早期公開
—技術報告—

土壤表層の攪乱場所を特定するための初磁化率の応用

川村紀子¹, 石川尚人², 山崎俊嗣³

¹海上保安庁海上保安大学校 基礎教育講座

〒737-8512 広島県呉市若葉町 5 番 1 号

²富山大学都市デザイン学部 地球システム科学科

〒930-8555 富山県富山市五福3190

³東京大学大気海洋研究所 海洋底科学部門

〒277-8564 千葉県柏市柏の葉 5 丁目 1 番 5 号

**Application of magnetic susceptibility for the identification of
disturbed soil surfaces**

Noriko Kawamura¹, Naoto Ishikawa² and Toshitsugu Yamazaki³

¹*Department of Liberal Arts, Japan Coast Guard Academy*

5-1 Wakaba-cho Kure-shi, Hiroshima 737-8512 Japan

²*Department of Earth System Sciences, Faculty of Sustainable Design, University of Toyama*

3190 Gofuku, Toyama 930-8555, Japan

³*Atmosphere and Ocean Research Institute, The University of Tokyo*

5-1-5, Kashiwanoha, Kashiwa-shi, Chiba 277-8564 Japan

(Received 11 May 2021; accepted 15 October 2021;

Published online 14 December 2021 in J-STAGE DOI: 10.3408/jafst.819)

We tested magnetic susceptibility (MS) as a forensic search tool to detect the disturbed area on soil surface. A 250-cm-long survey line was assessed on the campus ground of the Japan Coast Guard Academy in this study. A hole of 10 cm length × 20 cm width × 7 cm depth was dug on the survey line and backfilled using soil mixture. MS was measured using a magnetometer at 10 cm intervals along the line, and the peaks were observed in the disturbed area. A soil core sample of 7 cm in length was collected near the line. The grain size of the core was classified as silty sand with granite granules that may have originated from the parent rock. The ratio of granule composition increased with soil depth. MS, anhysteretic remanent magnetization (ARM), isothermal remanent magnetization (IRM), and magnetic hysteresis curves were measured using the dried soil samples. The values indicated a peak at the 7 cm depth, where large number of granite granules were present. This implied that MS, ARM, and IRM peaks were caused by the granite granules. The granules were moved to the disturbed soil surface and may have contributed to high MS values. Thermomagnetic analyses revealed the presence of magnetite, maghemite, and hematite in the soil. The magnetic hysteresis parameters showed that the magnetic

grain size also increased with burial depth and was consistent with the observed grain size distribution. The values of the disturbed area were located at the center of all the samples on a Day plot, implying that the grains of all soil layers were contained in the disturbed area. The MS peak could be recognized one year later although the hole was covered by weeds. The location of the disturbed area could be detected using a MS survey.

Key words: Soil, Magnetic susceptibility, Disturbed area

緒 言

土壌は事件や事故の鑑定資料として採取され¹⁾、異同識別を目的として顕微鏡の観察、粒度分析や化学分析が行われる²⁻⁴⁾。土壌の発展的な検査法としては、土壌細菌の DNA に着目した例などが報告されている⁵⁾。これらの分析のための薬品処理などによって試料の残存量は減少する。よって、できるだけ証拠品としての試料量を残すために、非破壊で分析可能な手法の提案が望まれる。また我が国の法地質学では、鑑定資料としての土壌の鑑定方法の研究がほとんどであり¹⁻³⁾、犯罪の現場での土壌の簡便な検査方法に関する研究例が少ない。

土壌が犯罪などによって攪乱され、証拠品が秘匿されている場合、これらの場所を推定するために、地中レーダーや音波探査、磁気探査などが実施されてきた^{6,7)}。特に磁気探査のなかでも初磁化率の測定は、非破壊で迅速かつ簡便に広範囲で実施が可能であり、様々な捜査に適用されてきた。土壌の初磁化率の値は、土壌に含まれている強磁性鉱物、磁鉄鉱 (Fe_3O_4)、磁赤鉄鉱 ($\gamma\text{Fe}_2\text{O}_3$)、赤鉄鉱 ($\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3$) や針鉄鉱 (αFeOOH) の量や種類を反映し、その地域の母岩や気象条件などによって変化する⁸⁾。さらにスコップやナイフといった強い磁化を持つ鉄製品が土壌に秘匿されているとき、埋没深度が浅い場合は、少量であっても初磁化率の値は周囲と比較して高く示されるため、これらの秘匿場所の特定が可能である^{8,9)}。工場や発電所周辺の土壌には、煙突から排出された金属類が多く含まれるために初磁化率も周囲より高い値を示す¹⁰⁾。よって土壌の初磁化率測定は、汚染源の特定だけでなく、環境モニタリングにも応用されている。また土壌中に遺体が埋まっているとき、動物の血液中にヘモグロビンとし

