JAEA-Research 2021-007 DOI:10.11484/jaea-research-2021-007



# 地質環境の長期安定性に関する研究 年度報告書 (令和2年度)

Annual Report for Research on Geosphere Stability for Long-term Isolation of Radioactive Waste in Fiscal Year 2020

| 石丸 恒存 | 尾方伸久 國分 (齋藤) 陽子 島田耕史 |
|-------|----------------------|
| 丹羽 正和 | 島田 顕臣 渡邊 隆広 末岡 茂     |
| 横山 立憲 | 藤田 奈津子 小北 康弘 福田 将眞   |
| 塚原 柚子 | 鏡味 沙耶 長田 充弘 小川 大輝    |
| 後藤 翠  |                      |

Tsuneari ISHIMARU, Nobuhisa OGATA, Yoko SAITO-KOKUBU, Koji SHIMADA Masakazu NIWA, Akiomi SHIMADA, Takahiro WATANABE, Shigeru SUEOKA Tatsunori YOKOYAMA, Natsuko FUJITA, Yasuhiro OGITA, Shoma FUKUDA Yuzuko TSUKAHARA, Saya KAGAMI, Mitsuhiro NAGATA, Hiroki OGAWA 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 X PS 

October 2021

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

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。 本レポートの転載等の著作権利用は許可が必要です。本レポートの入手並びに成果の利用(データを含む)は、 下記まで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ウェブサイト(<u>https://www.jaea.go.jp</u>)

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 JAEA イノベーションハブ 研究成果利活用課 〒 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. Reuse and reproduction of this report (including data) is required permission. Availability and use of the results of this report, please contact Institutional Repository and Utilization Section, JAEA Innovation Hub, 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, 2021

# 地質環境の長期安定性に関する研究 年度報告書(令和2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, 丹羽 正和, 島田 顕臣, 渡邊 隆広, 末岡 茂, 横山 立憲, 藤田 奈津子, 小北 康弘, 福田 将眞, 塚原 柚子, 鏡味 沙耶<sup>\*1</sup>, 長田 充弘<sup>\*1</sup>, 小川 大輝<sup>\*2</sup>, 後藤 翠<sup>\*2</sup>

## (2021年7月5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2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取りまとめた。

JAEA-Research 2021-007

# Annual Report for Research on Geosphere Stability for Long-term Isolation of Radioactive Waste in Fiscal Year 2020

Tsuneari ISHIMARU, Nobuhisa OGATA, Yoko SAITO-KOKUBU, Koji SHIMADA, Masakazu NIWA, Akiomi SHIMADA, Takahiro WATANABE, Shigeru SUEOKA, Tatsunori YOKOYAMA, Natsuko FUJITA, Yasuhiro OGITA, Shoma FUKUDA, Yuzuko TSUKAHARA, Saya KAGAMI<sup>\*1</sup>, Mitsuhiro NAGATA<sup>\*1</sup>, Hiroki OGAWA<sup>\*2</sup> and Akira GOTO<sup>\*2</sup>

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 5, 2021)

This annual report documents the progress of research and development (R&D) in the 6th 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

**<sup>※</sup>**1 Post-Doctoral Fellow

<sup>&</sup>lt;sup>★</sup>2 Collaborating Engineer

# 目 次

| 1. | はじめ    | 21   |     |
|----|--------|--|-----|
| 2. | 研究成    | 果の概要4  | ļ   |
| 3. | 令和 2   | 年度の研究成果  | ;   |
|    | 3.1 調査 | を技術の開発・体系化   | ,   |
|    | 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  |     |
|    | 3.1.3  | 深部流体の分布に関する調査技術  | ,   |
|    | 3.2 長其 | JF予測・影響評価モデルの開発  | ļ   |
|    | 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  |     |
|    | 3.2.2  | 時間スケールに応じた地圏環境変動の予測技術32  |     |
| -  | 3.3 年任 | 大測定技術の開発   | ;   |
|    | 3.3.1  | ウラン系列放射年代測定法の実用化   | , , |
|    | 3.3.2  | 光ルミネッセンス(OSL)年代測定法の実用化 ·······44   |     |
|    | 3.3.3  | アルミニウム-26( <sup>26</sup> Al)年代測定法,塩素-36( <sup>36</sup> Cl)年代測定法,ヨウ素-129( <sup>129</sup> I)年代 |     |
|    |        | 側正法の美田化 51   |     |
|    | 3.3.4  | 局分解能のアフフ问定手法の開発 ······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62  |     |

# Contents

| 1. Introduction ······ 1  |
|---|
| 2. Overview of R&D progress ······ 4  |
| 3. Progress of R&D in FY2020 ······ 6   |
| 3.1 Development and systematization of investigation techniques                       |
| 3.1.1 Investigation techniques for evaluation of fault activities                     |
| 3.1.2 Investigation techniques for high-resolution imaging of crustal heterogeneity   |
| 3.1.3 Investigation techniques for detection of geofluids                             |
| 3.2 Development of models for long-term estimation and effective assessment           |
| 3.2.1 Models of geological environment for extremely low-frequency events             |
| 3.2.2 Development of estimation and evaluation techniques for natural phenomena       |
| of very long-term ······32  |
| 3.3 Development of dating techniques  |
| 3.3.1 Practical use of Uranium-series dating method                                   |
| 3.3.2 Practical use of Optically Stimulated Luminescence dating method                |
| 3.3.3 Practical use of dating methods of Aluminium-26, Chlorine-36 and Iodine-12951   |
| 3.3.4 Development of high-resolution tephrochronology                                 |
| 3.3.5 Development of methods of dating and chemical analysis for geological samples62 |

# 図リスト

| 図 3.1.1-1 | IRSL 測定のための試料採取位置  |
|-----------|--|
| 図 3.1.1-2 | 断層ガウジ(TS1, TS3)とカタクレーサイト(TSB)の Imax-NI 比較9                                 |
| 図 3.1.2-1 | 検測対象とした地震の震源分布   |
| 図 3.1.2-2 | P 波及び S 波検測値による走時曲線の例14  |
| 図 3.1.2-3 | 分解能テストの結果15  |
| 図 3.1.2-4 | 近地地震及び遠地地震を同時に用いた地震波トモグラフィー  |
|           | による S 波速度偏差分布  |
| 図 3.1.3-1 | 紀伊半島における試料採取地点位置図  |
| 図 3.1.3-2 | 熱年代データ vs 熱水脈からの距離   |
| 図 3.1.3-3 | AFT 年代が若返らない温度・時間条件  |
| 図 3.2.1-1 | S 波スプリッティング解析により求めた 2011 年東北地震前の   |
|           | いわき地域周辺の速いS波の振動方向(φ)の分布  |
| 図 3.2.1-2 | S 波スプリッティング解析により求めた 2011 年東北地震後の   |
|           | いわき地域周辺の速いS波の振動方向(φ)の分布  |
| 図 3.2.1-3 | 2011 年東北地震後に発生した地震に対する距離規格化 dt 値の分布  |
| 図 3.2.1-4 | 各観測点における距離規格化 dt 値の平均値及び標準偏差(1g)30   |
| 図 3.2.2-1 | 内陸部を対象とした研究開発の事例地域   |
| 図 3.2.2-2 | 離水地形区分図  |
| 図 3.2.2-3 | 離水地形の縦断プロファイルと調査地点   |
| 図 3.2.2-4 | ボーリングコアの掘削地点   |
| 図 3.2.2-5 | ボーリングコアの柱状図  |
| 図 3.3.1-1 | 北上山地北部の花崗岩から採取されたジルコンの U-Pb 年代測定結果の例 40                                    |
| 図 3.3.1-2 | 黒部川花崗岩体から採取されたジルコンの <sup>238</sup> U- <sup>206</sup> Pb 年代測定結果の例40         |
| 図 3.3.2-1 | OSL 熱年代法による熱史解析結果48  |
| 図 3.3.3-1 | 左)標準試料 S4-1 とS4-2 の試験測定結果右)重イオン検出器で検出した <sup>36</sup> Cl と <sup>36</sup> S |
|           |  |
| 図 3.3.4-1 | AT 火山灰の分析値と報告値との比較60   |
| 図 3.3.5-1 | 携帯型成分分析装置により得られた標準試料中の主成分の   |
|           | 測定結果と既報値との比較   |

# 表リスト

| 表 3.1.3-1 | 流体包有物測定結果                               | 20 |
|-----------|---|----|
| 表 3.3.1-1 | 2 Ma より若いジルコンの U-Pb に適した LA-ICP の質量分析条件 | 41 |
| 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              | 59 |

#### 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の概念は、「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、1999<sup>1)</sup>: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、2002<sup>6</sup>)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)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 向けて一」(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、2012<sup>10</sup>)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、2012<sup>11</sup>))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、2012<sup>12</sup>)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一地質環境特性及び地質環境の長期安定性について一」 (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、2014<sup>13</sup>)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,2015<sup>14</sup>))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,2017<sup>15</sup>)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「地層処分研究開発調整会議,2018<sup>16</sup>) として示されている。本計画は,令和2年3月に各課題に対する取り組みの状況やそれまでの研究成果 を踏まえた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,2020<sup>17)</sup>)。 さらに,実施主体からは,サイト調査から処分場の設計・建設・操業・閉鎖,さらには閉鎖後の長期間にわ たる安全確保に関し,これまでに蓄積された科学的知見や技術を統合して包括的に説明した「包括的技 術報告書」が2021年2月に公表された(原子力発電環境整備機構,2021<sup>18</sup>)。

第3期中長期目標期間開始時点においては、国による申し入れや自治体からの応募等もなされてお らず、特定の地質やサイト(テクトニックセッティング)も選定されていなかったことから、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サイト調査・ 設計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きた。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6年目である令和2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 —地質環境特性および地質環境 の長期安定性について—,2014,61p.
- 14) 梅田浩司,安江健一,國分(齋藤)陽子,丹羽正和,浅森浩一,藤田奈津子,清水麻由子,島田 顕臣,松原章浩,田村 肇,横山立憲,渡邊隆広,徳安佳代子,濱 友紀,「地質環境の長期安定 性に関する研究」基本計画-第3期中長期計画(平成27年度~平成33年度), JAEA-Review 2015-012, 2015, 43p.
- 15) 経済産業省資源エネルギー庁,科学的特性マップ,2017, http://www.enecho.meti.go.jp/category/e lectricity\_and\_gas/nuclear/rw/kagakutekitokuseimap/maps/kagakutekitokuseimap.pdf (参照:2021 年5月19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, https://www.meti.go.jp/report/whitepaper/data/pdf/20 180329001\_01.pdf(参照:2021 年 5 月 19 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:2021年5月19日).
- 18) 原子力発電環境整備機構,包括的技術報告:わが国における安全な地層処分の実現ー適切なサイトの選定に向けたセーフティケースの構築-本編および付属書,NUMO-TR-20-03, 2021, https://scct.numo.or.jp/GeoCom2/faces/project/view.xhtml (参照:2021年5月19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 地の選定要件や国の安全規制で求められる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, 断層内物質への適用事例が未だ知られていない長石の赤外 光ルミネッセンス(IRSL:Infrared Stimulated Luminescence)法による検討を行った<sup>注 1)</sup>。②地殻構造の高 空間分解能イメージング技術では, 将来の火山活動に関与する流体の分布を把握するための地震波ト モグラフィー解析に必要な地震データ(マントル内を伝播する近地・遠地地震波)の収集・解析を行った<sup>注 1)</sup>。 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流体包有物 解析と熱年代解析を実施し, 深部流体の熱的特徴について検討した<sup>注 1)</sup>。

「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。

- 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、2011 年東北沖地震後に長期間にわた り湧水が発生しているいわき地域を事例とし、S 波スプリッティング解析によって、同地域におけるクラック 方向の特異性や東北沖地震前後の変化を示唆する情報に乏しいことを明らかにするとともに、湧水地点 付近の地下水賦存状態に関する情報を得られる可能性を示した<sup>注 1)</sup>。②時間スケールに応じた地圏環境 変動の予測技術では、穿入蛇行跡である環流旧河谷で掘削調査を行った結果、過去の河川の高さの指 標となる旧流路堆積物を採取することができ、隆起・下刻速度の算出に向けての足がかりを得た<sup>注 1)</sup>。

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

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

<sup>&</sup>lt;sup>注1)</sup>本課題では,平成30年度~令和2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(原子力機構・電力中央研究所,2019<sup>1)</sup>,2020<sup>2)</sup>,2021<sup>3)</sup>の一部を使用した。

- ③ アルミニウム-26(<sup>26</sup>Al)年代測定法,塩素-36(<sup>36</sup>Cl)年代測定法,ヨウ素-129(<sup>129</sup>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、地質試料への適用例を積み重ねることで、これまでに整備したジルコンや炭酸塩鉱物を対象とするウラン・鉛(U-Pb)年代測定技術のデータの信頼性の向上と分析精度の向上を図った。②光ルミネッセンス(OSL)年代測定法の実用化では、侵食速度が中程度(0.1 ~1.0 mm/yr 程度)の地域に対する大深度ボーリングコアを利用した光ルミネッセンス(OSL:Optically Stimulated Luminescence)熱年代法の適用可能性を評価した。③アルミニウム-26(<sup>26</sup>Al)年代測定法、塩素-36(<sup>36</sup>Cl)年代測定法、ヨウ素-129(<sup>129</sup>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<sup>36</sup>Cl 年代測定法の実用化に向けて、高同位体比の測定を達成した。④高分解能のテフラ同定手法の開発では、令和2年度までに整備した技術を用いて、種々の火山灰試料の分析を行い、引き続き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、携帯型成分分析装置を用いた化学成分の定量手法について検討し、断層岩や堆積物等の天然試料への適用性評価を進めた。

#### 参考文献

- 日本原子力研究開発機構,電力中央研究所,平成 30 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処 分に関する技術開発事業 地質環境長期安定性評価技術高度化開発 報告書,経済産業省資源 エネルギー庁, 2019, 200p.
- 2) 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.
- 3) 日本原子力研究開発機構,電力中央研究所,令和2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,2021,317p.

