

JNC TY7400 2004-001

ストロンチウム同位体比及び希ガスを用いた  
地球化学的研究手法の確立  
(公募型研究に関わる共同研究報告書)

2004年3月

東京大学

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

電話：029-282-1122（代表）

ファックス：029-282-7980

電子メール：[jserv@jnc.go.jp](mailto:jserv@jnc.go.jp)

Inquires about copyright and reproduction should be addressed to:

Technical Cooperation Section,

Technology Management Division,

Japan Nuclear Cycle Development Institute

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184, Japan

核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute) 2004

## 核燃料サイクル公募型研究

## 「ストロンチウム同位体比及び希ガスを用いた地球化学的研究手法の確立」

東京大学大学院理学系研究科 長尾 敬介

## 要 旨

地下水中に含まれる極微量の希ガス及び Sr の同位体比を正確に測定することにより、地下水の流動状態や起源の解析が可能である。この地球化学的手法の適用可能性評価とマニュアル化を目的として、岐阜県東濃地域と北海道幌延地域のボーリング孔から地下水を採取し、希ガス同位体と Sr 同位体比を測定した。また、地下水中の希ガスおよび Sr の端成分を調べるため、東濃地域のボーリングコア中の希ガスや Sr を測定した。

希ガス同位体分析については、改良した採取方法やガス抽出装置を用いて試料を分析し、精度の向上を図った。その結果、東濃地域の地下水では、 $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  比が増加すると  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比が減少し、岩石中の He, Ne と大気起源 He, Ne との混合でよく説明できた。これは、岩石中の放射性同位体 (U や Th など) の壊変により生成した  $^4\text{He}$  の地下水へ溶解を示すものと考えられる。一方、東濃地域の調査領域南部の高砂温泉や DH-15 号孔及び北海道幌延地域の水試料では、この傾向とは異なり、深部に由来するマントル起源 He が寄与している可能性があることが分かった。

Sr 同位体比については、東濃地域の花崗岩では、0.7099~0.7201 と広範囲の値を示し、ばらつきが大きいことがわかった。一方、地下水中の  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  同位体比は 0.7104~0.7123 と岩石に比べ狭い範囲の値を示し、地下水中の  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  同位体比と花崗岩中の  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  同位体比の平均値の差は、深度が増すにつれて値が小さくなる。この結果は、地下水と岩石の反応の進行にともない、地下水中の  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  同位体比が、岩石中のそれに近づいていく過程であると解釈できる。このことから、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  同位体比を、地下水と岩石あわせて分析することにより、ある領域内の地下水流動状態を推定できる可能性がある。また、地下水の  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  同位体比は、割れ目充填鉱物である方解石の値とほぼ一致した。加えて、室内での岩石-水反応試験から、岩石-水間の Sr 同位体交換反応は速く、特に方解石との反応が速いことが分かった。

本研究の結果から、希ガス同位体及び Sr 同位体は地下水流動解析に有効な元素であるが、天然系への適応の際には、方解石などの有無の把握や他の地球化学的手法を組み入れることにより、より詳細な議論が可能と思われる。

# Development of geochemical monitoring methods by using Sr and noble gas isotopic compositions

Keisuke Nagao\*

## Abstract

Isotopic compositions of noble gases and Sr in groundwaters and rocks from Tono and Horonobe districts were analyzed to investigate the movement and origin of the groundwaters. At Tono,  $^3\text{He}/^4\text{He}$  ratios decrease with increasing of  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  ratios. This means that noble gases at Tono are a mixture of air and radiogenic He. In contrast, a Na-Cl type hot-spring (Takasago) and groundwater from well DH-15 at Tono and all wells from Horonobe show the different tendency. These groundwaters must be contributed by noble gas with deep origin.

Sr isotopic compositions of groundwater at Tono are far from those of rocks and close to those of carbonates in fractures, where the isotopic difference between groundwaters and rocks ( $\Delta^{87}\text{Sr}$ ) decrease with increasing depth. These results indicate that Sr isotopic compositions of groundwater are controlled by carbonate dissolution/precipitation. Experimental results of Sr isotopic compositions on water-rock interaction support the view.

In conclusion, noble gas and Sr isotopes are very useful tools to study water movements and to discuss their origins by combining other geochemical approaches.

---

\* Laboratory for Earthquake Chemistry, Graduate School of Science, University of Tokyo

## 目 次

1. はじめに.....	1
1.1. 研究の背景および目的 .....	1
1.2. 希ガス同位体比及び Sr 同位体比の概要.....	2
1.3. 研究対象地域の概要.....	5
2. 採取試料と採取方法 .....	11
2.1. 水試料.....	11
2.2. 岩石試料 .....	14
2.3. 割れ目充填鉱物 (CaCO <sub>3</sub> ) 試料.....	15
2.4. 岩石-水反応実験における水試料.....	15
3. 前処理方法と同位体分析法.....	17
3.1. 希ガス抽出法.....	17
3.2. 希ガス同位体分析法.....	20
3.3. Sr 抽出法・同位体分析法.....	22
4. 結果.....	22
4.1. 希ガス同位体比 .....	22
4.2. Sr 同位体組成.....	37
4.3. 岩石-水反応実験による Sr 同位体交換反応評価 .....	43
5. 考察.....	47
5.1. 希ガス同位体比 .....	47
5.2. Sr 同位体比.....	53
5.3. 希ガス及び Sr 同位体を用いた地球化学的研究手法のマニュアル化.....	57
6. まとめ .....	61
7. 参考文献.....	63

## 図 表 目 次

図 1	海水の Sr 同位体比変動 .....	4
図 2	東濃地域地下水の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比 と $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比 .....	6
図 3	地下水中の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比の深度分布 .....	6
図 4	Excess He と深度の関係 .....	7
図 5	北海道幌延地域の調査領域の概要 .....	8
図 6	幌延地域の地下水（地層水）と間隙水の化学組成 .....	9
図 7	幌延岩石の間隙水の水素・酸素同位体組成と深度の関係 .....	10
図 8	幌延岩石の間隙水の水素・酸素同位体組成 .....	10
図 9	東濃地域での地下水試料採取地点 .....	11
図 10	水試料採取用容器 .....	12
図 11	地下水試料採取風景 .....	12
図 12	幌延ガス採取用サンプラー .....	14
図 13	水試料からの希ガス抽出用ガラス製真空装置 .....	18
図 14	新規開発した水試料からの希ガス抽出用ステンレス製真空装置 .....	19
図 15	新規開発したステンレス製真空装置の全体写真 .....	20
図 16	希ガス抽出精製真空装置の概念図 .....	21
図 17	ガラス製精製装置で希ガスを抽出後の同位体比分析結果 .....	25
図 18	試料水中の He 量とガラス製ガス抽出装置のバックグラウンド .....	26
図 19	東濃地域の地下水試料中のガス濃度（上の図は他堆積岩地域の例） .....	27
図 20	ガラス製精製装置で希ガスを抽出後の同位体比分析結果 .....	31
図 21	東濃地域地下水中の希ガス同位体比（全データ） .....	32
図 22	東濃地域の地下水の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と深度との関係 .....	32
図 23	東濃地域の地下水の $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比と深度との関係 .....	33
図 24	ボーリングコア岩石の He, Ne 同位体測定値を端成分（Granite）とした mixing line .....	34
図 25	東濃地域花崗岩中の $^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ 比と $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ 比の関係 .....	34
図 26	東濃地域の花崗岩の放射起源 $^4\text{He}$ と $^{21}\text{Ne}$ との濃度の関係 .....	35
図 27	幌延地域の地下水の希ガス同位体比 .....	36
図 28	東濃地域の地下水・岩石・方解石の Sr 同位体比 .....	38
図 29	地下水の Sr 同位体比（左図）と Sr 濃度（右図） .....	39
図 30	DH-3,7,13 号孔の地下水・方解石の Sr 同位体比と深度の関係 .....	39
図 31	東濃地域の地下水と岩石の Sr 同位体比と深度の関係 .....	40
図 32	幌延地域の地下水・岩石の Sr 同位体比 .....	41
図 33	幌延地域の地下水（△）・岩石（○）の Sr 同位体比と深度との関係 .....	43

図 34	岩石-水反応実験による Sr 同位体比変化.....	45
図 35	岩石-水反応実験による, 反応水の化学組成変化.....	46
図 36	東濃・幌延地域の希ガス同位体比.....	48
図 37	東濃地域の希ガス同位体比.....	48
図 38	$^3\text{He}-^4\text{He}-^{20}\text{Ne}$ ダイアグラム.....	50
図 39	$^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比- $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比の関係.....	51
図 40	$^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比と深度との関係.....	51
図 41	$^4\text{He}-^{36}\text{Ar}-^{84}\text{Kr}$ の関係.....	52
図 42	$^4\text{He}-^{36}\text{Ar}-^{32}\text{Xe}$ の関係.....	53
図 43	東濃地域の岩石と地下水の Sr 同位体比の差 ( $\Delta$ ) (左) と Sr 濃度と深度との関係.....	54
図 44	東濃地下水中の Ca/Na 濃度比と深度の関係.....	55
図 45	幌延地域の岩石の Sr 同位体比.....	56
図 46	幌延地域の岩石の Rb/Sr 重量比と Sr 同位体比.....	57
図 47	方解石の溶解速度.....	59
図 48	希ガス同位体を用いた地下水理解析の地化学フロー.....	59
図 49	Sr 同位体を用いた地下水理解析のフロー.....	60
表 1	大気中の希ガス同位体比と存在量.....	2
表 2	大気と平衡に存在する水中の希ガス濃度.....	3
表 3	様々な物質の希ガス組成.....	3
表 4	割れ目充填鉱物試料.....	15
表 5	岩石-水間の Sr 同位体分配試験に使用した岩石.....	16
表 6	東濃地域の地下水中の希ガス同位体含有量.....	23
表 7	東濃地域の地下水の希ガス同位体比.....	24
表 8	ステンレス製精製装置のバックグラウンド測定結果.....	27
表 9	東濃・幌延地域の地下水中の希ガス同位体存在量.....	29
表 10	東濃・幌延地域の地下水中の希ガス同位体比.....	30
表 11	東濃地域の岩石中の希ガス量.....	33
表 12	東濃地域の岩石の希ガス同位体比.....	34
表 13	幌延地域の地下水試料.....	35
表 14	幌延地域の地下水の希ガス同位体比.....	36
表 15	東濃地域の地下水の Sr 同位体組成.....	37
表 16	東濃地域の岩石試料の Sr 同位体比.....	37
表 17	幌延地域の地下水の Sr 同位体比.....	41
表 18	幌延地域の岩石の Sr 同位体比.....	42

表 19	岩石-水反応実験による Sr 同位体比.....	44
表 20	DH-3 号孔における個々の物質の Sr 同位体比.....	46
表 21	岩石-水反応後の溶液の化学組成.....	47



## 1. はじめに

### 1.1. 研究の背景および目的

近年、元素の安定同位体の測定技術が向上し、精度の良いデータを得ることが可能となってきた。地層科学研究分野においても、岩石や地下水の同位体比を測定することにより、地下水の起源や地下水と岩石の反応様式など水質形成機構の推定が行われている。

Sr 同位体比 ( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ) については、その測定精度が向上した結果 Sr 同位体比が、軽い元素（水素や酸素）の同位体比とは異なる挙動を示し、異なる同位体比を持つ水の混合や、岩石・鉱物・土壌・植物などの化学反応を通して変化することがわかってきた。また、岩石の Sr 同位体比は、年代の古い岩石や Rb/Sr 比の高い岩石ほど高い値を示し、岩石種によって特徴的な値となる。一方、地下水の大半は天水起源であり、Sr 濃度は低い。この天水が地下に浸透して岩石と反応すると、一般に地下水中へ Sr が溶解してくるため、Sr 濃度は上昇し、その Sr 同位体比は、しだいに岩石の同位体比に近付いてくると予想される。

Sr 同位体比による地球化学的研究は、既に地熱分野や金属鉱床学の分野では先進的に行われており、温泉水や地熱熱水の形成機構の研究や、経年変化を観測することにより地熱貯留層の変化や評価を行っている実績がある（例えば、Marshall et al., 1992; Katz and Bullen, 1996; Vengosh et al., 2002; 亀井ほか, 2000; Butterfield et al., 2001; Millot et al., 2003）。

希ガス（特に He, Ne, Ar）については大気、マントル、鉱物中に含まれる放射性核種の壊変とそれに付随して起こる核反応など、発生起源によって同位体比が異なることが既往研究で知られており、地下水の起源の推定に用いられている（例えば Kipfer et al., 2002）。但し、Kr, Xe の測定例は少ない。

本研究は、核燃料サイクル開発機構（以後「サイクル機構」とする）の東濃地科学センターが管理している東濃鉱山および東濃地域で掘削されたボーリング孔を対象とし、主に結晶質岩中の地下水や東濃鉱山周辺の地表水を採取し、地下水中の Sr 同位体比および全希ガス（He, Ne, Ar 同位体比と He, Ne, Ar, Kr, Xe の存在比および存在量）を測定し、地下水の水質形成機構を解明することを目的とした。

東濃鉱山およびその周辺地域においては、既に地球化学的研究が進み、ある程度の水質形成機構や地球化学的モデルの構築がなされているが、それらの成果と本研究の成果を比較検討し、研究対象地域における Sr 同位体比および希ガスの地球化学的研究への適用性について評価した。次に本研究実施中にボーリング孔掘削に着手し地下水採取などを実施した北海道幌延地域（堆積岩地域）を研究地点として選定し、Sr 同位体比および希ガスを用いた地球化学的研究手法の堆積岩地域における適用性について検討した。

本研究は Sr 同位体比と希ガスを用いた地球化学的研究に関して、使用機材まで含めた試料採取方法や分析方法を検討しており、得られたデータの評価方法を含めた解析方法も検討している。本研究成果が、今後、同様の研究を実施する際の指標として資されるものと期待する。

## 1.2. 希ガス同位体比及び Sr 同位体比の概要

### (1) 希ガス同位体比

希ガスは、He, Ne, Ar, Kr, Xe の 5 元素及び 23 の安定同位体から成る。溶存希ガスの地下水調査法への活用は、Isotope Hydrology の一分野である Noble Gas Hydrology として発展してきた。溶存希ガスは、その化学的な特性から周辺岩盤との反応も少なく、地下水に溶存している限りでは地下水と一緒に移動すると考えられるので、地下水の流れを追うトレーサーとしてすぐれた特性を有している。各希ガスの発生起源はそれぞれ異なり、また、同じ希ガスであっても同位体によって異なるものもあるので、その特性を十分に理解した上で調査に活用すれば多くの情報を得ることが可能となる。つまり、地下水年代・起源などの地下水の流動性に関する情報、或いはそれ以外にも水理地質に関する情報を得ることが可能である（例えば、五十嵐ほか、2000）。

天然物質のうち、大気中の希ガス同位体比を表 1 に、水中に平衡に溶存する希ガス濃度を表 2 に示す。

表 1 大気中の希ガス同位体比と存在量

$^3\text{He}/^4\text{He}$	$^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$
1.40E-06	0.318

$^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$	$^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$
9.80	0.0290

$^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$	$^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$
0.188	296.0

$^{78}\text{Kr}/^{84}\text{Kr}$	$^{80}\text{Kr}/^{84}\text{Kr}$	$^{82}\text{Kr}/^{84}\text{Kr}$	$^{83}\text{Kr}/^{84}\text{Kr}$	$^{86}\text{Kr}/^{84}\text{Kr}$
0.00609	0.0396	0.2022	0.2016	0.3055

$^{124}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$	$^{126}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$	$^{128}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$	$^{129}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$	$^{130}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$	$^{131}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$	$^{134}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$	$^{136}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$
0.003537	0.003300	0.07136	0.9832	0.1514	0.789	0.3879	0.3294

$^4\text{He}/^{36}\text{Ar}$	$^{20}\text{Ne}/^{36}\text{Ar}$	$^{84}\text{Kr}/^{36}\text{Ar}$	$^{132}\text{Xe}/^{36}\text{Ar}$
0.166	0.524	0.0206	7.40E-04

He	Ne	Ar	Kr	Xe
ppm	ppm	ppm	ppm	ppm
5.24	18.1	9340	1.14	0.087

表 2 大気と平衡に存在する水中の希ガス濃度

	He	Ne	Ar	Kr	Xe
	$\times 10^{-8} \text{cm}^3 \text{STP/g}$	$\times 10^{-7} \text{cm}^3 \text{STP/g}$	$\times 10^{-4} \text{cm}^3 \text{STP/g}$	$\times 10^{-8} \text{cm}^3 \text{STP/g}$	$\times 10^{-9} \text{cm}^3 \text{STP/g}$
T=1°C	3.95	1.75	3.69	8.78	13.7
T=20°C	3.75	1.51	2.46	5.34	7.5

天然の物質中の He-Ne 同位体比は、表 3 に示す 3 つの端成分の混合物であると言われている。現在までに求められている同位体比を示す (Staudacher and Allegre, 1988; Porcelli and Wasserburg, 1995)。

表 3 様々な物質の希ガス組成

	Air	MORB	Radiogenic
$^3\text{He}/^4\text{He}$	$1.4 \times 10^{-6}$	$1.1 \times 10^{-5}$	$1.5 \times 10^{-8}$
$^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$	0.318	>1000	>1000
$^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$	9.8	12.5	
$^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$	0.029	0.065	
$^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$	296	$2.8 \times 10^4$	350*
$^{129}\text{Xe}/^{130}\text{Xe}$	6.496	7.35	
$^{136}\text{Xe}/^{130}\text{Xe}$	2.176	2.45	

\*: Oceanic crust の値

ここで、ある物質の He-Ne 同位体比は、これら 3 つの端成分の混合物であるから、その関係式は次式で示される。

$$(^3\text{He}/^4\text{He})_s = (^3\text{He}/^4\text{He})_a \times A + (^3\text{He}/^4\text{He})_m \times M + (^3\text{He}/^4\text{He})_r \times R \quad (1)$$

$$1 / (^4\text{He}/^{20}\text{Ne})_s = A / (^4\text{He}/^{20}\text{Ne})_a + M / (^4\text{He}/^{20}\text{Ne})_m + R / (^4\text{He}/^{20}\text{Ne})_r \quad (2)$$

$$A + M + R = 1 \quad (3)$$

ここで、A は air, M は MORB-type (中央海嶺玄武岩), R は放射性起源 (radiogenic) を意味する (例えば, Sano and Wakita, 1985)。

## (2) Sr 同位体

Sr には主に質量数 84, 86, 87, 88 の 4 種類の同位体が存在するが、このうち質量数 87 の Sr は放射性同位体  $^{87}\text{Rb}$  の  $\beta$  壊変 (半減期 499 億年) によっても生じるため、その Sr 同位体比 ( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ) は、年代の古い岩石や Rb/Sr 比の高い岩石ほど高い値を示す。Notsu et al (1988) は年代の若い火

山岩の  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  比が 0.703-0.705 を示すのに対し、第三紀基盤岩の Sr 同位体比が 0.710 以上であることを報告している。亀井ほか(2000)は、秋田県澄川地熱地域の岩石の Sr 同位体比を調べ、地域で最も若い第四紀火山岩の Sr 同位体比が最も低い値 (0.7040) を示し、黒色頁岩の Sr 同位体比が最も高い値を示すというように、Sr 同位体比が岩相的特徴を反映していると報告している。

Sr は、反応性元素であり、水の Sr 同位体比は異なる値を持つ水の混合や、岩石・鉱物・土壌・植物などとの化学反応を通してのみ変化するため、起源となる水の Sr 同位体比と化学反応やイオン交換を起こした岩石の Sr 同位体比の両方の情報を持っている。また蒸気中には Sr は分配されないため、 $\delta\text{D}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$  といった軽元素安定同位体比の挙動とは異なる。こうした特徴を利用することで、これまでの地球化学的手法とは異なった視点からのアプローチが可能になると考えられ、地下の水理学的に応用する試みが、地下水(Aberg et al., 1989, 中野, 1993), 温泉水(佐藤・中野, 1994), 環境水(Bacon and Bain, 1995), 石油・天然ガス (Notsu et al., 1988) 等の研究分野で行われている。

佐藤・中野 (1994) は、例えば貯留層に存在する熱水の Sr が貯留層の存在する地層と同位体的に平衡にあると仮定した場合、異なる Sr 同位体比を示す岩相中の 2 つの貯留層から、地下水が途中で岩石と反応することなく上昇すると、それぞれの熱水の Sr 同位体比は、貯留層を構成する岩石の値を示すが、両方の貯留層を通過して地表に出た熱水の Sr 同位体比は、両岩石の値の間を示すという概念が、奥鬼怒地域の温泉水と地表岩石に適用できたとした。このことから、Sr 同位体比は天然トレーサーとして、温泉の湧出経路の推定に有意義な情報を提供すると報告している。

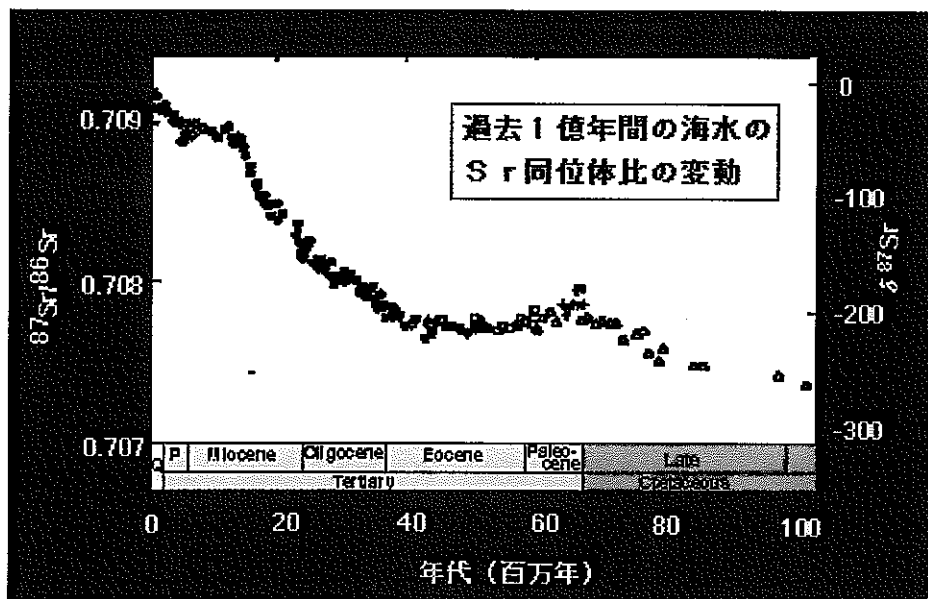


図 1 海水の Sr 同位体比変動

(Bacon and Bain, 1995 より引用)

熱水や岩石だけでなく、熱水変質で生成する方解石は過去の水の情報を持っていると考えられるが、Goff et al. (1991)は、アメリカ・カリフォルニア州 Long Valley カルデラ地熱系で岩石、方解石脈及び熱水の Sr 同位体比を測定し、地熱流体と平衡にある地層がカルデラ内の火山岩類ではなく、基盤岩類であること、カルデラ内での地熱流体は、西方から東方への側方流動が推定される等の報告を行っている。地下水の水理機構を推定するためには、地下水や岩石の Sr 同位体比だけではなく地下水の起源となっている水の同位体比を把握する事が必要である。例えば沿岸地域の地下水では、化学成分組成から海水起源であると推定される場合があるが、そのような場合、海水の Sr 同位体比の変動 (図 1) から地下水の年代を推定できる場合もある。

### 1.3. 研究対象地域の概要

#### (1) 東濃地域

東濃西部地域は、岐阜県の南東部に位置し、東西約 28 km 南北 25 km であり、中央部を東西に流れる土岐川に沿って点在するいくつかの盆地と周辺に広がる丘陵地から形成されている。

東濃鉾山周辺の堆積岩は、白亜紀の土岐花崗岩 (72.3Ma) を基盤岩として、新第三紀の瑞浪層群 (15~20Ma) と第四紀の瀬戸層群から構成されている (Shibata and Ishihara, 1979)。新第三紀堆積岩の層厚は約 200m であり、下部層にウラン鉍床が分布している (Itoigawa, 1974)。明世累層は海成層であり、貝化石が多く産出する (Sakamaki, 1985)。また、土岐夾炭累層中 (標高 200m) には低透水層が存在し、この層を境に滞水層が二分されている (Yusa et al., 1993)。地下水の水質については、堆積岩上部で Ca イオンに富み、深度が増加するにつれて Na, HCO<sub>3</sub> イオンに富む水質へ変化している。これ以外の成分については、深度による大きな差は報告されていない (Iwatsuki et al., 1995)。同地域の地下水については、<sup>14</sup>C 年代測定も実施されており、約 1,400~14,000 年 BP と見積もられている (岩月ほか, 1999)。また、花崗岩中の割れ目を充填している方解石の炭素・酸素同位体比から、海成起源の方解石が長期間天水と接触していてもその値が保持されていることから、弱アルカリ性の地下水が長期間維持されたと推測している (Iwatsuki and Yoshida, 1996; 岩月ほか, 2000)。

東濃地域では、DH-3, DH-12, DH-13 及び MIU-4 号孔から採取された地下水試料について、希ガス同位体のうちの He と Ne の同位体比について分析が行われている (図 2; 森川, 2001)。それによると、当地域の地下水の <sup>4</sup>He/<sup>20</sup>Ne 比は、大気あるいは大気に飽和した水と放射性起源に由来する希ガスの混合であることが指摘されている (図 2 の斜線部が混合領域)。また、深度については、DH-3 号孔で深度が深くなるにつれて、<sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He 比が低くなることから、深部ほど放射性起源の He が混入していると結論した (図 3)。

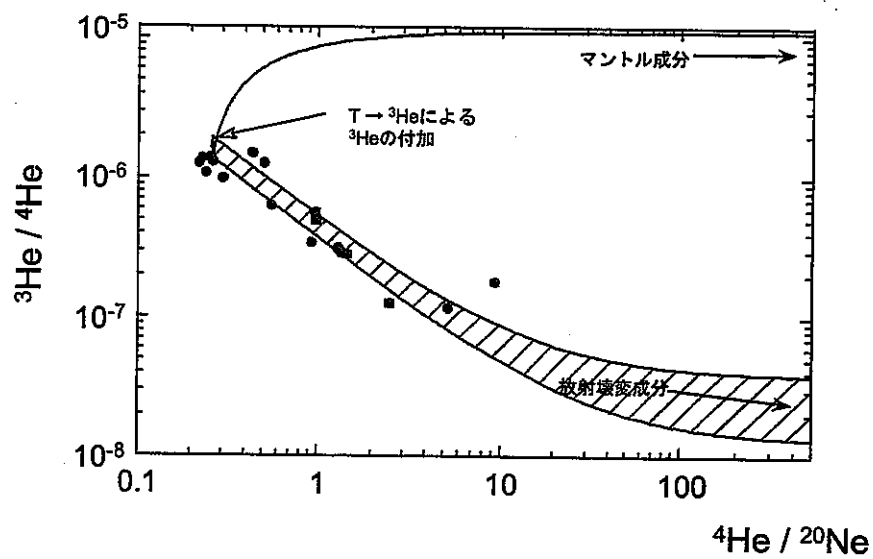


図 2 東濃地域地下水の  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比 と  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  比

