

3D01 (Keynote)

オスミウム同位体組成と微細組織からみた天然多結晶ダイヤモンド（カルボナド）の起源—地殻炭素の地球深部へのリサイクル

- 鍵 裕之¹、白石 智子¹、角野 浩史²、仙田 量子²、
鈴木 勝彦²、浅野 奈津子³、大藤 弘明³
(¹ 東大院理、² 東大院総合文化、² 海洋研究開発機構、
³ 愛媛大地球深部研)

カルボナド(carbonado)は、1 μm 前後のダイヤモンド微結晶が集合した多結晶ダイヤモンドである。 $\delta^{13}\text{C}$ で約-20 ‰と低い炭素同位体組成をもつこと、マントル鉱物が包有物として観察されないこと、多環芳香族炭化水素(PAH)を含むこと、ウランの核分裂片起源のキセノン同位体組成をもつことなどから、カルボナドダイヤモンドはマントル起源ではなく、地殻の炭素を原料とした衝撃圧起源、地殻での放射線照射、宇宙空間での気相成長などといった成因が提案されており (Smith and Dawson, 1985; Ozima et al., 1991; Kamisky 1991; Garai et al., 2006)、現時点でカルボナドの成因は明らかになっていない。カルボナドは多結晶ダイヤモンドであり、結晶組織に粒界が多く存在するため、カルボナドのダイヤモンドが成長した後、風化や変質といった流体を介した二次的影響を粒界が受けやすく、もともとダイヤモンドの粒界に存在していた結晶成長時の情報は保持されていない可能性が高い。本研究では多結晶ダイヤモンドの粒界と粒内の情報を区別して分析することで、その起源を明らかにすることを試みた。

オスミウム同位体比($^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$)は地殻物質とマントル物質を明確に区別することができる優れた指標である。カルボナド試料を粉碎、カリアスチューブ分解法で Os と Re を抽出して粒界の情報を選択的に得たのち、残渣をグラファイト化することでダイヤモンド粒内に含まれている Os と Re を抽出した。第一段階での抽出で得られた $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 比は 0.49~0.91、第二段階で得られた $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 比は 0.24~0.87 となり、すべての試料について粒界の $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 比が粒内の値よりも高くなることが明らかになった。このことはカルボナドの粒界が地殻物質の影響を受けていることを明確に示している。

FE-SEM による電子顕微鏡観察から、カルボナドを構成するダイヤモンド結晶内に取り込まれている包有物の観察を行った。ダイヤモンドの粒界には、これまでの報告のように地殻起源のフローレンサイトの存在が確認されたが、ダイヤモンド粒内には 100 nm オーダーのオンファース輝石組成の包有物が存在することがわかった。このことはカルボナドが海洋地殻の沈み込みによる起源をもつことを直接的に示唆する最初の証拠である。講演では微量元素存在度から支持される情報についても言及する。

Osmium isotopic composition and microstructure of natural polycrystalline diamonds

*H. Kagi¹, N. Shiraishi¹, H. Sumino², R. Senda², K. Suzuki², N. Asano² and H. Ohfuji² (¹Grad. Sci., Univ. Tokyo, ²Grad. Arts Sci., Univ. Tokyo, ³JAMSTEC, ⁴GRC, Ehime Univ.)

3D02

西太平洋の海底熱水鉱床鉱物の気体地球化学

○佐野有司¹、大城光洋¹、鹿児島渉悟¹、テファン・ラン²、高畑直人¹、
石橋純一郎³

(¹東大大海研、²中央研究院、³九大理)

【はじめに】沈み込み帯の火山・地熱系は中央海嶺の火山とともに地球表層の揮発性元素のマスバランスに大きく寄与しているだろう。陸上の島弧火山では分光分析装置を用いた二酸化硫黄などの放出量の測定が行われているが、海底にある背弧海盆の火山・地熱系では、そのような調査研究例はない。本研究では、沈み込み帯の海底熱水活動により生成する鉱床鉱物に包有物として含まれる揮発性元素に注目して、その起源と放出量について推定したので報告する。

【試料および分析】海底鉱床鉱物は西太平洋の4か所(沖縄トラフ、伊豆-小笠原弧、マリアナトラフ、ラウ海盆)で採取されたものを分析に供した。試料は主として熱水チムニーを構成する物質や硫化物鉱物である。これらに加えて、比較のために東北地方で採取された黒鉱硫化鉱石も合わせて分析した。約1gの試料を純水およびエタノールで良く洗浄した後に真空破砕機に導入して、約6時間ベークアウトした後で、約500回の破砕を行った。抽出された揮発性成分は、分離精製の後に、5つの独立した質量分析計や精密圧力計を用いて、揮発性成分(He, Ar, N₂, CO₂, H₂O)濃度と同位体比(³He/⁴He, ⁴⁰Ar/³⁶Ar, $\delta^{15}\text{N}$, $\delta^{13}\text{C}$)を測定した。

【結果および考察】海底鉱床試料の³He/⁴He比(⁴He/²⁰Ne比を用いて大気成分を補正した値)は5Raから9Ra(ここでRaは大気³He/⁴He比: 1.382×10^{-6})まで変化した。黒鉱はほぼ1Raだった。伊豆-小笠原弧とラウ海盆の試料は平均で8.4Raという典型的な中央海嶺玄武岩(MORB)の値を示した。一方、沖縄トラフとマリアナトラフの試料は平均で6.6Raという島弧火山の値を示した。すべての試料の⁴⁰Ar/³⁶Ar比は大気と等しいか、やや高い値を示した。伊豆-小笠原弧とラウ海盆の試料の $\delta^{15}\text{N}$ 値は平均で-1.6‰となり、沖縄トラフとマリアナトラフの平均+1.3‰より軽い値を示した。一方、二酸化炭素の $\delta^{13}\text{C}$ 値には大きな違いが見られなかった。これらのデータを用いて $\delta^{13}\text{C}$ -CO₂/³He および $\delta^{15}\text{N}$ -N₂/³⁶Ar ダイアグラムで炭素と窒素の起源を解析した結果、沖縄トラフとマリアナトラフの試料について、伊豆-小笠原弧とラウ海盆の試料より大きな堆積物起源の寄与が見積られた。さらに、³He との存在比から、炭素と窒素の放出量を求めて、総合的に議論する予定である。

Gas geochemistry of submarine hydrothermal ore deposits in the Western Pacific.

*Y. Sano¹, M. Ooki¹, T. Kagoshima¹, T. Lan², N. Takahata¹, J. Ishibashi³ (¹AORI, Univ. Tokyo, ²Academia Sinica, ³Kyushu Univ.)

