

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 10 日現在

機関番号：34310

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K05720

研究課題名(和文) 水月湖コア試料に含まれる火山ガラスの多元素同時定量分析法による識別および対比

研究課題名(英文) Identifications and correlations of volcanic glass shards in drill core samples from Lake Suigetsu by using a multi-element determination technique

研究代表者

丸山 誠史 (Maruyama, Seiji)

同志社大学・研究開発推進機構・嘱託研究員

研究者番号：10444647

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、「世界の標準時計」と言われる水月湖コア試料に含まれるテフラの識別及び対比を目的として、レーザーアブレーション誘導結合プラズマ質量分析法(LA-ICP-MS)を用いた主要・微量元素測定手法をテフラ試料中の火山ガラスに適用し、得られた化学組成に基づきテフラ試料の識別および対比、相互関係の解析を行った。また本手法のさらなる改良を目的として、水月湖テフラ試料と対比されている広域テフラ試料についても測定を行った。研究成果は国際誌や国内学会誌等に投稿し、国内の学会において発表を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、火山ガラスの化学組成がテフラ試料のより正確な識別・分類のための手がかりとなり得ることが示された。この事は、水月湖年縞堆積物試料の持つ「世界の標準時計」としての重要性を、テフラ年代学的情報から再認識することに直結している。

本研究で開発・改良が行われた火山ガラス定量分析法は、これまで主要元素と微量元素で別々に行われてきた測定を一度に、かつ短時間のうちに行うことが可能である。本手法が広く導入されることにより、今後のテフラ研究が大いに促進されることが期待できる。このことは過去の火山活動に関する従来以上にきめ細かい情報が得られることに繋がり、防災計画策定などにも有効な情報となり得る。

研究成果の概要(英文)：In this study, major and trace-element concentrations of volcanic glass shards in the visible tephra samples from drill core samples from Lake Suigetsu, which are regarded as the global standard timescale for determining ages, were obtained by using a LA-ICP-MS for identifications and correlations of them. For developing and improving the technique for identification and correlation of tephtras, volcanic glass shards in widespread tephtras which may relate to the Suigetsu tephtras were also analyzed. The findings obtained in this study were published in some international journals, and were presented in some domestic conferences.

研究分野：地球化学

キーワード：水月湖 テフラ 火山ガラス LA-ICP-MS 化学組成 コア試料 第四紀 クラスタ分析

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

火山から噴出する火山砕屑物(テフラ)は、長石や輝石などの鉱物粒子、また数マイクロン～数百マイクロン大のガラス物質(火山ガラス)粒子を主要構成物質として含んでいる。火山ガラスの化学組成による分類は、EPMAやSEM-EDXといった電子線を用いた定量分析による、 SiO_2 やCaOなど主要成分の組成に基づくものが主流である。しかし主要成分は10種程度に限定され、またそれらは異なるテフラ間で1-2重量パーセント程度と僅かな差しかないことがしばしばあり、テフラの識別・分類に曖昧さが生じる問題が発生していた。しかし、そのような指摘がなされているにも関わらず、火山ガラスの主要元素に基づくテフラ識別・対比は、現在最も信頼のおける方法として、世界中で広く活用されている。より長い歴史を持つ、ガラスや鉱物の屈折率、鉱物構成比などテフラの岩石学的特性に基づく対比法は、情報としての重要性自体は認識されているものの、現在、テフラ対比法としては(特に欧米においては)あまり用いられない傾向が強い。

研究代表者らは2014年度より、レーザーアブレーション誘導結合プラズマ質量分析法(LA-ICP-MS)を用いて日本国内および周辺地域、また北米大陸などの火山ガラスに関して、リチウムからウランまで合計58元素の同時定量分析手法の開発に取り組んでおり、微量元素に加えて主要元素も、LA-ICP-MS法で一括測定することが可能であることを示した。そして58元素の描くパターンはテフラごとに「個性」があり、テフラの識別・対比に極めて有用であることを見出した(Maruyama et al., 2016)。

