

地球化学的調査に基づいた地下水流動に関する研究  
—東濃地域を対象とした溶存希ガスによる地下水調査—

森川徳敏

2001年3月

核燃料サイクル開発機構

東濃地科学センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49

核燃料サイクル開発機構

技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

Technical Cooperation Section

Technology Management Division,

Japan Nuclear Cycle Development Institute

4-49, Muramatsui, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184,

Japan

核燃料サイクル開発機構

(Japan Nuclear Cycle Development Institute)

2001

地球化学的調査に基づいた地下水流動に関する研究  
—東濃地域を対象とした溶存希ガスによる地下水調査—

森川 徳敏\*

要旨

地下水中に溶存する希ガスの濃度・同位体比は地下水流動中に岩石より発生する成分あるいは、地球深部より上昇してきた成分の蓄積により変動する。この溶存希ガスを天然トレーサーとした、地下水の滞留年代・起源の推定及び、地下水流動解析が可能である。

本報告では、溶存希ガスによる地下水調査の適用性を評価することを目的として、岐阜県東濃地域の地下水について、希ガスの定量・同位体分析を行った。

主な、分析結果・成果は以下のとおりである。

(1) 東濃地域の地下水は、地下水流動中に周辺の岩石より発生した放射壊変起源のヘリウムを含んでいる。堆積岩中の地下水においては、深部ほど蓄積量は多くなっている。花崗岩中の地下水においては、試錐孔ごとにその傾向は異なる。

(2) 東濃地域の地下水中のネオン・アルゴン同位体組成は、大気と平衡にある水からの変動はないことが分かった。

(3) Stute et al. (1992)による Two-dimensional helium transport model によれば、DH-12号孔の地下水のヘリウム濃度深度プロファイルは流出域、DH-13号孔は涵養域の特徴と似ている。これは、東濃鉾山周辺の地下水が、東濃鉾山の北部を通る尾根線を涵養域とし土岐川を流出域とする地下水流動解析結果(三枝他 1998)と一致している

---

\* 核燃料サイクル開発機構 東濃地科学センター 施設技術グループ

Geochemical study on groundwater flow research  
—Groundwater survey by dissolved noble gases in groundwater from Tono area—

Noritoshi Morikawa \*

Abstract

Noble gas elemental and isotopic compositions in groundwaters may physically vary due to the accumulation of radiogenic component produced in situ and/or from deep flux. As a natural tracer, noble gas can be therefore considered to estimate the groundwater residence time, origin and groundwater flow.

In this report, the determination of noble gas contents and isotopic compositions in groundwaters from Tono area was performed in order to evaluate the validity of dissolved noble gas on the groundwater survey.

The following results can be reached through the present study:

- (1) Groundwaters from Tono area contain radiogenic helium, which was released from rocks around the path of groundwater flow and/or flux from the basement granite. In the sedimentary rocks, the amount of accumulated helium in groundwaters increases with depth, whereas such phenomena in fractured granite varies from borehole to borehole.
- (2) The neon and argon isotopic compositions in groundwaters from Tono area are not distinguishable from those in air-saturated water.
- (3) Calculation of the two-dimensional helium transport model (Stute et al., 1992) indicates that the depth profile of dissolved helium concentration in groundwater from DH-12 and DH-13 boreholes are similar to the characteristics of the discharge and recharge areas, respectively. This is consistent with the hydrogeological model that groundwater around Tono mine is recharged from the north and discharged into the Toki river in southern part (Saegusa et al., 1998).

---

\* JNC Tono Geoscience Center, Geoscience Facility Operation Group

## 目次

I. 希ガス質量分析装置による地下水溶存希ガス分析技術の開発	1
1. はじめに	1
2. 希ガス用質量分析装置の概要	2
3. 分析条件の設定	6
4. 標準試料	10
5. 分析結果	11
II 地下水溶存希ガスによる地下水流動解析	25
1. はじめに	25
2. 地下水溶存希ガスの起源及び、地下水流動解析への適用	26
3. 調査領域の概要	30
4. 分析手法	31
5. 結果	35
6. 岩石から発生するヘリウム原子数・同位体比の推定	50
7. 東濃地域の地下水中の希ガスの起源について	52
8. ヘリウムフラックス	56
9. 地下水流動解析への適用について	59
10. まとめ	61
引用文献	62

## 図目次

図1 溶存希ガス抽出ライン及び、希ガス精製ライン概略図	4
図2 希ガス質量分析計概略図	5
図3 溶存ヘリウム抽出率の変化とヘリウム同位体比測定値の関係	14
図4 溶存ネオン抽出率の変化とヘリウム同位体比測定値の関係	15
図5 溶存アルゴン抽出率の変化とヘリウム同位体比測定値の関係	16
図6 MP システムによる溶存希ガス用試料採取フロー	33
図7 東濃鉱山周辺より採取した地下水試料の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比の深度プロファイル	37
図8 花崗岩より採取した地下水試料の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比の深度プロファイル	38
図9 東濃地域における地下水試料の $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ 比と $^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ 比の関係	39
図10 東濃地域とカナダ・マニトバ州 WNRE サイトより採取された地下水試料のネオン同位体比の比較	40
図11 東濃地域における地下水試料の $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比と $^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比の関係	41
図12 東濃鉱山周辺より採取した地下水試料の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比の関係	54
図13 花崗岩より採取した地下水試料の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比の関係	55
図14 $^{14}\text{C}$ 年代及び、溶存ヘリウム濃度によるヘリウムフラックス計算結果	58
図15 Stute et al. (1992)による Two-dimensional helium transport model のシミュレーション結果と、東濃地域の花崗岩より採取した地下水試料の過剰 $^4\text{He}$ 濃度の深度プロファイルとの比較	60

## 表目次

表1 イオンソース設定値	7
表2 ヘリウム(a)・ネオン(b)・アルゴン(c)分析条件	8
表3 ネオン同位体のピークに重なるピーク	9
表4 大気試料中のヘリウム測定結果	17
表5 大気試料中のネオン測定結果	18
表6 大気試料中のアルゴン測定結果	19
表7 大気試料中のクリプトン測定結果	20
表8 大気試料中のゼノン測定結果	21
表9 蒸留水中のヘリウム測定結果	22
表10 蒸留水中のネオン測定結果	23
表11 蒸留水中のアルゴン測定結果	24
表12 岩石試料の分析項目及び、分析手法	34
表13 地下水試料中の $^4\text{He}$ 存在度及び、 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比	42
表13 地下水試料中の $^4\text{He}$ 存在度及び、 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比 (つづき)	43
表14 地下水試料中の $^{20}\text{Ne}$ 濃度及び、ネオン同位体比	44
表14 地下水試料中の $^{20}\text{Ne}$ 濃度及び、ネオン同位体比 (つづき)	45

表15 地下水中の <sup>40</sup> Ar濃度及び、アルゴン同位体比	46
表15 地下水中の <sup>40</sup> Ar濃度及び、アルゴン同位体比 (つづき)	47
表16 岩石試料の化学分析結果	48
表17 DH-12、-13号孔より採取した岩芯試料のLi分析結果	49
表18 岩石より発生するヘリウムの生成速度及び、 <sup>3</sup> He/ <sup>4</sup> He比	51

## I. 希ガス質量分析装置による地下水溶存希ガス分析技術の開発

### 1. はじめに

地下水中に溶存するヘリウムの同位体組成測定は、英 Micromass 社製 MM-5400 磁場型単収束質量分析計と試料前処理ラインを連結した装置を用いる。この分析装置は、平成9年度に東濃地科学センターに設置されたばかりであり、実試料を分析するに先立ち、装置の調整・標準試料を用いた精度評価を行う必要があった。ここでは、質量分析装置の概要・分析条件・標準試料による精度評価について述べる



## 2. 希ガス用質量分析装置の概要

地下水中に溶存する希ガスの同位体比測定のための分析装置は、地下水から希ガスを含む気体成分を抽出する溶存気体抽出ラインと、気体成分から水蒸気・水素・窒素・二酸化炭素・炭化水素などの不純物を取り除く希ガス精製ライン及び、希ガス用質量分析計から構成されている。以下に各装置の概要について述べる

### 2.1 溶存気体抽出ライン

溶存希ガス抽出ラインの概略図を図1に示した。溶存ガス抽出は、ステンレス製の採水試料ボトルを抽出ラインに接続し、系全体を高真空にした状態で行う。採水試料ボトルを密閉しているバルブを開け、試料水を Reservoir 部分に落とすことにより、希ガスを含む溶存気体は減圧により、気相に移る。Reservoir 部分に移された試料水に超音波洗浄を施すことにより、試料水中に再溶存した気体をより完全に追い出す。抽出された気体試料は、Reservoir 部分のバルブを閉じ、試料水と隔離したあと、Cold Trap 部分に導入される。Cold Trap 部分は液体窒素を用いて約 $-70^{\circ}\text{C}$ に冷やされたエタノール中に浸されており、抽出された気体試料のうち、水蒸気がここで除去される。

### 2.2 希ガス精製ライン

水蒸気が除去された後の気体試料は、希ガス精製ラインに導入される。図1に示したように、溶存気体抽出ラインと希ガス精製ラインは連結している。溶存気体抽出ラインで気体を抽出し、水蒸気を除去した後の気体成分には、希ガス以外にも、窒素、二酸化炭素、炭化水素、除去しきれなかった水蒸気などの活性ガスが含まれる。希ガスに比べて、これらの成分の存在量は多く、質量分析時に妨害元素となる。活性ガスの除去には2台の Zr-Al ゲッターポンプ (SAES 社製 NP-10; 図1の TZ1・TZ2) を用いる。ゲッターポンプははじめ、中心にあるヒーターに約 0.8~1A の電流を流し、約  $500\sim 600^{\circ}\text{C}$  に保持して主に炭化水素の分解や窒素、二酸化炭素の吸着のために用いる。その後、電流値を0に下げ、常温で水素を吸着させる。

活性ガスを吸着させた後は、融点の違いを利用して希ガス相互の分離を行う。クリプトン・ゼノンの吸着は、液体窒素と温度コントローラによって制御されたヒーターを用いて約 $-160^{\circ}\text{C}$ に冷却されたトラップ (図1の CTn; ステンレス片を充てん) によって行われる。アルゴンの吸着には、液体窒素で冷却したトラップ (図1の CT1・CT2; 活性炭を吸着) を用いる。最後に、ネオンの吸着に、 $-215^{\circ}\text{C}$ に冷却した極低温冷凍機を用いる (熱電対の示した温度であり、実際の温度は約 $-245^{\circ}\text{C}$ 程度であると思われる)。

希ガスの分析は、気相に残ったヘリウムを質量分析計に拡散して行う。測定終了後、各トラップを昇温し、各希ガスを順次測定する。

### 2.3 希ガス用質量分析計

前述の希ガス精製装置で精製された希ガスは、オンラインで繋がれた希ガス専用の Micromass 社製 MM5400 型質量分析計 (図2) を用いて同位体分析を行う。同質量分析計は、ファラデーカップ、二次電子増倍管とディリー光電子増倍管の3つの検出器を備えている。二次電子増倍管とディリー光電子増倍管は同軸上にあり、本報告での分析は二次電子増倍管を用いて行っている。通常分析計内は、イオンポンプで排気されており、 $10^{-10}\text{torr}$  台の真空が維持されている。測定時は、試料導入直前に排気系のバル

ブを閉じ、静的(スタティック)な状態にする。希ガス精製ラインで精製された各希ガスを順次質量分析計に導入させ、測定を開始する。

ヘリウムの分析においては、 $^3\text{He}$  の存在度が  $^4\text{He}$  の  $10^{-6}$  (空気の場合) 程度と極めて低いため、 $^3\text{He}^+$  を二次電子増倍管あるいは、ダイリー光電子増倍管によって検出し、 $^4\text{He}^+$  をファラデーカップによって検出する。 $^3\text{He}^+$  のピークの近傍には、 $\text{HD}^+$  のピークが存在する。分析管部には特殊な改良を施し分解能 600 を達成する工夫がなされ、この 2 つのピークを分離している。アルゴンの場合にも  $^{40}\text{Ar}$  の存在度が高いため、 $^{40}\text{Ar}$  のみファラデーカップで検出する。目的とする同位体の検出は、磁場を変化させることによって行われる。各同位体のイオンビームの強度は、検出器からデジタルボルトメータを経て電圧に変換される。これらの操作はすべてコンピュータによって制御されている。

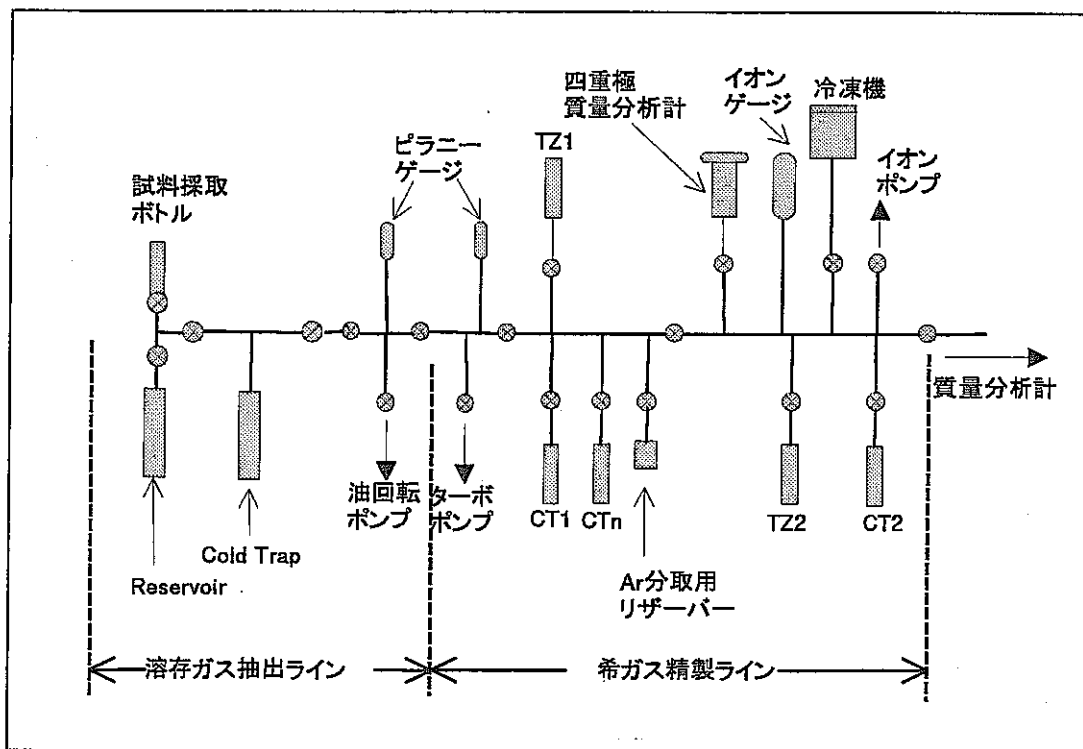


図1 溶存希ガス抽出ライン及び、希ガス精製ライン概略図

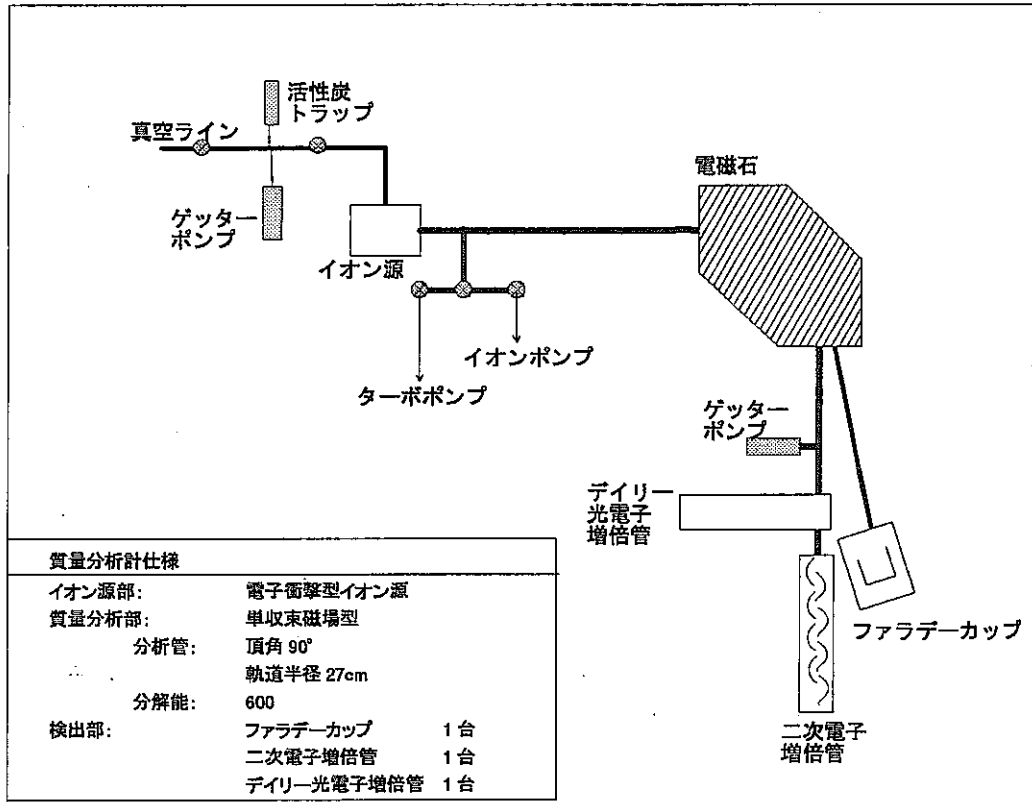


図2: 希ガス用質量分析計概略図

### 3. 分析条件の設定

分析に先立ち、イオンソース及び、各元素の測定条件を設定する必要がある。イオンソースの設定は、MM5400コントロールパネルの『Emission Control』及び、『Source Control A』のパネルにあるつまみで調節する。データの取得は、MS-DOS上で起動するコンピュータソフト(Noble Gas Software Ver. 2.80)を用いて行う。

#### 3.1 ヘリウム分析条件の設定

イオンソースの各設定値は表1にあるとおりである。ヘリウムの測定条件は Noble Gas Software の『Helium Sample Analysis』で測定ごとに設定する(表2-a)。

#### 3.2 ネオン分析条件の設定

イオンソースの各設定値は表1にあるとおりである。ネオンの測定条件は Noble Gas Software の『Procedure Editor』であらかじめ設定しておく(表2-b)。

ネオンの各同位体のピークには、様々なピークが重なる可能性がある(表3)。そこで、ネオン測定時には、 $^{40}\text{Ar}^+ \cdot \text{H}_2^{16}\text{O}^+ \cdot ^{44}\text{CO}_2^+$ のピークも検出しておく。また、予備試験で表3にあるような強度比を検討しておく、測定に際しての影響を見積もる。 $^{40}\text{Ar}^{2+}/^{40}\text{Ar}^+ \cdot ^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2^{2+}/^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2^+$ 比はそれぞれ、0.05・0.02であった。

#### 3.3 アルゴン分析条件の設定

イオンソースの各設定値は表1にあるとおりである。これは、ネオン分析時と同じである。アルゴンの測定条件は Noble Gas Software の『Procedure Editor』であらかじめ設定しておく(表2-c)。

表1 イオンソース設定値

	ヘリウム	ネオン・アルゴン
Trap Current	800 $\mu$ A	200 $\mu$ A
Electron Energy	99%	63%
Repeller	- 12.5V	- 7.4V
Focus	C : 5, F : 8.1	C : 5, F : 6.0
Beam Center	Rev : 9.8	Rev : 10.3

表 2 - a ヘリウム分析条件

He3 Zero	:	2.900			
He4 Zero	:	3.900			
No. of Runs	:	1			
No. of Blocks	:	5			
No. of Ratios	:	5			
		He4	He4 Zero	He3	He3 Zero
Settle Times		2	2	4	3
Integration Times		3	1	25	8
Detector to Use		Multiplier			

表 2 - b ネオン分析条件

File Name	:	NE-M			
No. of Ratios	:	10			
Mass	Name	Centre	Integ.	Zeros	Det.
3.955	h4		5	Z1	M
18.011	H2O	C	5	Z1	M
19.700	Z1	Z	5		M
19.992	Ne20	C	5	Z1 Z2	M
20.994	Ne21	C	10	Z1 Z2	M
21.991	Ne22	C	5	Z1 Z2	M
22.300	Z2	Z	5		M
39.962	Ar40	C	5	Z2	M
43.990	CO2	C	5	Z2	M