#### 3. 令和2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,年代学的解析の一つとして,断層内物質中の長石を用いた IRSL (例えば,塚本, 2018<sup>1)</sup>)法の適用性の検討を石川県立大学との共同研究により平成 30 年度から実施している(原子力機構・電力中央研究所, 2019<sup>2)</sup>, 2020<sup>3)</sup>, 2021<sup>4)</sup>)。本報では,長石の IRSL 法を用いた研究開発のこれまでの 主な成果について報告する。

(2) 当該分野に係る科学的・技術的背景

ルミネッセンスや電子スピン共鳴(ESR:Electron Spin Resonance)年代測定による断層の活動時期の推定は、一般に断層運動に伴い放出される熱エネルギーによってシグナルが減少またはリセットされることを前提としている(鴈澤ほか、2013<sup>5)</sup>)。このような熱エネルギーとしては、摩擦すべりによる断層面の近傍における急速な加熱、断層帯における熱水移動に起因する断層帯周辺部の加熱及び上部地殻内の地温勾配に由来する熱エネルギーの放出が主に考えられる(田上ほか、2010<sup>6)</sup>)。これら熱エネルギーの放出量の推定は、断層運動の規模に加え、周辺岩盤の諸物性や含水状態等様々な要因が寄与するため、決して単純ではない。

露頭で採取した試料の場合, 普段は常温でシグナルが安定な領域にあると考えられるため, 断層運動 時のリセット条件さえ示せれば, 年代情報を得るには地下深部から採取した試料よりもむしろ好都合とい える。また, サンプリングのしやすさという点でも有利である。ただし, 熱に敏感な手法でないと断層運動 に伴うシグナルの減少・リセットを捉えることが難しくなる。

本共同研究による予察的な検討からは,長石の IRSL 信号は,ESR 信号に比べ熱に敏感であることが 分かっている(原子力機構・電力中央研究所,2019<sup>2</sup>)。しかしながら,長石の IRSL 法を断層内物質に対 して適用した既往の研究は未だ知られていない。本報では,この長石の IRSL 信号に着目し,天然の断 層ガウジ試料に対して長石の IRSL 法を適用した結果について報告する。

## (3) 実施内容·結果

本研究で検討した試料は、岐阜県中津川市田瀬に位置する阿寺断層の破砕帯露頭から採取されたものである(図 3.1.1-1)。阿寺断層は左ずれセンスを示す活断層であり、当該露頭では、花崗岩と砂礫層が断層を介して接している(遠田ほか、1994<sup>7</sup>)。採取試料は3種類あり、断層ガウジ2試料(試料名:TS1

及び TS3)と花崗岩カタクレーサイト 1 試料(試料名:TSB)である。TS1 は花崗岩カタクレーサイトに直接 接する幅約 10 cm の白色均質な断層ガウジで,加藤ほか(2015)<sup>8)</sup>の FG01 に相当する。TS3 は花崗岩岩 片を含む乳白色の断層ガウジで,加藤ほか(2015)<sup>8)</sup>の FG03 に相当する。TS1 と TS3 の間にはより最近 に発達したと見られるやや砂質な褐色の断層ガウジを挟む。一方,TSB は破断,破砕が進んでいるもの の,断層ガウジに比べやや堅牢で花崗岩組織が保存されている。IRSL 測定のためのアルカリ長石の分 離手順については,原子力機構・電力中央研究所(2019)<sup>2)</sup>を参照されたい。測定に用いた粒径サイズは, 125~250 μm とした。

IRSL 測定は、測定時のアシスト温度を 50 °C, 75 °C, 100 °C, 125 °C, 225 °C と連続的に上昇させ、それぞれの測定温度ごとの IRSL 測定を行ういわゆる Multiple Elevated Temperature (MET) 法により行った。 測定方法の詳細については、原子力機構・電力中央研究所 (2020<sup>3</sup>), 2021<sup>4</sup>))を参照されたい。この IRSL 測定に基づき、各試料の再生照射 IRSL 強度を Robert and Duller (2004)<sup>9)</sup>の成長線関数にフィッティング させ、I<sub>max</sub> (IRSL 強度の上限) 及び D<sub>0</sub> (トラップ数の上限に対する許容線量)を求めた。Robert and Duller (2004)<sup>9)</sup>の成長線関数は以下のように示される。

Standardized IRSL (I) =  $I_0 + I_{max} (1 - e^{-D/D0})$ 

(1)

ここで、IRSL (I)は IRSL 強度, I<sub>0</sub> は任意に与えるゼロ点からの IRSL 強度のずれ (本研究では 0 を適用), D は照射線量である。実際に測定可能な上限蓄積線量は D<sub>0</sub> 値の 2 倍程度となるので、(1)式に基づけば、この 2D<sub>0</sub> 値から上限 IRSL 強度である I(2D<sub>0</sub>)を与えることができ、I(2D<sub>0</sub>)/I<sub>max</sub> で計算される飽和値は常に 0.865 となる。したがって、NI を天然の IRSL 強度とした時、NI/I<sub>max</sub> が 0.865 を超えると飽和に達したとみなすことができる。

測定の結果,断層ガウジである TS1 及び TS3 は,測定時のアシスト温度が最も低い IR50 では IRSL 強度が未飽和であったのに対し,それより温度が高い IR75, IR100, IR125, IR225 ではほとんどが飽和に達した。一方,カタクレーサイトである TSB は, IR75, IR100, IR125, IR225 だけでなく IR50 でもほとんど が飽和に達した(図 3.1.1-2)。IR50 の未飽和の要因が断層運動に伴う部分リセットであるとするならば,最新の断層運動では断層ガウジしか破壊・変形・変位しなかった,あるいは,断層運動によるそれらの影響により(IR50 が部分リセットするまで)温度上昇が生じたのは断層ガウジのみにとどまった,といった可能性が考えられる。

IRSL 測定の場合,時間とともに信号が減衰する anomalous fading(以下,「フェーディング」)の影響を 考慮する必要がある(Huntley and Lamothe, 2001<sup>10)</sup>; Buyleart *et al.*, 2009<sup>11)</sup>)。そのため, Buylaert *et al.* (2009)<sup>11)</sup>の手法に基づき,蓄積線量の測定を終了した TS3 の試料を再利用してフェーディング率(g 値) を決定した。実験では 30 Gy の X 線照射後,各測定温度の感度補正 IRSL 強度を測定した。放置時間 は 0, 1, 3.5, 10, 35, 100, 350 h とした。実験の結果, IR50, IR75, IR100, IR125, IR225 の g 値はそれぞ れ, 2.28±0.40 (20), 1.32±0.89(3), 1.71±1.23(3), 2.13±0.57(8), 2.34±0.56(20)となった。括弧内は測定数 である。低温の IR50 と高温の IR225 とで誤差内でほぼ一致する g 値を示した。したがって,飽和度の違 いはフェーディングの強弱が原因ではなく,断層ガウジに低温の加熱があり, IR50 の信号が部分リセット した可能性が考えられる(ただし, ゼロリセットではないので, IR50 から計算される IRSL 年代値が断層運 動の年代を直接反映しているとはいえない)。

#### (4) 主な成果と課題

本研究では、上載地層法が適用できない場合における断層活動性評価の新たな手法の一つとして、 断層内物質への適用事例が未だ知られていない長石の IRSL 法による検討を行った。天然の断層内物 質を用いた測定の結果,測定時のアシスト温度が 50 ℃ の場合の低温の信号において,最新の断層運動に伴う熱履歴(部分リセット)の記録が残されている可能性を見出した。今後,他の試料への適用事例の拡充に加え,大気環境下及び水熱条件下での人工加熱実験を行い,熱影響の及ぶ範囲やリセット時の温度条件等をさらに明らかにしていくことが課題である。



図 3.1.1-1 IRSL 測定のための試料採取位置

右写真の露頭が左図の赤星印に位置する。左図は背景に地理院タイル(淡色地図)を用いて作成した。



図 3.1.1-2 断層ガウジ(TS1, TS3)とカタクレーサイト(TSB)の I<sub>max</sub>-NI 比較 I<sub>max</sub>は各試料の再生照射 IRSL 強度を Robert and Duller (2004)<sup>9)</sup>の成長線関数にフィッティングさせた 時の IRSL 強度の上限, NI は天然の IRSL 強度を示す。NI/I<sub>max</sub>>0.865(グラフの点線の左上の領域にプ ロット)だと飽和に達したことになる。TSB ではほとんどの試料で飽和に達しているが, TS1 と TS3 では, IR50 は未飽和領域にプロットされる。

#### 参考文献

- 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) 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.
- 3) 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.
- 4) 日本原子力研究開発機構,電力中央研究所,令和2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,2021,317p.
- 5) 鴈澤好博,高橋智佳史,三浦知督,清水 聡,光ルミネッセンスと熱ルミネッセンスを利用した活断 層破砕帯の年代測定法,地質学雑誌,vol.119, no.11, 2013, pp.714-726.
- 6) 田上高広,渡邊裕美子,板谷徹丸,地震断層の年代学一最近の新展開と今後の展望一,月刊地 球,vol.32, no.1, 2010, pp.3-9.

- 7) 遠田晋次, 井上大栄, 高瀬信一, 久保内明彦, 冨岡伸芳, 阿寺断層の最新活動時期:1586 年天 正地震の可能性, 地震 第2輯, vol.47, no.1, 1994, pp.73-77.
- 8) 加藤尚希, 廣野哲朗, 石川剛志, 大谷具幸, 阿寺断層田瀬露頭における断層ガウジの鉱物学的・ 地球化学的特徴, 活断層研究, vol.43, 2015, pp.1-16.
- 9) Robert, H.M., Duller, G.A.T., Standardized growth curves for optical dating of sediment using multiplegrain aliquots, Radiation Measurements, vol.38, no.2, 2004, pp.241-252.
- 10) Huntley, D.J., Lamothe, M., Ubiquity of anomalous fading in K-feldspars and the measurement and correction for it in optical dating, Canadian Journal of Earth Sciences, vol.38, no.7, 2001, pp.1093-1106.
- 11) Buylaert, J.P., Murray, A.S., Thomsen, K.J., Jain, M., Testing the potential of an elevated temperature IRSL signal from K-feldspar, Radiation Measurements, vol.44, no.5-6, 2009, pp.560-565.

## 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、背弧域において現在火山のない場所においても、将来新たな火山が発生する可能性を考慮すべきであることが指摘されている(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、2017<sup>1</sup>)。このような新たな火山の発生に対しては、過去から現在までの火山活動の履歴を詳細に把握し、その時空間的な分布や活動の傾向等から将来を予測するといった外挿に基づくアプローチに加えて、火山に供給する地殻深部の高温流体の有無や分布をあらかじめ把握するといった、火山活動の成因に踏み込んだアプローチでの研究開発が進められてきた(例えば、Asamori et al., 2010<sup>2</sup>)。しかしながら、その評価の信頼性向上の観点から、主として地殻内の領域をターゲットとしたこれらの調査技術の整備に加え、上部マントルの領域も考慮した検討の重要性が指摘されている(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、2018<sup>3</sup>)。そのため本研究では、マントル・ウェッジにおける流体の分布・移動経路の推定に最も有効と考えられる地震波トモグラフィーの空間分解能の向上を図るための地震データの収集及び解析を行った。

#### (2) 当該分野に係る科学的・技術的背景

地震波トモグラフィーは多量の地震データを用いた逆解析(インバージョン)により地下の地震波速度 構造を推定する手法であり,内陸部の下部地殻や上部マントルに存在する部分溶融域や深部流体を検 出した事例が多く報告されている(例えば, Nakajima and Hasegawa, 2003<sup>4</sup>))。ただし,地震波速度構造の 推定に十分な数の P 波, S 波初動到達時刻データを蓄積するには,一般に数年以上の観測期間を要す るため,定常地震観測網で観測されたデータを用いる必要がある。現在,国内では約 2,500 点もの定常 地震観測網が展開され,観測データが日々蓄積され続けている。これらは,気象庁,各国立大学,国立 研究開発法人防災科学技術研究所,国立研究開発法人海洋研究開発機構等により設置・運用されてい る地震観測点によって構成されており,陸域に加えて海域に設置された海底地震計により記録されたデ ータを含む。これらの観測点において記録された地震波形データは気象庁に集約され,日本列島下で 発生した地震に伴うP波及びS波到達時刻の読み取り及び震源決定までの処理が一元的に行われた上 で公開されており,学術的な研究等に広く利用されている。しかしながら,このように処理された気象庁一 元化検測値データは震源決定精度を重視しているため,震央距離が長距離に及ぶ到達時刻の読み取り 数が少ない。地震波トモグラフィーをマントル・ウェッジにおける不均質構造の推定に適用するためには, このような震央距離が長距離に及ぶ地震データの検測数を拡充する必要がある。 (3) 実施内容·結果

本研究では、日本列島下のマントル内を伝播する地震データ(遠地地震・近地地震及び深発地震・浅 発地震)を対象とした地震波到達時刻の検測を進めてきた。平成 30 年度~令和 2 年度の 3 年間にわた り、547 個の地震に対し、P 波 311,702 個及び S 波 295,907 個の到達時刻データの収集を行った。一つ の地震に対する観測データ数は、それぞれ 88~1,443 個及び 57~1,443 個である。検測を実施した地震 の震源分布を図 3.1.2-1 に示す。また、図 3.1.2-2 には走時曲線の一例を示す。これによると、震央距離 が長くなるにつれて検測精度は低下するものの、気象庁一元化検測値データに比べて長い震央距離の ものを含む、より多くのデータが取得できたと考えられる。

本研究で収集した地震データを地震波トモグラフィーに適用した場合に期待される空間分解能を評価 するため、チェッカーボード分解能テスト(Checkerboard Resolution Test)を実施した。この分解能テストで は、まず解析領域内に設置したそれぞれのグリッド(格子点)に±3%の初期速度偏差を正負交互に与え た地震波速度構造を作成し、それに基づく理論走時を各地震ー観測点ペアに対して計算した上で、検 測誤差に相当するランダムノイズを加えたデータセットを作成した。このように準備したデータセットを用い た地震波トモグラフィーによって得られた速度構造の回復の程度により、各々の領域において十分な分 解能を有するか否かを評価することができる。

一般に、地震波トモグラフィーの分解能は P 波に比べて S 波が劣るものの、流体分布の推定にはその存在に敏感な S 波速度構造がよく用いられる。日本列島全域を対象とした近年の S 波トモグラフィー(例えば、Asamori and Zhao、2015<sup>5)</sup>)では、マントル・ウェッジの分解能は 33 km(0.33°)あるいはそれよりも低いと評価されている。本研究において、グリッド間隔を 25 km(0.25°)として解析を行った結果を図 3.1.2-3 に示す。解析の詳細については原子力機構・電力中央研究所(2020)<sup>6</sup>を参照されたい。この結果によると、背弧域の深さ 200 km 以浅では十分に速度構造の回復が認められており、既存の研究よりも空間分解能をさらに向上させることが期待できることを示す。

続いて、これらのデータセットを用いてマントル・ウェッジの三次元S波速度構造を推定し、既存の研究 により推定されている地震波速度構造の傾向との比較によって、現状のデータセットが十分な精度を有 するか否かを検討した。解析では、Zhao et al. (1994<sup>7)</sup>、2012<sup>8)</sup>)による近地地震及び遠地地震データの同 時インバージョンによる地震波トモグラフィー法に、本研究で収集したS波到達時刻データを適用するこ とで、深さ700 km までの三次元S波速度構造モデルを推定した。解析に用いた初期地震波速度モデル は iasp91 (Kennett and Engdahl、1991<sup>9)</sup>)を基本とし、厚さ90 kmの太平洋スラブ (S波速度偏差;+6%)を 考慮した。また、地殻内についてはZhao et al. (1992)<sup>10)</sup>及び藤原ほか(2009)<sup>11)</sup>による地震波速度モデ ルを採用した。なお、本解析におけるグリッド間隔は、水平方向に約33 km(0.33°)、鉛直方向には15~ 30 km とした。

本解析により得られた三次元 S 波速度偏差の各深さにおける平面図を図 3.1.2-4 に示す。これによる と、東北日本下に沈み込む太平洋スラブが地震波高速度体としてイメージされ、それ以浅のマントル・ウ ェッジには火山フロント直下から深部へ連続する地震波低速度体が認められる。これらはスラブの脱水に 起因し、火山に供給される流体の存在を示していると考えられるが、深くなるにつれて背弧側にシフトする ように分布し、東北地方では深さ 160 km まで、北海道では深さ 220 km まで確認できる。一方で、西南日 本下においては、沈み込むフィリピン海スラブに対応すると考えられる地震波高速度体が少なくとも深さ 220 km まで確認できる。また、特に九州地方に沈み込むフィリピン海スラブの周囲には顕著な地震波低 速度体が認められ、それらはマントル浅部から深さ 300 km 以深まで連続するようにイメージされる。

本解析により得られた三次元 S 波速度構造(図 3.1.2-4)は、遠地地震データを用いた既存の S 波速

度構造(Asamori and Zhao, 2015<sup>5)</sup>)及び近地地震データのみによるS 波速度構造(例えば, Zhao *et al.*, 1992<sup>12)</sup>; Nakajima *et al.*, 2001<sup>13)</sup>; Nakajima and Hasegawa, 2007<sup>14)</sup>; Huang *et al.*, 2011<sup>15)</sup>)と大局的に同様の傾向を示す。このことは、本研究においてこれまでに蓄積した地震データが概ね妥当な精度を有していることを示す。

(4) 主な成果と課題

本研究では、将来の火山活動に関与する流体の分布を把握するための地震波トモグラフィー解析に 必要な地震データ(マントル内を伝播する近地・遠地地震波)を収集し、解析により日本列島周辺の地下 深部の大局的な流体分布を推定するとともに空間分解能を評価した。これまでに、日本列島下のマント ル・ウェッジにおける地震波トモグラフィーの空間分解能の向上に大きく貢献するデータを収集した。これ らを活用することにより、処分事業におけるサイトスペシフィックな観点においても、地下深部の流体分布・ 移動に関する検討に供することができると考えられる。今後、後続波データ等も利用することにより、更な る空間分解能の向上が期待される。





丸はカラースケールで示す深さで発生した地震の震源を表す。四角及び星印は地震観測点及び図 3.1.2-2 に示す走時曲線例の震央を表す。



図 3.1.2-2 P 波及び S 波検測値による走時曲線の例

P 波検測精度 A, B 及び C は, それぞれ 0.05 秒以下, 0.05~0.25 秒, 0.25 秒以上を示す。S 波検測 精度 A, B 及び C は, それぞれ 0.10 秒以下, 0.10~0.50 秒, 0.50 秒以上を示す。



図 3.1.2-3 分解能テストの結果(水平方向のグリッド間隔は 25 km)



図 3.1.2-4 近地地震及び遠地地震を同時に用いた地震波トモグラフィーによるS波速度偏差分布

# 参考文献

- 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) Asamori, K., Umeda, K., Ogawa, Y., Oikawa T., Electrical resistivity structure and helium isotopes

around Naruko volcano, northeastern Japan and its implication for the distribution of crustal magma, International Journal of Geophysics, ID738139, 2010, doi:10.1155/2010/738139.

