

幌延深地層研究所設置地区周辺の 地下水水質形成シミュレーション

山本 肇¹・下茂道人¹・藤原 靖¹・國丸貴紀²・Tianfu Xu³・Marcus Laaksoharju⁴

¹正会員 大成建設株式会社 土木技術研究所 (〒245-0051 神奈川県横浜市戸塚区名瀬町344-1)

E-mail:hajime.yamamoto@sakura.taisei.co.jp

²非会員 日本原子力研究開発機構 (〒098-3207 北海道天塩郡幌延町宮園町1-8)

³非会員 Lawrence Berkeley National Laboratory, USA

⁴非会員 Geopoint AB, Sweden

放射性廃棄物の地層処分システムの性能評価において、天然バリア中の地下水の水質条件(塩分濃度, pH, Ehなど)は、核種の移動における重要な要因である。水質条件の変化を評価するには、地下水の混合や水-岩石間の化学反応などの物理化学プロセスを考慮したモデルが必要となる。著者らは、日本原子力研究開発機構が計画中の北海道・幌延町の研究所設置地区周辺を対象とした地下水流動・地球化学モデルを作成し、地下水流動-地球化学連成解析による地下水水質形成のシミュレーションを行なった。その結果、対象地下水の主要成分濃度, pH分布の特徴は、各々、1)表層部の淡水系地下水と深部の塩水系地下水の混合、2)地下水-岩石間の陽イオン交換反応により説明できることが分かった。

Key Words : chemically reactive transport, simulation, geochemistry, groundwater flow, Horonobe

1. はじめに

放射性廃棄物の地層処分システムの性能評価において、天然バリア中の地下水の水質条件(塩分濃度, pH, Ehなど)は、核種の移動(分配係数など)に大きな影響を与える要因である。特に地表からの調査段階において、深部地下水の水質に関する情報取得方法は、数本程度の試錐調査に限られる。そのような限られた情報からサイト周辺の水質分布を推定する、あるいは地下施設建設に伴う水質変化を予測する上では、数学的なモデルが必要である。

一般に、地下水の水質形成には、地下水流動に伴う異なる起源を持つ地下水の混合や、地下水-岩石間で生じる化学反応など、複数の物理・化学現象が寄与している。したがって、水質の予測・評価にあたっては、地下水流動と化学反応の相互作用を考慮する必要がある。

本研究では、北海道・幌延町にある日本原子力研究開発機構(旧核燃料サイクル開発機構)の研究所設置地区周辺を対象とし、試錐調査で得られた地質、水理、地球化学のデータを統合したモデルを作成し、地下水流動解析と地球化学計算の連成解析コードTOUGHREACT^{1,2)}を用いて、長期地下水水質形成シミュレーションを実施した。そして、水質分布の計算結果(塩化物などの主要成分のイオン濃度, pH)を測定値と比較した³⁾。

2. 研究対象区域の概要

研究対象区域は、日本原子力研究開発機構が建設中の地下研究施設を中心とし、尾根線で囲まれた約8 km × 4 kmの区域である(図-1)。図-2中に、区域内の7本の試錐調査孔(HDB-1, HDB-3~8孔)の位置を示した。

地質は、中新世~鮮新世の珪藻質泥岩である声間層とその下位の稚内層を主体とする。声間層、稚内層は大曲断層の東側では地表面に露頭しているが、西側では細~中粒砂岩の勇知層、更別層により不整合で覆われている。

研究所設置地区のほぼ中央部には、東傾斜の逆断層である大曲断層が存在している。大曲断層は延長25kmで

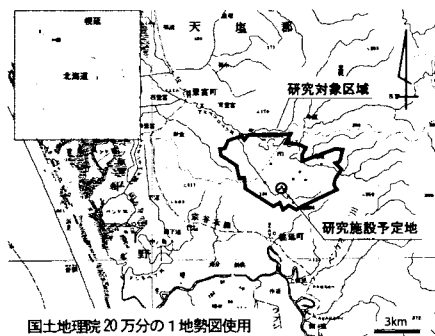


図-1 研究対象区域(幌延深地層研究施設周辺)

