

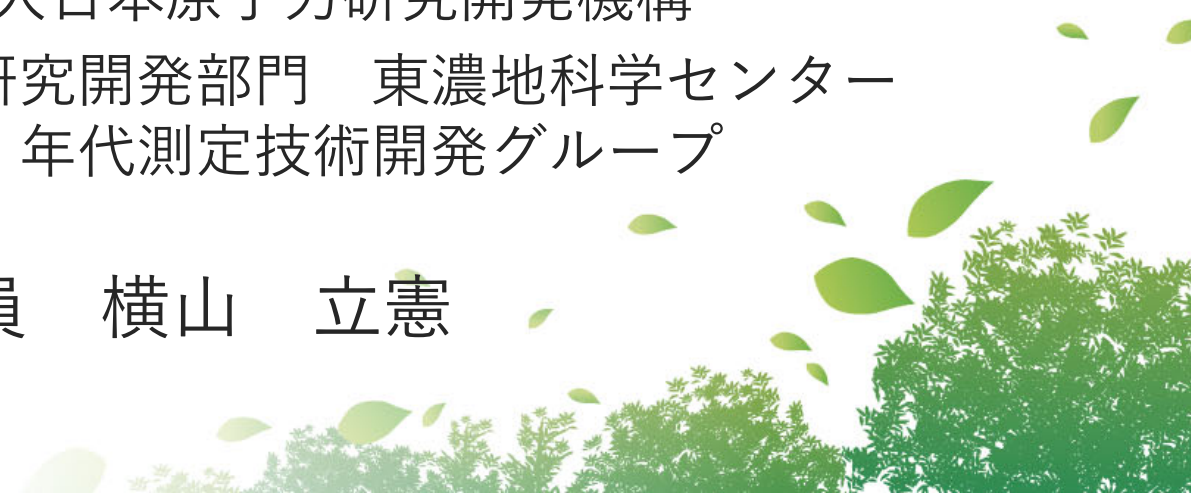


# レーザーを用いた局所分析による 岩石・鉱物の年代学的研究

令和3年11月18日

国立研究開発法人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  
地層科学研究部 年代測定技術開発グループ

