した粒径 0.1 mm 程の微細粒子であり、圧密時に生じた変形を受けている。チャート片は、粒径約 2 mm

であり、放散虫の仮像を含む。花崗斑岩片は、粒径約 2 mm であり、連結状のパーサイト組織を示すアルカリ長石を含む。また、随伴鉱物としてジルコン、アパタイト、褐れん石、不透明鉱物を含む。

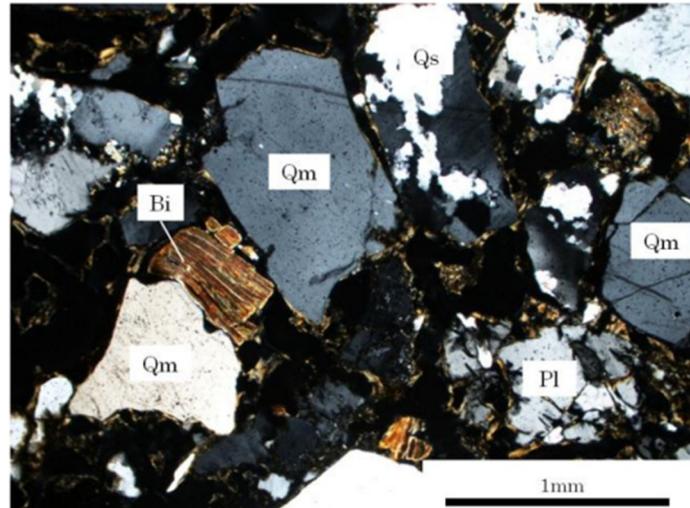


図 3.2-8 サンプル 140716-02 の鏡下写真
(Qm; 単結晶石英、Qs; 多結晶石英、Bi; 黒雲母、Pl; 斜長石)

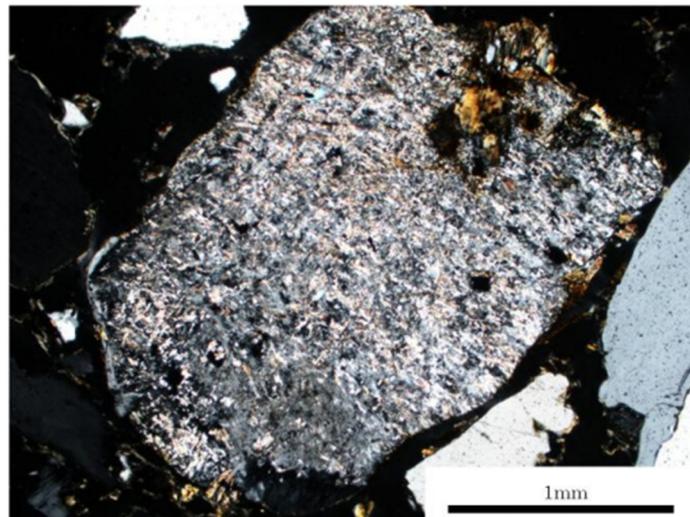


図 3.2-9 ソーシュライト化した斜長石

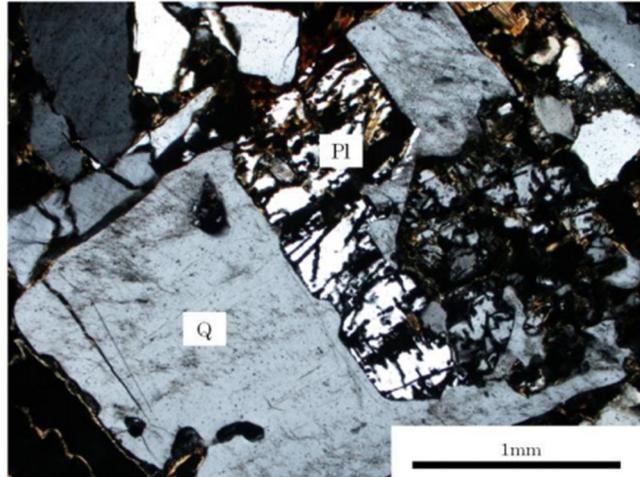


図 3.2-10 サンプル 140716-02 の鏡下写真 (Q; 石英、Pl; 斜長石)

b. 土岐砂礫層の試料

① サンプル 140716-03 (堆積物)

[層厚] 30 cm 以上

[層相] 本堆積物はオリーブ灰色 (5GY6/1) を呈する凝灰質砂岩である。淘汰の悪いシルト - 中粒砂サイズの粒子と細礫からなる。塊状を呈し、粒径 2 cm の軽石片を含む。

鏡下においては、シルトサイズ以下の基質が多く、淘汰度が著しく低い。粒子としてアルカリ長石、石英、斜長石、単斜輝石、黒雲母を含む。アルカリ長石は、粒径約 0.7 mm であり、連結したパーサイト組織を示す。岩片として砂岩片、まれに花崗斑岩片を含む。花崗斑岩片は、白雲母とミルメカイト状に発達する斜長石・石英、融食形のかんらん石、緑泥石を含む。黒雲母は、細粒砂サイズの粒子として認められ、ほとんどが緑泥石化している。アルカリ長石、石英、斜長石、砂岩片、花崗岩片は、0.5 - 2.0 mm の中粒砂 - 細礫サイズの粒子として多く認められるが、単斜輝石と黒雲母は、0.1 mm 以下の極細粒砂サイズ以下の粒子として含まれる。随伴鉱物としてアパタイト、ジルコン、不透明鉱物、パイライトを含む。

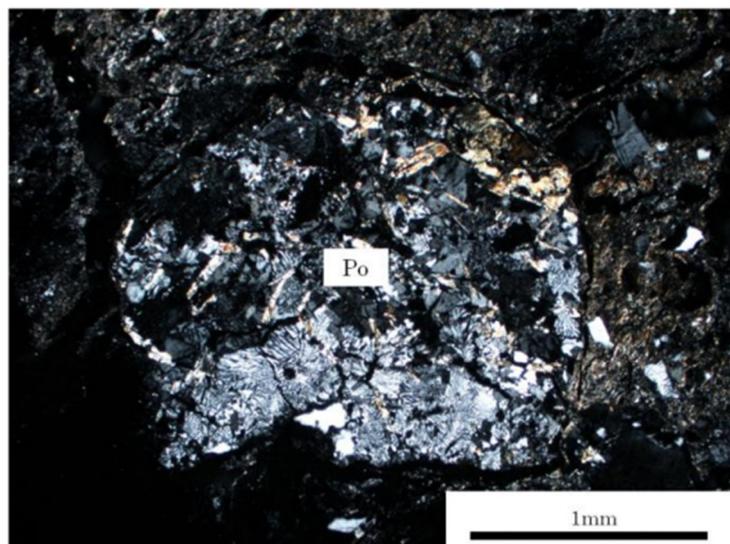


図 3.2-11 サンプル 140716-03 の花崗斑岩片 (Po; granite porphyry)

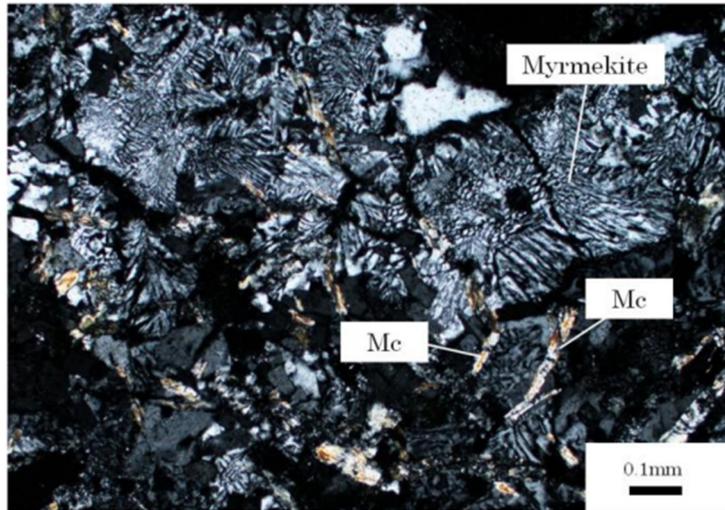


図 3.2-12 図 3.2-11 の花崗斑岩片を拡大 (Mc; Muscovite)

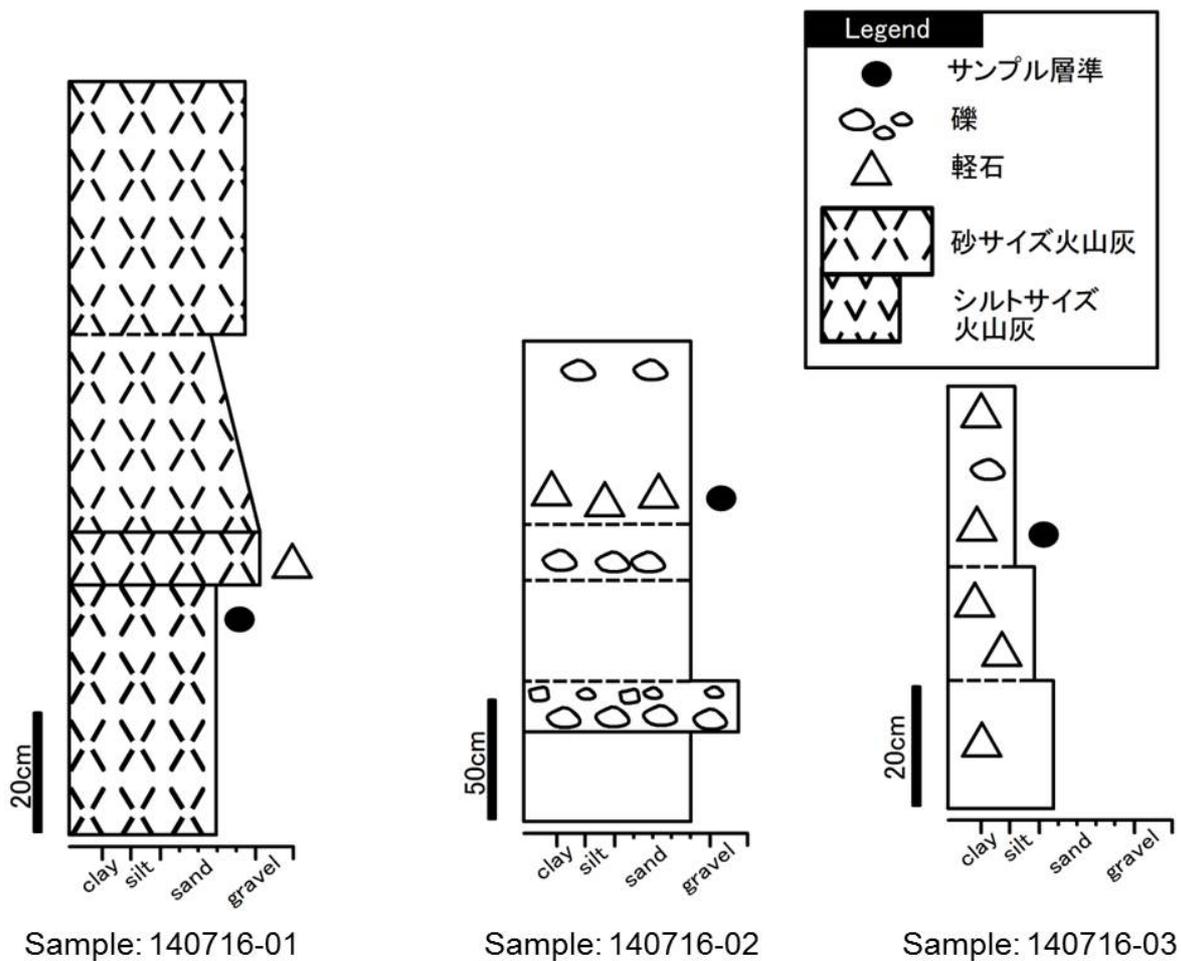


図 3.2-13 サンプル採取地点 (140716-01、140716-02、140716-03) の実測柱状図

3.3 陶土層の堆積年代に関する検討

平成 26 年度は 3.2.4 で記載した年代測定用試料に対して、フィッシュントラック年代、及び U-Pb 年代を測定した。年代測定の結果を表 3.3-1 に示す。

3.3.1 フィッシュントラック年代測定の結果

平成 26 年度は 3.2.4 で記載した年代測定用試料に対して、フィッシュントラック年代を測定した。

① 鉦山 A に認められる火山灰層（サンプル名：140612-32；図 3.2-1 の中央部の柱状図下部）

44 粒子のジルコンを対象に年代測定を行った。その結果、年代は 49.6 ± 2.2 Ma が得られた。本試料では、後述する他の試料のように、10 Ma 前後の若い年代を示すジルコン粒子が全く含まれない。このため、本試料は堆積年代を示す本質結晶を含まない可能性が高いと判断された。

なお、U-Pb 年代は 68.9 ± 0.7 Ma であった。

② 鉦山 B 下部に認められる軽石質堆積物（サンプル名：140612-12；図 3.2-1 の右側の柱状図下部）

26 粒子のジルコンを対象に年代測定を行った。その結果、年代値として 18.7 ± 1.1 Ma が得られたが、Pr(x) は 0 で χ^2 乗検定にて棄却された。そこで、U-Pb 年代において最も若い粒子年代集団を形成する 12 粒子を一つの集団とみなし、加重平均値として 8.9 ± 0.8 Ma を採用した。

なお、U-Pb 年代は 12.8 ± 0.3 Ma であった。

③ 鉦山 B 上部に認められる火山灰層（サンプル名：140612-46；図 3.2-1 の右側の柱状図上部）

29 粒子のジルコンを対象に年代測定を行った。その結果、年代値として 8.0 ± 0.4 Ma が得られたが、Pr(x) は 0 で χ^2 乗検定にて棄却された。しかし、本試料に含まれるジルコンは結晶サイズが小さく、U-Pb 年代などの再検討が困難であった。そこで、明らかに外来結晶とみなされる粒子を除いた 26 粒子を一つの集団とみなし、 6.8 ± 0.4 Ma を採用した。

なお、U-Pb 年代は 9.8 ± 0.1 Ma であった。

④ サンプル 140716-01（火山灰層）

30 粒子のジルコンを対象に年代測定を行った。その結果、年代値として 20.2 ± 1.2 Ma が得られ、Pr(x) は 86 で χ^2 乗検定にて採択された。しかし、1 粒子の年代は明らかに古いため、この粒子を除いて年代値を再計算し、年代値として 19.8 ± 1.2 Ma を得た（Pr(x) は 92）。

この年代は、下位に分布する瑞浪層群土岐夾炭層の年代（笹尾ほか，2006³⁶⁾）に一致することから、本火山灰層は瑞浪層群に属する、あるいは瑞浪層群からの再堆積性の碎屑粒子を含む可能性が考えられる。

なお、U-Pb 年代は 17.6 ± 0.3 Ma であり、誤差範囲でも一致しないが、いずれも瑞浪層群の年代を示す。

⑤ サンプル 140716-02（堆積物）

30 粒子のジルコンを対象に年代測定を行った。その結果、年代値として 61.8 ± 2.7 Ma が得られた。この年代は基盤の土岐花崗岩の年代（例えば、笹尾ほか，2006³⁶⁾）に一致するこ

とから、碎屑粒子の再堆積であると考えられた。そこで、U-Pb 年代において最も若い粒子年代集団を形成する 3 粒子を一つの集団とみなし、加重平均値として $12.1 \pm 1.4 \text{ Ma}$ が得られた。この年代は、陶土団体研究グループ (1999) ⁴⁾ で報告された土岐口陶土層の年代に一致する。

なお、U-Pb 年代は $11.8 \pm 0.5 \text{ Ma}$ であり、フィッシュントラック年代とは誤差範囲で一致した。

⑥サンプル 140716-03 (堆積物)

64 粒子のジルコンを対象に年代測定を行った。その結果、年代値として $32.8 \pm 1.3 \text{ Ma}$ が得られたが、 $\text{Pr}(x)$ は 0 で χ^2 乗検定にて棄却された。そこで、U-Pb 年代において最も若い粒子年代集団を形成する 12 粒子のうち、フィッシュントラック年代を測定可能であった 8 粒子を一つの集団とみなし、加重平均値として $16.3 \pm 1.4 \text{ Ma}$ を採用した。

なお、U-Pb 年代は $19.8 \pm 0.3 \text{ Ma}$ であった。

表 3.3-1 ファイッショントラック年代、及び U-Pb 年代測定結果

試料名	測定方法	結晶数 (個)	自発核分裂飛跡 ps ($10^6/cm^2$)	Ns	U総計数 pu ($10^8/cm^2$)	Nu	スタンダード係数(1),(2) pustd ($10^4/cm^2$)	Nustd	相関係数 (3)	χ^2 検定 (4) (%)	uranium content (ppm)	年代値(Ma) age $\pm 1\sigma$	U-Pb年代値 (Ma) age $\pm 1\sigma$
140612-16	外部面	26	6.01	667	37.7	418157	1051.0	82470	0.050	0	3380	6.8 ± 0.4	9.8 ± 0.1
140612-16(全粒子)	外部面	29	6.05	792	32.4	423840	1051.0	82470	0.007	0	2910	8.0 ± 0.4	
140612-12	内部面	12	1.86	132	2.60	18493	609.7	10768	0.567	0	400	8.9 ± 0.8	12.8 ± 0.3
140612-12(全粒子)	内部面	26	3.03	443	20.2	29428	609.7	10768	0.124	0	310	18.7 ± 1.1	
140612-32	内部面	44	7.45	1416	1.86	35405	609.7	10768	0.475	0	290	49.6 ± 2.2	68.9 ± 0.7
140716-01	内部面	29	0.722	392	0.965	52390	651.3	20452	0.724	92	140	19.8 ± 1.2	17.6 ± 0.3
140716-01(全粒子)	内部面	30	0.766	431	10.00	56282	651.3	20452	0.828	86	140	20.2 ± 1.2	
140716-02	外部面	3	0.988	83	2.16	18107	651.3	20452	-0.824	0	310	12.1 ± 1.4	11.8 ± 0.5
140716-02(全粒子)	外部面	30	3.02	2001	1.29	85177	651.3	20452	0.505	0	190	61.8 ± 2.7	
140716-03	内部面	8	2.78	164	1.75	10318	503.4	88906	0.873	0	330	16.3 ± 1.4	19.8 ± 0.3
140716-03(全粒子)	内部面	61	4.74	2233	1.48	69765	503.4	88906	0.353	0	280	32.8 ± 1.3	

(1) ^{238}U 濃度, U-Pb年代測定用標準試料:91500

(2) レーザービーム径:15 μm

(3) 相関係数:psとpuの相関係数

(4) 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, 1981³⁷⁾)

3.3.2 U-Pb 年代測定の結果

① 鉦山 A に認められる火山灰層（サンプル名：140612-32；図 3.2-1 の中央部の柱状図下部）

90 粒子のジルコンを対象に年代測定を行い、粒子年代として 64-1926 Ma が得られた（図 3.3-1）。本試料では 70-90 Ma を示す粒子群が多く、75-80 Ma に明瞭なピークを示す。200、1700、1900 Ma の年代を示す粒子も認められる（図 3.3-1）。

本試料ではフィッシュントラック年代測定結果と同様に、他の試料のように 10 Ma 前後の若い年代を示すジルコン粒子が全く含まれない。最も若い粒子年代集団を形成する 20 粒子を一つの集団とみなし、加重平均値として 68.9 ± 0.7 Ma を採用した。

② 鉦山 B 下部に認められる軽石質堆積物（サンプル名：140612-12；図 3.2-1 の右側の柱状図下部）

30 粒子のジルコンを対象に年代測定を行い、粒子年代として 10-2900 Ma が得られた。本試料ではコンコードアント粒子の比率が高いことから、最も若い年代粒子集団を形成する 19 粒子を一つの集団とみなし、加重平均値として 12.8 ± 0.3 Ma を採用した。

③ 鉦山 B 上部に認められる火山灰層（サンプル名：140612-46；図 3.2-1 の右側の柱状図上部）

30 粒子のジルコンを対象に年代測定を行い、粒子年代として 9-65 Ma が得られた（図 3.3-2）。本試料では、12-15 Ma を示す粒子群が多く、1700、1800、2900 Ma の年代を示す粒子も含まれる（図 3.3-2）。

本試料ではコンコードアント粒子の比率が高いことから、最も若い年代粒子集団を形成する 19 粒子を一つの集団とみなし、加重平均値として 9.8 ± 0.1 Ma を採用した。

④ サンプル 140716-01（火山灰層）

30 粒子のジルコンを対象に年代測定を行い、粒子年代として 16-68 Ma が得られた。最も若い年代粒子集団を形成する 21 粒子を一つの集団とみなし、加重平均値として 17.6 ± 0.3 Ma を採用した。

なお、本試料のフィッシュントラック年代は 19.8 ± 1.2 Ma であり、誤差範囲でも一致しないが、いずれも瑞浪層群の年代を示す。

⑤ サンプル 140716-02（堆積物）

30 粒子のジルコンを対象に年代測定を行い、粒子年代として 11-79 Ma が得られた。本試料ではコンコードアント粒子の比率が高いことから、最も若い年代粒子集団を形成する 3 粒子を一つの集団とみなし、加重平均値として 11.8 ± 0.5 Ma を採用した。

なお、本試料のフィッシュントラック年代は 12.1 ± 1.4 Ma であり、誤差範囲で一致する結果が得られた。

⑥ サンプル 140716-03（堆積物）

90 粒子のジルコンを対象に年代測定を行い、粒子年代として 10-1915 Ma が得られた。本試料ではコンコードアント粒子の比率が高いものの、粒子年代のばらつきが大きく、多源粒子で構成されると考えられる。ここでは、最も若い年代粒子集団を形成する 10 粒子を一つの集団とみなし、加重平均値として 19.8 ± 0.3 Ma を採用した。

なお、本試料のフィッシュントラック年代は 16.3 ± 1.4 Ma であり、誤差範囲でも一致しないが、いずれも瑞浪層群の年代を示す。

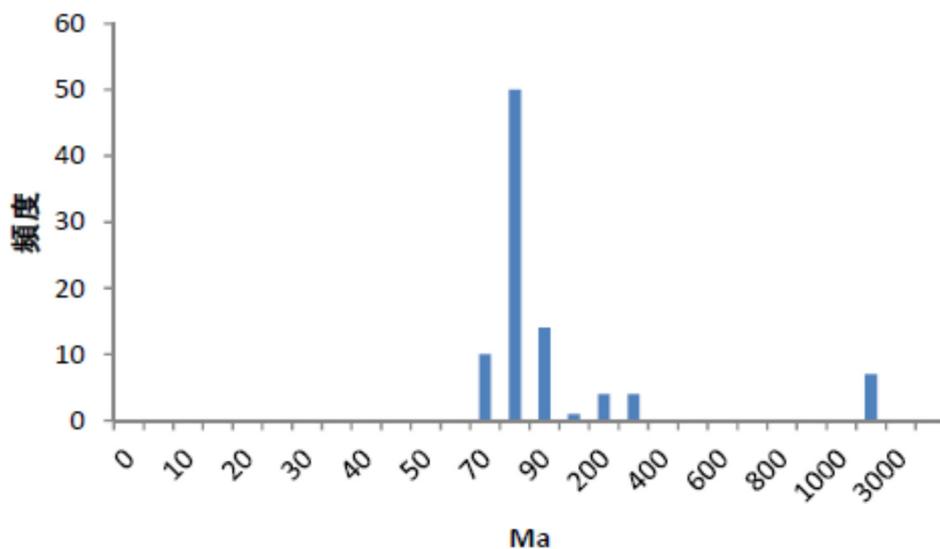


図 3.3-1 鉱山 A で採取した試料のジルコン U-Pb ($^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$) 年代測定結果のダイアグラム

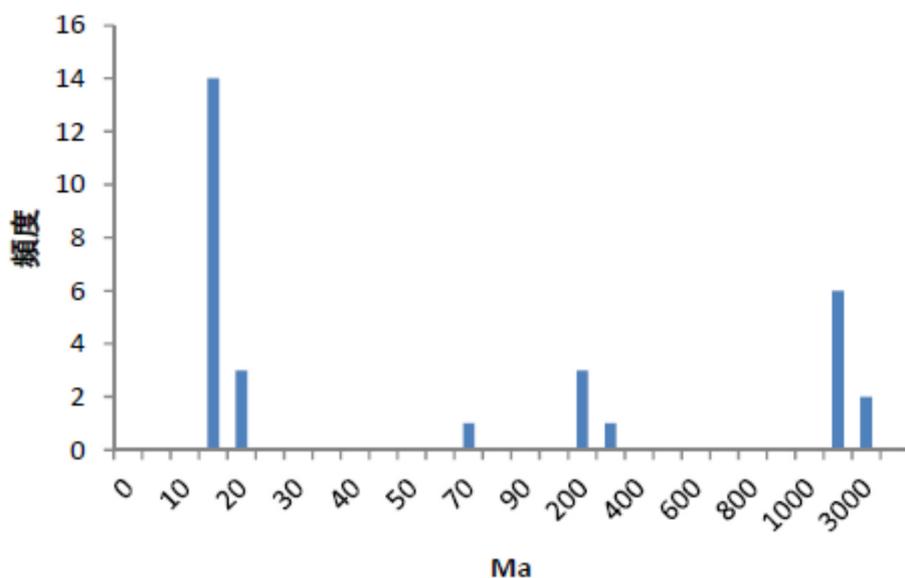


図 3.3-2 鉱山 B で採取した試料のジルコン U-Pb ($^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$) 年代測定結果のダイアグラム

上記した年代測定の結果から、土岐口陶土層の堆積年代は約 10 Ma と推定される。フィッシュオントラック年代と U-Pb 年代の測定結果を比較すると、U-Pb 年代では有意に古い年代を示すジルコン粒子が認められる。これは、ジルコンが複数段階で結晶成長を行っており、各段階の年代を示している可能性が考えられる。東濃地域では、土岐花崗岩 (68-72 Ma; Shibata and Ishihara, 1979³⁸⁾; Suzuki and Adachi, 1998³⁹⁾)、伊奈川花崗岩 (56-86 Ma; 柴田ほか, 1962⁴⁰⁾; Suzuki and Adachi, 1998³⁹⁾)、濃飛流紋岩 (58-85 Ma; 山田・小井土, 2005⁴¹⁾) などの基盤岩類のものや、瑞浪層群 (17-20 Ma; 笹尾ほか, 2006³⁶⁾, 2011⁴²⁾) の年代などが報告されている。これらに基づけば、70-90 Ma を示す粒子群は基盤岩類に、11-15 Ma を示す粒子群は瑞浪層群中の火山碎屑物あるいは土岐口陶土層の堆積以前に堆積した凝灰岩類に由来する可能性がある。特に日本列島の最も古い地質体の年代は一般には数億年前と考えられており、15

億年よりも古い年代を示す粒子は、大陸物質のリサイクルを示すと考えられる。これら原生代や始生代の年代を示す粒子は、美濃帯中生界砂岩からのリサイクルと推定される。

一方、鉾山 A と鉾山 B は近接しているものの、そのような場所においても、ジルコンの年代別粒子群の構成は大きく異なり、それぞれの堆積物の源岩構成は明瞭に異なっていたと推定される。つまり、同じ堆積区であっても、供給源岩の組合せは頻繁に変化した可能性があり、例えば、供給水系の集水域が頻繁に変化していた可能性や、多数の河川水系が集合する地理的条件に堆積盆が位置した可能性が考えられる。供給源の風化状況を評価するには源岩構成を具体的に見積もる必要があるが、内陸堆積盆地では堆積場の位置や層準によって、堆積物中に記録される後背地の源岩構成が異なるため、綿密な供給源解析が必要といえる。

平成 26 年度の測定結果から、U-Pb 年代は堆積物の供給源の年代を有意に示すことから、堆積年代の推定に加えて、後背地の推定にも活用できると考えられる。

3.4 化学分析に関する検討

3.4.1 後背地の岩石構成と風化度評価のための試料選別方法

蛍光 X 線分析と ICP-MS を用いて、鉾山 A から採取した計 17 試料についての全岩化学組成分析を行った。このうち、シルト-粘土・砂質泥・砂の粒度に着目して検討を進めた。

分析結果から、全試料の傾向が見いだせる。すなわち、粒度にかかわらず SiO₂ が最も高い濃度を示し、粘土質試料では 62.0-87.1 wt.% (平均 71.4 wt.%)、砂質試料 - 砂質泥試料では 70.4-92.4 wt.% (平均 81.9 wt.%) の濃度を示す。次に Al₂O₃ が高い濃度を示し、粘土試料では 9.9-33.0 wt.% (平均 23.4 wt.%)、砂質試料 - 砂質泥試料では 5.8-24.1 wt.% (平均 14.4 wt.%) の濃度を示す。

これらの元素構成の特徴を把握するために、PAAS (Post Archean Australian Shale; Taylor and McLennan, 1985⁴³⁾) で規格化したスパイダー図を用いた (図 3.4-1)。なお、標準試料は独立行政法人産業技術総合研究所で計量された試料を用いた。

結果として、シルト - 粘土試料、砂質泥試料では、SiO₂、TiO₂、Al₂O₃、V、Ga、Y、Zr、Nb が PAAS と比較して濃集していることがわかる。一部の砂質シルト試料では Co、La、Nd の濃集が、一部の砂試料で Co が濃集する。しかし、一般には粒度を問わず Fe₂O₃、MgO、CaO、Na₂O、K₂O、P₂O₅ が著しく枯渇する。特に砂質試料では、粘土質試料と比べて TiO₂、Al₂O₃、Fe₂O₃、CaO、MgO が低い。

したがって、全ての粒度において、主要元素のうち難溶性成分が選択的に濃集しているといえる。一方 NaO、MnO などの可溶性成分は著しく低濃度である。同様の傾向は微量元素組成においても見いだされ、やや可溶性な挙動をしめす Sr、Ba は低濃度である。一方、難溶性な挙動を取る V や Zr は濃集する傾向にある。

結果として、主要元素においては可溶性元素の著しい流出が想定されるので、その定量値から後背地の岩石構成についての地球化学的データを取得することは困難である。そのため、供給源の議論のためには、難溶性元素の定量による議論が必要である。土岐口陶土層のような地質体の場合は、特に微量元素の濃集が認められるシルト-粘土試料がその分析対象となりえる。一方、後背地の風化状況の把握のためには、供給源岩をある程度限定した上で、堆積物中に残留している難溶性元素種とその量比が重要であろう。また、堆積物における可溶性元素の残存率も源岩が被った風化変質の強度を議論する上で有用である。したがって、源岩が被った古風化強度の定量的議論のためには、ICP-MS を利用して粘土岩に濃集する難溶性元素を利用して源岩の岩石種の特定を行い、蛍光 X 線分析装置を利用した可溶性元素の残存率の測定をあわせて、風化強度を見積もることが効果的であると推定される。

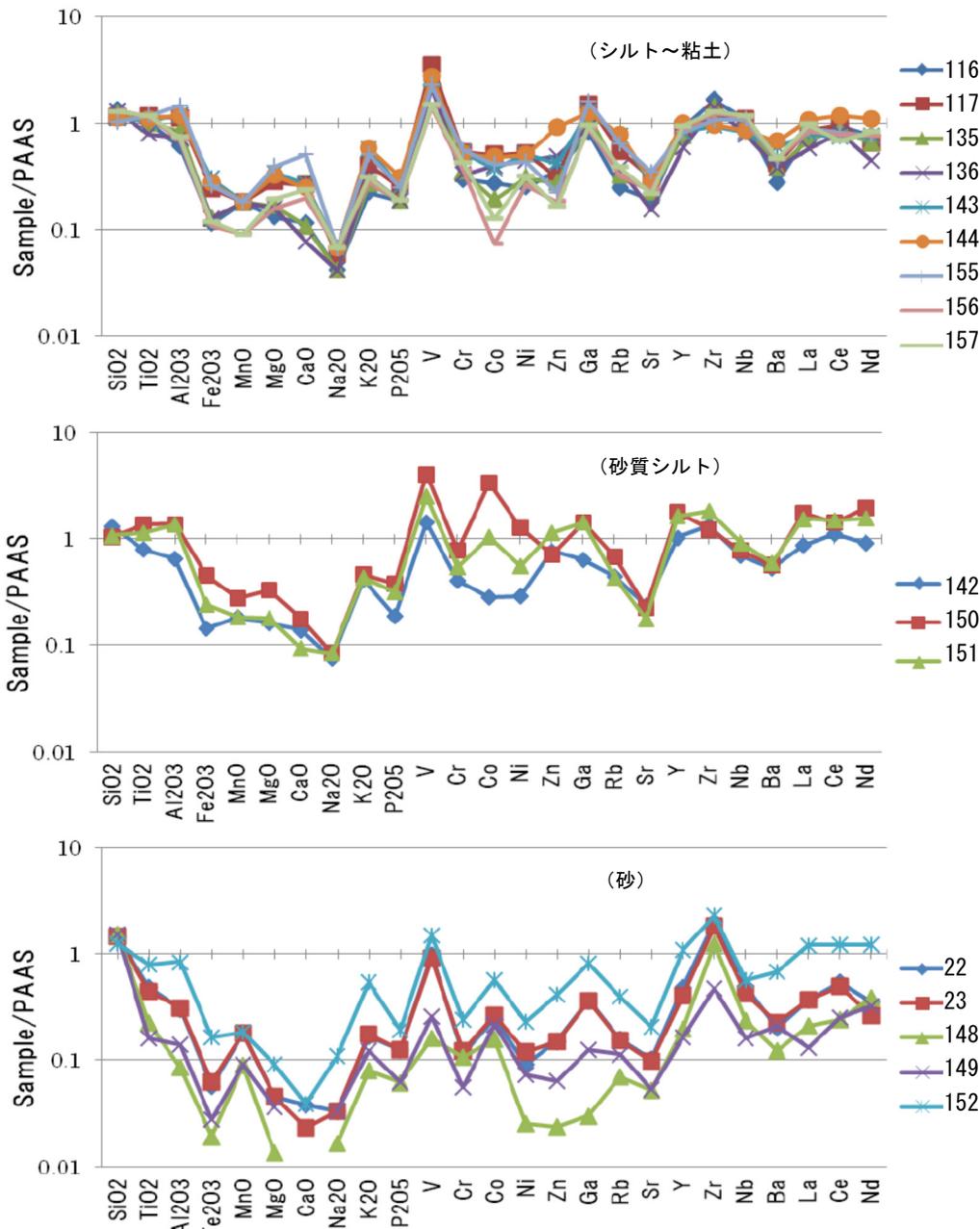


図 3.4-1 鉱山 A から採取したシルト～粘土、砂質泥、砂の化学組成スパイダーダイアグラム PAAS (Taylor and McLennan, 1985⁴³) で規格化した。

3.4.2 前処理方法の検討

アルカリ溶融（炭酸ナトリウムを融剤として使用）と酸溶融（フッ化水素酸を融剤として使用し、乾固後、炭酸水素ナトリウムを添加）の二つのケースについて検討した。ともに溶融後に乾固物を得た後、炭酸ナトリウム 0.5 g を加え 1050 °C のマッフル炉にて 10 分間溶融し、分解物を硝酸・塩酸にて中和したものを 20,000 倍に希釈して溶液とした。試料は鉱山 A にて採取された砂質粘土試料 (Todo2) を使用した。この試料はほぼ均質な灰色～白色の砂質粘土である。分析結果を C1 chondrite (Taylor and McLennan, 1985⁴³) で規格化したスパイダーダイアグラムを示す (図 3.4-2)。

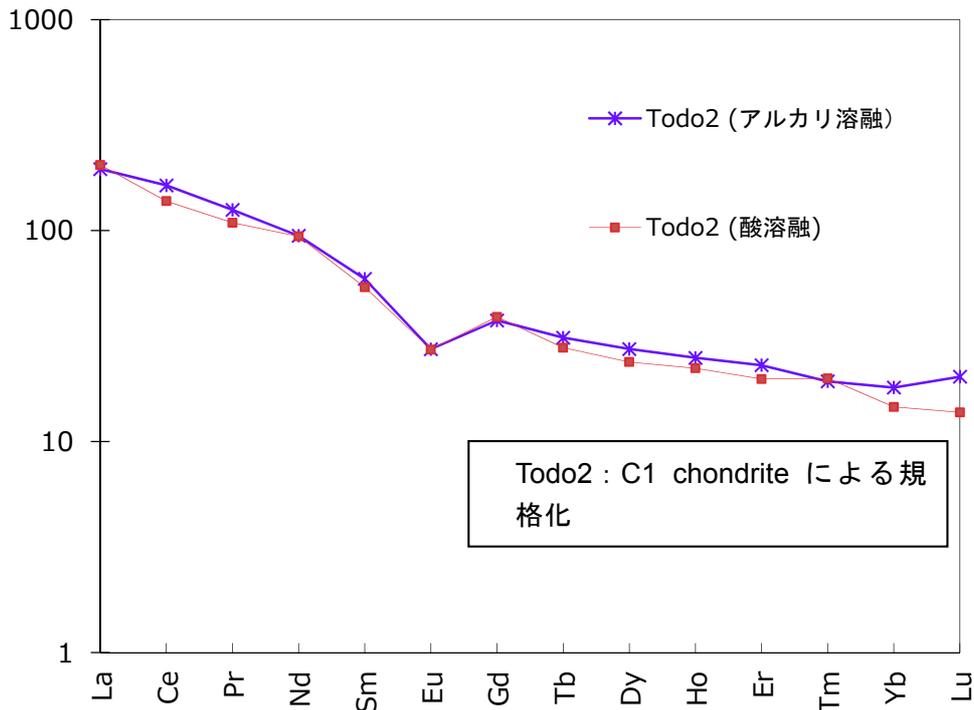


図 3.4-2 鉱山 A より採集した陶土層砂質粘土の化学組成スパイダーダイアグラム
それぞれ C1 chondrite (Taylor and McLennan, 1985⁴³) によって規格化した。

今回検討した試料では、REE の検出パターンにおいては酸溶融による分解、アルカリ溶融による分解では大きな差が認められない。ただし、Ce、Pr、Tb、Dy、Ho、Er、Yb、Lu においてアルカリ溶融による分解が高濃度を示す。

酸分解によって得られた溶液中の Yb、Lu 濃度の低下はこれらの元素を含む難溶性鉱物、例えばジルコン、の溶け残りが生じて溶液化が十分になされなかった可能性がある。一方、Ce、Pr などの濃度低下は雲母類などの残存が同様に起こっていた可能性がある。このような分解方法の差による組成差は、雲母類やジルコンの量比による顕在化、または潜在化を生じさせることが予想される。強い風化を受けた岩石は難溶性元素に富むことが予想され、ジルコンなどの抵抗力の高い鉱物が残存する可能性が高い。そのため、基盤岩類の岩石構成や風化状況に関する情報を取得するためには、抵抗力の高い粒子を適切に溶解して溶液化することが不可欠と言える。そのため、今回取り扱った陶土層のような堆積物にはアルカリ溶融を使用して微量元素の溶液化を行う必要があるといえる。

3.5 風化に関する検討

堆積場と後背地の化学風化度を検討するために、全岩化学組成値を利用した風化指標が利用されている。中でも CIA 値 (Chemical Index of Alteration : Nesbitt and Young, 1982⁴⁴) は、可溶性成分 (CaO、Na₂O、K₂O) と難溶性成分 (Al₂O₃) の比率を用いた指標で、化学風化度の評価には広く用いられている。これらの化学成分の構成は火成岩に普遍的に含まれる斜長石の風化をモデルとしており、普遍性が高い。この検討でも CIA 値を用いて、化学風化度を評価する。これらの成分の変化は、Al₂O₃、CaO + Na₂O、K₂O の三成分ダイアグラム (A-CN-K 図) でも表現される。

$$\text{CIA} = \text{molar ratio} (\text{Al}_2\text{O}_3 / (\text{Al}_2\text{O}_3 + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O} + \text{CaO}^* : \text{ignorganic})) \times 100$$

ここで、CaO*は、珪酸塩鉱物に含まれる CaO の総量であり、炭酸塩鉱物と磷酸塩鉱物に含まれる CaO は除く必要がある。本検討では、便宜的に全 CaO から P₂O₅ を引いたモル数が Na₂O より小さい場合は、全 CaO から P₂O₅ をひいた値を CaO*とする。また、全 CaO から P₂O₅ をひいたモル数が Na₂O より大きい場合は、CaO*を Na₂O と同量として扱う。以下に主要造岩鉱物の理想的化学組成から算出される CIA 値を示す (McLennan et al., 1993⁴⁵⁾)。一般的な造岩鉱物における CIA 値を表 3.5-1 に示す。

表 3.5-1 主要造岩鉱物における CIA 値

鉱物	CIA 値
長石	50
黒雲母	50
普通角閃石	10-30
輝石	0-10
イライト、スメクタイト	70-85
カオリナイト、緑泥石、ギブサイト	100

分析には鉱山 A より採集したシルト-粘土、砂質粘土、砂試料の 17 試料について、蛍光 X 線分析機によって得られた主要元素組成値を使用した。表 3.5-2 にそれぞれの試料の CIA 値を、図 3.5-1 に Al₂O₃-CaO + Na₂O-K₂O 三角ダイアグラムを示す。

それぞれの試料の CIA 値は、シルト-粘土試料で 89-92、砂質シルト試料で 91-93、砂試料で 82~88 を示す。A-CN-K 図では A-K 辺上部の A 頂点に近い部分にプロットされ、NaO、CaO に著しく乏しく Al₂O₃ が濃集することがわかる。シルト-粘土試料や砂質シルト試料では K₂O を 2 %以下含む。K₂O の濃度変化については十分な検討ができていないが、CIA 値 90 程度に達する試料については、その大部分が可溶性元素の流出が進み、Al₂O₃ に著しく濃集することから、極めて高い化学風化度を示すと考えられる。また、CIA 値 80 以上の試料についても、可溶性元素の流出が進んでいると言える。比較的高い K₂O 濃度は、続成過程での K₂O 付加を伴う変質による可能性があり、CIA 値を引き下げる原因となっているかもしれない。

地質時代の標準的な泥岩組成とされる PAAS (Post-Achaeon Australian Shale) は CIA 値が 70 程度であるので、土岐口陶土層の泥岩組成はすべて高い風化度を示していると言える。花崗岩を出発物質とした場合、80 を越える CIA 値を示す試料では長石類の大部分が粘土鉱物化していることを示唆している (McLennan et al., 1990⁴⁶⁾)。また、Nesbitt and Young (1982⁴⁴⁾)はこのような CIA 値 90 以上を示す試料を熱帯~亜熱帯環境において堆積したものと見なしている。実際の火成岩の風化殻ではその表層から深層にむけて明瞭な CIA 値の低下が認められるので (例えば、Price and Velbel, 2003⁴⁷⁾)、厚い風化殻が生じていたことが推察できる。したがって、陶土層の堆積時には極めて強い化学風化によって厚い風化殻が形成された火成岩類が後背地に分布していたと推定される。一般に化学風化は高温多湿の環境で最も進行すると考えられるので (Nesbitt and Young, 1982⁴⁴⁾)、当時のこの地域は温帯性~亜熱帯性の多雨気候の影響を受けていた可能性がある。

表 3.5-2 鉢山 A にて得られたシルト-粘土、砂質粘土、砂試料の CIA 値

sample name	22	23	116	117	135	136	142	143	144	148	149	150	151	152	155	156	157	PAAS	
lithology	fs-vfs	Vfs	clay	clay	clay	sandy silt	vfs-silt	silt	clay	fs-ms.	vcs	sandy silt	sandy silt	ms-fs	clay	clay	clay		
soil horizon	B	C	C	B	A	C	O	A	C	—	—	Cb	Cb	C	A	B	C		
wt. %																			
SiO2	92.88	92.25	85.16	85.16	72.96	80.22	82.46	83.56	70.43	71.05	97.62	96.34	65.99	68.5	79.41	65.14	83.02	81.69	63.7
TiO2	0.49	0.44	1.03	1.17	1.17	1.01	0.8	0.8	1.06	1.1	0.23	0.16	1.38	1.15	0.81	1.2	1.15	1.18	1.01
Al2O3	5.85	5.98	11.59	21.46	21.46	16.2	14.06	12.34	22.92	22.45	1.64	2.7	26.45	26.25	16.1	28.16	13.24	14.21	19.17
Fe2O3	0.41	0.45	0.84	1.77	1.77	0.93	0.93	1.05	2.2	2.01	0.14	0.2	3.28	1.77	1.2	1.9	0.8	0.87	7.32
MnO	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.01	0.01	0.03	0.02	0.02	0.02	0.01	0.01	0.11
MgO	0.1	0.1	0.29	0.63	0.63	0.37	0.35	0.36	0.76	0.73	0.03	0.08	0.73	0.4	0.21	0.88	0.35	0.43	2.23
CaO	0.05	0.03	0.15	0.34	0.34	0.14	0.1	0.18	0.35	0.32	0	0	0.23	0.12	0.05	0.67	0.26	0.31	1.32
Na2O	0.04	0.04	0.05	0.07	0.07	0.05	0.05	0.09	0.08	0.02	0.04	0.04	0.1	0.1	0.13	0.08	0.08	0.08	1.22
K2O	0.63	0.66	0.84	1.53	1.53	1.02	1.19	1.56	2.13	2.19	0.3	0.46	1.73	1.63	2.03	1.91	1.04	1.17	3.75
P2O5	0.02	0.02	0.03	0.04	0.04	0.03	0.03	0.03	0.04	0.05	0.01	0.01	0.06	0.05	0.03	0.04	0.03	0.03	0.16
total	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
CaO*	0.0007	0.0004	0.0008	0.0008	0.0011	0.0008	0.0008	0.0015	0.0013	0.0013	-7.00E-05	-7.00E-05	0.0016	0.0016	0.0007	0.0013	0.0013	0.0013	0.0196
A	0.878	0.8795	0.9152	0.9152	0.919	0.9271	0.9059	0.8607	0.8991	0.8947	0.8236	0.83	0.927	0.9258	0.866	0.9233	0.9044	0.9023	0.7036
CN	0.02	0.0158	0.0131	0.0131	0.01	0.0095	0.0107	0.021	0.0105	0.0106	0.0129	0.0182	0.0117	0.0118	0.0157	0.0087	0.0182	0.0169	0.147
K	0.102	0.1048	0.0717	0.0717	0.0711	0.0634	0.0684	0.1184	0.0905	0.0946	0.1635	0.1518	0.0656	0.0624	0.1184	0.068	0.0773	0.0808	0.1495
CIA	88	88	92	92	92	93	91	86	90	89	82	83	92	93	87	92	90	90	70

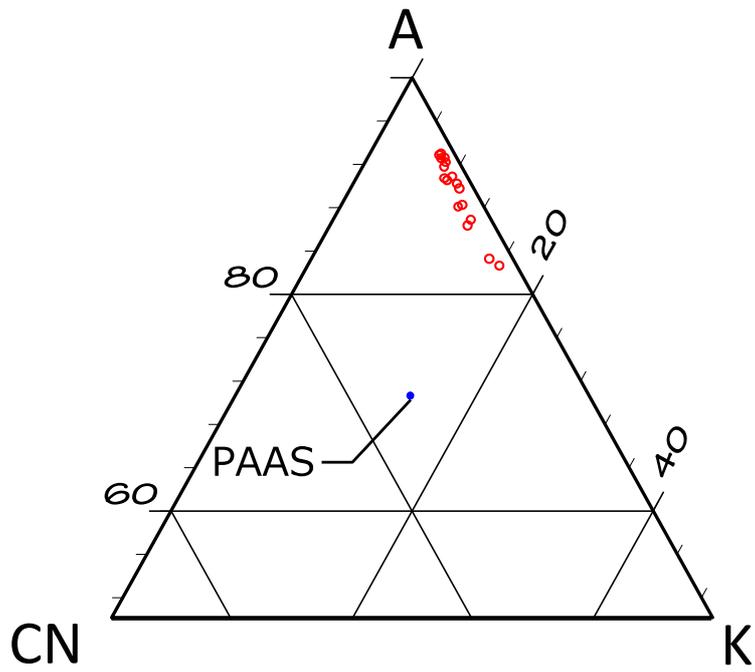


図 3.5-1 鉾山 A から採取したシルト-粘土、砂質シルト、砂の A-CN-K ダイアグラム
 A: Al_2O_3 , CN: $\text{CaO}+\text{Na}_2\text{O}$, K: K_2O . PAAS (Taylor and McLennan, 1985⁴³) の位置も示す。

4. まとめ

本共同研究は、岐阜県東濃地方に分布する陶土層を対象として、後背地の過去の風化状態に関する情報の取得を目的として実施した。平成 26 年度は、研究初年度として、陶土層の堆積環境、及び堆積機構の復元に重点的に取り組み、陶土層が広く観察される地点における地質調査、及び堆積層の解析を行い、陶土層の堆積機構を解明するとともに、陶土層の形成年代を検討した。

また、風化状態を解明するための化学分析手法を検討し、いくつかの試料の分析を行った。その結果から、陶土層の後背地での風化進行時には、化学風化が卓越していたと考えられたことから、当時の古気候を推察した。

今後の課題としては、より多くの試料の化学分析を通じて、風化状態の把握の詳細化を進めること、東濃地域の陶土層が形成されたと考えられる約 1200 万年前とは別の時代の風化状態の推定が必要である。後者については、風化の記録を保持している可能性のある地層の抽出と、今回用いた堆積学的検討と化学分析手法の適用性の確認が特に重要な課題である。

引用文献

- 1) 核燃料サイクル開発機構, わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第 2 次取りまとめ—(総論), 核燃料サイクル開発機構技術資料, JNC TN1400 99-020, 1999, 634p.
- 2) 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.
- 3) 赤嶺秀雄, 瀬戸市を中心とする陶土地帯の地質, 特に陶土および亜炭を含む地層の堆積状態, 資源科学研究所彙報, 34, 1954, pp.25-39.
- 4) 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, 53, 1999, pp.291-306.
- 5) 藤井紀之, 岐阜県多見・土岐地方の耐火粘土鉱床の研究—第 1 報 小名田木節の産状および組成について—, 地質調査所月報, 18, 1967, pp.649-667.
- 6) 八木久義, 野外における土壌および生成環境の調べ方. 森林土壌研究会(編), 森林土壌の調べ方とその性質(改訂版). 日本森林林業振興会, 東京, 1993, pp.28-64.
- 7) 真下育久, 森林土壌の土色と炭素含量. 森林立地, 14, 1973, pp.24-28.
- 8) 三宅康幸・津金達郎・金井哲男・池元壮彦, 珪酸塩岩石試料の主成分の蛍光 X 線分析—低希釈率ガラスビードの作成と迅速分析の精度. 信州大学理学部紀要, 31, 1996, pp.105-117.
- 9) 津金達郎・三宅康之, 珪酸塩岩石試料の微量成分のガラスビード法による蛍光 X 線分析. デイサイト溶岩の流動・固結過程の解明のための岩石石基の研究. 平成 11~12 年度科学研究費補助金基盤研究 C 研究成果報告書, 2001.
- 10) Roser, B., Kimura, J.-I. and Hisatomi, K., Whole-rock elemental abundances in sandstones and mudrocks from the Tanabe Group, Kii Peninsula, Japan: *Geoscience Report Shimane University*, 19, 2000, pp.101-112.
- 11) Eggins, S.M., Woodhead, J.D., Kinsley, L.P.J., Mortimer, G.E., Sylvester, P., McCulloch, M.T., Hergt, J.M and Handler, M.R., A simple method for the precise determination of ≥ 40 trace elements in geological samples by ICPMS using enriched isotope internal standardization, *Chemical Geology*, 134, 1997, pp.311-326.

- 12) 陶土団体研究グループ, 岐阜県瑞浪市南部の瀬戸層群—瀬戸層群の堆積盆地の発生～発展に関する研究(2)—, 地学団体研究会専報, 24, 1982, pp.143-155.
- 13) 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—, 地学団体研究会専報, 29, 1985, pp.101-117.
- 14) 中山勝博, 岐阜県土岐市における瀬戸層群の堆積盆地, 地学団体研究会専報, 29, 1985, pp.119-129.
- 15) 中山勝博・陶土団体研究グループ, 岐阜地方の小陥没盆地と陶土. 地学団体研究会専報, 36, 1989a, pp.237-246.
- 16) 中山勝博・陶土団体研究グループ, 瀬戸層群の堆積盆地. 地球科学, 43, 1989b, pp.392-401.
- 17) 吉田史郎, 中山勝博, 壇原 徹, 瀬戸層群下部のフィッション・トラック年代, 地球惑星科学関連学会講演要旨, 1997, p.584.
- 18) 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多数のオオミツバマツ球果の集合化石とその保存処理過程, 岐阜県博物館調査研究報告, 20, 1999, pp.17-22.
- 19) Miki, S., On the remains of *Pinus trifolia* n. sp. in the upper Tertiary from Central Honshu in Japan, *Botanical Magazine*, 53, 1939, pp.239-246.
- 20) Miki, S., On the change of flora in Eastern Asia since Tertiary period (I), the clay or lignite beds flora in Japan with special reference to the *Pinus Trifolia* beds in Central Hondo, *Japanese Journal of Botany*, 11, 1941, pp.237-303.
- 21) 中山勝博, 安藤善之, 塚腰 実, 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にみられる *Pinus trifolia* 球果化石の密集層, 地球科学, 53, 1999, pp.173-174.
- 22) Tsukakoshi, M., and Todo Collaborative Research Group, Plant megafossils from the Pliocene Toki Sand and Gravel Formation in and around Ena City, Gifu Prefecture, central Japan, *Bulletin of the Osaka Museum of Natural History*, 49, 1995, pp.23-46.
- 23) 窯業原料協議会編, 窯業原料 第2集, 1949, 324p, 学術図書出版社.
- 24) 北崎梅香, 荒木春視, 愛知・岐阜県下の窯業資源の研究(その1)—白土と木節粘土—, 資源科学研究所彙報, 34, 1952, pp.80-91.
- 25) 野沢和久, 愛知・岐阜県下の窯業資源の研究(第5報)—神明峠および苗木地方のいわゆるカオリンについて—, 資源科学化学研究所彙報, 32, 1953, pp.31-41.
- 26) 野沢和久, 愛知・岐阜県下の窯業用粘土の生成にかんする若干の考察, 地質学雑誌, 61, 1955, pp.367-380.
- 27) 種村光郎, 愛知県瀬戸地域の粘土および珪砂鉱床の地質学的鉱物学的研究, 地質調査所報告, no.203, 1964, pp.1-40.
- 28) Fujii, N., Genesis of the fireclay deposits in Tajimi-Toki district, Gifu Prefecture, Central Japan, Report of the Geological Survey, No.230, 1968, 54p.
- 29) 藤井紀之, 大森貞子, 岐阜県多治見・土岐地方の耐火粘土鉱床の研究—第2報 大洞木節と神明カオリンの産状および 2, 3 の鉱物学的性質について—, 地質調査所月報, 19, 1968, pp.81-102.
- 30) 長沢敬之助, 国枝勝利, 岐阜県苗木地域の粘土鉱床とそれに産するカオリン鉱物, 鉱山地質, 20, 1970, pp.361-377.
- 31) 百原 新, 齋藤 毅, 上部中新統土岐口陶土層堆積盆地とその周辺の古地形変化を伴う古植生変化, 島根大学地球資源環境学研究報告, 20, 2001, pp.49-58.
- 32) Miall, A.D., The Geology of fluvial deposits: Sedimentary facies, Basin analysis, and

- Petroleum geology, Springer, 1996, 582p.
- 33) Miall, A.D., A Review of the braided-river depositional environment, *Earth-Science Review*, 13, 1977, pp.1-62.
 - 34) 伊勢屋ふじこ, 茨城県, 桜川における逆グレーディングをした洪水堆積物の成因, 地理学評論, 55, 1982, pp.597-613.
 - 35) 吉川周作, 大阪層群の火山灰層について. 地質学雑誌, 82, 1976, pp.497-515.
 - 36) 笹尾英嗣, 岩野英樹, 檀原 徹, 岐阜県東濃地方に分布する瑞浪層群土岐夾炭層の凝灰質砂岩のフィッション・トラック年代, 地質学雑誌, 112, 2006, pp.459-468.
 - 37) Galbraith, R.F., On statistical models for fission track counts. *Journal of the International Association for Mathematical Geology*, 13, 1981, pp.471-478.
 - 38) Shibata, K. and Ishihara, S., Rb-Sr whole rock and K-Ar mineral ages of granitic rocks in Japan. *Geochemical Journal*, 13, 1979, pp.113-119.
 - 39) Suzuki, K. and Adachi, M., Denudation history of high T/P Ryoke metamorphic belt, southwest Japan: constraints from CHIME monazite ages of gneisses and granitoids. *Journal of Metamorphic Geology*, 16, 1998, pp.22-37.
 - 40) 柴田 賢, Miller, J.A., 山田直利, 河田清雄, 村山正郎, 片田正人, カリウム-アルゴン法によって測定された伊奈川花崗岩および苗木花崗岩の絶対年代. 地調調査所月報, 13, 1962, pp.317-320.
 - 41) 山田直利, 小井土由光, 濃飛流紋岩の分布, 基盤, 年代および岩相の特徴. 地学団体研究会専報, 53, 2005, pp.15-28.
 - 42) 笹尾英嗣, 檀原 徹, 岩野英樹, 林 譲治, 岐阜県南東部に分布する中新統瑞浪層群および岩村層群のフィッション・トラック年代. 地質学雑誌, 117, 2011, pp.476-481.
 - 43) Taylor, S. R. and McLennan, S.M., *The Continental Crust: Its Composition and Evolution*: Blackwell Scientific, Boston, 1985.
 - 44) Nesbitt, H. and Young, G., Early Proterozoic climates and plate motions inferred from major element chemistry of lutites: *Nature*, 299, 1982, pp. 715-717.
 - 45) McLennan, S.M., Hemming, S., McDaniel, D.K. and Hanson, G.N., Geochemical approaches to sedimentation, province and tectonics: *Geological Society of America Special Paper*, 284, 1993, pp.21-40.
 - 46) McLennan, S., Taylor, S., McCulloch, M. and Maynard, J., Geochemical and Nd Sr isotopic composition of deep-sea turbidites: Crustal evolution and plate tectonic associations: *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 54, 1990, pp. 2015-2050.
 - 47) Price, J.R. and Velbel, M.A., Chemical weathering indices applied to weathering profiles developed on heterogeneous felsic metamorphic parent rocks: *Chemical Geology*, 202, 2003, pp. 397-416.

