

## 6. 原位置トレーサー試験

### 6.1 はじめに

本研究においては、平成 17 年度より収着性トレーサーの使用も可能な原位置トレーサー試験装置を試作するとともに、試験結果から割れ目の開口幅や分散長等の溶質移行パラメーターを同定する評価手法を開発してきた。そして、平成 20 年度から平成 22 年度には、スイス Nagra の Grimsel Test Site (以下、GTS と呼ぶ) において、試作した試験装置を用いて原位置トレーサー試験を実施し、試験装置や試験結果の評価手法が基本的に整備できたことを確認した。その後、平成 23 年度から平成 25 年度には、スイスでの原位置試験を通じて抽出した課題に対し、トレーサー試験装置の改良を進めてきた。また、孔間トレーサー試験だけでなく、単孔トレーサー試験についても試験方法・評価方法の検討を行い、平成 26 年度には JAEA 瑞浪超深地層研究所の深度 300m ボーリング横坑において、改良した試験装置を用いて我が国の地質環境に対する原位置適用性試験を実施した。その結果、我が国の地質環境においても孔間、単孔トレーサー試験や開発した試験装置に十分な適用性があることが示唆された。しかし、原位置で生じた現象をより正確に理解するためには、計測精度の向上や試験方法(条件設定等)の更なる検討が必要であり、新たな課題も明らかとなった。

そこで、今年度は昨年度の試験で抽出された課題に対し、トレーサー試験装置の改良を行うとともに、トレーサー試験における条件設定について再検討し、昨年度と同じ試験場において原位置トレーサー試験を実施し、試験の精度や適用性が向上したことを確認した。

### 6.2 トレーサー試験装置概要

#### 6.2.1 トレーサー試験装置の構成

図 6.2.1-1 に孔間試験を例としたトレーサー試験装置の構成を示す。

トレーサー試験装置は孔内装置と孔外装置に大別され、さらに注入装置部と揚水装置部に分けられる。試験の種類に応じてポンプ、および配管を入れ替えることで、各試験孔を注水側、揚水側に切替えることが可能である。

孔内装置は、試験区間を形成するピストンパッカーと孔口パッカーの 2 連パッカーから、今回は新たに中間パッカーを加えた 3 連パッカーとした。ピストンパッカー内部には、循環流路切り替えバルブ(6 方バルブ)、蛍光濃度センサー、および圧力センサーを内蔵している。

孔外装置は、計測機器類、ポンプ、送水配管、および各制御ユニットで構成される。主な計測項目は、流路上での蛍光濃度、送水・揚水流量、試験区間を含めた試験孔の区間圧力、および周辺孔の間隙水圧などである。

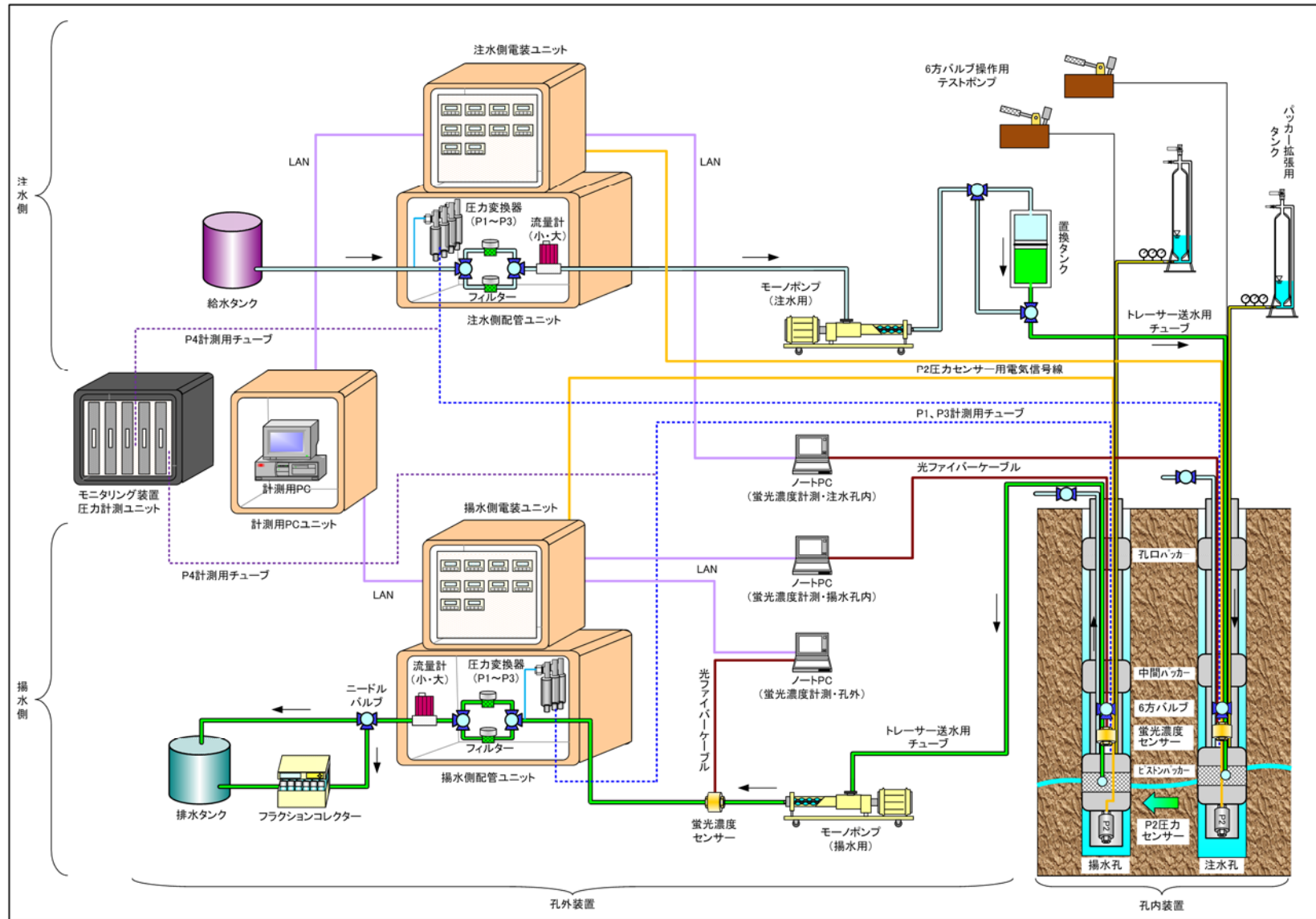


図 6.2.1-1 孔間試験時のトレーサー試験装置構成

## 6.2.2 孔内装置の概要

図 6.2.2-1 に孔内装置部の構成を示す。

孔内装置は孔口パッカー、中間パッカー、中継部（ロッド）およびピストンパッカー部から構成される。今年度は、昨年度の課題となった孔口からの地下水の漏出および間隙水圧環境の擾乱を抑制するため、中間パッカーを新たに設けることとした。



図 6.2.2-1 (左)ピストンパッカー、(右)孔口パッカー、中間パッカーとロッド

ピストンパッカーは、トレーサー注入ポート兼揚水ポートを有する試験区間の形成に使用され、蛍光濃度センサー、流路切り替えバルブ（6方バルブ）、および圧力センサーを内蔵している。

孔口パッカーと中間パッカーは同じものであり、ラバー長は 1.00m、最大外径は $\phi 79\text{mm}$ である。孔口パッカーの下位には、中間パッカーとの間に形成される区間用の圧力計測ポートを有している。

パッカーの挿入および深度調整用の中継部（ロッド）は、今年度は内径 $\phi 50.5\text{mm}$ のものを使用した。ロッドの定尺は、2.0m、1.0m、0.5mである。

ロッド内に収納したチューブ・ケーブル類は以下の通りである。ロッド径の拡大に伴いこれらのチューブ・ケーブル類は、外径 $\phi 39.3\text{mm}$ /内径 $32.6\text{mm}$ の蛇腹管を保護管として使用した。

- ・試験区間圧力センサー用電気信号ケーブル： $\phi 6\text{mm}$ /1本
- ・蛍光濃度センサー用光ファイバーケーブル： $\phi 6\text{mm}$ /1本
- ・トレーサー送水用チューブ： $\phi 6 \times 4\text{mm}$ /4本
- ・孔内他区間圧力計測用チューブ： $\phi 4 \times 2.5\text{mm}$ /3本
- ・6方バルブ駆動用チューブ： $\phi 4 \times 2.5\text{mm}$ /2本
- ・パッカー拡張用チューブ： $\phi 4 \times 2.5\text{mm}$ /3本

### 6.2.3 トレーサー試験装置の改良

平成26年度にJAEAの瑞浪超深地層研究所の深度300mボーリング横坑において実施した原位置トレーサー試験の結果、トレーサー試験装置の問題点が顕在化した。顕在化した問題点の概要とその対策方針を表6.2.3-1に示す。また、対策方針に沿って行ったトレーサー試験装置の各部の改良結果を以下に示す。

