

地質環境の長期安定性に関する研究 年度報告書 (平成 30 年度)

Annual Report for Research on Geosphere Stability for Long-term Isolation
of Radioactive Waste in Fiscal Year 2018

石丸 恒存 尾方 伸久 花室 孝広 島田 顕臣
國分 (齋藤) 陽子 浅森 浩一 丹羽 正和 島田 耕史
渡邊 隆広 雑賀 敦 末岡 茂 小松 哲也
横山 立憲 藤田 奈津子 清水 麻由子 小川 大輝

Tsuneari ISHIMARU, Nobuhisa OGATA, Takahiro HANAMURO, Akiomi SHIMADA
Yoko SAITO-KOKUBU, Koichi ASAMORI, Masakazu NIWA, Koji SHIMADA
Takahiro WATANABE, Atsushi SAIGA, Shigeru SUEOKA, Tetsuya KOMATSU
Tatsunori YOKOYAMA, Natsuko FUJITA, Mayuko SHIMIZU and Hiroki OGAWA

核燃料・バックエンド研究開発部門
東濃地科学センター

Tono Geoscience Center
Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development

November 2019

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Research

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<https://www.jaea.go.jp>)
より発信されています。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 研究成果管理課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方2番地4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Institutional Repository Section,
Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department,
Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2019

地質環境の長期安定性に関する研究 年度報告書(平成 30 年度)

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 東濃地科学センター

石丸 恒存, 尾方 伸久, 花室 孝広, 島田 顕臣, 國分(齋藤) 陽子, 浅森 浩一, 丹羽 正和,
島田 耕史, 渡邊 隆広, 雑賀 敦⁺¹, 末岡 茂, 小松 哲也, 横山 立憲, 藤田 奈津子,
清水 麻由子, 小川 大輝^{※1}

(2019 年 7 月 22 日受理)

本報は, 高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する研究開発のうち, 深地層の科学的研究の一環として実施している地質環境の長期安定性に関する研究について, 第 3 期中長期目標期間(平成 27 年度~令和 3 年度)における平成 30 年度に実施した研究開発に係る成果を取りまとめたものである。第 3 期中長期目標期間における研究の実施にあたっては, 最終処分事業の概要調査や安全審査基本指針等の検討・策定に研究成果を適宜反映できるよう, (1)調査技術の開発・体系化, (2)長期予測・影響評価モデルの開発, (3)年代測定技術の開発の三つの枠組みで進めている。本報では, それぞれの研究分野に係る科学的・技術的背景を解説するとともに, 主な研究成果及び今後の課題等について述べる。

東濃地科学センター: 〒509-5102 岐阜県土岐市泉町定林寺 959-31

+1 幌延深地層センター

※1 技術開発協力員

**Annual Report for Research on Geosphere Stability for Long-term Isolation of Radioactive Waste
in Fiscal Year 2018**

Tsuneari ISHIMARU, Nobuhisa OGATA, Takahiro HANAMURO, Akiomi SHIMADA,
Yoko SAITO-KOKUBU, Koichi ASAMORI, Masakazu NIWA, Koji SHIMADA, Takahiro WATANABE,
Atsushi SAIGA⁺¹, Shigeru SUEOKA, Tetsuya KOMATSU, Tatsunori YOKOYAMA, Natsuko FUJITA,
Mayuko SHIMIZU and Hiroki OGAWA^{※1}

Tono Geoscience Center
Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development
Japan Atomic Energy Agency
Izumi-cho, Toki-shi, Gifu-ken

(Received July 22, 2019)

This annual report documents the progress of research and development (R&D) in the 4th fiscal year during the JAEA 3rd Mid- and Long-term Plan (fiscal years 2015-2021) to provide the scientific base for assessing geosphere stability for long-term isolation of the high-level radioactive waste. The planned framework is structured into the following categories: (1) Development and systematization of investigation techniques, (2) Development of models for long-term estimation and effective assessment, (3) Development of dating techniques. In this report, the current status of R&D activities with previous scientific and technological progress is summarized.

Keywords: Geosphere Stability, Investigation Technique, Development of Model, Dating Technique

+1 Horonobe Underground Research Center

※1 Collaborating Engineer

目 次

1. はじめに	1
2. 研究成果の概要	4
3. 平成 30 年度の研究成果	6
3.1 調査技術の開発・体系化	6
3.1.1 断層の活動性に係る調査技術	6
3.1.2 地殻構造の高空間分解能イメージング技術	13
3.1.3 深部流体の分布に関する調査技術	20
3.2 長期予測・影響評価モデルの開発	26
3.2.1 稀頻度自然現象による地質環境への影響の評価技術	26
3.2.2 時間スケールに応じた地圏環境変動の予測技術	32
3.3 年代測定技術の開発	37
3.3.1 ウラン系列放射年代測定法の実用化	37
3.3.2 光ルミネッセンス(OSL)年代測定法の実用化	46
3.3.3 アルミニウム-26(²⁶ Al)年代測定法, 塩素-36(³⁶ Cl)年代測定法の実用化	51
3.3.4 希ガス同位体を用いた地下水年代測定法の実用化	55
3.3.5 高分解能のテフラ同定手法の開発	59
3.3.6 地質試料を対象とした年代測定法及び化学分析手法の高度化	64

Contents

1. Introduction	1
2. Overview of R&D progress	4
3. Progress of R&D in FY2018	6
3.1 Development and systematization of investigation techniques	6
3.1.1 Investigation techniques for evaluation of fault activities	6
3.1.2 Investigation techniques for high-resolution imaging of crustal heterogeneity	13
3.1.3 Investigation techniques for detection of geofluids	20
3.2 Development of models for long-term estimation and effective assessment	26
3.2.1 Models of geological environment for extremely low-frequency events	26
3.2.2 Development of estimation and evaluation techniques for natural phenomena of very long-term	32
3.3 Development of dating techniques	37
3.3.1 Practical use of Uranium-series dating method	37
3.3.2 Practical use of Optically Stimulated Luminescence dating method	46
3.3.3 Practical use of Aluminium-26 and Chlorine-36 dating methods	51
3.3.4 Development of groundwater dating method with noble gases	55
3.3.5 Development of high-resolution tephrochronology	59
3.3.6 Development of methods of dating and chemical analysis for geological samples	64

図リスト

図 3.1.1-1	回転式高速剪断摩擦試験機と、本研究における試料のセット方法の概要	8
図 3.1.1-2	CCA 形成状況	10
図 3.1.1-3	No.22 の試料で観察された CCA の(a)偏光顕微鏡写真, (b)反射電子組成像, (c)EPMA による元素マッピングの結果	11
図 3.1.2-1	解析領域における地震基盤深度の深さ分布	16
図 3.1.2-2	初期震源の震央分布(黒丸)及び震源再決定後の震源(赤丸)の分布	16
図 3.1.2-3	各深度における P 波速度偏差の分布	17
図 3.1.2-4	各深度における S 波速度偏差の分布	17
図 3.1.2-5	堆積層厚の変化を考慮した解析により推定された各深度のポアソン比偏差の分布	18
図 3.1.3-1	S 波スプリッティング解析に用いた震源及び観測点の分布	22
図 3.1.3-2	S 波スプリッティング解析の結果	23
図 3.1.3-3	波線長で規格化した場合の到達時間差(dt)の断面図(左図)及び平面図(右図)	23
図 3.2.1-1	MT 法観測点位置図	29
図 3.2.1-2	二次元比抵抗解析結果	29
図 3.2.2-1	深度・面積分布と地形断面との関係	34
図 3.2.2-2	浅海底の数値地形解析の例(石狩湾)	34
図 3.2.2-3	投影断面図上における海成段丘と浅海底地形の分布例(房総沖)	35
図 3.3.1-1	(a)Nummulites boninensis と(b)Placosmilia vidali の写真	40
図 3.3.1-2	Nummulites boninensis の元素・同位体イメージング図	41
図 3.3.1-3	Placosmilia vidali の元素・同位体イメージング図	42
図 3.3.1-4	Nummulites boninensis の Tera-Wasserburg コンコーディア図	43
図 3.3.1-5	Placosmilia vidali の Tera-Wasserburg コンコーディア図	43
図 3.3.2-1	(a)159 mab, (b)449 mab および(c)751 mab 地点の熱履歴	49
図 3.3.4-1	耐圧サンプリング容器(ダブルエンドボトル)とプラグバルブ	57
図 3.3.5-1	USGS BHVO-2G の認証値と分析値との比較	62
図 3.3.6-1	AGE3 により調整した少量試料の年代測定結果	66

表リスト

表 3.1.1-1	高速摩擦試験の実験条件と, 各試験における CCA 形成の有無	9
表 3.3.4-1	本手法で採取した地下水試料中の $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比の規格値	57
表 3.3.4-2	金属容器を 3 個連結した場合の試料封入状態の金属容器の重さ	57
表 3.3.5-1	微量元素分析の分析条件	61

1. はじめに

日本列島は、プレートの収束帯に位置しており、安定大陸に比べて地殻変動や火成活動が活発であることから、我が国における地層処分概念は、「長期的な安定性を備えた幅広い地質環境」に「性能に余裕をもたせた人工バリア」を設置するという特徴を有する(核燃料サイクル開発機構, 1999¹⁾) (以下、「第2次取りまとめ」)。すなわち、第一に自然現象によって地層処分システムに期待される物理的な隔離機能が損なわれる恐れがないようなサイトを選ぶことが前提となる。さらに、サイト固有の地質環境や想定されるそれらの長期的な変化を見込んだ上で、合理的な地層処分システムを構築し、長期的な安全性を確認することが必要となる。そのためには、サイトやその周辺においてマグマの貫入・噴火や断層運動に伴う岩盤の破壊等、地層処分システムに著しい影響を及ぼす現象が発生する可能性のほか、地殻変動等によって生じる地質環境(例えば、熱環境、力学場、水理場、化学場)の長期的な変化を予測・評価しておくことが重要となる。日本原子力研究開発機構(以下、「原子力機構」)では、1988年より「深地層の科学的研究」の一環として、これらの調査・評価に係る研究開発(地質環境の長期安定性に関する研究)を進めてきた。

このうち、1999年11月に報告した第2次取りまとめでは、関連する地球科学の分野に蓄積された情報や知見を分析するとともに、地層や岩石の年代測定等を補足的に実施し、過去から現在までの活動の中に認められる傾向や規則性に基づいて、自然現象の将来の活動の可能性や変動の規模等を検討した。その結果、地層処分に適した安定な地質環境が我が国にも広く存在し得るとの見通しが得られた。また、その科学的な根拠となる基盤情報として、活断層や第四紀火山、海成段丘の分布・形成年代等に関する全国レベルでのデータベースを整備してきた(核燃料サイクル開発機構, 1999²⁾)。第2次取りまとめ以降については、「特定放射性廃棄物の最終処分に関する法律」³⁾(以下、「最終処分法」)の成立や実施主体の設立等、我が国の地層処分計画が事業の段階に進展したことを踏まえ、最終処分法に定められた最終処分施設の建設スケジュールや段階的な選定要件等を念頭に置きつつ、特に第2次取りまとめやその評価(例えば、原子力委員会 原子力バックエンド対策専門部会, 2000⁴⁾; OECD/NEA, 1999⁵⁾)の過程で明らかにされた研究課題に焦点をあてて研究を進めてきた。さらに、2002年には原子力安全委員会から文献調査段階の予定地の選定に係る要件となる「高レベル放射性廃棄物処分の概要調査地区選定段階において考慮すべき環境要件について」(原子力安全委員会, 2002⁶⁾) (以下、「環境要件」)が示されたが、実施主体ではこれらを受けて「概要調査地区選定上の考慮事項」(原子力発電環境整備機構, 2002⁷⁾) (以下、「考慮事項」)を公表した。その一方で、「廃棄物安全小委員会報告書—高レベル放射性廃棄物処分の安全規制に係る基盤確保に向けて—」(総合資源エネルギー調査会 原子力安全・保安部会 廃棄物安全小委員会, 2003⁸⁾)や「放射性廃棄物処理・処分に係る規制支援研究について」(総合資源エネルギー調査会 原子力安全・保安部会 廃棄物安全小委員会, 2009⁹⁾)等により、安全規制にとって重要な研究分野や課題が示される等、研究開発を進めていく上での方向性や研究課題がさらに明確にされてきた。

しかしながら、2011年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震(以下、「東北沖地震」)及び福島第一原子力発電所の事故に伴い、我が国の原子力政策や地層処分技術に関する研究開発を取り巻く状況が大きく変化した。「今後の高レベル放射性廃棄物地層処分に係る取組について(見解)」(原子力委員会, 2012¹⁰⁾)では、「高レベル放射性廃棄物の処分について(回答)」(日本学術会議, 2012¹¹⁾)を踏まえ、現段階での地球科学分野の最新の知見を考慮しつつ、地層処分の実現可能性について調査研究し、その成果を国民と共有すべきとの指摘がなされた。さらに、「今後の原子力研究開発の在り方について(見解)」(原子力委員会, 2012¹²⁾)では、処分施設立地地域の地質条件を保守的に予想した上で、

十分に安全を確保していくことができる処分技術の確立に向けて研究開発を推進していくべきとしている。このような背景のもと、総合資源エネルギー調査会電力・ガス事業分科会原子力小委員会では、地層処分技術ワーキンググループを設置し、専門家による地層処分技術の再評価と今後の研究開発課題の検討が行われ、「最新の科学的知見に基づく地層処分技術の再評価—地質環境特性および地質環境の長期安定性について—」(総合資源エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 地層処分技術ワーキンググループ, 2014¹³⁾)が取りまとめられた。その結果、地層処分にとって好ましい地質環境特性を有する地域が我が国にも存在することが改めて示されるとともに、地層処分の技術的信頼性の向上に向けて、今後の地層処分事業の取り組みと並行した研究開発の必要性も併せて示された。

これらの背景や状況、第2期中期目標期間(平成22年度～平成26年度)における研究開発の成果、さらには関係研究機関や大学等で行われている研究の動向等も踏まえて、「地質環境の長期安定性に関する研究」基本計画—第3期中長期計画(梅田ほか, 2015¹⁴⁾)を策定した。また、平成29年7月には「科学的特性マップ」(経済産業省資源エネルギー庁, 2017¹⁵⁾)が公表されるとともに、平成30年3月にはその作成や提示の際の検討等を踏まえて整理された研究課題が「地層処分研究開発に関する全体計画(平成30年度～平成34年度)」(経済産業省資源エネルギー庁 地層処分研究開発調整会議, 2018¹⁶⁾)として示されている。現時点において国による申し入れや自治体からの応募等もなされておらず、特定の地質やサイト(テクトニックセッティング)が選定されていないことから、第3期中長期目標期間においてはこれまでに引き続き、高レベル放射性廃棄物の地層処分事業における概要調査や国の安全規制における安全審査基本指針等の検討・策定に研究成果を反映できるよう、概要調査等に必要となる、①自然現象に関する過去の記録や現在の状況を調査するための体系的な技術の整備(調査技術の開発・体系化)、変動シナリオを考慮した安全評価の基盤となる、②将来の自然現象に伴う地質環境の変化を予測・評価するための手法の整備(長期予測・影響評価モデルの開発)のほか、③最先端の分析装置等を用いた放射年代測定や鍵層の高分解能同定法等による編年技術の高度化(年代測定技術の開発)の三つのカテゴリーで研究開発を進めている。本報は、これら三つのカテゴリーに従い、第3期中長期目標期間の4年目である平成30年度の研究成果を取りまとめた報告書であり、それぞれの研究において科学的・技術的背景を解説するとともに、課題を克服するための実施内容、研究成果、今後の課題等について報告する。

参考文献

- 1) 核燃料サイクル開発機構, わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—総論レポート—, JNC TN1400 99-020, 1999, 634p.
- 2) 核燃料サイクル開発機構, わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—分冊1 わが国の地質環境—, JNC TN1400 99-021, 1999, 559p.
- 3) 特定放射性廃棄物の最終処分に関する法律(平成12年法律第117号), 2000.
- 4) 原子力委員会 原子力バックエンド対策専門部会, 我が国における高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術的信頼性の評価, 2000, 32p.
- 5) OECD/NEA, International Peer Review of the Main Report of JNC's H12 Project to Establish the Technical Basis for HLW Disposal in Japan, NEA/RWM/PEER(99)2, 1999.

- 6) 原子力安全委員会, 高レベル放射性廃棄物の概要調査地区選定段階において考慮すべき環境要件について, 2002, 21p.
- 7) 原子力発電環境整備機構, 概要調査地区選定上の考慮事項, 2002, 27p.
- 8) 総合資源エネルギー調査会 原子力安全・保安部会 廃棄物安全小委員会, 廃棄物安全小委員会報告書—高レベル放射性廃棄物処分の安全規制に係る基盤確保に向けて—, 2003, 108p.
- 9) 総合資源エネルギー調査会 原子力安全・保安部会 廃棄物安全小委員会, 放射性廃棄物処理・処分に係る規制支援研究(平成 22 年度～平成 26 年度)について, 2009, 40p.
- 10) 原子力委員会, 今後の高レベル放射性廃棄物の地層処分に係る取組について(見解), 2012, 9p.
- 11) 日本学会議, 高レベル放射性廃棄物の処分について(回答), 2012, 36p.
- 12) 原子力委員会, 今後の原子力研究開発の在り方について(見解), 2012, 15p.
- 13) 総合資源エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 地層処分技術ワーキンググループ, 最新の科学的知見に基づく地層処分技術の再評価—地質環境特性および地質環境の長期安定性について—, 2014, 61p.
- 14) 梅田浩司, 安江健一, 國分(齋藤)陽子, 丹羽正和, 浅森浩一, 藤田奈津子, 清水麻由子, 島田顕臣, 松原章浩, 田村 肇, 横山立憲, 渡邊隆広, 徳安佳代子, 濱 友紀, 「地質環境の長期安定性に関する研究」基本計画—第 3 期中長期計画(平成 27 年度～平成 33 年度), JAEA-Review 2015-012, 2015, 43p.
- 15) 経済産業省資源エネルギー庁, 科学的特性マップ, 2017, http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/kagakutekitokuseimap/maps/kagakutekitokuseimap.pdf (参照:2019 年 6 月 4 日).
- 16) 経済産業省資源エネルギー庁 地層処分研究開発調整会議, 地層処分研究開発に関する全体計画(平成 30 年度～平成 34 年度), 2018, 44p.

2. 研究成果の概要

「調査技術の開発・体系化」においては、候補地が有する地質環境が最終処分法による段階的な処分地の選定要件や原子力安全委員会による環境要件等に適合するか否かを判断するための情報(データ)を、概要調査等を通じて取得するための技術基盤を整備することを目的とする。本報では、この調査技術の開発・体系化として進めている次の研究開発課題のうち、特に進捗のある個別の成果を報告する。

- ① 断層の活動性に係る調査技術
- ② 地殻構造の高空間分解能イメージング技術
- ③ 深部流体の分布に関する調査技術

①断層の活動性に係る調査技術では、断層の活動性評価の鍵となるような断層内物質の特徴を抽出するため、断層運動を模擬した高速摩擦試験によって得た断層内物質の組織観察や化学分析を実施した。②地殻構造の高空間分解能イメージング技術では、自然地震データを用いた地震学的手法について、堆積層等の層厚分布を考慮した震源再決定及び地震波トモグラフィを試行し、解析手法の有効性を示した^{注1)}。③深部流体の分布に関する調査技術では、深部流体の湧出が示唆される地域を事例として三次元地震波線追跡及びS波スプリッティング解析を試行し、深部流体の流入経路を顕著な異方性を示す波線の分布としてイメージングできる可能性を示した^{注1)}。

「長期予測・影響評価モデルの開発」では、自然現象を発端とする様々な地質環境への影響に係るシナリオについて、そのシナリオの発生可能性や地質環境の変動幅を予測結果に内在する不確実性を含めて示すための手法の整備を目的としている。これらは、変動シナリオを考慮した安全評価と密接に関連する。本報では、長期予測・影響評価モデルの開発として進めている次の研究開発課題のうち、特に進捗のある個別の成果を報告する。

- ① 稀頻度自然現象による地質環境への影響の評価技術
- ② 時間スケールに応じた地圏環境変動の予測技術

①稀頻度自然現象による地質環境への影響の評価技術では、長期間の湧水を引き起こした松代群発地震を事例として、地磁気・地電流観測により湧水の供給源となった流体賦存域を検出し、その有無が同様の現象の発生可能性を評価するための指標の一つとなり得る可能性を示した^{注1)}。②時間スケールに応じた地圏環境変動の予測技術では、海成段丘と浅海底地形の分布高度の比較によって、沿岸部海域における地殻変動様式の把握には、大陸棚外縁や海底段丘の形成史の理解が重要であるとの見通しを示した^{注1)}。

「年代測定技術の開発」では、将来予測の科学的基盤となる過去の断層運動・火山活動が発生した時期や隆起・侵食の速度等を精度良く把握するための放射年代測定法を含めた編年技術を整備することを目的としている。本報では、年代測定技術の開発として進めている次の研究開発課題のうち、特に進捗のある個別の成果を報告する。

- ① ウラン系列放射年代測定法の実用化
- ② 光ルミネッセンス(OSL)年代測定法の実用化

^{注1)} 本課題では、平成30年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業(「地質環境長期安定性評価技術高度化開発」及び「沿岸部処分システム高度化開発」として、経済産業省資源エネルギー庁から原子力機構が受託して実施した成果(日本原子力研究開発機構・電力中央研究所, 2019¹⁾; 産業技術総合研究所ほか, 2019²⁾)の一部を使用した。

- ③ アルミニウム-26 (^{26}Al) 年代測定法, 塩素-36 (^{36}Cl) 年代測定法の実用化
- ④ 希ガス同位体を用いた地下水年代測定法の実用化
- ⑤ 高分解能のテフラ同定手法の開発
- ⑥ 地質試料を対象とした年代測定法及び化学分析手法の高度化

①ウラン系列放射年代測定法の実用化では、これまでに整備した炭酸塩鉱物の年代測定技術を用いて、生息年代の異なる二つの炭酸塩質な化石試料の年代測定を行い、年代測定の精度評価と適用できる年代範囲の検証を行った。②光ルミネッセンス(OSL)年代測定法の実用化では、大深度ボーリングコアに対して光ルミネッセンス(OSL:Optically Stimulated Luminescence)熱年代法を適用し、本手法が数十万年前より若い時代における低温領域の熱履歴を推定できる方法として有効であるとの見通しを示した^{注1)}。③アルミニウム-26 (^{26}Al) 年代測定法, 塩素-36 (^{36}Cl) 年代測定法の実用化では、ヨウ素-129 (^{129}I) 年代測定法の整備に向けた試料調製法の開発及び測定条件の調整を行い、地下水への ^{129}I 年代測定法の実用化に向けた整備を完了した^{注1)}。④希ガス同位体を用いた地下水年代測定法の実用化では、これまでに構築した発泡性のある地下水の採取方法について、天然の地下水試料の分析によりその有効性を確認した^{注1)}。⑤高分解能のテフラ同定手法の開発では、火山ガラスの微量元素分析によるテフラの同定に向けて、標準ガラスの分析により分析精度を評価した。⑥地質試料を対象とした年代測定法及び化学分析手法の高度化では、自動グラファイト調製装置を用いた炭素-14 (^{14}C) 年代測定の前処理手法について検討し、少量の試料に対する処理の有効性について見通しを示した^{注1)}。

参考文献

- 1) 日本原子力研究開発機構, 電力中央研究所, 平成 30 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 地質環境長期安定性評価技術高度化開発 報告書, 経済産業省資源エネルギー庁, 2019, 200p.
- 2) 産業技術総合研究所, 日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 電力中央研究所, 平成 30 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 沿岸部処分システム高度化開発 報告書, 経済産業省資源エネルギー庁, 2019, 356p.

3. 平成 30 年度の研究成果

3.1 調査技術の開発・体系化

3.1.1 断層の活動性に係る調査技術

(1) はじめに

断層の活動性評価として最も受け入れられている手法は、断層を被覆する堆積物の年代を放射性炭素年代測定やテフラ分析等によって明らかにし、堆積物と断層との切断関係から、断層の最新活動時期を推定する手法(上載地層法)である。しかし、ボーリングや坑道等の掘削によって地下で遭遇した基盤岩中の断層のように、断層の最新活動時期を制約する被覆層との関係が明らかでない場合、上載地層法によって断層の活動性を評価することが困難となる。本研究では、そのような断層にも適用できる活動性評価手法の確立を目的として、断層内物質(断層岩や割れ目充填鉱物等)の構造地質学、鉱物学、地球化学、年代学的解析に基づく検討を行う。

本研究の中ではこれまでに、断層内物質を模擬するように鉱物組成を調整した人工試料に対し、山口大学の回転式高速剪断摩擦試験機(嶋本・堤, 1994¹⁾)を用いて(図 3.1.1-1)、表 3.1.1-1 に示すような断層運動を模擬した高速摩擦試験を実施している(石丸ほか, 2018²⁾)。さらに、実際の断層に対する活動性評価の鍵となるような特徴を捉えることを目指し、試験後の断層内物質の組織観察や化学分析を行ったところ、一部の試料において、天然の断層内物質で報告されている Clay-Clast Aggregate (CCA; Boutareaud *et al.*, 2008³⁾)に類似した組織の形成を確認している。平成 30 年度は、この摩擦試験により模擬のガウジ中で生じる物理的・化学的变化を把握するために、試験後の試料のさらなる観察や分析を進めた。

(2) 当該分野に係る科学的・技術的背景

Spray (1987)⁴⁾により高速・大変位という条件の下での岩石の摩擦実験が開始されて以降、断層運動と物質変化の関係を明らかにするための試みが行われてきた。Spray (1987)⁴⁾の研究は、変輝緑岩 (metadolerite)を用いて高速かつ大変位条件下で摩擦実験を行い、摩擦熔融で形成された実験試料において、天然のシュードタキライトの組織及び組成上の特徴をほぼ再現するものであった。

その後、嶋本・堤(1994)¹⁾によって、摩擦加熱やそれに伴う溶融が断層の力学的性質に与える影響を調べる目的で新しい回転式高速摩擦試験機が開発されて以降、断層における「すべり軟化」(数 cm から数十 cm 以上に達するすべりを伴いながら摩擦係数が著しく低下する現象)や、「速度弱化」(すべり速度が数 cm/s に達すると急激に摩擦強度が減少する現象)が確認されたこと(例えば、Di Toro *et al.*, 2011⁵⁾)をはじめ、多くの研究成果が生み出された。

断層運動に伴う物質変化を、天然と実験の両方で捉えた研究も報告されている。例えば Boutareaud *et al.* (2008)³⁾は、高速条件下ですべり軟化を経験した断層岩の内部に、細粒な破碎岩片・鉱物片の周りを粘土質物質が同心円状に取り囲んだ雪だるま様の組織 (CCA) が存在することを報告した。そして、これと同様の組織が台湾の車籠埔断層(1999年の台湾集集地震によって活動したとされる断層)の断層内物質に認められることが明らかになった(Boullier *et al.*, 2009⁶⁾)。後に、CCA は mm/s オーダーの低速のすべりでも生じることが報告されている(Han and Hirose, 2012⁷⁾)。

一方、断層運動に伴う鉱物組成の変化の例として、大橋・小林 (2008)⁸⁾は、跡津川断層系の牛首断

層において断層ガウジ中に石墨(グラファイト)が濃集していることを発見し、後に摩擦実験に基づき、炭素を含む鉱物が断層運動によってグラファイト化し得ることを示した(Oohashi *et al.*, 2011⁹⁾)。

清水ほか(2015)¹⁰⁾は、活断層の断層岩の鉱物学的・地球化学的特徴を明らかにすることを目的として、六甲淡路断層帯を構成する五助橋断層から採取された試料を用いて X 線顕微鏡(XGT:X-ray Guide Tube)や電子プローブマイクロアナライザ(EPMA:Electron Probe Micro Analyzer)を用いた元素マッピング等の化学分析を行った。その結果、一部の岩片・鉱物を取り囲むような局所的なマンガン(Mn)の濃集を確認した。清水ほか(2015)¹⁰⁾はこの結果について、断層岩の全岩化学組成のデータからは Mn の濃集が捉えられないことを踏まえ、この濃集は流体移動によって外部から新しく Mn が付加したのではなく、断層運動に伴う Mn 含有鉱物(例えば、黒雲母等)の破碎・変質によって溶脱した Mn が局所的に濃集したと考察した。断層岩における Mn の濃集については、大谷ほか(2012¹¹⁾、2014¹²⁾による報告例があり、断層の活動性評価の指標となる可能性を指摘している。これを検証するためには、熱水活動や風化等の断層運動以外のメカニズムによる類似の現象との区別が必要である。

CCA の形成のような岩石組織の変化、グラファイト形成等の鉱物組成の変化、Mn 濃集等の化学組成変化といった現象と断層運動に伴う破碎との相関関係について検証するためには、断層内物質の模擬試料に対して高速摩擦試験を行い、どのような条件でこれらの現象が再現されるかを確認することが有効な手段の一つとなり得る。

