

地質環境の長期安定性に関する研究

これまでの研究成果と今後の計画について

年代測定技術

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
バックエンド研究開発部門

地質環境の長期安定性に関する研究(第3期中長期計画)

① 調査技術の開発・体系化

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

② 長期予測・影響評価モデルの開発

- 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
- ②-2) 時間スケールに応じた地圏環境変動の予測技術

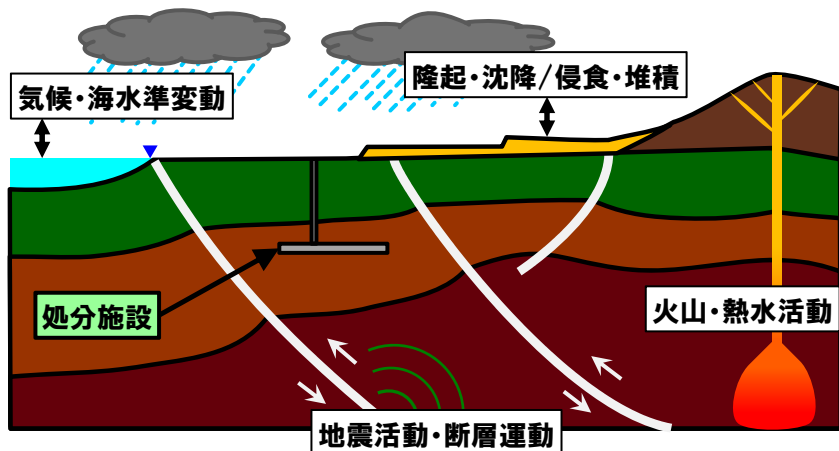
③ 年代測定技術の開発

- ③-1) ウラン系列放射年代測定法の実用化
- ③-2) 光ルミネッセンス(OSL)年代測定法の実用化
- ③-3) アルミニウム-26年代測定法, 塩素-36年代測定法の実用化
- ③-4) 高分解能のテフラ同定手法の開発
- 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

地層処分において考慮すべき自然現象

隆起・侵食／気候・海水準変動

- 生活環境と処分施設との離間距離の短縮
- 地下水の流動特性や水質の変化による放射性物質の移行への影響 等



火山・熱水活動

- マグマの貫入・噴出による処分施設の破損
- 地温上昇・熱水対流の発生, 熱水・火山ガスの混入による地下水の水質変化 等

地震活動・断層運動

- 岩盤の破断・破碎による処分施設の破損
- 岩盤の破断・破碎による地下水移行経路の形成, 岩盤歪に起因する地下水の水理学的変化 等

岩石や堆積物などの形成年代を高精度かつ高確度に求める必要あり

年代測定法

	年代測定法	適用年代（年）
放射性同位体を用いた方法	^{210}Pb 法	0～200
	^{238}U 系列(U-Th)法	$10^3 \sim 5 \times 10^5$
	^{14}C 法	$0 \sim 6 \times 10^4$
	$^{10}\text{Be}/^{26}\text{Al}$ 比法	$10^3 \sim 10^7$
	$^{40}\text{K}-^{40}\text{Ar}$ 法	$10^4 \sim 10^9$
放射線による損傷を計測する方法	熱ルミネッセンス(TL)法	$10^3 \sim 3 \times 10^5$
	光ルミネッセンス(OSL)法	$10^3 \sim 3 \times 10^5$
	電子スピン共鳴(ESR)法	$10^3 \sim 3 \times 10^6$
	フィッシュントラック法	$10^3 \sim 3 \times 10^9$
化学変化を利用した方法	アミノ酸のラセミ化法	$10^3 \sim 5 \times 10^6$
	黒曜石水和法	$10^3 \sim 3 \times 10^4$
年代マーカーと比較する方法	年輪年代法	0～ 10^4
	氷縞粘土、年縞堆積物	0～ 10^4
	火山灰層位法	0～ 10^6
	古地磁気法	0～ 5×10^6
	酸素安定同位体比法	$10^3 \sim 10^6$

