宇宙線・地下生成起源核種と希ガス同位体を 環境トレーサーとした地下水の滞留時間と 地形変化プロセスの推定*

馬 原 保 典^{1,2} 太 田 朋 子³ 五十嵐敏文⁴

Estimation of Groundwater Residence Time and Evaluation of Geomorphological Processes Using Cosmogenic and Terrigenous Radionuclides and Isotopes of Noble Gases

by Yasunori MAHARA^{a*,b}, Tomoko OHTA^a and Toshifumi IGARASHI^a

a. Faculty of Engineering, Sustainable Resources Engineering, Hokkaido University, Sapporo,
060-0810, Japan (*Corresponding author, E-mail: mahara@mta.biglobe.ne.jp)
b. Kyoto University, Kyoto, 606-8501, Japan

In this paper, the estimation of groundwater residence time and geomorphological changing processes are discussed by focusing on isotopes of noble gases and radionuclides with a long half-life as an environmental tracer. Noble gases and radionuclides are produced in the atmospheric air and terrestrial rocks by spallation and various muon reactions during cosmic rays irradiation. Groundwater dating and geomorphological changing are estimated from changes in the number of atoms of cosmogenic and terrigenous nuclides in groundwater and terrestrial rock. The main tools of groundwater dating are combination of the dissolved helium and tritium (half-life $T_{1/2}=12.3$ y) for younger groundwater less than 60 years of residence time, and of the dissolved helium and ^{36}Cl ($T_{1/2}=3.01 \times 10^5$ y) for older groundwater over million years. On the other hand, the main tools on the geomorphological changes are the estimation of exposure time using cosmogenic radionuclides (^{10}Be (half-life $T_{1/2}=1.6 \times 10^6$ y), ^{14}C ($T_{1/2}=5730$ y), ^{26}Al ($T_{1/2}=7.16 \times 10^5$ y) and ^{36}Cl) and cosmogenic stable noble gases (^3He and ^{21}Ne) produced in rock.

KEY WORDS: Cosmogenic Radionuclides, Terrigenous Radionuclides, Noble Gas isotopes, Groundwater Residence Time, Exposure Time, Erosion Rate

1. は じ め に

地下水の滞留時間や地表の削剥速度は、その中に時間のファクターを含んでおり、窮極的にはその時間を議論することになる。そこで、本総説では放射性核種の衰変速度あるいは放射性あるいは安定核種の生成・蓄積速度を基に『時間』を含んだ尺度を組み立てる手法とその応用例について述べる。最初に、天然の時計として活用される放射性・安定核種の生成機構(宇宙線起源(Cosmogenic)核種と地下起源(Terrigenous)核種)について簡単に纏める。

1・1 宇宙線による核種の生成

宇宙線は、広く地球に大気層を通して降り注いでいる。一部は、直接地表や地球内部に到達するもの、更にエネルギーの高いものでは地球を貫くものもある。1次宇宙線は、主に高速の陽子(p)、やHe原子核から構成され、まず地球大気を構成する(N_2 , O_2 , Ar等の)分子と核反応を起こし、地下水年代測定に用いられる ^{14}C 、 ^{36}Cl や ^{81}Kr 等の半減期の長い核種が大気中に生成される。また、

同時にエネルギーの高い π 中間子、中性子(n)やミューオン(μ)からなる2次宇宙線が生成される(Fig. 1)¹⁾。さらに、これら2次宇宙線の中性子と大気成分(例えば N_2)との核反応によって浅層地下水の年代測定に活用される半減期が短い ^3H 等が生成される。

一方、1次宇宙線および2次宇宙線粒子のうちでエネルギーが10MeVを超える中性子やミューオンが、地表面に降り注ぐと鉱物(例えば、風化に対して高い抵抗性を持つ石英)にふくまれる元素(O, Si)の間で複数の核反応(a. 核破砕(Cosmic-ray Spallation), b. ミューオン・キャプチャー(Muon Capture), c. 高速ミューオン誘導核反応(Fast Muon Induced Reactions))が起こり種々の放射性・安定核種が生成される。特に、地表面付近での地層の削剥速度を議論する際に重要な宇宙線との核反応のうちで地表面から1-10 m.w.e (m.w.e: m単位であらわした水中高さを表す。例えば、岩石層(例えば石英)ではその密度を考慮すると3-4m程度となる)深度までは、主要な核種(例えば ^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{36}Cl)の生成においては核破砕反応が卓越している²⁾。Fig. 2に例として、石英中に生成される ^{14}C 濃度と深度との関係と生成機構とともに示す。

Table 1に地下水年代測定と地表面変化プロセスの評価に用いられる宇宙線起源と原位置生成核種の生成機構の特徴について半減期、ターゲット元素、核反応等について整理する。

1・2 地下(岩石中)での核反応で生成される核種

地下水の滞留時間を推定する際に滞留時間が長くなれば、地下

*2013年2月25日受付 2013年3月25日受理

1. 北海道大学大学院 工学研究院 環境循環システム部門 招聘教授

2. 京都大学名誉教授

3. 正会員 北海道大学大学院 工学研究院 環境循環システム部門 助教

4. 正会員 北海道大学大学院 工学研究院 環境循環システム部門 教授

[著者連絡先] E-mail: mahara@mta.biglobe.ne.jp

キーワード: 宇宙線起源核種, 地下起源核種, 希ガス同位体, 地下水年代, 暴露時間, 削剥速度

Fig.1 The major components of a cosmic-ray extensive air shower (cascade), showing secondary particle production in the atmosphere and rock (modified after Gosse and Phillips (1))

Fig.2 Correlation between the production rate of ^{14}C (atoms/g y) in quartz irradiated by cosmic rays and depth (m.w.e.) of quartz. The unit of (m.w.e) is equivalent to meter of water depth. The produced mechanisms of ^{14}C are spallation, muon capture, and fast muon induced reactions. Total shows sum of three mechanisms (after Heisinger and Nolte (2)).

で生成される核種の影響は、無視できなくなる。具体的な例として、 ^{36}Cl (半減期 $T_{1/2} = 3.01 \times 10^5$ 年) を用いて滞留時間が 100 万年を超える地下水について考えてみる。大気起源の ^{36}Cl の初期値 ($^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比: 10^{-14} – 10^{-13}) は、地下水年代が 100 万年を超えると 1/10 程度に減少することから、地下水を含む周辺岩石中の天然の放射性核種である U, Th から放出される α 粒子と岩石中の軽元素 (Andrews and Kay³⁾ によれば 17 元素 Li, B, Na, Mg, Al, Si, Cl, K, Ca, Ti, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Sm, Gd, また Mahara et al.⁴⁾ の試算によれば、岩石中の存在率が高い C, O からの影響も大きい) が (α, n) 反応を起こし、放出される中性子と岩石のマトリックスや間隙水に含まれる ^{35}Cl との放射化反応 ($^{35}\text{Cl}(n, \gamma)^{36}\text{Cl}$) によって生成される ^{36}Cl の付加による影響は無視できなくなる。また、更に非常に

Table 1 Radionuclides and stable-nuclides as an environmental tracer using in researches on groundwater dating and geomorphology (half-life, target elements and major production mechanisms).

