
平成26年度地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備委託費
(水理関連情報の整備) 事業

平成26年度事業報告

平成27年3月

独立行政法人 産業技術総合研究所



目次

第1章 精密調査地区選定段階における基本方針等の妥当性レビューに向けた検討

- 1.1 地下水年代測定における複数の年代の混合している場合の
評価手法の検討 …………… 1-1
 - 1.1.1 平成22～26年度の5年間に於ける年度毎の検討結果の概要 …………… 1-1
 - 1.1.2 地質、地下水質等の条件が異なる地域において各手法を
適用する際の課題の抽出 …………… 1-3
 - 1.1.3 混合を起こした地下水の年代評価手法における必要事項の
検討および取りまとめ …………… 1-27
- 1.2 我が国の深層地下水の実態把握とデータベース化 …………… 1-36
 - 1.2.1 平成22～26年度の5年間に於ける各年度の検討結果の概要 …………… 1-36
 - 1.2.2 深層地下水データベースの拡充及び更新 …………… 1-38
 - 1.2.3 流出域データベースの拡充及び更新 …………… 1-42
 - 1.2.4 地下水関連パラメータの評価手法の構築 …………… 1-64

第2章 最終処分施設建設地選定段階における基本方針等の妥当性レビューに向けた検討

- 2.1 地下の水理環境及び地下水水質の変動要因と将来予測技術 …………… 2-1
 - 2.1.1 平成22～26年度の5年間に於ける年度毎の検討結果の概要 …………… 2-1
 - 2.1.2 施設周辺の地下水流動化学環境変化データの拡充 …………… 2-4
 - 2.1.3 長期の水質、酸化還元環境と将来予測手法 …………… 2-42
 - 2.1.4 時間スケールに応じた水質変動予測のためのモデル化手法の整理 …………… 2-81
- 2.2 各自然事象による地下水流動系の変化の予測と定量的評価の検討 …………… 2-183
 - 2.2.1 平成22～26年度の5年間に於ける年度毎の検討結果の概要 …………… 2-183
 - 2.2.2 地質学的エビデンスと定量的評価手法 …………… 2-187
 - 2.2.3 将来予測技術の検討結果のまとめ …………… 2-200
 - 2.2.4 解析モデルの作成及び評価 …………… 2-205
 - 2.2.5 氷河と永久凍土の影響 …………… 2-218

1. 精密調査地区選定段階における基本方針等の妥当性レビューに向けた検討

原子力規制委員会は、精密調査地区選定に際し、最終処分法に基づき、経済産業大臣が定める基本方針および最終処分計画の一部の事項のうち、安全の確保のための規制に関する事項について経済産業大臣から意見を求められる。

ここでは、精密調査地区選定段階における基本方針等の妥当性について原子力規制委員会が意見を述べる際に必要な基本的考え方の策定に資する観点からの研究を行う。

1.1 地下水年代測定における複数の年代の混合している場合の評価手法の検討

地下水流動の評価に必要な地下水年代の把握に関し、複数の年代のものが混合していると考えられる地下水について、地下水流動、地下水の成分分析、溶存ガス分析等により地下水の起源を明らかにすることによって地下水年代を評価する手法の検討を行う。

平成25年度までに、ヘリウム同位体による超長期にわたる地下水年代測定技術を開発するとともに、ヘリウムおよび放射性塩素同位体による複合年代測定法の改良と適用性の検討を行った。また、多変量解析を用いた混合解析手法により、混合した地下水の端成分を評価する解析手法を提示し、混合解析、トリチウム濃度、放射性炭素濃度等のデータにより、各端成分の起源および年代を評価する手法を提示した。さらに、海水と淡水が混合した地下水系において、それぞれの地下水が浸透した年代の推定手法を提示した。

平成26年度は、平成25年度までに整備された地下水の混合関係や混合年代等を評価する各種手法に関し、精密調査地区選定段階における基本方針等の妥当性を確認するために必要な事項について検討し取りまとめを行う。また、地質、地下水質等の条件が異なる地域において各手法を適用する際の課題を抽出する。

1.1.1 平成22～26年度の5年間における年度毎の検討結果の概要

[平成22年度]

地下水年代測定に用いられるトリチウム、放射性炭素、放射性塩素および放射壊変起源ヘリウムについての特徴を整理し、トリチウムと放射性炭素を利用した深層地下水への浅層地下水の混合に関する解析事例を示した。また、沿岸域に存在する海水と淡水の地下水混合系を対象に、放射性塩素および放射壊変起源ヘリウムの両方を用いた解析により、それぞれの侵入年代を導く手法の概念を提示した。

[平成23年度]

平成22年度に提示した海水と淡水の地下水混合系において、それぞれの侵入年代を示す手法(^{36}Cl - ^4He 法)を適用するために必要なパラメータである ^4He 蓄積速度や $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 放射平衡値を帯水層の岩石組成等のデータから導きだした。そして、瀬戸内花こう岩地域や青森県東部堆積岩地域の数多くの地下水の年代値を得た。帯水層地質の違いによる ^{36}Cl - ^4He 手法の適用性について、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 放射平衡値や ^4He 蓄積速度の不確実性の観点からの検討を行った。また、多成分混合系の地下水においては大阪平野東部の浅層地下水を対象に、多変量解析により端成分の化学組成および各地下水の端成分混合割合を同時に求める手法の概念を提示した。

[平成24年度]

^{36}Cl - ^4He 法による海水の侵入年代推定手法の適用性についてさらなる検討を行い、年代測定に必要な端成分値の精査を行った。具体的には、従来から未確定であった海水の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 値の精査を行うとともに、帯水層岩石化学組成データの補充し、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 放射平衡値・ ^4He 蓄積速度についてより広い

地域に適用できるようにした。また、深部流体が混合する地下水系への適用可能性を考慮するため、ウェッジマントルや海洋堆積物、付加体などの岩石組成にも着目し、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 深部流体端成分値の検討を行った。平成23年度に行った大阪平野東部の浅層地下水の多変量混合解析について精査し、最適な端成分の水質決定に加え、端成分の年代指標成分濃度(^3H , ^{14}C , ^{36}Cl)の推定を試みた。その結果、端成分として、Ca-HCO₃型の水質を有する若い地下水、Na-HCO₃型の水質を有する古い地下水、Na-Cl型の比較的現代に近い海水の侵入による高Cl⁻濃度地下水といった水質に加えて年代軸の入った端成分の推定手法が提示できた。

[平成25年度]

ヘリウム、放射性炭素、放射性塩素などの各種年代測定手法について地下水水質の違い等による各種手法の適用に際した問題点、不確実性の整理を行った。また、平成24年度に提示した多変量解析による水質および年代軸の入った端成分の推定手法の適用性評価のため、水質の異なる地域として大阪平野西部地下水を対象に解析を行った。多変量解析においてSO₄²⁻イオンなどの化学反応や人為起源成分の混入などによる濃度変動の大きい成分のため端成分解析に支障を来す場合が見られ、解析結果の不確実性が増すことが分かった。さらに、年代解析の結果得られた海水起源高Cl⁻濃度地下水の侵入年代の精度について検討し、現海水と最近の海進(数千年程度の年代)による海水侵入の区別は難しいという結果が得られた。

[平成26年度]

精密調査地区選定段階における基本方針等の妥当性を確認するために必要な事項として、平成25年度までに整備された地下水の混合関係や混合年代等を評価する各種手法に関する取りまとめを行った。具体的には、各種地下水年代測定手法の概要整理および、対象とする地質・地下水水質など条件が違う地域での適用に際した課題点の抽出、地下水混合が地下水年代測定に与える影響の整理、地下水混合を起こした地下水に対する年代評価手法開発およびその適用事例と課題について取りまとめた。

1.1.2 地質、地下水質等の条件が異なる地域において各手法を適用する際の課題の抽出

【実施内容】

平成 25 年度までの成果により整備された、高塩濃度地下水に対する放射性塩素同位体および、ヘリウム同位体を用いた海水と淡水それぞれの浸透年代、3 成分以上の混合が考えられる地下水に対する多変量解析による端成分年代解析手法について、さらに適用範囲、問題点など課題の抽出・整理を行い、取りまとめる。以上の成果は、原子力規制委員会が作成する概要調査結果の判断指標あるいは技術指針に反映される。

【成果】

1.1.2.1 地下水混合が地下水年代測定に与える影響の整理

1) 地下水年代測定の意義

深層地下水においては地下水の流れは非常に遅く実測は不可能であろうと思われるため、地下水の年代情報は地下水・熱水の貯留層における renewability や地下水流動モデルの構築に必要なパラメータの制約、地下水の流動パスや鉛直・水平方向の流速などの推定にとって不可欠となる。地下水年代と涵養場所から地下水採水場所までの距離（流動距離）、あるいは異なる複数の地点間の地下水年代の分布より地下水の流動パスや鉛直・水平方向の平均的な流速などを把握する試みがなされている。また、地下水年代の情報は、地層堆積時の化石水・化石海水が滞留したままか、あるいは流動性のある地下水が存在するか等の目安ともなる。沿岸部においては、年代の空間分布より、地下水流動状態や海水準変動に伴う地下水流動系の変化（海退に伴う活発化や海進に伴う停滞化・海水の侵入）を見る目安にもなる。また、深部流体の表層地下水系への蓄積フラックスなどの情報が得られる。

2) 地下水混合が年代に与える影響

地下水混合により地下水中の溶存化学成分の濃度・同位体比は平均化される。このことは異なる年代を持つ複数の地下水が混合した場合は、一つの平均化された年代値を示すことを意味する。年代値の大幅に異なる地下水同士の平均化された年代は意味のあるものとはいえない。さらに、用いる年代指標元素によって全く異なる年代を示すという矛盾が生じる。一例を挙げると、地下水涵養直後の水（例えば年代指標元素濃度を、トリチウム濃度 = 5 T.U., ^{14}C 濃度 = 100 PMC, 過剰 ^4He 濃度 = $0 \text{ cm}^3 \text{ STP/gH}_2\text{O}$ とする）、 ^{14}C の半減期 (5730 年) に相当する程度の比較的古い地下水 (0 T.U., 50 PMC, $5.7 \times 10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ STP/gH}_2\text{O}$)、10 万年程度の古い地下水 (0 T.U., 0 PMC, $1 \times 10^{-4} \text{ cm}^3 \text{ STP/gH}_2\text{O}$) が 1:1:1 で混合した水の年代値はトリチウム、 ^{14}C 、 ^4He でそれぞれ、約 20 年・5,700 年・33,000 年と全く異なった年代が計算されることになる (He は蓄積速度を $10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ STP/gH}_2\text{O/yr}$ とし計算した; 帯水層空隙率 10%, 層厚 100m, 地殻 ^4He フラックス = $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ STP/cm}^2 \text{ /yr}$ に相当、各端成分の溶存無機炭素濃度は同じと仮定)。また、起源の全く異なる地下水同士の平均年代値も意味をなさない。特に、2.2 章で評価手法の開発を行っている海水準変動に伴う地下水流動の変動予測を行う上では、平均化された年代ではなく、いつの時代の海水がどの程度・どれぐらいの範囲まで陸域に侵入したか、その後の天水起源の地下水の流動によって洗い流されるものかどうかなどを、海水準変動の周期とともに解析する必要がある。そのためには、淡水成分の年代と海水成分が侵入した年代の分布など各混合成分を特定した上で、年代値の解釈を行う必要がある。

産業技術総合研究所では、地下水混合を考慮に入れた年代測定、塩水成分・淡水成分のそれぞれの年代測定を行う手法を提案してきた (産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2011, 2012, 2013, 2014)。次章以降で、その手法の概要および適用に当たっての課題点等を取りまとめる。

1.1.2.2 地下水年代測定各手法の概要整理および適用に当たっての課題点抽出

1) 地下水年代測定各手法の概要

現在、国内外において適用されている地下水年代測定手法の原理と適用年代範囲・特記事項（特に問題点，課題点）を表1.1.2.2-1に整理した。年代測定法は大きく分けて目的成分の放射壊変量に基づいた『放射壊変法』，地層から生成される成分の地下水中の濃度と蓄積量に基づいた『蓄積法』，産業活動などによって大気中に放出された人為起源成分の濃度が時代とともに変化し，涵養時によって地下水中の濃度が大きく異なることに基づいた『イベントマーカ法』の3つに分けられる。年代測定範囲が非常に狭いために，対象となる地下水試料が極端に限られる手法や，原理上は可能であるが適用例がほとんどないものについては表1.1.2.2-1からは除外している。ただし，表1.1.2.2-1に記載されている手法でも，特記事項に書いてあるように，必要とする試料量が非常に多い（数十トンの地下水を必要とする手法もある）手法や特殊な技術を要し世界でも稀少な研究機関でのみ行える手法，適用例が非常に少なく信頼性がまだ確立していない手法などが多数含まれる。精密調査地区選定に際し，基本方針等の妥当性を確認するために必要な事項についての検討のためには，前項で記述したように，多くの地下水年代データにより広域分布を把握する必要がある。ゆえに，これらの手法を使用するのは困難である。また，非常に古い地下水に適用可能な手法が少ないのが現状である。

表 1.1.2.2-1 地下水年代測定手法の原理と適用年代範囲・特記事項（特に問題点、課題点）

手法	半減期(年)	生成(又は壊変)反応	年代測定原理 ¹⁾	適用可能な年代測定範囲	特記事項(特に適用にあたって問題となる事項を列記) ²⁾
若い地下水年代の測定手法					
T	12.34	${}^3\text{H} \rightarrow {}^3\text{He} + \beta^-$	放射壊変法	数年～10年程度	降水中のトリチウム濃度(初期値)に地域差がある(積雪依存性)
T- ${}^3\text{He}$	12.34	${}^3\text{H} \rightarrow {}^3\text{He} + \beta^-$	放射壊変法	数年～100年程度	地層上部ヘリウム(特にマントル起源 ${}^3\text{He}$)の混入が顕著な場合は適用が難しい 降水時には、大気の影響に対して、細心の注意が必要 初期値を推定することが可能な点でトリチウム(T)よりもアドバンテージがある
CFGs	—	—	イベントマーカ法	大気中のCFGs濃度は、1940年代以降増加しており、この間に追跡された地下水の年代測定に適用される	降水時には、大気の影響に対して、細心の注意が必要 工業地域からのCFGsの付加がある場合は、適用が難しい
BFs	—	—	イベントマーカ法	大気中のBF濃度は、1970年代以降増加しており、この間に追跡された地下水の年代測定に適用される	大気中のBF濃度分布が不均質(森林地域と都市域で大きく異なる) 適用可能な年代範囲が狭い 降水時には、大気の影響に対して、細心の注意が必要
${}^{87}\text{Kr}$	10.7	${}^{87}\text{Kr} \rightarrow {}^{87}\text{Rb} + \beta^-$	放射壊変法	数年～50年程度	非常に多くの試料量を必要とする上、分析可能な研究機関が世界でも稀少 降水時には、大気の影響に対して、細心の注意が必要
古い地下水年代の測定手法					
${}^{14}\text{C}_{\text{DIC}}$	5730	${}^{14}\text{C} \rightarrow {}^{14}\text{N} + \beta^-$	放射壊変法	1000～40000年程度	地下水遊過後の溶存無機炭素(DIC)濃度の変動(産物/消費物の溶解、イオン交換反応、深層の脱炭素などの)に対する補正が必要
${}^{14}\text{C}_{\text{DOC}}$	5730	${}^{14}\text{C} \rightarrow {}^{14}\text{N} + \beta^-$	放射壊変法	1000～40000年程度	DICに比べて化学反応性が低い、濃度も低い、多くの試料量を必要とする
${}^{40}\text{Ar}$	289	${}^{40}\text{Ar} \rightarrow {}^{40}\text{K} + \beta^-$	放射壊変法	160～1000年程度	非常に多くの試料量を必要とする上、分析可能な研究機関が世界でも稀少 降水時には、大気の影響に対して、細心の注意が必要
非常に古い地下水年代の測定手法					
${}^3\text{He}$	安定核種	${}^{12}\text{C} \rightarrow {}^{12}\text{N} + \beta^- + \gamma$ ${}^{13}\text{C} \rightarrow {}^{13}\text{N} + \beta^- + \gamma$ ${}^{14}\text{C} \rightarrow {}^{14}\text{N} + \beta^- + \gamma$	蓄積法	数千年以上	主に地質構造の違いにより、地下水への蓄積速度が帯水層ごとに異なる 降水時には、大気の影響に対して、細心の注意が必要
${}^{36}\text{Cl}$	301000	${}^{36}\text{Cl} \rightarrow \gamma + {}^{36}\text{S}$	イベントマーカ法	1950年代以降に追跡された地下水の検出	海水、深層の塩水の混入がある場合は適用が難しい
${}^{39}\text{Ar}$	301000	${}^{39}\text{Ar} \rightarrow {}^{39}\text{K} + \beta^-$	放射壊変法	数万年から数十万年の地下水に対して	海水、深層の塩水の混入がある場合は適用が難しい
${}^{37}\text{Cl}$	301000	${}^{37}\text{Cl} \rightarrow {}^{37}\text{Ar} + \beta^-$ ${}^{36}\text{Cl} \rightarrow \gamma + {}^{36}\text{S}$	放射壊変法+蓄積法	${}^{37}\text{Cl}$ の地球平均値に達する100万年以上古い地下水の同定	海水の主要成分であるため海水の年代測定にアドバンテージがある ${}^{37}\text{Cl}$ の地層中での生成速度が不可欠である上、帯水層岩石ごとに異なる Cl^- 濃度が低い場合は適用が難しい(天水記録 ${}^{37}\text{Cl}$ の補正が困難)
${}^{40}\text{Ar}$	安定核種	${}^{40}\text{K} \rightarrow {}^{40}\text{Ar} + \text{e}^-$ (電子捕獲)	蓄積法	100万年以上の地下水に対して	岩石から地下水への放出率が不確定かつ非常に低く、地下水への蓄積量が非常に少ないため、適用が困難 降水時には、大気の影響に対して、細心の注意が必要
${}^{81}\text{Kr}$	210000	${}^{81}\text{Kr} + e^- \rightarrow {}^{81}\text{Br}$	放射壊変法	20万年～100万年程度	${}^{81}\text{Kr}$ の範囲は宇宙線起源のみで、地層中での生成などは著微であり、解析しやすい 非常に多くの試料量を必要とする上、分析可能な研究機関が世界でも稀少 降水時には、大気の影響に対して、細心の注意が必要
${}^{129}\text{Xe}$	15.7×10^7	${}^{129}\text{Xe} \rightarrow {}^{129}\text{I} + \beta^-$	放射壊変法	1000万年以上の地下水に対して	適用可能な範囲が広すぎるため、対象となる地下水試料が限られる ${}^{129}\text{I}$ 初期値が不確定 ヨウ素の起源、 ${}^{129}\text{I}$ の地層中での生成に関する情報が不可欠

¹⁾ここでは、測定原理を大きく3つの原理に分けた。各原理の説明は以下の通り。
 ・放射壊変法: 地下水遊過後を初期値とし、放射壊変に伴う核種の割合量に基づいた年代測定法。
 ・蓄積法: 地層中で発生した核種が地下水に蓄積され、地下水中の濃度が上昇することに基づいた年代測定法。
 ・イベントマーカ法: ある特定の時刻に大気中に放出された人為起源(核実験、産業活動、工業製品等)の核種の地下水への溶解により追跡時期を把握する手法。
²⁾いずれも分析には特殊な装置、技術が必要とされるが、特に分析が困難な場合のみ特記事項として記載。

2) 各年代測定手法を地質、地下水質等の条件が異なる地域において各手法を適用する際の課題抽出
 2)-1 適用にあたって留意すべき一般的な課題

前項で地下水年代測定手法として比較的汎用性が高く、有用な手法を提案した。しかし、これらにも、各種条件が異なる地域において適用する際に考慮すべきことや、場合によっては適用困難となる場合がある。以下に放射壊変法と蓄積法・イベントマーカ法それぞれの適用に際する課題について列挙する。また、帯水層の透水係数と導水勾配を用いた水理学的な流動、流速などの見積りは地下水

混合を扱う時にはすべての流動パスを明らかにしなければいけない可能性があり、非常に困難であるためここでは扱わない。

(a) 適用する地域の地下水水質の違いによる課題

放射壊変法の場合、放射壊変以外の要因による濃度・同位体比の変動が起こると、年代測定の原理が成り立たなくなるかあるいは何らかの補正の必要性が生ずる。地下水の水温や pH 等の物理特性や化学組成（鉱物の飽和指数）によっては、これを考慮に入れなければならない。また、水質によっては目的成分の濃度が低すぎるために十分な情報を得ることが出来なくなる。

(b) 適用する地域の地質の違いによる課題

蓄積法では、帯水層岩石や周辺の地質の情報（化学組成など）なしでは生成量が見積もれないため、年代解析が困難である。また、地下水中の目的成分の濃度は水 / 岩石比によっても大きく変わるため、精度の良い解析のためには帯水層の空隙率や亀裂の密度などの情報が必要となる。帯水層周辺のみならず深層からの供給が関係してくる場合は、断層の有無、深層からの流体上昇に関して断層が果たす機能についての知見も必要となる。

放射壊変法においても、帯水層における生成あるいは鉱物の溶解、深層ガスの上昇と鉱物等との反応等による目的成分濃度の変動があるため、十分に帯水層岩石に関する情報とその影響を吟味する必要がある。

(c) その他の課題

イベントマーカー法では大気中の当該化学成分の濃度が非常に重要となる。ところが、大気中のこれらの成分の濃度は、地域差が大きいことが知られている。これは北半球と南半球の違い、高緯度地域と低緯度地域による違いから、沿岸域と内陸域の違い、森林・山岳地帯と都市域の違いなど様々なスケールでの違いがあり、詳細な初期値の時空分布に関する知識が必要となる。

以上のことをふまえると、現時点では、若い地下水年代を把握する測定手法として、T や CFC、古い地下水年代の測定手法として $^{14}\text{C}_{\text{DIC}}$ 、非常に古い地下水年代の測定手法として ^4He 、 ^{36}Cl による解析が最も一般的かつ有用であろうと思われる。

2) - 2 各手法の課題整理

ここでは、2) - 1 で整理した課題点をふまえ、T と CFC・ $^{14}\text{C}_{\text{DIC}}$ ・ ^4He ・ ^{36}Cl 法についての課題点を個別に整理する。CFC を除く 4 手法についてはその原理、課題点は産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2014) に詳細に記載しているので、ここでは簡潔に記す。なお、地下水混合に関する留意事項ではここでは示さない。

(1) T (トリチウム) 法

表 1.1.2.2-1 のうちトリチウムのみ唯一、水分子の同位体を使った手法であるため、前記 (a), (b) で記した化学反応、鉱物の溶解などによる変動はない。したがって、適用に当たった対象地質や地下水水質の違いによる留意事項はないと見なしてよい。しかし、(c) で記述した大気中の濃度の地域による違い（高緯度地域と低緯度地域による違いなど）があり、当該地域周辺の 1950 年代以降の降水水中のトリチウム濃度の変動などが解析に必要である。処分地相当の深度においては、トリチウムは、正確な年代測定のためのトレーサというよりも、表層水の混入の指標として用いられる。

(2) CFCs法

CFCs は 1970 年代より急速に人工的に生成され大気中に放出された化学成分であり、降水中にそれらが溶存し地下水として涵養される。これを利用し、地下水の CFCs 濃度と大気中の CFCs 濃度の年代変化を基に年代測定が行われる。現在の降水中のトリチウム濃度が核実験前の低いレベルに戻っているため、若い地下水に対する年代測定の指標としてトリチウムに変わる手法として重要性が増している。対象となる地下水の水質 (a)、帯水層地質 (b) に対する課題点はないが、CFCs の年代測定は 1970 年以前に涵養された地下水には適用できない。また、(c) に相当する地域間で初期値 (CFCs は放射壊変による減衰があるわけではないので年代値を直接的に示す値) の問題点がある。都市域、特に工業地帯と非都市域 (森林地域など) とでは大気中の CFCs 濃度が異なり、トリチウム同様に涵養時の濃度が場所によって異なる点でより詳細な初期値の時空分布に関する知識が必要となる。この点で、日本国内において適用できる地域と適用できない地域が存在するため、現時点では、精密調査選定段階における評価としてはその有用性に乏しい。

(3) $^{14}\text{C}_{\text{DIC}}$ 法

年代測定に用いられる DIC 成分は、反応性が高く表 1.1.2.2-1 にまとめた手法の中で最も濃度や同位体比の変化が大きい。地下水の涵養後に付加・除去される炭素成分を補正して、年代を求める試みが多くなされている (例えば、Clark and Fritz, 1997; Coetsiers and Walraevens, 2009; Fontes and Garnier, 1979)。どのような補正法を適用すべきなのかは、対象となる地域の地質、地下水水質によって異なる。地質条件から、どのような起源の炭素との反応が想定されるのかを抽出して、地下水の水温や pH・水質・安定炭素同位体比などから、涵養後の地下水が被った鉱物の溶解、同位体交換反応などによる影響を補正しなければならない。また、 CO_2 や CH_4 といった炭素を含むガス成分は、地下水流動とは独立して移流するため、その寄与や起源についての解析も重要である。

年代測定の重要な条件である ^{14}C の初期濃度について、グローバルな変動の他に、地下水の涵養時に溶解する土壌中の CO_2 の ^{14}C 濃度と、地下水が涵養される時の大気 CO_2 の ^{14}C 濃度が一致しないリザーバー効果を評価すべき場合もある。また、 ^{14}C 年代値の算出で用いられる半減期は、5568 年 (Libby 半減期と呼ばれる) であるため (Stuiver and Polach, 1977)、年代値の取扱には注意が必要である。Libby 半減期による影響は、グローバルな ^{14}C の初期濃度の変化をキャンセルするための年代較正 (例えば、Ramsey, 2009; Reimer *et al.*, 2004) によって取り除かれる。そのため、年代較正と Libby 半減期の補正の両方を行ってしまうと、正しい年代値が算出できない。

(4) ^4He 法

^4He 法は化学反応性のない希ガスであるヘリウムの蓄積量に基づいた手法である。化学反応性がないゆえ、適用に当たっての『(a) 水質の違いによる課題点』はない。初期値については涵養場所の気温・気圧に依存するものの、その変動幅は地層中で蓄積される量に比べてごく僅かである。したがって (c) についての課題点もない。しかし、 ^4He 法は『(b) の適用地域の地質の違い』による不確実性が非常に大きく、大きな課題点となっている。 ^4He は帯水層岩石種・空隙率および帯水層厚の違いにより、その生成速度・地下水への蓄積速度が大きく違う。さらに、全地殻およびマントル起源 He の上昇が地下水への ^4He 蓄積速度に与える程度が帯水層の構造や断層の有無によって大きく異なる。考慮すべき点が当該帯水層の構造と全地球規模でのヘリウムの起源に関わるため、年代を導くに当たっての必要なパラメータ・蓄積モデルを対象地域ごとに構築する必要がある。

(5) ^{36}Cl 法

地下水中の塩化物イオン (Cl^-) は比較的反応性が低いので、 ^4He 同様にイオン交換反応などを考慮

する必要はあまりない。しかし、地下水中の塩化物イオンと ^{36}Cl 濃度は、天水起源の地下水と海水等に由来する高 Cl^- 濃度の地下水とでは全く異なる。海水起源地下水の年代測定に際して、対象試料が天水起源の水で希釈されている場合は、天水起源の ^{36}Cl の寄与を補正しなければならない。その寄与が大きすぎる場合はもはや海水の年代は得られない。この意味では、(a)の適用する地域の地下水水質、特に Cl^- 濃度を見た上で適用可能かどうか判断する必要がある。放射壊変による減衰と地層中で発生する ^{36}Cl の蓄積を考慮に入れた手法である ^{36}Cl 法による地下水年代の計算には、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 放射平衡値（150万年程度で放射平衡に達する）の情報が必須である。放射平衡値は、帯水層岩石ごとに異なり、同一岩種においてもある程度の変動幅があるため（産業技術総合研究所深部地質環境研究コア、2012）、 ^{36}Cl 年代を導くに当たっての必要なパラメータを対象地域ごとに取得し、その変動幅を充分考慮に入れる必要がある。

1.1.2.3 混合を起こした地下水に対する年代評価手法開発

産業技術総合研究所深部地質環境研究コア（2011, 2012, 2013, 2014）では混合を起こした地下水に対して、混合を起こす前の端成分それぞれの年代を導く手法開発を行ってきた。ここでは、『淡水－海水の混合地下水系の年代評価手法開発』と、『多成分系での混合を起こした地下水の年代評価手法開発』について概説する。なお、端成分それぞれの年代とは、それぞれの端成分が涵養・侵入した年代を示し、いつ混合が起こったかを示すものではない。また、浅層地下水において頻繁に起こる若い地下水同士の混合は地層処分への安全審査に向けた評価手法の整備としては重要度は低いと思われるため、ここでは取り扱わない。

1) 淡水－海水の混合地下水系の年代評価手法開発

1)－1 ^{36}Cl - ^4He 法の原理

2.2.2.1 項にも記載している通り、 ^{36}Cl を利用することで海水起源の塩水の年代測定が可能である。一方で、もう1つの長期地下水年代指標である ^4He は、混合を経た地下水の場合、その平均的な年代を示す。これら2種類の年代指標を組み合わせることで、海水起源の塩水と天水起源の淡水系地下水を分離して、それぞれの年代を求める手法を開発してきた（産業技術総合研究所深部地質環境研究コア、2011, 2012, 2013, 2014）。ここでは、本手法の原理についてまとめる。

図1.1.2.3-1に、海水起源の塩水が地層中に長期間停滞した場合の ^4He 濃度と $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の時間変化を模式的に示した。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ は海水の値から次第に上昇し、150万年程度で放射平衡に達するが、 ^4He 濃度は概ね年代に比例して増加する。混合のない閉鎖系の地下水の場合には、図1.1.2.3-1の青色の曲線（以降、成長曲線と記す）に沿って ^4He 濃度と $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比が変化する。一方、これに天水起源の淡水系地下水が混入した場合、この曲線からずれてプロットされることになる。その位置は、塩水と淡水の混合割合、およびそれらの相対的な年代差に依存する。例えば、塩水よりも相対的に若い淡水が混合した場合、曲線の左上にずれる傾向を示す。一方、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ が放射平衡に達したような古い淡水と混合すると、概ね曲線の右側にずれる傾向になる。このため、地下水の測定値をプロットすることによって、定性的には海水成分と淡水成分との相対的な年代差が判断できる（産業技術総合研究所深部地質環境研究コア、2012）。

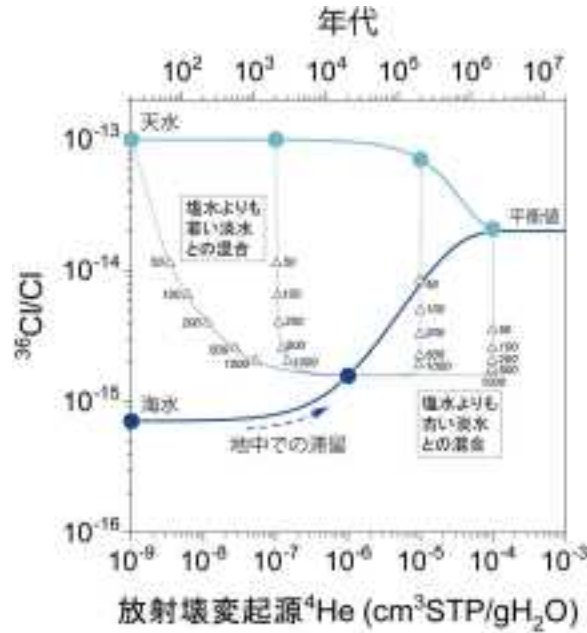


図 1.1.2.3-1 海水起源の塩水が地層中に長期間停滞した場合の放射壊変起源 ^4He 濃度と $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の時間変化の模式図。天水が地中に停滞した場合の曲線も示し、海水起源の塩水 ($\text{Cl}^- = 19,000 \text{ mg/L}$) と年代の異なる淡水 ($\text{Cl}^- = 10 \text{ mg/L}$) との混合線の例を示した。混合線上の値 (Δ) は、混合後の地下水の Cl^- 濃度 (mg/L) を表している。

1)–2 地下水水質の違いによる不確実性

上記手法について、淡水の混合割合が非常に大きい場合には、単純に判断できないケースが生じる。淡水が塩水よりも相対的に古い場合であっても曲線の左上にプロットされるものである。特に塩水の年代が非常に若く、地下水の Cl^- 濃度が低い場合には注意が必要である (産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2014)。しかしながら、実際の計算においては、この点も考慮された年代を導くことができる。

問題となるのは、低 Cl^- 濃度の地下水の場合の海水起源成分そのものの $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の見積もりにおける不確実性である。対象地域の天水の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の設定が適切でなかった場合、その誤差は塩水の年代の不確実性として反映され、それは低 Cl^- 濃度の地下水ほど大きくなる (産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2013)。そのため、核実験起源の ^{36}Cl の影響を避けた上で対象地域の渓流水や降水の測定を行うなど、天水の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ について十分検討することが必要である。その場合であっても、対象とする地下水の Cl^- 濃度が概ね 500 mg/L 以下の場合には、天水起源の ^{36}Cl の寄与が相対的に大きくなる可能性がある (産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2014)。したがって、塩水の年代に大きな誤差が含まれる可能性があり、適用する際は注意が必要である。

1)–3 帯水層地質の違いによる不確実性

1.1.2.2 に記したように、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ および ^4He による年代値の計算に必要な $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 放射平衡値および ^4He の蓄積速度とも帯水層岩石の化学組成に大いに依存する。また、 ^4He 蓄積速度は帯水層の構造や物性 (帯水層厚、水-岩石比など) にも大いに依存する。以下に、まず $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ と ^4He による年代測定に際した帯水層地質の違いによる不確実性について具体的に記載し、それに伴う ^{36}Cl - ^4He 法による地下水年代評価手法の不確実性についてまとめる。

³⁶Cl/Cl年代

図 1.1.2.3-2 に ³⁶Cl/Cl 放射平衡値と岩石の SiO₂ 含有量との関係を示した。結晶質岩においては、SiO₂ 含有量が高くなるにつれ ³⁶Cl/Cl 放射平衡値が高くなっている。一方、堆積岩においては、SiO₂ 含有量が高いにもかかわらず ³⁶Cl/Cl 放射平衡値が低いものが数多く見られる。また全体的に見て、³⁶Cl/Cl は結晶質岩に比べて低い傾向にある。

帯水層岩石の違いによる ³⁶Cl/Cl 放射平衡値の違いはそのまま地下水年代値の違いにつながる。図 1.1.2.3-3 に、任意の ³⁶Cl/Cl を持つ地下水が示す年代値を放射平衡値ごとに計算した結果を示す。例えば、地下水の ³⁶Cl/Cl が 8.5×10^{-16} であった場合、大阪平野堆積岩地域の地下水では、年代は 4,800 ~ 10,000 年となる。この年代から高 Cl⁻ 成分の混入プロセスを推定すると、年代値の幅が大きいものの最終氷期以降の温暖期に海水が侵入したと解釈できる。一方、地下水の ³⁶Cl/Cl が同じでも瀬戸内花崗岩地域では、年代値は 1800 ~ 2600 年となる。地下水の ³⁶Cl/Cl が 8×10^{-15} になると瀬戸内花こう岩地域では 10 ~ 16 万年となり、縄文海進の一つ前の海進（下末吉海進）の年代に近い値を示す一方で、大阪平野堆積岩地域では 36 ~ 150 万年以上と非常に幅が広がってしまう。年代値の正確な見積もりとそれによる海水などの高 Cl⁻ 濃度成分の侵入プロセスを考えるためには、当該地域の岩石の化学組成を取得し放射平衡値を正確に見積もった上での年代解析が不可欠である。

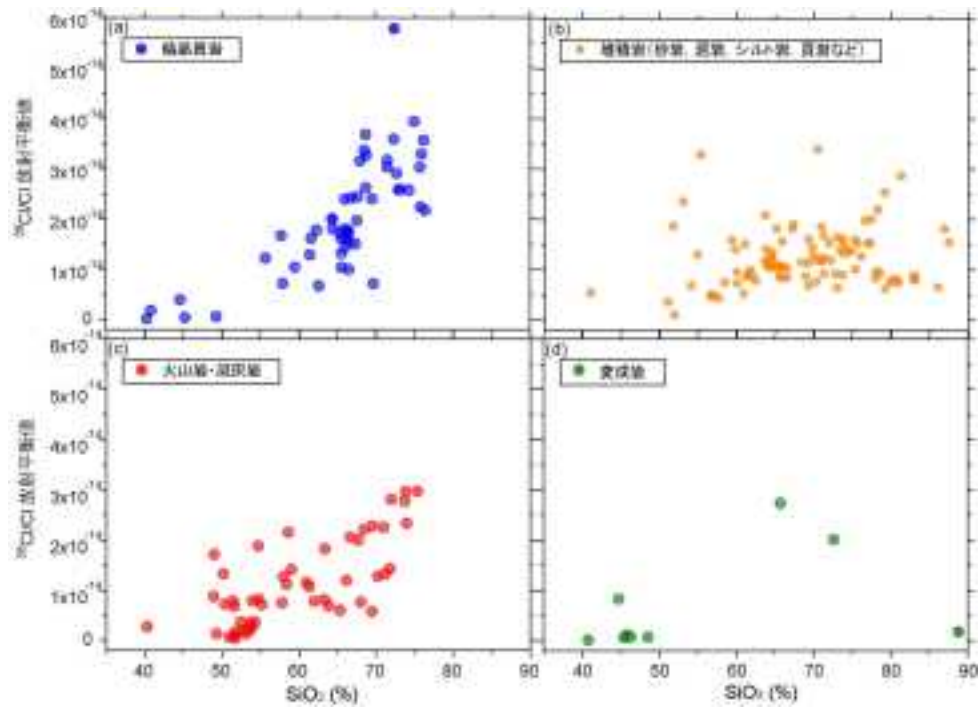


図 1.1.2.3-2 ³⁶Cl/Cl 放射平衡値と岩石中の SiO₂ 含有量の関係。

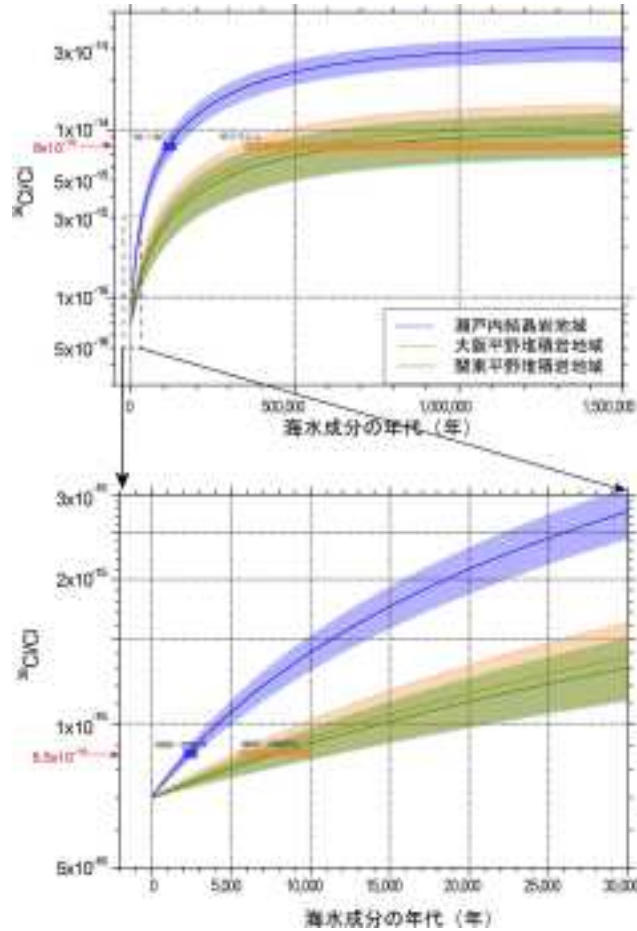


図 1.1.2.3-3 海水起源地下水の年代と $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の進化の関係。

図中の三色の領域はそれぞれ瀬戸内地域の花崗岩（青色：放射平衡値が $(3.2 \pm 0.5) \times 10^{-14}$ ）、大阪層群の砂岩（橙色： $(1.1 \pm 0.4) \times 10^{-14}$ ）、放射平衡値が $(9.8 \pm 2.9) \times 10^{-15}$ （緑色）の場合の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 進化曲線を示す。図中の数値は地下水の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ が 8.5×10^{-16} 、および 8×10^{-15} である場合の年代値の幅を示す。

^4He 年代

^4He による年代の計算には、地下水の ^4He 濃度と ^4He 蓄積速度が必要である。 ^4He 蓄積速度は、帯水層岩石から生成される ^4He 原位置発生量と、地殻・マントルに及ぶ超深層より上昇してくる ^4He フラックス値より見積もる必要がある。 ^4He 原位置発生量は岩石中の U・Th 濃度に依存する（図 1.1.2.3-4）。 ^4He フラックス量は様々な手法により得られているが（例えば、Sano, 1986; Torgersen, 1989）、帯水層が多重構造をなしているときは、下部に位置する帯水層にフラックス起源 ^4He は溶解されるため、上部の帯水層への ^4He フラックスは阻害される（産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2009）。帯水層ごとにフラックス値は異なり、最大で ^4He フラックス値、最少で 0 となりえるため個別に見積もる必要がある。

^4He 年代の算出方法は地下水の胚胎状態（帯水層を形成しているものかあるいは亀裂に充填されたものか）によって異なる。帯水層を形成するような堆積岩やグリーンタフ、火山岩地域においては、原位置発生量が主たる起源となるか ^4He フラックスの影響が大きいか、帯水層厚や空隙率などの帯水層構造のパラメータ等の情報が必要となってくる。産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2013) および森川・戸崎 (2013) では異なる地質地域に対して原位置発生量および ^4He フラックス値

の違いが及ぼす蓄積速度への影響を見積もっている(図1.1.2.3-5)。一方、結晶質岩地域においては、地下水は亀裂に充填されており帯水層を形成していない。この場合、蓄積速度を見積もる方法は堆積岩地域等とは異なる。産業技術総合研究所深部地質環境研究コア(2008)では、阿武隈地域の亀裂性花こう岩においては地下水の ^{14}C 年代と ^4He 濃度が得られており、ここから ^4He 蓄積速度を出している。ただし、蓄積速度はおもに水-岩石比などに依存し、岩体ごとあるいは同一岩体でも場所により不確実性が大きいいため、調査地域ごとに個別に見積もる必要がある。

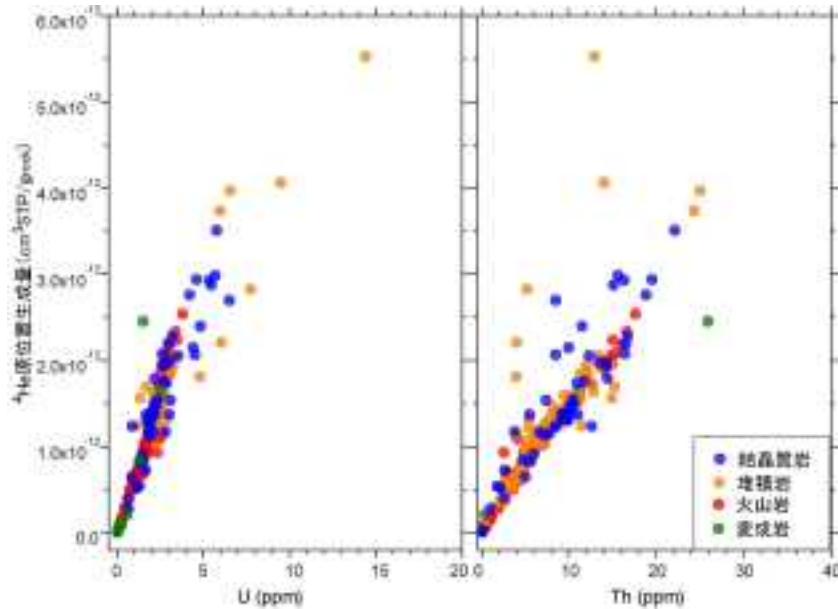


図1.1.2.3-4 ^4He 原位置発生量と岩石中の U(a), Th(b) の関係。

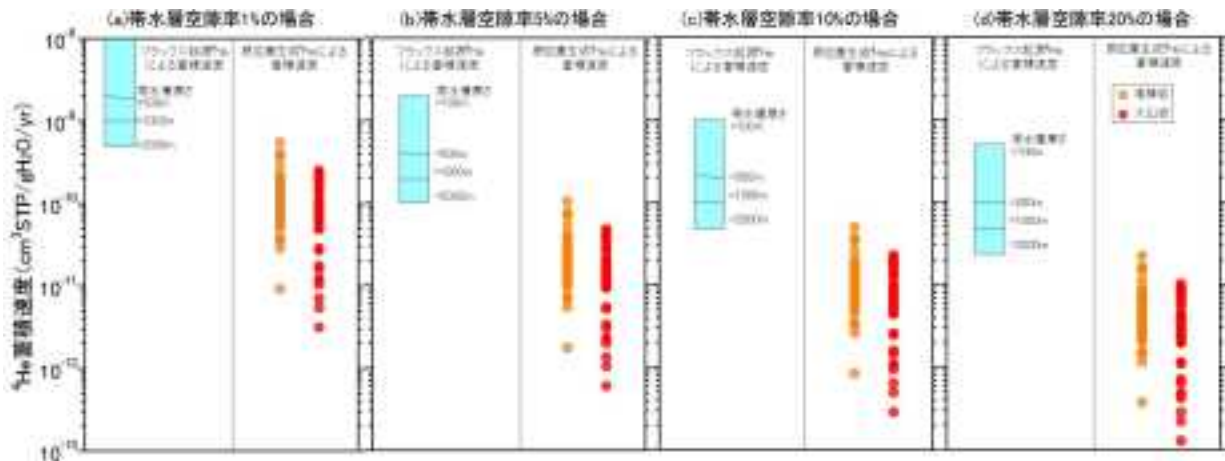


図1.1.2.3-5 原位置発生 ^4He 、地殻フラックス起源 ^4He による地下水への ^4He 蓄積速度。

原位置生成 ^4He による蓄積速度は、 ^4He 原位置発生量(図1.1.2.3-4)より、森川・戸崎(2013)の(20)式を用いて岩石ごとに計算した。地殻フラックス起源 ^4He による蓄積速度は、フラックス値が $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ STP/cm}^2/\text{yr}$ (Sano, 1986)である場合の計算値を示した。

^{36}Cl - ^4He を用いた淡水と海水の混合系における地下水年代評価手法の帯水層地質の違いによる不確実性

$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ - ^4He プロットにおいて、成長曲線からどの方向にずれるかによって淡水と海水の相対的な古さの解釈が異なってくる(図 1.1.2.3-1)。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 放射平衡値は帯水層岩種の化学組成の違いによる不確実性がある。放射壊変起源 ^4He 濃度も ^4He 原位置発生量が岩種により異なるとともに、地下構造により ^4He フラックス値が異なる。そのため、成長曲線は岩種ごとに異なる曲線を描くとともに、それぞれある程度の変動幅を考慮する必要がある。例として、図 1.1.2.3-6 に花こう岩地域と堆積岩地域の成長曲線を示した。

成長曲線の取り得る範囲は地質ごとに異なる。図 1.1.2.3-6a に He 蓄積速度を一定としたときの成長曲線の取りうる範囲を示した。この場合、瀬戸内花こう岩の方が $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 放射平衡値が高く、比較的一定の値であるため、海水の侵入年代を見積もるのに適している。しかし、結晶岩質地域は ^4He 蓄積速度の見積りが難しいため横軸の不確実性は大きい。これを考慮に入れると、瀬戸内花こう岩も大阪堆積岩地域同様に成長曲線の取り得る範囲は広がる(図 1.1.2.3-6b)。堆積岩地域においては、複数の帯水層が層状に分布する場合、下部の帯水層にフラックス起源 ^4He が溶解され、フラックス起源 ^4He の浅層への上昇は阻害される(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2014)。フラックス起源 ^4He の寄与の有無により成長曲線の横軸は大きく変動する(図 1.1.2.3-6c)。同じ堆積岩においても $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 放射平衡値は地域により異なるとともに、結晶質岩地域においても岩種の違いにより大きく異なる(図 1.1.2.3-6d)。特に、はんれい岩や玄武岩等の酸性岩の一部、三波川変成岩などは $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 放射平衡値が 1×10^{-15} 付近と海水の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 値に近いいため海水の侵入年代を得ることができない。

以上のように、 ^{36}Cl - ^4He を用いた手法は帯水層地質の違いによる不確実性が大きいいため、対象地域ごとに適切なパラメータの取得を行った上で適用する必要がある。

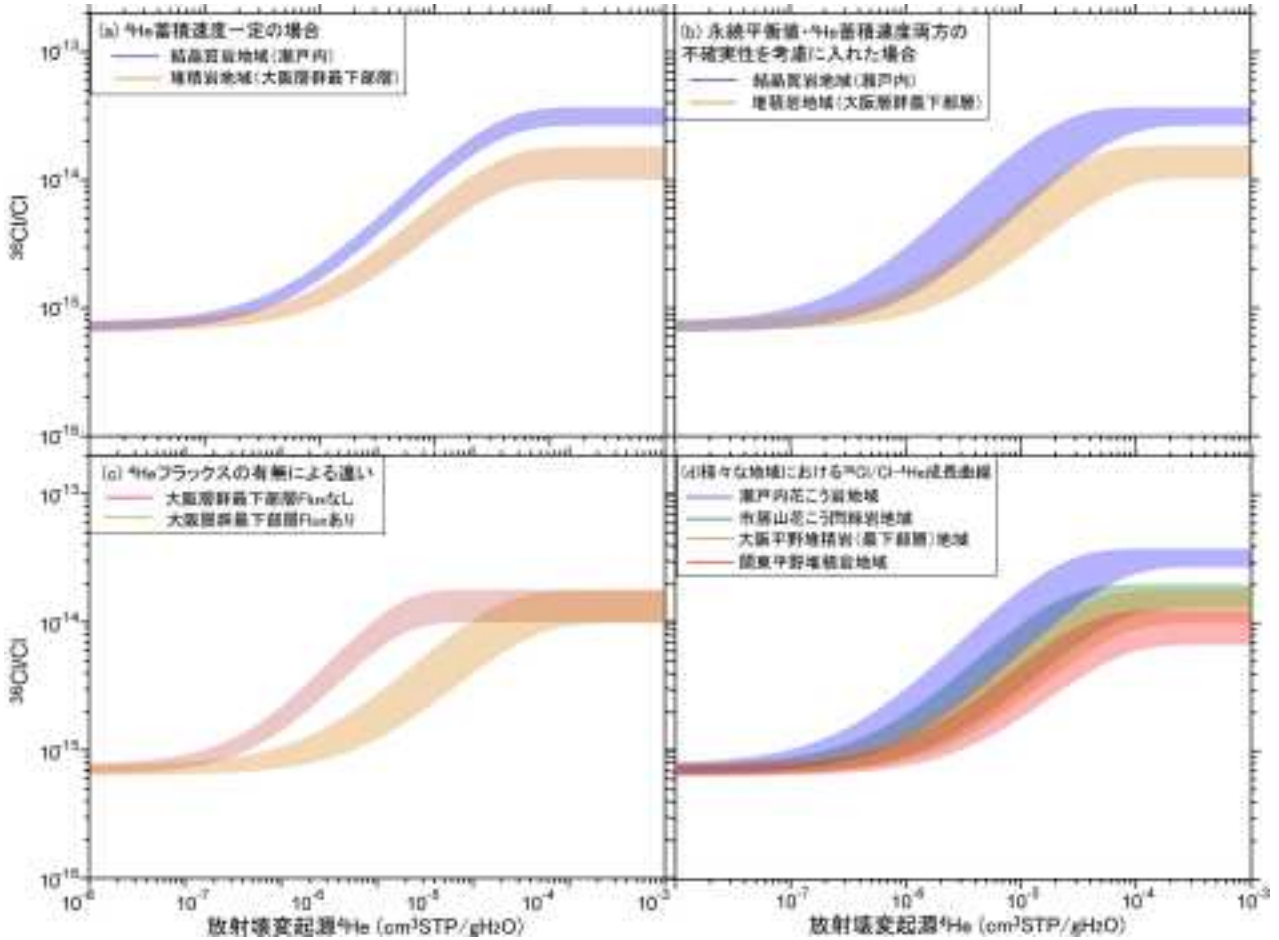


図 1.1.2.3-6 結晶質岩地域、堆積岩地域における $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}-^4\text{He}$ 成長曲線。

結晶質岩地域の ^4He 蓄積速度には $0.37 \sim 1.1 \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ STP/gH}_2\text{O/yr}$ (産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2012)を使用した。また、堆積岩地域の蓄積速度は、 ^4He フラックス値を $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ STP/cm}^2/\text{y}$ (Sano, 1986)、帯水層厚を500～1,000m、原位置発生量の計算として、空隙率を0.2、U・Th濃度をそれぞれ1 ppm・5 ppmとして計算した。(a)放射平衡値の違い・不確実性による成長曲線の取りうる範囲の違い、 ^4He 蓄積速度は一定としている(堆積岩地域の帯水層厚は500 mで固定)。(b)瀬戸内花こう岩地域、大阪平野堆積岩地域の続平衡値・ ^4He 蓄積速度両方の不確実性を考慮に入れた場合の成長曲線の取りうる範囲の違い。(c)大阪平野堆積岩地域におけるフラックス起源 ^4He の有無による成長曲線の取りうる範囲の違い。(d)花こう岩地域および堆積岩地域の様々な地域における $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}-^4\text{He}$ 成長曲線の取りうる範囲の違い。

2) 多成分系での混合を起こした地下水の年代評価手法開発

2)-1 端成分推定法

混合を起こした地下水の化学組成は、その端成分となる地下水の年代を推定するために重要であり、それぞれの地下水試料に対する端成分ごとの混合割合は、地下水年代を評価するために必要となる。それぞれを求めるために多変量解析が有効である。ここでは、Mathworks社製のMatlab(R2014b)を用いて、主成分分析と非線形の最小自乗法を用いた最適化計算によって解析を行っている(図1.1.2.3-7)。

まず、それぞれの地下水試料に対する端成分の暫定的な混合割合を求める。この暫定割合を求めるためには、端成分組成を仮定することが必要である。水質データの解析から端成分組成を想定できる場合は、その組成データを用いた最小二乗法による計算から混合割合を求めることができる。図

1.1.2.3-7 の (a) の初期条件設定が該当ステップである。そのような端成分が想定できていない場合は、主成分分析を利用する。図 1.1.2.3-7 の条件 NO のフローが該当する。端成分が 3 つの場合で述べると、主成分分析を行って得た第一主成分と第二主成分の得点を X-Y プロットしたときに、それらの点を内包し、かつ面積が最小となるような 3 点を仮定して、個々の試料との距離から、暫定的な混合割合を求める。このとき、どのような 3 点を仮定するのかが自明でない場合でも、最適化計算によって求めることができる。その上で、端成分組成を最小二乗法による計算で求める。ここまでの計算は、図 1.1.2.3-7 の (b) に該当する。また、主成分分析の累積寄与率によって、端成分数をいくつにするべきかの確認を行うことができる。

次に、最適化計算によって、端成分の化学組成と混合割合の両方を最適化計算によって求める。同時に最適化する化学成分は、陽イオンと陰イオンからそれぞれ 1 つ以上を選定する。このステップでは、イオンバランスをとりつつ端成分の化学組成を計算する。選定した化学組成と混合割合を最適化計算によって求め、次のステップで、残りの化学組成のみを最適化計算によって求める。この 2 段階のステップを繰り返し行って、計算を終了する。この繰り返し計算による結果は、図 1.1.2.3-7 の (c) に該当する。選定する化学成分によっては、計算結果が異なることがよくある。そのため、いくつかの場合で計算を実施して、現実的にあり得る端成分組成を選択することが重要となる。

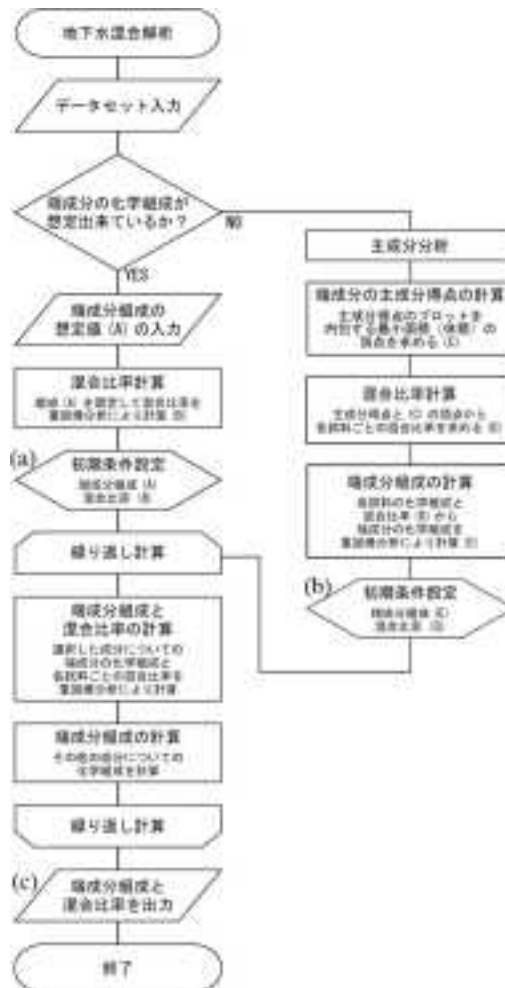


図 1.1.2.3-7 地下水混合解析のフローチャート。

地下水データの解析による端成分組成の想定がある場合とない場合で、計算フローが異なる。計算の制約条件として、端成分の化学組成の最小値やイオンバランスの許容範囲を設定している。計算ステップの進み具合により、端成分の化学組成や各試料の端成分ごとの混合割合が求まる。これらを(a),(b),(c)で示す。それぞれの結果の評価は1.1.2.4節 2)-2を参照。

2) - 2 端成分の年代推定法

地下水の起源となる地下水混合端成分それぞれの年代は、地下水そのもののデータからは得られず、端成分それぞれの年代指標成分の特徴を得る必要がある。産業技術総合研究所深部地質環境研究コア(2013)では、地下水試料の年代指標成分データと多変量解析により得られた各端成分の混合割合より、各端成分の年代指標成分濃度・同位体比を外挿により得る手法を提案した。なお、多変量解析によって導き出される端成分の混合割合は端成分の水の混合割合であり、それぞれの溶存成分における各端成分が占める割合(寄与率)は以下の式で計算する。

$$\text{端成分 } i \text{ 中の成分 } X \text{ の寄与率} = r_i C(X)_i / \sum r_i C(X)_i$$

ここで、 r_i は端成分 i の水の混合割合、 $C(X)_i$ は端成分 i 中の成分 X の濃度を示す。

端成分それぞれの年代指標成分の寄与率が最も高い試料あるいは寄与率を 100% まで外挿した数値が、端成分の年代指標成分の特徴を反映していると考えられる。いずれの年代指標成分も程度の差はあるが端成分それぞれにいくらかは含まれているため、きれいな相関は得られず外挿値を一義的に決めることは出来ないため不確実性が高い。しかし、トリチウムや ^4He ・ ^{14}C ・ ^{36}Cl など複数の年代指標成分の情報を得ることにより、それらを総合して年代の特徴を把握できる可能性がある。

1.1.2.4 混合解析による地下水年代解析例

1) 淡水-海水の混合地下水系の年代の解析事例

ここでは、瀬戸内沿岸地域の地下水を対象として、 ^{36}Cl と ^4He による塩水・淡水の年代解析結果をまとめる。地下水試料の Cl^- 濃度と $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ との関係を図 1.1.2.4-1 に示す。これを見ると、瀬戸内西部地域と東部地域とで明瞭な差異が見られる。具体的には、瀬戸内西部地域では、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ は海水と同程度の非常に低い値を示している地点がほとんどである。これに対して、瀬戸内東部地域では、半数程度は同様に海水程度の低い $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ を示しているが、残りは 10-14 台までの範囲の高い値を示している。一方、 ^4He 濃度との関係のみで見ると、瀬戸内海西部の地下水試料は、曲線の近傍から曲線のやや右側にかけてプロットされている。これらの地下水については、塩水よりも相対的に古い淡水が混合したものと推定できる。これに対して、瀬戸内東部地域の地下水は、曲線付近から曲線の左上にかけてプロットされる傾向を示し、塩水よりも相対的に若い淡水が混合したものと判断される。

この結果から塩水の年代を求めると、瀬戸内西部地域ではほとんどが 2 万年以下と非常に若いものに対して、東部地域では半数以上が 10 万年以上の古い年代となる(図 2.2.2.1-4)。2.2.2.1 項で記載したとおり、これは氷期の海面低下時における現在の瀬戸内海の領域の地形条件が影響しているものと考えられる(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2014)。一方、淡水の年代の分布を求めた結果を図 1.1.2.4-2 に示す。これを見ると、塩水の年代分布のように明瞭な傾向を見出すことは困難だが、10 万年以下の地点が多く、その中でも年代値としては 5 万年以下が主体となっている。このことは、これらの淡水が、最終氷期に涵養され古い塩水を置換した天水起源の地下水であることを示している可能性がある(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2014)。

本手法による年代解析によって、海進・海退時の海水起源の塩水と天水起源の淡水との入れ替わりについて、より詳細な把握が可能となるものと考えられる。

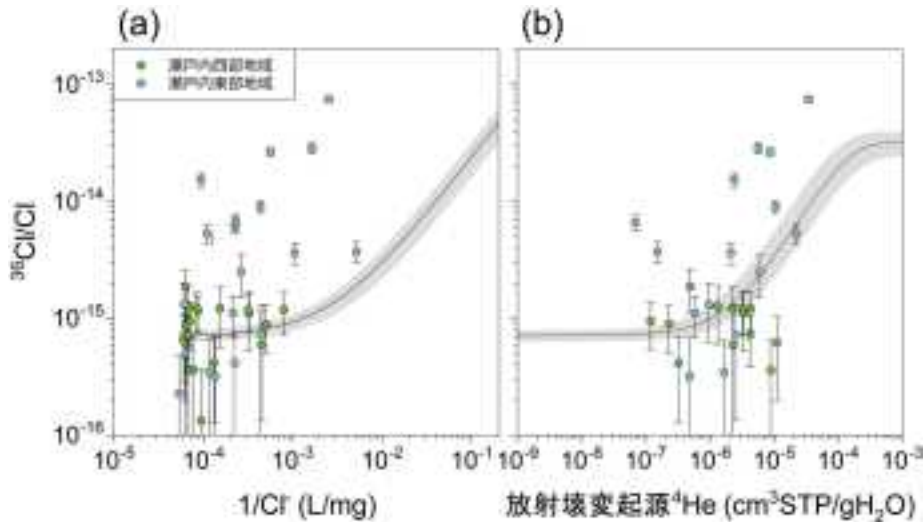


図1.1.2.4-1 瀬戸内沿岸地域の地下水のCl⁻濃度と³⁶Cl/Clとの関係(a), および放射壊変起源⁴He濃度と³⁶Cl/Clとの関係(b).
 (a) 曲線は海水 ($^{36}\text{Cl}/\text{Cl} = (0.71 \pm 0.08) \times 10^{-15}$, $\text{Cl}^- = 19,000 \text{ mg/L}$) と浅層地下水 ($^{36}\text{Cl}/\text{Cl} = (48 \pm 16) \times 10^{-15}$, $\text{Cl}^- = 5 \text{ mg/L}$) との混合線、(b) 曲線は $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ と⁴He濃度の成長曲線。瀬戸内花崗岩類の化学組成(森川・戸崎, 2013)から求めた $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 放射平衡値、および原位置での⁴He生成量のみを考慮して曲線を設定した。

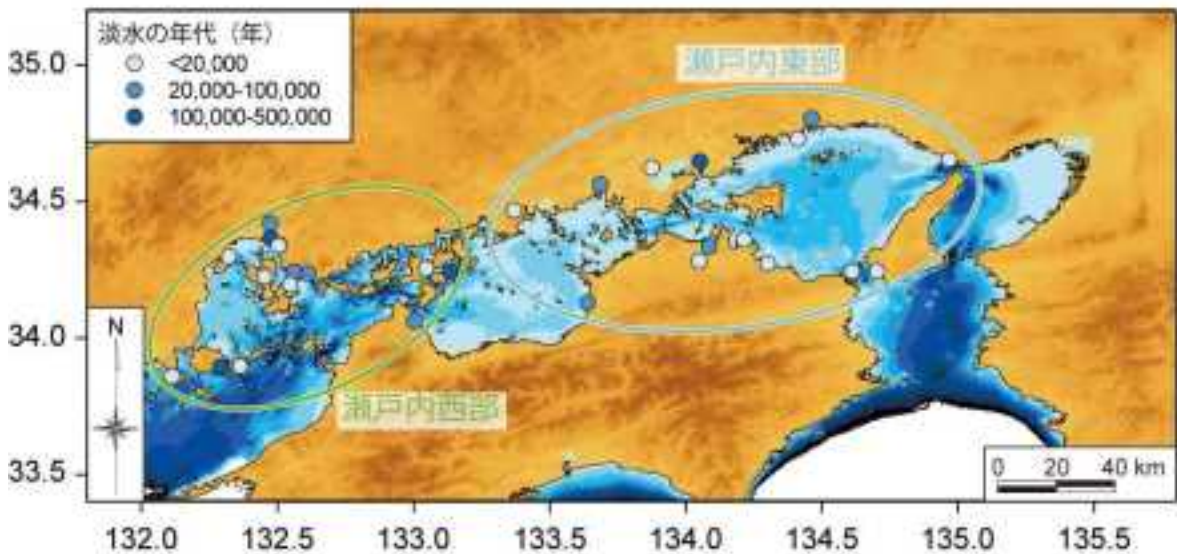


図 1.1.2.4-2 瀬戸内沿岸地域における淡水の年代分布。

現在よりも海面が 100 m 低下した場合の陸域上に示した。各地点における年代は上限値で示している。

2) 多成分系の混合地下水の解析事例

2)-1 大阪平野浅層地下水の解析例

産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2014) では、大阪平野西部の淀川周辺の浅層地下水を対象に、主要溶存成分を用いた多変量解析から端成分を決定し、各端成分の年代推定を試みた。主要溶存元素濃度の分布 (図 1.1.2.4-3)、主成分分析結果 (図 1.1.2.4-4) より、端成分は Ca-HCO₃ 型の水質を有する地下水、Na-HCO₃ 型の地下水、Na-Cl 型の地下水の 3 成分と予想された (表 1.1.2.4-1)。

予想された端成分を基に、重回帰分析を行い、各地下水試料の最適な端成分組成および端成分混合割合を導きだした。そして、地下水試料の年代指標成分データと上記端成分の寄与率を用いて、各端成分の年代指標成分濃度・同位体比を外挿により得た(図 1.1.2.4-5)。ここでは、産業技術総合研究所深部地質環境研究コア(2014)に加えて、 ^4He 濃度と各端成分の寄与率との関係を記した。その結果をまとめると以下ようになる。

- ・高塩濃度成分である端成分Cの年代は $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ が非常に低く、現海水あるいは最近の海進(縄文海進)時の値とオーバーラップしている。トリチウム濃度の外挿値はほぼ0になると見える。 ^{14}C 濃度はおよそ30 pMC程度。 ^4He 濃度は低く涵養時の濃度(溶解度平衡値)と変わらず、比較的最近の地下水であると思われる。
- ・端成分A(Ca- HCO_3 型)は Cl^- の寄与率は低く $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の値は得られないが、トリチウム濃度は2~3 T.U.程度、 ^4He 濃度は低く涵養時の濃度(溶解度平衡値)と変わらない。炭素の寄与率は低く外挿値を想定することは難しいが、 ^{14}C 濃度は高い値(現在に近い値)に向かっていているように見える。つまり、端成分Aは比較的現在に近い淡水であることが考えられる。
- ・端成分B(Na- HCO_3 型)は端成分Aと同様に Cl^- の寄与率は低く $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の値は得られない。トリチウム濃度は明らかに0の方向、 ^{14}C 濃度はおよそ30 pMC以下に向かっていている。これを地下水年代とみなすと端成分Aとは異なり、ある程度古い地下水と見なすことができる。 ^4He 濃度も範囲はばらつくものの蓄積が進んでおり、トリチウムや ^{14}C 濃度の傾向と矛盾するものではない。

大阪平野東部の地下水においての同様の解析により、平野東部の Cl^- 濃度の高い成分も比較的現在に近い海水であることが示された(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2013)。堆積物の層序と高 Cl^- 濃度端成分の年代をより詳細に比較することにより、高 Cl^- 濃度成分が化石海水であるか、地層堆積時よりも現在に近い時期に侵入した海水成分であるかの区別をつけることができる(森川ほか, 2014)。平野東部の高 Cl^- 濃度地下水の中には明らかに現在の海水あるいは数千年前の縄文海進時の海水と、約12万年前の海進時に侵入してきた海水(Ma12層の海成粘土層が堆積した当時の海水)が混合したような値となっているものもある(図 1.1.2.4-6)。ところが、取水層はMa12層よりも古い海成粘土層よりもさらに下位の層に相当する(No. 30・158の試料; 図 1.1.2.4-7)。これは、地層堆積時よりも若い時代の海水が侵入し、流動していることを示していると考えられている(森川ほか, 2014)。

以上の解析は、堆積時の海水成分が残留しているのみで、今後、天水起源の地下水によって洗い流されるのか、高塩濃度の端成分が今後も供給され腐食性の高い水質が維持されるのかを判断する材料の一つになりうる。

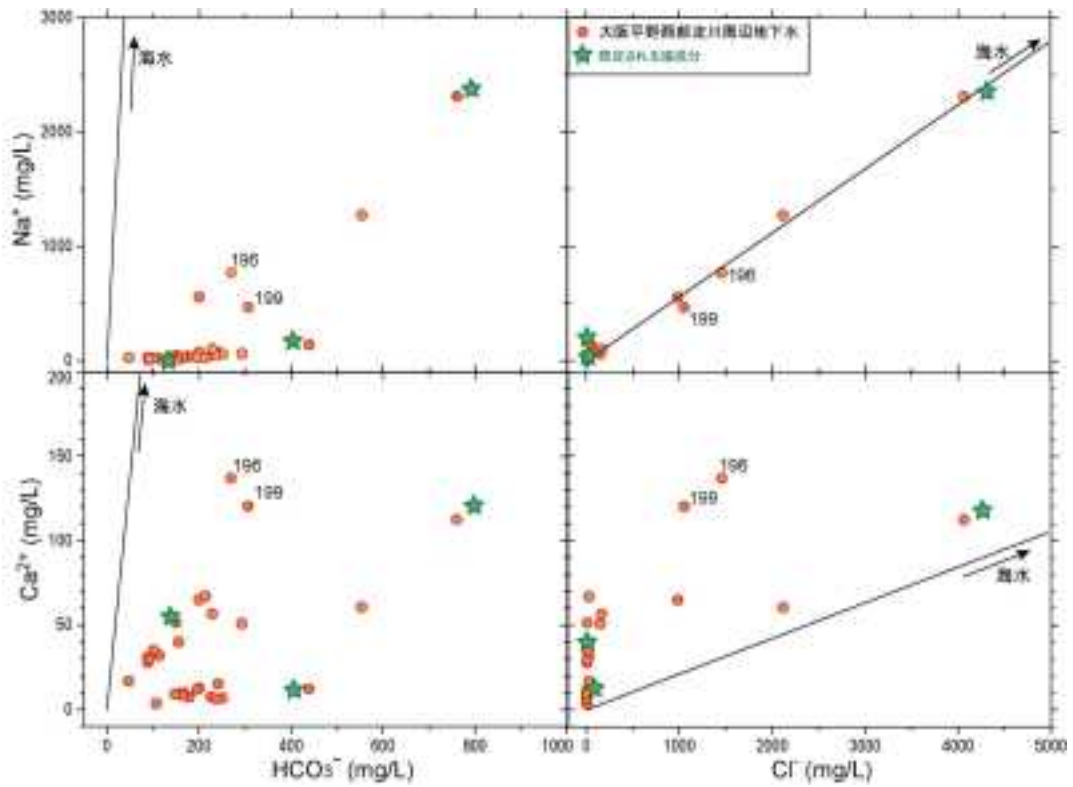


図 1.1.2.4-3 大阪平野西部地域の地下水における $\text{Na}^+ \cdot \text{Ca}^{2+}$ と $\text{Cl}^- \cdot \text{HCO}_3^-$ 濃度の関係。
産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2014) を改変。図中の番号は試料 No.。

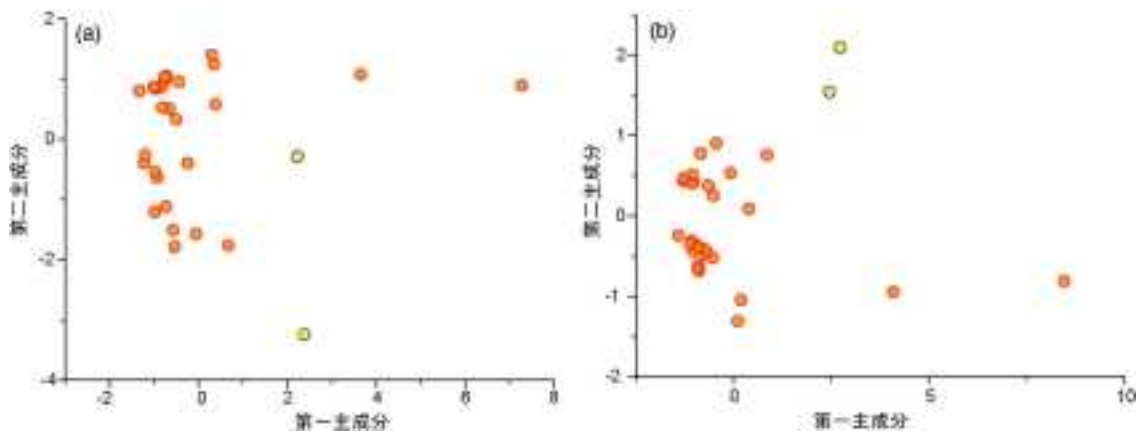


図 1.1.2.4-4 混合解析の第一段階目で実施する主成分分析の結果 (産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2014)。
(a), (b)はそれぞれ、主要化学成分 K^+ , Ca^{2+} , Cl^- , SO_4^{2-} , HCO_3^- と K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Cl^- , HCO_3^- の場合。図中の黄色の試料は最小二乗法による混合割合・端成分値の計算からは除外した試料。

表 1.1.2.4-1 大阪平野西部の地下水試料に対して想定される端成分と混合解析によって得た混合端成分の水質組成 (産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2014).

	Na	K	Mg	Ca	Cl	SO ₄	HCO ₃	NO ₃
想定される端成分								
端成分A Ca-HCO ₃	10	10	5	40	15		130	10
端成分B Na-HCO ₃	120	25	20	15	40		400	0
端成分C Na-Cl	2300	100	300	120	4200		800	0
端成分計算値								
端成分A	5	5	5	58	59		86	9
端成分B	33	15	5	5	5		215	1
端成分C	2655	121	305	125	4570		941	0

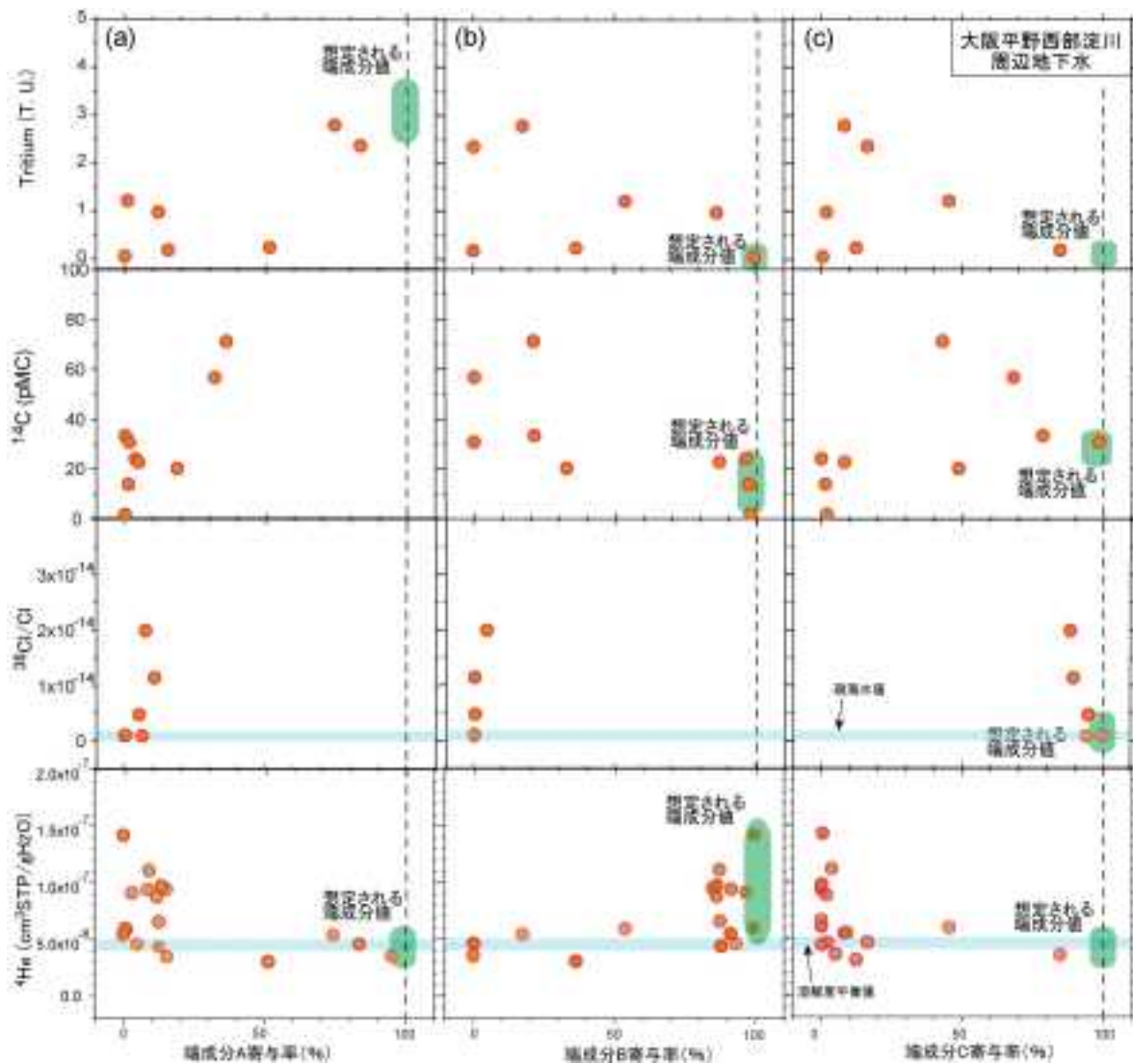


図1.1.2.4-5 大阪平野西部の地下水試料における多変量解析によって得られた端成分 (A, B, C) の混合割合とトリチウム濃度、各端成分における炭素の寄与率と¹⁴C、各端成分における塩化物イオンの寄与率と³⁶Cl/Cl、および各端成分の寄与率と⁴He濃度の関係。産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2014)より⁴He濃度を追加した。

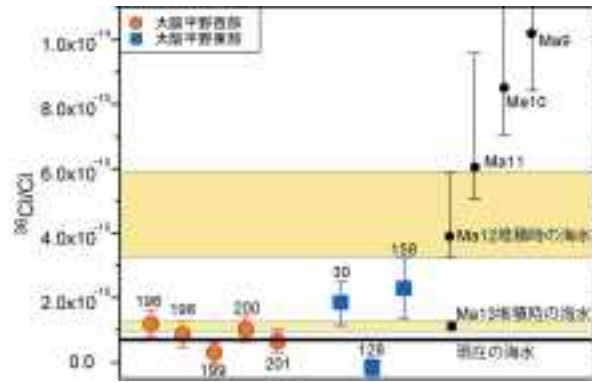


図1.1.2.4-6 大阪平野西部および東部地下水の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ および海成粘土層堆積時の海水が地層中に現在まで残留していた場合の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ (森川ほか, 2014)を改変. 海成粘土層堆積時の海水が地層中に現在まで残留していた場合に有する $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 値は, それぞれの海成粘土層基底面の年代(内山ほか, 2001), 大阪層群の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 放射平衡値を用いて計算した. 図中の番号は試料No.

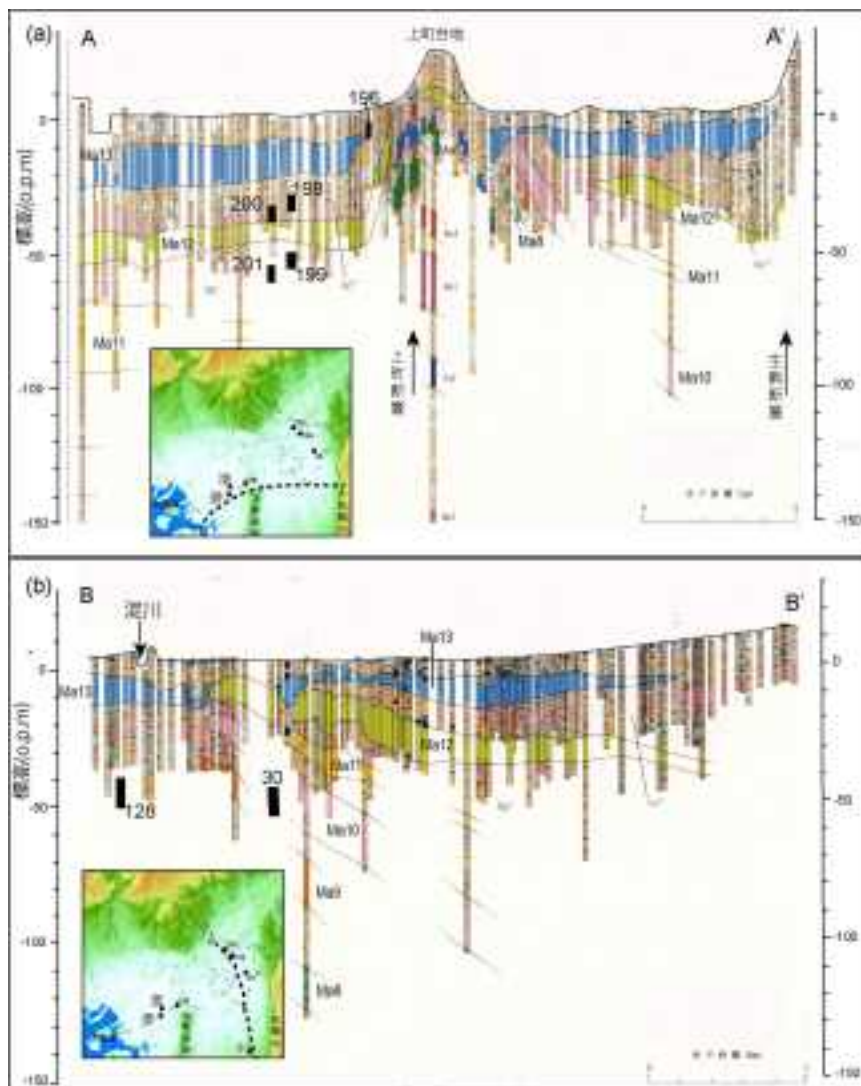


図 1.1.2.4-7 試料採取地点周辺の断面図 ((a) 東西方向, (b) 大阪平野東部の南北方向) および試料採取地点. (森川ほか, 2014) を改変. 図中の番号は試料 No.

2)-2 関東平野利根川下流域の浅層地下水の解析例

上記2)-1の手法の他地域の適用例として、関東平野・利根川下流域(図1.1.2.4-8)の地下水解析結果を示す。浅層地下水50試料の主要溶存元素濃度の分布(図1.1.2.4-9, 図1.1.2.4-10)から、混合の端成分として、Ca-HCO₃型の水質を有する地下水, Na-HCO₃型の地下水, Na-Cl型の地下水の3つが想定できる(表1.1.2.4-2)。主成分分析の結果からは(図1.1.2.4-11)、およそ半数の地下水については、ここで推定した端成分の混合で説明可能であるが、溶存元素濃度の低い試料ではこの3つの成分の勘合からは外れる試料も多い。

利根川下流域の地下水において、混合の端成分と各地下水に対する端成分ごとの混合割合についての計算を行い、地下水試料の年代指標成分データを用いて、各端成分の年代指標成分濃度・同位体比の外挿を試みた。なお、多変量解析による計算のうち、図1.1.2.3-7で示した下記の3通りの結果について評価した。

- (a) 主要溶存元素濃度の分布から想定した端成分の値を用い、各地下水の端成分ごとの混合割合のみを最小二乗法により求める。
- (b) すべての地下水試料の主成分得点を内包し、かつ面積が最小となる3つの点を仮定したときの混合割合を用いて、端成分組成を最小二乗法により求める。
- (c) (b)を初期条件として、選択した元素についての端成分組成と混合割合の両方を最小二乗法によって同時に求め、そこで得た混合割合からその他の元素の組成を求める。

主成分分析は主要溶存元素であるNa, K, Mg, Ca, Cl, HCO₃の濃度データを用いて行った。また、(c)では、Na, Ca, Cl, HCO₃を選択して計算を行い、その後、残りの元素の組成について計算した。

それぞれのモデル計算で端成分および混合割合の計算結果が大きく異なっている(図1.1.2.4-12a~図1.1.2.4-12c)。端成分Aにおいては、年代指標成分の寄与率がモデルにより異なり、(a)のモデルの場合は⁴He濃度が低く若い水であることが類推されるが、(c)モデルでは外挿値がいくらになるか不明瞭となっている。また、端成分Bの寄与率はどのモデルも低く外挿が困難であるため、有意の年代指標値は得られない。端成分Aと端成分Bはいずれも溶存成分の少ない淡水系であり、端成分計算値により各地下水中のそれぞれの成分の寄与率が相互に変動するためである可能性が考えられる。端成分Cについてはどのモデルも類似した傾向が見られる。ただし、現在の海水に近い³⁶Cl/Clを持つ地下水(1.3 - 1.7 × 10⁻¹⁵)から、古い時期の海進時に取り込まれた海水が現在示すと思われる高い³⁶Cl/Clを持つ地下水(6.8 - 7.2 × 10⁻¹⁵)まで値がばらつく。また端成分Cの¹⁴C濃度は20 pMC程度のやや古い(1万数千年)年代を示し、⁴He濃度も高い傾向にある。比較的最近の海水が混合している地下水と、古い時代の海水を含む地下水があることが示されている。

重回帰分析による端成分の化学組成の計算では、地下水データセットにない水質であるCaCl型の組成を示す端成分があった。実際の地下水試料では見られない水質を示す端成分が計算されることは、大阪平野において実施した解析でも見られた(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2014)。3成分混合系の計算では、溶存成分濃度の低い地下水においてCa²⁺濃度のばらつきがあるにもかかわらず低溶存成分の端成分を1つの組成で代表させているため、重回帰分析によって低濃度側のCa²⁺濃度(およびNa⁺濃度)のばらつきを説明できる端成分を探した結果、高濃度かつ相対的にCa²⁺の比率の高い成分が得られたものと思われる。

本手法では、多成分混合系における端成分それぞれの地下水年代を推定するため、本来の混合よりも端成分を少なくして多変量解析を実施せざるを得ないこともあり、端成分の化学組成および各地下水の端成分の混合割合の計算結果がモデルごとに大きく異なった可能性がある。より多くの端成分が考えられる場合は地下水水質の地域分布をより詳細に吟味し、解析対象となる地域をより詳細に区分けするなどによって、この問題を解消できるかも知れない。

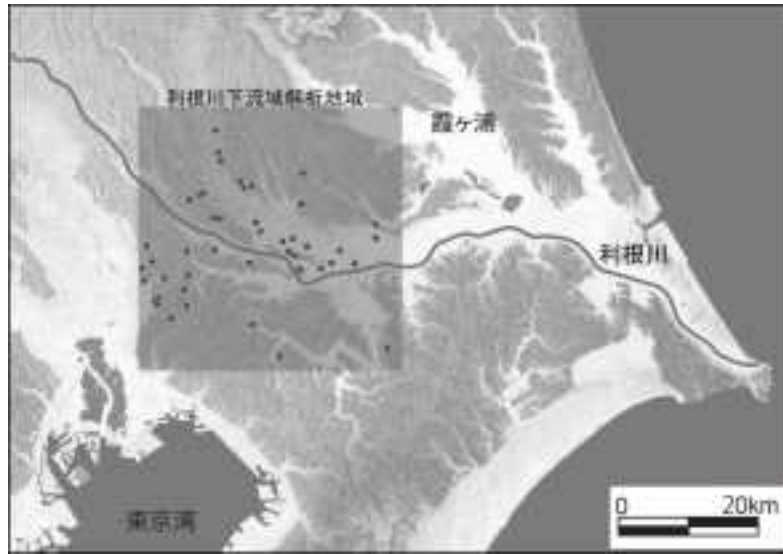


図 1.1.2.4-8 利根川下流解析地域.

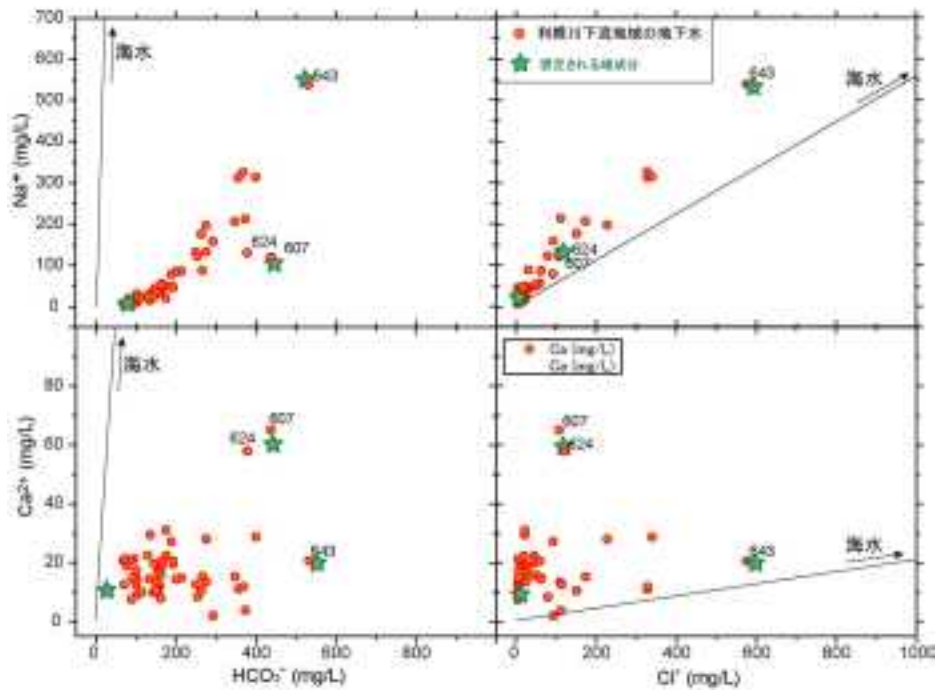


図 1.1.2.4-9 利根川下流地域の地下水における $\text{Na}^+ \cdot \text{Ca}^{2+}$ と $\text{Cl}^- \cdot \text{HCO}_3^-$ 濃度の関係.

図中の番号は試料 No.

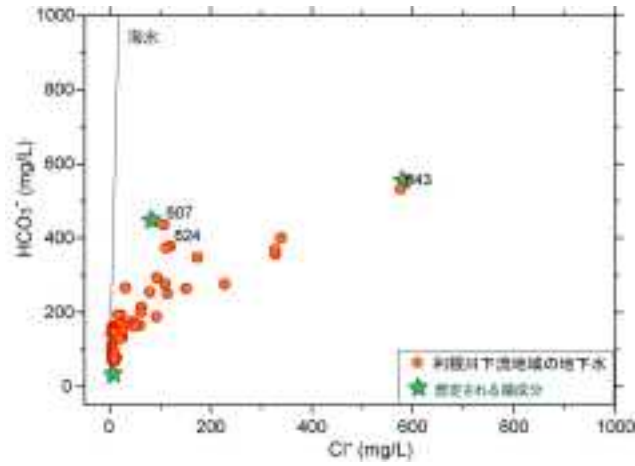


図 1.1.2.4-10 利根川下流地域の地下水における Cl^- と HCO_3^- 濃度の関係。
図中の番号は試料 No.



図 1.1.2.4-11 利根川下流地域の地下水における主成分分析の結果。
主要化学成分 K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Cl^- , HCO_3^- のデータを用いた場合。☆は図1.1.2.4-9, 図1.1.2.4-10のプロットより想定された端成分値。図中の番号は試料No.

表 1.1.2.4-2 利根川下流地域の地下水試料に対して想定される端成分と混合解析によって得た混合端成分の水質組成.

(a), (b), (c) は本文中の計算ステップに対応.

	Na ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻	HCO ₃ ⁻	NO ₃ ⁻
<i>Case (a)</i>								
端成分A	6.0	3.0	5.0	10.0	5.0	0.0	70.0	0.0
端成分B	120.0	40.0	20.0	60.0	100.0	0.0	450.0	0.0
端成分C	540.0	20.0	10.0	20.0	560.0	0.0	550.0	0.0
<i>Case (b)</i>								
端成分A	5.0	5.0	5.0	5.0	8.9	0.0	40.3	0.0
端成分B	28.3	17.5	14.4	52.4	6.0	0.0	293.4	0.0
端成分C	466.0	20.5	7.6	7.0	439.7	0.0	537.8	0.0
<i>Case (c)</i>								
端成分A	18.5	5.0	5.0	5.0	5.0	0.0	90.7	0.0
端成分B	5.0	20.4	15.4	81.5	10.4	0.0	317.4	0.0
端成分C	2836.8	121.9	39.7	5.0	2845.4	0.0	2709.9	0.0

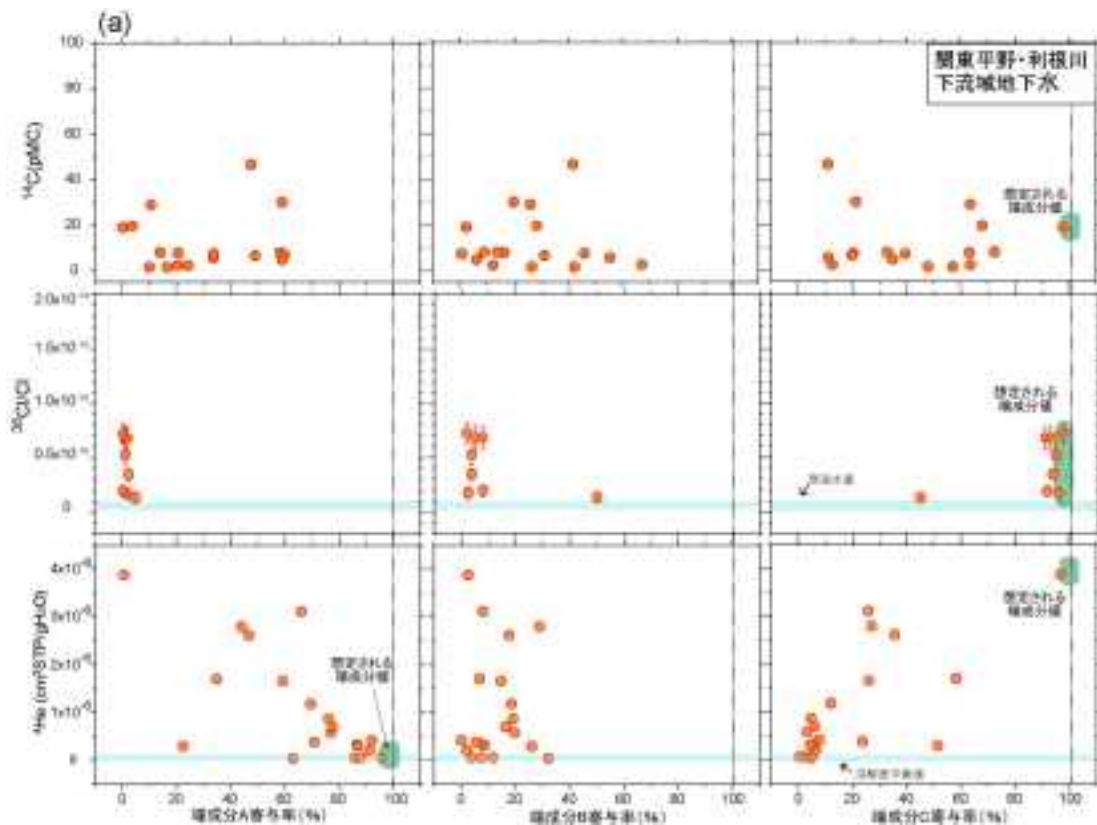


図1.1.2.4-12(a)~(c) 利根川下流地域の地下水試料における多変量解析によって得られた端成分 (A, B, C) の各年代指標成分の寄与率と¹⁴C濃度、³⁶Cl/Cl、および⁴He濃度の関係。(a), (b), (c)は本文中の計算ステップごとの結果(a), (b), (c)に対応.

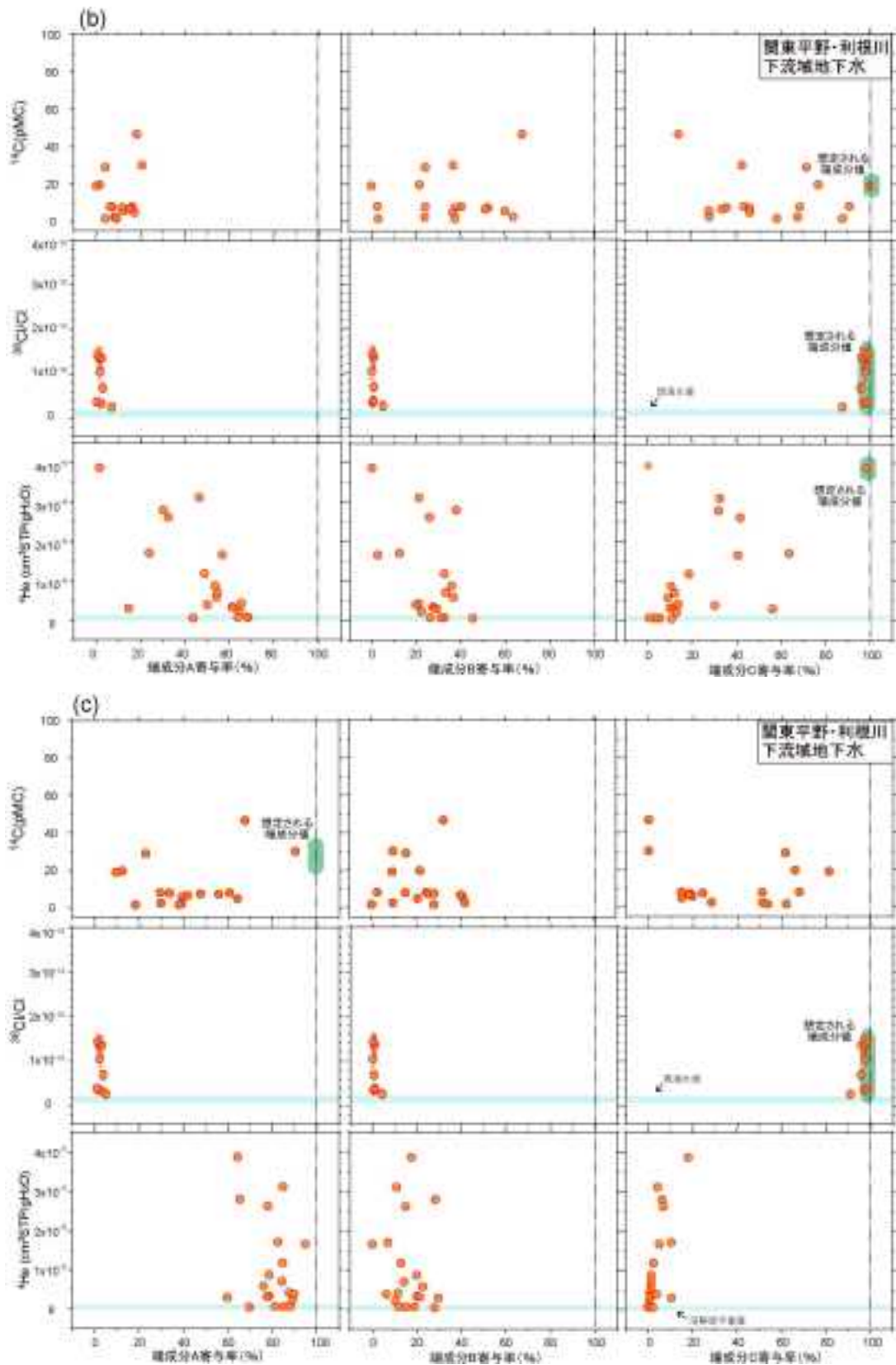


図1.1.2.4-12(a)~(c) 利根川下流域の地下水試料における多変量解析によって得られた端成分 (A, B, C) の各年代指標成分の寄与率と ^{14}C 濃度, $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$, および ^4He 濃度の関係。(a), (b), (c)は本文中の計算ステップごとの結果(a), (b), (c)に対応。

1.1.3 混合を起こした地下水の年代評価手法における必要事項の検討および取りまとめ

【実施内容】

平成 25 年度までに整備された、地下水の混合関係や混合年代等を評価する各種手法に関し、地下水混合、地下水年代の情報により考えられる流動系の把握など、精密調査地区選定段階における基本方針等の妥当性を確認するために必要な事項について検討を行い、取りまとめる。以上の成果は、原子力規制委員会が作成する概要調査結果の判断指標あるいは技術指針に反映される。

【成果】

1.1.3.1 地下水混合事例の整理

1) 地下水混合の起き得る場および混合前の考え得る端成分について

地下水混合は、人為的影響で地下水流動状況が変化することにより起こる場合と自然発生的に起きる場合とがある。前者では、掘削による浅層地下水の深層への侵入、地下施設建設に伴う地下水流動状態の変化などが考えられる。後者では、沿岸域など異なる起源の水が存在しうる場において、これらが混合する場合や断層などの存在による帯水層間での地下水の交流および深層からの流体の混入などが考えられる。

混合前の端成分は、大きく分けて天水と海水、深部流体に分けられる。天水・海水ともに比較的最近に涵養・侵入し地下水となったものと、地層堆積時に捕獲された化石水・化石海水、地層堆積時ではないが、古い時代に涵養・侵入した地下水がある。地下水水質の長期的変化および地下水流動状態の変動を予測する上では、混合を起こす前の地下水の起源とともに、それらの端成分自体の変動を予測する必要がある。つまり、概要調査結果の判断指標の一つとして腐食性の強い高塩濃度の端成分が今後も供給されうるかどうか、循環性を持つ若い地下水があるかどうか、あるいは停滞性の地下水かを判断する必要がある。

2) 地下水混合の有無の判断について

地下水混合の事例を表 1.1.3.1-1 に示した。ここでは、それに基づき、地下水混合が起きていることを判断する指標を示す。

表 1.1.3.1-1 国内外における地下水混合解析に関する研究の一例.

文献	混合解析手法および混合であることの判定方法	調査地域	採取試料	塩成分、年代情報等
主に多変量解析手法による研究				
森田ほか(1991)	多変量解析	岩手県釜石能山	鉱山の坑道からの地下水	6つの水質に区分、年代情報なし。
安池(1994)	多変量解析	記載無し	掘削孔からの地下水	3つの塩成分に区分、年代情報なし。
Laukoahoju et al. (1999) Matharín et al. (2012)	多変量解析(MI)	スウェーデン・Äspoサイト	地下施設・掘削孔からの地下水	掘削水、表層水、水河の降水、海水、起源不明の塩水の地下水等の混合。年代測定ではなく、起源・年代のわかっていない水を構成成分にしている。起源不明の塩水についての年代情報は無い。
阿島ほか(2005)	多変量解析(MI)	岐阜県瑞穂超深地帯研究所	地下施設・掘削孔からの地下水	掘削水、表層水、堆積岩の中の地下水、花崗岩底部・深部の地下水等の混合、年代情報なし。
奥田ほか(2008)	多変量解析、硫黄同位体($\delta^{34}\text{S}$)	北海道函館市周辺	深層地下水	海水、深層地下水などの混入、年代情報なし。
主に水質・同位体からの解析				
Kamerling et al. (1991)	トリチウム- ^3H 年代と ^4He 濃度	高・コラ半島	堆積盆地の中の2つの帯水層からの自噴井	十数年程度の若い水と10万年程度の古い水の混合。
Mahara et al. (2001)	水質の経時変化	スウェーデン・Äspoサイト	地下施設・掘削孔からの地下水	高Cl ⁻ 濃度の古い海水に淡水起源の地下水、バルト海の海水が侵入(He濃度、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$)。
Toth and Katz(2000)	CFCs、トリチウム年代の不一致	米・フロリダ(カルスト地帯の湧泉)	湧水(Floridan aquifer)	CaHCO ₃ 型とNaCl型、その中間の組成を持つ湧水。1980-1990年代に消費された塩水とより古い核実験以前時代の塩水の混合。
Quesada et al. (2006)	化学・同位体組成(C、He、Cl)からの解析	コスタリカ・Barva火山の麓(La Selva Biological Station)	湧井戸、湧水、湧泉水など	^{13}C が100‰以上のLocalな天水と、2000-4000年の年代を持つ古い基盤の中の地下水の混合。
Solomon et al. (2010)	CFCs、トリチウム濃度の混合モデル	コスタリカ・Barva火山の麓(La Selva Biological Station)	湧井戸、湧水、湧泉水など	0~10年の若い水と1000年以上の年代を持つ古い水の混合。
Hofman and Cartwright (2013)	帯水層地質と水質の比較、 ^{13}C 分布	Gippsland Basin (オーストラリア南東部)	6つの帯水層からの透層から望層井戸(数10~1000m)	^{13}C 濃度の分布より、透層-望層の帯水層間で地下水混合が起こっていることが示唆された。
小野理か(2014)	水質変化と水位の変動、多変量解析から	熊本県荒尾市沿岸部	近傍に海底鉱山(現在は閉鉱)のある沿岸部の地下水(浅層地下水、海水)	平均消費年代1930~1940年の淡水地下水と1972~1999年の塩水の混合。

2)-1 同一地点における水質などの経時変化からの判断事例

地下水混合が起こる顕著な例として、地下施設建設に伴う水質の変化が挙げられる。掘削孔や地下施設の採水地点において、同一地点で連続的に地下水をモニタリングしている場合、地下水水質の経時的変化が観測される場合がある。この場合、原位置にすでに存在していた地下水に加えて異なる起源を持つ地下水が混入してきたものと思われる。

Mahara *et al.* (2001) では、バルト海沿岸の Äspo サイトにおける 1995 年から 1997 年の地下水の水質や水素-酸素同位体比、ヘリウム同位体比、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の調査より、坑道掘削の影響によって原位置にあった古い塩水に比較的若い天水とバルト海の海水が侵入してきたことを報告している(図 1.1.3.1-1)。

上記とは逆に、坑道が閉鎖された場合に周辺の地下水の水位や水質が変化し、起源の異なる地下水が侵入してきた例もある。小野理か (2014) では海底鉱山の閉鎖に伴い沿岸部の地下水の塩水化が報告されている。

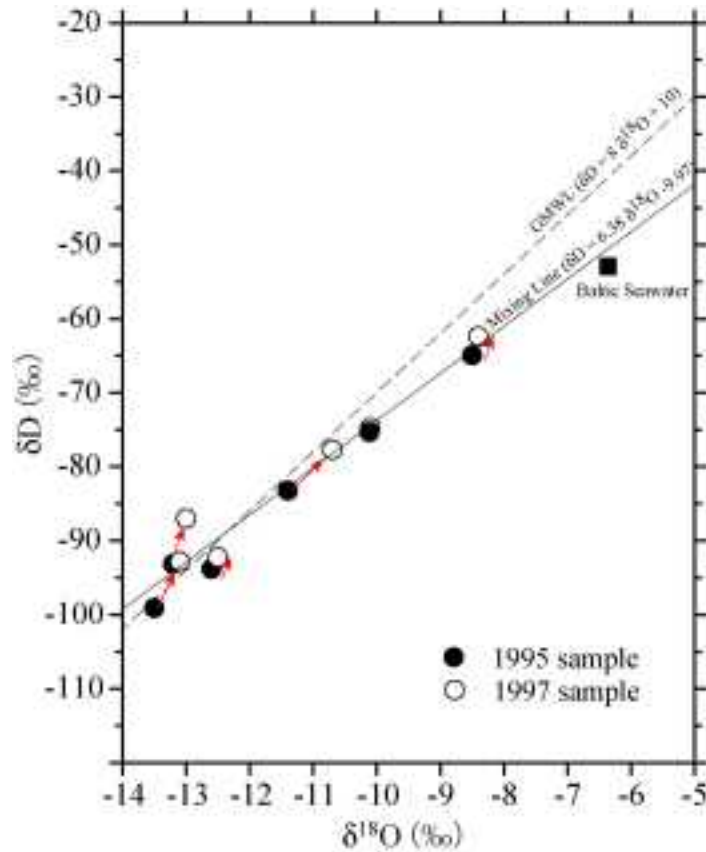


図 1.1.3.1-1 Äspo サイトの地下水における坑道掘削の影響による水素-酸素同位体比の変化。

●は 1995 年採取試料, ○は 1997 年採取試料. Mahara *et al.* (2001) の図を改変。

2) -2 水質, 同位体からの判断事例

水質, 同位体からの地下水混合判断としては, 淡水と海水が混合した場合の水素-酸素同位体プロットが挙げられる。日本列島の多くの天水の水素および酸素同位体比がそれぞれ約 -80 ~ -30‰, 約 -13 ~ -5‰の範囲に入るのに対し (Mizota and Kusakabe, 1994), 海水は水素・酸素同位体とも 0‰ 周辺と大きく異なる。そのため, 水素-酸素同位体プロット上で天水の範囲から原点方向にずれる場合は海水の混合が考えられる。ただし, 海水成分の混入率が少ない場合は判別しにくい。また, 有馬温泉に代表される有馬型熱水は水素および酸素同位体比がそれぞれ約 -33‰, +6‰ 周辺と考えられるため (Kusuda *et al.*, 2014), 水素-酸素同位体は天水と有馬型熱水の混合を示す証拠としてもよく用いられる。また, 水素同位体あるいは酸素同位体と Cl⁻ 濃度の関係から天水と混ざった有馬型熱水端成分値の推定もよく行われている (例えば, Matsubaya *et al.*, 1973)。

水素-酸素同位体プロットのみならず, 異なる元素間で濃度・同位体の特徴に相関がある場合なども地下水混合を示す目安となる。例えば, 関東平野・埼玉県東部の綾瀬川断層北東側の地下水では ⁴He 濃度と Cl⁻ 濃度の間により正の相関があり, 天水と年代の古い海水の少なくとも 2 種類の地下水の混合であることが示唆されている (図 1.1.3.1-2; 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2010)。同様の解析方法は, コスタリカ・Barva 火山麓における地下水についても行われている。多くの地下水のデータより, C, Cl, He 等の溶存元素が 2 成分混合の傾向が示され, ¹⁴C 濃度の分布より, ¹⁴C が 100pMC 以上に及ぶこの地域の天水と, 2,000 ~ 4,000 年の年代を示す古い基盤岩の中の地下水の混合であることが示されている (Genereux *et al.*, 2009)。ただしこれらは, 定型のパターンがあるわけではなく, 得られたデータセットより様々なプロットから混合の有無を見いだす必要

がある。

溶存化学成分を用いた多くの多変量解析では、当該地域に存在する地下水を端成分として地下水の混合を論じている。例えば、Laaksoharju *et al.* (2008) や Mathurin *et al.* (2012) では、スウェーデン Forsmark や Äspo サイトにおいて地下施設や掘削孔からの地下水の多変量解析の結果と、この地域において考えられる端成分（表層水、氷河の融水、海水、過去の海水、起源不明の深層塩水）の水質から地下水混合を論じている。同様の解析は阿島ほか (2006) において岐阜県瑞浪超深地層研究所においても行われている。

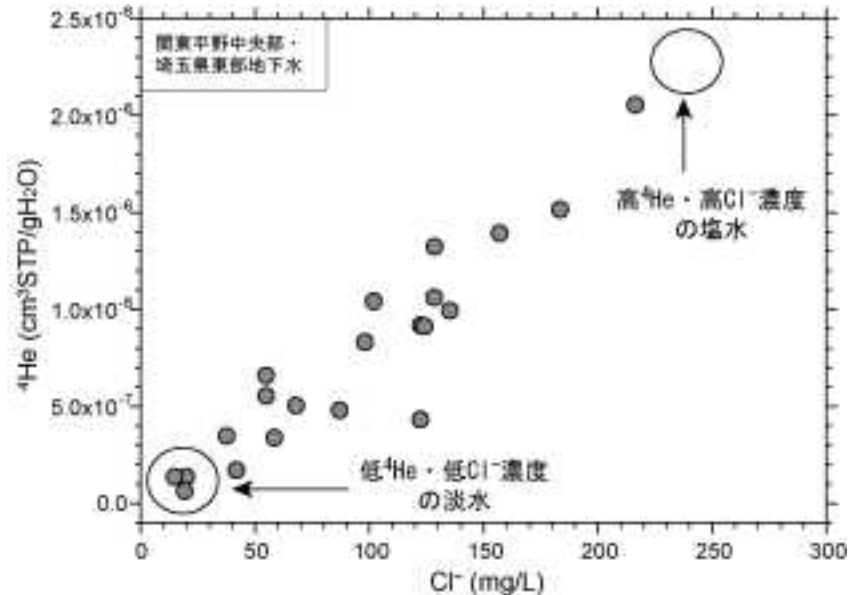


図 1.1.3.1-2 関東平野・埼玉県東部の綾瀬川断層北東側の地下水における Cl^- 濃度と ^4He 濃度の関係 (産業技術総合研究所 深部地質環境研究コア, 2010).

2) -3 年代指標成分からの判断事例

年代指標成分による地下水混合は、トリチウムや CFCs およびそれらを組み合わせた議論が多い。しかし、若い地下水同士の混合であるのでここでは取り上げない。

1.1.2.1.-2) 項に示したように、異なる年代を持つ地下水が混合した場合、年代指標成分濃度に矛盾が生ずることが起こりうる。図 1.1.3.1-3 に大阪平野西部・東部の地下水のトリチウム濃度と ^{14}C 濃度を示した。混合のない放射壊変のみによる濃度の変化曲線上には地下水のデータはプロットされず、トリチウムが検出されるにもかかわらず ^{14}C 年代の古い方向にずれる試料が多い。そしてこれはトリチウムを含む若い水と ^{14}C 濃度の低い古い水のいくつかの混合線の傾向とよく似ている。図 1.1.3.1-3 のみでは一概に混合と断定できるわけではないが、化学組成・他の年代指標元素のデータと照らし合わせることによって混合の有無について見る指標となる。また、Hofmann and Cartwright (2013) は、オーストラリア南東部の Gippsland 盆地において、複数の帯水層からの地下水の水質や Sr 同位体、トリチウム濃度、 ^{14}C 濃度の結果を解析している。想定される地下水の流動方向と ^{14}C 濃度の傾向に不一致が見られ、帯水層間での異なる地下水の交流・混合があることを示した。

なお、年代指標成分からの混合の年代に関する議論は現時点ではせいぜい 2 成分の混合のみである。

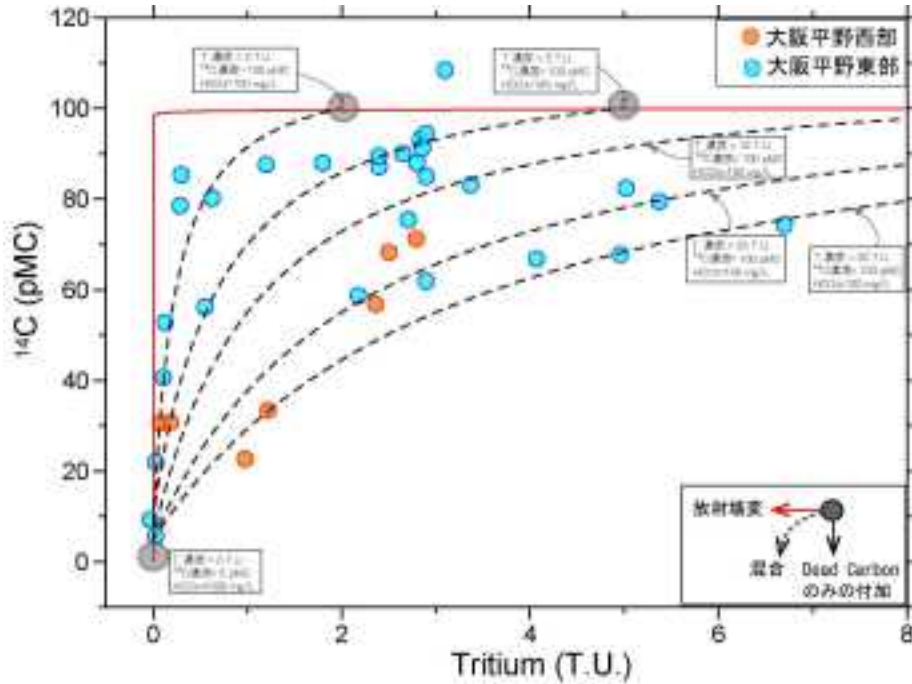


図 1.1.3.1-3 大阪平野浅層地下水のトリチウム濃度と ^{14}C 濃度の関係。

点線は、トリチウムを含む地下水とトリチウムを含まない古い地下水の混合線を示す。古い地下水の端成分はトリチウム濃度= 0, HCO_3^- 濃度を1,000 mg/L, ^{14}C 濃度を5 pMC (約25,000年に相当) とし、若い地下水の端成分のトリチウム濃度を 2, 5, 10, 20, 30 T.U., HCO_3^- 濃度を100 mg/L, ^{14}C 濃度を100 pMCとした。 HCO_3^- 濃度はこの地域の実測値を参考にして設定した。赤の実線は、放射壊変に伴うトリチウム濃度および ^{14}C 濃度変化を示す (トリチウムおよび ^{14}C の初期濃度をそれぞれ 10 T.U., 100 pMCとした)。

1.1.3.2 混合を起こした地下水系での年代情報の意義と年代解析の現状

1) 混合を起こした地下水系での年代情報の意義

前記のように、起源の全く異なる地下水が混合した系において、地下水の平均年代は意味あるものではない。以下に示すように、混合した端成分ごとの年代情報を得て、地下水流動状態および水質の長期的変動を予測する必要がある。

- ・沿岸域の海水が侵入している高 Cl^- 濃度地下水系においては、海水がこれからも供給されることにより高 Cl^- 濃度が維持されて腐食性の強い水質を維持するかあるいは、淡水方向に変化していくかを予測することが重要となる。そのためには、海水成分が地層堆積時に捕獲された海水か、より新しい時代の海水が侵入してきたもので今後も供給があるかを明らかにする必要がある。このためには海水成分の年代を知る必要がある。また、地下水の流動性を見積もる上で淡水成分の年代も必要となる。
- ・高 Cl^- 濃度の深部流体が混合する系においては、深部流体成分がこれからもどの程度供給されるか、それにより地下水の高 Cl^- 濃度が維持されて腐食性の強い水質を維持するかを予測することが重要となる。深部流体の混合による地下水水質の変動予測のためには、深部流体の化学組成とともに、今後、深部流体が地下水系に供給されつづけるか、その場合、期間がどれぐらいか、供給量の変化などを見積もる必要がある。そのためには、深部流体の混入量と地下水の年代が必要となる。
- ・淡水系の地下水においても起源の異なる地下水が混合した系においては、地下水の平均年代は意味あるものではない。若い地下水の指標となるトリチウム濃度が含まれる一方で、 ^{14}C 濃度からは古

い年代を示す地下水がある。これらは、掘削に伴う掘削水・浅層地下水が混入した証拠となる。

2) 混合を起こした地下水系での年代解析の現状と課題

処分地深度相当における地下水年代解析の現状と課題をまとめると以下ようになる。

- ・混合を起こした地下水の年代手法開発以前に、各地下水年代測定手法は、それぞれ対象とする帯水層の地質・地下水水質によって適用性が限られるかあるいは、年代値の誤差が増大する。各手法の適用に必要な様々なパラメータの取得や補正法の向上などによる年代精度の向上は依然として必要である。
- ・海水－淡水系の地下水混合系に関しては、産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2011)において地下水の³⁶Cl/Clおよび⁴He濃度を用いた手法を提案した。帯水層地質の違いによりこの手法の誤差などは大きく異なる。結晶質岩地域においては、³⁶Cl/Clによる海水の侵入年代測定に利点がある一方で、⁴He年代による淡水年代の見積もりは難しい。堆積岩地域においては、³⁶Cl/Cl放射平衡値が一般的にやや低めで、海水の侵入年代の誤差が大きくなる。またこの手法は海水－淡水の2成分混合を考えているため、年代の異なる海水が混ざっている場合はさらなる手法の整備が必要である。
- ・多成分混合系については地下水の混合状況を知る方法として、多変量解析による解析法が多く提案されている(例えば、Laaksoharju *et al.*, 1999; 柴田ほか, 2008; Tsurumi, 1982)。しかし、これらは該当地域の地下水の溶存化学成分・同位体などをくまなく説明するために水質データを統計学的に処理し、端成分の化学組成を導き出すものであるが、年代に関する情報は解析されていない。
- ・産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2012, 2013, 2014)および本報告において、多成分混合系における地下水年代解析のために多変量解析によって得られた3つの端成分それぞれの地下水年代を推定する試みを行った。ある程度端成分を単純化(端成分を減らす)させて年代解析を行った場合、端成分および各地下水の端成分の混合割合の計算に不確実性が大きくなる結果が得られる場合がある。その場合、端成分に関するより詳細な吟味や、解析対象となる地域のより詳細な設定が必要である。
- ・深部流体の混合系については、深部流体が高Cl濃度であることやヘリウム同位体の特徴があることを考えると³⁶Cl/Clおよび⁴He濃度を用いた手法を利用できる可能性が考えられる。ただし、深部流体の化学組成が明らかとなっている必要がある。Morikawa *et al.* (2005)では、神戸市街地深層における有馬型熱水が混合した系において滞留時間の推定法を提案しているが、海水とは異なり、深部流体の組成の地域依存性や⁴He濃度が未知であることを考えると、さらなる手法の整備・検討が必要である。深部流体の混合系については、まだ年代解析法は出されていない。

【まとめと今後の課題】

混合を起こした地下水の年代評価手法の開発のため、多成分系における地下水年代推定手法の適用として、関東平野利根川下流地域における年代解析を新たに行った。そして、平成25年度までに整備された地下水の混合関係や混合年代等を評価する各種手法に関し、以下の点を検討し、取りまとめを行った。

- ・各種地下水年代測定手法の概要整理および適用する地域の地下水水質・地質の違い等に起因する課題の抽出。
- ・混合を起こした地下水に対する年代評価手法として、淡水－海水の混合地下水系における淡水・海水それぞれの地下水年代を測定する手法の原理、適用に当たった地下水水質・対象地域の地質の違いによる不確実性の整理、多成分混合系における地下水の年代評価手法の概要整理。

- ・ 上記混合年代評価手法の適用事例の整理
- ・ 地下水混合事例および地下水混合であることの判断基準の整理

混合を起こした地下水年代の評価にかかる今後の課題としては、以下のような点がある。

- ・ 各地下水年代測定手法は、その適用性・精度の向上が依然として必要である。
- ・ 海水－淡水系の地下水混合系に関しては帯水層地質の違いにより年代値の誤差が大きく異なる。複数の高Cl濃度地下水が混合している場合の年代値の扱いに関してはまだ行われていない。
- ・ 多成分混合系における地下水年代解析は、ある程度端成分を単純化させて年代解析を行った場合、端成分および各地下水の端成分の混合割合の計算に不確実性が大きくなり、その結果年代値の結果が不鮮明になる場合がある。
- ・ 深部流体の混合系については、深部流体そのものの組成がまだ明確ではないこともあり、年代解析法はほとんど出されていない。手法の整備・検討が必要である。

【引用文献】

- 阿島秀司・戸高法文・岩月輝希・古江良治 (2006) 多変量解析による瑞浪超深地層研究所周辺の地下水化学モデルの構築. 応用地質, 47, 120-130.
- Clark, I. D. and Fritz, P. (1997) Environmental Isotopes in Hydrogeology. New York, Lewis Publishers, 328 p.
- Coetsiers, M. and Walraevens, K. (2009) A new correction model for ^{14}C ages in aquifers with complex geochemistry - Application to the Neogene Aquifer, Belgium. Appl. Geochem., 24, no. 5, 768-776, doi:710.1016/j.apgeochem.2009.1001.1003.
- Fontes, J. C. and Garnier, J. M. (1979) Determination of the initial ^{14}C activity of the total dissolved carbon -review of the existing models and a new approach. Water Resour. Res., 15, no. 2, 399-413, doi:310.1029/WR1015i1002p00399.
- Genereux, D. P., Webb, M. and Solomon, D. K. (2009) Chemical and isotopic signature of old groundwater and magmatic solutes in a Costa Rican rain forest: Evidence from carbon, helium, and chlorine. Water Resour. Res., 45, doi:10.1029/2008wr007630.
- Hofmann, H. and Cartwright, I. (2013) Using hydrogeochemistry to understand inter-aquifer mixing in the on-shore part of the Gippsland Basin, southeast Australia. Appl. Geochem., 33, 84-103, doi:110.1016/j.apgeochem.2013.1002.1004.
- Kamensky, I. L., Tokarev, I. V. and Tolstikhin, I. N. (1991) ^3H - ^3He dating: A case study for mixing of young and old groundwaters. Geochim. Cosmochim. Acta, 55, no. 10, 2895-2899, doi:2810.1016/0016-7037(2891)90454-d.
- Kusuda, C., Iwamori, H., Nakamura, H., Kazahaya, K. and Morikawa, N. (2014) Arima hot spring waters as a deep-seated brine from subducting slab. Earth Planets Space, 66, 119, 110.1186/1880-5981-1166-1119.
- Laaksoharju, M., Gascoyne, M. and Gurban, I. (2008) Understanding groundwater chemistry using mixing models. Appl. Geochem., 23, no. 7, 1921-1940, doi:1910.1016/j.apgeochem.2008.1902.1018.
- Laaksoharju, M., Skarman, C. and Skarman, E. (1999) Multivariate mixing and mass balance (M3) calculations, a new tool for decoding hydrogeochemical information. Appl. Geochem., 14, no. 7, 861-871, doi:810.1016/s0883-2927(1099)00024-00024.

- Mahara, Y., Igarashi, T., Hasegawa, T., Miyakawa, K., Tanaka, Y. and Kiho, K. (2001) Dynamic changes in hydrogeochemical conditions caused by tunnel excavation at the Aspo Hard Rock Laboratory (HRL), Sweden. *Appl. Geochem.*, 16, no. 3, 291-315, doi:210.1016/s0883-2927(1000)00032-00039.
- Mathurin, F. A., Astrom, M. E., Laaksoharju, M., Kalinowski, B. E. and Tullborg, E. L. (2012) Effect of Tunnel Excavation on Source and Mixing of Groundwater in a Coastal Granitoidic Fracture Network. *Environ. Sci. Technol.*, 46, no. 23, 12779-12786, doi:12710.11021/es301722b.
- Matsubaya, O., Sakai, H., Kusachi, I. and Satake, H. (1973) Hydrogen and oxygen isotopic ratios and major element chemistry of Japanese thermal water systems *Geochemical Journal*, 7, no. 3, 123-151.
- Mizota, C. and Kusakabe, M. (1994) Spatial-distribution of dD-d18O values of surface and shallow groundwaters from Japan, south Korea and east China. *Geochemical Journal*, 28, no. 5, 387-410.
- Morikawa, N., Kazahaya, K., Yasuhara, M., Inamura, A., Nagao, K., Sumino, H. and Ohwada, M. (2005) Estimation of groundwater residence time in a geologically active region by coupling ⁴He concentration with helium isotopic ratios. *Geophys. Res. Lett.*, 32, no. 2, doi:10.1029/2004gl021501.
- 森川徳敏・戸崎裕貴 (2013) 非常に古い地下水年代測定のための日本列島の帯水層岩石を対象にしたヘリウム同位体生成速度および放射性塩素同位体放射平衡値データ集. 地質調査総合センター研究資料集, 582.
- 森川徳敏・安原正也・戸崎裕貴・高橋浩・高橋正明・稲村明彦・益田晴恵・三田村宗樹 (2014) 大阪平野淀川周辺における浅層地下水の高塩濃度成分の年代に関する研究. *Proceedings of the Kansai Geo-Symposium 2014*, 61-66.
- 森田誠也・嶋田純・長久 (1991) 深部結晶質岩中の地下水の化学的特性とその挙動 (その1) - 岩手県釜石鉾山大峰地域における地下水の水質と分類 -. *応用地質*, 32, 155-166.
- 小野昌彦・本高雄大・嶋田純・長谷川琢磨・中田弘太郎・利部慎・工藤圭史 (2014) 沿岸域における地下水位の回復に伴う地下水塩水化現象の解明 - 熊本県荒尾市における事例 -. *地下水学会誌*, 56, 189-208.
- Ramsey, C. B. (2009) Bayesian analysis of radiocarbon dates. *Radiocarbon*, 51, no. 1, 337-360.
- Reimer, P. J., Baillie, M. G. L., Bard, E., Bayliss, A., Beck, J. W., Bertrand, C. J. H., Blackwell, P. G., Buck, C. E., Burr, G. S., Cutler, K. B., Damon, P. E., Edwards, R. L., Fairbanks, R. G., Friedrich, M., Guilderson, T. P., Hogg, A. G., Hughen, K. A., Kromer, B., McCormac, G., Manning, S., Ramsey, C. B., Reimer, R. W., Remmele, S., Southon, J. R., Stuiver, M., Talamo, S., Taylor, F. W., van der Plicht, J. and Weyhenmeyer, C. E. (2004) IntCal04 terrestrial radiocarbon age calibration, 0-26 cal kyr BP. *Radiocarbon*, 46, no. 3, 1029-1058.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2008) 地質処分に係る地質情報データの整備：平成19年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2009) 地質処分に係る地質情報データの整備：平成20年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2010) 地質処分に係る地質情報データの整備：平成21年度事業報告書.

- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2011) 地層処分に係る地質評価手法等の整備：平成22年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2012) 地層処分に係る地質評価手法等の整備：平成23年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2013) 地層処分に係る地質評価手法等の整備：平成24年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2014) 地層処分に係る地質評価手法等の整備（水理関連情報の整備）：平成25年度事業報告書.
- Sano, Y. (1986) Helium flux from the solid earth. *Geochemical Journal*, 20, 227-232.
- 柴田智郎・丸岡照幸・高橋徹哉・松田准一 (2008) 多変量解析法を用いた北海道函館平野における深部地下水の供給源の推定. *地球化学*, 42, 13-21.
- Solomon, D. K., Genereux, D. P., Plummer, L. N. and Busenberg, E. (2010) Testing mixing models of old and young groundwater in a tropical lowland rain forest with environmental tracers. *Water Resour. Res.*, 46, doi:10.1029/2009wr008341.
- Stuiver, M. and Polach, H. A. (1977) Reporting of C-14 Data - Discussion. *Radiocarbon*, 19, no. 3, 355-363.
- Torgersen, T. (1989) Terrestrial helium degassing fluxes and the atmospheric helium budget - Implications with respect to the degassing processes of continental-crust. *Chem. Geol.*, 79, no. 1, 1-14, doi:10.1016/0168-9622(1089)90002-x.
- Toth, D. J. and Katz, B. G. (2006) Mixing of shallow and deep groundwater as indicated by the chemistry and age of karstic springs. *Hydrogeol. J.*, 14, no. 6, 1060-1080, doi:10.1007/s10040-10006-10099-z.
- Tsurumi, M. (1982) Self-consistent least-squares method of estimating chemical composition of the sources of chemical constituents in natural waters. *Anal. Chim. Acta*, 138, no. JUN, 177-182, doi:10.1016/s0003-2670(1001)85300-85309.
- 内山美恵子・三田村宗樹・吉川周作 (2001) 大阪平野中央部，上町断層の変位速度と基盤ブロックの運動. *地質学雑誌*, 107, 228-336.
- 安池慎治 (1994) 多変量解析を用いた地下水の混合状況の推定手法の開発－結晶質岩体内の地下水水質データへの適用－. *地下水学会誌*, 36, 405-422.