研究員 横山 立憲



# 地層処分と地質環境の長期安定性に関する研究

## 地層処分

高レベル放射性廃棄物による影響が将来の世代にも及ばないように長期にわたって人間の生活環境から隔離するため、地下深部の岩盤中に廃棄物を埋設する

### 処分場の立地選定プロセス

自治体からの応募  
もしくは  
国からの申入れを自治体が受諾

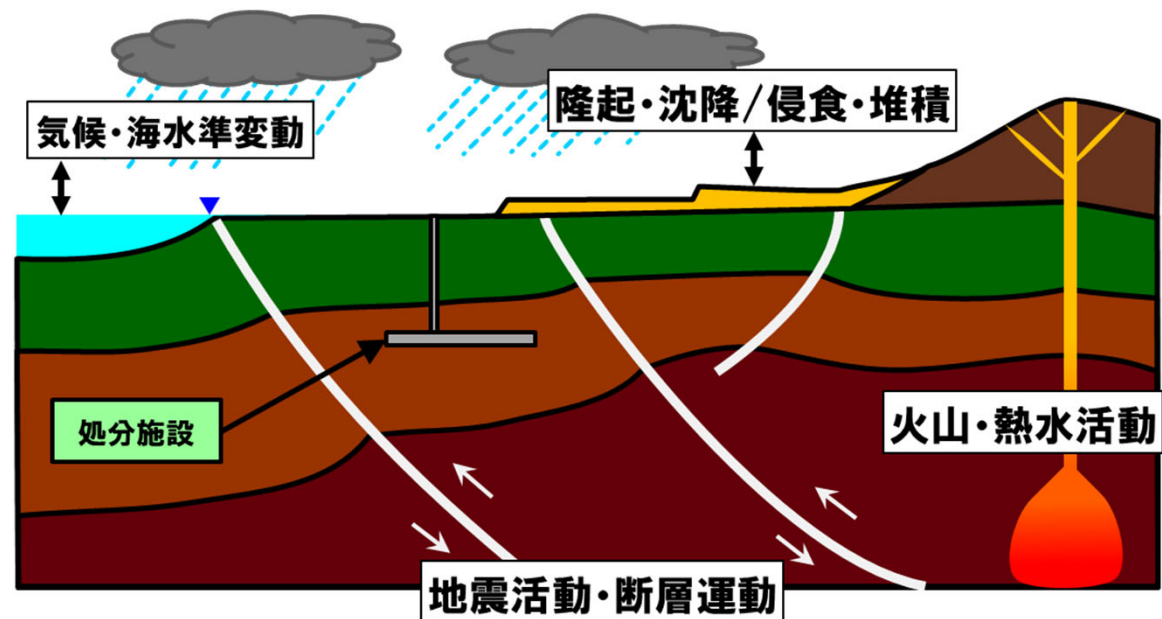
文献調査

概要調査

精密調査

建設

### 考慮すべきわが国の地質環境の特徴



NUMOによる処分地のサイト選定、処分施設の設計や長期的な安全性評価に資するため、**東濃地科学センター 土岐地球年代学研究所**では**長期安定性に関する研究**を実施

## 長期将来予測の課題

- ・直近の断層の活動時期を特定する技術など現象理解のための年代測定技術の新規開発
- ・過去の自然現象の理解における時空間的な不確実性の低減（年代測定の高精度化）

# 東濃地科学センターの概要



## 東濃地科学センター 土岐地球年代学研究所

年代測定に係る最先端の分析機器を備えて  
**地質環境の長期安定性に関する研究**を実施

- 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**



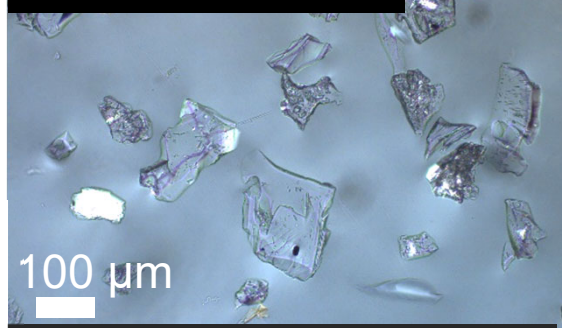
# 地質試料の化学分析によって得られる情報

## 対象とする自然現象

- ◆ 火山・熱水活動
- ◆ 隆起・沈降/侵食・堆積
- ◆ 地震活動・断層運動
- ◆ 地下水の流動

## 対象とする試料

火山碎屑物(テフラ)



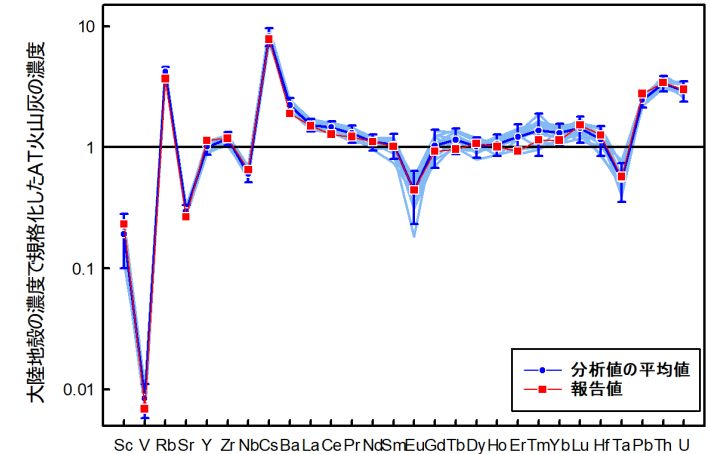
火成岩や堆積層中の重鉱物



二次的に形成・成長した鉱物

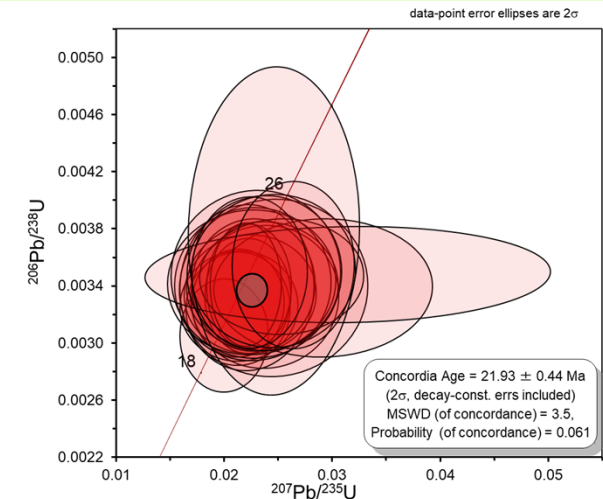


## 化学分析



## 元素濃度の情報

- 岩石等の形成過程(温度や化学反応)