Research	Nuclide	Half-life (y)	Target Element	Nuclear Reactions
Groundwater Dating	^3H	12.3	^{14}N , ^6Li	$^{14}\text{N}(n, ^3\text{H})^3\text{H}$ (Cosmogenic) $^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{H}$ (Terrigenous)
	^{14}C	5730	^{14}N	$^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ (Cosmogenic)
	^{36}Cl	3.01×10^5	^{35}Cl , ^{36}Ar , ^{39}K , ^{40}Ca	$^{36}\text{Ar}(n, p)^{36}\text{Cl}$, ^{40}Ar Spallation (Cosmogenic) $^{39}\text{K}(\mu, p2n)^{36}\text{Cl}$, $^{40}\text{Ca}(\mu, \alpha)^{36}\text{Cl}$, $^{35}\text{Cl}(n, \gamma)^{36}\text{Cl}$ K and Ca Spallation (Terrigenous)
	^{81}Kr	2.29×10^5	Kr ^{238}U	$^{80}\text{Kr}(n, \gamma)^{81}\text{Kr}$, $^{82, 83, 84}$ and ^{86}Kr Spallation (Cosmogenic) $^{238}\text{U}(n, f)^{81}\text{Kr}$ (Terrigenous: negligible small)
	^{129}I	1.57×10^7	Xe, ^{238}U	$^{129, 130, 131}$ and ^{132}Xe spallation (Cosmogenic) $^{238}\text{U}(n, f)^{129}\text{I}$ (Terrigenous)
Geomorphology	^{10}Be	1.6×10^6	O (^{16}O)	Spallation Muon Reactions*
	^{14}C	5730	O (^{16}O , ^{17}O)	Spallation Muon Reactions*
	^{26}Al	7.16×10^5	Si (^{28}Si), S (^{32}S)	Spallation Muon Reactions*
	^{36}Cl	3.01×10^5	K (^{39}K), Ca (^{40}Ca)	Spallation Muon Reactions*
	^{53}Mn	3.7×10^6	Fe (^{56}Fe)	Spallation Muon Reactions*
	^3He	Stable	O, Si, Al, Mg, K etc	Spallation Muon Reactions*
	^{21}Ne	Stable	Mg, Na, Si, Al	Spallation Muon Reactions*

*: Muon capture and Muon induced reaction

古い地下水の場合に、 ^{129}I (半減期 $T_{1/2} = 1.57 \times 10^7$ 年) をトレーサーとした場合に岩石中に含まれる ^{238}U の自発核分裂によって ^{129}I が生成され、岩石から溶出付加される影響は無視できない⁴⁾。Table 2 に Mahara⁵⁾ が、既に他所で整理した地下水年代測定研究に活用される環境トレーサーを一部修正加筆して示す。

2. 放射性核種と希ガスをを用いた地下水年代測定

地下水の年代を推定する手法については、多くの研究事例があり、いずれもいかに正確に時間の尺度 (天然の時計) を作るかという点とその作った時計が動き続けるための環境条件を満たしているかを明らかにすることに力点が置かれて来たといっても過言ではない。過去の地下水年代測定研究において用いられた環境トレーサーの種類、測定原理、測定精度ならびに適応環境条件については、既に Table 2 に示した。この結果を踏まえ、若く流動性の高い浅層地下水と非常に古く流動性の低い深層地下水を対象に現状では最も信頼性の高い放射性核種と希ガスを組み合わせた年代測定法、He 以外の放射性の希ガスを単独で用いた年代測定法、半減期の長い放射性核種 (^{36}Cl) の放射平衡値を基に深部岩盤中の間隙水の滞留時間を推定する年代測定法について、その測定原理と適用例について以下に解説する。

2・1 ^3H - ^3He 地下水年代測定法

2・1・1 測定原理

比較的若い地下水の滞留時間を推定するために、宇宙線と大気成分 (^{14}N) との核反応で生成される放射性核種である ^3H (トリチウム; 半減期 $T_{1/2}=12.3$ 年) とその β 壊変によって地下水中に蓄積する Tritogenic ^3He (トリチウム壊変ヘリウム-3) を同時に測定し、地下水の年代 τ を推定する方法で

Table 2 The required condition, estimation range, and technical subject for precise measurements to date groundwater (modified after Mahara (5)).