(森川, 2001 より引用)

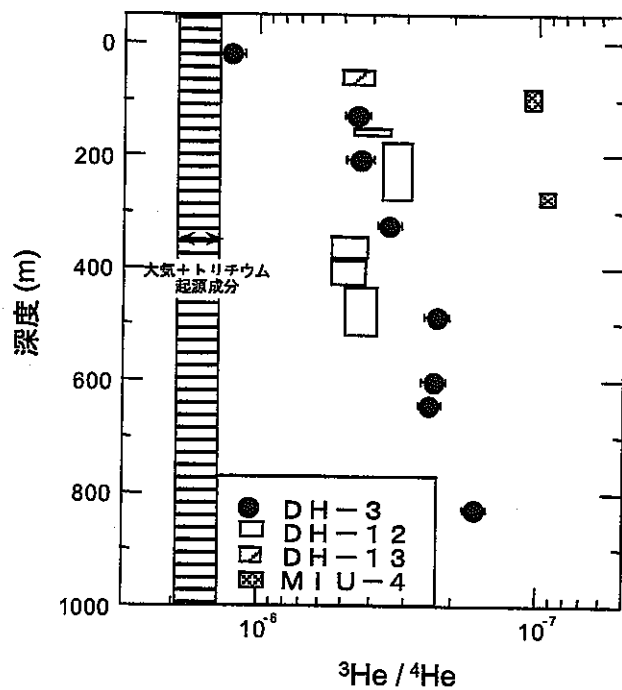


図 3 地下水中の  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比の深度分布

(森川, 2001 より引用)

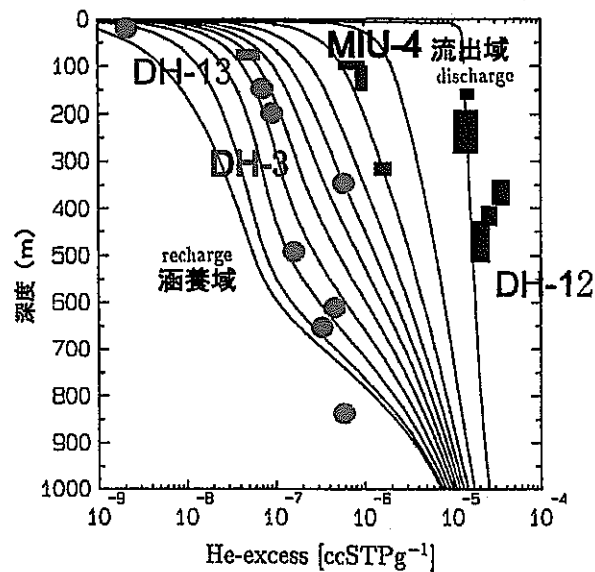


図 4 Excess He と深度の関係

(森川,2001 より引用)

図 4 は、東濃地域での Excess-He (岩石などから地下水へ寄与された He) を見積もった結果を示しており、地下水の涵養域と流出域の識別に応用されていることを示す (森川,2001)。この結果からは、DH-3 及び DH-13 号孔が涵養域に、DH-12 号孔が流出域に、MIU-4 号孔が中間的な領域に入るとされている。

## (2) 幌延地域

研究対象地域は北海道天塩郡幌延町に位置し、核燃料サイクル開発機構の幌延深地層研究センターが、平成 13 年 4 月設立され、平成 22 年に地下施設を完成する予定である (図 5)。この地域の地質は、新第三紀中新世の稚内層と声間層、鮮新世の勇知層と更別層、第四系更新世の恵北層、段丘堆積物、崖錐堆積物および完新世の氾濫原堆積物からなる。これらの地層は、ほぼ南北性の走向と西傾斜を示し、従って東側から西側へ順次上位の地層が観察されている。稚内層から更別層に至る新第三系はいずれも整合関係で累重している。地層の固結度は、稚内、声間層は固結、勇知、更別層は半固結ないし低固結、恵北層以上の地層は未固結である (動燃事業団,1998)。



図 5 北海道幌延地域の調査領域の概要

ボーリング孔は、平成13年度にHDB-1,2号孔が、平成14年度にHDB-3,4,5号孔が掘削され、その後もボーリング孔が増えている。水理試験時には、ガスも噴出しており、HDB-1,2号孔では、メタンガスが10～90%程度含まれることが特徴である（サイクル機構、未公表）。

当地域の地下水について、最も深い声問層中の地下水は、アルカリ非炭酸塩型（Na-Cl型）を示し海水と同じ分類となる（pHは8程度、図6）。しかし、塩素イオン濃度は約14,000mg/Lであり、海水（19,000mg/L）の約0.75倍である。また、硫酸イオン（ $\text{SO}_4^{2-}$ ）及びマグネシウムイオン（ $\text{Mg}^{2+}$ ）は海水に比べて格段に低濃度を示し、重炭酸イオン（ $\text{HCO}_3^-$ ）は高濃度を示している。これは、地層の還元環境（硫酸イオンの硫化物への還元）、陽イオン交換吸着能（マグネシウムイオンの減少）及び炭酸ガスの分圧が高いこと（重炭酸イオンの増加）を反映しているものと理解できる。海岸地域においては、過大な地下水の汲み上げにより地下水位が低下し海水面と同じ程度の高さになると、地盤中に海水が入ってくる現象が見られるが、研究地域の地下水位は海水面より10m程度高く、また海岸から遠く離れているため、このような現象によって海水が声問層中に入り込んでいるものではないと考えられる。声問層中の地下水は地層の還元環境、イオン交換吸着能及び高炭酸ガス分圧を反映し、海水に比べて硫酸イオン及びマグネシウムイオン濃度が格段に低く、重炭酸イオン濃度が高いという、海水とは明らかな性質の違いがある。したがって、この地下水は、声問層の堆積時からあまり動いていない化石海水に近いものであると考えられる（動力炉・核燃料開発事



業団, 1998)。

平成 14 年度に回収された HDB-3, 4, 5 号孔の岩石については, 加圧抽出法により間隙水が回収され, 水素・酸素同位体組成が分析されている (図 7 と図 8)。その結果は, 当地域の地下水と海水より  $^{18}\text{O}$  に富んだ水との混合線上にプロットされる。この混合線上には, 現位置で回収された地下水の同位体組成もプロットされる。幌延地域の岩石中の間隙水の酸素同位体組成と深度との関係では (図 7), HDB-3 号孔では深度 100m まで, HDB-3, 4 号孔では深度 450m までは化石海水と同じ値を示すことから, 化石海水がこの深度まで存在しており, それ以浅では, 天水によって任意に希釈されていると推定されている (嶋田ほか, 2002)。

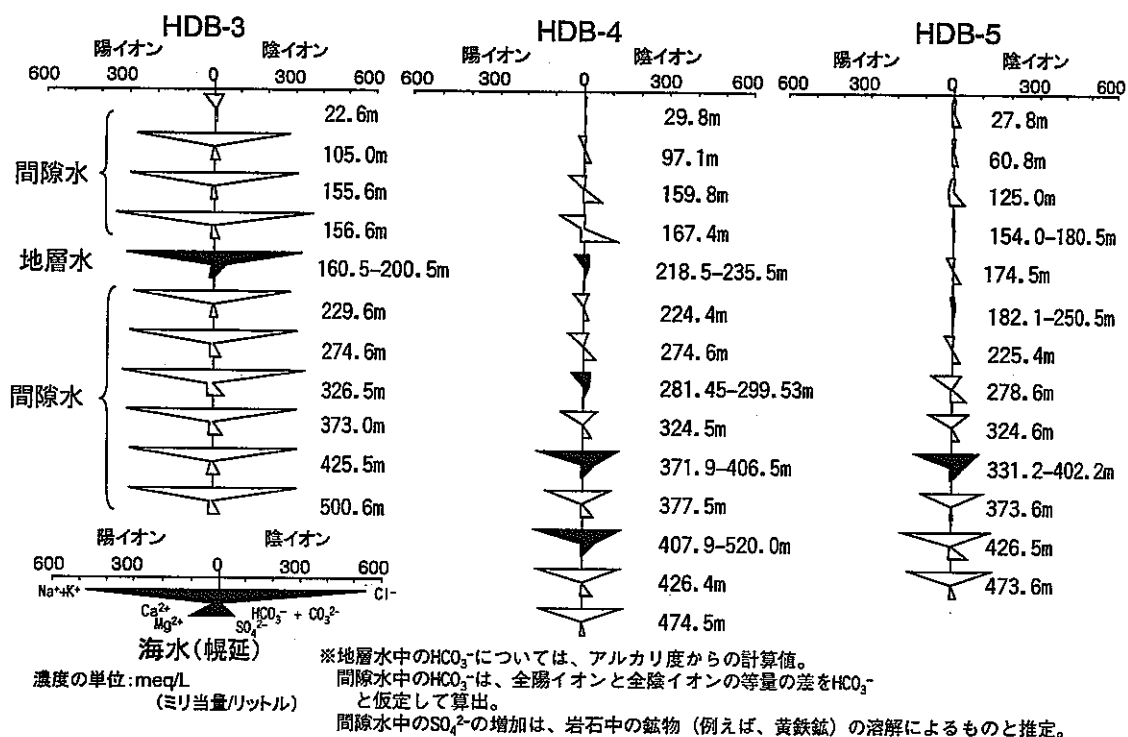


図 6 幌延地域の地下水 (地層水) と間隙水の化学組成

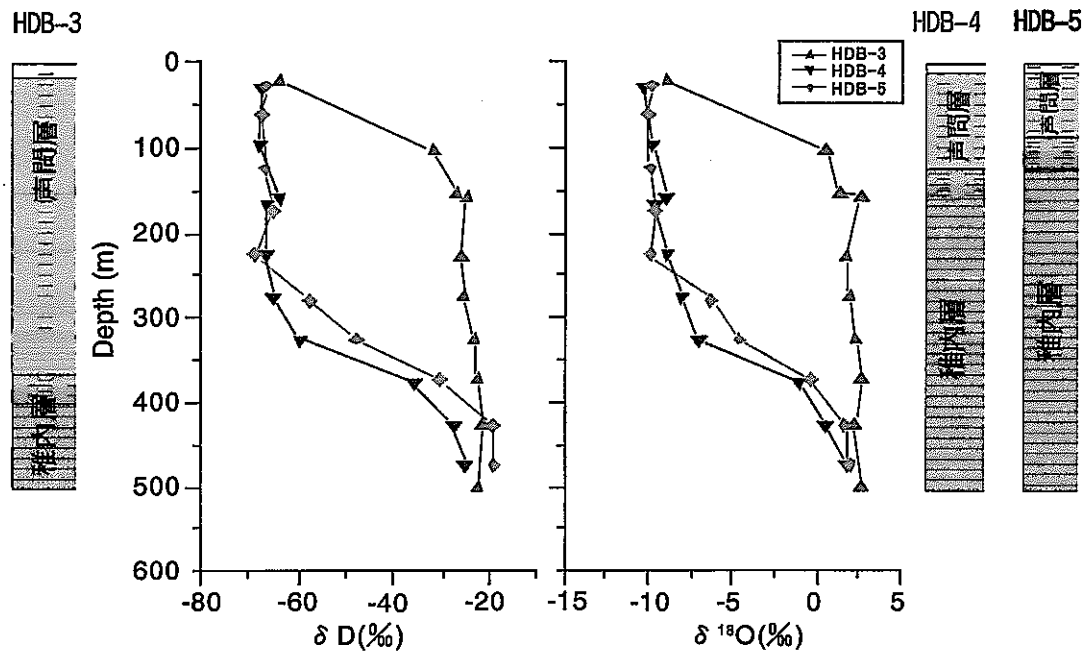


図 7 幌延岩石の間隙水の水素・酸素同位体組成と深度の関係 (嶋田ほか, 2002)

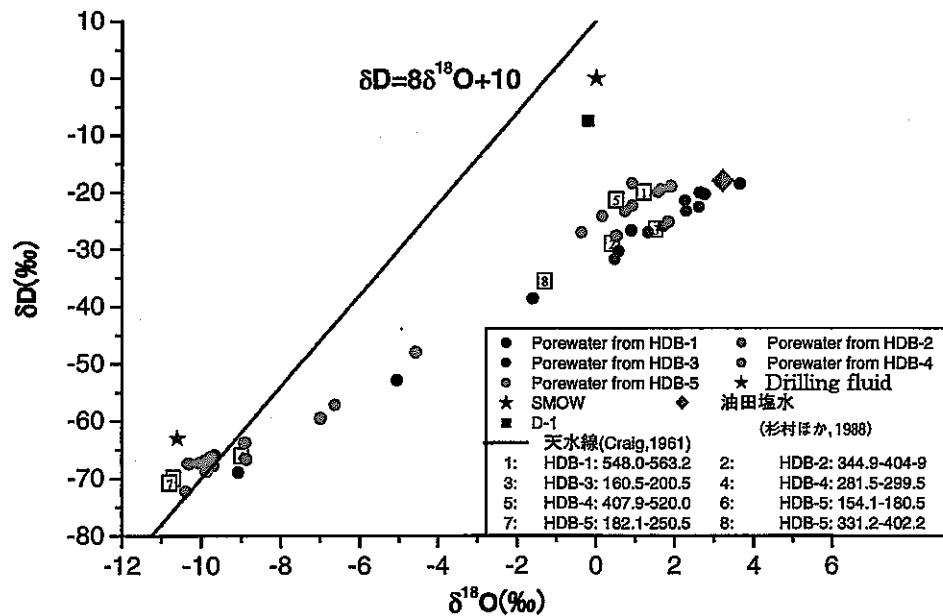


図 8 幌延岩石の間隙水の水素・酸素同位体組成 (嶋田ほか, 2002)

## 2. 採取試料と採取方法

### 2.1. 水試料

#### (1) 東濃地域

東濃地域の水試料については、KNA-6, MIU-4, DH-3, DH-7, DH-13, MSB-2, DH-15 号孔および高砂温泉にて採取を行った。また、岩石試料については KNA-6, DH-3 号孔コアの採取を行った。採取地点を図 9 に、採取容器を図 10 に示す。採取状況の写真を図 11 に示す。

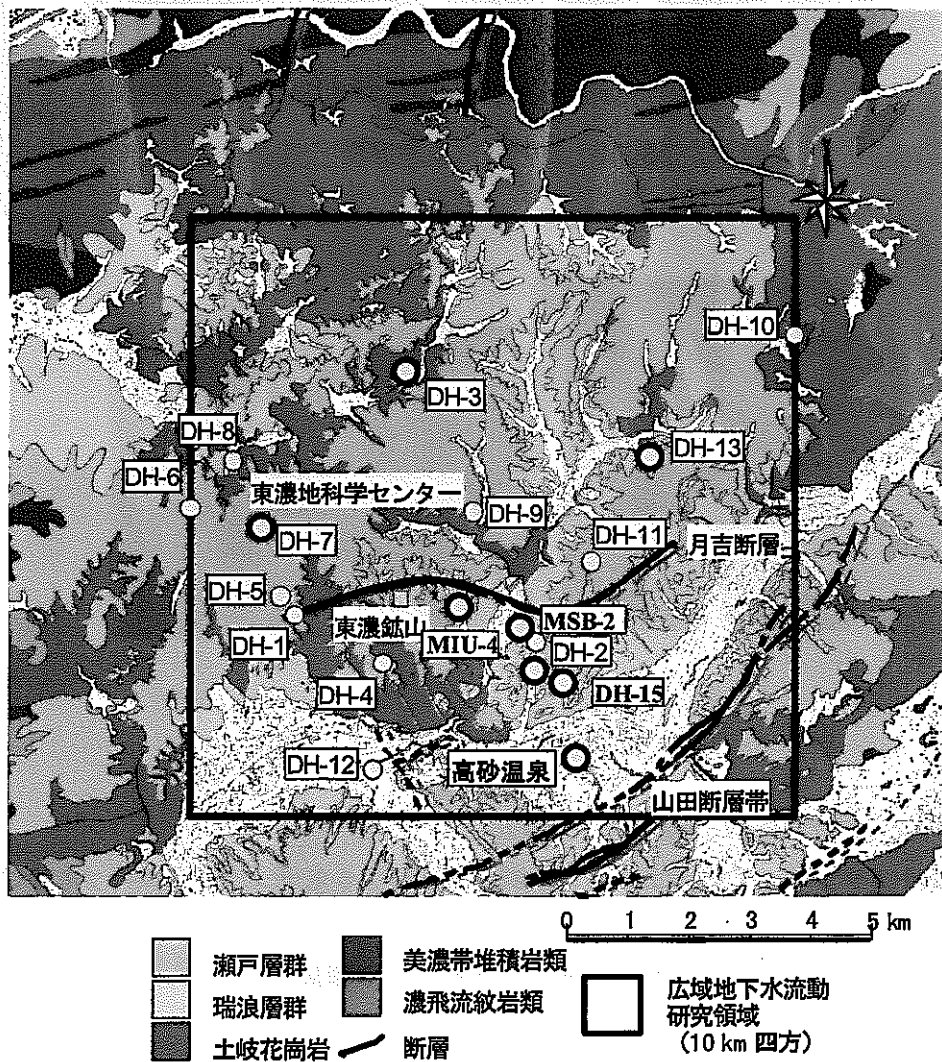


図 9 東濃地域での地下水試料採取地点  
 図中の ○ は、本研究での対象ボーリング孔

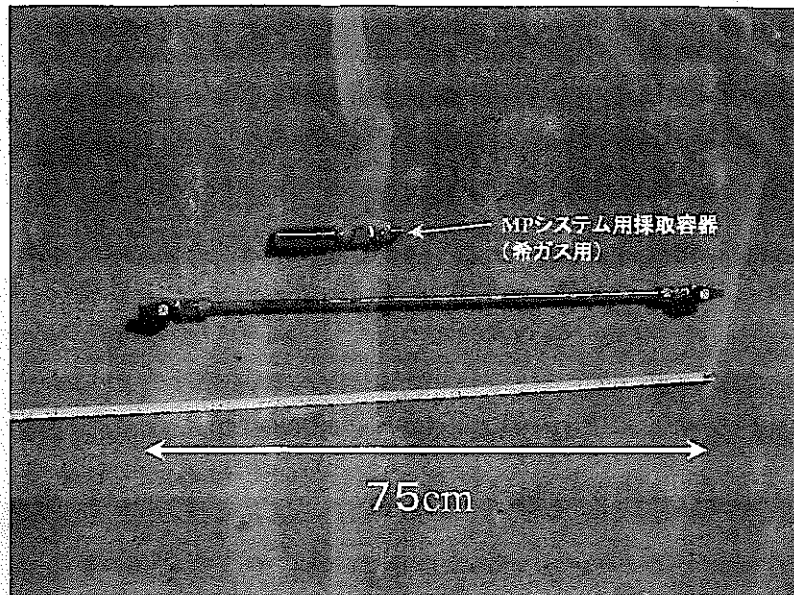


図 10 水試料採取用容器

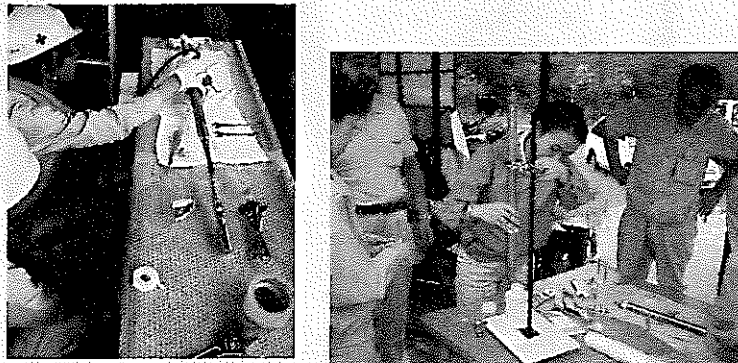


図 11 地下水試料採取風景

地下水試料の採取フローは、次の通りである。

250ml ステンレス容器および希ガス試料採水ボトルをサンプルプローブに接続



試料採水ボトルのバルブ開放

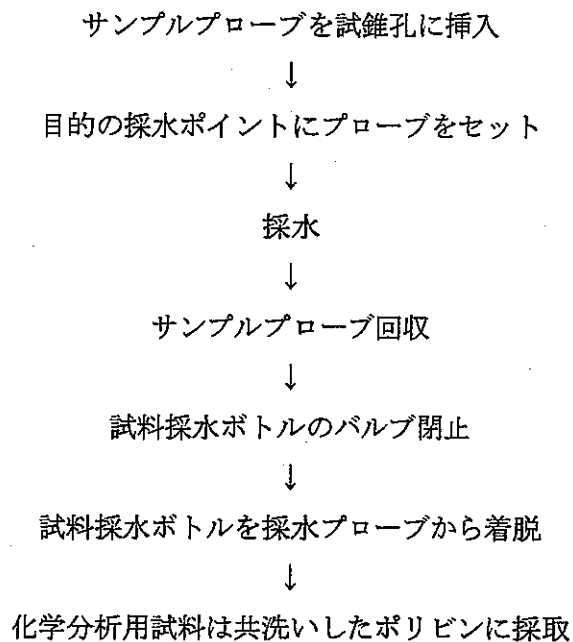


サンプルプローブの真空引き (ロータリーポンプによる真空引き)



高純度窒素ガスの導入 (真空引きから窒素ガス導入の操作を3回繰り返す)





DH-3・DH-7号孔については、MPシステムを用いて採水が行われた。MPシステムのコントロールプローブの下に容量約250mlのMP用ステンレスボトル（化学分析試料採取用）と希ガス試料採取用に容量約30mlのステンレスボトル（図10）を取り付けて、地下水試料を採取した。採取容器は、高純度窒素ガスで容器中の空気を置換した後ロータリーポンプで真空引きを行なうという操作を数回繰り返し行った。この採取容器を孔内へ下ろし、遠隔操作により目的の深度でバルブを開け採水した。この真空引きは、希ガス採取容器が接続されていない場合は最下部から、希ガス採取容器が接続されている場合は上部の採水口から行った。採取終了の確認は、容器内圧が外圧と同じ値になったかどうかで判断した。採水終了後、遠隔操作によりバルブを閉じて装置を地上まで引き上げた。地上に引き上げた後、手動にて採取容器のバルブを閉めた。採取した試料は同試料で共洗いしたポリ瓶に移した。試料容器の構造上、希ガスの試料採取は1回の作業で1試料である。従って、一日の作業で採取できる試料は、3～4試料である。

DH-13およびMIU-4、MSB-2、DH-15号孔については、地上まで揚水された地下水試料を採取している。採取法は以下の通りである。地下水採取容器には、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。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。また、地表水試料としてMIU-4号孔横を流れる沢水を、共洗いしたポリ瓶に採水した。

KNA-6号孔については東濃鉱山内で揚水された地下水試料（深度160mと180m）を採取している。採取方法は以下の通りである。地下水試料容器には、体積50mlのステンレス製試料採取用ポンベの両端にバルブを熔接したものをを用いた。この試料容器内に、水試料をオーバーフローさせ続け、気泡が出なくなったことを確認して、両端のバルブを閉じることによって採水を行った。

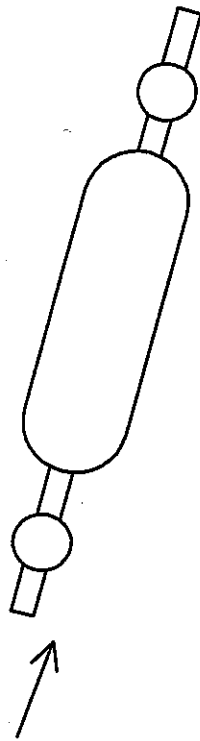


図 12 幌延ガス採取用サンプラー

## (2) 幌延地域

幌延地域においては、HDB-3・HDB-4・HDB-5号孔で試料を採取した。

採取容器は蒸留水ですすいだ後、乾燥機と真空引きにより乾燥した(東濃地域でのサンプリングでKNA-6 160mの地下水を2本分採取し両方について希ガス分析を行い、分析結果が大きく異なった。この原因として、乾燥不足で採取容器内に別試料が残っていた可能性が考えられたため、十分な乾燥をした)。

採取容器は縦にして(図12)、地下水は下から上へとフローさせた。これは、フローさせるときに大気が残らないようにするためである。採取後は、コックの外側にも地下水を入れ、ビニールテープでシールを施した。

## 2.2. 岩石試料

### (1) 東濃地域

KNA-6号孔及びDH-3号孔のボーリングコアの岩石を採取した。KNA-6号孔では月吉断層を突き抜けており、断層直下の掘削深度25mあたりに礫層が存在する。掘削深度30~45m付近には頁岩が存在する。それ以外は土岐花崗岩である。DH-3号孔の岩石は所々に破碎帯が存在するが全ての深度で土岐花崗岩である。いずれの深度も風化が激しい。地下水採取地点と同深度の岩石について分析を行った。

## (2) 幌延地域

幌延地域の岩石試料は、HDB-3,4,5号孔のボーリングコアで間隙水抽出用に採取されたものである。このコア試料を高圧下で1週間程度加圧して、間隙水を回収した後の粉碎状の岩石をSr同位体分析用試料とした。

## 2.3. 割れ目充填鉱物(CaCO<sub>3</sub>)試料

割れ目充填鉱物試料の一覧を表4に示す。割れ目充填鉱物はハンドドリルを用いて削り取った。

表4 割れ目充填鉱物試料

(Sr同位体比も示しており、eはその分析誤差(小数点5,6桁目)を示す)

井戸名	Depth(mabh)	量	<sup>87</sup> Sr/ <sup>86</sup> Sr	e
DH-3	503.0	△	0.712797	11
DH-3	663.0	△	0.712785	13
DH-7	636.7	○	0.710830	12
DH-7	741.0	○	0.711046	15
DH-7	896.9	○	0.713311	13
DH-13	238.5	○	0.710756	15
DH-13	278.6	○	0.710727	11
DH-13	314.2	○	0.710718	12
DH-13	484.7	○	0.711113	10

## 2.4. 岩石-水反応実験における水試料

岩石-水反応におけるSr同位体比の挙動を調べることを目的として、様々な系での反応実験を反応容器を用いて行った。

### (1) 東濃地域の岩石試料と地下水との反応

#### (a) 試料

岩石試料には風化程度が異なりSr同位体比の異なる2種類の岩石(DH-3号孔:掘削深度702.3-702.5m, 882.1-882.3m)を用いた。水については試料量が確保されており、かつ分析に必要なSr濃度であるKNA-6号孔花崗岩部(180m)から得た地下水を用いた。反応に用いた岩石と地下水のSr同位体比、化学成分組成及び粉末にした岩石試料の比表面積を表5に示す。岩石試料については粉末にし粒度分布測定で比表面積を求めた。

表 5 岩石-水間の Sr 同位体分配試験に使用した岩石

		DH-3	DH-3
深度	m	702.30-702.50	882.10-882.30
地質		花崗岩	花崗岩
$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	-	0.717692	0.721904
比表面積	$\text{m}^2/\text{g}$	1.99	1.86
Ca	mg/L		
Sr	mg/L		
SiO <sub>2</sub>	wt%		74.49
TiO <sub>2</sub>	wt%		0.03
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	wt%		13.61
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	wt%		0.12
FeO	wt%		0.59
MnO	wt%		0.03
MgO	wt%		0.09
CaO	wt%		0.93
Na <sub>2</sub> O	wt%		3.79
K <sub>2</sub> O	wt%		5.75
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	wt%		<0.01
H <sub>2</sub> O+	wt%		0.29
H <sub>2</sub> O-	wt%		0.03
Sr	ppm		52
Rb	ppm		382
Li	ppm		33
Th	ppm		16
U	ppm		3