3D03

地球深部における芳香族炭化水素の化学進化

○篠崎彩子¹、三村耕一¹、井上徹²、小松一生³、後藤弘匡⁴、
鍵裕之³

(¹ 名大院環境、² 愛媛大 GRC、³ 東大院理、⁴ 東大物性研)

【はじめに】 地球規模での炭素循環を考える上で、沈み込み帯は地球表層から地球深部へと物質が供給される重要な場である。有機物は地球表層の堆積物において、炭酸塩鉱物と並ぶ主要な炭素のリザーバーである (例えば, Nishino et al. 1998) が、沈み込むスラブに相当する温度圧力条件での有機物の安定性や組成の変化は明らかでない。そこで、有機物の中でも比較的安定であるとされ、マントル物質からも見つかっている (Garanin et al 2011) 芳香族炭化水素をモデル物質として、地球深部での有機物の化学進化を検討する事を目的とした。本発表では、圧力が芳香族炭化水素の安定性と重合反応に与える影響を調べた室温高压実験の結果を報告する。

【実験方法】 出発物質には代表的な芳香族炭化水素であるベンゼン (C_6H_6) とナフタレン ($C_{10}H_8$) を用いた。高压の発生には対向型ダブルトロイダルアンビルプレス、マルチアンビルプレスを用いた。いずれの実験でも金属カプセル中に試料を封入することで、揮発性の高い試料を保持したままでの高压実験および試料の回収を可能とした。ベンゼンの場合は 16 GPa まで、ナフタレンの場合には 23 GPa までの高压実験を行った。微量で多様な生成物の同定と定量化のため、常圧に回収した試料を GC-MS により分析した。

【結果と考察】 回収試料の GC-MS 分析の結果、ベンゼンを出発物質とした場合には 13 GPa 以上でベンゼンの二量体やナフタレン、ビフェニル、ターフェニルが検出された (図 1) (Shinozaki et al. 2014)。ナフタレンを出発物質とした場合には 15 GPa 以上で二量体などの複数種類の生成物が見つかった。本発表では、ベンゼン、ナフタレンの圧力誘起の二量化と、先行研究で報告された高温高压下における芳香族炭化水素の重合、分解反応 (Mimura and Toyama 2005, Chanyshv et al. 2015) の比較を行い、圧力が芳香族炭化水素の重合に与えた影響を議論する。

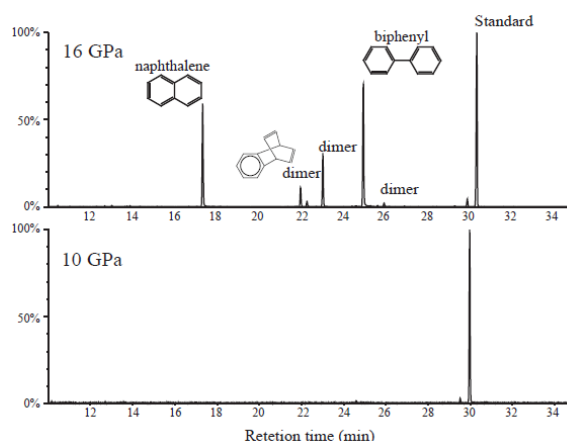


図 1 反応生成物の代表的なマス کروマトグラム ($m/z=87+128+154+156$)

Pressure-induced chemical evolution of aromatic hydrocarbons in the deep earth

*A. Shinozaki¹, K. Mimura¹, T. Inoue², K. Komatsu³, H. Gotou⁴, H. Kagi³

(¹Nagoya Univ., ²GRC, Ehime Univ., ³Univ. Tokyo., ⁴ISSP, Univ. Tokyo)

3D04

秋田県鮎川油ガス田における女川層タイトオイルの有機地球化学

○早稲田 周、奥村文章、横井 悟、辻 隆司
(石油資源開発株式会社)

[はじめに]

秋田県由利原油ガス田においては、1980 年代末にグリーンタフ層の探鉱の過程で偶然に中新統女川層珪質岩中に油ガスを発見した。その後、北隣の鮎川油ガス田でも同種の貯留岩を確認し、珪質岩貯留岩として探鉱開発が行われた。しかし、主要な貯留層は女川層中のドレライトや西黒沢層グリーンタフ層であり、有機物に富む女川層は石油根源岩として認識されてきた。一方、女川層と同時代の珪質岩層である米国カリフォルニア州の Monterey 層には、北米で最大級のシェールオイルポテンシャルが推定されている。そこで、女川層についてもシェールオイル（タイトオイル）の観点からの再評価が必要と考え、根源岩および油ガスの分析データを検討した。

[結果・考察]

女川層の全有機炭素量(TOC)は平均 2%、最大 5%程度である。この値は、北米の代表的なシェールオイル根源岩である Monterey シェールや Bakken シェール（最大 TOC が 20%程度）に較べると低いが、国内シェールとしては最も優秀な根源岩の一つである。

女川層の主力油ガス層に胚胎する炭化水素は、ガスの炭素同位体組成から、油生成帯（最盛期）の熟成度で生成したものと推定され、周辺、おそらく西方のより深部のキッチンからの移動集積したものと考えられる。一方、女川層では主力油ガス層以外にも、多くの区間で油ガス徴が認められ、非商業量／低生産性ながら油の産出が記録されている。これらの低生産性の油層と主力油ガス層とは、産出流体中のメタンの炭層同位体組成で-45‰、あるいは油の硫黄分で 0.5%を境にして区別され、前者は相対的に熟成度の低い根源岩に由来する炭化水素と解釈される。

本油ガス田における女川層の熟成度は未熟成帯と油生成帯の境界付近（ $T_{\max}=430^{\circ}\text{C}$ 前後）である。この熟成度では通常、現地性の油ガスの生成はあまり期待できない。しかし、クロジェン活性化エネルギーの測定結果は、女川層クロジェンが通常よりも低い熟成度で油を生成することを示す。また、低生産性の油層は根源岩性状が特に良好な区間に位置する傾向がある。これらの結果は、近傍からの若干の移動はあるにせよ、油ガスが現地性である可能性を示唆する。

以上のように、本油ガス田においては、高生産性・高熟成度の炭化水素で特徴づけられる生産中の貯留層に対して、低生産性・低熟成度の炭化水素で特徴づけられる未開発の貯留層が存在しており、後者はタイトオイル層として開発できる可能性がある。また、秋田堆積盆地の他の油ガス田にも存在する低熟成度の原油についても現地性の可能性があり、タイトオイル層として周辺深部への連続的で広範囲な分布が期待できる。

Organic Geochemistry for Tight Oil in the Onnagawa Formation, Ayukawa Field, Akita, Japan

*A. Waseda, F. Okumura, S. Yokoi and T. Tsuji (Japan Petroleum Exploration Co., Ltd.)