		The required condition of measurement and estimation										Estimated range	Applicability of technology		
Estimation based on the Darcy law		Analytic Numerical	Groundwater age estimated by analytic solution based on the Darcy law using the groundwater gradient, hydraulic conductivity, flow length and porosity Groundwater age estimated by numerical calculations of groundwater flow and mass transport based on the Darcy law and mass balance equation										1~2×10 ⁶ 1~2×10 ⁶	Mature technology Applicable	
Estimation from decrease in cosmogenic radionuclides and accumulation of terrigenic radionuclides	Natural Radionuclides	Nuclides and materials	Half-life (y)	Origin	Effects of terrigenic	The groundwater dating law	Technique used	Detection limit	Units	Sample condition	Abundance on the earth's surface				
											Concentration	Units			
		¹⁴ C	5730	Cosmic rays, Nuclear weapons test and Activities in nuclear industry	Samll	Radioactive decay from the initial modern carbon. Correction of cosmogenic production rate	AMS	5×10 ⁻¹⁵	¹⁴ C/C (%)	1 mg C	100% modern C	pmc	500-5×10 ⁴	Origin of dissolved carbon. Elimination of dead carbon.	
		²²⁸ Ra	5.8	Radioactive decay of ²³² Th	Great	Estimation from initial ratio of ²²⁸ Ra/ ²²⁶ Ra in groundwater	γ-ray spectrometry	~10 ⁻¹	²²⁸ Ra/ ²²⁶ Ra	100 mBq ²²⁸ Ra	1 ~ 2	²²⁸ Ra/ ²²⁶ Ra	1-100	Estimation of initial ratio of ²²⁸ Ra/ ²²⁶ Ra in groundwater	
		³⁶ Cl	3.0×10 ⁵	Cosmic rays, Nuclear weapons test, subsurface production	Great	Estimation from decrease in cosmogenic ³⁶ Cl. Correction of terrigenic ³⁶ Cl for long residence time	AMS	1×10 ⁻¹⁵	³⁶ Cl/Cl	10 mg AgCl	2×10 ⁻¹²	³⁶ Cl/Cl	5×10 ⁻⁴ -2×10 ⁶	Estimation of the subsurface production rate in rock and the secular equilibrium ratio	
		⁸¹ Kr	2.1×10 ⁵	Cosmic ray spallation, supontaneous nuclear fission of ²³⁸ U	Negligible small	Estimation from decrease in cosmogenic ⁸¹ Kr. Negligible small in subsurface production	RISM/AMS	~10 ⁻¹⁴	⁸¹ Kr/Kr	1 ccSTP	5×10 ⁻¹³	⁸¹ Kr/Kr	1×10 ⁻⁴ -1×10 ⁶	Technical developments on the AMS analyses and the extraction of dissolved Kr from much water	
	¹²⁹ I	1.6×10 ⁷	Cosmic ray spallation, supontaneous nuclear fission of ²³⁸ U, Activities in nuclear industry	Great	Estimation from decrease in cosmogenic ¹²⁹ I. Correction of terrigenic effects. Origin of iodine is important.	AMS	5×10 ⁻¹⁴	¹²⁹ I/I	2-10 mg/L	1.5×10 ⁻¹²	¹²⁹ I/I	1×10 ⁶ -2×10 ⁸	Estimation of terrigenic ¹²⁹ I in groundwater and reevaluation of the initial marine ratio of ¹²⁹ I/ ¹²⁷ I		
	Noble gases	³ He	—	Atmospheric, Nuclear weapons test, Cosmic rays spallation in rock, Tritigenic, Mantle origin and Decay of terrigenic ³ H	Small subsurface production	Estimation from the combination with ³ H. Separation of tritogenic ³ He is important.	Noble Gas MS	1×10 ⁻¹⁶	ccSTP/g	15 mL	6.7×10 ⁻¹⁴	ccSTP/g	Impossible estimation from ³ He concentration alone	Precise evaluation of tritogenic ³ He (elimination of the external ³ He sources)	
		⁴ He	—	Atmospheric, α decay and Mantle origin	Great	Estimation from the in-situ production and accumulation from the degassing ⁴ He flux.		2×10 ⁻¹⁰	ccSTP/g	15 mL	4.8×10 ⁻⁸	ccSTP/g	1×10 ⁻⁴ -1×10 ⁷	Precise evaluation on the in-situ production and the magnitude of degassing flux	
		²¹ Ne	—	Atmospheric and Terrigenic	Small	Estimation from the in-situ production		2×10 ⁻⁸	ccSTP/g	10 ⁻⁷ mL	1.0×10 ⁻⁸	ccSTP/g	1×10 ⁶ -1×10 ⁷	Precise evaluation on the produced rate and analyses	
		⁴⁰ Ar	—	Atmospheric, Decay from ⁴⁰ K in rock, Mantle origin	Dependent condition	Estimation from the in-situ production		2×10 ⁻⁸	ccSTP/g	10 ⁻⁷ mL	1.0×10 ⁻⁴	ccSTP/g	1×10 ⁻⁵ -1×10 ⁷	The evaluation method and leaching rate from rock	
	Estimation from disequilibrium	Uranium isotope ratio	²³⁴ U	2.46×10 ⁶	Radioactive decay of ²³⁸ U	Small	Estimation from the in-situ production	α-particle spectrometry, ICP-MS	1	count/h	1-5 μgU	1	ppm	1×10 ⁻⁵ -1×10 ⁶	Confirmation of environmental conditions for estimation
			²³⁸ U	4.47×10 ⁹	Natural radionuclide	Small	Estimation from equilibrium and disequilibrium ratios		1	count/h	< 1 μgU	1	ppm	1×10 ⁻⁵ -1×10 ⁶	Confirmation of environmental conditions for estimation
Chemical changes		Racemic	Changes in the chemical structure of isomer of amino acid throught the racemization										10 ¹ -10 ⁶	No applicable data	
		Hydration	Increase in the hydrated depth of glass with increasing in the passing time										10 ¹ -10 ⁶	No applicable data	
Estimation from anthropogenic and/or geologic events	Anthropogenic	³ H, ³⁶ Cl, ¹²⁹ I	12, 3×10 ⁵ , 1.57×10 ⁷	Cosmogenic, Nuclear weapons test and Activities in nuclear industry	Dependent nuclides	Bomb Pulse in 1950-1960, release from reprocessing plant	LSC, AMS	1×10 ⁻¹⁴	Isotopic ratio	250 mL	3.6	dpm/L	1-60	Useful tecnique for shallow groundwater within 60 y.	
		⁸⁵ Kr	10.7	Activities in nuclear industry	Negligible small	Estimation from the accumulated ⁸⁵ Kr in the air from reprocessing	LSC	1×10 ⁻⁵	Bq/L	2-10 m ³	1.5(present air)	Bq/m ³	~60	Quick extraction of a trace of Kr from much water	
		CFC,SF ₆	—	Anthropogenic atmospheric contamination	Small	Estimation from the atmospheric accumulation record	GC	1×10 ⁻¹⁶	mol/L	100 mL	274 (CFC-11), 534 (CFC-12), 85 (CFC-13) (in 1996)	pptv	1-60	Useful tecnique for shallow groundwater. Tracer is no direct proxy on time.	
	Paleoclimate and geologic events	² H	—	Atmospheric	Small	Isotopic temperature compared with SMOW	MS	1	‰	10 mL	-50	‰	0-3×10 ⁶	Collection of available data, and arrangement	
		¹⁸ O	—	Atmospheric	Small		MS	0.1	‰	10 mL	-10	‰	0-3×10 ⁶		
		Ne,Ar	—	Atmospheric	Small	Recharged temperature	Noble Gas MS	2×10 ⁻⁸	ccSTP/g	10 ⁻⁷ mL	5×10 ⁻⁴	ccSTP/g	0-3×10 ⁶	Tracer is no direct proxy on time. Paleoclimate data	
		Kr,Xe	—	Atmospheric	Small			2×10 ⁻⁸	ccSTP/g	10 ⁻⁷ mL	5×10 ⁻¹⁶	ccSTP/g	0-3×10 ⁶		
		Geology and Climate	—	—	—	—	Upper and lower limits estimated from volcanisms, sedimentary chronology and fault activities as the geologic events							1×10 ⁻⁴ -1×10 ⁷	Collection and arrangement of available data
	Evaluation of changes in precipitation and evaporation from changes in the paleoclimate or the sea level							0-5×10 ⁶							

LSC: Liquid Scintillation Counting Method, AMS: Acceleration Mass Spectrometry, GC: Gas Chromatography, MS: Mass Spectrometry, GPC: Gas Proportional Counting Method, RISM: Resonance Ionization Mass Spectrometry

ある。その際、地下水の年代は次式で与えられる。

$$\tau \text{ (years)} = 17.69 \ln \{4.01 \times (^3\text{He}_{\text{tri}} / (\text{HTO}) \times 10^{14} + 1.0) \} \dots \dots (1)$$

ここに、 $(^3\text{He}_{\text{tri}})$: ^3H の β 壊変によって生じた ^3He 濃度 (ccSTP/g),
 (HTO) : 地下水の ^3H 濃度 (TU; 1TU とは 10^{18} 個の水素 (H) 原子中に 1 個の ^3H 原子が含まれる割合を表す単位) である。

この式では、1TU の ^3H がすべて β 壊変によって ^3He に変わり地下水に溶存した場合の ^3He の濃度が、 0°C 1 気圧で 2.494×10^{-15} ccSTP/g となることを基本として、地下水の ^3H 濃度を TU 単位で表し ^3He ガス濃度に換算している。

これは、地下水が大気から遮断された閉じた系であるという条件 (基本条件) を満たし、地下水中に溶存している全 ^3He 量から

$^3\text{He}_{\text{tri}}$ だけが成分分離できる環境条件下にあり、かつ測定時点における地下水の ^3H と ^3He の合わせた濃度が地下に浸透した降水の初期 ^3H 濃度に一致すると仮定すれば、放射壊変の原理から地下水年代が決定できることを意味している。

この方法では、試料水の ^3H の測定限界レベル(0.1TU)から判断すると5半減期(60年)程度の地下水年代を決めることが可能である。一方で、この手法の適用にあたっての最大の課題は、Mahara and Ohta⁶⁾が既に指摘したようにTritogenic ^3He のみを分離評価する必要がある。したがって、我が国のように火山からのマントル起源の ^3He の影響が排除できない場合には、何らかの方法でマントル ^3He 成分の分離をしておく必要がある⁷⁾。

一方、地下の岩盤中での ^3H の生成($^6\text{Li}(n,\alpha)^3\text{H}$)量は、Andrew⁸⁾によれば岩石に含まれるU、ThとLi濃度に依存するために、岩盤中での($^3\text{He}_{\text{tri}}$)濃度は、岩石の種類とその生成年代に依存する(つまり、岩石が生成されてからの経過時間が長いほど岩石中での ^3He 濃度が高くなる)。しかしながら、多くの場合(U、Th濃度がそれらの鉱床を形成するほど高くない通常の火成岩や堆積岩のようにそれらの濃度が数10ppm以下)には、岩盤中で生成される ^3H 濃度は、0.1 TU/y以下と低い⁷⁾ので、無視しても大差はない。

2・1・2 測定例1 Mahara et al.⁹⁾によれば、三島付近の富士山の溶岩流内の地下水に対して本手法を適用した結果、地下水年代は10年程度で、箱根方面からの地下水の滞留時間15年とは異なる。三島溶岩流内の地下水は、溶岩流の先端部分の柿田川の湧水部で地下水年代は、最長10年程度と周辺部の地下水年代よりも若干若い結果を与えている。このことは、溶岩流内の地下水が周辺の地下水とは異なる起源をもつ可能性を示唆している。そこで、同時に測定した水の安定同位体比(δD , $\delta^{18}\text{O}$)は、周辺で観測された同位体比よりも軽い同位体に富んでいること示しており、起源となった降水が周辺部よりも高地的に高い場所で涵養されたものであると推測された。地下水の年代、水質、環境同位体比(δD , $\delta^{18}\text{O}$)の分布データを考慮して推定した平面2次元的な地下水の年代・流動区分モデル⁹⁾をFig. 3に示す。

