

令和 2 年 4 月 1 日現在

機関番号：11501

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2016～2019

課題番号：16H06138

研究課題名(和文)結晶質岩の熱進化モデルの構築および化学的な長期変遷の解明

研究課題名(英文)Thermal evolution modelling of crystalline rock and long term history of chemical characteristics within the rock body

研究代表者

湯口 貴史(Yuguchi, Takashi)

山形大学・理学部・准教授

研究者番号：00516859

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 19,600,000円

研究成果の概要(和文)：高レベル放射性廃棄物の地層処分安全評価において、地下水シナリオを想定した場合、地下水の化学的特徴の長期的な将来予測が、重要な課題である。本研究は、花崗岩の形成と発達に係る熱進化モデルの構築(研究成果：Yuguchi et al., 2016; 2017; 2019A)、流体の情報を保存する二次鉱物の岩石学的情報と形成温度・年代の解明(研究成果：Yuguchi et al., 2019B)を通じて、結晶質岩(花崗岩)体中の流体(熱水や地下水)の化学的特徴の長期変遷を解明する手法を構築した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の学術的意義は、マグマから貫入・定置・固化を経て深成岩へと至る熱進化モデルを構築したこと、また花崗岩体中の二次鉱物の岩石学的情報・熱年代学的情報を取得し、それらを組み合わせることで『花崗岩体内の流体の長期変遷の解明に必要な手法』を構築した点である。これらの知見や手法は地質環境変動のモデル化に際して有益な情報(地質履歴)になり得る。これは地層処分の長期安全性に関する不確実性を低減することに繋がる。

研究成果の概要(英文)：For safety evaluation of geological disposal of high-level radioactive waste, it is an important subject to reveal the long-term future forecast of fluid chemistry in a crystalline (granitic) rock. This study presented the procedures to reveal the long-term history of fluid chemistry in a crystalline rock on the basis of 1) thermal evolution model of granitic pluton (Yuguchi et al., 2016; 2017; 2019A) and 2) petrography and formation temperature and age of secondary minerals in the pluton (Yuguchi et al., 2019B).

研究分野：岩石学

キーワード：高レベル放射性廃棄物の地層処分 花崗岩 熱進化モデル 変質鉱物

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全評価において、地下水シナリオ(地下水によって放射性物質が処分施設から人間環境に運ばれるシナリオ)を想定した場合、地下水の化学的特徴の長期的な将来予測が、重要な課題の1つである。なぜなら、地下水が化学的に酸化状態であるのか還元状態であるのかは、高レベル放射性廃棄物のガラス固化体を覆う金属製のオーバーパックスの機能を維持できる期間を支配する。地下水が還元的な特徴を持つ場合、金属の腐食を遅滞させる。さらに、地下水は物質を移動・循環させる媒体であるため、物質移動の観点からも流体の化学的な特徴が重要となる。

結晶質岩(花崗岩)内の地下水の化学的特徴の将来予測のためには、過去から今日までの流体(熱水そしてその後の地下水)の化学的特徴の長期変遷を理解する必要がある。将来予測には、長期的な地質環境変動の数値モデルの構築が実施されており、これは過去から今日までのデータから将来を外挿するものである。つまりより妥当なモデルを構築するには、より精度の高い地質履歴の情報が必要となる。

過去の地球化学特性を反映した流体は、流体の滞留時間の範囲内でしか直接採取することができない。このため、過去の流体の地球化学的特性を復元するためには、流体の化学特性を反映しながら生成された割れ目充填鉱物や変質鉱物を利用する手法が有効である。花崗岩体内の割れ目は流体の経路であり、流体からの沈殿によって割れ目充填鉱物が生成される。また高温の流体は鉱物の変質をもたらす。このように二次的に生成された様々な種類の割れ目充填鉱物や変質鉱物は、流体が持つ特徴を岩石学的な特徴(化学組成や組織)として記録おり、かつ生成時期・生成温度条件はそれぞれで異なっている。複数の二次鉱物の岩石学的特徴や生成年代・温度条件の解明は、過去から今日までの流体の化学的特徴の長期変遷を理解する鍵となる。

2. 研究の目的

岩体中の地質環境特性(流体の流動経路や化学的特徴等)の長期的な将来予測は、高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全性そして妥当性の評価を行う上で重要な課題である。この課題解決には、過去の地質環境の長期変遷の理解を必要とする。本研究は、以下の2つのテーマを通じて、結晶質岩(花崗岩)体中の流体(熱水や地下水)の化学的特徴の長期変遷を解明する手法を構築するものである。