(3) 実施内容・結果

平成30年度は、石丸ほか(2018)²⁾において行った高速摩擦試験後の試料を薄片に加工したものに対して、偏光顕微鏡や走査型電子顕微鏡(SEM:Scanning Electron Microscope)による観察と、EPMAによる面分析を実施した。また、追加で実施した3試験(No.23~25)の試料についても同様の観察・分析を行った。その結果、石丸ほか(2018)²⁾において報告したNo.22の試料以外の複数の試料のガウジ中にも、石英粒子の周囲に石英中の元素よりも原子番号の大きい元素を含む物質が存在することが明らかになり、CCAとみられる組織が生じていることがわかった(表3.1.1-1)。

CCAは、ガウジ模擬物質として石英と黒雲母を質量比1:1で混合したものをを用いた試験において形成された(図3.1.1-2)。特に、模擬の母岩として花崗岩を用い、すべり速度1 m/s、軸圧3 MPa、変位量10 mで試験を行った試料のうち、ガウジ模擬物質に1,000 mg/LのMn標準液を添加したもの(No.22)のほか、非含水条件のもの(No.20)の2試料に顕著であった(図3.1.1-2)。CCAはこの他にも、これらと同一の剪断条件でガウジ模擬物質に蒸留水を添加し試験を行った後の試料(No.21)で確認された(図3.1.1-2)。ただしこの試料では、No.20、No.22に比べて石英粒子の周囲の物質の幅が小さいか、あるいは石英粒子を完全には取り囲んでいなかった。このようなCCAは、すべり速度1 m/s、軸圧1 MPa、変位量30 mで行った試験のうち、花崗岩を母岩としてガウジ模擬物質に鉄(Fe)とMnの濃度比が1:1の溶液を添加した場合(No.23)と、砂岩を母岩としてガウジ模擬物質に蒸留水を添加した場合(No.5)の2試料においても観察された(図3.1.1-2)。

No.22の試料では、石丸ほか(2018)²⁾においても報告したようにCCAの反射電子組成像から、石英粒子の周囲に石英中の元素よりも原子番号の大きい元素を含む物質が付着していることが確認できた(図3.1.1-3)。この物質に対してEPMAによる面分析を実施したところ、マグネシウム(Mg)、アルミニウム(Al)、カリウム(K)、Feが周囲より多く含まれているという結果が得られたことから、これは破碎した黒雲母が石英粒子の周囲に濃集したものと考えられる(図3.1.1-3)。ただし、これまでの化学分析ではCCAにおけるMnの明瞭な濃集は認められていない。

(4) 主な成果と課題

これまでに CCA の形成が確認された 5 試料の実験条件から考察すると、CCA の形成には(1)水の添加の有無は無関係と考えられる。一方で、垂直応力が 3 MPa の実験において特に CCA の形成が顕著であることから、CCA の形成には(2)垂直応力が関与している可能性がある。さらに、試料の切断面において CCA の分布に規則性が見られないことから、(3)切断面の速度範囲(約 0.64~1.00 m/s)においては、速度は CCA の形成に影響しないと考えられる。

今回はガウジの模擬物質として石英と黒雲母を混合したものを用いたが、今後は斜長石も模擬ガウジの材料に加え、粘土鉱物の生成による CCA の形成状況の変化や化学的影響等の検討も行う。また、実際の活断層と非活断層それぞれの断層岩に対して組織観察や元素マッピング等を行い、これまでに得た高速摩擦試験後の試料の観察・分析結果と比較することにより、活断層を特徴づける元素の挙動や岩石組織の変化の抽出を目指す。

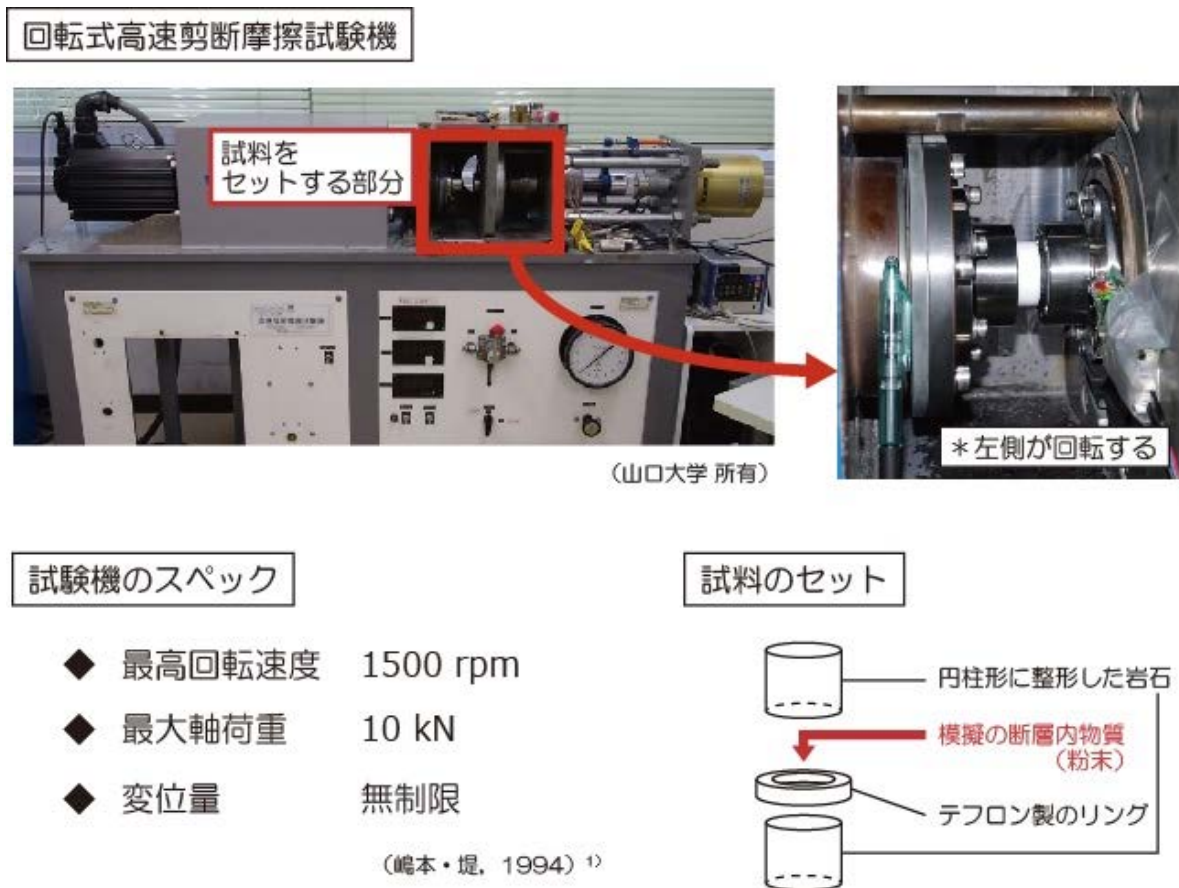


図 3.1.1-1 回転式高速剪断摩擦試験機と、本研究における試料のセット方法の概要

表 3.1.1.1-1 高速摩擦試験の実験条件と、各試験における CCA 形成の有無

No.	Material		Added water		Rock type	Slip Rate [m/s]	Normal Stress [MPa]	Displacement [m]	Formation of CCAs	
	Quartz [wt%]	Biotite [wt%]	Amount [mL]	Composition					Observation*	Remarks
1	50	50	—	—	Granite	1.0	1	30	—	unsuccessful
2	95	5	—	—	Granite	0.3	1	30	△	
3	50	50	1	distilled water	Granite	1.0	1	30	×	
4	95	5	1	distilled water	Granite	1.0	1	30	△	
5	50	50	1	distilled water	Sandstone	1.0	1	30	○	
6	95	5	1	distilled water	Sandstone	1.0	1	30	△	
7	50	50	—	—	Granite	—	1	—	—	compaction
8	95	5	—	—	Granite	—	1	—	—	compaction
9	100	0	—	—	Granite	1.0	1	30	×	
10	0	100	—	—	Granite	1.0	1	30	×	spherical aggregates
11	100	0	—	—	Granite	1.0	3	10	×	
12	0	100	—	—	Granite	1.0	3	10	×	spherical aggregates
13	100	0	1	distilled water	Granite	1.0	1	30	×	
14	0	100	1	distilled water	Granite	1.0	1	30	×	spherical aggregates
15	100	0	1	distilled water	Granite	1.0	3	10	×	
16	0	100	1	distilled water	Granite	1.0	3	10	×	
17	100	0	1	Mn 1000 ppm	Granite	1.0	3	10	×	
18	0	100	1	Mn 1000 ppm	Granite	1.0	3	10	×	
19	50	50	—	—	Granite	0.3	1	30	—	unsuccessful
20	50	50	—	—	Granite	1.0	3	10	◎	
21	50	50	1	distilled water	Granite	1.0	3	10	○	imperfectly formed CCAs
22	50	50	1	Mn 1000 ppm	Granite	1.0	3	10	◎	
23	50	50	1	Fe 50 ppm Mn 50 ppm	Granite	1.0	1	30	○	
24	50	50	1	Na 100 ppm	Granite	1.0	1	30	△	
25	95	5	1	Na 100 ppm	Granite	1.0	1	30	△	

*◎: 明瞭に形成されている, ○: ◎ほど明瞭ではないが形成されている, △: 組織変形が見られるが CCA の形成は見られない, ×: 形成されていない

No.	20	22	21	23	5
CCAの形成状況	◎ 明瞭	◎ 明瞭	○ やや不明瞭	○ やや不明瞭	○ やや不明瞭
反射電子組成像					
カウシ			石英 + 黒雲母 (質量比 1:1)		
添加水	なし (非含水)	Mn標準液 (1000 mg/L)	蒸留水添加	Mn標準液 + Fe標準液 (いずれも100 mg/L)	蒸留水添加
母岩		花崗岩			砂岩
すべり速度*		1 m/s * 梶本・梶 (1994) 1) で定義された「等価変位速度」			
垂直応力	3 MPa				1 MPa
変位量	10 m				30 m

図 3.1.1-2 CCA 形成状況

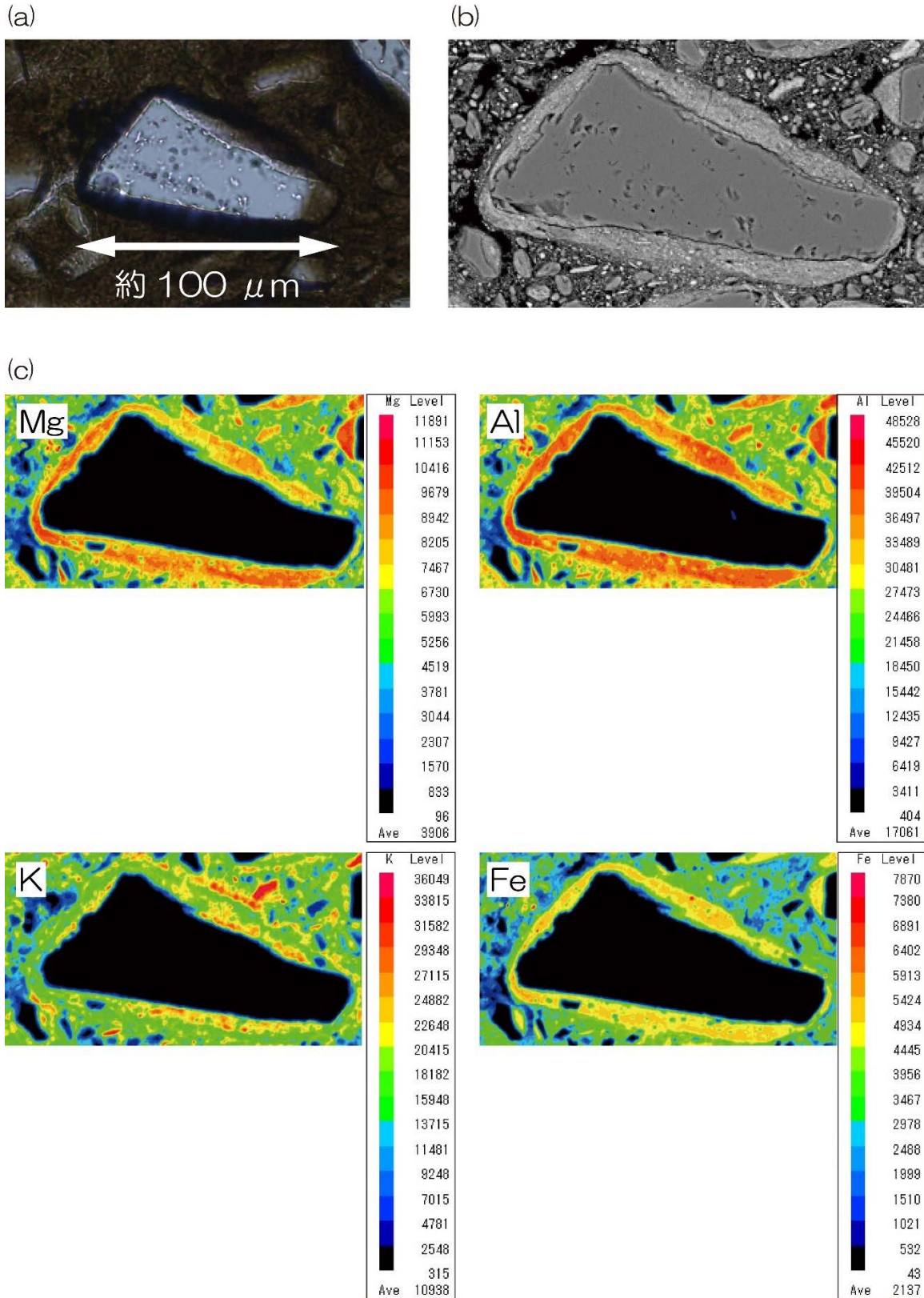


図 3.1.1-3 No.22 の試料で観察された CCA の(a)偏光顕微鏡写真, (b)反射電子組成像, (c)EPMA による元素マッピングの結果(カラーバー右側の数値は X 線強度を表し, 単位は cps/μA)

参考文献

- 1) 嶋本利彦, 堤 昭人, 新しい回転式高速剪断摩擦試験機: その基本設計と研究目的, 構造地質, vol.39, 1994, pp.65-78.
- 2) 石丸恒存, 安江健一, 浅森浩一, 國分(齋藤)陽子, 丹羽正和, 渡邊隆広, 横山立憲, 藤田奈津子, 雑賀 敦, 清水麻由子, 小川大輝, 地質環境の長期安定性に関する研究 年度報告書(平成28年度), JAEA-Research 2018-008, 2018, 83p.
- 3) Boutareaud, S., Calugaru, D.G., Han, R., Fabbri, O., Mizoguchi, K., Tsutsumi, A., Shimamoto, T., Clay-clast aggregates: A new textural evidence for seismic fault sliding?, Geophysical Research Letters: Solid Earth, vol.35, no.5, 2008, doi:10.1029/2007GL032554.
- 4) Spray, J.G., Artificial generation of pseudotachylyte using friction welding apparatus: simulation of melting on a fault plane, Journal of Structural Geology, vol.9, no.1, 1987, pp.49-60.
- 5) Di Toro, G., Han, R., Hirose, T., De Paola, N., Nielsen, S., Mizoguchi, K., Ferri, F., Cocco, M., Shimamoto, T., Fault lubrication during earthquakes, Nature, vol.471, no.7339, 2011, pp.494-498.
- 6) Boullier, A.M., Yeh, E.C., Boutareaud, S., Song, S.R., Tsai, C.H., Microscale anatomy of the 1999 Chi-Chi earthquake fault zone, Geochemistry, Geophysics, Geosystems, vol.10, no.3, 2009, doi:10.1029/2008GC002252.
- 7) Han, R., Hirose, T., Clay-clast aggregates in fault gouge: An unequivocal indicator of seismic faulting at shallow depths?, Journal of Structural Geology, vol.43, 2012, pp.92-99.
- 8) 大橋聖和, 小林健太, 中部地方北部, 牛首断層中央部における断層幾何学と過去の運動像, 地質学雑誌, vol.114, no.1, 2008, pp.16-30.
- 9) Oohashi, K., Hirose, T., Shimamoto, T., Shear-induced graphitization of carbonaceous materials during seismic fault motion: Experiments and possible implications for fault mechanics, Journal of Structural Geology, vol.33, no.6, 2011, pp.1122-1134.
- 10) 清水麻由子, 丹羽正和, 田中義浩, 青木和弘, 亀高正男, 六甲断層・五助橋断層の断層岩における化学組成変化, 日本地質学会第 122 年学術大会, 2015, R12-P-14.
- 11) 大谷具幸, 山下光将, 小嶋 智, 若居勝二, 各務和彦, 2011 年 4 月 11 日福島県浜通りの地震で地表に現れた断層ガウジと元素移動の関係, 日本地質学会第 119 年学術大会, 2012, R14-O-11.
- 12) 大谷具幸, 河野雅弘, 小嶋 智, 前期更新世までに活動を停止した断層における破砕帯の鉱物学的・地化学的特徴, 日本地質学会第 121 年学術大会, 2014, R15-O-12.

3.1.2 地殻構造の高空間分解能イメージング技術

(1) はじめに

将来の地層処分システムに重大な影響を及ぼす可能性がある現象(例えば、断層運動、マグマ活動)の潜在的なリスクを排除するためには、地表からの調査の段階において、地下深部における震源断層や流体(メルトや水)等の存否や構造をあらかじめ確認しておくための調査技術が必要となる。特に、地殻中部に存在する微小地震の集中域や地殻深部に流体等が存在するような領域の付近では、将来の活動によって地殻浅所まで破断が進展することや、それに伴って地下深部の流体が流入する可能性も考えられるため、これらに関連する地下深部の不均質構造を把握するための技術基盤の整備を進める。

これまで、本研究における研究開発は内陸部を事例とした検討を中心として進めてきた。一方で、「地層処分に関する地域の科学的な特性の提示に係る要件・基準の検討結果」(総合資源エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 地層処分技術ワーキンググループ, 2017¹⁾)では、廃棄体の輸送時における安全性の確保の観点から、沿岸部(島嶼部や海底下を含む)については「好ましい範囲」の要件の一つと整理されている。このため、沿岸部における地殻構造(特に、地下深部のマグマ・深部流体)の調査技術についても検討を進めてきた。平成 30 年度は、地下深部のマグマ・深部流体の分布推定に有効と考えられる技術(地震学的手法、電磁気学的手法等)のうち、陸域と比べて空間分解能や精度が劣ることが想定される自然地震データを用いた地震学的手法(震源再決定及び地震波トモグラフィ)について、その改善に向けた手法の検討を行った。

(2) 当該分野に係る科学的・技術的背景

地殻や上部マントルにおける流体分布の推定に関するこれまでの調査・研究では、地震波トモグラフィや地磁気・地電流(MT: Magnetotelluric)法といった自然由来の現象(自然地震、地磁気・地電流)の観測に基づく手法が主要な方法として用いられてきた。一般に、どちらの手法を適用する場合も対象とするマグマや深部流体の空間スケールと同程度以上の観測点間隔(観測点密度)で観測点を展開し、地下構造を推定するための解析に十分な質と量のデータを取得することが必要となる。

このうち地震波トモグラフィは多量の地震データを用いた逆解析(インバージョン)により地下の地震波速度構造を推定する手法であり、内陸部の下部地殻や上部マントルに存在する部分熔融域や深部流体を検出した事例が多く報告されている(例えば、Nakajima and Hasegawa, 2003²⁾)。ただし、地震波速度構造の推定に十分な数のP波、S波初動到達時刻データを蓄積するには、一般に数年以上の観測期間を要するため、定常地震観測網で観測されたデータを用いる必要がある。現時点において内陸部に地震波トモグラフィを適用する場合は、防災科学技術研究所が運用する高感度地震観測網(Hi-net)等、日本列島全域に約 20 km の観測点間隔で展開されている定常地震観測網を用いることが可能であり、これと同程度の空間分解能を有する解析が可能である。一方で海域では、太平洋沖や南海トラフ沖に日本海溝海底地震津波観測網(S-net)や地震・津波観測監視システム(Do-net)と呼ばれる地震観測網が一部の地域において近年整備されているものの(例えば、金沢ほか, 2009³⁾)、その観測点間隔は 30 km より大きく、内陸部と同等の空間分解能で地下深部構造を推定することは難しい。

また、地震波トモグラフィのように自然地震の観測に基づく手法を適用する場合は、解析の入力データとなる震源パラメータ(震源位置及び発震時刻)が精度よく決定されている必要がある。沿岸部では、陸域と海域の地震観測網を統合した解析によって震源パラメータを推定する解析(震源決定)を行うことになるが、これを高い精度で行うためには海岸線付近を境として急激に厚くなる海域の堆積層(極めて地

震波速度が遅い層)の存在を考慮する必要がある(Nakano *et al.*, 2015⁴⁾)。さらに、海域のように地震観測網の端部や外側で発生する地震の震源決定精度は、観測網の内側(内陸部)に比べて極めて低い。このため海域では、地震波トモグラフィをはじめとした解析の精度もまた低下することとなる。以下では、マグマや深部流体の有無や分布を把握するための主要な手法の一つと考えられる地震波トモグラフィについてこの問題点を改善するため、堆積層等の層厚分布を考慮した震源再決定を行った上で、その結果を用いた地震波トモグラフィを試行し、解析手法の妥当性について検討した結果を示す。

(3) 実施内容・結果

一般に、震源決定では震源パラメータを未知数とし、地下の一次元地震波速度構造を仮定して計算される理論走時と観測走時との差が最小となる震源パラメータをインバージョンによって推定する。そのため、仮定する地震波速度構造が実際のそれと大きく乖離している場合は、震源が誤った位置に推定されてしまう。震源分布を正確に推定するためには、上部地殻や下部地殻に比べて極めて地震波速度が遅い堆積層の存在を考慮することが重要となるが、その厚さは場所により大きく異なる。本研究では、地下深部にメルト等の火山性流体の存在が想定される利尻火山が位置し、かつ堆積層の層厚変化が著しい北海道北西部における陸域・海域を含む領域を事例として、震源再決定及び地震波トモグラフィを試行した。

震源再決定に用いた地震データは、2005年1月から2018年7月までの期間に発生し、気象庁一元化検測値データに掲載される3,509個の浅発地震である。震源再決定における理論走時の計算にあたっては、Zhao *et al.* (1992)⁵⁾による三次元高速波線追跡に、防災科学技術研究所により取りまとめられた深部地盤構造モデル(防災科学技術研究所, 2009⁶⁾)を地震波速度境界として考慮した。本解析に適用した地震波速度境界のうち、最深層の下面に相当する地震基盤面(P波速度5.0~6.0 km/s及びS波速度2.5~3.5 km/sの速度境界)について、解析領域における深さ分布を図3.1.2-1に示す。これによると、定常地震観測網が展開されている陸域の西部及び海域においては、上部地殻の平均的な地震波速度(P波速度6.0 km/s, S波速度3.5 km/s)に比べて極めて地震波速度が遅い堆積層(P波速度2.0~5.0 km/s, S波速度1.2~2.9 km/s)が厚く分布する。一方で、陸域の東側においてはほとんど存在せず、地点によりその深さは数千mの差が見られる。このため、本領域を対象とした震源決定において堆積層の分布を考慮しない場合、単純には、実際の震源位置よりも東側または深部に誤って決定されてしまうと考えられる。

この震源再決定によって得られた震源分布を、気象庁でのルーチン処理によって決定された震源(以下、初期震源)分布とともに図3.1.2-2に示す。初期震源は、その29%がうまく決定されておらず震源深さの誤差が評価されていないが、それ以外の震源の深さの誤差は平均2.46 kmであった。これに対して震源再決定後は、91%の地震が深さの誤差3.0 km以下で決定され、その平均は1.23 kmに減少した。また、震源再決定後の震源は、初期震源に比べて全体的にやや西側にシフトしている傾向が見られる(図3.1.2-2)。この傾向は、前述のように定常地震観測網の西部及び海域のみに堆積層が厚く分布することに起因すると考えられる。

地震波トモグラフィにおいても震源再決定と同様に、理論波線や理論走時の計算において深部地盤構造モデル(防災科学技術研究所, 2009⁶⁾)を考慮し、北海道北西部における三次元地震波速度構造を推定した上で、従来の解析手法に基づく結果と比較した。解析に使用した地震データは、上述した震源再決定後のデータから選出した1,361個の地震であり、それに含まれるP波及びS波到達時刻データ数はそれぞれ22,155個及び19,449個である。また、従来の手法による解析では、これと同一の地震について初期震源の震源パラメータを用いているが、P波及びS波の到達時刻データは同一である。解析では、

対象領域内における格子点 (grid point) を鉛直方向には深さ 5 km, 10 km, 25 km に、水平方向には約 33 km の間隔で設置し、Zhao *et al.* (1992)⁵⁾によるアルゴリズムを用いたインバージョンにより、地殻の三次元 P 波及び S 波速度構造を推定した。

堆積層の層厚分布を考慮した今回の手法と従来の手法により推定された、P 波及び S 波速度偏差分布の平面図をそれぞれ図 3.1.2-3 及び図 3.1.2-4 に示す。従来の手法による解析結果 (図 3.1.2-3 (a) 及び図 3.1.2-4 (a)) において、第四紀火山である利尻火山周辺の地震波速度は平均的な速度から高速度の領域としてイメージされた。この傾向は、地震波トモグラフィを用いて近年行われた研究 (Niu *et al.*, 2016⁷⁾) でも同様である。一方で、今回の手法を用いた解析結果 (図 3.1.2-3 (b) 及び図 3.1.2-4 (b)) では、P 波速度、S 波速度ともに地震波低速度の領域としてイメージされており、利尻火山周辺に対する二つの解析結果は大きく異なる傾向を示す。

地下にメルト等の流体が存在する場合は、P 波速度、S 波速度ともに低速度、かつ高ポアソン比を示すことが知られている (例えば、O'Connell and Budiansky, 1974⁸⁾; Zhao and Negishi, 1998⁹⁾)。また、利尻火山周辺の地殻においては低周波微小地震の発生が認められるが (図 3.1.2-3 及び図 3.1.2-4)、その発生には深部から火山に供給される流体の存在が関与していると考えられている。これまでの研究において、低周波微小地震の震源は地震波トモグラフィ等によって推定された流体分布域の周辺に位置することが多いが (例えば、Nakajima and Hasegawa, 2003²⁾; Hasegawa *et al.*, 2005¹⁰⁾)、今回の手法を用いた解析結果では、利尻火山下の地震波低速度 (図 3.1.2-3 及び図 3.1.2-4) かつ高ポアソン比 (図 3.1.2-5) の領域に分布する。さらに、利尻火山周辺下のマントル・ウェッジでは、流体の上昇を示唆する顕著な地震波低速度体が見出されている (Liu *et al.*, 2013¹¹⁾; Asamori and Zhao, 2015¹²⁾; Niu *et al.*, 2016⁷⁾)。以上のことから、堆積層の層厚分布を考慮した解析によって利尻火山下の上部地殻に認められた地震波低速度かつ高ポアソン比の領域は、その火山活動に関連した流体 (メルトまたは高温の水) の存在を示唆すると考えられる。また、従来の手法を適用した場合に認められた地震波高速度体は、解析領域における堆積層の層厚変化が顕著であることに伴う偽像である可能性が考えられる。

(4) 主な成果と課題

以上の成果は、マグマや深部流体の有無や分布を把握するための解析に必要となる自然地震の震源決定や地震波トモグラフィについて、その精度を向上させるためには、堆積層の分布を考慮した解析が有効であることを示唆する。また本手法は、堆積層の層厚が急変し、かつ定常地震観測網の端部に位置する沿岸部においては特に有効であると考えられる。今後は、これらの成果に関する取りまとめを進める。