2・1・3 測定例2 Mahara and Igarashi⁷⁾は北半島の低レベル放射性廃棄物処分のための六ヶ所サイトで鉛直方向に地下水中の溶存He量とHe同位体比を測定し $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と $^4\text{He}_{\text{eq}}/^4\text{He}$ 比でデータを整理することにより、サイトの台地上の地下水が、地表から海拔(EL) -40 mを境に浅部の地下水とそれよりも深部に存在する地下水とに区分できることを示した。ここに、 $^4\text{He}_{\text{eq}}$ は大気と平衡状態の ^4He 濃度を示す。浅部の地下水には、 ^3H のBomb Pulse(1950-1961年まで米ソを中心に大気圏で実施された核実験によって降水中の ^3H 濃度が、短期間のうちに天然レベルの1,000-10,000倍近く上昇し、その後急激に減少したことから ^3H 濃度がパルス状に変化したことを指す)の壊変を通じて生成された ^3He によって $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が押し上げられたTritogenic ^3He のピークが観測された。一方、深部の地下水には ^3H が観測されず、地下に浸透した降水にエンドメンバーとなる地下水が示唆する $^3\text{He}/^4\text{He}$ が 7.24×10^{-7} をもつCrustal(地殻起源)Heの蓄積が進み、地下水年代の増加に伴い $^3\text{He}/^4\text{He}$ の低下がみられた(Fig. 4)。このCrustal He成分には、6%程度Mantle(マントル)He成分からの寄与が含まれていると見積もられている⁷⁾。台地上の海拔+48mから-30mまでの地下水の年代は、Crustal Heの寄与を無視すると、0-38年となり深度方向に年代が古くなる傾向を示している。地下水年代と採水標高分布をFig. 5にプロットするとその傾きから台地上を浸透する地下水の平均的な鉛直方向の速度は、1.05m/yと推定された⁷⁾。

Fig. 3 Separation of groundwater flow ranges using differences in patterns of groundwater quality and groundwater residence time estimated by the ^3H + ^3He dating method in the Mishima lava flow and the surrounding region. Groundwater residence time ranged from 10 years in the Mishima lava flow to 15 years for groundwater flowing from the Hakone region (after Mahara et al. (9)).

2・2 ^4He - ^{36}Cl 地下水年代測定法

2・2・1 測定原理 Torgersen and Clarke¹⁰⁾が提案している式

$$\tau = \frac{C_{\text{He}}}{A + \frac{J}{n \cdot h \cdot \rho_w}} \quad (2)$$

$$A = \varepsilon \cdot \frac{1-n}{n} \cdot \frac{\rho_R}{\rho_w} \cdot (1.19 \times 10^{-13} \cdot U + 2.88 \times 10^{-14} \cdot Th) \quad (\text{ccSTP/gw} \cdot \text{y}^{-1}) \quad (3)$$

ここに、 τ : 地下水年代 (year), C_{He} : 地下水に溶けている ^4He 濃度 (ccSTP/gw), A : 原位置で生成され1年間に地下水中に蓄積される ^4He 量 (ccSTP/gw y^{-1}), n : 岩石の空隙率, h : 地下水の採水深度 (cm), ρ_w : 地下水密度 (g/cm³), ε : 岩石からの ^4He の放出率 (通常は1.0と仮定), ρ_R : 岩石密度, U : 岩石中ウラン濃度 (mg/kg), Th : 岩石中トリウム濃度 (mg/kg) を用いて地下水に溶存する ^4He 濃度を基に地下水の年代を決めるには、地下水の採水深度における脱ガスフラックス J による ^4He 蓄積量の評価が必要となる。この J を原位置で決めることは、困難である。そこで、Mahara et al.¹¹⁻¹⁴⁾は、 J を直接決めることなく、 ^{36}Cl と ^4He の相関関係を基に一定の時間内(例えば、 ^{36}Cl の半減期30万年間)に地下水中に蓄積する ^4He 濃度をもとに ^4He 蓄積速度を求める方法を提案している。

具体的には、地下水中に含まれる宇宙線起源 ^{36}Cl (Cosmogenic ^{36}Cl)の減衰と原位置の岩石中の α 核種の(α, n)反応で生成される中性子によって岩石や地下水中の安定 ^{35}Cl の放射化によって生成される ^{36}Cl (Nucleogenic ^{36}Cl)の増加の関係を基に、 ^{36}Cl の1

Fig.4 Correlation between the He isotopic ratio ($^3\text{He}/^4\text{He}$) and the saturated He content equilibrated with atmospheric air dissolved in groundwater. Shallow groundwater is shown in (a) and deep groundwater is shown in (b); open triangle: shallow groundwater collected from ground surface to 40 m below sea level; solid circle: deep groundwater collected beyond 40 m below sea level; $^4\text{He}_{\text{eq}}$: the saturated dissolved He content is 4.68×10^{-8} ccSTP/g when rainwater is equilibrated with atmospheric air at 8°C , which is the average temperature at the site (after Mahara and Igarashi (7)).

Fig.5 Groundwater age gradient estimated from the correlation between the $^3\text{H}/^3\text{He}$ ages and sampling depth of groundwater on the tableland (groundwater age gradient: 1.05 m/y, a correlation coefficient: $r^2 = 0.73$) (after Mahara and Igarashi (7)).

半減期間 (3.01×10^5 年) を時間尺度として採用している。Phillips et al.¹⁵⁾によれば、地下水中に含まれる ^{36}Cl 原子数の時間変化は次式で表される。

$$^{36}\text{Cl}(\tau) = \text{Cl}_0 \cdot R_0 \cdot e^{-\lambda \cdot \tau} + \text{Cl}_0 \cdot R_{\text{eq}} \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot \tau}) + R_{\text{eq}} \cdot (\text{Cl}(\tau) - \text{Cl}_0) \quad (4)$$

ここに、 Cl_0 : 地下水中の大気からもたらされる塩化物イオンの初期濃度、 R_0 : 宇宙線起源 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の初期比、 λ : 半減期、 τ : 地下水年代、 R_{eq} : 岩石中の放射平衡 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比である。

この式において、右辺第1項は、大気(宇宙線)起源の ^{36}Cl の地下水中での時間変化を表す。第2項は大気(降水中の)から地下水に供給される塩素の地下水中での放射化によって生成される ^{36}Cl の時間変化を表し、第3項は、岩石からの塩化物イオンの溶解に伴い放射平衡に達している ^{36}Cl の付加を表している。さらに、ここで地下水の混合、溶存 He の地下水中での拡散と地下水からの脱ガスによる減少がないと仮定すると、式(4)の地下水年代 τ は $\tau = ^4\text{He}_{(\text{ex})}/\alpha^*$ で表される。

ここに、 $^4\text{He}_{(\text{ex})}$ は測定された地下水中の ^4He 濃度から大気平衡 ^4He 濃度を差し引いた残りの ^4He 濃度であり、 α^* は ^4He の蓄積速度である。したがって、 ^{36}Cl 原子数と He 濃度との関係は、地下水中への He 蓄積速度が一定の条件のもとで以下の式(5)~(8)