1.2 我が国の深層地下水の実態把握とデータベース化

各種の調査で既に判明している日本各地の深層地下水の特性(性状、流量、成分等)を整理し、深層地下水データベースを更新するとともに、深層地下水に係る各種評価用パラメータを地下水地理情報データベースとして整備する。

平成25年度までに、深層地下水に関する水理・水文・地化学パラメータに関する情報収集を行うとともに、既存地下水試料の分析を行い、品質管理のためのデータ評価の検討結果を含めてデータベースへの登録を行った。また、位置情報を付加し地理情報システム(GIS)による深層地下水流出域のデータベース化を進め、地理的分布および成因等を評価できるように整備した。

平成26年度は、平成25年度までに作成された深層地下水データベースについて、各種論文、報告書等(以下「各種文献情報」という)から地下水に関する地化学データを収集するとともに、関東地方内陸部、東北地方太平洋側沿岸部、東海地方および一部の離島等のデータ密度が低い地域において既存井等の地下水採取調査を行い、データベースの拡充および更新を行う。また、これまでに構築した深層地下水の流出域に関するデータについて、各種文献情報等を用いて更新を図り、GIS化することにより、流出域の地理的な分布要因について平成25年度までの成果も踏まえて考察し、精密調査地区選定段階における基本方針等の妥当性を確認する観点から取りまとめを行う。また、地下水移行シナリオにおいて考慮すべき地下水関連パラメータの評価手法の構築に係る課題を取りまとめる。

1.2.1 平成22～26年度の5年間における年度毎の検討結果の概要

[平成22年度]

我が国の深層地下水に関する新規データを収集・分析し、分析データあるいは観測値の品質管理を行い深層地下水データベースに登録した。新規に加えたのは3,027点である。また、本データベースのデータを用いて、処分地周辺における水文地質学的モデルを作成するにあたり評価すべきパラメータのうち、地下水の性状、流動、混合、および年代に関わるパラメータについて検討した。各種パラメータは、地理情報データベースに登録し、日本列島における広域分布状況を示した。また、深層地下水流出域の特徴を抽出するため、過去に明らかに深層地下水が湧出していた地点を日本鑛泉誌(内務省衛生局編纂、1886)から抽出し、その地点における現在の分析データを照合し、その化学および同位体組成の特徴を検討した。その結果、浅層地下水と明らかに異なる水質特徴を有することがわかった。

[平成23年度]

我が国の深層地下水に関する新規データを収集・分析し、分析データあるいは観測値の品質管理を行い深層地下水データベースに登録した。新規に加えたのは3,002件である。また、深層地下水データベースから、自然湧出と確認された温泉、および、開湯が明治時代より前(～1868年)であることが確認された温泉を抽出し、日本鑛泉誌(内務省衛生局編纂、1886)掲載の鉱泉を加えて流出域データベース(1,400件収録)を作成した。さらに、流出域の地質を堆積岩、火山岩、付加体、深成岩、変成岩の5つに分類し、湧出する深層地下水の一般水質組成と比較検討した。その結果、堆積岩ではNa-Cl・SO₄型、火山岩ではNa・Ca-Cl・SO₄型、付加体ではNa-Cl・HCO₃型、データの数は少ないものの変成岩ではNa-Cl型の深層地下水の湧出によって流出域が特徴づけられることがわかった。

[平成24年度]

我が国の深層地下水に関する新規データを収集・分析し、分析データあるいは観測値の品質管理を行い深層地下水データベースに登録した。新規に加えたのは698件である。また、本データベース

のデータを用いて、処分地周辺における水文地質学的モデルを作成するにあたり評価すべきパラメータのうち、地下水の温度に関わるパラメータについて検討した。各種温度パラメータは、地理情報データベースに登録し、日本列島における広域分布状況を示した。また、深層地下水データベースのデータについて、平成 23 年度に引き続き自然湧出の有無、開湯時期等の調査を進め、流出域データベースを拡張更新した (2,200 件収録)。これにより日本列島の全域で流出域の地理的分布および地球化学的特徴に関する概要を把握することができた。

[平成25年度]

我が国の深層地下水に関する新規データを収集・分析し、分析データあるいは観測値の品質管理を行い深層地下水データベースに登録した。新規に加えたのは 2,068 件 (深層地下水試料 1,244 件、文献 824 件) である。また、深層地下水の流出域の分布要因に関する検討を福島県および茨城県北部地域において行った。地球化学的特徴と地形および地質との関連性の検討を行った結果、流出域の約 50 % は断層系に関係して形成されたものであり、断層系の流出域で湧出する深層地下水の多くには水温や塩化物イオン濃度をはじめ特徴的な水質が認められた。特に、断層の屈曲部に形成された流出域は、高温泉 (50°C 以上) で特徴づけられることがわかった。

[平成26年度]

我が国の深層地下水に関する新規データを収集・分析し、分析データあるいは観測値の品質管理を行い深層地下水データベースに登録した。新規に加えたのは 1,617 件 (深層地下水試料 766 件、文献 851 件) であり、現在の登録件数は 27,996 件である。また、流出域データベースに基づいて、近畿～北陸横断面と南東北～信越横断面の流出域について検討を行い、その地理的な分布要因ならびに湧出する深層地下水 (温鉱泉) の地球化学的特徴と地形・地質との関連性を議論した。両地域とも、約 60 % の流出域は断層系に関係して形成されたものと判断された。断層系に関係する流出域から湧出する深層地下水は、水温、pH、塩化物イオン、硫酸イオン等、その地域の地下深部に賦存する深部起源流体の特徴をよく反映していることが明らかとなった。さらに、地下水移行シナリオにおいて考慮すべき地下水パラメータの評価手法について、処分地から生活圏までの経路と流量および物理化学的性質についてその変動要因の検討を行い取りまとめた。

1.2.2 深層地下水データベースの拡充および更新

【実施内容】

平成25年度までに作成した深層地下水データベースに、新たに各種論文、報告書等から地下水に関する地化学データを収集するとともに、地下水データ密度の低い関東地方内陸部、東北地方太平洋側沿岸部、東海地方および一部の離島等において、既存井等の地下水採取調査を行う。また、各種分析においては、分析精度の向上を計るとともに、データ信頼性の確保のための品質管理を行い、深層地下水データベースの拡充および更新を行う。

また、深層地下水データベースのデータは随時地理情報システムにデータを移行し、各種解析可能なデータとする。以上の成果は、原子力規制委員会が作成する概要調査結果の判断指標あるいは技術指針における基礎資料となる。

【成果】

1.2.2.1 深層地下水試料の採取・分析

平成26年度は、深層地下水データ密度の低い関東地方内陸部（栃木県，群馬県），東北地方太平洋側沿岸部（福島県），東海地方（岐阜県）および一部の離島（北海道奥尻島，新潟県佐渡島）の146地点において、既存井等を用いた深層地下水調査を実施した。調査では地下水試料（146試料）を採取するとともに、温泉分析表や井戸掘削資料などから水質や深度情報を収集し、地下水の付随遊離ガスの有無について確認し、一部については、ガス試料（11試料）の採取を行った。調査で採取した地下水試料および産総研の保有する既存地下水試料（465試料）について、主成分陽イオン・陰イオン組成，同位体組成，全炭酸の炭素同位体比の分析を実施し，ガス試料の主要ガス組成の分析を行った。一部試料については，溶存ガスの希ガス組成，ヘリウム同位体比，遊離ガスの希ガス組成と $^3\text{He}/^4\text{He}$ の分析を実施した。

本年度は，近畿地方の深層地下水の混合および年代に係る基礎データ収集を目的として，放射性炭素同位体比および低レベルトリチウム濃度の分析を行った。また，関東地方の深層地下水の放射性塩素同位体比の分析も行った。放射性塩素同位体比の放射平衡値を求めるため全国の岩石試料について，全岩化学分析を行った。以上のデータは1.1章において活用された。また，産総研が保有する北海道，東北，関東，北陸地方の既存地下水試料について放射性塩素同位体比を測定した。これらのデータは2.2章において活用された。さらに，地下水年代情報の集積のため，関東，北陸，北海道地域の既存地下水試料について放射性炭素同位体比，および，東北，北陸，北海道の既存地下水試料について低レベルトリチウム濃度の分析を行った。これにより沿岸部の代表的地域において地下水年代解析のためのデータが得られた。深層地下水中の硫黄の起源情報収集のため九州地域の既存深層地下水試料の硫黄同位体比の分析を行った。これにより硫黄同位体情報に関しては，まだ不十分な地域があるものの，ほぼ日本列島全域をカバーした。

以上の分析結果は1.2.2.2項で収集した文献データとともに深層地下水データベースに格納した。

1.2.2.2 文献データの収集・編集

平成26年度は，これまでに印刷物として出版された論文，報告書，書籍等から，深層地下水，温泉水と呼ばれる地下水に関する地化学データおよび産業技術総合研究所地質調査総合センターが保有する地下水に関する地化学データを，本データベース作成に活用している。登録した地下水は，温泉水，深度100m以深の地下水，湧水である。湧水は，深層地下水が地表へ湧出した可能性があることから登録対象とした。

既存の深層地下水データベース（産業技術総合研究所深部地質環境研究コア，2014）に，本年

度新規に加えたのは 1,617 件（深層地下水試料 766 件，文献 851 件）である。現在の登録件数は 27,996 件である。また既存データの品質管理のためデータの加除を行った。

1.2.2.3 データの内容

データベース作成のために用意するデータ項目は以下の通り。

<水試料>

試料名，サンプル ID，試料採取場所の名称，試料採取日，試料採取者，地質，緯度・経度（測地系情報含む），標高，pH，水温，電気伝導度，試料採取詳細情報，flow rate，スクリーン深度，孔底深度

化学組成 (Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Li^+ , NH_4^+ , Cl^- , SO_4^{2-} , HCO_3^- , CO_3^{2-} , OH^- , F^- , NO_3^- , NO_2^- , PO_4^{3-} , Br^- , I^- , Si^- , B^{3+} , Al^{3+} , As , Cu^+ , Fe , Fe^{2+} , Fe^{3+} , SiO_2 , Pb^{2+} , Hg^{2+} , Cr^{3+} , Mn^{2+} , Rb^+ , Sr^{2+} , Ba^{2+} , Cs^+ , V , Ga)

同位体組成 ($\delta\text{D_H}_2\text{O}$, $\delta^{18}\text{O_H}_2\text{O}$, $\delta^{13}\text{C_DIC}$, $\delta^{14}\text{C_DIC}$, ^4He , ^{20}Ne , $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$, $^3\text{He}/^4\text{He}$, ^3H , $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$, $\delta\text{D_CH}_4$, $\delta^{13}\text{C_CH}_4$, $\delta^{15}\text{N_N}_2$, $\delta^{34}\text{S_SO}_4$, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$, ^{137}Cs)

<ガス試料>

試料名，サンプル ID，試料採取場所の名称，試料採取日

化学組成 (He , Ne , H_2 , O_2 , Ar , CO_2 , CO , CH_4 (C1), エタン (C2), プロパン (C3), イソブタン (iso-C4), n-ブタン (n-C4), ネオペンタン (neo-C5), イソペンタン (iso-C5), n-ペンタン (n-C5), 2.2ジメチルブタン (2.2DMB), 2.3ジメチルブタン (2.3DMB), 2メチルペンタン (2MP), 3メチルペンタン (3MP), n-ヘキサン (n-C6))

同位体組成 ($\delta^{13}\text{C_CO}_2$, $\delta\text{D_CH}_4$, $\delta^{13}\text{C_CH}_4$, ^4He , ^{20}Ne , ^{22}Ne , ^{36}Ar , ^{40}Ar , ^{84}Kr , ^{132}Xe , $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$, $^3\text{He}/^4\text{He}$).

1.2.2.4 データの公開と品質管理

データベースに登録された情報のうち，試料採取場所の名称，採取場所（緯度，経度），深度情報などが，個人情報に該当する項目となるため，原則非公開とする。

データベースの信頼性を担保するために，以下の基準を満たしたもののみをデータベースに登録した。

- (1) 水温について，試料採取時の記録により，タンクなどに貯留された水の温度を測定したことが確認できたもので，温泉分析書が入手できているものについては，分析書の水温を登録し，温泉分析書が入手できていないものについては，水温の登録を行わない。
- (2) 化学組成の測定値の妥当性は，電気伝導度と全溶存イオン量との関係，陽イオンと陰イオンの電荷バランスの 2 項目により検証している。E.C. と全溶存イオン量にはおおよそ比例の関係が成立すると考えられることから，この関係から逸脱する地下水試料の E.C. と化学組成の再測定を実施することで検証を行う。電荷バランスについては，pH から算出した H^+ と OH^- を考慮に入れ， CO_3 が未測定の試料では，水温，pH， HCO_3 濃度と純水における炭酸の解離定数から炭酸種の濃度を算出して検証する。Fe の価数が不明なものは 2 価として計算した。本データベースでは，電荷バランスが 10% 以上異なる試料の再測定を実施することで検証を行う。再測定により電荷バランスが 10% 未満であることが確認できない地下水は，データベースに化学組成の登録を行わない。ただし本検証は，産業技術総合研究所地質調査総合

センターが保有する分析値を対象とし、文献値については行わない。また、分析値についても、pHが4.8未満あるいは8.3を越えるものについては、陽イオンと陰イオンの電荷バランスがずれている場合でも登録を行った。これは強酸性あるいは強アルカリ性を示す試料は通常の測定項目のみから計算する陽イオンと陰イオンの電荷バランスでは電荷バランスを取ることが容易ではなく、逆にそのために多量の強酸性あるいは強アルカリ性を示すデータが失われることを避けるために行う措置である。

- (3) 水の安定同位体組成 (δD_{H_2O} , $\delta^{18}O_{H_2O}$) は、相互の関係から地下水の起源を知ることができ、この関係から推定される地下水の起源と Cl 濃度との関係を用いて検証を行う。天水起源であって、高い Cl 濃度を示す地下水を抽出して、採取地点の地質などを考慮した検討や再測定を実施することで検証を行う。また近年急速に普及し始めたレーザー分光 (CRD) 法による分析値と、従来の質量分析法による分析値の比較により検証を行う。
- (4) 地下水のトリチウム濃度の精度は、測定のための前処理作業の1つである試料水の濃縮の程度に密接に関連する。深層地下水データベース登録時には、試料水の濃縮に関する記述、あるいはデータを検討することで、その検証を行う。
- (5) 文献データから収集する深層地下水データは、深層地下水の化学組成の時間的な変遷 (例えば、(例えば、高橋ほか, 1998)を知る上でも、あるいは深層地下水の流出域の存否を知る上でも非常に重要であることは論をまたない。ただ化学組成のうち特に微量成分については分析精度に関して問題がある場合も存在するものと考えられる (例えば、高橋ほか, 2000)。そのため今後は、文献データが存在する地点での試料採取、文献データと自前データとの比較、検討を進めることから、文献データの検証、特に化学組成のうち微量成分について検証を行うことが可能になるものと考えられる。

以下に各登録項目について解説する。

<水試料>

- 試料 ID： 都道府県ごとに整理して、番号を付す。都道府県は市町村コードのうち上2桁で表記する。
- 都道府県： 試料を採取した都道府県名を示す。
- Gas： #：同一地点でガス試料を採取し、本データベースにガス組成が登録されている。
- \$： ガス組成が不明であるが、遊離ガスが付随することが確認されている。
- pH： pH 値
- 温度： 地下水の湧出、汲み上げ時の温度 (°C)
- balance： 上述 (2) の電荷バランスのチェックによって、化学組成データの登録を行わなかった試料に & を付す。
- 化学組成： 化学組成の分析値を登録。Fe については、2価・3価のデータがあるものはそれぞれ、 Fe^{2+} 、 Fe^{3+} に登録し、全量のみしかわからないものを Fe へ登録する。同一イオンで2つの項目があるものについては、分析の精度が異なる。
- $\delta D \cdot \delta^{18}O$ ： 水の水素同位体比 (‰-SMOW) と酸素同位体比 (‰-SMOW)。水の水素・酸素同位体比の分析は従来質量分析法のみにて行われてきたが、近年レーザー分光 (CRD) 法による分析も急速に普及し始めている。両者の分析精度は若干異なるため、深層地下水データベースには両者を分けて登録する。
- $\delta^{13}C \cdot \delta^{14}C$ ： 全炭酸の炭素安定同位体比 (‰-PDB) と放射性炭素同位体比 (‰)
- ${}^4He \cdot {}^{20}Ne$ ： 地下水 1g に含まれる 4He 濃度と ${}^{20}Ne$ の濃度
- ${}^4He/{}^{20}Ne$ ： 上記2成分の比

$^3\text{He}/^4\text{He}$:	地下水中のヘリウム同位体比
^3H :	地下水のトリチウム濃度 (TU)
$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$:	地下水中の放射性塩素同位体比
$\delta^{15}\text{N}$:	遊離窒素ガスの窒素同位体比 (‰ -AIR)
$\delta^{34}\text{S}$:	地下水中の硫酸イオンの硫黄同位体比 (‰ -CDT)
$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$:	地下水中の ^{87}Sr と ^{86}Sr の比
137Cs :	地下水中のセシウム 137 の放射能濃度 (Bq / ℓ)
データ元 :	出版物については文献情報を示す. 産業技術総合研究所の分析データには「産業技術総合研究所」を示す.

<ガス試料 (遊離ガス) >

試料 ID :	試料と同時期に同一地点で採取したものに, 水試料と同一番号を付す.
都道府県 :	試料を採取した都道府県名を示す.
組成値 :	化学・同位体組成の分析値を登録.

1.2.2.5 まとめ

今年度まで行ってきた深層地下水データベースは, データ拡張に伴う更新および品質管理による文献データの仕分け抽出等により, データ密度に問題のある地域が存在するものの, ほぼ全国をカバーすることができた. また, 深層地下水データベースを GIS 化することにより, 以下に示す検討課題について重要な役割を果たした. 1) 地下水データと地形をはじめとし, 各種地質情報, 第四紀火山, 活断層, 地質断層等との関連について解析可能になった, 2) 深部流体の成因や上昇場の解析のための重要な基盤情報として活用された, 3) 火山, 断層活動, 海面変化の影響評価においても, 同様に重要な地下水解析の基盤情報として活用された. さらに 4) 本データベースから流出域を抽出することにより, 流出域データベースを作成した.

本データベースは, 今後も様々な地下水調査により拡張されて行くことにより, 以下に示す用途で活用が可能である. a) 評価対象地域が明らかになった時点で, 迅速にその地域の地下水や地下水に関わる影響因子の情報を抽出することができる. b) 評価対象地域と類似の地域を抽出し, データの比較を行うことができる. c) 本データベースを基盤情報とし, 各種評価手法の適用性や解析結果の妥当性評価に用いることができる.

1.2.3 流出域データベースの拡充および更新

【実施内容】

流出域について各種文献等による情報の収集を行い、深層地下水データベースにおける自然湧出地点を含めて GIS 化を行う。

平成 25 年度までの成果により、流出域データベースにおいて収集データの更新を進めた結果、流出域の地理的分布についてその分布要因と地形・地質構造等との関係、および流出水の化学的性状の分布と地質の関係について明らかにした。地下水移行シナリオにおける地下水流動系のモデル化に資するため、特徴的な地質地域等について考慮しつつ、流出域の分布要因について整理しまとめる。以上の成果は、原子力規制委員会が作成する概要調査結果の判断指標あるいは技術指針に反映される。

【成果】

1.2.3.1 文献データの収集・整理に基づく流出域データベースの拡充・更新

深層地下水データベースに今年度新たに追加された 1,617 件(深層地下水試料 766 件, 文献 851 件; 1.2.2 章)について、既存文献・HP・聞き取り調査などを通じて、

1. 温泉が開湯した年(時代)
2. 自然湧出であるか否か(開湯時と現在について)
3. ボーリングの有無
4. 自噴の有無

など流出域であるかどうかを判断する上で不可欠な情報を収集した。検討の結果、深層地下水(温鉱泉)の流出域と判断された地点についてはデータベースへ追加し、GIS 流出域データベースの更新を行った。なお、昨年度までと同様に、流出域の選定にあたっては、①自然湧出であることが確認された温鉱泉(開湯当時は自然湧出であったが現在はボーリング孔から揚湯を行っている温鉱泉を含む)、②開湯が明治以前(～1868)であることが確認された温鉱泉をもって深層地下水の流出域に相当するものと判断した。また、平成 25 年度までに深層地下水データベースに採録された全国の温鉱泉を対象に、各種文献の再検討と情報確認作業を継続して行い、新たに流出域と認められた地点をデータベースに追加した。さらに、重複地点の削除や地化学データの更新をあわせて実施し、流出域データベースの拡充と精度・品質の改善に努めた。

1.2.3.2 流出域の分布とその要因に関する取りまとめ

1) 流出域の分布に関する検討

温鉱泉水を含む深層地下水の流出域では、地下深部から上昇した流体や物質が直接地表に湧出、あるいは浅層地下水や河川・湖沼等の地表水に混入することになる。したがって、放射性核種の地下水移行シナリオの安全評価においては、流出域の検出手法、深層地下水湧出経路の推定方法、湧出する流体の地球化学的特徴とフラックスの把握が極めて重要な検討課題となる。

流出域は断層や構造線等の地質学的な弱線に沿って、あるいは地形学的な鞍部や傾斜変換点に形成されることが多い(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2014)。しかし、地質学的・地形学的条件を満たしている場合でも、例えば断層の水理特性によっては必ずしもその場所が深層地下水流動系の流出域になるとは限らない。このため流出域の実態の把握と分布要因の評価が必要となる。本年度は、前弧域から背弧域まで日本列島を横断する 2 つの横断面として、近畿～北陸横断面と南東北～信越横断面を選定し、両地域における地形学的・地質学的環境や断層等の構造と流出域形成の関連(分布要因)を検討し、また湧出する深層地下水の地球化学的特性の把握を行った。

2) 近畿～北陸横断面

近畿地方と北陸地方に分布する流出域を流出域データベースから抽出し、20 万分の 1 の地質図（産業技術総合研究所地質調査総合センター，2010）上にプロットした（図 1.2.3.2-1）。また、各流出域で湧出する地下水の温度（図 1.2.3.2-2）、pH（図 1.2.3.2-3）、陰イオンに基づく水質区分（図 1.2.3.2-4）、塩化物イオン濃度（図 1.2.3.2-5）、硫酸イオン濃度（図 1.2.3.2-6）、炭酸水素イオン濃度（図 1.2.3.2-7）、水素同位体比（図 1.2.3.2-8）の分布図を示す。なお、第四紀火山から半径 15 km 以内に位置する流出域については黒点で表した。

地質図・地形図の読図結果に基づいて、流出域を断層系、河川沿い、地形変換点に区分したところ（図 1.2.3.2-1）、全 98 地点の約 75 % にあたる 73 地点の流出域が断層系と認められた。なお、河川沿いや地形変換点に位置するものであっても、断層に関係すると考えられるものは分類上すべて断層系に含めた。全体を俯瞰すると、山崎断層帯、六甲・淡路島断層帯、有馬・高槻断層帯、中央構造線断層帯、琵琶湖西岸断層帯、鈴鹿東縁断層帯、紀伊半島に無数に存在する大小の断層といった地質学的な弱線もしくはその近傍に断層系の流出域が形成されていることが読み取れる。また、石川県南西部の日本海沿岸部にも断層に起因すると考えられる流出域が集中している。一方、兵庫県中央部の盆地では河川沿いに、さらに京都盆地北方～北西方向の山地部、志摩半島、福井平野南部では地形変換点に多くの流出域が形成されている。以下、それぞれの代表的なケースについて記述する。

(a) 断層系の流出域

兵庫県神戸市の A 地点（図 1.2.3.2-1）では、白亜紀後期の珪長質深成岩類と非アルカリ珪長質火山岩類を画する北東－南西方向の活断層である湯槽谷活動セグメント（有馬－高槻断層帯）のほぼ直上に流出域が形成されている。湧出水は高い水温（69.5 °C；図 1.2.3.2-2）と低い pH（5.4；図 1.2.3.2-3）、また高濃度の塩化物イオン濃度（36,500 mg/L；図 1.2.3.2-5）によって特徴づけられる。さらに水素同位体比は -35 ‰（図 1.2.3.2-8）、また酸素同位体比も +4.5 ‰と同位体的にも特異な値を有する。これらの特徴は、西南日本の前弧域でその存在が指摘されているスラブ起源流体（いわゆる有馬型熱水；Matsubaya et.al., 1973）の水質・同位体組成と極めて似ている。同様の高塩化物イオン濃度で特異な同位体組成を呈する流出域は兵庫県の南東部に集中している（図 1.2.3.2-1）。A 地点を含むこれらの流出域では、地質学的な弱線である断層を通じて、地下深部のスラブ起源流体が元の性状を保持したまま地表まで上昇しているものと考えられる。

和歌山県田辺市の B 地点（図 1.2.3.2-1）は、古第三紀始新世～新第三紀中新世前期の付加コンプレックス内を東西方向に走る断層近傍に形成された流出域である。炭酸水素イオン（800 mg/L；図 1.2.3.2-5）を陰イオン側の主成分とし、水温が 86.8 °C（図 1.2.3.2-2）という高温の温泉水が湧出している。紀伊半島中央部には、付加コンプレックス内の断層上にこの様な高い水温（40 °C 以上）で炭酸水素イオン型の水質特性をもつ流出域が多数形成されている（図 1.2.3.2-4）。

石川県小松市の C 地点（図 1.2.3.2-1）は、新第三紀中新世前期～中期の非アルカリ珪長質火山岩類（いわゆるグリーンタフ）地域に形成された流出域である。湧出水は高い水温（49.2 °C；図 1.2.3.2-2）、pH 8.18 という高い pH 値（図 1.2.3.2-3）、また硫酸イオンを主成分とする水質組成（図 1.2.3.2-4）を有する。ナトリウムイオン濃度とカルシウムイオン濃度もそれぞれ 288 mg/L と 215 mg/L と高い。このような湧出水の地球化学的な特性は、グリーンタフ地帯の地下深部に賦存する温泉水の水質特性（例えば、Ohwada et.al., 2007）と類似している。C 地点の周辺には同様の水質特性をもつ流出域が集中している（図 1.2.3.2-1、図 1.2.3.2-4）。地形図や地質図の読図の結果、同地域には北西－南東方向の複数の地質学的弱線の存在が示唆されるが、このような弱線に沿って特異な水質を有する深層地下水が地表にもたらされているものと考えられる。

(b) 河川沿いに形成された流出域

兵庫県篠山市のD地点(図1.2.3.2-1)は、篠山川によって形成された第四紀更新世後期～完新世の山間盆地内に形成された流出域である。水温17.3℃(図1.2.3.2-2)、pH6.3(図1.2.3.2-3)、また炭酸水素イオンを陰イオン主成分(図1.2.3.2-4)とする地下水が湧出している。塩化物イオン濃度(9.9mg/L;図1.2.3.2-5)、硫酸イオン濃度(0.4mg/L;図1.2.3.2-6)、炭酸水素イオン濃度(52.5mg/L;図1.2.3.2-7)はいずれも低い。これらのことから、D地点の流出域は浅層地下水の河川流出により形成された流出域であり、地下水の流動系の規模はさほど大きいものではなく、また滞留時間も比較的短いと判断される。なお、北東ならびに南東方向にそれぞれ10km程度離れた断層系の2つの流出域と比較すると、湧出する地下水の水質タイプ(断層系は塩化物イオン型;図1.2.3.2-4)や塩化物イオン濃度(断層系は100mg/L以上;図1.2.3.2-5)に明瞭な違いが認められる。この事実は、隣接する地点であっても、流出域の形成機構によって湧出する水の地球化学的特性がまったく異なることを示している。

(c) 地形変換点に形成された流出域

京都市左京区のE地点(図1.2.3.2-1)は、白亜紀後期の花崗岩分布域の地形変換点に形成された流出域である。標高300mの山体の東麓斜面基部の傾斜変換点にあり、湧出水の水温は17.3℃(図1.2.3.2-2)、pHは6.8(図1.2.3.2-3)である。また塩化物イオン濃度(2.1mg/L;図1.2.3.2-5)、硫酸イオン濃度(7.0mg/L;図1.2.3.2-6)、炭酸水素イオン濃度(27.5mg/L;図1.2.3.2-7)はいずれも極めて低い。京都盆地の北方～北西方向の山地部には、地形変換点に形成された同様の低陰イオン濃度の地下水湧出によって特徴づけられる流出域が複数分布している(図1.2.2.3-1)。また、三重県志摩半島(F地点;図1.2.2.3-1)にも同様な地球化学的特性を示す流出域が河岸段丘上やジュラ紀の付加コンプレックス上に認められる。これらの流出域では、背後の山体上部で涵養された地下水が比較的短い滞留時間で小規模の流動系を経た後、地形変換点において湧出しているものと考えられる。

石川県鯖江市のG地点(図1.2.2.2-1)は、新第三紀中新世前期～中期の非アルカリ苦鉄質火山岩類からなる標高420mの小山体の斜面基部の傾斜変換点に位置する流出域である。ここでは、水温14.9℃(図1.2.2.2-2)、pH6.1(図1.2.2.2-3)と低水温・低pHながら、一方で高い硫酸イオン濃度(162mg/L;図1.2.2.2-6)と炭酸水素イオン濃度(1,740mg/L;図1.2.2.2-7)によって特徴づけられる深層地下水が湧出している。また、ナトリウムイオン濃度とカルシウムイオン濃度もそれぞれ317mg/Lと240mg/Lと高い値を呈する。周辺には同様のナトリウムイオン、カルシウムイオン、硫酸イオン、炭酸水素イオンに富んだ地下水によって形成された流出域が複数存在する(図1.2.3.2-1)。当該地域はいわゆるグリーンタフの分布域であるため、このグリーンタフ中に含まれる硬石膏(Ca-SO₄)が溶出することによってカルシウムイオンと硫酸イオンの濃度が増加するものと考えられる(例えば Ohwada *et al.*,2007)。

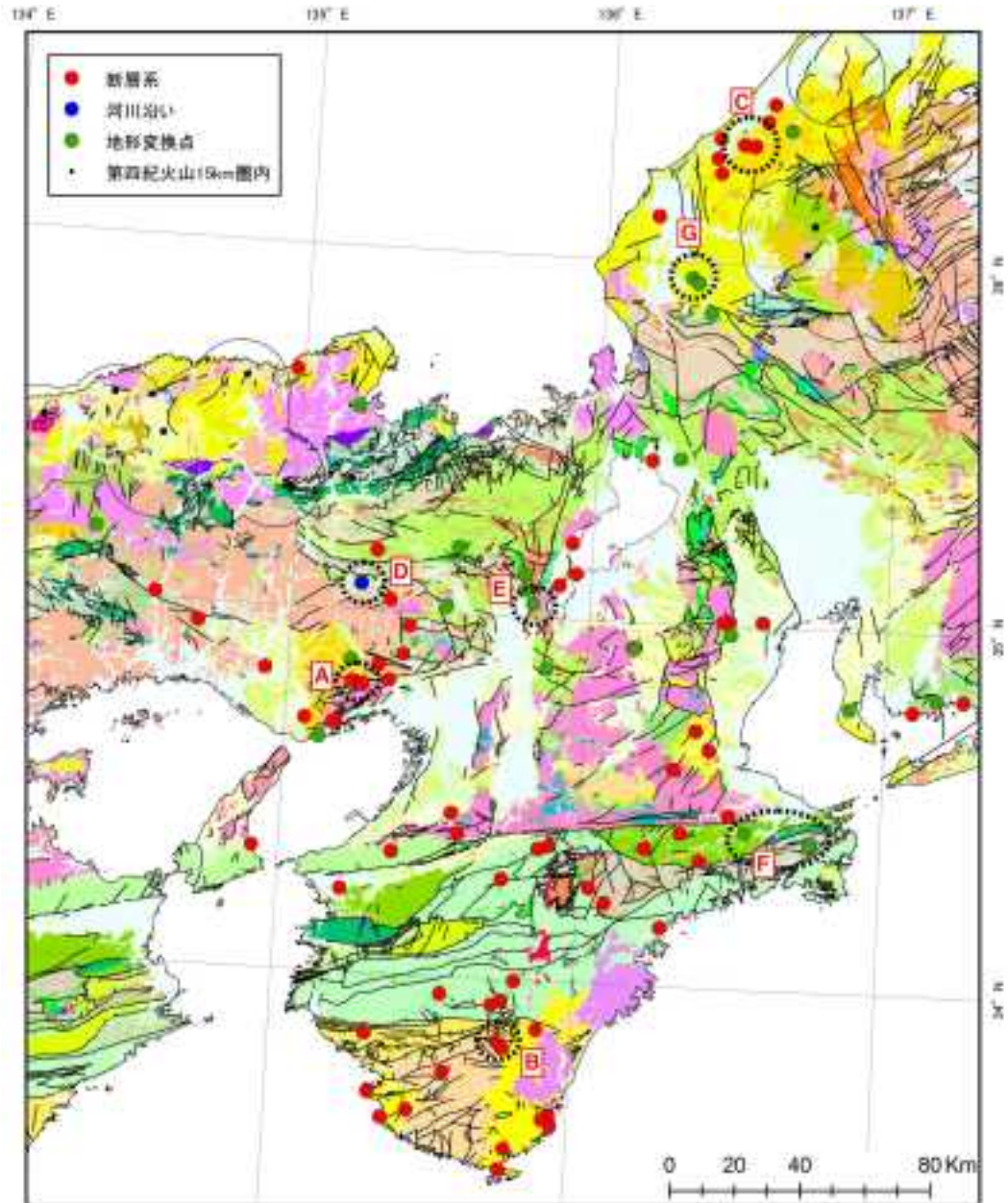


図 1.2.3.2-1 近畿～北陸横断面における流出域の分布.

地質図・地形図の読図結果に基づき、流出域を断層系、河川沿い、地形変換点の3種類に区分。図中のA～G地点は1.2.3.2項2)のそれらと対応。地質図は産業技術総合研究所地質調査総合センター (2010)の20万分の1の地質図を使用。

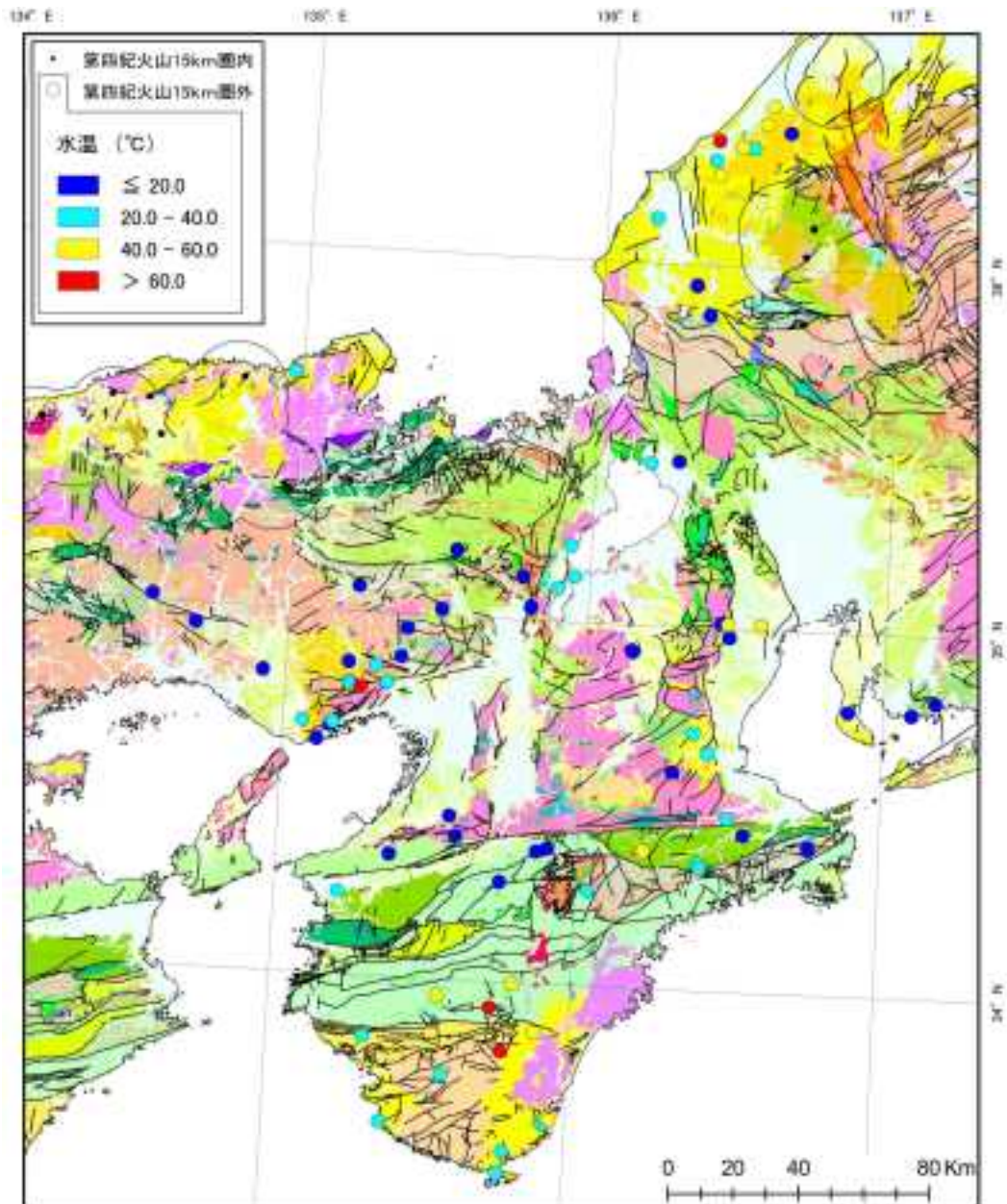


図 1.2.3.2-2 近畿～北陸横断面における流出域で湧出する地下水の水温分布。
地質図は産業技術総合研究所地質調査総合センター (2010) の 20 万分の 1 の地質図を使用。

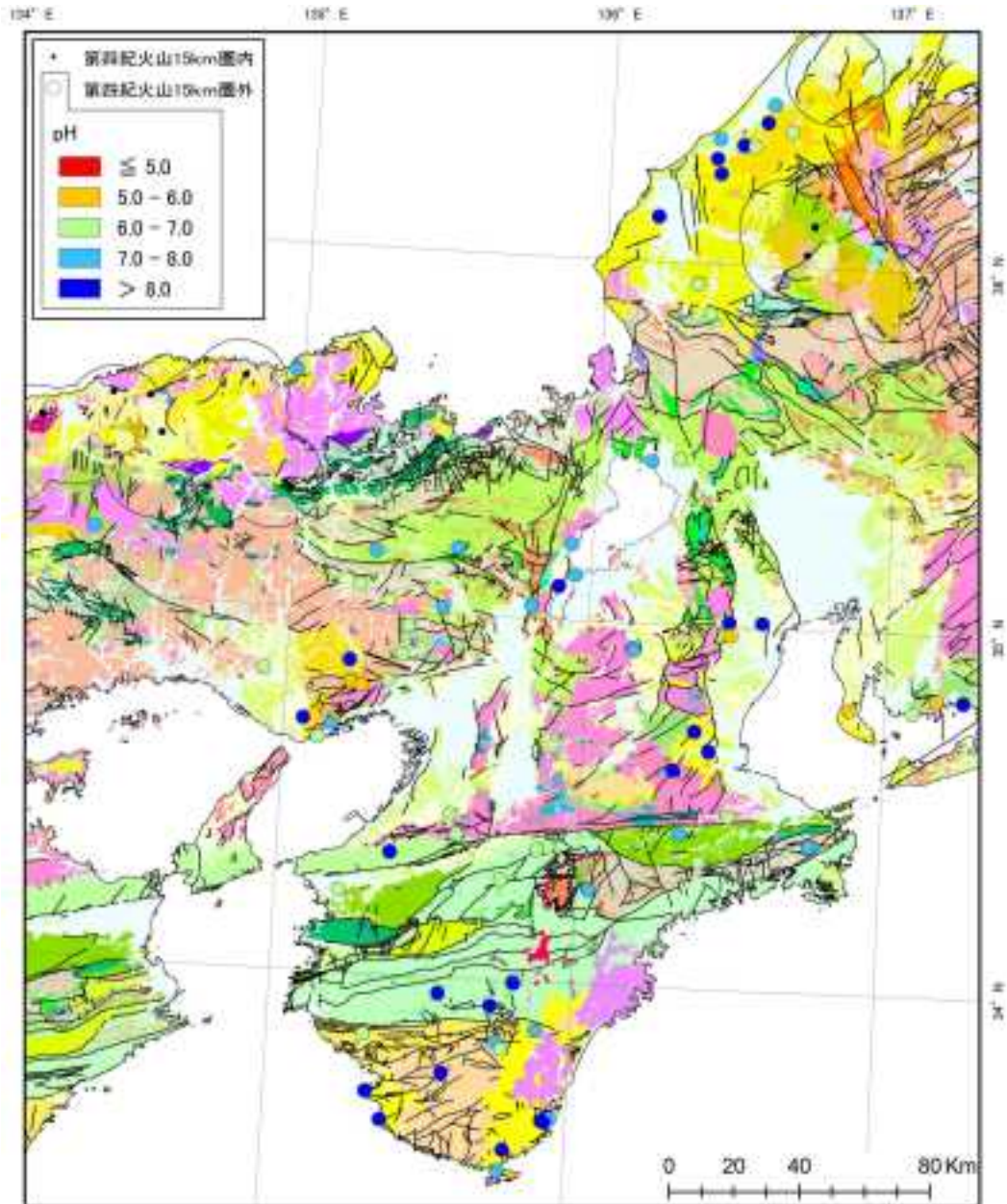


図 1.2.3.2-3 近畿～北陸横断面における流出域で湧出する地下水の pH 分布。
地質図は産業技術総合研究所地質調査総合センター (2010) の 20 万分の 1 の地質図を使用。

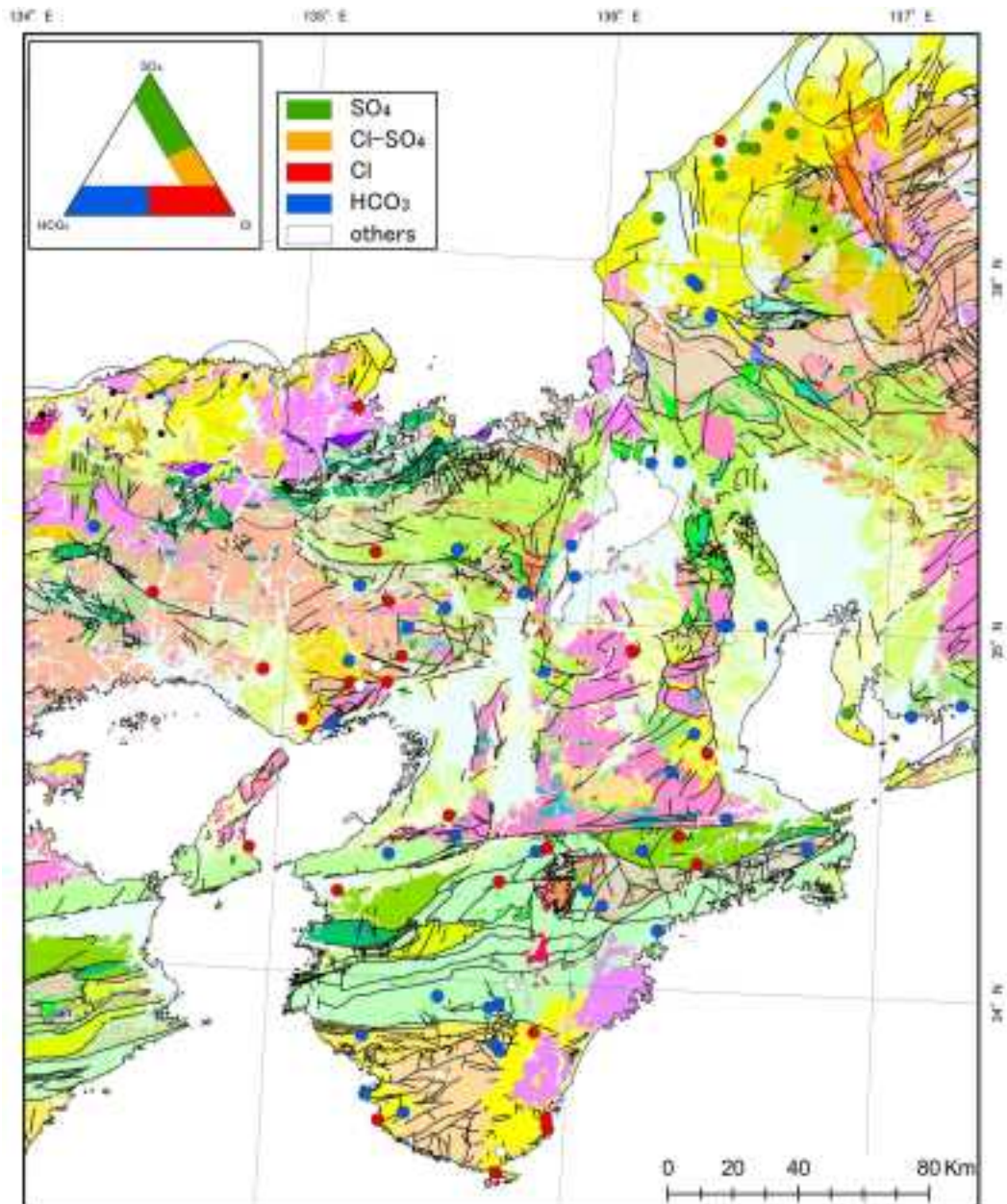


図 1.2.3.2-4 近畿～北陸横断面における流出域で湧出する地下水の陰イオンに基づく水質タイプ区分。
地質図は産業技術総合研究所地質調査総合センター (2010) の 20 万分の 1 の地質図を使用。

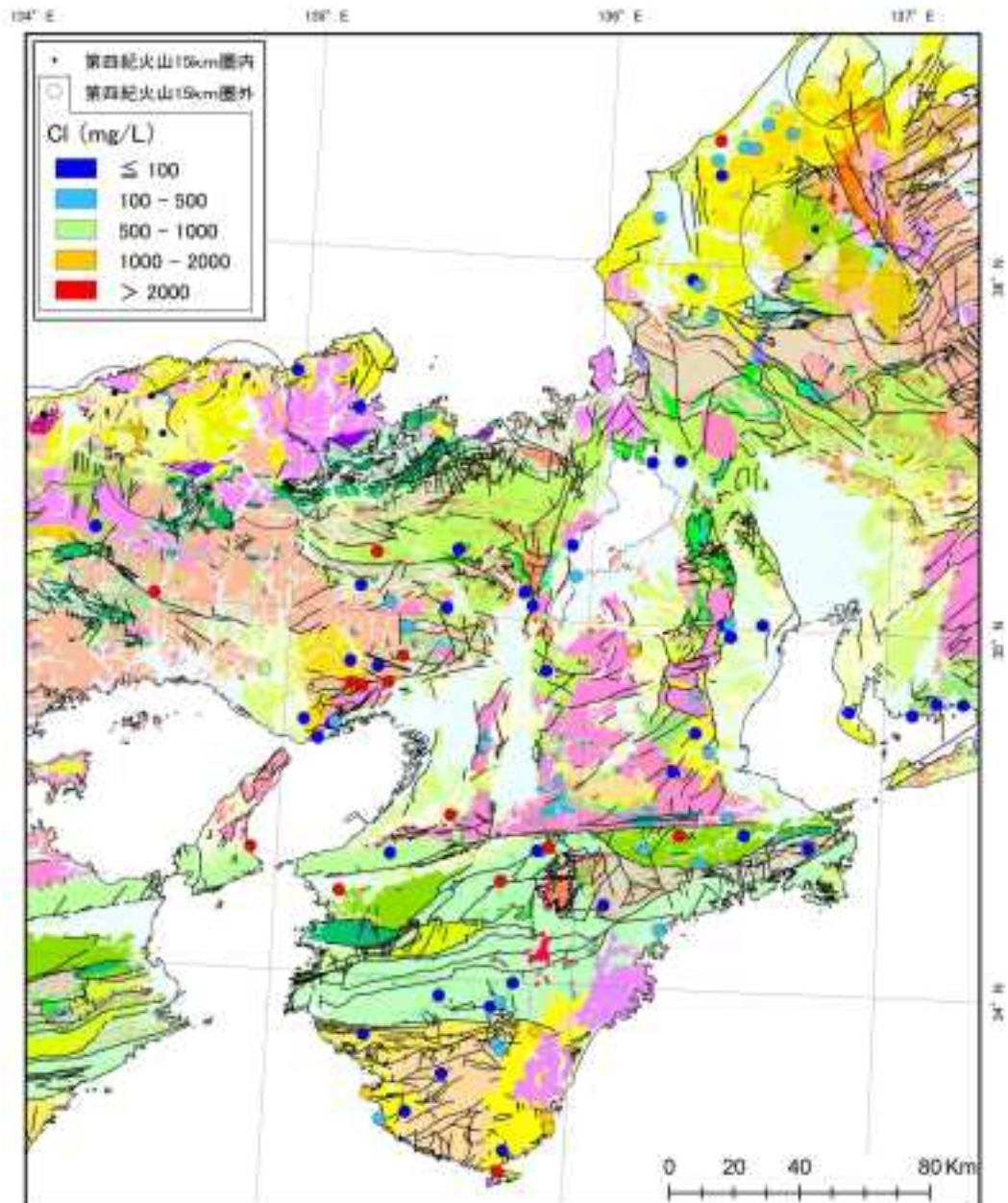


図 1.2.3.2-5 近畿～北陸横断面における流出域で湧出する地下水の塩化物イオン濃度分布.
地質図は産業技術総合研究所地質調査総合センター (2010) の 20 万分の 1 の地質図を使用.

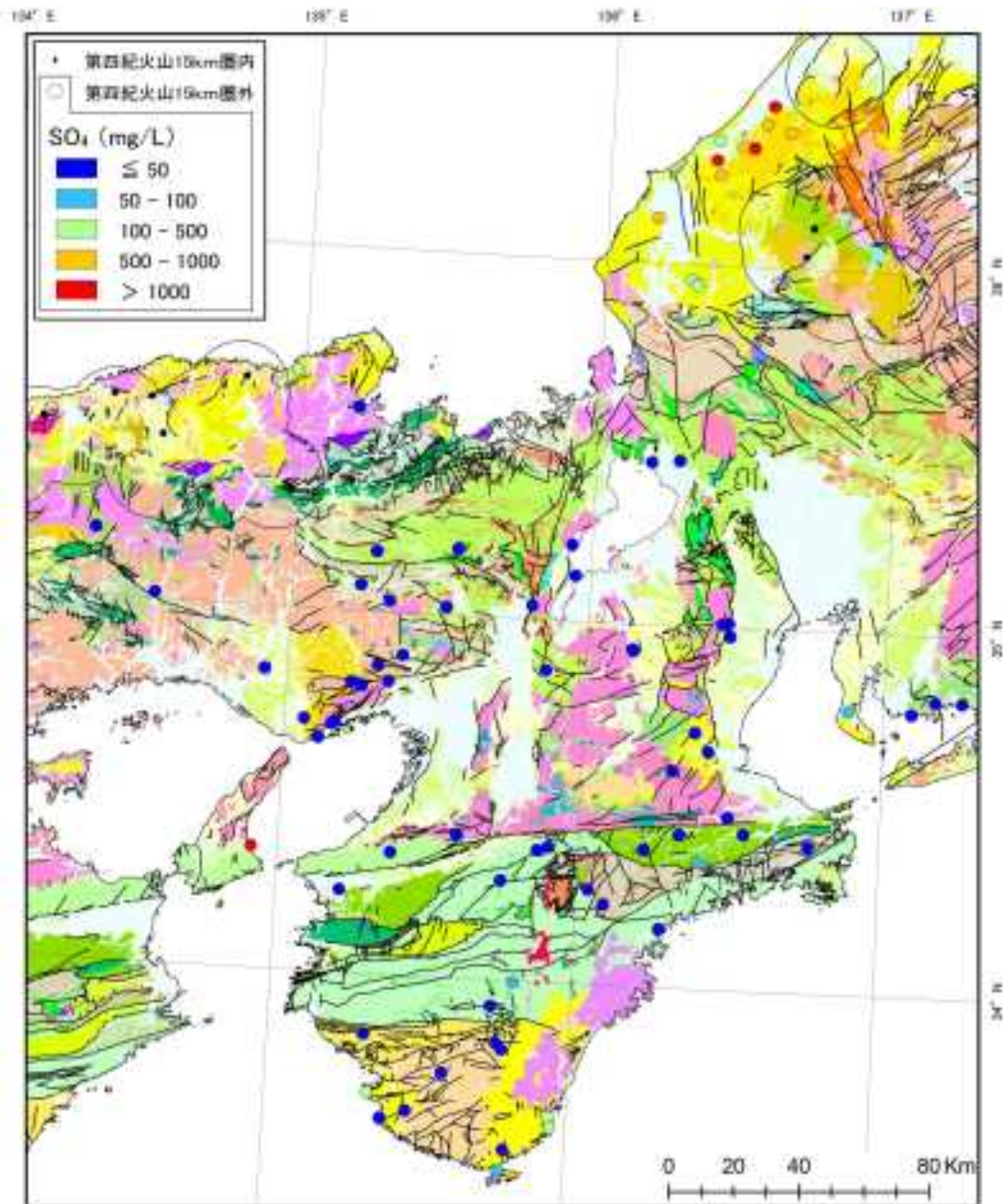


図 1.2.3.2-6 近畿～北陸横断面における流出域で湧出する地下水の硫酸イオン濃度分布。
地質図は産業技術総合研究所地質調査総合センター (2010) の 20 万分の 1 の地質図を使用。

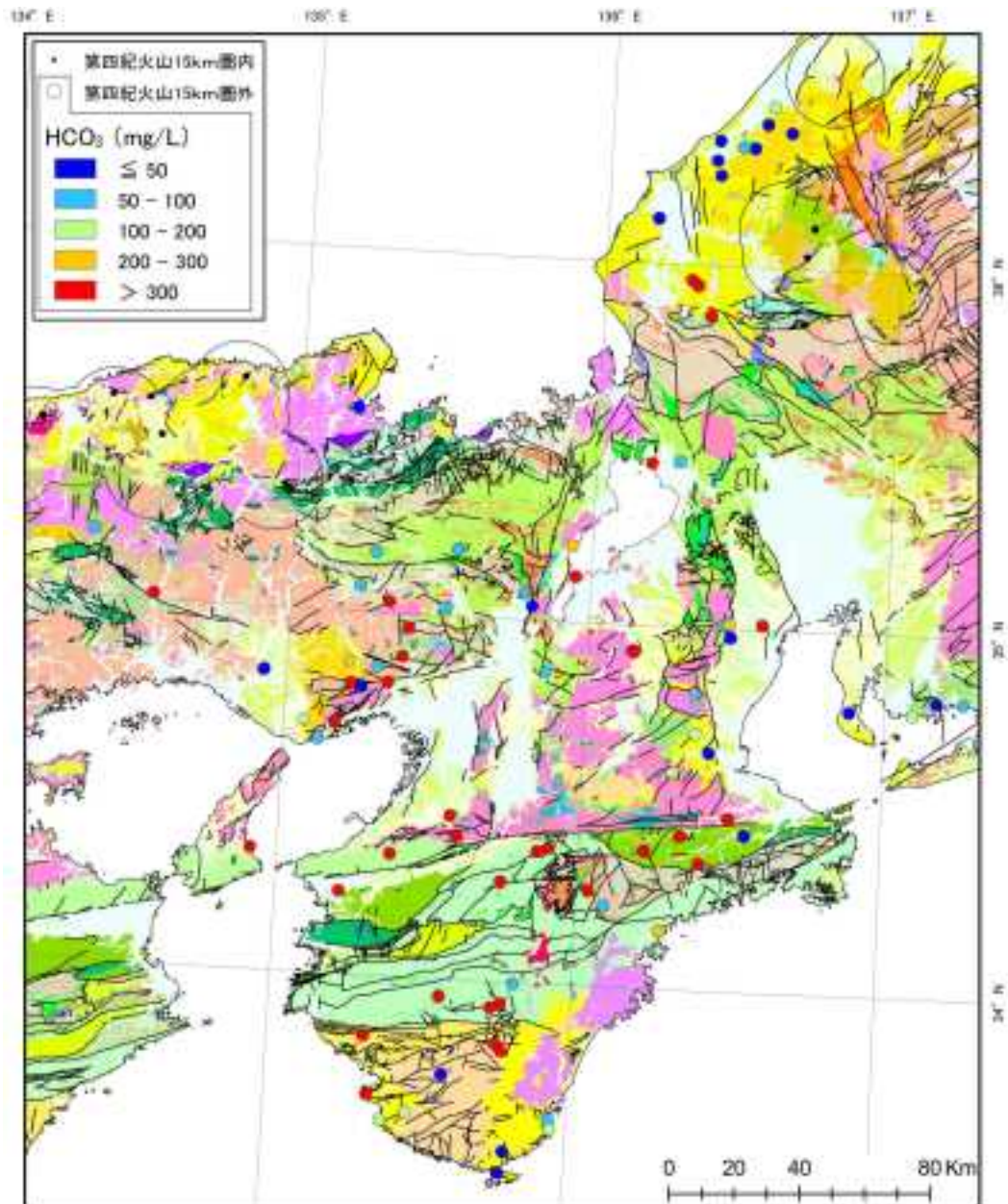


図 1.2.3.2-7 近畿～北陸横断面における流出域で湧出する地下水の炭酸水素イオン濃度分布。
地質図は産業技術総合研究所地質調査総合センター (2010) の 20 万分の 1 の地質図を使用。

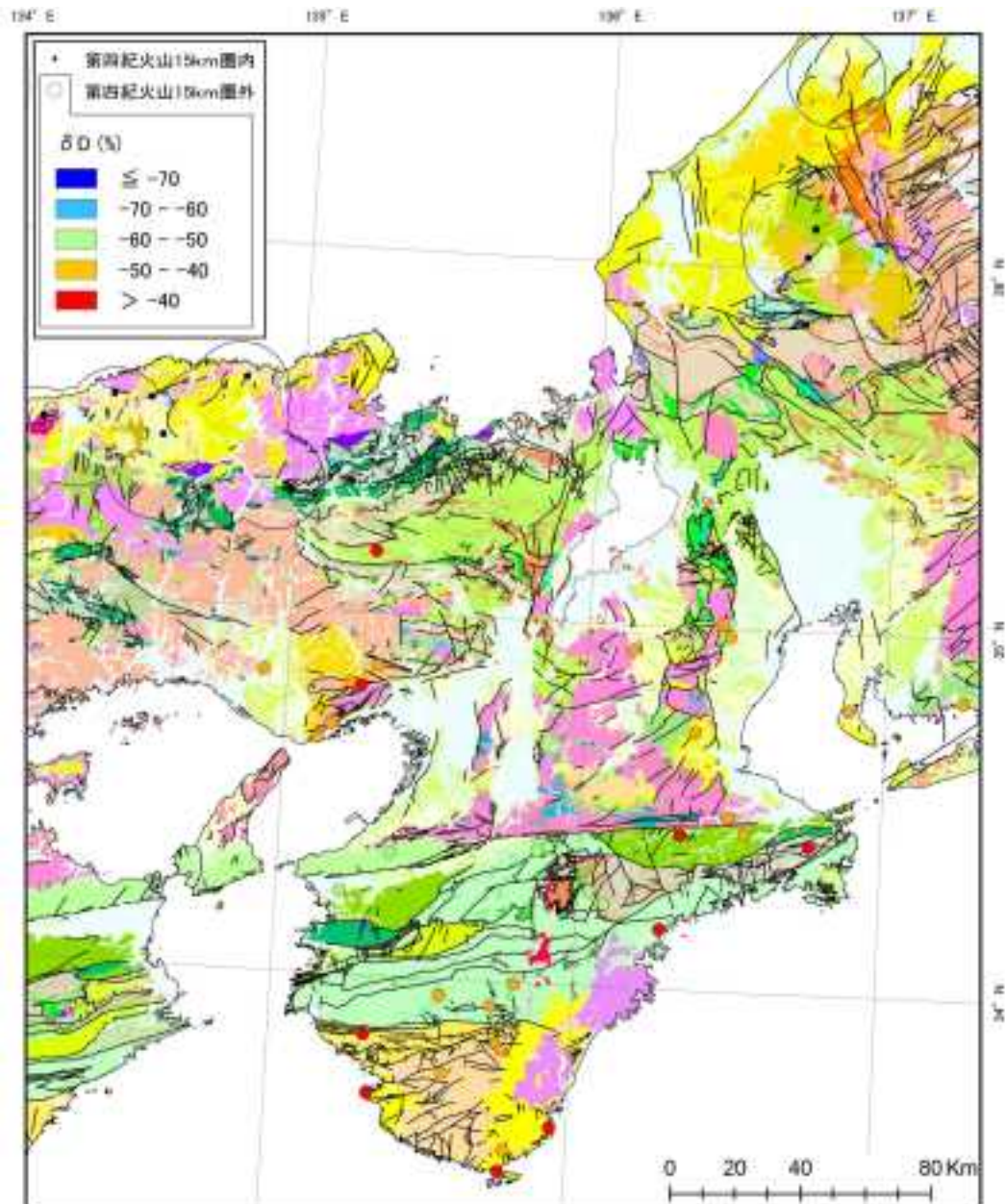


図 1.2.3.2-8 近畿～北陸横断面における流出域で湧出する地下水の水素同位体比分布。

地質図は産業技術総合研究所地質調査総合センター (2010) の 20 万分の 1 の地質図を使用。

3) 南東北～信越横断面

南東北地方と信越地方の流出域を流出域データベースから抽出し、20 万分の 1 の地質図 (産業技術総合研究所地質調査総合センター, 2010) 上にプロットした (図 1.2.3.2-9)。また、各流出域で湧出する地下水の温度 (図 1.2.3.2-10)、pH (図 1.2.3.2-11)、陰イオンに基づく水質区分 (図 1.2.3.2-12)、塩化物イオン濃度 (図 1.2.3.2-13)、硫酸イオン濃度 (図 1.2.3.2-14)、炭酸水素イオン濃度 (図 1.2.3.2-15)、水素同位体比 (図 1.2.3.2-16) の分布図を示す。なお、これらの図中では、第四紀火山から半径 15 km の範囲に位置する流出域については黒点で表してある。また、作図にあたっては、昨年度対象とした山形県東南部、福島県東部、茨城県北部の 103 地点 (産業技術総合研

究所深部地質環境研究コア, 2014) も併せて表示した。

地質図・地形図の読図結果に基づいて、南東北地方と信越地方の流出域を断層系、河川沿い、地形変換点に区分した(図 1.2.3.2-9)。なお、昨年度の 103 地点については再度検討を加えた結果、区分が変更になったものもある。図 1.2.3.2-9 から、全 153 地点の流出域のうち、その約 61 % にあたる 93 地点が断層系と認められた。全体を俯瞰すると、断層系の流出域は、長岡平野西縁断層帯、月岡断層帯、会津盆地西縁・東縁断層帯、長井盆地西縁断層帯、福島盆地西縁断層帯、双葉断層、井戸沢断層、湯ノ岳断層、棚倉構造線といった活断層や構造線の直上、もしくはその近傍や延長線上に形成されていることが読み取れる。また、いわき市や福島県北部の太平洋岸では河川沿いに、さらに阿武隈山地の中央部と周辺部、長井盆地西方の飯豊山と朝日岳の間の地域、東頸城丘陵などでは地形変換点にも多くの流出域が形成されている。

今年度新たにプロットした流出域においては「河川沿い」に区分されたものはなかった。そこで、以下、断層系ならびに傾斜変換点に形成された流出域の代表的なケースについて記述する。

(a) 断層系の流出域

新潟市の A 地点(図 1.2.3.2-9)は、弥彦山地の東側に分布する活断層である弥彦活動セグメント(長岡平野西縁断層帯)の直上に位置する流出域である。水温は 19.0 °C(図 1.2.3.2-10)、また pH は 7.2(図 1.2.3.2-11)であり、塩化物イオン(692 mg/L; 図 1.2.3.2-13)に富む一方、硫酸イオン(9.5 mg/L; 図 1.2.3.2-14)や炭酸水素イオン(38.3 mg/L; 図 1.2.3.2-15)の濃度は低い。陽イオンではナトリウム(329 mg/L)とカルシウム(107 mg/L)成分が卓越している。

新潟県北蒲原郡の B 地点(図 1.2.3.2-9)も同じく活断層上に形成された流出域である。後期白亜紀の花崗閃緑岩体の西縁を北東-南西に延びる月岡活動セグメント(月岡断層帯)の直上に位置している。水温は 49.3 °C と高温であり(図 1.2.3.2-10)、pH は 7.4(図 1.2.3.2-11)、また塩化物イオン濃度は 1,557 mg/L と高い(図 1.2.3.3-13)、硫酸イオン濃度は 485 mg/L(図 1.2.3.3-14)である。陽イオンではナトリウム成分が卓越しており(1,375 mg/L)、カルシウムイオン濃度は 66.1 mg/L と低く、はナトリウム-塩化物型の水質組成を呈する。

福島県喜多方市の C 地点(図 1.2.3.2-9)は、活断層である塔寺活動セグメント(会津盆地西縁・東縁断層帯)の北東延長線上に形成された流出域であり、新第三紀中新世中～後期の堆積岩類を基盤とする。湧出水は 62.5 °C と高温であり(図 1.2.3.2-10)、塩化物イオン濃度は 6,438 mg/L と高い値を示すが(図 1.2.3.2-13)、硫酸イオン濃度は 383 mg/L である(図 1.2.3.2-14)。陽イオンではカルシウムイオン(1,147 mg/L)に比べてナトリウムイオン(3,076 mg/L)が卓越しており、ナトリウム-塩化物型の水質組成を呈する。

以上の南東北～信越横断面の背弧側に分布する断層系の流出域においては、水質的な特徴から判断すると、石油・天然ガス付随水やグリーンタフ由来の特異な水質を有する深部水が、地質学的な弱線である断層を通じて元の水質特性をある程度保持したまま地表まで上昇しているものと考えられる。

(b) 地形変換点に形成された流出域

新潟県長岡市の D 地点(図 1.2.3.2-9)は、長岡平野と東頸城丘陵(最高標高約 350 m; 新第三紀中新世後期～第四紀更新世前期の海成・非海成の堆積岩類から構成される)の境界部に形成された流出域である。水温は 11 °C と低く(図 1.2.3.2-10)、また pH も 7.5 とほぼ中性(図 1.2.3.2-11)、さらに塩化物イオン(14.7 mg/L; 図 1.2.3.2-13)、硫酸イオン(43.8 mg/L; 図 1.2.3.2-14)、炭酸水素イオン(132 mg/L; 図 1.2.3.2-15)のいずれも低い濃度を示す。陽イオンではカルシウム成分が卓越しており(41.5 mg/L)、ナトリウムイオン濃度は 20.1 mg/L と低い。すなわち、D 地点の湧出水は、水質進化があまり進んでいない段階の地下水に一般的に見られるカルシウム-炭酸水素型の水

質組成を呈する。

山形県西置賜郡の E 地点（図 1.2.3.2-9）は、第四紀更新世後期の低位段丘上に位置し、背後には比高 250 m 程度の高さの山体が存在する。同地点では、水温 7.2 °C（図 1.2.3.2-10）、pH 7.2（図 1.2.3.2-11）、低塩化物イオン濃度（10.4 mg/L；図 1.2.3.2-13）の湧出水が流出域を形成している。陰イオン側で卓越するのは炭酸水素イオンであり、その濃度は 106.3 mg/L である（図 1.2.3.2-15）。一方、湧出水にはカルシウム成分はほとんど含まれておらず（0.3 mg/L）、陽イオン側の卓越成分はナトリウムイオンである（47.8 mg/L）。したがって、前出の D 地点とは異なり、E 地点では水質進化がある程度進んだナトリウム - 炭酸水素型の地下水が湧出している。

地形変換点に形成されたこれらの流出域では、背後の山体上部で涵養された地下水が比較的短い滞留時間で小規模の流動系を経た後、地形変換点において湧出しているものと考えられる。その滞留時間の相違によって、陽イオン側の主成分が決定されるものと考えられる。

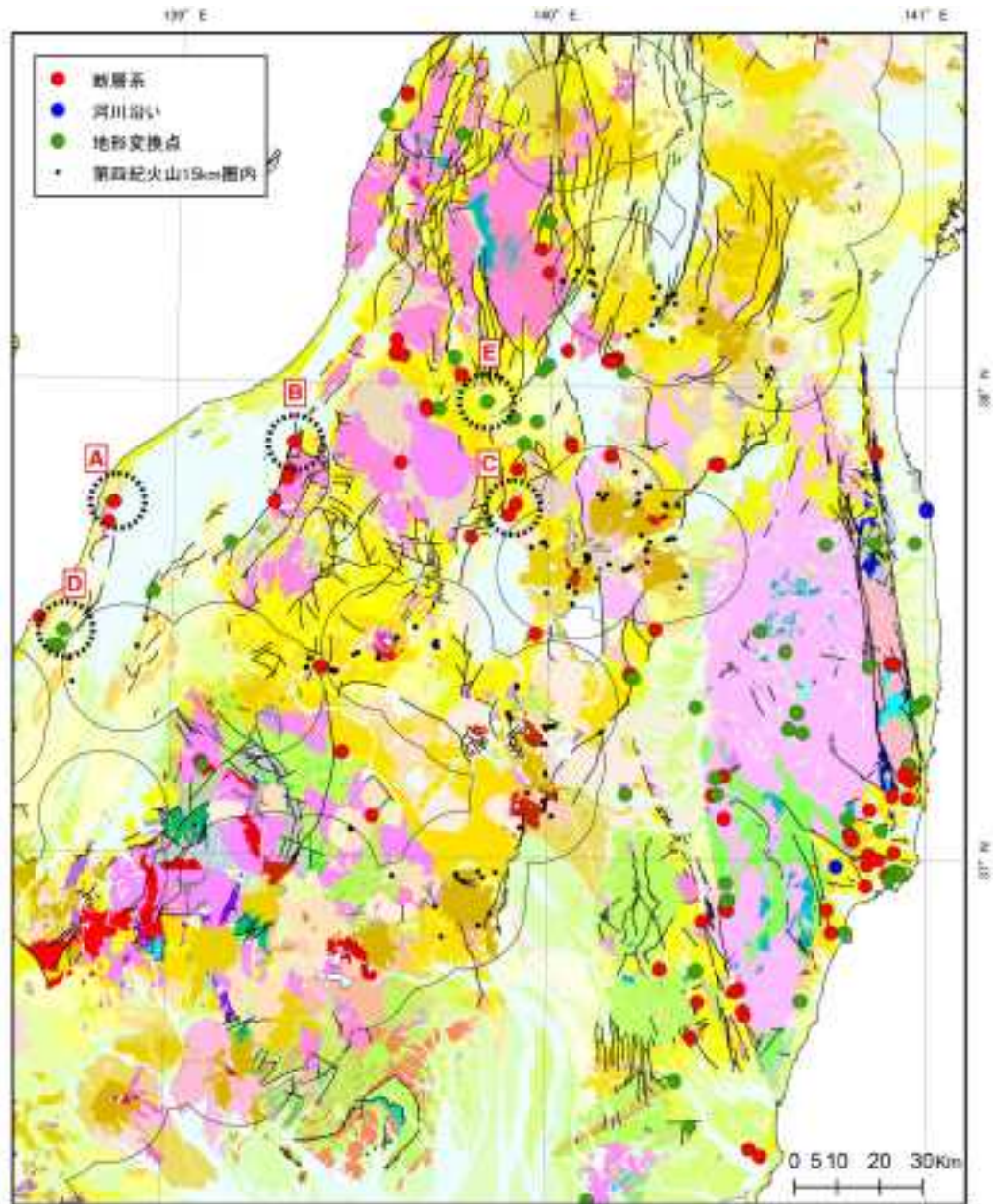


図 1.2.3.2-9 南東北～信越横断面における流出域の分布.

地質図・地形図の読図結果に基づき、流出域を断層系、河川沿い、地形変換点の3種類に区分。図中のA～E地点は節1.2.3.2項3)のそれらと対応。地質図は産業技術総合研究所地質調査総合センター(2010)の20万分の1の地質図を使用。

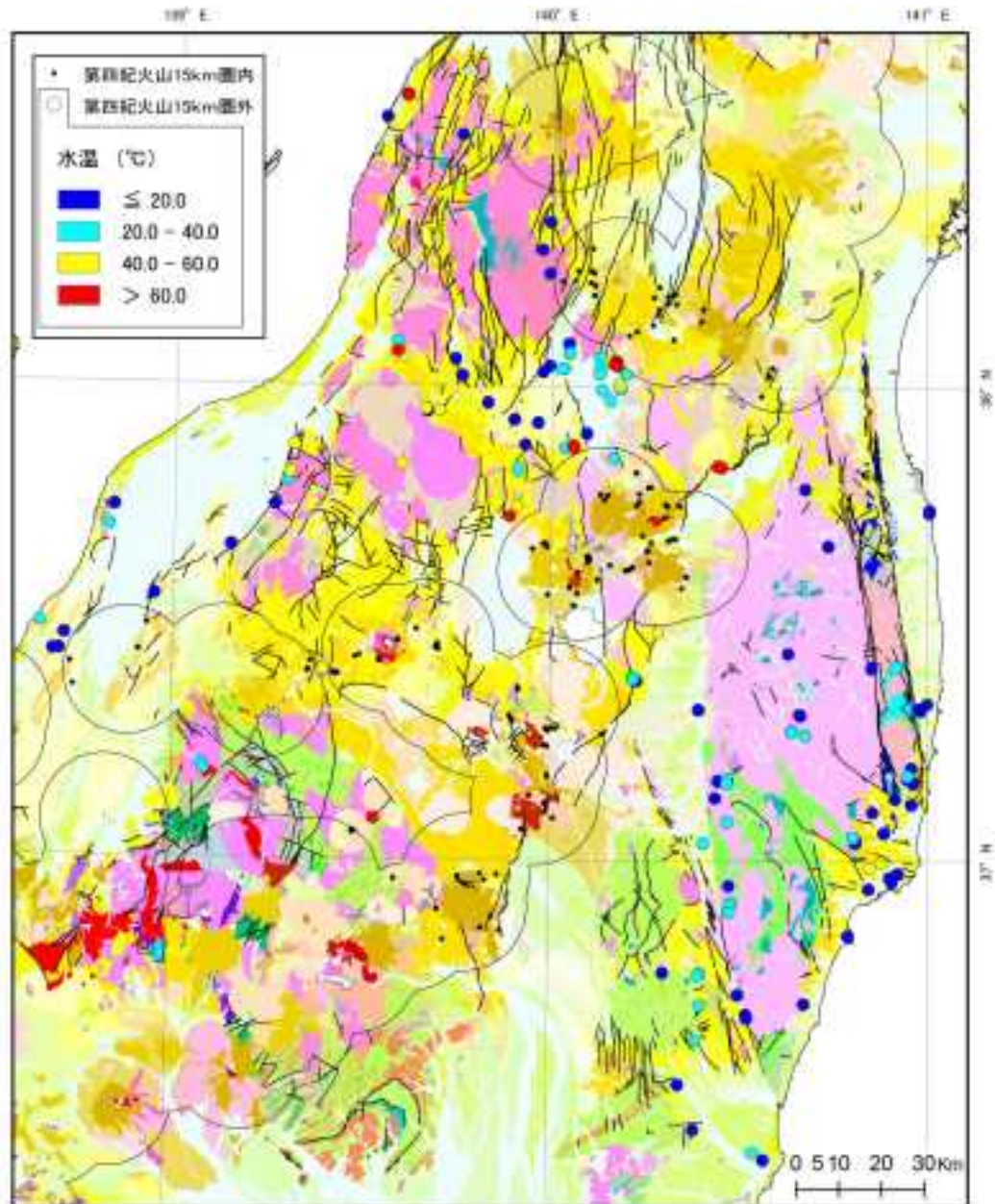


図 1.2.3.2-10 南東北～信越横断面における流出域で湧出する地下水の水温分布。
地質図は産業技術総合研究所地質調査総合センター (2010) の 20 万分の 1 の地質図を使用。

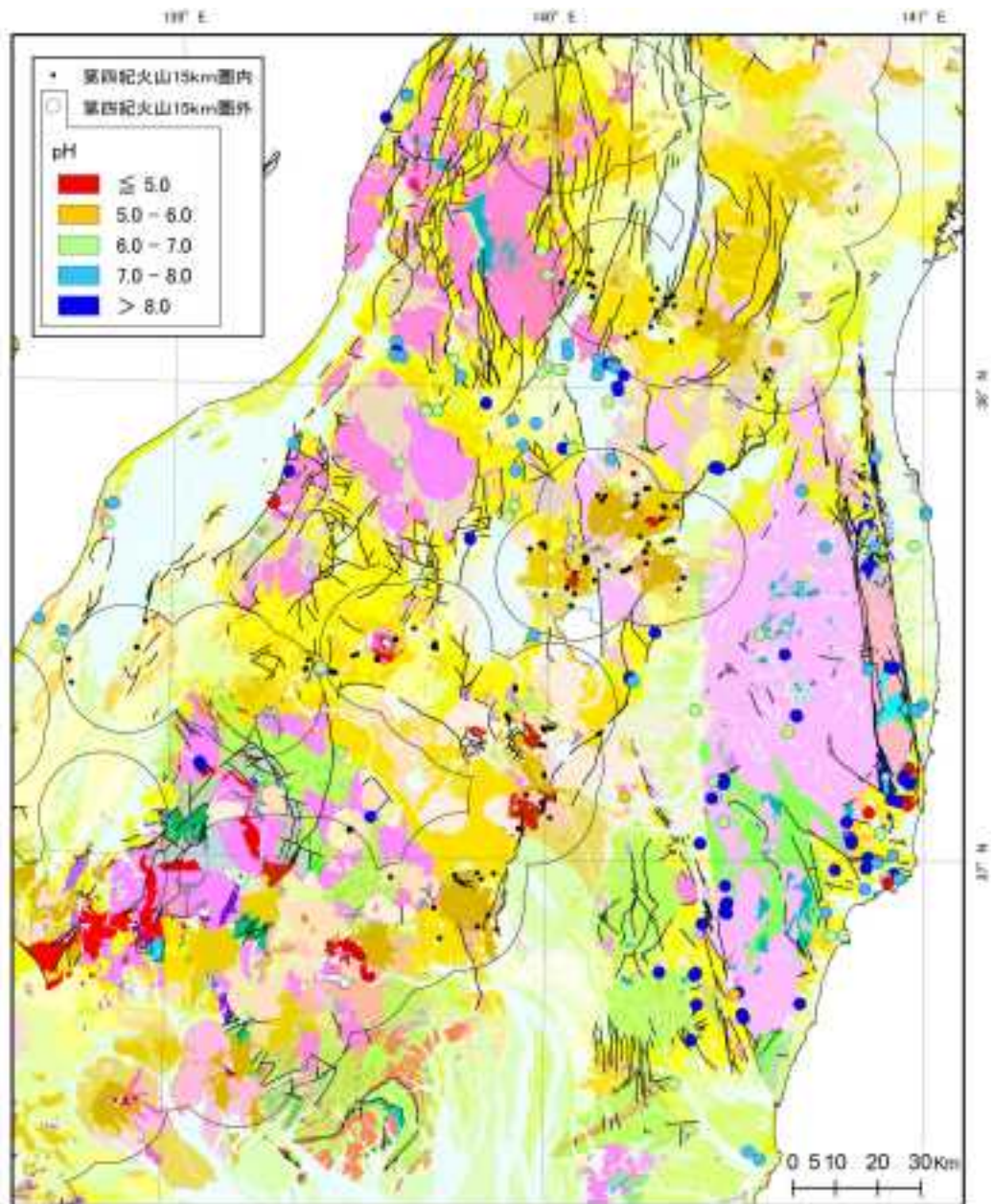


図 1.2.3.2-11 南東北～信越横断面における流出域で湧出する地下水の pH 分布.
地質図は産業技術総合研究所地質調査総合センター (2010) の 20 万分の 1 の地質図を使用.

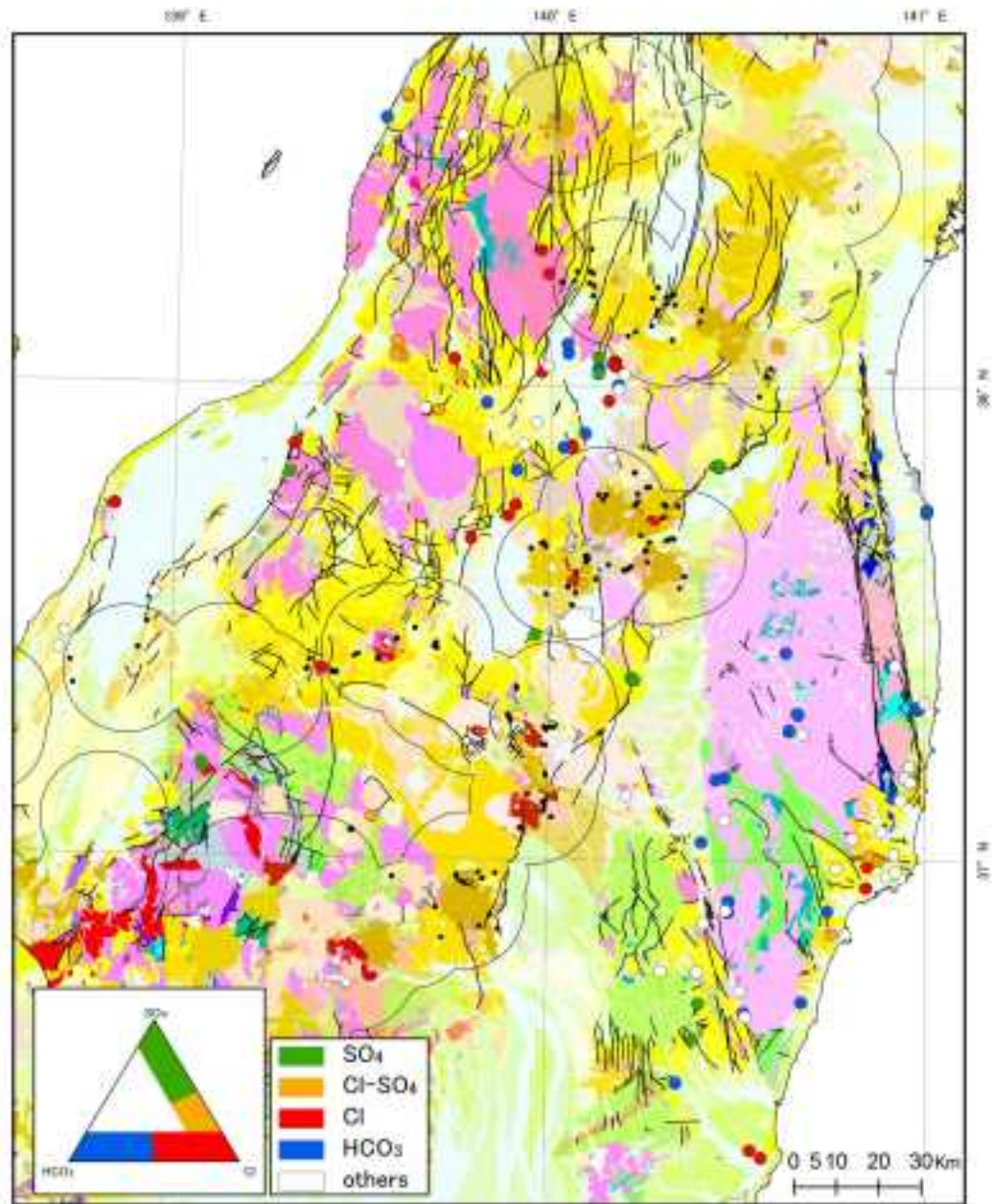


図 1.2.3.2-12 南東北～信越横断面における流出域で湧出する地下水の陰イオンに基づく水質タイプ区分。
地質図は産業技術総合研究所地質調査総合センター (2010) の 20 万分の 1 の地質図を使用。

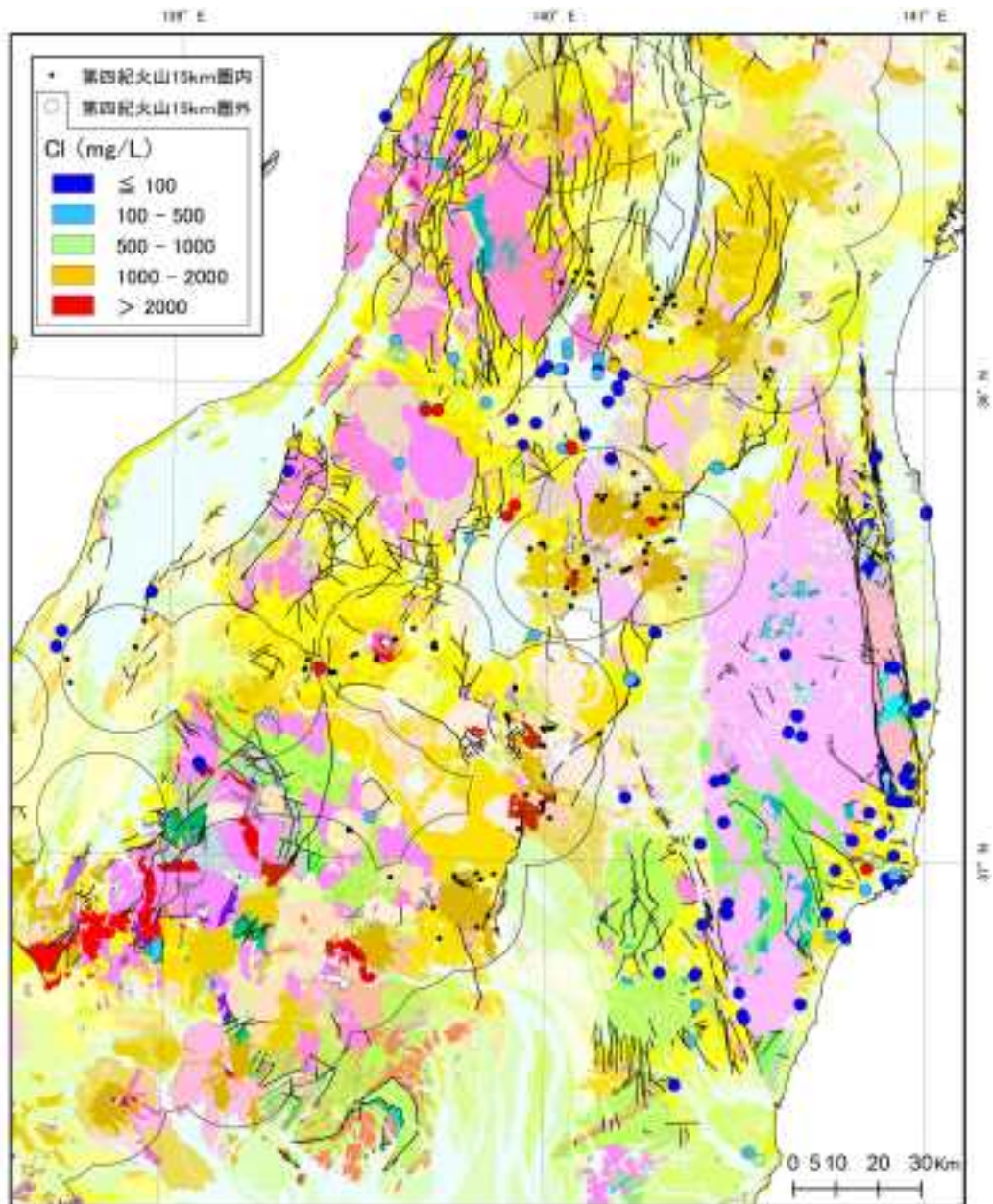


図 1.2.3.2-13 南東北～信越における流出域で湧出する地下水の塩化物イオン濃度分布。
地質図は産業技術総合研究所地質調査総合センター (2010) の 20 万分の 1 の地質図を使用。

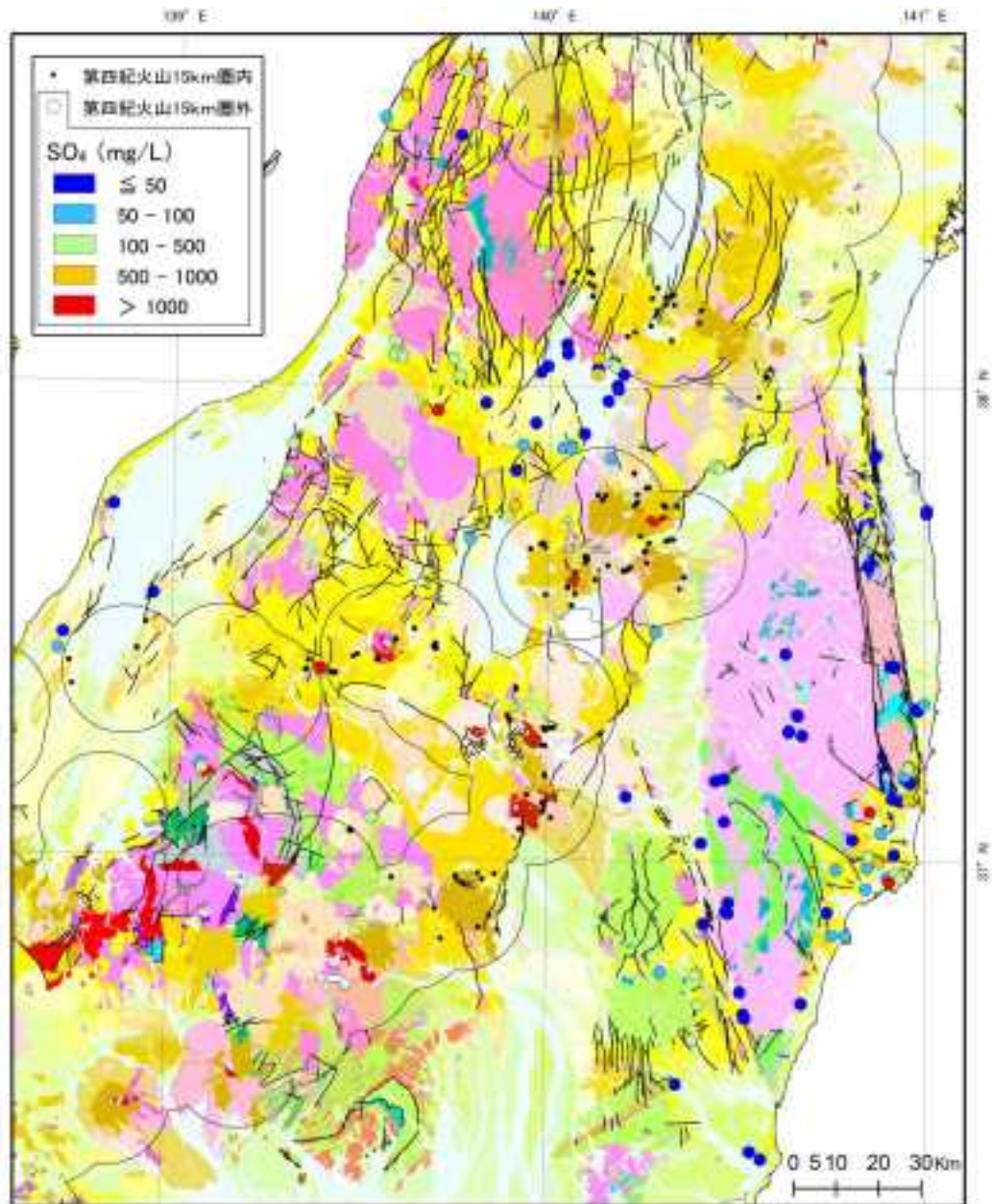


図 1.2.3.2-14 南東北～信越横断面における流出域で湧出する地下水の硫酸イオン濃度分布。
地質図は産業技術総合研究所地質調査総合センター (2010) の 20 万分の 1 の地質図を使用。

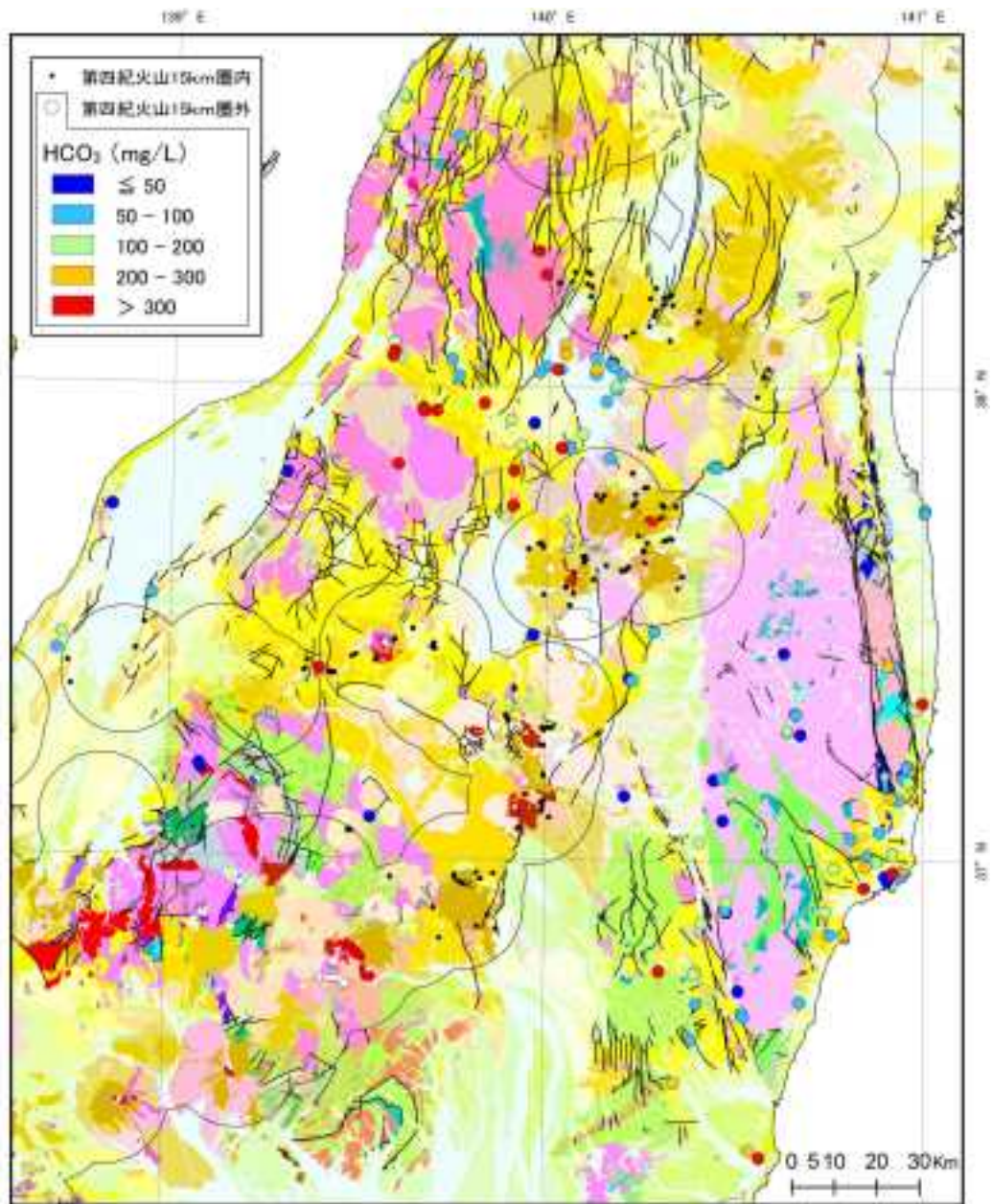


図 1.2.3.2-15 南東北～信越横断面における流出域で湧出する地下水の炭酸水素イオン濃度分布。
地質図は産業技術総合研究所地質調査総合センター (2010) の 20 万分の 1 の地質図を使用。

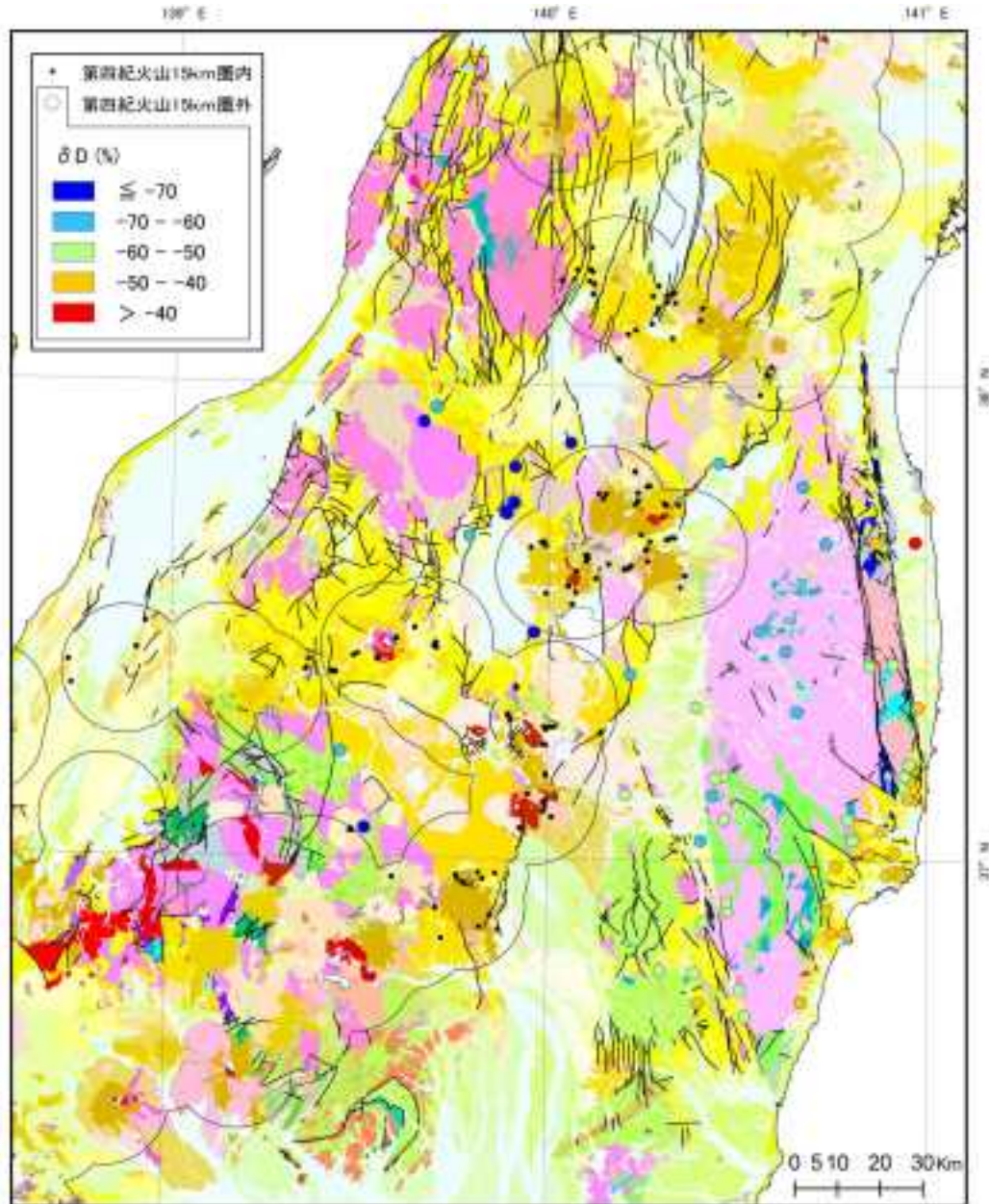


図 1.2.3.2-16 南東北～信越断面における流出域で湧出する地下水の水素同位体比分布。
地質図は産業技術総合研究所地質調査総合センター (2010) の 20 万分の 1 の地質図を使用。

4) まとめ

日本列島を横断する近畿～北陸横断面と南東北～信越横断面の 2 つ横断面において、流出域の地理的な分布要因ならびに湧出する深層地下水（温鉱泉）の地球化学的特徴と地形・地質との関連性を議論した。両地域とも約 60 % 以上の流出域は断層系に關係して形成されているものと判断された。さらに詳細な地質学的情報を収集した上で検討を行えば、今回は河川沿いあるいは傾斜変換点と区分された流出域についても、今後断層系との關係が明らかになるケースが出てくるものと予想される。このことから、断層系の流出域が全体に占める割合は実際にはさらに高いものと考えられる。

河川沿いや地形変換点に分布する流出域で湧出する地下水は概ね低温で水質成分の濃度も低いこと

から、流出域の形成に寄与する地下水の流動系の規模は小さく、その滞留時間も比較的短いものと推定される。対照的に、断層系の流出域から湧出する地下水は、水温、pH、塩化物イオン濃度、硫酸イオン濃度など、その地域の地下深部に賦存すると考えられる深部起源流体の特徴をよく反映している。地質学的弱線である断層を通じて、深層地下水が元の地球化学的な性状をある程度保持したまま地表にもたらされているものと考えられる。

1.2.4 地下水関連パラメータの評価手法の構築

【実施内容】

地下水移行シナリオにおいて考慮すべき地下水パラメータの評価手法について検討を行い、その手法構築のため必要な課題を整理しまとめる。以上の成果は、原子力規制委員会が作成する概要調査結果の判断指標あるいは技術指針に反映される。

【成果】

地下水移行シナリオにおいては、1) 処分地に到達する地下水の物理化学的性質と流量およびそれらの変動に関する情報、および、2) 処分地から生活圏までの経路、その区間における地下水の物理化学的性質、流量、および、それらの変動に関する情報が必要である。ここで1)については、各種自然事象や深部流体による地下水への影響評価として別に取り扱われている(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2015, 1.4章, 2章; 本報告書 2.2章)。本章においては、2)について考慮すべき地下水パラメータと評価に関する留意事項について取り扱う。

1.2.4.1 処分地から生活圏までの経路と流量およびそれらの変動要因

生活圏は、人間生活に影響する範囲と位置づけ、浅層地下水系(河川や海への直接流出を含む)までの経路を取り扱う。地下水の流路は、処分地周辺の深層地下水流動系が浅層地下水系にどこでどのように接続しているのか、そして、流れるだけの圧力差があるかどうかで決まる。

まず、最初に、現在の深層地下水流動系について水文地質学的なモデルを構築する必要がある。その概要は、1) 処分地周辺の深層地下水の流動方向を水文地質学的に明らかにする。2) その下流側の深層地下水流動系の空間配置を水文地質学的調査に基づき把握する。3) 接続される浅層地下水系や河川、海を明らかにする。さらに、4) 深層地下水流動系の流路上に流出域があるかどうかを水文地質学的に確認する。特に断層系は深層からの水みちになりうるので、下流側に断層等が存在する場合は流出域に関する評価が必要である。

次に、構築した水文地質学的モデルについて、将来にわたる深層地下水流動に関する変動を評価する必要がある。現在の地下水流動系は、涵養源および涵養量、地下水の経路(地下水系)、流出域にわけて考えることができる。それぞれに関する将来にわたる変動要因について、以下にその概要を示す。1) 涵養源については、将来の地形変化あるいは気象変化による影響が想定される場合は、その変化について考慮する必要がある。特に約10万年周期で訪れる氷期—間氷期サイクルによる海面変化の影響で地下水流動の出口ポテンシャルが大きく変動することにより、流出域であった場所が氷期に涵養域になる場合も考えられるため、留意する必要がある。2) 涵養量については、地下水系における流量を決めるパラメータであるが、氷期—間氷期サイクルの気候変動により大きな影響を受けるため必ず評価する必要がある。氷期においては日本列島全域で涵養量が減少する傾向になるが、2.2.5章に示したように、北海道においては永久凍土が広がり涵養量が0になる地域が広がる。3) 地下水経路は、後述する流出域の変化に際して同時に変化する。また、将来にわたる隆起・沈降活動やそれに伴う侵食・堆積作用により地下水系は大きな影響を受ける。具体的にどのような影響をうけるかについては、対象とする地域において、過去の地形変化や地下水系の変化等に関する情報を用いて評価する必要がある。将来にわたる断層運動の累積によっても地下水系の分断等の影響をうけるため、別に変動に関して評価する必要がある。4) 流出域は海水準の変化により大きく変化することが予想される。海退時には、地下水系の水頭ポテンシャルの減少とともに流出域の沿岸への移動等が考えられる。約10万年周期で生じる海水準の変化は100m以上に達すると予想されるため、広域で陸化し、同時に地下水流動系全体に大きな影響を及ぼすため、海退時の流出域の変化に関する予測は大変重要

になる。

1.2.4.2 地下水の物理化学的性質とその変動要因

一般に、酸化的かつ低い pH 環境において放射性核種は地下水に溶解しやすく移流・拡散により運搬されやすい。深層地下水の大部分は還元的環境にあると考えられ、pH 値も地層中の鉱物との反応などにより高い値となっていることが多い。逆に浅層地下水は酸化的環境かつ中性から弱酸性の環境にあることが多い。したがって、放射性核種等の重元素は、一般的な深層地下水中では浅層地下水に比べて移動しにくいと考えられる。このような系を乱す要因となる深部流体等の混入は高い CO₂、Cl 濃度に加えて低い pH 環境をもたらすため大変重要なプロセスであるが、その影響については別に評価される（産業技術総合研究所深部地質環境研究コア、2015、2 章）ため、本項では触れない。

深層地下水系から流出に至る過程において、現在観測により得られる酸化還元状態、pH、あるいは水質等が、将来にわたりどのような変動が想定されるかについて検討することが重要である。最も重要と考えられる酸化還元状態の変動は、地下水そのものの変化に起因して生じると考えられる。すなわち、深層地下水系に浅層地下水が流入する環境変化を引き起こすプロセスの評価が重要になる。このような過程は、1) 長期にわたる隆起・侵食プロセスによって、処分地が相対的に浅部に移動する場合であり、処分地周辺の地質学および地形学的調査により評価する必要がある。2) 長期的海水準変化に伴い、処分地近傍の深層地下水流出域が涵養域に変化する場合は、前節で述べた深層地下水流動系の水文地質学的モデルを構築した上で、詳細に検討すべきものである。3) 断層活動などによる鉛直方向の浅層—深層地下水相互作用（混合等）の活発化なども重要な擾乱要因である。断層の水文学的機能に関しては（産業技術総合研究所深部地質環境研究コア、2010）にまとめられている。上記の過程はいずれも深層地下水系に酸化的な浅層地下水が流入するケースになる。次に、水質の変動要因についてであるが、海水等の塩水の侵入に関する評価が重要である。特に沿岸部においては、海水準変動の影響が非常に大きいため、大きな水質変化が生じる可能性がある。この検討に関しては、2.2 章に詳しくまとめられている。

【まとめと今後の課題】

我が国の深層地下水に関する新規データを収集・分析し、分析データあるいは観測値の品質管理を行い、深層地下水データベースに登録した。本年度新規に加えたのは 1,617 点であり、現在までの登録件数は 27,996 件である。データ密度の低い地域がまだいくつか残っているが、概ね日本列島全域をカバーしている。本年度までに、深層地下水データベースは、以下に示す検討課題について重要な役割を果たした。1) 地下水データと地形をはじめとし、各種地質情報、第四紀火山、活断層、地質断層等との関連について解析可能になった。2) 深部流体の成因や上昇場の解析のための重要な基盤情報として活用された。3) 火山、断層活動、海面変化の影響評価においても、同様に重要な地下水解析の基盤情報として活用された。さらに 4) 本データベースから流出域を抽出することにより、流出域データベースを作成した。本データベースは、今後も様々な地域の地下水調査により拡張されて行くことにより、a) ある特定の地域において、迅速に地下水や地下水に関わる影響因子の情報を抽出、b) その地域と類似の地域を抽出し、データを比較検討、c) その地域における各種評価手法の適用性や解析結果の妥当性評価等に活用することができる。評価対象地域、あるいはその評価に必要な類似地域等においてあらたに地下水評価手法等の適用性の確認等を行う際は、随時既存井等の地下水採取調査や既存資料の調査を行い、データベースの拡充および更新を行う必要がある。

流出域の分布要因に関する検討に関しては、これまでに流出域に関する各種データを収集・構築し

ている GIS データベースを拡充した上で、近畿～北陸横断面と南東北～信越横断面の流出域について検討を行った。その結果、地理的な分布要因では、約 60 % 以上の流出域は断層系に關係して形成されたものと判断された。断層系に關係する流出域から湧出する深層地下水は、水温、pH、塩化物イオン、硫酸イオン等、その地域の地下深部に賦存する深部起源流体の特徴をよく反映していることが明らかとなった。

さらに、地下水移行シナリオにおいて考慮すべき地下水パラメータの評価手法について、処分地から生活圏までの経路と流量および物理化学的性質についてその変動要因の検討を行い、取りまとめた。海面が上昇している温暖期においては、流出域となっている場所も、氷期において海面が低下した場合に涵養域に変化しうることを、その結果、より酸化的な地下水が深層にもたらされる場合が生じる可能性があることを指摘した。今後は、将来にわたる地下水系の変動要因について、各要因に關係する地質学的エビデンスを集積してゆく必要があり、核種移行プロセスの評価において基盤となる水文地質学的地下水流動モデルに反映させて行くことが重要である。

【引用文献】

- Matsubaya, O., Sakai, H., Kusachi, I. and Satake, H. (1973) Hydrogen and oxygen isotopic ratios and major element chemistry of Japanese thermal water systems *Geochemical Journal*, 7, no. 3, 123-151.
- 内務省衛生局編纂 (1886) 日本鑛泉誌 (上・中・下巻)。
- Ohwada, M., Satake, H., Nagao, K. and Kazahaya, K. (2007) Formation processes of thermal waters in Green Tuff: A geochemical study in the Hokuriku district, central Japan. *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, 168, no. 1-4, 55-67, doi:10.1016/j.jvolgeores.2007.1007.1009.
- 産業技術総合研究所地質調査総合センター (2010) 20 万分の 1 日本シームレス地質図データベース 2010年2月1日版. 産業技術総合研究所研究情報公開データベース.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2010) 地質処分に係る地質情報データの整備：平成21年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2014) 地層処分に係る地質評価手法等の整備（水理関連情報の整備）：平成25年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2015) 地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備委託費（地質関連情報の整備）事業：平成26年度事業報告書.
- 高橋正明・佐藤努・前川竜男・佐々木宗建・藤本光一郎・伊藤順一・原山智・及川輝樹・高橋康・吉澤杉洋 (2000) 硫黄沢，地獄谷および餓鬼谷の温泉水のBr/Cl比について-花崗岩地帯から放出される水-. 地質調査所報告, 284, 127-132.
- 高橋正明・塚本斉・伊藤順一・安原正也・川邊禎久・遠藤秀典 (1998) 秋田県澄川地すべり後に見られた澄川・赤川温泉の水質. 地すべり, 35, 62-68.

2. 最終処分施設建設地選定段階における基本方針等の妥当性レビューに向けた検討

原子力規制委員会は、最終処分施設建設地の選定に際し、最終処分法に基づき、経済産業大臣が定める基本方針及び最終処分計画の一部の事項のうち、安全の確保のための規制に関する事項について経済産業大臣から意見を求められる。

ここでは、最終処分施設建設地選定段階における基本方針等の妥当性について原子力規制委員会が意見を述べる際に必要な基本的考え方の策定に資する観点からの研究を行う。

また、最終処分施設建設地の選定後は、事業許可申請が行われることから、許可に係る技術基準策定に資する観点からの研究を行う。

2.1 地下の水理環境及び地下水水質の変動要因と将来予測技術

水理環境や地下水の水質に変動・変化をもたらすと考えられる事象・要因について、既存の地下研究施設の原位置における水理試験、水圧モニタリング、化学・生物化学環境等のデータを基に検討を行う。また、安全評価の際の前提となる閉鎖後の再冠水による地下水水質の将来予測を行うための手法を検討する。

平成25年度までに、既往の地下研究施設におけるモニタリング手法の検討と、地下微生物の地下水水質に与える影響のモニタリング結果に基づく定量化及び水質変動予測のための数値解析モデルの構築を行った。また、より長期的な化学環境変動に着目し、海水準変動等による長期の水質、酸化還元環境変動と将来予測手法について検討を行った。

平成26年度は、水質モニタリングにおける水質変動予測の精度向上のため、微生物活動に起因する硫黄同位体等の地下水水質分析を追加的に実施する。

また、埋戻し時における現実的な水理環境を想定した予測手法の検討を行い、平成25年度までの成果を踏まえて取りまとめを行う。

さらに、長期的な化学環境変動の将来予測の観点から過去の長期的な水質変化の履歴を推定する手法として亀裂沈殿鉱物の生成年代の検討を行い、手法の適用性と課題の抽出を行う。

2.1.1 平成22～26年度の5年間における年度毎の検討結果の概要

本課題は、精密調査段階における地下施設を利用した水質等の変動評価手法と、安全評価における核種移行に影響する要因の将来予測手法の構築を目的として平成22年度から実施している課題である。各年度における成果を以下に取りまとめる。

[平成22年度]

- ・水理・地球化学環境の変動要因及び事象の抽出として、地下実験施設のモニタリング孔を用いた水質、溶存ガス、有機物、微生物分析のための試料採取から試料の分析に至るまでの全般的なモニタリング手法の改良を行い、特に溶存ガス評価に関しては試料採取手法の改良、有機物分析に関しては分析手法の改良により効率的な評価が可能となった。微生物に関しては、地質環境は類似しているが、地表条件が異なる瑞浪とグリムゼルでの群集の比較を行い、両者で微生物組成は類似しているが、微生物による還元能力は地表の植生が発達している瑞浪の方が高いことが示された。
- ・変動要因及び事象の将来予測手法の検討として、微生物代謝活性を原位置に近い圧力条件で評価可能な試験手法の検討と、鉱物による酸素消費速度の分析手法の検討を行った。微生物代謝活性試験に関しては、実験の擾乱要因の検討を行い、試験装置の有効性を確認した。鉱物の酸素消費速度に関しては、電気化学的実験手法と速度論的解析によって、酸素消費速度は黄鉄鉱の含有量には依存

しないということが明らかとなった。

[平成23年度]

- ・水理・地球化学環境の変動要因及び事象の抽出として、平成22年度に引き続き地下実験施設における水質モニタリングを行った。その結果、高透水性を示す区間においては、地下施設の立孔掘削の影響が比較的迅速に水質に反映されること、低透水性区間においては人為的擾乱が少なく、炭酸還元による水質変化を定量的に評価することができ、生成されたメタンへの微生物の寄与が小さいことが同位体分析によって示された。コロイド分析に関しては、嫌気的環境下においても、人為的擾乱によって生成した3価鉄コロイドが残存していることが明らかとなった。グリムゼルと瑞浪の微生物の比較の結果として、エネルギー供給の違いによる微生物代謝活性の相違が明らかとなった。
- ・事象・要因の将来予測手法の検討として、瑞浪をモデル化した一次元地下水流動と微生物代謝、増殖・死滅を包含したシミュレーションの適用性検討を行った。定量的には微生物代謝が過小評価されるが、全体の変化傾向は実測結果を再現できることが示された。

[平成24年度]

- ・水理・地球化学環境の変動要因及び事象の抽出として、地下実験施設内における継続的水質モニタリングの結果から、水理特性において大きな相違が無くとも、採水区間より深い地下水の混入の有無に相違が見られた。酸化還元電位の経時的変動は、透水性の小さい区間ほど大きく、これは微生物緩衝能力の低さに起因するものと考えられた。有機炭素及び溶存ガスモニタリングの結果では、地質条件によって浅層地下水の経時的な混入が認められた。
- ・事象・要因の将来予測手法の検討として、原位置圧力下での微生物活性評価では、水素を電子供与体とした実験が可能となり、最大活性速度を評価することができた。それらのパラメータを用いた水質変動予測解析では、空洞掘削から埋戻し後までの予測解析を簡便な一次元解析で実施し、空洞周辺では微生物の影響が小さいことが見られた。

[平成25年度]

- ・水理・地球化学環境の変動要因及び事象の抽出として、継続的なモニタリング結果から、施設建設の人為的擾乱の影響を考慮し、塩分濃度を基準としたデータ解析によって、数年間のモニタリング結果から原位置における微生物活性を評価することが可能となった。また、より長期的な地質事象による水質変動履歴を評価するために、き裂を充填している炭酸塩鉱物中の微量元素（ヒ素）の化学形態解析を行い、炭酸塩鉱物への分配係数から沈殿時の酸化還元電位を推定することが可能となった。
- ・事象・要因の将来予測手法の検討として、地下施設の建設から埋戻し後にわたる水質変動を、微生物の影響を考慮して予測するために、断面2次元の浸透流－水質変動結合解析を試みた。解析では、微生物活動に関するパラメータを変化させたケーススタディによって、埋戻し後に硝酸イオン濃度が特徴的に増加する傾向が有り得ることが示された。また、平行して実施した長期の海水準変動を考慮した水質変動解析では、海域の塩水の停滞及び酸化還元状態の海水準依存性が明らかになった。

[平成26年度]

- ・水理・地球化学環境の変動要因及び事象の抽出として、地下施設からの調査により、詳細な生物化学特性の把握が可能であり、水理特性との比較により 10^{-11} m/s付近の透水係数を境界に、生物地球化学過程が異なることが、世界各地の花崗岩基盤深部で共通の傾向として明らかとなった。また、鉛直方向の溶存ガス分布の解析により、深いほどメタン濃度は大きく、逆に全炭酸濃度は小さく

なることが、深度500mの調査でよりはっきりと確認できた。それらのメタンの起源については重い炭素を持つ炭酸の還元、あるいは軽い炭素を持つメタンの酸化という仮説を立てることができた。微生物活性実験からは、水素濃度によって異なる代謝を起こす微生物が活性化することが示された。より長期的な水質変動評価に関しては、ヒ素の化学形態に加え、ヨウ素の化学形態分析とウラン-トリウムによる年代評価を実施し、深度や地質環境ごとの沈殿環境、年代が整合性のある結果となっていることが示された。

- ・事象・要因の将来予測手法の検討として、断面2次元地下水流動-水質変動解析に、地下施設操業時における不飽和帯の形成及び水理的な異方性と微生物の影響、鉱物の影響を考慮したケーススタディを実施した。その結果、微生物による酸素濃度、pH、Eh等の変動への影響が鉱物によるものよりも卓越することが示された。長期的な海水準変動による水質変化モデルでは、7種類の酸化還元反応を組み込んだ解析により、単純な酸化還元モデルとは大きく異なる水質分布が得られ、原位置のキャラクタリゼーションやパラメータ決定の重要性が示された。

2.1.2 施設周辺の地下水流動化学環境変化データの拡充

【実施内容】

平成25年度までの地化学・生物化学モニタリング結果及び微生物の水質変動に与える影響を支配する微生物活性の評価結果を確認するために、瑞浪超深地層研究所におけるモニタリング孔及び周辺ボーリング孔を用いた継続的な水質、溶存ガス、同位体分析を実施する。その結果、人為的擾乱の影響範囲、人為的擾乱下における微生物、水質への影響パラメータの抽出を行う。以上の分析結果を用いて、地下水の酸化還元環境の擾乱からの回復に関連する微生物の水質バッファ作用に関するパラメータ評価を実施する。その上で、評価結果を用いて、処分場掘削時から埋め戻し後までの期間に渡る飽和・不飽和浸透流解析と微生物作用を加えた水質変動解析を逐次的に実施することによって、水質の回復過程の予測解析手法を検討し、成果を取りまとめる。以上の成果は、原子力規制委員会が作成する精密調査に対する判断指標あるいは技術指針の知見として反映される。

【成果】

2.1.2.1 花崗岩中の地下水の地球化学・生物化学特性の長期観測結果の取りまとめ

本研究課題では、地層処分の長期安定性を評価するために、水理・地球化学環境の長期変遷解析手法の確立を行った。放射性核種の隔離性能に関わる岩盤の水理特性と地下水の水質について、地下水試料を対象に、既往の地下実験施設における経時的な水理環境の変化をまとめた。

日本原子力研究開発機構瑞浪超深地層研究所において、花崗岩地下水の地球化学・生物化学特性の長期に渡る観測を行い、立坑建設による擾乱を把握した上で、建設前のベースライン特性の復元と、ベースラインへの回復過程の予測手法の確立を目指している。瑞浪超深地層研究所の地下施設の地下200, 300, 400 mの水平掘削孔の07MI07, 09MI20と10MI26で、亀裂頻度の高い岩体（高密度割れ目帯；highly fractured domain）の6年間に渡る長期観測結果の取りまとめが行われた（Suzuki *et al.*, 2014）。地下300 mの水平掘削孔09MI21は、低い割れ目頻度の岩体（低密度割れ目帯；sparsely fractured domain）中に位置しており、本年度は09MI21の3年間に渡る観測結果と取りまとめると共に、割れ目頻度の違いが水理特性と地下水の水質に及ぼす影響について考察を行った。

瑞浪超深地層研究所周辺の地質概要は、第三紀堆積岩の明世層、本郷層、土岐夾炭層が白亜紀土岐花崗岩を覆っている（図2.1.2.1-1）。深度200, 300, 400 mに位置する掘削孔07MI07, 09MI20, 10MI26は6区間にパッカーにより区切られており、手前の区間6はセメントの影響があるため取りまとめから除外した。300 mに位置する掘削孔09MI21は4区間にパッカーにより区切られており、手前の区間1は除外し2010年8月からのデータを取りまとめた。すべての掘削孔区間は自噴するため、試料採取時は区間体積の最低3倍量排水し分析用試料を採取した。

表2.1.2.1-1に、瑞浪超深地層研究所地下施設の水平掘削孔の掘削長、区間番号と水平深度、割れ目頻度および透水係数を示す。掘削長は55から103 mで、パッカー区間は水理特性の違いにより設定された。割れ目頻度は、掘削で得られたコアや孔内検層により決定され、特に低密度割れ目帯は割れ目頻度が著しく低かった。透水係数(m/s)は、Hvorslev法(Hvorslev, 1951)またはCooper法(Cooper Jr and Jacob, 1946)により算出された。透水係数は、割れ目頻度と相関して、09MI21の区間では 1.1×10^{-9} から 4.6×10^{-11} m/sと低く、07MI07, 09MI20, 10MI26は 1.0×10^{-4} から 7.0×10^{-9} m/sと高い範囲を示した。

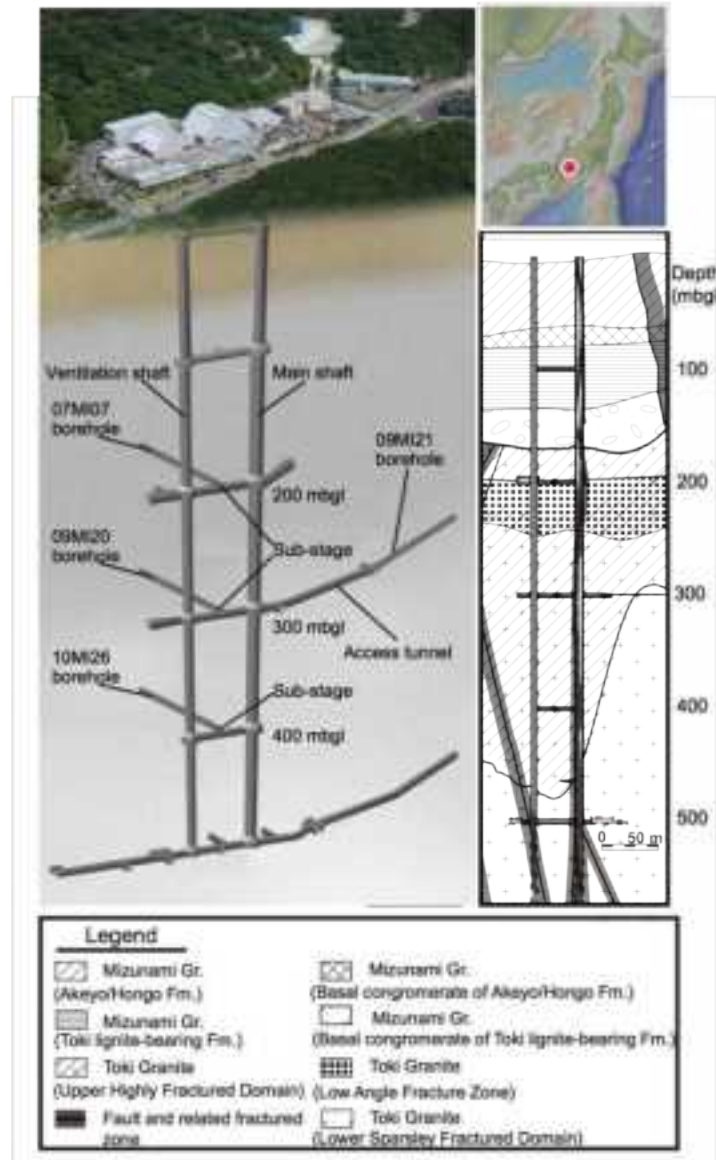


図 2.1.2.1-1 瑞浪超深地層研究所の位置と地下施設の概略図。
凡例は地質ユニットと断層を示す。

表 2.1.2.1-1 瑞浪超深地層研究所地下施設の水平掘削孔の掘削長、区間番号と水平深度、割れ目頻度および透水係数。

Borehole	Drilling length	Section No.	Packer interval (mabh)	Fracture frequency (n/m)	Hydraulic conductivity (m/s)
07MI07	55 m	1	48.3-55.3	11.2	1.1×10^{-4}
		2	38.9-47.4	17.4	3.0×10^{-7}
		3	31.5-38.0	5.7	1.6×10^{-4}
		4	27.1-30.6	7.8	1.7×10^{-4}
		5	17.1-26.2	10.3	1.1×10^{-7}
09MI20	102 m	1	96.1-102.0	8.2	3.0×10^{-5}
		2	84.7-95.2	4.4	1.0×10^{-4}
		3	58.7-83.8	4.9	2.3×10^{-7}
		4	34.8-57.8	6.0	7.0×10^{-9}
		5	19.4-33.9	4.3	3.9×10^{-8}
09MI21	103 m	4	89.0-103.0	1.0	4.4×10^{-11}
		3	78.1-88.1	2.0	1.1×10^{-9}
		2	67.1-77.1	0.2	4.6×10^{-11}
10MI26	71 m	1	52.8-70.6	5.5	2.0×10^{-7}
		2	50.6-51.8	0.0	No outflow
		3	37.9-49.6	5.9	2.5×10^{-8}
		4	30.2-36.9	7.0	3.5×10^{-5}
		5	10.0-29.2	5.1	3.0×10^{-8}

表 2.1.2.1-2 に、09MI21 の 2010 年から 2012 年に渡る地下水水質調査結果を示す。すべての区間で pH は弱アルカリ性 (pH = 8.6-9.0) で、水温は 22.4 から 25.2°C であった。地下水の水素同位体組成 δD_{H_2O} と酸素同位体組成 $\delta^{18}O_{H_2O}$ は -60~ -58‰ VSMOW と -9.1~ -8.8‰ VSMOW で、天水起源の地下水であった。Na⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺, Cl⁻, F⁻ や Br⁻ 等の陽イオンと陰イオンは、Suzuki *et al.* (2014) で報告された 07MI07, 09MI20 および 10MI26 の値の範囲内であった。

生物により電子受容体として利用され、酸化還元状態の指標となる化合物については、O₂ と NO₃⁻ 濃度は検出限界未満であったのに対し、SO₄²⁻ は 2.1 から 13.5 μM と低い濃度で、DIC (溶存無機炭素; dissolved inorganic carbon) は 333 から 658 μM と幅広い範囲を示した。生物により電子供与体として利用される化合物である HS⁻, Fe²⁺ および NH₄⁺ は検出限界未満または濃度が低かった。DOC (溶存有機炭素; dissolved organic carbon) の濃度は 11.6 から 58.3 μM であったが、有機酸は 09MI21 の区間 2 で 2010 年に検出された以外は、検出限界未満であった。溶存ガスは、H₂ が 1.4 から 135 nM, CH₄ が 226 から 604 μM, C₂H₆ が 0.05 から 0.75 μM と幅広い範囲を示した。

CH₄ の炭素同位体組成 $\delta^{13}C_{CH_4}$ と水素同位体組成 δD_{CH_4} は -42.6 から -30.2 ‰ VPDB と -95 から -164 ‰ VSMOW であった。DIC の炭素同位体組成 $\delta^{13}C_{DIC}$ は -13.3 から -8.9 ‰ VPDB と比較的範囲の幅が狭かった。DOC の炭素同位体組成 $\delta^{13}C_{DOC}$ も -28.6 から -26.6 ‰ VPDB とほぼ一定であり、2010 年に検出された酢酸の炭素同位体組成 $\delta^{13}C_{Ac}$ は -30.4‰ VPDB と DOC よりわずかに低い値であった。

表2.1.2.1-2 瑞浪超深地層研究所地下施設深度300 mの水平掘削孔09MI21の地下水の温度、同位体組成、pH、主要陽イオン・陰イオン濃度、生物利用される化合物の濃度と同位体組成。

	09MI21-2			09MI21-3			09MI21-4		
Sampling year and month	2010.8	2011.2	2012.8	2010.8	2011.2	2012.8	2010.8	2011.2	2012.8
pH	8.8	9.0	8.9	8.8	8.8	8.6	8.9	9.0	8.9
Temperature (°C)	24.7	22.3	24.3	23.8	22.4	24.2	24.2	22.4	24.1
DO (mg/L)	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02
Na ⁺ (mM)	6.4	5.3	5.2	3.7	3.9	4.2	5.8	5.6	5.6
K ⁺ (μM)	10.2	10.2	10.2	7.7	10.2	10.2	10.2	10.2	10.2
Ca ²⁺ (mM)	0.6	0.5	0.5	0.3	0.4	0.4	0.6	0.6	0.5
Mg ²⁺ (μM)	<4.1	<4.1	<4.1	<4.1	<4.1	<4.1	<4.1	<4.1	<4.1
Cl ⁻ (mM)	7.1	5.5	5.3	3.1	3.4	4.0	6.2	6	5.8
F ⁻ (mM)	0.4	0.5	0.5	0.7	0.6	0.6	0.5	0.5	0.5
Br ⁻ (μM)	6.3	5.0	5.0	2.5	2.5	3.8	6.3	5.0	5.0
NO ₃ ⁻ (μM)	<0.8	<0.8	<0.8	<0.8	s	<0.8	<0.8	<0.8	<0.8
NO ₂ ⁻ (μM)	<1.1	<1.1	<1.1	<1.1	<1.1	<1.1	<1.1	<1.1	<1.1
SO ₄ ²⁻ (μM)	2.1	7.3	4.2	13.5	7.3	5.2	4.2	4.2	4.2
Fe ²⁺ (μM)	<3.5	<3.5	<3.5	<3.5	<3.5	<3.5	<3.5	<3.5	<3.5
HS ⁻ (μM)	<3	<3	<3	<3	<3	<3	<3	<3	<3
NH ₄ ⁺ (μM)	13.2	5.6	11.1	9.3	5.6	11.1	11.9	11.1	11.1
DIC (mM)	0.33	0.46	0.41	0.66	0.65	0.55	0.38	0.41	0.40
δ ¹³ C _{DIC} (‰VPDB)	9.5	N.D. ^a	-8.9	-13.3	N.D.	-12.7	-11.4	N.D.	-11.6
DOC (μM)	15.9	40.3	18.3	11.6	50.2	58.3	15.5	34.3	49.2
δ ¹³ C _{DOC} (‰VPDB)	-27.6	N.D.	N.D.	-26.6	N.D.	N.D.	-28.6	N.D.	N.D.
Acetate (μM)	12.8	<2.8	<2.8	<2.8	<2.8	<2.8	<2.8	<2.8	<2.8
δ ¹³ C _{AC} (‰VPDB)	-30.4	N.D.	N.D.	<d.l. ^b	N.D.	N.D.	<d.l.	N.D.	N.D.
H ₂ (nM)	91	1.4	12.2	2.7	3.4	14.9	110	135	93.1
CH ₄ (μM)	604	361	380	250	327	431	312	438	537
δ ¹³ C _{CH4} (‰VPDB)	-42.6	-41.3	-40.7	-41.0	-38.8	-37.7	-39.8	-42.0	-41.6
δD _{CH4} (‰VSMOW)	-149	-164	-158	-146	-158	-149	-140	-162	-158
C ₂ H ₆ (μM)	0.75	0.08	0.23	0.10	0.06	0.07	0.27	0.13	0.39

^aN.D.: not determined. ^b<d.l.: under detection limit

VSMOWはVienna Standard Mean Ocean WaterでVPDBはVienna Pee Dee Belemnite の略。

aN.D.: not determined. b<d.l.: under detection limit

瑞浪超深地層研究所周辺の花崗岩体中では、1,000 万年前の大規模な海進以来、天水起源の淡水により深層の塩分に富んだ地下水が置換えられている。地下施設建設前の地上からの掘削調査により、地下施設近傍の掘削孔の DH-2 の塩化物イオン濃度は、深度と直線性が最小自乗法の R² 値が 0.950 と非常に良い相関を示した (Iwatsuki *et al.*, 2005)。立坑建設後はその関係が著しく擾乱を受け、浅層と深層の地下水が混合したことが判明した (Mizuno *et al.*, 2013)。この大型地下施設の建設による地下水の人為的な混合は、カナダや北欧の花崗岩体でも報告されており (Banwart *et al.*, 1996; Gascoyne and Thomas, 1997; Pedersen *et al.*, 2014)、精密調査段階で花崗岩体を対象とする場合は留意する必要がある。塩化物イオンは地下水中で非吸着性のトレーサーとして知られてお

り、立坑建設前の深度プロファイルを立てた立坑建設前の DH-2 の塩化物イオン濃度から復元を行った (図 2.1.2.1-2)。その結果、07MI07, 09MI20 と 10MI26 が位置する比較的高透水性の高密度割れ目帯では、 SO_4^{2-} と DIC は深度と共に減少するのに対し、 CH_4 は深度と共に増加する傾向が明らかとなった (Suzuki *et al.*, 2014)。これらの深度プロファイルは、 SO_4^{2-} と DIC に富み CH_4 に欠乏する浅層地下水と、逆に CH_4 に富み SO_4^{2-} と DIC に欠乏する深層地下水が、地下施設建設前から混合していたことを示すと共に、これらの化合物の硫黄と炭素の同位体組成の変化から、硫酸濃度の減少には微生物の硫酸呼吸による代謝活動が寄与していることも明らかとなった (Suzuki *et al.*, 2014)。

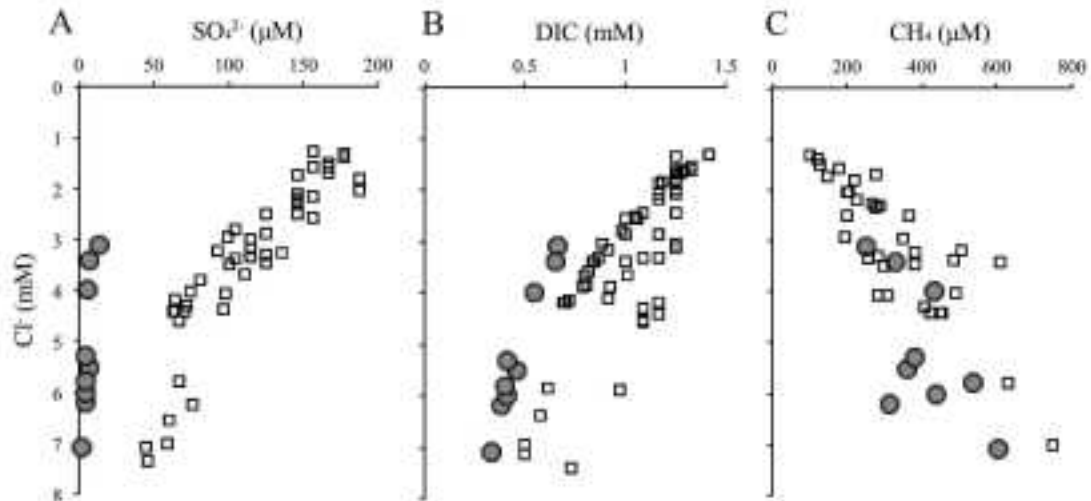


図 2.1.2.1-2 塩化物イオン濃度と硫酸、DIC、 CH_4 の濃度の相関。(A) 硫酸濃度、(B) DIC 濃度、(C) メタン濃度

灰色の丸は低密度割れ目帯 (sparsely fractured domain) にある 09MI21 から得られたデータに対し、白抜きの方角は高密度割れ目帯 (highly fractured domain) の 07MI07, 09MI20, 10MI26 から得られたデータを示す。

09MI21 は低透水性で立坑からも離れているため (図 2.1.2.1-1)、立坑建設による浅層と深層の地下水混合は顕著でなく、同じ深度でも区間ごとに塩化物イオン濃度が異なった (図 2.1.2.1-2)。低密度割れ目帯に位置する 09MI21 は、立坑建設の人為的な擾乱ではない 1,000 万年以降で続く浅層と深層の地下水混合による SO_4^{2-} と DIC の減少傾向とは明らかに異なる塩化物イオン濃度との相関を示した (図 2.1.2.1-2)。この混合傾向から低濃度側に著しくずれる結果は、低密度割れ目帯では、微生物の代謝活動により SO_4^{2-} と DIC が地下水から取り除かれていることを示唆する。一方で、 CH_4 は高密度割れ目帯と同様の地下水混合の傾向を示し、微生物によるメタンの生成量は大きくないことが示された。