## 年代の情報

- 形成年代・変質や変成を受けた年代

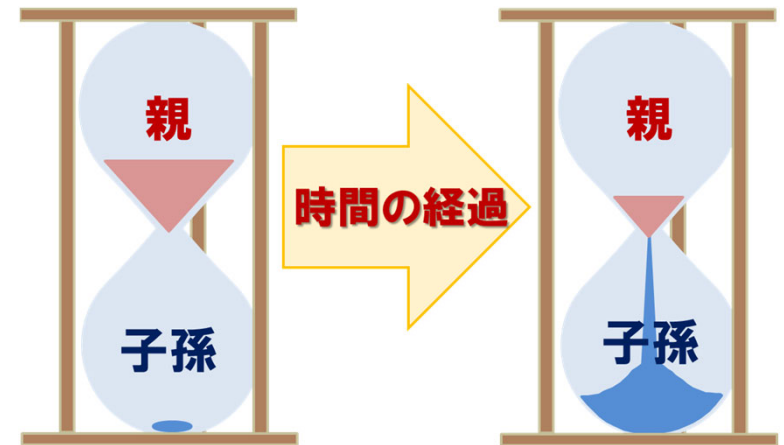
化学分析から得られる  
情報を基に自然現象を理解

# 岩石・鉱物の放射年代測定

## 放射年代測定法

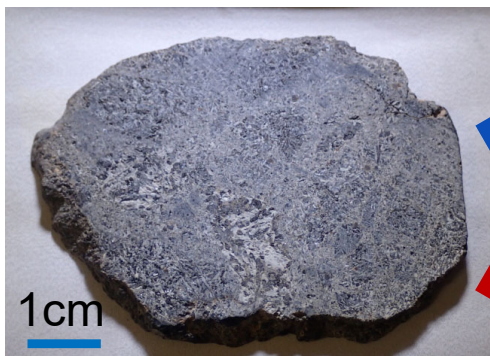
放射性核種（**親核種**）が、不変の半減期に基づいて異なる核種（**子孫核種**）へ壊変することを利用して、岩石や化石の年代（形成以降の経過年数）を測定する方法

## 放射年代測定の原理（概念図）



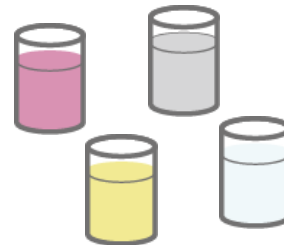
岩石や鉱物の年代測定では、試料を酸などで化学的に分解して、もしくは特定領域をレーザー照射などで気化・イオン化して質量分析装置で分析

## 分析の流れ



対象とする試料  
(岩石や鉱物)

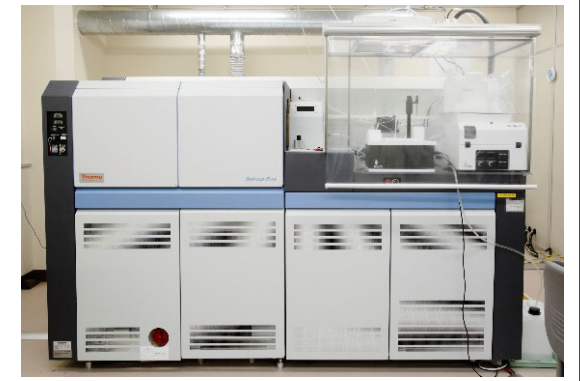
化学的に  
調製  
(湿式)



直接照射  
(局所)