表 2 - c アルゴン分析条件

File Name	:	AR-MH			
No. of Ratios	:	10			
Mass	Name	Centre	Integ.	Zeros	Det.
35.000	35		1	Z1	M
35.700	Z1	Z	5		M
35.968	Ar36	C	5	Z1 Z2	M
37.963	Ar38	C	5	Z1 Z2	M
38.300	Z2	Z	5		M
39.500	Z3	Z	5		H
39.962	Ar40	C	5	Z3	H

表3 ネオン同位体のピークに重なるピーク

	妨害ピーク	検討すべき強度比
$^{20}\text{Ne}^+$	$^{40}\text{Ar}^{++}$	$^{40}\text{Ar}^{++}/^{40}\text{Ar}^+$
	$\text{H}_2^{18}\text{O}^+$	$\text{H}_2^{18}\text{O}^+/\text{H}_2^{16}\text{O}^+$
	$\text{H}^{19}\text{F}^+$	(通常は考慮しない)
$^{21}\text{Ne}^+$	$^{20}\text{NeH}^+$	$^{20}\text{NeH}^+/\text{H}^{21}\text{Ne}^+$
$^{22}\text{Ne}^+$	$^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2^{++}$	$^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2^{++}/^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2^+$



#### 4. 標準試料

希ガス分析の標準試料としては、一般的に大気を用いられる。これは、大気中の希ガス組成は、世界中でほぼ一定であると考えられているからである。本研究においては、水試料採取用のボトルに東濃地科学センター屋外で採取した大気を標準試料とした。

また、水試料分析の際の溶存ガス抽出効率及び、再現性を見積もるために純水を標準試料として用いた。蒸留水中の希ガスの濃度は周囲の気温に依存するのみである。したがって、ある一定の温度条件下で蒸留水を保管しておけば、一定量の希ガスを含む標準試料として利用できる。また、各希ガスの同位体比も既知である。本研究においては、22℃の温度条件下で数日放置した蒸留水を標準試料とした。

標準試料の分析には、地下水試料と同じ容器(2種類)を使用した。一つは、溶存希ガス抽出ライン、MP システムで使用するサンプラープローブに連結可能であり、かつ、高真空を維持できることを考慮に入れ、市販のステンレス製の Swagelok® 試料採取ポンペにチューブ継手を用いてプラグバルブを装着したものを使用した。水試料のヘリウム分析に必要な試料量を考え、試料採取ポンペは内容量 25cc のものを使用した(継手部分の容量をあわせると約 27cc)。もう一つは、1000m 対応揚水試験装置に連結可能で、採水時の気泡の抜けやすさを考慮に入れ、長さ 60cm・内径8mm・肉厚 1mm のステンレス管の両端にプラグバルブを装着したものを使用した。内容量は、約 31cc である。

なお、大気と大幅に異なる希ガス組成を持つ試料においては、標準試料として人工的に合成した混合ガスを使う場合もある。

## 5. 分析結果

### 5.1 大気試料

#### 5.1.1 ヘリウム

大気試料のヘリウム測定結果を表4に示した。表中の数字はデジタルボルトメータによるファラデーカップの出力値( $V_D$ )及び、二次電子増倍管の出力値( $V_M$ )である。各試料の  $^3\text{He}^+ / ^4\text{He}^+$  信号強度比に付記されている誤差は  $1\sigma$  の信頼限界である。平均値は算術平均をとり、誤差はその標準偏差である ( $1\sigma$  の信頼限界)。各試料の  $^4\text{He}$  信号強度の測定誤差は、再現性よりも約1桁低いため、表中には記していない。

表中の  $^3\text{He}^+ / ^4\text{He}^+$  信号強度比は、ファラデーカップ—二次電子増倍管の間での感度のずれ (Discrimination) の補正を行っていない値である。Discrimination の係数 ( $F_D$ ) は、文献値にある大気中の  $^3\text{He} / ^4\text{He}$  比 ( $R_{atm}$ ) を、測定した  $^3\text{He}^+ / ^4\text{He}^+$  信号強度比 ( $R_{det}$ ) で除することによって得られる。

大気中の  $^3\text{He} / ^4\text{He}$  比は  $1.40 \times 10^{-6}$  であることが知られている (Mamyrin et al., 1970)。

表中、上段と下段の  $^4\text{He}$  信号強度、 $^3\text{He}^+ / ^4\text{He}^+$  信号強度比が異なるのは、それぞれ、拡散方法の違いによる試料導入量の違い、二次電子増倍管の感度調整の違いによるものである。

#### 5.1.2 ネオン

大気試料のネオン測定結果を表5に示した。表中の数字はデジタルボルトメータによる二次電子増倍管の出力値 ( $V_M$ ) である。ネオン測定時には、干渉ピーク ( $\text{H}_2^{18}\text{O}^+ \cdot ^{40}\text{Ar}^{2+} \cdot ^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2^+$ ) の補正を行うため、 $\text{H}_2^{16}\text{O}^+ \cdot ^{40}\text{Ar}^+ \cdot ^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2^+$  も同時に検出した。大気試料測定時の  $^{40}\text{Ar}^+ / ^{20}\text{Ne}^+$  比は  $10^{-2} \sim 10^{-3}$  程度であった。予備試験でえられた  $^{40}\text{Ar}^{2+} / ^{40}\text{Ar}^+$  比 (約 0.05) に基づき  $^{20}\text{Ne}^+$  ピークにおける  $^{40}\text{Ar}^{2+}$  の干渉の程度を算出すると 0.05% 以下となった。つまり、 $^{40}\text{Ar}^{2+}$  の干渉は無視できるほど小さいといえる。 $\text{H}_2^{18}\text{O}^+ \cdot ^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2^+$  による干渉はそれ以上に低かった。

各試料に付記されている誤差は  $1\sigma$  の信頼限界である。平均値は算術平均をとり、誤差はその標準偏差である ( $1\sigma$  の信頼限界)。各試料の  $^{20}\text{Ne}$  信号強度の測定誤差は、再現性よりも約1~2桁低いため、表中には記していない。

表中の  $^{20}\text{Ne}^+ / ^{22}\text{Ne}^+$  及び、 $^{21}\text{Ne}^+ / ^{22}\text{Ne}^+$  信号強度比は質量分析計の質量分別の補正を行っていない値である。質量分析計の質量分別係数は、それぞれの信号強度比を文献値にある値で規格化することによって得られる。大気試料の、 $^{21}\text{Ne}^+ / ^{22}\text{Ne}^+$  信号強度比を大気中の  $^{21}\text{Ne} / ^{22}\text{Ne}$  比 (0.029; Eberhardt et al., 1965) で規格化したところ  $^{21}\text{Ne} - ^{22}\text{Ne}$  間の質量分析係数はおよそ 0~0.3% である。

表5中、上段と下段の  $^{20}\text{Ne}$  信号強度、ネオン同位体の信号強度比が異なるのは、それぞれ、拡散方法の違いによる試料導入量の違い、二次電子増倍管の感度調整の違いによるものである。

#### 5.1.3 アルゴン

大気試料のアルゴン測定結果を表6に示した。表中の数字はデジタルボルトメータによるファラデーカップの出力値 ( $V_D$ ) 及び、二次電子増倍管の出力値 ( $V_M$ ) である。各試料に付記されている誤差は  $1\sigma$  の信頼限界である。平均値は算術平均をとり、誤差はその標準偏差である ( $1\sigma$  の信頼限界)。各試料の  $^{40}\text{Ar}$  信号強度の測定誤差は、再現性よりも約1~2桁低いため、表中には記していない。

表中の  $^{40}\text{Ar}^+ / ^{36}\text{Ar}^+$  信号強度比は、ファラデーカップ—二次電子増倍管の間での感度のずれ (Discrimination) の補正を行っていない値である。Discrimination の係数 ( $F_D$ ) は、文献値にある大気中の

$^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  比( $R_{\text{air}}$ )を、測定した  $^{40}\text{Ar}^+ / ^{36}\text{Ar}^+$  信号強度比( $R_{\text{det}}$ )で除することによえられる。

大気中の  $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  比は 295.5 であることが知られている(Nier, 1950; Steiger and Jäger, 1977)。

表中の  $^{38}\text{Ar}^+ / ^{36}\text{Ar}^+$  信号強度比は質量分析計の質量分別の補正を行っていない値である。質量分析計の質量分別係数は、 $^{38}\text{Ar}^+ / ^{36}\text{Ar}^+$  信号強度比を大気中の  $^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  比(0.1880)で規格化することによって得られる。表6の結果では、1質量あたりおよそ 2.4~2.7%である。

表6中、上段と下段の  $^{40}\text{Ar}$  信号強度、 $^{40}\text{Ar}^+ / ^{36}\text{Ar}^+$  信号強度比が異なるのは、それぞれ、拡散方法の違いによる試料導入量の違い、二次電子増倍管の感度調整の違いによるものである。

#### 5.1.4 クリプトン

質量分析計及び、前処置装置調整初期に測定した大気試料のクリプトンの結果を表7に示した。クリプトン測定においては、コールドトラップにおけるクリプトン吸着温度の設定ミスのため、吸着効率が悪くなっている。これに伴い、同位体比の分別も起こっているようである。地下水試料分析においてクリプトン測定は、分析項目に入れなかったためこれ以上の分析は行っていない。

#### 5.1.5 ゼノン

質量分析計及び、前処置装置調整初期に測定した大気試料のゼノンの結果を表8に示した。各試料に付記されている誤差は  $1\sigma$  の信頼限界である。平均値は算術平均をとり、誤差はその標準偏差である ( $1\sigma$  の信頼限界)。各試料の  $^{132}\text{Xe}$  信号強度の測定誤差は、再現性よりも約1~2桁低いため、表中には記していない。

表中の各信号強度比は質量分析計の質量分別の補正を行っていない値である。質量分析計の質量分別係数は、それぞれの信号強度比を文献値にある値で規格化することによって得られる。大気試料の、各信号強度比を大気中の質量分析係数は1質量あたり、およそ 0.5~12.7%である。

地下水試料分析においてゼノン測定は、分析項目に入れなかったためこれ以上の分析は行っていない。

### 5.2 水試料

#### 5.2.1 ヘリウム

大気試料のヘリウム測定結果を表9に示した。出力値、付記されている誤差の取り扱いに関しては5.1章と同じである。同一条件下で蒸留水を大気と溶解平衡にした10試料の測定の結果、 $^4\text{He}$  と  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比の再現性はそれぞれ、6.5%・3.4%となった。

#### 5.2.2 ネオン

大気試料のネオン測定結果を表10に示した。出力値、付記されている誤差の取り扱いに関しては5.1章と同じである。同一条件下で蒸留水を大気と溶解平衡にした10試料の測定の結果、 $^{20}\text{Ne}$  と各ネオン同位体比の再現性はそれぞれ、5.9%・約1%となった。

#### 5.2.3 アルゴン

大気試料のアルゴン測定結果を表11に示した。出力値、付記されている誤差の取り扱いに関しては5.1章と同じである。同一条件下で蒸留水を大気と溶解平衡にした10試料の測定の結果、 $^{40}\text{Ar}$  と各アルゴ

ン同位体比の再現性はそれぞれ、10%・約1%となった。

### 5.3 水試料分析時の精度評価

水試料分析時の定量値(信号強度)は、質量分析計による分析誤差よりも、試料の前処理における溶存気体の抽出効率に依存する。抽出効率が一定でない場合、定量値は得られないことになる。上記のヘリウム・ネオンの信号強度の再現性は、大気試料分析時の再現性と比べて、さほど遜色のあるものではない。しかし、抽出装置の形状・容積あるいは、水試料中の溶存気体量などの影響により抽出率の悪化が観測される時期もあった。

図3～5はそれぞれ蒸留水測定時の抽出率の変化に伴うヘリウム・ネオン・アルゴン同位体分析値の変化を見たものである。いずれも横軸に信号強度、縦軸に信号強度比をとっている。ヘリウム同位体の再現性は抽出率一定の場合と比べてやや悪くなっている(4.8%)。ネオン・アルゴンの同位体比の抽出率悪化に伴う変動は、極端な場合を除いて、ないと見てよいであろう。

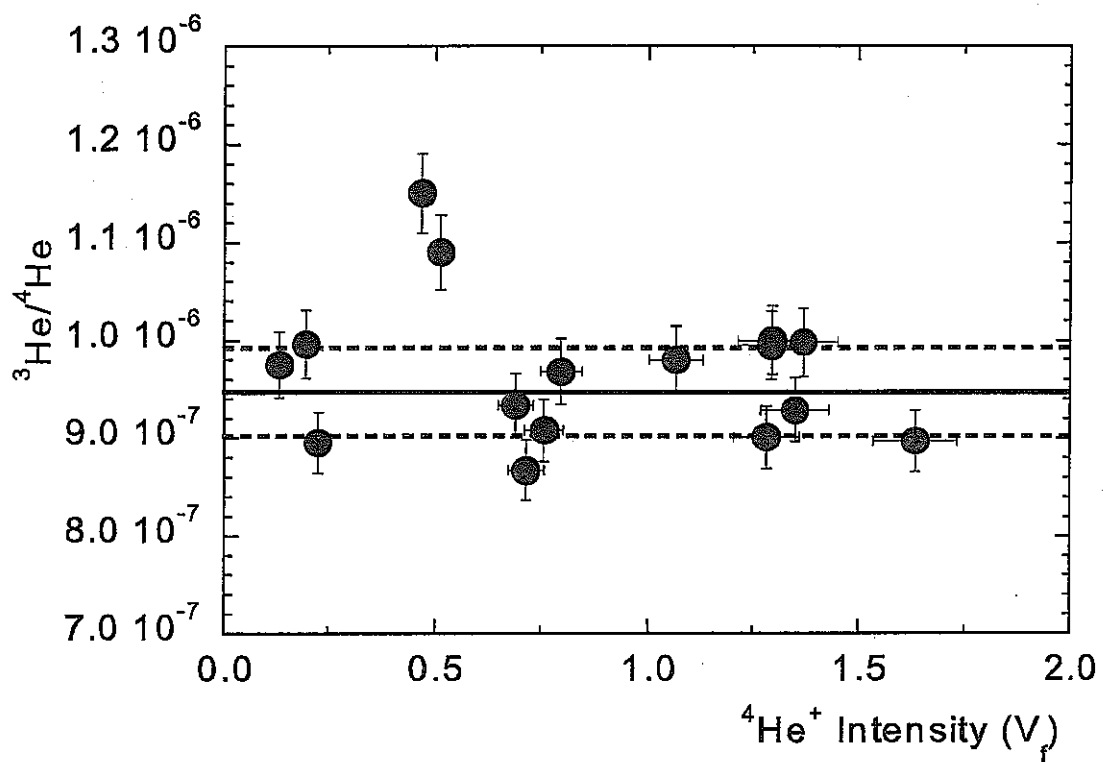


図3 溶存ヘリウム抽出率の変化とヘリウム同位体比測定値の関係

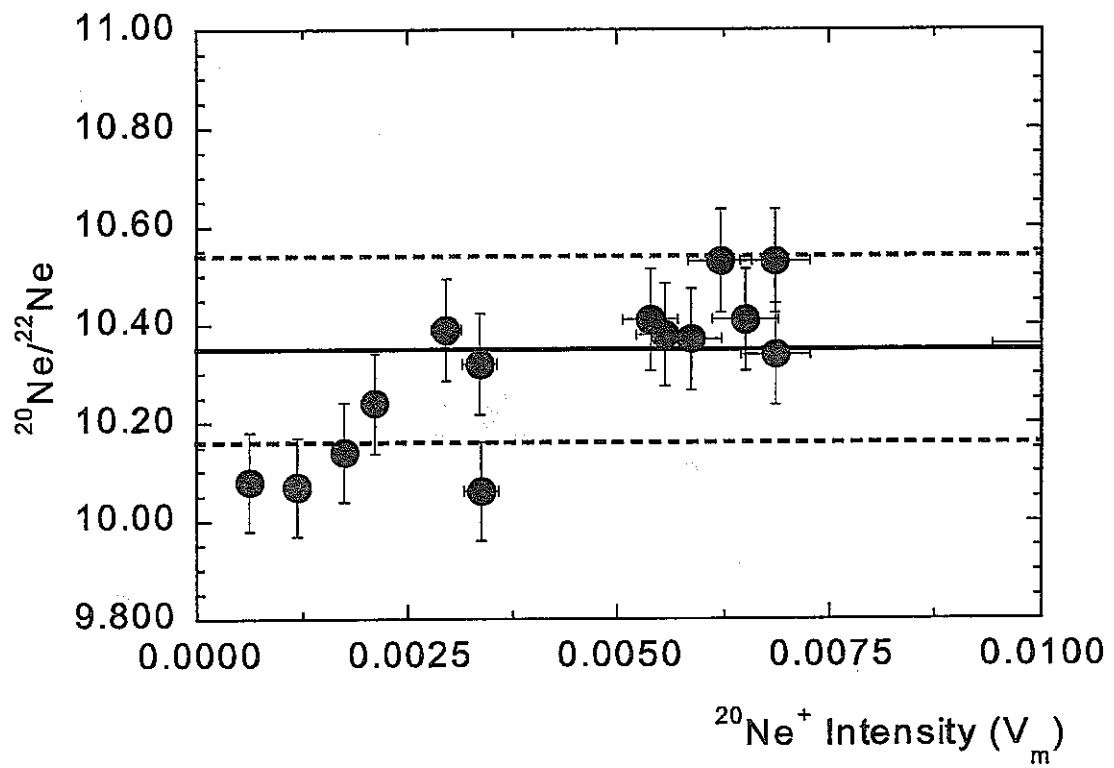


図4 溶存ネオン抽出率の変化とネオン同位体比測定の関係

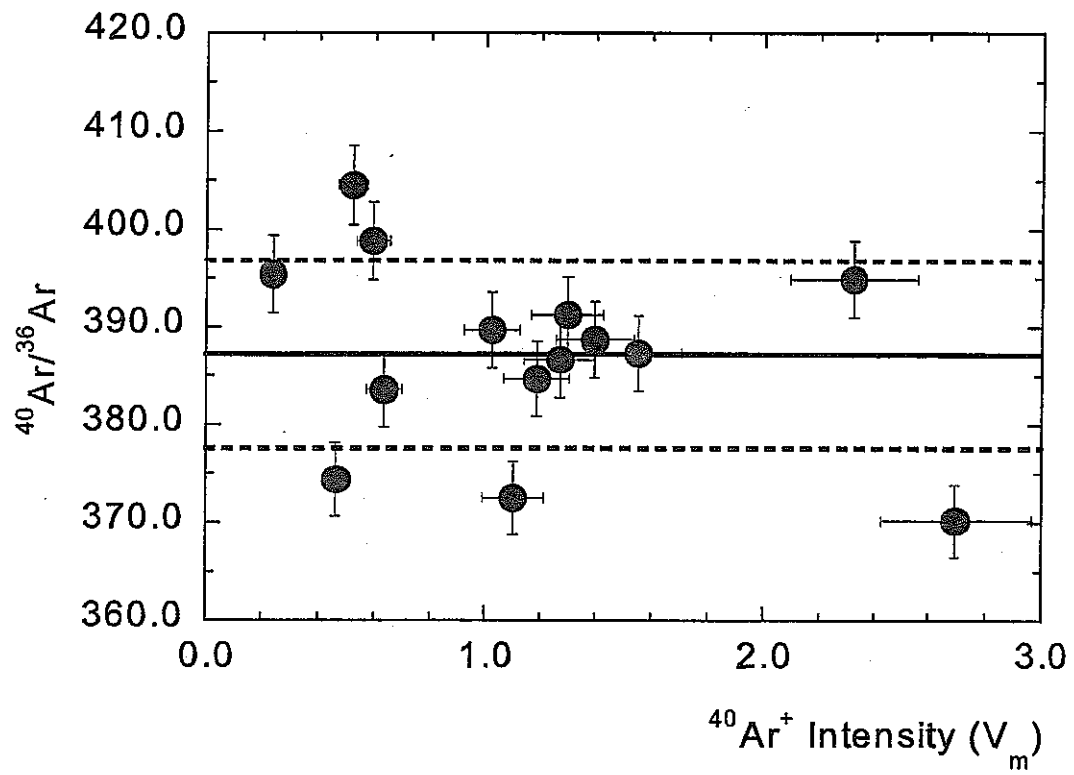


図5 溶存アルゴン抽出率の変化とアルゴン同位体比測定値の関係

表4 大気試料中のヘリウム測定結果

	分析日時	$^4\text{He}^+$		$^3\text{He}^+/^4\text{He}^+$	
		$(V_f)^{\$}$	$(1\sigma)^{\#}$	$(V_m^*/V_f)$	$(1\sigma)^{\#}$
Run 1	1998/12/14	0.384		$9.24 \times 10^{-7}$	2.0%
Run 2	1998/12/14	0.405		$9.32 \times 10^{-7}$	1.5%
Run 3	1998/12/15	0.378		$9.19 \times 10^{-7}$	1.6%
Run 4	1998/12/16	0.383		$9.38 \times 10^{-7}$	1.8%
Run 5	1998/12/17	0.349		$9.55 \times 10^{-7}$	1.5%
平均値		0.380	5.3%	$9.34 \times 10^{-7}$	1.5%
Run 1	2000/12/4	0.892		$9.85 \times 10^{-7}$	1.2%
Run 2	2000/12/6	0.840		$9.47 \times 10^{-7}$	1.0%
Run 3	2000/12/11	0.851		$9.63 \times 10^{-7}$	1.1%
Run 4	2000/12/22	0.844		$9.85 \times 10^{-7}$	1.2%
平均値		0.857	2.8%	$9.70 \times 10^{-7}$	1.9%