表 6.2.3-1 トレーサー試験装置についての問題点とその対策方法の概要

装置の場所	問題点	対策方針
光ケーブル	光ケーブルは折れ曲がりに弱い。作業範囲が狭く、取り回しの悪い場所での作業となった場合、装置挿入時に光ケーブルを損傷する可能性がある。	光ケーブルのプロテクトを強化。
蛍光濃度センサー 光ケーブル	光源→蛍光濃度センサー→分光器の間に光ケーブルの接続箇所が多いことから、蛍光強度のロスが発生する。	蛍光濃度センサーと光ケーブルの接続部を、最も高い出力が得られる場所で一体化（固定）。
孔口パッカー	孔口パッカー（水圧保持を目的に孔口に設置したパッカー）1つだけでは水圧を保持することが出来ない。	ピストンパッカーと孔口パッカーの間にもう一台のパッカー（中間パッカー）を増設。
挿入ロッド	ロッド内にチューブ類の束を通すことが困難であり、これにより、現場作業中に光ケーブルを損傷するリスクが発生する。	挿入ロッドの径を大きいものに変更。

#### (1) 光ケーブルの改良

現場作業に伴う光ケーブルの損傷リスクを低減するため、光ケーブルのプロテクトをステンレスの可とう管に変更した。図6.2.3-1に光ケーブルの設計図面を示す。

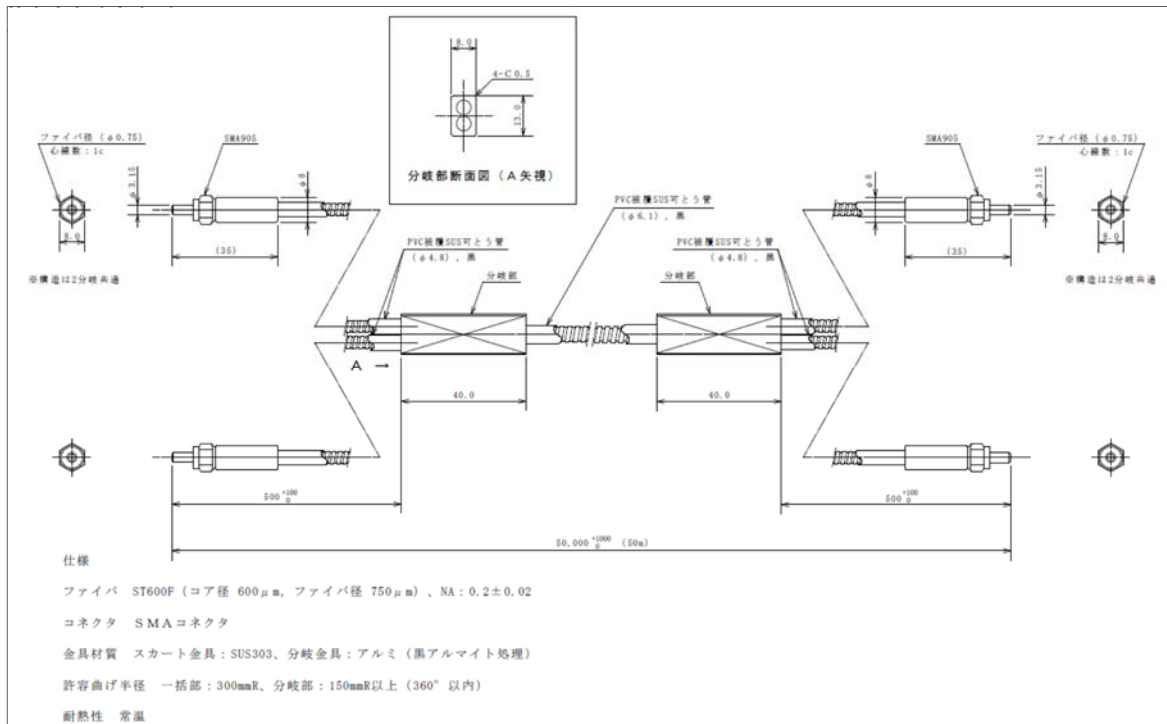


図 6.2.3-1 光ケーブルの設計図

(2) 蛍光濃度センサー (フローセル) の改良

平成 26 年度までの装置では、蛍光濃度センサー (以下、フローセルという) と光ケーブルを ST コネクタで接続していたが、その接続位置により、光ファイバー端で発生するレーリー反射などの影響で、光源や受光強度に対するロスが大きさが変化すると考える。

今回の改良では、フローセルと両端 SMA コネクタの光ケーブルを作成し、フローセルと SMA コネクタ接続時に最も出力が高い (光源のロスが少ない) 位置を確認し、その位置で一体化した。

図 6.2.3-2 にフローセルの外形図面を、図 6.2.3-3 光ケーブルの設計図面を、図 6.2.3-4 にフローセルの外観写真を示す。

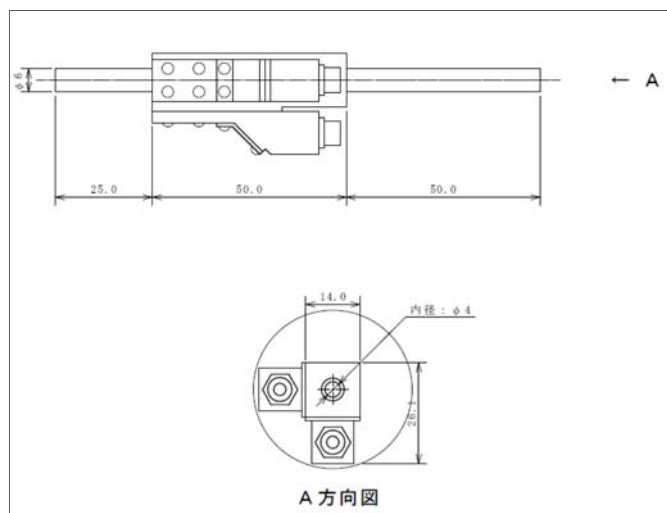


図 6.2.3-2 フローセル部の設計外形図

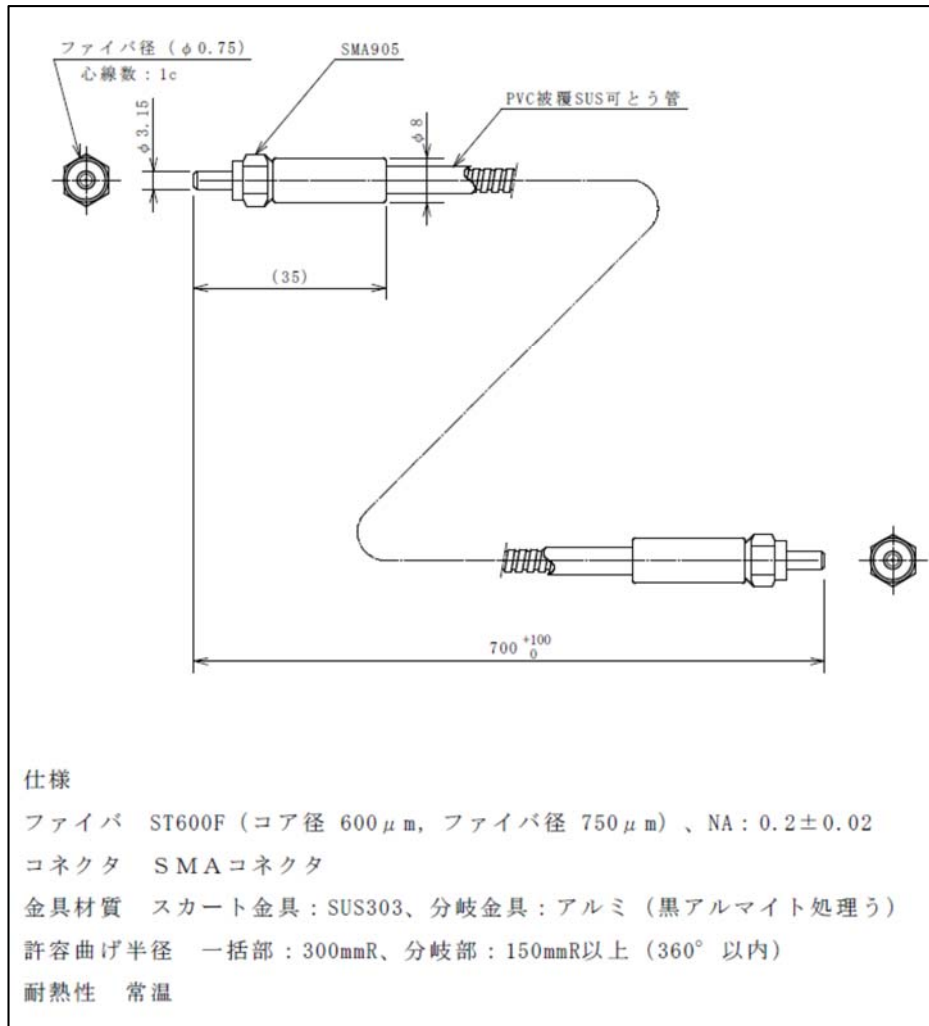


図 6.2.3-3 蛍光フローセル部に接続する光ファイバケーブルの設計図



図 6.2.3-4 フローセル外観

(3) 孔口パッカーの増設（中間パッカーの追加）

トレーサー試験中の試験孔の水圧を保持することを目的として、トレーサー試験装置はボーリング孔口にパッカー（孔口パッカー）が設置できる構造となっている。平成 26 年度までの試験装置では、このパッカーが 1 台であった。

