

See discussions, stats, and author profiles for this publication at: <https://www.researchgate.net/publication/294636235>

Natural analogue study on trace element migration in geological formation at Horonobe area, Japan

Article · July 2010

CITATION
1

READS
7

4 authors, including:



Teruki Iwatsuki
Japan Atomic Energy Agency
89 PUBLICATIONS 675 CITATIONS

SEE PROFILE



Eiichi Ishii
Japan Atomic Energy Agency
38 PUBLICATIONS 301 CITATIONS

SEE PROFILE



Takashi Mizuno
Japan Atomic Energy Agency
37 PUBLICATIONS 200 CITATIONS

SEE PROFILE

Some of the authors of this publication are also working on these related projects:



Mizunami URL [View project](#)



Mizunami URL project [View project](#)

Bulletin
of
Atomic Energy Research Laboratory
Tokyo City University
MITR-101 July 2010

ISSN 2185-4025

東京都市大学 原子力研究所 研 究 所 報

通巻 36 号

平成 21 年度
研 究 報 告

東京都市大学・原子力研究所

平成 22 年 7 月

1・1 北海道幌延地域における微量元素を利用したナチュラルアナログ研究

岩月輝希¹⁾，石井英一¹⁾，水野崇¹⁾，本多照幸²⁾

¹⁾ 日本原子力研究開発機構，²⁾ 東京都市大原研

はじめに

わが国においては，原子力発電所から発生する高レベル放射性廃棄物を地下 300m 以深の岩盤に地層処分することになっており，その安全性を示すために様々な調査研究及び技術開発が行われている。地層処分における安全評価シナリオでは，放射性核種を含むガラス固化体やそれを包む炭素鋼製のオーバーパックが千年以上の長期にわたる腐食によって損傷を受けた後，放射性核種が地下水中に溶出し，地下水流動とともに岩盤中を移動し希釈を受けながら，人間の生活環境に達する地下水シナリオを想定しており，それらの一連の現象を解析するために，地下水の流動経路や流動状態，放射性核種の溶解度に関わる地下水の化学的性質，放射性核種の移動経路における鉱物相との反応（吸着・拡散，沈殿など）を調査，解析するための研究技術開発が課題となっている。

一般的に地下深部は地表との物質収支に乏しい系であり，地下水流動速度が非常に遅いと想定されるため，放射性核種の移動は長期にわたるプロセスであることを念頭に置く必要がある。このような長期の移動プロセスについては，長期にわたって放射性核種を保持してきたウラン鉱床を対象としたナチュラルアナログ的観察や様々なモデルによる感度解析的なシミュレーションなどが行われてきた。一方で，ウラン鉱床のように天然の放射性元素が存在しない場所においては，地下水理・化学環境などを踏まえた上で，廃棄物中の放射性核種（ネプツニウム(Np)，プルトニウム(Pu)，アメリシウム(Am)，キュリウム(Cm)など）と類似し，かつ天然環境中に存在する微量元素（プロメチウム(Pm)，サマリウム(Sm)，ユウロピウム(Eu)，ガドリニウム(Gd)など希土類元素(REE)）やウラン(U)，トリウム(Th)などのアナログ元素の分布，移動状態や移動プロセスを調べることで，対象環境における放射性核種の移動について推察することができる。このようなナチュラルアナログ的アプローチは，様々な仮説を経ることなく事実に基づいて移動の有無を判断できるため，最も直接的に長期的な元素の移動の可能性を評価できる方法と言える。

Natural analogue study on trace element migration in geological formation at Horonobe area, Japan

T. Iwatsuki¹⁾, E. Ishii¹⁾, T. Mizuno¹⁾, T. Honda²⁾

1) JAEA, 2) Tokyo City University

*本研究は，日本原子力研究開発機構－東京都市大学間の「アクティブブル・トレーサー法を用いた水－岩石反応における微量元素の分配に関する共同研究」の一環として行われたものである。

また、地下水シナリオに基づく安全評価では、パーティクルトラッキング解析により地下水流動経路や流動状態それに伴う物質の移動を予察する方法が試みられている。ナチュラルアナログによる実際の元素の移動状態の観察に基づく移動経路の明確化は、これらの解析手法にもフィードバックすることができる。

北海道幌延地域では、地質環境の長期変遷やそれに伴う地下水流動、地球化学環境の変遷の研究が行われており、これまでに、深度数百 m の環境条件について、地下水流動が長期的な滞留状態にあること、中性の pH、還元的な化学条件が長期にわたって維持されてきたことなどが明らかになっている（岩月ほか，2009）。本研究では、微量元素の移動状態を指標とした岩盤の元素保持能力の評価手法の事例として、ナチュラルアナログ的観点から微量元素の分布状態を観察し、その移動について考察した。

研究対象領域の概要とアプローチ

研究対象地域には、新第三系の稚内層（主にオパール CT よりなる珪質泥岩）、声問層（主にオパール A よりなる珪藻質泥岩）が分布しており（図 1）、地表踏査や物理探査、ボーリング孔（深度約 500～1,000 m 級 11 本）を利用した地質調査、地下水理・採水調査などにより、地史や地質環境特性が評価されている（太田ほか，2007）。

声問層、稚内層は、珪藻を主体とする海成層であり、珪藻起源のケイ酸が主要成分であり、主な構成鉱物は石英、オパール A、オパール CT、斜長石、ス멕タイト、カオリナイト、イライト、緑泥石、黄鉄鉱、シデライト、ゲータイト、方解石、マグネサイトなどであり、ケロジェン、ビチューメンなどの有機物を挟在する。その構成割合は、石英、オパール A、オパール CT が主であり、その他の鉱物は粒間を埋めるように存在している（平賀・石井，2008）。

地下水は、塩分濃度が海水の 1/3～1/2 程度であり、地層堆積時に間隙中に存在した海水がその後のさまざまなプロセスにより変質した化石海水であり（Hama *et al.*, 2007）、現海水の化学組成と比較すると、カリウム、マグネシウム、硫酸イオン濃度が大きく減少し、無機・有機炭素、臭素、ヨウ素、ホウ素、アンモニウムイオンが海水の数倍～数十倍の割合で付加されているという水質進化が認められる。また、地質・地質構造や地下水流動特性、地球化学特性に関わる様々なプロセスやその相互関連、長期変遷のシナリオに関わる研究により、現在の水理地質特性が、数十万年～数百万年間にわたる時間スケールの地質プロセスにより形成されており、透水性の低い地下深部は、浅部に比べて地下水流動が滞留的で、地表の気候変動やそれに伴う表層地形の変化の影響が及びにくい水理環境にあったと推測されている（岩月ほか，2009）。