- 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, https://www.meti.go.jp/report/whitepaper/data/pdf/20 180329001 01.pdf(参照:2021 年 5 月 19 日).
- 4) Nakajima, J., Hasegawa, A., Tomographic imaging of seismic velocity structure in and around the Onikobe volcanic area, northeastern Japan: implications for fluid distribution, Journal of Volcanology and Geothermal Research, vol.127, no.1-2, 2003, pp.1-18.
- 5) Asamori, K., Zhao, D., Teleseismic shear wave tomography of the Japan subduction zone, Geophysical Journal International, vol.203, no.3, 2015, pp.1752-1772.
- 6) 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.
- Zhao, D., Hasegawa, A., 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.
- 8) Zhao, D., Yanada, T., Hasegawa, A., Umino, N., Wei, W., Imaging the subducting slabs and mantle upwelling under the Japan Islands, Geophysical Journal International, vol.190, no.2, 2012, pp.816-828.
- 9) Kennett, B., Engdahl, E., Traveltimes for global earthquake location and phase identification, Geophysical Journal International, vol.105, no.2, 1991, pp.429-465.
- Zhao, D., Horiuchi, S., Hasegawa, A., Seismic velocity structure of the crust beneath the Japan Islands, Tectonophysics, vol.212, no.3-4, 1992, pp.289-301.
- 11) 藤原広行,河合伸一,青井 真,森川信之,先名重樹,工藤暢章,大井昌弘,はお憲生,早川 譲, 遠山信彦,松山尚典,岩本鋼司,鈴木晴彦,劉 瑛,強震動評価のための全国深部地盤構造モデ ル作成手法の検討,防災科学技術研究所研究資料,vol.337,2009,265p.
- Zhao, D., Hasegawa, A., Horiuchi, S., Tomographic imaging of P and S wave velocity structure beneath northeastern Japan, Journal of Geophysical Research: Solid Earth, vol.97, no.B13, 1992, pp.19909-19928.
- 13) Nakajima, J., Matsuzawa, T., Hasegawa, A., 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, no.B10, 2001, pp.21843-21857.
- Nakajima, J., 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.
- 15) Huang, Z., Zhao, D., Wang, L., Seismic heterogeneity and anisotropy of the Honshu arc from the Japan Trench to the Japan Sea, Geophysical Journal International, vol.184, no.3, 2011, pp.1428-1444.

## 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、2014<sup>1)</sup>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裂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、2012<sup>2)</sup>)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,2014<sup>1)</sup>)。このことから平成 30 年度から令和 2 年度にかけて、深部流体の熱的特徴(温度、滞留時間、熱的影響範囲等)に係る知見を蓄積するため、 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熱年代 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、2004<sup>3</sup>)。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、2005<sup>4</sup>)。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、1994<sup>5</sup>)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、2001<sup>6</sup>)。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.*, 2006<sup>7</sup>);Morikawa *et al.*, 2016<sup>8</sup>)。

こうした高温の流体が地殻中に滞留した場合,その温度や滞留時間に応じて周囲の岩盤は加熱を受けるが、このような岩石が被った温度履歴を知るために有効な手法の一つに熱年代学の手法を挙げることができる。通常の放射年代測定は、不安定な親核種が放射壊変を経て安定な娘核種に変化することを利用して、親と娘の比から試料の年代を求める。しかし、娘核種が希ガスのような移動しやすい核種の場合、高温環境では娘核種が拡散し試料中に保持されないため、見掛け上若い年代が得られることがある。この時の年代の若返りやすさは、使用する年代測定手法(娘核種)と、対象とする鉱物(媒質)の組み合わせに固有である。また、各手法・鉱物について、年代の若返りの程度は、温度と時間の関数(カイネティックモデル)として記述できる(例えば、Reiners、2009<sup>9</sup>))。そのため、どの手法・鉱物から、どれくらい若い年代が得られたかを調べることにより、試料が経験した温度履歴を復元できる。なおこの時、別の手法により加熱温度を独立に推定できれば、加熱時間を制約できる可能性がある。そこで本研究では、熱水脈の流体包有物解析(佐脇、2003<sup>10</sup>)から熱水温度を推定し、熱水脈の周囲の母岩の熱年代解析から熱水の滞

留時間等を推定することを試みた。

#### (3) 実施内容·結果

和歌山県田辺市本宮町平治川にみられる熱水脈露頭3地点を対象として,流体包有物解析と熱年代 解析による熱的特徴の推定を行った(図3.1.3-1)。いずれの露頭でも幅数十 cm の熱水脈から流体包有 物解析用の試料を採取し,熱水脈からの距離に応じて周囲の母岩(四万十帯音無川層群の砂岩)から4 ~5点を熱年代解析用に採取した。加えて,熊野酸性岩類の露頭が近くにみられたため,貫入時の熱影 響を評価するため,U-Pb年代測定用の試料を1点採取した。流体包有物の解析は,地熱エンジニアリン グ(株)で実施した。熱年代解析のうち,アパタイトフィッション・トラック(AFT:Apatite Fission Track)法,ジ ルコン FT 法,ジルコン U-Pb 法の分析は(株)京都フィッション・トラック(AFT:Apatite Fission Track)法,ジ ん((U-Th)/He)法の実験については,娘核種(ヘリウム-4:<sup>4</sup>He)の定量は菅野ほか(2021)<sup>11)</sup>の方法により 東濃地科学センターで行われ,親核種(ウラン-238:<sup>238</sup>U,ウラン-235:<sup>235</sup>U,トリウム-232:<sup>232</sup>Th)の定量は Evans *et al.* (2005)<sup>12)</sup>の手順にしたがって豪・メルボルン大学で行われた。熊野酸性岩類試料のジルコン U-Pb年代測定は,東濃地科学センターのレーザーアブレーション付き誘導結合プラズマ(LA-ICP:Laser Ablation-Inductively Coupled Plasma)質量分析装置で行った。

流体包有物解析の結果,3地点の熱水脈露頭のうち,HJG1-Fでは140~145 °C(n=3),HJG2-Fでは110~216 °C(n=10)の均質化温度が推定された(表 3.1.3-1)。結晶成長に伴って捕獲された流体である初生包有物に限ると,HJG1-Fは144~145 °C,HJG2-Fは195~211 °Cとまとまりの良い値を示した。これらの温度は、それぞれの地点の熱水脈を形成した熱水活動の到達温度を示すと考えられる。なお、HJG4-Fでは包有物の存在は確認できたが、熱水脈の透明度が低かったため、均質化温度等の測定には至らなかった。

熱年代解析の結果を図 3.1.3-2 に示す。被熱への感度が異なる 4 種類の手法を用いたが, いずれの 手法でも熱水脈からの距離に応じた年代値の変化はみられなかった。この中で最も加熱に敏感な AFT 法の年代に着目すると12~9 Ma の値を示すが, これは熊野酸性岩類の貫入年代(HJG3 の U-Pb 年代) より若いことから, 熊野酸性岩類の貫入時の熱影響は反映していない。したがって, 考えられる可能性は, 1) これらの熱水脈を作った熱水活動は,約 10 Ma より古い時代に地下深部の高温領域で発生したもの であるため,その後の隆起・侵食に伴う温度変化で年代情報が上書きされた, または2) 熱水活動は比較 的新しい時代に地表付近で起こったものだが, 熱水の滞留時間が短すぎたため, これらの年代値を若返 らせるに至らなかった。両者を判別する手段の一つとしては, 熱水脈の形成年代の測定が挙げられるが, 熱水脈の主成分である石英はほぼ純粋な SiO<sub>2</sub> の結晶であり, 放射年代測定に利用できるウランやトリウ ム等の放射性元素に乏しいため年代測定は困難である。したがって, 現段階ではいずれの解釈が有力 かは判断できない。なお,後者の場合, AFT のカイネティックモデルを用いて, 熱水の滞留時間の上限を 制約することが可能で, 150 ℃ の場合は 10 年程度, 200 ℃ の場合は数か月程度となる(図 3.1.3-3)。

#### (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て、熱年代解析と流体包有物解析による熱的特徴に係る知見の抽出を試みた。その結果、流体包 有物の均質化温度から、深部流体の温度は約150°Cと200°Cと推定された。一方、熱年代解析の結果 では、被熱への感度が異なるいずれの手法でも、熱水脈からの距離に応じた年代の変化はみられなかっ た。すなわち、これらの熱水活動は地下深部の高温領域で起こった古い活動であるか、あるいは滞留時 間が短すぎて年代を若返らせるに至らなかったと考えられる。後者の場合、滞留時間の上限は、150°C の場合で10年程度,200℃の場合で数か月程度と制約できる。今後はさらに検討事例を増やすことによって,深部流体の熱的特徴に係る知見の蓄積と、本研究で用いたアプローチの妥当性の検証を進めていくことが望まれる。



図 3.1.3-1 紀伊半島における試料採取地点位置図

HJG1, 2, 4 は熱水脈の露頭で, HJG3 は熊野酸性岩類の露頭である。背景図に地理院タイル(標準地図)を用いて作成した。

|        | 鉱物<br>(産状) | 包有物<br>の種類 | 均質化温度 |         | _ | 氷融点温度·塩濃度 |             |  |
|--------|------------|------------|-------|---------|---|-----------|-------------|--|
| 試料名    |            |            | n     | 均質化温度   |   | 氷融点温度     | 塩濃度         |  |
|        |            |            |       | [°C]    | n | [°C]      | [wt. %NaCl] |  |
| HJG1-F | 石英         | 初生         | 2     | 144~145 | 0 | n.a.      | n.a.        |  |
|        | (鉱物脈)      | 二次         | 1     | 140     | 0 | n.a.      | n.a.        |  |
| HJG2-F | 石英         | 初生         | 2     | 195~211 | 1 | -5.0      | 7.9         |  |
|        | (鉱物脈)      | 二次         | 8     | 110~216 | 5 | -5.0~-0.4 | 0.7~7.9     |  |
| HJG4-F | 石英         | 初生         | 0     | n.a.    | 0 | n.a.      | n.a.        |  |
|        | (水晶片)      | 二次         | 0     | n.a.    | 0 | n.a.      | n.a.        |  |

包有物の種類は, Roedder (1984)<sup>13)</sup>の基準にしたがって判定した。塩濃度 (NaCl 相当量)は Bodnar (1993)<sup>14)</sup>に基づいて算出した。測定精度は均質化温度で±0.1 °C, 氷融点温度で±0.3 °C である。





エラーバーの範囲は, FT 年代は 1 $\sigma$ , U-Pb 年代は 2 $\sigma$ , FT 長は 1 標準誤差を表す。(U-Th)/He 年代は 単粒子年代をプロットしており, 誤差は 1 $\sigma$  である。熱水脈からの距離は, 熱水脈及び露頭面の走向・傾 斜を補正した値である。



# 図 3.1.3-3 AFT 年代が若返らない温度・時間条件

Ketcham *et al.* (2007)<sup>15)</sup>のカイネティックモデルを用いて作成した。FA は Fanning Arrenius モデル, FC は fanning curvlinear モデルで, r=0.93 は年代が若返らない条件, r=0.55 は年代が完全に若返る条件の 境界線をそれぞれ表す。

#### 参考文献

- 総合資源エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 地層処分技術ワーキンググ ループ,最新の科学的知見に基づく地層処分技術の再評価 —地質環境特性および地質環境の 長期安定性について—,2014,61p.
- 2) 産業技術総合研究所,概要調査の調査・評価項目に関する技術資料—立地要件への適合性とその根拠となる調査結果の妥当性—,産業技術総合研究所地質調査総合センター研究資料集, no.560, 2012, 112p.
- 3) 産業技術総合研究所地質調査総合センター編,日本列島及びその周辺域の地温勾配及び地殻熱 流量データベース,数値地質図 P-5,2004.
- 4) 産業技術総合研究所地質調査総合センター編,日本温泉・鉱泉分布図及び一覧 CD-ROM 版(第
  2 版),数値地質図 GT-2,2005.
- 5) 新エネルギー・産業技術総合開発機構,本宮地域,地熱開発促進調査報告書, no.37, 1994, 885p.
- 6) 西村 進, 紀伊半島の温泉とその熱源, 温泉科学, vol.51, no.3, 2001, pp.98-107.
- 7) Umeda, K., Ogawa, Y., Asamori, K., Oikawa, T., Aqueous fluids derived from a subducting slab: Observed high <sup>3</sup>He emanation and conductive anomaly in a non-volcanic region, Kii Peninsula southwest Japan, Journal of Volcanology and Geothermal Research, vol.149, no.1-2, 2006, pp.47-61.
- 8) Morikawa, N., Kazahaya, K., Takahashi, M., Inamura, A., Takahashi, H.A., Yasuhara, M., Ohwada, M., Sato, T., Nakama, A., Handa, H., Sumino, H., Nagao, K., Widespread distribution of ascending fluids transporting mantle helium in the fore-arc region and their upwelling processes: Noble gas and major element composition of deep groundwater in the Kii Peninsula, southwest Japan, Geochemica et Cosmochimica Acta, vol.182, 2016, pp.173-196.
- 9) Reiners, P.W., Nonmonotonic thermal histories and contrasting kinetics of multiple thermochronometers, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol.73, no.12, 2009, pp.3612-3629.
- 10) 佐脇貴幸, 流体包有物一その基礎と最近の研究動向一, 岩石鉱物科学, vol.32, no.1, 2003, pp.23-41.
- 11) 菅野瑞穂, 末岡 茂, 福田将眞, 東濃地科学センターにおける鉱物試料の(U-Th)/He年代測定(He 測定編)(受託研究), JAEA-Testing 2020-010, 2021, 38p.
- Evans, N.J., Byrne, J.P., Keegan, J.T., Dotter, L.E., Determination of uranium and thorium in zircon, apatite, and fluorite: Application to laser (U-Th)/He thermochronology, Journal of Analytical Chemistry, vol.60, no.12, 2005, pp.1159-1165.
- Roedder, E., Fluid Inclusions, Reviews in Mineralogy, vol.12, Mineralogical Society of America, 1984, 644p.
- Bodnar, R.J., Revised equation and table for determining the freezing point depression of H<sub>2</sub>O-NaCl solutions, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol.57, no.3, 1993, pp.683-684.
- 15) Ketcham, R.A., Carter, A., Donelick, R.A., Barbarand, J., Hurford, A.J., Improved modeling of fission-

track annealing in apatite, American Mineralogist, vol.92, no.5-6, 2007, pp.799-810.