あり、約300mの幅の破碎帯を有すると考えられている。

試錐調査による地下水の水質データから、本地域には表層部に淡水系の地下水が存在し、深度が深くなるにつれて塩水系（古海水）の地下水へと変化することが分かっている⁴⁾。このような水質分布の形成は、概念的に図-3に示すような淡水系の表層地下水の流入による塩水系深部地下水の洗い出しにより説明できる可能性がある⁹⁾。地下水中にはメタンを主成分とし、炭酸ガスを含むガスが溶存している。

3. 地下水水質の統計分析

(1) 水質データ

試錐調査（HDB-1～8孔）を通じて取得された水質試料は、1) 試錐孔内のバッカー区間の地下水を地上に汲み上げて採水した揚水試料、2) 岩芯の絞り出しによる岩芯抽出水試料、3) 対象区域内の河川水試料、4) 対象区域から約10km離れた海岸で採水された海水試料、からなる。分析項目は、pH、主要イオン濃度（Na, K, Ca, Mg, Cl, SO_4 , HCO_3 ）の他、安定同位体比（ δD , $\delta^{18}\text{O}$ ）、放射性同位体比（ ^{36}Cl ）などである。深部の塩水系地下水は、現海水と比べ、1) Mg濃度、 SO_4 濃度が低い、2) HCO_3 濃度が高い、3) pHが低い、4) 還元性である、という特徴を有する。

(2) M3 (Multivariate, Mixing, and Mass balance) 手法⁹⁾

前述の通り、本区域の地下水は、表層の淡水系地下水、深部の塩水系地下水（以下、各々地表水、深部塩水と呼ぶ）など複数の起源の水が混合して形成されていると考えられる。本研究では、異なる起源を有する地下水の混合特性の統計分析方法であるM3手法⁹⁾を適用した。M3手法は、以下に述べるように、主成分分析、混合計算、マスバランス計算の3ステップからなる。

a) 主成分分析

主成分分析プロットを用いて、異なる起源を有する水質の端成分を特定する。主成分分析では、説明変量（各成分のイオン濃度）に重みを乗じた1次式により、サンプルの総合的特性を表す主成分を計算する。第1、第2主成分をX軸とY軸にプロットしたものを主成分分析プロットと呼ぶ。主成分分析プロットによりデータのクラスタリングを視覚的に表示することで、端成分の特定が容易となる。今回の分析対象としたのは、上記の揚水試料、岩芯抽出水試料、河川水試料、海水試料からなる403試料の主要6成分（Na, K, Mg, Ca, Cl, SO_4 ）のイオン濃度である。酸素・水素の安定同位体対比（ $\delta^{18}\text{O}$, δD ）を用いたケースも別途検討したが、両同位体比が塩化物イオン濃度と強く相関しているため、分析結果の違いは小さかった。得られた主成分分析プロットを図-4に示す。な

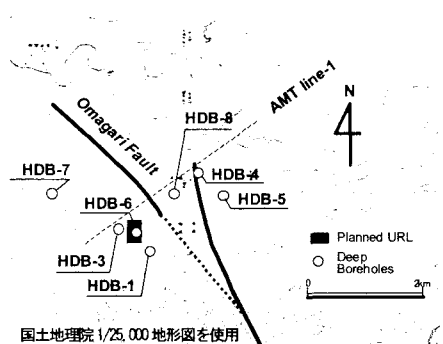


図-2 試錐孔レイアウト

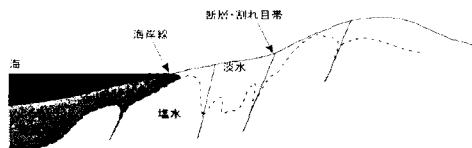


図-3 地下水水質分布の概念モデル
(JNC, 2001. 幌延深地層研究計画, 平成14年度調査研究成果報告, p22)