○朝比奈健太¹, 鈴木徳行^{1,2}(¹ 北大・創成、² 北大・理)

【緒言】 石油や石炭、堆積岩中にはナフタレン (N) やフェナントレン (P) をはじめとする多種多様な多環芳香族類 (PAH) が広く分布しており、これらの異性体組成は熱熟成度指標として用いられている。N や P の起源物質として、カジネンやアビエチン酸などのテルペノイド類があげられる。N や P は生物分解作用に強いいため、これらから起源物質を特定できればいろいろな応用が可能になる。しかし、これまで N や P の組成に注目した起源物質解析法は提案されていない。これは、N や P は分子構造が単純であること、さらには熱熟成により異性体組成が変化することに起因する。各テルペノイドから生成する PAH は、出発物質の構造的な特徴を反映していると考えられる。実際に、我々が先行研究で行ったセスキテルペノイドの加水熱分解実験では、モノメチル-, ジメチル-, トリメチルナフタレン(MN, DMN, TMN)の異性体組成は起源テルペノイドの構造的な特徴と反応性を反映していた。今回、我々はアビエチン酸、コレステロールの加水熱分解実験で得られる N や P の組成を検討し、これらによる起源物質解析の可能性について考察した。

【実験】 加水熱分解実験は、モンモリロナイト存在下、各テルペノイドと水をガラスチューブに入れ、減圧下で封管し、220–320 °C で 24 時間加熱した。加熱生成物は有機溶媒で抽出し、GC-MS で分析を行った。

【結果と考察】 それぞれの実験で N と P が主な生成物として得られ、これらの組成比は P が優位であった。先行研究で行ったカジネンの加水熱分解実験では、P は得られなかった。カジネンでは DMNs が主要な N として得られたが、アビエチン酸とコレステロールでは DMNs と TMNs が主要な生成物であった。またカジネンからは生成しないエチルナフタレンなどの長鎖アルキル基を持つ N なども、アビエチン酸とコレステロールから生成した。カジネンの DMNs 組成は、1,6-DMN のみが主成分であるのに対し、アビエチン酸とコレステロールの実験では 2,6-+2,7- DMNs, 1,3-+1,7-DMNs も主要な生成物であった。アビエチン酸から生成した 1,6-DMN と 1,3-+1,7-DMNs の組成比は同程度であるのに対し、コレステロールでは 1,3-+1,7-DMNs が優性であった。また 1,5-DMN は、アビエチン酸からのみ生成した。さらにメチルフェナントレン(MP)の異性体組成は、異なる結果を示した。アビエチン酸から生成する 1-MP と 9-MP は 1-MP が優位であり、コレステロールでは 9-MP が優位な生成物であった。本講演では原油試料の分析結果を例として、PAH 組成の特徴に基づく起源物質の推定方法についても述べる。

Characteristics of hydrous pyrolysate from terpenoids and its application.

*K. Asahina¹, N. Suzuki^{1,2} (¹CRIS, Hokkaido Univ., ²Fac. Sci., Hokkaido Univ.)

3D06

2-および 3-ヒドロキシアーキオールの立体選択的合成と水酸基の絶対立体配置の推定

○山内 敬明

(九大院理・地球惑星)

ヒドロキシアーキオールは、メタン生成アーキアの膜脂質コアの主成分であり、飽和イソプレノイドジエーテルのイソプレノイド鎖中に水酸基を持つ。この水酸基を持つイソプレノイド鎖のエーテル結合の位置に関する異性体 2-ないし 3-ヒドロキシアーキオールが存在し、微生物種によりいずれかを生産する。ヒドロキシアーキオールは、環境中でメタン生成アーキアの存在と、硫酸還元菌とメタン資性化菌によるメタン酸化環境を示す分子指標として利用されている。しかしこれまで特徴的なイソプレノイド水酸基の絶対立体配置が論じられることがなかった。ヒドロキシアーキオールは、現状ではメタン菌の培養でしか得られず、標品を大量に得て様々な分析に供するには問題がある。

私はこれまでに、ヒドロキシアーキオールの分析標品として、イソプレノイド中の水酸基の立体配置についてラセミ体である化合物を簡便かつ大量に合成し、その物性を評価した。結果として 2-ないし 3-ヒドロキシアーキオール相当化合物がいずれも、2つのジアステレオマー混合物として振舞うことが示された。一方これまで行われたフィールド試料中のヒドロキシアーキオールの分析からは、当該水酸基の立体化学が1つの異性体であることが推察される。そこで2-および3-ヒドロキシアーキオールの水酸基の立体化学を制御し合成し、その両異性体の物性を評価し、さらに、ヒドロキシアーキオールの水酸基の“真の”立体化学を推定することにした。

水酸基の立体化学を Katsuki-Sharpless 反応で規定した水酸基を持つイソプレノイド両異性体を調製し、末端をアルデヒドに変換、D-マンニトール由来の立体化学の定まったグリセロール由来のジオールとアセタールを形成させ、還元してグリセロール 2 位、3 位にそれぞれにイソプレノイド両異性体の結合したエーテルを調製し、さらに 2-および 3-ヒドロキシアーキオールに相当する両異性体に導いた。それぞれはガスクロマトグラフィー上で分離し、いずれも当該水酸基が *R* の絶対立体配置を持つものが、保持時間がわずかに早かった。2-ヒドロキシアーキオールの *S* 体と 3-ヒドロキシアーキオールの *R* 体が、ほぼ保持時間が重なること、過去の分析例との比較、2-および 3-ヒドロキシアーキオールは立体化学が同じ水酸基を持つイソプレノイド鎖を持っていると思われることから、ヒドロキシアーキオール内部水酸基は *R* の絶対立体配置を持つと推定される。今後生物試料およびフィールド試料との比較で決定したいと考えている。

Stereoselective preparation of 2- and 3-hydroxyarchaeol for the determination of stereochemistry at the hydroxyl group in the isoprenoidal portion

*N. Yamauchi (Dept. of Earth and Planetary Sci., Fac. Sci., Kyushu Univ.)

3D07

(Invited)

海底下深部の非在来型炭化水素資源環境における 生物地球化学的炭素循環とその環境規定要因

○稲垣史生¹、Kai-Uwe Hinrichs²、統合国際深海掘削計画 (IODP)
第 337 次研究航海「下北八戸沖石炭層生命圏探査」乗船研究者・
陸上研究者一同

(¹ 国立研究開発法人海洋研究機構、² ドイツ・ブレーメン大学)

地球表層の約 7 割を占める広大な海洋地下空間には、約 3×10^{29} 細胞、炭素量に換算すると 4.1 ペタグラムに相当する微生物が生息する「海底下生命圏」が存在する。一般に、海底堆積物に含まれる微生物のバイオマスは、表層海水の光合成による有機物一次生産量と正の相関を示し、深度が増すにつれて対数的に減少する傾向が認められる。大陸沿岸域の有機物に富む堆積物に生息する膨大な数の嫌気性微生物群集の代謝活動は、地質学的な時間をかけ、地球表層と内部をつなぐ元素循環に重要な役割を果たしている。