中村ら(1999)より
抜粋、修正

⑤ 年代測定技術の開発

⑤-1 ウラン系列放射年代測定法の実用化

⑤-2 光ルミネッセンス(OSL)年代測定法の実用化

⑤-3 アルミニウム-26、塩素-36年代測定法の実用化

⑤-4 希ガス同位体を用いた地下水年代測定法の実用化

⑤-5 高分解能のテフラ同定手法の開発

⑤-6 地質試料を対象とした年代測定法及び化学分析手法の高度化

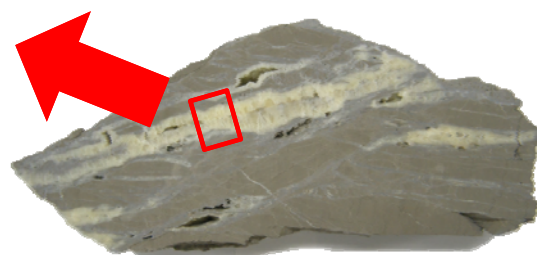
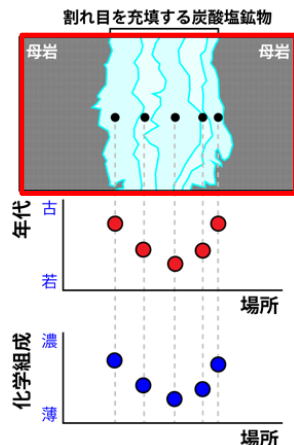
⑤-1 ウラン系列放射年代測定法の実用化

ウラン系列年代測定の開発状況

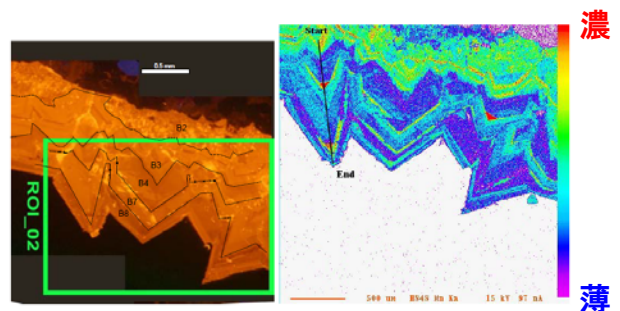
【目 標】 ○硬岩の割れ目を充填する炭酸塩鉱物の
局所領域ウラン系列年代測定技術の確立

【実施項目】

- ① ○ジルコンのU-Pb同位体分析によるLA-ICP-MSの実用化
- ② ○元素・同位体マッピング(イメージング)手法の構築
- ③ ○炭酸塩鉱物の分析に必要な標準試料の選定



堆積岩(稚内層)の割れ目を充填する炭酸塩
(横田・吉田, 2013)



炭酸塩鉱物のCL像とMn濃度分布
(Milodowski et al., 2005)

ウラン系列年代測定の開発状況

東濃地科学センター 土岐地球年代学研究所
微小領域同位体分析室

レーザーアブレーション装置
(Photon-machines社製: Analyte G2)



U-Pb同位体比測定用
二重収束型誘導結合プラズマ質量分析計
(Thermo Scientific社製: NEPTUNE-plus)

ジルコンの分析による分析装置の実用化

平成26年度に導入したLA-ICP質量分析装置による分析技術の確立を目的として、既往研究が進んでいるジルコンを対象に前処理・分析・解析の一連の手順を確認

⇒測定値と文献値との比較から、分析条件を再検討し間もなく実用化

装置実用化の流れ

試料の入手及び調整
✓ 前処理コンタミ評価
✓ 標準試料の入手

ICP質量分析計の分析条件の最適化

- ✓ 測定元素の酸化物生成の制御
- ✓ データ取得条件
- LA装置の照射条件の最適化
 - ✓ 照射強度
(径、エネルギー密度、繰り返し周波数)
 - ✓ 試料運搬効率