で表される。

$$\text{Cl}(t) = \text{Cl}_m \quad (5)$$

$$^{36}\text{Cl} = R_m \cdot \text{Cl}_m \quad (6)$$

$$(R_m - R_{\text{eq}}) \cdot \text{Cl}_m = \text{Cl}_0 \cdot (R_0 - R_{\text{eq}}) \cdot e^{-\lambda \cdot (\text{He}_{(\text{ex})}/\alpha^*)} \quad (7)$$

$$\frac{^4\text{He}_{(\text{ex})}}{\alpha^*} = -\frac{1}{\lambda} \cdot \ln \left(\frac{R_m - R_{\text{eq}}}{R_0 - R_{\text{eq}}} \cdot \left(\frac{\text{Cl}_m}{\text{Cl}_0} \right) \right) \quad (8)$$

ここに、 Cl_m : 測定された地下水中の塩化物イオン濃度、 R_m : 測定された $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比である。

実測データをもとに過剰 $\text{He}_{(\text{ex})}$ と $(R_m - R_{\text{eq}}) / (R_0 - R_{\text{eq}}) \times (\text{Cl}_m - \text{Cl}_0)$ との関係を片対数紙上にプロットし得られる直線の傾きから、 ^4He の蓄積速度 α^* を求めることが可能となる。

ここで議論の余地が残るのは ^4He の蓄積速度を一定と考えることが可能かどうかである。Mahara et al.¹³⁾ は、オーストラリア大嶺盆地地下水のデータを使って、Torgersen and Ivey¹⁶⁾ が導いた流下距離と帯水層の厚さで表した溶存 ^4He 濃度を表す式を以下のように書き直し、蓄積速度は条件が整えば一定であることを次のように示した。

$$^4\text{He}_{\text{ex}} = A \cdot \left(\frac{x}{v} \right) + \frac{F'}{H} \cdot \left(\frac{x}{v} \right) + \left(\frac{H \cdot F'}{k} \right) \cdot \left(\frac{1}{3} \right) + \text{diffusion term} \quad (9)$$

ここに、 A : ^4He の原位置での年間蓄積量、 x : 地下水の流下距離、 H : 帯水層の厚さ、 v : 地下水流速、 F' : ^4He 脱ガスフラックス、 k : 地下水中での溶存 ^4He の拡散係数である。

帯水層の厚さが一定で均質、 ^4He 脱ガスフラックスが一定、原位置での ^4He 生成量が一定、 ^4He の拡散係数が一定でかつ地下水の流速が一定と仮定できれば、地下水中の溶存過剰 ^4He 濃度は、地下水の流下距離あるいは時間(地下水年代)に比例する項と拡散による影響項 $\exp(-a \cdot k/H^2 \cdot (x/v))$ の関数で与えられる。ここで、 a は正の定数である。地下水の流下距離が長くなるか地下水の流速が小さくなれば、 x/v は無限に大きくなるので拡散項の寄与は無視できる。過剰 ^4He 濃度と時間 (x/v) あるいは流下距離 (x) の間には直線性が認められることになる。ここで仮定した条件が整えば、 ^4He 蓄積速度は一定と考えることができる。

地下水盆の水理地質条件に変化がなく、 ^4He 蓄積条件が変化し

Fig.6 Location of the Great Artesian Basin, Australia province name, sample locations (solid circle), and groundwater flow paths A through F, Triangles mark locations where drill cores were sampled for physical and chemical analyses. Arrows show flow directions inferred from previous studies. Groundwaters ages (T) are estimated along groundwater flow paths A, C, and D (modified Fig. 1 of Mahara et al. (13)).

ないと仮定できれば、 ^4He の脱ガスフラックスの大きさを決めることなく、 $^4\text{He}_{\text{(ex)}}$ と推定した ^4He 蓄積速度 α^* をもとに地下水の年代は推定が可能となる。

2・2・2 測定例 大気起源 ^{36}Cl が卓越した事例として、Mahara et al.¹¹⁾ はオーストラリア大鑽井盆地の Coonamble Embayment 地下水盆の地下水に対し本手法を適用し、He の蓄積速度として $9.6 \times 10^{-11} \text{ ccSTP/g} \cdot \text{y}^{-1}$ で、最長地下水年代は 1×10^6 年と推定した。また Mahara et al.¹²⁾ は、地下水の起源が海水で原位置での ^{36}Cl 生成が卓越しているスウェーデン Äspö 地下実験施設の滞留性の高い高塩分地下水に対して本手法を適用して、 ^4He の蓄積速度として $1.83 \pm 0.72 \times 10^{-8} \text{ ccSTP/g} \cdot \text{y}^{-1}$ 、最長地下水年代は 4.5×10^6 年と推定した。大気起源と原位置生成 ^{36}Cl が共存する場合として、オーストラリア大鑽井盆地中央部の 6 つの地下水流動経路を対象に本手法の適用を図り、そのうち地下水混合が比較的小さな 3 つの流動系で、 ^4He 蓄積速度として、 $(1.85 \pm 0.31) \times 10^{-11} \sim (1.51 \pm 0.63) \times 10^{-10} \text{ ccSTP/g} \cdot \text{y}^{-1}$ を、地下水年代として地下水の流出域である Lake Eyre 周辺で 7×10^5 年程度と推定した¹²⁾ (Fig. 6)。ここで推定した ^4He 蓄積量は、Lehmann et al.¹⁷⁾ が、大鑽井盆地の同じ流動経路の地下水に対し、 ^{81}Kr を使って推定した地下水年代値を基に推定した ^4He 蓄積量 ($2 \times 10^{-11} \sim 1.9 \times 10^{-10} \text{ ccSTP/g} \cdot \text{y}^{-1}$) とよく一致している。

2・3 その他の希ガスをを用いた地下水年代測定法の概要

溶存 He 以外に地下水年代測定に活用される希ガス成分としては、 ^{21}Ne が存在する。これは地下の岩盤中で発生する α 粒子と ^{18}O の核反応 ($^{18}\text{O}(\alpha, n)^{21}\text{Ne}$)¹⁸⁾ で生成される。酸素原子の中では ^{18}O の存在量が、0.1995% ときわめて低いために、大気起源の ^{21}Ne との分別が評価精度の鍵を握っている。Bottomley et al.¹⁹⁾ は、カナダ Chalk River Nuclear Laboratory ならびに Whiteshell にある Nuclear Research Establishment の敷地内において ^4He 年代とともに ^{21}Ne による年代測定結果を報告している。しかし、推定された ^4He と ^{21}Ne 年代はともに最長年代値が 2×10^8 年と同時に測定

された他の ^{14}C 年代、同位体データや水理地質データと十分に整合性がとれず、必ずしも満足のものではなかった。

Lippmann et al.²⁰⁾ は、 ^{40}Ar 、 ^{134}Xe 、 ^{136}Xe の原位置生成量とそれぞれの Crustal フラックスを見積もり、南アフリカの金鉱山で非常に古い地下水の年代測定を行った。その結果は、2 つのシナリオ (原位置生成量のみモデルと原位置生成量に各希ガスの Crustal フラックスの寄与を組み合わせたモデル) の下、原位置生成量のみモデルで最長で 10^8 年、Crustal フラックスを組み込んだモデルでは、 10^7 年と報告している。

溶存 Kr の場合、 ^{85}Kr 、 ^{81}Kr を用いた地下水年代測定法が提案されている。核燃料の再処理から放出される人為起源の ^{85}Kr はその半減期が 10.76 年と短いため浅層の地下水年代測定法として、人為起源の CFC や SF_6 による地下水年代測定と同時に計測されることも多く、 ^3H - ^3He 年代測定法とは測定原理を異にする点で注目される核種である。一方、非常に長い年代測定に活用できる宇宙線起源 ^{81}Kr (半減期 2.29×10^5 年) は、サイクロトロン方式の AMS (Acceleration Mass Spectrometry) を用いることによって測定が可能となった²¹⁾。Lehmann et al.¹⁸⁾ は、その手法を用いて ^{81}Kr を測定し、オーストラリアの大鑽井盆地の西側の Oodnadatta 周辺の Raspberry Creek-Watson Creek で地下水年代として 22.5 ~ 40.2 万年の測定値を報告している。地下水に溶存する ^{81}Kr は、地下での生成がほとんど無視できるため²²⁾、地下水年代測定のための宇宙線起源の理想的な環境トレーサと考えられている²¹⁾。そのために、深層地下水の年代だけでなく地殻内で循環していると考えられている深部流体の滞留時間の推定に活用が期待され研究が進められている²³⁾。