2012 年 7 月～9 月にかけて、青森県八戸市の沖合約 80km の地点（水深 1,180m）において、地球深部探査船「ちきゅう」のライザー掘削システムを用いた統合国際深海掘削計画 (IODP) 第 337 次研究航海「下北八戸沖石炭層生命圏探査」が実施された。本掘削調査は、海底下深部に埋没した石炭層を根源とする非在来型の炭化水素資源形成プロセスと同環境における微生物生態系の実態解明を主目的とした初めての科学掘削調査である。本航海では、科学海洋掘削における世界最高到達深度を更新する海底下 2,466m までのコア試料およびカッティングス試料を採取すると共に、ワイアーラインロギングによる詳細な物理検層データと温度計測や現場地層流体の採取等に成功した。

海底下約 1.2～2.5km の堆積物に含まれる珪藻や渦鞭毛藻の年代指標化石の分析や貝化石のストロンチウム同位体組成等の分析により、中新世～漸新世にかけて形成された大陸縁辺の湿原・湖沼性の堆積環境が日本列島の形成に伴って沈降し、浅海～深海性の堆積環境へと変化した古環境変遷が示唆されている。海底下約 1.9～2.0km 付近には、厚さ 7.3m の褐炭を含む夾炭層構造が認められ、固結した炭酸塩セメント層を数カ所はさむ頁岩および砂岩・シル岩を主体とし、シデライトやグラウコナイトと薄い炭層の葉理構造をもつ未固結のビーチサンド層が含まれていた。海底下約 2,000m 付近の夾炭層の温度は約 45-50℃であり、掘削孔最深部は 60℃であった。

堆積物に含まれる微生物細胞を鉗物から剥離・濃縮し、蛍光染色した微生物細胞の数をイメージ画像分析により計測した結果、大陸沿岸の堆積物に生息する微生物細胞数の世界平均を遥かに下回る極微量の微生物細胞 (10^2 細胞/ cm^3 以下) が存在していることが明らかとなった。急激な微生物バイオマスの低下は、世界で初めて海底下深部生命圏の限界域を捉えたことを示唆している。また、海底下 1.9～2.0km と 2.4km 付近の石炭層試料には、 10^4 細胞/ cm^3 程度の比較的高密度の微生物群集が認められた。

ライザー掘削の泥水循環により運ばれてくるマッドガス試料やコアから採取されたガス試料を用いて、ガスの化学成分組成、メタンの炭素・水素同位体組成、二酸化炭素

の炭素同位体組成を分析した結果、海底下約 2.5km までの天然ガスの主成分が、水素資化 CO₂ 還元型のメタン生成を末端反応とする微生物生態系の作用により生成された生物起源のメタンであることが示唆された。また、夾炭層から地層流体・ガス試料を保圧採取し、メタンのクランプト同位体 (¹³CH₃D) 組成分析を行った結果、現場の地層温度に近いメタン生成温度推定値を得た。さらに、同コア試料からメタン生成代謝の鍵酵素に含まれる F430 補酵素バイオマーカーが完全体で検出されたことから、海底下深部の現場環境において現在もなおメタン生成が進行していることが示唆された。

本掘削により採取された海底下約 2km の夾炭層試料を嫌気条件下で粉末化したものを接種源に、下流懸垂型スポンジバイオリアクターを現場温度に近い 40°C で稼働したところ、褐炭を栄養源としてメタンを生成する世界最深の海底下微生物群集の集積培養に成功した。本微生物群集の遺伝子解析と共に、安定同位体 (¹³C) 標識された二酸化炭素を加え超高空間分解能二次イオン質量分計 (NanoSIMS) でイメージ分析を行った結果、CO₂ 還元型メタン菌であるメタノバクテリウム属の存在と増殖が示された。

海底下深部の現場環境に生息する固有の微生物群集について、その種類や多様性を評価するため、採取されたコア試料や外来汚染源となる泥水等から 16S rRNA 遺伝子を増幅し、その塩基配列を網羅的に解読したデータを用いて比較群集構造解析を試みた。その結果、海底下 365m までの海洋性堆積物には、これまでに大陸沿岸の海底堆積物から一般的に検出されているバクテリア（例えば、クロロフレキシ門やアトリバクテリア門などに属するバクテリア）が優占的に検出されるのとは対照的に、海底下 1.2~2.5km の石炭層を含む深部地層からは、陸域の森林土壌などに広く分布するバクテリア（例えば、アクチノバクテリア門、プロテオバクテリア門、ファーミキューテス門やアッシドバクテリア門などに属するバクテリア）が優占的に検出された。

これらの結果は、大陸沿岸域における海底下生命圏の限界域が初めて確認されたのと同時に、過去 2000 万年以上前に当時「森」や「湿原」であった大陸縁辺の環境が、日本列島の形成に伴い、地質学的な時間を経て海底下深部に埋没してもなお、当時の森林土壌に由来する陸源性の微生物生態系の一部を保持し、有機物を分解してメタンを作り出す「海底下の森」としての役割を果たしていることを示唆している。

【参考文献】

Hinrichs, K.-U., and Inagaki, F. (2012) Downsizing the deep biosphere. *Science*, **338**, 204-205.

Inagaki, F., Hinrichs, K.-U., Kubo, Y., *et al.* (2015) Exploring deep microbial life down to ~2.5km below the seafloor. *Science*, in press.

Biogeochemical carbon cycles in deep subseafloor hydrocarbon reservoirs and its environmental constraints

*F. Inagaki¹, K.-U. Hinrichs², IODP Expedition 337 Scientists (¹Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, Japan, ²University of Bremen, Germany)

3D08

熊野海盆海底泥火山における深部流体・ガスの供給と起源および生物地球化学プロセスについて

○井尻暁¹、稲垣史生¹、JAMSTEC Expeditions 903・906 研究者一同（¹海洋研究開発機構）

海底泥火山は高間隙水圧をもった堆積物が泥ダイアピルとして上昇し海底に噴出した小丘であり、世界各地の大陸縁辺域やプレート収束帯で確認されている。海底泥火山の噴出堆積物中に含まれる流体、ガスに共通の化学的特徴は、イライト-ス멕タイト反応に代表される粘土鉱物の脱水反応の影響を受けていること、熱分解起源のメタンを多く含むことであり、これら粘土鉱物の脱水反応や有機物の熱分解の起こりうる温度を考慮すると、流体およびガスは地温60–100°C以上の海底下数kmから供給されていると推察される。これらの海底泥火山の堆積学的・地質学的条件に伴う深部流体およびガスの移動は、海底下の生命活動を支える水と栄養・エネルギー基質の供給経路となっていることを示唆する。実際に、泥火山頂部や断層面に沿った冷水湧出域には、海底下深部から運ばれる還元物質と海水に含まれる酸化物質に支えられる特異な化学合成生物と微生物生態系の存在が明らかになっている。しかしながら、その深部流路や根源となる泥質流体形成場に生命が存在するかどうかについては不明な点が多い。