- 花崗岩の形成と発達に係る熱進化モデルの構築
- 流体の情報を保存する割れ目充填鉱物と変質鉱物の岩石学的情報と形成温度・年代の解明

3. 研究の方法

本研究は、中部日本の土岐花崗岩体を対象とし、岩体中の流体の化学的特徴の長期変遷を解明し、その手法を確立する。その礎となる割れ目充填鉱物と変質鉱物の生成時期・温度条件および岩石学的な特徴の相違を把握のために、以下の3つのSTEPを設定し、段階的に研究を実施した。

(1) STEP1 花崗岩の形成と発達に係る熱進化モデルの構築

先行研究において、土岐花崗岩体の冷却に関する不均質性を明らかにした。このため、土岐花崗岩体中では、空間的(位置的)な相違に応じて温度・時間履歴(t - T path)も大きく異なることが推察される。このため、熱年代学的手法により、岩体内の領域ごとの花崗岩形成時から今日に至るまでの t - T pathを取得し、各領域の t - T pathの相違や類似性の検証を通じて、花崗岩全体の熱進化モデルの構築を行った。

(2) STEP2 流体の情報を保存する割れ目充填鉱物と変質鉱物の岩石学的情報と形成温度・年代の解明

STEP1で取得した t - T pathの各領域に存在する割れ目充填鉱物および変質鉱物(二次鉱物)に対して、記載岩石学的な手法により組織や化学組成のデータを収集する。さらに地質温度計あるいは年代学的手法を用いて、二次鉱物の生成温度あるいは生成年代のいずれかを決定する。これをSTEP1で決定した t - T pathに組み合わせることで、生成温度の判明した二次鉱物は生成年代を得ることができ、生成年代の判明した二次鉱物は生成温度を推定できる。この手法を用い、複数の二次鉱物に対する生成温度や年代を決定する。

(3) STEP3 流体の化学的特徴の長期的な変遷の解明

上記の STEP1 と STEP2 で得た知見に基づき、最終段階として、二次鉱物とそれを生成する流体との間の物質交換を明らかにし、流体の化学的特徴の長期的な変遷を明らかにする。

4. 研究成果

2016 年度から 2019 年度までの研究成果(1)-(4)を以下に記す。(1)-(3)は STEP1 に相当し、(4)は STEP2 および STEP3 に相当する。

(1) 花崗岩体内のジルコン成長：土岐花崗岩体の 3 次元的な熱進化の解明

熱進化モデルの構築に際して、本研究ではジルコンに着目し、1) カソードルミネッセンス像観察に基づくジルコンの内部構造の分類、2) Ti-in-zircon 温度計より内部構造ごとの結晶化温度の決定、3) 内部構造ごとの U-Pb 年代の決定を実施し、ジルコンの成長は複数のイベントを経ることを見出した。土岐花崗岩体のジルコンは内部構造より、Low luminescence core (LLC)と oscillatory zonation (OZ)に分類できる。チタン濃度に基づく温度決定より LLC は 910-760 °C、OZ は 850-690 °C で生成される。また年代測定より LLC は $74.7 \pm 4.2\text{Ma} \sim 70.5 \pm 1.3\text{Ma}$ 、OZ は $72.7 \pm 0.6\text{Ma} \sim 70.4 \pm 1.7\text{Ma}$ の時期に生成される。これらのジルコンの生成温度・年代から土岐花崗岩体の貫入・定置から結晶固化へといった熱進化を解明した。

(2) 土岐花崗岩体のアパタイトフィッシュン・トラック年代の空間分布

本研究は、土岐花崗岩体のアパタイトフィッシュン・トラック (AFT) 年代の空間分布を明らかにした。AFT の PAZ(partial annealing zone)は 60-120 °C であるため、AFT 年代の空間分布は低温条件での花崗岩の 3 次元的な熱進化を解明することに有用である。高温条件での花崗岩体の冷却は、母岩への熱放出に支配されるのに対し、低温条件では岩体の上昇に強く依存する。したがって、低温条件の冷却史の解明は、岩体の上昇速度の解明に有用である。そこで、本報告では AERs(age-elevation relationships)と HeFTy プログラムによる AFT 年代の逆解析に基づいて土岐花崗岩体の上昇速度について明らかにした。土岐花崗岩体の 11 本のボーリングコアから採取された 33 試料は、 $52.1 \pm 2.8 \sim 37.1 \pm 3.6\text{Ma}$ の年代を有する。土岐花崗岩体の広い領域で、浅部で古く深部で若い年代分布を示す。この結果は浅部ほど古い時期に閉鎖温度の深度に到達したことを意味し、土岐花崗岩体の上昇を示す。