このような環境において、各ボーリング孔で得られた XRD、XRF による鉱物・化学組成分析、ICP-MS、放射化分析によるアナログ元素分析結果に基づき、アナログ元素の分布状態に不均質性はあるか？断層など地質構造、地下水流動や地球化学環境とアナログ元素濃度の関連性はあるか？という観点でアナログ元素の分布、移動状態の解析、考

察を行った。

結果・考察

① 健岩部のアナログ元素の分布状態と大局的な移動

声問層、稚内層の健岩部の REE、U、Th 濃度を図 2 に示す。Ce で 25mg/kg、Nd で 15mg/kg 程度のバラツキがあるものの、その他の元素濃度のバラツキは小さく地層間の違いや深度依存性は認められず、比較的均質な分布状態であることが明らかになった。

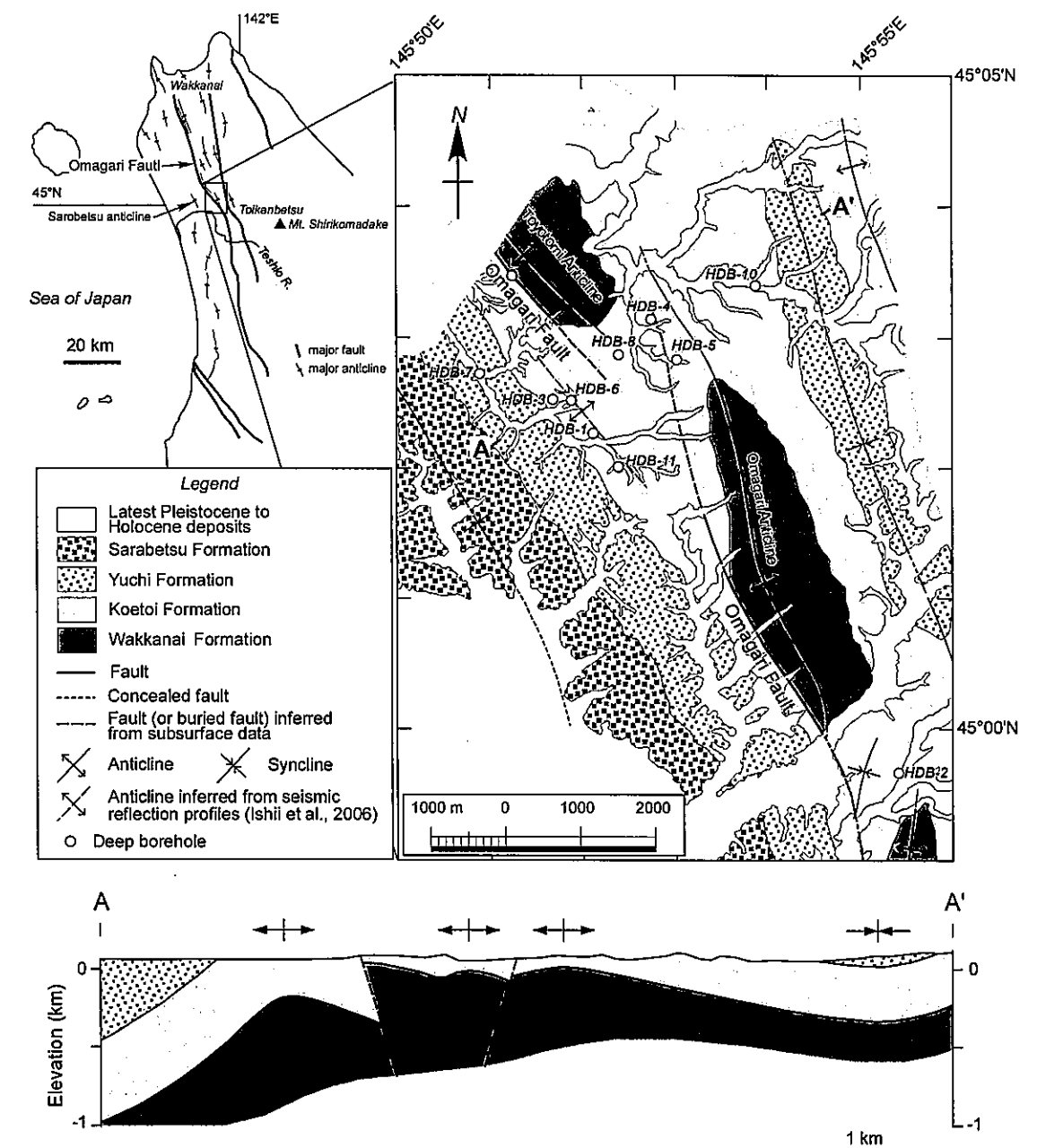


図 1 研究対象地域の地質概要（石井ほか，2008）

これらの元素間の相関を把握するため、主要・微量化学成分濃度間の相関解析を行った（表1）。なお、相関解析に用いた試料数は152試料であり、便宜的に相関係数の絶対値0.5以上を相関を有するとして考察した。

主要化学成分ではマンガン(Mn)、マグネシウム(Mg)、カルシウム(Ca)濃度がリン酸(P_2O_5)、無機炭酸濃度(TIC)と正の強い相関性を示す。これは声問層、稚内層中に普遍的に存在する炭酸塩ノジュール中の炭酸マンガン($MnCO_3$)、炭酸マグネシウム($MgCO_3$)、方解石($CaCO_3$)などを反映していると考えられる。また、リン酸との相関性も高いことから、リン酸塩としてマンガン、マグネシウム、カルシウムの一部が存在していると推測される。

REEと主要化学成分濃度との相関については、チタン(Ti)、アルミニウム(Al)、カリウム(K)の濃度と正の相関が認められた。地層中においてK、Alを含む鉱物は、カリ長石、イライトなどの粘土鉱物である。声問層、稚内層が陸域から供給された細屑物と海水中から沈積した珪藻を主体とする堆積岩で、有機物濃度やヨウ素、ホウ素イオン濃度に違いが認められるものの、その他の化学成分濃度はほぼ一様であることを踏まえると、粘土鉱物の沈降とともに堆積したREEが、均質な堆積環境を反映して岩石中に存在していると考えられる。

ThについてはAlと、Uについては全炭素濃度(TC)と相関が認められた。REEおよびTh濃度がAl濃度と相関を示し、声問層、稚内層でほとんど違いが無いのに対して、U濃度はAl濃度と相関を示さず、声問層の方が稚内層よりわずかに高い濃度を示している。相関係数表から、U濃度は有機炭素濃度と正の相関が認められる。声問層の方が稚内層よりも有機炭素(TOC)濃度が高い傾向があり（岩月ほか、2009）、U濃度も同様の傾向を示していることから、健岩部においてUは岩石中に豊富に存在する有機物に吸着していると考えられる。

