

地質環境の長期安定性に関する研究 年度報告書 (令和元年度)

Annual Report for Research on Geosphere Stability for Long-term Isolation
of Radioactive Waste in Fiscal Year 2019

石丸 恒存 尾方 伸久 國分 (齋藤) 陽子 島田 耕史
花室 孝広 島田 顕臣 丹羽 正和 浅森 浩一
渡邊 隆広 末岡 茂 小松 哲也 横山 立憲
藤田 奈津子 清水 麻由子 小北 康弘 鏡味 沙耶
後藤 翠

Tsuneari ISHIMARU, Nobuhisa OGATA, Yoko SAITO-KOKUBU, Koji SHIMADA
Takahiro HANAMURO, Akiomi SHIMADA, Masakazu NIWA, Koichi ASAMORI
Takahiro WATANABE, Shigeru SUEOKA, Tetsuya KOMATSU, Tatsunori YOKOYAMA
Natsuko FUJITA, Mayuko SHIMIZU, Yasuhiro OGITA, Saya KAGAMI
and Akira GOTO

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

October 2020

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, 2020

地質環境の長期安定性に関する研究 年度報告書(令和元年度)

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, 國分(齋藤) 陽子, 島田 耕史, 花室 孝広, 島田 顕臣, 丹羽 正和,
浅森 浩一*, 渡邊 隆広, 末岡 茂, 小松 哲也, 横山 立憲, 藤田 奈津子, 清水 麻由子,
小北 康弘, 鏡味 沙耶^{※1}, 後藤 翠^{※2}

(2020年7月13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)における令和元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 博士研究員

※2 技術開発協力員

*原子力発電環境整備機構へ出向中

**Annual Report for Research on Geosphere Stability for Long-term Isolation of Radioactive Waste
in Fiscal Year 2019**

Tsuneari ISHIMARU, Nobuhisa OGATA, Yoko SAITO-KOKUBU, Koji SHIMADA,
Takahiro HANAMURO, Akiomi SHIMADA, Masakazu NIWA, Koichi ASAMORI*,
Takahiro WATANABE, Shigeru SUEOKA, Tetsuya KOMATSU, Tatsunori YOKOYAMA,
Natsuko FUJITA, Mayuko SHIMIZU, Yasuhiro OGITA, Saya KAGAMI^{※1} and Akira GOTO^{※2}

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 13, 2020)

This annual report documents the progress of research and development (R&D) in the 5th 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. 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 Post-Doctoral Fellow

※2 Collaborating Engineer

* On loan to Nuclear Waste Management Organization of Japan

目 次

1. はじめに	1
2. 研究成果の概要	4
3. 令和元年度の研究成果	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	19
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	34
3.3 年代測定技術の開発	39
3.3.1 ウラン系列放射年代測定法の実用化	39
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, ヨウ素-129(¹²⁹ I)年代 測定法の実用化	52
3.3.4 高分解能のテフラ同定手法の開発	57
3.3.5 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	65

Contents

1. Introduction	1
2. Overview of R&D progress	4
3. Progress of R&D in FY2019	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	19
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	34
3.3 Development of dating techniques	39
3.3.1 Practical use of Uranium-series dating method	39
3.3.2 Practical use of Optically Stimulated Luminescence dating method	46
3.3.3 Practical use of dating methods of Aluminium-26, Chlorine-36 and Iodine-129	52
3.3.4 Development of high-resolution tephrochronology	57
3.3.5 Development of methods of dating and chemical analysis for geological samples	65

図リスト

図 3.1.1-1	断層内物質の化学組成を用いた機械学習による断層活動性評価の概要	10
図 3.1.1-2	線形判別分析結果	11
図 3.1.1-3	判別に寄与する 4 元素の含有量の関係	11
図 3.1.2-1	第四紀火山の活動範囲と現在の部分熔融域に関する概念モデル	15
図 3.1.2-2	MT 法電磁探査の観測点分布	16
図 3.1.2-3	MT 法電磁探査により推定された青野山単成火山群下の二次元比抵抗構造	16
図 3.1.3-1	紀伊半島における地震観測点及び解析に用いた地震の震央分布	22
図 3.1.3-2	S 波スプリッティング解析により求めた速い S 波の振動方向 (ϕ) の分布	22
図 3.1.3-3	波線の長さで規格化した場合の到達時間差 (dt) の平面図及び断面図	23
図 3.2.1-1	MT 法電磁探査により推定した松代群発地震の活動域における二次元比抵抗構造	29
図 3.2.1-2	地震波トモグラフィーによる各深度の P 波 (V_p) 及び S 波速度 (V_s) 偏差分布	30
図 3.2.1-3	S 波スプリッティング解析の対象とした地震観測点と解析に用いた地震の震央分布	31
図 3.2.1-4	S 波スプリッティング解析により求めた速い S 波の振動方向 (ϕ) の分布	31
図 3.2.2-1	マルチタイムスケールでみた山地の侵食速度	36
図 3.3.1-1	ACC 法によるカルサイトの合成	41
図 3.3.1-2	合成カルサイトの分析結果	42
図 3.3.1-3	Higher 2 を標準試料とした WC-1 の U-Pb 年代測定結果	43
図 3.3.2-1	各モデリング条件における熱履歴	49
図 3.3.3-1	重イオン検出器で検出した ^{37}Cl	54
図 3.3.3-2	重イオン検出器で検出した ^{36}S	54
図 3.3.4-1	ATHO-G, BHVO-2G, BCR-2G の再現性 (RSD [%])	62
図 3.3.4-2	ATHO-G, BHVO-2G, BCR-2G 及び AT 火山灰の分析値と報告値との比較	62
図 3.3.5-1	AGE3 により調製した少量試料の年代測定結果	67

表リスト

表 3.1.1-1 Case 10～16 の成分組み合わせと判別結果	11
表 3.1.1-2 活動性未知試料に対する判別式の適用結果	12
表 3.3.1-1 均質性評価を行った試料	41
表 3.3.1-2 LA-ICP 質量分析の条件	42
表 3.3.4-1 LA-ICP 質量分析法による微量元素分析の測定条件	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—地質環境特性及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。その後、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。また、令和2年3月にはここで挙げられた課題に対する取り組みの状況やそれまでの研究成果を踏まえて改定がなされている（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, 2020¹⁷⁾）。

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（テクニクセッティング）が選定されていない。このため、第3期中長期目標期間においては上述の動向も踏まえつつ、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5年目である令和元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 一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一, 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) 日本学術会議, 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 一地質環境特性および地質環境の長期安定性について一, 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:2020 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, http://www.meti.go.jp/shingikai/energy-environment/chiso-shobun/pdf/20180328_001.pdf (参照:2020 年 3 月 23 日).
- 17) 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～令和 4 年度), 2020, 71p, https://www.meti.go.jp/shingikai/energy_environment/chiso_shobun/pdf/20200331_001.pdf (参照:2020 年 9 月 1 日).

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、断層内物質の全岩化学組成に基づく多変量解析によって活断層と非活断層とを判別する手法の開発を試みた^{注1)}。②地殻構造の高空間分解能イメージング技術では、単成火山群を事例とした電磁探査により地下深部の部分熔融域を推定し、モホロビッチ不連続面(以下、「モホ面」)付近の部分熔融域の分布が、将来のマグマの活動範囲を検討する上で有効な指標の一つとなる可能性を示した^{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S波スプリッティング解析を実施し、深部流体の移動に関与するクラックの性状について検討した^{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た地震波トモグラフィーやS波スプリッティング解析によって、湧水の供給源や上昇経路の特徴を推定し、湧水が生じる可能性を評価するための指標の一つとして地下深部の流体賦存域の把握が有用である可能性を示した^{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、代表的な山地の侵食速度データを収集し、ダムの堆砂速度、宇宙線生成核種法、熱年代法に基づく侵食速度データを利用することによって、時間スケールに応じた侵食速度の情報を得ることが可能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。

注1) 本課題では、平成31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)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, 2020¹⁾)の一部を使用した。

- 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
- 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, ヨウ素-129 (^{129}I)年代測定法の実用化
- ④ 高分解能のテフラ同定手法の開発
- ⑤ 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、ウラン・鉛(U-Pb)年代測定の精度向上のために作成された合成標準試料の評価を行い、その有効性を検証した。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への光ルミネッセンス(OSL:Optically Stimulated Luminescence)熱年代法の適用を通じて、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ことを示した^{註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, ヨウ素-129 (^{129}I)年代測定法の実用化では、加速器質量分析装置を用いた ^{36}Cl 年代測定法の実用化に向けて、重イオン検出器での ^{36}Cl の検出位置の確認を進めた。④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、標準ガラスや火山灰試料の分析により分析手法の妥当性や精度を評価した。⑤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、従来法の20分の1となる炭素量0.05 mgに対する ^{14}C 年代測定の有効性について見通しを得た。

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31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, 2020, 251p,
https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2019/31fy_choukianteisei.pdf
 (参照:2020年9月1日).

3. 令和元年度の研究成果

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。

これらの手法のうち、地球化学的検討として、断層内物質の全岩化学組成をインプットデータとする多変量解析を用いた機械学習による検討を平成 30 年度より実施している。ここでは、2 年間の成果として、活断層と非活断層とが地球化学的に判別可能であることと(立石ほか, 2019¹⁾), 判別に寄与する化学成分(以下、「成分」と呼ぶ)に関する検討結果を報告する。

(2) 当該分野に係る科学的・技術的背景

物質のバルク化学組成データを用いて地質体が経験した事象を客観的に判断する手法の提案として、津波由来の堆積物(津波堆積物)と通常堆積物の区別を目的とした例がある(Kuwatani *et al.*, 2014²⁾)。Kuwatani *et al.*(2014)²⁾ は、津波堆積物と通常堆積物を採取し、堆積物の化学組成分析で一般的に採用される 18 成分の測定データを用い、多変量解析を用いた機械学習(machine-learning techniques)を実施した。その結果、得られた識別のための多数の式群(各成分の寄与が様々な、機械的に提案される判別式群)のうち、判別率が 99.0 %以上となるものが数十個あることを示した。

この判別式群を得る手法は数値化された全岩化学組成データを用いて数式化されるために定量的であり、先験的にある特定の成分の重要性を研究者が選択することがない点で客観的である。さらに、全岩化学組成データは確立された技術(蛍光エックス線分析装置;XRF 等)を用いて多くの機関で分析可能であり、多変量解析や機械学習はフリーソフトで実施可能であることから、手法の検証や発展に技術的障害は少ない。そこで本研究では、Kuwatani *et al.*(2014)²⁾と同様の手法を、既知の活断層及び非活断層の破碎帯内物質(断層の主要なすべりをまかなったと考えられる細粒の断層ガウジ)に適用した。

(3) 実施内容・結果

平成 30 年度の成果を踏まえた令和元年度の研究概要を、図 3.1.1-1 に示す。平成 30 年度及び令和元年度に実施した文献調査と化学分析により収集した化学組成データベースは母岩、カタクレイサイト、断層角礫、断層ガウジ等を含み、合計 276 試料分のデータである(以下では、個々の測定番号や記号で名称が与えられているものを「試料」とし、試料ごとの化学組成を「データ」とする)。このうち、教師データとして今回の検討に用いた断層ガウジの化学組成データは、主として西南日本に分布し、花崗岩質岩からなる活断層 53 試料、非活断層 24 試料のデータである。解析に使用した成分は、多くの文献で共通し、

かつ検討に供する試料数が増加するよう、15 成分 (SiO_2 , TiO_2 , Al_2O_3 , Fe_2O_3 *^{注 2)}, MnO , MgO , CaO , Na_2O , K_2O , P_2O_5 , Rb , Sr , Y , Ba , Th)とした。判別用一次式の検討には、各酸化物重量%または成分濃度 ppm の値を規格化等の処理をせずにそのまま用いた。また、平成 30 年度の検討で採用した 17 成分(上記に加え、 Nb , Pb)を用いたケース(活断層 51 試料, 非活断層 21 試料)も検討した。

本研究での説明変数(入力データ)は量的変数である断層ガウジの化学組成, 予測する目的変数(出力データ)は質的変数である断層性状(活断層または非活断層)である。これらが明確に分かれると仮定した場合, その 2 群を分けるためには線形判別分析が適している。これは 2 群が正規分布に従いつつ等分散性を持つことを前提として, 2 群が最もよく分かれる直線(一次式)を求める手法である。すなわち, 教師データ(活断層の試料か非活断層の試料かが既知であるデータ)から得られた一次式に活断層か非活断層かが未知の試料(未知試料)の化学組成データを代入すると, どちらのグループに属するかが判別できる。説明変数の数(=次元。ここでは判別式に採用する成分数)が増えると, 解析に用いた教師データに特化した一次式となってしまい, 判別式の汎化性能が低下する。本研究の目的に照らせば, 判別に適した成分を選択(変数選択)し, 汎化性能が高い判別式を探索していくことが適切である。その前提として, 教師データの 2 群が誤判別なく分けられることを確認する必要がある。なお, 線形判別分析, AIC(赤池情報量基準; Akaike, 1973³⁾)による変数選択等の一連の作業はオープンソースの統計解析プログラミング言語である R⁴⁾を用いて実行した。

教師データについて最初に変数選択をせず, Case 1:17 成分・72 試料, Case 2:15 成分・77 試料で線形判別分析を実施したところ, 令和元年度に追加した活断層試料のデータの一つで誤判別が生じ, この活断層のデータを除いた Case 3, Case 4(図 3.1.1-2 (a))では判別率 100 %となった。誤判別となった活断層の断層タイプは教師データの中で唯一の逆断層であることに着目し, 活断層を逆断層と横ずれ断層の 2 群に分け, 非活断層と合わせた 3 群で重判別分析を実施したところ, 非活断層の誤判別が生じるものの, 二つの一次式スコア軸からなる平面で概ね 3 領域に分けられることが確認できた。すなわち, 母集団が 3 群の性質を持っている可能性が示された。そこで, この活断層(逆断層)のデータを除外した上で以降の検討(Case 4 を用いた変数選択, Case 7~Case 16)を実施した。

AIC による Case 4 を用いた変数選択の結果, 11 成分が最適な組み合わせとして抽出された(AIC は, -13.3 から-16.96 へ減少)。この処理では選択された成分のうち判別式への寄与の大きさを程度分けすることができ, 中及び高程度の成分数は 8, 高程度の成分数は 6 となった。これに基づき, Case 7(成分数 11), Case 8(成分数 8; 図 3.1.1-2 (b)), Case 9(成分数 6)によって線形判別分析を実施したところ, Case 7, Case 8 の判別率は 100 %, Case 9 の判別率は 97 %となった。判別率が 100 %で成分数が最も少ないものは, Case 8(成分数 8)である。

注 2) Fe_2O_3 *は, 全鉄を Fe_2O_3 として換算した値である。

次に、2 群の判別に強く寄与する成分について考察した。Case 4, 7, 8, 9 の判別式における各成分の判別係数の絶対値の大きさから、活断層と非活断層の 2 群の違いを表す成分として共通して重要なものは TiO_2 , Al_2O_3 , CaO , P_2O_5 , Rb , Ba であり、特に TiO_2 , Al_2O_3 , P_2O_5 , Rb がその上位を占める。これらの 4 成分のうち TiO_2 と P_2O_5 の関係、 Al_2O_3 と Rb の関係は図 3.1.1-3 に示すように特徴的である。すなわち、前者は赤(活断層)及び青(非活断層)の両方について相関が強く一方の増減に他方が従属し、この組み合わせによる判別能力が低いことが示唆される。一方で、後者は分散し赤と青の分布境界が明瞭で、この組み合わせの判別への強い寄与(図 3.1.1-3 に示す右上がり直線に直交する軸が判別式となる)が推測できる。前者のように説明変数(化学組成)の中に高い相関を持つ組み合わせがある場合(共線性、複数の場合多重共線性と呼ぶ)、通常は、説明変数のいずれかを不使用とする対策が取られる。以上のことを踏まえて、4 成分から 1 成分を不使用とした場合の判別結果を比較した(Case 10~14; 表 3.1.1-1)。さらに、図 3.1.1-3 に示した各々 2 成分による判別結果を比較した(Case 15, 16; 表 3.1.1-1)。ある成分を不使用としたときの判別率の変化傾向は、 P_2O_5 不使用(Case 12)と TiO_2 不使用(Case 14)の比較では、 P_2O_5 不使用の方が判別率が減少する。したがって、判別への寄与は $\text{P}_2\text{O}_5 > \text{TiO}_2$ と考えられる。 Rb 不使用(Case 11)と Al_2O_3 不使用(Case 13)の比較では、 Rb 不使用の方が判別率が減少する。したがって、判別への寄与は $\text{Rb} > \text{Al}_2\text{O}_3$ と考えられる。さらに、4 成分のうち 2 成分を不使用とした場合(Case 15, 16)の比較では、 P_2O_5 と TiO_2 を不使用としても 4 成分(Case 10)の判別率と変わらないのに対し、 Rb と Al_2O_3 を不使用とした場合の判別率の減少は大きい。したがって、2 成分ごとの寄与は、 $(\text{Rb}, \text{Al}_2\text{O}_3) > (\text{P}_2\text{O}_5, \text{TiO}_2)$ と考えられる。そのため、判別への寄与度は $\text{Rb} > \text{Al}_2\text{O}_3 > \text{P}_2\text{O}_5 > \text{TiO}_2$ と見なせる。このような成果は、活断層と非活断層の違いが生じるメカニズムの解明に大きく貢献すると思われる。

続いて、 TiO_2 と P_2O_5 の多重共線性を踏まえ、汎化性能が高いと思われる Case 8 からいずれかの成分を不使用とした判別式(Case 8' (TiO_2 不使用), Case 8'' (P_2O_5 不使用))により線形判別分析を実施した。いずれも判別率は 100 %とはならなかったが、99 %の高確率で判別できることが明らかになった。その優劣は、判別係数や多重共線性の存否を示唆する数値からは決めがたい。しかしながら Rb と Al_2O_3 の判別係数は相対的に大きく、 TiO_2 または P_2O_5 の判別係数は相対的に小さくなっており、 Rb と Al_2O_3 の判別への寄与度が大きいことが確認できる。

最後に、活動性が未知の試料に対していくつかの判別式を適用したところ(表 3.1.1-2)、同じ断層ガウジ(fault gouge)層の異なる位置で採取した 2 試料(96-g と 101-1)であっても、式の違いによって異なる結果を示す様子が認められた。同一の断層ガウジ層から採取した複数の試料があった時、汎化性能が高い判別式ならば同じ結果を与える蓋然性が高いと考えられる。したがって、同一対象の異なる位置から採取した複数試料に対し、ある判別式が与える結果が同じか否かを確認することは、用いた判別式の汎化性能を判断する手段となり得る。表 3.1.1-2 では、試料 96-g と試料 101-1 に対して同じ結果を与えた Case 8'' の結果を重視して、試料 101-1 に対して活断層と推測されることを「AF?」と示した。また、試料 YD-14①~YD-14⑤は西南日本四万十帯の堆積岩起源の一つの破砕帯における断層ガウジと角礫部(fault breccia)であるが、仮にこの破砕帯が実際には活断層であった場合は、断層ガウジのみならず角礫部においても活断層として活動したことが化学組成に記録されている可能性が考えられる。一方、この破砕帯が実際には非活断層であった場合は、花崗岩質岩との原岩の違いが判別式の適用限界を超えたことにより、活断層と判別された可能性が考えられる。これらの破砕帯が活断層か否かについては、機械学習とは異なる地形・地質・地球年代学のアプローチも含めて引き続き検討していく必要がある。

(4) 主な成果と課題

本研究では、多変量解析によって活断層と非活断層の 2 群を 100 %判別する一次式が複数得られることを示した。つまり、今回の検討に用いた化学組成データセットの範囲では、少数の逆断層を除く活断層と非活断層とが地球化学的に判別可能である。さらに、2 群を分ける成分について判別係数や多重共線性を踏まえて検討を進めることで、判別への寄与度は $Rb > Al_2O_3 > P_2O_5 > TiO_2$ であると推定した。この結果を踏まえ、与えられた教師データに特化しない汎化性能の高い判別式を検討した。

本研究は教師データを判別することの可否を検討する平成 30 年度の段階から、未知試料を高い確率で判別できる式をどのように得るかという次の段階に移行しつつある。このような成果は活断層と非活断層の違いを生むメカニズムの解明に大きく貢献すると期待できる。また、本研究で用いた検討手順は、汎化性能が高い判別式を探索していく方法の一つとして提示できる。ただし、今後の課題として、本検討前半で除外した活断層の逆断層データに関する検討を進める必要があり、除外した断層の地質(岩石)学的検討や、3 群としての検討も視野に入れ、他地域や花崗岩質岩以外の分析データを増やしながら継続的に検討を進める必要がある。