お、第1および第2主成分は、各々塩化物イオン濃度、硫酸イオン濃度による正の寄与が大きい。第1、2主成分までの累積寄与率は82%以上である。図-4a中のばらつきは、主に岩芯抽出水試料のプロットによるものである。岩芯抽出水は絞り出し時に黄鉄鉱の酸化による硫酸の増加が生じている可能性があるため、岩芯抽出水のデータを除外したものが図-4bである。この図から、直線なトレンドが見出され、両端の河川水とHDB-3地下水（深度160.5m-200.5m）を、各々表層地下水と深部地下水を代表する端成分として抽出した。同図から、現海水は地下水

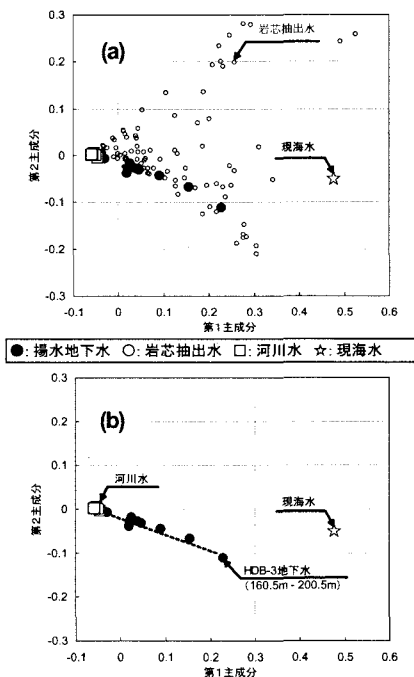


図-4 主成分分析プロット

水質を混合により説明する上で必ずしも必要でないことも読み取れる。

b) 混合率計算

各水質サンプル中の各端成分の混合率は、主成分分析プロット上での水質サンプルから各端成分への距離比により求める。なお、今回は地表水と深部塩水の単純な2成分混合であるので、混合率は塩化物イオン濃度にほぼ比例する。

c) マスバランス計算

混合モデルによる計算濃度と実測濃度との差（マスバランス）から、水-岩石反応による生成/損失量を推定する。計算値が実測値と一致すれば、抽出した端成分の混合モデルで実測値を説明できることになる。両者の差異は、測定方法などの不確実性による誤差の他、水-岩石反応による生成/損失量として説明される。

混合モデルによる計算値と実測値の比較を図-5に示す。まず、保存性元素である塩化物イオン濃度については、計算値と実測値が良く一致している。その他の反応性元素（Na, K, Ca, Mg）についてもそれほど大きな偏差は見られない。それらの偏差分は、淡水系と塩水系地下水の混合過程において、水-岩石反応（方解石などの鉱物の溶解・生成、陽イオン交換反応、酸化還元反応など）が生じていることを示唆する。SO₄濃度のばらつきについては酸化還元反応が関与していることが考えられる。以上から、各水質サンプルの成分濃度は、河川水と深部塩水の2成分混合によりほぼ説明可能なことが分かった。

