

共同研究成果報告書

鉍物中の微小領域同位体比測定による マグマプロセスの研究

原子力規制委員会 原子力規制庁

国立大学法人東京大学

令和7年5月

1. 研究目的

原子力規制庁では、安全研究プロジェクト「大規模噴火のプロセス等の知見整備に係る研究」において、過去に大規模なカルデラ形成噴火をした火山の噴火に至るまでのマグマプロセスを解明するための岩石学的な調査として、マグマの温度・圧力条件や化学組成の変化からマグマ蓄積の時空間変化を調べ、噴火の準備段階におけるマグマの状態の変化（深さ、滞留時間）に関する知見を蓄積している。そしてこれら知見を基に、大規模なカルデラ形成噴火のマグマプロセス、噴火に至るシナリオを作成したうえで、過去のカルデラ火山の長期的な活動評価の考え方を取りまとめることを目的としている。

本研究では、過去に大規模カルデラ形成噴火をした火山について、マグマ滞留時間及びマグマの成因を、噴出物に含まれる斑晶鉱物中の微小領域同位体比測定により調査することを目的としている。

2. 研究内容

2.1 マグマ滞留時間に関する研究

(1) ウラン系列微小領域の同位体比測定法の検討

ウラン系列核種の放射非平衡（例えば ^{238}U , ^{232}Th , ^{230}Th 同位体比から鉱物の生成年代を推定する手法（以下「U/Th 法」という。))を用いた鉱物生成年代測定方法を試みる。具体的には、測定条件や分析機器を ^{230}Th のカウント数が最大になるようにチューニングをする。

(2) 同位体比測定による結晶生成年代の測定

上記の検討結果を基に、試料の U/Th 測定等を行い、結晶生成年代（Crystal Age）を求める。試料は、過去に大規模噴火を起こした火山噴出物中のジルコンやアパタイト等のウラン系列核種を含む鉱物とする。

2.2 マグマの成因に関する研究

(1) 飛行時間型質量分析計の整備

鉱物中の希土類元素の同位体比を微小領域で測定することが期待できる飛行時間型質量分析計（以下「ToF-MS」という。）を導入する。

(2) ToF-MS を用いた微小領域同位体比の測定の検討

マグマの成因や化学組成変化を推定する際に Sr や希土類元素の挙動がマグマへの地殻物質混入を示唆する一つの指標となる。特に斜長石中の Sr 同位体比 ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) はマグマの起源物質の推定に用いられている。そこで、ToF-MS を用いた斜長石等の鉱物の微小領域同位体比の測定手法を試みる。

3. 実施方法

3.1 マグマ滞留時間に関する研究

(1) ウラン系列微小領域の同位体比測定法の検討

測定条件や機器のチューニングを行うためのテスト試料として、U/Th 同位体比が既知の試料を用いた測定を行い、分析ルーチンを確立する。

(2) 同位体比測定による結晶生成年代の測定

上記の検討結果を基に、大規模な噴火の噴出物に含まれる斑晶鉱物試料の結晶生成年代測定を行い、結晶生成年代と噴出年代の差分からマグマ滞留時間を推定する。

3.2 マグマの成因に関する研究

(1) ToF-MS の整備

$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 同位体比測定において同伴する同重元素の ^{87}Rb を分離できるコリジョンリアクションセル（検出器へ流入する干渉イオンの低減、除去するため、特定のガスと干渉イオンを衝突・反応させるためのセル）を装備した ToF-MS を整備する。

(2) ToF-MS を用いた微小領域同位体比の測定の検討

コリジョンリアクションセルを装備した ToF-MS を用い斜長石等の鉱物の微小領域 Sr 同位体比 ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) の測定手法を検討する。具体的には、反応ガス (CH_3F) を導入し Mass Shift 法 (^{87}Rb を質量数 19 の安定同位体の F と反応させ RbF (質量数 106) を生成) を用い ^{87}Rb と ^{87}Sr を分離法する手法を試みる。コリジョンリアクションセルに導入する