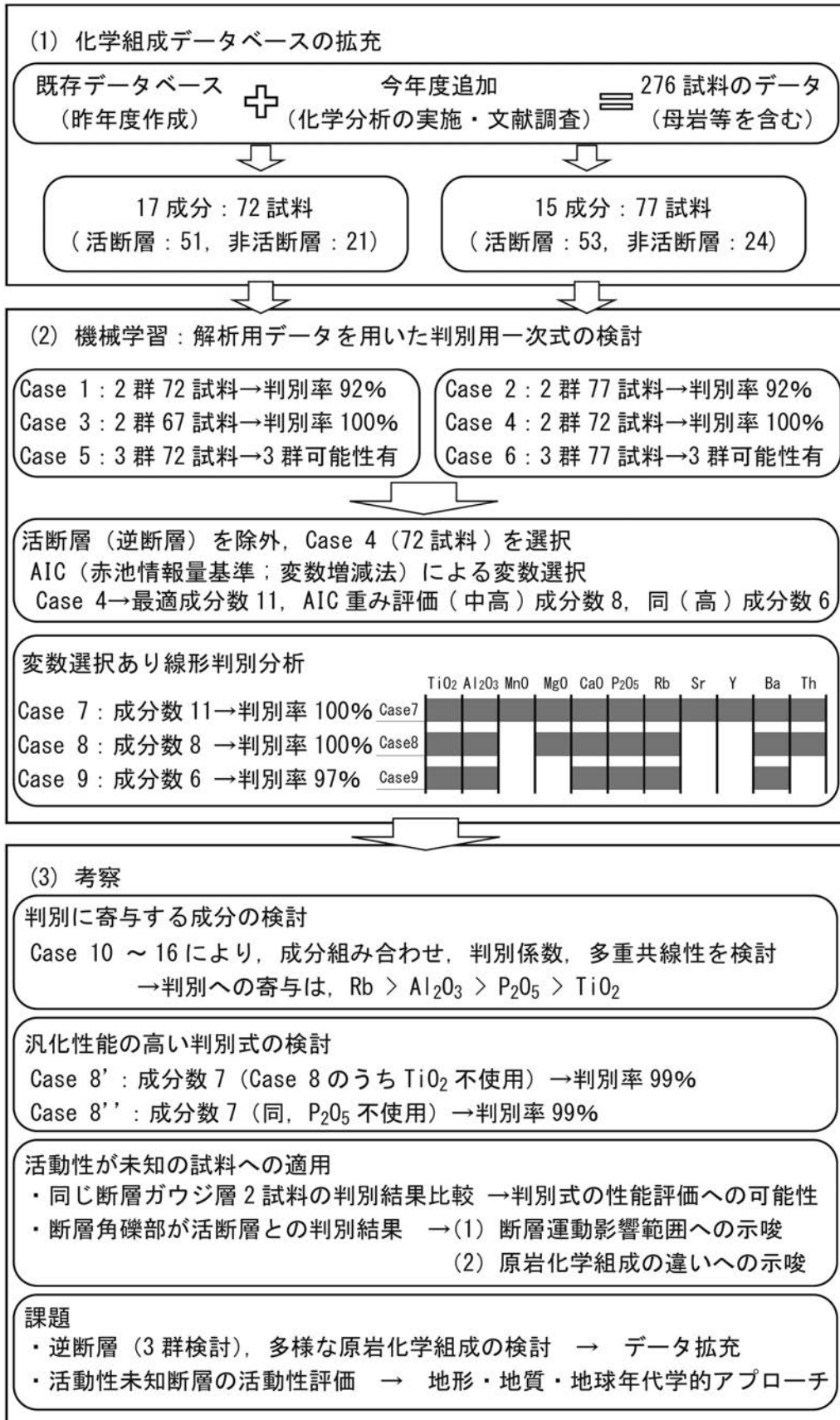


図 3.1.1-1 断層内物質の化学組成を用いた機械学習による断層活動性評価の概要

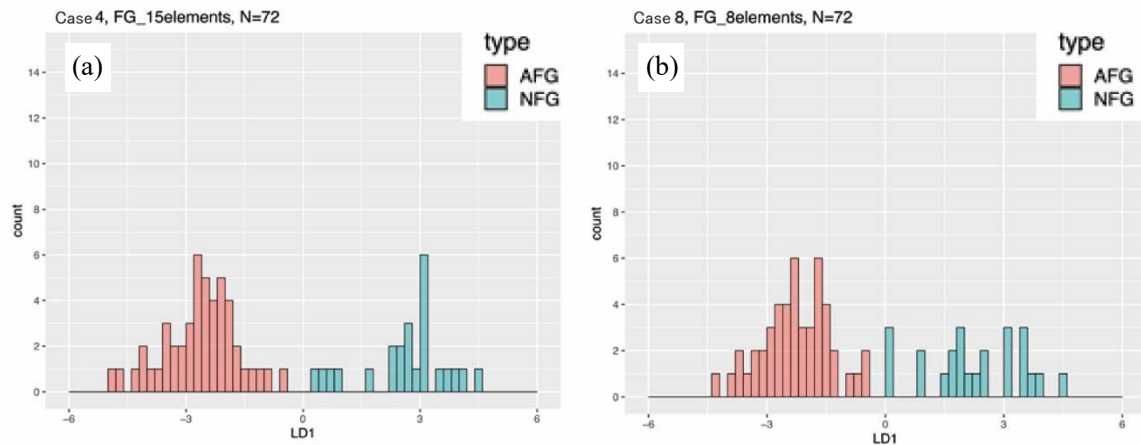


図 3.1.1-2 線形判別分析結果

(a) Case 4, (b) Case 8, LDI: 判別係数, AFG: 活断層ガウジ, NFG: 非活断層ガウジ

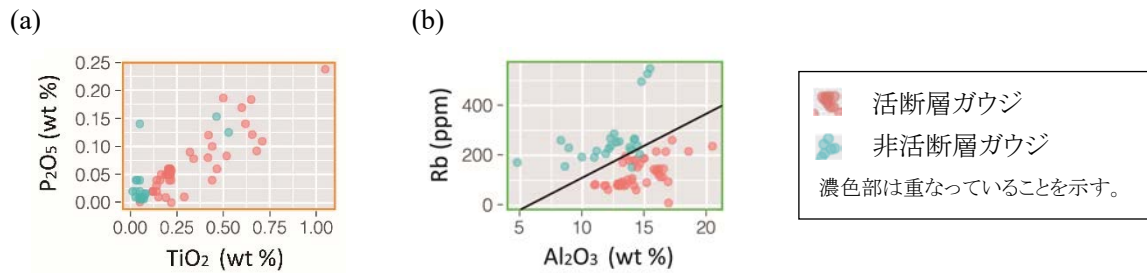


図 3.1.1-3 判別に寄与する4成分の含有量の関係

(a) TiO_2 と P_2O_5 の関係, (b) Al_2O_3 と Rb の関係

(b) では図中の黒線を境に活断層と非活断層の2群が概ね分かれてプロットされる。

表 3.1.1-1 Case 10~16 の成分組み合わせと判別結果

Case	Case 10	Case 11	Case 12	Case 13	Case 14	Case 15	Case 16
Elements	4	3	3	3	3	2	2
TiO_2	●	●	●	●		●	
Al_2O_3	●	●	●		●		●
P_2O_5	●	●		●	●	●	
Rb	●		●	●	●		●
Result	96%	76%	94%	94%	96%	68%	96%

表 3.1.1-2 活動性未知試料に対する判別式の適用結果

No.	Sample	Type	Case 4 score	Case 7 score	Case 8' score	Case 8'' score	Estimated activity	Remarks
1	NMG5	fault gouge	0.06	0.06	0.30	0.23	NF	
2	SGR5	fault gouge	0.57	0.85	0.18	0.19	NF	
3	96-g	fault gouge	-1.89	-2.26	-0.89	-1.02	AF	} Same fault gouge layer
4	101-1	fault gouge	0.44	0.15	0.14	-1.38	AF?	
5	118-4a	fault gouge	-2.69	-2.69	-1.99	-1.40	AF	
6	YD-14①	fault breccia	-1.70	-1.55	-1.99	-1.82	AF	} Same crush zone
7	YD-14②	fault gouge	-2.04	-2.30	-1.77	-1.09	AF	
8	YD-14③	fault breccia	-1.58	-1.49	-1.74	-1.48	AF	
9	YD-14④	fault breccia	-2.81	-2.63	-2.32	-1.80	AF	
10	YD-14⑤	fault breccia	-1.26	-0.94	-1.67	-1.53	AF	

AF:活断層, NF:非活断層, 「AF?」は本文参照, score が負の数ならば活断層, 正の数ならば非活断層を示す。

参考文献

- 1) 立石 良, 島田耕史, 植木忠正, 清水麻由子, 小松哲也, 末岡 茂, 丹羽正和, 安江健一, 石丸恒存, 断層ガウジの化学組成を用いた多変量解析による断層活動の有無の推定, 日本地球惑星科学連合 2019 年大会, 2019, SSS15-P27.
- 2) Kuwatani, T., Nagata, K., Okada, M., Watanabe, T., Ogawa, Y., Komai, T. and Tsuchiya, N., Machine-learning techniques for geochemical discrimination of 2011 Tohoku tsunami deposits, Scientific Reports, vol.4, 7077, 2014.
- 3) Akaike, H., Information theory and an extension of the maximum likelihood principle, Proceedings of the 2nd International Symposium on Information Theory, Petrov, B. N., and Caski, F. (eds.), Akadimiai Kiado, Budapest, 1973, pp.267-281.
- 4) The R Foundation, The R Project for Statistical Computing, <https://www.r-project.org/> (参照:2020年5月7日).

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自然現象(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。そのため、本項目ではこれらに関連する地下深部の不均質構造に係る技術基盤の整備を進める。

地層処分システムに著しい影響を及ぼす可能性のある自然現象のうち、火山活動に伴うマグマの貫入・噴出は、地層の物理的な隔離機能を広範囲にわたり喪失させる恐れがある。サイト選定ではその影響範囲を回避する必要があるが、その範囲の考え方については第四紀火山から半径 15 km 以内を好ましくない範囲の基準とすることが適当とされている(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⁾)。この考え方は、火山活動は火山フロントから背弧域に限定して繰り返して生じており、火山が分布する領域と分布しない領域(空白域)が見られるといった特徴が東北地方において認められていることや、マグマが地表に噴出した火口の位置はその火山を代表する位置を中心として概ね半径 15 km の範囲内に分布する(原子力発電環境整備機構, 2004²⁾)ことなどの知見に基づく。ただし、陥没カルデラを形成する第四紀火山や活動域が広範囲に及ぶ単成火山群等といった一部の火山には例外が認められる(原子力発電環境整備機構, 2004²⁾)。また、近年の火山噴火において岩脈マグマが火山中心から 30 km 移動したとの事例も報告されている(例えば、Nishimura *et al.*, 2001³⁾)。このため、実際に確保すべき火山中心からの距離については、個別地点における現地調査の結果に基づいて評価することとされており(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⁾)、その調査・評価に有効な知見や技術の整備が求められている(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, 2018⁴⁾; 2020⁵⁾)。

これまで本研究では、マグマの貫入・噴出が及ぶ範囲(マグマの活動範囲)に対する知見を提示するため、既存の MT(magnetotelluric)法電磁探査によって推定された火山地域下の部分熔融域や高温流体の分布に着目し、第四紀の火山活動との関連性について検討した。その結果、第四紀に活動した個別火山は、下部地殻やマントル最上部の部分熔融域を示唆する低比抵抗体の直上またはその近傍に分布するといった特徴が認められた(図 3.1.2-1)。このように、現在の部分熔融域の分布と過去(第四紀)の火山活動の分布に関連性が認められたことは、現在の部分熔融域の分布が将来の活動範囲を検討する上で有用な指標の一つとなり得ることを示唆する(原子力機構・電力中央研究所, 2019⁶⁾)。

しかしながら、前述のように単成火山群等の一部の火山(青野山単成火山群等)では、火山中心から半径 15 km の範囲の外側にも火口が分布するといった事例が報告されている(原子力発電環境整備機構, 2004²⁾)。さらに、このような(独立)単成火山群はそれぞれの火山ごとにマグマの通路が異なるため、一つの火口をもって火山群全体の中心と見なすことはできないとも指摘されている(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⁾)。このため令和元年度は、部分熔融域を指標とした火山活動範囲に係る概念モデル(図 3.1.2-1)の妥当性(単成火山群への適用性)を検証するため、青野山単成火山群を事例とした MT 法電磁探査により地殻及びマントル最上部の二次元比抵抗構造を推定し、部分熔融域と個別火山体の分布との対応性を検討した。

(2) 当該分野に係る科学的・技術的背景

一般に、地殻やマントル最上部における部分熔融域やそれに関連する高温流体の分布については、主に地震波速度構造や比抵抗構造等の地球物理学的な情報に基づいて推定される。部分熔融域や高温流体は、地震波トモグラフィーや MT 法電磁探査によって、地震波低速度体や低比抵抗体として検出される。このうち広範囲の地域を対象とすることが可能な地震波トモグラフィーによる研究では、日本列島に分布する活火山下のマントル最上部には部分熔融域の存在を示唆する地震波低速度体が分布するといった傾向が見出されている(例えば, Zhao *et al.*, 1992⁷⁾, 1994⁸⁾; Nakajima *et al.*, 2001⁹⁾)。一方、個別の火山地域を対象とした詳細な分布については、MT 法電磁探査を用いて推定された事例がいくつか報告されているが(例えば, Aizawa *et al.*, 2004¹⁰⁾)、地震波トモグラフィーを用いた事例については、高い空間密度で展開された臨時地震観測点を用いた研究(例えば, Nakajima and Hasegawa, 2003¹¹⁾)や多量の微小地震が発生する大地震の余震域(Zhao and Negishi, 1998¹²⁾)といった限られた事例を除いて、その空間分解能は MT 法電磁探査に比べて劣る。そのため本研究では、部分熔融域の分布を推定するための情報として、MT 法電磁探査による比抵抗構造を用いた。

(3) 実施内容・結果

中国地方西部の山口県東部から島根県西部においては、単成火山により構成される青野山(または青野)火山群及び阿武火山群が隣接して分布する(図 3.1.2-2)。このうち青野山火山群は青野山を典型とする 22 か所以上の溶岩円頂丘で構成され、それぞれは安山岩～デイサイトからなる。これらは南北約 45 km, 東西約 20 km の範囲において、およそ北北東-南南西方向に分布する(太田ほか編, 2004¹³⁾)。本研究では、青野山単成火山群をおよそ北北東-南南西方向に縦断する約 65 km の区間において、ファーマトリファレンス方式の MT 法電磁探査を行った。観測では、測線上に 1~7 km 程度の間隔で合計 25 地点に観測点を配置し、Phoenix 社製 MTU-5 システムを使用して磁場 3 成分及び電場 2 成分の時系列を測定した。比抵抗構造の解析では、観測データの品質が良好な 21 地点(図 3.1.2-2)の観測データのみを二次元インバージョン法(Ogawa and Uchida, 1996¹⁴⁾)に適用し、深さ 50 km までの二次元比抵抗構造を推定した。

解析によって推定された二次元比抵抗構造を図 3.1.2-3 に示す。これによると、地表から深さ約 20 km までの上部地殻は主として数千 Ωm 以上の高比抵抗域としてイメージされるが、解析領域の中央部において、それを深部から貫くように 100 Ωm 以下の低比抵抗体が分布する。この低比抵抗体は、青野山単成火山群下のマントル最上部に分布する低比抵抗体から上部地殻まで連続するようにイメージされる。また、解析領域北部の下部地殻においてもマントル最上部から連続する低比抵抗体が認められるが、その上端はコンラッド面付近に位置する。

一般に、岩石中の間隙にメルトや水といった流体が含まれる場合、その領域における比抵抗及び地震波速度は低下する(例えば, O'Connell and Budiansky, 1974¹⁵⁾)。既存の研究(例えば, Nakajima and Hasegawa, 2007¹⁶⁾; Asamori and Zhao, 2015¹⁷⁾)によると、青野山単成火山群下の下部地殻及びマントル最上部は地震波低速度域としてイメージされており、今回見出された低比抵抗体の分布域と大局的に整合する。また、火山群周辺の深さ約 50 km では、深部から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低周波地震の発生が認められる(図 3.1.2-3)。さらに、火山群の北端部に位置する温泉では、マントル起源ヘリウムの供給を示唆する高いヘリウム同位体比が観測されている(Umeda *et al.*, 2012¹⁸⁾)；図 3.1.2-2)。以上のことから、青野山単成火山群下の地殻及びマントル最上部に認められた低比抵抗体は、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。また、青野山ではスラブの熔融によって生じたアダカイトの噴出が認められており、マントル起源のメルトの供給が示唆されている(例えば, Kimura *et al.*,

2005¹⁹⁾ことから、この低比抵抗体は、単成火山群の活動に関与する部分熔融域やメルトの固化に伴って放出された水の存在を示唆すると考えられる。なお、少なくとも観測領域内に位置する個別の単成火山は、下部地殻やマントル最上部に推定された部分熔融域の直上に位置する。この結果は、図 3.1.2-1 に示す第四紀の火山活動範囲に関するモデルとは矛盾しない。

一方、上部地殻では火山群の北端において個別火山が密集する領域(クラスター)下のみに低比抵抗体が認められ、それはマントル最上部から延びるようにイメージされる(図 3.1.2-3)。95~610 ka の活動によって形成されたと推定されている青野山単成火山群において、相対的に最近の時代(200 ka 以降)に活動した単成火山のほとんどはこのクラスターに含まれる(太田ほか編, 2004¹³⁾)。図 3.1.2-3 に示す結果によれば、上部地殻において低比抵抗体としてイメージされる現在の流体供給経路は、最近の時代に活動した個別火山の分布と調和的である。このことは、上部地殻内でのマグマの上昇経路は第四紀を通じて一定ではなく、時期に応じて(下部地殻以深の部分熔融域に比べて短い時間スケールで)異なることを示唆する。

以上の結果は、既に整理した成層火山やカルデラといった異なるタイプの火山活動域での事例に認められた特徴(図 3.1.2-1; 原子力機構・電力中央研究所, 2019⁶⁾)と整合的である。すなわち、第四紀火山下のモホ面付近にはマグマの供給源となる部分熔融域が数十 km の空間スケールで存在し、地殻内ではそれよりも小さい規模の通路を通じて流体が地表付近に供給されているといった特徴は、いずれのタイプの火山においても共通する。ただし、上部地殻では時代によって異なる場所に通路が形成され、地表付近への流体供給に利用されていると考えられる。以上の成果は、下部地殻やマントル最上部における現在の部分熔融域の分布が、将来の活動範囲を検討する上で有用な指標の一つとなることを示唆すると考えられる。

(4) 主な成果と課題

本研究では、マグマの貫入・噴出が及ぶ範囲(マグマの活動範囲)の評価に有効な知見や検討事例を提示するため、地下深部の部分熔融域の分布に着目し、第四紀の火山活動との関連性に係る知見の抽出を試みた。その結果、第四紀に活動した火山は、下部地殻やマントル最上部における部分熔融域の直上またはその近傍に分布するといった特徴が認められた。このように、現在の部分熔融域の分布と過去(第四紀)の火山活動との関連性が認められたことは、下部地殻やマントル最上部における現在の部分熔融域の分布が、将来の活動範囲を検討する上で有効な指標の一つとなることを示唆すると考えられる。

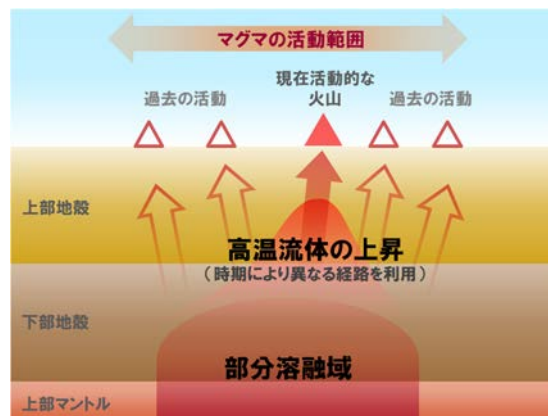


図 3.1.2-1 第四紀火山の活動範囲と現在の部分熔融域に関する概念モデル(原子力機構・電力中央研究所, 2019⁶⁾)

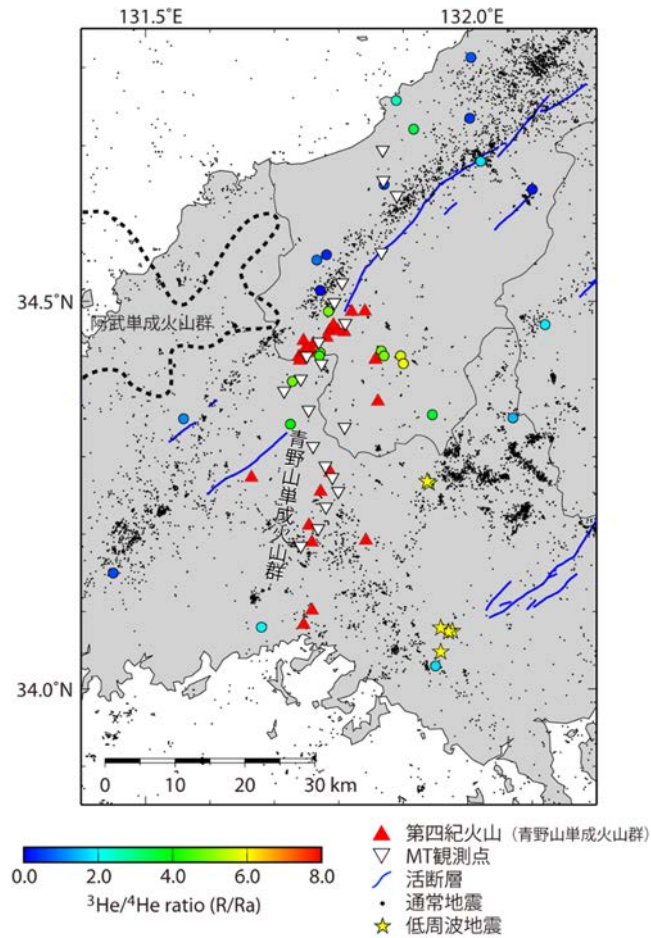


図 3.1.2-2 MT 法電磁探査の観測点分布
 丸及び青線は、ヘリウム同位体比(草野ほか, 2012²⁰)及び活断層(中田・今泉, 2002²¹)を表す。

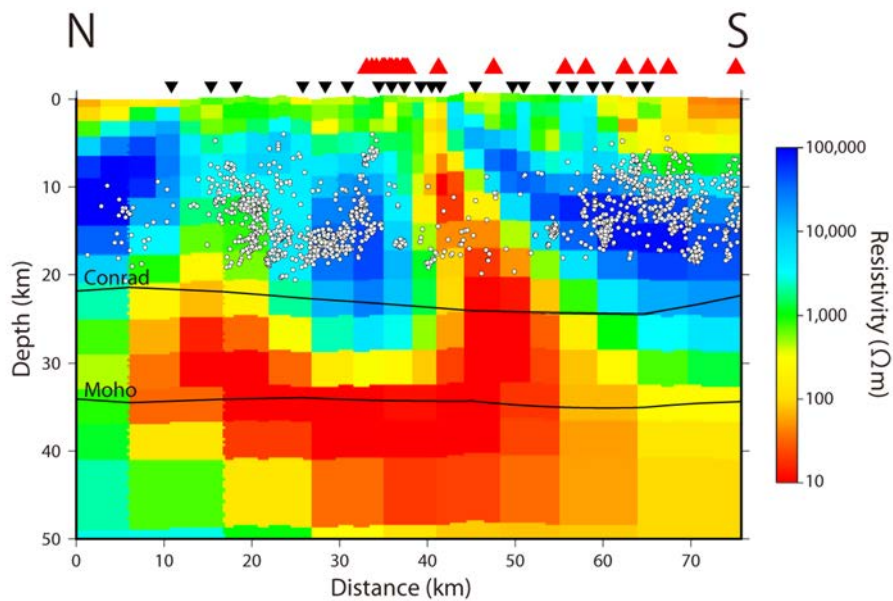


図 3.1.2-3 MT 法電磁探査により推定された青野山単成火山群下の二次元比抵抗構造
 黒三角, 赤三角, 白丸は, それぞれ図 3.1.2-2 に示す MT 観測点, 第四紀火山, 通常地震を表す。

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(地層処分技術 WG とりまとめ), 2017, 89p.
- 2) 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の背景と技術的根拠―「概要調査地区選定上の考慮事項」の説明資料―, NUMO-TR-04-02, 2004.
https://www.numo.or.jp/technology/technical_report/4alldl/tr0402all.pdf (参照:2020年3月23日).
- 3) Nishimura, T., Ozawa, S., Murakami, M., Sagiya, T., Tada, T., Kaidzu, M. and Ukawa, M., Crustal deformation caused by magma migration in the northern Izu Islands, Japan, *Geophysical Research Letters*, vol.28, no.19, 2001, pp.3745-3748.
- 4) 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,
http://www.meti.go.jp/shingikai/energy-environment/chiso-shobun/pdf/20180328_001.pdf(参照:2020年3月23日).
- 5) 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～令和4年度), 2020, 71p,
https://www.meti.go.jp/shingikai/energy_environment/chiso_shobun/pdf/20200331_001.pdf(参照:2020年9月1日).
- 6) 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,
https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2018/30fy_choukianteisei.pdf (参照:2020年9月1日).
- 7) Zhao, D., Hasegawa, A. and 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.
- 8) Zhao, D., Hasegawa, A. and Kanamori, H., Deep structure of Japan subduction zone as derived from local, regional, and teleseismic events, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, vol.99, no.B11, 1994, pp.22313-22329.
- 9) Nakajima, J., Matsuzawa, T., Hasegawa, A. and Zhao, D., Three-dimensional structure of *V_p*, *V_s*, and *V_p/V_s* beneath northeastern Japan: Implications for arc magmatism and fluids, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, vol.106, 2001, no.B10, pp.21843-21857.
- 10) Aizawa, K., Yoshimura, R. and 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.
- 11) Nakajima, J. and 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.