AERs と HeFTy プログラムによる AFT 年代の逆解析および土岐花崗岩体周囲の地質情報から以下の土岐花崗岩体の上昇史を明らかにした：1) 50-40Ma の上昇速度：0.16mm/year、2) 40Ma 以降は、50-40Ma と比較してゆっくりとした上昇(速度：0.16mm/year 以下)そして 3) 30Ma 以降、20Ma 以前に地表に露出。この結果から、土岐花崗岩体を含む東濃地域は、大陸縁辺部に位置した日本海拡大以前においては、0.16mm/year を超える上昇は経験しておらず、削剥速度もそれ以下であると推定できる。

(3) 土岐花崗岩体内部の冷却履歴の位置的な相違：相違をもたらす原因と割れ目との関連

本研究では、10 本のボーリングコアから採取された 15 試料に対して、ジルコン U-Pb 年代、黒雲母 K-Ar 年代、ジルコンフィッシュン・トラック (FT) 年代、アパタイト FT 年代、および FT データの逆解析からなる t - T path を再現した(図 1)。これらの t - T path は、岩体内の位置に応じた特徴を有する。これは浅部地殻に花崗岩質マグマが貫入

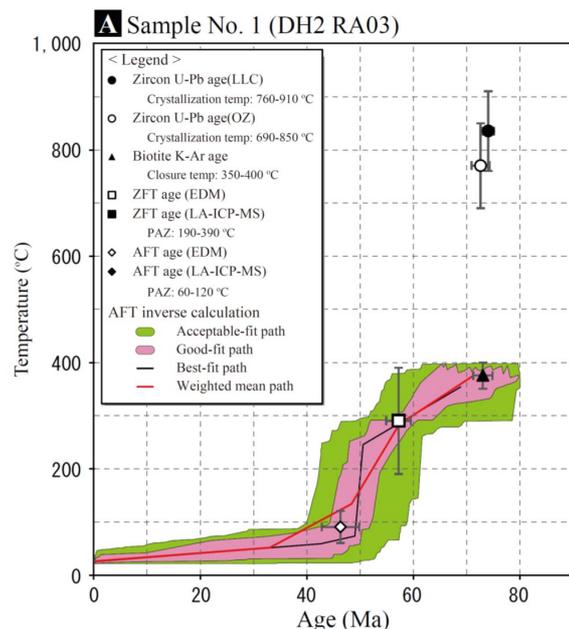


図 1 土岐花崗岩体(DH2 RA03)の温度 - 時間履歴

して以降の形成過程・冷却過程を反映する。岩体の結晶化温度からジルコン FT の閉鎖温度までの冷却において、岩体内の領域間での相違が顕著に認められる。岩体西端および北西端領域では急冷が認められ、これは貫入・定置過程での地殻の混成作用が起因する。またアパタイト FT の閉鎖温度付近での冷却は、15 地点で大きな相違なく徐冷傾向を示す。これは土岐花崗岩体が位置する東濃地域の広域的な上昇を反映するものである。研究成果(1)-(3)を通じて、当初目標である熱進化モデルの構築に至った。

また熱進化モデルと割れ目に関する新たな知見を得ることができた。温度 - 時間履歴を取得した領域の割れ目頻度のデータ (Yuguchi et al., 2012) と温度 - 時間履歴の関連について検討を行ったところ、ジルコン U-Pb 年代と黒雲母 K-Ar の閉鎖温度の間で、急冷か徐冷かで割れ目頻度が増減する傾向を見出した。具体的には徐冷の場合、割れ目頻度が多い傾向を有する。特にジルコンのオシラトリートゾーン領域で得られた U-Pb 年代は深成岩体の結晶化温度を示す (Yuguchi et al., 2016)。この結晶化温度と黒雲母 K-Ar 年代の年代差は割れ目頻度との間に高い正の相関を有する ($R^2=0.89$)。これらのことから温度 - 時間履歴から得られるデータは割れ目頻度を評価する際に有益な指標となることを見出した。

(4) 花崗岩体中の斜長石の熱水変質：変質を生じる熱水流体の化学的特徴の変遷

本研究では、中部日本の土岐花崗岩体中に認められる斜長石の熱水変質プロセスを、斜長石中の微小孔の役割、物質移動、反応速度の観点から論じ、斜長石の変質をもたらす熱水の化学的特徴の変遷について言及した。