2009年と2012年、我々は地球深部探査船「ちきゅう」により、南海トラフ熊野灘第五泥火山の山頂からノンライザー掘削による科学調査を行った。採取された堆積物コアサンプルから微生物細胞を剥離し、蛍光イメージ分析による微生物細胞計数を行った結果、山頂から深度約200 mまでの泥火山流路に、約1,000～1万細胞/cm³程度の比較的小さな規模の微生物群集が存在することが明らかとなった。堆積物の間隙水に含まれるメタンの炭素・水素同位体比、溶存無機炭酸の炭素同位体比およびメタン/エタン濃度比、酢酸の炭素同位体組成の測定結果や、放射性トレーサー基質を用いた微生物代謝活性測定の結果は、比較的浅部における水素資化性CO₂還元型酢酸生成と深部環境における水素資化性CO₂還元型メタン生成が起きていることを示唆した。さらに、メタンのクランプト同位体組成 (¹³CH₃D)、脂質バイオマーカー組成、16S rRNA遺伝子による分類・多様性解析および微生物代謝反応に必要な熱エネルギー収支の熱力学的計算の結果を統合的に解釈すると、泥火山深部に表層や浅部流路とは別タイプの微生物生態系が存在することが示唆された。その生態系を支える水・エネルギー供給経路と生物学的な物質変換フラックスは、堆積盆を含む南海トラフ付加体構造に特異的な堆積物続成プロセスや大深度の断層活動に連動する流体・ガス成分のインプットなど、プレート沈み込み帯における地質学的特徴とそのダイナミズムと連動していると考えられる。

Biogeochemical processes associated with fluid and gas migration in mud volcano sediments from the Kumano forearc basin, Japan.

*A. Ijiri¹, F. Inagaki¹, JAMSTEC Expeditions 903 and 906 Scientists (¹IJAMSTEC)

3D09

水溶性天然ガス田においてメタノール分解メタン生成を担うメタン生成アーキアの分離同定

○持丸華子、玉木秀幸、吉岡秀佳、坂田将、鎌形洋一
(産業技術総合研究所)

【はじめに】商業的に重要とされる世界の油ガス田等の貯留メタンの少なくとも 20%は微生物起源であると見積もられている。このうち日本の水溶性天然ガスのほとんどは、堆積有機物の微生物分解により生成した生物起源のメタンであり、主に千葉県や新潟県から産出されている。これらのガス田に様々なメタン生成アーキアが活性を保持して存在していることを明らかとしてきたが、地層中のどのような有機物がどのような分解経路によりメタンへと変換されているのかについて多くは未解明である。本研究では、水溶性天然ガス田における堆積有機物の微生物分解メタン生成過程を明らかにすることを目的とし、新潟県のガス田から採取された試料を用いて、メタン生成アーキアに着目した分子遺伝学的解析を行い、検出された新規メタン生成アーキアの分離同定を行った。

【方法】深度約 1000 m に貯留層がある水溶性ガス井から、ガス、地層水、沈砂槽の砂を採取した。ガス中のメタンの炭素安定同位体比と地層水のイオン組成の分析を行った。砂を用いて堆積物の中性脂質の分析、16S rRNA 遺伝子によるアーキアの菌相解析を行った。遺伝子解析により検出された新規メタン生成アーキアを分離培養し、温度、pH、塩濃度などの至適生育条件の測定、利用有機物の同定を行った。また、近縁のメタン生成アーキアを購入し、基質資化性について比較を行った。

【結果と考察】メタンの炭素安定同位体比は-64.4‰で微生物起源のメタンであることが推定された。堆積物のヘキサン分画成分には、巨大な UCM が検出され、加えて微量の n-アルカンやホパンが検出された。これにより微生物による有機物分解が示唆された。遺伝子解析の結果 *Methanobacterium* 属、*Methanocalculus* 属、*Methanolobus* 属に近縁の配列が検出された。このうち *Methanolobus* 属に近縁のメタン生成アーキアの分離に成功し、その系統分類学的同定を行った。本アーキアの生育至適温度は現地温度に一致する 40-45°C であり、至適 pH・塩濃度とも現地条件に一致した。*Methanolobus* 属には 8 種が知られており、いずれもメタノールとメチルアミン類を共に資化出来るが、本研究で分離したメタン生成アーキアは唯一メタノールのみを資化するものであった。このことから、堆積有機物分解メタン生成過程においてメタノール分解メタン生成経路が存在している可能性が示唆された。

Isolation and characterization of a methanogen mediating degradation of methanol in a natural gas field of dissolved-in-water type.

*H. Mochimaru, H. Tamaki, H. Yoshioka, S. Sakata, Y. Kamagata (AIST)

3D10

沿岸域地下帯水層における塩濃度変化が生物的メタン生成に与える影響

○片山泰樹、持丸華子、坂田将、井川怜欧、越谷賢、丸井敦尚
(産業技術総合研究所)

地下生命圏における生物的メタン生成の重要性は、世界中に賦存する微生物起源の天然ガスによって示唆されている。しかし、その詳細なメカニズム、有機物分解からメタン生成に至る一連の代謝経路、関与する微生物群、代謝活性及び経路を制御する環境因子、地層内に貯蔵するメタンに対する原位置活性の寄与、等は多くの点で不明である。北海道北部に位置する天塩平野では、新第三紀以降に堆積した深海成から陸成へ浅海化を示す堆積物が分布し、ガス同位体比分析から微生物起源のメタンが賦存している。沿岸域にて掘削採取した深度 1,000 m に及ぶコア堆積物の調査により、浅海成堆積物の勇知層から上部の浅海成・陸成堆積物の更別層にかけて、堆積環境の変化に伴う鉛直方向の間隙水塩濃度グラジエントが形成されていることが明らかにされた。これは、勇知層の古海水と更別層の淡水との拡散によるものと推定された。一方、更別層上部には天水由来の地下水が流れており、下部の地層水と異にしている。本研究では、これら地質的・地化学的性質の異なる帯水層における生物的メタン生成について調べた。

更別・勇知層の塩濃度の異なる 6 つの帯水層から地層水を採取し、地層水及び溶存ガスの地化学的分析、地層水の遺伝子解析並びにメタン生成菌の培養を行った。水素・炭素同位体比分析により更別・勇知層のメタンは炭酸還元経路と推定された。地層水中の *mcrA* 遺伝子配列解析では、どの試料も水素利用性メタン生成菌が優占した。更別層上部の淡水起源地層水と勇知層の海水起源地層水では、メタン生成菌の系統分布が顕著に異なった。一方、勇知層内では、試料によって塩濃度が大きく異なるにも関わらず、メタン生成菌系統分布に顕著な違いは認められなかった。地層水試料を異なる塩濃度で培養すると、勇知層試料は海水及び淡水条件のどちらからでもメタンが生成されたが、更別層試料の海水条件ではメタンが生成されなかった。これらの結果から、拡散によって生じる地層水の塩濃度勾配はメタン生成経路及びメタン生成菌の多様性に強く影響する因子ではないことが示唆された。炭酸還元メタン生成経路におけるメタンの水素は反応場となる水に由来することから、メタンの水素同位体比は水の水素同位体比に影響されることが知られている。勇知層では、地層水塩濃度の変化に伴って地層水の水素同位体比も変化しているにも関わらず、塩濃度の異なる試料でメタンの水素同位体比はほぼ同じであった。従って、勇知層に貯蔵されるメタンのほとんどは、上部の更別層が堆積して塩濃度勾配が形成される前に生成された、あるいは、淡水による希釈の無い勇知層の深部で生成され上層に拡散した可能性が示唆された。

