

学 位 論 文 題 名

Effects on Chemical Parameters of Deep Groundwaters
to Evaluate the Undisturbed Hydrochemical Conditions

(未擾乱の水理化学条件の評価における深部地下水の化学パラメータへの影響)

学位論文内容の要旨

高レベル放射性廃棄物は、地下 300m 以深の安定な地層中に処分されることが想定されている。地下深部の水理化学条件を把握するため、地上から掘削されたボーリング孔や地下坑道を利用した地下水の調査等が行われる。このような地下水の調査を行う場合、得られた地下水データが本来の深部地下水が有する物理化学特性を反映しているかどうかを確認することが必要である。

深部地下水を測定・分析する際、通常、ボーリング孔から地下水をくみ上げ、pH/Eh 等の物理化学パラメータの測定や水質分析が行われる。その場合、地下深部と地表での条件が異なるため、脱ガス等により pH/Eh や水質が変化する可能性がある。また、低透水性岩盤等に対して岩石コアから地下水を抽出した場合も抽出過程の人為的な擾乱影響により水質が変化する可能性がある。さらに、地下坑道を利用した調査では、坑道掘削等に伴い侵入した空気中の酸素により、坑道周辺岩盤中の地下水が酸化され、地下水の化学特性が変化する可能性がある。

本研究では、未擾乱の水理化学条件の評価における深部地下水の化学パラメータへの影響を検討することを目的とし、地下水の採水・抽出過程等における擾乱要因による地下水水質への影響や、坑道掘削による坑道周辺地下水の化学的特性への影響を評価するため、解析評価、現地調査、現象理解のためのモデル化等を行った。

本博士論文は、全 6 章から構成される。

第 1 章は、本論文の導入であり、高レベル放射性廃棄物の地層処分研究開発の背景や、本研究の位置づけ等を述べるとともに、本章の最後で各章の概要をまとめて記した。

第 2 章は、未擾乱の水理化学条件の評価における深部地下水の化学パラメータへの影響に関して、諸外国における検討例について述べた。また、地層処分の性能評価において、地下水の化学パラメータである pH/Eh の重要性についても概説した。

第 3 章は、本研究に関連する諸外国の先行研究における検討例を記した。結晶質岩での例としてスウェーデンでの事例、堆積岩（粘土層）での事例としてスイスおよびベルギーでの事例について紹介した。

第 4 章では、擾乱要因（人為的擾乱を含む）等による地下水水質への影響に関わる我が国における検討として、北海道幌延町の幌延深地層研究施設における地上からの調査段階で得られた地下水データをもとにした評価結果について述べた。幌延の地下水データは、ボーリング孔内に設置されたパッカーに区切られた区間から採水された地下水（GW）と岩石コアから圧搾抽出された地下水（間隙水：PW）に大別される。GW のデータを対象に、地球化学コード（PHREEQC）を用いて熱力学的解析を行ったところ、多くのデータは方解石に対し過飽和、黄鉄鉱・菱鉄鉱に対し未飽和という計算結果になった。この結果は、地下水の採水・測定時の擾乱による影響を示唆した。また、GW および PW の水質データを用いた 2 成分系および多成分系での比較を行い、両データの整合性をチェッ

クした。多成分系では、多変量解析コード (Pirouette) を用い、階層的クラスター分析および主成分分析により、両データの比較や統計学的な分類を試みた。2 成分系および多成分系での両データの比較の結果、 SO_4 、Ca、Mg および K 濃度については、両データの間に比較的明瞭な違いが認められた。また、GW および PW の両データを含めた多変量解析の結果、水質データは 5 つに分類された。このうち、高 K 濃度・高 SO_4 濃度の特徴を有する PW のデータから成る 2 つのグループは、岩石コアからの圧搾抽出過程において、岩石中に含まれる黄鉄鉱の酸化溶解の影響を受けた可能性があり、人為的な擾乱を受けた水質データと解釈された。GW の水質データには、 $\text{CH}_4(\text{g})$ や $\text{CO}_2(\text{g})$ を主とし、微量の $\text{H}_2\text{S}(\text{g})$ や炭化水素ガスのデータが含まれている。採水時におけるこれら溶存ガスの脱ガスによる影響を評価するため、脱ガスした成分を地表で採取された地下水に逐次再溶解させ、地下水の pH/Eh の変遷過程を地球化学コード (Geochemist's Workbench) を用いた計算により推定した。その結果、脱ガスによる擾乱を受ける前の地下水は、擾乱を受けた場合と比べ、pH はやや低くなり、溶存 $\text{CH}_4(\text{aq})$ と炭酸の活量はほぼ等価となった。さらに、未擾乱の地下水では CH_4/CO_2 の redox couple が Eh を支配していると仮定し Eh を推定すると、擾乱を受けた場合と比べ Eh は極端に下がり、還元的な値を示した。原位置測定センサーを用いた信頼性の高い pH/Eh の測定データと上述した地球化学計算による推定値を比較すると、両者の間にはやや相違が認められた。この相違は、地球化学計算では 1 組の redox couple をもとにした平衡論に基づく推定を行っているが、実際の地下水は、酸化還元非平衡 (mixed potential) であることに起因する可能性があることを考察した。

