# 管理型掘削土 (ズリ) の酸性・中和現象と今後の課題

(独) 日本原子力研究開発機構 正会員 山西 毅,関谷 美智,佐髙 裕之 大成建設(株) 札幌支店 正会員 北川 義人 (株)レアックス 正会員 ○加藤 欣也

## 1. 背景

日本原子力研究開発機構は、北海道幌延町において、高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する研究開発を推進するため、深地層の研究施設を平成17年11月から建設している。本研究施設は深度500m程度の立坑ならびに連絡坑道及び周回試験坑道からなり(図-1)、平成22年2月末現在で換気立坑約250m、東立坑約210mの掘削を完了している。

本建設に伴い生じる掘削土(以下「ズリ」とする)は、自然由来であるものの、環境基準値を超過する特定有害物質が含まれていることから、土壌汚染対策法の「遮水工封じ込め型」に準じたズリ置場に搬出して盛土している。この際には、建設現場内に設置した分析室にて溶出量試験を実施し(以下「現地分析」とする)、第二溶出量基準を満たすことを確認している。本稿においては、ズリ置場搬出後のズリの性状を報告するとともに、今後の展望について考察する。

## 2. 掘削箇所の地層の性状

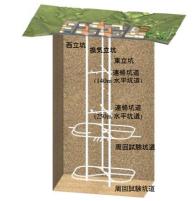
研究施設付近の地質は新第三紀~第四紀の地層で構成される. 地質年代の新しい順に更別層, 勇知層, 声問層, 稚内層と続き, 現在までに掘削した箇所は声問層に相当する. 声問層は珪藻質泥岩からなり, 方解石(CaCO<sub>3</sub>)や, 微量にひ素を含んだ黄鉄鉱(FeS<sub>2</sub>)などの鉱物を少量含む.

公定分析による溶出量試験結果において、ズリ中にひ素が検出されている。 図-2 には換気、東立坑におけるひ素溶出量の推移を示す。 ひ素溶出量は全深度を通じて約 $0\sim0.07$ mg/lの間で推移している。また、溶出液のpH は全深度を通じておよそ9.5 程度で推移している.

#### 3. ズリの長期的性状変化

ズリ置場の概要図は図-3に示すとおりである。平成19年5月から順次搬出しており、平成22年2月末までの搬出量は、およそ40,000m³に及ぶ。なお、ズリを浸透した雨水などは図中の浸出水調整池へ集水され、排水処理設備にて処理を施した後に天塩川へ放流している。

盛土したズリは、覆土などを施していないために大気開放下にあり、 雨水なども浸透する.このような状況下ではズリの酸性化が懸念される ことから、ズリの長期的な性状変化を把握するために、搬出後のズリを 再度採取して溶出量試験及び含有量試験を実施した.



注) 今後の調査研究結果によりレイアウト変更の可能性がある

図-1 地下施設研究施設イメージ図

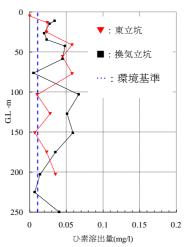


図-2 ひ素溶出量の推移



ズリの採取は、搬出からの経過期間が 33 ヶ月 (地点 B), 25 ヶ月 (地点 A), 20 ヶ月 (地点 C), 13 ヶ月 (地点 D), 5 ヶ月 (地点 E) となるよう、5 地点から各 2 箇所を選定し、各々の地点について盛土天端より、深度 15cm、1m、2mの3 深度から採取した、なおズリ置場の盛土高はおおよそ5mである。

測定項目は pH, ひ素, 溶存鉄,  $SO_4^{2-}$ ,  $Ca^{2+}$ である. 試料採取地点の一覧を表-1 に, 試験結果の一覧を表-2 に示す. なお, 分析値は各地点における深度ごとの平均値を採用している.

キーワード ズリ、掘削、盛土、黄鉄鉱、方解石、酸性化

連絡先 〒098-3224 北海道天塩郡幌延町北進 432-2 (独) 日本原子力研究開発機構 TEL01632-5-2022

表-1 採取地点一覧

地			経過期間	搬出時の平均ズリ性状		
点	採取月	掘削月	(ケ月)	掘削深度	pН	As(mg/l)
В		H19.2	33	V-50m, E-30m	9.5	0.015
Α		H19.10	25	V-100m, E-70m	9.8	0.017
C	H21.11	H20.3	20	V-150m, E-100m	9.6	0.024
D		H20.10	13	V-250m, E-140m	9.5	0.032
Е		H21.6	5	V-250m, E-140m	10	0.024