次に深度の指標になる塩化物イオン濃度ではなく、水理特性を代表する透水係数との相関性を調べた (図 2.1.2.1-3)。2012 年に測定された塩化物イオン濃度と透水係数でプロットした場合に、両因子間の相関が良いことが明らかになった。この相関性は、透水係数が低い程、深層の塩化物イオンに富む地下水が卓越し、浅層の塩化物に乏しい地下水によりフラッシュされないことで説明される。また、透水係数と SO_4^{2-} 、DIC、 CH_4 の相関性を調べると、塩化物イオンとのプロットでは高密度と低密度割れ目帯で、塩化物イオンとの相関が分かれた SO_4^{2-} と DIC が、透水係数とは比較的良好な相関を示すことが明らかとなった。透水係数が $<10^{-9}$ m/s の低密度割れ目帯で測定された SO_4^{2-} 濃度 (2.1 から $13.5 \mu\text{M}$) は、微生物の硫酸還元呼吸が可能な最低濃度として知られる $5 \mu\text{M}$ 程度なため (Chapelle, 2001)、地下水の混合に加えて微生物代謝が濃度を支配していることと整合的である。また、低密度割れ目帯では硫酸はほぼ枯渇していると判断される。 CH_4 については、透水係数と塩化物イオンの相関性程明確ではないが相関しているため、地下水の混合により濃度が影響を受けている

ことが確認された。

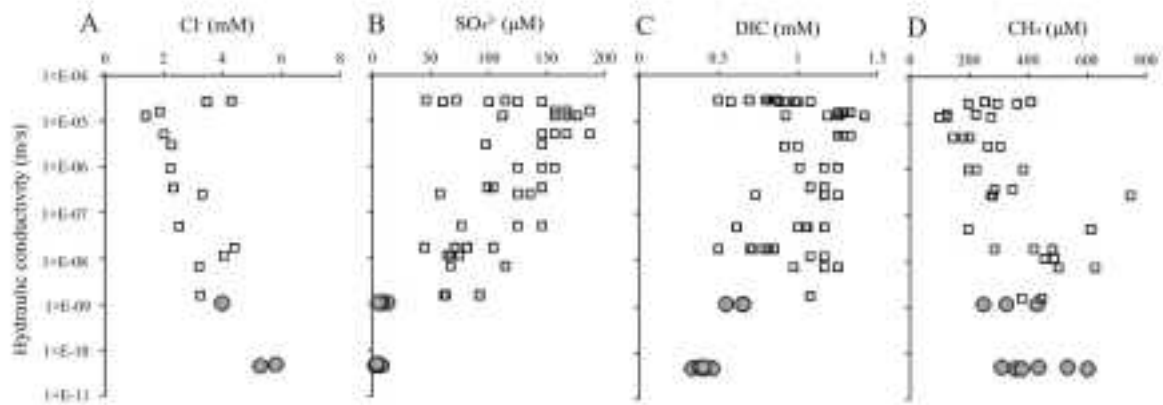


図 2.1.2.1-3 透水係数の log と塩化物イオン、硫酸、DIC、CH₄ の濃度の相関。

(A) 塩化物イオン、(B) 硫酸濃度、(C) DIC濃度、(D) メタン濃度。灰色の丸は低密度割れ目帯 (sparsely fractured domain) にある 09MI21 から得られたデータに対し、白抜き四角は高密度割れ目帯 (highly fractured domain) の 07MI07、09MI20、10MI26 から得られたデータを示す。

地下深部における微生物代謝のエネルギー源として重要な DOC と H₂ について、塩化物イオンと log スケールでの透水係数との相関をプロットした (図 2.1.2.1-4)。DOC はどちらの因子とも相関がなかったが、H₂ は低密度割れ目帯で透水係数が $\sim 4.5 \times 10^{-11}$ m/s で 91~135 nM と高い濃度だった。低透水性に加えて、塩化物イオン濃度が 5.8 mM 以上で濃集が見られたため、塩化物イオンに富む深い地下水は水素にも富んでいると考えられる。また、H₂ が高濃度で安定であった 09MI21 の区間 4 は、地下水の湧出量が ~ 40 ml/min と、同じ掘削孔の他の区間の湧出量 (> 170 ml/min) より著しく低かった。区間 2 の水も掘削翌年の 2010 年は同様に高く (表 2.1.2.1-2)、2011 年以降で低くなったため、水素に富む塩化物イオン濃度が高い地下水を、パッカー設置後の排水と採水により枯渇したと推察される。

100 nM 程度の H₂ が堆積物の間隙水や地下水中に含まれることは、最終電子受容過程が CO₂ 還元によるメタンまたは酢酸が生成する場合に普遍的である (Chapelle *et al.*, 2002; Heimann *et al.*, 2010)。瑞浪地下施設周辺の高密度割れ目帯では、硫酸還元が最終電子受容過程であり、H₂ 濃度も硫酸還元が主要な他のサイトと整合的に 5 nM より低かった (Hoehler *et al.*, 1998; Chapelle, 2001)。H₂ 濃度が、最も敏感な最終電子受容過程の指標として知られており、低密度割れ目帯は SO₄²⁻ と DIC 濃度の解釈と整合的に CO₂ 還元が主要な最終電子受容過程であり、硫酸還元からシフトしていることが明らかとなった (図 2.1.2.1-3)。しかし、CO₂ 還元によりメタンが生成する場合は、地下水中のメタン濃度も DIC の減少分上昇するが、地下水混合の影響を上回るメタンの生成は認められなかった。また酢酸についても、2010 年の 09MI21 の区間 2 でのみ検出されており、微生物により還元された CO₂ が酢酸として生成されていないことも明らかで、無機から有機炭素への変換過程が異なる可能性がある。

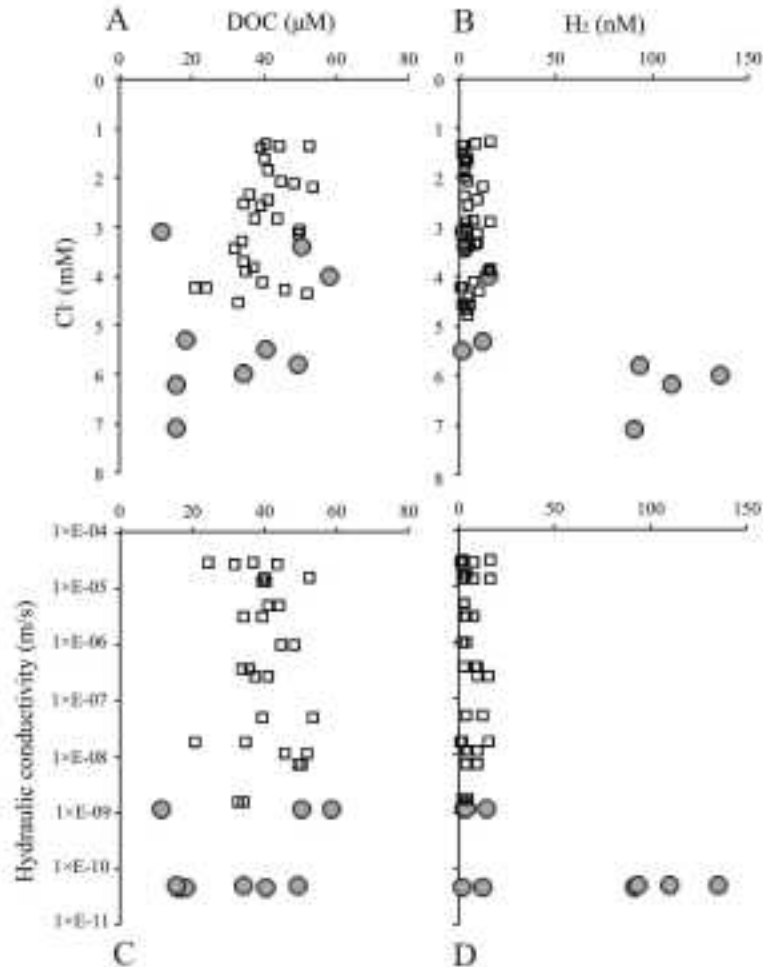


図 2.1.2.1-4 塩化物イオン濃度と (A)DOC 濃度または (B)H₂ 濃度との相関。

透水係数の log と (C) DOC 濃度または (D)H₂ 濃度との相関も示す。

灰色の丸は低密度割れ目帯(sparsely fractured domain)にある09MI21から得られたデータに対し、白抜きの方角は高密度割れ目帯(highly fractured domain)の07MI07, 09MI20, 10MI26から得られたデータを示す。

密度割れ目帯で微生物により媒介される炭素の物質循環を理解するために、メタンと DIC の炭素安定同位体組成 ($\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$ と $\delta^{13}\text{C}_{\text{CH}_4}$) およびメタンの水素安定同位体組成 ($\delta\text{D}_{\text{CH}_4}$) を測定した (表 2.1.2.1-2)。高密度割れ目帯では $\delta^{13}\text{C}_{\text{CH}_4}$ と $\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$ の値が塩化物イオン濃度に対してほぼ一定であった (Suzuki *et al.*, 2014)。透水係数でプロットした場合 (図 2.1.2.1-5)、透水係数の減少に伴い、 $\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$ 値が高く、 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CH}_4}$ 値が低くなっている傾向がわずかに高密度割れ目帯で見られた。低密度割れ目帯では、 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CH}_4}$ と $\delta\text{D}_{\text{CH}_4}$ の値が低くなる傾向が顕著であり (図 2.1.2.1-5)、同位体組成の軽い CH₄ が、透水係数の低下に伴い富むことが示された。一方で、微生物の代謝により消費されていることが明らかな DIC は、 $\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$ 値の変化が小さかった。特に、DIC の消費がメタン生成に至る場合は、DIC とメタンの間で大きな同位体分別が起きることが知られており (Whiticar, 1999a; Valentine *et al.*, 2004)、同位体組成の重い DIC と軽いメタンが生じる。しかし、DIC は同位体組成の変化が小さいため、消費の大部分がメタン生成に至っていないことを示唆する。

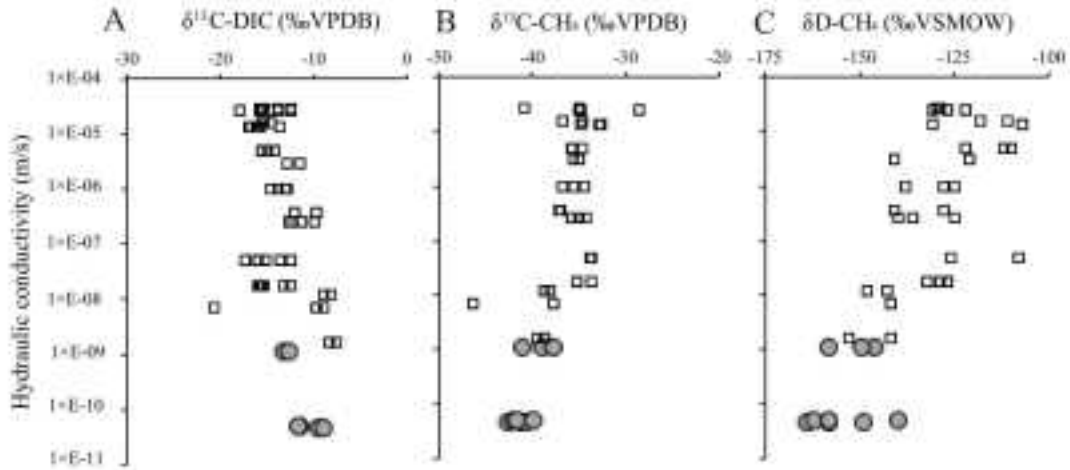


図 2.1.2.1-5 透水係数と (A) DIC の炭素安定同位体組成 $\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$, (B) CH_4 の炭素安定同位体組成 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CH}_4}$, (C) 水素安定同位体組成 δ_{DCH_4} の相関。

灰色の丸は低密度割れ目帯 (sparsely fractured domain) にある 09MI21 から得られたデータに対し、白抜き四角は高密度割れ目帯 (highly fractured domain) の 07MI07, 09MI20, 10MI26 から得られたデータを示す。

酢酸も CO_2 還元のプロダクトとして知られ、酢酸の生成には H_2 をエネルギー源とした CO_2 還元を介する経路と有機物の発酵により生成する経路の二つが知られており (Heuer *et al.*, 2009), これらの経路は炭素安定同位体組成 $\delta^{13}\text{C}_{\text{Ac}}$ により推定できる (Penning and Conrad, 2006). 有機物の発酵の場合は、原材料の有機物と同位体組成が変わらないが、 CO_2 還元を介す場合は原材料の DIC の同位体組成から -50 から -60 ‰程度低くなることから知られる (Heuer *et al.*, 2009). 2010 年に 09MI21 の区間 2 だけで検出された酢酸の $\delta^{13}\text{C}_{\text{Ac}}$ は -30.4 ‰ VPDB であり (表 2.1.2.1-2), 共存する DOC の $\delta^{13}\text{C}_{\text{DOC}}$ (-27.6 ‰ VPDB) とほぼ同じであった。また、DIC の $\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$ が 9.5 ‰ VPDB であり分別が 40 ‰近いので、DIC から生成している可能性も考えられる。したがって、酢酸の同位体組成から生成経路の特定に至らなかった。しかし、DIC 濃度の減少が同位体分別を伴わないことは、同位体分別の大きな酢酸生成やメタン生成の DIC 濃度の減少への寄与は小さいと結論付けられる。

地下水の酸化還元状態の指標として有用な生物地球化学反応は、表層付近の植生や土壌の発達度合いによりサイト毎に異なると考えられている (Drever, 1997). また、地下水の滞留時間も生物地球化学反応に影響を及ぼすと指摘されるが、結晶質岩深部を対象とした生物地球化学調査が地上からの掘削調査では困難なため、相関性については明らかではなかった。瑞浪超深地層所では、亀裂系花崗岩体中に透水性の異なる領域が近接しており、地下坑道からの生物地球化学特性と水理学特性の調査により相関性を明らかにできた。特に、透水係数が 1.1×10^{-9} m/s を境界に、 SO_4^{2-} と DIC の減少が顕著になり、 4.5×10^{-11} m/s では SO_4^{2-} が枯渇して、 H_2 が地下水の混合が少ない場合に高濃度で観測された。瑞浪超深地層所で見られた花崗岩基盤中での相関性の普遍性を明らかにするために、地下水の起源や表層の植生や土壌およびテクトニクスが異なる他のサイトの花崗岩基盤について比較した。

瑞浪と同様に淡水地下水系であるスイスのグリムゼル地下試験場は、アルプスの山頂付近の花崗岩が地表に露出し植生も疎らで、プレート境界の変動帯の瑞浪とは安定大陸に位置する点でも異なる。先行研究では、透水係数が 1.4×10^{-9} ~ 3.3×10^{-8} m/s の岩体中で、 SO_4^{2-} (51.6 ~ $176.8 \mu\text{M}$) と DOC (22.4 ~ $82.7 \mu\text{M}$) は透水係数も同様な瑞浪の高密度割れ目帯と同様の範囲を示した (Konno *et al.*, 2013). 海水地下水系であるフィンランドで高レベル放射性廃棄物の地層処分場が建設中の Olkiluoto では、 SO_4^{2-} が地表付近から 500 mg/l まで減少し、深部では SO_4^{2-} が枯渇する。一

方、海水地下水系で地層処分の最終候補地であるスウェーデンの Forsmark では、0.2 mM を超える SO_4^{2-} が 978 mbgl でも地下水に含まれる。Forsmark は透水係数が $\sim 10^{-5}$ から $\sim 10^{-8}$ m/s と高く (Laaksoharju *et al.*, 2008), Olkiluote では 500 mbgl までは透水係数が 3.0×10^{-7} to 1.5×10^{-11} m/s であり、以深では透水係数が 1.5×10^{-11} m/s を下回る (Pedersen *et al.*, 2008; Vaittinen *et al.*, 2011)。透水係数が低い Olkiluote は、DIC が減少し CH_4 が増加する傾向が顕著であり、最終電子受容過程が硫酸還元から CO_2 還元シフトしていると判断される。

CO_2 還元は常に H_2 を電子供与体とするため、DIC 濃度の減少には H_2 の供給が伴われる。瑞浪の花崗岩においても透水係数が $\sim 4.5 \times 10^{-11}$ m/s において、 SO_4^{2-} の枯渇と DIC 濃度の減少が顕著であり、Olkiluote と同様の特徴を示す。また透水係数が 10^{-9} m/s では SO_4^{2-} が枯渇しない特徴は淡水地下水系のグリムゼルと海水系の両サイトとも同様であった。これら透水係数と関係して共通の生物地球化学的特徴を示す理由として、 H_2 の水中での拡散速度に起因すると考えられる。その根拠として、25 °C における H_2 の拡散係数は $\sim 5 \times 10^{-9}$ m²/s であり (Jähne *et al.*, 1987)、透水量係数は H_2 の蓄積が見られた 09MI21 の区間 2 と 4 では $\sim 9.6 \times 10^{-10}$ m²/s で、蓄積の見られない 09MI21 の区間 3 や 09MI20 では、 H_2 の拡散係数より透水量係数が高かった。したがって、 H_2 の拡散速度を上回る透水性の亀裂中では、 H_2 が地下水により希釈され微生物代謝に利用しづらいと考えられる。

花崗岩を基盤とする地層処分が想定される北欧の地下深部は、最終氷期の 2 万年以降に海水が深部まで浸透しており、浸透した海水は比較的高濃度の硫酸 (0.2-20 mM) と DOC (0.1-50 mM) を含む。また H_2 も豊富な有機物の発酵から供給されると解釈されており (Pedersen, 2012)、断層を介した地下深部からの H_2 の供給を伴う瑞浪とは異なる (Suzuki *et al.*, 2014)。地表の植生や土壌も、瑞浪、グリムゼル試験場、Forsmark および Olkiluote で異なるが、花崗岩基盤中で透水係数が 10^{-11} m/s 付近になると硫酸が枯渇して CO_2 還元が顕著になる共通性があり、この透水性との相関は水素供給により微生物代謝が制約を受けているためと考察される。

まとめと今後の課題

精密調査で想定される地下施設からの調査により、詳細な生物化学特性の把握が可能であり、水理特性との比較により 10^{-11} m/s 付近の透水係数を境界に、生物地球化学過程が異なることが、世界各地の花崗岩基盤深部で共通した。今後、この相関が結晶質岩の他の地域や堆積岩にも一般的か明らかにし、処分場のサイト選定時に考慮するためのデータを蓄積する必要がある。

1) ガスモニタリング (全炭酸, メタン, エタン)

(1) はじめに

地下水は数百メートルの深さになるとその環境は一般に嫌氣的になる。特に嫌気性の高い環境にある深部地下水では、水素やメタンなど還元性の極めて強いガス成分に富み、その組成が現場の地質環境や微生物生態環境を左右することが知られている。しかしながら、これらの溶存ガス成分は、岩石-微生物-水の複雑な相互作用により生成・分解される上に、脱ガスなどによっても組成が変わるため、それらの動態を一般化することは容易ではない。各種溶存ガスの組成や性質の詳細を把握することによって、深部地下水の環境をおおまかに推測することが可能であり、また、地下水中に存在する各種物質や元素の動態を知る手掛かりの一つとなり得る。これまで、資源科学的な観点から研究が盛んに行われている堆積岩と比較して、有機物に乏しい結晶質岩環境では、地下水・地下環境に関する研究はあまり進められていない。本研究の対象地である瑞浪超深地層研究所は基盤岩として土岐花崗岩が分布している。

深部地下水に豊富に存在するメタンや水素などのガス成分の起源や挙動を調べるためには、構成元素である炭素や水素の安定同位体組成が有用な指標として用いられる (Schoell, 1980; Whiticar *et*

al., 1986; Burke *et al.*, 1988; Hornibrook *et al.*, 1997). そこで、瑞浪超深地層研究所の地下実験施設における地下水を対象として、溶存ガス成分である全炭酸、メタン、エタンの安定同位体組成の定量をおこない、これらのガス成分の挙動を明らかにした。

(2) 定期地下水モニタリングから得られたガス成分の鉛直分布の概略

瑞浪超深地層研究所の地下実験施設のボーリング坑において、全炭酸およびメタン、エタンの濃度と炭素・水素の安定同位体比の計測を2008年より07MI07号坑、09MI20号孔、09MI21号孔、10MI26号孔で行っている。今年度からは12MI33/13MI38/13MI39号孔（深さ500 m）の3つのボーリング孔においても同様の計測を初めて実施した。また、より深い場所の地下水試料を採取するために2009年および2012年に主立坑の近傍に設置された鉛直方向のボーリング孔MIZ1（深さ648 mおよび1,150 m）でも、揚水された深部地下水を計測した。

表2.1.1.1.2-1にこれまで得られた各深度における地下水中の全炭酸濃度とその $\delta^{13}\text{C}$ 値、メタン濃度とその $\delta^{13}\text{C}$ 値の平均値を示す。また、図2.1.2.1-6に全炭酸の濃度とその $\delta^{13}\text{C}$ 値の鉛直分布、図2.1.2.1-7にメタンの濃度とその $\delta^{13}\text{C}$ 値の鉛直分布をそれぞれ示す。主立坑およびその周辺の深層地下水にはメタンが豊富に含まれており、主立坑の深さ200～400 mでは300～380 $\mu\text{mol kg}^{-1}$ を示し、さらに深いMIZ1では約1,100 $\mu\text{mol kg}^{-1}$ を示した。また、今年度はじめて採取された深さ500 mの地下水では、3区間（12MI33/13MI38/13MI39）の間で偏差が大きかったものの平均で1,400 $\mu\text{mol kg}^{-1}$ であり、深さ650, 1,150 mの値に匹敵する高い値を示した。深度500mのボーリング孔は、2012/2013年に掘削されてからの時間が1～2年しか経過していないため、元の地下水の状態が保存されていると考えられる。一方、全炭酸濃度はメタン濃度とは明瞭な逆相関を示した。

同位体比に関して、メタンの $\delta^{13}\text{C}$ 値は、全体的には深度の増大に伴い、-36～-26‰ VPDBと増加する傾向を示し、深さ500 mでは-23 ‰ VPDBであり、深層（650, 1,150 m）の値と類似の値を示した（図2.1.2.1-7b）。メタンほど大きな変化ではないが、全炭酸の $\delta^{13}\text{C}$ 値は深度の増大に伴い-15～-10‰ VPDBと増加する傾向を示した（図2.1.2.1-6b）。全炭酸濃度とメタン濃度との間では深さの変化に伴い逆相関する関係が500 mのデータによって、よりはっきりと確認できた。このことから、深度が異なっても両者の間で炭素の収支が成り立っている可能性が考えられる。

表2.1.2.1-4に各深さにおける全炭酸とメタンを合わせた全炭素の濃度と加重平均した $\delta^{13}\text{C}$ 値を示す。全炭素の濃度および $\delta^{13}\text{C}$ 値は、09MI21号孔を除けば、今回初めて採取された500 mも含めて、深さに依らず概ね一定の値（1,500 $\mu\text{mol kg}^{-1}$ および -20‰ VPDB）であった。したがって、これら深層地下水中に溶存するメタンは、炭酸還元で生成した可能性がある（Lansdown *et al.*, 1992; Hansen *et al.*, 2001）。

表2.1.2.1-3 各深度における地下水中の全炭酸 (TIC) の濃度とその $\delta^{13}\text{C}$ 値, メタン (CH_4) の濃度とその $\delta^{13}\text{C}$ 値の分布 (各深度におけるすべてのデータの平均値) .

Station	Depth (m)	n	TIC ($\mu\text{mol kg}^{-1}$)	$\delta^{13}\text{C}_{\text{TIC}}$ (‰ VPDB)	CH_4 ($\mu\text{mol kg}^{-1}$)	$\delta^{13}\text{C}_{\text{CH}_4}$ (‰ VPDB)
07MI07	200	37	1066 ± 459	-15.2 ± 2.1	297 ± 153	-34.4 ± 3.7
09MI20	300	33	1206 ± 357	-12.5 ± 3.0	304 ± 161	-35.9 ± 3.7
10MI26	400	21	1069 ± 380	-11.1 ± 4.2	379 ± 138	-37.1 ± 4.2
12MI33/13MI38/13MI39	500	3	291 ± 113	-14.9 ± 2.9	1397 ± 855	-22.8 ± 1.0
MIZ1 ^a	648	4	207 ± 38	-11.1 ± 1.9	1041 ± 283	-27.9 ± 3.8
MIZ1 ^a	1150	4	112 ± 97	-10.4 ± 1.7	1174 ± 266 ^b	-25.8 ± 2.0 ^b
09MI21 ^c	300	25	429 ± 247	-11.1 ± 4.2	403 ± 117	-39.1 ± 3.9

^a 鉛直方向のボーリング孔. ^b n = 5. ^c 主立坑から約 100 m 北.

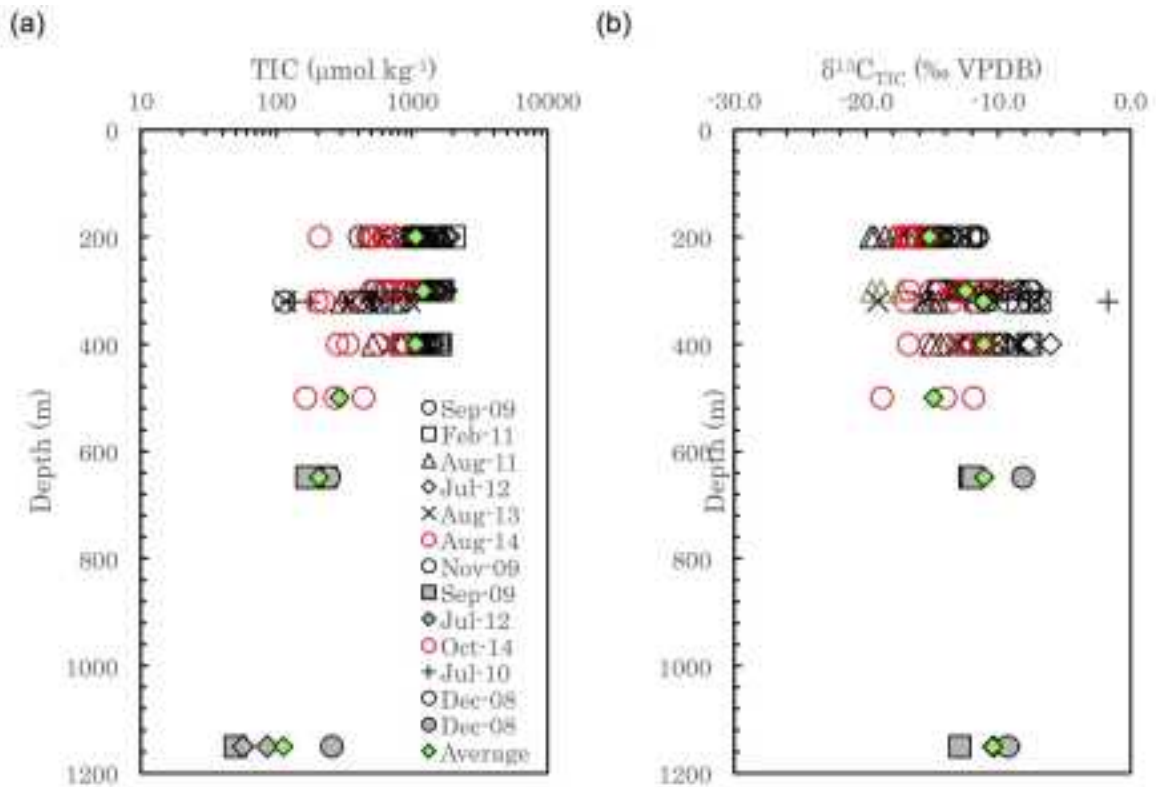


図2.1.2.1-6 07MI07, 09MI20, 09MI21, 10MI26, 12MI33/13MI38/13MI39号孔とMIZ1における地下水中の全炭酸 (TIC) 濃度とその $\delta^{13}\text{C}$ 値の鉛直分布.

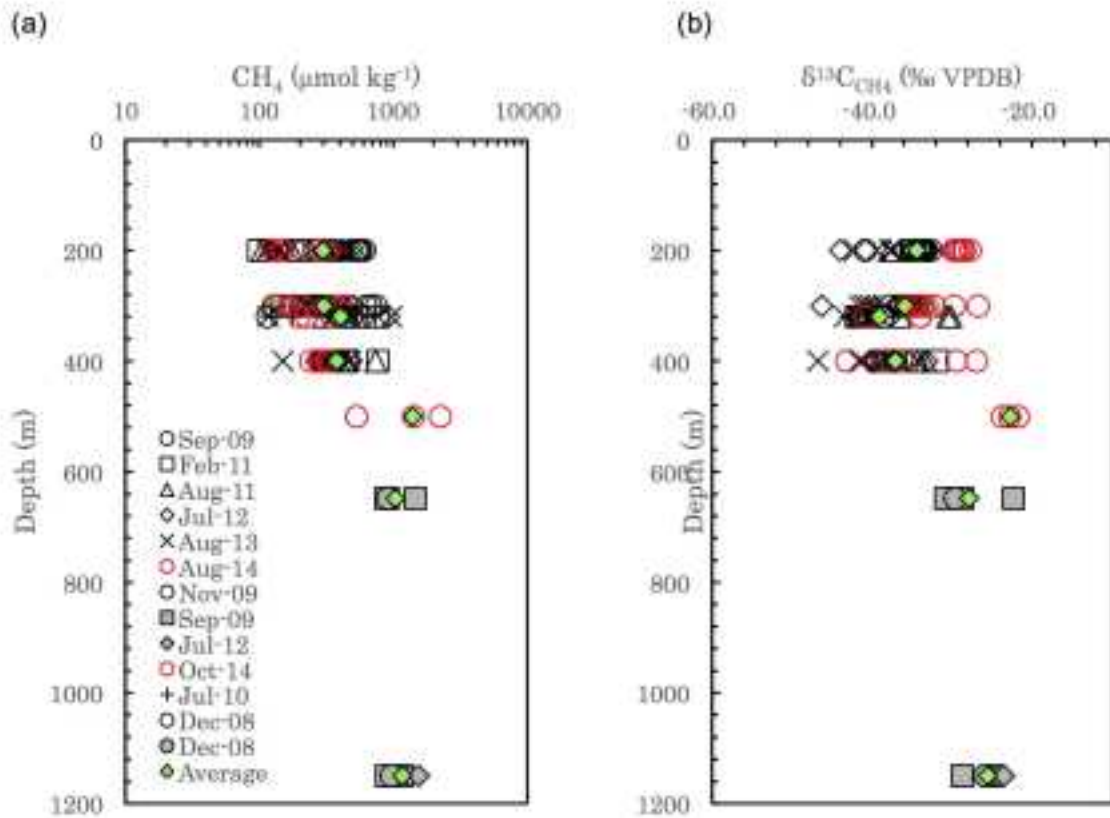


図2.1.2.1-7 07MI07, 09MI20, 09MI21, 10MI26, 12MI33/13MI38/13MI39号孔とMIZ1における地下水中のメタン(CH₄)の濃度とそのδ¹³C値の鉛直分布。

表 2.1.2.1-4 各深度における地下水中の全炭酸 (TIC) とメタン (CH₄) の濃度の総和と加重平均したδ¹³C 値。

Station	Depth (m)	n	TIC + CH ₄ (μmol kg ⁻¹)	δ ¹³ C _{TIC+CH₄} (‰ VPDB)	δD _{CH₄} (‰ VSMOW)
07MI07	200	37	1363 ± 483	-19 ± 10	-121 ± 22
09MI20	300	33	1510 ± 391	-17 ± 7	-131 ± 21
10MI26	400	21	1448 ± 404	-18 ± 7	-135 ± 12
12MI33/13MI38/13MI39	500	3	1689 ± 863	-21 ± 16	-121 ± 13
MIZ1 ^a	648	4	1248 ± 286	-25 ± 9	-135 ± 2
MIZ1 ^a	1150	5 ^b	1286 ± 283	-24 ± 8	-127 ± 5
09MI21 ^c	300	25	832 ± 273	-25 ± 11	-149 ± 16

^a 鉛直方向のボーリング孔, ^b TIC (n=4) では n=5 と仮定, ^c 主立坑から約 100 m 北。

表 2.1.2.1-5 に各深度の地下水中のエタンおよびプロパンの濃度を示す。今年度の値を含めて、エタン、プロパン濃度は依然として低く、メタンの濃度の 10⁻⁵ 倍相当であった。メタンの起源を調べる手法として、メタンの δ¹³C 値とメタン / (エタン + プロパン) 比による分類図が用いられる (Schoell, 1980; Whiticar *et al.*, 1986; Whiticar, 1999b)。そこで、図 2.1.2.1-8 に各ボーリング孔

の地下水中のメタンの $\delta^{13}\text{C}$ 値とメタン/(エタン+プロパン)比を示す。07MI07号孔, 09MI20号孔, 10MI26号孔, 09MI21号孔のいずれも, 微生物起源, 熱分解起源のどちらにも分類されず, また単純に両起源の混合でも説明できない。エタンの $\delta^{13}\text{C}$ 値は $-36 \sim -22\text{‰ VPDB}$ と極端に重い値を示していない。そのため, 熱分解起源のメタン, エタン, プロパン等炭化水素類から, エタン・プロパンが選択的に分解・消失した可能性は低い。

メタンの起源としては(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2014)で論じた結果, 下記二つの仮説が有力であると考えた; 仮説①: 重い $\delta^{13}\text{C}$ 値をもつ基質(全炭酸)から微生物による還元反応によってメタンが生成した; 仮説②: 軽い $\delta^{13}\text{C}$ 値($<-55\text{‰ VPDB}$)をもつ微生物起源のメタンが優先的に酸化分解されて $\delta^{13}\text{C}$ 値が増大した。これら二つの仮説について以下で詳細に論じる。

表 2.1.2.1-5 各深度における地下水中のエタンの濃度とその $\delta^{13}\text{C}$ 値(各深度におけるすべてのデータの平均値)。

Station	Depth (m)	n	Ethane (nmol kg ⁻¹)	Propane ^a (nmol kg ⁻¹)
07MI07	200	18	27 ± 26	0.7 ± 0.2
09MI20	300	18	28 ± 26	0.6 ± 0.1
10MI26	400	18	75 ± 84	0.5 ± 0.1
12MI33/13MI38/13MI39	500	-	-	-
09MI21 ^b	300	9	344 ± 246	-10.5 ± 8.4

* (産業技術総合研究所深部地質環境コア, 2014), n = 12. ^b 主立坑から約 100 m 北。

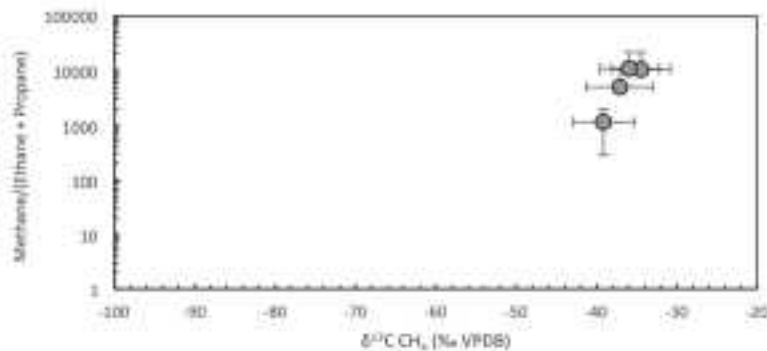


図 2.1.2.1-8 メタンの $\delta^{13}\text{C}$ 値とメタン/(エタン+プロパン)比によるメタンの起源の分類。

仮説①の「重い炭酸が還元されたメタン生成」については, 例として, 有機物に富んだ海底堆積物の深部では全炭酸が枯渇して $\delta^{13}\text{C}$ 値が増大し, それが炭酸還元を起こすことで重い $\delta^{13}\text{C}$ 値のメタンが生成することがある。しかし, 本研究の地下水中には全炭酸の $\delta^{13}\text{C}$ 値は最大でも -10‰ VPDB 付近で, 炭酸還元によるメタン生成時の同位体分別を考慮すると, やはりメタンの $\delta^{13}\text{C}$ 値($-39 \sim -23\text{‰ VPDB}$)は説明できない。

この矛盾を解決するため, 地下水相と岩相との相互作用に着目した。瑞浪の岩石相は花崗岩を中心に形成されているが, その岩石相が地下水と接する部分では, 風化反応によりアルカリ度が上昇し, 炭酸塩を沈積する(岩月ほか, 2000)。全炭酸は, 炭酸イオン(CO_3^{2-}), 重炭酸イオン(HCO_3^-), 溶存二酸化炭素(CO_2)の主に三種から成立するが, 平衡下では CO_2 が他の分子より7%程度, 軽い同

位体比を示す。よって、例えば、炭酸塩の陳積によってマイクロな水環境が形成され、そこから気体であるCO₂だけ散逸が進むと、その残さの $\delta^{13}\text{C}$ 値は重くなる。ここでこのマイクロな環境でメタン酸化が進めば重いメタンを作ることが可能である。

仮説②の「軽い $\delta^{13}\text{C}$ 値のメタンが酸化分解されて $\delta^{13}\text{C}$ 値が増大した」に関して検証するため、表2.1.2.1-4に地下水中のメタンの δD 値を示している。メタンの δD 値は、メタンの $\delta^{13}\text{C}$ 値の鉛直分布でみられ大きな変動を示さず、09MI21号孔では値がやや小さいものの(-149‰ VSMOW)、概ね-135～-121‰ VSMOWの範囲で有意差のない均一な値をとった。仮説②のメタン酸化が起きれば $\delta^{13}\text{C}$ 値に連動して δD 値も変化するので、 δD 値の変化が小さいことが説明できない。

この矛盾を解決するため、仮説②を元にした新たな仮説を検討した。メタンが酸化すると $\delta^{13}\text{C}$ 値と δD 値が連動して増加するが、メタンの水素は溶存水素ガスの水素、水の水素と同位体交換を起こす。この同位体交換は低温では遅いが、地下水の年代が古いこと(Iwatsuki *et al.*, 2005)からある程度の同位体交換が進んでいる可能性も考えられる。同位体交換が進めば、メタンの δD 値はある一定の値に変化し、その変化量は時間に比例する(Horibe and Craig, 1995)。以上のことから、仮説②に同位体交換の可能性を加えればメタンの起源を解釈することが可能である。

仮説①、②双方ともに、上記で述べたような条件がそろえばメタンの成因が説明可能であるが、どちらも証拠に乏しい。仮説①に関しては炭酸塩の同位体比計測および生成条件の検討等、仮説②に関しては、水素同位体比の計測など、多角的なアプローチで仮説を検証する必要がある。

(3) 定期的モニタリングによる地下水中の各種ガス成分の経時変化

瑞浪超深地層研究所の地下実験施設では、研究坑道の掘削に伴い、深層の高塩化物イオン濃度の地下水が浅層へ移動し、低塩化物イオン濃度の地下水と混合することで、地下水の水質分布が変化した(水野ほか, 2013)。このような水質分布の変化は、地下水中に溶存する全炭酸およびメタンなどの各種ガスの濃度とその構成元素の同位体組成の分布にも影響を与える可能性があるため、引き続き今年度もそれらの計測を行い、経時変化を調べた。

図2.1.2.1-9, 10に各ボーリング孔における地下水中の全炭酸の濃度と $\delta^{13}\text{C}$ 値を、図2.1.2.1-11, 12, 13にメタンの濃度、 $\delta^{13}\text{C}$ 値、 δD 値の経時変化をそれぞれ示す。主立坑に位置する07MI07号孔と09MI20号孔では、観測を開始した2008/2009年から2011年頃にかけて、地下水中の全炭酸濃度は増大し、逆にメタン濃度は減少する傾向がみられた(図2.1.2.1-9, 10)。同じ時期、これらボーリング孔では全炭酸の $\delta^{13}\text{C}$ 値はわずかに減少する傾向(図2.1.2.1-10)を示した一方、メタンの $\delta^{13}\text{C}$ 値および δD 値は、一部の区間を除いて概ね一定の値であった(図2.1.2.1-12, 13)。10MI26号坑は明瞭ではないものの、測定開始から2012年までに同様の傾向が確認できた。

2011-12年を境に、07MI07号孔と09MI20号孔では全炭酸濃度は逆に減少し、メタン濃度はそれまでの減少傾向がゆるやかになり、ほぼ一定で推移する傾向がみられた(図2.1.2.1-9, 10)。全炭酸の $\delta^{13}\text{C}$ 値は2011年から12年にかけて少し重くなるが、それ以後は概ね横ばいか微減の傾向を示した(図2.1.2.1-10)。メタンの $\delta^{13}\text{C}$ 値、 δD 値は緩やかな減少、もしくは横ばいで変化していた。

2014年はおおむね直近の傾向に沿ったデータであったが、メタンの $\delta^{13}\text{C}$ 値だけははっきりと増大した(09MI21号坑を除く)。しかし、メタンの δD 値などそれ以外の値は大きく変化しなかった。同位体比が増大する傾向は2011年の09MI21号坑でも観測されているが、この時は δD 値も連動して変化している。

一方、主立坑から離れた09MI21号孔では、他の3孔に比べて傾向は明瞭でなかった。全炭酸濃度は、2012年頃までは微増の傾向がみられ、その後、微減する傾向を示し、メタン濃度は、全期間を通じて大きい値を維持しながらほぼ一定で推移した(図2.1.2.1-9, 10)。また、全炭酸の $\delta^{13}\text{C}$ は2011年頃まで減少する傾向を示し、その後はほぼ一定で推移した(図2.1.2.1-10)。メタンの $\delta^{13}\text{C}$ および

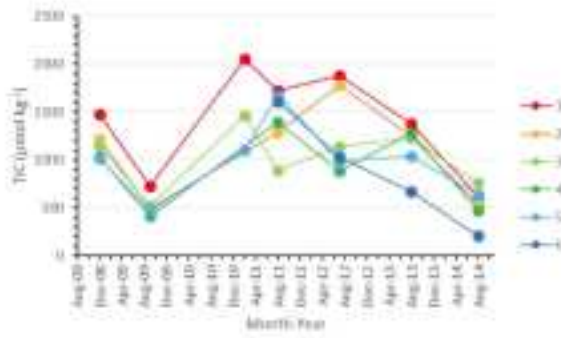
δD 値は、ともに 2011 年に大きい値を示したことを除けば、概ね一定の値で推移した（図 2.1.2.1-12, 13）。2014 年もこれまでの傾向から大きく外れることはなかった。

図 2.1.2.1-6, 7 での全炭酸およびメタン濃度の鉛直分布の結果から、浅い部分では全炭酸濃度が大きく、メタン濃度は小さいことが示された。したがって、07MI07 号孔および 09MI20 号孔で観測開始（2008/2009 年）から 2011 年頃までにみられた経時変化（即ち、全炭酸の増大およびメタン濃度の減少）と、10MI26 号孔で観測開始から 2012 年頃までにみられた同様の経時変化は、主立坑の建設に伴い、浅い部分から地下水が流入したことが要因として考えられた。このことは全炭酸の $\delta^{13}C$ 値の経時変化ともよく対応しており、浅い部分から $\delta^{13}C$ 値の小さい全炭酸が流入したことで、07MI07 号孔および 09MI20 号孔では 2011 年頃まで全炭酸の $\delta^{13}C$ 値は減少したと解釈できる。塩化物イオン濃度の経時変化も浅い地下水の流入で説明されていることから、主立坑の建設に伴う地下水移動の結果を示していると考えて問題ない。

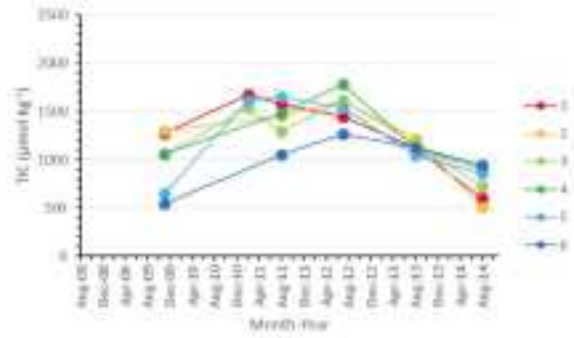
一方、別の立坑に位置する 09MI21 号孔では、明瞭ではないものの、観測開始から 2011 年頃にかけて全炭酸濃度の微増、メタン濃度の微減、全炭酸の $\delta^{13}C$ 値の減少する傾向がそれぞれみられたことから、主立坑の 3 孔の場合に比べれば影響は小さいが、やはり浅い部分の地下水が流入した可能性が考えられた。

2014 年に 07MI07 号抗、09MI20 号抗、10MI26 号抗で確認された $\delta^{13}C$ の増大は、 δD 値に変化がないことからメタン酸化だけでは説明できない。また、塩化物イオン濃度等、他のパラメーターに変化がないことから、地下水流動の変化でも説明できない。同位体比が変化する事象としてはメタン酸化が最も一般的であるが、水素同位体比では、メタン、水素、水の間での同位体交換によって変化するケースもある。水素の同位体交換は炭素よりも容易に進むと考えられ、平衡状態では水温によって相互の同位体比の関係が決定される (Horibe and Craig, 1995)。地下水中では水が圧倒的に大きな物質量を占めているので、メタンと水素の同位体比は水の同位体比に依存して決定される。したがって、仮にメタン酸化が進行して $\delta^{13}C$ の増大は、 δD 値が同時に変化しても、水素の同位体交換が進めば水素同位体比だけが元の値に戻ると考えられる。つまり、メタンの起源を推定した仮説②において起きていると考えられる水素の同位体交換で、2014 年の変化は説明可能である。しかし、現時点では同位体比からの証拠しかないため、水素ガスの水素同位体比を測定するなど、多角的なアプローチをすることで、この仮説の検証を行う必要がある。

(a) 07MI07



(b) 09MI20



(c) 10MI26

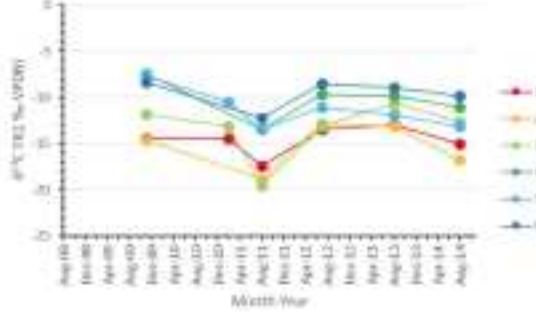


(d) 09MI21

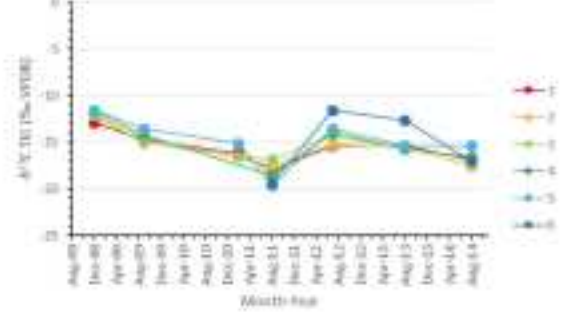


図 2.1.2.1-9 各ボーリング孔における全炭酸 (TIC) の濃度の経時変化。

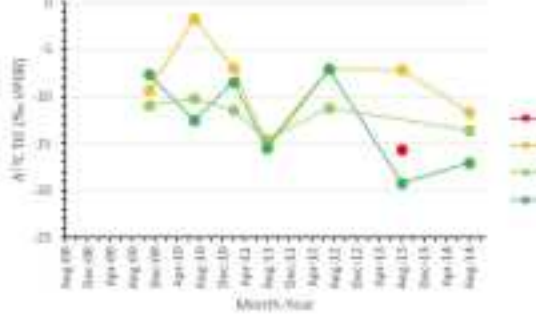
(a)07MI07



(b) 09MI20



(c) 10MI26



(d) 09MI21

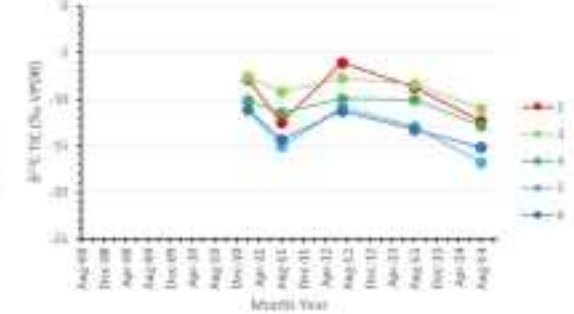


図 2.1.2.1-10 各ボーリング孔における全炭酸 (TIC) の $\delta^{13}\text{C}$ 値の経時変化 (数字は区間)。

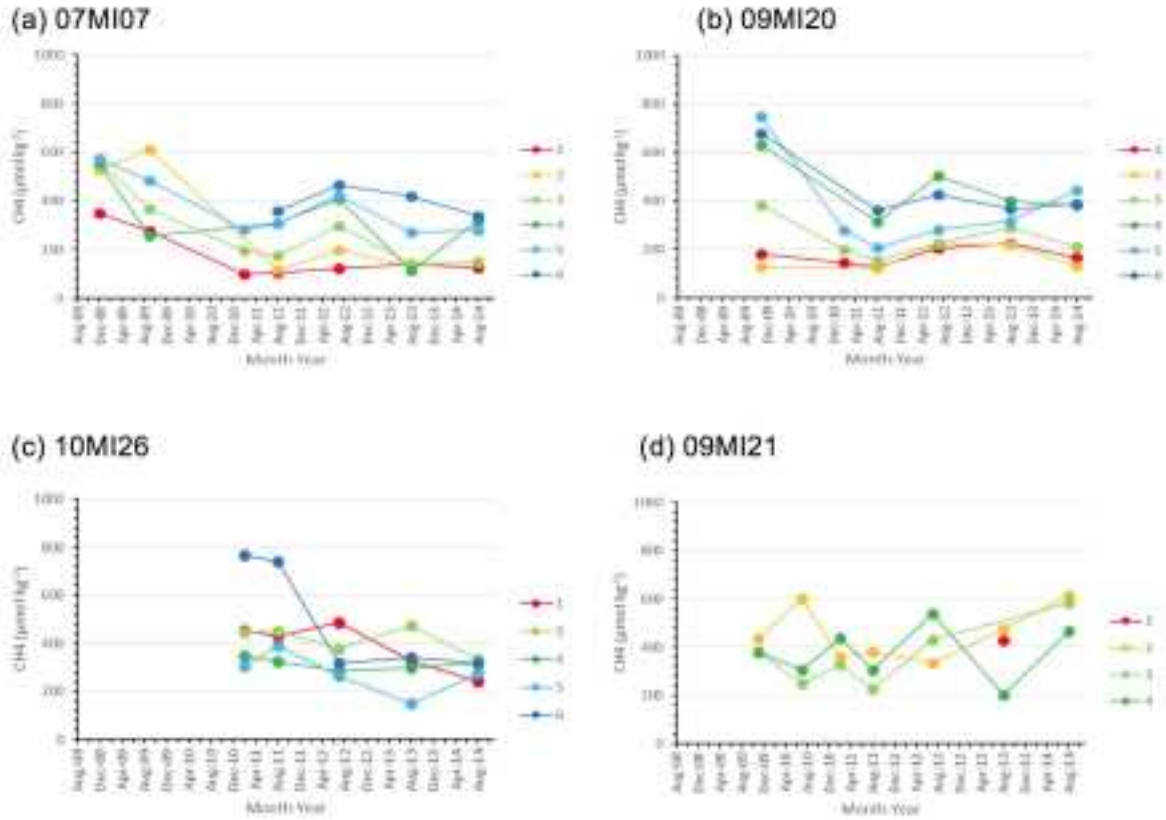


図 2.1.2.1-11 各ボーリング孔におけるメタン (CH₄) の濃度の経時変化。

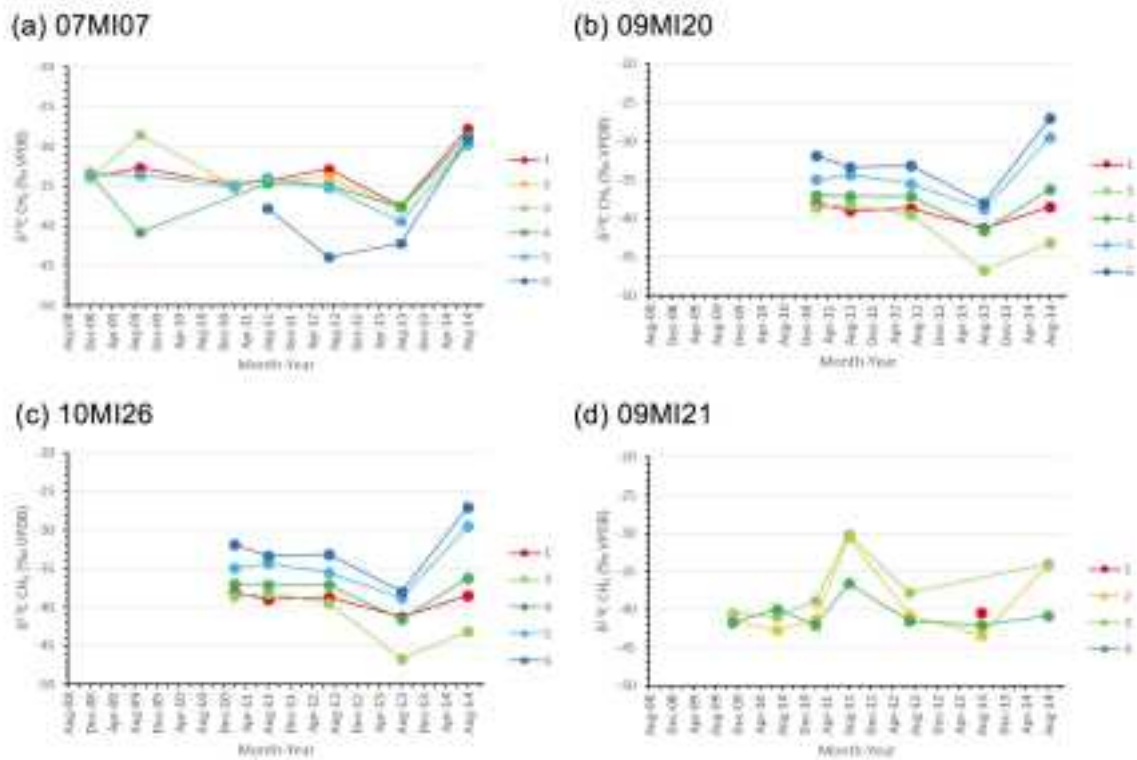


図 2.1.2.1-12 各ボーリング孔におけるメタン (CH₄) の $\delta^{13}\text{C}$ 値の経時変化 (数字は区間)。

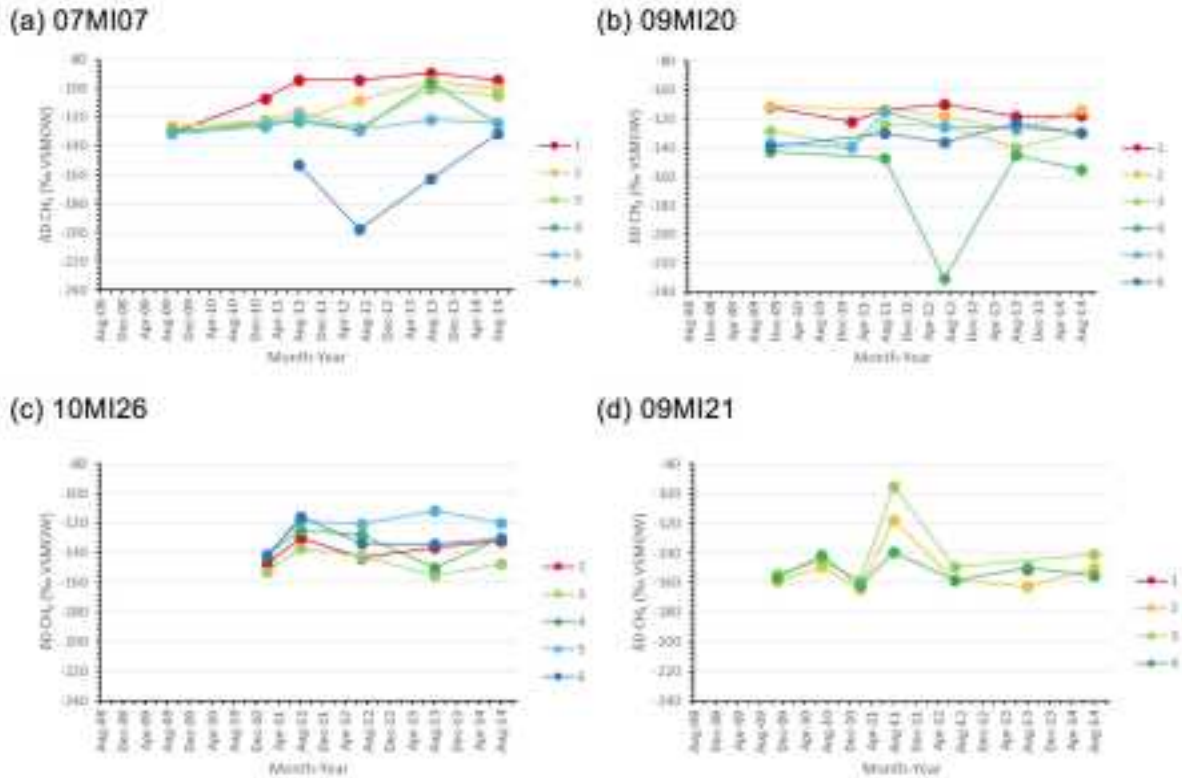


図 2.1.2.1-13 各ボーリング孔におけるメタン (CH₄) の δ D 値の経時変化 (数字は区間).

(4) まとめ

結晶質岩環境にある瑞浪超深地層研究所の地下実験施設およびその周辺域を対象に、異なる深さの深層地下水中の微量溶存ガスを分析した。鉛直方向の分布の解析により、深いほどメタン濃度は大きく、逆に全炭酸濃度は小さくなるのが、今年度行われた深度 500 m の調査でよりはっきりと確認できた。メタンの起源について、仮説①重い δ¹³C 値を持つ全炭酸が還元した可能性、仮説②軽い δ¹³C 値のメタンが酸化されて重くなった可能性、が考えられた。しかし、どちらも起原を完全に説明することは不可能なので、仮説①に関しては、地下水相と岩相との相互作用によって溶存ガス成分が変化している可能性を考慮する必要がある、仮説②に関しては、水素の同位体交換によって同位体比が変化する可能性を考慮する必要がある。

各ボーリング孔における定期モニタリングの解析から、これまでの傾向から大きく異なるような変化はみられなかった。ただし、主立坑 3 孔のほとんどの区間で、2013 年から 2014 年にかけて、メタンの δ¹³C 値は増大した。このとき、δD 値の変化は小さかった。原因としてメタン酸化によって δ¹³C 値、δD 値が増大したが、δD 値はメタン、水素、水の間で水素の同位体交換によって値が平均化した可能性が考えられる。

2) 希ガスの濃度、同位体比およびフラックス

瑞浪超深地層研究所立坑周辺の地下水は、水素同位体比と酸素同位体比から天水起源であることが知られている。天水が涵養して地下水になった初期状態では、大気由来の希ガスを大気平衡レベルの濃度のみ溶存しているが、地下での滞留時間が長いほど、深部流体の影響を受けて ³He/⁴He 比が高いマントル起源のヘリウムと、³He/⁴He 比が低い放射壊変による地殻起源のヘリウムが付加してヘリウム濃度が上昇する。深部流体が供給されるとき、深部由来の多くのガスが同時に供給されると考え

られ、それらのガス供給を類推するとき、反応性の低いヘリウム等の希ガス類は有用な指標となる。瑞浪地域地下水における深部流体の影響を確認するため、溶存地下水の希ガス分析を平成24年度から行っており、結果の一部は(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2013)でも示している。

これまでに得られた分析結果をまとめて表2.1.2.1-6に示す。また、地下水中の塩濃度と $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比そして $^3\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比とをプロットしたグラフをそれぞれ図2.1.2.1-14に示す。立坑建設前の超深地層研究所周辺地下水は深部ほど高塩濃度であったが、立坑建設によって地下水の擾乱が起き、立坑付近を中心に深部地下水の上昇と浅部地下水の下降が起きた(水野ほか, 2013)。そのため、立坑掘削後にボーリング孔から採取した地下水の、擾乱が起きる前の真の深度を知るために、保存成分である塩濃度を指標として使う産業技術(Suzuki *et al.*, 2014; 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2014)。図2.1.2.1-14では塩濃度が高いほど、深部の地下水であることを示している。このグラフによると、深部ほど $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比、 $^3\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比が高いことが示された。 ^{20}Ne は地下深部に供給源がほとんどないためすべて大気由来であるが、 ^3He 、 ^4He は深部流体によってマントル起源のヘリウムと地殻起源のヘリウムが供給される。そのため、地下深部の地下水ほど深部流体の影響によってヘリウムが供給され、濃度が上昇していることが示された。

$^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比を先行研究のデータと共に図2.1.2.1-15に示した(Morikawa, 2004; 長谷川ほか, 2010; 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2013)。先行研究では、主立坑に比較的近いDH-12とMSB-4のボーリング孔ではマントル起源のヘリウムと地殻起源のヘリウムの混合したガスが確認され、それ以外のDH-3, 9, 13とMIU-2, 3, 4のボーリング孔からは地殻起源の希ガスのみが供給されていることが判明している。立坑に付属するボーリング孔で採取したヘリウムも両者の混合であり、その混合比率も先行研究とほぼ同じであった。さらに、深度によらず混合比はほぼ一定であり、採取年(2012年, 2013年, 2014年)による違いも認められなかった。このことから、立坑周辺のある一定の範囲で、混合比の同じヘリウムを含む深部流体が均一に上昇しており、経時変化もないことを示している。

表2.1.2.1-6 地下水中溶存希ガス濃度と塩濃度の関係。

location	Section	Sampling data	depth m	$^3\text{He}/^4\text{He}$	$^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$	^3He	^4He	^{20}Ne
						$\text{cm}^3 \text{STP/gH}_2\text{O}$	$\text{cm}^3 \text{STP/gH}_2\text{O}$	$\text{cm}^3 \text{STP/gH}_2\text{O}$
07M07	1	Aug-2013	200	4.33E-07	79.5	7.07E-12	1.63E-05	2.06E-07
07M07	1	Aug-2013	200	4.39E-07	87.9	8.09E-12	1.84E-05	2.10E-07
09M20	1	Nov-2012	300	4.54E-07	149.8	2.87E-11	6.33E-05	4.23E-07
09M20	2	Aug-2013	300	4.69E-07	98.0	9.22E-12	1.97E-05	2.01E-07
09M20	3	Nov-2012	300	4.60E-07	155.0	2.14E-11	4.65E-05	3.00E-07
09M20	4	Aug-2013	300	4.72E-07	128.7	1.48E-11	3.15E-05	2.44E-07
09M21	2	Nov-2012	300	4.88E-07	201.2	2.68E-11	5.49E-05	2.73E-07
09M21	4	Nov-2012	300	4.89E-07	93.1	1.03E-11	2.11E-05	2.27E-07
10M26	5	Nov-2012	400	4.93E-07	137.1	1.99E-11	4.03E-05	2.94E-07
10M26	5	Aug-2013	400	4.44E-07	67.1	1.19E-11	2.67E-05	3.98E-07
12M33	2	Oct-2014	500	4.57E-07	273.3	1.12E-11	2.46E-05	8.98E-08
13M38	1	Oct-2014	500	4.67E-07	276.1	7.63E-12	1.63E-05	5.91E-08
13M39	3	Oct-2014	500	4.67E-07	322.9	9.91E-12	2.12E-05	6.57E-08

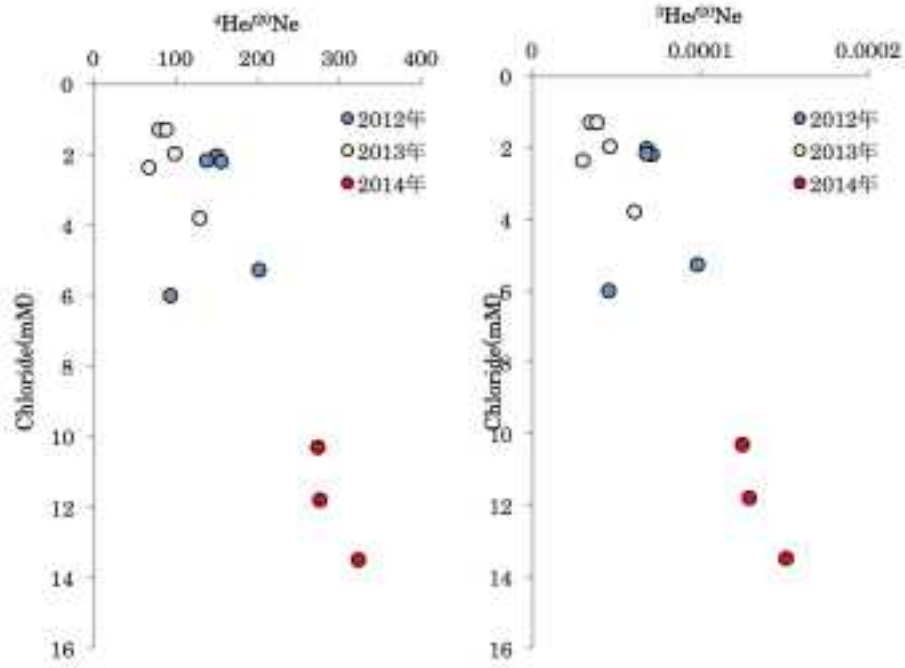


図 2.1.2.1-14 地下水中溶存ガスの $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比と塩濃度の関係。

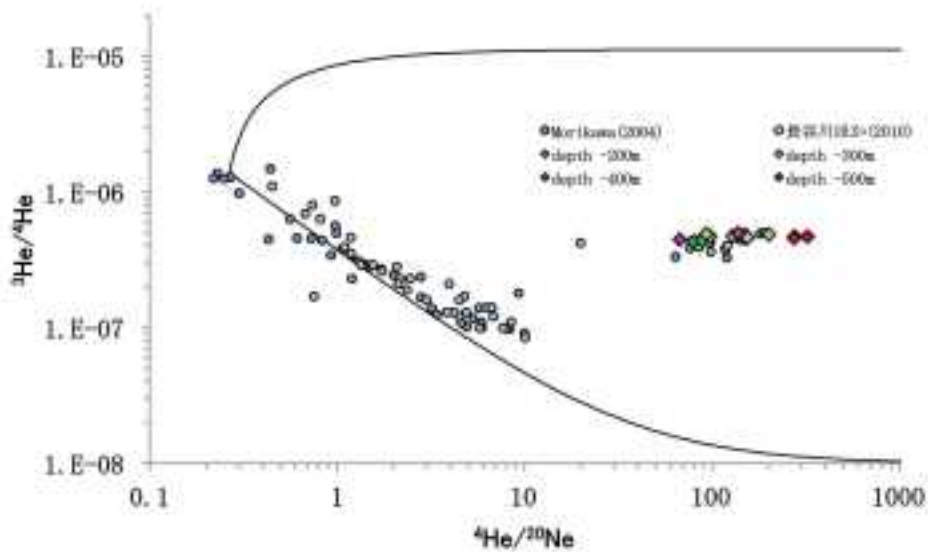


図2.1.2.1-15 地下水中溶存希ガスの $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比の関係。データには既存のデータと先行研究のデータを含む (Morikawa, 2004; 長谷川ほか, 2010; 産業技術総合研究所深部地質環境コア, 2013)。

次に、深部流体の上昇によって供給されるマントル起源の ^3He フラックスを、 ^3He , ^4He , ^{20}Ne 濃度から計算した (Morikawa *et al.*, 2005; Ohwada *et al.*, 2012)。瑞浪地域でのマントル起源 ^3He フラックスを各ボーリング孔ごとに図 2.1.2.1-16 に示す。フラックスはボーリング孔、採取年によらず、約 $2 \times 10^{-13} \text{ mol/m}^2/\text{y}$ でほぼ一定であった。

火山周辺地域等で行われている先行研究によれば、成層火山である岩手山周辺でのマントル起源 ^3He フラックスは $10^{-12} \text{ mol/m}^2/\text{y} \sim 10^{-13} \text{ mol/m}^2/\text{y}$ のオーダーである (産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2009; Ohwada *et al.*, 2012)。また、高清水断層、法輪寺断層、石動断層の3つの

断層に囲まれた地溝帯構造に位置する富山県の砺波平野において、断層に沿って上昇しているマンントル起源の³Heフラックスが確認されているが、このマンントル起源³Heフラックスは、断層沿いの高いところで 10^{-11} mol/m²/yのオーダー、断層から離れると 10^{-12} mol/m²/yのオーダーから 10^{-13} mol/m²/yのオーダーであった(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2013)。このことから、火山周辺や背弧側の断層帯と比較して、瑞浪地域の立坑周辺でのマンントル起源の³Heフラックスは低いと考えられる。

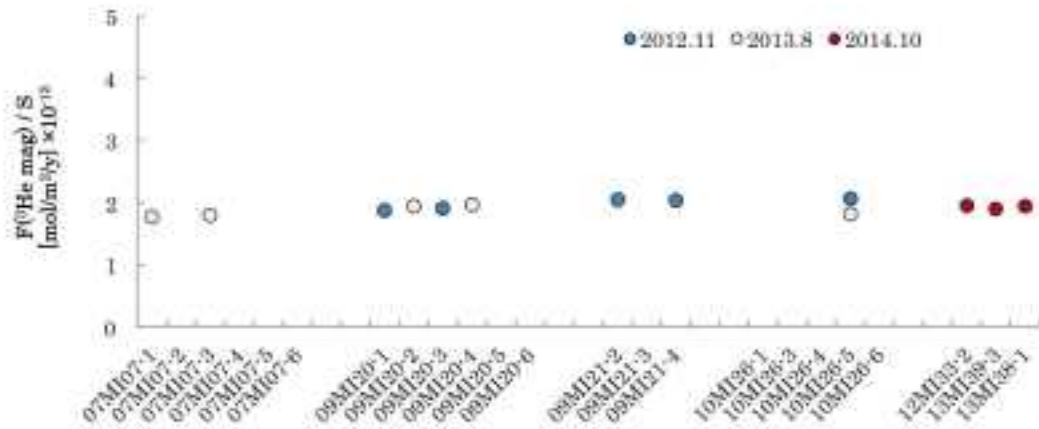


図 2.1.2.1-16 各ボーリング孔におけるマンントル起源の³Heフラックス。

まとめ

瑞浪超深地層研究所立坑周辺では定常的な深部流体のフラックスがあることが分かった。深部流体から供給される³Heのフラックスは一定であるが、深部地下水ほどヘリウムの蓄積は進行していることが図 2.1.2.1-14 から分かった。これは深部ほど地下水年代が古い傾向であることを示唆していると考えられる。この結果は¹⁴C年代測定法によって、地下水年代は9.3kaから50ka以上までと幅があり深部地下水ほど年代が古い(Iwatsuki *et al.*, 2005)。という先行研究とも整合的である。

【引用文献】

- Banwart, S., Tullborg, E.-L., Pedersen, K., Gustafsson, E., Laaksoharju, M., Nilsson, A.-C., Wallin, B. and Wikberg, P. (1996) Organic carbon oxidation induced by large-scale shallow water intrusion into a vertical fracture zone at the Äspö Hard Rock Laboratory (Sweden). *Journal of Contaminant Hydrology*, 21, no. 1, 115-125.
- Burke, R. A., Martens, C. S. and Sackett, W. M. (1988) SEASONAL-VARIATIONS OF D/H AND C-13/C-12 RATIOS OF MICROBIAL METHANE IN SURFACE SEDIMENTS. *Nature*, 332, no. 6167, 829-831.
- Chapelle, F. H. (2001) *Ground-water microbiology and geochemistry*. John Wiley & Sons, 496 p.:
- Chapelle, F. H., O'Neill, K., Bradley, P. M., Methé, B. A., Ciufo, S. A., Knobel, L. L. and Lovley, D. R. (2002) A hydrogen-based subsurface microbial community dominated by methanogens. *Nature*, 415, 312-315.
- Cooper Jr, H. H. and Jacob, C. E. (1946) A generalized graphical method for evaluating formation constants and summarizing well-field history. *Transactions, American*

- Geophysical Union, 27, 526-534.
- Drever, J. I. (1997) The geochemistry of natural waters: surface and groundwater environments 3rd ed. Upper Saddle River, New Jersey USA, Prentice Hall.
- Gascoyne, M. and Thomas, D. A. (1997) Impact of blasting on groundwater composition in a fracture in Canada's Underground Research Laboratory. *Journal of Geophysical Research Solid Earth*, 102, no. B1, 573-584.
- Hansen, L. K., Jakobsen, R. and Postma, D. (2001) Methanogenesis in a shallow sandy aquifer, Romo, Denmark. *Geochimica Et Cosmochimica Acta*, 65, no. 17, 2925-2935.
- 長谷川琢磨・中田弘太郎・富岡祐一・後藤和幸・柏谷公希・濱克宏・岩月輝希・武田匡樹・小坂寛 (2010) 地下水年代測定評価技術の開発 (その12) -東濃地域における⁴Heと¹⁴C地下水年代測定の適用性検討-. 財団法人電力中央研究所, N10001.
- Heimann, A., Jakobsen, R. and Blodau, C. (2010) Energetic constraints on H₂-dependent terminal electron accepting processes in anoxic environments: a review of observations and model approaches. *Environmental Science and Technology*, 44, 24-33.
- Heuer, V. B., Pohlman, J. W., Torres, M. E., Elvert, M. and Hinrichs, K. U. (2009) The stable carbon isotope biogeochemistry of acetate and other dissolved carbon species in deep seafloor sediments at the northern Cascadia Margin. *Geochim. Cosmochim. Ac.*, 73, no. 11, 3323-3336.
- Hoehler, T. M., Alperin, M. J., Albert, D. B. and Martens, C. S. (1998) Thermodynamic control on hydrogen concentrations in anoxic sediments. *Geochim. Cosmochim. Ac.*, 62, no. 10, 1745-1756.
- Horibe, Y. and Craig, H. (1995) D/H fractionation in the system methane-hydrogen-water. *Geochimica Et Cosmochimica Acta*, 59, no. 24, 5209-5217.
- Hornibrook, E. R. C., Longstaffe, F. J. and Fyfe, W. S. (1997) Spatial distribution of microbial methane production pathways in temperate zone wetland soils: Stable carbon and hydrogen isotope evidence. *Geochimica Et Cosmochimica Acta*, 61, no. 4, 745-753.
- Hvorslev, M. J. (1951) Time lag and soil permeability in ground-water observations. USACE Waterways experiment station, 36.
- Iwatsuki, T., Furue, R., Mie, H., Ioka, S. and Mizuno, T. (2005) Hydrochemical baseline condition of groundwater at the Mizunami underground research laboratory (MIU). *Applied Geochemistry*, 20, no. 12, 2283-2302.
- 岩月輝希・吉田英一・濱克宏・Metcalf, R. (2000) 炭酸塩鉱物の同位体組成に基づくpH条件の長期安定性の解析手法. サイクル機構技報, 8, 41-48.
- Jähne, B., Heinz, G. and Dietrich, W. (1987) Measurement of the diffusion coefficients of sparingly soluble gases in water. *Journal of Geophysical Research: Oceans (1978-2012)*, 92, no. C10, 10767-10776.
- Konno, U., Kouduka, M., Komatsu, D., Ishii, K., Fukuda, A., Tsunogai, U., Ito, K. and Suzuki, Y. (2013) Novel Microbial Populations in Deep Granitic Groundwater from Grimsel Test Site, Switzerland. *Microbial Ecology*, 1-12.
- Laaksoharju, M., Smellie, J., Tullborg, E.-L., Gimeno, M., Molinero, J., Gurban, I. and Hallbeck, L. (2008) Hydrogeochemical evaluation and modelling performed within the Swedish site investigation programme. *APPLIED GEOCHEMISTRY*, 23, no. 7, 1761-1795.

- Lansdown, J. M., Quay, P. D. and King, S. L. (1992) CH₄ PRODUCTION VIA CO₂ REDUCTION IN A TEMPERATE BOG - A SOURCE OF C-13-DEPLETED CH₄. *Geochimica Et Cosmochimica Acta*, 56, no. 9, 3493-3503.
- Mizuno, T., Aosai, D., Shingu, S., Hagiwara, H., Yamamoto, Y. and Fukuda, A. (2013) Hydrochemical Changes Associated with Construction of Mizunami Underground Research Laboratory. *Transactions of the Atomic Energy Society of Japan*, 12, 89-102.
- 水野崇・青才大介・新宮信也・萩原大樹・山本祐平・福田朱里 (2013) 瑞浪超深地層研究所の建設に伴う地下水水質の変化. *日本原子力学会和文論文誌*, 12, no. 1, 89-102.
- Morikawa, N. (2004) Dissolved helium distribution in deep groundwaters from the Tono area, central Japan: a tool for tracing groundwater flow in fractured granite. *Limnology*, 5, no. 2, 61-69.
- Morikawa, N., Kazahaya, K., Yasuhara, M., Inamura, A., Nagao, K., Sumino, H. and Ohwada, M. (2005) Estimation of groundwater residence time in a geologically active region by coupling He-4 concentration with helium isotopic ratios. *Geophysical Research Letters*, 32, no. 2.
- Ohwada, M., Kazahaya, K., Itoh, J., Morikawa, N., Takahashi, M., Takahashi, H. A., Inamura, A., Yasuhara, M. and Tsukamoto, H. (2012) Passive degassing of magmatic volatiles from Iwate volcano, NE Japan, based on three-dimensional measurement of helium isotopes in groundwater. *Journal of Geophysical Research-Solid Earth*, 117.
- Pedersen, K. (2012) Influence of H₂ and O₂ on sulphate-reducing activity of a subterranean community and the coupled response in redox potential. *FEMS Microbiology Ecology*, 82, no. 3, 653-665.
- Pedersen, K., Bengtsson, A. F., Edlund, J. S. and Eriksson, L. C. (2014) Sulphate-controlled Diversity of Subterranean Microbial Communities over Depth in Deep Groundwater with Opposing Gradients of Sulphate and Methane. *Geomicrobiology Journal*, no. just-accepted.
- Pedersen, K., Arlinger, J., Eriksson, S., Hallbeck, A., Hallbeck, L. and Johansson, J. (2008) Numbers, biomass and cultivable diversity of microbial populations relate to depth and borehole-specific conditions in groundwater from depths of 4-450 m in Olkiluoto, Finland. *Isme Journal*, 2, 760-775.
- Penning, H. and Conrad, R. (2006) Carbon isotope effects associated with mixed-acid fermentation of saccharides by *Clostridium papyrosolvens*. *GEOCHIMICA ET COSMOCHIMICA ACTA*, 70, no. 9, 2283-2297.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2009) 地層処分に係る地質情報データの整備：平成20年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2013) 地層処分に係る地質評価手法等の整備：平成24年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2014) 地層処分に係る地質評価手法等の整備（水理関連情報の整備）：平成25年度事業報告書.
- Schoell, M. (1980) THE HYDROGEN AND CARBON ISOTOPIC COMPOSITION OF METHANE FROM NATURAL GASES OF VARIOUS ORIGINS. *Geochimica Et Cosmochimica Acta*, 44, no. 5, 649-661.
- Suzuki, Y., Konno, U., Fukuda, A., Komatsu, D. D., Hirota, A., Watanabe, K., Togo, Y.,

- Morikawa, N., Hagiwara, H., Aosai, D., Iwatsuki, T., Tsunogai, U., Nagao, S., Ito, K. and Mizuno, T. (2014) Biogeochemical Signals from Deep Microbial Life in Terrestrial Crust. *Plos One*, 9, no. 12.
- Vahtinen, T., Ahokas, H., Nummela, J. and Paulamäki, S. (2011) Hydrogeological structure model of the Olkiluoto Site. Update in 2010. Posiva Oy, Helsinki (Finland).
- Valentine, D. L., Chidthaisong, A., Rice, A., Reeburgh, W. S. and Tyler, S. C. (2004) Carbon and hydrogen isotope fractionation by moderately thermophilic methanogens. *Geochim. Cosmochim. Acta.*, 68, 1571-1590.
- Whiticar, M. J. (1999a) Carbon and hydrogen isotope systematic of bacterial formation and oxidation of methane. *Chemical Geology*, 161, 291-314.
- Whiticar, M. J. (1999b) Carbon and hydrogen isotope systematics of bacterial formation and oxidation of methane. *Chemical Geology*, 161, no. 1-3, 291-314.
- Whiticar, M. J., Faber, E. and Schoell, M. (1986) BIOGENIC METHANE FORMATION IN MARINE AND FRESH-WATER ENVIRONMENTS - CO₂ REDUCTION VS ACETATE FERMENTATION ISOTOPE EVIDENCE. *Geochimica Et Cosmochimica Acta*, 50, no. 5, 693-709.

2.1.2.2 原位置条件における微生物代謝活動の定量化

1) はじめに

還元環境の深部地下水では地上の有酸素環境とは異なる種類の微生物が生息しており、近年の研究によって、深部地下水には硫酸還元菌、硝酸還元菌、鉄還元菌、酢酸生成菌、メタン生成菌などの様々な種類の微生物が存在することが分かってきた (Hallbeck and Pedersen, 2012; Pedersen, 2012; Pedersen *et al.*, 2008). これらの微生物は地下水中の化学物質をエネルギー源として利用することから、地下水中の酸化還元状態に影響を与える要因となっている。日本原子力研究開発機構瑞浪超深地層研究所の研究坑道において花崗岩中深部地下水の生物化学特性が水理特性（透水係数）によって変化することを2.1.2.1で論じた。そこで、地下水中の微生物の代謝様式の検証と代謝活動の定量的評価のために培養実験を行った。瑞浪超深地層研究所でえらた地下水中微生物の培養実験は（産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2012, 2013）でも行っているが、今回はデータ数を増やしすとともに、化学分析結果を全菌数測定結果とあわせて評価し、かつ NanoSIMS 分析結果を数値化して定量的に分析することで、それぞれの分析結果から微生物活動を定量的に評価し、具体的に硫酸還元速度、および炭酸還元速度を求める。

2) サンプリング

瑞浪超深地層研究所の09MI20号坑の区間4でサンプリングを行った。深部地下水中の微生物量は極めて希薄であり、活性も低いため、大量の地下水をメンブレンフィルター（ $0.22\mu\text{m}$ pore）でろ過することで微生物を大量採取し、それを少量の地下水に戻して微生物濃縮懸濁液を作成し、それを培養液とする。地下水中微生物は溶存酸素が枯渇した嫌気状態で活動しているため、サンプリング時も酸素を避ける必要がある。そのため、微生物および地下水のサンプリングは研究坑道内で行い、クイックコネクツ、テフロンチューブおよびステンレスフィルターホルダーを使うことで外気との接触を遮断した。また、ろ過地下水量は流量計で計測し、メンブレンフィルターの破損を防ぐためにフィルターホルダーの前に減圧レギュレーターを付けて圧力調整を行った（図2.1.2.2-1）。そして、微生物を採取したフィルターは移動時も嫌気冷蔵状態を維持し、微生物の増殖、死滅、およびコンタミネーションをさけるため細心の注意を払った。

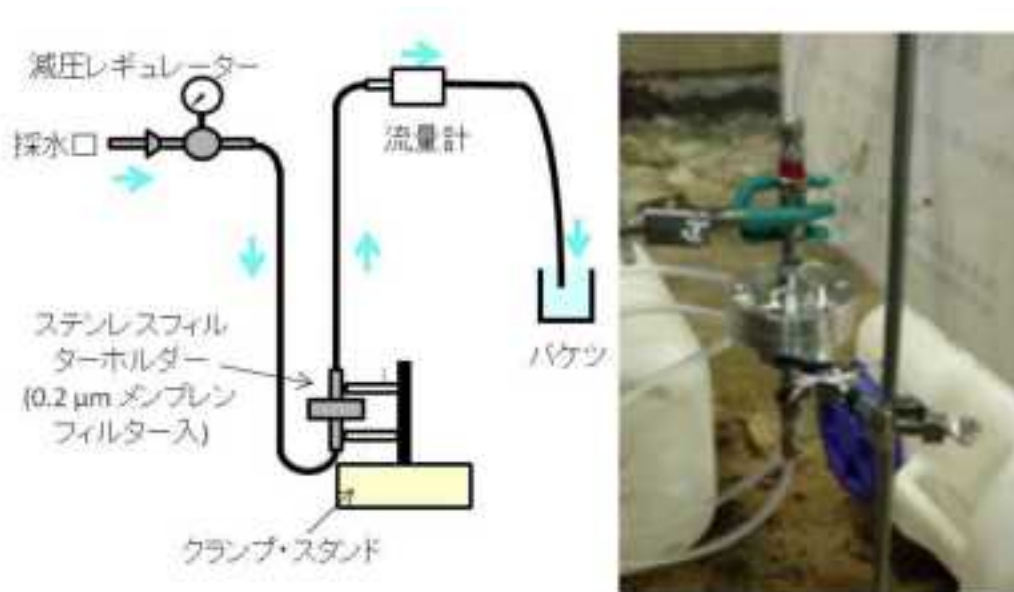


図 2.1.2.2-1 微生物サンプリング時の概念図（左）とサンプリング中のフィルターホルダーの写真（右）

3) 培養試料の作成

採取したメンブレンフィルターと地下水の処理は以下のように行った。まず、現場で微生物細胞を捕捉したメンブレンフィルターとろ過地下水をあわせて微生物濃縮懸濁液を作った。この作業は、微生物を酸素に接触させないために実験室の嫌気チャンバー内で行った。なお、微生物濃縮懸濁液の濃縮率は10倍以上である。微生物濃縮懸濁液は複数の培養容器に分けて、それぞれ硫酸ナトリウム（安定同位体 $\text{Na}^{34}\text{SO}_4$ または自然同位体 $\text{Na}^{32}\text{SO}_4$ ）、炭酸水素ナトリウム（安定同位体 $\text{NaH}^{13}\text{CO}_3$ または自然同位体 $\text{NaH}^{12}\text{CO}_3$ ）を嫌気チャンバー内で添加して炭酸イオン、硫酸イオンの濃度調整を行った。

培養実験は、原位置の水圧を模して行う高圧培養実験と、簡易的に行う常圧実験の2種類行った。常圧実験の仕込み作業手順は（I）滅菌した120mlのバイアルビンに硫酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウムを調整した微生物濃縮懸濁液20mlを導入、（II）滅菌したゴム栓を用いてバイアルビンを密閉、（I）、（II）の作業は嫌気チャンバー内で実施、（III）アルミシールを用いてバイアルビンを封印、（IV）水素濃度を5%、1%、0.1%、0.01%、0.003%、0.001%に調整した無酸素ガスを注射針を用いてバイアルビン内に導入させながら別の注射針でガスを抜き、バイアルビン内のヘッドスペースを循環させ十分に（5分～10分）通気、（V）通気用の注射針を抜き取り、同一ガスを用いてゲージ圧0.2MPaまで加圧、（VI）現場状況に準拠して25°Cに設定したグロースチャンバーに静置し試験を開始、以上の手順で常圧培養実験を行った。

高圧培養実験の仕込み手順を図2.1.2.2.2に示す。培養実験には滅菌した1,000ml容の耐圧容器（Swagelock製）を用いた。（I）下部バルブを取り付けて、閉じた状態の1,000ml耐圧容器に硫酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウムを調整した微生物濃縮懸濁液100～350mlを導入、（II）上部バルブを取り付けて耐圧容器を密閉、（I）、（II）の作業は嫌気チャンバー内で実施、（III）水素濃度を1%、0.1%、0.01%、0.003%、0.001%、0.0001%に調整した無酸素ガスを下部バルブに接続（このとき、容器内への大気の混入を避けるため、下部バルブにはT型ユニオンを接続）、（IV）各水素濃度の嫌気ガスを下部バルブから導入し、上部バルブから排気し十分に（5分）通気、（V）上部バルブを閉め、圧力を1MPaまで加圧した後、大気圧に開放する作業を3回行い容器内のガスを十分に置換、（VI）3.0MPaまで置換に使用したガスを用いて加圧、（VII）下部バルブを閉める、（VIII）加圧が終わった耐圧容器は現場状況に準拠した25°Cに設定したグロースチャンバーに静置し試験を開始、以上の手順で高圧培養実験を行った。

培養実験は最大で28日間行い、一定期間において全菌数、硫化水素濃度、硫酸イオン濃度、メタン濃度と炭素同位体比分析用およびNanoSIMS分析用サンプルを採取した。

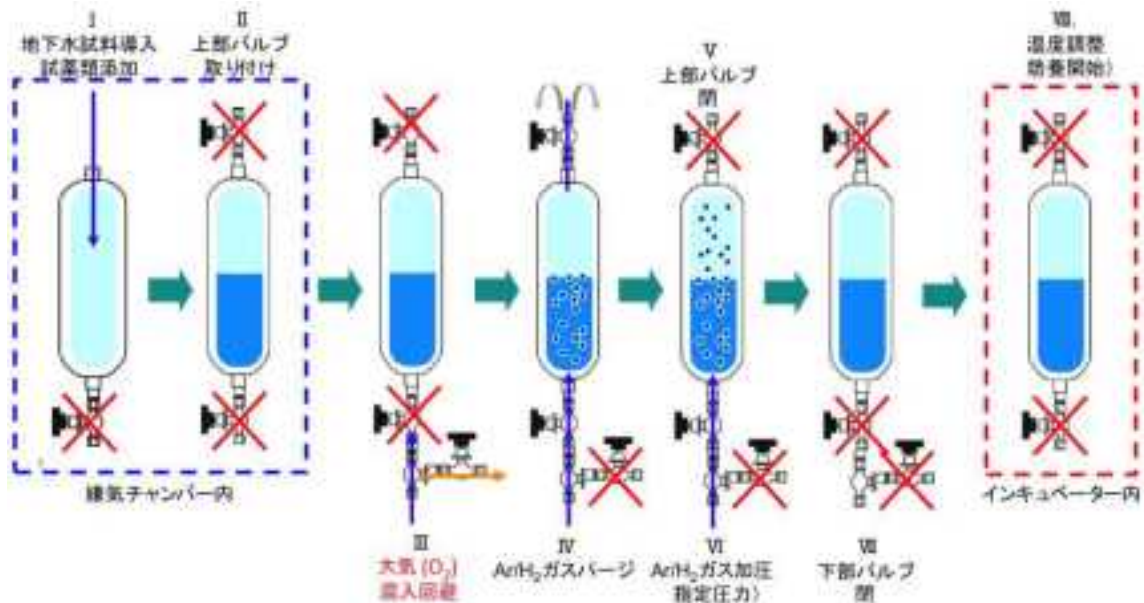


図 2.1.2.2-2 高圧培養実験の仕込み手順.

4) 硫化水素濃度から評価する硫酸還元活性

高圧実験，常圧実験において硫化水素濃度の測定を行った。培養液を 1ml 採取し，10mM の酢酸亜鉛溶液 5 μ L を加えて硫化物を固定し，その後に試薬を加えて発色反応を起こし吸光光度計で硫化水素濃度を測定した。培養期間 12 日～14 日の硫化水素濃度と培養前の全菌数を使って，微生物 1 個あたりの硫化水素濃度増加速度と培養時の溶存水素濃度の関係を図 2.1.2.2-3 に示す。溶存水素濃度は気層中水素濃度，気圧，温度から計算した値を使用している (Wiesenburg and Guinasso, 1979)。

測定の結果，水素濃度が 200nmol/kg 以下で硫酸還元速度が速く，それ以上の水素濃度では遅くなる傾向が確認できた。また，高圧培養実験と常圧培養実験の間で大きな違いは確認できなかった。通常，微生物の反応速度は Monod 式に従って基質の濃度が高いほど速くなることが知られており，ヨーロッパの Aspo 地下実験施設でも水素濃度の増加に伴い地下微生物の硫酸還元速度が上がる傾向が確認されている (Pedersen, 2012)。しかし，瑞浪の地下微生物の硫酸還元反応が必ずしも Monod 式によらずに，低い水素濃度で硫酸還元速度が活性化している。また，今回の結果は常圧培養と高圧培養の両方を個々の微生物あたりの硫酸還元活性に換算しているが，気層中水素濃度を溶存水素濃度に換算することで，常圧と高圧による結果の違いがほとんどないことが確認できた。さらに，原位置の溶存水素濃度を 2010 年から今年度まで毎年継続して測定した結果を表 2.1.2.2-1 に示すが，原位置の溶存水素濃度は 1.7～110nM (09MI20 号抗区間 4 に限れば，2.0～9.5nM) であり，硫酸還元速度が落ちるほどの高レベルの水素濃度ではない。以上のことから，瑞浪の地下微生物は原位置の溶存水素濃度に近いレベルで高い硫酸還元活性を示す可能性があることが予想される。

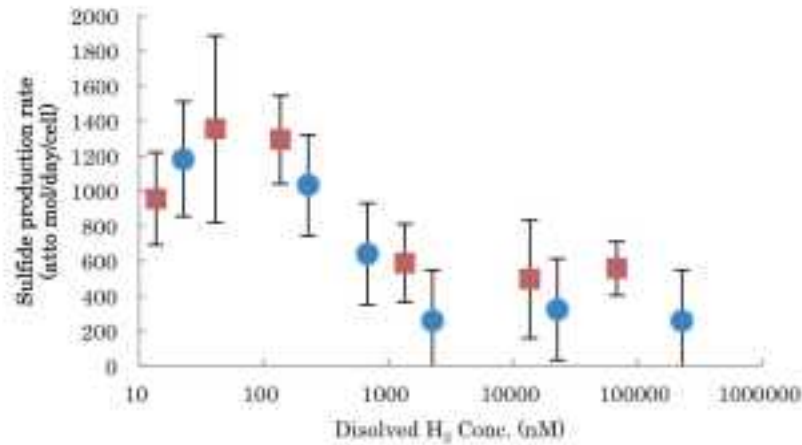


図 2.1.1.2-3 培養時の溶存水素濃度と単位微生物あたりの硫酸還元速度。
青丸が高圧培養実験の結果で赤四角が常圧培養実験の結果。

表 2.1.2.2-1 ボーリング孔ごとの溶存水素濃度。高感度水素濃度計、TRA-1（ラウンドサイエンス社製）を使用して測定（産業技術総合研究所深部地質環境コア，2012, 2013）。

Location	Section	2010.7 nmol/kg	2011.2 nmol/kg	2011.8 nmol/kg	2012.7 nmol/kg	2013.1 nmol/kg	2013.8 nmol/kg	2014.8 nmol/kg	2014.10 nmol/kg
07MI07	1	2.4	16.3	8.1	1.6		3.4	19.8	
07MI07	2			12.2	4.1		6.3	7.5	
07MI07	3	2.5		7.7	1.2		4.6	6.1	
07MI07	4			16.3	1.5		4.7	6.8	
07MI07	5	2		15.5	0.8		6.5	2.9	
07MI07	6				1.6		4.6	5.7	
09MI20	1	2.4	2.9	2.8	3.1	4.0	4.3	3.1	
09MI20	2	1.7		4.1	2.4		8.2	3.6	
09MI20	3	2.1		4	2.1	3.3	3.4	2.0	
09MI20	4			9.5	3.8	2.0	4.5	2.6	
09MI20	5			9.5	15.7	8.7	3.7	8.2	
09MI20	6			4.8	7.7	3.3	2.1	4.6	
09MI21	1						81.6		
09MI21	2	91	1.4	5.6	12.2	10.8	9.4	16.4	
09MI21	3	2.7	3.4	5	14.9			7.0	
09MI21	4	110	114	23.2	93.1	11.3	33.6	4.1	
10MI26	1		3.4	10.1	4.7		3.0	4.8	
10MI26	3		4.1	5.2	1.6		2.1	8.5	
10MI26	4		8.3	9.5	3.0		2.4	3.0	
10MI26	5		3.6	7.3	2.6	3.7	2.9	2.9	
10MI26	6		16.8	17.2	4.5		4.3	7.2	
12MI33	2								12.9
13MI38	1								2.1
13MI39	3								10.7

5) メタン生成速度から評価する炭酸還元活性

メタン生成速度を確認するために、メタンの濃度と炭素同位体比を測定した。培養前に¹³Cでラベルされた炭酸水素ナトリウム (NaH¹³CO₃) を添加することで、炭酸還元メタン生成が起きた時にメタンの炭素同位体比が通常の世界で可能な範囲を超えて重くなる。このときの炭素同位体比と濃度からメタン生成速度を計算することが可能であるため、培養液中のメタンの炭素同位体比と濃度を連続フロー型質量分析システム (Hirota *et al.*, 2010) で測定し、メタン生成速度を計算した結果を図 2.1.2.2-4 に示す (Montoya *et al.*, 1996)。メタン生成は全体的に低かったが、溶存水素濃度が 2,272nmol/kg と原位置よりも十分高い溶存水素濃度でもっとも高いメタン生成が確認できた。同様の条件であった他の培養試料は低かった理由は不明だが、少なくとも、原位置レベルよりも高い水素濃度で炭酸還元活性があることが確認できた。

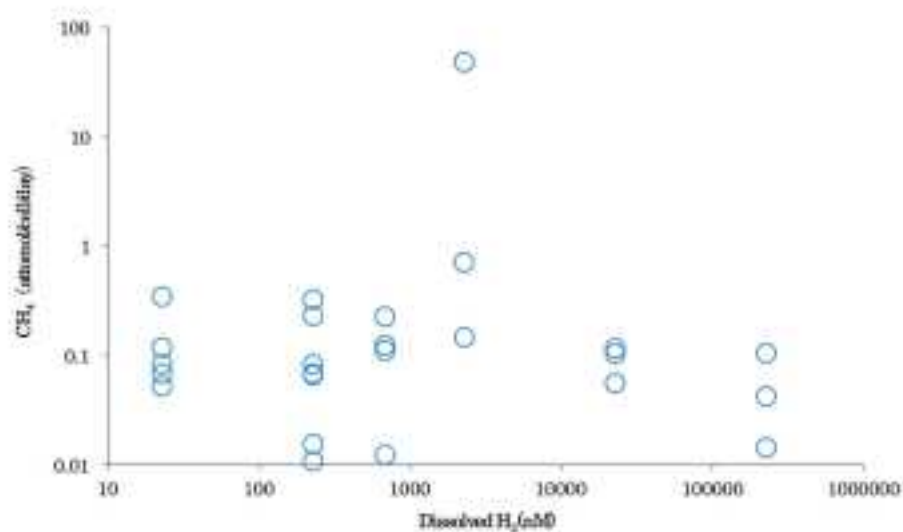


図 2.1.2.2-4 メタンの炭素同位体比から測定したメタン生成速度と培養時の溶存水素濃度。

6) NanoSIMS分析

微生物が硫酸と炭酸を呼吸によるエネルギー代謝に利用する際に、細胞外から細胞内への輸送のためにエネルギーを消費しなくてはならない。そのため、硫酸イオンもしくは炭酸イオンで呼吸する微生物はこれらの基質を細胞内に比較的高濃度取り込んでいることが想定される。そこで、天然存在度の低い³⁴Sと¹³Cでラベルした硫酸と炭酸を取り込ませ、取り込んだ細胞を NanoSIMS でマッピングすることにより、硫酸と炭酸の還元活性を評価し、その水素濃度依存性を明らかにする。そして、全分析サンプルの微生物中での硫酸還元菌と炭酸還元菌の割合を明らかにする。NanoSIMS 分析を利用した硫酸還元と炭酸還元の評価は (産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2014) でも行っているが、今回は分析サンプル数を増やし、水素濃度の幅を広げることで精度を上げた。また、培養期間が 28 日だったものを今回は 7 日間もしくは 8 日間と短期間にするすることで、微生物が増殖する前の状態を把握し、より原位置に近いデータを得られるようにした。さらに、NanoSIMS 分析で得られたデータを数値化し、個々の微生物あたりの活性速度を見積もった。

培養液をメンブレンフィルターでろ過して微生物を回収し、ホルマリン固定およびエタノールで脱水した後、そのフィルターを使って NanoSIMS 分析を行った。溶存水素濃度 227 μ M で培養した試料の NanoSIMS 画像を図 2.1.2.2-5 に、22.7 μ M で培養した試料の NanoSIMS 画像を図 2.1.2.2-6 に、溶存水素濃度 2.27 μ M で培養した試料の NanoSIMS 画像を図 2.1.2.2-7 に、溶存水素濃度 0.681 μ M で培養した試料の NanoSIMS 画像を図 2.1.2.2-8 に示す。全体では、溶存水素濃度 227 μ M の培養試

料は合計で 7 視野、10 個の微生物を確認、溶存水素濃度 $22.7\mu\text{M}$ の培養試料は合計で 7 視野、16 個の微生物を確認、溶存水素濃度 $2.27\mu\text{M}$ の培養試料は合計で 5 視野、10 個の微生物を確認、溶存水素濃度 $0.681\mu\text{M}$ の培養試料は合計で 10 視野、53 個の微生物を確認したが、それぞれの図で示しているのは代表的な一つの視野である。

$^{12}\text{C}^{14}\text{N}$ は生命体を構成する主要物質であるアミノ酸や核酸の分布を示すため、微生物は高い値を示す。図 2.1.2.2-5. であれば $^{12}\text{C}^{14}\text{N}$ の高い値が 3 か所で確認でき、これらは微生物のいる場所を示している。 $^{12}\text{C}^{14}\text{N}$ のデータで高い値が示された部分、つまり微生物のいる部分で $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比、 $^{34}\text{S}/^{32}\text{S}$ 比の結果が高い値を示した場合、添加した安定同位体、 ^{13}C と ^{34}S を取り込んだことを示している。溶存水素濃度 $227\mu\text{M}$ 、 $22.7\mu\text{M}$ 、 $2.27\mu\text{M}$ の視野で同位体比が高い値を示したものはなく、溶存水素濃度 $0.681\mu\text{M}$ の視野でも $^{34}\text{S}/^{32}\text{S}$ 比でわずかに高い値を示す微生物が少数確認できたが $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比では全く確認できなかった。このことから、 $0.681\mu\text{M}$ 以上の溶存水素濃度では炭酸の取り込み、硫酸の取り込みは小さいと考えられる。

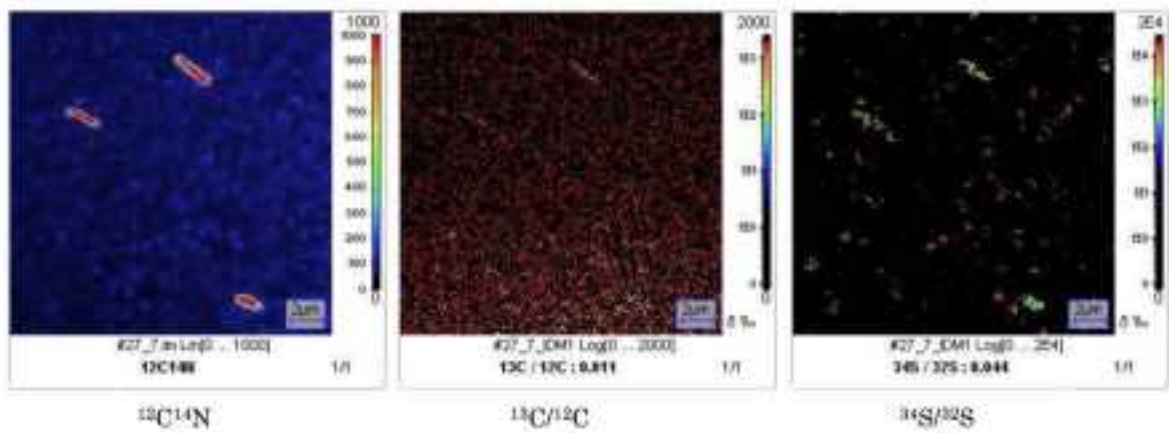


図 2.1.2.2-5 溶存水素濃度 $227\mu\text{M}$ の NanoSIMS 画像.

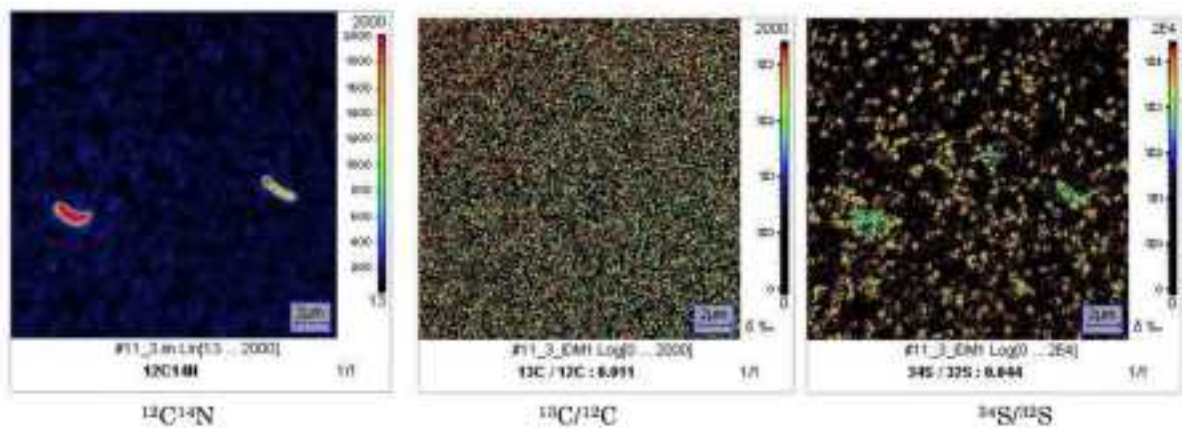


図 2.1.2.2-6 溶存水素濃度 $22.7\mu\text{M}$ の NanoSIMS 画像.

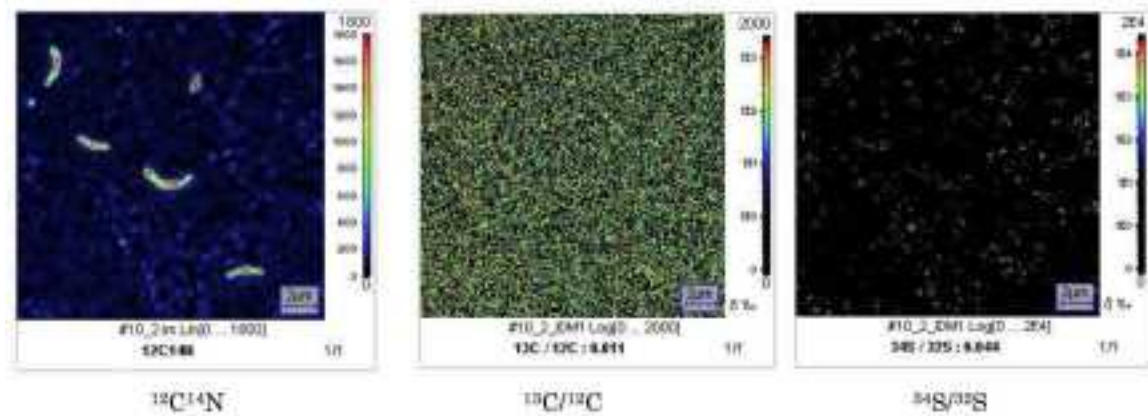


図 2.1.2.2-7 溶存水素濃度 2.27 μ M の NanoSIMS 画像。

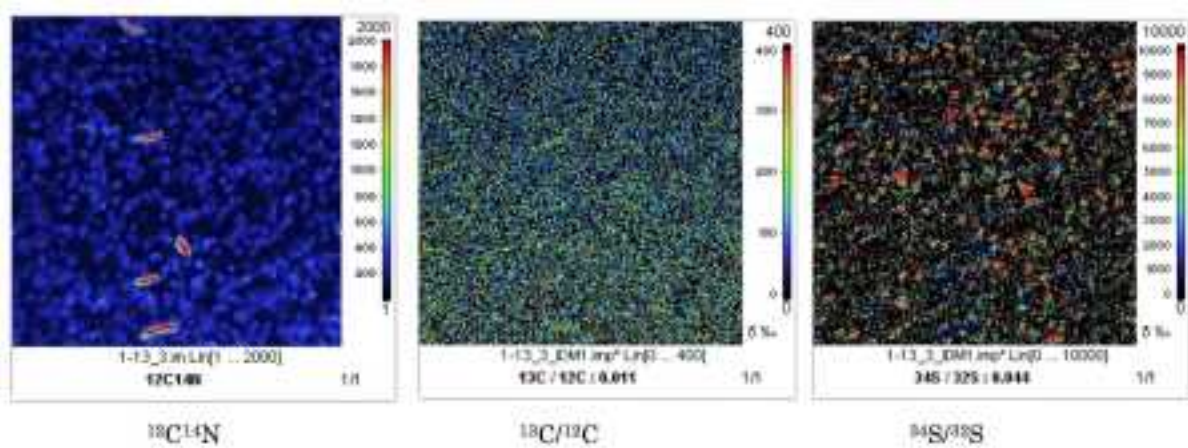


図 2.1.2.2-8 溶存水素濃度 0.681 μ M の NanoSIMS 画像。

上記の試料よりも培養時の溶存水素濃度が低い試料、溶存水素濃度 227nM で培養した試料の NanoSIMS 画像で代表的なものを図 2.1.2.2-9 に示す。この視野上では多くの微生物の $^{13}\text{C} / ^{12}\text{C}$ 比で高い値を示した。全体では合計 10 視野、67 個の微生物中 27 個 (40%) の微生物で高い $^{13}\text{C} / ^{12}\text{C}$ 比の値を確認した。しかし、 $^{34}\text{S} / ^{32}\text{S}$ 比で高い値を示した微生物は 1 個 (1.5%) だけで、わずかに高い値を示す微生物も少数であった。以上のことから、溶存水素濃度 227nM では微生物活動が炭酸還元活性にシフトしており、硫酸還元活性はわずかであると考えられる。

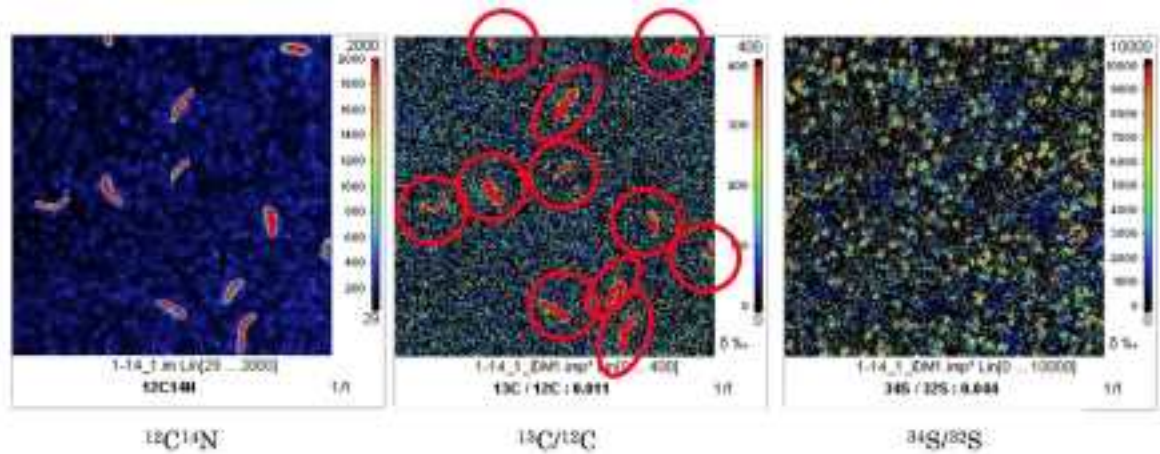


図 2.1.2.2-9 溶存水素濃度 227nM の NanoSIMS 画像。 $^{13}\text{C} / ^{12}\text{C}$ 比で高い値を示した微生物を赤丸で示す。

溶存水素濃度 22.7nM で培養した試料の NanoSIMS 画像を図 2.1.2.2-10 に示す。この視野上では複数の微生物で、 $^{34}\text{S} / ^{32}\text{S}$ 比が高い値を示した。全体では合計 10 視野、43 個の微生物中 15 個 (35%) の微生物で、 $^{34}\text{S} / ^{32}\text{S}$ 比が高い値を示した。 $^{13}\text{C} / ^{12}\text{C}$ 比ではわずかに高い値を示した微生物が複数確認できたが、はっきりとした高い値を示すものは確認できなかった。以上のことから、溶存水素濃度 22.7nM では微生物活動が硫酸還元へシフトして、炭酸還元活性はわずかであると考えられる。

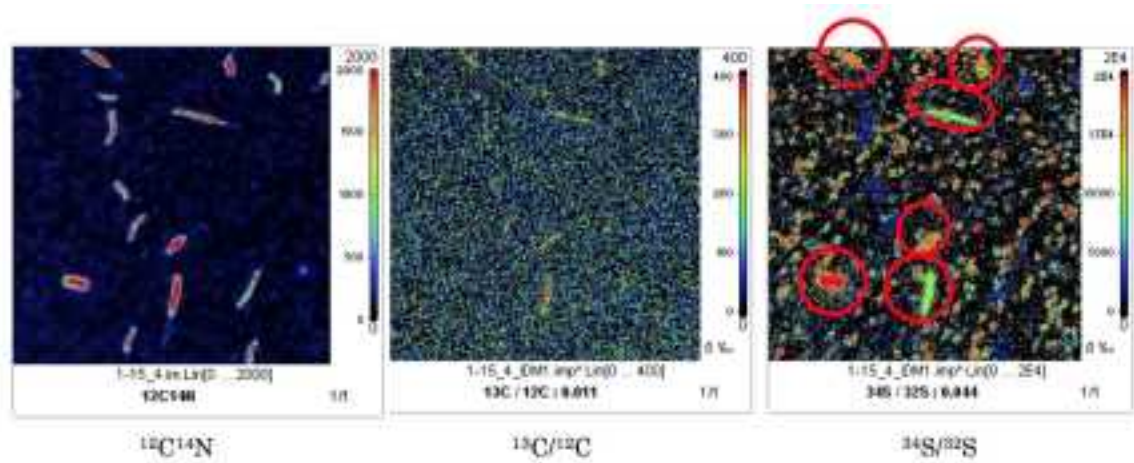


図 2.1.2.2-10 溶存水素濃度 22.7nM の NanoSIMS 画像。 $^{34}\text{S} / ^{32}\text{S}$ 比で高い値を示した微生物を赤丸で示す。

次に、NanoSIMS 分析結果から得られた数値データを使って、培養時の溶存水素濃度別に個々の微生物の $^{13}\text{C} / ^{12}\text{C}$ 値と $^{34}\text{S} / ^{32}\text{S}$ 値を図 2.1.2.2-11 に示す。この図から溶存水素濃度が 227nM のときに $^{13}\text{C} / ^{12}\text{C}$ 値が高く変化しており、この溶存水素濃度レベルで微生物活動が炭酸還元へシフトしていると予想できる。また、溶存水素濃度が 22.7nM のときに $^{34}\text{S} / ^{32}\text{S}$ 値が高く変化しており、この溶存水素濃度レベルで微生物活動が硫酸還元へシフトしていると予想できる。これらの結果は、画像データから得られた結果と整合的である。

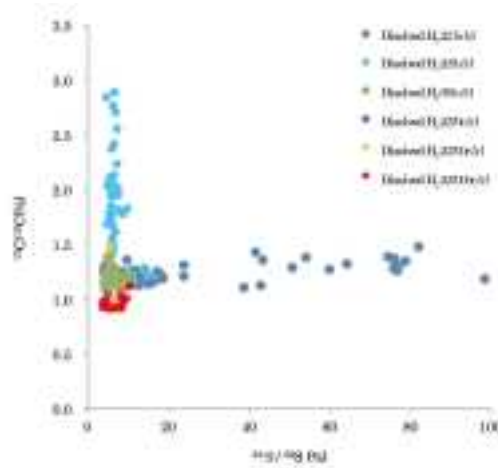


図 2.1.2.2-11 個々の微生物から得られた NanoSIMS 数値データの $^{13}\text{C} / ^{12}\text{C}$ 値と $^{34}\text{S} / ^{32}\text{S}$ 値の分布図。

NanoSIMS 分析の数値データと微生物中の炭素、硫黄の原子量から個々の微生物の炭素と硫黄の取り込み速度を計算した (Duboc *et al.*, 1995; Morono *et al.*, 2011; Whitman *et al.*, 1998). その結果と培養時の溶存水素濃度をグラフにし、図 2.1.2.2-12 に示す。

硫酸の取り込み速度は現場環境に近い溶存水素濃度 22.7nM で最も高いがそれよりも少し高い、227nM, 681nM でもある程度高い値を示した。そして、さらに水素濃度が上がると速度はより遅くなる。この結果は、画像データで、 ^{34}S の取り込みが確認できた微生物数が 22.7nM でもっとも多かった結果と整合的である。溶存水素濃度 22.7nM で、各微生物の硫酸取り込み速度の平均値は 2.7 atto mol/day/cell であった。この値から 09MI20 号抗区間 4 の全菌数および硫酸の取り込みが確認できた微生物の割合 (35%) を使って、年間の硫酸還元速度計算したところ、13.8nM/year となった。瑞浪地域での硫酸還元速度は 0.2 ~ 5nM/year と先行研究によって見積もられている (産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2014; Suzuki *et al.*, 2014)。ここで得られた硫酸還元速度は先行研究よりも高めであるが、培養時の溶存水素濃度が原位置の水素濃度 (09MI20 号抗区間 4 は、2.0 ~ 9.5nM) よりも若干高い事から、硫酸還元活性が上がっている可能性が考えられる。

NanoSIMS のデータから得られた硫酸の取り込み速度の変化の傾向と、図 2.1.1.2.6 で示した硫化水素濃度から計算した硫化水素生成速度の傾向は、溶存水素濃度が低いところで速度が速く高濃度では遅いという点で共通している。しかし、NanoSIMS データから得られた硫酸の取り込み速度は、最大で 6.9 atto mol/day/cell であるのに対し、硫化水素濃度から計算した生成速度は速いもので 1,200 atto mol/day/cell 以上の値を示していて、大きく異なる。原因としては、NanoSIMS 分析のデータは 7 ~ 8 日という短期間の培養であるが、硫化水素濃度は 12 ~ 14 日と少し長期間になるため、普段よりも高い水素濃度に適応できた硫酸還元微生物が大幅に増殖し、硫化水素生成を大量に行った可能性も考えられる。3 ~ 8 日の培養期間でも硫化水素濃度の測定を行っているが、多くは測定誤差範囲内の濃度増加であったことを考慮すると、8 日以上培養することで、微生物が増殖し急激に生成速度が速くなっている可能性も考えられる。以上のことから原位置での微生物の硫酸還元活性を評価するには NanoSIMS 分析から得られた値がより妥当であると考えられる。

炭酸の取り込み速度は現場環境よりも高い溶存水素濃度、227nM で最も高い値を示した。この結果は、画像データで、 ^{13}C の取り込みが確認できた微生物数が 227nM でもっとも多かった結果と整合的である。溶存水素濃度 227nM で、個々の微生物の炭酸の取り込み速度の平均値を計算したところ、33.1 atto mol/day/cell であった。この結果は、海底堆積物中での微生物の炭素取り込み速度である 67.3 ± 39.2 atto mol/day/cell (Morono *et al.*, 2011) の結果と同レベルである。

NanoSIMS 分析のデータから得られた炭酸の取り込み速度は 1 atto mol/day/cell 以上であるのに比べて、図 2.1.1.2.7 で示したメタンの炭素同位体比と濃度から計算したメタン生成速度は多くが 1 atto mol/day/cell 以下と全体的に低い。また、最も速度が速くなる溶存水素濃度も NanoSIMS 分析が 227nM であるのに対し、メタンの炭素同位体比から計算した値では 2,270nM であった。メタンは大気中に約 2ppm 存在しており、微生物によって生成するメタンが微量なこともあり、わずかなコンタミネーションでも生成速度が低く見積もられることがある。また、メタンの炭素同位体比から計算した値は 28 日間と長期間培養したものであるが、NanoSIMS 分析のデータは 7～8 日間と短期間であるため、より原位置の値を反映していると考えられる。以上のことから、NanoSIMS 分析のデータがより原位置微生物の炭酸還元活性を示していると考えられる。

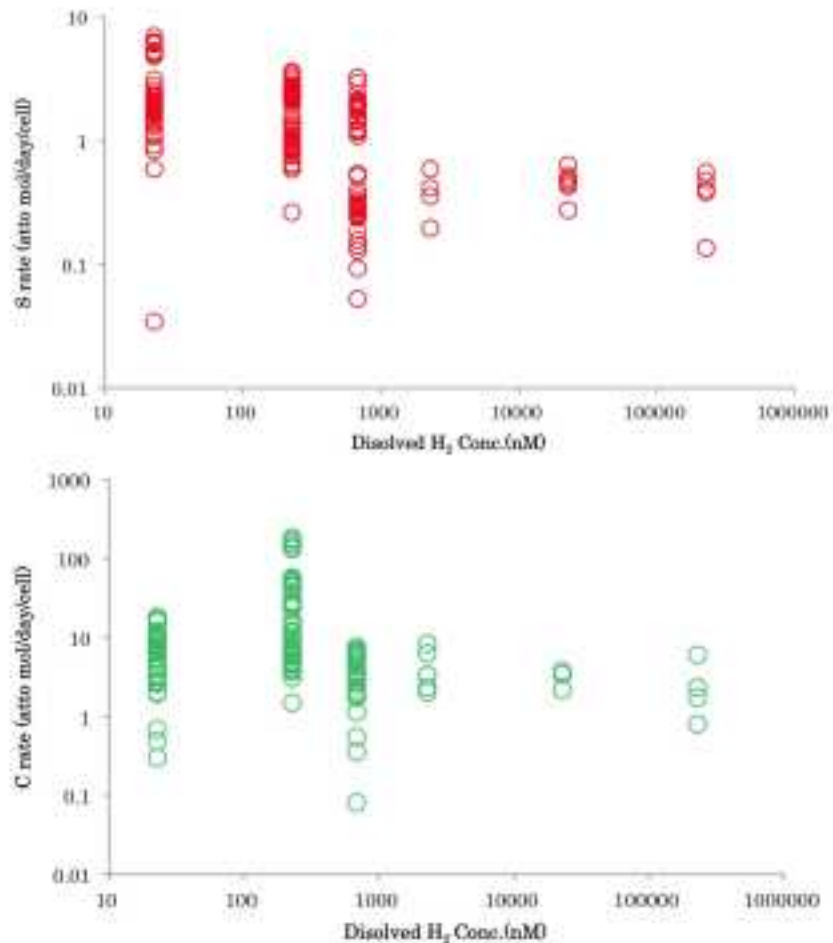


図 2.1.2.2-12 培養時の溶存水素濃度と個々の微生物の硫酸取り込み速度（上）および炭酸取り込み速度（下）。

7) DNA解析結果

地下水中で酸化還元反応に係る微生物の出現頻度と、その経時変化を評価するために、地下水中に棲息する微生物種の特異性を DNA 解析技術 (16S rRNA 遺伝子の配列を決定する手法) によって行った。特定した微生物種から生理的特徴 (代謝様式) を調べる事で、地下水中で微生物がどのような酸化還元反応を行っているかを推定することができる (Mayden, 1997; 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2012; Stackebrandt and Goebel, 1994)。本研究では 2009～2012 年と 2014 年の瑞浪超深地層研究所内の地下坑道 (09MI20 号孔の区間 4) の地下水中の微生物群集組成の経時変化を評価した。

DNA解析を実施するために、アルカリ抽出法 (Kouduka *et al.*, 2012), または MO BIO Laboratories 社の土壌用 DNA 抽出キットを用いて、地下水試料から DNA を抽出した。解析対象の遺伝子 (16S rRNA 遺伝子) は、抽出した DNA から PCR によって遺伝子を増幅した後、形質転換およびクローニング処理を経て、遺伝子配列決定装置を用いて配列決定した (産業技術 (産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2010, 2011). 得られた配列情報は膨大であるため、類似性が 97% 以上で同一微生物種由来と判断できる配列同士は、グループ化した産業技術 (産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2011). 97% でグループ化した配列 (phylotypes: 分類階級で典型的な特徴が共通するグループ) を、GenBank データベースを用いた Blastn 解析や ARB (ソフトウェアパッケージ) を用いた系統解析を行って、微生物種の同定を行った。各微生物の出現頻度 (微生物群集組成) は、各年度および各区間で集計した。

地下水試料中の微生物群集組成について、一試料あたり 33 から 90 配列、計 345 配列を解析した。解析した配列は、130 phylotypes にグループ化した後、配列情報から近縁の微生物種を同定し、年度毎に門レベルでまとめた。各ボーリング孔における地下水試料中の微生物群集組成の経時変化を評価した結果を図 2.1.2.2-13 に示した。掘削から 1 年目の地下水中で優占した β -proteobacteria 綱を代表した硫黄酸化細菌 (*Sulfurisoma sediminicola*; (Kojima and Fukui, 2011) は、通性独立栄養細菌で硫化水素を酸化して硫酸塩を生成する。好気性のメタン酸化細菌 (*Methylomonas paludis*) に代表される γ -proteobacteria 綱が掘削から 1 年の地下水中に多く、2 年目には消失した。掘削直後に酸素を含んだ掘削流体が地下水中に混入した後、地下水中の酸素が消費されて、酸素が枯渇したと考えられる。掘削から 2~4 年の地下水中からは、嫌気性のチオ硫酸還元菌 (*Dethiobacter alkaliphilus*) に代表される Firmicutes 門が、多く検出された。掘削から 2~3 年以降の地下水中から検出された Bacteroidetes 門と Chlorobi 門を代表する細菌は、近縁な培養菌株 (*Solitalea canadensis* と *Melioribacter roseus*) と相同性が低く (93% 以下), 代謝様式の推定は不可能だった。掘削から 4~5 年目の地下水中では、嫌気性の Bacteroidetes 門と Chlorobi 門等と並行して、好気性の脱窒菌 (*Denitratisoma oestradiolicum*) に代表される β -Proteobacteria 綱、メタン酸化細菌 (*Methylomonas* 属) に代表される γ -proteobacteria 綱、Cyanobacteria 門 (光合成を行う細菌が属するグループ) が検出された。好気性の脱窒菌と好気性のメタン酸化細菌と Cyanobacteria 門は、ボーリング坑内で増殖するとは考えにくい。脱窒菌とメタン酸化細菌は送水管中のチューブ内に、Cyanobacteria 門は照明付近のチューブ内に増殖していた可能性がある。メタン酸化細菌と Cyanobacteria 門が検出されるようになったのは、採水前に行うチューブ中のフラッシングが不十分で、チューブ内に溜っていた水が混入したことが原因と考えられる。掘削から 3~6 年で増加した Nitrospira 門 (窒素循環に関わる硝化細菌が属するグループ) を代表する細菌は、近縁な培養菌株 (*Thermodesulfobacterium yellowstonii*) と相同性が低く (87% 以下), 代謝様式の推定は不可能だった。掘削から 2~6 年で増加した Archaea (嫌気性, 古細菌) は、近縁な培養菌株と相同性が低く (90% 未満), 代謝様式の推定は不可能だった。掘削から 2~6 年で、嫌気性の微生物の出現頻度が高くなった。地下環境が擾乱から回復して嫌気的になったことを示している。そして、これら嫌気性の微生物、*Dethiobacter alkaliphilus* や Archaea など、が硫酸還元、炭酸還元活動を行っていると考えられる。

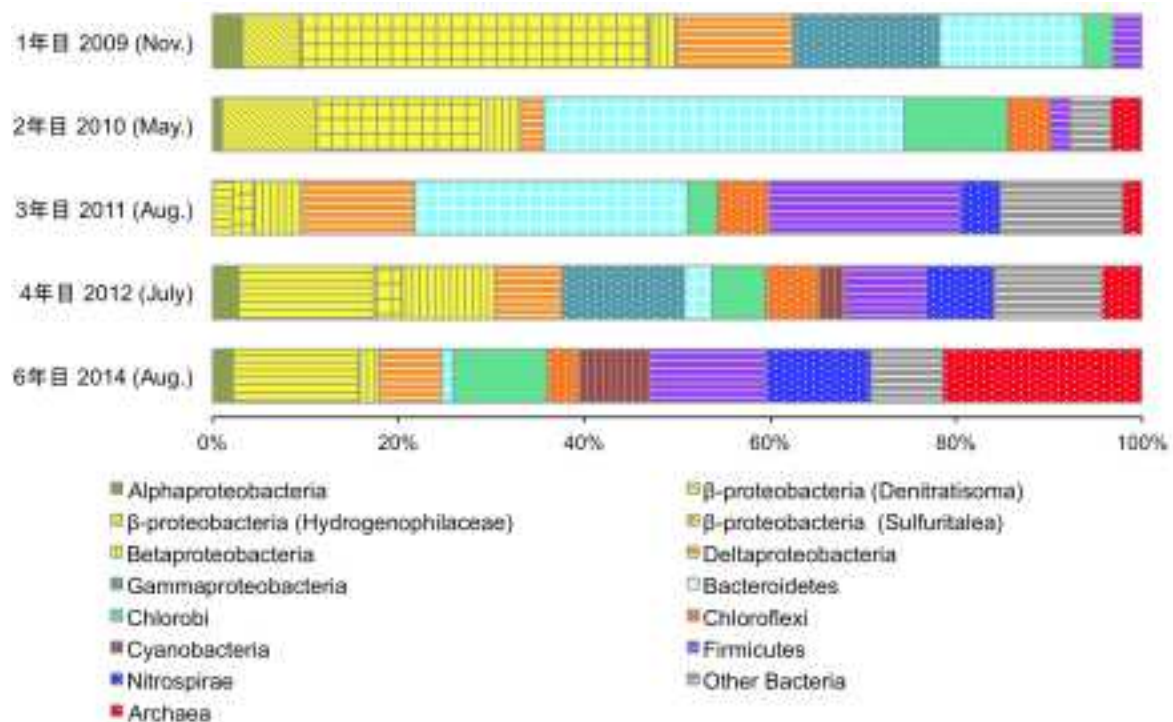


図 2.1.2.2-13 O9MI20 号孔 区間 4 の地下水中の微生物群集組成。

8) まとめ

NanoSIMS の結果から、原位置に近い低い溶存水素濃度 (22.7nM) で硫酸を、それよりも高い溶存水素濃度 (227nM) で炭酸を使った微生物活動が活性化することが確認できた。つまり、微生物の代謝活動が溶存水素濃度に依存して変化しており、変化の起点となる水素濃度は 22.7nM-227nM の間であることが確認できた。先行研究によって、水素は生物代謝に利用しやすい還元剤であり、その濃度の違いによって消費される酸化剤がシフトすることは知られており、具体的には、溶存水素濃度が < 0.1nM で硝酸呼吸、0.1-1nM で三価鉄呼吸、1-5nM で硫酸呼吸、5-30nM で炭酸呼吸となる (Chapelle *et al.*, 2002)。今回の研究結果は代謝活動がシフトする水素濃度レベルが、先行研究の値よりも高濃度側にずれてはいるが、硫酸呼吸よりも炭酸呼吸の方が高い水素濃度で活性化するという傾向は一致している。DNA 解析結果から確認された地下水中に生息する嫌気性の微生物が炭酸還元、硫酸還元活動を行っていると考えられる。

【引用文献】

- Chapelle, F. H., O'Neill, K., Bradley, P. M., Methe, B. A., Ciufo, S. A., Knobel, L. L., and Lovley, D. R., (2002) A hydrogen-based subsurface microbial community dominated by methanogens *Nature*, 415, no. 6869, 312-315.
- Duboc, P., Schill, N., Menoud, L., Vangulik, W., and Vonstockar, U., (1995) MEASUREMENTS OF SULFUR, PHOSPHORUS AND OTHER IONS IN MICROBIAL BIOMASS - INFLUENCE ON CORRECT DETERMINATION OF ELEMENTAL COMPOSITION AND DEGREE OF REDUCTION *Journal of Biotechnology*, 43, no. 2, 145-158.
- Hallbeck, L., and Pedersen, K., (2012) Culture-dependent comparison of microbial diversity in deep granitic groundwater from two sites considered for a Swedish final repository of

- spent nuclear fuel *Fems Microbiology Ecology*, 81, no. 1, 66-77.
- Hirota, A., Tsunogai, U., Komatsu, D. D., and Nakagawa, F., (2010) Simultaneous determination of δN_{15} and δO_{18} of N_2O and δC_{13} of CH_4 in nanomolar quantities from a single water sample *Rapid Communications in Mass Spectrometry*, 24, no. 7, 1085-1092.
- Kojima, H., and Fukui, M., (2011) *Sulfuritalea hydrogenivorans* gen. nov., sp. nov., a facultative autotroph isolated from a freshwater lake *International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology*, 61, 1651-1655.
- Kouduka, M., Suko, T., Morono, Y., Inagaki, F., Ito, K., and Suzuki, Y., (2012) A new DNA extraction method by controlled alkaline treatments from consolidated subsurface sediments *Fems Microbiology Letters*, 326, no. 1, 47-54.
- Mayden, R., L., (1997) A hierarchy of species concepts: the denouement in the saga of the species problem, *Species: the Units of Biodiversity*, Volume Chapman & Hall, London, : London, Chapman & Hall, 381-424.
- Montoya, J. P., Voss, M., Kahler, P., and Capone, D. G., (1996) A Simple, High-Precision, High-Sensitivity Tracer Assay for N_2 Fixation *Applied and Environmental Microbiology*, 62, no. 3, 986-993.
- Morono, Y., Terada, T., Nishizawa, M., Ito, M., Hillion, F., Takahata, N., Sano, Y., and Inagaki, F., (2011) Carbon and nitrogen assimilation in deep seafloor microbial cells *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 108, no. 45, 18295-18300.
- Pedersen, K., (2012) Influence of H_2 and O_2 on sulphate-reducing activity of a subterranean community and the coupled response in redox potential *Fems Microbiology Ecology*, 82, no. 3, 653-665.
- Pedersen, K., Arlinger, J., Eriksson, S., Hallbeck, A., Hallbeck, L., and Johansson, J., (2008) Numbers, biomass and cultivable diversity of microbial populations relate to depth and borehole-specific conditions in groundwater from depths of 4-450 m in Olkiluoto, Finland *Isme Journal*, 2, no. 7, 760-775.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2010) 地層処分に係る地質情報データの整備：平成21年度事業報告書。
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2011) 地層処分に係る地質評価手法等の整備：平成22年度事業報告書。
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2012) 地層処分に係る地質評価手法等の整備：平成23年度事業報告書。
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2013) 地層処分に係る地質評価手法等の整備：平成24年度事業報告書。
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2014) 地層処分に係る地質評価手法等の整備（水理関連情報の整備）：平成25年度事業報告書。
- Stackebrandt, E., and Goebel, B. M., (1994) Taxonomic Note: A Place for DNA-DNA Reassociation and 16S rRNA Sequence Analysis in the Present Species Definition in Bacteriology. *International Journal of Systematic Bacteriology*, 44, no. 4, 846-849.
- Suzuki, Y., Konno, U., Fukuda, A., Komatsu, D. D., Hirota, A., Watanabe, K., Togo, Y., Morikawa, N., Hagiwara, H., Aosai, D., Iwatsuki, T., Tsunogai, U., Nagao, S., Ito, K.,

- and Mizuno, T., (2014) Biogeochemical Signals from Deep Microbial Life in Terrestrial Crust Plos One, 9, no. 12.
- Whitman, W. B., Coleman, D. C., and Wiebe, W. J., (1998) Prokaryotes: The unseen majority Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 95, no. 12, 6578-6583.
- Wiesenburg, D. A., and Guinasso, N. L., (1979) Equilibrium solubilities of methane, carbon monoxide, and hydrogen in water and sea water Journal of Chemical & Engineering Data, 24, no. 4, 356-360.