試料(元素)を  
イオン化して質量分析

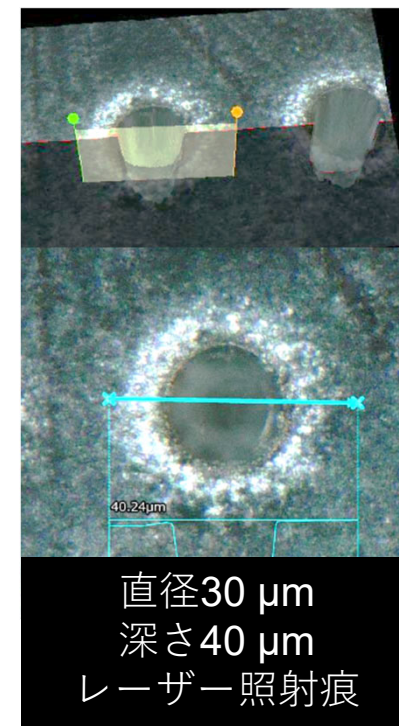
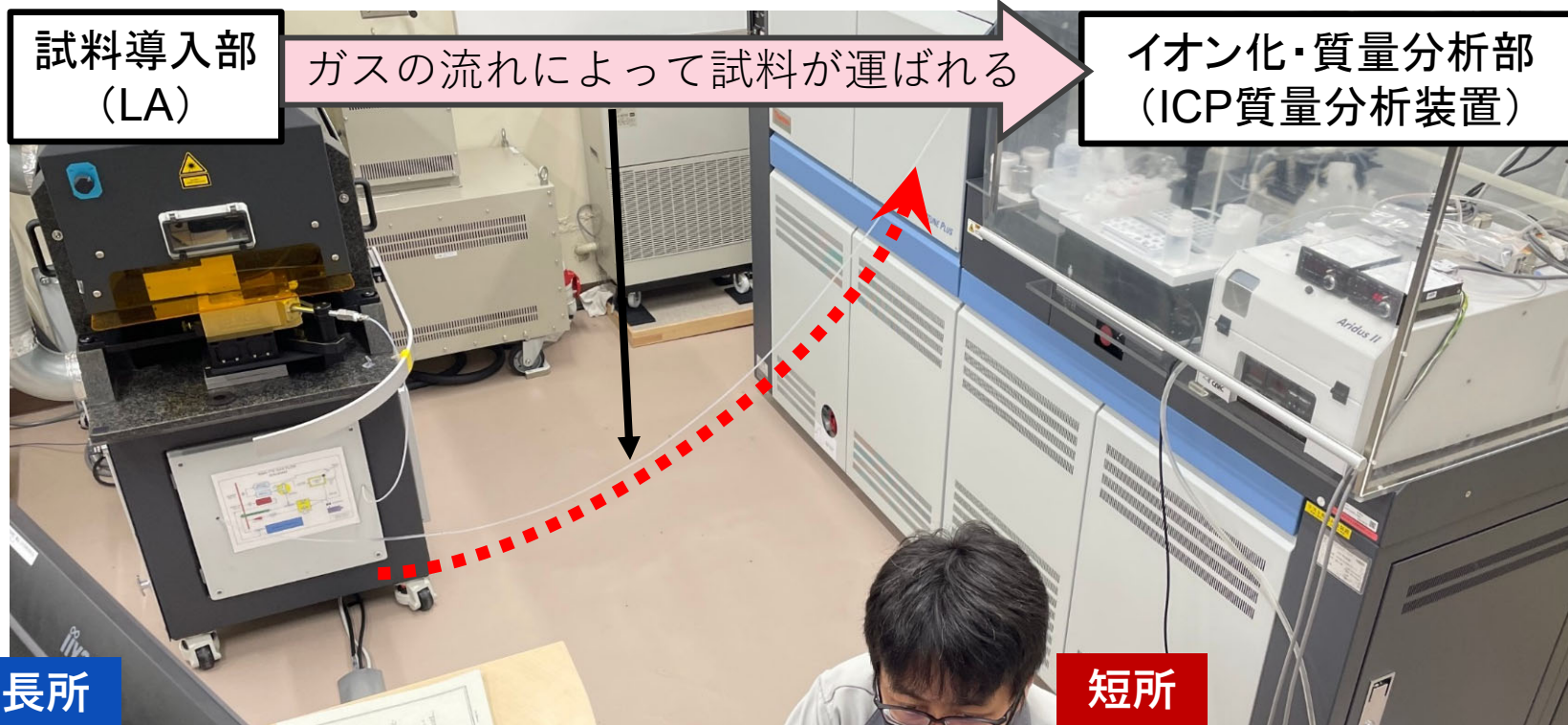


# レーザーを用いた局所分析手法

## レーザーアブレーション試料導入による 誘導結合プラズマ質量分析質量分析法

(LA-ICP-MS: Laser Ablation-Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry)

固体試料にレーザー照射することで試料を爆発的に気化またはエアロゾル化し、誘導結合プラズマでイオン化させて電場・磁場によって重さごとに分離して検出・計測する分析方法



### 長所

- ❑ 分析点を定めて、**直接分析**できる
- ❑ 熟練度を要する化学的**前処理が不要**
- ❑ **多点・多量分析**が可能

### 短所

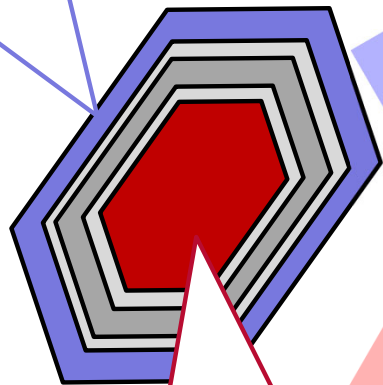
- 分析装置内での現象理解が不十分
- 前処理が簡便な分、補正が難しい
- データごとの精度は悪い