て含まれる多量の鉄が酸化し、磁鉄鉱や磁赤鉄鉱が生成されるので、周囲の初磁化率と比較して高い初磁化率を示す事例が報告されている^{11,12)}。

初磁化率の測定によって土壌表層が攪乱された場所の推定を試みた研究例は、Pringle et al. (2015) で報告されている。この研究では土壌表面の面積 $20 \times 20 \text{ cm}$ 、深さ 10 cm の土壌を切り取り、これを水平方向に 180° 回転させて静置し、初磁化率を測定した。その結果、切り取った場所の初磁化率は周囲の値よりも相対的に高い状態が 1 年間継続した⁸⁾。これは土壌中の強磁性鉱物が土壌表面に露出したことで初磁化率が高くなり 1 年間にわたってピークとして現れたためと考えられる。したがって初磁化率の測定は、1 年間にわたって土壌表層が攪乱された場所の位置の推定に有用であることが示唆された。もし我が国の土壌においても、この初磁化率の測定によって攪乱場所の検出が可能であることが示されれば、秘匿物の捜索に役立つと考えられる。初磁化率の測定は、土壌表面を化学変化させずに非破壊で実施が可能である。初磁化率測定と同様に携帯型の蛍光 X 線装置を用いた分析は、文化財の調査などでも用いられており、土壌表面をほとんど化学変化させることなく実施可能である。しかし、日本での土壌の初磁化率の測定例は少なく、基礎的なデータが不足している状態であり、秘匿物の捜査で有用性を確認した研究報告はない。そこで本研究は、日本で秘匿物の捜査が行われることの多い雑木林の土壌を研究対象とし、秘匿場所の土壌の攪乱位置を特定するために、初磁化率を測定し、その有用性を検証することを目的とした。

材料および方法

土壌表面の初磁化率の時間変化を把握するため

に、250 cm の観測線を設定して1年間にわたり、月一回の測定をした。携帯型の蛍光 X 線装置を用いて攪乱場所の土壌表面の化学分析を行った。また土壌の柱状試料から鉛直方向の強磁性鉱物の分布を調べた。

1. 土壌試料

本研究では、広島県呉市若葉町にある海上保安大学校内の雑木林の土壌を対象とした (Fig. 1a and b)。ここには、明治22年から日本海軍の弾薬製造所である呉海軍工廠火工部があり、昭和27年4月 (西暦1952年) に海上保安大学校が設立されてから土壌が形成された。この雑木林には普段、人の出入りはほとんど無いが、例年8月上旬には除草される。

本研究対象の雑木林の土壌から2018年5月14日にソイルサンプラー (株式会社アイシス社製, AMP301) を用いて直径2.2 cm, 長さ約7 cm の柱状試料を採取し、肉眼および偏光顕微鏡での観察を行った。深度0~2 cm にかけて黒褐色の腐葉土が分布し、約2~7 cm は母岩由来と考えられる花崗岩の砂礫を含む暗灰黄色シルトが認められた。土壌の岩石部分は主に砂サイズの粒子から成っており、平均粒径は深度方向に増加する傾向が見られた。採取土壌は褐色森林土に分類され、深度0~2 cm まではO層、約2~7 cm はA層と識別される (Fig. 3a)¹³⁾。この柱状試料のO₁層の深度0~2 cm (2.87 g), A₁層の3~5 cm (5.73 g), A₂層の6~7 cm (7.22 g) の土壌試料をサンプリングして、乾燥させてチャック付きポリエチレン袋 (ユニパック: 生産日本製) 中で保管した。またO層、A₁層とA₂層の乾燥させた土壌試料から同量を取り出して混合した試料は、後述する磁気測定に使用した。

また同日に柱状試料を採取した地点から約50 cm 離れた場所に、定期的な初磁化率測定を行う観測線 (長さ: 250 cm) を設けた。観測線の表層は均質な腐植土に覆われていて、初磁化率に大きく寄与するような岩石片などは認められなかった。観測線の110~120 cm に、観測線に直交させて約10 cm × 20 cm × 深さ7 cm の長方形の穴を新品のステンレス製のスコップを使用して2018年5月21日に掘った (Fig. 1c and d)。穴の断面の観察を行ったところ深

Fig. 1 (a) A white square indicates the study area in Hiroshima Prefecture; (b) the location map of this study area is modified using the e-map published by the Geospatial Information Authority of Japan (<https://maps.gsi.go.jp/>)—the black diamond shows the location of magnetic susceptibility measurements; (c) a diagram shows the 250-cm length survey line on the campus of the Japan Coast Guard Academy—a hole of 10-cm length × 20-cm width × 7-cm depth was dug on the survey line and backfilled using the soil mixture; (d) a photograph shows the survey line near a hole.

度約0~2 cm には腐葉土の層、約2~7 cm には花崗岩の砂礫を含むシルトの層があり、柱状試料の採取地点と同様の層相であった。観察後に土壌の上下の層を混ぜて埋め戻し、土壌表層と深度数センチメートルの土壌が混合し、攪乱された状態にした。

Table 1 Sampling date, temperature, precipitation²²⁾, and magnetic susceptibility (MS). SD means that the data standard deviation. Shading denotes that the survey line was covered with weeds and the data for Fig. 2b~2d.

