

平成 21 年 5 月 22 日現在

研究種目：基盤研究（B）
研究期間：2005～2008
課題番号：17340148
研究課題名（和文）日本海深海底コアの高密度な放射化分析によるアルカリ岩質テフラ 降下履歴の高感度検出
研究課題名（英文） Sensitive detection of alkaline cryptotephra layers in deep-sea cores from the Sea of Japan using high-resolution INAA analysis
研究代表者 豊田 和弘（TOYODA KAZUHIRO） 北海道大学・大学院地球環境科学研究院・准教授 研究者番号：10207649

研究成果の概要：地球温暖化の将来予測に有用な古環境復元の精密年代軸として注目されるクリプトテフラ（肉眼では検出不可な希薄な火山灰層）の高感度な検出法として、放射化分析法による地層の高密度な微量元素分析が有効であると実証した。十数本の日本海海底コア中の最大過去十五万年間の堆積物を走査し、5つの新しい指標となるテフラを検出し年代推定を行い、鬱陵島（韓国）と白頭山（中朝国境）から飛来する降下火山灰の履歴を構築にした。

交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2005年度	11,700,000	0	11,700,000
2006年度	1,300,000	0	1,300,000
2007年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2008年度	1,300,000	390,000	1,690,000
年度			
総計	15,600,000	780,000	16,380,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：地球惑星科学、地質学

キーワード：火山、気候変動、深海環境、地球化学、地質学

1. 研究開始当初の背景

地表の堆積層中に挟まれた火山噴出物（テフラ）は、広い地域での厳密な同一時間面を示す鍵層となる。そのため、露頭やコア試料に記録されている高密度なテフラ層序のデータは、地球温暖化の将来予測に有用であるとされる最終氷期末などの気候激変を復元する上で欠かせない、高分解能で高精度な年代軸となりうる。そのため、肉眼では検出できないほど希薄なテフラ層（クリプトテフラ）を、地層中から効率よ

く数多く検出し、そのテフラの給源火山を特定すること、また同一火山からのテフラ層群を噴火毎に区別する手法について、西欧州を中心に盛んに研究されはじめたという状況が背景にある。

申請者は基盤研究(A)(2)平成8・11年度「無機化学分析により過去一万数千年間の琵琶湖堆積環境を高分解能で連続復元する研究」で行った、琵琶湖ピストンコアの微量元素の連続垂直分布を検討したところ、約1万年前に鬱陵島（韓国）から噴出した

鬱陵隠岐 (U-Oki) テフラ層の、そのすぐ下位の 2 層準で、U-Oki と同様なアルカリ岩質テフラの混入とみられるタンタル/スカンジウム含有量比 (Ta/Sc 比) 異常を検出することができた。大陸性のアルカリ岩は、日本列島のような島弧火山岩に比べてタンタル含有量が一桁大きく、またスカンジウム含有量は一桁ほど小さいことが多いので、精度良く微量元素分析を連続的におこなうと、わずかな量のアルカリ岩質テフラの混入が検出できる計算になる。また水月湖掘削コアにもそれに対応する Ta/Sc 比の異常が検出され、それは年縞年代で U-Oki 降下よりさらに 500 年程前と 4300 年程前の層準となった。しかしそのような年代での鬱陵島での噴出軽石層準はほとんど報告されてない。

他方、鬱陵島中の噴出軽石層の炭素年代測定では、現在より約五千年前や約八千年前にも大規模なプレニー式噴火があったことが判明している。ところが琵琶湖の他のピストンコアでもその年代で Ta/Sc 比の異常は検出できなかつた。よって、この 2 つの噴火によるテフラ降下分布は鬱陵隠岐 (U-Oki) の南西方向ではなく、数万年前に降下した鬱陵大和 (U-Ym) テフラのように、北西方向に拡散軸をもつのだらうと推測している。これらの考察から日本海全域の深海底ピストンコアの放射化分析に興味をもった。また、中性子放射化法はテフラの同定法のひとつとして古くから利用されていたが、本研究のように肉眼でも確認できない程の薄いテフラ層の検出法として利用した例はこれまで世界でも日本でも全くないので、その有用性について検証したいということで申請を行った。