以上のことから、ボーリング調査を行った十数kmスケールの広域領域においてREE、Th、Uの分布に大局的な不均質性はなく、広域領域で顕著な移動は起こっていないものと判断できる。また、これらの元素濃度の均質性が堆積環境を反映していると考ええると、地層堆積から現在までの数百万年間にわたって、各元素の不均質性を引き起こすほどの移動は生じていないといえる。

各元素の移動が生じなかった理由としては、地層堆積時の閉鎖的環境の形成が挙げられる。地層堆積時に、陸源細屑物や海水中に含まれていたREE、Th、Uは、地層形成過程でより深部へ埋没していく。埋没過程では、温度、圧力環境が徐々に変化し、圧密により鉱物粒子間の空隙率が徐々に小さくなり、水や溶存イオンの移動（移流・拡散）が抑制されるようになる。また、この過程でオパールの変質や有機物の熟成・分解、粘土鉱物の脱水反応など様々な続成作用を経ることになる。粘土鉱物については、埋没に伴いスメクタイトからイライトやクロライトへの鉱物変化が起こり、各元素濃度はイライトなど粘土鉱物の構成元素と相関性を増すことになる。

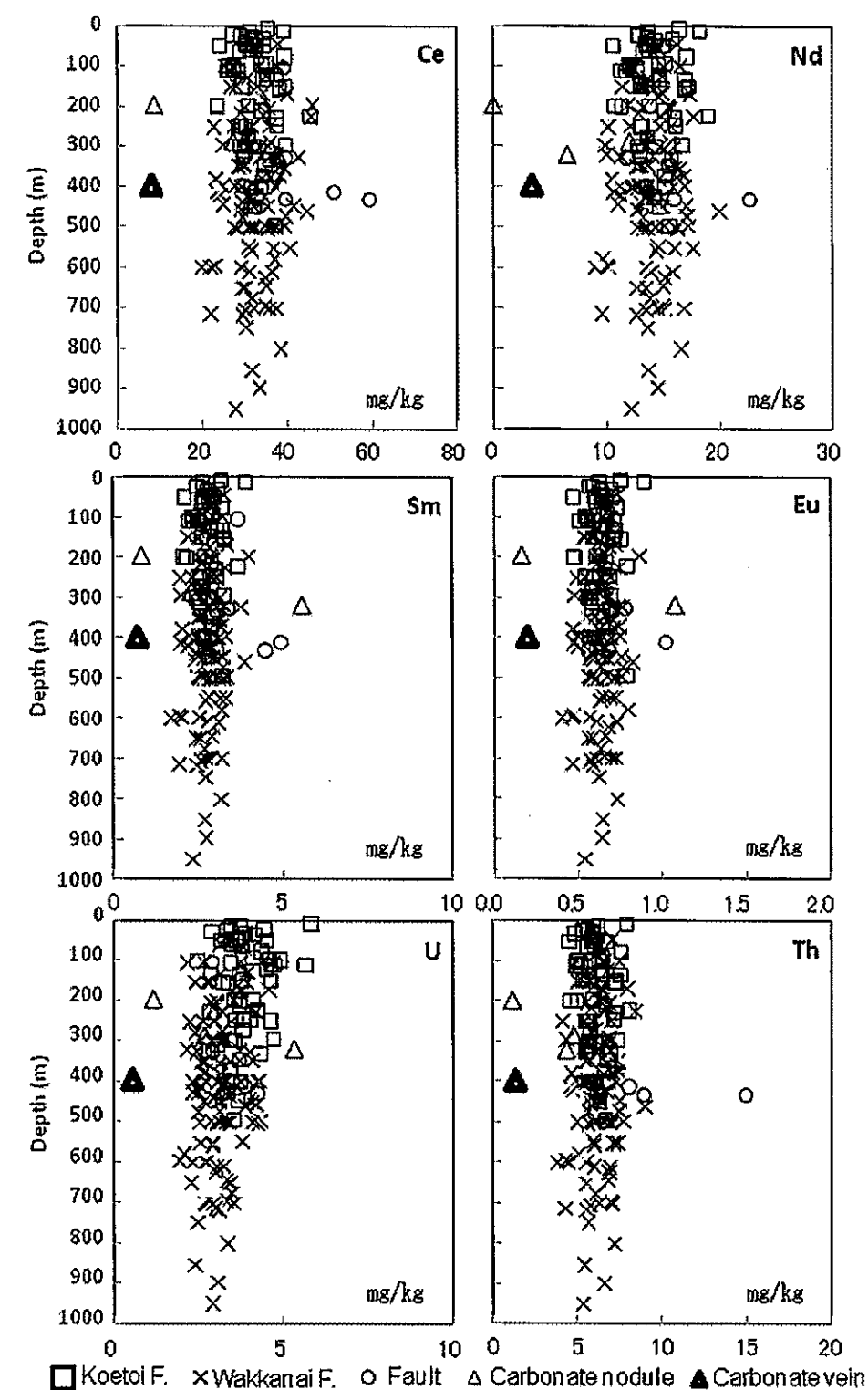


図2 声問層・稚内層における微量元素濃度分布

Depth(m)	SiO ₂	TiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	MnO	MgO	CaO	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅	TiC	Total C	TOC	Y	La	Ce	Pr	Nb	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu	Th	U	
1.00	1.00																														
0.04	0.04	0.21	0.82	1.00																											
SiO ₂	-0.01	-0.21	0.82	1.00																											
TiO ₂	-0.01	-0.13	0.82	1.00																											
Al ₂ O ₃	-0.06	-0.39	0.18	0.32	1.00																										
Fe ₂ O ₃	0.14	-0.19	0.46	0.22	-0.17	1.00																									
MnO	0.06	-0.56	0.12	-0.19	-0.21	0.33	1.00																								
MgO	0.04	-0.82	-0.30	-0.20	-0.04	0.12	0.70	1.00																							
CaO	0.01	-0.80	-0.39	-0.32	-0.04	0.04	0.72	0.91	1.00																						
Na ₂ O	0.46	0.18	0.54	0.47	-0.14	0.49	-0.08	-0.26	-0.37	1.00																					
K ₂ O	0.01	0.30	0.90	0.38	-0.26	0.42	0.09	-0.06	-0.40	0.54	1.00																				
P ₂ O ₅	0.05	-0.64	-0.06	-0.23	-0.22	0.35	0.81	0.86	0.79	-0.07	-0.05	1.00																			
TiC	0.02	-0.80	-0.38	-0.33	-0.05	0.02	0.72	0.95	0.99	-0.36	-0.39	0.82	1.00																		
Total C	-0.00	-0.38	-0.33	-0.05	0.02	0.72	0.95	0.99	-0.36	-0.39	0.82	1.00																			
TOC	-0.20	0.24	0.25	-0.04	-0.02	-0.17	-0.38	-0.32	0.06	0.26	-0.25	-0.34	0.59	1.00																	
Y	-0.11	0.14	0.73	0.57	0.05	0.13	-0.06	-0.34	-0.36	0.32	0.69	-0.20	-0.37	0.27	-0.02	1.00															
La	0.00	-0.04	0.56	0.83	0.31	0.06	-0.23	-0.35	0.35	0.44	-0.26	-0.34	0.56	-0.11	0.78	1.00															
Ce	-0.01	-0.04	0.56	0.83	0.31	0.06	-0.23	-0.35	0.35	0.44	-0.26	-0.34	0.56	-0.11	0.78	0.99	1.00														
Pr	-0.03	-0.03	0.55	0.83	0.29	0.06	-0.22	-0.34	0.34	0.47	-0.30	-0.37	0.56	-0.03	0.82	0.98	0.99	1.00													
Nb	-0.03	-0.03	0.61	0.82	0.28	0.08	-0.22	-0.33	0.35	0.50	-0.30	-0.38	0.59	-0.10	0.85	0.98	0.98	0.99	1.00												