Date	Temperature (°C)	Precipitation (mm)	Cumulative Daylight (hour)	Magnetic susceptibility (SI)							
				The disturbed area						The undisturbed area	
				At 110 cm	SD	At 120 cm	SD	The average (110~120 cm)		The undisturbed area	SD
14 May 2018	19.1	185.5	205.3	13.90	0.141	14.13	0.094	14.02		13.89	0.211
21 May 2018	19.1	185.5	205.3	14.27	0.047	14.44	0.047	14.35		13.93	0.374
7 June 2018	22.4	143.5	161.3	14.37	0.047	13.90	0.082	14.13		13.91	0.626
17 July 2018	28.2	522.0	257.7	14.30	0.000	14.20	0.000	14.25		13.78	0.792
28 August 2018	28.9	19.0	270.2	14.13	0.236	14.20	0.082	14.17		14.03	0.207
25 September 2018	23.8	343.0	107.8	14.53	0.197	14.27	0.471	14.40		14.16	0.685
24 October 2018	19.0	29.0	187.0	14.40	0.082	14.50	0.000	14.45		14.21	0.104
5 November 2018	13.8	22.0	15.2	14.47	0.094	14.43	0.047	14.45		14.22	0.083
18 December 2018	9.2	82.5	105.4	14.73	0.094	14.40	0.047	14.75		14.32	0.276
24 January 2019	7.2	19.0	168.1	14.40	0.000	14.53	0.047	14.47		14.32	0.080
26 February 2019	8.0	62.0	122.3	14.50	0.000	14.37	0.047	14.43		14.22	0.143
14 March 2019	10.6	103	194.4	14.50	0.000	14.43	0.094	14.47		14.33	0.127
10 April 2019	14.5	109.5	215.8	14.30	0.000	14.40	0.082	14.35		14.26	0.087
14 May 2019	19.9	49.0	268.6	14.10	0.000	14.17	0.047	14.13		14.06	0.135

攪乱された場所の深度 0~1 cm から混合土壌を採取して、乾燥させて磁気測定に使用した。

攪乱してから 2 か月後の 2018 年 7 月以降は、雑草により覆われてしまい攪乱された位置を目視で確認することはできなかった。観測線の表面は、2018 年 8 月上旬には人が観測線上に立ち入り、草刈り機によって除草されたが 2018 年 5~9 月にかけて雑草に覆われていた (Table 1)。

2. 方法

2-1. 土壌表面の初磁化率

初磁化率の測定には、産業技術総合研究所が所有している携帯型磁化率計 (ZH instruments 社製, SM-30) を用いて観測線上 10 cm ごとに土壌表面の初磁化率の読み取りの値 (SI) を得た。初磁化率は土壌表面から 2 cm の高さに保ち、1 つの観測点ごとに 3 回の測定を行い、平均値を算出した。この測定は、2018 年 5 月は 14 日に攪乱前、21 日に攪乱後の最初の測定を行い、その後は毎月一回、晴天の日の午前 10 時から 11 時半の間に実施した (Table 1)。観測線 110~120 cm のデータについては、110 cm では攪乱させた場所とそうでない場所の境界、120

cm では攪乱させた場所内で測定した。

2-2. 土壌の柱状試料の初磁化率と人工的残留磁化の測定

土壌試料に含まれる強磁性鉱物の相対量を推定するために、実験室において初磁化率の測定を行った。土壌試料の初磁化率は Bartington 社製磁化率計 (MS2 System) で測定し、試料の質量 (0.2~0.6 g) から単位質量あたりの初磁化率 (χ : 単位 m^3/kg) を算出した。次に人工的に残留磁化を付した。交流消磁装置 (夏原技研製) とソレノイドコイルを用いて、試料に交流磁場 100 mT と直流磁場 0.1 mT とを同時に付して非履歴残留磁化 (Anhysteretic remanent magnetization: ARM) を獲得させ、残留磁化強度を測定した。パルスマグネタイザー (model MPM-9, Magnetic Measurements 社製) を用いて、キューブ試料の一軸方向に 2.5 T の直流磁場を付加して等温残留磁化 (Isothermal remanent magnetization: IRM) を獲得させた。2.5 T の時の IRM を飽和等温残留磁化 (Saturation IRM: SIRM) とする。SIRM の測定後、2.5 T を付加した軸の反対方向に 0.3 T の磁場を付加し、その残留磁化を測

定した．この時のIRMを $IRM_{-0.3T}$ とする．ARMとIRMの測定には，スピナー磁力計（SMM-85，夏原技研製）を用いた．以下のBloemendal *et al.* (1992)の計算式に基づいて，試料中の低保磁力の強磁性鉱物や磁鉄鉱の比率を示すS比($S_{-0.3T}$)¹⁰⁾，高保磁力の磁性鉱物量を反映するhard isothermal remanent magnetization (HIRM)を算出した¹⁴⁾．

$$S_{-0.3T} = (1 - IRM_{-0.3T} / SIRM) / 2$$

$$HIRM = (SIRM + IRM_{-0.3T}) / 2$$

以上の測定は，海上保安大学校で行った．

交番磁場勾配型磁力計（Micromag 2900-2C AGFM，Lake Shore社製，京都大学所有）を用いて，磁気ヒステリシスと残留保磁力（Hcr）の測定を行った．得られた磁気ヒステリシス測定の高磁場（最大磁場の70%以上）の直線性を補正して，飽和磁化強度（Ms），飽和等温残留磁化強度（磁気ヒステリシス曲線から求めた値を示すときはMrを用いる），保磁力（coercivity: Hc）の値を求めた．土壌試料中の強磁性鉱物が不均質に分布して値がばらつくことが予想されたため，測定は1つの試料から3回分の試料取り分けて行い，平均値を得た．以上の測定は，京都大学で行った．

