



# 超深地層研究所計画（第1段階）における地下水の地球化学特性調査

彌榮 英樹 岩月 輝希 古江 良治 水野 崇

東濃地科学センター 瑞浪超深地層研究所

## Hydrochemical Investigations in Mizunami Underground Research Laboratory Project (Phase I)

Hideki MIE Teruki IWATSUKI Ryoji FURUE Takashi MIZUNO

Mizunami Underground Research Laboratory, Tono Geoscience Center

本研究では、「超深地層研究所計画」第1段階での調査・解析結果を踏まえて、研究坑道掘削前の地下水の地球化学特性（水質やpH、酸化還元状態等の三次元的分布）とその形成機構に関わる地球化学モデルの構築、研究坑道建設過程で予測される地球化学的諸現象等に関する考察を行った。

その結果、堆積岩上部の明世累層中にはSi-Na-Ca-SO<sub>4</sub>-HCO<sub>3</sub>型地下水が分布し、長石類など構成鉱物の風化変質反応や海成硫酸塩・硫化物の酸化溶解反応、炭酸塩鉱物の溶解反応等が水質形成に関与していることが明らかになった。一方、堆積岩下部の土岐夾炭累層と花崗岩中にはNa-Cl型地下水が分布し、塩素イオン濃度の異なる地下水の混合が水質形成に関与していることが明らかになった。

これらの結果に基づいて構築した地球化学モデルにより、未知の深度領域での水質分布を予測できる可能性が示された。また、第2段階の研究坑道掘削段階で起こり得る地球化学的諸現象に関しては、溶存ガスの脱ガス現象により、酸化還元電位、pH、硫酸イオン・無機炭酸濃度の変化が起こり得ることが想定された。

*This report discusses about hydrochemical properties before the construction of the underground research laboratory, hydrochemical model about groundwater evolution, and hydrochemical changes during construction based on the results of investigations in Mizunami Underground Research Laboratory Project (Phase I).*

*Chemical compositions of groundwater are Si-Na-Ca-SO<sub>4</sub>-HCO<sub>3</sub> type and Na-Cl type in Akeyo Formation and in Toki Lignite-bearing Formation, and Toki granite, respectively. Groundwater evolves by water-rock interaction in Akeyo Formation and the mixing process in Toki Lignite-bearing Formation and Toki granite.*

*This hydrochemical model enables prediction of groundwater chemistry in the MIU construction site. In Phase II (Construction Phase), changes of Eh and pH, concentration of sulphate ion and inorganic carbon will take place according to the degassing of dissolved gas.*

### キーワード

地下水、水質、pH、酸化還元状態、水質形成機構、地球化学モデル、地球化学特性、水-岩石反応、超深地層研究所

*Groundwater, Groundwater Chemistry, pH, Redox, Evolutionary Process, Hydrochemical Model, Hydrochemical Property, Water-Rock Interaction, Mizunami Underground Research Laboratory*



彌榮 英樹

超深地層研究グループ  
地下水化学チーム所属  
超深地層研究所計画の地球  
化学特性調査に関する研究  
に従事



岩月 輝希

超深地層研究グループ  
地下水化学チームリーダー  
超深地層研究所計画の地球  
化学特性調査に関する研究  
に従事  
理学博士



古江 良治

超深地層研究グループ  
地下水化学チーム所属  
超深地層研究所計画の地球  
化学特性調査に関する研究  
に従事



水野 崇

超深地層研究グループ  
地下水化学チーム所属  
超深地層研究所計画の地球  
化学特性調査に関する研究  
に従事

## 1. はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する研究では、自然状態における地下深部の地球化学環境や地層処分場を建設する過程で起こり得る諸現象及び周辺環境への影響、地層処分場閉鎖後の地球化学環境等を調査・解析・評価するための研究・技術開発が課題の一つとされている。

「特定放射性廃棄物の最終処分に関する法律」では、建設地選定段階の調査内容として「当該対象地層内の水素イオン濃度その他の当該対象地層の化学的性質に関する事項」、選定要件として「地下施設が当該対象地層内において異常な腐食作用を受けるおそれがないと見込まれることその他当該対象地層の化学的性質が最終処分施設の設置に適していると見込まれること」が挙げられており、これらの地球化学環境の調査・解析・評価が求められている。

東濃地科学センターでは岐阜県瑞浪市において、「超深地層研究所計画」<sup>1)</sup>(以下、MIU計画)に基づき、深度1,000m規模の地下研究施設(以下、研究所)の建設を進めており、研究所の建設過程の各段階で地球化学環境の調査を行いながら、上記課題に関わる研究・技術開発を行っている。MIU計画は、「地表からの調査予測研究段階(第1段階)」、「研究坑道の掘削を伴う研究段階(第2段階)」、「研究坑道を利用した研究段階(第3段階)」の3段階に分けて進められており、2005年の初めには第1段階の調査を終了する予定である。また第2段階に関しては、2003年より立坑の掘削を開始しており、2005年からは掘削タワーや巻上機等を用いた本格的な掘削を行う予定である。

本報告では、第1段階の調査研究の結果明らかになった研究坑道建設前の地下深部の地球化学特性(水質やpH、酸化還元状態等の三次元的分布)や、それから構築される地下水の水質形成機構に関わる地球化学モデル、モデルから予測される研究坑道建設過程で遭遇する地球化学環境及び地球化学的諸現象等について述べる。

## 2. 既存研究成果の概要

研究所用地の周辺は、基盤岩である白亜紀後期の土岐花崗岩(約7,000万年前)を新第三紀の堆積岩(瑞浪層群:約1,500~1,800万年前)が不整合に覆い、さらにそれを固結度の低い砂層(瀬戸層群:約200~500万年前)が不整合に覆っている<sup>2)</sup>。

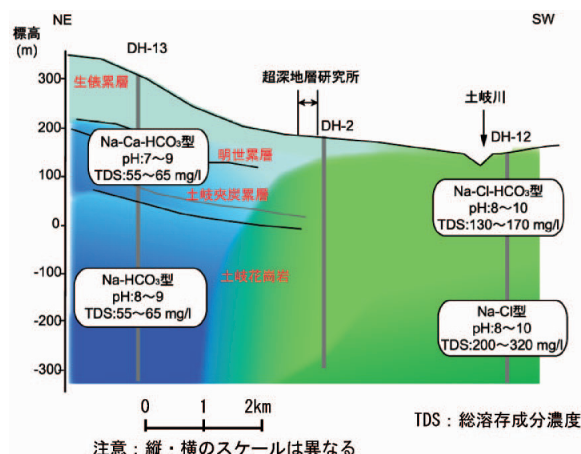
瑞浪層群は、下位より、泥岩・砂岩・礫岩からなり垂炭を挟む土岐夾炭累層(湖成層)、凝灰質の泥岩・砂岩を主体とする明世累層(海成層)、シルト岩・砂岩を主体とする生俵累層(海成層)の3層に区分される。研究所用地では、これまでの調査研究により、厚さ百数十mの堆積岩(明世累層・土岐夾炭累層)が基盤花崗岩を覆って分布することが明らかになっている。研究所用地周辺の地下水の流動状態は地形に依存し、おおむね北東から南西の流動方向であると推測されている<sup>3)</sup>。地下水の地球化学特性については、研究所用地を含む約10km四方の領域内(図1)に異なる水質を示す地下水が分布していることが判っており<sup>3)</sup>、各地下水の分布状態は次のように整理できる。1) 研究所用地の北方の地下水涵養域: ナトリウム, カルシウム, 炭酸水素イオンに富む地下水(以下, Na-Ca-HCO<sub>3</sub>型地下水)またはナトリウム, 炭酸水素イオンに富む地下水(以下, Na-HCO<sub>3</sub>型地下水), 2) 研究所用地の南方の地下水流出域: ナトリウム, 炭酸水素イオン, 塩素イオン濃度に富む地下水(以下, Na-Cl-HCO<sub>3</sub>型地下水)またはナトリウム, 塩素イオンに富む地下水(以下, Na-Cl型地下水)(図2)。研究所用地は1)と2)の地下水分布域の中間に位置している。本研究で