付録 2

東濃地域の断層の発達史に関する共同研究

平成 26 年度共同研究報告書

平成 27 年 1 月

国立大学法人新潟大学

独立行政法人日本原子力研究開発機構

目 次

1. 概要	1
1.1 共同研究件名	1
1.2 研究目的.....	1
1.3 実施期間.....	1
2. 研究内容	2
2.1 断層に関する情報整理.....	2
2.2 岩石試料の収集.....	2
2.3 岩石試料の解析・分析	2
2.3.1 研磨片・薄片の作成・観察	2
2.3.2 XRD 分析	5
2.3.3 帯磁率測定	7
2.4 断層発達史の検討	7
3. 研究成果	8
3.1 断層に関する情報整理.....	8
3.1.1 地質構造的特徴の整理	8
3.1.2 地形的特徴の整理	8
3.2 岩石試料の収集.....	11
3.3 岩石試料の解析・分析	15
3.3.1 研磨片・薄片の作成・観察	15
3.3.2 XRD 分析	22
3.3.3 帯磁率測定	27
3.4 断層発達史の検討	28
4. まとめ.....	29
謝辞	29
引用文献.....	29

図 目 次

図 2-1	東濃地域における主な断層の分布	3
図 2-2	断層露頭位置図及びその周辺のルートマップ	4
図 2-3	左：定方位試料採取時の写真 右：定方位試料開封時の写真	5
図 3-1	屏風山断層西部付近の接峰面図	9
図 3-2	断層露頭周辺の空中写真	9
図 3-3	断層露頭周辺の水系分布	10
図 3-4	断層露頭周辺の段丘面分布	10
図 3-5	調査対象露頭全体図	12
図 3-6	露頭拡大図	13
図 3-7	断層面のシュミットネット下半球投影図	14
図 3-8	XY 薄片写真	16
図 3-9	断層面構造及び線構造のシュミットネット下半球投影図	16
図 3-10	XZ 薄片・研磨片作成位置	17
図 3-11	XZ 研磨片 I 拡大図	18
図 3-12	XZ 研磨片 II 拡大図	19
図 3-13	XZ 薄片写真	20
図 3-14	主要粘土鉱物の積分強度	23
図 3-15	主要粘土鉱物の半値幅	24
図 3-16	粒度ごとに分離した各フラクションの XRD パターン	26
図 3-17	帯磁率測定を実施した断層露頭（左）と測定結果（右）	27

表 目 次

表 3-1	サンプルリスト	14
表 3-2	構成粘土鉱物同定結果一覧	22
表 3-3	粒度ごとに分離した各フラクションの XRD 分析結果	25

1. 概要

1.1 共同研究件名

東濃地域の断層の発達史に関する共同研究

1.2 研究目的

高レベル放射性廃棄物などの地層処分は、人工バリアと天然の地層（天然バリア）を適切に組み合わせたシステムによって、数万年以上にも及ぶ極めて長い時間スケールの安全を確保しようとするものである。日本列島は変動帯に位置していることから、諸外国に比べて地殻変動や火成活動などが活発であるため、地層処分事業においては将来の自然現象に伴う地質環境の変動スケールや復元性を把握しておくことが特に重要となる。今後、地層処分の技術的信頼性をさらに高めていくうえでも、実際の地質環境を構成する様々な要素についての過去の変動履歴や現象プロセスなどを把握するための調査技術を整備するとともに、これらの科学的知見を統合しつつ、三次元的に表現できる数値モデルを構築する技術を開発することは極めて有効となる。このため、独立行政法人日本原子力研究開発機構（以下、「原子力機構」という）が、経済産業省から受託して実施する「地質環境長期安定性評価確証技術開発」において、将来の自然現象に伴う長期の地質環境の変動を把握するため、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を構築する技術の開発を進めている。

本共同研究の目的は、この技術開発の一環として、100 万年以上の時間スケールの地形・地質モデルの構築において重要となる、断層の発達史に関する調査技術の開発を行うことであり、東濃地域とその周辺を事例に研究を実施する。東濃地域とその周辺には横ずれ断層や逆断層のように変位センスが異なる断層が分布しており、変位センスの時間的・空間的变化を考慮した断層の発達史の研究が可能である。

本共同研究を進めるにあたり、新潟大学は断層岩を用いた構造地質学的研究を精力的に行っており、その研究実績や調査・分析に関連するノウハウを有している。さらに、以前から東濃地域とその周辺の断層に関する研究を多く行っており、この地域における断層発達史の研究に必要な情報や調査経験を豊富に有している。一方、原子力機構は、地質試料の地球化学的特徴・物理化学的特徴などを把握するための複数の分析装置と分析技術を所有しているとともに、断層発達史の研究における基礎データとなる東濃地域とその周辺の地形・地質に関する研究実績を有している。こうした背景から、本共同研究により、長期の断層の発達史に関する調査技術開発を効果的に進めることができる。

1.3 実施期間

平成 26 年 7 月 1 日～平成 27 年 1 月 30 日

2. 研究内容

本研究では、東濃地域とその周辺に分布する断層（特に屏風山断層；図 2-1）を事例に、新第三紀から第四紀にかけての断層変位センスの変化及び発達史について、地形・地質データと各種解析・分析データからアプローチする。屏風山断層は、三河高原と美濃高原を境する断層であり、南西側の三河高原の形成、木曾川の流路変遷に影響を与えたと考えられる断層である。以下に、研究内容を詳述する。

2.1 断層に関する情報整理

東濃地域とその周辺に分布する断層について、地形的特徴及び断層発達史に関わる情報を収集・整理した。具体的には、文献調査、国土地理院発行の 2 万 5 千分の 1 地形図の読図及び空中写真判読による地形学図の作成を行った。

2.2 岩石試料の収集

本研究において、岐阜県瑞浪市論析付近の断層露頭において、岩石試料の採取を行った。調査ルート及び露頭位置を図 2-2 に示す。本露頭は、本共同研究において新たに発見された露頭である。本露頭では、8 m 以上の厚さの土岐砂礫層と基盤岩である伊奈川花崗岩が断層関係で接する。その境界付近には 100 cm 以上の厚さの断層岩が発達する。以上の点から、本露頭で観察できる断層は、屏風山断層の本体である可能性が高く、屏風山断層の活動履歴検討において重要な露頭であるといえる。

岩石試料は、構造解析に用いる定方位試料と、X 線回折（以下、「XRD」という）分析に用いる分析用試料の二種類を採取した（図 2-3）。多くの粘土鉱物を含む断層岩試料は非常に脆弱であることを踏まえ、それらの採取、固化及び切断・研磨については、高木・小林（1995）¹⁾と大橋ほか（2008）²⁾を参考に行った。

2.3 岩石試料の解析・分析

断層露頭から断層発達史を検討するために必要なデータを取得するため、野外にて採取した試料の研磨片・薄片の作成・観察、XRD 分析及び帯磁率測定を実施した。

2.3.1 研磨片・薄片の作成・観察

断層運動に伴い形成される断層岩は、その断層の剪断センスや形成環境といった情報を記録しているため、断層の規模や運動履歴を検討するうえで最も重要、かつ直接的な研究対象となる。本研究では、野外にて採取した断層岩試料の研磨片・薄片を作成し、実体顕微鏡及び偏光顕微鏡を用いて観察を行った。研磨片・薄片は、構造解析に最も適した XZ 面（断層面に垂直、線構造に平行な面）で作成した。露頭で線構造が不明瞭な場合は、XY 面（断層面に平行な面）で研磨片・薄片を作成し、Cataclastic lineation（Tanaka, 1992）³⁾を観察し線構造の決定を行った。観察では特に、断層運動に伴い晶出した鉱物の産状、破碎岩片と基質の量比及び複合面構造を記載した。

本研究で対象とする断層岩試料の多くは、多量の膨潤性粘土鉱物を含む。このような岩石は大変脆弱であり、通常の水を用いた研磨では膨潤し、剥離・脱落してしまう。そのため、野外にて試料を採取した後、室内にて樹脂（スペシフィックス-20）を用いた固化を行った。研磨の際は、膨潤性粘土鉱物の膨潤を防ぐため油研磨を行った。試料の採取、固化及び切断・研磨は、高木・小林（1995）¹⁾と大橋ほか（2008）²⁾を参考に行った。

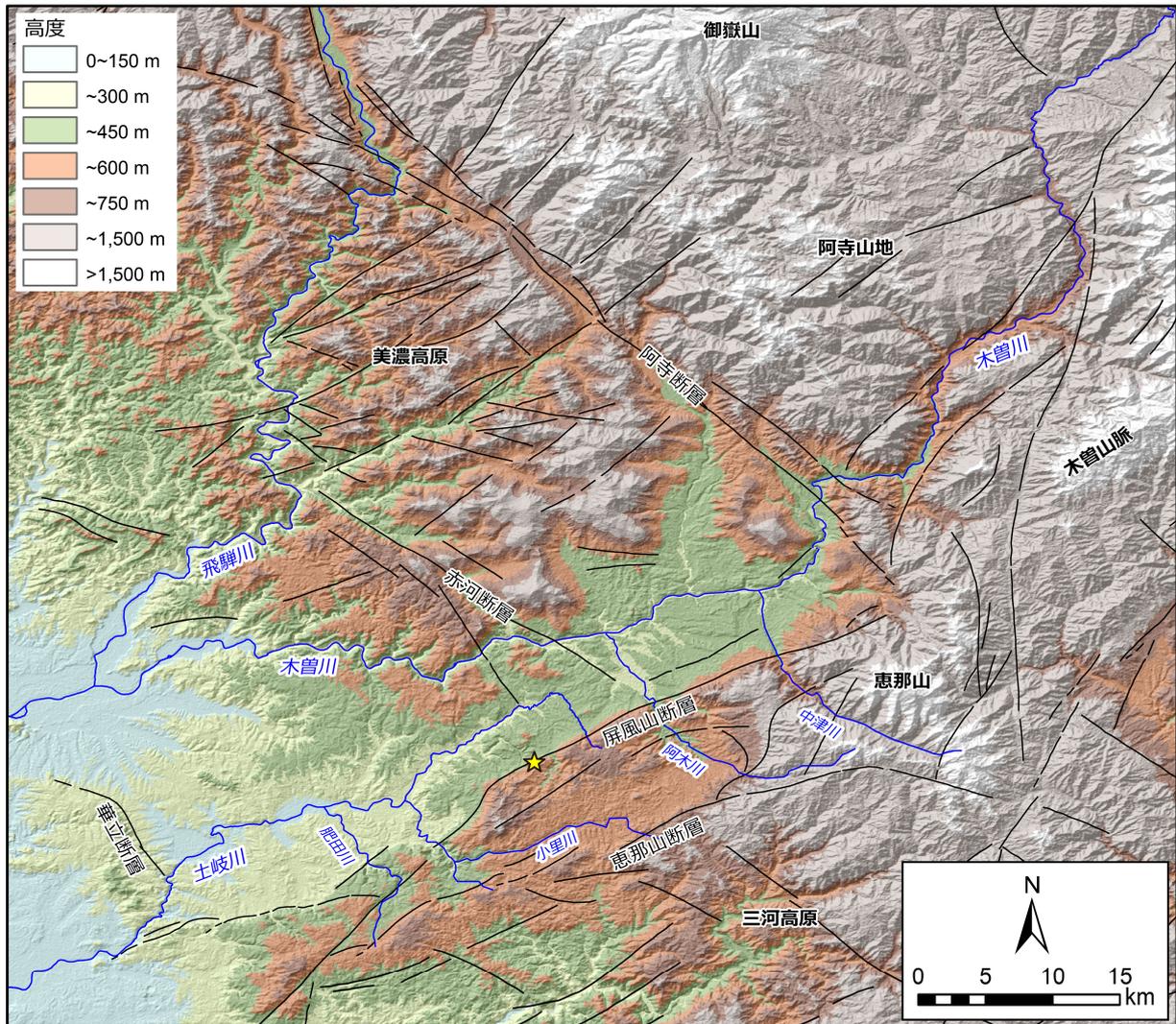


図 2-1 東濃地域における主な断層の分布

断層トレースは、活断層研究会編（1991）⁴⁾に基づいて図示している。露頭位置を星印で示す。この付近は、地震調査研究推進本部（2004）⁵⁾では活断層として認定されていない。段彩陰影図については、ASTER Global Digital Elevation Model (ASTER GDEM) version 2 を元データとし、ArcGIS 10.1 を用いて作成した。

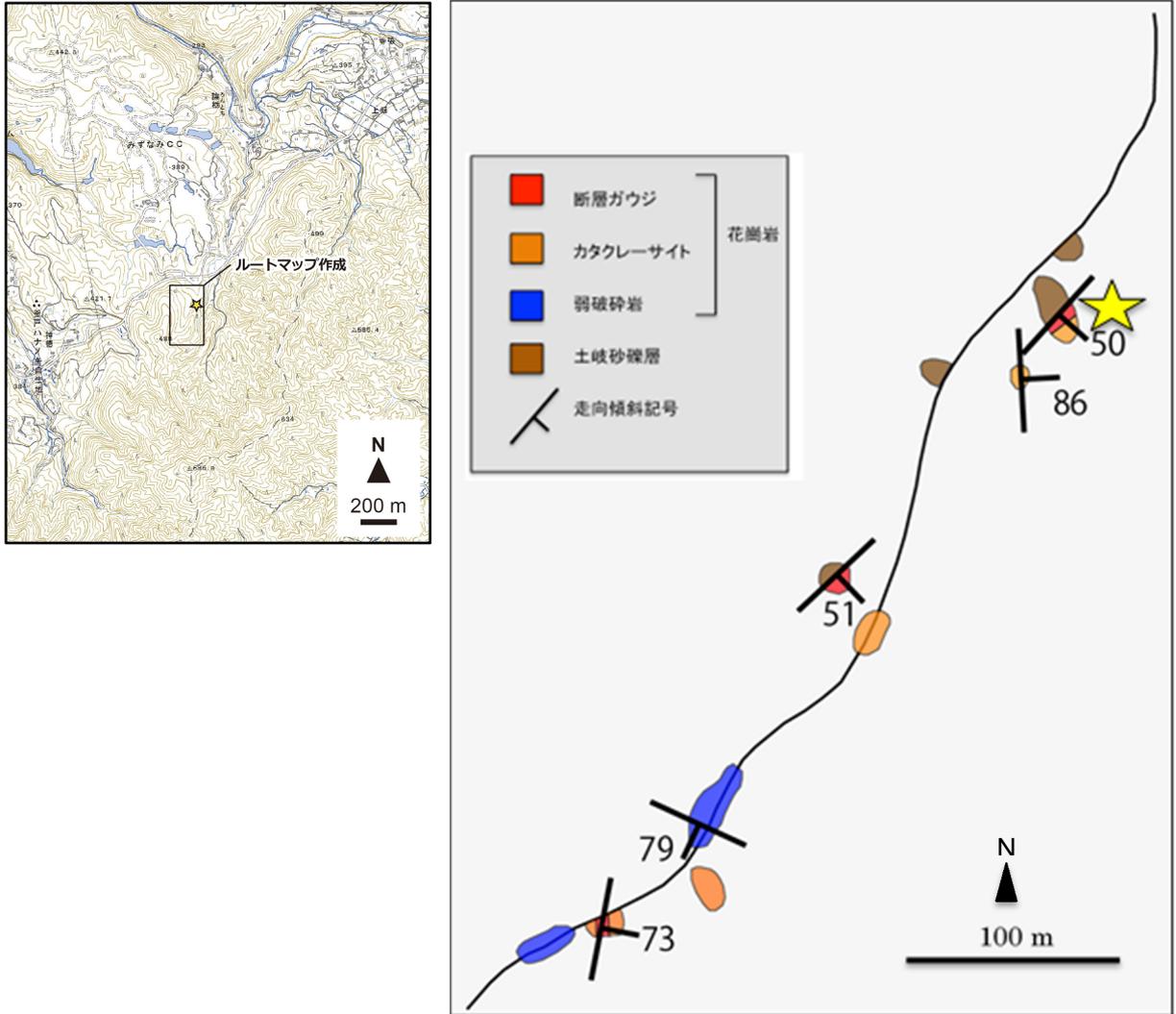


図 2-2 断層露頭位置図及びその周辺のルートマップ

星印は本研究の研究対象露頭の位置を示す。本ルート（右図の黒線）では、土岐砂礫層と基盤岩の花崗岩が断層で接する露頭が二箇所を観察でき、どちらも屏風山断層トレースに一致する。その他にもルート沿いには、基盤岩に多くの破砕帯を観察できた。断層露頭位置図は、国土地理院の電子地形図 25000「瑞浪」を使用して作成した。



図 2-3 左：定方位試料採取時の写真 右：定方位試料開封時の写真

2.3.2 XRD 分析

本研究の対象である断層露頭では、様々な破碎程度や色相を呈する断層岩を観察することができる。一般にこのような複数の断層岩帯を構成し得るイベントとしては、一度の断層活動を想定するより、複数回の断層活動に伴う累積性を考えた方が妥当である。また、本露頭の断層岩は破碎岩片と熱水変質作用により晶出した粘土鉱物によって構成されていることが明らかとなっている。熱水変質作用では、変質環境や温度により晶出する鉱物に変化するため、断層岩形成時の変質環境の有効な指標となる。以上のことを踏まえ、本研究では断層活動に伴う熱水変質環境の推定を目的に、XRD 分析法を用いた粘土鉱物の同定を行った。複数の断層岩帯は、異なる変質環境を示す可能性があるため、分析に用いた試料は異なる断層岩帯の混入がないよう、断層岩帯ごとに採取した。本研究では、より詳細に変質環境を検討するため、以下の二段階分析を行う。

(1) 粘土鉱物の同定分析

断層岩を構成する粘土鉱物を正確に同定するため、各処理を行った粘土試料に対して XRD 分析を行った。以下に詳細な試料調製法と測定方法を記す。

粘土の抽出には沈降法（sedimentation method）を利用した。手順は以下の通りである。

- 1) 原試料をシリンダーに入れ、蒸留水を用いて攪拌させた後 8 時間静置させる
- 2) 上から 10 cm の混濁液を回収し、遠心分離（3,000 回転/分を 30 分）にかけ、粘土鉱物を沈殿させる
- 3) 下に沈殿している粘土（2 μm 以下）を少量の蒸留水に溶かし混濁液とし、その混濁液をスライドガラスに塗布し、一晚自然乾燥させる

この手順で用意したものを定方位試料とした。エチレングリコール処理（以下、「EG 処理」という）試料は、定方位試料にエチレングリコールを噴射したものとした。400°C加熱試料は、混濁液をスライドガラスに塗布した後、加熱炉にて 400°C加熱を一時間施したものとした。550°C加熱試料は、400°C加熱処理と同様の手順で 550°C加熱を一時間施したものとした。

XRD 分析の相対強度は、塗布する混濁液の濃度や量に依存する。本研究では、定性的な相対強度の比較、及び正確な半値幅を検討するため、上記に加えて以下の秤量手法を用いた。なお、こ

の手法を用いたのは定方位試料のみである。以下に手順を示す。

- 1) 遠心分離により沈殿させた粘土試料を自然乾燥させ、水分を蒸発させる
- 2) 乾燥した試料をメノウ乳ばちを用いて粉末状にする
- 3) 電子天秤を用いて 0.01 g 秤量し、蒸留水をピペットで五滴滴下する
- 4) 粉末が溶けるまで十分に混ぜ合わせ、混濁液を作成する
- 5) 混濁液を全てスライドガラスに塗布し、後の手順は上記の各処理と同様とする

XRD 分析は新潟大学理学部所有の Rigaku Ultima IV により、シンチレーションカウンタを用いて行った。設定は、スキャンスピード 2°min^{-1} 、サンプリング幅 0.02° 、発散・散乱スリット $2/3^{\circ}$ 、受光スリット 0.45 mm、管電圧 40 kV 及び管電流 40 mA とした。

定方位で 14 \AA 、EG 処理で 17 \AA を示すものをスメクタイト、全ての処理に対し 10 \AA を示すものをイライト、定方位・EG 処理・ 400°C 加熱処理で 7 \AA 、 550°C 処理でピークが消失するものをカオリナイト、定方位・EG 処理で 9.1 \AA 、加熱処理でピークが消失するものを沸石類、 30 \AA の長周期反射を示すものをスメクタイト/緑泥石規則混合層と判断した。

(2) 粒度ごとに分離した試料の分析

熱水変質環境の推定にあたっては、試料を粒度ごとに分離してそれぞれについて XRD 分析を行い、含まれる鉱物の違いを比較する手法が有効となる場合がある。なぜなら、断層活動のような短時間のイベントの場合、熱水変質によってできた鉱物は、母岩に初生的に含まれている鉱物に比べ相対的に細粒となることが多いからである (Zwingmann and Manckeltow, 2004⁶⁾; Zwingmann et al., 2010a⁷⁾, b⁸⁾; Yamasaki et al., 2013⁹⁾)。本研究でも、後述するサンプル 3、6 及び 9 の試料に対し、試料を粒度ごとに分離して XRD 分析を行った。

粒度ごとに分離した試料の XRD 分析は原子力機構 土岐地球年代学研究所にて実施した。分離手法については安江ほか (2011, 2013) ^{10),11)}に準拠し、以下の通りとした。

- 1) 試料は 500 ml テフロンボトルに入れ、容器の 8 割ほどまで超純水を満たす
- 2) チャック付きポリ袋に入れたテフロンボトルを不凍液 (50%エチレングリコール) で満たされた超低温恒温槽 (Julabo F34) に浸ける
- 3) 試料を超低温恒温槽中で、2 時間かけて -20°C まで下げる→ -20°C で 3 時間保持→1 時間 30 分かけて 25°C まで上げる→ 25°C で 1 時間 30 分保持、の合計 8 時間を 1 サイクルとする設定で 15 サイクル (5 日間) 温度変化にさらす (凍結・融解の繰り返しによって粒子境界を丁寧に分離し、粗粒な碎屑粒子が打撃などにより人為的に破碎されて細粒のフラクションに混入するのを防ぐために実施)
- 4) $32 \mu\text{m}$ 用のふるい (425 メッシュ) のふるいを用いて粉碎した試料から $< 32 \mu\text{m}$ のフラクションを分離する
- 5) 水簸により、 $< 5 \mu\text{m}$ 及び $< 1 \mu\text{m}$ のフラクションを分離する
- 6) 最大 3,000 rpm と最大 21,000 rpm のスペックをそれぞれ持つ 2 種類の遠心分離機を用いて $< 0.4 \mu\text{m}$ 及び $< 0.1 \mu\text{m}$ のフラクションを分離する
- 7) それぞれのフラクションの密度調整した混濁液をスライドガラスに塗布して 40°C で乾燥させ、定方位試料とする

以上の方法により各試料について $< 0.1 \mu\text{m}$ 、 $< 0.4 \mu\text{m}$ 、 $< 1 \mu\text{m}$ 、 $< 5 \mu\text{m}$ 及び $< 32 \mu\text{m}$ の各フラクションの定方位試料を作製し XRD 分析を行った。XRD 分析は原子力機構 土岐地球年代学研究所の Rigaku Ultima IV により、高速一次元 X 線検出器 (D/teX Ultra) を用いて行った。設定は、スキャンスピード $1^{\circ} \text{min}^{-1}$ 、サンプリング幅 0.01° 、発散スリット 0.5° 、発散縦制限スリット 10 mm、散乱スリット 8 mm、管電圧 40 kV 及び管電流 30 mA とした。測定には無処理及

びエチレングリコール処理の試料をそれぞれ用いた。

2.3.3 帯磁率測定

帯磁率は、岩石や堆積物の磁化のしやすさを表す指標であり、岩石や堆積物に弱い磁場をかけて誘導される磁化を測定して求める（田中・野村, 2006¹²⁾）。帯磁率を表す単位は、かつては cgs 単位系の emu (electro-magnetic unit) が使われていたが、現在は mks 単位系の SI ユニット (International System of Units: 国際単位系) に統一されている（石渡ほか, 2011¹³⁾）。測定された帯磁率の値は岩石の中に含まれる磁鉄鉱に代表されるような強磁性鉱物の量によって決まる（森尻, 2007¹⁴⁾）。例えば、肉眼で認定できない火山灰を帯磁率測定により抽出できる可能性が指摘されており、高帯磁率の全てが火山灰層を意味するものではないが、泥層や泥炭層中の火山灰を抽出する方法としては有効と考えられている（吉川ほか, 1993¹⁵⁾）。また、花崗岩の野外調査に帯磁率測定が役立つことは以前から知られており、磁鉄鉱系花崗岩では帯磁率が高く、チタン鉄鉱系花崗岩では低く（Ishihara, 1979¹⁶⁾）、その境界として野外での実測値の目安は、 $0.5 \times 10^{-3} \text{SI}$ が妥当と考えられている（石渡ほか, 2011¹³⁾）。このように堆積物や岩石の識別に適用できる帯磁率測定は、断層やその周辺の破碎帯の特徴を把握する際の基礎資料として役立つと考えられる。また、帯磁率測定は非破壊で簡易的にできることから、露頭調査やコア観察の際にも有効なツールの一つである。

本研究では、帯磁率の測定にポケット型帯磁率計 WSL-C（田中地質コンサルタント社製）を使用した。測定は、計器底部にあるセンサーを露頭の表面にあてて行った。測定点は、2.5 - 5.0 cm 間隔とし、得られた値を記録した。

2.4 断層発達史の検討

2.1 - 2.3 で得られた結果に基づいて、屏風山断層の運動像及び周辺の断層を含めた本地域の断層発達史を検討する。その検討結果を地形・地質モデルへ反映する方法と、本研究において実施した手法の問題点や課題を抽出する。

3. 研究成果

3.1 断層に関する情報整理

3.1.1 地質構造的特徴の整理

屏風山断層は、辻村（1948）¹⁷⁾の屏風山・夕立山地塊崖に相当し、有井（1958）¹⁸⁾によって屏風山断層崖と記載された。

屏風山断層の活動に伴う古地理変遷については、森山（1985）¹⁹⁾が東濃地域に広がる小起伏面の分布並びにその堆積面を構成する礫の礫種・礫径・ファブリックに基づき検討している。その結論は、以下のようにまとめられる。

- ・屏風山断層の活動以前に、東濃地域において NE - SW 方向を軸にもつ波状変形が生じ、結果、木曾川・飛騨川の流路は、NS 方向から EW 方向へと変化した
- ・この波状変形が限界に達した後、東西圧縮応力場で数多くの共役断層系が形成された
- ・屏風山断層の活動は更新世中期、または更新世後期に活発化し、山地を大きく隆起させた

一方、陶土団体研究グループ（1994）²⁰⁾は、土岐砂礫層に見られる高角アバット不整合面の分布や姿勢に着目し、共役断層系の活動は土岐砂礫層堆積期以前であり、共役断層系の活動によって不淘汰な土岐砂礫層が堆積したと考えた。この論文では、高角アバット不整合面の姿勢が、屏風山断層や赤河断層、権現山断層の姿勢に調和的であることを示している。また、これら三つの断層について、地域により活動時期が異なるとし、土岐砂礫層の堆積年代が不確定という根本的問題を抱えながらも、本地域における統括的な構造発達史をまとめている。

屏風山断層の活動性については、岐阜県がトレンチ調査及び地形判読に基づいて検討している（岐阜県、2000²¹⁾、2001²²⁾、2002²³⁾）。その結果、屏風山断層は、瑞浪市稲津町小里から恵那市浜井場に至る南西部（長さ約 18 km）と、恵那市浜井場から中津川市霧ヶ原南西部（長さ約 14 km）に区分され、南西部では約 8 万年前以降は活動していないこと、北東部では約 13,000 から約 3,500 年前に活動したことが認められた。

屏風山断層の地球物理学的な特徴については、大久保ほか（2000）²⁴⁾や田中（2000）²⁵⁾がバイブロサイス反射法や重力調査に基づいて検討している。それによると、屏風山断層を境として基盤のずれは認められるものの、恵那山断層や第三紀以前の断層系に対応した所の方が顕著な構造境界となっていることが分かった。また、重力異常の分布から、屏風山断層は恵那市街地付近を境に東西に分けられるように見え、東部の方がより活動的であるという結果が得られている。

3.1.2 地形的特徴の整理

本研究では、屏風山断層の西部、屏風山の北西側に分布する急崖の麓に、花崗岩と砂礫層が接する断層露頭を新たに確認した。この付近では、急崖が北西 - 南東走向から北北西 - 南南東走向に変化する（図 3-1）。急崖の両側には小起伏面が分布しており、北西側は美濃高原、南東側は三河高原である。1:25,000 岐阜県活断層図（鈴木・杉戸編、2010²⁶⁾）における活断層図には、新たに確認した断層露頭付近に、最近数十万年間に繰り返し活動したことが確実に認定される断層が認められず、そのような断層は北東側に数 km 離れた地点に分布している（図 3-1）。

断層露頭周辺の空中写真（図 3-2）においても、活断層の特徴は認められないが、断層露頭付近を境に南東側は谷の発達がよく、細かい樹枝状の水系を形成しており、北西側に比べて険しい地形である（図 3-2）。このことは水系図にすると分かりやすく、断層露頭付近を含む北東 - 南西方向のラインを境に違いが認められる（図 3-3）。また、北西側の水系には河成段丘面と沖積面が分布し、一部で急崖沿いに沖積錐が分布する（図 3-4）。河成段丘面と沖積面が分布する佐々良木川は、屏風山断層の南東側の山地及び北西側の丘陵において先行谷となっており（図 3-4）、こ

これらの山地や丘陵が隆起する前から南側から流れていたと考えられる。

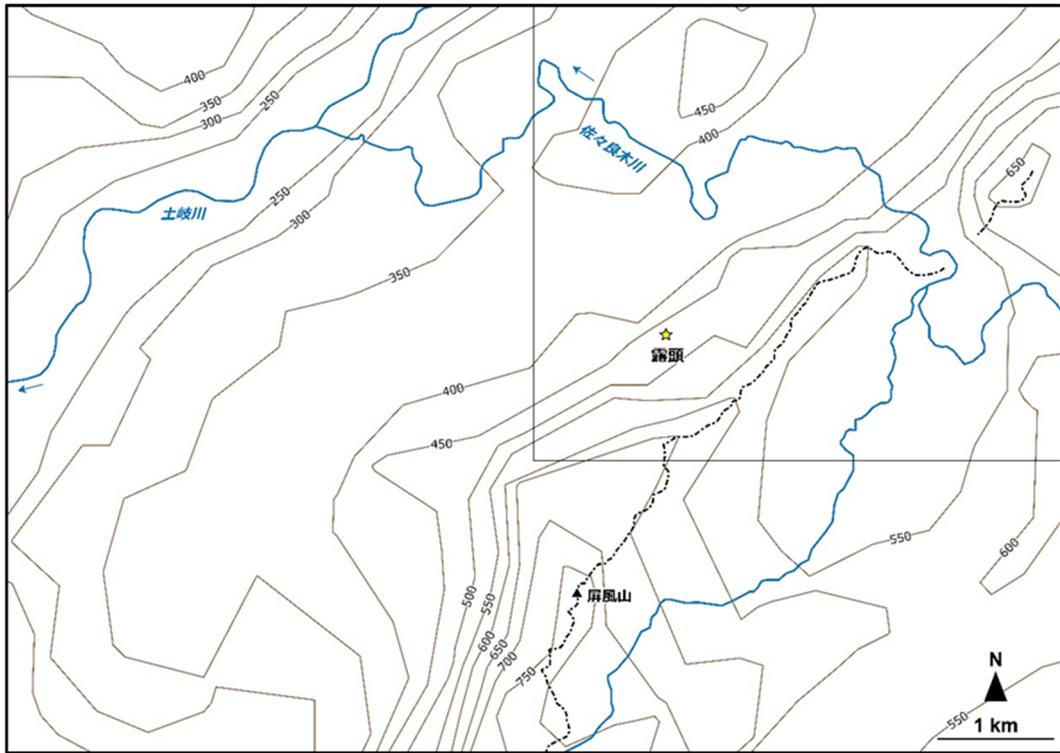


図 3-1 屏風山断層西部付近の接峰面図
谷埋幅 1.0 km の接峰面図。数字は標高 (m) を示す。図中の枠は図 3-4 の範囲を示す。

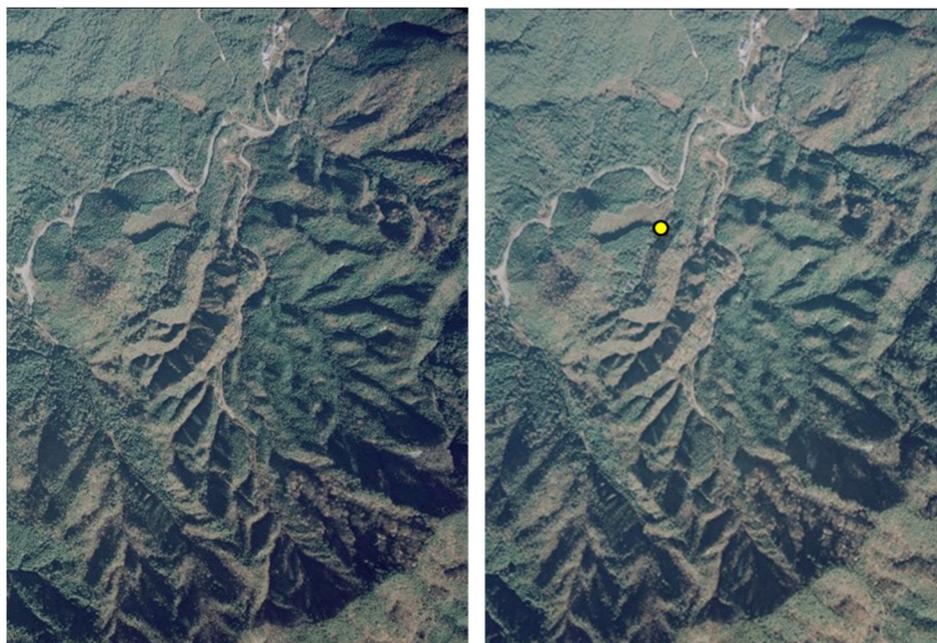


図 3-2 断層露頭周辺の空中写真
国土地理院撮影空中写真 C CB-76-16 C9-11,12 の一部を使用。

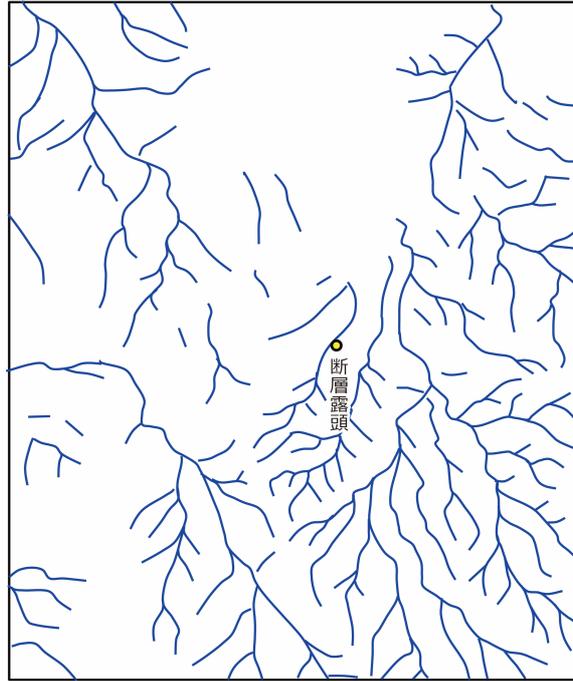


図 3-3 断層露頭周辺の水系分布

瑞浪市都市計画図に基づいて作成。北部の広い空白部分は人工的に改変されているため、トレースしていない。

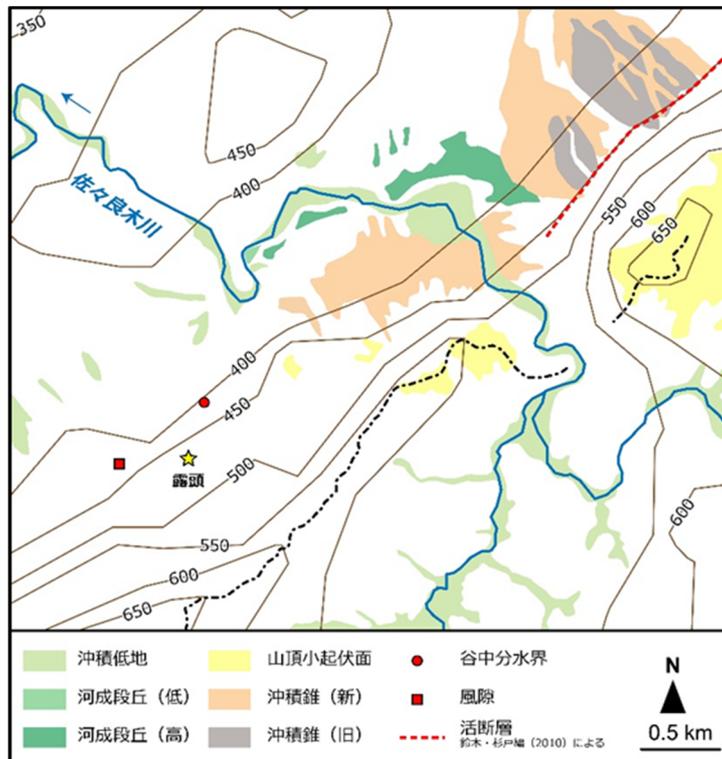


図 3-4 断層露頭周辺の段丘面分布

3.2 岩石試料の収集

本研究で対象とした断層露頭は、岐阜県瑞浪市論析周辺の沢沿いに露出する。図 2-2 に調査した沢の位置とルートマップを示す。露頭位置は、活断層研究会編 (1991)⁴⁾の屏風山断層活断層トレースに一致するが、地震調査研究推進本部 (地震調査研究推進本部, 2004⁵⁾) や岐阜県の活断層図 (鈴木・杉戸編, 2010²⁶⁾) では、活断層トレースの引かれていない区間にあたる。しかし、本研究対象露頭では土岐砂礫層と基盤岩 (伊那川花崗岩) が断層関係で直接接していることから、屏風山断層の本体である可能性が高く、屏風山断層の活動履歴の検討において重要な露頭であると言える。

本露頭では、下位から砂礫層、破碎帯及び花崗岩が連続して観察できる (図 3-5)。破碎帯は土岐砂礫層及び花崗岩起源の脆性破碎岩から構成されており、下部から順に幅約 30 cm 以上の明褐色を呈す土岐砂礫層起源の断層角礫帯、幅約 30 cm の茶褐色～暗灰色を呈す土岐砂礫層起源の断層ガウジ帯、幅約 5 cm の赤褐色を呈す起源不明の断層ガウジ帯、幅約 40 cm の白濁色を呈す花崗岩起源の面状カタクレサイト帯、幅約 30 cm で白色を呈す花崗岩起源のカタクレサイト帯及び弱く破碎を受けた花崗岩となる (図 3-5、図 3-6)。土岐砂礫層起源の断層ガウジ帯には、幅 7 cm の白色花崗岩が帯状に観察できるが、側方へ延長しないことから、レンズ状に含まれる細長いフラグメントであると判断した。花崗岩起源の面状カタクレサイト帯には、濃緑色を呈す断層ガウジが数多くみられる。しかし、断層面が非常に湾曲し連続性も悪いため断層岩帯として区分を行わなかった。本研究では、便宜上断層岩帯ごとに略称をつけた (図 3-5)。

露頭において、構造的な面構造の測定を行った。測定した面構造データを用いたシュミットネット下半球投影図を図 3-7 に示す。条線を含む線構造の測定はできなかった。破碎帯の下部にあたる土岐砂礫層起源の断層角礫帯には、P フォーリエーションを示す礫の定向配列が明瞭に観察でき、見かけ右横ずれセンスを呈す。その他の断層岩帯においても、右横ずれを示す複合面構造が観察できた。

本露頭の記載に基づき、重要であると思われる箇所で定方位試料・分析用試料を採取した。表 3-1 にこれら採取試料の一覧を示す。

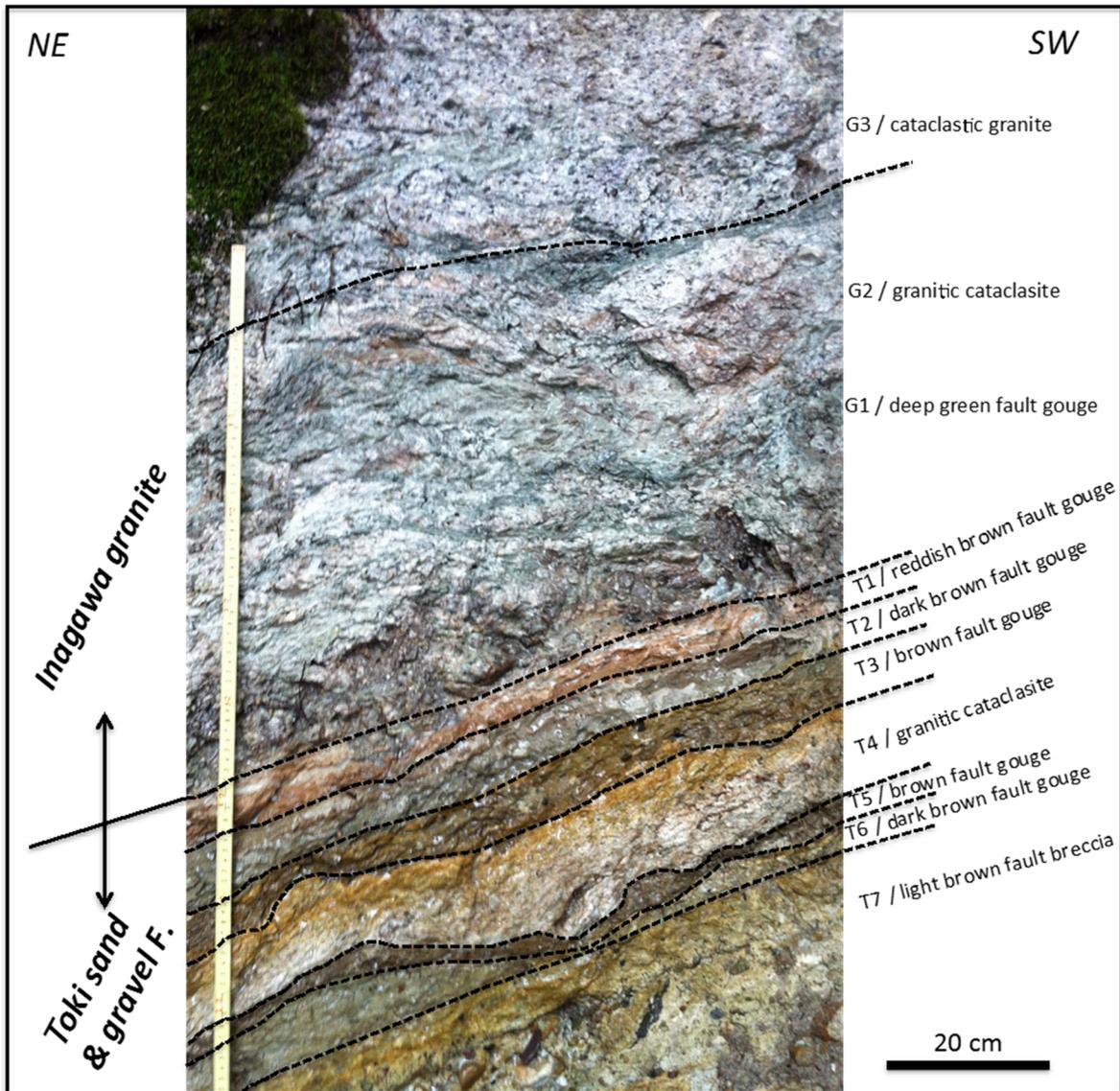


图 3-5 調査対象露頭全体図



图 3-6 露头放大图

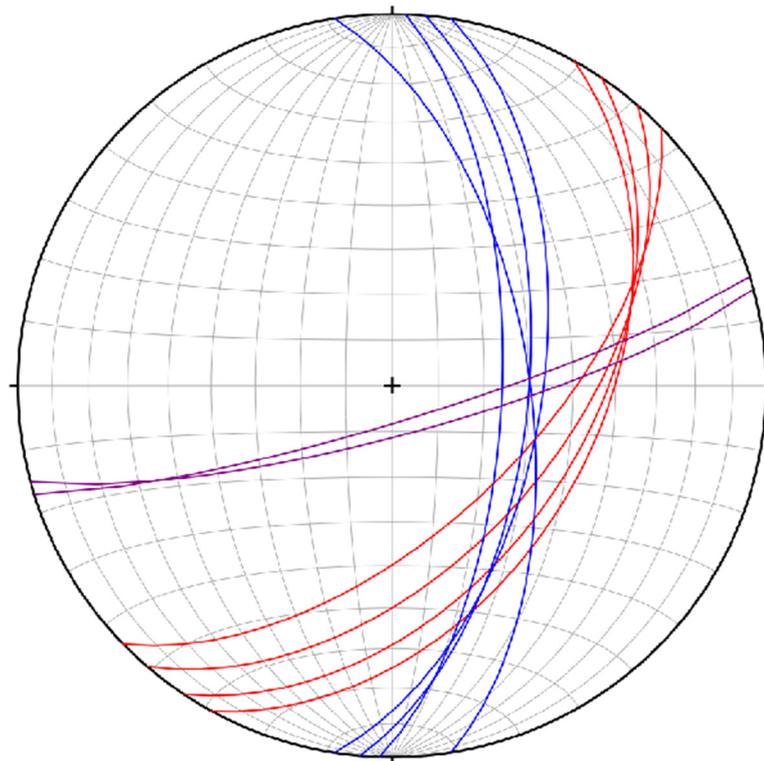


図 3-7 断層面のシュミットネット下半球投影図
赤線：Y 面（断層面）、紫線：破断面 1、青線：破断面 2。

表 3-1 サンプルリスト

試料番号	採取箇所	断層岩の種類	源岩の種類	色彩	試料種類
1	G3	弱破碎岩	花崗岩	白色	分析試料
2	G2	カタクレーサイト	花崗岩	白色	分析試料
3	G1	断層ガウジ	花崗岩	濃緑色	分析試料
4	T1	断層ガウジ	土岐砂礫層	赤褐色	分析試料
5	T2	断層ガウジ	土岐砂礫層	暗褐色	分析試料
6	T3	断層ガウジ	土岐砂礫層	褐色	分析試料
7	T4	断層ガウジ	花崗岩	白色	分析試料
8	T5	断層ガウジ	土岐砂礫層	褐色	分析試料
9	T6	断層ガウジ	土岐砂礫層	暗褐色	分析試料
10	T7	断層角礫	土岐砂礫層	明褐色	分析試料
11	G3	弱破碎岩	花崗岩	白色	薄片用試料
12	G2～G1	カタクレーサイト	花崗岩	白色～濃緑色	定方位試料
13	G1～T3	断層ガウジ	花崗岩・土岐砂礫層	様々	定方位試料

3.3 岩石試料の解析・分析

3.3.1 研磨片・薄片の作成・観察

断層の剪断センスや鉱物の産状を観察するため、研磨片・薄片の作成及び観察を行った。本露头では明瞭な線構造が観察できなかったため、XY面（断層面と平行な面）で薄片を作成し、Cataclastic lineation (Tanaka, 1992) ³⁾の観察を行った。XY薄片を作成したのは、花崗岩と土岐砂礫層の境界部にあたる赤褐色ガウジ(T1)と花崗岩起源の断層ガウジ(G1)である(図 3-8)。細粒な石英フラグメントは同一方向に伸長し、開口裂がみられるものもあった。また、フラグメントの伸長と同じ方向に粘土鉱物が配列する様子も観察でき、これらがCataclastic lineationを形成している。解析結果を図 3-9 に示す。本断層の線構造は二つ以上存在し、斜めずれの剪断方向を記録している。

次に、構造解析に適したXZ面（断層面に垂直、線構造に平行な面）で研磨片・薄片を作成し、観察を行った。XZ研磨片・薄片作成箇所を図 3-10 に示す。線構造は、本露头の中軸部だと思われるT1のXY薄片の方向を採用した。XZ薄片ⅠはT2、XZ薄片ⅡはT1、XZ薄片ⅢはG2、XZ薄片ⅣはG1にそれぞれ相当し、弱破碎を受ける花崗岩(G3)を薄片Ⅴとした。以上、計2個の研磨片と5枚の薄片を作成し、鉱物の観察及び構造解析を行った(図 3-11、図 3-12、図 3-13)。

<XZ 薄片Ⅰ> 土岐砂礫層起源の茶褐色断層ガウジは、細粒なフラグメントとマトリックスからなる。フラグメントは角礫状の石英が多く、美濃堆積岩起源の泥岩やホルンフェルスもみられる。土岐砂礫層堆積時のものと思われる炭質物もみられ、断層活動に伴って流動変形している。粘土鉱物や炭質物はPフォーリエーションの方向に伸長・配列し、右横ずれセンスを示す。

<XZ 薄片Ⅱ> 土岐砂礫層起源の赤褐色断層ガウジは、極めて細粒なフラグメントとマトリックスからなり、最も破碎が進行している。直線的なY面を持つわけではなく、RI面とP面の組み合わせで、屈曲した断層面を形成している。研磨片スケールで鉱物の伸長方向を観察すると右ずれセンスを示す。しかし、薄片スケールではセンスが不明瞭になる。

<XZ 薄片Ⅲ> 花崗岩起源の面状カタクレーサイトでは、破碎により細粒化した石英粒子と方解石脈が特徴的にみられる。マトリックス中には、屈折率の低い細粒鉱物がみられたが、後述するXRD分析結果と照らし合わせると沸石類であると思われる。これら沸石類は脈状に産出せず、フラグメント化を受けている。研磨片では、鉱物の伸長方向から右ずれセンスを示すが、薄片では左ずれセンスを示す箇所もみられた。

<XZ 薄片Ⅳ> 花崗岩起源のカタクレーサイトでは、破碎による細粒化と黒雲母の流動変形が特徴的にみられる。黒雲母はフラグメントを取り囲むように変形し、Pフォーリエーションを形成していることから、左ずれセンスを示す。面状カタクレーサイトに比べると、破碎程度は弱い。

<XZ 薄片Ⅴ> 花崗岩起源の弱破碎岩では、破碎による開口裂と、それを充填するフィロ珪酸塩鉱物が特徴的にみられる。斜長石は著しく変質し、セリサイト化を受けている。全体として鉱物の細粒化は認められず、破碎程度としては最も低い。

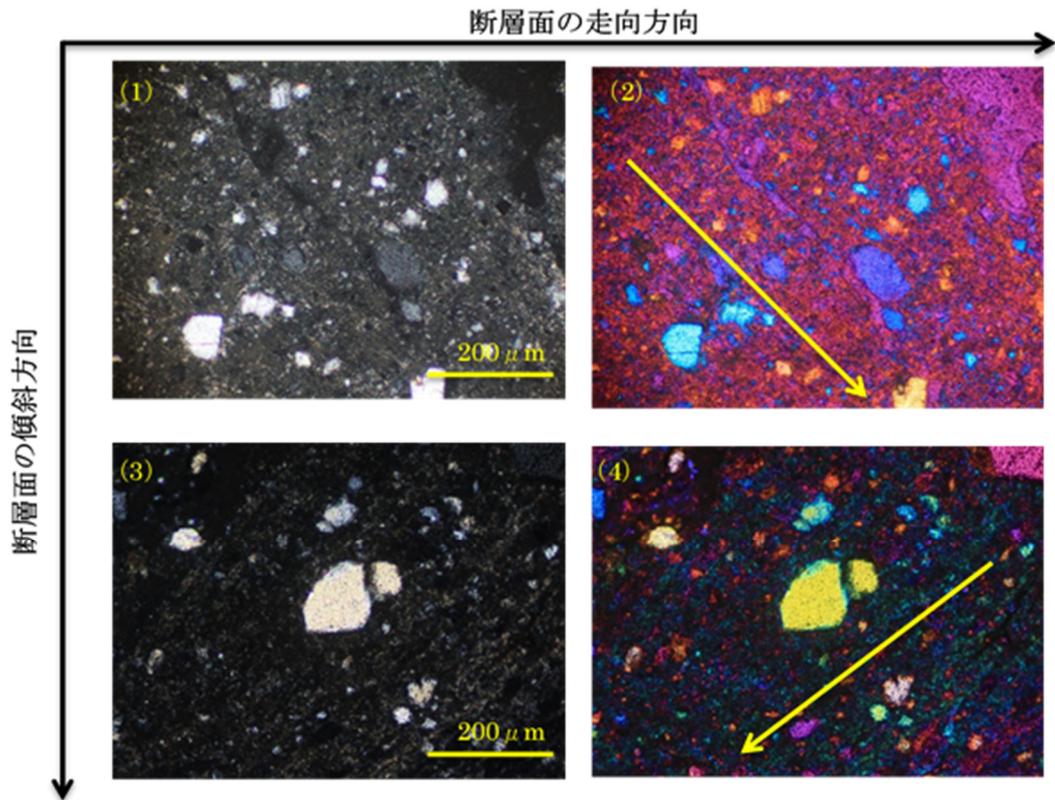


図 3-8 XY 薄片写真

(1) (2) T1 の XY 薄片、(3) (4) G1 の XY 薄片。黄色矢印は Cataclastic lineation (Tanaka, 1992³⁾) を示す。矢印方向に鉱物の伸長、粘土鉱物の配列が観察でき、伸長した鉱物には開口裂かもみられる。(1) (3) はクロスニコル、(2) (4) は検板を入れた状態で観察。

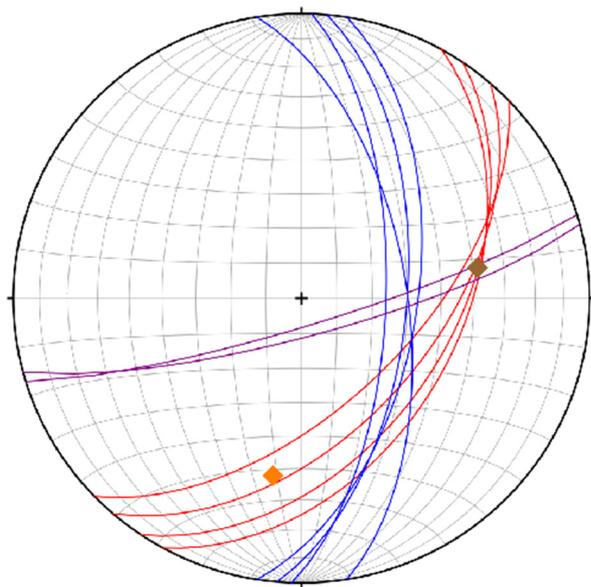


図 3-9 断層面構造及び線構造のシュミットネット下半球投影図

赤線：Y 面（断層面）、紫線：破断面 1、青線：破断面 2。

茶色星印：T1 の線構造、橙星印：G1 の線構造。

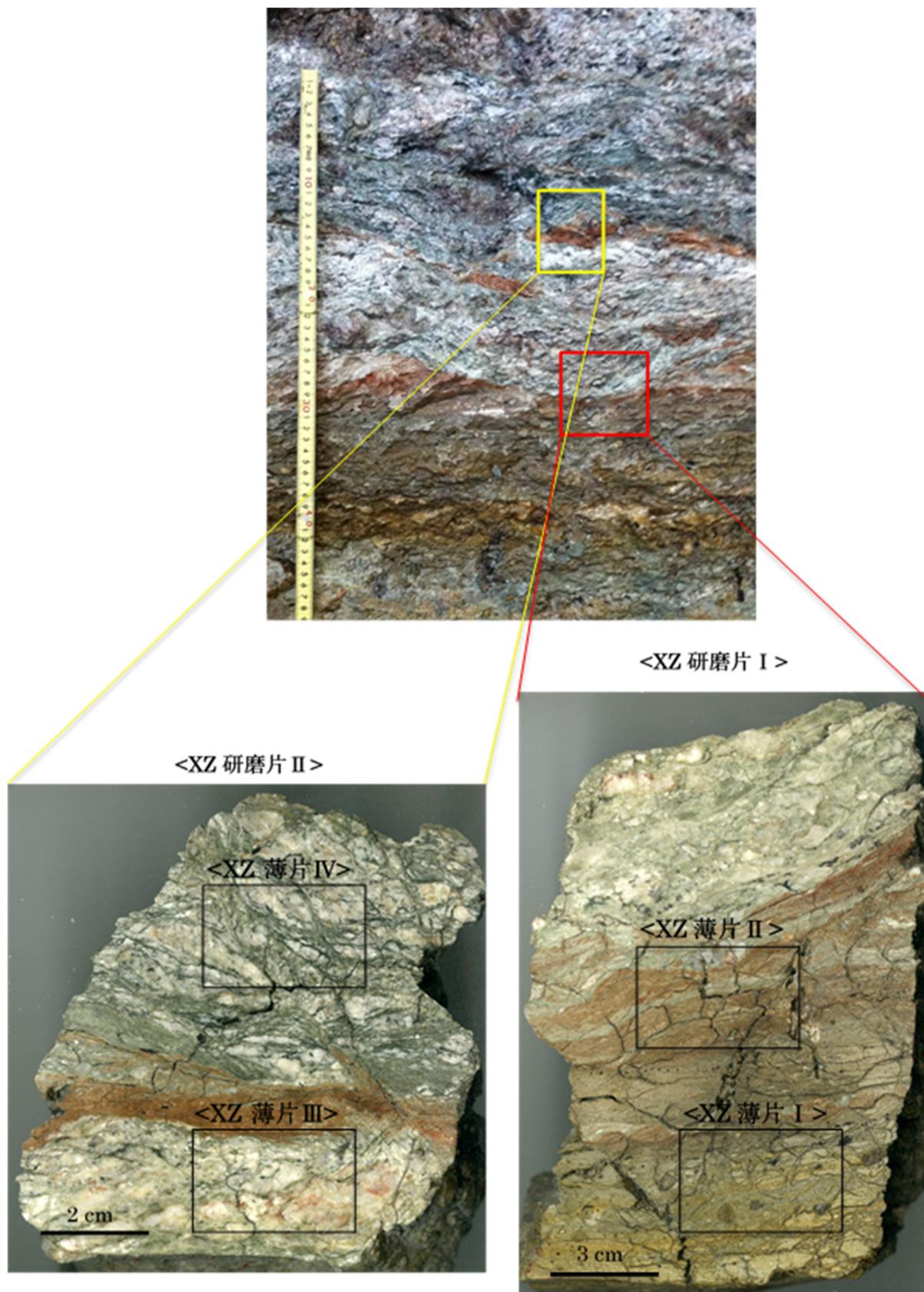


图 3-10 XZ 薄片·研磨片作成位置

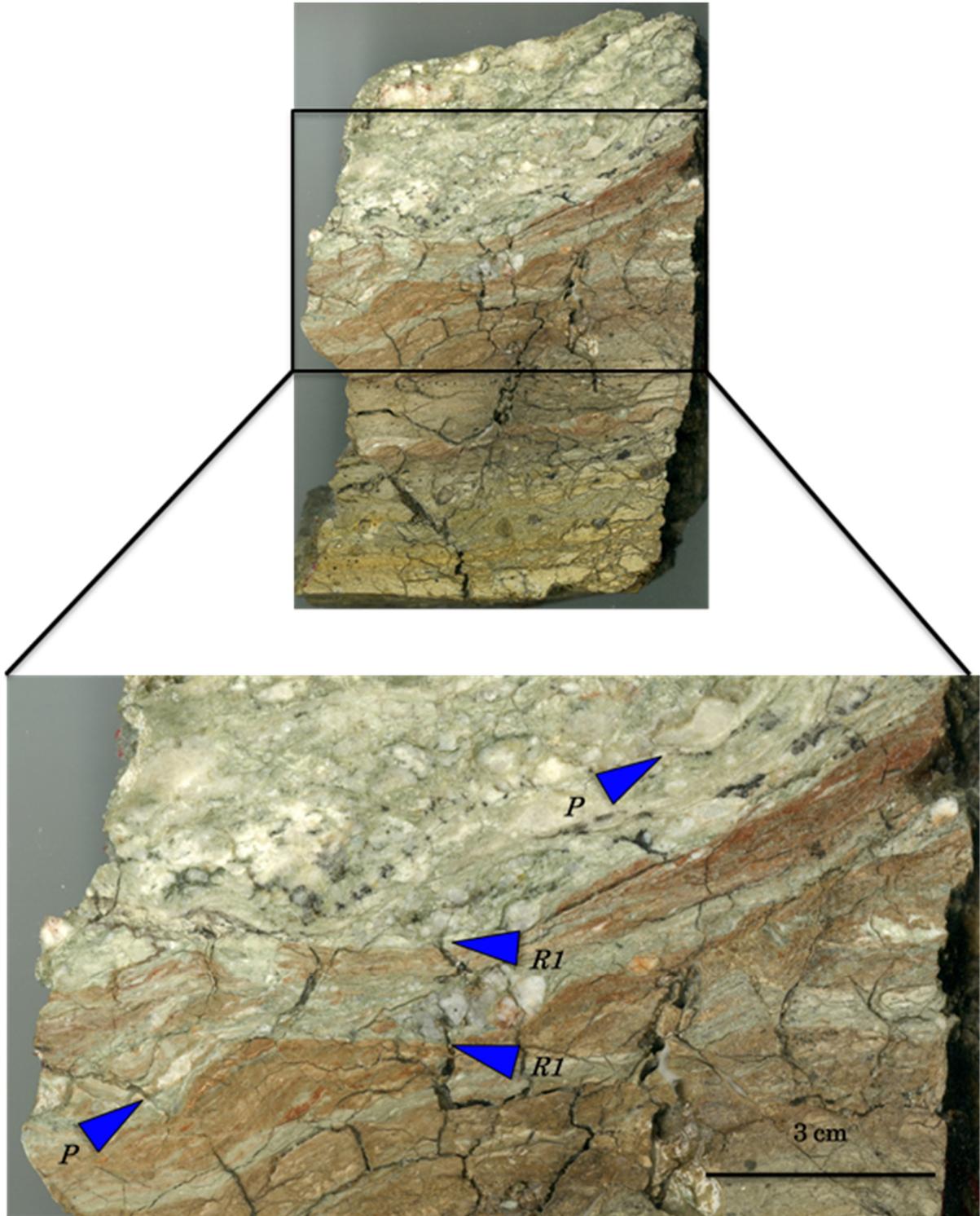


図 3-11 XZ 研磨片 I 拡大図

断層中軸部の赤褐色断層ガウジ (T1) は、鉱物の伸長方向が特徴的な P 面と、シャープな R1 面の組み合わせで断層面を形成する。赤褐色断層ガウジ直上の、花崗岩起源の面状カタクレサイト (G2) においても、石英の伸長構造が観察できる。これらは右横ずれ逆断層の運動センスを示す。

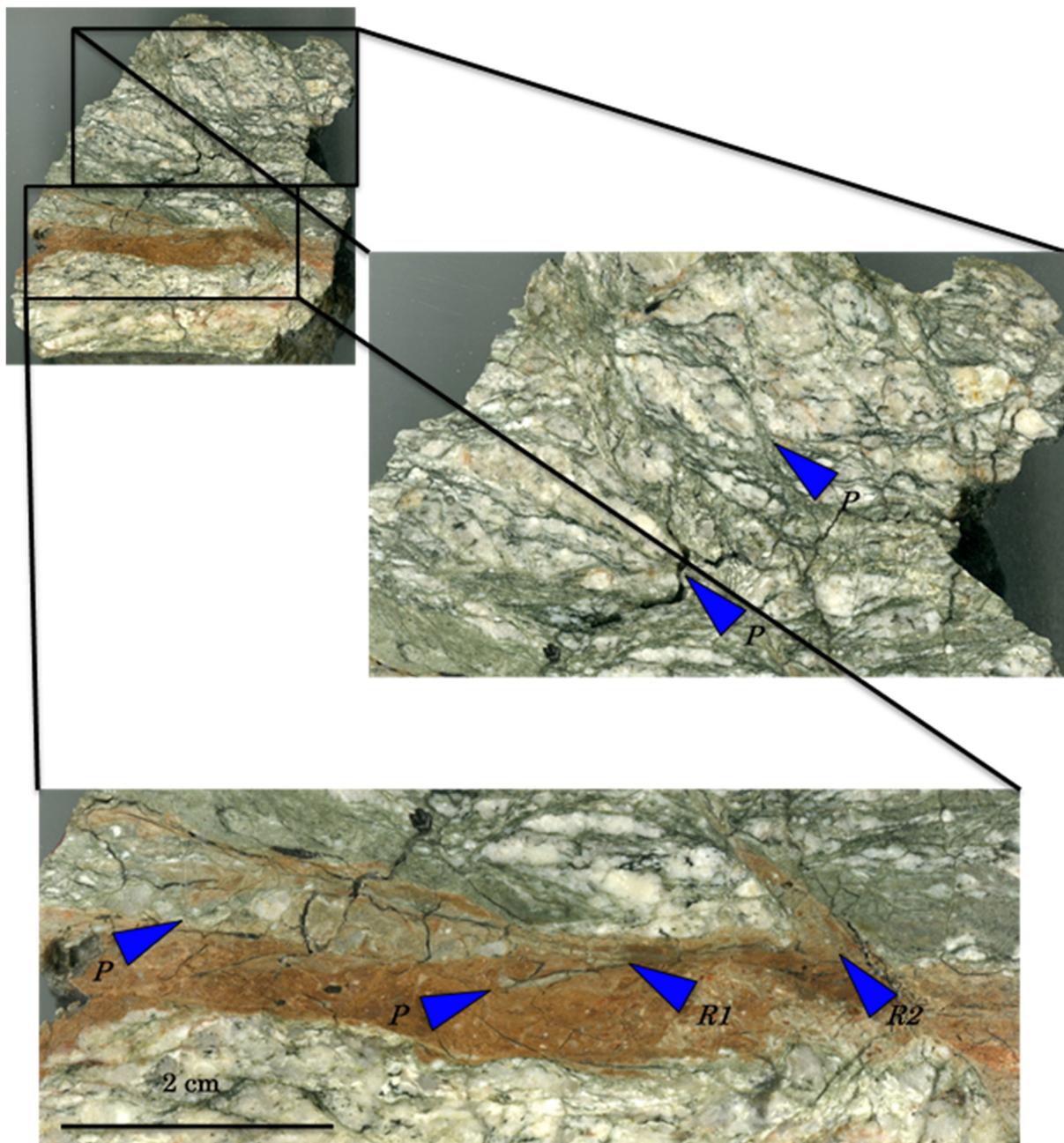


図 3-12 XZ 研磨片Ⅱ拡大図

花崗岩起源の濃緑色断層ガウジと (G1) と面状カタクレサイト (G2) の境界には、赤褐色断層ガウジがみられ、右横ずれを示す明瞭な複合面構造を有する。濃緑色断層ガウジでは、みかけ左横ずれセンスを示す構造も観察できる。赤褐色断層ガウジ部は、その他の断層岩を切って入り込んでいることから、より後期の断層活動に伴う断層岩であると考えられる。

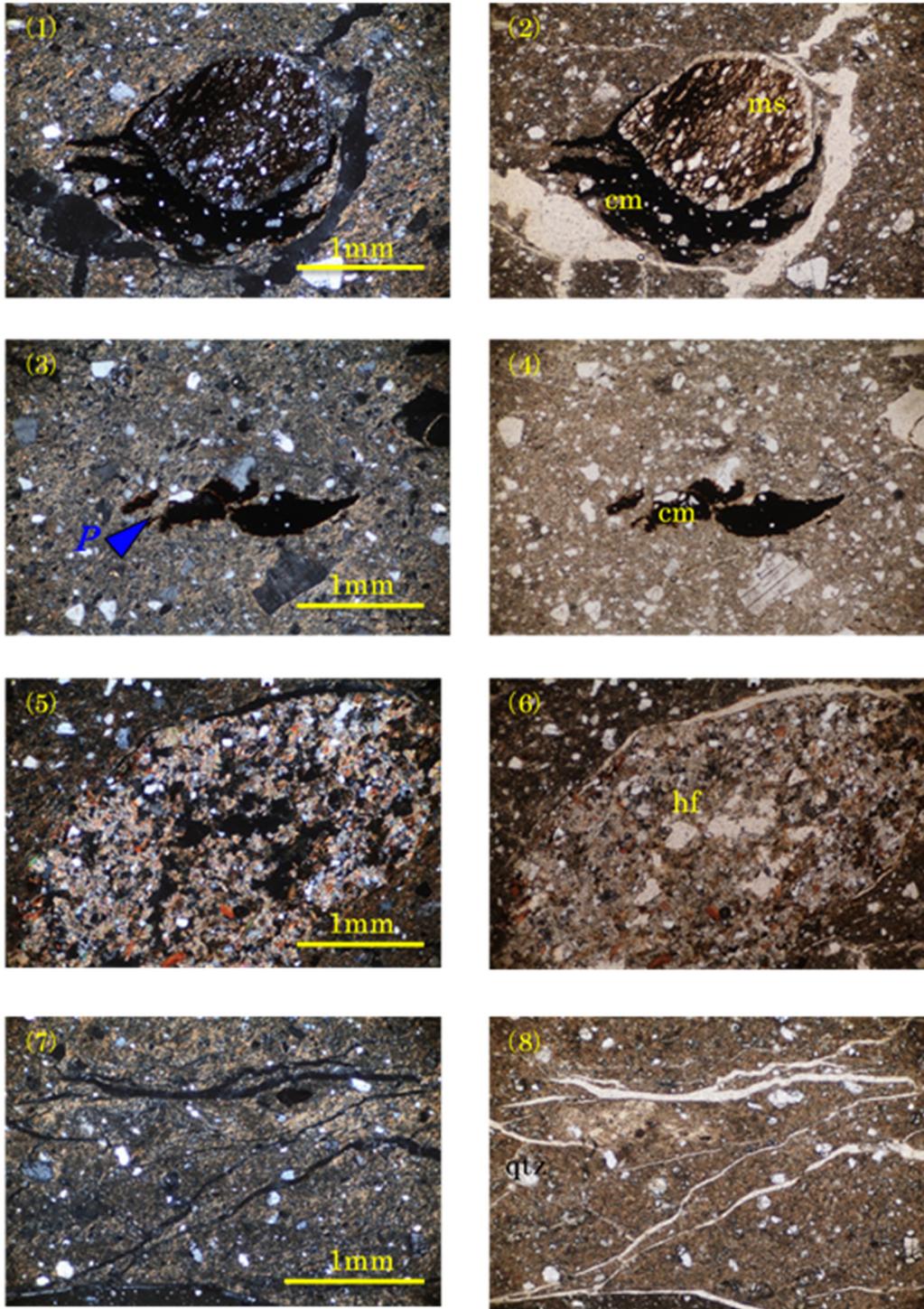


図 3-13 XZ 薄片写真

(1) - (6) XZ 薄片 I、(7)・(8) XZ 薄片 II。(1)・(2)：断層ガウジのフラグメントとして含まれる美濃帯起源の泥岩と、それを囲むように流動変形する炭質物。(3)・(4)：P 面方向に流動変形する炭質物。(5)・(6)：美濃帯起源のホルンフェルス。(7)・(8)：赤褐色断層ガウジでは、フラグメントの細粒化が進み、粘土鉱物の割合も非常に多い。顕微鏡下では明瞭な複合面構造を示さないが、粘土鉱物の配列から右横ずれだと考えられる。(1) (3) (5) (7) クロスニコル、(2) (4) (6) (8) オープンニコル。ms：泥岩、cm：炭質物、hf：ホルンフェルス、qtz：石英。

