JAEA-Research 2022-004 DOI:10.11484/jaea-research-2022-004



キャビティーリングダウン法による 携帯型装置の車載測定に基づく メタン漏出の効率的な検出手法の検討

Efficient Detection of Methane Seepage Using a Vehicle-mounted Cavity Ring-down Spectroscopy Analyzer

丹羽 正和 下茂 道人 島田 耕史 後藤 翠

Masakazu NIWA, Michito SHIMO, Koji SHIMADA 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 地層科学研究部

Geoscientific Research Department Tono Geoscience Center Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development

June 2022

у 🛛 日本原子力研究開発機構

Japan Atomic Energy Agency

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。 本レポートはクリエイティブ・コモンズ表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。 本レポートの成果(データを含む)に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の 条件で利用してください。(<u>https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja</u>) 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。本レポートに関しては下記までお問合せください。

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. This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License (<u>https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en</u>). Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under

the same terms and conditions as CC-BY.

For inquiries regarding 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, 2022

キャビティーリングダウン法による携帯型装置の車載測定に基づくメタン漏出の 効率的な検出手法の検討

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

丹羽 正和,下茂 道人*,島田 耕史,後藤 翠*

(2022年3月17日受理)

地下貯留層の天然ガスは、断層や割れ目に沿った移流によって地表に到達するので、天然ガ ス資源探査の初期段階においては、地表でのメタンの漏出を検出するための調査がしばしば行 われる。一方、沈み込み帯に沿ったスラブの脱水に由来する流体も溶存ガスとしてメタンを豊 富に含むことが多いが、これらはしばしば高温、かつ塩分に富むなど特徴的な化学的特徴を有 することから、放射性廃棄物の地層処分における重要な評価対象として指摘されている。本研 究では、高精度(ppbレベル)かつ短い測定間隔(約1秒)でメタンガス濃度が測定できる波 長スキャンキャビティーリングダウン分光法(CRDS法)による携帯型分析装置を採用し、ス ラブ脱水起源の深部流体の湧出を検出するための車載測定の適用性について検討した。事例対 象とした紀伊半島南東部の本宮地域での車載測定では、メタン含有温泉である川湯温泉および 湯の峰温泉において、バックグラウンド濃度を超える明らかなメタンアノマリ(>2 ppm)が 検出された。ガウスプルームモデルに基づく大気中のメタン拡散の推定結果は、車載測定の結 果と調和的である。本研究で適用した CRDS 法による車載測定は、資源探査などにおいて、地 表でのメタン漏出を迅速かつ容易に特定するのに有効な手法となる可能性がある。本報告書で は、車載測定の実施事例に加え、測定装置の使用方法についても併せて取りまとめた。

東濃地科学センター:〒509-5102 岐阜県土岐市泉町定林寺 959-31

※ 技術開発協力員

* 深田地質研究所

Efficient Detection of Methane Seepage Using a Vehicle-mounted Cavity Ring-down Spectroscopy Analyzer

Masakazu NIWA, Michito SHIMO*, Koji SHIMADA, and Akira GOTO*

Geoscientific Research Department, Tono Geoscience Center Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development Japan Atomic Energy Agency Izumi-cho, Toki-shi, Gifu-ken

(Received March 17, 2022)

Methane (CH₄) seepage to the surface in the early stage of hydrocarbon exploration has attracted increasing attention. Also, detection of CH₄-rich fluid emission can be applied to reconnaissance surveys for safety management in geological disposal of radioactive waste because high-temperature fluids that come from slab dehydration along a subduction zone are often rich in CH₄. These fluids likely migrate along faults and fractures. In this study, we employed a portable analyzer that used a wavelength-scanned cavity ring-down spectroscopy (CRDS) with high accuracy (in ppb levels) and short measurement intervals (~1 s). An on-vehicle measurement that employed the CRDS system was performed in the Hongu area in southeast Kii Peninsula, Japan, which included CH₄-bearing hot springs (Kawayu and Yunomine). The measurement near the hot springs detected a clear CH₄ anomaly (>2 ppm) that exceeded the background concentration. The estimation of CH₄ diffusion in air based on the Gaussian plume model corresponded to the result of the on-vehicle measurement. This study confirmed that the method using the vehicle-mounted CRDS analyzer can help in quickly and easily identifying CH₄-bearing fluid emissions at the surface. Additionally, directions for use of the analyzer were summarized in this report.

Keywords: Methane, Cavity Ring-down Spectroscopy, In-vehicle Measurement, Deep-seated Fluids

^{*} Collaborating Engineer

^{*} Fukada Geological Institute

目 次

1	14	じめに	1
т.	10		Ŧ
2.	浿	定装置	3
	2.1	税要	3
	ດດ	庙田专法	5
	2.2	反用力 仏	0
	2.3	メタンのバックグラウンド濃度1	7
0	-+-		-
3.	早	載測定の事例2	T
	3 1	測定地域の概要	1
	0.1		-
	3.2	測定2	3
		休田	~
	3.3	結果 2	Э
	3.4	考察2	7
			~
4.	Ł	わりに2	9
謝	辞 - ·	3	0
		с. 	-
参	考戈	〔献3	1

付録 CD-ROM

付録1:2020年11月12日の車載測定結果の元データ 付録2:2020年11月13日の車載測定結果の元データ 付録3:川湯温泉湧出地点における測定結果の元データ

Contents

1.	Introduction1
2.	Measurement equipment3
	2.1 Overview
	2.2 Method5
	2.3 Background concentration of methane17
3.	Case study of in-vehicle measurement21
	3.1 Study area21
	3.2 Measurement23
	3.3 Results25
	3.4 Discussions27
4.	Concluding remarks29
Ac	knowledgements30
Re	ferences31

Appendices CD-ROM

Appendix 1: Source data of the on-vehicle measurement result on November 12, 2020 Appendix 2: Source data of the on-vehicle measurement result on November 13, 2020 Appendix 3: Source data of the measurement result at the discharge point in the Kawayu hot springs

1. はじめに

メタンは、天然ガスの主成分である。地下貯留層の天然ガスは、断層や割れ目に沿った移流 によって地表に到達する¹⁾。したがって、地表でのメタンの漏出は、天然ガス資源探査の初期 段階における重要なターゲットと見なされてきた²⁾³⁾。逆に、メタンの漏出を調査することで、 流体の移動経路としての断層や割れ目を検出することができる可能性があるとも言える。

石炭の生成過程でもメタンが発生する。石炭層やその近傍の地層中に貯留されたメタン (coalbed methane)は、資源として採掘対象とされている⁴⁾。それに対し、炭鉱の坑道内で は、漏出したメタンガスが爆発事故の原因となるため、炭鉱でのメタンガスの除去は、重要な 安全管理上の課題の1つである⁵⁾⁶⁾。メタンガスは主に割れ目から漏れ出すため、ガスの移動 経路となる割れ目を効率よく検出するための調査技術の開発が求められている。

一方、沈み込み帯に沿ったスラブの脱水に由来する深部流体に起因する温泉^{¬)·10}は、溶存ガ スとしてメタンを豊富に含むことが多い(表 1.1)。これら深部流体は、地熱資源として、ある いは温泉に着目した観光資源として利用できる。しかし、放射性廃棄物の地層処分においては、 深部流体は高温であることと、化学組成が塩分に富むなど特徴的であることから、人工バリア に影響を及ぼしうるリスク要因として考えられている¹¹⁾¹²⁾。深部流体の主要な移動経路として も、断層や割れ目が挙げられている¹³⁾。さらに、沈み込み帯に沿ってしばしば見られる泥火山^{14)·17)} も、地下深部から地表への流体に富む物質の主要かつ迅速な経路として機能する可能性があり¹⁸⁾、 放射性廃棄物の地層処分における重要な評価対象として指摘されている¹¹⁾。泥火山から放出さ れる流体もメタンに富んでいることが知られている(表 1.1)¹⁴⁾¹⁸⁾。

地表でのメタンの漏出を検出するための従来の地球化学的調査は、地表で採取した試料の地 球化学的分析が主であった。堆積物から軽質炭化水素を抽出するため、機械的衝撃、化学的分 離、熱や真空による脱着などの複数の方法が適用できる¹⁹⁾。ただしこのような方法は、十分な 空間分解能を達成するためには多地点での試料の分析が避けられないため、莫大な時間と費用 が必要となる。一方、波長スキャンキャビティーリングダウン分光法(CRDS法)を使用した 測定技術²⁰⁾⁻²²⁾の採用により、大気中の微量メタンガスの濃度を ppb レベルの精度、少ないド リフト(1日あたり≤1 ppb)、および短い応答時間(数秒)で非常に正確に測定できるようにな った。CRDS法を採用したメタンガス測定は、主に温室効果ガスの大気中の濃度や地表からの 放出の評価といった目的で近年、盛んに実施されてきている²³⁾⁻²⁶⁾。CRDS法による携帯型分析 システムも開発され²⁷⁾⁻²⁹⁾、メタン濃度の地表マッピングに適用されている³⁰⁾⁻³²⁾。携帯型装置 を車両に搭載して測定を行うことで、迅速かつ効率的なマッピングが可能となる。

ただし、炭化水素資源探査や深部流体の調査に対しては、地表でのメタンの漏出を検出する ために CRDS 法による携帯型分析装置を使用した主要な研究は知られていない。筆者らは既 に、CRDS 法による携帯型分析装置(Picarro GasScouter™ G4301:以下、G4301と呼ぶ)を 用いて、山形県の余目油田地域や北海道幌延地域などにおける、断層や褶曲といった地質構造 に起因するガス移行経路を把握するための測定¹⁾³³⁾³⁴⁾、および、瑞浪超深地層研究所の深度 500 m 研究アクセス北坑道において実施した水みち割れ目の検出を目的とした徒歩測定の結果に ついて報告している³⁵⁾。本研究では、G4301の車載での地表メタン濃度測定の適用性につい て、スラブ脱水起源の深部流体に起因する温泉が多数知られている紀伊半島を事例として検討 した。本報告書では、紀伊半島での検討内容に加え、G4301の使用方法についても整理して取 りまとめた。これらの知見は、炭化水素資源の初期段階での探査に加え、炭鉱坑道内での安全 管理に係る検討、ひいては深部流体や泥火山の影響を念頭に置いた地層処分のサイト設計や安 全評価に係る調査に反映できると考えられる。