(出展:「高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する研究開発—平成14年度報告—」に加筆)

図1 超深地層研究所周辺約10km四方の調査領域





(出展：「高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する研究開発—平成14年度報告—」に加筆)

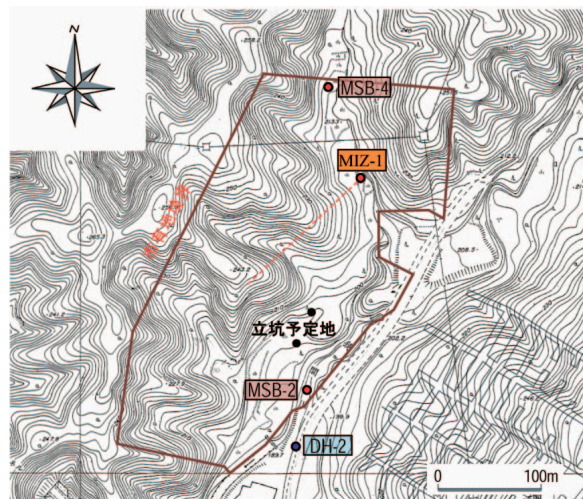
図2 超深地層研究所周辺の地下水の水質分布

は、研究用地を含む約10km四方のスケールで明らかとなった地下水の地球化学特性に基づいて、より狭域のスケール（サイトスケール；数百m～数km×数百m～数km）に焦点をあてて、地球化学特性の深度依存性やボーリング・研究坑道の掘削の影響についてより詳細に検討を行った。

### 3. 調査方法

MIU計画第1段階の研究坑道建設前における地球化学調査には、研究用地内の3本のボーリング孔（MSB-2号孔：掘削長約180mの鉛直孔，MSB-4号孔：掘削長約100mの鉛直孔，MIZ-1号孔：掘削調査中，予定掘削長約1,350m，鉛直孔～斜孔）と研究用地外のDH-2号孔（掘削長約500mの鉛直孔）を用いた（図3）。MSB-2号孔及びMSB-4号孔は2002年に掘削され<sup>4)</sup>，同年に4深度，次年に14深度の地下水の採水を行った。DH-2号孔は，1993年から1994年にかけて地下水流動状態の調査用に掘削されたボーリング孔であり，水理学的調査終了後，裸孔状態にあった。その後，2002年に深度約170～500m間で11深度の地下水の採水調査を行った。MIZ-1号孔は，2003年から2004年にかけて掘削を行っており，深度約100～230m間で2深度の地球化学調査を行っている。

地下水は，各孔で試験深度の上下に遮水パッカーを設置し，岩盤の透水性を把握するための揚水試験の過程で水中ポンプを用いて採取した。揚水試験時には，地上で水中ポンプの地下水排出口に地下水水質連続モニタリング装置<sup>5)</sup>を接続し，水



(出展：「超深地層研究所計画 年度計画書（平成15年度）」に加筆)

図3 研究用地周辺におけるボーリング位置図

温，pH，Eh（酸化還元電位），EC（電気伝導度）等を大気に触れない状態で連続的に測定した。この方法では，溶存ガスの脱ガスに伴う値の変化を免れ得ないものの，参考値として地下水の酸化還元状態に関わる情報を取得する事ができる。また，MSB-2，MSB-4号孔においては，揚水試験実施後にボーリング孔内にMPシステム（多区間間隙水圧モニタリングシステム）<sup>5)</sup>を設置し，気密採水ボトルを用いたバッチ式採水により揚水試験を行わなかった深度の地下水を採取した。地下水の採水では，掘削水の影響を可能な限り排除した地下水試料を採水するために，上記のボーリング孔のうちDH-2号孔を除くボーリング孔において掘削水に蛍光染料などのトレーサーを加えて，トレーサー濃度の低下量に基づいて，掘削水の地下水試料への汚染程度を把握して，可能な限り汚染程度の小さな地下水試料を採水する品質管理手法<sup>6)</sup>を用いた。本手法に基づいて，トレーサー濃度が十分に低下していること（1%以下を目標），pH・EC等のモニタリングの値が一定の値に収束していること，トレーサー濃度の低下と主要化学成分濃度の変化に相関性が認められることを確認して採水を行った。

得られた地下水試料に対して，主要溶存化学成分濃度，水素・酸素・炭素同位体組成，溶存ガス等の分析を行った。また，ボーリングコア試料については，コアの風化変質状態や特定の鉱物の深度分布の観察，化学分析等を行った。これらのデータに基づき，地球化学計算コードPHREEQEを用

いた熱力学解析, マスバランス解析などを行い, 研究用地内の地球化学特性の三次元的分布, その形成機構, 研究坑道建設予定深度の地球化学環境について考察した。

#### 4. 結果と考察

##### 4.1 地下水の水質分布と水質形成機構

###### 4.1.1 地下水の水質分布

地下水の分析結果を表1に示す。深度約500mまでの研究用地周辺の地下水は, 堆積岩上部の明世累層中でシリカ, ナトリウム, カルシウム, 硫酸, 炭酸水素イオンに富み(以下, Si-Na-Ca-SO<sub>4</sub>-HCO<sub>3</sub>型地下水), 堆積岩下部の土岐炭炭累層並びに花崗岩中では, ナトリウム, 塩素イオンに富む水質(以下, Na-Cl型地下水)を示す。Si-Na-Ca-SO<sub>4</sub>-HCO<sub>3</sub>型地下水は, 約10km四方の領域での調査におけるNa-Ca-HCO<sub>3</sub>型地下水に相当し(図2), 研究用地周辺では, シリカと硫酸も多く含まれることが判明した。

ボーリングコアの化学分析の結果, 明世累層と土岐炭炭累層の塩素の含有量には明瞭な違いが認められ(図4), 海成層である明世累層よりも湖成層である土岐炭炭累層の方が塩素の含有量が高いという結果が得られた。これは, 明世累層と土岐炭炭累層の境界部周辺に水理学的な境界が存在し, 土岐炭炭累層の岩石中には地下水から塩素が供給されている可能性を示唆するものである<sup>4)</sup>。花崗岩中のNa-Cl型地下水には, 深部ほど塩分濃度