研究代表者らは、九州から関東までの各地で採取された、同一テフラ(猪牟田ピンクテフラ)に対比されている複数試料に上記手法を適用し、一つの試料が全く異質なものだということを見出した(雑誌論文Maruyama et al., 2017)。この事実は、主要元素による方法を含む、従来の地質学的・鉱物学的手法によるテフラ識別・対比に間違いが含まれている可能性を示唆している。琵琶湖コア試料や水月湖コア試料に含まれるテフラは、古環境変動の年代学に留まらず、テフラ年代学にも極めて高い科学的重要性を持つという事実を考慮すると、従来法を上回る正確さを有する本手法による対比と、従来法による対比の再検証が早急に求められる状況であった。

2. 研究の目的

水月湖コア試料の年縞堆積物は、炭素14年代測定法により、過去5万年分に及ぶ年代の値付けが精密に行われている。このため水月湖コア試料は「世界の標準時計」と呼ばれており、年縞堆積物に挟在するテフラの年代を推定する最良の手がかりともなる(e.g., Smith et al., 2013)。本研究ではこの水月湖コア試料に注目し、コア試料に含まれる各テフラ試料の火山ガラスに対してLA-ICP-MSによる主要・微量元素同時分析法を適用し、ガラスの多元素組成データを得ることを第1の目標とした。既に従来法に基づいて対比されている水月湖テフラ試料(e.g., Albert et al., 2018, 2019)については、本手法を用いて、従来の主要元素に基づくテフラの識別・対比の妥当性を検証することも、目的の一つとした。

火山ガラスの化学的特性とテフラ噴出年代は、テフラ年代学における「車の両輪」とも言える不可分な情報である。本研究では、主要・微量元素同時定量分析結果に基づく高精度なテフラ識別・対比を行うと同時に、水月湖試料テフラのうち、炭素14年代(約5万年前～現世)と比較可能な年代が推定されているものについて照合、検証することも平行して行った。より古い年代を持つ、下層に存在するテフラ試料のうち、既に従来法により識別・対比されているものは元素組成に基づき、テフラ年代学的に矛盾なく対比されているかどうかの検証も必須事項として含められた。また、取得された多元素組成データに関して、元素濃度パターンの単なる「見た目」だけの比較に留まらず、測定値の数理統計的な比較による各テフラ間の関係性の定量化・視覚化の検討も、より確実な対比手法を確立するための重要目標と定められた。

また、先行研究で未だ明確な識別がなされていない水月湖テフラ試料に関して、日本各地で採取されているテフラのうち可能性が高いと推定されるものと主要・微量元素組成の対比を行い、最終的には現在得られる全ての水月湖テフラ試料の識別を達成することを目標とした。

そしてテフラに含まれる火山ガラスの主要・微量元素組成と年代(特に水月湖年縞堆積物の炭素14年代から年代が推定されているもの)をセットにした、水月湖テフラ化学組成・年代データベースを構築、水月湖試料を用いた各種の地球科学的・環境学的研究に寄与するために、国内外へ広く公開することを、当初の本研究の最終目標とした(これに関しては後述)。

3. 研究の方法

本研究は、大まかには以下のような流れで進められた。

(1) 水月湖テフラ試料に含まれる火山ガラス試料について、LA-ICP-MS法を用いて合計58元素の定量分析を行った。また水月湖試料と対比されている、あるいは対比される可能性のある、日本各地のテフラに関しても同様に測定を行った。

水月湖コア試料のLA-ICP-MS定量分析は、1993年と2006年に掘削されたコア試料(それぞれSG93、SG06と呼称)に含まれる可視テフラ(SG93から合計25試料、SG06から合計32試料)のうち、ガラスが良好な状態で測定可能な26試料に関して行われた。(多くのテフラはSG93とSG06の両方に含まれるが、どちらか一方にしか含まれないものや、SG93では一つのものがSG06では二つに分かれたりしているものも存在する)