Effects of salinity change on methanogenesis in deep coastal aquifers

*T. Katayama, H. Mochimaru, S. Sakata, R. Ikawa, M. Koshigai, A. Marui (AIST)

3D11

(Keynote)

Fe コンクリーションに学ぶ地下環境中の Fe(水)酸化物の長期挙動アナログ

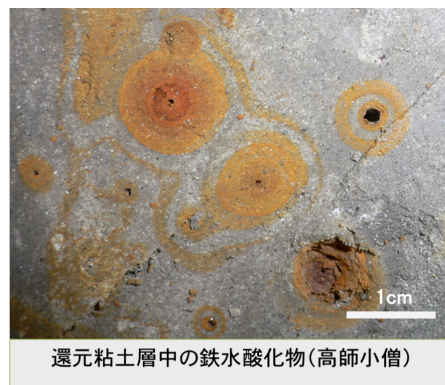
○吉田英一¹

(¹ 名古屋大学博物館)

地層処分ではガラス固化体を炭素鋼のオーバーパックで覆い、地下 300m よりも深い還元状態の地下環境に埋設することを基本とする。しかし、廃棄体埋設後の処分坑道近傍が還元状態に復旧するには時間がかかるとともに、操業～埋設期間中に拡散した酸素や酸化した地下水などが一部のオーバーパックを腐食させ、処分場閉鎖後に緩衝材や周辺岩盤中に鉄（水）酸化物の拡散が想定される。この場合、オーバーパックは腐食することによって還元剤としての役割を果たすものの、還元状態の地下水で満たされた緩衝材中や地下岩盤マトリクス中に、酸化物が浸透・分散する状態をもたらす。現在の処分場閉鎖後のシナリオでは、再冠水後は還元状態に戻る（厳密には、還元状態の地下水で再度満たされる）と考えられているが、二次的に形成された酸化物の長期挙動については明確なシナリオを有していない。例えば、鉄（水）酸化物は、処分場閉鎖後に、還元状態の地下水が再浸透してきた後に果たして再度還元され消滅するのか、あるいは、鉄（水）酸化物が還元されない場合、これらは核種移行のバリア機能に関してどのように影響するのか、などについてである。したがって、ニアフィールド～ファーフールドのバリア機能および影響を正確に把握するためには、これらの長期的挙動の理解が不可欠である。

上記背景のもと、鉄（水）酸化物の長期的挙動の理解を目的に、自然界における鉄（水）酸化物の下記のアナログ的事例の調査や、地下環境中での酸化物形成実験をこれまで行ってきた。

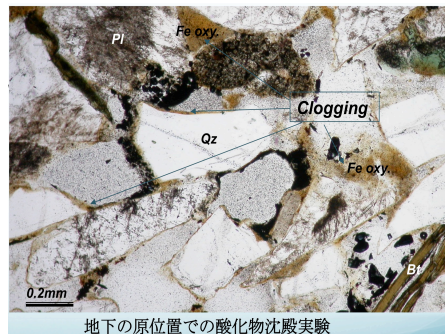
- 1) 高師小僧:還元状態堆積岩中における鉄水酸化物の長期挙動(Yoshida et al., 2008)
- 2) 酸化還元フロント:結晶質岩及び堆積岩マトリクス中での鉄水酸化物の移動現象と天然ウランの吸着現象(Yamamoto et al., 2013)
- 3) 鉄コンクリーション:堆積岩中での鉄（水）酸化物の形成プロセスと長期安定性
- 4) LPG 地下備蓄サイトでの鉄酸化物形成実験:岩石マトリクス空隙のクロッキング現象(Yoshida et al., 2013)



還元粘土層中の鉄水酸化物(高師小僧)

これらの調査・実験から、鉄（水）酸化物の地質環境中での挙動およびバリア機能に関しての影響として、下記の現象が明らかとなってきた。

- 1) LPG や地下研究所の事例より、地下環境中での鉄（水）酸化物の形成を避けることは困難と考えられる。
- 2) 地下環境中で形成された鉄（水）酸化物は、周辺岩盤が再度還元状態に修復された場合でも還元されにくい。
- 3) 鉄（水）酸化物は、ウランなどの核種吸着剤として機能することが期待される。
- 4) 岩石空隙中に沈殿・析出した鉄（水）酸化物は、クロッキングによって透水性を低下させる働きがある。



地下の原位置での酸化物沈殿実験

実際の処分場においては、地下坑道はコンクリートやロックボルトなど、多様な人工材料が敷設され、上記自然界における（水）酸化物の挙動とは一部異なる現象を示すことは否めない。したがって、今後の課題として、コンクリートの敷設された地下環境での鉄（水）酸化物の形成メカニズムや産状の確認など、より処分環境に類似した状態での調査を行うこと。また拡散をベースにしたモデル化による反応速度の見積もりなどを行い、より定量的な現象解析を行うことが必要である。

References

- Yoshida, H. et al. (2008) The persistence of Fe-oxyhydroxides in a reducing geological environment: implications for the post-closure safety of radioactive waste repositories. *Environmental Geology*, 55, 1363-1374.
- Yamamoto, K., Yoshida, H., Akagawa, F., Nishimoto, S., Metcalfe, R. (2013). Redox front penetration in the fractured Toki granite, central Japan: An analogue for redox reactions and redox buffering in fractured crystalline host rocks for repositories of long-lived radioactive waste. *Applied Geochemistry*, 35, 75-87.
- Yoshida, H., Maejima, T., Nakajima, S., Nakamura, Y., Yoshida, S. (2013). Features of fractures forming flow paths in granitic rock at LPG storage site in the orogenic field of Japan. *Engineering Geology*, 152, 77-86.