平成 26 年度に JAEA の瑞浪超深地層研究所の深度 300m ボーリング横坑でトレーサー試験を実施したが、深度 300m ボーリング横坑は、複数の水理的連続性を持った割れ目が密に存在するため、孔口パッカー 1 台だけでは十分に水圧を保持することが出来なかった。このため、ピストンパッカーと孔口パッカーの間にもう 1 台のパッカー（中間パッカー）を増設することで、トレーサー試験中の試験孔の水圧保持を行った。

孔口パッカーおよび中間パッカーの外観写真は図 6.2.2-1 を参照。

(4) 挿入ロッドの変更

孔内装置として、六方バルブ（平成 26 年度～）や中間パッカー（平成 27 年度～）を追加したことでロッド内を通すチューブ類が増えた。平成 26 年度までは内径  $\phi 32.7\text{mm}$  のロッド（図 6.2.3-5）を使用していたが、チューブ類が増えたことで、ロッド内にチューブ類を通す際にロッドとチューブ類のクリアランスがほとんどなくなっている。これのため、ロッド内にチューブ類を通す際に光ケーブルを損傷するリスクが高まると考え、ロッドを内径  $\phi 32.7\text{mm}$  のものから内径  $\phi 50.5\text{mm}$  のものに変更した（図 6.2.3-6）。

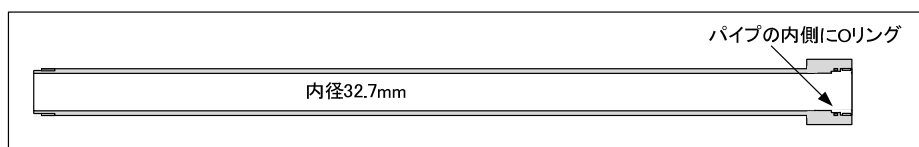


図 6.2.3-5 平成 26 年度まで使用していた挿入ロッド構造図

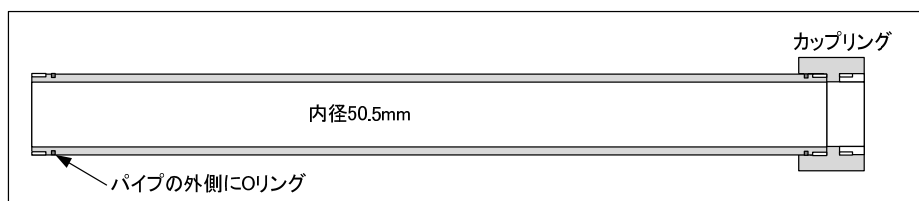


図 6.2.3-6 今回変更した挿入ロッド構造図

(5) その他

上記以外に、経年劣化等により不具合が確認された部分について交換を行った。交換を行ったものは以下の通り。

- ① モーターポンプのスターター部
- ② 流量計

### 6.3 トレーサー試験の概要

今年度は 12MI31 号孔、13MI37 号孔の 2 孔を試験対象とした。

トレーサー試験の準備として、試験毎に以下の項目を実施した。

- ・トレーサー試験装置の機材は、事前に室内で正常に作動することを確認した。
- ・トレーサー材は、蛍光染料(ウラニン)をベースとし、カクテルを作成する場合は、非収着性トレーサーとしてアミノ G 酸、重水(D<sub>2</sub>O)、I<sup>-</sup> (ヨウ素) を、収着性トレーサーとして Ba<sup>2+</sup> (バリウム)、Rb<sup>+</sup> (ルビジウム) を使用した。また、孔内へ注水する水は原位置で採取した地下水を用いた。
- ・使用するトレーサー材やその濃度、注水・揚水の流量、時間は、試験毎に決定した。
- ・ウラニンの蛍光濃度は、使用した 3 台の蛍光濃度センサー毎に試験前にキャリブレーションを実施し、作成した検量線より求めた。



### 6.3.1 単孔トレーサー試験

単孔トレーサー試験は、トレーサーの注入と回収を同一孔同一区間で実施する試験である。

#### 6.3.1.1 単孔トレーサー試験の概要

単孔トレーサー試験は同一孔同一区間で行うため、孔間トレーサー試験と比べて、試験区間の選定が容易であり短時間で実施可能である。

単孔トレーサー試験の概念、および単孔トレーサー試験で得られる破過曲線の例を図 6.3.1-1 に示す。単孔トレーサー試験の一般的な手順を以下に示す。

- ① 地下水を定流量（あるいは定圧）で注入し、定常状態を形成する（場の安定）。
- ② 一種類、あるいは複数種類のトレーサーを注入する（図 6.3.1-1(i)）。
- ③ トレーサーの注入終了後、チェイサー（原位置の地下水）の注入を行う（図 6.3.1-1(ii)）。
- ④ チェイサーの注入終了後、一定時間静置する。
- ⑤ 定流量（あるいは定圧）で揚水し、トレーサーを回収する（図 6.3.1-1(iii)）。

試験の目的により、手順③、④は省略することもある。

チェイサーを注入することにより、デッドボリューム内の残留トレーサーの除去効果（フラッシング）が期待できること、およびトレーサーをより広範囲に浸透させ広域の物質移行を評価することが可能になると考えられる。また、チェイサー注入後に待機時間を設けることにより、収着や岩盤基質部への拡散の効果が期待できる。

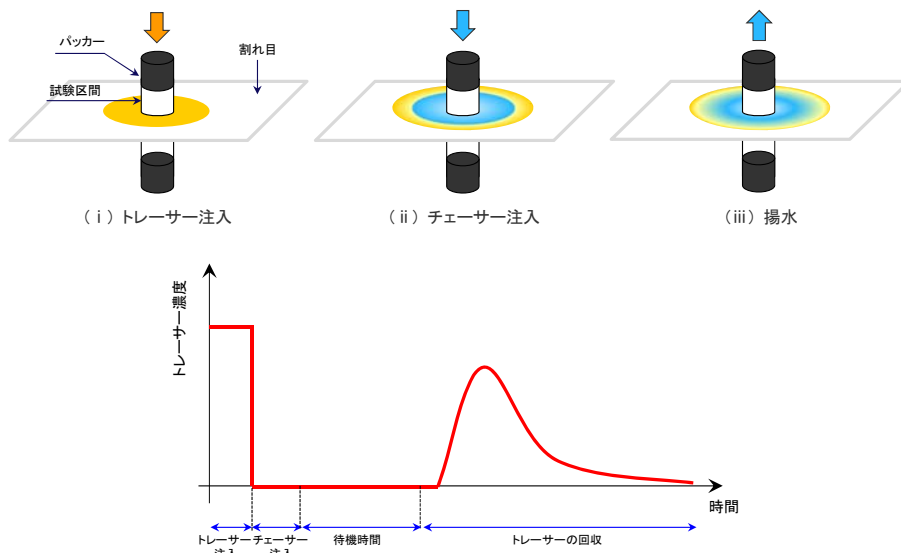
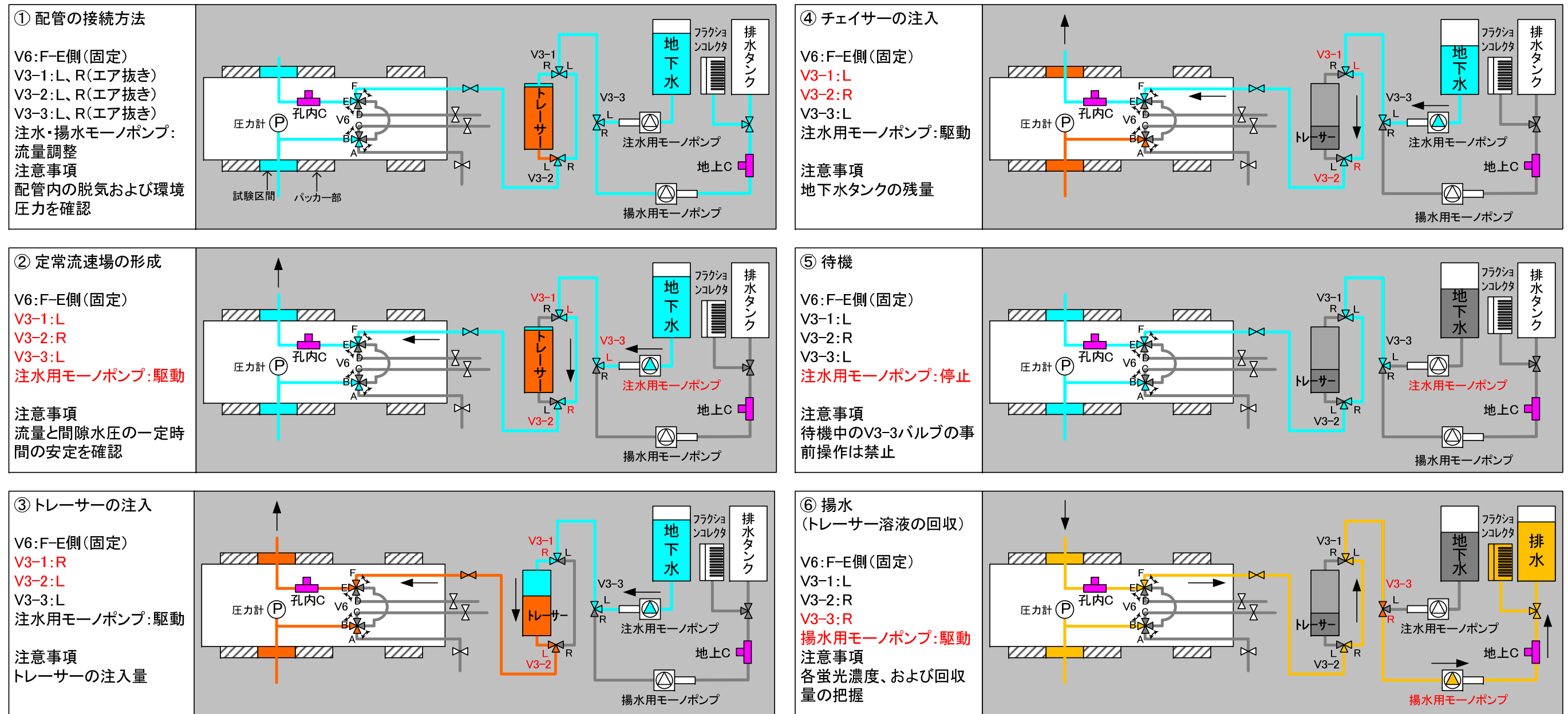