2-3. 熱磁気測定

土壌の柱状試料に含まれる強磁性鉱物の同定を目的として，高温および低温での磁気測定を行った．1つの試料につき1回の測定を実施した．低温磁性については2020年12月に高知大学海洋コア総合研究センターの磁気特性測定装置（MPMS XL5，Quantum Designs社製）を用いた．数mgの乾燥土壌試料を約3×3cmのポリ塩化ビニリデン（サララップ，旭化成製）で梱包して，プラスチック製のサンプルホルダーに入れて室温から5Kまで無磁場中で低下させ，5Kで2.5Tの磁場をかけ，IRMを獲得させた．その後，無磁場で5Kから300Kまで昇温させてSIRM強度の変化を測定した．

高温での磁気測定は，熱磁気天秤（栄光電機製，2019年までは京都大学所有，以降は富山大学に移動）を用いて，2018年6月に空気中でキュリー点の推定を実施した．乾燥させた数百mgの土壌試料を石英カップに入れて，強磁場をかけた状態で室温から720℃まで空気中で加熱し，その後室温まで冷

却し，誘導磁化の変化を測定した．

2-4. 土壌に含まれる強磁性鉱物の観察

土砂の鑑定においては，粒子の形状から異同識別を行うことを目的として走査型電子顕微鏡を用いた粒子の観察が行われる場合がある²⁾．本研究では，土壌試料の強磁性鉱物の基礎的なデータを得るために，電子顕微鏡による粒子の観察を行った．強磁性鉱物のうち磁鉄鉱は，単位質量当たりの初磁化率の値が粒子サイズ約20nm前後で最大値となる¹⁵⁾．単磁区の粒子の特徴を捉えるために東京大学大気海洋研究所の透過型電子顕微鏡（Transmission Electron Microscope: TEM，JEOL社製，JEM-1400，加速電圧120kV）での観察を実施した．攪乱された110～120cmの表層から採取した土壌試料1.00gをコニカルビーカーに入れて，200mLの超純水を加え，水中にサマリウムコバルト磁石を用いて24時間放置して試料中の強磁性鉱物を抽出した．抽出によって得られた強磁性鉱物は保存中に酸化による変質を防ぐため，観察の直前までエタノール中で保管した．

2-5. 土壌表層の蛍光X線分析

株式会社リガク所有の携帯型の蛍光X線（X-ray Fluorescence: XRF）分析装置機器（Niton携帯型成分分析計XL3 t950S，鉱物・土壌・各種素材用）を用いて，土壌表面の元素分析をした．2018年11月7日に，観測線上の90cmの攪乱されていない地点および115cmの攪乱された地点の凹凸のある土壌表層において，土壌測定モードによって空気中で直径8mm円の範囲でX線を1分照射して1回測定した．分析した元素の範囲はS～Cl，K～Biであり，管電圧は最大50kVである．元素の濃度はファンダメンタルパラメーター法により算出した．

結 果

1. 土壌地表面の初磁化率

測定結果をFig. 2に示す．Fig. 2aの黒色の丸印は2018年5月14日の観測線上の初磁化率の平均値であり，黒線は変動幅である．また灰色の三角印は，2018年5月21日に観測線110～120cmの攪乱させた直後の初磁化率の平均値であり，灰色線は変動幅である．2018年5月21日の初磁化率は，観測点120cmで最大値を示した．観測点200～220cmと250

Fig. 2 (a)–(c) Magnetic susceptibility along the survey line—the arrows indicate the disturbed area where a hole was dug and backfilled using sandy soil (at 120 cm along the survey line); (a) the black circles indicate the average magnetic susceptibility (MS) before the disturbance—the gray triangles indicate MS after the disturbance and vertical lines show the range of variability before and after the disturbance; (b) average of the MS values from May to August 2018; (c) average of MS values from September 2018 to May 2019; and (d) MS values of the stations at 110 cm, 120 cm, and the undisturbed area from May 2018 to May 2019—the shading indicates that the survey line was covered with weeds at the time of measurement.

cm の値は、観測日の違いによる初磁化率の平均値には変動幅を超えるほどの差があるが、1 週間の時間経過では、これらを除いて攪乱前と後で大きな変化は認められなかった。

次に2018年5月21日から2019年5月14日まで、1 カ月おきに測定した初磁化率の平均値を Fig. 2b と 2c に示した。攪乱された場所の110～120 cm の初磁

化率の値は、110 cm と120 cm の少なくともいずれか一方では、攪乱された場所以外の平均値よりも高い値を示した。

Fig. 2d は、観測点の初磁化率の平均値をプロットしたものである。月平均気温が低い月（2018年10月～2019年4月）には、初磁化率は相対的に高い値を示した (Fig. 2b～2d; Table 1)。本研究結果と同