データ解析

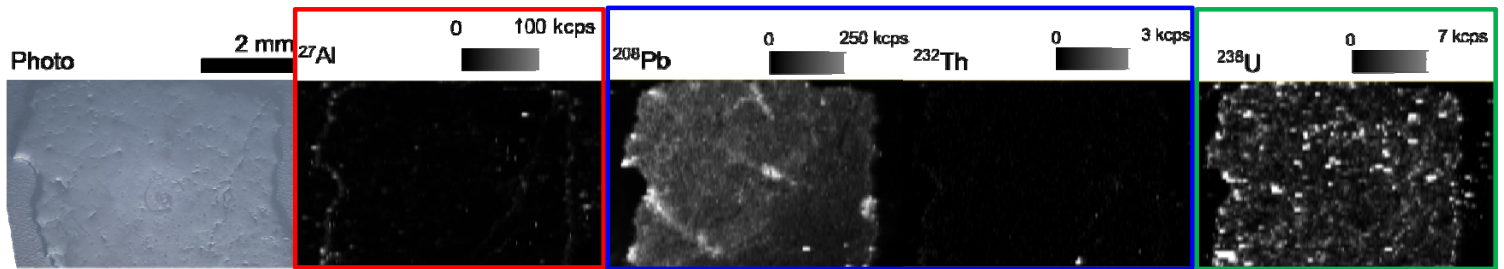
- ✓ 解析データの選別
- ✓ 干渉補正
- ✓ 年代計算

ウラン系列年代測定の開発状況

LA-ICP質量分析法による元素・同位体イメージング分析技術の構築

年代測定における分析点の選定や試料の均質性を可視化するため、四重極型ICP質量分析計とレーザーアブレーション装置を組み合わせたイメージング分析技術を構築

適用例：南シベリアGorny Altai山地 Kurai付加体中の炭酸塩鉱物 (KR Loc.3-6) のイメージング
(共同研究：京都大学-(株)京都フィッション・トラック-JAMSTEC)



- イメージング分析から
Alの分布：砕屑物評価、 ^{232}Th - ^{208}Pb との関係：初生Pbの見積もり、 ^{238}U ：分析点の選定
が可能となることが示唆される
⇒同位体分析を実施する前段階として重要な情報を得ることができる

ウラン系列年代測定の開発状況

マトリクスの一致した“炭酸塩鉱物”の標準試料の選定

1. 標準試料候補の入手

- 化石（有孔虫など）、蒸発岩、サンゴ、鍾乳石・・・etc.

2. 目的元素濃度の確認と有望標準試料の選定

- 主要及び微量元素分析

3. 選定した試料の同位体分析と標準試料の決定

- LA-ICP質量分析法と湿式法の分析結果の比較

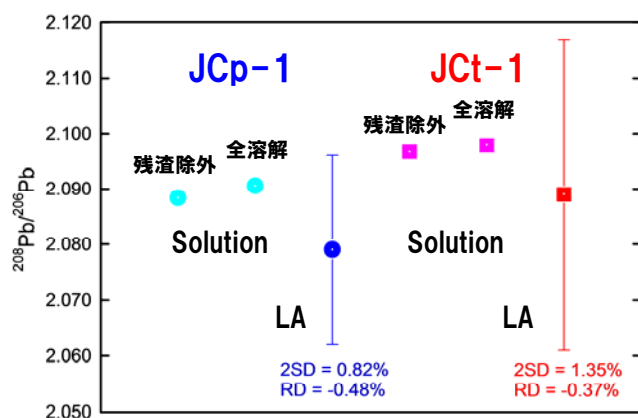
4. 標準試料としての利用可能性の検討

- 均質性・再現性の確認など（2次元元素分布（イメージング）の取得）

共同研究：「レーザーアブレーション付き誘導結合プラズマ質量分析計を用いた炭酸塩鉱物の分析手法の開発」（京大、京都FT、JAMSTEC）

ウラン系列年代測定の開発状況と今後の計画

湿式法	(ppm)	Pb (SD)	Th (SD)	U (SD)	Pb/U
JCp-1	測定値	0.215 (3.1%)	0.0478 (2.8%)	2.337 (3.2%)	0.094
(サンゴ)	認証値	0.18*	—	2.91*	0.062
JCt-1	測定値	0.0593 (2.8%)	0.0131 (2.2%)	0.0307 (4.0%)	1.9
(シャコガイ)	認証値	0.10*	—	0.05*	2