図 6.3.1-1 単孔トレーサー試験のトレーサー濃度変化の模式図および破過曲線の例

### 6.3.1.2 単孔トレーサー試験の試験手順

単孔トレーサー試験は、図 6.3.1-2 の①～⑥に示す配管と手順に従い実施した。なお、トレーサー試験装置を用いた手順では、6方バルブの作動不良により置換タンクからトレーサーの注入を開始する手法とした。

- ① 置換タンクにトレーサーを充填し、配管内エア抜きを行った。また、注水・揚水用モノポンプの流量設定、およびフラクションコレクターの採取間隔と採取量を調整した。
- ② V3-1、V3-2 のバルブを地下水注入側のラインへ向け、注水用モノポンプにより定流量で注水し定常流速場を形成した。
- ③ V3-1、V3-2 のバルブを置換タンク側へ同時に切り替え、トレーサーを試験区間内へ注入した。トレーサーの注入状況は、孔内のトレーサー濃度および置換タンクの水位から確認した。
- ④ 所定時間までトレーサーを注入した後、V3-1、V3-2 のバルブを地下水注入側に同時に切り替えチェイサーを注入した。チェイサーは孔内に設置された蛍光濃度センサーを確認し、トレーサー濃度が十分に減少するまで注入することとした。
- ⑤ 所定時間までチェイサーを注入した後、注水用モノポンプを停止した。試験の目的により、揚水まで所定の待機時間を設けた。
- ⑥ V3-3 のバルブを揚水側に切り替えた後、揚水用モノポンプを駆動し注水区間から揚水した。また、揚水開始と同時にフラクションコレクターの作動を開始し、一定時間毎に地下水をサンプリングした。フラクションコレクターで採取されない水は排水タンクに貯水し、現場において所定時間における回収率を把握するために使用した。



※今年度は6方バルブの作動不良のためトレーサー溶液の循環ラインは未使用

図 6. 3. 1-2 単孔トレーサー試験の配管と手順

### 6.3.2 孔間トレーサー試験

孔間トレーサー試験はダイポール試験を実施した。ダイポール試験は、2本のボーリング孔間に注水、揚水により動水勾配を生じさせ、注水側から注入したトレーサーを揚水側から回収する試験である。

#### 6.3.2.1 ダイポール試験の概要

ダイポール試験の概念を図6.3.2-1に示す。

試験方法は、揚水した水を再度注入し循環する方法、注水流量と揚水流量の比率（ダイポール比）を変える方法などに分けられる。

ダイポール試験は主として、2孔間の岩盤・地盤の物質移行特性を評価するのに用いられる。ダイポール試験は、単孔トレーサー試験のような放射状のトレーサー試験に比べると、ダイポールの比率を変えることにより孔間の動水勾配を調整することができるため、トレーサー試験の中では透水性の低い地盤・岩盤、あるいは孔間距離が大きい場合でも比較的实施しやすい試験方法とされている。

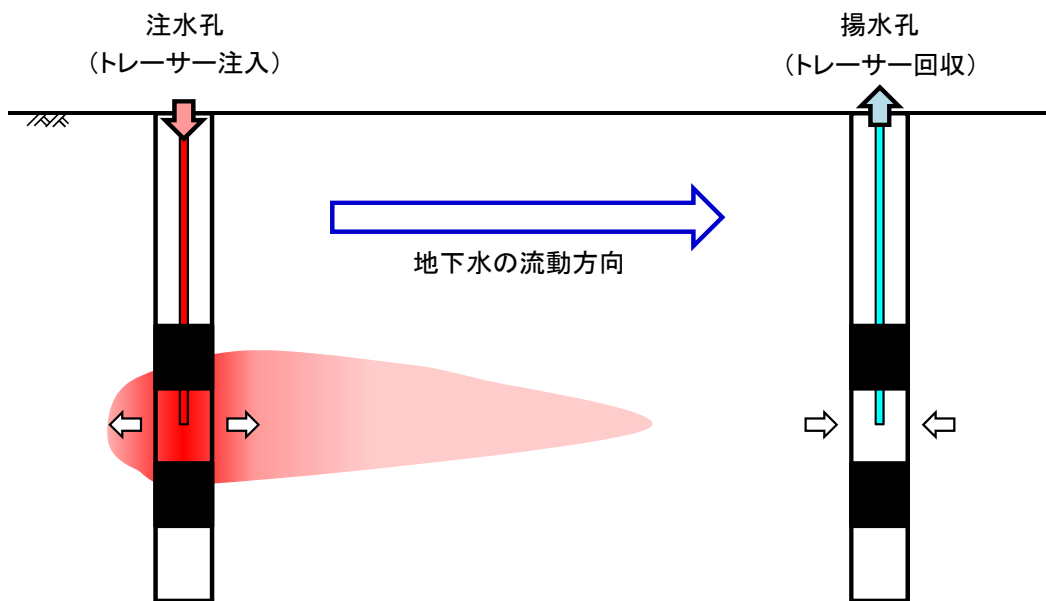


図 6.3.2-1 ダイポール試験の概念

### 6.3.2.2 ダイポール試験の試験手順

ダイポール試験は、試験区間のデッドボリュームの相違による試験結果を比較するため、揚水孔にモニタリング装置を設置した場合、とトレーサー試験装置を設置した場合の2パターンを実施した。

モニタリング装置を揚水孔に設置した場合の配管と手順を図 6.3.2-2 に、トレーサー試験装置を設置した場合の配管と手順を図 6.3.2-3 に示す。揚水孔にモニタリング装置を設置した場合は、地上の蛍光濃度センサーのみによる蛍光濃度計測となるが、試験手順に相違はない。

- ① 置換タンクにトレーサーを充填し、配管内のエア抜きを行った。また、注水・揚水用モノポンプの流量設定、およびフラクシオンコレクターの採取間隔および採取量の調整を行った。
- ② V3-1、V3-2 のバルブを地下水注水側のラインに向け、揚水側と注水側のモノポンプを同時に駆動し、定常流速場を形成した。
- ③ V3-1、V3-2 のバルブを置換タンク側へ同時に切り替え、トレーサーを試験区間内に注入した。トレーサーの注入は、孔内のトレーサー濃度および置換タンクの水位から確認した。また、トレーサー注入開始時、あるいは揚水孔のトレーサー濃度が上昇した時点からフラクシオンコレクターの作動を開始し、一定時間ごとに地下水をサンプリングした。
- ④ 所定時間までトレーサーを注入した後、V3-1、V3-2 のバルブを地下水注水側に同時に切り替え、チェイサーを試験区間内に注入した。バルブの切り替え後、孔内のトレーサー濃度よりチェイサーが注入されていることを確認した。フラクシオンコレクターで採取されない水は、回収率を把握するため排水タンクに貯めた。回収率は、所定時間の排水タンク内のトレーサー濃度と積算揚水量より算定した。