様の傾向は Pringle et al. (2015) でも報告されており、これは初磁化率の温度依存性を表している⁸⁾。

観測月の平均気温、降水量、観測点110 cm と120 cm の攪乱された場所の初磁化率を3回測定した値の平均値と標準偏差、これらを除く観測点の平均値と標準偏差を Table 1 に示す。2018年5～9月は、他の月に比べて平均降水量、平均気温と日照時間が多いために雑草が繁茂しやすい。地土壌表面が除草された8月を除いては雑草で覆われており、標準偏差は相対的に高かった。これは雑草が繁茂したために土壌表面の凹凸が生じ、初磁化率計との距離が一定にならず、測定値のばらつきが大きくなった可能性が考えられる。この期間以外の2018年10月～2019年4月では雑草は枯れて土壌表面の凹凸は少なく、攪乱された場所以外の初磁化率の標準偏差は比較的小さい値を示した (Fig. 2c; Table 1)。

以上のように温度依存性や土壌表面の凹凸によって初磁化率の値は変動するものの、攪乱された場所の110～120 cm の初磁化率の値は、110 cm と120 cm の少なくともいずれか一方では、攪乱された場所以外の平均値よりも高い値を示した (Fig. 2d; Table 1)。

2. 土壌の柱状試料の岩石磁気学的パラメータ

柱状試料の初磁化率 χ と残留磁化の測定結果を Fig. 3b～3f に示す。 χ は深度約2 cm のO₁層とA層₁との境界で最大値を示し、深度5 cm までは下方向に減少し、母岩由来と考えられる砂礫が混入する深度7 cm では、これ以外の層準よりも高い傾向が認められた (Fig. 3b)。ARM の値は、深度0～5 cm までは下方向に減少し、 χ と同様に深度7 cm で最大値を示した (Fig. 3c)。SIRM の値は、ARM の値と同様に深度3 cm までは深さと共に減少し、深度4 cm でやや増加し、深度7 cm でこれ以外の層準よりも高い値になった (Fig. 3d)。S 比はO₁層では0.949であり、A層では0.967～0.982の範囲の値を示した (Fig. 3e)。これは保磁力の低い強磁性鉱物の割合がA層で高いことを示唆する。HIRM は、SIRM と同様に深度4 cm で少し増加し、深度方向に値が減少した (Fig. 3f)。

O₁層、A₁層とA₂層の乾燥させた土壌試料を同量混合した試料の岩石磁気学的パラメータを Fig. 3のグラフの上部に星印(★)で示す。この星印で示された $\chi_{\text{aver.}}$ と $\text{ARM}_{\text{aver.}}$ 、 $\text{SIRM}_{\text{aver.}}$ の値は、柱状試料の深度1 cm と深度7 cm の値とほぼ同じであっ

Fig. 3 (a) A soil core sample composed of two units—a black-brown “organic layer” consisting of fine silt lies at 0–2 cm and a dark olive-gray layer of silty sand lies at 2–7 cm; (b) χ , (c) ARM, (d) IRM, and (e) S ratio—a star indicates the average value of soils which are mixed with the 0–2-, 3–5-, and 6–7-cm samples.

Fig. 4 (a)–(c) Magnetic hysteresis curves of the samples collected from the soil core; (d) magnetic hysteresis curves of the soil sample taken from the disturbed area; and (e) a Day plot¹⁶⁾—single-domain (SD), pseudo-single-domain (PSD), and multi-domain (MD).

た。S比は、4 cm 以深の値と近い値であった。また $HIRM_{aver}$ は深度 1 cm と近い値であった。以上から本研究では、 O_1 層、 A_1 層と A_2 層の土壌が等量ずつ混合された場合は、S比の値が土壌深部の値に近いという結果が示された。

磁気ヒステリシス測定の結果を図 4 に示す。磁気ヒステリシス曲線は土壌の柱状試料および観測線の 110～120 cm の攪乱場所の試料がフェリ磁性であることを示した (Fig. 4a～4d)。Fig. 4e の Day plot に Mr/Ms と Hcr/Hc の値を示す。Day plot は、磁鉄鉱の粒径の推定を行うために考案されたもので、左上の単磁区 (Single domain: SD) 側に位置するほど磁鉄鉱の粒径は小さく、右下の多磁区 (Multi domain: MD) 側になるほど粗いと解釈される¹⁶⁾。深度約 0～2 cm では値のばらつきはあるものの、そのばらつきは他の深度の試料と比較して小さかつ

た。砂礫が散在する深度 6～7 cm では、試料の粒子サイズは他の試料と比べて平均粒径が大きく、測定のために分割した試料も粒子サイズの不均質性が大きかったために、ばらつきも大きかった。 O_1 層と A_1 層の試料は磁鉄鉱の擬似単磁区 (Pseudo single domain: PSD) の範囲内に分布し、深度約 6～7 cm の試料は PSD の範囲からやや右側にプロットされ、強磁性鉱物の平均粒径が比較的大きいことが示された。肉眼観察では、深度方向に土壌中の岩片や鉱物の平均粒径の増加が認められており、Day plot の結果と整合的であった。また観測線の 110～120 cm の土壌試料の平均値は PSD の範囲内であり、 Hcr/Hc の値の平均値は O_1 層、 A_1 層と A_2 層の試料の間に位置した。