4. 研究実施分担

項目	原子力規制委員会 原子力規制庁	国立大学法人 東京大学 理学部
(1) ウラン系列微小領域の同位体比測定法の検討	○	◎
(2) 同位体比測定による結晶生成年代の測定	◎	○
(3) 飛行時間型質量分析計(ToF-MS)の整備	○	◎
(4) ToF-MS を用いた微小領域同位体比の測定の検討	◎	○

◎：主担当、○：担当

5. 共同研究参加者

区分	氏 名	所属部局・職名	本研究における役割
原子力 規制委 員会 原子力 規制庁	安池 由幸	地震・津波研究部門 専門職	研究統括 項目（１）（２）（３）（４）
	高橋 宏明	放射線・廃棄物研究部門 主任技術研究調査官	項目（１）（３）（４）
国立大 学法人 東京大 学	平田 岳史	大学院理学研究科付属地殻化学実験施設 教授	研究統括 項目（１）（２）（３）（４）の研究指導

6. 研究実施工程

項 目	年 度			
	令和 3 年度		令和 4 年度	
(1) ウラン系列微小領域の同位体比 測定法の検討				
(2) 同位体比測定による結晶生成年代の測定				
(3) 飛行時間型質量分析計(ToF-MS) の整備				
(4) ToF-MS を用いた微小領域同位 体比の測定の検討				

7. 成果概要

マグマ滞留時間に関する研究として、U/Th 法による鉍物生成測定を行った。U/Th 法では、レーザーアブレーション質量分析装置（以下「LA-ICP-MS」という。）を用い、鉍物試料中に含まれる ^{238}U の放射壊変で生成する ^{230}Th を測定する必要があるが、 ^{230}Th の存在比は ^{238}U 量に対し 10^{-6} 程度である。既往研究（例えば Guillong ら¹ 及び Keller ら²）では、検出感度が高い磁場セクター型質量分析計を用いた U/Th 法による年代測定が行われている。Guillong ら¹の方法では、鉍物試料をアブレーションする際に、同伴する鉍物マトリックス元素起源の干渉イオンの影響を補正する必要がある。本研究では、Niki ら³を参考に、ガルバノ光学系（精密な制御が可能な反射鏡によりレーザ光を任意

の方向に制御することにより高速多点アブレーションが可能)と固体レーザーを組み合わせたレーザーアブレーション装置及び四重極型質量分析装置を用いた。四重極型質量分析装置は磁場セクター型に比べてイオンの透過効率が低いため ^{230}Th の検出感度は低い、コリジョンセルにより干渉イオンの影響を低減することができる。本研究では、Niki ら³が使用した LA-ICP-MS を用いるとともに、一部の測定をスイス連邦工科大学に依頼し、U/Th 法によるジルコンとイルメナイト結晶の生成年代を比較した。測定した試料は、噴出年代が約 110 ka (ka : 千年前) の洞爺火砕流のジルコンとイルメナイト、約 90 ka の大山生竹軽石層 (以下「DNP」という。) のジルコン及び 0.9~1.3 Ma (Ma : 百万年前) の芦野火砕流のイルメナイトである。Guillong ら¹の方法で得られた洞爺火砕流の年代値は、ジルコンが 102 ± 3.7 ka、イルメナイトが 108 ± 1.6 ka となり、Niki ら³及び Ito⁴が報告したジルコンの結晶年代 111.5^{+24}_{-20} ka と誤差の範囲内で一致した。DNP については、10 試料を測定し、うち 6 試料が放射平衡 (^{230}Th の半減期約 5 万年の 6 倍の約 30 年以上) に達していたが、4 試料からは約 200 ka の年代値が得られた。Yamamoto ら⁵は、大山火山は約 200 ka の大山松江軽石層 (以下「DMP」という。) 以降に化学組成が類似しているマグマを噴出する大規模な噴火を繰り返していることを報告しており、本研究で得られた年代値から DNP 噴火のマグマは DMP 噴火と同一のマグマ溜まりであった可能性を示唆している。一方、芦野火砕流のイルメナイト分析では、ジルコンに比べ ^{238}U の含有量が 1/10 程度であると予想されることから四重極型質量分析装置の感度を上げる必要がある。そこで、真空ポンプを付加することにより検出器内へのイオン流入量を増加することで感度の向上を試みた。その結果、従来に比べて 5 倍程度感度が向上し、 ^{232}Th のカウント数 ($3 \times 10^6 \text{cps}$) に対して ^{230}Th のカウント数 ($1 \sim 5 \times 10^3 \text{cps}$) が得られた。芦野火砕流のイルメナイトは噴火から約 100 万年経過しているため、放射平衡に達しており、 ^{230}Th は最大値 (飽和状態) を示しているが、放射非平衡にあるイルメナイトについても四重極型質量分析装置によって測定できる可能性が示唆された。