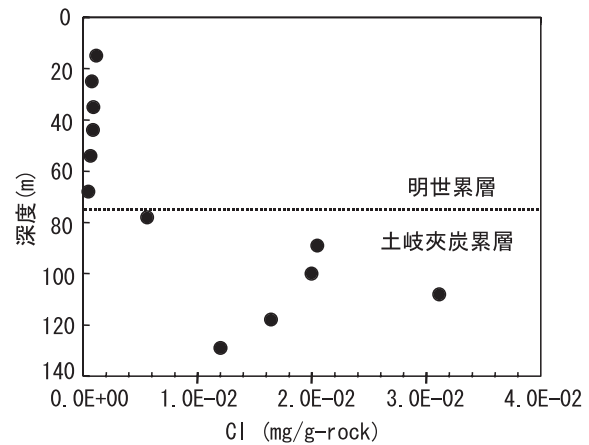


図4 岩層中の塩素含有量

が高くなる傾向が認められた(図5)。また, Na-Cl型地下水は, 硫酸イオン濃度が低く, 溶存ガスとして硫化水素ガスを含むという特徴があり, Si-Na-Ca-SO<sub>4</sub>-HCO<sub>3</sub>型地下水に比べ明らかに還元の状態にあると考えられる。

###### 4.1.2 水質形成機構

研究用地周辺の地下水の水素・酸素同位体比は, すべて日本海側の天水線と太平洋側の天水線の間にプロットされ(図6), 地下水の主な起源は天水であると推測される。明世累層中のSi-Na-Ca-SO<sub>4</sub>-HCO<sub>3</sub>型地下水を採水した深度は約15~60mと浅く, 岩層の風化変質が進んでおり, コアに酸化的環境であることを示唆する鉄水酸化物の沈殿