$\$$ : ファラデーカップの出力値(V)

$\#$ : 誤差(%)

$*$ : 二次電子増倍管の出力値(V)



表5 大気試料中のネオン測定結果

分析日時	$^{20}\text{Ne}^+$		$^{20}\text{Ne}^+ / ^{22}\text{Ne}^+$		$^{21}\text{Ne}^+ / ^{22}\text{Ne}^+$	
	$(V_m)^{\$}$	$(1\sigma)^{\#}$	$(V_m/V_m)$	$(1\sigma)$	$(V_m/V_m)$	$(1\sigma)$
Run 1 1998/12/15	0.0157		10.65	0.8%	0.0301	1.0%
Run 2 1998/12/16	0.0155*		8.99	3.5%	0.0278	1.5%
Run 3 1998/12/17	0.0133		9.33	0.7%	0.0285	1.3%
Run 4 1998/12/21	0.0153		10.54	3.2%	0.0295	2.1%
Run 5 1998/12/21	0.0127		11.24	1.2%	0.0294	1.7%
平均値	0.0142	10.3%	10.15	9.4%	0.0291	3.0%
Run 1 2000/12/4	0.00790		10.13	0.5%	0.0293	0.5%
Run 2 2000/12/6	0.00702		10.05	0.3%	0.0289	0.6%
Run 3 2000/12/11	0.00733		10.13	0.2%	0.0285	0.4%
Run 4 2000/12/22	0.00715		9.94	0.4%	0.0295	1.2%
平均値	0.00735	5.3%	10.06	0.9%	0.0290	1.6%

$\$$ : 二次電子増倍管の出力値(V)

$\#$ : 誤差(%)

\*: 試料精製過程が異なるため、平均値の算出には加えていない。

表6 大気試料中のアルゴン測定結果

	分析日時	$^{40}\text{Ar}^+$		$^{38}\text{Ar}^+ / ^{36}\text{Ar}^+$		$^{40}\text{Ar}^+ / ^{36}\text{Ar}^+$	
		$(V_f)^{\$}$	$(1\sigma)^{\#}$	$(V_m^* / V_m)$	$(1\sigma)^{\#}$	$(V_f / V_m)$	$(1\sigma)^{\#}$
Run 1	1998/12/15	0.627		0.1869	0.58%	425.7	0.16%
Run 2	1998/12/16	0.623		0.1863	0.50%	412.6	0.20%
Run 3	1998/12/17	0.615		0.1888	0.76%	422.2	0.29%
Run 4	1998/12/17	0.495*		0.1861	0.58%	417.6	0.40%
Run 5	1998/12/20	0.592		0.1867	0.54%	432.7	0.24%
平均値		0.582	2.7%	0.1870	0.57%	422	1.8%
Run 1	2000/12/4	0.645		0.1856	0.25%	408.7	0.26%
Run 2	2000/12/6	0.581		0.1878	0.69%	411.1	0.43%
Run 3	2000/12/11	0.566		0.1875	0.25%	415.5	0.19%
Run 4	2000/12/22	0.606		0.1873	0.25%	394.7	0.20%
平均値		0.600	5.7%	0.1871	0.53%	408	2.2%

$\$$ :ファラデーカップの出力値

$\#$ :誤差(%)

$*$ :二次電子増倍管の出力値

表7 大気試料中のクリプトン測定結果

分析日時	$^{84}\text{Kr}^+$	$^{78}\text{Kr}^+ / ^{84}\text{Kr}^+$		$^{80}\text{Kr}^+ / ^{84}\text{Kr}^+$		$^{82}\text{Kr}^+ / ^{84}\text{Kr}^+$		$^{83}\text{Kr}^+ / ^{84}\text{Kr}^+$		$^{86}\text{Kr}^+ / ^{84}\text{Kr}^+$	
	( $V_m$ ) <sup>§</sup>	( $V_m/N_m$ )	( $1\sigma$ ) <sup>#</sup>	( $V_m/N_m$ )	( $1\sigma$ ) <sup>#</sup>	( $V_m/N_m$ )	( $1\sigma$ ) <sup>#</sup>	( $V_m/N_m$ )	( $1\sigma$ ) <sup>#</sup>	( $V_m/N_m$ )	( $1\sigma$ ) <sup>#</sup>
Run 1 1998/12/14	0.002	0.00655	2.3%	0.0412	1.5%	0.209	1.1%	0.2027	0.7%	0.288	3.0%
Run 2 1998/12/15	0.0037	0.00624	1.7%	0.0403	1.2%	0.201	0.4%	0.1987	0.5%	0.298	0.4%
Run 3 1998/12/16	0.0042	0.00638	1.6%	0.0403	0.8%	0.206	0.9%	0.2004	0.7%	0.289	1.89%
Run 4 1998/12/17	0.0254	0.00572	0.3%	0.0372	0.3%	0.191	0.2%	0.1898	0.2%	0.288	0.2%
Run 5 1998/12/17	0.0476	0.00555	0.3%	0.0360	0.3%	0.187	0.1%	0.1857	0.3%	0.284	0.1%
平均値	-----	0.00609	7.1%	0.0389	5.8%	0.199	4.8%	0.1955	3.8%	0.289	1.8%

§: 二次電子増倍管の出力値(V)

#: 誤差(%)

表 8 大気試料中のゼノン測定結果

分析日時	$^{132}\text{Xe}^+$		$^{124}\text{Xe}^+ / ^{130}\text{Xe}^+$		$^{128}\text{Xe}^+ / ^{130}\text{Xe}^+$		$^{128}\text{Xe}^+ / ^{130}\text{Xe}^+$	
	$(V_m)^\$$	$(1\sigma)^\#$	$(V_m/N_m)$	$(1\sigma)^\#$	$(V_m/N_m)$	$(1\sigma)^\#$	$(V_m/N_m)$	$(1\sigma)^\#$
Run 1 1998/12/14	0.00267*		0.02402	1.21%	0.02138	2.08%	0.4703	0.36%
Run 2 1998/12/16	0.00506		0.02316	1.24%	0.02251	0.61%	0.4648	0.45%
Run 3 1998/12/17	0.00455		0.02451	0.99%	0.02210	1.17%	0.4646	0.40%
Run 4 1998/12/17	0.00487		0.02358	1.52%	0.02189	0.82%	0.4646	0.23%
Run 5 1998/12/20	0.00474		0.02320	1.19%	0.02176	0.94%	0.4671	0.30%
平均値	0.00481	4.5%	0.02369	2.4%	0.02193	1.9%	0.4663	0.54%

	$^{129}\text{Xe}^+ / ^{130}\text{Xe}^+$		$^{131}\text{Xe}^+ / ^{130}\text{Xe}^+$		$^{132}\text{Xe}^+ / ^{130}\text{Xe}^+$		$^{134}\text{Xe}^+ / ^{130}\text{Xe}^+$		$^{136}\text{Xe}^+ / ^{130}\text{Xe}^+$	
	$(V_m/N_m)$	$(1\sigma)^\#$	$(V_m/N_m)$	$(1\sigma)^\#$	$(V_m/N_m)$	$(1\sigma)^\#$	$(V_m/N_m)$	$(1\sigma)^\#$	$(V_m/N_m)$	$(1\sigma)^\#$
Run 1	6.605	0.28%	5.256	0.28%	6.694	0.29%	2.558	0.51%	2.143	0.59%
Run 2	6.622	0.27%	5.309	0.22%	6.785	0.23%	2.577	0.28%	2.170	0.38%
Run 3	6.588	0.21%	5.264	0.25%	6.702	0.21%	2.562	0.29%	2.150	0.32%
Run 4	6.630	0.28%	5.293	0.23%	6.744	0.31%	2.569	0.30%	2.155	0.37%
Run 5	6.597	0.19%	5.266	0.18%	6.709	0.23%	2.573	0.48%	2.155	0.54%
平均値	6.609	0.26%	5.278	0.43%	6.727	0.56%	2.568	0.30%	2.155	0.47%

§ : 二次電子増倍管の出力値(V)

# : 誤差(%)

表 9 蒸留水中のヘリウム測定結果

	分析日時	${}^4\text{He}^+$ (V) <sup>§</sup>	${}^3\text{He}^+/\text{}^4\text{He}^+$ ( $\times 10^{-7} V_m^*/V_f$ )
Run 1	1999/7/28	2.40	8.96 $\pm$ 0.06 <sup>#</sup>
Run 2	1999/7/28	2.19	8.69 $\pm$ 0.08
Run 3	1999/7/29	2.55	8.64 $\pm$ 0.07
Run 4	1999/7/29	2.19	8.52 $\pm$ 0.07
Run 5	1999/7/30	2.44	9.10 $\pm$ 0.07
Run 6	1999/8/3	2.28	8.46 $\pm$ 0.06
Run 7	1999/8/5	2.31	8.51 $\pm$ 0.07
Run 8	1999/8/5	2.56	8.53 $\pm$ 0.09
Run 9	1999/8/6	2.63	8.11 $\pm$ 0.09
Run 10	1999/8/9	2.36	8.32 $\pm$ 0.08
	平均値	2.39 $\pm$ 0.16	8.58 $\pm$ 0.29

§: ファラデーカップの出力値(V)

\*: 二次電子増倍管の出力値(V)

#: 誤差(1 $\sigma$ )

表 10 蒸留水中のネオン測定結果。

	分析日時	$^{20}\text{Ne}^+$ ( $V_m$ ) <sup>§</sup>	$^{20}\text{Ne}^+ / ^{22}\text{Ne}^+$ ( $V_m / V_m$ )	$^{21}\text{Ne}^+ / ^{22}\text{Ne}^+$ ( $V_m / V_m$ )
Run 1	1999/7/28	0.0151	10.46 ± 0.02 <sup>#</sup>	0.0290 ± 0.0004 <sup>#</sup>
Run 2	1999/7/28	0.0136	10.53 ± 0.03	0.0291 ± 0.0002
Run 3	1999/7/29	0.0152	10.71 ± 0.04	0.0288 ± 0.0002
Run 4	1999/7/29	0.0136	10.58 ± 0.03	0.0292 ± 0.0003
Run 5	1999/7/30	0.0132	10.69 ± 0.02	0.0291 ± 0.0003
Run 6	1999/8/3	0.0137	10.69 ± 0.03	0.0299 ± 0.0003
Run 7	1999/8/5	0.0151	10.62 ± 0.04	0.0291 ± 0.0002
Run 8	1999/8/5	0.0141	10.60 ± 0.04	0.0287 ± 0.0003
Run 9	1999/8/6	0.0155	10.67 ± 0.03	0.0293 ± 0.0003
Run10	1999/8/9	0.0139	10.62 ± 0.02	0.0291 ± 0.0003
平均値		0.0143 ± 0.0008	10.62 ± 0.08	0.0291 ± 0.0003

§: 二次電子増倍管の出力値(V)

#: 誤差(1 $\sigma$ )

表 1 1 蒸留水中のアルゴン測定結果

	分析日時	$^{40}\text{Ar}^+$ ( $V_f$ ) <sup>§</sup>	$^{38}\text{Ar}^+ / ^{36}\text{Ar}^+$ ( $V_m^* / V_m$ )	$^{40}\text{Ar}^+ / ^{36}\text{Ar}^+$ ( $V_f / V_m$ )
Run 1	1999/7/28	4.92	0.1805 ± 0.0010 <sup>#</sup>	382.8 ± 4.1 <sup>#</sup>
Run 2	1999/7/28	3.95	0.1806 ± 0.0003	382.0 ± 2.7
Run 3	1999/7/29	3.98	0.1795 ± 0.0003	382.7 ± 0.3
Run 4	1999/7/29	3.90	0.1804 ± 0.0003	385.5 ± 0.3
Run 5	1999/7/30	n.d. <sup>¶</sup>	n.d.	n.d.
Run 6	1999/8/3	3.81	0.1798 ± 0.0003	391.3 ± 0.4
Run 7	1999/8/5	4.80	0.1794 ± 0.0002	387.6 ± 0.5
Run 8	1999/8/5	4.03	0.1810 ± 0.0005	384.2 ± 0.6
Run 9	1999/8/6	4.32	0.1795 ± 0.0002	390.5 ± 1.1
Run 10	1999/8/9	3.65	0.1793 ± 0.0003	390.6 ± 0.5
平均値		4.15 ± 0.44	0.1800 ± 0.0006	386 ± 4

§: ファラデーカップ出力値(V)

\*: 二次電子増倍管出力値(V)

#: 誤差(1σ)

¶: 測定せず

## II 地下水溶存希ガスによる地下水流動解析

### 1. はじめに

一般的に地下深部の地下水の流動状態の解析では、地表地質図や試錐孔調査から作成した地質断面図などを基に作られた「地質構造概念モデル」に、岩盤の透水性などの水理学的情報を加えて構築された「水理地質構造モデル」を基に、地下水流動解析を実施し、調査領域内の地下水流動を推定している。

地下水流動を推定する方法の一つとして、地下水の水質や各種同位体など地下水の地球化学的特性が挙げられる。地下水の水質の形成は、表層水の水質と地下水の流動経路における鉱物の地下水中への溶解・地下水—鉱物間のイオン交換反応などが関与しているために、流動区間での岩石の構成鉱物の量比、水—鉱物間の反応速度に関する知見を得る必要がある。

溶存ヘリウムの場合、表層水中の濃度・同位体比は滞留時間・地層の種類にかかわらずほとんど一定である。地下水の流動経路において得られるヘリウム量は地下水の滞留時間に比例する。したがって、地下水中の溶存ヘリウムは、地下水の流動解析に適用できる可能性が指摘されている。しかし、単位時間あたりに地下水中に溶け込むヘリウム量に関して確立された考え方がなく、溶存ヘリウムによる地下水年代推定は、まだ十分確立されているとは言い難いのが現状である。

本報告では、溶存希ガス分析の概要、溶存ヘリウムによる地下水流動解析の概要について述べる。また、水理地質構造モデルと比較し、溶存ヘリウムによる地下水流動解析の可能性について検討する。



## 2. 地下水溶存希ガスの起源及び、地下水流動解析への適用

### 2.1 地下水溶存希ガスの起源

溶存ヘリウムの起源としては、以下の特徴を持つ3成分

- ①大気(+トリチウム)成分:  ${}^3\text{He}/{}^4\text{He} = 1.4 \times 10^{-6}$ ,  $\text{He}/\text{Ne} = 0.24$
- ②マントル成分:  ${}^3\text{He}/{}^4\text{He} = 1.1 \times 10^{-5}$ ,  $\text{He}/\text{Ne} \geq 1,000$
- ③放射壊変成分:  ${}^3\text{He}/{}^4\text{He} =$  岩石の化学組成に依存,  $\text{He}/\text{Ne} \geq 1,000$

が挙げられる(例えば, Sano and Wakita, 1985)。大気(+トリチウム)成分は地下水涵養時に溶けていた成分で、地下水流動中に出入りがない。トリチウムがすべて壊変した場合、涵養時のトリチウムを 5.5T.U.あるいは、10T.U.とすると、 ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$  はそれぞれ、 $1.7 \times 10^{-6}$ ・ $1.9 \times 10^{-6}$ となる。マントル成分は、おもに、マグマなどを介して上昇してくる成分であり、 ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$  は高い。放射壊変成分は、滞水層あるいは基盤岩中のウラン・トリウムなどの $\alpha$ 壊変核種の壊変により発生する成分である。

### 2.2. 岩石から放出されるヘリウム(Andrews, 1985 から引用)

単位重量あたりの岩石から単位時間あたりに発生する ${}^4\text{He}$ 原子数( $P_4$ )は、岩石中のウラン、トリウム及び、その娘核種の壊変速度をもとに、下式で計算できる。

$$P_4 = 3.211 \times 10^6 [\text{U}] + 7.763 \times 10^5 [\text{Th}] \quad (\text{atoms} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}) \quad (1)$$

[U]・[Th]:岩石の U・Th 濃度(ppm)

${}^3\text{He}$  は地殻中のリチウムの(n,  $\alpha$ )反応とそれに続く $\beta$ 壊変:



によって生成される(Aldrich and Nier, 1948)。したがって、岩石のリチウム濃度、岩石中で発生する中性子量及び、発生した中性子が ${}^6\text{Li}$ と反応する確率が分かれば、岩石中における ${}^3\text{He}$ の生成速度( $P_3$ )を見積もることができる:

$$P_3 = n \times F_{\text{Li}} \quad (\text{atom g}^{-1} \text{y}^{-1}) \quad (3)$$

岩石中において、単位時間中に発生する中性子数(n)は、Feige et al. (1968)より以下の式で計算できる。

$$\begin{aligned} n = & [\text{U}]/100 \times \{ 13.8 [\text{Na}] + 5.4 [\text{Mg}] + 5.0 [\text{Al}] + 1.31 [\text{Si}] + 0.6 [\text{Ca}] \} \\ & + [\text{Th}]/100 \times \{ 6.0 [\text{Na}] + 2.45 [\text{Mg}] + 2.55 [\text{Al}] + 0.56 [\text{Si}] + 0.25 [\text{Ca}] \} \\ & + 0.4764 [\text{U}] \quad (\text{g}^{-1} \text{y}^{-1}) \end{aligned} \quad (4)$$

[Na]・[Mg]・[Al]・[Si]・[Ca]:岩石の Na・Mg・Al・Si・Ca 濃度(%)

[Li]:岩石の Li 濃度(ppm)

これらの発生した中性子が ${}^6\text{Li}$ と反応する確率( $F_{\text{Li}}$ )は、以下の式で計算できる。

$$F_{\text{Li}} = \frac{1.023 \times 10^{-5} \times [\text{Li}]}{1.023 \times 10^{-5} \times [\text{Li}] + \sum \sigma_i N_i} \quad (5)$$

$\sigma_i \cdot N_i$ : 元素  $i$  の中性子捕獲断面積(barns)・岩石中の存在度(mol)

(4)・(5)式を(3)式に代入すれば ${}^3\text{He}$ の生成速度が求まる。これを(1)式で除することにより、原位置で発生するヘリウムの同位体比が計算できる。

### 2.3 地下水溶存ヘリウム濃度によるヘリウムフラックスの見積もり

大気中のヘリウム濃度・同位体比( $^3\text{He}/^4\text{He}$ )はそれぞれ、 $5.24\text{ppm}\cdot 1.4 \times 10^{-6}$ で世界中一定であると考えられている。しかし、大気中のヘリウムは地球の重力を振り切って大気圏から宇宙空間へ散逸している(Kockarts, 1973)ことが知られている。この散逸分を補うのが地球内部から脱ガスによって大気に供給される成分で、ヘリウムフラックスと呼ばれている。ヘリウムフラックス量を見積もることは、大気の進化を考えるうえで重要な地球科学的問題の一つである。また、地下水中のヘリウム濃度による地下水年代の推定・地下水流動解析を行ううえでもヘリウムフラックスを見積もることは重要である。以下に、地下水中のヘリウム濃度よりヘリウムフラックスを見積もる方法を記す。