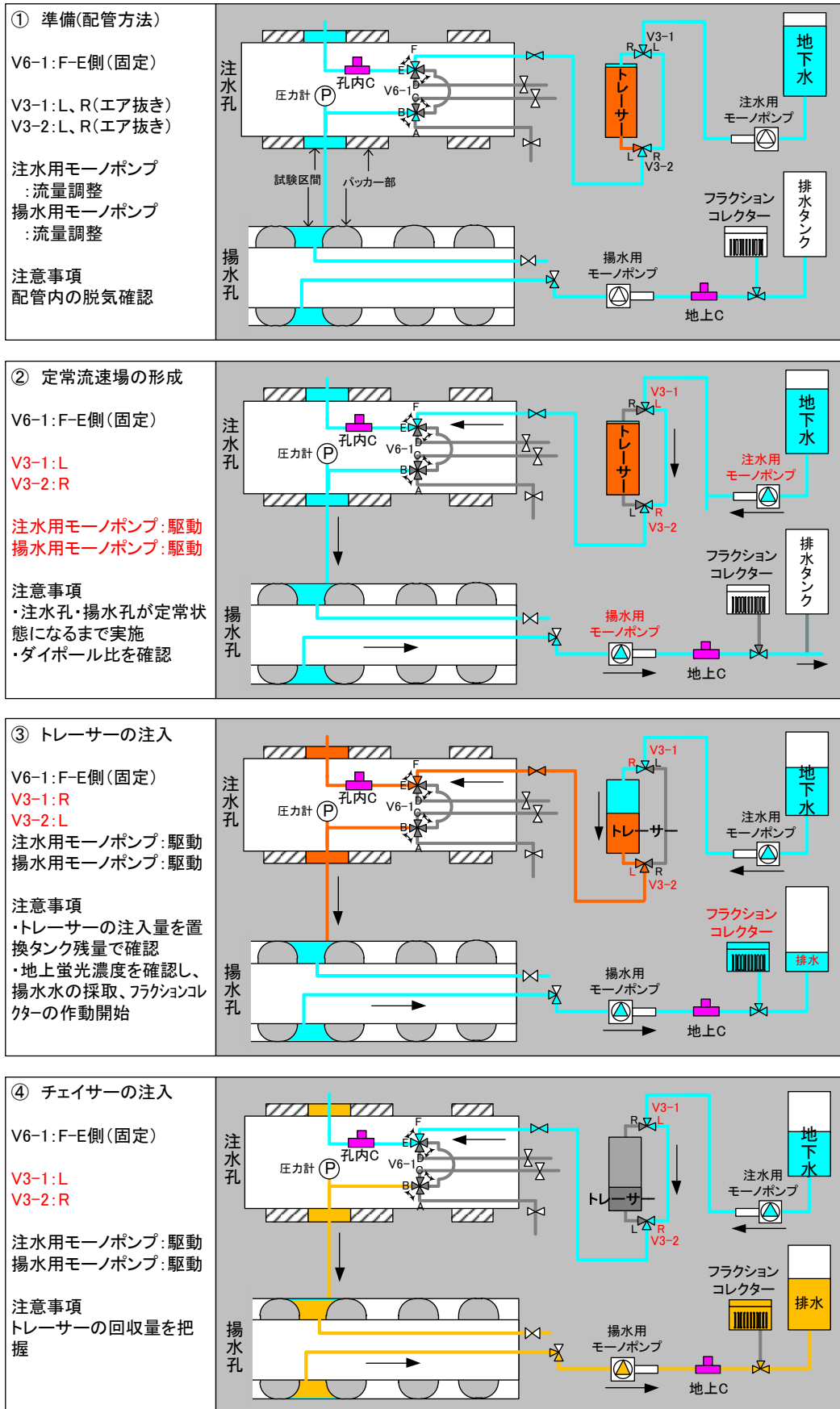


図 6.3.2-2 ダイポール試験の配管と手順 (揚水孔にモニタリング装置を設置した場合)

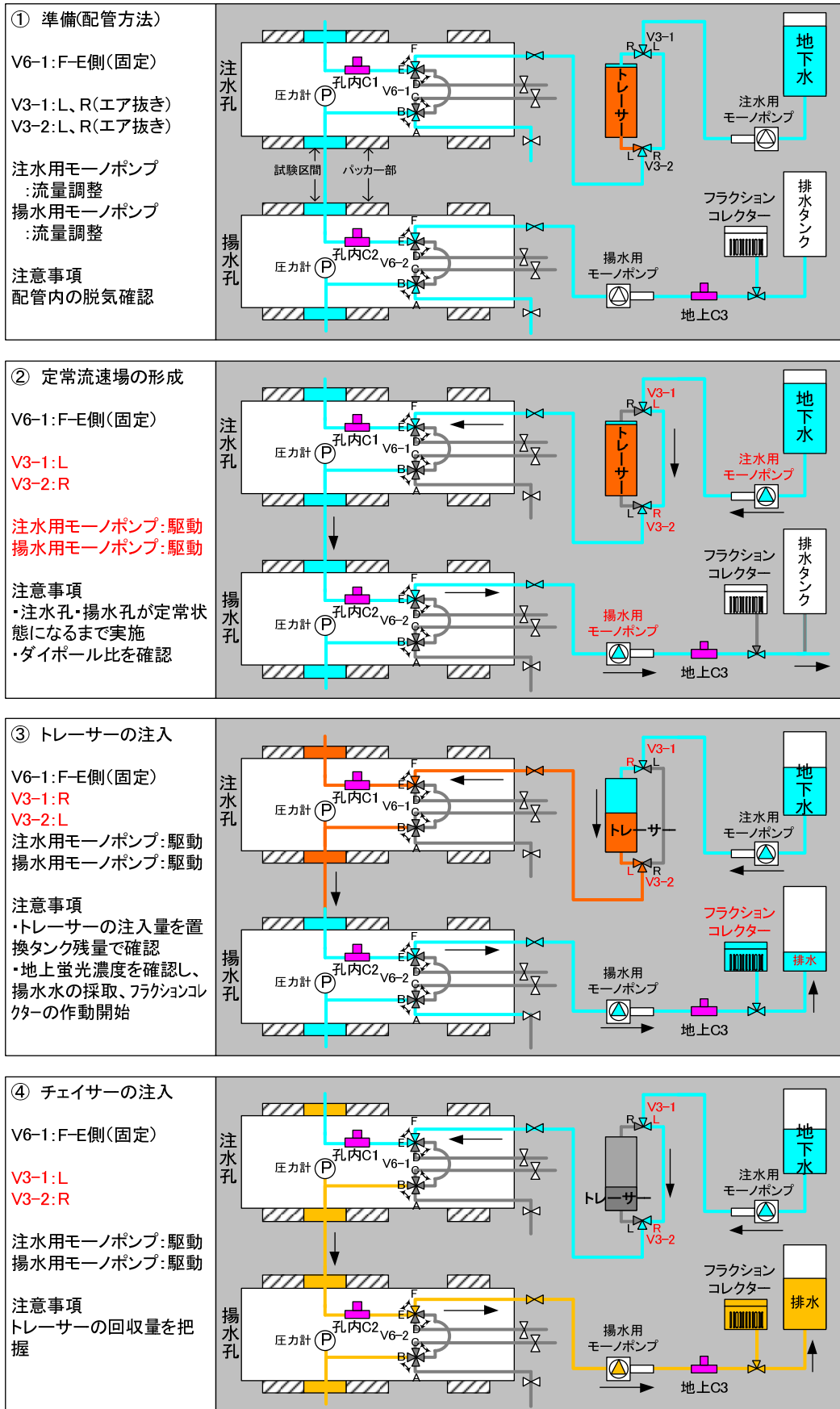


図 6.3.2-3 ダイポール試験の配管と手順 (揚水孔にトレーサー試験装置を設置した場合)