- 12) 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.
- 13) 太田陽子, 成瀬敏郎, 田中眞吾, 岡田篤正 編, 日本の地形 6 近畿・中国・四国, 東京大学出版会, 2004, 383p.
- 14) Ogawa, Y. and Uchida, T., A two-dimensional magnetotelluric inversion assuming Gaussian static shift, *Geophysical Journal International*, vol.126, no.1, 1996, pp.69-76.
- 15) O'Connell, R. J. and 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.
- 16) Nakajima, J. and Hasegawa, A., Tomographic evidence for the mantle upwelling beneath southwestern Japan and its implications for arc magmatism, *Earth and Planetary Science Letters*, vol.254, no.1-2, 2007, pp.90-105.
- 17) Asamori, K. and Zhao, D., Teleseismic shear wave tomography of the Japan subduction zone, *Geophysical Journal International*, vol.203, no.3, 2015, pp.1752-1772.
- 18) Umeda, K., Kusano, T., Asamori, K. and McCrank, G. F., Relationship between $^3\text{He}/^4\text{He}$ ratios and subduction of the Philippine Sea plate beneath southwest Japan, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, vol.117, no.B10, B10204, 2012, doi:10.1029/2012JB009409.
- 19) Kimura, J.-I., Stern, R. J. and Yoshida, T., Reinitiation of subduction and magmatic responses in SW Japan during Neogene time, *Geological Society of America Bulletin*, vol.117, no.7-8, 2005, pp.969-986.
- 20) 草野友宏, 浅森浩一, 梅田浩司, 日本列島における地下水・温泉ガスのヘリウム同位体比データベースの作成, JAEA-Data/Code 2012-017, 2012, 19p.
- 21) 中田 高, 今泉俊文 編, 活断層詳細デジタルマップ, 東京大学出版会, 2002, 60p.

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。しかしながら、「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新たに指摘されている。このうち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深部流体(産業技術総合研究所, 2012²⁾)については、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と指摘されている。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とされている(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⁾)。

深部流体の流入の可能性やそれによる地層処分システム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(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, 2018³⁾; 2020⁴⁾)。このことから平成 30 年度及び令和元年度は、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 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地質調査総合センター編, 2004⁵⁾)。このうち紀伊半島には、湯の峰(92 °C)や白浜(78 °C)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地質調査総合センター編, 2005⁶⁾)。紀伊半島の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, 1994⁷⁾)によると、深部からの熱水(約 210 °C)の上昇により、深度 1,500 m で 100~180 °C、地表では最大 92 °Cの温泉が自噴していると報告されている(西村, 2001⁸⁾)。また、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指摘されている(例えば, Umeda *et al.*, 2006⁹⁾; Morikawa *et al.*, 2016¹⁰⁾)。

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(産業技術総合研究所, 2012²⁾)と考えられているが、このような流体の移動(上昇)経路が主に地殻内のクラックの性状に起因すると考えた場合、それを知るための有効な手法の一つとして S 波スプリッティング解析を挙げることができる。一般に、地殻を構成する岩石内にクラックが一定の方向に発達した異方性媒質を S 波が通過すると、異なる伝播速度を持ち、互いに直交する方向に振動する二つの S 波(ここでは、「速い S 波」と「遅い S 波」と呼ぶ)に分裂するという現象(S 波スプリッティング)が生じる。このように、S 波の振動方向によ

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。地殻を対象とした場合、S 波スプリットング解析により推定できる速い S 波の振動方向(ϕ)は、開口クラックの配列方向(長軸方向)を示していると解釈され、それらは最大水平圧縮応力軸(σ_{Hmax})の方向に平行であることが多い。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、クラック密度やクラックの配列方向に対する S 波の入射角に依存する(例えば、Mizuno *et al.*, 2001¹¹⁾)。そのため、S 波スプリットング解析により地下深部の S 波偏向異方性を推定し、深部流体の上昇が示唆される領域とそうでない地域との差を検討することで、深部流体の移動経路となり得るクラックの情報を抽出できる可能性がある。

(3) 実施内容・結果

紀伊半島を事例とした S 波スプリットング解析では、Silver and Chan (1991)¹²⁾による手法を用いて、 ϕ 及び dt の推定を行った。図 3.1.3-1 は、紀伊半島とその周辺に分布する地震観測点及び解析に用いた地震の震央分布を示す。このうち解析の対象とした観測点は、紀伊半島の中部から南部に位置する防災科学技術研究所の高感度地震観測網(Hi-net)、東京大学地震研究所(ERI)、気象庁(JMA)及び産業技術総合研究所(AIST)が運用する 46 点である。また、解析に用いた地震は、2004 年 4 月から 2006 年 3 月までの 2 年間に深さ 60 km 以浅で発生した気象庁マグニチュード(M_j) 1.5~3.5 の地震であり、これらの連続波形データを解析に使用した。なお、S 波が地表面に入射した際に生じる P 波への変換波のために S 波到達時の位相が乱される可能性(Booth and Crampin, 1985¹³⁾)を避けるため、観測点への波線の入射角が 35°以内となる震源と観測点の組み合わせのみを解析対象とした。

図 3.1.3-2 に各観測点で推定された ϕ の分布を示す。ローズダイアグラムの延びる方向が ϕ の方位を表し、その長さは観測されたデータの数を示す。ここでは、地殻内の S 波偏向異方性のみを見るために、深さ 30 km 以浅の地震を用いた場合の解析結果のみを表示した。これによると、 ϕ の卓越方向は、Saiga *et al.* (2011)¹⁴⁾によって推定された方向と概ね同様の傾向を示し、特に紀伊半島の沿岸部では地震データの応力テンソルインバージョンや坑井での応力測定によって推定された σ_{Hmax} の向き(伊藤, 1990¹⁵⁾; 池田ほか, 2001¹⁶⁾; 大坪ほか, 2009¹⁷⁾; Saiga *et al.*, 2011¹⁴⁾)と調和的である。また、 ϕ の方位は地殻におけるクラックの卓越方位のみならず、地質構造の卓越方向(走向)にも依存する(例えば、Kaneshima, 1990¹⁸⁾; Savage, 1999¹⁹⁾)。紀伊半島の地質構造は、熊野酸性岩類が分布する紀伊半島南東部を除いて概ね東西方向に卓越するが、これらは北向きに緩く傾斜することが明らかにされており(Ito *et al.*, 2009²⁰⁾)、本研究や Saiga *et al.* (2011)¹⁴⁾で用いられた地震波の観測点への入射角の範囲では、 ϕ への影響は十分に小さいと考えられる(Saiga *et al.*, 2011¹⁴⁾)。これらのことから、紀伊半島の沿岸部における ϕ の方位は、主として広域的な応力場に起因して σ_{Hmax} の方向に開口したクラックの卓越方向を示していると考えられる。

一方、湯の峰や川湯といった高温の温泉が湧出し、紀伊半島で最も高い熱流束(239, 219 mW/m²; Umeda *et al.*, 2007²¹⁾)や顕著に高いヘリウム同位体比(Sano and Wakita, 1985²²⁾; Ono *et al.*, 1993²³⁾; Nagao *et al.*, 1981²⁴⁾)が観測されている本宮(観測点 E.HGU)のほか、紀伊半島内陸部(観測点 N.TKWH, E.OIC)の ϕ は、およそ北北西-南南東に卓越する傾向が認められ、地質構造の卓越方向(およそ東西方向)とは明らかに異なる。このうち和歌山県北西部における σ_{Hmax} の向きはおよそ東西~西北西-東南東と推定されており(図 3.1.3-2)、沿岸部における観測点(E.WKME, E.ARD, N.HRKH)の ϕ はそれと調和的な方位に卓越する。しかしながら、海岸線からおおよそ 10 km 内陸側に位置する観測点(観測点 E.OIC)では、周辺の観測点(E.WKME, E.ARD, N.HRKH)での卓越方向とは異なる北北西-南南東へと急変し、かつ周辺の σ_{Hmax} の向きとは整合しない。また、観測点 E.HGU や N.TKWH が位置する領域の σ_{Hmax} は明らかでないが、このうち観測点 N.TKWH 近傍の ϕ はおよそ東西方向に卓越することが明らかにされており(Saiga *et al.*, 2013²⁵⁾)、この領域においても ϕ の卓越方位が急変している可能性を示す。ただし Saiga

et al. (2011)¹⁴⁾によれば、観測点 N.TKWH の ϕ は、本解析により推定された北北西—南南東方向とおよそ直交する向きに推定されている。このためデータの追加による詳細な検討が必要であるが、このような既存の結果も考慮すると、観測点 N.TKWH 近傍のクラックは異なる二つの方位に卓越している可能性も考えられる。

以上の結果は、必ずしも原因は明確でないものの、紀伊半島の内陸部(観測点 E.OIC, N.TKWH)で認められた北北西—南南東の ϕ の卓越は、 σ_{Hmax} の方位とは異なる向きに発達したクラックの存在を示している可能性を示唆する。また、高温の温泉が湧出する本宮(観測点 E.HGU)においてもこれらと同様の卓越方位を示し、近傍の観測点とは異なる向きを指す。このことから、①広域的な σ_{Hmax} の方位とは異なる向きに発達したクラックや、②異なる向きに発達した複数のクラック帯が交差する領域(ϕ の急変領域)が、深部流体の上昇に関与している可能性が推測される。また、本宮(観測点 E.HGU)における S 波偏向異方性に関するこれらの特徴は、「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」で報告する松代群発地震の湧水域下で認められた S 波偏向異方性の特徴と類似している。

また、図 3.1.3-3 は、波線の長さ(地震波伝播距離)で規格化した dt の分布を示す。これによると、いずれの観測点においても地殻内では 0.005 s/km 以上のばらつきが見られるが、その最大値は解析領域内で概ね同様の値を示しており、高温の温泉が湧出する本宮(観測点 E.HGU)とその他の領域で有意な差は認められない。単純には dt が大きくなるほどクラック密度が高いことを示すが、現時点での結果によると、クラック密度の大小と深部流体の上昇との関連性は認められない。

(4) 主な成果と課題

本研究では、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 S 波偏向異方性の推定を通じて、流入経路となり得るクラック性状に係る知見の抽出を試みた。その結果、深部流体の顕著な流入が観測されている領域では、 ϕ の卓越方位が急変する傾向が見られた。また、その方位は広域的な σ_{Hmax} とは異なる向きに発達したクラックの卓越を示している可能性も考えられる。引き続きデータの蓄積が必要であるが、これらの結果は、広域的な σ_{Hmax} の方位とは異なる向きのクラックや、異なる向きに発達した複数のクラック帯が交差する領域が、深部流体の移動が卓越する経路として機能している可能性を示唆すると考えられる。

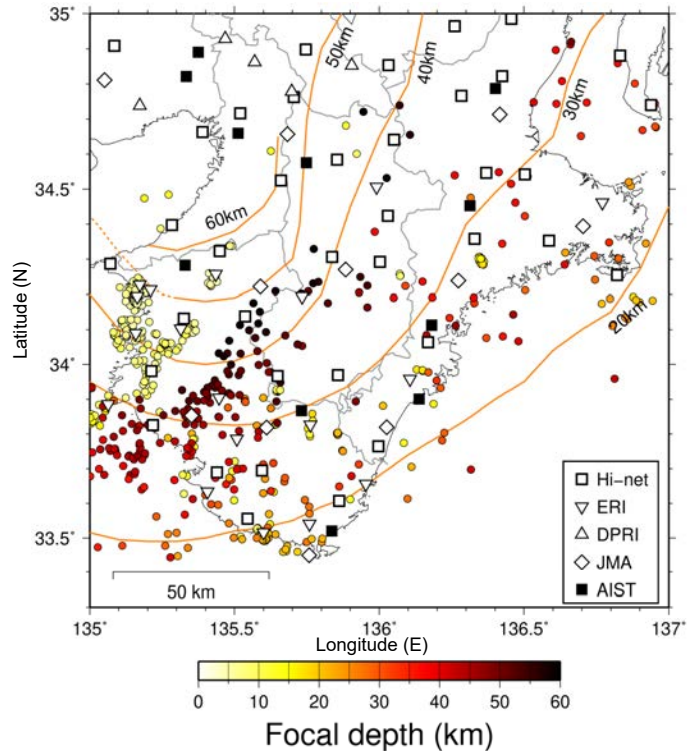


図 3.1.3-1 紀伊半島における地震観測点及び解析に用いた地震の震央分布
 丸の色は震源の深さ(km)を表す。橙色のコンターはフィリピン海スラブ上面の深さ(km)分布 (Hirose *et al.*, 2008²⁶⁾)を示す。Hi-net, ERI, DPRI, JMA, AIST はそれぞれ防災科学技術研究所, 東京大学地震研究所, 京都大学防災研究所, 気象庁, 産業技術総合研究所による地震観測点を示す。

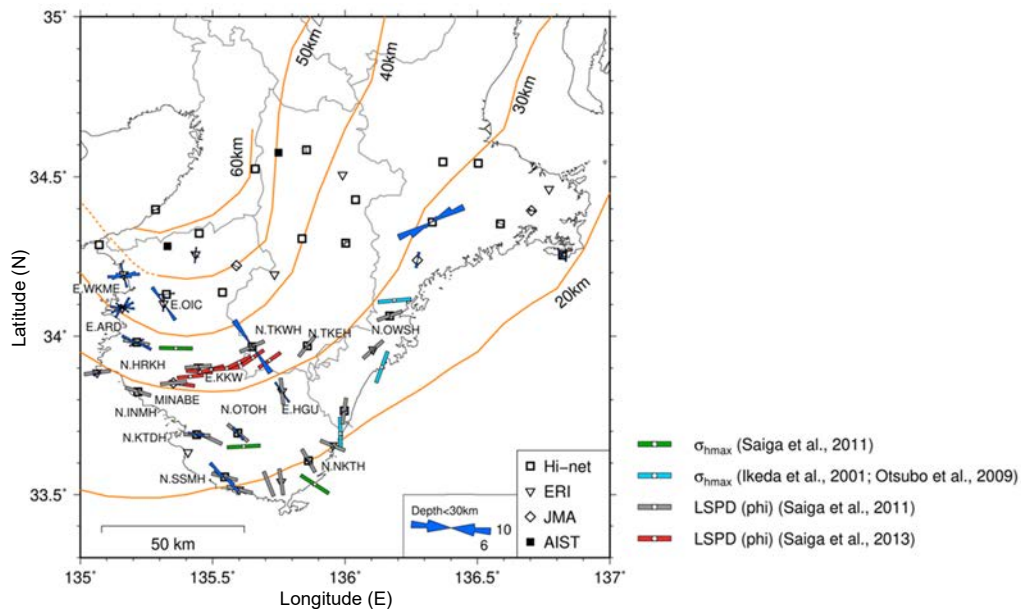


図 3.1.3-2 S波スプリッティング解析により求めた速いS波の振動方向(ϕ)の分布
 緑のバーは地震データに基づく応力テンソルインバージョンによる最大水平圧縮応力の方位 (Saiga *et al.*, 2011¹⁴⁾), 青のバーは坑井での応力測定による最大水平圧縮応力の方位 (池田ほか, 2001¹⁶⁾; 大坪ほか, 2009¹⁷⁾)を示す。灰色及び赤のバーは Saiga *et al.* (2011¹⁴⁾, 2013²⁵⁾)による ϕ の主要な向きを示す。

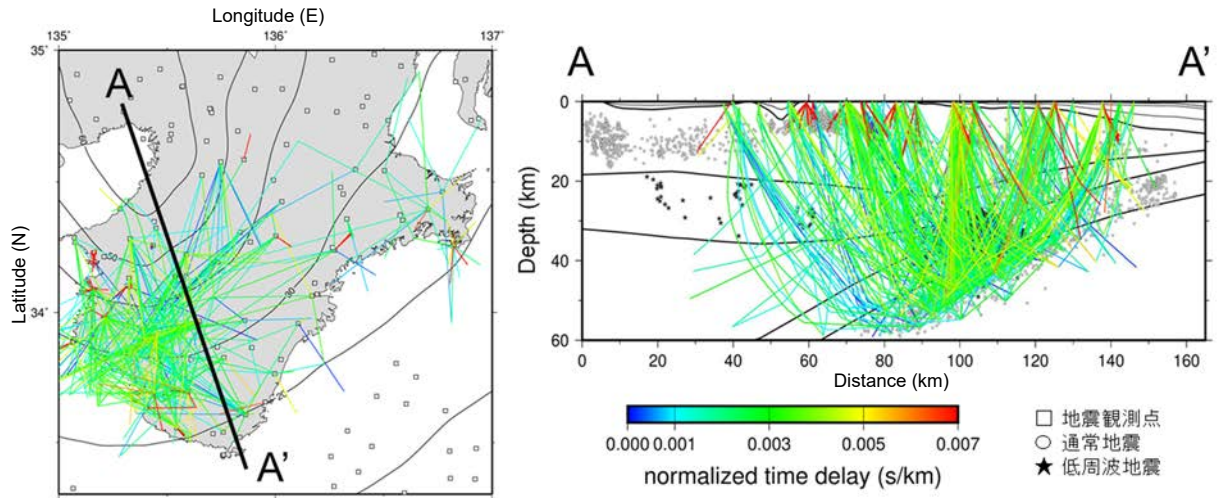


図 3.1.3-3 波線の長さで規格化した場合の到達時間差 (dt) の平面図及び断面図
 左図の黒線は、フィリピン海スラブ上面深度のコンター (10 km 間隔) を示す。

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) 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,
http://www.meti.go.jp/shingikai/energy-environment/chiso-shobun/pdf/20180328_001.pdf (参照: 2020年3月23日).
- 4) 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～令和4年度), 2020, 71p,
https://www.meti.go.jp/shingikai/energy_environment/chiso_shobun/pdf/20200331_001.pdf (参照: 2020年9月1日).
- 5) 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.
- 6) 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.
- 7) 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.
- 8) 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.
- 9) 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.
- 10) 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.
- 11) Mizuno, T., Yomogida, K., Ito, H. and Kuwahara, Y., Spatial distribution of shear wave anisotropy in the crust of the southern Hyogo region by borehole observations, Geophysical Journal International, vol.147, no.3, 2001, pp.528-542.
- 12) 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.
- 13) Booth, D. C. and Crampin, S., Shear-wave polarizations on a curved wavefront at an isotropic free surface, Geophysical Journal of the Royal Astronomical Society, vol.83, no.1, 1985, pp.31-45.

- 14) Saiga, A., Kato, A., Sakai, S., Iwasaki, T. and Hirata, N., Crustal anisotropy structure related to lateral and down-dip variations in interplate coupling beneath the Kii peninsula, SW Japan, *Geophysical Research Letters*, vol.38 no.9, L09307, 2011, doi:10.1029/2011GL047405.
- 15) 伊藤 潔, 西南日本の地震活動とテクトニクス, *地震第2輯*, vol.43, no.4, 1990, pp.555-569.
- 16) 池田隆司, 小村健太郎, 飯尾能久, 石井 紘, 小林洋二, 西上欽也, 山内常生, 南海トラフ地震に向けた陸域での地殻応力・歪測定, *地学雑誌*, vol.110, no.4, 2001, pp.544-556.
- 17) 大坪 誠, 重松紀生, 北川有一, 小泉尚嗣, 南海トラフ沈み込み帯前弧陸域での応力場変遷:熊野市井内浦および紀北町海山観測点コアをきる断層面を用いて, *地質学雑誌*, vol.115, no.9, 2009, pp.457-469.
- 18) Kaneshima, S., Origin of crustal anisotropy: shear wave splitting studies in Japan, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, vol.95, no.B7, 1990, pp.11121-11133.
- 19) 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.
- 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. and 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) Umeda, K., Sakagawa, Y., Ninomiya, A. and Asamori, K., Relationship between helium isotopes and heat flux from hot springs in a non-volcanic region, Kii peninsula, southwest Japan, *Geophysical Research Letters*, vol.34, no.5 L05310, 2007, doi:10.1029/2006GL028975.
- 22) Sano, Y. and 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*, vol.90, no.B10, 1985, pp.8729-8741.
- 23) Ono, A., Sano, Y., Wakita, H. and Giggenbach, W. F., Carbon isotopes of methane and carbon dioxide in hydrothermal gases of Japan, *Geochemical Journal*, vol.27, no.4-5, 1993, pp.287-295.
- 24) Nagao, K., Takaoka, N. and Matsubayashi, O., Rare gas isotopic compositions in natural gases of Japan, *Earth and Planetary Science Letters*, vol.53, no.2, 1981, pp.175-188.
- 25) Saiga, A., Kato, A., Kurashimo, E., Iidaka, T., Okubo, M., Tsumura, N., Iwasaki, T., Sakai, S. and Hirata, N., Anisotropic structures of oceanic slab and mantle wedge in a deep low-frequency tremor zone beneath the Kii peninsula, SW Japan, *Journal of Geophysical Research*, vol.118, no.3, 2013, pp.1091-1097.
- 26) Hirose, F., Nakajima, J. and 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, B09315, 2008, doi:10.1029/2007JB005274.