(b)反応条件

岩石は約15cm長のコア試料全てを、あらかじめ粉碎し試験試料として用いた。粉末状にした岩石20gと0.1 $\mu\text{m}$ のメンブランフィルターで濾過した地下水60mLを三角フラスコに入れて攪拌した後、室温で反応時間静置した。反応時間は5, 11, 15, 20, 31, 42, 49日である。反応終了後、一度攪拌し、反応水を0.1 $\mu\text{m}$ のメンブランフィルター付きのシリンジで濾過して採取した。マグネットスターラーで攪拌し続けると、岩石との摩擦によりスターラーが磨耗してしまうため、反応中は攪拌を行わなかった。



### (c)分析項目

反応水の Sr 同位体比及び溶存化学成分濃度 (Na, K, Ca, Mg, Sr) の分析を行った。また、粒子状にした岩石を水と混ぜて静置したところ、上部に粘土層が、下部に比較的粒子の粗い層ができたため、それぞれの層の Sr 同位体比も測定した。また、全岩と希塩酸を混合して溶解した Sr の同位体比についても分析を行った。

### (2) 方解石と蒸留水の反応による Sr 同位体比測定

Sr 同位体比から岩石-水反応の挙動を調べることを目的とし、粉末状にした方解石を用いて Sr 交換反応を調べる。

#### (a)試料

ブラジル産方解石を使用

#### (b)試料前処理

方解石を粉碎し 0.85~1.75mm の金網で選別した後変色している破片を取り除いた。その後蒸留水で白色の濁りが無くなるまで洗浄し、蒸留水に3日間浸し乾燥させた。

#### (c)試験条件

温度 : 常温  
方解石/水比 : 1 : 5  
反応時間 : 3, 7, 14, 21, 28 日  
回転速度 : 2 rpm

#### (d)試験方法

100ml のテフロンビーカーに、方解石 15 g と蒸留水 75 g を入れた後、テフロンビーカーを鉄製保護管に入れ密閉した。その後、回転炉で所定期間反応させた。反応後は、0.22  $\mu$ m フィルターで濾過し分析に供した。

## 3. 前処理方法と同位体分析法

### 3.1. 希ガス抽出法

希ガスの抽出において、遊離ガスが存在する際には、試料採取時にそのガスを回収するが、遊離ガスが存在しない試料では、水に溶存しているガスを実験室で抽出する必要がある。

(1) ガラス製ガス抽出装置による希ガス抽出

平成 13 年度は,当初図 13 に示すようなガラス製抽出装置を用いて希ガスを抽出していた。本装置は,後述のようにバックグラウンドが高く,ステンレス製抽出装置へ変更している。本研究では,希ガス抽出装置の改良を行っていることから,ガラス製装置による抽出方法を記載して,ステンレス製装置との違いを検討した。

DH-3・DH-7・DH-13・KNA-6・MIU-4 号孔の試料については, 溶存ガス分取をガラス製ガス抽出装置にて行った。溶存ガス抽出はガラス製の真空ラインに試料容器を接続し, 系全体をロータリーポンプで真空排気した状態で行う。ラインを十分に真空排気したら分取ラインのバルブを全て閉め, 試料容器を密閉しているバルブを開ける。その後, 分取ラインのバルブを試料容器に近い側から順に開けていく。これにより, 試料水に溶存しているガスは分取ラインに拡散されていく。このとき溶存ガスの水からの分離を促進するために, 図のように試料容器を超音波洗浄器に浸し, 容器内の水を超音波で攪拌した。溶存ガスがラインに拡散し, 圧力計の値が安定したところで, 硬質ガラス製アンプルを, ガスバーナーを用いて焼き切る。

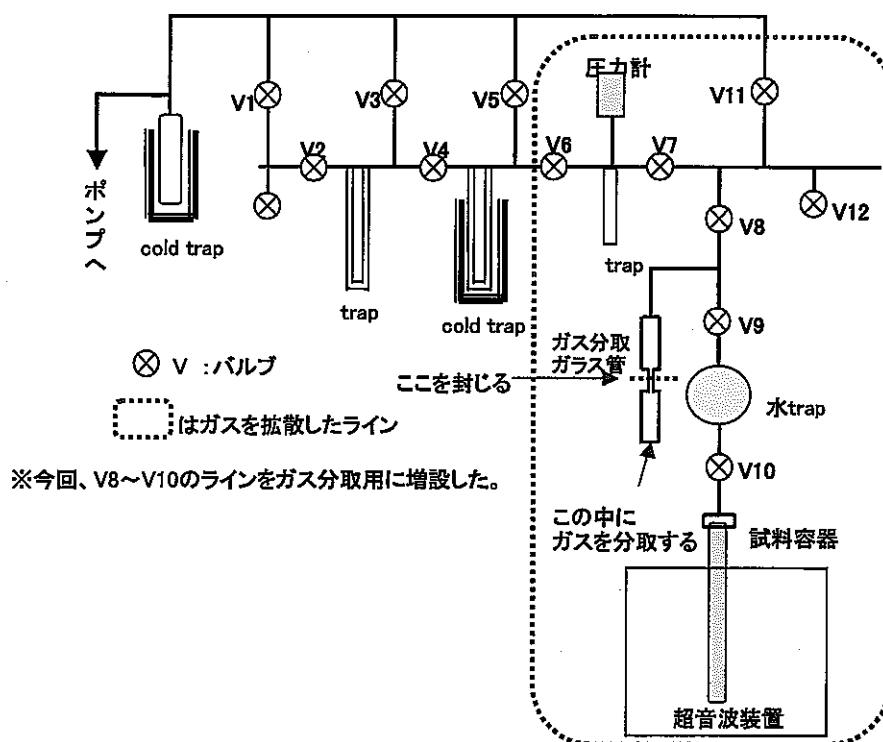
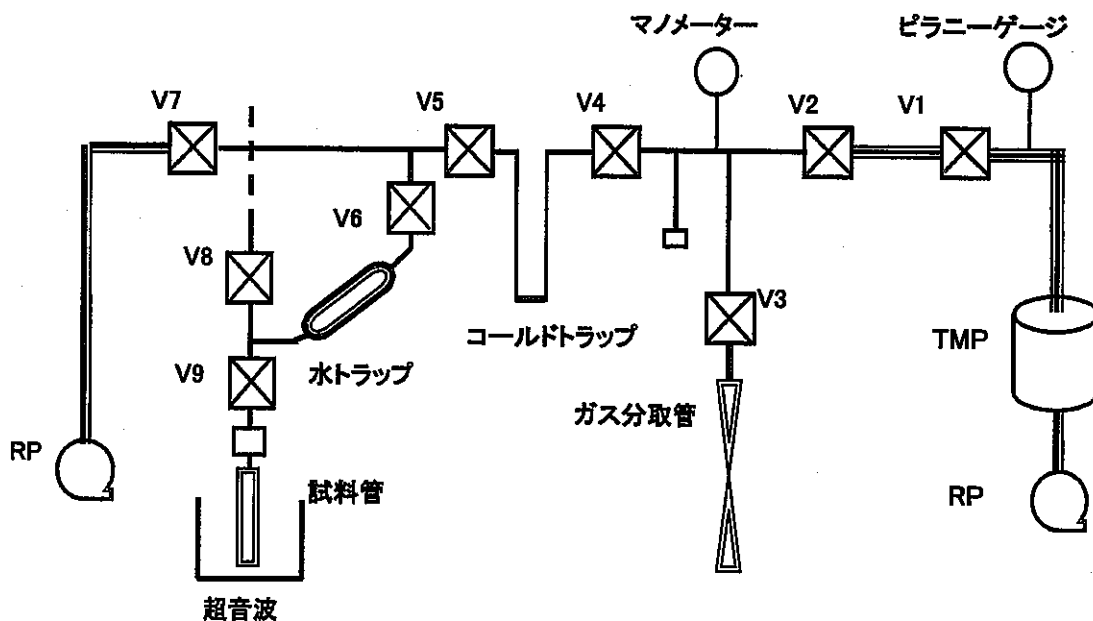


図 13 水試料からの希ガス抽出用ガラス製真空装置

## (2) ステンレス製ガス抽出装置

平成 13 年度の結果より、溶存ガス濃度が低い水試料については、上記ガラス製ガス抽出装置を用いた場合、抽出ガスに抽出装置のバックグラウンドの影響が出る可能性が示唆された。これは、ガラスを通して大気から真空装置に入る He によるバックグラウンドの悪化と、ロータリーポンプによる不十分な真空度のためと考えて、ターボ分子ポンプで排気できるステンレス製ガス抽出装置を作成した。この新しい装置を利用して、平成 13 年度に採取したボーリング孔と同じ孔で再採取した試料、及び平成 14 年度以降の採取試料（MSB 孔試料、高砂温泉など）の希ガスを抽出した。

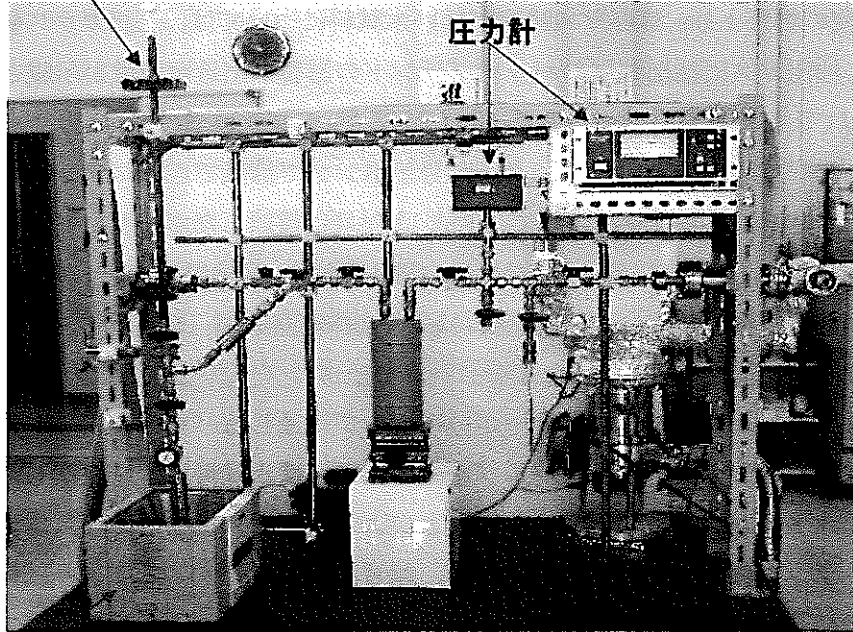
ステンレス製ガス抽出装置の概略図を図 14 に、全体写真を図 15 に示す。ガス分取はステンレス製の装置に採水容器を接続し、系全体をターボ分子ポンプで真空排気した高真空状態で行なう。抽出ラインを十分に真空排気したらターボ分子ポンプに通じるバルブを締めて分取ラインを真空排気系から切り離す。分取ラインのバルブを全て閉め、採水試料容器を密閉しているバルブを開け、試料水を水トラップに移す。こうすることにより、希ガスを含む溶存気体は減圧により気相に移る。水トラップに移った試料水に数分間、超音波洗浄を施すことにより試料水中に再溶存した気体を完全に追い出す。その後、水トラップのバルブを閉め、ラインのバルブを水トラップに近い方から順に開け、ガスを硬質ガラス製アンプルまで拡散する。圧力計の値が安定したら、硬質ガラス製アンプルをガスバーナーにより焼き切る。



(V:バルブ、RP:ロータリーポンプ、TMP:ターボモレキュラーポンプ)

図 14 新規開発した水試料からの希ガス抽出用ステンレス製真空装置

試料容器(銅管)



圧力計

超音波洗浄器

図 15 新規開発したステンレス製真空装置の全体写真

### 3.2. 希ガス同位体分析法

希ガス分析は、東京大学大学院理学系研究科の Micro mass 社製 VG5400 型を用いて行った。ガス精製ラインは、岩石・鉱物試料熔解のためのタンタル炉とガス試料ホルダー、希ガス精製用 Ti・Zr ゲッター、活性炭トラップ及びクライオ冷凍機を用いたトラップを備えた精製システムより成る。そして、これらの部分はターボ分子ポンプとイオンポンプにより超高真空が保たれている。

#### (1) 水から抽出した希ガス同位体分析法

溶存ガスから抽出したガスを封入した硬質ガラス製アンプルを、希ガス精製用真空ラインにガラス細工で接続する。高真空ライン部分の終夜ベーキングの後、一つ一つブレーカブルシールを割って試料を処理する。試料の精製には、800~850°Cに加熱した Ti・Zr ゲッターを用い、希ガス以外の CO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub> などの化学的に活性な分子をゲッター作用により除去する。活性ガスを除去した後は、トラップへの吸着温度の違いを利用して希ガス相互の分離を行う。まず、アルゴン・クリプトン・キセノンの吸着には、液体窒素温度に冷却した活性炭トラップを用いた。そして、15K に冷却したクライオトラップを用いてネオンの吸着を行う。このようにして分離されたヘリウムを、質量分析計に導入して測定を行い、次にクライオトラップを 45K に昇温して、ガス化したネオンを質量分析計に導入する。その後、活性炭を 150°C に加熱して吸着されたアルゴン、クリプトン、キセノンを脱離し、加熱した Ti・Zr ゲッターにより再度精製、質量分析計に導入する。ヘリウム、ネオン、アルゴンについては絶対量と同位体比を、クリプトン、キセノンについては絶

対量の測定を行った。

装置の感度と質量差別効果の補正係数は、定量した大気中の希ガス同位体を試料と同様な方法で測定して算出した。また  $^3\text{He}/^4\text{He}$  同位体比については、 $^3\text{He}$  をイオンカウンティング、 $^4\text{He}$  を Faraday Cup で測定し、検出器の感度比と質量差別効果の補正は  $^3\text{He}$  と  $^4\text{He}$  を混合したヘリウムガス (HESJ:  $^3\text{He}/^4\text{He}=(28.88\pm 0.14)\times 10^{-6}$ , Matsuda et al., 2002) を測定しておこなった。

## (2) 岩石中の希ガス同位体分析法

複数の測定試料をタンタル製抽出炉の上に接続したガラス製サンプルホルダーに入れ、超高真空下で約1日間  $150^\circ\text{C}$  に加熱して大気からの吸着希ガス成分を除去する。希ガス分析は、サンプルホルダーに入れた試料のうち任意の試料を、モリブデン製のつぼに落とし、真空中で約  $1800^\circ\text{C}$  で加熱溶解して、希ガスを脱ガスさせる。こうして岩石試料から抽出した希ガスの同位体分析は、基本的には前述したガス試料の希ガス分析と同様である。(図 16; Nagao et al., 1981)。

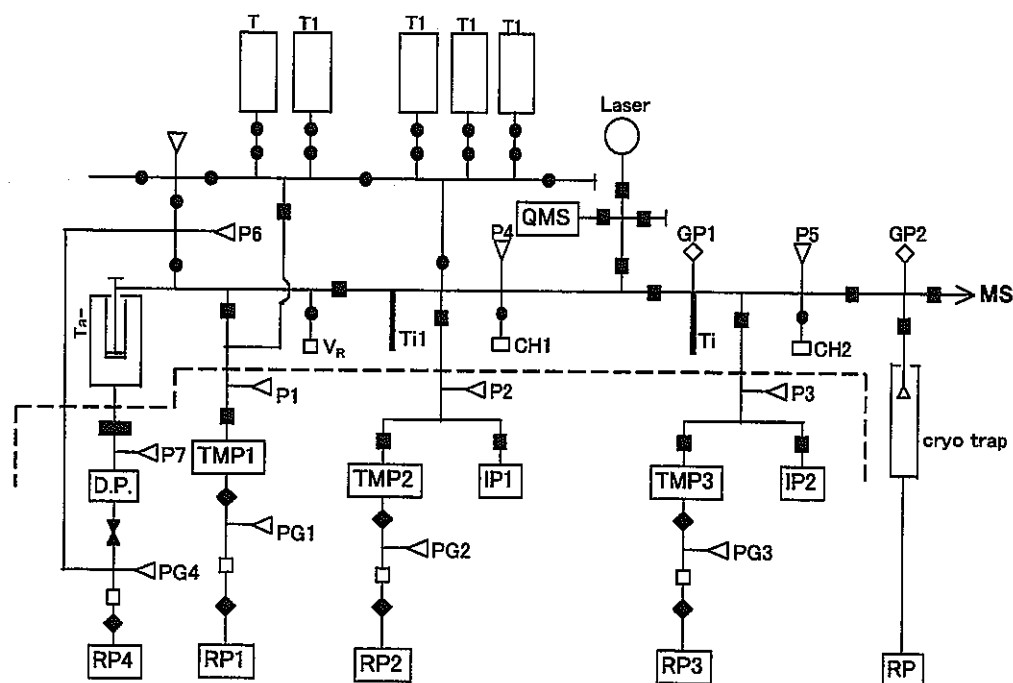


図 16 希ガス抽出精製真空装置の概念図

### 3.3. Sr 抽出法・同位体分析法

#### (1) Sr 抽出法

##### (a) 水試料

水試料はあらかじめポアサイズ  $1\mu\text{m}$  のメンブランフィルターで濾過し、浮遊物を除去した。試料約 20ml に 6N-HCl, HF を加え  $110^\circ\text{C}$  で分解・蒸発乾固した。これを D.P.E (0.5N-ピリジン溶液中に 1,2-diaminocyclohexanetetra acetic acid を 0.06M の濃度で溶解したもの) で溶解し、ピリジン型陽イオン交換樹脂を用いて Sr を精製した (溶離液: D.P.E, 水, 2.8N-HCl, 6N-HCl)。

##### (b) 岩石試料

粉末状にした岩石試料約 50mg に濃 HF と  $\text{HClO}_4$  を 4:1 の割合で加え、 $110^\circ\text{C}$  で 1 昼夜加熱した後、蒸発乾固した。その後 6N-HCl による溶解、蒸発乾固をフッ化物がなくなるまで繰り返し行った。蒸発乾固した試料を 4N-HCl で溶解し、 $\text{H}^+$  型陽イオン交換樹脂を用いて主要陽イオンと分離した (溶離液: 2.8N-HCl, 6N-HCl)。Sr を含む溶離液を蒸発乾固後、25%ピリジンを加えて再び蒸発乾固し、ピリジン型陽イオン交換樹脂を用いて Sr を精製した (溶離液: D.P.E, 水, 2.8N-HCl, 6N-HCl)。

##### (c) 割れ目充填鉱物試料

ハンドドリルで削り取った  $\text{CaCO}_3$  試料には、その他の鉱物も含まれる可能性が考えられた。よって試料 3~4mg を 2.8N-HCl 1.2mL で溶解し、遠心分離を行い、上澄み 1.0mL を分析用試料とした。溶出液は  $110^\circ\text{C}$  で蒸発乾固した。蒸発乾固した試料を 4N-HCl で溶解し、岩石試料と同じ方法で分析を行った。

#### (2) Sr 同位体分析法

Sr を含む溶離液を蒸発乾固し、濃硝酸で溶解して W フィラメントに塗布し、表面電離型質量分析計で同位体比を測定した。分析は Yoshikawa and Nakamura(1993)を引用したが、溶出液の量などは変更した。使用機器は、Finnigan MAT 社製質量分析計 MAT262 型を用いた。

## 4. 結果

### 4.1. 希ガス同位体比

東濃地域では、平成 13 年から 3 年間にわたって地下水試料を採取している。採取した試料についての希ガス同位体分析結果を、表 6 と表 7 に示す。このうち、平成 13 年度に採取して、ガラス製精製装置で希ガスを抽出して、その同位体比を分析したものには、後述のようなバックグラウンドが高いため、その分析値に問題があることが分かっている。表 6 と表 7 のうち、灰色でマークした

表 6 東濃地域の地下水中の希ガス同位体含有量

試料名	孔名	深度上端 (mabh)	深度下端 (mabh)	<sup>4</sup> He	<sup>20</sup> Ne	<sup>36</sup> Ar	<sup>40</sup> Ar	<sup>84</sup> Kr	<sup>132</sup> Xe
				cc/g H <sub>2</sub> O					
				E-5	E-9	E-9	E-5	E-9	E-9
<平成13年度試料>									
JNC-2	KNA-6	160.0		0.007	14	137	4.1	4.79	0.261
JNC17	KNA-6	160.0		0.018	32	301	9.3	4.32	0.050
JNC18	KNA-6	160.0		0.063	2	57	1.7	0.92	0.012
	KNA-6	160.0		0.088	153	815	24.1	27.83	1.459
JNC-1	KNA-6	180.0		0.001	2	27	0.8	0.93	0.041
JNC15	KNA-6	180.0		0.002	2	36	1.1	0.58	0.006
	KNA-6	180.0		0.110	152	827	24.4	28.56	1.498
JNC-4	MIU-4	584.0	647.0	0.424	682	2954	87.7	40.07	1.773
JNC19	MIU-4	754.5	790.1	0.003	2	38	1.1	0.62	0.006
JNC21	MIU-4	754.5	790.1	0.176	76	7515	222.5	75.15	0.968
	MIU-4	754.5	790.1	0.308	1569	4070	120.3	101.48	4.200
JNC46	DH-3(Z-1)	19.1		0.016	302	645	19.2	16.12	0.666
JNC47	DH-3(Z-1)	19.1		0.009	28	161	4.9	6.25	0.288
JNC36	DH-3(Z-2)	130.3	139.5	0.004	160	843	25.2	7.92	0.076
JNC6	DH-3(Z-3)	208.4	220.7	0.020	505	2470	73.2	20.13	0.184
JNC8	DH-3(Z-3)	208.4	220.7	0.012	13	258	7.7	3.41	0.051
JNC9	DH-3(Z-3)	208.4	220.7	0.015	7	105	3.2	1.56	0.021
JNC10	DH-3(Z-3)	208.4	220.7	0.022	404	2225	65.9	23.16	0.217
JNC11	DH-3(Z-3)	208.4	220.7	0.011	118	980	26.2	10.68	0.114
JNC38	DH-3(Z-4)	330.6	337.8	0.002	25	562	16.9	8.37	0.129
JNC50	DH-3(Z-5)	475.7		0.003	4	18	0.5	0.66	0.031
JNC51	DH-3(Z-5)	475.7		0.009	2	8	0.2	0.73	0.012
JNC42	DH-3(Z-6)	507.9	521.7	0.005	114	1038	31.3	8.58	0.076
JNC48	DH-3(Z-7)	645.6		0.013	40	214	6.4	7.50	0.394
JNC49	DH-3(Z-7)	645.6		0.008	3	22	0.7	1.02	0.051
JNC13	DH-3(Z-8)	699.7	706.0	0.009	50	1415	42.6	17.47	0.193
JNC44	DH-3(Z-9)	876.9	889.1	0.005	68	883	26.4	11.87	0.159
JNC40	DH-3(Z-11)	984.4	1002.5	0.003	9	242	7.3	3.05	0.042
	DH-7	482.4		0.224	6731	11945	351.6	218.08	9.206
	DH-7	482.4		0.071	428	1117	33.0	28.92	1.298
JNC-3	DH-7	563.8		0.023	394	2430	72.1	75.88	6.224
JNC5	DH-7	601.3		0.007	62	2071	62.1	33.36	0.484
JNC22	DH-7	664.8		0.013	18	365	11.0	4.96	0.064
JNC29	DH-7	738.7		0.090	133	1841	53.4	22.88	0.287
JNC35	DH-7	837.6		0.874	29640	101386	3006.7	523.50	2.966
JNC34	DH-7	837.6		0.021	714	3372	101.0	60.28	0.139
JNC52	DH-7	860.1		0.018	247	407	12.2	10.03	0.336
JNC55	DH-7	883.1		0.009	4	16	0.5	0.50	0.023
	DH-7	967.5		0.029	388	1322	39.1	37.37	1.621
	DH-7	967.5		0.043	1088	2181	65.2	48.89	2.025
JNC31	DH-13	182.0	252.0	0.021	299	3595	109.3	39.92	0.408
JNC32	DH-13	253.5	323.5	0.046	753	7544	226.2	68.97	0.572
JNC33	DH-13	474.5	544.5	0.037	62	5958	178.8	54.42	0.438
JNC26	DH-13	546.0	616.0	0.062	911	7740	231.7	67.70	0.651
JNC27	DH-13	713.0	783.0	0.143	1329	10101	301.9	85.67	0.679
JNC28	DH-13	856.2	926.2	0.037	625	7751	233.2	81.97	0.847
JNC24	DH-13	995.0	1015.0	0.060	839	7966	238.9	75.77	0.634