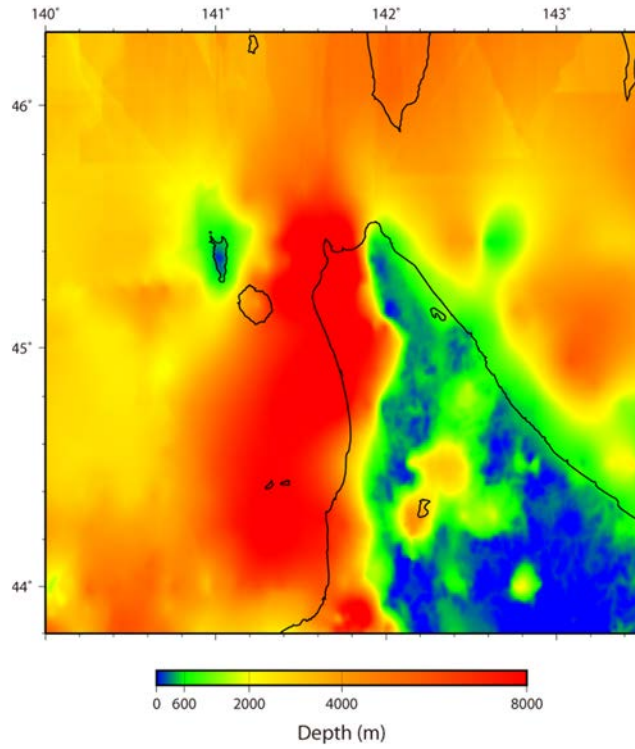


図 3.1.2-1 解析領域における地震基盤深度の深さ分布
 深部地盤構造モデル(防災科学技術研究所, 2009⁶⁾)をもとに作成した。

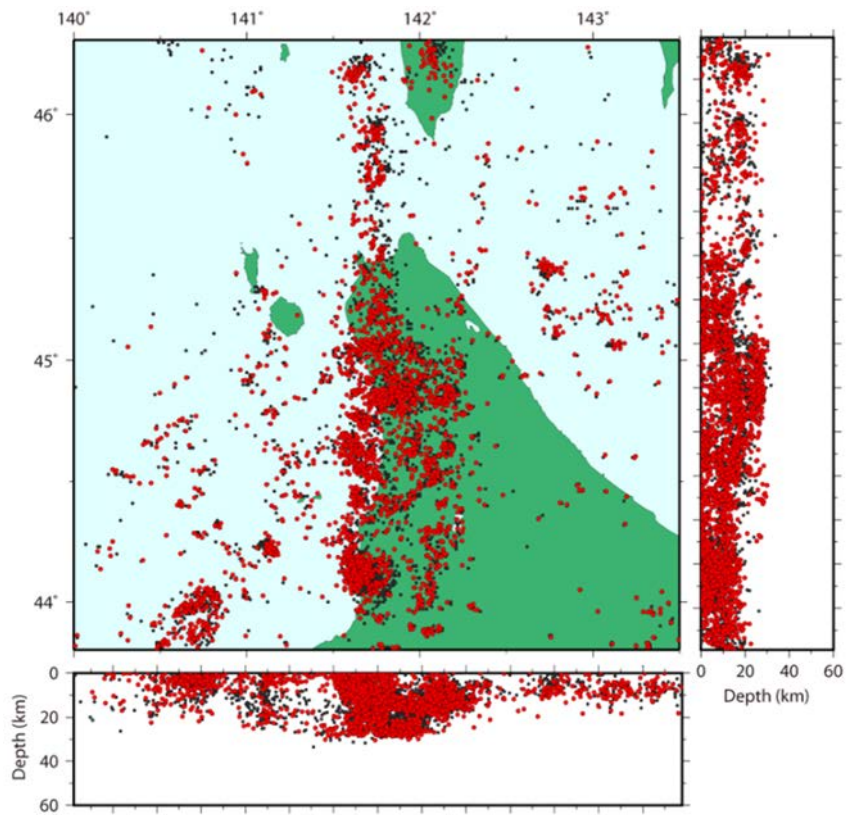


図 3.1.2-2 初期震源の震央分布(黒丸)及び震源再決定後の震源(赤丸)の分布

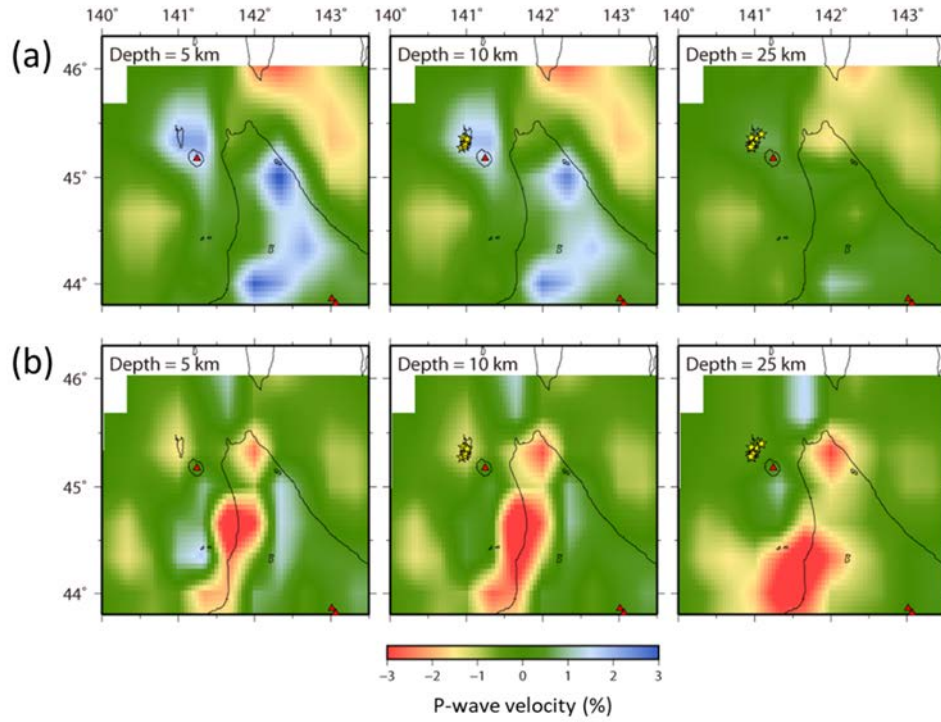


図 3.1.2-3 各深度における P 波速度偏差の分布

(a)従来の手法による解析結果, (b)堆積層の層厚分布を考慮した手法による解析結果。星印及び赤三角は, それぞれ低周波地震及び第四紀火山を示す。

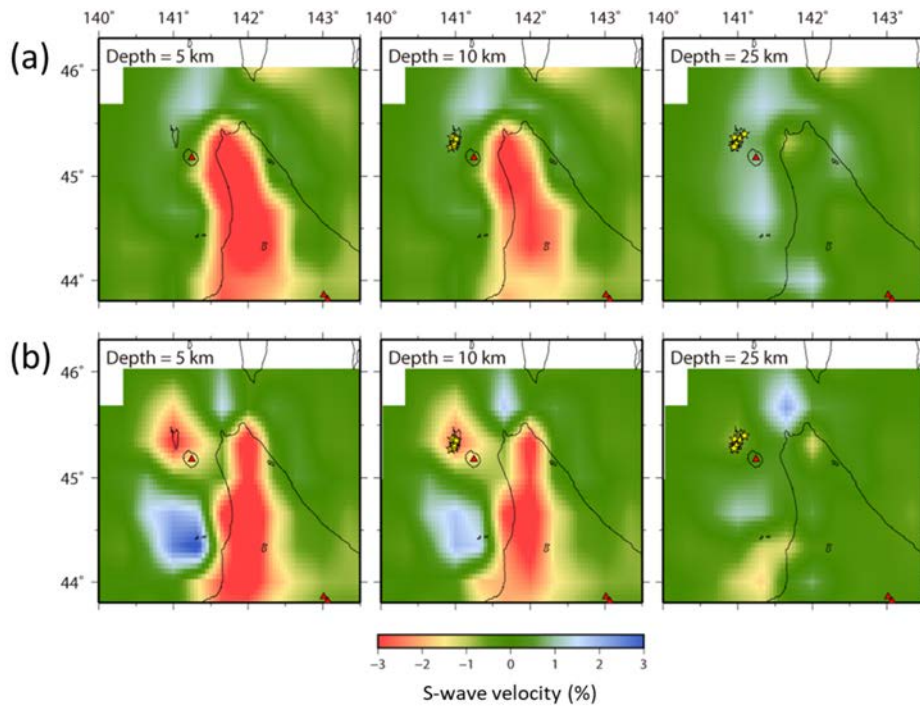


図 3.1.2-4 各深度における S 波速度偏差の分布

(a)従来の手法による解析結果, (b)堆積層の層厚分布を考慮した手法による解析結果。星印及び赤三角は, それぞれ低周波地震及び第四紀火山を示す。

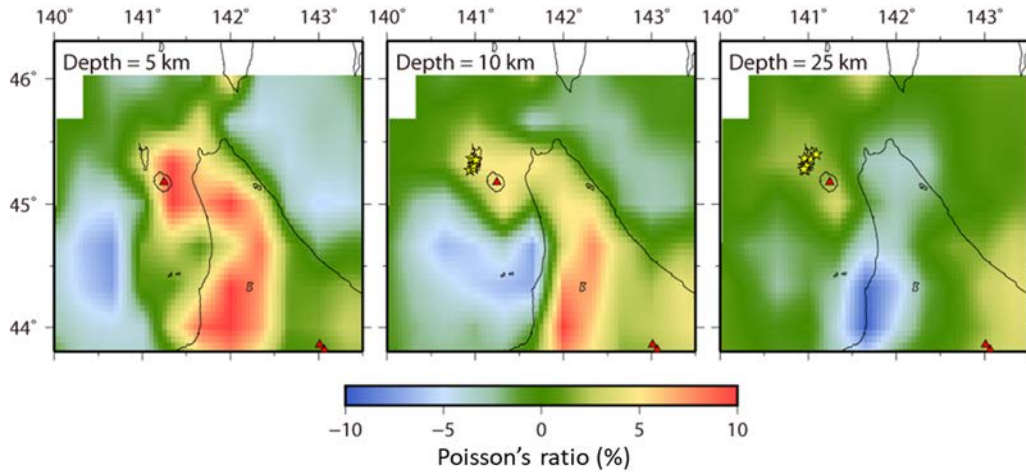


図 3.1.2-5 堆積層厚の変化を考慮した解析により推定された各深度のポアソン比偏差の分布
星印及び赤三角は、それぞれ低周波地震及び第四紀火山を示す。

参考文献

- 1) 総合資源エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 地層処分技術ワーキンググループ, 地層処分に係る地域の科学的な特性の提示に係る要件・基準の検討結果(地層処分技術 WG とりまとめ), 2017, 89p.
- 2) Nakajima, J., Hasegawa, A., Tomographic imaging of seismic velocity structure in and around the Onikobe volcanic area, northeastern Japan: implications for fluid distribution, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, vol.127, no.1-2, 2003, pp.1-18.
- 3) 金沢敏彦, 篠原雅尚, 塩原 肇, 海底地震観測の最近の進展—海底地震観測システムと海底における自然地震観測の進展について—, *地震 第2輯*, vol.61, Supplement, 2009, pp.55-68.
- 4) Nakano, M., Nakamura, T., Kaneda, Y., Hypocenters in the Nankai trough determined by using data from both ocean-bottom and land seismic networks and a 3D velocity structure model: Implications for seismotectonic activity, *Bulletin of the Seismological Society of America*, vol.105, no.3, 2015, pp.1594-1605.
- 5) Zhao, D., Hasegawa, A., Horiuchi, S., Tomographic imaging of P and S wave velocity structure beneath northeastern Japan, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, vol.97, no.B13, 1992, pp.19909-19928.
- 6) 防災科学技術研究所, 強震動評価のための全国深部地盤構造モデル作成手法の検討, 防災科学技術研究所研究資料, no337, 2009, 265p.
- 7) Niu, X., Zhao, D., Li, J., Ruan, A., P wave azimuthal and radial anisotropy of the Hokkaido subduction zone, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, vol.121, no.4, 2016, pp.2636-2660.
- 8) O'Connell, R.J., Budiansky, B., Seismic velocities in dry and saturated cracked solids, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth and Planets*, vol.79, no.35, 1974, pp.5412-5426.

- 9) Zhao, D., Negishi, H., The 1995 Kobe earthquake: Seismic image of the source zone and its implications for the rupture nucleation, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, vol.103, no.B5, 1998, pp.9967-9986.
- 10) Hasegawa, A., Nakajima, J., Umino, N., Miura, S., Deep structure of the northeastern Japan arc and its implications for crustal deformation and shallow seismic activity, *Tectonophysics*, vol.403, no.1-4, 2005, pp.59-75.
- 11) Liu, X., Zhao, D., Li, S., Seismic heterogeneity and anisotropy of the southern Kuril arc: insight into megathrust earthquakes, *Geophysical Journal International*, vol.194, no.2, 2013, pp.1069-1090.
- 12) Asamori, K., Zhao, D., Teleseismic shear wave tomography of the Japan subduction zone, *Geophysical Journal International*, vol.203, no.3, 2015, pp.1752-1772.

3.1.3 深部流体の分布に関する調査技術

(1) はじめに

地層処分システムが長期的に安全機能を発揮するためには、地層処分の場となる地質環境に期待される閉じ込め機能の観点から、好ましい地質環境特性が長期にわたって維持されることが重要となる。変動帯に位置する我が国においては、これに関わる自然現象として、火山・火成活動、地震活動・断層運動、隆起・侵食が従来より着目されてきた。経済産業省の総合資源エネルギー調査会に設置された地層処分技術ワーキンググループにより示された「最新の科学的知見に基づく地層処分技術の再評価」(総合資源エネルギー調査会電力・ガス事業分科会原子力小委員会地層処分技術ワーキンググループ, 2014¹⁾)では、地層処分システムにおける閉じ込め機能の喪失につながる事象の一つとして、「火山性熱水や深部流体の移動・流入」が挙げられ、深部流体に対する考慮の必要性が最近の科学的知見を踏まえて新たに指摘されている。また、深部流体は、沈み込むスラブやマントル起源の流体が断層系等を通じて地表付近に上昇する(産業技術総合研究所, 2012²⁾)もので、pH が低く炭酸化学種が高濃度に含まれる等の特徴があり、温度が高い場合には熱環境への影響も考慮すべきであることが指摘されている。そのため、これらが流入する範囲では地質環境として好ましくない熱環境や化学場が生成される可能性があり、概要調査等においてその影響を排除することが望ましい(総合資源エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 地層処分技術ワーキンググループ, 2014¹⁾)とされている。

深部流体の流入の可能性や地質環境への影響を適切に評価するためには、深部流体そのものの化学的・熱的性状のほかに、流入の経路となり得る地質環境の特性(流体の移動に関与する断層やクラックの性状等)に関する知見を得ておくことが重要であると考えられる。そのため平成30年度は、流入経路となり得る地質環境の特徴(地下深部の断層やクラックの性状)を抽出するため、深部流体の流入が高温の温泉の湧出等に関与していると指摘されている紀伊半島を事例とした地震波解析(三次元波線追跡及びS波スプリッティング解析)を実施した。

(2) 当該分野に係る科学的・技術的背景

我が国には、常磐地域、能登半島、新潟平野、紀伊半島等、非火山地帯にもかかわらず高温の温泉が湧出している地域がいくつか存在する(産業技術総合研究所, 2004³⁾)。このうち紀伊半島には湯の峰(92℃)、白浜(78℃)等といった、前弧域としては特異な高温の温泉が存在する(産業技術総合研究所, 2005⁴⁾)。温泉井及び掘削井における地化学調査の結果(新エネルギー・産業技術総合開発機構, 1994⁵⁾)によると、深部からの熱水(約210℃)の上昇により、深度1,500mで100~180℃、地表では最大92.0℃の温泉が自噴していると報告されている(西村, 2001⁶⁾)。紀伊半島におけるこれらの熱水の起源については、温泉水の同位体組成のほか、低周波地震の分布、地震波速度構造、比抵抗構造といった地球化学・物理学的な情報から、フィリピン海スラブから脱水した流体が関与していると考えられている(例えば, Umeda *et al.*, 2006⁷⁾; Morikawa *et al.*, 2016⁸⁾)。

既に述べたように、深部流体は断層系等を通じて地下深部から地表付近に上昇すると考えられているが(産業技術総合研究所, 2012²⁾)、このような流体の移動に関与する断層やクラックの性状等を知るために有効な手法の一つとして、S波スプリッティング解析が挙げられる。一般に、地殻を構成する岩石中にクラックが高密度に発達した異方性媒質をS波が通過すると、異なる伝播速度をもち、互いに直交する方向に振動する二つのS波に分裂するという現象が生じる。この現象のことをS波スプリッティングといい、S波の振動方向によって伝播速度が異なる性質のことをS波偏向異方性という。なお、断層についても、微

視的な視点で見れば、微小なクラックの集合体として捉えることができるため、地殻内に存在する一種の異方性媒質として扱うことができる。この時、速い S 波の振動方向 (ϕ) は、クラック面に平行な方向となる。また、観測点に速い S 波が到達してから遅い S 波が到達するまでの時間差 (dt) は、S 波が通過した異方性媒質内のクラック密度が高いほど、大きくなることが知られている (Savage, 1999⁹⁾)。さらに、 dt は、クラックの伸びる方向に対する S 波の入射角にも強く依存し、クラックの長軸方向に対して S 波が平行な方向から入射した場合に、最も大きくなることが理論的に明らかにされている (Hudson, 1980¹⁰⁾, 1981¹¹⁾)。以上の S 波スプリッティングに関する性質を利用することにより、流体の移動経路となり得るクラックの性状や、クラック密度、断層面の存在といった情報が抽出できる可能性があると考えられる。

(3) 実施内容・結果

後述する S 波スプリッティング解析によって得られる地震波速度異方性に係るパラメータ (スプリッティングした S 波の偏向方位 ϕ 及び到達時間差 dt) は、解析に用いたそれぞれの震源－観測点間の S 波伝播経路 (波線) 上における地震波速度異方性が積算されたものである。そのため、地震波の波線が異なれば、得られる地震波速度異方性のパラメータもそれぞれ異なることとなる。ここでは、地殻における地震波速度異方性の空間的な特徴を検討するために必要となる波線を精密に推定するため、紀伊半島下の地殻及び上部マントルを対象とした三次元波線追跡を実施した。

三次元波線追跡には、Zhao *et al.* (1992)¹²⁾による高速波線追跡法を用いた。解析では、地震波速度不連続面における波線の屈曲はスネルの法則にしたがいつつ、それぞれの地震波速度不連続面間においては Um and Thurber (1987)¹³⁾による pseudo-bending 法を用いて、震源－観測点間の波線を繰り返し計算によって求めた。地震波速度不連続面としては、地表付近の地震波速度モデル (防災科学技術研究所, 2009¹⁴⁾)、Moho 面、Conrad 面の深さ分布 (Katsumata, 2010¹⁵⁾)、フィリピン海スラブ上面の深さ分布 (Hirose *et al.*, 2008¹⁶⁾) 及び既存の地震探査 (Kodaira *et al.*, 2000¹⁷⁾; Nakanishi *et al.*, 2002¹⁸⁾; 伊藤ほか, 2007¹⁹⁾; Ito *et al.*, 2009²⁰⁾) を参考としてスラブ内の Moho 面 (海洋地殻の厚さは一様に 8.0 km とした) の分布を考慮した。また、それぞれの層内における地震波速度は、既存の地震探査や地震波トモグラフィによる研究 (Nakajima and Hasegawa, 2007²¹⁾; Hirose *et al.*, 2008¹⁶⁾) を参照して設定した。なお、海洋地殻及びスラブマントルの S 波速度は、平均的な上部マントルの地震波速度に比べてそれぞれ -8.0 % 及び +8.0 % に相当する速度とした。

また、S 波スプリッティング解析には、Silver and Chan (1991)²²⁾ による手法を用いた。この解析には、防災科学技術研究所により公開されている高感度地震観測網 (Hi-net) の連続波形データを用いた。本解析では、以下の異なる二つの地震のグループに対して解析を行った。一つ目の地震のグループは、2004 年 6 月から 2008 年 11 月までの期間に深さ 80 km 以浅で発生したマグニチュード (M) 3～4 の地震の中で、少なくとも 30 点以上の観測点で観測されている 11 個の地震である (図 3.1.3-1)。これに対して、二つ目の地震のグループは、2009 年 6 月から 2010 年 1 月までの期間に発生した M 1～4 の地震である (図 3.1.3-1)。

図 3.1.3-2 に S 波スプリッティング解析の結果の平面図を示す。ここでは各観測点で観測された地震波について、バーの向きが速い S 波の振動方向 (ϕ) を示し、バーの長さが速い S 波と遅い S 波の到達時間差 (dt) の大きさを示す。これによると、大局的に ϕ 及び dt は、ともにばらつきが大きいことがわかる。このことは、解析に用いた地震の数が十分でないことが要因の一つであると考えられる。一方、観測される S 波偏向異方性は、震源から観測点へと至る波線上に存在する異方性媒質による影響が積算されたものである。したがって、 ϕ 及び dt に見られるばらつきは、それぞれの地震波が通過した媒質の異方性に関する特徴が異なることを示している可能性も考えられる。

図 3.1.3-3 には、解析によって得られた dt を波線の長さで規格化し、波線上に表示した結果を示す。これによると、断面の北西側から約 100 km の距離の地点において、この値が大きく顕著な異方性の存在を示唆する波線が南東方向から到来していることがわかる。さらに、120 km の地点においても 100 km の地点に見られる波線とほぼ平行に、南東方向から大きな値を示す波線が到来していることがわかる。また、100 km の距離の地点においては、北西方向の深さ 10 km 付近から到来する大きな値を示す波線も認められる。このうち、断面の北西側から約 120 km の地点に位置する本宮観測点の近傍に湧出する温泉水 (92 °C) のヘリウム同位体比 ($^3\text{He}/^4\text{He}$) は、大気のそれに比べて有意に高く、マントル起源ヘリウムの上昇が示唆されている (例えば, Sano and Wakita, 1985²³)。また、紀伊半島南部下における低周波地震の発生域周辺には、地震波速度構造や比抵抗構造の推定によって、フィリピン海スラブの脱水により生じた深部流体の存在が示唆されており (例えば, Umeda *et al.*, 2006⁷; Kato *et al.*, 2014²⁴)、顕著な異方性を示す波線はこれらの領域を繋ぐように分布するようにも見える (図 3.1.3-3)。これらのことから、顕著な異方性を示す波線の分布は、深部流体の流入経路を映し出している可能性が示唆される。しかしながら、前述した解析結果のばらつきを考慮すると、更なるデータの蓄積による検討が必要である。

(4) 主な成果と課題

本研究では、紀伊半島を対象とした三次元波線追跡及び S 波スプリッティング解析を行った。その結果、深部流体の流入経路を顕著な異方性を示す波線の分布としてイメージングできる可能性を示した。今後は、特に地殻内で発生した地震を新たにデータに加え、地殻内における S 波偏向異方性の特徴を詳細に解析する予定である。

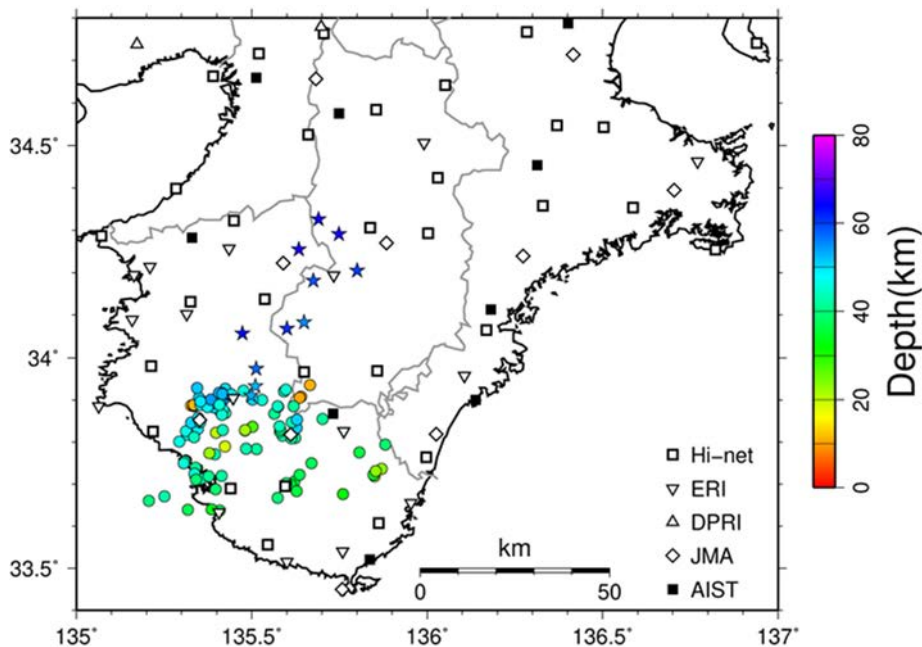


図 3.1.3-1 S 波スプリッティング解析に用いた震源及び観測点の分布

星印は 2004 年 6 月から 2008 年 11 月まで期間に深さ 80 km 以浅で発生した地震の震央。丸印は 2009 年 6 月から 2010 年 1 月まで期間に発生した地震の震央を示す。

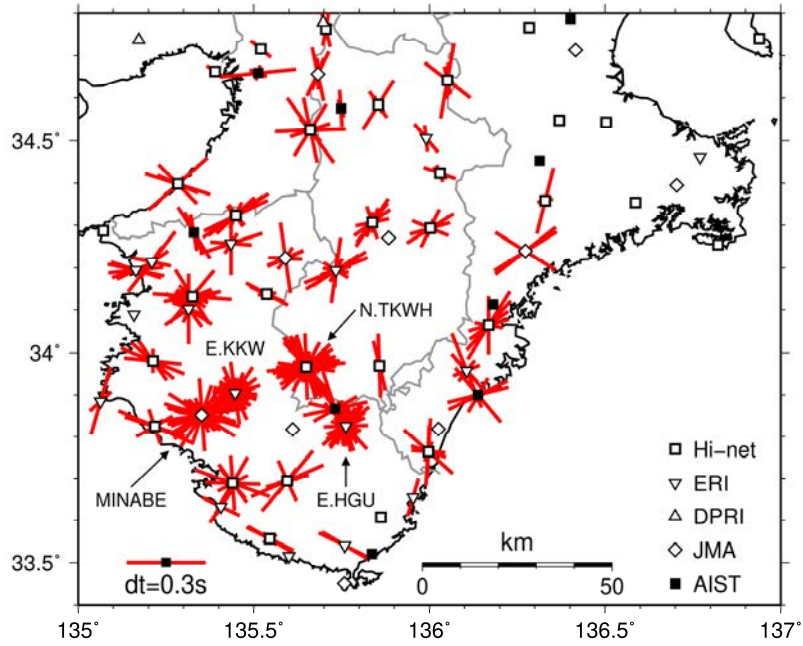


図 3.1.3-2 S波スプリッティング解析の結果

バーの向きは速い S 波の振動方向 (ϕ), バーの長さは速い S 波と遅い S 波の到達時間差 (dt) の大きさを示す。

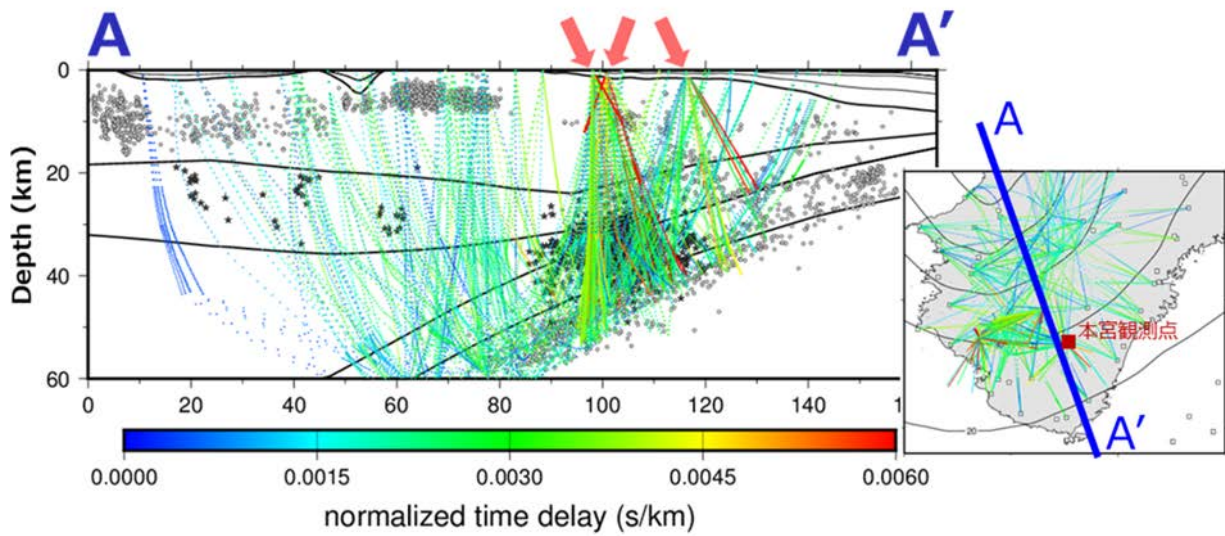


図 3.1.3-3 波線長で規格化した場合の到達時間差 (dt) の断面図 (左図) 及び平面図 (右図)