一方で ^{85}Kr 、 ^{81}Kr を用いた地下水年代測定法における最大の技術課題は、これら核種の地下水中の溶存濃度が非常に低いため、分析には大量の地下水試料 ($1 \sim 10 \text{ m}^3$) から僅か $0.1 \sim 1 \text{ cm}^3$ 程度の Kr を分離回収する必要があった。この点は、Ohta et al.²⁴⁾ の研究によって抽出効率が格段と向上した。我国では、Ohta et al. に

Fig.7 Correlation between cosmogenic radionuclides (^{10}Be , ^{26}Al and ^{36}Cl) measured in quartz and depth (g/cm^2) at Abukuma, Japan, and the estimated erosion rates obtained from a simple erosion model based on cosmic irradiated effects. (a) ^{10}Be and ^{26}Al measured at Purdue University, (b) ^{36}Cl measured at Swiss Federal Institute of Technology (ETH) (after Mahara et al. (29)).

よって試作された抽出装置²⁴⁾を用いて熊本平野の地下水の年代測定調査²⁵⁾にも活用された。

3. 宇宙線生成核種を用いた地形変化プロセスに関する研究

3・1 浸食速度の推定に関する研究

3・1・1 測定の原理 既に述べたように大気層 ($200 \text{ g}/\text{cm}^2$) を通過した宇宙線に含まれる粒子は、主に中性子と陽子である。これら粒子が岩石に吸収されることによる核種の生成量は、地表から、深度方向に指数関数的に減少する。

Lal²⁶⁾, Nishizumi *et al.*²⁷⁾によれば、浸食がない場合には、深度 x (cm) における生成率を $P(x)$ (atoms/g/y) とすると、次式

$$P(x) = P(0)e^{-\rho x/\Lambda} = P(0)e^{-\mu x} \quad (10)$$

ここに、 ρ : 岩石の平均密度 (g/cm^3)、 Λ : 核反応を起こすまでの粒子の吸収平均自由行程 (g/cm^2)、 μ : 吸収係数 ($=\rho/\Lambda$) (cm^{-1})、 $P(0)$: 岩石表面での核種の生成率 (atoms/g/y) で与えられる。時間 τ における任意の深度 x の岩石内での放射性核種の原子の数 $N(x, \tau)$ は、一般に次式で与えられる。

$$\frac{dN(x, \tau)}{dt} = -N(x, \tau) \cdot \lambda + P(x, \tau) \quad (11)$$

いま、浸食速度 ε ($t = \varepsilon$ と宇宙線強度が一定で照射期間中の地表面における核種生成率 $P(0, t) = P(0)$ が一定の場合、任意時間における任意深度の岩石中の核種の原子の個数は、式 (11) を解くことで次式

$$N(x, \tau) = N(x, 0)e^{-\lambda\tau} + \frac{P(0)}{\lambda + \mu\varepsilon} e^{-\mu x} (1 - e^{-(\lambda + \mu\varepsilon)\tau}) \quad (12)$$

で与えられる。 $N(x, 0)$ は、もともと深度 x にあった岩石中の初期 ($\tau = 0$) の着目核種の原子数 (atoms/g) を表す。この式の右辺第1項は、宇宙線照射期間中に岩石中に元々あった核種の減衰を表す。第2項は、宇宙線照射と浸食によって削剥される深度 x における岩石中の核種の原子数を表している。岩石中の初期核種の原子数が無視できる場合、任意の宇宙線照射時間では深度方向の核種数と浸食速度は、次式で表される。

$$N(x) = \frac{P(0)}{\lambda + \mu\varepsilon} e^{-\mu x} \quad (13)$$

Fig.8 The estimated erosion rates of 0.008–0.009 mm/y by the ^{10}Be – ^{26}Al method at Abukuma, Japan.

実際には、同じ宇宙線照射時間を持つ岩石中の核種量 (atoms/g) と深度 (g/cm^2) を片対数紙上にプロットすると、宇宙線照射フラックスが一定で浸食速度が一定であれば、直線で近似できる。その傾きから宇宙線粒子の吸収係数と切片から浸食速度が推定できる。また、Yokoyama *et al.*²⁸⁾によれば、同じ岩石試料中に生成される半減期が異なる核種を定量できれば、式 (12) から浸食速度と宇宙線照射時間が原理的には推定できると述べている。

3・1・2 測定事例 Mahara *et al.*²⁹⁾は、阿武隈高原の風化花崗岩地帯で、宇宙線によって平均5万年間照射を受けたと推定される斜面の表面から鉛直深度方向に ^{10}Be 、 ^{26}Al と ^{36}Cl 濃度分布を測定し、それぞれの核種ごとに 0.017 ± 0.001 , 0.019 ± 0.001 , $0.01 \pm 0.001 \text{ mm/y}$ の浸食速度を評価し (Fig. 7), 3核種の平均浸食速度として $0.015 \pm 0.0017 \text{ mm/y}$ を報告している。また、同じサイトで二つの宇宙線起源核種を組み合わせた ^{26}Al – ^{10}Be 法^{26-27, 29-30)} (任意の浸食速度を仮定し求めた岩石試料の $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$ 比と ^{10}Be (atoms/g) の理論曲線に測定値をフィッティングし浸食速度を推定する手法) を適用し、浸食速度は 0.009 mm/y 程度 (Fig. 8) と推定した。先に求めた深度と核種原子数の関係を基に推定した浸食速度ともほど同程度であった。これらの浸食速度は、阿武隈地域のダム等で測定された土砂の堆積速度 $0 - 0.3 \text{ mm/y}$ から推定される削剥速度³¹⁾とも調和的である。

一方、Nishiizumi *et al.*²⁷⁾は、南極のアラン・ヒルにある基盤岩を対象に ^{26}Al – ^{10}Be 法を適用し、宇宙線照射時間140万年の定常

Fig.9 The estimated erosion rate of 0.24 mm/ky by the ^{10}Be - ^{26}Al method at the Alan Hill in the Antarctic (after Nishiizumi et al. (27)).

状態を仮定し、最大浸食速度を $2.4 \times 10^{-4} \text{ mm/y}$ と推定している (Fig. 9)²⁷⁾。さらに Nishiizumi et al.³²⁾ は、アリゾナの隕石孔の岩石に対してこの手法を適用して、隕石の衝突によってクレーターができた時期を 5 万年前頃と推定している。同一クレーターのサンプルを用いて、Phillips et al.³³⁾ は、 ^{36}Cl 暴露年代を推定し Nishiizumi et al. の推定³²⁾ を支持する結果を与えている。一方、Wakasa et al.³⁴⁾ は、韓国ソウル郊外の Mt. Sape の花崗岩に対して ^{26}Al - ^{10}Be 法を適用し、0.8 - 7 万年間の宇宙線照射による削剥速度として 0.7 mm/y を報告している。

また、宇宙線照射によって石英中に生成される ^{10}Be , ^{26}Al , ^{36}Cl よりもさらに半減期が短い ^{14}C を使った削剥速度推定の試みが、Kim et al.³⁵⁾ によって検討された。それによれば、海拔 535m に位置するニュージーランドのマクラウス平原の 400 g/cm^2 (1.45m) までの深度の石英試料から ^{14}C を抽出し、すでに ^{26}Al - ^{10}Be 法で測定された削剥速度との比較推定を試みている。しかし、石英中の流体包有物に含まれる窒素の放射化による ^{14}C の寄与が十分に評価できていないために、まだ削剥速度を推定するには至っていない。