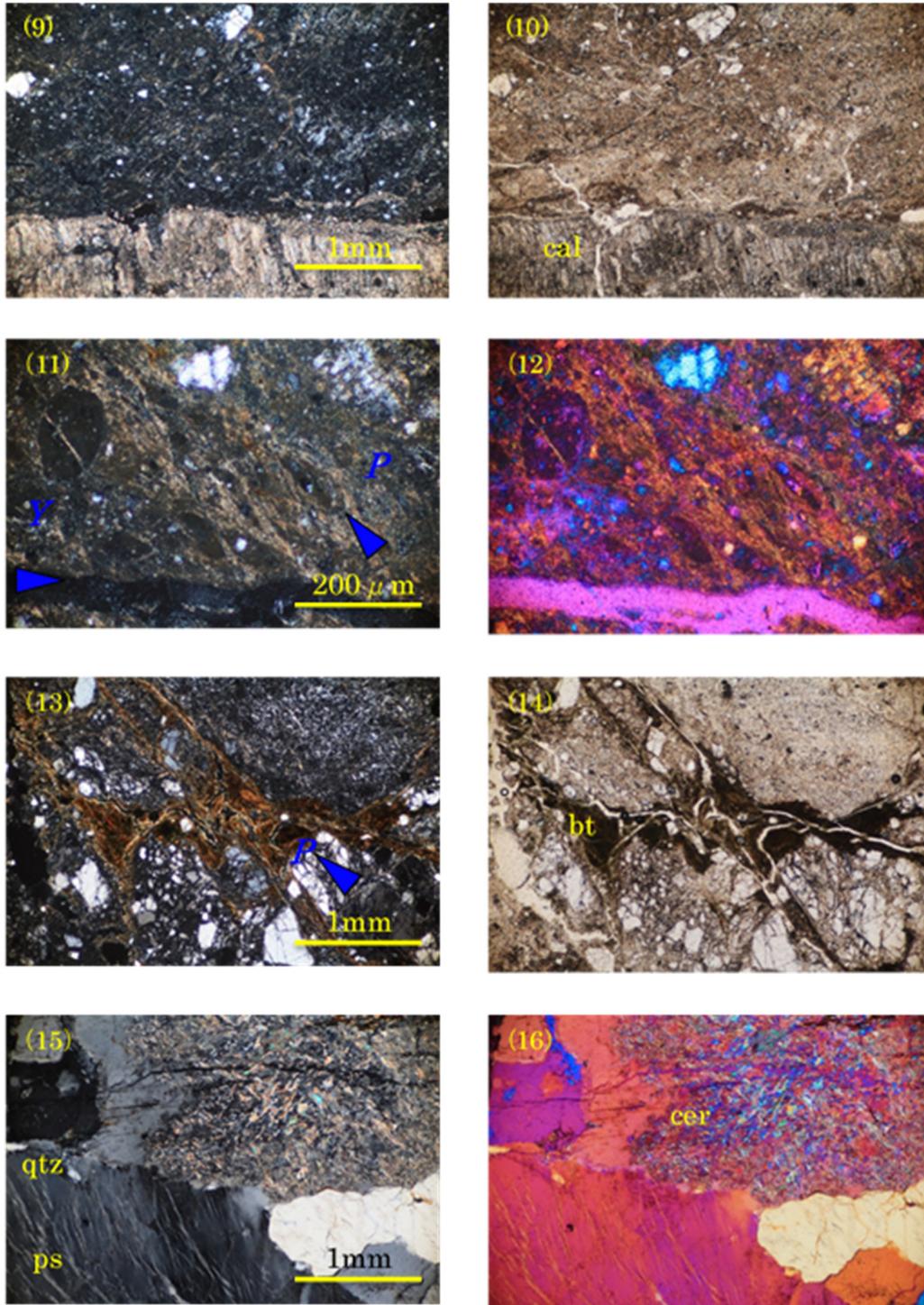


図 3-13 (続き)

(9) - (12) XZ 薄片Ⅲ、(13)・(14) XZ 薄片Ⅳ、(15)・(16) XZ 薄片Ⅴ。(9)・(10)：方解石脈を多く含み、マトリックスには細粒な沸石フラグメントがみられる。(11)・(12)：鉱物の伸長や粘土鉱物の配列から左横ずれセンスがみられる。(13)・(14)：破碎により細粒化した石英と、流動変形を示す黒雲母が特徴的にみられる。(15)・(16)：石英中の開口裂かを充填するフィロケイ酸塩鉱物と、斜長石を交代するセリサイトが特徴的にみられる。(9) (11) (13) (15) クロスニコル、(10) (14) オープンニコル、(12) (16) 検板入り。cal：方解石、bt：黒雲母、cer：セリサイト、ps：フィロ珪酸塩鉱物、qtz：石英。

3.3.2 XRD 分析

(1) 粘土鉱物の同定分析結果

構成粘土鉱物の正確な同定を目的に XRD 分析を行った。同定結果一覧を表 3-2 に示す。断層岩帯区分に用いた略称については図 3-5 を参照されたい。

スメクタイトはどの断層岩帯においても含まれる。イライトとカオリナイトは T4 を除く全ての断層岩帯に含まれる。沸石は花崗岩起源の断層岩帯 (G1 - G3) のみに含まれる。スメクタイト/緑泥石規則混合層は、T1・T3・T4 のみに含まれる。

次に、粘土鉱物の定性的な特徴を検討するため、各粘土鉱物の積分強度及び半値幅を比較した。対象とした鉱物は、ほとんどの断層岩帯に含まれているスメクタイト・イライト・カオリナイトである。用いた分析値は秤量定方位試料である。ここでは単純な断層岩帯の傾向を把握するため、T4 の分析値を省いてグラフを作成した。また、T7 のカオリナイトは、他の断層岩帯と比較し異様に多く含まれているためグラフ作成には使用しなかった。これについては後述の考察で追記する。

最初に積分強度測定の結果について説明する (図 3-14)。花崗岩側 (G1-G3) の傾向をみると、各粘土鉱物で強度のピーク位置が異なる。それぞれの鉱物でピークがみられる位置は、スメクタイトで G3、イライトで G2、カオリナイトで G1 にあたる。土岐砂礫層側 (T1-T6) では、一つのピークを含み、T1 に向かい減少していく傾向が読み取れる。スメクタイト・イライトのピークは T5 にあたり、カオリナイトのピークは T2・T3 にあたる。

次に半値幅測定の結果について説明する (図 3-15)。スメクタイトは T1 で最高値をとり、外側に向かって徐々に値が低くなる傾向を示す。イライトでも、スメクタイトと類似して T2 でピークをもち、外側に向かって段階的に値が低くなる傾向がみられるが、G2・G3 で半値幅が著しく高くなる特徴をもつ。カオリナイトでは、G1 で最低値、G3 と T2 で最高値をとるように、半値幅の段階的な変化がみられる。

表 3-2 構成粘土鉱物同定結果一覧

断層岩帯	Rock type	Color	Clay minerals				
			Sme	Ill	Kln	Zeo	S/C
G3	Cataclastic granite	white	○	○	○	○	—
G2	Granitic Cæclasite	white	○	○	○	○	—
G1	Fault gouge	deep green	○	○	○	○	—
T1	Fault gouge	reddish brown	○	○	○	—	○
T2	Fault gouge	deep brown	○	○	○	—	—
T3	Fault gouge	brown	○	○	○	—	○
T4	Fault gouge	white	○	—	—	—	○
T5	Fault gouge	brown	○	○	○	—	—
T6	Fault gouge	deep brown	○	○	○	—	—
T7	Fault bræcia	light brown	○	○	○	—	—

Ill: イライト、Kln: カオリナイト、S/C: スメクタイト/緑泥石規則混合層、Sme: スメクタイト、Zeo: 沸石類。

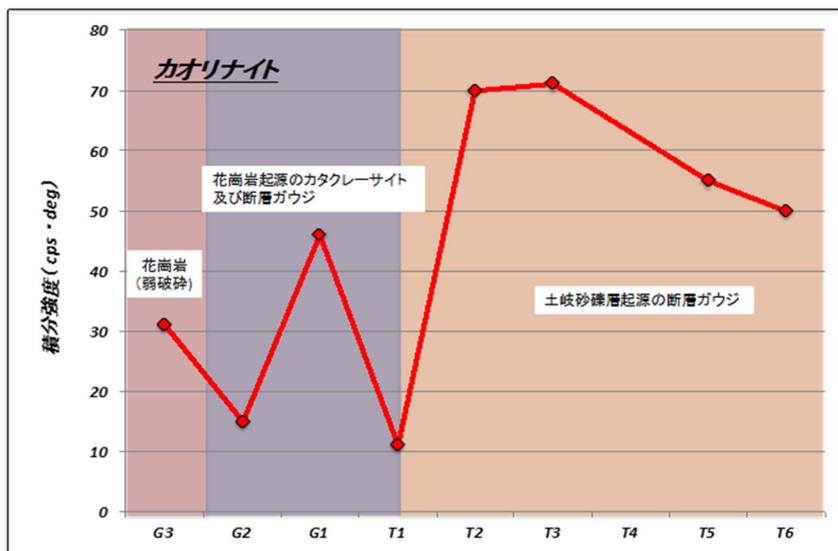
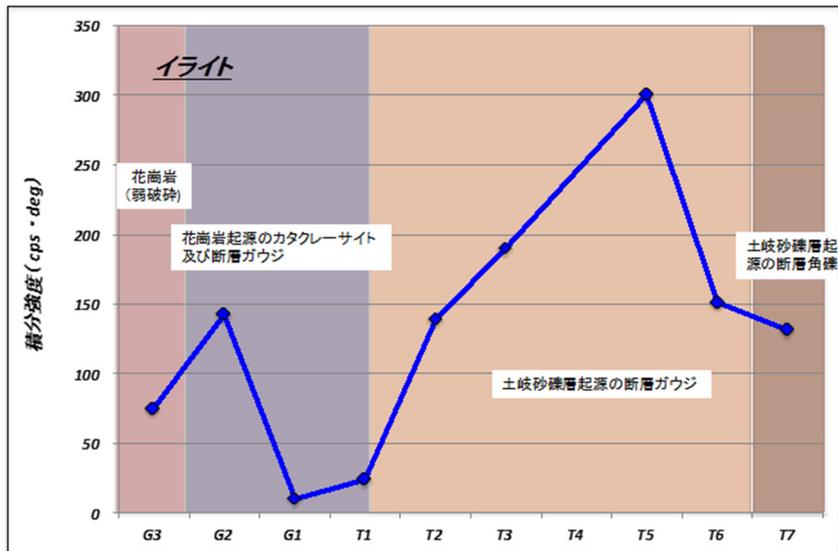
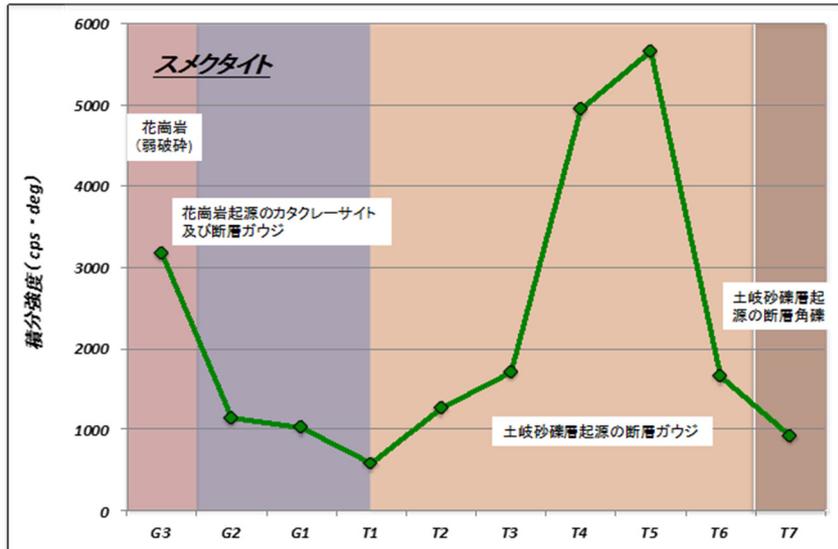


図 3-14 主要粘土鉱物の積分強度
横軸は断層帯区分に用いた記号 (図 3-5 を参照)。

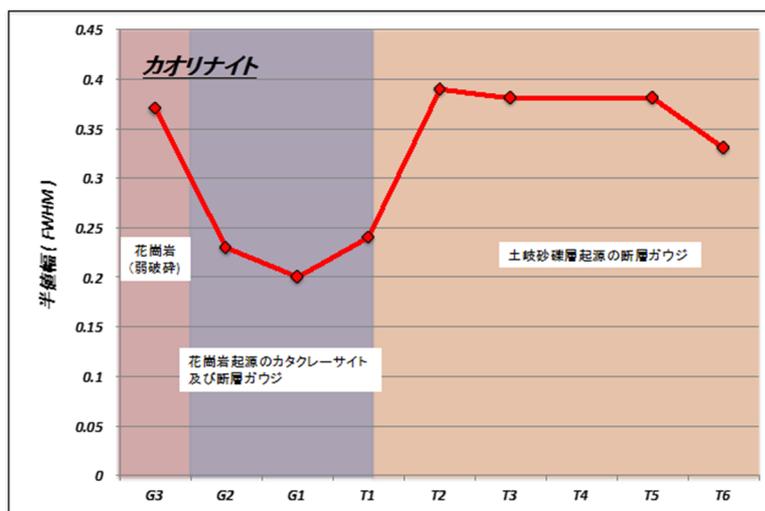
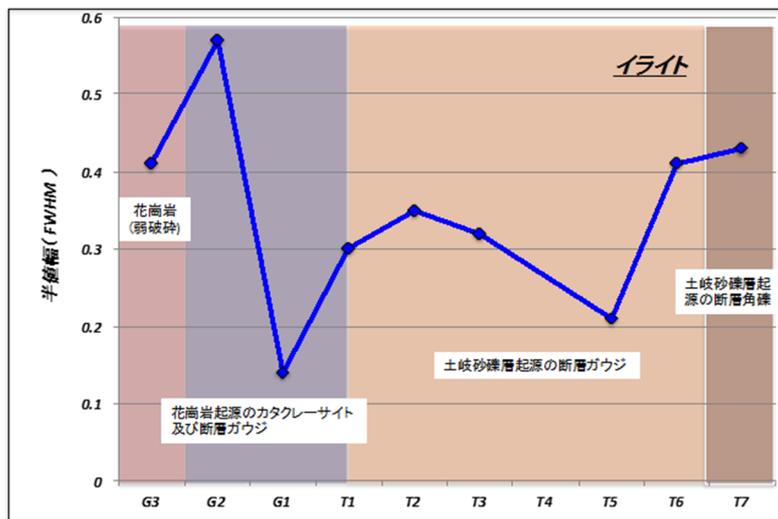
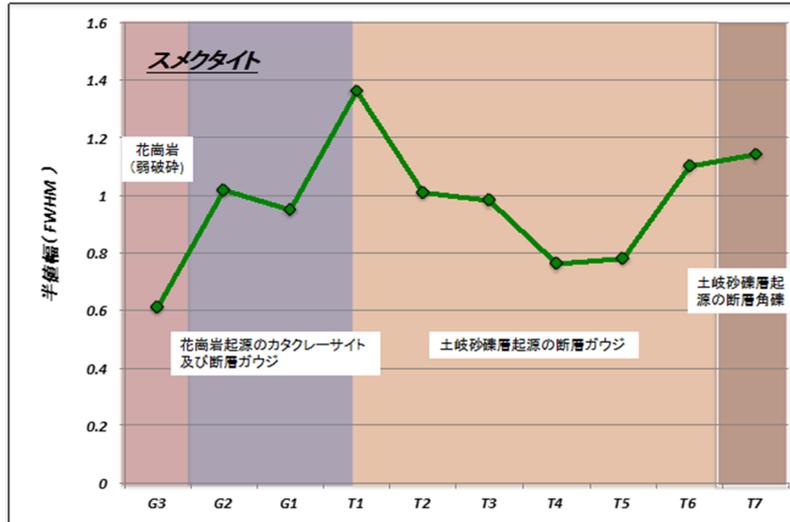


図 3-15 主要粘土鉱物の半値幅
横軸は断層帯区分に用いた記号 (図 3-5 を参照)。

(2) 粒度ごとに分離した試料の分析結果

土岐地球年代学研究所において実施した粒度ごとに分離した試料の XRD 分析結果は表 3-3 のように要約される。また XRD チャートを図 3-16 に示した。

粘土鉱物は、すべてのサンプルにおいてスメクタイトに富むとともに、イライト及びカオリナイトをほとんどのフラクションに含んでいる。測定したいずれのサンプルもスメクタイトは細粒のフラクションほど濃集する傾向がある。イライトは土岐砂礫層起源のガウジ（サンプル 6 及び 9）の方が、花崗岩起源のガウジ（サンプル 3）に比べ多く含まれる。フラクションごとのイライトの濃集傾向はサンプル 6 と 9 とでは異なり、より断層境界に近いサンプル 6 では粗粒のフラクションでイライトが増加するのに対し、サンプル 9 では逆に減少する。イライトのピークの形状からは、サンプル 6 の粗粒のフラクション（ $< 5 \mu\text{m}$ や $< 32 \mu\text{m}$ ）のイライトは他のフラクション及びサンプルに比べピークが鋭く、結晶度が相対的に高いように見える点特徴的である。エチレングリコール処理後のスメクタイトとイライトの XRD パターンの変化に基づくと、イライト/スメクタイト混合層を含む積極的な証拠は見られず、スメクタイトは単独で存在する可能性が高い。

石英及びカリ長石は測定したすべてのサンプルに含まれ、いずれのサンプルも粗粒のフラクションほど濃集する傾向がある。一方、斜長石はサンプル 3 では（ $< 0.1 \mu\text{m}$ フラクションを除き）普通に含まれるが、サンプル 6 及び 9 では（サンプル 6 の $< 32 \mu\text{m}$ フラクションを除き）認められない。サンプル 3 では、モルデン沸石及び方解石を含む点特徴である。一方、サンプル 6 及び 9 では、 $< 32 \mu\text{m}$ フラクションにおいて黄鉄鉱を含む。

表 3-3 粒度ごとに分離した各フラクションの XRD 分析結果

sample no.	fraction	quartz	K-feldspar	plagioclase	mordenite	calcite	pyrite	smectite	illite	kaolinite
3	$< 0.1 \mu\text{m}$	+	+		+			++++	+	+
	$< 0.4 \mu\text{m}$	+	+	+	+			+++	+	+
	$< 1 \mu\text{m}$	++	++	++	++	+		+++	+	++
	$< 5 \mu\text{m}$	++++	+++	+++	++	++		++	+	++
	$< 32 \mu\text{m}$	++++	+++	+++	++	++		++	+	++
6	$< 0.1 \mu\text{m}$	+	+					++++	++	+
	$< 0.4 \mu\text{m}$	+	+					++++	++	+
	$< 1 \mu\text{m}$	+	+					+++	++	+
	$< 5 \mu\text{m}$	+++	++					++	+++	+
	$< 32 \mu\text{m}$	++++	+++	+			+	++	+++	
9	$< 0.1 \mu\text{m}$	+	+					++++	++	+
	$< 0.4 \mu\text{m}$	+	+					++++	++	+
	$< 1 \mu\text{m}$	++	+					+++	++	+
	$< 5 \mu\text{m}$	++++	+++					+++	++	+
	$< 32 \mu\text{m}$	++++	+++				+	++	+	+

+の数が多きほど量比が多いことを示す。

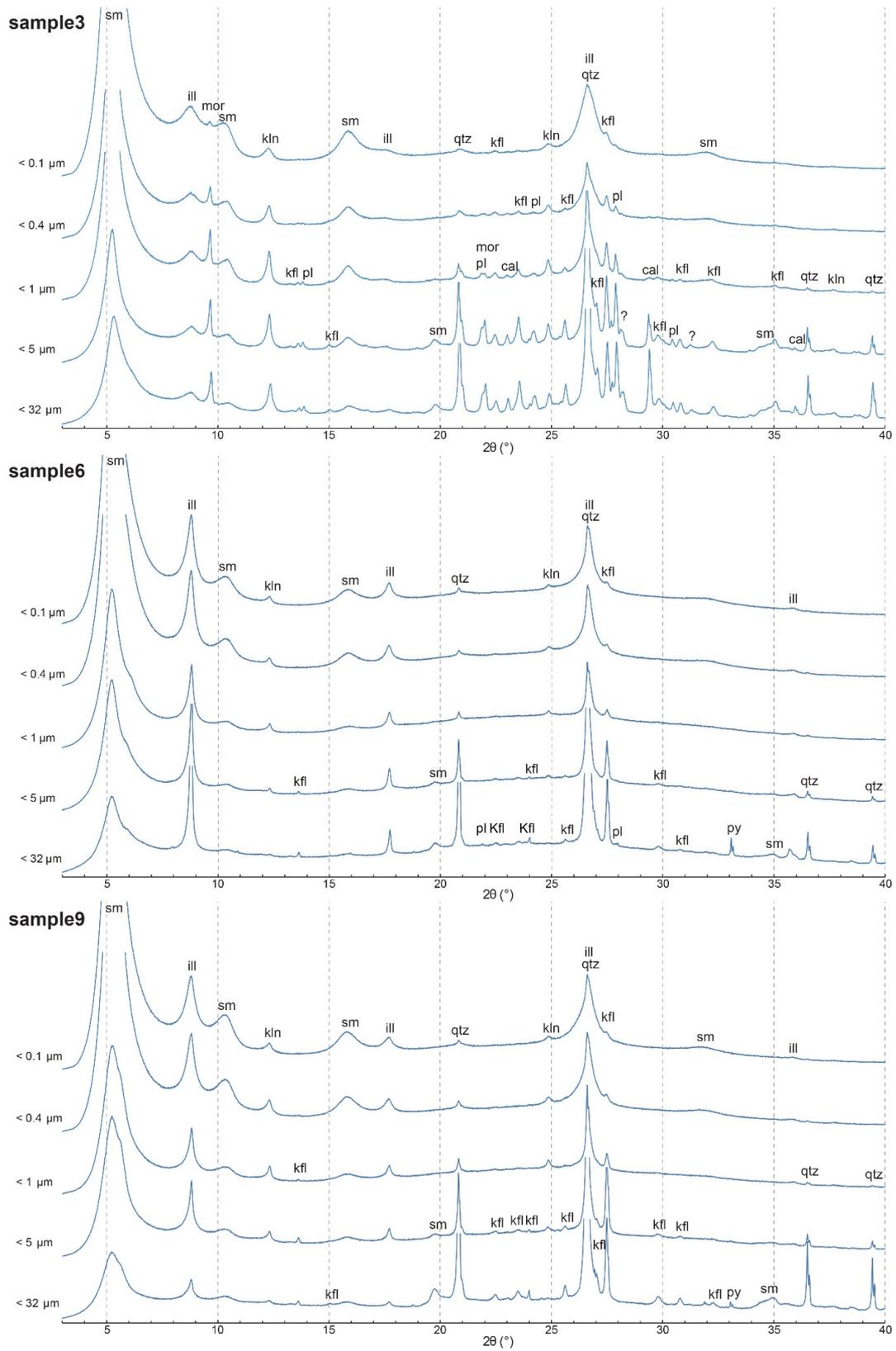


図 3-16 粒度ごとに分離した各フラクションの XRD パターン

Cal: 方解石、ill: イライト、kfl: カリ長石、kln: カオリナイト、mor: モルデン沸石、pl: 斜長石、py: 黄鉄鉱、qtz: 石英、sm: スメクタイト。

3.3.3 帯磁率測定

ポケット型帯磁率計による測定の結果を図 3-17 に示す。弱破碎した花崗岩では $10\text{-}20 \times 10^{-5}$ SIunit 程度の値であり、低角の割れ目の部分で高い値を示す傾向が認められた。花崗岩のカタクレーサイト及び断層ガウジでは、 $20\text{-}80 \times 10^{-5}$ SIunit の範囲で急激に値が変化した。断層ガウジの部分及び砂礫層の部分は $30\text{-}50 \times 10^{-5}$ SIunit 程度の値を示し、急激な変化は認められなかった。

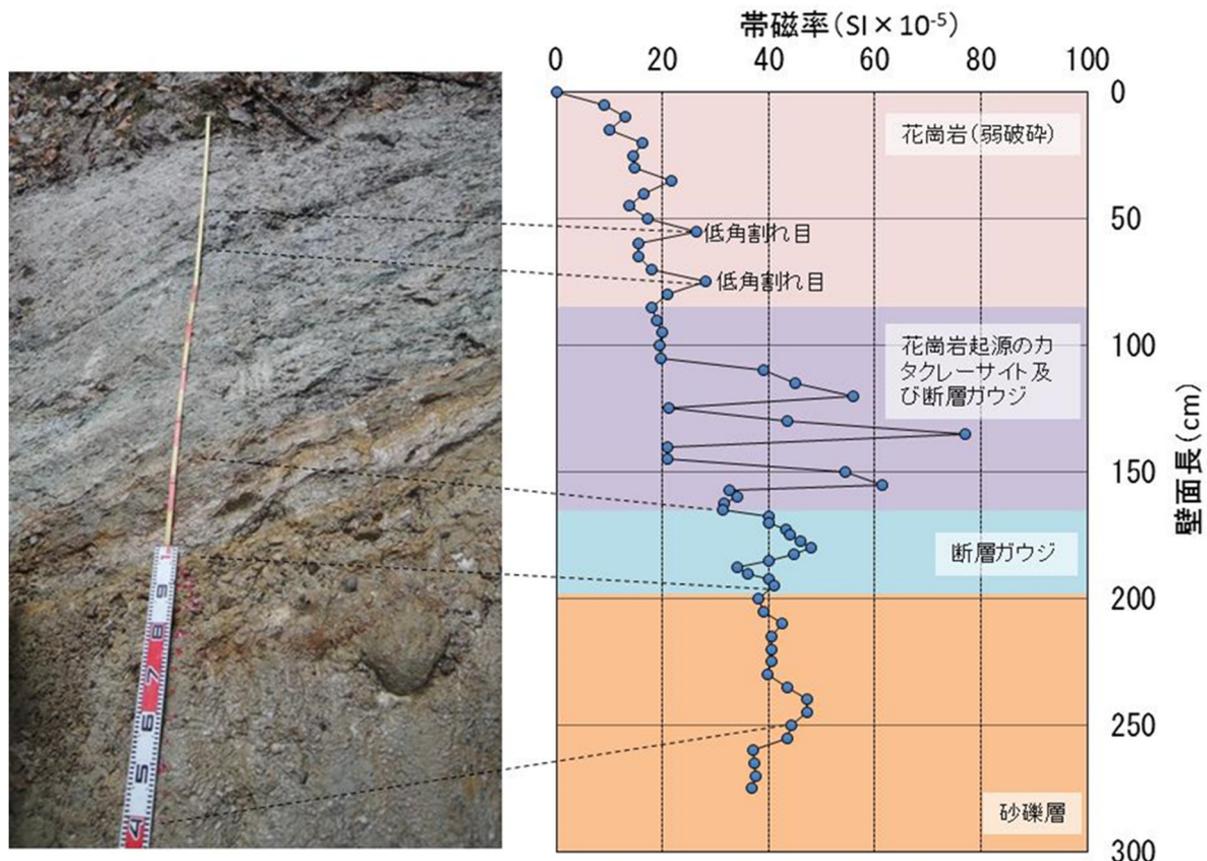


図 3-17 帯磁率測定を実施した断層露頭 (左) と測定結果 (右)

破碎帯や堆積物では健岩に比べて水分を保持しやすいと考えられ、その水分の影響で全体的に帯磁率が低い値を示している可能性がある。露頭においては、乾燥した時期にも測定して比べるなどの工夫が必要と考えられる。本測定結果は全体的に低い値であるが、岩相ごとに異なった値を示すことや、同じ岩相の中で急激な値の増減が認められることから、露頭の特徴を把握するうえで役立つと考えられる。低角割れ目とカタクレーサイト及び断層ガウジにおいて周囲より高い値を示す原因については不明であるが、断層活動等の際に水が関与して磁性鉱物が周囲より多く分布する環境になった可能性がある。この点については、今後、露頭・岩石の詳細な観察や密な帯磁率測定が必要である。また、本測定で得られたような値の変化が花崗岩中の破碎帯や断層ガウジの特徴であるとする、ポケット型帯磁率計を用いて簡易的な破碎の程度の把握が可能であり、試料採取の範囲を検討する際の参考データになると考えられる。今後、事例の蓄積が必要である。

3.4 断層発達史の検討

本研究で対象とした断層露頭は、活断層トレースとの位置関係や、基盤岩と堆積層が断層関係で接している点、さらにその破碎帯の規模から、屏風山断層を代表する露頭であると言える。そこで、本研究で実施した断層に関する情報整理・岩石試料の収集・岩石試料の解析・分析結果の統括的な解釈を行った結果、屏風山断層の発達史に関して以下の知見を新たに得ることができた。

本露頭では幅広い断層岩が形成されており、断層岩の種類や色相、帯磁率の値の変化などから複数の異なる破碎帯の存在が確認できた。これら各破碎帯には、変質鉱物の組み合わせや存在比に違いがみられる。また薄片観察では、変質鉱物の晶出と破碎に関する前後関係や複数の剪断センスもみられた。これらのことから、本露頭でみられる破碎帯は複数の断層活動により形成され、それぞれの断層活動に伴う変質作用、運動方向の違いを記録していることが予想される。本研究では以上の基本的な理解をもとに、屏風山断層の発達史を四つのステージに区分した。

<ステージⅠ> 基盤岩が圧密破碎を受け、弱破碎岩が形成された（G3 に相当）。石英中の裂かにはフィロ珪酸塩鉱物が充填し、斜長石は変質しセリサイト化を受けた。破碎の集中帯では、局所的に還元的な熱水変質作用に伴う沸石脈が晶出し、カタクレーサイトが形成されていたと考えられる。

<ステージⅡ> 屏風山断層の左横ずれ運動に伴い、基盤岩中にカタクレーサイトが形成された。断層面の姿勢や剪断センスから、当時の応力場は南北圧縮東西伸張であったと考えられる。断層活動に伴い石英や沸石は細粒化し、黒雲母は底面滑り変形をした。断層活動に伴う方解石脈の晶出が生じた。土岐砂礫層に左横ずれ時の変形・変質が認められないことと、土岐砂礫層の堆積年代と南北圧縮の広域応力場の時代性を考慮すると、このステージでの断層運動は土岐砂礫層の堆積以前に起こったと考えられる。その場合、このステージの断層運動に伴う地表隆起量は、削剥速度を越えない程度であったか、断層面が地表まで到達していなかったと考えられる。

<ステージⅢ> 応力場が東西圧縮南北伸張に変わり、屏風山断層が右横ずれ成分を伴う逆断層運動を開始した。この断層運動は屏風山を大きく隆起させ、土岐砂礫層に垂直隔離を与えたと考えられる。基盤岩及び土岐砂礫層には断層ガウジや断層角礫、面状カタクレーサイトが形成された。これらの断層岩にはスメクタイトやイライトを豊富に含むことから、これら粘土鉱物の形成を伴う熱水活動がこのステージで活発に起こった可能性があるが、詳細は今後の研究の課題である。

<ステージⅣ> 東西圧縮南北伸張応力場における逆断層運動は、屏風山をさらに隆起させ、幅広い断層ガウジが形成された。基盤岩と土岐砂礫層の境界部には、特徴的な赤褐色断層ガウジが形成された。カオリナイトを豊富に含むことから、酸性の低温熱水変質作用、または天水の影響があったと考えられる。

4. まとめ

本研究では、長期の断層の発達史に関する調査技術を開発するため、屏風山断層を事例として、既存文献から地質構造的特徴の整理を行い、空中写真と地形図を用いて本共同研究で発見した屏風山断層の露頭周辺の地形的特徴を把握した。その後、その断層露頭において、記載と試料採取を行い、断層岩の種類や色相に基づいて複数の異なる破碎帯を認定した。さらに、各破碎帯を対象に研磨片・薄片観察、XRD分析、帯磁率測定を行い、その結果から断層発達史を四つのステージに区分した。断層岩における変質環境は、これら四つのステージごとに変化しており、古いステージに形成された変質鉱物ほど還元的な環境下の断層活動によるものであると推測された。このことは断層活動に伴う地下での流体移動の変化を示している可能性がある。また、本研究から明らかになった断層発達史に基づくと、屏風山断層の運動開始時期は土岐砂礫層堆積以前まで遡る可能性がある。その時期については、中部地方の一般的な応力場の変遷と照らし合わせると古第三紀に相当すると考えられる。このように一つの露頭から長期の断層の発達史を検討することが可能な場合もあり、その際に適用する手法として本共同研究の調査技術が有効と考えられ、引き続き詳細な検討と事例の蓄積が必要である。

謝辞

本研究を進めるにあたり、中央開発株式会社の細矢卓志氏、植木忠正氏には、野外作業に同行いただき、有益な議論をして頂きました。以上の方々に、厚く御礼申し上げます。

引用文献

- 1) 高木秀雄, 小林健太, 断層ガウジとマイロナイトの複合面構造—その比較組織学, 地質学雑誌, vol.102, 1996, 170-179.
- 2) 大橋聖和, 小林健太, 間嶋寛紀, 膨潤性粘土鉱物を含む未固結断層岩の薄片・研磨片作製法, 地質学雑誌, vol.114, 2008, pp.426-431.
- 3) Tanaka, H., Cataclastic lineations, *Journal of Structural Geology*, vol.14, no.10, 1992, pp.1239-1252.
- 4) 活断層研究会編, 新編日本の活断層—分布図と資料—, 東京大学出版会, 1991, 437p.
- 5) 地震調査研究推進本部, 屏風山・恵那山断層帯及び猿投山断層帯の長期評価について, 2004. http://www.jishin.go.jp/main/chousa/04oct_byoubu/ (2015.01.22)
- 6) Zwinfmann, H., and Nanckeltpw. N., Timing of Alpine fault gouges, *Earth Planetary Science Letters*, vol. 223, 2004, pp.415-425.
- 7) Zwinfmann, H., Manckeltow, N., Antognini, M. and Lucchini, R., Dating of shallow faults : New constraints from the AlpTransit tunnel site (Switzerland), *Geology*, vol.38, 2010a, pp.487-490.
- 8) Zwingmann, H., Yamada, K. and Tagami, T., Timing of brittle deformation within the Nojima fault zone, Japan, *Chemical Geology*, vol. 275, 2010b, pp.176-185.
- 9) 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.
- 10) 安江健一, 浅森浩一, 谷川晋一, 山田国見, 山崎誠子, 國分(齋藤) 陽子, 丹羽正和, 道家涼介, 草野友宏, 花室孝広, 石丸恒存, 梅田浩司, 地質環境の長期安定性に関する研究 年度

- 報告書, 2011, JAEA-Research 2011-023, 2011, 113p.
- 11) 安江健一, 浅森浩一, 丹羽正和, 花室孝広, 國分(齋藤) 陽子, 末岡 茂, 幕内 歩, 生田正文, 松原章浩, 田村 肇, 小堀和雄, 石丸恒存, 梅田浩司, 地質環境の長期安定性に関する研究年度報告書, 2013, JAEA-Research 2013-047, 2013, 109p.
 - 12) 田中謙次, 野村成宏, ポケット型帯磁率計を用いたボーリングコアの定量的評価事例, 第41回地盤工学研究会発表会, 2006.
 - 13) 石渡 明, 佐藤勇輝, 久保田 将, 濱木健成, 磁鉄鉱系・チタン鉄鉱系花崗岩の帯磁率の境界値: 鬼首カルデラ周辺の例, 日本地質学会ホームページ, 2011.
<http://www.geosociety.jp/faq/content0337.html> (2015.01.22)
 - 14) 森尻理恵, 携帯型帯磁率計, 地質ニュース, no. 629, 2007, pp.68.
 - 15) 吉川周作, 近藤洋一, 井内美郎, 帯磁率による「肉眼では識別することのできない火山灰」の検出, 地質学雑誌, vol. 99, 1993, pp.293-296.
 - 16) Ishihara, S., Lateral variation of magnetic susceptibility of the Japanese granitoids, *Journal of Geological Society of Japan*, vol. 85, 1979, pp.509-523.
 - 17) 辻村太郎, 断層地形論考, 古今書院, 1948, 397p.
 - 18) 有井琢磨, 岐阜県岩村付近の断層地形, 新地理, vol.7, 1958, pp.110-121.
 - 19) 森山昭雄, 恵那・中津川盆地の地形発達史, 愛知教育大学研究報告 自然科学, vol. 34, 1985, pp.1-15.
 - 20) 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-岐阜県恵那盆地の例, 地球科学, vol.48, 1994, pp.17-29.
 - 21) 岐阜県, 屏風山・恵那山断層帯に関する調査, 平成 11 年度地震関係基礎調査交付金 成果報告書, 2000. <http://www.hp1039.jishin.go.jp/danso/Gifu5Bfrm.htm> (2015.01.22)
 - 22) 岐阜県, 屏風山・恵那山断層帯に関する調査, 平成 12 年度地震関係基礎調査交付金 成果報告書, 2001. <http://www.hp1039.jishin.go.jp/danso/Gifu5Bfrm.htm> (2015.01.22)
 - 23) 岐阜県, 屏風山・恵那山断層帯に関する調査, 平成 13 年度地震関係基礎調査交付金 成果報告書, 2002. <http://www.hp1039.jishin.go.jp/danso/Gifu5Bfrm.htm> (2015.01.22)
 - 24) 大久保慎人, 青木治三, 池田安隆, 佐々木嘉三, 山崎文人, 浅井康広, 田中俊行, 井川 猛, 大西正純, 猪野 滋, イブロサイス反射法による屏風山断層の構造, 地球惑星科学関連学会 2000 年合同大会予稿集, 2000.
 - 25) 田中俊行, 青木治三, 志知龍一, 井川 猛, 大西正純, 猪野 滋, 屏風山断層の地下構造(その 2), 地球惑星科学関連学会 200 年合同大会予稿集, 2000.
 - 26) 鈴木康弘, 杉戸信彦編, 1:25,000 岐阜県活断層図, 岐阜県, 2010, 138p.

付録 3

ボーリング試料を用いた分析技術に関する共同研究

平成 26 年度共同研究報告書

平成 27 年 1 月

国立大学法人東京大学

独立行政法人日本原子力研究開発機構

目 次

1. 概要	1
1.1 共同研究件名	1
1.2 研究目的	1
1.3 実施期間	1
2. 研究方法	2
2.1 情報収集	2
2.2 試料採取	2
2.3 試料分析	2
2.3.1 粒度分析	2
2.3.2 XRF 分析	2
2.3.3 ESR 測定	3
2.3.4 OSL/TL 測定	3
2.4 技術検討	3
3. 研究成果	4
3.1 情報収集	4
3.1.1 分析手法に関する情報収集・整理	4
3.1.2 既存ボーリングに関する情報収集・整理	6
3.2 試料採取	9
3.2.1 KNG コア	9
3.2.2 OK3 コア	10
3.3 試料分析	12
3.3.1 粒度分析	12
3.3.2 XRF 分析	15
3.3.3 ESR 測定	17
3.3.4 OSL/TL 測定	22
3.4 技術検討	25
4. まとめ	27
引用文献	27

図 目 次

図 3.1-1 後背地解析技術に関する手法の整理.....	6
図 3.1-2 本共同研究で使用する試料を採取した既存ボーリングコアの位置図.....	7
図 3.1-3 OK3 ボーリング地点	7
図 3.1-4 本共同研究で使用する試料を採取した既存ボーリングコアの位置図.....	8
図 3.1-5 KNG ボーリング地点	8
図 3.2-1 KNG コア写真.....	9
図 3.2-2 KNG コア柱状図.....	9
図 3.2-3 OK3 コア写真.....	10
図 3.2-4 OK3 コア柱状図	10
図 3.3-1 粒度分布の例 (滝澤, 2014 ³¹)	12
図 3.3-2 KNG コアの粒度の鉛直変化.....	14
図 3.3-3 OK3 コアの粒度の鉛直変化.....	14
図 3.3-4 検量線の例.....	15
図 3.3-5 KNG コアの XRF 分析結果.....	16
図 3.3-6 濃尾平野周辺の地球化学図	17
図 3.3-7 石英粒子抽出フロー.....	18
図 3.3-8 ESR 波形における各信号の強度の測定.....	19
図 3.3-9 KNG コア (左) 及び OK3 コア (右) の ESR の E_1' 中心信号	19
図 3.3-10 コア試料の Al 及び Ti-Li 中心信号強度の対比	21
図 3.3-11 コア試料の E_1' 中心信号強度	21
図 3.3-12 KNG コア試料の TL 測定結果.....	23
図 3.3-13 OK3 コア試料の TL 測定結果.....	23
図 3.3-14 KNG コア試料の OSL 測定結果.....	24
図 3.3-15 OK3 コア試料の OSL 測定結果.....	24
図 3.4-1 本共同研究におけるボーリング試料を用いた後背地解析手法のフローとノウハウ	26

表 目 次

表 3.2-1 KNG 及び OK3 の試料採取深度.....	11
表 3.3-1 KNG コアの粒度分析結果	13
表 3.3-2 OK3 コアの粒度分析結果	14
表 3.3-3 XRF による KNG コアの元素含有率.....	15
表 3.3-4 KNG 及び OK3 コア試料の Al, Ti-Li, E_1' 中心信号強度	20

1. 概要

1.1 共同研究件名

ボーリング試料を用いた分析技術に関する共同研究

1.2 研究目的

高レベル放射性廃棄物などの地層処分は、人工バリアと天然の地層を適切に組み合わせたシステムによって、数万年以上にも及ぶ極めて長い時間スケールの安全を確保しようとするものである。日本列島は変動帯に位置していることから、諸外国に比べて地殻変動や火成活動などが活発であるため、地層処分事業においては将来の自然現象に伴う地質環境の変動スケールや復元性を把握しておくことが特に重要となる。今後、地層処分の技術的信頼性をさらに高めていくうえでも、実際の地質環境を構成する様々な要素についての過去の変動の履歴や現象プロセスなどを把握するための調査技術を整備するとともに、科学的知見を統合しつつ、三次元的に表現できる数値モデルを開発することは極めて有効となる。このため、独立行政法人日本原子力研究開発機構（以下、「原子力機構」という）が、経済産業省から受託して実施する「地質環境長期安定性評価確証技術開発」では、将来の自然現象に伴う超長期の地質環境の変動を考慮できる数値モデル及びその解析評価に必要な調査技術の研究開発を進めている。この調査技術においては、超長期の自然現象の一つである山地の形成過程に関する情報を取得するための「後背地解析技術の研究開発」を進めている。

この研究開発の一環として本共同研究では、平野や盆地におけるボーリング試料を用いて、堆積物中の岩石や鉱物の地球化学的・物理化学的特徴を把握する分析技術に関する研究開発を行い、後背地解析に有効な手法を検討する。平野や盆地の堆積物には、山地の形成過程に関する情報が記録されていると考えられる。本共同研究では、東濃地域を事例として、その周辺の山地の形成過程に関する情報が記録されていると考えられる濃尾平野や東濃地域の盆地における既存のボーリング試料を用いて研究開発を進める。

1.3 実施期間

平成 26 年 7 月 1 日～平成 27 年 1 月 30 日

2. 研究方法

本共同研究では、平野や盆地からボーリングによって採取された未固結堆積物を用いた後背地解析技術の構築に必要な分析技術の検討を行う。実施にあたっては、古くから後背地の研究が行われている地域の一つである東濃地域周辺を事例に、既存ボーリング試料を用いて、地球化学・物理化学などの特徴を把握する分析を行う。また、得られた分析結果に基づいて、後背地解析におけるボーリング試料を用いた分析技術について検討するとともに、今後の技術開発要素について示す。

2.1 情報収集

堆積物を用いて後背地を解析する手法について、最近の研究成果などの情報を収集し、その特徴を整理する。また、東濃地域周辺において、本共同研究に有効と考えられるボーリング試料に関する既存情報を収集し、供給源の推定の観点から情報を整理する。これらの情報から後背地の解析に有効な指標などについて検討する。収集した情報については、図表を用いて整理する。

2.2 試料採取

2.1 の情報を踏まえて、既存のボーリングコアから分析に必要な試料を採取する。その際、採取した試料の堆積環境を把握するためにコアの観察・記載と写真撮影を行う。必要に応じて、比較検討などに用いる試料を露頭から採取する。

2.3 試料分析

2.2 で採取した試料を用いて、粒径の違いを把握する粒度分析、堆積物の地球化学的特徴を把握する蛍光 X 線元素 (X-ray Fluorescence: 以下「XRF」という) 分析、風化に強く堆積物中に普遍的に存在する石英の物理化学的特徴を把握する電子スピン共鳴 (Electron Spin Resonance: 以下、「ESR」という) 測定・光ルミネッセンス (Optically Stimulated Luminescence: 以下、「OSL」という) 測定を実施する。

2.3.1 粒度分析

装置名：島津製作所製 SALAD-3000S

レーザー回折 (laser diffraction) 式粒度分布測定法は、単色のレーザー光線を粒子に照射すると、粒子の大きさに応じた回折光と散乱光が様々な方向へ発せられることを利用したものである。粒子径が小さいほど回折・散乱光の進路が広がる原理を応用し、回折・散乱光の分布をもとに、粒子径を推定する。簡便で、乾式・湿式ともに測定可能であり、特に、0.05 μm から 3000 μm まで広範囲の粒径を同時測定できる点は、砂や泥を含む自然堆積物の分析に適している。本共同研究では、超音波で粒子を十分ほぐすことが容易な湿式法によって測定を行う。

2.3.2 XRF 分析

装置名：リガク製 ZSX-PRIMUS II

XRF 分析法は、一定以上のエネルギーをもつ X 線を元素に照射することによって、元素ごとに固有の蛍光 X 線が発生することを利用した非破壊による元素分析の手法である。測定試料を構成する元素の蛍光 X 線の強度を測定することにより、測定試料中の目的元素の濃度を求めることができる。対象元素は実用的にはナトリウム (以下「Na」という) ($Z = 11$) 以上の原子番号を持つ元素である。XRF 装置は、エネルギー分散型分析装置 (Energy Dispersive X-ray

Fluorescence Spectrometer: EDS) と波長分散型分析装置 (Wavelength Dispersive X-ray Fluorescence Spectrometer: WDS) に大別される。結晶分光器を用いてエネルギー分析を行う WDS の方が高分解能で、主成分元素の分析精度が高いことから、本共同研究では WDS を採用する。

2.3.3 ESR 測定

装置名：日本電子製 JES-X320

ESR 法では、物質中にある不対電子の磁気的な性質を測定し、不対電子の定量、構造、電子状態などを知ることができる。不対電子とは、原子や分子の電子軌道中で対になっているスピン方向が異なる電子が、放射線や化学反応によって離れた単独の電子のことである。この不対電子が不純物などに捕獲されたものが捕獲電子である。測定試料は、固体、液体、気体と多くの物質が対象となるが、本共同研究においては、堆積物中に普遍的に存在し、風化に強い石英を測定試料として用いる。

2.3.4 OSL/TL 測定

装置名：Riso 製 TL/OSL DA-20

OSL 法や熱ルミネッセンス (Thermoluminescence: 以下、「TL」という) 法などのルミネッセンス法では、石英や長石などの鉱物に蓄積された捕獲電子が光や熱の刺激により再結合する際に発光し、リセットされる現象を利用している。この発光量は天然の放射線による被ばく線量(時間)に応じて増加することから、鉱物に蓄積された線量を測定し、それを単位時間当たりの年間線量で除することで、過去に捕獲電子がリセットされた年代を求めることができるため、堆積物の年代測定などに適用されている。本共同研究においては、ESR 測定と同様に堆積物中に普遍的に存在し、風化に強い石英を測定試料として用いる。

2.4 技術検討

2.1～2.3 の結果に基づいて、後背地解析におけるボーリング試料を用いた分析技術について検討する。また、本共同研究において検討した技術のフロー図の作成やノウハウなどの整理を行う。さらに、検討した技術の問題点や課題を抽出する。

3. 研究成果

3.1 情報収集

3.1.1 分析手法に関する情報収集・整理

堆積物から後背地を解析する分析手法について、主に平成 24 年度の学会における講演などから最新の研究に関する情報を収集・整理した。

(1) 砕屑粒子の化学組成を指標とした手法

日本列島における中・古生代などの後背地解析に以前からザクロ石を用いた研究が多く行われており（例えば、竹内, 2000¹⁾）、最近でも四万十帯のうち最も若い付加体（中期始新世～前期中新世）においてザクロ石の化学組成を指標とした後背地解析の研究が行われている（別所, 2014²⁾）。また、XRF 分析と記載岩石学的検討によって主要・微量元素組成を求めて、琴ヶ浜の海浜砂とその給源候補となる地質体を比較し、琴ヶ浜の鳴り砂が久利層凝灰岩を出発点として古砂丘・鳴り砂へと至る混合と成熟の過程が示された（林ほか, 2014³⁾）。海浜砂に代表されるように、元素が鉱物態のまま安定した砕屑物粒子として運搬される場合は、XRF 分析が後背地解析に有用である。古川ほか（2014a⁴⁾, b⁵⁾）は日本海東縁の海底堆積物のクロム、ニッケル濃度に着目し、北アルプス姫川・青海川流域の蛇紋岩体起源であること、これらの濃度変動が夏季モンスーン強度変動と調和的であること、その理由として夏季豪雨による斜面崩壊が北アルプスの陸源物質フラックスを増加させてきた可能性が高いことを報告した。

襖七筋、湖の堆積物中の ¹⁰Be とストロンチウム（以下「Sr」という）、ネオジウム（以下「Nd」という）の同位体比を用いて、集水域起源物質と大陸由来物質（例えば、風成塵）の影響の違いの検討が可能であり、琵琶湖の例では集水域からの砕屑物流入が少なく、集水域に降下した風成塵を多く含んでいることが示唆された例などがある（内藤ほか, 2014⁶⁾）。また、¹⁰Be 濃度と高精度のデジタル地表モデル（DTM）を用いた地形解析とを比較し、山地流域の土砂移動現象を定量的に評価する研究も行われている（池見ほか, 2014⁷⁾）。

(2) 法地質学における供給源推定の手法

法地質学に応用する目的で花崗岩の化学的特徴から風化物の供給源を推定することが可能であり、その手法が堆積物の後背地解析にも応用できる可能性が示されている（Hiraoka, 1997a⁸⁾, b⁹⁾）。法地質学とは、法医学と同じく、法律の運用の際に重要な事項について、地質学的な研究・解釈・鑑定を行う学問分野であり、地学全般の知識を総動員し、地質学というテクニックを駆使して犯罪捜査に貢献する（北村, 2013¹⁰⁾）。法地質学では、岩石・鉱物及びこれらに由来する土砂や道路の堆積物などの天然物に加え、植物や人工物も扱う（杉田, 2014a¹¹⁾）。その際、土砂の鑑定では、色調検査、粒度分析、顕微鏡観察、X 線回折による鉱物同定などを行うため、土砂資料の法科学的異同識別の方法が検討されている（杉田, 2014b¹²⁾）。

(3) 信号特性を利用した手法

鉱物中の放射線損傷量を推定する手法である ESR 法、TL 法及び OSL 法を用いた後背地解析は以前から検討されている（例えば、Tsukamoto et al., 2011¹³⁾; 高田, 2010¹⁴⁾）。これらの物理化学的手法は、堆積物中の砕屑粒子及び後背地の岩体に含まれる石英結晶の特性の違いを比較することで、砕屑物の供給源を推定する。近年では、それらの手法を用いて、現河床堆積物の供給源を推定するための基礎研究も試みられている（Sawakuchi et al., 2011¹⁵⁾; Shimada et al., 2013¹⁶⁾; 野曾原ほか, 2014¹⁷⁾; Yoshida et al., 2014¹⁸⁾）。Shimada et al. (2013)¹⁶⁾は、複数の ESR

信号強度と熱ルミネッセンスカラー画像 (TLCI) を組み合わせることで、より詳細な後背地解析が可能であることを示した。さらに、堆積物中の石英の ESR 信号と TL 信号に加え、SEM-EDS による石英の微小領域の化学組成を指標として、現河床堆積物とその供給源の岩体を比較する研究が行われている (Shimada et al., 2014¹⁹)。

類似の手法として、花崗岩、変成岩、堆積岩などに含まれる様々な石英のカソード・ルミネッセンス (以下、「CL」という) 像の観察から、石英の CL 像が後背地解析に利用可能であることが示されている (Zinkernagel, 1978²⁰)。しかし、石英の CL 像の組織や発光色からは必ずしも各源岩特有の特徴の存在が保証されないため、源岩の判別は部分的にしか成功していない (中山・太田, 2014²¹)。中山・太田 (2014) ²¹) は、石英の CL 像の組織の特徴と CL のスペクトル型の特徴から、各岩石種の石英を識別できることを明らかにし、砕屑物中の石英粒子に対してより確度の高い後背地解析が可能となることを示した。

これら物理化学的手法の利点は、測定が比較的簡便であり、測定試料として石英を用いるため、汎用性が高いことである。しかし、これまでの研究では主に現世の堆積物での適用により手法開発が進められてきたことから、山地形成プロセスの解明などに適用するためには、より古い堆積物での検討が必要である。また、その際には供給源と考えられる岩体を構成する石英の信号との対比が必要となる。さらに、より詳細な後背地解析に向けて、ESR、TL、OSL、CL の信号などの複数の指標を組み合わせた適用の検討が望まれる。これらの物理化学的手法は、日本列島における山地形成プロセスの解明に適用できる汎用性の高い後背地解析技術の一つと考えられることから、手法の確立が望まれる。

(4) その他の手法

古くから行われている礫を用いた手法は、最近でも適用されており、多摩川を例にして堆積物中の礫の径や円磨度の違いから氷期と間氷期の河成段丘形成プロセスの違いを明らかにする試みがなされている (高橋・白井, 2014²²)。

堆積物のうち、砂以下の細粒層に関しても、沿岸域の海脚上で掘削された海底コアの粒度分析によって、後背地における堆積物供給の活発さや堆積場の変遷を復元しうる。滝澤ほか (2014) ²³) は、砕屑物粒子径は氷期の低海水準期に細粒化し、間氷期の高海水準期に粗粒化すること、また急激な海面上昇期には内湾奥に河川源堆積物がトラップされるため、粗粒化は海面上昇よりも数千年遅れ、それを用いて海面上昇期に内湾が拡大した流域とそうでない流域の影響を評価しうることを報告している。

また、堆積物はその源岩や堆積環境によってカリウム (以下「K」という)、トリウム (以下「Th」という) 及びウラン (以下「U」という) を含む鉱物の含有量が変化しうる。片岡・竹内 (2014) ²⁴) は、ガンマ線を利用した簡便な後背地解析手法の開発のため、K や Th のガンマ線を利用して後背地の地質と砕屑物組成の関係を検討している。

以上の情報を踏まえて、日本原子力研究開発機構 (2014) ²⁵) において整理された後背地解析技術を改訂する。岩石・複数鉱物の組成的特徴を把握する技術に「ガンマ線」、単一鉱物の信号特性を把握する技術に「CL」を加筆した (図 3.1-1)。

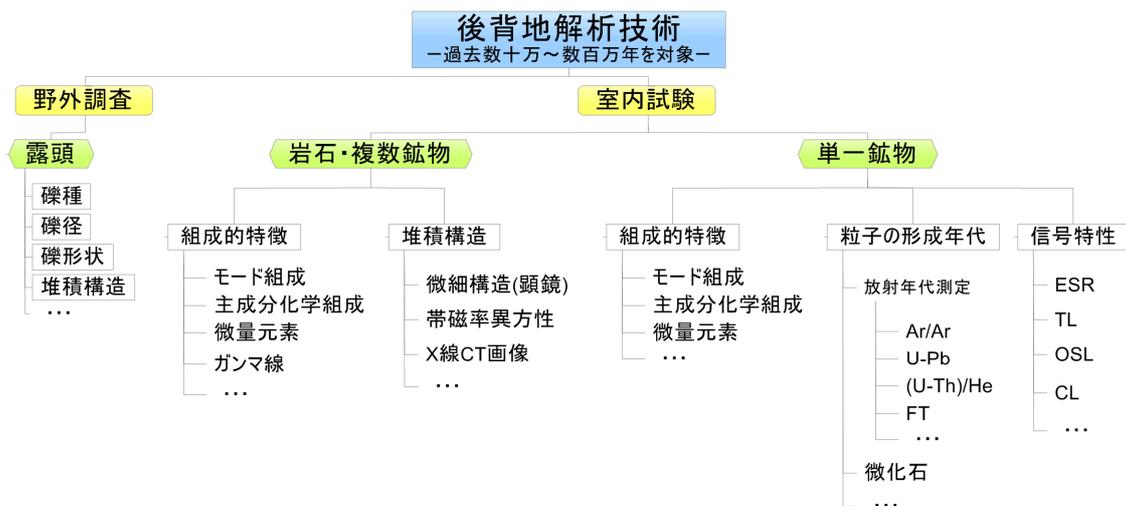


図 3.1-1 後背地解析技術に関する手法の整理
日本原子力研究開発機構 (2014) ²⁵⁾に加筆。

3.1.2 既存ボーリングに関する情報収集・整理

東濃地域を流れる庄内川（土岐川）の下流域において、庄内川の北方約 2.5 km 地点の沖積平野で掘削された KNG コア（野原ほか, 2008²⁶⁾; 図 3.1-4、図 3.1-5）が、氷期と間氷期における後背地からの供給粒子の違いを検討する上で有効な試料である。また、この地点は濃尾平野の中でも東側の丘陵・山地に近い地点に位置しており、丘陵・山地部を流れてきた庄内川が流域に分布する岩体の碎屑粒子を堆積させやすい地点と考えられる。しかし、約 14 km 北方を流れる木曾川によって形成された犬山扇状地の下流延長に位置している点に注意が必要である。

次に、庄内川の上流域においては、過去数十万年程度の堆積物を連続的に採取したボーリングとして大湫盆地（図 3.1-2）における研究があり、ボーリングコアを用いた各種分析から過去 30 万年間の古気候変動（佐々木ほか, 2006²⁷⁾）、植生変遷（守田ほか, 2006²⁸⁾）、古環境変遷（佐藤ほか, 2014²⁹⁾）などの解明とともに、有機炭素含有率の推定手法の開発（佐々木ほか, 2010³⁰⁾）などが行われてきた。大湫盆地では、このように様々な研究が行われ多くの分析データが得られていることから、それらと併せて検討を進めることができる。また、大湫盆地は小起伏面上で閉塞した小盆地であり（図 3.1-3）、そこに堆積している堆積物のほとんどは狭い流域から供給されたものと考えられる。流域の基盤地質は単純であり、南西側に花崗岩、北東側に濃飛流紋岩が分布し、一部に美濃帯が分布する。そのため、供給源の岩体の地質を想定しやすく、後背地解析技術の開発に有効な堆積物と考えられる。

本共同研究では、KNG コアと複数ある大湫ボーリングの内の OK3 コアを使用する。

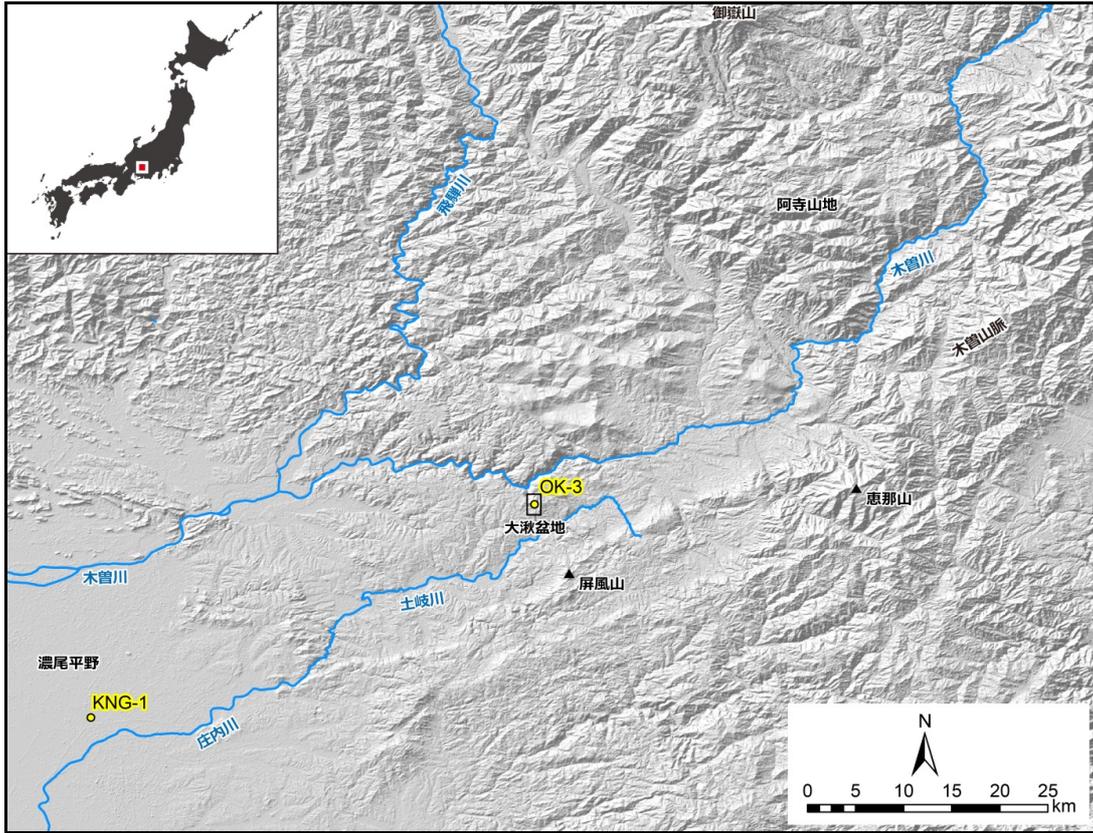


図 3.1-2 本共同研究で使用する試料を採取した既存ボーリングコアの位置図
 陰影図については、ASTER Global Digital Elevation Model (ASTER GDEM) version 2 を元データとし、ArcGIS を用いて作成した。