## 6.4 トレーサー試験の原位置適用試験

### 6.4.1 適用性試験の対象割れ目

原位置適用性試験の試験場所は、JAEAの瑞浪超深地層研究所の深度300mボーリング横坑である。昨年度までの同試験場所での地質環境調査により、300mボーリング横坑から掘削した12MI31号孔の21.90mabh (meter along borehole) で交差する割れ目と、13MI37号孔の23.14mabh で交差する割れ目とを試験の対象割れ目として選定した。試験対象割れ目とボーリング孔配置の平面配置を図6.4.1-1に示す。これら2孔の割れ目交差位置の距離は2.93mである。また、図6.4.1-2および図6.4.1-3に、高解像度ボアホールTVカメラによるこれらの割れ目の画像を示す。画像を見ると、これらの割れ目の様相は良く類似している。ただし、12MI31号孔の対象割れ目の平均開口幅は0.15mmであるのに対し、13MI37号孔の対象割れ目の平均開口幅は0.7mmと違いが見られる。これらの割れ目の走向傾斜は、12MI31号孔の割れ目がN29°W88°E、13MI37号孔の割れ目がN26°W80°Eとほぼ同じである。この深度300mボーリング横坑周辺の岩盤においては、このNW走向の高傾斜の割れ目が最も良く見られる。図6.4.1-1に示すように、これら2条の割れ目は幾何学的な位置関係も重なっている。岩石コアの観察によれば、には緑泥石、粘度、黄鉄鉱の充填があり、割れ目周辺のマトリクス部分に絹雲母化や緑泥石化の変質が見られる。一方、13MI37号孔の対象割れ目には緑泥石の充填があり、割れ目周辺のマトリクス部分に緑泥石化の変質が見られる。13MI37号孔の対象割れ目付近の掘削時や水理試験時には、12MI31号孔の対象割れ目付近の間隙水圧に変動が見られた。