- 標準試料の適用性・妥当性評価
湿式法の分析値と認証値との比較
+ LAでの局所分析(粒子ごと)
+(イメージング分析)
により、候補試料の均質性を評価
⇒現在までのところ、JCp-1(サンゴ)、
JCt-1(シャコガイ)が有望か？

- 標準試料の均質性(U/Pb元素比など)を評価
- 炭酸塩鉱物の同位体分析の高度化へ

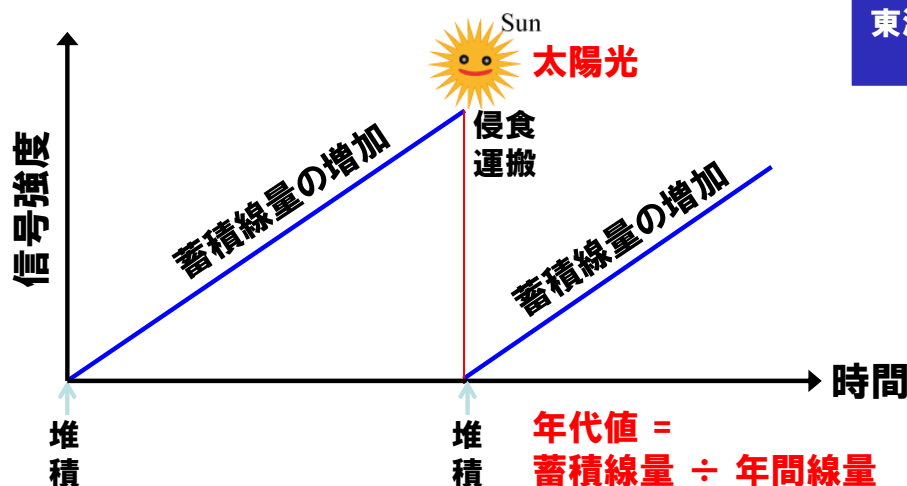
⑤-2 光ルミネッセンス(OSL)年代測定法の実用化

光ルミネッセンス（OSL）年代測定法の実用化

【目 標】 日本の堆積物へのOSL年代測定の適用性を検討する。

【実施項目】

- ① 河成段丘堆積物への適応事例の検討
- ② OSL/TL信号特性の決定条件に関する検討



東濃地科学センター 土岐地球年代学研究所
光ルミネッセンス測定室



Risø DTU製 TL/OSL DA-20

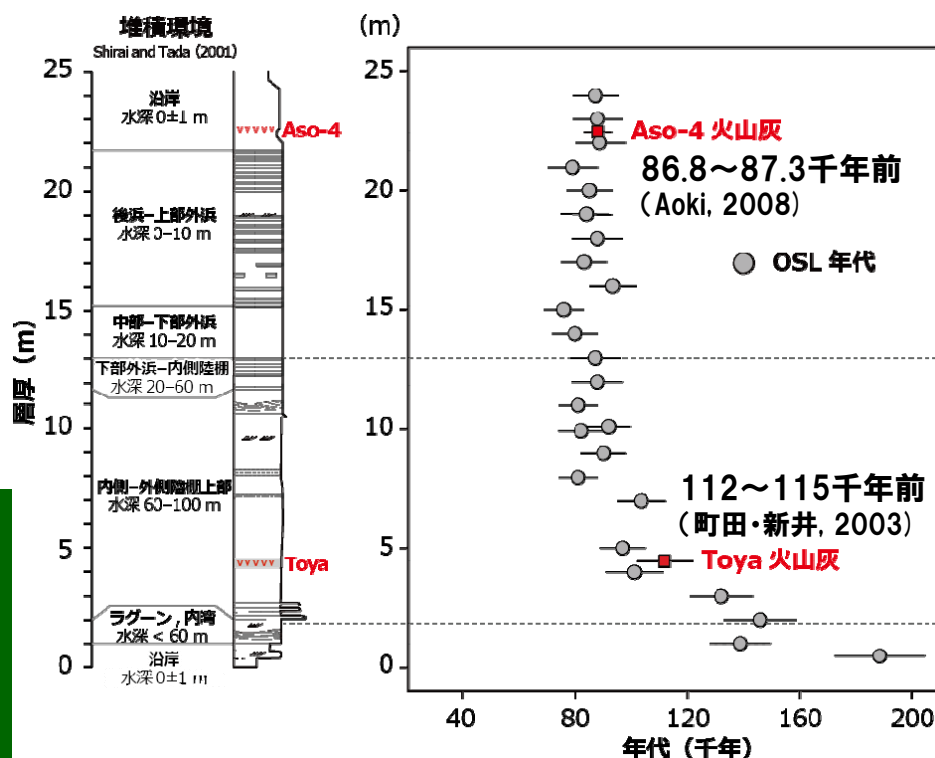
OSL研究事例：海成段丘堆積物の光ルミネッセンス年代測定

長石を用いた海成段丘堆積物の光ルミネッセンス年代測定の適用を検討



海成段丘堆積物の露頭
(男鹿半島の安田海岸)

- 連続的な長石の光ルミネッセンス年代値は火山灰層序と調和的
⇒長石を用いた海成段丘堆積物の光ルミネッセンス年代測定が可能



⑤-3 アルミニウム-26、塩素-36年代測定法の実用化

ペレトロンにおける年代測定技術開発(^{14}C , ^{10}Be , ^{26}Al)の状況 および適用事例

【目 標】 ^{26}Al 年代測定法の実用化に向けた試料調製法及び測定条件の最適化を行う。

【実施項目】

- ① ^{26}Al の定量法の確立
→ ^{26}Al 測定用試料調製の検討
→ 加速器質量分析装置による ^{26}Al 測定の検討
- ② ^{26}Al 年代測定法の実用化