#### 2.3.1 $^4\text{He}$ 濃度の深度プロファイルによるヘリウムフラックスの見積もり(Osenbrück et al., 1998)

堆積岩における $^4\text{He}$ の輸送が分子拡散によると仮定した場合、 $^4\text{He}$ フラックスは $^4\text{He}$ の深度プロファイルの傾きから得られる。Stute et al. (1992)の式を変形すると $^4\text{He}$ フラックス( $\text{ccSTPcm}^{-2}\text{s}^{-1}$ )は以下の式で計算できる(Osenbrück et al., 1998)。

$$J = \phi D \rho_w \frac{\Delta C_{\text{He}}}{\Delta z} \quad (6)$$

J :  $^4\text{He}$  フラックス( $\text{ccSTPcm}^{-2}\text{s}^{-1}$ )  
 $\phi$  : 堆積岩の空隙率  
D : 地下水中の $^4\text{He}$ の拡散係数( $\text{cm}^2 \text{s}^{-1}$ )  
 $\rho_w$  : 水の密度( $\text{g cm}^{-3}$ )  
z : 深度(cm)

[ccSTP/g  $\text{H}_2\text{O}$ ]は単位重量(g)あたりの地下水に溶存しているヘリウムの標準状態における体積をさす。ここで、Osenbrück et al. (1998)は拡散係数として、地下水採取地点と類似した空隙率と岩石を使って、実験的に求めた値( $2 \times 10^{-6} \text{cm}^2 \text{s}^{-1}$ )を使用している。また、Jähne et al. (1987)は $15^\circ\text{C}$ の水に対してヘリウムの拡散係数として $6 \times 10^{-5} (\text{cm}^2 \text{s}^{-1})$ を与えている。

#### 2.3.2 地下水年代及び、地下水溶存ヘリウム濃度によるヘリウムフラックスの見積もり

このモデルは、Takahata and Sano (2000)が広島県三条盆地より得られた地下水のヘリウムデータより、ヘリウムフラックスを見積もった方法である。ヘリウムによる地下水年代推定に関する初期の研究では、滞水層中の岩石において発生するヘリウムのみを扱っていたため、えられた年代値がほかの手法で得られた年代値に比べて、時には数桁古い値が得られていた(たとえば、Andrews and Lee, 1979; Andrews et al., 1982; Rudolph et al., 1984)。このことは、より深い地層より拡散・輸送されてきたヘリウムが地下水に加わっていることを示している。Andrews et al. (1985)はこれを利用し、

$$[\text{He}]_{\text{ex}} = \frac{t \cdot F}{\phi \cdot h} \quad (7)$$

$[\text{He}]_{\text{ex}}$ : 地層中で加わったヘリウム濃度 (ccSTP/g $\text{H}_2\text{O}$ )  
h: 滞水層の厚さ(cm)

式により地下水滞留年代を得た。Takahata and Sano (2000)は $T\text{-}^3\text{He}$ 年代をtととり、上式からヘリウムフラックスを見積もっている。

2.4 地下水流動解析への適用—Stute et al. (1992)による Two Dimensional Helium Transport Model—  
 ここでは、地下水の涵養域・流出域での地下水の流れを垂直流・その間の流れを水平流と簡略化した系を考える。また、以下の仮定をおく。

(仮定1) 帯水層中で発生したヘリウムは一定の速度(A)で地下水中に蓄積される。

$$A = \{1.19 \times 10^{-13}[\text{U}] + 2.88 \times 10^{-14}[\text{Th}]\} \times (1 - \phi) \times \rho_R / (\phi \times \rho_w) \quad (\text{ccSTP/g/y}) \quad (8)$$

$\rho_R \cdot \rho_w$ : 岩石・水の密度 ( $\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ ) である。

なお、堆積岩においては、岩石から発生したヘリウムはすべて地下水中に放出されるとする(Torgersen, 1980; 1989)。

(仮定2) 帯水層の底部から一定の速度で上昇するヘリウム・フラックス(J)も系に取り込まれる。このとき、フラックスは鉛直方向のみである。

(仮定3) 帯水層の最上部では、ヘリウムは大気中に放出される ( $C_{\text{He ex}} = 0$ )

拡散係数(D)を一定とすると、ヘリウム輸送を示す拡散方程式は、

$$D \left( \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \right) - v_x \frac{\partial C}{\partial x} - v_z \frac{\partial C}{\partial z} + A = 0 \quad (9)$$

$$D \frac{\partial C}{\partial x} \Big|_{(0,z)} = D \frac{\partial C}{\partial x} \Big|_{(x_0,z)} = 0 \quad (10)$$

$$-D \frac{\partial C}{\partial z} \Big|_{(x,z_0)} = \frac{J}{\phi \rho_w} \quad (11)$$

$$C \Big|_{(x,0)} = 0 \quad (12)$$

A: ヘリウム原位置発生量 ( $\text{ccSTP g}^{-1} \text{y}^{-1}$ )

J: ヘリウムフラックス ( $\text{ccSTP cm}^{-2} \text{y}^{-1}$ )

$\phi$ : 岩石の空隙率

$\rho_w$ : 水の密度 ( $\text{g cm}^{-3}$ )

となる。

#### 2.4.1 涵養域におけるヘリウム輸送

涵養域における地下水の流れを垂直方向と仮定した場合、涵養域における地下水の  $[^4\text{He}]_{\text{ex}}$  は原位置でのヘリウム発生量に依存する。このとき、地下水の平均滞留時間(mean residence time)は、

$$t = [^4\text{He}]_{\text{ex}} / A \quad (13)$$

で示される。

#### 2.4.2 水平流領域におけるヘリウム輸送

涵養域あるいは、流出域以外の領域の地下水の流れをほぼ水平流と仮定すると、 $v_z = 0$  及び、 $D_x = 0$

とすることにより、この領域の地下水平均滞留時間(mean residence time),

$$t = C / \left( \frac{J}{\phi z_o \rho_w} + A \right) \quad (14)$$

が得られる。

#### 2.4.3 流出域におけるヘリウム輸送

涵養域における地下水の流れを垂直方向に上昇すると仮定した場合、ヘリウムフラックスは次式であらわされる。

$$J = v_z \rho n \left( \frac{c(z_2) - c(z_1)}{1 - \exp(N_{PE})} + c(z_1) \right) \quad (15)$$

$$N_{PE} = \Delta z v_z / D_z, \quad \Delta z = z_2 - z_1 \quad (16)$$

この場合、ヘリウムフラックスが分かっているならば、地下水の流速が計算可能である。

### 3. 調査領域の概要

東濃鉦山周辺の地質は、白亜紀の土岐花崗岩が基盤岩として分布し、これを新第三紀中新世の堆積岩(瑞浪層群)及び、新第三紀鮮新世から第四紀更新世にかけての未固結砂礫層(瀬戸層群)が覆っている。瑞浪層群は下位より土岐夾炭累層(下部層・上部層)、明世累層、生俣累層に区分される。新第三紀堆積岩の層厚は約 200m であり、土岐夾炭累層下部層にはウラン鉦床が分布している。

試錐孔による地下水の間隙水圧及び、透水係数などの調査結果に基づいた数値解析の結果、東濃鉦山周辺領域の地下水流動状態は、堆積岩上部でほぼ下向きに、堆積岩下部で調査坑道に向かって、流速 3.15~315mm/年の範囲にあることが分かっている(稲葉 他, 1998)。地下水の水素及び酸素同位体比から、地下水はすべて天水起源であり、 $^{14}\text{C}$  法を用いて得られた地下水年代は、土岐夾炭累層下部層において約 19,000 年と報告されている(Iwatsuki et al., 2001)。

本報告で、花崗岩中の地下水を対象とした調査の大部分は、広域流動調査のための試錐孔を持ち行け行われている。広域地下水流動解析は、東濃地域における主要な断層である屏風山断層や赤河断層を含む尾根線(北東、南東境界)及び、飛騨川(北西境界)で囲まれる約 30km 四方を調査領域としている。水理地質構造モデルによる地下水流動解析の結果、地下水の大局的な流動方向は相対的に標高の高い北東部から標高の低い南西部に向かう流れとなっている。この中で、東濃鉦山周辺の地下水は、東濃鉦山の北部を通る東西方向の尾根線の南側を涵養域とし、土岐川を流出域としていることがわかっている(三枝他, 1998)。 $^{14}\text{C}$  法を用いて得られた地下水年代は、DH-8 号孔深度 1,000m 付近において約一万数千年と報告されている。

## 4. 分析手法

### 4.1 地下水試料の採取

地下水試料の採取はTH-3・-4・-6, AN-6, DH-3・-12・-13及び, MIU-4号孔より行った。TH-3・-4・-6, AN-6及び, DH-3号孔においては, MPシステムのコントロールプローブの下に試料採取容器を取り付けて, 地下水試料を採取した。また, DH-12・-13及び, MIU-4号孔においては, 1000m 対応揚水試験装置により地上まで揚水された地下水試料を採取している。DH-12号孔においては, 湧水量が多かったため, 水理試験を考慮し圧力損失の内容大口径のパイプを試験区間から地上まで伸ばし, 自噴する地下水を採取した。なお, いずれの場合も, 標準試料分析時と同じ容器を使用している。

MP システムを用いた溶存ヘリウム分析用試料採取は図6の要領で行った。試料容器内の残留大気を可能なかぎり軽減するため, 試料容器をあらかじめ実験室内でターボ分子ポンプにより  $10^{-3}$  Torr まで排気した。溶存ヘリウム分析の場合, 大気の混入以外に試料を汚染する要素はないので, 採水は通常の採水方法と同じ方法をとった。試料容器の構造上, 試料の採取は1回の作業で1試料である。したがって, 一日の採取作業で採取できる試料は, 3~4試料である(DH-3号孔の場合, 深度が深く1試料採取に要する時間が長いため, 1日の採取作業で採取できる試料は, 2~3試料である)。

DH-12・-13及び, MIU-4号孔における地下水の採取法は以下のとおりである。地下水試料採取用の試料容器には, 長さ60cm・内径8mm・肉厚1mmのステンレス管を用い, 両端にプラグバルブを装着したものを使用した。この試料容器内に気泡がなくなるまで試料をオーバーフローさせ続け, その後, ステンレス管両端のバルブを閉じることによって採水を行った。この場合, 溶存ガスの脱ガスあるいは, 大気の混入が危惧されるため, 採水1地点につき2~3試料採取し, 再現性を見た。

試料容器からの溶存ガスの大気中への散逸を防ぐために, 試料の分析は, 採取後直ちに行っている。しかし, 1試料の試料前処理・分析に約5時間, 分析終了前後の排気作業に数時間を要するため, 1日につき1~2試料のみ分析を行っている。また, 地下水試料分析の前後には, 標準試料の分析を行い, その分析値をもとに地下水試料の同位体比・濃度を算出している。

### 4.2 希ガス分析

地下水試料の希ガス分析には, 蒸留水分析時と同じ分析方法(I章参照)を用いた。ヘリウムについては, 試料により数桁の濃度の変動が予測されるため, 質量分析計に導入させる試料量を調節する必要がある。そのため, 試料の精製後, 前処理装置のイオンゲージで残留ガスの分圧を見積もり, ヘリウム量の多い試料については, 拡散・排気を繰り返すことによって試料導入量を調節した。拡散・排気による試料の希釈倍率は, 予備試験で明らかにした。ヘリウム濃度の計算はこの希釈倍率を掛けて計算を行った。一部の試料については, ネオン・アルゴン分析時もこの操作を行った。

### 4.3 岩石試料分析

岩石中から単位時間あたりに発生する $^4\text{He}$ 量・ヘリウム同位体比を把握するために, 岩石試料の主要・微量元素組成の分析を行った。堆積岩の試料には, TH-6号孔の岩芯試料より, 104.9m(明世累層)・132.5m(土岐夾炭累層上部層)・153.4m(土岐夾炭累層下部層)の部分を使用した。花崗岩試料については, TH-6号孔の177.0m地点, DH-3号孔の206.0m・297.0m・510.6m・714.7m・795.5m及び, 843.1m

地点の試料を用いた。分析項目及び、分析手法は表12のとおりである。また、DH-12・-13号孔の岩芯試料についても花崗岩5試料について Li 分析を行った。なお、地質調査所より配給されている岩石標準試料 JG-1a を同時に分析し、推奨値と比べることによって、分析値の信頼性を評価した。

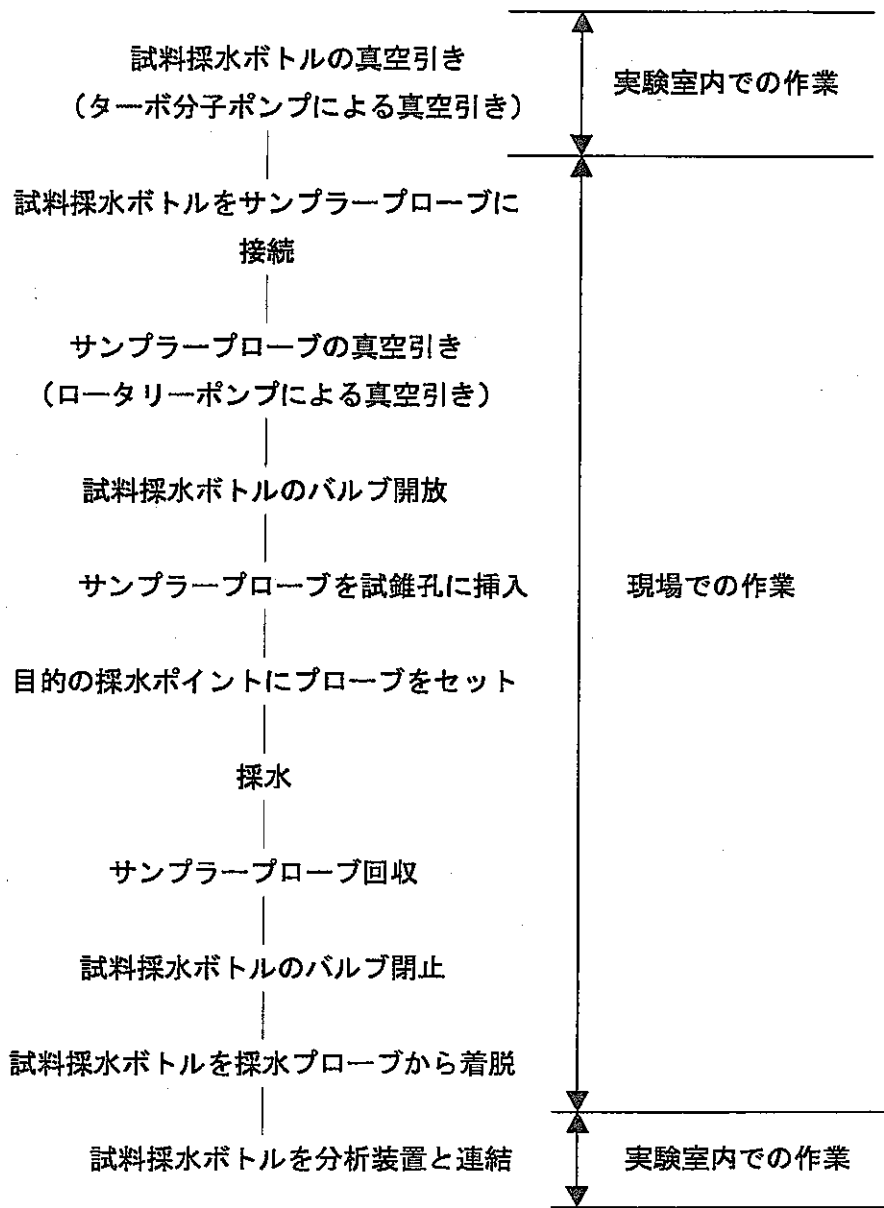


図6 MP システムによる溶存希ガス用試料採取フロー



表 1 2 岩石試料の分析項目及び、分析手法

分析項目	分析手法	分析項目	分析手法
SiO <sub>2</sub>	蛍光 X 線	B	ICP 発光分析法
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	蛍光 X 線	Li	原子吸光光度法
Total-Fe	蛍光 X 線	Cl	ICP 質量分析法
CaO	蛍光 X 線	Co	ICP 質量分析法
MgO	蛍光 X 線	Ni	ICP 発光分析法
Na <sub>2</sub> O	蛍光 X 線	Sm	ICP 質量分析法
K <sub>2</sub> O	蛍光 X 線	Gd	ICP 質量分析法
MnO	蛍光 X 線	U	固体蛍光法
TiO <sub>2</sub>	蛍光 X 線	Th	吸光光度法
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	蛍光 X 線		

## 5. 結果

### 5.1 地下水試料

#### 5.1.1 ヘリウム

測定した地下水試料のヘリウム存在度( ${}^4\text{He}$ )と同位体比を表13に示した。大気と平衡にある場合の水試料中の ${}^4\text{He}$ 濃度は $4.55\sim 4.76 \times 10^{-8} \text{ccSTP/gH}_2\text{O}$ (大気が $5\sim 15^\circ\text{C}$ の場合)である。また、 ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 比は $1.38 \times 10^{-6}$ であることが知られている(Benson and Krause, 1980)。地下水中に溶存するトリチウムが壊変し、 ${}^3\text{He}$ が加わった場合、 ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 比は $1.7 \times 10^{-6}$ から $1.9 \times 10^{-6}$ (トリチウムの初期濃度をそれぞれ $5.5 \cdot 10\text{T.U.}$ とした場合)まで上昇する。今回測定した地下水はすべて、この値よりも低くなっている。

東濃鉱山周辺の地下水のヘリウム同位体比の特徴は、深度とともに、急激に ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 比が低くなる傾向にある(図7)。また、花崗岩中の地下水(DH-3-12-MIU-4号孔)においては、深度とともに緩やかに ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 比が低くなっているかあるいは、深度によらず ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 比がほぼ一定であることが分かった(図8)。

${}^4\text{He}$ 濃度測定値は、東濃鉱山周辺の地下水においては、 $2 \times 10^{-8}\sim 6 \times 10^{-6} \text{ccSTP/gH}_2\text{O}$ となっており、AN-6号孔を除き、 ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 比の低い試料ほど濃度が高くなっている。花崗岩中の試料においては、 ${}^4\text{He}$ 濃度の変動はよりに大きく、DH-12号孔において最大 $7 \times 10^{-5} \text{ccSTP/gH}_2\text{O}$ までの値が得られている。

2章で記したように、 ${}^4\text{He}$ は岩石中のウラン・トリウム系列の $\alpha$ 壊変核種の放射壊変により生成される。また、 ${}^3\text{He}$ は岩石中のLiと中性子の核反応により生成されるため、これらの成分の付加により地下水中のヘリウム濃度・同位体比は変化する。これについては、後で述べる

後述のネオン・アルゴンの定量値に見られた溶存ガスの不完全な抽出あるいは、(溶存ガス起源の)気泡の混入による定量値の変動が、ヘリウムについても予想される。したがって、得られた定量値をもとに議論することは出来ないが、抽出率の悪化による同位体分析値の系統的な変化は見られていないため、ヘリウム同位体による議論は可能である。

#### 5.1.2 ネオン

測定した地下水試料のネオン存在度( ${}^{20}\text{Ne}$ )と同位体組成を表14に示した。大気と平衡にある場合の水試料中の ${}^{20}\text{Ne}$ 濃度は $1.75\sim 1.92 \times 10^{-7} \text{ccSTP/gH}_2\text{O}$ (大気が $5\sim 15^\circ\text{C}$ の場合)である。天水を起源とした地下水の場合もこの値は変わらない。MPシステムを使用して採取した試料のうちAN-6号孔14.0m地点で採取した試料は、約10倍高くなっている。この試料については、おそらく大気が混入したものであると思われる。また、DH-3号孔330m地点では、約60倍低い値となっている。これは、おそらく分析時に試料から溶存ガスが十分に抽出されなかったためと思われる。揚水された地下水試料においては、同一地点で3試料採取した結果、約10倍の ${}^{20}\text{Ne}$ 濃度の違いが見られた。揚水の場合、地下水と溶存ガスの分離が起こりやすいと考えられるため、採水した試料の中の(溶存ガス起源の)気泡の量により定量値は変わってくるおそれがある。ヘリウム同位体の再現性がよいことから、大気の混入による違いはあまりないといえる。

${}^{20}\text{Ne}/{}^{22}\text{Ne}$ 比と ${}^{21}\text{Ne}/{}^{22}\text{Ne}$ 比との関係を図9に示した。大気中の ${}^{20}\text{Ne}/{}^{22}\text{Ne} \cdot {}^{21}\text{Ne}/{}^{22}\text{Ne}$ 比はそれぞれ、 $9.80 \cdot 0.0290$ である。大気-天水間でネオン同位体の分別が起こるという報告は現在のところない。図9からは、測定した地下水のデータはいずれも大気成分近くにプロットされている。岩石中においてネオン