左図の白丸及び黒星印は、それぞれ通常地震及び低周波地震の震源を示す。右図の黒線は、フィリピン海スラブ上面深度のコンター (10 km 間隔) を示す。

参考文献

- 1) 総合資源エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 地層処分技術ワーキンググループ, 最新の科学的知見に基づく地層処分技術の再評価—地質環境特性および地質環境の長期安定性について—, 2014, 61p.
- 2) 産業技術総合研究所, 概要調査の調査・評価項目に関する技術資料—立地要件への適合性とその根拠となる調査結果の妥当性—, 産業技術総合研究所地質調査総合センター研究資料集, no.560, 2012, 112p.
- 3) 産業技術総合研究所地質調査総合センター編, 日本列島及びその周辺域の地温勾配及び地殻熱流量データベース, 数値地質図 P-5, 2004.
- 4) 産業技術総合研究所地質調査総合センター編, 日本温泉・鉱泉分布図及び一覧 CD-ROM 版(第2版), 数値地質図 GT-2, 2005.
- 5) 新エネルギー・産業技術総合開発機構, 本宮地域, 地熱開発促進調査報告書, no.37, 1994, 885p.
- 6) 西村 進, 紀伊半島の温泉とその熱源, 温泉科学, vol.51, no.3, 2001, pp.98-107.
- 7) Umeda, K., Ogawa, Y., Asamori, K., Oikawa, T., Aqueous fluids derived from a subducting slab: Observed high ^3He emanation and conductive anomaly in a non-volcanic region, Kii Peninsula southwest Japan, Journal of Volcanology and Geothermal Research, vol.149, no.1-2, 2006, pp.47-61.
- 8) Morikawa, N., Kazahaya, K., Takahashi, M., Inamura, A., Takahashi, H.A., Yasuhara, M., Ohwada, M., Sato, T., Nakama, A., Handa, H., Sumino, H., Nagao, K., Widespread distribution of ascending fluids transporting mantle helium in the fore-arc region and their upwelling processes: Noble gas and major element composition of deep groundwater in the Kii Peninsula, southwest Japan, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol.182, 2016, pp.173-196.
- 9) Savage, M.K., Seismic anisotropy and mantle deformation: What have we learned from shear wave splitting?, *Reviews of Geophysics*, vol.37, no.1, 1999, pp.65-106.
- 10) Hudson, J.A., Overall properties of a cracked solid, *Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society*, vol.88, no.2, 1980, pp.371-384.
- 11) Hudson, J.A., Wave speeds and attenuation of elastic waves in material containing cracks, *Geophysical Journal of the Royal Astronomical Society*, vol.64, no.1, 1981, pp.133-150.
- 12) Zhao, D., Hasegawa, A., Horiuchi, S., Tomographic imaging of P and S wave velocity structure beneath Northeastern Japan, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, vol.97, no.B13, 1992, pp.19909-19928.
- 13) Um, J., Thurber, C., A fast algorithm for two-point seismic ray tracing, *Bulletin of Seismological Society of America*, vol.77, no.3, 1987, pp.972-986.
- 14) 防災科学技術研究所, 強震動評価のための全国深部地盤構造モデル作成手法の検討, 防災科学研究所研究資料, no.337, 2009, 265p.
- 15) Katsumata, A., Depth of the Moho discontinuity beneath the Japanese islands estimated by

- traveltime analysis, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, vol.115, no.B4, 2010, doi:10.1029/2008JB005864.
- 16) Hirose, F., Nakajima, J., Hasegawa, A., Three-dimensional seismic velocity structure and configuration of the Philippine Sea slab in southwestern Japan estimated by double-difference tomography, *Journal of Geophysical Research*, vol.113, no.B9, 2008, doi:10.1029/2007JB005274.
 - 17) Kodaira, S., Takahashi, N., Park, J.O., Mochizuki, K., Shinohara, M., Kimura, S., Western Nankai Trough seismogenic zone: Results from a wide-angle ocean bottom seismic survey, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, vol.105, no.B3, 2000, pp.5887-5905.
 - 18) Nakanishi, A., Takahashi, N., Park, J.O., Miura, S., Kodaira, S., Kaneda, Y., Hirata, N., Iwasaki, T., Nakamura, M., Crustal structure across the coseismic rupture zone of the 1944 Tonankai earthquake, the central Nankai Trough seismogenic zone, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, vol.107, no.B1, 2002, doi:10.1029/2001JB000424.
 - 19) 伊藤 潔, 廣瀬一聖, 澁谷拓郎, 片尾 浩, 梅田康弘, 佐藤比呂志, 平田 直, 伊藤谷生, 阿部進, 川中 卓, 井川 猛, 近畿地方における地殻および上部マントルの構造と地震活動, *京都大学防災研究所年報*, vol.50, no.B, 2007, pp.275-288.
 - 20) Ito, T., Kojima, Y., Kodaira, S., Sato, H., Kaneda, Y., Iwasaki, T., Kurashimo, E., Tsumura, N., Fujiwara, A., Miyauchi, T., Hirata, N., Harder, S., Miller, K., Murata, A., Yamakita, S., Onishi, M., Abe, S., Sato, T., Ikawa, T., Crustal structure of southwest Japan, revealed by the integrated seismic experiment Southwest Japan 2002, *Tectonophysics*, vol.472, no.1-4, 2009, pp.124-134.
 - 21) Nakajima, J., Hasegawa, A., Subduction of the Philippine Sea plate beneath southwestern Japan: Slab geometry and its relationship to arc magmatism, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, vol.112, no.B8, 2007, doi:10.1029/2006JB004770.
 - 22) Silver, P.G., Chan, W.W., Shear wave splitting and subcontinental mantle deformation, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, vol.96, no.B10, 1991, pp.16429-16454.
 - 23) Sano, Y., Wakita, H., Geographical distribution of $^3\text{He}/^4\text{He}$ ratios in Japan: Implications for arc tectonics and incipient magmatism, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, vol.90, no.B10, 1985, pp.8729-8741.
 - 24) Kato, A., Saiga, A., Takeda, T., Iwasaki, T., Matsuzawa, T., Non-volcanic seismic swarm and fluid transportation driven by subduction of the Philippine Sea slab beneath Kii Peninsula, Japan, *Earth, Planets and Space*, vol.66, no.86, 2014, doi:10.1186/1880-5981-66-86.

3.2 長期予測・影響評価モデルの開発

3.2.1 稀頻度自然現象による地質環境への影響の評価技術

(1) はじめに

2011年3月11日に発生した東北沖地震及び福島第一原子力発電所の事故は、数百年から数千年を超える時間間隔で発生する巨大地震・津波といったこれまでの原子力安全では想定していなかった自然現象のリスクを再認識させた。これに伴って、我が国の原子力政策や地層処分技術に関する研究開発を取り巻く状況は大きく変化した。このような背景のもとで示された「高レベル放射性廃棄物の処分について(回答)」(日本学術会議, 2012¹⁾)では、この地震に伴って生じた地殻変動等の自然現象に関して、今後の調査研究によって明らかになるであろう科学的知見は、高レベル放射性廃棄物の処分において確実に考慮されるべきであると指摘されている。

東北沖地震は、1,000年に1回程度の頻度で発生する海溝型巨大地震であると考えられるが、これに伴って内陸地震が活発化した地域や1m以上の沈降を生じた地域も現れた。また、地殻応力場・ひずみ場の変化によって地下水位の変化が観測されるとともに、東北沖地震の一か月後に発生した福島県浜通り地震に伴う異常湧水は数年間継続している。このような東北沖地震後の観測等によって得られつつある科学的知見も踏まえて取りまとめられた「最新の科学的知見に基づく地層処分技術の再評価」(総合資源エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 地層処分技術ワーキンググループ, 2014²⁾)では、今後の地層処分事業の取り組みと並行して進めるべき研究開発の一つとして、東北沖地震後に誘発された地震や湧水(例えば、2011年4月11日の福島県浜通り地震)に関する調査事例の蓄積の必要性が示されている。

地層処分システムにおける閉じ込め機能の喪失につながる事象の一つとして、「断層のずれに伴う透水性の増加」による水理場や化学場の変動が指摘されているが(総合資源エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 地層処分技術ワーキンググループ, 2014²⁾)、長期間の湧水といった事象の発生の可能性や、その発生を加味した安全評価を適切に行うためには、流入する可能性のある流体の賦存の有無をあらかじめ把握しておくことも重要であると考えられる。しかしながら、これまでに観測された顕著な湧水に対して、その供給源となった流体の賦存域が物理探査等によって確認された事例はない。そこで平成30年度は、地下深部から上昇した流体の流入が、地震活動に伴って生じた長期間の湧出に関与しているとも指摘されている松代群発地震の活動域を事例として、MT法により地下深部の二次元比抵抗構造を推定し、湧水の供給源となった可能性のある流体賦存域の有無について検討した。

(2) 当該分野に係る科学的・技術的背景

1946年南海地震(川辺, 1991³⁾)や1995年兵庫県南部地震(佐藤・高橋, 1997⁴⁾)等、比較的規模の大きい地震が発生した際には、その震源域を含む広域的な範囲で地下水位や間隙水圧の変化がしばしば観測される。また、震源域の近傍では数か月から数年間以上に及ぶ異常湧水が認められることがある。このような地震に伴って生じる湧水のメカニズムについては、地震の発生(断層運動)に伴う静的な地殻応力(地殻ひずみ)の変化のほか、地震波の通過や断層の変位に伴う透水性の変化が指摘されており、特に後者によって生じた場合の湧水の起源としては、周辺の山体における地下水の解放や地下深部を起源とする流体の上昇等が指摘されている(例えば, Manga and Wang, 2015⁵⁾)。

数年以上にわたる多量の湧水のように、地震活動に伴って地下水理場の顕著な変化が認められた国内での事例としては、東北沖地震後にいわき市周辺で活発化した群発地震の活動に伴う湧水(佐藤, 2015⁶⁾)のほかに、1965年から始まった松代群発地震の活動に伴う湧水が挙げられる(例えば、大竹, 1976⁷⁾;奥澤・塚原, 2001⁸⁾)。このうち第四紀火山である皆神山付近を中心として生じた松代群発地震では、マグニチュード5以上の地震を含む地震活動が約2年間にわたって継続した(Hagiwara and Iwata, 1968⁹⁾)。また、皆神山の北側においては、北西-南東方向に走向を持つ松代地震断層と呼ばれる伏在断層の左横ずれの活動が推定されている(Tsuneishi and Nakamura, 1970¹⁰⁾)。一方、湧水に関するこれまでの研究によると、この地震活動に伴った湧水は皆神山周辺で生じ(図3.2.1-1)、湧出した地下水は約1千万トン/4か月に達した(中村, 1971¹¹⁾)。また、それは地表付近における通常の循環水とは異なる高濃度の塩化物イオン(Cl⁻)を主要溶存成分とする塩水であり(Kitano *et al.*, 1967¹²⁾;Yoshioka *et al.*, 1970¹³⁾)、その濃度は地震発生前の2~3倍に増加した(奥澤・塚原, 2001⁸⁾)。地表に流入した地下水の起源については諸説あるが、湧水域における土壌ガス中の³He/⁴He比から、マントル起源の流体であるとも指摘されている(Wakita *et al.*, 1978¹⁴⁾)。ただし、この地震活動に伴って地表に湧出した流体の賦存域の有無や分布は推定されていないのが現状である。

(3) 実施内容・結果

MT法による自然電磁場変動の観測は、地球深部の構造を推定する上で有効な手法の一つである。地球は導体であるため、外部起源の自然電磁場変動に対応した電流が地下に誘導される。MT法では自然電磁場の観測を行い、磁場変動に対する電場変動の比(インピーダンス)を測定することによって地下の比抵抗分布を推定する。比抵抗は岩石の特徴を反映してオーダーで変化する物性値であり、空隙率の高い岩石や導電率の高い流体を含む岩石は低比抵抗を示す。また、MT法は地殻深部もしくは上部マントルまでの比抵抗構造を推定することが可能であることや、一次元解析をはじめ、二次元解析や三次元解析手法(例えば、Ogawa and Uchida, 1996¹⁵⁾;Siripunvaraporn *et al.*, 2005¹⁶⁾)が開発されていること等から、地殻深部を対象とした地殻内物性の不均質に関する研究等に用いられており、特に流体の存在に関わる地殻内物性の不均質が明らかにされてきた(Mitsuhashi *et al.*, 2001¹⁷⁾)。その一例として、富士山周辺において行われたMT法による観測では、火山下における深さ50 kmまでの二次元比抵抗構造が推定され、マグマ溜りの存在を示唆する顕著な低比抵抗体が見出されている(Aizawa *et al.*, 2004¹⁸⁾)。このように、地下深部に流体が存在する場合、MT法による比抵抗構造の推定は流体の賦存状況を把握するためには特に有効な手法であると考えられる。

本研究では、群発地震やそれに伴う湧水の活動域の中心に位置する皆神山を通る約45 kmの区間において、ファーリモートリファレンス方式のMT観測を行った。ここでは、およそ北西-南東方向の測線上に、1~9 km程度の間隔で合計16点の観測点を配置した(図3.2.1-1)。測定にはPhoenix Geophysics社製MTU-5システムを使用し、磁場3成分及び電場2成分の時系列を測定した。また、対象地域のノイズ環境を考慮して、測定時間は夜間を含む15時間とし、各観測点で3晩以上の測定を行うとともに、リモートリファレンス点を岩手県和賀郡西和賀町(観測域からの距離約400 km)に設けた。リモートリファレンス処理の結果、各観測点においてノイズ除去の効果が認められ、周波数320~0.0092 Hzの信頼性の高いインピーダンスを得ることができた。比抵抗構造の解析ではOgawa and Uchida(1996)¹⁵⁾のアルゴリズムを用いた二次元インバージョンを行い、深さ10 kmまでの二次元比抵抗構造を推定した。ここで、観測周波数ごとにphase tensor(Caldwell *et al.*, 2004¹⁹⁾)を推定した結果、主としてN60°E-S60°Wの方向に比抵抗構造が卓越すると考えられることから、各観測点におけるインピーダンスをN60°E-S60°Wの方向に回転させた上でインバージョンを行った。

インバージョンによって得られた二次元比抵抗構造を図 3.2.1-2 に示す。これによると、第四紀火山である皆神山直下の深さ 2 km 以深において顕著な低比抵抗体が認められる。この低比抵抗体は、皆神山直下からその北西側の領域において、深さ 10 km まで連続するようにイメージされる。また、この低比抵抗体は、湧水が顕著に認められた領域に向かって地下深部から連続し、その近傍の地表で湧出するガスの $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は大気の 6.5 倍を示すと報告されている (Nagao *et al.*, 1980²⁰)。このことから、この低比抵抗体はマントルを起源とする流体の存在を示唆すると考えられる。

群発地震の活動に伴って新たに生じた湧水は、その後の群発地震活動の終息とともに自然消滅し、また排水設備が整えられたこともあり、2000 年代に入っても湧出が継続している地点は当時と比べて極めて少ないが、これらは皆神山の近傍に推定された松代地震断層 (Tsuneishi and Nakamura, 1970¹⁰) の直上及びその周辺に多く点在している (奥澤・塚原, 2001⁸)。このことは、この地震断層が湧水の主な流入経路として関与した可能性を示唆する。また、これらの溶存イオン濃度の時間変化を調査した結果 (奥澤・塚原, 2001⁸) によると、群発地震に伴って最大約 1.9 トン/分の湧出が確認された温泉の Cl 濃度は、活動が続いていた 1966 年に約 1,500 mg/L から約 5,500 mg/L へ急増した後に大きな変化はない。これらのことは、群発地震活動の終了後も継続する湧水の供給源や流入経路は、活動当時のそれと同様である可能性を示唆する。

以上の結果は、松代群発地震に伴って生じた顕著な湧水には、皆神山下の上部地殻以深に賦存するマントル起源の流体の上昇が関与したことを示唆する。このことは、将来の地震活動に伴って異常湧水が生じる可能性を検討する場合に、現在の流体賦存域の有無や分布が指標の一つとなり得る可能性を示唆すると考えられる。

(4) 主な成果と課題

本研究では、地震活動に伴って長期間の湧水が認められた松代群発地震を事例として、MT 法電磁探査による二次元比抵抗構造の推定を行い、湧水域下の上部地殻にマントルを起源とする流体が賦存することを示した。湧水が生じ始めた当時の流体賦存域の分布を推定することは困難であるが、群発地震の活動に伴って湧出した水及びガスに関する地球化学的情報を総合すると、地震活動に伴って生じた長期間の湧水には、上部地殻あるいはそれ以深に賦存する流体の上昇が関与したと考えられる。今後は、他地域における事例についても情報を収集し、地震活動に伴って異常湧水が生じる可能性を検討する上で、地下深部の流体賦存域の存在が指標となり得る可能性について検討を進める。

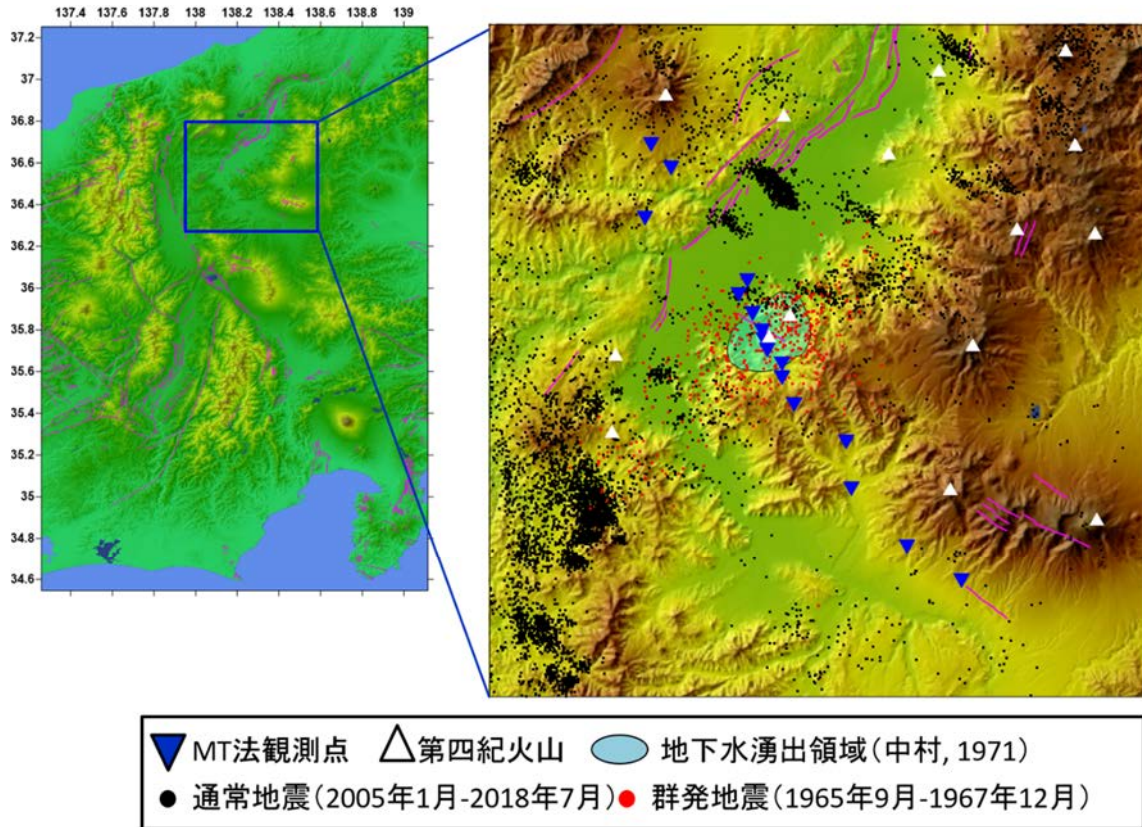


図 3.2.1-1 MT 法観測点位置図

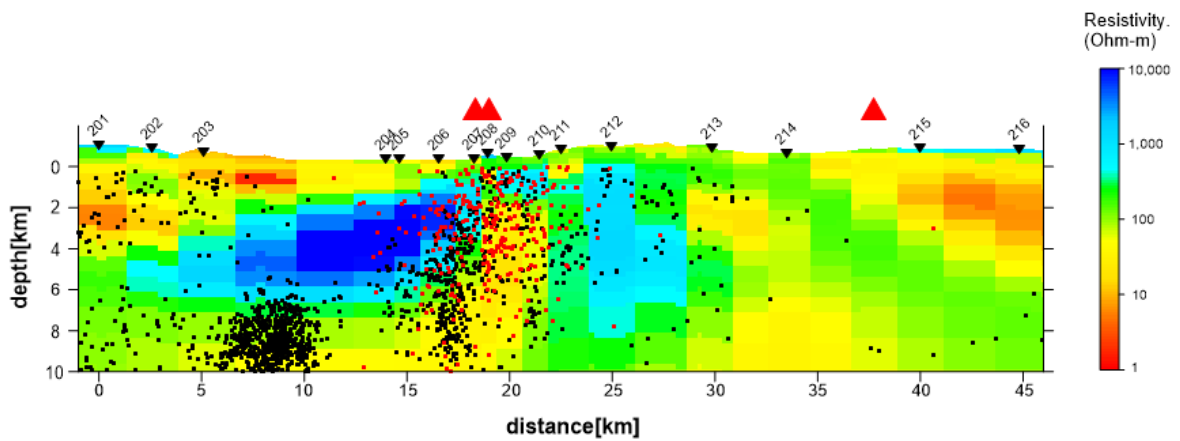


図 3.2.1-2 二次元比抵抗解析結果

赤三角は第四紀火山を示す。黒丸は通常地震(2005年1月～2017年11月)を、赤丸は群発地震(1965年10月～1967年11月)を示す。

参考文献

- 1) 日本学術会議, 高レベル放射性廃棄物の処分について(回答), 2012, 36p.
- 2) 総合資源エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 地層処分技術ワーキンググループ, 最新の科学的知見に基づく地層処分技術の再評価—地質環境特性および地質環境の長期安定性について—, 2014, 61p.
- 3) 川辺岩夫, 地震に伴う地下水・地球化学現象, 地震 第2輯, vol.44, Supplement, 1991, pp.341-364.
- 4) 佐藤 努, 高橋 誠, 淡路島の異常湧水の化学組成変化—1995 年兵庫県南部地震による影響—, 地球化学, vol.31, no.2, 1997, pp.89-98.
- 5) Manga M., Wang C.Y., Earthquake Hydrology, Treatise on Geophysics, 2nd edition, vol.4, 2015, pp.305-328.
- 6) 佐藤 努, 地震に伴って発生し四年以上も継続する温泉湧出, 産業技術総合研究所 IEVG ニュースレター, vol.2, no.3, 2015, pp.1-4.
- 7) 大竹政和, 松代地震から 10 年, 科学, vol.46, no.5, 1976, pp.306-313.
- 8) 奥澤 保, 塚原弘昭, 松代群発地震地域に湧出する深層地下水, 地震 第2輯, vol.53, no.3, 2001, pp.241-253.
- 9) Hagiwara, T., Iwata, T., Summary of the seismographic observation of Matsushiro swarm earthquakes, Bulletin of the Earthquake Research Institute, University of Tokyo, vol.46, no.3, 1968, pp.485-515.
- 10) Tsuneishi, Y., Nakamura, K., Faulting associated with the Matsushiro swarm earthquakes, Bulletin of the Earthquake Research Institute, University of Tokyo, vol.48, no.1, 1970, pp.29-51.
- 11) 中村一明, 松代地震から学んだこと—手に入れた地震制御へのデータ—, 科学朝日, vol.10, 1971, pp.127-133.
- 12) Kitano, Y., Yoshioka, R., Okuda, S., Okunishi, K., Geochemical study of ground waters in the Matsushiro area. Part 1: Chemical composition of ground waters, Bulletin of the Disaster Prevention Research Institute, vol.17, no.2, 1967, pp.48-71.
- 13) Yoshioka, R., Okuda, S., Kitano, Y., Calcium chloride type water discharged from the Matsushiro area in connection with swarm earthquakes, Geochemical Journal, vol.4, no.2, 1970, pp.61-74.
- 14) Wakita, H., Fujii, N., Matsuo, S., Notsu, K., Nagao, K., Takaoka, N., “Helium Spots”: Caused by a diapiric magma from the upper mantle, Science, vol.200, no.4340, 1978, pp.430-432.
- 15) Ogawa, Y., Uchida, T., A two-dimensional magnetotelluric inversion assuming Gaussian static shift, Geophysical Journal International, vol.126, no.1, 1996, pp.69-76.
- 16) Siripunvaraporn, W., Egbert, G., Lenbury, Y., Uyeshima, M., Three-dimensional magnetotelluric inversion: data-space method, Physics of the Earth and Planetary Interiors, vol.150, no.1-3, 2005, pp.3-14.
- 17) Mitsuhashi, Y., Ogawa, Y., Mishina, M., Kono, T., Yokokura, T., Uchida, T., Electromagnetic

- heterogeneity of the seismogenic region of 1962 M6.5 Northern Miyagi Earthquake, northeastern Japan, *Geophysical Research Letters*, vol.28, no.23, 2001, pp.4371-4374.
- 18) Aizawa, K., Yoshimura, R., Oshiman, N., Splitting of the Philippine Sea Plate and a magma chamber beneath Mt. Fuji, *Geophysical Research Letters*, vol.31, no.9, 2004, doi:10.1029/2004GL019477.
- 19) Caldwell, T.G., Bibby, H.M., Brown, C., The magnetotelluric phase tensor, *Geophysical Journal International*, vol.158, no.2, 2004, pp.457-469.
- 20) Nagao, K., Takaoka, N., Wakita, H., Matsuo, S., Fujii, N., Isotopic compositions of rare gases in the Matsushiro earthquake fault region, *Geochemical Journal*, vol.14, no.2, 1980, pp.63-69.