表1 地下水の分析結果一覧

| 孔名         | 地質 | 方法 | 標高 (masl) |        | 採水日    | temp. degC | pH   | Eh mV | cond. mS/m | Na <sup>+</sup> ppm | K <sup>+</sup> ppm | Ca <sup>2+</sup> ppm | Mg <sup>2+</sup> ppm | TC ppm | IC ppm | TOC ppm | SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> ppm | S <sup>2-</sup> ppm | F ppm | Cl <sup>-</sup> ppm | NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> ppm | Br <sup>-</sup> ppm | Si ppm | Al ppm | Σ Fe ppm | Fe <sup>2+</sup> ppm | Σ Mn ppm | B ppm | U ppm | δD ‰  | δ <sup>18</sup> O ‰ | δ <sup>13</sup> C ‰ |       |
|------------|----|----|-----------|--------|--------|------------|------|-------|------------|---------------------|--------------------|----------------------|----------------------|--------|--------|---------|-----------------------------------|---------------------|-------|---------------------|----------------------------------|---------------------|--------|--------|----------|----------------------|----------|-------|-------|-------|---------------------|---------------------|-------|
|            |    |    | upper     | lower  |        |            |      |       |            |                     |                    |                      |                      |        |        |         |                                   |                     |       |                     |                                  |                     |        |        |          |                      |          |       |       |       |                     |                     | med.  |
| MSB-2      | A  | MP | 179.7     | 175.8  | 177.8  | 2003.11.25 | n.m. | 6.9   | n.m.       | 0.469               | 34.0               | 5.2                  | 66.0                 | 10.2   | 63.4   | 48.3    | 15.2                              | 115.9               | <0.01 | 0.1                 | 3.2                              | <0.3                | <0.1   | 20.5   | 0.015    | 5.83                 | 5.07     | 0.42  | 0.06  | 0.22  | n.m.                | n.m.                | n.m.  |
| MSB-2      | A  | MP | 174.9     | 159.6  | 167.3  | 2003.11.25 | n.m. | 7.9   | n.m.       | 0.389               | 89.7               | 3.2                  | 8.6                  | 0.9    | 41.0   | 31.3    | 9.6                               | 85.3                | <0.01 | 0.6                 | 1.3                              | <0.3                | <0.1   | 17.9   | 0.004    | 0.06                 | <0.05    | 0.02  | 0.14  | 0.11  | n.m.                | n.m.                | n.m.  |
| MSB-2      | A  | MP | 158.7     | 130.3  | 144.5  | 2003.11.25 | n.m. | 8.9   | n.m.       | 0.255               | 60.6               | 1.5                  | 2.7                  | 0.2    | 24.9   | 19.0    | 5.8                               | 34.2                | <0.04 | 0.0                 | 1.0                              | <0.3                | <0.1   | 6.6    | 0.007    | 0.02                 | <0.05    | 0.01  | 1.23  | <0.05 | n.m.                | n.m.                | n.m.  |
| MSB-2      | A  | MP | 129.4     | 121.1  | 125.8  | 2003.11.25 | n.m. | 7.7   | n.m.       | 0.254               | 53.0               | 2.0                  | 6.6                  | 0.9    | 27.7   | 20.3    | 7.5                               | 22.5                | <0.02 | 7.0                 | 6.6                              | <0.3                | <0.1   | 7.1    | 0.010    | 0.22                 | 0.21     | 0.07  | 1.13  | 0.06  | n.m.                | n.m.                | n.m.  |
| MSB-4      | A  | MP | 198.7     | 188.9  | 193.8  | 2003.11.21 | n.m. | 7.3   | n.m.       | 0.324               | 18.8               | 1.9                  | 46.9                 | 8.0    | 60.4   | 48.6    | 11.8                              | 15.4                | <0.01 | 0.1                 | 1.1                              | <0.3                | <0.1   | 27.3   | 0.003    | 2.81                 | 1.4      | 0.26  | 0.05  | 0.07  | n.m.                | n.m.                | n.m.  |
| MSB-4      | A  | MP | 187.9     | 180.6  | 184.3  | 2003.11.21 | n.m. | 7.6   | n.m.       | 0.340               | 31.9               | 2.1                  | 44.6                 | 6.6    | 51.2   | 41.5    | 9.7                               | 55.8                | <0.01 | 0.2                 | 1.1                              | <0.3                | <0.1   | 25.4   | 0.004    | 0.14                 | 0.09     | 0.17  | 0.11  | 0.07  | n.m.                | n.m.                | n.m.  |
| MSB-4      | A  | MP | 179.7     | 152.3  | 166.0  | 2003.11.20 | n.m. | 7.9   | n.m.       | 0.340               | 41.3               | 2.4                  | 37.8                 | 4.8    | 46.1   | 38.9    | 7.2                               | 59.6                | <0.01 | 0.2                 | 1.0                              | <0.3                | <0.1   | 26.4   | 0.004    | 0.21                 | 0.14     | 0.13  | 0.13  | <0.05 | n.m.                | n.m.                | n.m.  |
| MSB-4      | A  | MP | 151.4     | 137.6  | 144.5  | 2003.11.20 | n.m. | 8.8   | n.m.       | 0.450               | 89.5               | 1.3                  | 14.7                 | 0.5    | 14.4   | 9.8     | 4.6                               | 15.5                | <0.10 | 9.1                 | 112.0                            | <0.3                | 0.12   | 7.4    | 0.008    | 0.02                 | <0.05    | 0.00  | 1.63  | 0.07  | n.m.                | n.m.                | n.m.  |
| MSB-2      | T  | MP | 120.2     | 78.3   | 99.3   | 2003.11.25 | n.m. | 7.7   | n.m.       | 0.581               | 122.8              | 1.2                  | 14.7                 | 0.8    | 25.6   | 18.7    | 6.9                               | 37.1                | <0.01 | 5.2                 | 135.3                            | <0.3                | 0.21   | 7.4    | 0.004    | 0.13                 | 0.08     | 0.04  | 1.02  | <0.05 | n.m.                | n.m.                | n.m.  |
| MSB-2      | T  | PT | 119.5     | 68.0   | 93.7   | 2002.7.7   | 21.8 | 9.1   | -118       | n.m.                | 107.0              | 0.2                  | 15.0                 | 0.2    | 7.6    | 6.0     | 1.6                               | 0.8                 | 0.08  | 11.0                | 155.0                            | <0.3                | 0.29   | 4.9    | 0.012    | 0.02                 | <0.05    | 0.01  | n.m.  | n.m.  | -57.8               | -9.1                | -13.4 |
| MSB-2      | T  | MP | 77.4      | 68.1   | 72.8   | 2003.11.25 | n.m. | 7.9   | n.m.       | 0.493               | 102.6              | 0.9                  | 13.1                 | 0.9    | 17.2   | 12.1    | 5.1                               | 8.1                 | 0.08  | 9.9                 | 192.6                            | <0.3                | 0.16   | 5.9    | 0.005    | 0.15                 | 0.09     | 0.07  | 0.83  | 0.05  | n.m.                | n.m.                | n.m.  |
| MSB-2      | T  | MP | 67.2      | 44.8   | 55.0   | 2003.11.21 | n.m. | 7.6   | n.m.       | 0.704               | 120.0              | 0.9                  | 31.9                 | 0.9    | 15.0   | 11.3    | 3.4                               | 11.0                | 0.08  | 6.5                 | 202.5                            | <0.3                | 0.34   | 6.7    | 0.005    | 0.23                 | 0.19     | 0.07  | 1.51  | 0.05  | n.m.                | n.m.                | n.m.  |
| MSB-2      | T  | PT | 66.5      | 44.5   | 55.5   | 2002.6.29  | 21.3 | 8.8   | -75        | n.m.                | 130.0              | 0.9                  | 27.0                 | 0.1    | 4.8    | 4.0     | 0.7                               | <0.4                | 0.04  | 8.3                 | 223.0                            | <0.3                | 0.42   | 5.7    | 0.014    | 0.02                 | <0.05    | 0.02  | n.m.  | n.m.  | -57.0               | -9.1                | -12.4 |
| MSB-4      | T  | MP | 136.7     | 132.8  | 134.8  | 2003.11.20 | n.m. | 8.6   | n.m.       | 0.454               | 92.9               | 1.1                  | 15.3                 | 0.4    | 15.7   | 9.5     | 6.2                               | 15.0                | 0.11  | 9.0                 | 120.0                            | <0.3                | 0.24   | 7.0    | 0.006    | 0.14                 | <0.05    | 0.00  | 1.67  | 0.07  | n.m.                | n.m.                | n.m.  |
| MSB-4      | T  | MP | 131.9     | 120.6  | 126.3  | 2003.11.20 | n.m. | 8.4   | n.m.       | 0.535               | 94.4               | 0.8                  | 17.2                 | 0.2    | 17.3   | 12.2    | 5.0                               | 8.0                 | <0.01 | 6.1                 | 131.2                            | <0.3                | 0.20   | 8.9    | 0.011    | 0.02                 | <0.05    | 0.00  | 1.26  | 0.31  | n.m.                | n.m.                | n.m.  |