#### 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,2012<sup>1)</sup>)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1m以上の沈降を生じた地域も現 れた。また、地殻応力場・ひずみ場の変化に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1か月後に発生した福島県浜通り地震(M<sub>j</sub> 7.0)に伴う顕著な湧水は数年間以 上継続している(佐藤, 2015<sup>2</sup>);Sato *et al.*, 2020<sup>3</sup>)。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、 2014<sup>4</sup>)では、今後の地層処分事業の取り組みと並行して進めるべき研究開発の一つとして、東北沖地震 後に誘発された地震や湧水(例えば、2011年4月11日の福島県浜通り地震)に関する調査事例の蓄積 の必要性が示されている。

地層処分システムにおける閉じ込め機能の喪失につながる事象の一つとして、「断層のずれに伴う透水性の増加」による水理場や化学場の変動が指摘されているが(総合資源エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 地層処分技術ワーキンググループ,2014<sup>4</sup>),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と移動経路を把握することが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てきた。令和2年度は、地殻深部に深部流体が見出されている(Umeda *et al.*, 2015<sup>5</sup>)福島県浜通り地震震源域周辺のいわき地域において、流体の移動経路に関する検討を実施した。

(2) 当該分野に係る科学的・技術的背景

1946年南海地震(川辺, 1991<sup>6</sup>)や1995年兵庫県南部地震(佐藤・高橋, 1997<sup>7</sup>)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, 2015<sup>8</sup>)。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及び移動経路を あらかじめ把握しておくことが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や移動経路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地磁気・地電流 (MT: Magnetotelluric) 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(原子 力機構・電力中央研究所、2019%)。さらに、令和元年度は、同領域に対する地震波トモグラフィー解析に より, 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波低速度体が分布し, このS波低 速度体に対応する P 波速度偏差が, 平均的なマントルの速度から-2 %程度の低速度となっていることを 示し,周辺の低周波地震の分布からも,流体分布域の存在が示唆された(原子力機構・電力中央研究所, 20199)。上部地殻における流体の移動経路については、S波スプリッティング解析に基づき、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推測されている(原子力機構・電 力中央研究所, 2020<sup>10</sup>)。令和2年度には、S波スプリッティングの再解析を行い、これらの一連の地球物 理学的検討によって、マントル最上部から地殻に至る流体賦存域及び上部地殻の流体の移動経路が確 認可能である事例として取りまとめられた(原子力機構・電力中央研究所、202111))。さらに令和2年度は、 海溝型巨大地震の発生に伴う地質環境の影響評価に関する調査事例の蓄積として,福島県浜通り地震 震源域周辺のいわき地域において、S 波スプリッティング解析による流体の移動経路に関する検討に着 手した。

# (3) 実施内容·結果

東北沖地震の発生後,福島県浜通りから茨城県北部にわたる地域で地殻内の群発地震活動が活発 化した(気象庁地震予知情報課・気象庁気象研究所,2011<sup>12)</sup>)。2011年4月11日には、同地域で東北東 - 西南西方向に伸長軸を持つ正断層型の福島県浜通り地震(Mw 6.6)が発生した。この地震の後,いわ き市内の数か所で始まった地下水の異常な湧き出しは, 湧出量の変化を伴いながら 2018 年以降も継続 しており、こうした長期にわたる湧出の理由は不明で前例がないとされている(Sato et al., 2020<sup>3)</sup>)。そこで、 湧水と深部流体の移動経路の関連性を検討するために、いわき地域周辺で発生した東北沖地震前後の 地震データを用いて S 波スプリッティング解析を実施した。東北地震前のデータは 2004 年 4 月 28 日か ら2011年1月6日までに深さ30km以浅で起きたMj1.5~3.2の675個(図3.2.1-1),東北地震後のデ ータは 2011 年 6 月 1 日から 2011 年 12 月 30 日までに深さ 30 km 以浅で起きた Mi 1.5~1.9 の 4,159 個である(図 3.2.1-2)。前者のマグニチュードの上限は解析に十分な地震数を確保する目的で大きくなっ ている。これらのデータに対し, Silver and Chan (1991)<sup>13)</sup>による解析手法を適用し,各地震観測点におけ る速いS波の振動方向(o)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。 さらに、東北地震後のデータについては、dtを震源距離で除した距離規格化 dt 値を観測点ごとに比較し た(図 3.2.1-3)。S 波スプリッティング解析の結果,東北沖地震後に生じた湧水の分布する沿岸域の観測 点では, 速い S 波の振動方向(q)は海溝に対して概ね平行である(図 3.2.1-1, 2)。そして地震前後の q の向きは、東北沖地震前のデータ数が少ないながらも、顕著な変化はないように見える。太平洋沿岸域 で、o が海溝と概ね平行な向きに分布する傾向は、東北日本弧の前弧域全体に認められており(lidaka and Obara, 2013<sup>14)</sup>; Iidaka et al., 2014<sup>15)</sup>), 今回の解析結果はこれと調和的である。すなわち, 現時点では いわき地域が前弧域のなかで特異である根拠は見いだせないと判断される。速い S 波の振動方向(φ)は, 地震波が通過する地殻内のクラックの卓越方向を示しており、流体の移動経路となり得る割れ目の卓越 方向とみなせるが、その方向が東北沖地震の前後で大きく変化したことを示すデータは得られなかった。 一方、距離規格化 dt 値については、湧水地点に近く、地震データの多い観測点 IWAKMZ(いわき水石 山)において、他の観測点に比べて大きな値が得られた(図 3.2.1-3, 4)。ただし、値はばらつきが大きく、 標準偏差 1g の範囲が他の観測点と重なり、その有意性は必ずしも明確ではない。しかしながら、湧水地 点付近の流体賦存状態等を既存観測点のデータを活用して検討し得る可能性が示されたと考えられる。 今回の解析では、既往の電磁探査で認められた地下深部の低比抵抗領域を横切る波線を持つ地震が なく、同領域の dt 値等を得ることができなかった。したがって、東北沖地震前後の変化や距離規格化 dt の空間変化の有無に関する評価の確度を上げ、既往の電磁探査結果との比較を行う観点から、解析に 供するデータの増加が必要である。なお、観測点 IWAKMZ が位置する水石山の地名は地下水が豊富 な事に由来するとの説があり(福島県観光物産交流協会、2021<sup>16</sup>)、自然地理学や郷土史の観点からの 情報収集も有益である可能性を指摘しておく。

# (4) 主な成果と課題

本研究では、2011 年東北沖地震後の 2011 年福島県浜通り地震に引き続いて生じ、湧水が長期化しているいわき地域を事例とし、S 波スプリッティング解析により推定した S 波偏向異方性及び距離規格化 dt 値の特徴から、クラック方向が東北地方太平洋沿岸域の特徴と調和的であり、同地域の特異性や東北沖地震前後の変化を示唆する情報に乏しいことや、湧水地点付近の地下水賦存状態に関する情報を得られる可能性が示された。これらの特徴や可能性を統計的に検討し、さらに既往の地球物理学的情報と関連付けていくためには、解析に供するデータ数を増やしていくことが必要な段階にある。しかしながら、東北沖地震前の期間の地震は少ないため、地震前後の比較については理解の大きな進展は期待しにくい。その一方で、データ解析期間を最近まで延長することにより、地震後の遷移的変化や、地震間の定常状態とみなし得る特徴を提示できる可能性があり、これらの情報は地質環境への影響の時間変化を評価する上で重要と考えられることから、引き続き検討を進める予定である。



図 3.2.1-1 S 波スプリッティング解析により求めた 2011 年東北地震前のいわき地域周辺の速い S 波の振動方向(φ)の分布(原子力機構・電力中央研究所(2021)<sup>11)</sup>に加筆)。



図 3.2.1-2 S 波スプリッティング解析により求めた 2011 年東北地震後のいわき地域周辺の速い S 波の振動方向(φ)の分布(原子力機構・電力中央研究所(2021)<sup>11)</sup>に加筆)。


図 3.2.1-3 2011 年東北地震後に発生した地震に対する距離規格化 dt 値の分布(原子力機構・電力中央研究所, 2021<sup>11)</sup>)

桃菱形は, Sato et al. (2020)<sup>3)</sup>で報告された湧水地点, 番号を付けた桃色線は活断層や活断層の疑いのあるリニアメント(活断層研究会編, 1991<sup>17)</sup>)を確実度とともに示した。橙色×は Umeda et al. (2015)<sup>5)</sup>の電磁探査観測点を示す。観測点の文字のうち, 距離規格化 dt の統計処理(図 3.2.1-4)の際にデータ数が少なかった観測点は灰色で示す。



図 3.2.1-4 各観測点における距離規格化 dt 値の平均値及び標準偏差(1σ) 平均値を○で示し, 地震の個数を付記した。 地震数が 1 の観測点は灰色で示す。

#### 参考文献

- 1) 日本学術会議, 高レベル放射性廃棄物の処分について(回答), 2012, 36p.
- 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.
- Sato, T., Kazahaya, K., Matsumoto, N., Takahashi, M., Deep groundwater discharge after the 2011 Mw 6.6 Iwaki earthquake, Japan, Earth, Planets and Space, vol.72, no.54, 2020, doi:10.1186/s40623-020-01181-7.
- 4) 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.
- 5) Umeda, K., Asamori, K., Makuuchi, A., Kobori, K., Hama, Y., Triggering of earthquake swarms following the 2011 Tohoku megathrust earthquake, Journal of Geophysical Research: Solid Earth, vol.120, no.4, 2015, pp.2279-2291.
- 6) 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.
- 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.

- 8) Manga M., Wang C.Y., Earthquake Hydrology, Treatise on Geophysics, 2nd edition, vol.4, 2015, pp.305-328.
- 9) 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.
- 10) 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.
- 11) 日本原子力研究開発機構,電力中央研究所,令和2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,2021,317p.
- 12) 気象庁地震予知情報課, 気象庁気象研究所, 福島県浜通りから茨城県北部にかけての地震活動, 地震予知連絡会会報, vol.86, 2011, pp.53-61.
- Silver, P.G., Chan, W.W., Shear wave splitting and subcontinental mantle deformation, Journal of Geophysical Research, vol.96, no.B10, 1991, pp.16429-16454.
- Iidaka, T., Obara, K., Shear-wave splitting in a region with newly-activated seismicity after the 2011 Tohoku earthquake, Earth, Planets and Space, vol.65, 2013, pp.1059-1064.
- 15) Iidaka, T., Muto, J., Obara, K., Igarashi, T., Shibazaki, B., Trench-parallel crustal anisotropy along the trench in the fore-arc region of Japan, Geophysical Research Letters, vol.41, no.6, 2014, pp.1957-1963.
- 16) 福島県観光物産交流協会,ふくしまの旅 水石山, https://www.tif.ne.jp/jp/spot/spot\_disp.php?id=3389 (参照:2021年5月20日).
- 17) 活断層研究会編,新編 日本の活断層 分布図と資料,東京大学出版会,1991,440p.

3.2.2 時間スケールに応じた地圏環境変動の予測技術

#### (1) はじめに

地質環境の長期安定性評価において、地形学的時間スケール(数千から数十万年)での隆起速度の 推定は、河成段丘や海成段丘の離水時期に基づいて行われることが多い。しかし、西南日本や穿入蛇 行が発達するような河川の上流域では、氷期の堆積段丘の発達が悪いため、隆起速度算出の指標とし て河成段丘を用いることができない場合がある。このような場合、穿入蛇行河川の痕跡地形となる環流旧 河谷を指標として、河川の下刻速度(≒隆起速度)を算出する手法が有効である(安江ほか、2014<sup>1)</sup>)。本 研究では、気候段丘が発達しない地域における隆起速度の推定手法の高度化を目的として、事例研究 の蓄積に取り組む。事例地域としては、赤石山脈の大井川中流域を選定し、地形判読、露頭調査及び環 流旧河谷でのボーリング調査を実施した。

(2) 当該分野に係る科学的・技術的背景

環流旧河谷を指標とした隆起速度の推定事例としては、安江ほか(2014)<sup>1)</sup>が挙げられる。安江ほか (2014)<sup>1)</sup>は、紀伊半島の新宮川流域の環流旧河谷 1 か所でボーリング調査を実施し、旧流路堆積物を 覆う角礫層の色調を用いて離水年代の推定を行った。掘削したコアの中には、旧流路堆積物が確認され ず、離水後に堆積した斜面性の角礫層のみから構成されるコアもあり、環流旧河谷のボーリング調査で は、旧流路堆積物が分布する地点を的確に選定することが重要であると示された。

原子力機構・電力中央研究所(2020)<sup>2)</sup>は、安江ほか(2014)<sup>1)</sup>と同じく、新宮川流域に分布する環流旧 河谷を対象にボーリング調査を実施した。ボーリング調査は3か所の環流旧河谷で行った。その結果、環 流旧河谷の相対編年において、基質の赤色度と礫の酸化帯の幅の測定が有効な手法となることが明ら かになった。さらに、環流旧河谷の旧流路堆積物の堆積年代を制約する手法として、長石の IRSL 法が 適用可能であるとの見通しが得られた。一方で、広い流域を持つ環流旧河谷で採取したコアでは、支流 性の斜面堆積物の被覆により、旧流路堆積物を観察できなかった。このことから、ボーリング調査の実施 場所としては、流域が狭く、斜面堆積物の層厚が薄いと推定される環流旧河谷が適していることが明らか になった。

# (3) 実施内容·結果

本研究では、環流旧河谷が多く分布する赤石山脈南部の大井川を事例地域として選定した(図 3.2.2-1)。事例地域の選定では、日本列島における環流旧河谷分布データベース(高取ほか、2013<sup>3)</sup>)を参照した。はじめに、大井川流域の河成段丘や環流旧河谷といった離水地形の分布を把握するために、空中 写真による地形判読を行った。次に、河成段丘の構成層を対象に現地観察を実施し、最後に、環流旧河 谷でのボーリング調査を実施した。

# 1) 離水地形の分布と特徴

大井川中流部から河口までを対象に、1976年に撮影された国土地理院カラー空中写真を用いて実体 視判読を行った。判読作業では、日本列島における環流旧河谷分布データベース(高取ほか、2013<sup>3</sup>)や、 大井川河口の河成段丘の分布を示した杉山ほか(1987)<sup>4)</sup>を参考にした。作成した大井川沿いの河成段 丘面と環流旧河谷の分布図を図 3.2.2-2 に、河成段丘面と環流旧河谷の縦断形投影図を図 3.2.2-3 にそ れぞれ示す。 大井川の谷口から河口までの区間には、牧ノ原面(Marine Isotope Stage(MIS) 5e に形成(杉山ほか, 1987<sup>4</sup>)))とよばれる連続性のよい扇状地起源の河成段丘面が発達する。谷口よりも上流部の河成段丘面は、全体として発達が悪く、連続性に乏しい。また、大井川流域では、堆積段丘面によくみられる支流の谷を埋積するような分布形態(支流に入り込むような分布形態)をとる河成段丘面が認められないことも特徴として挙げられる。

現地観察は、河成段丘の構成層が露出する地点で実施した。観察は数地点で行ったに過ぎないが、 推定された段丘堆積物の厚さは 0.3~15 m と薄く、本地域に分布する河成段丘は全て侵食段丘であるこ とが明らかになった。