# 岩石・鉱物の年代学的研究における局所分析法の利点

- ◆ 局所分析では、空間的な情報を残したまま分析が可能のため、**段階的な自然現象（地質イベント）を解釈**できる

(例) マグマの中で100万年前から10万年間かけて結晶成長した鉱物

90万年前に成長が止まった  
≒ マグマが固結した？



100万年前にでき始めた  
≒ マグマが冷え始めた？

分解  
(湿式)

局所

- 元素・同位体組成は結晶内の平均値が得られる  
= 年代値も平均的な値となり、晶出に要した時間の情報は消失してしまう

解釈の例:

95万年前に結晶ができたのではないか

解釈に差が生じる

- 領域ごとに元素・同位体組成を取得可能  
= 段階的に地質イベントを解釈できる

解釈の例:

100万年前にマグマが冷え始めて結晶が成長し始め、10万年かけてマグマが固結していったのではないか

# LA-ICP-MSによる鉱物分析の事例



## ジルコンの結晶化年代・温度を推定する新たな分析手法の構築

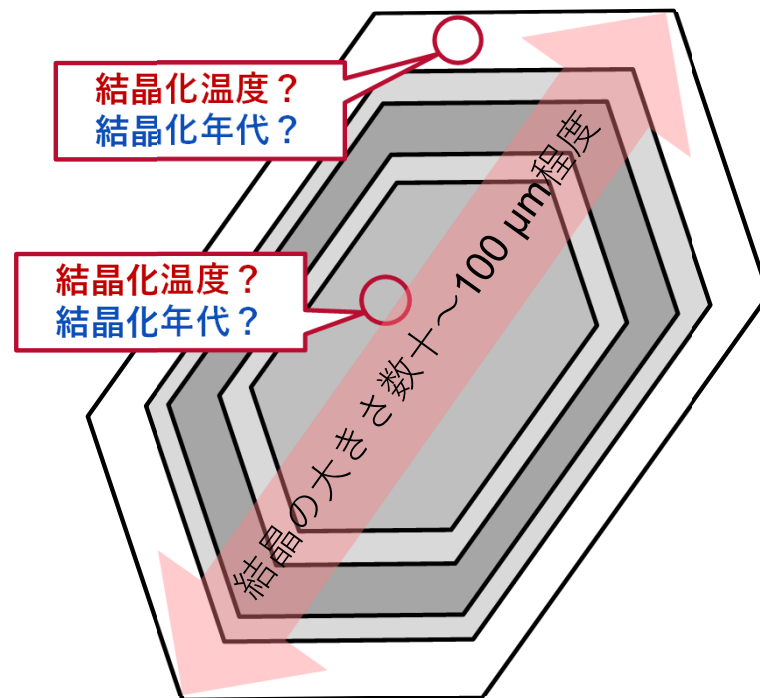
～温度時間履歴が導く深成岩の冷却過程や隆起過程の調査・評価技術の高度化～

(令和2年11月5日 共同プレスリリース)

### 研究目的

岩体の冷却過程や山地の隆起過程を明らかにするため、花崗岩や深成岩に含まれるジルコンに着目し、それらがマグマから晶出した時の温度や時間の履歴を復元する

### ジルコン結晶の模式図



### 【ジルコン】

- ◆ 花崗岩や深成岩中に含まれる鉱物で熱変成や風化に強い
  - ◆ 結晶成長に伴い、累帯構造（段階的な成長の証）を呈することが多い
- ⇒ “累帯ごと”に年代・温度が取得できれば、マグマでの結晶化の環境を高精度に復元可能？

本研究は、経済産業省資源エネルギー庁委託事業「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）」の成果の一部です。



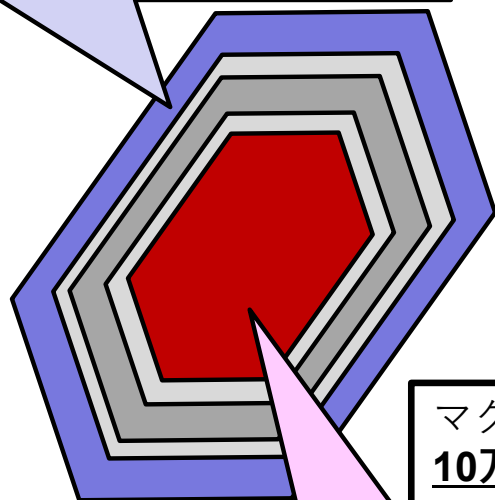
# LA-ICP-MSによる鉱物分析の事例

## アプローチ

ジルコンのチタン(Ti)濃度から結晶化した温度を  
ウラン(U)-鉛(Pb)法による年代測定から結晶化した年代を得ることが可能  
⇒ 温度と時間の情報が段階的に取得可能な分析手法を開発