は,



などの核反応で生成される(Wetherill, 1954)。地下水にこの成分が加わった場合, 地下水中のネオン同位体比は変動する可能性がある。Bottomley et al. (1984)は, カナダ・マニトバ州の WNRE サイトで採取したいくつかの地下水試料において, 低い  $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$  比( $\sim 8.8$ )と高い  $^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$  比( $\sim 0.068$ )を観測している(図10)。今回の測定試料においては, この影響はないといえる。

### 5.1.3 アルゴン

測定した地下水試料のアルゴン存在度( $^{40}\text{Ar}$ )と同位体組成を表15に示した。大気と平衡にある場合の水試料中の  $^{40}\text{Ar}$  濃度は  $3.44\sim 4.34 \times 10^{-4}\text{ccSTP/gH}_2\text{O}$  (大気が  $5\sim 15^\circ\text{C}$  の場合)である。天水を起源とした地下水の場合もこの値は変わらない。MP システムを使用して採取した試料のうち AN-6 号孔 14.0m 地点で採取した試料は, 約 10 倍高くなっている。ネオン測定時と同様に, これは, おそらく大気が混入したためであると思われる。また, 溶存ガスの不完全な抽出あるいは, (溶存ガス起源の)気泡の混入による定量値の変動が, アルゴン測定時にも見られた。

$^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  比と  $^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  比との関係を図11に示した。大気中の  $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar} \cdot ^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  比はそれぞれ,  $295.5 \cdot 0.1880$  である。天水のアルゴン同位体比も大気と分別が起こるという報告は現在のところない。測定した地下水のデータはいずれも大気成分近くにプロットされている(図10)。岩石中において  $^{40}\text{Ar}$  は,  $^{40}\text{K}$  の  $\beta$  壊変によって生成する。この成分が地下水に加わった場合, 地下水中のヘリウム同位体組成が, 天水の値から変動することが予測される。地下水にこの成分が加わった場合, 地下水中の  $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  比は上昇する。国外の事例研究においては, Torgersen et al. (1989)がオーストラリア大鑽井盆地において採取された地下水中に  $^{40}\text{K}$  起源の  $^{40}\text{Ar}$  を観測している。また, Osenbrück et al. (1998)は, ドイツ・Morsleben 地域で採取した岩芯試料中の間隙水中のアルゴン同位体比を測定し, いくつかの試料において高い  $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  比を観測されている(図11)。今回の測定試料においては, この影響はないといえる。

### 5.2 岩石試料

分析結果を標準試料(JG-1a)の分析結果とともに表16・17に示した。JG-1a の主成分元素の分析結果は,  $\text{K}_2\text{O} \cdot \text{Cr}_2\text{O}_3$  を除いて 2%以内の範囲で推奨値と一致している。 $\text{K}_2\text{O}$ ・微量元素については, 15~30%程度の違いがあるものもある。しかし, 今回の岩石試料の分析は, 岩石中から単位時間あたりに発生するヘリウム原子数・同位体比を計算するために行ったものである。これらの計算結果の誤差を見積もった。微量元素の誤差によるヘリウム原子数・同位体比計算値の変動は無視できる程度である。

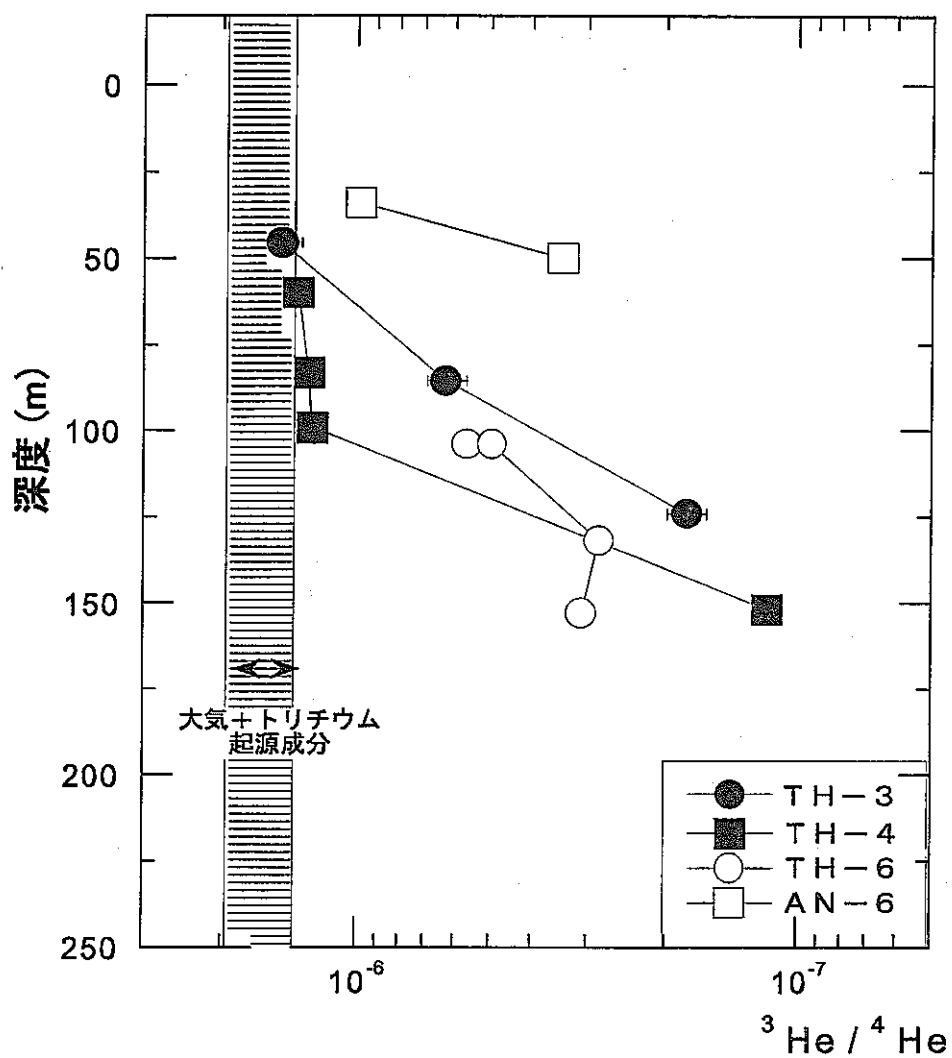


図7 東濃鉦山周辺の地下水試料の  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比の深度プロファイル

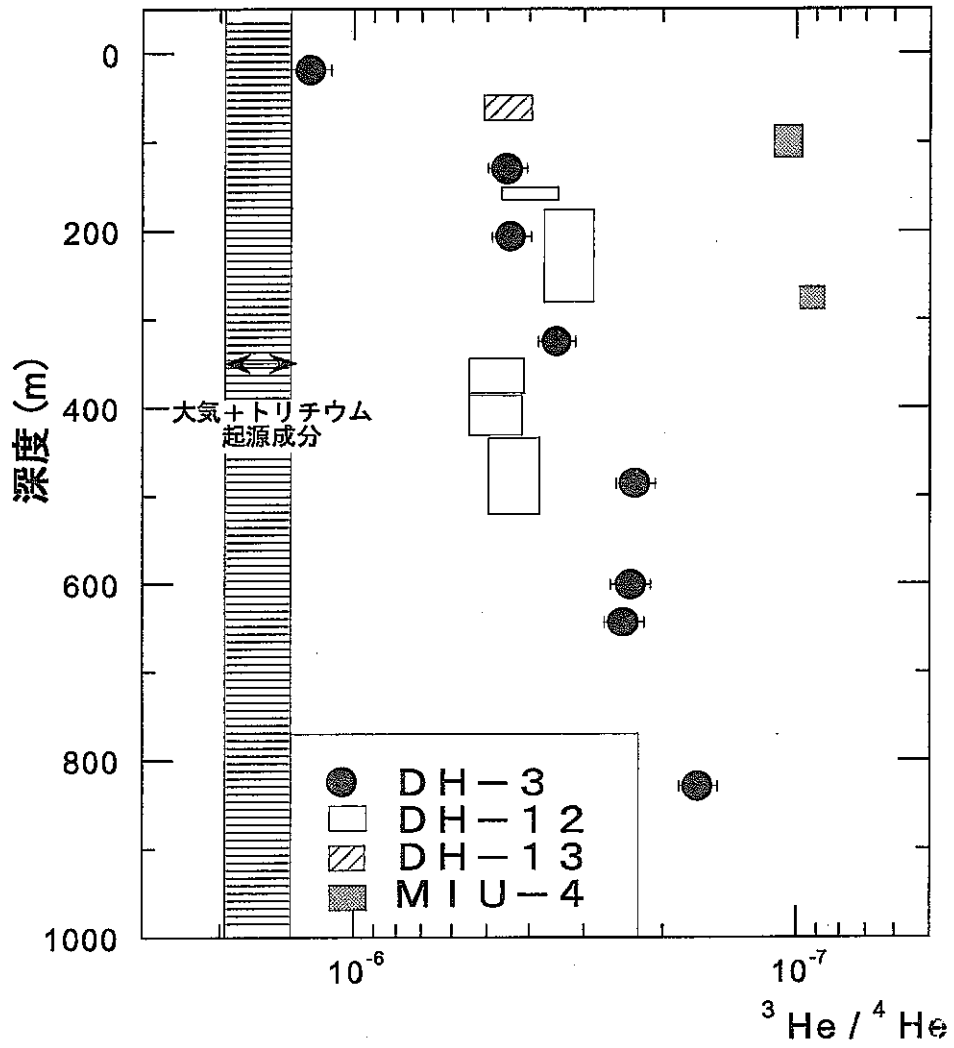


図 8 花崗岩より採取した地下水試料の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比の深度プロフィール

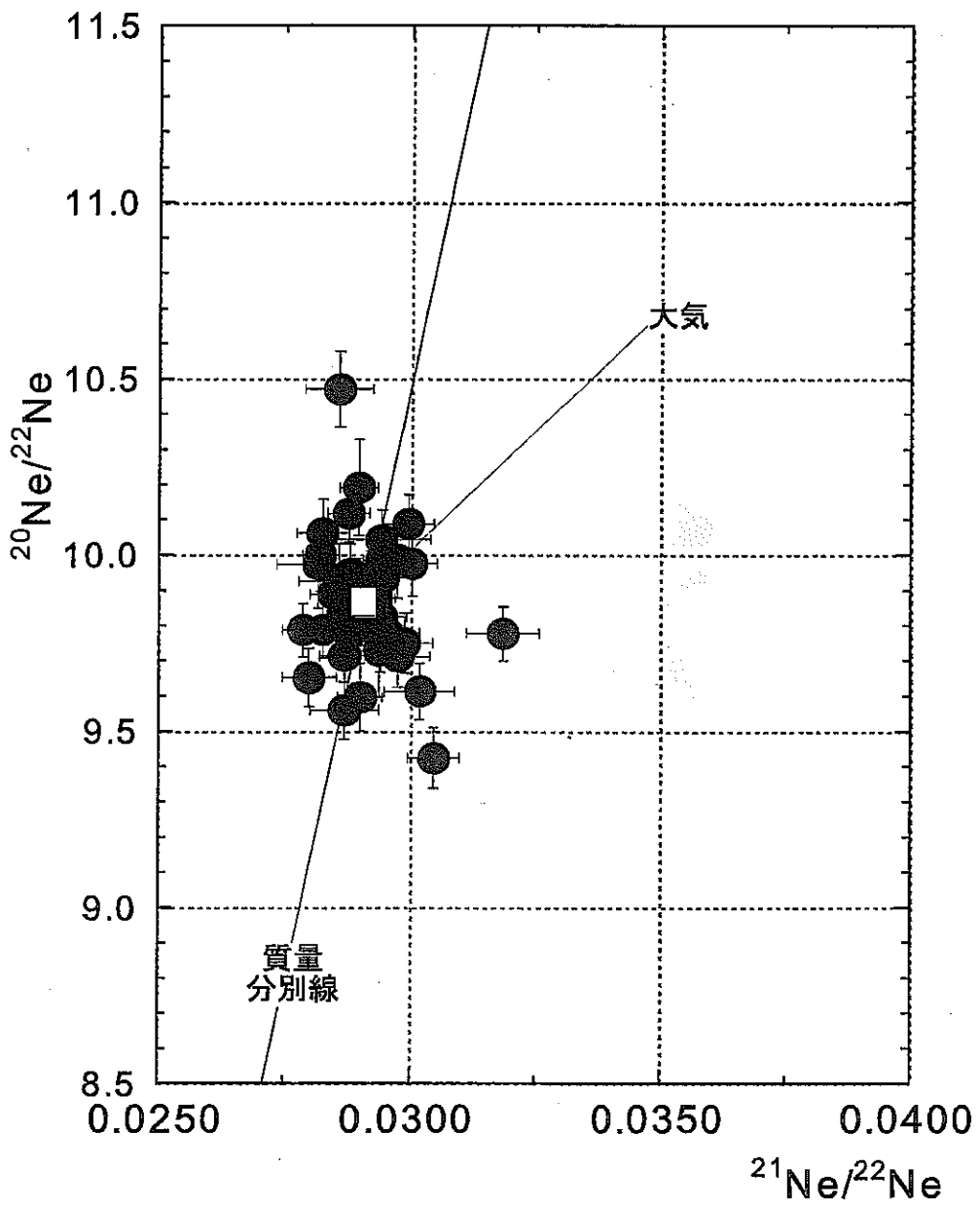


図9 東濃地域における地下水試料の  $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$  と  $^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$  比の関係

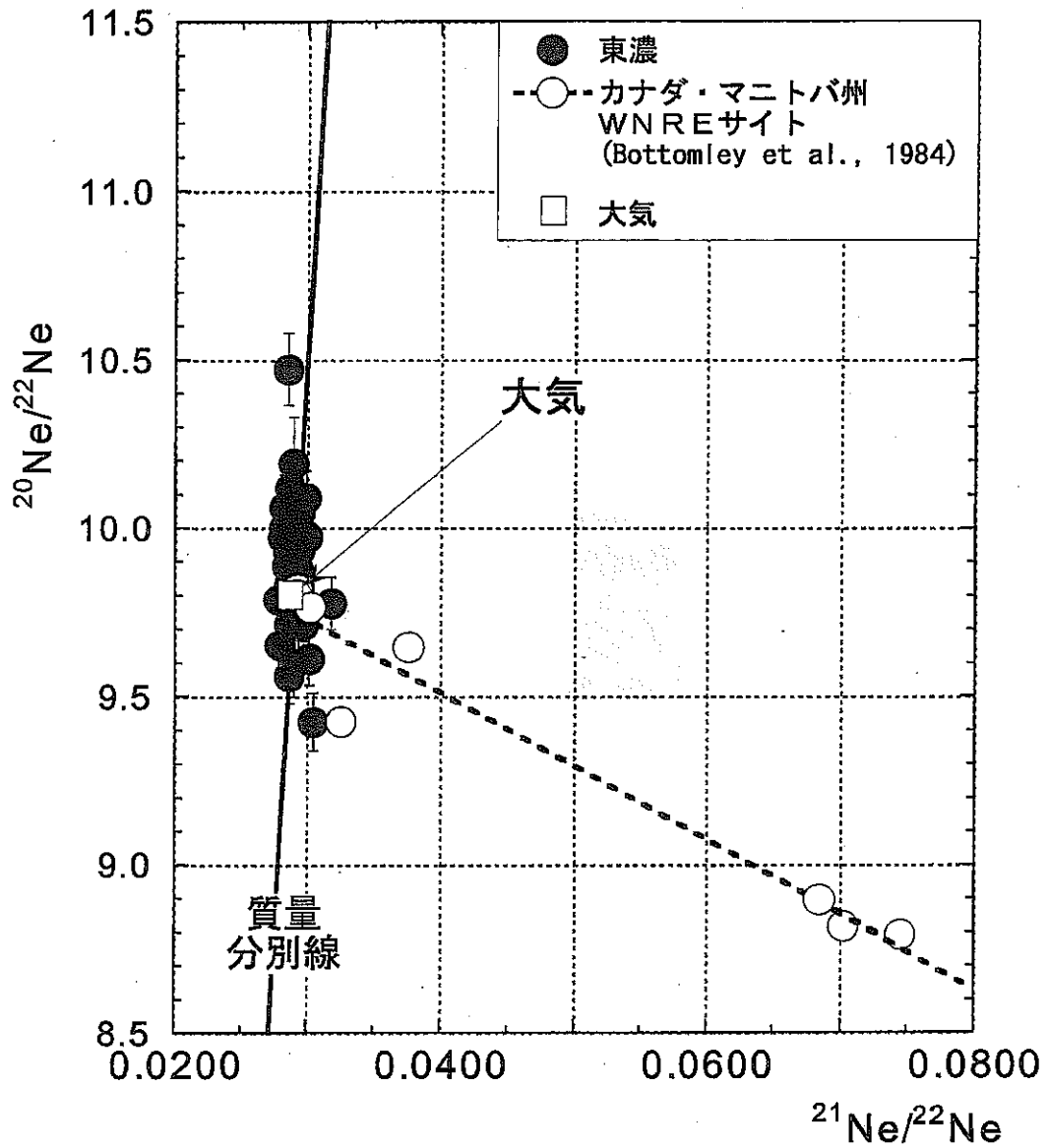


図10 東濃地域とカナダ・マニトバ州 WNRE サイトより採取された地下水試料のネオン同位体比の比較。点線は大気成分と地殻より発生するネオン成分との混合線(Kennedy et al., 1990)。

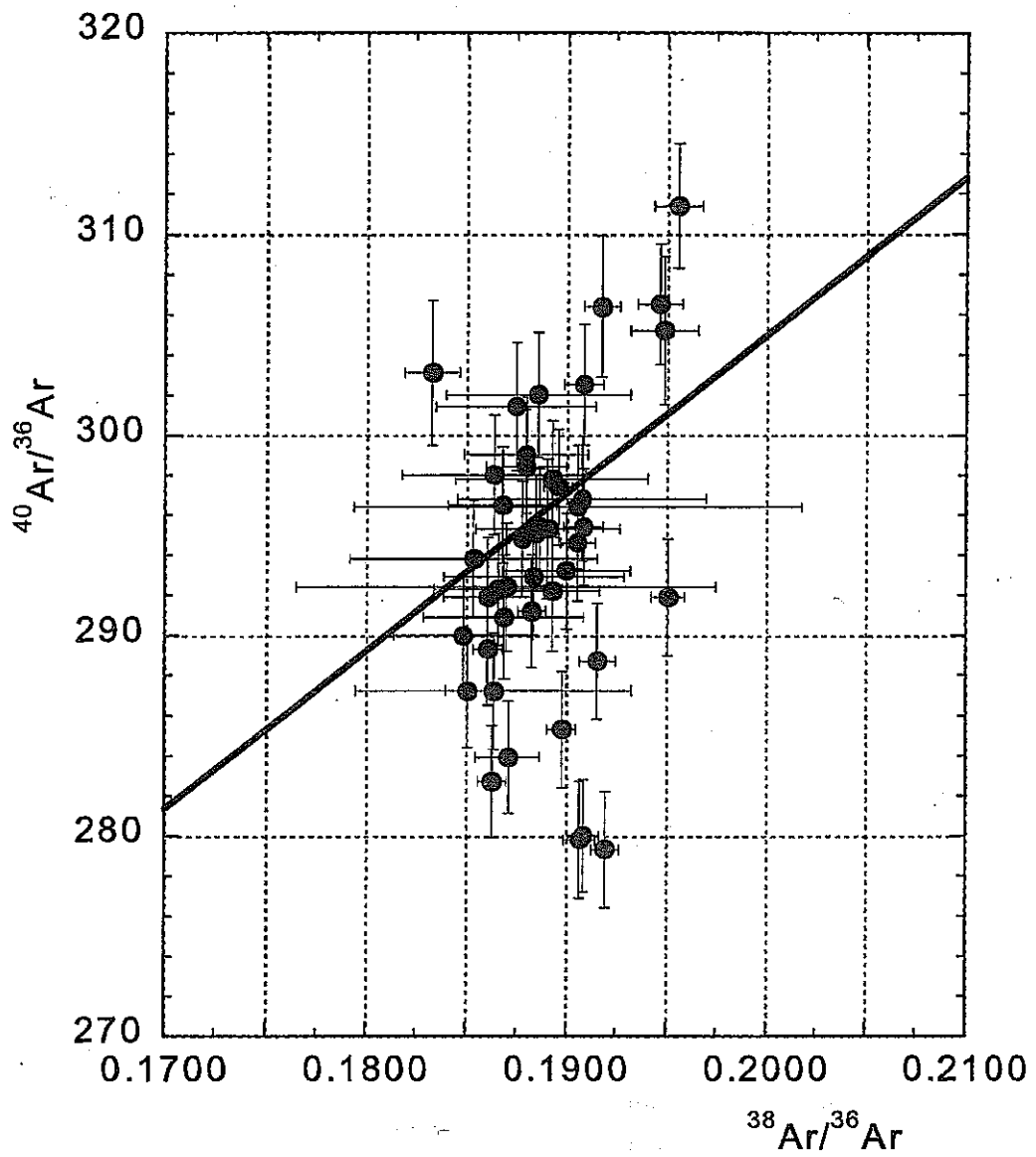


図11 東濃地域における地下水試料の  $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  比と  $^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  比の関係