# 2) ボーリング調査

地形判読結果に基づき,ボーリング調査を実施する環流旧河谷の選定を行った。選定においては,流 域の面積に着目し,支流性の斜面堆積物が比較的薄く,旧流路堆積物を観察できる可能性が高い小規 模な環流旧河谷を選択した。本研究では,現河床との比高約 200 m の環流旧河谷を調査場所として選 定し,流路堆積物の出現深度の変化を確認するために,同じ環流旧河谷内の2 地点(KOM-1, KOM-2) でボーリング調査を実施した(図 3.2.2-4)。KOM-1 は環流丘陵の基部より20 m 程離れた地点で,KOM-2 は KOM-1 より攻撃斜面側に 11 m 移動した地点である。

採取した堆積物コアの柱状図を図 3.2.2-5 に示す。堆積物コアは、肉眼での観察結果に基づき、基盤 岩(BR)、河川流路堆積物(RC)、斜面堆積物(SD)、埋没土壌(BS)、盛土(AS)の 5 タイプに区分した。 以下に、環流旧河谷の離水層準の指標となる、河川流路堆積物(RC)、斜面堆積物(SD)、埋没土壌 (BS)の特徴を簡単に記す。

#### ・河川流路堆積物(RC)

同ユニットは円礫主体の礫層, 粒径の揃った砂層, シルト層から構成される。礫層はよく円磨された細 礫~コア径を超える大礫を主体とすることから, 掃流環境で堆積した河床堆積物であると考えられる。砂 層は礫層より上位で確認される。粒径が揃った細粒砂~粗粒砂で構成されることから, 礫層と同様に, 河 床の堆積物であると考えられる。シルト層は同ユニットの最上部で観察される。淡黄色を呈するシルトを主 体とし, KOM-2 コアでは細礫まじりとなる。主に浮遊運搬される粒子から構成されることと, KOM-2 コアの シルト層に含まれる細礫が円磨されていることから, 河川が離水する直前の流路堆積物もしくは洪水堆積 物である可能性が高い。これらのことから, このユニットは河川や流路の作用によって堆積した河川流路 堆積物であると考えられる。

## ・斜面堆積物(SD)

同ユニットは円磨度が低い角~亜角礫を主体とする砂礫層で構成される。含まれる礫の淘汰は悪く、 細礫~コア径をこえる大礫まで確認される。また、KOM-2 コアでは後述する埋没土壌(BS)を挟む。これ らのことから、このユニットは本流性の河成砂礫層ではなく、環流旧河谷の流域内で生じたマスブームメン トに由来する斜面堆積物であると考えられる。斜面堆積物(SD)と河川流路堆積物(RC)との境界に認定 される離水面の深度は、KOM-1 コアで 7.8 m、KOM-2 コアで 11.6 m と、KOM-2 コアで有意に深くなる。 これは、KOM-2 コアの掘削地点が KOM-1 コアの掘削地点より攻撃斜面側に位置することを反映してい ると考えられ、地形的特徴と整合的である。

#### ・埋没土壌(BS)

同ユニットは黒色の腐植質シルトと灰白色のシルトから構成される細粒な堆積物であり、斜面堆積物 (SD)の直上に位置する。KOM-1コアの 3.2 m付近とKOM-2コアの 6.1 m付近では、腐植質シルトから 灰白色のシルトへと漸移的に移り変わる様子が認められる。出現層準と堆積物の特徴から、このユニット は、風成堆積物、大きな角礫を伴わないマスムーブメントにより堆積した細粒な斜面堆積物、離水後に生 じた小規模な湖沼の埋積堆積物等を起源に持つと考えられる。現時点では、この点を明らかにできるよう な観察や分析を行っていないため、ここでは一括して埋没土壌と呼称した。

(4) 主な成果と課題

本研究では、大井川中流域を対象に地形判読,現地観察及び環流旧河谷でのボーリング調査を実施 した。ボーリング調査地点の選定では、流域面積が狭く、斜面堆積物による被覆が少ないと考えられる小 規模な環流旧河谷を選定した。その結果、過去の河川の高さの指標となる旧流路堆積物を採取すること ができ、掘削調査に適した環流旧河谷を選定することの重要性が再確認された。今後は、斜面堆積物や 埋没土壌を対象としたテフラ分析や河川流路堆積物を対象とした IRSL 法による年代測定を行い、環流 旧河谷の離水年代の制約に取り組む予定である。



図 3.2.2-1 内陸部を対象とした研究開発の事例地域

環流旧河谷の分布は,高取ほか(2013)<sup>3</sup>のデータベースに基づく。背景の色別標高図は国土地理院の基盤地図情報 5 m メッシュ DEM を用いて作成した。



図 3.2.2-2 離水地形区分図 背景図に地理院タイル(陰影起伏図)を用いて作成した。



図 3.2.2-3 離水地形の縦断プロファイルと調査地点

環流旧河谷の標高については、旧流路の攻撃斜面と環流丘陵との間に分布する平坦面の標高をプロ ットした。



図 3.2.2-4 ボーリングコアの掘削地点 背景図に地理院タイル(傾斜量図)を用いて作成した。



図 3.2.2-5 ボーリングコアの柱状図 掘削地点については,図 3.2.2-4 を参照。

#### 参考文献

- 1) 安江健一,高取亮一,谷川晋一,二ノ宮 淳,棚瀬充史,古澤 明,田力正好,内陸部における侵 食速度の指標に関する検討:環流丘陵を伴う旧河谷を用いた研究,地質学雑誌,vol.120, no.12, 2014, pp.435-445.
- 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.
- 3) 高取亮一, 安江健一, 谷川晋一, 二ノ宮 淳, 日本列島における環流旧河谷分布データベースの 作成, JAEA-Data/Code 2012-028, 2013, 15p.
- 4) 杉山雄一,寒川 旭,下川浩一,水野清秀,静岡県御前崎地域の段丘堆積物(上部更新統)と更 新世後期における地殻変動,地質調査所月報,vol.38, no.8, 1987, pp.443-472.

# 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。<sup>238</sup>U(半減期:約 44億6,800万年)及び<sup>235</sup>U(半減期:約 7億380万年)の壊変を利用する 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(<sup>234</sup>U, 半減期:約 245,500年)とトリウム-230(<sup>230</sup>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、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適宜実施している(石丸ほか,2019<sup>1)</sup>;2020<sup>2)</sup>)。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, 分析値較正に必要不可欠 な標準試料の選定と開発(合成)及び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, 20191))。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, 1957<sup>4</sup>; Fabian, 1987<sup>5</sup>; Fossilworks<sup>6</sup>), 六方サンゴ(Placosmilia vidali): 推定年代範囲約86~85 Ma(Pomar et al., 20057)),大型有孔虫(貨幣石)(Nummulites boninensis):推定年代範囲約44~40 Ma (Kaneoka et al., 1970<sup>8)</sup>;海野ほか, 2009<sup>9)</sup>; Ishizuka et al., 2006<sup>10)</sup>))のLA-ICP 質量分析法による U-Pb 年 代測定から得られる年代値と化石試料の生息年代が良い一致を示し,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., 2017<sup>11)</sup>)が選定・評価されている 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(Roberts et al., 2020<sup>12)</sup>)。令和元年 度までに、UとPb濃度及びPb同位体組成について均質性の高い合成標準物質の評価と炭酸塩鉱物 の U-Pb 年代測定への適用性評価を行った (Miyajima et al., 2021<sup>13)</sup>)。

# (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(特 にジルコン等の鉱物分析)の年代測定技術開発の傾向でもある。分析装置の技術的な革新に伴い,元 素・同位体分析の感度や精度が向上したことにより、炭酸塩鉱物の年代測定手法の整備も国内外で急速 に進みつつある。特に, 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., 2014<sup>14</sup>); Coogan et al., 2016<sup>15</sup>); Roberts and Walker, 2016<sup>16</sup>)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)<sup>12)</sup>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)<sup>11)</sup> 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±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 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。また、炭酸塩鉱物をはじめ国際的に古くから実施されているジルコンの U-Pb 年代測定の事例を積 み重ねていくことで、データの信頼性の向上や分析精度の向上を図る必要がある。

# (3) 実施内容·結果

令和2年度は、U-Pb年代測定の高精度化、高空間分解能化を目指し、ジルコンの年代測定を中心に 事例研究の積重ねを重点的に行った。生成年代の異なる岩体の試料を用い、既往研究から得られる地 質学的背景や既報年代値と比較することで、U-Pb年代測定の汎用性とデータの信頼性に寄与すると考 えられる。飛騨山脈黒部地域に分布する黒部川花崗岩体、北上山地に分布する堺ノ神深成岩体、遠野 複合深成岩体及び山地東縁部に分布する浄土ヶ浜の古第三紀流紋岩類から採取されたジルコン等複 数の火成岩体の試料を分析対象とした。火成岩体の試料を分析した結果の一例(北上山地北部の花崗 岩:既報年代値130~120 Ma(土谷ほか,2015<sup>17)</sup>;Osozawa *et al.*,2019<sup>18)</sup>))を図 3.3.1-1 に示す。また、特 に世界一若い生成年代を示す花崗岩が露出しているとされる黒部川花崗岩体のジルコンの U-Pb 年代 測定では、放射壊変起源の Pbを高感度に検出し、さらにジルコン晶出時の U-Th の非平衡を考慮する 必要があるため、Sakata (2018)<sup>19</sup>に基づき、若い(概ね< 2 Ma)ジルコンの分析条件及び解析手法の検 討も実施した(図 3.3.1-2、表 3.3.1-1)。

# (4) 主な成果と課題

令和2年度に実施した各火成岩体のジルコン U-Pb 年代測定結果は、概ね年代値として3%(2σ)以内の不確かさで分析可能であり、また、既報の年代値と良い整合性が確認された。また、200万年前よりも後に生成した若いジルコンを U-Pb 法により精度良く年代測定する手法の検討を行い、飛騨山脈黒部地域に分布する黒部川花崗岩体の試料を対象として、U-Pb 年代測定を実施した。放射非平衡を考慮すべき(U-Pb 系に対して)若い年代(<2Ma)を示す試料については、古い試料と比較して<sup>238</sup>U,<sup>235</sup>Uを起源とする放射壊変起源のPb(それぞれ、鉛-206(<sup>206</sup>Pb)、鉛-207(<sup>207</sup>Pb))の量が少なく、特に<sup>207</sup>Pb につい

ては初生的に含まれる Pb の量と比較しても同等程度となるため、レーザー出力の検討等適切な分析条件を検討した。また、ジルコン晶出時のマグマとの U-Th 非平衡を考慮し、補正した場合と、そうでない場合とでは、年代値として 1~5%程度変化する可能性があることが判明した。

今後はさらにジルコンや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。 特に炭酸塩鉱物については,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。



図 3.3.1-1 北上山地北部の花崗岩から採取されたジルコンの U-Pb 年代測定結果の例



図 3.3.1-2 黒部川花崗岩体から採取されたジルコンの <sup>238</sup>U-<sup>206</sup>Pb 年代測定結果の例 青で示したデータは加重平均の算出で除外したデータ。左は放射非平衡の補正前,右は補正後の結 果を表す。

表 3.3.1-1 2 Ma より若いジルコンの U-Pb に適した LA-ICP の質量分析条件

| レーザーアブレーション装置     |   |
|-------------------|---|
| 機種名               | Photon Machines 社製 Analyte G2   |
| レーザータイプ           | エキシマーレーザー(レーザー光波長 193 nm)   |
| レーザーフルエンス         | 5.0 [2.0] J cm <sup>-2</sup>  |
| クレーターサイズ          | 30 [15-20] μm circle  |
| 繰り返し周波数           | 15 [10] Hz (300 [200] shots)  |
| サンプルキャリアガス        | Не  |
| キャリアガス流量          | 1.0 L/min   |
|                   |   |
| マルチコレクタ ICP 質量分析装 | 置   |
| 機種名               | Thermo Fisher Scientific 社製 Neptune-Plus  |
| (進行波)電力           | 1,200 W   |
| サンプルキャリアガス        | Ar  |
| Ar キャリアガス流量       | 0.85 -1.0 L/min   |
| 積分時間              | 0.066 s (×700 ratios)   |
| モニターした同位体         | <sup>202</sup> Hg (CDD), <sup>204</sup> Pb (CDD), <sup>206</sup> Pb (SEM), <sup>207</sup> Pb (SEM), |
|                   | <sup>208</sup> Pb (SEM), <sup>232</sup> Th (FC), <sup>238</sup> U (FC)                              |
|                   | *CDD: Compact Discrete Dynode, SEM: Secondary Electron  |
|                   | Multiplier, FC: Faraday Cup   |
|                   |   |

[]内の値は、2 Ma より古いジルコンを分析する時の分析条件

# 参考文献

- 1) 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.
- 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 2) 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,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), JAEA-Research 2020-011, 2020, 67p.
- 3) Yokoyama, T., Kimura, J., Mitsuguchi, T., Danhara, T., Hirata, T., Sakata, S., Iwano, H., Maruyama, S., Chang Q., Miyazaki, T., Murakami, H., Saito-Kokubu, Y., U-Pb dating of calcite using LA-ICP-MS: Instrumental setup for non-matrix-matched age dating and determination of analytical areas using elemental imaging, Geochemical Journal, vol.52, no.6, 2018, pp.531-540.
- 4) Galloway, J.J., Kaska, H.V., Genus Pentremites and its species, Geological Society of America, vol.69, 1957, pp.1-114.

- 5) Fabian, R.S., Relation of biofacies to lithofacies in interpreting depositional environments in the Pitkin Limestone (Mississippian) in northeastern Oklahoma (Part I), Shale Shaker, vol.37, 1987, pp.76-95.
- 6) Fossilworks: Gateway to the paleobiology database, http://fossilworks.org/bridge.pl?a=collectionS earch&taxon\_no=30913&max\_interval=Chesterian&country=United States&state=Oklahoma&is\_rea 1 user=1&basic=yes&type=view&match subgenera=1 (参照:2021年5月21日).
- 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.
- 8) Kaneoka, I., Isshiki, N., Zashu, S., K-Ar ages of the Izu-Bonin Islands, Geochemical Journal, vol.4, no.2, 1970, pp.53-60.
- 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.
- Ishizuka, O., Kimura, J., Li, Y.B., Stern, R.J., Reagan, M.K, Taylor, R.N., Ohara, Y., Bloomer, S.H., Ishii, T., Hargrove III, U.S., Haraguchi, S., Early stages in the evolution of Izu-Bonin arc volcanism: New age, chemical, and isotopic constraints, Earth and Planetary Science Letters, vol.250, no.1-2, 2006, pp.385-401.
- Roberts, N.M.W., Rasbury, E.T., Parrish, R.R., Smith, C.J., Horstwood, M.S.A., Condon, D.J., A calcite reference material for LA-ICP-MS U-Pb geochronology, Geochemistry, Geophysics, Geosystems, vol.18, no.7, 2017, pp.2807-2814.
- 12) Roberts, N.M.W., Drost, K., Horstwood, M.S.A., 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, no.1, 2020, pp.33-61.
- 13) Miyajima, Y., Saito, A., Kagi, H., Yokoyama, T., Takahashi, Y., Hirata, T., Incorporation of U, Pb and rare earth elements in calcite through crystallisation from amorphous calcium carbonate: Simple preparation of reference materials for microanalysis, Geostandards and Geoanalytical Research, vol.45, no.1, 2021, pp.189-205.
- 14) 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.
- 15) Coogan, L.A., Parrish, R.R., Roberts, N.M.W, 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.
- 16) Roberts, N.M.W., Walker, R.J., U-Pb geochronology of calcite-mineralized faults: Absolute timing of rift-related fault events on the northeast Atlantic margin, Geology, vol.44, no.7, 2016, pp.531-534.
- 17) 土谷信高,武田朋代,足立達朗,中野伸彦,小山内康人,足立佳子,北上山地の前期白亜紀ア ダカイト質火成活動とテクトニクス,岩石鉱物科学,vol.44, no.2, 2015, pp.69-90.
- 18) Osozawa, S., Usuki, T., Usuki, M., Wakabayashi, J., Jahn, B., Trace elemental and Sr-Nd-Hf isotopic compositions, and U-Pb ages for the Kitakami adakitic plutons: Insights into interactions with the early

Cretaceous TRT triple junction offshore Japan, Journal of Asian Earth Sciences, vol.184, 2019, 103968, doi:10.1016/j.jseaes.2019.103968.