### 年代情報のみ

90万年前に成長が止まった  
≡ マグマが固結した？

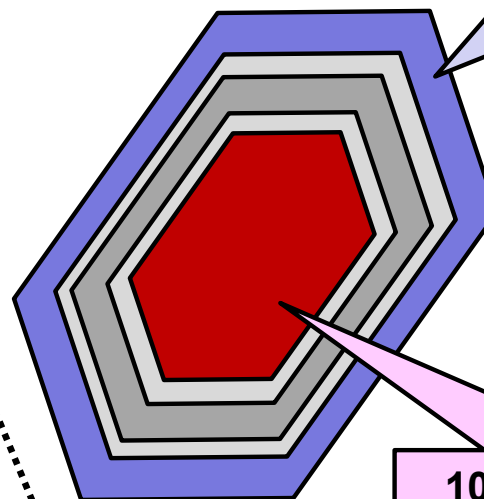


マグマは100万年前から  
10万年かけて冷却した

100万年前にでき始めた  
≡ マグマが冷え始めた？

### 年代情報と温度情報の の組合せ

90万年前に成長が止まった  
≡ マグマが固結した？  
600°Cの環境下で結晶化  
≡ マグマ固結時は600°C？



マグマが100万年前から  
冷え始めて、10万年  
かけて200°Cの冷却が  
あった

より詳細な冷却史！

100万年前にでき始めた  
≡ マグマが冷え始めた？  
800°Cの環境下で結晶化  
≡ マグマが冷え始めたとき  
の温度は800°C

# LA-ICP-MSによる鉱物分析の事例

## 従来法の課題

- ◆ Ti濃度の定量とU-Pb同位体分析を異なる装置、異なるサンプルポイントで実施しており、全く同じ領域の分析ではなかった（空間的な不確かさ）
- ◆ ジルコン中の低濃度（～ppmオーダー）Tiを高い空間分解能で精度良く測る分析手法に課題

## 本研究の成果

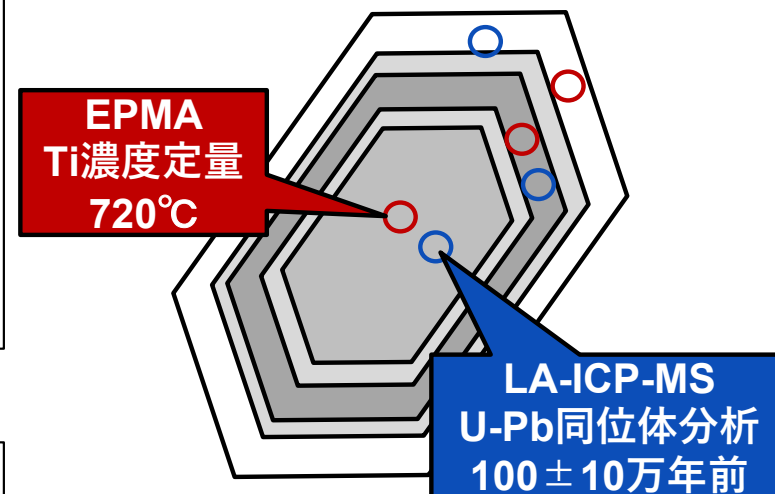
**同一サンプルスポットで、Ti濃度の定量とU-Pb同位体分析を高精度で同時におこなうLA-ICP-MSによる新しい分析手法を構築**