表 1.1 日本の代表的な油・ガス田、泥火山、および紀伊半島の温泉中の溶存ガスに含まれるメ タン濃度

地域	溶存ガス中のメタン濃度	引用文献
豊富油田	43.6%	松波ほか (1979)36)
余目油田	85 - 97%	Wakita et al. (1990) ³⁷⁾
見附油田	88%	Sakata (1991) ³⁸⁾
茂原ガス田	98-99%	Sano et al. (1982) ³⁹⁾
幌延泥火山	90.7%	Miyakawa et al. $(2013)^{40}$
蒲生泥火山	85.1 - 93.4%	加藤ほか (2009)41)
上湯温泉	53.3%	坂田ほか (1987)42)
上北山温泉	45.0%	Matsumoto et al. (2003)43)
川湯温泉	34.1%	Matsumoto et al. (2003)43)
笠置温泉	27.2%	Matsumoto et al. (2003)43)
おくとろ温泉	26%	Umeda et al. (2006)9)
大塔温泉	13.9%	Matsumoto et al. (2003)43)
湯の峰温泉	6.0%	Matsumoto et al. (2003)43)
白浜温泉	2.7%	Matsumoto et al. (2003)43)
熊野川温泉	1.9%	Umeda et al. (2006) ⁹⁾
有馬温泉	0.94%	Matsumoto et al. (2003)43)

2. 測定装置

2.1 概要

本研究で使用した東濃地科学センター所有の G4301 の仕様を表 2.1.1 に示す。G4301 は、大 気中のメタン濃度に加え、二酸化炭素および水蒸気濃度が測定できる。メタン濃度については ppb レベルの精度で測定が可能である。

G4301には専用の GPS アンテナを取り付けることができる。GPS 受信機の位置と速度の精度はそれぞれ<3 m と 0.1 m/s である。GPS データは、G4301 で測定された濃度データに自動的に統合される。G4301 は測定間隔がほぼ 1 秒と短く、質量 12 kg 程度のバックパック型なので、背負っての徒歩測定や、車内に固定しての車載測定で連続的にデータを取得することにより、ガス濃度の空間的な分布をマッピングすることができる(図 2.1.1)。また、固定点で連続観測することにより、ガス濃度の時間変化をモニタリングすることも可能である。

ただし、測定したガス濃度が装置に接続した PC に表示(記録)されるまでには時間差があ り、装置の吸入口(INLET)に接続されたテフロンチューブをガスが伝わる時間と、装置固有 の応答時間(約5秒)を足し合わせた時間がその時間差となる。ガス濃度マッピングの際は、 この時間差の補正をする必要がある。



図 2.1.1 G4301 を背負ってガス測定を行う様子

(左) 瑞浪超深地層研究所の深度 500 m 研究アクセス北坑道で、露出する花崗岩岩盤に沿って 歩きながら測定する様子。(右) 屋外で GPS アンテナ(黄色矢印)を取り付けての測定。iPhone を用いて測定値をリアルタイムで確認している。

表 2.1.1 東濃地科学センター所有の G4301 の仕様

項目	保証値	説明
5 秒間精度(メタン)	$\leq 3 \text{ ppb}$	一定値 (2 ppm) のメタンを 24 時間測定した時の生デ
		ータの5秒ごとの標準偏差(1o)の平均。
5 分間精度(メタン)	$\leq 0.3 \text{ ppb}$	一定値 (2 ppm) のメタンを 24 時間測定した時の生デ
		ータの5分ごとの標準偏差(1o)の平均。
ドリフト (メタン)	$\leq 1 \text{ ppb}$	一定値 (2 ppm) のメタンを 24 時間測定した時の生デ
		ータの 50 分ごとの平均値の最大の振れ幅。
確度(メタン)	±10.0 ppb	メタン標準ガスを 10 分間測定した時の生データの平
		均値と推奨値とのずれ。
測定可能範囲	1.5 - 800	
(メタン)	ppm	
5秒間精度	$\leq 0.4 \text{ ppm}$	一定値(400 ppm)の二酸化炭素を 24 時間測定した
(二酸化炭素)		時の生データの5秒ごとの標準偏差(1o)の平均。
5 分間精度	$\leq 0.04 \text{ ppm}$	一定値(400 ppm)の二酸化炭素を 24 時間測定した
(二酸化炭素)		時の生データの5分ごとの標準偏差(1o)の平均。
ドリフト	$\leq 0.5~{ m ppm}$	一定値(400 ppm)の二酸化炭素を 24 時間測定した
(二酸化炭素)		時の生データの 50 分ごとの平均値の最大の振れ幅。
確度	±1 ppm	二酸化炭素標準ガスを 10 分間測定した時の生データ
(二酸化炭素)		の平均値と推奨値とのずれ。
測定可能範囲	300-10000	
(二酸化炭素)	ppm	
精度 (水蒸気)	$\leq 0.016\%$	24 時間測定した時の生データの 5 分ごとの標準偏差
		(1σ) の平均。
測定間隔	≤5秒	通常はほぼ1秒だが、バックグラウンド値よりも桁違
		いで高濃度のガスを検出した場合は測定間隔が一時
		的に長くなる。
応答時間	約5秒	濃度が 10%→90%に上昇するのにかかる時間、また
		は、90%→10%に低下するのにかかる時間
ガス流量	~1 L/分	

2.2 使用方法

(1) バッテリーの充電と交換

装置を稼働させる 223Wh リチウムイオンバッテリー (BiXPower Rechargeable Battery Power Bank; Model: BP220)の充電を行う。バッテリーが装置内に収納され、Charging Port (図 2.2.1 右写真の IN) にコードが接続されている場合は、付属の AC アダプタ (図 2.2.2) を装置側面の CHARGER IN (図 2.2.3) に接続して充電する。バッテリーが装置から外されている場合は、AC アダプタを Charging Port に直接接続して充電する。



図 2.2.1 G4301 内部に収納されたリチウムイオンバッテリー

(左)赤点線で囲まれた部分がリチウムイオンバッテリー。黄色矢印は 15 V/19 V の切り替え スイッチを示す。緑色矢印は装置内蓋を開ける 2 か所のねじの位置を示す。なお、バッテリー の下にガスが導入されるキャビティーがある。(右)リチウムイオンバッテリーの側面。黄色矢 印は ON/OFF スイッチ、青色矢印は Out Port (OUT)に接続する予備のコードを示す。IN は Charging Port である。



図 2.2.2 リチウムイオンバッテリー充電用 AC アダプタ コンセントは 3P である。



図 2.2.3 G4301 の側面

黄色矢印は POWER ボタンを示す。OUTLET の接続口には赤色のキャップがついている。

バッテリーの表面に充電状態を示す表示がある(図 2.2.4)。また、AC アダプタの赤色ラン プが緑色になれば、充電完了となる。バッテリーの駆動時間は通常、フル充電で7時間半程度 である。なお、G4301の使用時は、バッテリーの電圧設定は常に19Vとする(図 2.2.1 左写真 の黄色矢印)。

装置稼働中にバッテリー容量が無くなってきた時は、Out Port に接続する予備のコード(図 2.2.1 右写真の青色矢印)を用いて、装置を稼働しながらバッテリーを交換することができる。 すなわち、装置を稼働したまま、充電された新しいバッテリーの Out Port に予備のコードを 接続し、新しいバッテリーの電源を ON にした後、元から接続されていたバッテリーの電源を OFF にする。その後、元から接続されていたバッテリーの Charging Port と Out Port に接続 されていたコードを外してバッテリーを取り出し、代わりに新しいバッテリーを収納する。



図 2.2.4 バッテリー表面の充電状態を示す表示

(2) GPS の接続

GPS アンテナを装置側面グリップ (図 2.2.5) に装着し、USB を同じく装置側面のポート (図 2.2.3 の POWER ボタンの下) に接続する。



図 2.2.5 GPS アンテナの接続

左写真の黄色矢印は GPS アンテナを接続するグリップ、緑色矢印は GPS 受信機を示す。GPS 受信機は磁石でアンテナに接着しているので、衝撃などにより外れないように注意する必要が ある。GPS アンテナは右写真のようにレバーを反時計回りに回転して固定させる。

(3) コネクタの抜き差し

装置を長期間使用していなかった時は、USB ドライバの再認識のため、装置内蓋の裏側の黒 色のコネクタ(図 2.2.6)を抜き差しする。内蓋は、3 mm 六角レンチで 2 か所のねじ(図 2.2.1 左写真の緑色矢印)を外してからゆっくり開ける。コネクタの抜き差しの作業の際は、静電気 防止用手袋を着用するとともに、装置およびバッテリーの電源を落として十分に時間が経過し てから行う。蓋を閉じる際は、虹色のフラットケーブル(図 2.2.6)が折れ曲がりすぎないよう 注意する。



図 2.2.6 装置内蓋の裏側の黒色のコネクタ(赤色囲み)とフラットケーブル(黄色囲み) 右写真は左写真の黒色のコネクタを拡大したもの。

(4) 起動

バッテリー側面の電源(図 2.2.1 右写真の黄色矢印)を ON にする。さらに、キャビティー に異物が入るのを防止するためのフィルター付きチューブ(図 2.2.7)を INLET(図 2.2.3)に 接続する。キャビティーから気体が放出される OUTLET には、装置停止時には保護のため赤 色キャップが装着されているが(図 2.2.3)、装置稼働時はキャップを外す。



図 2.2.7 INLET に接続したフィルター付きチューブ

INLET に接続したフィルター付きチューブからさらに、測定目的に応じたチューブ長にな るよう、1/4 インチテフロンチューブをナット(Swagelok SS-400-6)により接続する。チュー ブの先端は、異物や水滴が入りにくくするため、市販のポリプロピレンマスクなどで覆う(図 2.2.8)。



図 2.2.8 INLET に接続された 1/4 インチテフロンチューブ 先端(黄色矢印)はポリプロピレンマスクで覆われている。

装置側面の POWER ボタン (図 2.2.3 の黄色矢印)を押す。POWER ボタンの緑色が明るく なるとともに、GPS アンテナの USB の部分が一定時間ごとに緑色点滅する (図 2.2.9)。



図 2.2.9 GPS アンテナの USB の部分が緑色点滅した状態

(5) Wi-Fi 接続

通常時は、G4301 に内蔵されている Windows PC とは Wi-Fi 接続を通して各種操作や、測 定値の確認を行う。測定データを他の PC にコピーしたり、装置に記録されたデータログを確 認したりする場合は、Windows 搭載の PC を使用し、リモートデスクトップ機能により Wi-Fi に接続する。なお、他の Wi-Fi との干渉を避けるため、使用する PC において他の Wi-Fi に自 動接続されないようあらかじめ設定しておく。

装置起動後1分程度経過すると、ネットワークで「Nomad4062」(東濃地科学センター所有のG4301の場合)が選択できるようになるので、それを選択して接続する。続いて、リモートデスクトップを検索、実行し、内蔵 PC の IP アドレス、ユーザー名、パスワードを入力すると接続され、PC に装置の測定状態が表示される (図 2.2.10)。