19) Sakata, S., A practical method for calculating the U-Pb age of Quaternary zircon: Correction for common Pb and initial disequilibria, Geochemical Journal, vol.52, no.3, 2018, pp.281-286.

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,2018<sup>1)</sup>)。東 濃地科学センターでは,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,2019<sup>2)</sup>)。

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., 2010<sup>3</sup>)。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,FT 法や(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., 2010<sup>3</sup>);King et al., 2016<sup>4</sup>);Herman and King, 2018<sup>5</sup>;Ault et al., 2019<sup>6</sup>)。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(鉱物が比較的短時間で地下深部 の高温領域から地表に到達した)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, 2018<sup>5</sup>)。一方,Guralnik et al. (2015)<sup>7</sup>)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., 1997<sup>8</sup>))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1km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、深度数百 m 以浅における 10 万年 スケールの侵食史の復元を可能とする OSL 熱年代法の技術開発を進めた。昨年度までは、東濃地域の 大深度ボーリングコアを用いて、侵食速度が比較的遅い地域(0.1 mm/yr 以下)に対する長石の multi-OSL 熱年代法の適用性を検討した。令和 2 年度は、六甲地域を事例に、侵食速度が中程度(0.1~1.0 mm/yr 程度)の地域に対する長石の multi-OSL 熱年代法の適用性を検討した。

# (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 が利用されていたが(例えば, Herman et al., 2010<sup>3)</sup>),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., 2016<sup>4)</sup>;Herman and King, 2018<sup>5)</sup>;塚本, 2018<sup>1)</sup>),近年では長石の 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 万~50 万年(塚本, 2018<sup>1)</sup>))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, 1973<sup>9)</sup>))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, 2018<sup>5)</sup>):

$$\frac{d\tilde{n}}{dt} = Trapping - Thermal \ detrapping - A thermal \ detrapping \tag{1}$$

 $d\tilde{n}/dt$ 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.*, 2016<sup>4</sup>);Herman and King, 2018<sup>5</sup>):

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

**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( $3 \times 10^{-15}$  /s),  $\rho'$  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  $n \ge T$ 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., 2016<sup>10)</sup>)。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 MET 測定プロトコル(Li and Li, 2011<sup>11)</sup>)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、侵食速度が中程度(0.1~1 mm/yr)と予想される六甲山地を事例対象地域とした。六甲山地は、大阪層群の海成粘土 Ma-1 の堆積(約 1 Ma)以降に少なくとも 500 m の隆起(隆起速度:0.5 mm/yr 以上)を起こしたことが知られている(藤田、1983<sup>12)</sup>)。末岡ほか(2010)<sup>13</sup>)は AFT 法で求めた年代(約 20~30 Ma)から現在までの平均侵食速度を約 0.04~0.10 mm/yr と報告したが、松四ほか(2014)<sup>14</sup>)は石英中の宇宙線生成核種(<sup>10</sup>Be)から、六甲山地流域の 10<sup>3</sup> 年スケールの侵食速度を 0.37~0.81 mm/yr と算出した。両者の不一致の原因として、六甲山地の侵食速度が、1 Ma 以降の地殻変動の活性化(六甲変動(藤田、1983<sup>12)</sup>))によって増加した可能性が挙げられている(松四ほか、2014<sup>14</sup>))。これらの先行研究の結果より、10<sup>4</sup>~10<sup>5</sup>年スケールの侵食速度は 0.1 mm/yr から 1 mm/yr 程度と予想される。

六甲山地の OSL 熱年代用分析試料として, 防災科学技術研究所所有の掘削深度 1,313.2 m の「甲山」ボーリングコア(兵庫県西宮市甲山森林公園内で採取されたもの)を用いた(山田ほか, 2012<sup>15</sup>))。甲山は六甲山地の南東部, 芦屋断層と甲陽断層の間に位置する。甲山は, 瀬戸内火山帯に属する中新世の火山が侵食されることによって形成された旧火道の残丘であると考えられている(藤田・笠間, 1982<sup>16</sup>);藤田, 1983<sup>12</sup>)。甲山の山体は輝石安山岩で構成されるが, 甲山コアは甲山の西約 300 m の位置で掘削されているため, この地域の基盤岩である後期白亜紀の六甲花崗岩で構成される。六甲花崗岩は, 黒雲 母カリウム・アルゴン(K-Ar)法や全岩ルビジウム・ストロンチウム(Rb-Sr)法のような比較的閉鎖温度が高い(それぞれ 350~400 °C,約 700 °C) 手法では,約 70 Ma の年代を示している(河野・植田, 1966<sup>17)</sup>;藤田・前田, 1984<sup>18</sup>; Terakado and Nohda, 1993<sup>19</sup>)。甲山コアのうち,風化や断層破砕帯の著しい部分や, ノンコアリング掘削部分を避け,408 m(KBT-1),642 m(KBT-2),818 m(KBT-3), 1,048 m(KBT-4)の計4

地点の試料を採取した。本年度は、このうち、KBT-1、KBT-2、KBT-4の3試料の測定を行った。

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砕し,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<sup>3</sup>未満のフラクションを抽出した。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、東濃地科学センター所有の β 線源 (<sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y:2.96 GBq:0.226 Gy/s)を搭載した TL/OSL reader (Risø 製 TL/OSL-DA-20 (Bøtter-Jensen *et al.*, 2010<sup>20)</sup>))を利用した。加熱率は 5 °C/s、測 定温度は 50, 100, 150 及び 225 °C に設定した。200 °C 以上の測定は窒素雰囲気下で,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 を紫ー青色に制限するために光学フィルターBG3 と BG39 (いずれも Schott 社製)の組み合わせを利用 した。

OSL 測定では,放射線反応曲線測定,等温減衰測定及びフェーディング測定を行い,電子のトラップ 速度,熱的及び非熱的脱トラップ速度の算出に必要な物理パラメータを決定した。また,数値解析ソフト ウェアの Mathworks 社製 MATLAB を用いて,熱史を推定した。推定手順としては,まず温度-時間パス を無作為に発生させ,求めた物理パラメータを基に,それぞれのパスに対応する電子のトラップの成長曲 線を計算した。この中から試料の蓄積トラップ電子量(等価線量)に到達する成長曲線のみを抽出するこ とで,実測値とよく適合する温度-時間パスの分布範囲を制約し,熱史の復元及び信頼性の評価を行っ た。モデリングの条件として,温度-時間パスの終点の温度は,掘削深度における孔内温度とした(山田 ほか,2012<sup>15</sup>)。始点の年代と温度は,multi-OSL 熱年代法を開発した King *et al.* (2016)<sup>10</sup>に倣い,0.5 Ma と 150 ℃ とした。

OSL 熱年代測定の結果を図 3.3.2-1 に示す。図の色相は、パスの確率密度(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±60%信頼区間、黒線が±90%信頼区間の範囲を示す。時間ごとのパスの分布の中央値(赤線)、もしくはその周辺を通り、かつパスの確率密度分布の高い部分(色相が暖色系の部分)が信頼性の高い熱史を表す。

KBT-1(408 m)とKBT-2(642 m)については, multi-OSL 熱年代法の適用上限である 20 万年まで, 暖 色系の確率密度が現在の温度(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。これより, 過去 10 万~20 万年間にわたって温度変化がほとんどない, すなわち, 大きな侵食 を経験していないことが推測される。一方, KBT-1とKBT-2よりも深部に位置する KBT-4(1,048 m)は, 20 万~15 万年前に急激な温度変化を示すように黄~緑の確率密度が分布し, その後, 現在温度付近に分 布する。全パスの中央値も確率密度分布の推移と一致している。この結果からは, 20 万~15 万年前に何 らかの熱イベントが生じたことが推測される。これらの結果より推測される二通りの熱史を, それぞれの OSL 熱年代測定結果の解釈とともに以下にまとめる:

A) 過去約 20 万年間は,熱的に安定(侵食が緩慢)であった。KBT-4 の 15 万~20 万年の温度変化は, 試料の特性ないし局所的な熱イベントに起因しており,広域的な侵食を反映しているわけではない。すな わち,KBT-4 のみ年間線量率が高かった等の理由で,15 万年以前は multi-OSL 熱年代法の適用上限 外になっており,実際の熱史を反映していない,もしくは,深度1km付近で生じた局所的な熱イベント(例 えば、断層運動や熱水活動)を反映していることが考えられる。甲山コアは断層調査のために掘削された コアであり、深部で破砕帯をくり抜いていることからも、局所的熱イベントが発生した可能性はある。

B) 15 万~20 万年前に大きな温度変化(侵食)が生じ,その後は侵食が緩慢になった。KBT-1 と KBT-2 の OSL 熱年代測定の結果が温度変化を反映していないのは,地温の差が原因と考えられる。ルミネッセンスの成長曲線は飽和曲線形であり,飽和に近づくほど精度が悪くなるため,閉鎖温度に近い温度であると,温度変化に対するトラップ電子の蓄積変化の感度が悪くなると考えられる。そのため,浅部に位置する KBT-1 と KBT-2 においては, OSL 熱年代モデリングに有意な変化として表すには, 15 万~20 万年の温度変化量は不足であったと考えられる。しかし, KBT-4 の温度変化から換算した削剥量は km オーダーになり,既往の知見に基づく六甲山地の隆起・侵食史とは一致しないことから, B)シナリオの可能性は低いと考えられる。

いずれにしても、少なくとも過去約 10 万年間は侵食が緩慢であることが推測された。10 万年前以前の 熱史の解釈については、KBT-3 (818 m)の結果と併せて、ルミネッセンスシグナル飽和値及び OSL の閉 鎖温度の評価も踏まえて、信頼性を高めていくことが課題である。また、熱史から侵食史への読み替えに おいては、地形発達・地殻変動、隆起・侵食速度等に関する先行研究との比較検討を通じて、慎重に議 論する必要があると考えられる。

# (4) 主な成果と課題

甲山(六甲山地)で掘削された大深度ボーリングコアに対して OSL 熱年代法を適用し、少なくとも過去 約10万年間は侵食が緩慢であることが推測された。しかし、10万年前以前の熱史・侵食史については、 本年度の研究結果では二通りの可能性が考えられ、一方に絞り込むことはできなかった。今後は、KBT-3 の結果やルミネッセンスの物理パラメータ、地形発達・変動、隆起・侵食速度等に関する先行研究を基に、 甲山の侵食史を推定することが課題である。また、様々な地形・地質・テクトニクス条件の地域で、OSL 熱 年代法の事例対象を増やすことで、OSL 熱年代法の適用可能性をより詳細に評価することも望まれる。

JAEA-Research 2021-007





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

#### 参考文献

- 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.
- 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.
- 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.K., Gautheron, C., 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., Rhodes, E.J., OSL-thermochronometry of feldspar from the KTB borehole, Germany, Earth and Planetary Science Letters, vol.423, 2015, pp.232-243.
- Hirschmann, G., Duyster, J., Harms, U., Kontny, A., Lapp, M., de Wall, H., 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.
- King, G.E., Herman, F., Lambert, R., Valla, P.G., Guralnik, B., Multi-OSL-thermochronometry of feldspar, Quaternary Geochronology, vol.33, 2016, pp.76-87.
- 11) 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.
- 12) 藤田和夫,日本の山地形成論一地質学と地形学の間一,蒼樹書房,1983,466p.
- 13) 末岡 茂,田上高広,堤 浩之,長谷部徳子,田村明弘,荒井章司,山田隆二,松田達生,小村健 太朗,フィッション・トラック熱年代に基づいた六甲地域の冷却・削剥史,地学雑誌,vol.119, no.1, 2010, pp.84-101.
- 14) 松四雄騎,松崎浩之,牧野久識,宇宙線生成核種による流域削剥速度の決定と地形方程式の検 証,地形,vol.35, no.2, 2014, pp.165-185.

- 15) 山田隆二,小村健太朗,池田隆司,野島断層における深層掘削調査の概要と岩石物性試験結果 (平林・岩屋・甲山),防災科学技術研究所研究資料,vol.371,2012,27p.
- 16) 藤田和夫, 笠間太郎, 大阪西北部地域の地質 地域地質研究報告(5万分の1地質図幅), 地質調 査所, 1982, 112p.
- 17) 河野義礼, 植田良夫, 本邦産火成岩の K-Ar dating (V) 一西南日本の花崗岩類一, 岩石鉱物鉱 床学会誌, vol.56, no.5, 1966, pp.191-211.
- 18) 藤田和夫,前田保夫,須磨地域の地質 地域地質研究報告(5 万分の1 地質図幅),地質調査所, 1984,101p.
- Terakado, Y., Nohda, S., Rb-Sr dating of acidic rocks from the middle part of the Inner Zone of southwest Japan: tectonic implications for the migration of the Cretaceous to Paleogene igneous activity, Chemical Geology, vol.109, no.1-4, 1993, pp.69-87.
- 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(<sup>26</sup>Al)年代測定法, 塩素-36(<sup>36</sup>Cl)年代測定法, ヨウ素-129(<sup>129</sup>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(<sup>10</sup>Be),炭素-14(<sup>14</sup>C),<sup>26</sup>Al,<sup>36</sup>Cl,<sup>129</sup>I等の複数の長半減期放射性核種の年代測定が可能となるタンデム型加速器 質量分析計(ペレトロン年代測定装置)を導入し,平成9年から整備を開始した。

施設整備後,過去 5 万年程度までの年代が推定でき,需要が最も多い<sup>14</sup>C 測定を開始し(Xu et al., 2000<sup>1)</sup>),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, 2008<sup>2)</sup>;丹羽ほか, 2009<sup>3)</sup>;丹羽ほか, 2010<sup>4)</sup>等)に利用されている。このほか,これまでは原子力機構が進める環境科学研究(Nakanishi et al., 2014<sup>5)</sup>;Nakanishi et al., 2012<sup>6)</sup>;竹内ほか, 2014<sup>7)</sup>),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., 2013<sup>8)</sup>;奥野ほか, 2015<sup>9)</sup>;Mirabueno et al., 2014<sup>10)</sup>;國分ほか, 2014<sup>11)</sup>)。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., 2013<sup>12)</sup>;Matsubara et al., 2014<sup>13)</sup>;Saito-Kokubu et al., 2015<sup>14)</sup>;南ほか, 2015<sup>15)</sup>)。

第2期中期目標期間では、<sup>14</sup>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<sup>10</sup>Be年代測定の実用化を行った。<sup>10</sup>Be年代測定に係る試料調製、ペレトロン年 代測定装置の設定及び調整、データ解析に至る一連の技術の整備に取り組みつつ、標準試料を用いた 試験測定を進めた。その結果、精確な結果が定常的に得られることを確認でき、ルーチン測定に向けた 測定技術の整備を平成24年度末をもって完了し(國分ほか、2013<sup>16</sup>);松原ほか、2013<sup>17)</sup>;Saito-Kokubu *et al.*, 2015<sup>14)</sup>)、平成25年度から施設供用制度による<sup>10</sup>Beの依頼測定の受け入れ開始や実用化を達成し た。また、<sup>10</sup>Be年代測定法の開発に並行して、<sup>26</sup>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、<sup>26</sup>Al及び<sup>36</sup>Clの定量法を確立し、<sup>26</sup>Al,<sup>36</sup>Cl及び<sup>129</sup>Iの年代測定法を 実用化することを目指す。さらに、ペレトロン年代測定装置で測定可能な他の宇宙線生成核種等を用い た年代測定法について検討するため、試料調製法や測定法等に係る文献調査にも着手し、検出器の改 良等に関する研究開発も行っていく。このうち平成27年度~平成29年度は平成27年度に実用化した <sup>26</sup>Al年代測定法の高度化のための検討及び<sup>36</sup>Cl年代測定法実用化に向けた検討に加え、<sup>129</sup>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<sup>129</sup>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、2019<sup>18</sup>)。令和元年度は<sup>26</sup>Al年代測定法及び<sup>129</sup>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、<sup>36</sup>Cl 年代測定法実用化に向けた検討を引き続き行った。 (2) 当該分野に係る科学的・技術的背景