LA-ICP-MSによる定量分析は、東京大学理学部地殻化学実験施設に設置されているサーモフイッシャーサイエンティフィック iCAP Qc 四重極型 ICP-MS 質量分析装置と、サイバーレーザー

IFRIT フェムト秒紫外線レーザー装置を用いて行なった。

(2) 得られた測定結果に基づき、各テフラ試料の識別・対比を行った。また、水月湖年縞堆積物試料の炭素 14 年代 (Albert et al., 2018, 2019) と、これまで推定されているテフラの年代についても比較、再検討を行った。

前述の通り、当初の研究計画では最終目標として、得られた各種火山ガラスの多元素濃度およびパターン、年代情報などのデータベース化も含まれていた。しかし今現在、日本国内・周辺の火山を給源とするテフラを纏めた「新編火山灰アトラス」(町田・新井, 2003) を更新するための計画が進められているとのことで、しかも将来的には本研究の当初の計画と同様に、オンラインでのデータベース化もあり得るため、本研究で限定的かつ小規模なデータベースを作成する必要性、妥当性は薄いであろうという判断となった。

4. 研究成果

(1) 水月湖テフラ試料の識別・対比

本研究で測定された水月湖テフラ試料は SG93、SG06 とともに、コア試料掘削時に岩石学的特性の観察・分析が行われ、それらに基づいたテフラ対比が研究協力者 (檀原) らによって行われている (岩石学的特性と対比結果は雑誌論文 Maruyama et al., 2019JoG として初公表)。本研究ではこれらテフラ試料の岩石学的特性と対比結果を重要な基盤的情報として扱い、本研究で取得された多元素濃度データに基づく対比結果と岩石学的特性による対比結果を比較、クロスチェックを行った。両手法による対比結果には大きな食い違いは見られず、テフラの対比手法としては最も「伝統的」である岩石学的特性による対比が、今もなお有効かつ有用であることを明確に示すものであった。水月湖テフラ試料は、主に中国地方の三瓶山および大山を給源とするものと、九州のカルデラ (始良、阿蘇、阿多、鬼界) を給源とするものに大別されることが確認された。しかし、岩石学的特性に基づいて三瓶木次テフラに対比されていた試料は、化学組成 (元素濃度パターン) が Maruyama et al. (2016) で示されたものとは全く異なっていた。このテフラ試料のものと元素濃度パターンが似通っており、