第 5 章では、坑道掘削による坑道周辺地下水の化学的特性への影響に関わる我が国における検討として、岩手県釜石鉱山における結晶質岩を対象とした原位置での調査結果や、坑道周辺の酸化領域の広がりを概略的に推定するためのモデル化に関して述べた。原位置試験では、坑壁に認められる湧水割れ目に沿って深さ 2m 程度のボーリング孔を掘削し、多段式パッカーを設置するとともに、坑壁から 3 深度の区間において地下水の連続モニタリングを行った。その結果、坑壁から 2~3m 程度の範囲にわたり坑道内の酸素による影響が示唆された。このような現象を理解するため、坑壁からの酸素の拡散と岩盤中の黒雲母の溶解に伴う Fe^{2+} による酸素の消費を連成させたモデルを構築し、酸素の影響範囲を概略的に評価する方法を提示した。

第 6 章では、本論文の第 2 章から第 5 章までの内容を総括し、本研究の成果と意義についてまとめた。また、最後に、地質環境特性調査で得られる地下水化学に関わる情報を地層処分研究に反映してゆくための体系的なスキームについて、本論文で検討した内容も含めて提示した。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 佐 藤 努
副 査 教 授 五十嵐 敏 文
副 査 准教授 大 竹 翼

学 位 論 文 題 名

Effects on Chemical Parameters of Deep Groundwaters to Evaluate the Undisturbed Hydrochemical Conditions

(未擾乱の水理化学条件の評価における深部地下水の化学パラメータへの影響)

高レベル放射性廃棄物は、地下 300m 以深の安定な地層中に処分されることが想定されている。地下深部の水理化学条件を把握するため、地上から掘削されたボーリング孔や地下坑道を利用した地下水の調査等が行われる。このような地下水の調査を行う場合、得られた地下水データが本来の深部地下水が有する物理化学特性を反映しているかどうかを確認することが必要である。

深部地下水を測定・分析する際、通常、ボーリング孔から地下水をくみ上げ、pH/Eh 等の物理化学パラメータの測定や水質分析が行われる。その場合、地下深部と地表での条件が異なるため、脱ガス等により pH/Eh や水質が変化する可能性がある。また、低透水性岩盤等に対して岩石コアから地下水を抽出した場合も抽出過程の人為的な擾乱影響により水質が変化する可能性がある。さらに、地下坑道を利用した調査では、坑道掘削等に伴い侵入した空気中の酸素により、坑道周辺岩盤中の地下水が酸化され、地下水の化学特性が変化する可能性がある。

本研究では、未擾乱の水理化学条件の評価における深部地下水の化学パラメータへの影響を検討することを目的とし、地下水の採水・抽出過程等における擾乱要因による地下水水質への影響や、坑道掘削による坑道周辺地下水の化学的特性への影響を評価するため、解析評価、現地調査、現象理解のためのモデル化等を行った。

本博士論文は、全 6 章から構成される。

第 1 章は、本論文の導入であり、高レベル放射性廃棄物の地層処分研究開発の背景や、本研究の位置づけ等を述べるとともに、本章の最後で各章の概要をまとめて記した。

第 2 章は、未擾乱の水理化学条件の評価における深部地下水の化学パラメータへの影響に関して、諸外国における検討例について述べた。また、地層処分の性能評価において、地下水の化学パラメータである pH/Eh の重要性についても概説した。

第 3 章は、本研究に関連する諸外国の先行研究における検討例を記した。結晶質岩での例としてスウェーデンでの事例、堆積岩(粘土層)での事例としてスイスおよびベルギーでの事例について紹介した。