装置を背負って徒歩で測定する場合などは、iPhone や iPad のように携行しやすい媒体で測 定値をリアルタイムで見るのが便利である。iPhone や iPad で測定値を表示する場合は、設定 >Wi-Fi>Nomad4062(東濃地科学センター所有のG4301の場合)の順に選択し、パスワード を入力する。接続が確認できた後、Safariの検索で指定のIPアドレスを入力すると測定値の 画面(図 2.2.11)が表示される。



図 2.2.10 リモートデスクトップ機能で Windows PC から G4301 内蔵の PC に接続した場合の画面表示

3 つの項目のリアルタイムの測定値およびグラフが表示できる。表示させたい項目は黄色四角 の部分から選択できる。アラームが出た場合は左上の表示(赤四角の部分)が赤色点灯する。 また、何らかのエラーが出た場合は青囲みの部分にエラーメッセージが出る。このエラーメッ セージは、イベントログ(「(8) 異常時の対応」参照)に自動的に保存される。

JAEA-Research 2022-004



図 2.2.11 iPhone の Safari で G4301 の測定値の画面を表示した状態 2 つの項目のリアルタイムの測定値およびグラフが表示できる。表示させたい項目は写真左上 の赤四角の部分をタップすると選択できる。

(6) データファイルの保存

測定データは、G4301 内蔵の PC に逐一保存されていく。それらのファイルは、

C:¥UserData¥Minimal¥(西暦)¥(月)¥(日)

のフォルダに格納されているので(図 2.2.12)、リモートデスクトップ機能で接続した Windows PC 上でコピー・ペーストしてデータを取り出す。データファイルの形式は.dat となっているが、Microsoft Excel で開くことができる。なお、1つのデータファイルに最大1時間分のデータが格納され、1時間以上連続測定している場合は、1時間ごとに新しいファイルが作成される。

データファイルを Microsoft Excel で最初に開いたときは、測定値が指数表示されるため(図 2.2.13)、セルの書式設定>表示形式>標準の順に選択して生データの数値表示に変更する。こ の表示形式の変更の後、ファイルを csv 形式で保存して各種のソフトウェアでグラフの作成や 測定値の地図上での表示に使用する。測定値の指数表示から数値表示への変更を行わずに csv 形式で保存すると、測定値が自動的に丸められてしまうので注意が必要である。

データファイルにおける時間は、G4301 内蔵の PC と同期して、グリニッジ標準時(GMT) で表示される。なお、測定開始時に、G4301 内蔵の PC の時間と実時間との間のずれを確認し、 補正をしておく必要がある。

-1 4 () ▼ ↓ Normad-4062	→ Picarro (C:) → UserData → Minimal → 2021 → 08	⊧ ▶ 09		•	4
Organize 👻 Include in librar	y ▼ Share with ▼ New folder				
Favorites	Name	Date modified	Туре	Size	
🖳 📃 Desktop	NOMAD-20210809-001343Z-DataLog_Us	8/9/2021 10:13 AM	DAT File	1,682 KB	
📜 Downloads	NOMAD-20210809-011347Z-DataLog_Us	8/9/2021 11:13 AM	DAT File	1,901 KB	
12 🔢 Recent Places	NOMAD-20210809-021351Z-DataLog_Us	8/9/2021 12:13 PM	DAT File	1,788 KB	
	NOMAD-20210809-031355Z-DataLog_Us	8/9/2021 1:14 PM	DAT File	1,758 KB	
📕 🥃 Libraries	NOMAD-20210809-041358Z-DataLog_Us	8/9/2021 2:14 PM	DAT File	1,943 KB	
Documents	NOMAD-20210809-051403Z-DataLog_Us	8/9/2021 3:14 PM	DAT File	1,968 KB	
ih 🌙 Music	NOMAD-20210809-061407Z-DataLog_Us	8/9/2021 4:14 PM	DAT File	1,932 KB	
Pictures	NOMAD-20210809-071411Z-DataLog_Us	8/9/2021 5:14 PM	DAT File	1,771 KB	
nt 🛃 Videos	NOMAD-20210809-081415Z-DataLog_Us	8/9/2021 6:14 PM	DAT File	1,948 KB	
nin	NOMAD-20210809-091419Z-DataLog_Us	8/9/2021 6:24 PM	DAT File	336 KB	
🔨 🌉 Nomad-4062	NOMAD-20210809-231017Z-DataLog_Us	8/10/2021 9:10 AM	DAT File	1,902 KB	
im 🏭 Picarro (C:)					
🙀 data (\\fs-syn-02) (R:)					
🚽 🙀 temp_space (\\fs-syn-02) (X6)				

図 2.2.12 G4301 内蔵の PC に格納された測定データの.dat ファイルが入ったフォルダ

B	5-0										NOMAD	-20211108-0	12644Z-Data	aLog_User_M	1inimal.dat	- Excel							
771	(ル ホーム	挿入		か 数式		校開表示		Acrobat	Q (\$6	うしたい作業を入													
	🔍 🔏 খ্যাচা	なり	10-12-0	n	× 11		= = _	æ.	ab tenter 74	いたまデオス	停油				標准	25	らでも	悪い	良い				μΣ
貼り (े तिम िक २८-		P T	n . 1 00	- 1.0- 1	7				T-t-t-	- 0		▲ 単 単 単 単 単 単 単 単 単 単 単 単 単 単 単 単 単 単 単	テーブルとして	チェック	-17 × F		リンクセル		Ì	1 曲	田に	
	定告 🍫	のコピー/貼り作	tt B 1	<u>n</u> .	• <u>• •</u> • <u>#</u>	- # ·		<u> </u>	1111を結合	」(中犬捕え 、		• * 165 -47	雷式 *	書式設定 *	/ ± / /	<u>e</u> 7. e		577 27					÷
	クリップオ	1-15	5	77	121	5		BC	逽		ral 3	汉德	rs I				スタイル					セル	
X15	5 -	: ×	$\checkmark = f_X$																				
	А	В	С	D	Е	F	G	н	1.1	J	к	L	М	N	0	P	Q	R	S	т	U	V	W
1 [DATE	TIME	FRAC_DA	FRAC_HR	EPOCH_T	ALARM_S	INST_STA	CH4	CH4_dry	CO2	CO2_dry	H2O	CavityPres	CavityTen	Battery_C	Battery_T	Battery_V	GPS_ABS	GPS_ABS	GPS_FIT	GPS_TIM	GPS_A	LTITUDE
2	#######	26:42.8	310.7269	7457.445	1.64E+09	0	899	1.95E+00	1.97E+00	0 6.33E+02	6.40E+02	1.03E+00	7.05E+02	2.00E+01	#######	2.39E+01	1.89E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
3	#######	26:44.1	310.7269	7457.446	1.64E+09	0	899	1.95E+00	1.97E+00	0 6.11E+02	6.18E+02	1.03E+00	7.05E+02	2.00E+01	#######	2.39E+01	1.89E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
4	#######	26:45.4	310.7269	7457.446	1.64E+09	0	899	1.94E+00	1.97E+00	0 6.11E+02	6.20E+02	1.38E+00	7.05E+02	2.00E+01	#######	2.39E+01	1.89E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
5	#######	26:46.7	310.7269	7457.446	1.64E+09	0	899	1.94E+00	1.97E+00	5.85E+02	5.94E+02	1.38E+00	7.05E+02	2.00E+01	#######	2.39E+01	1.89E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
6	#######	26:48.0	310.7269	7457.447	1.64E+09	0	899	1.95E+00	1.97E+00	5.85E+02	5.91E+02	9.42E-01	7.05E+02	2.00E+01	#######	2.39E+01	1.89E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
7	#######	26:49.4	310.727	7457.447	1.64E+09	0	899	1.95E+00	1.97E+00	5.75E+02	5.81E+02	9.42E-01	7.05E+02	2.00E+01	#######	2.39E+01	1.89E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
8	#######	26:50.8	310.727	7457.447	1.64E+09	0	899	1.95E+00	1.97E+00	5.75E+02	5.83E+02	1.23E+00	7.05E+02	2.00E+01	#######	2.39E+01	1.90E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
9	#######	26:52.1	310.727	7457.448	1.64E+09	0	899	1.95E+00	1.97E+00	5.76E+02	5.84E+02	1.23E+00	7.05E+02	2.00E+01	#######	2.39E+01	1.90E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
10	#######	26:53.6	310.727	7457.448	1.64E+09	0	899	1.94E+00	1.96E+00	5.76E+02	5.82E+02	9.78E-01	7.05E+02	2.00E+01	#######	2.39E+01	1.90E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
11	******	26:55.0	310.727	7457.449	1.64E+09	0	899	1.94E+00	1.96E+00	5.82E+02	5.88E+02	9.78E-01	7.05E+02	2.00E+01	########	2.39E+01	1.90E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
12	******	26:56.3	310.727	7457.449	1.64E+09	0	899	1.95E+00	1.97E+00	5.82E+02	5.89E+02	1.14E+00	7.05E+02	2.00E+01	#######	2.39E+01	1.90E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
13	*******	26:57.6	310.7271	7457.449	1.64E+09	0	899	1.95E+00	1.97E+00	5.67E+02	5.74E+02	1.14E+00	7.05E+02	2.00E+01	******	2.39E+01	1.90E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
4	******	20:59.0	310.7271	7457.45	1.04E+09	0	899	1.98E+00	2.00E+00	5.67E+02	5.72E+02	9.14E-01	7.05E+02	2.00E+01	########	2.39E+01	1.90E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
10		27:00.4	310.7271	7457.45	1.64E+09	0	899	1.98E+00	1.07E+00	5.66E+02	5.72E+02	9.14E-01	7.05E+02	2.00E+01	******	2.39E+01	1.90E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
17	*******	27:01.7	210 7271	7457.45	1.64E+09	0	800	1.95E+00	1.97E+00	5.00E+02	5.73E+02	1.01E+00	7.05E+02	2.00E+01		2.39E+01	1.90E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
10	*******	27:03.1	310.7271	7457.451	1.64E+09	0	899	1.95E+00	1.97E+00	5.67E+02	5.73E+02	1.01E+00	7.05E+02	2.00E+01	******	2.39E+01	1.90E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
10	*******	27:05 7	210 7271	7457.451	1.04E+09	0	099	1.94E+00	1.97E+00	5.07E+02	5.74E+02	1.11E+00	7.03E+02	2.00E+01	*******	2.39E+01	1.90E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
20		27:03.7	210 7272	7457.452	1.04E+09	0	200	1.940+00	1.07E±00	5 60E±02	5.76E+02	0.695-01	7.04E+02	2.00E+01	*******	2.3500+01	1.00E±01	0.0000+00	0.0000+00	0.00E+00	0.00E+00	0.000	00
21	*******	27:08.4	310.7272	7457.452	1.64E+09	0	800	1.95E±00	1.97E±00	5.64E±02	5 70E±02	9.68E-01	7.04E+02	2.00E+01	******	2.39E+01 2.39E±01	1.90E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.000	00
22	*******	27:09.7	310 7272	7457 453	1.64E+09	0	899	1.94E+00	1.96E+00	5.64E+02	5 71E+02	1.04F+00	7.05E+02	2.00E+01	########	2 39E+01	1.90E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
23		27:11.0	310.7272	7457.453	1.64E+09	0	899	1.94E+00	1.96E+00	5.69E+02	5.76E+02	1.04E+00	7.04E+02	2.00E+01	########	2.39E+01	1.90E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
24		27.12.2	310 7272	7457 453	1.64E+09	0	899	1.95E+00	1.97E+00	5.69E+02	5.76E+02	1.10E+00	7.04E+02	2 00E+01	******	2.39E+01	1.90E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
25	******	27:13.4	310,7272	7457.454	1.64F+09	0	899	1.95F+00	1.97F+00	5.63E+02	5.69E+02	1.10E+00	7.04F+02	2.00F+01	########	2.39F+01	1.90F+01	0.00F+00	0.00F+00	0.00F+00	0.00F+00	0.00F+	00
26	******	27:14.7	310,7273	7457.454	1.64E+09	0	899	1.98E+00	1.99E+00	5.63E+02	5.68E+02	8.09E-01	7.04E+02	2.00E+01	#######	2.40E+01	1.90E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
27	#######	27:16.0	310.7273	7457.454	1.64E+09	0	899	1.98E+00	1.99E+00	5.63E+02	5.68E+02	8.09E-01	7.04E+02	2.00E+01	#######	2.42E+01	1.90E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
28	#######	27:17.4	310.7273	7457.455	1.64E+09	0	899	1.95E+00	1.97E+00	5.63E+02	5.70E+02	1.07E+00	7.04E+02	2.00E+01	#######	2.42E+01	1.90E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+	00
4		NOMAD	-20211108-	012644Z-0	DataLog_	۲										:	I					1	