^{26}Al の定量法の確立

1. 岩石の溶解(全岩、石英)
2. Alの分離
(陰イオン交換→陽イオン交換)
3. Al酸化物への調製
4. カソードへの充填



ペレトロンにおける年代測定技術開発(^{14}C , ^{10}Be , ^{26}Al)の状況 および適用事例

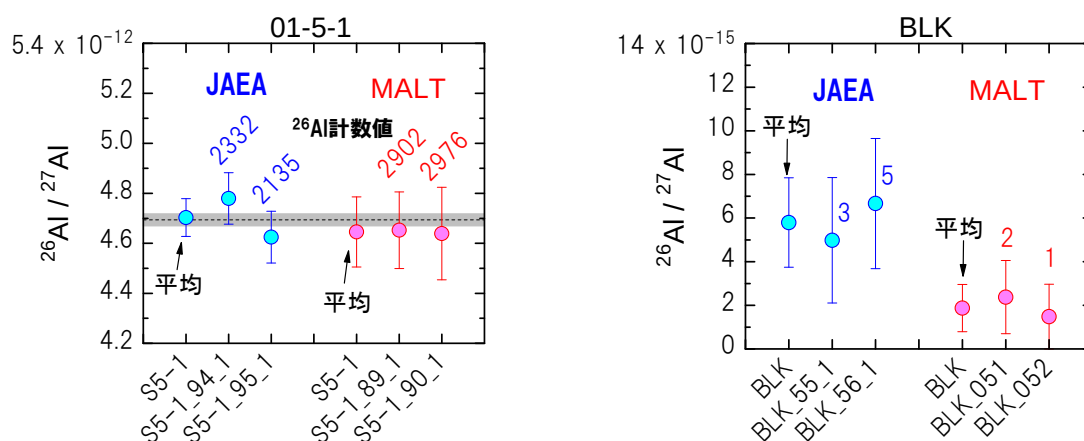
加速器質量分析装置による ^{26}Al 測定の見通し

測定条件	^{14}C	^{10}Be	^{26}Al
試料	C+Fe	BeO+Nb	Al_2O_3 +Ag
負イオン (電流)	C^- (20 μA)	BeO^- (2 μA)	Al^- (0.1 μA)
加速器 入射方法	逐次入射 $^{12}\text{C}^{4+}$: 0.3 ms, $^{13}\text{C}^{4+}$: 0.9 ms, $^{14}\text{C}^{4+}$: 98.6 ms	同時入射 $^9\text{Be}^{17}\text{O}^-$, $^{10}\text{Be}^{16}\text{O}^-$	逐次入射 $^{26}\text{Al}^{3+}$: 99.3 ms, $^{27}\text{Al}^{3+}$: 0.5 ms
加速電圧 (エネルギー)	4.5 MV (22.5 MeV)	4.7~4.8 MV (15.9~16.3 MeV)	4.3 MV (17.2 MeV)
重イオン 検出器	ΔE カウンター	ガスセル + ΔE カウンター	ΔE カウンター

- 試料調製法の選択および加速器質量分析装置でのAl同位体測定条件の設定完了