2.1.3 長期の水質、酸化還元環境変動と将来予測手法

【実施内容】

海水が主体であった過去に地下水から沈殿した鉱物は、淡水化した後も地層中に保存され、沈殿した当時の海水系地下水の水質と酸化還元状態を記録していると想定される。淡水と海水では塩分等の化学成分や安定同位体組成が異なるため、それぞれで沈殿した鉱物は同様に化学成分や同位体組成が異なり判別可能であるため、長期的な水質変動のエビデンスとして、地下実験施設等の結晶質岩、堆積岩の既存岩石試料から沈殿鉱物を抽出し、化学組成や硫黄同位体、年代の分析等を行い、異なる地質環境下における沈殿鉱物を利用した履歴評価手法の適用性を検討するとともに、鉱物分析での化学環境変化履歴の評価、将来予測に適用する際の課題を抽出する。以上の成果は、原子力規制委員会が作成する精密調査に対する判断指標あるいは技術指針の見知として反映される。

【成果】

2.1.3.1 花崗岩割れ目充填鉱物の解析

本研究では、日本原子力研究開発機構瑞浪超深地層研究所を用いて、地下坑道からの掘削孔から採取した掘削コアを利用して、割れ目充填鉱物に記録される過去の水理特性と地下水化学特性を復元する手法について検討した。割れ目充填鉱物のパイライトに対して粒子内での硫黄安定同位体比の変動を二次元高分解能二次イオン質量計 (NanoSIMS) で測定した。また、カルサイトの走査電子顕微鏡 (SEM) 観察と電子線マイクロアナライザー (EPMA) による元素マッピングおよび炭素・酸素安定同位体比の測定を行った。

瑞浪超深地層研究所において、亜鉛と鉄を含む閃亜鉛鉱 (ZnS) の構造を有する金属硫化物鉱物が、図 2.1.3.1-1 に示すように 09MI20 の区間 4 から採取した地下水で形成していることが明らかになった (Suzuki *et al.*, 2014)。07MI07, 09MI20, 10MI26 が位置する高密度割れ目帯の花崗岩中では、微生物の硫酸還元代謝が行われており、地下水の還元的水質の形成に重要な役割を果たしている。現在の硫酸還元状態の地下水水質が、割れ目充填鉱物に保存されているかを明らかにするため、09MI20 号孔の区間 4 に位置する掘削コア (水平深度 55.45-48 m) から亀裂充填鉱物をサンプリングし解析を行った。

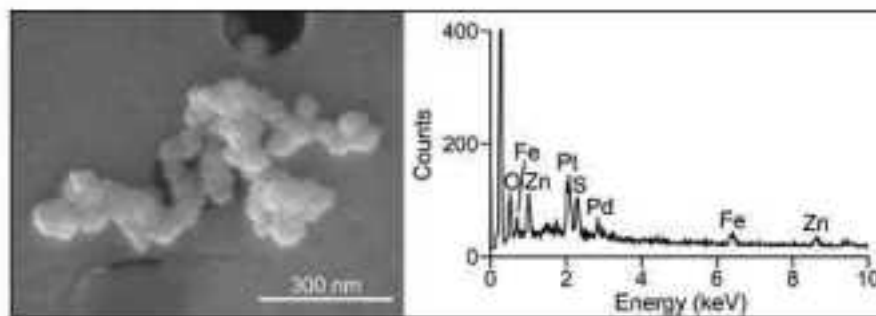


図 2.1.3.1-1 09MI20 の区間 4 の地下水中に懸濁する金属硫化物粒子。

走査電子顕微鏡像 (左) およびエネルギー分散型 X 線分析 (EDS) の結果 (右)。

光学顕微鏡下でパイライト粒子が認識できたため、ピックアップし Pt-Pd 蒸着膜で導電性を確保したのち、SEM 観察を行った。SEM は冷陰極電界放射型の HITACHI S-4500 を使い、加速電圧 15 kV で観察および元素分析を行った。また、電子線後方散乱回折法 (EBSD) は検出器に対して垂直な試料面が必須となるため、FIB 加工により平滑な試料断面を切り出し (HITACHI FB-2100)、70° の傾斜を持つ試料台に固定して測定を実施した。EBSD 測定時の加速電圧は 20 kV である。FIB で切

り出した試料断面について元素分析と EBSD を実施した結果、硫化物としてはパイライトのみが観察され、外形もほぼ一様で、増晶を示すような組織（空隙やゾーネーション）は見られなかった（図 2.1.3.1-2）。懸濁粒子の解析結果を踏まえると、現在の地下水から沈殿する鉄と亜鉛を含む硫化物は充填鉱物としては記録されていない。この解釈は、コア中の黄鉄鉱の $\delta^{34}\text{S}$ が +19.2 ~ +37.9‰ と地下水中の硫化水素の硫黄安定同位体組成 $\delta^{34}\text{S}$ が -24.9‰ と異なる点からも支持される (Suzuki *et al.*, 2014)。現在の天水起源の地下水中には硫酸と硫化水素濃度の両方が低いため、今回分析した黄鉄鉱は 1,000 万年前の海進時または花崗岩マグマの貫入後の熱水活動で形成した硫化物であることが推定された。

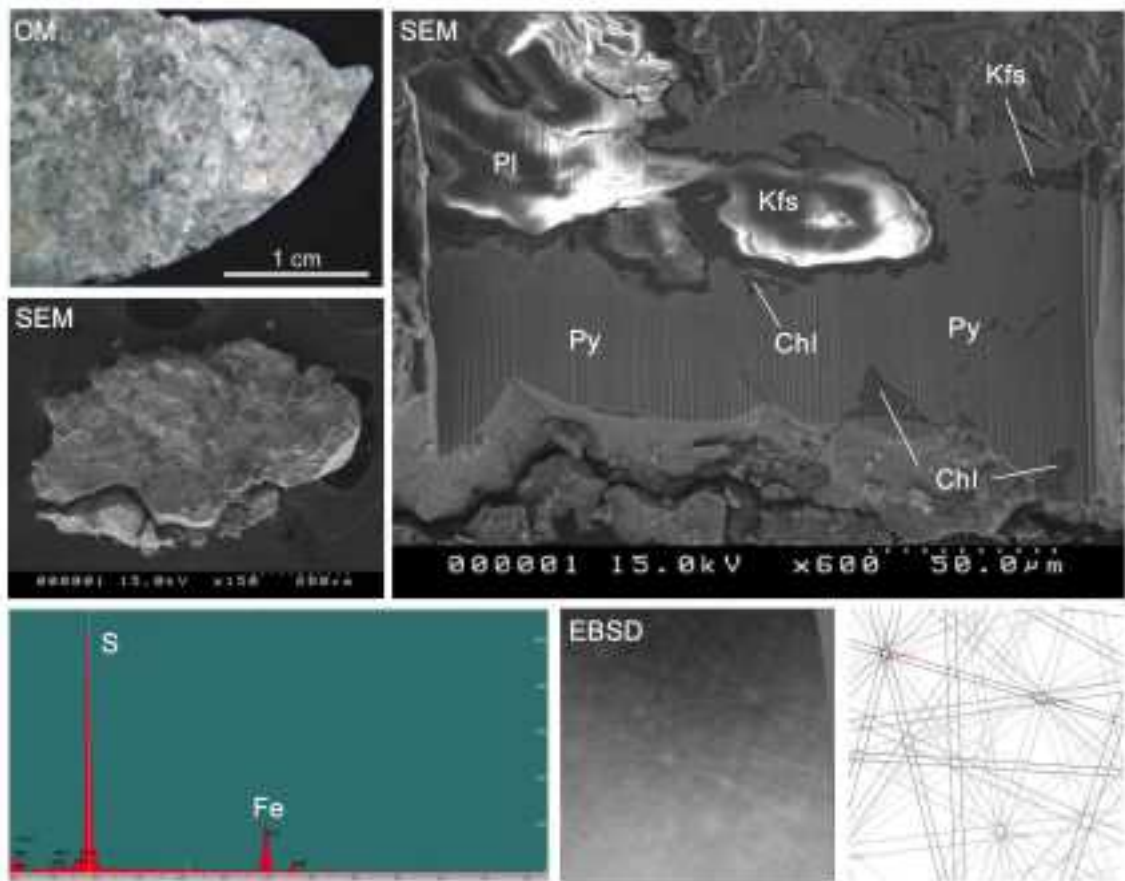


図2.1.3.1-2 09MI20号孔区間4のコアサンプルから採取したパイライト ($\delta^{34}\text{S} = +19.2\%$) の光学顕微鏡像 (OM) , SEM像, EDSスペクトラおよび電子線後方散乱回折法 (EBSD) 結果. Plはplagioclase, KfsはK feldspar, Pyはpyrite, Chlはchloriteのそれぞれ略である。

北欧の高レベル放射性廃棄物の最終処分場選定の際に、割れ目充填鉱物中の黄鉄鉱の硫黄安定同位体組成について、二次イオン質量分析計 (SIMS) を用いた粒子内の $\delta^{34}\text{S}$ の累帯構造の解析が行われている (Sim *et al.*, 2011; Sahlstedt *et al.*, 2013)。粒子内の $\delta^{34}\text{S}$ の累帯構造のデータは微生物の硫酸還元時の地下水流動場の特性が閉鎖的か開放的か明らかにできる。また正確な $\delta^{34}\text{S}$ の測定により、微生物起源と熱水起源についても粒子レベルで特定が可能である。我が国の地層処分関連の研究では、充填鉱物の $\delta^{34}\text{S}$ についてはバルクでの分析しか行われていないため (Shikazono and Utada, 1997; Iwatsuki *et al.*, 2002), 粒子レベルでの $\delta^{34}\text{S}$ について、空間分解能で SIMS より優れた NanoSIMS を用いて分析し、精度等の検討を行った。

NanoSIMS 分析は図 2.1.3.1-2 に示す $\delta^{34}\text{S}$ が +19.2‰ と最も熱水起源の黄鉄鉱に近い試料を対象

とした(図 2.1.3.1-3). また黄鉄鉱試料は熱水からの沈殿が一般的な緑泥石(図 2.1.3.1-2 右上で Chl と略述)を伴っており, 起源の特定は重要である. 花崗岩基盤に近い 5, 6, 15 地点と離れた 1, 10, 11 地点間の側線に沿って, 5 点の 3 重測定を行った. 黄鉄鉱の標準物質は藤見鉱床産で, 先行研究により $\delta^{34}\text{S}$ が 5.5% で均質であると知られる(Nishizawa *et al.*, 2010). 一次イオンとして Cs^+ ビームを用い, 加速電圧は 8 kV, ビーム強度は 35 nA で測定を行った. 二次イオンの質量分解のが 4,500 程度であった.

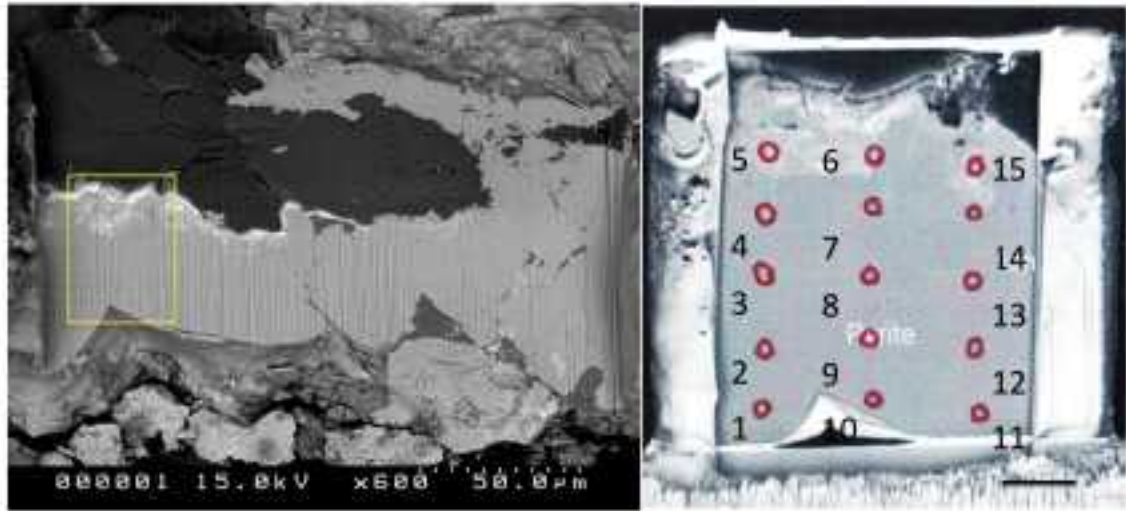


図 2.1.3.1-3 NanoSIMS 分析を行った黄鉄鉱試料の領域の SME 像(左)と 15 の分析地点(右).

左図の黄色で囲まれた領域が右図に相当する. 右図のスケールは 10 μm .

黄鉄鉱標準の測定では, 10 粒子の測定を行った結果, 平均と標準偏差は $^{34}\text{S}/^{32}\text{S}$ 比で $4.0050 \times 10^{-2} \pm 0.0356 \times 10^{-2}$ であり, $\delta^{34}\text{S}$ スケールでは標準偏差は 0.5% 程度であった. 地下試料中の黄鉄鉱中の 15 点について 3 重測定し, 黄鉄鉱標準の値で $^{34}\text{S}/^{32}\text{S}$ を補正した結果を図 2.1.3.1-4 に示す. 花崗岩基盤に接する内側の 4, 6, 15 地点から外側の 1, 10, 11 地点に向かって, $\delta^{34}\text{S}$ が 6-8% 程度外側に軽く ($^{34}\text{S}/^{32}\text{S}$ の比が低く) なっていることが判明した. 閉鎖系で微生物による硫酸還元が進行すると内側から外側に向けて $\delta^{34}\text{S}$ が重くなる. 現在の淡水中の硫化水素の $\delta^{34}\text{S}$ が -24.9% であるため, 海進時の硫酸還元で生じる $\delta^{34}\text{S}$ の重い硫化水素が, 海退時に硫化水素の $\delta^{34}\text{S}$ が軽い淡水に置き換わる際に形成した可能性も考えられる. しかし, 黄鉄鉱の $\delta^{34}\text{S}$ だけでは, 過去の地下水水質を復元するには情報量が限られるため, 共存する鉱物と組み合わせて復元に用いる必要がある. また, 黄鉄鉱中に含まれる微量元素の濃度についてマッピングして, $\delta^{34}\text{S}$ の粒子内での変動と対比する必要がある.

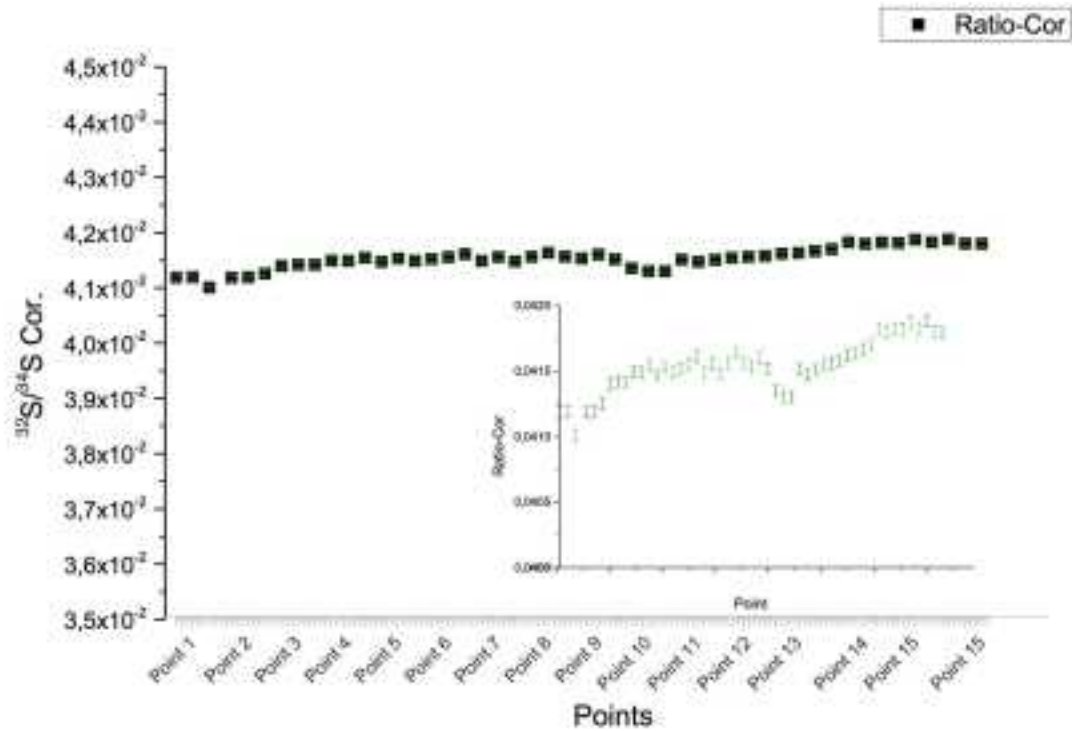


図 2.1.3.1-4 09MI20 号孔の水平深度 55.45-55.48 m から採取したコア試料中の黄鉄鉱の NanoSIMS 分析結果。
³²S と ³⁴S の比は標準物質の測定値で補正した。補正後の測定値の平均を黒い四角で、標準偏差を内側の緑線の幅で示す。右下の図は縦軸を拡大して示す。

炭酸塩鉱物の方解石は、地下水中で亀裂充填鉱物として沈殿することが知られ、瑞浪超深地層研究所周辺の花崗岩体中で普遍的に分布する (Iwatsuki *et al.*, 2002)。また、熱水活動時の流体移動や、海進と海退時の海水と天水の混合は、炭酸塩鉱物中の酸素と炭素の安定同位体組成 ($\delta^{13}\text{C}$ と $\delta^{18}\text{O}$) に記録として保存されていることも知られる。特に瑞浪地域では堆積岩による地史の復元から、海進が 1000 万年前に起きたことが報告されている。海進時に形成した炭酸塩から海水と淡水の混合過程を復元すると共に、炭酸塩中に含まれる黄鉄鉱を分析できれば、当時の酸化還元状態や地下深部の水理特性についてより詳細に復元が可能になると期待される。深度 200 メートルの 07MI07 号孔の水平深度 30.80-30.90 m から採取されたコア試料は、炭酸塩脈の発達が顕著である。そこで炭酸塩脈と花崗岩基盤を共に樹脂埋めし、鏡面研磨したブロック試料を作成し、岩石組織学的解析と炭酸塩の $\delta^{13}\text{C}$ と $\delta^{18}\text{O}$ の測定を行った。岩石組織学的解析には JEOL 社製電界放出型走査型電子顕微鏡 (JSM-7000F) を用いた SEM-EDS 分析と JEOL 社電子線マイクロアナライザー JXA-8900L を用いた元素マッピングを行った。両装置共に加速電圧が 15 kV で観察および分析を行った。炭酸塩脈からは出雲ウェブ社製マイクロドリル (Geomill 326) を用いて粉末を採取し、安定同位体比測定には Thermo 社製安定同位体比質量分析計 Finnigan MAT252 を用いた。炭素安定同位体組成 $\delta^{13}\text{C}$ は標準物質を PDB とし、酸素安定同位体組成 $\delta^{18}\text{O}$ は SMOW を標準物質とした。

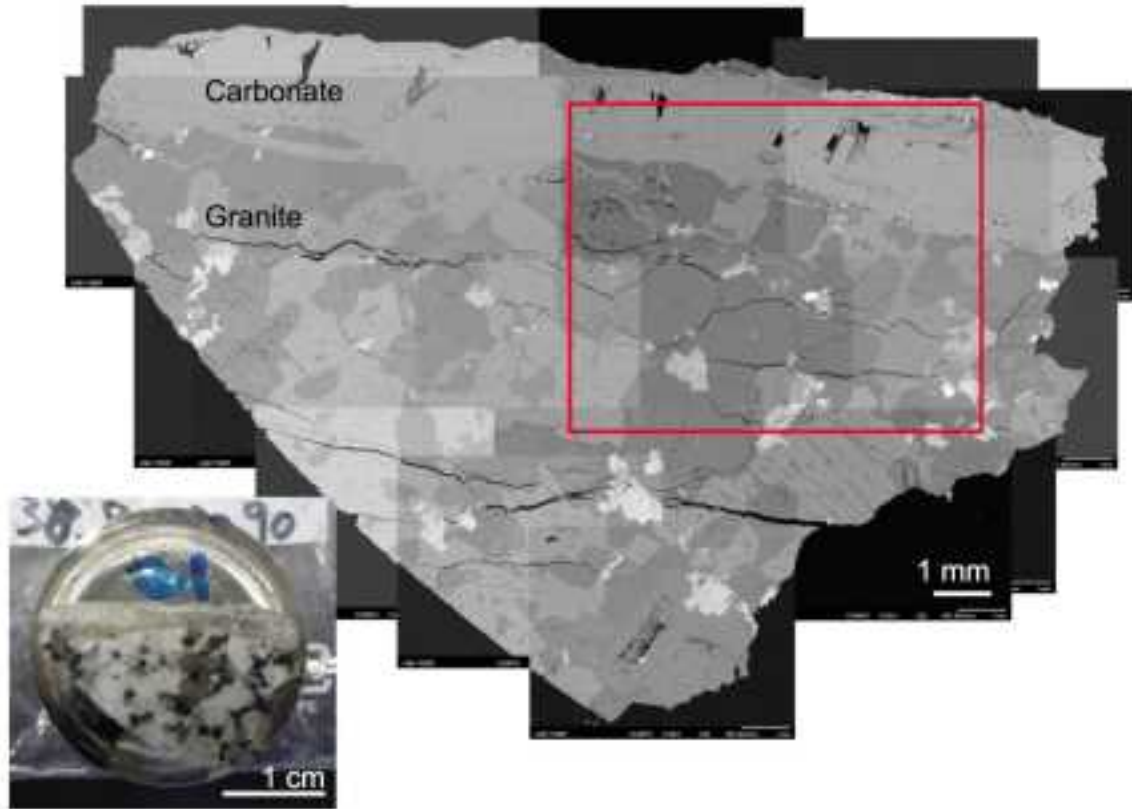


図2.1.3.1-5 深度200メートルの07MI07号孔の水平深度30.80-30.90 mから採取されたコア試料の研磨ブロックの写真およびSEM像。赤い四角で囲んだ領域をEPMAで分析した。

写真上部の白色の炭酸塩脈中に、肉眼で結晶形が発達する内部と、それを上下で挟む白濁色の層とに分かれることが観察された(図2.1.3.1-5)。SEM像でも中心部の炭酸塩結晶が花崗岩基盤から成長するのが明らかである。次にEPMAにより元素マッピングを行ったところ、カルシウムが主体の炭酸塩であり、Caの濃度に下位から上位の層で違いがあることが判明した(図2.1.3.1-6)。またCaに比較的乏しい上位の層はMgに富むことが明らかになった。したがって、結晶形態と化学組成から、これら3層の炭酸塩は異なる形成ステージを伴うと解釈される。熱水から沈殿した炭酸塩に富むSrは検出されず、Feは細粒で下位と上位の炭酸塩に多く含まれ、中位の結晶形が発達する炭酸塩には見られなかった。化学的に不動なZrは含まれず、Pは炭酸塩に濃集した(図2.1.3.1-7)。また、細粒状のAlは下位の炭酸塩に含まれ、硫黄は花崗岩基盤中にも疎らに分布した。

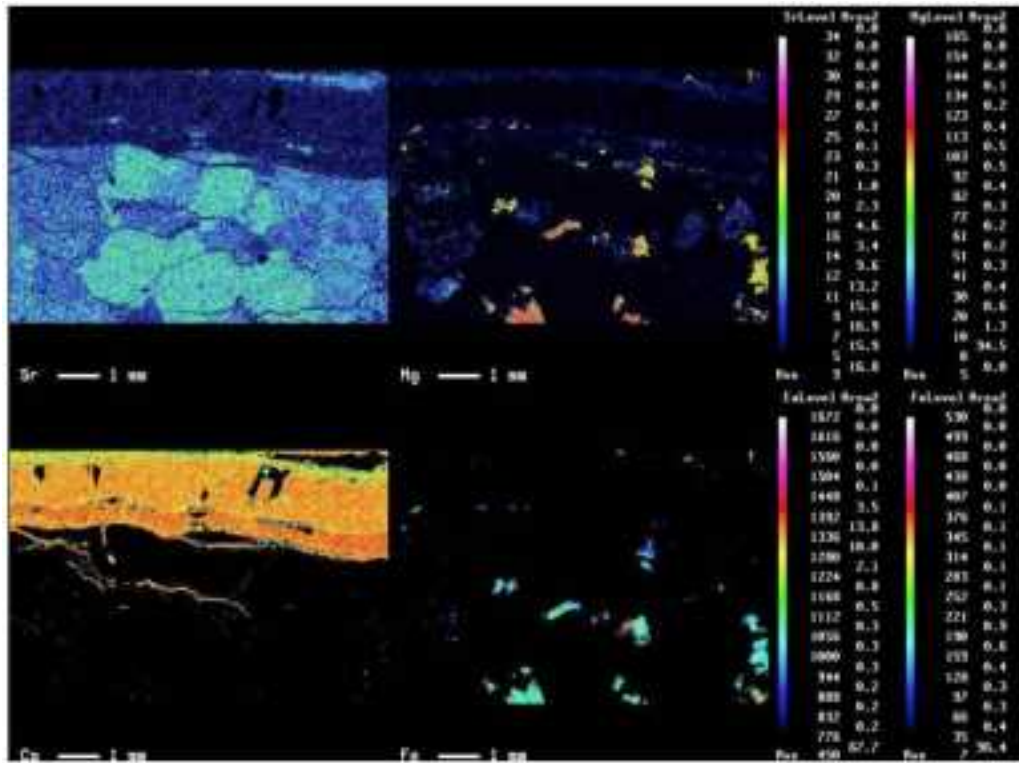


図2.1.3.1-6 深度200メートルの07MI07号孔の水平深度30.80-30.90 mから採取されたコア試料の炭酸塩脈と花崗岩基盤のEPMAによるSr, Mg, Ca, Feのマッピング像。

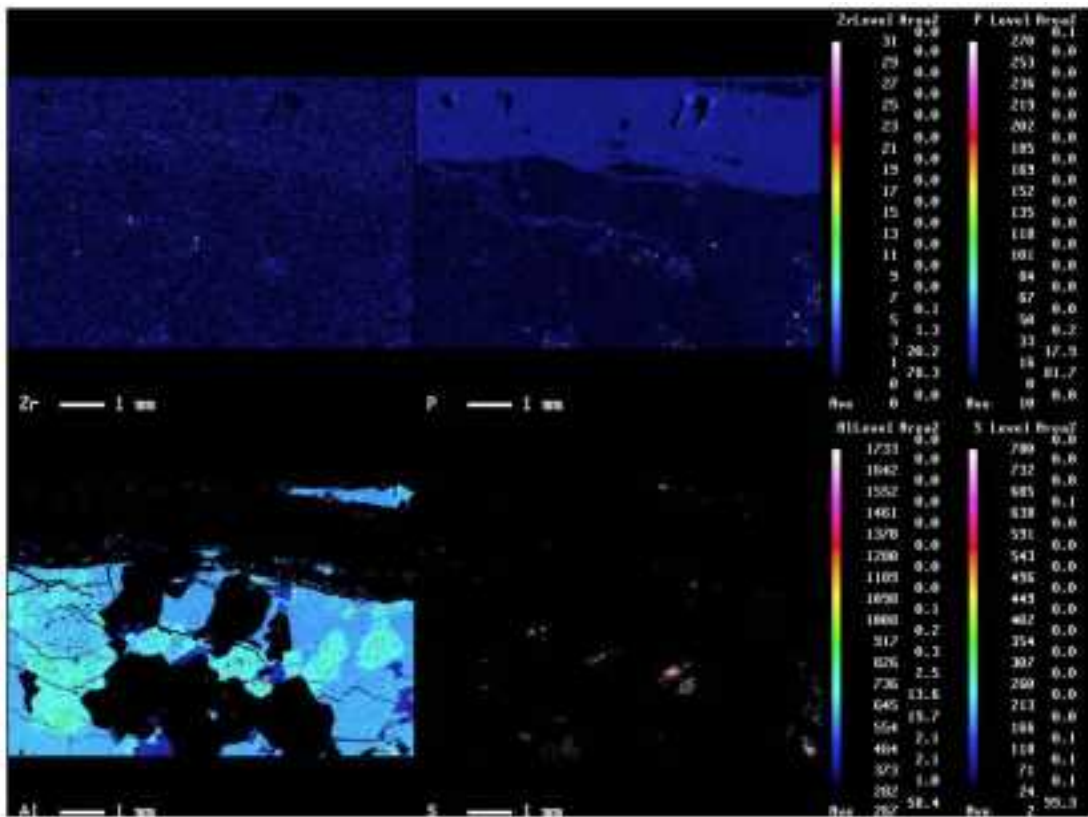


図2.1.3.1-7 深度200メートルの07MI07号孔の水平深度30.80-30.90 mから採取されたコア試料の炭酸塩脈と花崗岩基盤のEPMAによるZr, P, Al, Sのマッピング像。

岩石組織学的に認識された形成ステージの異なる3層からそれぞれマイクロドリルで削り出し、炭酸塩の $\delta^{13}\text{C}$ と $\delta^{18}\text{O}$ を決定した。上位は $\delta^{13}\text{C}$ が $-7.7\pm 0.3\text{‰}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ が $21.2\pm 0.1\text{‰}$ で、中位は $\delta^{13}\text{C}$ が $-6.1\pm 0.5\text{‰}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ が $21.8\pm 0.3\text{‰}$ で、下位は $\delta^{13}\text{C}$ が $-10.0\pm 1.1\text{‰}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ が $21.3\pm 0.3\text{‰}$ であった。これらの結果を、これまでに測定した瑞浪周辺の花崗岩のデータと共に図2.1.3.1-8にプロットした。どの部位も海水と天水の混合ラインにのりため、熱水ではなく地下水の混合時に形成したことは事明である。中位の結晶形が発達した炭酸塩が最も海水の値に近く、海水起源の炭酸塩はC軸方向に結晶が伸長することが知られるため(Iwatsuki *et al.*, 2002)、海進の卓越した時期に形成した解釈される。その上下で $\delta^{18}\text{O}$ は一定だが、 $\delta^{13}\text{C}$ が有為に軽くなっており、現在の同じ区間の地下水中で炭酸イオンの $\delta^{13}\text{C}$ が -15.8 から -12.4‰ のため(Suzuki *et al.*, 2014)、天水起源の地下水の影響がより強いと考えられる。したがって、上位と下位の炭酸塩層は海進の終わりと始まりに形成した炭酸塩の可能性が高く、海進・海退の地下水水質の影響を復元するには適していると判断される。

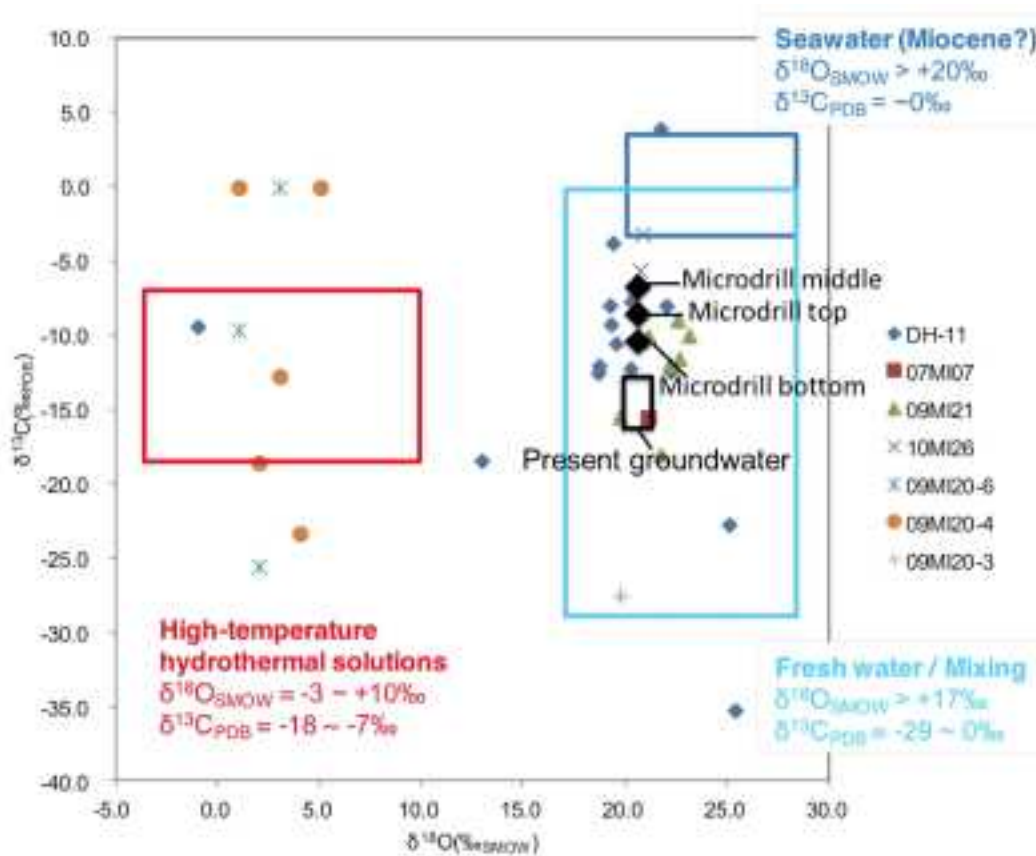


図 2.1.3.1-8 瑞浪地域の花崗岩割れ目充填鉱物として産するカルサイトの酸素および炭素同位体組成。

海進が進行する影響は下位の炭酸塩層に情報が記録されている可能性が高いため、SEM-EDS 分析を行い、さらに詳細な鉱物共生について解析した(図2.1.3.1-9)。炭酸塩層中に黄鉄鉱が含まれ、09MI20号孔の水平深度55.45-55.48mから採取したコアの充填物中の黄鉄鉱のように緑泥石が共存していた。下位と中位の炭酸塩層の境界に沿って頻りに分布しており、海進の進行の末期に地下水水質が大きく変動する地質学的な事象が存在した可能性を示し、緑泥石の存在から熱水の寄与も考えられる。しかし、炭酸塩や硫黄の安定同位体の測定結果とは整合的でないため、今後炭酸塩脈中に含まれる共生鉱物の解析も行う必要がある。

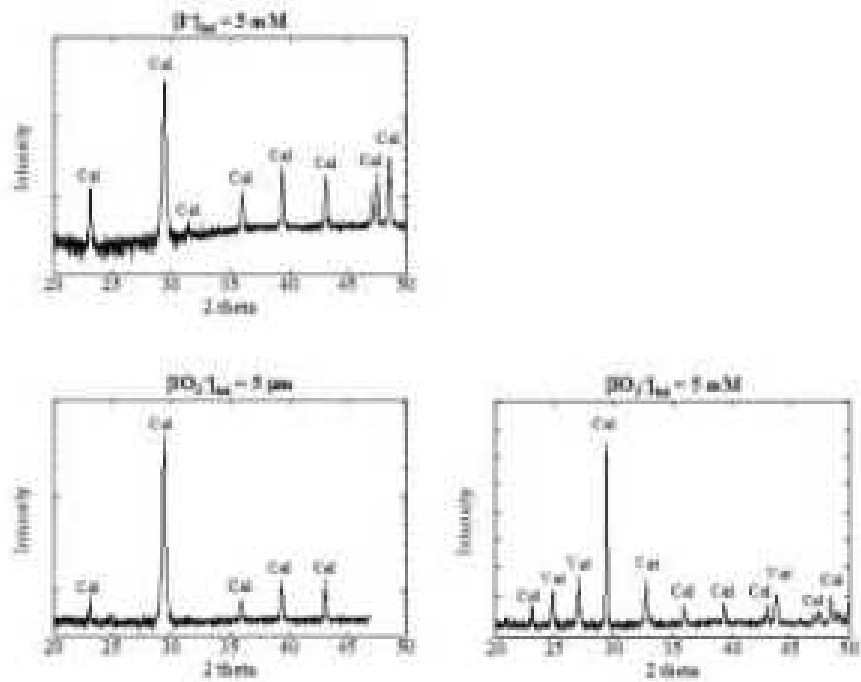


図 2.1.3.1-9 下位の炭酸塩層の SEM-EDS 分析結果.

上図の赤丸部を高倍率で分析した。右中と下の赤丸からEDSスペクトラを取得した。Caはcalcite, Pyはpyrite, chlはchloriteをそれぞれ示す。

まとめと今後の課題

瑞浪地域は、ウラン鉱床を伴い地史の情報が豊富である。黄鉄鉱の粒子内の硫黄同位体組成の分析は、形成年代を制約するために地下水の起源から形成年代の制約が可能な炭酸塩と組み合わせると有効であることが判明した。今後、粒子内の微量元素の分布を LA-ICP-MS で明らかにし、炭酸塩と硫化物とで比較することにより、形成した地下水の水質を精度よく復元できるツールに成り得る。また、地史とは独立した年代測定を行う必要もある。

2.1.3.2 堆積岩地域における炭酸塩中の微量元素を用いた酸化還元状態の推定とウラン系列放射非平衡による年代決定

酸化還元状態（地球化学的には水素電極を標準とした酸化還元電位 Eh で表すことが多い）は、水圏環境を記述する最も基本的な物理化学的パラメータであり、酸化するか還元するかの違いによって、その環境に存在する redox-sensitive な元素の価数が変化する。価数が変化すると、その元素の溶解性や反応性が大きく変わる。そのため、酸化還元状態 Eh は、多くの元素の挙動を支配する重要な因子である。放射性廃棄物の地層処分の主要な対象であるアクチノイド元素は、複数の価数をとる場合が多く、その挙動も酸化還元環境に大きく依存する。例えばウランの場合、酸化環境で安定なウランイオン (UO_2^{2+}) は水溶性が高く、陰イオンである炭酸との錯イオン ($\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$) を形成し、海洋でも保存型の元素として知られている。一方、還元形である U^{4+} は不溶性で、沈殿を作り易い。そのため、還元的な環境下ではウランは動きにくくなる。一方、プルトニウムは環境中で +3 価、+4 価、+5 価、+6 価までの多様な価数を取り、その挙動は価数間で微妙に異なる。しかし大まかには、還元的環境で動きにくくなる性質はウランと同様である。同様にネプツニウムも複数の価数をとるが、還元的環境により動きにくくなる性質を持つ (Langmuir, 1997)。アクチノイド以外の元素でも、

放射性廃棄物に多く含まれる元素では、還元的な方が動きにくくなる元素が多い（例：テクネチウム、セレンなど）。これらのことから、放射性廃棄物に含まれる放射性核種の環境中での動きをより抑制するには、酸化的な環境よりも還元的な環境が適しているとみなされている。以上から、放射性廃棄物の地層処分の研究では、地層中の酸化還元状態が、アクチノイドやその他の放射性核種の動きを予想する上で重要なパラメータであり、大きな関心を集めている。

昨年度の研究で、カルサイト中のヒ素の価数比から Eh を直接的に決定できる可能性を示すことができた（産業技術総合研究所深部地質環境研究コア，2014）。そこで、本年度も炭酸塩に含まれるヒ素の濃度や価数の分析を引き続き進めるとともに、新たな酸化還元状態の指標として、炭酸塩中のヨウ素濃度の分析法の開発と炭酸塩への応用を行った。さらに、炭酸塩が形成した年代の情報を得るため、ウラン系列放射非平衡年代測定を行った。炭酸塩試料は、独立行政法人日本原子力研究開発機構幌延深地層研究センターで採取された試料を提供していただいた。

1) 幌延地域の地質概要と炭酸塩試料

幌延深地層研究センターがある北海道北西部は白亜系を基盤岩とし、古第三紀や新第三紀の堆積岩に不整合に覆われている。このうち新第三紀の地層は、下位から宗谷夾炭層、鬼志別層、増幌層、稚内層、声問層に分けられる。その上位の第四紀は、下位より勇知層、更別層、沖積層に分類され、新第三紀～第四紀の地層の全層厚は6,000 mに達する。幌延地域の地質図とボーリングコア試料の採取地点を図2.1.3.2-1に示した。本研究で用いた炭酸塩の母岩である稚内層（中新世～鮮新世）は、声問層の埋没続成過程で生成された層準と考えられ、オパールAの続成生成物であるオパールCTを含み、間隙率も40%程度まで減少する。

本研究で分析対象とした炭酸塩鉱物はカルサイトで、主に堆積岩中の(i) 割れ目において脈状に産するものと(ii) 塊状に産するものの2種類があった（代表的な写真；図2.1.3.2-2）。カルサイトは、電動ドリル（DREMEL社製4000にダイヤモンドの歯を装着）を使用して注意深く分離した。その後、X線回折装置（X'Pert PRO PANalytical社製）によって、純度よくカルサイトを分離していることを確認した。幌延地下深部に分布する炭酸塩脈と、脈から採取されたカルサイト試料の特徴及びXRDによる鉱物同定結果を表2.1.3.2.1-1に示した。

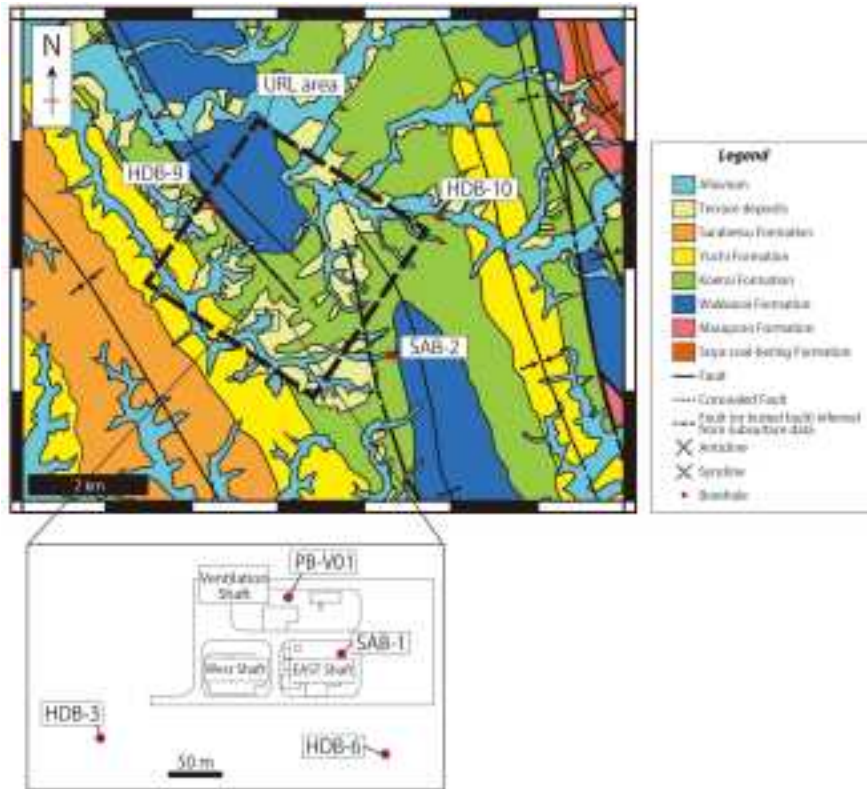


図 2.1.3.2-1 幌延深地層研究センター周辺の地質図，及びボーリング孔の位置図
(太田ほか，2007；日本原子力研究開発機構，2011；天野ほか，2012) を元に作成。



図 2.1.3.2-2 代表的な産状の炭酸塩。

(a) 割れ目に発達した脈石(ES-1)，(b) ネットワーク状に発達した脈石(SAB1-9)，(c) 破碎された炭酸塩ノジュール(SAB2-11)

表 2.1.3.2-1 幌延地下深部に分布する炭酸塩脈と、脈から採取されたカルサイト試料の特徴及び XRD による鉱物同定結果

炭酸塩脈	ボーリング孔 (立坑)	深度 (mbgl)	炭酸塩試料				Mineralogy**		
			Sample	特徴	色	Mg-cal*	Ank*	Qz*	
HDB10-1	HDB-10	449.55	HDB10-1y	割れ目に発達した晶洞を伴う脈石	黄色	xxx			
HDB10-2	HDB-10	516.85	HDB10-2y	割れ目に発達した晶洞を伴う脈石	黄色	xxx			
HDB9-1	HDB-9	305.55	HDB9-1g	割れ目に発達する脈石	白灰色				
			HDB9-1w	ネットワーク状に発達した脈石	白色	xxx			
ES-1	東立坑	323.8	ES-1y	割れ目に発達した晶洞を伴う脈石	黄色	xxx			
PBV01-1	PB-V01	289.5	PBV01-1y	割れ目に発達する脈石	黄色	xxx			
SAB1-8	SAB-1	490.5	SAB1-8w	ネットワーク状に発達した脈石	白色	xxx			
			SAB1-8y	ネットワーク状に発達した脈石	黄色	xxx			
SAB1-9	SAB-1	503	SAB1-9g	割れ目に発達する脈石	白灰色	xxx			
			SAB1-9w	晶洞に付着する炭酸塩鉱物の結晶	白色	xxx			
SAB2-5	SAB-2	352.08	SAB2-5w	ネットワーク状に発達した脈石	白色	xxx			
SAB2-11	SAB-2	609.34	SAB2-11b	角礫状に破砕された炭酸塩ノジュール	淡黄褐色	xxx	x	xx	
			SAB2-11w	ネットワーク状に発達した晶洞を伴う脈石	白色	xxx		xx	

*Mg-cal: マグネシウムに富むカルサイト; Ank: アンケライト; Qz: 石英

** xxx:>50%; xx: 50-20%; x:<20% (XRD による半定量結果)

2) カルサイト中のヒ素の価数・濃度分析に基づく酸化還元状態や地下水中のヒ素濃度の推定

本節では、カルサイト中のヒ素の価数および濃度分析を行い、過去の酸化還元電位や溶存ヒ素濃度の推定を行った。濃度情報は、幌延地域に元々存在していた古海水中にヒ素が高濃度に含まれ、その後の天水の希釈により地下水中のヒ素濃度が低下したと推定されることに基くと、用いた炭酸塩が生成した年代や生成した地下の深度などを反映すると期待される。カルサイト中のヒ素の価数比を用いた酸化還元電位の推定手法については、昨年度の報告書を参照されたい(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2014)。また、昨年度の研究でカルサイト中のセレンについても同様に酸化還元状態の指標となる可能性を示したが、試料中のセレン濃度が低く、X線吸収端近傍構造(XANES分析)を用いたセレンの価数分析で検出ができなかった。そのため、以下にヒ素の結果のみを示す。

ヒ素の場合、亜ヒ酸(As(III))に比べてヒ酸(As(V))はカルサイト中に取り込まれ易い。(Yokoyama *et al.*, 2012)では、pH7におけるカルサイトへの分配係数として、亜ヒ酸は $K_{As(III)} < 0.23 \text{ L/kg}$ 、ヒ酸は $K_{As(V)} = 4.9 \times 10^2 \text{ L/kg}$ と決定されている。これらの比を示す $K_{As(V)}/K_{As(III)}$ は $>2.1 \times 10^2$ と大きく、亜ヒ酸に比べてヒ酸のカルサイトへの分配が非常に大きいことが分かる。このことは、As(III)に比べてAs(V)がかなり選択的に取り込まれることを意味し、カルサイト中のヒ酸/亜ヒ酸比をredox計として用いるのは実際的には簡単ではない。しかしながら、カルサイト中のAs(V)の割合が実験的に100%である場合に、その環境では酸化還元電位が「ある値以上である」という下限を与えることは可能である。

本研究ではX線吸収端近傍構造(XANES)を用いてAs(V)とAs(III)の比を求めている。その際、(Takahashi *et al.*, 2003)に基くと、As(V)とAs(III)の和に対するAs(III)の検出下限は4%程度である。したがって、固相中でAs(V)が100%であったとしても、厳密にはAs(III)が4%以下であることを示す。固相中のAs(III)/As(V)比が $4/96=0.042$ であるとき、上記の分配係数から、液相中のAs(III)/As(V)比はpH=7で $As(III)/As(V) = 88.8$ となり、その場合の酸化還元電位は-51.5 mVとなる。したがって、もし固相中のヒ素の化学種としてAs(V)のみしかXANES測定で検出できなかったとしても、それは共存する水中の酸化還元状態の下限を決める因子となり得る。

また仮にAs(III)が検出されれば、それはその環境が $Eh=-51.5 \text{ mV}$ 以下というようなかなり還元的环境であったことを示すことになる。

一方、 $K_{As(V)}$ や $K_{As(III)}$ を決定したことは、この値を使ってカルサイト中のAs(V)やAs(III)の濃度が

ら、地下水中のAs(V)やAs(III)の濃度が決められることを示す。価数によって分配係数が異なるので、カルサイト中のヒ素の価数別の濃度や分配係数をXANES法とICP-MS法などを駆使して決定しなければ、この水中のヒ素濃度の推定を行うことはできない。本研究では、これらのパラメータを得ることが可能なため、カルサイト生成時の地下水中のヒ素濃度の推定も行った。

(1) バルク試料のXANES解析

炭酸塩中のヒ素の価数比を決定するためにSAB-1コア試料中のSAB1-8y(深度490.6 m)およびSAB1-9w(深度503.6 m)、SAB-2コア試料中のSAB2-11b(炭酸塩ノジュール)(深度609.3 m)、HDB-9コア試料中のHDB9-1w(深度305.6 m)について、バルクのXANES解析を行った(図2.1.3.2-3)。

HDB9-1gおよびSAB1-9wの試料からは亜ヒ酸は検出されなかった。したがって、XANES法による化学種解析の検出下限の4%を考慮すると価数比はAs(III):As(V)=4:96となり(表2.1.3.2-2)、酸化還元電位は $E_h = -51.5\text{mV}$ 以上であると考えられる。

またカルサイト中のヒ素濃度から推定したカルサイト生成時の溶液中のヒ素濃度は、炭酸塩中のヒ素濃度(表2.1.3.2-3)および亜ヒ酸・ヒ酸の分配係数($K_{As(III)} = 0.23\text{ L/kg}$; $K_{As(V)} = 4.9 \times 10^2\text{ L/kg}$)を用いて、HDB9-1gは $0.24\text{ }\mu\text{g/L}$ ($= 0.12/490 \times 10^3$)、SAB1-9wは $0.18\text{ }\mu\text{g/L}$ ($= 0.086/490 \times 10^3$)と見積もられる。このヒ素濃度の推定値の妥当性は、実際の地下水中のヒ素濃度で検証すべきであるが、HDB9-1gおよびSAB1-9w付近の地下水中のヒ素濃度のデータはない。一方、地下水中のヒ素濃度と塩素濃度は相関することが昨年度の報告で示されている(図2.1.3.2-4)。そこで、この相関に基づき、SAB2-11近くの間隙水の塩素濃度(Cl: $3,600\text{ mg/L}$)から地下水中のヒ素濃度を推定すると、約 $0.6\text{ }\mu\text{g/L}$ であるが見積もられた。この値は、上記の分配係数から推定した値($0.20\text{ }\mu\text{g/L}$)と同程度であり、分配係数を用いたヒ素濃度の推定が妥当であることが分かる。

SAB1-8yの炭酸塩中のヒ素の化学種は主に硫化物(AsS)およびヒ酸(As(V))の寄与が大きい、わずかに亜ヒ酸(As(III))の寄与が見られた。この時のヒ素の価数比はAs(III):As(V)=7:93であり(表2.1.3.2-3)、これは酸化還元電位 $E_h = -59.2\text{mV}$ に対応する。これは直下にあるSAB1-9w(上記)での予想値($E_h > -51.5\text{mV}$)とは矛盾はしない。対応する深度における現在の間隙水の酸化還元電位は $E_h = -78\text{ mV}$ であり、より酸化的であったことになる。SAB1-8yの炭酸塩中のヒ素濃度と各化学種の分配係数から見積もられるSAB1-8yコア中の炭酸塩生成時の溶液中のヒ素濃度は $28.5\text{ }\mu\text{g/L}$ ($= 0.099 \times (0.07/0.23 + 0.93/490) \times 10^3$)であり、現在の地下水より30倍程度ヒ素の濃度が高い。

一方でSAB2-11bのノジュール試料(アンケライトと石英を含むカルサイト)中にも亜ヒ酸が検出され、ヒ素の価数比はAs(III):As(V)=25:75であり(図2.1.3.2-3および表2.1.3.2-2)、これは酸化還元電位 $E_h = -86.1\text{ mV}$ に対応する。また、この時の溶液中のヒ素濃度は、 $119.7\text{ }\mu\text{g/L}$ ($= 0.11 \times (0.25/0.23 + 0.75/490) \times 10^3$)と見積もられ、現在の地下水よりも100倍程度濃度が高い。SAB2-11bの産状は角礫状に破碎されていることから、幌延地域の隆起等の地質変動以前の古海水の影響が大きい地下水環境下でノジュールが形成され、その後の地質変動で破碎された可能性がある。

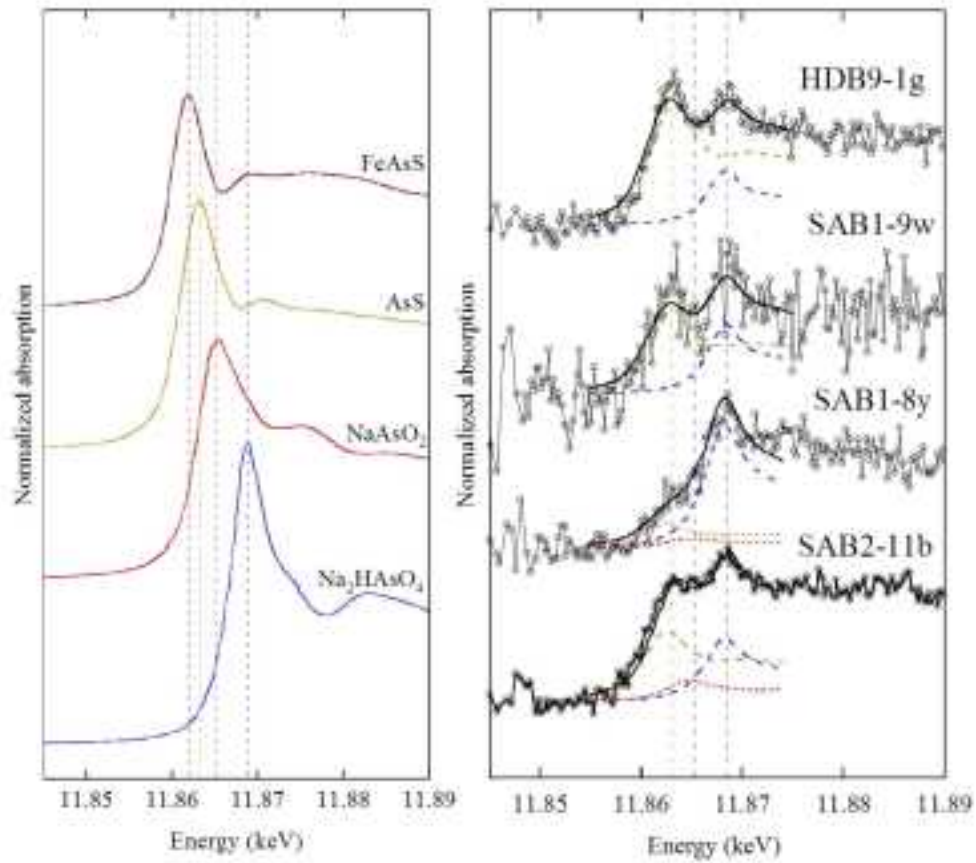


図 2.1.3.2-3 ヒ素の標準物質及びバルク試料のヒ素の K 吸収端 XANES スペクトル。
太線は標準スペクトルによるフィッティングの結果を示し、点線のスペクトルは各標準物質の寄与を示す。

表 2.1.3.2-2 ヒ素の K 吸収端 XANES 解析から得られた化学種の存在割合.

Sample	spot	深度 (mbgl)	化学種の割合(%)				
			FeAsS	AsS	As(III)	As(V)	As(III)/As(V)
<i>Bulk XANES</i>							
HDB9-1g		305.6		70		30	0.04*
SAB1-8y		490.5		15	6	79	0.08
SAB1-9w		503.0		59		41	0.04*
SAB2-11b		609.3		46	13	41	0.33
<i>micro-XANES</i>							
HDB9-1w	s01	305.6		84		16	0.04*
	s02		51	32		16	0.04*
	s03			11	43	46	0.94
SAB2-11w	s14	609.3	32	68			
	s15			20		80	0.04*

*XANES 分析によるヒ素の価数比決定の誤差 4%を考慮した値

表 2.1.3.2-3 カルサイト試料中の微量元素濃度.

	深度 (mbgl)	Fe (g/kg)	Mg (g/kg)	Mn (g/kg)	Sr (g/kg)	As (mg/kg)	Se (mg/kg)
HDB10-1y	449.55	11.9	7.5	0.57	0.24	0.13	< 0.05
HDB10-2y	516.85	9.5	5.1	0.22	0.21	0.037	< 0.05
HDB9-1g	305.55	12.8	5.5	0.65	0.28	0.12	< 0.05
HDB9-1w		12.2	5.3	0.57	0.25	0.096	< 0.05
ES-1y	323.6	10.3	7.4	0.29	0.25	0.011	< 0.05
PBV01-1y	289.5	7.3	6.3	0.17	0.29	0.036	< 0.05
SAB1-8w	490.5	13.3	3.1	0.86	0.19	0.081	< 0.05
SAB1-8y		15.9	5.9	0.48	0.23	0.093	< 0.05
SAB1-9g	503	15.5	5.7	0.41	0.25	0.047	< 0.05
SAB1-9w		14.4	3.7	0.75	0.20	0.086	< 0.05
SAB2-5w	352.08	19.1	5.1	0.81	0.20	0.033	< 0.05
SAB2-11b	609.34	9.0	38	0.69	1.1	0.11	< 0.05
SAB2-11w		16.4	40	0.96	0.92	0.099	< 0.05

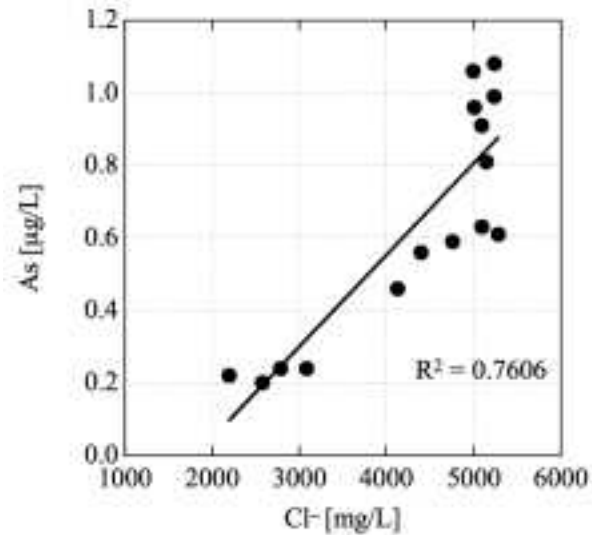


図 2.1.3.2-4 地下坑道内で採水された地下水中の塩素濃度とヒ素濃度の相関関係。

(2) μ -XANES解析

この分析は、既に昨年度の報告書で報告済みであるが、上記のバルク試料の分析との比較を行った上で新たな考察を行ったので、ここに改めて結果をまとめる。

HDB9-1w の炭酸塩試料について鉄の濃集部を避けた3点 (s01-03) での μ -XANES 分析のうち、2点 (s01, s02) では硫化物 (FeAsS, AsS) とヒ酸の寄与のみであり、亜ヒ酸は検出されなかった (Eh=-51.5 mV 以上) (図 2.1.3.2-5)。s03 では亜ヒ酸とヒ酸の両方が検出され、その価数比は As(III):As(V)=48:52 であり、見積もられる酸化還元電位は Eh=-92.0 mV である。この時の溶液中のヒ素濃度は 200 μ g/L ($=0.096 \times (0.48/0.23 + 0.52/490) \times 10^3$) となる。

SAB2-11w の炭酸塩試料の2点での μ -XANES 分析では、主に硫化物 (s14)、硫化物とヒ酸 (s15) のみであり、亜ヒ酸は検出されなかった。そのため、見積もられる酸化還元電位は Eh=-51.5mV 以上である。

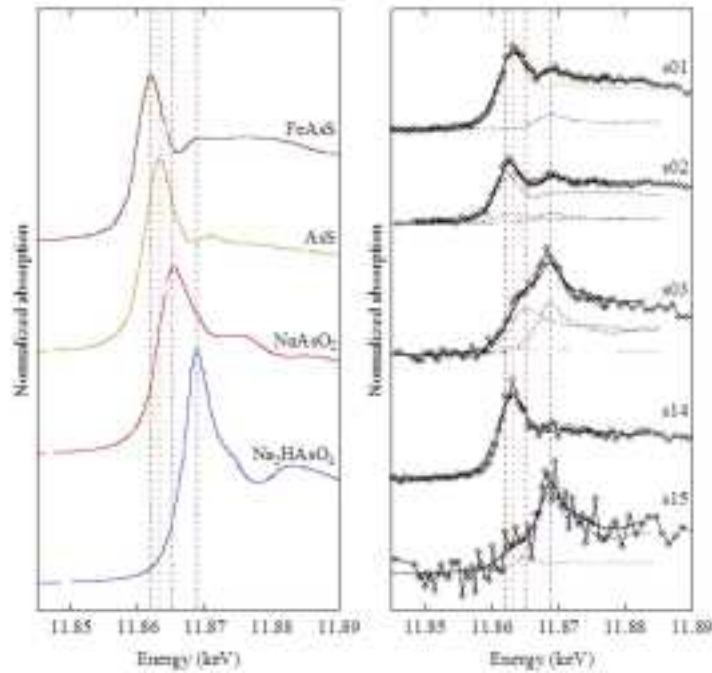


図 2.1.3.2-5 ヒ素の標準物質及び HDB9-1w(s01, s02, s03) と SAB2-11w(s14, s15) のカルサイト相中のヒ素の K 端 μ -XANES スペクトル。太線は標準スペクトルによるフィッティングの結果を示し、点線のスペクトルは各標準物質の寄与を示す。

(3) 炭酸塩の産状と推定酸化還元電位

炭酸塩の産状（表 2.1.3.2-4）と亜ヒ酸の検出の有無を比較すると、晶洞や大きな割れ目に発達した炭酸塩からは亜ヒ酸は検出されにくく（SAB1-9w, SAB2-11w）、ネットワーク状に発達した脈石に亜ヒ酸が検出される傾向にあった（HDB9-1w, SAB1-8y）。ネットワーク状の脈石中には鉄水酸化鉱物も検出されており（HDB9-1w）、これらに亜ヒ酸・ヒ酸が吸着されている可能性もあるが、すべてカルサイト中に取り込まれているとするならば、 $E_h = -51.5\text{mV}$ 以下の還元的な環境で取り込まれたことになる。

本研究で分析した炭酸塩試料は稚内層に産するものである。稚内層は、①高透水性の深度 400 m 以浅、②低～中透水性の深度 400 m 以深、の地質構造に区分される（岩月ほか、2009）。400 m 以深の稚内層は二次鉱物を充てんした割れ目が少ない特徴を持ち、閉鎖的な水理地質環境が形成されている（岩月ほか、2009）。

一方、海成層である稚内層の間隙水は海水由来であるが、隆起・侵食などの地質変化に伴い、稚内層の地下水は地表からの天水によって塩分濃度が希釈されていると考えられている（石井ほか、2007）。前述したように地下水中のヒ素濃度は塩素濃度と相関しており（図 2.1.3.2-4）、同様に天水による希釈を受けていると考えられる。

晶洞や大きな割れ目に発達した炭酸塩が生成した環境の地下水のヒ素濃度は現在の地下水中の濃度と同程度であった。晶洞や大きな割れ目は透水率が高いと考えられ、その間隙水は天水による希釈の影響を受けやすく、より酸化的になると考えられる。一方で、ネットワーク状に発達した脈石は、前述の稚内層深部の特徴に類似しており、その地下水は天水による希釈の影響が少ないと考えられ、ヒ素の濃度や還元的な環境が保たれていると考えられる。

以上のことから、現在の仮説として炭酸塩試料には以下の 3 つのタイプがあると考えている。

タイプ1: 稚内層浅部などにみられる割れ目に発達した炭酸塩。空隙があり、岩石全体がもろい産状を示す場合が多い。天水の影響を受けているため、ヒ素濃度やヨウ素濃度が低く、またタ

タイプ2)に比べて酸化的な特徴を示す。

タイプ2: 稚内層深部などに卓越しているネットワーク状・脈状に発達した炭酸塩。岩石全体が硬く、深部で生成したことを示唆する。深部の還元的環境で生成し、古海水の影響も受けているため、ヒ素濃度やヨウ素濃度が高い。

タイプ3: この地域の隆起の活動が起きる以前に沈殿した炭酸塩。その後の断層活動などにより角礫化。海水の影響を受けた化学組成を持つため、ヒ素濃度やヨウ素濃度が高く、また還元的環境で生成したとみなせる。

以上のことを年代順にすると、タイプ3→タイプ2→タイプ1の順により若い年代を示す可能性が高い。このような仮説にたって、各コア試料の結果を考察する。

SAB-2 コア試料の間隙水を用いた³⁶Cl/Cl年代測定によると深度450 m以深では放射平衡に達しており、その年代は100万年オーダーの古い地下水であることが示唆されている(久田ほか, 2011)。塩素濃度は表層付近で10 mg/Lから深部に向かって450 mの3000 mg/L程度まで増加し、それ以深では図2.1.3.2-6に示されているように3100-4400 mg/L程度でほぼ一定となる(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2009; 天野ほか, 2012)。このCl濃度の450 mまでの希釈は地表からの天水によるものと考えられており(石井ほか, 2007)、もともと地下水中に等濃度のClが存在していたとすると、表層付近の塩化物濃度を440倍程度まで希釈する天水が流入したことになる。

声間層・稚内層は約100万年前に最大埋没し、その後隆起している(石井ほか, 2008)。したがって、SAB2-11bのノジュールは100万年以上前の地下水から生成し、その後の隆起等により破碎されたと考えられる(タイプ3)。一方で晶洞内に発達したSAB2-11w(タイプ1)が生成した当時の地下水中のヒ素濃度は0.20 μg/Lと見積もられ、現在の地下水中のヒ素濃度はCl濃度との相関から0.60 μg/L(図2.1.3.2-4)と推定され、現在の地下水と同じレベルである。

したがって、SAB2-11bが生成した当時の環境と比べてSAB-2 コア試料から予想されるヒ素濃度は500倍程度に希釈されていることになる。これは塩素濃度の希釈率と同程度である。天水の流入に伴って酸化還元電位はEh=-86.1.2mVからEh=-51.5mV以上へと、より酸化的な環境に変化したと考えられる。

HDB9 コア試料については、μ-XANESによりネットワーク状に発達した脈石であるHDB9-1w(タイプ2)は亜ヒ酸とヒ酸の両方が含まれているポイントが存在し、そこから見積もられる酸化還元電位はEh=-93.4 mVである。一方で、割れ目に発達する脈石であるHDB9-1g(タイプ1)からは、バルクXANES分析によってヒ酸のみが検出され、酸化還元電位はEh=-51.5 mV以上となる。

HDB9-1gとHDB9-1wでは、形成時期が異なる可能性が示唆された。HDB9-1gが生成した時の地下水中のヒ素濃度は0.24 μg/Lと見積もられ、これは現在の地下水と近いレベルのヒ素濃度である。一方で、亜ヒ酸も含むHDB9-1wは、溶液側が約200 μg/Lと見積もられる。これは現在の地下水に比べて3桁高い濃度であり、HDB9-1wの炭酸塩が現在の地下水とは異なる深部の環境で生成した可能性がある。一方で、HDB9-1gは天水によりヒ素の濃度が希釈された後の地下水の元で生成した可能性がある。それに伴い酸化還元電位がEh=-93.4mVからEh=-51.5mV以上へと変化したものと考えられる。

SAB-1 コア試料では、晶洞に付着した炭酸塩鉱物の結晶(タイプ1)であるSAB1-9wは、亜ヒ酸が検出されず、酸化還元電位はEh=-51.5mV以上である。一方、脈状のSAB1-8y(タイプ2)は亜ヒ酸を僅かに含みEh=-59.5mVである。SAB1-8yは僅かにSAB1-9wより浅部に位置し、塩化物濃度は深部へ向けて僅かに減少傾向にある(図2.1.3.2-6)。したがって、天水の影響はSAB1-8yが大きくなるべきであるが、SAB1-9gの方が酸化的である。したがって、両者の生成時期は異なり、SAB1-8yが天水の影響を受ける前に生成したと考えられ、SAB1-9gよりもSAB1-8yの方が生成年代が古いことが示唆される。

以上のことをまとめると、産状によって、還元される酸化還元状態に違いが見られ、ネットワーク状に発達した脈石は晶洞や大きな割れ目に発達した脈石に比べて還元的な環境で生成したことが予想された。また、前者の溶液中のヒ素濃度は、現在の地下水中のヒ素濃度と比較して、還元されたヒ素濃度はより高い傾向があり、これらの違いは、形成年代の違いによるものと考えられる。ネットワーク状に発達した脈石は、大きな割れ目や晶洞に発達した脈石に比べて、古い時期に生成したことが示唆された。

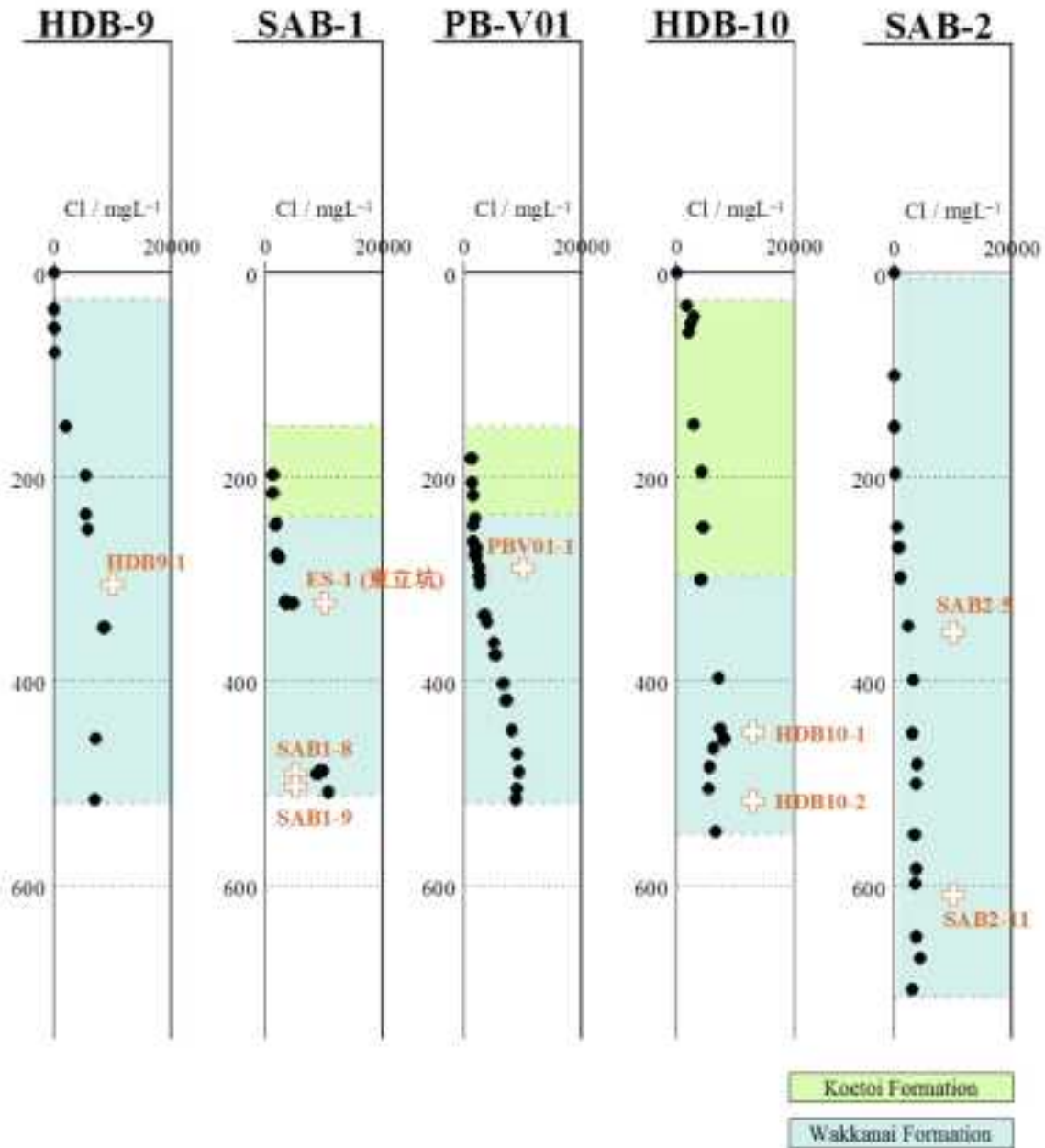


図2.1.3.2-6 各ボーリング孔における炭酸塩脈の分布とボーリングコア間隙水中の塩素濃度（産業技術総合研究所，2009；天野ら，2012）。●が塩素濃度，+が炭酸塩試料の採取深度を示す。

3) 幌延地下深部に産する炭酸塩中に含まれるヨウ素濃度測定

本節では、ヨウ素酸・ヨウ化物イオンの分配係数を決定するとともに、カルサイトへの分配前後の元素の化学状態を明らかにし、地下深部における酸化還元環境の指標としての有用性について考察する。ヨウ素は酸化還元状態に敏感な元素であり、ヨウ素酸イオン (IO_3^-)/ヨウ化物イオン (I^-)の化学種変化は海水の酸化還元電位の指標になることが示唆されている (Liss *et al.*, 1973)。ヨウ素は酸化的な環境ではヨウ素酸イオン (IO_3^-)として存在し、還元的な環境ではヨウ化物イオン (I^-)として存在する。ヨウ素酸 IO_3^- の濃度は溶存酸素の量に比例し、カルサイト中にはヨウ素酸イオンは取り込まれるが、ヨウ化物イオンはほとんど取り込まれない (Lu *et al.*, 2010)。したがって、カルサイト中に含まれるヨウ素の濃度は、カルサイトが生成した当時の酸化還元状態を反映すると考えられる。海洋堆積物中のヨウ素の起源は、海洋中のヨウ素を珪藻などの海洋プランクトンなどが体内に取り込み濃縮し、その遺骸が無酸素環境の海底に堆積し、長期にわたる有機物の熟成により溶出したものと考えられている (岩月ほか, 2009)。したがって、堆積年代が古いものほどヨウ素の濃度が高いと考えられ、炭酸塩中に取り込まれたヨウ素の濃度を測定することで、分配係数を用いて液相のヨウ素濃度を推定し、その炭酸塩が生成した年代を推定できる可能性がある。本研究では場所や深度が異なる炭酸塩中のヨウ素濃度を測定することにより、炭酸塩が生成した酸化還元環境の指標とし、ひいては生成の年代を推定することを目的とした。

(1) 共沈実験によるカルサイトへの IO_3^- および I^- の取り込み

本研究では、まず、液相中の IO_3^- および I^- がカルサイトにどのように取り込まれるのかを明らかにするため、標準物質を用いた共沈実験を行った。実験方法は以下の通りである。

NaHCO_3 および CaCl_2 を Milli-Q 水に溶解させ、0.16 M の NaHCO_3 および CaCl_2 溶液を調製した。NaI および NaIO_3 を Milli-Q 水に溶解させ、10 mM の溶液を調製した。調製したヨウ素溶液を CaCl_2 溶液と混合後に I 濃度が NaI: 5, 10, 50, 100, 500 μM , 5 mM および NaIO_3 : 0.05, 0.1, 0.5, 1, 5 μM , 5 mM になるように NaHCO_3 溶液 (100 ml) に加え、 CaCl_2 溶液 (100 ml) と混合した後、恒温槽で温度を 25°C に保ち、24 時間静置してカルサイトを沈殿させた。pH の調整は行わなかった。混合直後の pH は -8.6、反応後の pH は -6.1 であった。反応後、0.4 μm メンブレンフィルタを用いて吸引ろ過し、Milli-Q 水で結晶表面を洗浄した後カルサイトを回収し、室温で風乾した。回収したカルサイト中のヒ素濃度は後述する加熱分離法を用いて決定し、ろ液中のヨウ素濃度を ICP-MS で測定した。

回収したカルサイトおよびろ液中のヨウ素濃度の関係を図 2.1.3.2-7 に示した。異なる初期濃度のヨウ素溶液を用いたカルサイト共沈実験の結果から、ヨウ素酸イオンに比べてヨウ化物イオンはカルサイトに取り込まれにくいことが分かった。また、ヨウ素酸イオンの取り込みは溶液中のヨウ素濃度に比例するのに対して、ヨウ化物イオンはほぼ一定量しか取り込まれていない。

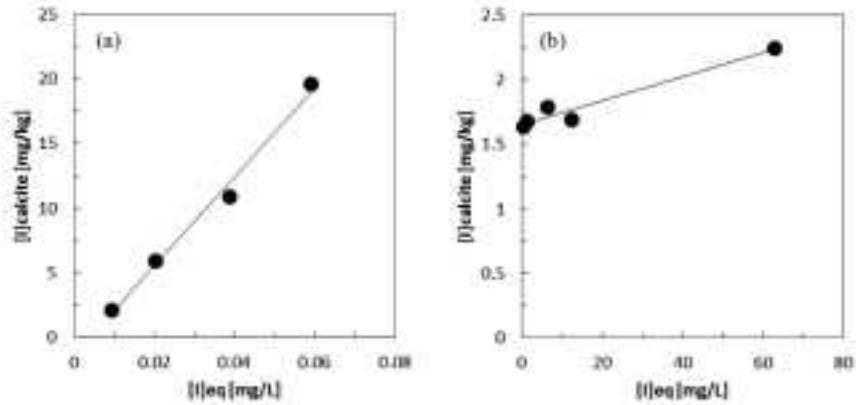


図 2.1.3.2-7 共沈実験後のカルサイトおよび液中のヨウ素濃度の関係. (a) IO_3^- , (b) I^- .

カルサイトと共沈させたヨウ素の K 吸収端 XANES を図 2.1.3.2-8 に示す. カルサイトへ分配しにくいヨウ化物イオンを添加した実験試料からは, 濃度が低いため XANES スペクトルが得られなかった. ヨウ素酸イオンを添加した実験試料の XANES スペクトルは, ヨウ素酸イオンの標準試料と類似した構造を示すが, 初期濃度が高い実験 (5 mM) と低い実験 (5 μM) ではスペクトルの形状が僅かに異なる. 高濃度試料のスペクトルがヨウ素酸イオン溶液 (NaIO_3 solution) のスペクトルに類似しているのは, 結晶表面に吸着しているヨウ素酸イオンを強く反映しているためと考えられる. この試料の結晶構造が一部ファタライトであることから (図 2.1.3.2-9), 結晶成長を妨害するようなヨウ素酸イオンの吸着が起こっていることが考えられる.

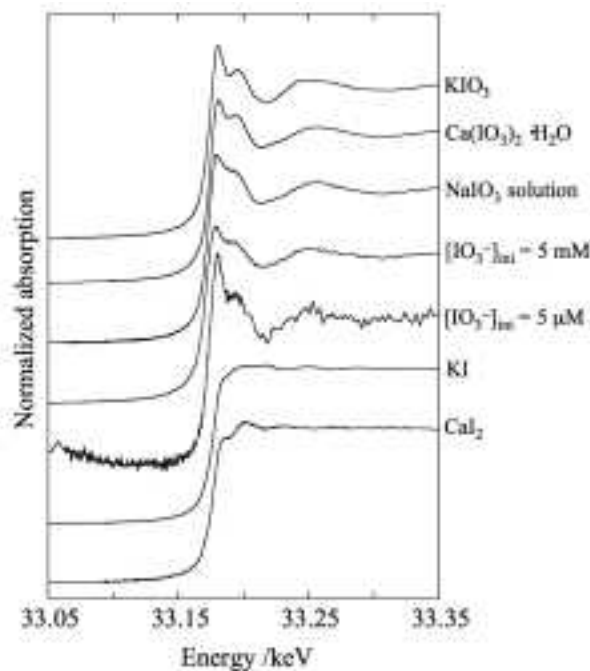


図 2.1.3.2-8 ヨウ素の標準試料と共沈実験試料の I-K 吸収端の XANES スペクトル.

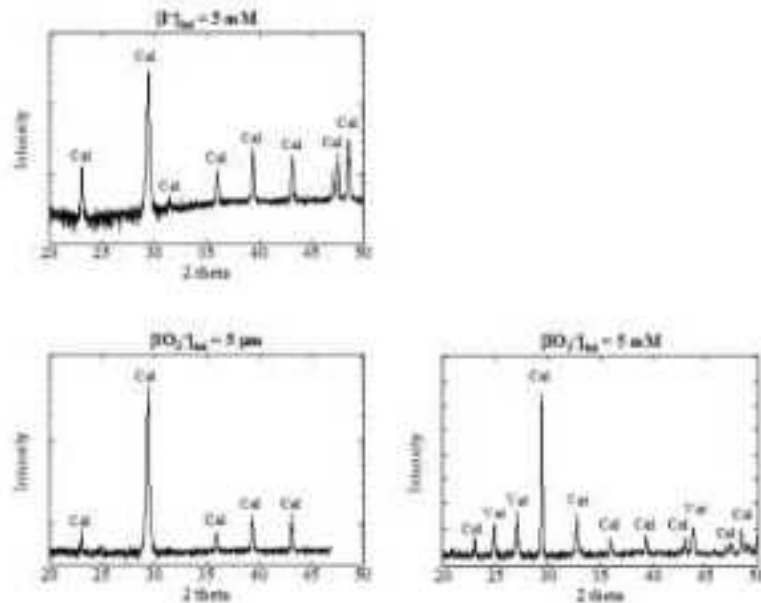


図 2.1.3.2-9 ウ化物イオン及びヨウ素酸イオンの共沈実験で得られた沈殿物の XRD パターン

(Ca: カルサイト, Vat: ファテライト).

(2) 炭酸塩中のヨウ素濃度測定法の検討

固体中のヨウ素濃度の測定にはこれまで加熱分離法が用いられてきたが、100 mg 程度の試料を必要とする。また、固体からヨウ素を気化させてトラップする段階で化学種が変化していることが考えられ、固体中のヨウ素の化学種を特定することはできない。一方で、Lu *et al.* (2010) がカルサイト中のヨウ素濃度を測定するために開発した酸溶解法は、10 mg 以下の試料で測定可能であり、操作も比較的容易である。そこで酸溶解法の幌延の炭酸塩試料への適用可能性を検討し、実験条件等の改良を行った。さらに得られた溶液を HPLC-ICP-MS を用いて分析し、炭酸塩中の化学種解析を試みた。

ヨウ素は酸性条件下で揮発しやすいため、固体中のヨウ素の濃度測定には加熱分離法が用いられている。しかし、加熱分離法は 100 mg 程度の試料を必要とする。幌延のボーリングコアに脈状に発達した炭酸塩試料は、その産状により、大量に回収できないものもあった。Lu *et al.* (2010) は、カルサイトを主成分とした試料について酸溶解によるヨウ素濃度の測定法を開発し、地球化学標準物質の JcP-1 (サンゴ, アラゴナイト) を用いて、加熱分離法で得られたヨウ素濃度と一致する測定結果を報告している。この方法では、カルサイトを硝酸に溶解させて、第三級アミンを加えることでヨウ素を安定化させる。また、ICP-MS でヨウ素濃度を測定する際に塩濃度の違いによる感度の変化 (マトリックス効果) を抑えるために、測定試料中の Ca 濃度を 50 mg/L に調製する。この酸溶解法は 10 mg 以下の少量の試料で測定可能であり、加熱分離法に比べて操作が容易である特徴を持つ。そこで、本研究では加熱分離法に加えて、Lu *et al.* (2010) の酸溶解法の適用を試みた。また、加熱分離法ではヨウ素は I₂ として取り出されるのに対して、酸溶解法では炭酸塩中のヨウ素の化学形態を保存している可能性があるため、HPLC-ICP-MS を用いた化学種解析を試みた。以下に、各手法の詳細をまとめる。

a) 加熱分離法

Chai and Muramatsu (2007) の方法に従って実験を行った (図 2.1.3.2-10)。炭酸塩試料 50 mg を用いて、当重量 (50 mg) の五酸化バナジウム (V₂O₅) を燃焼ボートに乗せ、石英管中に設置し、電気炉を用いて 1,100°C で 20 分程度燃焼させた。その後、石英管内に残るヨウ素を取り出すために、

石英管を移動させて10分程度焼いた。石英管内で気化させたヨウ素は水蒸気を含んだ酸素で送り出し、アルカリトラップ溶液(亜硫酸ナトリウム(Na_2SO_3) 100 mg/Lの0.5%TMAH溶液)に溶解させた。0.5%TMAHをICP-MSのバックグラウンド溶液として用いた。燃焼ボートからのヨウ素混入を防ぐため、燃焼ボートはマッフル炉にて1,120°Cで10時間、空焼きした。

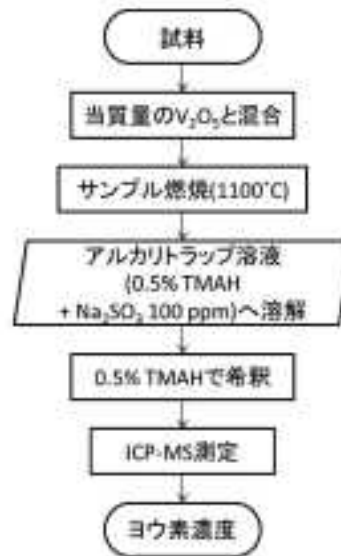


図 2.1.3.2-10 加熱分離法の実験手順

b) 酸溶解法

ここでは、最適化した手順を述べる(図 2.1.3.2-11)。炭酸塩試料 10 mg を PP チューブ (φ16 mm × 125 mm) に入れ、3% 硝酸を 0.581 ml 加え、発生する気体を逃さないよう素早くパラフィルムでチューブの口を覆い溶解させた。0.023 M EDTA を加えた 0.57%TMAH 溶液の入った注射針付きシリンジで、気体をゆっくり抜き取って TMAH 溶液に通した後、PP チューブに加えて、0.35% HNO_3 と 0.5%TMAH の混合溶液とした。炭酸塩試料をすべてカルサイトと仮定すると、この時のカルシウム (Ca) 濃度は ~800 mg/L である。0.35% HNO_3 /0.5%TMAH 混合溶液を ICP-MS のマトリックス溶液として用いた。さらに、マトリックス効果を補正するためにヨウ素の標準溶液に 0.1 M 硝酸カルシウム $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ 溶液を加えて Ca 濃度を 800 mg/L に調製した。



図 2.1.3.2-11 加熱分離法の実験手順

c) HPLC-ICP-MS

ヨウ素の化学種分離 (IO_3^-/I^-) を行うために陰イオン交換カラム (TSKgel super IC-AP, Tosoh) を用いた。溶離液には 0.5%TMAH/0.3%メタノール溶液を用い、流速は 1.0 mL/min とした。カラムの温度はカラムオープンで 40°C に保たれた。

Lu *et al.* (2010) は、0.5% HNO_3 /0.5% 第三級アミン混合溶液 (pH-3) を用いて ICP-MS の測定溶液のカルシウム濃度を 50 mg/L に調製している。しかし予備実験の結果から本研究で用いる幌延の炭酸塩試料中のヨウ素濃度は、Lu *et al.* (2010) が手法の検証に用いた JCp-1 に比べて二桁程度低い。そのため、測定溶液中のヨウ素濃度を高めるためにカルシウム濃度を 50 mg/L 以上にする必要があるが、一方で測定溶液の塩濃度が高いと ICP-MS の感度が下がる可能性があるため (マトリックス効果)、本法がより高い Ca 濃度でも適用可能かを検討した。0.1 M 硝酸カルシウム ($\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$) 溶液を用いてカルシウム濃度が 100, 500, および 800 mg/L になるようにヨウ素標準試料溶液を調製し、検量線が正しく描けるかを確認した。その結果、すべての Ca 濃度において良い相関が得られ、顕著な感度の低下は見られなかった。したがって、Lu *et al.* (2010) の手法は Ca 濃度が 800 mg/L 程度であっても適用できることが確認された。そこで、測定溶液のヨウ素濃度を高めるため、Ca 濃度を 800 mg/L に調製することとした。

次に、Lu *et al.* (2010) の手順に従い、3% HNO_3 に幌延の炭酸塩試料を溶解させたのち TMAH 溶液を加えて 0.5% HNO_3 と 0.5%TMAH の混合溶液としたところ、黄褐色のコロイド状の沈澱が生じた (図 2.1.3.2-12)。0.2 μm メンブレンフィルタを用いてろ過し、沈澱を取り除いた溶液中のヨウ素濃度を ICP-MS を用いて測定したが、その濃度は加熱分離法の予備実験で得られた濃度より一桁程度低かった。生じた沈澱の量はカルサイト試料中の鉄の含有量が高いほど多くなっていることから (表 2.1.3.2-4)、水酸化鉄 (III) コロイドが凝析によって沈澱したものと考えられる。また、水酸化鉄 (III) コロイドは正の電荷を帯びているため、ヨウ化物イオン (I^-) およびヨウ素酸イオン (IO_3^-) がコロイドに吸着され、ろ過後の溶液のヨウ素濃度が低くなったと考えられる。そこで、カルシウム濃度と当量程度の EDTA を溶かした TMAH 溶液 (0.023 M EDTA) を用いることで、カルサイト溶液中の Fe^{2+} と EDTA のキレート錯体を形成させ、コロイド状の沈澱の生成を抑制した。また、0.5% HNO_3 /0.5%TMAH 混合溶液の pH は 1.6 と酸性度が高かったため、pH は 3 程度になるように混合割合を調整し 0.35% HNO_3 /0.5%TMAH の混合溶液とした。

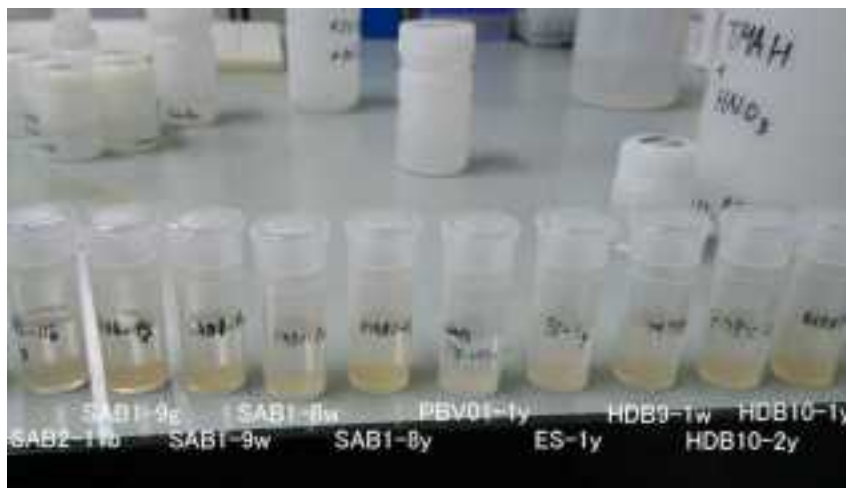


図 2.1.3.2-12 0.5% HNO_3 /0.5%TMAH 溶液で生じたコロイド状の沈澱。

また、3% HNO_3 に炭酸塩試料を溶解させる段階で二酸化炭素が発生する。この時、一時的に酸性度が高くなるため、ヨウ素も揮発する可能性がある。ヨウ素は比重が空気より重いと考えられるため

細長いPPチューブ ($\phi 16 \text{ mm} \times 125 \text{ mm}$) 内で炭酸塩試料を溶解させた。さらに、硝酸を添加後すぐにパラフィルムでチューブの口を覆い、EDTA TMAH 溶液を入れた注射針付きシリンジでゆっくり気体を抜き取り、シリンジ内の TMAH 溶液に気体を通した後、EDTA TMAH 溶液を PP チューブへ注入した。

得られた炭酸塩中のヨウ素濃度を表 2.1.3.2-4 に示す。加熱分離法の結果は、誤差が大きくなっている。燃焼ボートのみを用いて加熱分離の操作を行ったところ、 1.2 ng 程度のヨウ素（測定溶液中のヨウ素濃度： $0.15 \mu\text{g/L}$ ）が検出された。また燃焼ボートに酸化バナジウム (V_2O_5) のみを入れて同様に操作を行い、酸化バナジウムにヨウ素が 0.008 mg/kg 程度含まれていることが示唆された。したがって、炭酸塩中のヨウ素濃度が低いため、不純物の影響が大きくなることが誤差が大きくなる原因であると考えられる。

酸溶解法により得られたヨウ素濃度は、加熱分離法に比べて低く見積もられた。これは、炭酸塩を硝酸で溶解する際に揮発する影響も考えられるが、誤差は比較的小さいため、前述のように加熱分離法がヨウ素混入により濃度が高くなっている可能性が考えられる。また、標準岩石試料である JLS-1（ライムストーン）および JDo-1（ドロマイト）を測定した結果、文献値 (Chai and Muramatsu, 2007) をよく再現した。これらのことから、酸溶解法の結果は、加熱分離法の結果と整合的であり、本研究で改良した酸溶解法が、カルサイトを主とする炭酸塩中のヨウ素濃度の測定に有効であると言える。

酸溶解法では、炭酸塩を $3\% \text{HNO}_3$ で溶解させるため、処理中に化学種が変化してしまう可能性がある。実験操作による化学種変化を確認するため、酸溶解と同じ量の $3\% \text{HNO}_3$ を加えた $0.01 \mu\text{M}$ NaIO_3 , NaI 溶液および共沈実験で得られたカルサイト（初期濃度 NaIO_3 : $0.05 \mu\text{M}$; NaI : 0.05 mM ）を溶解した溶液の化学種を HPLC-ICP-MS により調べた（図 2.1.3.2-13）。硝酸を加えた NaIO_3 , NaI 溶液の分析から、 IO_3^- は 10% 程度 I^- に変化するが、 I^- は化学種が変化しないことが分かった。また、 IO_3^- を共沈させたカルサイト溶解液の分析から、 IO_3^- は 8.7% 程度 I^- に変換することが分かった。したがって、カルサイト中に 2 mg/kg 程度 IO_3^- が含まれている場合、酸溶解法の操作によって 10% 程度が I^- に変化する。一方で、 I^- は溶液の化学種が変化していないのに対して、 I^- を共沈させたカルサイトを溶解させた溶液では、 IO_3^- と I^- の割合が IO_3^- の共沈試料と同程度であった。今回、共沈実験は大気下で行ったため、溶液中で I^- が、より取り込まれやすい IO_3^- に酸化されてカルサイト中に取り込まれたと考えられる。ヨウ化物イオン (I^-) の共沈実験で求められたヨウ素濃度は、初期濃度が IO_3^- に比べて 1,000 倍高いにもかかわらず、カルサイト中に取り込まれるヨウ素の量は同程度である（図 2.1.3.2-7）。このことから、 I^- の IO_3^- への酸化反応が律速となり、ヨウ素が主に IO_3^- としてカルサイト中に取り込まれたことが示唆された。 NaI 溶液の化学種は変化しないことから、炭酸塩中に I^- のみが存在する場合は実験操作による化学種の変化はないと考えられる。したがって、カルサイト中のヨウ素は生成時の液相の酸化還元状態を保存し、化学種解析から IO_3^-/I^- 比を求めることで酸化還元状態を還元できることが示唆された。

表 2.1.3.2-4 炭酸塩中のヨウ素濃度.

サンプル名	深度 (mbgl)	炭酸塩試料		
		加熱分離 ^a I濃度 [mg/kg] ^b	酸溶解 I濃度 [mg/kg] ^b	
HDB9-1w	305.55	0.243 (0.045)		
HDB10-2y	516.85	0.193 (0.048)	0.113 (0.003)	
ES-1y	323.60	0.144 (0.049)	0.088 (0.017)	
SAB1-8w	490.50	0.055 (0.016)		
SAB1-8y	490.50	0.112 (0.031)		
SAB1-9w	503.00	0.107 (0.027)	0.077 (0.005)	
SAB1-9g	503.00	0.114 (0.041)	0.105 (0.037)	
PB-V01-1y	289.50	0.081 (0.023)	0.055 (0.004)	
SAB2-11b	609.34	0.974 (0.048)		
標準岩石			文献値	
JLs-1		0.263 ^c (0.051) ^c	0.304 (0.024)	0.26 (0.02) ^d
JDo-1		0.573 ^c (0.060) ^c	0.649 (0.032)	0.71 (0.06) ^d

a) V₂O₅のみで加熱分離を行った際の測定値 0.03 mg/kg

b) n=2-5. カッコ内は標準偏差(1σ)

c) サンプル使用量 100 mg (n=3), 500 mg (n=1)

d) Chai and Muramatsu, (2007).

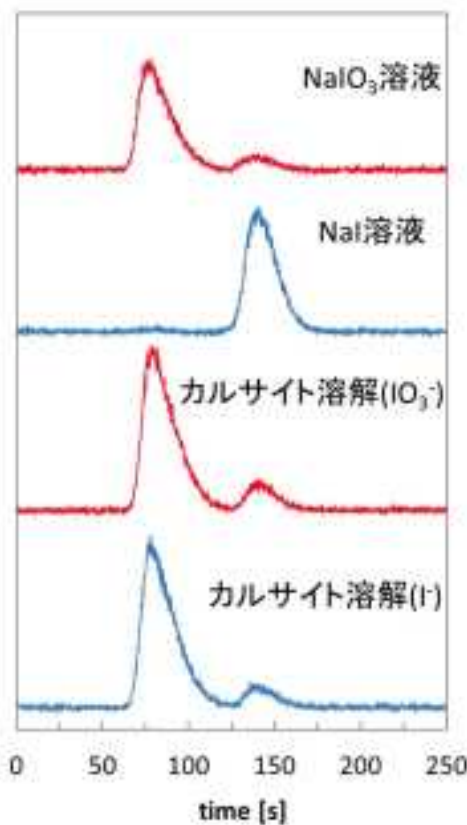


図 2.1.3.2-13 硝酸処理によるヨウ素の化学種への影響.

(3) 幌延地域で採取した炭酸塩中のヨウ素濃度測定

本研究で用いた試料は、昨年度分類した5つのボーリングコアと東立坑で見つかった9つの炭酸

塩脈をその特徴や色調（白色，灰白色，黄色）によって分類した（表2.1.3.2-1）。これらは，母岩（珪質泥岩）の割れ目を充填するように発達している。試料はマイクロドリルやセラミックスクレーパを用いて採取した。炭酸塩試料は，XRDによって鉱物が同定されており，そのほとんどは，マグネシウムを多く含むカルサイト（ CaCO_3 ）である。

炭酸塩中のヨウ素濃度は，SAB2-11bを除くと0.055-0.243 mg/kg程度であり，(Muramatsu and Wedepohl, 1998)で報告されている石灰岩の値（Limestones 0.792-3.870 mg/kg）と比較すると3-70倍低い値であった（表2.1.3.2-4，図2.1.3.2-14）。この理由は，海水と幌延地下水の酸化還元状態の違いを反映している可能性がある。カルサイトの共沈実験の結果から，ヨウ化物イオン（ I^- ）はヨウ素酸イオン（ IO_3^- ）に比べて，カルサイト中へ取り込まれにくい（図2.1.3.2-7）。また幌延地域の地下水については，声間層の地下水中のヨウ素の化学状態は I^- であると報告されており（嶋本ほか，2010），稚内層の深度500 mから採水された地下水のヨウ素の化学形態も主にヨウ化物イオン（ I^- ）として存在していることが報告されている（Kozai *et al.*, 2013）。酸溶解法で得られた溶液をHPLC-ICP-MSを用いて炭酸塩中のヨウ素の化学種解析した結果，深度や地層の違いによらず I^- として取り込まれていることが分かった（図2.1.3.2-15）（ IO_3^- 付近にピークの様に見えるのは溶液の流量変化によるものと考えられる）。一方で，現在の海洋ではヨウ素は主に IO_3^- として存在している。したがって，幌延の地下水中のヨウ素の化学形態（ I^- ）を保ったまま，炭酸塩中に I^- として取り込まれるために，海水から沈殿した炭酸塩（ IO_3^- として取り込まれる）などに比べて少ないと考えられる。したがって，炭酸塩は IO_3^- が生成しない還元的な環境で生成したと考えられる。また，炭酸塩中に僅かに IO_3^- が存在したとしても，硝酸処理によって I^- へ変換されてしまうと考えられ， IO_3^-/I^- 比による酸化還元状態の推定は困難になる。

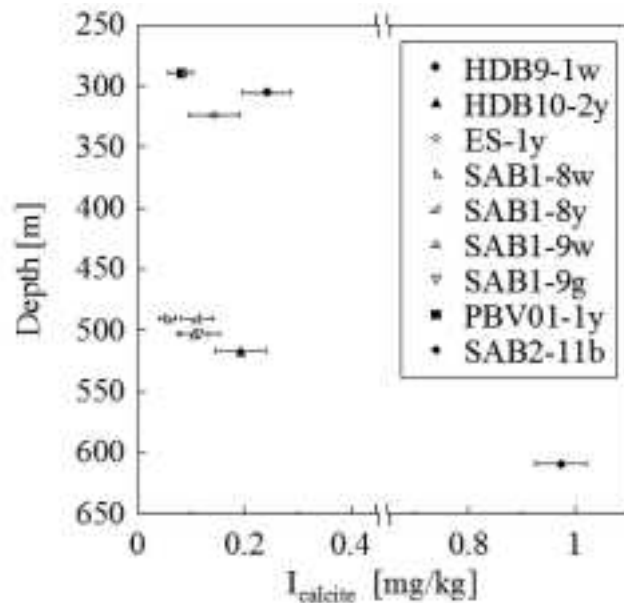


図 2.1.3.2-14 加熱分離法で求めた深度に対する炭酸塩中のヨウ素濃度。

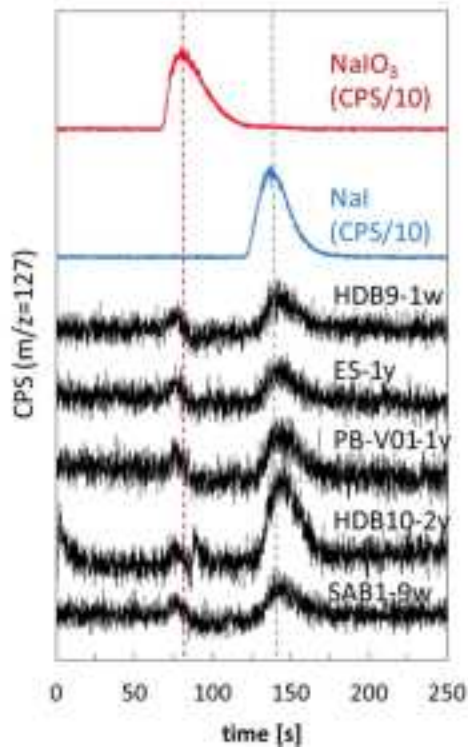


図 2.1.3.2-15 炭酸塩を酸溶解した溶液のヨウ素のクロマトグラム。

地下水中のヨウ素濃度は、深度が深くなるほど高くなり、稚内層の深度～500mに位置する SAB1-8, SAB1-9 および HDB10-2y の試料地点のヨウ素濃度は、声問層と稚内層の境界付近に位置する PB-V01-1y の深度 300m 付近に比べて十倍程度高くなっている (図 2.1.3.2-16)。このようなヨウ素の濃度分布は声問層・稚内層形成時に深部で地下水に溶解した高濃度のヨウ素が、天水などの影響で希釈されたためと考えられている (岩月ほか, 2009; 嶋本ほか, 2010)。深度 300m 付近の HDB9-1w は、PB-V01-1y および ES-1y に比べてカルサイト中のヨウ素濃度が高い。HDB9-1w が生成した当時の地下水中のヨウ素濃度は高かったと考えられる。これは、この炭酸塩が生成した時期は地下水が天水などで希釈される以前であることを示している可能性がある。これは、第 2 章で述べた HDB9-1w 中のヒ素濃度と分配係数から推定される地下水のヒ素濃度が、現在の地下水より非常に高くなり、HDB9-1w は現在の地下水環境とは異なる環境で沈澱したと示唆されたことと調和的である。稚内層における高濃度のヨウ素を含む地下水は、圧密過程における有機物の熟成に伴って形成されたものであり、地層の堆積年代は火山性砕屑岩の K-Ar 年代値に基づく約 13 Ma と言われている (岩月ほか, 2009)。また、炭酸塩の鉱脈の産状を見ると、声問層に位置する PB-V01-1 や声問層-稚内層境界周辺に位置する ES-1 は、大きな割れ目に発達した炭酸塩結晶である。一方で HDB9-1w は細いネットワーク上に張り巡らされた脈であり、二次鉱物を充てんした割れ目が少なく低～中透水性の地質構造の特徴を持つ深度 400 m 以深の稚内層 (岩月ほか, 2009) で生成した可能性がある。

一方で、PB-V01-1y は声問層と稚内層の境界付近に位置しており、カルサイト中のヨウ素濃度は低くなっている。声問層は間隙率が大きく水理的には多孔質媒質と考えられる (岩月ほか, 2009)。したがって、隆起の過程で割れ目の発達に伴って、天水等による地下水の希釈が起こった後に生成したものと考えられ、これが低いヨウ素濃度の原因と考えられる。

また、SAB2-11b は最も高い値を示した。SAB-2 の現在の間隙水中のヨウ素濃度は低いいため、過去の地下水から生成した炭酸塩であると考えられる。今後、HPLC-ICP-MS を用いた炭酸塩中のヨウ素の化学形態分析を行う必要があるが、仮に I⁻ として存在するのであれば、非常に高いヨウ素濃度の

地下水から生成したと考えられる。ヒ素の結果から SAB2-11b のノジュールは 100 万年以上前の地下水から生成していると推察されていることは整合的である。また、SAB2-11b はアンケライトを含むため (表 2.1.3.2-1)、アンケライトの影響を考慮する必要がある。

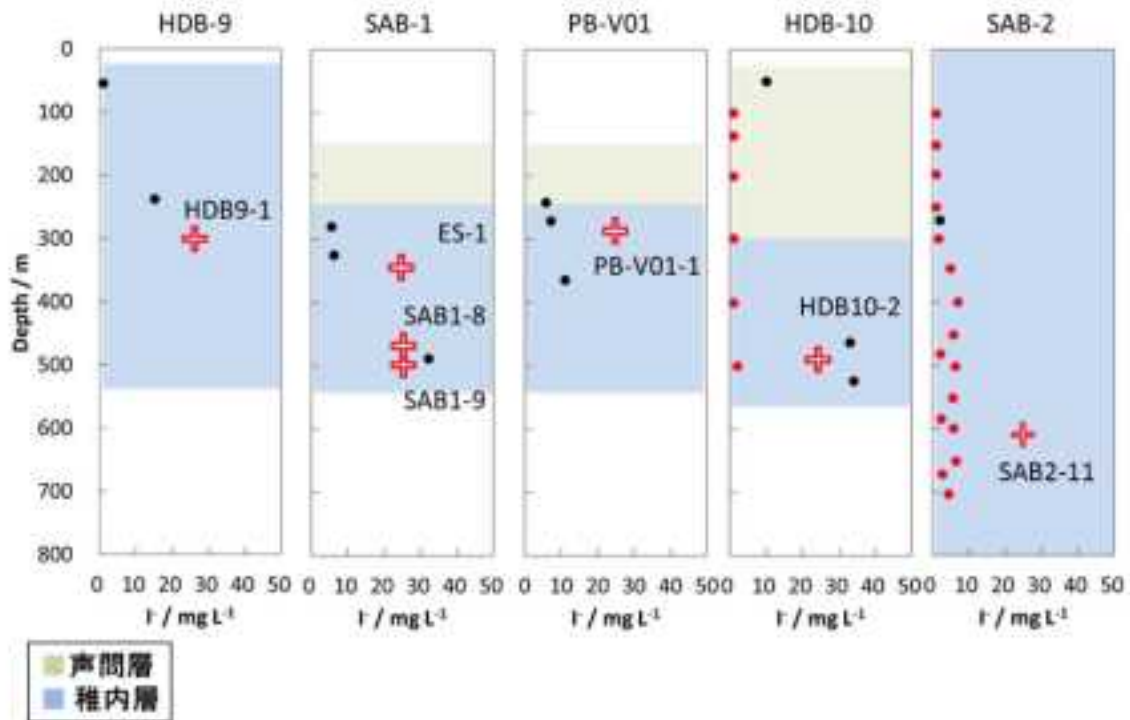


図 2.1.3.2-16 地下水及び間隙水中のヨウ素濃度 (天野ほか, 2012).

●: 地下水中のヨウ素濃度, ●: 間隙水中のヨウ素濃度, +: 炭酸塩試料の採取深度を示す。

4) 幌延地下深部に産する炭酸塩鉱物のウラン-トリウム年代測定

ここまでの研究で、炭酸塩中の微量元素の特徴から、炭酸塩沈殿時の酸化還元状態がある程度推定できることが示唆されている。しかし、それがいつであるかを知るには、炭酸塩自身の年代測定が必要となる。そこで、炭酸塩に対してウラン-トリウムの放射非平衡を用いた年代測定の適用を行った。

幌延深地層研究センター地下から採取されたボーリングコアサンプル中に産出するカルサイト中には一般的に 1 ppm 以下のウランが含有され、さらに ^{238}U の放射壊変起源である ^{234}U , ^{230}Th が微量に存在する。この ^{234}U — ^{230}Th の放射非平衡を利用することによって、鉱物の年代測定を行うことが可能である。この方法は、炭酸塩鉱物を沈殿させる天然水が酸化している場合、ウランは溶液中で多様なウラニル錯イオンを形成して溶解しているのに対し、トリウムは非常に低い溶解度をもつことによって起こる放射非平衡を使って年代測定を行うことができる。

(1) ドリルによる炭酸塩鉱物のサンプリング

幌延深地層研究センター地下炭酸塩試料の U-Th 年代測定は、マルチコレクターの二重収束磁場型 ICP 質量分析計 (MC-ICPMS) を用いて行う。この際、信頼のおける同位体比分析を行うために注意すべきことは、放射壊変起源の娘核種である ^{230}Th および ^{234}U が非常に微量である点である。そのため、信頼のおける同位体比分析を行うために必要な信号強度を得るには、少なくとも 1 g 程度の炭酸塩鉱物試料を用意することが望ましい。

本研究において U-Th 年代測定の対象となる炭酸塩鉱物試料は、泥岩の割れ目の中に発達した産状

を示している。この炭酸塩鉱物は、その形成過程に母岩との関連性は無いと見られることから、試料採取の際には炭酸塩鉱物を母岩から分離することが望ましい。本研究ではまず、比較的大きな炭酸塩の結晶を持つ HDB-10-2, ES-1 および PBV01-1 の3試料について電動ドリルを用いて炭酸塩鉱物の分離回収を行った。得られた粉末試料はメノウ乳鉢で粉碎した。

今回用いる方法では、炭酸塩鉱物を酸分解させる際にまず硝酸を用いて分解し、その後硝酸に不溶性な鉱物をフッ酸と過塩素酸を加えることにより全分解して同位体比測定を行う。この際、炭酸塩鉱物試料の形成年代は母岩の泥岩と無関係であると考えられることから、炭酸塩鉱物部分のみを母岩から分離することが重要である。そこで、メノウ乳鉢で粉碎後の試料に対し XRD による鉱物同定を行うことによって、炭酸塩鉱物の回収が達成できているか否かを調べた。この結果より、ドリルにより母岩から分離し粉末化した試料はカルサイト、あるいはマグネシウムを多く含むカルサイトであることがわかる (図 2.1.3.2-17)。また、母岩のケイ酸塩のピークが観測されていないことから、炭酸塩鉱物を純度よく分離できていると考えられる。

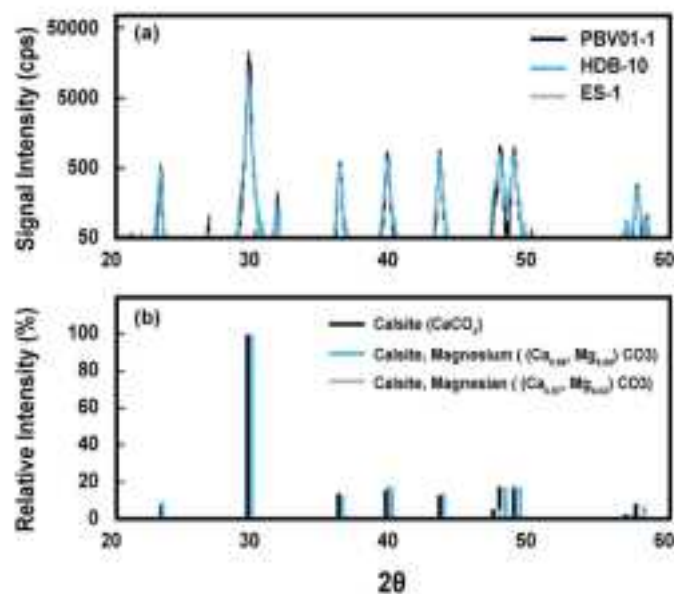


図 2.1.3.2-17 XRD による炭酸塩鉱物試料粉末の鉱物同定。

(a)炭酸塩鉱物の粉末試料から得られたX線回折、(b)観測された回折角と回折強度をデータベースと照合したリファレンスパターン。

(2) 炭酸塩鉱物の酸分解とThおよびUの単離回収

採取された炭酸塩鉱物は酸分解された後、MC-ICPMSによる高精度同位体比分析を行うため、イオン交換樹脂を用いて目的元素であるウランとトリウムをマトリックスから単離回収する。今回の実験では Watanabe *et al.* (2008) 等を参考に、まずイオン交換によってトリウムを回収後、Eichrom 社製 U/TEVA spec resin を用いてウランを回収する (図 2.1.3.2-19)。

以下に、炭酸塩試料の酸分解とウラン、トリウムの単離回収について記述する。なお、以下の手順は Watanabe and Nakai (2006) によって報告されている方法を参考に行った。炭酸塩試料を酸分解する際に、部分的に分解すると残渣にトリウムが吸着し、溶液と残渣の間で元素分別が起こることが報告されている (Bischoff, 1991)。よって、試料はまず約 7 N の硝酸を用いて分解した後、残渣をフッ酸と過塩素酸を用いて分解し、全分解を行った。試料を分解後、試料溶液に ²²⁹Th (NIST SRM 4.3-28C; 0.0459 ng/g) および ²³⁶U (IRMM-3660; 0.554 ng/g) の同位体スパイクを約 1 ml ずつ加えた。

次に、マトリックス由来の同重体干渉ピークおよび元素・同位体分別の効果を取り除くため、目的元素であるウランとトリウムを単離回収を行った。まず、試料溶液から主要元素を取り除くために鉄共沈法を適用した。これは、目的元素のウラン、トリウムと、主要元素であるカルシウムの共沈挙動の違い（カルシウムはウラン、トリウムと比較して高いpHで共沈する）を利用している。実際の手順では、試料を溶解させた硝酸溶液に関東化学社製鉄標準試料（1,000 ppm）を3 ml ずつ加え、20%アンモニア水溶液（関東化学超高純度分析用）を加えpH7.9に調製し、沈殿を生成した。この方法は、(Lawrence Edwards *et al.*, 1987)に基づく。こうして得られた沈殿と上澄みに対し遠心分離（4,000 rpm, 10 min）を行い、上澄みをデカンテーションによって取り除いた後、沈殿物を7 N 硝酸1 mlに溶解させた。

トリウムの単離回収を行うための陰イオン交換樹脂にはEichrom社製のAGI-X8を用いた。これはスチロールとジビニルベンゼンの共重合体を母体とし、第四級アンモニウム塩を有する強塩基型イオン交換樹脂であり、この樹脂中で主要元素は陰イオン錯体を形成しにくく、弱い吸着性しか持たない。一方でトリウムは安定な $\text{Th}(\text{NO}_3)_6^{2-}$ を形成し、5-10 Nの硝酸中で最も強い吸着性を持つ。またトリウムは塩酸溶液下では錯体を作らず樹脂に吸着されない。ウランの単離回収にはEichrom社製のU/TEVA spec resinを用いた。U/TEVAは他のカチオンやアニオンの影響が少なく、ウランの吸着能力が高い樹脂として知られており、硝酸溶液中でアクチノイドと錯体を形成する性質がある。陰イオン交換樹脂によるトリウムの単離回収とU/TEVAによるウランの単離回収の手順を図2.1.3.2-18に示した。

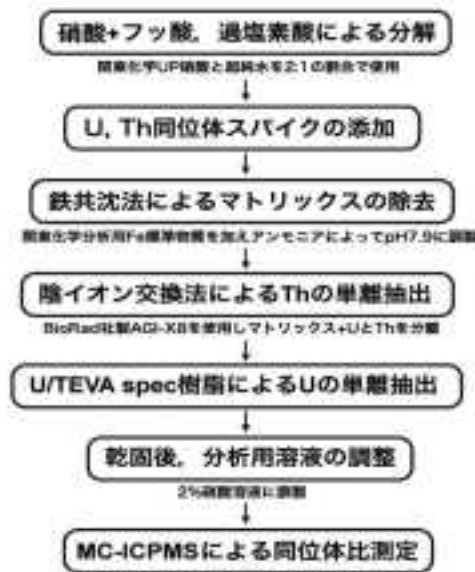


図 2.1.3.2-18 ウラン、トリウム同位体分析前の化学処理の手順。



図 2.1.3.2-19 カラム分離を用いたトリウム、ウランの単離回収の手順。

(3) U-Th放射非平衡を用いた年代測定

この方法では、炭酸塩鉱物が水から沈殿して形成する際、水にはトリウムがほとんど取り込まれないことから、娘核種である ^{230}Th 形成時の初生値をゼロと見なし ^{234}U の放射壊変による ^{230}Th が放射平衡に至るまでの同位体比変動から年代を決定する (Edwards *et al.* (2003) など)。この年代測定の原理は以下の式によって表される。

$$\left(\frac{^{230}\text{Th}}{^{234}\text{U}}\right) = \left(\frac{^{238}\text{U}}{^{234}\text{U}}\right) \left(1 - e^{-\lambda_{230}t}\right) + \frac{\lambda_{230}}{\lambda_{230} - \lambda_{234}} \left[1 - \left(\frac{^{238}\text{U}}{^{234}\text{U}}\right)\right] \left(e^{-\lambda_{230}t} - e^{-\lambda_{234}t}\right) \quad \text{式 2.1.3.2-1}$$

$^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ および $^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$ の比を質量分析計によって測定し、上式に代入することで年代値 t を得ることができる。

(4) MC-ICPMSによるウラン、トリウムの定量分析および同位体比の測定

年代測定に必要な同位体比および目的元素であるウラン、トリウムの存在量を求めるために、MC-ICPMS法を用いた。上記の手順による試料の前処理を行った後、回収したウラン、トリウムを2%硝酸溶液として分析用に調製した。MC-ICPMSによる測定では、主に存在する ^{232}Th 、 ^{238}U の他に、放射壊変起源で非常に微量にしか存在しない ^{230}Th および ^{234}U を精度よく測定することが求められる。今回同位体測定に用いたMC-ICPMSであるIsoprobe (Micromas社製)には、ファラデー検出器の他に高感度なイオンカウンティングが可能なデイリー検出器が1機搭載されており、ウラン、トリウムの試料溶液中の ^{230}Th および ^{234}U の同位体をデイリー検出器で、その他の同位体をファラデー検出器で測定する方法を用いた。この方法では、 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ の同位体比を信号強度比により求めることができないため、ウラン、トリウムそれぞれの試料溶液について同位体希釈法を用いた絶対濃度を算出し、それぞれの同位体の濃度比により同位体比を算出する。

同位体比測定を行う際、得られた信号強度比は、イオン検出器間における検出効率の差、および質量分析計内での同位体分別の影響を受けているため、補正計算を行う必要がある。検出器間での検出効率の差による真の値と測定値との差は、それぞれの測定の前後に同位体比既知の標準溶液を測定して挟み込む方法 (standard-sample bracketing法) によって補正を行った。質量分析計内で起こる同位体分別については、exponential lawによってウランを内部補正法 (Hart and Zindler, 1989)、トリウムを外部補正法 (e.g. (Marechal *et al.*, 1999)) を用いて補正した。また、結晶成長時に初生的に取り込まれた碎屑物に由来する ^{230}Th は ^{232}Th に放射平衡時の同位体比 $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}=4.4 \times 10^{-6}$ をかけることによって見積もり、補正を行っている。

本研究で分解した3つの炭酸塩鉱物試料の重量およびウランの濃度を表2.1.3.2-5にまとめる。ウランの含有量は同位体希釈ICP質量分析法によって定量分析を行った結果である。今回のウラン、トリウムの同位体比測定は東京大学地震研究所に設置されているMC-ICPMS (Isoprobe) を用いて年代測定を行った。幌延深地層センター地下から得られた炭酸塩鉱物試料中のウラン濃度は数ppb~数十ppbと非常に微量であった (表2.1.3.2-5)。

$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ の同位体比は約1~1.6 (表2.1.3.2-6)と、天然と同じかそれよりも高い放射非平衡の値をとった。ウラン同位体比に関する過去の研究によると、これは天然の岩石から ^{238}U の α 壊変による反跳効果によって娘核種が格子点から外れることによって水相に溶出されやすくなる効果 (Dooley *et al.*, 1966) および水に接している岩層から反跳によって娘核種が直接水相中に放出される効果 (Kigoshi, 1971) によって、 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ の同位体比を大きくする放射非平衡を説明することが可能であ

る。 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ と $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ の放射能比を比較すると(表2.1.3.2-6および図2.1.3.2-20), PBV01-1およびES-1は ^{234}U が卓越した $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比を持つ地下水から析出し、一方でHDB10-2は放射平衡に近い $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ を持つ地下水から $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 比が放射平衡となるよりも新しい年代に析出したことを示している。それぞれの $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比は誤差の範囲で一致しないため、今回の結果からはそれぞれのカルサイトを沈殿させた地下水の起源が異なることを示唆している。上記の結果は産出した地層との対応関係がみられないが、それぞれの採取された深さは、最も $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比が高いPBV01-1が289.5 m, 続くES-1で323.6 m, 放射平衡に近い値を示したHDB10-2では516.9 mであり、試料採取地が深いほど1に近い $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比を示している。PBV01-1声間層と稚内層の境界付近, およびES-1の産出した深度400m以浅の稚内層では、約1.3~1.0 Ma以降の隆起・浸食の間に長期にわたる地表からの天水の涵養によって海水が洗い出され、塩分濃度が相対的に低い環境になっている(石井ほか, 2008)。

表2.1.3.2-5 本研究に用いた炭酸塩鉱物試料の重量とウラン濃度。

sample	weight (g)	U (ng/g)
PBV01-1	1.0002	2.56
HDB10-2	1.0175	13.00
ES-1	0.9885	11.49

表2.1.3.2-6 炭酸塩鉱物試料より得られたウラン-トリウム放射能比と放射年代。

sample	$^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$	2 σ	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	2 σ	$^{230}\text{Th}/\text{U}$ age (ka)	error
PBV01-1	1.073	0.147	1.564	0.036	115	+29 -23
HDB10-2	0.764	0.183	1.030	0.018	146	+110 -55
ES-1	1.025	0.126	1.201	0.036	188	+86 -47

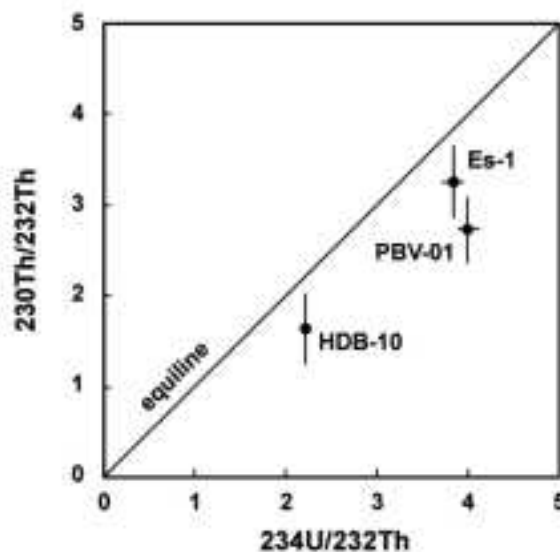


図2.1.3.2-20 ウラン-トリウム放射非平衡ダイアグラム(放射能比, 実線は放射平衡時の比)。

一方で、HDB-10-2 が産出した深部の稚内層では天然の放射性塩素同位体 (^{36}Cl) に基づいて、少なくとも約 1.5 Ma 以上の滞留時間を持つ可能性が示唆されており (電力中央研究所, 2008), その主な起源は化石海水と考えられている。以上のことから、これらの層の地下水の地球化学的環境はそれぞれ異なる水理地質特性として分類されている (岩月ほか, 2009)。 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比の非平衡はそれぞれの炭酸塩中のウラン濃度と相関しており (図 2.1.3.2-21) この関係を考慮すると、本研究により求められた $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比は、放射平衡に近い値を取る HDB10-2 は滞留時間の長い化石海水が起源で、比較的高いウラン濃度を持つことから、反跳による娘核種の放出および溶出の影響をあまり受けていないと考えられる。一方、浅部から産出した ES-1 および PBV01-1 では放射平衡に至っていないという結果より、天水の涵養による海水中のウランの希釈が $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ の放射非平衡の原因であると考えることができ、これらの結果は幌延地域の水理地質条件と対応していると見ることができる。以上のような水理地質条件と $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比の関係が幌延地域全体に一般的に成り立つか否かは今後の研究課題であるが、炭酸塩鉱物および地下水の採取深度や採取地点による同位体比の分布に系統的な関係性が見出せれば、幌延地域の地下水の長期的な変動を調査するための指標となる可能性が指摘できる。

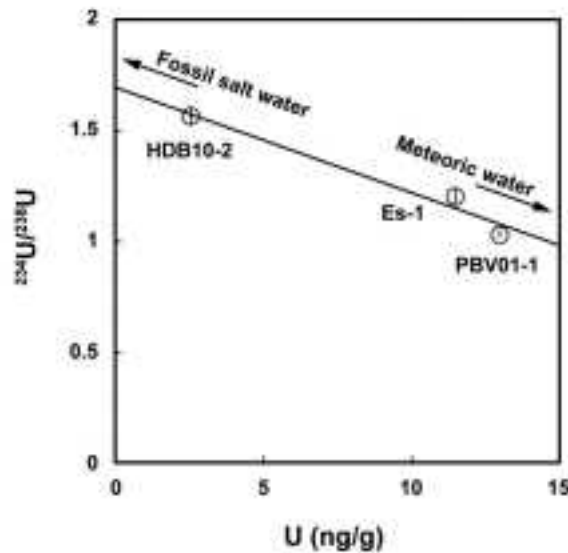


図 2.1.3.2-21 炭酸塩試料のウラン濃度に対する $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比。

$^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ および $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比より年代を (2.1.3.2-1) 式を用いて算出した。その際、年代の計算は IsoPlot (Ludwig and Titterton, 1994) を用いて行った。算出された各試料の放射非平衡年代は、稚内層から得られた PBV-01-1 のカルサイトで 115 (+29, -23) ka, 稚内層より得られた HDB-10-2 で 146 (+110, -55) ka, ES-1 で 188 (+86, -47) ka であった (表 2.1.3.2-6)。

この年代値は、誤差も考慮するとおおよそ 12-28 万年前の範囲に分布している。これは基本的には、稚内層が約 1.0 Ma (1.3-0.7 Ma) に最大埋没し、その後隆起に転じたとする過去の研究 (石井ほか, 2008) と調和的である。一方、幌延深地層研究センター付近の大曲断層および近傍の褶曲運動が終了したとされる年代 300-200 ka に比べるとやや若い年代となった。これらの年代の海洋酸素同位体ステージ (MIS; (Bassinot *et al.*, 1994)) は、PBV01-1 で 5, ES-1 および HDB10-2 で 7 と推定され、同段丘堆積物の分布高度と周辺の海成段丘面の分布から判断された海洋酸素同位体ステージ (7 または 9) よりはやや若い傾向を示す。

本研究で調べたような地層中の炭酸塩は、一般的には隆起に伴う褶曲運動で断層や割れ目が生じ、その比較的速やかに沈殿したとみなすことができる。この考え方に基づくと、本研究で得られた結果から、研究施設周辺の褶曲運動は 30 ~ 20 万年前までに終了したという従来の推定よりもさらに 10

万年ほど後まで続いていたことが示唆される。今後、炭酸塩の生成過程など炭酸塩が持つ放射非平衡年代の地質学的な意味をさらに検討すると共に、今回分析した試料よりもより深部の炭酸塩の放射非平衡年代の決定などを通じて、今回得られた年代値とその意味の妥当性を検証していく必要がある。

また、本研究では、炭酸塩鉱物の発達の形態により、ドリルによる母岩との分離が困難な試料が5試料あった。これらの試料については炭酸塩鉱物を1g程度集めること、さらに共生鉱物と分離することが難しいため、他の分離方法を検討する必要がある。(Poulton and Canfield, 2005)は、pH4.5に調製した酢酸干渉溶液による分解で、カルサイト、アンケライトおよびシデライトの炭酸塩鉱物を選択的に分解でき、これらの鉱物中の鉄を95%以上回収可能なことを示している。この方法は本研究にも有用であると考えられるが、ウランおよびトリウムの回収率は評価されていないため、予備実験を行い、ウランおよびトリウムの回収率を評価する必要がある。上記の方法による炭酸塩鉱物の分離が可能となれば、その他の5試料および新たにドリルによる母岩からの分離が困難な炭酸塩試料についても年代測定を行うことが可能であると考えられる。

5) 古環境復元と今後の展望

本研究では、昨年度の研究成果に基づき、幌延地域の炭酸塩が生成した当時の酸化還元状態や地下水の化学組成などを推定するために、幌延コア試料の種々の脈状に発達した炭酸塩について、炭酸中のヒ素の価数比を用いた酸化還元状態の特定に加えて、ヨウ素の化学種(IO_3^-/I^-)比を用いた酸化還元状態の特定を試みた。さらにU-Th年代測定法により、炭酸塩の形成年代を調べた。

炭酸塩試料のバルクのXANES解析および μ -XANES解析を用いたヒ素の価数比により調べた。その結果、ヒ酸の寄与のみの場合は、XANESスペクトルの検出下限(4%)を考慮して、カルサイト沈殿時の酸化還元電位が-51.5 mV以上であることを示し、亜ヒ酸とヒ酸の両方を確認することができた場合は、共存する水中の酸化還元環境を特定することができた。亜ヒ酸の検出と炭酸塩の産状を調べると、ネットワーク上に発達した脈石に亜ヒ酸が検出されやすく、大きな割れ目や晶洞などに発達する脈石には亜ヒ酸は検出されなかった。亜ヒ酸が検出された場合は、酸化還元電位が低くなるだけでなく、炭酸塩が生成した地下水中のヒ素濃度も現在の地下水の濃度に比べて30-200倍程度高くなる。したがって、ネットワーク状の脈石は古海水の影響が高い地下水の環境で、生成した可能性がある。一方で、ヒ酸のみを含む炭酸塩が生成した地下水中のヒ素濃度は、現在の地下水と同程度の濃度であり、共存した溶液が天水の影響を受けていることが示唆された。したがって、これらの産状の異なる炭酸塩は形成年代が異なる可能性がある。またこれ以外の炭酸塩の産状として、角礫化している炭酸塩が深部に存在しており、これはヒ素濃度が高く亜ヒ酸がみられた。これは海水の影響を受けると共に(続成作用で)還元的な環境下で生成したことを示唆している可能性がある。この場合、角礫上の炭酸塩は、この地域の隆起の活動が始まる前から地層中に存在し、その活動と共に角礫化したと考えられ、ヒ素の濃度・価数の情報は、この仮説と整合的である。

ヨウ素濃度測定からは、カルサイトの酸溶解法とHPLC-ICP-MSを組み合わせた化学種解析により、幌延の炭酸塩中にヨウ化物イオンとして取り込まれていることが分かった。ヨウ素酸イオンに比べて、ヨウ化物イオンはカルサイトへ圧倒的に取り込まれにくい。ヨウ化物イオンのみで取り込まれたことは、ヨウ素酸イオンが存在しない還元的な環境で炭酸塩が生成したことを示唆している。そのため、幌延炭酸塩中のヨウ素濃度は、(Muramatsu and Wedepohl, 1998)で報告されている石灰岩のヨウ素濃度に比べて、3-70倍程度低かった。酸溶解法によるカルサイト処理とHPLC-ICP-MSによる解析により、原理的には IO_3^-/I^- 比による酸化還元状態の推定は可能であることが示されたが、ヨウ化物イオンのみが取り込まれる幌延炭酸塩試料については適用が困難であることが分かった。しかし、炭酸塩中のヨウ素濃度は、生成環境中の地下水の情報を保持しており、地下水中のヨウ素の起源は圧密過程における有機物の熟成によるものと考えられているため、深度が深いほど濃度が高く、また地

表からの天水によって希釈されている。このことから、現在の地下水中のヨウ素濃度と比較することでカルサイトの相対的な形成年代の推定に使用できることが示唆された。実際に、ヒ素の価数比および濃度測定によって形成年代が古いと考えられた試料では、ヨウ素濃度は高く、上記仮説と整合的であった(図 2.1.3.2-22, 2.1.3.2-23)。

ウラントリウムの放射非平衡を用いた年代測定からは、大きな割れ目に発達した炭酸塩について、化学分離した U および Th の同位体を MC-ICPMS を用いて分析し、 $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ および $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 同位体比を求めた。その結果、炭酸塩の形成年代は 19-12 万年前であることが推定され、声問層および稚内層が隆起した(100 万年前以降)際にできた割れ目を充填するように炭酸塩が生成したとするモデルと整合的な結果であった。分析した 3 試料の中では、稚内層の 2 試料に比べて、声問層に産する PBV01-1 の年代が若いことが示された。ヨウ素濃度測定により、PBV01-1 は天水の影響を大きく受けた地下水中で生成されたと考えられたので、表層に近いところで天水の影響も受けながら生成した炭酸塩は、より深部の炭酸塩に比べて若い年代を示すことが示唆された。

今後の展望として、幌延地域の地下の炭酸塩には、本研究で区別した 3 種類の産状(大きな割れ目中の炭酸塩、ネットワーク上の炭酸塩、ノジュール上のものが角礫化したとみなせる炭酸塩)があると考えられ、これらは互いに形成年代が異なることが本研究で示唆された(図 2.1.3.2-24)。このうち、今回の U-Th 年代測定では、主に実験法の確立に主眼があったことと、試料量の制約から、大きな割れ目に発達した炭酸塩の年代の決定を行った。今後は、さらに微量な炭酸塩に対してウラン系列放射非平衡年代を得るための工夫を重ねることで、異なる産状である (i) ネットワーク状に発達した脈石および (ii) 炭酸塩ノジュールについての年代測定を行い、産状と炭酸塩の形成年代の関係や、ヒ素・ヨウ素の価数や濃度から推定される古酸化還元状態と形成年代の関係などを明らかにしていくことが期待される。ヒ素やヨウ素については、相対的な年代の違いと酸化還元状態は表裏一体の関係にある(古い年代のものは天水の影響を受けておらず還元的、など)と考えているので、同時に酸化還元状態についても議論できると期待される。

なお、本研究で発展させた炭酸塩の酸溶解法によるヨウ素濃度測定は簡易的で容易に適用が可能なため、炭酸塩が生成した当時の地下水環境の推定や、この地域での相対的なカルサイトの生成年代の指標として広く利用できる可能性がある。一方で、XAFS 解析を用いた価数比決定による酸化還元状態の復元や形成時の地下水中のヒ素濃度の推定では、炭酸塩中のヒ素濃度が高い必要があるという制約がある。また、ウラントリウム年代測定においても比較的多量の炭酸塩試料が必要という実験的な制約がある。一方、本研究でこれら 3 つの異なる手法で得られた結果は、互いに良く相関しており、これは結果の妥当性を示すものと考えられる(図 2.1.3.2-22)。そのため、今後の研究の進め方として、まず炭酸塩中のヨウ素濃度の測定で炭酸塩のキャラクタリゼーションを行った後で、分析対象として有効と思われる炭酸塩試料について年代測定やヒ素の価数・濃度測定を行う、などのように研究を進めていくのがよいと考えられる。

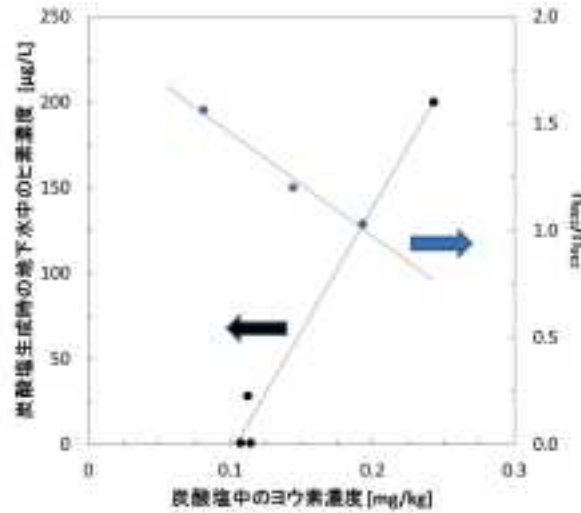


図 2.1.3.2-22 炭酸塩中のヨウ素濃度と地下水中のヒ素濃度および $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ の関係。
ヨウ素とヒ素の関係において、アンケライトを含む SAB2-11b は図から除外した。

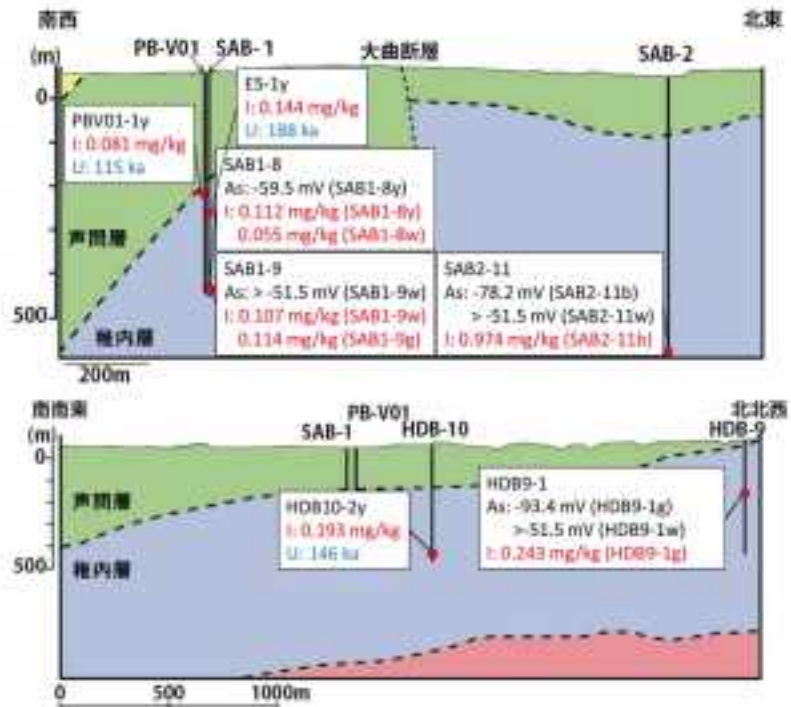


図 2.1.3.2-23 コア試料中の炭酸塩から得られた酸化還元電位 (As), ヨウ素濃度 (I) および形成年代 (U)
(地層図は (天野ほか, 2012) からトレース)。

	特徴	Redox	ヒ素濃度	ヨウ素濃度	形成年代 〔予想〕
	割れ目に発達	酸化的	低い	低い	10-30 万年 前
	ネットワーク状	還元的	高い	やや高い	30-100 万 年前
	ノジュール 結成作用	還元的	高い	高い	100 万年以 前

図 2.1.3.2-24 コア試料中の炭酸塩の産状と炭酸塩形成時の酸化還元状態および地下水中のヒ素濃度、炭酸塩中のヨウ素濃度、予想される形成年代の傾向。

【引用文献】

Bischoff, J. L. (1991) Densities of Liquids and Vapors in Boiling NaCl-H₂O Solutions - a Pvtx Summary from 300-Degrees-C to 500-Degrees-C. Am. J. Sci., 291, no. 4, 309-338.