宇宙線は大気中の元素や地表物質と反応し、各種の放射性核種を生成する。そのような反応で生成した宇宙線生成核種である<sup>26</sup>Al及び<sup>36</sup>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<sup>26</sup>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<sup>26</sup>Alの蓄積量を定量し<sup>10</sup>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、<sup>36</sup>Cl年代測定法及び<sup>129</sup>I年代測定法は、これまでに行ってきた<sup>14</sup>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、<sup>14</sup>C年代測定法より古い年代を測定できるためこれらを組み合わせることにより精度を上げることが可能となる。

現在,国内で<sup>26</sup>Al 測定及び<sup>36</sup>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, 2007<sup>19)</sup>; Matsuzaki *et al.*, 2007<sup>20)</sup>)及び筑波大学(笹ほか, 2015<sup>21)</sup>)に限られている。また<sup>129</sup>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<sup>129</sup>I 測定の需要も高まっ ていることから,<sup>26</sup>Al 年代測定,<sup>36</sup>Cl 年代測定及び<sup>129</sup>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

<sup>36</sup>Cl 年代測定法の実用化に向けた研究開発として, 令和元年度は, カソードへの測定試料充填条件の検討と, 装置設定条件の検討として重イオン検出器での<sup>36</sup>Clの検出位置の確認等を行った。令和2年度は<sup>36</sup>Cl の加速器質量分析用標準試料(Sharma *et al.*, 1990<sup>22)</sup>)を使用して, 検出器の最適化やビーム調整の最適化等を行い, 試験測定を数回実施した。

検出器の最適化では、令和元年度の課題で記載した通り、重イオン検出器のガスを分子量の比較的 大きなイソブタンガスに変更することにより同重体の分離がより改善する(検出器内での<sup>36</sup>Cl と硫黄-36 (<sup>36</sup>S)のエネルギー損失の差を広げることができる)可能性がわかったため、令和元年度に用いた PR ガ ス(アルゴンガス 90 %、メタンガス 10 %の混合ガス)ではなく、イソブタンガスを入手し使用した。重イオン 検出器の窓は令和元年度と同様に 50 nm の窒化シリコンとした。また、加速電圧は加速器のコンディショ ニングを行うことにより令和元年度よりも電圧を上げることができ、4.75 MV~4.8 MV(エネルギー28.5 MeV~28.8 MeV)で行い、本電圧による<sup>36</sup>Cl と<sup>36</sup>S の分離具合も確認した。

各標準試料の試験測定の結果を図 3.3.3-1 左)に、代表的な重イオン検出器でのヒストグラムを図 3.3.3-1 右)に示す。また、上段は標準試料 S4-1(公称同位体比:1.000×10<sup>-11</sup>)の結果であり、この試料を 基準として他の標準試料の補正を行っている。下段は補正した後の標準試料 S4-2(公称同位体比: 5.000×10<sup>-12</sup>)の結果を表している。ばらつきはあるものの大体公称値の付近に結果が得られていることが わかる。一方、同じ測定バッチの中に、標準試料 S4-3(公称同位体比:1.600×10<sup>-12</sup>)と標準試料 S5(公称 同位体比:5.000×10<sup>-13</sup>)も一緒に入れて測定を行った。しかし、これらは <sup>36</sup>S の影響を受けて、公称同位体 比よりも明らかに同位体比が高くなった。これは <sup>36</sup>S が <sup>36</sup>Cl のゲート枠(図 3.3.3-1 右)の丸で示した部分) に多くカウントされ、見かけ上の <sup>36</sup>Cl の個数が増えたためと考えられる。さらに、<sup>36</sup>S の混入が少ないと考 えられる富士フイルム和光純薬(株)製の塩化銀を測定した結果では公称値はないが、1×10<sup>-13</sup>~10<sup>-12</sup> 程 度で測定結果が推移していたため、本装置において 1×10<sup>-13</sup> 程度まで測定できることを確認した。

また,一般的に加速電圧が高くなるほど,<sup>36</sup>Clと<sup>36</sup>Sの分離能力が高くなると考えられるが,本試験測定では図 3.3.3-1 左)の結果のうち最初の 3 回は 4.75 MV で,最後の 1 回は 4.8 MV で実施しており, 4.8

MV の結果のほうが著しく分離されたという結果ではなかったことがわかる。つまり, 現時点では <sup>36</sup>Cl の同 位体比を測定するにあたり, 0.05 MV の加速電圧の増加では <sup>36</sup>Cl と <sup>36</sup>S の分離能力の向上は見られない ことがわかった。

# (4) 主な成果と課題

<sup>36</sup>Cl 年代測定法の実用化に向けた研究開発においては,標準試料の前処理及び試験測定を一通り 行うことができ,1×10<sup>-13</sup> 程度の測定が可能であることを確認した。今後の検討として,標準試料中の硫黄 を除去するため未知試料の試料調製法と同様の作業を実施する等して低同位体比測定に向けて試験 測定を引き続き実施していきたい。また測定時のゲート枠の設定の安定化等についても検討していきた い。

このほか<sup>26</sup>Al 年代測定法については、令和2年度も引き続き実試料の測定を行っており、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<sup>26</sup>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。

<sup>129</sup>I年代測定法については、令和元年度よりルーチン測定を開始しており、令和2年度も未知試料の 測定数を増やすことができ、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。 今後も引き続き、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 施設間比較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。超小型加速器質量分析装置の試験機については、令和元年度に引き続き試 験機を使用した試験を行い、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。



図 3.3.3-1 左)標準試料 S4-1とS4-2の試験測定結果。X 軸が測定日, Y 軸が同位体比を表す。右)重 イオン検出器で検出した<sup>36</sup>Clと<sup>36</sup>S。(1,000 サイクル(約 100 秒)で測定)<sup>36</sup>Cl は丸で囲んだ 部分をゲート枠として設定した。

#### 参考文献

- 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<sup>14</sup>C年代の再検討, 第四紀研究, vol.47, no.6, 2008, pp.425-431.
- 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.
- Nakanishi, T., Atarashi-Andoh, M., Koarashi, J., Saito-Kokubu, Y., Hirai, K., Seasonal and snowmeltdriven changes in the water-extractable organic carbon dynamics in a cool-temperate Japanese forest soil, estimated using the bomb-<sup>14</sup>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 waterextractable 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<sup>14</sup>C 測定への影響―サルフィックスと銀板の比較―, 第16回AMS シンポジウム報告集, 2014, pp.51-55.
- 8) Okuno, M., Nakamura, T., Geshi, N., Kimura, K., Saito-Kokubu, Y., Kobayashi, T., AMS radiocarbon dating of wood trunks in the pumiceous deposits of the Kikai-Akahoya eruption in Yakushima Island, SW Japan, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol.294, 2013, pp.602-605.
- 9) 奥野 充,長岡信治,國分(齋藤)陽子,五島列島,福江島の鬼岳降下スコリア直下の土壌試料の 放射性炭素年代,月刊地球,vol.37, no.4, 2015, pp.119-121.
- 10) Mirabueno, Ma.H.T., Torii, M., Laguerta, E.P., Delos Reyes, P.J., Fujiki, T., Bariso, E.B., Okuno, M., Nakamura, T., Danhara, T., Saito-Kokubu, Y., Kobayashi, T., Stratigraphy and AMS radiocarbon dates of cored sediments (IrBH-2) from the Irosin Caldera, the Philippines, 地学雑誌, vol.123, no.5, 2014, pp.751-760.
- 11) 國分陽子, 松原章浩, 石丸恒存, 三宅正恭, 西澤章光, 大脇好夫, 西尾智博, 江門遺跡出土の 果実類及び木片の放射性炭素年代測定, 平成 24 年度土岐市市内遺跡発掘調査報告書, 2014, pp.28-30.
- 12) Saito-Kokubu, Y., Nishizawa, A., Suzuki, M., Ohwaki, Y., Nishio, T., Matsubara, A., Saito, T., Ishimaru, T., Umeda, K., Hanaki, T., Current status of the AMS facility at the Tono Geoscience Center of the Japan Atomic Energy Agency, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, vol.294, 2013, pp.43-45.
- 13) Matsubara, A., Saito-Kokubu, Y., Nishizawa, A., Miyake, M., Ishimaru, T., Umeda, K., Quaternary geochronology using Accelerator Mass Spectrometry (AMS)—Current status of the AMS system at the TONO Geoscience Center, Geochronology Methods and Case Studies, InTech, 2014, pp.3-30, ISBN 978-953-51-1643-1.
- 14) Saito-Kokubu, Y., Matsubara, A., Miyake, M., Nishizawa, A., Ohwaki, Y., Nishio, T., Sanada, K., Hanaki, T., Progress on multi-nuclide AMS of JAEA-AMS-TONO, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol.361, 2015, pp.48-53.
- 15) 南 雅代,高橋 浩,荒巻能史,國分(齋藤)陽子,伊藤 茂,中村俊夫,水試料の<sup>14</sup>C 比較プログ ラム(RICE-W)-沈殿法の検討一,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 <sup>10</sup>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 <sup>36</sup>Cl standards for AMS, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol.52, no.3-4, 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(デフラ)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では、火山ガラスの屈折率の多量測定とその統計解析により、肉眼で確認できないような微量のテフラ起源物質を同定する多量屈折率測定地質解析法(RIPL法:Refractive Index Physical Lobas)を提示した(例えば、梅田・古澤、2004<sup>1)</sup>)。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、2011<sup>2</sup>);古澤ほか、2013<sup>3)</sup>)。また、新たなテフラ同定手法の開発として、東濃地科学センターに整備し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 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 等,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。近年、LA-ICP 質量分析法による国内の広域テ フラ中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., 2015<sup>6</sup>; Maruyama et al., 20167); 古澤, 20178), テフラの同定において強力なツールとなっているが, 微量元素組成を含むデータ のカタログ化は十分には進んでおらず、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。令和元年度までに、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、2016<sup>9)</sup>;石丸ほか、2019<sup>10)</sup>、2020<sup>11)</sup>)。令和2年度は、引き続き整備 した技術の妥当性評価と実試料への適用を進め, データの蓄積を図る。

(3) 実施内容·結果

令和2年度は、火山ガラスの微量元素を精確に分析する手法の検討として、令和元年度に引き続き、 検量線法を用いた定量分析の手法の妥当性を検証した。検量線を求める標準試料として、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, NIST SRM 612, NIST SRM 614 (Jochum *et al.*, 2011<sup>12</sup>))と ATHO-G (Max-Planck-Institute 発行の標 準試料 MPI-DING (Jochum *et al.*, 2006<sup>13</sup>))を用いることを検討し, Aso-4 b-W (阿蘇火山を給源とした Aso-4 火山灰をガラスビード化した試料 Aso-4 b-W (Kimura *et al.*, 2018<sup>14</sup>))を二次標準試料とした分析か ら, どの標準試料を採用するのが適切かを評価した。また, 整備した技術の信頼性の向上を図るため, 文 献値の公表されている火山ガラス試料の分析を行った。

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。分析手法の妥当 性を評価した結果,二次標準試料 Aso-4b-W の元素濃度定量分析において,ATHO-G,NIST SRM 612, NIST SRM 614 を用いた3点で検量線を得る手法(一部の元素は、検量線の内挿となる2点で検量線を 得る手法を採用)によって得られた値が, 文献値と最も良い一致を示したため, この手法が適切であると 判断した。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: Relative Standard Deviation) < 10 %)が確認され,報告値から相対差(RD: Relative Difference(%)=(分析値-報告値)/報告値×100)±20%以下で分析可能であった。また, Scや 比較的質量数が小さい元素に関しては再現性が低く、報告値からの相対差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等,検量線の再現性そのものに問題があると考 えられる。次に,実試料への応用として,日本列島のほぼ全域に分布している更新世後期の姶良 Tn(AT) 火山灰(町田・新井,197615))と、中部日本に広く分布している前期鮮新世の大田テフラ層に対比される東 海層群(瀬戸)の東郷火山灰(森, 197116)を分析対象とした。テフラの同定に有効と考えられる次に示す 微量元素を含む 28 元素: Sc, V, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Hf, Ta, Pb, Th, U に関して分析を行った。AT 火山灰(16 点)の分析値とそれらの平均値及びばら つきを 2g 標準偏差で誤差バーとして表記し, 先行研究で報告されている結果(報告値(古澤, 2017<sup>8</sup>))と 比較した(分析値及び文献値ともに大陸地殻の各元素濃度(Taylor and McLennan, 1995<sup>17)</sup>)で規格化し た値)ところ,分析値は報告値と良い一致を示した(図 3.3.4-1)。また,東郷火山灰に含まれる火山ガラス (19点)を分析した平均値を,東郷火山灰と対比される大田火山灰の火山ガラスの報告値(Kimura et al., 2015<sup>6</sup>)と比較したところ、多くの元素で相対差±20%以下となり、良い一致を示した。また、東郷火山灰は Ba/La=42, La/Y=0.70 であること示され,田村・山崎(2004)5)で報告されている大田テフラの特徴 (Ba/La=~40, La/Y=~0.7)と一致した。一方で、Sc や V は報告値と 40 %を超える相対差を示したが、同 重体干渉の影響を受けて精確に測定できていない可能性が示唆された。

# (4) 主な成果と課題

令和 2 年度は、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と妥当性の検証を 引き続き行い、さらに実試料の分析を行った。ATHO-G、NIST SRM 612, 614 を用いた三つの標準試料 (一部は二つの標準試料)から検量線を得る手法が最も適切な手法であることがわかった。また、整備し た手法を実試料である AT 火山灰や東郷火山灰に応用し、多くの元素で報告値と一致した結果(相対差 ±20%以下)が得られた。測定元素の中で比較的質量数が小さい元素や0.5 µg/g 以下の濃度である元素 に関しては、再現性が低く、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等、検量線 の再現性そのものに問題があると考えられる。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、同重体干渉の抑制に効果的なトリプル四重極型 ICP 質量分析装置の使用を検討し、さらに 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。

今後は、分析技術の高度化を図るとともに、LA-ICP 質量分析法を用いた火山ガラスの微量元素組成 分析によって広域テフラの微量元素組成データを蓄積し、それらに基づくカタログ化を実施する。

| レーザーアブレーション装置                 |  |
|-------------------------------|--|
| 機器名                           | Analyte G2 ATL Excimer laser (Photon Machines Inc., Redmond, WA, U.S.A)  |
| セルタイプ                         | Two volume cell  |
| レーザー光波長                       | 193 nm   |
| パルス持続時間                       | < 5 ns   |
| フルエンス                         | 7.3 J/cm <sup>2</sup>  |
| 繰り返し周波数                       | 10 Hz  |
| アブレーション径/形状                   | 30 µm/ circle  |
| サンプリング法                       | Single hole drilling   |
| キャリアガス種                       | He   |
| キャリアガス流量                      | ~1.0 L/min   |
| アブレーション時間/試料                  | 20 s   |
| シグナルスムーザー                     | Homogenize type: 8 mm beads in the bottle (volume: 125 mL)   |
| ICP 質量分析装置                    |  |
| 機器名                           | Agilent7700 (Agilent Technology, Santa Clara, California, U.S.A.)  |
| 高周波出力                         | 1,500 W  |
| キャリアガス種                       | Ar   |
| キャリアガス流量                      | ~0.8 L/min   |
| コリジョン/リアクションセルガ<br>ス(流量)      | He (3.0 mL/min.)   |
| データ取得方法                       | Integration of total ion counts per single ablation  |
| 検出器構成                         | Single collector   |
| 検出モード                         | Time resolved analysis (Pulse counting mode)   |
| モニターする質量数 (amu)               | 29 (Si), 45(Sc), 51(V), 85(Rb), 88(Sr), 89(Y), 90(Zr), 93(Nb), 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), 208 (Pb), 232 (Th), 238 (U) |
| 積分時間/質量数                      | 50 ms/mass (29: (Si) 10 ms)  |
| サンプリング周期(1 サイク<br>ルあたりの総積分時間) | 1.465 s  |
| 積分時間/試料                       | 5 s  |
| ウォッシュアウトモニター時<br>間            | 85 s   |
| データ解析                         |  |
| ガスブランク                        | Gas blank counts were obtained for 15 s before each ablation pit.  |
| 較正用標準試料                       | ATHO-G (MPI-DING), NIST SRM 612, 614<br>ATHO-G, NIST SRM 61: Pb, Th, U<br>ATHO-G, NIST SRM 614: Pr, Sm, Eu, Gd, Hf, Ta   |
| 内標準元素                         | Si   |