図 2.2.13 測定データの.dat ファイルを Microsoft Excel で開いた状態 CH4 の値が表示された H 列から右の列の値はすべて指数表示になっている。

G4301の初期設定では、測定データのファイルには、以下の項目が収納されている。 DATE:日付 TIME:データ取得時間(GMT表示) FRAC_DAYS_SINCE_JAN1:測定した年の1月1日からの経過日(day)

FRAC_HRS_SINCE_JAN1: 測定した年の1月1日からの経過時間(hour)

EPOCH_TIME: 1970年1月1日からの経過時間 (second)

ALARM_STATUS: アラームの状態(0: アラームなし、1: システムアラーム、2: H2O アラ ーム(水蒸気モル分率が規定値(初期設定では 2.5%)を上回っている場合)、4: バッテリ ーアラーム(バッテリー残量が残り少なくなっている場合))

INST_STATUS: ハードウェアのステータスコード(東濃地科学センター所有の G4301 の場合、正常に動作していれば、899 が記録される)

CH4:メタンモル分率 (ppm)

CH4_dry:メタンの水蒸気による希釈の影響を補正した乾燥モル分率 (ppm)

CO2:二酸化炭素モル分率 (ppm)

CO2_dry:二酸化炭素の水蒸気による希釈の影響を補正した乾燥モル分率 (ppm)

H2O:水蒸気モル分率(%)

CavityPressure:キャビティー内の圧力(Torr)

CavityTemp:キャビティー内の温度(℃)

Battery_Current:バッテリーの電流値(A)

Battery_Temperature:バッテリーの温度 (℃)

Battery_Voltage: バッテリーの電圧出力 (V)

GPS_ABS_LAT: GPS が計測した緯度

GPS_ABS_LONG: GPS が計測した経度

GPS_FIT: GPS データの質 (GPS が正常に受信されている場合は、1 または 2 が記録される。 室内など、GPS が受信できない場合は、0 が記録される。)

GPS_TIME: GPS が計測した時間

GPS_ALTITUDE: GPS が計測した標高

(7) 終了処理

装置の電源を切る前に、乾燥空気を導入することにより、キャビティー内を乾燥させる。ガ ス乾燥ジャー(Drierite)と INLET とを図 2.2.14 のように接続する。接続が正しければ、測 定値が示す水蒸気濃度は 0.1%未満に低下し、二酸化炭素濃度も大きく低下する。

水蒸気濃度が 0.1%未満に低下してから 5~15 分程度(高湿度下で測定していた場合はより 長時間待機する)経過したら、Safari 上で Shutdown を選択し、水蒸気濃度が 0.1%未満にな っていることを再度確認したうえで、「Shut down analyzer」を選択する(図 2.2.15)。30 秒程 度経つと自動的に装置の稼働が止まる(POWER ボタンの緑色が暗くなる)。装置の稼働が止 まったら、Drierite を片付けるとともに、INLET と OUTLET に保護用のキャップを付ける

(Drierite の 2 つの栓にも、保護用のキャップを付けて湿気が入るのを防ぐ)。バッテリー側面の電源を OFF にする (図 2.2.1 右写真の黄色矢印)。

リモートデスクトップ機能で接続した Windows PC から G4301 の稼働を停止する場合は、 Picarro analyzer フォルダ中の Stop Instrument を起動し、「Turn off analyzer in current state」を選択する (図 2.2.16、図 2.2.17)。



図 2.2.14 Drierite と G4301 の接続

(左) Drierite の青色の顆粒(硫酸カルシウム)の入っている側から空気が導入されるよう、 灰色の顆粒の入っている側を専用の1/4インチテフロンチューブで接続する。(右)チューブの 反対側は INLET に接続したフィルター付きチューブに接続する。Drierite の使用が進むと、 青色の顆粒が吸湿により容器下部から徐々にピンク色に変わる。青色の顆粒がすべてピンク色 に変わったら、Drierite の交換時期である。



図 2.2.15 Safari 上で G4301 の稼働を停止する様子

画面左上(図 2.2.11 の赤四角)をタップしてメニューを表示させ、Shut down(写真中央緑色部分)を選択すると、水蒸気濃度に関する注意喚起のメッセージが出る(写真上部)。水蒸気濃度が 0.1%未満になっていることを確認して、「Shut down analyzer」(黄色矢印)を選択する。



図 2.2.16 リモートデスクトップ機能で接続した Windows PC から G4301 の稼働を停止する様子

Stop Instrument (赤色の×のマーク; 左写真の黄色矢印)を選択すると、右写真のような Stop CRDS Software のポップアップウィンドウが出るので、「Turn off analyzer in current state」 (青色矢印)を選択して Stop を押下する。



図 2.2.17 シャットダウン中の Windows PC の表示

(8) 異常時の対応

測定が正常に行われていない場合や、システムエラーが点灯した場合など、装置に何らかの 異常が認められた場合は、代理店に相談する際の証拠データとして、画面のスクリーンショッ トに加え、下記に示すログの入ったフォルダをコピーして提示できるようにしておく。

C:\Picarro\G2000\Log\Archive\EventLogs\() \ (日) \ (日)

また、G4301 内蔵の PC に Wi-Fi で接続できない場合は、Thunderbolt ケーブルを用いて G4301 内蔵の PC とモニターを直接接続することにより、G4301 内蔵の PC の操作を行う場合 がある (図 2.2.18、図 2.2.19)。



図 2.2.18 Thunderbolt ケーブル(黄色矢印)を用いて G4301 内蔵の PC とモニターを 接続する様子

キーボードやマウスは、装置側面の USB ポート (図 2.2.3) から接続する。



図 2.2.19 装置内部の Thunderbolt ケーブルの接続部分(黄色矢印)

(9) 長距離運搬時の注意点

装置を稼働させるリチウムイオンバッテリーは、航空輸送に厳しい制約があるため、基本的 には、装置は陸送で運搬する必要がある。装置を配送する場合、収納する容器には、リチウム 電池マーク(国連番号: UN3481)の表示を付ける。

装置を国外に持ち出す場合は、リチウムイオンバッテリー輸送に係る手続きに加え、装置の 輸出管理の該否判定も必要となる(代理店から証明書を取り寄せる)。

2.3 メタンのバックグラウンド濃度

G4301による測定結果に基づき、地下からのメタン漏出などのアノマリを特定するためには、 一般大気中のメタン濃度(本研究におけるバックグラウンド濃度と見なす)を考慮する必要が ある。本研究では、測定日の全測定データ(装置起動直後の GPS 通信確立までのデータや、 Drierite で乾燥空気を導入している間のデータは除く)のうちの>1.6 ppm かつ<2.0 ppm の平 均をその日のメタンのバックグラウンド濃度とし、その+2σを超える値をメタンアノマリと して認定することとした。さらに、これらのデータから二酸化炭素濃度が>300 ppm かつ<500 ppm を示した値の平均をその日の二酸化炭素のバックグラウンド濃度とし、その+2σを超え る値を二酸化炭素のアノマリとした。東濃地科学センター所有の G4301 でこれまでに測定し たデータから計算された各測定日のメタン・二酸化炭素のバックグラウンド濃度と、その時の 水蒸気濃度および気象データを表 2.3.1 に示す。

メタンおよび二酸化炭素のバックグラウンド濃度は、測定時期や地域によって多少の違いが 見られる可能性があるものの、一般的にメタンが 1.91 ppm 前後、二酸化炭素が 410 ppm 前後 を示す(図 2.3.1)。平均気温、平均湿度、最高気温、平均気圧との相関関係は不明瞭ではある が、敢えて言えば、メタンのバックグラウンド濃度は気温が低いほど、または湿度が低いほど 高くなる傾向が認められる(図 2.3.2)。二酸化炭素のバックグラウンド濃度と気温・湿度との 相関関係は見られない。また、気圧が高い方がメタンのバックグラウンド濃度は高いのに対し、 二酸化炭素のバックグラウンド濃度は低い傾向も認められる。