表 7 東濃地域の地下水の希ガス同位体比

試料名	孔名	深度上端 (mabh)	深度下端 (mabh)	$^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$	$^3\text{He}/^4\text{He}$ ( $\times 10^{-6}$ )	$^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$	$^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$	$^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$	$^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$
<平成13年度試料>									
JNC-2	KNA-6	160.0		4.90	0.21	9.731	0.02888	0.1891	296.35
JNC17	KNA-6	160.0		5.47	0.084	9.740	0.02872	0.1885	307.92
JNC18	KNA-6	160.0		5.3	1.09	9.735	0.0292	0.1894	302.03
	KNA-6	160.0		5.79	0.145	9.803	0.02901	0.1878	295.45
JNC-1	KNA-6	180.0		4.91	1.08	9.657	0.02889	0.1896	299.25
JNC15	KNA-6	180.0		14.0	1.31	9.747	0.0290	0.1889	298.67
	KNA-6	180.0		7.25	0.122	9.798	0.02897	0.1877	295.51
JNC-4	MIU-4	584.0	647.0	6.22	0.093	9.654	0.02869	0.1892	296.84
JNC19	MIU-4	754.5	790.1	18.1	0.381	9.792	0.0292	0.1890	298.03
JNC21	MIU-4	754.5	790.1	2.33	0.180	9.697	0.0286	0.1883	296.02
	MIU-4	754.5	790.1	1.97	0.313	9.784	0.02897	0.1878	295.49
JNC46	DH-3(Z-1)	19.1		0.534	1.317	9.723	0.02889	0.1878	297.22
JNC47	DH-3(Z-1)	19.1		3.13	1.427	9.760	0.02886	0.1881	296.47
JNC36	DH-3(Z-2)	130.3	139.5	0.275	1.03	9.630	0.0287	0.1890	298.89
JNC6	DH-3(Z-3)	208.4	220.7	0.404	1.14	9.675	0.0285	0.1883	296.15
JNC8	DH-3(Z-3)	208.4	220.7	9.07	1.42	9.779	0.0292	0.1888	297.21
JNC9	DH-3(Z-3)	208.4	220.7	22.2	1.29	9.689	0.0294	0.1897	300.29
JNC10	DH-3(Z-3)	208.4	220.7	0.545	1.34	9.747	0.0286	0.1884	296.42
JNC11	DH-3(Z-3)	208.4	220.7	0.904	1.29	9.620	0.0282	0.1887	297.70
JNC38	DH-3(Z-4)	330.6	337.8	0.912	1.52	9.717	0.0289	0.1896	301.30
JNC50	DH-3(Z-5)	475.7		21.4	1.856	9.788	0.0295	0.1891	299.31
JNC51	DH-3(Z-5)	475.7		42.5	1.298	9.617	0.02749	0.1885	298.54
JNC42	DH-3(Z-6)	507.9	521.7	0.431	1.04	9.552	0.0286	0.1894	301.89
JNC48	DH-3(Z-7)	645.6		3.12	1.17	9.746	0.02912	0.1880	297.61
JNC49	DH-3(Z-7)	645.6		25.3	1.288	9.757	0.02958	0.1888	300.40
JNC13	DH-3(Z-8)	699.7	706.0	1.87	1.43	9.674	0.0287	0.1900	300.95
JNC44	DH-3(Z-9)	876.9	889.1	0.693	1.18	9.695	0.0289	0.1889	299.53
JNC40	DH-3(Z-1)	984.4	1002.5	3.44	1.39	9.706	0.0291	0.1893	300.26
	DH-7	482.4		0.331	1.274	9.729	0.02887	0.1877	296.84
	DH-7	482.4		1.66	0.721	9.831	0.02901	0.1874	295.03
JNC-3	DH-7	563.8		0.583	0.83	9.723	0.02882	0.1892	296.97
JNC5	DH-7	601.3		1.19	1.55	9.677	0.0288	0.1894	299.61
JNC22	DH-7	664.8		7.09	1.34	9.702	0.0290	0.1898	302.24
JNC29	DH-7	733.7		6.74	1.27	9.630	0.0287	0.1895	301.23
JNC35	DH-7	837.6		0.295	1.40	9.703	0.0286	0.1880	296.56
JNC34	DH-7	837.6		0.300	0.924	9.585	0.0285	0.1889	299.41
JNC52	DH-7	860.1		0.747	1.01	9.597	0.02877	0.1894	299.99
JNC56	DH-7	883.1		21.700	1.36	9.797	0.02834	0.1890	298.49
	DH-7	967.5		0.74	0.466	9.782	0.02894	0.1876	295.73
	DH-7	967.5		0.397	0.860	9.738	0.02885	0.1880	298.72
JNC31	DH-13	182.0	252.0	0.692	0.585	9.556	0.0286	0.1903	304.00
JNC32	DH-13	253.5	323.5	0.616	0.501	9.584	0.0286	0.1891	299.78
JNC33	DH-13	474.5	544.5	0.59	0.616	9.602	0.0286	0.1888	300.09
JNC26	DH-13	546.0	616.0	0.682	0.439	9.594	0.0285	0.1889	299.40
JNC27	DH-13	713.0	783.0	1.08	0.299	9.610	0.0285	0.1891	298.86
JNC28	DH-13	856.2	926.2	0.59	0.641	9.579	0.0286	0.1894	300.88
JNC24	DH-13	995.0	1015.0	0.711	0.553	9.572	0.0285	0.1893	299.87



試料は、そのような試料である。このため、ボーリング孔によっては、地下水試料を後日再採取し、バックブランドの低いステンレス製精製装置で希ガスを抽出した後に、同位体分析を行ったものもある。

(1) 平成 13 年度分析結果と問題点

図 17 は、表 6 と表 7 中の平成 13 年度の東濃地域で採取された試料の希ガス分析結果を、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比- $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  比に関してプロットした図である。これを見ると、大気と放射起源物質との混合ライン上（図中の破線）にプロットされるものと、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比がほぼ一定で  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  比が増加する、2 つの傾向が認められる。このうち、前者は大気と放射起源物質との混合で説明可能であるが、後者については、今までに観測されたことのない傾向である。ここで、東濃地域の地下水中の希ガス量が低いため、ガラス製ガス抽出装置のバックブランドが問題となる。さらに、採水容器のリークの影響が考えられる。

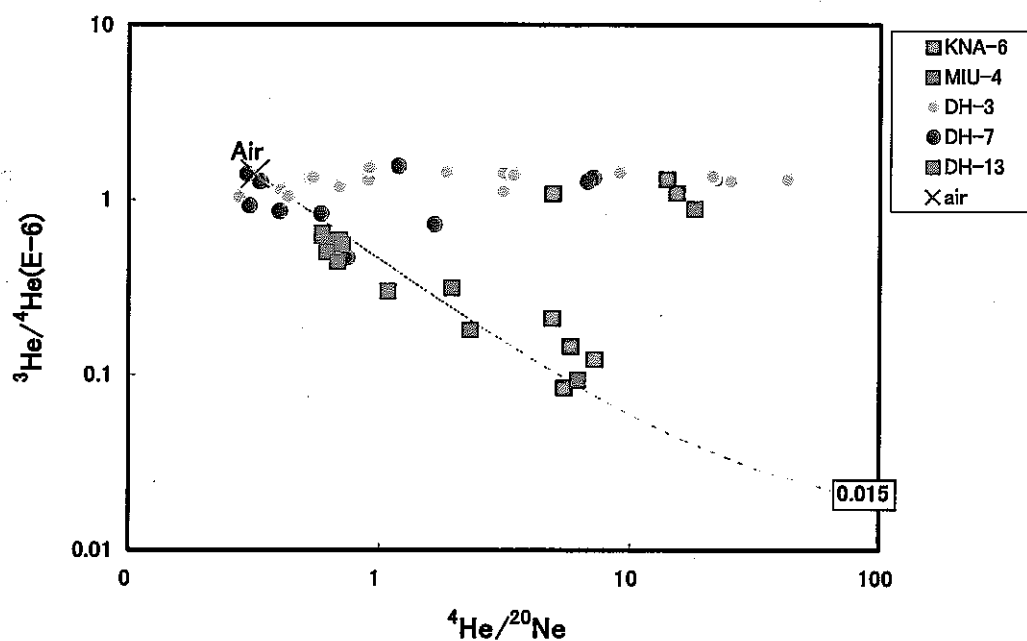


図 17 ガラス製精製装置で希ガスを抽出後の同位体比分析結果

(平成 13 年度に採取した東濃地下水)

そこで、He 濃度におけるガラス製ガス抽出装置のバックグラウンドを検討した (図 18)。その方法は、ガラス製ガス抽出装置のブランクテストを行ったもので、水試料に換算した値は  $0.02 \times 10^{-6}$  [cc/g H<sub>2</sub>O]である。このことは、この値よりも He 濃度が少ない水試料については、ガス抽出装置でのガス抽出の際に混入した抽出ラインのバックグラウンドの He を見ていることになる。図 19 には、東濃地域の地下水をガラス抽出装置で抽出したガス (CO<sub>2</sub> などを含む) を、一定の容積に拡散した際のピラニーゲージの圧力値を示している。この地域では、全ガス量が 1Torr/gH<sub>2</sub>O と、他の堆積岩地域での地下水中のガス量 (~1000Torr/gH<sub>2</sub>O)と比較して極端に少ないことが分かる。堆積岩地域では抽出されたガス量は、採取した水の深度と正の相関がある。これは、CO<sub>2</sub> ガスの圧力依存性によるものと思われる。しかし、東濃地域では深度との相関は得られなかった。

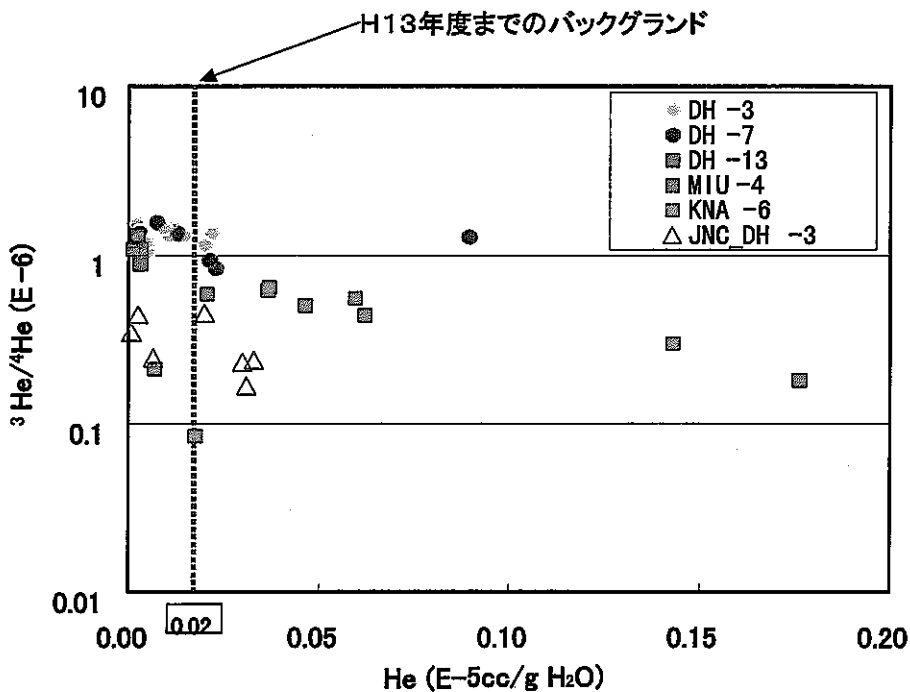


図 18 試料水中の He 量とガラス製ガス抽出装置のバックグラウンド

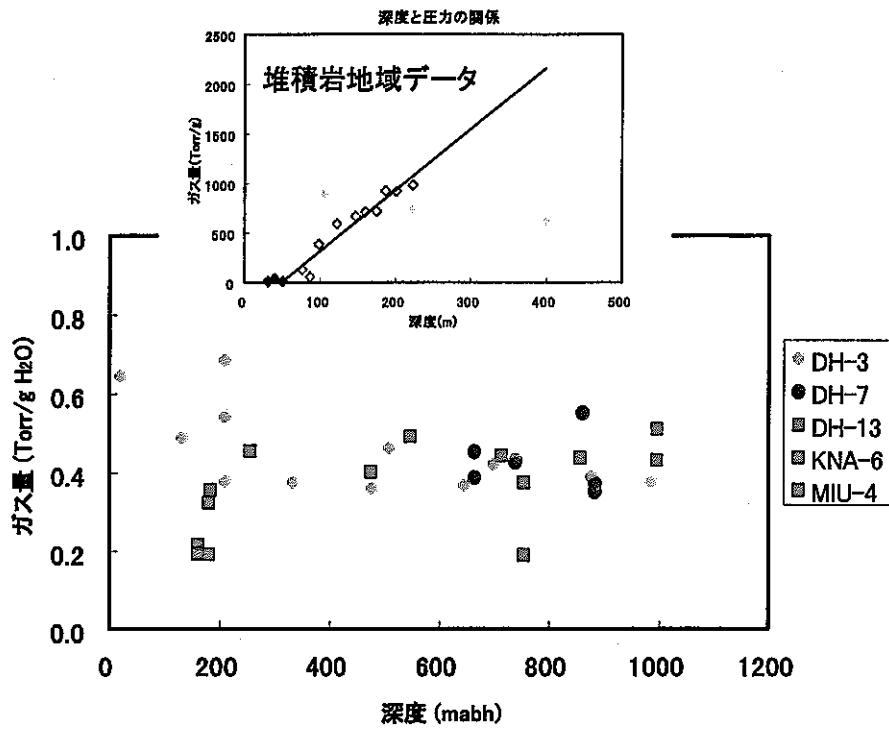


図 19 東濃地域の地下水試料中のガス濃度（上の図は他堆積岩地域の例）

表 8 ステンレス製精製装置のバックグラウンド測定結果

(ラインの数字は,装置の各部分を示す)

ライン	リーク率(cc/min)	地下水試料に及ぼす影響(%)	
		ガス	影響率
ガラスライン	0.042	He	0.001~0.0066
1	$7.87 \times 10^{-6}$	Ne	0.0003~0.25
2	$3.29 \times 10^{-6}$	Ar	0.0001~0.12
3	$2.95 \times 10^{-6}$	Kr	0.0001~0.04
4	$2.98 \times 10^{-5}$	Xe	0.0001~0.06

## (2) ガス抽出装置の改良

平成 13 年度の分析結果より、ガラス製ガス抽出装置のバックグラウンドが分析値へ影響を及ぼしている可能性が示唆された。このため、新たなガス抽出装置を設計・製作した(図 14)。このガス抽出装置は、全てステンレス製であり、ロータリーポンプだけでなく、ターボ分子ポンプで装置内を高真空まで排気することにより、ガラス透過 He および残留ガスの混入を避けるよう改良した。この結果、抽出装置のバックグラウンドを表 8 の通り低減することができた。さらに、ステンレス製にしたことにより、高温での装置の焼きだしが行えるようになり、バックグラウンドをさらに低減することができた。また、メタルバルブを導入していることから、抽出作業での操作性も向上した。

## (3) 平成 13 年度データの見直し

ガス抽出装置をガラス製から、メタル製に変え、ターボ分子ポンプを設置して高真空を得るよう改良したことにより、抽出装置のバックグラウンドの影響を低減することができた。そこで、平成 13 年度に採取した試料の分析結果のうち、バックグラウンドの影響がある試料を除外して、表 6 と表 7 を再表示すると、それぞれ表 9 及び表 10 になる。この表には、平成 14 年度以降の分析値及び幌延地域の地下水中の分析値も示している。

表 9 東濃・幌延地域の地下水中の希ガス同位体存在量

試料名	孔名	深度上端 (mabh)	深度下端 (mabh)	<sup>4</sup> He	<sup>20</sup> Ne	<sup>36</sup> Ar	<sup>40</sup> Ar	<sup>84</sup> Kr	<sup>132</sup> Xe
				cc/g H <sub>2</sub> O					
				E-5	E-9	E-9	E-5	E-9	E-9
<東濃地域>									
JNC-2	KNA-6	160.0		0.007	14	137	4.1	4.79	0.26
JNC17	KNA-6	160.0		0.018	32	301	9.3	4.32	0.05
	KNA-6	160.0		0.088	153	815	24.1	27.8	1.46
	KNA-6	180.0		0.110	152	827	24.4	28.6	1.50
JNC-4	MIU-4	584.0	647.0	0.424	682	2954	87.7	40.1	1.77
JNC21	MIU-4	754.5	790.1	0.176	76	7515	222	75.2	0.97
	MIU-4	754.5	790.1	0.308	1569	4070	120	101	4.20
JNC46	DH-3(Z-1)	19.1		0.016	302	645	19.2	16.1	0.67
JNC36	DH-3(Z-2)	130.3	139.5	0.004	160	843	25.2	7.92	0.08
JNC6	DH-3(Z-3)	208.4	220.7	0.020	505	2470	73.2	20.1	0.18
JNC10	DH-3(Z-3)	208.4	220.7	0.022	404	2225	65.9	23.2	0.22
JNC42	DH-3(Z-6)	507.9	521.7	0.005	114	1038	31.3	8.58	0.08
JNC44	DH-3(Z-9)	876.9	889.1	0.005	68	883	26.4	11.9	0.16
	DH-7	482.4		0.224	6731	11845	352	218	9.21
JNC-3	DH-7	563.8		0.023	394	2430	72.1	75.9	6.22
JNC34	DH-7	837.6		0.021	714	3372	101	60.3	0.14
JNC52	DH-7	860.1		0.018	247	407	12.2	10.0	0.34
	DH-7	967.5		0.029	388	1322	39.1	37.4	1.62
	DH-7	967.5		0.043	1088	2181	65.2	48.9	2.02
JNC31	DH-13	182.0	252.0	0.021	299	3595	109	39.9	0.41
JNC32	DH-13	253.5	323.5	0.046	753	7544	226	69.0	0.57
JNC33	DH-13	474.5	544.5	0.037	62	5958	179	54.4	0.44
JNC26	DH-13	546.0	616.0	0.062	911	7740	232	67.7	0.65
JNC27	DH-13	713.0	783.0	0.143	1329	10101	302	85.7	0.68
JNC28	DH-13	856.2	926.2	0.037	625	7751	233	82.0	0.85
JNC24	DH-13	995.0	1015.0	0.060	839	7966	239	75.8	0.63
	DH-15	84.5	97.4	0.019	283	1650	55.2	94.3	6.78
	DH-15	63.0	72.5	0.013	252	1220	36.2	50.7	4.21
	DH-15	152.1	216.3	0.511	139	867	25.7	39.8	6.02
	DH-15	233.6	240.0	0.706	63	579	17.4	29.5	2.53
J14-2	MSB-2	79.0	130.5	20.6	10705	1684	267	290	18.1
J14-4	MSB-2	132.0	154.0	18.4	1496	1188	188	201	11.6
J14-1	MSB-2	171.5	175.5	17.0	1557	1386	220	242	14.6
J14-3	MSB-4	95.5	99.0						
J15-3-1	MIZ-1	215.0	225.7	0.443	531	538	16.6	16.0	3.31
<幌延地域>									
J14-5	HDB-1	548.0	563.2	0.006	10	15	2.3	6.62	1.02
J14-6	HDB-2	346.0	405.0	0.060	142	133	21.2	16.37	0.80
J14-8	HDB-3	160.5	200.5	0.000	3	1	0.2	0.31	0.04
J14-7	HDB-4	281.5	299.5	0.014	5	10	1.5	1.78	0.09
J14-10	//	407.9	520.0	0.028	50	94	2.8	4.71	0.85
J14-9	HDB-5	182.1	250.5	0.003	10	19	3.1	4.03	0.20
J14-11	//	331.2	402.2	0.011	62	126	3.8	2.70	0.10
	HDB-6	364.0	409.0						
	HDB-8	168.0	184.1						

表 10 東濃・幌延地域の地下水中の希ガス同位体比

試料名	孔名	深度上端 (mab)	深度下端 (mab)	$^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$	$^3\text{He}/^4\text{He}$ ( $\times 10^{-6}$ )	$^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$	$^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$	$^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$	$^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$
<東濃地域>									
JNC-2	KNA-6	160.0		4.90	0.21	9.73	0.0289	0.189	296.4
JNC17	KNA-6	160.0		5.47	0.08	9.74	0.0287	0.189	307.9
	KNA-6	160.0		5.79	0.14	9.80	0.0290	0.188	295.5
	KNA-6	180.0		7.25	0.12	9.80	0.0290	0.188	295.5
JNC-4	MIU-4	584.0	647.0	6.22	0.09	9.65	0.0287	0.189	296.8
JNC21	MIU-4	754.5	790.1	2.33	0.18	9.70	0.0286	0.188	296.0
	MIU-4	754.5	790.1	1.97	0.31	9.78	0.0290	0.188	295.5
JNC46	DH-3(Z-1)	19.1		0.53	1.32	9.72	0.0289	0.188	297.2
JNC36	DH-3(Z-2)	130.3	139.5	0.28	1.03	9.63	0.0287	0.189	298.9
JNC6	DH-3(Z-3)	208.4	220.7	0.40	1.14	9.68	0.0285	0.188	296.2
JNC10	DH-3(Z-3)	208.4	220.7	0.55	1.34	9.75	0.0286	0.188	296.4
JNC42	DH-3(Z-6)	507.9	521.7	0.43	1.04	9.55	0.0286	0.189	301.9
JNC44	DH-3(Z-9)	876.9	889.1	0.69	1.18	9.70	0.0289	0.189	299.5
	DH-7	482.4		0.33	1.27	9.73	0.0289	0.188	296.8
JNC-3	DH-7	563.8		0.58	0.83	9.72	0.0288	0.189	297.0
JNC34	DH-7	837.6		0.30	0.92	9.59	0.0285	0.189	299.4
JNC52	DH-7	860.1		0.75	1.01	9.60	0.0288	0.189	300.0
	DH-7	967.5		0.74	0.47	9.78	0.0289	0.188	295.7
	DH-7	967.5		0.40	0.86	9.74	0.0289	0.188	298.7
JNC31	DH-13	182.0	252.0	0.69	0.59	9.56	0.0286	0.190	304.0
JNC32	DH-13	253.5	323.5	0.62	0.50	9.58	0.0286	0.189	299.8
JNC33	DH-13	474.5	544.5	0.59	0.62	9.60	0.0286	0.189	300.1
JNC26	DH-13	546.0	616.0	0.68	0.44	9.59	0.0285	0.189	299.4
JNC27	DH-13	713.0	783.0	1.08	0.30	9.61	0.0285	0.189	298.9
JNC28	DH-13	856.2	926.2	0.59	0.64	9.58	0.0286	0.189	300.9
JNC24	DH-13	995.0	1015.0	0.71	0.55	9.57	0.0285	0.189	299.9
	DH-15	84.5	97.4	0.682	0.720	9.60	0.0292	0.202	334.1
	DH-15	63.0	72.5	0.506	1.00	9.63	0.0292	0.189	297.9
	DH-15	152.1	216.3	36.9	0.276	9.84	0.0294	0.189	296.3
	DH-15	233.6	240.0	112	0.402	9.85	0.0294	0.189	300.4
J14-2	MSB-2	79.0	130.5	19.2	0.42	9.89	0.0296	0.189	298.8
J14-4	MSB-2	132.0	154.0	123	0.40	9.97	0.0297	0.188	298.9
J14-1	MSB-2	171.5	175.5	109	0.45	9.86	0.0295	0.189	299.6
J14-3	MSB-4	95.5	99.0	3.86	1.82	10.1	0.0268	0.188	297.8
	MIZ-1	215.0	225.7	20.6	0.43	9.52	0.0291	0.189	308.9
	高砂温泉			681	0.93	9.79	0.0291	0.189	306.7
<幌延地域>									
J14-5	HDB-1	548.0	563.2	6.52	1.61	10.1	0.0318	0.189	296.9
J14-6	HDB-2	346.0	405.0	4.25	0.59	9.97	0.0306	0.190	302.0
J14-8	HDB-3	160.5	200.5	1.23	0.98	9.95	0.0307	0.189	297.8
J14-7	HDB-4	281.5	299.5	25.7	0.41	9.86	0.0303	0.190	302.9
J14-10	"	407.9	520.0	5.66	0.90	9.87	0.0300	0.188	299.3
J14-9	HDB-5	182.1	250.5	2.90	0.59	9.84	0.0302	0.190	300.6
J14-11	"	331.2	402.2	1.77	3.10	9.77	0.0300	0.189	297.8
	HDB-6	364.0	409.0	0.46	1.19	9.81	0.0293	0.188	296.9
	HDB-8	168.0	184.1	0.53	1.05	9.95	0.0295	0.190	294.2

バックグラウンドの低減によって、問題のあるデータを除外して、図 17 を再プロットすると、図 20 のようになる。その結果、大気放射起源物質の混合ライン上に載るものだけが残る。これを見ると、各試料において  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比が小さくなると  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  比が大きくなる。これは、天水などが地下へ浸透し、花崗岩中の希ガス ( $^4\text{He}$ ) が付加された結果であると考えられる。これらの結果は、森川(2001)の結果と一致している。また、図 21 に全データをプロットしたものを示す。それぞれの井戸においては、KNA-6・MIU-4・DH-13 号孔の順で放射壊変起源  $^4\text{He}$  の寄与が大きい ( $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  比が増加) ことが判明した。このことは、これらの地下水の滞留時間が相対的に長いことを示している。

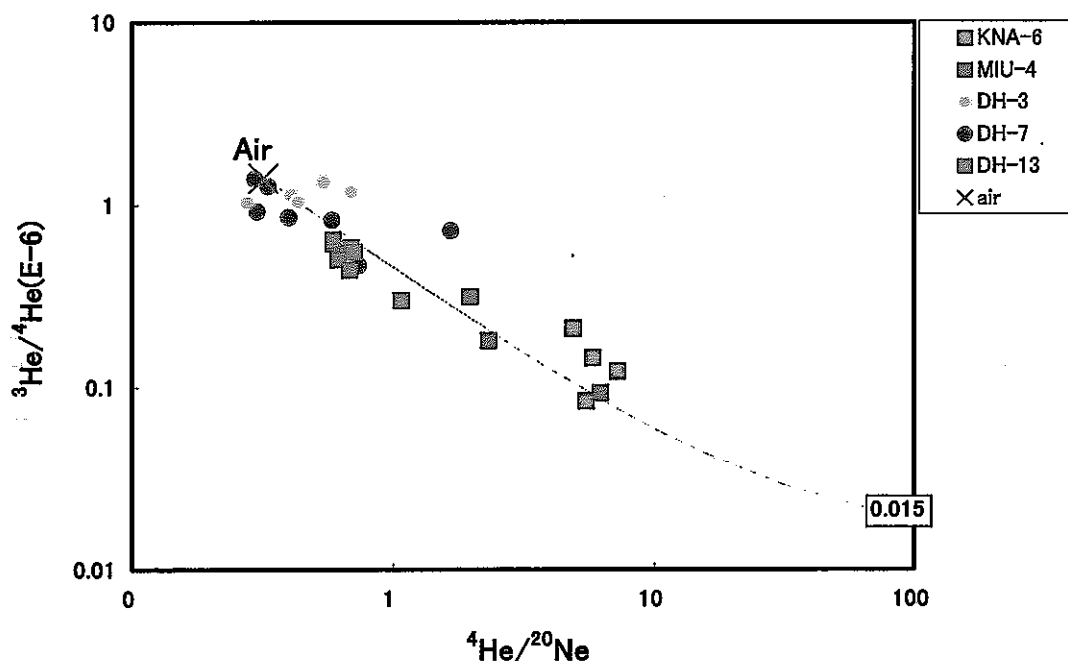


図 20 ガラス製精製装置で希ガスを抽出後の同位体比分析結果

(図 17 のデータのうち、バックグラウンド以下のものを削除したもの)

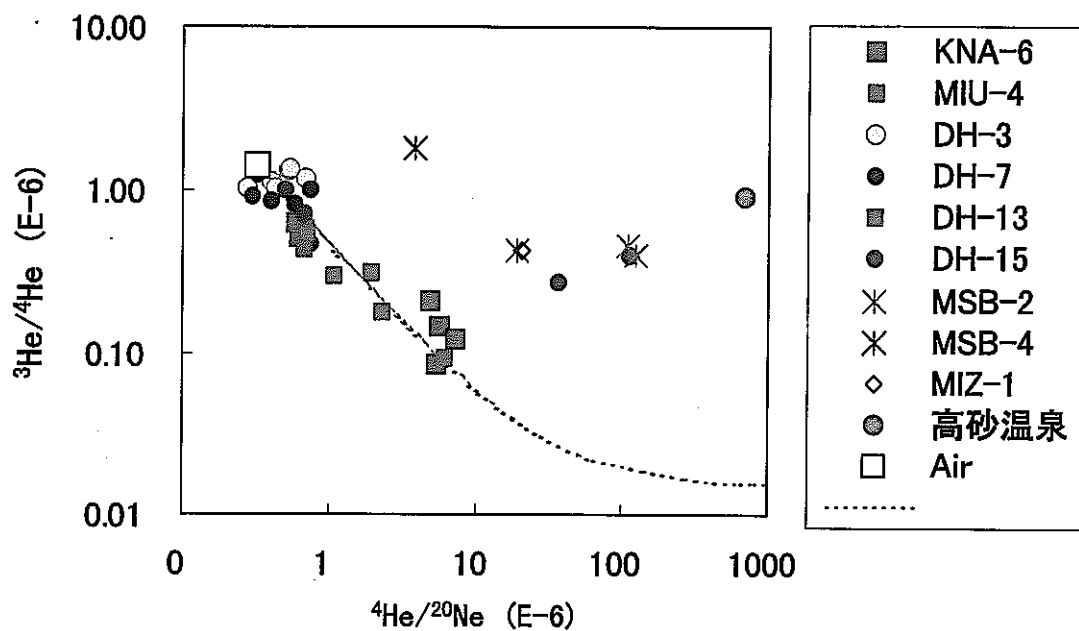


図 21 東濃地域地下水中の希ガス同位体比 (全データ)