3.2.2 時間スケールに応じた地圏環境変動の予測技術

(1) はじめに

地質環境の長期的な変化の評価においては、測地学的時間スケールより長い期間での地殻変動の傾向・速度の評価が必要となる。長期間の地殻変動の傾向・速度について、陸域では、地形・地質（例えば、海成段丘や高海面期の堆積物）の高度分布に基づいて評価する手法が構築されており、地質環境の長期安定性委員会(2011)¹⁾により日本列島の十万年間の隆起量マップが提示されている。一方で、海域、特に氷期に広く陸化する浅海底(大陸棚)で生じる長期的な地殻変動の傾向・速度を直接評価する手法については、地層の累重様式に着目した手法が岡村(1990)²⁾により示されているが、浅海底地形に基づく手法は未構築であり、技術開発課題となっている(例えば、産業技術総合研究所ほか, 2017³⁾; 産業技術総合研究所ほか, 2018⁴⁾)。この課題の解決のためには、浅海底において地殻変動の指標となる地形の分布やその特徴を読み取ることが必要となる。そこで、本研究では、浅海底地形の中でも特に日本列島の海域に広く分布する海底段丘に着目し、その判読技術の高度化を行うとともに、海底段丘と大陸棚外縁の分布特性の把握に基づく地殻変動の評価手法について検討した。

(2) 当該分野に係る科学的・技術的背景

我が国における沿岸部の陸域では、海成段丘の成因理解に基づき、過去一万から数十万年間の地殻変動の傾向やその量が空間的に示されている(例えば、小池・町田, 2001⁵⁾)。その一方で、沿岸海域では、地形・地層の成因の検討、特に氷河性海面変動と地殻変動の地形への表れ方についての検討が総括的に進んでいないため、過去一万から数十万年間の地殻変動の傾向やその量を空間的に把握することが陸域に比べて困難な場合が多い。

近年、海底地形デジタルデータ(日本水路協会 M7000 シリーズ)から作成した海底地形アナグリフ(余色立体図)を用いることで、日本列島の海底地形を同一の基準で実体視判読することが可能となった(例えば、後藤, 2013⁶⁾; 後藤, 2014⁷⁾)。こうした状況を受けて産業技術総合研究所ほか(2017³⁾, 2018⁴⁾)では、海底地形アナグリフを利用した地形判読から、日本列島の大陸棚外縁の深度には地域差があること、大陸棚外縁付近に複数の明瞭な傾斜変換線が存在する海域が存在すること、海成段丘と形態的に似た海底段丘が海域に広く分布し、その発達度合いや分布深度には地域差があること等が報告されている。

(3) 実施内容・結果

本研究では、日本列島の海域における長期的な隆起・沈降を評価する技術の構築に向けて、産業技術総合研究所ほか(2017³⁾, 2018⁴⁾)において報告された海底段丘を対象とした判読技術の高度化を行うとともに、浅海底地形と海成段丘の高度分布の比較から沿岸部海域の地殻変動の評価手法について検討した。

1) 数値地形解析に基づく浅海底地形判読

浅海底地形判読の信頼性向上を目的として、深度・面積分布図を用いた数値地形解析に基づく地形判読手法について検討した。使用した数値地形モデルは、日本水路協会が作成した海底地形デジタルデータ(M7000 シリーズ)を後藤(2013⁶⁾, 2014⁷⁾)に記された手法にならって 90 m メッシュのラスターデータに変換したものである。

図 3.2.2-1 に深度・面積分布と地形断面との関係を模式的に示す。深度・面積分布に見られるピークは、その深度に平坦面ないしは緩傾斜な斜面が存在することを表し、谷はその深度の面積が狭い、すなわち急斜面が存在することを表す。つまり、深度・面積分布におけるピークの立ち上がり深度は海底段丘の後面段丘崖基部に、またピークが見られなくなる上限深度が大陸棚外縁にそれぞれ相当するとみなせる。

数値地形解析に基づく判読結果と海底地形アナグリフ判読の結果（産業技術総合研究所ほか、2017³⁾；産業技術総合研究所ほか、2018⁴⁾）とを比較すると、数値地形解析から新たに海底段丘を判読することができた場と数値地形解析のみでは海底段丘を判読することが困難であった場が存在した。大まかに言えば、前者に相当する場は、傾斜 1°未満の斜面であり、後者に相当する場は、①一本の測線で地形断面を代表させられる解析領域（矩形）を設定できない、つまり複雑な地形形状をとる場や、②深度・面積変化が相対的に小さいため、深度方向の面積変化のピークがはっきりしない、例えば傾斜数°以上の斜面に複数段の海底段丘が分布するような場であった。そのため、傾斜 1°未満の斜面が広がる浅海底地形における海底段丘判読では、アナグリフ画像判読に数値地形解析を組み合わせた手法の適用が望ましいと考えられた。そのような場の事例を図 3.2.2-2 に示す。

2) 海成段丘と浅海底地形の分布高度の比較

沿岸部海域の地殻変動の評価手法の検討では、陸域の過去 12 万年間の地殻変動を示す Marine Isotope Stage (MIS) 5e 海成段丘と浅海底地形を投影断面図上に示し、両者の高度分布パターンの比較を行った。図 3.2.2-3 に房総沖の事例を示す。ひと続きの海底段丘面、大陸棚外縁、遷急線が同時代に形成された地形であると仮定した時に、投影断面図から読み取れた結果の要点は、以下の通りである。

- ・海成段丘の高度と海底段丘群や大陸棚外縁の深度変化の傾向が調和的に見える区間がある。このことは、海底段丘の深度分布の中に地殻変動を反映したものが含まれていることを示していると考えられる。
- ・大陸棚外縁については、海岸線の一般方向にほぼ一定深度のものと、深度変化が大きくノコギリ状の深度分布を呈するものがある。後者は、開析前線が大陸棚外縁に及んでいるためと考えられる。

(4) 主な成果と課題

本研究により、傾斜 1°未満の斜面が広がる海域での海底段丘の判読においては、数値地形モデルの深度・面積分布のパターンに基づく判読手法が有効であることが示された。さらに浅海底地形と過去約 12 万年間の地殻変動を表す MIS 5e の海成段丘の高度分布を比較することで、大陸棚外縁や海底段丘の深度分布の中には海域の地域的な地殻変動を反映したものが含まれている可能性があることがわかった。このことから、海域における地殻変動様式の把握において、大陸棚外縁や海底段丘の形成史の理解が重要であるとの見通しを得た。今後は、海底段丘や大陸棚外縁の形成史を音波探査記録等から検討する予定である。

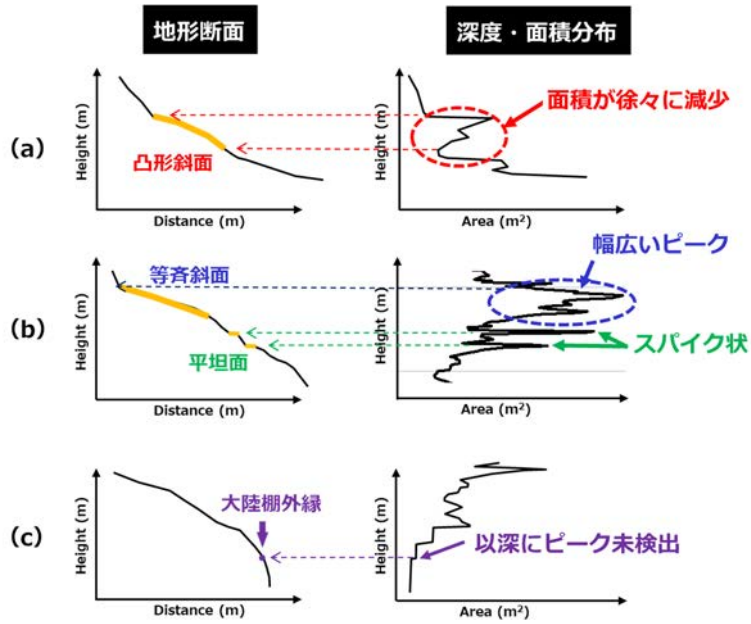


図 3.2.2-1 深度・面積分布と地形断面との関係

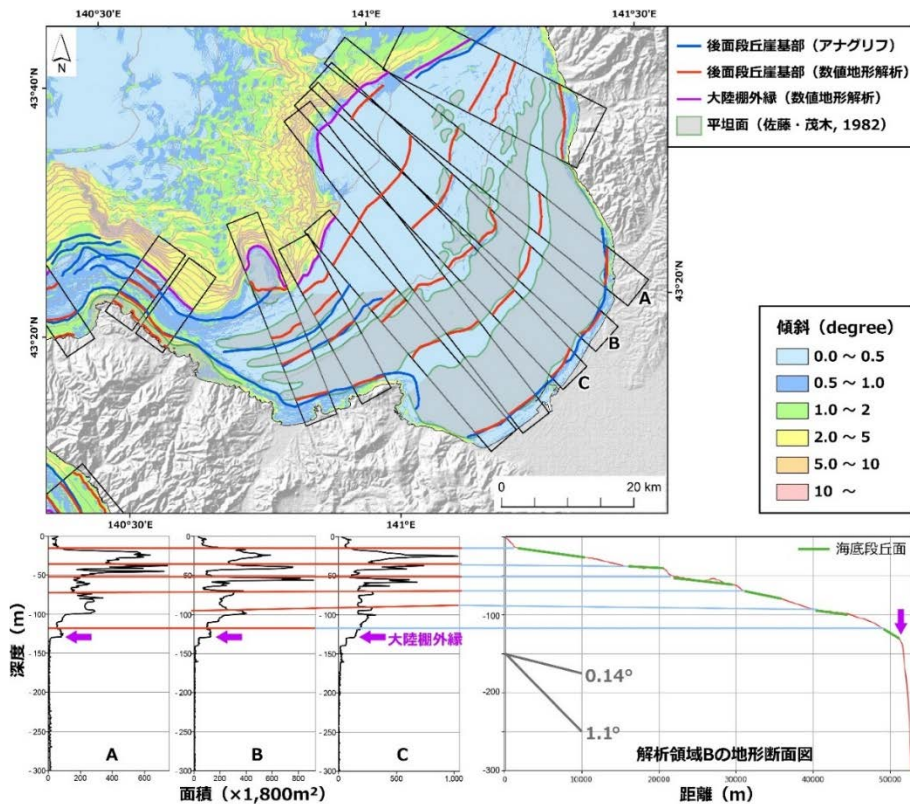


図 3.2.2-2 浅海底の数値地形解析の例(石狩湾)

傾斜区分図上の平坦面は、佐藤・茂木(1982)⁸⁾に示された大陸棚の平坦面分布図に基づいている。深度・面積分布図は、解析領域内の深度 0~300 m のものを示している。石狩湾では、深度・面積分布図を用いることで海底地形アナグリフにより判読されなかった海底段丘面を認識することができる。

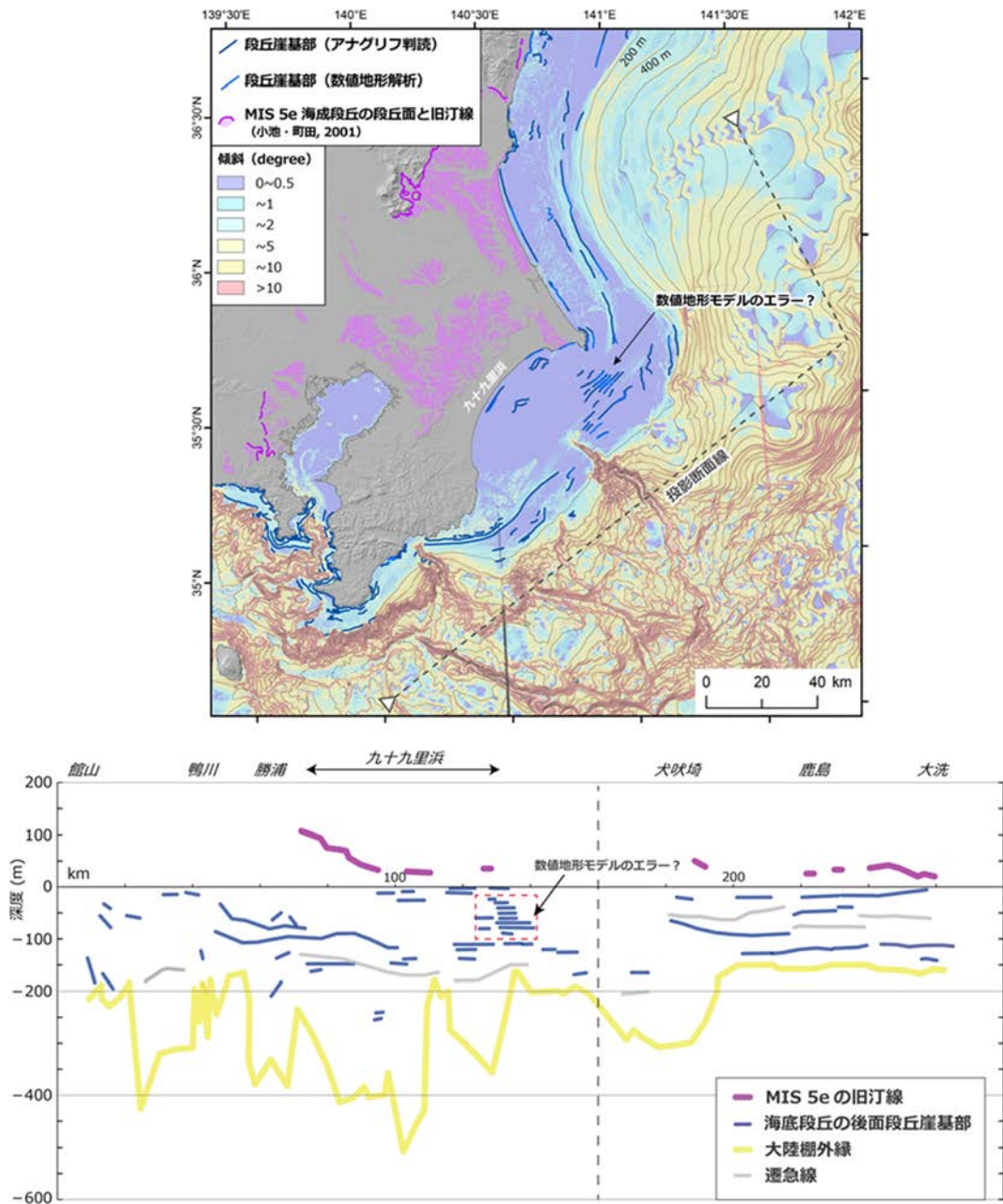


図 3.2.2-3 投影断面図上における海成段丘と浅海底地形の分布例(房総沖)
 MIS 5e 海成段丘の段丘面及び旧汀線の分布は、小池・町田(2001)⁵⁾のデータに基づく。

参考文献

- 1) 地質環境の長期安定性研究委員会編, 日本列島と地質環境の長期安定性, 日本地質学会, 2011, 地質リーフレット 4, ISSN 2185-8543.
- 2) 岡村行信, 四国沖の海底地質構造と西南日本外帯の第四紀地殻変動, 地質学雑誌, vol.96, no.3, 1990, pp.223-237.
- 3) 産業技術総合研究所, 日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 電力中央研究所, 平成 28 年度 地層処分技術調査等事業 沿岸部処分システム高度化開発 報告書, 2017, 372p.
- 4) 産業技術総合研究所, 日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 電力中央研究所, 平成 29 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 沿岸部処分システム高度化開発 報告書, 2018, 393p.
- 5) 小池一之, 町田 洋編, 日本の海成段丘アトラス, 東京大学出版会, 2001, 122p.
- 6) 後藤秀昭, 等深線データから作成した日本列島周辺の海底地形アナグリフ—解説と地図—, 広島大学大学院文学研究科論集 特輯号, vol.73, 2013, pp.1-74.
- 7) 後藤秀昭, 日本列島と周辺海域を統合した詳細地形アナグリフ—解説と地図—, 広島大学大学院文学研究科論集 特輯号, vol.74, 2014, pp.1-103.
- 8) 佐藤任弘, 茂木昭夫, 海底地形からみた日本海の海水準変化, 第四紀研究, vol.21, no.3, 1982, pp.203-210.

3.3 年代測定技術の開発

3.3.1 ウラン系列放射年代測定法の実用化

(1) はじめに

地層処分における将来の地質環境の予測・評価は、過去から現在までの変動傾向から将来を外挿することが基本となる。そのために必要となる過去の地質環境の変遷を解読するためには、隆起・侵食や地震活動・断層運動及び火山・火成活動等の自然現象に時間軸を与える放射年代測定法による編年技術の整備が不可欠である。また、概要調査や精密調査の段階でこれらの編年技術を有効なものとするには、様々な地質環境を想定して普遍的に存在する試料に対応でき、かつ広範な年代範囲で測定可能な技術の整備が必要である。

ウランは微量元素であるものの岩石中に一般的に存在する元素であり、年代測定に応用できる対象範囲が広いことから、ウラン系列の放射年代測定は地球惑星科学の諸分野において広く用いられている。ウラン-238 (^{238}U) 及びウラン-235 (^{235}U) の壊変を利用するウラン・鉛 (U-Pb) 法は、数十万年前から数十億年前までの地質試料の年代決定に特に有効である。また、ウラン-234 (^{234}U) とトリウム-230 (^{230}Th) の放射非平衡を利用したウラン・トリウム (U-Th) 法では、数千年前からおよそ 50 万年前までの比較的若い年代に対応した年代学的な評価が可能である。本研究では、特に過去 10 万年前後の断層の活動性の評価や地下水の流動経路の変遷を把握するために有効な、長い半減期を持つウラン系列の年代測定技術開発を実施している。分析対象試料としては、火成岩に含まれるジルコンをはじめとして断層岩や岩石の透水性割れ目を普遍的に充填する炭酸塩鉱物(ここでは、カルシウム炭酸塩を指す)を想定し、レーザーアブレーション付き誘導結合プラズマ (LA-ICP: Laser Ablation-Inductively Coupled Plasma) 質量分析装置を用いて、元素の二次元分布の取得(元素・同位体イメージング)や鉱物ごとの局所分析法による年代測定を行う。

本研究では、平成 29 年度までに、LA-ICP 質量分析法によるジルコンの U-Pb 年代測定技術を整備した。さらに、炭酸塩鉱物の U-Pb 年代測定技術の開発を進めるため、分析値校正に必要な標準試料の選定、開発及び分析技術の精度評価として、生息年代が既知の炭酸塩質な示準化石試料の分析を行った。その結果、示準化石(ウミツボミ (Pentremites): 推定年代範囲: 約 339~318 Ma, Galloway and Kaska, 1957¹⁾; Fabian, 1987²⁾; Fossilworks, 2018³⁾) の U-Pb 年代測定から得られる年代値と化石試料の生息年代が良い一致を示し、局所分析法による炭酸塩鉱物の年代測定が可能であることを示した (Yokoyama *et al.*, 2018⁴⁾)。平成 30 年度は、年代測定の精度評価を引き続き実施し、本手法が適用できる年代範囲の確認を行った。

(2) 当該分野に係る科学的・技術的背景

炭酸塩鉱物は、結晶成長の段階で取り込む鉱物周辺の不純物の濃度等に応答して累帯構造を呈することが多く、地下環境下での形成・発達史をより正確に解読して過去の炭酸塩鉱物の生成環境を再現するためには、空間分解能の高い(数 μm から数百 μm) 分析技術を構築する必要がある。このような空間分解能の高い分析技術の構築は、炭酸塩鉱物に留まらず、近年の古環境指標物質(特にジルコン等の鉱物分析)の年代測定技術開発の傾向でもある。

分析装置の技術的な革新に伴い、元素・同位体分析の感度や精度が向上したことにより、炭酸塩鉱物の年代測定手法の整備も国内外で急速に進みつつある。特に、レーザーアブレーション装置を試料導

入に採用した局所分析法による U-Pb 法による年代測定は、世界的にも技術の開発・整備の動向が見られる (Roberts and Walker, 2016⁵); Roberts *et al.*, 2017⁶); Beaudoin *et al.*, 2018⁷); Yokoyama *et al.*, 2018⁴)。U-Pb 年代測定は、火成岩起源の重鉱物(ジルコン, モナザイト, アパタイト等)について多くの研究例があり、汎用性が高く、手法が確立している。U-Pb 年代測定手法の炭酸塩鉱物への応用は、標準試料の欠如や試料の適用性の低さ(ウラン濃度が低く、初生的に含む鉛の量が多い)から、未だ研究例が少ないが、その適用性が確認されつつある。

(3) 実施内容・結果

本研究では、炭酸塩鉱物の年代測定手法を整備し、その分析技術の精度を評価するため、複数の生息年代が既知でかつ生息年代の異なる示準化石試料を分析の対象とした。示準化石試料として、小笠原諸島母島御幸之浜から産出する大型有孔虫(貨幣石) *Nummulites boninensis* (生息年代: 古第三紀中期 44~40 Ma, Kaneoka *et al.*, 1970⁸); 海野ほか, 2009⁹); Ishizuka *et al.*, 2006¹⁰) 及びスペイン リエイダから産出する六放サンゴ *Placosmilium vidali* (生息年代: 白亜紀後期 86~85 Ma, Pomar *et al.*, 2005¹¹) を選出した(図 3.3.1-1)。

本研究の U-Pb 同位体分析手法には、LA-ICP 質量分析法を採用した。分析装置は、東濃地科学センターに設置されたレーザーアブレーション装置 (Photon Machines 社製 Analyte G2) 及び誘導結合プラズマ質量分析装置 (Agilent Technologies 社製 7700x; Thermo Fisher Scientific 社製 NEPTUNE-Plus) を使用した。炭酸塩鉱物の中でも、安定相であるカルサイトは、U の分配係数が小さく、一般に U 濃度が低い (Jahn and Cuvellier, 1994¹²)、U-Pb 年代測定において分析対象とする U 及びその放射壊変により生じる Pb (鉛-206 (²⁰⁶Pb) 及び鉛-207 (²⁰⁷Pb)) の濃度が低い。そのため、高精度な年代測定を実施するためには、LA-ICP 質量分析法による元素・同位体イメージングにより、事前に試料中の U 濃度が高い (あるいは、放射壊変起源 Pb が非放射壊変起源 Pb に比べて多い) 適正部位を把握することが重要である (Yokoyama *et al.*, 2018⁴)。また、LA-ICP 質量分析法による U-Pb 年代測定では、一般に、同位体分析における元素分別効果を補正するために、主成分(マトリックス)の一致した標準試料を準備する必要がある。

本研究では、*Nummulites boninensis* 及び *Placosmilium vidali* の元素・同位体イメージングを実施し、年代測定の適正部位を確認した上で、U-Pb 年代測定を実施した。また、標準試料には、その適正が確認されている WC-1 (米国南西部 Delaware 盆地・上部ペルム系・炭酸塩岩脈から採取された U-Pb 年代 = 254.4 ± 0.8 Ma の試料; Roberts *et al.*, 2017⁶) を採用して、同位体分析を行った。WC-1 を用いた分析値の U/Pb 比の補正法については、Roberts *et al.* (2017)⁶) に従った。誤差の表記については、特に断りのない限り 1σ で表記する。

Nummulites boninensis 及び *Placosmilium vidali* の U-Pb 年代測定に先駆け、事前に試料の U 及び Pb の濃度分布を把握し、年代測定に適した部位を選定することを目的として、LA-ICP 質量分析法による、元素・同位体イメージングを実施した。イメージング分析結果を図 3.3.1-1 及び図 3.3.1-2 に示す。

図 3.3.1-2 において、*Nummulites boninensis* 試料の縁辺部及び中心部を除く部分で、²³⁸U の濃度が比較的高い領域が確認される。また、縁辺部及び内部の一部領域で Pb 濃度が顕著に高い部位が認められる。試料の縁辺部にトリウム-232 (²³²Th) の高濃度な領域が確認されるが、これは試料表面に吸着した有機物や碎屑物由来のものと考えられる。一方で、縁辺部以外は ²³²Th の濃度が低いことから、有機物や碎屑物の混入はほとんどなく、縁辺部以外の鉛-208 (²⁰⁸Pb) のほぼ全てが非放射壊変起源の Pb とみなせる。したがって、図 3.3.1-2 中の ²⁰⁶Pb/²⁰⁸Pb 比の図は放射壊変起源の Pb の相対的な濃度分布を示し

ていると解釈できる。 ^{206}Pb は ^{238}U の子孫核種であるため、試料がU-Pb同位体系に対して閉鎖系を保持していた場合、 ^{238}U の高濃度領域では、 ^{206}Pb も非放射壊変起源の ^{208}Pb に比べ高濃度になっていることが期待される。しかしながら、 ^{238}U の相対的な高濃度領域が認められるにも関わらず、 $^{206}\text{Pb}/^{208}\text{Pb}$ 比の濃淡は明瞭ではない。このことは、放射壊変起源のPbが非放射壊変起源のPbに比べて少なく(U濃度が低い、もしくは初生Pbを多量に含む)、放射壊変の寄与を捉えにくい試料であることを示唆している。Nummulites boninensisについては、比較的 ^{238}U の濃度が高い領域(図3.3.1-2中の白枠内)をU-Pb年代測定の適正部位とした。

図3.3.1-3において、Nummulites boninensisと同様に、Placosmilia vidali試料の縁辺部に ^{232}Th の高濃度な領域が確認されるが、これは試料表面に吸着した有機物や碎屑物由来のものと考えられる。一方で、縁辺部以外は ^{232}Th の濃度が低いことから、有機物や碎屑物の混入はほとんどなく、縁辺部以外の ^{208}Pb のほぼ全てが非放射壊変起源のPbとみなせる。したがって、図3.3.1-3中の $^{206}\text{Pb}/^{208}\text{Pb}$ 比の図も放射壊変起源のPbの相対的な濃度分布を示している。図3.3.1-3において、 $^{206}\text{Pb}/^{208}\text{Pb}$ 比の濃淡は明瞭ではないが、 ^{238}U の高濃度領域にわずかながら他の領域よりも $^{206}\text{Pb}/^{208}\text{Pb}$ 比が高い領域が確認される。すなわち、放射壊変起源の ^{206}Pb を捉えていると考えられるため、Placosmilia vidaliについては、 $^{206}\text{Pb}/^{208}\text{Pb}$ 比が高い領域(図3.3.1-3中の白枠内)をU-Pb年代測定の適正部位として評価した。

元素・同位体イメージング結果より評価したNummulites boninensis及びPlacosmilia vidaliそれぞれの適正部位について、LA-ICP質量分析法によるU-Pb同位体分析を行い、年代値を取得した。Nummulites boninensis及びPlacosmilia vidaliの分析結果のTera-Wasserburgコンコーディア図をそれぞれ図3.3.1-4及び図3.3.1-5に示す。本研究でのU-Pb同位体分析では、Pb同位体比及びU/Pb比の分析値の補正のため、SRM NIST614(Pb同位体組成:Baker *et al.*, 2004¹³);U同位体組成:Duffin *et al.*, 2013¹⁴)及びWC-1(U-Pb年代値及び初生Pb同位体組成:Roberts *et al.*, 2017⁶)を使用した。

通常、コンコーディア図は、初生Pb(鉱物形成時に取り込まれるPb)をほとんど含有しないジルコン等のU-Pb年代測定で利用される。初生Pbを含まない試料の場合、コンコーディア図上で分析値がコンコーディア(年代一致線)から外れ、直線上に並ぶ時、この直線はディスコーディア(年代不一致線)と呼ばれ、試料についてのPbの損失(もしくはUの付加)を受けるような二次的な変成作用があったと解釈される。一方で、炭酸塩鉱物のように、Pbを初生的に含有しやすい試料について、コンコーディア図を用いて年代決定を行う際には、分析で得られるPb同位体組成は、初生Pbと放射壊変起源のPbの混合組成である点に注意が必要である。したがって、分析値は初生Pb(図3.3.1-4及び図3.3.1-5上でのY切片)の同位体組成と放射壊変起源のPbの同位体組成(コンコーディア上の点)の混合線上にプロットされ、この直線とコンコーディアとの交点が試料の年代値を示す。

Tera-Wasserburgコンコーディア図上で、分析値から得られる回帰直線とコンコーディアとの(下方)交点から、Nummulites boninensisのU-Pb年代は 39.7 ± 2.9 Ma(重みつき標準偏差の2乗平均(MSWD: Mean Square Weighted Deviation)=0.31)であった。この値はNummulites boninensisの推定年代範囲(44~40 Ma, Kaneoka *et al.*, 1970⁸);海野ほか⁹, 2009;Ishizuka *et al.*, 2006¹⁰)と整合的である。また、Placosmilia vidaliのU-Pb年代は 85.6 ± 7.0 Ma(MSWD=0.04)であり、同様に推定年代範囲(86~85 Ma, Pomar *et al.*, 2005¹¹)と整合的である。これらの結果から、炭酸塩鉱物質の化石試料について、U-Pb年代測定が有効であることが確認された。本手法による年代測定の精度は、年代値に対しておよそ10%以下であると評価できる。

(4) 主な成果と課題

平成30年度は、平成29年度までに整備したLA-ICP質量分析法による炭酸塩鉱物の年代測定技術を用いて、生息年代の異なる二つの炭酸塩質化石試料の年代測定を行い、年代測定の精度評価と適用できる年代範囲の検証を行った。U-Pb年代測定の結果、貨幣石 (*Nummulites boninensis*) 及び六放サンゴ (*Placosmilia vidali*) はそれぞれの生息年代と良い一致を示した。平成29年度に年代測定を実施した化石試料(ウミツボミ (*Pentremites*):化石年代 約339~318 Ma)を含めて3例の年代測定結果から、本手法による年代測定の精度は±10%以下であると評価できる。また、現段階で適用できる年代範囲は、石炭紀(~340 Ma)以前から古第三紀中期(~40 Ma)の試料と判断できる。今後はさらに炭酸塩鉱物の年代測定に関してデータを蓄積し、分析技術の高度化を図るとともに、断層岩や岩石の透水性割れ目を充填する炭酸塩鉱物に対して本手法の適用を試みる。



- | | |
|--|---|
| <p>(a) 貨幣石 (<i>Nummulites boninensis</i>)
 産地: 小笠原諸島・母島
 年代: 44~40 Ma
 地質時代: 古第三紀中期 (Eocene)</p> | <p>(b) 単体サンゴ (<i>Placosmilia vidali</i>)
 産地: Lerida, スペイン
 年代: 86~85 Ma
 地質時代: 白亜紀後期 (Santonian)</p> |
|--|---|