表 1 3 地下水試料中の  $^4\text{He}$  存在度及び、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比

採水日	採水地点	地層 <sup>§</sup>	$^4\text{He}$ ( $\times 10^{-8}$ ccSTP/gH <sub>2</sub> O)	$^3\text{He}/^4\text{He}$ ( $\times 10^{-6}$ )
1999/11/2	AN6-14.0m	A	100	1.26 $\pm$ 0.04 <sup>#</sup>
1999/11/2	AN6-34.0m	TU	2.7	0.98 $\pm$ 0.04
1999/11/2	AN6-50.0m	TU	26	0.341 $\pm$ 0.012
1999/11/2	AN6-121.5m	G	44	0.293 $\pm$ 0.010
1999/11/5	TH3-45.5m	A	13	1.48 $\pm$ 0.05
1999/11/5	TH3-85.5m	TU	5.0	0.63 $\pm$ 0.02
1999/11/5	TH3-124.0m	TL	600	0.179 $\pm$ 0.006
1999/8/27	TH4-60m	A	8.3	1.37 $\pm$ 0.05
1999/8/27	TH4-83m	TU	3.3	1.28 $\pm$ 0.05
2000/8/29	TH4-83.0m	TU	2.2	1.08 $\pm$ 0.04
1999/8/27	TH4-99m	TU	2.9	1.26 $\pm$ 0.05
1999/9/3	TH4-152m	TL	110	0.117 $\pm$ 0.004
2000/8/29	TH4-152.5m	TL	180	0.126 $\pm$ 0.005
1999/9/3	TH6-104m	A	2.5	0.56 $\pm$ 0.02
1999/9/8	TH6-104m	A	19	0.493 $\pm$ 0.017
1999/9/3	TH6-132m	TU	19	0.282 $\pm$ 0.012
1999/9/8	TH6-153m	TL	17	0.309 $\pm$ 0.011
1999/8/10	DH3-19m	G	2.0	1.25 $\pm$ 0.04
1999/9/13	DH3-130m	G	20	0.451 $\pm$ 0.017
1999/8/10	DH3-208m	G	2.7	0.441 $\pm$ 0.017
1999/8/17	DH3-330m	G	0.8	0.347 $\pm$ 0.015
1999/8/17	DH3-508m	G	30	0.230 $\pm$ 0.008
1999/8/19	DH3-646m	G	33	0.236 $\pm$ 0.010
1999/9/13	DH3-699.7m	G	6.5	0.244 $\pm$ 0.009
1999/9/13	DH3-984.4m	G	31	0.167 $\pm$ 0.006

表 13 地下水試料中の  $^4\text{He}$  存在度及び、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比 (つづき)

採水日	採水地点	地層	$^4\text{He}$ ( $\times 10^{-8}$ ccSTP/gH <sub>2</sub> O)	$^3\text{He}/^4\text{He}$ ( $\times 10^{-6}$ )
2000/7/26	DH-12 157.45~164.12m	S-G	660	0.384 $\pm$ 0.013
2000/7/26	DH-12 157.45~164.12m	S-G	470	0.420 $\pm$ 0.015
2000/7/26	DH-12 157.45~164.12m	S-G	2900	0.401 $\pm$ 0.014
2000/8/27	DH-12 178.00~280.17m	G	2700	0.326 $\pm$ 0.012
2000/8/27	DH-12 178.00~280.17m	G	1800	0.333 $\pm$ 0.012
2000/12/19	DH-12 345.9~387.2m	G	2800	0.488 $\pm$ 0.017
2000/12/19	DH-12 345.9~387.2m	G	340	0.50 $\pm$ 0.02
2000/12/7	DH-12 388.9~429.7m	G	2100	0.468 $\pm$ 0.017
2000/12/7	DH-12 388.9~429.7m	G	1500	0.499 $\pm$ 0.019
2000/12/7	DH-12 388.9~429.7m	G	7100	0.486 $\pm$ 0.017
2000/11/22	DH-12 431.4~510.0m	G	1200	0.444 $\pm$ 0.016
2000/11/22	DH-12 431.4~510.0m	G	1800	0.435 $\pm$ 0.017
2000/11/22	DH-12 431.4~510.0m	G	800	0.447 $\pm$ 0.018
2000/9/1	DH-13 60.50~74.15m	G	10	0.448 $\pm$ 0.018
2000/9/1	DH-13 60.50~74.15m	G	18	0.457 $\pm$ 0.017
2000/7/24	MIU-4 82.50~88.65mabh	TL	48	0.138 $\pm$ 0.005
2000/7/24	MIU-4 82.50~88.65mabh	TL	100	0.125 $\pm$ 0.005
2000/7/24	MIU-4 82.50~88.65mabh	TL	9.8	0.139 $\pm$ 0.007
2000/8/13	MIU-4 95.02~134.47mabh	G	130	0.101 $\pm$ 0.005
2000/8/13	MIU-4 95.02~134.47mabh	G	190	0.108 $\pm$ 0.004
2000/8/13	MIU-4 95.02~134.47mabh	G	92	0.109 $\pm$ 0.006
2000/12/2	MIU-4 314.95~316.95mabh	G	n.d. <sup>¶</sup>	n.d.
2000/12/2	MIU-4 314.95~316.95mabh	G	61	0.091 $\pm$ 0.004
2000/12/2	MIU-4 314.95~316.95mabh	G	33	0.098 $\pm$ 0.004

#: 誤差(1 $\sigma$ )

§: A - 明世累層, TU - 土岐夾炭累層上部層, TL - 土岐夾炭累層下部層, G - 土岐花崗岩,  
S-G - 礫岩部 (花崗岩含む)

¶: 測定せず

表 14 地下水試料中の  $^{20}\text{Ne}$  濃度及び、ネオン同位体比

採水日	採水地点	$^{20}\text{Ne}$ ( $\times 10^{-7}\text{ccSTP/gH}_2\text{O}$ )	$^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$	$^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$
1999/11/2	AN6-14.0m	20	$9.71 \pm 0.08^\#$	$0.0287 \pm 0.0005^\#$
1999/11/2	AN6-34.0m	0.90	$9.79 \pm 0.08$	$0.0279 \pm 0.0004$
1999/11/2	AN6-50.0m	2.8	$9.82 \pm 0.08$	$0.0287 \pm 0.0004$
1999/11/2	AN6-121.5m	3.2	$9.88 \pm 0.08$	$0.0292 \pm 0.0004$
1999/11/5	TH3-45.5m	2.9	$10.12 \pm 0.08$	$0.0288 \pm 0.0004$
1999/11/5	TH3-85.5m	0.88	$9.78 \pm 0.09$	$0.0295 \pm 0.0006$
1999/11/5	TH3-124.0m	6.4	$9.82 \pm 0.08$	$0.0287 \pm 0.0004$
1999/8/27	TH4-60m	3.6	$9.90 \pm 0.08$	$0.0287 \pm 0.0004$
1999/8/27	TH4-83m	1.2	$9.80 \pm 0.08$	$0.0288 \pm 0.0004$
2000/8/29	TH4-83.0m	0.90	$9.74 \pm 0.08$	$0.0294 \pm 0.0006$
1999/8/27	TH4-99m	1.3	$10.47 \pm 0.11$	$0.0286 \pm 0.0007$
1999/9/3	TH4-152m	2.0	$10.00 \pm 0.10$	$0.0282 \pm 0.0004$
2000/8/29	TH4-152.5m	7.2	$10.09 \pm 0.08$	$0.0300 \pm 0.0005$
1999/9/3	TH6-104m	0.25	$9.61 \pm 0.08$	$0.0302 \pm 0.0007$
1999/9/8	TH6-104m	1.9	$9.89 \pm 0.07$	$0.0290 \pm 0.0004$
1999/9/3	TH6-132m	1.3	$9.73 \pm 0.13$	$0.0294 \pm 0.0007$
1999/9/8	TH6-153m	1.3	$9.78 \pm 0.08$	$0.0319 \pm 0.0007$
1999/8/10	DH3-19m	0.80	$9.60 \pm 0.10$	$0.0290 \pm 0.0004$
1999/9/13	DH3-130m	2.8	$9.87 \pm 0.08$	$0.0292 \pm 0.0004$
1999/8/10	DH3-208m	0.33	$9.42 \pm 0.09$	$0.0305 \pm 0.0005$
1999/8/17	DH3-330m	0.032	$9.17 \pm 0.14$	$0.0306 \pm 0.0010$
1999/8/17	DH3-508m	2.5	$9.82 \pm 0.08$	$0.0294 \pm 0.0005$
1999/8/19	DH3-646m	1.2	$10.19 \pm 0.14$	$0.0290 \pm 0.0004$
1999/9/13	DH3-699.7m	0.32	$9.56 \pm 0.08$	$0.0287 \pm 0.0007$
1999/9/13	DH3-984.4m	1.1	$9.75 \pm 0.08$	$0.0299 \pm 0.0006$

表 14 地下水試料中の  $^{20}\text{Ne}$  濃度及び、ネオン同位体比 (つづき)

採水日	採水地点	$^{20}\text{Ne}$ ( $\times 10^{-7}\text{ccSTP/gH}_2\text{O}$ )	$^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$	$^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$
2000/7/26	DH-12 157.45~164.12m	0.87	$9.65 \pm 0.08^\#$	$0.0280 \pm 0.0005^\#$
2000/7/26	DH-12 157.45~164.12m	0.48	$9.93 \pm 0.11$	$0.0286 \pm 0.0008$
2000/7/26	DH-12 157.45~164.12m	3.5	$9.89 \pm 0.08$	$0.0285 \pm 0.0005$
2000/8/27	DH-12 178.00~280.17m	2.3	$10.04 \pm 0.09$	$0.0294 \pm 0.0010$
2000/8/27	DH-12 178.00~280.17m	2.8	$9.90 \pm 0.09$	$0.0290 \pm 0.0004$
2000/12/19	DH-12 345.9~387.2m	1.6	$9.98 \pm 0.08$	$0.0294 \pm 0.0004$
2000/12/19	DH-12 345.9~387.2m	0.18	$10.06 \pm 0.10$	$0.0283 \pm 0.0005$
2000/12/7	DH-12 388.9~429.7m	1.6	$9.79 \pm 0.08$	$0.0283 \pm 0.0004$
2000/12/7	DH-12 388.9~429.7m	1.0	n.d. <sup>¶</sup>	n.d.
2000/12/7	DH-12 388.9~429.7m	5.2	$9.78 \pm 0.08$	$0.0288 \pm 0.0004$
2000/11/22	DH-12 431.4~510.0m	0.86	$9.88 \pm 0.08$	$0.0293 \pm 0.0004$
2000/11/22	DH-12 431.4~510.0m	2.3	$9.94 \pm 0.08$	$0.0292 \pm 0.0004$
2000/11/22	DH-12 431.4~510.0m	0.92	$9.83 \pm 0.08$	$0.0287 \pm 0.0003$
2000/9/1	DH-13 60.50~74.15m	2.4	$9.71 \pm 0.09$	$0.0297 \pm 0.0006$
2000/9/1	DH-13 60.50~74.15m	2.9	$9.93 \pm 0.08$	$0.0294 \pm 0.0006$
2000/7/24	MIU-4 82.50~88.65mabh	1.5	$9.88 \pm 0.09$	$0.0291 \pm 0.0005$
2000/7/24	MIU-4 82.50~88.65mabh	3.0	$9.95 \pm 0.08$	$0.0288 \pm 0.0003$
2000/7/24	MIU-4 82.50~88.65mabh	0.17	$9.97 \pm 0.12$	$0.0282 \pm 0.0008$
2000/8/13	MIU-4 95.02~134.47mabh	2.7	n.d.	n.d.
2000/8/13	MIU-4 95.02~134.47mabh	4.1	n.d.	n.d.
2000/8/13	MIU-4 95.02~134.47mabh	1.6	n.d.	n.d.
2000/12/2	MIU-4 314.95~316.95mabh	n.d.	n.d.	n.d.
2000/12/2	MIU-4 314.95~316.95mabh	0.62	$9.97 \pm 0.09$	$0.0300 \pm 0.0005$
2000/12/2	MIU-4 314.95~316.95mabh	0.40	$9.99 \pm 0.11$	$0.0297 \pm 0.0005$

#: 誤差(1 $\sigma$ )

¶: 測定せず

表 15 地下水試料中の  $^{40}\text{Ar}$  濃度及び、アルゴン同位体比

採水日	採水地点	$^{40}\text{Ar}$ ( $\times 10^{-4}$ ccSTP/gH <sub>2</sub> O)	$^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$	$^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$
1999/11/2	AN6-14.0m	27	$0.1878 \pm 0.0007^{\#}$	$295 \pm 3^{\#}$
1999/11/2	AN6-34.0m	1.1	$0.1951 \pm 0.0008$	$292 \pm 3$
1999/11/2	AN6-50.0m	3.4	$0.1909 \pm 0.0008$	$280 \pm 3$
1999/11/2	AN6-121.5m	4.0	$0.1898 \pm 0.0007$	$285 \pm 3$
1999/11/5	TH3-45.5m	2.1	$0.1916 \pm 0.0009$	$289 \pm 3$
1999/11/5	TH3-85.5m	n.d. <sup>¶</sup>	n.d.	n.d.
1999/11/5	TH3-124.0m	4.5	$0.1920 \pm 0.0007$	$279 \pm 3$
1999/8/27	TH4-60m	5.4	$0.1896 \pm 0.0007$	$297 \pm 3$
1999/8/27	TH4-83m	0.87	$0.1918 \pm 0.0009$	$306 \pm 3$
2000/8/29	TH4-83.0m	1.9	$0.188 \pm 0.004$	$301 \pm 3$
1999/8/27	TH4-99m	n.d.	n.d.	n.d.
1999/9/3	TH4-152m	2.4	$0.1883 \pm 0.0007$	$291 \pm 3$
2000/8/29	TH4-152.5m	13	$0.186 \pm 0.007$	$287 \pm 3$
1999/9/3	TH6-104m	0.22	$0.1956 \pm 0.0012$	$311 \pm 3$
1999/9/8	TH6-104m	2.1	$0.1887 \pm 0.0007$	$295 \pm 3$
1999/9/3	TH6-132m	1.4	$0.1885 \pm 0.0008$	$295 \pm 3$
1999/9/8	TH6-153m	0.81	$0.1909 \pm 0.0010$	$295 \pm 3$
1999/8/10	DH3-19m	0.94	$0.1909 \pm 0.0010$	$302 \pm 3$
1999/9/13	DH3-130m	4.8	$0.1863 \pm 0.0007$	$283 \pm 3$
1999/8/10	DH3-208m	0.36	$0.1949 \pm 0.0017$	$305 \pm 4$
1999/8/17	DH3-330m	0.03	$0.1833 \pm 0.0014$	$303 \pm 4$
1999/8/17	DH3-508m	4.7	$0.1861 \pm 0.0007$	$289 \pm 3$
1999/8/19	DH3-646m	1.6	$0.1907 \pm 0.0008$	$280 \pm 3$
1999/9/13	DH3-699.7m	0.29	$0.1947 \pm 0.0011$	$307 \pm 3$
1999/9/13	DH3-984.4m	1.1	$0.1906 \pm 0.0009$	$295 \pm 3$

表 15 地下水試料中の  $^{40}\text{Ar}$  濃度及び、アルゴン同位体比  
(つづき)

採水日	採水地点	$^{40}\text{Ar}$	$^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$	$^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$
		(x $10^{-4}$ ccSTP/gH <sub>2</sub> O)		
2000/7/26	DH-12 157.45~164.12m	2.1	0.189 ± 0.005 <sup>#</sup>	298± 3 <sup>#</sup>
2000/7/26	DH-12 157.45~164.12m	0.79	0.191 ± 0.006	297± 3
2000/7/26	DH-12 157.45~164.12m	6.0	0.1871 ± 0.0016	284± 3
2000/8/27	DH-12 178.00~280.17m	3.0	0.189 ± 0.005	302± 3
2000/8/27	DH-12 178.00~280.17m	6.0	0.188 ± 0.003	299± 3
2000/12/19	DH-12 345.9~387.2m	1.7	0.187 ± 0.003	292± 3
2000/12/19	DH-12 345.9~387.2m	0.14	0.187 ± 0.011	292± 3
2000/12/7	DH-12 388.9~429.7m	2.4	0.188 ± 0.002	298± 3
2000/12/7	DH-12 388.9~429.7m	1.2	0.190 ± 0.003	293± 3
2000/12/7	DH-12 388.9~429.7m	5.9	0.189 ± 0.002	292± 3
2000/11/22	DH-12 431.4~510.0m	1.3	0.189 ± 0.004	295± 4
2000/11/22	DH-12 431.4~510.0m	2.2	0.1851 ± 0.0011	287± 3
2000/11/22	DH-12 431.4~510.0m	1.1	0.185 ± 0.004	290± 3
2000/9/1	DH-13 60.50~74.15m	5.9	0.186 ± 0.005	298± 3
2000/9/1	DH-13 60.50~74.15m	5.0	0.187 ± 0.004	291± 3
2000/7/24	MIU-4 82.50~88.65mabh	2.1	0.187 ± 0.003	296± 3
2000/7/24	MIU-4 82.50~88.65mabh	5.5	0.185 ± 0.006	294± 3
2000/7/24	MIU-4 82.50~88.65mabh	0.18	0.191 ± 0.011	296± 3
2000/8/13	MIU-4 95.02~134.47mabh	4.2	n.d.	n.d.
2000/8/13	MIU-4 95.02~134.47mabh	5.6	n.d.	n.d.
2000/8/13	MIU-4 95.02~134.47mabh	1.9	n.d.	n.d.
2000/12/2	MIU-4 314.95~316.95mabh	n.d.	n.d.	n.d.
2000/12/2	MIU-4 314.95~316.95mabh	0.61	0.186 ± 0.002	292± 3
2000/12/2	MIU-4 314.95~316.95mabh	0.37	0.188 ± 0.005	293± 3

<sup>#</sup>: 誤差(1σ)

<sup>¶</sup>: 測定せず

表 16 岩石試料の化学分析結果

孔名	TH-6	TH-6	TH-6	TH-6	DH-3	DH-3	DH-3	DH-3	DH-3	DH-3	JG1-a
深度(m)	104.9	132.5	153.4	177.0	206.0	297.0	510.6	714.7	795.5	843.1	
地層 <sup>#</sup>	A	TU	TL	G	G	G	G	G	G	G	
SiO <sub>2</sub> (%)	62.41	68.64	51.88	75.12	77.65	74.33	74.57	76.13	75.39	75.99	72.43
TiO <sub>2</sub> (%)	0.75	0.54	0.99	0.17	0.04	0.09	0.11	0.04	0.09	0.11	0.24
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	16.16	17.47	15.67	13.29	12.27	12.94	13.44	12.98	13.05	13.12	14.22
MnO (%)	0.07	0.02	0.07	0.04	0.01	0.04	0.05	0.03	0.05	0.06	0.06
MgO (%)	1.15	0.61	3.30	0.23	0.10	0.24	0.29	0.10	0.22	0.27	0.69
CaO (%)	3.57	1.34	4.34	0.93	0.63	1.18	0.88	0.87	0.93	1.31	2.10
Na <sub>2</sub> O (%)	2.51	2.26	1.77	3.19	3.36	2.75	3.23	3.51	3.10	3.47	3.42
K <sub>2</sub> O (%)	1.52	3.47	2.12	4.83	4.31	5.12	4.76	4.99	5.04	3.69	4.01
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> (%)	0.11	0.02	0.15	0.02	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	0.02	n.d.
Total Fe (%)	4.01	1.11	3.90	1.33	0.51	0.98	1.20	0.60	0.95	1.18	1.39
Li (ppm)	23	39	34	43	55	54	54	51	64	76	85
B (ppm)	74	70	53	10	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	4	3
Sm (ppm)	7.1	5.3	4.9	4.3	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	5.6	4.4
Gd (ppm)	5.8	4.9	4.9	3.9	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	6.5	4.2
U (ppm)	1.92	5.72	26.0	6.14	2.95	3.90	4.06	6.93	6.71	4.16	4.60
Th (ppm)	19.6	38.9	29.3	34.2	20.1	21.5	16.3	18.3	31.3	21.4	11.8