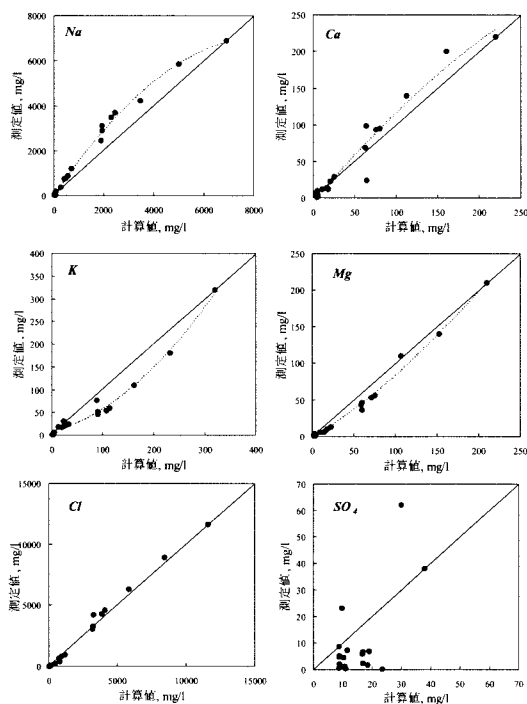


図-5 M3計算結果（破線：二次多項式による近似曲線）

4. 地下水流動-化学反応連成解析

(1) 解析コード

本研究では、熱・流体-化学反応連成解析コード TOUGHREACT^{1),2)}を用いた。本コードは、多相系の熱・流体解析コード TOUGH2 (Pruess, 1999) のベースに化学反応解析機能を付け加えたものである。TOUGHREACTで扱うことができるプロセスは次の通りである：1)多成分・多相流体および熱の移動；2) 移流・拡散による気相および水相中の化学種の移行；3)水溶性錯体形成、酸・塩基反応、酸化還元反応、ガスの溶解/脱ガス；4) 鉱物溶解・生成、陽イオン交換反応、表面吸着など。化学反応は各時間ステップの流体解析の後で陽的に計算される。地球化学計算には JNC 熱力学データベース (<http://migrationdb.jnc.go.jp>)を用いた。同データベースに含まれていない化学反応の熱力学平衡定数は、EQ3/6 V8.2b (Wolery, 1992)および Xu ら(2000)により補足した。

(2) 解析モデル

a) 地下水流動モデル

地質構造モデル化では、図-1に示した研究対象区域（上面：地表面、底面：EL-2km）を対象とする。解析に用いた3次元グリッドを図-6に示す。地表面形状は50mグリッドDEMにより与える。また、1) 大曲断層形状、2) 地層境界面の形状を地質構造として反映し、以下に述べる水理定数を各グリッドに割り当てる（図-7）。

透水係数は等方であつ同一地層内で均一とする。各地層の透水係数ならびに空隙率は、操上他⁹⁾に基づいて設定する（表-1）。ただし、勇知層と稚内層で見られる透水係数の深度依存性⁹⁾は考慮せず、平均的な透水係数値を与える。

地表面の水理境界条件は、地表面標高による水頭固定条件とする。従って、地表面からの地下水涵養は、地表面形状と透水性分布により計算される地表面近傍の動水勾配にしたがって生じる。側面および底面境界は不透水境界とする。

b) 地下水化学モデル

地下水水質成分の濃度は、質量作用則¹⁾を連立させて解くことにより計算する。初期および境界の水質設定を表-2に示す。初期条件として、解析モデル全体を深部地下水の水質で満たす。この初期水質はM3解析結果に基づき、深部地下水の端成分であるHDB-3孔の深度160.5～200.5mの水質に設定する。深部地下水のEhは、対象区域に存在する黄鉄鉱との平衡計算により-262mVに設定する。地表面から浸透する地表水のEhは、河川水成分を大気中の酸素分圧（0.2 bar）と平衡計算により設定する。

鉱物組成に関し、岩石薄片観察と粉末X線回折分析の結果によれば、大半は非晶質シリカが占めており、これにクリストバライト、若干量の石英、長石類、粘土鉱物（スメクタイト、イライト）、黄鉄鉱、沸石類などが含まれる。上記の鉱物を全て考慮することは、熱力学的な不確実性が大きく、その設定にはさらなる検討が必要であり、今後の課題とする。今回は、酸化還元フロントの形成に関して重要な、黄鉄鉱（鉱物体積比1%）のみを考慮し、その溶解に関しては局所平衡を仮定する。

pHを変化させる要因として、CO₂の脱ガス、方解石の溶解などが考えられるが、ここでは陽イオン交換反応に着目する。Na⁺ + H-X = H⁺ + Na-Xの陽イオン交換を考える。水相中および固相中のH⁺とNa⁺のモル分率は次式のように示される（Appelo, 1994）。

$$\frac{[H^+]}{[Na^+]} = K_{Na/H} \frac{\beta_{Na}}{\beta_H} \quad (1)$$

ここに、 $K_{Na/H}$ ：選択係数、 β_i ：交換体に保持されている交換性イオン量である。塩水が希釈されてNa濃度が減少しても、固相中のH⁺とNa⁺のモル分率の変化は無視でき、これが緩衝となって、水相中のH⁺濃度が低下することでpHが上昇する。イオン交換容量（CEC）と選択係数は、HDB-1孔の室内試験結果に基づき設定する（表-3）。ただし、H⁺の選択係数はAppelo (1994)の値を用いる。