以上のことから、これら2条の割れ目は同一の割れ目である可能性が高い。

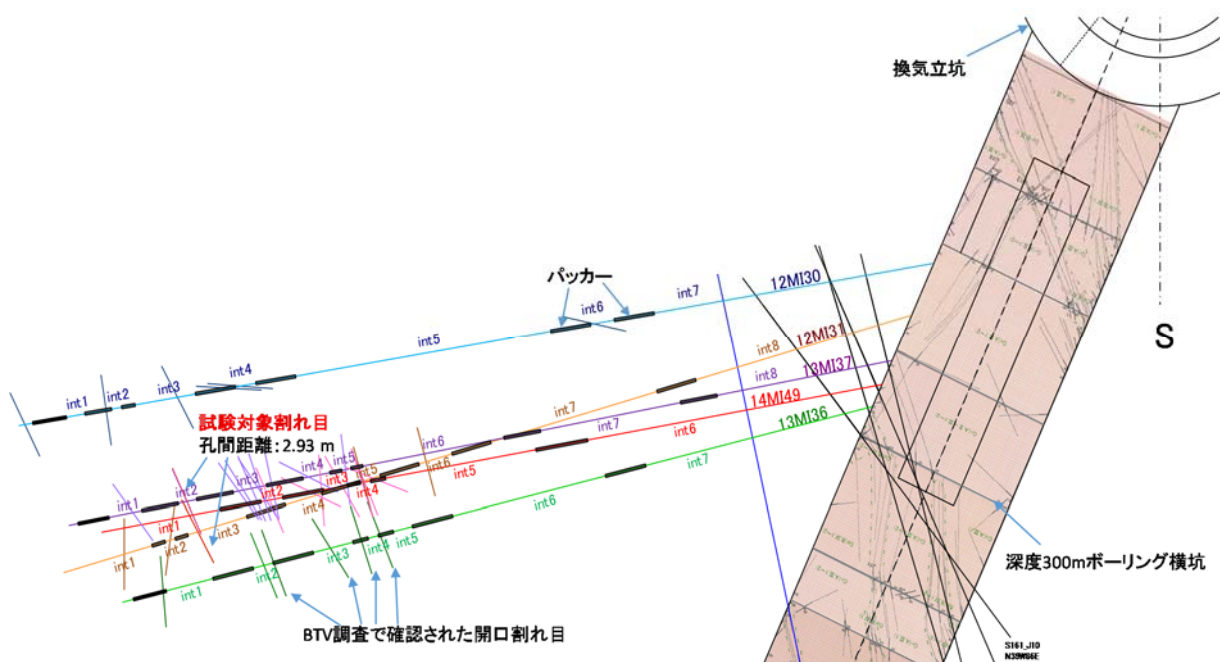


図6.4.1-1 試験対象割れ目とボーリング孔配置の平面図



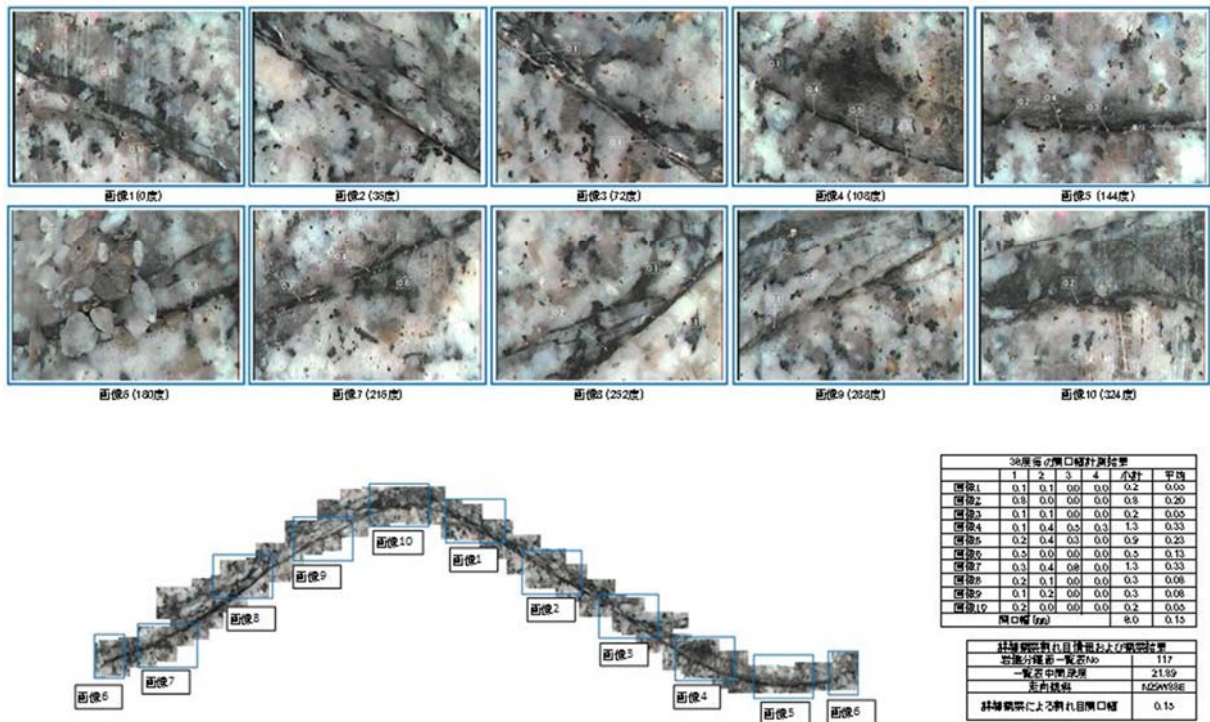


図 6.4.1-2 高解像度ボアホール TV カメラによる 12MI31 号孔 21.90mabh の割れ目の画像

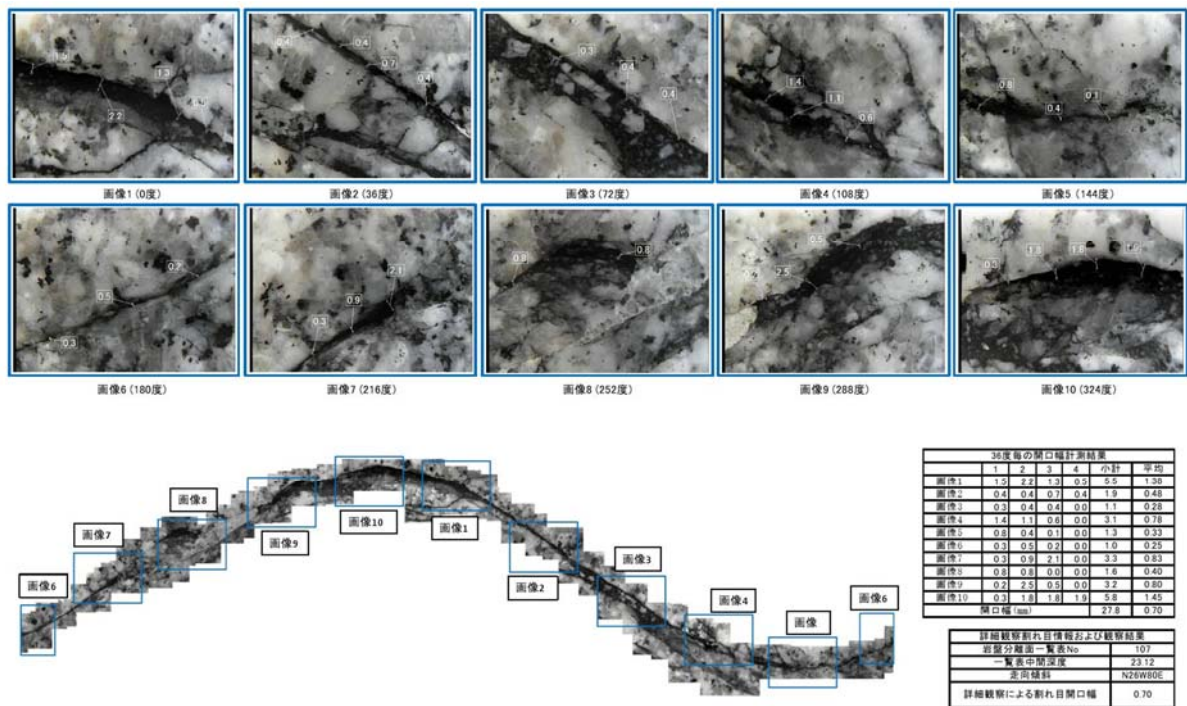


図 6.4.1-3 高解像度ボアホール TV カメラによる 12MI31 号孔 21.90mabh の割れ目の画像

#### 6.4.2 実施したトレーサー試験

表 6.4.2-1 に実施した試験一覧と個別の試験名を示す。トレーサー試験については、単孔／孔間などの試験種別、対象ボーリング孔、および使用した装置種別などの条件毎に細分される。細分した各試験名は、後述する「表 6.4.5-1 試験名の読み方」の基準に基づいて設定した名称を記載した。

なお、これら 2 孔にトレーサー試験装置やモニタリング装置を設置した場合の試験深度は、以下の通りである。

##### (1) 12MI31 号孔の試験深度

- ① トレーサー試験装置：21.82～21.98mabh（試験区間長 0.16m）
- ② モニタリング装置：INT-3\_20.37～22.20mabh（試験区間長 1.83m）

##### (2) 13MI37 号孔の試験深度

- ③ トレーサー試験装置：23.04～23.24mabh（試験区間長 0.20m）
- ④ モニタリング装置：INT-2\_22.82～23.42mabh（試験区間長 0.60m）

表 6.4.2-1 実施した試験一覧

##### 単孔トレーサー試験

実施日	試験名	試験孔	12MI31号孔	12MI37号孔
10月29日	15S31M1	31	トレーサー試験装置	モニタリング装置
10月30日	15S31M2	31	トレーサー試験装置	モニタリング装置
11月2日	15S31M3	31	トレーサー試験装置	モニタリング装置
11月16日	15S37T4	37	トレーサー試験装置	トレーサー試験装置
11月17日	15S37T5	37	トレーサー試験装置	トレーサー試験装置
11月18日	15S37T6	37	トレーサー試験装置	トレーサー試験装置
11月18日-19日	15S37T7	37	トレーサー試験装置	トレーサー試験装置
11月20日	15S37T8	37	トレーサー試験装置	トレーサー試験装置
12月7日	15S37M9	37	モニタリング装置	トレーサー試験装置
12月8日	15S37M10	37	モニタリング装置	トレーサー試験装置
12月9日	15S37M11	37	モニタリング装置	トレーサー試験装置
12月10日	15S37M12	37	モニタリング装置	トレーサー試験装置
12月11日	15S37M13	37	モニタリング装置	トレーサー試験装置

##### 孔間トレーサー試験

実施日	試験名	注水孔	12MI31号孔	12MI37号孔
10月28日	15W3137M1	31	トレーサー試験装置	モニタリング装置
11月9日	15W3137T2	31	トレーサー試験装置	トレーサー試験装置
11月10日	15W3137T3	31	トレーサー試験装置	トレーサー試験装置
11月11日	15W3137T4	31	トレーサー試験装置	トレーサー試験装置
11月12日-13日	15W3137T5	31	トレーサー試験装置	トレーサー試験装置
11月24日	15W3137T6	31	トレーサー試験装置	トレーサー試験装置
11月25日-26日	15W3731T7	37	トレーサー試験装置	トレーサー試験装置
11月26日-27日	15W3137T8	31	トレーサー試験装置	トレーサー試験装置
11月30日	15W3731T9	37	トレーサー試験装置	トレーサー試験装置
12月1日-2日	15W3731T10	37	トレーサー試験装置	トレーサー試験装置

#### 6.4.3 適用試験での確認項目

今年度は、昨年度に引き続き国内サイトの JAEA 瑞浪の超深地層研究所の深度 300m ボーリング横坑にて原位置適用試験を実施した。

以下に、昨年度（平成 26 年度）の原位置適用試験で顕在化した問題点と、それぞれの問題点に対応した今年度の対策項目を以下の①～⑤に示す。

##### (1) 昨年度の問題点

- ① 蛍光トレーサーのウラニン、アミノ G を混合した原液の濁り。
- ② トレーサー試験装置の光ファイバーの養生および設置方法。
- ③ 挿入に使用したロッド内径の大きさ。
- ④ 光ファイバーの接続箇所の多さに起因すると考えられる蛍光強度の低下。
- ⑤ 2 連編成の試験装置設置に伴う間隙水圧の場の乱れ。

##### (2) 今年度の実施した対応策

- ① 原液はウラニンとアミノ G 酸のそれぞれについて個別に作成し、希釈した後に混合した。また、孔間トレーサー試験では多くの試験で蛍光トレーサーとしてウラニンのみを使用した。
- ② 光ファイバー、各種チューブ等の養生は現場持込前に実施した。
- ③ JFT ロッド（内径 35.7mm）の使用を止め、内径の大きなモニタリング装置用ロッド（内径φ 50.5mm）に変更した。
- ④ 蛍光濃度センサー Ver3.1 の蛍光強度の出力低下は、コネクタによる接続箇所の多さが原因と考えられたため、接続箇所を 10 カ所から 4 カ所に変更した。
- ⑤ ピストンパッカーと孔口パッカーの間に中間パッカーを設け、孔口パッカーは口元ケーシング直下に設置した。

## 6.4.4 試験準備

### 6.4.4.1 蛍光濃度センサーのキャリブレーション

蛍光濃度センサーでは、蛍光トレーサーの濃度の経時変化をリアルタイムで計測できる。キャリブレーションは、複数濃度に作成したトレーサー溶液（以下、試料水）を蛍光濃度センサーにて計測し、その蛍光強度(counts)と、蛍光分光光度計にて計測した蛍光濃度の関係から検量線を作成した。蛍光濃度センサーで計測するトレーサー材は、非吸着性であるウラニンとした。

#### (1) 蛍光濃度計測の原理と使用した計測機器

蛍光濃度の計測は、蛍光濃度センサー、LED光源と分光器、光ファイバーケーブル、およびデータロガーPCを用いて行った。図 6.4.4-1 に蛍光濃度計測の概念を示す。

蛍光濃度の計測原理は以下の通りである。

- ① LED光源から、470nm 付近をピーク波長とする励起光を照射する。
- ② 光源側の光ファイバーを通して、蛍光濃度センサーの流路中に励起光が入射され、流路内を通過するウラニン溶液を蛍光させる。
- ③ 蛍光したウラニン溶液の光は、受光側の光ファイバーを通して分光器に伝送される。分光器内では、光を分光してMLDイメージセンサにて電気信号に変換してデータを取り込む。MLDイメージセンサを使用しているため、特定の波長の強度だけではなく、ある帯域の光を波形として見ることが可能である。

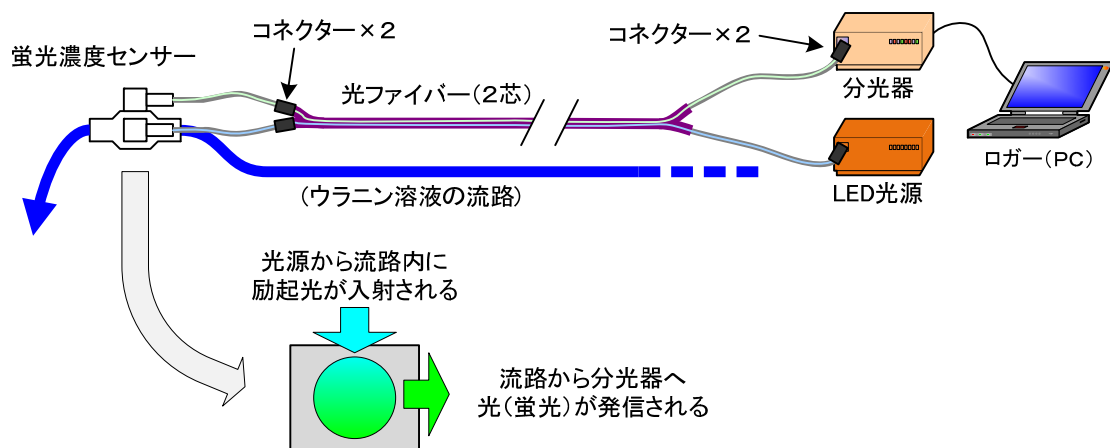


図 6.4.4-1 蛍光濃度計測の概念

今回使用した 3 台の蛍光濃度センサーは、試作時期やそれぞれの性能が異なるため、各センサー個別にキャリブレーションを行った。表 6.4.4-1 に各蛍光濃度センサーのバージョンと仕様をまとめた。この内、Ver. 3.1 の蛍光濃度センサーは今年度から採用した新規のセンサーである。