<sup>#</sup>: A: 明世累層、TU: 土岐夾炭累層上部層、TL: 土岐夾炭累層下部層、G: 土岐花崗岩

表 17 DH-12、-13 号孔より採取した岩芯試料の Li 分析結果

孔名	深度(m)	Li 濃度(ppm)
DH-12	181.00~181.30	38
DH-12	301.50~301.30	61
DH-12	369.80~370.10	61
DH-12	406.50~406.75	66
DH-12	450.00~450.50	53
DH-13	111.00~111.35	35
DH-13	181.50~181.95	47
DH-13	260.00~260.30	55
DH-13	389.70~390.00	47
DH-13	442.68~443.00	42



## 6 岩石から発生するヘリウム原子数・同位体比の推定

岩石中から単位時間あたりに発生するヘリウム原子数・同位体比を(1)～(6)式を用いて計算した。ここで、各元素の中性子捕獲断面積は Andrews and Kay (1982)に従っている。その結果を表18に示す。JG-1aの実測値と推奨値から計算した $^4\text{He}$ 発生量・ヘリウム同位体比の違いから考えられる誤差は、それぞれ約10%・約2%といえる。

発生する $^4\text{He}$ 原子数は明世累層と土岐夾炭累層下部層では、6倍以上の違いがある。(1)式から分かるように、 $^4\text{He}$ 発生量はおもに岩石中のU濃度に依存する。土岐夾炭累層中にはウラン鉱床が形成されているため、局所的にU濃度が高く、その部分での $^4\text{He}$ 発生量はさらに多いものと予想できる。 $^4\text{He}$ 発生量に比べて、発生するヘリウムの同位体比は比較的一定である。堆積岩においては $1.3\sim 1.9 \times 10^{-8}$ と一般的に見積もられている放射壊変起源成分と一致している。TH-6号孔周辺の土岐花崗岩から発生するヘリウム同位体比もこれに近い。DH-3号孔の岩芯試料を用いて計算した土岐花崗岩の $^4\text{He}$ 発生量は、TH-6号孔試料を用いて計算した値と良く一致している。また、DH-8号孔の岩芯試料のU・Th濃度の深度による変動も少なく、DH-3号孔試料のU・Th濃度ともほぼ一致している。したがって、土岐花崗岩から発生する $^4\text{He}$ 量は空間的にほぼ一様であるといえる。

表 18 岩石より発生するヘリウムの生成速度及び、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比

地層	採取地点	$^4\text{He}$ 生成速度 (atoms · g <sup>-1</sup> · y <sup>-1</sup> )	$^3\text{He}/^4\text{He}$ 生成比
明世累層	TH-6,104.9m	$1.30 \times 10^7$	$1.29 \times 10^{-8}$
土岐夾炭累層上部層	TH-6,132.5m	$7.69 \times 10^7$	$1.86 \times 10^{-8}$
土岐夾炭累層下部層	TH-6,153.4m	$8.17 \times 10^7$	$1.59 \times 10^{-8}$
土岐花崗岩	TH-6,177.0m	$5.01 \times 10^7$	$2.25 \times 10^{-8}$
:	DH-3,206.0m	$2.51 \times 10^7$	$3.14 \times 10^{-8}$
:	DH-3,297.0m	$2.92 \times 10^7$	$2.92 \times 10^{-8}$
:	DH-3,510.6m	$2.56 \times 10^7$	$3.00 \times 10^{-8}$
:	DH-3,714.7m	$3.65 \times 10^7$	$2.79 \times 10^{-8}$
:	DH-3,795.5m	$4.58 \times 10^7$	$3.54 \times 10^{-8}$
:	DH-3,843.1m	$4.47 \times 10^7$	$3.78 \times 10^{-8}$
上部地殻 (Torgersen and Clarke, 1987)		$1.7 \times 10^7$	$3.9 \times 10^{-8}$

## 7 東濃地域の地下水中の希ガスの起源について

5.1.2 及び, 5.1.3 章で述べたように, 東濃地域の地下水中のネオン・アルゴン同位体比に変動は見られなかった。

岩石中の  $^{21}\text{Ne}$  の生成速度 [ $J(^{21}\text{Ne})$ ] は,

$$J(^{21}\text{Ne}) = 6.7 \times 10^{-21} \cdot [\text{U}] \cdot \{1 + 0.123 ([\text{Th}] / [\text{U}] - 4)\} \quad (\text{ccSTP} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}) \quad (21)$$

で表される (Craig and Lupton, 1976)。岩石中の U・Th 濃度として, 土岐花崗岩の典型値 (U: 5ppm, Th: 25ppm) を用いると, 東濃地域の岩石中の  $^{21}\text{Ne}$  の生成速度は,  $3.8 \times 10^{-20}$  ccSTP/g y となる。地下水の滞留時間を t (年) とした場合, t 年間に地下水中に蓄積される  $^{21}\text{Ne}$  は, Andrews and Lee (1979) の He 蓄積の式と同様に,

$$^{21}\text{Ne} = t \cdot \Lambda_{\text{Ne}} \cdot J(^{21}\text{Ne}) \cdot \rho_{\text{R}} / \rho_{\text{w}} \cdot (1 - \phi) / \phi \quad (22)$$

$\Lambda_{\text{Ne}}$ : 岩石から発生した Ne が地下水中に放出される割合

$\rho_{\text{R}}, \rho_{\text{w}}$ : 岩石・水の密度 ( $\text{g cm}^{-3}$ )

で表される。岩石の空隙率  $\phi$  に土岐花崗岩の空隙率 0.8% を, 地下水滞留時間にこの付近の地下水の年代 (14,000 年; Iwatsuki et al., 2000) を用いると, 発生したネオンすべてが地下水中に放出された場合 ( $\Lambda_{\text{Ne}}=1$ ) でも, 地下水中に蓄積される  $^{21}\text{Ne}$  は  $2 \times 10^{-13}$  ccSTP/gH<sub>2</sub>O となる。この値は, 大気と平衡にある水, すなわち涵養時に地下水に含まれる  $^{21}\text{Ne}$  の約 0.04% である。堆積岩の場合  $J(^{21}\text{Ne})$  に大きな変化はないが, 空隙率が大きいので, 地下水中に蓄積される  $^{21}\text{Ne}$  は少ない。つまり, 東濃地域の地下水において, 岩石から発生する成分によるネオン同位体の変動が見られないことは妥当の結果である。

次に,  $^{40}\text{K}$  の  $\beta$  壊変による  $^{40}\text{Ar}$  の地下水への付加による変動について考える。花崗岩中の  $\text{K}_2\text{O}$  の濃度を 5% とした場合, 岩石中の  $^{40}\text{Ar}$  の生成速度 [ $J(^{40}\text{Ar})$ ] は,  $^{40}\text{K}$  の壊変定数  $5.55 \times 10^{-10}$  ( $\text{y}^{-1}$ ) に基づいて計算すると,  $1.55 \times 10^{-13}$  ccSTP g y<sup>-1</sup> となる。上記のネオンの場合と同様に, 地下水滞留中に周囲の岩石から発生した  $^{40}\text{Ar}$  がすべて地下水中に溶け込んだと仮定すると, 東濃地域の地下水中に蓄積される  $^{40}\text{Ar}$  は  $8 \times 10^{-7}$  ccSTP/gH<sub>2</sub>O となる。涵養時に地下水に含まれる  $^{40}\text{Ar}$  は  $3 \sim 4 \times 10^{-4}$  ccSTP/gH<sub>2</sub>O である。したがって, 滞水層で発生した  $^{40}\text{K}$  起源の Ar によるアルゴン同位体の変動が見られないことは妥当の結果である。

ネオン, アルゴン同位体比とは異なり, ヘリウム同位体比は 1 桁以上の変動が見られた。2 章で述べたように, 溶存ヘリウムの起源は基本的に 3 成分が考えられる。各成分の  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比・ $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  比の違いを利用し, 今回分析した東濃地域の地下水中のヘリウムの起源を推定した。図 12・図 13 は, それぞれ堆積岩及び, 花崗岩中の地下水における  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比と  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  比の関係を見たものである。図中, 実線は大気成分とマントル成分及び, 大気成分と放射壊変成分の混合ラインを示す。

堆積岩中及び, DH-3, -13, MIU-4 号孔より採取した花崗岩中の地下水は, 大気成分付近かあるいは大気成分と放射壊変成分の混合ライン付近に位置する。2.1 章の 3 成分のヘリウム同位体比・He/Ne 比から, 地下水の各成分の混合比割合を見積もったところ, マントル成分の混合比率は, ほとんどが  $\pm 1\%$  であり無視できる程度であるといえる。つまり, 東濃鉾山周辺の堆積岩地下水は, 涵養時に含んでいた大気成分の希ガスに加え, 流動中に放射壊変成分を溶解することにより上記の結果が得られたといえる。

岩芯試料の化学分析より推測した, 岩石から得られるヘリウム同位体比は  $1.3 \sim 3.8 \times 10^{-8}$  であり, この

値は, Torgersen and Clarke (1987)が見積もった上部地殻から発生するヘリウム同位体比とよく一致している。したがって, 地下水に蓄積されているヘリウムが, 原位置で発生したヘリウムに由来するものかあるいは, 地殻深部より上昇してきたものであるかはヘリウム同位体比のみでは分からない。

DH-12号孔より得られた地下水はいずれも, この混合ラインよりも明らかに上にプロットされる。DH-12号孔の地下水を, 端成分が大気成分の単純な2成分の混合であるとする, もう一つの端成分は $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が $3\sim 5 \times 10^{-7}$ となる。DH-12号孔岩芯試料のLi分析(5試料)では, Li濃度は, 38~66ppmとなった。このデータからは, 岩石から発生する $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が $3\sim 5 \times 10^{-7}$ とはなりえない。DH-12号孔の地下水中のヘリウムの起源としてほかの成分を考える必要がある。

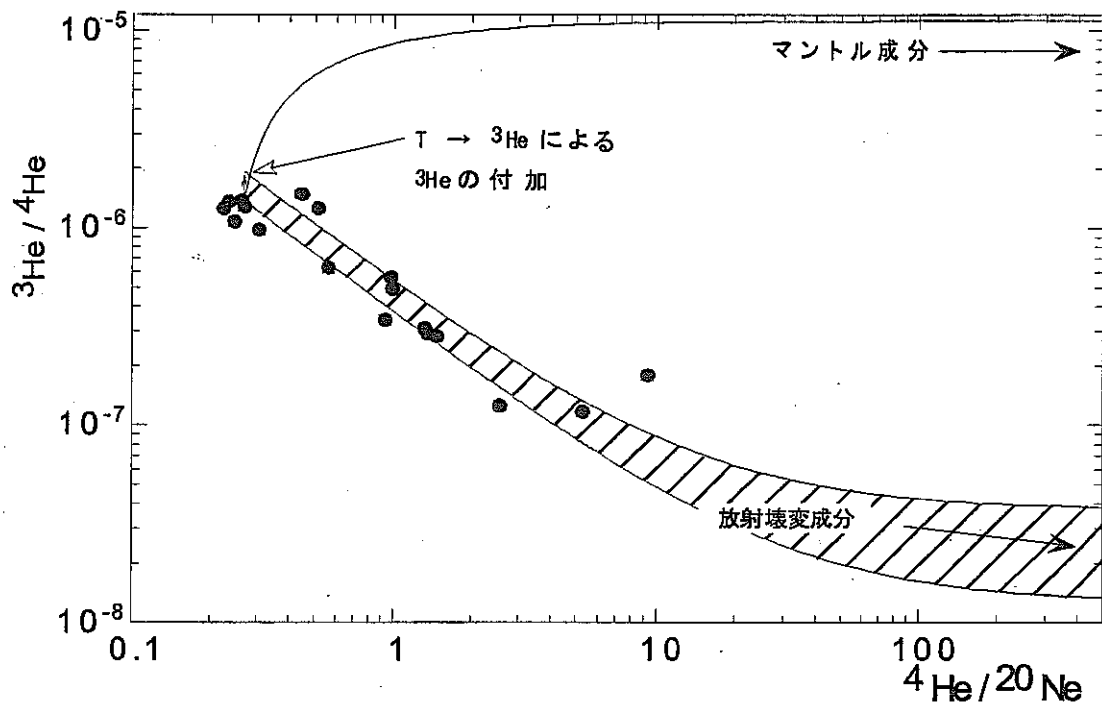


図 1 2 東濃鉦山周辺より採取した地下水試料の ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 比と ${}^4\text{He}/{}^{20}\text{Ne}$ 比の関係

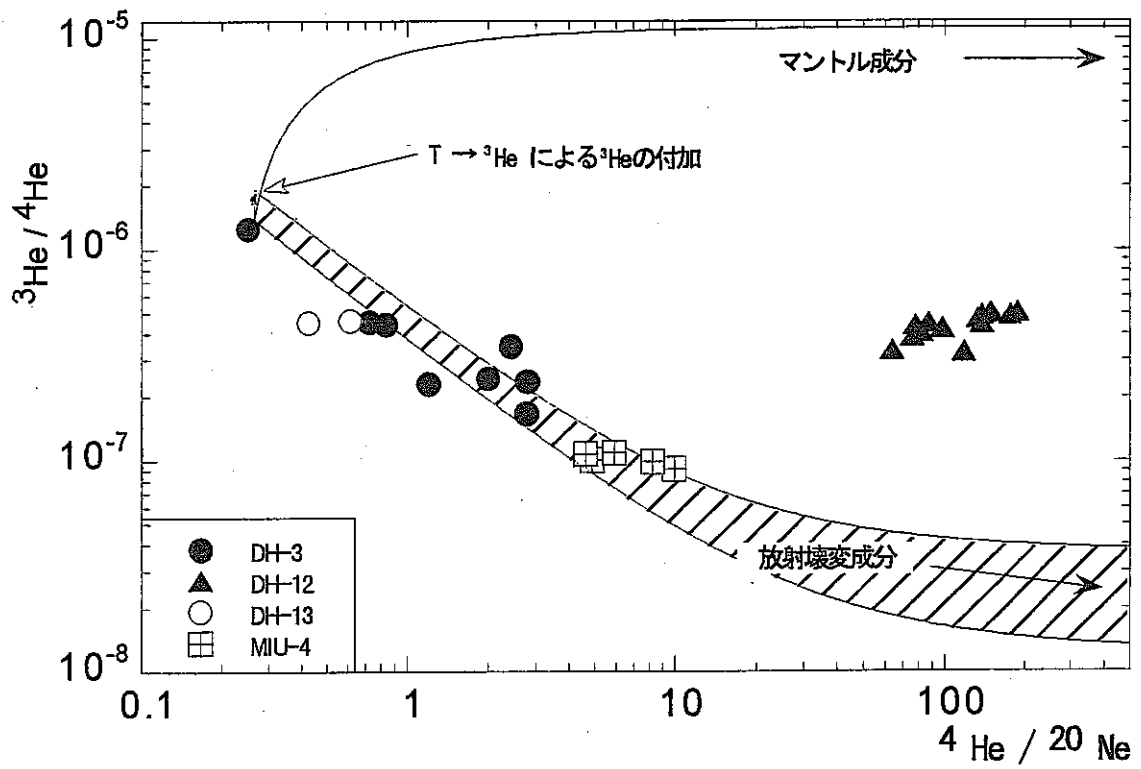


図 1 3 花崗岩より採取した地下水試料の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比の関係

## 8 ヘリウムフラックス

2章で述べた2つのモデルを用いて、今回測定した地下水試料のヘリウムデータから、東濃地域のヘリウムフラックスを見積もった。なお、溶存ガスの抽出率・(溶存ガス起源の)気泡の量の違いを補正するため、ヘリウム濃度の値は、以下の方法で計算した値を使っている。

$$C_{He} = \left[ {}^4He \right]_{det} \cdot \frac{1.83 \times 10^{-7}}{\left[ {}^{20}Ne \right]_{det}} \quad (\text{ccSTP} / \text{gH}_2\text{O}) \quad (23)$$

$C_{He}$  :  ${}^4\text{He}$  補正濃度(ccSTP/gH<sub>2</sub>O)

$[{}^4\text{He}]_{det}$  :  ${}^4\text{He}$  実測値 (ccSTP/gH<sub>2</sub>O)

$[{}^{20}\text{Ne}]_{det}$  :  ${}^{20}\text{Ne}$  実測値 (ccSTP/gH<sub>2</sub>O)

なお、ここで、 $1.83 \times 10^{-7}$  は 10°Cの大気と平衡にある蒸留水中の  ${}^{20}\text{Ne}$  の濃度である。つまりこの補正式は、ネオンの実測値と理論値から、抽出率あるいは、気泡の濃縮率を見積もり、ヘリウム・ネオンの抽出・濃縮率を同じと仮定したうえで、 ${}^4\text{He}$  実測値をネオンで規格化したものである。

### 8.1 ${}^4\text{He}$ 濃度の深度プロファイルによるヘリウムフラックスの見積もり

2.4章の式(6)式において、堆積岩の空隙率を 0.49(Hirahara et al., 1999)、拡散係数を  $6 \times 10^{-5}$  (Jähne et al., 1987)として、TH-3・-4・-6及び、AN-6号孔についてヘリウムフラックスを計算した。

TH-3・-4・-6号孔においては堆積岩最上部と最下部の地点でのヘリウム濃度差を  $\Delta C_{He}$ 、深度差を  $\Delta z$  にとった。また、AN-6号孔においては、14.0m 地点で顕著な大気の混入が考えられるため、34.0mと50.0mの地点のデータを採用した。

計算の結果、TH-3・-4・-6及び、AN-6号孔のデータに基づいて計算したヘリウムフラックスはそれぞれ、 $1.8 \times 10^{-7}$ ・ $8.7 \times 10^{-8}$ ・ $1.1 \times 10^{-8}$ ・ $6.1 \times 10^{-8}$  (ccSTP cm<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>)となった。

### 8.2 地下水年代及び、地下水溶存ヘリウム濃度によるヘリウムフラックスの見積もり

2.4章の式(7)式において、 $[He]_{ex}$  はヘリウム濃度補正值から 10°Cの大気と平衡にある蒸留水中のヘリウム濃度 ( $4.65 \times 10^{-8}$  ccSTP/gH<sub>2</sub>O)を差し引いた値、堆積岩の空隙率に0.49(Hirahara et al., 1999)、地下水年代として  ${}^{14}\text{C}$  年代(Iwatsuki et al., 2001)を採用した。

また、滞水層の厚さについては、それぞれの試錐孔の柱状図より見積もった。土岐夾炭累層下部層中には、低透水層が存在し、低透水層を境に地下水の滞留系が分かれていることが指摘されている(Yusa et al., 1993)ため、低透水層上部については、生俣累層シルト岩下部(TH-6のみ)あるいは、明世累層上部から土岐夾炭累層下部層の凝灰質岩濃縮部までの距離約 70~100mを滞水層の厚さとした。低透水層下部については、土岐夾炭累層下部層の凝灰質岩濃縮部から土岐花崗岩との境目までの約 30mを滞水層の厚さとした。

図14は、上の仮定に基づき計算した  $[He]_{ex} \times \phi \times h$  (ccSTP/cm<sup>2</sup>)を縦軸に、 ${}^{14}\text{C}$  年代を横軸にとったものである。原点と各データポイントを結んだ傾きがヘリウムフラックス(F)となるが、結果は図14のようにばらついた。図14中の3つの直線は、TH-3号孔の土岐夾炭累層、TH-6号孔の2ポイント及び、そのほ

かのデータポイントから得られた回帰直線である。それぞれの直線の傾きは、ヘリウムフラックスとして、それぞれ、 $5.9 \times 10^{-7}$ ・ $1.1 \times 10^{-7}$ ・ $1.6 \times 10^{-8}$  (ccSTPcm<sup>-2</sup>y<sup>-1</sup>)に相当する。