Sm	-0.06	-0.01	0.58	0.82	0.28	0.08	-0.21	-0.32	-0.38	0.52	-0.26	-0.38	0.61	-0.03	0.84	0.97	0.97	0.99	1.00												
Eu	-0.06	0.10	0.70	0.66	0.12	0.10	-0.14	-0.32	-0.38	0.52	-0.26	-0.38	0.61	-0.03	0.84	0.97	0.97	0.99	1.00												
Gd	-0.09	0.01	0.74	0.25	0.04	-0.00	-0.22	-0.31	-0.36	0.51	0.36	-0.27	-0.39	0.13	-0.06	0.85	0.86	0.89	0.91	0.93	0.95	0.94	1.00								
Tb	-0.09	0.04	0.56	0.76	0.25	0.00	-0.22	-0.31	-0.36	0.51	0.36	-0.27	-0.39	0.13	-0.06	0.85	0.86	0.89	0.91	0.93	0.95	0.94	0.96	0.87	0.97	0.98	1.00				
Dy	-0.06	0.07	0.63	0.74	0.19	0.06	-0.18	-0.33	-0.39	0.51	0.36	-0.27	-0.39	0.13	-0.06	0.85	0.86	0.89	0.91	0.93	0.95	0.94	0.96	0.87	0.97	0.98	1.00				
Ho	-0.11	0.11	0.66	0.67	0.11	0.11	-0.13	-0.34	-0.39	0.53	0.34	-0.23	-0.38	0.23	-0.06	0.85	0.86	0.89	0.91	0.93	0.95	0.94	0.96	0.87	0.97	0.98	1.00				
Er	-0.09	0.15	0.71	0.59	0.06	0.10	-0.09	-0.33	-0.37	0.53	0.34	-0.23	-0.38	0.24	-0.02	0.88	0.90	0.90	0.94	0.95	0.96	0.96	0.96	0.88	0.91	0.95	0.98	1.00			
Tm	-0.09	0.10	0.76	0.54	0.06	0.14	-0.05	-0.33	-0.37	0.53	0.34	-0.23	-0.38	0.24	-0.02	0.88	0.90	0.90	0.94	0.95	0.96	0.96	0.96	0.88	0.91	0.95	0.98	1.00			
Yb	-0.10	0.17	0.73	0.47	-0.00	0.14	-0.09	-0.31	-0.34	0.50	0.34	-0.23	-0.38	0.24	-0.02	0.88	0.90	0.90	0.94	0.95	0.96	0.96	0.96	0.88	0.91	0.95	0.98	1.00			
Lu	-0.11	0.17	0.75	0.41	-0.06	0.12	-0.05	-0.27	-0.29	0.28	0.75	-0.10	-0.35	0.33	0.05	0.98	0.76	0.74	0.74	0.74	0.74	0.74	0.74	0.74	0.74	0.74	0.74	0.74	0.74	0.74	
Th	-0.03	-0.13	0.41	0.90	0.38	0.05	-0.26	-0.20	-0.31	0.35	0.26	-0.27	-0.31	-0.05	-0.11	0.41	0.94	0.85	0.93	0.91	0.89	0.73	0.83	0.80	0.72	0.84	0.58	0.53	0.46	1.00	
U	-0.39	0.13	0.21	0.26	-0.30	-0.28	-0.32	-0.29	-0.27	-0.27	-0.32	-0.27	-0.31	-0.05	-0.11	0.41	0.94	0.85	0.93	0.91	0.89	0.73	0.83	0.80	0.72	0.84	0.58	0.53	0.46	0.99	

表 1 主要・微量元素濃度間の相関係数

②炭酸塩部・断層部のアナログ元素の分布状態

図 2 において、一部の断層部、炭酸塩部（ノジュールと割れ目充填部）の REE, U, Th 濃度は、声問層、稚内層の健岩部のパラッキの範囲外にプロットされている。そのため、健岩部と地下水流動状態が異なる可能性のある断層部や化学環境が異なる可能性のある炭酸塩鉱物周辺の REE, U, Th 濃度について考察した。図 3 は岩石の変質により溶脱などが起こりにくい Al の濃度に対して各元素濃度をプロットしたものである。健岩部の REE, Th 濃度と Al 濃度は強い相関があり、REE, Th の存在場所が主に Al を主成分とするケイ酸塩鉱物だとすると、REE, Th 濃度はケイ酸塩鉱物（見掛け上 Al 濃度）の量比に影響を受けることになる。したがって、健岩部の Al 濃度と各元素濃度の相関線上にプロットされる断層部、炭酸塩部の分析値は、断層部や炭酸塩部に特有の傾向というよりむしろ分析に用いた試料に含まれていたケイ酸塩鉱物の量比を反映しているものと推察される。したがって、各元素の移動状態については、健岩部の相関線上に位置するか否かを判別して、その要因を考察する必要がある。

相関線から外れる試料については、健岩部の濃度を基準として Al を含むケイ酸塩鉱物、REE, Th の増減を考察することができる。健岩部と比較して相対的に Al 濃度が高くなる試料については、Al を含むケイ酸塩鉱物の割合が増加しており、健岩部より各元素の濃度が高くなれば元素が付加、低くなれば元素が溶脱していることを示す。