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・津波といったそ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。また、これ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。

東北沖地震では、その発生に伴って内陸地震が活発化した地域や1 m以上の沈降を生じた地域も現れた。また、地殻応力場・ひずみ場の変化に起因する内陸地震の活動度や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(M_j 7.0)に伴う顕著な湧水は数年間継続している(佐藤, 2015²⁾)。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, 2014³⁾)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。

一方、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, 2014³⁾)、長期間の湧水といった事象の発生可能性やそれを加味した安全評価を適切に行うためには、次項に述べるように、流入する可能性のある流体の賦存状況をあらかじめ把握しておくことも有用であろうと考えられる。そのため本研究では、過去に同様の事象が生じた松代群発地震を事例として、流体の賦存域やその移動経路に係る情報を得ることで、流体賦存域の存在等がこれらの評価の指標となり得る可能性を検討した。

(2) 当該分野に係る科学的・技術的背景

1946年南海地震(川辺, 1991⁴⁾)や1995年兵庫県南部地震(佐藤・高橋, 1997⁵⁾)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に及ぶ顕著な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(動的な地殻応力・ひずみの変化)や断層の変位に伴う透水性の変化等が指摘されており、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, 2015⁶⁾)。このうち湧水の発生が地下深部からの流体上昇に起因する場合は、水質の顕著な変化や長期間に及ぶ湧水を引き起こす可能性が指摘されている(佐藤, 2015²⁾)。

このような知見に基づけば、地震に伴う長期間の湧水が生じる可能性や、それを考慮した安全評価を

適切に行うためには、地下深部から流入する可能性のある流体の賦存域の有無や分布をあらかじめ把握しておくことも有効であると期待される。しかしながら、地震活動に伴って生じた長期間の湧水といった現象に対して、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明確に確認された事例は見当たらない。そこで平成 30 年度は、地震に伴う長期間の湧水が認められた松代群発地震の活動域を事例として MT 法電磁探査による二次元比抵抗構造の推定を行い、湧水域直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(図 3.2.1-1:原子力機構・電力中央研究所, 2019⁷⁾)。この流体賦存域は湧水の発生に関与したと推測されるが、推定された二次元比抵抗構造は深さ 10 km 以浅であったこと等から、現在の上部地殻に見られる流体賦存域は群発地震活動によって新たに形成された(群発地震以前に流体賦存域は存在していなかった)可能性も考えられる。また、流体賦存域の有無のみならず、その移動経路の特性に係る知見を得ることも、同様の事象が生じる可能性を評価するためには有用であると考えられる。そのため令和元年度は、より深部(下部地殻及び上部マントル)における流体賦存域の有無や上部地殻の流体移動経路の特性に係る知見を得ることを目的として、同領域に対して地震波トモグラフィ及び S 波スプリッティング解析を適用し、三次元地震波速度構造及び S 波偏向異方性の推定を行った。

(3) 実施内容・結果

1965 年 8 月に第四紀火山である皆神山を中心として生じた松代群発地震では、多量の湧水を伴う地震活動が約二年間にわたって継続した(例えば, Hagiwara and Iwata, 1968⁸⁾)。また、湧水域の近傍に活断層は認定されていないが(例えば, 産業技術総合研究所, 2012⁹⁾)、群発地震活動時に観測された地震活動や地殻変動等から、共役な二つの伏在断層(松代地震断層, 東長野断層)の活動が推定されている(Tsuneishi and Nakamura, 1970¹⁰⁾; Kisslinger, 1975¹¹⁾)。これらの活動とともに生じた湧水に関するこれまでの研究によると、その湧出量は約 1 千万 t/4 ヶ月に達する(中村, 1971¹²⁾)。また、その水質は地表付近の循環水とは異なる高濃度の Cl を主要溶存成分とする塩水であり(Kitano *et al.*, 1967¹³⁾; Yoshioka *et al.*, 1970¹⁴⁾)、その濃度は地震発生前の 2~3 倍に増加した(奥澤・塚原, 2001¹⁵⁾)。湧出した地下水の起源については諸説あるが、湧水域における土壤ガス中のヘリウム同位体比($^3\text{He}/^4\text{He}$ 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.*, 1978¹⁶⁾)。さらに、2011 年に皆神山周辺で採取された地下水の分析によると、群発地震以降はその化学的特徴が概ね変化していないと報告されている(Okuyama *et al.*, 2016¹⁷⁾)。これらのことから、湧水開始当時と比べて現在の湧出量は顕著に減少しているものの、湧水の供給源や流体移動経路といったメカニズムは近年でも維持されていると考えられる。

地震波トモグラフィの解析では、中部地方及びその周辺で発生した 14,348 個の地震(地震発生前:2002 年 6 月~2019 年 4 月)による P 波及び S 波到達時刻データを Zhao *et al.* (1992)¹⁸⁾による三次元インバージョン法に適用することによって、三次元 P 波及び S 波速度構造を推定した。解析により推定された P 波, S 波速度偏差の分布(図 3.2.1-2)によると、松代群発地震の活動域となった皆神山下では、深さ 25 km から深さ 80 km まで連続するように-2~-4 %程度の S 波低速度体が分布する。なお、この S 波低速度体に対応する P 波速度偏差は、平均的なマントルの速度から-2 %程度の低速度を示す。一般に、地下にメルトや水等の流体が存在する場合は、地震波速度が低下することが知られている(例えば, O'Connell and Budiansky, 1974¹⁹⁾)。また、低周波地震の震源は部分熔融域等の流体分布域を示す地震波低速度体やその端部で生じることが多いが(例えば, Nakajima and Hasegawa, 2003²⁰⁾; Hasegawa *et al.*, 2005²¹⁾)、皆神山周辺の下部地殻やマントル最上部でも同様に、火山下の地震波低速度体やその端部に低周波地震の発生が認められる(図 3.2.1-2)。さらに、皆神山の近傍では、マントル起源の流体の供給を示唆する高いヘリウム同位体比(大気の 6.5 倍)が観測されている(Wakita *et al.*, 1978¹⁶⁾)。以上のことから、本解析によって見出された皆神山下の地震波低速度体は、第四紀火山である皆神山に供給するメル

トやその固化に伴って放出された水の存在を示唆すると考えられる。また、皆神山が 0.3 Ma に活動した比較的新しい第四紀火山である(産業技術総合研究所, 2013²²⁾)ことや、周辺に活火山(草津白根山, 浅間山)が分布することを踏まえれば、その活動に関与するモホ面付近の部分熔融域が、群発地震時あるいはその後の数十年で急速に形成されたとは考えにくい。このことから、地震波トモグラフィーによって推定されたモホ面付近の流体は、群発地震の発生以前から存在していたと推測される。

S 波スプリッティング解析では、図 3.2.1-3 に示す地震の連続波形データを Silver and Chan (1991)²³⁾による解析手法に適用し、各地震観測点における速い S 波の振動方向(φ)と、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)を求めた。これによって推定された φ の分布(図 3.2.1-4)によると、群発地震の活動域周辺では概ね西北西-東南東方向を示す。松代群発地震の活動に伴い、皆神山の北側で活動した伏在断層(松代地震断層)は、地表において西北西-東南東方向を向く多数の雁行配列したクラックが観察されたことから、全体として北西-南東方向に延びる左横ずれ剪断帯を形成していると考えられている(Tsuneishi and Nakamura, 1970¹⁰⁾)。このことから、 φ が西北西-東南東方向に卓越するといった特徴は、松代地震断層の運動に関連する西北西-東南東方向のクラックや、広域的な最大水平圧縮応力軸(σ_{Hmax} : およそ北西-南東方向)に応じて開口したクラックの存在が原因であることを示していると考えられる。

これに対し、湧水域の南部に位置する観測点においては、 φ の卓越方向が北東-南西方向に急変しており、広域的な σ_{Hmax} の方位とは整合しない(図 3.2.1-4)。Kisslinger (1975)¹¹⁾は、松代群発地震の活動域が時間の経過とともに北東-南西方向に拡大したことに基づき、湧水域の直下に北東-南西方向に延びる東長野断層が伏在することを指摘している。このことから、この観測点において φ の向きが北東-南西方向に急変していることは、東長野断層の運動に伴って形成されたクラックが S 波偏向異方性の原因となっていることを示している可能性が高い。なお、dt については湧水域とそうでない地域における特徴の明瞭な差は認められなかった。

以上のことを踏まえると、湧水域は、松代地震断層の運動に関連する西北西-東南東方向に発達したクラックが卓越する領域と、北東-南西方向のクラックが発達する東長野断層とが交差する領域に相当すると考えられる。また、この領域では深さ 10 km 以浅におよそ鉛直に延びる低比抵抗体が認められ(図 3.2.1-1)、その深部にはマントルから連続する地震波低速度体が分布する(図 3.2.1-2)。以上の結果は、群発地震に伴い湧出した多量の湧水が、主として地殻深部やマントル最上部でのメルトの固化により放出された水の上昇に起因し、上部地殻ではクラックが発達した断層の交差部がその主たる上昇経路となった可能性を示唆する。また、地殻浅部に認められた低比抵抗体(図 3.2.1-1)は、主に群発地震時の地震活動(断層運動)によって形成され、現在も利用されている流体上昇経路であり、地震波低速度体として下部地殻以深に捉えられた流体賦存域(図 3.2.1-2)がその供給源に相当すると推定される。

(4) 主な成果と課題

本研究では、長期間かつ多量の湧水を伴った松代群発地震の活動域を事例とした MT 法電磁探査及び地震波トモグラフィーにより、二次元比抵抗構造及び三次元地震波速度構造を推定し、多量の湧水が地殻深部~マントル最上部に存在する流体賦存域から放出された水の上昇に起因することを示した。さらに、S 波スプリッティング解析により推定した S 波偏向異方性の特徴から、原因は必ずしも明確でないが、上部地殻ではクラックが発達した断層の交差部が流体の主な上昇経路として機能した可能性を示した。以上の成果は、地震に伴って長期間の湧水が生じる可能性を評価するための指標の一つとして、地下深部の流体賦存域やクラックが卓越する断層交差部の存否が有用である可能性を示唆する。今後は、他地域における事例についても知見を収集し、さらに検討を進める予定である。

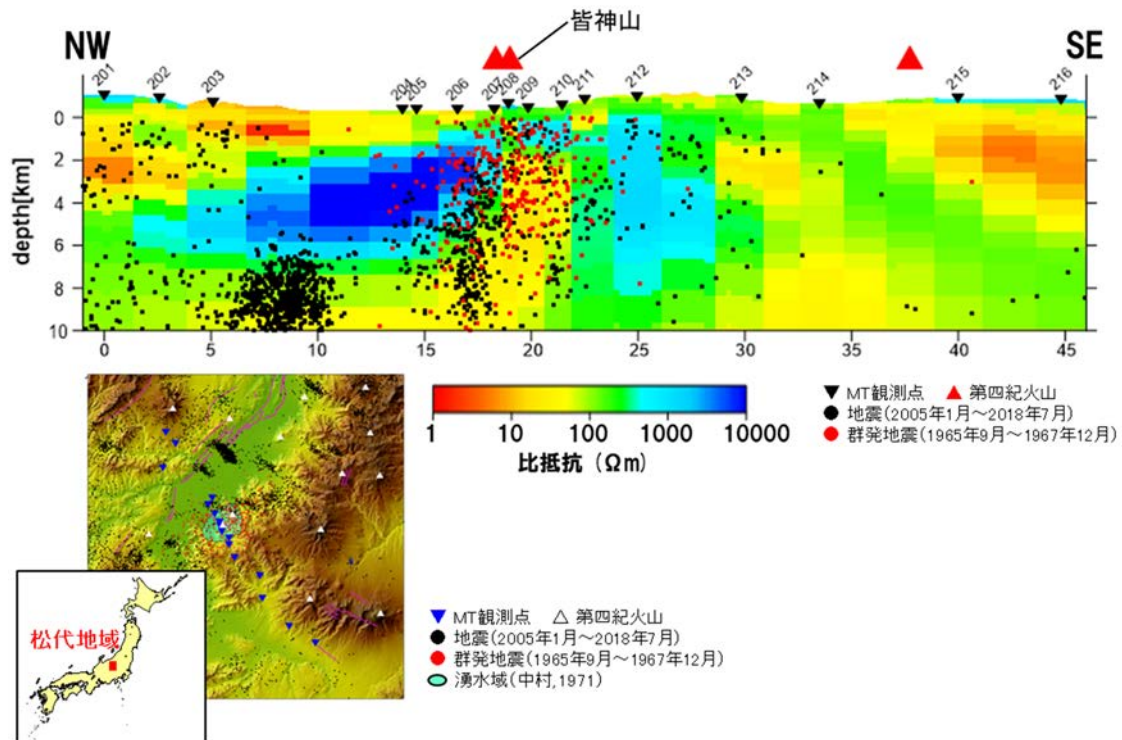


図 3.2.1-1 MT 法電磁探査により推定した松代群発地震の活動域における二次元比抵抗構造 (原子力機構・電力中央研究所, 2019⁷⁾。

赤線は活断層(中田・今泉, 2002²⁴⁾)を示す。湧水域の範囲は中村(1971)¹²⁾に基づく。

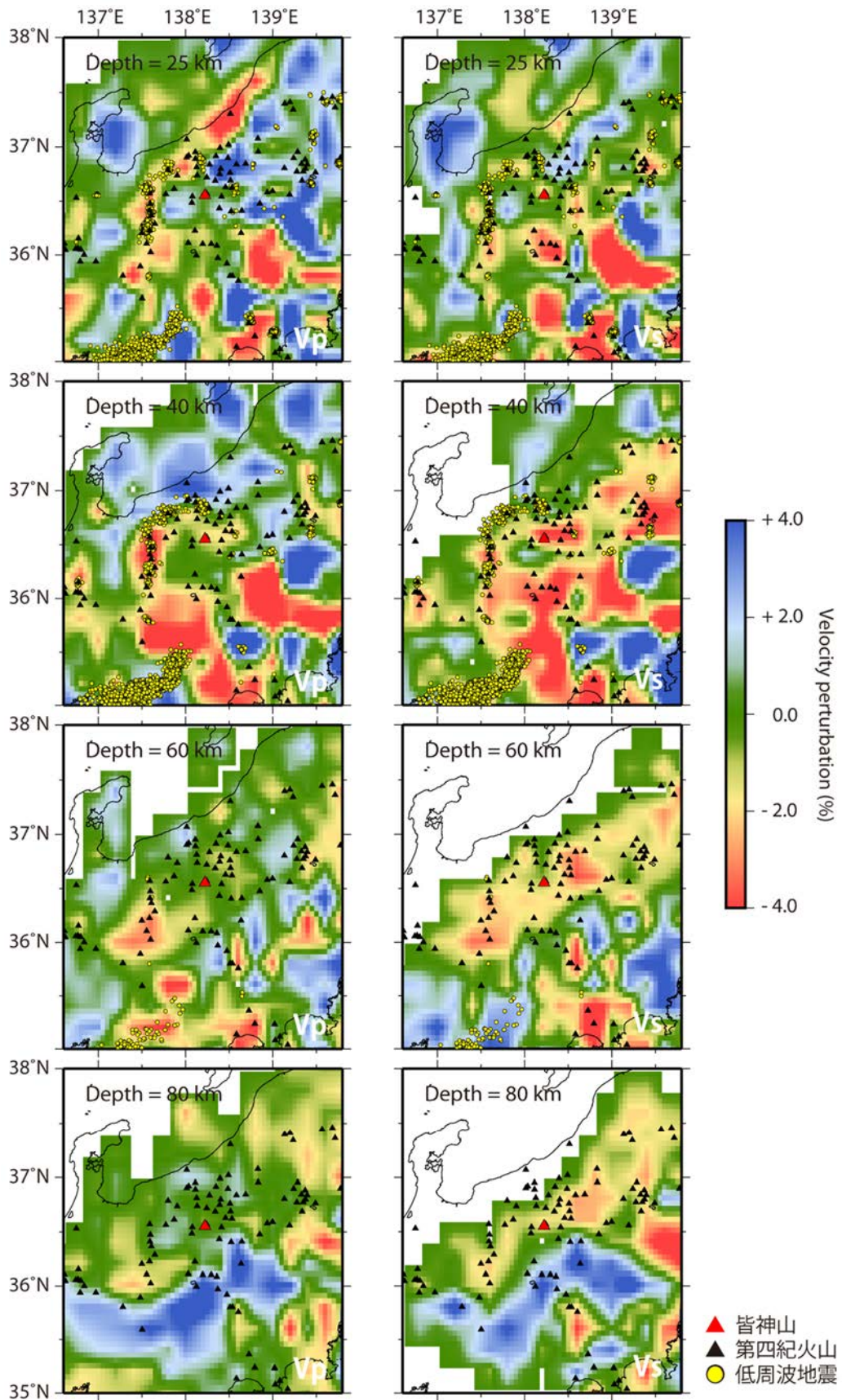


図 3.2.1-2 地震波トモグラフィーによる各深度の P 波 (V_p) 及び S 波速度 (V_s) 偏差分布

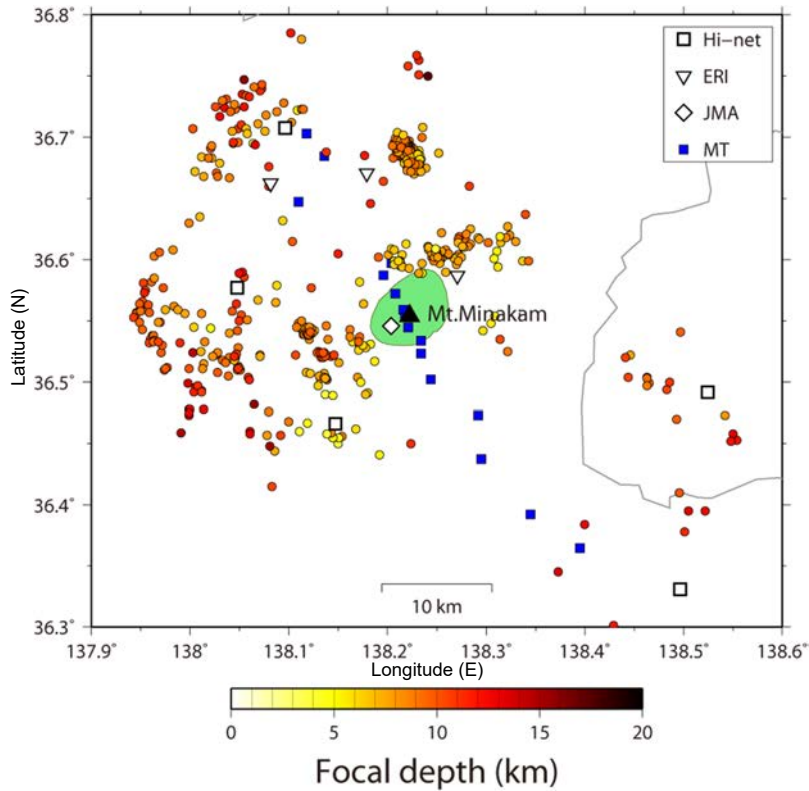


図 3.2.1-3 S波スプリッティング解析の対象とした地震観測点と解析に用いた地震の震央分布
 青の四角は、図 3.2.1-1 に示す MT 法電磁探査の観測点の位置を示す。緑の領域は、松代群発地震の活動に伴う湧水域(中村, 1971¹²)を示す。Hi-net, ERI, JMA はそれぞれ防災科学技術研究所, 東京大学地震研究所, 気象庁による地震観測点を示す。

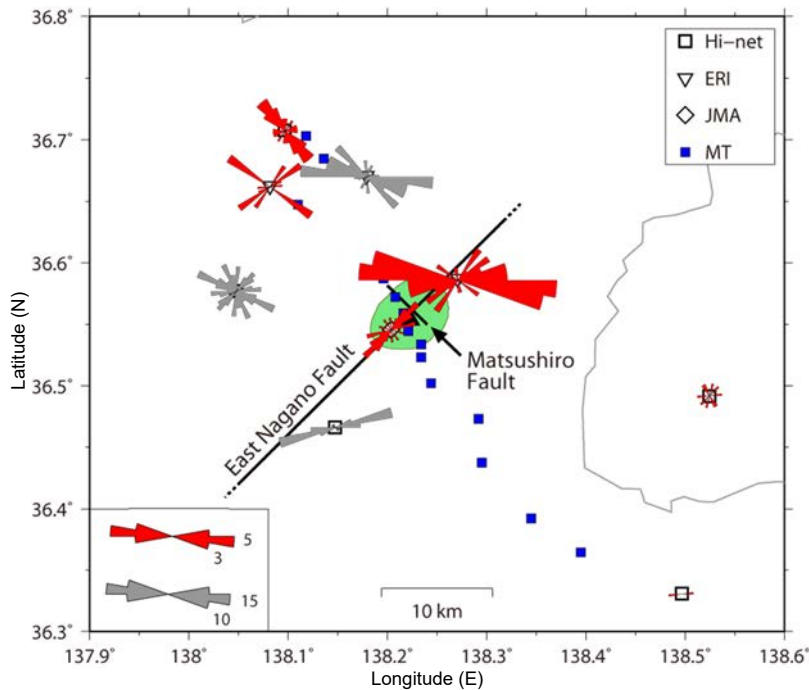


図 3.2.1-4 S波スプリッティング解析により求めた速いS波の振動方向(φ)の分布

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) 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.
- 3) 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.
- 4) 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.
- 5) 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.
- 6) Manga M., Wang C.Y., Earthquake Hydrology, Treatise on Geophysics, 2nd edition, vol.4, 2015, pp.305-328.
- 7) 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, 2019, 200p, https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2018/30fy_choukianteisei.pdf (参照:2020 年 9 月 1 日).
- 8) 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.
- 9) 産業技術総合研究所, 活断層データベース, 2012, <https://gbank.gsj.jp/activefault/> (参照:2020 年 6 月 1 日).
- 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) Kisslinger, C., Processes during the Matsushiro, Japan, earthquake swarm as revealed by leveling, gravity, and spring-flow observations, Geology, vol.3, no.2, 1975, pp.57-62.
- 12) 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.
- 13) 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.
- 14) 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.
- 15) 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.
- 16) 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.
- 17) Okuyama, Y., Funatsu, T., Fujii, T., Takamoto, N., Toshi, T., Mid-crustal fluid related to the Matsushiro earthquake swarm (1965-1967) in northern Central Japan: Geochemical reproduction, *Tectonophysics*, vol.679, 2016, pp.61-72.
 - 18) Zhao, D., Hasegawa, A. and 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.
 - 19) O'Connell, R.J. and 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.
 - 20) Nakajima, J. and 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.
 - 21) 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.
 - 22) 産業技術総合研究所, 日本の火山(第3版), 200万分の1地質編集図, no.11, 2013.
 - 23) Silver, P. G. and Chan, W. W., Shear wave splitting and subcontinental mantle deformation, *Journal of Geophysical Research*, vol.96, no.B10, 1991, pp.16429-16454.
 - 24) 中田 高, 今泉俊文 編, 活断層詳細デジタルマップ, 東京大学出版会, 2002, 60p.