図 2.3.1 各測定日のメタンおよび二酸化炭素のバックグラウンド濃度 誤差範囲は 2 σ を示す。



図 2.3.2 メタンおよび二酸化炭炭素のバックグラウンド濃度と、平均気温、平均湿度、 最高気温、平均気圧との相関

目的		Α	Α	Α	Α	Α	Α	Α	D	Α	Α	Α	В	В	В	D	D	D	В	В	В	Α	ы	Ъ	Ъ	Ъ	C
最高気温	Ĉ	21.7	18.8	9.5	24.4	29.7	26.0	30.3	31.1	22.9	24.9	17.9	25.9	25.7	28.2	21.4	20.0	21.3	7.9	12.1	5.7	0.7	12.1	27.1	24.9	30.4	8.6
平均湿度	%	86	82	68	53	74	06	76	82	68	68	93	79	77	66	60	68	62	58	69	56	86	53	55	64	51	52
半均気圧	hPa	941.0	939.8	947.8	953.5	943.0	938.8	947.7	1006.0	951.6	953.7	956.4	1017.6	1020.8	1018.7	1010.7	1010.4	1012.1	1025.1	1017.0	1028.1	950.6	1025.5	1014.0	1012.3	1006.8	1016.4
雨多風回	16 方位	꾸	北北西	北北西	嶣	東南東	北東	꾸	⊤	七周	北北西	北北東	東南東	東南東	南東	東北東	東北東	東北東	西北西	南東	七周	七西	西北西	東北東	⊤	西北西	围
半均風速	m/s	1.3	2.0	3.9	2.0	1.9	1.0	2.0	2.1	2.7	1.6	0.9	2.0	2.7	2.9	2.8	2.3	2.7	5.0	6.8	5.2	1.3	3.1	2.3	2.9	4.0	4.7
降水重	mm	16	2.5	3.5	0	0	10	0	0	0	0	9	0	0	0	0	0	0	0	17	0	ю	0	0	0	0	0.5
半均気温	$^{\circ}{\rm C}$	16.8	14.0	6.4	13.6	20.7	20.6	23.9	27.8	17.3	17.2	16.3	21.0	20.4	21.1	15.6	16.4	16.2	5.3	6.3	4.1	-3.6	5.6	21.2	20.6	24.3	7.4
风象台		高山	通行	高日	山市	山市	山市	通行	阿久根	山市	山市	山市	通田	通田	田駅	阿久根	阿久根	阿久根	通田	通田	通田	高山	岐阜	岐阜	岐阜	岐阜	稚内
0	2σ	0.353	0.813	0.329	0.602	0.589	0.255	0.410	0.776	0.370	0.313	0.250	0.232	0.334	0.520	0.599	0.309	0.286	0.270	0.460	0.113	0.223	0.081	0.158	0.137	0.357	0.651
H_2	%	2.760	2.126	0.789	1.057	2.485	3.339	3.548	3.386	1.696	1.665	2.392	2.643	2.557	2.417	1.539	1.754	1.409	0.842	1.099	0.630	0.541	0.511	1.570	1.809	1.876	0.924
5	2σ	32.3	42.5	29.4	35.3	58.1	44.0	48.3	54.9	54.9	50.9	45.7	37.6	43.7	40.4	42.1	23.0	23.0	16.5	20.1	16.8	25.0	26.7	29.8	24.2	31.7	19.8
CO	ppm	421.6	429.6	417.6	435.5	427.3	451.0	424.8	414.9	411.2	412.6	430.8	404.1	412.7	415.7	413.1	406.9	412.5	411.8	411.6	414.5	420.2	418.7	423.7	413.5	401.3	407.4
4	2σ	0.044	0.043	0.029	0.032	0.027	0.043	0.051	0.039	0.022	0.023	0.046	0.036	0.036	0.050	0.054	0.062	0.029	0.020	0.049	0.015	0.021	0.011	0.021	0.017	0.030	0.021
CH	ppm	1.830	1.874	1.918	1.913	1.944	1.887	1.896	1.767	1.902	1.904	1.893	1.870	1.892	1.905	1.895	1.897	1.914	1.932	1.935	1.949	1.934	1.923	1.905	1.887	1.934	1.965
日付		2019/4/25	2019/4/26	2019/4/27	2019/5/4	2019/6/20	2019/7/14	2019/7/16	2019/8/21	2019/9/19	2019/9/20	2019/9/21	2019/9/30	2019/10/1	2019/10/2	2019/11/6	2019/11/7	2019/11/8	2019/12/13	2019/12/14	2019/12/15	2020/2/10	2020/2/11	2020/5/1	2020/5/3	2020/6/7	2020/10/15
	1																										

JAEA-Research 2022-004

	表 2.;	$3.1 \times$	タンおし	1 び い	酸化炭素	50133	クグラウ	ンド濃度、	および	予測 応日の	水蒸気濃度	Eと気象デ ー	-タ(続き		
日付	C	H_4	CC	$)_2$	H	20	気象台	平均気温	降水量	平均風速	最多風向	平均気圧	平均湿度	最高気温	目的
	bpm	2σ	ppm	2σ	%	2σ		Ĉ	mm	m/s	16 方位	hPa	%	$^{\circ}$ C	
2020/10/16	1.969	0.021	407.6	13.6	0.895	0.259	稚内	10.7	0	4.8	西南西	1015.8	51	12.8	C
2020/10/17	1.961	0.025	406.9	18.8	1.117	0.438	稚内	12.4	0.5	4.0	围	1015.5	51	14.9	C
2020/10/18	1.951	0.021	408.5	21.9	1.355	0.223	稚内	14.7	0	5.8	西南西	1013.3	58	17.6	C
2020/10/19	1.962	0.025	409.6	20.2	0.891	0.189	稚内	10.8	0	3.2	围	1016.9	50	13.1	C
2020/11/12	1.896	0.061	420.9	25.0	1.648	0.510	潮岫	15.6	×	5.1	北東	1019.6	75	18.8	Ы
2020/11/13	1.892	0.059	421.3	42.0	1.881	0.272	潮岬	17.8	0	4.3	北東	1015.5	76	20.4	Э
2020/11/17	1.965	0.039	417.5	17.6	1.476	0.398	神戸	17.6	0	2.9	東北東	1022.9	56	21.2	되
2020/11/22	1.936	0.026	414.9	25.5	1.410	0.138	飯田	9.4	0.5	1.8	围	958.4	82	15.5	Э
2020/11/23	1.937	0.012	421.3	37.2	1.014	0.103	長野	8.7	1	3.9	東北東	968.4	79	12.0	Э
2020/11/27	1.925	0.029	416.4	25.0	1.455	0.211	伊良湖	13.9	0	2.5	北北西	1017.8	68	17.5	Э
2021/4/22	1.942	0.014	418.0	12.7	0.291	0.080	岐阜	19.4	0	2.9	西北西	1017.1	25	26.8	Γų
2021/6/29	1.914	0.028	400.5	33.0	1.878	0.360	稚内	13.8	0	5.2	東	1009.0	88	18.8	C
2021/6/30	1.911	0.027	390.4	21.1	1.942	0.194	稚内	13.1	റ	5.1	嶣	1012.6	93	14.9	C
2021/7/1	1.908	0.031	382.7	17.6	2.191	0.288	稚内	13.3	0	4.0	承	1014.6	94	15.6	C
2021/7/2	1.911	0.051	379.5	24.4	2.483	0.317	稚内	15.2	0	2.9	承	1014.8	88	18.9	C
2021/8/7	1.869	0.097	411.9	48.6	3.588	0.464	稚内	24.5	0	5.8	南西	1006.7	86	31.6	C
2021/8/8	1.900	0.034	393.3	14.4	2.093	0.183	稚内	16.2	7	10.0	嶣	1010.2	92	17.9	C
2021/8/9	1.910	0.042	395.2	25.6	2.121	0.203	稚内	14.3	0.5	8.5	東北東	1010.4	95	14.7	C
2021/8/10	1.910	0.031	393.3	19.4	1.791	0.143	稚内	13.9	4	10.9	東北東	1009.9	88	14.7	C
2021/8/11	1.913	0.040	386.1	16.2	1.787	0.248	稚内	15.4	0	6.5	北東	1016.2	78	18.3	C
2021/11/8	1.941	0.021	411.4	15.5	1.097	0.181	岐阜	17.9	0	2.8	南南東	1015.8	56	24.7	Έų
A:東京大学・	深田地會	【研究所·	·原子力桃	態構 との)共同研究	こ「断層中	コのメタン	ガス高精度権	良出に関す	る共同研究.	」における頃	を す よの に 解 し	暑を対象とし	、た測定(下	茂ほか,
2019 ³³⁾ 参照)、	. B: 同∃	も同研究(こおける	糸目油目	田地域やう	対象とし1	こ測定 (下	茂ほか,202	0 ¹⁾ 参照)、	C:同共同	研究における	5北海道幌延	地域を対象。	ヒした測定	下茂ほ
$(\dot{p}, 2021^{34})$	照)、D:	資源エネ	いーボー庁	東荒亭	業「高し	ベル放射	性廃棄物等	等の地層処分	心関する	技術開発事訓	裈(地質環境	長期安定性調	平価技術高度	化開発)」44	(45) (C)
ち、活断層地	形が不明	療なせん	断帯を対	象とし	た技術開	発におけ	る測定、E	1:同受託事業	業のうち、	深部流体の	調査・評価ヨ	支術開発にお	ける測定 45)	、F:東濃地	科学セ
ンター周辺で(の試験測	定(装置	の動作確	認)。 🤌	〔象データ	7 は気象庁	ドアメダス	による。							

3. 車載測定の事例

3.1 測定地域の概要

本報告書では、G4301を用いた車載測定の事例として、紀伊半島に分布するスラブ脱水起源 の深部流体に起因する温泉をターゲットとした測定について示す。紀伊半島沖の南海トラフで は、20 Ma 前後の年代を示すフィリピン海プレートがユーラシアプレートの下に沈み込んでい る 46) (図 3.1.1)。紀伊半島を含む西南日本の太平洋側では、火山フロントより前弧側の非火山 地域であるにもかかわらず高温の熱水が湧出していることが知られている47/48)。これらの熱水 は³He/⁴He 比が高い特徴を持つことが多く(図 3.1.1)、沈み込むスラブの脱水に起因する流体 によってマントル由来の He 成分が地表に運ばれることで説明されている ^{7)-9),43)49)}。マントル には地球生成時に取り込まれた始源的な³He が残されているのに対し、⁴He は主に U と Th の 崩壊によって地殻で生成される。したがって、地球表層における高い³He/⁴He 比は、マントル 由来のヘリウムの地下からの供給を示している可能性がある 50%。紀伊半島の地下におけるスラ ブ脱水起源の流体の存在は、高い地温勾配 51)、非火山性群発地震 52)-54)、非火山性微動 55)-57)、 地震波速度異常 58⁻⁶⁰、地磁気・地電流探査における低比抵抗域の分布 6¹などの多くの地球物 理学的観測からも推定されている。スラブ脱水起源の深部流体には、高い³He/⁴He 比の他にも、 塩分濃度が高い、pH が低いなどの特徴的な地球化学的性質があり、二酸化炭素やメタンの濃 度も高いものが多い45)。紀伊半島の温泉中の溶存ガスにも、1.8~53%の比較的高濃度のメタン が含まれている(表 1.1)。