ちなみに、日本列島に降下するアルカリ岩質テフラの供給火山は、日本海西端の韓国・鬱陵島周辺と中朝国境の白頭山の 2 カ所に限られる。この偏西風によって日本にもたらされる大陸性テフラは、日本の沈み込み帯の島弧火山から供給されるテフラとは大きく異なる組成を持つため、その特異性から日本のテフラ群の中からの判別は容易である。それでも、第四紀後期に鬱陵島も白頭山もそれぞれ数回以上噴火しているのに、広域テフラとして確定していたのは、鬱陵島から約 1 万年に飛来した U-Oki (鬱陵隠岐) テフラと、約千年前の白頭山の大噴火に由来する B-Tm (白頭山苦小牧) テフラの 2 つのみで、U-Ym や B-J などのテフラに関してはその噴出年代には未だ不確定さが残っていた。

さらに、日本海における第四紀堆積物中には明暗色互層があり、その変遷は氷期と間氷期での世界的な海水準変動やより短期の数千年周期の世界的な気候変動などとも対

比されているので、地球環境変化の研究対象として優良である。しかしその色調の変化に乏しいコアもあり、肉眼で見えるアルカリ岩質テフラ層も限られているため、その層序には不明な点が残されている。そこで、「日本海深海底コアの高密度な放射化分析によるアルカリ岩質テフラ降下履歴の高感度検出」という本題目で、科研費補助金の申請をおこなう事にした。

2. 研究の目的

(1) 方法論の確立：まず、中性子放射化分析を用いた日本海堆積物中の微量元素の連続垂直分布の測定が、アルカリ岩質クリプトテフラの検出に特に高感度であり、かつ効率的で、有用な手法である事を示す。

(2) 手法の適応：次に、日本海南部から日本海東北部にかけての複数のコアを用いて、鬱陵島周辺から過去 9 万年間に、また白頭山から過去十数年間に、日本周辺にもたらされたアルカリ岩質テフラ層をすべて走査して、検出する。

(3) テフラ層序の構築：さらに、検出したテフラ層内から抽出した火山ガラスの分析から、供給火山と噴火毎での化学組成の相違を見つけ出した上で、対比をおこない、明暗色互層の年代とも比較して、これまでほとんど不明であった第四紀後期における日本周辺でのアルカリ岩質テフラ層序を確立する事を目的とした。

(4) なお、鬱陵島周辺および白頭山の噴火毎でのテフラの化学組成の相違を考察する上で参考とするため、鬱陵島陸上と白頭山山麓で町田洋名誉教授により採取された粗粒火山灰試料を入手して、分析をさせていただいた。

本補助金の申請時には目的としては上記の目的(1)と(2)のみを記載したが、これらの測定はほぼ終了しており、また目的(2)の結果をレベルの高い国際学術雑誌に投稿するためには目的(3)についてもデータをだして併せて考察する必要があり、さらに、目的(4)も考察する上で参考になるので、本研究費で分析をおこなった。

3. 研究の方法

(1) 分析手法

①バルク試料の微量元素分析：中性子放射化分析の長寿命核種の測定のために、乾燥粉末にした堆積物 100mg をポリエチレンで 3 重に封入した照射試料を、JR-3 と JB1a などの標準岩石試料と一緒に日本原子力機構東海研内の大学開放研に郵送して、東海研内の研究炉 JRR4 の T-A 孔で 20 分間照射を依頼した。照射後 1 ヶ月ほど冷却してから、大学開放研から北大へ搬送してもらい、北海道大学大学院環境科学院内

の地下管理区域内のγ線半導体検出器で1試料につき九千秒間測定した。この測定に使用した自動試料交換装置付きのγ線半導体検出器は本研究補助金で購入できた備品で、おかげで1日に約7試料の速度で測定が可能になり、以下のように期間内の約四千個のバルク試料の微量元素分析が可能になった。定量できる元素はクロム、コバルト、セリウム、タンタル、スカンジウム、ハフニウム、ユウロピウムなどの約十元素である。