| MSB-2      | G  | PT | 27.0      | 23.0   | 25.0   | 2002.7.22  | 20.5 | 8.6   | -140       | n.m.                | 110.0              | 0.1                  | 27.0                 | 0.2    | 6.0    | 5.4     | 0.6                               | 1.6                 | 0.05  | 8.0                 | 189.0                            | <0.3                | 0.25   | 5.5    | 0.004    | 0.06                 | <0.05    | 0.02  | n.m.  | n.m.  | -61.0               | -8.9                | -13.2 |
| MSB-4      | G  | MP | 119.7     | 115.5  | 117.6  | 2003.11.20 | n.m. | 8.3   | n.m.       | 0.442               | 70.1               | 0.9                  | 16.7                 | 0.4    | 18.7   | 11.4    | 4.7                               | 3.9                 | 0.07  | 11.1                | 91.5                             | <0.3                | 0.10   | 6.4    | 0.035    | 0.02                 | <0.05    | 0.01  | 1.58  | 0.06  | n.m.                | n.m.                | n.m.  |
| MSB-4      | G  | PT | 119.0     | 115.5  | 117.2  | 2002.8.13  | 23.0 | 8.8   | -86        | n.m.                | 74.0               | 0.2                  | 14.0                 | <0.1   | 10.0   | 8.9     | 1.1                               | <0.4                | 0.50  | 12.0                | 96.0                             | <0.3                | 0.18   | 6.1    | 0.069    | 0.04                 | <0.05    | 0.01  | n.m.  | n.m.  | -61.8               | -8.9                | -14.3 |
| DH-2       | G  | PT | -13.9     | -15.9  | -14.9  | 2002.9.23  | 24.2 | 8.7   | -60        | 48                  | 76.0               | 1.1                  | 15.1                 | 0.2    | 12.3   | 12.3    | <2                                | 6.3                 | n.m.  | 9.7                 | 93.9                             | <0.05               | 0.18   | 6.9    | n.m.     | 0.02                 | n.m.     | 0.02  | n.m.  | n.m.  | -60.4               | -9.0                | n.m.  |
| DH-2       | G  | PT | -34.9     | -43.4  | -39.9  | 2002.10.9  | 22.4 | 8.7   | -46        | 53                  | 99.5               | 1.0                  | 17.6                 | 0.2    | 10.8   | 10.8    | <2                                | 3.6                 | n.m.  | 8.8                 | 106.0                            | <0.05               | 0.21   | 6.9    | n.m.     | <0.01                | n.m.     | <0.01 | n.m.  | n.m.  | -60.0               | -8.9                | n.m.  |
| DH-2       | G  | PT | -109.1    | -111.1 | -110.1 | 2002.9.25  | 22.5 | 8.5   | -0         | 65                  | 98.5               | 1.0                  | 19.2                 | 0.1    | 3.9    | 3.9     | <2                                | 3.9                 | n.m.  | 9.9                 | 145.0                            | <0.05               | 0.29   | 6.6    | n.m.     | <0.01                | n.m.     | <0.01 | n.m.  | n.m.  | -60.1               | -8.9                | n.m.  |
| DH-2       | G  | PT | -111.9    | -113.9 | -112.9 | 2002.9.10  | 23.5 | 8.6   | -61        | 63                  | 88.6               | 0.6                  | 16.5                 | 0.1    | 7.1    | 7.1     | <2                                | 3.9                 | n.m.  | 9.2                 | 138.0                            | <0.05               | 0.27   | 6.0    | n.m.     | 0.03                 | n.m.     | <0.01 | n.m.  | n.m.  | -60.3               | -8.9                | n.m.  |
| DH-2       | G  | PT | -116.1    | -118.1 | -117.1 | 2002.9.17  | 23.2 | 8.5   | -19        | 65                  | 91.0               | 0.6                  | 22.1                 | 0.1    | 7.1    | 7.1     | <2                                | 3.9                 | n.m.  | 9.5                 | 146.0                            | <0.05               | 0.28   | 6.7    | n.m.     | 0.01                 | n.m.     | <0.01 | n.m.  | n.m.  | -60.3               | -8.9                | n.m.  |
| DH-2       | G  | PT | -119.4    | -121.4 | -120.4 | 2002.9.20  | 24.7 | 8.5   | -99        | 66                  | 97.0               | 0.6                  | 21.7                 | 0.1    | 7.3    | 7.3     | <2                                | 3.7                 | n.m.  | 9.1                 | 150.0                            | <0.05               | 0.29   | 6.6    | n.m.     | 0.02                 | n.m.     | <0.01 | n.m.  | n.m.  | -60.4               | -9.0                | n.m.  |
| DH-2       | G  | PT | -127.3    | -134.8 | -131.0 | 2002.10.6  | 23.2 | 8.6   | -103       | 66                  | 103.0              | 0.7                  | 19.9                 | 0.1    | 7.2    | 7.2     | <2                                | 3.7                 | n.m.  | 8.8                 | 158.0                            | <0.05               | 0.28   | 6.2    | n.m.     | <0.01                | n.m.     | <0.01 | n.m.  | n.m.  | -60.1               | -8.9                | n.m.  |
| DH-2       | G  | PT | -154.2    | -156.2 | -155.2 | 2002.9.27  | 23.7 | 8.7   | -32        | 77                  | 117.0              | 0.6                  | 25.5                 | 0.1    | 5.5    | 5.5     | <2                                | 4.0                 | n.m.  | 8.1                 | 191.0                            | <0.05               | 0.34   | 6.8    | n.m.     | 0.03                 | n.m.     | <0.01 | n.m.  | n.m.  | -60.1               | -8.9                | n.m.  |
| DH-2       | G  | PT | -171.9    | -173.9 | -172.9 | 2002.10.1  | 24.6 | 8.8   | -121       | 78                  | 114.0              | 0.6                  | 25.3                 | 0.1    | 5.1    | 5.1     | <2                                | 3.7                 | n.m.  | 7.8                 | 211.0                            | <0.05               | 0.35   | 6.4    | n.m.     | <0.01                | n.m.     | <0.01 | n.m.  | n.m.  | -59.4               | -8.9                | n.m.  |
| DH-2       | G  | PT | -245.9    | -254.4 | -250.1 | 2002.10.12 | 23.2 | 8.8   | -60        | 88                  | 141.0              | 0.9                  | 36.3                 | 0.1    | 4.7    | 4.7     | <2                                | 3.2                 | n.m.  | 6.5                 | 228.0                            | <0.05               | 0.42   | 6.5    | n.m.     | <0.01                | n.m.     | <0.01 | n.m.  | n.m.  | -60.8               | -9.0                | -10.8 |
| DH-2       | G  | PT | -257.6    | -266.1 | -261.8 | 2002.10.15 | 25.0 | 8.7   | -122       | 103                 | 157.0              | 1.0                  | 42.1                 | 0.2    | 4.4    | 4.4     | <2                                | 2.3                 | n.m.  | 6.1                 | 267.0                            | <0.05               | 0.47   | 6.4    | n.m.     | <0.01                | n.m.     | <0.01 | n.m.  | n.m.  | -60.5               | -9.0                | n.m.  |
| MI-2-1     | G  | PT | 93.6      | 90.3   | 92.0   | 2003.4.20  | 19.6 | 9.2   | -71        | 352                 | 58.7               | 0.3                  | 15.9                 | <0.1   | 10.1   | 9.6     | <1                                | 6.8                 | 0.08  | 8.7                 | 37.5                             | <0.3                | <0.1   | 8.6    | 0.059    | 0.021                | <0.05    | 0.002 | n.m.  | n.m.  | -60.7               | -8.8                | n.m.  |
| MI-2-1     | G  | PT | -9.4      | -19.1  | -13.5  | 2003.7.9   | 22.3 | 8.9   | -280       | 480                 | 68.1               | 0.9                  | 11.1                 | <0.1   | 9.4    | 6.6     | <2                                | 8.4                 | 4.49  | 11.9                | 85.3                             | <0.3                | 0.2    | 4.5    | 0.889    | 0.066                | <0.05    | 0.084 | n.m.  | n.m.  | -59.6               | -8.9                | n.m.  |
| 高砂温泉 G 温泉水 |    |    | -532      | -1041  | -787   | 1991.10.8  | 36.2 | 8.8   | n.m.       | n.m.                | 719.8              | 5.8                  | 468.3                | 4.50   | n.m.   | n.m.    | n.m.                              | 4.0                 | 0.70  | 4.3                 | 1929                             | n.m.                | n.m.   | 8.4    | <0.1     | n.m.                 | 0.4      | 0.030 | 4.42  | n.m.  | n.m.                | n.m.                | n.m.  |
| 高砂温泉 G 温泉水 |    |    | -532      | -1041  | -787   | 2003.8.8   | 36.2 | 9.0   | n.m.       | n.m.                | 292                | 370.0                | 2.1                  | 2100.0 | 0.10   | <2      | <2                                | <2                  | 0.9   | 9.5                 | 934                              | <0.05               | 4.1    | 7.3    | <0.2     | <0.05                | <0.05    | <0.01 | n.m.  | n.m.  | -57.9               | -8.9                | -13.2 |