(3) 解析結果

a) 塩化物イオン濃度分布

塩化物イオン濃度の時間変化を図-8に示す。塩化物イオン濃度の低い地表水が透水性の高い断層などに沿って浸透しているのが分かる。断層の東側領域は涵養域になっており、西側より地表水の浸入が速い。地下水試料（揚水および岩芯抽出水）の塩化物イオン濃度を空間補間して作成したコンター図を図-9aに示す。これを地表水侵入開始から2万年後の解析結果（図-9b）と比較すると、両者は、大曲断層の東側での塩水希釈の傾向が類似している。同じ解析結果をHDB-3孔とHDB4孔を通る断面において比抵抗分布の測定結果と比較すると（図-10），大曲断層に沿った低比抵抗部分が解析結果における塩素の高濃度部分に対応している⁶⁾。次に、試験孔内の塩化物イオン濃度分布を見ると（図-11），断層西側のHDB-3孔内では浅い深度まで高濃度の塩水が存在するのに比較して、断層東側のHDB-4/5孔では相対的に塩分濃度が低い。解析結果によれば、HDB-4/5孔内の塩化物イオン濃度分布は、各々10万年、2万年間の塩水希釈で表現できる。そのような塩化物イオン濃度分布が適合する年代を選ぶと、その他の主要成分についても、計算値は測定値の傾向をある程度表している（図-12）。しか

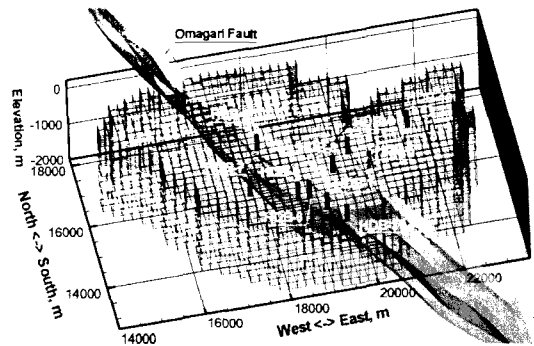


図-6 解析用グリッド

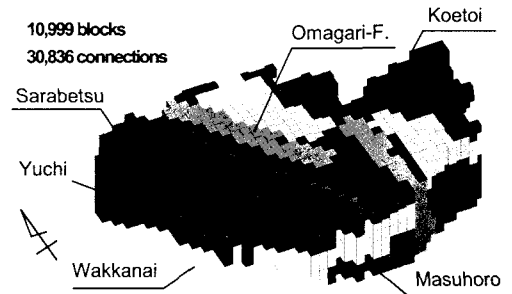


図-7 解析用グリッドへの地層割り当て

表-1 水理定数

地層名	透水係数, m/s	空隙率, %
更別層以浅	1×10^6	30
勇知層	1×10^9	45
声間層	1×10^8	50
稚内層	1×10^8	40
増幌層	5×10^{10}	10
大曲断層	1.3×10^7	30

表-2 初期および境界の水質設定 (単位: mol/l)

成分	初期水質 (深部塩水)	境界水質 (地表水)
pH	6.7	6.8
Ca ²⁺	5.5×10^3	8.7×10^5
Mg ²⁺	5.5×10^3	7.0×10^5
Na ⁺	8.6×10^3	5.2×10^4
K ⁺	3.0×10^1	3.8×10^5
Fe ²⁺	8.2×10^3	2.5×10^7
SiO ₂ (aq)	9.6×10^4	1.1×10^3
HCO ₃ ⁻	4.0×10^2	2.1×10^4
SO ₄ ²⁻	4.0×10^4	8.9×10^5
AlO ₂ ³⁻	1.0×10^8	1.9×10^6
Cl ⁻	3.3×10^1	4.2×10^4
O ₂ (aq)	1×10^{-24} (Eh=-262mV)	2.0×10^{-14} (Eh=774mV)