(4) 深度プロファイル

図 22 に  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比と、図 23 に  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  比と深度との関係を示した。 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は、特に深度との相関は得られず、同じボーリング孔では変化はなかった。 $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  比については、MIU-4 号孔を除くと、深度 200m より浅い地下水では、 $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  比が大きく変動していることが分かる。

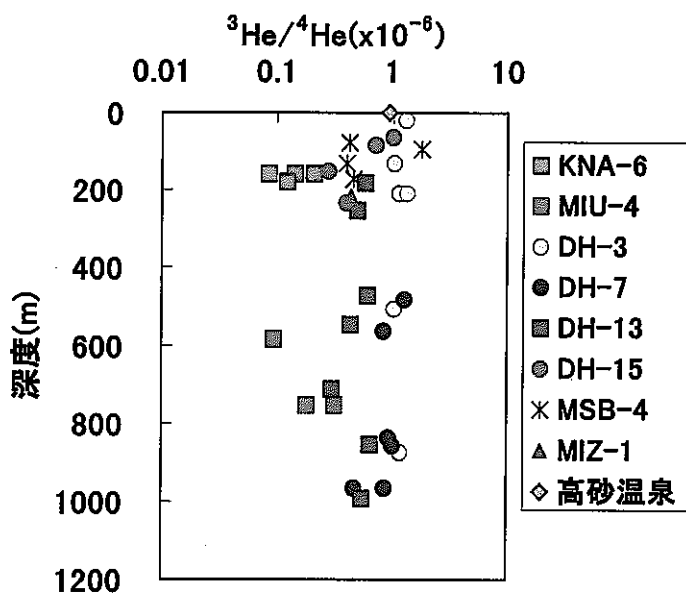


図 22 東濃地域の地下水の  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比と深度との関係



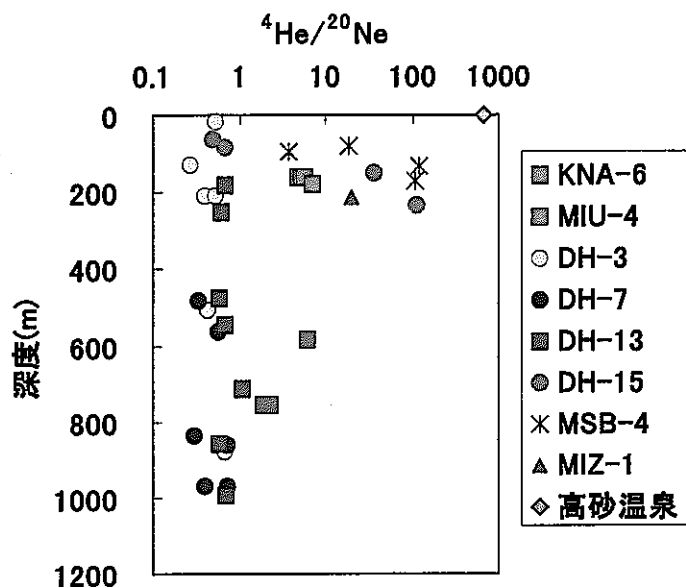


図 23 東濃地域の地下水の  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  比と深度との関係

(5) 東濃地域の花崗岩の希ガス同位体比

東濃地域のボーリングコアから採取した花崗岩の希ガス濃度及び同位体比を表 11 および表 12 に示す。 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比はほぼ  $5 \times 10^{-9}$  と極めて小さい値、 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  が 1600-6100 と高い値を示し、放射性起源  $^4\text{He}$  と  $^{40}\text{Ar}$  に富むことを示した。 $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  比は、深度が最も浅い試料 (DH-3-1) を除いて、2000 以上の値を持つ。この  $^3\text{He}/^4\text{He}$  と  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  を端成分とすれば、図 24 のようにこの地域の水試料の低い He 同位体比をよく説明することができる。更に、岩石中での核反応  $^{18}\text{O}(\alpha, n)^{21}\text{Ne}$  や  $^{24}\text{Mg}(n, \alpha)^{21}\text{Ne}$  により生成される  $^{21}\text{Ne}$  の過剰も検出された (図 25)。

表 11 東濃地域の岩石中の希ガス量

Sample		重量 (g)	$^4\text{He}$	$^{20}\text{Ne}$	$^{40}\text{Ar}$	$^{84}\text{Kr}$	$^{132}\text{Xe}$
孔名	採取深度(mabh)		E-9cc/g	E-9cc/g	E-9cc/g	E-12cc/g	E-12cc/g
DH-3-1	208.40-208.60	0.6430	3540	5.63	13100	242	14.8
DH-3-3	329.90-330.10	0.4031	11600	2.88	12100	69.4	6.83
DH-3-5	481.00-481.20	0.4352	6130	1.78	9780	83.5	15.5
DH-3-7	509.50-509.60	0.5116	8150	1.44	10400	73.6	7.08
DH-3-13	882.10-882.30	0.4413	10800	3.45	12300	111	7.88
DH-3-15	996.00-996.20	0.5539	9600	4.87	11100	105	8.43
KNA6-15	96.0-101.0	0.5019	13600	1.34	10200	95.9	7.96

表 12 東濃地域の岩石の希ガス同位体比

Sample	$^3\text{He}/^4\text{He}$ E-6	e-3/4 E-6	$^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$	e-20/22	$^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$	e-21/22	$^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$	e-38/36	$^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$	e-40/36
孔名 採取深度(mabb)										
DH-3-1 208.40-208.60	0.0039	0.0034	9.804	0.047	0.0314	0.0007	0.1894	0.0010	1597	4
DH-3-3 329.90-330.10	0.0050	0.0030	9.428	0.060	0.0350	0.0008	0.1924	0.0016	6107	37
DH-3-5 481.00-481.20	0.0080	0.0028	9.463	0.052	0.0341	0.0009	0.1891	0.0009	2543	7
DH-3-7 509.50-509.60	0.0054	0.0030	9.261	0.047	0.0377	0.0011	0.1909	0.0014	4882	12
DH-3-13 882.10-882.30	0.0045	0.0032	9.478	0.043	0.0323	0.0006	0.1910	0.0018	3445	15
DH-3-15 996.00-996.20	0.0041	0.0028	9.559	0.048	0.0304	0.0006	0.1895	0.0016	3295	12
KNA6-15 96.0-101.0	0.0108	0.0032	9.343	0.085	0.0420	0.0013	0.1911	0.0021	3931	15

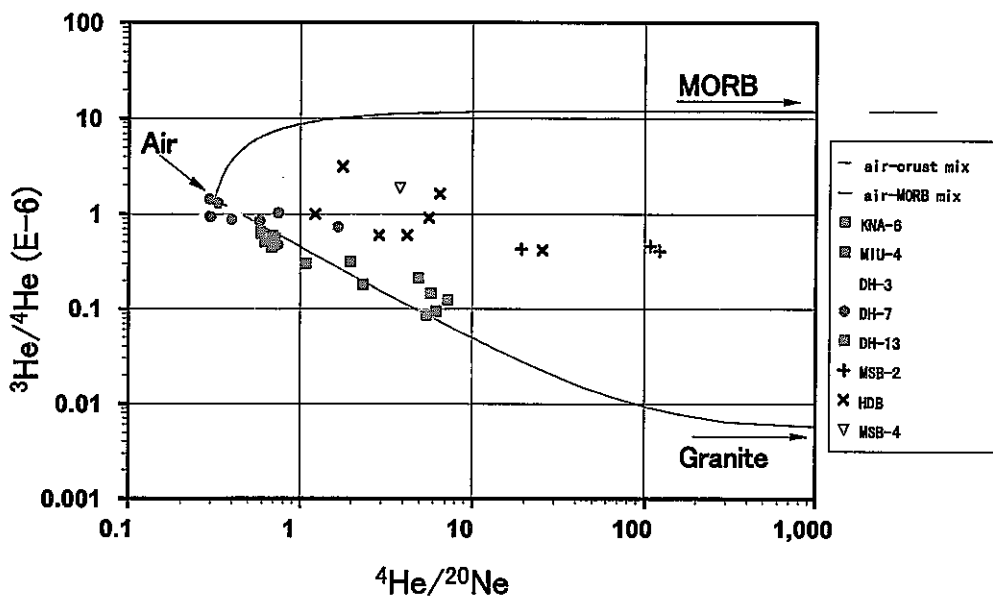


図 24 ボーリングコア岩石の He,Ne 同位体測定値を端成分 (Granite) とした mixing line

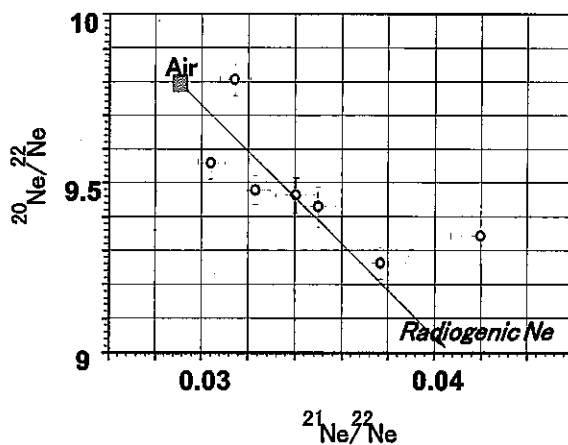


図 25 東濃地域花崗岩中の  $^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$  比と  $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$  比の関係

$\alpha$  および  $n$  は U, Th の  $\alpha$  壊変と  $\alpha$  粒子による核反応で二次的に生成される。岩石中に存在する U 及び Th の  $\alpha$  壊変起源  $^4\text{He}$  と、この  $\alpha$  粒子によって引き起こされる  $^{18}\text{O}(\alpha, n)^{21}\text{Ne}$  核反応起源  $^{21}\text{Ne}$  の存在量の比の地殻における平均値はほぼ  $2 \times 10^7$  である (図 26 中の青線: Ballentine and Burnard, 2002)。花崗岩の  $^4\text{He}/^{21}\text{Ne}$  比はこの平均値より低く、 $^4\text{He}$  の地下水への選択的な溶出を示唆し、地下水中の He 同位体の端成分を、地下水と接触する花崗岩中の He と仮定して良く説明できることと整合的である。

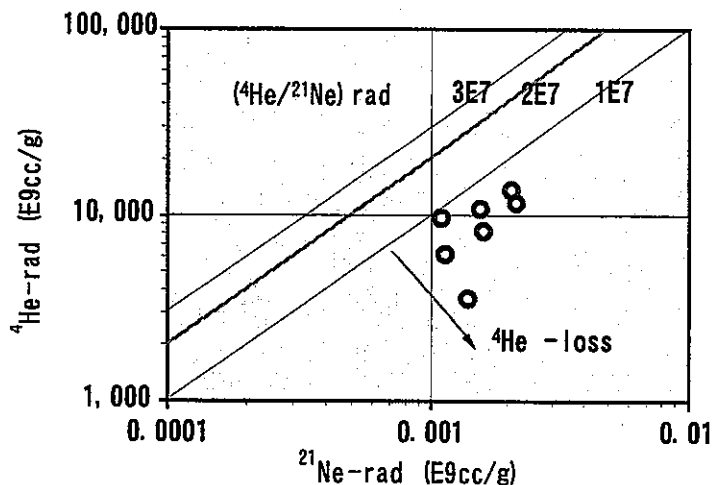


図 26 東濃地域の花崗岩の放射起源  $^4\text{He}$  と  $^{21}\text{Ne}$  との濃度の関係

#### (6) 幌延地域の希ガス同位体組成

幌延地域の試料の希ガス分析結果を表 13 と表 14 に示す。また、図 27 は  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比 -  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  比の関係を示したものである。それぞれの値は大気-放射壊変起源成分の混合ライン上には乗らず、大気-放射壊変起源成分の混合ラインと大気-マントル起源成分の混合ラインの中間位置にプロットされる。このことは、放射壊変起源  $^4\text{He}$  の付加だけではなく、別起源の希ガスの付加が考えられる。この仮説を支持するデータが、約 30km 南の遠別で採取されたガス試料で得られている ( $^3\text{He}/^4\text{He} = (1.96 \pm 0.04) \times 10^{-6}$ ,  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne} = 274$ ,  $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar} = 348.5 \pm 0.3$ ; Shibata 未公表データ)。

表 13 幌延地域の地下水試料

Sample		試料重量 (g)	$^4\text{He}$ E-5cc/g H <sub>2</sub> O	$^{20}\text{Ne}$ E-9cc/g H <sub>2</sub> O	$^{36}\text{Ar}$ E-9cc/g H <sub>2</sub> O	$^{40}\text{Ar}$ E-5cc/g H <sub>2</sub> O	$^{84}\text{Kr}$ E-9cc/g H <sub>2</sub> O	$^{132}\text{Xe}$ E-9cc/g H <sub>2</sub> O	備考		
孔名	採取深度 (mabh)								試料採取 容器	ガス分取	ガス分取 ライン
HDB-3	160.5-200.45	996	0.0004	3.35	1.37	0.216	0.311	0.040	④	MMC	メタル
HDB-4	281.45-299.525	966	0.0135	5.28	9.52	1.52	1.78	0.086	④	MMC	メタル
HDB-4	407.9-520	32.3	0.0282	49.9	94.1	2.82	4.71	0.345	①	MMC	メタル
HDB-5	182.05-250.46	974	0.0028	9.54	19.3	3.05	4.03	0.195	④	MMC	メタル
HDB-5	331.22-402.23	49.5	0.0111	62.4	126	3.77	2.70	0.104	①	MMC	メタル

表 14 幌延地域の地下水の希ガス同位体比

Sample		$^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$	$^3\text{He}/^4\text{He}$	$e\text{-}3/4$	$^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$	$e\text{-}20/22$	$^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$	$e\text{-}21/22$	$^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$	$e\text{-}38/36$	$^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$	$e\text{-}40/36$
孔名	採取深度 (mab)		E-6	E-6								
HDB-3	160.5-200.45	1.23	0.980	0.281	9.73	0.018	0.0290	0.00055	0.1886	0.00091	297.75	0.75
HDB-4	281.45-299.525	25.7	0.408	0.034	9.64	0.016	0.0288	0.00028	0.1897	0.00070	302.94	0.48
HDB-4	407.9-520	5.66	0.898	0.113	9.87	0.040	0.0300	0.00050	0.1881	0.00036	299.30	0.70
HDB-5	182.05-250.46	2.90	0.591	0.124	9.62	0.015	0.0289	0.00022	0.1898	0.00058	300.64	0.59
HDB-5	331.22-402.23	1.77	3.10	0.295	9.77	0.039	0.0300	0.00048	0.1887	0.00055	297.75	0.67

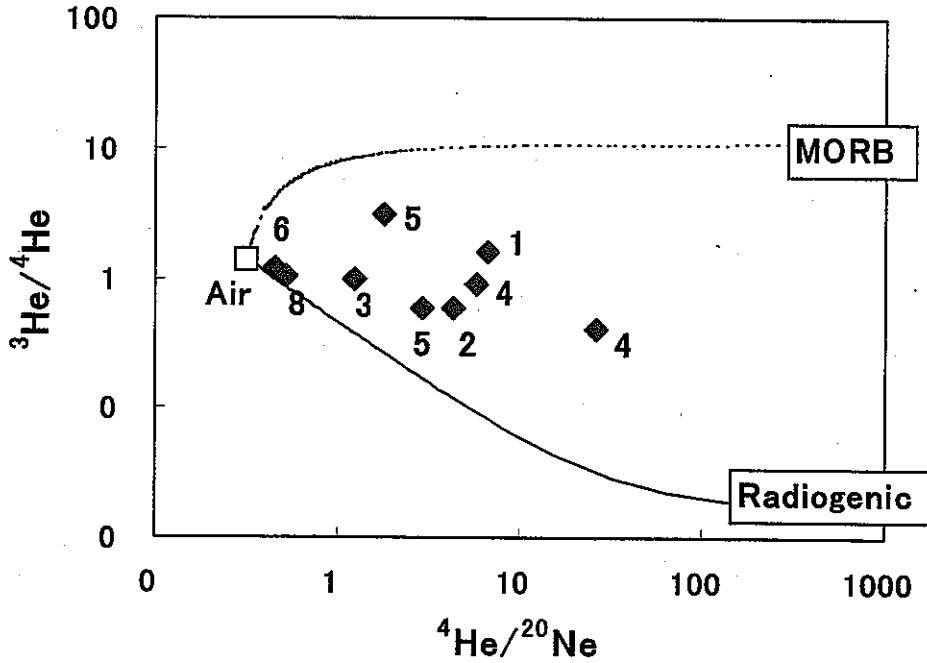


図 27 幌延地域の地下水の希ガス同位体比

(図中の番号は、HDB 孔の孔番号を示す)

## 4.2. Sr 同位体組成

### (1) 東濃地域

東濃地域の地下水と岩石の Sr 同位体比を,それぞれ表 15, 16 に示す。

表 15 東濃地域の地下水の Sr 同位体組成

試料名	深度 mabh	採取日	分析項目 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	Sr[mg/l]
MIU-4	754.50~790.10	01/08/20	0.7121 ± 9	0.01
KNA-6不整合	160	01/08/20	0.7107 ± 11	<0.01
KNA-6花崗岩	180	01/08/20	0.7116 ± 8	0.05
MIU-4号孔横沢水	—	01/08/20	0.7093 ± 8	0.06
DH-3 Z-1	19.1-25.4		0.7104 ± 8	0.16
DH-3 Z-2	130.3-139.5	01/11/13	0.7114 ± 8	0.18
DH-3 Z-3	208.4-220.7	01/08/21	0.7105 ± 8	0.11
DH-3 Z-4	330.6-337.8	01/11/14	0.7119 ± 9	0.19
DH-3 Z-5	475.7-485.0		0.7123 ± 9	0.14
DH-3 Z-6	507.9-521.7	01/11/15	0.7123 ± 9	0.12
DH-3 Z-7	645.6-660.8		0.7117 ± 8	0.05
DH-3 Z-8	699.7-706.0	01/08/21	0.7119 ± 8	0.02
DH-3 Z-9	876.9-889.1		0.7116 ± 8	0.03
DH-3 Z-11	984.4-1002.5	01/11/13	0.7120 ± 9	0.06
DH-7	479.0 - 485.5	02/02/01	0.7130 ± 17	
DH-7	660.0 - 666.5	01/09/03	0.7126 ± 13	
DH-7	735.5 - 742.0	01/09/27	0.7125 ± 10	
DH-7	833.5 - 840.0	01/10/31	0.7126 ± 13	
DH-7	857.0 - 863.5	01/11/30	0.7118 ± 11	
DH-7	880.0 - 886.5	01/12/26	0.7127 ± 13	
DH-7	964.5 - 971.5	02/01/31	0.7120 ± 13	
DH-13	182.00-252.00	01/10/25	0.7106 ± 10	
DH-13	253.50-323.50	01/10/11	0.7104 ± 13	
DH-13	474.50-544.50	01/10/06	0.7110 ± 11	
MBS-2	79.0-130.5	02/07/07	0.7095 ± 14	
MBS-2	132.0-154.0	02/06/29	0.7114 ± 11	
MBS-2	171.5-175.5	02/07/22	0.7114 ± 11	
MBS-4	95.5-99.0	02/08/13	0.7115 ± 13	

表 16 東濃地域の岩石試料の Sr 同位体比

試料名	深度 mabh	標高 masl	岩相	lab. No.	採取日	分析項目 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$
KNA6-8	37.9	133.8	頁岩	Sr714	2001/08/21	0.709906 ± 13
KNA6-14	85.0	101.1	花崗岩	Sr715	2001/08/21	0.714425 ± 8
DH3-1	208.5	143.2	花崗岩	Sr743	2001/11/13	0.717767 ± 8
DH3-3	330.0	22.8	花崗岩	Sr744	2001/11/13	0.717417 ± 8
DH3-5	481.1	-118.8	花崗岩	Sr745	2001/11/13	0.713858 ± 8
DH3-7	509.6	-144.4	花崗岩	Sr746	2001/11/13	0.716936 ± 10
DH3-9	644.5	-261.5	花崗岩	Sr747	2001/11/13	0.715228 ± 7
DH3-11	698.4	-306.3	花崗岩	Sr748	2001/11/13	0.715251 ± 9
DH3-12	702.4	-309.6	花崗岩・破碎	Sr749	2001/11/13	0.714458 ± 9
DH3-13	882.2	-450.2	花崗岩	Sr750	2001/11/13	0.720107 ± 10
DH3-15	996.1	-532.6	花崗岩・破碎	Sr751	2001/11/13	0.720129 ± 8
DH3-16	1004.3	-538.4	花崗岩	Sr752	2001/11/13	0.716509 ± 9

割れ目充填鉱物である方解石の Sr 同位体比は、岩石の値よりも地下水の値に近い (図 28)。この地下水の Sr 同位体比は、ばらつきがあるが、DH-13, DH-3, DH-7 号孔の順に高くなる傾向がある。この順序は、各孔井の東西方向の位置関係と対応する。MIU-4 号孔脇の河川水の Sr 同位体比が最も低い値を示し、地下水の値が岩石と河川水の間位置する事から、この地域の地下水が天水を起源とし、相対的に高い Sr 同位体比を持つ岩石との反応を起こしていることが推測される。

標高と地下水、岩石の Sr 同位体比との関係 (図 29, 30, 31) をみると、深度が増加すると同位体比も高くなるような傾向があるものの、ばらつきが 0.7130~0.7200 と大きいため、今回の結果からは断定できない。地下水については大局的に標高が高いほど低い値を示す。特に、DH-3 号孔の地下水では、深度が増加すると同位体比が高くなっている。

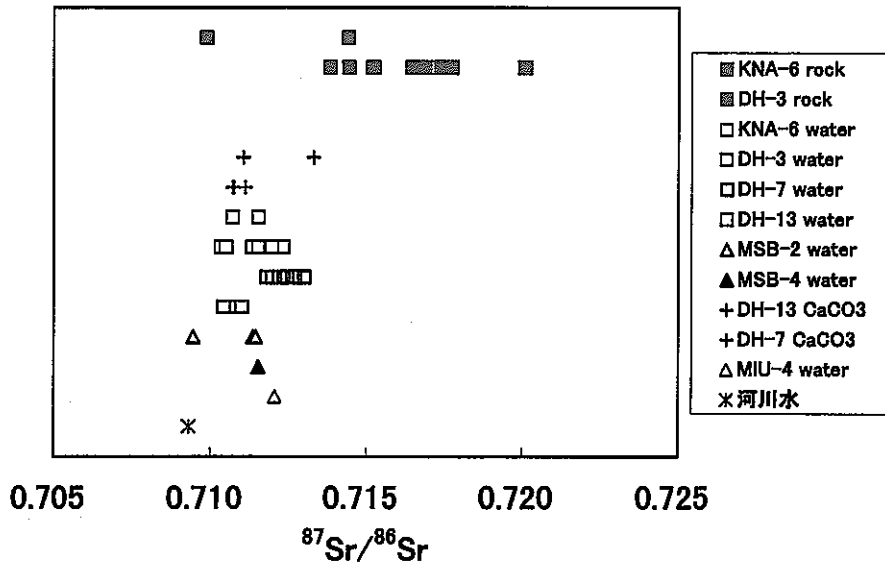


図 28 東濃地域の地下水・岩石・方解石の Sr 同位体比

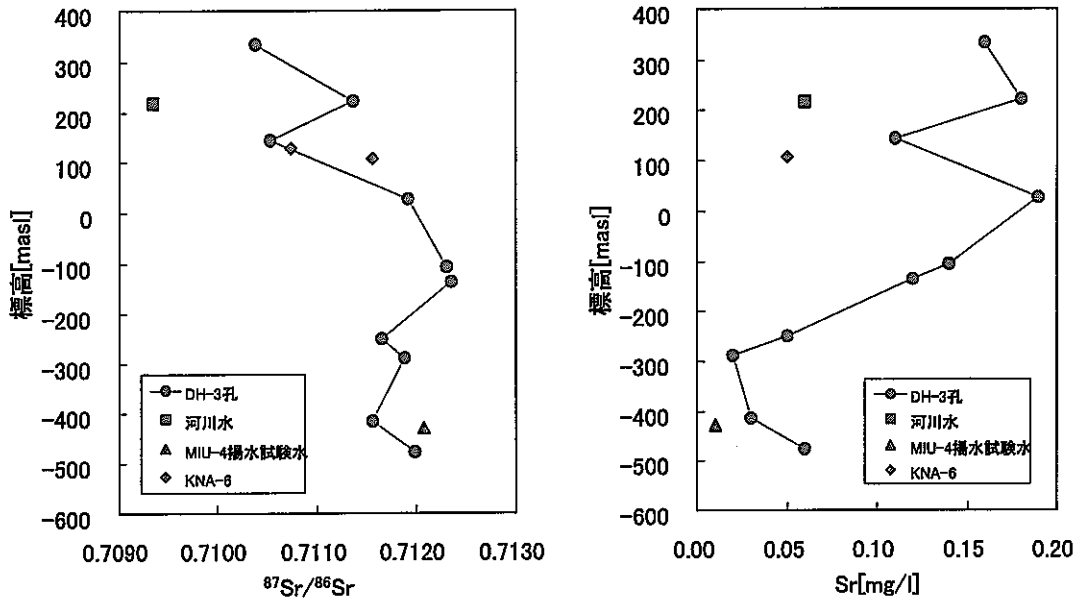


図 29 地下水の Sr 同位体比 (左図) と Sr 濃度 (右図)