マグマの成因に関する研究については、鉍物中の希土類元素の同位体比を微小領域で測定することを目的として ToF-MS を導入した。しかしながら、導入後に装置の不具合が発生し、調整を繰り返したが、最終的に返品・交換を行ったため、本研究の期間内に ToF-MS による分析データは得られなかった。そこで、ToF-MS の代わりとして Kimura ら⁶の手法を参考にマルチコレクター誘導結合プラズマ質量分析計 (以下「MC-ICP-MS」という。) を用い、八戸火砕流の斜長石の微小領域の Sr 同位体比の分析を行った。MC-ICP-MS は、コリジョンリアクションセルがなく ^{87}Sr と同質量の ^{87}Rb を分離することはできないため、検出器は同じ質量のイオンとしてカウントする。しかし、同時に複数イオンの質量を分析することができるマルチコレクターを実装しているため、質量が同じ同位体を天然での存在比等から補正することができる。具体的には、同時に分析する質量数を 84, 85, 86, 87, 88 として、天然の ^{85}Rb および ^{87}Rb の存在比 $^{85}\text{Rb} : ^{87}\text{Rb} = 0.7217 : 0.2783$ を用いることで質量数 87 のカウント数を補正することにより行った。その結果、

斜長石 15 個、スポット数 35 の平均値として $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr} = 0.7052$ が得られた。同一サンプルの全岩試料を表面電離型質量分析計で分析した $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値として 0.7041~0.7044 が得られており、有効数字 3 桁目の値が高くなった。また、Kimura ら⁶では指摘されていなかった $^{84}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ にばらつきがみられた。分析した斜長石はアノーサイト値（An 値：斜長石中の Ca 量と Ca, Na, K の総和の比）が高く、Kimura ら⁶の報告では指摘されていない質量数 86 の Ca 二量体 ($^{42}\text{Ca}+^{44}\text{Ca}$) 等の干渉イオンの影響についても調べた上で、全岩試料の Sr 同位体比との差を議論する必要性が示された。

8. 公表成果一覧

なし

9. 参考文献

1. Guillong, M., Sliwinski, J., Schmitt, A., Forni, F. and Bachmann, O., “U-Th Zircon Dating by Laser Ablation Single Collector Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry (LA-ICP-MS)”, *Geostandards and Geoanalytical Research*, 40, 377-387, 2016.
2. Keller, F., Guillong, M., Popa, R. G. and Bachmann, O., “In Situ $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ Geochronology of Young Volcanic Rocks on Inclusion-Bearing Ilmenite”, *Geostandards and Geoanalytical Research*, 46, 465-475, 2022.
3. Niki, S., Kosugi, S., Iwano, H., Danhara, T. and Hirata, T., “Development of an In Situ U-Th Disequilibrium Dating Method Utilising Multiple-Spot Femtosecond Laser Ablation-CRC-ICP-MS”, *Geostandards and Geoanalytical Research*, 46, 589-602, 2022.
4. Ito, H., “Zircon U-Th-Pb dating using LA-ICP-MS: Simultaneous U-Pb and U-Th dating on 0.1 Ma Toya Tephra, Japan”, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 289, 210-223, 2014.
5. Yamamoto, T. and Hoang, N., “Geochemical variations of the Quaternary Daisen adakites, Southwest Japan, controlled by magma production rate”, *Lithos*, 350-351, 105214, 2019.
6. Kimura, J., Takahashi, T. and Chang, Q., “A new analytical bias correction for in situ Sr isotope analysis of plagioclase crystals using laser-ablation multiple-collector inductively coupled plasma mass spectrometry”, *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 28, 945-957, 2013.