表-3 陽イオン交換容量（CEC）および選択係数

交換反応	選択係数 (K_{Na} に対する比)
Na ⁺ + 0.5 Ca-X ₂ = 0.5 Ca ²⁺ + Na-X	0.091
Na ⁺ + 0.5 Mg-X ₂ = 0.5 Mg ²⁺ + Na-X	0.35
Na ⁺ + K-X = K ⁺ + Na-X	0.889
Na ⁺ + H-X = H ⁺ + Na-X	3.1×10^6

CEC=21 meq/100g

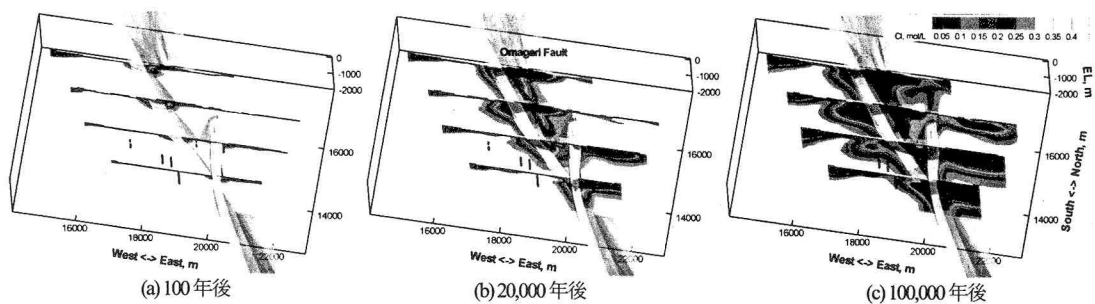


図-8 塩化物イオン濃度分布の時間変化 (解析結果)

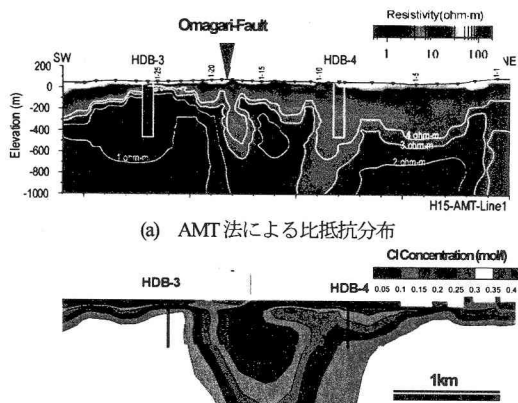
し、前述のように、適合する年代が試錐孔毎に異なることは、今後の課題である。

b) pH

pHについても、塩化物イオン濃度分布の計算値が実測値とマッチする年代を選ぶと、計算値は測定値の傾向を概ね表現できる (図-11)。次に、揚水地下水試料のpHとNa濃度の関係を図-13に示す。ここで、希釈前の交換体と深部塩水の平衡を仮定し、式(1)の水相中の H^+ と Na^+ のモル分率が深部塩水 (HDB-3地下水で代表) での値で緩衝されるとして、pHとNa濃度の関係を計算した結果を図-13中に示した。計算値が測定値の変化傾向を良く表していることから、pHの変化は塩水の希釈に伴う陽イオン交換反応により説明可能と考えられる。