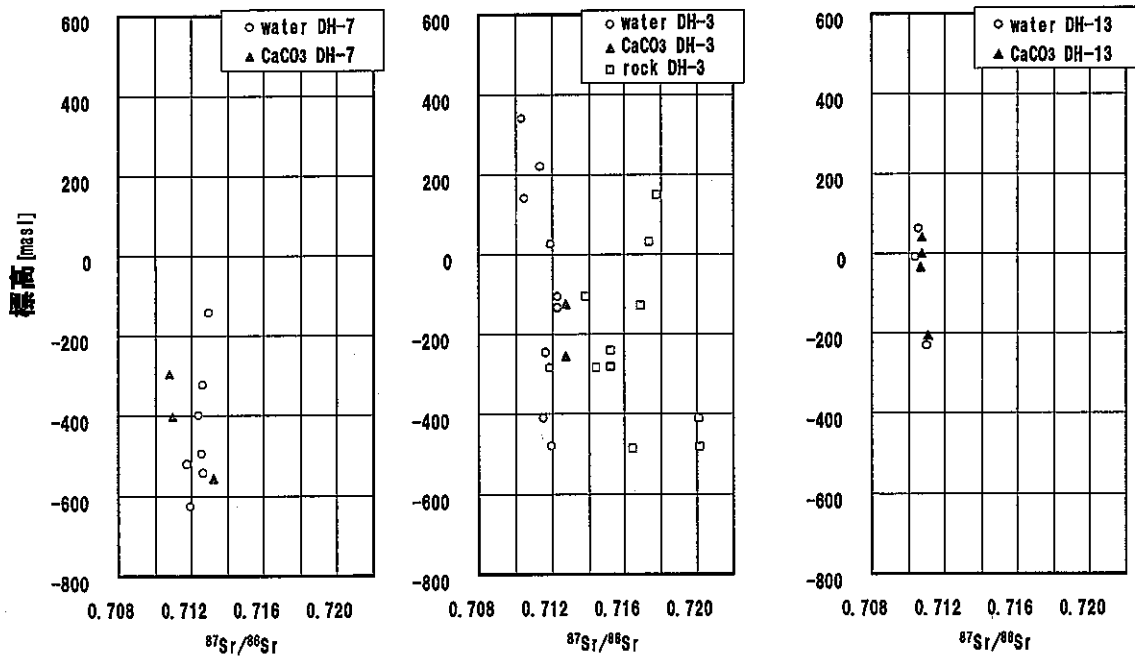


図 30 DH-3,7,13 号孔の地下水・方解石の Sr 同位体比と深度の関係

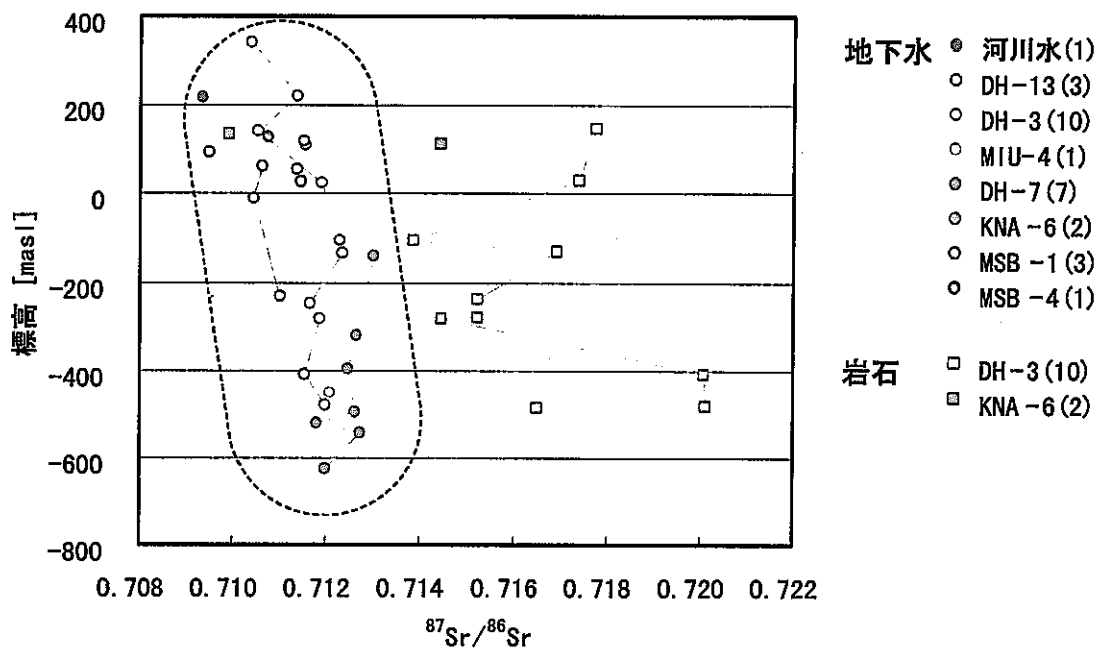


図 31 東濃地域の地下水と岩石の Sr 同位体比と深度の関係

東濃地域の岩石の Sr 同位体比が、天水や地下水の値よりも高いとすると、Sr 同位体比の高い地下水ほど岩石との反応が進んでいると考えられる。したがって、深度が深い程、また西側に位置するボーリング孔の地下水ほど、岩石との反応が進んで、Sr が溶脱していると推測される。

## (2) 幌延地域

幌延地域で採取された地下水及び岩石の Sr 同位体比を、それぞれ表 17 及び表 18 に示す。

地下水の Sr 同位体比は岩石の値よりも低い (図 32)。5 孔の地下水の Sr 同位体比はほぼ同じ値を示す。HDB-2 号孔の地下水が他の地下水に比べて低い値を示すが、これは他 4 孔が最長約 2km しか離れていない位置にあるのに対し、HDB-2 号孔だけが 6km 強離れているためと推測される。

図 30 は、標高に対して岩石と地下水の Sr 同位体比をプロットしている。岩石の値は、孔井毎の相違が殆ど見られず、深度方向についても規則性がない。これはこの地域の岩相に変化が無い事が理由と考えられ、多少のばらつきは岩石が堆積岩であることによると考えられる。



表 17 幌延地域の地下水の Sr 同位体比

試料名	HDB-1	HDB-2	HDB-3	HDB-4	HDB-4	HDB-5	HDB-5
掘削深度 [mab]	548.0-563.2m	346.0-405.0m	160.5-200.5m	281.5-299.5m	407.9-520.0m	182.1-250.5m	331.2-402.2m
$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	0.708041±12	0.707765±14	0.708048±10	0.708006±15	0.708051±14	0.708220±15	0.708032±10
pH	-	-	6.7	7.8	7.0	8.3	7.0
EC $\mu\text{S}/\text{cm}$	-	-	3490	430	1681	85	1301
Na mg/l	-	-	6900	880	3700	180	2900
K mg/l	-	-	320	21	59	5.4	46
Ca mg/l	-	-	220	23	95	2.2	99
Mg mg/l	-	-	210	10	56	0.96	46
Al mg/l	-	-	none	none	0.4	0.1	0.4
T-Fe mg/l	-	-	0.19	0.05	0.11	0.13	2.50
Fe <sup>2+</sup> mg/l	-	-	none	0.02	0.06	none	0.02
Cl <sup>-</sup> mg/l	-	-	11600	820	4600	67	3250
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> mg/l	-	-	38	0.3	7.0	2.2	6.8
Mn mg/l	-	-	0.01	0.01	0.03	0.01	0.03
Sr mg/l	-	-	5.70	0.23	1.30	0.02	1.10
F mg/l	-	-	none	0.2	0.4	0.4	0.2
T-CO <sub>2</sub> mg/l	-	-	2463	1243	2610	415	2640
Si mg/l	-	-	27	20	23	19	20

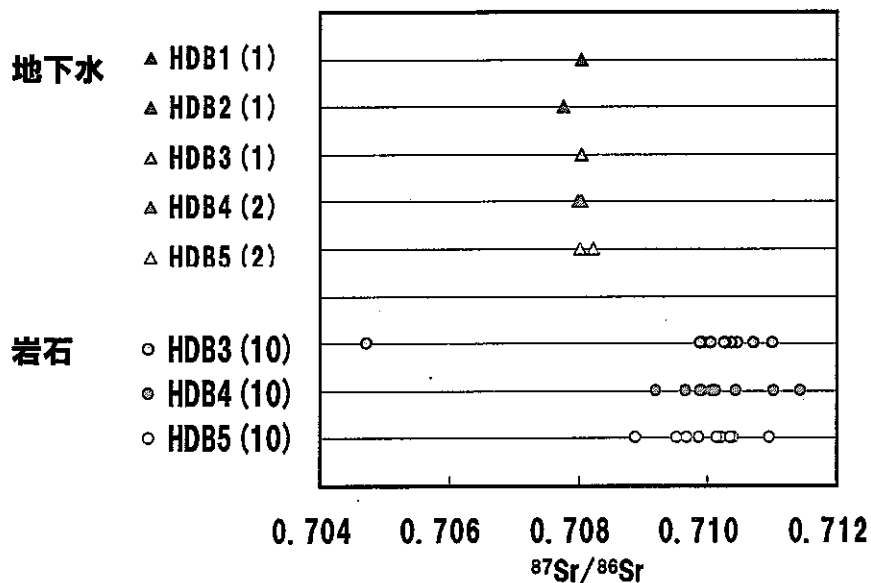


図 32 幌延地域の地下水・岩石の Sr 同位体比

(かっこ内の数字は、分析数を示す)

表 18 幌延地域の岩石の Sr 同位体比

name	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	e	Rb	Sr
			ppm	ppm
HDB-3 50.1- 50.1m	0.709939	8	55	74
HDB-3 99.2- 99.3m	0.709908	12	56	86
HDB-3 158.5-158.5m	0.704736	14	86	65
HDB-3 199.0-199.1m	0.710710	15	59	83
HDB-3 247.5-247.6m	0.711025	11	66	107
HDB-3 300.9-301.0m	0.710458	11	69	98
HDB-3 349.6-349.7m	0.710368	14	102	81
HDB-3 400.5-400.6m	0.710294	11	104	84
HDB-3 449.2-449.3m	0.710057	10	97	87
HDB-3 503.7-503.8m	0.710258	13	94	79
HDB-4 50.9- 51.0m	0.711038	15	57	89
HDB-4 100.0-100.1m	0.711456	10	55	112
HDB-4 149.8-149.9m	0.709912	12	52	83
HDB-4 250.0-250.1m	0.710070	9	72	106
HDB-4 286.5-286.5m	0.709217	10	97	73
HDB-4 297.3-297.4m	0.710440	14	64	98
HDB-4 349.1-349.2m	0.709892	17	96	92
HDB-4 400.1-400.2m	0.709904	12	99	89
HDB-4 450.2-450.3m	0.710130	13	99	86
HDB-4 500.2-500.2m	0.709660	10	74	77
HDB-5 50.0- 50.1m	0.709532	13	76	108
HDB-5 99.9-100.0m	0.710396	14	69	111
HDB-5 150.7-150.8m	0.710182	13	63	118
HDB-5 169.4-169.4m	0.710972	12	78	117
HDB-5 250.2-250.3m	0.709694	14	60	86
HDB-5 300.3-300.3m	0.710226	12	96	90
HDB-5 350.9-350.9m	0.710356	11	118	90
HDB-5 398.0-398.0m	0.708892	9	20	1460
HDB-5 461.2-461.3m	0.710158	13	134	103
HDB-5 502.5-502.5m	0.709885	12	118	96

e:  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  の分析誤差 (小数点以下5,6桁を示す)

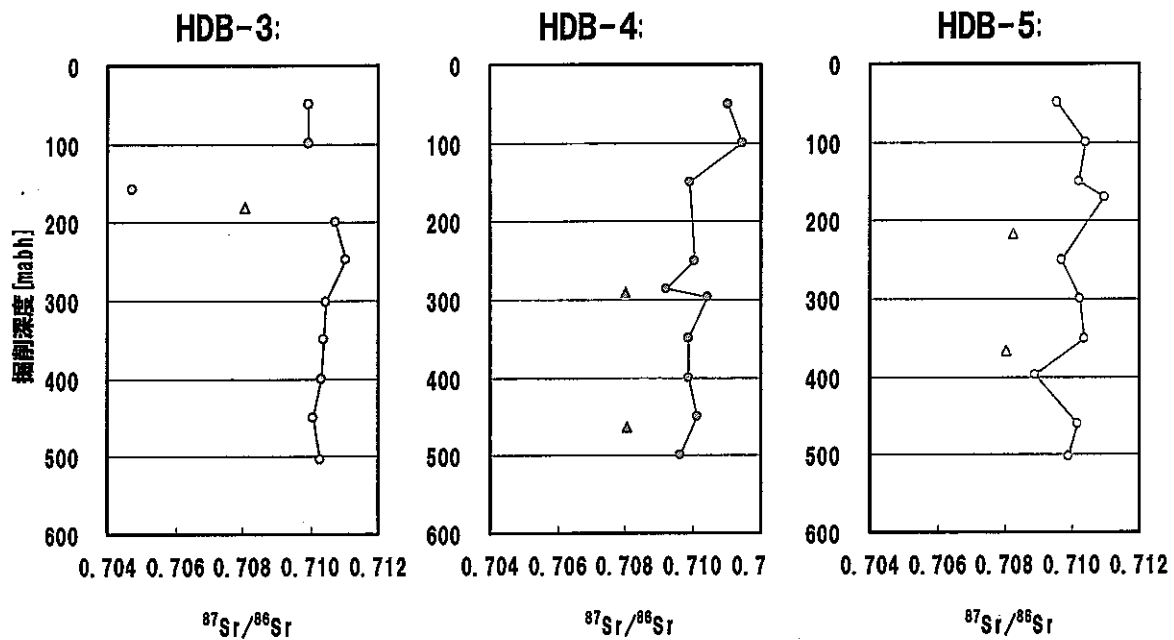


図 33 幌延地域の地下水 (△)・岩石 (○) の Sr 同位体比と深度との関係

#### 4.3. 岩石-水反応実験による Sr 同位体交換反応評価

##### (1) 東濃地域の試料を用いた岩石-地下水反応実験

岩石-水反応における Sr 同位体比の挙動を調べるために、反応は2種類の岩石を用いて行った。結果を、表 19 に示す。

深度 702.3-702.5m の岩石と 882.1-882.3m の岩石を用いた反応実験では、反応開始後 15 日間で、反応水の Sr 同位体比が一定となり、その値は全岩の値よりも低い値であった (図 34)。この原因として、まず岩石を粉末にしたことが考えられる。粉末にした岩石を水と混合し静置したところ、粒子の粗いものほど先に沈殿し、粘土状の岩石が上層に沈殿し層を成した。粘土の粒子は非常に細かく表面の孔隙率は非常に小さいと推測され、沈殿層上部との接触面だけで反応が起きた可能性がある。粉末にした際に粘土になりやすい鉱物とそうでない鉱物があったと仮定すると、そうした鉱物と優先的に反応した結果、反応後の地下水の Sr 同位体比が全岩の Sr 同位体比とは異なる値で収束したと考えられる。そこで沈殿した岩石を上層と下層に分け、それぞれの Sr 同位体比を測定した。その結果、上層の粘土層の Sr 同位体比も反応後の水の値とは一致しなかった (図 34)。

これは岩石と水に含まれる Sr 量のバランスが原因である可能性が考えられる。岩石と水に含まれる Sr 量が同じであった場合、どんなに反応が進んでも反応後の水の Sr 同位体比は、反応前の水の値と岩石の値の中間値にしかない。本実験で使用した岩石と地下水に含まれる全 Sr 量は、岩石で 820  $\mu\text{g}$  (702.3-702.5m) あるいは 1040  $\mu\text{g}$  (882.1-882.3m) であり、水中には 3  $\mu\text{g}$  である。

すなわち、岩石に含まれる Sr 量が圧倒的に多い。しかし反応中、岩石と水は攪拌されず、静置した際に岩石上層に粘土層が沈殿したため、透水性が悪く、反応に寄与した Sr 量は少なかったと予測される。

マスバランスについては、岩石/水比だけでなく、鉱物組成も検討する必要があると考えられる。Sr を保有していても反応しにくい鉱物と、反応しやすい鉱物が存在するため、岩石の鉱物組成比、各鉱物の Sr 量と Sr 同位体比を把握しないと、岩石-水反応において反応水が収束した原因を特定する事はできない。

DH-3, 7, 13 号孔の割れ目充填鉱物である方解石の Sr 同位体比が、水の Sr 同位体比に近い値であったことや、岩石の変質で方解石が生成すること等から、岩石-水反応で反応水の Sr 同位体比を規制している鉱物として方解石が考えられた。方解石の Sr 同位体比を測定するには方解石のみを分離する必要があるが、変質で生成し岩石中に存在する方解石を分離することは困難であることから、方解石が塩酸に溶けやすい性質を利用し、岩石と希塩酸を反応させ溶出した成分について Sr 同位体比を測定した。その結果を表 20 に示す。溶出液の Sr 同位体比は全岩や粘土層の Sr 同位体比よりも低い値を示したが、収束した反応水の Sr 同位体比よりも高い値であった。この原因としては、塩酸に溶出した鉱物が方解石だけでなかった事と、方解石だけだったとしても水と反応した Sr 量とのマスバランスで中間の値を示した事が考えられる。

表 19 岩石-水反応実験による Sr 同位体比

DH-3 702.30-702.50m									
反応時間	days	0	5	11	15	20	31	42	49
$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	-	0.711621	0.713036	0.713401	0.713384	0.713382	0.713423	0.713422	0.713457
Na	mg/L	28.8	61	63		65		68	
K	mg/L	0.2	22	23		25		27	
Ca	mg/L	9.4	22	25		31		34	
Mg	mg/L	0.2	2	1.8		2.3		2.6	
Sr	mg/L	0.05	0.21	0.25		0.3		0.31	

DH-3 882.10-882.30m									
反応時間	days	0	5	11	15	20	31	42	49
$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	-	0.711621	0.714051	0.715967	0.716207	0.716362	0.716487	0.715889	0.716453
Na	mg/L	28.8	50	52		55		55	
K	mg/L	0.2	34	35		37		39	
Ca	mg/L	9.4	6.1	3.6		4.2		3.9	
Mg	mg/L	0.2	0.82	0.18		0.21		0.2	
Sr	mg/L	0.05	0.03	0.01		0.02		0.01	

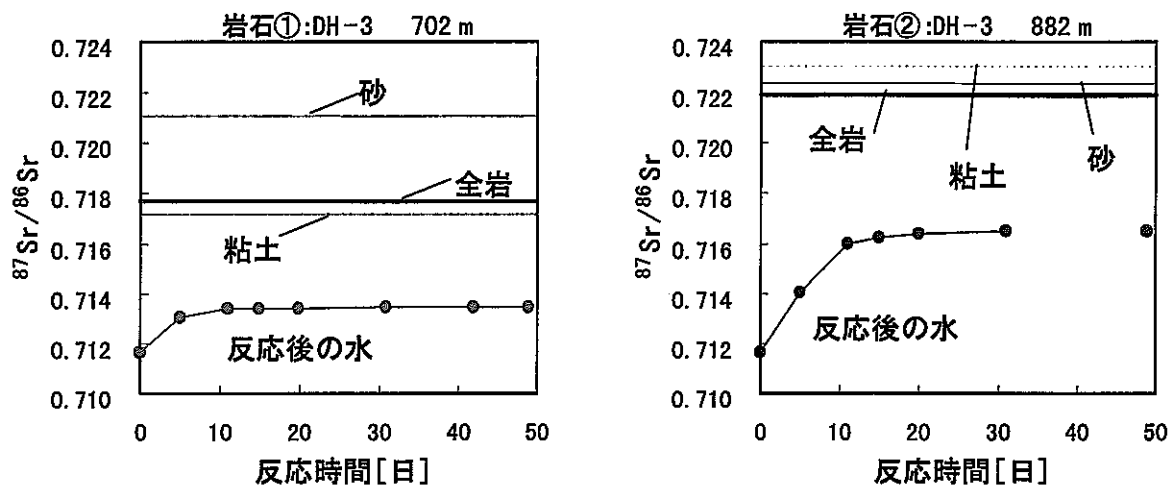


図 34 岩石-水反応実験による Sr 同位体比変化

次に反応水の主要陽イオン成分について検討する (図 35, 表 21)。Na, K, Ca, Mg, Sr 濃度の変化を調べた。702.3-702.5m 岩石との反応では、反応水のいずれの成分も反応開始から濃度が増加している。Na, K のアルカリ金属イオンは反応開始から 5 日の間に急激に濃度が増加し、その後は緩やかな増加であるのに対し、Ca, Mg, Sr のアルカリ土類金属イオンは反応開始後 5 日間の濃度増加率が最も高いが、その後も 20 日目までは増加率が比較的高い状態が続く。一方 882.1-882.3m の岩石との反応では、Na, K のアルカリ金属イオン濃度は 702.3-702.5m の岩石と同様の変化をするが、Ca, Mg, Sr のアルカリ土類金属イオンは反応開始から減少する傾向がある。減少率は 10 日まで高くその後は低い。両岩石の反応水について Ca/Na 比を調べてみると、702.3-702.5m 岩石では時間経過と共に Ca/Na 比は増加し、882.1-882.3m 岩石では減少している。この Ca/Na 比は、増加しているときは岩石から水への溶解反応が起きており、逆に減少しているときはイオン交換反応が起きている。反応に使用した水は同じであるため、このような違う反応が起きたのは岩石の違いが原因と考えられる。

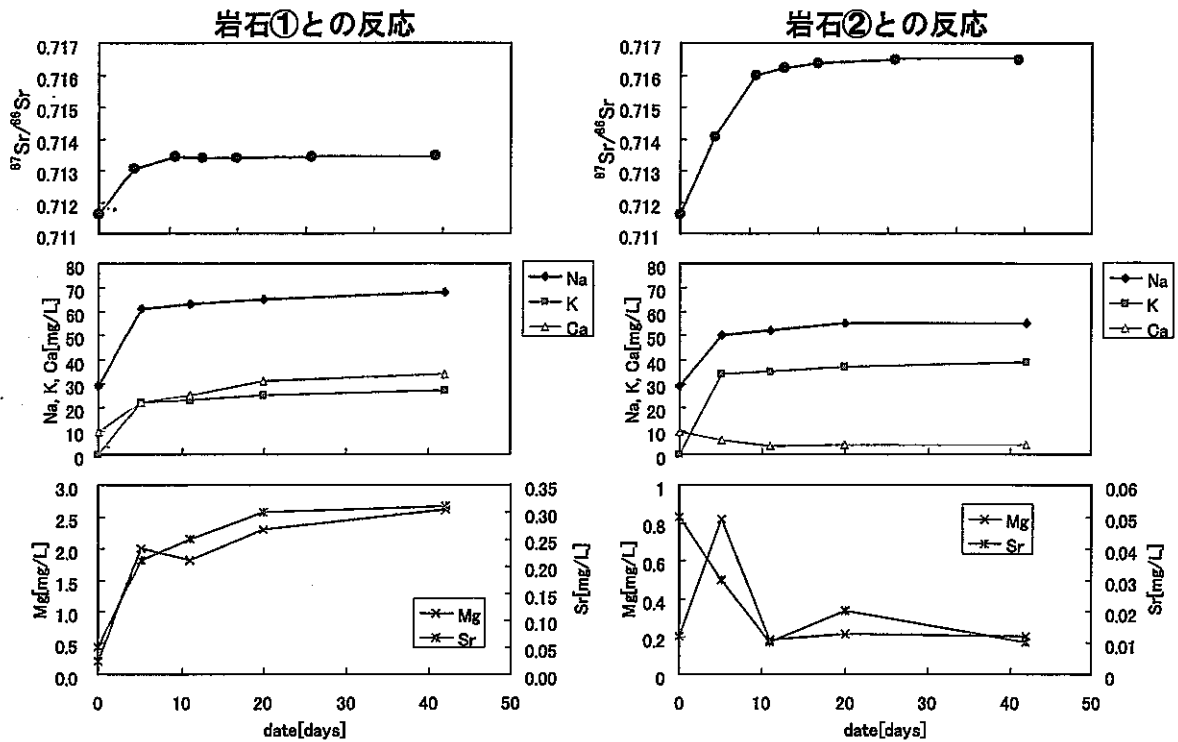


図 35 岩石-水反応実験による、反応水の化学組成変化

表 20 DH-3 号孔における個々の物質の Sr 同位体比

岩石 : DH-3 702.30-702.50m

	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	e
全岩	0.717692	11
粒度の小さい岩石 (粘土)	0.717172	9
粒度の大きい岩石 (砂)	0.721075	10
0.1N HCl 溶出液	0.714662	13

岩石 : DH-3 882.10-882.30m

	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	e
全岩	0.721904	12
粒度の小さい岩石 (粘土)	0.723062	13
粒度の大きい岩石 (砂)	0.722353	13
0.1N HCl 溶出液	0.719339	11

e:  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  の分析誤差 (小数点以下5,6桁を示す)

表 21 岩石-水反応後の溶液の化学組成

岩石: DH-3 702.3-702.5m

反応時間 days	<sup>87</sup> Sr/ <sup>86</sup> Sr	e	Na mg/L	K mg/L	Ca mg/L	Mg mg/L	Sr mg/L
0	0.711621	14	28.8	0.2	9.4	0.2	0.05
5	0.713036	12	61	22	22	2	0.21
11	0.713402	9	63	23	25	1.8	0.25
15	0.713384	11					
20	0.713382	12	65	25	31	2.3	0.3
31	0.713423	11					
42	0.713422	12	68	27	34	2.6	0.31
49	0.713457	10					

岩石: DH-3 882.1-882.3m

反応時間 days	<sup>87</sup> Sr/ <sup>86</sup> Sr	e	Na mg/L	K mg/L	Ca mg/L	Mg mg/L	Sr mg/L
0	0.711621	14	28.8	0.2	9.4	0.2	0.05
5	0.714051	12	50	34	6.1	0.82	0.03
11	0.715967	12	52	35	3.6	0.18	0.01
15	0.715207	11					
20	0.716362	11	55	37	4.2	0.21	0.02
31	0.716487	11					
42	0.715889	13	55	39	3.9	0.2	0.01
49	0.716453	11					

e: <sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Srの分析誤差 (小数点以下5,6桁を示す)

## 5. 考察

### 5.1. 希ガス同位体比

#### (1) <sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He 比 - <sup>4</sup>He/<sup>20</sup>Ne 比の関係

図 36 は、東濃地域及び幌延地域で分析された地下水中の希ガスのうち、<sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He 比 - <sup>4</sup>He/<sup>20</sup>Ne 比の関係を示している。図中の2つの破線は、大気あるいは水に溶解した大気中の He が、東濃のボーリングコア中の U, Th 起源の He と混合した場合 (<sup>4</sup>He/<sup>20</sup>Ne 比が増加すると <sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He 比が減少しているもの) と、上部マントル起源の He との混合した場合を示している。特に後者については、火山ガスや地熱ガスなどで、世界的に多く分析されており、その端成分の <sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He 比は、中央海嶺玄武岩中の値(MORB)とする ( $1.1 \times 10^{-5}$ , <sup>4</sup>He/<sup>20</sup>Ne 比 > 1000) ケースが多い (Staudacher and Allègre, 1988; Porcelli and Wasserburg, 1995)。一方、マントル起源の希ガスを含まず、U, Th の放射壊変起源希ガスを多く含む地殻物質のエンドメンバーとしては、本研究でもとめられた東濃花崗岩の測定値 (<sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He =  $5 \times 10^{-9}$ , <sup>4</sup>He/<sup>20</sup>Ne = 5000) を用いた。

図 37 は、東濃地域の地下水中の He 同位体濃度を示したものである。水の He の溶解度が、20°C では、 $3.75 \times 10^{-8}$  cc/gH<sub>2</sub>O である (図中の橙色四角の部分) ことから、この地域の地下水は、岩石から放射性起源の He が追加されたことを示す。ここで、DH-3 号孔や KNA-6 号孔が最も大気を溶解した天水に近い値を示しており、DH-13 号孔、DH-7 号孔及び MIU-4 号孔と He 濃度が増加してゆき、MSB-2 号孔が最も He を多く含んでいる地下水であることが分かる。さらに、同じボーリング孔で、He 濃度が大きく異なっているが、その <sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He 比はほぼ大気に近い一定であるものがある。これら希ガス濃度が高くなっているものは、試料容器への大気の流れ、または試料採取時に大気希ガスの汚染を受けた可能性が高い。また、MSB-2 号孔は東濃地域の他の地下水の値と異なることが分かる。