ここまで宇宙線によって生成される放射性核種を用いた研究事例について述べたが、岩石中に蓄積される宇宙線起源の安定核種である安定希ガス ^3He や ^{21}Ne を測定して暴露時間を推定する試みも提案されている³⁶⁻³⁷⁾。

3・2 宇宙線起源核種を用いたその他の地形変化研究事例

Cerling and Craig³⁷⁾ は、宇宙線照射によって岩石中に生成される長半減期放射性核種濃度を基に照射年代を正確に評価することにより様々な地質学的なイベント (氷河作用、地層浸食、残丘や太古の浸食面、火山活動、沖積堆積作用、氷床の融除率の推定、隕石の衝突、砂漠の消長、過去の大洪水に関する情報) や考古学分野への活用の可能性について言及している。一方、Yokoyama et al.²⁸⁾ は、テクトニクスに関連した断層運動に関する研究事例と浸食による河川による堆積物の輸送 (ケイ酸塩の風化) が、大気中の CO_2 濃度へ与える影響についても触れた解説を行っている。

3・2・1 断層運動 Ritz et al.³⁸⁾ や Zerda and Noller³⁹⁾, Gran Mitchell et al.⁴⁰⁾ の研究から、正確な照射年代を基に断層運動のタイミングが決定できること、また、Benedetti et al.⁴¹⁾ は断層崖の露出面の ^{36}Cl 測定することによって、正断層が過去 20Ka, 14.5Ka, 10.5Ka の間に 500 - 4,500 年の間隔で 3 回 (0.6m - 2.1m) スリップし崖が成長したと推測し報告している。

3・2・2 断層活動性評価 河川や沿岸堆積物中の宇宙線照

射核種を用いて断層の活動性を評価する研究が、成果を上げている^{42, 43)}。一方で堆積物が堆積地点で宇宙線照射を受ける以前に持っていた照射履歴 (遺産照射 (inheritance)) についての補正がこの種の研究では重要となる。補正方法については、河岸段丘の場合^{44, 47)} には段丘の基底面上に河川等が輸送してきた堆積物は、堆積時には同じ遺産照射を持つが、堆積層が形成されてからは深度毎に宇宙線照射によって生成される核種量が異なることを基に、遺産照射線量曲線を描き基底面が持つ遺産照射量を推定できる。また、Anderson et al.⁴⁵⁾ は、この基底面が持つ遺産照射線量と段丘表面の段丘形成後の宇宙線暴露によって生成された生成核種量の違いから、段丘の暴露時間 (形成年代) の推定を行った。

3・2・3 チベット地域のテクトニクスと気候変動の関連性

チベット高原地域の隆起と断層運動をインドとユーラシア大陸の衝突と潜り込みに起因するテクトニクスの運動の面から明らかにするため、長大な断層の長期的な平均スリップ速度について、宇宙線照射生成核種 (^{10}Be - ^{26}Al) と有機物に含まれる ^{14}C を用いて詳細な議論がされている⁴⁸⁻⁵⁰⁾。一方、Lal et al.⁵¹⁾ は、北部チベットの Kunlun 地域で 60-200 mm/y と非常に大きな浸食速度を測定しており、中部や南部では 30 mm/y 以下と地域によって浸食速度が大きく異なることを明らかにした。このことは、北部の Kunlun 地域がもつ大きな浸食速度を仮定しても、Kunlun 地域全体での降水量が低いことを考慮すると、河川が運ぶ堆積物量による化学的風化の影響は、ヒマラヤ地域ほどは大きくなく、Kunlun 地域の河川によって輸送される堆積物に含まれるケイ酸塩が、地球大気全体の CO_2 濃度に変動を与える⁵²⁾ とは考えにくい⁵¹⁾ と推定している。

4. ま と め

本論では、①地下水の流れを追跡できる環境トレーサーとして、宇宙線で生成されるあるいは地下の核反応で生成される長半減期核種と溶存 He およびその他の希ガスデータの特性と地下水年代測定への応用、②岩石中に宇宙線照射によって生成される長半減期核種 (例えば ^{10}Be , ^{26}Al , ^{36}Cl) の照射年代測定を基にした地表面の浸食速度推定研究を中心にとりまとめた。

地下水年代測定においては、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優れた性能を有している。また、 ^3H や ^{36}Cl と組み合わせて、滞留時間が数 10 年の若い地下水から 100 万年を超す非常に古い地下水の年代測定が可能となる。さらに、溶存 He 同位体データからは、地下水年代・起源等の地下水の流動性に関する情報と地下水の流れを大きく左右する地下水盆の水理地質に関する情報を得ることも可能である。

一方、宇宙線照射によって岩石中に生成される長半減期核種濃度を深度方向へ測定することによって、地表面の照射年代から、各種地質イベント (氷河作用、地層浸食、断層の運動性、残丘や太古の浸食面の痕跡、火山活動、沖積堆積作用、氷床の融除率の推定、隕石の衝突、砂漠の消長、過去の大洪水の記録) に関する情報やテクトニクスと気候変動の関連性への応用の可能性についても研究が展開されていることを述べた。

地下水年代と地形変化 (主に照射年代と浸食速度) の推定は、いずれも地下水や岩石に含まれるあるいは生成される環境トレーサー (安定・放射性核種) 濃度を基にいかにかに正確に年代 (時間) を評価するか、またその前提となる必要な評価条件を規定することが出来るかが、鍵となる。