②テフラ粒子の抽出と分析：肉眼で判るテフラ層と、希薄なテフラの混入を示唆する微量元素組成の異常を示す堆積物試料からは、ふるいと重液分離を用いて、火山ガラス粒または長石粒の抽出をおこない、北海道大学大学院理学研究院内のX線分析研究室に設置されたエネルギー分散型EPMAを用いて、これらの粒子の主成分分析をおこなった。微量元素分析については、抽出成分からハンドピックで集めたテフラ粒子約1mgを高純度石英管中に減圧封入した照射試料を標準試料と共に、バルク試料と同様にJRR4のT-A孔で6時間照射した。1週間冷却後に大学開放研のγ線半導体検出器にて中寿命核種の測定をおこない、1ヶ月冷却後に北大に郵送してバルク試料と同様に長寿命核種の測定を行った。ただし、テフラ粒子の微量元素の定量は現時点でまた解析中である。

(2) 分析試料

①分析に用いた試料は主として日本列島沿いの日本海における産業技術総合研究所所有のピストンコアである。目的(1)については、以下の5つのコア中のいずれも過去数千年～約2万年前の堆積年代に相当する部位から連続して1cm間隔で採取した約千二百個の試料について微量元素分析を行った。

- ・GH86-2-D：島根沖(対馬海盆南部)コア 18-232 cm
- ・GH86-4-P510：隠岐北東方(大和海盆南西端)コア 76-402 cm
- ・GH87-2-308：鳥取沖コア 80-295 cm
- ・GH87-2-KT：丹後半島沖コア 22-223 cm
- ・GH88-2-303：金沢沖(北陸沖縁辺台地)コア 10-246 cm

②次に、目的(2)と(3)については、日本海南東部の北陸沖、大和海盆、山陰沖の5つのコア中から、過去2～9万年前又は約7万年までの年代の部位から連続して1cm間隔で分取した約千五百試料について微量元素分析をおこない、鬱陵島周辺および白頭山を供給火山としたアルカリ岩質テフラの検出を行った。

- ・GH86-2-N：山陰沖コア 218-558 cm

- ・GH89-2-28；北陸沖(大和海盆) 182-524 cm
- ・GH89-2-26；北陸沖(大和海盆) 71-465 cm
- ・GH89-2-25：男鹿半島沖(大和海盆) 164-487 cm
- ・GH99-1259 男鹿半島沖(佐渡海嶺近傍)123-303 cm

③さらに、過去十数万年間の朝鮮半島北部白頭山を供給源とするアルカリ岩質の広域テフラの検出を行うため、連続して1cm間隔で分取した千数百試料についての微量元素分析がほぼ終わった段階である。

- ・KR05-09 PC01 松前海台 160-860 cm
- ・KR05-09 PC02 留萌沖(日本海盆)解析中
- ・GH96-1212 羽幌沖(日本海盆)150-520 cm

4. 研究成果

(1) クリプトテフラ検出法としての有効性の検証

日本海南部の5本の海底コア中の数千年から1万数千年前の堆積層のバルク分析のタンタル/スカンジウム含有量比の垂直分布を図1に示す。なお、図1中のハッチをかけた層が肉眼で確認されたU-Okiテフラ層序である。

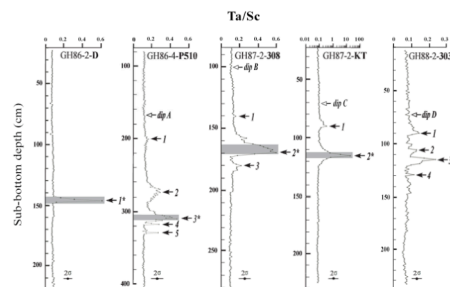


図1. 南海域の5コア中のTa/Sc垂直分布

一番西の海域で採取された(図1の左端の)コアを除く4つのコアについて、U-Oki層以外にもタンタル/スカンジウム含有量比からそれぞれ1～3層の化学的な異常層が検出された。これらはプレU-OkiやポストU-Okiとこれまで呼ばれていた、その存在が不確かなアルカリ岩質テフラに相当する可能性が高い。その異常層から抽出した粗粒な粒子について顕微鏡観察とEPMA-EDS分析をおこなった結果、その粗粒粒子中の97%が鬱陵島系火山を給源とするアルカリ岩質テフラ粒と判定された。つまり肉眼では特定できないほど希薄なアルカリ岩質マイクロテフラ層が微量分析から検出できる事例を挙げることができた。