本研究で車載測定を行ったのは、川湯温泉および湯の峰温泉が位置する紀伊半島南東部の本 宮地域である。本地域の基盤は、四万十帯の始新世音無川層群羽六累層の砂岩・泥岩からなる⁶²⁾。 さらに川湯温泉の湧出域では石英斑岩が貫入しており、石英斑岩は西北西ないし北西方向に約 10 km 連続している⁶³⁾。石英斑岩は、14.9±0.6 Ma のジルコン U-Pb 年代⁴⁴⁾、および 13.7±0.4 Ma のセリサイト K-Ar 年代を示す⁶⁴⁾。川湯温泉は大塔川の、湯の峰温泉は湯の峰川の河床か ら自然湧出しており、古くから利用されてきた温泉である⁶⁵⁾⁶⁶⁾(図 3.1.2)。温泉水はいずれ も塩分濃度が高く、溶存ガスはメタンおよび二酸化炭素に富み、高い³He/⁴He 比を示す¹³⁾⁴³⁾。



図 3.1.1 紀伊半島の高³He/⁴He 比を示す温泉の分布と調査地域の位置 高³He/⁴He 比を示す温泉の分布は草野ほか(2012)⁶⁷⁾に基づく。R と RA は、それぞれ温泉ガ スと大気の³He/⁴He 比を示す。ベースマップは Google Earth による。



図 3.1.2 自然湧出する川湯温泉および湯の峰温泉の写真

3.2 測定

車載測定は、G4301 をハイブリッド車の後部座席に配置し、INLET に接続した 1/4 インチ テフロンチューブの先端を車外に出して、車両の前部に向け、車両側面の下部に固定して行っ た(図 3.2.1)。測定中、車両は 10~50 km/h (2.8~14 m/s)の速度で走行した。地点ごとのメ タン濃度は、チューブ内でのガスの移動時間と G4301 の応答時間を考慮し、測定時間の 20 秒 後に GPS が示した位置での測定値となるように較正した。

測定は川湯温泉および湯の峰温泉沿いおよびその周辺の道路を利用して、2020 年 11 月 12 日と13日に行った。気象庁アメダスの栗栖川(川湯温泉の西 24 km)のデータによると、測 定期間中の風速は約 0.3~2.6 m/s、風向は概ね東からの風であった。測定中に降雨は無かった。



図 3.2.1 G4301 を用いた車載測定の写真

(左) G4301 をハイブリッド車の後部座席に配置した様子。(右) INLET に接続した 1/4 イン チテフロンチューブを車両側面に固定した様子。チューブの先端はポリプロピレンマスク(黄 色の矢印)で保護されている。

車載測定に加え、川湯温泉が湧出する大塔川の河床では、G4301を背負っての徒歩測定も行った。水中から湧き出す気泡の位置や赤外線サーモグラフィー⁶⁶⁾に基づき特定した温泉湧出地 点において、INLET に接続されたチューブの先端を近づけて保持することによって、メタン濃 度を測定した(図 3.2.2)。測定中、2 L のアルミニウムバッグ(ジーエルサイエンス株式会社 製)をシリコンチューブを用いて G4301 の OUTLET に接続し、G4301 のポンプのガス吸引 力を利用してガスサンプリングを行った。

採取した試料について、ガス組成をガスクロマトグラフ(Agilent 7890AGC)を用いて、メ タンと二酸化炭素の安定炭素同位体比をガスクロマトグラフー熱変換-同位体比質量分析計 (Thermo Fisher Scientific Trace GC Ultra、GC Isolink、および Delta V Advantage)を用 いてそれぞれ分析した。分析は石油資源開発株式会社で実施した。安定炭素同位体比は、標準 試料 V-PDB (Vienna Peedee belemnite)からの千分偏差δ¹³C として示した⁶⁸⁾。δ¹³C 測定 の精度は±0.2‰である。メタンの水素同位体比は、メタン濃度が低かったため分析できなかっ た。



図 3.2.2 川湯温泉の湧出地点におけるメタン濃度測定とガスサンプリング (a) INLET に接続した 1/4 インチテフロンチューブを川湯温泉の湧出地点で保持して測定する 様子。湧出地点では気泡が断続的に観察される(白色矢印)。(b)(a)で示した測定におけるメタ ン濃度の時間変化。バックグラウンド濃度(1.876±0.044 ppm)よりも明らかに高いメタンが 常に検出される。(c)川湯温泉の湧出地点近傍の高温を示す岩石の割れ目にテフロンチューブ を近づけてのメタン濃度測定とガスサンプリングの様子。高温を示す岩石の割れ目は赤外線サ ーモグラフィーに基づき特定した⁶⁶⁾。赤外線(d)(c)で示した測定におけるメタン濃度の時間変 化。ガスサンプリングは 12:10:30 から 12:12:30 の間に実施した。

3.3 結果

車載測定の結果、川湯温泉と湯の峰温泉の近傍で明確なメタンアノマリが認められた(図 3.3.1)。2020年11月12日と13日のメタンのバックグラウンド濃度は、それぞれ1.876±0.044 ppmと1.895±0.056 ppmであった。温泉近傍を除き、バックグラウンド濃度の+2σを超える メタンアノマリは検出されなかった。温泉付近の車載測定で得られた最大のメタン濃度は7.7 ppmであった。

川湯温泉が湧出する大塔川の河床における G4301 を背負った徒歩測定においても、温泉湧 出地点において、バックグラウンド値よりも明らかに高いメタン濃度を示した(図 3.2.2)。特 に、赤外線サーモグラフィーで識別される高温を示す岩石の割れ目にチューブを近づけた測定 では、100~680 ppm のメタン濃度が認められた。この高温を示す岩石の割れ目からサンプリ ングしたガスの組成と安定炭素同位体組成分析の結果を表 3.3.1 に示す。試料は主に空気で構 成されていたが、二酸化炭素濃度は一般大気中の濃度よりも約 10 倍高かった。メタン濃度は 170 ppm で、G4301 による測定結果と同程度を示した。また、メタンより重い炭化水素は検出 されなかった。メタンのδ¹³C は-33.7‰であったが、これは Whiticar (1999)⁶⁹⁾の示した区分 からは、有機物分解起源ではなく熱分解起源に近い。沈み込み帯におけるスラブ脱水起源の深 部流体に含まれる炭化水素は一般に、熱分解起源を示すことが知られている⁷⁰⁾。

1 0.0.1	八八山	以わよ 0.2	、尼灰希问	山仲和从刀刀	小小小木
	ガス組成	t (vol.%)		$\delta^{13}C$	(‰)
O_2	N_2	CH_4	CO_2	CH_4	CO_2
20.78	78.76	0.017	0.45	-33.7	-16.6

表 3.3.1 ガス組成および安定炭素同位体組成分析の結果



 図 3.3.1 2020 年 11 月 12 日と 13 日の G4301 を使用した車載測定の結果

 測定範囲は図 3.1.1 を参照。メタン濃度の分布は GPS Visualizer を使用して描画した。ベース

 マップは Google Earth による。

3.4 考察

G4301による車載測定の結果の妥当性を確認するため、大気中に放出された物質のランダム な挙動を理解するために提案された大気拡散モデルに基づく検討を行った。大気の拡散におい て最も一般的に採用されるモデルの 1 つとして、ガウスプルームモデル (Gaussian Plume Model)がある⁷¹⁾⁻⁷⁴⁾。このモデルでは、点源から速度一定で放出される物質が一方向から吹く 風によって拡散する様子が推定される。風速 u [m/s]の大気中に地面からの高さ h [m]の点源か ら放出速度 Q [mg/s]で放出された物質の濃度 C [mg/m³]は次のように表される。

$$C(x, y, z) = \frac{Q}{2\pi u \sigma_y \sigma_z} \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right) \times \left\{ \exp\left[-\frac{(z-h)^2}{2\sigma_z^2}\right] + \alpha \cdot \exp\left[-\frac{(z+h)^2}{2\sigma_z^2}\right] \right\}$$
(1)

x 軸は風向、y 軸は風向に直交する方向、z 軸は地面からの高さを示し、地面は平坦であるとする。 $\sigma_y \ge \sigma_z$ は拡散係数[m]を示し、 α は地表に達したときに反射して大気中に戻る物質の割合を示す。ここで、次の仮定を行う。

- 1)物質(ここでは CH₄)は地表から放出される、すなわち h = 0 とする。
- 2) 一定の高さ z = z₀ での濃度を測定する。
- 3) 安定な環境で等方的に拡散すると見なし、 $\sigma_y = \sigma_z = \sigma$ とする。
- 4) 大気中の CH₄ と地中との相互作用は考慮しない、すなわち、α=1とする。

すると、式(1)は次のようになる。

$$C(x,y) = \frac{Q}{\pi u \sigma^2} \exp\left(-\frac{y^2 + z_0^2}{2\sigma^2}\right)$$
(2)

拡散係数 σは、渦拡散係数 K を用いて次のように変換される ⁷¹⁾⁷⁵⁾。

$$\sigma^2 = \frac{2K}{u}x\tag{3}$$

式(2)に式(3)を代入すると、次のようになる。

$$C(x,y) = \frac{Q}{2\pi Kx} \exp\left[-\frac{u(y^2 + z_0^2)}{4Kx}\right]$$
(4)

式(4)より、y = 0に沿った位置 $x_{max} = (uz_0^2) / (4K)$ で、濃度が $C_{max} = 2Q / (\pi uz_0^2 e)$ の最大値に 達することがわかる。式(4)は次のように置き換えられる。

$$C(x,y) = C_{\max} \cdot \frac{x_{\max}}{x} \exp\left[1 - \left(\frac{y^2 + z_0^2}{z_0^2}\right) \cdot \left(\frac{x_{\max}}{x}\right)\right]$$
(5)

ここで、川湯温泉の湧出地点近傍の高温を示す岩石の割れ目にテフロンチューブを近づけた 時のメタン濃度(図 3.2.2)に基づき、メタンの放出源からの放出速度を Q=200 mg/s とする。 車載測定実施時の気象(23ページ参照)に基づき、風速は u=1 m/s とし、メタン放出源のあ る岩盤から路面までのおおよその高さより、 $z_0 = 2 \text{ m}$ とすると、 C_{max} が計算できる。さらに、 放出源の位置を $x_{max} = 1 \text{ m}$ とすると、式(5)より、図 3.4.1 に示されるようなメタン濃度の等濃 度線が描画できる。

この等濃度線より、バックグラウンド値より 0.5 ppm を超えるメタンアノマリは、メタンの 放出源から風向の方向に約 60 m 程度の範囲で検出できることになる。車載測定実施時の風向

(概ね東からの風)を考慮すると、車載測定の結果(図 3.3.1;メタン放出源となる温泉の主に 西側で高濃度が検出されている)は、ガウスプルームモデルに基づく推定結果と概ね一致する。 実際の車載測定の結果は、ガウスプルームモデルに基づく等濃度線よりもメタンアノマリの範 囲がやや広いが、これは測定装置が自動車とともに移動していたことによる影響と、測定装置 のキャビティー内にガスが残留して一定時間高い測定値が残ってしまうメモリー効果 70によ る影響、および局所的な気流(風向風速)の変化があったためと考えられる。