A: 明世累層, T: 土岐炭炭累層, MP: MPシステムによる採水, PT: 湯水試験に伴う採水, n.m.: 未測定, TC: 総炭素濃度, IC: 無機炭素濃度(主にHCO<sub>3</sub><sup>-</sup>イオン), TOC: 有機炭素濃度  
\*1991.10.8に得られた高砂温泉のデータは掘削直後のデータ



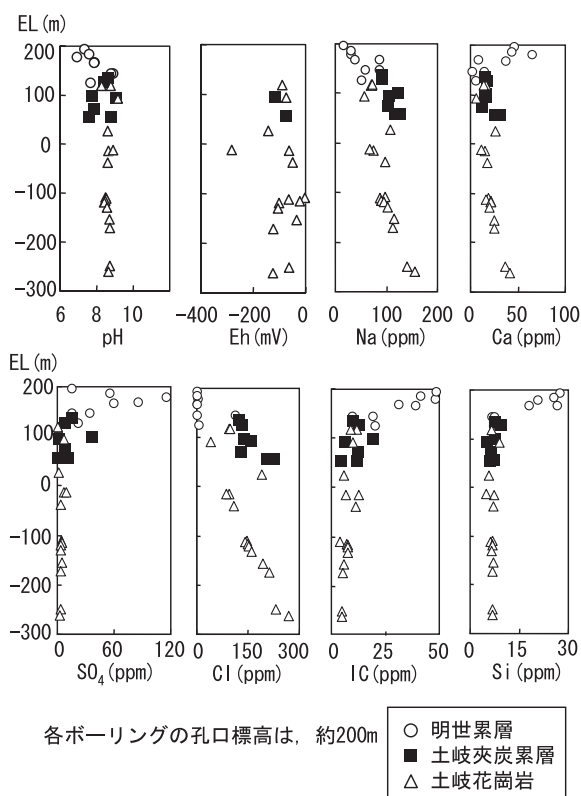


図5 水質深度分布図

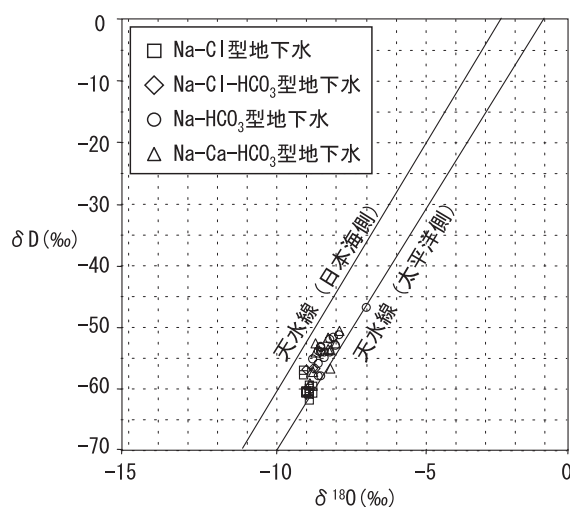


図6 水素・酸素同位体比図

や低pH環境であることを示唆する炭酸塩鉱物(主に貝化石)の溶脱痕が観察された<sup>4)</sup>。これらのことから、Si-Na-Ca-SO<sub>4</sub>-HCO<sub>3</sub>型地下水が分布する深度では、長石類など構成鉱物の風化変質反応や海成硫酸塩・硫化物の酸化溶解反応、炭酸塩鉱物の溶解反応等が水質形成反応として挙げられる。

一方、Na-Cl型地下水については、塩素イオン

濃度が深度に比例して増加し、ナトリウム・カルシウム・フッ素・臭素・硫酸・炭酸水素イオン濃度が、深度に伴う塩素イオン濃度変化と良い相関を示しながら増減する傾向が認められる(図7)。塩素イオンは、水-岩石反応によって生成する2次鉱物中には取り込まれにくいイオンであるため、地下水中のその濃度は、水-岩石反応の進行程度や海水に起源の地下水組成を検討する際の指標となる。塩素イオン濃度の深度依存性と、他成分との相関性から、花崗岩深部に高塩素イオン濃度の地下水が存在していると推測され、この地下水と浅部の低塩素イオン濃度の地下水の混合が水質形成機構として想定できる。混合の端成分と考えられる花崗岩深部の高塩素イオン濃度の地下水の起源・成因については、ブラインや温泉水のように長期にわたる水-岩石反応または高温環境での水-岩石反応を主成因とする地下水、あるいは当該地域が海底下にあった時代(中期中新世)に地下深部に浸透していた海水に由来する化石海水などである可能性が考えられる。

これらの仮説について検討するため、研究用地で得られたNa-Cl型地下水に加えて、研究用地周辺で最も深度が深く、最も塩素イオン濃度の

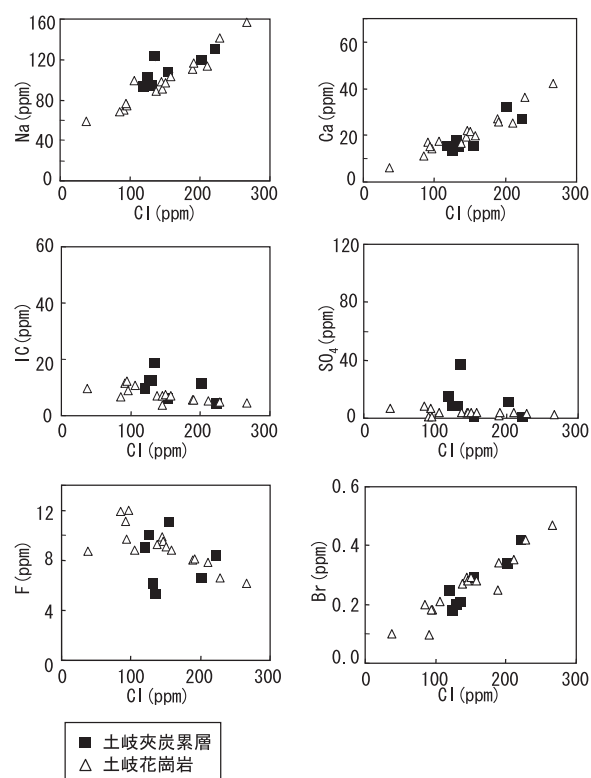


図7 塩素イオン濃度との相関図

高い地下水が観察される高砂温泉（研究所用地の約2 km南方に位置）の水質データ（表1）も用いて解析を行った。高砂温泉の水質は、研究所用地のNa-Cl型地下水の形成において、現在得られているデータの中で、混合の端成分となる高塩素イオン濃度地下水に最も近いと推測される。

一般的に、水-岩石反応を主成因とする高塩分濃度の地下水は、反応によって酸素同位体比が岩石の値に近づく傾向がある<sup>7)</sup>。また、海水に由来する化石海水は、海水の水素・酸素同位体比（ともに0‰）とその後の水-岩石反応を反映した値となる。Na-Cl型地下水の水素・酸素同位体比（図6）については、水素同位体比も酸素同位体比もともに、他の水質の地下水<sup>8)</sup>に比べて低い値を示すものの、長期にわたる水-岩石反応や高温環境での水-岩石反応の結果生じる酸素同位体比の変化であるのか、あるいは海水に由来する化石海水との混合であるのかを確認できない。この理由は、得られた地下水に対して、端成分となる花崗岩深部の高塩素イオン濃度地下水の混入率が、水素・酸素同位体比を有意に変化させるほど大きくないためと考えられる。

また、各成因により形成される地下水の化学的特徴については、水-岩石反応を主成因とする高塩分濃度地下水の場合は、一般的に水-岩石反応の進行に伴って塩素イオン濃度やフッ素イオン濃度の増加が予想される。化石海水の場合は、水-岩石反応によって影響を受けにくい陰イオンの成分比が海水の特徴を保存している可能性がある。特に、海水の寄与が大きい地下水の臭素イオン／塩素イオン（Br/Cl）比やホウ素イオン／塩素イオン（B/Cl）比は、各々重量比で0.0034、0.00024<sup>9)</sup>という特徴的な値を示す事が判っている。Na-Cl型地下水のフッ素イオン濃度は、塩素イオン濃度と負の相関を示しており、塩素イオン濃度が高いほど濃度が減少する。また、高砂温泉についても、フッ素イオン濃度はとりわけて高くなく、これまでに得られてきたNa-HCO<sub>3</sub>型地下水の値（最大で約13ppm<sup>8)</sup>）と同等である。この結果は、水-岩石反応の進行程度がNa-HCO<sub>3</sub>型地下水と同等であり、水-岩石反応が高塩分濃度地下水の主成因ではない可能性を示唆する。しかしながら、Metcalf et al., (2003)<sup>10)</sup>はフッ素イオンが塩素イオンに比べ特定の鉱物に取り込まれ易いことを指摘しており、熱力学解析の結果、花崗岩中ではホタル