第 4 章では、擾乱要因(人為的擾乱を含む)等による地下水水質への影響に関わる我が国における検討として、北海道幌延町の幌延深地層研究施設における地上からの調査段階で得られた地下水データをもとにした評価結果について述べた。幌延の地下水データは、ボーリング孔内に設置されたパッカーに区切られた区間から採水された地下水(GW)と岩石コアから圧搾抽出された地下水

(間隙水:PW)に大別される。GWのデータを対象に、地球化学コード(PHREEQC)を用いて熱力学的解析を行ったところ、多くのデータは方解石に対し過飽和、黄鉄鉱・菱鉄鉱に対し未飽和という計算結果になった。この結果は、地下水の採水・測定時の擾乱による影響を示唆した。また、GWおよびPWの水質データを用いた2成分系および多成分系での比較を行い、両データの整合性をチェックした。多成分系では、多変量解析コード(Pirouette)を用い、階層的クラスター分析および主成分分析により、両データの比較や統計学的な分類を試みた。2成分系および多成分系での両データの比較の結果、 SO_4 、Ca、MgおよびK濃度については、両データの間に比較的明瞭な違いが認められた。また、GWおよびPWの両データを含めた多変量解析の結果、水質データは5つに分類された。このうち、高K濃度・高 SO_4 濃度の特徴を有するPWのデータから成る2つのグループは、岩石コアからの圧搾抽出過程において、岩石中に含まれる黄鉄鉱の酸化溶解の影響を受けた可能性があり、人為的な擾乱を受けた水質データと解釈された。GWの水質データには、 $\text{CH}_4(\text{g})$ や $\text{CO}_2(\text{g})$ を主とし、微量の $\text{H}_2\text{S}(\text{g})$ や炭化水素ガスのデータが含まれている。採水時におけるこれら溶存ガスの脱ガスによる影響を評価するため、脱ガスした成分を地表で採取された地下水に逐次再溶解させ、地下水のpH/Ehの変遷過程を地球化学コード(Geochemist's Workbench)を用いた計算により推定した。その結果、脱ガスによる擾乱を受ける前の地下水は、擾乱を受けた場合と比べ、pHはやや低くなり、溶存 $\text{CH}_4(\text{aq})$ と炭酸の活量はほぼ等価となった。さらに、未擾乱の地下水では CH_4/CO_2 のredox coupleがEhを支配していると仮定しEhを推定すると、擾乱を受けた場合と比べEhは極端に下がり、還元的な値を示した。原位置測定センサーを用いた信頼性の高いpH/Ehの測定データと上述した地球化学計算による推定値を比較すると、両者の間にはやや相違が認められた。この相違は、地球化学計算では1組のredox coupleをもとにした平衡論に基づく推定を行っているが、実際の地下水は、酸化還元非平衡(mixed potential)であることに起因する可能性があることを考察した。

第5章では、坑道掘削による坑道周辺地下水の化学的特性への影響に関わる我が国における検討として、岩手県釜石鉱山における結晶質岩を対象とした原位置での調査結果や、坑道周辺の酸化領域の広がりを概略的に推定するためのモデル化に関して述べた。原位置試験では、坑壁に認められる湧水割れ目に沿って深さ2m程度のボーリング孔を掘削し、多段式パッカーを設置するとともに、坑壁から3深度の区間において地下水の連続モニタリングを行った。その結果、坑壁から2~3m程度の範囲にわたり坑道内の酸素による影響が示唆された。このような現象を理解するため、坑壁からの酸素の拡散と岩盤中の黒雲母の溶解に伴う Fe^{2+} による酸素の消費を連成させたモデルを構築し、酸素の影響範囲を概略的に評価する方法を提示した。

第6章では、本論文の第2章から第5章までの内容を総括し、本研究の成果と意義についてまとめた。また、最後に、地質環境特性調査で得られる地下水化学に関わる情報を地層処分研究に反映してゆくための体系的なスキームについて、本論文で検討した内容も含めて提示した。

以上を要するに、著者は、精緻な現地調査と解析評価によって、地下水の採水・抽出過程等の擾乱要因や坑道掘削による地下水の化学的特性への影響を定量的に評価することに成功した。これらの研究成果は、地下水の地球化学だけでなく資源工学や廃棄物処分工学の発展に寄与するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格があるものと認める。