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

地層処分における地質環境の長期安定性を評価する上で考慮すべき自然現象の一つに侵食がある(核燃料サイクル開発機構, 1999¹⁾)。しかし, 侵食の速さは, 地殻変動や気候変動の影響を受けるため, 数十年～数億年という期間で見ると必ずしも一定というわけではなく, 対象とする時間スケールによって異なることがある(例えば, Schaller *et al.*, 2005²⁾; Cyr and Granger, 2008³⁾; Marshall *et al.*, 2017⁴⁾)。そのため, その評価においては, 単一の時間スケールではなく, 様々な時間スケール(マルチタイムスケール)の侵食速度データに基づいて侵食速度がどの程度の時間スケールでどれだけ変化し得るかについて把握しておく必要がある。そこで本研究では, 日本列島の代表的な山地を事例にマルチタイムスケールの侵食速度データをコンパイルすることにより, 侵食速度の時間変化過程を復元した。

(2) 当該分野に係る科学的・技術的背景

侵食速度の推定方法については, 従来, ダムの堆砂速度から流域の過去数十年間の平均侵食速度を算出する方法が一般的であり, その方法により全国をほぼ網羅するように侵食速度データが取得されている(例えば, 藤原ほか, 1999⁵⁾; 長谷川ほか, 2005⁶⁾)。一方, 数十年以上の長期的な時間スケールの侵食速度については, 宇宙線生成核種(Terrestrial Cosmogenic Nuclide, TCN)法(対象期間, 数百年～数万年; 末岡ほか, 2015⁷⁾)や熱年代法(対象期間, 数百万年～数億年; 末岡ほか, 2015⁷⁾)を用いて算出することができ, これらの方法を利用して国内の様々な地域において侵食速度が明らかにされている(例えば, Korup *et al.*, 2014⁸⁾; Sueoka *et al.*, 2017⁹⁾)。上記の三つの方法のうち, ダムの堆砂速度とTCN法に基づき算出された国内の侵食速度データについては, 原子力機構・電力中央研究所(2019)¹⁰⁾にまとめられている。マルチタイムスケールでみた侵食速度の時間変化については, これらの手法による侵食速度データを基に, 横軸を時間, 縦軸を侵食速度としたグラフにプロットすることで示すことができる。しかし, 日本列島ではマルチタイムスケールで侵食速度の時間変化が示された事例は極めて少ない。

(3) 実施内容・結果

本研究では, まずマルチタイムスケールの侵食速度データを作成するため, 日本列島全域を対象にダムの堆砂速度, TCN法, 熱年代法に基づいて算出された侵食速度データを収集した。ダムの堆砂速度とTCN法に基づき算出された侵食速度データについては, 原子力機構・電力中央研究所(2019)¹⁰⁾がまとめた侵食速度データを用いた。熱年代法に基づく侵食速度データについては, Sueoka and Tagami(2019)¹¹⁾がまとめた「日本列島の基盤岩類における低温領域の熱年代データベース」に掲載されている熱年代から侵食速度を算出したものを使用した。熱年代から侵食速度を算出する方法については, 原子力機構・電力中央研究所(2019)¹⁰⁾に記された方法になった。

次に, 収集したマルチタイムスケールの侵食速度データに基づいて, 横軸に対数時間, 縦軸に侵食速度を取ったプロット図を作成した(図 3.2.2-1)。対象とした山地は, ①ダムの堆砂速度データ, TCNデータ, 熱年代データのいずれかが2種類以上が得られていること, ②米倉ほか編(2001)¹²⁾の形態的区分において険しい山地から最もなだらかな山地までを網羅することに留意して選定した。これによって選定した山地は, 日高山脈, 北上山地, 飯豊山地, 朝日山地, 三国山脈(谷川岳周辺), 阿武隈山地, 丹沢山地, 飛騨山脈, 木曾山脈, 赤石山脈, 六甲山地, 紀伊山地, 四国山地及び九州山地の計14山地である。以下に, プロット図から推察される各山地の侵食速度の時間変化過程について述べる。

日高山脈(図 3.2.2-1a)は中新世に活発に隆起して、現在は相対的に隆起が不活発な山地である(例えば、在田ほか, 2001¹³⁾)。それを反映してか、最大侵食速度は数百万年より長期では 1 mm/year を超えるのに対して、最近数十年では 0.1 mm/year 程度に下がる。データ取得地点の違いに注意する必要があるが、大局的には、日高山脈が既に隆起を終えて解体に向かっている山地であることを示していると考えられる。

日本アルプス(図 3.2.2-1b)と東北日本背弧側の山地(図 3.2.2-1c)は、数百万年スケールでも最近数十万年間でも侵食速度がほぼ同等で、少なくともオーダーでは変化していないという点で共通である。この結果は、これらの山地が隆起と侵食が釣り合った動的平衡状態(Ohmori, 1978¹⁴⁾)に達していることを示唆している。対照的に、東北日本前弧側の北上山地、阿武隈山地(図 3.2.2-1d)では、どの時間スケールで見ても侵食速度は約 0.1 mm/year 以下に留まっている。阿武隈山地では第四紀以降に若干の加速は見られるものの(Sueoka *et al.*, 2017⁹⁾; Fukuda *et al.*, 2019¹⁵⁾)、現在に至るまで 0.1 mm/year オーダーの低い侵食速度を有している。これらの山地には、地形的にも明瞭な隆起準平原が広く分布しており(Nakamura, 1963¹⁶⁾; 木村, 1994¹⁷⁾)、ほとんど侵食が進行していないと解釈できる。

三国山地(谷川岳)と丹沢山地(図 3.2.2-1e)は、日本アルプスに匹敵する高い侵食速度にみえる。しかし、これらの山地には最近数百万年間に形成された若い花崗岩が露出している(佐藤, 2016¹⁸⁾; Tani *et al.*, 2010¹⁹⁾)。したがって、熱年代が花崗岩の形成年代を反映して若くなるため、数百万年より長期の侵食速度が過大評価になっている可能性があることに注意が必要である。

六甲山地(図 3.2.2-1f)は近畿三角帯に分布する逆断層地塊で、六甲変動と呼ばれる第四紀以降の地殻変動により、約 1 Ma 以降に隆起したと考えられている(藤田, 1983²⁰⁾)。熱年代データに基づく侵食速度は、TCN 法に基づく速度より一桁以上小さい値を示す。これは、第四紀以降は断層運動で急速に隆起はしているものの、熱年代を若返らせるほどの侵食量には達していないためだと考えられる(例えば、末岡ほか, 2015⁷⁾)。このような山地では、TCN 法等の比較的短い時間スケールを対象とした手法を用いなければ、侵食速度を過小評価することになるので注意が必要である。

西南日本外帯の山地(図 3.2.2-1g)は、日本アルプスや飯豊・朝日山地と同様に、侵食速度は長期間を通じて変化せず、動的平衡状態に達しているようにみえる。外帯山地の隆起開始時期や隆起メカニズムには不明な点が多いが、例えば紀伊山地では最近数十年の侵食速度は 0.2~0.5 mm/year と決して速くはない。このような山地が動的平衡状態に達するには、日本アルプスや飯豊・朝日山地よりも長い時間が必要である。このことは、外帯山地の形成時期や形成メカニズムが、第四紀に隆起した西南日本内帯の断層地塊とは全く異なることを示唆している。

(4) 主な成果と課題

本研究により、数十年～数億年に及ぶ様々な時間スケールの侵食速度データ、具体的にはダムの堆砂速度、TCN 法、熱年代法に基づいて算出された侵食速度データを利用することで、侵食速度の時間変化について定量的に把握することが可能であるとの見通しを得た。しかし、侵食速度の時間変化過程やその特徴をより詳細に検討するためには、侵食速度データの時間ギャップとなっている数万年～数十万年の時間スケールを埋め、侵食史の時間分解能を向上させることが望ましい。従来、数万年～数十万年の時間スケールの侵食速度を定量的に把握するための手法は確立されていなかったが、最近になり OSL 熱年代法を用いることで、この時間スケールの侵食速度を算出することが可能となった(例えば、Herman *et al.*, 2010²¹⁾)。そのため、今後の課題としては、OSL 熱年代法を用いた数万年～数十万年の侵食速度データの拡充が挙げられる。

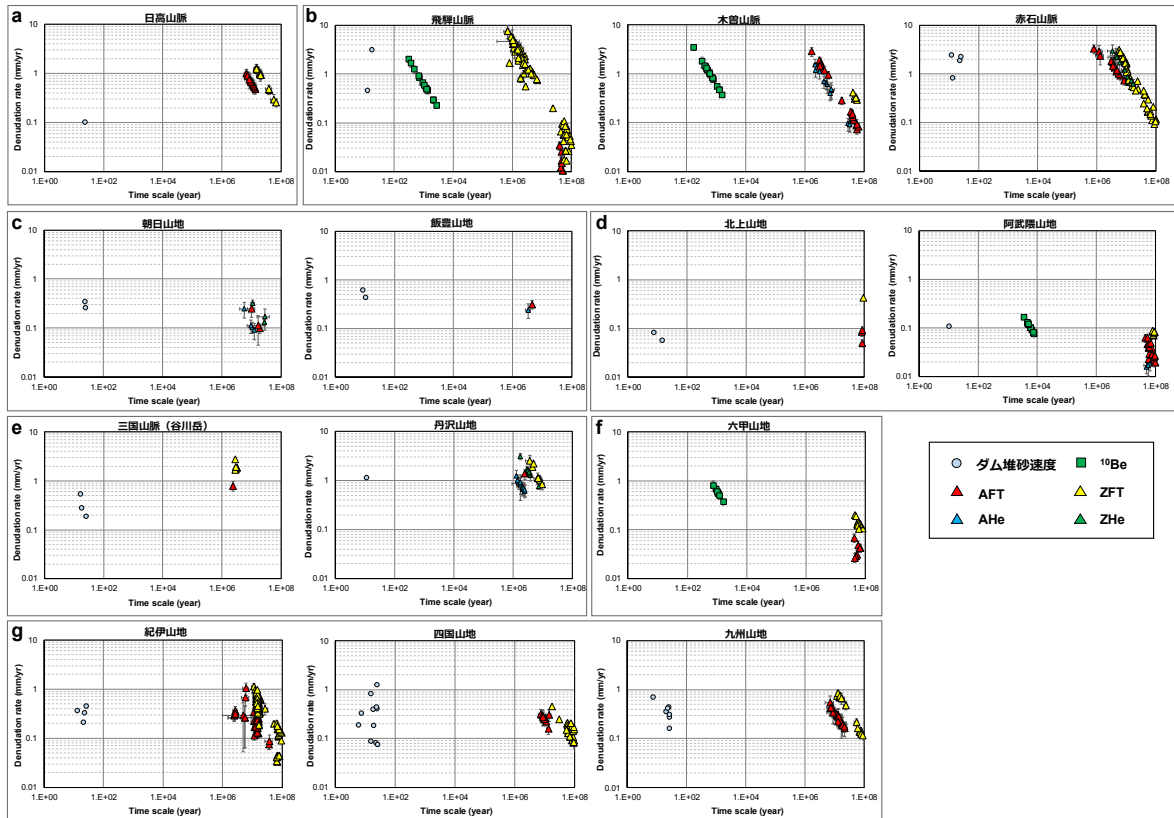


図 3.2.2-1 マルチタイムスケールでみた山地の侵食速度

TCN 法に基づく侵食速度については、 ^{10}Be 法により算出された値をプロットした。熱年代法に基づく侵食速度については、Apatite Fission Track (AFT) 法, Zircon Fission Track (ZFT) 法, Apatite (U-Th)/He (AHe) 法, Zircon (U-Th)/He (ZHe) 法により算出された値をプロットした。

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) Schaller, M., Hovius, N., Willett, S.D., Ivy-Ochs, S., Synal, H.-A., Chen, M.-C., Fluvial bedrock incision in the active mountain belt of Taiwan from in situ-produced cosmogenic nuclides, Earth Surface Processes and Landforms, vol.30, no.8, 2005, pp.955-971.
- 3) Cyr, A.J., Granger, D.E., Dynamic equilibrium among erosion, river incision, and coastal uplift in the northern and central Apennines, Italy, Geology, vol.36, no.2, 2008, pp.103-106.
- 4) Marshall, J.A., Roering, J.J., Gavin, D.G., Granger, D.E., Late Quaternary climatic controls on erosion rates and geomorphic processes in western Oregon, USA, Geological Society of America Bulletin, vol.129, no.5-6, 2017, pp.715-731.

- 5) 藤原 治, 三箇智二, 大森博雄, 日本列島における侵食速度の分布, サイクル機構技報, vol.5, 1999, pp.85-93.
- 6) 長谷川浩一, 若松加寿江, 松岡昌志, ダム堆砂データに基づく日本全国の潜在的侵食速度分布, 自然災害科学, vol.24, no.3, 2005, pp.287-301.
- 7) 末岡 茂, 堤 浩之, 田上高広, 低温領域の熱年代学の発展と日本の山地の隆起・削剥史研究への応用, 地球科学, vol.69, no.1, 2015, pp.47-70.
- 8) Korup, O., Hayakawa, Y., Codilean, A.T., Matsushi, Y., Saito H., Oguchi, T. and Matsuzaki, H., Japan's sediment flux to the Pacific Ocean revisited, *Earth-Science Reviews*, vol.135, 2014, pp.1-16.
- 9) Sueoka, S., Tagami, T. and Kohn, B.P., First report of (U-Th)/He thermochronometric data across Northeast Japan Arc: implications for the long-term inelastic deformation, *Earth, Planets and Space*, vol.69, no.79, 2017, doi:10.1186/s40623-017-0661-z.
- 10) 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, 2019, 200p, https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2018/30fy_choukian_teisei.pdf (参照:2020年9月1日).
- 11) Sueoka, S., Tagami, T., Low-temperature thermochronological database of bedrock in the Japanese Islands, *Island Arc*, vol.28, e12305, 2019, oi:10.1111/iar.12305.
- 12) 米倉伸之, 貝塚爽平, 野上道男, 鎮西清高編, 日本の地形 1 総説, 東京大学出版会, 2001, 376p.
- 13) 在田一則, 鷹澤好博, 板谷徹丸, 日高山脈のテクトニクスと上昇過程－熱放射年代学からの検討, 東京大学地震研究所彙報, vol.76, 2001, pp.93-104.
- 14) Ohmori, H., Relief structure of the Japanese mountains and their stages in geomorphic development, *Bulletin of the Department of Geography, University of Tokyo*, vol.10, 1978, pp.31-85.
- 15) Fukuda, S., Sueoka, S., Hasebe, N., Tamura, A., Arai, S. and Tagami, T., Thermal history analysis of granitic rocks in an arc-trench system based on apatite fission-track thermochronology: A case study of the Northeast Japan Arc, *Journal of Asian Earth Sciences: X*, vol.1, 100005, 2019, <https://doi.org/10.1016/j.jaesx.2019.100005>.
- 16) Nakamura, Y., Base levels of erosion in the central part of the Kitakami Mountainland, *Science Reports of the Tohoku University, 7th series, Geography*, vol.12, pp.85-110, 1963.
- 17) 木村和雄, 阿武隈高地北部の侵食小起伏面と後期新生代地形発達史, 季刊地理学, vol.46, no.1, 1994, pp.1-18.
- 18) 佐藤興平, 谷川岳花崗岩体の年代とフォッサマグナ地域における新第三紀の珪長質火成活動, 群馬県立自然史博物館研究報告, vol.20, 2016, pp.85-104.
- 19) Tani, K., Dunkley, D.J., Kimura, J., Wysoczanski, R.J., Yamada, K. and Tatsumi, Y., Syncollisional rapid granitic magma formation in an arc-arc collision zone: Evidence from the Tanzawa plutonic complex, Japan, *Geology*, vol.38, no.3, 2010, pp.215-218.

- 20) 藤田和夫, 日本の山地形成論—地質学と地形学の間—, 蒼樹書房, 1983, 466p.
- 21) Herman, F., Rhodes, E.J., Braun, L. and Heiniger, L., Uniform erosion rates and relief amplitude during glacial cycles in the Southern Alps of New Zealand as revealed from OSL-thermochronometry, *Earth and Planetary Science Letters*, vol.297, no.1-2, 2010, pp.183-189.

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

地層処分における地質環境の将来予測は、着目する自然現象について過去の履歴を解読し、その変動の傾向を将来へ外挿することが基本となる。そのためには、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く、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 , 半減期:約 44 億 6,800 万年)及びウラン-235 (^{235}U , 半減期:約 7 億 380 万年)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 , 半減期:約 245,500 年)とトリウム-230 (^{230}Th , 半減期:約 75,380 年)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 10 万年前後の断層の活動性の評価や過去の地下水の流動経路の変遷を把握するために有効な、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質量分析装置(LA-ICP 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。

東濃地科学センター土岐地球年代学研究所では、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。この年代測定技術を用いて、地質環境の長期安定性に係る研究として山地の隆起量・侵食量評価のための年代測定を実施している(原子力機構, 2019¹⁾; 2020²⁾)。さらに、平成 29 年度及び平成 30 年度には、炭酸塩鉱物の U-Pb 年代測定技術の開発を進めるため、分析値の較正に必要不可欠な標準試料の選定と開発(合成)を行った。さらに、整備した分析技術の精度評価及び妥当性評価を目的として、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(Yokoyama *et al.*, 2018³⁾; 石丸ほか, 2019⁴⁾)。その結果、数種類の示準化石(ウミツボミ(*Pentremites*): 推定年代範囲 約 339~318 Ma, Galloway and Kaska, 1957⁵⁾; Fabian, 1987⁶⁾; Fossilworks, 2018⁷⁾, 六方サンゴ(*Placosmia vidali*): 推定年代範囲 約 86~85 Ma, Pomar *et al.*, 2005⁸⁾, 大型有孔虫(貨幣石)(*Nummulites boninensis*): 推定年代範囲 約 44~40 Ma, Kaneoka, 1970⁹⁾; 海野ほか, 2009¹⁰⁾; Ishizuka *et al.*, 2006¹¹⁾)の LA-ICP 質量分析法で得られた年代値と化石試料の生息年代は良い一致を示し、炭酸塩鉱物の U-Pb 年代測定が可能であることを示した。一方で、LA-ICP 質量分析法による炭酸塩鉱物の年代測定に必要不可欠とされる標準試料の選定や開発(合成)に関しては、唯一 WC-1 (Roberts *et al.*, 2017¹²⁾) が選定・評価されるに留まり、年代測定に係る分析精度の向上において課題となっている。

(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年代測定に係る分析技術の構築は、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、LA-ICP 質量分析法による U-Pb 年代測定は、世界的にも技術の開発・整備の動向がみられ(例えば, Li *et al.*, 2014¹³); Coogan *et al.*, 2016¹⁴); Roberts and Walker, 2016¹⁵)等), これまでの応用例や今後の分析技術の課題及び動向は Roberts *et al.* (2020)¹⁶)にまとめられている。LA-ICP 質量分析法による 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。その一方で、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、年代測定の精度に課題があった。Roberts *et al.* (2017)¹²)により標準試料: WC-1 (米国南西部 Delaware 盆地・アリゾナ州 Walnut Canyon の上部ペルム系・炭酸塩岩脈から採取; U-Pb 年代=254.4 \pm 0.8 Ma)が報告され、炭酸塩鉱物の U-Pb 年代測定技術の整備が進みつつある。しかしながら、より高精度で年代測定を行うためには、分析値の較正に用いる標準試料として、元素及び同位体(ここでは特に U/Pb の元素比と Pb 同位体比)について均質性の高いものあるいは年代値が判明しているものが複数あることが望ましい。

(3) 実施内容・結果

令和元年度は、LA-ICP 質量分析法による炭酸塩鉱物の U-Pb 年代測定の精度向上を目指して開発(合成)された、合成標準試料の評価を行った。本研究で評価した合成標準試料は、U と Pb 濃度及び Pb 同位体組成が均質な炭酸カルシウム(カルサイト)試料の合成を目的として作製されたものである(斉藤ほか, 2017¹⁷); 宮嶋ほか, 2018¹⁸)。炭酸カルシウムを液相から生成(沈殿)させる場合、元素の挙動は固相-液相間の元素分配に従う。例えば、海成炭酸塩鉱物の微量元素の分配係数と平衡濃度 (Veizer, 1983¹⁹)を参照し、海成の炭酸カルシウムに含有される U 濃度を見積もると < 0.1 ppm 程度である。このため、人工的に合成試料を作製する場合、沈殿させる母液の U や Pb の濃度をコントロールしても、実際に炭酸カルシウムに含まれるそれぞれの元素濃度は、分配係数に支配され、任意量の元素を含有させることが難しく、固相-液相間での同位体の分別も生じ得る。斉藤ほか(2017)¹⁷)では、元素を添加した母液から非晶質炭酸カルシウム(ACC)を沈殿させ、それを加圧または加熱し結晶化させる手法(以下、「ACC 法」)(Matsunuma *et al.*, 2014²⁰)によってカルサイトを合成し、Sr 等の不適合元素をカルサイト中に取り込ませている(図 3.3.1-1)。天然に存在するカルサイトは、母液(ここでは、海水や地下水及び熱水等を指す)中の元素濃度等、成長した環境により含有される U や Pb の量に幅がある。そのため、合成試料中の元素濃度をコントロールできる ACC 法を用いた標準試料の合成は、U-Pb 年代測定の高精度化に有効である。本研究では、ACC 法によって作製された合成標準試料の有効性を評価するため、試料中の U, Pb 濃度及び同位体組成について均質性の評価を行った。また、最も有効性の高いと判断したものをを用いて、年代既知の炭酸塩(カルサイト)標準試料である WC-1 の年代測定を実施した。

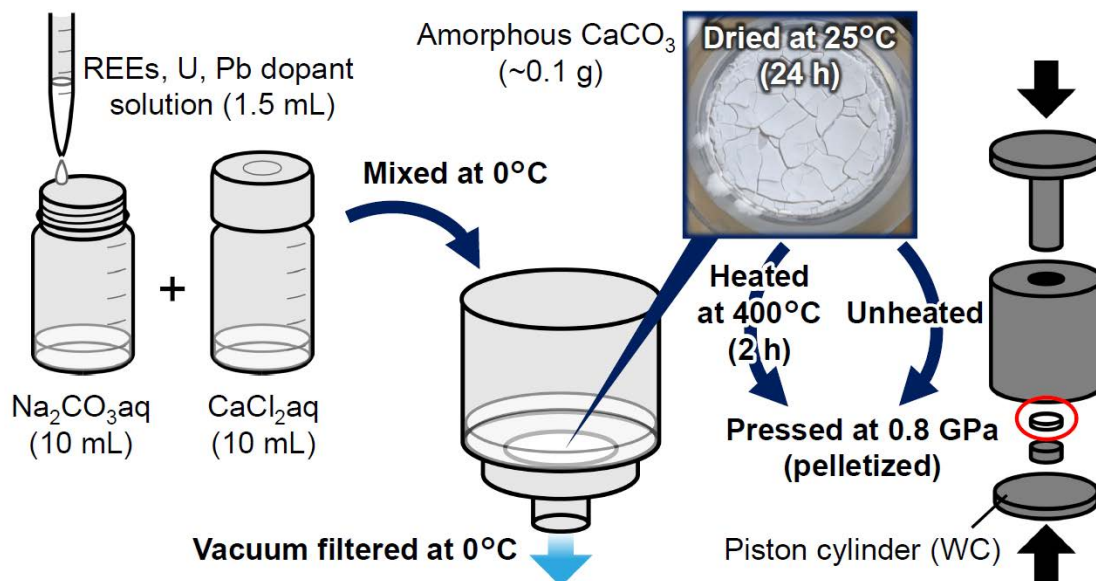


図 3.3.1-1 ACC 法によるカルサイトの合成 (図:宮嶋佑典 博士より提供)