# 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



# 図 3.3.4-1 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(16点)の元素濃度の分析値(水色)及びそれらの平均値(青色) と報告値(赤色(古澤, 2017<sup>8</sup>)))を大陸地殻の元素濃度で規格化したもの。分析値の平均値の誤差は16 点分析の2SD。

#### 参考文献

- 梅田浩司,古澤明, RIPL 法によるテフラ降灰層準の認定と最新の噴火活動の推定,月刊地球, vol.26, no.6, 2004, pp.395-400.
- 2) 中村千怜, 安江健一, 石丸恒存, 梅田浩司, 古澤 明, 緑色普通角閃石中のガラス包有物の主成 分化学組成を用いた広域テフラの対比: 阪手テフラを例として, 地質学雑誌, vol.117, no.9, 2011, pp.495-507.
- 3) 古澤 明, 安江健一,中村千怜, 梅田浩司, 根ノ上高原に分布する土岐砂礫層のテフラ層序-石英 中のガラス包有物の主成分化学組成を用いた広域テフラの対比-, 応用地質, vol.54, no.1, 2013, pp.25-38.
- 4) 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--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--,地質学雑誌, vol.110, no.7, 2004, pp.417-436.
- Kimura, J., Nagahashi, Y., Satoguchi, Y., 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.
- 7) Maruyama, S., Hattori, K., Hirata, T., Danhara, T., A proposed methodology for analyses of wide-ranged elements in volcanic glass shards in widespread Quaternary tephras, Quaternary International, vol.397,

2016, pp.267-280.

- 8) 古澤 明, レーザーアブレーション ICP 質量分析装置を用いた火山ガラスの分析による十和田カ ルデラ起源大不動テフラと八戸テフラの識別, 地質学雑誌, vol.123, no.9, 2017, pp.765-776.
- 9) 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.
- 10) 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.
- 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,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), JAEA-Research 2020-011, 2020, 67p.
- 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., 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) 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., de Bruin, D., Canil, D., Cornell, D., de Hoog, C., 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.A., Kent, A.J.R., Ludwig, T., Zack, T., Mason, P.R.D., Meixner, A., Rosner, M., Misawa, K., Nash, B.P., Pfänder, J., Premo, W.R., Sun, W.D., Tiepolo, M., Vannucci, R., Vennemann, T., 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.
- 14) Kimura, J., Chang, Q., 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.
- 15) 町田洋,新井房夫,広域に分布する火山灰一姶良Tn火山灰の発見とその意義一,科学, vol.46, no.6, 1976, pp.339-347.
- 16) 森 忍,名古屋市東部の瀬戸層群矢田川累層,地質学雑誌,vol.77, no.10, 1971, pp.635-644.
- Taylor, S.R., McLennan, S.M., The geochemical evolution of the continental crust, Reviews of Geophysics, vol.33, no.2, 1995, pp.241-265.

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では,既に<sup>14</sup>C,<sup>10</sup>Be, K-Ar 及び(U-Th)/He による年代測定法が実用化され,関 連する技術開発を継続して実施している(Watanabe et al., 2021))。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。過去の地質環境の推定に必要なデータ解析精度 の向上のためには、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 の適切な選定に加え、多地点かつ多量の分析結果を蓄積することが望ましい。したがって、地質試料の 化学分析においても分析精度の維持とともに高効率でのデータ取得を可能にする技術開発が求められ る。多量かつ必要な精度でデータを取得するためには、誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS: Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometer)等による地質試料の化学成分の微少量分析に加えて (Yokoyama et al., 2018<sup>2)</sup>; Watanabe et al., 2018<sup>3)</sup>; Nara et al., 2021<sup>4)</sup>), 蛍光エックス線分析装置(XRF: Xray Fluorescence Spectrometer)を用いた簡便かつ高効率での分析が有効である(Watanabe et al., 2020<sup>5)</sup>)。 このため令和2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,化学分析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,化学分析手法の高度化として実施した携帯型成分分析装置(ポータブル XRF)による定量法の改 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

作業効率の改善のためには、既に実用化されている化学分析法の高度化が必要となる。XRF 等による化学成分の定量分析は、地球科学研究等に必要不可欠な手法であり、岩石、鉱物、土壌及び堆積物等の分析結果をもとに、地質イベント層の検出、過去の物質循環や酸化還元環境の変動推定、また地下における水ー岩石反応等に関する情報が得られる(Niwa et al., 2020<sup>6</sup>);Watanabe et al., 2020<sup>5</sup>))。東濃地科学センターでは、既に比較的大型の波長分散型 XRF(リガク製 ZSX Primus II)が稼働しており、分析試料の前処理として高周波溶融によるガラスビード作製や粉末プレス試料の作製が必要となっている(清水ほか、2017<sup>7</sup>);Niwa et al., 2019<sup>8</sup>))。さらに、環境科学分野等で活用されている携帯型成分分析装置(Young et al., 2016<sup>9</sup>);Al-Musawi and Kaczmarek, 2020<sup>10</sup>))を地質試料中の化学成分の定量分析へ適用させることで、作業の簡略化と迅速化につながると期待される。しかし、国内での地質試料への適用例は未だ限られている(Watanabe et al., 2021<sup>11</sup>))。したがって、令和元年度までに、化学分析手法の改善として、携帯型成分分析装置(Thermo Fisher Scientific 社製 Niton XL3t-950S portable XRF)を用いた繰返し測定精度の評価及び分析条件等の検討を進めた。令和2年度は、地球化学標準試料の測定、定量分析に必要な検量線作成、測定精度の評価を実施し、断層岩や堆積物等の天然試料への適用について継続して検討を進めた。

## (3) 実施内容·結果

令和2年度は、化学分析手法の改良を継続して進めた。携帯型成分分析装置による各種試料の測定 条件の最適化を実施し、主成分及び微量成分の定量分析について検討を進めた。火成岩や堆積物等 の地球化学標準試料を用いて、定量分析に必要な検量線を作成し、断層岩等の天然試料の化学分析 への適用性を評価した。

本研究では粉末状の地球化学標準試料(産業技術総合研究所(GSJ)製,アメリカ地質調査所(USGS) 製,国際原子力機関(IAEA)製等,合計 27 種類)を使用した。標準試料は,底面にエックス線分析用の 厚さ 4 µm のポリプロピレン薄膜を貼ったリング状試料容器(Niton 製 polyethylene double open-ended sample cup,内径 26 mm)に充填した。地球化学標準試料を携帯型成分分析装置用のテストスタンド(遮 蔽体)内に設置し,Niton XL3t-950S による蛍光エックス線分析を実施した。エックス線の照射時間は 1 回 あたり 120 秒間に設定し,繰り返し測定(3 回)を実施した。今回の測定では,Mg,Al,Si,P,S,Cl,K,Ca, Ti,V,Cr,Mn,Fe,Cu,Zn,As,Rb,Sr,Zr,Nb,Ba,Pb,Th,Uの24元素を対象とした。測定対象とする元素 に適合する4種類のエックス線フィルター(main filter, low filter, high filter, light filter (Young *et al.*, 2016<sup>9</sup>))) を使用した。試料表面の測定範囲は標準仕様である 8 mm 径とした。データの取得及び解析には Niton NDT ver. 8.2 softwareを使用した。携帯型成分分析装置 Niton XL3t-950S では、ファンダメンタルパラメ ーター(FP:Fundamental Parameter)法による理論計算に基づき測定値が算出される。しかし,FP 法によ る実際の測定値と地球化学標準試料の認証値等には乖離が見られるケースが多い(Young *et al.*, 2016<sup>9</sup>))。 したがって,FP 法による測定値を補正し定量値を取得するため、地球化学標準試料を用いて検量線を 作成した(図 3.3.5-1)。

岩石等の主成分である Si, Ti, Fe, Mn, Ca, K の検量線の相関係数( $r^2$ )は 0.97 から 0.99 であり, 既設の 波長分散型 XRF(清水ほか, 2017<sup>7</sup>)と同等の結果が得られた(図 3.3.5-1)。一方, MgO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の検量線 の相関係数は 0.58 から 0.70 であった。軽元素の検量線の相関係数が比較的低い値を示す要因として, MgとAlは長波長(低エネルギー)領域での分析であることから,水分や大気成分による干渉及び試料の 表面状態の影響を強く受けるためと考えられる。また、P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> については標準試料の濃度範囲が狭いため, 相関係数は比較的低い値を示すと考えられる(図 3.3.5-1)。微量成分の検量線については, Ba以外の元 素で既設の波長分散型 XRF と同等の結果が得られた(Watanabe *et al.*, 2021<sup>11</sup>))。装置内部の部品等に 由来する Sc や標準試料に含まれる Ti の K  $\alpha$  線及び K  $\beta$  線が干渉し, Ba の L  $\alpha$  線での測定に影響が生 じている可能性がある。蛍光エックス線分析で得られた全岩化学組成に基づく環境解析や供給原推定で は、多元素かつ多量のデータを用いることが有効である(Watanabe *et al.*, 2020<sup>5</sup>)。したがって、今後は、 蛍光エックス線スペクトルの干渉補正等を適切に実施することで Ba の検量線の改善を検討し、定量分析 が可能な元素を追加していくことが望ましい。また、Cl 及び U 濃度の定量分析については既報値が公開 されている試料数が限られることから、継続して標準試料の選定及び検量線へのデータ追加を実施する 予定である。

携帯型成分分析装置の天然試料への適用性を評価するため, 既報の断層岩試料等 (Niwa et al., 2019<sup>8</sup>)を使用した。本研究で検討した携帯型成分分析装置の測定条件及び検量線を用いることで, 断層岩試料等の Ti, Fe, Mn, Ca, K, Rb, Sr, Zr, Th の定量分析を実施することが可能であった。特に, Fe, Mn, Rb, Sr 濃度等の変動傾向は既報値とよく一致した。現状の携帯型成分分析装置の適用は, 岩石等の粉末試料及び堆積物等の樹脂固化試料に限られる。したがって, 今後は粉砕前の岩石試料や野外での未処理試料の分析事例を追加しデータを蓄積することで, 携帯型成分分析装置の天然試料への適用範囲の評価及び明確化につなげていくことが重要である。

## (4) 主な成果と課題

携帯型成分分析計は、迅速な化学分析及びオンサイトでのデータ取得において重要な役割を果たす。 しかし、これまでに地質試料に含まれる化学成分の定量分析の実例は限られていた。令和2年度は、Mg からUまでの24元素について、標準試料等を用いて検量線を作成した。これらの検量線を用いて、断層 岩試料、堆積物等の天然試料の化学分析を実施した。携帯型成分分析計を用いて各試料から得られた 定量値は、一部の試料を除き既報値とよく一致した。したがって、本装置が地質試料の化学分析に有効 であることが示された。さらに、今後は、標準試料の選定を継続することで測定精度の向上と定量下限値 の評価を検討するとともに少量試料(3 mm 径試料)への適用を進める。



図 3.3.5-1 携帯型成分分析装置により得られた標準試料中の主成分の測定結果と既報値との比較
## 参考文献

- Watanabe, T., Fujita, N., Matsubara, A., Miyake, M., Nishio, T., Ishizaka, C., Saito-Kokubu, Y., Preliminary report on Small-mass graphitization for radiocarbon dating using EA-AGE3 at JAEA-AMS-TONO, Geochemical Journal, vol.55, no.4, 2021, pp.277-281.
- 2) Yokoyama, T., Kimura, J., Mitsuguchi, T., Danhara, T., Hirata, T., Sakata, S., Iwano, H., Maruyama, S., Chang Q., Miyazaki, T., Murakami, H., Saito-Kokubu, Y., U-Pb dating of calcite using LA-ICP-MS: Instrumental setup for non-matrix-matched age dating and determination of analytical areas using elemental imaging, Geochemical Journal, vol.52, no.6, 2018, pp.531-540.
- Watanabe, T., Saito-Kokubu, Y., Murakami, H., Iwatsuki, T., Onsite chelate resin solid-phase extraction of rare earth elements in natural water samples: its implication for studying past redox changes by inorganic geochemistry, Limnology, vol.19, no.1, 2018, pp.21-30.
- Nara, F.W., Yokoyama, T., Yamasaki, S., Minami, M., Asahara, Y., Watanabe, T., Yamada, K., Tsuchiya, N., Yasuda, Y., Characteristics in trace elements compositions of tephras (B-Tm and To-a) for identification tools, Geochemical Journal, vol.55, no.3, 2021, pp.117-133.
- 5) Watanabe, T., Tsuchiya, N., Yamasaki, S., Sawai, Y., Hosoda, N., Nara, F.W., Nakamura, T., Komai, T., A geochemical approach for identifying marine incursions: Implications for tsunami geology on the Pacific coast of northeast Japan, Applied Geochemistry, vol.118, 104644, 2020.
- 6) Niwa, M., Kamataki, T., Kurosawa, H., Saito-Kokubu, Y., Ikuta, M., Seismic subsidence near the source region of the 1662 Kanbun Hyuganada Sea earthquake: Geochemical, stratigraphical, chronological, and paleontological evidences in Miyazaki Plain, southwest Japan, Island Arc, vol.29, no.1, e12341, 2020.
- 7) 清水麻由子, 佐野直美, 柴田健二, 東濃地科学センターにおける蛍光 X 線分析装置を用いた岩 石試料の主要元素および微量元素の定量分析, JAEA-Testing 2016-004, 2017, 40p.
- Niwa, M., Shimada, K., Ishimaru, T., Tanaka, Y., Identification of capable faults using fault rock geochemical signatures: A case study from offset granitic bedrock on the Tsuruga Peninsula, central Japan, Engineering Geology, vol.260, 105235, 2019.
- 9) Young, K.E., Evans, C.A., Hodges, K.V., Bleacher, J.E., Graff, T.G., A review of the handheld X-ray fluorescence spectrometer as a tool for field geologic investigations on Earth and in planetary surface exploration, Applied Geochemistry, vol.72, 2016, pp.77-87.
- Al-Musawi, M., Kaczmarek, S., A new carbonate-specific quantification procedure for determining elemental concentrations from portable energy-dispersive X-ray fluorescence (PXRF) data, Applied Geochemistry, vol.113, 104491, 2020.
- 11) Watanabe, T., Ishii, C., Ishizaka, C., Niwa, M., Shimada, K., Sawai, Y., Tsuchiya, N., Matsunaka, T., Ochiai, S., Nara, F.W., Quantification and semi-quantification analyses using a portable energy dispersive X-ray fluorescence spectrometer: Geochemical applications in fault rocks, lake sediments, and event deposits, Journal of Mineralogical and Petrological Science, vol.116, no.3, 2021, pp.140-158.

This is a blank page.