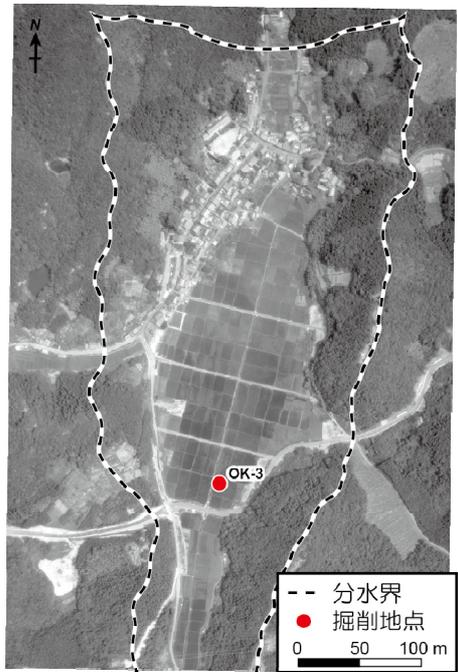


図 3.1-3 OK3 ボーリング地点
 空中写真は 1980 年国土地理院撮影。

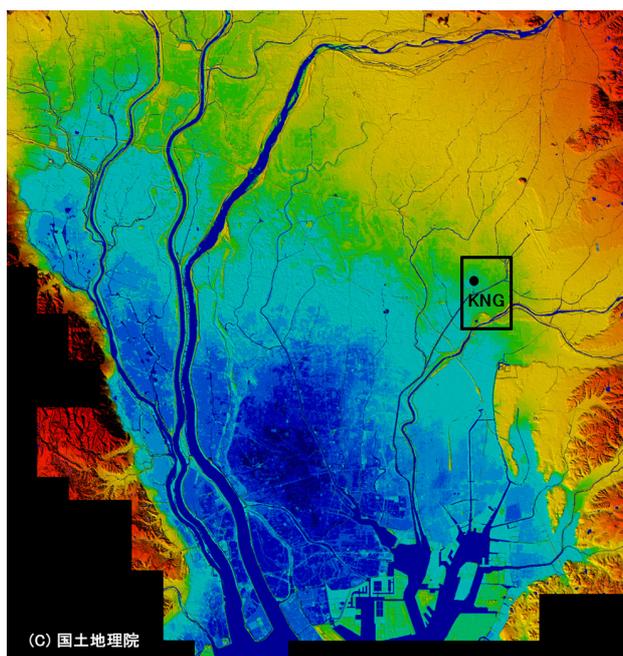


図 3.1-4 本共同研究で使用する試料を採取した既存ボーリングコアの位置図
 国土地理院ホームページ掲載の航空レーザ測量によるカラー陰影段彩図（濃尾平野）を使用した
 （KNG 地点と図 3.1-5 の範囲を加筆）。



図 3.1-5 KNG ボーリング地点
 空中写真は 2004 年国土地理院撮影（CCB2004 IVC7-17）に加筆。

3.2 試料採取

3.2.1 KNG コア

主に砂と砂礫層から構成される長さ 25.1 m のコアである（図 3.2-1、図 3.2-2）。地表付近から深度約 10 m までは、主に中～細砂の層が分布し、2 m 以浅では一部に腐植質の粘土を含む。深度約 10 m より深部では主に砂礫層が分布し、所々に中～細砂の層が分布する。深度 14.2～16.3 m には火山灰質の中砂～シルトを挟む。このコアから以下の分析に必要な試料を採取した（表 3.2-1）。

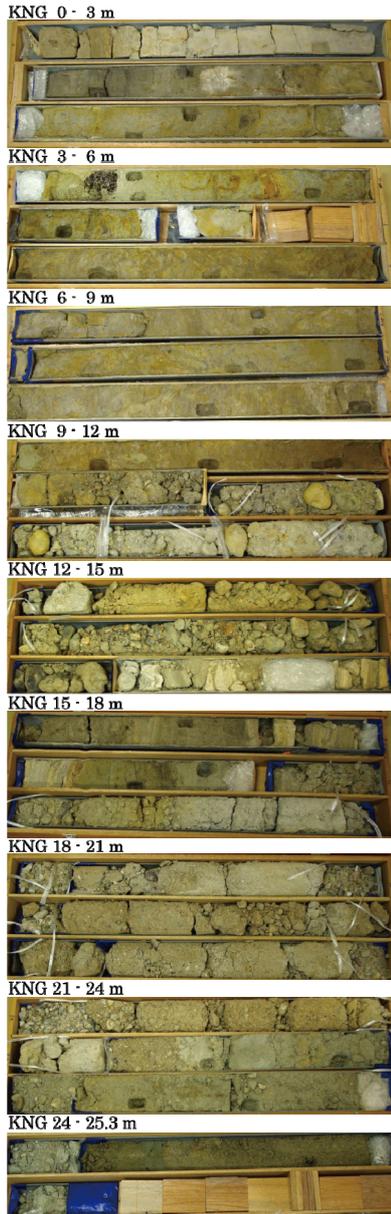


図 3.2-1 KNG コア写真

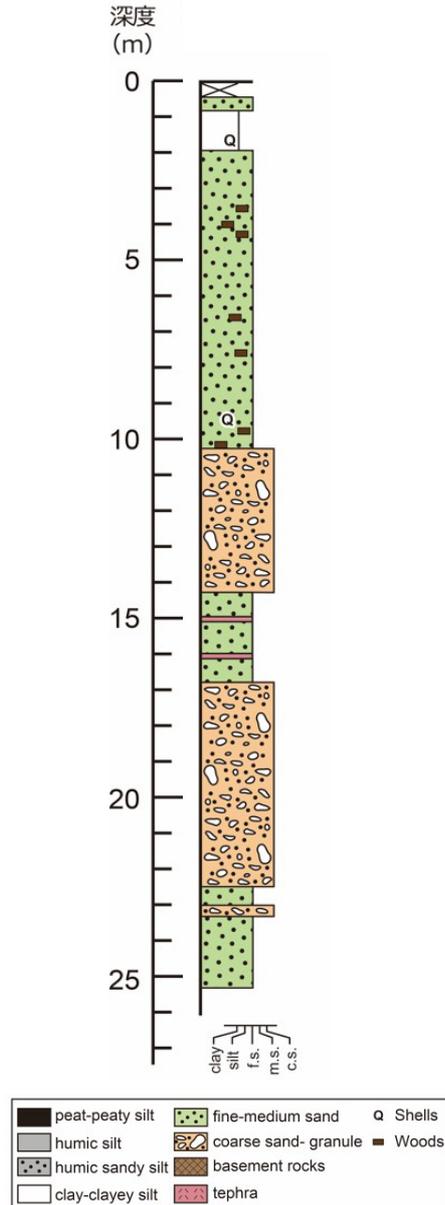


図 3.2-2 KNG コア柱状図

3.2.2 OK3 コア

主に泥炭～有機質シルト層、無機質粘土～シルト層、砂礫層から構成される長さ 26.0 m のコアである（図 3.2-3、図 3.2-4）。地表付近 0.5 m 程度は現在の水田耕作土と盛土である。深度 0.5～21 m は、主に泥炭～有機質シルト層と無機質粘土～シルト層との互層であり、所々に砂礫層、砂層、テフラを挟む。深度 2.2～2.3 m 付近に AT、深度 7.0～7.2 m 付近に K-Tz、深度 7.6～7.7 m 付近と深度 8.9～9.0 m 付近に未詳のローカルテフラ、深度 16.3-16.4 m 付近に hpm1、深度 20 m 付近に Tky-Ng1 を挟む。深度 21～25 m は主に砂礫層が分布し、その間に 1.5 m 程のシルト～粘土を挟む。深度約 25 m 以深は風化した基盤岩である。このコアから以下の分析に必要な試料を採取した（表 3.2-1）。

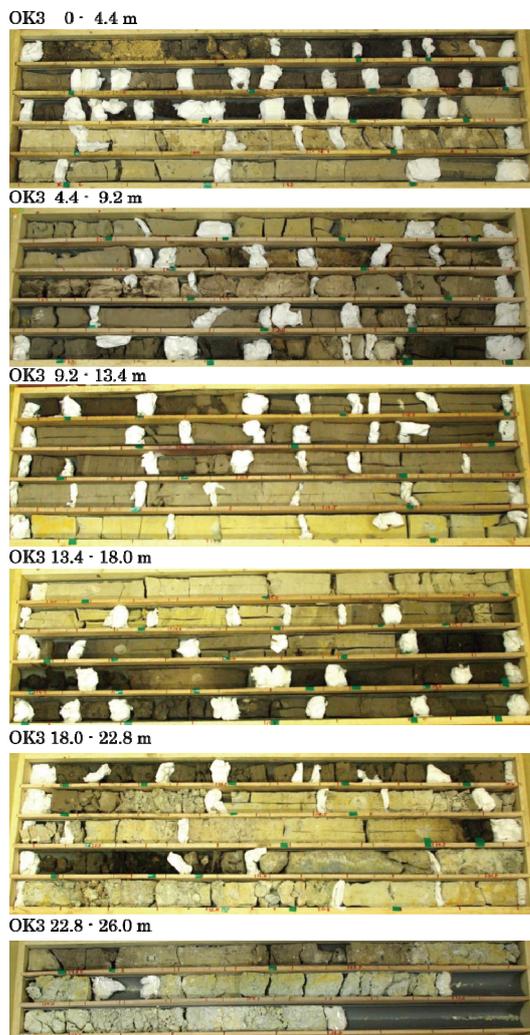


図 3.2-3 OK3 コア写真

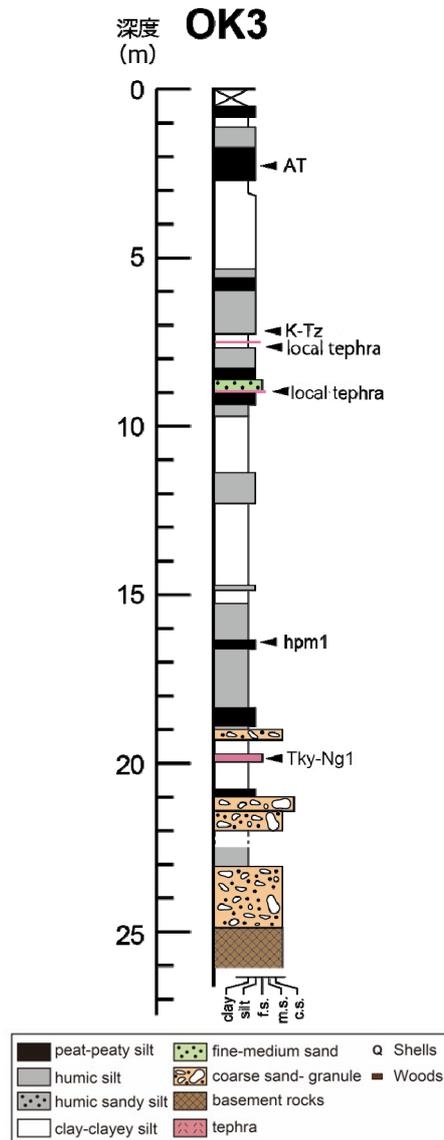


図 3.2-4 OK3 コア柱状図

表 3.2-1 KNG 及び OK3 の試料採取深度

Sample	depth(m)	粒度分析	XRF	ESR	TL	OSL
	0.76 ~ 0.81		○			
KNG-1	0.95 ~ 1.10	○				
KNG-2	1.55 ~ 1.60	○		○	○	○
	2.45 ~ 2.50	○	○			
KNG-3	2.55 ~ 2.60	○				
	3.30 ~ 3.35	○	○			
KNG-4	3.50 ~ 3.55	○		○	○	○
	3.80 ~ 3.85	○	○			
	4.10 ~ 4.15	○	○			
KNG-5	4.45 ~ 4.50					
	4.55	○				
	5.20 ~ 5.25	○	○			
KNG-6	5.55 ~ 5.60	○				
KNG-7	6.50 ~ 6.55	○				
	6.65 ~ 6.70	○	○			
	7.20 ~ 7.25	○	○			
KNG-8	7.50 ~ 7.55	○		○	○	○
	7.90 ~ 7.95	○	○			
	8.50 ~ 8.55	○	○			
KNG-9	8.57 ~ 8.63	○				
	8.90 ~ 8.95	○	○			
	9.20 ~ 9.25	○	○			
KNG-10	9.45 ~ 9.50	○				
	9.50 ~ 9.55	○	○			
	9.85 ~ 9.90	○	○			
	10.10 ~ 10.15	○	○			
KNG-11	10.63 ~ 10.68	○		○	○	○
KNG-12	11.70 ~ 11.75	○				
KNG-13	12.45 ~ 12.50	○		○		
KNG-14	13.48 ~ 13.53	○				
	14.45 ~ 14.50	○	○			
KNG-15	14.65 ~ 14.70	○		○	○	○
	15.45 ~ 15.50	○	○			
KNG-16	15.50 ~ 15.55	○				
	16.30 ~ 16.35	○	○			
KNG-17	16.45 ~ 16.50	○				
	16.50 ~ 16.55	○	○			
KNG-18	17.38 ~ 17.43	○				
	18.46	○				
KNG-19	18.47 ~ 18.53			○	○	○
KNG-20	19.37 ~ 19.42	○				
KNG-21	20.43 ~ 20.48	○		○	○	○
KNG-22	21.40 ~ 21.45	○				
	22.45 ~ 22.50	○	○			
KNG-23	22.70 ~ 22.75	○		○	○	○
	22.80 ~ 22.85	○	○			
	23.35 ~ 23.40	○	○			
KNG-24	23.53 ~ 23.58	○				
	23.55	○				
	23.65 ~ 23.70		○			
	23.85 ~ 23.90	○	○			
KNG-25	24.50 ~ 24.55	○		○	○	○
	24.75 ~ 24.80	○	○			

Sample	depth(m)	粒度分析	XRF	ESR	TL	OSL
OK3-1	0.70 ~ 0.90	○				
OK3-2	1.00 ~ 1.20	○				
OK3-3	1.60 ~ 1.90	○				
OK3-4	3.80 ~ 3.95	○				
OK3-5	4.82 ~ 4.95	○				
OK3-6	6.05 ~ 6.25	○				
OK3-7	7.20 ~ 7.30	○				
OK3-8	8.22 ~ 8.38	○		○		
OK3-9	9.35 ~ 9.50	○				
OK3-10	10.24 ~ 10.40	○				
OK3-11	11.50 ~ 11.70	○				
OK3-12	12.31 ~ 12.38	○				
OK3-13	13.01 ~ 13.11	○				
OK3-14	14.40 ~ 14.50	○				
	14.94	○				
OK3-15	15.40 ~ 15.53	○		○	○	○
OK3-16	15.94 ~ 16.08					
OK3-17	16.33 ~ 16.43	○				
	16.63	○				
OK3-18	16.65 ~ 16.73					
OK3-19	16.95 ~ 17.02	○				
OK3-20	17.58 ~ 17.72	○				
OK3-21	18.90 ~ 19.00	○				
OK3-22	19.41 ~ 19.50	○				
	20.40					
OK3-23	20.40 ~ 20.47	○				
OK3-24	21.28 ~ 21.40	○				
OK3-25	22.73 ~ 22.81	○				
OK3-26	23.00 ~ 23.08	○				
OK3-27	23.18 ~ 23.28	○				
OK3-28	23.35 ~ 23.40	○		○	○	○
OK3-29	24.80 ~ 24.90	○				

3.3 試料分析

3.3.1 粒度分析

(1) 試料調製法

KNG コアから 49 試料、OK3 コアから 27 試料を直接採取して、粒度分析装置の湿式サンプラー（小型水槽）に投入し、攪拌棒と超音波によって、試料を分散させた後、ポンプで装置内を循環させた。粒子に照射されたレーザー光の回折・散乱分布状態はリアルタイムで検出され、粒度分布をモニターで確認できる。

分布が安定化した段階で計測を開始した。中砂以上のサイズの堆積物が多く含まれる場合には分布が安定化しにくいいため、ポンプ出力をあげて粒子の循環を促すとともに、レーザー照射時間を長めに設定して、試料の代表性・再現性が確保されるようにした。

(2) レーザー回折式粒度分析結果

自然界に存在する堆積物の粒度分布（粒度組成）は、一般に対数正規分布を示すことが知られている。このため、堆積物の粒径 d [mm] を式： $d = 2^{-\phi}$ によって対数変換し、 ϕ スケールで表現することが多い。

ϕ スケールによって粒度分布を表現した例を図 3.3-1 に示す。横軸の ϕ は、数値が大きくなるほど細粒になる点に注意が必要である。KNG コアおよび OK3 コアの粒度分析結果をそれぞれ表 3.3-1 と表 3.3-2 に示す。

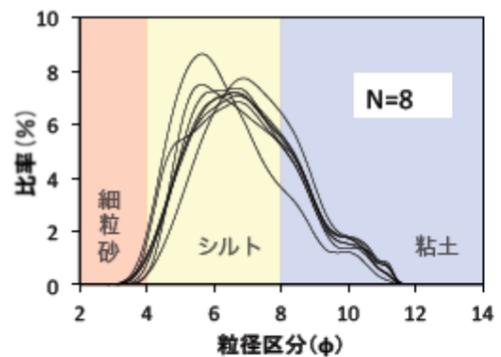


図 3.3-1 粒度分布の例（滝澤, 2014³¹⁾）

(3) 後背地解析に関する検討

粒度特性は、堆積物を特徴づける最も基本的な情報のひとつであり、他の情報を解釈するうえで重要である。粒度情報単独であっても、同時代に堆積した堆積物の粒度の地理的分布をもとに、堆積物の主たる移動方向を復元しうる。また、堆積物の粒度の淘汰度（sorting または deviation）に着目することによって、堆積物の運搬プロセスをある程度推定できる。一般に、風、海浜（波）、河川、氷河の順で淘汰度が悪くなる。本共同研究では、単独のコア掘削地点における粒度特性を明らかにした段階であるため、シーケンス層序学的視点から、コア掘削地点の堆積環境を踏まえて、以下のような後背地解析に関する予察ができる。

KNG コアにおいては、コア深度 10 m 付近から 2 m 付近にかけて、上方粗粒化傾向と淘汰傾向（25%、50%、75%の粒度の差異が縮小する傾向）が明瞭である（図 3.3-2）。この層準は、次に述べる XRF による硫黄含有率から海成層と判断されることを踏まえると、内湾を埋積する前進性デルタ堆積物・プロデルタからデルタフロントへの移行過程を示していると解釈できる。そして、この堆積層の上位には、わずか層厚 2 m 程度の細粒な河川氾濫原堆積物が堆積し、地表面（盛土層）となっている。したがって、現在の KNG コア周辺の地形面の大雑把な形状を形成しているのが、この上方粗粒化層であると推定できる。それゆえ、デルタ堆積物の主たる後背地は土岐川流域と推定できる。コア深度 10~14 m の粗粒な砂礫層は低海水準期の堆積物で、谷口から距離を踏まえると、土岐川（庄内川）の供給物を主とする可能性が高い。これ以深の堆積物に関しては、堆積当時の古地形情報が不十分なため、粒径のみから後背地を特定することは困難である。ただし、コア深度 23~25 m の淘汰の良い砂層は、上述したコア深度 4~2 m 付近のデルタフロント堆積物と類似しており、ひとつ前の海水準上昇期（最終間氷期）の前進性デルタ堆積層の最上部である可能性もある。

OK3 コアにおいては、粒度分布は安定的であり、シルト画分が卓越していることから、堆積環

境に大きな変動が生じなかったことを強く示唆する（図 3.3-3）。本コアには、まれに粗粒な砂層の薄層が挟在する（図 3.2-4）。粒度分析時には、これらの層は採取済み、もしくは、堆積構造が不明瞭であったため、粒度分析結果と共に示した柱状図には反映されていない。粒度変化の全体的傾向をみると、コア深度 24 m 付近から細粒層の堆積が始まり、およそ 7φ から 6φ へ徐々に上方粗粒化している。このことは、この小規模閉塞盆地がある時期に堆積場が変わり、おそらく湛水して、その後、徐々に盆地の埋積が進んできたことを示している。粗粒層は盆地を取り巻く集水域斜面からの土砂流入が間欠的に生じた可能性を示唆する。

表 3.3-1 KNG コアの粒度分析結果

KNG Core depth cm	Grain size (φ scale)					composition (%)				
	25%	50% (median)	75%	mean size	deviation	coarse sand	medium sand	fine sand	silt	clay
95	5.3	6.3	7.6	6.2	1.7	-	-	3.9	75.9	20.2
155	5.2	6.2	7.5	6.1	1.6	-	-	3.9	78.6	17.5
245	0.9	1.4	2.3	1.5	1.5	2.4	67.6	18.6	11.4	-
255	0.6	0.9	1.6	1.3	1.7	1.5	79.0	6.7	12.8	-
330	0.7	1.1	1.4	0.9	0.7	2.2	89.0	7.8	1.0	-
350	0.7	1.1	1.5	0.9	0.7	2.3	87.8	9.3	0.7	-
380	1.1	1.4	1.7	1.1	0.6	1.7	87.7	10.6	0.0	-
410	1.1	1.5	1.9	1.2	0.8	3.0	77.1	19.0	1.0	-
455	0.5	1.1	1.8	1.2	1.5	5.7	73.6	12.0	8.7	-
520	2.0	3.0	4.3	3.1	1.9	0.0	24.2	46.2	25.9	3.6
555	3.1	4.2	5.7	4.4	2.2	-	3.3	42.6	43.3	10.8
650	3.0	4.1	5.7	4.4	2.3	-	3.7	44.5	40.4	11.4
665	2.9	3.8	5.1	3.9	1.9	-	7.5	48.5	38.0	6.0
720	2.7	3.6	4.6	3.5	1.8	0.0	13.3	49.1	33.5	4.2
750	3.2	3.9	5.3	4.3	2.1	-	0.8	51.9	36.9	10.4
790	2.6	3.2	4.1	3.3	1.6	-	9.6	64.2	23.1	3.1
850	3.3	3.9	5.0	4.1	1.6	-	1.0	52.3	42.0	4.7
857	3.3	3.8	4.8	4.0	1.8	-	0.7	56.9	37.6	4.7
890	4.0	4.9	6.4	5.0	1.8	-	0.0	26.1	64.0	9.9
920	3.6	4.6	6.3	4.8	2.0	-	0.6	34.7	54.5	10.2
945	3.4	4.3	6.0	4.7	2.2	-	0.4	42.9	44.6	12.2
950	3.4	4.4	6.0	4.6	1.9	-	0.6	40.8	49.6	9.0
985	3.6	5.0	6.6	4.8	2.4	0.3	12.0	18.8	56.2	12.7
1010	3.7	4.6	6.1	4.8	1.9	0.0	0.4	33.9	55.7	10.0
1063	0.1	0.3	0.5	0.1	0.4	12.0	87.9	0.1	-	-
1175	0.3	0.6	0.9	0.4	1.2	14.1	80.8	1.3	3.8	-
1245	0.5	0.7	1.0	0.5	0.4	1.0	97.8	1.1	0.1	-
1348	0.2	0.5	0.7	0.3	1.1	8.1	89.1	0.3	2.5	0.0
1445	1.4	2.0	5.1	3.0	2.5	0.3	48.9	15.6	29.2	5.9
1465	0.9	1.3	1.6	1.0	0.9	2.5	89.0	6.5	1.9	0.0
1545	1.6	1.9	2.3	2.1	1.7	0.0	62.5	26.3	7.0	4.2
1550	1.4	1.7	2.1	1.7	1.5	1.0	68.2	22.5	6.6	1.7
1630	3.1	4.9	7.2	5.0	2.4	0.0	3.7	34.9	44.6	16.8
1645	0.5	0.8	1.3	1.0	1.6	1.3	83.7	4.8	10.2	-
1650	0.4	0.6	1.1	0.7	1.2	6.1	84.5	4.4	5.1	-
1738	0.6	0.8	1.7	1.5	2.3	1.1	78.8	5.1	11.1	3.9
1846	0.1	0.4	0.6	0.1	0.4	13.3	86.7	0.1	-	-
1937	0.1	0.3	0.5	0.1	0.5	12.0	87.8	0.0	0.2	0.0
2043	0.3	0.5	0.7	0.2	0.4	6.0	93.6	0.4	-	-
2140	0.2	0.4	0.7	0.2	0.5	8.6	90.7	0.7	-	-
2245	5.2	6.4	8.0	6.3	1.9	0.0	0.0	6.2	69.1	24.7
2270	0.8	1.1	1.3	0.9	1.0	2.0	92.9	3.0	2.0	0.1
2280	0.9	1.2	1.5	1.0	1.2	2.2	88.2	6.7	2.8	0.1
2335	0.3	0.6	0.8	0.3	0.4	6.2	93.1	0.7	-	-
2353	0.3	0.6	0.9	0.3	0.5	7.5	91.6	0.8	0.1	-
2355	0.7	1.4	4.9	2.6	3.3	2.3	62.2	8.2	14.0	13.3
2385	0.3	0.5	0.8	0.2	0.4	6.7	92.9	0.4	-	-
2450	0.6	1.0	1.4	0.7	0.6	2.7	90.4	6.8	0.2	-
2475	0.4	0.7	1.0	0.4	0.5	5.9	92.2	1.9	-	-

表 3.3-2 OK3 コアの粒度分析結果

OK3 core depth cm	Grain size (ϕ scale)					composition (%)				
	25%	50% (median)	75%	mean size	deviation	coarse sand	medium sand	fine sand	silt	clay
70	4.8	5.6	7.0	5.7	1.6	-	-	6.0	80.6	13.4
100	5.4	6.7	8.1	6.5	1.8	-	-	2.5	70.8	26.7
160	4.6	5.5	6.8	5.6	1.6	-	-	8.5	79.6	11.8
380	5.5	6.7	8.0	6.5	1.7	-	-	2.3	72.1	25.7
482	5.7	6.9	8.2	6.7	1.7	-	-	0.7	70.1	29.2
605	5.3	6.5	8.0	6.4	1.7	-	-	2.3	73.4	24.2
720	5.2	6.2	7.5	6.1	1.6	-	-	3.1	79.4	17.4
822	4.7	5.3	6.4	5.4	1.5	-	-	7.6	84.2	8.2
935	5.1	6.6	8.1	6.4	1.9	-	-	5.4	67.7	26.9
1024	5.1	6.0	7.4	6.0	1.6	-	-	2.5	80.2	17.3
1150	4.9	5.8	7.1	5.8	1.6	-	-	6.2	80.0	13.8
1231	5.4	6.3	7.6	6.3	1.6	-	-	2.2	78.9	19.0
1301	5.6	6.8	8.1	6.6	1.6	-	-	1.2	72.9	25.9
1440	5.5	6.5	7.6	6.4	1.5	-	-	1.7	80.0	18.3
1494	5.8	6.9	8.1	6.7	1.6	-	-	0.5	72.0	27.5
1540	5.6	6.8	8.2	6.7	1.7	-	-	0.9	70.7	28.5
1633	5.2	6.4	8.0	6.4	1.8	-	-	2.8	71.8	25.4
1663	5.3	6.5	8.0	6.4	1.8	-	-	2.3	72.6	25.1
1695	5.2	6.3	7.7	6.3	1.7	-	-	2.7	75.7	21.6
1758	5.5	6.8	8.1	6.6	1.7	-	-	0.9	72.1	27.0
1890	5.7	7.1	8.4	6.8	1.7	-	-	0.6	67.2	32.2
1941	5.9	7.2	8.7	7.1	2.0	-	-	0.5	62.7	36.8
2040	5.5	6.7	8.2	6.6	1.8	-	-	2.3	69.4	28.3
2128	5.4	6.7	8.2	6.5	1.9	-	0.0	6.5	65.7	27.8
2273	6.1	7.4	8.6	7.1	1.7	-	-	0.3	62.3	37.5
2300	5.1	6.1	7.7	6.2	1.8	-	-	3.8	75.2	21.0
2318	5.4	6.6	8.1	6.5	1.8	-	-	3.6	69.9	26.5
2335	4.9	5.8	7.4	5.9	1.8	-	-	6.1	75.9	18.0
2480	5.4	6.8	8.2	6.6	1.8	-	-	2.9	68.2	28.9

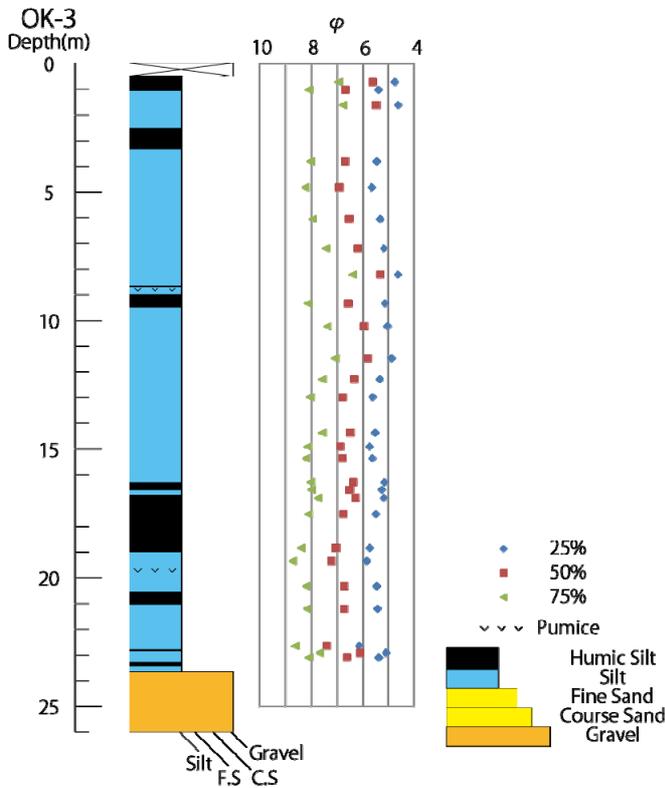


図 3.3-2 OK3 コアの粒度の鉛直変化

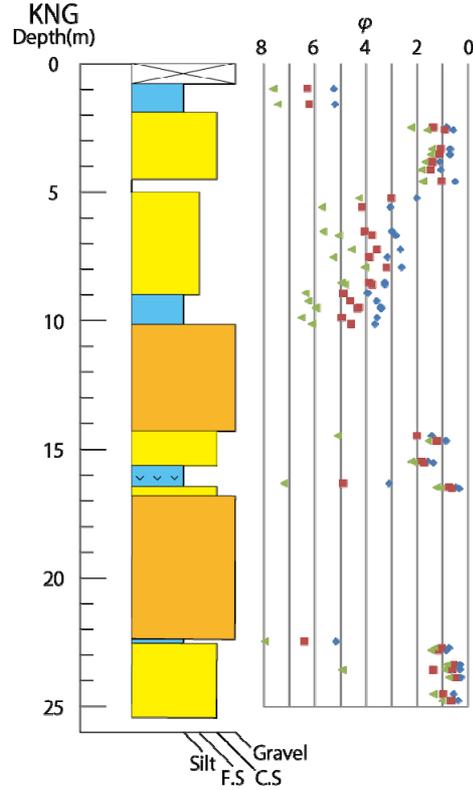


図 3.3-3 KNG コアの粒度の鉛直変化

凡例は図 3.3-2 に準ずる。

3.3.2 XRF 分析

(1) WD-XRF による試料調整法

試料を湿重量で 20 g 程度採取し、恒温乾燥機で 24 時間乾燥させ、ミルで粉碎後、粉体を直径 30 mm の塩ビリングに入れて、プレス機で加圧整形してタブレットを作成した。バインダーは用いていない。産業技術総合研究所地質調査総合センターが提供している地球化学標準物質のうち、火成岩、堆積岩及び堆積物 15 試料を用いて、検量線法によって 15 成分 (SiO₂, TiO₂, Al₂O₃, MnO, MgO, CaO, Na₂O, K₂O, P₂O₅, Fe₂O₃, S, Cr, Cu, Ni, Zn) の含有量を定量分析した。K の検量線例を図 3.3-4 に示す。

本共同研究では、KNG コアの 25 試料について、分析を行った。

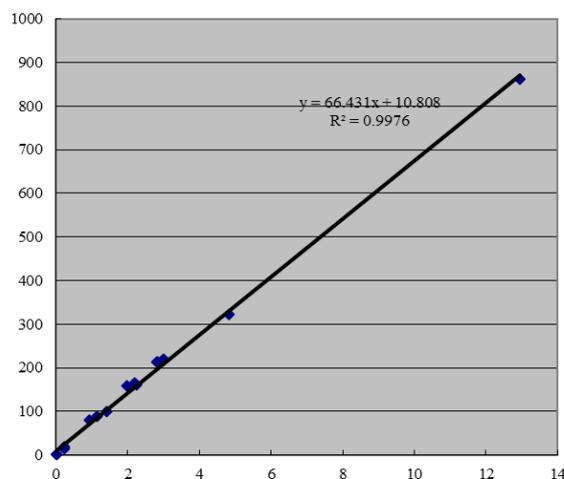


図 3.3-4 検量線の例

横軸が K の含有率 mass %、縦軸は cps 値

(2) XRF 分析結果

結果を表 3.3-3 と図 3.3-5 に示す。

表 3.3-3 XRF による KNG コアの元素含有率

KNG core depth cm	SiO ₂ mass%	TiO ₂ mass%	Al ₂ O ₃ mass%	MnO mass%	MgO mass%	CaO mass%	Na ₂ O mass%	K ₂ O mass%	P ₂ O ₅ mass%	Fe ₂ O ₃ mass%	S mass%	Cr mass ppm	Cu mass ppm	Ni mass ppm	Zn mass ppm
76-81	62.7	0.49	15.9	0.04	0.69	1.59	2.10	2.87	0.07	3.28	0.02	32	16	9	89
245-250	60.8	0.38	12.4	0.03	0.70	1.39	2.17	3.12	0.09	2.45	0.45	19	7	6	47
330-335	60.8	0.42	11.7	0.04	0.78	1.59	2.31	3.16	0.09	2.80	0.86	18	2	4	34
380-385	59.9	0.38	12.4	0.04	0.79	1.65	2.36	3.22	0.09	2.39	0.34	16	4	4	45
410-415	60.6	0.41	12.7	0.04	0.90	1.61	2.31	3.26	0.09	2.81	0.30	15	4	4	45
520-525	58.8	0.38	12.4	0.05	0.92	1.79	2.12	2.86	0.11	2.72	1.15	20	7	5	46
665-670	56.8	0.45	12.6	0.06	1.06	1.75	1.98	2.82	0.11	3.40	1.43	20	9	7	62
720-725	57.5	0.42	12.3	0.06	0.96	1.83	2.09	2.75	0.11	3.31	1.33	20	8	7	61
790-795	57.9	0.42	12.5	0.05	1.00	1.87	2.22	2.79	0.10	2.86	0.89	17	7	6	53
850-855	58.0	0.50	12.9	0.07	1.06	1.93	1.97	2.68	0.12	3.66	1.54	20	10	8	63
890-895	57.6	0.49	13.3	0.08	1.02	1.62	1.73	2.61	0.11	3.83	1.76	23	14	9	76
920-925	56.5	0.44	12.2	0.07	0.89	1.88	1.65	2.52	0.10	3.48	1.91	19	12	8	59
950-955	58.0	0.43	12.5	0.08	0.94	1.73	1.84	2.67	0.10	3.26	1.44	18	11	8	64
985-990	59.1	0.38	10.3	0.09	0.81	2.18	1.16	2.46	0.07	3.08	2.58	22	12	9	50
1010-1015	57.5	0.37	10.3	0.07	0.73	1.22	1.15	2.46	0.08	3.40	2.31	18	11	7	41
1445-1450	51.8	0.68	23.4	0.16	0.92	1.69	1.41	1.46	0.06	3.96	0.01	15	11	7	81
1545-1550	52.6	0.73	21.5	0.11	1.09	2.29	1.72	1.40	0.04	3.85	0.02	19	11	7	68
1630-1635	62.8	0.54	17.4	0.13	0.69	0.83	0.93	2.23	0.05	2.43	0.01	22	12	8	49
1650-1655	67.8	0.31	12.7	0.06	0.44	0.71	1.34	2.73	0.02	1.32	0.01	20	6	5	25
2245-2250	65.4	0.57	17.1	0.06	0.73	0.81	1.44	2.91	0.04	3.35	0.01	26	22	12	87
2280-2285	62.8	0.44	12.9	0.04	0.74	0.93	1.85	3.36	0.03	2.50	0.01	19	9	6	47
2335-2340	67.2	0.30	12.1	0.03	0.58	0.87	1.94	3.31	0.03	2.03	0.01	19	11	6	37
2365-2370	66.2	0.30	12.9	0.03	0.53	1.00	2.29	3.58	0.03	2.05	0.00	15	20	6	44
2385-2390	68.7	0.24	10.8	0.03	0.40	0.73	1.86	3.27	0.03	1.65	0.01	15	7	6	31
2475-2480	66.4	0.29	11.3	0.03	0.48	0.91	1.89	3.28	0.04	1.84	0.01	16	6	5	32

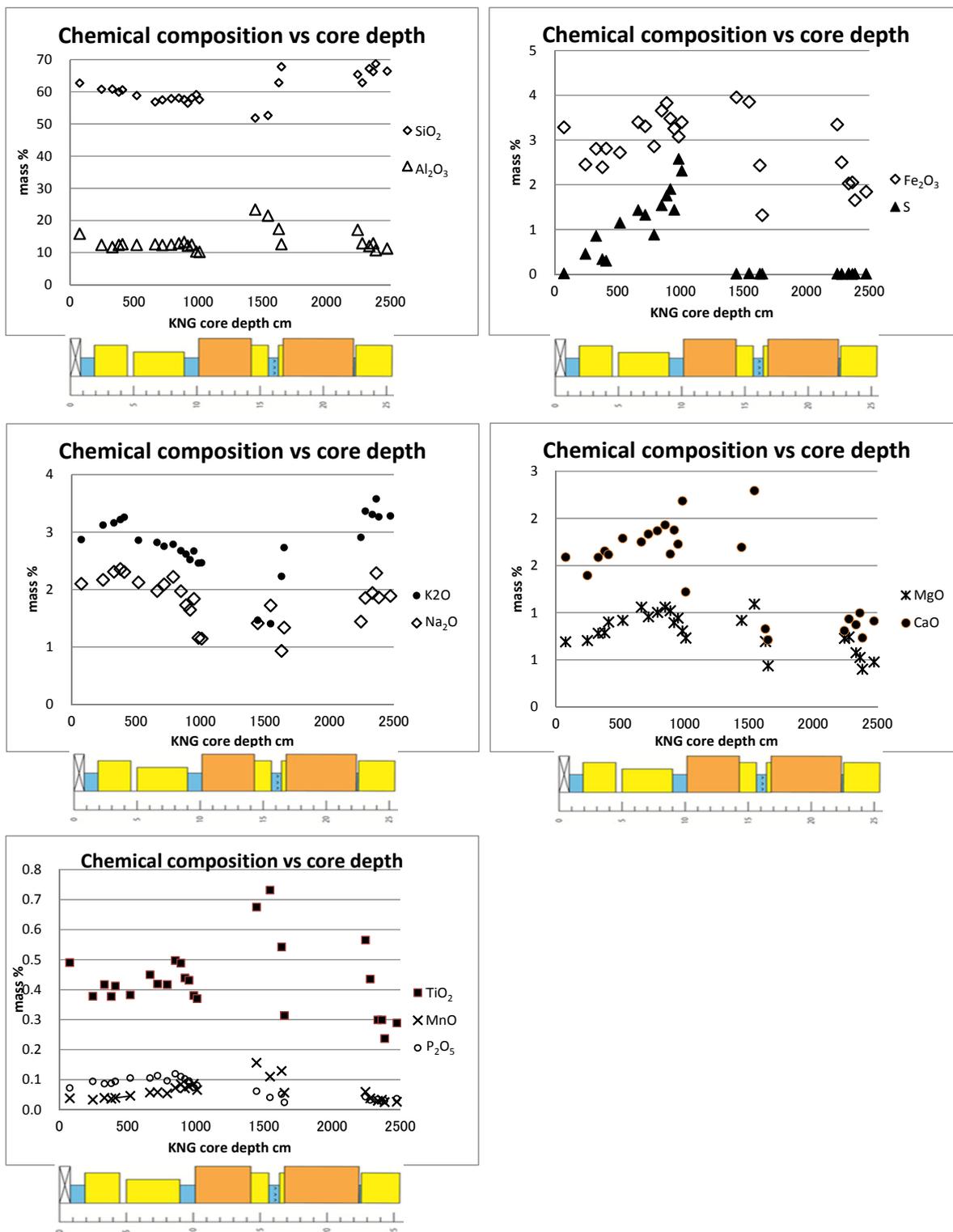


図 3.3-5 KNG コアの XRF 分析結果
 横軸に試料のコア深度、縦軸に各成分の含有率を示す。
 横軸柱状図の凡例は図 3.3-2 を参照。

(3) 後背地解析に関する検討

今回は細粒層を対象として全岩分析を実施したため、分析層準は、礫層を挟んで3層に分かれる。最も浅い層準は完新統で前進性デルタ～河川氾濫原堆積物である。中位層からは木曾御嶽火山起源の軽石層が産出し（大上ほか，2008³²⁾）、MIS 5ないし4の堆積物である。最下位層準はおそらく MIS 5 の河成層である。以下ではこれら3層間の成分の含有率を比較する。その前に、各成分間の相関関係に言及すると、二酸化ケイ素（以下「SiO₂」という）は大半の成分と負の相関を示し、特に酸化カルシウム（以下「CaO」という）と-0.841、酸化鉄(III)（以下「Fe₂O₃」という）と-0.85の強い負の相関をもつ。酸化カリウム（以下「K₂O」という）との間には明瞭な正の相関を示す。

上述の3層準間で濃度に明瞭な差異を示す成分は、硫黄（以下「S」という）とCaOである。Sは独特の挙動を示し、コア深度約10 m以浅に存在し、上方へ漸減する。Sはコアサイトの堆積環境が陸上か海底かを示すと考えられる（例えば、Niwa et al., 2011³³⁾）。CaOは下位層と比べて中・上位層で明瞭に増加する。CaOの高濃度域は、日本の地球化学図（今井ほか，2004³⁴⁾；図3.3-6）によれば犬山扇状地域と一致している。庄内川河道付近を境に、それ以南と以東ではCaOは非常に低濃度である。

KNG サイトは、下位層堆積時まではカルシウム（以下「Ca」という）の低濃度域に属し、中位層の堆積を期に高濃度域へ変化したと解釈しうる。すなわち、中位層以降、土岐川からの堆積物に加えて、木曾川系の堆積物が混入しやすくなったと解釈しうる。上述のとおり中位層には木曾御嶽火山起源の軽石層（木曾川が運搬したドリフトパミス）が挟在することと整合する。御嶽火山の活動が活発化し、犬山扇状地が扇面を拡大し、そこで不安定化した流路が濃尾平野の東縁付近にも達するようになり、洪水時にKNG サイト付近まで土砂を運搬するようになったと推定できる。

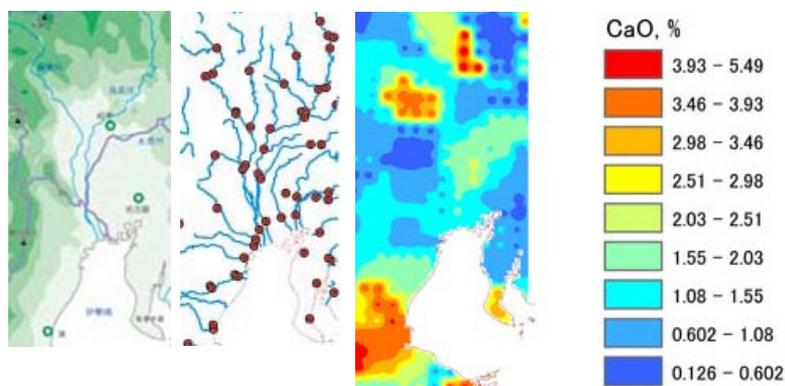


図 3.3-6 濃尾平野周辺の地球化学図
今井ほか（2004）³⁴⁾による

3.3.3 ESR 測定

(1) ESR 分析における試料調製法

ESR 測定試料として石英を用いることから、幡谷・白井（2003）³⁵⁾を参考にして堆積物から石英粒子を抽出した。以下にその工程を記すとともに、フローを示す（図 3.3-7）。

- 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、炭酸塩鉱物を取り除く。
- 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、有機物を取り除く。
- 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り除く。
- 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/cm³ 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 時間とした。
- ⑧塩酸処理
試料を塩酸（36%）に 45 分間浸し、フッ化物を取り除く。

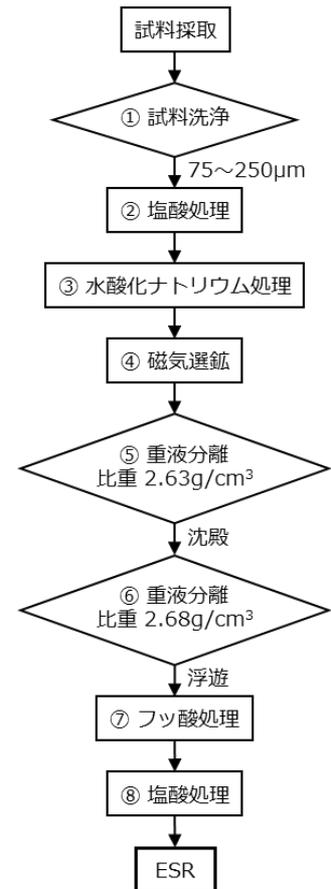


図 3.3-7 石英粒子抽出フロー

(2) ESR 分析結果

KNG コア及び OK3 コア試料から上述した方法で石英粒子を抽出し、ESR 信号（アルミニウム（以下「Al」という）中心信号及びチタン-リチウム（以下「Ti-Li」という）中心信号）を測定した。測定における変調幅は 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。その他の測定条件は Shimada et al. (2013)¹⁹⁾に従った。Ei'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。測定した波形から図 3.3-8 のように信号の高さを計測した。測定は 3 回実施し、その平均値を信号強度の値とした。

KNG コア及び OK3 コアの石英粒子の ESR 信号を測定した結果、図 3.3-9 の波形が得られた。ほとんどの試料で Ei'中心信号が認められたが、KNG コアの深度 12～15m 付近の試料で Ei'中心信号は弱く、不明瞭であった。これらの波形から得られた信号強度を表 3.3-4 に示す。

図 3.3-10 は、Al 中心信号強度と Ti-Li 信号強度を比較したグラフである。10 試料の KNG コアでは、上位の KNG-2, 4, 8, 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 KNG-13 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 KNG-19, 21, 23, 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。これらの試料の内、礫層中の砂や礫混じり砂から採取した試料は KNG-11, 13, 19, 21 であり、上述した領域の中でも Ti-Li 中心信号が比較的小さいという特徴がある。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、OK3-8 で 2.5、OK3-15 で 11.1、OK3-28 で 8.6 の値を示した。

図 3.3-11 は、Ei'中心信号強度を示したものである。KNG-2, 4, 11、KNG-13, 15 及び KNG-19、

21, 23, 25 のグループでそれぞれ類似した値を示し、KNG-8 だけ大きな値を示した。層相の違いによる明瞭な強度の違いは認められない。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。

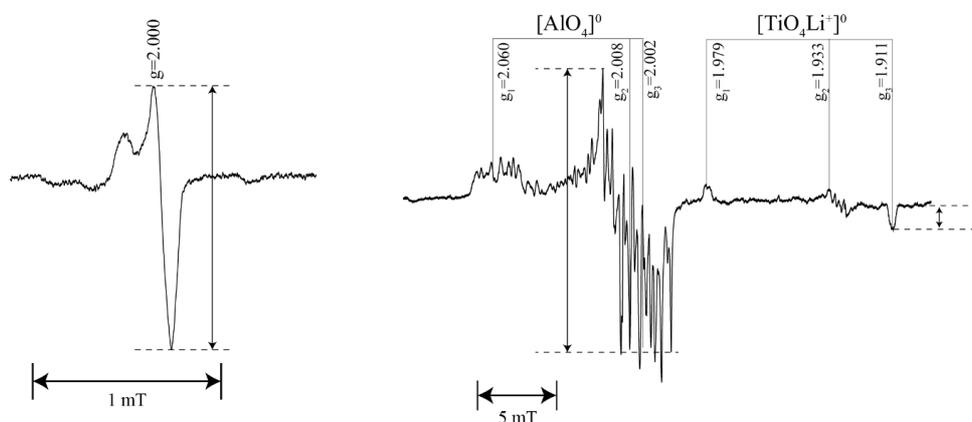


図 3.3-8 ESR 波形における各信号の強度の測定
左 : E_1' 中心信号 (OK3-15) 右 : Al 及び Ti-Li 中心信号 (KNG-25)

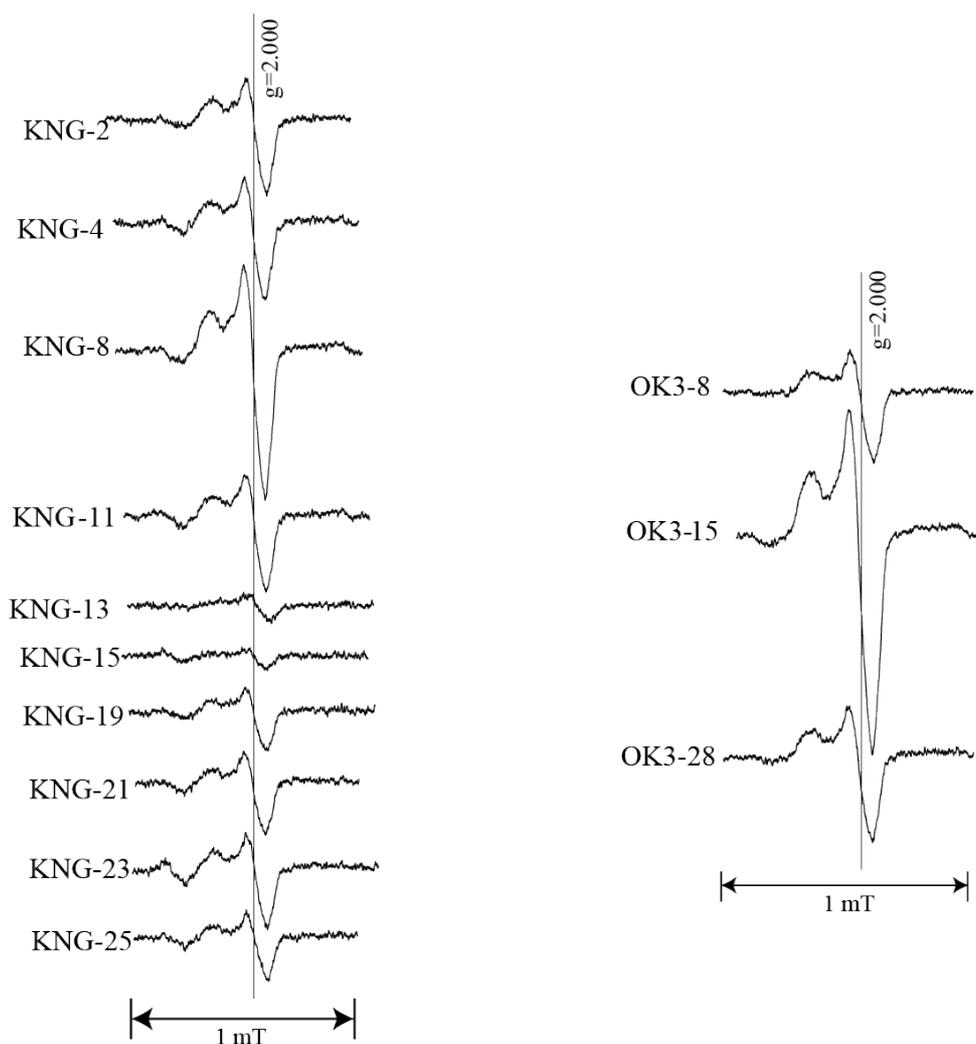


図 3.3-9 KNG コア (左) 及び OK3 コア (右) の ESR の E_1' 中心信号

表 3.3-4 KNG 及び OK3 コア試料の Al, Ti-Li, E1' 中心信号強度

Sample	Depth (m)	Weight (mg)	E1'			Al			Ti-Li									
			Num	signal	S/M	Average	error	Num	signal	S/M	Average	error						
KNG2	1.55-1.60	100	1	1623	777	2.09	2.14	0.04	1	4558	679	6.7	6.9	0.2	1	461	679	0.68
			2	1588	755	2.10	2.14	0.04	2	2400	324	7.4	6.9	0.2	2	258	324	0.80
			3	1637	737	2.22	2.14	0.04	3	2388	357	6.7	6.9	0.2	3	268	357	0.75
KNG4	3.50-3.55	100	1	1746	739	2.36	2.30	0.03	1	5623	718	7.8	7.6	0.2	1	575	718	0.80
			2	1692	744	2.27	2.30	0.03	2	5481	708	7.7	7.6	0.2	2	577	708	0.81
			3	1625	718	2.26	2.30	0.03	3	5552	776	7.2	7.6	0.2	3	590	776	0.76
KNG8	7.50-7.55	100	1	3289	707	4.65	4.79	0.11	1	5422	760	7.1	7.2	0.2	1	527	760	0.69
			2	3345	667	5.01	4.79	0.11	2	5676	742	7.6	7.2	0.2	2	524	742	0.71
			3	3244	690	4.70	4.79	0.11	3	5404	783	6.9	7.2	0.2	3	526	783	0.67
KNG11	10.63-10.68	100	1	1634	756	2.16	2.20	0.02	1	2051	301	6.8	6.6	0.1	1	109	301	0.36
			2	1653	741	2.23	2.20	0.02	2	2220	335	6.6	6.6	0.1	2	133	335	0.40
			3	1654	748	2.21	2.20	0.02	3	2292	363	6.3	6.6	0.1	3	114	363	0.31
KNG13	12.45-12.50	37	1	384	758	0.51	0.53	0.01	1	996	377	2.6	2.8	0.1	1	93	377	0.25
			2	406	746	0.54	0.53	0.01	2	978	330	3.0	2.8	0.1	2	67	330	0.20
			3	410	753	0.54	0.53	0.01	3	926	341	2.7	2.8	0.1	3	341	341	0.20
KNG15	14.65-14.70	100	1	377	768	0.49	0.50	0.00	1	1085	389	2.8	2.8	0.1	1	175	389	0.45
			2	347	699	0.50	0.50	0.00	2	1935	656	2.9	2.8	0.1	2	324	656	0.49
			3	389	774	0.50	0.50	0.00	3	1977	719	2.7	2.8	0.1	3	328	719	0.46
KNG19	18.47-18.53	100	1	1024	752	1.36	1.43	0.11	1	3758	354	10.6	10.6	0.4	1	154	354	0.44
			2	962	752	1.28	1.43	0.11	2	3462	352	9.8	10.6	0.4	2	159	352	0.45
			3	1256	758	1.66	1.43	0.11	3	3729	329	11.3	10.6	0.4	3	142	329	0.43
KNG21	20.43-20.48	100	1	1232	720	1.71	1.66	0.02	1	3220	368	8.8	9.0	0.4	1	140	368	0.38
			2	1153	706	1.63	1.66	0.02	2	3300	339	9.7	9.0	0.4	2	137	339	0.40
			3	1247	758	1.65	1.66	0.02	3	3204	381	8.4	9.0	0.4	3	139	381	0.36
KNG23	22.70-22.75	100	1	1357	694	1.96	1.89	0.04	1	7669	787	9.7	9.6	0.1	1	612	787	0.78
			2	1329	730	1.82	1.89	0.04	2	7060	752	9.4	9.6	0.1	2	561	752	0.75
			3	1373	724	1.90	1.89	0.04	3	7187	743	9.7	9.6	0.1	3	605	743	0.81
KNG25	24.50-24.55	100	1	938	705	1.33	1.32	0.02	1	3573	343	10.4	10.1	0.2	1	358	343	1.04
			2	932	723	1.29	1.32	0.02	2	3385	336	10.1	10.1	0.2	2	300	336	0.89
			3	978	723	1.35	1.32	0.02	3	3472	352	9.9	10.1	0.2	3	284	352	0.81
OK3-8	8.22-8.38	24	1	1504	793	1.90	2.08	0.10	1	1780	757	2.35	2.53	0.1	1	baseline	757	
			2	1614	757	2.13	2.08	0.10	2	1887	742	2.54	2.53	0.1	2	baseline	742	
			3	1612	727	2.22	2.08	0.10	3	2035	756	2.69	2.53	0.1	3	baseline	756	
OK3-15	15.40-15.53	100	1	4751	693	6.86	6.54	0.16	1	8419	753	11.18	11.12	0.1	1	87	753	0.12
			2	4785	744	6.43	6.54	0.16	2	8286	733	11.30	11.12	0.1	2	100	733	0.14
			3	4787	756	6.33	6.54	0.16	3	8484	780	10.88	11.12	0.1	3	116	780	0.15
OK3-28	23.35-23.40	100	1	1899	768	2.47	2.51	0.06	1	6251	766	7.95	8.59	0.3	1	118	766	0.15
			2	1873	715	2.62	2.51	0.06	2	6280	721	8.71	8.59	0.3	2	125	721	0.17
			3	1918	787	2.44	2.51	0.06	3	6764	742	9.12	8.59	0.3	3	132	742	0.18

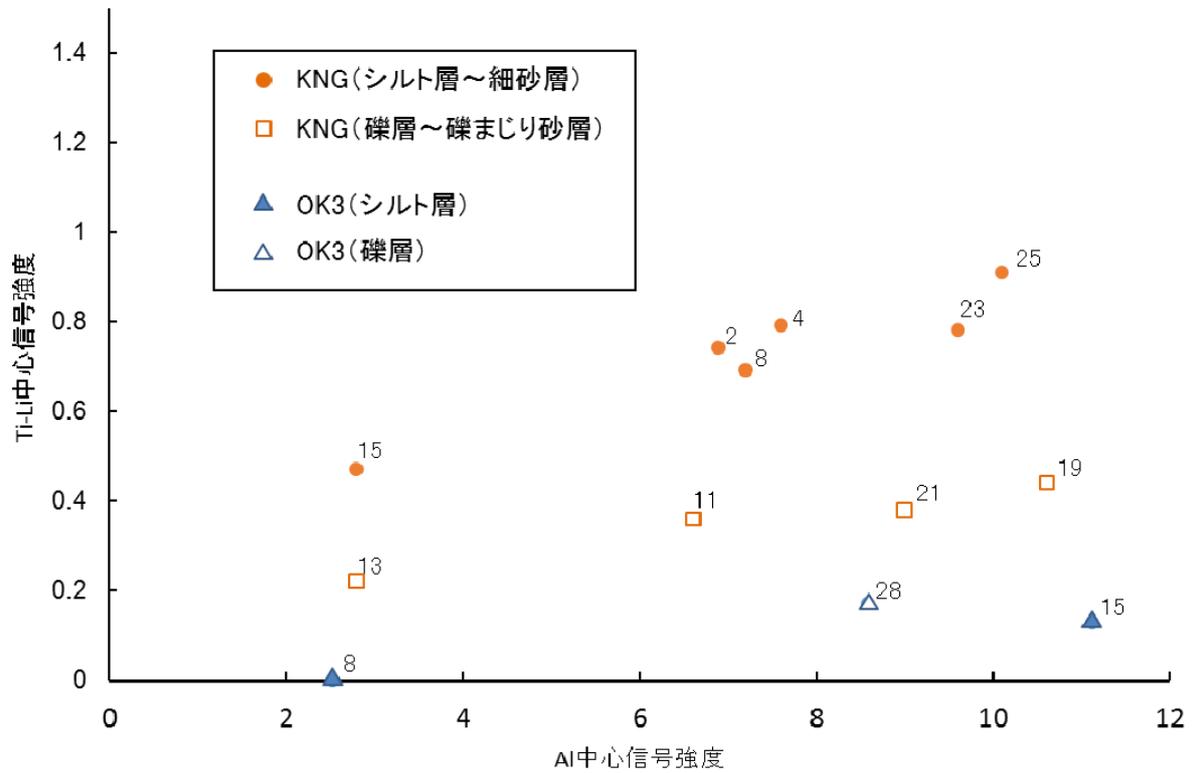


図 3.3-10 コア試料の Al 及び Ti-Li 中心信号強度の対比

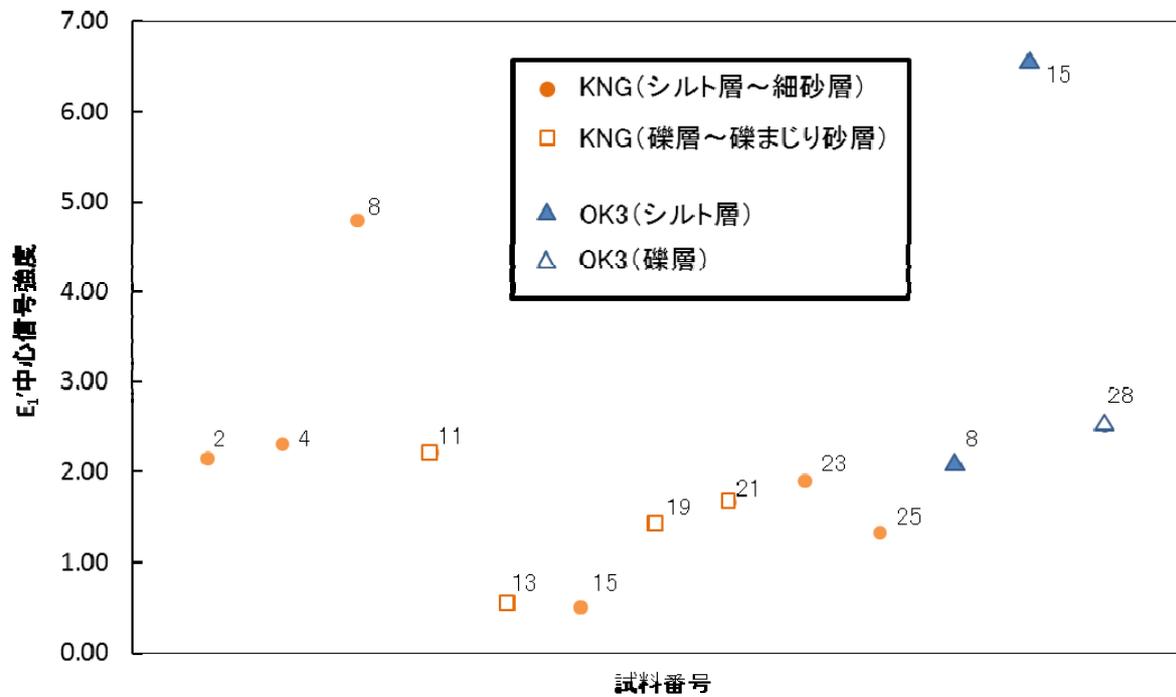


図 3.3-11 コア試料の E1' 中心信号強度

(3) 後背地解析に関する検討

KNG コアの ESR 信号特性は、深度の違いにより大きく三つのグループに分類できる（図 3.3-10、図 3.3-11）。さらに層相の違いにより、礫層や礫まじり砂層の場合は Ti-Li 中心信号が比較的小さい値を示す特徴がある（図 3.3-10）。これらの違いは、石英の種類やその構成比の違いを示していると考えられる。堆積物中の石英の種類やその構成比を変化させる作用としては、流域や流量の変化が考えられる。

OK3 コアにおいては、今後、異なる深度の試料を用いて測定数を増やすことで、深度によって ESR 信号特性に変化がみられるかを確認する必要がある。

また、供給地を推定するという点では、石英粒子のサイズを変えて測定した際の信号の特徴や 1 粒子での測定なども課題である。

3.3.4 OSL/TL 測定

(1) OSL/TL 分析における試料調製

OSL 及び TL の測定においては、ESR と同様に石英を用いることから、3.3.3(1)で述べた ESR 分析における試料調製と同じ方法で行った。なお、OSL 信号は光に敏感であるため、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。本共同研究では、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。

(2) OSL/TL 分析結果

1) TL 信号

測定によって得られた KNG 試料の TL 信号を図 3.3-12 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 3.3-13 に OK3 試料の 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 試料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。