ペレトロンにおける年代測定技術開発(^{14}C , ^{10}Be , ^{26}Al)の状況 および適用事例

JAEAで作製した試料をJAEAとMALT（東京大学）で測定



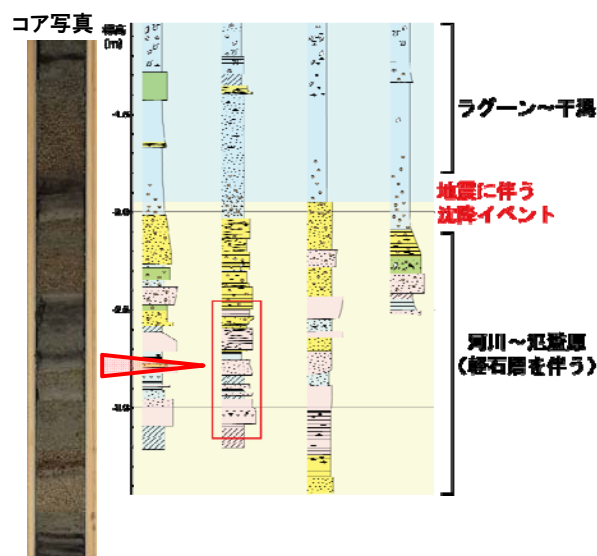
- 既存の施設に匹敵する測定性能を実現
- 長期間の測定品質の安定性を確認
- ⇒ 平成27年度よりルーチン測定開始（施設供用制度による外部利用も開始）
- 試料調製法の改良及びバックグラウンドの低減やビームの安定化による更なる測定結果の高品質化をめざす
- ^{36}Cl 年代測定法等の実用化

ペレトロンにおける年代測定技術開発(^{14}C , ^{10}Be , ^{26}Al)の状況 および適用事例

^{14}C 適用事例:

宮崎平野堆積物の ^{14}C 年代測定

- 海溝型地震に伴う隆起・沈降などの影響を評価するための研究として、宮崎平野を事例対象とした更新統～完新統堆積物の掘削調査を実施(秋田大学との共同研究)。
- 堆積構造の観察や微化石分析などから地震に伴う沈降イベントを同定。このイベントの時期を推定するため、イベント直下に産出したテフラの分析を実施。



【分析内容】

- 火山ガラスの屈折率測定, 水和層厚さ計測, LA-ICP-MSによる主成分・微量元素同時分析による軽石層の給源の特定
- 軽石層とその前後に含まれる炭質物(木片, 葉など)の放射性炭素年代測定



軽石層は1471年桜島文明噴火によるものであり, 歴史記録との比較により, イベントは1662年寛文日向灘地震によるものであることを特定

生田ら, 地質学雑誌, 2016.