⇒ 高い空間分解能で精確にジルコンの結晶成長を議論可能  
マグマプロセスの温度時間履歴の高精度な復元に寄与

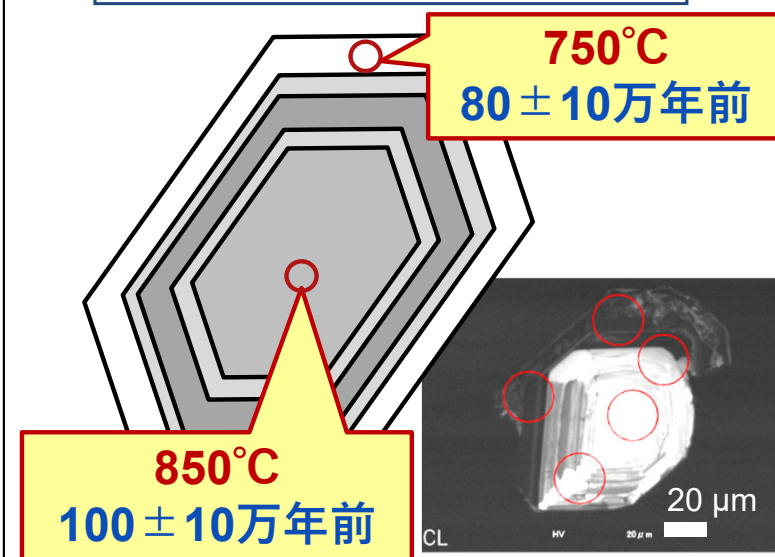
Yuguchi et al. (2020), Lithos, 373-373, 105682  
令和2年11月5日 共同プレスリリース

発案、実験試料の検討・採取・提供：山形大学  
分析手法の検討：東京大学・JAEA・学習院大学  
これまでの化学分析の実績に基づき機器分析を実施  
(@学習院大学・JAEA)

## 従来法



## 本研究で構築した手法



実際に分析したジルコンの  
カソードルミネッセンス像

# まとめ



- ◆ 地層処分に係る地質環境の長期安定性に関する研究において、過去から現在までの自然現象を精度良く把握するため、岩石・鉱物試料の年代測定や化学組成分析に必要な分析手法の開発・整備を進めている
- ◆ レーザーを用いた岩石・鉱物試料の分析は、観察下でターゲットとした領域を直接分析が可能で、段階的な地質イベントに解釈を与え得る
- ◆ ジルコンの結晶化温度と結晶化年代を同一領域の分析から推定可能な**LA-ICP-MS**による局所分析手法を共同で開発した

# 第4期中長期目標に向けた展望

- ◆ 年代測定に係る分析技術は、原子力分野では原子力機構でのみ開発・整備を進めており、地層処分の長期間の安全性評価や原子力施設の断層調査などの基盤技術となるものである
- ◆ 幅広い時間スケールに及ぶ年代測定のニーズに対応する原子力機構の独自性を活かし、総合的な年代学の研究拠点として、国際的にリードできるように引き続き新しい分析技術の開発・整備を進めていく

## 局所分析技術を使った分析技術開発・整備の取り組み

- U-Pb法によるジルコンの年代測定
- U-Pb法による炭酸塩鉱物（カルサイト）の年代測定（国内初）
- ジルコンのHf同位体分析手法
- **Sr同位体分析手法の開発・整備【新規開発・整備中】**  
(理事長ファンド萌芽研究開発制度)
- **U-Pb法によるチタナイトの年代測定手法の開発【新規開発・整備中】**  
(理事長ファンド萌芽研究開発制度)

以下、補足資料

# レーザーを用いた局所分析手法

## レーザーアブレーション試料導入法

岩石・鉱物試料などに高出力のパルスレーザーを照射することによって加熱蒸発（アブレーション）し、**固体試料を爆発的に気化、エアロゾル化**して、質量分析装置に導入する手法