### 8.3 ヘリウムフラックス計算値の評価

今回用いた2つのモデルによるヘリウムフラックス計算値は、ヘリウムの拡散係数、年代の不確定性、試錐孔ごとの深度プロファイルの違いなどにより、大きな不確定性を持っていると考えられる。TH-3号孔の土岐夾炭累層下部層より採取した地下水は、比較的若い地下水との混合が示唆されている(Iwatsuki et al., 2001)。<sup>14</sup>C年代はこの影響を受け、相対的に若い年代を与えているとすれば、図14中のTH-3、124.0mのデータポイントは本来よりも左にずれ、見かけ上高いヘリウムフラックス値を与えている可能性がある。

ヘリウムフラックス値は、天然ガス中のHe濃度、地下水中のヘリウム濃度など実測値からの推定が世界各地で行われたり、大気中のヘリウム濃度からのモデル計算値なども提出されている。モデル計算値や気体試料の実測値( $3 \times 10^{-6}$  ccSTP/cm<sup>2</sup>/y)に比べて、今回の値は1~2桁低い値となっている。しかし、近年になって、地下水中のヘリウム濃度からフラックスを計算する試みが多くなされており、それらの値と本研究の値は大きく違っていない( $0.8 \sim 5.5 \times 10^{-7}$  — Stute et al., 1992;  $0.3 \times 10^{-7}$  — Takahata and Sano, 2000)。

Stute et al. (1992)はGreat Hungarian Plainにおいてヘリウムフラックスが低い原因として、この地域の上部地殻が比較的若い(<65my)ため、ヘリウムのフラックスがまだ定常状態に達していないことを挙げている。彼らの計算によると、地殻深部からのヘリウムフラックスの蓄積は2000m以浅からのものであり、それ以深の地殻からのフラックスは第三紀の層に遮蔽されていることになる。東濃地域においても、基盤岩となる土岐花崗岩の年代(70Ma)から考えて同様のことが考えられる。Takahata and Sano (2000)はヘリウムフラックス値の低さを、滞水層上部からのヘリウムの散逸によるものであると推測している。したがって、得られた値を下限値として扱っている。

ヘリウムフラックスの地域間での違い、地下水の分析値からのフラックスの見積もりに関しては、現在でも統一した見解はない。地下水中のヘリウム濃度から、地下水年代の推定を行う場合、ヘリウムフラックスを正確に見積もることは不可欠であり、今後より深い検討を行う必要がある。



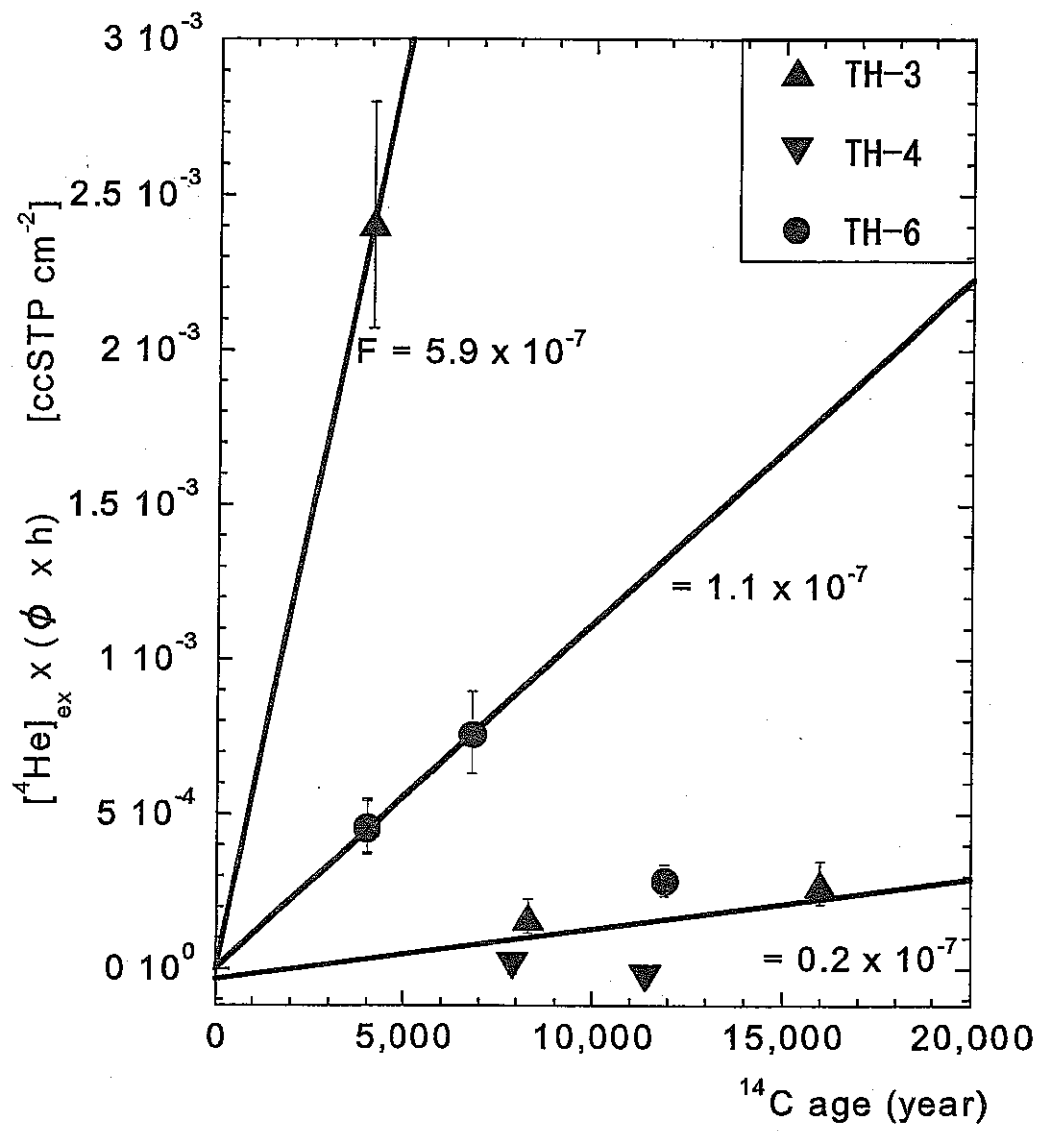


図 14  $^{14}\text{C}$  年代及び、溶存ヘリウム濃度によるヘリウムフラックス計算結果

## 9 地下水流動解析への適用について

今回得られた地下水のヘリウムの深度プロファイルとヘリウムフラックスを用いて簡単に地下水流動解析への適用例を示す。

Stute et al. (1992)は2.4章の式(9~12)を使って、涵養域から流出域に至るまでの領域における、地下水中のヘリウム濃度の深度プロファイルのコンピュータシミュレーションを行った。その結果、涵養域においては、深度とともに、ヘリウム濃度が増加し、流出域においては、深度によるヘリウム濃度の違いはあまり見られない。また、同一深度において涵養域と流出域でのヘリウム濃度を比べると数桁の違いが見られている(Stute et al., 1992 中の Fig. 7)。ヘリウムフラックス値、涵養域と流出域間の距離の設定、岩石の空隙率など東濃地域のデータを用いて計算し直す必要があるが、Stute et al. (1992)は、各パラメータを10倍程度変えても基本的な特徴は変わらないとしている。Stute et al. (1992)の結果とDH-3・-12・-13及び、MIU-4号孔より得られたヘリウム濃度の深度プロファイルとを比較すると、DH-12は流出域のプロファイル付近、MIU-4は涵養域と流出域の中間付近、DH-3・-13が涵養域のプロファイル付近にプロットされる。また、ヘリウム濃度の深度プロファイルもモデルと良く一致している(図15)。3次元有限要素法による定常飽和—不飽和浸透流解析の結果、東濃鉾山周辺の地下水は東濃鉾山の北部を通る東西方向の尾根線の南側を涵養域とし、土岐川を流出域としている結果となっている(三枝他, 1998)。この解析結果によれば、DH-13は涵養域、DH-12は流出域に位置する。ヘリウムの結果は、この解析結果と一致している。

今後より詳細なヘリウム濃度のプロファイルと東濃地域のデータを用いたヘリウム濃度の深度プロファイルのシミュレーションを行うことによって、これを検証する必要があるであろう。

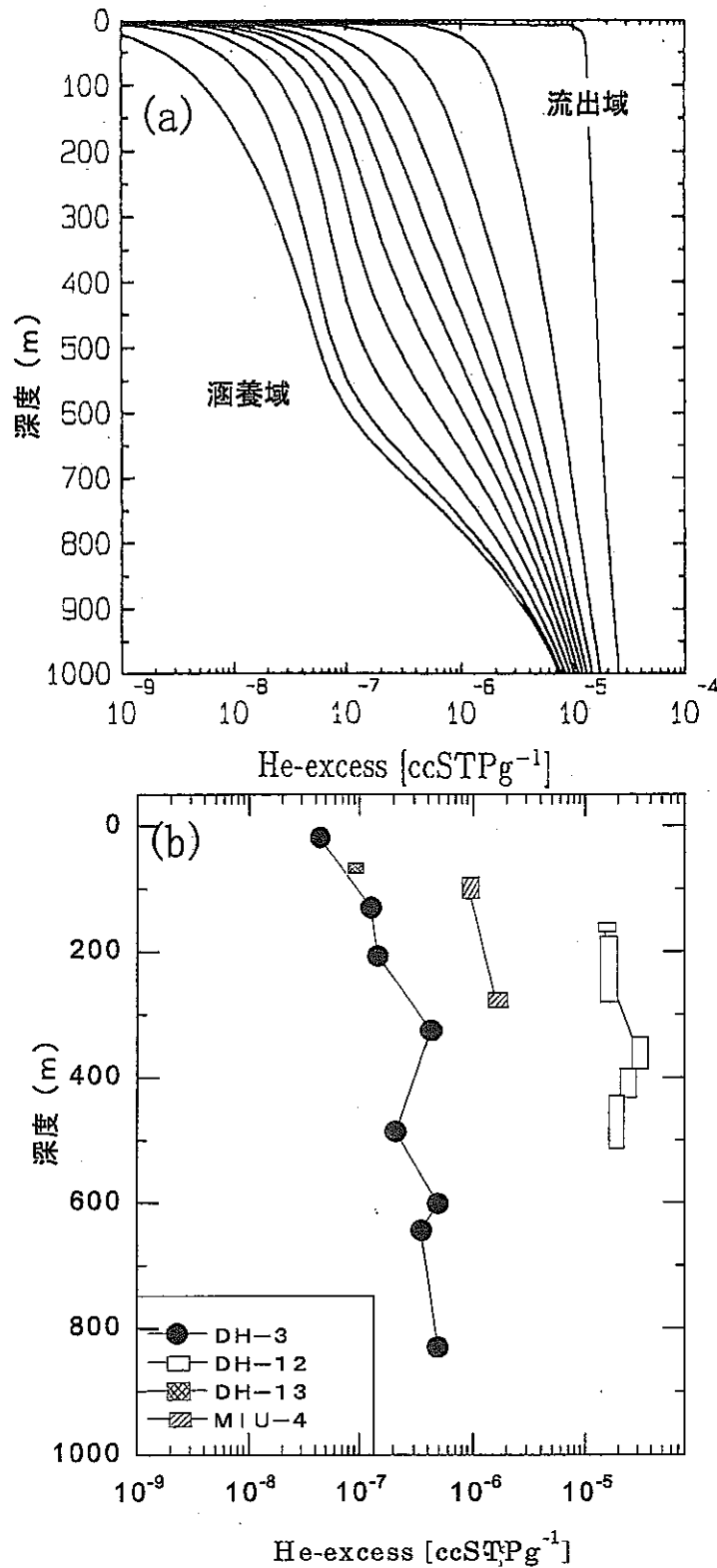


図15 Stute et al. (1992)によるTwo-dimensional helium transport modelのシミュレーション結果(a)と、東濃地域の花崗岩より採取した地下水試料の過剰<sup>4</sup>He濃度の深度プロファイル(b)との比較

## 10. まとめ

岐阜県東濃地域の地下水について、希ガスの定量・同位体分析を行った。分析結果は主に以下のとおりである。

(1) 東濃地域の地下水中のヘリウム同位体比は、大気と平衡にある水よりも低い。堆積岩中の地下水においては、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比が深度と共に急激に低くなる傾向にある。花崗岩中の地下水においては、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比が深度とともに緩やかに低くなっているかあるいは、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は深度によらずほぼ一定となった。

(2) 東濃地域の地下水中のネオン・アルゴン同位体比は、大気と平衡にある水からの変動はない。東濃地域の地下水の年代と岩石からのネオン・アルゴンの生成速度から考えると、この結果は妥当であるといえる。

(3) 岩石の化学組成から、原位置で発生するヘリウムの同位体比( $^3\text{He}/^4\text{He}$ )は、堆積岩においては  $1.3 \sim 1.9 \times 10^{-8}$ 、花崗岩においては  $2.3 \sim 3.8 \times 10^{-8}$  となった。ヘリウム同位体比の低下は、地下水流動中にこれらの成分を付加することによって説明できる。しかし、DH-12号孔より採取した試料はどれも、これに加えて、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比の高い成分を考慮する必要がある。

(4) ヘリウムフラックスは、 $0.02 \sim 0.59 \times 10^{-6}$  ccSTP/gH<sub>2</sub>O の範囲と見積もることができた。

(5) 花崗岩中の地下水のヘリウム濃度の深度プロファイルは、東濃鉾山周辺の地下水が、東濃鉾山の北部を通る尾根線を涵養域とし土岐川を流出域として考えた場合にえられると思われるシミュレーション結果とよく一致することが分かった。

## 引用文献

- L.T.Aldrich and A.O.Nier. : "The occurrence of  $^3\text{He}$  in natural source of helium", *Phy. Rev.*, 71, p. 1590-1594 (1948).
- J.N.Andrews. : "The isotopic composition of radiogenic helium and its use to study groundwater movement in confined aquifers", *Chem. Geol.*, 49, p. 339-351 (1985).
- J.N.Andrews and R.L.F.Kay. : "Natural production of tritium in permeable rocks", *Nature*, 298, p. 361-363 (1982).
- J.N.Andrews and D.J.Lee. : "Inert gases in groundwater from the Bunter sandstone of England as indicators of age and palaeoclimatic", *J. Hydrol.*, 41, p. 233-252 (1979).
- J.N.Andrews, I.S.Giles, et al. : "Radioelements, radiogenic helium and age relationships for groundwaters from the granites at Stripa, Sweden", *Geochim. Cosmochim. Acta*, 46, p. 1533-1543 (1982).
- J.N.Andrews, J.E.Goldbrunner, et al. : "A radiochemical, hydrochemical and dissolved gas study of groundwaters in the Molasse basin of Upper Austria", *Earth Planet. Sci. Lett.*, 73, p. 317-332 (1985).
- R.O.Barnes and R.H.Bieri. : "Helium flux through marine sediments of the northwest pacific ocean", *Earth Planet. Sci. Lett.*, 28, p. 331-336 (1976).
- B.B.Benson and D.Krause. : "Isotopic fractionation of helium during solution: A probe for the liquid state", *J. Sol. Chem.*, 9, p. 895-909 (1980).
- D.J.Bottomley, J.D.Ross, et al. : "Helium and neon isotope geochemistry of some ground waters from the Canadian Precambrian Shield", *Geochim. Cosmochim. Acta*, 48, p. 1973-1985 (1984).
- H.Craig and J.E.Lupton. : "Primordial neon, helium and hydrogen in oceanic basalts", *Earth Planet. Sci. Lett.*, 31, p. 369-385 (1976).
- P.Eberhardt, O.Eugster, et al. : "A redetermination of the isotopic composition of atmospheric neon." *Zeitschrift für Naturforschung*, 20a, p. 623-624 (1965).
- Y.Feige, B.G.Oltman, et al. : "Production rates of neutrons in soils due to natural radioactivity", *J. Geophys. Res.*, 73, p. 3135-3142 (1968).
- N.Hirahara, T.Ishihara, et al. : "In-situ experiment on effect of excavation method on excavation disturbance at the Tono mine in Japan", *The 7th international conference proceedings on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation (ICEM'99)*, 26-30 Aug. 1999, Nagoya, Japan, CD-ROM (1999).
- T.Iwatsuki, S.Xu, et al. : "Estimation of relative groundwater age in the granite at the Tono research site, central Japan", *Nucl. Inst. Methods Phys. Res. B* 172, p. 524-529 (2000).
- T.Iwatsuki, S.Xu, et al. : "Carbon-14 study of groundwater in the sedimentary rocks at the Tono study site, central Japan", *Appl. Geochem.* (in press) (2001).
- B.Jähne, G.Heinz, et al. : "Measurement of the diffusion coefficients of sparingly soluble gases in water", *J. Geophys. Res.*, 92, p. 10767-10776 (1987).
- B. M.Kennedy, H.Hiyagon, et al. : "Crustal neon: a striking uniformity", *Earth Planet. Sc. Lett.*, 98, p. 277-286 (1990).

- G.Kocharts. : "Helium in the terrestrial atmosphere", *Space Sci. Reviews*, 14, p. 723-757 (1973).
- B.A.Mamyrin, G.S.Anufriyev, et al. : "Determination of the isotopic composition of atmospheric helium." *Geochem. Int.* 7, p. 498-505 (1950).
- A.O.Nier : "A redetermination of the relative abundances of the isotopes of carbon, nitrogen, oxygen, argon and potassium." *Phy. Rev.* 77, p. 789-793 (1950).
- K.Osenbrück, J.Lippmann, et al. : "Dating very old pore waters in impermeable rocks by noble gas isotopes", *Geochim. Cosmochim. Acta*, 62, p. 3041-3045 (1998).
- J.Rudolph, H.K.Rath, et al. : "Noble gases and stable isotopes in  $^{14}\text{C}$ -dated palaeowaters from central Europe and the Sahara", In *isotope Hydrology 1983*, p. 467-477. IAEA, Vienna, 1984 (1984).
- 三枝博光, 稲葉秀雄 他 : "東濃地域を対象とした広域地下水流動解析", *動燃技術資料 TN 7410* 98-004 (1998).
- Y.Sano and H.Wakita. : "Geographical distribution of  $^3\text{He}/^4\text{He}$  ratios in Japan: Implications for Arc tectonics and incipient magmatism", *J. Geophys. Res.*, 90, p.8729-8741 (1985).
- R.H.Steiger and E.Jäger. : "Subcommission of Geochronology: Convection on the use of decay constants in geo- and cosmochronology." *Earth Planet. Sci. Lett.*, 36, p. 359-362 (1977).
- M.Stute, C.Sonntag et al. : "Helium in deep circulating groundwater in the Great Hungarian Plain: Flow dynamics and crustal and mantle helium fluxes", *Geochim. Cosmochim. Acta*, 56, p. 2051-2067 (1992).
- N.Takahata and Y.Sano : "Helium flux from a sedimentary basin", *Appl. Radiat. Isotopes*, 52, p. 985-992 (2000).
- T.Torgersen. : "Controls on porefluid concentration of  $^4\text{He}$  and  $^{222}\text{Rn}$  and the calculations of  $^4\text{He}/^{222}\text{Rn}$  ages", *J. Geochem. Explor.*, 13, p. 57-75 (1980).
- T.Torgersen. : "Terrestrial helium degassing fluxes and the atmospheric helium budget: Implications with respect to the degassing processes of continental crust", *Chem. Geol.*, 79, p. 1-14 (1989).
- T.Torgersen and W.B.Clarke. : "Helium accumulation in groundwater, III. Limits on helium transfer across the mantle-crust boundary beneath Australia and the magnitude of mantle degassing", *Earth Planet. Sci. Lett.*, 84, p. 345-355 (1987).
- T.Torgersen, B.M.Kennedy, et al. : "Argon accumulation and the crustal degassing flux of  $^{40}\text{Ar}$  in the Great Artesian Basin, Australia", *Earth Planet. Sci. Lett.*, 92, p. 43-56 (1989).
- G.W.Wetherill. : "Variations in the isotopic abundances of neon and argon extracted from radioactive minerals", *Phys. Rev.*, 96, p. 679-683 (1954).
- Y.Yusa, K.Ishimaru, et al. : "Geological and geochemical indicators of paleohydrology in Tono area uranium deposits, Japan", In *Paleohydrogeological methods and their application*", Proc. NEA Workshop, OECD Paris, p. 117-146 (1993).