天野由記・山本陽一・南條功・村上裕晃・横田秀晴・山崎雅則・國丸貴紀・大山隆弘・岩月輝希 (2012) 幌延深地層研究計画における地下水、河川水および降水の水質データ (2001~2010 年度) . 日本原子力研究開発機構.

Bassinot, F. C., Labeyrie, L. D., Vincent, E., Quidelleur, X., Shackleton, N. J. and Lancelot, Y. (1994) The astronomical theory of climate and the age of the Brunhes-Matuyama magnetic reversal. Earth Planet Sc. Lett., 126, 91-108.

Chai, J. Y. and Muramatsu, Y. (2007) Determination of bromine and iodine in twenty-three geochemical reference materials by ICP-MS. Geostand Geoanal Res, 31, no. 2, 143-150.

電力中央研究所 (2008) 平成19年度地層処分技術調査など (岩盤中物質移行特性原位置評価技術高度化調査) 報告書.

Dooley, J. R., Granger, H. C. and Rosholt, J. N. (1966) Uranium-234 fractionation in the sandstone-type uranium deposits of the Ambrosia Lake District, New Mexico. ECONOMIC GEOLOGY, 61, 1362-1382.

Edwards, R. L., Gallup, C. D. and Cheng, H. (2003) Uranium-series dating of marine and lacustrine carbonates. Rev. Mineral. Geochemistry, 52, 363-405.

Hart, S. R. and Zindler, A. (1989) Isotope Fractionation Laws - a Test Using Calcium. International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes, 89, no. 2-3, 287-301.

久田公一・宗像雅広・松末和・木村英雄 (2011) 北海道幌延地域, SAB-2孔における塩素同位体を用いた地下水年代の推定に関する調査. in Proceedings 日本地球科学惑星連合2011年大会2011.

石井英一・安江健一・大平寛人・古澤明・長谷川健・中川光弘 (2008) 北海道北部, 大曲断層近傍の背斜成長の開始時期. 地学雑誌, 114, 286-299.

石井英一・濱克宏・國丸貴紀・佐藤治夫 (2007) 海成堆積物の地下浅部における天水の浸透に伴う地下水のpH変化. 地質学雑誌, 113, no. 2, 41-52.

Iwatsuki, T., Satake, H., Metcalfe, R., Yoshida, H. and Hama, K. (2002) Isotopic and

- morphological features of fracture calcite from granitic rocks of the Tono area, Japan: a promising palaeohydrogeological tool. *Appl. Geochem.*, 17, 1241-1257.
- 岩月輝希・石井英一・新里忠史 (2009) 北海道幌延地域における深部地球化学環境の長期変遷シナリオの構築. *地学雑誌*, 118, 700-716.
- 日本原子力研究開発機構 (2011) 平成21~22年度地下水流動解析 モデルの総合的検証手法の検討 (幌延ボーリング調査) 最終調査報告書.
- Kigoshi, K. (1971) Alpha-Recoil Thorium-234 - Dissolution into Water and Uranium-234/Uranium-238 Disequilibrium in Nature. *Science*, 173, no. 3991, 47-&.
- Kozai, N., Ohnuki, T. and Iwatsuki, T. (2013) Characterization of saline groundwater at Horonobe, Hokkaido, Japan by SEC-UV-ICP-MS: Speciation of uranium and iodine. *Water Res.*, 47, no. 4, 1570-1584.
- Langmuir, D. (1997) *Aqueous Environmental Geochemistry*. Prentice-Hall, New Jersey, 600 p.:
- Lawrence Edwards, R., Chen, J. H. and Wasserburg, G. J. (1987) ^{238}U - ^{234}U - ^{230}Th - ^{232}Th systematics and the precise measurement of time over the past 500,000 years. *Earth and Planetary Science Letters*, 81, 175-192.
- Liss, P. S., Herring, J. R. and Goldberg, E. D. (1973) Iodide-Iodate System in Seawater as a Possible Measure of Redox Potential. *Nature-Phys Sci*, 242, no. 120, 108-109.
- Lu, Z. L., Jenkyns, H. C. and Rickaby, R. E. M. (2010) Iodine to calcium ratios in marine carbonate as a paleo-redox proxy during oceanic anoxic events. *Geology*, 38, no. 12, 1107-1110.
- Ludwig, K. R. and Titterton, D. M. (1994) Calculation of (230)Th/U Isochrons, Ages, and Errors. *Geochim. Cosmochim. Ac.*, 58, no. 22, 5031-5042.
- Marechal, C. N., Telouk, P. and Albarede, F. (1999) Precise analysis of copper and zinc isotopic compositions by plasma-source mass spectrometry. *Chem. Geol.*, 156, no. 1-4, 251-273.
- Muramatsu, Y. and Wedepohl, K. H. (1998) The distribution of iodine in the earth's crust. *Chemical Geology*, 147, 201-216.
- Nishizawa, M., Maruyama, S., Urabe, T., Takahata, N. and Sano, Y. (2010) Micro-scale (1.5 μm) sulphur isotope analysis of contemporary and early Archean pyrite. *Rapid Communications in Mass Spectrometry*, 24, no. 10, 1397-1404.
- 太田久仁雄・阿部寛信・山口雄大・國丸貴紀・石井英一・操上広志, 戸村豪治・柴野一則・濱克宏・松井裕哉・新里忠史・高橋一晴・丹生屋純夫・大原英史・浅森浩一・森岡宏之・舟木泰智・茂田直孝・福島龍朗 (2007) 幌延深地層研究計画における地上からの調査研究段階 (第1段階) 研究成果報告書 分冊「深地層の科学的研究」. JAEA-Research 2007-044, 日本原子力研究開発機構.
- Poulton, S. W. and Canfield, D. E. (2005) Development of a sequential extraction procedure for iron: implications for iron partitioning in continentally derived particulates. *Chem. Geol.*, 214, no. 3-4, 209-221.
- Sahlstedt, E., Karhu, J. A., Pitkänen, P. and Whitehouse, M. (2013) Implications of sulfur isotope fractionation in fracture-filling sulfides in crystalline bedrock, Olkiluoto, Finland. *Appl. Geochem.*, 32, 52-69.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2009) 平成20年度地下水流動解析モデルの総合的検証手法の検討.

- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2014) 地層処分に係る地質評価手法等の整備 (水理関連情報の整備) : 平成25年度事業報告書.
- Shikazono, N. and Utada, M. (1997) Stable isotope geochemistry and diagenetic mineralization associated with the Tono sandstone-type uranium deposit in Japan. *Mineralium Deposita*, 32, 596-606.
- 嶋本洋子・高橋嘉夫・天野由記・松崎浩之・村松康行・岩月輝希 (2010) 幌延地域における珪藻質-珪質泥岩中のヨウ素の移行挙動解明. in *Proceedings 日本地球化学会年会2010*, Volume 57, 34-34.
- Sim, M. S., Bosak, T. and Ono, S. (2011) Large Sulfur Isotope Fractionation Does Not Require Disproportionation. *Science*, 33, no. 6038, 74-77.
- Suzuki, Y., Konno, U., Fukuda, A., Komatsu, D. D., Hirota, A., Watanabe, K., Togo, Y., Morikawa, N., Hagiwara, H., Aosai, D., Iwatsuki, T., Tsunogai, U., Nagao, S., Ito, K. and Mizuno, T. (2014) Biogeochemical Signals from Deep Microbial Life in Terrestrial Crust. *Plos One*, 9, no. 12, e113063.
- Takahashi, Y., Mitsunobu, S., Ohtaku, N., Yuita, K. and Nomura, M. (2003) Determination of the As(III)/As(V) ratio in soil by X-ray Absorption Near-edge Structure (XANES) and its application to the arsenic distribution between soil and water. *Am. Sci.*, 19, 891-896.
- Watanabe, Y. and Nakai, S. (2006) Accurate U-Th radioactive disequilibrium analyses of carbonate rock samples using commercially available U and Th reagents and multi-collector ICP-MS. *Microchim Acta*, 156, no. 3-4, 289-295.
- Watanabe, Y., Nakai, S. and Lin, A. M. (2008) Attempt to determine U-Th ages of calcite veins in the Nojima fault zone, Japan. *Geochem. J.*, 42, no. 6, 507-513.
- Yokoyama, Y., Tanaka, K. and Takahashi, Y. (2012) Differences in the immobilization of arsenite and arsenate by calcite. *Geochim. Cosmochim. Ac.*, 91, 202-219.

2.1.4 時間スケールに応じた水質変動予測のためのモデル化手法の整理

【実施内容】

長期的（10万年オーダー）での地下水化学環境変化を予測するための手法として、塩水の存在を考慮した岩石－水反応と海水準変動を考慮した水理－地化学連成解析モデルによって、酸化還元環境の変動範囲を予測する手法の検討を行う。また、短期的な水質回復過程の予測解析手法と合わせ、時間スケールに応じた予測解析手法の取りまとめを行う。以上の成果は、原子力規制委員会が作成する精密調査に対する判断指標あるいは技術指針の知見として反映される。

【成果】

2.1.4.1 海水準変動の影響を考慮した長期的水理－地化学連成モデル化手法

1) 研究の背景と目的

高レベル放射性廃棄物の地層処分では、地層に放射性核種の閉じ込めの機能を期待している。期待される機能には放射性核種を運ぶ地下水の流れにくさに係る透水性、核種の移行遅延に係る、拡散、吸着などがあげられる。また、これらの機能が長期的に安定して変動しないことが望まれる。しかし、地層のある地下環境と言えども長期的にはさまざまな要因の自然事象の影響を受けざるをえないので、このような影響を適切に評価することが安全評価において求められている。本課題はこのような背景のもとで、長期的な地下水化学環境変化を予測するための手法の一環として、岩石－水反応と海水準変動を考慮した水理－地化学連成解析モデルによって、地下水流動に海水の関与する場の酸化還元環境を予測するための数値シミュレーションと数値モデル構築を取り上げる。ここでは、その手法の基本的な取り組み方を提示して、安全審査の基本的考え方の整備に資することを旨とする。

2) 研究の概要

昨年度の平成25年度では、海水準変動によって海水と淡水の地下での混合が変動する環境をモデル化して酸化還元環境の変動を予測するために青函トンネル工事で行われた津軽海峡の地形を参考にモデル化を試みた(図2.1.4.1-1)。その結果、海域、陸域の分布変化によらず塩水化した地下水は停滞気味であるにも関わらず硫酸還元による酸化還元状態は海水準変動にかなり影響されていることが明らかにされた。しかしながら昨年度のシミュレーションは極めて単純化されたモデルに基づいており、以下に示すようないくつかの課題も示された。

- (1) モデルに硫酸還元以外のその他の反応を考慮する。
- (2) 酸化還元で鉄などの遷移金属が関与した場合の影響。鉍物が沈殿して硫化水素、鉄などが除去される可能性があり、より現実的な水－岩石反応への展開。
- (3) シミュレーションの境界条件となる地下に浸透する陸水と海水のモデルとしてのより適切なキャラクターライゼーション。例えば、酸素、炭酸ガス濃度、有機物の種類と濃度。
- (4) 微生物の関与する反応を扱う場合の活性の温度依存性についての扱い。

これを受けて今年度は、微生物反応速度についての考え方を整理し、より現実的な反応と環境のモデル化に取り組む。上記課題の(1)と(3)に主として関わることになる。

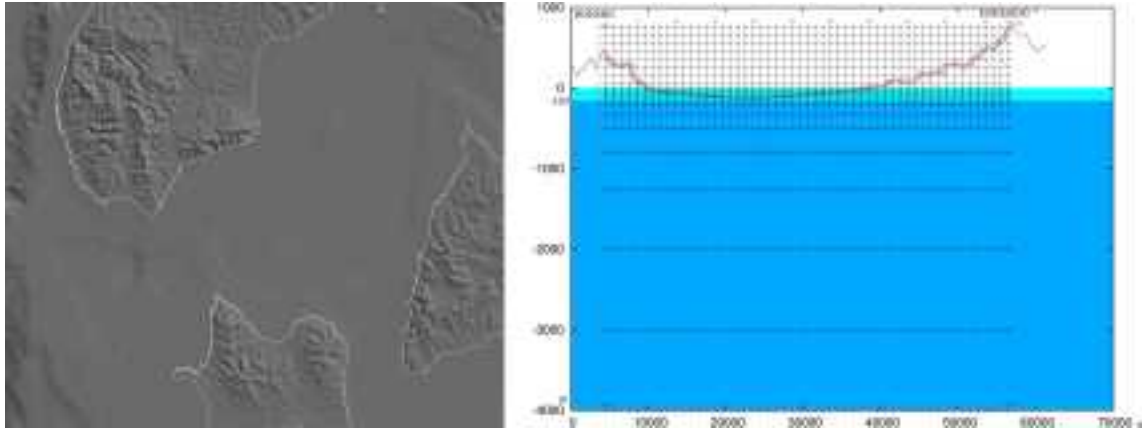
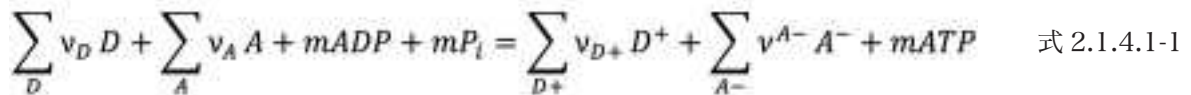


図 2.1.4.1-1 モデル化の参考とした地域とモデル断面.

左:緑線のAからBまでの断面をモデル化. DEM陸域は国土地理院250mメッシュ, 海域は日本海洋情報センター水深500mメッシュ利用. 右:断面線A-Bに沿った2次元モデル. 要素の一を+で示す. 淡青色で塗色した範囲が海水準の変動範囲.

3) Reactive Transport Modelにおける微生物反応速度

微生物が関与する化学反応ではしばしば monod kinetics と呼ばれる反応速度式が用いられ, 経験的な inhibition parameter が含まれたりして, 熱力学的制約を考慮していない (Jin and Bethke, 2005) あるいは熱力学的にありえない反応をシミュレートしたりするといった批判 (Curtis, 2003) があった. これに対して熱力学的に整合する反応速度式も提案されている (Curtis, 2003; Jin and Bethke, 2005). ここでは innovative approach とされる (Dale *et al.*, 2008) Jin and Bethke (2005) を次に紹介し TOUGHREACT を用いたシミュレーションにこれを取り込むことを検討する. Jin and Bethke (2005) では m モルの ATP の合成反応式



について次式を提案する.

$$r = k[X]F_D F_A F_T \quad \text{式 2.1.4.1-2}$$

$$F_D = \frac{\prod [D]^{\beta_D}}{\prod [D]^{\beta_D} + K_D \prod [D^+]^{\beta_{D^+}}} \quad \text{式 2.1.4.1-3}$$

$$F_A = \frac{\prod [A]^{\beta_A}}{\prod [A]^{\beta_A} + K_D \prod [A^-]^{\beta_{A^-}}} \quad \text{式 2.1.4.1-4}$$

$$F_T = 1 - \exp\left(\frac{\Delta G_{redox} + m\Delta G_P}{\chi RT}\right) \quad \text{式 2.1.4.1-5}$$

$$\Delta G_{redox} = \Delta G_{redox}^{\circ} + RT \ln \frac{\prod a_{D^+}^{v_{D^+}} \prod a_{A^-}^{v_{A^-}}}{\prod a_D^{v_D} \prod a_A^{v_A}} \quad \text{式 2.1.4.1-6}$$

ここで, D^+ , D は反応式の電子供与体の酸化側, 還元側それぞれの化学種, A , A^- は反応式の電子受容体の酸化側, 還元側それぞれの化学種を表し P_i はリンイオン化学種を表す. r は反応速度, k は

反応速度定数, $[X]$ はバイオマス濃度, F_D は電子供与側の化学種の反応乗数, F_A は電子受容側の化学種の反応乗数, K および β は実験的に決定されるパラメータ, χ は平均化学量論数, ΔG_{redox} は電子供与, 電子受容反応間での電子移動にかかるギブスエネルギーで, ΔG°_{redox} はその標準ギブスエネルギーである. ΔG_p は ADP から ATP を合成する際のギブスエネルギー変化である.

一方 TOUGHREACT では Curtis (2003) の反応速度式を利用しており, その式は式 2.1.4.1-7 のように表現される. オプションの選択によって r に $(1-Q/K)^{r_{kaq,cf}}$ を乗ずることができる. Jin and Bethke (2005) の式と比較すると, $F_D F_A$ が monod terms に F_T がオプションの乗数 $(1 - Q / K)^{r_{kaq,f}}$ に相当し, さらに product terms と inhibition terms が追加的に乗ぜられ $[X]$ 項が無いことが特徴である.

$$r_i = \sum_{s=1}^M \left[\begin{array}{l} k_{i,s} \quad \text{rate constant} \\ \times \prod_{j=1}^{N_l} \left(\gamma_j^{v_{i,j}} C_j^{v_{i,j}} \right) \quad \text{product terms} \\ \times \prod_{k=1}^{N_m} \frac{C_{i,k}}{K_{M(i,k)} + C_{i,k}} \quad \text{Monod terms} \\ \times \prod_{p=1}^{N_p} \frac{I_{i,p}}{I_{i,p} + C_{i,p}} \quad \text{inhibition terms} \end{array} \right] \quad \text{式 2.1.4.1-7}$$

昨年度のシミュレーションでは, 硫酸還元のみを取り扱い, パラメータもユーザーガイド (Xu, 2012) の例題 prob10 を参考に設定した. この例題は Sengor *et al.* (2007) を利用したものであった. 微生物反応速度式には前年度利用した式とパラメータとは異なる先行研究があること, その中には革新的とされるものもあることを記したが, これらを評価する目的で次の比較を試みた. 昨年度のシミュレーション結果の地下水化学組成をもとに同じ化学組成を昨年度の式とパラメータに適用した場合と Dale *et al.* (2008) の式とパラメータに適用した場合の硫酸還元の反応速度を比較してみた. その結果は表 2.1.4.1-1 の通りで, 海進海退 21 サイクル目の 1 ~ 7 ステージの全要素全期中を通じた反応速度の最大と最小を比較した.

表 2.1.4.1-1 平成 25 年度のシミュレーション結果の地下水化学組成を用いた微生物反応速度の比較.

期	期初年	Dale <i>et al.</i> (2008) S13		Dale <i>et al.</i> (2008) S10		Xu (2012)	
		mol/(L s)		mol/(L s)		mol/(kg s)	
		max	min	max	min	max	min
epoch1	233.5 Ma	5.01x10 ⁻⁸	0	1.26x10 ⁻⁸	0	2.62x10 ⁻⁸	5.73x10 ⁻⁶⁰
epoch2	234.6 Ma	5.01x10 ⁻⁸	0	1.26x10 ⁻⁸	0	2.62x10 ⁻⁸	5.73x10 ⁻⁶⁰
epoch3	239.2 Ma	5.01x10 ⁻⁸	0	1.26x10 ⁻⁸	0	2.62x10 ⁻⁸	5.73x10 ⁻⁶⁰
epoch4	243.0 Ma	5.01x10 ⁻⁸	0	1.26x10 ⁻⁸	0	2.62x10 ⁻⁸	5.73x10 ⁻⁶⁰
epoch5	244.3 Ma	5.01x10 ⁻⁸	0	1.26x10 ⁻⁸	0	2.62x10 ⁻⁸	5.73x10 ⁻⁶⁰
epoch6	244.7 Ma	5.01x10 ⁻⁸	0	1.26x10 ⁻⁸	0	2.62x10 ⁻⁸	5.73x10 ⁻⁶⁰
epoch7	245.0 Ma	5.01x10 ⁻⁸	0	1.26x10 ⁻⁸	0	2.62x10 ⁻⁸	5.73x10 ⁻⁶⁰

反応速度が最大となるのはどの期でも期初であり, 最小値は 0 (Dale *et al.* (2008) による場合) も

しくはほぼ0 (Xu *et al.* (2012) による場合) で、最大値は常に Dale *et al.* (2008) による場合が1桁大きくなっている。反応速度に影響が大きいのは反応速度定数にあたる k (TOUGHREACT の場合) あるいは v (Dale *et al.* (2008) の場合) であり、それぞれ 3.0×10^{-9} ($\text{mol kg}^{-1} \text{s}^{-1}$) および $3.6 \times 10^{-8} \sim 9.2 \times 10^{-9}$ ($\text{mol L}^{-1} \text{s}^{-1}$) であり、この違いが反応速度に影響しているようである。この値はそれぞれの微生物環境に依存したサイト依存性のあるデータであることから、それぞれの微生物環境を比較すると以下のような特徴が示される。

Sengor *et al.* (2007) が対象とした微生物環境

1. 金属に汚染された内陸の湖底堆積物 (Lake Coeur d'Alene Basin, Idaho, U.S.A.).
2. 反応速度にかかる k はフィッティングパラメータ。
3. SO_4 還元バクテリア群集は、 10^6 から 10^4 cells/g (wet weight) 堆積物。

Dale *et al.* (2008) が対象とした微生物環境

1. ノルウェーとデンマークの間のバルト海と北海をつなぐ海峡 Skagerrak での海底堆積物。
2. バイオマス濃度はコア実測値 6×10^8 または 1.5×10^8 cells/cm³。
3. 反応速度にかかる v はバイオマス濃度実測値をもとに理論的に推定。

Dale *et al.* (2008) によるとバイオマス濃度と反応速度 v は比例関係にあることが示されているので、この考え方に従えば、Dale *et al.* (2008) の反応速度が Xu *et al.* (2012) のそれより大きいのはバイオマス濃度が大きいことに起因すると解される。なお、Dale *et al.* (2008) では Jin and Bethke (2005) のように菌数 $[X]$ を明示的に独立変数とはせず反応速度定数 v に含めているが、これは steady-state biomasses を仮定しているためと解される。本シミュレーションでもこの考え方を踏襲する。

以上の考察を踏まえると昨年度のシミュレーションで仮定した、微生物化学モデルでのパラメータの遡及的出典である Sengor *et al.* (2007) は海底地質環境のモデルにはあまりふさわしくなかったと判断される。今回比較した Dale *et al.* (2008) の Skagerrak 海底堆積物でのパラメータがより好ましくこれをできるだけ反映した再計算を実施した。

そこで次に、Dale *et al.* (2008) のパラメータをどのように TOUGHREACT v.2 に反映するかについてさらに検討する。

4) シミュレーションに用いた微生物化学モデル

Dale *et al.* (2008) によると海底堆積物での微生物化学反応は次のように整理される (図 2.1.4.1-2)。

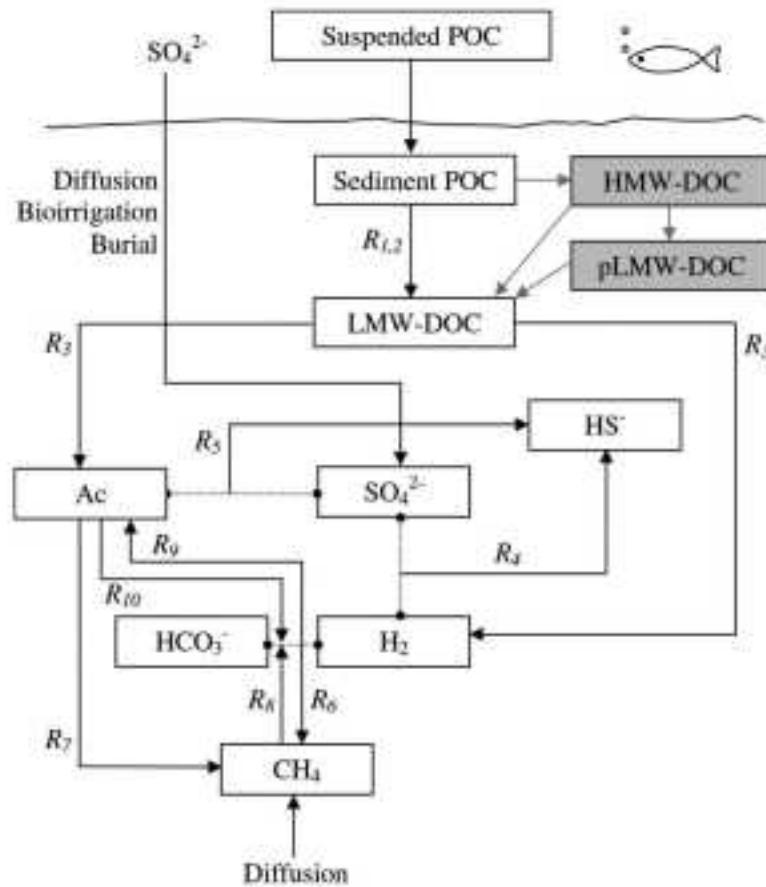


図 2.1.4.1-2 海底堆積物中の微生物化学モデル (Dale *et al.*, 2008 による)。

略号 DOC: dissolved organic carbon, HMW: high molecular weight, LMW: low molecular weight, POC: particulate organic carbon, pLMW: polymeric low molecular weight.

本課題で扱うモデルは海底堆積物よりさらに下の環境であるが、海底堆積物よりさらに下の地質環境は微生物にとってより過酷な環境であるので、ここにあげた反応を考慮すれば十分と考え、このモデルから R_{1,2} および R₃ 発酵 (fermenting) を除く R₄ ~ R₁₀ の反応を扱うこととした。

これらの反応を表 2.1.4.1-2 に示す。

表 2.1.4.1-2 反応式は 1 電子あたりに規格化してある。Ac⁻ は CH₃COO⁻。

R ₄	$1/2\text{H}_2^{\text{aq}} + 1/8\text{SO}_4^{2-} + 1/8\text{H}^+ = 1/8\text{HS}^- + 1/2\text{H}_2\text{O}$
R ₅	$1/8\text{Ac}^- + 1/8\text{SO}_4^{2-} = 1/8\text{HS}^- + 1/4\text{HCO}_3^-$
R ₆	$1/2\text{H}_2^{\text{aq}} + 1/8\text{HCO}_3^- + 1/8\text{H}^+ = 1/8\text{CH}_4^{\text{aq}} + 3/8\text{H}_2\text{O}$
R ₇	$1/8\text{Ac}^- + 1/8\text{H}_2\text{O} = 1/8\text{CH}_4^{\text{aq}} + 1/8\text{HCO}_3^-$
R ₈	$1/8\text{CH}_4^{\text{aq}} + 3/8\text{H}_2\text{O} = 1/2\text{H}_2^{\text{aq}} + 1/8\text{HCO}_3^- + 1/8\text{H}^+$
R ₉	$1/2\text{H}_2^{\text{aq}} + 1/4\text{HCO}_3^- + 1/8\text{H}^+ = 1/8\text{Ac}^- + 1/2\text{H}_2\text{O}$
R ₁₀	$1/8\text{Ac}^- + 1/2\text{H}_2\text{O} = 1/2\text{H}_2^{\text{aq}} + 1/4\text{HCO}_3^- + 1/8\text{H}^+$

TOUGHREACT の反応速度式を利用するため、パラメータ類をそれにできるだけあわせる。Dale *et al.* (2008) で用いられない product terms および inhibition terms は使用しないこととし、オプシ

オン選択によって乗ぜられる f_G 項に必要な $\log K$ を含めて以下の表 2.1.4.1-3 のように微生物反応のパラメータを Dale *et al.* (2008) によって設定した。 f_G は逆反応の場合は 0 となる TOUGHREACT のオプションを選択した。

表 2.1.4.1-3 $\log K$ は Dale *et al.* (2008) の ΔG より算出。

反応	rate	monod terms				logK
		species	half sat.	species	half sat.	
R ₄	7.07x10 ⁻⁸	SO ₄ ²⁻	1.0x10 ⁻³	H ₂ ^{aq}	1.0x10 ⁻⁸	1.250
R ₅	3.65x10 ⁻⁸	SO ₄ ²⁻	1.0x10 ⁻³	Ac ⁻	1.0x10 ⁻⁴	0.522
R ₆	7.04x10 ⁻⁸	H ₂ ^{aq}	1.0x10 ⁻⁶			0.522
R ₇	3.55x10 ⁻⁸	Ac ⁻	5.0x10 ⁻³			0.835
R ₈	3.49x10 ⁻⁸	CH ₄ ^{aq}	1.5x10 ⁻³			0.593
R ₉	6.98x10 ⁻⁸	H ₂ ^{aq}	1.0x10 ⁻⁷			0.522
R ₁₀	3.49x10 ⁻⁸	Ac ⁻	1.0x10 ⁻³			0.522

また新たな反応を考慮したことにともない、次のように地下水の化学組成の設定を見直した。

海底境界条件

- x pH 7.21 (10°C)
- Na⁺ 0.48616 mol/kgw
- Ca²⁺ 0.01074 mol/kgw
- Cl⁻ 0.48616 mol/kgw
- SO₄²⁻ 0.01074 mol/kgw
- Ac⁻ 0.0001 mol/kgw
- CH₄(aq) 1×10⁻¹⁰ mol/kgw
- H₂(aq) 1×10⁻⁹ mol/kgw

地表境界条件

- pH 7.0 (15°C)
- Ac⁻ 5×10⁻⁵ mol/kgw

地下 (陸域・海域ともに) 初期条件

- pH 7.0 (100°C)
- Ac⁻ 5×10⁻⁵ mol/kgw

海水の主成分化学組成は chlorinity35 標準海水 (DOE, 1997) をもとに大気平衡の炭酸は無視し、深部の環境を論ずる今回のモデルの前提として酸素が地表付近で消費し尽されていると仮定している点も昨年度と変わらない。その他の Ac⁻、CH₄(aq)、H₂(aq) は平成 26 年度委託事業報告書の瑞浪深地層研究所での研究成果を参考に設定した。上記に記載の無い成分は 0 mol/kgw であるが、計算上 1×10⁻¹⁹ mol/kgw を設定した。Ac⁻ は TOC を Ac⁻ とみなして設定している。地下水初期条件の温度を 100°C にしてあるが、定常状態で最終的に得られる温度には影響しない。

5) その他の設定条件

微生物反応にかかる化学的条件について昨年度平成25年度のものを見直したが、その他の条件は昨年度と同じであり、次に簡単にまとめる。

系： H_2O , H^+ , Na^+ , Ca^{2+} , Cl^- , HCO_3^- , HS^- , SO_4^{2-} , CH_3COO^- (以下, Ac⁻と略記), $H_2(aq)$, $CH_4(aq)$

2次化学種： HAc , $CaAc^+$, $NaAc^+$, $CO_2(aq)$, $CaCl^+$, $CaHCO_3^+$, $CaOH^+$, $CaSO_4(aq)$, $H_2S(aq)$, HSO_4^- , $NaCl(aq)$, $NaHCO_3(aq)$, $NaOH(aq)$, $NaSO_4^-$, OH^-

鉱物：無し

海水準変動：階段状に表現 (図2.1.4.1-3)

使用熱力学データセット：TOUGHREACT v.2のthermok3.01.dat

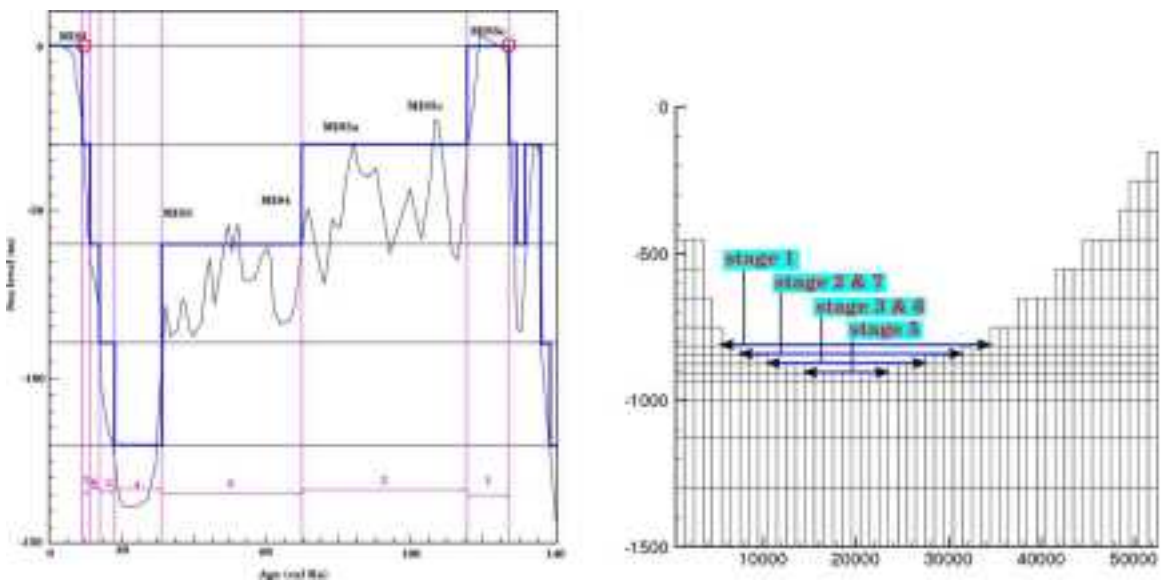


図 2.1.4.1-3 海水準変動の近似と海底境界条件の設定範囲。

左:海水準変動(黒実線)およびシミュレーションで用いた1サイクルの階段状の近似(2つの赤丸間の青実線)と対応するステージ番号(ピンク)。海水準変動はYokoyama and Esat (2011)による。右:モデル断面のステージごとに異なる青矢印範囲の最上部要素に海底境界条件を設定。stage4は完全海退で海域が存在しないので青矢印表示が無い。

シミュレーションはまず化学反応をさせずに物理的な設定条件のみで系が定常状態に到達するまで進めた。今回の場合、海水準変動パターンを21サイクル繰り返した時点で定常状態と判断した。この状態を物理的初期条件として次の化学反応を伴うシミュレーションを既に記した化学条件に従ってリスタートモードを進める。時計はこの状態で時刻0にリセットしている。以下の記述ではここを起点とした時間表示を用いている。

なお、シミュレーションの進行にともないAc⁻が枯渇する要素が出現することがある。TOUGHREACTは1次化学種が枯渇するとその濃度がアンダーフローともいえる値になって、それがマスバランスエラー判定に誤認されるきっかけとなる。このようにエラー判定される要素数が一定数をこえるとシミュレーションは停止される。停止の原因がここに記したようにはっきりしており、この原因は継続しても支障がないので、ソースコードに対しシミュレーションを停止せずに続行するように変更して利用した。

リスタート後のH-T-Cシミュレーションは海水準変動パターンで21サイクル繰り返して234万

年まで進めた。リスタート時の化学的初期条件は境界条件以外の全要素を海水で満たす場合と淡水で満たす場合が考えられるが、どちらからリスタートしても同じ定常状態に到達することを確認している。

6) シミュレーションの結果

海水準変動で21サイクルまで進めた今回のシミュレーションについて11サイクル目の結果と21サイクル目の結果を比較すると、どちらもほぼ同じ状態にあるので、すでに11サイクル目にはほぼ定常状態にあるものと思われる。ここでは、より長時間経過した21サイクル目の結果を全体図(図2.1.4.1-4～15)と浅部の拡大図(図2.1.4.1-16～25)に示し、物理化学変数分布のステージ間の変化、換言すれば海水準変動との関係および昨年度の微生物化学モデルを見直した影響についてまとめる。

温度分布(図2.1.4.1-4)はステージ間を通じてほとんど変化が認められない。地表水温15°C、海水温10°Cとあまり違いが無いことが海水と淡水の混合状況が変わっても大局的な温度分布に影響しないものと思われる。

地下水の流動を表す流線は全体的にはポテンシャル駆動による高所から低所に向う流れとなっているが、海域では水平近距離で巡回するような流線が認められる。最大海退で海が消失するステージ4ではこれが認められなくなる。

地下水流動の鉛直方向ベクトルの大きさの分布を示す図では海域の中央部を中心として下降流が卓越し、これが陸域の高所から流れてくる地下水と合わさって沿岸域で上昇していることが一連のステージ全体を通じた傾向となっている。また、最大海退のステージ4ではもと海域であった所でも上昇流傾向の広がりを見せている。このような傾向は淡水に比べて密度の高い海水の挙動として理解できる。

海水を特徴付ける成分はいくつかあるが、Clについて(図2.1.4.1-6)見ると高Cl濃度の領域は最大海進時のステージ1において浅所で最大に拡がり、ステージ2, 3と海退に応じて浅所の拡がり小さくなり、最大海退で完全陸化したステージ4にて地表付近は淡水が拡がるが地下には塩水が残っている。ステージ4の図では2列の高塩濃度水塊が地下に認められるが両者の間には楔状の淡水塊が地表から深部にのびている。この楔状の部分は海進期のステージ5, 6, 7と時間を追って小さくなるが、最大海進のステージ1でも地下に部分的に残存する。こうした傾向は海水成分であるNa, Ca, SO₄(図2.1.4.1-7, 8, 10)にも認められる。Ac(図2.1.4.1-9)は常に地表から供給されるが地下でほとんど消費つくされて低濃度となっている。これは昨年度のAcの挙動と異なる。HS, HCO₃(図2.1.4.1-11, 12)は地表からも海底からも供給されない微生物の活動によって産生される成分であるが、これらが高い濃度を示す2列の水塊が海進海退を繰り返す領域にあらわれる。これらの形態はCl, Na, SO₄などの楔状の低濃度水塊とは異なる形をしており、微生物活動の影響と解される。図2.1.4.1-13のCH₄は10⁻¹⁰～10⁻¹¹と極めて低濃度であるが地表付近の一部でやや高い特徴を示す。地表での濃度分布の様子がAcの濃度が低い要素で高めであり、相補的であるように見える。図2.1.4.1-14のH₂が初期条件、境界条件どちらにおいても高く与えていないにも関わらず高めの濃度で、地表部で低く海域で海進海退の影響をあまり受けない分布を示している。図2.1.4.1-15のpHは6から7を示すが、温度分布を考慮するとほぼ中性と考えてよい。pHが9にまで及んだ昨年度の結果と大きく異なる。

今回、新たな微生物による酸化還元にかかわる6反応を追加して計算した結果、昨年度とは異なる結果を得た。具体的にはpHが中性付近になり、Acが消費し尽くされた。その原因は電子供与体が増えた結果、さまざまな微生物活動が活発化したことと、それにともない産生された成分間でのpH緩衝作用が働いた可能性が考えられる。

また、反応の追加に加えて微生物環境を湖底堆積物から海底堆積物に見直したが、利用している知

見が海底堆積物のものであり、その下の地層のものではないことに注意する必要がある。微生物環境にかかるパラメータを湖底堆積物から海底堆積物へ変更したことも結果に影響している。このように結果が変わったのはシミュレーションに必要なデータがサイト固有のものであることによるもので、今回の課題の解決にはおそらく海底堆積物データを用いたシミュレーションでは不十分で、より深部の地質環境のデータが必要となるであろう。

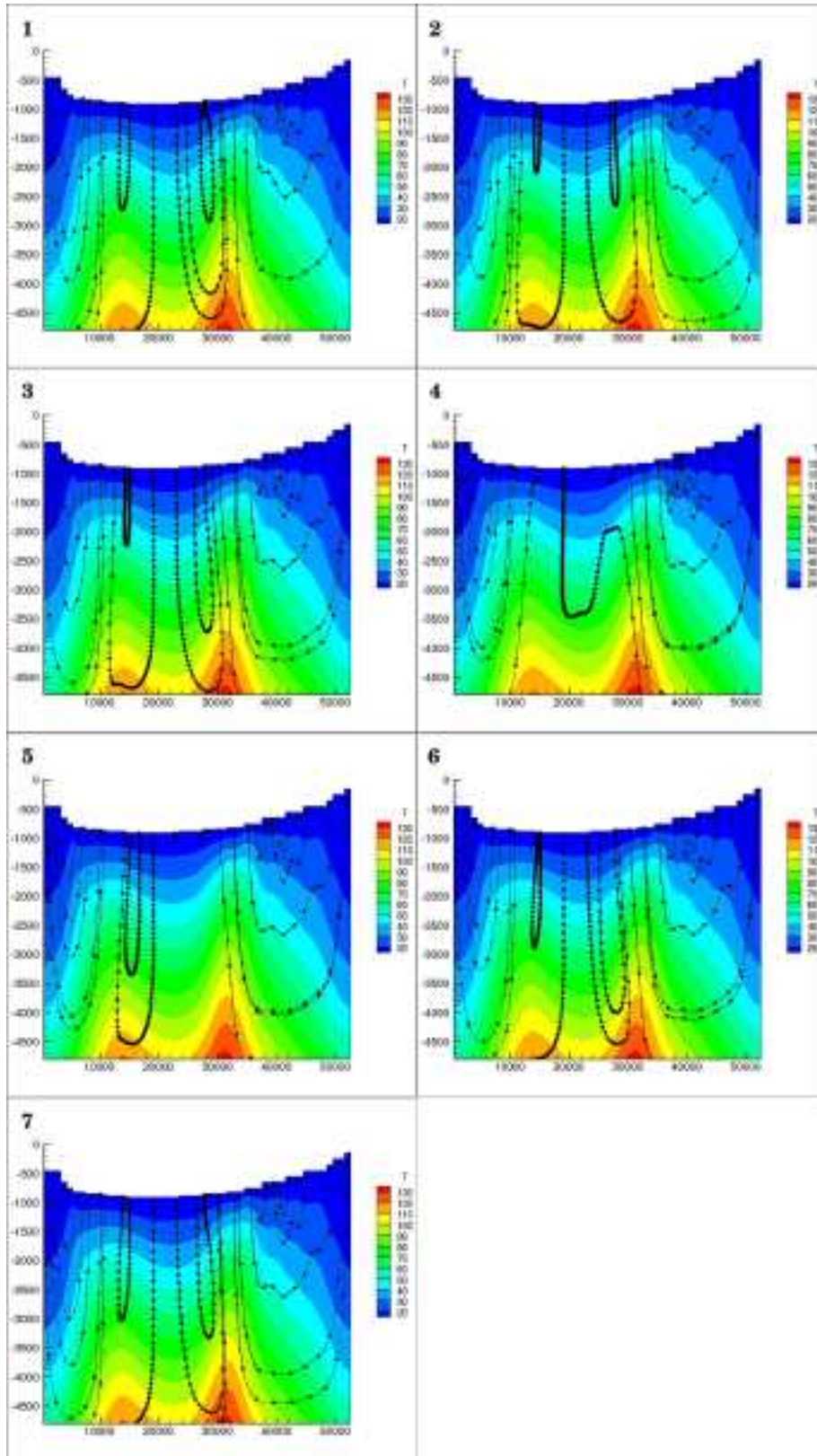


図 2.1.4.1-4 21 サイクル目の各ステージ最後の温度分布 (全体図).

単位: °C, 流線上の黒丸は 1,000 年ごとのマーカー, 1: stage1 (234.6Ma), 2: stage2 (239.2Ma), 3: stage3 (243.0Ma), 4: stage4 (244.3Ma), 5: stage5 (244.7Ma), 6: stage6 (245.0Ma), 7: stage7 (245.1Ma)

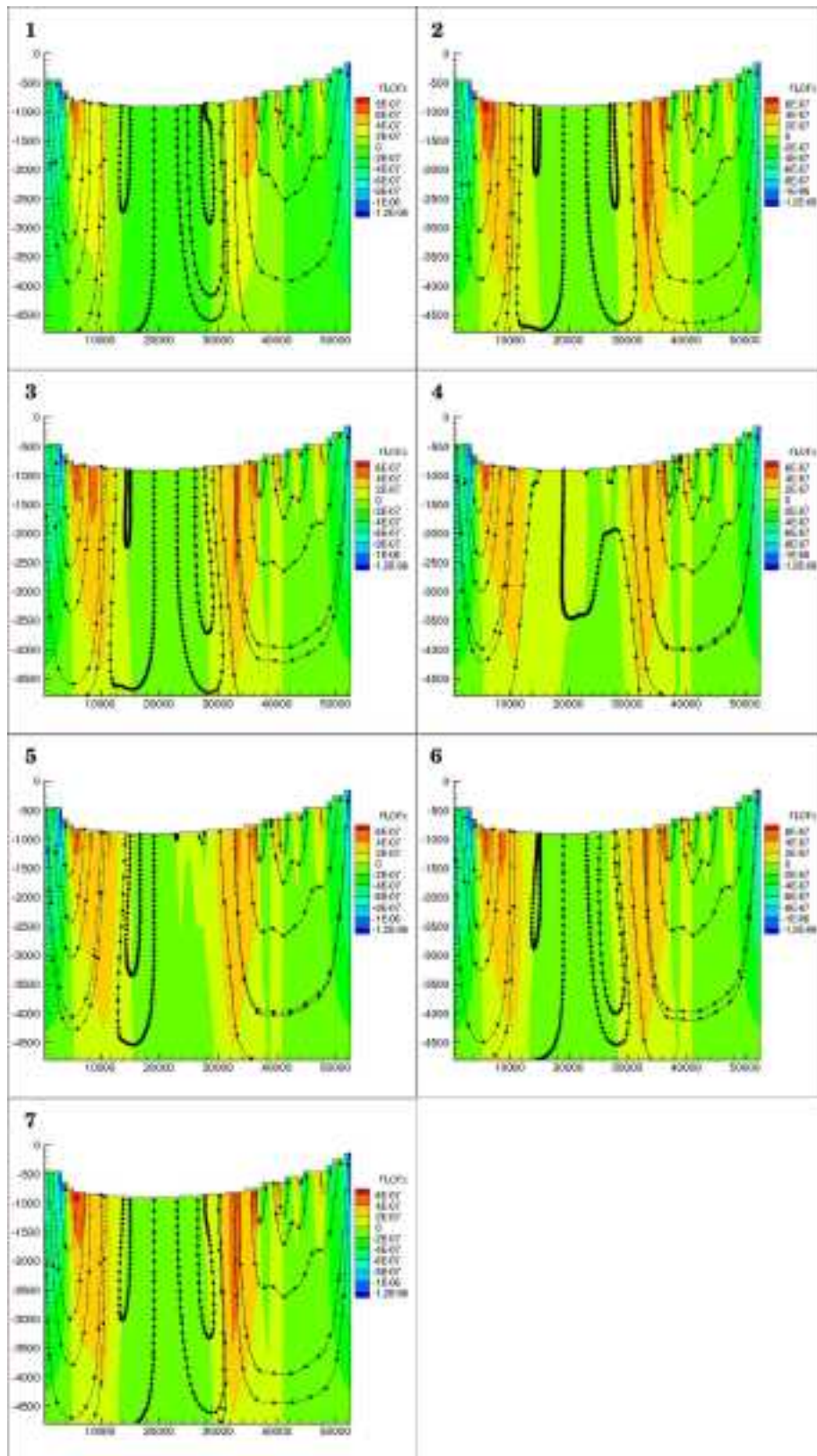


図 2.1.4.1-5 21 サイクル目の各ステージ最後の鉛直流量 (全体図).

単位 : kg/sec (+ 上昇, - 下降), 流線上の黒丸は 1,000 年ごとのマーカー, 1: stage1 (234.6Ma), 2: stage2 (239.2Ma), 3: stage3 (243.0Ma), 4: stage4 (244.3Ma), 5: stage5 (244.7Ma), 6: stage6 (245.0Ma), 7: stage7 (245.1Ma)

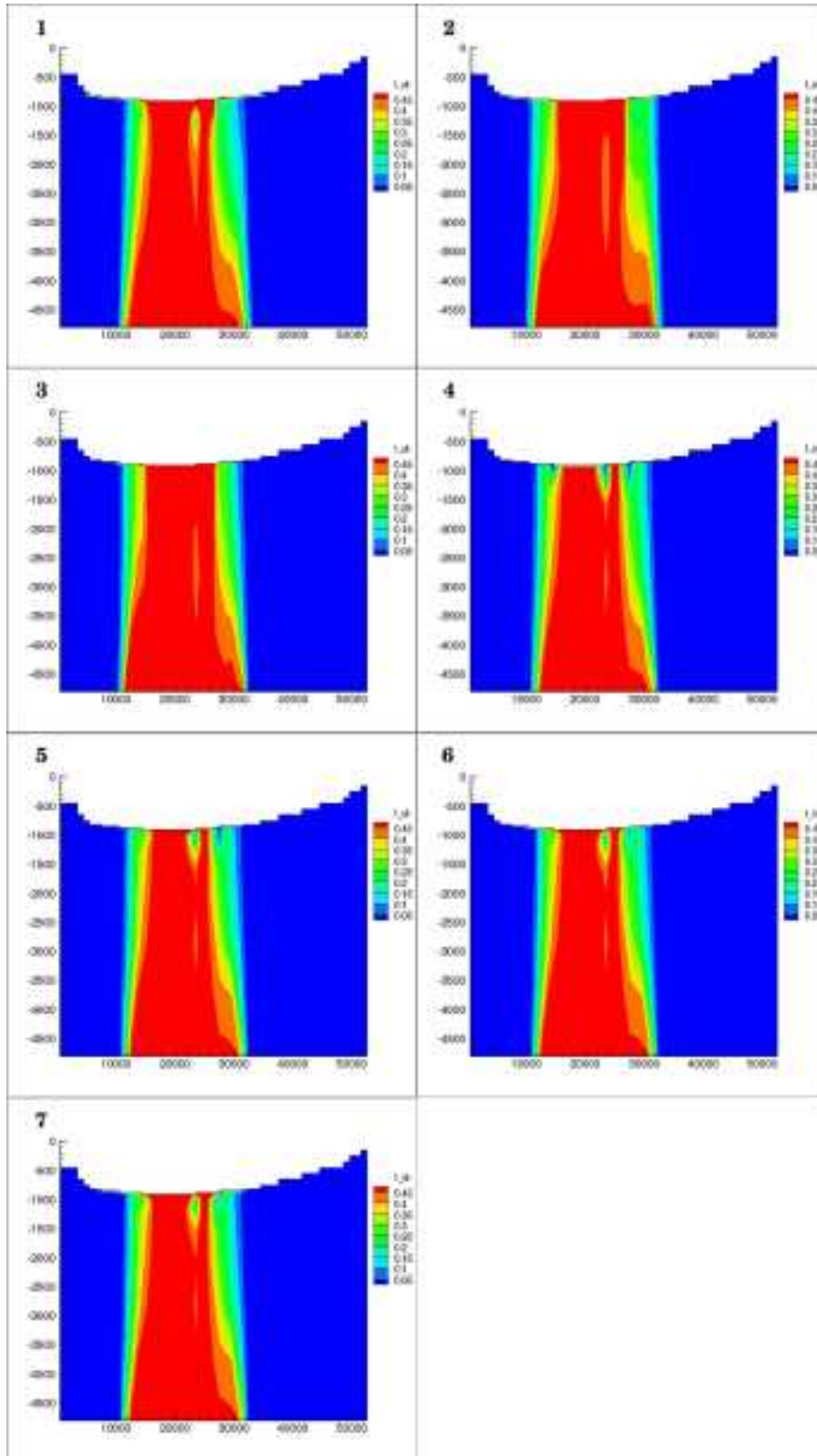


図 2.1.4.1-6 21 サイクル目の各ステージ最後の全 Cl 濃度分布 (全体図).

単位: mol/kgw, 1: stage1 (234.6Ma), 2: stage2 (239.2Ma), 3: stage3 (243.0Ma), 4: stage4 (244.3Ma), 5: stage5 (244.7Ma), 6: stage6 (245.0Ma), 7: stage7 (245.1Ma).

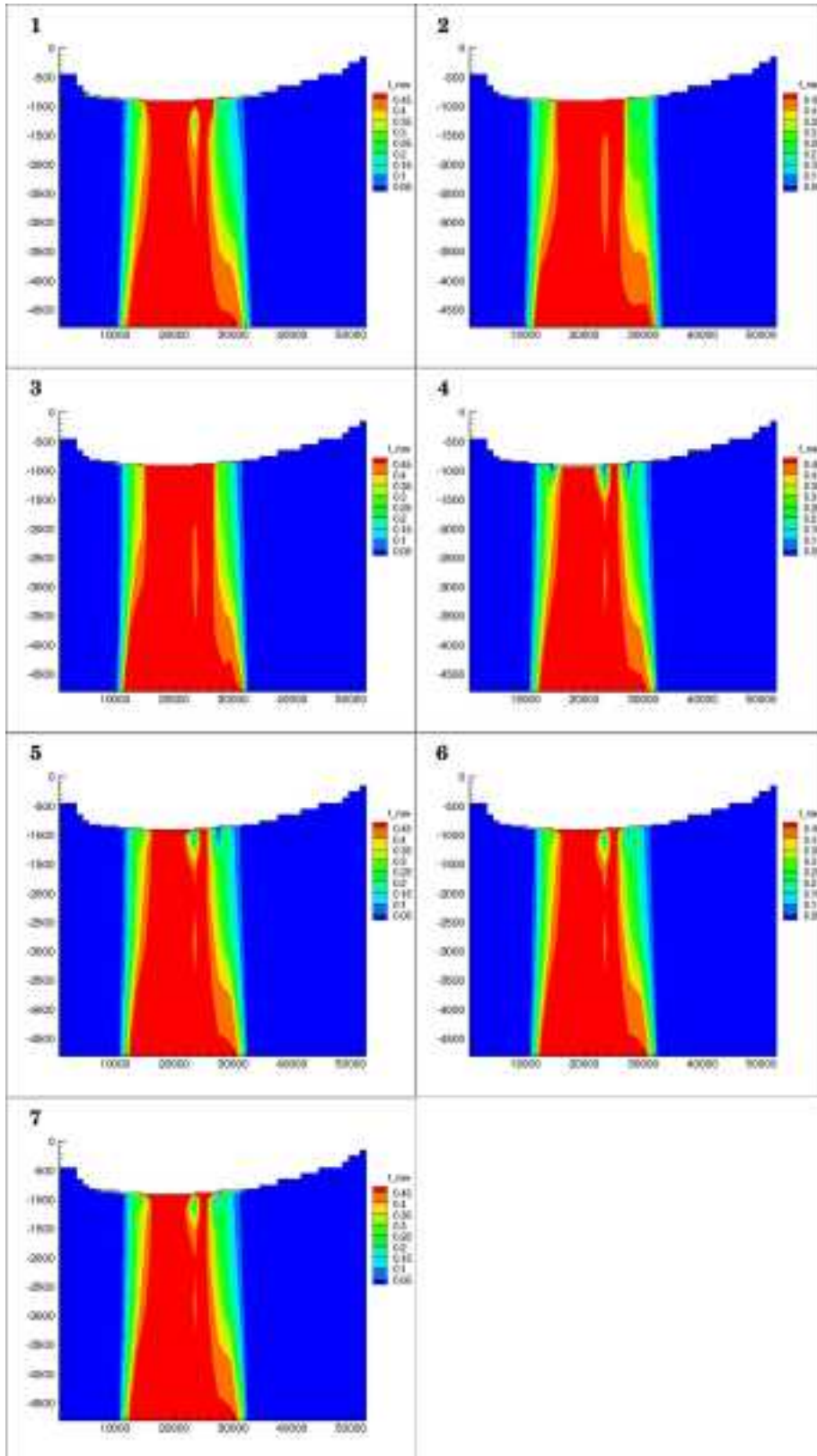


図 2.1.4.1-7 21 サイクル目の各ステージ最後の全 Na 濃度分布 (全体図).

単位: mol/kgw, 1: stage1 (234.6Ma), 2: stage2 (239.2Ma), 3: stage3 (243.0Ma), 4: stage4 (244.3Ma), 5: stage5 (244.7Ma), 6: stage6 (245.0Ma), 7: stage7 (245.1Ma).

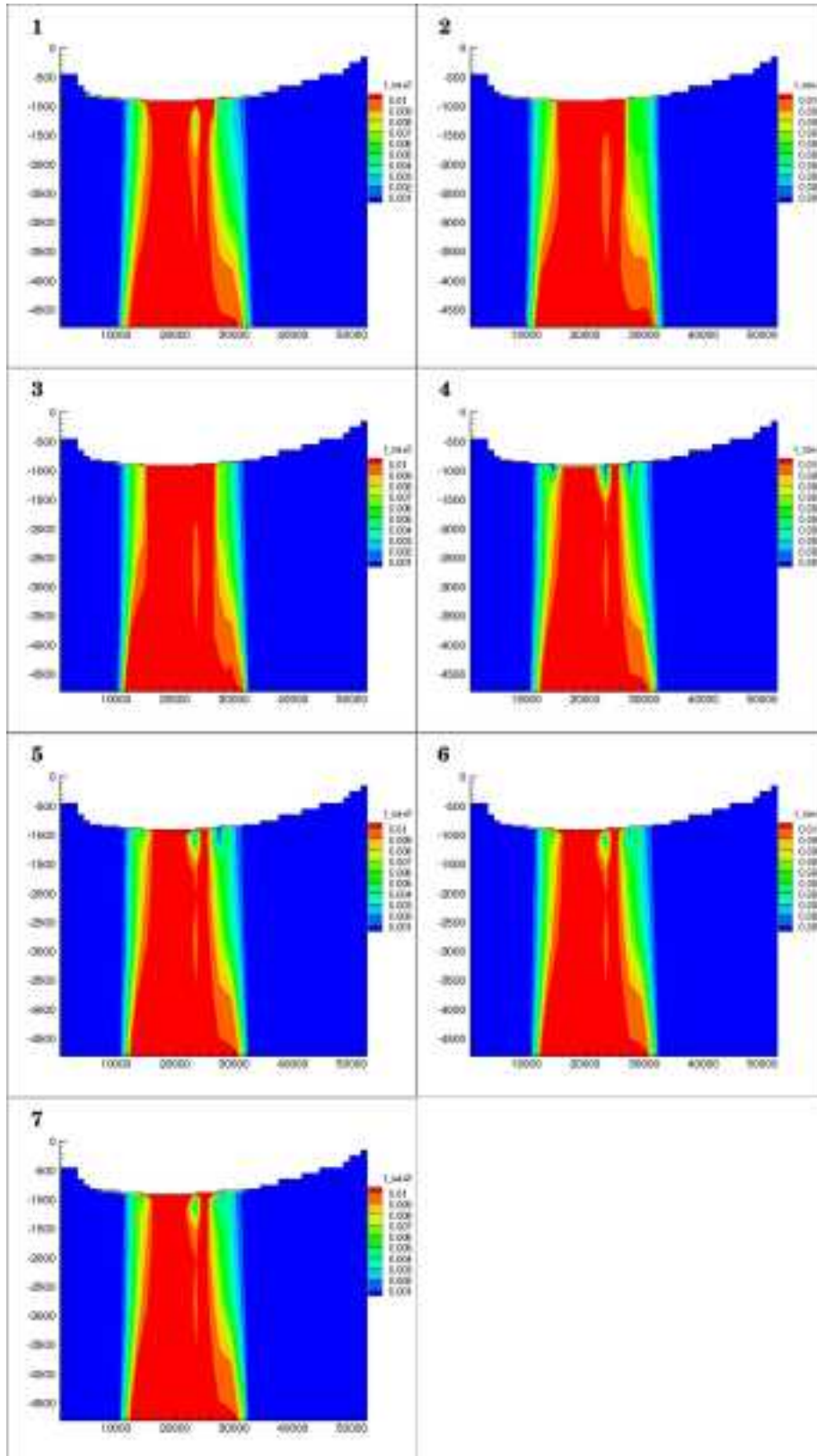


図 2.1.4.1-8 21 サイクル目の各ステージ最後の全 Ca 濃度分布 (全体図)。

単位: mol/kgw, 1: stage1 (234.6Ma), 2: stage2 (239.2Ma), 3: stage3 (243.0Ma), 4: stage4 (244.3Ma), 5: stage5 (244.7Ma), 6: stage6 (245.0Ma), 7: stage7 (245.1Ma)。

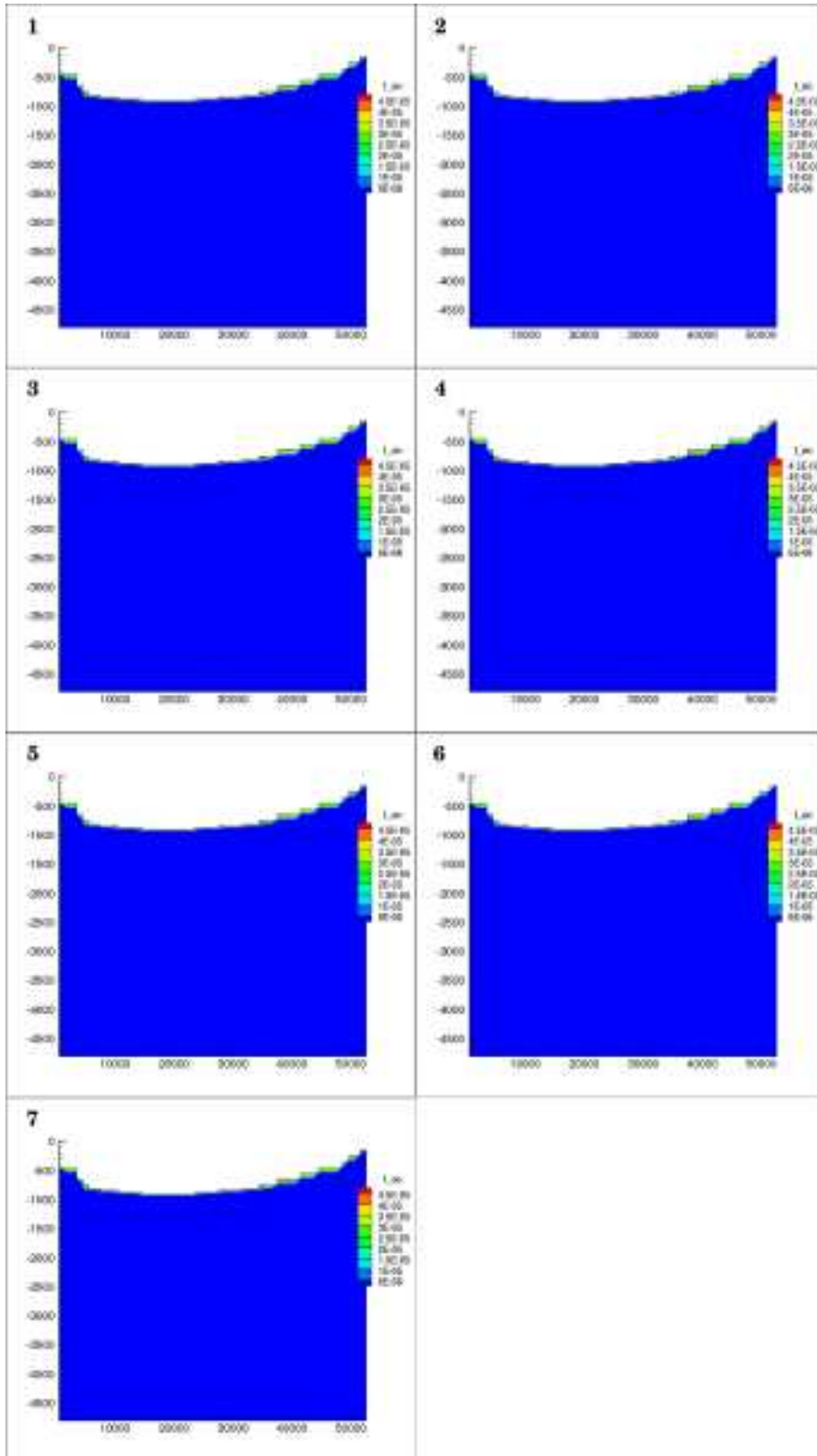


図 2.1.4.1-9 21 サイクル目の各ステージ最後の全 Ac 濃度分布 (全体図).

単位: mol/kgw, 1: stage1 (234.6Ma), 2: stage2 (239.2Ma), 3: stage3 (243.0Ma), 4: stage4 (244.3Ma), 5: stage5 (244.7Ma), 6: stage6 (245.0Ma), 7: stage7 (245.1Ma).

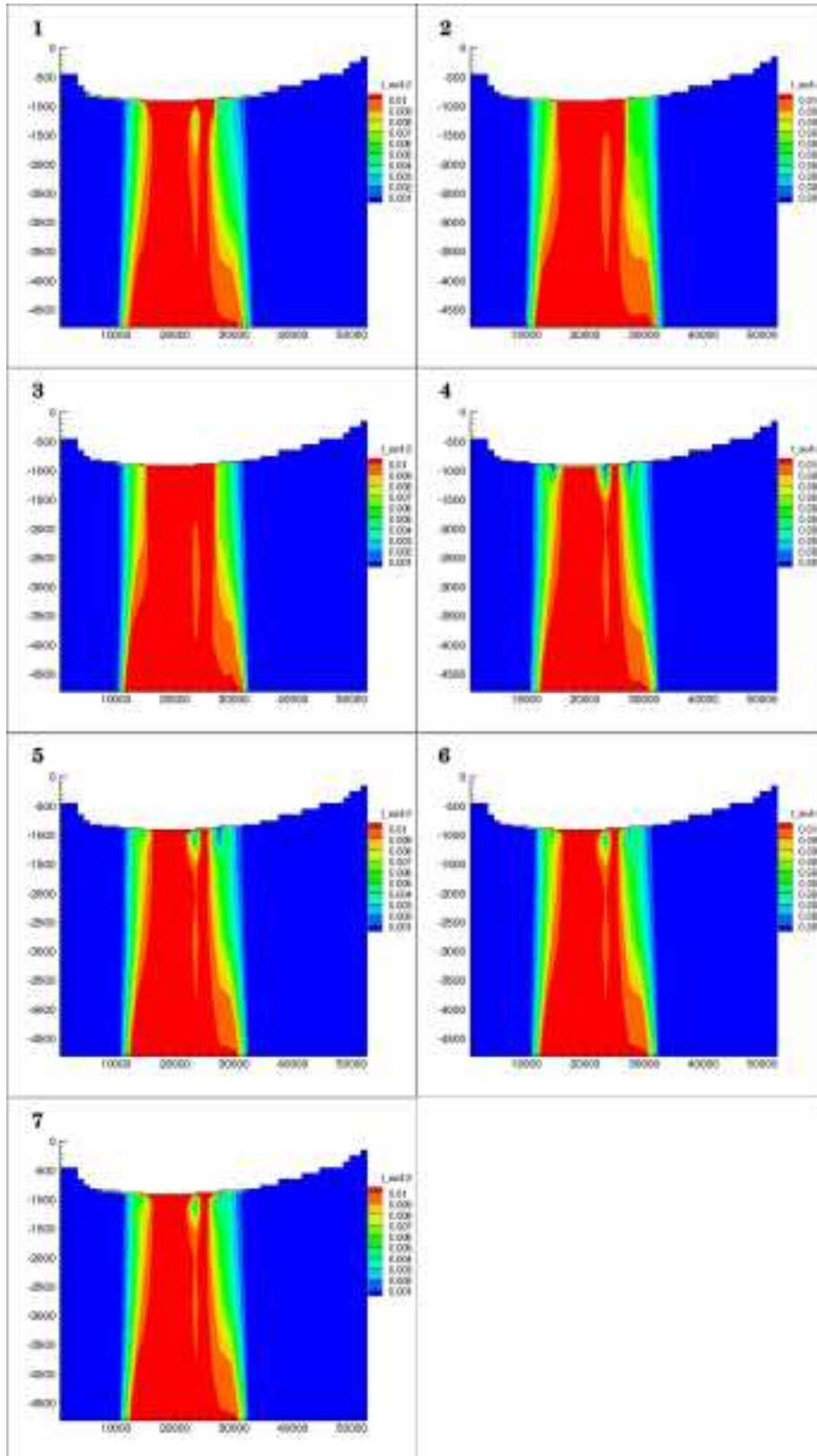


図 2.1.4.1-10 21 サイクル目の各ステージ最後の全 SO₄ 濃度分布 (全体図)。

単位: mol/kgw, 1: stage1 (234.6Ma), 2: stage2 (239.2Ma), 3: stage3 (243.0Ma), 4: stage4 (244.3Ma), 5: stage5 (244.7Ma), 6: stage6 (245.0Ma), 7: stage7 (245.1Ma)。

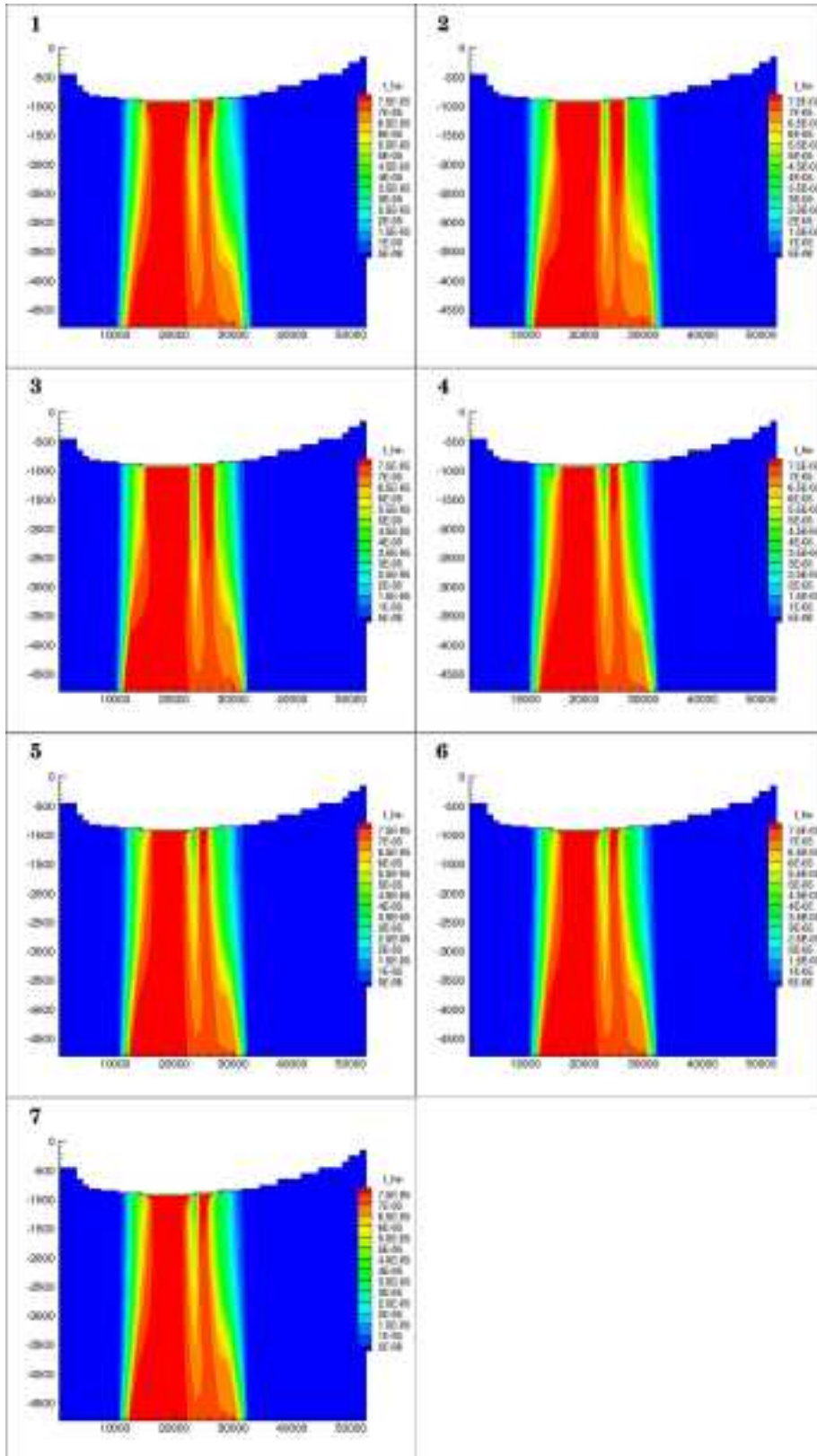


図2.1.4.1-11 21サイクル目の各ステージ最後の全HS濃度分布(全体図)。

単位: mol/kgw, 1: stage1 (234.6Ma), 2: stage2 (239.2Ma), 3: stage3 (243.0Ma), 4: stage4 (244.3Ma), 5: stage5 (244.7Ma), 6: stage6 (245.0Ma), 7: stage7 (245.1Ma)。

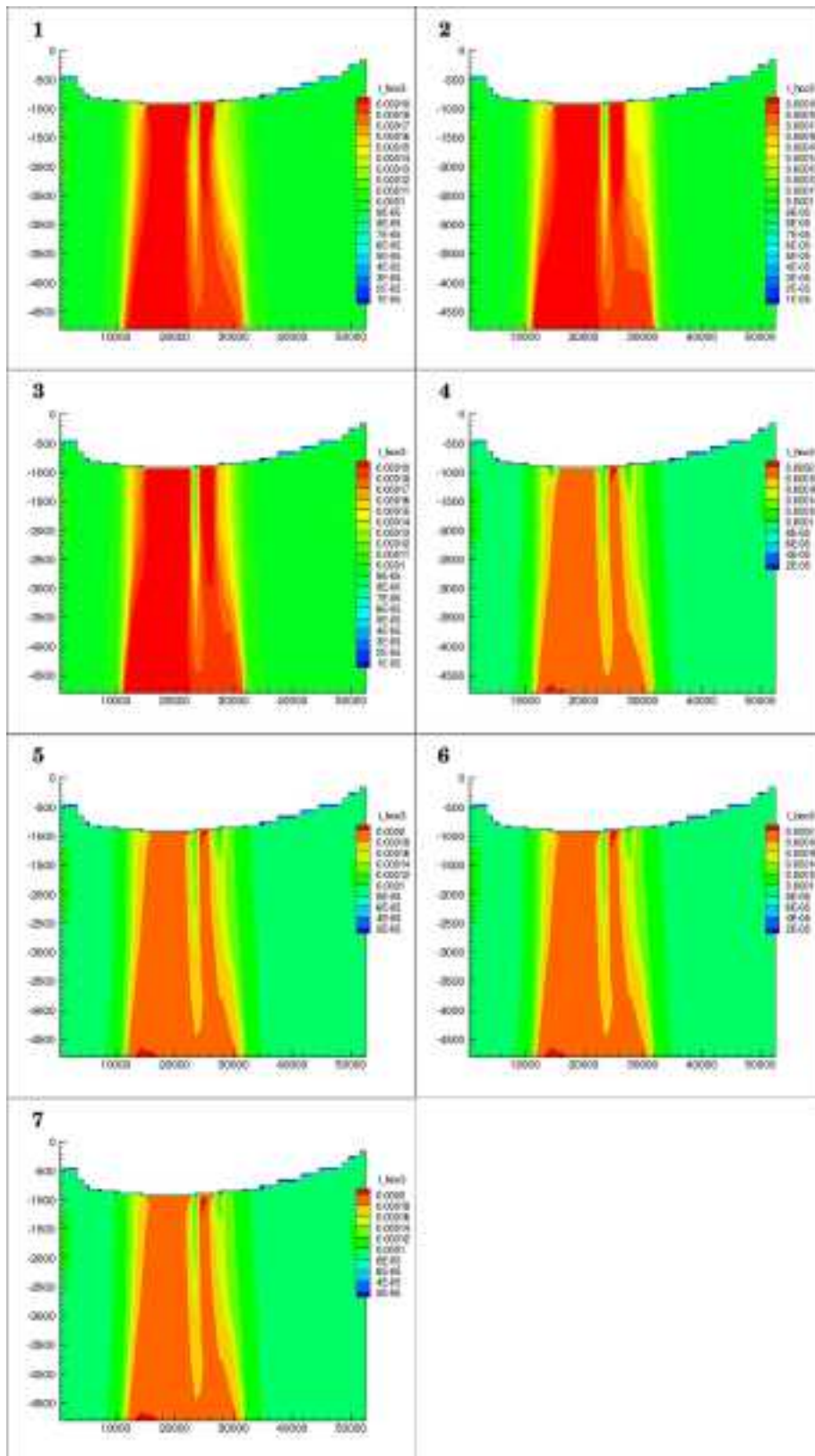


図 2.1.4.1-12 21 サイクル目の各ステージ最後の全 HCO_3^- 濃度分布 (全体図).

単位: mol/kgw, 1: stage1 (234.6Ma), 2: stage2 (239.2Ma), 3: stage3 (243.0Ma), 4: stage4 (244.3Ma), 5: stage5 (244.7Ma), 6: stage6 (245.0Ma), 7: stage7 (245.1Ma).

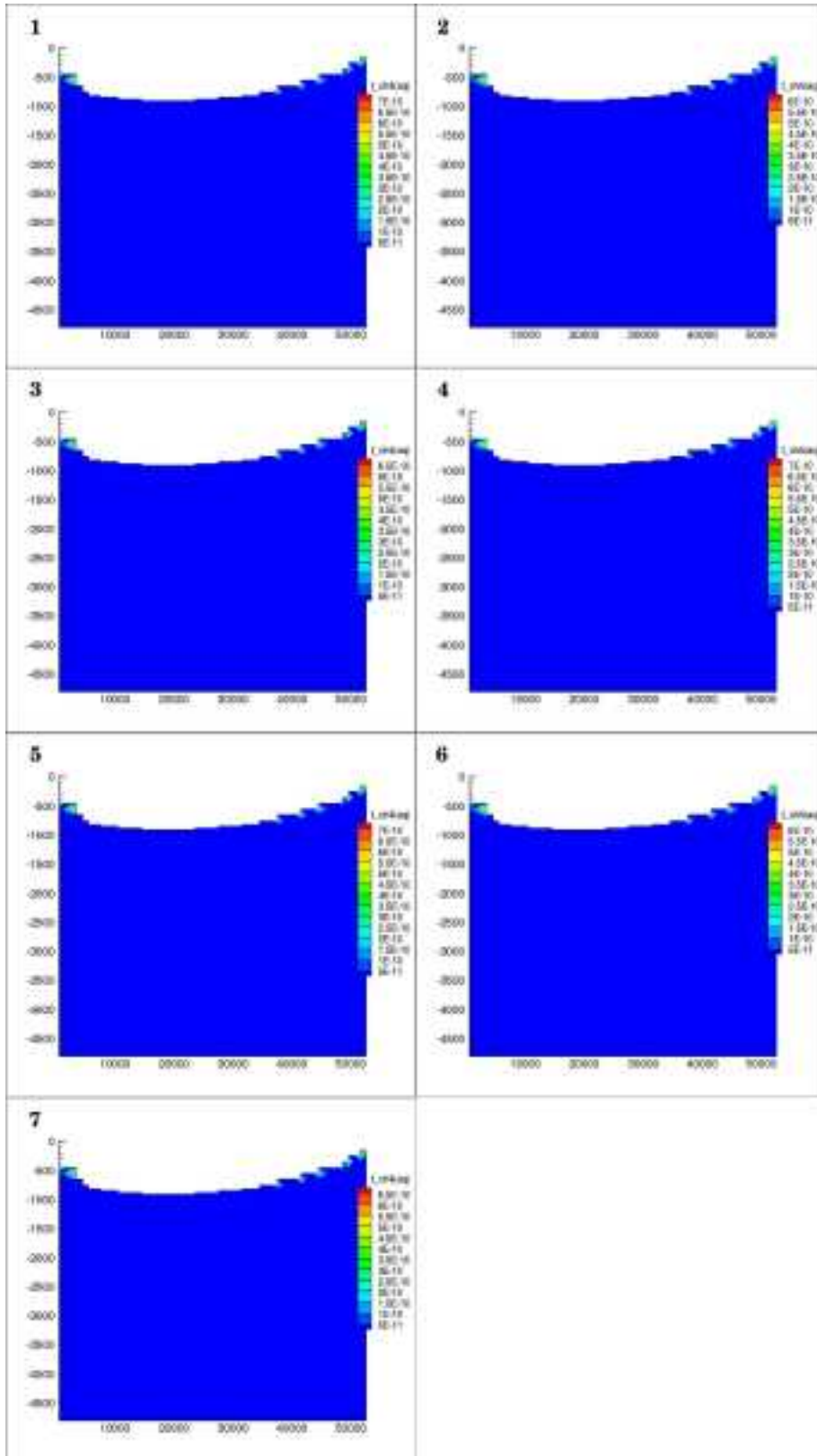


図 2.1.4.1-13 21 サイクル目の各ステージ最後の全 CH₄ 濃度分布 (全体図)。

単位: mol/kgw, 1: stage1 (234.6Ma), 2: stage2 (239.2Ma), 3: stage3 (243.0Ma), 4: stage4 (244.3Ma), 5: stage5 (244.7Ma), 6: stage6 (245.0Ma), 7: stage7 (245.1Ma)。

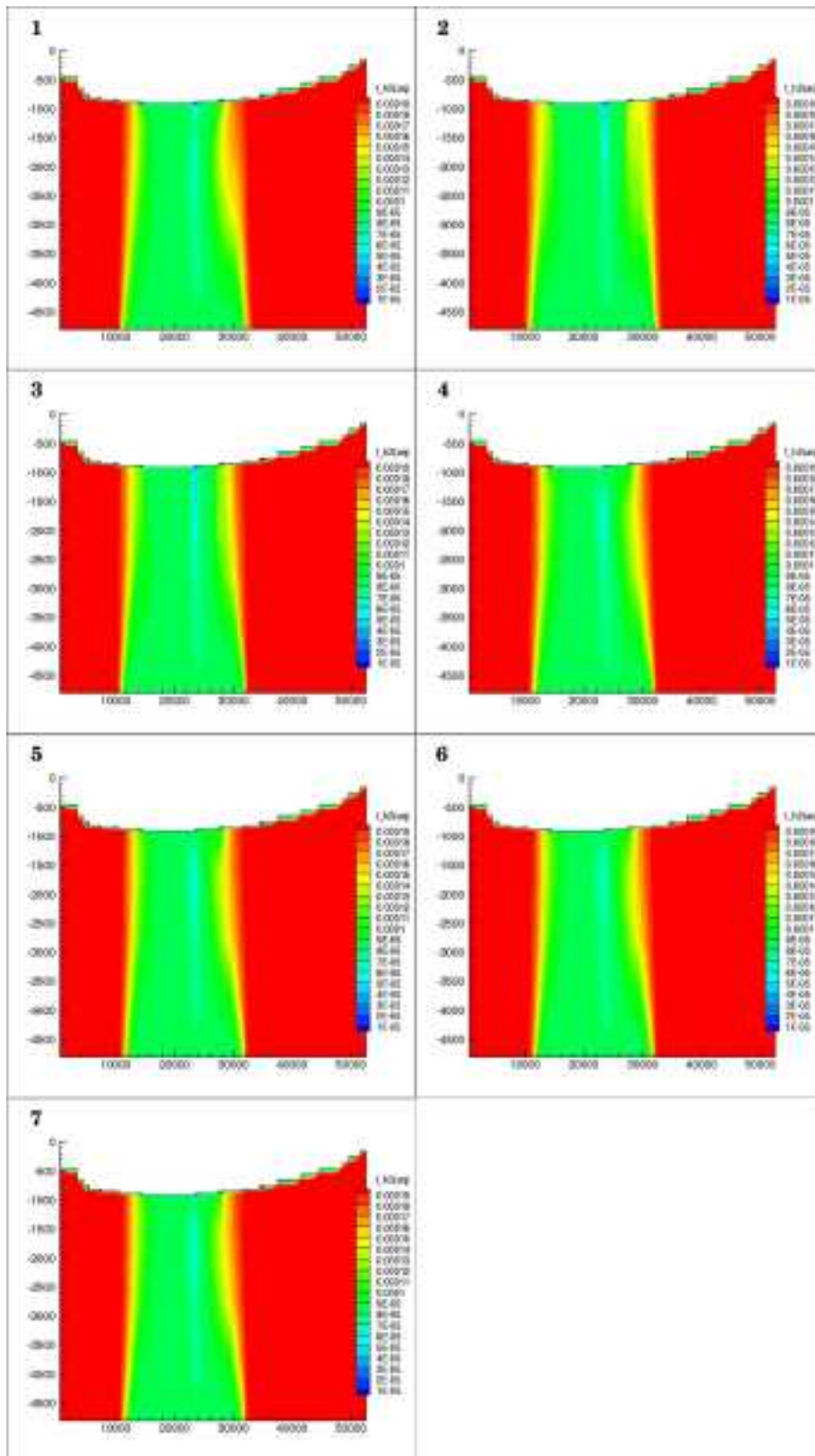


図 2.1.4.1-14 21 サイクル目の各ステージ最後の全 H₂ 濃度分布 (全体図).

単位: mol/kgw, 1: stage1 (234.6Ma), 2: stage2 (239.2Ma), 3: stage3 (243.0Ma), 4: stage4 (244.3Ma), 5: stage5 (244.7Ma), 6: stage6 (245.0Ma), 7: stage7 (245.1Ma).

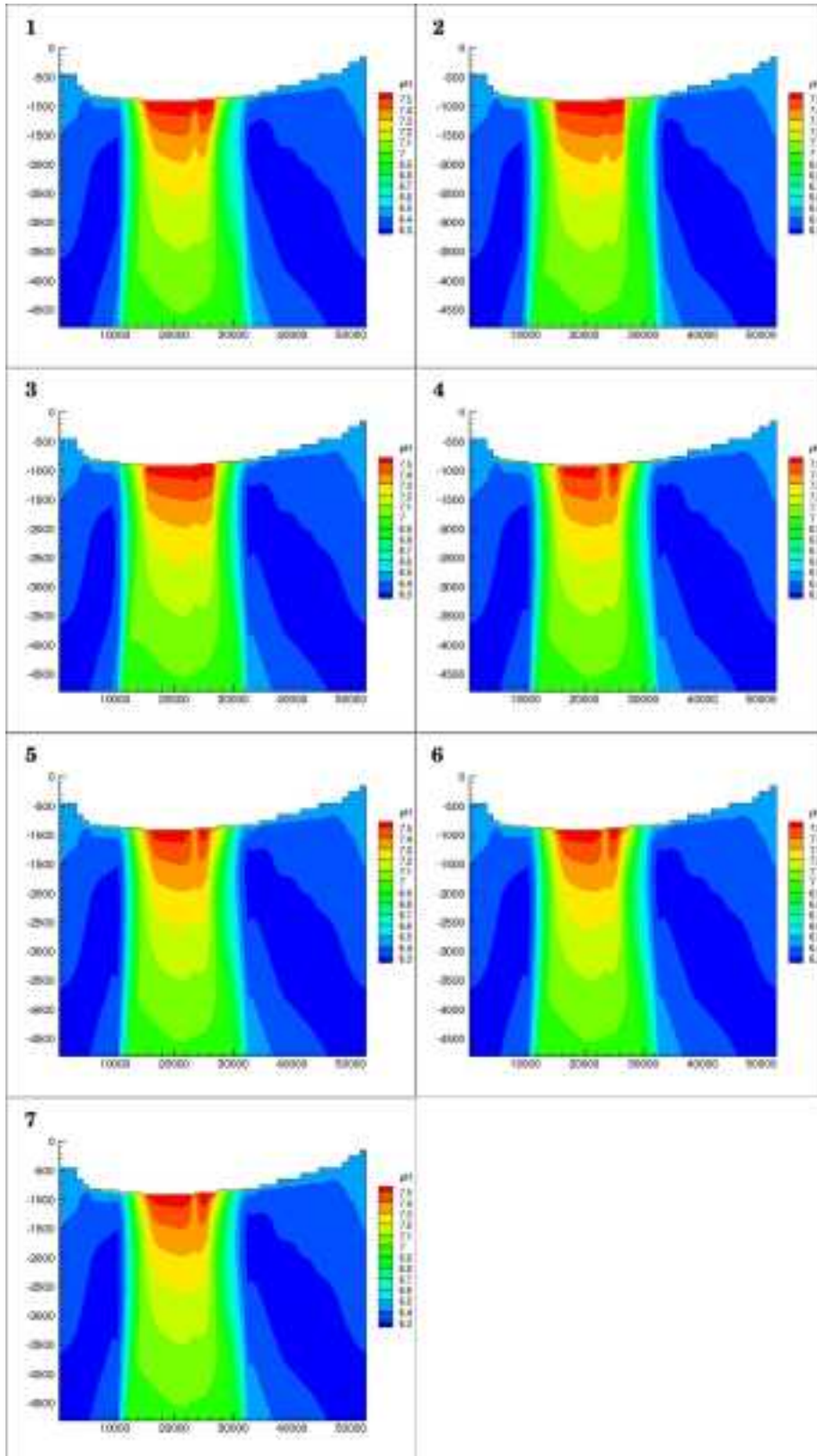


図2.1.4.1-15 21サイクル目の各ステージ最後のpH分布(全体図).

1: stage1 (234.6Ma), 2: stage2 (239.2Ma), 3: stage3 (243.0Ma), 4: stage4 (244.3Ma), 5: stage5 (244.7Ma), 6: stage6 (245.0Ma), 7: stage7 (245.1Ma)

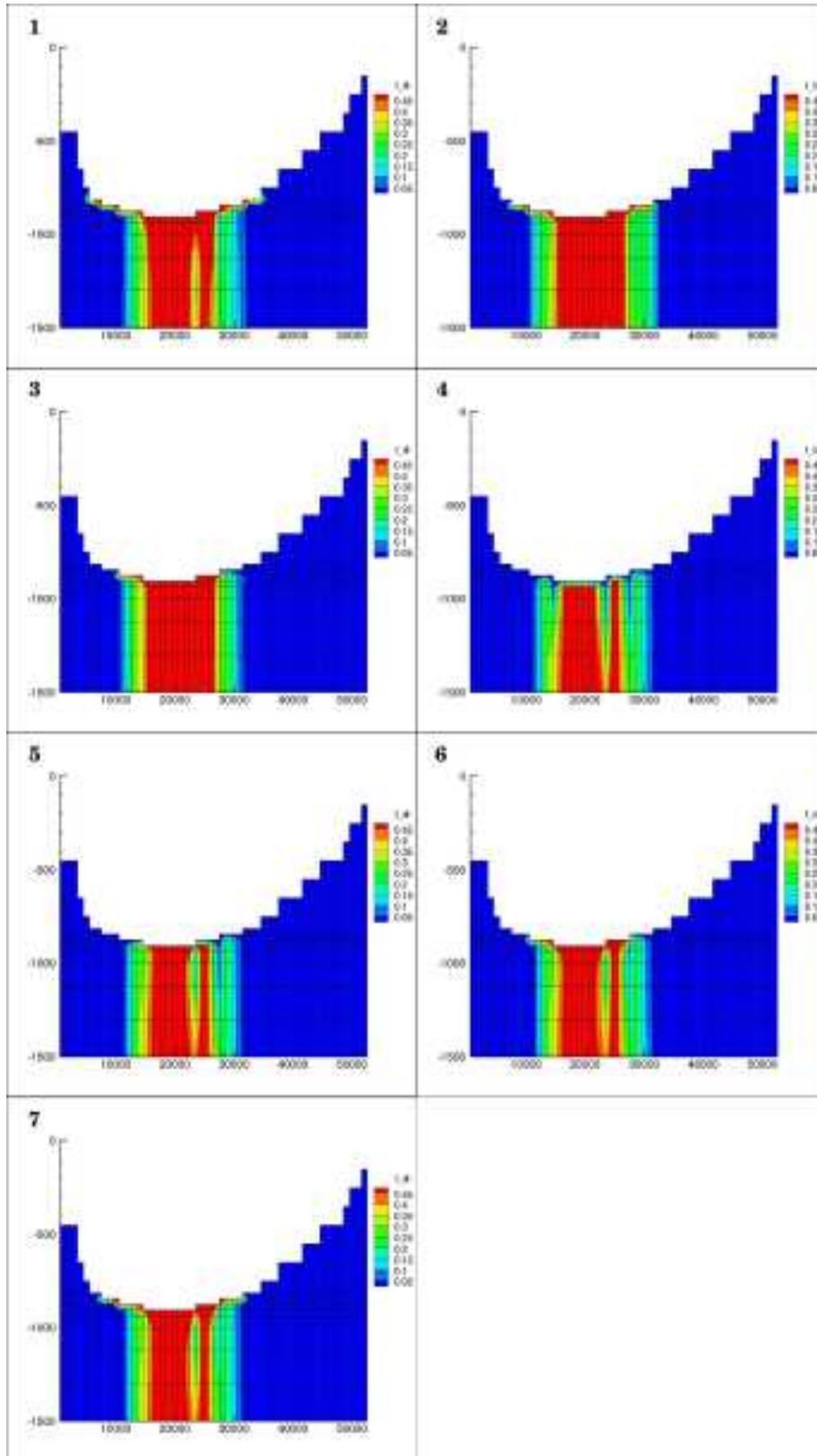


図 2.1.4.1-16 21 サイクル目の各ステージ最後の全 Cl 濃度分布 (拡大図).

単位: mol/kgw, 1: stage1 (234.6Ma), 2: stage2 (239.2Ma), 3: stage3 (243.0Ma), 4: stage4 (244.3Ma), 5: stage5 (244.7Ma), 6: stage6 (245.0Ma), 7: stage7 (245.1Ma).

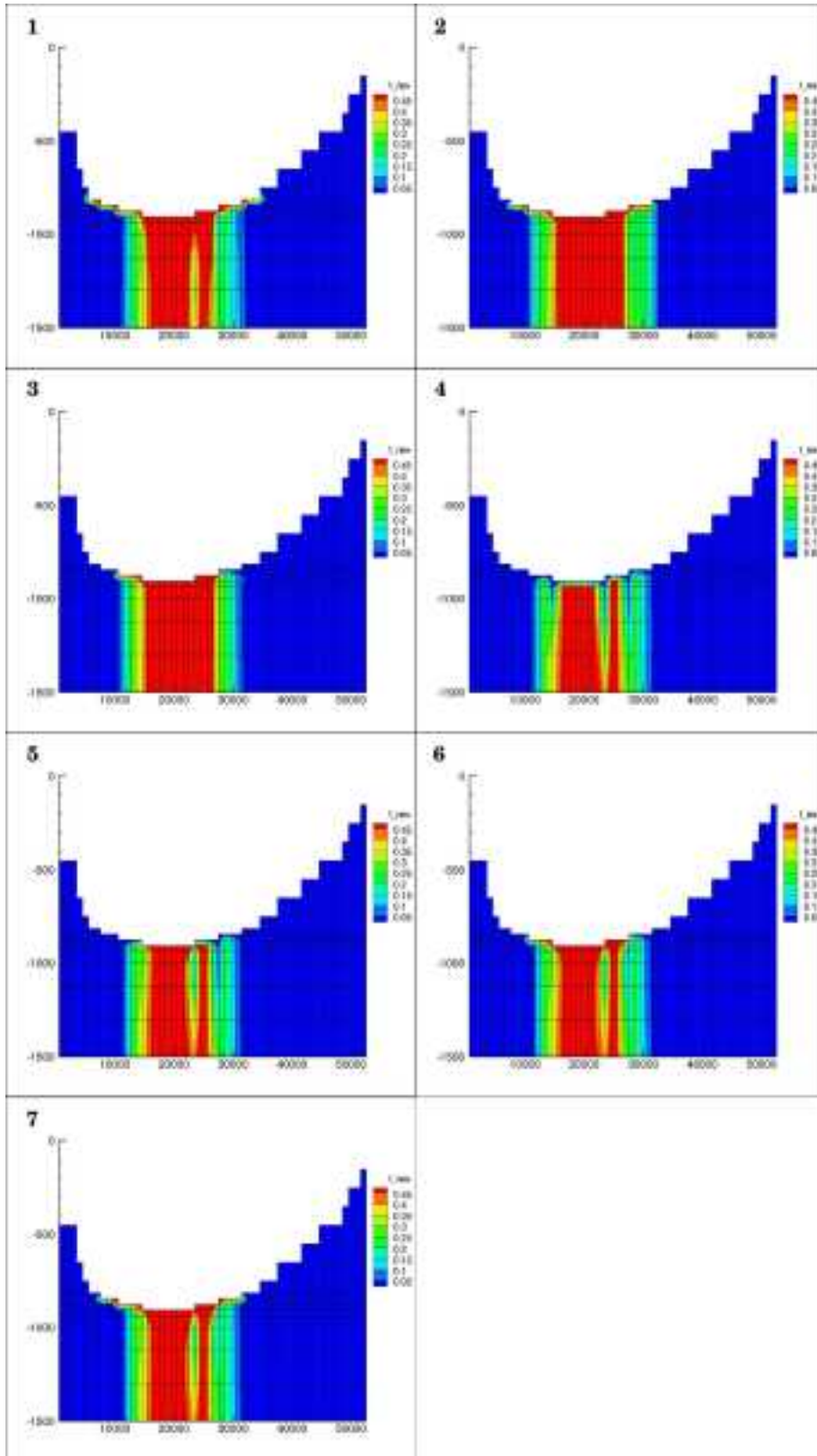


図 2.1.4.1-17 21 サイクル目の各ステージ最後の全 Na 濃度分布 (拡大図)。

単位: mol/kgw, 1: stage1 (234.6Ma), 2: stage2 (239.2Ma), 3: stage3 (243.0Ma), 4: stage4 (244.3Ma), 5: stage5 (244.7Ma), 6: stage6 (245.0Ma), 7: stage7 (245.1Ma)。

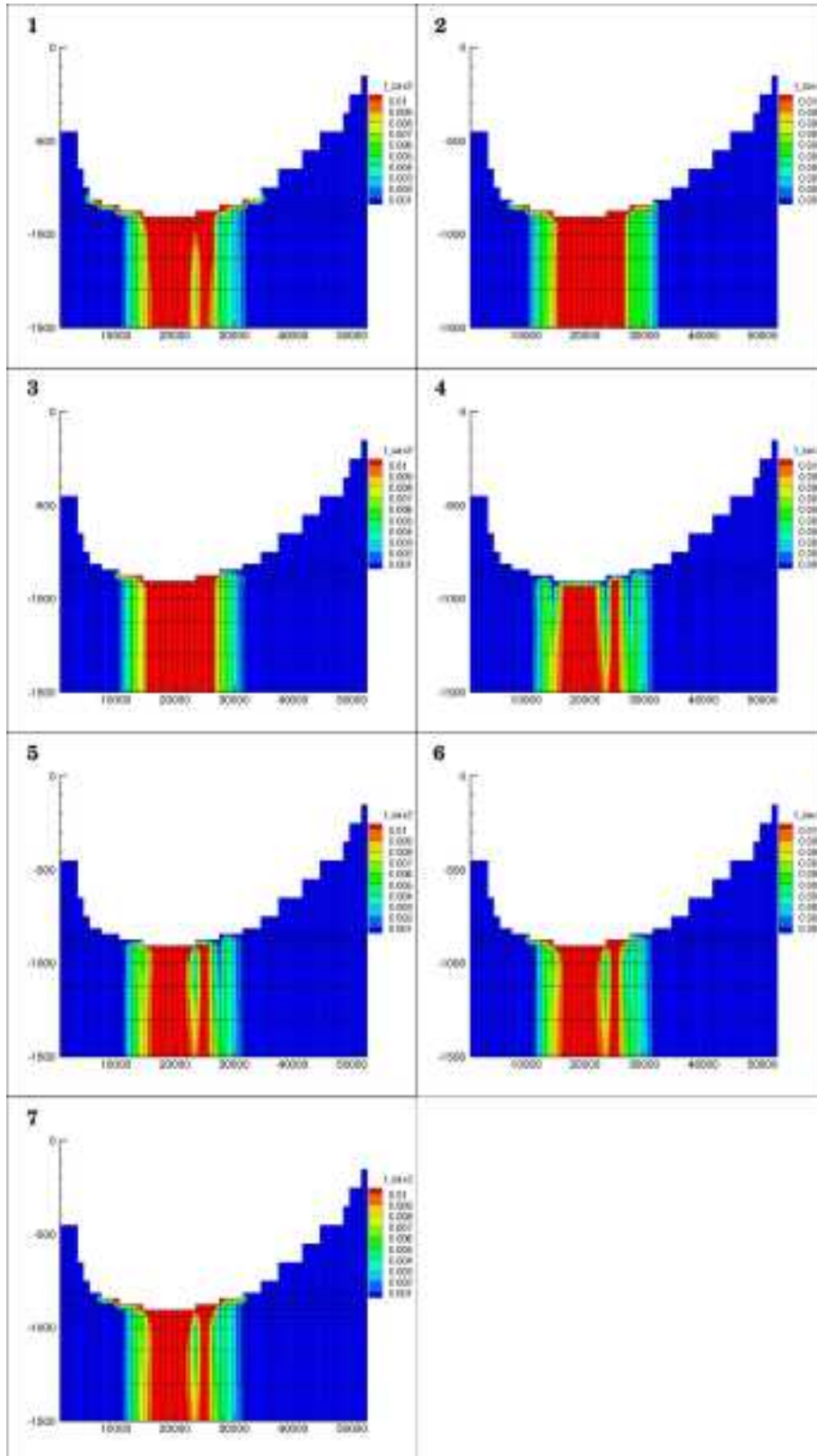


図2.1.4.1-18 21サイクル目の各ステージ最後の全Ca濃度分布(拡大図)。

単位: mol/kgw, 1: stage1 (234.6Ma), 2: stage2 (239.2Ma), 3: stage3 (243.0Ma), 4: stage4 (244.3Ma), 5: stage5 (244.7Ma), 6: stage6 (245.0Ma), 7: stage7 (245.1Ma)。

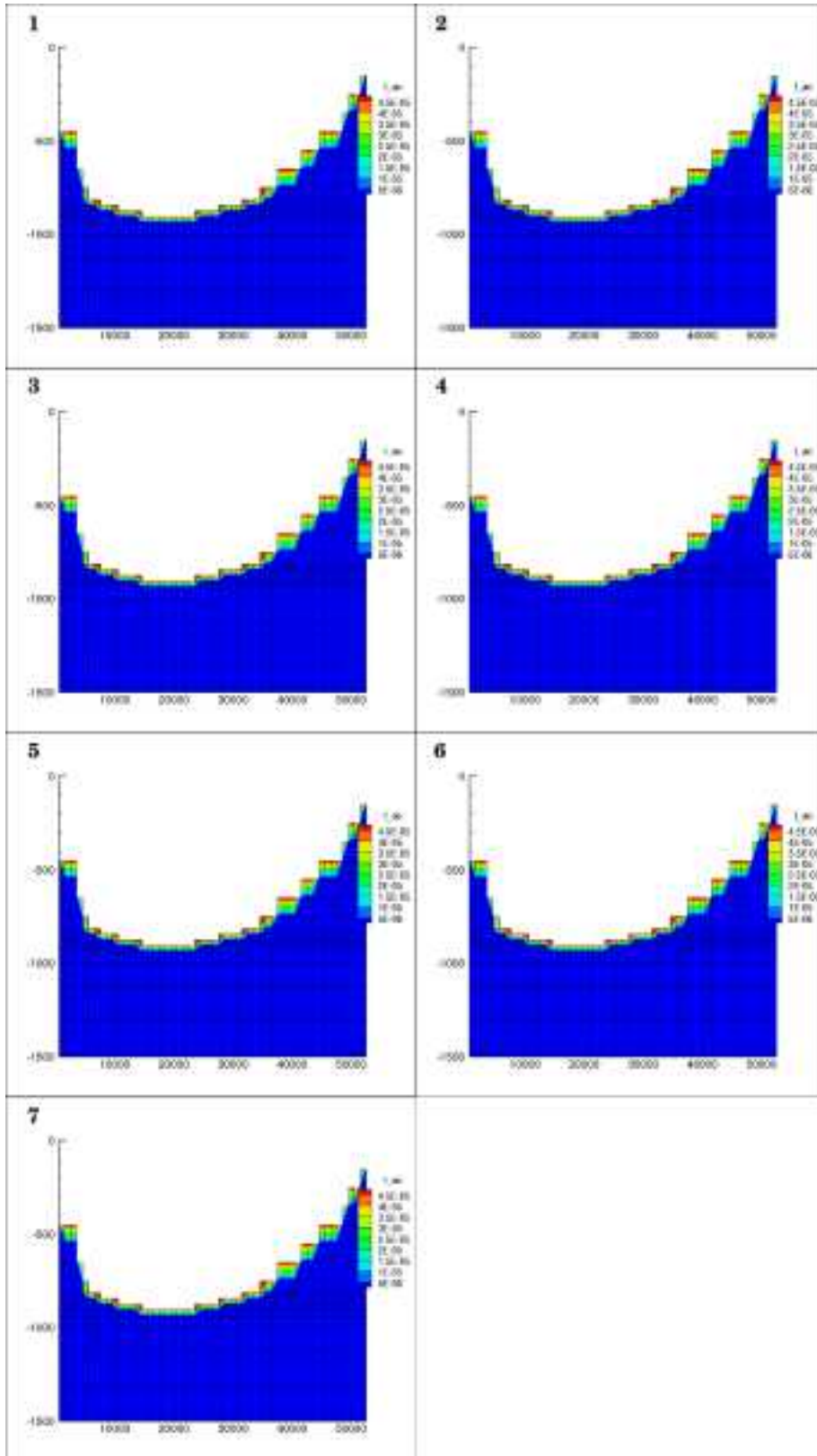


図2.1.4.1-19 21サイクル目の各ステージ最後の全Ac濃度分布(拡大図).

単位: mol/kgw, 1: stage1 (234.6Ma), 2: stage2 (239.2Ma), 3: stage3 (243.0Ma), 4: stage4 (244.3Ma), 5: stage5 (244.7Ma), 6: stage6 (245.0Ma), 7: stage7 (245.1Ma).

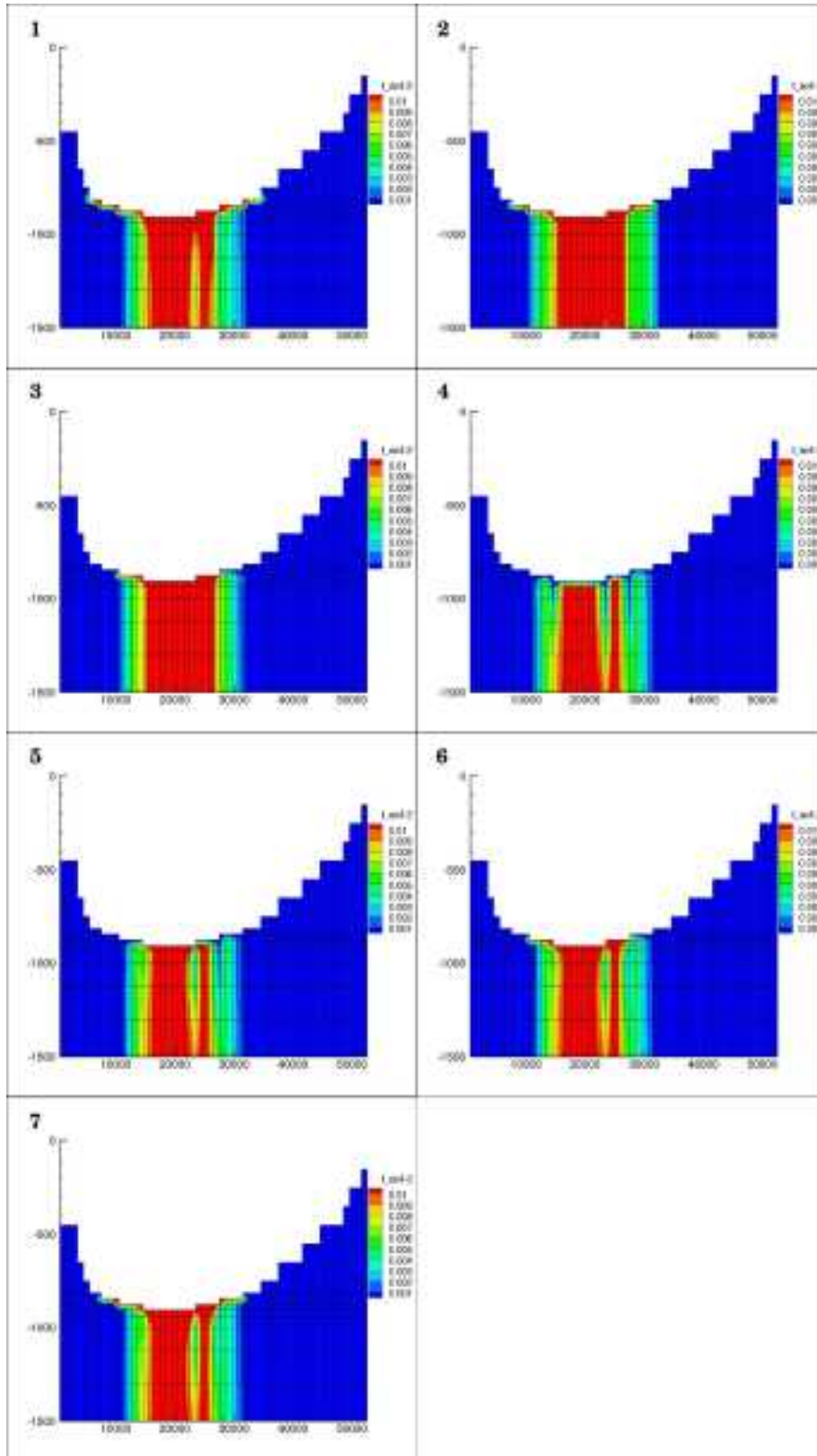


図 2.1.4.1-20 21 サイクル目の各ステージ最後の全 SO₄ 濃度分布 (拡大図)。

単位: mol/kgw, 1: stage1 (234.6Ma), 2: stage2 (239.2Ma), 3: stage3 (243.0Ma), 4: stage4 (244.3Ma), 5: stage5 (244.7Ma), 6: stage6 (245.0Ma), 7: stage7 (245.1Ma)。

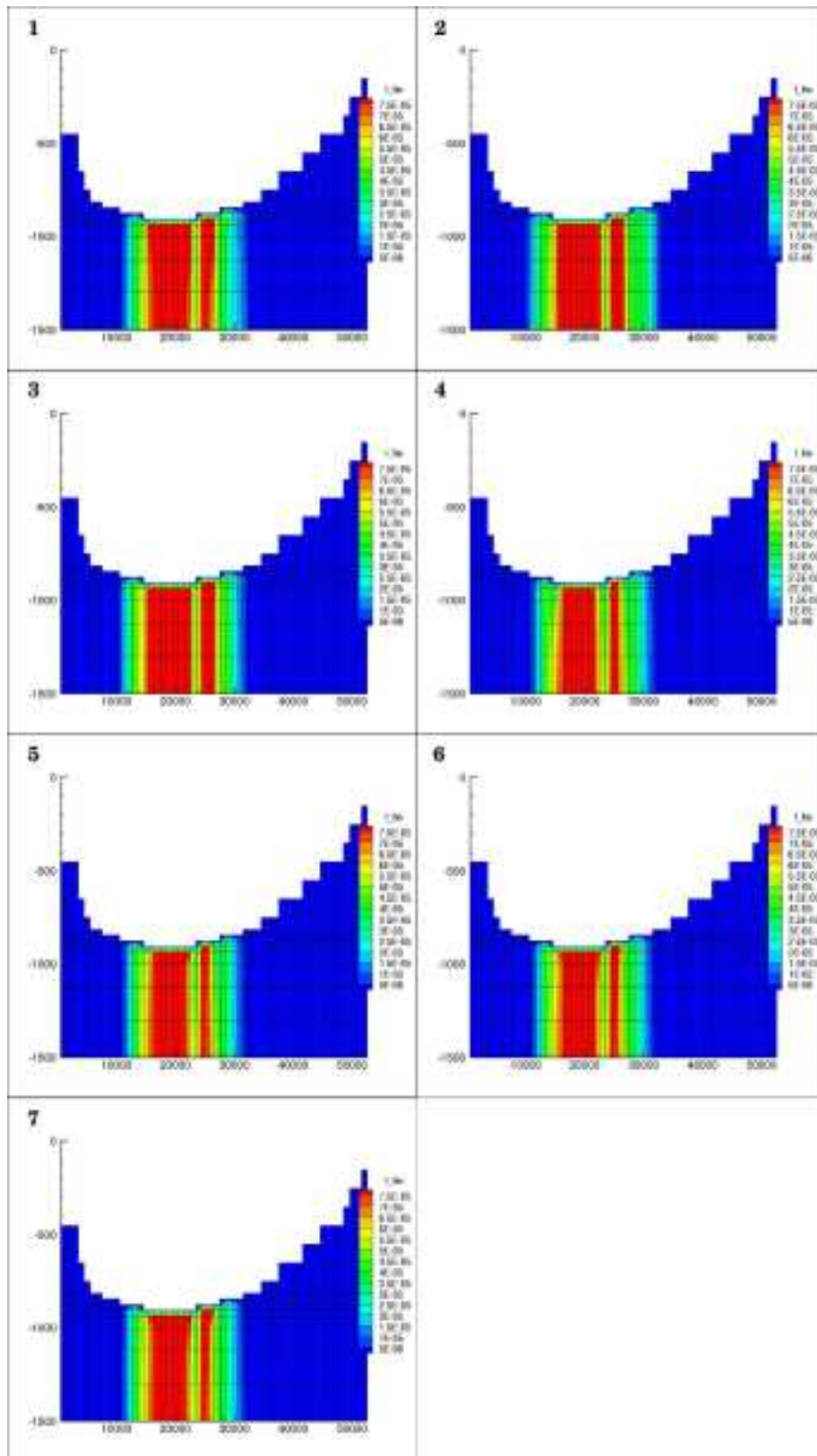


図2.1.4.1-21 21サイクル目の各ステージ最後の全HS濃度分布(拡大図).

単位: mol/kgw, 1: stage1 (234.6Ma), 2: stage2 (239.2Ma), 3: stage3 (243.0Ma), 4: stage4 (244.3Ma), 5: stage5 (244.7Ma), 6: stage6 (245.0Ma), 7: stage7 (245.1Ma).

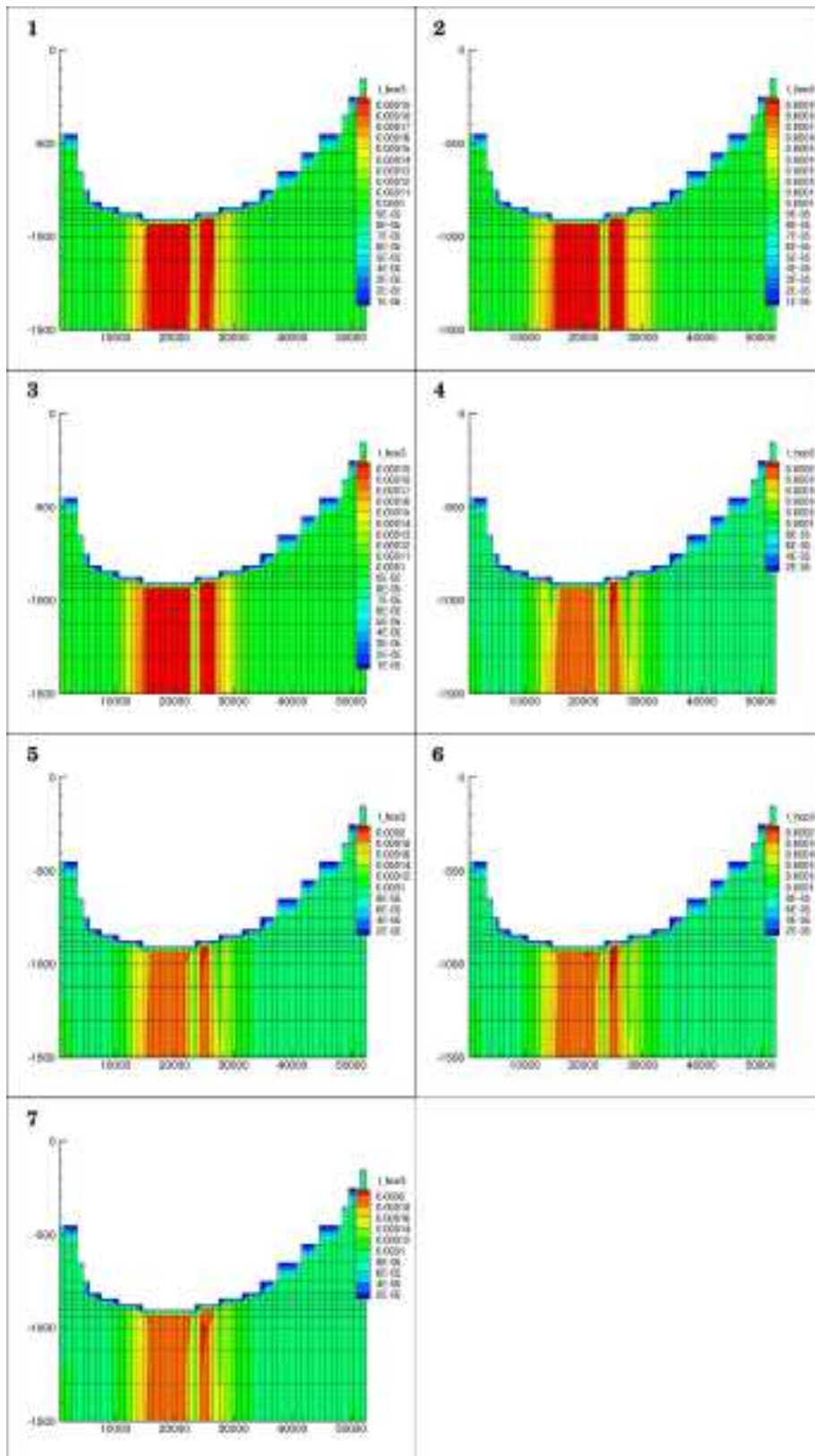


図 2.1.4.1-22 21 サイクル目の各ステージ最後の全 HCO_3^- 濃度分布 (拡大図).

単位: mol/kgw, 1: stage1 (234.6Ma), 2: stage2 (239.2Ma), 3: stage3 (243.0Ma), 4: stage4 (244.3Ma), 5: stage5 (244.7Ma), 6: stage6 (245.0Ma), 7: stage7 (245.1Ma).

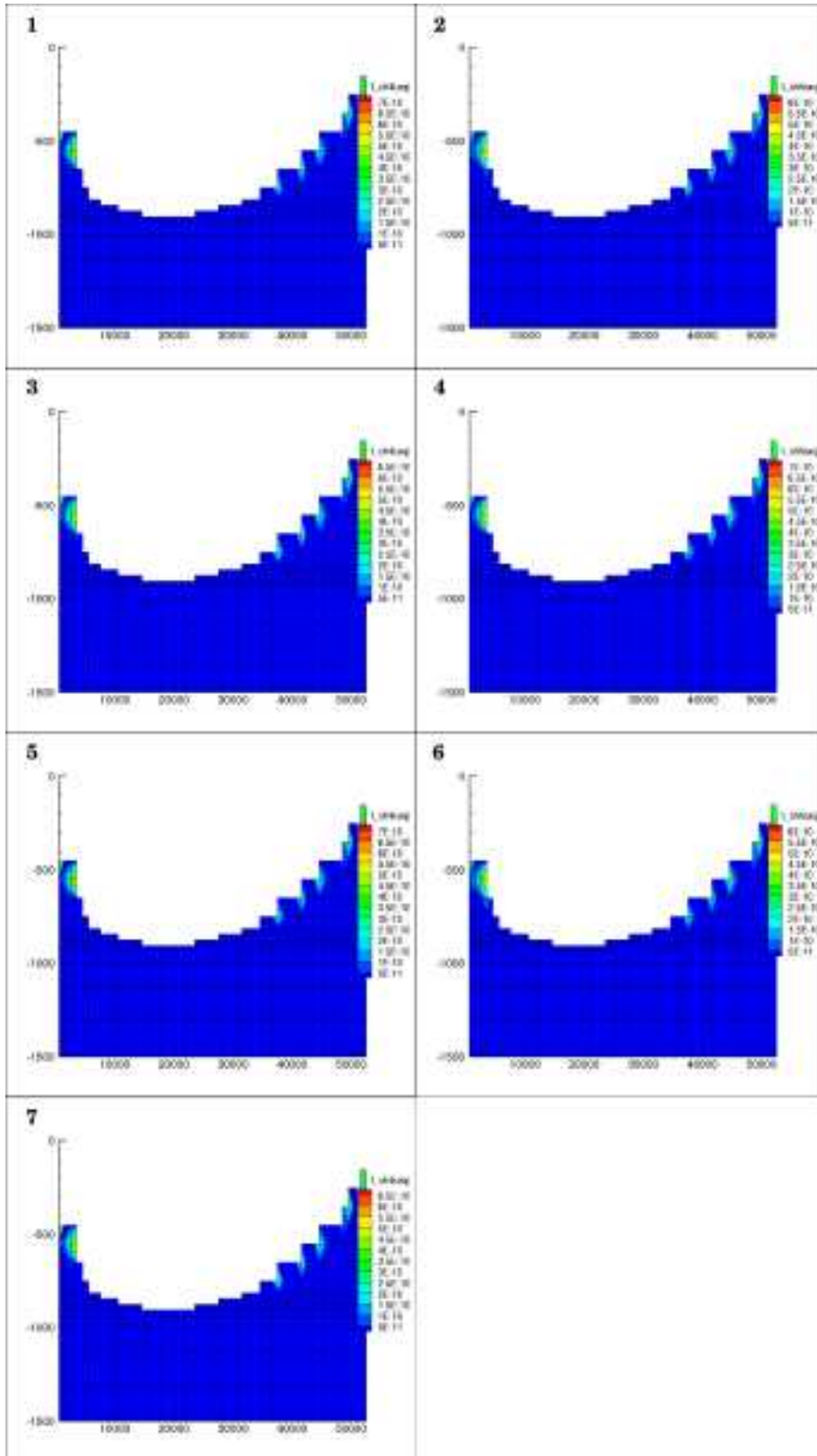


図 2.1.4.1-23 21 サイクル目の各ステージ最後の CH₄ 濃度分布 (拡大図).

単位: mol/kgw, 1: stage1 (234.6Ma), 2: stage2 (239.2Ma), 3: stage3 (243.0Ma), 4: stage4 (244.3Ma), 5: stage5 (244.7Ma), 6: stage6 (245.0Ma), 7: stage7 (245.1Ma).

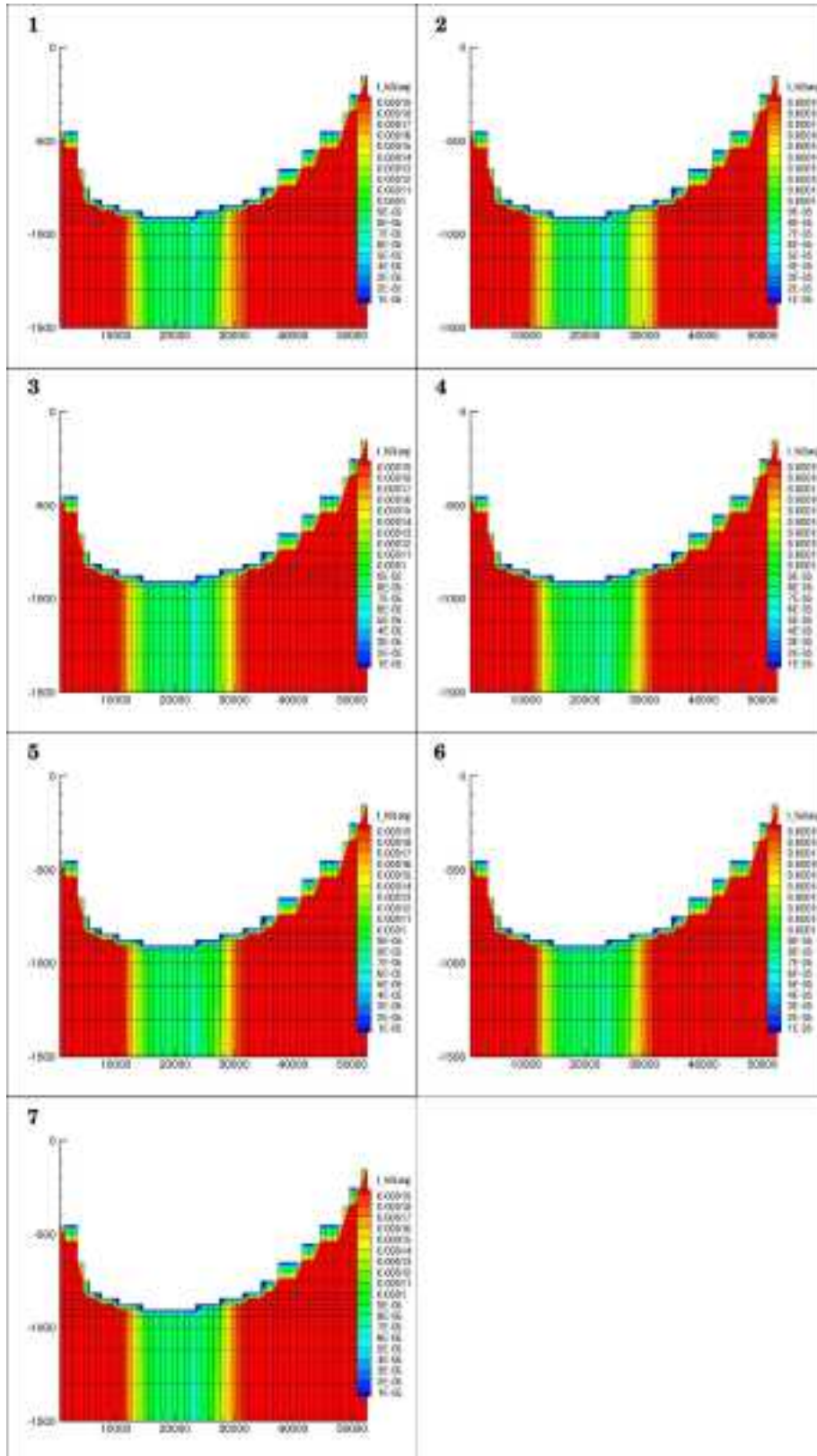


図 2.1.4.1-24 21 サイクル目の各ステージ最後の全 H₂ 濃度分布 (拡大図).

単位: mol/kgw, 1: stage1 (234.6Ma), 2: stage2 (239.2Ma), 3: stage3 (243.0Ma), 4: stage4 (244.3Ma), 5: stage5 (244.7Ma), 6: stage6 (245.0Ma), 7: stage7 (245.1Ma).

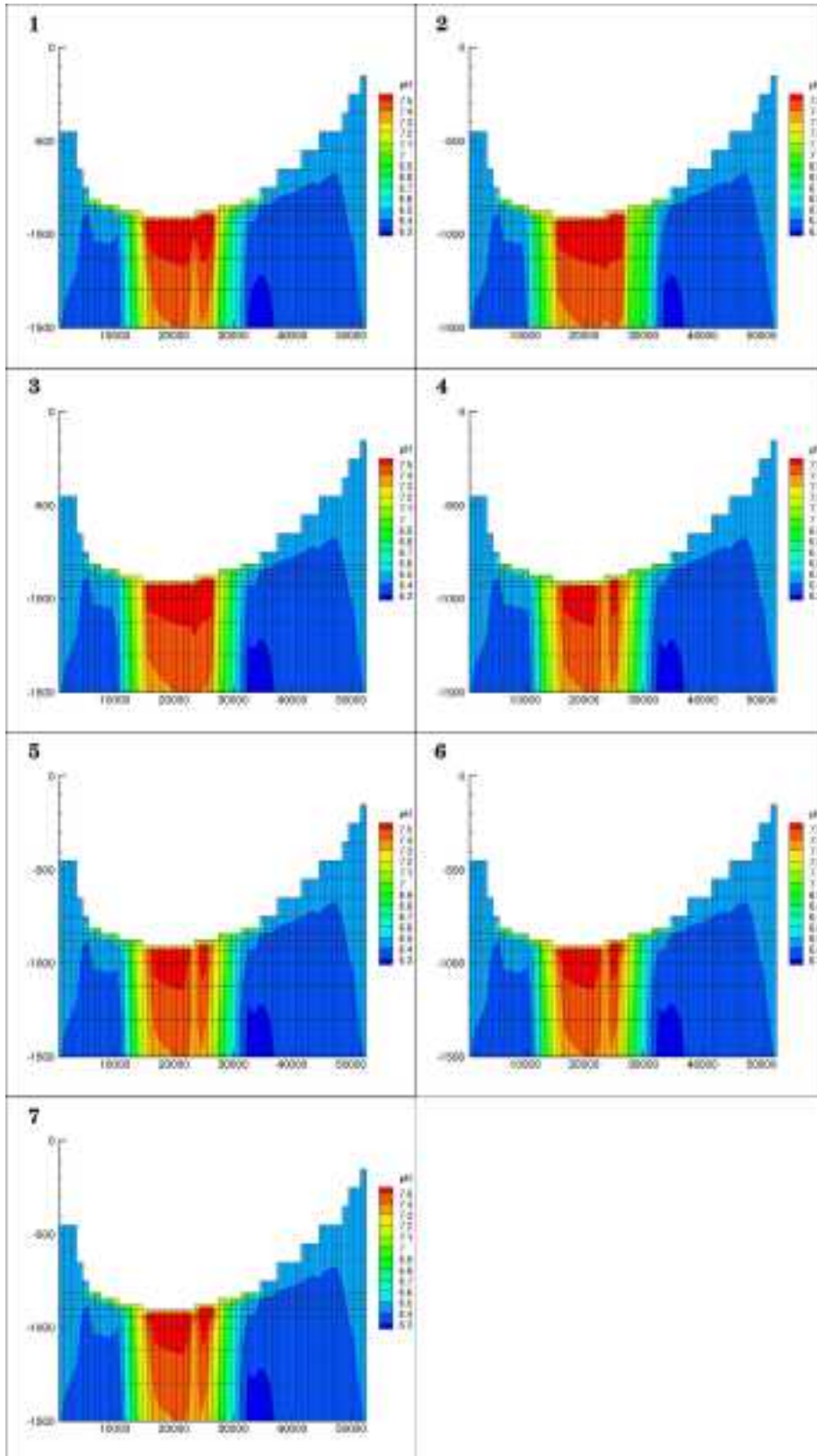


図 2.1.4.1-25 21 サイクル目の各ステージ最後の pH 分布 (拡大図).