.....
Analogous example of long-term behavior of Fe oxyhydroxides in deep geological environment – the formation process and its influence on barrier function-

H. Yoshida¹ (¹Nagoya University, University Museum)

花崗岩の酸化還元緩衝能力は大規模地下施設の建設・ 操業に耐えられるか？

○岩月輝希，林田一貴，加藤利弘，宗本隆志，久保田満
(日本原子力研究開発機構)

地下深部の酸化還元状態は、放射性核種の移動に影響を与える重要な環境条件の一つである。しかしながら、高レベル放射性廃棄物の地層処分場の建設・操業時には、坑道が大気環境になり、かつ地下水が長期的に排水されることで、酸化還元状態が建設前の状態から変化すると想定される。本研究では、深度 500m までの花崗岩中に建設された瑞浪超深地層研究所（以下、研究所）において、研究坑道の直近から約 100m までの範囲の地下水を対象として酸化還元状態の経時変化を観測し、地下施設建設時の酸化還元状態の変化について考察した。なお、研究所では、建設開始から約 10 年間で累計百万トン近い地下水を排水した結果、上記観測範囲の地下水の水位が百数十 m 低下している。そのため、研究坑道内の大気が酸化還元状態に与える影響と地下水位の低下に伴う浅層地下水の浸透が酸化還元状態に与える影響の両方の知見を得ることができる。

研究坑道内の大気が酸化還元状態に与える影響を把握するため、研究坑道から約 5～15m の範囲の岩盤内に設けた複数の観測点において、地下水の酸化還元電位を定期的に観測した結果、坑道掘削後、約 2 年間の間に酸化還元電位が約 -200mV から約 -100mV に変化し、坑道の周囲が徐々に酸化的環境に変化しつつあることが確認された。一方で酸化還元電位の変化が小さい領域もあり、研究坑道に連結する割れ目の有無など地質構造に応じて酸化的影響の程度が異なると考えられた。また、研究坑道から約 100m までの範囲においては、花崗岩を覆う堆積岩直下（深度 200m）の観測点の酸化還元電位は変化に乏しいものの、深度 300～400m の酸化還元電位は約 -200mV から -百数十 mV への上昇が認められた。

以上の酸化還元電位の経時変化は、理論的に計算される鉄水酸化物（Goethite）と二価鉄イオンの酸化還元反応の相平衡図において、両者の平衡電位線に沿って変化する傾向があり、鉄の化学種の酸化還元平衡を維持しながら相対的に酸化的環境になっている可能性がある。このことから花崗岩においては、地下施設建設時に人為的に生じる酸化インパクトに対して、鉄を含む鉱物の水-鉱物反応（雲母類などの風化、溶解に伴う二価鉄イオンの放出や鉄水酸化物の生成など）が、主要な酸化還元緩衝反応になると推察される。この反応は不可逆反応であり、花崗岩中の割れ目表面の雲母類を消費した後、酸化還元緩衝能力が回復しないことも想定される。今後、酸化還元電位の変化が定常状態に達した時点で、その空間分布についてより詳細な解析を行う予定である。

Redox resilience of granitic rock for a large scale underground facility construction and operation

*T. Iwatsuki, K. Hayashida, T. Kato, T. Munemoto, M. Kubota (JAEA)

レーザーアブレーション試料導入-ICP 質量分析法による炭酸塩鉱物の U-Th-Pb 年代測定技術の開発

○横山立憲¹、國分（齋藤）陽子¹、村上裕晃¹、平田岳史²、坂田周平²、檀原徹³、岩野英樹³、常青⁴、木村純一⁴

(¹ 日本原子力研究開発機構、² 京都大学 理学研究科、³ 京都フュージョン・トラック、⁴ 海洋研究開発機構)

炭酸塩鉱物は火成岩の岩盤中に一般的に産出する鉱物であるため(例えば、Iwatsuki and Yoshida, 1999; 吉田, 2012; 石橋ほか, 2014)、地球化学分野において汎用的な古環境指標物質として利用できる。炭酸塩鉱物の放射年代学研究が与える生成年代などの年代学的な情報は、生成環境の水理学情報と併せることによって、過去の地質環境の変遷を解読する決定的な制約となり、将来の長期的な地質環境変動モデル構築への利用に期待できる。そのため、炭酸塩鉱物の年代測定技術は、我が国の高レベル放射性廃棄物の地層処分に関する要素技術開発の最重要課題の一つとされている(原子力機構, 2015; 平成 26 年度地層処分技術調査等事業地質環境長期安定性評価確証技術開発報告書)。炭酸塩鉱物の放射年代学研究には、地表の酸化的環境下で生成された炭酸塩鉱物の U-Pb 年代の報告例(Becker et al., 2002)はあるが、還元的な地下環境で生成された炭酸塩鉱物については、対象元素の濃度が低いことや分析する試料量を十分に確保できないなどの課題により、年代測定技術が確立されていない。炭酸塩鉱物からは、結晶成長を反映した累帯構造が確認されることが多いため(Milodowski et al., 2005)、局所領域をターゲットとした分析手法を確立し、位置ごとの元素及び同位体情報を得ることが必須である。また、局所領域の高時間分解能な年代測定を実施する際は、U-Th-Pb 壊変系列の閉鎖系の評価及びどの領域に対して同位体分析を行うべきか選定する必要があるため、微量元素及びその同位体の 2 次元分布情報(元素イメージング)を取得することが重要である。

本研究では、地下環境下における高透水性の地質構造(割れ目や断層など; Yoshida et al., 2000; 舟木ほか, 2009)に充填鉱物として存在する炭酸塩鉱物を対象に、数十～数百万年オーダーの年代測定技術を実用化することを目的とする。局所領域の年代測定技術を確立するため、レーザーアブレーション試料導入法を組み合わせた誘導結合プラズマ(ICP)質量分析計を用いて、炭酸塩鉱物から成る海生化石(マダガスカル産アンモナイト)の微量元素及び同位体の基礎情報を取得するとともに、花崗岩(土岐花崗岩、江若花崗岩)の割れ目を充填する炭酸塩鉱物及び鍾乳石(山口県秋吉台)について予察的に U-Pb 同位体比測定を行った。その結果、元素イメージングの取得により、アンモナイト化石中の U-Th-Pb 壊変系列の各元素及び同位体分布を可視化することができた。U-Pb 同位体比測定では、測定領域のウラン濃度が全般的に低く(濃度範囲: 0.001-7 ppm)、また非放射起源の鉛を多く含んでいたため、鉛同位体へのウランの壊変寄与が認められず、測定結果から有意な U-Pb 年代を得られなかった。一方で、鉛濃度が検出下限(0.001 ppm)を有意に上回る領域から得られた測定結果から、鉛同位体の組成差が炭酸塩鉱物を沈殿させた水溶液の起源を探るのに有効な指標となることが示唆された。今後は、より高精度な定量分析及び同位体比測定に必要不可欠な炭酸塩鉱物から成る標準試料の選定などの課題に取り組む予定である。

謝辞: 本報告は経済産業省資源エネルギー庁からの委託事業である「平成 26 年度地層処分技術調査等事業(地質環境長期安定性評価確証技術開発)」の成果の一部である。

Technical Developments of the U-Th-Pb Dating for Carbonates Using LA-ICP Mass Spectrometry

*T. Yokoyama¹, Y. Saito-Kokubu¹, H. Murakami¹, T. Hirata², S. Sakata², T. Danhara³, H. Iwano³, Q. Chang⁴ and J.-I. Kimura⁴ (¹JAEA, ²Kyoto Univ., ³Kyoto F-T., ⁴JAMSTEC)

3D14

(Invited)