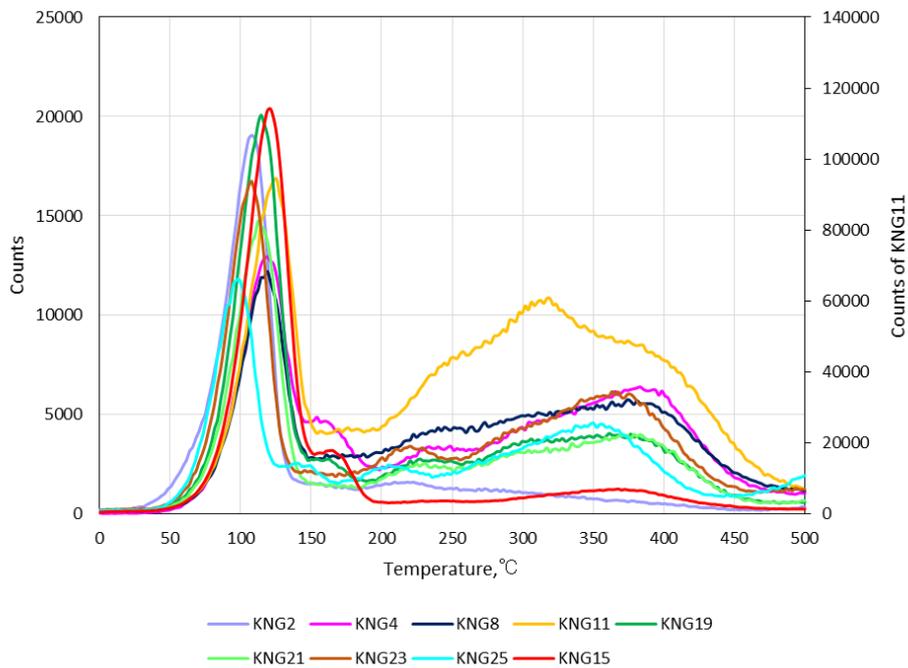


図 3.3-12 KNG コア試料の TL 測定結果

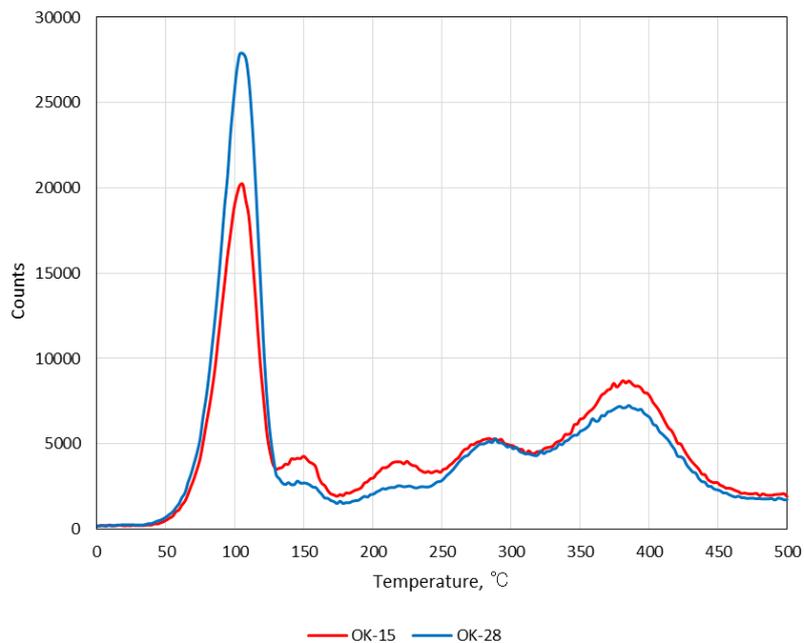


図 3.3-13 OK3 コア試料の TL 測定結果

2) OSL 信号

測定によって得られた KNG 試料の OSL 信号を図 3.3-14 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 3.3-15 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。

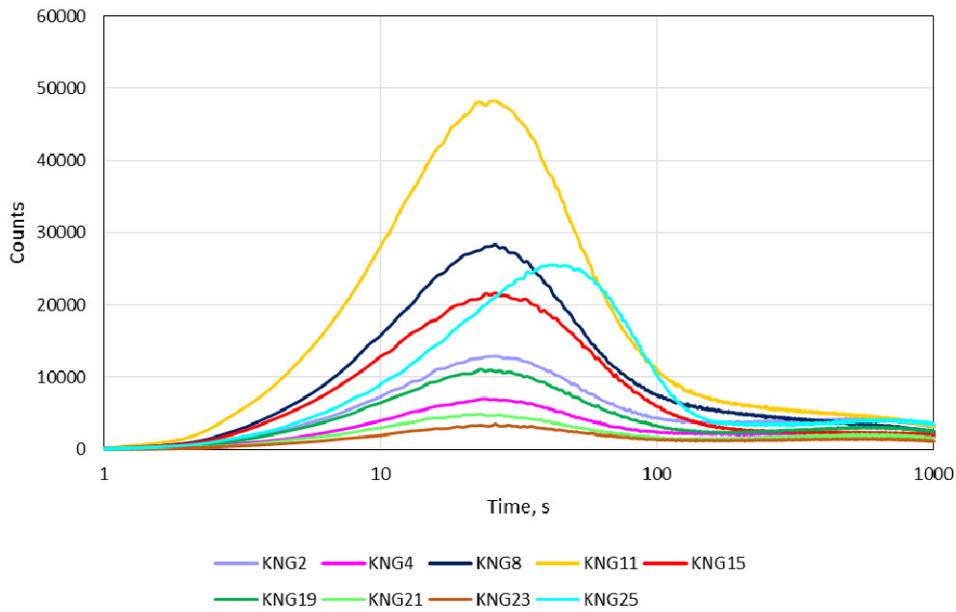


図 3.3-14 KNG コア試料の OSL 測定結果

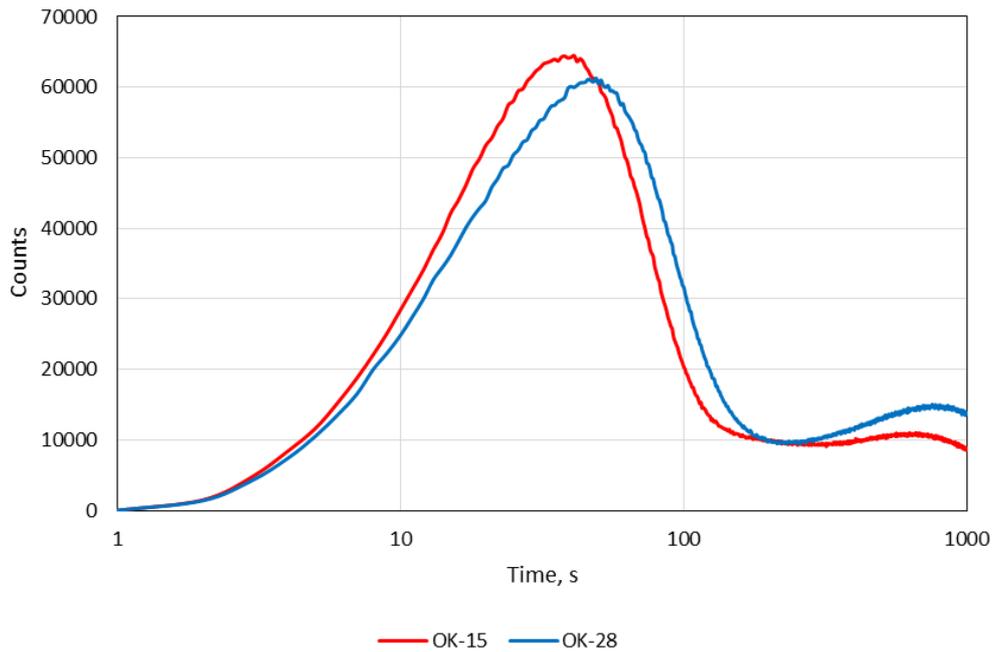


図 3.3-15 OK3 コア試料の OSL 測定結果

(3) 後背地解析に関する検討

KNG コアについては、TL 信号において 300-400℃付近にピークが認められる試料 (KNG-4, 8, 11, 19, 21, 23, 25) は、先述の ESR 分析において Al 中心信号強度が高い試料 (KNG-2, 4, 8, 11, 19, 21, 23, 25) と一致する傾向がある (図 3.3-10、図 3.3-12)。これらの多くは OSL 信号が弱い試料 (KNG-2, 4, 19, 21, 23) と一致する傾向がある (図 3.3-14)。以上の傾向から、TL 信号や OSL 信号においても ESR 信号と同様に、石英の種類やその構成比の違いを示していると考えられる。KNG-11 については、OSL 信号、TL 信号ともに他の試料に比べて大きく異なる信号を

示したが、その理由は不明である。KNG-11 を採取した砂礫層の下位には、火山灰を多く含む中砂～シルトが特徴的に分布していることから、火山灰の供給などの地質イベントも考慮して検討する必要があると考えられる。

OK3 コアから採取した 2 試料については、TL 信号、OSL 信号ともに類似の特徴を示す（図 3.3-13、図 3.3-15）。また、ESR 信号においてもこの 2 試料は Al 中心信号強度が比較的大きい特徴がある（図 3.3-10）。これらのことから、含まれる石英が二つの深度で類似していると考えられる。本試料の採取地は、小起伏面上で閉塞した小盆地であり、流域も狭い範囲に限られている（図 3.1-3）ことから、下部から上部まで同じ供給源であった可能性が高い。TL 信号、OSL 信号及び ESR 信号の特徴はそれを示唆していると考えられる。さらに、先述したように粒度分布が安定しており、堆積環境に大きな変動が生じなかったと考えられることとも調和的である。しかし、2 試料だけでは傾向が把握できないこと、ESR 信号の E_1' 中心信号強度はこの二つで大きく異なることから、今後は他の深度の試料においても分析を行って比較・検討を進める必要がある。

供給地を推定するという点では、TL 測定、OSL 測定及び ESR 測定における共通の課題として、石英粒子のサイズを変えて測定した際の信号の特徴や 1 粒子での測定などが挙げられる。また、TL 信号と OSL 信号については、これらの波形を分離して検討する必要がある。

3.4 技術検討

粒度特性は、堆積物を特徴づける基本的な情報の一つであり、他の情報を解釈するうえで重要である。粒度分析単独の結果においても粒度の地理的分布をもとに堆積物がどこから供給されたかを検討することができる場合がある。本共同研究においては、KNG コアの深度 14 m 以浅の堆積物は主に庄内川（土岐川）から供給されたと考えられ、OK3 の堆積物は間欠的に土砂流入があったが堆積環境に大きな変動は生じなかったと考えられる。

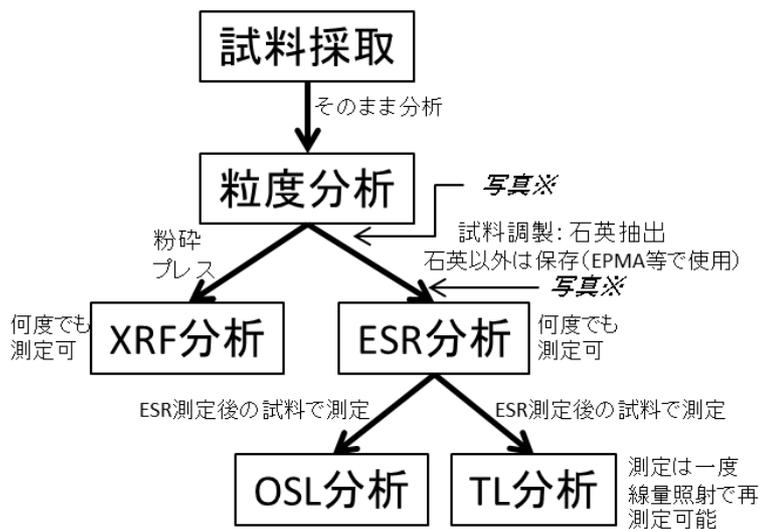
XRF は堆積物の地球化学的特徴を得ることができ、そこから堆積環境や後背地の変化を推定できる場合がある。本共同研究における KNG では、S の濃度から深度 10 m 付近を境に、それ以浅では海底であったと考えられる。また、Ca の濃度変化から、中位層より浅い部分では、土岐川からの供給に加えて、木曾川系の堆積物が混入しやすくなったと考えられる。

ESR、TL 及び OSL は、石英の信号特性から堆積物の供給源の違いを把握できる可能性がある。本共同研究における KNG では、ESR 信号の特性から三つのグループに分類でき、その違いは深度の違い、つまり供給されている砕屑粒子の違いで説明が可能である。TL 信号と OSL 信号においては、ESR 信号の特徴と一致する傾向を示す試料が多く認められた。深度によって特徴が異なる結果は、粒度特性や XRF の結果とも調和的であり、堆積環境や後背地の変化を示している可能性がある。OK3 については、2 試料の結果しかないが、その 2 試料は TL 信号及び OSL 信号の特徴が類似しており、粒度特性と同様に堆積環境に大きな変動が生じなかったと考えられる。

以上のように粒度特性、XRF による地球化学特性及び ESR・TL・OSL 信号特性を用いることで、ポーリング試料から後背地の解析に有効なデータを得られると考えられる。しかし、現時点では ESR・TL・OSL 分析の数量が少ないことから十分な比較検討ができていない。今後は ESR・TL・OSL 分析を密に行って傾向を把握する必要がある。

なお、これまでの分析と検討から、本共同研究で適用した手法をフローに示すと図 3.4-1 になる。まず、採取した試料はそのまま粒度分析を行う。その後、試料を二つに分けて試料調製を行い、XRF 分析と ESR 分析を行う。これらの分析は同じ試料で何度でも実施可能である。ESR 測定後の試料については、二つに分けて OSL 分析と TL 分析を行う。試料 100 mg 程度を測定する ESR 測定に対して、OSL 測定と TL 測定の必要試料量は数 mg～10 mg 程度であり、十分な試料

量である。また、試料調製の前後で粒子の写真を実体顕微鏡で撮影しておく、測定結果の考察に役立つと考えられる。



※試料調製の前後で実体顕微鏡による写真撮影

図 3.4-1 本共同研究におけるポーリング試料を用いた後背地解析手法のフローとノウハウ

4. まとめ

堆積物から後背地を解析する手法について、最近の研究成果などの情報を収集し、その特徴を整理した。整理した手法の中で、粒度分析、XRF 分析及び ESR・OSL・TL 分析の適用性を確認するため、古くから後背地解析の研究が行われている東濃地域周辺を事例に、時間変化を踏まえて手法を検討するために、既存ボーリング試料を用いて研究を行った。その結果、各分析において深度方向での特徴の違いが認められ、堆積環境の変化や後背地の変化などを推定するために有効な手法である可能性を示した。現時点では ESR・TL・OSL 分析の数が少なく、深度方向での違いを詳細に検討することが難しいことから、今後はこれらの分析を増やして粒度分析や XRF 分析の結果とあわせて手法の有効性と方法論を提示していく必要がある。

引用文献

- 1) 竹内 誠, 碎屑粒子の化学組成からのメッセージ: 碎屑性ザクロ石の化学組成に基づく後背地解析と東アジアの地殻変動, 地質学論集, vol.57, 2000, pp.183-194.
- 2) 別所孝範, 紀伊半島牟婁付加シーケンス市鹿野構造ユニットの砂岩組成から推定される後背地, 日本地質学会第 121 年学術大会講演要旨, 2014, p.97.
- 3) 林 広樹, Roser, B.P., 幸村哲也, 酒井哲弥, 三瓶良和, 島根県大田市琴ヶ浜周辺の地質: 鳴り砂の後背地解明を目指して, 日本地質学会第 121 年学術大会講演要旨, 2014, p.79.
- 4) 古川理央, 須貝俊彦, 松本 良, 日本海上越沖コアの元素分析からみた飛騨山脈北部流域の最終間氷期以降の環境変動, 日本地理学会発表要旨集 86, 2014, p.136.
- 5) 古川理央, 須貝俊彦, 松本 良, MD-179 コアの元素分析に基づく第四紀後期の日本海上越沖の堆積環境復元, 日本第四紀学会発表要旨集, 2014, p.157.
- 6) 内藤慶一, 横山祐典, 高橋理美, 中野孝教, 竹村恵二, 琵琶湖湖底堆積物中の微量元素同位体からの集水域環境復元, 日本本第四紀学会講演要旨集, 44, 2014, p.148.
- 7) 池見弘明, 山崎絢生, ヘンドラ パチリ, 中西隆之介, 三谷泰浩, 黒木貴一, 報告されている河川堆積物の ^{10}Be 濃度と流域の地形プロセス解析, 日本応用地質学会平成 26 年度研究発表会講演論文集, 2014, pp.205-206.
- 8) Hiraoka, Y., Characterization of weathered products from granites around southern Lake Biwa, central Japan – Application to forensic geology –, *Journal of the Geological Society of Japan*, vol.103, 1997a, pp.36-46.
- 9) Hiraoka, Y., Presumption method for the provenance of weathered products from granites around southern Lake Biwa, central Japan, based on chemical analysis of biotite, *Journal of the Geological Society of Japan*, vol.103, 1997b, pp.770-780.
- 10) 北村有迅, 大地が証言する事件の真相, ジオルジュ, no.4, 2013, pp.14-17.
- 11) 杉田律子, 法地質学的資料中の粒子の分析例, 日本地質学会第 121 年学術大会講演要旨, 2014a, p.146.
- 12) 杉田律子, 土砂資料の法科学的異同識別のための画像解析による粒度分析法の検討, 日本地質学会第 121 年学術大会講演要旨, 2014b, p.291.
- 13) Tsukamoto, S., Nagashima, K., Murray, A. S. and Tada, R., Variations in OSL components from quartz from Japan sea sediments and the possibility of reconstructing provenance, *Quaternary International*, vol.234, 2011, pp.182-189.
- 14) 高田将志, 起源の異なる石英の 110°C 熱ルミネッセンス信号特性 – 堆積物の供給源推定にむけて –, 奈良女子大学地理学・地域環境学研究報告, vol.7, 2010, pp.105-112.
- 15) Sawakuchi, A.O., Blair, M.W., DeWitt, R., Faleiros, F.M., Hyppolito, T. and Guedes, C.C.F., Thermal history versus sedimentary history: OSL sensitivity of quartz grains extracted from rocks and sediments, *Quaternary Geochronology*, vol.6, 2011, pp.261-272.

- 16) 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.
- 17) 野曾原吉彦, 豊田 新, 高田将志, 島田愛子, 吉田真徳, 現河床堆積物に含まれる石英の ESR 信号特性—木津川流域を対象として—, *ESR 応用計測*, vol.30, 2014, pp.4-11.
- 18) Yoshida, M., Toyoda, S., Ninagawa, K., Takada, M. and Shimada, A., Temporal change of TL and ESR signals in quartz extracted from Kurobe River Sediments, *14th International Conference on Luminescence and Electron Spin Resonance Dating Book of Abstracts*, 2014, p.236.
- 19) Shimada, A., Takada, M., Toyoda, S., Ninagawa, K. and Muto, H., Characteristics of ESR / TL / SEM-EDS signals of natural quartz from bedrocks and river bed sediments, *14th International Conference on Luminescence and Electron Spin Resonance Dating Book of Abstracts*, 2014, p.187.
- 20) Zinkernagel, U., Cathodoluminescence of Quartz and its Application in Sandstone Petrology, *Contributions to Sedimentology*, vol.8, 1978, pp.1-69.
- 21) 中山 歩, 太田 亨, 石英粒子のカソード・ルミネッセンス特性による源岩の判別方法の提示 日本地質学会第 121 年学術大会講演要旨, 2014, p.249.
- 22) 高橋尚志, 白井正明, 礫の大きさと円磨度からみた氷期・間氷期の河成段丘構成層の違い, 日本第四紀学会講演要旨集, 44, 2014, p.153.
- 23) 滝澤みちる, 須貝俊彦, 松本 良, MD179 海底コアの粒度変動からみた日本海上越沖とその周辺域における最終間氷期以降の環境変動, 日本地理学会発表要旨集, 85, 2014, p.295.
- 24) 片岡達也, 竹内 誠, 現河川堆積物の K, Th ガンマ線量の変動要因および後背地の地質との関係, 日本地質学会第 121 年学術大会講演要旨, 2014, pp.249.
- 25) 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)
- 26) 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, 二ノ宮淳, 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.
- 27) 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, 東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, pp.275-286.
- 28) 守田益宗, 神谷千穂, 佐々木俊法, 宮城豊彦, 須貝俊彦, 柳田 誠, 古澤 明, 藤原 治, 守屋俊文, 東海地方の中間温帯における中期更新世以降の植生変遷—内陸小盆地堆積物の花粉分析から—, *季刊地理学*, vol.58, 2006, pp.123-139.
- 29) 佐藤善輝, 安江健一, 須貝俊彦, 後期更新世以降における岐阜県大湫盆地の堆積環境変遷, 日本第四紀学会発表要旨集, 2014, p.143.
- 30) 佐々木俊法, 須貝俊彦, 大上隆史, 柳田 誠, 安江健一, 色相計測による閉塞盆地埋積物中の有機炭素含有率推定の試み, *地学雑誌*, vol.119, 2010, pp.562-567.
- 31) 滝澤みちる, MD179 海底コアの粒度変動からみた日本海上越沖とその周辺域における最終間氷期以降の環境変動, 東京大学大学院新領域創成科学研究科自然環境学専攻修士論文, 2014, pp1-50.
- 32) 大上隆史, 田力正好, 安江健一, 丹羽雄一, 須貝俊彦, 複数のオールコアボーリングにもとづく濃尾平野沖積層の庄内川に沿うプログラデーション, 2008 年度日本地理学会春季学術大会発表要旨.
https://www.jstage.jst.go.jp/article/ajg/2008s/0/2008s_0_96/_article/-char/ja/ (2015.1.16)
- 33) Niwa, Y., Sugai, T., Saegusa, Y., Ogami, T. and Sasao, E., Use of electrical

conductivity to analyze depositional environments: Example of a Holocene delta sequence on the Nobi Plain, central Japan, *Quaternary International*, vol.230, 2011, pp.78-86.

- 34) 今井 登, 寺島 滋, 太田充恒, 御子柴真澄, 岡井貴司, 立花好子, 富樫茂子, 松久幸敬, 金井豊, 上岡 晃, 日本の地球化学図 -元素の分布から何が分かるか?-, 産業技術総合研究所地質調査総合センター, 2004, 209p.
- 35) 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.

付録 4

EPMA による微小領域鉍物の分析技術の研究

平成 26 年度共同研究報告書

平成 27 年 1 月

国立大学法人名古屋大学

独立行政法人日本原子力研究開発機構

目次

1. 概要	1
1.1 共同研究件名	1
1.2 研究目的	1
1.3 実施期間	1
2. 研究方法	2
2.1 EPMA を用いた後背地解析技術に関する情報整理	2
2.2 EPMA を用いた微小領域の分析と技術検討	2
2.3 作業の流れ・意思決定プロセス・ノウハウなどの整理	2
3. 研究成果	3
3.1 EPMA を用いた後背地解析技術に関する情報収集	3
3.2 EPMA を用いた微小領域の分析と技術検討	3
3.2.1 補正計算に関する検討	3
3.2.2 ジルコン年代測定に関する情報収集（特に鉛の移動について）	5
3.2.3 過去の測定との比較及びラボ間比較における問題	6
3.2.4 将来の再検証可能性の担保	7
3.3 作業の流れ・意思決定プロセス・ノウハウなどの整理	7
4. まとめ	8
謝辞	8
引用文献	8

図目次

図 3.2-1 サブグレイン年代測定の考え方	6
------------------------------	---

表目次

表 3.2-1 補正系計算モデル及び質量吸収係数を変化させた場合に得られる化学組成の違いの例	4
表 3.2-2 検証に用いた各モデルの詳細	5

1. 概要

1.1 共同研究件名

EPMA による微小領域鉍物の分析技術の研究

1.2 研究目的

高レベル放射性廃棄物などの地層処分は、人工バリアと天然の地層を適切に組み合わせたシステムによって、数万年以上にも及ぶ極めて長い時間スケールの安全を確保しようとするものである。日本列島は変動帯に位置していることから、諸外国に比べて地殻変動や火成活動などが活発であるため、地層処分事業においては将来の自然現象に伴う地質環境の変動スケールや復元性を把握しておくことが特に重要となる。今後、地層処分の技術的信頼性を更に高めていく上でも、実際の地質環境を構成する様々な要素についての過去の変動の履歴や現象プロセスなどを把握するための調査技術を整備するとともに、科学的知見を統合しつつ、三次元的に表現できる数値モデルを開発することは極めて有効となる。このため、独立行政法人日本原子力研究開発機構（以下、「原子力機構」という）が、経済産業省から受託している「地質環境長期安定性評価確証技術開発」では、将来の自然現象に伴う超長期の地質環境の変動を考慮できる数値モデル及びその解析評価に必要な調査技術の研究開発を進めている。この調査技術においては、超長期の自然現象の一つである山地の形成過程に関する情報を取得するための「後背地解析技術の研究開発」を進めている。

この研究開発では、電子線マイクロアナライザ（以下、「EPMA」という）による化学組成の分析が重要となる。特に鉍物中の数 μm ～十数 μm という微小領域を精度良く分析することで、これまで困難であった高精度な岩石分類や火山灰対比を可能とし、堆積物の供給源の解明や堆積時期の決定に大きく貢献することができる。よって、本研究では後背地解析に必要となる高精度な岩石分類や火山灰対比などに有効な、微小領域の EPMA 分析技術の研究を進める。正確な現状把握・将来予測では微小領域の化学組成を高い確度で求めることが重要であり、その技術的な課題や地層処分が想定する長い時間スケールでの再検証に耐えうるデータ保存について検討した。

1.3 実施期間

平成 26 年 7 月 10 日～平成 27 年 1 月 30 日

2. 研究方法

本研究では、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、鉍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、得られた成果を地層処分で想定される長期間にわたり再検証可能にする技術的要件を検討する。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する。

2.1 EPMA を用いた後背地解析技術に関する情報整理

後背地解析において EPMA などを活用していくために必要な情報や、EPMA を適用する上で解決すべき課題についての情報を収集する。それらの情報を整理するとともに、微小領域の測定に注目して EPMA による定量分析等を用いた後背地解析の研究に必要となる技術情報を抽出する。

2.2 EPMA を用いた微小領域の分析と技術検討

2.1 を踏まえて、既存の適切な試料（分析値などが詳細に調べられている試料など）を用いた鉍物の微小領域の高精度化学分析を EPMA において試行する。そのために、EPMA 定量分析で用いられる補正計算モデルなどを比較・評価し、様々な試料で正確な化学組成を得る手法を検討する。その結果を踏まえて、後背地解析に適用する高精度な岩石分類や火山灰対比などに有効な微小領域の EPMA 分析技術を検討する。その際、必要に応じて化学分析以外の分析結果なども取り入れて検討する。

2.3 作業の流れ・意思決定プロセス・ノウハウなどの整理

2.1 と 2.2 で得られた情報、分析結果及び分析技術の検討結果に基づいて、後背地解析に有効な微小領域の EPMA 分析技術に関して、原子力機構が開発した次世代型サイト特性調査情報統合システム※に取り込めるように、作業の流れ、意思決定プロセス、ノウハウなどの整理を行う。

※地質環境モデルの作成や調査計画立案・実施を支援するエキスパートシステム、作成された地質環境モデルの可視化ツール、エキスパートシステムを作成するツール、調査の工程管理及び地質環境電子文書システムとこれらを統合するマネジメントコクピットによって構成されている。マネジメントコクピットを通して、地質環境調査の様々な場面でマネージャーが行う意思決定を迅速かつ効率的に支援できる。さらに、関係者間の知識の共有、知識の追跡性の確保が可能である。

3. 研究成果

3.1 EPMA を用いた後背地解析技術に関する情報収集

後背地解析においては、鉱物組成に加えて鉱物の化学組成や年代が重要な情報となりうる。そこで、これらの分析法について情報収集及び実際の EPMA 分析データの検討を実施した。EPMA 分析は、原子力機構及び名古屋大学において実施した。名古屋大学の現有装置（日本電子株式会社製 JCSA-733）は製造後約 30 年が経過した旧型モデルであり、経年劣化により原子力機構に設置されている現行モデル（日本電子株式会社製 JXA-8530F）と特性が異なる可能性があった。そこで、特性に影響を与えうる機構部品を中心に名古屋大学の装置を整備し、メーカー基準を満たして相互比較に耐えうる性能があることを確認した。そして、原子力機構及び名古屋大学で EPMA 分析を実施したところ、現行モデルも旧型モデルでも得られるエックス線の計数データそのものの品質には違いがないことが明らかになった。

3.2 EPMA を用いた微小領域の分析と技術検討

EPMA 定量分析により微小領域の化学組成を高い確度で得る手法を確立していくために、どのような技術的課題を解決しなければならないか検討した。そのため、原子力機構と名古屋大学に設置されている EPMA の調査を実施した。この技術的検討では、名古屋大学で開発している補正計算ソフトウェアを使用した。このソフトウェアは、様々なメーカーの旧型から最新機種まであらゆる補正計算モデルを再現することが可能であり、原子力機構の最新モデル、名古屋大学の旧型モデル及びもっぱら海外で広く普及しているモデルのすべてについて検証できる。

3.2.1 補正計算に関する検討

EPMA 定量分析では、測定したエックス線強度から化学組成を得るために、補正計算を行うことが一般的である。補正計算では、加速された電子の衝突によるエックス線の発生過程をモデル化しているが、これまで様々なモデルが提唱されてきた。

平成 25 年度に原子力機構に設置された EPMA では、補正計算に用いるパラメーターを従来の機器と異なるものにすることが可能である。そこで、原子力機構及び名古屋大学で分析したデータを用い、名古屋大学において以下の条件で補正計算の比較を行った。

- A 現行の日本電子株式会社製 EPMA がサポートする補正計算モデル
- B 従来の日本電子株式会社製 EPMA がサポートする補正計算モデル
- C アメテック社製（カメカブランド）EPMA がサポートする補正計算モデル

あわせて、重要なパラメーターの一つである質量吸収係数の影響も評価した。これらのモデルを比較した結果、メーカーのソフトウェアなどの違いによる影響を再現することができた（表 3.2-1）。この結果は、同じ標準物質・同じ分析条件で同じ試料を測定しても、適用した補正計算モデルやパラメーターにより見かけ上異なる化学組成が得られることを示している。

表 3.2-1 補正系計算モデル及び質量吸収係数を変化させた場合に得られる化学組成の違いの例

m.a.c.s	Kato ¹⁾	Chantler ²⁾	MAC30 ³⁾	MAC26 ⁴⁾
PAP ⁵⁾				
SiO ₂	50.4	50.4	50.6	51.1
TiO ₂	0.10	0.10	0.10	0.10
Al ₂ O ₃	1.51	1.51	1.53	1.57
FeO	24.2	24.2	24.2	24.2
MnO	0.61	0.61	0.61	0.60
MgO	22.5	22.5	22.7	23.4
CaO	0.65	0.65	0.66	0.66
Total	100.0	100.0	100.4	101.6
Mg#	0.624	0.624	0.626	0.633
Surface-center Gaussian by Armstrong ^{6),7)}				
SiO ₂	51.1	51.1	51.4	51.7
TiO ₂	0.10	0.10	0.10	0.10
Al ₂ O ₃	1.52	1.52	1.53	1.57
FeO	23.9	23.9	23.9	23.9
MnO	0.60	0.60	0.60	0.60
MgO	22.6	22.6	22.8	23.5
CaO	0.65	0.65	0.65	0.65
Total	100.5	100.5	101.0	102.0
Mg#	0.628	0.628	0.630	0.637
Conventional ZAF				
SiO ₂	50.5	50.5	50.7	51.1
TiO ₂	0.10	0.10	0.10	0.10
Al ₂ O ₃	1.52	1.52	1.54	1.58
FeO	25.2	25.2	25.3	25.3
MnO	0.61	0.61	0.61	0.61
MgO	22.9	22.9	23.2	23.9
CaO	0.65	0.65	0.65	0.62
Total	101.5	101.5	102.1	103.2
Mg#	0.618	0.618	0.620	0.627

PAP、Surface-center Gaussian 及び Conventional ZAF で用いられるモデルの詳細は表 3.2-2 に示されている。Mg# = Mg / (Mg + Fe)。

表 3.2-2 検証に用いた各モデルの詳細

モデル	後方散乱	阻止能	発生関数モデル
PAP	PAP ^{5),8)}	PAP ^{5),8)}	PAP ^{5),8)}
Surface-center Gaussian	LS78 ⁶⁾	LS78 ⁶⁾	Armstrong ⁷⁾
Conventional ZAF	Duncumb-Reed ⁹⁾	Philibert-Tixier ¹⁰⁾	Philibert ¹¹⁾

実際の装置のソフトウェアについて取り扱い説明書の記述などを調査したところ、日本電子株式会社製の EPMA では現行モデルでもユーザーが変更可能なパラメーターが存在することが判明した。したがって、Kato et al. (2013)¹⁾の質量吸収係数を導入したり、今後よりよいパラメーターが公開された場合に容易に導入したりすることが可能である。なお、アメテック社製の EPMA ではパラメーターが実行ファイルに組み込まれているため、ユーザーが変更することはきわめて困難である。

さらに、補正計算モデルに加えてエックス線の干渉についても名古屋大学で検討したところ、メーカーやタイプの違いだけではなく、個々の分光器ごとに波長分解能などの特性が異なることが明らかとなった。これは、分光結晶の特性や分光器の調整のばらつきによるものと考えられる。したがって、エックス線の干渉が問題となる場合は、用いる分光器ごとに干渉補正に必要なパラメーターを決定するとともに、経時変化に対応した再決定を実施していかなければならない。

3.2.2 ジルコン年代測定に関する情報収集（特に鉛の移動について）

EPMA による鉱物の化学組成に加え、地層に含まれる複数の粒子の形成年代の分布も後背地解析に有用である。そこで、ジルコンのサブグレイン年代測定の信頼性に関する文献調査を実施した。近年、二次イオン質量分析計 (SIMS)、レーザーアブレーション誘導結合プラズマ質量分析計による U-Pb サブグレイン年代測定が普及している。また、CHIME 年代測定でも同様に U-Th-Pb 系のサブグレイン年代を得ることが可能である。これらの手法により、地層に含まれる鉱物、特にジルコンの年代分布を明らかにすることが可能であり、頻繁に利用されている。これらの年代測定法では、原則として系が閉鎖系であったことを前提としている。すなわち、物質移動があると正確な年代が得られない可能性がある(図 3.2-1)。U-Pb 同位体年代測定においては、ジルコンの形成と二次的な熱イベントで解釈することもあるが、そのような解釈が可能であることは保証されていない。また、二次的な熱イベントでは解釈不可能な結果が得られることもあり、閉鎖系の仮定が成立していない可能性が存在している。

3.2.4 将来の再検証可能性の担保

3.1でエックス線強度の測定そのものは1970年代に設計された装置でも現行モデルでも違いがないことを示した。これにより、エックス線強度のデータは過去のデータであっても再検証可能な場合があることが明らかになった。しかし、3.2.1で示したように、補正計算モデルや用いるパラメーターにより得られる化学組成が不正確になる問題は現在まで残っている。すなわち、補正計算後の化学組成については、そのまま再検証に耐えられるものであるかどうか必ず検討する必要がある。

長期にわたり後背地解析に用いた分析値を再検証可能とし続けていくためには、

- ・用いた標準物質の化学組成
- ・分析条件
- ・標準物質及び未知試料のエックス線強度
- ・適用した補正計算モデル及びパラメーター

を保存し続けることが必要不可欠である。さらに、標準物質の化学組成の信頼性を将来評価する可能性を考えると、標準物質そのものについても長期保存が必要になる。また、分光器の特性のばらつきの干渉補正への影響を考慮すると、分光器の特性を記述することが必要になるが、現在のところ実現不可能である。また干渉に加えて、微量元素測定でも分光器依存性が問題になることが指摘されている^{16),17)}。さらに、メーカーが補正計算について正確かつ詳細な情報を提供しない場合は、適用した補正計算モデルやパラメーターをデータベース化することが不可能である。これらのことを考慮すると、未知試料についても長期保存を行い、いつでも再検討することができるようにしておくことが必要であると考えられる。これらのことを実現する体制をどのように整備するか、今後検討する必要がある。

3.3 作業の流れ・意思決定プロセス・ノウハウなどの整理

3.1と3.2で得られた情報、分析結果及び分析技術の検討結果に基づいて、後背地解析に有効な微小領域のEPMA分析技術に関して、原子力機構が開発した次世代型サイト特性調査情報統合システムに取り込めるように、作業の流れ、意思決定プロセス、ノウハウなどの整理を行うことが重要である。しかし、現状では測定技術に限界があるため、現行のノウハウなどをそのまま蓄積するのではなく、問題点についてもあわせて蓄積する必要があり、この観点での整理が今後重要となる。また、3.2.4で示したように、標準物質や未知試料の保存も重要であるため、「もの」の保管システムとの連携を検討しなければならない。

分析機器の性能が向上し、ユーザーは内部について理解していなくてもEPMA分析は可能になっている。しかし、補正計算モデルを含め装置内部で行われている処理は時代とともに変化していることがユーザーには認識しにくくなっている。そのため、再現性を確保するために必要な情報を把握していなければ、不正確な記録を残すことにつながりかねない。

以上のことから、ルーチン化された測定技術を維持するだけでは不十分であり、長期にわたり地質環境とエックス線分光分析の両方の視点で検討を行う人材を維持していく必要がある。人材育成の体制も含め今後検討していかなければならない。

4. まとめ

EPMA 定量分析では、用いるモデルやパラメーター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するため、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。

謝辞

本研究では、鈴木和博名古屋大学名誉教授の助言を頂きました。ここに深く感謝します。

引用文献

- 1) Kato, T., Jeon, M.-J. and Cho, D.-L., Validation of physical parameters in quantitative electron probe microanalysis (EPMA) Part I – mass attenuation coefficients, *Earth and Planetary Sciences Nagoya University*, vol.60, 2013, pp.1-91.
- 2) Chantler, C.T., Olsen, K., Dragoset, R.A., Chang, J., Kishore, A.R., Kotochigova, S.A. and Zucker, D.S., X-ray Form Factor, Attenuation and Scattering Tables (version 2.1), 2005, [Online] Available: <http://physics.nist.gov/ffast>, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, M.D.
- 3) Heinrich, K.F.J., Mass absorption coefficients for electron probe microanalysis, In: Brown, J.D. and Packwood, R.H. (eds.), *Proceedings of the 11th International Congress of X-ray Optics and Microanalysis*, University of Western Ontario Press, London, Ontario, 1987, pp.67-119.
- 4) Heinrich, K.F.J., X-ray absorption uncertainty, In: McKinley, T.D., Heinrich, K.F.J. and Wittry, D.B. (eds.), *The Electron Microprobe*, John Wiley and Sons, New York, 1966, pp.196-377.
- 5) Pouchou, J.L. and Pichori, F., Quantitative analysis of homogeneous or stratified microvolumes applying the model “PAP”, In: Heinrich, K.F.J. and Newbury, D.E. (eds.), *Electron Probe Quantitation*, Plenum Press, New York, 1991, pp.31-75.
- 6) Love, G., Cox, M.G. and Scott, V.D., A versatile atomic number correction for electron-probe microanalysis, *Journal of Physics D*, vol.11, 1978, pp.7-21.
- 7) Armstrong, J.T., Quantitative elemental analysis of individual microparticles with electron beam instruments, In: Heinrich, K.F.J. and Newbury, D.E. (eds.), *Electron Probe Quantitation*, Plenum Press, New York, 1991, pp.261-315.
- 8) Pouchou, J.L. and Pichoir, F., Extension des possibilités à la microsonde électronique, *Journal de Physique Colloques*, vol.C2 45, 1984, pp.47-50.
- 9) Duncumb, P. and Reed, S.J.B., The calculation of stopping power and backscatter effects in electron probe microanalysis, In: Heinrich, K.F.J. (ed), *Quantitative Electron Probe Microanalysis, NBS Special Publication 298*, U.S. Government Printing Office, Washington D.C., 1968, pp.138-154.

- 10) Philibert, J. and Tixier, R., Electron penetration and the atomic number correction in electron probe microanalysis, *British Journal of Applied Physics*, vol.1, 1968, pp.685-694.
- 11) Philibert, J. A., method for calculating the absorption correction in electron probe microanalysis, In: Cosslet, V.E. and Engstrom, A. (eds.), *X-ray Optics and X-ray Microanalysis*, Academic Press, New York, 1963, pp.379-392.
- 12) Kusiak, M.A., Whitehouse, M.J., Wilde, S.A., Nemchin, A.A. and Clark C., Mobilization of radiogenic Pb in zircon revealed by ion imaging: Implications for early Earth geochronology, *Geology*, vol.41, 2013, pp.291-294.
- 13) Tilton, G.R., Davis, G.L., Wetherill, G.W. and Aldrich, L.T., Isotopic ages of zircon from granites and pegmatites, *Transactions, American Geophysical Union*, vol.38, 1957, pp.360-371.
- 14) Scärer, U. and Allègre, C.J., Investigation of the Archean crust by single-grain dating of detrital zircon: a greywacke of the Slave Province, Canada, *Canadian Journal of Earth Sciences*, vol.19, 1982, pp.1910-1918.
- 15) Suzuki, K., Discordant distribution of U and Pb in zircon of Naegi granite: A possible indication of Rn migration through radiation damage, *Geochemical Journal*, vol.21, 1987, pp.173-182.
- 16) Donovan, J.J., Lowers, H.A. and Rusk, B.G., Improved electron probe microanalysis of trace elements in quartz, *American Mineralogist*, vol.96, 2011, pp.274-282.
- 17) Kato, T. and Suzuki, K., 'Background holes' in X-ray spectrometry using a pentaerythritol (PET) analyzing crystal, *Journal of Mineralogical and Petrological Sciences*, vol.109, 2014, pp.151-155.

付録 5

炭酸塩鉱物の LA-ICP-MS による U-Pb 年代測定法の開発

平成 26 年度共同研究報告書

平成 27 年 1 月

国立大学法人京都大学

京都フィッション・トラック

独立行政法人日本原子力研究開発機構

目次

1. 概要	1
1.1 共同研究名	1
1.2 研究目的	1
1.3 実施期間	1
2. 研究内容	2
2.1 研究概要	2
2.2 共同研究内容	3
3. 研究手法	4
3.1 炭酸塩鉱物の年代測定法の確立に際して有益な標準試料の選定・採取	4
3.2 LA-ICP 質量分析計によるウラン系列年代測定法の研究・開発及び炭酸塩鉱物試料への応用	4
4. 研究成果	7
4.1 炭酸塩鉱物の年代測定法の確立に際して有益な標準試料の選定・採取	7
4.2 若いジルコンに対する LA-ICP 質量分析計によるウラン系列年代測定法の研究・開発	8
4.2.1 放射非平衡の影響	9
4.2.2 放射非平衡の補正係数	12
4.2.3 第四紀ジルコンの年代測定	15
4.2.4 炭酸塩鉱物への応用	16
4.3 閉鎖系評価のための元素イメージング技術	16
5. まとめ	20
引用文献	20

図目次

図 2.1-1 炭酸塩鉱物のカソードルミネッセンス(CL)の累帯構造と分析点の概略図	2
図 3.2-1 LA-ICP 質量分析計の概念図	6
図 4.1-1 標準試料分析から未知試料分析へのアプローチ	7
図 4.2-1 初生非平衡を考慮に入れた鉛同位体成長曲線	11
図 4.2-2 ^{238}U - ^{206}Pb 、 ^{235}U - ^{207}Pb 年代と放射非平衡の影響を受けない ^{232}Th - ^{208}Pb を対比することで算出した補正係数分布図 (f_{ThU} 、 f_{PaU})	15
図 4.2-3 三瓶木次から採取されたジルコンの年代分析例	16
図 4.3-1 LA-ICP 質量分析法を用いた元素イメージング分析の測定概念図	18
図 4.3-2 マダガスカル産アンモナイト (試料番号 SJF15) の一部分から得られた鉛-トリウム-ウランの元素分布 (元素イメージング)	19

表目次

表 4-1 平成 26 年度に収集した炭酸塩からなる海生化石	8
--------------------------------	---

1. 概要

1.1 共同研究名

炭酸塩鉱物の LA-ICP-MS による U-Pb 年代測定法の研究

1.2 研究目的

わが国の高レベル放射性廃棄物の地層処分計画を円滑に進めていくためには、処分事業や安全規制の基盤となる技術を整備・強化してゆくための研究開発を着実に進めていく必要がある。具体的には、地層処分システムの長期的な変化をモデル計算によって予測・評価しつつ、その結果に基づいてシステムの性能や安全性の判断を行うことになるが、モデルを構築していく上で、モデルの作成に必要となる情報やモデルの検証に用いるデータを取得するための革新的な要素技術の開発として、炭酸塩鉱物の放射年代測定技術及び酸化還元電位推定技術の開発を進める必要がある。

この技術開発の一環として本共同研究では、レーザーアブレーション誘導結合プラズマ質量分析法 (Laser Ablation Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry ; 以下、「LA-ICP 質量分析法」という) を用いた炭酸塩鉱物の微小領域を対象とした年代測定技術の開発、特に U-Pb 年代法の技術開発を目指し、同位体比の測定及び元素分析手法の開発を実施する。分析対象となる割れ目及び断層を充填する炭酸塩鉱物は細脈状であることが多く、かつ年代的な累進を示す累帯構造をあわせ持つ。これらのことは、炭酸塩鉱物の年代測定に際して、微小領域での分析が必要であることを意味する。この微小領域の分析に際して LA-ICP 質量分析法であれば数十 μm 以下の試料領域の分析が期待できる。しかし、炭酸塩鉱物に対して LA-ICP 質量分析法による年代測定の既存研究例は極めて少ない。京都大学は、鉱物の U-Pb 年代測定法に特化した同位体比測定が可能な LA-ICP 質量分析法による分析技術の構築や高速元素マッピング測定手法の開発を行っており、その研究実績や研究に関連するノウハウを有している。また、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を標準試料として対象とすることが望ましい。京都フィッション・トラックは、鉱物の U-Pb 年代測定法などの開発を行っており、その測定で必須となる標準試料に関する豊富な知識を有している。日本原子力研究開発機構 (以下、「原子力機構」という) は、鉱物の放射年代測定法の開発や炭酸塩鉱物を利用した地下水の地球化学特性の推定などの研究実績を有し、また測定試料作製や試料の元素組成や構造を把握するための分析装置を所有しており、本年度中にレーザーアブレーション誘導結合プラズマ質量分析計 (Laser Ablation Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer ; 以下、「LA-ICP 質量分析計」という) も導入予定である。

本共同研究では、三者のノウハウを活用し、LA-ICP 質量分析法による炭酸塩鉱物に対する年代測定技術の構築を行う。

1.3 実施期間

平成 26 年 10 月 14 日～平成 27 年 1 月 31 日

2. 研究内容

2.1 研究概要

炭酸塩鉱物は岩盤中に広く一般的に産出する鉱物であるため（西本ほか, 2008¹⁾; Nishimoto and Yoshida, 2010²⁾; Iwatsuki and Yoshida, 1999³⁾; Yoshida et al., 2000⁴⁾; 吉田, 2012⁵⁾; 横田・吉田, 2013⁶⁾）、汎用的な古環境指標物質として利用が期待できる。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考えられる。そのため、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）では、「革新的要素技術開発」の一項目として「炭酸塩鉱物測定技術」の開発を進めている。

「炭酸塩鉱物測定技術開発」では、割れ目や断層における炭酸塩鉱物の生成年代の推定、及び炭酸塩鉱物が形成される際の地下水の化学的特徴の推定を行うため、炭酸塩鉱物を対象とした革新的な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を目指している。割れ目や断層を充填する炭酸塩鉱物の生成年代が推定できれば、割れ目や断層の形成・発達に関する時間-温度履歴が定量的に議論できる。また同一の炭酸塩鉱物中に存在する累帯構造（鉱物成長方向）ごと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議論することが可能となる（図 2.1-1）。

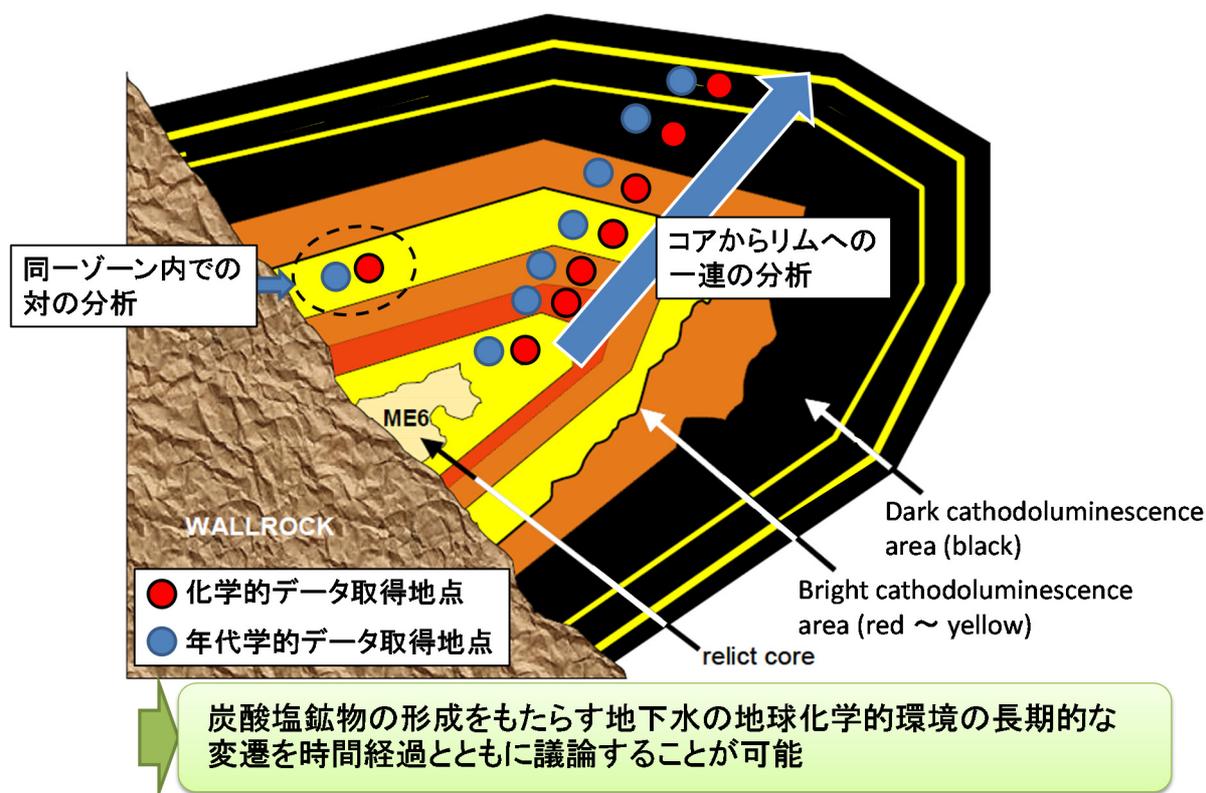


図 2.1-1 炭酸塩鉱物のカソードルミネッセンス(CL)の累帯構造と分析点の概略図 (Milodowski et al., 2005⁷⁾を改定)

2.2 共同研究内容

放射年代測定法と酸化還元電位測定技術の研究開発に際して、それぞれで以下の三項目の重要課題を有すると考える。

<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

これらの重要課題を解決するため、本共同研究開始に当たり、平成 26 年 11 月 13 日に京都大学にて原子力機構、京都大学及び株式会社京都フィッション・トラックの間で研究の方向性を確認する打合せを行った。その結果、本共同研究では A-1 と A-2 を解決するための「LA-ICP-MS による炭酸塩鉱物のウラン系列年代測定法の研究・開発」及び A-3 を解決するための「炭酸塩鉱物の年代測定法の確立に際して有益な標準試料の選定・採取」を実施することとした。また、B-1 の解決に当たっては、鉄などの酸化還元電位の評価に必要な主要元素組成分析技術の構築のため、A-1 及び A-2 で開発を行う LA-ICP 質量分析法による微小領域分析の応用を検討することとした。

平成 26 年度は、選定し得られた炭酸塩試料が希少（例えば、化石）かつ分析対象領域が微小であることから、炭酸塩鉱物を対象とした分析としては、試料へのダメージや消費の少ないウラン系列年代測定法の開発に必要な微量元素イメージング分析に留まり、X 線回折による結晶構造の分析や主に酸化還元電位の推定に必要な鉄など主要元素分析は今後の課題として残った。

3. 研究手法

3.1 炭酸塩鉱物の年代測定法の確立に際して有益な標準試料の選定・採取

本研究の目的は、割れ目及び断層を充填する炭酸塩鉱物の年代測定を実施することである。これらの炭酸塩鉱物は細脈を成し、累帯構造を呈する。このため、LA-ICP 質量分析法による数十 μm 以下の微小領域の同位体比測定技術及び元素分析技術の開発が必要となる。この目標の達成のため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を評価し、補正技術を確立することが不可欠となる。つまり、どのような炭酸塩鉱物を標準試料として選定するかが重要となる。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を明らかにし、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を提案する。また、この選定基準に適合する炭酸塩試料の収集を実施し、結果を 4.1 にまとめた。

3.2 LA-ICP 質量分析計によるウラン系列年代測定法の研究・開発及び炭酸塩鉱物試料への応用

LA-ICP 質量分析計は、高周波誘導結合プラズマ (ICP) とよばれる大気圧の高温アルゴンプラズマをイオン源にもつ質量分析計の一種である。8,000 $^{\circ}\text{C}$ 以上の高温プラズマをイオン源に用いることで、周期律表のほとんどの元素に対して 90 % 以上のイオン化効率が得られ、これまでイオン化が難しかった元素 (例えば、鉄、水銀、ハフニウム、タングステン、トリウム、ウランといったイオン化ポテンシャルが高い元素、鉛、ゲルマニウム、亜鉛といった揮発性の高い元素) 対しても高感度分析が可能である (Becker, 2008⁸⁾; Dobrowolska and Matuschi, 2007⁹⁾; Günther and Hattendorf, 2005¹⁰⁾; Günther and Heinrich, 1999¹¹⁾; 平田ほか, 2004¹²⁾)。さらに、イオン源が大気圧であることから、様々な試料導入法が適用可能であり、固体・液体・気体のあらゆる態の試料の化学分析に対応できるという特長をもつ。レーザーアブレーション試料導入法 (Laser Ablation Sample Introduction Technique : 以下、「LA 法」という) は、固体試料の直接分析のための試料導入法の一つであり、分析感度、繰り返し再現性、簡便性及び迅速性の高さから、地球化学分野では岩石・鉱物中の微量元素分析や、局所年代測定に広く用いられている (図 3.2-1)。

LA-ICP 質量分析法や二次イオン質量分析法、電子線マイクロプローブ分析法 (EPMA) などの局所分析法が分析対象とする固体試料は、岩石、セラミックス、高純度物質、半導体物質、新機能材料など多岐にわたり、試料の化学組成や物性 (色、硬度、融点、熱伝導率など) は試料ごとに大きく異なる。こうした多様な固体試料から正確な元素分析情報を引き出すためには、未知試料と類似した化学組成・物性をもつ標準試料を用いて信号校正・定量化する必要がある。しかし、試料と化学組成が一致し、さらに分析対象元素の濃度が既知である標準試料が入手できる場合は少なく、多くの場合で標準試料と未知試料の主要成分組成は異なったものとなる。このような場合、試料主要構成成分の違いによって信号強度変化が変化し、得られる定量結果に系統誤差が現れることがある。これをマトリックス効果 (あるいは非質量スペクトル干渉) と呼び、分析結果の系統誤差の主因となっている。LA-ICP 質量分析法においても、主要構成成分の違いにより、レーザーアブレーション効率 (蒸発効率、エアロゾル生成率、エアロゾルのサイズ分布及びクレータ周辺への再沈着の影響) や、イオン化効率、質量分析計内でのイオン透過効率に変化が生じ、分析結果に系統誤差が生じる。しかし、LA-ICP 質量分析法では、他のプローブ分析法と比較してマトリックス効果が小さいことが知られている。これは、LA-ICP 質量分析法ではポストイオン化が達成されているためである。多くのプローブ分析法あるいは質量分析計では試料のサンプリングとイオン化が同時に行なわれるのに対し、LA-ICP 質量分析法では、サンプリングはレーザーアブレーション、イオン化は高温プラズマがそれぞれ役割を分担する。これにより、両者の操作条件を独立に最適化することができる。こうした定量性の高さを利用して、LA-ICP

質量分析法はジルコンの U-Pb 年代測定法として広く用いられてきた（例えば、Hirata and Nesbitt, 1995¹³; Iizuka and Hirata, 2004¹⁴; Orihashi et al., 2008¹⁵; Gaboardi and Humayun, 2009¹⁶; Kimura and Chang, 2012¹⁷）。LA-ICP 質量分析法が実用化された当初は、古いジルコン（> 500 Ma）の年代測定や、年代のスクリーニング分析に用いられてきたが、最近 10 年間の ICP 質量分析計の分析感度の向上やレーザー発振技術の向上（短波長化や短パルス化）にともない、レーザー照射径の絞り込み（直径 5~30 μm 程度）や、年代測定の高精度化が達成され、今では 1 Ma を下回る“若い”ジルコンからも正確な年代データを引き出すことが可能となっている。

LA-ICP 質量分析法は、その高い分析性能（定量性と空間分解能）と操作性・迅速性から様々な分析局面に応用されている。最近の元素分析では、より低濃度の元素を迅速かつ正確に分析することに加え、試料を構成する主要成分に対しても定量分析を行いたいという要請も増えてきている。主要成分の同時分析は LA-ICP 質量分析法を用いた化学分析では特に重要である。主要成分を内標準として用いることで、分析データの信頼性を飛躍的に改善できるためである。主要成分と微量成分を同時に計測するためには、イオン検出器の信号出力直線性（ダイナミックレンジ）が広くなければならない。ICP 質量分析計に用いられているイオン検出法は、イオンマルチプライアーを用いたパルスカウンティング法（PC 法）が一般的である。この方式では、微量成分から主要成分までの約 6~7 桁をカバーすることが可能であり、固体中の 1 ppb (ng/g) の超微量成分から 1,000 ppm ($\mu\text{g/g}$) レベルの副成分までを同時に計測できる。しかし、最近の分析要請となっている主要成分は試料の数%~数十%の濃度レベルであるため、超微量元素と同時に主要成分を計測するには、従来の 6~7 桁のダイナミックレンジでは不十分である。このため、ICP 質量分析計には、PC 法に加え、より強いイオン信号を計測するためにアナログ検出（PC 法と異なり、イオンを電流として計測する手法）が併用されている。アナログ検出法を用いることで、従来の PC 法のみでのイオン検出法よりも、さらに 2 桁程度ダイナミックレンジ（信号出力直線性）が広がり、トータルで 8~9 桁程度のダイナミックレンジ（ppb レベルの超微量元素から数%レベルまでの主要元素の濃度範囲をカバーすることが可能）が達成できている。しかし、主要成分の計測時にはマルチプライアーには強いイオン信号が入射されるため、長時間におよぶ分析では検出器の増幅率やバックグラウンドの経時変化が避けられず、パルスカウンティング法—アナログ検出法間の正確な切り替え（リニアリティ校正）が難しいという問題が生じる。こうした問題から最新の装置では、マルチプライアーの直前にアッテネータとよばれる特殊なイオンレンズを配置し、マルチプライアーに入射するイオン数を抑制する機能を持ったものが市販されている。京都大学に設置されている Nu Instruments 社製 AttoM HR-ICP 質量分析計では、アッテネータによりイオンの数を約 500 分の 1 に“間引く”ようになっている。アッテネータの on/off の切り替えは 1 ミリ秒以下の早さで行われるため、高速質量走査中にある特定の同位体信号（主要成分）のみを 500 分の 1 に低減（抑制）することができる。このサプレッサー技術を用いることで、マルチプライアーの増幅率やバックグラウンドの変動が低減でき、単一のイオン検出器を用いて、そのダイナミックレンジを 9 桁以上にまで改善することができる。特に LA-ICP 質量分析計を用いた U-Pb 年代測定においては、検出器系のダイナミックレンジは非常に重要である。このイオン計測方式を用いることで、分析技術的には若いジルコンから正確な年代情報を引き出すことが可能となった（坂田ほか, 2013¹⁸; Sakata et al., 2015¹⁹）。本研究で目指す炭酸塩鉱物の年代測定についても、アッテネータ方式が極めて有力である。

本研究が分析対象とする、割れ目や断層を充填する炭酸塩鉱物は、年代値として数万年オーダーの時間分解能を求められる。そのため、まずは LA-ICP 質量分析法で比較的手法の確立されたジルコンの U-Pb 年代測定に注目し、特に若い年代を示すジルコンを対象として、高精度な年代

測定技術開発を試みた。また、炭酸塩鉱物の U-Pb 年代測定技術開発に際し、若いジルコンの年代測定にかかるもう一つの大きな問題であると考えられる、初生同位体非平衡の問題に関して基礎データを取得し、炭酸塩鉱物への応用性を検討した。さらに、年代測定技術開発にあたって、LA-ICP 質量分析法を用いて分析すべき領域の元素の拡散や移動及び鉱物・結晶間での元素の交換についての情報を取得するため、元素イメージング分析手法の開発を行った。平成 26 年度に取得した研究成果を、本共同研究報告書の 4 章にまとめた。

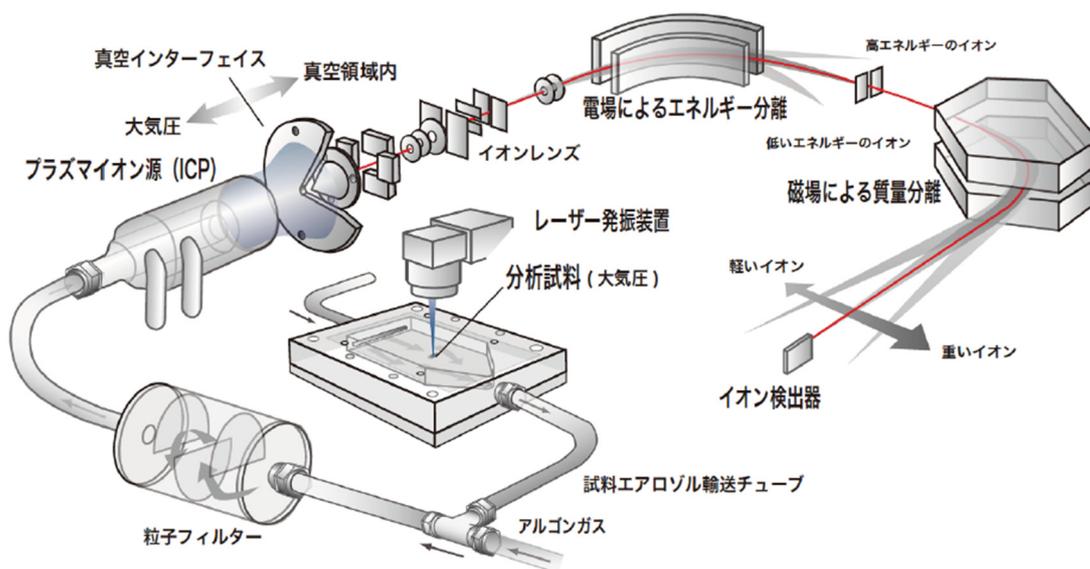


図 3.2-1 LA-ICP 質量分析計の概念図

LA-ICP 質量分析法では、レーザーにより固体試料の局所部分を加熱・気化させ、生成した分析元素蒸気や試料エアロゾルをアルゴンまたはヘリウムガスを用いてイオン源である ICP に導入する。イオン源が大気圧であるため試料を真空領域内に設置する必要が無く、迅速な化学分析が可能である。

4. 研究成果

4.1 炭酸塩鉱物の年代測定法の確立に際して有益な標準試料の選定・採取

LA-ICP 質量分析法による炭酸塩鉱物の微小領域の同位体比測定技術及び元素分析技術の開発に有益な標準試料となり得る炭酸塩鉱物の選定基準を検討し、それを踏まえて、年代測定技術の構築に向けて必要なアプローチを探った。炭酸塩鉱物の年代測定手法の適用性検討に際しては、既往研究により年代が推定されている炭酸塩鉱物を標準試料として対象とすることが望ましい（例えば、Beets and De Ruig, 1992²⁰; Gao et al., 1992²¹; Russell et al., 1996²²; Israelson et al., 1996²³; Rasbury et al., 1997²⁴; Ortega et al., 2005²⁵; Boix et al., 2011²⁶; Kakizaki et al., 2012²⁷; Nuriel et al., 2012²⁸; McArthur et al., 2012²⁹; Kuznetsov et al., 2013³⁰; Li et al., 2014³¹; Cros et al., 2014³²）。