3. 土壌の磁化を担う強磁性鉱物種

柱状試料と攪乱された土壌表層から採取した試料

Fig. 5 (a)–(d) Thermal demagnetization curves for a low-temperature saturation isothermal remanent magnetization (SIRM) imposed at 5 K with a 2.5 T DC field—the black dots represent the SIRM intensity and gray lines correspond to $d\text{IRM}/dT$; (e)–(l) magnetization vs. temperature curves—the measurements were conducted in air and vacuum and magnetization (J_s) values were normalized by magnetic susceptibility (J_0) when the measurement started at room temperature; the black curves indicate the values during heating, and gray curves show cooling curves; and the upper-right figures show the enlargement from 600 °C to 740 °C in air and from 570 °C to 740 °C in vacuum.

の熱磁気分析の結果を図5に示す。低温（5 Kから300 K）でのIRMの強度変化では全ての試料で磁鉄鉱のフェルベー点（120 K）付近の100 K～120 K

でIRMが減少したので、磁鉄鉱が試料の磁化を担う磁性鉱物であると判断できる（Fig. 5a～5d）¹⁷⁾。純度の高い磁鉄鉱ではフェルベー点より明瞭であ

るため、これらの試料の磁鉄鉱はチタン (Ti) が不純物として含まれる、あるいは表面が酸化して磁赤鉄鉱が存在している、もしくはこれら両方の可能性が推定される¹⁸⁾。

高温の磁気測定のうち、空气中で加熱したときの結果では、全ての試料で磁鉄鉱のキュリー温度である 580 °C において誘導磁化が減少した (Fig. 5e~5h)¹⁰⁾。深度 6~7 cm の試料には、加熱中 (Heating) の 320~360 °C の誘導磁化の減少と赤鉄鉱のキュリー温度である 680 °C 付近での減少が明瞭に現れた (Fig. 5g)。同様に攪乱された土壌表層から採取した試料の加熱中の曲線でも、320~360 °C 付近の誘導磁化の減少が見られた (Fig. 5h)。680 °C の付近の誘導磁化については、ノイズが多く不明瞭であるものの、その値はやや減少した。

真空中での測定結果では、同様に、全ての試料で 580 °C において誘導磁化が減少した (Fig. 5i~5l)。特に腐植土などからなる O₁ 層試料や攪乱された土壌表層から採取した試料では、加熱中に 580 °C~740 °C で磁化が増加した。冷却時の誘導磁化強度は加熱時より大きくなった。このことは加熱中に強磁性鉱物が形成されたことを示唆する。冷却時の曲線には、580 °C において誘導磁化の増加が確認できるため、磁鉄鉱の存在が認められることから、実験中に有機物が還元剤となって磁鉄鉱が合成されたと推定できる (Fig. 5i~5l)。空气中で認められた 320~360 °C 付近と 680 °C 付近の誘導磁化の減少については真空中での測定結果では認められなかった。したがって、空气中で認められた誘導磁化強度の減少は、320~360 °C で磁赤鉄鉱が熱分解され、680 °C 付近で試料が酸化されて赤鉄鉱が生成されたためであると考えられる¹⁰⁾。

TEM を用いて、観測線の 110~120 cm の攪乱場所の表層の土壌試料から抽出した強磁性鉱物の観察を行った (Fig. 6)。約 20~50 nm の大きさの六角の鉱物が複数認められた。これらの形態から、赤鉄鉱と推定される¹⁹⁾。

4. 土壌表層の元素分析

土壌表面の元素分析の結果を Table 2 に示した。土壌や花崗岩の主要元素であるカリウム (K)、カルシウム (Ca)、鉄 (Fe) の濃度は、高い値を示し

Fig. 6 Electron micrographs of the magnetic extracts—(a) the sample collected at 6–7-cm depth in the soil core and (b) soil sample from the disturbed area.

Table 2 Results of the X-ray fluorescence analysis on the disturbed and undisturbed soils. “n.d.” means that the data was not determined.

Element	At 90 cm, on the undisturbed area (ppm)	At 115 cm, on the disturbed area (ppm)
S	881	794
K	5246	1783
Ca	114000	202000
Sc	80	133
Ti	413	87
V	19	10
Cr	n.d.	51
Mn	295	155
Fe	8931	5730
Co	n.d.	131
Cu	64	65
Zn	84	97
Rb	58	45
Sr	42	63
Zr	71	63
Ba	233	90
Pb	32	21

た。これらの主要元素について土壌表層が攪乱された場所 (115 cm) とそれ以外 (90 cm) の場所の値を比較すると、他の元素よりも大きな差が認められた。同様に Ti の値にも他の元素と比較して大きな差が見られた。このように土壌表層の攪乱によって