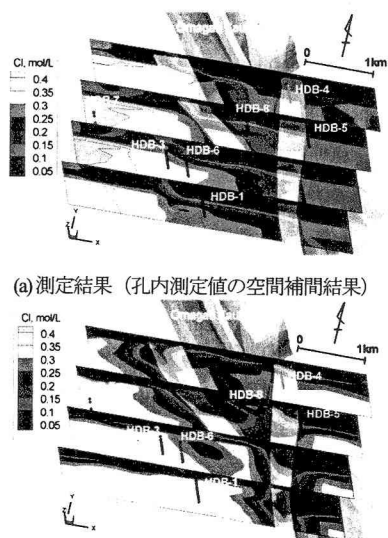
c) 酸化還元フロント

対象区域内の試錐孔では、全般的に黄鉄鉱の存在が認められ、本区域の地下での還元環境が示唆される。千木良 (1995) は、声間層中の試錐コアの鉱物観察と全岩組成分析を行い、酸化フロントが地表から数m地下に存在することや、酸化フロントが黄鉄鉱の溶解と鉄水酸化物の生成により特徴付けられることを示した。図-14は、黄鉄鉱を考慮した場合とそうでないケースでの、酸化還元電位の解析結果である。黄鉄鉱が存在すると、非常に強力な還元剤として作用し、地表からの酸化フロントの進行を遅延させる効果があるのが分かる。



(b) 塩化物イオン濃度分布の計算結果 (2万年後)

図-10 比抵抗分布と計算結果の比較



(b) 計算結果 (地表水侵入開始から 20,000 年後)

図-9 塩化物イオン濃度分布の測定値と計算値の比較

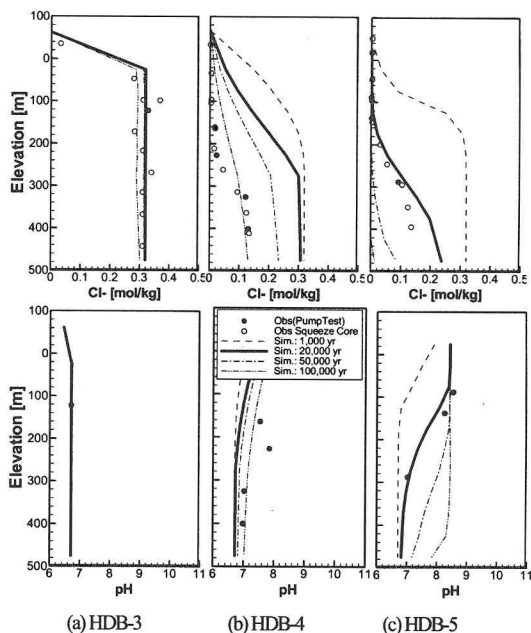


図-11 孔内の塩化物イオン濃度、pH (丸: 測定値、線: 計算値)

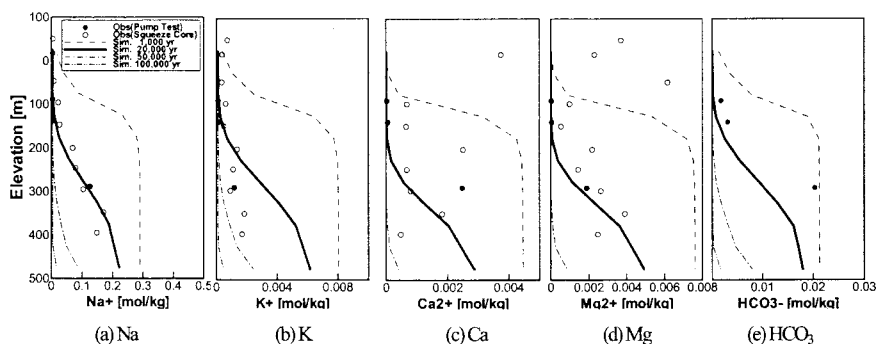


図-12 主要成分 (Na, K, Ca, Mg, HCO₃) の計算値と測定値の比較 (HDB-5 孔, 線: 計算値, 丸: 測定値)

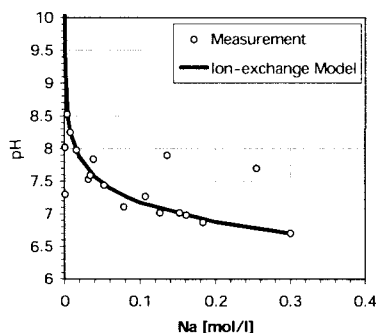
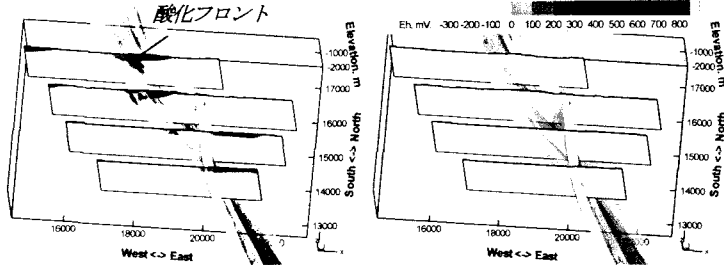