ペレトロンにおける年代測定技術開発(^{14}C , ^{10}Be , ^{26}Al)の状況 および適用事例

^{10}Be 適用事例:

ベリリウム同位体を用いた山地流域の土砂動態に関する検討



流域	ID	^{10}Be 含有量 (10^4 atoms/g)		侵食速度 (m/ 10^6 yr)	
A	93R	3.34	± 0.79	193 ± 50	
	93S	5.48	± 0.92	115 ± 21	
	201	3.11	± 0.51	199 ± 36	
	205	4.01	± 0.80	146 ± 32	
B	330	8.73	± 1.85	65 ± 15	

伐採、植林が行われた流域Aで
 ^{10}Be 含有量が低い

学生実習生、施設供用利用制度による利用

- Pachri et al., J. Geol. Resour. Eng., 3 (4), 163-172 (2015).
- Pachri, 九州大学大学院 博士号取得(2016.3)

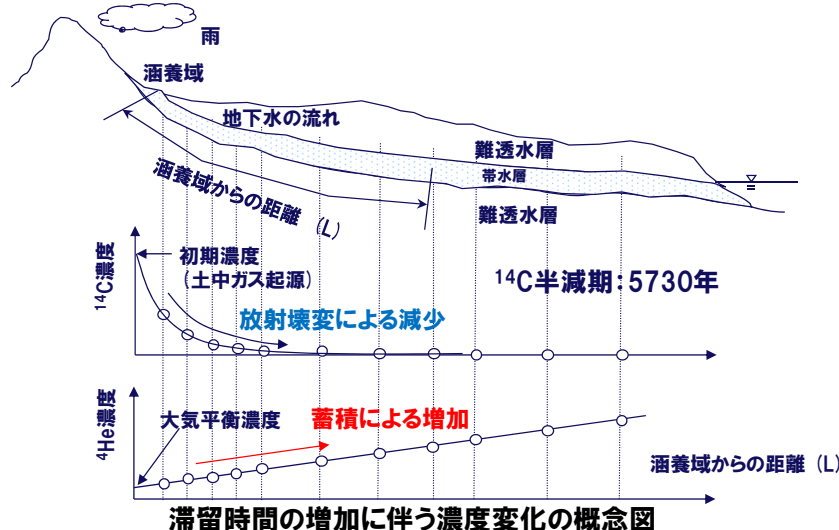
⑤-4 希ガス同位体を用いた地下水年代測定法の実用化

希ガス同位体を用いた地下水年代測定法の実用化

【目 標】 地下水中に溶存するヘリウム-4(^4He)やネオン-21(^{21}Ne)、アルゴン-40(^{40}Ar)等を用いた年代測定技術を開発する。

【実施項目】

- ① 地下水からの希ガス元素の回収技術の開発
- ② 希ガス同位体の定量・年代測定技術の実用化

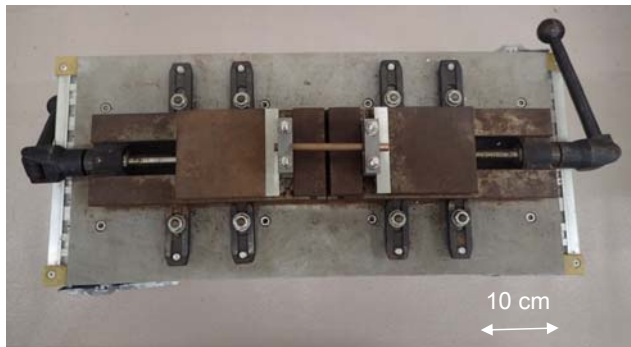


希ガス自動精製装置

地下水試料の採取方法の検討

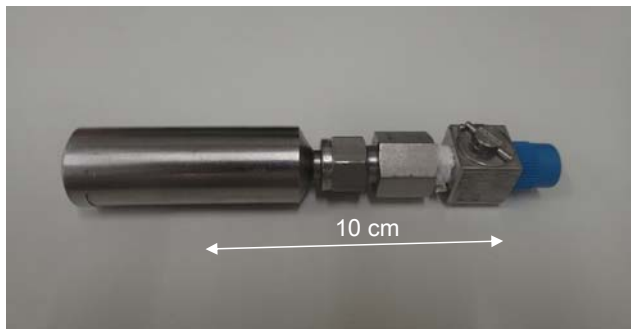
【地下水採取手法の検討とサンプリング機材の整備】

湧水からのサンプリング



- ✓ 湧水を銅管に通し、銅管の両端をクランプで封止して採取
- ✓ 分析時は、一端を真空容器の上部に接続し、接続側のクランプを緩めて水を真空容器中に落とし、容器中で脱ガス
- ✓ 装置校正用の標準水試料作製にも使用