花崗岩の砂礫を含む A₂ 層が土壌表面に現れたために K, Ca や Fe の濃度が高くなった可能性が示された。

考 察

本研究では、観測線上において攪乱させた場所とそうでない場所の境界である 110 cm と攪乱させた場所内の 120 cm の初磁化率の平均値の両方、もしくはどちらか一方がこれら以外の観測点の平均値よりも高い値を示す原因について、土壌の柱状試料の岩石磁気学的パラメータや XRF 分析から考察する (Fig. 2d)。これは攪乱による土壌中の空隙の大きさや単位体積あたりの空隙の割合の変化、もしくは攪乱前後で土壌表層を構成する物質の違いを示唆すると考えられる (Table 2)。柱状試料の岩石磁気学的パラメータのうち χ , ARM, SIRM は、O₁ 層の深度 1 cm と A₂ 層の 7 cm で比較的高い値を示し、攪乱された 110~120 cm と近い値を示した (Fig. 3b~3d)。特に深度 7 cm の試料では、砂礫が散在し (Fig. 3a)、磁気的な粒径も相対的に大きい (Fig. 4e)。S 比は深度 4 cm 以深で 0.976~0.982 であり、攪乱された土壌表層では 0.976 であり、両者の試料には保磁力の低い強磁性鉱物の割合が相対的に多いと考えられる (Fig. 3e)。同様に磁気的粒径を反映する Day plot から攪乱された場所の土壌が O₁ 層、A₁ 層と A₂ 層の試料の値をカバーし、Hcr/Hc の平均値は A₁ 層と A₂ 層の間に位置した。砂礫が多く含まれる A₂ 層の深度 4 cm 以深の試料には、他の層準と比べて保磁力が低く磁化強度の高い強磁性鉱物が多く分布しており、これが攪乱によって土壌表層に移動したことにより初磁化率のピークとして現れたと考えられる。雑草に被われるなどの土壌表面の状態に依存して水平方向では初磁化率のピークの位置は 10 cm ずれることはあるが、1 年間にわたってこのピークが維持される理由は、磁鉄鉱といった強磁性鉱物が土壌表面に移動してから、ほとんど変質を受けずに維持されたためと考えられる。以上から、攪乱によって鉛直方向に土壌の物質が移動して、周囲と比較して主要元素の濃度差や初磁化率の増加が認められた場合、本研究と同じような母岩と層準の土壌において 1 年以内であれば、攪乱さ

れた場所を推定することが可能であると考えられる。

次に Pringle et al. (2015) の結果と比較して議論する。Pringle et al. (2015) は、攪乱された場所での初磁化率は、実験開始時と比較して 1 年後には約 7 割減少したと報告している。彼らは初磁化率の減少の原因について具体的に言及していないが、可能性としては攪乱によって土壌中に埋没していた強い磁性を持つ磁鉄鉱が空気中で酸化したり降水によって溶解して、比較的磁化の弱い磁赤鉄鉱や赤鉄鉱、水酸化鉄へ変化したと考えられる。本研究結果では、攪乱された 110~120 cm の土壌表面では、時間経過に伴う初磁化率の減少は認められなかった (Fig. 2b~2d; Table 1)。Pringle et al. (2015) の例と比較すると、彼らが実験したイギリスと日本とは、気温や平均降水量などの気候区分、土壌の種類や含有する強磁性鉱物の量や粒径形、種類が異なると考えられる。本研究との大きな相違としては、実験方法と土壌の違いが挙げられる。Pringle et al. (2015) では、土壌表面の面積 20×20 cm、深さ 10 cm の土壌を切り取り、これを水平方向に 180°回転させて静置させているのに対して、本研究では攪乱させて土壌表層に砂礫を露出させている。本研究地域の母岩は花崗岩であり、花崗岩には包有物として磁鉄鉱が含まれている場合が多い²⁰⁾、これらの由来の砂礫の包有物にも磁鉄鉱が含まれる可能性は十分にあると考えられる。包有物は、周辺の岩石や鉱物に被われているために降水などでは溶解せず、1 年間という時間では、ほとんど化学変化が起こっていないと考えられる。山陽地域に分布する花崗岩由来の砂礫に含まれる黒雲母などの鉄含有鉱物が地表で変質したことにより、磁鉄鉱が生成した可能性もある²¹⁾。また土壌中の新鮮な磁鉄鉱が地表近くに移動して、1 年間変質していない可能性も考えられる。

我が国において森林褐色土が分布する雑木林での鑑識や、秘匿物の捜査を実施する場合、平均気温や降水量、日照時間によって植生が異なり、雑草が生い茂るなど外観が変化するために、目視では証拠品が隠された場所を特定することが難しい場合が考えられる。本研究のように、まずは簡易的に土壌表面の初磁化率を測定し、このピークを見つけ出すこと

で攪乱された場所を推定できる可能性がある。今後、広範囲での鑑識や捜査への応用するためには、様々な種類の土壌での利用可能性についての検証が必要であると考えらる。

結 言

広島県内の雑木林の森林褐色土において、250 cm の観測線の一部を攪乱させて、土壌表面の初磁化率を約 1 か月おきに 1 年間測定した。また観測線の近くの場所から土壌の柱状試料を採取して、初磁化率や残留磁化強度、磁気ヒステリシスの測定を行った。柱状試料と攪乱させた土壌表層試料の熱磁気分析の結果からは、磁鉄鉱や赤鉄鉱が含まれていることが明らかになった。攪乱された場所やその近傍は、1 年間にわたって初磁化率のピークとして認められ、強磁性鉱物の割合と粒径形、主要元素の濃度がこれら以外の場所と異なっていた。事件や犯罪の現場検証や鑑識などで、攪乱された場所の特定が目視では困難なとき、簡易的に土壌表面の初磁化率のピークからその場所を推定できる可能性がある。