炭酸塩部におけるアナログ元素の移動について

炭酸塩部については、堆積岩形成時の初期続成過程で形成されたと考えられる炭酸塩ノジュールと二次的に割れ目を充填して生成した脈状沈殿物があり、それぞれの形成プロセスを踏まえた上で考察する必要がある。炭酸塩ノジュール中のアナログ元素濃度は、地層堆積直後の元素の移動を反映しており、炭酸塩脈中のアナログ元素濃度は炭酸錯体として地下水中に溶存・沈殿する過程の元素の移動を反映している可能性がある。

図 3 において炭酸塩部の試料は、Al を含むケイ酸塩鉱物の割合が低くなるため、健岩部に比べて Al 濃度が小さくなっている。炭酸塩脈の REE, Th 濃度は、健岩部の相関線上に位置することから、分析に用いた炭酸塩脈試料に含まれていたケイ酸塩鉱物を反映した濃度であると考えられる。

REE 全体の挙動について考察するため、REE 濃度と Cl コンドライトで規格化した濃度パターンを図 4 に示す。なお、図 4 では、図 3 において健岩部の相関線付近にプロットされる試料と相関線から外れてプロットされる試料を分けて示している。規格化した濃度パターンを見ると健岩部の試料は、Eu が負の異常を示す特徴がある。炭酸塩脈の REE コンドライト規格化パターンは、REE 濃度が健岩部に比べ低いため健岩部の範囲を外れるものの、Eu が負の異常を示し健岩部と同様のパターンを示している（図 4）。また、健岩部に比べ有意に REE, U, Th 濃度も高くないことから、炭酸-REE/U/Th 錯体として地下水中を移動し、炭酸塩脈として沈殿した量は少なく、アナログ元素の移動

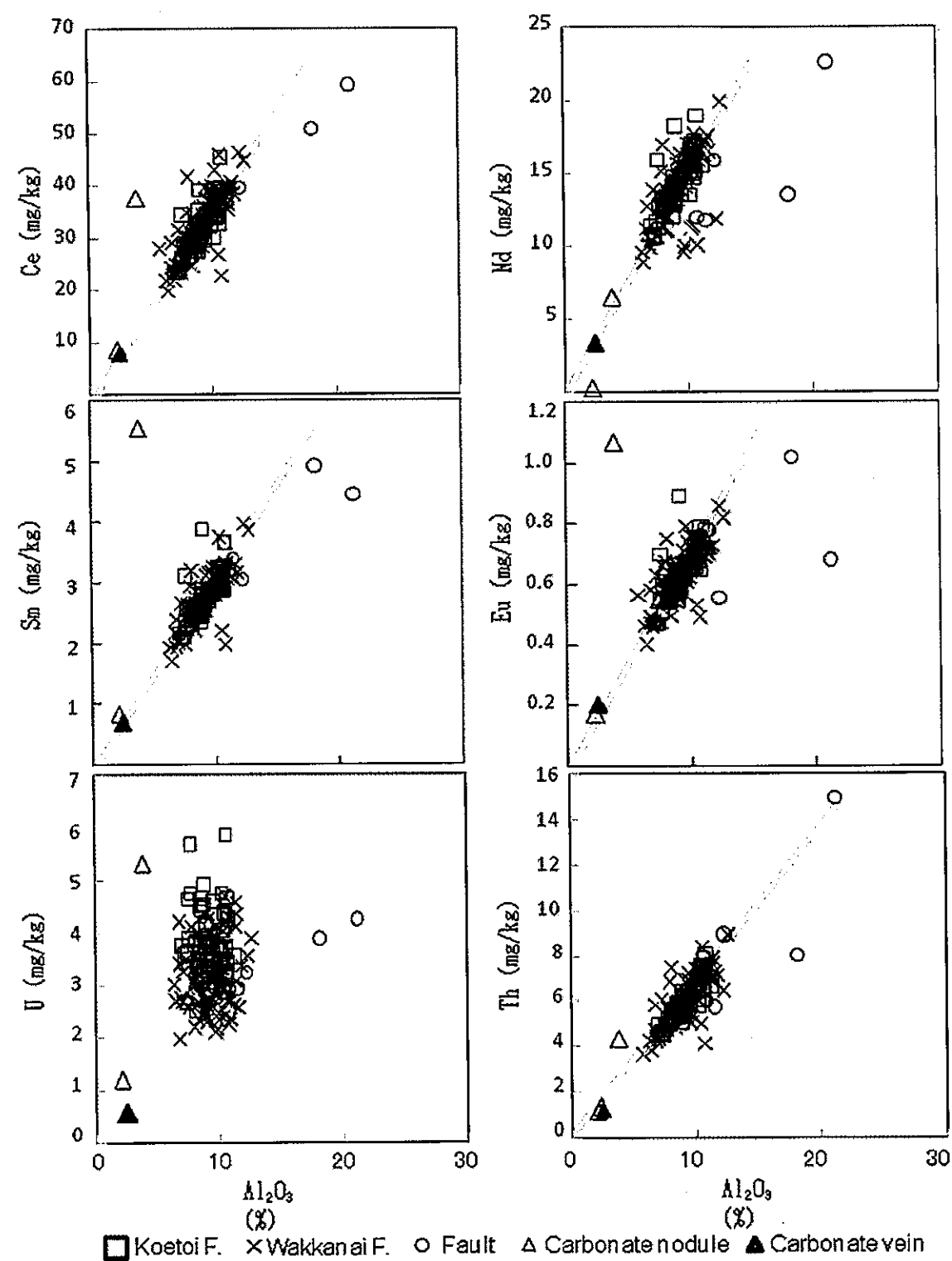


図3 各微量元素とAl濃度の相関

プロセスとして重要性は低いものと判断できる。

炭酸塩ノジュールについては、健岩部の相関線上にプロットされる試料と相関線を外れかつ健岩部に比べ有意にREE濃度が高い試料がある(図3)。健岩部の相関線上にプロットされる試料のコンドライト規格化パターンは、健岩部の範囲内で同様のパターンを示しており、相関線を外れかつ健岩部に比べ有意にREE濃度が高い試料は、Sm, Euの他にジスプロジウム(Dy), イッテルビウム(Yb)など重REE濃度が健岩部と比較して突出して高い値を示す(図4)。

炭酸塩ノジュールは、地層堆積直後の続成過程において、貝化石などの集積部が核となり、炭酸塩鉱物が溶解・沈殿を繰り返して形成されている。そのため、生物起源の炭酸塩の初期のREE特性とその溶解・再沈殿過程におけるpHの変動に伴う周辺の岩石基質部との元素の移動・再分配プロセスを反映した濃度特性となっている可能性がある。これらのプロセスは、地層堆積初期のものであり、地層処分に関わるアナログ元素移動プロセスとしての重要性は低いと考えられる。