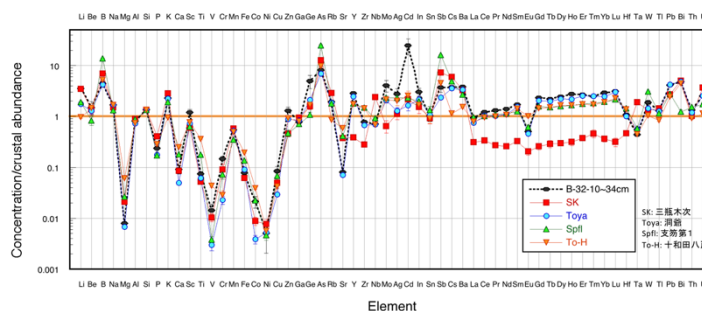


図1 洞爺テフラの可能性のある水月湖テフラ試料の元素濃度パターン

かつ噴出年代が最も近いものとしては、北海道の洞爺テフラである可能性が示唆された (図 1)。

また、火山噴火史の解明を目的として同じ水月湖テフラ試料の対比を行っていた Albert et al. (2018, 2019) の主要元素 (および一部の微量元素) に基づく対比結果との比較も行われた。結果としては大きな矛盾は見られず、年代の新しい (= 「若い」) 三瓶山および大山テフラの一部に差異が見られる程度であった。この比較によって、Albert et al. (2018, 2019) で示された水月湖テフラ試料の炭素 14 年代が、多くの三瓶山、大山、そして九州カルデラ由来のテフラに関して適用できることが確認された。一部の若い三瓶系・大山系の対比における差異は、本研究では単に多元素濃度のみならずテフラの岩石学的特性による対比結果も加味した「総合的な」対比であることに起因している。三瓶系および大山系の若いテフラの幾つかに関しては、それらの給源近傍で採取可能なテフラ試料が乏しく、またこれらの化学組成が互いに似通ったものであるという問題もあり、今後より慎重かつ詳細な対比が必要であることが示唆された。本研究の多元素測定結果と対比結果などは、雑誌論文 (Maruyama et al., 2020JQS) として出版された。

さらに水月湖テフラ試料に含まれる阪手テフラ試料と、その直前に噴出した (= 一連の火山活動で噴出) 三瓶浮布テフラの岩石学的特性とガラスの化学組成、そして先行研究から推定される阪手および三瓶浮布テフラの分布域から、これらの関係性を再検証した (雑誌論文 Maruyama et al., 2020JoG)。

(2) ガラスの多元素定量分析データに基づくテフラ識別・対比手法の開発

水月湖テフラ試料には、前述のように北海道から近畿地方まで飛来したのものも含まれている可能性があるため、中国地方や九州からのテフラのみならず、日本全国の多種多様なテフラ試料に関する情報が必要不可欠である。そのため本研究では、九州や近畿地方、伊豆諸島、東北地方といった地域で採取されたテフラ試料の元素濃度定量分析も行い、水月湖テフラ試料との比較対象として情報を蓄積することも継続して行われた。

また、元素濃度データの比較に関して、元素濃度パターンの単なる「見た目」による判断のみならず、数理統計的比較により定量的に類似の度合いを示す試みもなされた。本研究の初期の段階では既に、猪牟田ピンクテフラ試料の比較 (雑誌論文 Maruyama et al., 2017) のために、チャーキー・クレーマー (TK) 検定法による比較が導入されており、雑誌論文 Maruyama et al. (2020JoG; 2018) および Suzuki et al. (2020) でも試料間の比較のために TK 検定法を使用している。本研究ではさらに、階層型クラスター分析法を導入することにより、テフラ試料間の関係と類似度を定量的に求める試みを行った。クラスター分析法では、各試料間の関係を示す「樹形図」が得られるのが最大の特徴である。本研究では水月湖テフラ試料 26 試料に関して、化学

組成データに基づき樹形図を作成、各試料間の関係性を得た(図2)。この樹形図は、テフラの類似度を推定するための一種の「物差し」として応用できる可能性があり、同条件で測定されたものであれば、他のテフラ試料群の比較においても「この高さよりも低い枝に属する試料は同一火山由来と見做せる」というような判断のための指標として利用可能であると思われる。また、クラスター分析法の応用として、泥質堆積物中に含まれている複数火山由来の火山ガラスを化学組成の類似度に基づきグループ分けして、それぞれの給源火山を特定する試みもなされた(雑誌論文 Maruyama et al., 2019QR)。

※ スコア層は除く

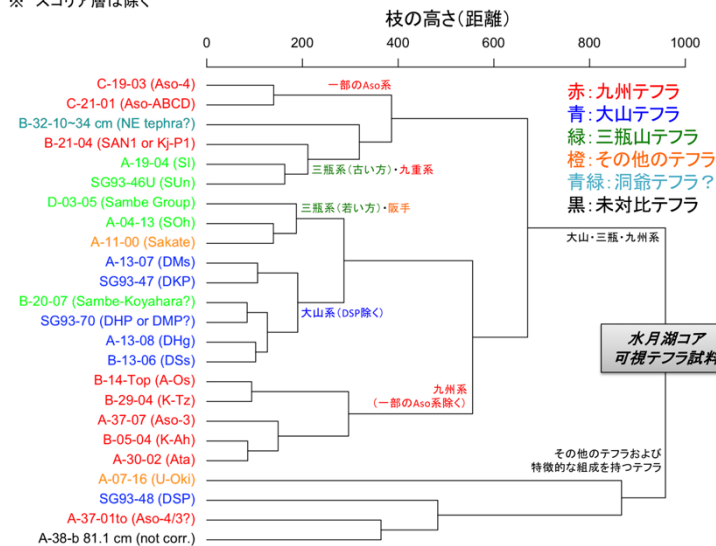


図2 水月湖テフラ試料のクラスター分析結果(樹形図)