謝 辞

産業技術総合研究所地質情報研究部門の森尻理恵博士には、磁化率計を貸していただいた。株式会社リガクには携帯型 XRF を貸していただいた。本研究は、高知大学海洋コア総合研究センター全国共同利用研究（採択番号 19A0010, 19B008）の一部、東京大学大気海洋研究所共同利用研究（受付番号 144, 2018 年）として行われた。高知大学の山本裕二教授には、試料の低温磁気測定に便宜を図っていただいた。科学研究費補助金（基盤研究 C, 20K01153）の一部を使用して研究を実施した。以上の方々に厚く御礼申し上げます。

利益相反

申告すべき利益相反はない。

文 献

- 1) 杉田律子, 川村紀子, 組坂健人, 法地質学入門. 地質学雑誌, **126**, 407–410, 2020.
- 2) 組坂健人, 杉田律子, 日本の法地質学の歩

- み. 地質学雑誌, **126**, 425–431, 2020.
- 3) 杉田律子, 法地質学における分析機器を用いた検査法の発展. 地質汚染—医療地質—社会地質学会誌, **11**, 11–20, 2015.
- 4) 杉田律子, 最近の法地質学の国際動向. 地質学雑誌, **126**, 433–442, 2020.
- 5) 宮口 一, 中原弘明, 杉田律子, 土壌中細胞外 DNA の抽出における市販キットの性能評価. 日本法科学技術学会誌, **24**, 63–72, 2019.
- 6) Ruffell A. and McKinley J., Forensic geoscience: applications of geology, geomorphology and geophysics to criminal investigations. *Earth-Sci. Rev.*, **69**, 235–247, 2005.
- 7) Ruffell A., Pringle J. K., Cassella J. P., Morgan R. M., Ferguson M., Heaton V. G., Hope C. and McKinley J. M., The use of geoscience methods for aquatic forensic searches. *Earth-Sci. Rev.*, **171**, 323–337, 2017.
- 8) Jordanova N., *Soil Magnetism: Applications in Pedology, Environmental Science and Agriculture*. Academic Press, San Diego, 2016.
- 9) Pringle J. K., Giubertoni M., Cassidy N. J., Wisniewski K. D., Hansen J. D., Linford N. T. and Daniels R. M., The use of magnetic susceptibility as a forensic search tool. *Forensic Sci. Int.*, **246**, 31–42, 2015.
- 10) Evans M. E. and Heller F., *Environmental Magnetism: Principles and Applications of Enviromagnetism*. Academic Press, San Diego, 2003.
- 11) 川村紀子, 法地質学のツールとしての磁気測定: レビュー. 地質学雑誌, **126**, 459–470, 2020.
- 12) Linford N. and Platzman E., Estimating the approximate firing temperature of burnt archaeological sediments through an unmixing algorithm applied to hysteresis data. *Phys. Earth Planet. Interiors*, **147**, 197–207, 2004.
- 13) 日本ペドロロジー学会, 土壌調査ハンドブック, 博友社, 東京, 1997.
- 14) Bloemendal, J., J. W. King, F. R. Hall and S.-J. Doh, Rock magnetism of late Neogene and

- Pleistocene deep-sea sediments: relationship to sediment source, diagenetic processes, and sediment lithology, *J. Geophys. Res.*, **97**, 4361–4375, 1992.
- 15) Maher B. A., Magnetic properties of some synthetic sub-micron magnetites. *Geophys. J.* **94**, 83–96, 1988.
- 16) Day R., Fuller M. and Schmidt V. A., Hysteresis properties of titanomagnetites: Grain-size and compositional dependence. *Phys. Earth Planet. Inter.*, **13**, 260–267, 1977.
- 17) Verwey E. J. W., Electron conduction of magnetite (Fe_3O_4) and its transition point at low temperatures. *Nature*, **144**, 327–328, 1939.
- 18) Özdemir Ö., Dunlop D. J. and Moskowitz B. M., The effect of oxidation on the Verwey transition in magnetite. *Geophys. Res. Lett.*, **20**, 1671–1674, 1993.
- 19) Raming T. P., Winnubst A. J. A., van Kats C. M. and Philipse A. P., The Synthesis and Magnetic Properties of Nanosized Hematite ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$) Particles. *J. Colloid Interface Sci.*, **249**, 346–350, 2002.
- 20) Wakabayashi K., Tsunakawa H., Mochizuki N., Yamamoto Y., and Takigami Y., Paleomagnetism of the middle Cretaceous Iritono granite in the Abukuma region, northeast Japan. *Tectonophysics*, **421**, 161–171, 2006.
- 21) 高木哲一, 磁鉄鉱系列/チタン鉄鉱系列花崗岩質マグマの酸化還元状態の推移—中国地方中部～東部の例—, 岩鉱, **88**, 165–178, 1993.
- 22) 気象庁ホームページ「各種データ・資料 各地の気温, 降水量, 風など」: <https://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php> (アクセス日2019年12月).