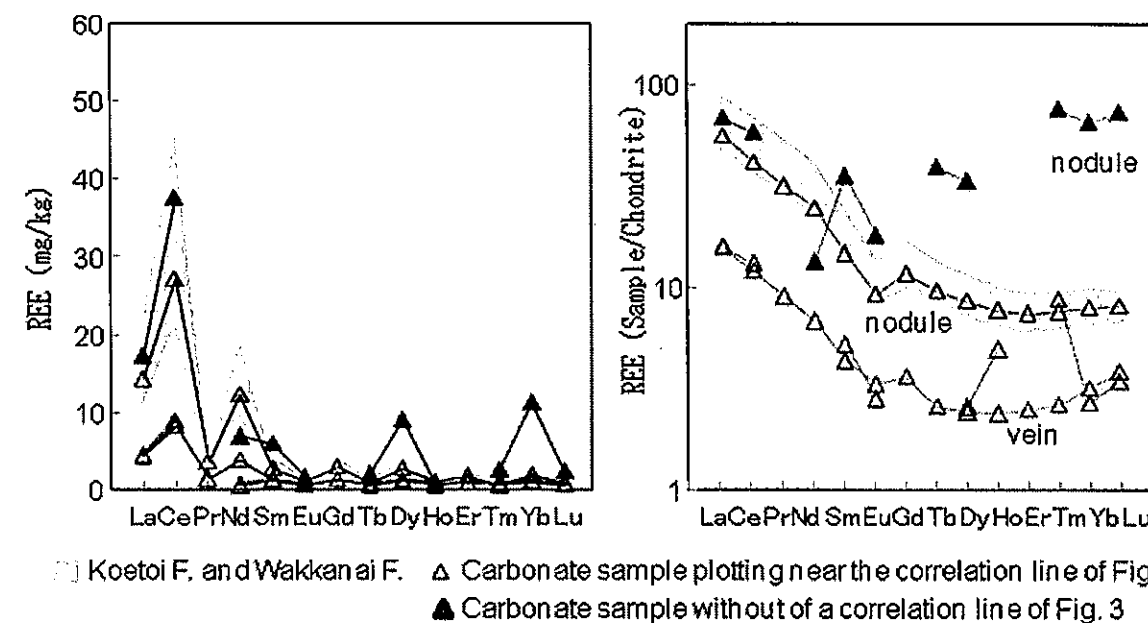


図4 健岩部と炭酸塩部におけるREE濃度とコンドライト規格化パターン

断層部におけるアナログ元素の移動について

図3において断層部の試料は、粘土鉱物の割合が高くなるため、粘土鉱物に相対的に多く含まれるAlの濃度が高くなっている。また、REE, Th濃度は健岩部と同様もしくは高い傾向があり、一部の試料は、健岩部の相関線から外れて健岩部より有意に高いREE, Th, Al濃度でプロットされる。主要元素の組成をみると、断層部は健岩部に比べAl濃度のみならずNa, Ca, Mg濃度も相対的に増加している(図5)。これらのこ