斜長石の変質はアルバイト化、カリ長石化、およびイライトの形成により特徴づけられる。本研究では、1) 変質領域と非変質領域の微小孔の分布特性の相違、2) 反応式の構築による斜長石変質に伴う流入・流出成分の解明、3) イライト K-Ar の年代決定に基づく、変質年代・温度条件の推定、および 4) 斜長石の変質をもたらす年代・温度条件における熱水の化学的特徴の時間的な推移について論じた。変質領域と非変質領域の微小孔の分布の解析によって、微小孔は斜長石変質の初期に、アノサイト成分の溶脱により生じ、微小孔は斜長石内部への熱水の浸透に寄与することを明らかにした。また微小孔の伸長方向の解析は、変質領域において、微小孔は黒雲母から変質した緑泥石との連結を示唆する。緑泥石化で放出された成分が微小孔を通路として、斜長石内部に供給されることを示す。

研究成果(4)と Yuguchi et al. (2015)で得た黒雲母の緑泥石化に関する物質移動や生成温度の知見を統合することで、岩体が約 350 から約 180 に冷却する間に、黒雲母の緑泥石化と斜長石の変質が連続的に生じること、その期間は 68Ma から 51Ma に相当する。その間、連続的な緑泥石化・斜長石の変質により熱水中の Al, Fe, Mn, Mg が減少し、Ca, F が増大する化学的特徴の時間変化を得た(図 2)。これにより、流体の化学的特徴の長期的な変遷を明らかにするという当初目的は達成された。