本研究では、まず第1段階として「炭酸塩からなる海生化石」を標準試料として用いる。海生化石は層序から年代が既知であるものが多い（例えば、有孔虫など）。また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。まずはこれら様々な年代の示準化石のうち、炭酸塩からなる海生化石を対象に年代測定を系統的に実施し、測定技術の開発と得られた年代と成因や続成作用との間の影響評価を実施する。炭酸塩からなる海生化石を用いるメリットとして、LA-ICP 質量分析法でウランや鉛を測定する際にストロンチウム同位体比情報を取得し、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。この検討により、炭酸塩鉱物を①直接的に年代が取得できる化石及び②何らかの補正を行うことで年代を得ることが出来る化石の二種類に大別することが可能となる。この分別に基づき、炭酸塩からなる海生化石に対するデータを蓄積することにより、体系的な年代測定技術の構築が可能となる。

第2段階として、「炭酸塩岩」を標準試料として利用する。炭酸塩岩としては、鍾乳石、蒸発岩、海成の炭酸塩鉱物である方解石やドロマイトなどの炭酸塩岩を想定している。この測定の際には、前段階と同様に U-Pb 年代値とストロンチウム同位体比データの取得を同時に行う。この段階において、試料評価方法のさらなる向上を図る。

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されれば、第3段階として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を実施する。

このように上述した3段階のアプローチ「炭酸塩からなる海生化石の年代測定」、「炭酸塩岩の年代測定」及び「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」を経て、炭酸塩鉱物の年代測定技術の確立を行う（図 4.1-1）。

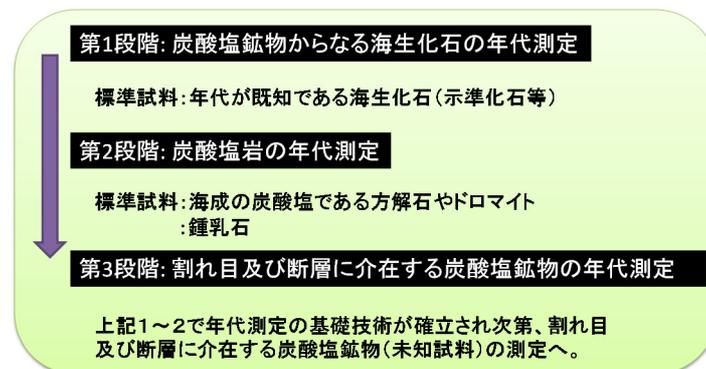


図 4.1-1 標準試料分析から未知試料分析へのアプローチ

まず、アプローチの第1段階に相当する、炭酸塩からなる海生化石の収集を実施した。表 4-1 において、本年度収集した 25 種の海生化石を示す。得られた化石の内、「マダガスカル産アンモナイト化石 (SJF15)」におけるマッピングを実施した (4.3 参照)。

表 4-1 平成 26 年度に収集した炭酸塩からなる海生化石

地質時代区分	試料番号	化石	
新生代	新第三紀鮮新世初期	SJF27	オパキュリナ(有孔虫類)
	新第三紀鮮新世	SJF24	フォルティペクテン(二枚貝)
	新第三紀中新世	SJF26	ミオジプシナ(有孔虫類)
	古第三紀始新世	SJF23	オトドス(サメの歯)
		SJF22	ヌムリテス(貨幣石石灰岩)
		SJF21	ヌムリテス(貨幣石)
中生代	白亜紀	SJF20	ヘミニューステス(ウニ)
		SJF19	アクロテウチス(ベレムナイト)
		SJF18	ライエリセラス(アンモナイト)
		SJF17	プラコスミア(六放サンゴ)
	ジュラ紀	SJF15	アリガティセラス(アンモナイト)
古生代	ペルム紀	SJF25	紡錘虫石灰岩(二畳系・赤坂石灰岩)
		SJF14	パラフズリナ(紡錘虫)
	石炭紀	SJF12	ペントレミテス(ウミツボミ)
		SJF11	タプロフィルム(四放サンゴ)
		SJF10	シュードザフレントイデス(四放サンゴ)
		SJF09	ヘテロカニア(四放サンゴ)
	デボン紀	SJF08	トリゴニリンチア(ワンソク類リンコネラ)
		SJF07	キルトスピリファー(ワンソク類スピリファー)
		SJF06	パシファコプス(三葉虫)
		SJF05	ゲイソノセラス(直角石)
	シルル紀	SJF04	ファボシテス(ハチノスサンゴ)
	オルドビス紀	SJF03	クリノイド(ウミユリー茎)
	カンブリア紀	SJF02	エルラシア(三葉虫)
先カンブリア時代	原生代	SJF01	コレニア

4.2 若いジルコンに対する LA-ICP 質量分析計によるウラン系列年代測定法の研究・開発

本研究で分析対象とする、割れ目や断層を充填する炭酸塩鉱物のウラン系列年代測定法においては、時間分解能として、数万年オーダー以下の分析精度が求められる。炭酸塩鉱物の年代測定を行う上で、現時点で比較的分析手法の確立されている、LA-ICP 質量分析計によるジルコンの年代測定手法を利用し、その応用を試みる必要がある。特に若い年代を示す試料に対して半減期の長い放射性核種を利用した年代測定法(例えば、U-Th-Pb 年代測定法)を適用する場合、従来の放射平衡論に基づく年代測定が困難である。既存報告においては 50 万年よりも若いジルコンの U-Pb 年代測定手法は確立されていない。

そこで、本共同研究では、最終的に目標とする炭酸塩の年代測定を行う上で必要不可欠と考えられる 50 万年よりも若い年代を示す試料の U-Pb 年代測定における放射非平衡の課題を明確にし、

解決を図るため、“若いジルコン”を分析対象として放射非平衡の影響を考察し、第四紀ジルコンの年代測定を試みた。また、これらの研究成果を基盤として、炭酸塩鉱物への応用を考察した。

4.2.1 放射非平衡の影響

U-Th-Pb 年代測定法は、半減期の長い放射性核種を利用した年代測定法 (^{238}U : 4.468×10^9 年 [壊変定数: $\lambda_{238} = 1.551 \times 10^{-10} \text{ a}^{-1}$], ^{235}U : 7.038×10^8 年 [$\lambda_{235} = 9.849 \times 10^{-10} \text{ a}^{-1}$], ^{232}Th : 1.405×10^{10} 年 [$\lambda_{232} = 4.933 \times 10^{-11} \text{ a}^{-1}$]) であるため、第四紀のような若いジルコンでは放射壊変起源の鉛が少なく、正確な年代測定は困難であった。これまでに 2 Ma より若いジルコンの年代測定例も報告されている (Sano et al., 2002³³; Cocherie et al., 2009³⁴) が、より正確な年代情報を引き出すためには、U-Th-Pb 放射壊変系列の放射非平衡の影響を考慮に入れる必要がある (Schärer, 1984³⁵)。従来の U-Th-Pb 年代測定法では、ジルコン形成時にウラン系列 (^{238}U - ^{206}Pb)、アクチニウム系列 (^{235}U - ^{207}Pb)、トリウム系列 (^{232}Th - ^{208}Pb) の放射壊変生成核種が放射平衡にあることを仮定している。この場合、親核種 (^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U)、放射壊変生成物 (^{208}Pb , ^{207}Pb , ^{206}Pb)、試料の年代(t)の間には以下の関係が成立する。

$$\frac{{}^{206}\text{Pb}}{{}^{238}\text{U}} = e^{\lambda_{238}t} - 1 \quad (1)$$

$$\frac{{}^{207}\text{Pb}}{{}^{235}\text{U}} = e^{\lambda_{235}t} - 1 \quad (2)$$

$$\frac{{}^{208}\text{Pb}}{{}^{232}\text{Th}} = e^{\lambda_{232}t} - 1 \quad (3)$$

しかし、実際には、ジルコン形成時に、放射壊変系列の全ての核種が同じ濃度比でジルコンに取り込まれていないため、ジルコン晶出時に放射平衡が成り立たなくなる (初生非平衡)。したがって、ジルコン形成後の鉛の同位体成長速度は正確には上式(1)~(3)で表すことができない。放射平衡からどれだけ乖離するかは、マグマ中での元素存在度とジルコン中での元素存在度がどれくらい変化するかで見積もることができる (厳密には元素の存在度ではなく、親核種であるウラン、トリウムと放射壊変生成核種の存在比で表される)。また、それぞれの放射壊変系列核種が、どれくらいのタイムスケールで放射平衡に戻るかは、その核種の半減期で決まる。換言すれば U-Th-Pb 壊変系列で放射非平衡の影響は、半減期の長い核種がより顕著となる。放射壊変系列の核種の中で半減期が長い核種は、ウラン系列では ^{230}Th (半減期 7.538×10^4 年 [$\lambda_{230} = 9.195 \times 10^{-6} \text{ a}^{-1}$])、アクチニウム系列では ^{231}Pa (半減期 3.276×10^4 年 [$\lambda_{231} = 2.116 \times 10^{-5} \text{ a}^{-1}$]) であり (Farley et al., 2002³⁶)、これらの核種の非平衡が最も大きくなる。一方、トリウム系列では、親核種の ^{232}Th 以外で最も半減期の長い核種は ^{228}Ra の 5.75 年であり、 ^{232}Th - ^{208}Pb 壊変系列を用いた年代測定では放射非平衡の影響は事実上無視することが可能である。ジルコン晶出時に ^{230}Th と ^{231}Pa がどれだけ非平衡になったかは、マグマとジルコンで $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 比 (Th/U 比) 及び $^{231}\text{Pa}/^{235}\text{U}$ 比 (Pa/U 比) がどれだけ分別したかで決まる。これは、マグマとジルコン間での分配比 (D) を用いて表すことができる。分配比はある元素の、ジルコン中の濃度とジルコンを晶出した起源マグマ中の元素濃度の比で定義される。

$$D_{Zircon/Source\ Magma}^U = \frac{U_{Zircon}^{Initial}}{U_{Source\ Magma}^{Initial}} \quad (4)$$

$$D_{Zircon/Source\ Magma}^{Th} = \frac{Th_{Zircon}^{Initial}}{Th_{Source\ Magma}^{Initial}} \quad (5)$$

ここで、Initial はジルコン晶出時を示す。いま、Th と U の分配比の違い（比）を $f_{Th/U}$ 、Pa と U の分配比の違い（比）を $f_{Pa/U}$ とおく。

$$f_{Th/U} = \frac{D_{Zircon/Source\ Magma}^{Th}}{D_{Zircon/Source\ Magma}^U} \quad (6)$$

$$f_{Pa/U} = \frac{D_{Zircon/Source\ Magma}^{Pa}}{D_{Zircon/Source\ Magma}^U} \quad (7)$$

この f が 1 の場合は、ジルコン晶出時でも放射平衡が成立しているため、鉛同位体比の成長速度は式 (1)~(3) により正確に計算できる。しかし、一般にジルコン結晶に対する分配比は元素により異なるため、 f は 1 とはならない。Schärer (1984)³⁵⁾によれば、 $f_{Th/U}$ を用いることで、非平衡の影響を加味した $^{206}Pb/^{238}U$ 比及び $^{207}Pb/^{235}U$ 比の変化を計算することができる (図 4.2-1)。

$$\frac{^{206}Pb}{^{238}U} = e^{\lambda_{238}t} - 1 + \frac{\lambda_{238}}{\lambda_{230}} (f_{Th/U} - 1) \quad (8)$$

$$\frac{^{207}Pb}{^{235}U} = e^{\lambda_{235}t} - 1 + \frac{\lambda_{235}}{\lambda_{231}} (f_{Pa/U} - 1) \quad (9)$$

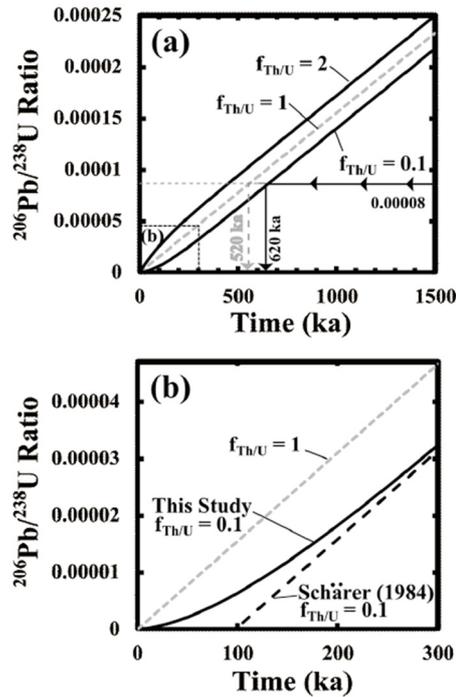


図 4.2-1 初生非平衡を考慮に入れた鉛同位体成長曲線

初生非平衡の程度は補正係数 f で定量化できる。 f に応じて、鉛の成長速度が変化する (a)。先行研究では、成長速度の相対的変化に注目した補正であるため、20 万年よりも若い試料に対しては相対誤差の原因となる (b)。Schärer (1984)³³⁾らによる補正計算では、原点 ($t=0$) の時、 $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}=0$ にならないことに注意されたい。

しかし、式(8)、(9)は ^{230}Th 、 ^{231}Pa が放射平衡に達した後の $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ 比、 $^{207}\text{Pb}/^{235}\text{U}$ 比の成長を計算することはできるが、平衡に達するまでの時間範囲 (^{230}Th で約 0.5 Ma、 ^{231}Pa で約 0.3 Ma まで) では正確な補正ができない。事実、式(8)、(9)では、 $t=0$ の時に原点 ($^{206}\text{Pb}^* = ^{207}\text{Pb}^* = 0$) を通らない。このため、0.1~1.0 Ma の年代をもつ試料の年代計算には、さらに正確な非平衡の補正が必要となる。そこで本共同研究では、より正確な放射非平衡の補正を行うために、鉛同位体成長速度の式を導く。Schärer (1984)³⁵⁾は、鉛成長速度が近似的に直線になると仮定して非平衡の影響を評価しているが、ここではその仮定は行わず、以下の三点のみを仮定する。

- (a) ジルコンが晶出するマグマ中ではウラン壊変系列の放射平衡が成立している。
- (b) マグマとジルコンで $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比は変化しない (^{238}U と ^{234}U は放射平衡を保持する)。
- (c) ジルコン晶出時に取り込まれる鉛は 0 と見なせる ($\text{Pb}^*=0$)。

ソースマグマ中では放射平衡 ($N\lambda = \text{一定}$) が成立しているので、 ^{238}U 、 ^{234}U 、 ^{230}Th には以下の関係が成り立つ。

$$\begin{aligned}
 ^{238}\text{U}_{\text{Source Magma}}^{\text{Initial}} \lambda_{238} &= ^{234}\text{U}_{\text{Source Magma}}^{\text{Initial}} \lambda_{234} \\
 &= ^{230}\text{Th}_{\text{Source Magma}}^{\text{Initial}} \lambda_{230}
 \end{aligned}
 \tag{10}$$

また、ジルコン中においても、上記仮定(b)、(c)より ^{238}U 、 ^{234}U 、 ^{206}Pb には以下の関係が成立する。

$${}^{238}\text{U}_{\text{Zircon}}^{\text{Initial}} \lambda_{238} = {}^{234}\text{U}_{\text{Zircon}}^{\text{Initial}} \lambda_{234} \quad (11)$$

$${}^{206}\text{Pb}_{\text{Zircon}}^{\text{Initial}} = 0 \quad (12)$$

一方、年代 t における ${}^{230}\text{Th}$ と放射壊変起源 ${}^{206}\text{Pb}$ には以下の関係が成立する。

$$\frac{d{}^{230}\text{Th}_{\text{Zircon}}}{dt} = {}^{234}\text{U}_{\text{Zircon}} \lambda_{234} - {}^{230}\text{Th}_{\text{Zircon}} \lambda_{230} \quad (13)$$

$$\frac{d{}^{206}\text{Pb}_{\text{Zircon}}^*}{dt} = {}^{230}\text{Th}_{\text{Zircon}} \lambda_{230} \quad (14)$$

式 (8)-(14) を解いて $\lambda_{230} - \lambda_{238} \doteq \lambda_{230}$ 、 $\lambda_{231} - \lambda_{235} \doteq \lambda_{231}$ と近似した後、式 (4)-(7) の関係から分配比 D を補正係数 f におきかえると、年代値 t と ${}^{206}\text{Pb}/{}^{238}\text{U}$ 比の関係を表した次式を得る。

$$\begin{aligned} \left(\frac{{}^{206}\text{Pb}_{\text{Zircon}}^*}{{}^{238}\text{U}_{\text{Zircon}}} \right) &= (e^{\lambda_{238}t} - 1) \\ &+ \frac{\lambda_{238}}{\lambda_{230}} (f_{\text{Th/U}} - 1) (1 - e^{-\lambda_{230}t}) e^{\lambda_{238}t} \end{aligned} \quad (15)$$

${}^{235}\text{U}$ - ${}^{207}\text{Pb}$ 壊変系列に関しても同様な取り扱いが可能である。

$$\begin{aligned} \left(\frac{{}^{207}\text{Pb}_{\text{Zircon}}^*}{{}^{235}\text{U}_{\text{Zircon}}} \right) &= (e^{\lambda_{235}t} - 1) \\ &+ \frac{\lambda_{235}}{\lambda_{231}} (f_{\text{Pa/U}} - 1) (1 - e^{-\lambda_{231}t}) e^{\lambda_{235}t} \end{aligned} \quad (16)$$

この式から初生放射非平衡が、鉛の同位体成長速度に大きく影響することが分かる。今、 $f_{\text{Th/U}} = 0.1$ である場合、非平衡の影響による系統誤差は 100 ka にもおよび、若いジルコンを分析する場合には、初生非平衡の補正が非常に重要であることが分かる。

4.2.2 放射非平衡の補正係数

補正係数 $f_{\text{Th/U}}$ を決定するには、ジルコン中の Th/U 比と、ジルコンを晶出したマグマの Th/U 比が分かればよい。 ${}^{238}\text{U}$ 、 ${}^{235}\text{U}$ と ${}^{232}\text{Th}$ の半減期が長いことから、若いジルコンに関しては、現在のジルコンの Th/U 比を晶出時のジルコンの Th/U 比とみなすことができる。一方、マグマの Th/U 比に関しては、ジルコンを含む母岩バルクの Th/U 比を適用する例 (Ito et al., 2013³⁷; Reid et al., 1997³⁸) や母岩中のメルトインクルージョンの Th/U 比を適用する例 (Crowley et al., 2007³⁹) がある。しかし、ジルコンが晶出したマグマは、様々な鉱物の結晶化、化学組成分化を経ているため、ジルコン晶出時から Th/U 比が大きく変動している可能性がある (Amelin and Zaitsev, 2002⁴⁰)。さらに、マグマ中で Th/U 比が不均一である可能性もあり、先行研究のように母岩の Th/U 比をその場のマグマの Th/U 比とみなすことはできない。そこで本共同研究では、ジルコンから ${}^{232}\text{Th}$ - ${}^{208}\text{Pb}$ 年代と ${}^{206}\text{Pb}/{}^{238}\text{U}$ 比、 ${}^{207}\text{Pb}/{}^{235}\text{U}$ 比を測定し、式(15)、(16)から $f_{\text{Th/U}}$ 、

$f_{\text{Pa/U}}$ 値を算出することとした。ここでは、 ^{232}Th - ^{208}Pb 年代が放射非平衡の影響を殆ど受けないことを利用する (Barth et al., 1989⁴¹)。また、 ^{238}U - ^{206}Pb 、 ^{235}U - ^{207}Pb 、 ^{232}Th - ^{208}Pb 年代測定法では、子孫核種はいずれも鉛 (ジルコン中での鉛の閉鎖温度は約 900 °C である (Lee et al., 1997⁴²)) であるため、ジルコンの ^{238}U - ^{206}Pb 、 ^{235}U - ^{207}Pb 、 ^{232}Th - ^{208}Pb 年代は同じ値を示すと考えてよい。

本共同研究では、霧ヶ峰流紋岩 (及川・西来, 2005⁴³)、ビショップ・タフ (Hildreth, 1979⁴⁴)、戸賀パミス (鹿野ほか, 2002⁴⁵)、三瓶木次パミス (町田・新井, 1992⁴⁶) から分離した四種類のテフラ由来ジルコン試料の U-Th-Pb 分析を行った。霧ヶ峰流紋岩 (Kiri02)、ビショップ・タフ (Bishop)、戸賀パミス (Toga) の三試料は、それぞれ同じ母岩から分離されたサニディンの ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代及びジルコンのフィッション・トラック年代 (ZFT 年代) が報告されている。Kiri02 は ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代が $0.945 \pm 0.005 \text{ Ma}$ (弘原海ほか, 1994⁴⁷)、ZFT 年代が $0.94 \pm 0.08 \text{ Ma}$ (杉原ほか, 2009⁴⁸)、Bishop は ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代が $0.7589 \pm 0.0036 \text{ Ma}$ (Sarna-Wajcicki et al., 2000⁴⁹)、ZFT 年代が $0.79 \pm 0.04 \text{ Ma}$ (岩野, 私信)、Toga は ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代が $0.42 \pm 0.01 \text{ Ma}$ (宇都ほか, 2010⁵⁰)、ZFT 年代が $0.42 \pm 0.08 \text{ Ma}$ (鹿野ほか, 2002⁴⁵) である。また、三瓶木次パミス (SK) に関しては ZFT 年代 $96 \pm 26 \text{ ka}$ (檀原, 私信)、海洋同位体ステージ (MIS) との対比により 99.9 ka (長橋ほか, 2007⁵¹) という年代が報告されている。これらのジルコン試料を厚さ約 1 mm のテフロンシート上にマウントし、表面を研磨した後、LA-ICP 質量分析法を用いて U-Th-Pb 同位体測定を行った。

ジルコン試料の局所年代分析は Nu Instruments 社製の AttoM HR-ICP 質量分析計と、波長 193 nm の ArF エキシマレーザーアブレーション装置 (New Wave Research 社製の NWR-193) を組み合わせて行った。レーザーの発振周波数は 8 Hz、エネルギー密度 (フルエンス) は約 2.5 J cm^{-2} 、レーザースポットサイズは $25 \mu\text{m}$ と $35 \mu\text{m}$ をジルコンの粒子サイズや放射壊変起源 Pb の濃度に応じて使い分けた。レーザーアブレーションにより生成した試料エアロゾルは、ヘリウムを用いてイオン源である ICP へと輸送した。ヘリウム雰囲気中でレーザーアブレーションすることでレーザー照射点周辺への試料の再沈着を低減することができる (Eggins et al., 1998⁵²; Günther and Heinrich, 1999⁵³; Jackson et al., 2004⁵⁴)。また、ヘリウムは熱伝導が高いため、レーザーアブレーションにより生成する試料エアロゾルのサイズを小さくでき、信号の得られる分析元素信号の安定性を大幅に改善することができる。ヘリウムは粘性が低いガスであるため、エアロゾルを輸送する能力が低い。このため試料エアロゾルの輸送過程での損失を低減するために、試料セル出口でアルゴンガス (メイクアップガス) を添加し、輸送効率を高めた。さらに本共同研究では、大きなサイズ ($> 1 \mu\text{m}$) の試料エアロゾルがプラズマに導入されるのを防ぐ目的でスタビライザーを用いた。これにより、スパイク状ノイズが低減でき、得られる各同位体信号の安定化が図れた (Tunheng and Hirata, 2004⁵⁵)。測定に用いたすべての Ar ガスは活性炭フィルターを通したものを使用した。活性炭フィルターを通すことにより鉛に対して質量スペクトル干渉を引き起こす水銀 (^{204}Pb に対し ^{204}Hg が質量スペクトル干渉する) のバックグラウンド信号強度を低減できる (Hirata and Nesbitt, 1995⁵⁶; Hirata et al., 2005⁵⁷)。ICP 質量分析計により計測される同位体信号の強度が一定の値 (約 $4.5 \times 10^6 \text{ cps}$) より大きくなった場合は、アッテネータにより信号を約 500 分の 1 に抑制し計測した。

本共同研究では、すべての分析でアブレーションブランク方式を用いてバックグラウンド信号強度補正を行った。通常の LA-ICP 質量分析計による分析では、バックグラウンドの測定に際し、レーザーを発振しない状態での信号強度をバックグラウンドとみなす (ガスブランク)。しかし、通常のガスブランクでは正確なバックグラウンド値が測定できない。レーザーアブレーションにより、レーザーエネルギーが固体試料の局所部分に印加される。これにより試料の温度が急速に

上昇し、同時に固体試料構成成分が爆発的に飛び出す。このときレーザー照射点から衝撃波が発生し、この衝撃波により試料表面に付着していた試料エアロゾルや、試料を格納するセル表面に付着するエアロゾルが飛び出し、これらが ICP に導入される。これにより同位体信号のバックグラウンド値がガスブランクに比べ高くなる（坂田ほか, 2013¹⁸⁾ ; Sakata et al., 2015¹⁹⁾）。こうした実験結果に基づき、本共同研究ではより正確なバックグラウンド補正を行うために、アブレーションブランク方式を採用した。

Kiri02、Bishop、Toga の三試料の ^{232}Th - ^{208}Pb 年代、 ^{238}U - ^{206}Pb 年代、 ^{235}U - ^{207}Pb 年代を測定した。 ^{232}Th - ^{208}Pb 年代は、Kiri02 : 0.940 ± 0.010 Ma ($n = 29$)、Bishop : 0.759 ± 0.016 Ma ($n = 23$)、Toga : 0.4296 ± 0.0066 Ma ($n = 31$) であった。ここで得られた ^{232}Th - ^{208}Pb 年代は、いずれも先行研究で報告されている ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代と誤差範囲で一致した。一般に ^{232}Th - ^{208}Pb 放射壊変系は、 ^{40}Ar - ^{39}Ar (^{40}K - ^{39}Ar) 放射壊変系に比べ閉鎖温度が高いため、 ^{232}Th - ^{208}Pb 年代がより古くなるものと期待される。しかし、本共同研究の結果では、Kiri02、Bishop、Toga のジルコン試料ともに、 ^{232}Th - ^{208}Pb 年代と ^{40}Ar - ^{39}Ar (^{40}K - ^{39}Ar) 年代は誤差の範囲で一致した。これはマグマ中での滞留時間が、本共同研究の年代測定精度の不確定性程度、あるいはそれ以下の非常に短い時間に起こったことを意味している。一方、 ^{238}U - ^{206}Pb 年代は、Kiri02 : 0.8841 ± 0.0055 Ma ($n = 70$)、Bishop : 0.7026 ± 0.0058 Ma ($n = 45$)、Toga : 0.3811 ± 0.0048 Ma ($n = 42$) となった。また ^{235}U - ^{207}Pb 年代は、Kiri02 : 1.027 ± 0.037 Ma ($n = 70$)、Bishop : 0.825 ± 0.038 Ma ($n = 45$)、Toga : 0.636 ± 0.056 Ma ($n = 42$) となった。 ^{232}Th - ^{208}Pb 年代と比べて、 ^{238}U - ^{206}Pb 年代が系統的に若めに、また ^{235}U - ^{207}Pb 年代が系統的に古めの値を示している。これは、図 4.2-2 から分かる通り、 $f_{\text{Th/U}}$ は 1 より小さく、 $f_{\text{Pa/U}}$ は 1 より大きいことを示唆する。 ^{238}U - ^{206}Pb 年代及び ^{235}U - ^{207}Pb 年代と、 ^{232}Th - ^{208}Pb 年代の対比より、式(15)、(16)から $f_{\text{Th/U}}$ 、 $f_{\text{Pa/U}}$ の値を計算した結果を図 4.2-2 に示す(誤差は標準誤差の 2 倍で表している)。 $f_{\text{Th/U}}$ の値は Kiri02 : 0.48 ± 0.11 、Bishop : 0.48 ± 0.16 、Toga : 0.56 ± 0.08 となり、誤差範囲で一致した。母岩のバルクの Th/U 比とジルコン結晶の Th/U 比から $f_{\text{Th/U}}$ の値を求めた先行研究(例えば、Schmitt et al., 2003⁵⁸⁾) では、 $f_{\text{Th/U}}$ は 0.2-0.3 の範囲を示しており、本共同研究で求めた値とは有意に異なる。両者の違いが、ジルコン形成過程に応じて $f_{\text{Th/U}}$ が変化するためなのか、あるいは先行研究では現在の母岩の Th/U 比とマグマの Th/U 比の差異に由来するものなのかは結論づけることはできない。特筆すべきは、本共同研究の手法ではジルコン結晶の分析のみから $f_{\text{Th/U}}$ (及び $f_{\text{Pa/U}}$) を算出できるため、先行研究と比較して起源マグマの化学組成に関する仮定が少なく、より信頼性の高い値が得られると考えられる点である。一方、 $f_{\text{Pa/U}}$ の結果は Kiri02 : 2.83 ± 0.80 、Bishop : 2.39 ± 0.87 、Toga : 5.3 ± 1.2 となった。ジルコンの $f_{\text{Pa/U}}$ の値を求めた研究例は多くないが、Schmitt (2007)⁵⁹⁾ は $f_{\text{Pa/U}} = 0.9$ - 2.2 という報告をしており、本共同研究で Kiri02 と Bishop から求めた f 値と誤差内で一致する。しかし、Toga の年代対比から求めた f 値は、Kiri02 と Bishop、あるいは先行研究とは大きく異なる値となった。これは Toga の ^{207}Pb の信号強度が非常に小さかったために、同位体分析時にわずかな Pb の汚染が生じ、観測される ^{235}U - ^{207}Pb 年代が系統的に古くなった可能性が高い。より信頼性のある $f_{\text{Pa/U}}$ 値を得るためには、測定同位体の数を絞る ^{207}Pb の測定積分時間を伸ばすなどの対処が必要であろう。

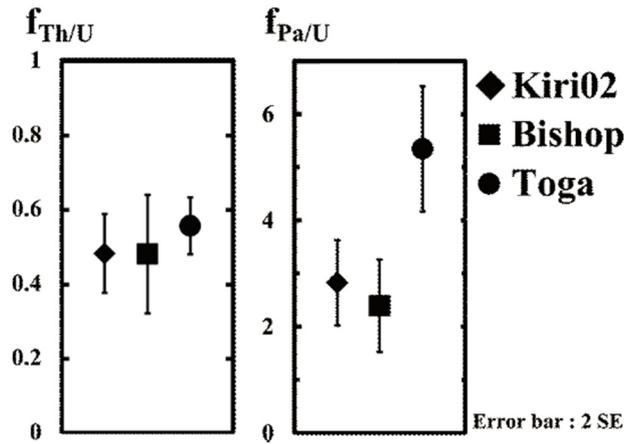


図 4.2-2 ^{238}U - ^{206}Pb 、 ^{235}U - ^{207}Pb 年代と放射非平衡の影響を受けない ^{232}Th - ^{208}Pb を対比することで算出した補正係数分布図 ($f_{Th/U}$ 、 $f_{Pa/U}$)
 本共同研究で分析した三試料に関して、 $f_{Th/U}$ は誤差範囲内で一致したが、 $f_{Pa/U}$ は Toga が他の試料と比較して異なる値を示した。

4.2.3 第四紀ジルコンの年代測定

本共同研究で求めた $f_{Th/U}$ 値 (Kiri02、Bishop、Toga に対する ^{238}U - ^{206}Pb 年代と ^{232}Th - ^{208}Pb 年代の対比による算出法) は、三つの試料間において誤差範囲内で一致した。これらのジルコンを晶出させたマグマは、おそらく異なる化学組成、圧力、温度分布を持っていたと考えられる。異なる条件下で晶出したにもかかわらず、測定される $f_{Th/U}$ の値が誤差範囲で一致したことは特筆すべきであろう。そこで本共同研究は、三試料から求めた $f_{Th/U}$ の平均値 ($f_{Th/U} = 0.51 \pm 0.11$ 、2 SE [SE: Standard Error]) が、ジルコン晶出時に普遍的な値であると仮定し、この $f_{Th/U}$ 値を用いて SK (三瓶木次パミス) ジルコンの U-Th-Pb 年代測定を試みた。コンコーディア曲線の算出には $f_{Th/U}$ 値と $f_{Pa/U}$ 値が必要となる。また、若いジルコンの $^{207}\text{Pb}/^{235}\text{U}$ 比測定では、 ^{207}Pb 信号が微弱となるため、統計誤差の影響により繰り返し再現性が低くなる。このため、通常のコンコーディア図では、 $^{207}\text{Pb}/^{235}\text{U}$ 比に付随する大きな測定誤差のため、コンコーディア曲線上にプロットされるかどうかの判断が難しくなる。そこで本共同研究では、通常のコンコーディア図で用いられる $^{207}\text{Pb}/^{235}\text{U}$ 比に代えて、横軸に $^{208}\text{Pb}/^{232}\text{Th}$ 比、縦軸に $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ 比をとった“改訂コンコーディア図”を SK ジルコン測定値に適用した (図 4.2-3)。このプロットでは、 $^{208}\text{Pb}/^{232}\text{Th}$ 比では非平衡の影響が無視できるため補正の必要がなく、 $f_{Th/U}$ 値が決定できればコンコーディア曲線が定義できる。またジルコン中の放射壊変起源 $^{208}\text{Pb}^*$ は $^{207}\text{Pb}^*$ よりも多いため、統計誤差に起因する横軸の広がり ($^{208}\text{Pb}/^{232}\text{Th}$ 比のばらつき) が小さくなる。これにより、コンコーディア曲線からのずれ (すなわち、放射壊変系の閉鎖系) を正確に評価することができる。図 4.2-3 から、SK から得られた U-Th-Pb 同位体データは、コンコーディア曲線を中心に平均的に分布していることがわかる。これは SK ジルコンが過去に顕著な Pb の汚染や損失を経験していないことを示唆するとともに、SK ジルコンについても $f_{Th/U}$ の値が Kiri02、Bishop、Toga と大きく変わらないことを示唆する。SK ジルコンから求めた U-Th-Pb 同位体データから年代計算 (コンコーディア曲線に乗るデータのみ使用、誤差は標準誤差の 2 倍) を行うと、U-Th-Pb 年代は 8.7 ± 3.0 万年となる。この値は、ジルコンフィッシュトラック年代 (96 ± 26 ka、檀原, 私信) と誤差範囲内で一致し、10 万年以下の若いジルコンからも信頼性の高い年代情報を引き出すことが可能であることが示された。

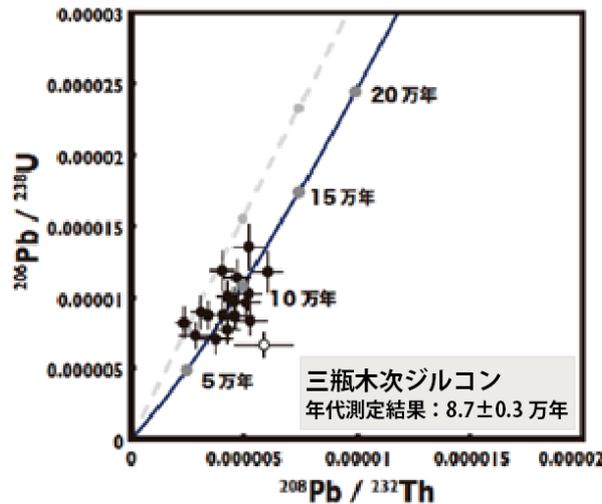


図 4.2-3 三瓶木次から採取されたジルコンの年代分析例

レーザーサンプリング、質量分析計、年代計算手法（非平衡の補正）などに様々な改良を行った結果、これまで分析が不可能であった若い試料（< 50 万年）からも正確な年代データを引き出すことが可能となった。

4.2.4 炭酸塩鉱物への応用

本共同研究において、50 万年よりも若い 10 万年オーダーのジルコンを対象とした U-Pb 年代測定が可能であることが示された。また、若い年代を示す試料については、放射非平衡を考慮する必要があることが明らかとなった。ジルコンと炭酸塩鉱物では結晶の形成過程が異なるため、例えば、補正係数の決定に必要な Th/U 比を直接適応することはできない。しかし、U-Pb 法による 10 万年オーダーの分析が少なくともジルコンにおいて可能であることが判明し、“若い”炭酸塩鉱物の高精度な年代測定を行う上では、本共同研究で行ったアプローチを応用することが重要であることが示された。

4.3 閉鎖系評価のための元素イメージング技術

LA 法は、固体試料に絞り込んだレーザーを照射し、試料の一部分を気化（エアロゾル化）させる手法であり、ICP 質量分析計と組み合わせることで、固体試料から直接、元素組成・同位体組成分析が可能である。この局所分析能力を応用することで、固体試料に含まれる微量元素の二次元分布情報（元素イメージング）が取得できる。固体試料に対してレーザーを照射し、元素の直線プロファイルを取得し、その直線走査分析を繰り返すことで二次元の元素分布を計測する（図 4.3-1）。イメージング情報は、元素の拡散や移動、さらには鉱物・結晶相間での元素の交換などの情報を保持しているため、試料の閉鎖系を評価する上で非常に重要な知見を提供する。例えば、年代測定法においては、得られた年代情報の信頼性を決定づける重要な要素として放射壊変系列核種の閉鎖系の評価と、鉛の二次的な汚染の影響の評価がある。U-Th-Pb 放射壊変系列では、コンコーディア図を活用することで注目核種の閉鎖系を評価でき、閉鎖系が維持されていない場合には、その補正が可能であるという他の年代測定法にはない優れた特長がある。しかし、その補正による年代測定精度の低下は避けられないため、年代測定の大原則としては閉鎖系が維持されている局所部分のみから U-Th-Pb 同位体分析を行い、年代情報を引き出すことが重要となる。この元素の閉鎖性を評価する新しい手法として元素イメージング技術を応用することが可能である。本共同研究では、U-Th-Pb 壊変系列における元素閉鎖系の評価を目的に、いくつかの地球化学試料に対してイメージング分析を行った。分析法の最適化及び得られた元素情報の可視化（イメー

ジング処理)のためのソフトウェアを開発することで、分解能 50 μm 程度での元素イメージング分析が可能となった。マダガスカル産アンモナイト化石(試料番号 SJF15: 表 4.1 参照)の一部に対して鉛 (^{206}Pb)、トリウム、ウランのイメージング分析を行った結果を図 4.3-2 に示す。図 4.3-2 では、鉛の同位体として ^{206}Pb の分布状況のみを示したが、U-Th の放射壊変では生成されない ^{204}Pb の分布情報も取得でき、二次的汚染の評価に有用である。通常の高倍率顕微鏡イメージングだけでは、どの部分に対し局所同位体分析を行い、年代決定すべきか判別することが難しいが、Pb-Th-U 分布を見ることで閉鎖系の評価や二次的な鉛の汚染の評価が容易となり、分析箇所の設定に大きく寄与する。一方、現段階ではイメージング分析を行う際に数時間が必要であり、大型サイズの試料や、あるいは多数の試料から正確な元素イメージング情報を取得することは難しい。今後の課題として、イメージング分析技術の高速化や、さらに定量的な元素分布解析が可能な新しいソフトウェアの開発などが挙げられる。

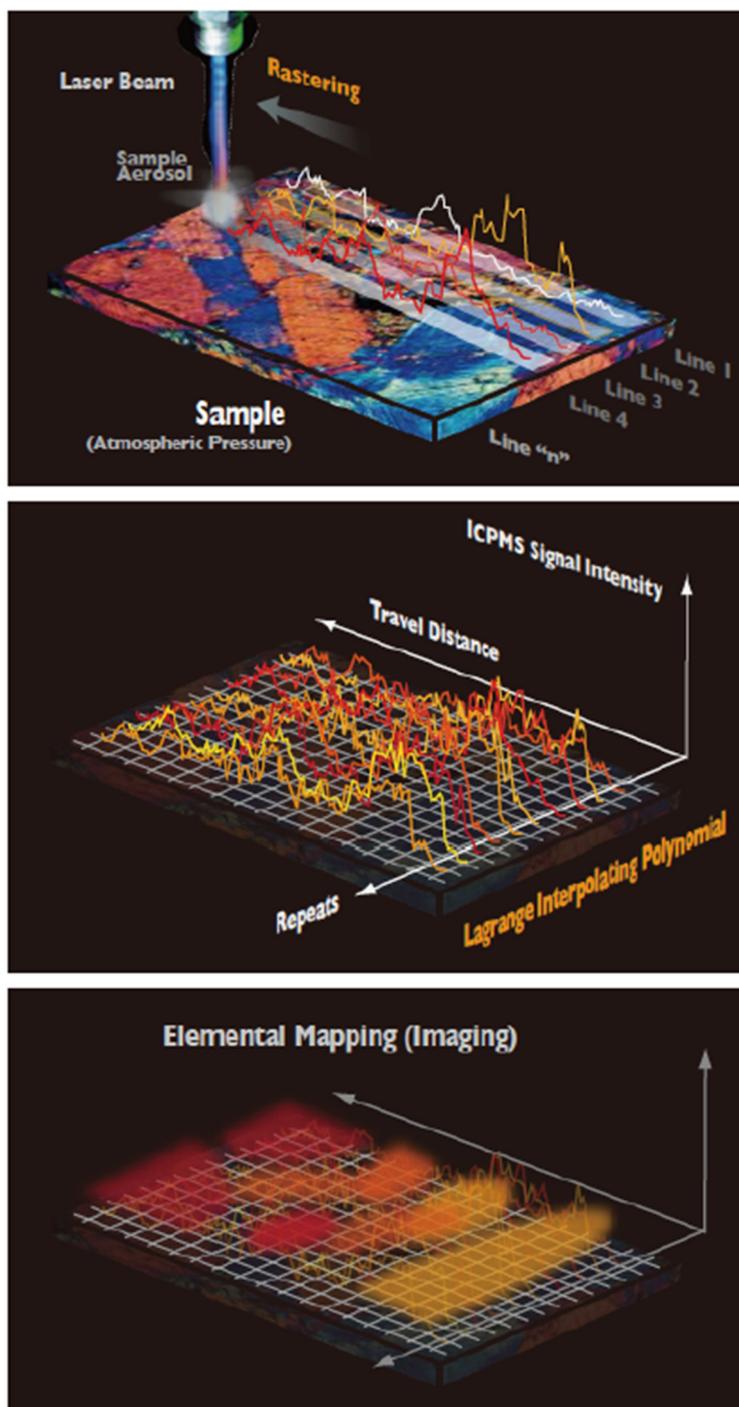


図 4.3-1 LA-ICP 質量分析法を用いた元素イメージング分析の測定概念図
 絞り込んだレーザービームを直線的に走査し、信号強度のラインプロファイルを取得する。
 このライン分析を繰り返すことで二次元の元素分布を再現する。

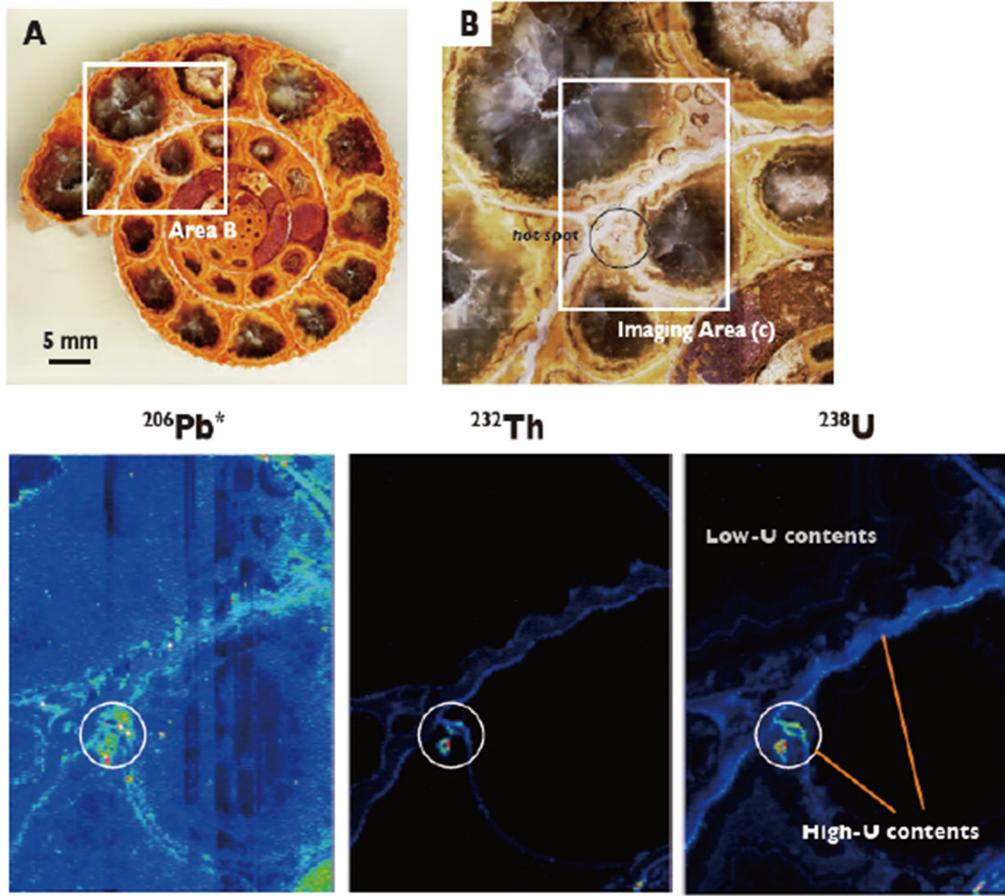


図 4.3-2 マダガスカル産アンモナイト（試料番号 SJF15）の一部分から得られた鉛-トリウム-ウランの元素分布（元素イメージング）

殻の部分にウランと鉛が保持されているが、連結部位では両者の濃度が高く、年代測定に適す可能性が高い。トリウムについても連結部位に濃集していることが分かるなど、元素の閉鎖系を議論することが可能である。

5. まとめ

炭酸塩鉱物の中で、標準試料となり得る試料の選定及び採取を行った。炭酸塩鉱物に関して今後年代測定技術を確立する上での方向性を見出し、最初のアプローチとなる海生化石(示準化石)を収集した。また、収集した試料の一部であるマダガスカル産アンモナイトについて、元素イメージング分析を行った。このイメージング分析技術は、4.3に示したPb-Th-Uの分布だけでなく、例えば、海生の炭酸塩(海生化石)を形成した当時の海水の酸化還元電位の評価を可能とする、ウランや鉄の元素分布を得ることも可能である。今後は海生化石の分析と分析結果に対する評価を行った上で、より複雑な内部構造をもつと推測される炭酸塩岩の試料の選定と分析を行う必要がある。

LA-ICP 質量分析計による炭酸塩鉱物のウラン系列年代測定法の開発に際して課題となる、若い年代値を持つ試料の年代測定について、まずはジルコン試料を対象とし基礎データの構築を図った。その結果、若い試料を対象としてU-Pb年代を求める場合、初生非平衡の影響が無視できないほど大きく、その補正が重要であることが判明した。また、放射非平衡の補正係数($f_{Th/U}$)を霧ヶ峰流紋岩(Kiri02)、ビショップ・タフ(Bishop)、戸賀パミス(Toga)より求めジルコンに普遍的な補正係数値であると仮定し、三瓶木次パミスのU-Th-Pb年代測定を行った結果、 87 ± 3 kaが得られ、フィッシュン・トラック年代(96 ± 26 ka)と誤差の範囲内で一致し、10万年以下の若いジルコンからも信頼性の高い年代情報を引き出すことができた。これらのジルコンに対する基礎研究は、炭酸塩鉱物のU-Th-Pb年代測定において極めて有益であり、炭酸塩鉱物の放射非平衡の補正係数の決定に関しては、今後の重要な検討課題であると考えられる。

固体試料の微量元素については、二次元分布情報を取得できる元素イメージング手法を利用し、炭酸塩鉱物であるマダガスカル産アンモナイトに関してU-Th-Pb壊変系列の元素に対する閉鎖系の評価を行った。その結果、どの部分に対し局所同位体分析を行うべきか選定するうえで有益となる元素情報を可視化することができた。このイメージング手法は微量元素だけでなく、酸化還元電位の推定に必要な鉄などの主要元素分析にも応用が可能である。一方、イメージング分析技術の高速化及びより定量的な元素分布解析が可能なソフトウェアの開発など、今後の課題も残る。

引用文献

- 1) 西本昌司, 鵜飼恵美, 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, 2012, 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) 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. EUFP5 Contract No: FIKW-CT2001-20129, 2005, 206p.
 - 8) Becker, S., "Inorganic Mass Spectrometry: Principles and Applications", Wiley, 2008, 514p.
 - 9) Dobrowolska, J. and Matusch, A., Laser ablation inductively coupled plasma mass spectrometry (LA-ICP-MS) in elemental imaging of biological tissues and in proteomics, *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, vol.22, 2007, pp.736-744.
 - 10) Günther, D. and Hattendorf, B., Solid sample analysis using laser ablation inductively coupled plasma mass spectrometry, *Trends in Analytical Chemistry*, vol.24, 2005, pp.255-265.
 - 11) Günther, D. and Heinrich, C. A., Comparison of the ablation behaviour of 266 nm Nd:YAG and 193 nm ArF excimer lasers for LA-ICP-MS analysis, *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, vol.14, 1999, pp.1369-1374.
 - 12) 平田岳史, 浅田陽一, Apinya Tunheng, 大野 剛, 飯塚 毅, 早野由美子, 谷水雅治, 折橋裕二, レーザーアブレーション誘導結合プラズマ質量分析法による地球化学試料の微量元素分析, *分析化学*, vol.6, 2004, pp.491-501.
 - 13) Hirata, T. and Nesbitt R. W., U-Pb isotope geochronology of zircon: Evaluation of the laser probe-inductively coupled plasma mass spectrometry technique, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol.59, 1995, pp.2491-2500.
 - 14) Iizuka, T. and Hirata, T., Simultaneous determinations of U-Pb age and REE abundances for zircons using ArF excimer laser ablation-ICPMS, *Geochemical Journal*, vol.38, 2004, pp.229-241.
 - 15) Orihashi, Y., Nakai, S. and Hirata, T., U-Pb Age Determination for Seven Standard Zircons using Inductively Coupled Plasma – Mass Spectrometry Coupled with Frequency Quintupled Nd:YAG ($\lambda = 213$ nm) Laser Ablation System: Comparison with LA-ICP-MS Zircon Analyses with a NIST Glass Reference Material, *Resource Geology*, vol.58, 2008, pp.101-123.
 - 16) Gaboardi, M. and Humayun, M., Elemental fractionation during LA-ICP-MS analysis of silicate glasses: implications for matrix-independent standardization, *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 24, 2009, pp.1188-1197.
 - 17) Kimura, J. and Chang, W., Origin of the suppressed δ : matrix effect for improved analytical performance in determination of major and trace elements in anhydrous silicate samples using 200 nm femtosecond laser ablation sector-field inductively coupled plasma mass spectrometry, *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, vol.27, 2012, pp.1549-1559.
 - 18) 坂田周平, 平川晋輔, 岩野英樹, 檀原 徹, 平田岳史, 第四紀ジルコンの U-Th-Pb 年代測定における初生放射非平衡の補正、第四紀研究における年代測定法の新展開, 号外地球, vol.62, 2013, pp.142-152.
 - 19) Sakata, S., Hattori, K., Iwano, H., Yokoyama, T. D., Danhara, T. and Hirata, T., Determination of U-Pb Ages for young zircons using laser ablation-ICP-mass spectrometry coupled with an ion detection attenuator device, *Geostandards and Geoanalytical Research*, in press.
 - 20) Beets, C.J. and DeRuig, M.J., $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ dating of coralline algal limestones and its implications for the tectono-stratigraphic evolution of the eastern Prebetic (Spain),

- Sedimentary Geology, vol.78, 1992, pp.233-250.
- 21) Gao, G., Elmore, R.D. and Land, L.S., Geochemical constraints on the origin of calcite veins and associated limestone alteration, Ordovician Viola Group, Arbuckle Mountains, Oklahoma, U.S.A., *Chemical Geology*, vol.98, 1992, pp.257-269.
 - 22) Russell, J., Chadwick, B., Rao, K. and Vasudev, V.N., Whole-rock Pb / Pb isotopic ages of late Archean limestone Karnataka, India, V.N. Vasudev, *Precambrian Research*, vol.78, 1996, pp.261-272.
 - 23) Israelson, C., Halliday, A.N. and Buchardt, B., U-Pb dating of calcite concretions from Cambrian black shales and the Phanerozoic time scale, *Earth and Planetary Science Letters*, vol. 141, 1996, pp.153-159.
 - 24) Rasbury, E.T., Hanson, G.N., Meyers, W.J. and Saller, A.H., Dating of the time of sedimentation using U-Pb ages for paleosol calcite, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol.61, 1997, pp.1525-1529.
 - 25) Ortega, R., Marie, R., Deves, G. and Quinif, Y., High-resolution mapping of uranium and other trace elements in recrystallized aragonite-calcite speleothems from caves in the Pyrenees (France) :Implications for U-series dating, *Earth and Planetary Science Letters*, vol.237, 2005, pp.911-923.
 - 26) Boix, C., Frijia, G., Vicedo, V., Bernaus, J.M., Lucia, M.D., Parente, M. and Caus, E., Larger foraminifera distribution and strontium isotope stratigraphy of the La Cova limestones (Coniacian-Santonian, "Serra de Montsec", Pyrenees, NE Spain), *Cretaceous Research*, vol.32, 2011, pp.806-822.
 - 27) Kakizaki, Y., Ishikawa, T., Nagaishi, K., Tanimizu, M., Hasegawa, T. and Kato, A., Strontium isotope ages of the Torinosu-type limestones (latest Jurassic to earliest Cretaceous, Japan): Implication for biocalcification event in northwestern Palaeo-Pacific, *Journal of Asian Earth Sciences*, vol.46, 2012, pp.140-149.
 - 28) Nuriel, P., Weinberger, R., Rosenbaum, G., Golding, S.D., Zhao, J. and Uysal, I.T., Bar-Matthews, M. and Gross, M.R., Timing and mechanism of late-Pleistocene calcite vein formation across the Dead sea Fault Zone, northern Israel, *Journal of Structural Geology*, vol.36, 2012, pp.43-54.
 - 29) McArthur, J.M., Howarth, R.J. and Shields, G.A., *Strontium Isotope Stratigraphy, The Geologic Time Scale*, Elsevier, 2012, pp.127-144.
 - 30) Kuznetsov, A.B., Ovchinnikova, G.V., Gorokhov, I.M., Letnikov, E.F., Kaurova, O.K. and Konstantinova, G.V., Age constrains on the Neoproterozoic Baikal Group from combined Sr isotopes and Pb-Pb dating carbonates from the Baikal type section, southeastern Siberia, *Journal of Asian Earth Sciences*, vol.62, 2013, pp.51-66.
 - 31) Li, Q., Parrish, R.R., Horstwood, M.S.A. and McArthur, J.M., U-Pb dating of cements in Mesozoic ammonites, *Chemical Geology*, vol.376, 2014, pp.76-83.
 - 32) Cros, A., Gautheron, C., Pagel, M., Berthet, P., Tassan-Got, L. and Douville, E., Pinna-Jamme, R., Sarda, P., ^4He behavior in calcite filling viewed by (U-Th) / He dating, ^4He diffusion and crystallographic studies, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol.125, 2014, pp.414-432.
 - 33) 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.
 - 34) Cocherie A., Fanning C. M., Jezequel P. and Robert M., LA-MC-ICPMS and SHRIMP U-Pb dating of complex zircons from Quaternary tephras from the French Massif Central: Magma residence time and geochemical implications, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol.73, 2009, pp.1095-1108.
 - 35) Schärer U., The effect of initial ^{230}Th disequilibrium on young U-Pb ages: the Makalu case, Himalaya, *Earth and Planetary Science Letters*, vol.67, 1984, pp.191-204.
 - 36) Farley K. A., Kohn B. P. and Pillans B., The effects of secular disequilibrium on (U-Th)/He systematics and dating of Quaternary volcanic zircon and apatite, *Earth and*

- Planetary Science Letters, vol.201, 2002, pp.117-125.
- 37) Ito H., Yamada R., Tamura A., Arai S., Horie K. and Hokada T., Earth's youngest exposed granite and its tectonic implications: the 10 - 0.8 Ma Kurobegawa Granite, Scientific Reports, vol.3, 2013, p.1306.
 - 38) Reid M. R., Coath C. D., Harrison T. M. and McKeegan K. D., Prolonged residence times for the youngest rhyolites associated with Long Valley Caldera: ^{230}Th - ^{238}U ion microprobe dating of young zircons, Earth and Planetary Science Letters, vol.150, 1997, pp.27-39.
 - 39) Crowley J. L., Schoene B. and Bowring S.A., U-Pb dating of zircon in the Bishop Tuff at the millennial scale, Geology, vol.35, 2007, pp.1123-1126.
 - 40) Amelin Y. and Zaitsev A. N., Precise geochronology of phosphates and carbonates: The critical role of U-series disequilibrium in age interpretations, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol.66, 2002, pp.2399-2419.
 - 41) Barth S., Oberli F. and Meier M., U-Th-Pb systematics of morphologically characterized zircon and allanite: a high-resolution isotopic study of the Alpine Rensen Pluton (northern Italy), Earth and Planetary Science Letters, vol.95, 1989, pp.235-254.
 - 42) Lee J. K. W., Williams I. S. and Ellis D. J., Pb, U and Th diffusion in natural zircon, Nature, vol.390, 1997, pp.159-162.
 - 43) 及川 輝樹, 西来 邦章, 霧ヶ峰火山の K-Ar 年代, 火山, vol.50, 2005, pp.143-148.
 - 44) Hildreth W., The Bishop Tuff, Evidence for the origin of compositional zonation in silicic magma chambers, Geological Society of America Special Paper, vol.180, 1979, pp.43-75.
 - 45) 鹿野 和彦, 大口 健志, 林 信太郎, 宇都 浩三, 檀原 徹, 戸賀火山, 東北日本, 男鹿半島西端のアルカリ流紋岩質ダブリング, 火山, vol.47, 2002, pp.373-396.
 - 46) 町田 洋, 新井 房夫, 火山灰アトラス [日本列島とその周辺], 東京大学出版会, 1992, 276p.
 - 47) 弘原海 清, 北田 奈緒子, Alan Deino, ガラス標準試料 JAS-G1 の Ar-Ar 年代測定: フィッション・トラック ニュースレター, vol.7, 1994, pp.7-8.
 - 48) 杉浦 重夫, 長井 雅史, 柴田 徹, 檀原 徹, 岩野 英樹, 霧ヶ峰・北八ヶ岳産黒曜石の記載岩石学的・岩石化学的検討とフィッション・トラック年代-黒曜石製遺物の原産地推定法に関する基礎的研究-, 駿台史学, vol.136, 2009, pp.57-109.
 - 49) Sarna-Wojcicki A. M., Pringle M. S. and Wijbrans J., New $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ age of the Bishop Tuff from multiple sites and sediment rate calibration for the Matuyama-Brunhes boundary, Journal of Geophysical Research, vol.105, 2000, pp.431-443.
 - 50) 宇都 浩三, 鹿野 和彦, 石塚 治, 男鹿半島戸賀火山, 戸賀軽石層中のサニディン斑晶のレーザ融解 ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代, 火山, vol.55, no.4, 2010, pp.201-206.
 - 51) 長橋 良隆, 佐藤 孝子, 竹下 欣宏, 田原 敬治, 公文 富士夫, 長野県高野層ボーリングコア (TKN-2004) に挟在する広域テフラ層の層序と編年, 第四紀研究, vol.46, 2007, pp.305-325.
 - 52) Eggins S. M., Kinsley L. P. J. and Shelley J. M. G., Deposition and element fractionation processes during atmospheric pressure laser sampling for analysis by ICP-MS, Applied Surface Science, vol.129, 1998, pp.278-286.
 - 53) Günther D. and Heinrich C. A., Enhanced sensitivity in laser ablation-ICP mass spectrometry using helium-argon mixtures as aerosol carrier, Journal of Analytical Atomic Spectrometry, vol.14, 1999, pp.1363-1368.
 - 54) Jackson S. E., Pearson N. J., Griffin W. L. and Belousova E. A., The application of laser ablation-inductively coupled plasma-mass spectrometry to in situ U-Pb zircon geochronology, Chemical Geology, vol.211, 2004, pp.47-69.
 - 55) Tunheng A. and Hirata T., Development of signal smoothing device for precise elemental analysis using laser ablation-ICP-mass spectrometry, Journal of Analytical Atomic Spectrometry, vol.19, 2004, pp.932-934.
 - 56) Hirata T. and Nesbitt R.W., U-Pb isotope geochronology of zircon: evaluation of the laser probe-inductively coupled plasma mass spectrometry technique, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol.59, 1995, pp.2491-2500.

- 57) Hirata T., Iizuka T. and Orihashi Y., Reduction of mercury background on ICP-mass spectrometry for in situ U-Pb age determinations of zircon samples, *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, vol.20, 2005, pp.696-701.
- 58) Schmitt A. K., Grove M., Harrison T. M., Lovera O., Hulen J. and Walters M., The Geysers - Cobb Mountain Magma System, California (Part 1): U-Pb zircon ages of volcanic rocks, conditions of zircon crystallization and magma residence times, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol.67, 2003, pp.3423-3442.
- 59) Schmitt A. K., Ion microprobe analysis of $(^{231}\text{Pa})/(^{235}\text{U})$ and an appraisal of protactinium partitioning in igneous zircon, *American Mineralogist*, vol.92, 2007, pp.691-694.