本研究で評価した試料は、U を 25 ppm, Pb を 2 ppm 添加し加熱結晶化したペレット試料(Higher 1)と非加熱の加圧結晶化したペレット試料(Higher 2), 及び U を 2 ppm, Pb を 0.2 ppm 添加し加熱結晶化したペレット試料(Lower 1)と非加熱の加圧結晶化したペレット試料(Lower 2)の 4 種の試料である(表 3.3.1-1)。添加した標準液は SPEX 社で調製されたもの(XSTC-3375)を使用した。これらの試作したペレット試料は、カルサイトの LA-ICP 質量分析での U/Pb 比及び Pb 同位体組成の測定時に使用する標準試料とするため、その母液である SPEX 社の標準溶液中には、Pb 同位体標準試料である NIST SRM981 が添加されている。ペレット試料は、いずれも東京大学(現所属 産業技術総合研究所) 宮嶋佑典 博士によって作製され、試料の均質性及び有効性の評価のために一時的に提供いただいたものである。

表 3.3.1-2 に LA-ICP 質量分析の分析条件を示す。LA 装置には Photon-Machines 社製のエキシマレーザー装置 Analyte G2, 及び ICP 質量分析装置には Thermo Scientific 社製 Neptune-Plus を用いた。均質性の評価のため、試料の上下・左右方向におよそ 400 μm ステップで十字状にそれぞれ 10 点ずつ各試料計 20 点の分析を行った。

表 3.3.1-1 均質性評価を行った試料

合成法	加熱結晶化		非加熱加圧結晶化	
ペレット名	Higher 1	Lower 1	Higher 2	Lower 2
加えた元素				
U (μg/g)	25	2	25	2
Pb (μg/g)	2	0.2	2	0.2

表 3.3.1-2 LA-ICP 質量分析の条件

Laser ablation system	
Instrument Model	Analyte G2 ATL Excimer laser (Photon-machines Inc., Redmond, WA, U. S. A)
Laser type	Excimer 193 nm
Energy density	4.6 J cm ⁻²
Crater size	110 μm circle (Lower 1, Lower 2) 65 μm circle (Higher 1, Higher 2) 65 μm circle (WC-1)
Repetition rate	3 Hz (60 shots)
Carrier gas	He
He gas flow rate	1.0 l/min
ICP-MS	
Instrument Model	Neptune-Plus (Thermo Fisher Scientific Inc., Bremen, Germany)
Forward power	1600 W
Carrier gas	Ar
Ar gas flow rate	~1.0 l/min
Scanning mode	Multi-collector Static
Data acquisition protocol	Time resolved analysis
Integration time	0.066s×700 ratios
Monitor isotopes	²⁰² Hg (CDD), ²⁰⁴ Pb (CDD), ²⁰⁶ Pb (SEM), ²⁰⁷ Pb (SEM), ²⁰⁸ Pb (SEM), ²³² Th (CDD), ²³⁸ U (CDD) CDD: Compact Discrete Dynode, SEM: Secondary Electron Multiplier
Primary standard	NIST SRM614

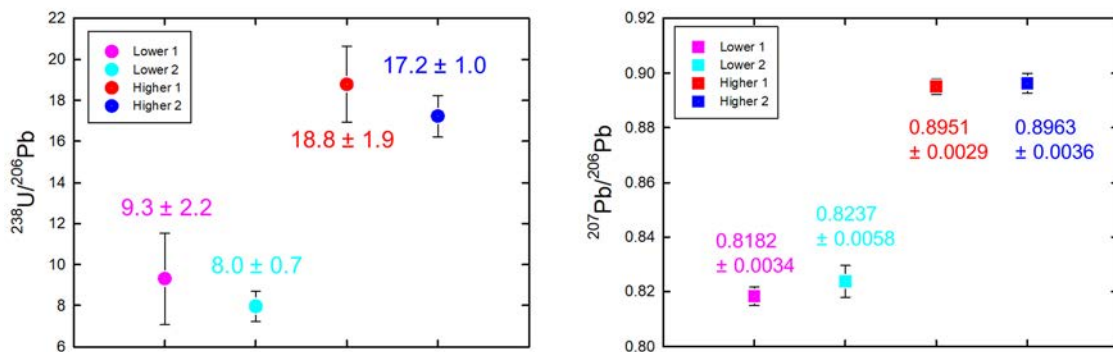


図 3.3.1-2 合成カルサイトの分析結果
左図:²³⁸U/²⁰⁶Pb 比(元素比); 右図:²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pb 比(Pb 同位体比)

分析の結果(図 3.3.1-2), Higher 2 の元素比(U/Pb 比)及び Pb 同位体組成が最も均質であり, 有効性が高いと判断された。そこで, Higher 2 を標準試料として WC-1 を分析したところ, 243.4 ± 5.1 Ma の年代値が得られ(図 3.3.1-3), U-Pb 年代の既報値 254.4 ± 0.8 Ma (Roberts *et al.*, 2017¹²⁾)と比較すると, 中央値として 5 %ほど若い年代となっている。今回, 校正に用いた Higher 2 の U/Pb 比は合成時の標準液の添加から見積もられる計算値を用いており, 湿式分析等で精確に値付けされたものではないため, WC-1 の分析から得られた年代値が既報値からずれた可能性がある。

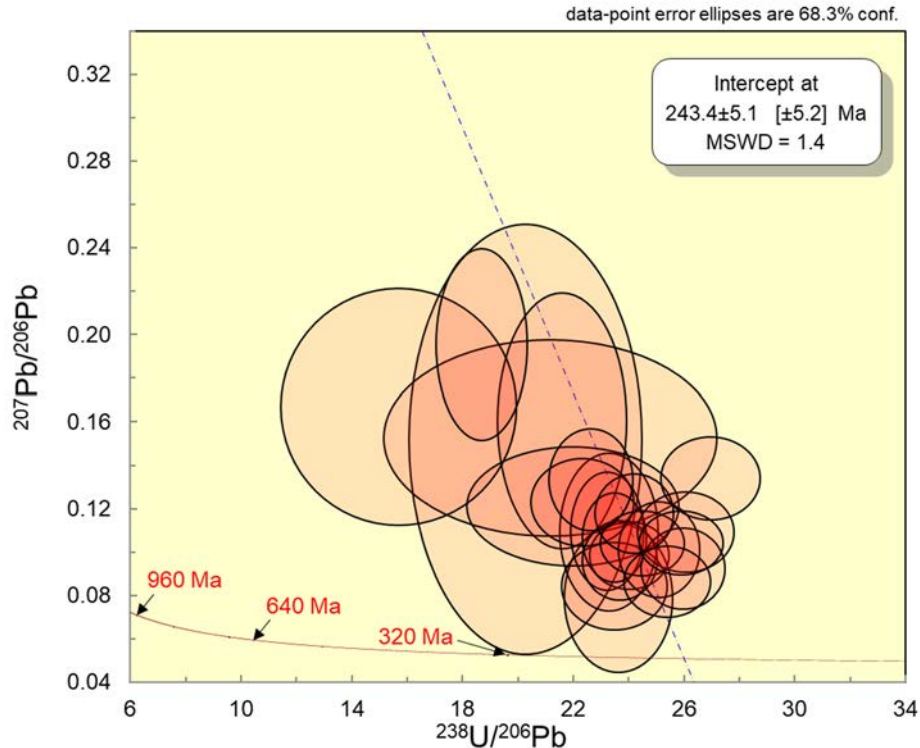


図 3.3.1-3 Higher 2 を標準試料とした WC-1 の U-Pb 年代測定結果

(4) 主な成果と課題

令和元年度は, 炭酸塩鉱物の年代測定技術の高度化を目指し, 人工合成されたカルサイト標準試料の評価を行った。ACC 法により, 任意量の U 及び Pb を含有させた合成カルサイトは, 今回分析した 4 種の試料の中では, 非加熱加圧結晶化されたペレット(Higher 2)の元素及び Pb 同位体組成の均質性が最も高いことがわかった。これを U/Pb 比, 及び Pb 同位体比のブラケット補正に用いる一次標準試料として, カルサイトの年代標準試料である WC-1 を分析したところ, 既報値より 5 %程度若い年代値が得られた。作製されたペレットの元素比と同位体組成について精確な値付けができれば, 有効な標準試料となる可能性がある。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。

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, 2019, 200p, https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2018/30fy_choukianteisei.pdf (参照:2020 年 9 月 1 日).
- 2) 日本原子力研究開発機構, 電力中央研究所, 平成 31 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, 2020, 251p, https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2019/31fy_choukianteisei.pdf (参照:2020 年 9 月 1 日).
- 3) Yokoyama, T., Kimura, J.-I., Mitsuguchi, T., Danhara, T., Hirata, T., Sakata, S., Hideki, I., Maruyama, S., Chang Q., Miyazaki, T., Murakami, H. and 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.
- 4) 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, 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), JAEA-Research 2019-006, 2019, 66p.
- 5) Galloway, J. J., Kaska, H.V., Genus *Pentremites* and its species, *Geological Society of America Memoirs*, vol.69, 1957, pp.1-114.
- 6) Fabian, R., 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.113-132.
- 7) 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 (accessed 2019.06.15).
- 8) 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.
- 9) Kaneoka, I., Isshiki, N., Zashu, S., K-Ar ages of the Izu-Bonin Islands, *Geochemical Journal*, vol.4, no.2, 1970, pp.53-60.
- 10) 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.
- 11) Ishizuka, O., Kimura, J.-I., Li, Y.B., Stern, R.J., Reagan, M., Taylor, R.N., Ohara, Y., Bloomer, S.H., Ishii, T., Hargrove, 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.
- 12) Roberts, N.M.W., Rasbury, E.T., Parrish, R.R., Smith, C.J., Horstwood, M.S.A. and 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.
- 13) Li, Q., Parrish, R. R., Horstwood, M. S. A., McArthur, J. M., U-Pb dating of cements in Mesozoic ammonites, *Chemical Geology*, vol.376, 2014, pp.76-83.
 - 14) Coogan, L. A., Parrish, R. R., Roberts, N. M., Early hydrothermal carbon uptake by the upper oceanic crust: Insight from in situ U-Pb dating, *Geology*, vol.44, no.2, 2016, pp.147-150.
 - 15) Roberts, N. M. W. and 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.
 - 16) Roberts, N. M. W., Drost, K., Horstwood, M. S. A., Condon, D. J., Condon, D. J., Chew, D., Drake, H., Milodowski, A. E., McLean, N. M., Smye, A. J., Walker, R. J., Haslam, R., Hodson, K., Imber, J., Beaudoin, N., Lee, J. K., Laser ablation inductively coupled plasma mass spectrometry (LA-ICP-MS) U-Pb carbonate geochronology: strategies, progress, and limitations, *Geochronology*, vol.2, 2020, pp.33-61.
 - 17) 齊藤綾花, 鍵 裕之, 田中佑樹, 平田岳史, U-Pb 年代測定法に用いるカルサイト標準試料の合成, 2017 年度日本地球化学会第 64 回年会講演要旨集, 2017, #3B08, https://doi.org/10.14862/geochemproc.64.0_209.
 - 18) 宮嶋佑典, 齊藤綾花, 鍵 裕之, 横山立憲, 平田岳史, 炭酸塩 U-Pb 年代測定に向けたカルサイト標準物質の合成と均質性評価, 2018 年度日本地球化学会第 65 回年会講演要旨集, 2018, #1B12, https://doi.org/10.14862/geochemproc.65.0_28.
 - 19) Veizer, J., Chemical Diagenesis of carbonates: theory and application of trace element technique, *Stable isotopes in Sedimentary Geology. S.E.P.M. Short Course*, vol.10, 1983, pp.3-1-3-100.
 - 20) Matsunuma S., Kagi H., Komatsu K., Maruyama K., Yoshino T., Doping incompatible elements into calcite through amorphous calcium carbonate, *Crystal Growth & Design*, vol.14, no.11, 2014, pp.5344-5348.

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熱や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高温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土岐地球年代学研究所では、段丘堆積物の供給源の判別及び堆積年代の推定等を行うため、OSL 年代測定技術の開発を進めている(石丸ほか, 2019²⁾)。

近年、OSL 年代測定法の応用として、試料の熱履歴を推定する OSL 熱年代法が提唱されている(Herman *et al.*, 2010³⁾)。この手法は、鉱物中のトラップ電子の蓄積速度が周囲の温度によって変化する性質に基づいており、フィッション・トラック(FT)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(Herman *et al.*, 2010³⁾; King *et al.*, 2016⁴⁾; Herman and King, 2018⁵⁾; Ault *et al.*, 2019⁶⁾)。したがって、一般的な地温構造を仮定すると、数百メートルの侵食に要した期間を対象とした侵食速度の評価に利用できる。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(加熱を受けた鉱物が比較的短時間で地表に到達した)地域に制限されている。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⁾)。一方、Guralnik *et al.* (2015)⁷⁾はドイツで掘削された大深度ボーリングコア(KTB borehole; Hirschmann *et al.*, 1997⁸⁾)の深度 0.1~2.3 km の試料を対象に長石の OSL 熱年代法を適用し、深部で加熱を受けてからの時間を反映して地表から約 1 km まではルミネッセンス信号は飽和するが、それ以深からルミネッセンス信号強度が減少することを報告した。これより、大深度ボーリングコアを利用し、ルミネッセンス信号が未飽和の部分を抽出することで、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、十万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、大深度ボーリングコアの試料 3 点に OSL 熱年代法を適用し、過去約 20 万年間の冷却史を推定することに成功した。これにより、侵食速度が遅い地域に対する本手法の有効性を示した。しかし、熱履歴解析は一通りの解析条件のみで行ったため、解析条件の違いに起因する熱履歴の不確実性が検証されていないという課題が残されていた。令和元年度は、同じボーリングコアの試料 3 点で追加の OSL 熱年代測定を行うとともに、熱履歴モデリングのパラメータスタディを行うことで解析条件の影響を確認し、侵食速度が遅い地域に対する OSL 熱年代法の適用性のさらなる確認を行った。

(2) 当該分野に係る科学的・技術的背景

OSL 熱年代法が使用されるようになった当初は石英 OSL を利用していたが、年代測定の上限が数万年程度であることや、基盤から抽出された石英のシグナルは不安定なものが多いことから(King *et al.*, 2016⁴⁾; Herman and King, 2018⁵⁾; 塚本, 2018¹⁾)、近年では長石の赤外光ルミネッセンス(infrared stimulated luminescence: IRSL)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 熱年代と称される。長石 IRSL の利点として、石英 OSL よりもルミネッセンス感度や年代測定の上限が高い(おおよそ 25~50 万年: 塚本, 2018¹⁾)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(以下、「フェーディング」; Wintle, 1973⁹⁾)の考慮が必要にな

り、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 (Herman and King, 2018⁵⁾):

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

$d\tilde{n}/dt$ は鉱物内のトラップ電子蓄積率 (\tilde{n}) の増加速度を表す。Trapping は放射線による電子のトラップ速度, thermal detrapping は試料周囲の温度による熱的脱トラップ速度, athermal detrapping はフェーディング現象による非熱的脱トラップ速度である。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⁾):

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

\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 は絶対温度 (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 (無次元), r' はトラップと再結合センターの距離 (無次元) である。これらのうち \tilde{n} と T 以外は時間 t に関して定数とみなせるため、ルミネッセンス測定でこれらの物理パラメータを実験的に決定することで、トラップ電子の蓄積速度及び熱履歴が推定できる。

近年では、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、段階的に測定温度を上げて、連続して IRSL を測定する multiple elevated temperature (MET) 測定プロトコル (Li and Li, 2011¹⁰⁾) を利用している。測定温度によって IRSL の熱安定性は異なるため、MET 法を用いることで、1 試料から閉鎖温度が異なる複数の IRSL 信号が測定できる。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

本研究では、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, 2005¹¹⁾) を対象に OSL 熱年代法を適用した。アパタイト FT 法で推定された約 40 Ma 以降の侵食速度 (< 0.16 mm/year; Yuguchi *et al.*, 2017¹²⁾) や、河成段丘の分布高度から求められた MIS 6 から MIS 2 の隆起速度 (0.11~0.16 mm/year; 田力ほか, 2011¹³⁾) から、東濃地域の十万年スケールの侵食速度は 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, 2010¹⁴⁾)。その総掘削長は 1,300 mabh (meter along borehole) であり、OSL 熱年代用試料は 159 (MIZ-1-1), 449 (MIZ-1-3), 751 (MIZ-1-5), 1,043 (MIZ-1-8), 1,198 (MIZ-1-9) 及び 1,287 mabh (MIZ-1-10) 地点から採取し、そのうち MIZ-1-1, -3, -5 の 3 試料は、平成 30 年度に OSL 熱年代測定を実施済みである。令和元年度は、残りの 3 試料 (MIZ-1-8, -9, -10) の OSL 熱年代測定を実施した。

OSL 測定用のカリ長石を抽出するため、以下の手順で試料を処理した。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。まず、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出した。露光部分は年間線量率を算出するため、放射性元素濃度測定に利用した。切り出した OSL 測定用試料を乳鉢と乳棒で粉碎し、篩を用いて粒径を 180~250 μm に選別した。その後、10% 塩酸で炭酸塩、35% 過酸化水素水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 未満のフラグションを抽出した。最後に、ネオジム磁石で磁性鉱物を分

離し、カリ長石を抽出した。

OSL の測定には、スイス・ローザンヌ大学所有の β 線源 ($^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}:2.96 \text{ GBq}:0.226 \text{ Gy/s}$) を搭載した TL/OSL reader (Risø 製 TL/OSL-DA-20; Bøtter-Jensen *et al.*, 2010¹⁵) を利用した。加熱率は $5 \text{ }^\circ\text{C/s}$ 、測定温度は 50, 100, 150 及び $225 \text{ }^\circ\text{C}$ に設定した。 $200 \text{ }^\circ\text{C}$ 以上の測定は窒素雰囲気下で、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。

熱履歴解析の条件設定が冷却史に及ぼす影響を評価するため、パラメータスタディとして 3 通りのモデリング条件について解析を行った。モデリング範囲における年代と温度の上限として、 0.5 Ma と $150 \text{ }^\circ\text{C}$ (Set A)、 1.0 Ma と $90 \text{ }^\circ\text{C}$ (Set B) 及び 2.0 Ma と $60 \text{ }^\circ\text{C}$ (Set C) を設定した。Set A は Multi-OSL 熱年代法を開発した King *et al.* (2016)⁴) に倣った。Set B と Set C は土岐花崗岩体のアパタイト FT 年代 (閉鎖温度: $90 \sim 120 \text{ }^\circ\text{C}$, partial annealing zone: $60 \sim 130 \text{ }^\circ\text{C}$) が $52.1 \pm 2.8 \sim 37.1 \pm 3.6 \text{ Ma}$ (Yuguchi *et al.*, 2017¹²) であることを考慮し、Set A よりも温度の上限を低くした。また、温度の幅が狭くなることによる恣意的な熱履歴の制約を防ぐため年代幅を広く (温度の上限を古く) した。 0 Ma における温度は各試料の採取深度における孔内温度とした (魚住ほか, 2005¹¹)。

OSL 熱年代解析の結果を図 3.3.2-1 に示す。図の色相は、パスの確率密度 (PDF: probability density function) を表し、暖色系ほど高確率を表す。赤線はその時間におけるパスの分布の中央値、緑線が $\pm 60 \%$ 信頼区間、黒線が $\pm 90 \%$ 信頼区間の範囲を示す。パスの中央値 (赤線) とパスの確率密度分布の高い部分 (色相が暖色系の部分) が重なっている箇所が、熱履歴の信頼性の高い領域を表す。

全解析結果の過去 20 万年の範囲において、暖色系の確率密度は現在の温度 (孔内温度) 付近に分布し、全パスの中央値も暖色系の確率密度分布と一致した。すなわち、multi-OSL 熱年代法の適用範囲である 20 万年前以降の熱履歴には、モデリング条件の設定の差異による影響は確認できなかった。したがって、過去 10～20 万年間にわたって温度がほとんど変化していないという解析結果は信頼性が高いと考えられる。推定された熱履歴は、本地域で報告されている過去 10 万年スケールの隆起速度 (田力ほか, 2011¹³) や千万年スケールの侵食速度 (Yuguchi *et al.*, 2017¹²) が 0.1 mm/year 程度またはそれ以下であることも矛盾しない。

一方、20 万年前以前の熱履歴を比較すると、MIZ-1-9 は他の試料と比べて暖色系の確率密度分布がより古い時代まで延長せず、全パスの中央値も 20 万年前後で急冷傾向を示すという違いが見られた。Multi-OSL 熱年代法の適用年代範囲外ではあるが、MIZ-1-9 と他試料との明らかな差異は、熱水活動や断層運動に関連する局所的な再加熱を反映している可能性が考えられる。今後、飽和線量・物理パラメータの他試料との比較や局所的な再加熱イベント等を考慮し、より詳細な検討を行う予定である。

(4) 主な成果と課題

本研究によって、侵食速度が遅い地域に対する大深度ボーリングコアを利用した OSL 熱年代法の適用性を確認できた。本手法は、既存の手法では推定が困難な、数十万年までの低温領域の熱履歴及び侵食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・モデリング結果の解析法を整備・高度化する。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。