1: stage1 (234.6Ma), 2: stage2 (239.2Ma), 3: stage3 (243.0Ma), 4: stage4 (244.3Ma), 5: stage5 (244.7Ma), 6: stage6 (245.0Ma), 7: stage7 (245.1Ma).

【まとめと今後の課題】

海底堆積物中の微生物反応にかかる先行研究をふまえて微生物のかかわる7種類の酸化還元反応を海水準変動によって海水と淡水が混合するような環境をモデル化してシミュレートした結果、硫酸還元のみを考慮した場合とかなり異なる結果を得た。これには考慮した反応が増えたことの影響のほか利用したパラメータを湖成堆積物から海底堆積物に変えたことも影響している。大きな違いは、酢酸が枯渇することとpHがアルカリから中性になったことである。微生物活動の影響と考えられる単純な混合パターンとは異なる濃度分布を示す成分の種類に変わりはないが、分布パターンには違いが認められ、より深部にまで影響が及ぶように見える。しかし、これまでの本課題への一連の取り組みで強調すべき点は、こうした変化の具体的内容より、考慮する反応やそれにかかるパラメータを見直すことにより結果が大きく左右されることである。微生物反応にかかるパラメータは実験的に決定せねばならないものが多く、それらの条件はサイトの環境に大きく依存するものであることは湖底堆積物と海底堆積物を用いた一連の計算結果の比較からもわかる。しかも本課題で必要とするような地層中の微生物活動にかかるパラメータは不十分であり、これからも継続的に処分環境と同等な環境で調査および実験によるデータの蓄積が課題であるといえる。

【引用文献】

- Curtis, G. P. (2003) Comparison of approaches for simulating reactive solute transport involving organic degradation reactions by multiple terminal electron acceptors. *Computers & Geosciences*, 29, no. 319-329.
- Dale, A. W., Regnier, P., Knab, N. J., Jorgensen, B. B. and Van Cappellen, P. (2008) Anaerobic oxidation of methane (AOM) in marine sediments from the Skagerrak (Denmark): II. Reaction-transport modeling. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 72, 2880-2894.
- Doe (1997) Handbook of methods for the analysis of the various parameters of the carbon dioxide system in sea water v.2.13.
- Jin, Q. and Bethke, C. (2005) Predicting the rate of microbial respiration in geochemical environments. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 69, no. 5, 1133-1143.
- Sengor, S. S., Spycher, N. F., Ginn, T. R., Sani, R. K. and Peyton, B. (2007) Biogeochemical reactive-diffusive transport of heavy metals in Lake Coeur d'Alene sediments. *Applied Geochemistry*, 22, 2569-2594.
- Xu, T., Spycher, N., Sonnenthal, E., Liange, Z. and Pruess, K. (2012) TOUGHREACT User's Guide: A simulation program for non-isothermal multiphase reactive transport in variably saturated geologic media, version 2.0. Earth Sciences Division, Lawrence Berkeley National Laboratory.

2.1.4.2 処分施設建設段階を考慮した水質変動解析

1) 研究の背景と目的

地下研究施設および地下処分場などの建設により長期にわたって還元的条件を維持してきた地下環境は酸素に晒されることになり、さらに地下水を通して拡散する酸素により酸化環境が拡大することが予想される。放射性廃棄物の地層処分を考慮した場合オーバーパックの健全性維持や放射性核種の溶解・拡散の低減には還元環境を維持することが望ましいと考えられている（例えば本田・谷口, 1999）。特に、地下施設操業終了後の埋戻し時に持ち込まれる酸素の消費にかかる期間、および拡散した酸素が岩盤の鉱物や水質に与える影響を評価することは、処分技術の確立の上で重要である。

還元領域に浸透した地下水中の酸素は、鉱物、有機物および微生物の反応で消費され、その後再び還元的な環境へと変化すると考えられる（吉田ほか, 2007）。特に、鉱物の中でも黄鉄鉱が主要な還元剤として挙げられ、溶存酸素の消費と還元的な環境の保持が期待されている。一方、微生物については、その存在量が注目されるようになって以来（Whitman *et al.*, 1998）、影響評価の重要性の高まりとともに、鉱物生成の挙動（ウラン鉱床の生成）（村上ほか, 2003）、コロイドとしての放射性核種の輸送への寄与（金井ほか, 2007）、水質と微生物との関連性（Fukuda *et al.*, 2010）、など、地層処分において微生物を考慮する重要性が指摘されている。

さらに、酸化還元状態の回復への寄与が重要であることから、原位置での反応機構を忠実に再現するべく、微生物反応を組み込んだ地球化学シミュレーションが実施されている。近年は、国内においても、速度論的解析を対象とした複数の解析モデルの構築が進められてきた（例えば福永, 2008）。モデルはいずれも Monod 式を基本とし、使用される電子受容体によって複数の微生物群集を設定する。電子供与体は有機物の最終分解物として酢酸、乳酸およびメタンなどが利用される。反応式の Monod 骨格に加え、例えば微生物影響評価コードである MINT においては、有機物の分解速度に見られる原位置と培養系との違いを難分解性係数「 Δ 」によって記述し、微生物反応全体のパラメータフィッティングを可能にしている（産業技術総合研究所, 2012）。また、PHREEQC を利用したモデルでは、熱力学的に有利な電子受容体を利用する微生物が下位の微生物群よりも優先的に活動するように、下位の代謝反応を抑制するための項が反応式に追加されている（日本原子力研究開発機構, 2010）。これらはいずれも 1 次元モデルの輸送解析であるため、2 次元以上のモデル中から特定の流路を抽出し、1 次元モデルとして下流域での解析を実施することによって、地下水中の微生物バイオマスおよび溶存イオン濃度の変化を追うことが可能である。

本研究では、微生物の速度論的解析を実施するツールとして、The Geochemist's Workbench (Aqueous Solutions LCC, IL) (Jin and Bethke, 2003) を使用した。当ツールは、微生物反応式に、地下水水質の変化に伴う熱力学的な制約を考慮する項が設定されており、これまでも帯水層における微生物反応シミュレーション（例えば Park *et al.*, 2009）でも利用され、原位置環境の再現および整合性の確認が行われている。また、二次元平面までの解析が可能であり、より原位置環境に則した輸送解析が可能であると考えられる。

そこで本研究では、これまでの研究によって多様なデータが蓄積されている瑞浪超深地層研究所を含む東濃地域の岩盤に関する情報に基づき、鉱物反応および微生物反応の酸素消費に対する寄与の大きさを比較することを目的として、廃棄体や緩衝材による埋戻しに伴う飽和・不飽和帯の生成について浸透流解析を実施した後、化学・微生物反応を考慮した水質変動シミュレーションを実施した。

2) 本研究で用いる数値モデル

本研究においては地下水の流速分布の評価について浸透流解析ソフトウェア G-TRAN/3D for Dtransu-3D・EL（以下 G-TRAN）を、地下水の生物学的および非生物学的に進行する化学反応については The Geochemist's Workbench (Aqueous Solutions LLC IL)（以下 GWB）を採用する。

GWBはイリノイ大学水文地質学研究室によって開発された地球化学計算ソフトウェアである。化学反応の計算に際しては既存の汎用的ソフトウェアであるPHREEQCなど同様の熱力学的データベースを搭載している上に解析に応じて化学種や酸化還元反応を追加・修正することも可能である。微生物反応に関する解析モデルは主にJin and Bethke (2003)の提唱する微生物代謝理論に基づいて開発・改良が進められてきた。

GWBにおける微生物反応式は、微生物の代謝反応を記述する一般的なMonod式を基本骨格としている(式2.1.4.2-1)。さらに同式では地下水中の酸化還元反応における自由エネルギーと微生物の各代謝様式のATP合成における自由エネルギーの差を含む項(F_T)が代謝の駆動力に関わる因子として新たに考慮されている(式2.1.4.2-2)。またGWBは微生物反応の速度論的解析のデータを利用し設定された各反応様式に対応した微生物のバイオマスを計算する(式2.1.4.2-3)。鉱物反応式は、鉱物の表面積、活量積および平衡定数からなる項によって構成されており、溶解反応を正反応としている(式2.1.4.2-4)。物質移行の支配方程式は空隙率 ϕ の位置・時間的な変化を考慮するとのように示される(式2.1.4.2-5)。この式における反応速度 R_i は、地球化学モデルにおいて溶液から成分が追加または排除されるさまざまな反応系に対応しており、速度論的な微生物反応(式2.1.4.2-1)・鉱物反応(式2.1.4.2-4)の効果の和となる。酸化還元電位は、ネルンストの式(式2.1.4.2-6)を用いて計算される。

熱力学データベースはGWB付属のThermo.com.V8.R6+_v2.datを使用した。当該データベースはGWB付属のThermo.com.V8.R6+.datを基本としつつ、本研究に際し不要な化学種を省略するなどの修正を加えたものである。

$$r_k = n_w (k_+)_k [X] \frac{m_D}{m_D + K'_{DK}} \frac{m_A}{m_A + K'_{AK}} F_T \quad \text{式 2.1.4.2-1}$$

$$F_T = 1 - \exp\left(\frac{\Delta G_r + m\Delta G_p}{\chi RT_K}\right) \quad \text{式 2.1.4.2-2}$$

$$\frac{d[X]}{dt} = \frac{Yr_k}{n_w} - D[X] \quad \text{式 2.1.4.2-3}$$

$$r_{\rightarrow} = A_s k_+ \left(1 - \frac{Q}{K}\right) \quad \text{式 2.1.4.2-4}$$

r_k : 反応速度 (mol s^{-1})
 A_s : 鉱物の表面積 (cm^2)
 k_+ : 反応速度定数 ($\text{mol cm}^{-2} \text{s}^{-1}$)
 Q : 活量積
 K : 平衡定数

$$\frac{\partial(\phi C_i)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(\phi D_{xx} \frac{\partial C_i}{\partial x}\right) + \frac{\partial}{\partial x} \left(\phi D_{xy} \frac{\partial C_i}{\partial y}\right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(\phi D_{yx} \frac{\partial C_i}{\partial x}\right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(\phi D_{yy} \frac{\partial C_i}{\partial y}\right) - \quad \text{式 2.1.4.2-5}$$

$$\frac{\partial}{\partial x} (\phi v_x C_i) - \frac{\partial}{\partial y} (\phi v_y C_i) + \phi R_i$$

ϕ : 空隙率
 C_i : 溶解している成分濃度 (mol cm^{-3})
 D_{xx} : 分散テンソルにおける入力項目
 (v_x, v_y) : 地下水の流速ベクトル
 R_i : 反応速度 ($\text{mol cm}^{-3} \text{s}^{-1}$)

$$Eh = \frac{2.303RT_A}{nF} \log \frac{Q}{K}$$

式 2.1.4.2-6

- R : 気体定数 (8.3143 J mol⁻¹ K⁻¹)
- T_A : 絶対温度 (K)
- n : 消費される電子数
- F : ファラデー定数 (96485 C mol⁻¹)
- Q : イオン流量
- K : 平衡定数

3) 水理シミュレーションにおけるモデル設定

・解析対象範囲

図 2.1.4.2-1 にモデル全体の要素図を示す。モデルは矩形の鉛直二次元断面とし、鉛直方向に 1,050m、水平方向に 2,050m の領域を設定した。各要素形状も矩形（正方形）とし、掘削・埋戻しされる空洞部分（以下、埋戻し部、ただし操業期間中の記述の場合は空洞部とする）については 1 要素（50m×50m）で表現した。埋戻し部を示す要素は、上端が深度 500m、左端はモデルの左側方境界から 1,000m となるように設定した。

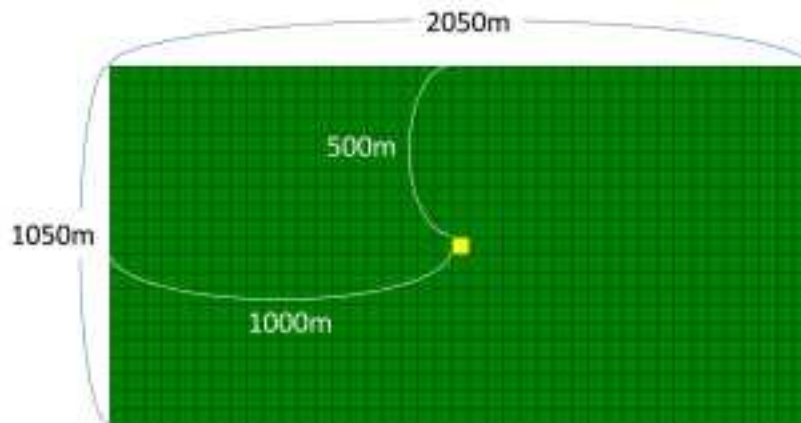


図 2.1.4.2-1 解析モデル要素図。
(黄色で示した要素が埋戻し部)

・モデルの境界条件等

- ① 左右の側方境界、ならびに底面は不透水とする
- ② 上面については圧力固定を行い、動水勾配は 1/1,000 とする（本解析ではモデル上面の左端に全水頭 2.05m 右端に 0m を設定）
- ③ 地下施設の操業期間は、埋戻し部要素の周囲に浸出面境界を設定する
- ④ 埋戻し部には、ベントナイトを充填するものとする

・解析期間

掘削前の定常状態（以下、掘削前）の取得の後、処分場の操業期間（以下、操業中）を 50 年、空洞の埋戻し後（以下、埋戻し後）は、流れ場が定常状態になるまで、最大 10 万年を解析期間とした。

・水理特性

本解析で設定した岩盤およびベントナイトの物性値・透水係数を、表 2.1.4.2-1 および表 2.1.4.2-2 にそれぞれ示す。

岩盤の透水係数については、超深地層研究計画の一環で取りまとめられた単項式水理試験のデータセットより抜粋した(竹内・藤田, 2005)。11のボーリング孔において取得された214点の測定結果のうち、解析に採用するにあたり、「複雑な地質構造は考慮しない」、「透水性の高い主要な断層から離して配置する」などの観点(核燃料サイクル開発機構, 1999)に基づいて「花崗岩健岩部」を対象とした。さらに解析深度である500～600mで実施された測定結果(7地点)を抽出し、対数平均により解析に用いる透水係数を算出した。加えて、土岐花崗岩の透水係数の異方性を考慮し、鉛直方向と水平方向の透水係数について3つの異方性ケースを設定した。

表 2.1.4.2-1 岩盤およびベントナイトの物性値

	単位	岩盤 ^{※1}	埋戻し部
			ベントナイト ^{※2}
有効間隙率	—	0.059	0.4
比貯留係数	l/m	1.0×10^{-5}	5.8×10^{-4}
縦分散長	m	4.3	0.1
横分散長	m	0.43	0.01

※1：岩盤の透水係数は(竹内・藤田, 2005)、有効間隙率は(小出・前田, 2001)、その他の物性値は(尾上ほか, 2014)

※2：ベントナイトの物性値は、有効間隙率は(藤崎ほか, 2008)および(笹本ほか, 2013)、その他の物性値は(藤田ほか, 2007)

表 2.1.4.2-2 岩盤における透水係数の異方性に基づくケース設定

	単位	岩盤 ^{※1}		埋戻し部
		鉛直方向	水平方向	ベントナイト ^{※2}
異方性ケース1	m/sec	8.06×10^{-10}	8.06×10^{-9}	1.30×10^{-11}
異方性ケース2	m/sec	8.06×10^{-9}	8.06×10^{-10}	1.30×10^{-11}
異方性ケース3	m/sec	8.06×10^{-10}	8.06×10^{-10}	1.30×10^{-11}

※1：岩盤の透水係数は(竹内・藤田, 2005)

※2：ベントナイトの透水係数は(藤田ほか, 2007)

・不飽和浸透特性

岩盤およびベントナイトに設定した不飽和浸透特性のグラフを図 2.1.4.2-2 に示す。

操業中の地下水の浸出ならびに埋戻し後の不飽和ベントナイトの埋設により、埋戻し部周辺に不飽和領域が持ち込まれることが想定される。つまり、岩盤およびベントナイトに設定される不飽和浸透特性によって、操業中の空洞部周辺および埋戻し後の初期に埋戻し部の飽和度が100%未満となるような処理を施す必要がある。

操業中については、空洞部の要素に圧力水頭=-10m(不飽和浸透特性の最大値)を設定する。これにより、空洞部にかかる節点に約44%の飽和度が設定される。続く埋戻し後の解析では、空洞部要素にベントナイトの物性値を入力し、操業中の50年後の解析結果を引き継いで解析が進められる。

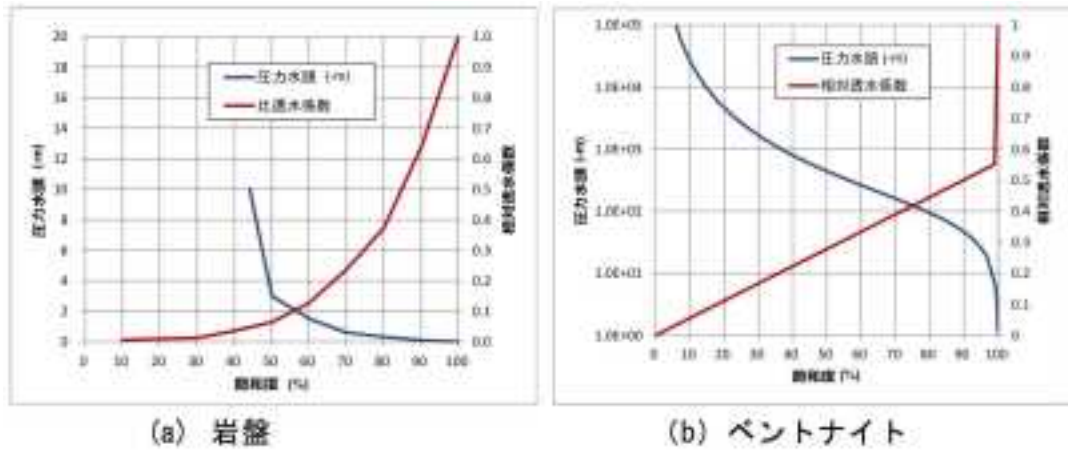


図 2.1.4.2-2 不飽和浸透特性曲線.

4) 水理解析の解析結果

・異方性ケース1

異方性ケース1におけるベクトル図および全水頭コンター図を、図 2.1.4.2-3～図 2.1.4.2-5 に示す。掘削前の定常状態では、まず左端上部より下方および斜め下方への浸透流が認められ、埋戻し部を含むモデル中央部はほぼ水平方向の流向を示した。右端に向かうにつれて、水平方向の流向が上向きに変化し、右端上部で流出を示すベクトル場となった。全水頭は左端から右端に向けて徐々に低下し、鉛直方向の大きな変化が認められない分布となった。

操業中の全水頭は、岩盤の透水係数の異方性を反映して、水平方向よりも鉛直方向で急速に低下した。ベクトル場も同様に、埋戻し部へ向かっていく変化は鉛直方向で速い傾向が見られた。

埋戻し後は、徐々に定常状態の分布へと変化し、1,000年～2,000年後には全水頭・ベクトル場ともに掘削前の状態に回復した。

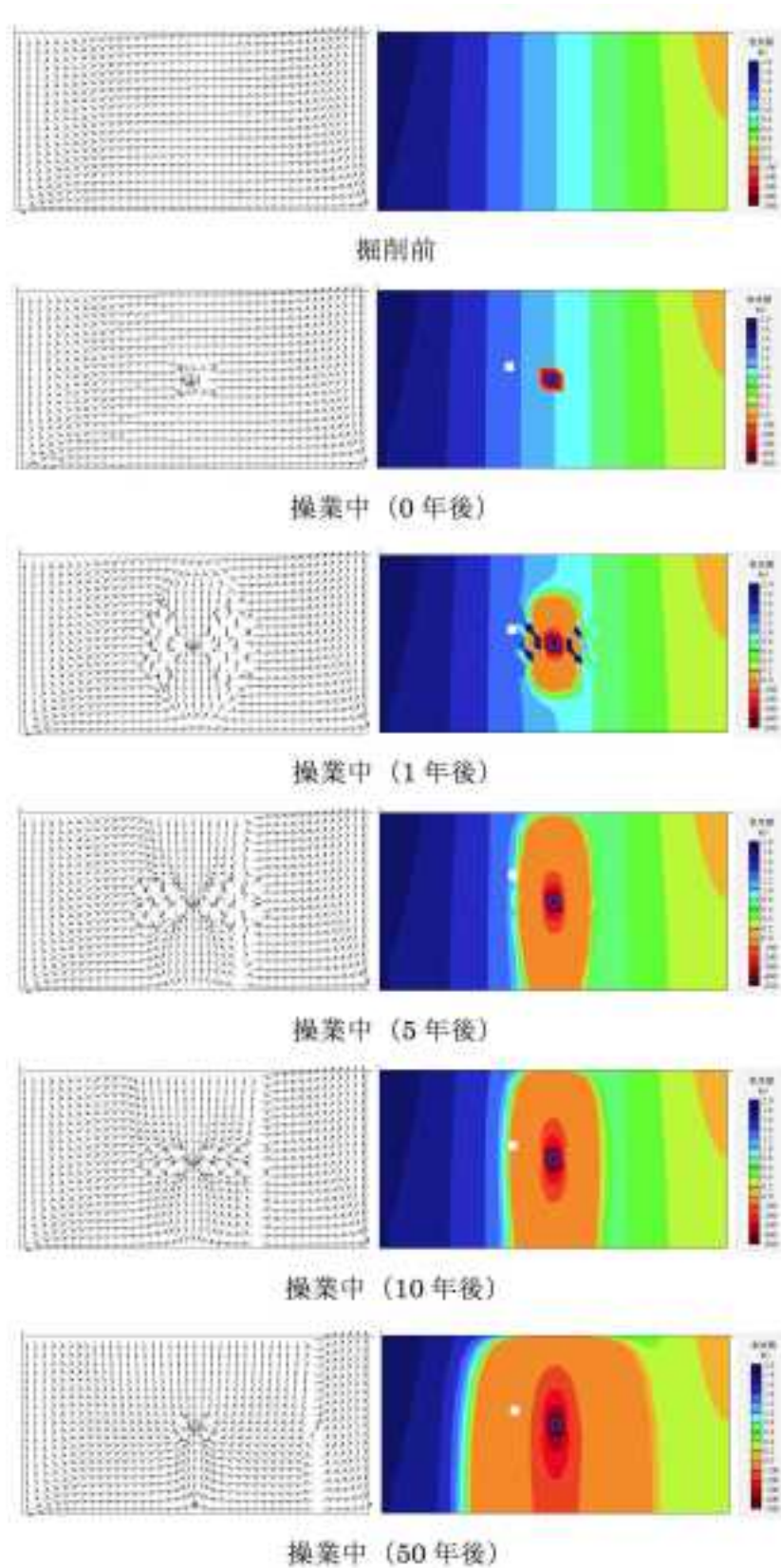


図 2.1.4.2-3 異方性ケース 1 の掘削前・操業中におけるベクトル分布図および全水頭コンター図。
(ベクトルは同一長で表示)

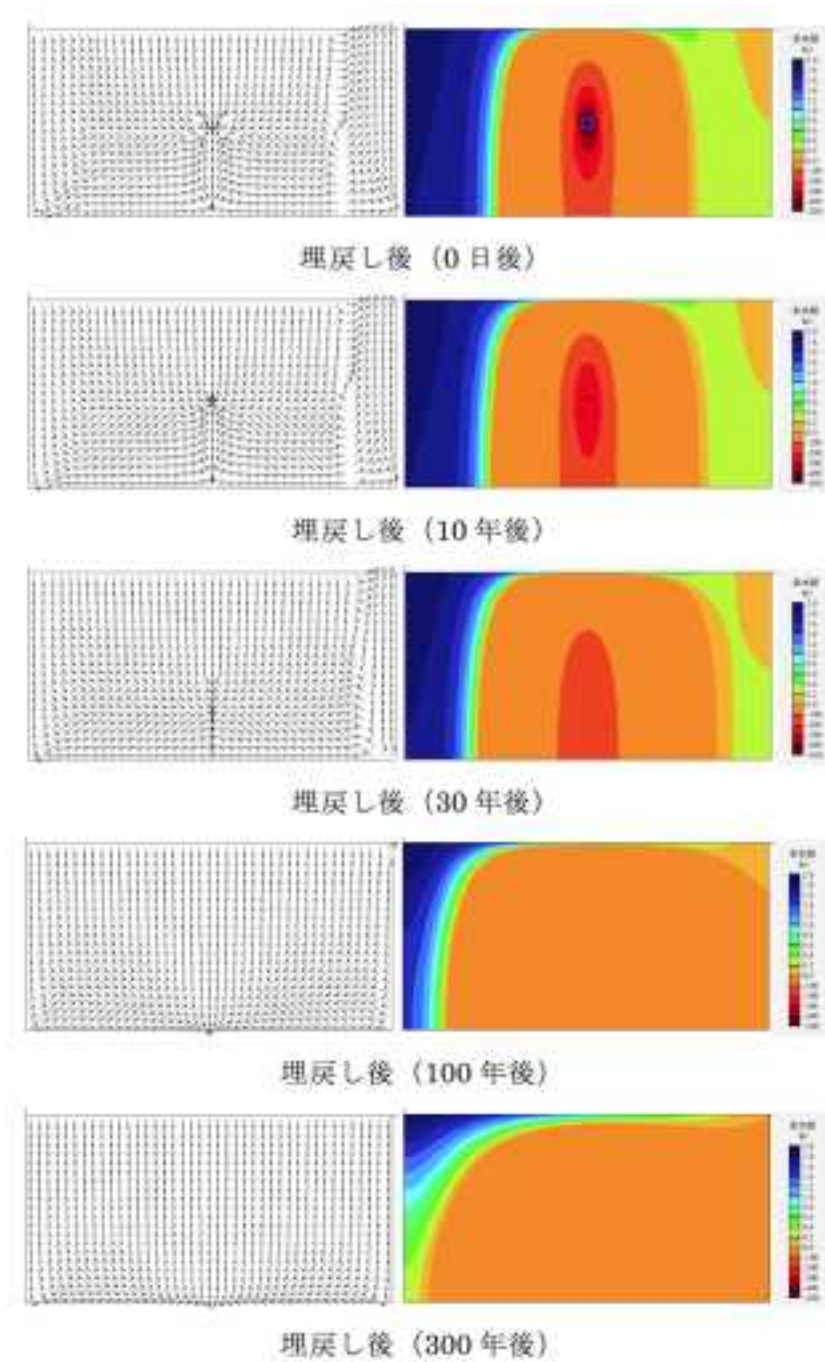


図 2.1.4.2-4 異方性ケース 1 の埋戻し後におけるベクトル分布図および全水頭コンター図。
(0日後～300年後、ベクトルは同一長で表示)

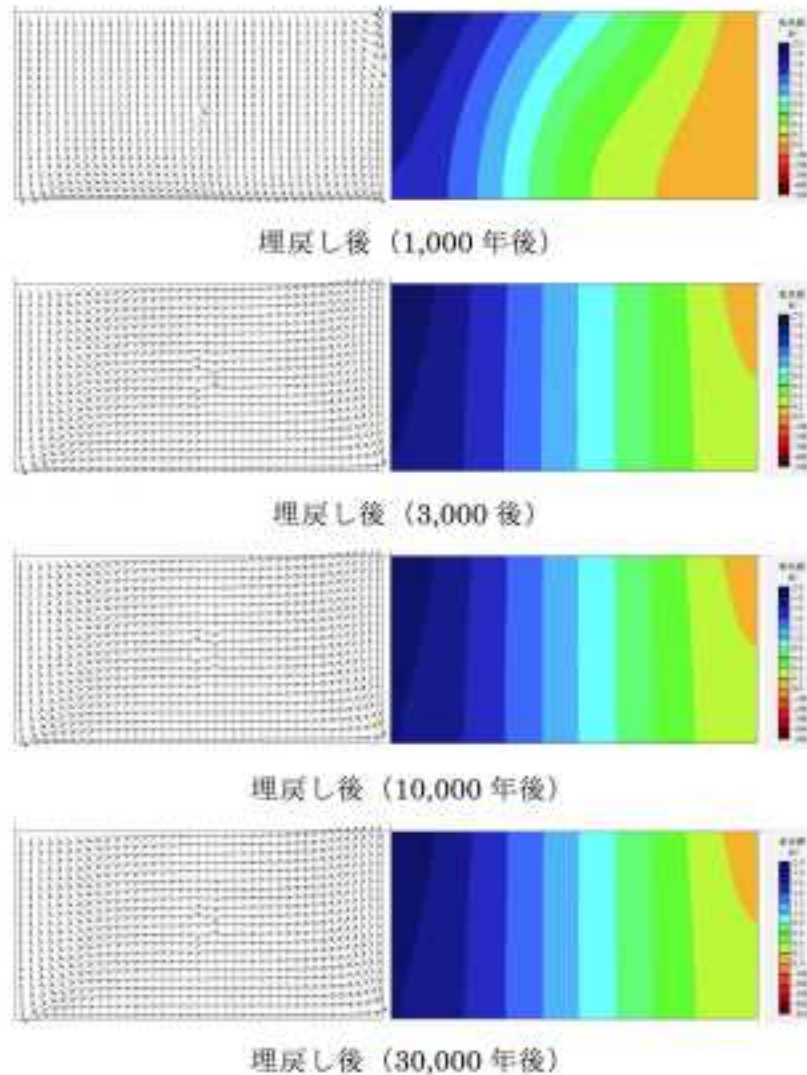


図 2.1.4.2-5 異方性ケース 1 の埋戻し後におけるベクトル分布図および全水頭コンター図。
(1,000 年後～ 30,000 年後、ベクトルは同一長で表示)

・異方性ケース 2

異方性ケース 2 におけるベクトル図および全水頭コンター図を、図 2.1.4.2-6～図 2.1.4.2-8 に示す。掘削前の定常状態では、ケース 1 と同様に、まず左端上部より下方および斜め下方への浸透流が認められ、埋戻し部を含むモデル中央部はほぼ水平方向の流向を示し、右端上部で流出を示すベクトル場となった。全水頭は左端上部付近および右端上部付近で、相対的に急な変化を示し、空洞部以深では緩やかな勾配の全水頭分布となった。操業中の全水頭は、ケース 1 と異なり、空洞部の深度を中心として、主に水平方向への急速な低下が認められた。ベクトル場も同様に、埋戻し部へ向かっていく変化は、水平方向で速い傾向が認められた。埋戻し後の定常状態への回復は、ケース 1 よりも時間を要し、30,000 年後に定常状態となった。

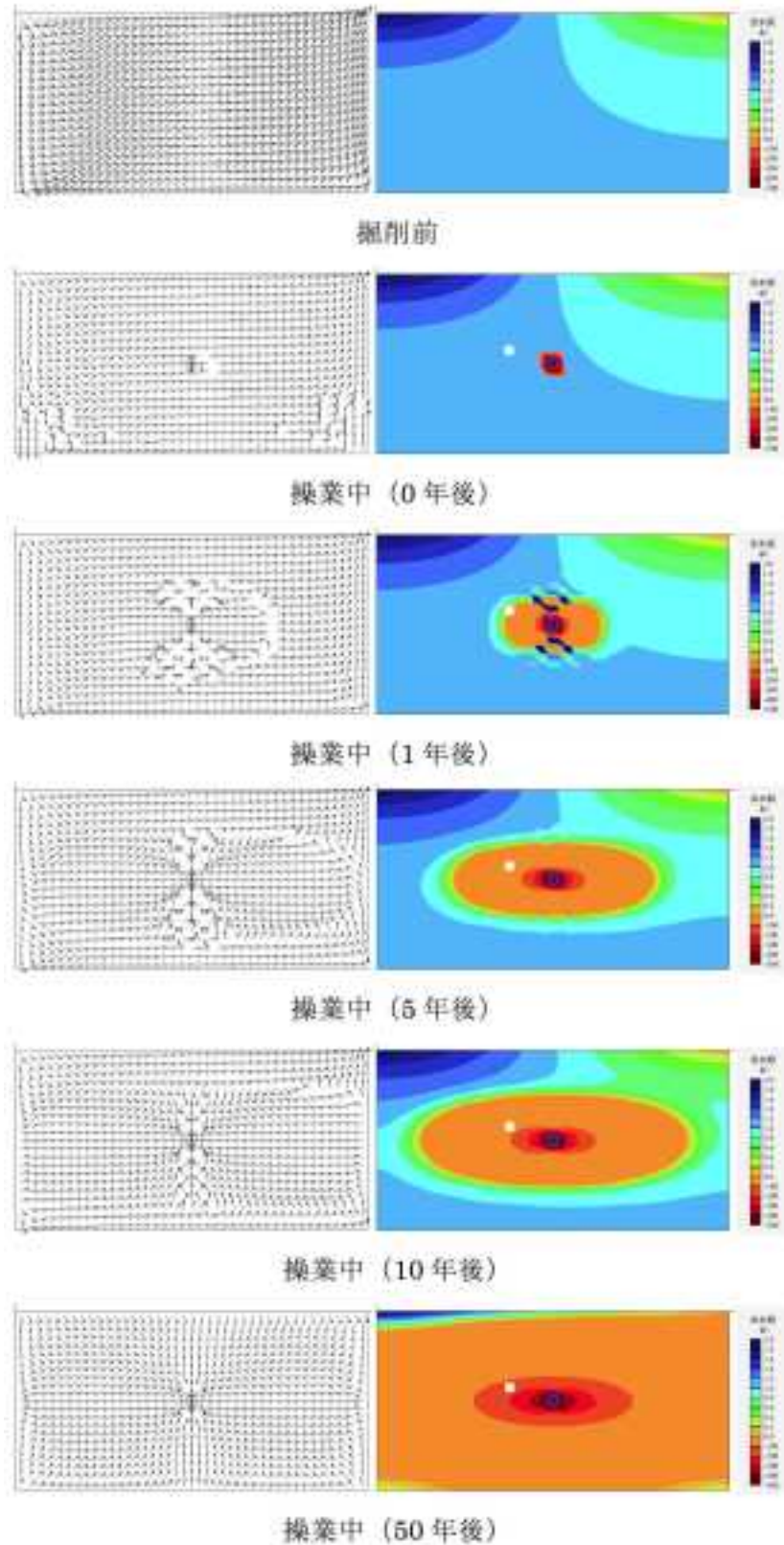


図 2.1.4.2-6 異方性ケース 2 の掘削前・操業中におけるベクトル分布図および全水頭コンター図。
(ベクトルは同一長で表示)

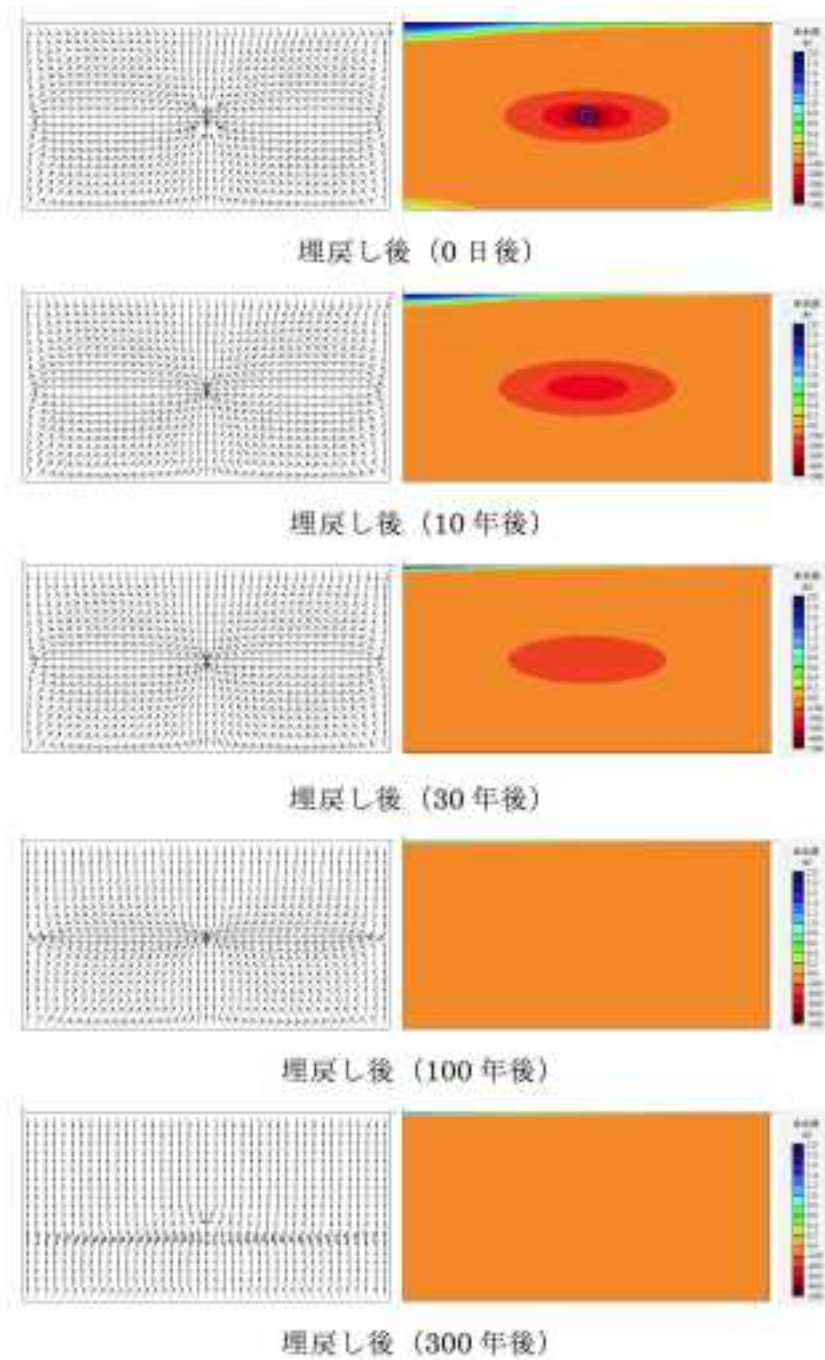


図 2.1.4.2-7 異方性ケース 2 の埋戻し後におけるベクトル分布図および全水頭コンター図。
(0日後～300年後、ベクトルは同一長で表示)

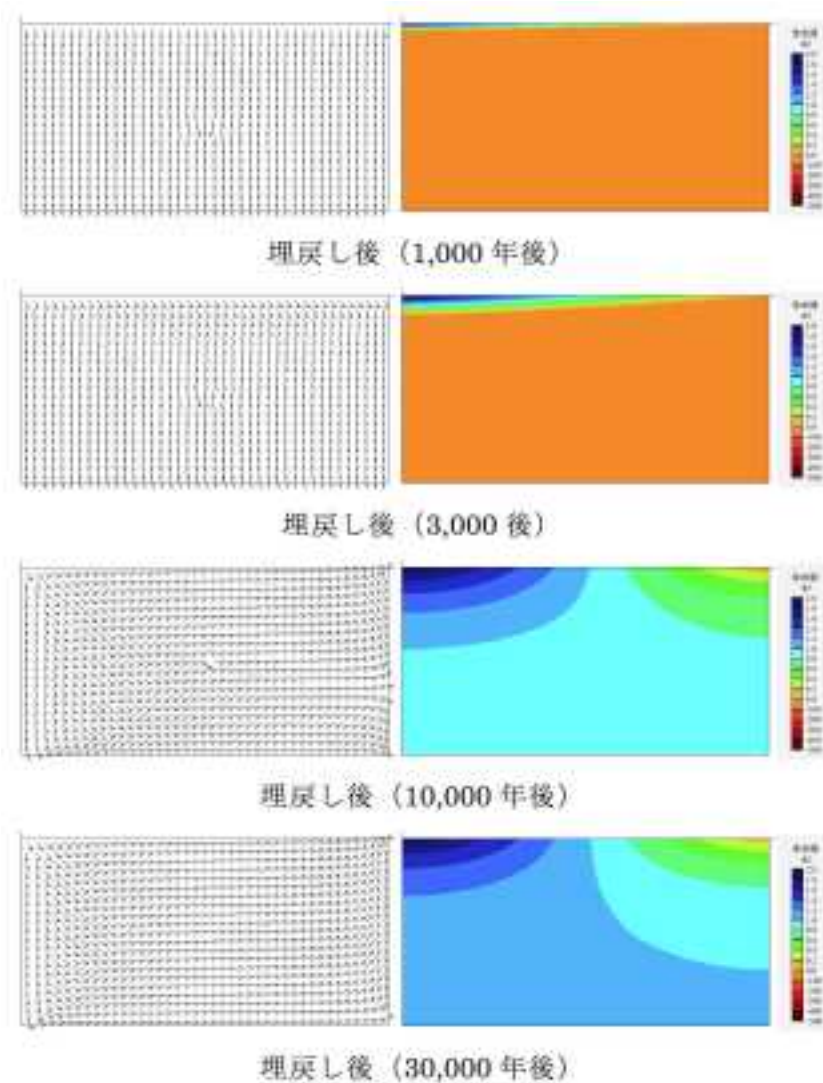


図 2.1.4.2-8 異方性ケース 2 の埋戻し後におけるベクトル分布図および全水頭コンター図。
(1,000 年後～ 30,000 年後、ベクトルは同一長で表示)

・異方性ケース3

異方性ケース 3 におけるベクトル図および全水頭コンター図を、図 2.1.4.2-9～図 2.1.4.2-11 に示す。ケース 3 においても掘削前は、ケース 1 およびケース 2 に類似したベクトル場が形成された。続く操業中は、空洞部を中心とした同心円状の全水頭分布および空洞部へと向かうベクトル分布となった。埋戻し後は、全水頭が徐々に上昇するのに伴い、ベクトル分布も定常状態へと変化し、30,000 年後に掘削前の定常状態に回復した。

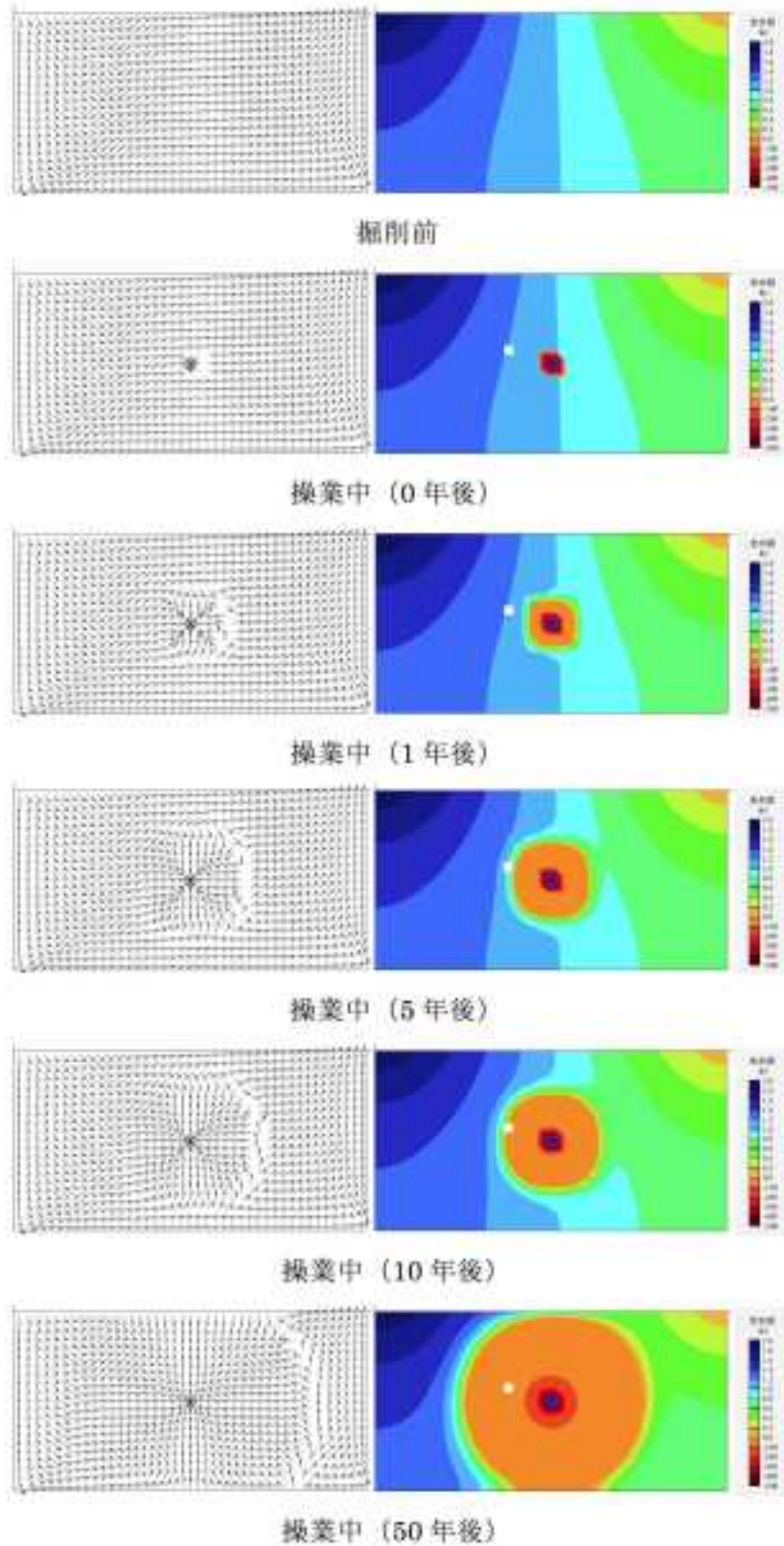


図 2.1.4.2-9 異方性ケース 3 の掘削前・操業中におけるベクトル分布図および全水頭コンター図。
(ベクトルは同一長で表示)

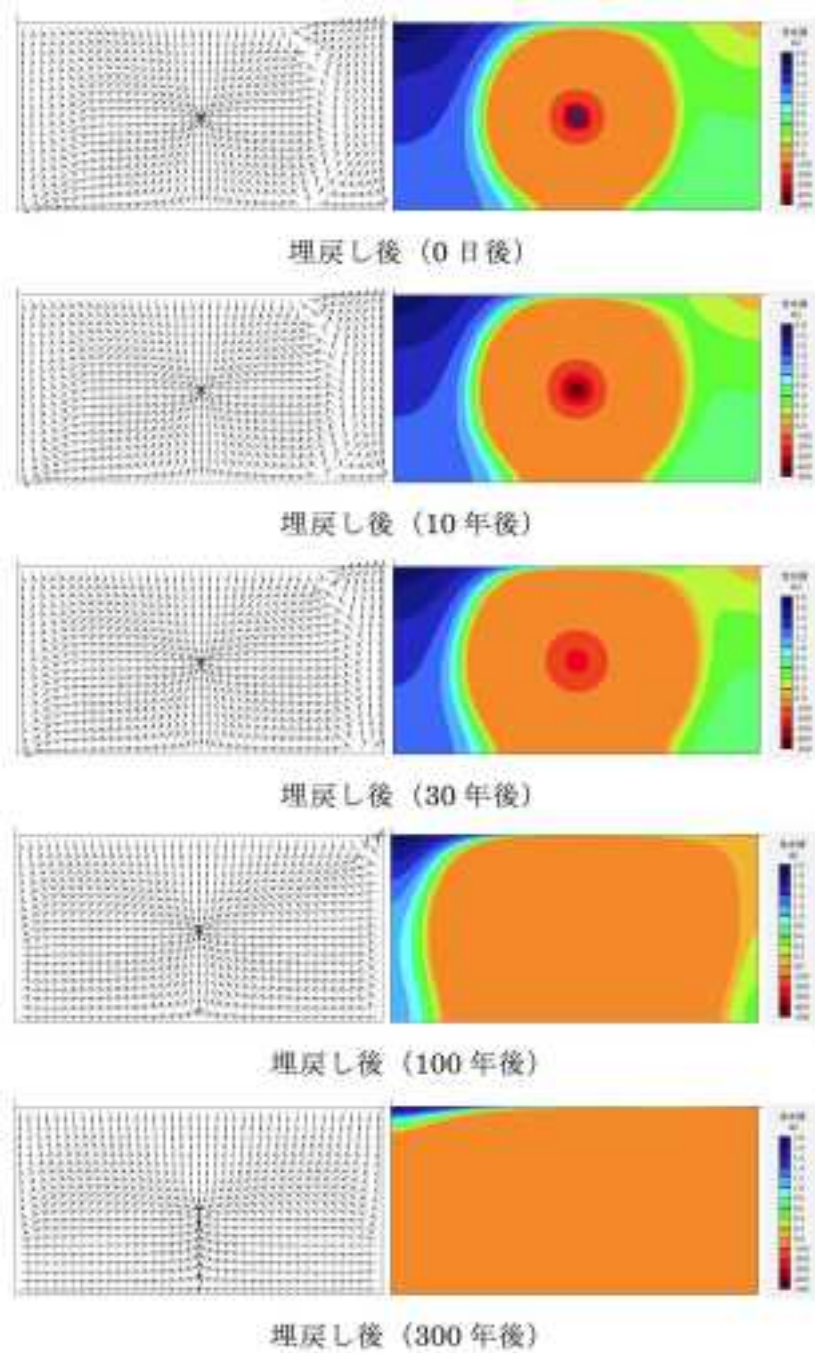


図 2.1.4.2-10 異方性ケース 3 の埋戻し後におけるベクトル分布図および全水頭コンター図。
(0日後～300年後、ベクトルは同一長で表示)

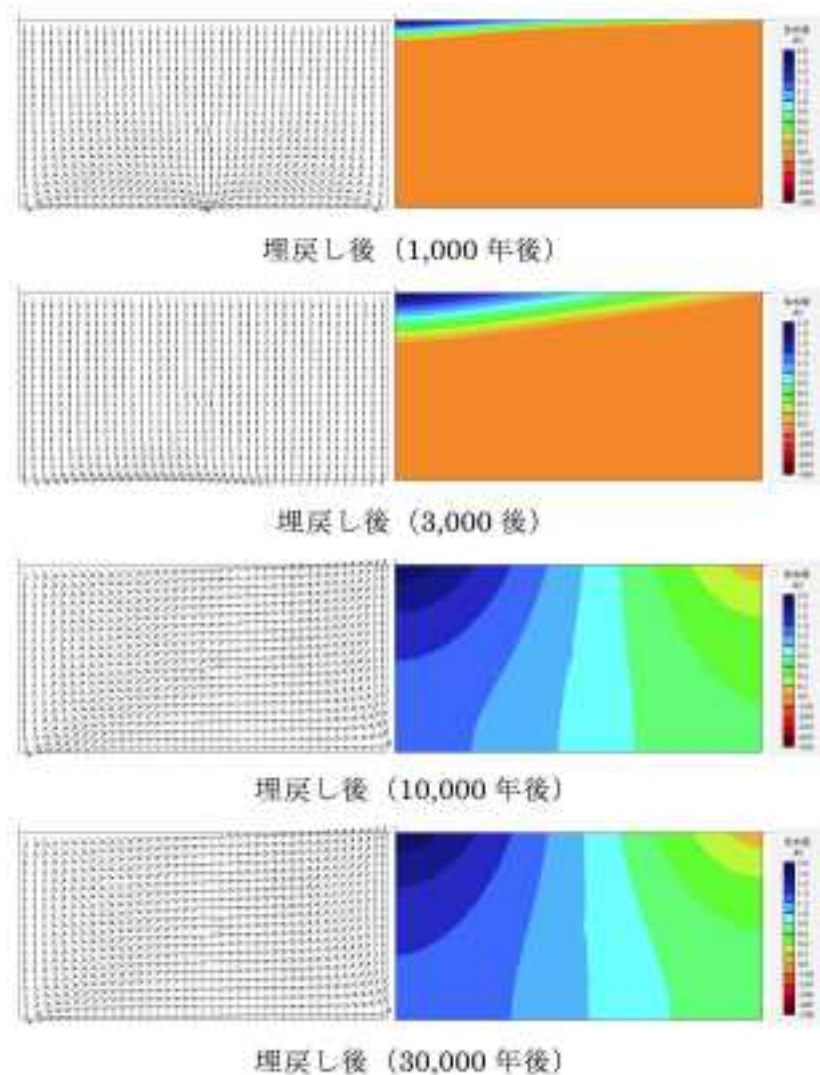


図 2.1.4.2-11 異方性ケース 3 の埋戻し後におけるベクトル分布図および全水頭コンター図。
(1,000 年後～ 30,000 年後、ベクトルは同一長で表示)

5) 水質変動解析の設定

水質変動解析はの解析期間は掘削前を 100 万年間、操業中を 50 年間、埋戻し後を 10 万年間として、水理的な異方性と微生物の有無によって、以下のシナリオ設定を行った。

シナリオ1：岩盤の透水係数は異方性ケース1を採用し、4種の鉱物反応（黄鉄鉱、スメクタイト、カリ長石、石英）を設定、微生物反応は未設定としたケース

シナリオ2：岩盤の透水係数は異方性ケース1を採用し、4種の鉱物反応に加え、3種の微生物反応（好気性菌、鉄還元菌、硫酸還元菌）も設定したケース

シナリオ3：岩盤の透水係数は異方性ケース2を採用し、4種の鉱物反応（黄鉄鉱、スメクタイト、カリ長石、石英）を設定、微生物反応は未設定としたケース

シナリオ4：岩盤の透水係数は異方性ケース2を採用し，4種の鉱物反応に加え，3種の微生物反応（好気性菌，鉄還元菌，硫酸還元菌）も設定したケース

シナリオ5：岩盤の透水係数は異方性ケース3を採用し，4種の鉱物反応（黄鉄鉱，スメクタイト，カリ長石，石英）を設定，微生物反応は未設定としたケース

シナリオ6：岩盤の透水係数は異方性ケース3を採用し，4種の鉱物反応に加え，3種の微生物反応（好気性菌，鉄還元菌，硫酸還元菌）も設定したケース

それぞれのシナリオ，水質初期値，微生物反応様式，微生物初期値，鉱物反応様式，鉱物初期値を表2.1.4.2-3～2.1.4.2-8に示す。

表2.1.4.2-3 シナリオ設定

シナリオ No.	透水係数の異方性	反応速度設定	
		鉱物	微生物
シナリオ1	異方性ケース1（鉛直方向>水平方向）	4種	—
シナリオ2	異方性ケース1（鉛直方向>水平方向）	4種	3種
シナリオ3	異方性ケース2（鉛直方向<水平方向）	4種	—
シナリオ4	異方性ケース2（鉛直方向<水平方向）	4種	3種
シナリオ5	異方性ケース3（鉛直方向=水平方向）	4種	—
シナリオ6	異方性ケース3（鉛直方向=水平方向）	4種	3種

表 2.1.4.2-4 水質条件.

化学種	単位	浅層地下水 (モデル第1層)	モデル第2層以深
pH	—	8.8	8.8
O ₂	mol/L	2.30×10 ⁻⁴	1.00×10 ⁻²⁰
HCO ₃ ⁻	mol/L	1.00×10 ⁻²⁰	1.00×10 ⁻²⁰
NO ₃ ⁻ (aq)	mol/L	1.00×10 ⁻²⁰	1.00×10 ⁻²⁰
N ₂ (aq)	mol/L	1.00×10 ⁻²⁰	1.00×10 ⁻²⁰
MnO ₂ (aq)	mol/L	1.00×10 ⁻²⁰	1.00×10 ⁻²⁰
Mn ²⁺	mol/L	1.00×10 ⁻²⁰	1.00×10 ⁻²⁰
Fe ²⁺	mol/L	1.00×10 ⁻²⁰	1.00×10 ⁻²⁰
Fe(OH) ₃ (aq)	mol/L	1.00×10 ⁻²⁰	1.00×10 ⁻²⁰
SO ₄ ²⁻	mol/L	1.00×10 ⁻²⁰	1.00×10 ⁻²⁰
HS ⁻	mol/L	3.02×10 ⁻⁶	1.00×10 ⁻²⁰
CH ₄	mol/L	9.65×10 ⁻⁴	9.65×10 ⁻⁴
Cl ⁻	mol/L	5.42×10 ⁻³	5.42×10 ⁻³
Na ⁺	mol/L	1.87×10 ⁻²	1.87×10 ⁻²
Ca ²⁺	mol/L	4.99×10 ⁻⁴	4.99×10 ⁻⁴
SiO ₂ (aq)	mol/L	1.00×10 ⁻²⁰	1.00×10 ⁻²⁰
H ₂ (aq)	mol/L	3.30×10 ⁻⁶	3.30×10 ⁻⁶
Al ³⁺	mol/L	1.00×10 ⁻²⁰	1.00×10 ⁻²⁰
K ⁺	mol/L	1.00×10 ⁻²⁰	1.00×10 ⁻²⁰
Mg ²⁺	mol/L	1.00×10 ⁻²⁰	1.00×10 ⁻²⁰

表 2.1.4.2-5 微生物代謝の反応様式ならびに代謝反応式.

反応様式	微生物の代謝反応式
酸素還元	$\text{CH}_4 + 2^*\text{O}_2 \rightarrow \text{HCO}_3^- + \text{H}^+ + \text{H}_2\text{O}$
鉄還元 ^{※1}	$\text{CH}_4 + 8^*\text{Fe}(\text{OH})_3 + 15^*\text{H}^+ \rightarrow \text{HCO}_3^- + 8^*\text{Fe}^{2+} + 21^*\text{H}_2\text{O}$
硫酸還元 ^{※1}	$\text{CH}_4 + \text{SO}_4^{2-} \rightarrow \text{HCO}_3^- + \text{HS}^- + \text{H}_2\text{O}$

※1 鉄還元, 硫酸還元 : (Beal *et al.*, 2011)

表 2.1.4.2-6 微生物反応シミュレーション入力値^{※1}.

	単位 ^{※2}	好気性菌	鉄還元菌	硫酸還元菌
最大比基質消費速度	mol/mg sec	4.60×10 ⁻⁹	2.66×10 ⁻⁹	2.33×10 ⁻¹⁰
菌体収率	mg/mol	14139	3620	2375
電子供与体の半飽和濃度	mol/L	1.00×10 ⁻⁵	1.00×10 ⁻⁵	1.00×10 ⁻⁵
電子受容体の半飽和濃度	mol/L	2.00×10 ⁻⁵	6.00×10 ⁻⁵	3.00×10 ⁻⁵
死滅定数	1/s	1.16×10 ⁻⁷	4.63×10 ⁻⁹	4.63×10 ⁻⁹
微生物量	mg/kg	2.80×10 ³	2.80×10 ⁴	2.80×10 ⁴
1回の代謝反応で生成されるATP数 ^{※3}	-	8	1	1
average stoichiometric number ^{※3}	-	16	8	6

※1 (産業技術総合研究所, 2012)

※2 GWBでの単位系(基質濃度はmol微生物量はmg/kg)に変換。微生物量の単位においては溶媒1L=1kgとして表記

※3 (Jin and Bethke, 2005)および(Bethke *et al.*, 2011)より算出

表 2.1.4.2-7 鉱物の反応式.

鉱物	鉱物の反応式	平衡定数 [※] (Log K 25°C)
黄鉄鉱	$\text{Pyrite} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{Fe}^{2+} + 0.25*\text{H}^+ + 1.75*\text{HS}^- + 0.25*\text{SO}_4^{2-}$	-24.7
スメクタイト	$\text{Smectite} + 8*\text{H}^+ \rightarrow 5*\text{H}_2\text{O} + 0.5*\text{Fe}^{2+} + 3.5*\text{SiO}_2(\text{aq}) + 0.2*\text{Fe}^{3+} + 1.25*\text{Al}^{3+} + 0.1*\text{Na}^+ + 0.025*\text{Ca}^{2+} + 0.2*\text{K}^+ + 1.15*\text{Mg}^{2+}$	16.3
カリ長石	$\text{K-feldspar} + 4*\text{H}^+ \rightarrow 2*\text{H}_2\text{O} + \text{K}^+ + \text{Al}^{3+} + 3*\text{SiO}_2(\text{aq})$	0.083
石英	$\text{Quartz} \rightarrow \text{SiO}_2(\text{aq})$	-4.0

※ GWB Rxnプログラムを用いて計算

表 2.1.4.2-8 鉱物の解析パラメータ[※].

鉱物名	反応速度定数 (mol/cm ² /sec)	表面積 (cm ² /g)	設定量 (vol%)		
			岩盤 (深さ 0~200m)	岩盤 (深さ 200~1050m)	ベントナイト
黄鉄鉱	4.00×10 ⁻¹⁵	12.87	4.1	0.035	0.15
スメクタイト	1.00×10 ⁻¹⁸	151.63	60	0.065	30
カリ長石	1.00×10 ⁻¹⁶	9.8	3	60	5.85
石英	1.26×10 ⁻¹⁸	9.8	27	34	24

※ 速度定数, 表面積, および鉱物設定量(瑞浪層群・土岐花崗岩)は(戸高ほか, 2005)のデータを参照し, ベントナイトについては(笹本ほか, 2013)のデータから算出

その他の設定条件を以下に示す.

① 酸化還元種

微生物反応に関与する以下の6組の酸化還元種について酸化還元カップリングを解除しそれらの

濃度変化は主に微生物反応依存とした。



② 収束性検証の結果、収束性の向上のために、下記2点について閾値を設定した。

Al³⁺：上限値として 1×10^{-6} mol/L

pH：下限値として 6

③ GWBにおける埋戻し部（空洞部）の設定条件

- ・ 操業中および埋戻し後は、 2.3×10^{-4} mol/L の酸素濃度を含む水質条件を設定
- ・ 操業中の空洞部には、解析の収束性を確保するために岩盤と同様の鉱物組成の要素が仮想的に存在することとし、 $20 \text{ m}^3/\text{day}$ で排水する井戸を設定
- ・ 埋戻し後の逐次解析 1step（1日間）のGWBにおける porosity（体積含水率）の初期値は、文献値の初期含水比 0.13 を設定し、逐次解析 2step 以降は水理シミュレーションから得られた体積含水率を採用
- ・ 埋戻し後には、3種類の微生物について 1×10^{-10} mg/kg のバイオマスを設定
- ・ メタン濃度は 9.65×10^{-3} mol/L を設定

④ GWBにおける不飽和帯の設定

岩盤の不飽和帯は、GWBにおける岩盤の物性を示す「porosity」、および鉱物の体積分率を用いて定義される。すなわち、鉱物の体積分率の設定後、残りの体積分率よりも porosity を小さく設定することにより、地下水も鉱物も指定されない空隙の体積分率が不飽和帯に相当する。例えば、下記の設定の場合には、岩盤中の不飽和帯は 15 volume% となる。つまり GWB において不飽和帯を考慮する場合、「porosity」は岩盤中に占める地下水の体積分率として定義される。

(例) porosity = 25 volume%
 Pyrite = 5 volume%
 K-feldspar = 5 volume%
 Quartz = 50 volume%
 不飽和帯 = 15 volume%

⑤ 操業中の不飽和帯における酸素濃度の設定

操業中の不飽和帯には、大気圧の酸素が存在することが想定される。つまり、GWB において不飽和帯に大気圧の酸素を設定すると、操業中に不飽和帯を形成する要素の地下水は大気圧飽和の酸素濃度 (2.3×10^{-4} mol/L) で平衡状態にあるものとして考慮される。本研究におけるモデルの1要素は $50\text{m} \times 50\text{m}$ の矩形で設定されるため、仮に不飽和帯の体積分率が極めて小さいとしても、要素全体の酸素濃度が 2.3×10^{-4} mol/L となり、そこから得られる結果は実際の酸素濃度に対して過大評価となる懸念がある。そこで便宜上、不飽和帯を有する要素においては、不飽和帯と同体積の飽和酸素溶液が要素内に存在すると仮定し、それを要素の水の体積あたりに希釈した濃度を、その要素に設定することとした。

また操業中は、大気圧の酸素が不飽和帯に常時供給されることが想定されるが、逐次解析の都合上、大気圧飽和の酸素濃度を各解析 STEP の初期値として設定し、酸素供給を表現した。

⑥ 流れ場の切り替えステップの設定

- ・ 掘削前 100 万年間：定常状態であるため、100 万年間の流れ場は不変

- ・ 操業中 50 年間 :最初の 10 日間は 1 日毎, 続く 30 日後までは 10 日毎, 60 日後までは 30 日間, 続いて 1 年後までは 60 日毎 (300 日目のみ 65 日), 続く 50 年後までは 1 年毎に流れ場を切り替え
- ・ 埋戻し後 10 万年間 :1 年後までは操業中と同様とし, 2 年後までは 60 日毎 (1 年 300 日目のみ 65 日), 10 年後までは 1 年毎, 50 年後までは 2 年毎, 100 年後までは 50 年間, 500 年後までは 100 年毎, 1,000 年後までは 500 年間, 10,000 年後までは 1,000 年毎, 10 万年後までは 10,000 年毎

なお, 水質や微生物バイオマスなどの解析結果は, 切り替えステップ毎に, そのステップを 10 分割した時間で出力される設定とした。例えば, 切り替えステップが 10 年間であれば, その流れ場の中で 1 年毎のデータが出力される。

6) 水質変動解析結果

以下に, シナリオごとの水質変動解析結果から, 各種経時変化のコンター図とまとめた結果を示す。

・シナリオ1

酸素濃度分布の経時変化を図 2.1.4.2-12, 硫酸イオン濃度分布を 2.1.4.2-13, pH 分布を 2.1.4.2-14, Eh 分布を 2.1.4.2-15, 黄鉄鉱の溶解度分布を図 2.1.4.2-16 に示す。

化学種の濃度分布に関しては, 掘削前の解析は約 74 万年で停止したものの, 埋戻し部上流側の要素 (P1 ~ P6) の酸素濃度は, 埋戻し後の濃度と同程度まで増加してほぼ定常状態に達し, 大気圧飽和の濃度付近 2.3×10^{-4} mol/L 付近の濃度を示した。埋戻し部周辺ならびに下流側の要素でも掘削前の増加傾向が見られたが, 埋戻し後の 10 万年間でわずかな増加が認められた。硫酸イオン濃度は, 掘削前の約 74 万年後までにいずれの要素においても 8×10^{-9} mol/L に達し, 操業中ならびに埋戻し後まで大きな変化は見られなかった。鉄 (III) イオンは掘削前から埋戻し後までの解析を通じて増加傾向は認められなかった。

pH および Eh ($\text{SO}_4^{2-}/\text{HS}^-$) に関しては, いずれの要素においても掘削前の pH は初期条件の 8.8 から微減した後, 続く操業中 50 年間で 8.5 ~ 9.0 の間で推移し, 埋戻し後の 10 万年後には 8.4 前後の値を示した。Eh ($\text{SO}_4^{2-}/\text{HS}^-$) においても解析期間を通じて顕著な変化は認められず, いずれの要素においても -300mV 付近の値で推移し, 埋戻し後の 10 万年後にはほぼ定常状態に達した。

鉱物の初期値に対する変化量の比に関しては, 黄鉄鉱の初期値に対する変化量の比は, 下流側最表層の P13 を除き, 掘削前の約 74 万年後には -1×10^{-8} ~ -1×10^{-7} オーダーの値を示した。その後, 操業中から埋戻し後の解析期間を通じて変化は見られなかった。カリ長石の変化量の比は, 上流側の最表層の要素 (P1 および P5) において低下傾向が認められ, 埋戻し後の 10 万年後には -6×10^{-5} オーダーに達した。一方, スメクタイトおよび石英においては顕著な変化は認められなかった。

黄鉄鉱の反応速度に関しては, 黄鉄鉱の溶解反応速度は, 解析期間を通じて 1×10^{-20} ~ 1×10^{-19} mol/kg/sec オーダーの値を示した。操業中から埋戻し後 1,000 年後までは, モデル第 1 層のみで第 2 層以深よりも高い値を示した。埋戻し後 3,000 年後以降はモデル第 1 層の最上流付近で, 他の要素よりも相対的に高い値で推移した。

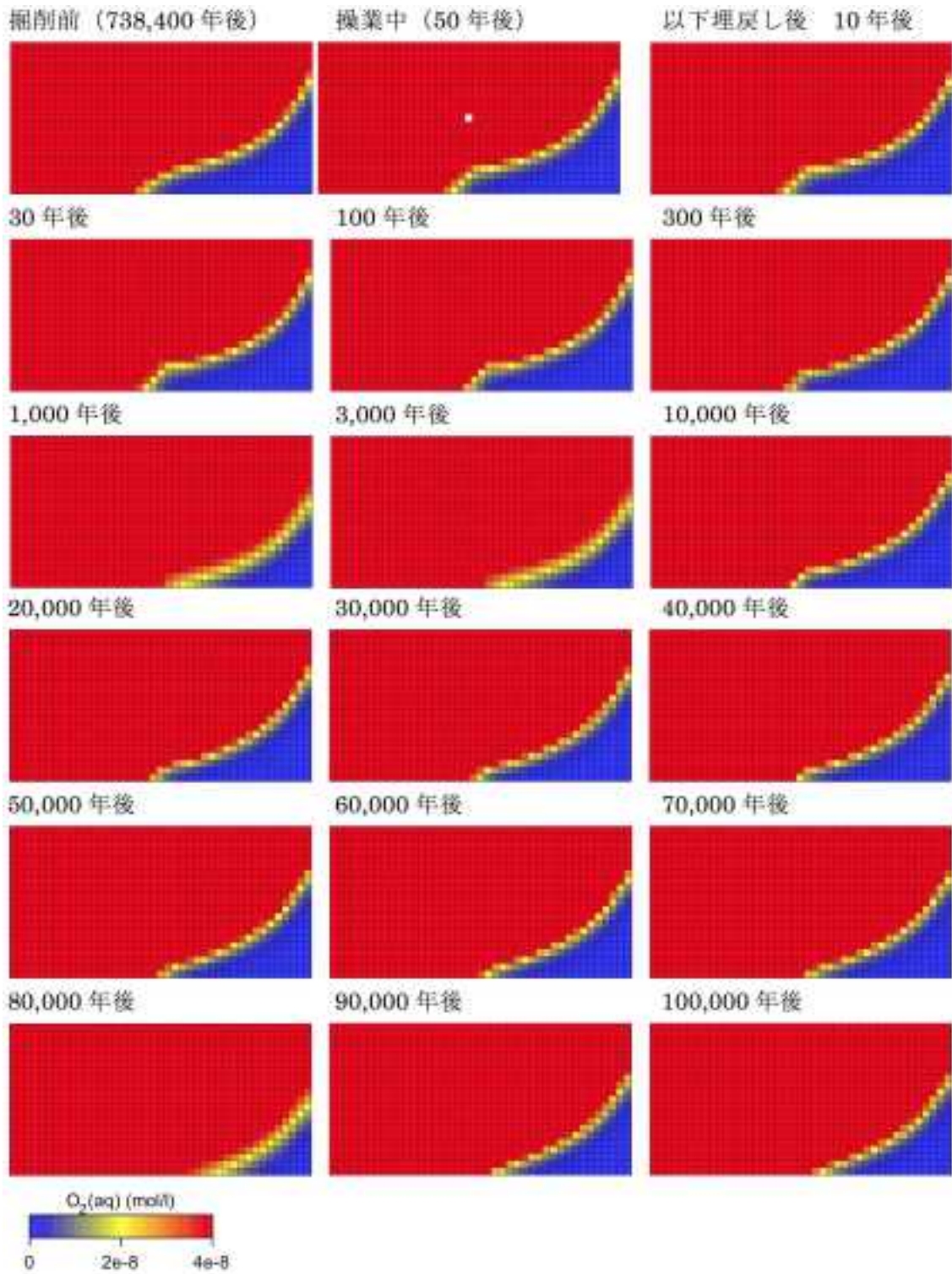


図 2.1.4.2-12 シナリオ 1 における酸素濃度コンター図.

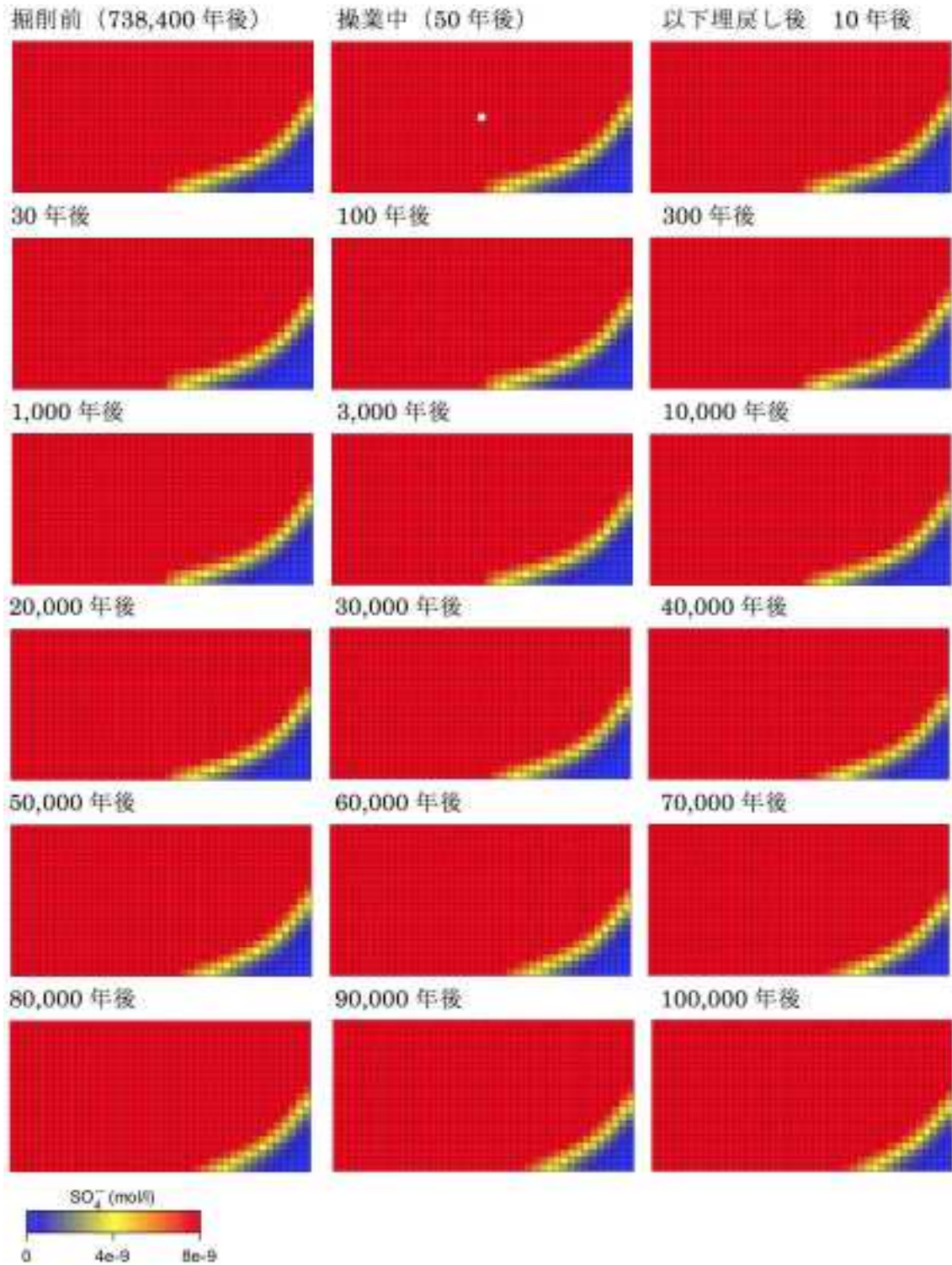


図 2.1.4.2-13 シナリオ 1 における硫酸イオン濃度コンター図.

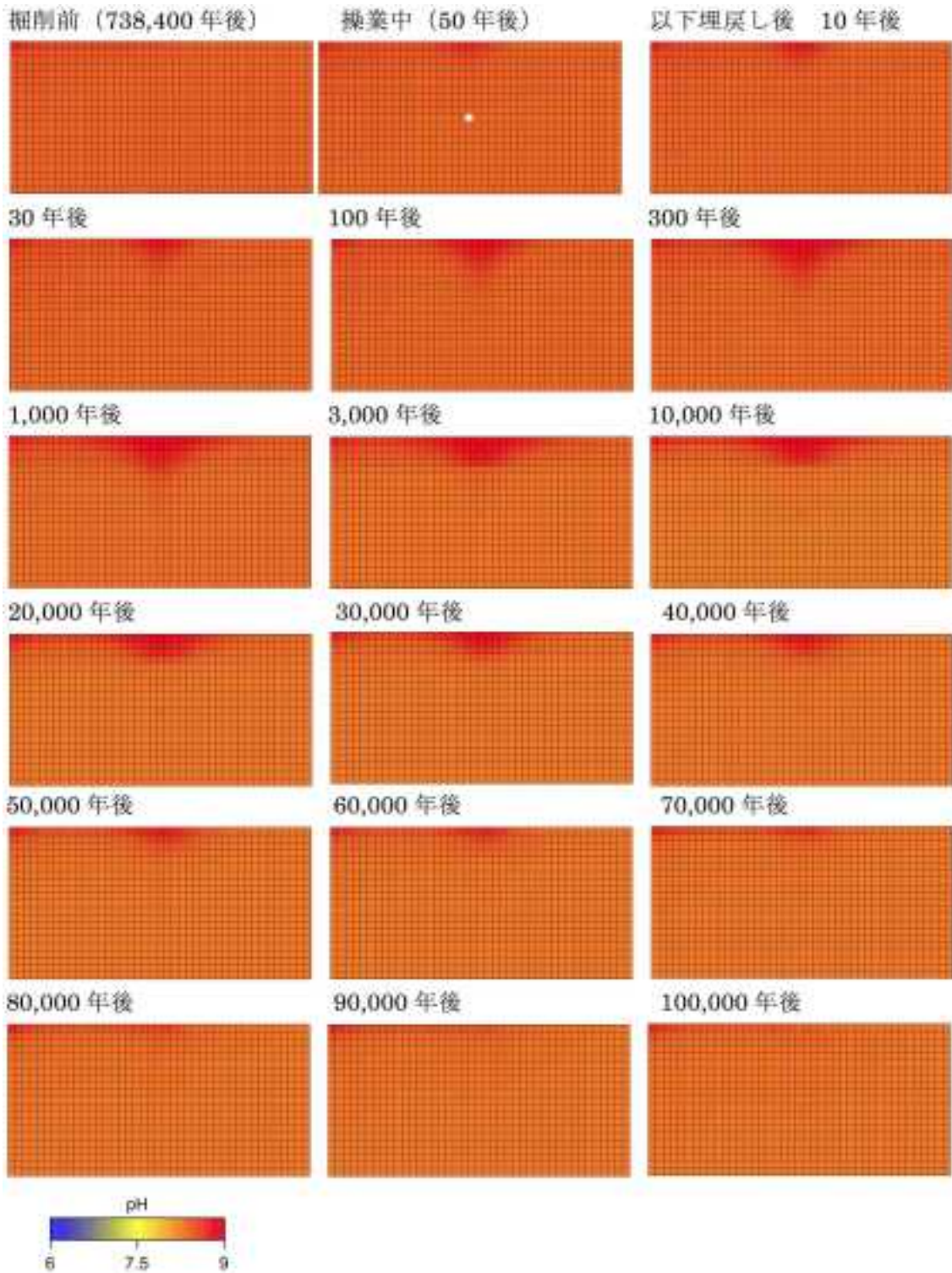


図 2.1.4.2-14 シナリオ 1 における pH コンター図.

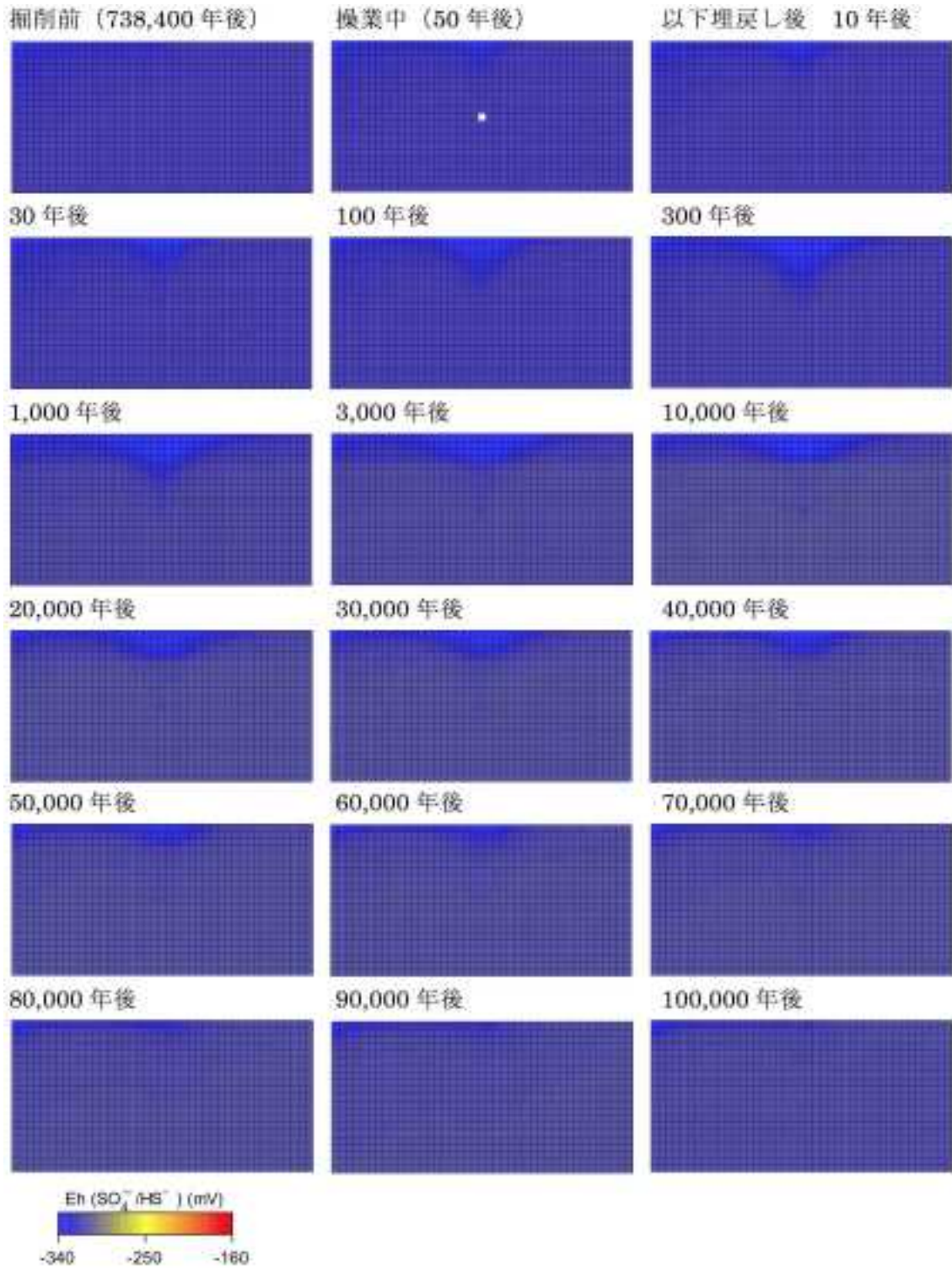


図 2.1.4.2-15 シナリオ 1 における Eh (SO₄²⁻/HS⁻) コンター図。

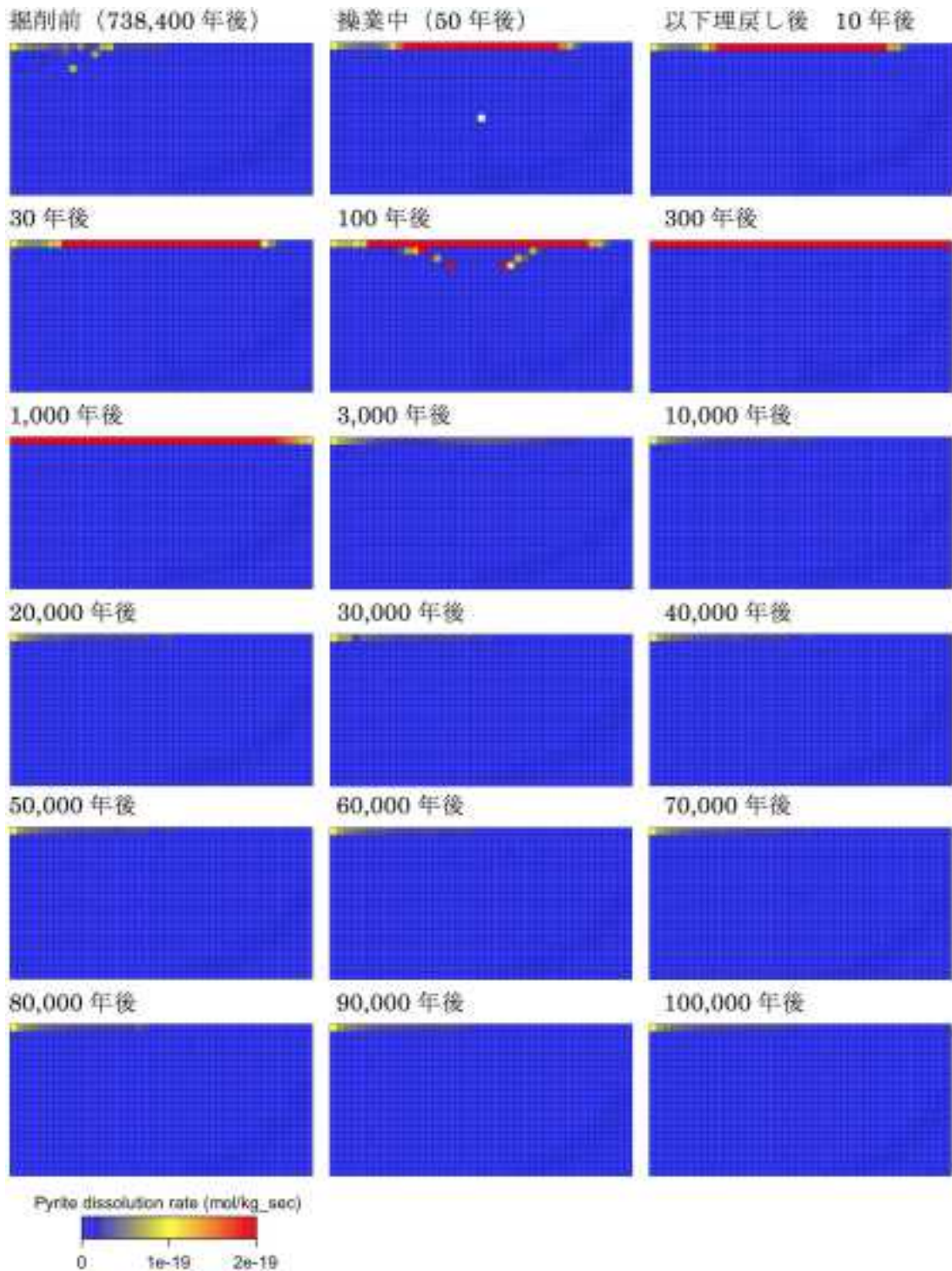


図 2.1.4.2-16 シナリオ 1 における黄鉄鉱の溶解速度コンター図。

・シナリオ2

シナリオ 2 における酸素濃度分布を図 2.1.4.2-17, メタン濃度分布を図 2.1.4.2-18, 硫酸イオン濃度分布を図 2.1.4.2-19, 鉄 (III) イオン濃度分布を図 2.1.4.2-20, pH を図 2.1.4.2-21, Eh を図 2.1.4.2-22, 好気性菌バイオマスを図 2.1.4.2-23, 鉄還元菌バイオマスを図 2.1.4.2-24, 黄鉄鉱の溶解速度を図 2.1.4.2-25 に示す。

化学種の濃度分布に関しては、埋戻し部上流側の要素の酸素濃度は、掘削前100万年の解析で、埋戻し後の濃度と同程度まで増加したものの、大気圧飽和の濃度 (2.3×10^{-4} mol/L) と比較して4桁程度低い $1 \times 10^{-8} \sim 1 \times 10^{-9}$ mol/L 付近の値で推移した。埋戻し部周辺の要素) は、掘削前および埋戻し後は 1×10^{-8} mol/L 程度の値を示したが、操業中は $1 \times 10^{-11} \sim 1 \times 10^{-13}$ mol/L オーダーまで低下した。埋戻し部下流側の要素においては 1×10^{-7} mol/L を超えることはなく、特に下流側最深部の要素では解析期間を通して 1×10^{-11} mol/L 付近の値であった。

メタン濃度は $8.5 \times 10^{-4} \sim 9.7 \times 10^{-4}$ mol/L の変動幅を示し、埋戻し部上流域において相対的に低い値を示した。掘削前の埋戻し部上流の硫酸イオン濃度は、いずれも約 2×10^{-9} mol/L まで増加し、操業中を通して維持された後、埋戻し後は一部において一時的に急上昇したものの、その後は減少傾向を示して、埋戻し後10万年後にはほぼ定常状態となった。空洞部周辺の要素では解析期間を通じて 2×10^{-9} mol/L 付近の値で推移した。一方、埋戻し部下流側の要素の一部においては掘削前40万年後に 5×10^{-9} mol/L まで増加した後、100万年後には 2×10^{-9} mol/L 未満まで低下した。またそのような変化が見られた要素では、埋戻し後直後にも一時的な増加が認められ、その後他の要素と同レベルの濃度で定常状態となった。

埋戻し部上流側の鉄(III)イオン濃度は、掘削前100万年後に 1×10^{-8} mol/L オーダーで定常状態に達し、続く操業中には一部においてのみ10分の1程度まで濃度が低下した。埋戻し後は、初期に埋戻し部上流側の最表層で急激な増加が認められ、その後10万年をかけて定常状態となった。埋戻し部下流側においても、最表層で相対的に高い値で推移し、埋戻し後は急激な増加の後、 8×10^{-8} mol/L 付近の値で定常状態となった。埋戻し部周辺の要素においては、掘削前から埋戻し後までの全解析期間を通して増加傾向を示した。

pHおよびEh ($\text{SO}_4^{2-}/\text{HS}^-$) に関しては、掘削前の100万年間は、すべての要素においてpHが低下する傾向が認められ、埋戻し部上流側の要素ではいずれも酸性を示した。操業中は埋戻し部周辺の要素において、下限値の6まで低下したものの、埋戻し後は6～7程度の範囲で増加する傾向が認められた。一方、埋戻し部下流側の最表層において、pH6まで低下した後、約6.6まで回復した。

Eh ($\text{SO}_4^{2-}/\text{HS}^-$) は、掘削前の100万年間にいずれの要素においても増加する傾向を示し、続く操業中には、特に埋戻し部上流側及び埋戻し部周辺の要素において相対的に高い値 (-150mV) を示した。埋戻し部周辺では埋戻し後にわずかに低下して -170mV 付近で定常状態となるが、埋戻し部上流側の要素では一部で低下傾向を示したものの、その他の要素では大きな変化は見られなかった。

好気性菌バイオマスについてみて見ると、掘削前の100万年間の解析では、埋戻し部上流側の最表層の要素のみ 1×10^{-5} mg/kg で定常状態となり、その他の要素では下限値の 1×10^{-10} mg/kg であった。操業中になるとP5の好気性菌バイオマスが急増し、操業中20年後には 1×10^{-2} mg/kg オーダーに達した。埋戻し部周辺の要素においても、操業中は相対的に高いバイオマスの値を示し、操業中の50年間はそのオーダーが維持されたものの、埋戻し後は急減して下限値となった。埋戻し部下流側では最表層でのみ、操業中の顕著な増加および埋戻し後の急速な低下が認められた。

掘削前の鉄還元菌バイオマスは、 1×10^{-7} mg/kg オーダーまで増加した要素を除き、いずれも下限値から変化しなかった。操業中から埋戻し後にかけても、一部について他の領域よりも高い値 (1×10^{-7} mg/kg オーダー) が示されたのに加え、埋戻し部下流側の最表層において、増減を繰り返しつつ下限値から増加する傾向が認められた。

硫酸還元菌バイオマスは、解析期間を通して、いずれの要素においても下限値 (1×10^{-10} mg/kg) からの変化が認められなかった。

黄鉄鉱は、掘削前の一部のみで100万年後に -6×10^{-8} の比率を示し、また、埋戻し後の埋戻し部では -1.6×10^{-7} を示した。その他の要素では変化量の比に大きな変化は認められなかった。スメクタイトおよびカリ長石においては、解析期間を通して一部で減少傾向を示したものの、その他の要素で

は顕著な変化は見られなかった。石英はすべての要素で掘削前100万年後までに、定常状態にまで低下した。

反応速度に関しては、好気性菌バイオマスは、領域の最表層でのみ 1×10^{-16} mol/kg sec オーダーでの反応速度を示し、埋戻し後3,000年以降はほぼ定常状態となった。一方、黄鉄鉱の溶解速度は、1,000年後まではモデルの最表層付近で、最大でも 1×10^{-18} mol/kg sec オーダーであった。

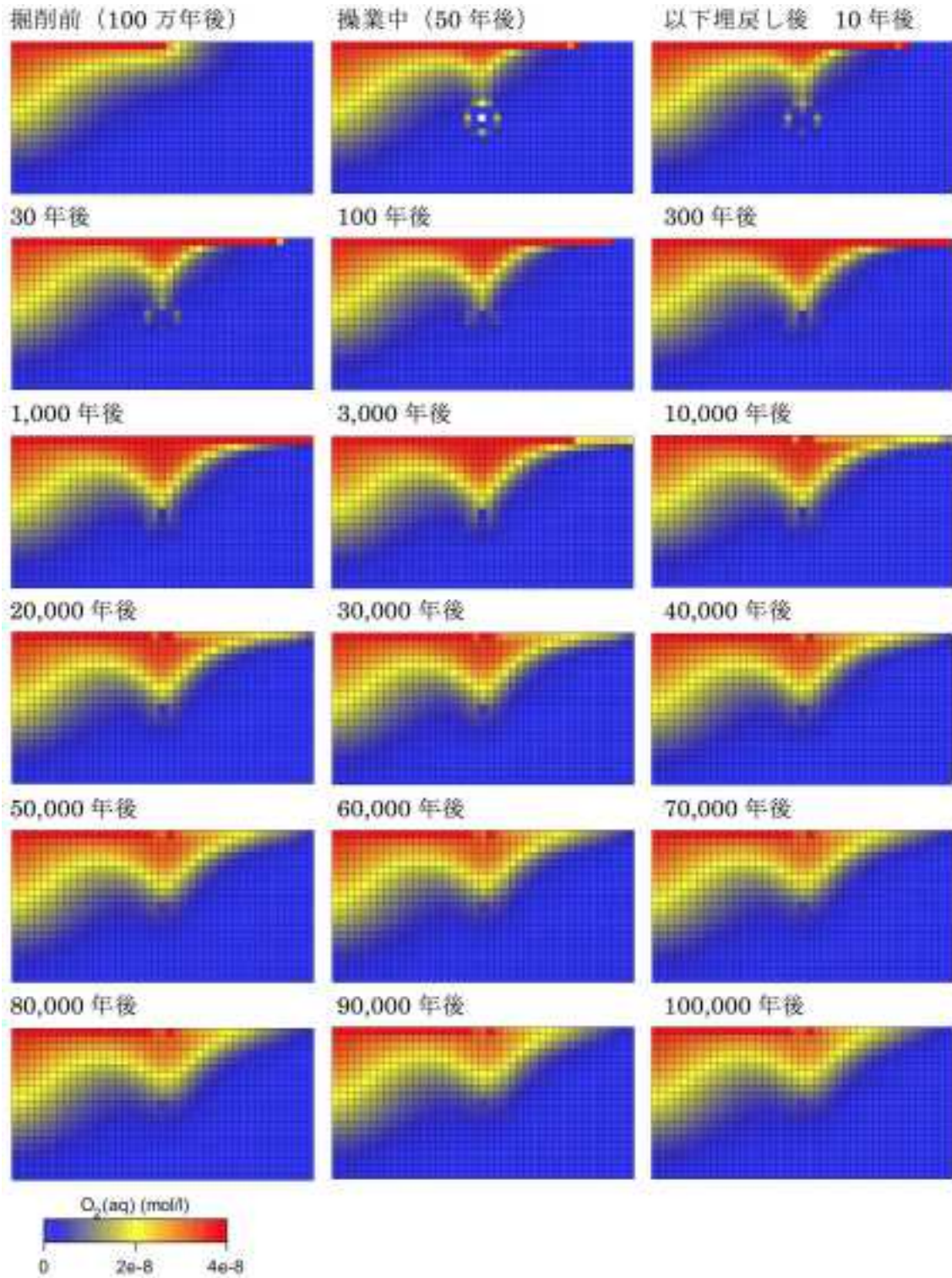


図 2.1.4.2-17 シナリオ 2 における酸素濃度コンター図。

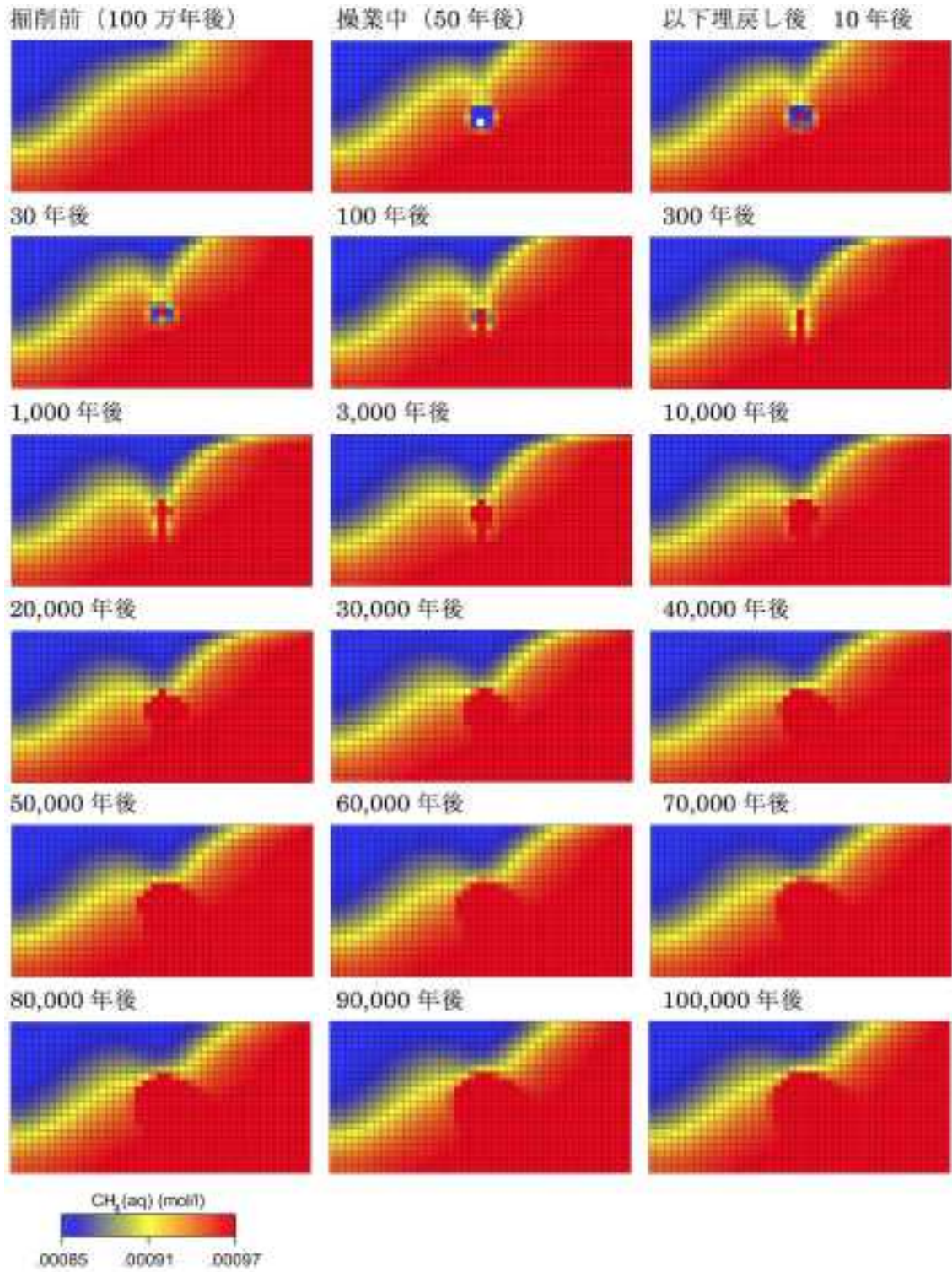


図 2.1.4.2-18 シナリオ 2 におけるメタン濃度コンター図。

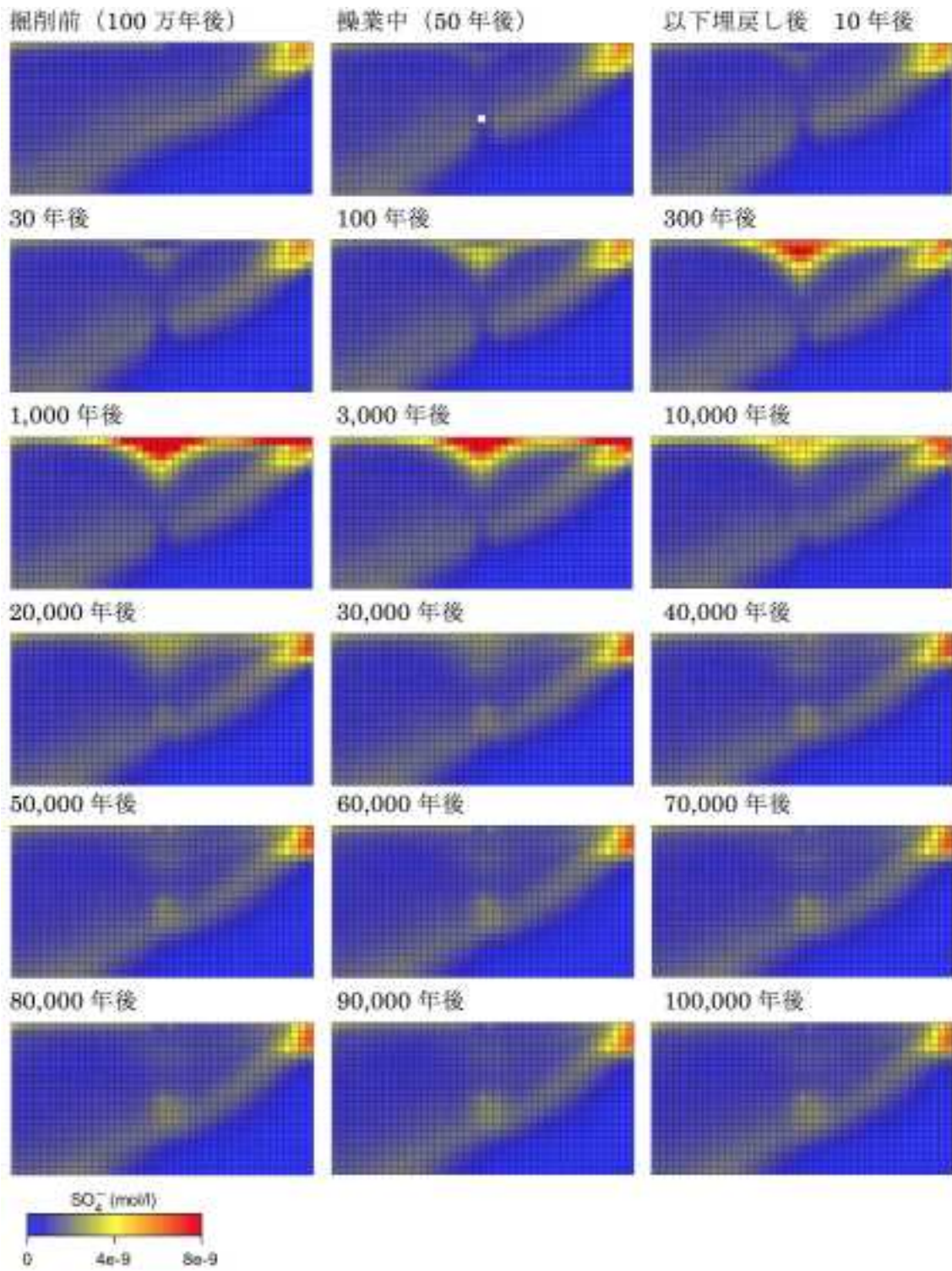


図 2.1.4.2-19 シナリオ 2 における硫酸イオン濃度コンター図.

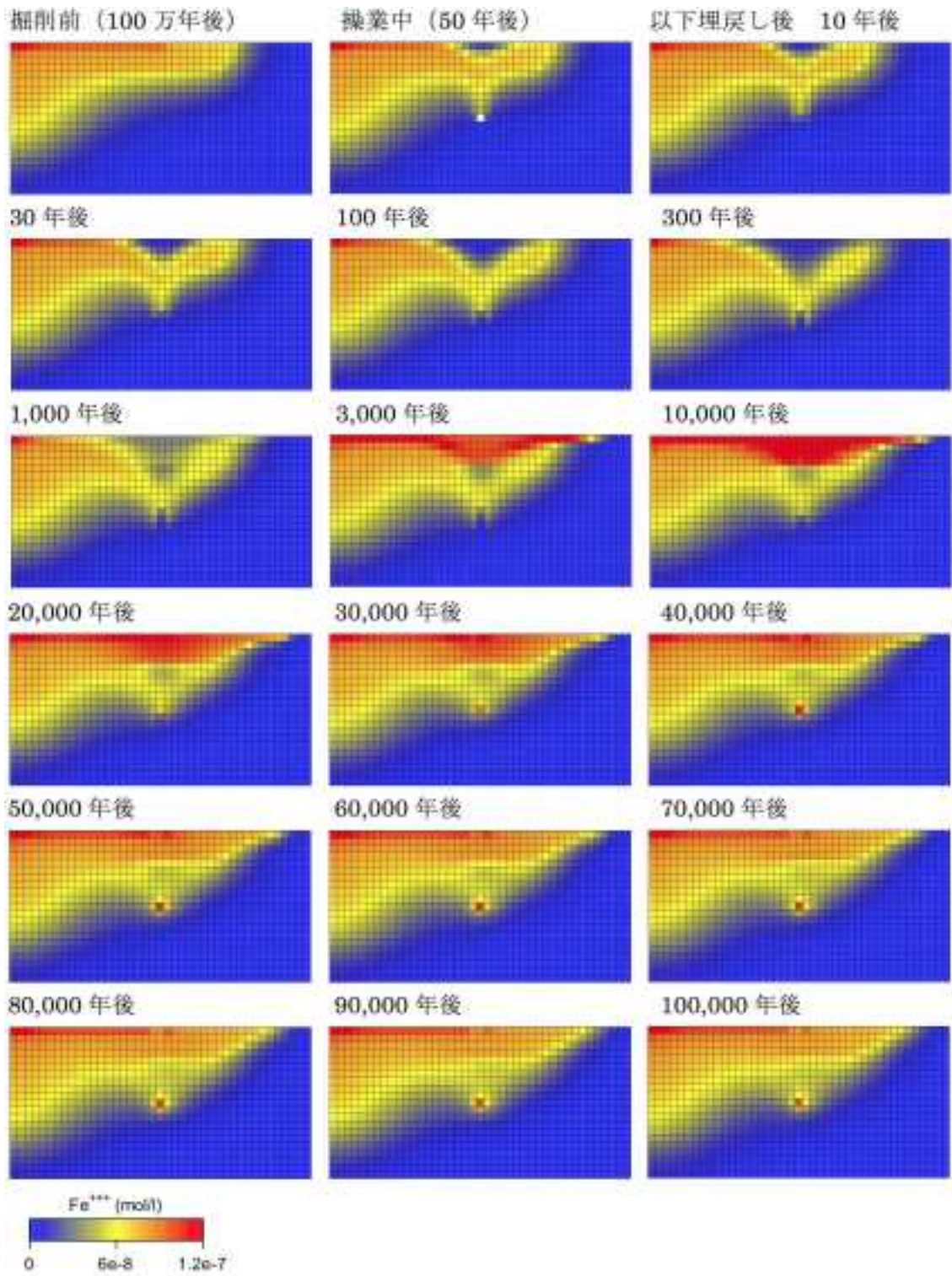


図 2.1.4.2-20 シナリオ 2 における鉄 (III) イオン濃度コンター図。

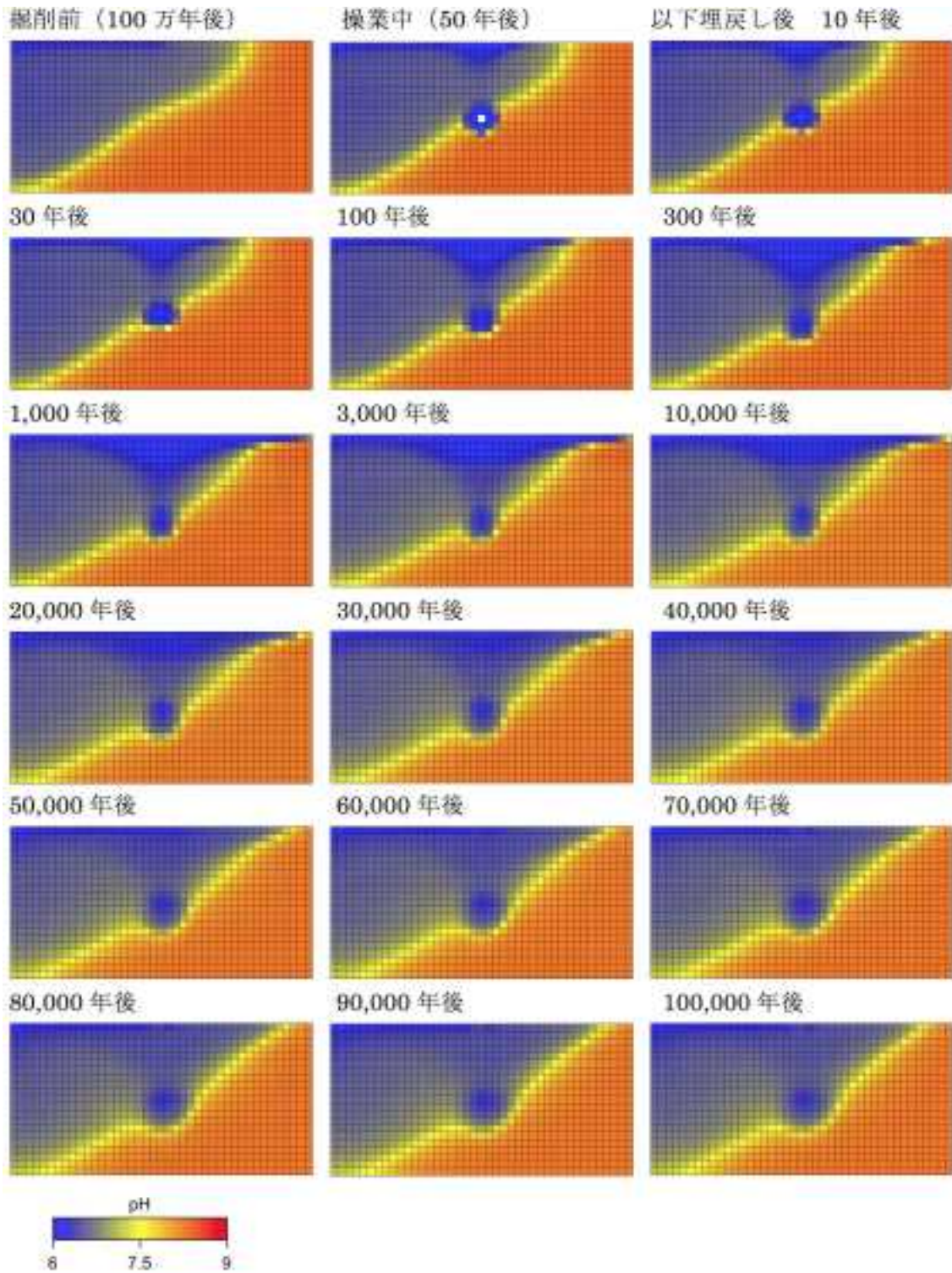


図 2.1.4.2-21 シナリオ 2 における pH コンター図。

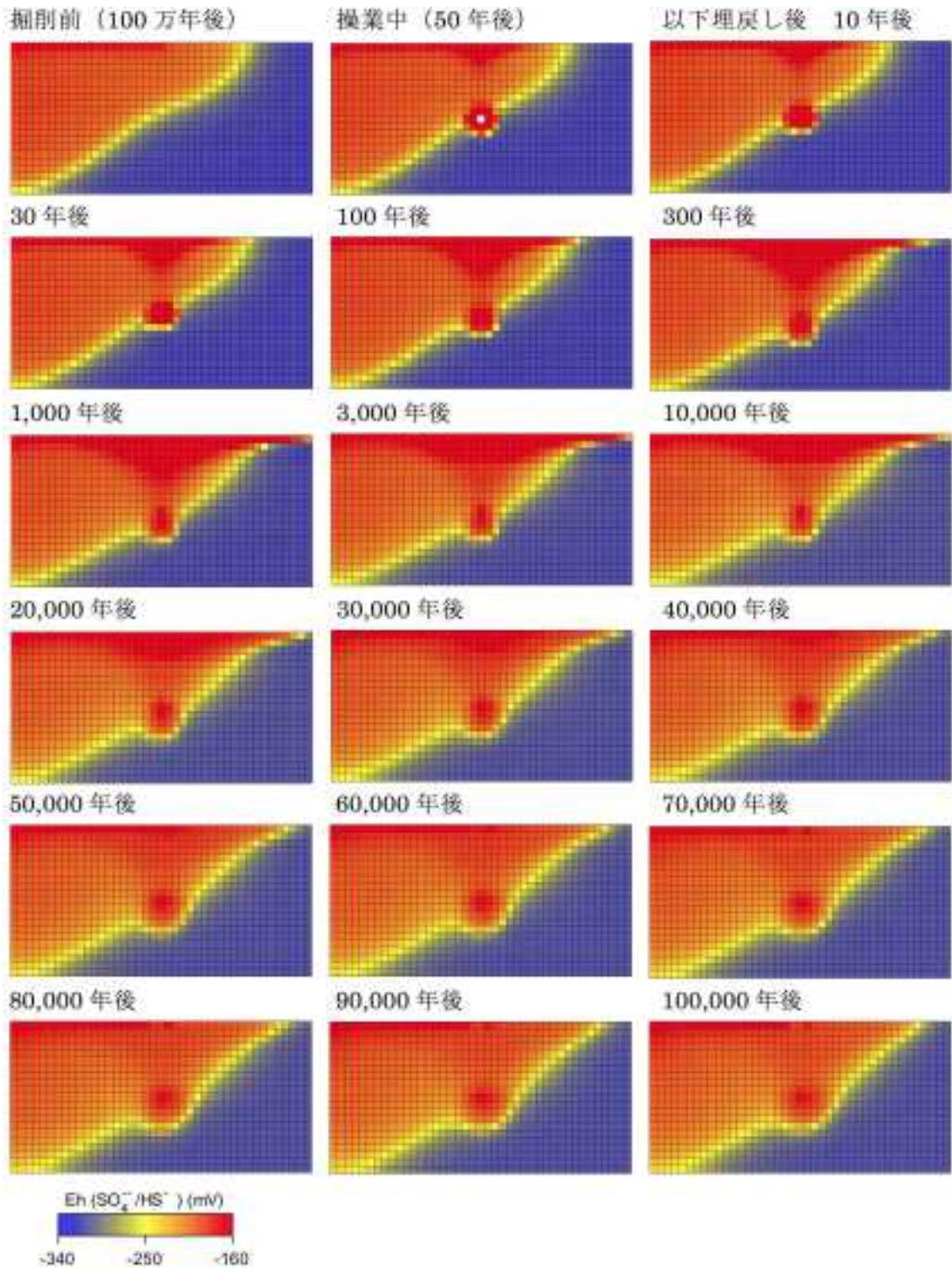


図 2.1.4.2-22 シナリオ 2 における Eh ($\text{SO}_4^{2-}/\text{HS}^-$) コンター図。

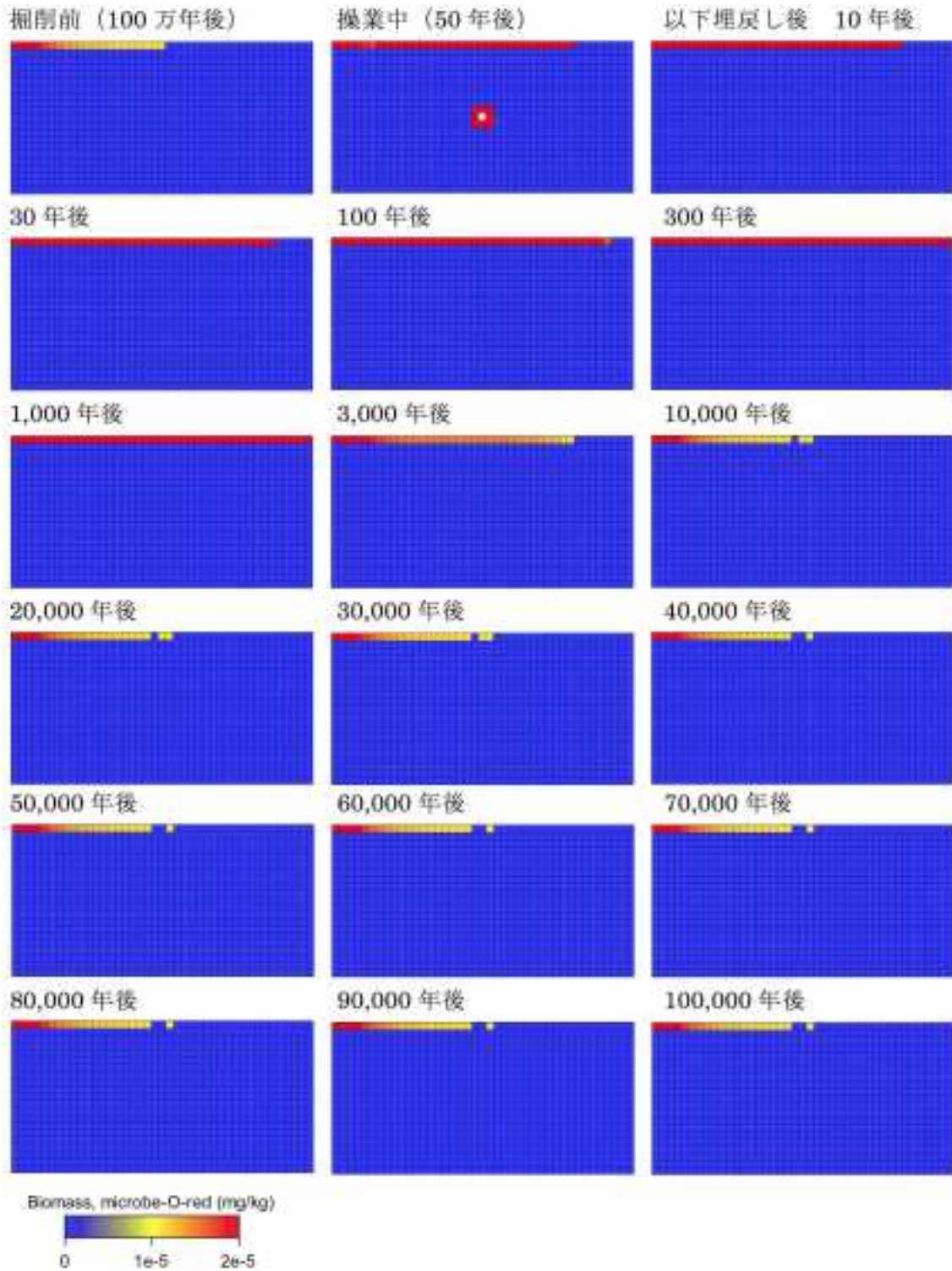


図 2.1.4.2-23 シナリオ 2 における好気性菌バイオマスコンター図。

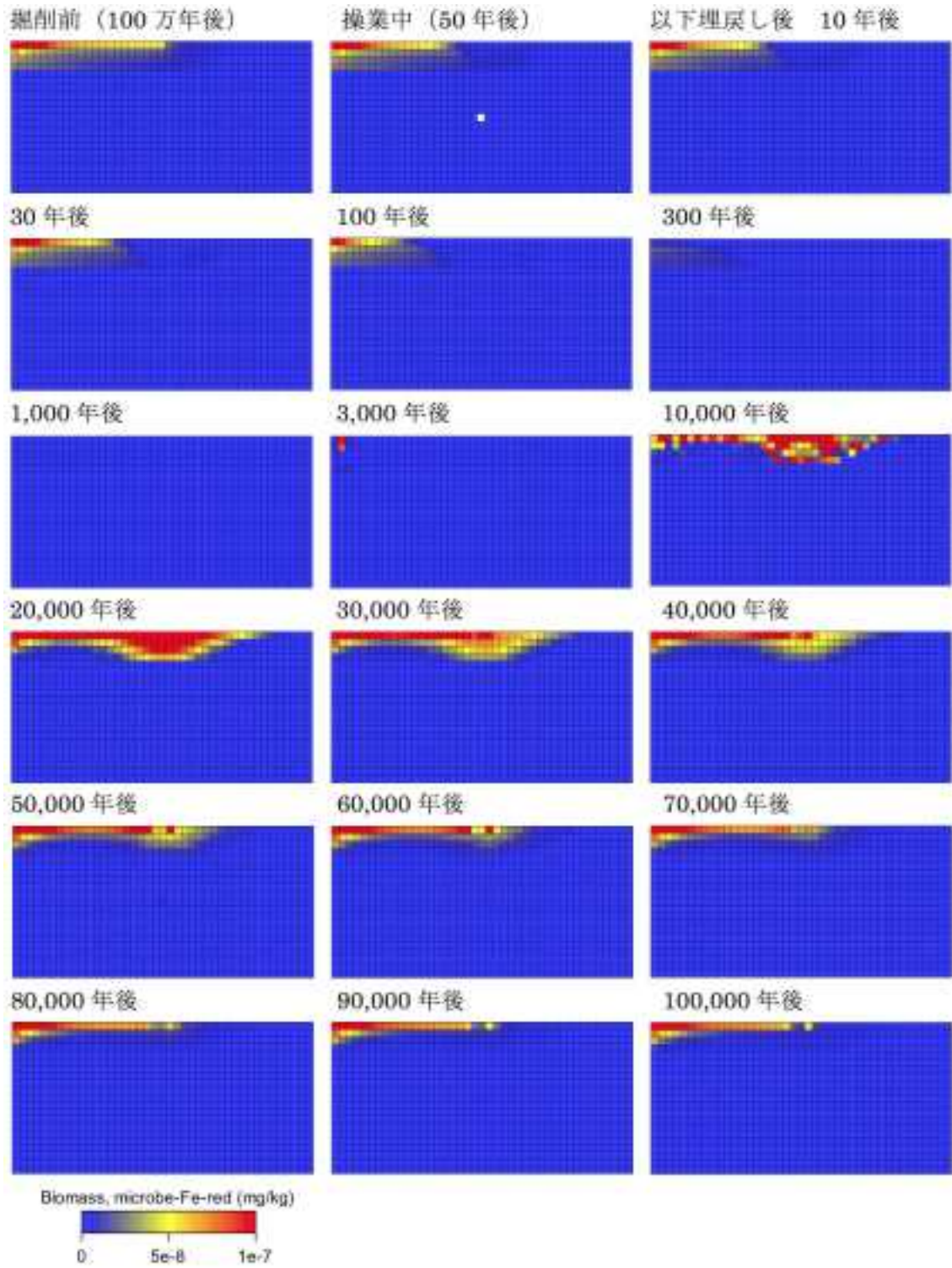


図 2.1.4.2-24 シナリオ 2 における鉄還元菌バイオマスコンター図。

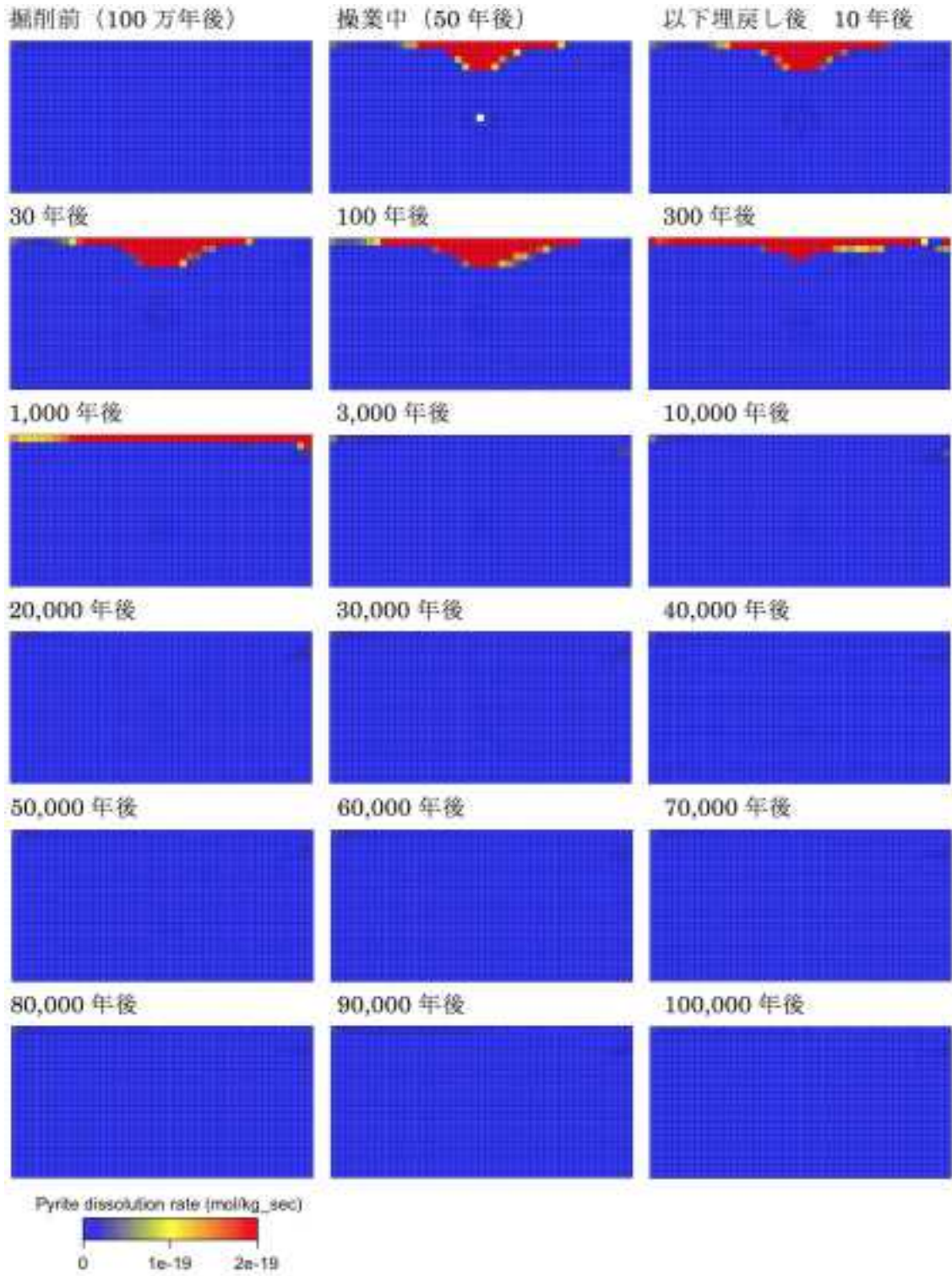


図 2.1.4.2-25 シナリオ 2 における黄鉄鉱の溶解速度コンター図。

・シナリオ3

酸素濃度分布の経時変化を図 2.1.4.2-26, 硫酸イオン濃度分布を 2.1.4.2-27, pH 分布を 2.1.4.2-28, Eh 分布を 2.1.4.2-29, 黄鉄鉱の溶解度分布を図 2.1.4.2-30 に示す。

化学種の濃度分布に関して、掘削前の解析は約 42 万年で停止したものの、化学種濃度の経時変化は、全解析期間を通して概ねシナリオ 1 と同様の变化を示した。

最表層の要素の酸素濃度は、大気圧飽和の濃度付近 2.3×10^{-4} mol/L 付近の濃度にまで達し、それ以外の要素も解析期間を通して上昇する傾向を示した。硫酸イオン濃度は、掘削前に定常状態に達しなかった P15 および P16 を除き、 8×10^{-9} mol/L を超える値で推移したが、それら2つの要素も、埋戻し後に 8×10^{-9} mol/L に向けて増加した。鉄(III)イオンは掘削前から埋戻し後までの解析を通じて増加傾向は認められなかった。

pH および Eh ($\text{SO}_4^{2-}/\text{HS}^-$) に関しては、pH および Eh ($\text{SO}_4^{2-}/\text{HS}^-$) についても、シナリオ1と同様の変化を示しており、いずれの要素においても pH は 8.5 ~ 9.0 の間で推移した。Eh ($\text{SO}_4^{2-}/\text{HS}^-$) は -300mV 付近の値を示し、解析期間を通じて顕著な変化は見られなかった。

鉱物の初期値に対する変化量の比に関しては、シナリオ3における黄鉄鉱の初期値に対する変化量の比は、一部の要素を除き、掘削前の約42万年後には $-1 \times 10^{-8} \sim -1 \times 10^{-7}$ オーダーの値を示した。その後、一部 -6×10^{-8} まで低下したが、それ以外の要素においては、操業中から埋戻し後の解析期間を通じて変化は見られなかった。カリ長石の変化量の比は、上流側の最表層の要素において低下傾向が認められ、シナリオ1と同様に埋戻し後の10万年後には -6×10^{-5} に達した。石英は掘削前にはいずれの要素においても減少傾向を示し、続く操業中以降も一定の値を示した。一方、スメクタイトにおいては顕著な変化は認められなかった。

シナリオ3における黄鉄鉱の溶解反応速度は、シナリオ1と同様に解析期間を通じて $1 \times 10^{-20} \sim 1 \times 10^{-19}$ mol/kg/sec オーダーの値を示した。操業中から埋戻し後3,000年後までは、モデル第1層のみで第2層以深よりも高い値を示した。埋戻し後3,000年後以降はモデル第1層の最上流付近で、他の要素よりも相対的に高い値で推移した。

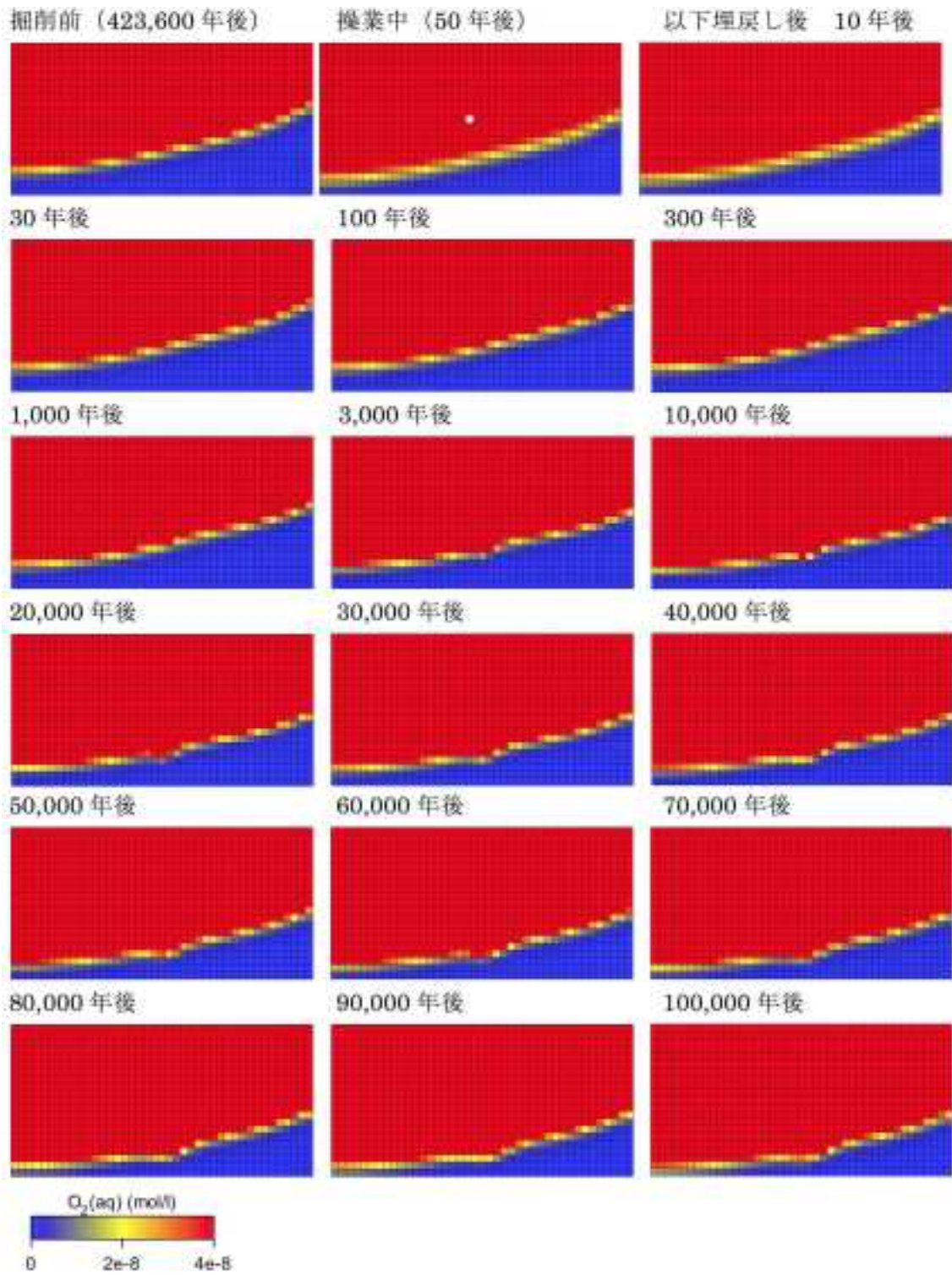


図 2.1.4.2-26 シナリオ 3 における酸素濃度コンター図.