図 3.3.1-1 (a) *Nummulites boninensis* と(b) *Placosmilia vidali* の写真

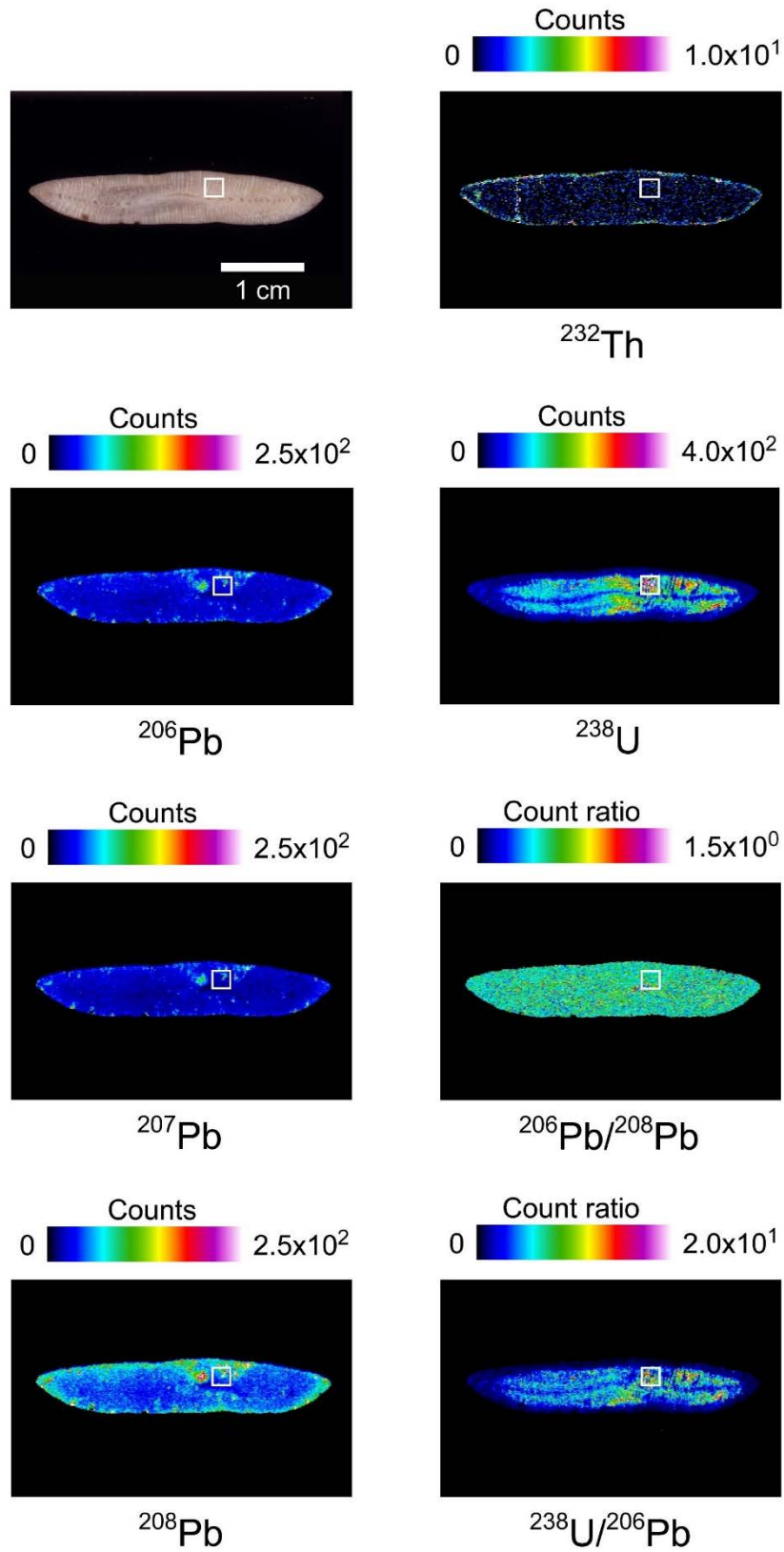


図 3.3.1-2 *Nummulites boninensis* の元素・同位体イメージング図

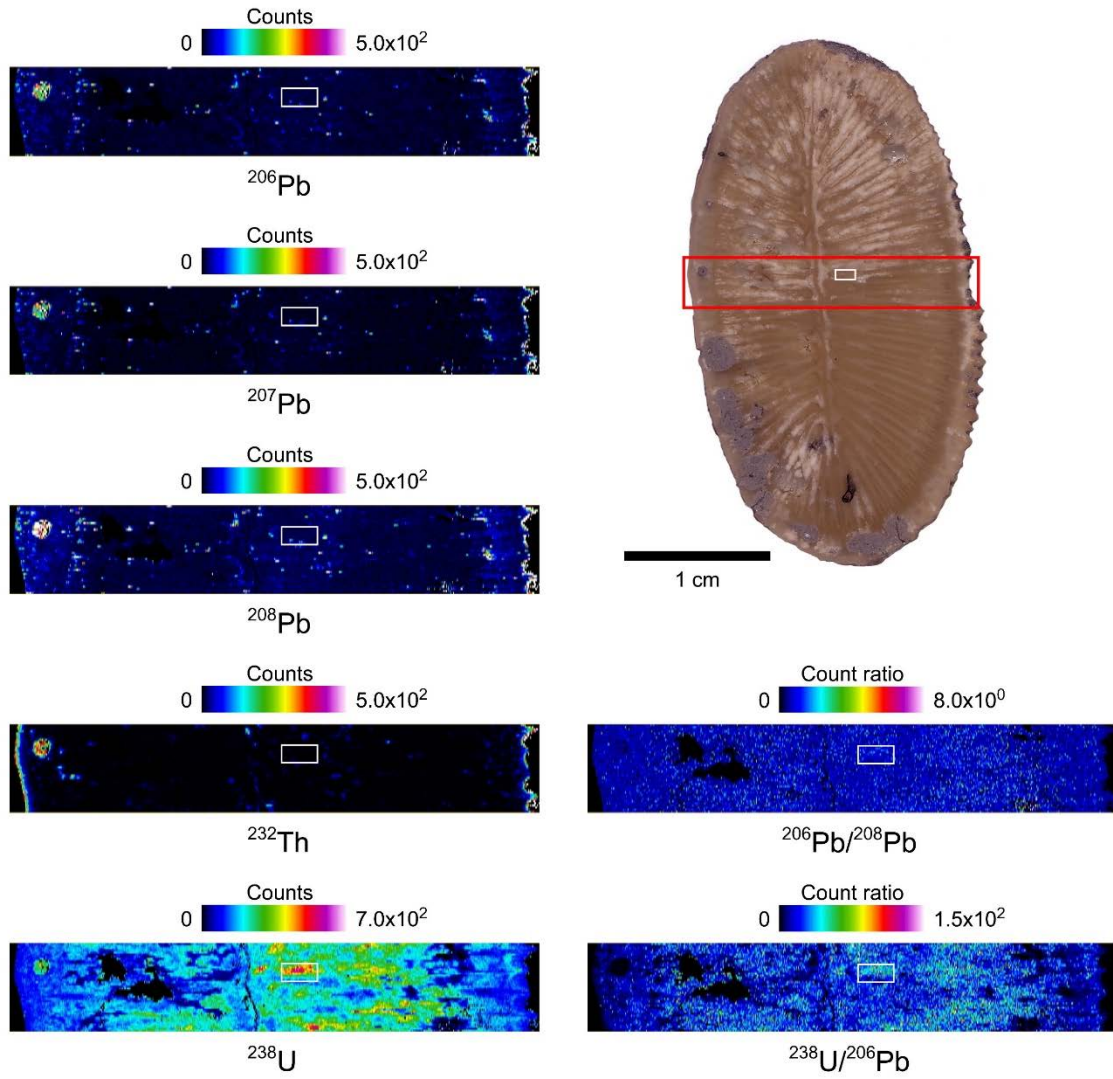


図 3.3.1-3 *Placosmilia vidali* の元素・同位体イメージング図

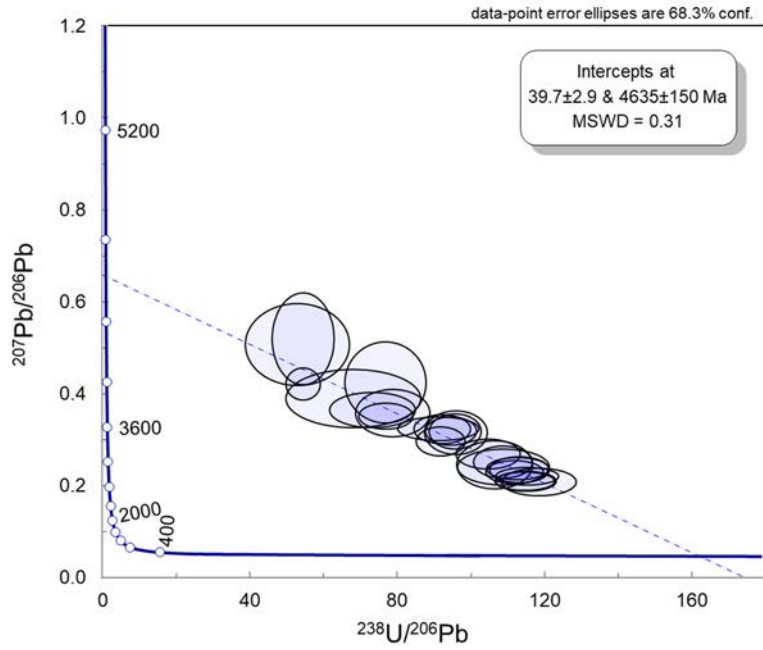


図 3.3.1-4 Nummulites boninensis の Tera-Wasserburg コンコーディア図

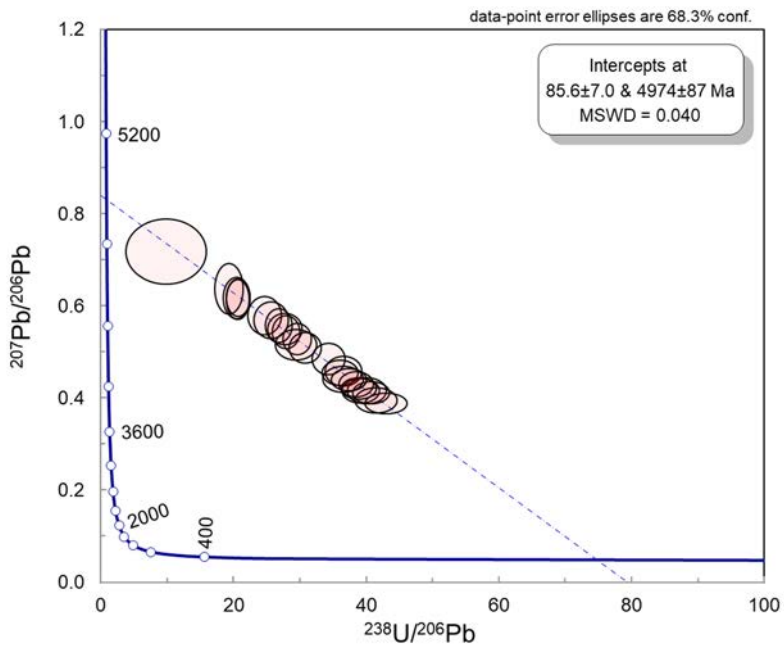


図 3.3.1-5 Placosmilia vidali の Tera-Wasserburg コンコーディア図

参考文献

- 1) Galloway, J.J., Kaska, H.Y., Genus *Pentremites* and its species, Geological Society of America Memoir, vol.69, 1957, pp.1-114.
- 2) Fabian, R.S., Relation of biofacies to lithofacies in interpreting depositional environments in the Pitkin Limestone(Mississippian) in northeastern Oklahoma(Part I), Shale Shaker, vol.37, 1987, pp.76-95.
- 3) Fossilworks: Gateway to the paleobiology database, 2018, http://fossilworks.org/bridge.pl?a=collectionSearch&taxon_no=30913&max_interval=Chesterian&country=United States&state=Oklahoma&is_real_user=1&basic=yes&type=view&match_subgenera=1 (参照:2019年6月15日).
- 4) Yokoyama, T., Kimura, J., Mitsuguchi, T., Danhara, T., Hirata, T., Sakata, S., Iwano, H., Maruyama, S., Chang, Q., Miyazaki, T., Murakami, H., Saito-Kokubu, Y., U-Pb dating of calcite using LA-ICP-MS: Instrumental setup for non-matrix-matched age dating and determination of analytical areas using elemental imaging, *Geochemical Journal*, vol.52, no.6, 2018, pp.531-540.
- 5) Roberts, N.M.W., Walker, R.J., U-Pb geochronology of calcite-mineralized faults: Absolute timing of rift-related fault events on the northeast Atlantic margin, *Geology*, vol.44, no.7, 2016, pp.531-534.
- 6) Roberts, N.M.W., Rasbury, E.T., Parrish, R.R., Smith, C.J., Horstwood, M.S.A., Condon, D.J., A calcite reference material for LA-ICP-MS U-Pb geochronology, *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, vol.18, no.7, 2017, pp.2807-2814.
- 7) Beaudoin, N., Lacombe, O., Roberts, N.M.W., Koehn, D., U-Pb dating of calcite veins reveals complex stress evolution and thrust sequence in the Bighorn Basin, Wyoming, USA, *Geology*, vol.46, no.11, 2018, pp.1015-1018.
- 8) Kaneoka, I., Isshiki, N., Zashu, S., K-Ar ages of the Izu-Bonin Islands, *Geochemical Journal*, vol.4, no.2, 1970, pp.53-60.
- 9) 海野 進, 中野 俊, 石塚 治, 駒澤正夫, 20万分の1地質図幅「小笠原諸島」, 産業技術総合研究所 地質調査総合センター, 2009.
- 10) Ishizuka, O., Kimura, J., Li, Y.B., Stern, R.J., Reagan, M.K., Taylor, R.N., Ohara, Y., Bloomer, S.H., Ishii, T., Hargrove III, U.S., Haraguchi, S., Early stages in the evolution of Izu-Bonin arc volcanism: New age, chemical, and isotopic constraints, *Earth and Planetary Science Letters*, vol.250, no.1-2, 2006, pp.385-401.
- 11) Pomar, L., Gili, E., Obrador, A., Ward, W.C., Facies architecture and high-resolution sequence stratigraphy of an Upper Cretaceous platform margin succession, southern central Pyrenees, Spain, *Sedimentary Geology*, vol.175, no.1-4, 2005, pp.339-365.
- 12) Jahn, B., Cuvellier, H., Pb-Pb and U-Pb geochronology of carbonate rocks: an assessment, *Chemical Geology*, vol.115, no.1-2, 1994, pp.125-151.
- 13) Baker, J., Peate, D., Waight, T., Meyzen, C., Pb isotopic analysis of standards and samples using a ^{207}Pb - ^{204}Pb double spike and thallium to correct for mass bias with a double-focusing MC-ICP-MS,

Chemical Geology, vol.211, no.3-4, 2004, pp.275-303.

- 14) Duffin, A.M., Hart, G.L., Hanlen, R.C., Eiden, G.C., Isotopic analysis of uranium in NIST SRM glass by femtosecond laser ablation MC-ICPMS, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, vol. 296, no.2, 2013, pp.1031-1036.

3.3.2 光ルミネッセンス(OSL)年代測定法の実用化

(1) はじめに

OSL 年代測定法は、自然放射線の作用により石英や長石等の鉱物内に蓄積されたトラップ電子を、光の刺激により再結合させた際に生ずる発光の強度を利用した年代測定法である。トラップ電子の蓄積量は数百度の熱や太陽光に曝されるとリセットされるため、ルミネッセンス年代は試料が加熱や光曝を受けて以降の時間に相当し、テフラや考古遺物、堆積物の年代測定に利用されている(塚本, 2018¹⁾)。東濃地科学センターでも、OSL 年代測定技術の開発を進めており、段丘堆積物の供給源及び堆積年代の違いについての測定及び分析を可能としている(石丸ほか, 2019²⁾)。

近年、OSL 年代測定法の応用として、鉱物中のトラップ電子の蓄積開始時期及び蓄積率が周囲の温度によって変化することを利用し、試料の熱履歴を推定する OSL 熱年代法も提唱されている(Herman *et al.*, 2010³⁾)。この手法は、フィッション・トラック(FT:Fission Track)法やウラン・トリウム・ヘリウム((U-Th)/He)法といった既存の熱年代法では測定が困難な、過去数十万年の低温領域(30~100 °C)の熱履歴の推定を得意とするため、深度数百メートルの侵食速度の評価に利用できる(Herman *et al.*, 2010³⁾);King *et al.*, 2016⁴⁾;Herman and King, 2018⁵⁾)。OSL 熱年代法の適用は、ルミネッセンス信号が数十万年で飽和するため、露頭試料においては侵食速度の速い地域に制限されており、先行研究のほとんども、東ヒマラヤや南アルプス(ニュージーランド)、飛騨山脈といった侵食速度が数 mm/year を超える地域で行われている(Herman and King, 2018⁵⁾)。しかし、大深度ボーリングコアを用い、ルミネッセンス信号が飽和していない地下深部の試料を利用することで、侵食速度の遅い地域にも適用できる可能性がある。

本研究では、隆起・侵食速度の評価技術の高度化に資するため、深度数百メートルにおける 10 万年スケールの侵食史の復元を可能とする OSL 熱年代法の技術開発を進めた。平成 30 年度は、侵食速度が遅い地域に対する OSL 熱年代法の適用可能性を検討するために、本手法を大深度ボーリングコアに適用した。

(2) 当該分野に係る科学的・技術的背景

OSL 熱年代法は、当初、石英 OSL を利用していたが、近年では、長石の赤外光ルミネッセンス(IRSL:Infrared Stimulated Luminescence)を利用することが多い。IRSL は、広義では OSL に含まれるため、これを利用した熱年代法も OSL 熱年代と称する。長石 IRSL の利点として、ルミネッセンス感度や年代上限が石英 OSL よりも高いことが挙げられる。しかし、長石利用の際には、トンネル効果による非熱的脱トラップ(フェーディング;Wintle, 1973⁶⁾)の考慮が必要になる。

長石を用いた OSL 熱年代法の基本モデルは以下のように記述される:

$$\frac{d\tilde{n}}{dt} = \text{Trapping} - \text{Thermal detrapping} - \text{Athermal detrapping} \quad (1)$$

\tilde{n} は鉱物内のトラップ電子蓄積率(トラップ電子数/総トラップ数)、 t は時間を表す。時間あたりの \tilde{n} の増加量($d\tilde{n}/dt$)は、電子のトラップ量(Trapping)から、熱的脱トラップ量(Thermal detrapping)と非熱的脱トラップ量(Athermal detrapping)を引くことで表される。さらにこのモデルは、以下の数学的モデルで記述される(King *et al.*, 2016⁴⁾;Herman and King, 2018⁵⁾):

$$\frac{d\tilde{n}}{dt} = \frac{\dot{D}}{D_0} \cdot (1 - \tilde{n}) - s_{th} \cdot \tilde{n} \cdot \exp\left(\frac{E_b - E_t}{kT}\right) - s_{tun} \cdot \tilde{n} \cdot \exp\left(\rho'^{-\frac{1}{3}} \cdot r'\right) \quad (2)$$

\dot{D} は線量率 (Gy/ka), D_0 は飽和線量 (Gy), s_{th} は熱減衰の頻度因子, E_b はバンドテイルのエネルギー (eV), E_t はトラップ深度 (eV), k はボルツマン定数 (eV/K), T は温度 (K), s_{tun} はフェーディングの頻度因子 (3×10^{-15} /s), ρ' は再結合センターの密度, r' はトラップと再結合センターの距離である。ルミネッセンス測定で物理パラメータを決定することで、温度条件におけるトラップ電子の蓄積率を計算でき、この関係を利用し、熱履歴を推定する。

近年には、より詳細な熱履歴推定を可能にする multi-OSL 熱年代法が開発されている (King *et al.*, 2016⁴⁾)。この手法は、段階的に補助温度を上げて、連続して IRSL を測定する Multiple Elevated Temperature (MET) 法 (Li and Li, 2011⁷⁾) を利用している。補助温度によって IRSL の熱安定性は異なるため、MET 法を用いることで、1 試料から複数の閉鎖温度を設定できる。そのため、multi-OSL 熱年代法は過去 10 万～20 万年の低温領域 (< 75 °C) の熱履歴をより詳細に推定できる。

(3) 実施内容・結果

平成 30 年度は、侵食速度が遅いことが予想される東濃地域において掘削されたボーリングコア (孔名: MIZ-1; 魚住ほか, 2005⁸⁾) を用いて、OSL 熱年代法の適用性を検討した。アパタイトフィッション・トラック法で推定された約 40 Ma 以降の侵食速度 (< 0.16 mm/year; Yuguchi *et al.*, 2017⁹⁾) や、河成段丘から求められた MIS 6 から MIS 2 の隆起速度 (0.11～0.16 mm/year; 田力ほか, 2011¹⁰⁾) から、東濃地域の侵食速度は 0.1 mm/year 程度またはそれ以下と予想される。MIZ-1 コアは主に山陽帯の土岐花崗岩体で構成される (湯口ほか, 2010¹¹⁾)。MIZ-1 コアの総掘削長は 1,300 mabh (meter along borehole) であり、OSL 熱年代用試料は 159, 449 及び 751 mabh 地点から採取した。

OSL 測定用のカリウム長石を抽出するため、以下の手順で岩石試料を処理した。光曝によるルミネッセンスの減衰を防ぐため、全ての作業は赤色灯下で行った。露光している表面部分 (厚さ約 1.5 cm) を岩石カッターで切りとり、乳鉢と乳棒を使い、内部の試料を粉砕した。篩を用いて粒径を 180～250 μm に選別後、10 % 塩酸で炭酸塩、35 % 過酸化水素で有機物を除去した。ポリタングステン酸ナトリウム水溶液を用いて重液分離を行い、密度が 2.58 g/cm^3 未満の試料を抽出した。最後に、ネオジウム磁石で磁性鉱物を分離した。

OSL の測定には、スイス・ローザンヌ大学所有の β 線源 ($^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$: 2.96 GBq: 0.226 Gy/s) を搭載した TL/OSL reader (Riso 製 TL/OSL-DA-20; Bøtter-Jensen *et al.*, 2010¹²⁾) を利用した。加熱率は 5 °C/s に設定した。補助温度は、50, 100, 150 及び 225 °C に設定した。200 °C 以上の測定は窒素 (N_2) 雰囲気下で、それ以外の測定は大気雰囲気下で行った。発光の検出には、光電子増倍管 (EMI9235QA) を用いた。また、検出波長を紫～青色に制限するために光学フィルター BG3 と BG39 (いずれも Schott 社製) の組み合わせを利用した。

OSL 測定では、放射線反応曲線測定、等温減衰測定及びフェーディング測定を行い、電子のトラップ率、熱的脱トラップ及び非熱的脱トラップの物理パラメータを決定した。数値解析ソフトウェアの MATLAB を用いて、無作為に温度パスを引き、求めた物理パラメータを基に、温度パスに対応する電子トラップの成長曲線を引くことで、熱履歴を推定した。また、試料の蓄積トラップ電子量 (等価線量) に到達する成長曲線のみを抽出することで熱履歴の制約を行い、パスの分布から熱履歴の信頼性を確かめた。

Multi-OSL 熱年代法の年代適用範囲が 0.2 Ma であること、また温度適用範囲が 75 °C 未満であることを考慮し、モデリングの条件として、年代の始点を 0.5 Ma、温度の始点を 150 °C と設定した。温度の終点は、試料の掘削深度における温度とした(魚住ほか, 2005⁸⁾)。年間線量は未測定のため、ヒマラヤ山脈の既往研究例を参考に 4.67 Gy/ka と仮定した。

OSL 熱年代測定の結果を図 3.3.2-1 に示す。図の色相は、パスの確率密度を表し、暖色系ほど高確率を示す。赤線はその時間におけるパスの分布の中央値、緑線が 60 %信頼区間、黒線が 90 %信頼区間の範囲を示す。時間ごとのパスの分布の中央値(赤線)、もしくはその周辺を通り、かつパスの確率密度分布の高い部分(色相が暖色系の部分)が信頼性の高い熱履歴を表す。全ての試料で、確率密度分布は過去数十万年間、温度が変化しないという結果を示した。全パスの中央値を考慮しても、およそ 20 万年前以降の温度変化は数度以内に収まっていると考えられる。しかし、中央値は試料の飽和線量やパスの始点温度の影響を受けていると考えられ、実際には確率密度分布が示すように、より長期間にわたって温度が安定していた可能性がある。この結果は、本地域で報告されている 10 万年スケールの隆起速度(田力ほか, 2011¹⁰⁾)や、1,000 万年スケールの侵食速度(Yuguchi *et al.*, 2017⁹⁾)とも矛盾しない。より精度の高い熱履歴の推定のためには、物理パラメータやモデリング条件の再検討が今後の課題として挙げられる。

(4) 主な成果と課題

本研究により、大深度ボーリングコアを用いることで、侵食速度が遅い地域にも OSL 熱年代法を適用できる可能性を示した。本手法は、既存の手法では推定が困難な、数十万年前より若い時代の低温領域の熱履歴を推定できる方法として有効であると考えられる。

今後は、熱履歴推定の精度を高めるために、既知の熱履歴情報や気候変動による温度変化、試料の飽和線量等を考慮し、最適なモデリング条件の設定法やモデリング結果の解析法を整備する。また、先行研究で報告されていない侵食速度が中程度(0.5 mm/year 前後)の地域に対する OSL 熱年代法の適用可能性を検討する。

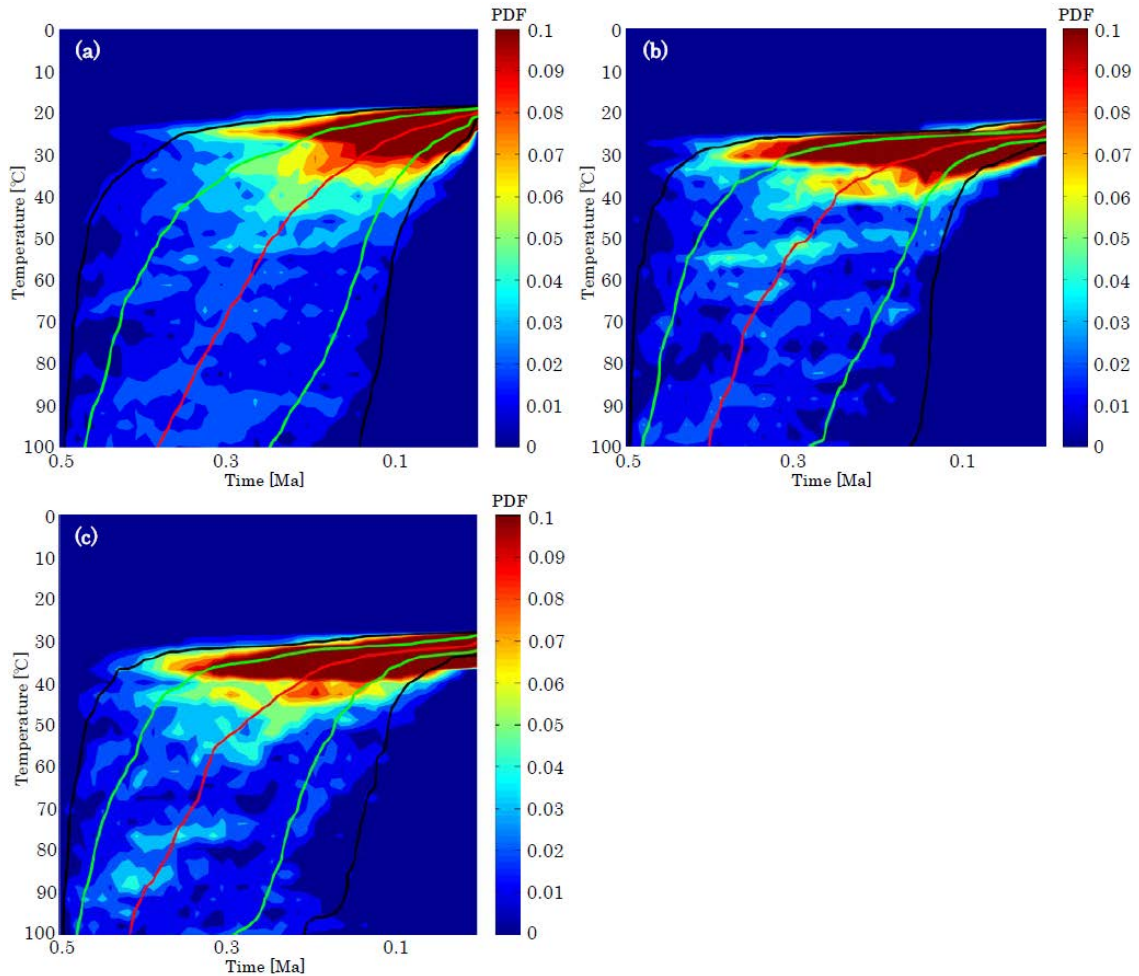


図 3.3.2-1 (a)159 mabh, (b)449 mabh および(c)751 mabh 地点の熱履歴

図の色相は、パスの確率密度(PDF)を表し、暖色系ほど高確率を示す。赤線はその時間におけるパスの分布の中央値、緑線が 60 %信頼区間、黒線が 90 %信頼区間の範囲を示す。

参考文献

- 1) 塚本すみ子, 光ルミネッセンス(OSL)年代測定法の最近の発展と日本の堆積物への更なる応用の可能性, 第四紀研究, vol.57, no.5, 2018, pp.157-167.
- 2) 石丸恒存, 尾方伸久, 島田顕臣, 浅森浩一, 國分(齋藤)陽子, 丹羽正和, 渡邊隆広, 雑賀 敦, 末岡 茂, 小松哲也, 横山立憲, 藤田奈津子, 清水麻由子, 小川大輝, 植木忠正, 雨宮浩樹, 地質環境の長期安定性に関する研究 年度報告書(平成 29 年度), JAEA-Research 2018-015, 2019, 89p.
- 3) Herman, F., Rhodes, E.J., Braun, J., Heiniger, L., Uniform erosion rates and relief amplitude during glacial cycles in the Southern Alps of New Zealand, as revealed from OSL-thermochronology, Earth and Planetary Science Letters, vol.297, no.1-2, 2010, pp.183-189.
- 4) King, G.E., Guralnik, B., Valla, P.G., Herman, F., Trapped-charge thermochronometry and

- thermometry: A status review, *Chemical Geology*, vol.446, 2016, pp.3-17.
- 5) Herman, F., King, G.E., *Luminescence thermochronometry: Investigating the link between mountain erosion, tectonics and climate*, *Elements*, no.1, vol.14, 2018, pp.33-38.
 - 6) Wintle, A.G., *Anomalous fading of thermoluminescence in mineral samples*, *Nature*, vol.245, no.5421, 1973, pp.143-144.
 - 7) Li, B., Li, S.-H., *Luminescence dating of K-feldspar from sediments: A protocol without anomalous fading correction*, *Quaternary Geochronology*, vol.6, no.5, 2011, pp.468-479.
 - 8) 魚住直己, 村上真也, 大石保政, 河村秀紀, *超深地層研究所計画における試錐調査 (MIZ-1 号孔) (核燃料サイクル機構契約業務報告書)*, JNC TJ7440 2005-091, 2005, 1883p.
 - 9) Yuguchi, T., Sueoka, S., Iwano, H., Danhara, T., Ishibashi, M., Sasao, E., Nishiyama, T., *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*, *Island Arc*, vol.26, no.6, 2017, doi:10.1111/iar.12219.
 - 10) 田力正好, 安江健一, 柳田 誠, 古澤 明, 田中義文, 守田益宗, 須貝俊彦, *土岐川(庄内川)流域の河成段丘と更新世中期以降の地形発達*, *地理学評論 SeriesA*, vol.84, no.2, 2011, pp.118-130.
 - 11) 湯口貴史, 鶴田忠彦, 西山忠男, *中部日本土岐花崗岩体の岩相と化学組成の累帯変化*, *岩石鉱物科学*, vol.39, no.2, 2010, pp.50-70.
 - 12) Bøtter-Jensen, L., Thomsen, K.J., Jain, M., *Review of optically stimulated luminescence (OSL) instrumental developments for retrospective dosimetry*, *Radiation Measurements*, vol.45, no.3-6, 2010, pp.253-257.