石（CaF<sub>2</sub>）の溶解・沈殿反応が平衡状態にあると計算されることから（図8）、水-岩石反応により地下水中に供給されたフッ素イオンが二次生成鉱物のホタル石の沈殿により、再度鉱物化した可能性もある。図8に示す熱力学解析では、飽和指数が-1～1の範囲内にある場合を平衡状態にあるとみなした。

一方、海水の指標として用いられることの多いBr/Cl比、B/Cl比について見てみると、高砂温泉の値は各々0.0044（2003年データ）、0.0023（1991年データ）であり、Br/Cl比は海水のそれに近いものの、B/Cl比に関しては海水の10倍程度である。海水のBr/Cl比、B/Cl比そのものを示さない理由として、高砂温泉の塩素濃度が海水の1%程度であり、化石海水に由来するとしてもその寄与率が非常に低いことや、化石海水の水質が長期的な水-岩石反応により海水の水質から変化している可能性があること等が挙げられる。実際に、化石海水のこれらの化学成分比については、水-岩石反応により海水のそれに比べ幅広い値を示す例も示されている<sup>11)</sup>。

以上のことから、花崗岩深部の高塩素イオン濃度の地下水の起源・成因は、海水が長期的水-岩石反応の結果その水質を変化させた化石海水である可能性が高いと考えられるが、第2段階における調査で、より塩素イオン濃度の高い地下水を採取することで確認を行っていく必要がある。

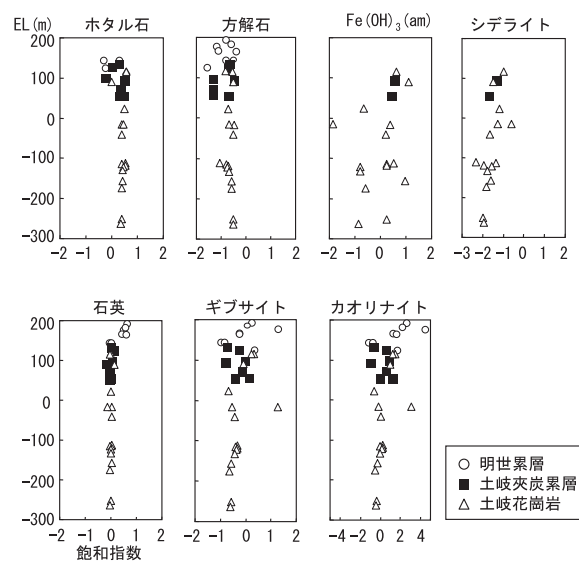


図8 飽和指数の深度分布

## 4.2 地下水のpH・酸化還元状態とその形成機構

地下水のpHは、約7～9の範囲で深度とともに上昇する傾向を示す(図5)。堆積岩の上部では、炭酸塩鉱物(主に貝化石)の溶解・再結晶痕が普遍的に観察され、地下水の化学組成を基にして熱力学的に地下水に対する各鉱物の飽和指数を計算した結果、pHがほぼ一定になる深度で、方解石の溶解・沈殿反応がほぼ平衡状態に達していることから(図5、図8)、地下水のpHに関わる主要な緩衝反応として炭酸塩鉱物の溶解・沈殿反応が想定できる。

地下水の酸化還元電位については溶存ガス(特に硫化水素)の脱ガスにより真値から変化している可能性があるため参考値として取り扱う必要があるものの、土岐炭炭累層ならびに花崗岩中の地下水で0～-280mVという値が得られている。明世累層中のSi-Na-Ca-SO<sub>4</sub>-HCO<sub>3</sub>型地下水については酸化還元電位を実測できていないことから、ボーリングコアの観察結果に基づいて酸化還元状態の推測を試みた。酸化還元状態を反映し易い鉱物(鉄や硫黄を含む鉱物)の深度分布を観察した結果、深度約10～20m以浅の割れ目表面に鉄水酸化物の沈殿が、約40～60m以深のコア中に黄鉄鉱が認められた。これらのことから、鉄の化学種(二価鉄/三価鉄)の酸化還元境界が深度約10～20m、硫黄の化学種(硫酸イオン/硫化物)の酸化還元境界が深度約40～60mに位置すると推測できる。また、これらの鉱物が酸化還元電位の主要な制限固相となっている可能性がある。

一方、土岐炭炭累層以深のNa-Cl型地下水は、前述したように、明世累層中のSi-Na-Ca-SO<sub>4</sub>-HCO<sub>3</sub>型地下水に比べ硫酸イオン濃度が低く、溶存ガスとして硫化水素ガスを含み、明らかに還元的状態にある。実測された酸化還元電位に基づく熱力学解析では、主にFe(OH)<sub>3</sub>(am.)またはシデライト(FeCO<sub>3</sub>)の溶解・沈殿反応が平衡状態にあると計算され、これらの鉱物が酸化還元電位の制限固相となっている可能性がある。しかしながら、揚水ポンプを用いた地下水の採水においては、原位置の水圧が地上の1気圧まで減圧し、酸化還元電位の実測時に地下水から硫化水素ガスが脱ガスしている可能性が高いこと、硫化水素ガスが遍在する環境においては硫酸イオン/硫化物イオン/硫化水素ガス間の酸化還元反応も主要な反応となりうることから、原位置の酸化還元電位とその形

成機構については更に注意深い検討が必要である。この点については、今後、第2段階において、原位置の水圧を保持し溶存ガスの脱ガスのない地下水に対して酸化還元電位の実測を行う計画である。

## 4.3 研究坑道建設過程で遭遇する地球化学環境と地球化学的諸現象について

研究所用地周辺における地下水の水質分布・水質形成機構を表す地球化学モデルを図9に示す。研究所用地周辺に分布するNa-Cl型地下水が、深部の高塩素イオン濃度の地下水と浅部の低塩素イオン濃度の地下水との混合によって形成されていると仮定すると、地下水水質の深度依存性から未知の深度領域の水質を予測することができる可能性がある。図9はDH-2号孔の調査結果から、深度500m程度までの花崗岩中の塩素イオン濃度の深度分布を推定したものである。推定にあたり、DH-2号孔とMIZ-1号孔との間の塩素イオン濃度は、各深度において水平に成層分布しているものと仮定した。この地球化学モデルについて、MIZ-1号孔の調査により得られた溶存化学成分濃度とDH-2号孔のデータに基づく予測結果を比較することでモデルの検証を行った。花崗岩中では塩素イオン濃度が深度とともに直線的に増加し、ナトリウム・カルシウムなどのイオン濃度が塩素イオン濃度と良い相関を示しながら増減する傾向が認められることから、MIZ-1号孔の採水ポイントである深度約220mでの各成分のイオン濃度を塩素イオン濃度との相関式から計算した。この結果、MIZ-1号孔の深度約220mでの分析値は、硫酸イオン・無機炭素濃度を除いて予測値におおむね一致