岩石学的特性や推定降灰域などに基づき三瓶小屋原テフラに対比された水月湖テフラ試料は、化学組成データに基づくクラスター分析では、三瓶系よりも大山系により近いことが示唆された(図2)。給源である三瓶山の近傍で採取された三瓶小屋原テフラの測定を行い、元素濃度パターンを比較したところ、大山を給源とするテフラに対比する方が、やはり理にかなっていることが明らかになった。しかし同時代に、大山から水月湖まで達するようなテフラの噴出があった証拠は現在のところ存在せず(大山鴨ヶ丘テフラという可能性もあるが、降灰域が非常に狭いという大きな問題がある)、今後のより詳細な地質的・地球化学的研究が必要である。なお本件に関しては、三瓶山の噴火史(マグマ化学組成の変遷)の解明および大山テフラ研究の現在抱える問題点の指摘を目的として、現在論文を準備中である。

(JQS: Journal of Quaternary Science; JoG: Journal of Geography; QR: The Quaternary Research)

<引用文献>

- ① Albert, P.G., Smith, V.C., Suzuki, T., Tomlinson, E.L., Nakagawa, T., McLean, D., Yamada, M., Staff, R.A., Scholaut, G., Takemura, K., Nagahashi, Y., Kimura, J. and Suigetsu 2006 Project Members (2018) Constraints on the frequency and dispersal of explosive eruptions at Sambe and Daisen volcanoes (South-West Japan Arc) from the distal Lake Suigetsu record (SG06 core). *Earth-Science Reviews*, 185, 1004-1028, doi: 10.1016/j.earscirev.2018.07.003.
- ② Albert, P.G., Smith, V.C., Suzuki, T., McLean, D., Tomlinson, E.L., Miyabuchi, Y., Kitaba, I., Mark, D.F., Moriwaki, H., SG06 Project Members and Nakagawa, T. (2019) Geochemical characterisation of the Late Quaternary widespread Japanese tephrostratigraphic markers and correlations to the Lake Suigetsu sedimentary archive (SG06 core), *Quaternary Geochronology* 52, 103-131. doi: 10.1016/j.quageo.2019.01.005.
- ③ 町田洋, 新井房夫(2003)新編火山灰アトラス. 東京大学出版会, pp.336.
- ④ Maruyama, S., Hattori, K., Hirata, T. and Danhara, T. (2016) A proposed methodology for analyses of wide-ranged elements in volcanic glass shards in widespread Quaternary tephras. *Quaternary International*, 397, 267-280, doi: 10.1016/j.quaint.2015.06.020.
- ⑤ Smith, V.C., Staff, R.A., Blockley, S.P.E., Ramsey, C.B., Nakagawa, T., Mark, D.F., Takemura, K., Danhara, T. and Suigetsu 2006 Project Members (2013) Identification and correlation of visible tephras in the Lake Suigetsu SG06 sedimentary archive, Japan: chronostratigraphic markers for synchronizing of east Asian/west Pacific palaeoclimatic records across the last 150 ka. *Quaternary Science Reviews*, 67, 121-137, doi: 10.1016/j.quascirev.2013.01.026.