さらに、約七千三百年前に西日本に広く

降下した鬼界アカホヤ (K-Ah) のテフラ層が確認できたのは、5つのコアのうちの一つ (図2の中央) だけである。K-Ah テフラは日本海堆積物に比べてクロム含有量が小さいのがその化学組成の特徴である。そのコア以外の3つのコア中のクロム/スカンジウム含有量比の垂直分布 (図2) には、K-Ah テフラの混入を示唆する化学的異常層 (図2中の矢印 A, B, C そして D) が検出された。これらのクロム/スカンジウム含有量比の異常層から抽出された粗粒の流紋岩質火山ガラス粒と長石について、屈折率測定 (企業に測定依頼) と EPMA-EDS 分析 (図3) を行った結果、その 94-97% の粒子が K-Ah というテフラ成分と特定された。

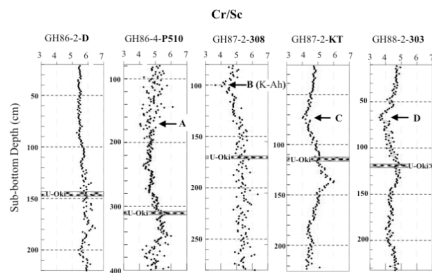


図2. 南海域の5コア中のCr/Sc垂直分布

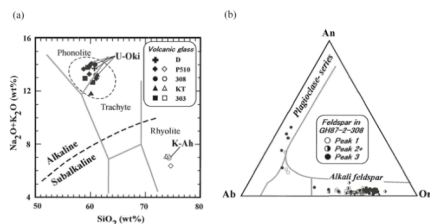


図3. 主成分組成 (a) 火山ガラス (b) 長石

本手法によって検出されたクリプトテフラ層と肉眼で確認できるテフラ層との相違は、テフラ成分の他の堆積物成分による希釈率だけでなく、テフラ粒子の粒度の違いにより生じると考えられる。本試料中の肉眼で確認できるテフラ層中のテフラ粒子は 0.2 mm よりも粗粒であるのに対して、本手法で検出されたクリプトテフラ層中のテフラ粒の大部分は 0.04 mm 以下の大きさで、その抽出と分離には1試料でも相当な時間と手間が必要となる。本法はテフラ成分とそれ以外の堆積物成分との間の大きな化学組成の相違を利用して、日本海堆積物中の重量比で約2%に希釈された鬱陵島系テフラ層でも検出できる事を実証できた。

この研究成果は一流の国際学術雑誌に掲載された。さらに、日本海西南部における過去2万年間のアルカリ岩質テフラ層序を確定するためには、抽出したテフラ粒の噴火毎での微量元素パターンの相違を見いだすことも必要で、現在解析中である。

(2) 日本海南東部での過去9万年間のアルカリ岩質テフラ層序の構築

次に本手法を用いて、山陰沖コア1本と東北地方西岸コア4本における3-9万年前の年代での層を走査したところ、タンタル/スカンジウム含有量比の垂直分布 (図4) にあるように、アルカリ岩質テフラの混入を示す多数の化学的異常層が検出された。その異常層のほとんどは肉眼では確認できないものであり、またもうひとつの年代決定法としてよく使用される明暗色互層もやや不明瞭なため、明暗色互層層序のみで確実な年代確定をするのは難しいコアである。

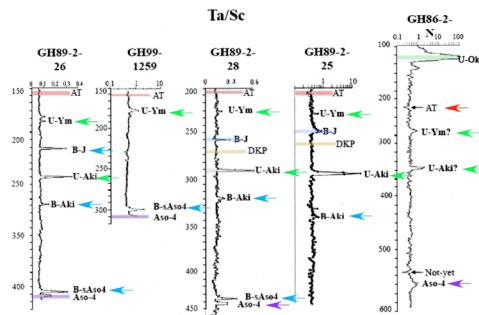


図4. 東南域の5コア中のTa/Sc垂直分布

これらの異常層の粗粒相から分離した火山ガラス中の主成分元素の定量 (図5) を行うことで、そのクリプトテフラが、鬱陵島系テフラか白頭山系テフラか、またはタンタル/スカンジウム含有量比がやや高いのが特徴である Aso-4 (阿蘇4) テフラなのかを区別する事ができる。