⇒ 試料を分解（溶解）せずに高空間分解能で“取り出す”ことができる

### レーザーアブレーションの模式図

レーザーの種類

- 波長
- パルス幅

赤外光  
ナノ秒LA



紫外光  
ナノ秒LA



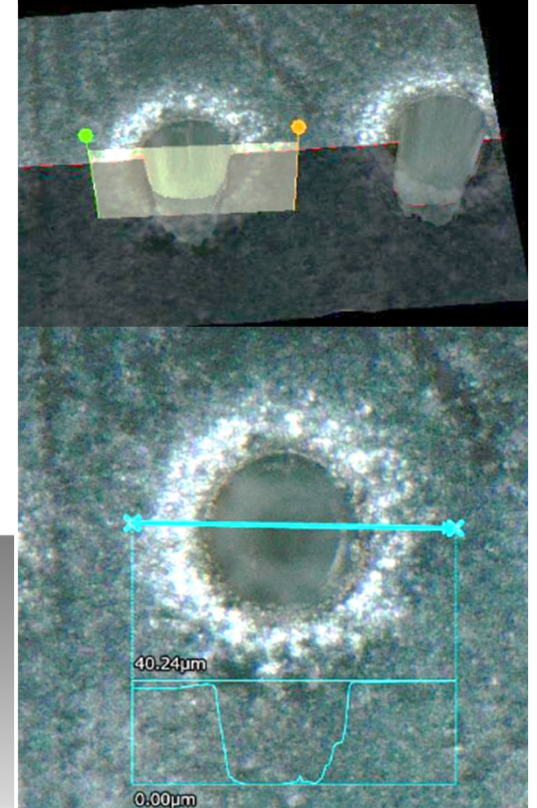
紫外光  
フェムト秒LA



加熱される  
領域の違い

岩石・鉱物試料など固体試料

直径30  $\mu\text{m}$ 、深さ40  $\mu\text{m}$   
のレーザー照射痕



# LA-ICP-MSでの分析技術の開発



## 局所分析技術を使った新しい分析技術の整備

### 【実用化】 U-Pb法によるジルコンの年代測定

火成活動の時期の推定や堆積層の後背地解析に有効

### 【実用化】 U-Pb法による炭酸塩鉱物（カルサイト）の年代測定

地下水流動経路の変遷の解明に有効

充填鉱物への適用するため高度化を進めている

### 【実用化】 Hf同位体分析手法を整備

U-Pb法による年代測定と合わせて、起源マグマの組成を把握できる  
後背地解析に有効

### 【新規開発・整備中】 Sr同位体分析手法の開発・整備

（理事長ファンド萌芽研究開発制度）

局所分析が困難であったSr同位体を分析可能にする新手法を開発中

### 【新規開発・整備中】 U-Pb法によるチタナイト年代測定手法を開発

（理事長ファンド萌芽研究開発制度）

ジルコン以外の鉱物（チタナイト）を対象とした新しい年代測定手法  
を開発中

# 土岐地球年代学研究所での年代測定技術開発

| 対象施設                                        | 年代測定法             | 年代測定範囲(年前)      |                 |                 |                 |                 |                 |                 | 主な反映先 | 対象物質        |
|---------------------------------------------|-------------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-------|-------------|
|                                             |                   | 10 <sup>9</sup> | 10 <sup>8</sup> | 10 <sup>7</sup> | 10 <sup>6</sup> | 10 <sup>5</sup> | 10 <sup>4</sup> | 10 <sup>3</sup> |       |             |
| 加速器質量分析装置<br>(JAEA-AMS-TONO-5MV<br>& 300kV) | <sup>14</sup> C法  |                 |                 |                 |                 |                 | ■               |                 | 断層運動  | 地下水, 有機物    |
|                                             | <sup>10</sup> Be法 |                 |                 | ■               | ■               | ■               |                 |                 | 侵食速度  | 石英          |
|                                             | <sup>26</sup> Al法 |                 |                 | ■               | ■               | ■               |                 |                 | 侵食速度  | 石英          |
|                                             | <sup>36</sup> Cl法 |                 |                 |                 | ■               | ■               | ■               |                 | 地下水年代 | 地下水         |
|                                             | <sup>129</sup> I法 |                 |                 | ■               | ■               | ■               | ■               |                 | 地下水年代 | 地下水         |
| 希ガス質量分析装置                                   | K-Ar法             | ■               | ■               | ■               | ■               | ■               |                 |                 | 断層運動  | 自生雲母粘土鉱物    |
| 四重極型質量分析装置                                  | (U-Th)/He法        |                 | ■               | ■               | ■               | ■               |                 |                 | 侵食速度  | アパタイト, ジルコン |
| 光ルミネッセンス測定装置                                | OSL法              |                 |                 |                 |                 | ■               | ■               | ■               | 断層運動  | 石英          |
|                                             |                   |                 |                 |                 | ■               | ■               | ■               | ■               | 隆起速度  | 長石          |
| 電子スピン共鳴装置                                   | ESR法              |                 |                 | ■               | ■               | ■               | ■               | ■               | 断層運動  | 石英, 炭酸塩鉱物   |
| 高精度希ガス質量分析装置                                | 希ガス法              |                 |                 | ■               | ■               | ■               | ■               |                 | 地下水年代 | 地下水         |
| 電子プローブマイクロアナライザ                             | CHIME法            | ■               | ■               | ■               |                 |                 |                 |                 | 後背地解析 | モナザイト, ジルコン |
| レーザーアブレーション誘導<br>結合プラズマ質量分析装置               | U-Pb法             | ■               | ■               | ■               | ■               | ■               |                 |                 | 後背地解析 | ジルコン        |
|                                             |                   | ■               | ■               | ■               | ■               | ■               |                 |                 | 断層運動  | 炭酸塩鉱物       |
| FT自動計測装置                                    | FT法               |                 | ■               | ■               | ■               | ■               |                 |                 | 侵食速度  | アパタイト, ジルコン |