References

- 1) J. C. Gosse and F. M. Phillips: *Quaternary Sci. Rev.*, **20** (2001), 1475-1560.
- 2) B. Heisinger and E. Nolte: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., B*, **172** (2000), 790-795.
- 3) J. N. Andrews and R. L. F. Kay: *Nature*, **282** (1982), 361-363.
- 4) Y. Mahara, T. Ohta, T. Tokunaga, H. Matsuzaki, E. Nakata, Y. Miyamoto, Y. Mizuochi, T. Tashiro, M. Ono, T. Igarashi and K. Nagao: *Appl. Geochem.*, **27** (2012), 2389-2402.
- 5) Mahara, Y. (2009): *Groundwater dating*. J. Groundwater Hydrol., **51**, 55-59. (in Japanese)
- 6) Y. Mahara and T. Ohta: *J. Plasma Fusion Res.*, **85** (2009), 434-436. (in Japanese)
- 7) Y. Mahara and T. Igarashi: *Appl. Geochem.*, **18** (2003), 719-738.
- 8) J.N. Andrews: *Isotopes of Noble Gases as Tracers in Environmental Studies*, (IAEA, Vienna, 1992) pp.87-110.
- 9) Y. Mahara, T. Igarashi and Y. Tanaka: *J. Groundwater Hydrol.*, **35** (1993), 201-2115. (in Japanese)
- 10) T. Torgersen and W.B. Clarke: *Geochim. Cosmochim. Acta*, **49** (1985), 1211-1218.
- 11) Y. Mahara, M.A. Habermehl, K. Miyakawa, J. Shimada and Y. Mizuochi: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., B*, **259** (2007), 530-546.
- 12) Y. Mahara, T. Hasegawa, K. Miyakawa and T. Ohta: *Appl. Geochem.*, **23** (2008), 3305-3320.
- 13) Y. Mahara, M.A. Habermehl, T. Hasegawa, K. Nakata, T.R. Ransley, T. Hatano, Y. Mizuochi, H. Kobayashi, A. Ninomiya, B.R. Senior, H. Yasuda and T. Ohta: *Earth Planet. Sci. Lett.*, **287** (2009), 43-56.
- 14) Y. Mahara, T. Ohta, T. Kubota, K. Miyakawa, T. Hasegawa, M. A. Habermehl and L. K. Fied: *J Web of Conference* **24** (2012), 03002, DOI:10.1051/epjconf/20122403002.
- 15) F.M. Phillips, H.W. Bentley, S.N. Davis, D. Elmore and B.G. Swanick: *Wat. Resour. Res.*, **22** (1986), 2003-2016.
- 16) T. Torgersen and G.N. Ivey: *Geochim. Cosmochim. Acta*, **49** (1985), 2445-2452.
- 17) B.E. Lehmann, A. Love, R. Purtschert, P. Collon, H. H. Loosli, W. Kutschera, U. Beyerle, W. Aeschbach-Hertig, R. Kipfer, S.K. Frape, A. Herczeg, J. Moran, N.I. Tolstikhin and M. Gröning: *Earth Planet. Sci. Lett.*, **211** (2003), 237-250.
- 18) G.W. Wetherill: *Phys. Rev.*, **96** (1954), 679-683.
- 19) D.J. Bottomley, J.D. Ross and W.B. Clarke: *Geochim. Cosmochim. Acta*, **48** (1984), 1973-1985.
- 20) J. Lippmann, M. Stute, T. Torgersen, D.P. Moser, J.A. Hall, L. Lin, M. Borcsik, R.E.S. Bellamy and T.C. Onstott: *Geochim. Cosmochim. Acta*, **67** (2003), 4597-4619.
- 21) P. Collon, W. Kutschera, H.H. Loosli, B.E. Lehmann, R. Purtschert, A. Love, I. Sampson, D. Anthony, D. Cole, B. Davids, D.J. Morrissey, B.M. Sherrill, M. Steiner, R.C. Pardo and M. Paul: *Earth Planet. Sci. Lett.*, **182** (2000), 103-113.
- 22) J.N. Andrews, T. Florkowski, B.E. Lehmann and H.H. Loosli: *Appl. Geochem.*, **6** (1991), 425-434.
- 23) TANGER 2012: *Whitepapers of the first International Workshop in Tracer Application of Noble Gas Radionuclides in the Geosciences*. (2012) <http://www.phy.anl.gov/event/tanger2012/>
- 24) T. Ohta, Y. Mahara, N. Momoshima, F. Inoue, J. Shimada, R. Ikawa and M. Taniguchi: *J. Hydrol.*, **376** (2009), 152-158.
- 25) N. Momoshima, F. Inoue, T. Ohta, Y. Mahara, J. Shimada, R. Ikawa, M. Kagabu, M. Ono, K. Yamaguchi, S. Sugihara and M. Taniguchi: *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **287** (2011), 761-767.
- 26) D. Lal: *Earth Planet. Sci. Lett.*, **104** (1991), 424-439.
- 27) K. Nishiizumi, C. P. Kohl, J. R. Arnold, F. Klein, D. Fink and R. Middleton: *Earth Planet. Sci. Lett.*, **104** (1991), 440-454.
- 28) Y. Yokoyama, T. Aze, H. Muraoka and H. Matsuzaki: *Jour. Geol. Soc. Japan*, **111** (2005), 693-700. (in Japanese)
- 29) Y. Mahara, K. Hojo, T. Kubota, T. Ohta, Y. Mizuochi, T. Tashiro, S. Sekimoto, K. Takamiya, S. Shibata and K. Tanaka: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., B*, **268** (2010), 1197-1200.
- 30) K. Nishiizumi, D. Lal, F. Klein, R. Middleton and J. R. Arnold: *Nature*, **319** (1986), 134-136.
- 31) O. Fujiwara, T. Sanga and H. Ohmori: *JNC Tech. Rep. Rep. 41* (JNC TN7410 2001-015) (2001), p. 85. (in Japanese)
- 32) K. Nishiizumi, C. P. Kohl, J. R. Shoemaker, J. R. Arnold, F. Klein, D. Fink and R. Middleton: *Geochim. Cosmochim. Acta*, **55** (1991), 2699-2703.
- 33) F. M. Phillips, M. G. Zreda, S. S. Smith, D. Elmore, P. W. Kubik, R. I. Dorn and D. J. Roddy: *Geochim. Cosmochim. Acta*, **55** (1991), 2695-2698.
- 34) S. Wakasa, H. Matsuzaki, K. Horiuchi, Y. Tanaka and Y. Matsukura: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., B*, **223-224** (2004), 628-632.
- 35) K.J. Kim, D. Lal, P.A. J. Englert and J. Southon: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., B*, **259** (2007), 632-636.
- 36) T. Graf, C. P. Kohl, K. Marti and K. Nishiizumi: *Geophys. Res. Lett.*, **18** (1991), 203-206.
- 37) T. E. Cerling and H. Craig: *Ann. Rev. Earth Planet. Sci.*, **22** (1994), 273-317.
- 38) J. F. Ritz, E. T. Brown, D. L. Bourles, H. Phillips, A. Schlupp, G. M. Raisbeck, F. Yiou and B. Enkhtuvskhin: *Geology*, **23** (1995), 1019-1022.
- 39) Zreda and J. S. Noller: *Science*, **282** (1998), 1097-1099.
- 40) S. Gran Mitchell, A. Matmon, P. R. Bierman, Y. Enzel, M. Caffee and D. Rizzo: *J. Geophys. Res.*, **106** (2001), 4247-4264.
- 41) L. Benedetti, R. Finkel, G. King, R. Armijo, D. Ryerson F. J. Papanastassiou, F. Flerit and D. Farber: *Terra Nova*, **15** (2003), 118-124.
- 42) P. R. Bierman, A. R. Gillespie and M. N. Caffee: *Science*, **270** (1995), 447-450.
- 43) L. L. Siame, D. L. Bourles, M. Sebrier, O. Bellier, J. C. Castano, M. Araujo, M. Perez, G. M. Raisbeck and F. Yiou: *Geology*, **25** (1997), 975-978.
- 44) E. T. Brown, D. L. Bourles, C. Burchfield, D. Qidong, L. Jun, P. Molnar, G. M. Raisbeck and F. Yiou: *Geol. Soc. Am. Bull.*, **110** (1998), 377-386.
- 45) R. S. Anderson, J. L. Repka, and G. S. Dick: *Geology*, **24** (1996), 47-51.
- 46) J. L. Repka, R. S. Anderson and R. C. Finkel: *Earth Planet. Sci. Lett.*, **152** (1997), 59-73.
- 47) G. S. Hancock, R. S. Anderson, O. A. Chadwick and R. C. Finkel: *Geomorphology*, **27** (1999), 41-60.
- 48) J. Van der Woerd, F. J. Ryerson, P. Tapponnier, A.-S. Meriaux, Y. Gaudemer, B. Meyer, R. C. Finkel, M. W. Caffee, Z. Guoguang and X. Zhigun: *Geophys. Res. Lett.*, **27** (2000), 2353-2356.
- 49) J. Van der Woerd, X. Xu, H. B. Li, P. Tapponnier, B. Meyer, F. J. Ryerson, A.-S. Meriaux and Z. Q. Xu: *J. Geophys. Res.*, **106** (2001), 30475-30504.
- 50) A.-S. Meriaux, F. J. Ryerson, P. Tapponnier, J. Van der Woerd, R. C. Finkel, X. Xu, Z. Xu, and M. W. Caffee: *Geophys. Res. Lett.*, **109** (2004), doi:10.1029/2003JB002558.
- 51) D. Lal, N. B. W. Harris, K. K. Sharma, Z. Gu, L. Ding, T. Liu, W. Dong, M.W. Caffee and A. J. T. Jull: *Earth Planet. Sci. Lett.*, **217** (2003), 33-42.
- 52) M. E. Raymo and W. F. Ruddiman: *Nature*, **359** (1992), 117-122.