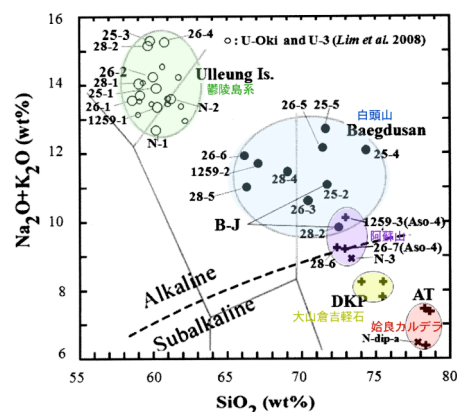


図5 火山ガラスの主成分組成と供給火山

層序学的な考察から、U-Ym (鬱陵-大和) テフラを含むであろう2層の鬱陵島系テフラ、およびB-J (白頭山-日本海盆) テフラを含むであろう3層の白頭山系テフラ層が、それぞれ3つのコアから検出されたと考えられる。新しく検出できたテフラはU-Aki(鬱陵-秋田沖)、B-Aki(鬱陵-秋田沖)、B-sAso4(Aso-4 直後の鬱陵系)とそれぞれ命名した。

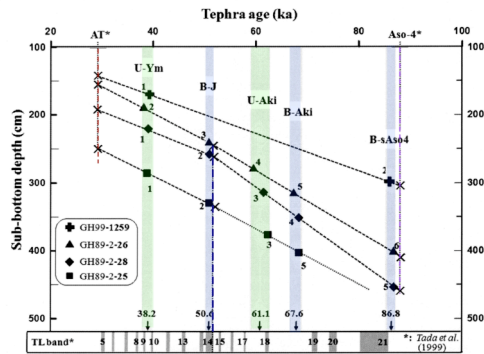


図6 東南海域の5コア中のテフラ対比

これらの検出層から抽出したコア間での各テフラ層の対比をおこなう事で、試料コア中の不明瞭な明暗色互層の年代も一部確定する事ができた。AT (始良) テフラを29.24千年前、Aso-4 テフラを88千年前の噴出、TL(暗色層)-14の底面の年代を51.5千年前として年代を補間すると、それぞれのテフラの年代は、U-Ym が38.2千年前、B-J が50.6千年前、61.1千年前、67.6千年前、86.8千年前と計算された(図6)。抽出したテフラ粒中の微量元素の定量もほぼ終わっており、現在、給源火山の違いだけでなく、それぞれの給源火山の噴火毎での微量元素パターンの相違について解析中であり、これらの結論についても国際学術雑誌に投稿準備中である。

(3) 日本海北東部での過去15万年間の白頭山系テフラ層序の構築

さらに本法を用いて、北海道西岸の2つの日本海コア内の2~15万年前の層について同様に走査したところ、23千年前のB-V (白頭山-ウラジオストック)、B-J および前述のB-AkiとB-sAso4のテフラを含む6層のアルカリ岩質テフラ層が検出されており、これらは主成分元素分析の結果、すべて白頭山系テフラ層と判明した。ここで新たに検出された2つの白頭山系テフラの年代は、このコアの明暗色互層層序(池原、未発表データ)から補間して104千年前と148千年前と計算される。これらの層から抽出したテフラ粒中の微量元素の定量することで、さらに白頭山の詳しい噴火履歴や

マグマ溜まりの化学組成の変化を再現できる事を示唆している。

以上の研究成果では、近年注目されているクリプトテフラの高感度な新検出法を示し、それが効率的な手法である事を日本海の堆積物で実証して、日本の第四紀後期のアルカリ岩質テフラ層序を確立しつつあることを示した。現在急務とされている最終氷期末の気候激変の日本近郊と世界各地との時間的なずれ、及び気候激変の機構の解明や、最終氷期末の日本周辺の海流と海面の変化についての編年をおこなう上でも、本研究は重要な役割を果たす。この新手法を活用することで、世界の他の活動的縁辺部地帯におけるテフラ層序も飛躍的に精密になり、過去の地球環境変動の復元に寄与する事が期待される。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計2件)

- ① Lim C., Ikehara K., Tovoda K., Cryptotephra detection using high-resolution trace-element analysis of Holocene marine sediments, southwest Japan. *Geochimica et Cosmochimica Acta* (審査有) 72, 2008, 5022-5036.
- ② Hatsukawa Y., Miyamoto Y., Toh Y., Oshima M., Gharaie M. H. M., Goto K., Tovoda K., High-sensitive elemental analysis Using Multi-parameter Coincidence Spectrometer, GEMINI-II. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, (審査有) 272, 2007, 273-276.