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 2件）

1. 著者名 Maruyama Seiji, Yamashita Tohru, Hayashida Akira, Hirata Takafumi, Danhara Tohru	4. 巻 129
2. 論文標題 Examination of the Relationship between the Ukinuno and Sakate Tephros from Sambe Volcano, Southwest Japan	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Geography (Chigaku Zasshi)	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 Maruyama Seiji, Takemura Keiji, Hirata Takafumi, Yamashita Tohru, Danhara Tohru	4. 巻 35
2. 論文標題 Major and trace element abundances in volcanic glass shards in visible tephros in SG93 and SG06 drillcore samples from Lake Suigetsu, central Japan, obtained using femtosecond LA-ICP-MS	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Quaternary Science	6. 最初と最後の頁 66 ~ 80
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/jqs.3124	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 Suzuki Takehiko, Maruyama Seiji, Danhara Tohru, Hirata Takafumi, Machida Hiroshi, Arai Fusao	4. 巻 35
2. 論文標題 Identification of Lower Pleistocene widespread tephros associated with large caldera forming eruptions in the Tohoku area, north east Japan	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Quaternary Science	6. 最初と最後の頁 316 ~ 333
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/jqs.3162	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 Maruyama Seiji, Takemura Keiji, Hirata Takafumi, Yamashita Tohru, Danhara Tohru	4. 巻 128
2. 論文標題 Petrographic Properties of Visible Tephra Layers in SG93 and SG06 Drill Core Samples from Lake Suigetsu, Central Japan	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Geography (Chigaku Zasshi)	6. 最初と最後の頁 879 ~ 903
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.5026/jgeography.128.879	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 Maruyama Seiji, Makinouchi Takeshi, Hirata Takafumi, Danhara Tohru	4. 巻 58
2. 論文標題 Identification of multiple widespread tephra from the volcanic glass shard chemistry of muddy sediments of the Nohbi Formation, central Japan	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Quaternary Research (Daiyonki-Kenkyu)	6. 最初と最後の頁 333 ~ 348
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.4116/jaqua.58.333	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 Maruyama Seiji, Takemura Keiji, Hirata Takafumi, Iwano Hideki, Yamashita Tohru, Danhara Tohru	4. 巻 57
2. 論文標題 Identification and correlation of tephra from the Plio-Pleistocene Shobudani Group, Kinokawa River, southwest Japan	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 The Quaternary Research (Daiyonki-Kenkyu)	6. 最初と最後の頁 211 ~ 227
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.4116/jaqua.57.211	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 Maruyama Seiji, Danhara Tohru, Hirata Takafumi	4. 巻 456
2. 論文標題 Re-identification of Shishimuta-Pink tephra samples from the Japanese Islands based on simultaneous major- and trace-element analyses of volcanic glasses	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Quaternary International	6. 最初と最後の頁 180 ~ 194
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.quaint.2017.02.024	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5件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 丸山誠史・山下透・林田明・平田岳史・檀原徹
2. 発表標題 テフラ成分の屈折率と化学組成に基づく三瓶浮布テフラと阪手テフラの関係の再検証
3. 学会等名 日本鉱物科学会2019年年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 丸山誠史・竹村恵二・牧野内猛・平田岳史・檀原徹
2. 発表標題 火山ガラスの多元素濃度測定データへの階層型クラスター分析の応用
3. 学会等名 日本第四紀学会2019年大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 丸山誠史・竹村恵二・平田岳史・山下透・檀原徹
2. 発表標題 水月湖コア試料SG06 およびSG93 に含まれるテフラ層中の火山ガラスの元素濃度パターン
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 丸山誠史・森戸茂一・服部健太郎・平田岳史・鈴木毅彦・檀原徹
2. 発表標題 火山ガラス中の含ホウ素微結晶
3. 学会等名 日本鉱物科学会2017年会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 鈴木毅彦・西澤文勝・石村大輔・伊藤美和子・丸山誠史・檀原徹・平田岳史
2. 発表標題 神津島天上山 新島向山テフラの認定・識別に関する再検討
3. 学会等名 日本第四紀学会2017年大会
4. 発表年 2017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	平田 岳史 (Hirata Takafumi)		
研究協力者	檀原 徹 (Danhara Tohru)		