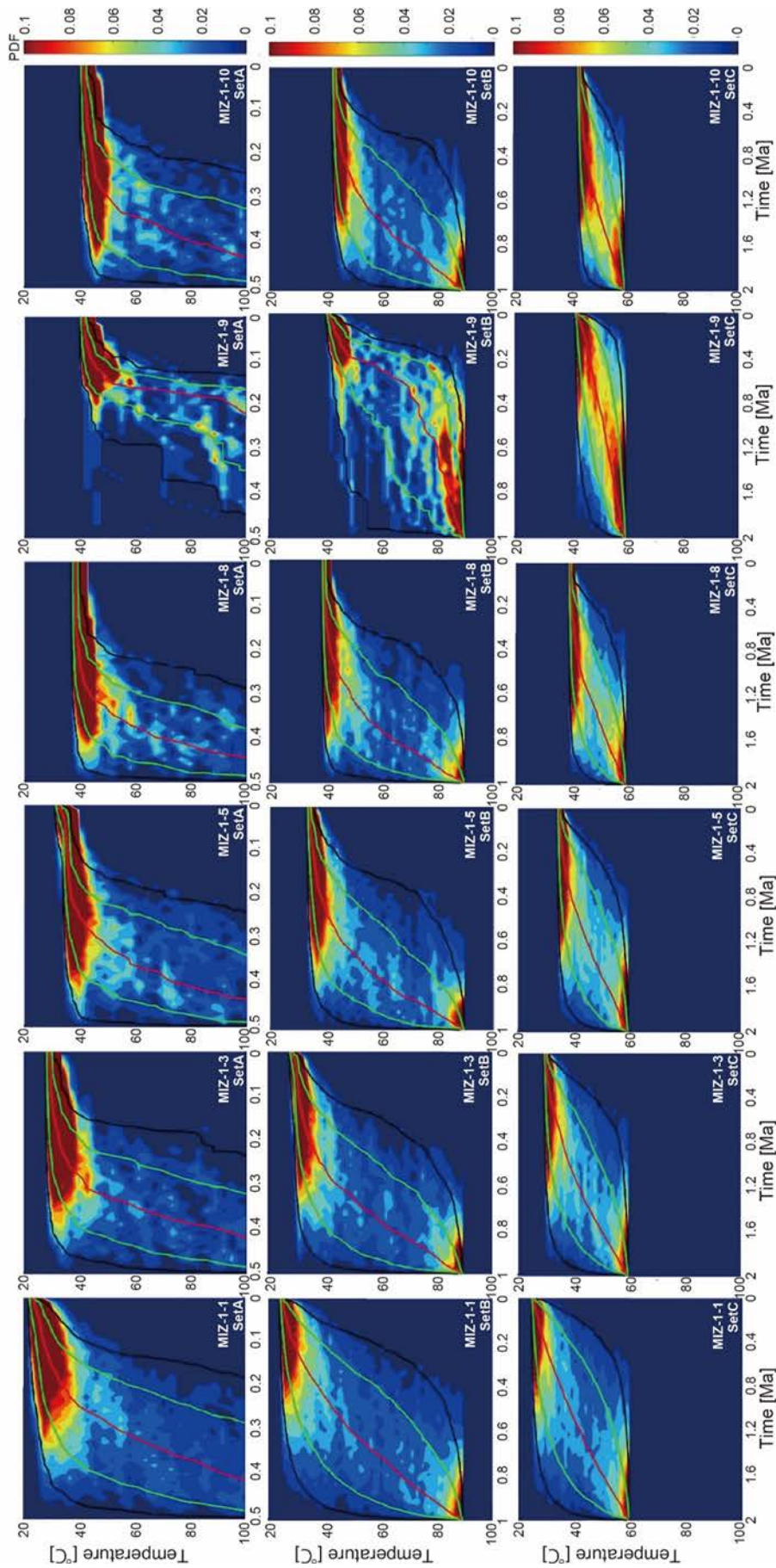


図 3.3.2-1 各モデリング条件における熱履歴

各試料に対して、年代の始点と温度の始点を 0.5 Ma と 150 °C (Set A)、1.0 Ma と 90 °C (Set B) 及び 2.0 Ma と 60 °C (Set C) の場合を示す。
 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) Ault, A.X., Gautheron, C. and King, G.E., Innovations in (U-Th)/He, fission track, and trapped charge thermochronometry with applications to earthquakes, weathering, surface-mantle connections, and the growth and decay of mountains, Tectonics, vol.38, no.11, 2019, pp.3705-3739.
- 7) Guralnik, B., Jain, M., Herman, F., Ankjærgaard, C., Murray, A.S., Valla, P.G., Preusser, F., King, G.E., Chen, R., Lowick, S.E., Kook, M. and Rhodes, E.J., OSL-thermochronometry of feldspar from the KTB borehole, Germany, Earth and Planetary Science Letters, vol.423, 2015, pp.232-243.
- 8) Hirschmann, G., Duyster, J., Harms, U., Kontny, A., Lapp, M., De Wall, H. and Zulauf, G., The KTB superdeep borehole: petrography and structure of a 9-km-deep crustal section, Geologische Rundschau, vol.86, 1997, pp. S3-S14.
- 9) Wintle, A.G., Anomalous fading of thermoluminescence in mineral samples, Nature, vol.245, no.5421, 1973, pp.143-144.
- 10) 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.
- 11) 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), JNC TJ7440 2005-091, 2005, 1883p.
- 12) 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.
- 13) 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 Series A, vol.84, no.2, 2011, pp.118-130.

- 14) 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.
- 15) 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, ヨウ素-129 (^{129}I) 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土岐地球年代学研究所では, 過去数十万年間を対象とした年代測定の重要性が増すことを想定し, 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装置(JAEA-AMS-TONO-5MV^{注3)})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⁾, 2010⁴⁾等)に利用されている。このほか, 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変遷を評価するために利用可能であり, 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, 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 年代測定法の開発に並行して, ^{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, 当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～平成29年度は平成27年度に実用化した ^{26}Al 年代測定法の高度化のための検討及び ^{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。さらに, 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い実用化の目処を得ることができた(石丸ほか, 2019¹⁸⁾)。令和元年度は ^{26}Al 年代測定法及び ^{129}I 年代測定法に対して試料調製法の改良, バックグラウンドの低減及びビームの安定化等の高度化を図るとともに, ^{36}Cl 年代測定法実用化に向けた検討を行った。

注3) 旧称 ペレトロン年代測定装置

(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～数千万年前及び数千～数百万年前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, 2007¹⁹); Matsuzaki *et al.*, 2007²⁰) 及び筑波大学 (笹ほか, 2015²¹) 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

^{36}Cl 年代測定法の実用化に向けた研究開発として、平成 27 年度以降、検出器でのイオンビームの観測や装置構成の仕様の検討を実施してきた。具体的には、ビーム調整試験用試料の準備及び試験的なビーム調整として、 ^{36}Cl の同重体である硫黄-36 (^{36}S) を、重イオン検出器に入射させ、そのスペクトルを観測した。令和元年度は、カソードへの測定試料充填条件の検討及び装置設定条件の検討として、重イオン検出器での ^{36}Cl の検出位置の確認を行った。

近年の情報収集により、測定試料となる塩化銀は、充填 (以下、「プレス」) するアルミニウム製カソードと反応性が高いことや、遮光性のある部屋においてカソードへのプレスを行わないと潮解することがわかった。このため、カソードの材質を、 ^{129}I 年代測定等で使用している銅とし、またプレス時に遮光性を高めた場合の試料プレスについて検討した。試料は市販の塩化銀に加え、硫化銀も用いた。これは ^{36}Cl の同重体である ^{36}S を ^{36}Cl の代わりに検出し、重イオン検出器の調整検討に用いるためである。これらを 2 個ずつ銅カソードにプレス後、放置して経過観察を行った。また、プレスは簡易的に遮光した室内で行った。その結果、その状態であれば塩化銀及び硫化銀は 1 週間放置しても潮解せず維持されることがわかり、上記の条件で今後プレスすることとした。

ビーム調整は、重イオン検出器における ^{36}Cl の検出位置を同定することを目的として実施した。装置の設定等について行った情報収集の結果をもとに、重イオン検出器の窓を 50 nm の窒化シリコンとし、また重イオン検出器内のガスはこれまで ^{14}C 等の測定で用いてきた PR ガス (アルゴンガス 90 %, メタンガス 10 % の混合ガス) を使用した。今回の加速電圧は 4.65 MV で行い、本電圧による同重体 (^{36}Cl と ^{36}S) の分別具合も確認した。試料は上記のプレス条件の検討で用いた塩化銀及び硫化銀に加えて、筑波大学から入手した $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の同位体比が 5.00×10^{-12} の標準試料 (Sharma *et al.*, 1990²²) も用いた。同重体の重イオン検出器での位置確認のため、まずは ^{35}Cl と ^{37}Cl を重イオン検出器で確認し、それぞれの位置を確認したところ、 ^{35}Cl は $x=0.8$, $y=1.1$ 付近に、 ^{37}Cl は $x=1.0$, $y=1.3$ 付近 (図 3.3.3-1) に位置することがわかった。ここで、 x 軸は重イオン検出器内の電離箱の $\angle E_1$ (電離箱内検出プレート 1 枚目)、 y 軸は $\angle E_5$ (電離箱内検出プレート 5 枚目) のそれぞれで検出したイオンのエネルギーである。また ^{36}S を検出したとこ

ろ、 $x=0.9$, $y=1.2$ 付近にシグナルが見られた(図 3.3.3-2)。また、理論からは ^{36}Cl は ^{35}Cl と ^{37}Cl を結んだ線上に検出されるとされており、今回検出した同重体の ^{36}S は y 軸方向に高いところ、つまり ΔE_5 におけるエネルギーが高いところに検出されたが、これは元素の違いによるものと考えられ、おおよその ^{36}Cl 検出位置を特定することができた。

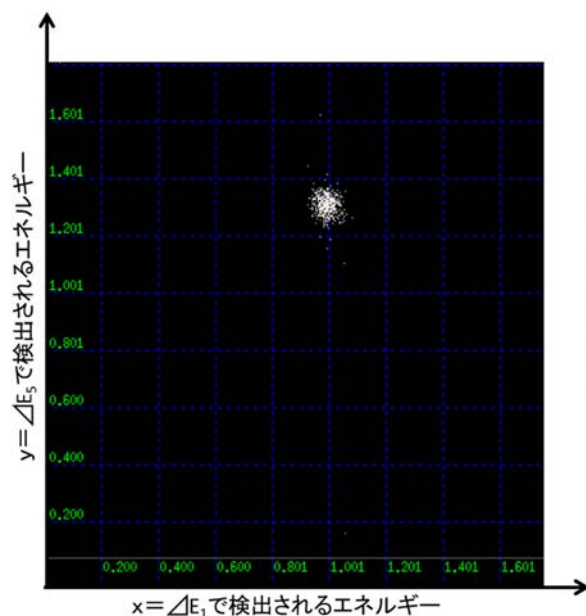


図 3.3.3-1 重イオン検出器で検出した ^{37}Cl (300 サイクル(約 30 秒)で測定)

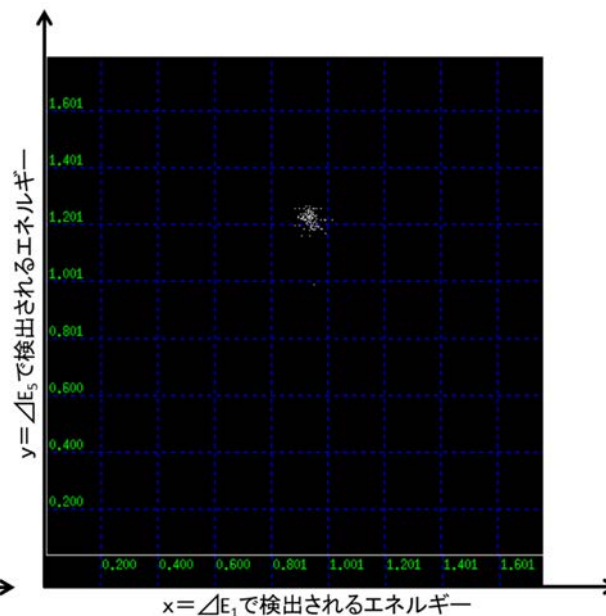


図 3.3.3-2 重イオン検出器で検出した ^{36}S (300 サイクル(約 30 秒)で測定)

(4) 主な成果と課題

^{36}Cl 年代測定法の実用化に向けた研究開発においては、測定試料のプレス条件の検討及び装置設定条件の検討として、重イオン検出器での ^{36}Cl の検出位置の確認をを行い、窒化シリコンと PR ガスを重イオン検出器で使用した際の ^{36}Cl の検出位置を導くことができた。さらなる情報収集によると、重イオン検出器のガスをイソブタンガスに変更することにより同重体分別がより改善する可能性がわかった。したがって、今後は重イオン検出器ガスにイソブタンを用い、さらに加速電圧も昇圧しより良い測定条件を検討していく。また、未知試料の試料調製法についても検討していく。

このほか ^{26}Al 年代測定法については、令和元年度も引き続き実試料の測定を行った。また、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。今後も実試料の ^{26}Al 年代測定の実績を増やすとともに、高精度化を目指した情報収集を行っていく。 ^{129}I 年代測定法については、本年度よりルーチン測定を開始した。未知試料の測定を数件行い、 1×10^{-14} レベルでバックグラウンド測定が可能であることがわかった。今後は、世界的な標準試料が存在していないため、独自のワーキングスタンダードとなる標準物質の検討を行っていくとともに、他機関との比較測定等を通じて測定の精度確認を行っていく予定である。また、同重体分別技術に関する研究開発も引き続き行っていく。現在、超小型加速器質量分析装置の設計及び組み上げを行い、同重体分別の試験機を製作中である。今後は試験を実際に行い、実証に向けて検討していく予定である。これらに並行して、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も進める予定である。

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, Chigaku Zasshi(Journal of Geograaphy), 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 ^{14}C 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 ^{10}Be 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) 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, 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), JAEA-Research 2019-006, 2019, 66p.
- 19) 松崎浩之, 加速器質量分析の原理, 真空, vol.50, no.7, 2007, pp.467-474.
- 20) 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.
- 21) 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.
- 22) Sharma, P., Kubik, P.W., Fehn, U., Gove, H.E., Nishiizumi, K., Elmore, D., Development of ^{36}Cl standards for AMS, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, vol.52, 1990, pp.410-415.

3.3.4 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、火山砕屑物(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、火山活動が活発な日本列島において有効な技術であり、新しいテフラの発見やその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よって、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)を提示した(例えば、梅田・古澤, 2004¹⁾)。また、火山ガラスが風化の影響を受けている場合に有用な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(主要元素)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⁾)。

本研究では、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土岐地球年代学研究所に整備したレーザーアブレーション装置を試料導入系として備えた誘導結合プラズマ質量分析装置(LA-ICP質量分析装置)を用い、テフラ粒子ごとの微量元素組成分析の技術整備を進めた。

(2) 当該分野に係る科学的・技術的背景

爆発的な噴火によって放出されたテフラは広域にかつ短時間で堆積するという特徴から、そのようなテフラ層は年代決定において重要な鍵層となる。テフラは火山ガラスや鉱物の岩石鉱物学的特徴(構成鉱物組み合わせや屈折率、ガラスの形態等)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など、テフラの岩石学的特徴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。その一つとして、火山ガラスの微量元素組成(特に、Ba, La, Sc, Sr, Y)に基づいて、テフラを識別可能なことが示唆されている(例えば、吉川, 1990⁴⁾; 田村・山崎, 2004⁵⁾)。従来の方法では、テフラから火山ガラスを純化し酸分解した後、その微量元素の分析が行われてきた(湿式法)。しかし、得られるガラスの微量元素濃度は、純化の程度(鉱物の混入等)に大きく影響され、この影響を抑えるための純度を上げる作業は煩雑となる。さらに、ガラス粒子ごとの濃度のバリエーションを評価することはできない。一方で、LA-ICP質量分析法を用いた火山ガラスの微量元素組成分析は、ガラス粒子ごとに分析可能なため、これらの問題点を解決できる。平成30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対比においても有効となり得ることを示し、その分析技術の整備を進めた(生田ほか, 2016⁶⁾; 石丸ほか, 2019⁷⁾)。近年、LA-ICP質量分析法による国内の火山ガラスの微量元素組成の分析例は増えつつあり(Kimura *et al.*, 2015⁸⁾; Maruyama *et al.*, 2016⁹⁾; 古澤, 2017¹⁰⁾)、テフラの同定において強力なツールとなっているが、広域テフラにおいては微量元素組成を含むデータのカタログ化は進んでおらず、従来法に比べ迅速な分析が可能なLA-ICP質量分析法による火山ガラスの微量元素組成分析の技術整備は重要である。また、この手法は火山ガラスだけでなくテフラ中の鉱物に含まれるメルトインクルージョンの微量元素組成分析にも適用可能と考えられる。

(3) 実施内容・結果

令和元年度は、平成 30 年度に引き続き、東濃地科学センター土岐地球年代学研究所の LA-ICP 質量分析装置(レーザーアブレーション装置: Photon-Machines Analyte G2; ICP 質量分析装置: Agilent 7700x)を用いた火山ガラスの微量元素分析手法の整備を行った。具体的には、分析手法の整備として検量線法を用いた定量分析の手法、分析における信号強度(シグナル)の安定化、及び酸化物干渉の除去・補正の手法に関する検討を行った。さらに、United States Geological Survey (USGS) 及び Max-Planck-Institute 発行の標準ガラスを繰り返し分析することで分析精度の評価を行った。また、手法の妥当性評価のため、広域テフラの一つである始良 Tn 火山灰(AT 火山灰; 町田・新井, 1976¹¹)を試験試料として分析した。本研究での LA-ICP 質量分析の装置セッティング及び分析条件を表 3.3.4-1 に示す。本研究では主要元素を含む 58 元素を測定しているが、以下では定量分析に用いる標準ガラスに含まれ、かつ一般的な火山ガラスに 1 µg/g 以上含まれる微量元素と、テフラの同定に有効と考えられる希土類元素(39 元素: Li, Sc, V, Cr, Co, Ni, Cu, Zn, Ga, Ge, As, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Mo, Sn, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Hf, Ta, W, Pb, Th, U)に関して報告する。

LA-ICP 質量分析法による火山ガラスの微量元素の定量では、1 種の標準ガラスを標準試料として、標準試料から得られるシグナルと火山ガラス(未知試料)から得られるシグナルとを比較して、元素濃度を定量する手法(1 点検量)が一般的である。本研究では、National Institute of Standards and Technology (NIST) 発行の元素含有量の異なる 3 種の標準ガラス(NIST SRM 610, 612, 614; それぞれの標準ガラスに含まれる元素濃度は、NIST SRM 610 \geq 612 \geq 614; Jochum *et al.*, 2011¹²)を用意し、1 点検量(それぞれ NIST SRM 610, 612, 614 のうち 1 種のみ)、2 点検量(NIST SRM 610 と 612, NIST SRM 610 と 614、及び NIST SRM 612 と NIST SRM 614 の組み合わせ)、3 点検量(NIST SRM 610, 612, 614 全て利用)での定量性の比較を行った。LA-ICP 質量分析では、湿式法による ICP 質量分析に比べ、主成分元素(マトリックス)干渉が分析値の真度に強く影響を与える可能性がある。そのため、本研究ではマトリックスが火山ガラスと類似したガラスのスタンダードである ATHO-G (Max-Planck-Institute 発行の標準試料 MPI-DING シリーズ)を用いて火山ガラスの分析手法の妥当性を評価した。その結果、本研究で分析した元素のうち多くの元素に対して、NIST SRM 612 と 614 による 2 点検量によって定量した場合が ATHO-G の元素濃度を最も精確に得ることができた。これは、それらの元素に関して、ATHO-G の元素濃度が NIST SRM 612 と 614 の元素濃度の間もしくはいずれかと同程度の濃度であるためと考えられる。また、1 種の標準ガラスの分析値と原点を結んで検量線を得る 1 点検量法は、本研究の結果から、その定量性が十分でないことが確認された。1 点検量法では、特に低濃度領域での定量性が低いことが確認され、3 種の標準ガラスのうち最も濃度の低い NIST SRM 614 を分析することで濃度の低い試料に対する検量線を決定することが望ましいことが示された。一方で、3 点検量では、NIST SRM 612 と 614(一部の元素に対しては NIST SRM 610 と 612)による 2 点検量に比べ、分析値の真度が低くなった。これは、ATHO-G の元素濃度と離れた濃度を持つ標準試料(相対的に元素濃度の高い NIST SRM 610(一部の元素に対しては、元素濃度の低い NIST SRM 614))を検量線の参照値として採用し、低濃度領域あるいは高濃度領域の定量性が悪くなったためと考えられる。したがって、本研究では、未知試料の濃度を挟むような標準試料 2 点での検量線を、また検量線の外挿となる場合には、未知試料の濃度に近い標準試料 2 点の検量線(NIST SRM 614 以下の濃度場合は NIST SRM 612 と 614 の検量線、NIST SRM 610 以上の濃度場合は NIST SRM 610 と 612 の検量線)を用いて濃度計算を行うことが最も定量性が高いと判断した。

次に、定量精度の向上のため、ICP 質量分析におけるシグナル安定性を向上させる手法を検討した。LA 装置から運ばれる試料の微細粒子(エアロゾル)が、均質(塊状でなく滑らか)に ICP 質量分析装置に導入されるように、シグナルスモージー(125 mL プラスチックボトルに 8 mm ビーズを封入したもの)を導入

した。このスムーザーを導入することで、スパイク状のシグナルが減少しシグナルの安定性が得られた。一方で、スムーザーの導入前と比べてガス及び運搬される試料の移動経路が複雑になるため、試料が移動経路上に長時間残存する。そのため、1 試料分析後に設ける試料の移動経路の洗浄時間をスムーザーなしの場合の 55 s と比べて、115 s と長くとることとした。

ICP 質量分析では、プラズマ内であらゆる元素イオンの酸化物が生成されるため、微量元素の定量では、その影響が無視できない。特に重希土類元素の定量においては、主に軽希土類元素の酸化物が同重体となり重希土類元素に干渉するため、これらの干渉を除去または補正する必要がある。そのため、まず ICP 質量分析装置 (Agilent 7700x) に備え付けられているコリジョンリアクションセル (CRC) を用い、酸化物による同重体干渉の除去を試みた。本研究で用いたコリジョンモードでは、不活性ガス (ヘリウム等) をセルに導入し、ガスとイオンの衝突及びそれに伴う運動エネルギー差の分別によって、干渉する多原子イオンを目的元素イオンに分離することが可能になる。ただし、不活性ガスの量を過剰に増やすと感度が著しく低下するため、分析対象に適切なガス流量を摸索する必要がある。そのため、本研究では火山ガラスを分析する際に十分な感度を保つことができるように、適切な He ガス流量を決定した (5.0 mL/min)。次に、分析時の酸化物生成率を算出することで、湿式法による ICP 質量分析で提唱された補正の手法 (Yokoyama *et al.*, 2017¹³) を LA-ICP 質量分析法へ適用する必要性を検討した。希土類元素の標準溶液 (関東化学) を任意量含有させたガラスビードを作製し、未知試料分析の前後で分析することで、それらの酸化物生成率を算出した結果、LA-ICP 質量分析では、湿式法による ICP 質量分析に比べて酸化物生成率が低い (例えば、CeO/Ce=0.08 %; 湿式法の 1/40) ことが判明し、本手法による希土類元素の酸化物補正の必要性は限定的であることがわかった。