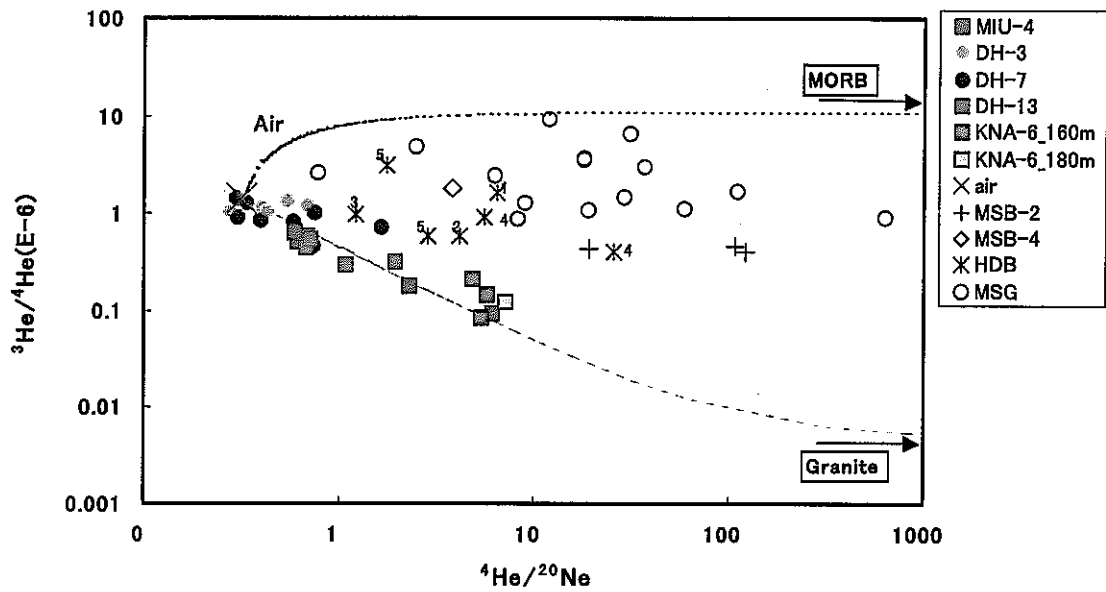


図 36 東濃・幌延地域の希ガス同位体比

(HDB は幌延試料, MSG は Nagao et al (1981) の地熱ガス試料, それ以外は東濃試料)

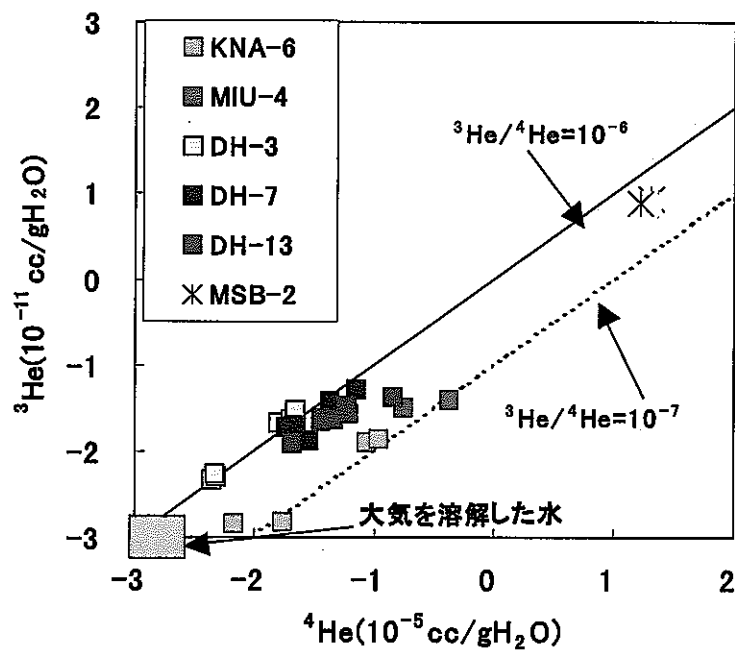


図 37 東濃地域の希ガス同位体比



## (2) $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$ - $^{20}\text{Ne}$ ダイアグラム

現在まで、様々な物質の希ガス同位体組成、特に He-Ne 同位体については、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比- $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  ダイアグラムで、物質の起源を論じている研究例が多い。本研究では、図の2つの混合線にプロットされない試料が存在すること、希ガスの同位体比を分析していることから、いろいろな同位体について三角ダイアグラム上にプロットして検討を行った。この図にプロットすると、ある試料が、2つの起源物質の混合によるものである際には、1つの直線上にプロットされる。これは、Giggenbach(1980)により、火山ガスで用いられた手法である。

図 38 は、東濃地域の地下水中の  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$ - $^{20}\text{Ne}$  同位体を示したものである。図中には、3つの起源物質である大気、マントル、放射起源希ガスに富んだ地殻物質を示している。この図から、図 36 で検討した結果と同様に、ほとんどの試料は大気あるいは大気-地殻物質(Radiogenic)の混合線上にプロットされる。

図 38 では、もう1本の別な混合線が想定される。それは、大気を1つの起源物質とし、もう一方は  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比が、 $6 \times 10^{-7}$  (図中の?マーク)である物質と推定される。ここで、MSB-2号孔の試料は、この値に近い点にプロットされ、 $^{20}\text{Ne}$  をほとんど含まないことが分かる。また、幌延地域の HDB 号孔のガス試料もばらつきはあるものの、この“?”の起源物質と大気との混合線近くの組成を示している。

坂本ほか(1993)は、本邦のグリーンタフ地域における天然ガスの炭素及び希ガス同位体比を分析し、メタンは生物起源であるが、He 同位体比は火山性ガスの寄与があることを示唆している。幌延地域は新第三紀堆積岩より形成され、火山活動の記載はない。また、ボーリング孔からは多量のメタンガスが発生しており、地下水中にもその存在が確認されている。幌延地域のガス試料の He 同位体比からは、放射性起源の He とマントル起源 (=火山性起源) の He が混合している可能性もあることが推測される。

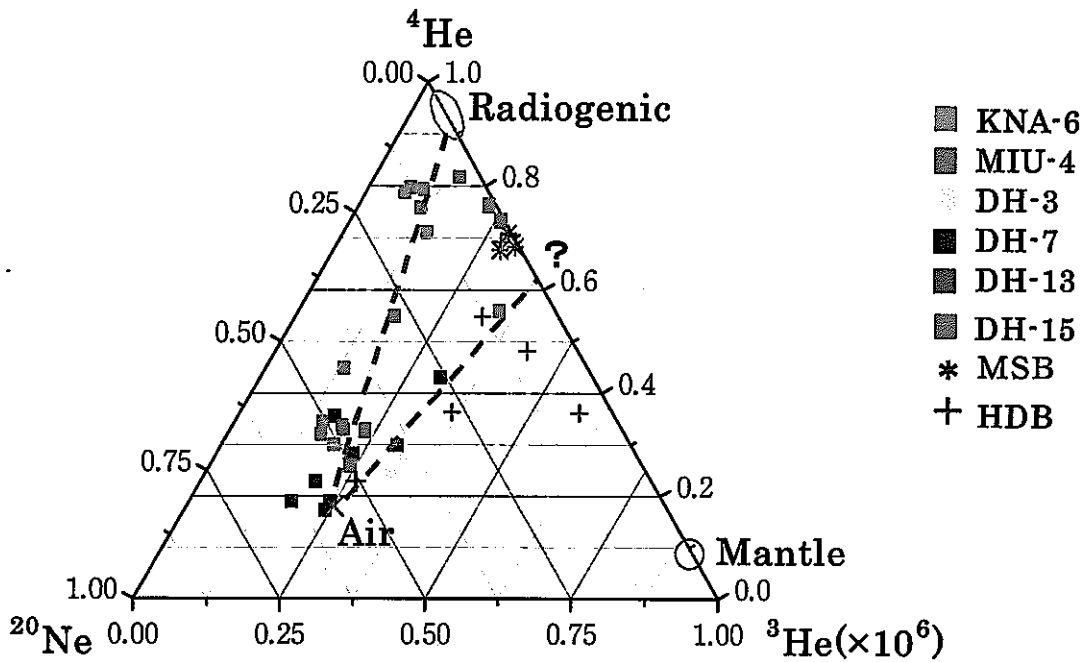


図 38  ${}^3\text{He}$ — ${}^4\text{He}$ — ${}^{20}\text{Ne}$  ダイアグラム

### (3) ${}^4\text{He}/{}^{20}\text{Ne}$ 比— ${}^{40}\text{Ar}/{}^{36}\text{Ar}$ 比の関係

図 39 は、東濃地域の地下水試料中の He-Ne-Ar の関係を検討したものである。この図で、縦軸の  ${}^{40}\text{Ar}/{}^{36}\text{Ar}$  比は、大気値 (296) よりも  ${}^{40}\text{Ar}$  に富むことが分かる。また、 ${}^4\text{He}/{}^{20}\text{Ne}$  比が増加すると、 ${}^{40}\text{Ar}/{}^{36}\text{Ar}$  比も増加する傾向がある。これは、花崗岩中に含まれる U, Th の放射壊変により形成される放射性起源の  ${}^4\text{He}$  の追加と、 ${}^{40}\text{K}$  の放射壊変により形成される  ${}^{40}\text{Ar}$  の追加が同時に起きていると思われる。

今回分析した試料中で最も  ${}^{40}\text{Ar}/{}^{36}\text{Ar}$  比が高かったのは、KNA-6 号孔の深度 160m と DH-15 号孔 (85m) であるが、同じボーリング孔でも低い値を示すものがあり、この原因については現在のところ不明である。また、深度との関係 (図 40) については、特に相関は認められなかったため、単純に天水が浸透して、下降する際に時間と共に岩石から放射性  ${}^{40}\text{Ar}$  が蓄積されたとは考えられない。

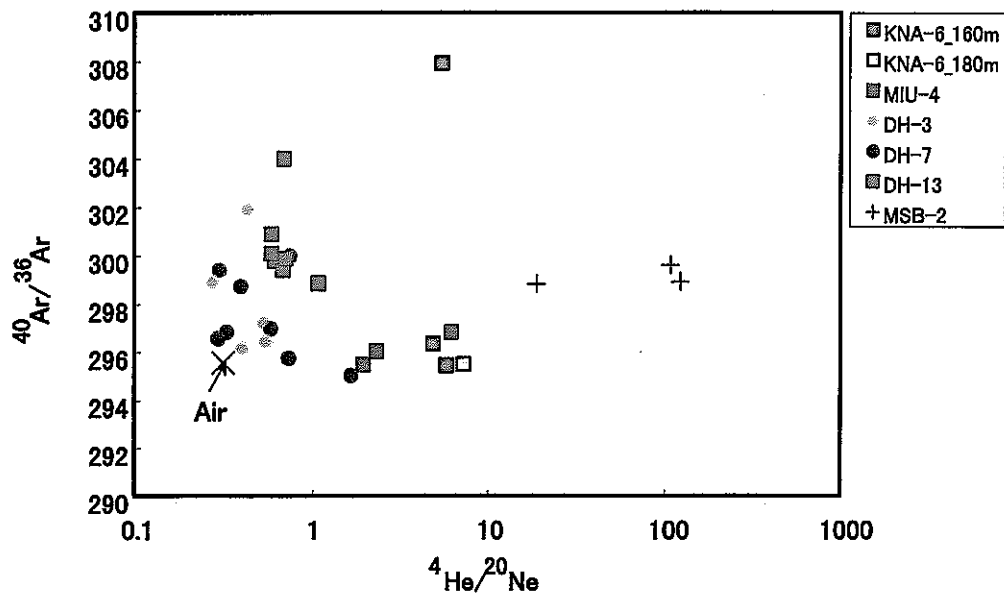


図 39  ${}^4\text{He}/{}^{20}\text{Ne}$  比— ${}^{40}\text{Ar}/{}^{36}\text{Ar}$  比の関係

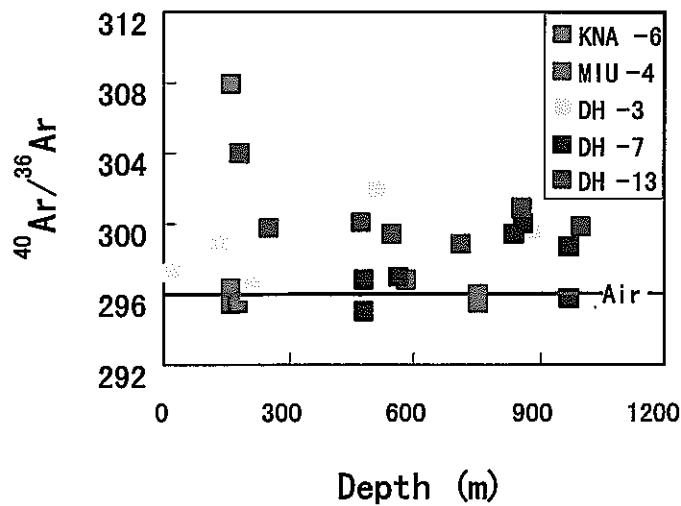


図 40  ${}^{40}\text{Ar}/{}^{36}\text{Ar}$  比と深度との関係

ドイツ Morsleben の堆積岩地域では、深度 700m から回収されたボーリングコア試料を、真空下で 1 ヶ月程度放置して、間隙水中のガスを回収している。その結果、地表から 700m まで深度と共に He 含有量は、 $10^{-7}$  から  $10^{-2}\text{ccSTP/gH}_2\text{O}$  まで増加し、 ${}^{40}\text{Ar}/{}^{36}\text{Ar}$  比は 420m から急激に大気の数から 500 まで増加しており、年代も 55,000 年と推定されている (Osenbruck et al., 1998)。東濃

地域の岩石は花崗岩であり、ドイツの例と直ちに比較はできないが、 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  比は最大でも 334 (DH-15 号孔) と低く、また深度との関係も見いだされなかった。

幌延地域では、コア試料からガスは真空下で抽出され分析されているが、希ガス同位体は分析されていない。

#### (4) $^4\text{He}-^{36}\text{Ar}-^{84}\text{Kr}$ ダイアグラム

図 41 は、東濃地域の地下水中の  $^4\text{He}-^{36}\text{Ar}-^{84}\text{Kr}$  の存在量比を示したものである。これらの同位体は、それぞれの元素で最も天然で存在量が多い同位体である。地下水中のこれらの 3 成分は、空気組成に近い値を示すものから、 $^4\text{He}$  に富む成分へプロットされる試料があることが分かる。この  $^4\text{He}$  に富む成分は、図 38 で認められた傾向と同様に、放射性起源の He であるが、同時に Nagao et al (1981) で報告されている火山性流体の成分でもある。このため、この図からは放射性起源と火山性起源の成分を識別することはできないものと思われる。ここで、HDB 孔や MSB 孔は、 $^{36}\text{Ar}$  が他の同位体に比較して極端に低いことが分かる。

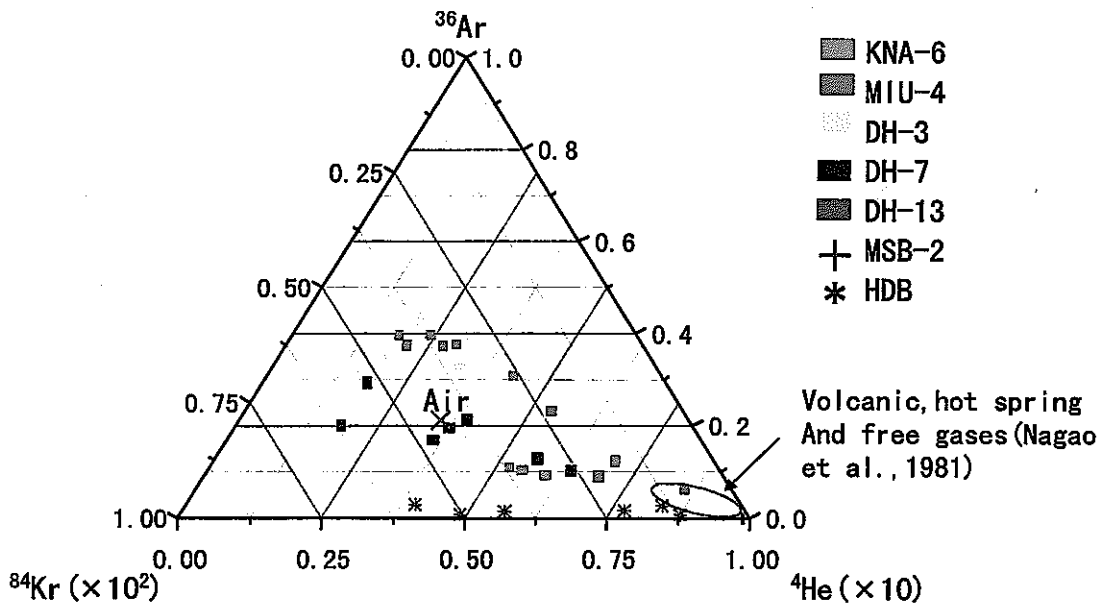


図 41  $^4\text{He}-^{36}\text{Ar}-^{84}\text{Kr}$  の関係

(5)  $^4\text{He}$ — $^{36}\text{Ar}$ — $^{132}\text{Xe}$  の関係

図 42 は、東濃地域の  $^4\text{He}$ — $^{36}\text{Ar}$ — $^{132}\text{Xe}$  の関係を示している。この図から、大気組成に近いものと、それとは離れた組成を示すものがあることが分かる。このうち、KNA-6 号孔の試料は、図から東濃地域で最も放射性起源の He を含んでいる試料であるが、図 42 では、大気組成から  $^{36}\text{Ar}$  が相対的に少ない成分へシフトしている。一方、KNA-6 号孔と同様に放射性起源 He を含んでいる DH-13 号孔の試料は、KNA-6 号孔の試料とは逆に  $^{36}\text{Ar}$  に富む傾向を示した。この傾向の違いは起源物質が異なることを示しているが、現在のところその起源物質については不明である。

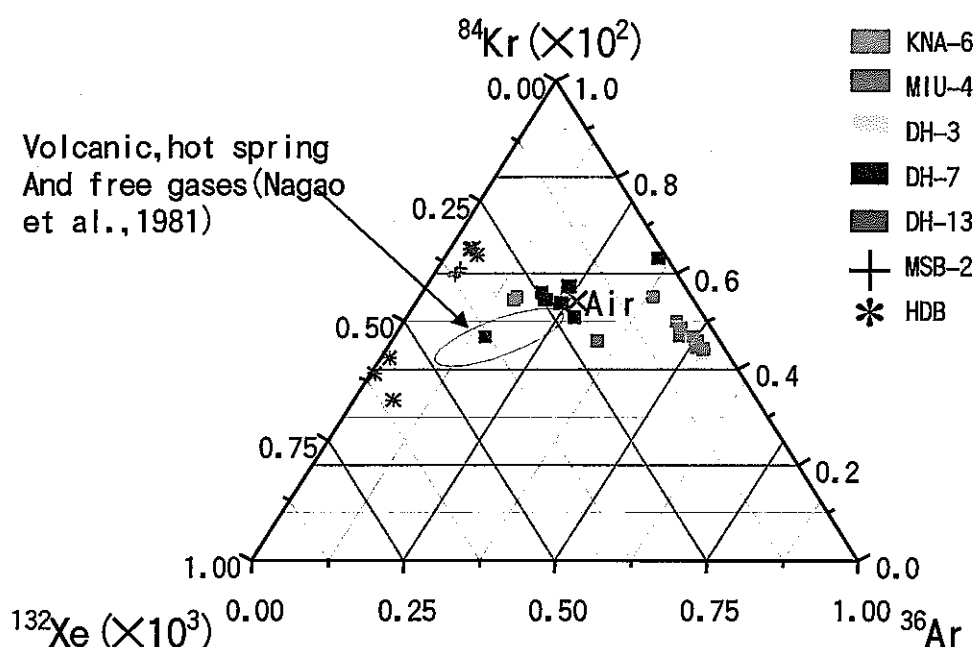


図 42  $^4\text{He}$ — $^{36}\text{Ar}$ — $^{132}\text{Xe}$  の関係

5.2. Sr 同位体比

本研究では、東濃地域と幌延地域で、それぞれの地下水と岩石の Sr 同位体比 ( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ) を、高精度 (小数点以下 5 桁で  $\pm 5$ , 通常はその 1/10 の精度) の前処理法と分析法で測定している。このため、地下水と岩石の Sr 同位体比に有意の差があることが判明している。このような、分析法の開発により、従来では評価が不可能であった地下水がたどってきた履歴を追跡できると期待される。ここでは、観測された Sr 同位体分析結果と岩石—水反応実験による Sr 同位体交換反応を考慮しながら検討を進めてゆく。

(1) 東濃地域

図 43 は、東濃地域の DH-3 号孔について、ほぼ同深度で分析された岩石と地下水の Sr 同位体比の差 ( $\Delta^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ) を深度に対してプロットしたものである。この結果から、標高-200m より浅いところでは、深度が深くなるにつれて  $\Delta^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  は小さくなる傾向が認められる。

一方、地下水中の Sr 濃度は、深度 200m を境に標高が低いほど Sr 濃度が低くなる傾向が見られる (図 43 の右図)。Ca/Na 比の深度方向の変化を見ると (図 44)、標高-200m を境に標高が低いところでは値が低くなっている。この Ca/Na 比は岩石-水反応の律速反応を調べる指標として用いられる値で、天水が地下に浸透し岩石中の Ca が地下水中に溶け出す反応 (岩石の変質反応) が律速の場合には値が高くなり、その後、岩石が地下水中の  $\text{Ca}^{2+}$  を取り込んで Na を溶出するイオン交換反応が律速になると低くなる傾向がある。つまり DH-3 号孔では標高-200m を境に深部では岩石の変質に伴うイオン交換反応が進んでいると考えられる。Sr は Ca を置換する形で存在すると考えられるため、図 44 のような挙動を示したと推測される。

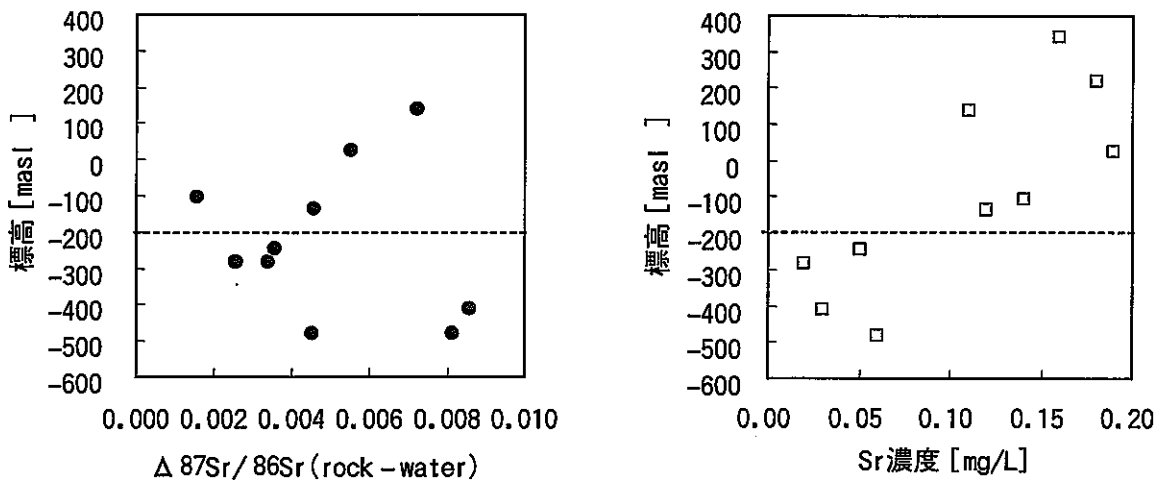


図 43 東濃地域の岩石と地下水の Sr 同位体比の差 ( $\Delta$ ) (左) と Sr 濃度と深度との関係

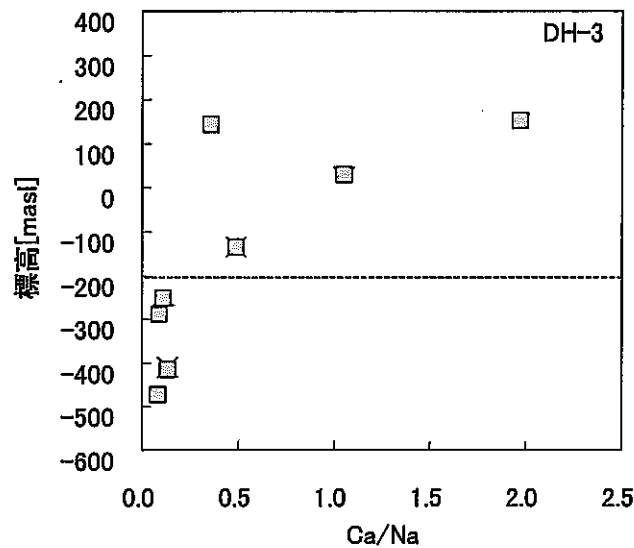


図 44 東濃地下水中の Ca/Na 濃度比と深度の関係

割れ目充填鉱物の Sr 同位体比を岩石、地下水とともに標高に対してボーリング孔毎にプロットしたところ (図 30), いずれの孔も割れ目充填鉱物の値は同深度の地下水の値に近く, 岩石の変質で生じたものではなく, 地下水から沈殿したものであると考えられる。DH-3 号孔及び DH-13 号孔の割れ目充填鉱物の Sr 同位体比は, 同深度の地下水の値よりも高い値を示しているが, DH-7 号孔の割れ目充填鉱物では地下水の値よりも低い値を示しているものもある。

## (2) 幌延地域

幌延地域の地下水の Sr 同位体比は, 岩石の値よりも低いことが分かった。また, 現在までに分析した 5 孔の地下水の Sr 同位体比は, ほぼ同じ値を示す。岩石の値は, 孔毎の相違が殆ど見られず, 深度方向についても規則性がない (図 45)。これはこの地域の岩相に変化が無い事が理由と考えられ, 多少のばらつきは岩石が堆積岩であることによると考えられる。図 46 は, 岩石中の Rb/Sr 比と  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  比の関係を示したものである。両者には弱い正の相関が認められ, 岩石の  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  比が, 0.709~0.712 と増加する理由として, 岩石中に含まれている Rb の量の違いを反映していると推測される。

地下水の化学成分を比較すると HDB-4 号孔と HDB-5 号孔の浅部の地下水は塩濃度が低い但深部は高い。これに対し HDB-3 号孔では比較的浅部の地下水であるにも関わらず, 最も高い塩濃度を示す。このように地下水溶存成分組成には大きなばらつきがあるにも関わらず, Sr 同位体比にばらつきがみられない理由として, 地域の岩石の Sr 同位体比にばらつきがないことと, 地域の地下水が海水を起源としていることが考えられる。地下水中の溶存化学成分濃度が低く岩石から Sr が溶け出すような溶解反応が起きている場合には, 地下水の Sr 同位体比は岩石の値の影響を受けやすいが (東濃地域が一例), 海水のように溶存化学成分濃度が高く, 岩石とのイオン交換反応が起