3.3.3 アルミニウム-26(^{26}Al)年代測定法、塩素-36(^{36}Cl)年代測定法の実用化

(1) はじめに

地震活動・断層運動、火山・火成活動、隆起・侵食等に係る過去の活動履歴を把握する方法の一つとして、様々な地質試料に含まれる長半減期放射性核種を用いた放射年代測定がある。東濃地科学センターでは、過去数十万年を対象とした年代測定の重要性が増すこと想定し、ベリリウム-10(^{10}Be)、 ^{14}C 、 ^{26}Al 、 ^{36}Cl 、 ^{129}I 等の複数の長半減期放射性核種の年代測定が可能となるタンデム型加速器質量分析計(ペレットロン年代測定装置)を導入し、平成9年から整備を開始した。

施設整備後、過去5万年程度までの年代が推定でき、需要が最も多い ^{14}C 測定を開始し(Xu *et al.*, 2000¹⁾)、種々の地質学研究、例えば、段丘の形成年代や断層の活動履歴の推定に関する研究(及川ほか, 2008²⁾;丹羽ほか, 2009³⁾;丹羽ほか, 2010⁴⁾等)に利用されている。このほか、これまでは原子力機構が進める環境科学研究(Nakanishi *et al.*, 2014⁵⁾;Nakanishi *et al.*, 2012⁶⁾;竹内ほか, 2014⁷⁾)、さらには原子力機構の施設供用制度等を通して様々な調査・研究に貢献している(Okuno *et al.*, 2013⁸⁾;奥野ほか, 2015⁹⁾;Mirabueno *et al.*, 2014¹⁰⁾;國分ほか, 2014¹¹⁾)。また、実試料の測定に並行して、精確さや測定限界等のデータの品質の向上も進めている(Saito-Kokubu *et al.*, 2013¹²⁾;Matsubara *et al.*, 2014¹³⁾;Saito-Kokubu *et al.*, 2015¹⁴⁾;南ほか, 2015¹⁵⁾)。

第2期中期目標期間では、 ^{14}C 年代より長期の地質環境の予測及び評価に利用可能であり、第四紀全体を対象とできる ^{10}Be 年代測定の実用化を行った。 ^{10}Be 年代測定に係る試料調製、ペレットロン年代測定装置の設定及び調整、データ解析に至る一連の技術の整備に取り組みつつ、標準試料を用いた試験測定を進めた。その結果、精確な結果が定常的に得られることを確認でき、ルーチン測定に向けた測定技術の整備を平成24年度末をもって完了し(國分ほか, 2012¹⁶⁾;松原ほか, 2012¹⁷⁾, Saito-Kokubu *et al.*, 2015¹⁴⁾)、平成25年度から施設供用制度による ^{10}Be の依頼測定の受け入れ開始や実用化を達成した。また、 ^{10}Be の開発に並行して、 ^{26}Al 年代測定法の実用化に向け、試料調製及び測定条件の検討、標準試料を用いた試験測定を行った。

第3期中長期目標期間では、 ^{26}Al 及び ^{36}Cl の定量法を確立し、 ^{26}Al 、 ^{36}Cl 及び ^{129}I の年代測定法を実用化することを目指す。さらに、ペレットロン年代測定装置で測定可能な他の宇宙線生成核種等を用いた年代測定法について検討するため、試料調製法や測定法等に係る文献調査にも着手し、検出器の改良等に関する研究開発も行っていく。このうち平成27年度は、主に ^{26}Al 年代測定法実用化、 ^{36}Cl 年代測定法の情報収集及び仕様の検討を、平成28年度、平成29年度は ^{26}Al 年代測定法及び ^{36}Cl 年代測定法実用化に向けた検討に加え、 ^{129}I 年代測定法の整備に向けて試料調製法や装置構成に関する情報収集及び仕様の検討等を行いながら、試料調製法の開発及び測定条件の調整を行った。平成30年度は ^{129}I 年代測定法の実用化に向けた研究開発を重点的に行い、試料調製及び測定条件の検討、標準試料を用いた試験測定を行った。

(2) 当該分野に係る科学的・技術的背景

宇宙線は大気中の元素や地表物質と反応し、各種の放射性核種を生成する。そのような反応で生成した宇宙線生成核種である ^{26}Al 及び ^{36}Cl を用いた年代測定法は、各々数千～数千万年及び数千～数百万年の年代測定が可能であり、岩石の露出年代や地下水年代の推定に有用な手法である。第3期中長期目標期間における ^{26}Al 年代測定法の利用目的は、岩石の露出年代等を推定するため、宇宙線によって表層の岩石や土壌に含まれる石英中に生成する ^{26}Al の蓄積量を定量し ^{10}Be と組み合わせること

で、より精度の高い年代推定を可能にすることである。一方、 ^{36}Cl 年代測定法及び ^{129}I 年代測定法は、これまでに行ってきた ^{14}C 年代測定法と同様に地下水の滞留時間等の推定が可能であり、 ^{14}C 年代測定法より古い年代を測定できるため多核種の組み合わせにより精度を上げることが可能となる。

現在、国内で ^{26}Al 測定及び ^{36}Cl 測定を実施できる施設は、同規模の加速器を有する東京大学タンデム加速器研究施設(MALT:Micro Analysis Laboratory, Tandem Accelerator) (松崎, 2007¹⁸⁾; Matsuzaki *et al.*, 2007¹⁹⁾及び筑波大学(笹ほか, 2015²⁰⁾)に限られている。また ^{129}I 測定については上記に加え、JAEA-AMS-MUTSUにおいても測定が可能であるが、原子力機構内における ^{129}I 測定の需要も高まっていることから、 ^{26}Al 年代測定、 ^{36}Cl 年代測定及び ^{129}I 年代測定の実用化を目指す当計画の意義は大きい。

(3) 実施内容・結果

^{129}I 年代測定法の実用化に向けた研究開発として、平成29年度は、ノルマルヘキサンを用いたヨウ素の抽出法等を検討し、 10^{-11} レベルのヨウ素同位体比($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比)の標準試料を用いた測定条件の最適化を実施した。平成30年度は、地下水への適用を目指し、地下水と近い 10^{-13} レベルの同位体比試料に対してノルマルヘキサンを用いたヨウ素の抽出法の適用性を確認しつつ、装置の最適化も行った。

ノルマルヘキサンは、これまで一般的に使用されてきた四塩化炭素のような特定化学物質ではないため、比較的使用しやすい有機溶剤である。しかし、ノルマルヘキサンの使用は海水等の人為起源の ^{129}I が混入した試料での適用が主であり、地下水のような低い同位体比を持つ試料への使用例は少なく、その使用による同位体比への影響の有無に関する報告がなかった。そのため、 10^{-13} レベルの同位体比を持つことがわかっているヨウ化イオン溶存溶液を用いて、ノルマルヘキサンによるヨウ素の抽出において同位体比に変化があるかを確認した。試料は、同位体比が 10^{-13} レベルのIonPlus(ヨウ化ナトリウム溶液)と 10^{-14} レベルのWoodward iodine(I_2 を亜硫酸ナトリウムを用いて超純水に溶解させたもの)を用いた。その結果、IonPlus及びWoodward iodineともに抽出操作の有無で、同位体比に差は見られなかった。よって、ノルマルヘキサンによる抽出を含む試料調製法が、同位体比の低い地下水へ適用可能であることが確認できた。

また測定に関しては、平成29年度に同位体比 10^{-11} レベルの試料(MUTSU#2-3)を測定することができていたが、バックグラウンドの値が他の機関よりも高く、また不安定であるという問題があった。そのため、バックグラウンドの低減を図るため、装置の最適化を行った。 ^{129}I の検出に関する検討を行ったところ、ペレトロン年代測定装置は装置の設計上、ヨウ素-127(^{127}I)の電流値を測定する電流計が、 ^{127}I が通る軌道よりもわずかに外側に設置されており、電流計に入らない一部の ^{127}I が ^{129}I の軌道に入り込んでいることがわかった。電流計の設置位置は変更できないため、 ^{129}I の軌道に ^{127}I が混ざらないように ^{129}I の検出器より前にあるスリットを絞ることにより対応を行った。その結果、バックグラウンドの値を 10^{-14} レベルに下げることが成功し、安定した値を得ることができるようになった。この結果、ペレトロン年代測定装置を用いて低い同位体比の測定が実施可能となった。

以上により、地下水の ^{129}I 年代測定法を対象とした試料調製法及び $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比測定の整備を完了し、次年度よりルーチン測定を開始する予定である。

(4) 主な成果と課題

^{129}I 年代測定法の実用化に向けた研究開発においては、試料調製方法の検討及び測定条件の最適化への検討等を行い、地下水への ^{129}I 年代測定法の実用化に向けた整備を完了した。今後の課題とし

て、さらにバックグラウンドの値を低減するように、試料調製法を検討するとともに、地下水以外の試料にも ^{129}I 年代測定法を適用できるよう検討していく。

このほか ^{26}Al 年代測定法については、平成 30 年度も引き続き実試料の測定を行うとともに、標準試料を用いた測定品質の確認により信頼性の高いデータが得られていることがわかった。今後の課題として、実試料の ^{26}Al 年代測定の実績を増やすとともに、標準試料の測定による信頼性の確認や検出限界の改善等の測定の高精度化を目指した技術開発及び情報収集を行っていく。 ^{36}Cl 年代測定法については、平成 29 年度に引き続き試料調製法の情報収集や装置の仕様の検討を行った。これまでの検討を元に、実際に標準試料を用いて ^{36}Cl 測定を行う。また、同重体分別技術に関する研究開発も行っていく。また、これらに並行して、今後も他の宇宙線生成核種等を用いた年代測定法の実用化に向けた試料調製法や装置構成等の情報収集及び仕様の検討を行っていく。

参考文献

- 1) Xu, S., Ito, S., Iwatsuki, T., Abe, M., Watanabe, M., A new AMS facility at the JNC Tono Geoscience Center, Japan, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol.172, no.1-4, 2000, pp.8-12.
- 2) 及川輝樹, 笹尾英嗣, 星野安治, 長野県梓川上流セバ谷沿いに分布する礫層中から産する材化石の ^{14}C 年代の再検討, 第四紀研究, vol.47, no.6, 2008, pp.425-431.
- 3) 丹羽雄一, 須貝俊彦, 大上隆史, 田力正好, 安江健一, 齋藤龍郎, 藤原 治, 濃尾平野西部の上部完新統に残された養老断層系の活動による沈降イベント, 第四紀研究, vol.48, no.5, 2009, pp.339-349.
- 4) 丹羽雄一, 須貝俊彦, 大上隆史, 田力正好, 安江健一, 藤原 治, 相対的海水準の急激な上昇イベントが示唆する養老断層系の完新世活動—濃尾平野西縁におけるボーリングコアの解析から—, 地学雑誌, vol.119, no.4, 2010, pp.668-682.
- 5) Nakanishi, T., Atarashi-Andoh, M., Koarashi, J., Saito-Kokubu, Y., Hirai, K., Seasonal and snowmelt-driven changes in the water-extractable organic carbon dynamics in a cool-temperate Japanese forest soil, estimated using the bomb- ^{14}C tracer, Journal of Environmental Radioactivity, vol.128, 2014, pp.27-32.
- 6) Nakanishi, T., Atarashi-Andoh, M., Koarashi, J., Saito-Kokubu, Y., Hirai, K., Carbon isotopes of water-extractable organic carbon in a depth profile of forest soil imply a dynamic relationship with soil carbon, European Journal of Soil Science, vol.63, no.4, 2012, pp.495-500.
- 7) 竹内絵里奈, 安藤麻里子, 小嵐 淳, 國分(齋藤)陽子, 西尾智博, 大脇好夫, 眞田勝樹, グラファイト生成の前処理の違いにおける ^{14}C 測定への影響—サルフィックスと銀板の比較—, 第 16 回 AMS シンポジウム報告集, 2014, pp.51-55.
- 8) Okuno, M., Nakamura, T., Geshi, N., Kimura, K., Saito-Kokubu, Y., Kobayashi, T., AMS radiocarbon dating of wood trunks in the pumiceous deposits of the Kikai-Akahoya eruption in Yakushima Island, SW Japan, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with

- Materials and Atoms, vol.294, 2013, pp. 602-605.
- 9) 奥野 充, 長岡信治, 國分(齋藤)陽子, 五島列島, 福江島の鬼岳降下スコリア直下の土壌試料の放射性炭素年代, 月刊地球, vol.37, no.4, 2015, pp.119-121.
 - 10) Mirabueno, Ma.H.T., Torii, M., Laguerta, E.P., Delos Reyes, P.J., Fujiki, T., Bariso, E.B., Okuno, M., Nakamura, T., Danhara, T., Saito-Kokubu, Y., Kobayashi, T., Stratigraphy and AMS radiocarbon dates of cored sediments(IrBH-2) from the Irosin Caldera, the Philippines, 地学雑誌, vol.123, no.5, 2014, pp.751-760.
 - 11) 國分陽子, 松原章浩, 石丸恒存, 三宅正恭, 西澤章光, 大脇好夫, 西尾智博, 江門遺跡出土の果実類及び木片の放射性炭素年代測定, 平成 24 年度土岐市市内遺跡発掘調査報告書, 2014, pp.28-30.
 - 12) Saito-Kokubu, Y., Nishizawa, A., Suzuki, M., Ohwaki, Y., Nishio, T., Matsubara, A., Saito, T., Ishimaru, T., Umeda, K., Hanaki, T., Current status of the AMS facility at the Tono Geoscience Center of the Japan Atomic Energy Agency, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, vol.294, 2013, pp.43-45.
 - 13) Matsubara, A., Saito-Kokubu, Y., Nishizawa, A., Miyake, M., Ishimaru, T., Umeda, K., Quaternary geochronology using Accelerator Mass Spectrometry(AMS)—Current status of the AMS system at the TONO Geoscience Center, Geochronology - Methods and Case Studies, InTech, 2014, pp.3-30, ISBN 978-953-51-1643-1.
 - 14) Saito-Kokubu, Y., Matsubara, A., Miyake, M., Nishizawa, A., Ohwaki, Y., Nishio, T., Sanada, K., Hanaki, T., Progress on multi-nuclide AMS of JAEA-AMS-TONO, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol.361, 2015, pp.48-53.
 - 15) 南 雅代, 高橋 浩, 荒巻能史, 國分(齋藤)陽子, 伊藤 茂, 中村俊夫, 水試料の¹⁴C比較プログラム(RICE-W)—沈殿法の検討—, 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書, vol.26, 2015, pp.132-137.
 - 16) 國分(齋藤)陽子, 松原章浩, 石丸恒存, 花木達美, 西澤章光, 三宅正恭, 大脇好夫, 西尾智博, 田中孝幸, JAEA-AMS-TONOの現状(平成24年度), 第15回AMSシンポジウム報告集, 2013, pp.21-24.
 - 17) 松原章浩, 西澤章光, 三宅正恭, 國分(齋藤)陽子, 石丸恒存, JAEA-AMS-TONOにおける¹⁰Beのルーチン測定に向けた装置の整備, 第15回AMSシンポジウム報告集, 2013, pp.25-28.
 - 18) 松崎浩之, 加速器質量分析の原理, 真空, vol.50, no.7, 2007, pp.467-474.
 - 19) Matsuzaki, H., Nakano, C., Tsuchiya-Sunohara, Y., Kato, K., Maejima, Y., Miyairi, Y., Wakasa, S., Aze, T., Multi-nuclide AMS performances at MALT, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol.259, no.1, 2007, pp.36-40.
 - 20) 笹 公和, 高橋 努, 松中哲也, 松村万寿美, 坂口 綾, 佐藤志彦, 本多真紀, 泉 大希, 末木啓介, 筑波大学6MV AMSシステムの設置状況と将来展望, 第17回AMSシンポジウム報告集, 2015, pp.20-23.

3.3.4 希ガス同位体を用いた地下水年代測定法の実用化

(1) はじめに

過去から現在までの地下水流動や水質変化のシミュレーション結果等の妥当性を示すためには、地下水の年代値等のデータを過去数万年から 100 万年程度の期間にわたって得ることが重要である。このため、地下水中に溶存するヘリウム-4 (^4He)、ネオン-21 (^{21}Ne) 及びアルゴン-40 (^{40}Ar) を用いた年代測定技術を開発する。第 3 期中長期目標期間では、これらの地下水に溶存する希ガス元素を用いた年代測定を行うために、地下水からの希ガス元素の回収技術の開発及びこれらの核種の定量とその際に必要になる同位体分析の高度化を行うとともに、経年的な変化量を算定する際に問題となる時間変化に比例しない成分の影響を評価する。

(2) 当該分野に係る科学的・技術的背景

地下水の滞留年代は、炭酸塩の生成に要した時間や物質供給の速度等に制約を与えることから研究が進められている。地下における炭酸塩の形成は、花崗岩体や堆積層の中に地下水が浸潤し、地下水中の二酸化炭素が塩として析出することによる。花崗岩体や堆積層を構成する一部の鉱物、また時には地下水自体も微量成分としてウランやトリウムを含むが、これらは主としてアルファ崩壊によって ^4He を放出する。放出された ^4He は地下水の溶存成分となる。このようにして地下水中に蓄積される ^4He を用いた地下水の涵養年代の測定には、Torgersen (1980)¹⁾ 等の例がある。またケイ酸塩鉱物中に放出されたアルファ粒子は酸素-18 (^{18}O) と反応して ^{21}Ne を生じる。これも微量ではあるが周囲の地下水に溶出し、その測定例として Lippmann *et al.* (2003)²⁾ がある。東濃地科学センターにおいても森川 (2001)³⁾ が地下水のヘリウム及びネオン同位体組成を分析しているが、用いられた希ガス質量分析計 (Micromass 社製 VG5400) では、 ^{21}Ne の変化は測定限界以下であるとされている。また Lippmann *et al.* (2003)²⁾ や Castro and Jambon (1998)⁴⁾ は、放射起源 ^{40}Ar や自発核分裂起源キセノン同位体による変動も報告している。

地下水の滞留年代の不確かさは、各種の希ガス同位体分析の精度に依存する。近年では、同位体分析の高精度化を目的として、これまで固体や溶液試料の測定を行う表面電離型質量分析計及び誘導結合プラズマ質量分析計 (ICP-MS: Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry) で用いられてきたマルチコレクタ及び高利得高安定増幅器を採用した希ガス質量分析計が登場した (角野, 2015⁵⁾)。これまでいくつかの装置が販売されているが、IsotopX 社がシングルコレクタ希ガス質量分析計の一つである VG5400 希ガス質量分析計をベースにマルチコレクタ化し、併せて高利得高安定増幅器を搭載した NGX を開発した。この装置は実績のある希ガス質量分析計の設計を踏襲することで全般的な性能を確保した上で、あえてコレクタ配置を固定とすることで質量分析計の容積を VG5400 に対し半分程度まで縮小し、試料の利用効率を高めるとともにイオン加速電圧を 8 kV に高めることで、イオン化効率と質量分解能を高めている (IsotopX, 2012⁶⁾)。このような特徴を持つことから、東濃地科学センターでは平成 26 年度に高分解能マルチコレクタ希ガス質量分析計 (NGX-004) を導入した。ただし、質量分解能を高めるためにフライトチューブを延長していることから、通常の装置より容積が増加している。また、NGX-004 と同時に、その前処理装置 (堀口鉄工所製 PEG-035) も導入した。PEG-035 は、3 基のチタンゲッターと通電状態で動作する 1 基の非蒸発型ゲッター (NEG: Non-Evaporable Getter) ポンプによって高い活性ガス除去能力を備えている。室温で動作する NEG ポンプにより水素を除去し、極低温冷凍機、ステンレスシーブトラップ及び活性炭トラップを用いて、希ガスの分離を行う部分を水素発生源となるチタンゲッターや通電状態の NEG ポンプから隔離することによって、質量分析計に送り込む試料ガスの純度を高められる。また、極低温冷凍機 (Advanced Research Systems 社製 DE-210SF) により冷却される極低温トラップを備え、

He と Ne を分離できる。

平成 27 年度は、本装置を用いて Ne 同位体分析の整備を行った。その結果、VG5400 を用いた森川 (2001)³⁾の報告に比べて $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ 比、 $^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ 比とも一桁精度の高い測定値が得られ、地下水を対象とした Nucleogenic ^{21}Ne の検出に耐える不確かさであることを確認した。また、地下水を採取する際に用いる試料容器として銅管の両端をクランプで封止するものと Swagelok 社の耐圧サンプリング容器(シングルエンドボトル)にバルブを組み合わせたもの(森川, 2001³⁾を参考)を整備した(日本原子力研究開発機構, 2016⁷⁾)。

平成 28 年度は、大気を標準試料として測定することで He 同位体分析の整備を行った。イオン源のスリット等の調整を行ったことにより、安定した測定結果が得られるようになり、相対標準偏差 (RSD: Relative Standard Deviation) は 10 % 以下となった。測定精度は、通常の He 同位体組成の検討を行うには十分な三桁程度が得られた。また、平成 27 年度に整備した試料採取容器(銅管及び耐圧サンプリング容器)と模擬地下水として作製した標準水試料を用いて、地下水試料の精製、分離及び測定の手順を確立した(日本原子力研究開発機構, 2017⁸⁾)。

平成 29 年度は、平成 28 年度までに構築した He 及び Ne 同位体比分析手法を天然の地下水試料に適用することで、本手法の実用性を検証した。その結果、天然試料においても He 同位体比で RSD が 10 % 以下に収まる測定結果が得られ、高精度分析ができることを確認できた。また、この検証においては発泡性のある地下水を扱ったが、試料採取の際、気泡の試料への混入を防ぐ方法として、金属容器(ダブルエンドボトル)を 5 本連結し、試料採取時に湧水を還流させる方法を考案した(日本原子力研究開発機構, 2018⁹⁾)。

(3) 実施内容・結果

平成 30 年度は、平成 29 年度に考案した発泡性のある地下水の採取方法の有効性の確認を行った。また、試料採取の簡便化を図るため、連結させる金属容器の数を減らした場合についても検討を行った。

地下水の採取は、Swagelok 社の 25 mL 耐圧サンプリング容器(ダブルエンドボトル)を用い、その両端にプラグバルブを取りつけ(図 3.3.4-1)、保圧器具によってそれぞれのバルブをつなげることにより、金属容器を 5 個直列に連結した容器を用いた。採水は、連結した容器を幌延深地層研究センターの研究坑道に設置し、容器内に湧水を 1 週間環流させた上で行った。また、採水は再現性の確認のため 2 回実施し、採取された試料の重量及び希ガス同位体比を比較した。1 回目及び 2 回目の試料封入状態の金属容器の重さの平均値はそれぞれ 335.4 ± 0.3 g、 336 ± 1 g であり、いずれも超純水を大気暴露させ気泡なく封入した標準水の容器(333.7 g)よりも重かった。この結果から、金属容器を 5 個連結させた器具を用いて湧水を環流することにより、気泡を混入させることなく地下水試料を採取できることの再現性が確認できた。また、同試料のヘリウム/ネオン比($^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比)をマルチコレクタ型希ガス質量分析装置(IsotopX 社製 NGX)を用いて測定した結果を表 3.3.4-1 に示す。容器番号は、それぞれ下流側から 1 から 5 とし、 $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比は標準水の値によって規格化したものである。1 回目は容器 1 で、2 回目は容器 5 以外で標準水とほぼ同じ値となった。このことは、連結の末端部以外の容器で希ガスの同位体変動を抑えて試料を採取できたことを示唆する。以上の結果から、発泡性のある地下水に対しては、金属容器を 5 個連結させた器具を用いて湧水を環流し、連結の末端部以外の容器に採取した地下水を測定に用いる方法が有効であることを確認した(産業技術総合研究所ほか, 2019¹⁰⁾)。

また、試料採取の簡便化を図るため、連結させる金属容器を 3 個に減らしたものを 5 組用意し、それぞ

れ異なる地点で採水した。表 3.3.4-2 には試料封入状態にあるそれぞれの金属容器の重さの平均値を示す。いずれの場合も、容器間で大きな違いは確認できず、金属容器を 3 個に減らすことも可能であると考えられる(産業技術総合研究所ほか, 2019¹⁰⁾)。

(4) 主な成果と課題

平成 30 年度は、それまでに考案した発泡性のある地下水の採取方法の有効性及を確認するとともに、その簡便化の目処を得た。この技術を含め、地下水を対象とした試料採取法及びマルチコレクタ型希ガス質量分析装置を用いた各種の希ガス同位体比の高精度測定を実用化した。これは、経年的な変化量を算定する際に問題となる時間変化に比例しない成分の影響を評価するために十分な測定精度である。よって、第 3 期中長期目標期間における所期の目標を達成した。今後は、これらの技術を地下水の滞留年代の評価に係る研究開発等に活用していく。



図 3.3.4-1 耐圧サンプリング容器(ダブルエンドボトル)とプラグバルブ

表 3.3.4-1 本手法で採取した地下水試料中の $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比の規格値

容器 No.	1 回目	2 回目
1	2.27	1.03
2	0.97	0.96
3	0.97	0.92
4	0.68	0.88
5	*n.d.	7.62

※装置不具合によりデータなし

表 3.3.4-2 金属容器を 3 個連結した場合の試料封入状態の金属容器の重さ

組	(g)
A	336.8±0.7
B	335.0±0.5
C	333.8±0.9
D	335.4±0.3
E	336±1

参考文献

- 1) Torgersen, T., Controls on pore-fluid concentration of ^4He and ^{222}Rn and the calculation of $^4\text{He}/^{222}\text{Rn}$ ages, *Journal of Geochemical Exploration*, vol.13, no.1, 1980, pp.57-75.
- 2) Lippmann, J., Stute, M., Torgersen, T., Moser, D.P., Hall, J.A., Lin, L., Borcsik, M., Bellamy, R.E.S., Onstott, T.C., Dating ultra-deep mine waters with noble gases and ^{36}Cl , Witwatersrand Basin, South Africa, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol.67, no.23, 2003, pp.4597-4619.
- 3) 森川徳敏, 地球化学的調査に基づいた地下水流動に関する研究—東濃地域を対象とした溶存希ガスによる地下水調査—, JNC TN7400 2001-003, 2001, 63p.
- 4) Castro, M.C., Jambon, A., Noble gases as natural tracers of water circulation in the Paris Basin 1. Measurements and discussion of their origin and mechanisms of vertical transport in the basin, *Water Resource Research*, vol.34, no.10, 1998, pp.2443-2466.
- 5) 角野浩史, 希ガス同位体質量分析の温故知新, *Journal of the Mass Spectrometry Society of Japan*, vol.63, no.1, 2015, pp.1-30.
- 6) IsotopX, NGX Multicollector Noble Gas Mass Spectrometer, 2012, 20p.
- 7) 日本原子力研究開発機構, 平成 27 年度 地層処分技術調査等事業 地質環境長期安定性評価 確証技術開発 報告書, 2016, 266p.
- 8) 日本原子力研究開発機構, 平成 28 年度 地層処分技術調査等事業 地質環境長期安定性評価 確証技術開発 報告書, 2017, 230p.
- 9) 日本原子力研究開発機構, 平成 29 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 地質環境長期安定性評価確証技術開発 報告書, 2018, 206p.
- 10) 産業技術総合研究所, 日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 電力中央研究所, 平成 30 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 沿岸部処分システム高度化開発 報告書: Appendix VIII, 2019, 6p.