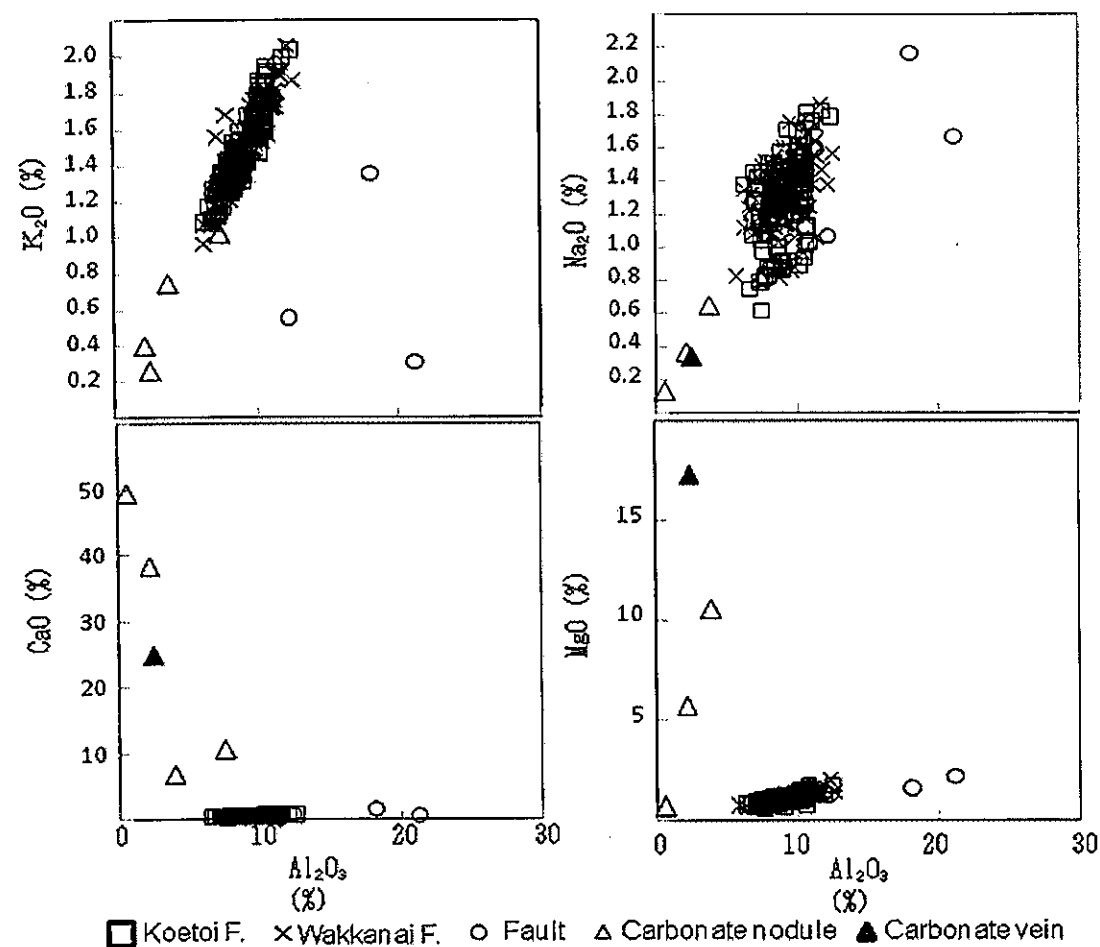


図5 各試料の主要元素濃度

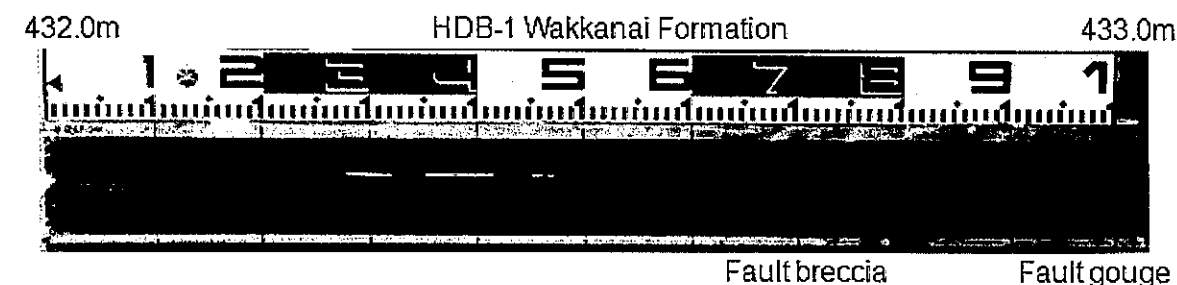
とから、SiO₂が大部分を占める硅質岩において、断層部の粘土鉱物化が進んで相対的にAlを含むケイ酸塩鉱物の割合が増加したことが伺える。

断層部におけるアナログ元素の分布については、特に健岩部よりも高いREE, Th濃度が認められた断層部の試料を対象として、その直近の健岩部の試料のデータを比較して解析することで、より詳細な移動状態の考察を試みた。図6に検討対象とした断層試料

(断層角礫部・粘土部)の写真、鉱物組成、主要・微量元素濃度を示す。断層角礫部、断層粘土部は直近の健岩部に比べて石英、オパールCT、斜長石の量比が減少し、相対的に粘土鉱物(スメクタイト)の量比が増加しており、断層部の変質(粘土鉱物化)が進んでいることが分かる。酸化還元状態の指標となるCe/U-Th/U比やFe₂O₃/FeO比

(図7)は、断層部の試料が健岩部と比較して酸化的もしくは酸性のpH条件になった可能性を示唆している。なお、Fe₂O₃/FeO比は断層粘土部よりも断層角礫部の方が相対的に酸化的環境になったことを示しており、Fe濃度が黄鉄鉱(FeS₂)の量比の違いを踏まえても断層粘土部よりも断層角礫部の方が有意に高くなっている。そのため、Feに関しては断層粘土部よりもむしろ断層角礫部に濃集しているといえる。REE, Th濃

度は、健岩部から断層角礫部、断層粘土部の順に高くなっている(図6, 8)。また、U濃度は、断層角礫部と健岩部の値は同等であるが、断層粘土部において高くなっている。断層角礫部、断層粘土部のコンドライト規格化パターンは、La~Hoが健岩部よりも高め、Er~Luが低めにプロットされる傾向がある(図8)。断層粘土部のREE, Th, Uの増加については、断層活動時(産状から複数回あったと推察される)に岩石の変質に伴い酸化的もしくは酸性のpH条件になるとともに、REE, Th, Uが地下水中に放出され、イオン交換や物理的なプロセスにより粘土鉱物へ吸着、蓄積した可能性がある。



Mineral composition

	Depth (m)	Qtz	OCT	Pl	Afs	Sm	Ill	Chl	Kln	Py	Gp	Ja	Le	Ma
Fresh	424.0	14.1	3.4	2.5	0.9	0.4	0.7	0.2	0.2	0.8	0.6			
Breccia	432.7	3.3	0.4	0.7		2.1				2.4	0.4	0.7		2.7
Gouge	432.9	6.6	1.3	2.1	0.6	6.6	0.3	0.1	0.1	1.4	2.6		0.5	0.6

Qtz: quartz, OCT: opal-CT, Pl: plagioclase, Afs: alkali feldspar, Sm: smectite, Ill: illite, Chl: chlorite, Kln: kaolinite, Py: pyrite, Gp: gypsum, Ja: jarosite, Le: lepidocrocite, Ma: marcasite

Chemical composition (wt. %)

	Depth (m)	SiO ₂	TiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	FeO	MnO	MgO	CaO	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅	TIC	TOC	SO ₃
Fresh	401.0	74.78	0.37	7.94	1.83	0.91	0.02	0.97	0.40	1.31	1.25	0.05	0.61	0.59	0.23
Fresh	422.0	77.14	0.31	6.72	1.88	0.73	0.01	0.77	0.35	1.25	1.10	0.05	0.51	0.79	0.20
Fresh	436.1	72.01	0.43	9.37	1.95	1.20	0.02	1.19	0.47	1.46	1.49	0.07	0.77	0.53	0.17
Breccia	432.7	40.18	0.24	12.20	16.73	2.06	0.01	1.22	0.85	1.07	0.55	0.03	0.25	0.65	4.83
Gouge	432.9	56.00	0.23	21.18	4.32	0.65	0.00	2.14	0.53	1.67	0.30	0.03	0.03	0.37	0.71

Trace element composition (mg/kg)

	La	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu	Th	U
Fresh	14.00	28.40	3.31	12.34	2.40	0.55	2.32	0.34	2.10	0.41	1.17	0.18	1.29	0.19	5.35	3.08
Fresh	12.64	24.38	2.90	11.23	2.17	0.49	2.02	0.32	1.95	0.38	1.07	0.16	1.14	0.17	4.76	3.41
Fresh	16.11	31.77	3.74	13.87	2.74	0.62	2.67	0.40	2.40	0.46	1.36	0.21	1.47	0.22	6.25	3.40
Breccia	19.25	39.62	4.40	15.89	3.05	0.56	2.99	0.43	2.38	0.41	1.08	0.16	1.02	0.15	8.97	3.22
Gouge	27.37	59.34	6.39	22.62	4.47	0.68	3.99	0.59	3.27	0.55	1.28	0.17	1.07	0.13	14.98	4.24