既述の分析手法の検討により本研究で最も定量性が高いと判断した手法を用いた、ATHO-G (7 点) 及び USGS 発行の標準ガラス BHVO-2G (7 点) と BCR-2G (7 点) の分析の再現性を図 3.3.4-1 に示す。テフラの同定の際に重要とされている Ba, La, Sc, Sr, Y に関する分析値のばらつき (1SD) は、Sc を除き 10 % 未満であり、高い再現性が確認された。また、ATHO-G (7 点)、BHVO-2G (7 点)、及び BCR-2G (7 点) に加えて試験試料として分析した AT 火山灰 (15 点) のそれぞれの平均値 (分析値) と先行研究で報告されている結果 (報告値; ATHO-G: Georem database: Jochum *et al.*, 2006¹⁴), BHVO-2G, BCR-2G: Georem: Jochum *et al.*, 2005¹⁵), AT 火山灰: Maruyama *et al.*, (2017)¹⁶) を比較し、それらの差分 (Relative Difference: RD (%)) = (分析値 - 報告値) / 報告値 × 100 で分析値の真度を評価した (図 3.3.4-2)。その結果、AT 火山灰や ATHO-G, BCR-2G に関して、多くの元素で ±20 % 以下の差分となったが、BHVO-2G はそれらに比べて少し差分が大きくなった。BHVO-2G の分析値の真度が悪くなった原因として、マトリックス干渉の影響を受けている可能性がある。このマトリックス干渉を改善するためには、検量線を求める際の標準試料と分析対象とする試料のマトリックスが一致したものにする (マトリックスマッチ) 等、さらなる手法の検討が必要である。さらに、全ての試料において、比較的質量数が小さい元素に関して、分析値の再現性と真度が共に低いことが確認された。この原因として、低質量の元素の分析では、ICP 質量分析においてプラズマ内で生成される多種の酸化物やアルゴン化合物が同重体として影響しているためと考えられる。また、NIST SRM 614 の極微量 (概ね 1 µg/g 以下) の元素は、十分なシグナルが得られておらず定量下限値以下である場合があり、検量線そのものの再現性も低かった。

(4) 主な成果と課題

本研究では、平成 30 年度に引き続き、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い、USGS や Max-Planck-Institute 発行の標準ガラスを繰り返し分析することで分析精度の評価を行った。検量線法を用いた定量分析手法の検討や分析におけるシグナルの安定化を試み、さらに酸

化物干渉の除去・補正の手法を検証した。未知試料の濃度を挟むような標準試料による 2 点検量, スムーザーを用いたシグナルの安定化, コリジョンリアクションセルを用いた酸化物干渉の除去を行うことで, LA-ICP 質量分析法による微量元素分析を可能にした。濃度が低い元素に対して NIST SRM 614 を用いる重要性が示されたが, 検量線の精度を向上させ, より定量性の高い分析手法とするためには, ICP 質量分析装置での感度を向上させることが必要不可欠である。また, ATHO-G, BHVO-2G, BCR-2G, AT 火山灰を用いて火山ガラスに対する本分析手法の妥当性を評価した。テフラの同定において特に有効な元素 (Ba, La, Sc, Sr, Y) のうち Ba, La, Sr, Y は高い再現性 (相対標準偏差: RSD < 10 %) が確認され, ± 20 % 以下の報告値からの差分で分析可能であったが, Sc の定量分析については今後改良する必要がある。さらに, 比較的質量数が小さい元素に関しては再現性が低く, 報告値からの差分も大きくなっており, 同重体の影響を受けていたり十分なシグナルが得られていないなど, 検量線の再現性そのものに問題があると考えられる。

今後は, 分析精度向上に向けて, より最適な分析条件を探る必要がある。検量線の再現性を向上させるため, ICP 質量分析装置でのシグナルの感度向上や希土類元素以外の同重体の影響の補正法を検討する。また, 本研究では, 内標準物質としてガラスに最も多く含まれる Si を用いたが, LA-ICP 質量分析法では Si の感度がわずかに低下するため, 次に多く含まれる Al を適用した報告もある (古澤, 2017¹⁰)。さらに, NIST 発行の標準試料だけではなく, USGS や Max-Planck-Institute 発行の標準試料を用いて組成差のある複数の標準試料を用いて検量線を求めることを検討する。特に, 火山ガラスの濃度・マトリックス元素が類似した Max-Planck-Institute 発行の標準試料 MPI-DING シリーズの ATHO-G や Kimura *et al.* (2018)¹⁷ で用いられている Aso-4 のガラスビード試料が有効である可能性が高い。分析精度の評価を継続して実施し, LA-ICP 質量分析法を用いた火山ガラスの微量元素組成手法を整備し, 広域テフラの微量元素組成に基づくカタログ化を実施する。さらに, この手法をテフラ中の鉱物に含まれるメルトインクルージョンの微量元素分析に適用し, テフラ同定を試みる。

表 3.3.4-1 LA-ICP 質量分析法による微量元素分析の測定条件

Laser ablation system	
Instrument model	Analyte G2 ATL Excimer laser (Photon-machines Inc., Redmond, WA, U. S. A)
Laser type	Excimer 193 nm
Energy density	7.3 J cm ⁻²
Crater size	30 μm circle
Repetition rate	10 Hz (200 shots)
Carrier gas	He
He gas flow rate	~1.0 L/min
ICP-MS	
Instrument model	Agilent7700 (Agilent Technology, Santa Clara, California, U.S.A.)
Forward power	1600 W
Carrier gas	Ar
Ar gas flow rate	~0.95 L/min
Collision/reaction gas and flow rate	He (5.0 mL/min.)
Scanning mode	Single collector
Data acquisition protocol	Time resolved analysis
Integration time	7(10 ms), 9(20 ms), 11(20 ms), 23(10 ms), 24(10 ms), 27(20 ms), 29 (50 ms), 31(50 ms), 39(20 ms), 43(50 ms), 45(10 ms), 49(20 ms), 51(20 ms), 52(50 ms), 55(10 ms), 57(20 ms), 59(100 ms), 60(100 ms), 63(20 ms), 66(20 ms), 71(20 ms), 73(100 ms), 75(50 ms), 85(10 ms), 88(10 ms), 89(20 ms), 90(10 ms), 93(10 ms), 95 (10 ms), 107(150 ms), 111(100 ms), 115(50 ms), 118(50 ms), 121(100 ms), 133(20 ms), 137(10 ms), 139(20 ms), 140(20 ms), 141(20 ms), 146(20 ms), 147(20 ms), 153(50 ms), 157(20 ms), 159(20 ms), 163(20 ms), 165(20 ms), 166(20 ms), 169(20 ms). 172(20 ms), 175(20 ms), 178(10 ms), 181 (50 ms), 182(50 ms), 205(100 ms), 208 (10 ms), 209 (100 ms), 232 (10 ms), 238 (10 ms)
Integration time per single ablation	14.767 s
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	NIST SRM 612, 614
Internal standard isotope	Si
Data source of standard	Jochum et al., 2011

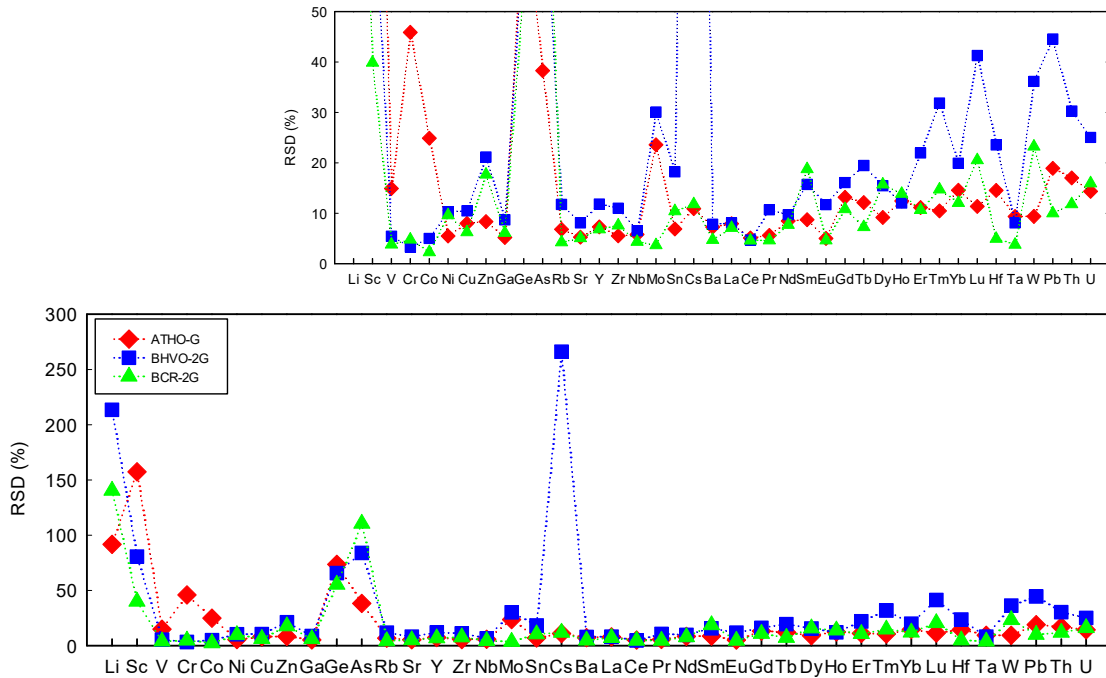


図 3.3.4-1 ATHO-G, BHVO-2G, BCR-2G の再現性(RSD [%])

横軸は微量元素, 縦軸は ATHO-G, BHVO-2G, BCR-2G をそれぞれ 7 点分析した再現性を相対標準偏差(RSD [%])で示した。挿入図は RSD(1σ)が 50 %以下の範囲の拡大図。

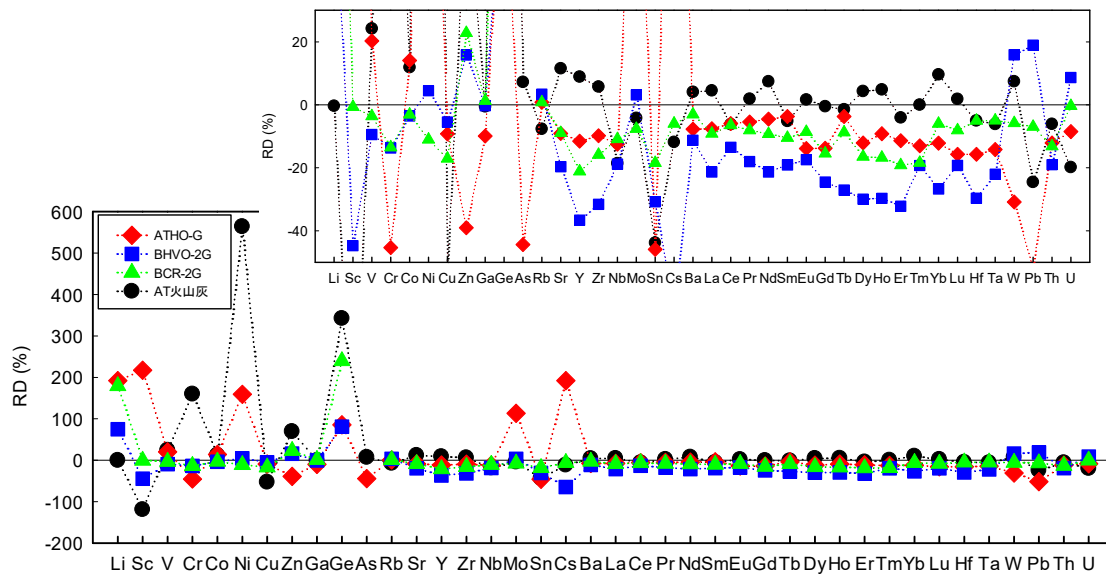


図 3.3.4-2 ATHO-G, BHVO-2G, BCR-2G 及び AT 火山灰の分析値と報告値との比較

横軸は微量元素, 縦軸は AT 火山灰(15 点), ATHO-G, BHVO-2G, BCR-2G(それぞれ 7 点)分析したの平均値(分析値)と報告値(ATHO-G: Georem database: Jochum *et al.*, 2006¹⁴⁾, BHVO-2G, BCR-2G: Georem: Jochum *et al.*, 2005¹⁵⁾, AT 火山灰: Maruyama *et al.* (2017)¹⁶⁾)との差分(%)を示す。挿入図は RD が-50~30 %の範囲の拡大図。

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, 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ー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ー, 応用地質, vol.54, no.1, 2013, pp.25-38.
- 4) 吉川清志, ICP 発光分析を用いたテフラの同定法とその応用, 地学雑誌, vol.99, no.7, 1990, pp.743-758.
- 5) 田村糸子, 山崎晴雄, 北陸層群のテフロクロノロジーーテフラ層序および広域テフラ層との対比に基づく北陸層群の堆積年代ー, 地質学雑誌, vol.110, no.7, 2004, pp.417-436.
- 6) 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, 地質学雑誌, vol.122, no.3, 2016, pp.89-107.
- 7) 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, 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), JAEA-Research 2019-006, 2019, 66p.
- 8) Kimura, J., Nagahashi, Y., Satoguchi, Y. and Chang, Q., Origins of felsic magmas in Japanese subduction zone: Geochemical characterizations of tephra from caldera-forming eruptions <5 Ma, *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, vol.16, no.7, 2015, pp.2147-2174.
- 9) Maruyama, S., Hattori, K., Hirata, T. and Danhara, T., A proposed methodology for analyses of wide-ranged elements in volcanic glass shards in widespread Quaternary tephtras, *Quaternary International*, vol.397, 2016, pp.267-280.
- 10) 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.
- 11) 町田 洋, 新井房夫, 広域に分布する火山灰ー始良 Tn 火山灰の発見とその意義, 科学, vol.46, 1976, pp.339-347.
- 12) 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. and 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.
- 13) Yokoyama, T., Nagai, Y., Hinohara, Y. and Mori, T., Investigating the influence of non-spectral matrix effects in the determination of twenty-two trace elements in rock samples by ICP-QMS, *Geostandards*

and Geoanalytical Research, vol.41, no.2, 2017, pp.221-242.

- 14) Jochum, K.P., Stoll, B., Herwig, K., Willbold, M., Hofmann, A.W., Amini, M., Aarburg, S., Abouchami, W., Hellebrand, E., Mocek, B., Raczek, I., Stracke, A., Alard, O., Bouman, C., Becker, S., Dücking, M., Brätz, H., Klemd, R., Bruin, D. D., Canil, D., Cornell, D., Hoog, J.C.D., Dalpé, C., Danyushevsky, L., Eisenhauer, A., Gao, Y., Snow, J.E., Groschopf, N., Günther, D., Latkoczy, C., Guillong, M., Hauri, E.H., Höfer, H.E., Lahaye, Y., Horz, K., Jacob, D.E., Kasemann, S., Kent, A.J.R., Zack, T., Ludwig, T., Mason, P.R.D., Meixner, A., Rosner, M., Misawa, K., Nash, B.P., Pfänder, J.A., Premo, W.R., Sun, W.D., Tiepolo, M., Vannucci, R., Vennemann, T.W., Wayne, D., Woodhead, J.D., MPI-DING reference glasses for in situ microanalysis: New reference values for element concentrations and isotope ratios, *Geochemistry Geophysics Geosystems*, vol.7, no.2, 2006, 44p.
- 15) Jochum, K. P., Nohl, U., Herwig, K., Lammel, E., Stoll, B., Hofman, A. W. GeoReM: A New geochemical database for reference materials and isotopic standards, *Geostandards and Geoanalytical Research*, vol. 29, 2005, pp.333-338.
- 16) Maruyama, S., Danhara, T. and Hirata, T., Re-identification of Shishimuta-Pink tephra samples from the Japanese Islands based on simultaneous major- and trace-element analyses of volcanic glasses, *Quaternary International*, vol.456, 2017, pp.180-194.
- 17) Kimura, J., Chang, Q. and Furusawa, A., Analysis of matrix effect in laser ablation inductively coupled plasma mass spectrometry for rhyolitic glass: Critical evaluation with new Aso-4 b-W synthetic glass blocks, *Geochemical Journal*, vol.52, no.3, 2018, pp.227-240.

3.3.5 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土岐地球年代学研究所では、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に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。このため令和元年度は、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 年度までに、放射性炭素年代測定の前処理手法の改善として、自動グラファイト調製装置(Ionplus 社製 AGE3)を用いて従来法の 10 分の 1 となる炭素量 0.1mg までの少量試料への適用について評価を進めた。令和元年度は国際標準試料のテスト測定、及び天然試料の測定を継続して実施し、炭素量 0.05 mg までのさらに少量試料への適用性について継続して評価を進めた。

(3) 実施内容・結果

令和元年度は、 ^{14}C 年代測定の前処理手法の改良を継続して進めた。EA(元素分析装置)-AGE3 装置による各種試料の調製条件の最適化を実施し、少量試料での試料調製について検討を進めた。平成 30 年度に実施した炭素量 0.1 mg での試料前処理の検討と同様に、国際標準物質である IAEA-C5(木片)及び NIST-SRM-4990C(シュウ酸)等を用いて、EA-AGE3 装置による少量試料(炭素量 0.05 mg)の試料調製について適用性を評価した。

調整する試料の燃焼においては、まず標準試料を銀箔(4×4×12 mm, Elemental micro analysis 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。試料導入用の銀箔は使用前に電気

炉で 500 °C に加熱処理し炭素汚染を除去した。従来法で使用していたスズ箔は試料導入時の燃焼触媒としては有効であるが、加熱処理することで劣化し使用不可となってしまったため、本研究では銀箔を選択した。また、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、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。ゼオライト製トラップの温度上昇 (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。ここで、ペルチェ素子による冷却部の温度は約 -10 °C とした。触媒となる鉄粉は炭素汚染除去のため、使用前に大気雰囲気中で加熱し、その後、水素で再度還元したものを使用した。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、今回の少量試料での調製では炭素量約 0.05 mg に対して鉄粉 5 mg の条件で実施した。さらに、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 (銀箔のみを燃焼)、空焼きによる装置内の洗浄を実施した。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。以上の方法によって調製したグラファイト試料の ^{14}C 濃度測定には東濃地科学センター土岐地球年代学研究所設置の JAEA-AMS-TONO-5MV を使用した。JAEA-AMS-TONO-5MV による測定条件の検討には、EA-AGE3 装置を用いて炭素量約 0.05 mg となるように調製した NIST-SRM-4990C を使用した。また、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, 炭素量約 0.05 mg で調製) の測定データを用いた。

炭素量 0.05 mg での少量試料での ^{14}C 測定について、JAEA-AMS-TONO-5MV で得られた実測値を図 3.3.5-1 に示す。測定結果は NIST-SRM-4990C で 134.1 ± 2.1 pMC ($n=8$), IAEA-C5 で 24.0 ± 0.5 pMC ($n=4$) であり、国際放射性炭素学会で認められた合意値 (NIST-SRM-4990C, 134.07 pMC; IAEA-C5, 23.05 pMC; Rozanski *et al.*, 1992⁵⁾) 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。したがって、上述した試料の前処理手法を用いるにより炭素量 0.05 mg での年代測定が可能になったと言える。

今後は、さらに測定を継続し安定したデータが得られるようにすることが重要である。また、炭素量 0.05 mg での少量試料では、JAEA-AMS-TONO-5MV による測定で得られる ^{14}C の計数値が相対的に低くなり、繰り返し測定の不確かさも炭素量 0.1 mg での測定時と比較してさらに大きくなる (図 3.3.5-1)。したがって、天然試料の年代測定に応用する際は、不確かさの範囲が試料の年代幅を超えないようにするなど、適用範囲の確認が必要であるが、JAEA-AMS-TONO-5MV での繰り返し測定の回数や測定時間を調整することでこの不確かさについては改善されると期待できる。一方で、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⁾)。特に少量試料の場合は炭素の収率の改善とともに、実験室での試料処理時における汚染評価を正確に実施することが必要である。したがって、放射性炭素を含まない、もしくは濃度既知の標準試料を用いて、バックグラウンドの定量化を進めることが重要である。

(4) 主な成果と課題

令和元年度は、年代測定法及び化学分析手法の高度化を継続して進めた。EA-AGE3 装置を用いて、従来法の 20 分の 1 となる炭素量 0.05 mg での少量試料の ^{14}C 年代測定について検討を進めた。測定結果は、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。さらに、今後は EA-AGE3 装置による炭素収率の安定化、バックグラウンドの定量化に加え、炭素量 0.05 mg 以下での年代測定の検討を進める。

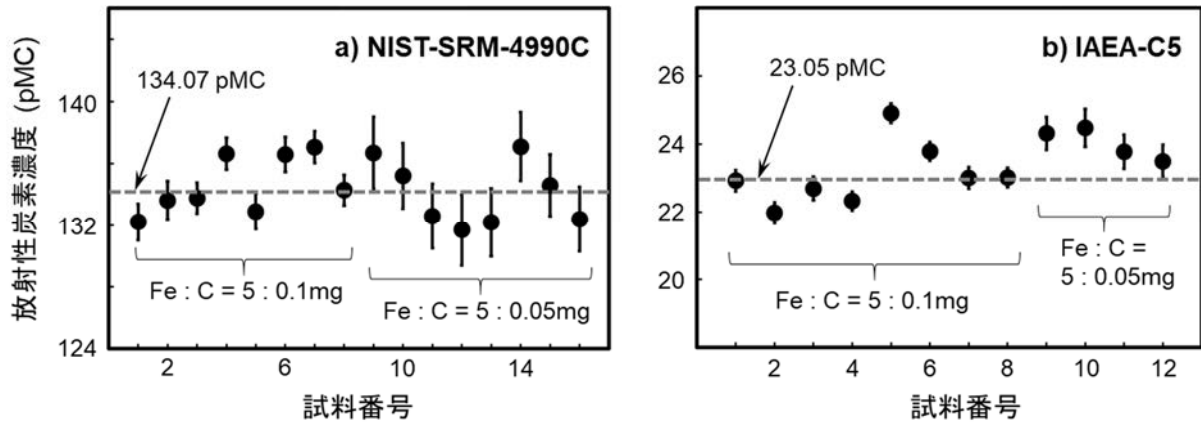


図 3.3.5-1 AGE3 により調製した少量試料の年代測定結果

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.

This is a blank page.

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 ^(e)	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
光照射量	ルーメン	lm	cd sr ^(e)	cd
放射線量	グレイ	Gy	J/kg	m ² s ⁻²
放射性核種の放射能 ^(f)	ベクレル ^(d)	Bq		s ⁻¹
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	m ² s ⁻²
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間には1:1の関係がある。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
角速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg s ⁻²
角加速度	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
電表面積	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単位との数値的關係は、 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
フオト	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「△」は対応關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=4.1858J (「15°C」カロリ), 4.1868J (「IT」カロリ), 4.184J (「熱化学」カロリ)
マイクロン	μ	1 μ=1μm=10 ⁻⁶ m