[学会発表] (計11件)

- ① 任忠完、池原研、豊田和弘、日本海堆積物コアの中性子放射分析による第四紀後期のアルカリ岩質テフラ層序の構築、日本地球化学会2008年会、2008年9月19日、駒場(東京)
- ② Chungwan LIM、Kazuhiro TOYODA、Ken IKEHARA、Cryptotephra detection by high-resolution trace-element profiles of hemipelagic sediments.. 京都大学原子炉実験所専門研究会、2008年1月23日、熊取(大阪)
- ③ UMETSU Akane、MACHIDA Hiroshi、Lim Chungwan、TOYODA Kazuhiro、Neutron activation analysis of volcanic glasses in alkaline tephra layers at Baitoushan volcano and Ulreung island, Korea、京都大学原子炉実験所専門研究会、

- 2008年1月23日、熊取（大阪）
- ④ Chungwan LIM、Kazuhiro TOYODA、Ken IKEHARA、Identification of multiple cryptotephra layers from Ulleung Island and Baitoushan volcanoes detected by INAA at deep-sea cores in the Japan Sea、日本第四紀学会 50周年記念国際シンポジウム 2007年11月20日、産総研（筑波）
- ⑤ UMETSU Akane, MACHIDA Hiroshi, Lim Chungwan, TOYODA Kazuhiro、Neutron activation analysis of volcanic glasses in alkaline tephra layers at Baitoushan volcano and Ulreung island, Korea、日本第四紀学会 50周年記念国際シンポジウム 2007年11月20日、産総研（筑波）
- ⑥ Toyoda K., Shinozuka Y, Lim C., Takemura K., Kitagawa H., Yasuda Y., GEOCHEMICAL DETECTION OF ALKALINE CRYPTOTEPHRA LAYERS: AN EXAMPLE OF LAST TERMINATION SEQUENCES IN JAPANESE LAKE SEDIMENTS、The 12th International Conference on Modern Trends in Activation Analysis (MTAA12)、2007年9月17日、首都大（東京）
- ⑦ 任忠完、池原研、豊田和弘、Geochemical detection of multiple cryptotephra layers from Ulleung Island and Baegdusan volcanoes detected by INAA at deep-sea cores in the Sea of Japan、地球惑星連合学会、2007年5月22日、幕張メッセ（千葉）
- ⑧ 豊田和弘、篠塚良嗣、竹村恵二、北川浩之、安田喜憲、琵琶湖と水月湖の堆積物コア中から放射化分析で検出した複数の鬱陵島テフラ、日本地球化学会 2006年会、2006年9月13日、日大（東京）
- ⑨ 任忠完・豊田和弘・千鍾華・篠塚良嗣・池原研、放射化分析法を用いた日本海・海底コア中のクリプトテフラ検出法の検討、日本地球化学会 2006年会、2006年9月13日、日本大学（東京）
- ⑩ 豊田和弘、篠塚良嗣、竹村恵二、北川浩之、安田喜憲、琵琶湖と水月湖の堆積物コア中から放射化分析で検出した複数の鬱陵島テフラとその噴出年代、日本地球惑星科学連合大会、2006年5月15日、幕張メッセ（千葉）
- ⑪ 任忠完、豊田和弘、Jong-Hwa Chun、篠塚良嗣、池原研、日本海南部コアから放射化分析により検出された複数の鬱陵島系起源のアルカリ岩質テフラ層、日本地球惑星科学連合大会、2006年5月15日、幕張メッセ（千葉）

- ① 豊田和弘、紫外線による地表物質への影響、北海道大学出版会、オゾン層破壊の科学（2007） 243-273 ページ

6. 研究組織

(1) 研究代表者

豊田 和弘 (TOYODA KAZUHIRO)

北海道大学・大学院地球環境科学研究院・准教授

研究者番号：10207649

(2) 研究分担者

池原 研 (IKEHARA KEN)

独立行政法人産業技術総合研究所・地質情報研究部門・研究グループ長

研究者番号：40356423

(2008年度のみ(3)連携研究者に移行)

(4) 研究協力者

町田 洋 (MACHIDA HIROSHI)

東京都立大学・理学部・名誉教授

千鍾華 (Chun Jong-Hwa)

韓国・江原国立大学・研究員（申請時）