図6 断層の概要と断層周辺の鉱物組成、化学組成

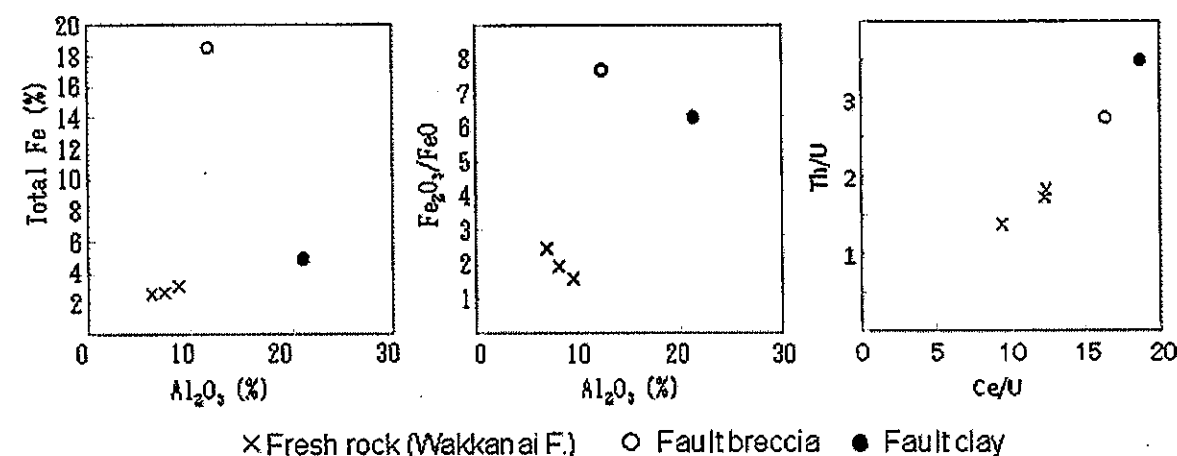


図 7 断層と断層周辺の酸化還元状態

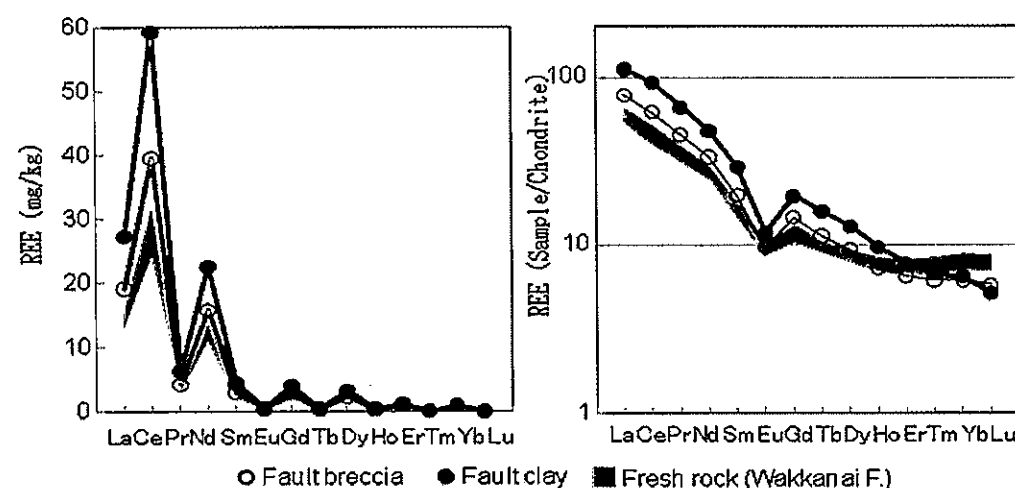


図 8 健岩部と断層部における REE 濃度とコンドライト規格化パターン

まとめ

声問層、稚内層においては、大局的なアナログ元素の不均質性は認められなかった。また、炭酸塩脈においては、REE, U, Th とともに濃集が認められず、炭酸錯体としての元素の移動プロセスの重要性は低いと考えられた。一方、一部の炭酸塩ノジュールにおいては、健岩部より高い Sm, Eu, U 濃度が認められたが、その成因を考慮すると、アナログ元素の移動経路という観点で重要性は低いと考えられた。

断層粘土部においては、REE, U, Th の濃集が認められ、特に Pu, Am のアナログ元素である Sm, Eu を含む La から Ho までの軽 REE が断層部の粘土鉱物に濃集していると考えられた。断層部は、アナログ元素の移動経路という観点で重要性が高いが、断層部におけるアナログ元素の濃集が起こった時期が断層形成時である場合は、アナログ元素の移動経路という視点ではなく、断層形成時のアナログ元素移動プロセスとして考

える必要がある。一方、各元素が断層形成後に断層周辺を流れる地下水から徐々に粘土鉱物に蓄積したと推察される場合は、地下水と断層中の粘土鉱物間の元素分配係数や粘土鉱物の元素収着（吸着・沈殿および岩石基質内への拡散）能力が重要な調査研究課題となる。Ce を例にとると一部の断層粘土部は健岩部に比べ 2 倍近い濃集が認められ、長期にわたって地下水から元素が蓄積した可能性がある。また、このような断層はアナログ元素の蓄積が認められない断層に比べ、より重要な元素の移動経路といえる。

REE や U, Th をアナログ元素としたナチュラルアナログ研究手法は、元素の移動経路（特に複数の断層や割れ目において、移動経路としてより重要な地質構造）を明確にする上で適用性が高く、最初に Ce/U-Th/U 比を把握した上で、相対的にそれらの値の高い地質構造に焦点を当て、その周辺の健岩部を含めて、REE 全体の濃度を把握することで、効率的かつ費用対効果の高い調査研究を実施できる。

今後は、地下水中的のアナログ元素濃度やその化学形に基づいた理論解析やマスバランス解析、地下水流動解析などにより、アナログ元素の移動速度（フラックス）に関わる考察を行っていく予定である。

引用文献

- Hama, K., Kunimaru, T., Metcalfe, R. and Martin, A.J. (2007): The hydrogeochemistry of argillaceous rock formations at the Horonobe URL site, Japan. *Physics and Chemistry of the Earth*, 32, 170-180.
- 平賀正人, 石井英一(2008): 幌延深地層研究計画(第1段階)において採取されたボーリングコアの鉱物組成・全岩化学組成及び地表ガスの化学組成. 日本原子力研究開発機構技術資料, JAEA-Data/Code 2007-022.
- 石井英一, 安江健一, 大平寛人, 古澤 明, 長谷川健, 中川光弘(2008): 北海道北部, 大曲断層近傍の背斜成長の開始時期, 地質学雑誌, 114(6), 286-299.
- 岩月輝希, 石井英一, 新里忠史(2009): 北海道幌延地域における深部地球化学環境の長期変遷シナリオの構築, 地学雑誌, 118(4), 700-716.
- 太田久仁雄, 阿部寛信, 山口雄大, 國丸貴紀, 石井英一, 操上広志, 戸村豪治, 柴野一則, 濱 克宏, 松井裕哉, 新里忠史, 高橋一晴, 丹生屋純夫, 大原英史, 浅森浩一, 森岡宏之, 舟木泰智, 茂田直孝, 福島龍朗(2007): 幌延深地層研究計画における地上からの調査研究段階(第1段階)研究成果報告書分冊「深地層の科学的研究」, JAEA-Research, 2007-044.