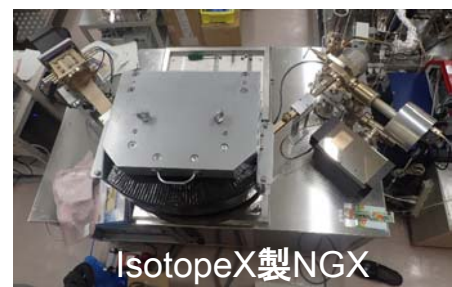
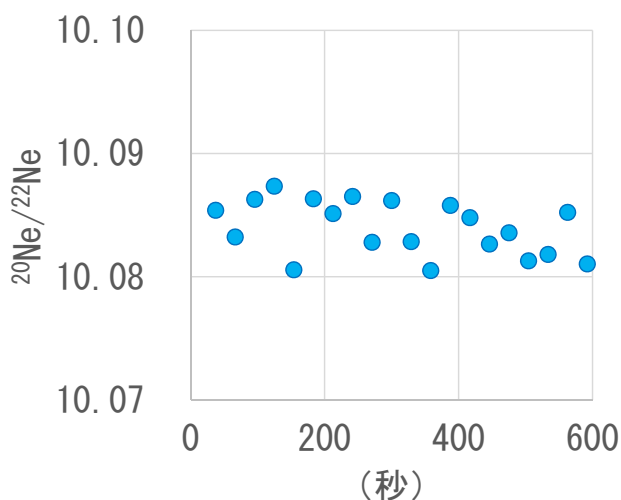
ボーリング坑内(高水圧下)での地下水サンプリング



- ✓ クランプを使用できないボーリング坑内部などでの水採取のための採取容器
- ✓ 森川(2001)において用いられていた方法を再構築
- ✓ 内部を真空とした状態でボーリング坑に投入し、目標深度でバルブを開放後、水を採取しバルブを閉鎖して機材を回収

希ガス質量分析計の性能評価

【導入した装置の実用化と性能把握】



- 希ガス精製装置(前処理部)を含めた感度
 $\text{Ne}: 1.2 \times 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{STP/V}$
⇔ 飽和水中のNe濃度:
 $1.78 \times 10^{-7} \text{ cm}^3 \text{STP/g}$
→ 1 g程度の水で十分な測定可能
- Ne同位体比の測定誤差評価
 $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ 比測定で誤差は5桁目に乗る
→ 想定していた測定精度を確認

- 地下水中のNe測定に十分な能力を持つことを確認

計画

- ⑤-1 ウラン系列放射年代測定法の実用化
炭酸塩鉱物のウラン系列放射年代測定法の技術開発
- ⑤-2 光ルミネッセンス(OSL)年代測定法の実用化
河成段丘堆積物のOSL年代測定法の検討
- ⑤-3 アルミニウム-26、塩素-36年代測定法の実用化
 ^{26}Al 測定法の高度化、 ^{36}Cl 年代測定法等の実用化
- ⑤-4 希ガス同位体を用いた地下水年代測定法の実用化
ヘリウム等の測定技術の整備、地下水年代測定法の検討
- ⑤-5 高分解能のテフラ同定手法の開発
鮮新世－更新世テフラのデータベース化
- ⑤-6 地質試料を対象とした年代測定法及び化学分析手法の高度化
 ^{14}C や ^{10}Be 年代測定法等、既存年代測定法の高度化