調査地域が人口の少ない地域に位置することもあってか、車の排気ガスなどの人為的と考え られるメタンアノマリは、本研究における車載測定では明瞭には認められなかった。CRDS法 を採用した車載測定である本方法の信頼性を向上させるためには、今後、更なる測定事例の蓄 積が望まれる。



図 3.4.1 (x, y, z) = (1, 0, 0)をガスの放出源とした時の z₀=2 m の水平面でのガス濃度 C(x, y) の等高線図

4. おわりに

本研究では、地表でのメタンの漏出箇所の効率的な検出を目的として、CRDS 法による携帯 型分析装置(Picarro GasScouterTM G4301)を用いた車載測定の適用性の検討を行った。事例 研究地域としたのは、溶存ガスとしてメタンに富み、スラブ脱水起源の深部流体に起因する温 泉が分布する紀伊半島南東部の本宮地域である。測定結果は以下の通りまとめられる。

- G4301をハイブリッド車の後部座席に配置し、G4301の INLET に接続した 1/4 インチテ フロンチューブの先端を車外に固定して実施した車載測定の結果、メタン含有温泉である川 湯温泉と湯の峰温泉の近傍において、バックグラウンド値(1.83~1.95 ppm)を超える明確 なメタンアノマリが認められた。それ以外の場所では、バックグラウンド値を上回るメタン アノマリは認められなかった。
- 2)川湯温泉が湧出する大塔川の河床において G4301 を背負って実施した徒歩測定でも、温泉 湧出地点でバックグラウンド値よりも明らかに高いメタン濃度を示した。特に、赤外線サー モグラフィーで識別される高温を示す岩石の割れ目にチューブを近づけた測定では、メタン 濃度が 100 ppm を超える大幅な増加を示した。この高温を示す岩石の割れ目から採取した 試料のガス組成と安定炭素同位体組成を分析した結果、メタン濃度は G4301 による測定結 果と同様の値を示し、メタンのδ¹³C は熱分解起源を示唆する重い値を示した。
- 3) ガウスプルームモデルに基づき、点状放出点から放出されたメタンの大気中での拡散挙動を 推定した結果は、G4301による車載測定の結果と概ね整合的であった。

本研究の結果より、CRDS法による携帯型分析装置を用いて車載測定を行う方法は、メタン を含む流体の地表への漏出を迅速かつ簡便に検出するのに非常に有効である見通しを得た。こ の方法は、メタンを含む流体の移行経路としての断層や割れ目の検出という観点から、炭化水 素資源探査はもとより、放射性廃棄物の地層処分におけるサイト設計や安全評価で考慮すべき 可能性のあるスラブ脱水起源深部流体や泥火山などの影響に関する調査技術としての適用も期 待される。

謝 辞

本研究の一部は、資源エネルギー庁委託事業「平成 31 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)」の成果に 基づく。本研究の実施に当たっては、公益財団法人深田地質研究所における「高精度微量ガス 測定技術を用いた各種探査に関する研究委員会」での議論が大変参考になった。メタン濃度分 布の図示において、Adam Schneider 氏が開発した GPS Visualizer (https://www.gpsvisualizer.com/)を使用した。なお、本文中において、Windows (Microsoft Windows Operating System)および Microsoft Excel は、Microsoft Corporationの登録商標 である。iPhone、iPad、および Safari は、Apple inc.の登録商標である。iPhone の商標は、ア イホン株式会社のライセンスに基づき使用されています。Wi-Fi は、Wi-Fi Alliance の登録商 標である。Thunderbolt は、Intel Corporation の商標である。Google Earth は、Google inc. の登録商標である。

参考文献

- 1) 下茂道人, 横井 悟, 丹羽正和, 松岡俊文, 徳永朋祥, 大気中のメタン濃度アノマリに基づく 石油構造地質評価, 深田地質研究所年報, no.21, 2020, pp.15–34.
- 2) Abrams, M.A., Significance of hydrocarbon seepage relative to petroleum generation and entrapment, Marine and Petroleum Geology, vol.22, 2005, pp.457–477.
- 3) Etiope, G., Natural Gas Seepage: The Earth's Hydrocarbon Degassing, Springer, 2015, 216p.
- 4) Moore, T.A., Coalbed methane: A review, International Journal of Coal Geology, vol.101, 2012, pp.36-81.
- 5) Palchik, V., In situ study of intensity of weathering-induced fractures and methane emission to the atmosphere through these fractures, Engineering Geology, vol.125, 2012, pp.56-65.
- Palchik, V., Estimation of methane emission from shallow gas-bearing sandstones, Engineering Geology, vol.245, 2018, pp.33-43.
- Sano, Y. and Wakita, H., Geographical distribution of ³He/⁴He ratios in Japan: Implications for arc tectonics and incipient magmatism, Journal of Geophysical Research, vol.90, 1985, pp.8729–8741.
- 8) Umeda, K., Kanazawa, S., Kakuta, C., Asamori, K. and Oikawa, T., Variations in the ³He/⁴He ratios of hot springs on Shikoku Island, southwest Japan, Geochemistry Geophysics Geosystems, vol.7, 2006, Q04009. https://doi.org/10.1029/2005GC001210
- 9) Umeda, K., Ogawa, Y., Asamori, K. and Oikawa, T., Aqueous fluids derived from a subducting slab: Observed high ³He emanation and conductive anomaly in a non-volcanic region, Kii Peninsula southwest Japan, Journal of Volcanology and Geothermal Research, vol.149, 2006, pp.47–61.
- 10) Kusuda, C., Iwamori, H., Nakamura, H., Kazahaya, K. and Morikawa, N., Arima hot spring waters as a deep-seated brine from subducting slab, Earth, Planets and Space, vol.66, 2014, 119. https://doi.org/10.1186/1880-5981-66-119

- 11) 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア,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-,地質調査総合センター研究資 料集, no.560, 2012.
- 12) 近藤浩文, 後藤淳一, 火山性熱水・深部流体の分類に応じた影響評価手法の整備, NUMO-TR-19-02, 2020, 78p.
- 13) Morikawa, N., Kazahaya, K., Takahashi, M., Inamura, A. Takahashi, H.A., Yasuhara, M., Ohwada, M., Sato, T., Nakama, A., Handa, H., Sumino, H. and Nagao, K., Widespread distribution of ascending fluids transporting mantle helium in the fore-arc region and their upwelling processes: Noble gas and major element composition of deep groundwater in the Kii Peninsula, southwest Japan, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol.182, 2016, pp.173–196.
- 14) Kopf, A.J., Significance of mud volcanism, Reviews of Geophysics, vol.40, 2002, 1005. https://doi.org/10.1029/2000RG000093
- 15) Mazzini, A. and Etiope, G., Mud volcanism: An updated review, Earth-Science Reviews, vol.168, 2017, pp.81–112.
- 16) 後藤 翠, 村上雅紀, 酒井隆太郎, 照沢秀司, 末岡 茂, 地震及び断層活動による二次的影響 に関する知見の整理(受託研究), JAEA-Review 2020-003, 2020, 60p.
- 17) 浅田美穂,「泥火山」定義, 概念, 成因, および最近の研究動向. 地質学雑誌, vol.126, 2020, pp.3–16.
- 18) 田中和広,浅野慶治,渡辺征稔,小松原大,鈴木浩一,泥火山研究の最前線-陸上泥火山研 究における最近8年の進展,地質学雑誌,vol.126,2020, pp.39-51.
- 19) Abrams, M.A. and Dahdah, N.F., Surface sediment gases as indicators of subsurface hydrocarbons – examining the record in laboratory and field studies, Marine and Petroleum Geology, vol.27, 2010, pp.273–284.
- 20) O'Keefe, A. and Deacon, D.A.G., Cavity ring-down optical spectrometer for absorption measurements using pulsed laser sources, Review of Scientific Instruments, vol.59, 1988, 2544. https://doi.org/10.1063/1.1139895
- 21) Zaman, M., Heng, L. and Müller, C., Measuring Emission of Agricultural Greenhouse

Gases and Developing Mitigation Options using Nuclear and Related Techniques, Applications of Nuclear Techniques for GHGs, Springer, 2021, 337p.

- 22) Mchale, L.E., Martinez, B., Miller, T.W. and Yalin, A.P., Open-path cavity ring-down methane sensor for mobile monitoring of natural gas emissions, Optics Express, vol.27, 2019, pp.20084–20097.
- 23) Tadić, J.M., Loewenstein, M., Frankenberg, C., Butz, A., Roby, M., Iraci, L.T., Yates, E.L., Gore, W. and Kuze, A., A comparison of in situ aircraft measurements of carbon dioxide and methane to GOSAT data measured over Railroad Valley Playa, Nevada, USA, IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing, vol.52, 2014, pp.7764–7774.
- 24) O'Reilly, C., Santos, I.R., Cyronak, T., McMahon, A. and Maher, D.T., Nitrous oxide and methane dynamics in a coral reef lagoon driven by pore water exchange: Insights from automated high-frequency observations, Geophysical Research Letters, vol.42, 2015, pp.2885–2892.
- 25) Satar, E., Berhanu, T.A., Brunner, D., Henne, S. and Leuenberger, M., Continuous CO₂/CH₄/CO measurements (2012–2014) at Beromünster tall tower station in Switzerland, Biogeosciences, vol.13, 2016, pp.2623–2635.
- 26) Korkiakoski, M., Tuovinen, J.-P., Aurela, M., Koskinen, M., Minkkinen, K., Ojanen, P., Penttilä, T., Rainne, J., Laurila, T. and Lohila, A., Methane exchange at the peatland forest floor – automatic chamber system exposes the dynamics of small fluxes, Biogeosciences, vol.14, 2017, pp.1947–1967.
- 27) Brachmann, C.G., Hernandez-Ramirez, G. and Hik, D.S., CH₄ uptake along a successional gradient in temperate alpine soils, Biogeochemistry, vol.147, 2020, pp.109– 123.
- 28) Chai, L.L., Hernandez-Ramirez, G., Hik, D.S., Barrio, I.C., Frost, C.M., Soto, C.C. and Esquivel-Hernández, G., A methane sink in the Central American high elevation páramo: Topographic, soil moisture and vegetation effects, Geoderma, vol.362, 2020, 114092. https://doi.org/10.1016/j.geoderma.2019.114092
- 29) Villa, J.A., Smith, G.J., Ju, Y., Renteria, L., Angle, J.C., Arntzen, E., Harding, S.F., Ren,
 H., Chen, X., Sawyer, A.H., Graham, E.B., Stegen, J.C., Wrighton, K.C. and Bohrer, G.,
 Methane and nitrous oxide porewater concentrations and surface fluxes of a regulated

river, Science of The Total Environment, vol.715, 2020, 136920. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.136920