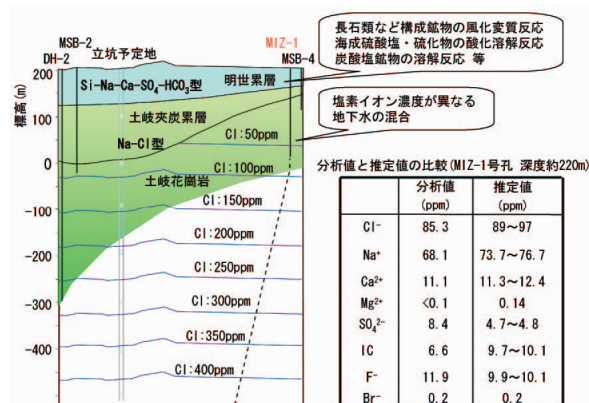


図9 地球化学モデル



する結果となり、研究所用地では、同様の水質の地下水が各深度において水平に成層分布している可能性が高いことが明らかになった。したがって、DH-2号孔とMIZ-1号孔の間に位置する研究坑道建設地点においても、地球化学モデルからその水質を予測できると考えられる。また、予測される地下水水質の分布を研究坑道建設に伴う地下水の擾乱が起こる前の初期状態として扱う事が可能である。なお、実測された硫酸イオン・無機炭素濃度が予測値と一致しない理由として、両成分ともに溶存ガス（硫化水素ガス、炭酸ガス）の濃度変化によって影響を受け易い成分であることから、ボーリング孔掘削からポンプ採水調査の間に生じた溶存ガスの脱ガス現象によって濃度が変化したものと推察される。

ボーリング孔掘削に伴う溶存ガスの脱ガス現象は、第2段階の研究坑道掘削段階でも起こりうる現象であり、脱ガスに伴い起こり得る地球化学特性の変化について考察しておく必要がある。脱ガスに伴う諸現象としては、前述のように酸化還元電位の変化、硫酸イオン・無機炭素濃度の変化等が考えられる。DH-2号孔とMIZ-1号孔の深度約220mの地下水の水質、pHは、ほぼ同じ値を示すものの酸化還元電位がDH-2号孔で約-50mV、MIZ-1号孔で約-280mVと大きく異なっていた。このように酸化還元電位が大きく異なる理由を明らかにするため、両地点の溶存化学成分濃度をともに熱力学解析を行った結果、両地点で方解石、ホタル石、石英の溶解・沈殿反応が平衡状態にあり、更にDH-2号孔ではギブサイト、カオリナイト、 $\text{Fe}(\text{OH})_3(\text{am.})$ が、MIZ-1号孔ではシデライトの溶解・沈殿反応が平衡状態にあると推測された。一方、DH-2号孔では地下水の採水時点（掘削の約10年経過後）で、MIZ-1号孔では掘削・採水終了の約半年後にボーリング孔壁をボアホールテレビにより観察した結果、黒い沈殿物が孔壁面全面に付着している様子が観察された。DH-2号孔の沈殿物をSEM-EDS分析した結果、沈殿物は鉄水酸化物（一部は硫化物）の可能性があると推察された。ボーリングコアの割れ目には沈殿物が観察されないことから、沈殿物は自然状態では存在しておらず、ボーリング孔掘削に伴い新たに生成したものと考えられる。その後の調査により沈殿物は約2週間以内に生成することが確認された。

これらのことから、DH-2号孔ではボーリング孔

の掘削に伴い生成した鉄水酸化物と地下水が酸化還元平衡状態にあり、酸化還元電位を決めていると考えられる。MIZ-1号孔では掘削直後にデータが取得されているため、沈殿物の影響の無い、より人為的擾乱の小さい状態でデータが取得できたと考えられるのに対して、DH-2号孔では、新たに生成した鉄水酸化物の沈殿が主要な酸化還元反応鉱物となることで、酸化還元電位がより酸化状態に変化したと推測される。この鉄水酸化物の沈殿は、ボーリング孔の存在により、より深部から還元性の硫化水素ガスが供給されることで掘削水中の鉄イオンが還元され生成したものと推察される。

第2段階の研究坑道掘削段階では、ボーリング孔に比べて、はるかに大きな規模で地下環境に対して酸化的、低圧力の地下空間が出現するため、ボーリング孔で観察された脱ガス現象より更に大規模な脱ガスが起こり、坑道周辺に溶存ガス成分に関する不飽和領域が形成されることが予想される。そのため、硫酸イオン・無機炭素濃度や酸化還元電位の変化が坑道周辺で顕著に起こる事が予測される。

## 5. まとめと今後の取り組み

本研究では、MIU計画第1段階での調査・解析結果を踏まえて、研究所用地に分布する堆積岩及び花崗岩（深度500m程度まで）を対象に、研究坑道建設前（初期状態）の地下水の地球化学特性（水質、pH、酸化還元状態など）の3次元的分布とその形成機構について考察を行い、これらを表現する地球化学モデルを構築した。今後、MIZ-1号孔で新たに取得されるデータを用いて、深度500m以深の領域において、本研究で構築された地球化学モデルが適用可能かどうかを確認する。さらに、今後実施される孔間水理試験・検層などの結果を踏まえた深部における地下水流動に関して、地球化学特性の観点から、地下水流動解析の結果の検証を行う手法について検討を行っていく予定である。また、第2段階の研究坑道掘削段階では、第1段階の初期状態に関する地球化学モデルとそれから予想される研究坑道掘削過程で起こりうる諸現象に基づき、地下施設建設過程の地球化学的擾乱や周辺環境への影響を評価していく予定である。



## 参考文献

- 1) 核燃料サイクル開発機構：“超深地層研究所 地層科学研究基本計画”，サイクル機構技術資料，JNC TN7410 2001-018 (2002)
- 2) 糸魚川淳二：“瑞浪地域の地質”，瑞浪市化学博物館専報，No.1, pp. 1-50 (1980)
- 3) 核燃料サイクル開発機構：“広域地下水流動研究年度報告書（平成14年度）”，サイクル機構技術資料，JNC TN7400 2003-002 (2003)
- 4) 熊崎直樹，池田幸喜，他：“Synthesis of the Shallow Borehole Investigations at the MIU Construction Site.”，JNC TN7400 2003-005 (2003)
- 5) 岩月輝希，豊島賢治，他：“深地層を対象とした地下水の地球化学調査の現状”，原子力バックエンド研究，Vol.4, No.2 (1998)
- 6) 古江良治，岩月輝希，他：“試錐孔を利用した地下水の地球化学特性調査手法と品質管理”，サイクル機構技術資料，JNC TN7520 2003-001 (2003)
- 7) 酒井均，松久幸敬：“安定同位体地球化学”，東京大学出版会 (1996)
- 8) Furue, R., Iwatsuki, T., et al.: “Data book on groundwater chemistry in the Tono area.”，JNC TN 7450 2003-001 (2003)
- 9) 半谷高久，小倉紀雄：“水質調査法”，丸善 (2000)
- 10) Metcalfe, R., Hama, K., et al.: “Geochemical approaches to understanding a deep groundwater flow system in the Tono area, Gifu-ken, Japan.”，Kono, Nishigaki & Komatsu (eds), Groundwater Engineering, pp. 555-561 (2003)
- 11) 小原欽一：深部地下水の水質形成機構に関する研究，サイクル機構技術資料，PNC TJ1679 97-001 (1997)