三浦半島西部沿岸域における地下水年代測定による地下水流動場の評価

○富岡祐一¹、長谷川琢磨¹、中田弘太郎¹、近藤浩文¹、吉村公孝²、國丸貴紀²、西尾 光²
(¹電力中央研究所、²原子力発電環境整備機構)

【はじめに】

高レベル放射性廃棄物等の処分地選定では、地表からのボーリング孔を用いた地質や地下水等に関する地質環境調査が行われる計画である。電力中央研究所では原子力発電環境整備機構との共同研究として、三浦半島西部の沿岸域において、地質環境調査・評価技術のひとつであるボーリング調査技術の有効性の確認を主な目的とした、実証試験を行っている¹⁾。本講演では、実証試験の実施内容のうち、地下水年代測定法を用いた地下水流動場の評価²⁾の概要について報告する。

【水理地質条件の概要と試料採取】

ボーリング調査は、三浦半島西部の小和田湾に面した電力中央研究所横須賀地区において実施した。本地点の地質構成は概ね GL-200m 以深が泥岩主体の葉山層群（前期～中期中新世）であり、その上位に砂質シルト岩・砂岩互層の三浦層群（後期中新世～鮮新世）が不整合に覆っている。透水係数は三浦層群、葉山層群それぞれ 10^{-7} および 10^{-9} m/s 程度である。

地下水年代評価に用いた試料は、2006 年度から 2009 年度にわたって掘削調査を行った、掘削長 350m および 500m の 2 本のボーリング孔（YDP-1、2 孔）から得られたものであり、ダブルパッカーを用いた揚水採水、ボーリングコアからの圧縮抽水、およびボーリングコアからのガスの抽出により採取した。地下水年代の指標として、³H、溶存無機炭素の ¹⁴C、³⁶Cl、および ⁴He を用いた。また、水素酸素同位体比や各種溶存イオン濃度を分析した。

【結果と考察】

Cl イオン濃度、同位体および希ガスの分析結果の深度分布概念図を図 1 に示す。Cl イオン濃度および水素酸素同位体比の分布から、三浦層群の浅部は降水を起源とする淡水系地下水、三浦層群深部から葉山層群浅部にかけては淡水と海水との混合系であることが分かった。また、葉山層群深部は海水程度の Cl イオン濃度であり、水素酸素同位体比のシフトが見られたことから、化石海水であることが示唆された。³H と ¹⁴C の分布から、三浦層群の浅部は 50 年未満の地下水であり、三浦層群深部では数千年程度の滞留時間を持つ地下水と推定された。³⁶Cl/Cl は淡水系である三浦層群浅部において高く、海水が混合している深部において現海水程度の値が得られた。一方で、葉山層群の

$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ は現海水より高い値を示し、深度によらず概ね一定の値を示した。このことから、葉山層群の海水系地下水は $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ が放射平衡に達しており、滞留時間の長い地下水年代であると考えられた。 ^4He 濃度は三浦層群浅部から葉山層群浅部にかけて増加し、葉山層群の深部では概ね一定の値を示した。葉山層群の岩石コアを分析して得た U、Th 濃度等をもとに、 ^4He の地下水への蓄積速度を計算し、地下水の ^4He 濃度を除して地下水年代を求めた³⁾。その結果、葉山層群深部の地下水年代はある程度の幅があるが、概ね 700 万年程度と推定された。

以上から、本地域の地下水流動場について、三浦層群の地下水は流動性が高く、降水を起源とする淡水に対して化石海水よりは比較的若い海水が混合しているものと考えられた。また、葉山層群の地下水は化石海水であり、流動性が極めて低いものと考えられた。

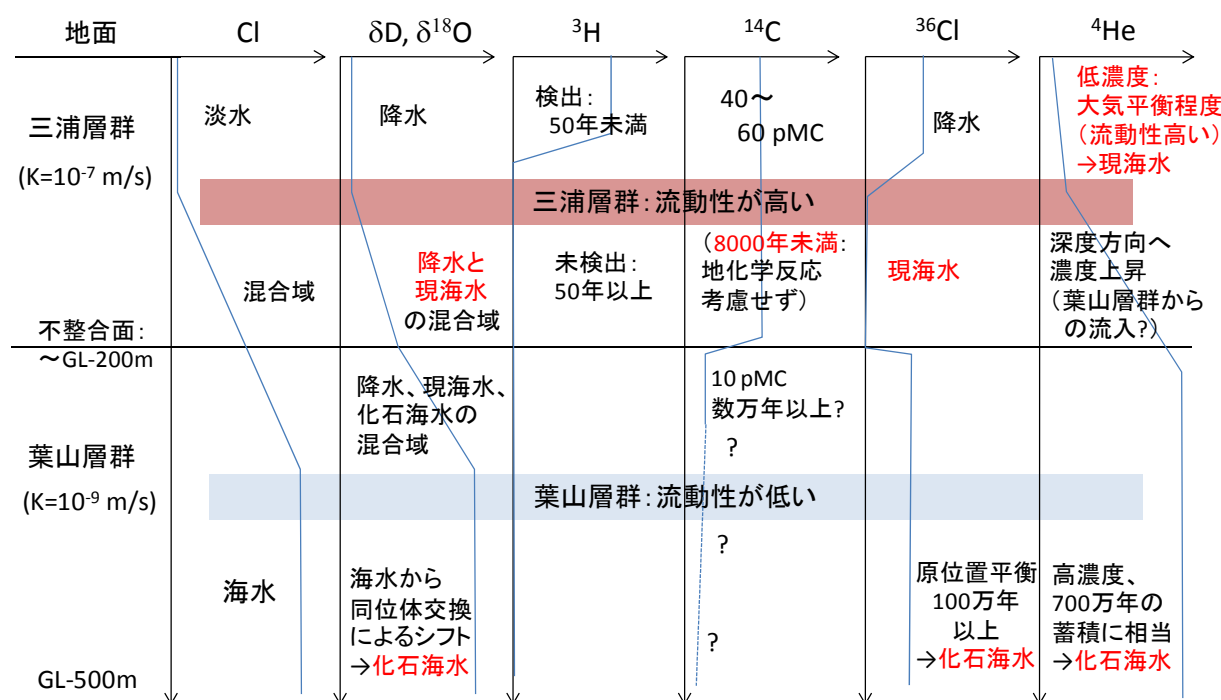


図1 Cl イオン濃度、同位体および希ガスの分析結果の深度分布概念図

- 1) 近藤浩文ほか (2011) : 電力中央研究所報告, N15. 2) 長谷川琢磨ほか (2013) : 地学雑誌, 122, 116-138.
- 3) 馬原保典ほか (1998) : 電力中央研究所報告, U97052.

Estimation of groundwater flow system based on the results of groundwater dating at west coast of Miura peninsula, Japan

*Y. Tomioka¹, T. Hasegawa¹, K. Nakata¹, H. Kondo¹, K. Yoshimura², T. Kunimaru² and H. Nishio² (¹CRIEPI, ²NUMO)