酸性化の指標として pH に着目すると、全ての試料において酸性化が進行しているが、その進行具合は試料によって大きく異なる。同様にひ素の溶出量も搬出時に比べて低下している。また、Fe、 $SO_4$  及び Ca が溶出していることから、黄鉄鉱や方解石の酸化・溶解反応の進行が予想される。そこで pH の挙動を支配する反応として、黄鉄鉱や方解石の酸化・溶解反応に着目して、pH や上記の成分濃度の相互関係を整理した。

まず、黄鉄鉱と方解石の酸化・溶解反応式は以下の式である.

$$FeS_2(s) + 7/2O_2 + H_2O = Fe^{2+} + 2SO_4^{2-} + 2H^+$$
 (1)

$$FeS_2(s) + 15/4O_2 + 7/2H_2O = Fe(OH)_3 + 2SO_4^{2-} + 4H^+$$
 (2)

$$CaCO_3 + 2H^+ = Ca^{2+} + H_2CO_3$$
 (3)

次に溶出水中のCa活動度と $SO_4$ 活動度との関係を図-4に示す。グラフ中の記号が試料名に対応する. 堆積期間の短い試料はCaに対する $SO_4$ の活動度比が大きく、堆積期間の長い試料はCaと $SO_4$ の活動度が1:1に近い。つまり黄鉄鉱の溶解の際に放出される $H^+$ と、方解石の溶解の際に消費する $H^+$ が同等に近づくために、中和作用が働くと考えられる.

しかし、地点 A,B には pH4 前後の酸性を示す試料もある。そこで pH と Ca 活動度との関係を整理すると Ca の濃度は [Ca] =  $5 \times 10^{-3}$  に制限され、溶出液は酸性に傾くことがわかる (図-5)。この値は Ca と  $SO_4$  の活動度が一致する場合の、石膏(Ca $SO_4 \cdot 2H_2O$ )の溶解度積で制限される活動度である。つまり pH が酸性に傾くのは、Ca と  $SO_4$  の濃度が石膏の溶解度積と大気圧下( $P_{CO2} = 10^{-3.5}$ )において制限され、中和作用が抑制されるためと考えられる。

### 4. まとめと今後の課題

以上より、現在ズリ置場では pH の中和作用が働いているが、Ca と  $SO_4$  の濃度が増加により土壌は酸性化することが示唆された。しかし今回の試験では堆積期間による鉄、ひ素の溶出量の変化は見られなかった( $\mathbf{Z}-6$ ). これは pH が 4.5 以上の場合 3 価の水酸化鉄を生じるため、ひ素が鉄と共沈して濃度が減少したと予想される(式 (4)).

$$Fe(OH)_3 + AsO_4^{3-} + 3H^+ \rightarrow FeAsO_4 + 3H_2O$$
 (4)

したがって、当面はひ素の溶出量が増加する恐れはないと考えられる. 今後はひ素の溶出量変化をモニタリングすることに加えて、pH を試験的にコントロールさせた場合の、ひ素の存在形態とその挙動についてデータを取得し、適切なズリ管理方法の確立を課題とする.

表-2 試験結果の一覧

地	深度	рН	As	Fe	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Ca <sup>2+</sup>
点	(m)	рп	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l
	15cm	6.5	0.005	0.3	1450	465
В	1 m	4.6	0.008	0.9	1400	375
	2m	5.9	0.003	0.7	1150	275
	15cm	3.9	0.008	1.1	830	260
A	1 m	6.7	0.011	0.7	1105	282
	2m	7.7	0.002	0.3	620	132
	15cm	6.7	0.015	0.2	1095	355
C	1 m	7.5	0.003	0.4	805	250
	2m	8.1	0.005	0.5	665	136
	15cm	7.6	0.001	0.3	275	25
D	1 m	7.7	0.004	0.6	360	69
	2m	6.3	0.006	1.3	510	152
	15cm	7.8	0.006	1.3	385	22
Е	1 m	8.0	0.010	0.4	395	46
	2m	8.6	0.007	1.6	310	38

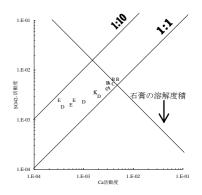


図-4 Ca 活動度とSO<sub>4</sub>2-活動度との関係

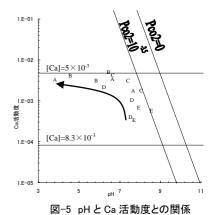


図-6 ひ素,鉄,硫酸イオンの溶出量変化

### 5. 参考文献

五十嵐敏文・齋藤綾佑・長澤俊輔・朝倉國臣・木村裕俊(2005): カラム溶出試験による緩衝鉱物の酸性水中和現象の解明,応用地質, Vol.46, No. 5, pp.256-264.