付録 6

炭酸塩鉱物の LA-ICP-MS による同位体分析手法の開発

平成 26 年度共同研究報告書

平成 27 年 3 月

独立行政法人海洋研究開発機構

独立行政法人日本原子力研究開発機構

目 次

1. 概要	1
1.1 共同研究件名.....	1
1.2 研究目的.....	1
1.3 実施期間.....	1
2. 研究内容	2
2.1 研究概要.....	2
2.2 共同研究内容.....	3
2.3 炭酸塩鉱物の LA-ICP 質量分析計を用いた高精度同位体比測定技術の向上.....	3
3. 炭酸塩鉱物の U-Pb の定量及び高精度同位体比測定技術の向上.....	6
3.1 分析試料.....	6
3.2 分析手法.....	12
3.3 分析結果.....	13
3.4 分析結果の考察.....	14
4. まとめ.....	19
引用文献.....	20

図 目 次

図 2.1-1 炭酸塩鉱物のカソードルミネッセンス (CL) の累帯構造と分析点の概略図	2
図 3.1-1 土岐花崗岩試料 (SP1) の写真	8
図 3.1-2 江若花崗岩試料 (092814sp1) の写真	8
図 3.1-3 江若花崗岩試料 (092814sp2) の写真	9
図 3.1-4 江若花崗岩試料 (092814sp3) の写真	9
図 3.1-5 江若花崗岩試料 (092814sp4) の写真	10
図 3.1-6 江若花崗岩試料 (092814sp5) の写真	10
図 3.1-7 秋吉台鍾乳洞試料 (A3) の写真.....	11
図 3.4-1 炭酸塩試料中に含まれる Pb 及び U 濃度 (上) 及び $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 同位体比 (下) 18	

表 目 次

表 2.3-1 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	4
表 3.2-1 エキシマレーザーアブレーション ICP 質量分析計の設定	12
表 3.4-1 炭酸塩試料の U-Pb 同位体比測定結果：生データ及び Pb, Th, U 半定量値	16
表 3.4-2 炭酸塩試料の U-Pb 同位体比測定結果	17

1. 概要

1.1 共同研究件名

炭酸塩鉱物のLA-ICP-MSによる同位体分析手法の研究

1.2 研究目的

わが国の高レベル放射性廃棄物の地層処分計画を円滑に進めていくためには、処分事業や安全規制の基盤となる技術を整備・強化していくための研究開発を着実に進めていく必要がある。具体的には、地層処分システムの長期的な変化をモデル計算によって予測・評価しつつ、その結果に基づいてシステムの性能や安全性の判断を行うことになるが、モデルを構築していく上で、モデルの作成に必要な情報やモデルの検証に用いるデータを取得するための革新的な要素技術の開発として炭酸塩鉱物の放射年代測定技術及び酸化還元電位推定技術の開発を進める必要がある。

この技術開発の一環として、本共同研究では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計（Laser Ablation Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer；以下、「LA-ICP 質量分析計」という）を用いた炭酸塩鉱物の微小領域の同位体比測定及び元素分析手法の開発を実施する。分析対象となる割れ目及び断層を充填する炭酸塩鉱物は細脈状であることが多く、かつ年代的な累進を示す累帯構造を合わせ持つ。これらのことは、炭酸塩鉱物の年代測定に際して、微小領域での分析を必要とする。この微小領域の分析に際して LA-ICP 質量分析計を用いれば数十 μm 以下の試料領域の分析が期待できる。しかしながら炭酸塩鉱物に対して LA-ICP 質量分析計を用いた年代測定の既存研究例は極めて少ない。

独立行政法人海洋研究開発機構（以下、「海洋研究開発機構」という）は、LA-ICP 質量分析計による鉱物の各種年代測定法や高精度同位体比測定法の開発を行っており、これらに関する豊富な知識や経験を有している。また、独立行政法人日本原子力研究開発機構（以下、「原子力機構」という）に導入予定の誘導結合プラズマ質量分析計（Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer；以下、「ICP 質量分析計」という）と同機種を有しており、本装置による原子力機構への装置導入前に測定条件の検討が可能であるとともに、装置の改良等について双方における効率的な検討が可能となる。原子力機構は、鉱物の放射年代測定法の開発や炭酸塩鉱物を利用した地下水の地球化学特性の推定等の研究実績を有し、また測定試料作製や試料の元素組成や構造を把握するための分析装置を所有しており、平成 26 年度中に LA-ICP 質量分析計も導入予定である。

本共同研究では、炭酸塩鉱物の年代測定技術開発に必要な、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法（Laser Ablation Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry；以下、「LA-ICP 質量分析法」という）に基づく高精度同位体比測定手法の開発を行う。

1.3 実施期間

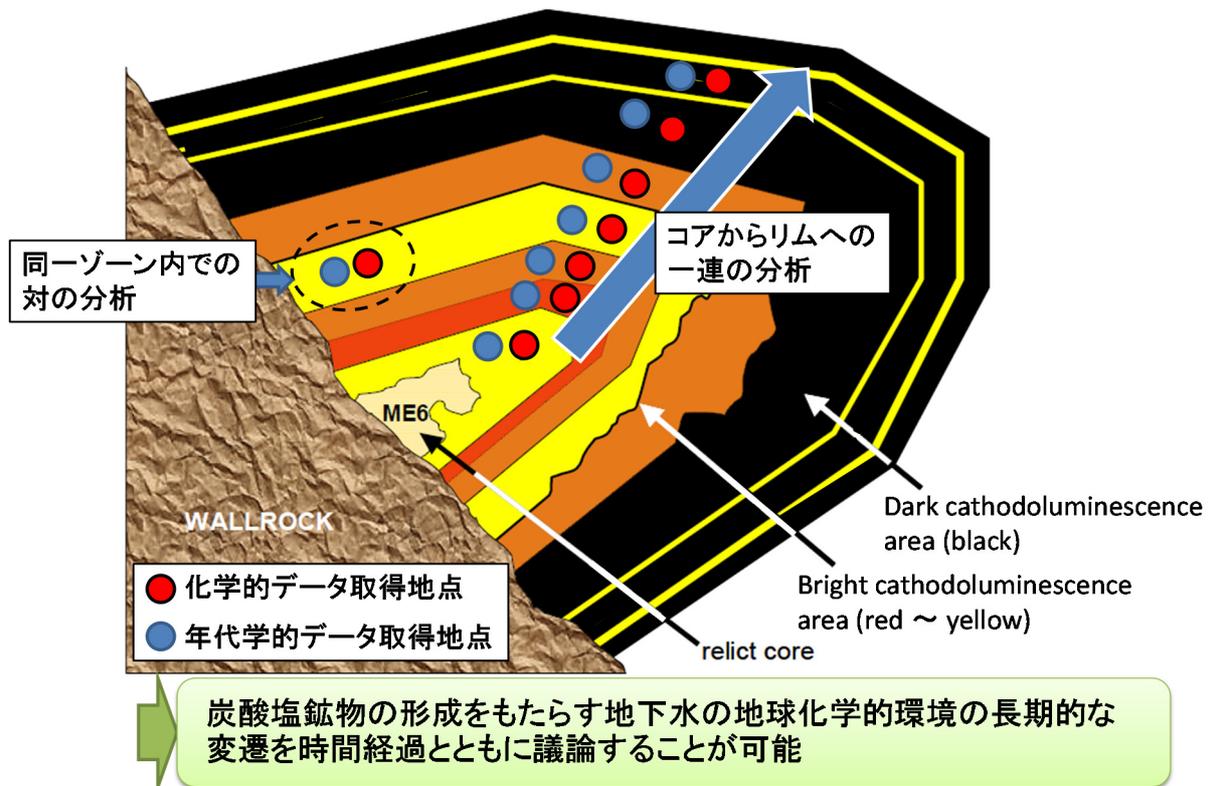
平成 26 年 9 月 1 日～平成 27 年 3 月 31 日

2. 研究内容

2.1 研究概要

炭酸塩鉱物は岩盤中に広く一般的に産出する鉱物であるため（西本ほか, 2008¹⁾; Nishimoto and Yoshida, 2010²⁾; Iwatsuki and Yoshida, 1999³⁾; Yoshida et al., 2000⁴⁾; 吉田, 2012⁵⁾; 横田・吉田, 2013⁶⁾）、汎用的な古環境指標物質として利用が期待できる。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考えられる。そのため、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）では、「革新的要素技術開発」の一項目として「炭酸塩鉱物測定技術」の開発を進めている。

「炭酸塩鉱物測定技術開発」では、割れ目や断層における炭酸塩鉱物の生成年代の推定、及び炭酸塩鉱物が形成される際の地下水の化学的特徴の推定を行うため、炭酸塩鉱物を対象とした革新的な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を目指す。割れ目や断層を充填する炭酸塩鉱物の生成年代が推定できれば、割れ目や断層の形成・発達に関する時間・温度履歴が定量的に議論できる。また同一の炭酸塩鉱物中に存在する累帯構造（鉱物成長方向）ごと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議論することが可能となる（図 2.1-1）。



2.2 共同研究内容

放射年代測定法の研究開発に際して、以下の項目について重要課題を有すると考える。

<A. 放射年代測定法の開発の重要課題>

- 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

本共同研究では、A-1 と A-2 及び B-3 を解決するための「炭酸塩鉱物の LA-ICP-MS を用いた高精度同位体比測定技術の向上」を目指した。A-3 に関わる試料の選定及び採取に関しては、平成 26 年度共同研究報告書「炭酸塩鉱物の LA-ICP-MS による U-Pb 年代測定法の研究」⁸⁾及び「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」⁹⁾を参考にされたい。

2.3 炭酸塩鉱物の LA-ICP 質量分析計を用いた高精度同位体比測定技術の向上

地質環境の安定性を地層処分の観点から評価する上では、年代スケールとしておよそ数万年から数十万年以上の年代決定が必要である。脈状の炭酸塩鉱物を主な対象とした場合について、放射（非）平衡と放射線損傷を基に年代決定を行う手法とその適用年代範囲を、兼岡（1998）¹⁰⁾を基に表 2.3-1 のようにまとめる。これによると、10 万年のオーダーで年代測定を行える手法は極めて限定的で、例えば放射年代測定手法としては、U-Th 法、K-Ar 法及び宇宙線生成核種（¹⁰Be、²⁶Al、³⁶Cl）を対象とする手法が挙げられる。しかし、U-Th 法では一般に同位体希釈法による同位体分析が行われるが、核燃料物質であるスパイクの入手及び取り扱いが難しいこと、K-Ar 法では娘核種のアルゴンの過剰及び損失が容易に起こること、宇宙線生成核種を用いた手法では、対象試料が地下数メートルよりも深くにある場合は対象核種が生成されないなど、いずれの手法においても短所がある。一方で、数十万年よりも古いスケールの年代測定法については、親核種の半減期が長いこと年代値の分解能が著しく低下する。しかしながら、近年の分析技術の飛躍的な進展に伴い、年代決定の下限値は低下し、より若い年代が定量的に取得できるようになってきている。すなわち、Rb-Sr 法や U-Pb 法といった数百万年から数十億年をターゲットとする放射年代測定においては、数万年から数十万年オーダーの年代決定のための測定技術開発の余地がある。本研究では、炭酸塩鉱物に着目し局所領域の年代測定を目的とすることから、LA-ICP 質量分析計を用いた U-Pb 年代測定技術開発を目指し、高精度同位体比測定法の検討を行った。

表 2.3-1 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

ジルコンの U-Pb 年代測定では、1970 年代より開発が進められた高感度高分解能イオンマイクロプローブ (SHRIMP) を用いた研究例が多く、その最大の長所は結晶成長において累帯構造を呈するジルコン結晶内の位置ごとの鉛同位体分析を、高精度に行うことができる点である。一方で、レーザーアブレーション装置と四重極型 ICP 質量分析計を用いた U-Pb 年代測定技術は、1990 年代の半ばよりジルコンを対象として行われてきた (Hirata and Nesbitt, 1995¹¹⁾)。当初は、ダウンホール効果と呼ばれる質量分別効果と元素の溶融、揮発性に依存した元素分別を主な原因として、レーザーアブレーション装置による ICP 質量分析計への均質な試料導入を充分に行うことができず、同位体比測定及び年代測定精度は SHRIMP のそれらに一桁ほど劣るものであった。しかし現在では、レーザー装置の試料アブレーションに関する技術開発が進み、世界的に多くの研究機関に LA-ICP 質量分析計が導入され汎用性が高まってきており、分析精度の向上は著しい。LA-ICP 質量分析計の試料導入源として用いられている装置としてエキシマレーザー装置が主流であるが、短パルス長・高エネルギー密度の特長を生かすべく、フェムト秒レーザー装置の導入も増えつつある。U-Pb 法による年代測定を行う場合には、高感度かつ広いダイナミックレンジで同位体を測定する必要がある。それゆえ、一般に四重極 ICP 質量分析計やセクター型 ICP 質量分析計を用いてシングルイオンカウンターで測定が行われているが、同位体比測定精度を向上するため、マルチイオンカウンター (MIC-ICP 質量分析計) による測定事例も報告数が増えつつある (Simonetti et al., 2005¹²⁾; Cocherie et al., 2009¹³⁾; Kimura et al., 2011¹⁴⁾)。一方、近年 ICP 質量分析計のインターフェイス部の改良 (Bouman et al., 2008¹⁵⁾) と高ゲインファラデーカップアンプが開発された (Koorneef et al., 2013¹⁶⁾; Koorneef et al., 2014¹⁷⁾) ことにより、検出部の感度が数十もしくは数百倍 (それぞれ 10¹²Ω と 10¹³Ω アンプ使用時に対応) に向上した。これに伴い、マルチファラデーカップを備えた ICP 質量分析計 (MFC-ICP 質量分析計) を用いたピコグラムオーダーの超微量元素同位体分析も行われている (Kimura et al., 2014¹⁸⁾)。

上記のような装置に係る技術開発により、試料のアブレーション効率と質量に依存した分別効果が解消されつつある一方で、アブレーション装置及び質量分析計のインターフェイス部の改良のみでは、元素のイオン化効率に依存する分別効果は未だ無視できないほど大きい。近年では、試料へのアブレーション時におけるダウンホール効果及びそれに伴う元素分別の影響を軽減するため、レーザー照射を一点（スポット照射）ではなく、試料ハウジングを回転ないしは光学系にガルバノメトリックを用いてレーザー光を2枚のミラーで高速に走査し、試料表面を均一にアブレーションする手法も試行されている（Claverie et al., 2009¹⁹； Kimura et al., 2011¹⁴； Yokoyama et al., 2011²⁰）。

本共同研究では、原子力機構に導入された ICP 質量分析計（NEPTUNE-*plus*）とエキシマレーザー装置（Analyte G2）による炭酸塩鉱物の U-Pb 同位体分析に先駆け、海洋研究開発機構所有の ICP 質量分析計（NEPTUNE）とエキシマレーザー装置（OK ExLA-2000）を使用して、高ゲインファラデーカップを組み合わせた測定手法により、炭酸塩鉱物のレーザーアブレーションに対する特性と同位体分析精度を検証した。

3. 炭酸塩鉱物の U-Pb の定量及び高精度同位体比測定技術の向上

本共同研究における実施内容は、下記の 2 点である

- ・ U-Pb年代測定技術開発

地中で沈殿する炭酸塩は、間隙水や裂隙水などの地下水によって運搬された成分が沈積したものであり、花崗岩の固結末期の熱水や、断層沿いに集積する高濃度地下水からの沈積が期待される。したがって、そこで生成された炭酸塩鉱物は花崗岩固結末期に発達した熱水系の年代や、断層が生成した年代、あるいは生成以降に形成された地下水流動系の年代を決定することができる。地表環境下で生成された炭酸塩鉱物（例えば、蒸発岩中の方解石）の U-Pb 年代測定はすでに実施されており（例えば、Becker et al. 2002²¹⁾）、この手法が地下環境で生成した炭酸塩鉱物に適用できれば、上記のアプリケーションが可能になる。一方、これらの地下環境で生成した炭酸塩鉱物には微細な成長累帯構造が認められるのが常であり、全岩組成分析だけではその生成環境や年代について正しい解析や分析を行うことは困難である。したがって、炭酸塩の U-Pb 組成や同位体分析には LA-ICP 質量分析法の適用が必須である。そのため、天然の炭酸塩試料を用いて分析フィジビリティを検討した。

- ・ 炭酸塩鉱物の Pb の定量及び高精度同位体比測定技術の向上

上記の分析を可能とするためには、感度と精度の高い分析手法を開発する必要がある。本研究では、海洋研究開発機構所有の ICP 質量分析計 (NEPTUNE) と深紫外エキシマレーザー装置 (OK ExLA-2000) を使用して、高ゲインファラデーカップを組み合わせた測定手法により、炭酸塩鉱物のレーザーアブレーションに対する特性と同位体分析精度を検証した。深紫外エキシマレーザー装置 (ArF ガスを用いた波長 193 nm レーザー) を用いる理由は、分析対象の炭酸塩鉱物である方解石は光学的に非常に透過性が高く、可視光や紫外線領域のレーザーでは適正なアブレーションがなされないためである (Jeffries et al., 1998²²⁾)。また、局所分析よって精度の高い同位体分析を実施するためには、ICP 質量分析計の高感度化が必須である。海洋研究開発機構の NEPTUNE はインターフェイスの改良による高感度化 (Bouman et al., 2008¹⁵⁾; Kimura et al. 2014b²³⁾) に加えて、高増幅率ファラデーアンプを採用することによる、さらなる高感度化 (Koorneef et al., 2013¹⁶⁾; Kimura et al. 2014b²³⁾) を計った装置である。本装置はファラデーカップをイオン検出に用いる事で、安定した高精度同位体比測定を実現するとともに、高感度化によって微小領域同位体分析のアプリケーションを可能としたものである。本研究ではこの装置を用いて実際に天然の炭酸塩試料を分析し、測定技術向上を目指した。

3.1 分析試料

分析に用いた炭酸塩試料は、①土岐花崗岩中に生成した炭酸塩脈、②江若花崗岩中に生成した炭酸塩脈、③秋吉台鍾乳洞（山口県美祿市）で採取した鍾乳石、④大滝鍾乳洞（岐阜県郡上市）から採取した鍾乳石及び⑤縄文鍾乳洞（岐阜県郡上市）から採取した鍾乳石試料である。このうち最後の鍾乳石 2 試料中には、ウラン（以下、「U」という）ならびに鉛（以下、「Pb」という）がほとんど含有されていないことを確認した。したがって、本報告書では①～③の 3 試料を用いて行った分析結果を報告する。それぞれの試料の記載は以下の通りである。

① 土岐花崗岩試料 (SP1 : 図 3.1-1)

土岐花崗岩試料は岐阜県瑞浪市にて採取した。土岐花崗岩は岐阜県の土岐市～瑞浪市にわたって分布する後期白亜系の深成岩体である (西本ほか, 2008¹⁾)。分析に用いた炭酸塩鉱物は土岐花崗岩中の割れ目に挟在しており、厚さは 1～2 mm 程度である。

② 江若花崗岩試料（092814sp1～sp5：図 3.1-2～図 3.1-6）

江若花崗岩試料は福井県敦賀市にて5試料を採取した。江若花崗岩は古第三系の花崗岩類で、粗粒～細粒の黒雲母花崗岩からなる（中江ほか, 2015²⁴）。分析に用いた炭酸塩鉱物は江若花崗岩中の割れ目に挟在しており、厚さは1 mm以下のものから2 cm程度のものまで様々である。

③ 秋吉台鍾乳洞試料（A3：図 3.1-7）

秋吉台鍾乳洞試料は山口県美祢市にて採取した。分析個所は鍾乳石の 1 部分である。試料に関する詳細な内容は平成 26 年度共同研究報告書「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」⁹を参考にされたい。

分析に際して、以下の手順で試料の前処理を実施した。炭酸塩鉱物の成長面と直交する方向でスライドガラスサイズに切り出し、片面をコランダム（#3000 まで）で研磨したのち、ペトロボキシでスライドガラスに接着した。試料面をコランダムで研磨し、厚さ約 1 mm の厚片とした。その後、試料面をさらにダイヤモンドペースト（3 μm 及び 1 μm）で琢磨し、μm オーダーにおいて凹凸の少ない分析面を成形した。試料の分析の前にエキシマレーザー装置の反射顕微鏡を用いて試料の観察を行い、分析位置を決定した。炭酸塩鉱物のレーザーアブレーションに対する特性を評価するため、（脈状）炭酸塩を対象に無作為に測定位置を選定し、レーザー照射及び同位体比測定を行った。



図 3.1-1 土岐花崗岩試料 (SP1) の写真
赤丸で囲った部分が脈状炭酸塩を示す



図 3.1-2 江若花崗岩試料 (092814sp1) の写真
赤丸で囲った部分が脈状炭酸塩を示す



図 3.1-3 江若花崗岩試料 (092814sp2) の写真



図 3.1-4 江若花崗岩試料 (092814sp3) の写真



図 3.1-5 江若花崗岩試料（092814sp4）の写真



図 3.1-6 江若花崗岩試料（092814sp5）の写真



図 3.1-7 秋吉台鍾乳洞試料 (A3) の写真

3.2 分析手法

分析に用いたエキシマレーザーアブレーション ICP 質量分析計の設定を以下に示す。

表 3.2-1 エキシマレーザーアブレーション ICP 質量分析計の設定

<u>Apparatus</u>	<u>Experimental setting</u>
Excimer laser	OK ExLA-2000 (OK Laboratory)
Source wave length/pulse width	193 nm/20 ns
Energy at source	200 mJ
Focusing lens	Imaging optics using field lens and air spaced doublet objective
Pulse width	20 ns
Spot size	100 μm
Fluence at laser spot	15 J/cm ²
Repetition rate	5 Hz
MFC-ICP-MS	NEPTUNE (Thermo Scientific) modified
RF-power	1500 W
Guard electrode	On
Sampling cone	JET-sample cone (Ni)
Skimmer cone	X-skimmer cone (Ni)
Cool gas (Ar)	13 L/min
Auxiliary gas (Ar)	1.0 L/min
Sample gas (Ar)	1.3 L/min
Laser carrier gas (He)	1.15 L/min
Interface vacuum with E2M80	1.8 mbar with He ablation carrier gas
Mass resolution	Low resolution
Acquisition time	0.5 s \times 60 scans
Dispersion Quad	19.9 (^{219,73} M centre mass with zoom optics)
Focus Quad	2–7
Cup and amplifier configurations	
²⁰⁴ Pb	FC L4 10 ¹² Ω resistor amplifier
²⁰⁶ Pb	FC L3 10 ¹² Ω resistor amplifier
²⁰⁷ Pb	FC L2 10 ¹² Ω resistor amplifier
²⁰⁸ Pb	FC L1 10 ¹² Ω resistor amplifier
^{219,73} M	FC Axial (not observed in data acquisition)
²³² Th	FC H2 10 ¹¹ Ω resistor amplifier
²³⁸ U	FC H4 10 ¹² Ω resistor amplifier
Background subtraction	On-peak background

FC: Faraday cup; isobaric atomic and molecular ions are shown in parentheses.

現状として標準試料の選定がなされていない炭酸塩試料を測定するうえで、スタンダードには Pb、トリウム（以下、「Th」という）、U 濃度の均質な NIST SRM 612 ガラス (Pb = 38.96 ppm;

Th = 37.23 ppm; U = 37.00 ppm: Pearce et al. 1997²⁵⁾) を使用した。NIST SRM 612 のエキシマレーザーによる測定精度は、個々の $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比測定において標準偏差 0.1 %程度であった。エキシマレーザー装置のクレーター径及びパルス反復率の設定は、NIST SRM 612 のシグナルが、 $10^{12} \Omega$ 高感度アンプの直線性上限 (イオンカレント電圧 3 V) を越えないよう設定した。スタンダードガラスと炭酸塩未知試料のアブレーション効率が近くなるよう、スタンダードも未知試料も同じ設定で測定を実施した。

ICP 質量分析計は、装置の感度が最も高くなるような設定を行った。その際、高感度インターフェイス (Jet-sampler cone + X-skimmer cone + シールドトーチ (GE: Guard electrode on)) の設定では多量の酸化物イオンが生成する事が知られている (Kimura et al. 2014b²³⁾)。今回の測定では、酸化物イオンが生成しやすい U と Th に多量の酸化物イオンが発生するため、金属イオンとして検出される ^{230}Th ならびに ^{238}U の感度は本来の感度のおよそ 60 %を下回る値となっている。酸化物イオンの生成を 0.5 %以下に抑えるハードウェア設定も可能であるが、感度が 15 分の 1 以下に低下するため、今回は酸化物の生成は無視して最高感度の得られる設定とした (Kimura et al. 2014b²³⁾)。今回のハードウェア設定では、直径 100 μm のレーザークレーターから得られる装置全体の検出下限をおよそ 0.001 ppm (ファラデー検出器で 100 μV 、イオンカウンター6250 cps 相当) まで引き下げることができた。なお、酸化物イオンの生成率は分析の時間と共に漸減的に低下する事が知られている (Kimura et al. 2014b²³⁾)。したがって、スタンダード試料である SRM 612 ガラスを頻繁に分析して未知試料測定値をブラケット補正する事で、分析した各同位体の感度外部補正を実施した。感度補正に用いた元素濃度は Pearce et al. 1997²⁵⁾、Pb 同位体組成は Baker et al. 2004²⁶⁾の値を用いた。なお、このブラケット法による補正は $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 、 $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 、 $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 及び $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 同位体比と、アイソクロン法に用いられる同位体比の $^{238}\text{U}/^{204}\text{Pb}$ 、 $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 、 $^{235}\text{U}/^{204}\text{Pb}$ 、 $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 及び $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ の計算に用いたほか、スタンダードガラスと炭酸塩未知試料のアブレーション効率を一定と仮定し、炭酸塩中の Pb、Th 及び U 濃度の半定量計算にも用いた。

分析元素のうち特に Pb には、試料導入に用いるガス (LA 及び ICP 質量分析計キャリアガス) のガスブランクに ^{204}Pb の同重体である ^{204}Hg が、さらにコーンからのメモリーである $^{204-208}\text{Pb}$ シグナルが認められる。これらのシグナルを差し引くため、レーザーエアロゾルの測定を開始する前に 30 秒 \times 2 回のガスブランク測定を行い、計数値を各同位体から差し引き、レーザーエアロゾル中の元素信号強度を得た。ガスブランクシグナル測定時には、レーザーアブレーションによって導入されるエアロゾルのマスローディングによって発生するガスブランクシグナル抑制が知られている (例えば、Kimura et al. 2013²⁷⁾; Chang et al. 2015²⁸⁾)。今回測定した試料でも極低濃度の Pb の場合、負のイオン強度が計測される場合があったが、その場合、信号は 100 μV (イオンカウントで 6250 cps 相当) とファラデー検出器の検出限界近傍のため、対策を実施しなかった。レーザーアブレーションシグナルは信号がファラデーに到達してからアイドルタイム 8 秒を経た後測定を開始した。これは、ファラデーアンプが急激な信号強度の変化に対して遅延反応をして測定精度が落ちることを抑制するためである。8 秒のアイドルタイム後の信号は測定時間 30 秒 (0.5 秒 \times 60 スキャン) の間安定しており、その間におこる緩やかな信号強度変化によって同位体比測定精度が劣化することはなかった。測定値は 10 %を越えるエラーを自動的に排除した後、平均値と標準誤差 (1 σ) として記録した。

3.3 分析結果

上記の測定によって得られた分析結果を表 3.4-1 に示す。表 3.4-1 は測定時に感度法で分析された Pb、Th、U 濃度と $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 、 $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 、 $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 及び $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 同位体

比を示してある。同位体分析値は測定時のまま、ブラケット補正を施していない。炭酸塩試料と共に測定したスタンダードガラス SRM 612 の $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ は比較的安定した値を示しているが、質量分散が時間と共に若干低下する経時変動が見られる。一方、 $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ については時間と共に顕著に低下する傾向が見られ、経時的に U 酸化物イオン生成が低下するというこれまでの報告 (Kimura et al. 2014b²³⁾) と一致した挙動を示している。なお、SRM 981 の $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 、 $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ 同位体比の測定精度は 1σ の信頼区間でそれぞれ 0.01 %、1 - 2 % であり、U や Pb 濃度が十分にあれば、高精度の年代測定が可能である事を示している (Kimura et al. 2014b²³⁾)。しかしながら、今回計測した炭酸塩試料の U 濃度は土岐花崗岩試料を除き、いずれも ppb レベルであり、有意な年代値を得るに至らなかった。

表 3.4-2 には、SRM 612 ガラスによる外部補正係数 (表 3.4-2 中の CF) と、この補正係数で補正された炭酸塩未知試料の $^{238}\text{U}/^{204}\text{Pb}$ 、 $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 、 $^{235}\text{U}/^{204}\text{Pb}$ 、 $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 及び $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 同位体比を示した。 $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 、 $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 及び $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 同位体比については、ほとんど 1 に近い補正係数となっており、ICP 質量分析計において高マス側の質量分散係数はきわめて小さい (1 - 2 % 以内) ことを表している。一方、 $^{238}\text{U}/^{204}\text{Pb}$ 、 $^{235}\text{U}/^{204}\text{Pb}$ については 4 - 6 の補正係数が必要で、多量の UO^+ イオン生成によって U^+ イオンの生成が抑制されているかを示している。この補正係数には時間依存性があるが、大幅な再チューニングを実施しない限り、係数は指数関数的に漸減するので、ブラケット法による補正が有効である。

Pb や U が 35 - 40 ppm 含まれる SRM 612 と違い、測定した炭酸塩試料の Pb と U 量は著しく少ない。また、炭酸塩試料には一貫して一定程度のコモン鉛が含まれるため (表 3.4-2)、 ^{204}Pb をベースとしたアイソクロン法で年代を求める必要がある。しかしながら、得られた信号強度は Pb、U 共に著しく低いため、それらの同位体比のエラーは極端に大きく、年代測定に有意なデータは得られなかった。したがって、U-Pb 年代測定に関する検討はできなかった。

3.4 分析結果の考察

今回の炭酸塩試料① - ③の分析結果からは、U-Pb 年代測定精度の検討に用いられるデータは得られなかった。その一方、花崗岩中や鍾乳洞で生成した炭酸塩の Pb、Th 及び U 濃度 (表 3.4-1)、 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 同位体比 (表 3.4-2) について有意なデータを得ることができた。Th 濃度は分析した元素の中でも最も低く、0.001 - 1 ppm で、大半が 0.1 ppm 以下である (表 3.4-1)。U は次に乏しく、0.01 - 4 ppm で、土岐花崗岩試料は 0.1 ppm から最大 7 ppm 入っているものがあつた (図 3.4-1 上)。しかし、江若花崗岩試料並びに秋吉台鍾乳石試料中の U は 0.001 - 0.05 ppm と、土岐花崗岩試料に比較していずれも 2 桁近く低い濃度であつた。これら U-Pb 壊変系列の親核種に比較して、Pb は 0.01 - 7 ppm の組成を示し、特に土岐花崗岩試料と秋吉台鍾乳石試料中には 1 ppm を越える濃度のものがあつた (図 3.4-1 上)。Pb に対して Th 濃度が著しく低いのは、Th が価数の高いイオンをもち水溶液中に溶出しにくい元素 (高電界強度元素) であるためと考えられる。また、地表環境と比較して U 濃度が低いのは、地下環境が還元的事が理由であると推測される。すなわち、U が水溶液中に溶け出さないか、あるいは元々地下水中に溶存していても還元的环境下で沈殿してしまい、炭酸塩内に含まれなかったと考えられる。これに対して Pb は水溶液中によく溶存するので、炭酸塩中でも濃度が比較的高いものと推測される。

図 3.4-1 (下) には、鉛濃度が検出下限値 (0.001 ppm) より有意に高く、 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比の測定誤差が数%以下で測定できた $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 同位体組成を示す。土岐花崗岩試料の花崗岩部分の $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 組成は 0.851 と最も高く、花崗岩中に生成した炭酸塩脈の $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 組成は有意に低い。江若花崗岩試料の $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 組成は Pb 濃度が低いことからエラーが大きいが、平均値は 0.846 と土岐花崗岩試料の花崗岩部と炭酸塩の中間的な組成を示す。秋吉台鍾乳石中の

$^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 組成は平均で 0.843 と低く、土岐花崗岩の炭酸塩脈の一部と類似した組成を示す。この値は、西南日本山陰地域の広域風成塵起源古土壌、つまり黄砂堆積物（木村・松本，未公表試料）の平均組成とほぼ一致する。これに対して、広域汚染物質を多く含む現在の黄砂堆積物は 0.862 と著しく高く、人為的な $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 組成を示す（木村・松本，未公表試料）。

一方、日本列島の花崗岩類の既存 Pb 同位体組成データは限られているが、新生代の火山岩類のそれは九州～東北日本までよく測定されている。これらのうちデイサイト・流紋岩溶岩の組成は、上部地殻を構成する花崗岩・角閃岩・堆積岩の組成を反映していると考えられる（Kimura et al. in review²⁹）。これら火山岩類の $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 組成は 0.835 - 0.855 であり、一部に見られる低い $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 組成を除き、土岐花崗岩中の炭酸塩の組成幅と一致する。一方、遠洋底堆積物の $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 組成は 0.816-0.845 であり（Plank and Langmuir, 1998³⁰）、土岐花崗岩中の炭酸塩の低い $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 組成の試料と一致している。

今回測定された炭酸塩試料の $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 組成は、基盤花崗岩（土岐花崗岩・江若花崗岩試料）あるいは広域風成塵由来の土壌（秋吉台試料）と反応した地下水に由来する可能性が指摘される。一部の土岐花崗岩中の炭酸塩試料の低い同位体組成は、基盤の付加帯堆積岩に由来する可能性がある。このように、 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 組成は炭酸塩を沈殿させた水溶液の由来を反映している可能性があり、今後、炭酸塩の生成環境や地下水の起源についての研究に寄与すると期待される。

表 3.4-1 炭酸塩試料の U-Pb 同位体比測定結果：生データ及び Pb, Th, U 半定量値
赤字は検出限界値を下回り、マイナスの値で取得されたデータを示す

Run#	Sample	Pb(ppm)	Th(ppm)	U(ppm)	²⁰⁴ Pb	²⁰⁶ Pb	²⁰⁷ Pb	²³² Th	²³⁸ U	²⁰⁶ Pb/ ²⁰⁸ Pb	²⁰⁶ Pb/ ²⁰⁸ Pb	²³² Th/ ²³² U	²⁰⁶ Pb/ ²⁰⁸ Pb	²⁰⁶ Pb/ ²⁰⁸ Pb	²⁰⁶ Pb/ ²⁰⁸ Pb	²³² Th/ ²³² U	²⁰⁶ Pb/ ²⁰⁸ Pb	²⁰⁶ Pb/ ²⁰⁸ Pb	²⁰⁶ Pb/ ²⁰⁸ Pb
		半定量	半定量	半定量	平均	平均	平均	平均	平均	平均	平均	平均	平均	平均	1SD	1SD	1SD	1SD	1SD
Run1	SP1_1	0.061	0.038	1.127	0.0002	0.0029	0.0016	0.0002	0.0196	0.5541	0.146	0.008	17.40	9.64	5.2	9.2	30.1	14.4	15.0
Run2	SRM612_1	38.960	37.230	37.060	0.0657	1.1273	1.0277	0.1501	0.6445	0.9112	1.761	0.233	17.17	15.65	0.1	2.8	4.4	0.1	0.1
Run3	SP1_2	1.447	0.046	2.957	0.0025	0.0474	0.0382	0.0002	0.0514	0.8027	0.933	0.003	19.22	15.44	1.4	26.1	45.0	2.0	1.6
Run4	SP1_3	3.637	0.187	0.960	0.0061	0.1137	0.0959	0.0008	0.0167	0.8441	6.756	0.045	18.54	15.64	0.2	11.1	8.1	0.5	0.5
Run5	SRM612_2	38.960	37.230	37.060	0.0625	1.0726	0.9772	0.1646	0.6612	0.9110	1.625	0.249	17.17	15.64	0.1	2.9	4.2	0.1	0.1
Run6	SP1_4	2.412	0.174	0.837	0.0039	0.0717	0.0605	0.0008	0.0149	0.8390	4.611	0.052	18.53	15.55	0.6	32.6	6.9	1.1	1.2
Run7	SP1_5	1.951	0.079	2.203	0.0031	0.0577	0.0489	0.0003	0.0036	0.8475	16.096	0.096	18.44	15.65	0.3	7.3	13.7	1.0	0.8
Run8	SRM612_3	38.960	37.230	37.060	0.0272	0.4659	0.4245	0.0870	0.2883	0.9112	1.615	0.303	17.15	15.63	0.1	1.5	2.7	0.1	0.2
Run9	SP1_6	-0.033	0.066	1.986	-0.0000	0.0003	-0.0004	0.0002	0.0154	-1.9135	0.018	0.10	-0.98	1.64	-106.9	41.9	30.4	-2127.8	1529.2
Run10	SP1_7	-0.007	0.051	1.174	0.0000	0.0003	-0.0001	0.0001	0.0091	-0.4320	0.036	0.13	1.55	-1.06	-1546.3	97.9	37.9	5110.1	-3070.5
Run11	SP1_8	4.779	0.102	1.071	0.0033	0.0618	0.0521	0.0002	0.0083	0.8428	7.533	0.029	18.58	15.66	0.2	23.6	18.8	1.0	1.1
Run12	SRM612_4	38.960	37.230	37.060	0.0259	0.4436	0.4041	0.0858	0.2832	0.9110	1.566	0.305	17.16	15.63	0.1	1.0	2.4	0.2	0.2
Run13	SP1_9	0.118	0.086	1.772	0.0001	0.0020	0.0012	0.0002	0.0135	0.6030	0.150	0.015	18.87	11.22	6.9	14.9	26.8	29.9	28.6
Run14	SP1_10	-0.041	0.008	3.778	0.0000	0.0007	-0.0004	0.0000	0.0289	-0.6508	0.024	0.001	14.06	-9.82	-20.0	9.9	306.5	946.7	-765.0
Run15	SP1_11_granite	6.949	0.001	0.005	0.0046	0.0843	0.0721	0.0000	0.0000	0.8552	1608.215	0.024	18.25	15.59	0.2	192.9	7980.0	0.6	0.7
Run16	SRM612_5	38.960	37.230	37.060	0.0250	0.4295	0.3912	0.0878	0.2834	0.9108	1.514	0.311	17.14	15.62	0.1	1.2	2.8	0.2	0.2
Run17	SP1_12	2.487	0.111	3.590	0.0016	0.0305	0.0250	0.0000	0.0027	0.8197	1.109	0.001	18.95	15.55	0.5	11.1	129.9	1.9	2.0
Run18	SP1_13	2.874	1.053	1.622	0.0019	0.0347	0.0289	0.0025	0.0124	0.8308	2.711	0.205	18.53	15.40	0.7	50.7	21.5	1.6	1.8
Run19	SRM612_6	38.960	37.230	37.060	0.0271	0.4650	0.4235	0.0948	0.3155	0.9109	1.474	0.302	17.16	15.63	0.1	1.2	2.1	0.1	0.1
Run20	SP1_14	1.239	0.109	0.457	0.0009	0.0161	0.0135	0.0003	0.0039	0.8361	4.175	0.073	17.93	15.60	0.4	12.4	29.5	3.2	3.2
Run21	SP1_15	0.376	0.146	1.156	0.0003	0.0052	0.0041	0.0004	0.0098	0.7795	0.549	0.037	16.98	13.24	1.7	20.2	32.5	9.3	8.2
Run22	SP1_16	-0.000	0.073	1.304	0.0000	0.0005	-0.0000	0.0002	0.0111	-0.0079	0.045	0.19	7.28	1.05	-3053.6	33.6	40.7	415.7	562.4
Run23	SP1_17	-0.008	0.050	0.590	0.0000	0.0001	-0.0001	0.0001	0.0050	0.6384	0.020	0.24	-0.62	-1.69	775.9	177.8	34.1	-1877.5	-937.8
Run24	SP1_18	0.124	0.149	0.686	0.0001	0.0018	0.0013	0.0004	0.0058	0.7113	0.318	0.067	14.25	10.23	10.9	54.8	29.6	27.8	31.3
Run25	SRM612_7	38.960	37.230	37.060	0.0276	0.4740	0.4318	0.0986	0.3317	0.9110	1.428	0.299	17.15	15.63	0.1	1.5	2.2	0.1	0.1
Run26	SP1_19	0.023	0.020	1.734	0.0001	0.0009	0.0003	0.0001	0.0155	0.0256	0.051	0.003	32.86	5.15	1289.1	62.2	103.2	254.7	538.7
Run27	SP1_20	0.482	0.104	1.333	0.0004	0.0067	0.0053	0.0003	0.0119	0.7485	0.545	0.023	17.47	12.98	12.1	70.4	19.4	28.9	29.8
Run28	SRM612_8	38.960	37.230	37.060	0.0281	0.4818	0.4389	0.0995	0.3410	0.9111	1.408	0.294	17.16	15.63	0.1	1.8	2.9	0.1	0.1
28/09/2014																			
Run1	SRM612_1	38.960	37.230	37.060	0.0156	0.2673	0.2433	0.0614	0.1851	0.9102	1.444	0.334	17.11	15.58	0.1	0.9	2.7	0.2	0.2
Run2	092814sp1_1	-0.020	-0.004	0.003	0.0004	-0.0001	-0.0001	0.0000	0.0000	0.9913	-1.540	-0.139	-0.35	-0.35	48.7	-1888.2	-3772.4	-43.0	-31.3
Run3	092814sp1_2	1.178	-0.005	0.010	0.0012	0.0087	0.0074	-0.0000	0.0000	0.8475	38.593	-0.096	7.51	6.36	0.7	958.4	-1997.1	5.3	5.4
Run4	SRM612_2	38.960	37.230	37.060	0.0460	0.7880	0.7165	0.1497	0.6253	0.9094	1.260	0.239	17.11	15.56	0.1	1.2	1.7	0.1	0.1
Run5	092814sp1_3	-0.008	-0.002	0.000	0.0005	-0.0001	-0.0002	0.0000	0.0000	1.0423	0.476	-0.30	-0.32	33.6	3340.9	-923.5	-35.1	-35.2	
Run6	092814sp1_4	0.183	0.002	0.004	0.0009	0.0040	0.0034	0.0000	0.0001	0.8427	65.337	0.021	4.22	3.55	1.3	121.6	5128.5	4.4	4.4
Run7	092814sp1_5	0.242	-0.000	0.001	0.0008	0.0053	0.0045	-0.0000	0.0000	0.8461	-79.502	-0.125	6.67	5.65	1.0	-615.1	-2791.1	8.8	8.7
Run8	SRM612_3	38.960	37.230	37.060	0.0777	1.307	1.182	0.0402	0.1279	0.9048	1.021	0.314	16.91	15.29	0.2	2.0	9.4	0.4	0.4
Run9	092814sp2_1	-0.012	0.028	0.041	0.0001	-0.0000	-0.0000	0.0000	0.0001	0.9707	-0.515	0.344	-0.34	-0.44	196.8	-319.0	289.0	-143.6	-126.4
Run10	092814sp2_2	-0.011	0.012	0.008	0.0001	-0.0000	-0.0000	0.0000	0.0000	0.9805	-0.288	0.039	-0.70	-0.49	1759.3	-560.4	3679.9	-130.9	-187.4
Run11	SRM612_4	38.960	37.230	37.060	0.0665	1.091	0.9988	0.0378	0.1207	0.9059	0.904	0.312	16.91	15.32	0.2	1.9	7.7	0.5	0.5
Run12	092814sp2_3	0.002	0.114	0.053	0.0001	0.0000	0.0000	0.0000	0.0002	0.4773	0.091	0.071	0.45	0.06	275.4	297.2	483.8	318.5	1384.0
Run13	092814sp2_4	0.108	0.052	0.097	0.0001	0.0003	0.0003	0.0001	0.0003	0.8239	1.244	0.151	4.70	3.91	15.2	5.5	121.3	51.5	51.2
Run14	SRM612_5	38.960	37.230	37.060	0.0663	1.061	0.9962	0.0388	0.1244	0.9069	0.852	0.312	16.92	15.34	0.2	2.5	7.2	0.6	0.6
Run15	SRM612_6	38.960	37.230	37.060	0.0286	0.4902	0.4467	0.1010	0.3407	0.9112	1.439	0.297	17.17	15.64	0.1	2.5	6.0	0.1	0.1
Run16	092814sp3_1	-0.010	0.006	0.018	0.0007	-0.0001	-0.0001	0.0000	0.0002	0.8858	-1.059	0.078	-0.19	-0.18	56.8	-84.3	462.4	-47.6	-53.6
Run17	092814sp3_2	0.005	-0.003	0.052	0.0005	0.0001	0.0001	-0.0000	0.0005	0.5432	0.194	-0.28	0.15	0.11	208.9	116.1	-372.0	127.5	159.4
Run18	092814sp3_3	-0.007	0.002	0.009	0.0005	-0.0001	-0.0001	0.0000	0.0001	0.6239	-0.199	0.210	-0.19	-0.19	358.1	-150.1	466.9	-56.4	-45.9
Run19	SRM612_7	38.960	37.230	37.060	0.0281	0.4822	0.4393	0.1010	0.3328	0.9109	1.449	0.305	17.15	15.62	0.1	2.4	6.3	0.1	0.1
Run20	092814sp4_1	0.045	-0.004	0.019	0.0002	0.0006	0.0005	-0.0000	0.0002	0.8059	3.715	-0.067	2.44	1.99	8.0	35.8	-396.0	21.8	22.9
Run21	092814sp4_2	0.068	-0.003	0.010	0.0003	0.0009	0.0008	-0.0000	0.0001	0.8386	12.675	-0.122	3.58	3.01	6.4	62.9	-503.0	14.2	14.6
Run22	092814sp4_3	0.107	-0.004	0.020	0.0003	0.0014	0.0012	-0.0000	0.0002	0.8438	9.280	-0.058	5.31	4.54	4.0	54.1	-527.0	16.1	16.3
Run23	SRM612_8	38.960	37.230	37.060	0.0274	0.4692	0.4274	0.1043	0.3454	0.9108	1.359	0.302	17.15	15.63	0.1	2.9	7.1	0.1	0.1
Run24	092814sp4_4	0.569	0.002	0.026	0.0006	0.0073	0.0062	0.0000	0.0002	0.8493	30.								

表 3.4-2 炭酸塩試料の U-Pb 同位体比測定結果

Run #	測定条件(レーザー)	試料測定点名	試料名		同位体比					誤差 (1 standard deviation)				
					$^{238}\text{U}/^{204}\text{Pb}$	$^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$	$^{235}\text{U}/^{204}\text{Pb}$	$^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$	$^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$	$^{238}\text{U}/^{204}\text{Pb}$	$^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$	$^{235}\text{U}/^{204}\text{Pb}$	$^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$	$^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$
27/09/2014														
Run1	100um/5Hz30kV	SP1_1	Toki Gr. Sp.1		856.30	18.19	6.21	9.97	0.560	276.88	4.68	2.01	2.38	0.032
Run2	100um/5Hz30kV	SRM612_1		CF	6.80	1.00	6.80	0.99	0.996					
Run3	100um/5Hz30kV	SP1_2	Toki Gr. Sp.1		150.66	19.12	1.09	15.28	0.799	43.26	0.48	0.31	0.35	0.011
Run4	100um/5Hz30kV	SP1_3	Toki Gr. Sp.1		17.34	18.46	0.13	15.51	0.840	1.91	0.10	0.01	0.09	0.003
Run5	100um/5Hz30kV	SRM612_2		CF	6.30	1.00	6.30	0.99	0.996					
Run6	100um/5Hz30kV	SP1_4	Toki Gr. Sp.1		27.79	18.38	0.20	15.43	0.840	9.50	0.43	0.07	0.31	0.025
Run7	100um/5Hz30kV	SP1_5	Toki Gr. Sp.1		7.36	18.37	0.05	15.51	0.844	0.72	0.19	0.01	0.16	0.003
Run8	100um/5Hz30kV	SRM612_3		CF	6.28	1.00	6.28	0.99	0.996					
Run9	100um/5Hz30kV	SP1_6	Toki Gr. Sp.1		-349.88	0.53	-2.54	3.58	-0.551	6279.98	17.70	45.55	23.52	10.972
Run10	100um/5Hz30kV	SP1_7	Toki Gr. Sp.1		1702.33	11.82	12.35	-1.06	-4.669	5750.54	30.31	41.71	33.21	31.894
Run11	100um/5Hz30kV	SP1_8	Toki Gr. Sp.1		2.55	113.11	0.02	95.35	0.840	0.62	1.15	0.00	1.01	0.002
Run12	100um/5Hz30kV	SRM612_4		CF	6.09	1.00	6.09	0.99	0.996					
Run13	100um/5Hz30kV	SP1_9	Toki Gr. Sp.1		757.18	18.38	5.49	11.02	0.601	251.59	5.37	1.82	3.20	0.042
Run14	100um/5Hz30kV	SP1_10	Toki Gr. Sp.1		3898.89	15.96	28.28	-10.48	-0.646	33504.61	135.81	243.01	74.91	0.137
Run15	100um/5Hz30kV	SP1_11_granite	Toki Gr. Sp.1		0.05	18.20	0.00	15.50	0.852	0.05	0.11	0.00	0.10	0.001
Run16	100um/5Hz30kV	SRM612_5		CF	5.89	1.00	5.89	0.99	0.996					
Run17	100um/5Hz30kV	SP1_12	Toki Gr. Sp.1		101.18	18.90	0.73	15.44	0.817	12.05	0.35	0.09	0.29	0.004
Run18	100um/5Hz30kV	SP1_13	Toki Gr. Sp.1		46.29	18.48	0.34	15.28	0.827	16.59	0.31	0.12	0.29	0.005
Run19	100um/5Hz30kV	SRM612_6		CF	5.73	1.00	5.73	0.99	0.996					
Run20	100um/5Hz30kV	SP1_14	Toki Gr. Sp.1		25.02	17.89	0.18	14.91	0.833	3.29	0.58	0.02	0.48	0.003
Run21	100um/5Hz30kV	SP1_15	Toki Gr. Sp.1		182.61	16.92	1.32	13.15	0.778	41.23	1.42	0.30	1.08	0.014
Run22	100um/5Hz30kV	SP1_16	Toki Gr. Sp.1		859.73	7.07	6.24	0.87	-0.015	5432.17	30.94	39.40	5.90	0.234
Run23	100um/5Hz30kV	SP1_17	Toki Gr. Sp.1		357.21	-0.90	2.59	-2.71	0.738	2022.95	10.83	14.67	12.84	5.238
Run24	100um/5Hz30kV	SP1_18	Toki Gr. Sp.1		306.68	14.02	2.22	10.03	0.709	168.55	3.81	1.22	3.18	0.077
Run25	100um/5Hz30kV	SRM612_7		CF	5.56	1.00	5.56	0.99	0.996					
Run26	100um/5Hz30kV	SP1_19	Toki Gr. Sp.1		4476.80	34.23	32.47	2.32	0.003	12754.13	88.07	92.50	23.12	0.307
Run27	100um/5Hz30kV	SP1_20	Toki Gr. Sp.1		307.55	17.70	2.23	13.26	0.748	344.31	4.67	2.50	3.37	0.091
Run28	100um/5Hz30kV	SRM612_8		CF	5.49	1.00	5.49	0.99	0.996					
28/09/2014														
Run1	100um/5Hz30kV	SRM612_1		CF	5.63	1.00	5.63	1.00	0.997					
Run2	100um/5Hz30kV	092814sp1_1	0407-07-1		0.23	-0.36	0.00	-0.35	1.028	0.50	0.14	0.00	0.12	0.405
Run3	100um/5Hz30kV	092814sp1_2	0407-07-1		0.23	7.49	0.00	6.34	0.846	0.25	0.41	0.00	0.35	0.006
Run4	100um/5Hz30kV	SRM612_2		CF	4.91	1.00	4.91	1.00	0.998					
Run5	100um/5Hz30kV	092814sp1_3	0407-07-1		0.12	-0.31	0.00	-0.31	1.050	0.39	0.10	0.00	0.11	0.370
Run6	100um/5Hz30kV	092814sp1_4	0407-07-1		0.40	4.20	0.00	3.53	0.841	0.25	0.18	0.00	0.15	0.010
Run7	100um/5Hz30kV	092814sp1_5	0407-07-1		0.10	6.74	0.00	5.72	0.848	0.21	0.59	0.00	0.50	0.009
Run8	100um/5Hz30kV	SRM612_3		CF	4.03	1.01	4.03	1.01	1.003					
Run9	100um/5Hz30kV	092814sp2_1	0407-01		5.91	-0.34	0.04	-0.41	0.867	5.61	0.41	0.04	0.56	2.006
Run10	100um/5Hz30kV	092814sp2_2	0407-01		1.57	-0.70	0.01	-0.46	27.987	4.13	0.95	0.03	0.96	174.855
Run11	100um/5Hz30kV	SRM612_4		CF	3.57	1.01	3.57	1.01	1.002					
Run12	100um/5Hz30kV	092814sp2_3	0407-01		14.28	0.44	0.10	0.01	0.371	15.57	1.23	0.11	0.77	1.326
Run13	100um/5Hz30kV	092814sp2_4	0407-01		16.58	4.74	0.12	3.93	0.840	9.99	2.48	0.07	2.05	0.160
Run14	100um/5Hz30kV	SRM612_5		CF	3.36	1.01	3.36	1.01	1.001					
Run15	100um/5Hz30kV	SRM612_6		CF	5.59	1.00	5.59	0.99	0.996					
Run16	100um/5Hz30kV	092814sp3_1	0407-02-2		1.40	-0.20	0.01	-0.17	0.925	0.74	0.09	0.01	0.09	0.417
Run17	100um/5Hz30kV	092814sp3_2	0407-02-2		5.94	0.18	0.04	0.11	0.487	1.38	0.18	0.01	0.16	1.203
Run18	100um/5Hz30kV	092814sp3_3	0407-02-2		1.08	-0.19	0.01	-0.18	0.578	0.50	0.11	0.00	0.09	2.368
Run19	100um/5Hz30kV	SRM612_7		CF	5.64	1.00	5.64	0.99	0.996					
Run20	100um/5Hz30kV	092814sp4_1	0407-04		3.99	2.41	0.03	1.94	0.805	1.17	0.46	0.01	0.41	0.073
Run21	100um/5Hz30kV	092814sp4_2	0407-04		1.98	3.54	0.01	2.95	0.836	0.84	0.47	0.01	0.40	0.053
Run22	100um/5Hz30kV	092814sp4_3	0407-04		3.96	5.27	0.03	4.42	0.838	1.80	0.82	0.01	0.71	0.036
Run23	100um/5Hz30kV	SRM612_8		CF	5.28	1.00	5.28	0.99	0.996					
Run24	100um/5Hz30kV	092814sp4_4	0407-04		2.03	11.45	0.01	9.69	0.847	0.33	0.56	0.00	0.49	0.006
Run25	100um/5Hz30kV	092814sp4_5	0407-04		2.28	9.95	0.02	8.38	0.843	0.66	0.85	0.00	0.69	0.011
Run26	100um/5Hz30kV	092814sp4_6	0407-04		3.56	13.17	0.03	11.19	0.850	0.45	0.94	0.00	0.81	0.007
Run27	100um/5Hz30kV	SRM612_9		CF	5.17	1.00	5.17	0.99	0.996					
Run28	100um/5Hz30kV	092814sp4_7	0407-04		0.96	2.86	0.01	2.43	0.851	0.35	0.27	0.00	0.24	0.032
Run29	100um/5Hz30kV	092814sp4_8	0407-04		5.17	3.18	0.04	2.70	0.842	2.18	0.92	0.02	0.95	0.098
Run30	100um/5Hz30kV	092814sp4_9	0407-04		2.01	13.21	0.01	11.20	0.848	0.55	0.90	0.00	0.77	0.006
Run31	100um/5Hz30kV	SRM612_10		CF	5.09	1.00	5.09	0.99	0.996					
Run32	100um/5Hz30kV	092814sp4_10	0407-04		2.90	13.85	0.02	11.75	0.848	0.48	0.73	0.00	0.63	0.006
Run33	100um/5Hz30kV	092814sp4_11	0407-04		2.57	14.68	0.02	12.46	0.848	0.32	0.66	0.00	0.55	0.004
Run34	100um/5Hz30kV	092814sp4_12	0407-04		1.32	9.95	0.01	8.39	0.844	0.57	0.87	0.00	0.75	0.014
Run35	100um/5Hz30kV	SRM612_11		CF	5.09	1.00	5.09	0.99	0.996					
Run36	100um/5Hz30kV	092814sp4_13	0407-04		1.47	8.20	0.01	6.95	0.847	0.96	1.03	0.01	0.90	0.018
Run37	100um/5Hz30kV	SRM612_12		CF	5.41	1.00	5.41	0.99	0.996					
Run38	100um/5Hz30kV	SRM612_13		CF	4.26	1.00	4.26	0.99	0.997					
Run39	100um/5Hz30kV	092814sp5_1	0407-06		0.27	9.80	0.00	8.32	0.849	0.53	1.29	0.00	1.10	0.018
Run40	100um/5Hz30kV	092814sp5_2	0407-06		0.92	10.67	0.01	9.01	0.844	0.51	1.36	0.00	1.18	0.013
Run41	100um/5Hz30kV	092814sp5_3	0407-06		2.76	6.54	0.02	5.53	0.847	1.14	1.11	0.01	0.96	0.043
Run42	100um/5Hz30kV	092814sp5_4	0407-06		0.72	10.78	0.01	9.13	0.847	0.59	0.93	0.00	0.77	0.012
Run43	100um/5Hz30kV	092814sp5_5	0407-06		1.62	8.96	0.01	7.57	0.845	0.83	1.63	0.01	1.42	0.021
Run44	100um/5Hz30kV	SRM612_14		CF	4.24	1.00	4.24	0.99	0.997					
22/01/2015														
Run1	100um/5Hz30kV	SRM612_1		CF	5.38	1.00	5.38	0.99	0.996					
Run2	100um/5Hz30kV	A3_1	Akiyoshidai		2.37	17.39	0.02	14.59	0.839	0.67	1.14	0.00	0.95	0.005
Run3	100um/5Hz30kV	A3_2	Akiyoshidai		2.01	17.61	0.01	14.83	0.8					

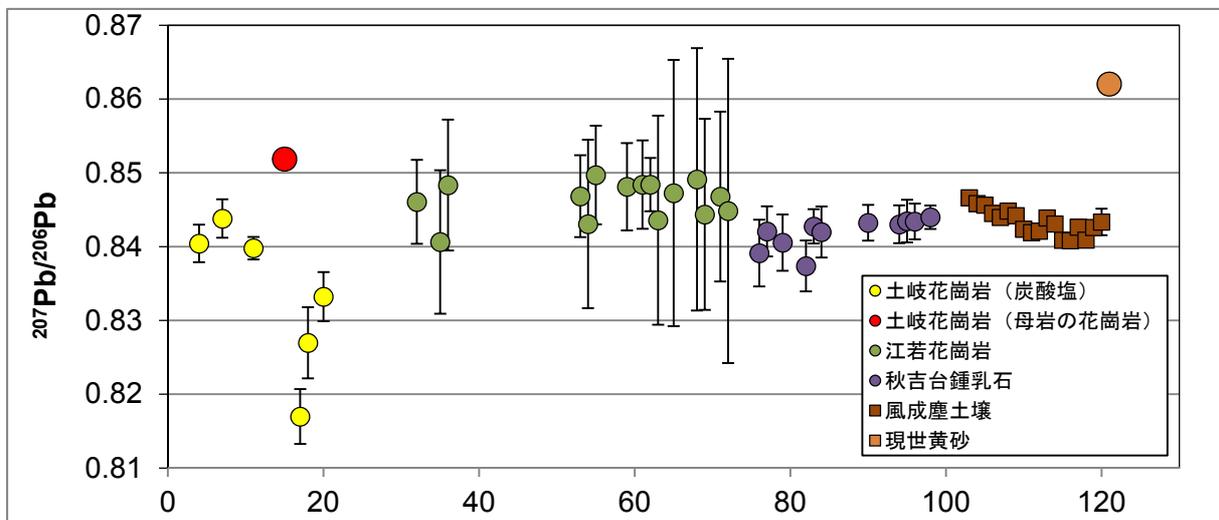
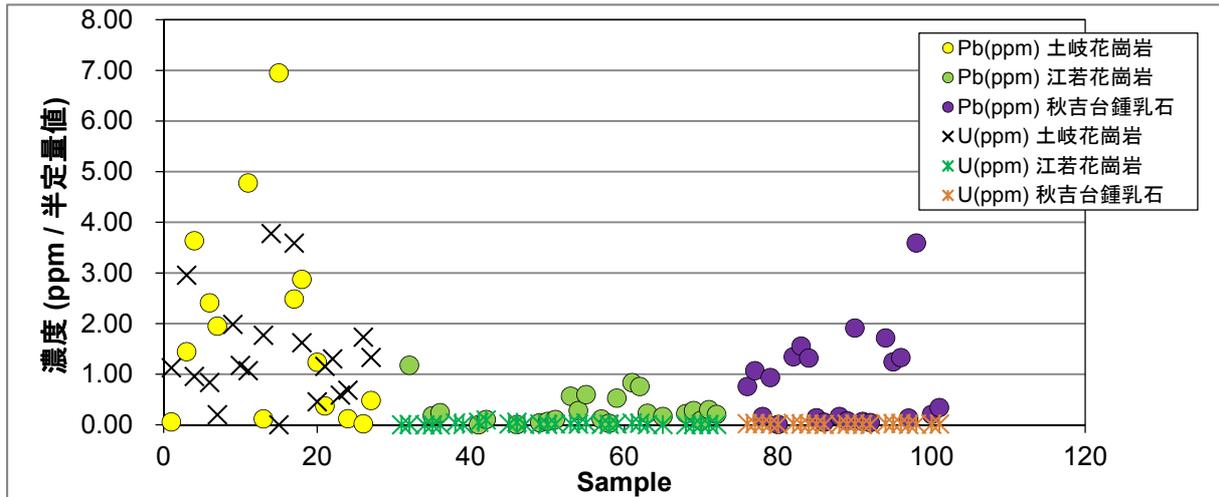


図 3.4-1 炭酸塩試料中に含まれる Pb 及び U 濃度 (上) 及び $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 同位体比 (下)

4. まとめ

本研究では、花崗岩中の炭酸塩鉱物脈並びに鍾乳石試料に含まれる U-Th-Pb 濃度測定と Pb 同位体比測定を、LA-ICP 質量分析法を用いて実施した。これらの分析にあたり、エキシマレーザー装置によるアブレーション条件を最適化した。さらにサブ ppm から ppm 一桁レベルの U-Th-Pb 分析を実施するため、ICP 質量分析計は最大感度が得られるよう、高感度インターフェイスクォンタム並びにそのチューニング設定を行ない、高増幅率ファラデーアンプを採用した。その結果、直径 100 μm のレーザークレーターから得られる、装置全体の検出下限はおよそ 0.001 ppm (ファラデー検出器で 100 μV 、イオンカウンター 6250 cps 相当) まで引き下げることが可能となった。

上記の条件で分析した結果、今回分析した炭酸塩試料には Pb が 0.01 - 7 ppm、Th が 0.001 - 1 ppm、U が 0.001 - 4 ppm が含まれる事が明らかになった。この低い親核種濃度と、高いコモン鉛のため U-Pb 年代測定を実施する事はできなかった。一方、Pb 濃度の高い試料については $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 同位体組成を得ることが出来た。土岐花崗岩の花崗岩部分は 0.852 で最も高く、その他の炭酸塩試料は 0.817 - 0.849 であった。日本列島の基盤花崗岩の $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 同位体組成は 0.835 - 0.855 の間に、風成塵由来の古土壌はおよそ 0.843 である。得られた炭酸塩の組成は古い堆積岩 (0.816 - 0.846) に相当する土岐花崗岩の中の低い炭酸塩を除き、いずれも基盤花崗岩の組成幅と、土壌由来の Pb 同位体組成の範囲に収まる。しかし、Pb 同位体組成は、地域毎あるいは脈内でも組成差が認められ、炭酸塩を沈殿させた水溶液の起源物質を探るのに有効な指標となる。

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., Yoshida, H., Hydrothermal alteration of deep fractured granite: Effects of dissolution and precipitation, *Lithos*, vol.115, 2010, pp. 153-162.
- 3) Iwatsuki, T., 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, 2012, 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) 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., 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. EUFP5 Contract No: FIKW-CT2001-20129, 2005, 206p.
- 8) 京都大学, 京都フィッション・トラック, 日本原子力研究開発機構, 「炭酸塩鉱物の LA-ICP-MS による U-Pb 年代測定手法の研究」共同研究報告書, 2015, 23p.
- 9) 秋吉台科学博物館, 山口大学, 日本原子力研究開発機構, 「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, 2015, 14p.
- 10) 兼岡一郎, 年代測定概論, 東京大学出版会, 1998, 315p.
- 11) Hirata, T. and Nesbitt, W., U-Pb isotope geochronology of zircon: evaluation of the laser probe-inductively coupled plasma mass spectrometry technique, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol.59, 1995, pp.2491-2500.
- 12) Simonetti, A., Heaman, L.A., Hartlaub, R.P., Creaser, R.A., MacHattiea, T.G. and Böhm, C., U-Pb zircon dating by laser ablation-MC-ICP-MS using a new multiple ion counting Faraday collector array. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, vol.20, 2005, pp. 677-686.
- 13) Cocherie, A., Fanning, C.M., Jezequel, P. and Robert, M., LA-MC-ICPMS and SHRIMP U-Pb dating of complex zircons from Quaternary tephra from the French Massif Central: Magma residence time and geochemical implications, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol.73, 2009, pp.1095-1108.
- 14) Kimura, J.-I., Chang, Q. and Tani, K., Optimization of ablation protocol for 200 nm UV femtosecond laser in precise U-Pb age dating coupled to multi-collector ICP mass spectrometry, *Geochemical Journal*, vol.45, 2011, pp.283-296.
- 15) Bouman, C., Deerberg, M., Schwieters, J.B. and Scientific T. F., NEPTUNE and NEPTUNE-Plus: Breakthrough in Sensitivity using a Large Interface Pump and New Sample Cone, *Application Note of Thermo Fischer Scientific*, 2008, vol.30187, pp.1-4.
- 16) Koornneef, J. M., Bouman, C., Schwieters, J.B., and Davies, G.R., Use of 1012 ohm current amplifiers in Sr and Nd isotope analyses by TIMS for application to sub-nanogram samples, *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, vol.28, 2013, pp.749-754.
- 17) Koornneef, J. M., Bouman, C., Schwieters, J.B., and Davies, Measurement of small ion beams by Thermal Ionisation mass spectrometry using new 1013 ohm resistors,

- Analytica Chimica Acta*, vol.819, 2014, pp.49-55.
- 18) Kimura, J.-I., Nozaki, T., Senda, R. and Suzuki, K., Precise determination of Os isotope ratios in the 15–4000 pg range using a sparging method using enhanced-sensitivity multiple Faraday collector-inductively coupled plasma-mass spectrometry, *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, vol.29, 2014, pp.1483-1490.
 - 19) Claverie, F., Fernandez, B., Pecheyran, C., Alexis, J. and Donard, O.F.X., Elemental fractionation effects in high repetition rate IR femtosecond laser ablation ICP-MS analysis of glass, *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, vol.24, 2009, pp.891-902.
 - 20) Yokoyama, T.D., Suzuki, T., Kon, Y. and Hirata, T., Determinations of Rare Earth Element Abundance and U-Pb Age of Zircon Using Multispot Laser Ablation-Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, *Analytical Chemistry*, vol.83, 2011, pp.8892-8899.
 - 21) 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 Planetary Research Letters*, vol.203, 2002, pp.681-689.
 - 22) Jeffries, T.L., Jackson, S.M., and Longerich, H.P., Application of a frequency quintupled Nd:YAG source ($\lambda=213$ nm) for laser ablation inductively coupled plasma mass spectrometric analysis of minerals, *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, vol.13, 1998, pp.935-940.
 - 23) Kimura, J.-I., Chang, Q., Itano, K., Iizuka, T., Voglarov, B.S., and Tani, K., An improved U-Pb age dating method for zircon and monazite using 200/266 nm femtosecond laser ablation and enhanced sensitivity multiple-Faraday collector inductively coupled plasma mass spectrometry, *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, vol.30, 2014b, pp.494-505.
 - 24) 中江 訓, 小松原 琢, 高橋裕平, 吉川敏之, 今庄及び竹波地域の地質, 地域地質研究報告(5万分の1 地質図幅), 産総研地質調査総合センター, 2013, 110 p.
 - 25) Pearce, N.J.g., Perkins, W.T., Westgate, J.A., Gorton, M.P., Jackson, S.E., Neal, C.R., and Chenery, S.P., A compilation of new and published major and trace element data for NIST SRM 610 and NIST SRM 612 glass reference materials, *Geostandard Newsletter*, vol.21, 1997, pp.115-144.
 - 26) Baker, J., Peate, D., Waight, T., and Meyzen, C. Pb isotopic analysis of standards and samples using a 207Pb–204Pb double spike and thallium to correct for mass bias with a double-focusing MC-ICP-MS, *Chemical Geology*, vol.211, 2004, pp.275-303.
 - 27) Kimura, J.-I., Takahashi, T. and Chang, Q., A new analytical bias correction for in-situ Sr isotope analysis of plagioclase crystals using laser ablation-multiple collector-inductively coupled plasma-mass spectrometry, *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, vol.28, 2013, pp.945-957.
 - 28) Chang, Q., Kimura, J.-I., and Vaglarov, S.B., In situ Sr isotope measurement of small glass samples using multiple-Faraday collector inductively coupled plasma mass spectrometry with 1012- Ω resistor high gain Faraday amplifiers, *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, vol.30, 2015, pp.515-524.
 - 29) Kimura, J.-I., Nagahashi, Y., Satoguchi, Y., and Chang Q. Caldera eruptions over the past 5 million years in Japan: Geochemistry and petrology of tephra glasses and origin of the huge volume felsic magmas, *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, in review.
 - 30) Plank, T. and Langmuir, C.L., The chemical composition of subducting sediment and its consequences for the crust and mantle, *Chemical Geology*, vol.145, 1998, pp.325-394.