- 30) Maher, D.T., Santos, I.R. and Tait, D.R., Mapping methane and carbon dioxide concentrations and δ¹³C values in the atmosphere of two Australian coal seam gas fields, Water, Air, & Soil Pollution, vol.225, 2014, 2216. https://doi.org/10.1007/s11270-014-2216-2
- 31) Hatch, M.A., Kennedy, M.J., Hamilton, M.W. and Vincent, R.A., Methane variability associated with natural and anthropogenic sources in an Australian context, Australian Journal of Earth Sciences, vol.65, 2018, pp.683–690.
- 32) Chen, J., Dietrich, F., Maazallahi, H., Forstmaier, A., Winkler, D., Hofmann, M. E. G., van der Gon, H.D. and Röckmann, T., Methane emissions from the Munich Oktoberfest, Atmospheric Chemistry and Physics, vol.20, 2020, pp.3683–3696.
- 33) 下茂道人, 丹羽正和, 天野健治, 徳永朋祥, 戸野倉賢一, 松岡俊文, セバスチャン ビロード, キャビティーリングダウン分光法を用いた大気中微量メタンガス測定による活断層調査, 深田地質研究所年報, no.20, 2019, pp.45–54.
- 34) 下茂道人, 丹羽正和, 宮川和也, 天野健治, 戸野倉賢一, 徳永朋祥, 大気中メタンの分布に 基づく断層周辺のガス移行経路の推定, 深田地質研究所年報, no.22, 2021, pp.119–137.
- 35) Niwa, M., Amano, K., Takeuchi, R. and Shimada, K., Rapid identification of waterconducting fractures using a trace methane gas measurement, Groundwater Monitoring & Remediation, vol.41, 2021, pp.41–50.
- 36) 松波武雄,和気 徹,早川福利,二間瀬洌,横山英二,内田 豊,酒匂純俊,斎藤尚志,北海 道の地熱・温泉(C) 北海道中央部,地下資源調査所調査研究報告,1979,192p.
- 37) Wakita, H., Sano, Y., Urabe, A. and Nakamura, Y., Origin of methane-rich natural gas in Japan: formation of gas fields due to large-scale submarine volcanism, Applied Geochemistry, vol.5, 1990, pp.263–278.
- 38) Sakata, S., Carbon isotope geochemistry of natural gases from the Green Tuff Basin, Japan, Geochimica et Cosmochimica, vol.55, 1991, pp.1395–1405.
- 39) Sano, Y., Tominaga, T., Nakamura, Y. and Wakita, H., ³He/⁴He ratios of methane-rich

natural gases in Japan, Geochemical Journal, vol.16, 1982, pp.237-245.

- 40) Miyakawa, K., Tokiwa, T. and Murakami, H., The origin of muddy sand sediments associated with mud volcanism in the Horonobe area of northern Hokkaido, Japan, Geochemistry Geophysics Geosystems, vol.14, 2013, pp.4980–4988.
- 41) 加藤 進, 早稲田周, 西田英毅, 岩野裕継, 新潟県東頸城地域における泥火山および周辺の 原油・ガスの地球化学, 地学雑誌, vol.118, 2009, pp.455–471.
- 42) 坂田 将,牧 真一,矢崎清貫,永田松三,紀伊半島の石油・天然ガス資源に関する地球化学 的考察,地球化学,vol.21,1987,pp.65–74.
- 43) Matsumoto, T., Kawabata, T., Matsuda, J., Yamamoto, K. and Mimura, K., ³He/⁴He ratios in well gases in the Kinki district, SW Japan: surface appearance of slab-derived fluids in a non-volcanic area in Kii Peninsula, Earth and Planetary Science Letters, vol.216, 2003, pp.221–230.
- 44) 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.
- 45) 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.
- 46) Okino, K., Shimakawa, Y. and Nagaoka, S., Evolution of the Shikoku basin, Journal of Geomagnetism and Geoelectricity, vol.46, 1994, pp.463–479.
- 47) 産業技術総合研究所, 平成 27 年度原子力発電施設等安全技術対策委託費(自然現象等の長期予測に関する予察的調査) 事業 平成 27 年度事業報告, 2016, 299p.
- 48) 村岡洋文, 阪口圭一, 玉生志郎, 佐々木宗建, 茂野 博, 水垣桂子, 日本の熱水系アトラス, 産業技術総合研究所地質調査総合センター, 2007, 110p.
- 49) Nagao, K., Takaoka, N. and Matsubayashi, O., Rare gas isotopic compositions in the natural gases from Japan, Earth and Planetary Science Letters, vol.53, 1981, pp.175–188.
- 50) Ozima, M. and Podosek, F.A., Noble Gas Geochemistry, 2nd edition, Cambridge University Press, 2002, 286p.

- 51) 田中明子,山野 誠, 矢野雄策, 笹田政克, 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 DGM P-5, 産業技術総合研究所地質調査総合センター, 2004.
- 52) Kato, A., Sakai, S., Iidaka, T., Iwasaki, T. and Hirata, N., Non-volcanic seismic swarms triggered by circulating fluids and pressure fluctuations above a solidified diorite intrusion, Geophysical Research Letters, vol.37, 2010, L15302. https://doi.org/10.1029/2010GL043887
- 53) Kato, A., Saiga, A., Takeda, T., Iwasaki, T. and Matsuzawa, T., Non-volcanic seismic swarm and fluid transportation driven by subduction of the Philippine Sea slab beneath the Kii Peninsula, Japan, Earth, Planets and Space, vol.66, 2014, 86. https://doi.org/10.1186/1880-5981-66-86
- 54) Yoshida, A., Hosono, K., Takayama, H., Kobayashi, A. and Maeda, K., Seismic and geodetic evidence for the existence of hot materials beneath the Wakayama swarm activity, southwestern Japan, Tectonophysics, vol.510, 2011, pp.124–131.
- 55) Obara, K., Nonvolcanic deep tremor associated with subduction in southwest Japan, Science, vol.296, 2002, pp.1679–1681.
- 56) Obara, K., Matsuzawa, T., Tanaka, S. and Maeda, T., Depth-dependent mode of tremor migration beneath Kii Peninsula, Nankai subduction zone, Geophysical Research Letters, vol.39, 2012, L10308. https://doi.org/10.1029/2012GL051420
- 57) Sawaki, Y., Ito, Y., Ohta, K., Shibutani, T. and Iwata, T., Seismological structures on bimodal distribution of deep tectonic tremor, Geophysical Research Letters, vol.48, 2021, e2020GL092183. https://doi.org/10.1029/2020GL092183
- 58) Salah, M.K. and Zhao, D., 3-D seismic structure of Kii Peninsula in southwest Japan: evidence for slab dehydration in the forearc, Tectonophysics, vol.364, 2003, pp.191–213.
- 59) Nakajima, J. and Hasegawa, A., Subduction of the Philippine Sea plate beneath southwestern Japan: Slab geometry and its relationship to arc magmatism, Journal of Geophysical Research, vol.112, 2007, B08306. https://doi.org/10.1029/2006JB004770
- 60) Nakajima, J. and Hasegawa, A., Tomographic evidence for the mantle upwelling beneath southwestern Japan and its implications for arc magmatism, Earth and Planetary Science

Letters, vol.254, 2007, pp.90-105.

- 61) Yamaguchi, S., Uyeshima, M., Murakami, H., Sutoh, S., Tanigawa, D., Ogawa, T., Oshiman, N., Yoshimura, R., Aizawa, K., Shiozaki, I. and Kasaya, T., Modification of the Network-MT method and its first application in imaging the deep conductivity structure beneath the Kii Peninsula, southwestern Japan, Earth, Planets and Space, vol.61, 2009, pp.957–971.
- 62) 鈴木博之,紀伊半島の四万十累帯音無川帯から始新世放散虫化石の発見,地球科学,vol.47, 1993, pp.75–79.
- 63) 村岡洋文,和歌山県本宮温泉地域の中新世貫入岩類の K-Ar 年代と化学組成,地質調査研 究報告, vol.59, 2008, pp.27-43.
- 64) 花室孝広,梅田浩司,高島 勲,根岸義光,紀伊半島南部,本宮および十津川地域の温泉周辺の熱水活動史,岩石鉱物科学,vol.37,2008, pp.27–38.
- 65)株式会社クボタ,紀伊半島の地質と温泉,アーバンクボタ, no.38, 1999, 56p.
- 66) 島田耕史,後藤 翠,丹羽正和,下茂道人,和歌山県田辺市本宮町川湯温泉周辺の露頭の赤 外線画像,地質学雑誌, vol.127, 2021, I–II.
- 67) 草野友宏, 浅森浩一, 梅田浩司, 日本列島における地下水・温泉ガスのヘリウム同位体比デ ータベースの作成, JAEA-Data/Code 2012-017, 2012, 19p.
- 68) Coplen, T.B., Bohlke, J.K., Bievre, P.D., Ding, T., Holden, N.E., Hopple, J.A., Krouse, H.R., Lamberty, A., Peiser, H.S., Revesz, K., Rieder, S.E., Rosman, K.J.R., Roth, E., Taylor, P.D.P., Vocke, R.D. and Xiao, Y.K., Isotope-abundance variations of selected elements, Pure and Applied Chemistry, vol.74, 2002, pp.1987–2017.
- 69) Whiticar, M.J., Carbon and hydrogen isotope systematics of bacterial formation and oxidation of methane, Chemical Geology, vol.161, 1999, pp.291-314.
- 70) Saffer, D.M. and Kopf, A.J., Boron desorption and fractionation in Subduction Zone Fore Arcs: Implications for the sources and transport of deep fluids, Geochemistry Geophysics Geosystems, vol.17, 2016, pp.4992–5008.
- 71) De Nevers, N., Air Pollution Control Engineering, 3rd edition, Waveland Press Inc.,

2016, 598p.

- 72) Hanna, S.R., Briggs, G.A. and Hosker, Jr, R.P., Handbook on Atmospheric Diffusion, DOE/TIC-11223, 1982, 102p. https://doi.org/10.2172/5591108
- 73) Sánchez-Sosa, J.E., Castillo-Mixcóatl, J., Beltrán-Pérez, G. and Muñoz-Aguirre, S., An application of the Gaussian plume model to localization of an indoor gas source with a mobile robot, Sensors, vol.18, 2018, 4375. https://doi.org/10.3390/s18124375
- 74) Turner, D.B., Workbook of Atmospheric Dispersion Estimates, Public Health Service, Publication 999-AP-26, Robert A. Taft Sanitary Engineering Center, 1967.
- 75) Stockie, J.M., The mathematics of atmospheric dispersion modelling, SIAM Review, vol.53, 2011, pp.349–372.
- 76) 山中 勤, 恩田裕一, 波長スキャンキャビティリングダウン分光法を用いた水同位体分析 計の測定精度について, 筑波大学陸域環境研究センター報告, no.12, 2011, pp.31-40.