

## 放射光 X 線分析による日本全国の土砂試料の重鉱物・重元素データベースの開発 Development of Heavy Minerals and Trace Heavy Elements Database of Soils from Japan by Using SR X-ray Analysis.

古谷 俊輔<sup>1\*</sup>, 黄 嵩凱<sup>1</sup>, 鈴木 裕子<sup>1</sup>, 阿部 善也<sup>1</sup>, 河野 由布子<sup>1</sup>, 中井 泉<sup>1</sup>, 大坂 恵一<sup>2</sup>, 松本 拓也<sup>2</sup>, 今井 登<sup>3</sup>, 二宮 利男<sup>2</sup>

Shunsuke Furuya<sup>1\*</sup>, Willy Bong Shun Kai<sup>1</sup>, Hiroko Suzuki<sup>1</sup>, Yoshinari Abe<sup>1</sup>, Yuko Kawano<sup>1</sup>, Izumi Nakai<sup>1</sup>, Keiichi Osaka<sup>2</sup>, Takuya Matsumoto<sup>2</sup>, Noboru Imai<sup>3</sup>, Toshio Ninomiya<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 東理大, <sup>2</sup> 高輝度光科学研究センター, <sup>3</sup> 産総研

<sup>1</sup>Tokyo Univ. of Sci., <sup>2</sup>JASRI, <sup>3</sup>AIST

【はじめに】土砂の鉱物組成や化学組成は、その採取地域の地質を反映することから、法科学において事件に関係した場所を推定する重要証拠として使われる。従来は、偏光顕微鏡による鉱物同定が行われてきたが、同定には経験と技術が必要とし特定の専門家以外は困難であった。そこで、多くの経験を必要としない客観的手法に基づき、日本全国の土砂の地域推定ができるデータベースの開発がもてられていた。鉱物同定は粉末回折法が有用であるが、多数の鉱物の混合物である土砂は、分解能の悪い実験室系の回折装置では困難であった。また、土砂の重元素組成は地域の特性化に有効であるが、通常の EPMA や蛍光 X 線分析装置では重元素に対する感度が低く、微量重元素組成をもとめることはできない。特に法科学では靴についた土砂など、極微量試料からの特性化が求められることから、本研究では、極微量試料で鉱物組成と重元素組成の分析が可能で、放射光粉末回折法と高エネルギー放射光蛍光 X 線分析の導入をめざした。試料は、産業技術総合研究所地質調査情報センターの元素の地球化学図の作成に使われた、日本全国 3024 力所の土砂試料を用いた。このような多数試料の放射光分析データの収集は、1 試料を 10 分程度で測定可能な SPring-8 の全自動測定システムを用いることで初めて可能になった。本研究は、法科学を目的としたデータベースの作成で、放射光分析技術を用いた世界初の試みであり、極微量の土砂を用いて、迅速に日本全国のどの地域の土砂であるかを特定することが期待される。また、作成したデータベースは農産物などの産地推定や、地球科学の研究のためのデータベースなど、様々な応用が期待される。

【方法】放射光粉末 X 線回折法のための測定試料はテトラブromoエタン (比重: 2.82) を用いて重鉱物分離したものをを用いた。得られた重鉱物はめいの乳鉢で粉碎後、0.3 mm 径のガラスキャピラリーに封入した。SPring-8 BL19B2 にて全自動放射光粉末 X 線回折システムを用いて、デバイシェラー法により測定した。測定条件は波長 = 1.0 Å、露光時間 10 分、検出器としてイメージングプレート (IP) を用いた。一方、SEM-EDS 分析により、化学組成から 1 粒ずつ重鉱物の同定を行った。高エネルギー蛍光 X 線分析は、前処理なしで土砂試料をめいの乳鉢で磨り潰し、厚さ 6 μm のポリプロピレン膜に封入、SPring-8 BL08W にて励起エネルギー 116 keV、ビーム径 0.5 × 0.5 mm<sup>2</sup>、測定時間 10 分、検出器として Ge 半導体検出器を用いて測定を行った。これまでに、関東地方 (n=229)、信越地方 (n=42)、東海地方 (n=219)、近畿地方 (n=182)、中国地方 (n=24) の測定を終了している。

### 【結果と考察】

放射光の高エネルギー・高輝度・高指向性の X 線を用いたことにより、回折ピークの半値幅が狭く、高分解能な XRD データが得られた。このようなデータは定量分析のためのリートベルト法を用いた多相解析に用いることができた。今回関東地方の重鉱物、重元素の分布について例を示す。一般的に関東地方の地質は関東平野と関東山地の 2 つに大別することができる。関東平野は火山灰を多く含んだ第四期の堆積岩に覆われ、関東山地では低温高压型変成を受けた三波川変成帯、古生代シルル紀～中生代白亜紀の秩父帯と堆積岩類・花崗岩類・火山岩類等様々な地層を含んだ四万十帯からなり、地質の特徴が異なる。関東平野の重鉱物の XRD パターンは単斜輝石、斜方輝石、角閃石が主であり、これらは火山起源の重鉱物である。一方、関東山地の重鉱物は緑簾積、角閃石、単斜輝石、その他の重鉱物を含んでいた。また、高エネルギー蛍光 X 線分析のデータに関しては関東平野と関東山地の試料で重元素に関してスペクトルが大きく異なった。図 1 は関東平野の地質である千葉地域の異なる 4 点の土砂採取地の HE-XRF スペクトルである。4 点とも関東平野の地質を持つため、XRD パターンはほぼ同一であるが、XRF スペクトルから Hf、W といった人為的要因で混入する可能性もある重元素の濃度に違いが見られた。よって、ほぼ同一の重鉱物組成を持つ場合でも重元素組成を加味することで特性化が可能となった。さらに、地球科学図において希土類元素の特徴的な凝集がみられた地域については、本法においても同様に高濃度の希土類元素の存在を確認できた。現在、測定結果から検量線法により、重元素濃度の定量化も行っている。今後は引き続き測定を行い、全国の地域へと対象を広げていく計画である。

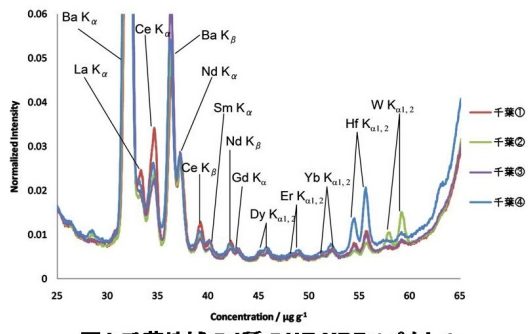


図1.千葉地域の4種のHE-XRFスペクトル

キーワード: 放射光, 土砂, 重鉱物, 重元素, XRF, XRD

Keywords: Synchrotron Radiation, soil, heavy minerals, heavy elements, XRF, XRD