図-13 pH と Na 濃度の関係



(a) 黄鉄鉱無し

(b) 黄鉄鉱有り (鉱物体積比 1%)

図-14 酸化還元電位 (Eh) の解析結果 (地表水侵入開始より 20,000 年)

5. まとめと今後の課題

幌延深地層研究計画での研究所設置地区周辺約8km×4km区域を対象とし、地下水流動－地球化学連成解析による長期地下水水質形成シミュレーションを実施した。解析結果から、地下水の主要成分濃度、pHの実測分布は、各々、1)地表水と深部塩水の混合、2)地下水－岩石間の陽イオン交換反応により説明できることや、黄鉄鉱などの還元性鉱物が存在すると酸化フロントの進行が大きく遅延されることが示された。今回のモデル化は第1段階であり、追加調査データの反映、長期地質変動の考慮 (地表面変動、海水面変動、氷河期の凍土化)、水理境界条件の再検討 (涵養量の見直し)、酸化還元メカニズムの再検討などを含めたモデル改良を行う所存である。

参考文献

- 1) Xu, T., K. Pruess, 2001. Modeling multiphase fluid and reactive geochemical transport in variably saturated fractured rocks: 1. Methodology, *Am. J. Sci.*, v. 301, pp.16-33.
- 2) 山本 肇: 地下水－岩石反応を考慮した水理・物質移行解析, 一解析コード TOUGHREACT と CO₂ 地下貯留への適用, 大成建設技術センター報, 第 38 号, CD-ROM, 2005.
- 3) Yamamoto, H., T. Kunimaru, M. Shimo, Y. Fujiwara, M. Ono, T. Xu, M. Laaksoharju, 2005. Reactive chemical transport simulations for evaluation of ambient chemical conditions at Horonobe URL site, Hokkaido, Japan., *2nd Japan-Korea Joint Workshop on Radioactive Waste Disposal 2005*, pp. 159-172.
- 4) 國丸貴紀, 濱克宏, 山本 肇, 小野誠, 2005. 幌延深地層研究計画 一新第三紀堆積岩中の地下水の地球化学特性について (2) 一, 地球惑星関連学会 (要旨) 地球惑星科学関連学会合同大会予稿集 (CD-ROM), G018P-007.
- 5) Laaksoharju M., C. Skärman, E. Skärman, 1999. Multivariate Mixing and Mass-balance (M3) calculations, a new tool for decoding hydrogeochemical information. *Applied Geochemistry*, Vol. 14, #7, 1999, pp861-871.
- 6) 操上広志, 今井久, 塩崎功, 竹内竜史, 2005. 堆積岩中の塩分分布に着目した水理地質構造モデルの構築, 第 40 回地盤工学研究発表会, 平成 17 年度発表講演集, pp.1235-1236.

COUPLED GROUNDWATER FLOW AND GEOCHEMICAL SIMULATIONS TO EVALUATE AMBIENT CHEMICAL CONDITIONS AT HORONOB URL AREA

Hajime YAMAMOTO, Michito SHIMO, Yasushi FUJIWARA, Takanori KUNIMARU, Tianfu XU, and Marcus LAAKSOHARJU

A coupled groundwater flow and geochemical simulation was performed to evaluate chemical condition of groundwater around the Horonobe URL area. The spatial distribution of major constituents was well reproduced by simulating the intrusion of the surface fresh water into the deep saline water. Increases in pH at shallow depths are explained by cation exchange with the freshening of groundwater. Redox front migrates as oxidized surface water infiltrates and dissolves reducing minerals such as pyrite.