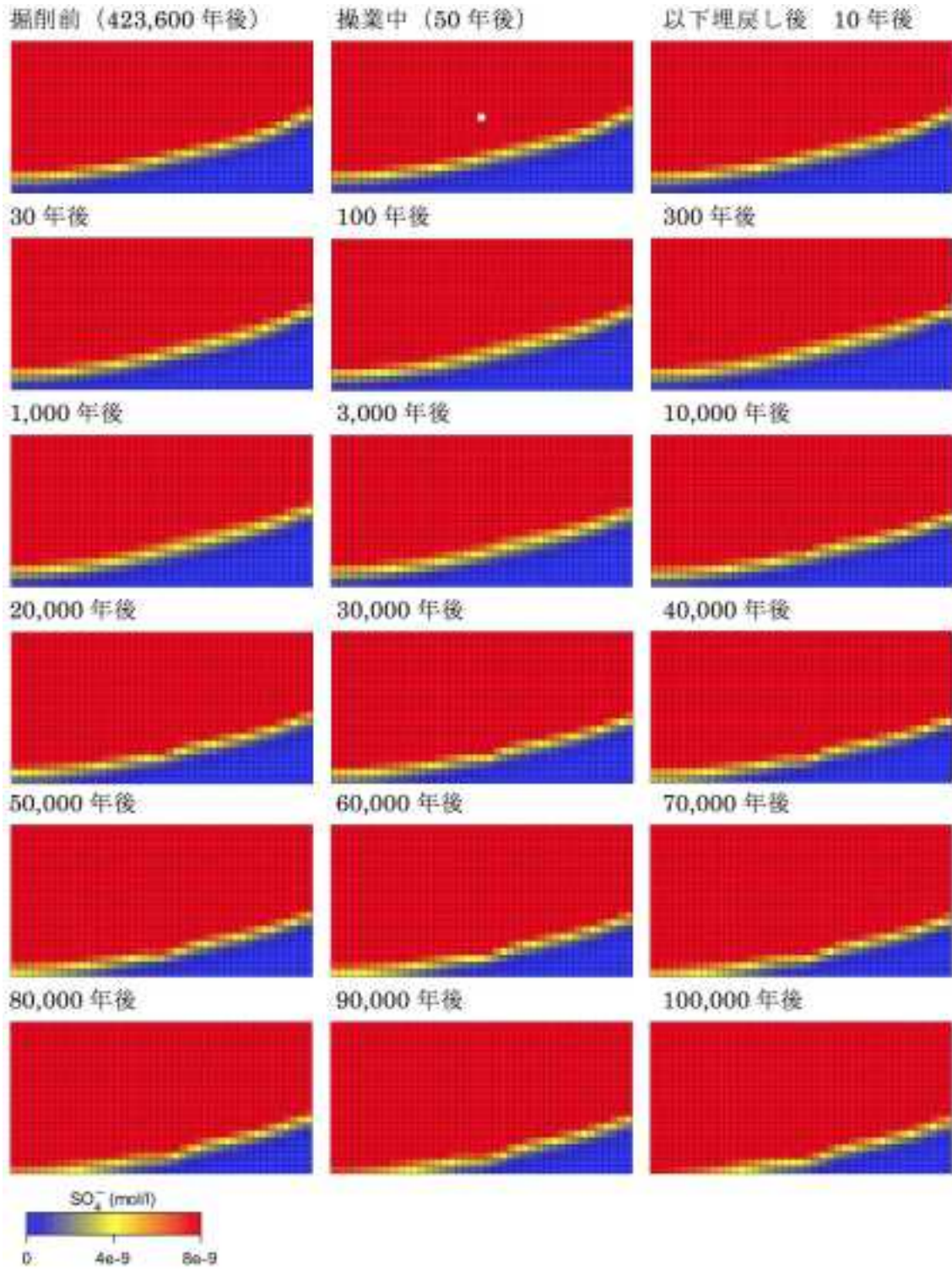


図 2.1.4.2-27 シナリオ 3 における硫酸イオン濃度コンター図.

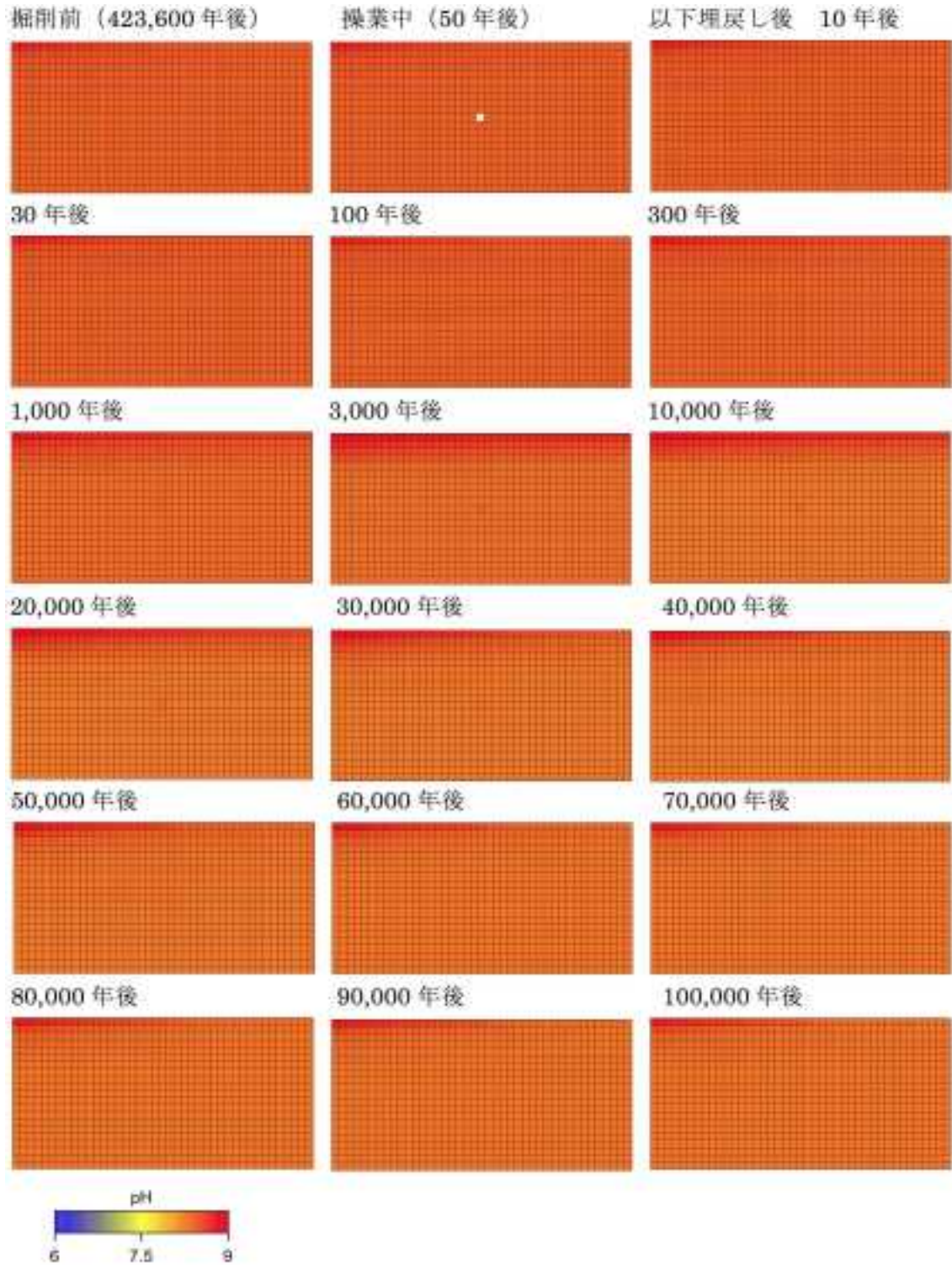


図 2.1.4.2-28 シナリオ 3 における pH コンター図.

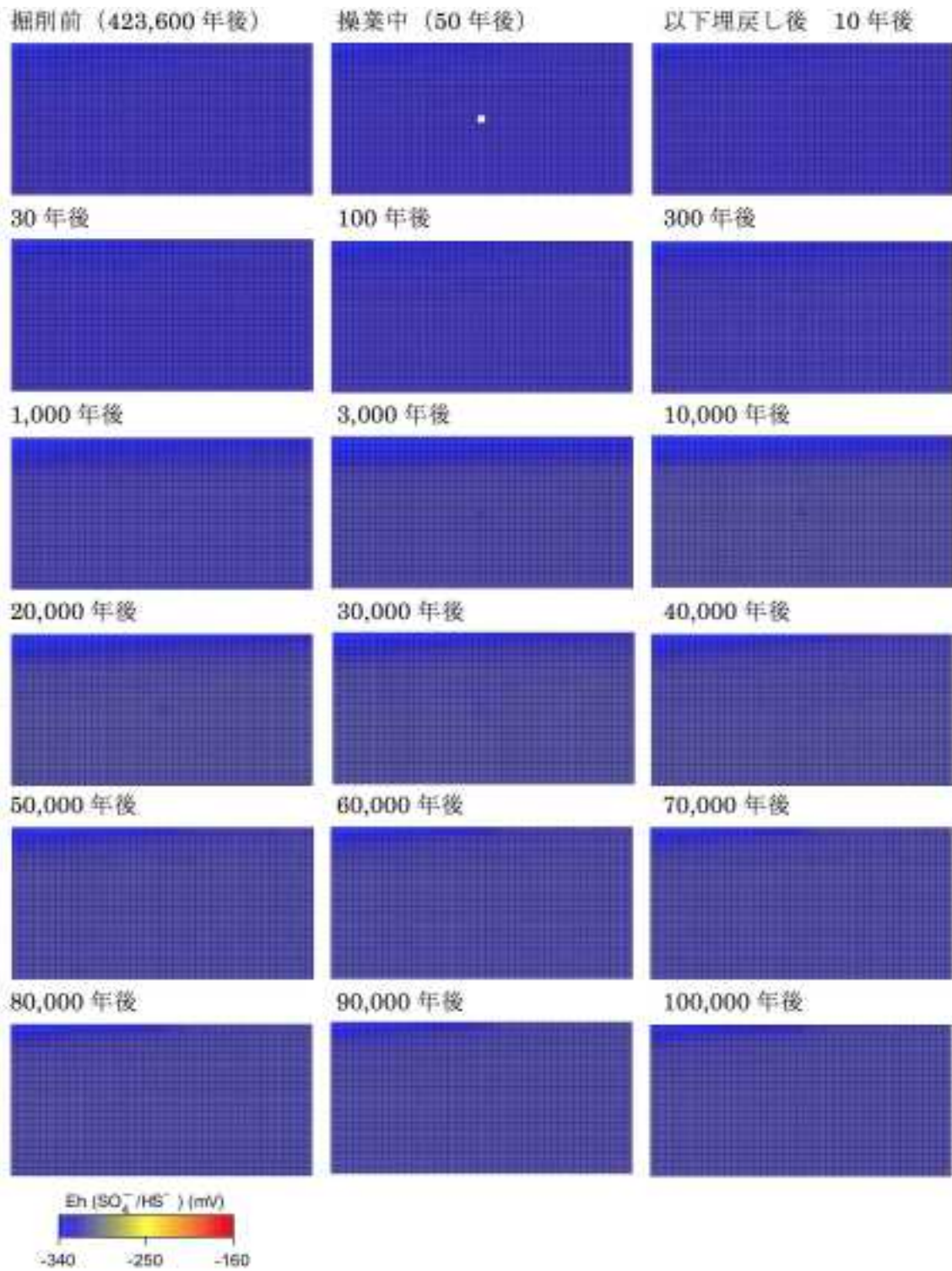


図 2.1.4.2-29 シナリオ 3 における Eh (SO₄²⁻/HS⁻) コンター図。

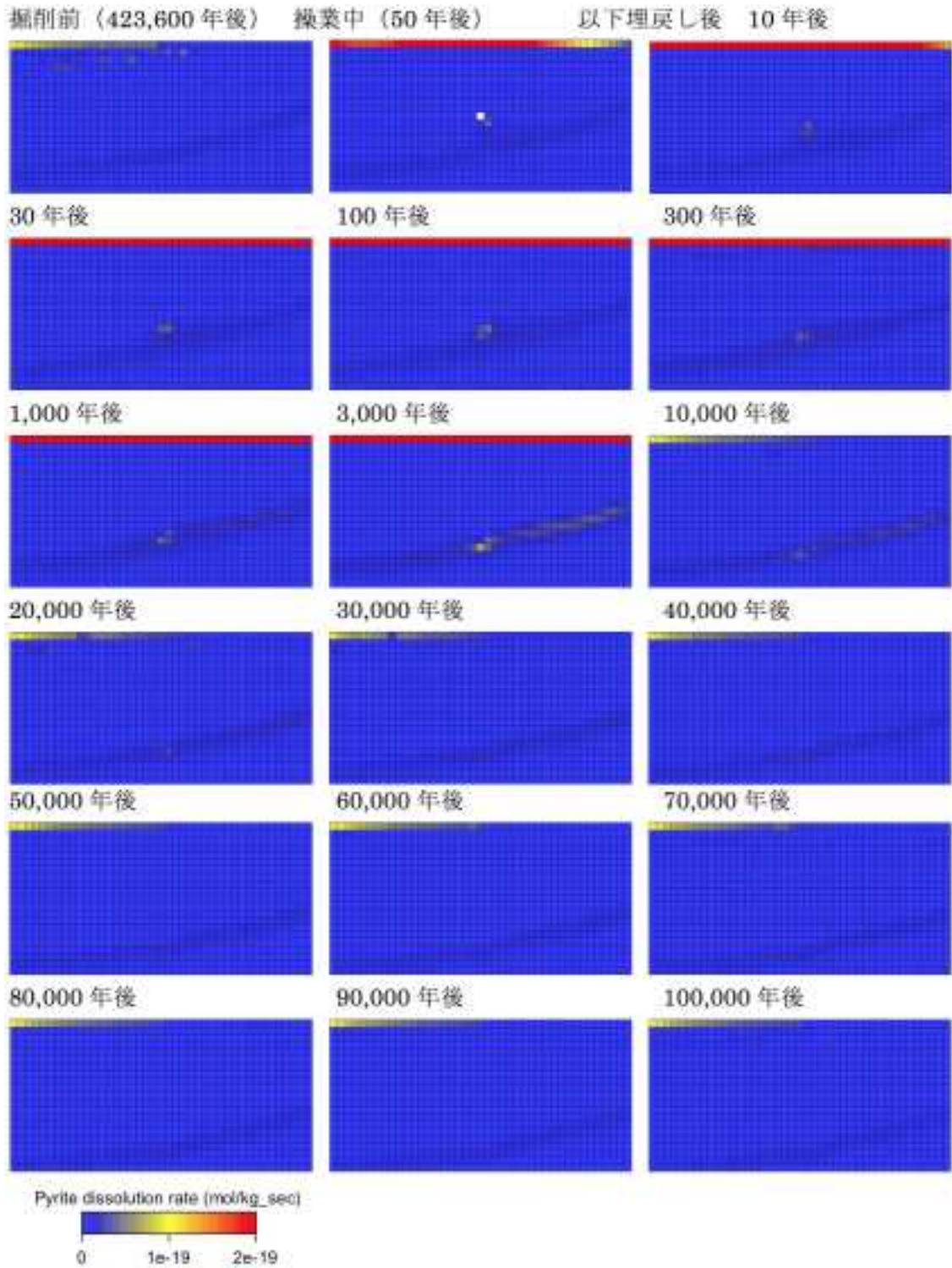


図 2.1.4.2-30 シナリオ 3 における黄鉄鉱の溶解速度コンター図。

・シナリオ4

シナリオ 4 における酸素濃度分布を図 2.1.4.2-31, メタン濃度分布を図 2.1.4.2-32, 硫酸イオン濃度分布を図 2.1.4.2-33, 鉄 (III) イオン濃度分布を図 2.1.4.2-34, pH を図 2.1.4.2-35, Eh を図 2.1.4.2-36, 好気性菌バイオマスを図 2.1.4.2-37, 鉄還元菌バイオマスを図 2.1.4.2-38, 黄鉄鉱の溶解速度を図 2.1.4.2-39 に示す。

シナリオ4における酸素濃度およびメタン濃度は、全解析期間を通してシナリオ2と同様の経時変化を示した。

酸素濃度は最大でも、大気圧飽和の濃度 (2.3×10^{-4} mol/L) と比較して4桁程度低い 1×10^{-8} mol/L 付近の値であり、埋戻し部周辺の要素 (P7 ~ P11) の操業中は 1×10^{-11} ~ 1×10^{-13} mol/L オーダーまで低下した。

メタン濃度は 8.5×10^{-4} ~ 9.7×10^{-4} mol/L の変動幅を示し、埋戻し部上流域において相対的に低い値を示したが、深度方向への浸透は抑えられていた。硫酸イオン濃度もシナリオ2と同じ変化傾向を示したが、埋戻し後に見られたP5での急激な増加は約 5×10^{-9} mol/L に抑えられた。

鉄(III)イオン濃度の経時変化も、概ねシナリオ2と同様の傾向を示した。ただし、掘削前のP13の鉄(III)イオン濃度は、シナリオ2では掘削前100万年後に 6×10^{-8} mol/L に達したのに対し、シナリオ4では10万年後には 7×10^{-8} mol/L を超えた。

掘削前の100万年間のpHは、すべての要素において低下傾向を示し、埋戻し部上流側ではいずれも酸性を示した。操業中は埋戻し部周辺において、下限値の6まで低下したものの、埋戻し後は6~7程度の範囲で増加する傾向が認められた。一方、埋戻し部下流側の最表層において、pH6まで低下した後、約6.6まで回復した。

Eh ($\text{SO}_4^{2-}/\text{HS}^-$) は、掘削前の100万年間にいずれの要素においても増加する傾向を示し、続く操業中には、特に埋戻し部上流側、埋戻し部周辺の要素において相対的に高い値 (-150mV) を示した。埋戻し部周辺では埋戻し後にわずかに低下して -170mV 付近で定常状態となるが、埋戻し部上流側の要素では一部で低下傾向を示したものの、その他の要素では大きな変化は見られなかった。

掘削前の好気性菌バイオマスは、一部以外の対象要素ではいずれも 1×10^{-10} mg/kg の下限値であったが、操業中になると埋戻し部周辺においてバイオマスの顕著な増加が認められた。埋戻し後には一部のみで 1×10^{-5} mg/kg オーダーの値で推移した一方で、埋戻し部周辺等では1万年後までに下限値まで低下した。

掘削前および操業中の鉄還元菌バイオマスは一部でのみ 1×10^{-7} ~ 1×10^{-8} mg/kg オーダーで推移した。

硫酸還元菌バイオマスは、解析期間を通して、いずれの要素においても下限値 (1×10^{-10} mg/kg) からの変化が認められなかった。

黄鉄鉱においては、一部において掘削前の100万年後以降から埋戻し後まで、 -6.0×10^{-8} の比率を示した。また、埋戻し部では埋戻し後4万年後の変化量の比率は -1.6×10^{-7} から -6.0×10^{-8} に達した。スメクタイトおよびカリ長石においては、シナリオ2と同様に、解析期間を通して一部で減少傾向を示したものの、その他の要素では顕著な変化は見られなかった。石英についても、すべての要素で掘削前100万年後までに、比率が定常状態にまで低下した。

好気性菌バイオマスは、領域の最表層でのみ 1×10^{-16} mol/kg sec オーダーでの反応速度を示し、埋戻し後10,000年以降はほぼ定常状態となった。一方、黄鉄鉱の溶解速度は、3,000年後まではモデルの最表層付近で、最大でも 1×10^{-18} mol/kg sec オーダーであった。

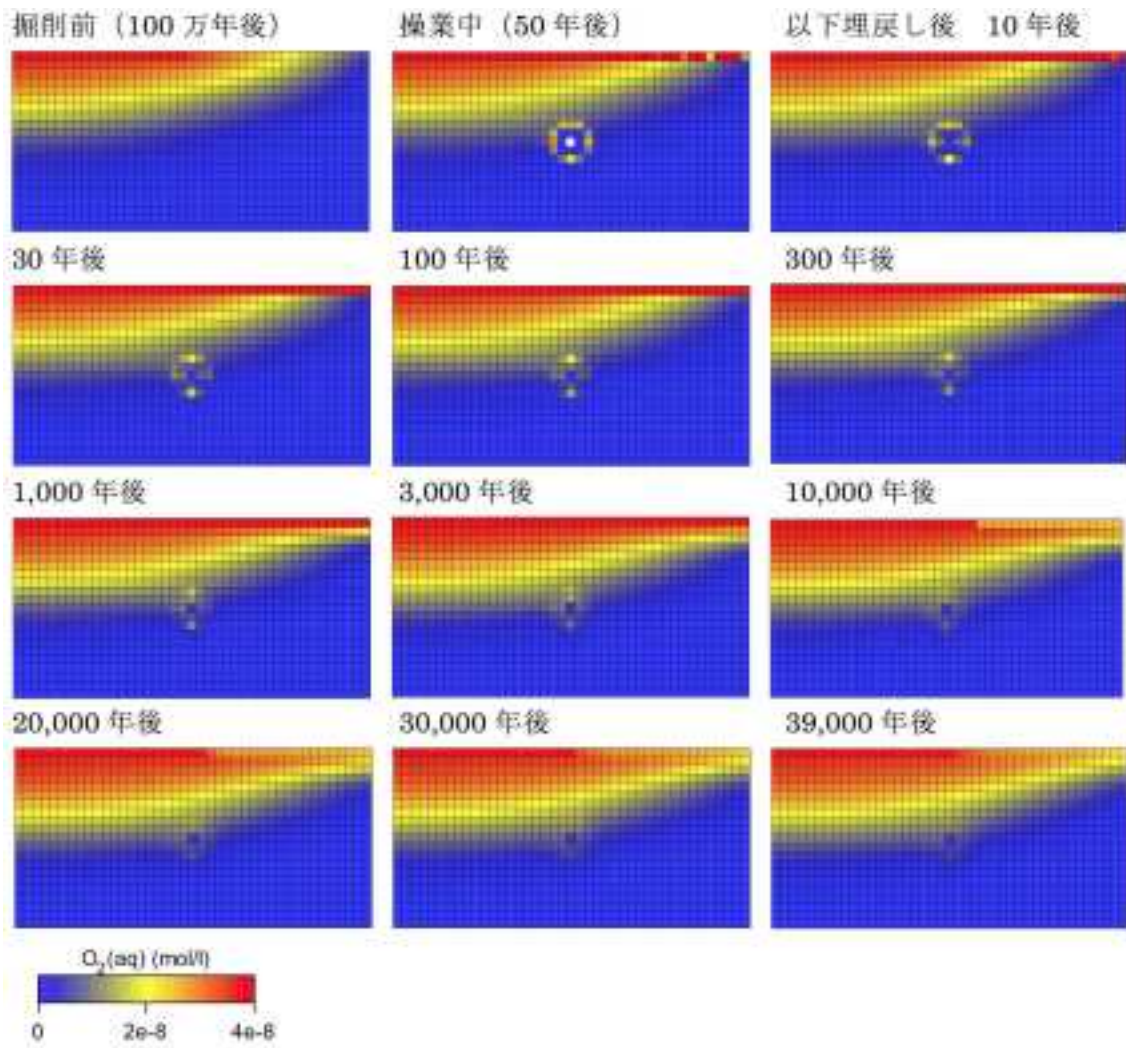


図 2.1.4.2-31 シナリオ 4 における酸素濃度コンター図.

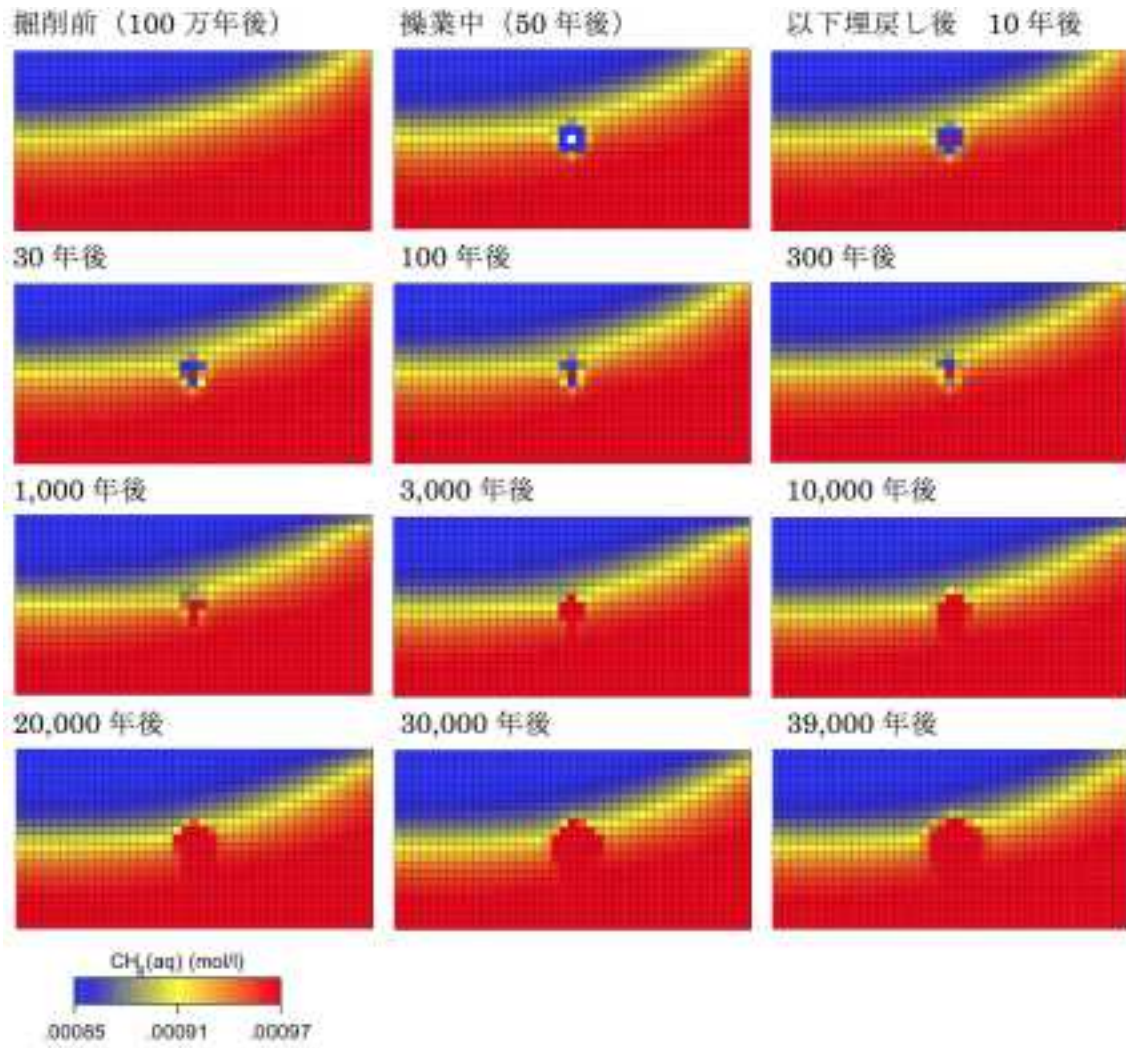


図 2.1.4.2-32 シナリオ 4 におけるメタン濃度コンター図。

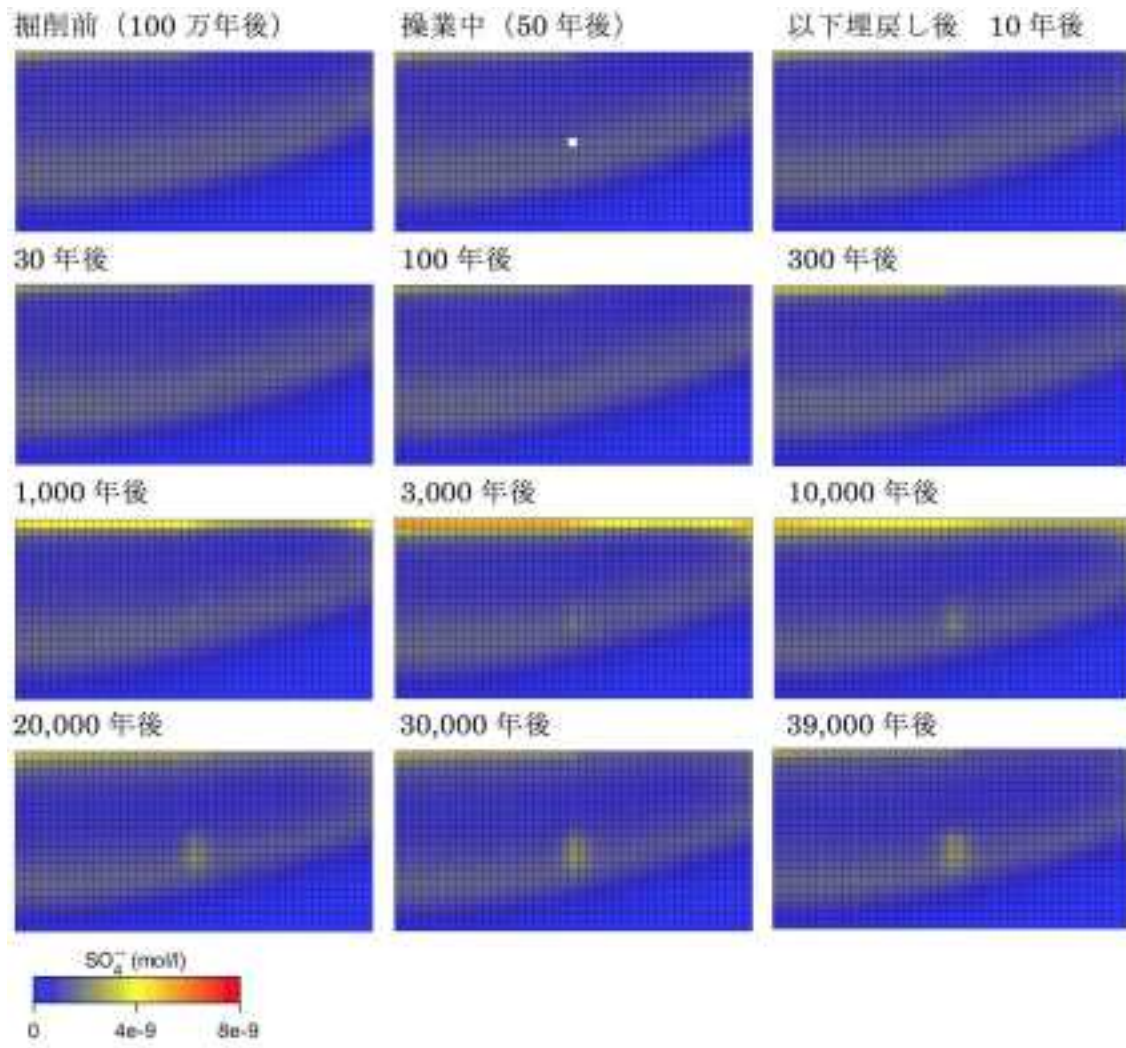


図 2.1.4.2-33 シナリオ 4 における硫酸イオン濃度コンター図.

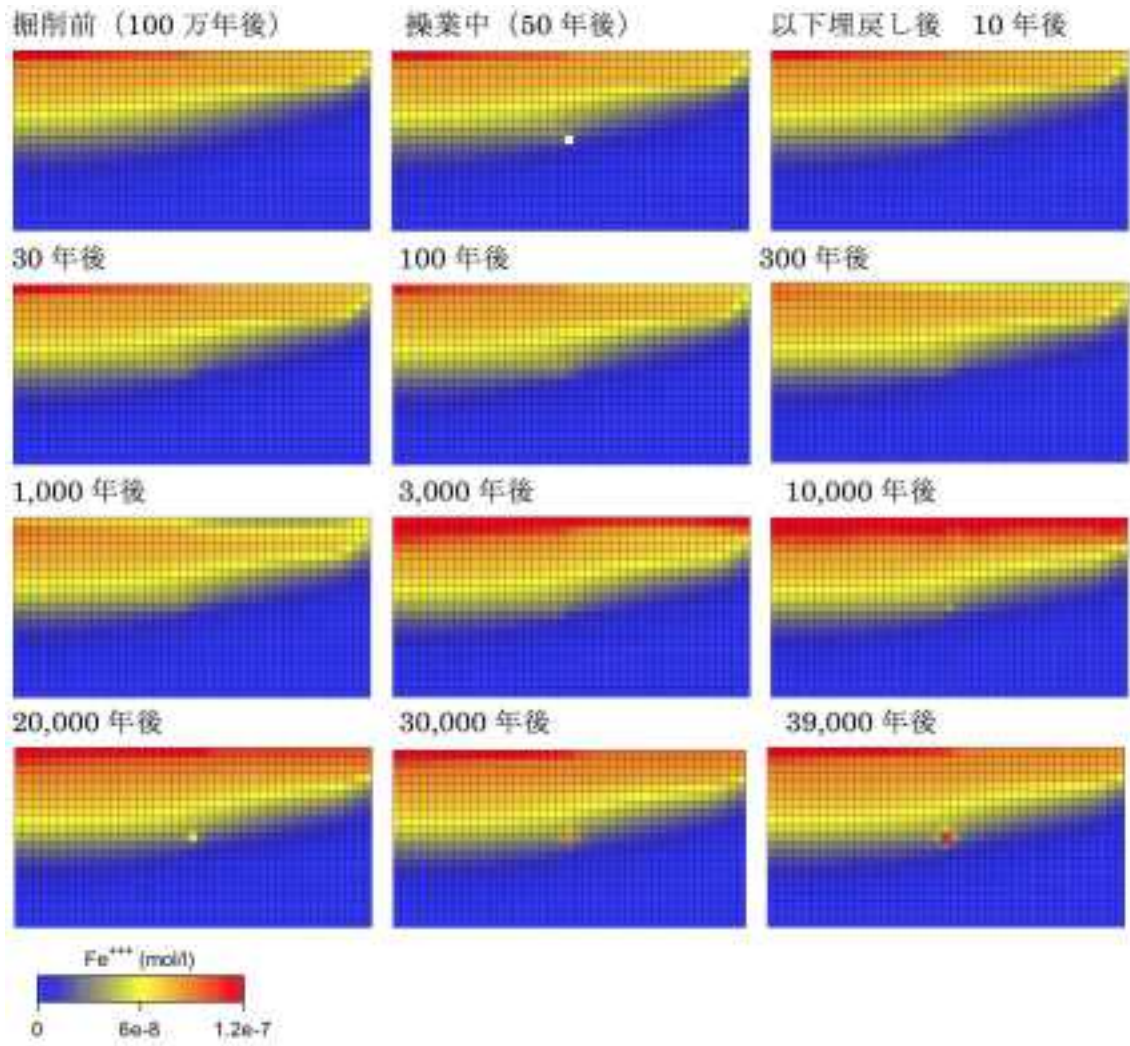


図 2.1.4.2-34 シナリオ 4 における鉄 (III) イオン濃度コンター図。

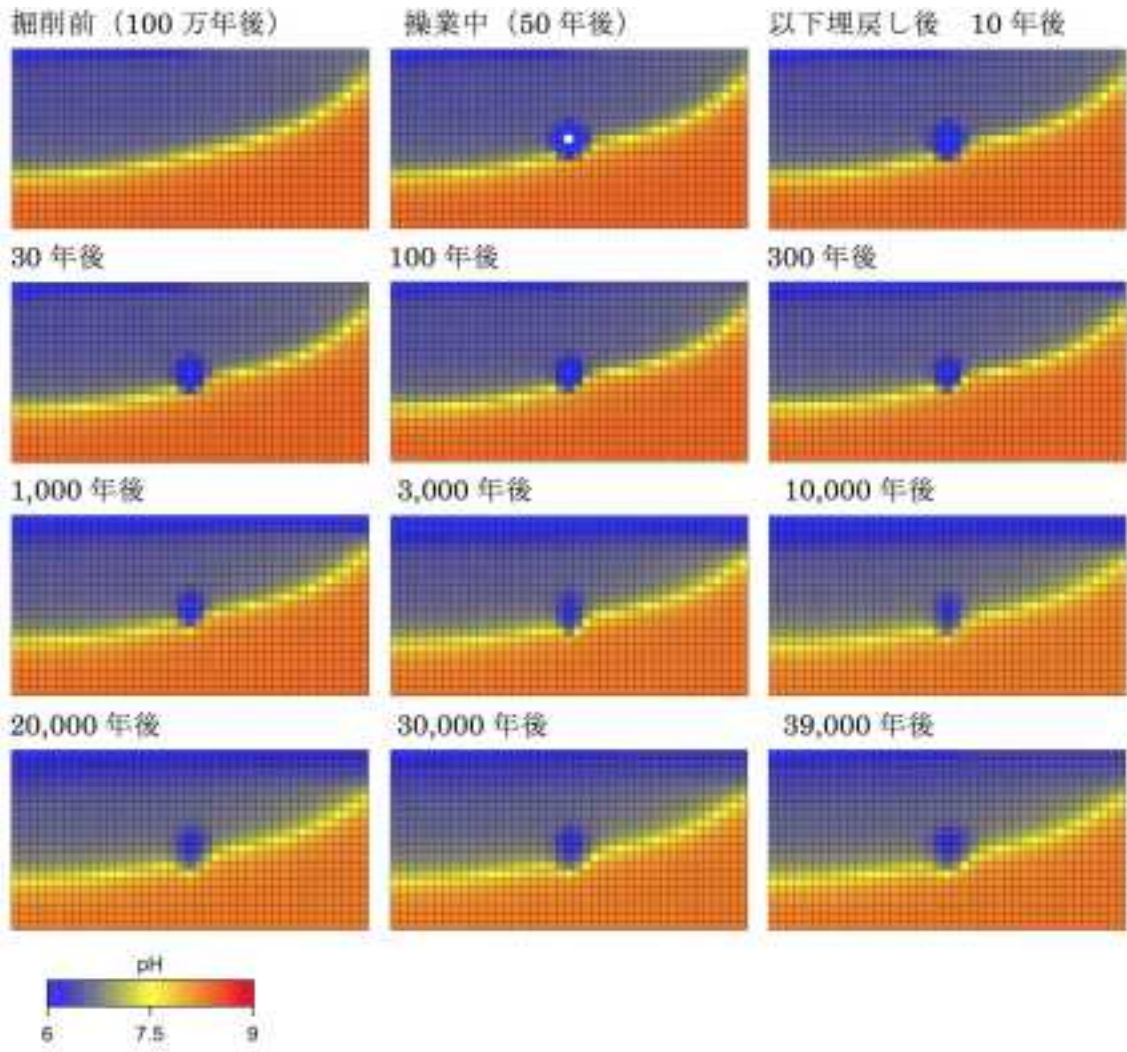


図 2.1.4.2-35 シナリオ 4 における pH コンター図。

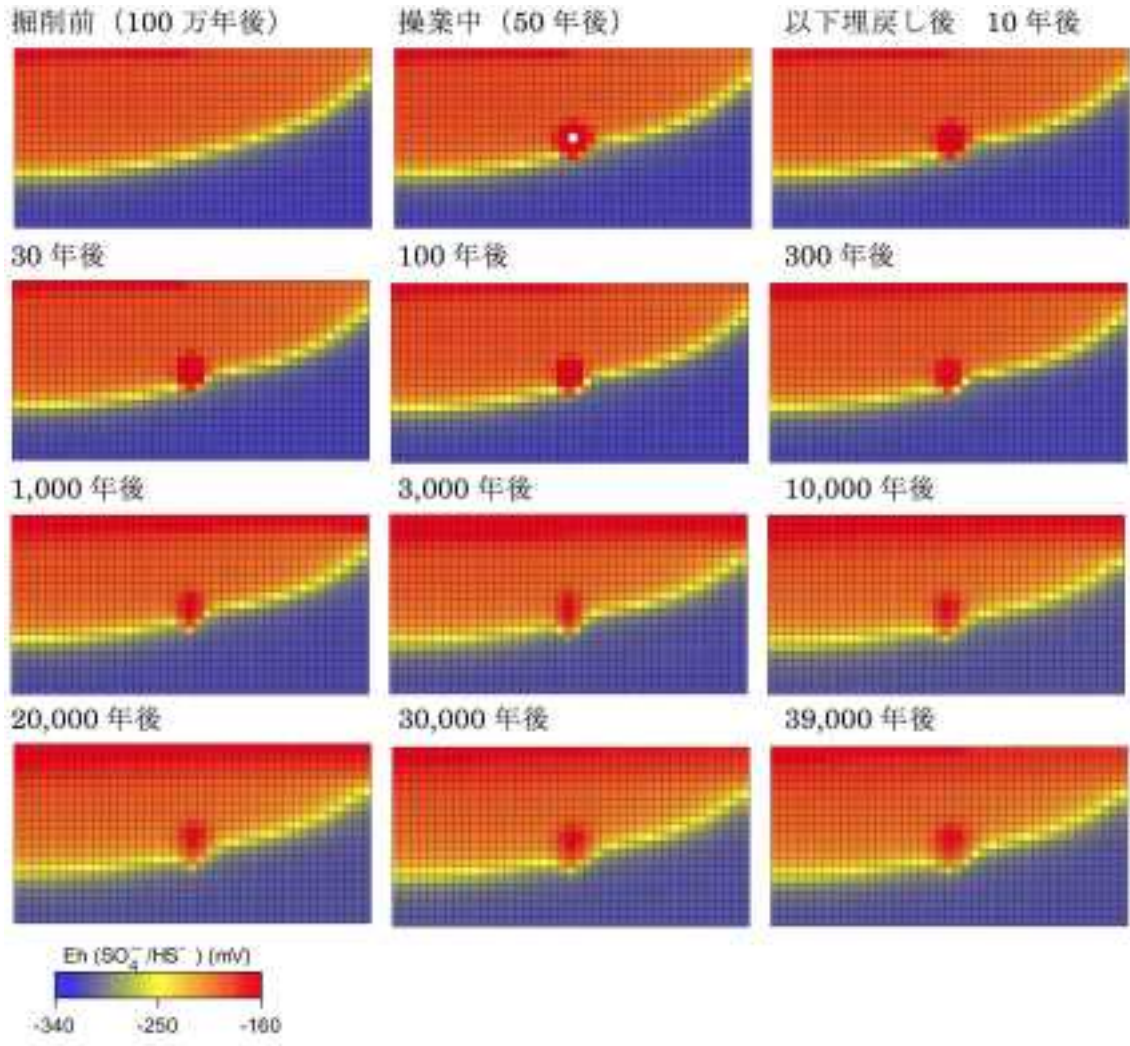


図 2.1.4.2-36 シナリオ 4 における Eh ($\text{SO}_4^{2-}/\text{HS}^-$) コンター図。

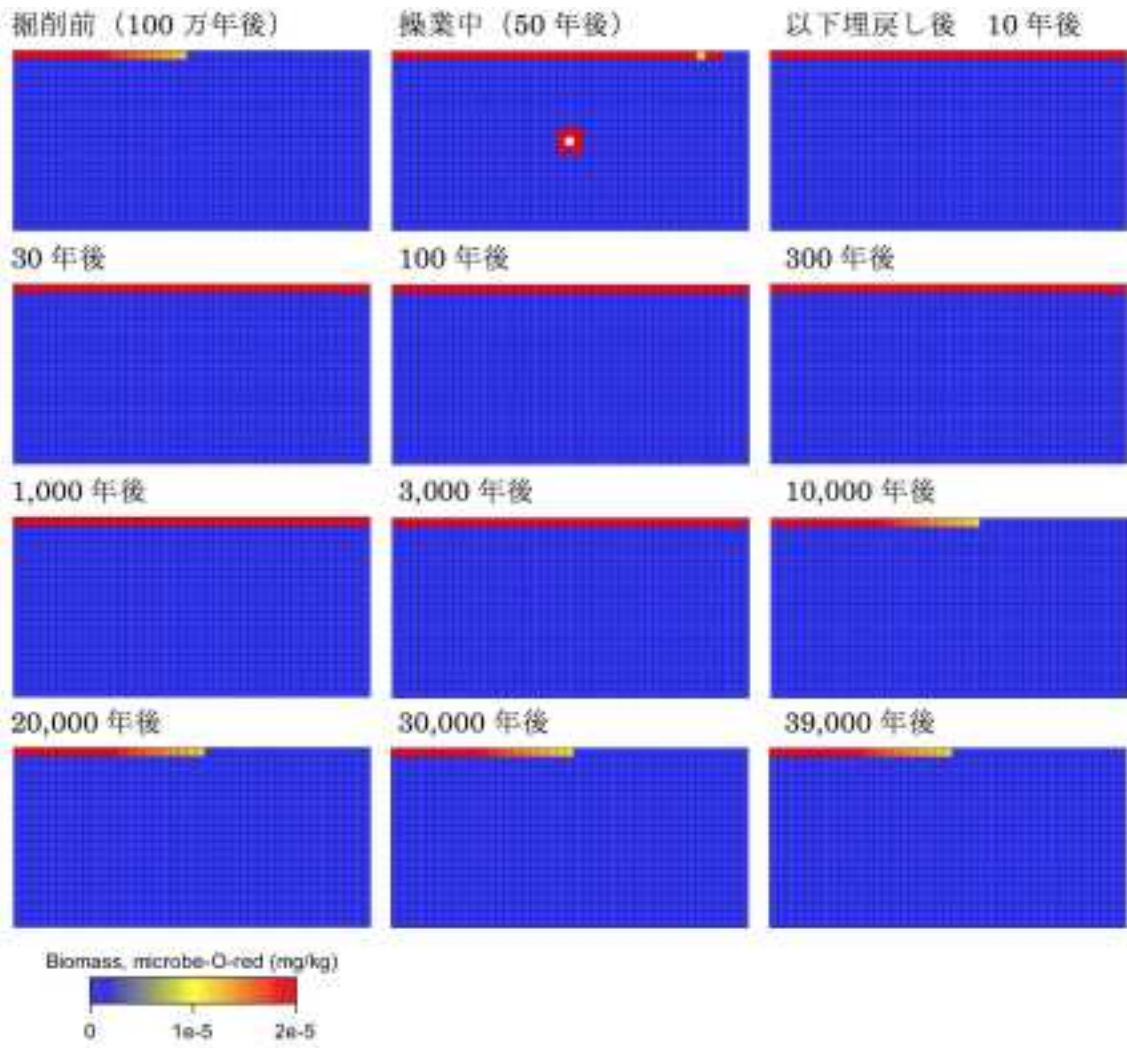


図 2.1.4.2-37 シナリオ 4 における好気性菌バイオマスコンター図.

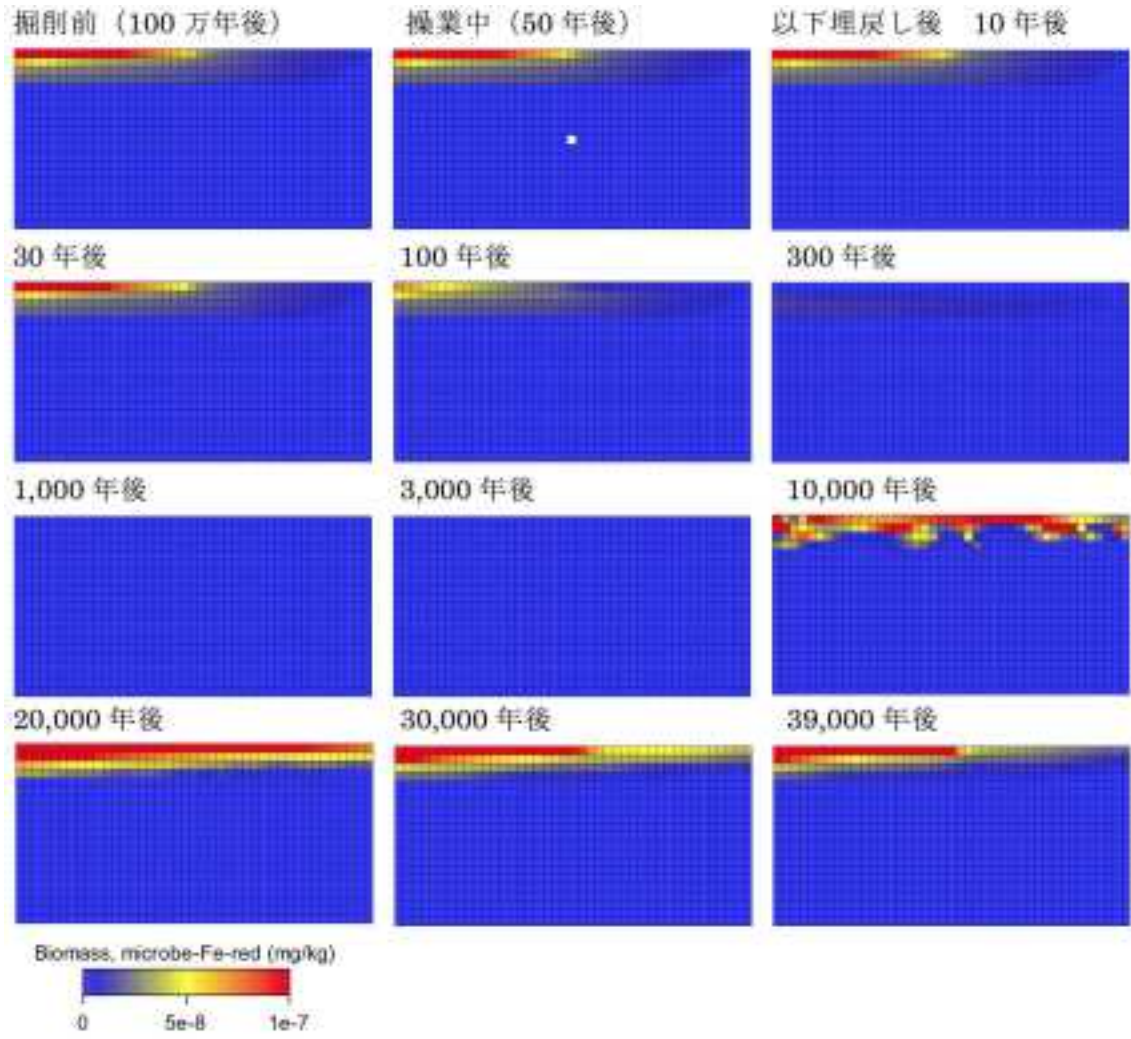


図 2.1.4.2-38 シナリオ 4 における鉄還元菌バイオマスコンター図.

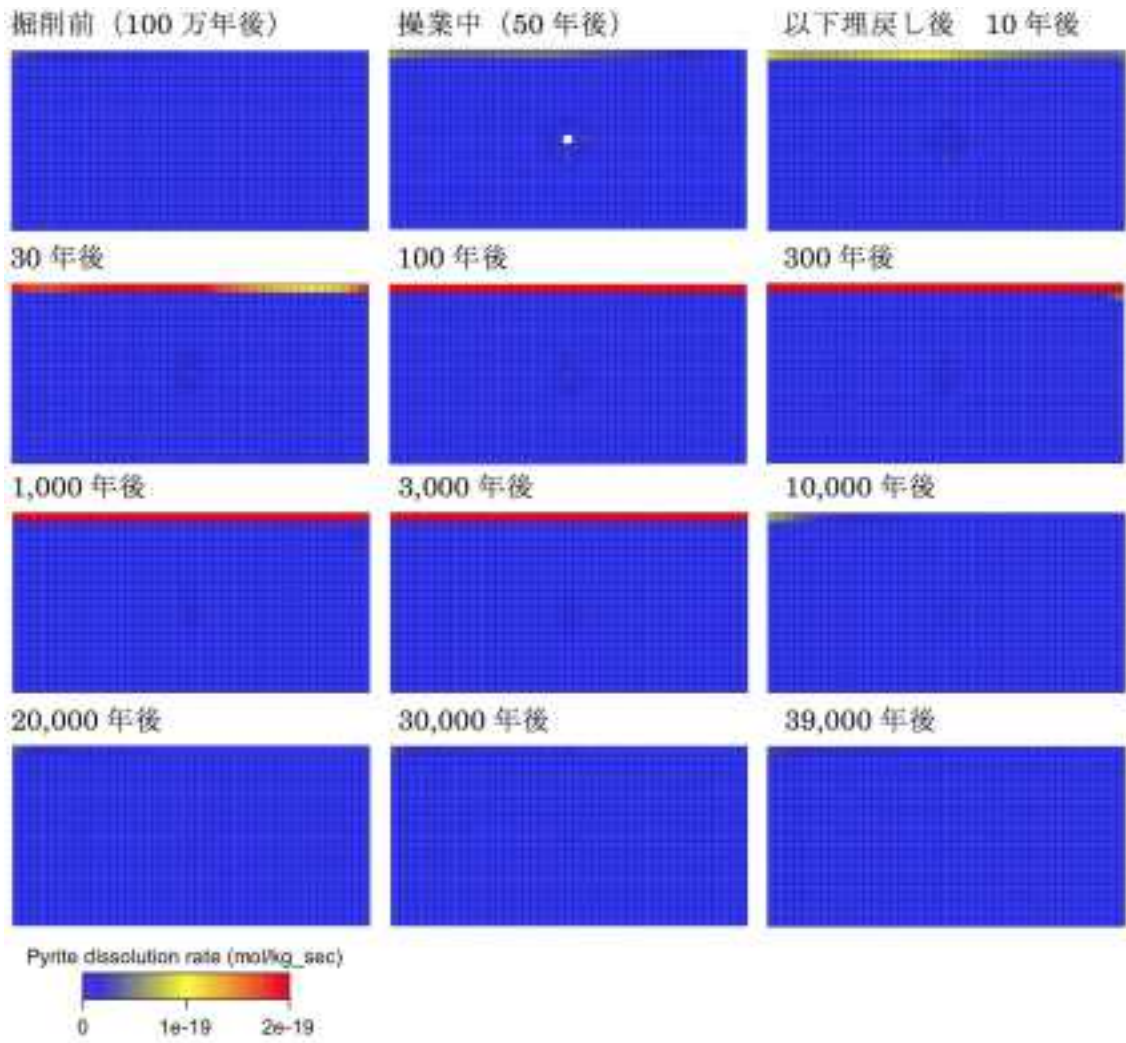


図 2.1.4.2-39 シナリオ 4 における黄鉄鉱の溶解速度コンター図。

・シナリオ5

酸素濃度分布の経時変化を図 2.1.4.2-40, 硫酸イオン濃度分布を 2.1.4.2-41, pH 分布を 2.1.4.2-42, Eh 分布を 2.1.4.2-43, 黄鉄鉱の溶解度分布を図 2.1.4.2-44 に示す。

約 43 万年で停止するまでの掘削前の解析結果は、いずれの化学種においても概ねシナリオ 1 および 3 と同様の傾向を示した。

最表層の要素の酸素濃度は、約 40 万年後には大気圧飽和の濃度付近 2.3×10^{-4} mol/L 付近の濃度にまで達し、それ以外の要素も解析期間を通して上昇する傾向を示した。硫酸イオン濃度は、掘削前に定常状態に達しなかった要素を除き、 8×10^{-9} mol/L を超える値で推移したが、それら 2 つの要素も、埋戻し後 10 万年後には 8×10^{-9} mol/L に達した。鉄 (III) イオンは掘削前から埋戻し後までの解析を通じて大きな変化は認められなかった。

pH および Eh ($\text{SO}_4^{2-}/\text{HS}^-$) についても、シナリオ 1 および 3 と同様の変化を示しており、いずれの要素においても pH は 8.5 ~ 9.0 の間で推移した。Eh ($\text{SO}_4^{2-}/\text{HS}^-$) は -300mV 付近の値を示し、解析期間を通じて顕著な変化は見られなかった。

いずれの鉱物に見られる変化も、シナリオ 3 に類似の傾向を示した。黄鉄鉱については多くの要素で埋戻し後 10 万年後には -1×10^{-8} ~ -1×10^{-7} オーダーの値を示した。カリ長石については、最表

層の要素において低下傾向が認められるとともに、埋戻し後においても10万年後まで減少傾向が示された。石英は掘削前にはいずれの要素においても減少傾向を示し、続く操業中以降も一定の値を示した。一方、スメクタイトにおいては顕著な変化は認められなかった。

シナリオ5における黄鉄鉱の溶解反応速度は、シナリオ1および3と同様に解析期間を通じて $1 \times 10^{-20} \sim 1 \times 10^{-19}$ mol/kg/sec オーダーの値を示した。操業中から埋戻し後3,000年後までは、モデル第1層および埋戻し部付近の要素で、他の岩盤における速度よりも高い値を示した。

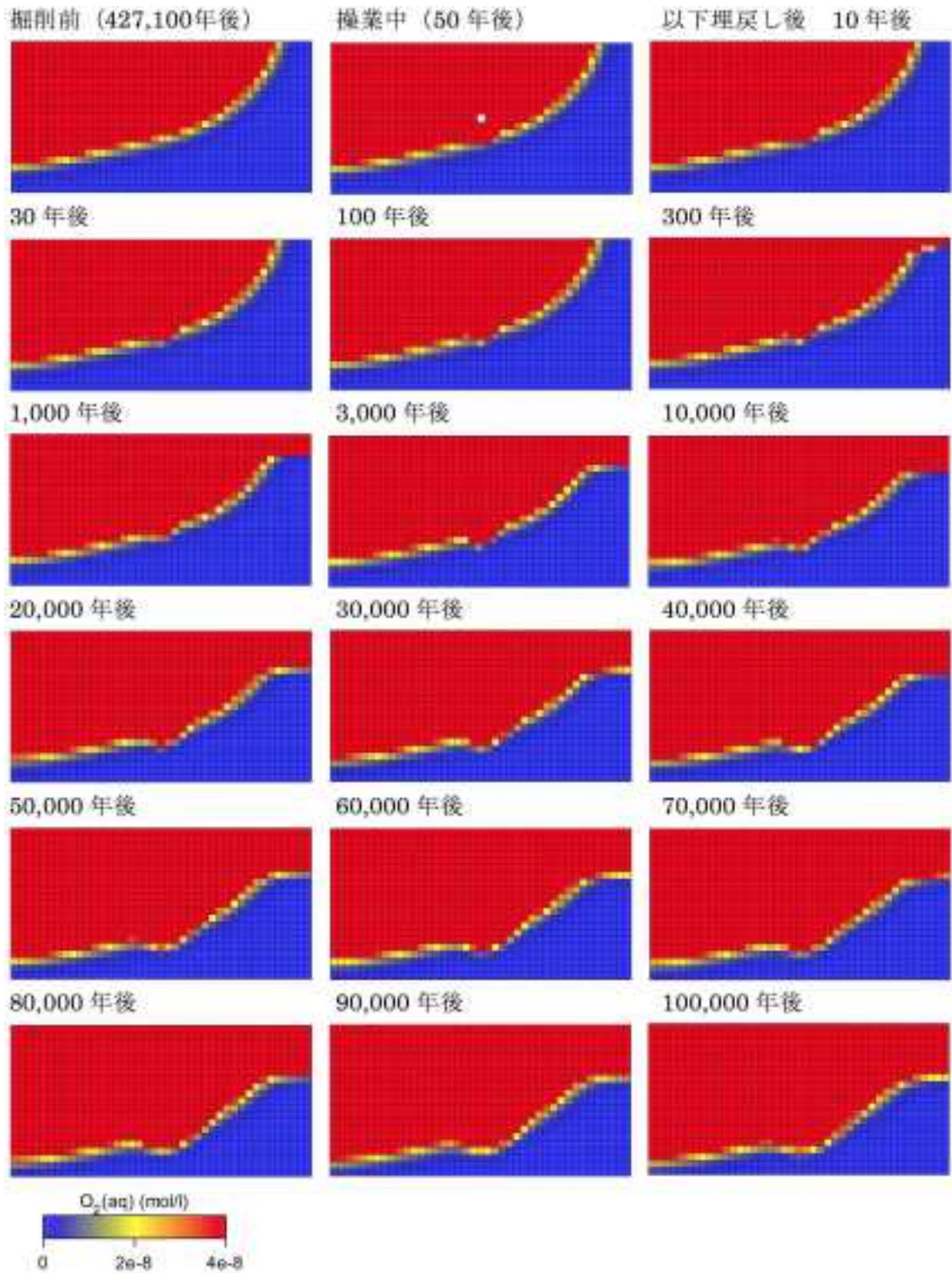


図 2.1.4.2-40 シナリオ5における酸素濃度コンター図.

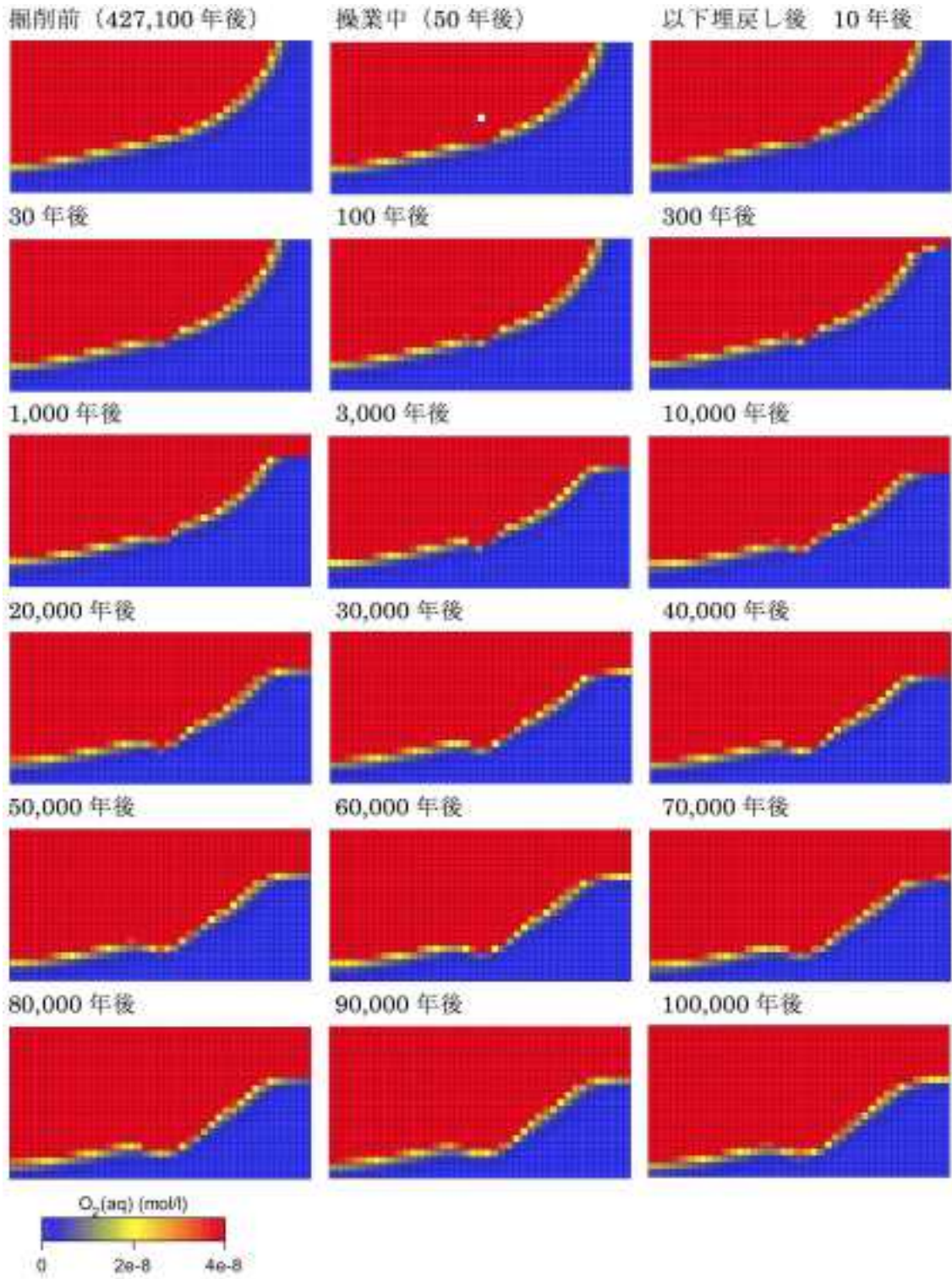


図 2.1.4.2-41 シナリオ 5 における硫酸イオン濃度コンター図.

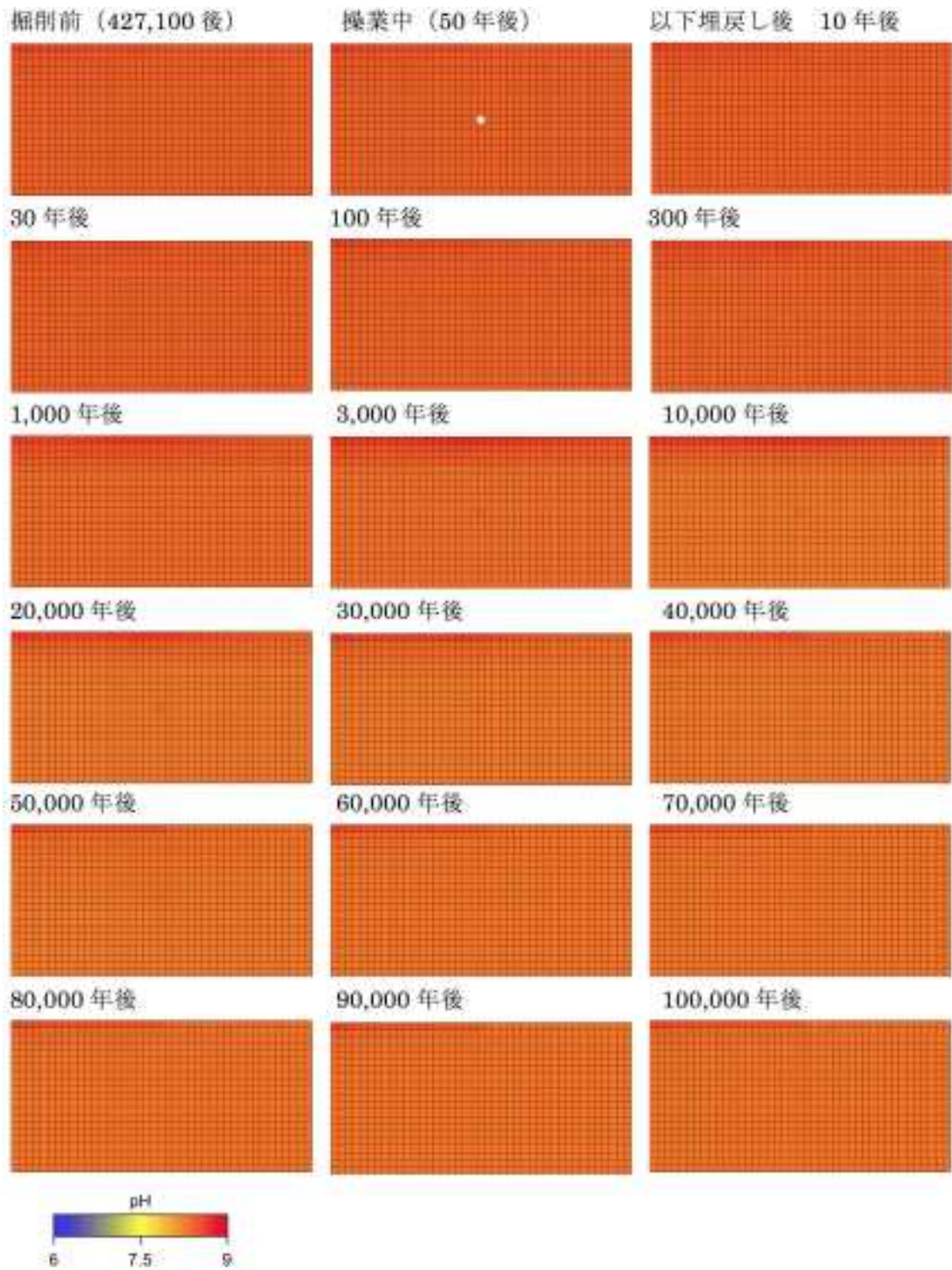


図 2.1.4.2-42 シナリオ 5 における pH コンター図。

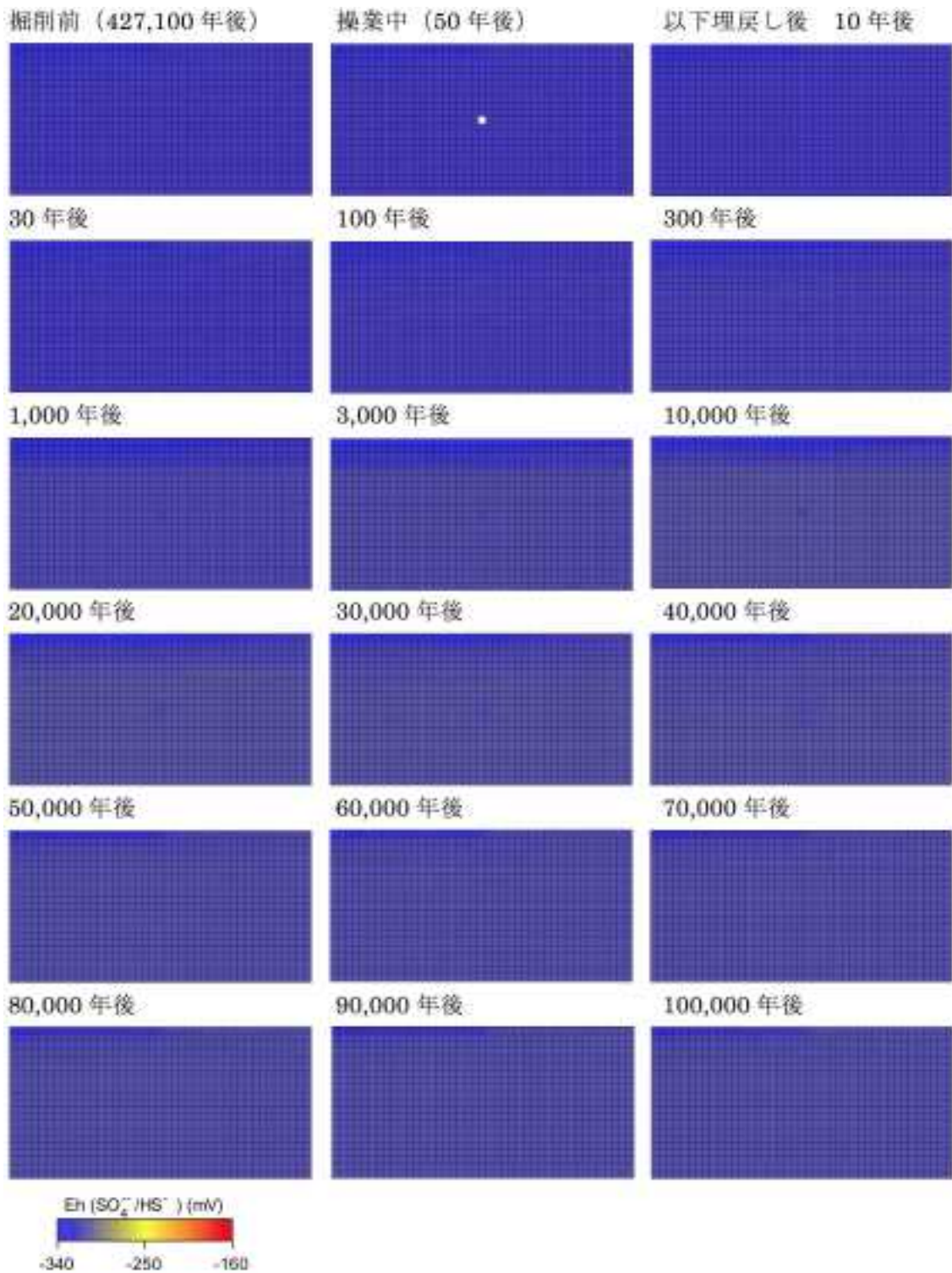


図 2.1.4.2-43 シナリオ 5 における Eh (SO₄²⁻/HS⁻) コンター図。

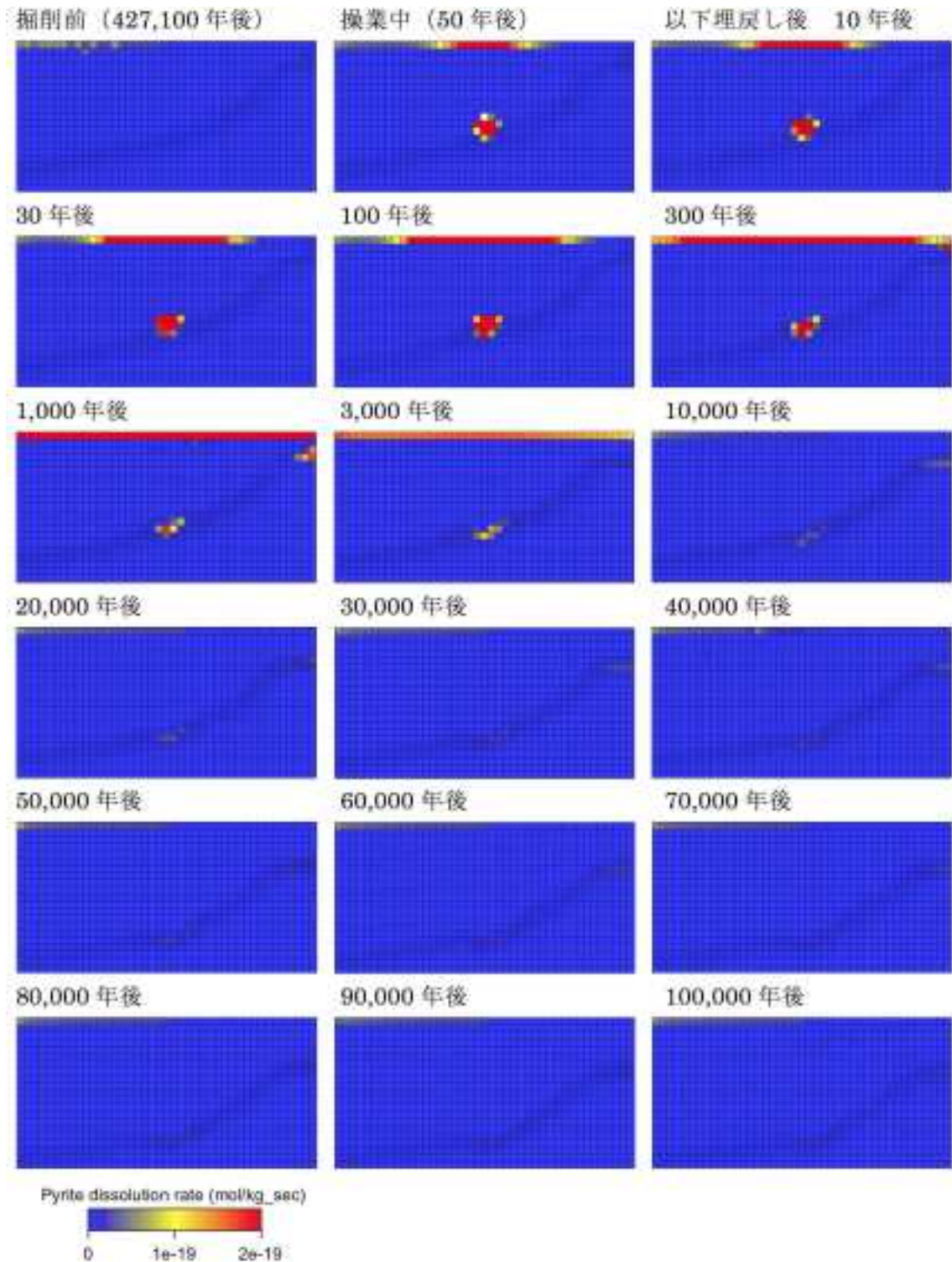


図 2.1.4.2-44 シナリオ 5 における黄鉄鉱の溶解速度コンター図。

・シナリオ6

シナリオ 6 における酸素濃度分布を図 2.1.4.2-45, メタン濃度分布を図 2.1.4.2-46, 硫酸イオン濃度分布を図 2.1.4.2-47, 鉄 (III) イオン濃度分布を図 2.1.4.2-48, pH を図 2.1.4.2-49, Eh を図 2.1.4.2-50, 好気性菌バイオマスを図 2.1.4.2-51, 鉄還元菌バイオマスを図 2.1.4.2-52, 黄鉄鉱の溶解速度を図 2.1.4.2-53 に示す。

シナリオ4における酸素濃度およびメタン濃度は、全解析期間を通してシナリオ2および4と同様の経時変化を示した。

酸素濃度は最大でも 1×10^{-8} mol/L 付近の値であり、埋戻し部周辺の要素 (P7～P11) の操業中は 1×10^{-13} mol/L オーダーまで低下した。

メタン濃度は $8.5 \times 10^{-4} \sim 9.7 \times 10^{-4}$ mol/L の変動幅を示し、埋戻し部上流域において相対的に低い値を示したが、シナリオ2および4と比較して、深度方向・水平方向のいずれへの浸透も抑えられていた。

埋戻し部下流側の最表層 (P13) における硫酸イオン濃度は、掘削前40万年後および埋戻し後の初期において、 6×10^{-9} mol/L を超える濃度まで達したが、他の要素では 6×10^{-9} mol/L 付近の値で推移した。

鉄(III)イオン濃度の経時変化も、概ねシナリオ2および4と同様の傾向を示した。ただし、埋戻し部上流側および下流側においては、解析期間を通してシナリオ2および4よりも低濃度で推移した。

掘削前の100万年間のpHは、すべての要素において低下傾向を示した。続く操業中においては、埋戻し部付近の要素で下限値の6まで低下したが、それ以外の要素では大きな変化は認められなかった。埋戻し後には、最表層の要素において酸性となり、10万年後には定常状態に達した。

好気性菌バイオマスは、シナリオ4と類似した変化を示した。操業中には埋戻し部周辺の要素で増加が認められた。埋戻し後になると、埋戻し部周辺の要素は急速に下限値 (1×10^{-10} mg/kg) まで低下したが、一部は顕著な低下もなく 1×10^{-5} mg/kg オーダーの値で推移した。埋戻し後の解析開始直後に、一部要素において 1×10^{-4} mg/kg オーダーの値まで急増し、その後再び下限値まで低下する変化が示された。

鉄還元菌バイオマスも、シナリオ4とほぼ同様の変化を示したが、シナリオ6の埋戻し後6万年後以降には、P9において増加傾向が認められた。

硫酸還元菌バイオマスは、解析期間を通して、いずれの要素においても下限値 (1×10^{-10} mg/kg) からの変化が認められなかった。

黄鉄鉱においては、掘削前の100万年後以降から埋戻し後まで、 -6.0×10^{-8} の比を示した。また、埋戻し部では埋戻し後4万年後の変化量の比は $-1.6 \times 10^{-7} \sim -6.0 \times 10^{-8}$ に達した。スメクタイトおよびカリ長石においては、シナリオ2と同様に、解析期間を通して一部要素で減少傾向を示したものの、その他の要素では顕著な変化は見られなかった。石英についても、すべての要素で掘削前100万年後までに、変化量の比がほぼ定常状態にまで低下した。

好気性菌バイオマスは、領域の最表層でのみ 1×10^{-16} mol/kg sec オーダーでの反応速度を示し、埋戻し後10,000年以降はほぼ定常状態となった。一方、黄鉄鉱の溶解速度は、10,000年後にはモデルの最表層付近で、約 1×10^{-20} mol/kg sec オーダーまで低下した。

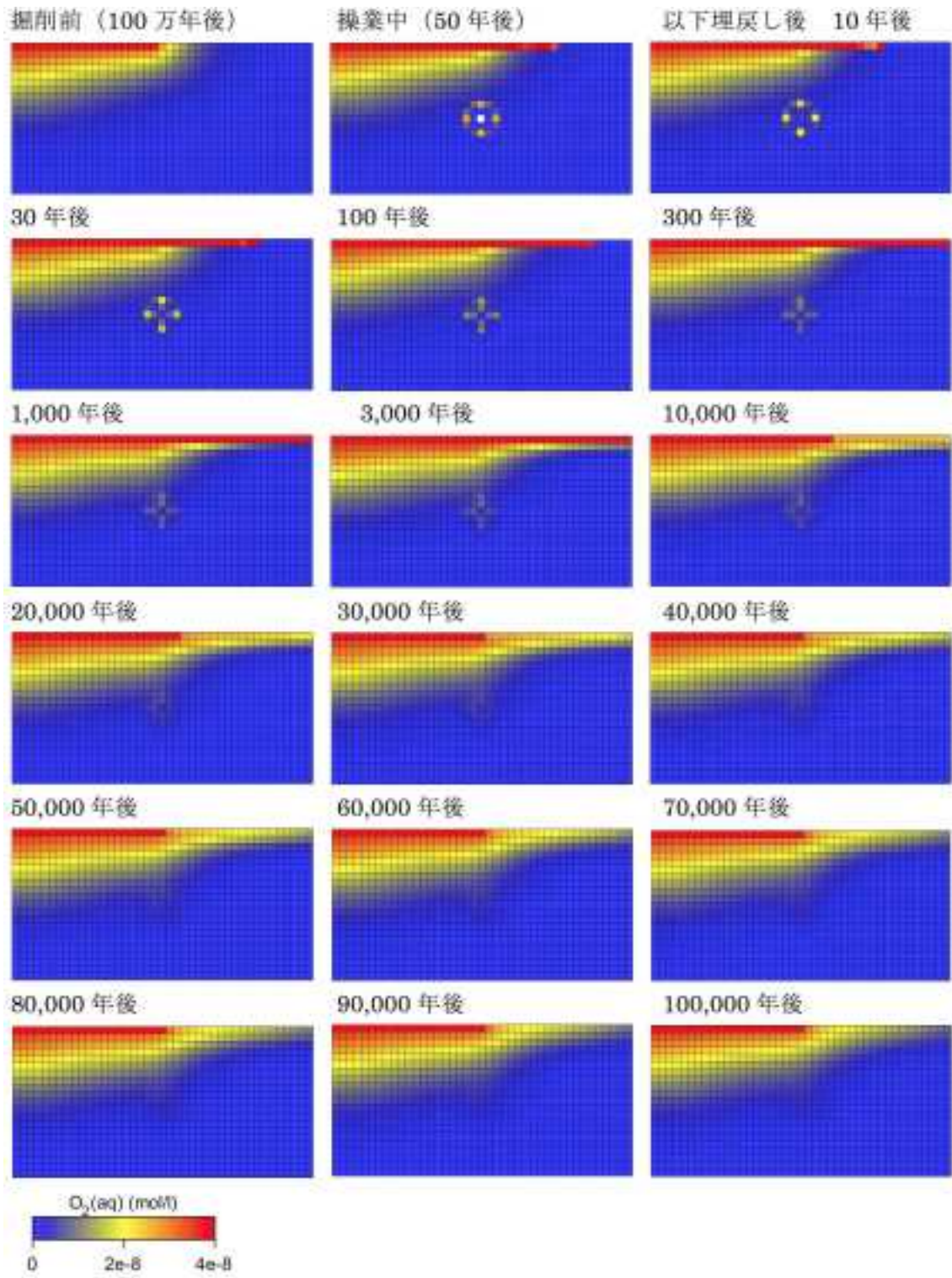


図 2.1.4.2-45 シナリオ 6 における酸素濃度コンター図.

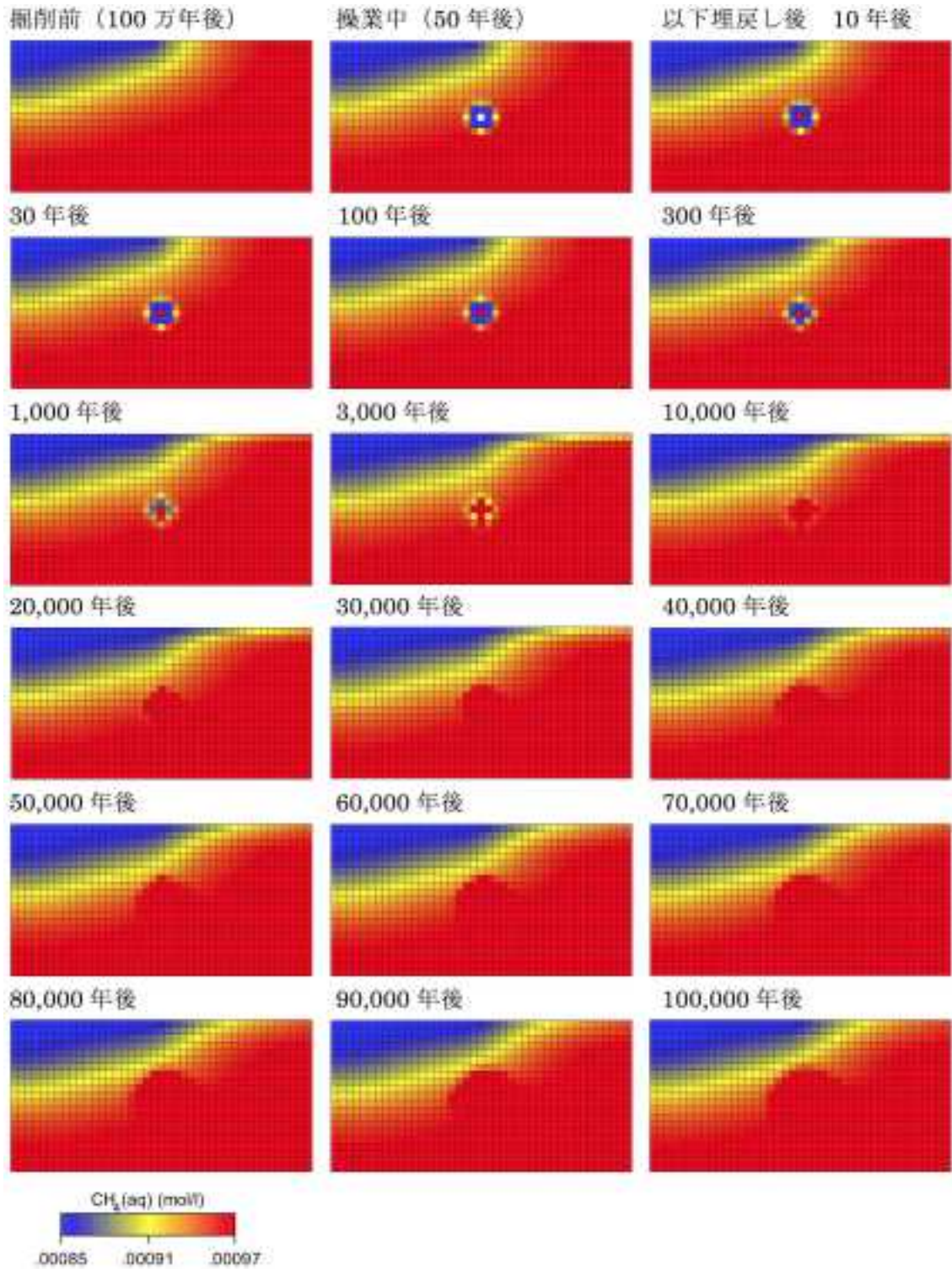


図 2.1.4.2-46 シナリオ 6 におけるメタン濃度コンター図。

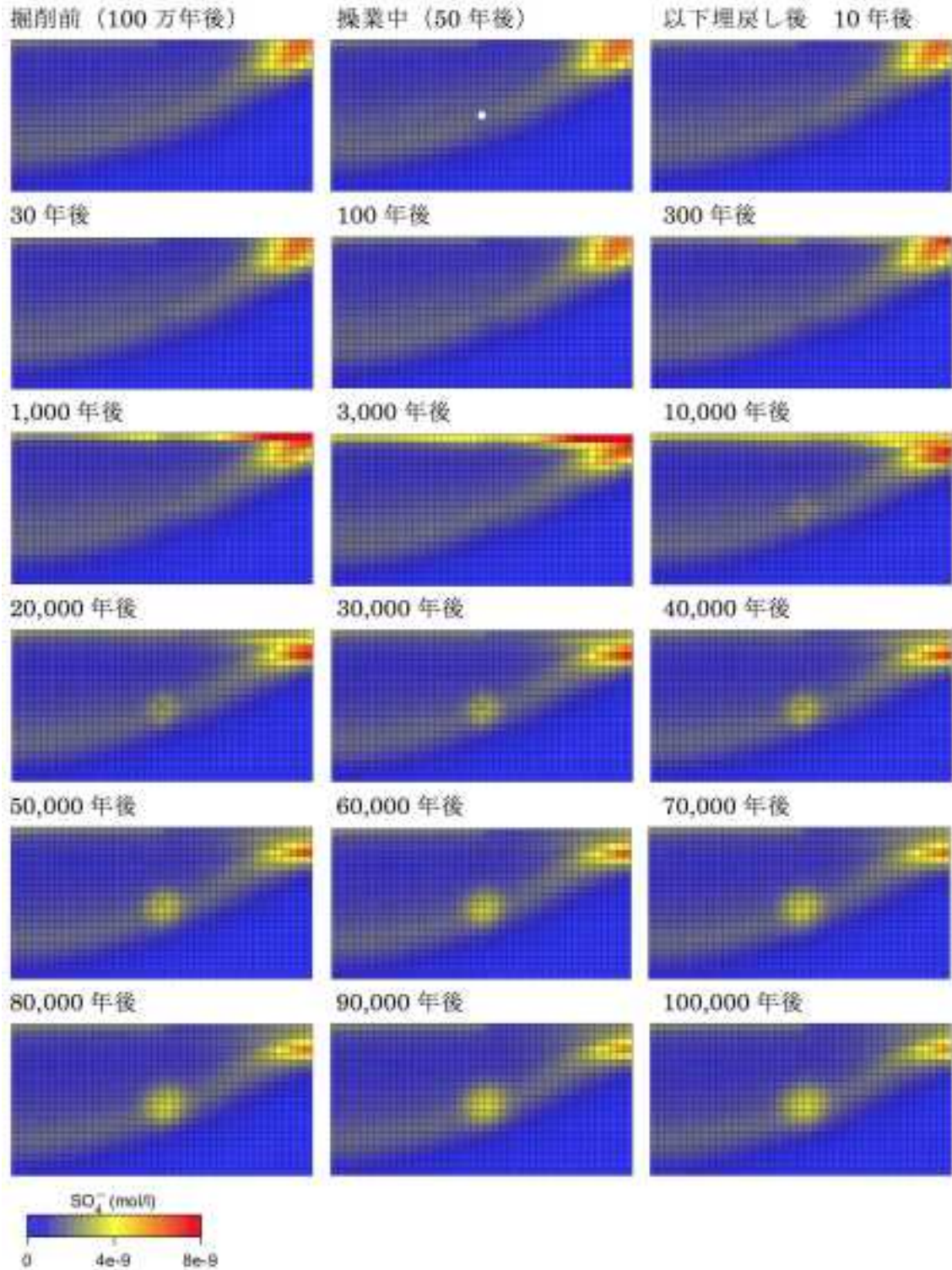


図 2.1.4.2-47 シナリオ 6 における硫酸イオン濃度コンター図.

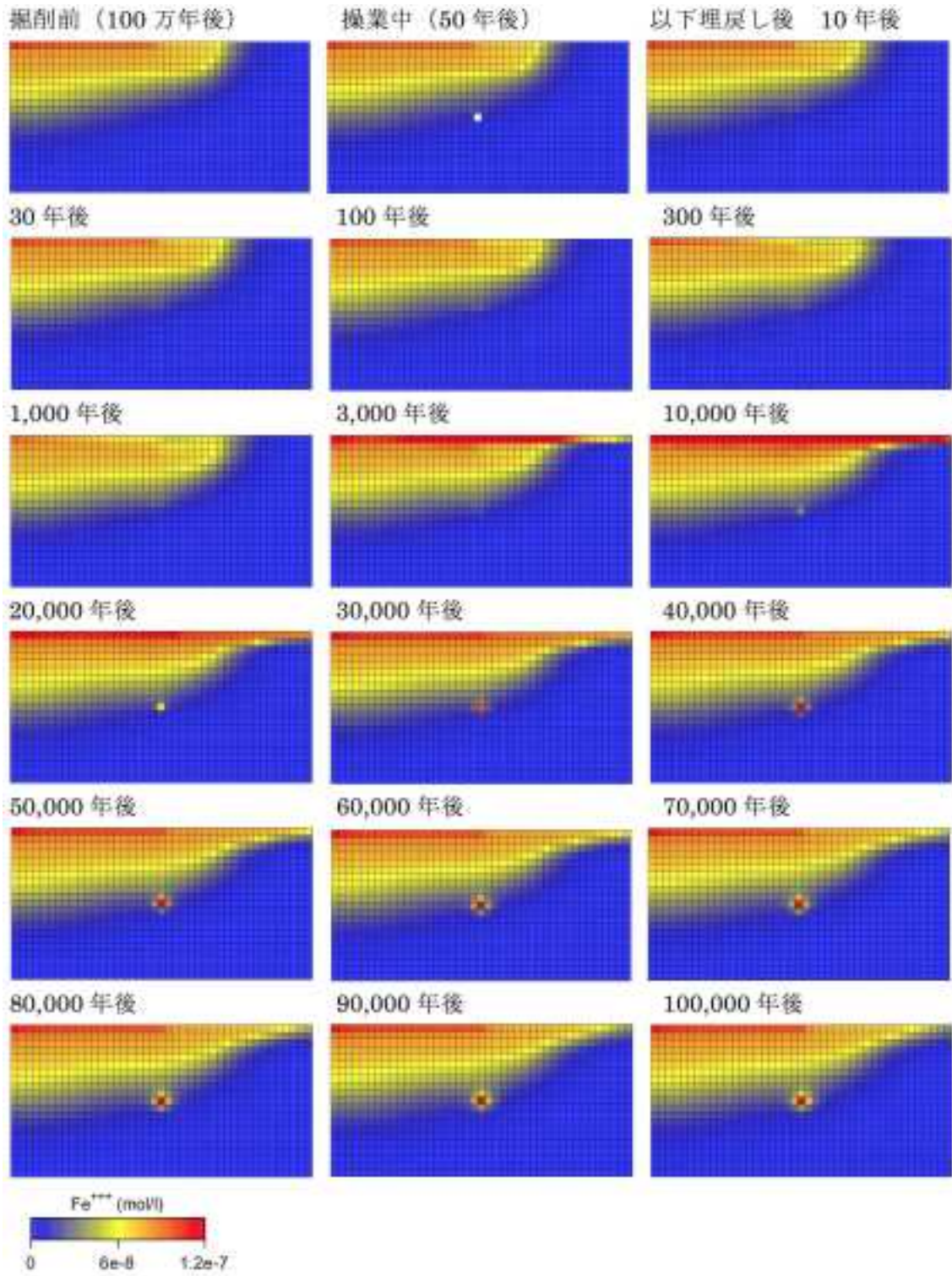


図 2.1.4.2-48 シナリオ 6 における鉄 (III) イオン濃度コンター図。

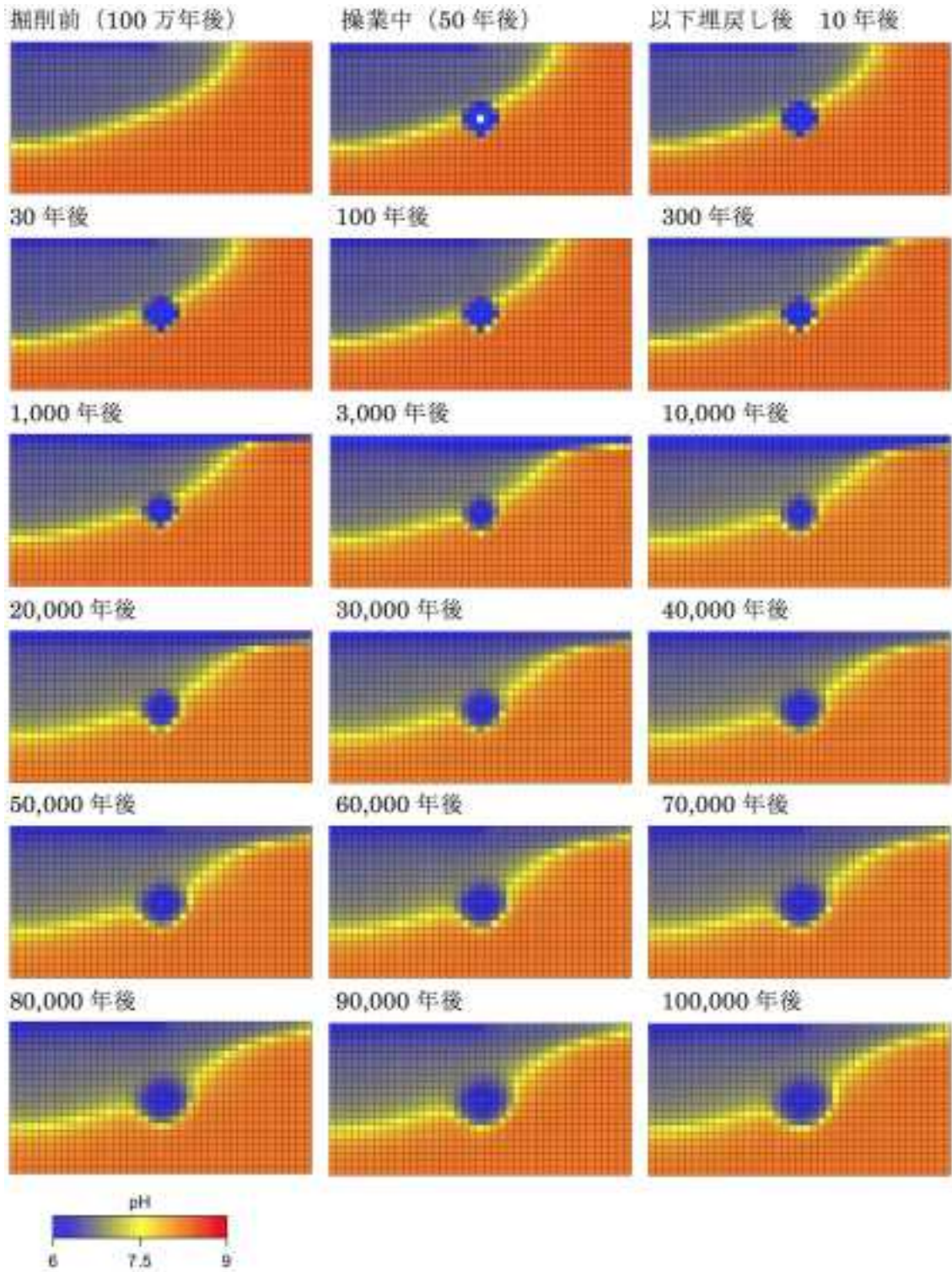


図 2.1.4.2-49 シナリオ 6 における pH コンター図。

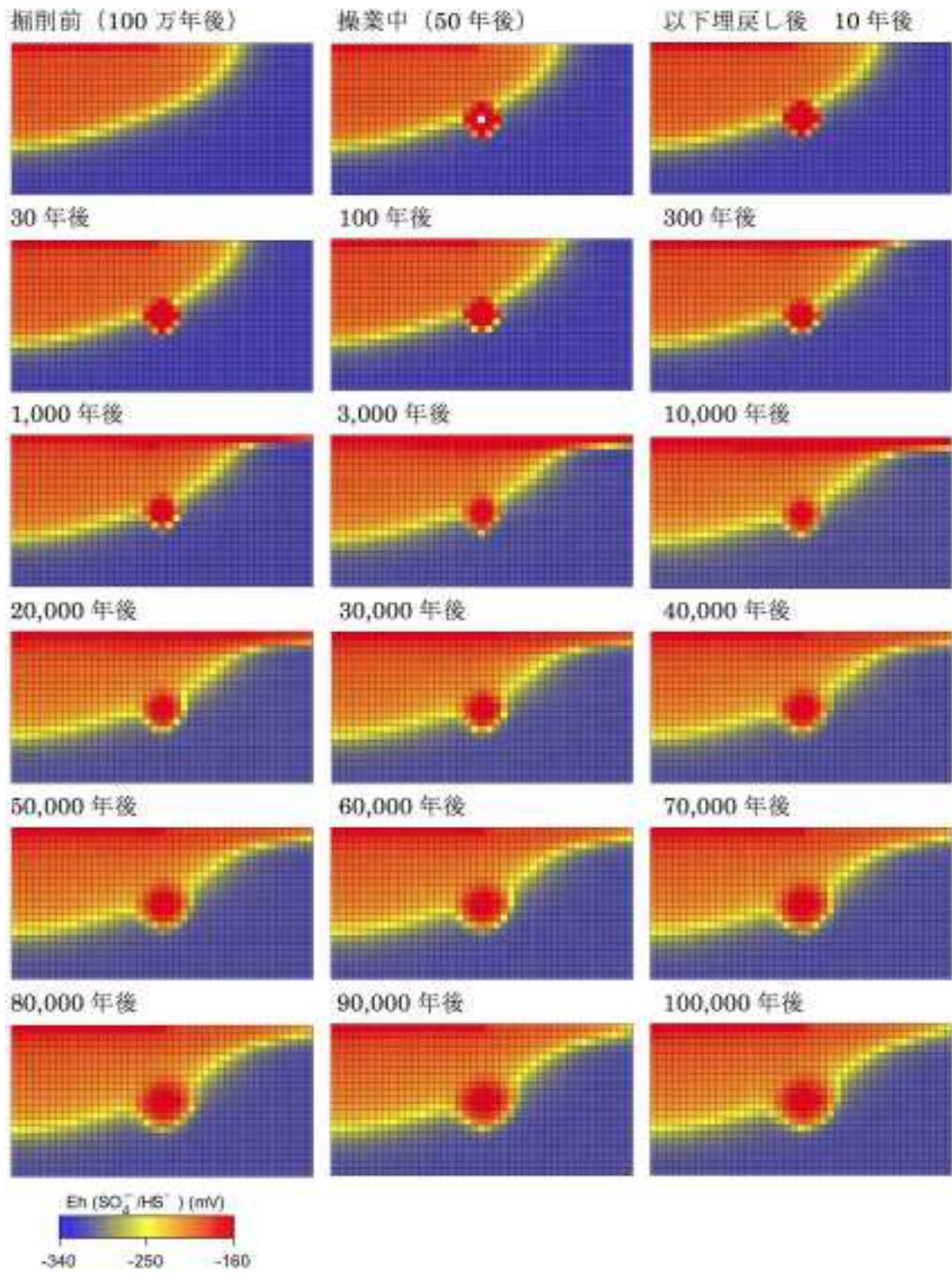


図 2.1.4.2-50 シナリオ 6 における Eh ($\text{SO}_4^{2-}/\text{HS}^-$) コンター図。

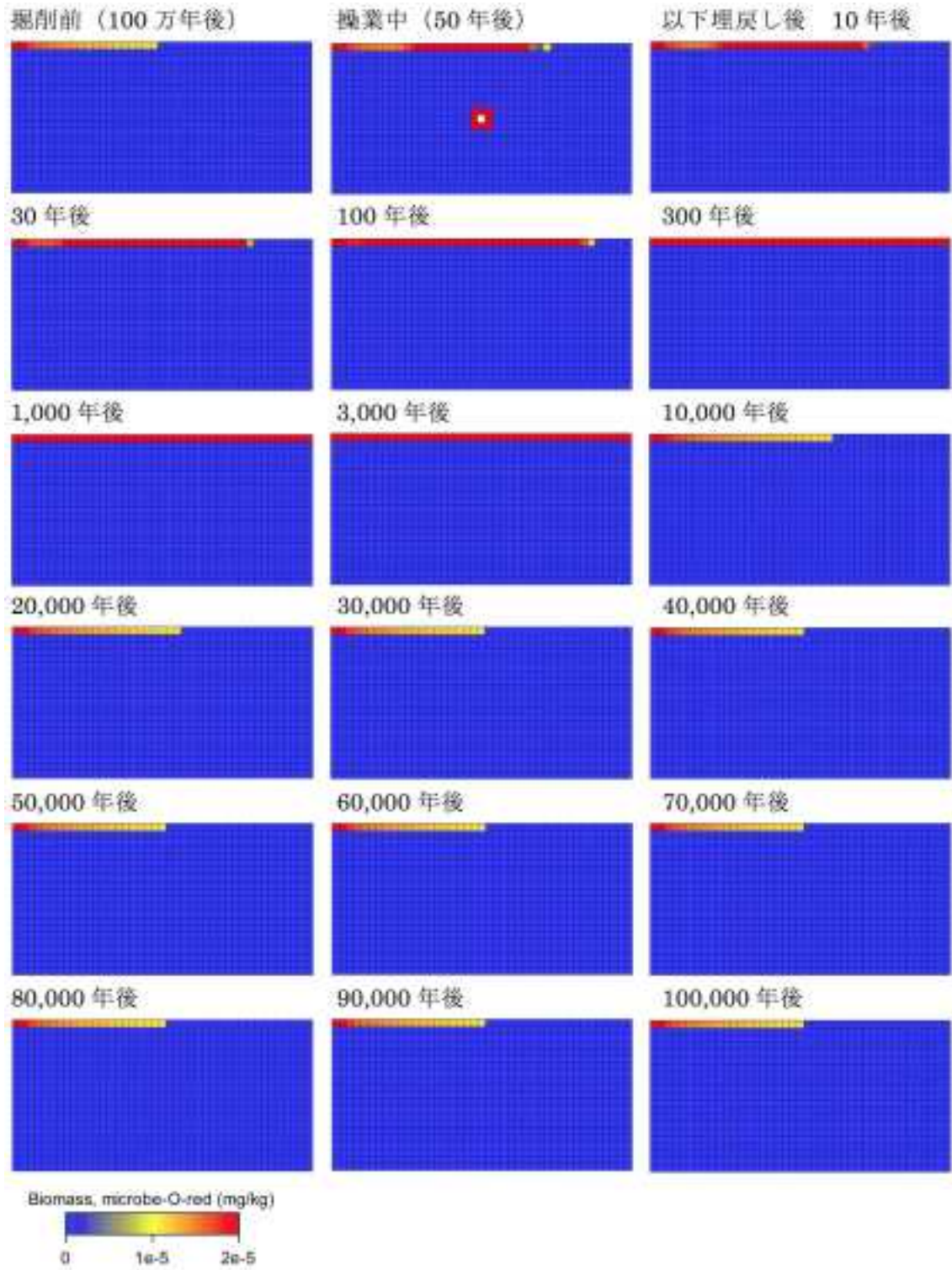


図 2.1.4.2-51 シナリオ 6 における好気性菌バイオマスコンター図。

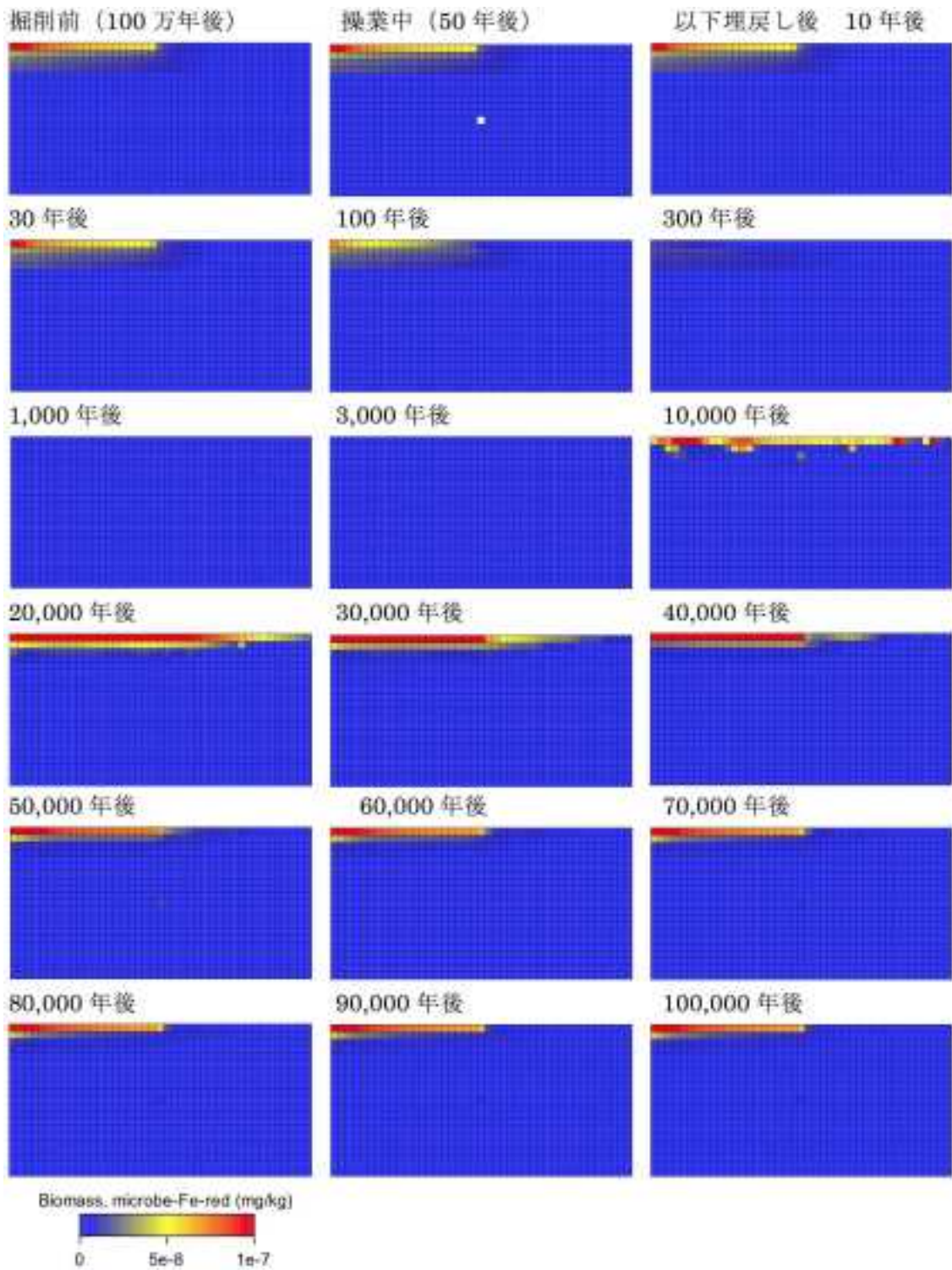


図 2.1.4.2-52 シナリオ 6 における鉄還元菌バイオマスコンター図。

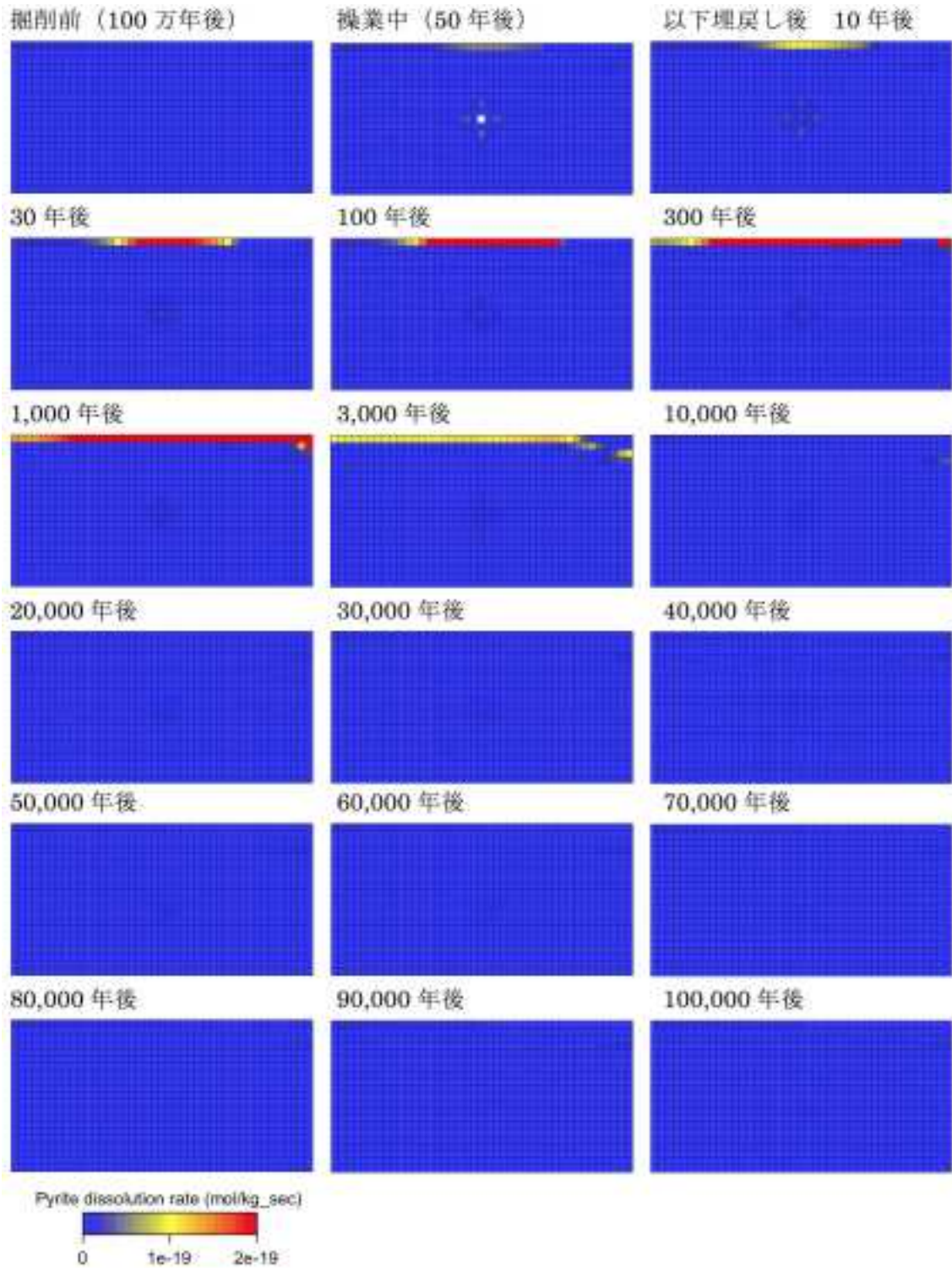


図 2.1.4.2-53 シナリオ 6 における黄鉄鉱の溶解速度コンター図。

7) 考察

・酸素の消費

本解析において、酸素は主に 3つの供給源から岩盤内に浸透することが想定されている。一つ目はモデル領域上部より浸透する酸素、二つ目は操業中の空洞部周辺要素の不飽和帯に割り当てられた酸素、三つ目は埋戻し後に埋戻し部に設定されたベントナイトが内包する酸素である。以上の設定を

踏まえ、モデル領域全体の酸素濃度の分布について見ると、埋戻し部上流側の領域において相対的に高濃度となる傾向が認められ、地表面の水頭勾配によって規定された流れ場に従ってモデル左上部より大気圧飽和の酸素が浸透・拡散する様子が、設定された透水係数の異方性に関わらず表現されていた。同じ流れ場で、微生物設定の有無によってシナリオ間（シナリオ1および2、シナリオ3および4、シナリオ5および6）を比較すると、いずれの組み合わせにおいてもモデル領域内に浸透した酸素濃度分布に明確な差異が認められた。微生物未設定の場合（シナリオ1、3および5）、埋戻し部上流側の酸素濃度は大気圧飽和に近い 2.2×10^{-4} mol/L にまで達していたのに対し、微生物が設定された場合は 3.7×10^{-8} mol/L まで低下した。また、埋戻し部要素の酸素の消費に着目すると、微生物の存在するシナリオ（シナリオ2、4および6）では約5日程度で、設定濃度である 2.3×10^{-4} mol/L から 1×10^{-9} mol/L オーダー以下へと急速に低下した。この低下した酸素濃度は、これまでに実施された東濃地域での地下水水質の計測において設定された検出下限値（ $1 \text{ mg/L} = 6.25 \times 10^{-5}$ mol/L）（産業技術総合研究所，2012）よりも低濃度である。このことは、領域内に供給される酸素が微生物（好気性菌）によって速やかに消費されることを示しており、本解析においては酸素消費に対する微生物の寄与は鉱物反応よりも大きいことを示唆している。ここで、酸素の消費に関与する好気性菌と黄鉄鉱のモデル第1層での反応速度に着目すると、好気性菌は 5×10^{-16} mol/kg sec の値まで速度が上昇するのに対し、黄鉄鉱の溶解速度は最大でも 1×10^{-18} mol/kg sec オーダーであり、2オーダー程度の反応速度の差があった。ただし、本研究で用いた黄鉄鉱の比表面積（ $12.87 \text{ cm}^2/\text{g}$ ）（戸高ほか，2005）に対し、ベントナイト中の黄鉄鉱に着目した別の既往研究（亀井，1996）で設定された $2.48 \text{ m}^2/\text{g}$ を採用すると、式2.1.4.2-4（下記再掲）から約2,000倍相当の反応速度が与えられることになる。つまり、設定値によっては黄鉄鉱による酸素消費が卓越することもあると考えられ、結果に対する感度の強さを考慮しつつパラメータ設定を行う必要がある。

$$r_{\text{O}_2} = A_s k_{\text{O}_2} \left(1 - \frac{Q}{K} \right)$$

式 2.1.4.2-4

r_{O_2}	反応速度 (mol/L ³ /s)
A_s	鉱物の比表面積 (cm ² /g)
k_{O_2}	反応速度定数 (mol·cm ³ ·s ⁻¹)
Q	酸素濃度
K	平衡酸素濃度

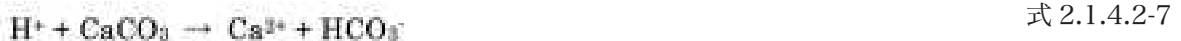
・硫酸還元反応

黄鉄鉱の溶解反応により、硫酸イオン、鉄(II)イオンならびに硫化物イオンが生成する。硫酸イオンは、嫌気環境下において硫酸還元反応の電子受容体となり、電子供与体である有機物とともに硫酸還元菌バイオマスの増加に利用される。しかし、本研究ではいずれのシナリオにおいても、硫酸還元菌バイオマスの設定下限値（ 1×10^{-10} mg/kg）からの変化は認められず、硫酸還元反応が進行しないことが示された。東濃地域においては特定の深度において硫酸還元菌が検出され（村上ほか，2003）、地下水中の硫酸還元速度が見積もられており（Suzuki *et al.*, 2014）、硫酸還元反応が進行していることが明らかとなっている。本研究では単純な有機物としてメタンを電子供与体として選定したが、メタンを電子供与体として利用する硫酸還元反応の自由エネルギー変化は -33.0 kJ/mol （Caldwell *et al.*, 2008）であり、好気性菌の酸素還元反応（ -803 kJ/mol ）（Schmidt *et al.*, 2008）や鉄還元菌の反応（ -270.3 kJ/mol ）（Beal *et al.*, 2011）と比較しても非常に小さい。解析上、硫酸還元反応を進行させるためには、本研究の予備解析ケース2のように黄鉄鉱の存在量やメタン濃度を大きくする他に、例えば硫黄酸化細菌（長沼毅 *et al.*, 2003）の反応を設定して硫化物イオンの酸化を促し、硫酸イオンの供給量を増やすことが必要であると考えられる。また、東濃地域において硫酸還元速度が見積もられた例（Suzuki *et al.*, 2014）では、電子供与体として水素に着目しているが、水素を用いた硫酸還元

反応の自由エネルギー変化は -152.2 kJ/mol (Thauer *et al.*, 1977) であり、解析パラメータとして水素を適用することでも硫酸還元反応の進行を期待できる。

・pHおよびEhに見られる変化

微生物設定の有無によってシナリオ間を比較すると、いずれの組み合わせにおいても微生物反応が設定されているシナリオ2, 4および6では、特に表層付近においてpHが酸性にまで低下していた。好気性菌の活発化は、表2.1.4.2-5で示された反応の進行により、水素イオンが地下水中に増加することを意味する。つまり、埋戻し部の上流側領域のpH低下は、表層付近の好気性菌の活発な酸素消費によって放出された水素イオンが、流れ場に流れ下ったことによってもたらされたものと考えられる。一方で、地下水中の岩石-水反応において、カルシウムを含む鉱物（カルサイトなど）により、pHの変化が緩衝される可能性が指摘されている（式2.1.4.2-7）（千葉ほか，1999）。



これまでの東濃地域における地下水水質調査でもカルサイトの飽和指数の多くは負の値（溶解）を示しており (Iwatsuki *et al.*, 2005)，式2.1.4.2-7の反応が進行しやすい条件にあると推察される。本研究の解析条件においても、岩盤やベントナイトの鉱物組成にもカルサイトのような含カルシウム鉱物を加えることで、pH低下に対する緩衝作用を表現可能であると考えられる。

本研究では、鉱物による酸素消費に関連して黄鉄鉱の溶解反応を、さらにその生成物である硫酸イオンを利用する硫酸還元反応を設定しているため、領域内の一連の硫黄循環が酸化還元環境の決定に重要な役割を果たすとの予想から、硫酸イオンおよび硫化物イオンのペアに基づくEh (SO₄²⁻/HS⁻)に着目した。還元菌によるEh (SO₄²⁻/HS⁻)についてみて見ると、微生物が設定された場合には酸化的水が岩盤中に拡散していないにも関わらず、嫌気状態を示してはいるものの-160mVまで値が上昇する傾向が認められた。

ここでEhはネルンストの式（式2.1.4.2-6，再掲）で表される。

$$Eh = -\frac{2.303RT}{nF} \log \frac{Q}{K} \quad \text{式 2.1.4.2-6}$$

R : 気体定数 (8.314 J mol⁻¹ K⁻¹)
 T : 絶対温度 (K)
 n : 消費される電子数
 F : ファラデー定数 (96485 C mol⁻¹)
 Q : イオン活量積
 K : 平衡定数

また、式2.1.4.2-6中のlogQは式2.1.4.2-8で表される (Bethke, 2007)。

$$\log Q = \log \frac{[HS^-]}{[SO_4^{2-}][H^+]^9} = \log \frac{[HS^-]}{[SO_4^{2-}]} + 9 \times pH \quad \text{式 2.1.4.2-8}$$

[HS⁻] : 硫化物イオン濃度
 [SO₄²⁻] : 硫酸イオン濃度
 [H⁺] : 水素イオン濃度

黄鉄鉱の溶解で硫酸イオンおよび硫化物イオンは1:7の比で生成するため（表2.1.4.2-7），logQ中の[HS⁻]/[SO₄²⁻]の比の決定に関しては、硫酸還元反応の寄与が大きくなる。しかし、本研究では、硫酸還元反応が進行しなかったため、Eh (SO₄²⁻/HS⁻)はpHの変化が直接的に強く影響を及ぼすこととなった。結果として本研究では、黄鉄鉱および硫酸還元菌によって駆動する硫黄循環に基づいて、Eh (SO₄²⁻/HS⁻)の変動を表現できていなかったと言える。以上のことから、Eh値を用いて酸化還元

環境の変化を記述するためにも、前述のような硫黄循環に関わる反応をモデルに追加する余地はあると考えられる。

・鉄還元反応

いずれのシナリオにおいても、鉄(III)イオンは、モデルの浅層領域および埋戻し部で増加する傾向が見られ、その分布と整合的に鉄還元菌バイオマスの増加が認められた。本研究において、鉄が関与する鉱物として黄鉄鉱およびスメクタイトが設定されているが、スメクタイトの溶解反応では直接鉄(III)イオンが生成される(表2.1.4.2-7)。好気性菌の利用があったとしても十分な量のメタンが残存していたこと、および岩盤の浅層(60 vol%)およびベントナイト(30%)に高い割合で設定されていたことなどの要因も、モデル浅層領域および埋戻し部での鉄還元菌バイオマスの増加をもたらしたと考えられる。さらにスメクタイトは、その反応式の右辺に水素イオンを含むことから、水素イオンの供給すなわちpHの低下が、スメクタイトの溶解反応に対して促進的に働いたことを示唆している。一方で、有機物の少ない花崗岩中の鉄循環に関連して、例えば硝酸イオンを分子状酸素の代替物として利用する鉄酸化細菌の関与の可能性が指摘されている(村上ほか, 2003)。鉄酸化反応の電子供与体である鉄(II)イオンは、黄鉄鉱およびスメクタイトのいずれの溶解反応においても生成される。つまり、鉄酸化細菌と適切な電子受容体の設定により、pHの変化に依存しない鉄(III)イオンの生成を想定することができる。また、黄鉄鉱から溶出した鉄(II)イオンの酸化による酸素消費(千葉ほか, 1999)に対し、鉄酸化細菌は触媒的に作用すると考えられる。

8) まとめ

本研究では、地下水の移流分散化学・微生物反応を考慮した数値モデルを利用することによって地下処分場建設時から埋戻し時までの地下水流速の変化ならびに化学・生物反応による水質変化、特に酸素の消費やpHの変化の将来予測に関する解析を実施した。

本研究で得られた結果をまとめると表2.1.4.2-9のようになる。

表2.1.4.2-9 本研究の結果の概要

	微生物なし	微生物あり
酸素	領域の広範囲に大気圧飽和に近い酸素濃度が拡散	領域の広範囲で 1×10^{-4} mol/L オーダーまで低下
pH	顕著な変化はみられない	埋戻し部上流側の領域において低下傾向
Eh	顕著な変化はみられない	埋戻し部上流側の領域において上昇傾向
好気性菌	—	酸素が供給される要素で顕著に増加
硫酸還元菌	—	下限値から変化しない
鉄還元菌	—	モデルの表層付近で増加

1. 鉱物みの場合、高濃度の酸素が岩盤内に拡散するが、微生物反応が設定されることにより検出限界未満の濃度まで減少することから、酸素消費に対する微生物(好気性菌)の寄与は大きい。
2. 好気性菌の代謝によりpHが低下し、Eh値あるいは鉱物の溶解反応に影響を及ぼす。
3. 硫酸還元菌はいずれのシナリオにおいても下限値からの変化が見られなかった。
4. pHの低下に伴って鉱物から鉄(III)イオンが溶出し、それを利用する鉄還元菌バイオマスが増加した。

岩盤中に浸透する酸素は好気性菌によって速やかに消費されることが示された。一方で、pHが原

位置で測定されているものよりも大きく低下していること、あるいは Eh が酸素の浸透に伴う酸化還元環境の変化を適切に表現できていないことなど、今後検討すべき点もいくつか抽出された。例えば、pH 低下を緩衝する鉱物の設定は、原位置環境の再現に効果的なプロセスを生み出すことが期待できる。また、地下水における硫黄および鉄循環に関連するイオンの生成・消費を、微生物によって活発化させることで、間接的に鉱物による酸素消費を促進できるとともに、それらの物質循環をより反映した Eh を導出できる。以上のように、岩盤中の地球化学特性について化学・生物環境変動シミュレーションを実施することにより、岩石-水-生物反応において見られる主たる変化プロセスの把握、ならびに水質変動の変化量に基づく将来予測に寄与できるものと考えられる。

【引用文献】

- Beal, E. J., Claire, M. W. and House, C. H. (2011) High rates of anaerobic methanotrophy at low sulfate concentrations with implications for past and present methane levels. *Geobiology*, 9, no. 2, 131-139.
- Bethke, C. M. (2007) *Geochemical and Biogeochemical Reaction Modeling*. Cambridge University Press.
- Bethke, C. M., Sanford, R. A., Kirk, M. F., Jin, Q. and Flynn, T. M. (2011) The thermodynamic ladder in geomicrobiology. *American Journal of Science*, 311, no. 3, 183-210.
- Caldwell, S. L., Laidler, J. R., Brewer, E. A., Eberly, J. O., Sandborgh, S. C. and Colwell, F. S. (2008) Anaerobic Oxidation of Methane: Mechanisms, Bioenergetics, and the Ecology of Associated Microorganisms. *Environmental Science & Technology*, 42, no. 18, 6791-6799.
- 千葉保・笹本広・三木崇史・稲垣学・油井三和 (1999) ニアフィールドにおける酸化還元状態変遷の解析のためのモデル開発. 核燃料サイクル開発機構東海事業所.
- 藤崎淳・鈴木英明・藤田朝雄 (2008) 熱-水-応力連成試験設備(COUPLE)を用いた室内試験結果に基づく熱-水連成モデルの信頼性確認. 日本原子力研究開発機構, 2008-020.
- 藤田朝雄, 杉田裕, 升元一彦 and 風間秀彦 (2007) 結晶質岩における粘土プラグの閉鎖性能に関わる原位置試験および解析評価. *原子力バックエンド研究*, 14, no. 1, 13-30.
- Fukuda, A., Hagiwara, H., Ishimura, T., Kouduka, M., Ioka, S., Amano, Y., Tsunogai, U., Suzuki, Y. and Mizuno, T. (2010) Geomicrobiological properties of ultra-deep granitic groundwater from the Mizunami Underground Research Laboratory (MIU), central Japan. *Microbial ecology*, 60, no. 1, 214-225.
- 福永栄 (2008) 深地層における微生物活性モデル化への展望. *日本微生物生態学会誌*, 23, no. 1, 4-17.
- 本田明・谷口直樹 (1999) 高レベル放射性廃棄物の地層処分におけるオーバーパックスの腐食寿命評価: 研究報告. 核燃料サイクル開発機構.
- Iwatsuki, T., Furue, R., Mie, H., Ioka, S. and Mizuno, T. (2005) Hydrochemical baseline condition of groundwater at the Mizunami underground research laboratory (MIU). *Applied geochemistry*, 20, no. 12, 2283-2302.
- Jin, Q. and Bethke, C. M. (2003) A New Rate Law Describing Microbial Respiration. *Applied and Environmental Microbiology*, 69, no. 4, 2340-2348.
- Jin, Q. and Bethke, C. M. (2005) Predicting the rate of microbial respiration in geochemical environments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 69, no. 5, 1133-1143.

- 核燃料サイクル開発機構 (1999) わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性：地層処分研究開発第2次取りまとめ；分冊3地層処分システムの安全評価。
- 亀井玄人 (1996) 黄鉄鉱の溶存酸素消費に関する実験と、緩衝材中の黄鉄鉱による酸素消費に関する試算, PNC TN8410 96-312.
- 金井豊・鈴木正哉・上岡晃・吉田崇宏・須甲武志 (2007) 高レベル放射性廃棄物地層処分におけるコロイドの影響：自然界のコロイドの理解に向けて. 地球化学, 41, no. 4, 89-107.
- 小出馨・前田勝彦 (2001) 東濃地域を対象とした広域地下水流動研究の現状(その2). サイクル機構技報, no. 12, 107-122.
- 村上由記・岩月輝希・長沼毅 (2003) 東濃地域における地下水化学と地下微生物の相互作用. 地学雑誌, 112, no. 2, 277-287.
- 長沼毅・岩月輝希・村上由記・濱克宏・岡本拓士・谷本大輔・藤田夕佳・渡辺史子・足立奈保美・佐藤誠 (2003) 深部地質環境に対する微生物の影響に関する研究 -地下微生物群集の種組成と代謝の多様性に関する研究. 広島大学・核燃料サイクル開発機構.
- 日本原子力研究開発機構 (2010) 平成21年度地層処分技術調査等委託費高レベル放射性廃棄物処分関連処分システム化学影響評価高度化開発報告書.
- 尾上博則・前村庸之・木村仁 (2014) 超深地層研究所計画(岩盤の水理に関する調査研究) 研究坑道掘削に伴う地下水流動場及び地下水水質の変化を考慮した地下水流動のモデル化・解析(2011年度). 日本原子力研究開発機構.
- Park, J., Sanford, R. A. and Bethke, C. M. (2009) Microbial activity and chemical weathering in the Middendorf aquifer, South Carolina. *Chemical Geology*, 258, no. 3-4, 232-241.
- 産業技術総合研究所 (2012) 地層処分に係る地質評価手法等の整備：平成23年度事業報告書.
- 笹本広・Wilson, J.・佐藤努 (2013) 鉄との相互作用による緩衝材への変質影響評価：影響要因に関する解析的検討. 原子力バックエンド研究, 20, no. 2, 39-52.
- Schmidt, C., Vuillemin, R., Le Gall, C., Gaill, F. and Le Bris, N. (2008) Geochemical energy sources for microbial primary production in the environment of hydrothermal vent shrimps. *Marine Chemistry*, 108, no. 1-2, 18-31.
- Suzuki, Y., Konno, U., Fukuda, A., Kimatsu, D., D., Hirota, A., Watanabe, K., Togo, Y., Morikawa, N., Hagiwara, H., Aosai, D., Iwatsuki, T., Tsunogai, U., Nagao, S., Ito, K. and Mizuno, T. (2014) Biogeochemical Signals from Deep Microbial Life in Terrestrial Crust. *PLOS ONE*, 9, no. 12, e113063.
- 竹内真司・藤田有二 (2005) 超深地層研究所計画における単孔式水理試験データ. 核燃料サイクル開発機構東濃地科学センター.
- Thauer, R. K., Jungermann, K. and Decker, K. (1977) Energy conservation in chemotrophic anaerobic bacteria. *Bacteriological Reviews*, 41, no. 1, 100-180.
- 戸高法文・阿島秀司・中西繁隆・手塚茂雄 (2005) 超深地層研究所周辺の地下水水質変化に関する多変量解析, JNC TJ7400 2005-001.
- Whitman, W. B., Coleman, D. C. and Wiebe, W. J. (1998) Prokaryotes: The unseen majority. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 95, no. 12, 6578-6583.
- 吉田英一・大貫敏彦・長沼毅 (2007) 地層処分システムと微生物：—地下研究施設における微生物影響研究の考え方—. 原子力バックエンド研究, 14, no. 1, 31-42.