3.3.5 高分解能のテフラ同定手法の開発

(1) はじめに

放射年代測定に供する地質試料が得られない場合には、それを補完する方法として、テフラを年代指標とした編年技術(テフロクロノロジー)が用いられる。テフロクロノロジーは、火山の多い日本において有効な技術であり、新しいテフラの発見や対比の研究が進むことで、これまで年代決定が困難であり、かつ地層処分にとって重要となる第四紀の堆積物の詳細な年代決定を行えるといった利点を有している。これまでの研究開発においては、火山ガラスの屈折率の多量測定とその統計解析によって、肉眼で確認できないような微量のテフラ起源物質を同定する多量屈折率測定地質解析法(RIPL 法:Refractive Index Physical Lobas)を提示した(例えば、梅田・古澤, 2004¹⁾)。また、新たな手法としてテフラ中の鉱物に含まれるメルトインクルージョン(結晶成長の過程で取り込まれたメルトの化石)の化学組成によってテフラを同定する手法を提示した(例えば、中村ほか, 2011²⁾;古澤ほか, 2013³⁾)。しかしながら、テフラ粒子中にメルトインクルージョンが存在する必要があること、メルトインクルージョンの化学組成の定量には高度な技術が必要であるといった問題がある。そこで、新たなテフラ同定手法の開発として、東濃地科学センターに整備しているレーザーアブレーション試料導入を備えた LA-ICP 質量分析装置を用いて、テフラ粒子の微量元素組成分析を進めた。

(2) 当該分野に係る科学的・技術的背景

テフラは火山ガラスや鉱物の岩石鉱物学的特徴(屈折率、形態、鉱物組成等)や主要元素組成によって同定されるのが一般的である。しかしながら、例えば同じ火山から噴出したもので、噴火年代の異なるものやマグマの化学組成が似ているもの等、テフラの鉱物組成や主要元素組成が酷似したものは、一般的な手法では識別が困難であり、他の同定手法の整備が必要となる。また、東北日本に分布する広域テフラ等、微量元素でのカタログ化が進んでいないテフラは未だに多い。平成 29 年度までに、LA-ICP 質量分析法を用いた火山ガラスの主成分・微量元素同時分析がテフラの対比においても有効となり得ることを示した(生田ほか, 2016⁴⁾)。近年、LA-ICP 質量分析法による火山ガラスの微量元素組成の分析例は増えつつあり(例えば、Maruyama *et al.*, 2016⁵⁾)、テフラの同定において強力なツールでとなっている。

(3) 実施内容・結果

平成 30 年度は、東濃地科学センターの LA-ICP 質量分析装置(レーザーアブレーション装置(Photon Machines 社製 Analyte G2);ICP 質量分析装置(Agilent Technologies 社製 7700x))を用いた微量元素分析手法の整備を行なった。LA-ICP 質量分析法による微量元素の定量では、一種類の標準ガラスを標準試料として、標準試料から得られる信号強度とテフラ(未知試料)から得られる信号強度を比較して、元素濃度を定量する手法(一点検量)が一般的である。本研究では、National Institute of Standards and Technology (NIST) 発行の元素含有量が異なる三種類の標準ガラス(NIST SRM 610, 612, 614; Jochum *et al.*, 2011⁶⁾)の分析から得られる検量線を基に、元素濃度を定量した。また、United States Geological Survey (USGS) 発行の標準ガラス USGS BHVO-2G を繰り返し分析することで、分析精度の評価を行った。

LA-ICP 質量分析の装置セッティング及び条件を表 3.3.5-1 に示す。また、USGS BHVO-2G の認証値(GeoReM database; Jochum *et al.*, 2005⁷⁾)と本手法により 66 点分析した平均値との偏差(% Relative Deviation (RD))=(分析値-認証値)/認証値×100)を図 3.3.5-1 に示す。図 3.3.5-1 より、比較的質量数の小さい微量元素(V, Cr, Co, Ni, Cu, Zn, Ga, Rb, Sr, Zr, Nb, Ba)及び軽希土類元素(Sc, Y, La, Ce, Pr, Nd,

Sm, Eu)の認証値からの偏差は概ね 30~40 %程度であった。一方で、重希土類元素(Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu)及びそれよりも重い元素に関しては、偏差が大きいものが確認される。この大きな偏差の原因としては、LA 装置で設定したレーザー径が小さい、もしくはフルエンス(レーザーのエネルギー密度)が小さく、測定元素に対して十分な感度が得られていないことが考えられる。

(4) 主な成果と課題

平成 30 年度は、テフラを年代指標としたテフクロロジーに関する分析手法の構築として、LA-ICP 質量分析法による火山ガラスの微量元素分析手法の整備を行なった。その結果、今回の分析条件では、重希土類元素をはじめ比較的質量の重い元素に関して確度が不十分であることが判明した。今後は、分析精度の向上に向けて、分析条件の最適化を図る必要がある。例えば、本分析では、ガラスに最も多く含まれるケイ素(Si)を内標準物質として用いたが、LA-ICP 質量分析では、Si の感度がやや低くなるため、次に多く含まれる Al を内標準物質として採用した研究例もある(古澤, 2017⁸⁾)。また、組成差のある複数の標準ガラスの分析により、分析精度の評価を継続して実施する予定である。

表 3.3.5-1 微量元素分析の分析条件

Laser ablation	
Model	Photon Machines Analyte G2
Laser type	Excimer 193 nm
Energy density	3.1 J cm ⁻²
Crater size	15 μm
Repetition rate	5 Hz
Carrier gas	He
ICP-MS	
Model	Agilent 7700x
Forward power	1600 W
Carrier gas	Ar
Ar gas flow rate	0.85 L/min
He gas flow rate	~1.1 L/min
Scanning mode	Single collector
Data acquisition protocol	Time resolved analysis
Dwell time	0.01-0.15 s/element, 2 s/time slice
Monitor isotopes	⁷ Li, ⁹ Be, ¹¹ B, ²³ Na, ²⁴ Mg, ²⁷ Al, ²⁹ Si, ³¹ P, ³⁹ K, ⁴³ Ca, ⁴⁵ Sc, ⁴⁹ Ti, ⁵¹ V, ⁵² Cr, ⁵⁵ Mn, ⁵⁷ Fe, ⁵⁹ Co, ⁶⁰ Ni, ⁶³ Cu, ⁶⁶ Zn, ⁷¹ Ga, ⁷³ Ge, ⁷⁵ As, ⁸⁵ Rb, ⁸⁸ Sr, ⁸⁹ Y, ⁹⁰ Zr, ⁹³ Nb, ⁹⁵ Mo, ¹⁰⁷ Ag, ¹¹¹ Cd, ¹¹⁵ In, ¹¹⁸ Sn, ¹²¹ Sb, ¹³³ Cs, ¹³⁷ Ba, ¹³⁹ La, ¹⁴⁰ Ce, ¹⁴¹ Pr, ¹⁴⁶ Nd, ¹⁴⁷ Sm, ¹⁵³ Eu, ¹⁵⁷ Gd, ¹⁵⁹ Tb, ¹⁶³ Dy, ¹⁶⁵ Ho, ¹⁶⁶ Er, ¹⁶⁹ Tm, ¹⁷² Yb, ¹⁷⁵ Lu, ¹⁷⁸ Hf, ¹⁸¹ Ta, ¹⁸² W, ²⁰⁵ Tl, ²⁰⁸ Pb, ²⁰⁹ Bi, ²³² Th, ²³⁸ U
Calibration Standard	NIST610, NIST612, NIST614
Internal Standard Isotope	²⁹ Si
Data Source of NIST glass	Jochum <i>et al.</i> , 2011 ⁶⁾

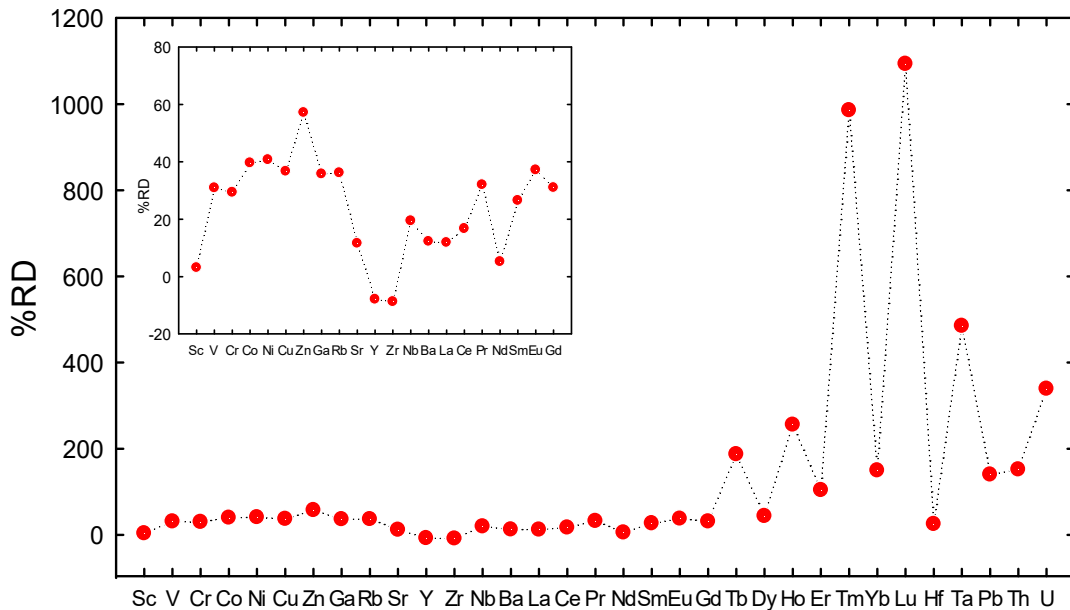


図 3.3.5-1 USGS BHVO-2G の認証値と分析値との比較

横軸は分析した微量元素，縦軸は分析値と認証値との偏差を示す。挿入図は Sc から Gd までの範囲の拡大図である。

参考文献

- 1) 梅田浩司, 古澤 明, RIPL 法によるテフラ降灰層準の認定と最新の噴火活動の推定, 月刊地球, vol.26, no.6, 2004, pp.395-400.
- 2) 中村千怜, 安江健一, 石丸恒存, 梅田浩司, 古澤 明, 緑色普通角閃石中のガラス包有物の主成分化学組成を用いた広域テフラの対比: 阪手テフラを例として, 地質学雑誌, vol.117, no.9, 2011, pp.495-507.
- 3) 古澤 明, 安江健一, 中村千怜, 梅田浩司, 根ノ上高原に分布する土岐砂礫層のテフラ層序—石英中のガラス包有物の主成分化学組成を用いた広域テフラの対比—, 応用地質, vol.54, no.1, 2013, pp.25-38.
- 4) 生田正文, 丹羽正和, 檀原 徹, 山下 透, 丸山誠史, 鎌滝孝信, 小林哲夫, 黒澤英樹, 國分(齋藤)陽子, 平田岳史, 歴史時代に噴出した同一火山由来の軽石層の同定: 宮崎平野で見出された桜島文明テフラの例, 地質学会誌, vol.122, no.3, 2016, pp.89-107.
- 5) Maruyama, S., Hattori, K., Hirata, T., Danhara, T., A proposed methodology for analyses of wide-ranged elements in volcanic glass shards in widespread Quaternary tephras, Quaternary International, vol.397, 2016, pp.267-280.
- 6) Jochum, K.P., Weis, U., Stoll, B., Kuzmin, D., Yang, Q., Raczek, I., Jacob, D.E., Stracke, A., Birbaum,

- K., Frick, D.A., Günther, D., Enzweiler, J., Determination of reference values for NIST SRM 610-617 glasses following ISO guidelines, *Geostandards and Geoanalytical Research*, vol.35, no.4, 2011, pp.397-429.
- 7) Jochum, K.P., Nohl, U., Herwig, K., Lammel, E., Stoll, B., Hofmann, A.W., *GeoReM: A new geochemical database for reference materials and isotopic standards*, *Geostandards and Geoanalytical Research*, vol.29, no.3, 2005, pp.333-338.
- 8) 古澤 明, レーザーアブレーション ICP 質量分析装置を用いた火山ガラスの分析による十和田カルデラ起源大不動テフラと八戸テフラの識別, *地質学雑誌*, vol.123, no.9, 2017, pp.765-776.

3.3.6 地質試料を対象とした年代測定法及び化学分析手法の高度化

(1) はじめに

東濃地科学センターでは、既に ^{14}C 、 ^{10}Be 、カリウム-アルゴン(K-Ar)及び(U-Th)/Heによる年代測定法が実用化されている。しかし、地質試料の生成プロセスは複雑であり、物質の供給源の変化による年代値への影響に加え、前処理方法や測定手法の違いによる年代値の差異等、解決すべき課題がある。近年の年代測定技術の発展によって、データ取得については迅速・簡便化されつつあるが、現状では最終的に得られたデータの解釈が困難になるケースが多い。正確な年代軸を構築するためには、岩石、鉱物、土壌、堆積物、炭酸塩沈殿物、植物化石、地下水等、それぞれの試料の特性及び生成環境に適応した年代測定手法の開発が必要である。これらの年代測定に加えて、試料の無機化学組成や同位体組成等の化学分析を実施することにより、過去から現在までの長期的な地質環境の変遷を推定することが可能になる。効率的かつ必要な精度でデータを取得するためには、当時の古環境またはその後生じた地質イベントに関する情報を保持している試料の選別が必要である。しかし、採取した全サンプル中から得られる適切な測定対象物(植物化石、鉱物や化学成分)は限られている。したがって、地質試料の化学分析においても微小領域の測定を可能にする技術の開発が求められる。このため平成30年度は、年代測定法と化学分析手法の基礎技術の高度化及び微小領域の分析手法の構築に向けて、前処理手法の改良を実施し適切な測定条件の選定等を継続して進めた。このうち本報では、年代測定法の高度化として実施した ^{14}C 年代測定の試料前処理手法の改良について報告する。

(2) 当該分野に係る科学的・技術的背景

測定精度の改善のためには、既に実用化されている年代測定法の高度化が必要となる。加速器質量分析法(AMS: Accelerator Mass Spectrometry)による放射性炭素(^{14}C)年代測定は、地球科学研究等に必要不可欠な年代測定法であり、有機物や炭酸塩の ^{14}C 測定結果をもとに、地層の形成年代、地質イベントの発生年代、地下水の滞留時間に関する情報が得られる(Iwatsuki *et al.*, 2002¹⁾; Watanabe *et al.*, 2012²⁾)。AMSによる ^{14}C 年代測定を実施するためには、試料洗浄、化学処理、燃焼、二酸化炭素の精製、グラファイト調製等の前処理作業を行う必要がある。これらの前処理作業には数週間程度の時間と多大な労力を要する。したがって、AMS技術の発展とともに、前処理手法の簡略化と迅速化が求められている(Yoneda *et al.*, 2004³⁾; 松中ほか, 2015⁴⁾)。平成30年度は、放射性炭素年代測定の前処理手法の改善手法として、自動グラファイト調製装置(Ionplus社製 AGE3)による国際標準試料のテスト測定及び天然試料の測定を実施し、炭素量0.1 mgまでの少量試料への適用についての評価を進めた。

(3) 実施内容・結果

平成30年度は、 ^{14}C 年代測定の前処理手法の改良とともに、EA(元素分析装置)-AGE3による各種試料の調製条件の最適化や少量試料での試料調製について検討を進めた。本研究では、国際標準物質であるIAEA-C5(木片)及びシュウ酸のNISToxII(アメリカ国立標準技術研究所製 NIST-SRM-4990C)を用いて、EA-AGE3による少量試料(炭素量0.1 mg)に対する試料調製の適用性を評価した。年代測定結果のバックグラウンド補正にはEA-AGE3装置で調製したIAEA-C1(大理石)の測定データを用いた。試料の燃焼においては、標準試料を $4 \times 4 \times 12$ mmの錫箔(Elemental Microanalysis社製)に包み、オートサンプラーにより石英製燃焼管(850 °C)に導入した。ここで、燃焼管内の酸化剤として酸化銅(Elementar社製)を、還元剤として還元銅を使用した(Elementar社製、還元炉温度550 °C)。試料燃焼後は、分離カラムで生成した混合ガスから二酸化炭素を脱離させ、ゼオライト製トラップに導入した。さら

に、温度上昇(最大 420 °C)により二酸化炭素をトラップから分離し、水素添加後、鉄粉を触媒とし 580 °C で 2 時間加熱することによりグラファイトを調製した。その際、ペルチエ素子による冷却部の温度は約-10 °Cとした。なお、試料前処理に関するグラファイト調製時の IonPlus 社の推奨条件は炭素量約 1 mg に対して鉄粉 5 mg であるが、今回は少量試料に対する前処理手法の有効性を検討するため、炭素量約 0.1 mg に対して鉄粉 5, 1, 0.5 mg の 3 パターンで実施した。また、メモリー効果等による汚染の影響を防ぐため、試料間に毎回 3 回のブランクを挟み(錫箔のみを燃焼)、空焼きによる洗浄を実施した。以上の方法によって得られたグラファイトを反応管から回収し、自動プレス機を用いてアルミニウム製サンプルホルダーに充填した上で、東濃地科学センターのペレトロン年代測定装置を用いて ^{14}C 濃度測定を行った。

EA-AGE3 による少量でのグラファイト調製を行うにあたり、まずは二酸化炭素の還元を使用する鉄粉の最適量の調整を試みた。炭素量 1 mg でのグラファイト調製時の条件と同比率とすると、炭素量約 0.1 mg の場合に必要鉄粉量は 0.5 mg となる。しかし、反応後の生成物の総量が少なく EA-AGE3 の反応管からのグラファイトの回収そのものが困難であった。また、わずかに回収された試料をプレスし、試験的に ^{14}C 濃度測定を測定したが十分なビーム強度は得られなかった。鉄粉量を 1 mg とした場合は、反応後のグラファイトの回収は可能であったが、 ^{14}C 濃度の測定結果は合意値(Rozanski *et al.*, 1992⁵⁾)とは一致しなかった。定量的な判断には至っていないが、これらのケースでは、二酸化炭素からグラファイトへの還元の効率が低いことが原因の一つとして考えられる。一方で、鉄粉量を 5 mg とした場合はグラファイトが鉄粉量の 50 分の 1 以下となるため、測定試料中の炭素濃度が低く ^{14}C 濃度測定が困難になることが懸念されたが、図 3.3.6-1 に示す通り、合意値に近い ^{14}C 濃度が得られた。したがって、EA-AGE3 によるグラファイト調製では、炭素量約 0.1 mg に対して鉄粉量 5 mg とすることが適当であると考えられる。

炭素量 0.1 mg での少量試料に対する ^{14}C 濃度測定について、得られた実測値を図 3.3.6-1 に示す。NIST-SRM-4990C に対する測定結果は 134.0 ± 1.0 pMC ($n=4$)、IAEA-C5 については 22.5 ± 0.2 pMC ($n=4$) であり、合意値とおおよそ $\pm 2\sigma$ の範囲で一致、もしくは近い値が得られた。これらの結果の不確かさは、従来法であるガラス製真空ラインを使用した手法による ^{14}C 濃度測定のそれに比べて大きい数値ではあるが、今回の測定数は 4 回と少ないため、IAEA-C5 以外の標準試料も含めて測定事例を蓄積することで改善できると考えられる。なお、バックグラウンド評価については、今後 IAEA-C4, C9 及び IonPlus 社が提供する無水フタル酸等を測定する予定である。EA-AGE3 装置は完全自動化の装置ではあるが、バックグラウンドの評価や測定精度の向上・維持のためには、データの継時変化等を正確に把握できる環境を整備することが重要と考えられる(丸岡, 2008⁶⁾, 渡邊ほか, 2016⁷⁾)。

(4) 主な成果と課題

平成 30 年度は、AGE3 を用いた少量試料の ^{14}C 年代測定について、AGE3 を用いた前処理法の有効性を検討した。炭素量 0.1 mg での測定結果は一部を除き、標準試料の放射性炭素濃度の合意値とおおよそ $\pm 2\sigma$ の範囲で一致した(NIST-SRM-4990C, 134.0 ± 1.0 pMC, $n=4$; IAEA-C5, 22.5 ± 0.2 pMC, $n=4$)。また、他の標準試料も含め測定事例を蓄積することでさらに改善できると考えられる。今後は、炭素量 0.05 mg 及び 0.01 mg といったさらに少量の試料に対する分析について検討を進める予定である。

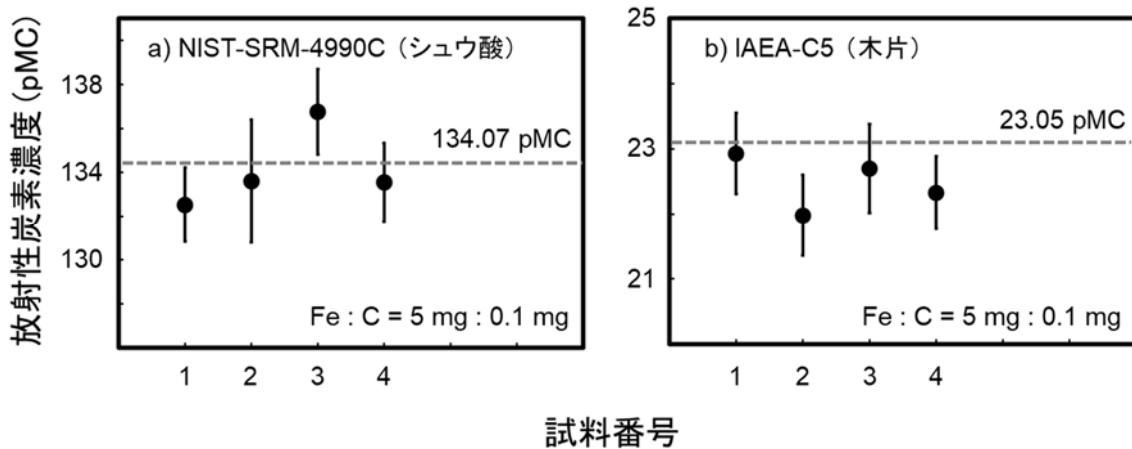


図 3.3.6-1 AGE3 により調製した少量試料の年代測定結果

参考文献

- 1) Iwatsuki, T., Satake, H., Metcalfe, R., Yoshida, H., Hama, K., Isotopic and morphological features of fracture calcite from granitic rocks of the Tono area, Japan: a promising palaeohydrogeological tool, *Applied Geochemistry*, vol.17, no.9, 2002, pp.1241-1257.
- 2) Watanabe, T., Minoura, K., Nara, F.W., Shichi, K., Horiuchi, K., Kakegawa, T., Kawai, T., Last glacial to post glacial climate changes in continental Asia inferred from multi-proxy records(geochemistry, clay mineralogy, and paleontology) from Lake Hovsgol, northwest Mongolia, *Global and Planetary Change*, vol.88-89, 2012, pp.53-63.
- 3) Yoneda, M., Shibata, Y., Tanaka, A., Uehiro, T., Morita, M., Uchida, M., Kobayashi, T., Kobayashi, C., Suzuki, R., Miyamoto, K., Hancock, B., Dibden, C., Edmonds, J.S., AMS ^{14}C measurement and preparative techniques at NIES-TERRA, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol.223-224, 2004, pp.116-123.
- 4) 松中哲也, 笹 公和, 末木啓介, 高橋 努, 村松万寿美, 大森貴之, 松崎浩之, 中村俊夫, 筑波大学における GC-AMS の開発と炭素 14 自動前処理システムの性能評価, 第 17 回 AMS シンポジウム報告集, 2015, pp.51-55.
- 5) Rozanski, K., Stichler, W., Gonfiantini, R., Scott, E.M., Beukens, R.P., Kromer, B., van der Plicht, J., The IAEA ^{14}C intercomparison exercise 1990, *Radiocarbon*, vol.34, no.3, 1992, pp.506-519.
- 6) 丸岡照幸, 連続フロー型質量分析計による固体試料の炭素・硫黄同位体比分析: 高精度分析のための改善点, *地球化学*, vol.42, no.4, 2008, pp.201-216.
- 7) 渡邊隆広, 國分(齋藤)陽子, 西尾智博, 藤田奈津子, 三宅正恭, 西澤章光, 松原章浩, JAEA-AMS-TONO での元素分析計を用いた ^{14}C 年代測定の前処理手法の改良, 第 18 回 AMS シンポジウム報告集, 2016, pp.114-117.

国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質량	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m ²
体積	立方メートル	m ³
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s ²
波数	毎メートル	m ⁻¹
密度, 質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m ²
比体積	立方メートル毎キログラム	m ³ /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m ²
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 ^(a) , 濃度	モル毎立方メートル	mol/m ³
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m ²
屈折率 ^(b)	(数字の)	1
比透磁率 ^(b)	(数字の)	1

(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。
 (b) これらは無次元量あるいは次元1をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の1は通常は表記しない。

表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン ^(b)	rad	1 ^(b)	m/m
立体角	ステラジアン ^(b)	sr ^(c)	1 ^(b)	m ² /m ²
周波数	ヘルツ ^(d)	Hz		s ⁻¹
力	ニュートン	N		m kg s ⁻²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²	m ⁻¹ kg s ⁻²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N m	m ² kg s ⁻²
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s	m ² kg s ⁻³
電荷, 電気量	クーロン	C		s A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻¹
静電容量	ファラド	F	C/V	m ² kg ⁻¹ s ⁴ A ²
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻²
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V	m ² kg ⁻¹ s ³ A ²
磁束	ウェーバ	Wb	Vs	m ² kg s ⁻² A ⁻¹
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²	kg s ⁻² A ⁻¹
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m ² kg s ⁻² A ⁻²
セルシウス温度	セルシウス度 ^(e)	°C		K
光照射度	ルーメン	lm	cd sr ^(c)	cd
放射線量	グレイ	Gy	J/kg	m ² s ⁻²
放射線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト ^(g)	Sv	J/kg	m ² s ⁻²
酸素活性化	カタール	kat		s ⁻¹ mol

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。
 (b) ラジアンとステラジアンは数字の1に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の1は明示されない。
 (c) 測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
 (d) ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。
 (e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。
 (f) 放射性核種の放射能 (activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。
 (g) 単位シーベルト (PV, 2002, 70, 205) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

表4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI基本単位による表し方
粘力のモーメント	パスカル秒	Pa s	m ⁻¹ kg s ⁻¹
表面張力	ニュートンメートル	N m	m ² kg s ⁻²
角加速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg s ⁻²
角加減	ラジアン毎秒	rad/s	m m ⁻¹ s ⁻¹ =s ⁻¹
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s ²	m m ⁻¹ s ⁻² =s ⁻²
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg s ⁻³
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m ² kg s ⁻² K ⁻¹
比エネルギー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m ² s ⁻² K ⁻¹
熱伝導率	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² s ⁻²
体積エネルギー	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s ⁻³ K ⁻¹
電界の強さ	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ kg s ⁻²
電荷密度	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m kg s ⁻³ A ⁻¹
電表面電荷	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ s A
電束密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
誘電率	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ² s A
透磁率	ファラド毎メートル	F/m	m ³ kg ⁻¹ s ⁴ A ²
モルエネルギー	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s ⁻² A ⁻²
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル	J/mol	m ² kg s ⁻² mol ⁻¹
照射線量 (X線及びγ線)	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m ² kg s ⁻² K ⁻¹ mol ⁻¹
吸収線量率	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ s A
放射線強度	グレイ毎秒	Gy/s	m ² s ⁻³
放射線輝度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m ⁴ m ⁻² kg s ⁻³ =m ² kg s ⁻³
酵素活性濃度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m ² sr)	m ² m ⁻² kg s ⁻³ =kg s ⁻³
	カタール毎立方メートル	kat/m ³	m ³ s ⁻¹ mol

表5. SI 接頭語

乗数	名称	記号	乗数	名称	記号
10 ²⁴	ヨタ	Y	10 ¹	デシ	d
10 ²¹	ゼタ	Z	10 ²	センチ	c
10 ¹⁸	エクサ	E	10 ³	ミリ	m
10 ¹⁵	ペタ	P	10 ⁶	マイクロ	μ
10 ¹²	テラ	T	10 ⁹	ナノ	n
10 ⁹	ギガ	G	10 ¹²	ピコ	p
10 ⁶	メガ	M	10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ³	キロ	k	10 ⁻¹⁸	アト	a
10 ²	ヘクト	h	10 ⁻²¹	ゼプト	z
10 ¹	デカ	da	10 ⁻²⁴	ヨクト	y

表6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI単位による値
分	min	1 min=60 s
時	h	1 h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	'	1'=(1/60)°=(π/10 800) rad
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648 000) rad
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm ² =10 ⁴ m ²
リットル	L, l	1 L=1 l=1 dm ³ =10 ³ cm ³ =10 ⁻³ m ³
トン	t	1 t=10 ³ kg

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI単位で表される数値
電子ボルト	eV	1 eV=1.602 176 53(14)×10 ⁻¹⁹ J
ダルトン	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10 ⁻²⁷ kg
統一原子質量単位	u	1 u=1 Da
天文単位	ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 ¹¹ m

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100 kPa=10 ⁵ Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg=133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 ⁻¹⁰ m
海里	M	1 M=1852m
バイン	b	1 b=100fm ² =(10 ¹² cm ²) ² =10 ⁻²⁸ m ²
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的関係は、 対数量の定義に依存。
ベレル	B	
デシベル	dB	

表9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI単位で表される数値
エルグ	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm ⁻² =0.1Pa s
ストークス	St	1 St=1cm ² s ⁻¹ =10 ⁻⁴ m ² s ⁻¹
スチルブ	sb	1 sb=1cd cm ⁻² =10 ⁴ cd m ⁻²
フォット	ph	1 ph=1cd sr cm ⁻² =10 ⁴ lx
ガリ	Gal	1 Gal=1cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G cm ² =10 ⁻⁸ Wb
ガウス	G	1 G=1Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T
エルステッド ^(a)	Oe	1 Oe _e =(10 ³ /4π)A m ⁻¹

(a) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「△」は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI単位で表される数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 ⁻⁴ C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 ⁻⁹ T
フェルミ	f	1 フェルミ=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット		1 メートル系カラット=0.2 g=2×10 ⁻⁴ kg
トル	Torr	1 Torr=(101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm=101 325 Pa
カロリ	cal	1 cal=4.1858 J (「15°C」カロリ), 4.1868 J (「IT」カロリ), 4.184 J (「熱化学」カロリ)
マイクロン	μ	1 μ=1μm=10 ⁻⁶ m