この場合には、もともとの地下水（海水）に存在している Sr の同位体比の影響が大きい。

現在の海水の Sr 同位体比は、約 0.709 を示し、この地域の地下水 (0.708) よりも高い値である。地域岩石の Sr 同位体比 (0.709-0.712) は更に高い値であることから、地下水は、低い Sr 同位体比を持つ地下水または岩石（調査されていない場所の岩石）と反応した可能性が考えられる。別な可能性として、海水の Sr 同位体比は地質時代を通して変動している。今回観測された地下水の  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  比 (0.708) と同じ値を持つ海水は、現在より 20Ma 以前のものである（図 1）。幌延地域の堆積岩は、中期中新世の稚内層と声間層からなっており、年代としては 10Ma 程度である。この時代の海水の  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  比は、約 0.709 であることから、20Ma の頃の海水が残留しているとは考えにくい。

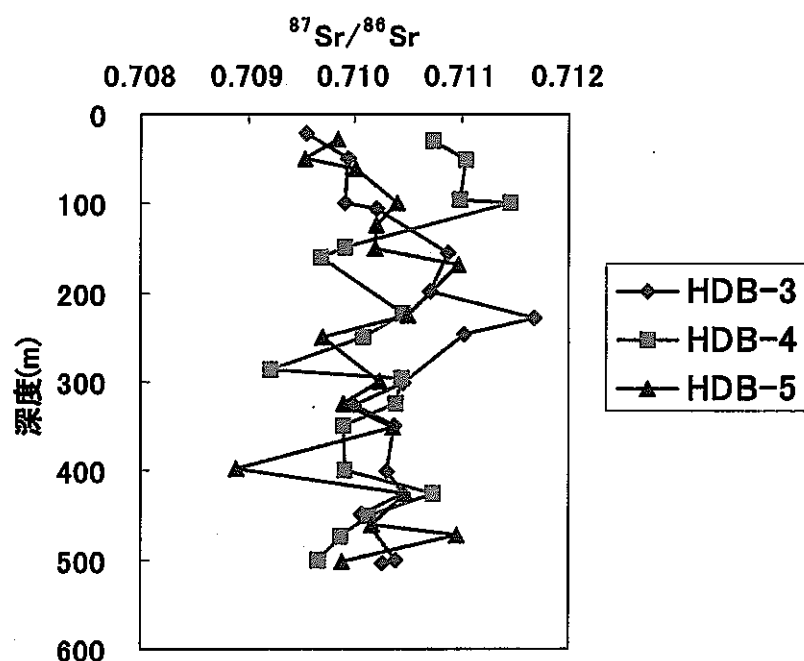


図 45 幌延地域の岩石の Sr 同位体比



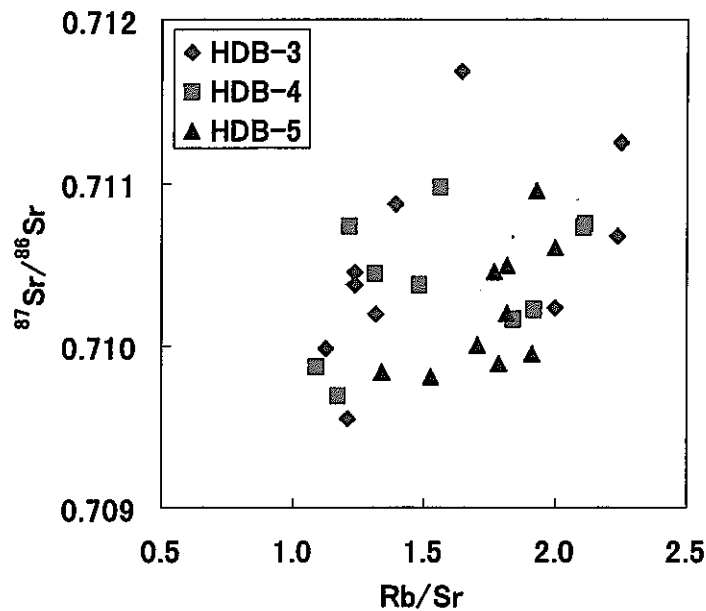


図 46 幌延地域の岩石の Rb/Sr 重量比と Sr 同位体比

### 5.3. 希ガス及び Sr 同位体を用いた地球化学的研究手法のマニュアル化

本研究では、平成 13 年度～平成 15 年度の 3 年間で、岐阜県東濃地域及び北海道幌延地域をテストフィールドとして、希ガス同位体及び Sr 同位体分析による地下水流動解析手法の検討を行った。対象とした試料は、地下水、河川水、坑内水、岩石、割れ目充填鉱物である。本章では、希ガス同位体及び Sr 同位体の地球化学的手法の有効性や、適応の際の問題点など検討する。

#### (1) 希ガス同位体

希ガス同位体については、本研究では、He, Ne, Ar, Kr, Xe の 5 元素の存在量及び、それぞれの同位体比を測定した。このうち、He-Ne 同位体については、東濃地域の地下水が、空気と放射性起源物質の混合物であり、ボーリング孔毎にその混合率が異なることが判明した。この混合率の差は、地下水の滞留時間が長くなるほど、また、地下水を胚胎する岩石中にもともと含まれている放射性元素の量が多いほど、放射性起源からの He-Ne の寄与が大きくなると考えられ、地下での滞留時間の差を表す指標となることが期待される。また、今回新たな地球化学ダイアグラムを用いて、He-Ne 同位体の起源解析を行ったが、純粋な放射起源とマントル起源以外にこれらが一定の割合で混合した起源物質があることが判明した。このように、He-Ne 同位体については、既存研究で多方面で利用されているように、水理解析に有効な元素であると言える。また、東濃地域

のような花崗岩地域や幌延地域のような堆積岩地域でも、地域性に関係なく、地下水中に含まれる希ガスの起源を推定することができる点が有効な指標であると言える。

Ar 同位体については、古くから K-Ar 年代測定に用いられており、 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  比が高い程古い年代であることを示す。今回の両地域での、地下水中の Ar の同位体比については、空気の値と大きな差は認められなかったが、試料によっては高い比を示すものも存在した。花崗岩のように  $^{40}\text{K}$  を多く含む岩石中の、流れがない（即ち滞留時間が長い）地下水では、花崗岩中の  $^{40}\text{Ar}$  が地下水に溶出して時間と共に蓄積されるため、相対的な年代を推定することが可能となる。

Kr と Xe については、今回地下水中の存在量を測定した。その結果、異なる起源物質の混合物であることが判明したが、その起源物質を同定するまでには至らなかった。これらの元素の存在量は、今後多くの地域で分析値が報告されてくれば、その起源について言及することも可能になると思われる。

## (2) Sr 同位体

Sr 同位体は、最近では多くの温泉水や地下水を対象として分析がなされている。それは、Sr が天水中にはほとんど含まれず、河川水や地下水として流動している間に、岩石・粘土などと接触（溶解沈殿反応）することにより、しだいに Sr 濃度が上昇し、反応した岩石の Sr 同位体比を保持していることを利用している。この溶解沈殿反応の際に同位体効果がないことも、天然のトレーサーとして利用されている理由である。

本研究では、東濃地域では、地下水の Sr 同位体比は、深度が増加するほど岩石の値に近くはなっているが、岩石の同位体比とは一致していないのが特徴である。これは、岩石-水反応実験の結果から、東濃地域では地下水中の Sr は割れ目内などに存在する方解石の Sr 同位体比に一致していることが判明した。この地域では、深度 200m 以深では地下水は方解石に対して飽和しているとされている（岩月ほか,2000）。このことは、地下水中の Sr 同位体比は方解石により制御されていることを示唆し、方解石-水反応による実験結果もその仮説を支持する。また、その反応は非常に早いと推定される。一般に方解石の蒸留水中での溶解速度は、 $1 \times 10^{-5} \sim 10^{-6}$  (mol/m<sup>2</sup>/sec)である（図 47；例えば、Arvidson et al.,2003）。今回、方解石-水反応で用いた方解石の溶解速度は、 $1.81 \sim 8.93 \times 10^{-5}$  (mol/m<sup>2</sup>/sec)と計測されており、既存値とほぼ一致する。

幌延地域では、地下水中の Sr 同位体比は、岩石の値より低い値を示した。この地域のフラクチャーの鉱物などについては、詳細に調査はされていないため、東濃地域で議論したような方解石の寄与については言及できない。この地域の岩石からの間隙水の水素・酸素同位体組成から、HDB-3 号孔は 150m 以浅、HDB-4,5 号孔は 350m 以浅から天水の寄与が推定されており、それより深いところでは化石海水型の流体が存在していると推定されている（例えば、嶋田ほか,2001）。今回の Sr 同位体比には、そのような流体の性状の違いは反映されていないことが分かる。

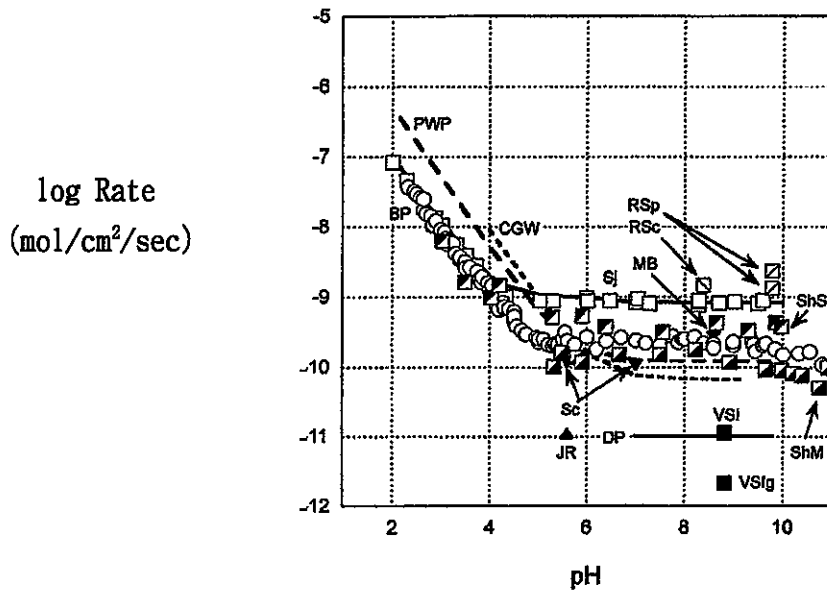


図 47 方解石の溶解速度

(Arvidson et al., 2003 より引用 (注: 縦軸: 溶解速度の面積の単位が  $\text{cm}^2$  になっている))

### (3) 地球化学マニュアル化

本研究で得られた成果から、希ガス同位体及び Sr 同位体を利用した地下水理解析の際の指針となるマニュアルを検討した。希ガス同位体による地化学解析のフロー図を以下に示す。

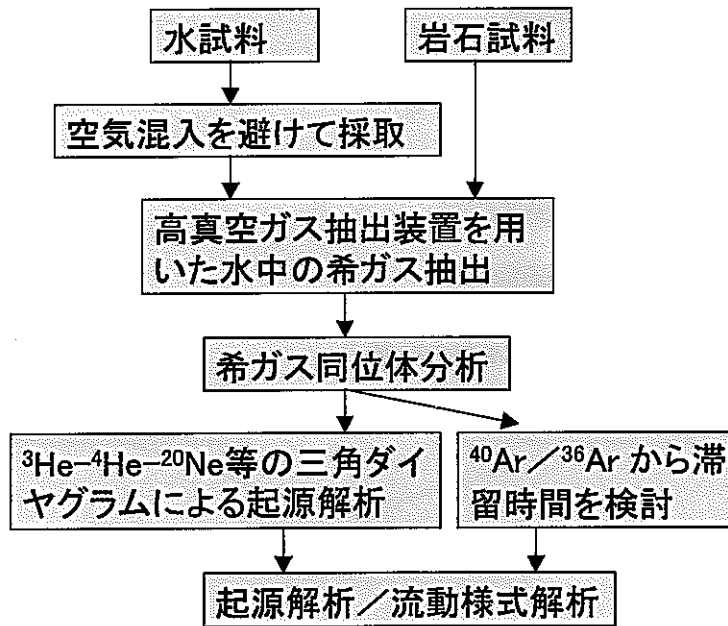


図 48 希ガス同位体を用いた地下水理解析の地化学フロー

- ① 水試料は、泡立てないようにして原水で採取容器を洗浄し、満水にして持ち帰る。この際、採取容器内の大気をポンプで排気しておく方法では、水試料中のガスがいったんガス化する。このため、容器内を水試料で流して採取する方法を取る。温泉水など遊離ガスがすでに発生している水試料については、ガスと水試料の両方を採取する方が良い。
- ② 希ガスの抽出は、ターボモレキュラーポンプなどを利用して高真空下で抽出し、装置もメタル製として、空気の混入を避ける必要がある。
- ③ 得られた結果は、従来の2成分ダイヤグラムや3成分ダイヤグラムを用いて、水試料中の希ガスの起源について検討を行う。特に、大気起源、放射性起源、火山性ガス起源の寄与について検討を行う。
- ④  $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  比については、その値が大きいほど相対的に滞留時間が長いことを示唆することから（岩石中のK量が同じ場合）、深度などとの関係から地下水の流動様式を検討する。
- ⑤ 対象とする地下水地域の岩石中のU, Th, K量を測定し、その存在量のばらつきが小さい場合、単位時間あたりに生成されるHe, Ne, Ar同位体量が推定できる。このことから、岩石/水重量比、水と接している岩石の表面積、拡散速度や地下水による岩石の変質速度などを推定することにより、地下水の年代を推定することが可能となる。
- ⑥ 以上の解析により、対象地域の地下水系の流動様式や起源について検討を行う。

Sr同位体による調査解析のフローを以下に示す。

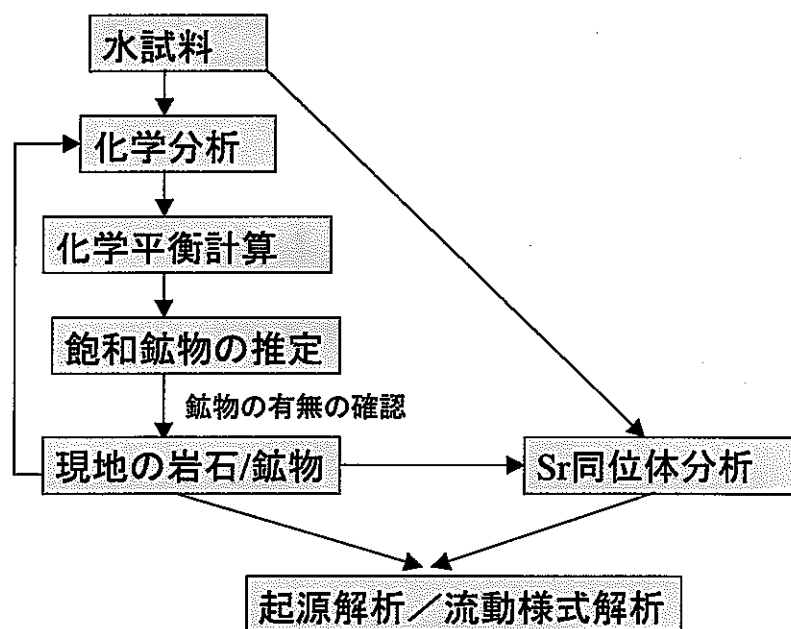


図 49 Sr 同位体を用いた地下水理解析のフロー

- ① 水試料の採取では、プラスチックボトルを原水で良く内部を洗浄し、満水になるまで採水する。粘土物質などの浮遊物がある場合には、フィルターを用いて除去する必要がある。採水量は、通常の地下水の場合には、100ml で良いが、他化学成分分析用として 1 L 採取する。
- ② 岩石試料及び割れ目充填鉱物の採取は、他物質が混入しないように採取する。
- ③ 試料からの Sr 抽出は、Sr 濃度をあらかじめ測定しておいて、適量の試料をカラムなどを用いて分離回収する。同位体分析は、数 ng 程度の Sr を質量分析計で、その同位体比を測定する。このように、微量の Sr を分析に供することにより、カラム処理による Rb との分離がより完全になるため、分析精度を向上させることができる。

Sr は、Ca と同族元素であることから、その挙動は Ca と似ている。地下水中の Ca や Sr の濃度は、Ca 鉱物、特に方解石の溶解度により規制されている。このため、地下水の Sr 同位体を議論する上では、地下水の化学組成を分析し、その方解石に対する飽和度が重要な因子となる。今回の東濃地域でも、深度が増加すると Sr 濃度は減少している。これは、深部地下水が方解石に対して飽和しており、地下水から Ca (Sr も) が除去されたことを反映している。この間、Sr 同位体比は変動がない。研究対象とする地域の地下水の化学組成から、飽和している Ca 鉱物を予測し、その鉱物の Sr 同位体交換反応速度を実験的に求めることにより、地下水の滞留時間や岩石との反応機構が判別できると期待される。

## 6. まとめ

### 東濃地域

- ① 希ガスについては、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  と  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  の相関図で、大気成分と放射壊変成分の混合ライン上にプロットされるものと、混合ライン上にプロットされないものがある。このうち前者は、 $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  比が増加すると  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比が減少する傾向を示し、岩石中の放射性同位体 (U や Th など) の壊変により生成した  $^4\text{He}$  の地下水へ溶解によるものと考えられる。一方、混合ライン上にプロットされないもの (MSB 孔、DH-15 号孔と高砂温泉) に関しては、深部起源の希ガスが寄与していると推測される。
- ② Sr 同位体比については、東濃地域花崗岩では、0.7099~0.7201 と広範囲の値を示し、ばらつきが大きいことがわかった。一方、地下水中の  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  同位体比は 0.7104~0.7123 と岩石に比べ狭い範囲の値を示し、地下水中の  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  同位体比と花崗岩中の  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  同位体比の平均値との差は、深度が増すにつれて値が小さくなる。この結果は、地下水と岩石の反応の進行にともない、地下水中の  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  同位体比が、岩石中のそれに近づいていく過程であるとの解釈ができる。すなわち、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  同位体比を地下水と岩石あわせて分析することにより、ある領域での地下水流動状態を推定できる可能性がある。また、割れ目充填鉱物の方解石の値とほぼ一致した。
- ③ 東濃地域の岩石と地下水を用いた Sr 同位体交換反応実験では、反応後溶液の Sr 同位体比は岩石の値からかなり低い値で一定となった。この Sr 同位体交換反応は早く、特に方解石との

反応は早いことが予想される。

#### 幌延地域

- ① 地下水中の希ガスの  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比- $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  比の関係は、大気-放射性起源成分の混合ライン上には乗らず、大気-放射性起源成分の混合ラインと大気-深部起源成分の混合ラインの中間位置にプロットされる。このことは、放射壊変起源  $^4\text{He}$  の付加だけではなく、別起源の希ガスの付加が考えられる。
- ② 地下水の Sr 同位体比は、岩石の値よりも低いことが分かった。また、現在までに分析した 5 孔の地下水の Sr 同位体比は、ほぼ同じ値を示す。HDB-2 号孔の地下水が他の地下水に比べて低い値を示すが、これは他 4 孔が最長約 2km しか離れていない位置にあるのに対し、HDB-2 号孔だけが 6km 強離れていることに起因していると思われる。岩石の値は、孔毎の相違が殆ど見られず、深度方向についても規則性がない。これはこの地域の岩相に変化が無い事が理由と考えられ、多少のばらつきは岩石が堆積岩であることによると考えられる。

本研究で得られた成果から、希ガス同位体及び Sr 同位体を利用した地下水解析の際の指針となるマニュアルを検討した。希ガス同位体及び Sr 同位体は、地下水流動解析に有効な元素であるが、天然系への適応の際には、方解石などの有無の把握や他の地球化学的手法を組み入れることにより、より詳細な議論ができると思われる。

## 7. 参考文献

- G. Aberg, G. Jaks, and P. J. Hamilton: Weathering rates and  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  ratios: an isotopic approach. *Journal of Hydrology*, 109, 65-78 (1989)
- R. S. Arvidson, I. E. Ertan, J. E. Amonette and A. Luttge: Variation in calcite dissolution rates: A fundamental problem?, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, Vol. 67, 1623-1634 (2003)
- J. R. Bacon, and D. C. Bain: Characterization of environmental water samples using strontium and lead stable isotope composition. *Environmental Geochemistry and Health*, 17, 39-49 (1995)
- C. J. Ballentine and P. G. Burnard: Production, release and transport of noble gases in the continental crust, *in* Noble gases in Geochemistry and Cosmochemistry, Ed. D. Porcelli, C. J. Ballentine and R. Wieler, *Rev. Mineral. Geochem.* 47, 481-538 (2002)
- D. A. Butterfield, B. K. Nelson, C. G. Wheat, M. J. Mottl and K. K. Roe: Evidence for basaltic Sr in midocean ridge-flank hydrothermal systems and implications for the global oceanic Sr isotope balance, 65, 4141-4153 (2001)
- 動力炉・核燃料開発事業団:貯蔵工学センターに関する調査のとりまとめ, 報告書 PNC TN1420 98-003 (1998)
- W. F. Giggenbach: Geothermal gas equilibria, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 44, 2021-2032 (1980)
- F. Goff, H. A. Wollenberg, D. C. Brookins, and R. W. Kistler: A Sr-isotopic comparison between thermal water and rocks, and hydrothermal calcites, Long Valley caldera, California. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 48, 265-281 (1991)
- 五十嵐敏文・馬原保典・塩崎功:地下水モデリングのためのデータ解析手法の基礎, 地下水学会誌, 42 (3), 243-262 (2000)
- 糸魚川淳二: 瑞浪の地層と化石, 瑞浪化石博物館研究報告, 1, 1-42 (1974)

- T. Iwatsuki, K. Sato, T. Seo and K. Hama: Hydrogeochemical investigation of groundwater in the Tono Area, Japan, Proc. Of the 18<sup>th</sup> international Symposium on the Scientific basis for Nuclear Waste Management, 357, 1251-1257 (1995)
- T. Iwatsuki and H. Yoshida: Water-Rock Interaction Analysis in Relation to Geological Structure in Deep Crystalline Rock at the Tono Area, Japan. Chemical Containment of Waste in the Geosphere (1996)
- 岩月輝希・徐勝・伊藤茂・阿部雅人・渡辺雅人:<sup>14</sup>C 同位体による地下水流動状態の推定, サイクル機構技報, No. 4, 93-100 (1999)
- 岩月輝希・吉田英一・濱克宏・R. Metcalf:炭酸塩鉱物の同位体組成に基づく pH条件の長期安定性の解析手法, サイクル機構技報, No. 8, 41-48 (2000)
- 亀井淳子・加藤久遠・上田晃・岡野修・山本雅弘: 澄川・大沼地熱地域の Sr 及びその同位体比, 日本地熱学会誌, vol. 21, 379-390 (2000)
- B. G. Katz and T. D. Bullen: The combined use of <sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Sr and carbon and water isotopes to study the hydrochemical interaction between groundwater and lakewater in mantled karst, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 60, 5075-5087 (1996)
- R. Kipfer, W. Aeschbach-Hertig, F. Peeters and M. Stute: Noble gases in lakes and ground waters, in *Noble gases in Geochemistry and Cosmochemistry*, Ed. D. Porcelli, C. J. Ballentine and R. Wieler, *Rev. Mineral. Geochem.* Vol. 47, 615-700 (2002)
- B. D. Marshall, J. F. Whelan, Z. E. Peterman, K. Futa, S. A. Mahan and J. S. Stuckless: Isotopic studies of fracture coatings at Yucca Mountain, Nevada, USA, *Water-Rock Interaction, Kharaka and Maest ed.*, 737-740 (1992)
- J. Matsuda, T. Matsumoto, H. Sumino, K. Nagao, J. Yamamoto, Y. N. Miura, I. Kaneoka, N. Takahata and Y. Sano: The <sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He ratio of the new internal He standard of Japan (HESJ). *Geochem. J.* 36, 191-195 (2002)
- R. Millot, J. Gaillardet, B. Dupre and C. J. Allegre: Northern latitude chemical weathering



rates: clues from the Mackenzie River Basin, Canada, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 67, 1305-1329 (2003)

森川徳敏: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—, JNC TN7400-2001-003, 63p (2001)

K. Nagao, N. Takaoka and O. Matsubayashi: Rare gas isotopic compositions in natural gases of Japan, *Earth Planet. Sci. Lett.*, 53, 175-188 (1981)

中野孝, 水文トレーサーとしての Sr 同位体: ハイドロロジー (日本水文科学会誌), 23, 67-82 (1993)

K. Notsu, H. Wakita and Y. Nakamura: Strontium isotopic composition of oil-field and gas-field waters, Japan, *Applied Geochemistry*, 3, 173-176 (1988)

K. Osenbruck, J. Lippmann and C. Sonntag: Dating very old pore waters in impermeable rocks by noble gas isotopes, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 62, 3041-3045 (1998)

D. Porcelli and G. J. Wasserburg: Mass transfer of helium, neon, argon, and xenon through a steady-state upper mantle, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 59, 4921-4937 (1995)

Y. Sano and H. Wakita: Geographic distribution of  $^3\text{He}/^4\text{He}$  ratios in Japan: Implications for arc tectonics and incipient magmatism, *Journal Geophysical Research* (1985)

Y. Sakamaki: Geological environments of Ningyo-Toge and Tono uranium deposit, Japan, IAEA-TECDOC, 328, 135-154 (1985)

坂本稔・中井俊一・脇田宏:グリーンタフ地域における天然ガスの希ガス同位体組成 (演旨), 日本地球化学会年会講演要旨集, 242-242 (1993)

佐藤努・中野孝教: Sr 同位体を用いた地熱流体母岩の推定-奥鬼怒温泉地域における研究例-. 地質ニュース, 474, 23-26 (1994)

K. Shibata and S. Ishihara: Rb-Sr whole-rock and K-Ar mineral ages of granitic rocks of the Komagane district, Nagano Prefecture, central Japan, *Geochemical Journal*, 13, 119-133

(1979)

嶋田純・小坂寛・国丸貴紀・川村淳:間隙水中の安定同位体比に基づく低透水性海成堆積岩盤中の地下水流動の解釈, 日本地下水学会 2002 年秋季大会, 55 (2002)

T. Staudacher and C. J. Allegre: Recycling of oceanic crust and sediments: the noble gas subduction barrier, *Earth and planet. Sci. lett.*, 89, 173-183 (1988)

A. Vengosh, J. Gill, M. L. Davisson and G. B. Hudson: A multi-isotope (B, Sr, O, H, and C) and age dating ( $^3\text{H}$ - $^3\text{He}$  and  $^{14}\text{C}$ ) study of groundwater from Sakinas Valley, California: Hydrogeochemistry, dynamics and contamination processes, *Water Resources Research*, 38, 1-17 (2002)

M. Yoshikawa and E. Nakamura: Precise isotope determination of trace amount of Sr in Magnesium-rich samples, *J. Min. Peter. Econ. Geol.*, vol. 88, 548-561 (1993)

Y. Yusa, K. Ishimaru, K. Ota and K. Umeda: Geological and geochemical indicators of paleohydrogeological methods and their application, *Proc. NEA Workshop, OECD, Paris*, 117-146 (1993)