2.2 各自然事象による地下水流動系の変化の予測と定量的評価の検討

将来、処分地に影響を与える各自然事象のモデル化に基づいて、地下水流動が受ける影響の予測とその定量的評価手法を検討する。平成25年度までに、沿岸部の深層地下水データを収集し、地質状況、地下水の塩分濃度等の水質、同位体データ等から得られる水文学的情報に基づく長期的な地下水流動場の変化の予測技術について検討を行い、不確実性に係る課題を整理した。

平成26年度は、平成25年度までに実施された、海面変化、火山活動、地震活動等の自然事象による地下水流動系変化の予測技術に関する検討結果を踏まえて、各自然事象による地下水流動系の変化の予測技術に係る知見を基に、これらの自然事象に対応した定量的評価手法に基づく地下水流動の将来予測技術についての検討結果を取りまとめる。また、予測技術に関する問題点や不確実性に係る課題を取りまとめる。

2.2.1 平成22～26年度の5年間における年度毎の検討結果の概要

2.2.1.1 海面変化の影響評価

[平成22年度]

堆積岩地域（青森東部）および結晶質岩地域（瀬戸内地方）において、深層地下水の性状、起源、年代等の調査を行った。堆積岩地域の事例研究として行った青森東部の上北平野では、海水を起源とする塩水と淡水の混合により形成された深層地下水が存在することがわかった。その地下水年代をトリチウム (^3H)、放射性炭素 (^{14}C)、放射性塩素 (^{36}Cl)、放射壊変起源ヘリウム ($^4\text{He}_{\text{rad}}$) を用いて検討した結果、 ^{14}C 年代、 ^4He 年代および $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比がそれぞれ異なる年代値を示すことがわかり、複雑な混合過程の存在を示唆した。上北平野では、 ^4He 年代と $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比の比較により、沿岸部では10,000年以上の年代を持つ古い淡水に若い海水が混合していることがわかった。一方、内陸部では、最終氷期以前から存在している塩水に10,000年以上の年代を持つ相対的に若い淡水が混入していることが示された。この結果は、長期にわたる海面変化の影響によるものと考えられる。一方、結晶質岩地域の事例研究として行った瀬戸内地方の沿岸部における深層地下水は、 Li/Cl 比が高い値を示す地点を除き、海水（変質した海水を含む）と淡水の混合により形成されている。海水の変質を仮定した場合、 Ca/Na 比の増加と Cl の濃縮が特徴的で、海面変化により陸化—内海化を繰り返す過程での蒸発等を含む反応過程が原因の可能性がある。沿岸域では、古い淡水に現代に近い若い海水が混入するケースや、1,000m以上の深度にも関わらず、小豆島に古い淡水が見つかるなど、長期にわたる海面変化の影響と考えられる深層地下水の存在が確認された。

[平成23年度]

海面変化による沿岸部地下水の変化の予測と定量化の検討のため、堆積岩地域（青森東部）における地下水の混合成分である淡水および塩水年代を放射壊変起源 ^4He 濃度、放射性炭素 (^{14}C) 濃度および放射性塩素同位体比 ($^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$) 等を解析に用いて求めた。また、結晶質岩地域（瀬戸内海）においても同様に、沿岸部地下水を形成する混合端成分である淡水および海水の年代を求めた。それらの年代および化学組成の分布なども用いて、海水の侵入年代や淡水の停滞時間などを解析し、過去10万年程の期間にわたる海面変化が地下水に与える影響を、結晶質岩地域および堆積岩地域の事例に基づいて概念モデル化した。

[平成24年度]

海面変化に伴う広域地下水流動系の変化について、現在より100m海面が低下した場合における陸地の変化についての地域的特徴を検討した。その結果、海面低下による地下水流動系の影響は地域

により大きく異なることがわかった。また、日本列島における放射性塩素同位体を用いた手法により求めた塩水侵入年代をまとめた。その結果、堆積岩地域の沿岸部では、最終氷期以前の古い塩水が存在する傾向があり、結晶質岩地域の沿岸部では、海水準の上昇後に侵入した若い塩水が存在することを示した。これは地下水流動系が亀裂系か帯水層を形成するかによる違いに関係していると考えられ、さらに流動系の規模(胚胎量、流動量)などと関連する可能性を指摘した。また、年代測定結果を海面低下時に陸化する瀬戸内海地域に適用し、塩水・淡水それぞれの年代分布から海面変化の影響による地下水流動特性を抽出した。その結果、地質、地質構造や地形(谷、盆地)により、海面低下時に塩水、淡水の流動が規制されることを示した。

[平成25年度]

地質学的エビデンスとして過去の海面変化が現在の地下水系にどのような影響を与えているのか定量的に検討するため、放射性塩素による塩水年代測定と ^4He による地下水平均滞留時間を組み合わせた手法を瀬戸内海沿岸部の深層地下水に適用し、塩水と淡水の年代値の分布を明らかにした。その結果、氷期における深層地下水流動は、地下水のポテンシャルが増加するため、現在よりも活発であったと考えられ、地下水系に対する海面変化の影響は、地形条件によって空間的に変化することが示唆された。また、瀬戸内海地域を対象として、予察的な、海水準変動を考慮した断面2次元解析を実施し、透水係数の変化によるケーススタディを実施するとともに、実測データとの定性的な比較を実施した。その結果、1) 塩分濃度は陸化している期間に関係する、2) 透水係数に依存し、淡水の侵入深度が支配される、ただし、一定以下の透水係数においては、拡散による濃度勾配が支配的となる、3) 海水準低下時においては、陸化している期間に応じて、海底地形に支配される淡水の浅部流動系が形成されることがわかった。

[平成26年度]

海水準変動に伴う長期的な地下水の流動変化について、これまでの地質学的エビデンスに関する検討結果、問題点を取りまとめるとともに、予測手法に関して検討を行った。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ は、塩水の侵入年代を把握する上で非常に有効なツールであるが、核実験起源の ^{36}Cl を含む天水の混合の評価および帯水層を形成する岩石の実測値の使用については、年代測定精度向上のため重要である。予測手法に関しては、まず各種地下水年代測定法および混合解析法等の活用により、地下水の変動履歴を地質学的エビデンスとして明らかにすることが重要であり、1) 地質構造等により長期にわたる地下水流動系への影響に違いがでること、2) 地理的要因により海水準低下時に地下水流動系が現在と全く異なるシステムに変化することなど、モデル化の上で考慮すべき点を示した。

一方、将来を予測する上で、変動履歴および流動変化に影響する各種の地質学および気候学的要因をいかにしてモデル化し、シミュレーション手法に組み込むかという点は、今後も引き続き検討を重ねて行く必要がある。また、本来は超長期にわたる相対的海面変化で評価する必要があり、当該地域の隆起・沈降およびそれに伴う侵食・堆積についても考慮した上で、塩水侵入の影響予測を行う必要がある。

2.2.1.2 火山活動の影響評価

[平成22年度]

火山活動に起因する熱水活動について、カルデラ火山が周辺の浅層地下水系に与える影響をマグマ起源物質の濃度、フラックスおよび賦存量について取りまとめた。また、平成22年度までに求めた深層地下水系への影響についてもまとめなおし、浅層および深層地下水系への影響の違いと原因につ

いて検討した。これらの結果から、カルデラ火山が周辺地下水に与える影響は、浅層では主にカルデラ内におよび、深層では周辺の地質構造および水理構造に依存し、異方性を持つことを示した。また、成層火山が周辺地下水に与える影響についても、影響の量、異方性などについて取りまとめた。カルデラ火山の場合と同様に影響には異方性があり、地下地質構造および水みちとしての断層の存在が影響量や範囲に関係があることが示された。一方、九州および中国地方に存在する単成火山の年代と周辺の地下水の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比を用いて、噴火年代と地下水に含まれるマグマ起源物質の濃度に関係があることがわかった。この結果から、単成火山においては、約300万年で火山の地下水系への影響が消失することがわかった。

[平成23年度]

東北日本弧において、火山活動年代と地下水に溶解しているヘリウムの同位体比の関係を調べた。その結果、火山活動域以外にも広域な熱水上昇の影響が見られることがわかった。日本列島では深さ20～40kmの地殻下部において熱水活動に由来する深部低周波(DLF)地震が各所で生じている。DLF地震の地域的な特徴を抽出し、分類したところ、スラブから直接脱水して生じた熱水と火山近傍に存在する熱水等があることがわかった。地殻浅部にマグマが供給された場合は、噴火活動とともに強酸性熱水活動を生じる。マグマは地殻内で熱水を放出するが、浅部マグマ溜り(<10km)で脱水する場合は低いpHの強酸性熱水となり、地殻下部で脱水する場合は、 CO_2 による弱酸性の NaCl-CO_2 型熱水となる。実際に火山近傍に存在する熱水流体を列島規模で解析すると、前者のみならず、後者の深部流体が存在していることを指摘した。火山のない場所でもDLF地震と NaCl-CO_2 型熱水が観測される場合があり、その原因として地殻下部に固化するあるいは固化したマグマからの脱水し生じた熱水とスラブ脱水起源の熱水が直接地殻下部にもたらされる場合があることを指摘した。マグマから放出される火山性ガスが地下水系に与える影響の定量化について、その手法を示すとともに、大型カルデラ火山(屈斜路)と成層火山(岩手)における事例を示した。いずれの場合でも、火山性ガスの影響範囲は火山の山体構造の違いに依存し、浅層地下水系と深層地下水系で大幅に異なること、さらに空間的広がりについては周辺の地質構造の影響が非常に大きいことが示された。

[平成24年度および25年度]

火山活動に起因する熱水活動の影響評価に関する研究は行っていない。

[平成26年度]

火山活動に起因する熱水活動の影響評価に関して、影響範囲および影響の持続時間等について、レビューおよびこれまでの成果の取りまとめおよび課題について示した。具体的には、1) 単成火山や複成火山では、基本的に影響は火山中心から15km以内に入る場合がほとんどであること、ただし、火山フロントおよびそれよりも背弧側の地域において近傍に火山が存在しないにも関わらず、マントル起源ヘリウムが観測される場所があること、2) カルデラ火山では、マグマ起源成分が火山中心から30km以上の範囲に影響し、地下水系へのフラックスも成層火山よりも一桁大きいこと、などを示した。火山活動場の周辺では、長期的に噴出物が累積されて行くことに加えて、カルデラの形成などに伴い、大規模火砕流による地形変化やそれに伴う地下水流動系の変化など広域かつ多岐にわたる影響因子が考えられるため、長期的な地下水変動への影響を考える場合に、想定すべき地下水系への影響として、1) 噴出物による地形変化および地殻歪みの累積等による地殻変動による広域流動システムそのものの変化、2) それらの事象に付随する地下水の化学組成や流動速度の変化などの地下水系そのものに関する変動、3) マグマ活動の変化によるマグマ起源成分の流量変化や長期にわたる地下水系への蓄積を検討課題として挙げた。

2.2.1.3 地震活動の影響評価

平成17年度および18年度において、本課題の研究を行っているが、平成22年度以降は行っていない。以下に、平成17年度および18年度の結果をまとめる。1946年南海地震、1999年集集地震、2003年十勝沖地震に伴う地下水変化を解析した。平野部の堆積層における地震時の液状化による地下水変化および歪モデルで説明できる地震時の地下水の変化の回復は、数ヶ月から数年以内と比較的早いことがわかった。比較的透水性の高い海岸付近の平野部では、地下水圧の境界条件である海水位や河川水位が安定していれば、地震直後の変化は早めに回復すると考えられる。歪モデルによる地震直後の水位変化等の計算値と実測値に差がない場合、地震前後で帯水層の弾性定数や透水性があまり変わっていないことを意味し、回復の早さが説明できる。他方、強震動による透水性変化や貯留係数変化による地下水変化については、数年以上たっても回復しない場合があることがわかった。1946年南海地震前の海岸部の不圧地下水位の低下(四国～紀伊半島南岸の広い範囲で観測はされているが全体の中での数は1%以下)は、微小な地殻変動によって大きく不圧地下水が変化する可能性を示しているが、そのメカニズムとしては、大規模な被圧帯水層と不圧帯水層との連結または局所的に大きな地殻変動の発生が考えられる。

[平成26年度]

地震活動に伴う地下水系の変動について、その影響内容、期間、および予測手法等について取りまとめた。具体的には、1) 内陸地震、プレート境界地震共に比較的大きな水位変動あるいは湧出量変動を生じ、これまでの観測による報告等からの変動事例について、数ヶ月～数年程度の影響期間であること、2) 変動原因は地殻歪変化や強震動の影響で説明可能であり、影響範囲についても理論的に取り扱うことができること、したがって、3) 地殻歪変化や強震動が原因で生じる影響の予測に関しては一般化が可能であることを示した。しかし、2011年3月の太平洋沖地震の誘発地震として生じたいわき内陸地震による温泉水噴出事象については、4年近く経過した現在でも、湧出量に減衰傾向が見られないため、地震現象が地下水に与える影響評価および将来予測に関しては、スラブ間隙水起源の熱水が関与した活動について、引き続き検討対象とすることが重要である。

2.2.2 地質学的なエビデンスと定量的評価手法

【実施内容】

平成25年度までに実施された海面変化、火山活動、地震活動のそれぞれの自然事象が地下水系に与える影響の評価手法について、地下水流動変化と地下水性状変化の観点から検討を行い、取りまとめる。以上の成果は、原子力規制委員会が作成する精密調査結果の判断指標あるいは技術指針における科学的知見に反映される。

【成果】

2.2.2.1 海面変化による影響評価

1) 塩水年代測定技術

地下水系に与える海面変化の影響を検討するための最も直接的な指標として、地下水中の放射性塩素同位体 (^{36}Cl) が利用できる。これまで日本列島の沿岸地域において、 ^{36}Cl を用いた塩水の年代測定により、過去の海面変化の影響の実態把握を進めてきた(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2010, 2011, 2012, 2013, 2014)。ここではまず、本手法の概要について述べる。

塩素 (Cl) は海水の主成分であることから、その放射性同位体である ^{36}Cl は、海水起源の塩水の年代指標として用いることができる。また、 ^{36}Cl の半減期は 301,000 年であるため、約 10 万年周期の海面変化の影響を把握する上で適している。海水には主として宇宙線起源の ^{36}Cl が含まれるが、Cl が大量に存在していることから、海水の同位体比 ($^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$) は $(0.71 \pm 0.08) \times 10^{-15}$ と非常に低い (Fifield *et al.*, 2013)。海水が陸地の地層へ侵入して長期間滞留した場合、周囲に存在する岩石中の U, Th の壊変に起因して発生する中性子によって、安定同位体の ^{35}Cl から ^{36}Cl が生成・蓄積される。これによって塩水の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ は上昇していくが、150 万年程度が経過すると ^{36}Cl の生成速度と壊変速度とが釣り合い、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ は岩石の化学組成に依存した放射平衡値に達する (森川・戸崎, 2013)。この間の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の時間変化を利用することで、塩水の年代測定が可能となる。

多くの場合、深層地下水は天水起源の地下水の混合によって希釈されている。一般に、天水の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ は海水よりも 2 桁ほど高いことから、天水成分の混合の影響を除いた海水端成分の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ から塩水の年代を求める必要がある (図 2.2.2.1-1; 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2013)。また、低 Cl 濃度の深層地下水ほど、海水端成分の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ を求める際の誤差が大きくなるため (産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2014)、塩水の年代に大きな不確実性が生じうることに注意が必要である。

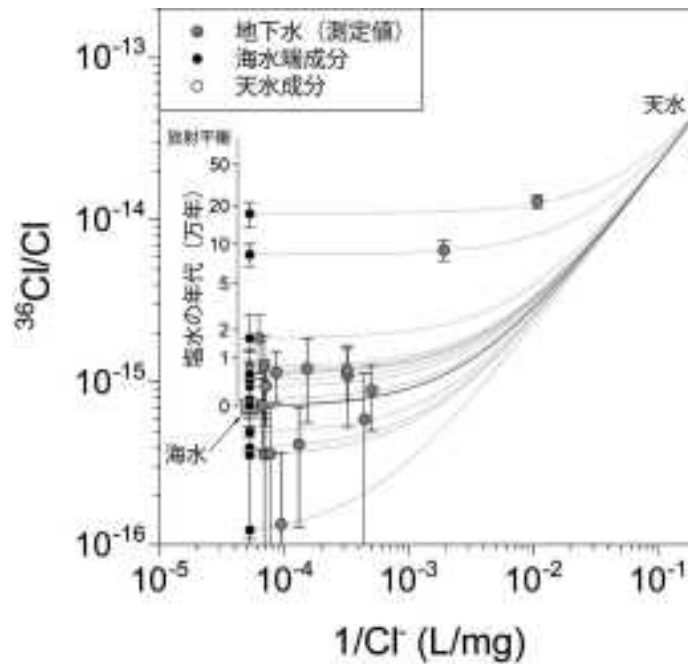


図 2.2.2.1-1 海水端成分を用いた塩水の年代測定の模式図 (瀬戸内東部地域の例)。

2) 沿岸域への適用例

これまで、日本列島の沿岸地域の深層地下水を対象として、上記の手法を適用して塩水の年代解析を進めてきた(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2012, 2013, 2014)。ここでは、これまでに得られている結果についてまとめる。

図 2.2.2.1-2 は、日本列島の沿岸地域における塩水の年代分布を示している。なお、ここでは Cl 濃度が 500 mg/L 以上で且つ他の指標から深部流体の寄与がないと判断できる地点を抽出してある。全体的にみて、全国の主要な堆積平野では、塩水の年代は 10 万年以上の古い値を示す傾向がある。同じ堆積岩地域であっても、海岸の近傍の一部の地点では 2 万年以下の若い年代を示しているところも見られる。一方、顕著に若い年代を示しているのは主に花崗岩からなる瀬戸内地域であり、2 万年以下の年代が多く分布している。

次に、塩水の年代のより詳細な分布の例として、青森県東部沿岸地域(上北地域)と瀬戸内海沿岸地域(瀬戸内地域と大阪平野)の結果を示す。図 2.2.2.1-3 に堆積岩地域である上北地域における塩水の年代分布を示した。海岸線の近傍においては、10 万年以下の比較的若い年代を示している地点も見られるが、多くは 10 万年以上の古い年代を示している。全体的な傾向としては、沿岸部から内陸に向かって年代は古くなっているが、平野の中央部では比較的若い年代が内陸部まで分布している。一方、図 2.2.2.1-4 は瀬戸内海沿岸地域における塩水の年代分布である。これを見ると、花崗岩からなる瀬戸内地域の西部ではほとんどが 2 万年以下の若い年代を示しているのに対し、東部では半数程度が 10 万年以上の古い年代を示している。これに対し、堆積岩からなる大阪平野では、上北地域と同様に海岸近傍を除いて 10 万年以上の非常に古い年代を示している。

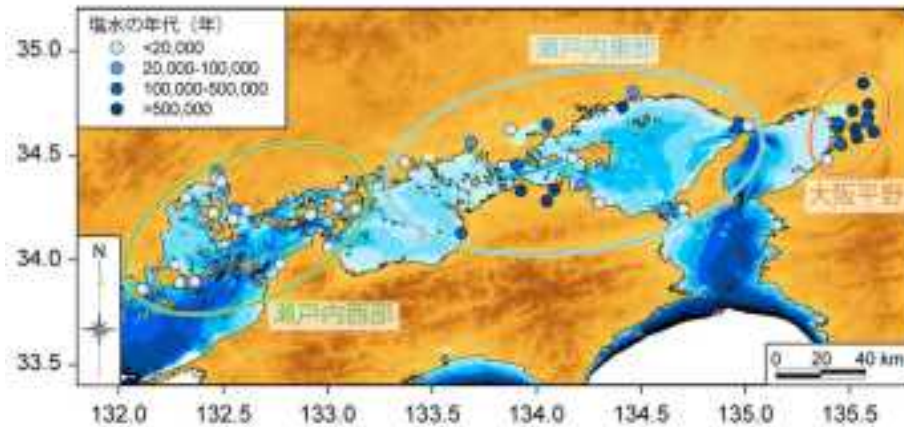


図 2.2.2.1-4 瀬戸内海沿岸地域における塩水の年代分布。

現在よりも海面が100 m低下した場合の陸域上に示した。天水の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ は $(48 \pm 16) \times 10^{-15}$ ($\text{Cl} = 5 \text{ mg/L}$)と仮定し、各地点における年代は上限値で示している。

3) 侵入年代と影響範囲

ここではまず、瀬戸内海沿岸地域の事例(図 2.2.2.1-4)から、海水の侵入年代とその影響範囲についてまとめる。瀬戸内西部地域で得られた2万年以下という年代は、これらが最終氷期以降の海面上昇時に侵入してきた海水を起源とすることを示している。一方、瀬戸内東部地域で見られた10万年以上の古い年代は、10万年周期の海面変化でも入れ替わりにくいような地下水系が存在していることを示している。産業技術総合研究所深部地質環境研究コア(2014)でまとめた通り、これは氷期における瀬戸内海周辺の地形的な特徴に関係していると考えることができる。すなわち、瀬戸内西部地域では、氷期に深い谷地形で特徴付けられる大規模な流域が形成され、古い塩水が淡水によって置換されやすく、その後に侵入してきた新しい海水起源の塩水が主体となったと考えられる。一方、瀬戸内東部地域では、氷期には広域的に盆地化すると予想されるため、古い塩水が外部へ流出できずに停滞し、その後の海進時に侵入した海水の寄与も限定的であったと解釈できる。したがって、海面変化の影響範囲は地形条件によって空間的に変化し、それは内海・内湾においてより顕著であると考えられる。

これに対して、大阪平野や上北地域などの堆積岩地域で10万年以上の古い塩水が多く分布していることは、堆積岩地域における地下水は、10万年周期の海面変化では入れ替わりにくいものと考えられる。これは、結晶質岩地域では亀裂中を流れる地下水が主体であるのに対し、堆積岩地域では多孔質媒体中の地下水流動の特徴が卓越することが要因の1つと考えられる。この点で、地質条件も海面変化の影響の程度を規定している。一方で、断層が多く分布する広島平野の6 km内陸でも比較的若い塩水が見られたことは(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2014)、断層などの地質構造が存在する場合には、局所的に内陸まで海面変化の影響が及ぶ可能性を示唆している。

4) 影響評価に関するまとめと課題

海水準変動に伴う長期的な地下水の流動について、地質学的エビデンスを結晶質岩地域においては、瀬戸内海沿岸域、堆積岩地域については上北平野、大阪平野等について示した。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ は、塩水の侵入年代を把握する上で非常に有効なツールである。しかし、対象地域の地下水環境によっては、核実験起源の ^{36}Cl を含む天水の混合があるため、大きな不確実性の原因になることは留意しておく必要がある。一方で、地殻岩石に含まれるU, Thが原因でとなり生成されるClについては、塩水の侵

入年代値に大きく影響する。岩石中の U, Th が岩石種により大きく異なることから、帯水層を形成する岩石の分析値を使用できない場合は大きな誤差の原因になることも留意する必要がある。

広範囲にわたる塩水の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の調査により、1) 堆積盆地においては比較的古い塩水が存在しており、値のバリエーションも小さいこと、および、2) 結晶質岩地域においては、周辺地形（谷あるいは盆地など）や断層の存在により、深層地下水系への塩水侵入あるいは排出が大きな影響を受けることがわかった。長期的な地下水系の変動を予測する上で、断層系が地下水の流動にどのように作用するのかを解明する必要がある。また、本来は超長期にわたる相対的海面変化で評価する必要があり、当該地域の隆起・沈降およびそれに伴う侵食・堆積についても考慮した上で、塩水侵入の影響予測を行う必要がある。

2.2.2.2 火山活動による影響評価

1) 活動に伴う短期的影響事例

(1) 有珠火山

有珠火山は 1663 年の噴火以来、350 年間で 8 回の噴火が起きている（曾屋ほか、2007）。1910 年の噴火では、北麓における水蒸気噴火で 40 を超える噴火口が生じた。この活動後には山頂の北約 3km の洞爺湖畔にて温泉が湧出するようになり、現在の洞爺湖温泉に至っている（石川、1963）。

2000 年の噴火では、多くの井戸で地下水の自噴が起きる大規模な地下水変動が観測されている（秋田ほか、2000；佐藤ほか、2002）。山頂から 3-9km 離れた地域における被圧地下水の地殻歪程度の解析によって、観測された水位変化はマグマの上昇に伴う地殻歪変化で起きたと考えられている（Matsumoto *et al.*, 2002）。その後の観測によって、地下水位の異常は 1 年近く継続したことが明らかになっている（佐藤ほか、2002）。一方、地殻歪変化が 10^{-4} を超えるような山体近傍（山頂から 3km 以内）では、温泉井戸から突然温泉水が数時間吹き上がる現象や、帯水層への温泉ガスの流入による自噴（期間は 1 ヶ月ほど）などが観測されており、新たな亀裂の発生などが主な原因と考えられている（秋田ほか、2000；Shibata and Akita, 2001）。山頂から 15km 離れた地点での地下水変化の報告はないが、Matsumoto *et al.* (2002) を参考にすると 10^{-7} を超える地殻歪変化が計算されており、通常の地下水位変動（例えば地球潮汐による 10^{-8} の地殻歪に対応する変化）の 10 倍を超える地下水位変化が起きていたと推測される。

(2) 御嶽火山

御嶽火山は、1979 年の水蒸気噴火以降、1991 年、2007 年、2014 年に水蒸気噴火が起きている（気象庁、2014a）。2007 年の活動初期には、マグマの上昇によるものと考えられる地殻変動が観測されており（Nakamichi *et al.*, 2009）、この時に生じた地殻歪変化によると考えられる 20cm の地下水位低下が山頂の南東 10km の地点で観測されている（産業技術総合研究所、2014）。山頂から 15km 離れた地点での地下水変化の報告はないが、15km を超えた地域においても地殻歪変化に応じた水位変化が広域で起きていたものと推測される。

2014 年の水蒸気噴火では、噴火の直前に傾斜計に変化が見られたものの（気象庁、2014b）、地下水位には変化は観測されなかった（産業技術総合研究所、2014）。

(3) 三宅島火山

三宅島火山は、頻繁に噴火を繰り返している直径約 8km の火山島である（気象庁、2014c）。地表付近は玄武岩質の火山噴出物で覆われており、透水係数は 10^{-3} から 100cm/s オーダーで非常に高く、定常的表流水は存在せず、島内の地下水は主に淡水レンズとその下部に存在する海水と考えられてい

る(青木ほか, 1984).

1983年の噴火では、島の南部に位置する新瀨池にて大規模な水蒸気爆発が生じて池が消滅し、その付近で一時的な温泉が生じ、火山灰が堆積した地域では浅層地下水の水質に影響が出ている(相川ほか, 1984).

2000年の噴火では、島の中央部に直径1.6km、深さ約500mのカルデラが形成され、島全体が数十cm沈降した(長谷川ほか, 2001; 国土地理院, 2005). このカルデラ形成と同時期に、島から北西方向に長さ27kmに及ぶ開口割れ目が生じたと考えられ、その開口割れ目におけるマグマ貫入量はカルデラの陥没容積 $6 \times 10^8 \text{ m}^3$ の倍近い $1 \times 10^9 \text{ m}^3$ に達すると推測されている(西村ほか, 2002). この活動時に生じた水位変化が東京都による観測によって明らかになっており、解析の結果、マグマの動きに伴う地殻歪変化が被圧地下水に影響を与えたと考えられる水位変化や、井戸の場所の水準変動に対応した水位変化が生じたことが判明している(Albano *et al.*, 2003). この噴火活動では大量の火山灰が地表に堆積し、溶出した硫黄成分を起源とする浅層地下水の硫酸濃度の上昇(最大1,000mg/L)が、噴火から2年以上経っても継続していることが明らかになっている(Sato *et al.*, 2006). 山頂から15km離れた地域での地下水の観測結果は報告されていないが、2000年の噴火では長さ27kmに及ぶ開口割れ目が生じて大量のマグマが貫入していることより、その周辺の地下水には歪変化に応じた水位変化が生じていたと推測される.

(4) 伊豆大島火山

1986年11月15日に始まった伊豆大島火山の噴火から5ヶ月(165-180日)後に、西山麓の元町地区にある水道用揚水井(小清水揚水井; 三原山火口の北西4.5km、カルデラ外に形成されたC火口列末端のC11火口の西北西1.6km)において地下水温の上昇が始まった(高橋ほか, 1987, 1988). 水温上昇率は最高で $3.0^\circ\text{C}/\text{月}$ 、水温の上昇は約2年間続いた(Takahashi *et al.*, 1991; 高橋ほか, 2000). 小清水揚水井で観測された最高水温は 66.3°C (高橋ほか, 1991, 2000; 2005年7月21日観測時には 48.5°C ; データは深層地下水データベースに格納). 地下水温の上昇は小清水揚水井の半径1km以内にある5本の揚水井においても次々と観測されるようになった(高橋ほか, 1991, 2000). 最終的には、地下水の流下方向である西部の海岸部(小清水揚水井の北西1.3km)でも地下水温上昇が観測された(川邊, 1998; 高橋ほか, 2000). 水温上昇域の広がる速度は $1.5\text{-}2.3\text{m}/\text{day}$ であった(高橋ほか, 2000).

地下水温の上昇ばかりではなく、地下水の塩化物イオン濃度の上昇、水素・酸素同位体比の変化も同時に観測された(高橋ほか, 1991, 2000). 変動の原因として、1986年伊豆大島火山の噴火により火山ガス(Kazahaya *et al.* (1993)を参照)が供給され、海洋島に特有な地下水系であるGhyben-Herzberg's lens内に熱塩対流を発生させたことが考えられた(石戸, 1994; 高橋ほか, 2000). 予想される熱塩対流の発生地点は、小清水揚水井の北東0.5km付近の地点である(高橋ほか, 2000). この地点は1986年噴火時のC火口列の北西延長部にあたる。また、伊豆大島では、各所に地下水温の異常地点(最高 31.5°C)が存在している(高橋ほか, 1991). 過去の噴火時にも、火山ガスの供給により地下水層(Ghyben-Herzberg's lens)内に熱塩対流が発生していた可能性が考えられる。2000年三宅島火山の噴火に関連して、三宅島から神津島にかけての群発地震発生域の全長27kmにも及ぶ開口割れ目が形成され、大量のマグマが貫入した(Furuya *et al.*, 2003; 西村ほか, 2002). このような現象が起き、火山ガスの供給が起きれば、山頂から15kmを越える遠方においても、小清水揚水井周辺で観測されたような地下水温の高温化、地下水の化学組成の変化が発生することが想定される.

1986年伊豆大島火山の噴火では、約40km北西の伊豆半島にある2観測井において、自噴量の減少(永井・風早, 1987)と水温低下(Mogi *et al.*, 1989)が観測された。伊豆大島火山の噴火に起因す

る地殻歪変化による水温変化であると考えられている (Mogi *et al.*, 1989).

(5) 桜島火山

桜島火山の1914年噴火では、山体の東部の20km四方程度の広い範囲において15cm以上の降灰があり (Omori, 1916)、噴火後には鹿児島湾を中心とした50km四方に及ぶ広い地域において10cm以上の沈降が観測されている (Omori, 1920)。この噴火の後、鹿児島県が県全域における地下水調査を実施しており、その結果より、噴火に伴って水位低下が見られた地域は降灰量の多い地域と重なるものの、水位上昇が見られた地域と地殻変動の分布の偏りが一致することから、水位変化と地殻変動との関連性が示唆されている (伊藤, 2006)。

2) 長期的影響評価技術

(1) 単成火山

日本列島における単成火山は、中部北海道・滝川火山群、東北日本・目瀉火山群、東伊豆火山群、山陰地域の神鍋火山群、横田火山群、阿武火山群および九州北部の壱岐火山群、福江火山群、小値賀火山群等があり、その多くは中国山地と九州北西部に存在する。産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2011) では単成火山群を含む中国山地および九州北西部に存在する火山周辺および北西九州に分布する過去数百万年間に活動した火山岩類周辺の地下水系について、火山活動度の違いが現れやすいヘリウム同位体比 ($^3\text{He}/^4\text{He}$) に着眼し、火山周辺の深層地下水について解析を行った。影響の時間スケールを見るための一つとして、火山活動が終了してからの期間が様々な火山を抽出し、各火山周辺の深層地下水系について $^3\text{He}/^4\text{He}$ と火山・火成活動時期との関係をみた (図 2.2.2.2-1)。福江・壱岐・姫島など活火山や活動時期が数十万年前以降の単成火山群に関連づけられる深層地下水の $^3\text{He}/^4\text{He}$ は特に高く、活動時期が1 Ma 以降の地域とともに $^3\text{He}/^4\text{He}$ は低下しているが、九州北部では嬉野など230万年前の火山岩分布地域においても90°Cを超える温泉が湧出しており、熱水活動は未だ続いている (図 2.2.2.2-1)。3 Ma 以降に火山活動のない地域を見ると、マグマ起源成分の影響は見られないことがわかる (図 2.2.2.2-1)。火山活動の周辺への影響の時間スケールが約3 Ma 程度にもおよぶ可能性を示している。

一方、単成火山を含む第四紀火山より15 km 圏外の地域の深層地下水を見ると、中国地方においては火山の分布域よりも南側、いわゆる前孤域ではマグマ起源成分の影響は見受けられない (図 2.2.2.2-2)。しかし、阿武火山群・青野山火山群と大江高山の間や三瓶山と横田火山群の間に位置する地域では火山からの15 km 圏内に比べるとやや低いものの、 $^3\text{He}/^4\text{He}$ の高い深層地下水も見受けられる。第四紀火山より15 km 圏外の地域での高 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 域は東北日本弧でも見られ (産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2012)、単に火山の近傍というだけではなく、その場の地下地質構造、あるいは、地表に現れない地下の貫入マグマの存在にも依存すると考えられる。なお、九州北部における火山からの15 km 圏外のデータは乏しいため詳細な議論はまだできない (図 2.2.2.2-3)。

以上より、多くの単成火山を含む第四紀火山の半径15km 圏内の地下水で高いマグマ起源の成分 (ヘリウム) が検出され、その影響は300万年程度の期間残ることがわかった。15km 圏外の地下水では、火山フロント近傍に高いマントル起源ヘリウムが見つかる場所があるが、これらについては、1) 地表に現れない伏在貫入岩体の存在の有無、2) 15km 以上離れた火山から断層等を水みちとしたマグマ起源成分の移動の有無、および、3) 非火山性のスラブ起源流体の上昇に関する調査等により、まず原因を究明しなければ評価ができない。

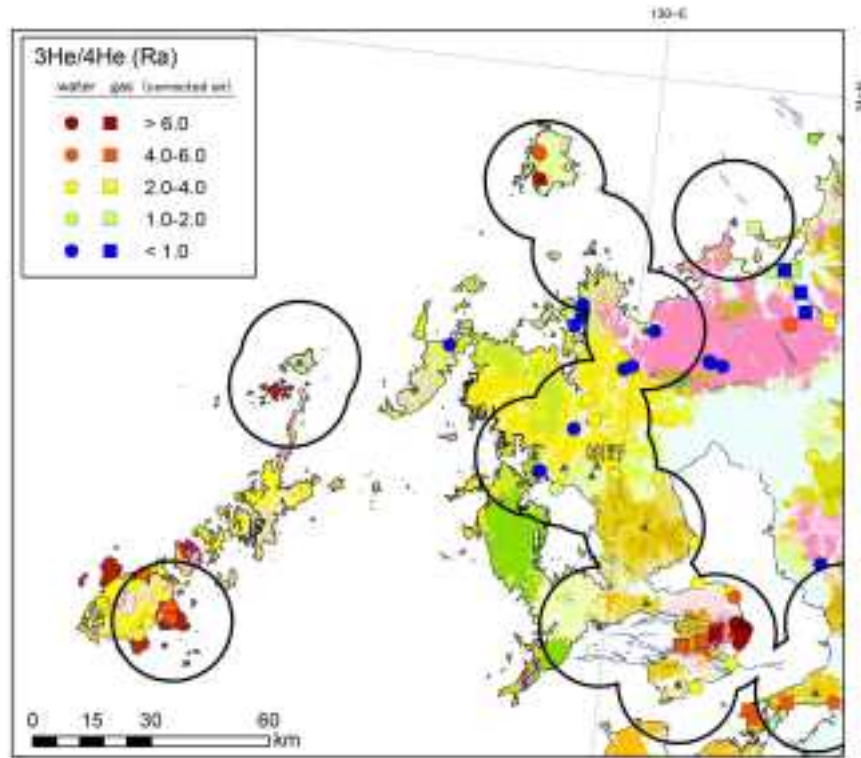


図 2.2.2.2-3 九州北部地域における深層地下水のヘリウム同位体比 ($^3\text{He}/^4\text{He}$) の分布。

▲は第四紀火山 (西来ほか, 2012) を示し, 第四紀火山より 15km 以内の地域を円で囲っている。

(2) 複成火山

日本の代表的な複成火山の一つである岩手山では, 周辺地下水流動系へのマグマ起源成分の影響規模 (範囲・量) に関する影響についての検討がこれまでに行われている (Ohwada *et al.*, 2012; 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2011, 2012). 岩手山においては, マグマ起源成分であるマグマ起源 ^3He や深部起源炭素 (C_{ds}) 濃度が雫石西縁断層帯周辺の南西麓の浅層・深層地下水や北麓や北東麓の浅層地下水で高く, マグマ起源成分の影響があることが示された (Ohwada *et al.*, 2012; 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2011, 2012). しかし, 岩手山では帯水層ごとの地下水滞留時間が, 火山体である第四紀層で数十から数百年, 第三紀層で数千年, 中古生層で数千から数万年と大きく異なる (産業技術総合研究所深部地質環境研究センター, 2007) ことから, これらのマグマ起源物質の濃度は, 地下水へのマグマ起源物質の蓄積量を意味し, 直ちに影響の度合いを示すものとして取り扱えない. そこで, ヘリウム同位体組成を用いた地下水年代評価手法 (Morikawa *et al.*, 2005) を利用して, ヘリウム同位体組成からマグマ起源成分 (マグマ起源 ^3He , 深部起源炭素, S, Cl) のフラックスや供給率を見積もり, これらを新たな指標としてマグマ起源物質の地下水流動系への影響範囲や影響値を検討した (Ohwada *et al.*, 2012; 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2011, 2012).

図 2.2.2.2-4 に深部起源炭素 (C_{ds}) フラックスを示す. 深部起源炭素は, マグマから遊離する主要な揮発性物質の一つであり, 処分地への化学的破壊をもたらす要因成分でもある CO_2 の表層起源以外の深部由来炭素の成分を示したものであり, ここではマグマ由来である. 深部起源炭素フラックスは北麓・北東麓地域や南麓の断層帯周辺で高く, その範囲は山頂から 10^{15} km 離れた地域まで広がり, 特に浅層地下水で深層地下水に比べ値が高い (図 2.2.2.2-4). フラックスの分布から, 岩手山におけるマグマ起源成分の地下水流動系への影響は主として浅層地下水系を介したものであり, その範

囲は広範囲に及ぶが異方性があることがわかる。これは、岩手山の複雑な山体構造や断層によって地下水流動系が大きく規制されていることに起因したものと考えられる(風早・安原, 1999; Ohwada *et al.*, 2012)。また、水系区分されたそれぞれの流域(北麓, 北東麓, 南東麓, 南麓)へのマグマ供給率の見積もりが試見られており、深部起源炭素供給率はフラックスの高かった北麓・北東麓の浅層地下水系でそれぞれ 1.1×10^8 mol/y, 1.5×10^8 mol/y, 南西麓で 1.5×10^8 mol/y と見積もられている(Ohwada *et al.*, 2012)。岩手山の事例では、影響は火山中心から 15km 以内の範囲であるが、他の成層火山において詳細に検討された事例は他にない。

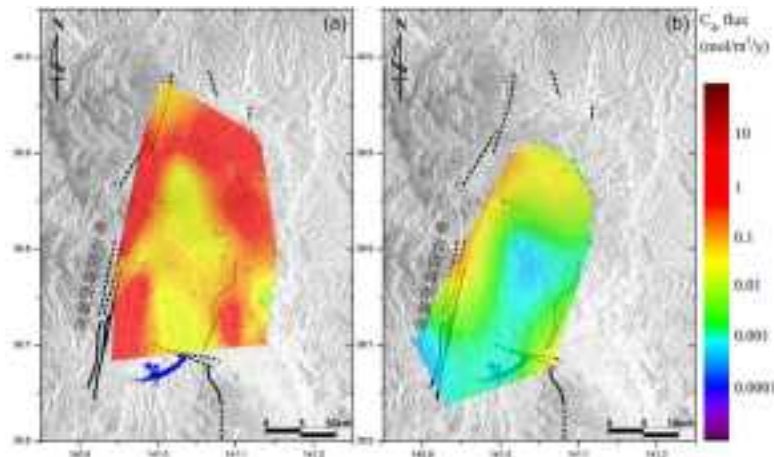


図 2.2.2.2-4 岩手山周辺地域における深部起源炭素 (C_{as}) フラックスのコンター図。

(a) 浅層, (b) 深層。産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2012)の図を拡大したもの。実線は断層, 点線は伏在断層を示す。

(3) カルデラ火山

日本列島は火山列島であり大規模カルデラも多数存在する。大規模カルデラ噴火では多量のマグマが関与することから、カルデラ火山から放出されるマグマ起源成分の周辺地下水流動系への影響も大きなものになることが予想される。これまでに、日本最大のカルデラである屈斜路カルデラにおいて、先に述べた岩手山での手法を適用し、屈斜路湖周辺地下水流動系へのマグマ起源成分の影響に関して検討が行われている(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2010, 2011, 2012)。屈斜路カルデラ周辺地域においては、マグマ起源 ^3He 濃度や深部起源炭素濃度は、カルデラ内では比較的浅層から深層まで高く、さらにカルデラ外の北部や東部地域においてもカルデラ内と同程度の濃度が見られた。それに対し、カルデラ外の南部の釧路川流域地域では濃度が低い。先述の岩手山の場合と同様に帯水層ごとの地下水滞留時間の見積もりが試みられ、カルデラ内の浅層地下水で数十～数百年、カルデラ外の北部の深層地下水で数百から数千年(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2009)、さらに、南部の釧路川流域の深層地下水では数万～数十万年(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2010)と地域ごとに大きく異なる滞留時間が得られた。

図 2.2.2.2-5 に岩手山の場合と同様の手法で見積もられたマグマ起源 ^3He フラックスを示す。マグマ起源 ^3He フラックスの高い範囲は浅層地下水ではカルデラ内のみで見られ、深層地下水では、カルデラ内からカルデラ外側の北部から東部の 30 ~ 40km の範囲に広がる(図 2.2.2.2-5)。そのフラックス値は岩手山に比べ一桁大きい(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2012)。カルデラ周辺地域におけるマグマ起源成分の周辺地下水流動系への影響は、カルデラ内の深層・浅層地下水および広域の深層地下水を通して及んでおり、複成火山である岩手山と比べるとその影響範囲も影響量

も格段に大きい。影響範囲に関してはカルデラの北部から東部に限られ、南西方向には影響しないことがわかる(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2012)。同様に見積もられた深部起源炭素フラックスの分布(図2.2.2.2-6)からは、マグマ起源³Heフラックスが高かったカルデラを挟んだ北側と南側の地域でも低い値となった(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2012)。これは、方解石(CaCO₃)の沈殿による炭素種の除去により生じたものと思われる。そのため、屈斜路カルデラ周辺での深部起源炭素の供給率は、炭素種の沈殿により深部起源炭素フラックス値が低い地点を除き、さらにマグマ起源³Heフラックス分布からマグマ起源成分の影響域を仮定することで見積もられ、その値は浅層域(カルデラ内)で 7×10^8 mol/y, 深層域では 3×10^8 mol/yとなった(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2012)。この値は、岩手山周辺地域で見積もられた値の倍以上の高い供給率である。屈斜路カルデラ周辺地域で影響範囲が広く供給率が大きいことは、マグマ起源ガス成分の供給源となるマグマの規模の違いや、火山活動によって深部まで破碎されたカルデラ自体がマグマ起源成分の巨大な供給経路として機能していることが要因と考えられる(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2012)。

以上より、カルデラ火山(屈斜路カルデラ)では、マグマ起源成分が火山中心から30km以上の範囲に影響し、地下水系へのフラックスも大きいことがわかった。カルデラ火山は地下のマグマ溜まりそのものが単成火山や複成火山のそれと比較して巨大であること、および、カルデラ構造により深部からリム部に流体が上昇しやすいことなどが、影響が大きくなる原因であると考えられる。カルデラ火山においては、より広域で影響の評価を行う必要があることを示している。

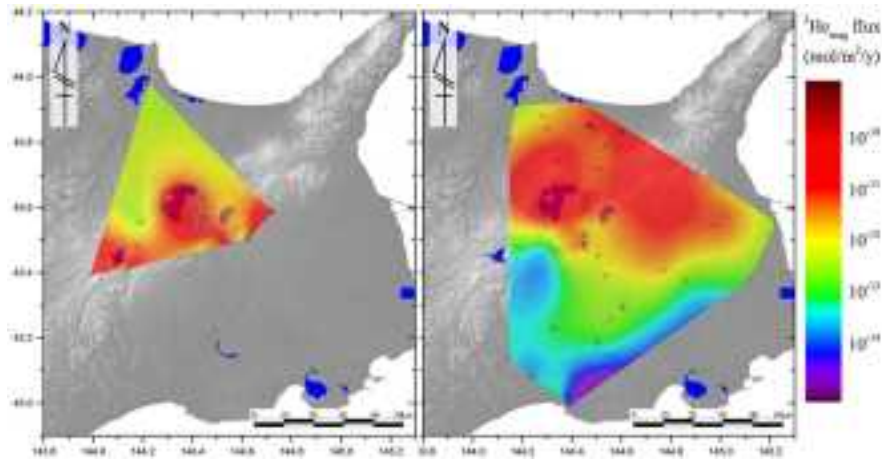


図2.2.2.2-5 屈斜路カルデラ周辺地域におけるマグマ起源³Heフラックスのコンター図。

(a) 浅層, (b) 深層。産業技術総合研究所深部地質環境研究コア(2012)より引用。黒点線はマグマ起源³Heの影響範囲と設定した領域。

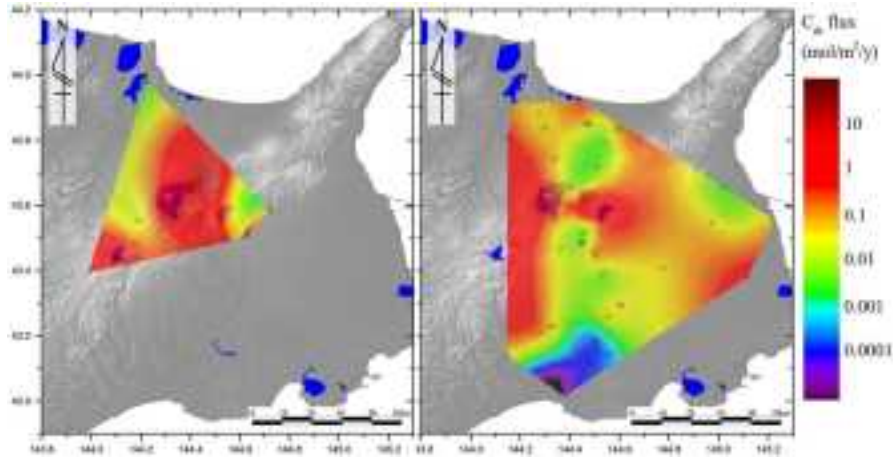


図 2.2.2.2-6 屈斜路カルデラ周辺地域における深部起源炭素フラックスのコンター図。
(a) 浅層, (b) 深層. 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2012) より引用.

2.2.2.3 地震活動による影響評価

1) 内陸地震活動による影響事例

地下水系に大きな影響を与えたいわき内陸地震 (Mw7.0; 2011.4.11) については、数 10km 程度の影響範囲で温泉水、地下水の新規湧出および湧出量の増加が生じた。この現象はほぼ 4 年間経過した 2015 年 3 月現在でも衰える兆しが見えていない。詳しくは産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2015) 1.4 章を参照されたい。

(1) 1974年伊豆半島沖地震

1974 年 5 月 9 日に、静岡県石廊崎地域の深さ 10km を震源とする Mj6.9 の地震が起きた (高橋・片桐, 1974)。この地震により長さ 10km の石廊崎断層において地表にズレが生じており、その詳細は、走向が北西 - 南東、傾斜は S80° で、ズレは石廊崎部落で最も大きく右横ズレ約 40cm、北落ち約 15cm と報告されている (高橋・片桐, 1974)。この地震に伴って静岡県から千葉県にわたる広い地域 (震央から 50-210km) において数 cm 程度の水位変化が観測されており、水位変化の上下分布が予想される地殻歪変化と同じ四象限型を示すことから、この水位変化は地震による地殻歪変化によって生じたものと考えられている (Wakita, 1975)。

(2) 1995年兵庫県南部地震

1995 年 1 月 17 日に、兵庫県の淡路島北部の深さ 16km を震源とする Mj7.3 の地震が起きた (気象庁, 2014d)。この地震により、北東 - 南西走向の長さ約 40km、幅約 15km の断層において 40-80cm 程度のズレが生じたと考えられている (橋本, 1995)。この地震に伴い、震央から 200km までの広い範囲において地下水に変化が見られたことが、変化の規模や継続時間は不明であるが、アンケート調査によって明らかになっている (Koizumi *et al.*, 1996)。淡路島では湧水の異常発生が確認されており、震央より 25km 以内における湧水量 (最大日量 2,400 トン) の測定の結果、湧水量の異常増加は地震より 2 年程度継続したことが明らかになっており、この原因として強震動による帯水層の透水性の増加が考えられている (Sato *et al.*, 2000)。また、上記推定断層上のミネラルウォーターの井戸において、地下水中の Cl 濃度 (14ppm) が地震の 5 ヶ月前から地震後 2 ヶ月間にかけて 10% ほど上昇したことが報告されている (Tsunogai and Wakita, 1995)。

2) プレート境界地震による影響事例

(1) 南海トラフの巨大地震

南海トラフ沿いでは684年以降9回の巨大地震が発生している(寒川, 1992). 宇佐見(2003)によると, 1707年以降の3回の南海トラフの地震の後に道後温泉, 湯峯温泉等の温泉の湧出が停止した. 1946年昭和南海地震(M8.0)では, 震源域から約100 km離れた道後温泉において14m程度の水位低下を生じ, 数ヶ月後に再度自噴した(川辺, 1991; 力武, 1947). 道後温泉での自噴停止期間が1946年南海地震後よりも1707年宝永地震(M8.6)および1854年安政南海地震(M8.4)の後が1.5倍以上長い140日程度であったので(「道後温泉」編集委員会, 1982), Scholz(1990)は, 宝永地震および安政南海地震後の道後温泉の水位低下は25m以上であった可能性を指摘している.

(2) 2003年十勝沖地震

2003年9月26日の十勝沖地震(Mw8.0)では, 北海道の29井において, 最大4.3mの地震後の水位変化が観測された(Akita and Matsumoto, 2004). 1年程度経過しても水位が低下したまま回復していない事例がある(Matsumoto and Akita, 2004).

(3) 2011年東北地方太平洋沖地震

2011年3月11日発生した東北地方太平洋沖地震(Mw 9.0)では広域で地下水位や自噴量の変化が観測された. 産総研の観測井戸では, 北海道, 茨城県, 東海地方から四国地方にかけての57本の観測井で地震後の地下水位あるいは自噴量の変化が観測された(北川・小泉, 2011). つくば1観測井では地下水位が地震後に1.7m低下し, 2014年末までに1.0m回復した. 静岡栗原2観測点では地下水位が地震後に2.5m低下し, 14ヶ月後に元の水位に回復した. 東北地方太平洋沖地震によって温泉の自噴量・水位・動水位への影響に関しても広域に影響様々な報告がある. 栃木県の温泉では地震後に動水位が28m上昇した(大塚ほか, 2012). また, 茨城県の温泉では地震前には毎分400L自噴していたが, 地震後に停止した(堀川ほか, 2012).

本地震発生後1ヶ月以内に発生したM6以上の内陸の誘発地震としては, 3月12日長野県北部(M6.7), 3月15日静岡県東部(M6.4), 3月19日茨城県北部(M6.1), 3月23日福島県浜通り(M6.0), 4月11日福島県浜通り(M7.0)があり, 広範囲に影響を及ぼした(桑原, 2012). このうち4月11日の地震はいわき市内の広域で温泉水・地下水の湧出を伴った(産業技術総合研究所深部地質環境研究コア, 2014, 2015).

2.2.3 将来予測技術の検討結果のまとめ

【実施内容】

海面変化、火山活動、地震活動のそれぞれの自然事象に対応した地下水変動に関する予測技術についての知見をまとめる。さらに、変動パラメータの定量化手法に基づいた将来予測手法について検討を行い、その結果をまとめる。また、海面変化、火山活動、地震活動のそれぞれの自然事象に対応した地下水変動に関する予測技術についての問題点および課題についてまとめる。以上の成果は、原子力規制委員会による精密調査結果の判断指標あるいは技術指針の作成に必要な知見となる。

【成果】

2.2.3.1 海面変化による地下水変動予測技術

1) 予測手法の検討

将来にわたる地下水変動予測に際しては、まず、対象地域において過去の海面変化によりどのような変動を生じたかを明らかにしておく必要がある(2.2.2章参照)。このような地質学的エビデンスの集積により、より正確な過去の地下水変動を再現することができる。将来予測をシミュレーション等により行う場合には、予測精度を向上させる、あるいは、シミュレーション結果の検証等に用いることができる。本項では、海面変化による地下水変動予測についてモデル化およびシミュレーションによる手法を適用する際の考え方および問題点等の検討を行う。

海面変化による地下水流動の変動を予測するためには、主として塩分濃度による密度変化を考慮した密度流-移流分散解析(密度流解析)が適用される。一般的に密度流解析は現状での塩水くさびの形状や人為的な地下水の汲み上げによる塩水侵入の評価を行うために適用されることが多く、地層処分事業で対象とされる海水準変動サイクルを考慮した長期の予測解析等に利用された事例は少ない。海面変化を考慮した予測解析に適用する際の留意事項を以下に示す。

(1) 地表および海底面境界条件の設定

海水準が固定された条件下においては、陸域は降雨浸透あるいは流出域として圧力固定境界条件、海域はモデル境界面となる海底面の深度を考慮した圧力・濃度固定境界条件となる。ここで、海水準の変動履歴をモデル化する場合、現状の高海水準からの海水準の低下に伴い海域の陸化が進むことによって、陸化部分の新たな地表境界条件を設定する必要がある。図2.2.3-1に示したように、陸化直後は地下が海水で飽和した状況であるため、新たな陸域は流出域(圧力固定境界条件)と設定されるべきものと推測されるが、降雨強度と時間経過の兼ね合いによる地下水位の低下による不飽和帯の形成によって、新規に陸化した地表面が涵養域となる可能性も排除できない。

したがって、海水準変動に伴う陸域の地表境界条件としては、地表面直下が飽和状態の場合は流出域として圧力固定条件、直下が不飽和の場合には降雨浸透境界条件として取り扱う必要がある。

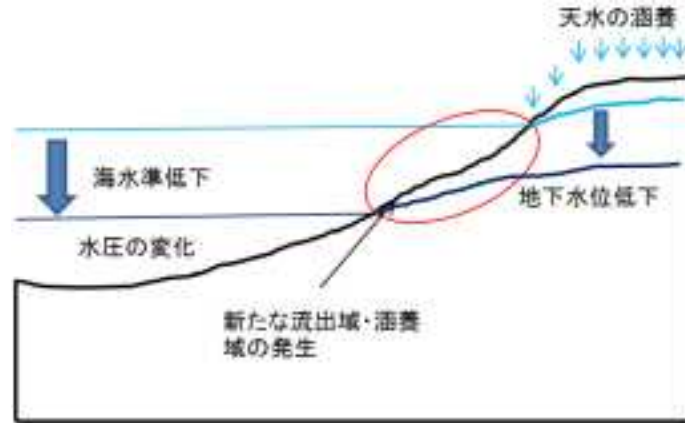


図 2.2.3-1 海水準変動に伴う地表・海底面境界条件変化模式図。

(2) 涵養量の評価

前項で述べたように、各海水準段階における涵養・流出域の設定は、数値解析の各時間ステップにおける飽和・不飽和状態によって決定される。飽和・不飽和状態を支配する要因としては、陸域における涵養量があげられる。降雨から蒸発散、地表面流出、地下への浸透に関しては古くから分離評価するためのモデルが提示されている (de Marsily, 1986)。実測ベースでは、水質、同位体を用いた分離方法、モデルでは地表面流出を多相流動の方程式と類似形に変換してシミュレーションに組み込む方法 (Tosaka *et al.*, 2000) が提案されている。

本報告書 2.2.4 に示したように、涵養量は海水準変動時における陸域と海域間の塩水・淡水流動に大きく影響するパラメータであるが、実際に評価することは困難であると同時に、着目する岩体の水理特性によって影響を受ける。水位観測データが豊富に存在する場合には、実測の水位データに合致するような透水係数と涵養量の組み合わせを設定することが可能と考えられるが、情報が不足する場合には、飽和状態での涵養量を最大値として、実際の涵養量をパラメトリックに評価する必要がある。また、氷期-間氷期における気候変動による降水量（涵養量）の変化についても、松末ほか (2000) 等の研究事例はあるが、十分なデータが得られていないことにも留意すべきである。また、同位体水文学的エビデンス（塩水あるいは淡水の年代）が検証のための評価指標として重要である。

2) 問題点と課題

気候変動に伴う海水準変動は約 10 万年周期で生じており、評価期間によっては、100m 以上の海水準変化を伴う大きな変化が繰り返されることになる。そのため、沿岸域においては、地下水流動系に大きな影響を与えると考えられる。影響予測に関しては、その精度の確保が重要課題となる。

手法としては、まず各種地下水年代測定法および混合解析法等の活用により、陸域に侵入した塩水の年代値や淡水成分の年代値を示し、地下水の変動履歴を地質学的エビデンスとして明らかにすることが重要である。これまでの検討の結果、1) 地質構造等により長期にわたる地下水流動系への影響に違いがでること、2) 地理的要因により海水準低下時に地下水流動系が現在と全く異なるシステムに変化することなど、モデル化の上で考慮すべき点が示された。

一方、将来を予測する上で、変動履歴および流動変化に影響する各種の地質学および気候学的要因をいかにしてモデル化しシミュレーション手法に組み込むかという点は、今後も引き続き検討を重ねて行く必要がある。

2.2.3.2 火山活動による地下水変動予測技術

1) 予測手法の検討

(1) 短期的影響予測

火山活動に伴う短期的な地下水変動については、それ自体が数十年に一度の軽微な変動であっても、長期にわたる期間では、数千回以上繰り返されるイベントとして想定されるため、影響評価の対象になりうる。

山体から15km圏外の変動については、報告自体が少なく、影響を与えない事例が多いと考えられる。ただし、有珠火山2000年噴火の例を参照にすると、マグマ上昇に伴う地殻歪変化は15km圏外であっても 10^{-7} を超えることがあり、地球潮汐による地殻歪変化(10^{-8})に伴う地下水位変動の10倍を超える変化が生じる可能性が考えられる。また、三宅島火山2000年噴火の例のように、山体から15kmを超えてマグマが岩脈貫入する可能性があり、そのようなマグマ活動が新たな地下水変動をもたらす場合も想定される。

火山活動による地下水変動を予測するためには、ターゲットとする火山体にどのような形状でマグマが供給されるのかを想定しモデル化する必要がある。形状が想定できれば、15km圏外を超えて岩脈が発達する可能性が予測でき、また上昇するマグマ量を想定すれば15km圏外において発生する地殻歪変化を予測することもできる。発生する地殻歪変化量が予測できれば、地下水位の地殻歪感度を用いることによって発生する水位変化量を計算することができる。

(2) 長期的影響予測

火山活動の場では、長期的に噴出物が累積されて行くことに加えて、カルデラの形成などに伴い、大規模火砕流による地形変化やそれに伴う地下水流動系の変化など広域かつ多岐にわたる影響因子が考えられる。まず、ある対象地域において長期的な地下水変動への影響を考える場合に、想定すべき事象について整理する。地下水系への影響は、1) 噴出物による地形変化および地殻歪みの累積等による地殻変動による広域流動システムそのものの変化、2) それらの事象に付随する地下水の化学組成や流動速度の変化などの地下水系そのものに関する変動に加えて、3) マグマ活動の変化によるマグマ起源成分の流量変化や長期にわたる地下水系への蓄積を考慮する必要がある。このうち、1)および2)については、地域性が非常に大きいため一般化が難しい。評価対象地域がある程度明らかになった時に詳細な検討を加える必要がある。3)については、2.2.2.2章において、複成火山およびカルデラ火山について影響の評価手法と問題点をまとめた。

2) 問題点と課題

火山活動が地下水系に与える影響に関しては、15km圏内にとどまる影響が多い。その範囲を超える可能性のある影響については、広域影響としての歪み変化とその累積による地下水系の変化、応力場と貫入方向の関係による貫入岩体が地下水系に与える変化による影響評価が重要である。しかし、前節でも述べたように、歪み累積による地殻変動は火山により影響が大きく異なることに加えて、周辺地形や広域応力の影響も関係するため、複雑であり、一般化することはできない。また、三宅島で見られた27kmものマグマ貫入現象は、カルデラ陥没を伴い数千年に一度生じる事象であり、玄武岩質のマグマ活動に特有の現象の可能性があるため、一般化が難しい。評価対象地域の近傍にこのような火山がある場合には、これらの影響については非常に重要な評価項目になるため、地域が明らかになった時に詳細な検討を加える必要がある。

2.2.3.3 地震活動による地下水変動予測技術

1) 予測手法の検討

(1) 内陸地震

内陸地震に伴う地下水変動は、断層近傍における大規模な変動と断層から 20km 以上離れた地域で観測される水位、自噴量、水温などの小規模な変化に分けられる。地震の発生間隔は断層により様々であるが、数十万年の評価期間の場合では数千回以上繰り返される事象である。

断層近傍における大規模な地下水変動は、地殻歪変化や強震動などによって断層近傍における岩盤や帯水層の透水性が変化することにより生じると考えられる。2011 年いわき内陸地震のように、その場所が深部流体の湧出域であった場合、地震によって透水性が増加することによって地域全体の水頭圧が数 m の規模で上昇することが予測される。また 1995 年兵庫県南部地震のように、透水性の増加によって地下水流動が加速されることも考えられる。この場合、標高の高い地域で数十 m オーダーの水位低下が、標高の低い地域で異常湧水の発生が生じると予測される。このような大規模な地下水変動の継続時間は、流出域における水頭圧の上昇は少なくとも 4 年以上、後者の地下水流動の加速は 2 年程度と考えられる。さらに断層近傍においては、1995 年兵庫県南部地震の際に観測されたように、地震をきっかけに地下水中の Cl 濃度が上昇する可能性も考えられる。

断層より 20km 以上離れた地域における地下水変動については、地震に伴って発生する地殻歪変化や強震動によって生じると考えられる。地殻歪変化によってもたらされる地下水変動は、発生する地震の断層モデルを想定することにより、地下水の地殻歪感度を用いて変化量を計算することができる。一方、強震動によってもたらされる地下水変動については、帯水層近傍における地下水の擾乱が原因であるため、普段の地震時の地下水変動を観測することによって変化の傾向を予測することができる。

(2) プレート境界地震

プレート境界地震による地下水変動については、内陸地震のうち断層から離れた地域における地下水変動と同様、地震による地殻歪変化や強震動によって生じると考えられる。発生間隔は百年から千年であり、評価期間が長い場合は数千回以上繰り返される事象である。ただし、プレート境界地震の規模（マグニチュード）が内陸地震よりも大きいため、震源域から大きく離れていても地震による地殻歪の変化量や強震動の振幅は大きくなる。

たとえば、昭和南海地震の震源域から約 100km 離れている道後温泉では地震直後に 14m 程度の水位低下が引き起こされた。この水位低下は同地震の断層モデルから推定される 6×10^{-6} の伸張ひずみと道後温泉の地殻歪感度 (10^{-8} あたり 2cm の水位変化) で予測が可能である。このように、地殻歪による水位変動は、想定される地震の断層モデルおよび地下水の地殻歪感度を得ることができれば予測が可能である。また、地殻歪による水位変動は、数ヶ月から数年程度で地震前の水位に戻る。

一方、強震動が原因となる地下水変動については、透水係数の変化など、帯水層・地下水の循環系における擾乱が原因である。この場合、より頻度が多い振幅の小さい地震動により地下水変動が観測される場合があるので、これを観測することによって地下水変動の傾向を予測できる場合がある。また強震動が原因となる地下水変動については、元の水位に戻らない場合も考慮する必要がある。

2) 問題点と課題

地震活動に伴う地下水系の変動については、内陸地震、プレート境界地震共に比較的大きな水位変動あるいは湧出量変動を生じ、数ヶ月～数年程度の影響期間である。これまでの観測による報告等からの変動事例についても、その原因が地殻歪変化や強震動で説明可能であり、影響範囲についても理論的に取り扱うことができる。したがって、地殻歪変化や強震動が原因で生じる影響の予測に関して

は一般化が可能である。しかし、以下に示す新しい事例については、これまで想定されていなかった事象により生じたものであり、さらに検討を続ける必要があると考えられる。

2011年3月の東北地方太平洋沖地震(Mw9.0)のように、そもそもその規模の地震の発生が想定されていなかったため、予測できなかった場合がある。そのため地震現象に限ったことではないが、長期の評価期間を対象とする場合は、地質学的証拠の残りづらい地質変動事象については、今後も留意し続ける必要がある。また、太平洋沖地震の誘発地震として生じたいわき内陸地震による温泉水噴出事象については、産業技術総合研究所深部地質環境研究コア(2015)にもまとめられているように、4年近く経過した現在でも、湧出量に減衰傾向が見られない。この事例は、沈み込むプレートの間隙水が関与している可能性があり、地震現象が地下水に与える影響評価に関しては、地殻歪変化や強震動以外の原因で生じる影響について、引き続き検討対象とすることが重要である。

2.2.4 解析モデルの作成および評価

【実施内容】

予測技術の一般化において、流動系の変化予測を定量化するためには、地下水流動系の変動に係る各種パラメータを用いたモデルの評価を検討する必要がある。そのため、模式的な三次元モデルを構築し、地形による涵養域の面積、あるいは水理異方性等の地下水流動シミュレーション結果に変化を与える各種パラメータを用いた解析モデルの作成を行い、評価する。以上の成果は、原子力規制委員会による精密調査結果の判断指標あるいは技術指針の作成に必要な予測技術開発の基礎資料となる。

【成果】

2.2.4.1 解析モデルの構築

本項では、特に涵養量に着目し、海水準変動による涵養量変動を模式的に与えた上での海水準と内陸への塩水の流動の変化をパラメトリックに評価することを目的としたモデル構築を行った。解析対象領域は、産業技術総合研究所深部地質環境研究コア(2014)においても検討を行った瀬戸内海沿岸部とした。同地域には北東-南西方向に断層に起因する断裂系が卓越するため、図2.2.4.1-1に示す地形図上の線を代表断面とした断面2次元解析を実施した。

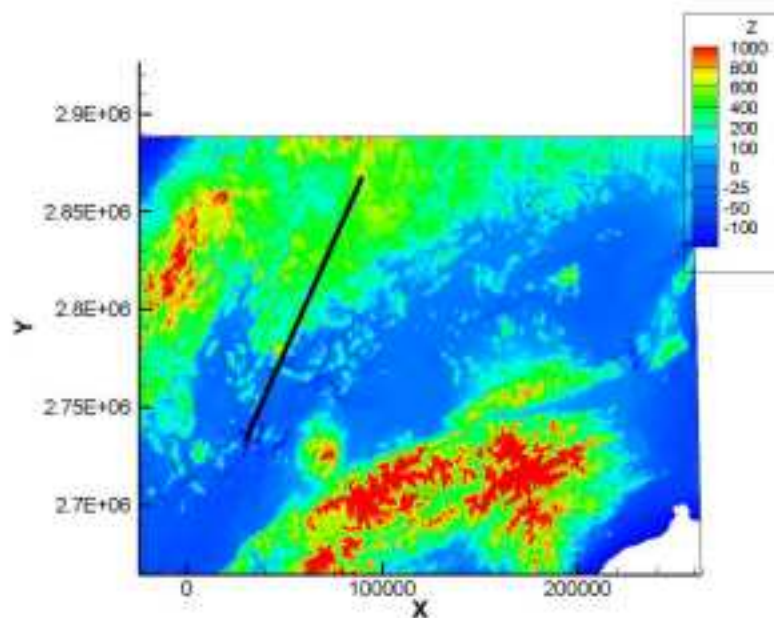


図 2.2.4.1-1 瀬戸内海地形データおよび解析測線。

断面2次元格子分割図を図2.2.4.1-2に示す。解析は積分型差分法による多相流動解析手法であるGETFLOWSを用いた。解析底面はEL-2,000mとした。解析格子の第1層は大気層で、第2層が表流水を計算する地表層で、第3層目以下が地表面以下の地質層となっている。なお、地質層の最上位に層厚1mの表土層を設けており、総格子数は $500 \times 43 = 21,500$ である。

Distance Range (m)	Distance (m)	NK	OX	Elevation Range (m)	Elevation (m)	NZ	OZ
Atmosphere				950 - 950	1000	1	200
Surface				950 - 750	2000	1	200
Subsided Area				750 - 200		1	1
0 - 30000	30000	200	150	750 - (-1500)	1200	15	63
30000 - 60000	30000	150	200	(-500) - (-1000)	300	17	42
60000 - 90000	30000	100	300	(-2000) - (-1500)	500	8	63
90000 - 130000	40000	50	600	(1500) - (-2000)	500	5	100
Total	130000	500			3000	45	

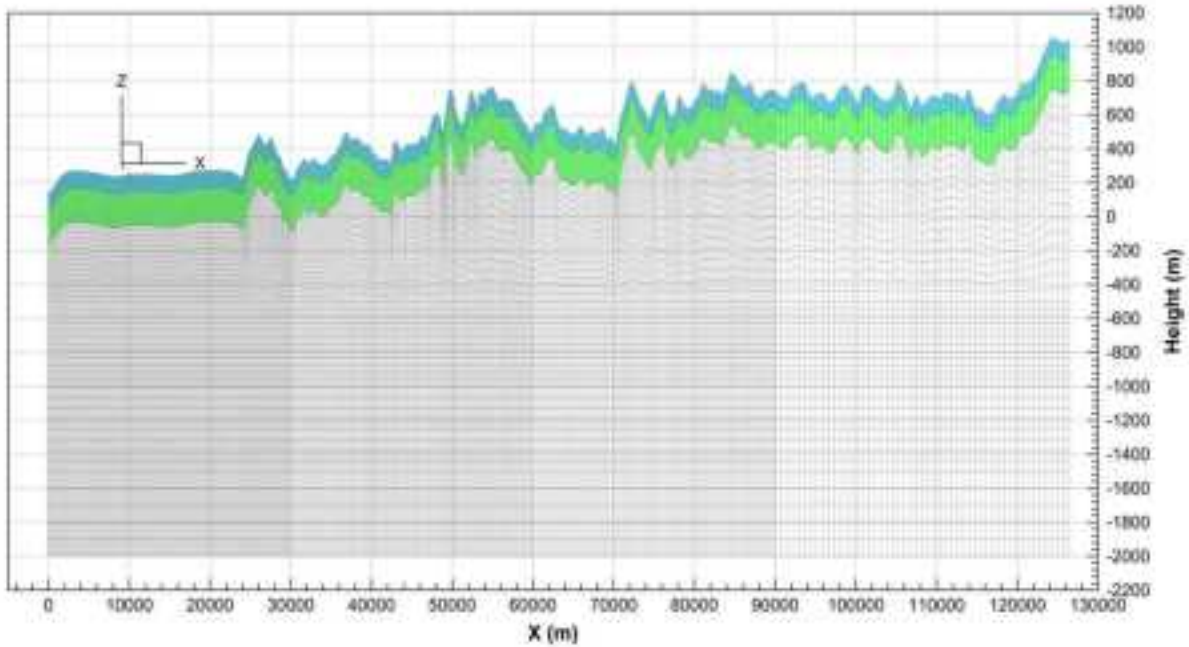


図 2.2.4.1-2 解析格子断面図（青は大気層、緑は地表層を示す）。

2.2.4.2 水理特性および境界条件

1) 飽和透水係数および有効間隙率

花崗岩の飽和透水係数 k_s は、堤ほか (1994) に例示されている値として表 2.2.4.2-1 に示した $k_s = 1.25 \times 10^{-10}$ cm/s をベースに、断層周辺の選択的流動を考慮して 1.25×10^{-7} cm/s と設定した。また、有効間隙率は、同論文から 0.67% を採用した。

表 2.2.4.2-1 各種岩石試料の水理特性の代表値 (堤ほか, 1994).

供試体	高さ (cm)	有効間隙率 (%)	飽和透水係数 (cm/s)	一定蒸発量 (mg/m ² /s)
花崗岩	(a)15	0.82	1.25×10 ⁻¹⁰	0.4
	(b)20	0.67		0.2
島尻層群泥岩	(a)15	30.0	1.0×10 ⁻⁷	21.0
	(b)8			17.0
瑞浪層群泥岩	(a)10	20.0	1.6×10 ⁻¹⁰	3.0
	(b)8		1.1×10 ⁻¹⁰	5.0
第三紀宮崎層群泥岩	(a)15	36.5	1.0×10 ⁻⁷	13.0
	(b)10			12.0

2) 不飽和特性パラメータ

既往研究に示され散る各岩種に関する van Genuchten 式の不飽和特性パラメータ (今井ほか, 2013; 堤ほか, 1994) から, 花崗岩のデータで間隙率の低い供試体の値 (表 2.2.4.2-1 の赤線囲み) を採用した. なお, 花崗岩については 2 論文とも同じデータである. すなわち, van Genuchten 式の不飽和特性パラメータは, $n = 2.09$, $m = 0.522$, $\alpha = 0.014$ とした. なお, 相対浸透率 (比透水係数) 曲線と水分特性曲線の n および m パラメータは共通とした. 残留 (最小) 体積含水率は, 今井ほか (2013) より 0 とした. すなわち, 有効飽和度=飽和度となる. 空気相の相対浸透率曲線 (比透水係数) は, 以下に示す Corey 式を採用した. Corey 式では $n=2$ が空気相に対応するとされている.

$$K_{rg} = (1 - S_{we})^n (1 - S_{we}^n) \tag{式2.2.4.2-1}$$

$$S_{we} = \frac{S_w - S_{wr}}{1 - S_{wr} - S_{gr}} \tag{式2.2.4.2-2}$$

ここに,

K_{rg} : 空気相の相対浸透率 (比透水係数)

n : パラメータ

S_{we} : 有効飽和度

S_{wr} : 水相の残留飽和度

S_{gr} : 空気相の残留飽和度

以上より, 設定した水相および空気層の相対浸透率 (比透水係数) 曲線を図 2.2.4.2-1 に, 水分特性 (毛細管圧力) 曲線を図 2.2.4.2-2 に示す.

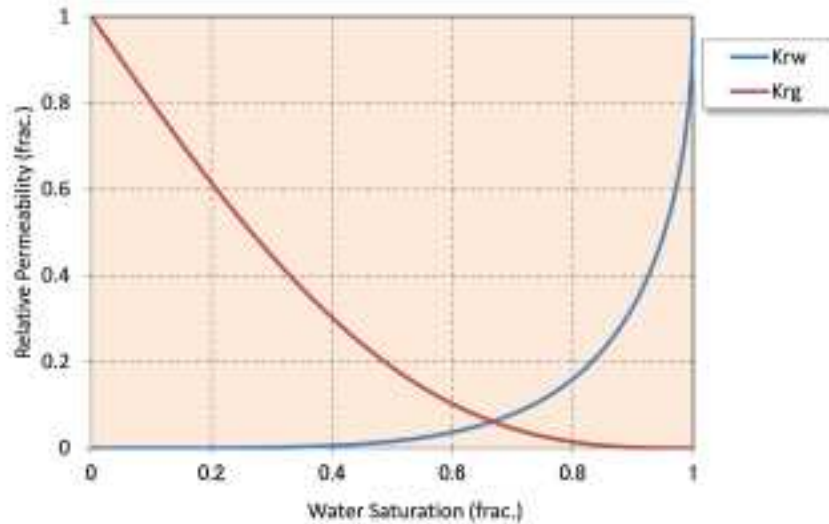


図 2.2.4.2-1 水相および空気相の相対浸透率（比透水係数）曲線。

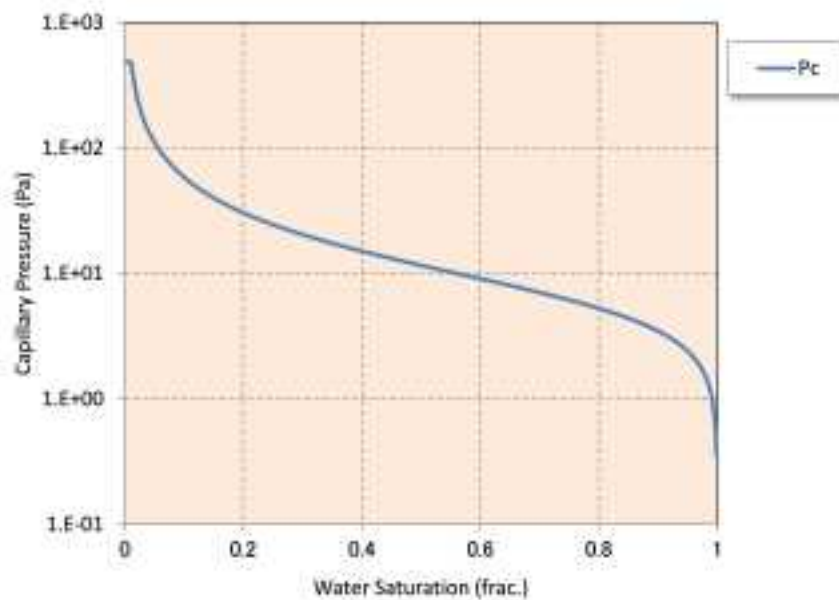


図 2.2.4.2-2 水分特性（毛細管圧力）曲線。

3) 海水条件および拡散係数

2004 年度版理科年表の日本近海の表面塩分濃度によれば、1～3月では 32.0 パーミル、7～9月では 30.0 パーミルとされているため、海水の塩分濃度はこれらの平均値を採用して 31.0 パーミルとした。また、海水の濃度解析のパラメータ、拡散係数 (Dm)、縦/横分散長 (aL/aT)、屈曲度 (τ) については、産業技術総合研究所 (2013) を参考にして $Dm = 2 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ 、 $aL/aT = 100\text{m}/10\text{m}$ と設定する。屈曲度は考慮しないこととして $\tau = 1$ と設定した。

4) 気象条件

気象条件としては、図 2.2.4.2-3 に示す陸域上面（表土層上面）が淡水で飽和した際の涵養量に際して、基本ケースとして海水準低下時には松末ほか (2000) を参考として表 2.2.4.2-2 のような条件で涵養量を設定した。海水準 0m で飽和透水係数 $ks = 1.25 \times 10^{-7} \text{ cm/s}$ のとき、涵養量合計値＝

2.06mm/yrである。また、上記の基本ケースとなる涵養量に対し、一般的に涵養量が小さいとされている花崗岩を考慮し、全体の涵養量を1/10としたケースを比較ケースとして設定した。

表 2.2.4.2-2 海水準ごとの涵養量設定条件。

海水準	涵養量設定条件
海水準最高時（標高0m）	陸域上面が淡水で飽和した際の涵養量に対し、0.75を乗じたものとする。涵養量は飽和状態での涵養要素のみに与えるものとする。
海水準最低時（標高-130m）	陸域上面が淡水で飽和した際の涵養量に対し、0.5を乗じたものとする。涵養量は飽和状態での涵養要素のみに与えるものとする。
海水準低下時（標高0m～-130m）	階段状（各海水準（-20m、-30m、-40m、-50m、-60m、-90m）で陸域上面が淡水で飽和した際の涵養量に対して、海水準の低下量と比例して低下させる。比例の割合は、海水準が最高（標高0m）時の0.75と最低（標高-130m）時の0.5の間を当該海水準で比例配分したものとする。涵養量は飽和状態での涵養要素のみに与えるものとする。

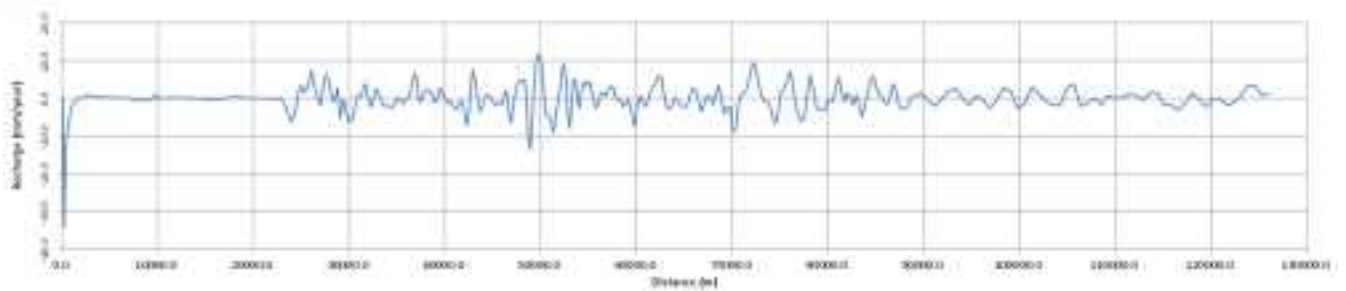


図 2.2.4.2-3 飽和状態における地表面の涵養・流出量分布。

5) 境界条件

モデルの底面、側面および上部の境界条件は、表 2.2.4.2-3 に示すような条件とした。

表 2.2.4.2-3 モデル境界条件の設定。

境 界	境 界 条 件
底面及び山側側面	不透水境界
海側側面	海面下が静水位圧分布境界
陸域の流出域	流出域の地表面は、標準大気圧固定条件とし、涵養量は与えない。
海域の上部境界	瀬戸内海の塩分濃度で水深に相当する圧力を与える。

海水準変動に関しては、汎地球的な海水準変動サイクルの内、直近の12万年1サイクルを繰り返して設定した。海水準変動は、図 2.2.4.2-4 に示すような階段状とした。なお、総サイクル数は、圧力、塩分濃度等の計算結果が周期定常状態となるまで、あるいは30サイクルを目安として解析を終了した。

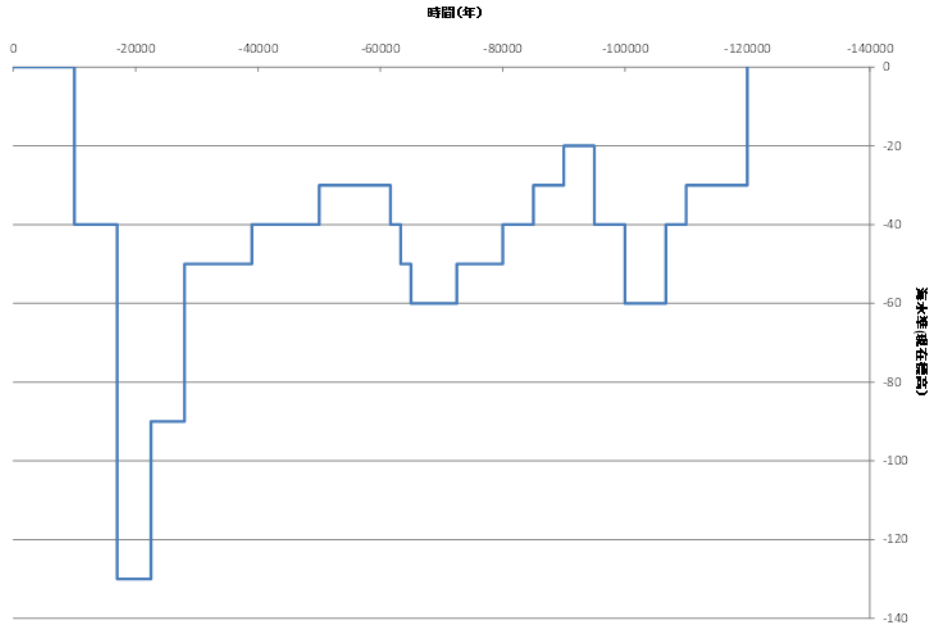


図 2.2.4.2-4 海水準変動条件のモデル.

6) 初期条件

現在の海水準（標高 0m）において，全領域が塩水で飽和された状態から計算を開始し，陸域上面の涵養により塩水が洗い出され，定常状態に到達した時点での圧力，塩分濃度の条件とした。

2.2.4.3 解析結果

1) 地下水位の分布

涵養量基本ケースにおいて，直近の海水準変動サイクルの海水準最高時（現在）および最低時のモデル全体の水飽和度分布を図 2.2.4.3-1 に，涵養量 1/10 ケースにおける水飽和度分布を図 2.2.4.3-2 に示す。これから，基本ケースとなる飽和状態を維持するための涵養量の 75% を最大涵養量とした場合には，地表面標高が高い一部を除き，ほぼ全領域が飽和していること，涵養量が最大涵養量の 50% となる海水準 -130m においても一部が不飽和となるのみであるのに対し，各海水準ステージにおける涵養量を 1/10 としたケースでは，地表面近傍の高透水ゾーンの存在によって，不飽和帯が広範囲に形成されていることが示された。

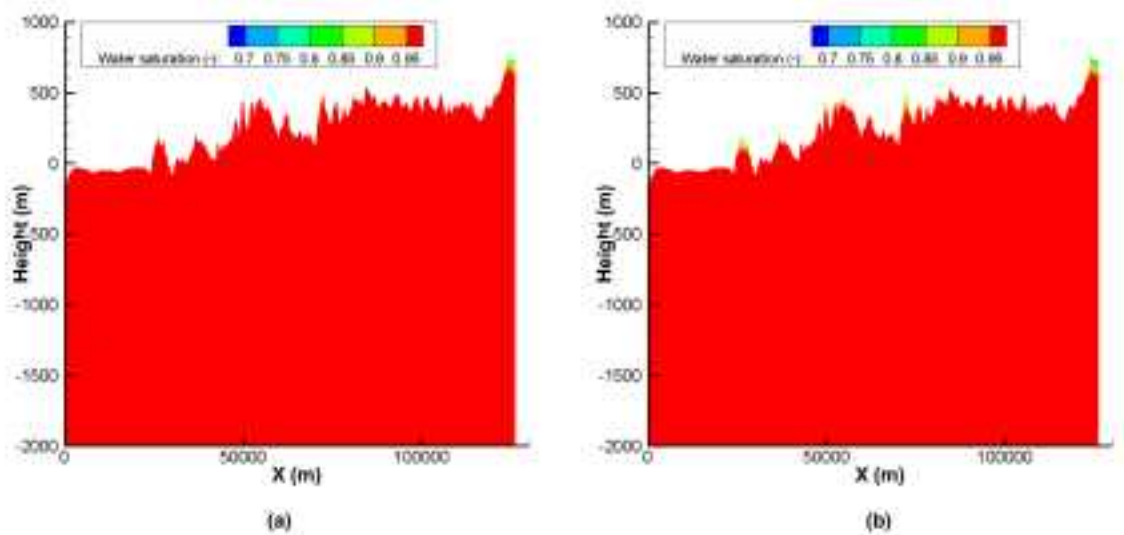


図 2.2.4.3-1 涵養量基本ケースにおける水飽和度分布.

(a) は海水準最高時（現在）、(b) は海水準最低時.

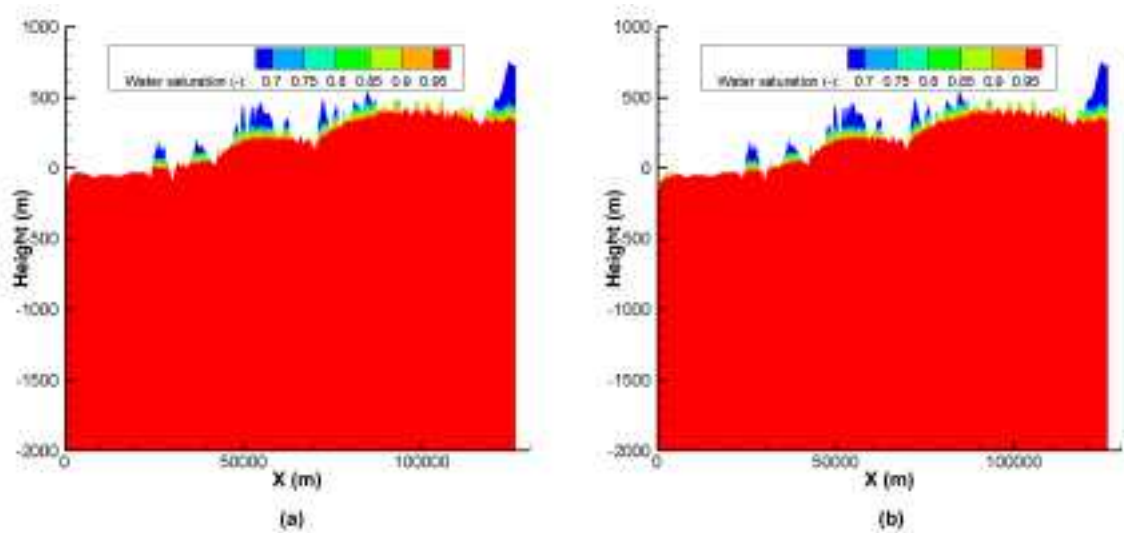


図 2.2.4.3-2 涵養量 1/10 ケースにおける水飽和度分布.

(a) は海水準最高時（現在）、(b) は海水準最低時.

2) 塩分濃度分布

図 2.2.4.3-1 および図 2.2.4.3-2 と共通の条件における塩分濃度分布を図 2.2.4.3-3 および図 2.2.4.3-4 に示す。なお、塩分濃度変化が見られるのは海岸線近傍であるため、海岸線近傍を拡大した結果を示す。この結果から、両ケースともに海水準低下時に一定範囲において地下水の塩分濃度低下が見られるが、塩分濃度分布には大きな変化が見られないこと、陸域の地形による陸域からの淡水流動によって、涵養量が多いケースにおいてはいわゆる“塩水くさび”が観察されず、低涵養量としたケースにおいて塩水の陸域への侵入が観察されることが示された。

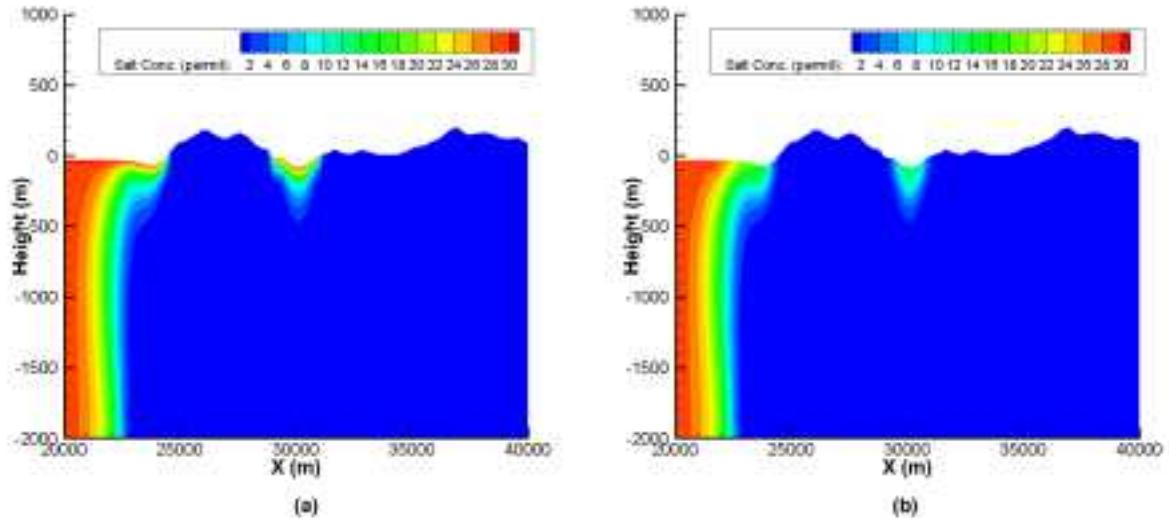


図 2.2.4.3-3 涵養量基本ケースにおける塩分濃度分布（海岸線近傍を拡大）。
(a) は海水準最高時（現在）、(b) は海水準最低時。

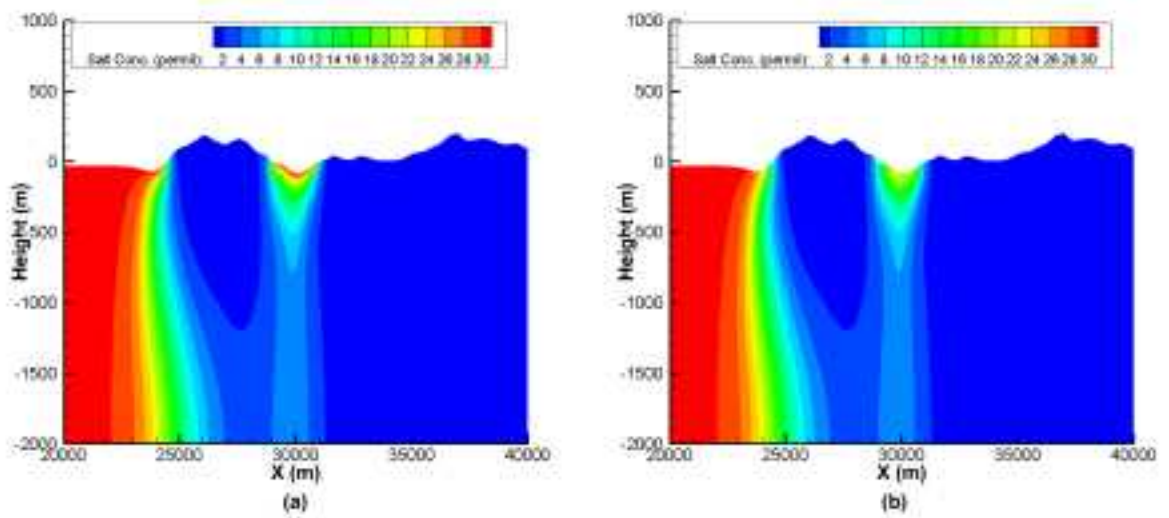


図 2.2.4.3-4 涵養量 1/10 ケースにおける塩分濃度分布。
(a) は海水準最高時（現在）、(b) は海水準最低時。

3) 海域からの塩水流入

海水準サイクルの中での陸域と海域間の地下水流動を評価するために、現海岸線周辺における塩分濃度分布（図 2.2.4.3-3 および図 2.2.4.3-4）に粒子追跡線を併記した結果を図 2.2.4.3-5 および図 2.2.4.3-6 に示す。涵養量の違いによる地下水流動の大きな相違点として、涵養量が大きく全体が飽和に近い基本ケースにおいては、海水準の高低に関わらず地下水流動は常に地形に支配され、陸域から海域へ流動するのに対し、涵養量が小さく地下水位が低下するケースにおいては、海水準が低下したステージにおいては陸域から海域に向かった流れが支配的であるが、海水準が上昇し、海域の水頭が上昇した際には逆に海域から陸域への塩水の流動が生じるということがあげられる。

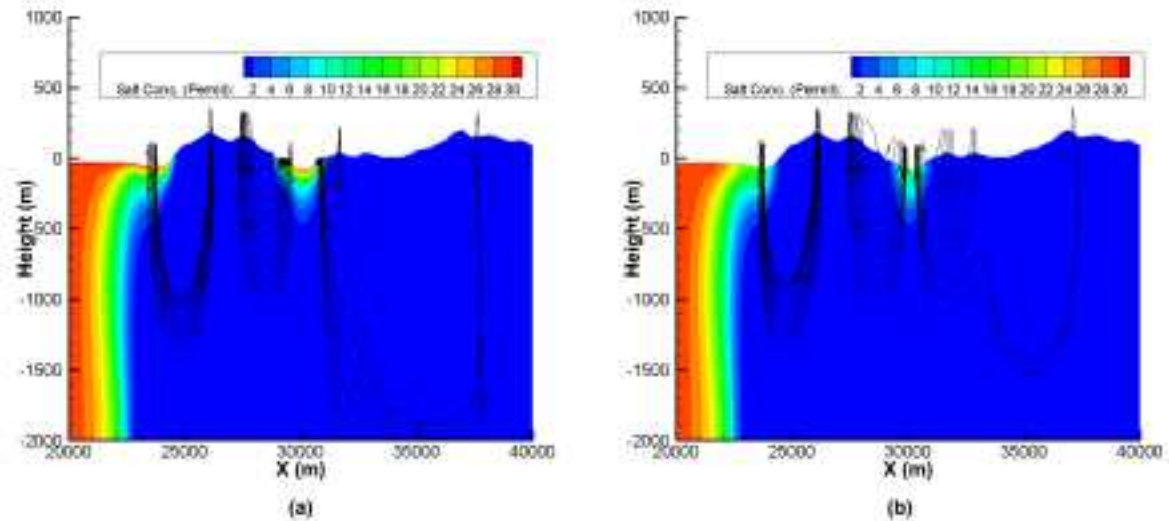


図 2.2.4.3-5 涵養量基本ケースにおける塩分濃度分布と粒子追跡線（海岸線近傍を拡大）。

(a) は海水準最高時（現在）、(b) は海水準最低時。

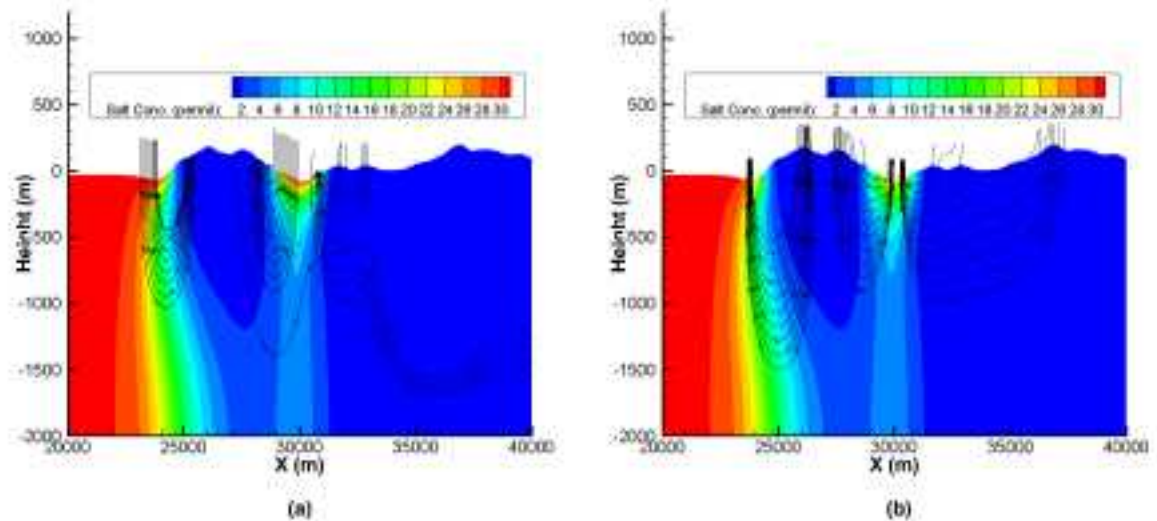


図 2.2.4.3-6 涵養量 1/10 ケースにおける塩分濃度分布と粒子追跡線（海岸線近傍を拡大）。

(a) は海水準最高時（現在）、(b) は海水準最低時。

2.2.4.4 考察

解析結果から、涵養量によって塩分濃度分布および海岸近傍における地下水流動方向が大きく異なることが示された。ここでは、図 2.2.4.4-1 に示した鉛直方向測線上における経時的な塩分濃度変化についての考察を行う。涵養量 1/10 ケースにおける Line1（海岸線近傍）および Line2（内陸 1km）における現在の塩分濃度解析結果を図 2.2.4.4-2 に示す。

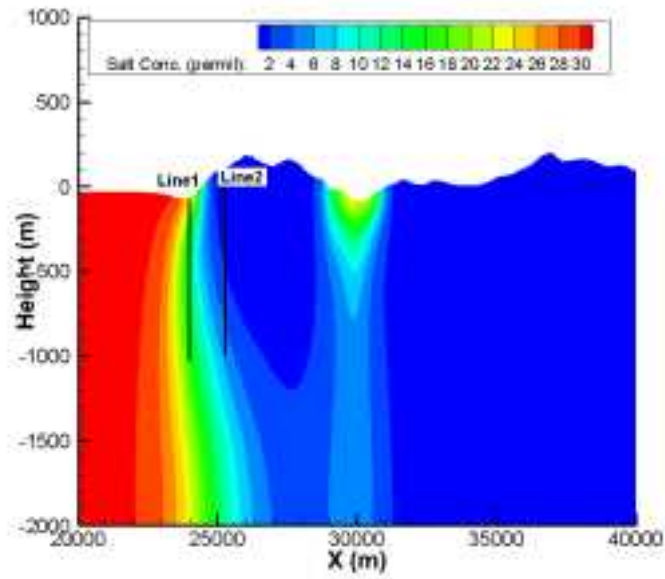


図 2.2.4.4-1 塩分濃度評価を行った測線 (Line1 は海岸線近傍, Line2 は内陸 1km).

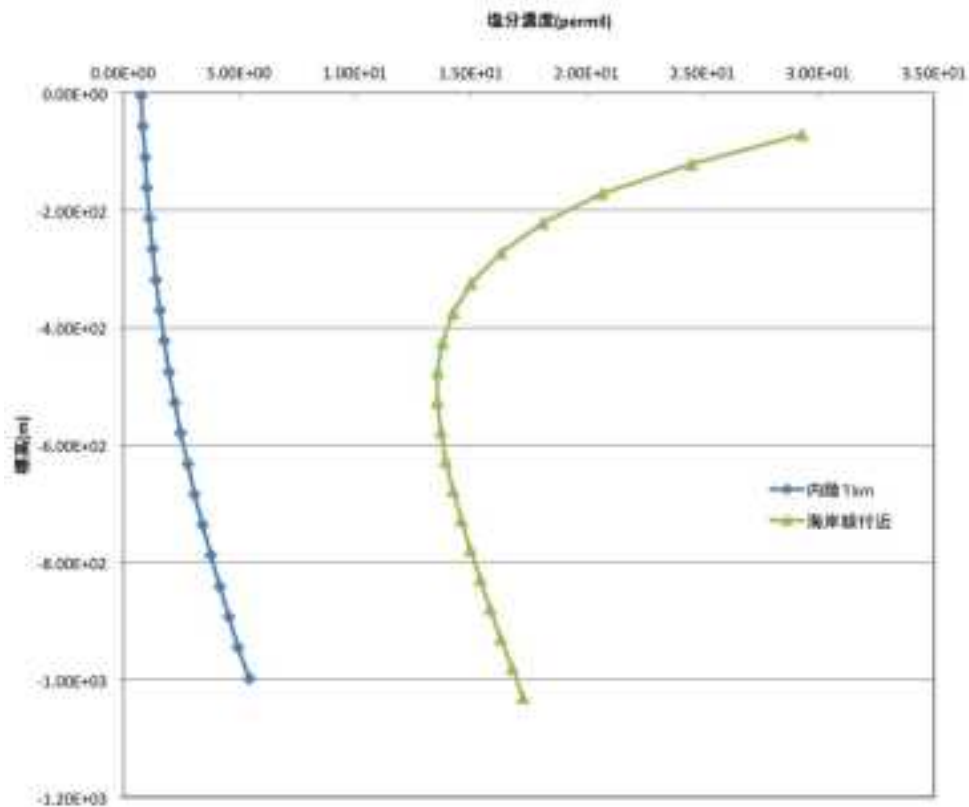


図 2.2.4.4-2 涵養量 1/10 ケースにおける海水準サイクル終了後の塩分濃度分布.

これから、内陸部において塩分濃度は深度と調和的に上昇しているが、海岸部では急速な海水準上昇に伴う塩分濃度の逆転が生じている。次に、海岸線付近の標高 324m 近傍における最終サイクルにおける塩分濃度経時変化を、両涵養量ケースについて図 2.2.4.4-3 に示す。

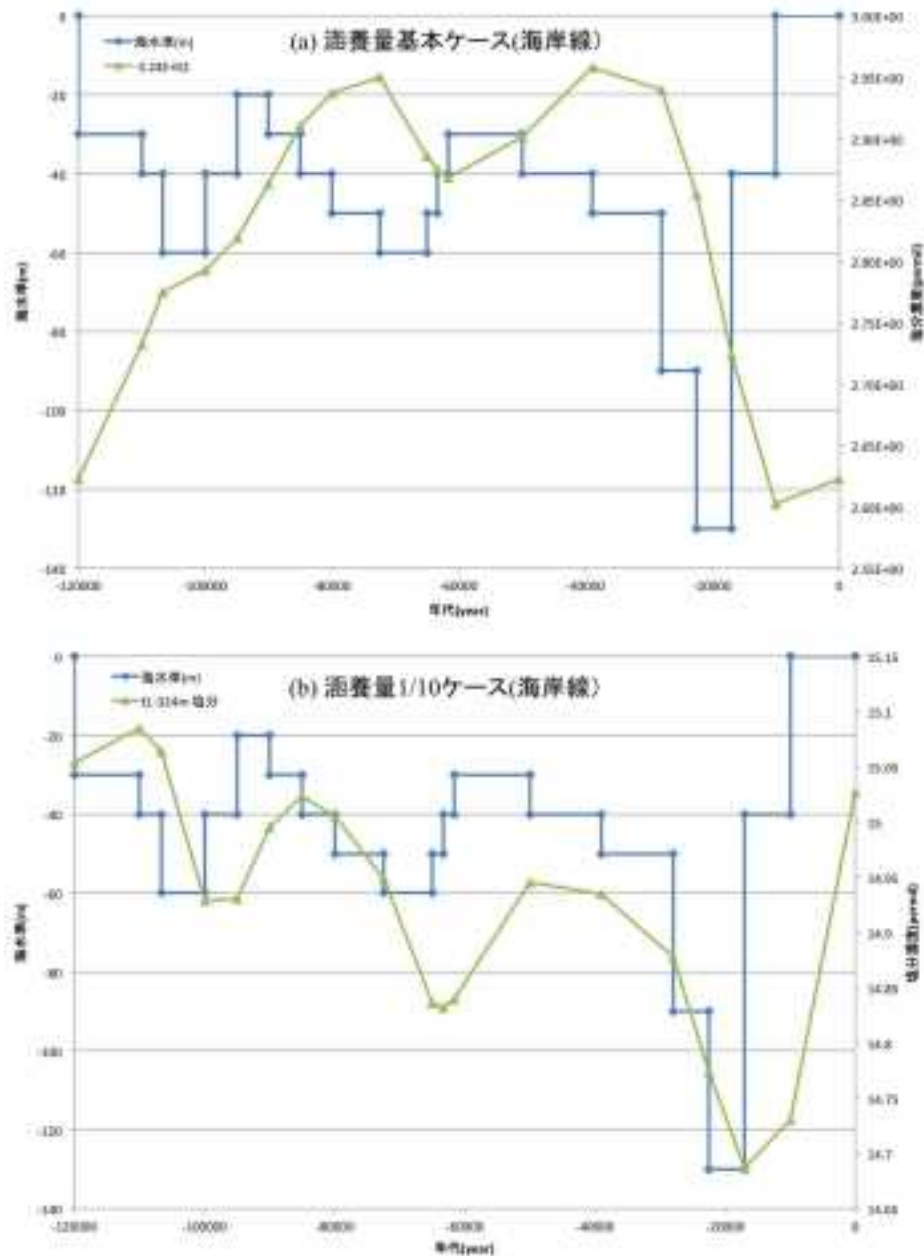


図 2.2.4.4-3 Line1 測線上同一標高 (EL-324m 付近) における塩分濃度経時変化.

涵養量基本ケースにおける塩分濃度は、塩分濃度分布コンターからも読み取れるように涵養量 1/10 ケースと比較して 1 オーダー低い値となる。また、涵養量 1/10 ケースにおける経時変化が、ほぼ海水準の変動に追従したものである一方、基本ケースにおける経時変化は海水準変動とは逆位相の傾向を示している。これは、図 2.2.4.3-5 に示した粒子追跡線が常に陸域から海域への流動を示していることから、海水準変動と連動させた涵養量の変化によって、拡散現象によって侵入している塩分の希釈の程度が影響されるためと考えられる。

涵養量基本ケースにおいては、内陸への塩水侵入はほとんど見られないため、涵養量 1/10 ケースの Line2 (内陸 1km) 標高 -319m 付近および -998m 付近における塩分濃度経時変化を図 2.2.4.4-4 に示す。

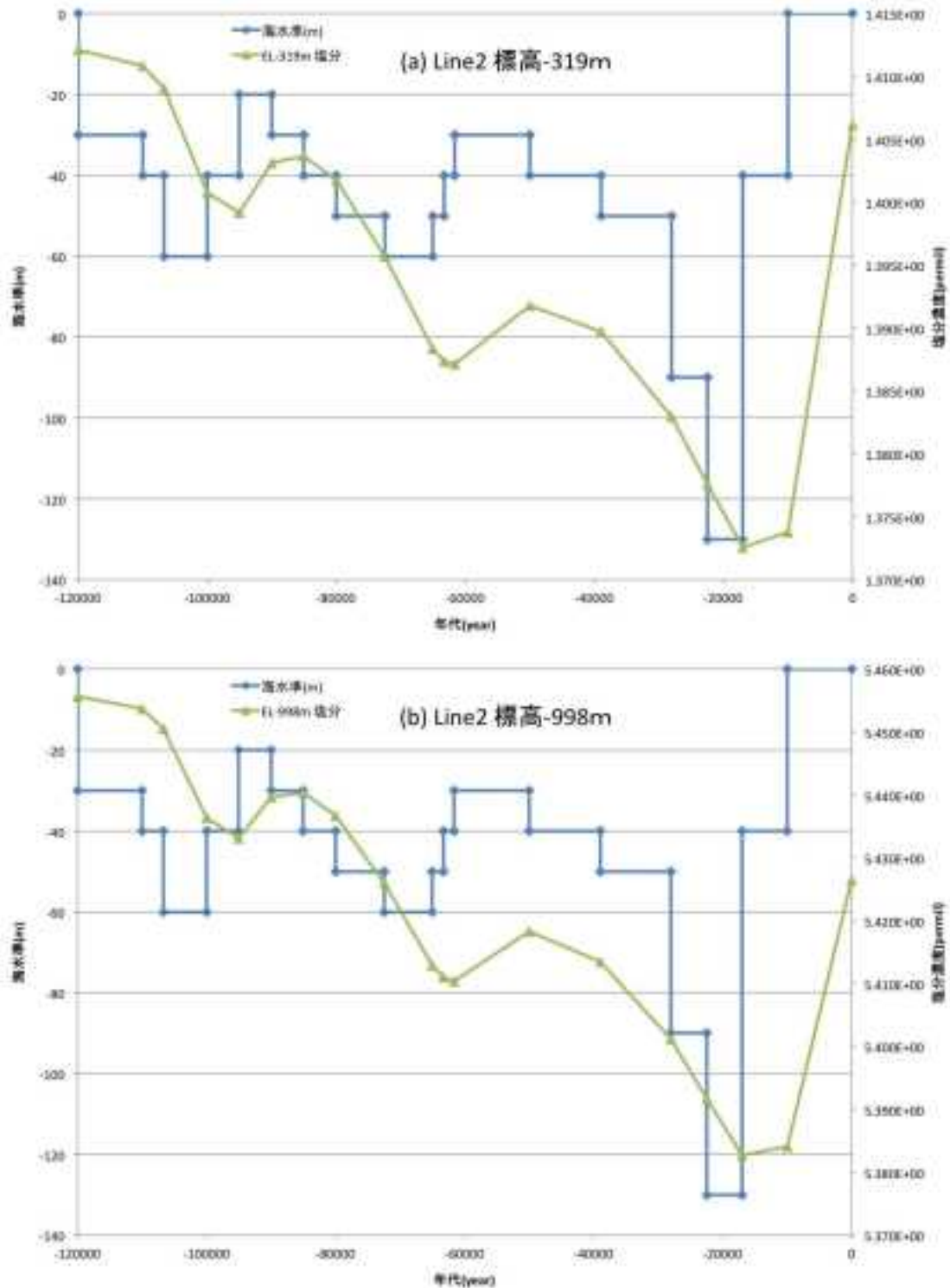


図 2.2.4.4-4 Line2 (内陸 1km) の 2 標高における塩分濃度経時変化.

涵養量が少ないケースにおいては、図 2.2.4.4-1 において、深度と調和的な塩分濃度分布を示し、その傾向は海水準の変化サイクル内でも保持されている。また、内陸 1km 深度 1,000m 付近においても、海水の 1/6 程度の塩分濃度近傍で推移することが示された。

これらの解析結果から、海水準変動による海水の陸域への侵入は、降水の陸域における涵養量に大きく左右されることが示唆される。地形の影響も考えられるが、特に海水準が高い時期においては、

涵養量が少ない場合には年代の新しい海水が内陸部まで侵入し、海水準の低下に伴い徐々に洗い出される傾向が示された。

また、解析の基本となる透水係数が不明な場合の対応に関しては、飽和状態での涵養量は透水係数に比例した値となるため、飽和状態の涵養量に対する割合をパラメータとし、現状の地下水位分布を再現する値を求めることが望ましい。

2.2.4.5 まとめ

海水準変動に合わせた涵養量の変動をモデル化した上で、涵養量をパラメータとした塩水侵入の予察的シミュレーションを実施した。得られた結果を以下にまとめる。

- ・涵養量が多く、ほぼ全体が飽和状態と近くなるケースに関しては、陸域から海域方向への地下水流動が卓越するため、陸域への塩水侵入は抑制され、塩分濃度分布は陸域における涵養量の変動に支配される。
- ・涵養量が少ないケースにおいては、海水準上昇に伴う海域からの塩水侵入が発生するが、海水準の低下に伴い、流動は陸域から海域へ方向に変化する。
- ・飽和状態における涵養量分布を基本とし、そこからの比をパラメータとした上で、実際の地下水位分布を再現することで涵養量を決定することが重要な課題である。

2.2.5 氷河と永久凍土の影響

【実施内容】

本州以南の地域においては、海面低下時に現在の沿岸域は内陸化し深層地下水流動系が現在よりも活発化することが予想されている。しかし、北海道等では、海面低下の寒冷期に氷河・周氷河が発達し長期にわたり永久凍土化する地域が存在する。これらの地域を明らかにするとともに、永久凍土の発生が地下水系に与える影響を評価することは、日本列島北部においては重要である。まず、氷河・永久凍土化する地域についてまとめ、その影響評価手法について検討を行う。以上の成果は、原子力規制委員会が作成する精密調査結果の判断指標あるいは技術指針における科学的知見に反映される。

【成果】

一般に、地表面が永久凍土に広く覆われた場合、難透水層となって降水による地下水の涵養を妨げる効果があるものと考えられる (McEwen and de Marsily, 1991; French, 1996)。また、氷河分布域での地下水涵養量もかなり小さいと考えられる (例えば、数十 mm/year; Boulton *et al.*, 1993)。したがって、氷期に氷河・永久凍土が広域に分布するような環境下では、地下水涵養量の著しい低下が想定される。このような状況が継続した場合、海面の低下量以上に地下水面が低下し、地下水流動は緩慢になると考えられる。また、地下水流動がほとんど停止するような状況にまで至ると、沿岸域では海水の侵入が顕著になる可能性も考えられる。このように、氷期に永久凍土が形成されるような寒冷地域では、他地域とは大きく異なる地下水流動が予想されることから、ここでは氷期の日本列島における氷河・永久凍土の分布について検討を行う。

日本列島に現存する氷河はないが、日高山脈 (北海道) や日本アルプスなどに氷河地形が分布しており、最終氷期には日本列島全体で 800 km² 程度に氷河が存在していた可能性がある (米倉ほか編, 2001)。また、周氷河地域として、大雪山 (北海道)、富士山、立山において永久凍土が確認されているほか (米倉ほか編, 2001)、インボリューションに代表される氷期の凍結融解作用によって形成されたと考えられる化石周氷河地形が、北海道 (小疇, 1973; 小疇ほか, 1974a) や東北地方の北上川上流域・北上山地 (小池ほか編, 2005) などに分布している (米倉ほか編, 2001)。化石周氷河地形からは、それらが形成された当時の凍土環境を推定することが可能であるため (小疇ほか, 1974a)、氷期における永久凍土の分布域などを知る手がかりとなる。

北海道における化石周氷河地形の分布は、Nogami *et al.* (1980) にまとめられているが、ほぼ全域に確認されており低地部にも広く分布している。この中で、化石凍結割れ目 (連続的永久凍土帯で形成されるアイスウェッジと不連続的永久凍土帯で形成されるソイルウェッジを含む) については北海道の北部と東部で確認されているが (小疇ほか, 1974b)、その分布から最終氷期最寒冷期には北海道北部のオホーツク海沿岸から根釧原野にかけてが連続永久凍土帯の南限から不連続永久凍土帯への移行域 (年平均気温 -7°C) であり、十勝平野や北海道北部の日本海側は不連続永久凍土帯 (年平均気温 -7 ~ -3°C) であったと推定されている (三浦・平川, 1995)。したがって、氷期の北海道では、山岳氷河・山岳永久凍土帯に加えて低地全域に不連続永久凍土帯が分布していたと考えられることから (小野, 1990)、永久凍土の存在が地下水流動に与える影響の評価が必要である。北海道東部においては、連続永久凍土帯が形成される地域があると考えられ、特に地下水涵養が著しく低下する可能性があり、地下水流動に対する影響が大きいと考えられる。

本州の山地部においても化石周氷河地形が多く確認されているが (米倉ほか編, 2001)、氷期の凍土環境については明確ではない。米倉ほか編 (2001) では、最終氷期の北海道における永久凍土分布域の積算寒度 (日平均気温 0°C 以下の値の積算値) を指標として、最終氷期の北上山地の一部に永久凍土が存在した可能性を指摘している。また、松末ほか (2000) では、アラスカ、ロシア、日本における永久凍土の厚さと年平均気温との関係から、最終氷期最寒冷期の日本列島における永久凍土の厚

さの分布を求めている。その結果、北海道全域のほか、東北地方と中部地方の高山部に永久凍土が分布していたと推定されている。このことから、本州では氷期の永久凍土の分布は山地の高所に限られていたと考えられ、北海道と比較すると永久凍土の影響は限定的であると推察される。

以上検討したように、化石周氷河地形は北海道のほぼ全域において確認されており、氷期においては地表凍結による涵養阻害の影響を考慮する必要がある。氷期における涵養阻害の程度および持続期間は、永久凍土帯の形成期間と関係するので、年平均気温等のパラメータと涵養阻害についての関係について検討を行う必要がある。さらに、より詳細な影響評価手法の構築のため、地下水涵養低下時における塩水侵入の地質学的痕跡があるかどうかも含めて、調査が行われることが望ましい。

【まとめと今後の課題】

海水準変化に伴う影響

海水準変動に伴う長期的な地下水の流動変化について、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ を用いた塩水の侵入年代に基づいた地質学的エビデンスをいくつかの沿岸地域（代表的結晶質岩地域として瀬戸内海沿岸域、堆積岩地域として上北平野、大阪平野等）について示した。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ は、塩水の侵入年代を把握する上で非常に有効なツールであるが、核実験起源の ^{36}Cl を含む天水の混合がある場合等は、大きな不確実性の原因になることに留意しておく必要がある。一方で、地殻岩石に含まれるU、Thが原因でとなり生成される ^{36}Cl については、塩水の侵入年代値に大きく影響するため、精度向上のためには、帯水層を形成する岩石の実測値を使用すべきである。

予測手法に関しては、まず各種地下水年代測定法および混合解析法等の活用により、地下水の変動履歴を地質学的エビデンスとして明らかにすることが重要である。これまでの検討の結果、1) 地質構造等により長期にわたる地下水流動系への影響に違いがでること、2) 地理的要因により海水準低下時に地下水流動系が現在と全く異なるシステムに変化することなど、モデル化の上で考慮すべき点を示された。

一方、将来を予測する上で、変動履歴および流動変化に影響する各種の地質学的および気候学的要因をいかにしてモデル化しシミュレーション手法に組み込むかという点は、今後も引き続き検討を重ねて行く必要がある。また、本来は超長期にわたる相対的海面変化で評価する必要があり、当該地域の隆起・沈降およびそれに伴う侵食・堆積についても考慮した上で、塩水侵入の影響予測を行う必要がある。

火山活動に伴う影響

火山活動の規模や活動期間は火山の噴火活動スタイルに大きく依存する。それにより、影響の規模（範囲）、程度なども変化すると考えられる。単成火山や複成火山では、基本的に影響は火山中心から15km以内に入る場合がほとんどである。ただし、火山フロントおよびそれよりも背弧側の地域において近傍に火山が存在しないにも関わらず、マントル起源ヘリウムが観測される場所がある。このような地域では、その原因について詳細な調査が必要である。一方、カルデラ火山（事例：屈斜路カルデラ）では、マグマ起源成分が火山中心から30km以上の範囲に影響し、地下水系へのフラックスも成層火山（事例：岩手山）よりも一桁大きいことがわかった。カルデラ火山は地下のマグマ溜まりそのものが単成火山や複成火山のそれと比較して巨大であること、および、カルデラ構造により深部からリム部に流体が上昇し易いことなどが、影響が大きくなる原因であると考えられる。カルデラ火山においては、より広域で影響の評価を行う必要があることを示している。

火山活動場の周辺では、長期的に噴出物が累積されて行くことに加えて、カルデラの形成などに伴い、大規模火砕流による地形変化やそれに伴う地下水流動系の変化など広域かつ多岐にわたる影響因

子が考えられる。長期的な地下水変動への影響を考える場合に、想定すべき地下水系への影響として、1) 噴出物による地形変化および地殻歪みの累積等による地殻変動による広域流動システムそのものの変化、2) それらの事象に付随する地下水の化学組成や流動速度の変化などの地下水系そのものに関する変動に加えて、3) マグマ活動の変化によるマグマ起源成分の流量変化や長期にわたる地下水系への蓄積を検討・考慮する必要がある。

地震活動に伴う影響

地震活動に伴う地下水系の変動については、内陸地震、プレート境界地震共に比較的大きな水位変動あるいは湧出量変動を生じ、これまでの観測による報告等からの変動事例について、数ヶ月～数年程度の影響期間である。変動原因は地殻歪変化や強震動の影響で説明可能であり、影響範囲についても理論的に取り扱うことができる。したがって、地殻歪変化や強震動が原因で生じる影響の予測に関しては一般化が可能である。しかし、以下にしめす新しい事例については、これまで想定されていなかった事象により生じたものであり、さらに検討を続ける必要があると考えられる。

2011年3月の太平洋沖地震の誘発地震として生じたいわき内陸地震による温泉水噴出事象については、産業技術総合研究所深部地質環境研究コア(2015)にもまとめられているように、4年近く経過した現在でも、湧出量に減衰傾向が見られない。この事例は、沈み込むプレートの間隙水が関与している可能性があり、地震現象が地下水に与える影響評価および将来予測に関しては、引き続き検討対象とすることが重要である。

【引用文献】

- 相川嘉正・野口喜三雄・加藤尚之・塚本邦子(1984) 1983年の三宅島噴火に伴う温泉の化学組成の変化。火山, 29, 313-323.
- Akita, F. and Matsumoto, N. (2004) Hydrological responses induced by the Tokachi-oki earthquake in 2003 at hot spring wells in Hokkaido, Japan. *Geophys. Res. Lett.*, 31, no. 16, doi:10.1029/2004gl020433.
- 秋田藤夫・柴田智郎・鈴木敦生・松島喜雄・佐藤努(2000) 有珠山噴火に伴う温泉・地下水の変化(速報)。温泉科学, 50, 43-46.
- Albano, S. E., Roeloffs, E. A., Matsumoto, N., Newhall, C. G., Koizumi, N. and Sato, T. (2003) Mechanisms for groundwater level change during the 2000 unrest of Miyake-Jima. *Geological Society of America Abstracts with Programs*, 35, no. 6, 183.
- 青木滋・新藤静夫・茅原一也(1984) 三宅島火山島の地下水。火山, 29, 324-334.
- Boulton, G. S., Slot, T., Blessing, K., Glasbergen, P., Leijnse, T. and Vangijssel, K. (1993) Deep circulation of groundwater in overpressured subglacial aquifers and its geological consequences. *Quat. Sci. Rev.*, 12, no. 9, 739-745, doi:10.1016/0277-3791(1993)90014-d.
- de Marsily, G. (1986) *Quantitative Hydrogeology*. Academic Press, 434 p.
- 「道後温泉」編集委員会(1982) 道後温泉増補版。松山市。
- Fifield, L. K., Tims, S. G., Stone, J. O., Argento, D. C. and De Cesare, M. (2013) Ultra-sensitive measurements of ^{36}Cl and ^{236}U at the Australian National University. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B-Beam Interact. Mater. Atoms*, 294, 126-131, doi:10.1016/j.nimb.2012.1004.1028.
- French, H. M. (1996) *The Periglacial Environment*. 2nd Edition. Longman, 341 p.

- Furuya, M., Okubo, S., Kimata, F., Miyajima, R., Meilano, I., Sun, W., Tanaka, Y. and Miyazaki, T. (2003) Mass budget of the magma flow in the 2000 volcano-seismic activity at Izu-islands, Japan. *Earth Planets Space*, 55, no. 7, 375-385.
- 長谷川裕之・村上亮・政春尋志・松尾馨・小荒井衛 (2001) 三宅島山頂の陥没地形の計測. *国土地理院時報*, 95, 121-128.
- 橋本学 (1995) 兵庫県南部地震の概要. *国土地理院時報*, 83, 6-14.
- 堀川有 (2012) 平成23年(2011年)東北地方太平洋沖地震に伴ういくつかの温泉の変化. *温泉科学*, 61, 280-285.
- 今井久・雨宮清・松井裕哉・佐藤稔紀・三枝博光・渡邊邦夫 (2013) 地下空洞周辺岩盤内の不飽和領域解析手法に関する提案－岩石の不飽和浸透パラメータと空洞壁面境界条件の設定方法－. *土木学会論文集C (地圏工学)*, 69, no. 3, 285-296.
- 石戸経士 (1994) マグマ-熱水系の数値モデリング. *地質学論集*, 43, 133-140.
- 石川俊夫 (1963) 洞爺湖温泉の生成と変遷. *物理探鉱*, 16, 27-36.
- 伊藤順一 (2006) 桜島大正噴火における地下水位異常-鹿児島県による噴火直後の一斉調査-. *地下水技術*, 48, no. 5, 1-8.
- 川辺岩夫 (1991) 地震に伴う地下水・地球化学象. *地震*, 44, 341-364.
- 川邊禎久 (1998) 伊豆大島火山地質図 1:25000, 火山地質図10. 地質調査所.
- Kazahaya, K., Takahashi, M. and Ueda, A. (1993) Discharge model of fumarolic gases during post-eruptive degassing of Izu-Oshima volcano, Japan. *Geochem. J.*, 27, no. 4-5, 261-270.
- 風早康平・安原正也 (1999) 岩手山の地下水流動系 -同位体水文学的手法による予察結果-. *月刊地球*, 21, 290-295.
- 気象庁 (2014a) 御嶽山 有史以降の火山活動. http://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/312_Ontakesan/312_history.html.
- 気象庁(2014b) 御嶽山. 第130回火山噴火予知連絡会資料(その1), 3-27.
- 気象庁(2014c) 三宅島 有史以降の火山活動. http://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/320_Miyakejima/320_history.html.
- 気象庁(2014d) 「阪神・淡路大震災から20年」特設サイト. http://www.data.jma.go.jp/svd/eqev/data/1995_01_17_hyogonanbu/index.html.
- 北川有一・小泉尚嗣 (2011) 東北地方太平洋沖地震(M9.0)後1日間での地下水位・地下水圧・自噴量変化. *活断層・古地震研究報告*, 11, 309-318.
- 小疇尚 (1973) 北海道北部の化石周氷河現象. *駿台史学*, 32, 1-22.
- 小疇尚・野上道男・岩田修二 (1974a) ひがし北海道の化石周氷河現象とその古気候学的意義. *第四紀研究*, 12, 177-191.
- 小疇尚・野上道男・岩田修二(1974b) 北海道東部のice-wedge cast. *地学雑誌*, 83, 48-60.
- 小池一之・田村俊和・鎮西清高・宮城豊彦 編 (2005) 日本の地形3 東北. 東京大学出版会, 376 p.
- Koizumi, N., Kano, Y., Kitagawa, Y., Sato, T., Takahashi, M., Nishimura, S. and Nishida, R. (1996) Groundwater anomalies associated with the 1995 Hyogo-ken Nanbu earthquake. *J. Phys. Earth*, 44, no. 4, 373-380.
- 国土地理院 (2005) 三宅島の地殻変動. *火山噴火予知連絡会会報*, 90, 92-103.
- 桑原保人 (2012) 2011年東北地方太平洋沖地震で誘発された内陸地震活動の現状と地震災害リスク評価のための調査研究プロジェクトの紹介. *GSJ地質ニュース*, 1, 172-174.
- Matsumoto, N. and Akita, F. (2004) Hydrological changes induced by the 2003 Tokachi-

- oki earthquake at wells in Hokkaido, Japan. *Eos, Trans. AGU* 85(47), Fall Meeting Supplement, Abstract G11A-0777.
- Matsumoto, N., Sato, T., Matsushima, N., Akita, F., Shibata, T. and Suzuki, A. (2002) Hydrological anomalies associated with crustal deformation before the 2000 eruption of Usu volcano, Japan. *Geophys. Res. Lett.*, 29, no. 5, doi:10.1029/2001gl013968.
- 松末和之・藤原治・末吉哲雄 (2000) 日本列島における最終氷期最寒冷期の気候. サイクル機構技報, 6, 93-103.
- McEwen, T. and de Marsily, G. (1991) The potential significance of permafrost to the behaviour of a deep radioactive waste repository. *SKI Report*, 91:8, Swedish Nuclear Power Inspectorate, 69p.
- 三浦英樹・平川一臣 (1995) 北海道北・東部における化石凍結割れ目構造の起源. *地学雑誌*, 104, 189-224.
- Mogi, K., Mochizuki, H. and Kurokawa, Y. (1989) Temperature changes in an artesian spring at Usami in the Izu Peninsula (Japan) and their relation to earthquakes. *Tectonophysics*, 159, no. 1-2, 95-108, doi:10.1016/0040-1951(1989)90172-90178.
- Morikawa, N., Kazahaya, K., Yasuhara, M., Inamura, A., Nagao, K., Sumino, H. and Ohwada, M. (2005) Estimation of groundwater residence time in a geologically active region by coupling ^4He concentration with helium isotopic ratios. *Geophys. Res. Lett.*, 32, no. 2, doi:10.1029/2004gl021501.
- 森川徳敏・戸崎裕貴 (2013) 非常に古い地下水年代測定のための日本列島の帯水層岩石を対象にしたヘリウム同位体生成速度および放射性塩素同位体放射平衡値データ集. *地質調査総合センター研究資料集*, 582.
- 永井茂・風早康平 (1987) 伊豆半島吉川温泉, 赤沢1・6号温泉の水質, 水温, 自噴量と地震との関係について. *地質調査所月報*, 38, 351-353.
- Nakamichi, H., Kumagai, H., Nakano, M., Okubo, M., Kimata, F., Ito, Y. and Obara, K. (2009) Source mechanism of a very-long-period event at Mt Ontake, central Japan: Response of a hydrothermal system to magma intrusion beneath the summit. *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, 187, no. 3-4, 167-177, doi:10.1016/j.jvolgeores.2009.1009.1006.
- 西村卓也・村上亮・小沢慎三郎・石本正芳・鷺谷威・矢来博司・多田堯・海津優・鶴川元雄 (2002) 三宅島2000年噴火前後の地殻変動と変動源の推定—1983年噴火後から2001年5月までの収縮・膨張源—. *東京大学地震研究所彙報*, 77, 55-65.
- 西来邦章・伊藤順一・上野龍之 (2012) 第四紀火山岩体・貫入岩体データベース. *地質調査総合センター速報 no.60*, 産業技術総合研究所地質調査総合センター.
- Nogami, M., Koaze, T. and Fukuda, M. (1980) Periglacial environment in Japan: Present and past. *GeoJournal*, 4, 125-132.
- Ohwada, M., Kazahaya, K., Itoh, J., Morikawa, N., Takahashi, M., Takahashi, H. A., Inamura, A., Yasuhara, M. and Tsukamoto, H. (2012) Passive degassing of magmatic volatiles from Iwate volcano, NE Japan, based on three-dimensional measurement of helium isotopes in groundwater. *J. Geophys. Res.-Solid Earth*, 117, doi:10.1029/2011jb008532.
- Omori, F. (1920) The Sakura-jima eruptions and earthquakes IV: Results of the leveling surveys and the Kagoshima Bay siybdubgs made after the Sakura-jima eruption of 1914. *Bulletin of the Imperial Earthquake Investigation Committee*, 8, no. 4, 323-351.
- Omori, F. (1916) Accumulation and transportation of ashes thrown out during the Sakura-

- jina eruptions of 1941, The Sakurajima, Eruptions and Earthquakes II, Bulletin of the Imperial Earthquake Investigation Committee, Volume 8, 113-133.
- 小野有五 (1990) 北の陸橋. 第四紀研究, 29, 183-192.
- 大塚晃弘・高橋孝行・益子保 (2012) 平成23年(2011年)東北地方太平洋沖地震に伴ういくつかの温泉の変化. 温泉科学, 61, 286-291.
- 力武常次 (1947) 南海地震に伴う道後温泉の変化. 東大地震研究所速報, 5, 189-194.
- 寒川旭 (1992) 地震考古学. 中公新書, 251 p.
- 産業技術総合研究所 (2013) 海域地質環境調査技術高度化開発 成果報告書.
- 産業技術総合研究所 (2014) 2014年御嶽山噴火前後の産総研王滝観測点における地下水圧変化. 第130回火山噴火予知連絡会資料(その1), 86-90.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究センター (2007) 地層処分にかかる地質情報データの整備：平成18年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2009) 地層処分に係る地質情報データの整備：平成20年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2010) 地層処分に係る地質情報データの整備：平成21年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2011) 地層処分に係る地質評価手法等の整備：平成22年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2012) 地層処分に係る地質評価手法等の整備：平成23年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2013) 地層処分に係る地質評価手法等の整備：平成24年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2014) 地層処分に係る地質評価手法等の整備（水理関連情報の整備）：平成25年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2015) 地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備委託費（地質関連情報の整備）事業：平成26年度事業報告書.
- Sato, T., Machida, I., Takahashi, M. and Nakamura, T. (2006) Geochemical changes in spring water associated with the 2000 eruption of the Miyakejima volcano, Japan. Pure Appl. Geophys., 163, no. 4, 809-823, doi:10.1007/s00024-00006-00042-00021.
- 佐藤努・松本則夫・秋田藤夫・柴田智郎・鈴木敦生・松島喜雄・高橋誠 (2002) 有珠火山2000年噴火に伴って伊達市で観測された地下水位異常. 火山, 47, 171-176.
- Sato, T., Sakai, R., Furuya, K. and Kodama, T. (2000) Coseismic spring flow changes associated with the 1995 Kobe earthquake. Geophys. Res. Lett., 27, no. 8, 1219-1222, doi:10.1029/1999gl011187.
- Scholz, C. H. (1990) The Mechanics of Earthquake and Faulting. Cambridge University Press.
- Shibata, T. and Akita, F. (2001) Precursory changes in well water level prior to the March, 2000 eruption of Usu volcano, Japan. Geophys. Res. Lett., 28, no. 9, 1799-1802, doi:10.1029/2000gl012467.
- 曾屋龍典・勝井義雄・新井田清信・堺幾久子・東宮昭彦 (2007) 有珠火山地質図(第2版)1:25,000, 火山地質図2. 産業技術総合研究所地質調査総合センター.
- 高橋博・片桐一美 (1974) 伊豆半島沖地震の概要, 1974年伊豆半島沖地震現地調査および観測報告. 主要災害調査, 5, 1-55.
- 高橋正明・阿部喜久男・野田徹郎・安藤直行 (1988) 伊豆大島の地下水水質の地球化学的観測. 火山,

33, S290-S296.

高橋正明・阿部喜久男・野田徹郎・安藤直行 (1987) 伊豆大島地域の地下水の地球化学的研究. 地質調査所月報, 38, 719-730.

Takahashi, M., Abe, K., Noda, T., Kazahaya, K. and Ando, N. (1991) Three end-members of the hydrothermal fluid related to the Izu Oshima volcanic eruption: magmatic, seawater and meteoric. Reports, Geological Survey of Japan, 277, 105-110.

高橋正明・阿部喜久男・野田徹郎・風早康平・安藤直行・遠藤秀典・曾屋龍典 (1991) 伊豆大島における地下水温の高温化. 火山, 36, 403-417.

高橋正明・阿部喜久男・野田徹郎・風早康平・安藤直行・曾屋龍典 (2000) 1986年伊豆大島火山の噴火により形成された小清水温泉 (大島温泉浜の湯). 温泉科学, 49, 176-185.

Tosaka, H., Itoh, K. and Furuno, T. (2000) Fully coupled formulation of surface flow with 2-phase subsurface flow for hydrological simulation. Hydrol Process, 14, no. 3, 449-464.

Tsunogai, U. and Wakita, H. (1995) Precursory chemical changes in ground water: kobe earthquake, Japan. Science, 269, no. 5220, 61-63, doi:10.1126/science.1269.5220.1161.

堤和大・渡辺邦夫・菅伊三男・山脇真二 (1994) 岩石の不飽和特性の逆推定法. 応用地質, 35, no. 2, 23-30.

宇佐見龍夫 (2003) 日本被害地震総覧146-2001. 東京大学出版会.

Wakita, H. (1975) Water wells as possible indicators of tectonic strain. Science, 189, no. 4202, 553-555, doi:10.1126/science.1189.4202.1553.

米倉伸之・貝塚爽平・野上道男・鎮西清高 編 (2001) 日本の地形1 総説. 東京大学出版会, 349p.