付録 7

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

平成 26 年度共同研究報告書

平成 27 年 3 月

美祢市立秋吉台科学博物館

国立大学法人山口大学

独立行政法人日本原子力研究開発機構

目 次

1. 概要	1
1.1 共同研究名	1
1.2 研究目的	1
1.3 実施期間	1
2. 研究内容	2
2.1 研究概要	2
2.2 共同研究内容	3
3. 試料の選定と採取	4
3.1 炭酸塩鉱物試料の選定基準	4
3.2 鍾乳石採取地の検討	5
3.3 鍾乳石の採取	6
4. 分析手法の検討	9
4.1 試料の調製と分析	9
4.2 分析結果及び考察	10
5. まとめ	13
引用文献	13

図 目 次

図 2-1 炭酸塩鉱物のカソードルミネッセンス(CL)の累帯構造と分析点の概略図	2
図 3-1 標準試料分析から未知試料分析へのアプローチ	5
図 3-2 鍾乳石に対する中心部から最縁部へ年代データ取得の概念図	5
図 3-3 「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	7
図 3-4 北山北の横穴内の鍾乳石の採取現場写真	8
図 4-1 調製後の AK-1 の写真と LA-ICP 質量分析計による分析の位置図	10
図 4-2 AK-1 の XRD 分析結果図	11
図 4-3 AK-1 中の鉛、トリウム及びウランの各濃度のラインプロファイル図	12
図 4-4 AK-1、風成塵及び現世黄砂の $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 含有比図	12

表 目 次

表 3-1 「炭酸塩鉱物の年代測定法の開発」に用いる試料リスト	8
---------------------------------------	---

1. 概要

1.1 共同研究名

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

1.2 研究目的

わが国の高レベル放射性廃棄物の地層処分計画を円滑に進めていくためには、処分事業や安全規制の基盤となる技術を整備・強化していくための研究開発を着実に進めていく必要がある。具体的には、地層処分システムの長期的な変化をモデル計算によって予測しつつ、その結果に基づいてシステムの性能や安全性の評価を行うことになるが、モデルを構築していく上で、モデルの作成に必要な情報やモデルの検証に用いるデータを取得するための革新的な要素技術の開発として、炭酸塩鉱物の放射年代測定技術及び酸化還元電位推定技術の開発を進める必要がある。

地下深部の亀裂を充填する炭酸塩鉱物は地下水の“化石”の一つであり、過去から現在までの地下水の流れや水質などに関する情報を保持している。このような炭酸塩鉱物が沈殿した際の地下水の地球化学特性や放射年代値を把握することは、地形・地質モデルや地下水モデル、統合数値モデルの信頼性の向上に寄与するものと考えられる。地球化学特性の測定手法や年代測定手法の適用性の検討については、既往研究によりこれらの情報が推定されている炭酸塩鉱物を対象とすることが望ましい。そこで、既往研究例が豊富な山口県美祢市秋吉台の地質学的背景を考慮した炭酸塩鉱物の微小領域における地球化学特性の測定手法や年代測定手法の研究・開発を目的とした共同研究を締結した。

秋吉台科学博物館及び山口大学は、主に西日本に分布する炭酸塩鉱物を対象とした研究実績や研究に関連するノウハウを有している。原子力機構は、測定試料の作製装置及び試料の元素組成や構造を把握するための分析装置を所有しており、鉱物の放射年代測定法の開発や炭酸塩鉱物を利用した地下水の地球化学特性の推定などの研究実績を有している。

1.3 実施期間

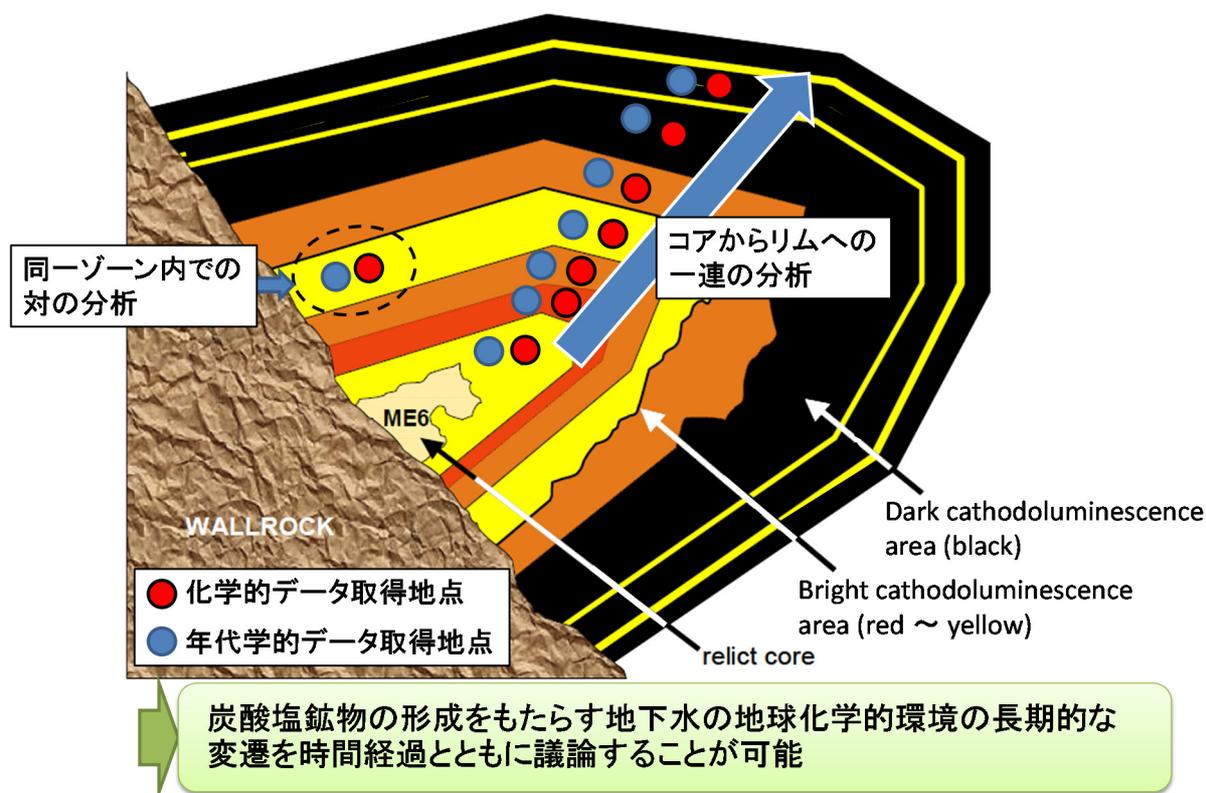
平成 26 年 7 月 1 日～平成 27 年 3 月 31 日

2. 研究内容

2.1 研究概要

炭酸塩鉱物は岩盤中に広く一般的に産出する鉱物であるため（西本ほか, 2008¹⁾; Nishimoto and Yoshida, 2010²⁾; Iwatsuki and Yoshida, 1999³⁾; Yoshida et al., 2000⁴⁾; 吉田, 2012⁵⁾; 横田・吉田, 2013⁶⁾）、汎用的な古環境指標物質として利用が期待できる。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考えられる。そのため、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）では、「革新的要素技術開発」の一項目として「炭酸塩鉱物測定技術」の開発を進めている。

「炭酸塩鉱物測定技術開発」では、割れ目や断層における炭酸塩鉱物の生成年代の推定、及び炭酸塩鉱物が形成される際の地下水の化学的特徴の推定を行うため、炭酸塩鉱物を対象とした革新的な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を目指す。割れ目や断層を充填する炭酸塩鉱物の生成年代が推定できれば、割れ目や断層の形成・発達に関する時間-温度履歴が定量的に議論できる。また同一の炭酸塩鉱物中に存在する累帯構造（鉱物成長方向）毎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議論することが可能となる（図 2-1）。



2.2 共同研究内容

放射年代測定法と酸化還元電位測定技術の研究開発に際して、それぞれで以下 3 項目の重要課題を有すると考える。

<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

これらの課題のうち、本共同研究は主に「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」及び「B-3. 微小領域での分析手法の構築」について検討するものである。具体的には、微小領域における化学組成の測定を主な目的とし、地質学的背景が既知である炭酸塩鉱物の試料を選定し、地球化学特性の測定手法や放射年代測定法の研究・開発を実施する。

3. 試料の選定と採取

「炭酸塩鉱物測定技術開発」の目的の一つは、割れ目及び断層を充填する炭酸塩鉱物の年代測定を実施することである。それらの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、例えばレーザーアブレーション型誘導結合プラズマ質量分析計（以下、「LA-ICP 質量分析計」という）のように、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。この目標の達成のためには年代測定の技術的な開発に加え、その測定結果を評価するためには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ため、本共同研究では試料の選定基準を考慮し、この基準に適合する炭酸塩試料の収集と分析を実施した。

3.1 炭酸塩鉱物試料の選定基準

炭酸塩鉱物の年代測定手法の適用性検討及び標準試料の選定基準の検討は、「炭酸塩鉱物の LA-ICP-MS による U-Pb 年代測定法の研究」の共同研究にて実施している。本稿においては、「炭酸塩鉱物の LA-ICP-MS による U-Pb 年代測定法の研究」共同研究報告書⁸⁾ より抜粋した内容を以下に示す。

炭酸塩鉱物の年代測定手法の適用性検討に際しては、既往研究により年代が推定されている炭酸塩鉱物を標準試料として対象とすることが望ましい。「炭酸塩鉱物の LA-ICP-MS による U-Pb 年代測定法の研究」の共同研究では、標準試料の選定を 3 つの段階に分けて実施する戦略を提案している。

第 1 段階では、標準試料として「炭酸塩鉱物からなる海生化石」を用いる。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、また、ストロンチウム同位体比を測定することで年代値のクロスチェックが可能である。まずはこれらの「炭酸塩鉱物からなる海生化石」を対象に、年代測定を系統的に実施する。第 2 段階では、「炭酸塩岩」として鍾乳石、蒸発岩、海成の炭酸塩鉱物である石灰岩や炭酸塩堆積物を標準試料として活用する。これらの試料は海生化石と比較すると不均質な組成であると考えられるため、第 1 段階で構築した手法に基づき、測定技術の開発の継続と、標準試料の評価方法の向上を図る。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出来されれば、第 3 段階として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」の年代測定を実施する。(図 3-1)。この 3 つの段階のうち、第 1 段階である海生化石を用いた検討は「炭酸塩鉱物の LA-ICP-MS による U-Pb 年代測定法の研究」の共同研究により実施中である。そのため、本共同研究では第 2 段階である「炭酸塩岩」のうち、鍾乳石に着目した。

第 2 段階において、鍾乳石は最も有効な標準試料となり得る。鍾乳石の多くは千年 ~ 十万年のタイムスケールで連続的に成長し、ほとんど続成作用を受けず、ウラン系列の年代測定法が適用可能という特徴がある (Fairchild et al., 2006⁹⁾)。特にトリウムは、酸化的环境下で水に溶けやすいウランと異なり、非常に溶けにくい (Porcelli and Swarzenski, 2003¹⁰⁾)。このことから、U-Th の放射非平衡を用いた年代測定法が鍾乳石に適用されている。例えば、(Edwards et al., 1987¹¹⁾; Cheng et al., 2000¹²⁾; Watanabe et al., 2010¹³⁾; Shen et al., 2013¹⁴⁾)。

鍾乳石には内部にて明部と暗部が繰り返す縞状構造をなすものが存在しており、U-Th 年代値などと対応している年縞である (Watanabe et al., 2010¹³⁾; Shen et al., 2013¹⁴⁾)。また、例えば山口県美祢市の秋芳洞内で採取されたある石筍は、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が 5.5 ± 0.5 万年であることが報告されている (Miki and Ikeya, 1978¹⁵⁾)。鍾乳石の内部に発達する全ての縞が年縞であるとは限らない (狩野, 2012¹⁶⁾) が、鍾乳石内部の縞状構造と成長の関係を把握した上で、その試料に対して 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、年代値の妥当性を確認することが可能となる（図 3-2）。

なお、本稿では、石灰岩洞窟内に二次的に成長した炭酸塩鉱物を全て「鍾乳石（speleothem）」と呼び、特に洞床から上方へ向かって成長したことが明らかな鍾乳石を「石筍（stalagmite）」と呼ぶ。

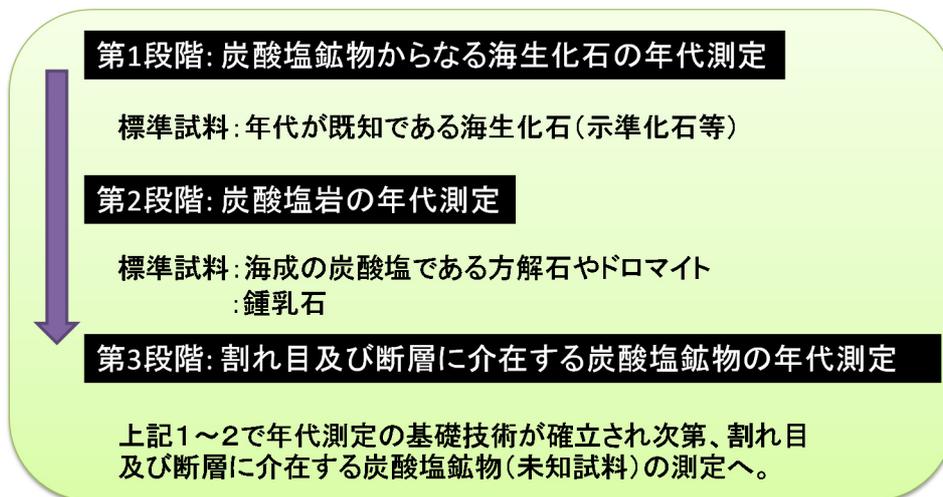
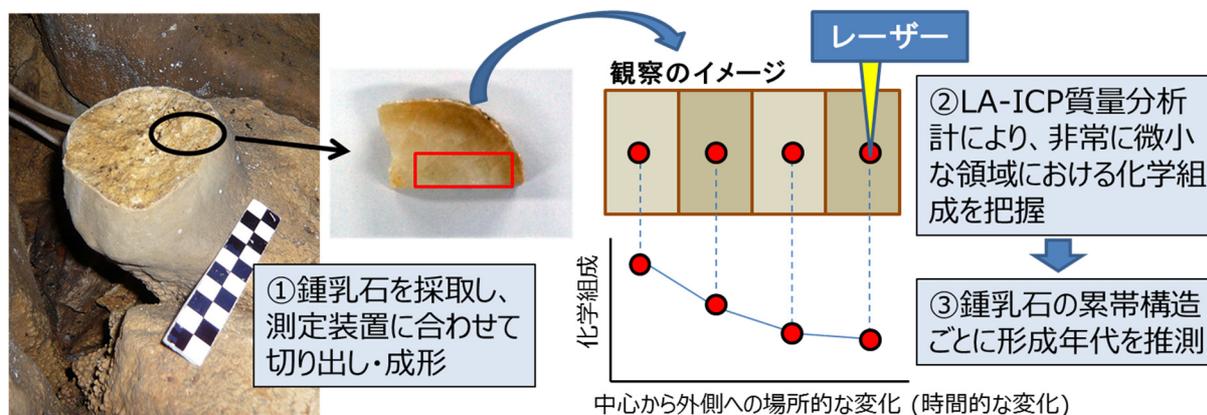


図 3-1 標準試料分析から未知試料分析へのアプローチ



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 3-2 鍾乳石に対する中心部から最縁部へ年代データ取得の概念図

3.2 鍾乳石採取地の検討

日本には全国各地の様々な場所に大小の鍾乳洞が分布し、鍾乳石が形成されている。平成 26 年度は、本共同研究に適した鍾乳石試料の選定を行った。本共同研究の目的に沿った鍾乳石試料の条件としては、□ 鍾乳石自体の形成年代が報告されている、□ 鍾乳洞の開口年代などの年代の議論がなされている、の二つの条件が挙げられる。

山口県美祢市に位置する秋吉台は、厚東川を挟む 2 つの台地から構成され、100 km² 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, 1978¹⁷⁾）、日本列島を形成する後期古生代の付加体として国内外に広く認識されている（藤川, 2010¹⁸⁾）。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, 2012¹⁹⁾）、藤井（2009）²⁰⁾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。秋吉台に分布する鍾乳洞は、大きく高位・中位・低位の3段階の標高に集中して分布し、厚東川の下刻作用の緩急に伴って発達したと考えられている（河野, 1980²¹⁾）。

秋吉台周辺の鍾乳洞内に存在する鍾乳石については、Miki and Ikeya（1978）¹⁵⁾が ESR 法を用いた年代値を推定している。また、Yoshimura et al.（2014）²²⁾は石筍の縞状構造を年縞としてカウントし、各縞の炭素同位体比（ $\delta^{13}\text{C}$ ）と微量元素濃度を分析し、組成の変化を当時操業していた鉱山の歴史と対比している。栗崎ほか（2006）²³⁾や栗崎ほか（2013）²⁴⁾は秋吉台に分布する複数の洞窟内部の石筍を採取し、石筍の炭素同位体比（ $\delta^{13}\text{C}$ ）の変化から秋吉台上の植生の変遷について議論している。

これらの既往研究により、山口県美祢市に分布する鍾乳洞内の鍾乳石は、鍾乳石自体の年代値や地質発達史が議論されており、「炭酸塩鉱物測定技術開発」に適した試料であると言える。そのため本共同研究では、山口県美祢市の秋吉台に分布する鍾乳洞内の鍾乳石をターゲットとした。秋吉台に分布する鍾乳洞のうち、鍾乳石の測定例（栗崎ほか, 2006²³⁾）がある「北山北の横穴」を選定し、鍾乳石を採取した（特別天然記念物秋吉台の現状変更（試料採取）許可「26受庁財第4号の1262」による）。

3.3 鍾乳石の採取

平成26年度に試料を採取した地点を図3-3に示す。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」内の1箇所において鍾乳石を採取した。北山北の横穴は秋吉台の草原地域に存在し、標高367.6 mの北山の北部約1 kmの場所に位置する（山口ケイビングクラブ, 2012¹⁹⁾）。地表の開口部から、らせん状の縦穴が約10 m続き、そこから高さが2 - 10 m程度の横穴が分布する。横穴はホール状及び通路状のものが連結しており、その拡がりは南北に約100 m、東西に約50 mである（山口大学洞穴研究会, 1968²⁵⁾）。洞床は赤褐色の粘土が堆積しており、折れた鍾乳石が点在している。鍾乳石を採取した地点の写真を図3-4に、採取した鍾乳石のリストを表3-1にそれぞれ示す。北山北の横穴では、折れて床面に転落していた鍾乳石（図3-4 A）や転石（図3-4 B）を採取した。鍾乳石試料 No.AK-1（以下、「AK-1」という）は直径が約5 cm、高さが約10 cmの円柱状であり、両端部が切断されているため、鍾乳石の先端部及び基部は残っていない。

なお、あまりに若い年代の鍾乳石（例えば数十年前に形成した鍾乳石）を測定した場合、年代測定法の適用範囲から大きく外れ、「炭酸塩鉱物測定技術開発」の目的を達成しない恐れがある。石筍の成長速度について、Fairchild et al.（2006）⁹⁾は温帯地域で十分に滴下水が供給される条件を仮定した場合、年間10 ~ 100 μm 程度（1 cm/100 - 1000年）であると述べている。ただし、この成長速度は滴下水が十分にある場合であり、また成長速度には地域性も大きく影響すると考えられる。このため、本共同研究では可能な限り大きいサイズの試料を採取した。



図 3-3 「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

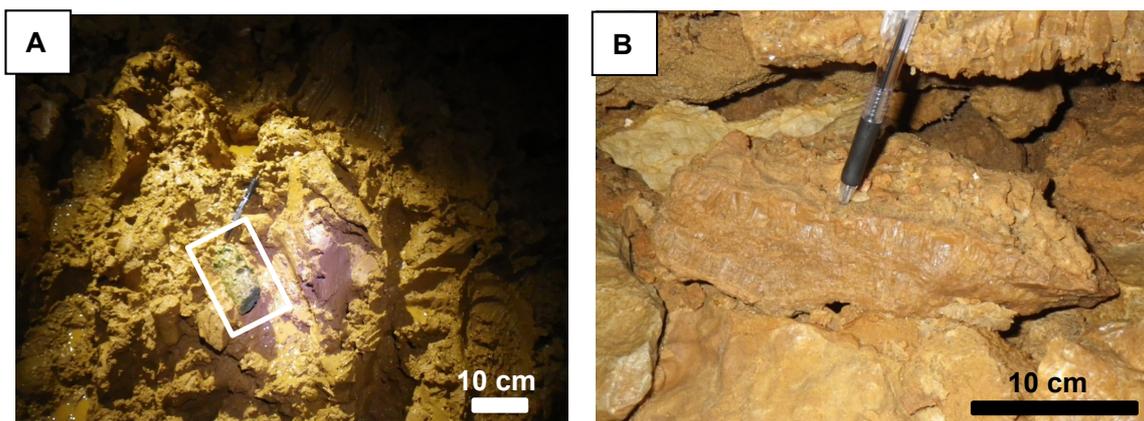


図 3-4 北山北の横穴内の鍾乳石の採取現場写真
 A) 折れて床面に転落していた鍾乳石 (AK-1) B) 鍾乳石の転石 (AK-6)

表 3-1 「炭酸塩鉱物の年代測定法の開発」に用いる試料リスト

試料採取場所	試料 No.	肉眼観察による形状等の特徴
北山北の横穴 (山口県美祢市)	AK-1 (図 3-4A)	円柱状、長さ 15 cm 程度、採取した試料の中では縞状構造が最も発達
	AK-2	円錐状、長さ 30 cm 程度
	AK-3	円柱状、長さ 15 cm 程度
	AK-4	円柱状、長さ 10 cm 以下
	AK-5	円柱状、長さ 20 cm 程度
	AK-6 (図 3-4B)	塊状(フローストーン状)、幅 30 cm 程度

4. 分析手法の検討

本共同研究の目的である微小領域における化学組成測定手法として、様々な手法が挙げられるが、中でも LA-ICP 質量分析計はその高い分析性能と操作性・迅速性から様々な分析局面に応用されている（平田ほか, 2014²⁶⁾）。また近年は、極微量の元素を対象とした年代測定法に利用される（例えば、Sakata et al, 2014²⁷⁾）など、定量性に優れる利点もある。このような背景のもと、本共同研究では LA-ICP 質量分析計に着目し、鍾乳石を対象とした LA-ICP 質量分析計の適用性について検討した。

なお、本共同研究では、採取した試料のうち AK-1 を分析に用いた。AK-1 を選定した理由は以下の通りであり、これらの理由により全く同一の条件下にて中心部から外縁部までの分析を実施可能である。

- ・採取した試料の肉眼観察の結果、縞状構造が最も発達していた
- ・鍾乳石の中心部から外縁部までが 1 枚のスライドガラスに収まる大きさであった

4.1 試料の調製と分析

LA-ICP 質量分析計による微小領域の分析への適用性を検討する前に、採取した鍾乳石試料の基礎情報を把握する必要がある。そこで、X 線回折装置（以下、「XRD」という）を用いて、採取した AK-1 の結晶構造を把握した。また、誘導結合プラズマ質量分析装置（以下、「ICP 質量分析計」という）による微量元素分析を行った。

XRD による分析は以下の手順で実施した。

1. 採取した試料表面の泥などを洗浄するため、超純水（Mill-Q water）で超音波洗浄する
2. 試料への汚染を防止するため試料を複数層のポリ袋に入れてからハンマーで砕く
3. 取り出した数グラム程度の試料を乳鉢により粉末状に調製し、四分法によりおよそ 1 g の粉体を全岩試料とする
4. 粉末にした試料を XRD（株式会社リガク製 Ultima IV）により分析する

なお、XRD の分析条件は測定範囲：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 とした。

ICP 質量分析計による分析は、以下の手順で実施した。

1. 採取した試料表面の泥などを洗浄するため、超純水（Mill-Q water）で超音波洗浄する
2. 試料への汚染を防止するため試料を複数層のポリ袋に入れてからハンマーで砕く
3. 取り出した数グラム程度の試料を乳鉢により粉末状に調製し、四分法によりおよそ 1 g の粉体を全岩試料とする
4. 粉末にした試料を和光純薬株式会社製の特級試薬である 14 N の硝酸（68 % HNO₃）に溶解し超純水で 1,000 倍に希釈する
5. 四重極型 ICP 質量分析計（Agilent Technologies 社製 Agilent 7700x）を用いてウランの定量分析をする

また、LA-ICP 質量分析計による分析は、以下の手順で分析した。LA-ICP 質量分析計は海洋研究開発機構（JAMSTEC）が所有の LA-ICP 質量分析計を用いた。本装置の詳細な仕様及び測定条件は、「炭酸塩鉱物の LA-ICP-MS による同位体分析手法の開発」の共同研究報告書²⁸⁾を参考にされたい。

1. 炭酸塩鉱物の成長方向と直交する方向で、スライドガラスの大きさに合わせて数 cm 程度の大きさに切り出す
2. 片面をコランダム (#3000 まで) で研磨したのち、エポキシ樹脂でスライドガラスに接着する
3. 試料面をコランダムで研磨し、試料の厚さを約 1 mm に調製する
4. 試料面をさらにダイヤモンドペースト(3 μm 及び 1 μm)で琢磨し、 μm オーダにおいて凹凸の少ない分析面を成形する
5. エキシマレーザー装置の反射顕微鏡を用いて試料の観察を行い、分析位置を決定する
6. LA-ICP 質量分析計を用いて分析をする

試料の分析位置は、試料中央部のストローから試料外縁部へ向かう方向へ 1 mm ステップで 22 点設定した (図 4-1)。

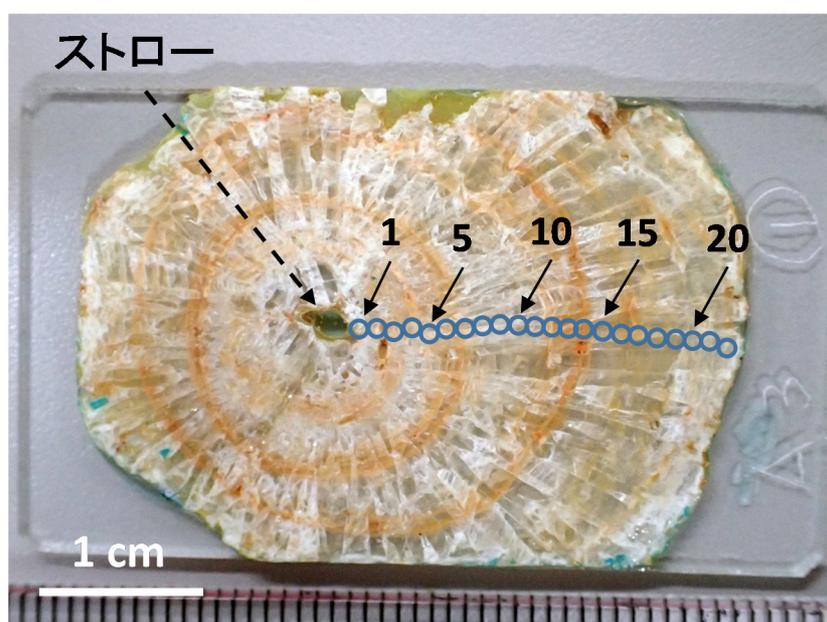


図 4-1 調製後の AK-1 の写真と LA-ICP 質量分析計による分析の位置図
写真の青丸の中心が分析の位置

4.2 分析結果及び考察

XRD による分析の結果、AK-1 は方解石で構成されることがわかった (図 4-2)。また、ICP 質量分析計を用いて AK-1 に含まれるウランを測定した結果、その縞状構造を考慮しない含有量は 0.028 ppm であった。通常、鍾乳石のウランの含有量は試料により著しく異なる (たとえば Cheng et al., 2000¹²⁾) もの、既往報告によるとおよそ ppb - ppm オーダを示しており (たとえば Watanabe et al., 2010¹³⁾; Shen et al., 2013¹⁴⁾)、今回の分析結果はこれらの既往報告とおおむね一致する。また、LA-ICP 質量分析計で AK-1 に含まれるウランの含有量を 22 地点で測定した結果、最小で 0.008 ppm、最大で 0.032 ppm で、平均して 0.019 ppm であった (検出下限値は 0.001 ppm)。炭酸塩鉱物の微量元素定量分析を高精度に行うためには、未知試料と同じ結晶構造を持つ標準試料を準備する必要がある。現状では炭酸塩鉱物の標準試料が選定されておらず、LA-ICP 質量分析計の分析値は NIST ガラス (NIST SRM 612) を標準試料として算出した半定量値である。しかし、LA-ICP 質量分析計の分析値は ICP 質量分析計で測定した分析結果 (0.028

ppm) と大きく異なってはいない。このことから、LA-ICP 質量分析計による半定量値は、炭酸塩鉱物に含まれるウランの分布の特徴を反映していると考えられる。

LA-ICP 質量分析計によって AK-1 から得られた鉛、トリウム及びウランの各分析点の測定結果を図 4-3 に示す。鉛の濃度は高い場所で数 ppm 程度含まれているが、ウランやトリウムはほとんどが 0.1 ppm オーダ以下であった。ウラン、鉛、トリウムの各元素により若干の違いはあるが、どの元素も No.6・7 付近、No.13 付近、No.16・18 付近で濃度が高くなる傾向がある。また、図 4-1 から、この 3 箇所は AK-1 の縞状構造のうち、橙色に呈色している箇所とおおよそ一致する。肉眼で観察できる鍾乳石の縞状構造は滴下水の供給速度や水質組成に依存し、炭酸塩鉱物の結晶形、空隙構造の発達程度、有機酸の含有量などの差異が原因で形成される (Tan et al., 2006²⁹; Kurisaki and Yoshimura, 2008³⁰)。これらのことを踏まえると、秋吉台鍾乳石が示す微量元素濃度の分布傾向は洞内環境の変化を記録している可能性がある。

図 4-3 に、AK-1 に含まれる鉛の $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 同位体比のうち、誤差が 1% 以下のデータを示す。秋吉台鍾乳石中の $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比は平均で 0.842 である。この値は、西南日本山陰地域の広域風成塵起源の古土壌 (風成塵土壌) の $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比 (約 0.843; 木村・松本, 私信) とほぼ一致し、広域汚染物質を多く含む現世の日本の風成塵 (現世黄砂) の値 (約 8.65; Bollhofer and Rosman, 2000³¹) と一致しない。したがって、AK-1 に含まれる鉛は古土壌起源であると示唆される。AK-1 は長さが 10 cm 程度あるため、滴下水が十分に供給されるような環境下で成長速度が速い (1 cm/100・1,000 年; Fairchild et al., 2006⁹) と仮定しても、形成されるのに 1,000 年以上かかると予想される。このことは、AK-1 の鉛が古土壌起源であることと矛盾しない。

一方、年代測定を実施する場合において、本試料のように対象元素の濃度が低い試料は、誤差が非常に大きくなるため、年代測定の標準試料として用いるには適さない。この問題を解決するためには、より高精度な値が得られる分析条件の検討や、同一試料内においてウランやトリウムが濃集している箇所を狙った分析の実施などの対策が考えられる。

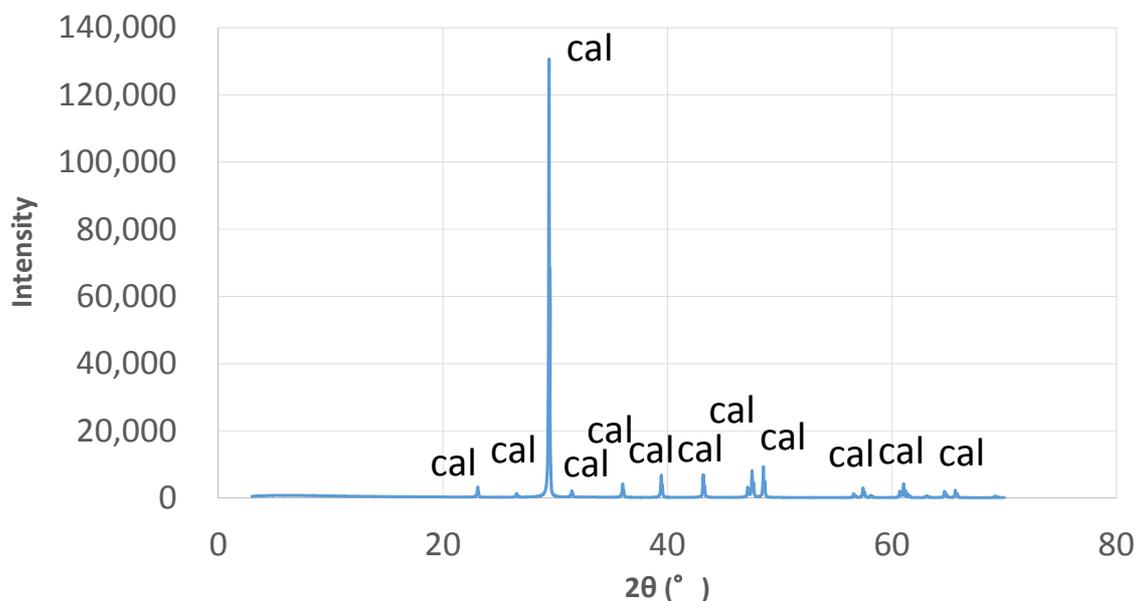


図 4-2 AK-1 の XRD 分析結果図
cal は方解石を示す

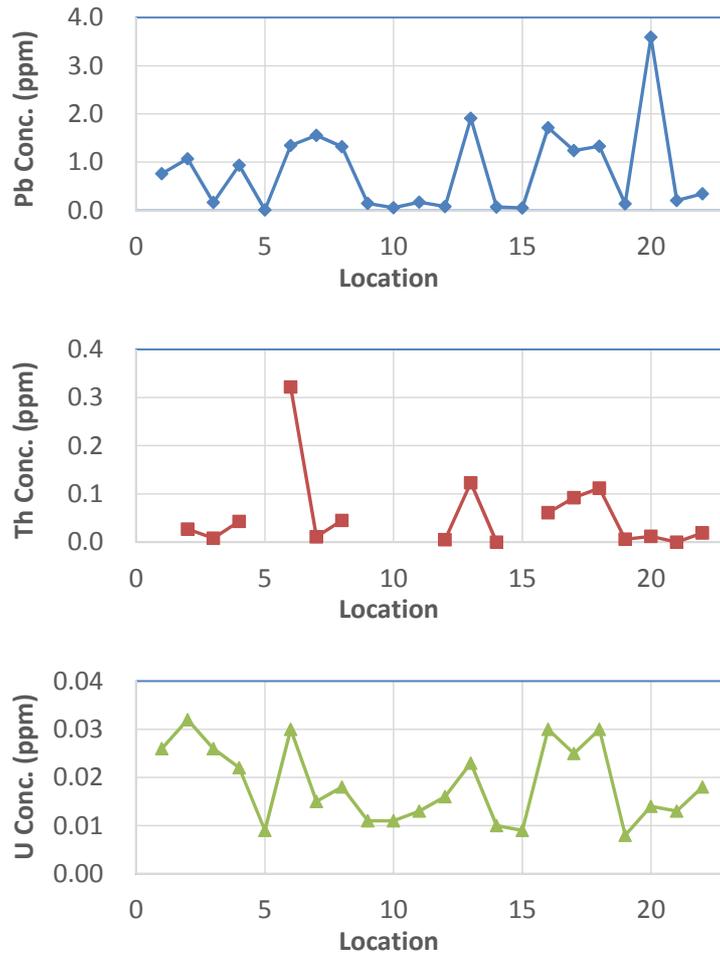


図 4-3 AK-1 中の鉛、トリウム及びウランの各濃度のラインプロファイル図
(定量下限値以下の値を除く、Location No.は図 4-1 に対応)

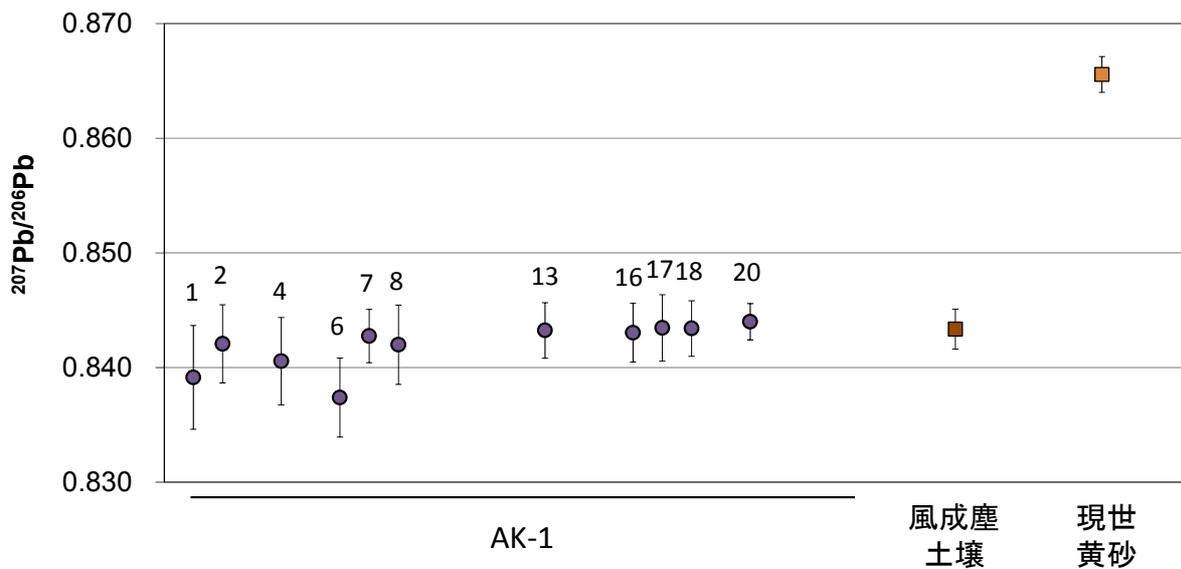


図 4-4 AK-1、風成塵及び現世黄砂の $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 含有比図
(AKh1 の No.は図 4-3 に対応)

風成塵土壤：木村・松本（私信）、現世黄砂：Bollhofer and Rosman（2000）³¹⁾

5. まとめ

標準試料となり得る炭酸塩鉱物の選定基準を検討し、この選定基準に適合する炭酸塩試料として、既存研究報告が豊富な山口県美祢市の秋吉台において鍾乳石を採取した。また、年代測定技術の構築に向けて必要なアプローチを検討し、採取した鍾乳石を対象として LA-ICP 質量分析計を用いた微小領域の分析を試みた。LA-ICP 質量分析計の結果は同一サンプルを対象とした ICP 質量分析計を用いた微量元素分析の結果とおおよそ一致することから、手法の妥当性が高いことが確認できた。さらに、微量元素分析の結果から対象元素の分布傾向を把握でき、 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比も試料の形成過程に矛盾しない結果が得られた。一方で、秋吉台の鍾乳石は、ウラン、トリウム、鉛が低濃度であることがわかった。このような試料を年代測定法の標準試料とするには、分析手法のさらなる検討が必要である。

本共同研究では、高精度な値が得られる分析条件の検討や、対象元素が濃集している箇所を狙う必要があることなどの課題が明らかとなった。これらの課題を解決することで、炭酸塩鉱物の微小領域の化学組成について、より詳細に分析可能になると考えられる。

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., Yoshida, H., Hydrothermal alteration of deep fractured granite: Effects of dissolution and precipitation, Lithos, vol.115, 2010, pp.153-162.
- 3) Iwatsuki, T., 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, 2012, 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) 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., 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. EUFP5 Contract No: FIKW-CT2001-20129, 2005, 206p.
- 8) 京都大学, 京都フィッション・トラック, 日本原子力研究開発機構, 「炭酸塩鉱物の LA-ICP-MS による U-Pb 年代測定手法の開発」共同研究報告書, 2015, 23p.
- 9) Fairchild, I. J., Smith, C. L., Baker, A., Fuller, L., Spötl, C., Matthey, D., McDermott, F. and E.I.M.F., 2006, Modification and preservation of environmental signals in speleothems, Earth-Science Reviews, vol.75, pp.105-153.
- 10) Porcelli, D. and Swarzenski, P.W., The behavior of U- and Thseries nuclides in groundwater, Reviews in Mineralogy and Geochemistry, vol.52, 2003, pp.317-361.
- 11) Edwards R.L., Chen, J.H. and Wasserburg, G.J., ^{238}U - ^{234}U - ^{230}Th - ^{232}Th Systematics and the precise measurement of time over the past 5,000,000 years, Earth Planetary Science Letters, vol.81, 1987, pp.175-192.

- 12) Cheng, H., Edwards, R.L., Hoff, J., Gallup, C.D., Richards, D.A., Asmerom, Y., The half-lives of uranium-234 and thorium-230, *Chemical Geology*, vol.169, 2000, pp.17-33.
- 13) 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., 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.
- 14) Shen, C.C., Lin, K., Duan, W., Jiang, X., Partin, J. W., Edwards, R. L., Cheng, H. and Tan, M., Testing the annual nature of speleothem banding, *Scientific Reports*, vol.3, 2013, pp.1-5.
- 15) Miki, T. and Ikeya, M., Thermoluminescence and ESR Dating of Akiyoshi Stalactite, *Japanese Journal of Applied Physics*, vol.17, 1978, pp.1703-1704.
- 16) 狩野彰浩, 石筍古気候学の原理と展開, *地質学雑誌*, vol.118, 2012, pp.157-171.
- 17) 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.
- 18) 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.
- 19) 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.
- 20) 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.
- 21) 河野通弘, 秋吉台のカルスト地形と石灰洞, 秋吉台の鍾乳洞 - 石灰洞の科学 -, 河野通弘教授退官記念事業会, 1980, pp.25-40.
- 22) Yoshimura, K., Kurisaki, K., Okamoto, T., Fujikawa, M., Ikeda, Y., Yamada, T. and Matsuda, H., Sulfide Ore Smelting at the Naganobori Copper Mine Recorded on Speleothems from the Ogiri No. 4 Pit on the Akiyoshi-dai Plateau, Yamaguchi, Japan, *ISIJ International*, vol.54, 2014, pp.1147-1154.
- 23) 栗崎弘輔, 中村 久, 川村秀久, 畑江久美, 吉村和久, 鍾乳石に記録された山口県秋吉台カルスト地域の植生変遷, *地球化学*, vol.40, 2006, pp.245-251.
- 24) 栗崎弘輔, 中尾武史, 富田麻井, 藤川将之, 岡本 透, 能登征美, 吉村和久, 石筍が語る山口県秋吉台の土地利用と植生の変遷, *月刊 地球*, vol.35, 2013, pp.585-593.
- 25) 山口大学洞穴研究会, 石灰洞報告書, 第9集, 1968, 11p.
- 26) 平田岳史, 坂田周平, 岩野英樹, 折橋裕二, 岡林識起, 横山隆臣, 牧 賢志, 昆 慶明, 服部健太郎, 小宮 剛, 飯塚 毅, 檀原 徹, 丸山茂徳, レーザーアブレーション ICP 質量分析法による U-Pb 年代測定, *号外地球*, vol.62, 2013, pp.100-111.
- 27) Sakata, S., Hattori, K., Iwano, H., Yokoyama, T.D., Danhara, T., Hirata, T., Determination of U-Pb Ages for young zircons using laser ablation-ICP-mass spectrometry coupled with an ion detection attenuator device, *Geostandards and Geoanalytical Research*, vol.38, 2014, pp.409-420.
- 28) 海洋研究開発機構, 日本原子力研究開発機構, 「炭酸塩鉱物の LA-ICP-MS による同位体分析手法の開発」共同研究報告書, 2015, 21p.
- 29) Tan, M., Baker, A., Genty, D., Smith, C., Esper, J. and Cai, B., Applications of stalagmite laminae to paleoclimate reconstructions: Comparison with dendrochronology/climatology, *Quaternary Science Reviews*, vol.25, 2006, pp.2103-2117.
- 30) Kurisaki, K. and Yoshimura, K., Novel dating method for speleothems with microscopic fluorescent annual layers, *Analytical Sciences*, vol.24, 2008, pp.93-98
- 31) Bollhofer, A. and Rosman, K.J.R., Isotopic source signatures for atmospheric lead: The Northern Hemisphere, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol.65, 2000, pp.1727-1740.

付録 8

地質環境長期安定性評価に係る知識集約のためのシステムの管理

付録 8. 地質環境長期安定性評価に係る知識集約のためのシステムの管理

A. 概要

高レベル放射性廃棄物等の地層処分においては、天然の岩盤と人工的なバリアから構築される多重バリアシステムによって長期的な安全確保がなされる。従って、地層処分システムの成立性や安全性の評価に係る信頼性を得ていくために、天然の岩盤の特性、すなわち地質環境の長期的な安定性を評価するためのサイト特性調査及びその情報に基づく一連の調査・評価技術を、システム化された知識として整備していくことが重要である。

独立行政法人日本原子力研究開発機構（以下、「原子力機構」）では、平成 19 年度から平成 24 年度の経済産業省委託事業「地層処分技術調査等事業（地層処分共通技術調査：地質環境総合評価技術高度化開発）」において、次世代型サイト特性調査情報統合システム（以下、「情報統合システム」）を開発している（日本原子力研究開発機構, 2008¹⁾, 2009²⁾, 2010³⁾, 2011⁴⁾, 2012⁵⁾, 2013a⁶⁾, 2013b⁷⁾）。情報統合システムは、地質環境を適切に把握し、処分場設計や安全評価に必要な情報を提供するため、処分事業における段階的な地質環境の調査、モデル化、解析といった一連の調査・評価の技術基盤の構築を行うことを目的として開発され、図 1 に示すように、地質環境モデルの作成や調査計画立案・実施を支援するエキスパートシステム、作成された地質環境モデルの可視化ツール、エキスパートシステムを作成するツール、調査の工程管理及び地質環境電子文書システムとこれらを統合するマネジメントコクピットによって構成されている。

平成 25 年度から始まった、経済産業省委託事業「地質環境長期安定性評価確証技術開発」（以下、「地質環境長期安定性評価」）においては、地質環境長期変動モデルの開発や革新的要素技術の開発で得られた科学的知見や方法論などの知識を取り扱う。これらの知識を、これまでに整備した知識体系（地質環境の調査、モデル化、解析といった一連の調査・評価の繰り返し）の中に、効率的かつ体系的に統合するとともに、長期の時間軸にも焦点をあてた新たな知識体系が必要となる。

平成 25 年度は、上記のように新たな知識体系を、情報統合システムに組み込むとともに利用するために必要な場を整備した（日本原子力研究開発機構, 2014⁸⁾）。平成 26 年度は、平成 25 年度に整備した場を用いて、地質環境長期安定性評価に係る知識集約のための情報統合システムの管理を行った。

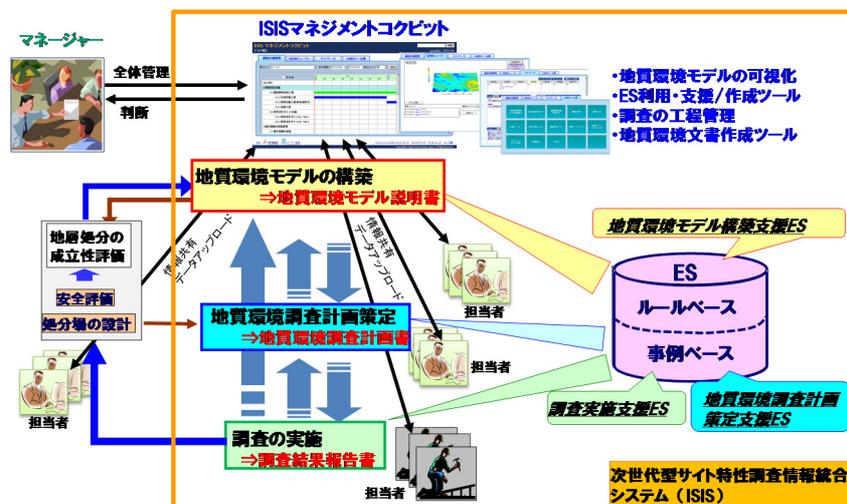


図 1 情報統合システムの全体構成
(日本原子力研究開発機構, 2013a⁶⁾)

B. 実施内容

平成 26 年度は、地質環境長期安定性評価に係る知識集約を行うための情報統合システムの管理として、利用環境の整備、バックアップ環境の整備、セキュリティ対策及びツールの改良を行った。

a) 利用環境の整備

情報統合システムの管理を行うために、平成 25 年度に整備した情報統合システムの利用環境を再構築し、各ツールのセットアップを行った。なお、利用環境の再構築及び情報統合システムの活用にあたっては、インターネットを経由し、動作環境のサーバーと利用者の PC との双方向の情報共有を行うため、ネットワーク環境の整備もあわせて行った。

b) バックアップ環境の整備

入力した知識の逸失を防ぐとともに、データ更新などで情報統合システムのサーバーに障害が起きた際、以前の状態に戻すことができるように、情報統合システムのバックアップ環境を整備した。具体的には、サーバーの LAN 環境に、バックアップ装置を接続し、サーバーのバックアップを自動的に実行する設定を行った。また、毎月 1 日夜間にバックアップを自動実行し、1 年間のローテーションを行うようにバックアップのシェルを改良した。この改良により、日次バックアップは 1 か月前まで、月次バックアップは 1 か年前までロールバックできるようにした。

c) セキュリティ対策

地質環境長期安定性評価に係る知識は、原子力機構担当者のみならず、外部関係者も入力する可能性があると考えられる。そのため、セキュリティ対策として、情報統合システムのサーバーにウイルス対策ソフトをインストールし、適宜、パターンファイルの最新化を行った。また、サーバーへのアクセス制限のため、開放するネットワークポートを制限した。さらに、OWASP ZAP (Open Web Application Security Project が提供している Web サイトの脆弱性を診断するためのツール) を用いて、情報統合システムの脆弱性検査を実施した。脆弱性検査の結果、「マネジメントコクピット」及び「地質環境電子文書作成システム」の一部の機能に、SQL インジェクション*と呼ばれる重大度が高い脆弱性が検知された。SQL インジェクションの脆弱性に対処するため、脆弱性の対応方法を検討し、該当するプログラムに下記の改修を行った。

- ・ ログイン実行時にサーバーが受け取る情報のエスケープ処理
- ・ ログイン画面の入力項目のエラーチェックの改良
- ・ プログラムで利用しているフレームワークのデータ送信方法の改良 (POST メソッドの無効化)

プログラムの改修後には、再度脆弱性検査を実施した。その結果、重大度の高い脆弱性は検知されず、脆弱性が改善された。

d) ツールの改良

地質環境長期安定性評価に係る知識集約を行うにあたって、情報統合システムの管理中に発見した改良点や問題点は、サーバーの設定変更や関係するツールを改修することにより対処した。

* : Web 画面上の入力項目に不正な文字列を入力し、データベースの操作言語である SQL 文を実行させることにより、データベースを不正に操作する攻撃方法

C. まとめ

平成 26 年度は、地質環境長期安定性評価に係る知識集約を行うための情報統合システムの管理を行った。具体的には、平成 25 年度に整備した場を再構築し、知識の逸散防止及びサーバーの障害対策として、バックアップ環境の整備及び改良を行った。また、セキュリティ対策として、ウィルス対策ソフトの導入及びアクセス制限を行うとともに、脆弱性検査を実施し、重大な脆弱性が検知されたツールに対しては改修を行った。さらに、地質環境長期安定性評価に係る知識集約を行うにあたっての改良点や問題点に対しては、ツールを改修することにより対処した。

参考文献

- 1) 日本原子力研究開発機構, 平成 19 年度 地層処分技術調査等委託費 地層処分共通技術調査 地質環境総合評価技術高度化開発報告書, 2008, 243p.
http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/library05.html (accessed 2015.02.26)
- 2) 日本原子力研究開発機構, 平成 20 年度 地層処分技術調査等委託費 地層処分共通技術調査 地質環境総合評価技術高度化開発報告書, 2009, 241p.
http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/library05.html (accessed 2015.02.26)
- 3) 日本原子力研究開発機構, 平成 21 年度 地層処分技術調査等委託費 地層処分共通技術調査 地質環境総合評価技術高度化開発報告書, 2010, 189p.
http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/library05.html (accessed 2015.02.26)
- 4) 日本原子力研究開発機構, 平成 22 年度 地層処分技術調査等委託費 地層処分共通技術調査 地質環境総合評価技術高度化開発報告書, 2011, 194p.
http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/library05.html (accessed 2015.02.26)
- 5) 日本原子力研究開発機構, 平成 23 年度 地層処分技術調査等事業 地層処分共通技術調査 地質環境総合評価技術高度化開発報告書, 2012, 168p.
http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/library05.html (accessed 2015.02.26)
- 6) 日本原子力研究開発機構, 平成 24 年度 地層処分技術調査等事業 地層処分共通技術調査 地質環境総合評価技術高度化開発報告書, 2013a, 219p.
http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/library05.html (accessed 2015.02.26)
- 7) 日本原子力研究開発機構, 平成 24 年度 地層処分技術調査等事業 地層処分共通技術調査 地質環境総合評価技術高度化開発 6 カ年とりまとめ報告書, 2013b, 166p.
http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/library05.html (accessed 2015.02.26)
- 8) 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/library05.html (accessed 2015.02.26)

付録 9

「地質環境長期安定性評価確証技術開発委員会」の開催実績

- A. 第 1 回委員会開催実績
- B. 第 2 回委員会開催実績

付録 9-A 第 1 回委員会開催実績

日 時	平成 26 年 9 月 5 日（金） 13 時 30 分～17 時 30 分	
場 所	東京八重洲ホール 201 会議室	
審議事項	平成 26 年度の計画の概要について報告し、実施内容とアプローチの適切性の観点から審議・検討を行っていただく。	
主なコメント 研究開発の全体概要	シミュレーションや外挿などの予測方法においては、それらの計算の元となる正確なモデルをつくることが重要である。	
	モデル、シミュレーションによる将来予測において求められることは、不確実性をいかに少なくするかであり、その不確実性は幅で示すことができると良い。また、不確実性が少なくなったことの確認や検証も行われるべきであり、本事業でどこまで実施するかを示す必要がある。	
	モデル作成の際には、地層処分においてはどの位の不確実性を対象とするのかについて、ある程度は設定しておいた方が良い。	
	地層処分事業では、本質的な内容を含んだ地質環境の評価を、一般の方に理解できる形で提供してゆくことが重要となる。このような観点から、本事業におけるモデル、シミュレーションの可視化を積極的に進めていただきたい。	
	地質学的現象の将来予測の方法論において、モデルを用いたシミュレーションでは力学過程を取り入れた取組が不十分であると思われる。地層処分の検討に求められる時間スケールでは、地質環境を取り巻く力学的な状態は、プレート運動、侵食などによりダイナミックに変化する。そのため、それらの影響を無視してしまうと本事業による予測の信頼性が損なわれる可能性がある。そこで、それらの影響を適切にモデル作成に取り入れることを検討してほしい。	
	将来予測の不確実性については、それが「自然が持つ本質的な不確実性」なのか、それとも「理解不足に伴う不確実性」なのかを区別し、どの様な要因により不確実性があつたのかということ意識する必要がある。	
	過去のデータは、一般的にまばらである。そのため、どのくらい粗い波長のデータを将来に外挿できるのかについて考慮する必要がある。	
	シミュレーションや外挿などの予測方法においては、それらの計算の元となる正確なモデルをつくることが重要である。	
	風化帯の研究に関しては、目的が地下水の水質形成なのか物質移行なのかを整理し、アプローチすべきである。	
	数値シミュレーションにおいて、具体的な内容を理解するために検討しているシミュレーションコードや数値手法を示してほしい。また実施にあたり、計算規模や精度の妥当性を評価するために、時空間解像度（グリッドサイズや積分時間）を示してほしい。	
	地形・地質モデルをバランス断面法で解析すると、沈降場が作れないという問題がある。汎用性のある手法としてディスロケーションモデルなどの他の方法も検討したほうが良い。	
	統合化モデルのフレームにおいて、パラメトリックな調査やデータ取得を行う意義を示すべきである。そうした意義付けにおいて、サイトキャラクターゼーションの進展に繋がることも示せると良い。	
	地質環境長期変動モデルの開発	

主なコメント（つづき）	革新的要素技術の開発	<p>涵養量と地下水の水質、さらには後背地とのリンクを考えた方が良い。水が涵養して岩石と反応し、風化・削剥が進むことは後背地解析に関連する。</p>
		<p>地下水涵養量予測技術では、どこで、どれだけのスケールのメッシュを考慮してデータをとればいいのかといった点までを考慮して進めるべきである。</p>
		<p>地下水涵養量の推定では、色々な相関関係で式を出すと思うが、信頼性向上のためにも、そうした結果を検証できると良い。</p>
		<p>炭酸塩には累帯構造が認められるが、そうした累帯間での物質の移動が本当に無いかどうか注意しながら技術開発を進める必要がある。</p>
	総合討論	<p>統合数値モデルの全体像を示すために、統合する各分野のモデルの関係性を整理し「統合」の意味をきちんと定義する必要がある。</p>
		<p>風化についても一般的にいわれる「機械的風化」、「化学的風化」、「生物的風化」を踏まえて定義する必要がある。</p>
		<p>「後背地解析技術」という名称に違和感がある。「後背地推定技術」などの名称の方が外部にわかりやすい。</p>
		<p>本事業の実施にあたり適切に人的資源が配分されているかを評価するための資料を示していただきたい。</p>

付録 9-B 第 2 回委員会開催実績

日 時	平成 27 年 2 月 19 日（木） 13 時 30 分～17 時 30 分	
場 所	経済産業省別館 1 階 108 各省庁共用会議室	
審議事項	平成 26 年度の実施内容の概要について報告し、その適切性の観点から審議・検討を行っていただく。	
主なコメント	研究開発の全体概要	三次元化の目的を明確にするとともに、そのアウトプットをどのように活用するのかをわかるようにすること。
	地質環境長期変動モデルの開発	様々な実施項目が示されているが、その項目が抽出された背景、本事業における到達点、その判断方法をわかるようにすること。
		例えば、天然バリアのパフォーマンスの期間が長くなり、その期間を扱うツールまたはエビデンスとして炭酸塩鉱物が適用できそうなのでアプローチする、というような理解しやすい説明が必要である。
		測地で検討されるモデルについては、妥当性の判断方法を合わせて示されることを望む。
	統合数値モデル化の目的の一つに感受性解析があると理解している。今後、実用的な感受性解析では、パラメータのサンプル数を増やしていく必要があり、その際には蓋然性でなく、システマティックなパラメータであると良い。	
	今回報告された不確実性の区分に関しては、ひとつにつき 10 点のサンプル数とした場合、おおよそ 10 の 4 乗である 1 万のパラメータセットを用意すれば、少なくとも不確実性に関する感受性というものがマップできる。これができれば、見たいものにどれくらいインパクトを与えるか評価できる。	
	数値モデルをなぜ作るのかとなったときに、蓋然性やシナリオから数値モデルの不確実性を取り除くためのミドルウェアの開発も次年度以降に検討していただきたい。	
	モデル化したスケールの理由に加えて、モデルの確からしさの確認法を意識した説明が重要である。	
	現在の地球科学の限界を知るための技術開発であればわかる。この点で、東濃・幌延地域を事例として進める意義を示した上で、三次元とスケールと時間をセットで説明すると理解しやすい。	
	まずは地下水年代を確実に押さえて、古い年代が出てきたら、水質がどのようにできるのかというアナログ的な検証データの一つとすることで目的達成とする戦略が技術的に秀でており、どの部分の精度を上げようとしているか見えてくると考えられる。	
	不確かさはあったとしても地下水年代で押さえようとしていることを示さないとモデルの検証を何で行うか見えないと考えられる。その際、既往の研究や技術開発における限界と合わせた上で進めていくことは重要である。	
	説明されたモデルは主に上下変動を扱っているが、それで本当に良いか疑問である。三次元で扱うメリットとして、横ずれ変位や三次元的に上がったたり下がったりすることを踏まえたモデル化の検討や解析結果の取り扱いに注意が必要である。	

主なコメント(つづき)	地質環境長期変動モデルの開発	断層のパラメータが重要であるが、断層のデータが取れない場合にどうするかを考えなければならない。
		地表環境モデルでは、物質移行プロセスにおける希釈や吸着に関連する事象を扱うと考えられ、風化帯などの環境も重要であると考えられる。
		ウラン鉱床のアナログ研究で得られているデータセットなども統合モデル化の中の一つの題材として活用できるか検討してほしい。
	革新的要素技術の開発	後背地解析における ESR 信号の特徴を表現する際に、横軸の示し方や単位などを工夫する必要がある。
		本事業において、革新的要素技術が完成しないとモデルができない、ということにならないように取り組まなければならない。
		地形地質モデルにおける復元地形、地下水涵養量において解析する地形など、本事業で扱う地形の解像度について相互作用を踏まえて整理することが重要である。