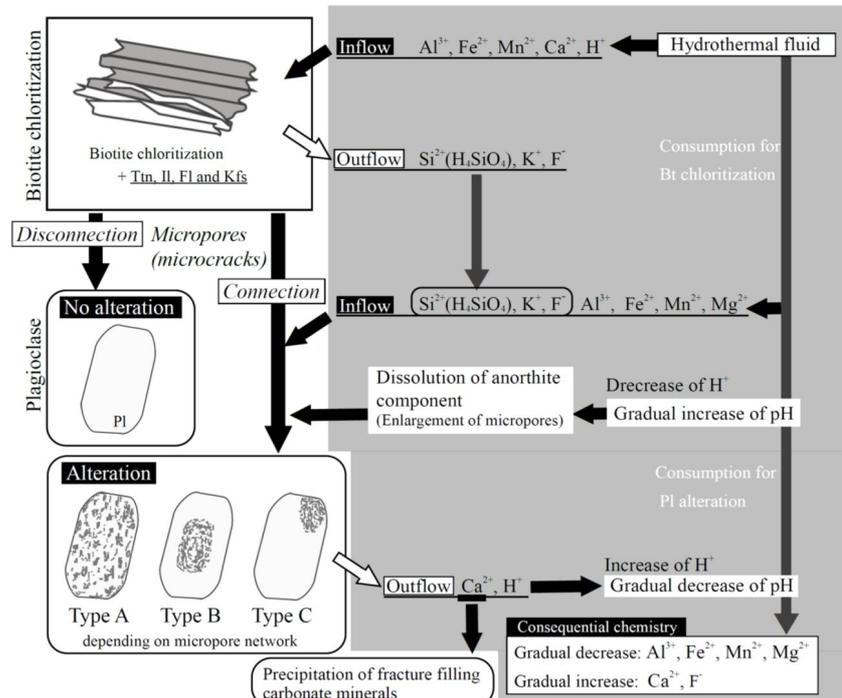


図 2 熱水変質に伴う岩体中の化学的特徴の変遷

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Yuguchi, T., Sueoka, S., Iwano, H., Izumino, Y., Ishibashi, M., Danhara, T., Sasao, E., Hirata, T. and Nishiyama, T.	4. 巻 169
2. 論文標題 Position-by-position cooling paths within the Toki granite, central Japan: Constraints and the relation with fracture population in a pluton.	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Asian Earth Sciences	6. 最初と最後の頁 47-66
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1016/j.jseaes.2018.07.039	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 石橋正祐紀, 湯口貴史	4. 巻 58
2. 論文標題 花崗岩類中の鉱物分布および鉱物組合せとその量比 (モード組成) の新たな評価手法の構築: 走査型X線分析顕微鏡で取得した元素分布図を用いた画像解析	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 応用地質	6. 最初と最後の頁 80-93
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.5110/jjseg.58.80	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Yuguchi, T., Sueoka, S., Iwano, H., Danhara, T., Ishibashi, M., Sasao, E. and Nishiyama	4. 巻 26
2. 論文標題 Spatial distribution of the apatite fission-track ages in the Toki granite, central Japan: Exhumation rate of a Cretaceous pluton emplaced in the East Asian continental margin.	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Island Arc	6. 最初と最後の頁 e12219
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1111/iar.12219	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 西山忠男, 森部陽介, 森康, 重野未来, 湯口貴史	4. 巻 123
2. 論文標題 開いた系における変成反応と物質移動の解析: 特異値分解法の新しい応用	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 地質学雑誌	6. 最初と最後の頁 717-731
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.5578/geosoc.2017.0021	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Yuguchi, T., Iwano, H., Kato, T., Sakata, S., Hattori, K., Hirata, T., Sueoka, S., Danhara, T., Ishibashi, M., Sasao, E., Nishiyama, T.	4. 巻 111
2. 論文標題 Zircon growth in a granitic pluton with specific mechanisms, crystallization temperatures and U-Pb ages: Implication to the 'spatiotemporal' formation process of the Toki granite, central Japan.	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Journal of Mineralogical and Petrological Sciences	6. 最初と最後の頁 9-34
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) http://doi.org/10.2465/jmps.151007	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yuguchi, T., Ogita, Y., Kato, T., Yokota, R., Nishiyama, T.	4. 巻 in press
2. 論文標題 Crystallization processes of quartz in a granitic magma: Cathodoluminescence zonation pattern controlled by temperature and titanium diffusivity	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Asian Earth Sciences	6. 最初と最後の頁 in press
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1016/j.jseaes.2020.104289	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yuguchi, T., Shoubuzawa K., Ogita Y., Yagi, K., Ishibashi, M., Sasao E., Nishiyama T.	4. 巻 104
2. 論文標題 Role of micropores, mass transfer, and reaction rate in the hydrothermal alteration process of plagioclase in a granitic pluton.	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 American Mineralogist	6. 最初と最後の頁 536-556
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.2138/am-2019-6786	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 石橋正祐紀, 笹尾英嗣, 湯口貴史, 森川佳太, 村上裕晃
2. 発表標題 わが国の花崗岩中の空隙分布に関する検討
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 湯口貴史、末岡茂、岩野英樹、五十公野裕也、石橋正祐紀、檀原徹、笹尾英嗣、平田岳史、西山忠男
2. 発表標題 土岐花崗岩体内部の冷却履歴の位置的な相違：相違をもたらす原因と割れ目との関連
3. 学会等名 日本地質学会第125年学術大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 湯口貴史、菖蒲澤花穂、小北康弘、八木公史、石橋正祐紀、笹尾英嗣、西山忠男
2. 発表標題 花崗岩体中の斜長石の熱水変質：微小孔の役割，物質移動および反応速度
3. 学会等名 日本鉱物科学会 2018年年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 石井貴大，小暮敏博，菊池亮佑，宮脇律郎，湯口貴史
2. 発表標題 熱水変質による花崗岩中黒雲母の緑泥石化機構の再考
3. 学会等名 日本鉱物科学会 2018年年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小北康弘，加藤丈典，湯口貴史
2. 発表標題 カソードルミネッセンス像解析およびチタン濃度定量分析に基づく
3. 学会等名 日本鉱物科学会 2018年年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 石井 貴大、小暮 敏博、菊池 亮佑、宮脇 律郎、湯口 貴史
2. 発表標題 熱水変質を受けた花崗岩中黒雲母の緑泥石化機構に関する新しい知見
3. 学会等名 JPGU-AGU Joint Meeting 2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 石橋正祐紀、森川佳太、笹尾英嗣、湯口貴史
2. 発表標題 断層形成に伴う花崗岩基質中の空隙への影響に関する検討
3. 学会等名 日本地質学会第124年学術大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 湯口貴史・末岡茂・岩野英樹・檀原徹・石橋正祐紀・笹尾英嗣・西山忠男
2. 発表標題 土岐花崗岩の アパタイトフィッション・トラック年代の空間分布：大陸縁辺部に定置した深成岩体の上昇速度
3. 学会等名 日本鉱物科学会2016年年会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Nishiyama, T., Yuguchi, T.
2. 発表標題 Hydrothermal chloritization processes from biotite in the Toki granite, Central Japan: Temporal variations of of the compositions of hydrothermal fluids associated with chloritization.
3. 学会等名 2016 TIGeR Conference, Curtin (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 石橋正祐紀・湯口貴史
2. 発表標題 走査型X線分析顕微鏡を用いた鉱物マップの作成と鉱物組合せの把握
3. 学会等名 平成28年度応用地質学会研究発表
4. 発表年 2016年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	西山 忠男 (Nishiyama Tadao)	熊本大学・理学部・教授 (17401)	
研究協力者	笹尾 英嗣 (Sasao Eiji)	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・核燃料・バックエンド研究開発部門・部長 (82110)	