表 6.4.4-1 蛍光濃度センサーの主な仕様

項目	Ver. 1	Ver. 3.0	Ver. 3.1
試作年度	平成 18 年度	平成 22 年度	平成 27 年度
特色	・センサー部に LED 光源を内蔵	・耐圧性能向上 ・光ファイバーとセンサー一部が分離可能な構造	・耐圧性能向上 ・光ファイバーとセンサー一部が一体化した構造
材質	接液部：SUS316 窓 材：サファイアガラス	接液部：SUS304 窓 材：サファイアガラス	接液部：SUS316 窓 材：サファイアガラス
サイズ (mm) 流路×幅 <sub>A</sub> ×幅 <sub>B</sub>	48×30×25	82×26×26	100×26.1×26.1
流路径 (mm)	φ4.83	φ4	φ4
重量	98 g	126 g	290 g (光ファイバー1.5m 含む)
光コネクタ	SMA	ST (レセプタクル)	SMA
配管コネクタ	1/4 in.	φ6mm	φ6mm



図 6.4.4-2 (左)高出力タイプ LED 光源 (右)分光器



図 6.4.4-3 蛍光濃度センサー

## (2) キャリブレーション手順

キャリブレーションでは、蛍光分光光度計より求めた各試料水の蛍光濃度、および蛍光濃度センサーにて計測した蛍光強度 (counts) の関係から検量線を作成した。

ウラニンの蛍光強度は地下水の pH に依存する性質があるため、孔内とほぼ同条件の水質となるように 300m ボーリング横坑内から採取した湧水を用いて検量用の試料水を作成した。キャリブレーションに用いた試料水は、4mg/L と地下水 (≒0mg/L) を上下限值とする 9 段階の濃度を作成した。また、1sec ピッチのデータサンプリング条件でより大きな蛍光強度を取得するため、適切な Integral Time (照射光の積算時間) と Average (データの平均化) を設定した。

蛍光強度は、流路内に地下水中のガスの気泡が含まれると大きく減衰するため、キャリブレーションは試料水を加圧してガスの遊離を抑制させて実施した。

蛍光濃度センサーのキャリブレーション手順を以下に示す。

- ① 蛍光濃度センサー、HPLC ポンプ (プランジャーポンプ) を含む循環系配管を構築した。
- ② 4mg/L と地下水を上下限值とする 9 段階の濃度の試料水を作成した。
- ③ 蛍光強度の上限値を把握した上で Integral Time と Average を設定するため、最初に 4mg/L の試料水を準備した。
- ④ 配管内に試料水を注水して所定圧まで加圧し、HPLC ポンプにて流量 100mL/min で循環させた。
- ⑤ 4mg/L の蛍光強度最大値において、計測上限値を超えないよう適切な Integral Time と Average を設定した。
- ⑥ 薄い濃度から順に、全 9 段階の試料において手順④の作業にて蛍光強度データを取得した。
- ⑦ 取得した蛍光濃度と蛍光強度の値の相関より、近似曲線 (検量線) を作成した。



図 6.4.4-4 キャリブレーションの作業状況

(3) キャリブレーション結果

蛍光濃度センサーVer. 3.1 の検量線を図 6.4.4-5、図 6.4.4-6 に示す。図 6.4.4-5 は地上計測用として本体付属の 1.5m の光ファイバーを使用した検量線で、図 6.4.4-6 は孔内計測用 (C1 用途) として 50m の光ファイバーを使用した検量線である。なお、キャリブレーションは 1 台のセンサーがピストンパッカーに組み込まれた状態で実施し、加圧条件は 1.0MPa とした。

蛍光濃度センサー	Integral Time	Average	加圧条件 (MPa)
Ver.3.1	1000	1	1.0
近似式 $y=8.68E-13x^2 \times 1.74E-6x - 0.06$			

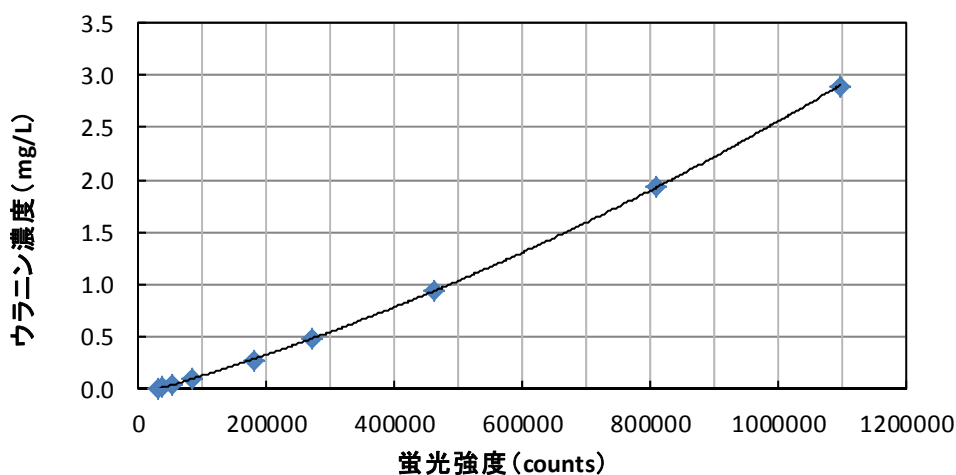


図 6.4.4-5 蛍光濃度センサーVer. 3.1 の検量線 (1.5m 光ファイバー使用)

蛍光濃度センサー	Integral Time	Average	加圧条件 (MPa)
Ver.3.1	1000	1	1.0
近似式 $y=3.80E-12x^2 \times 6.89E-6x - 0.19$			

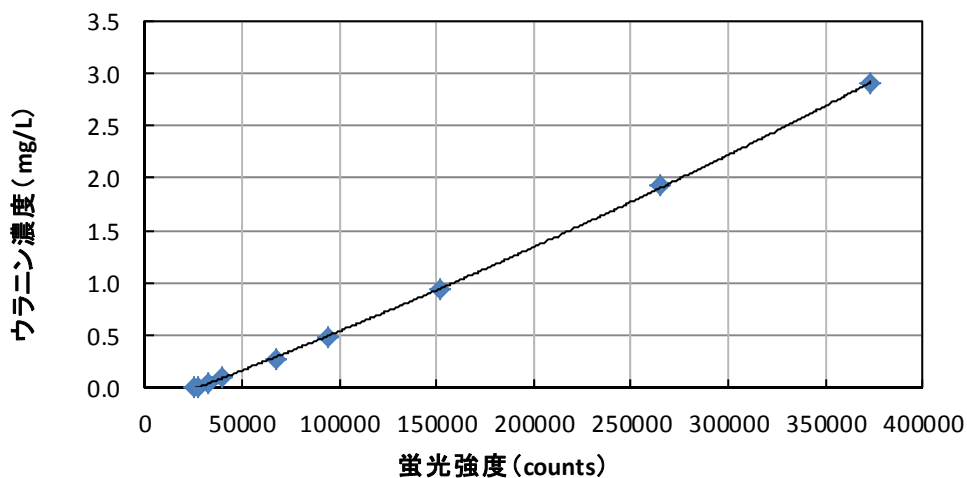


図 6.4.4-6 蛍光濃度センサーVer. 3.1 の検量線 (50m 光ファイバー使用)

蛍光濃度センサーVer. 3.0、および Ver. 1.0 の検量線を図 6.4.4-7、図 6.4.4-8 に示す。

蛍光濃度センサーの Ver. 3.0 は、試験中に原因不明の蛍光強度低下を起こした Ver. 3.1 の代替 (C2 用途) として 11 月 9 日以降に使用した。これに伴い、予備として準備していた Ver. 1.0 は、Ver. 3.0 の代替として地上計測用 (C3 用途) として使用した。Ver. 1.0 の耐圧性能は 1.0MPa のため、キャリブレーションは 1.0MPa の加圧条件で実施した。

原位置試験で使用した蛍光濃度センサーのバージョンと計測位置関係 (C1~C3) は、7.4.5 項にて個別の試験毎に示した。

蛍光濃度センサー	Integral Time	Average	加圧条件 (MPa)
Ver.3.0	800	1	1.5
近似式 $y=3.45E-12x^2 \times 3.81E-6x - 0.05$			

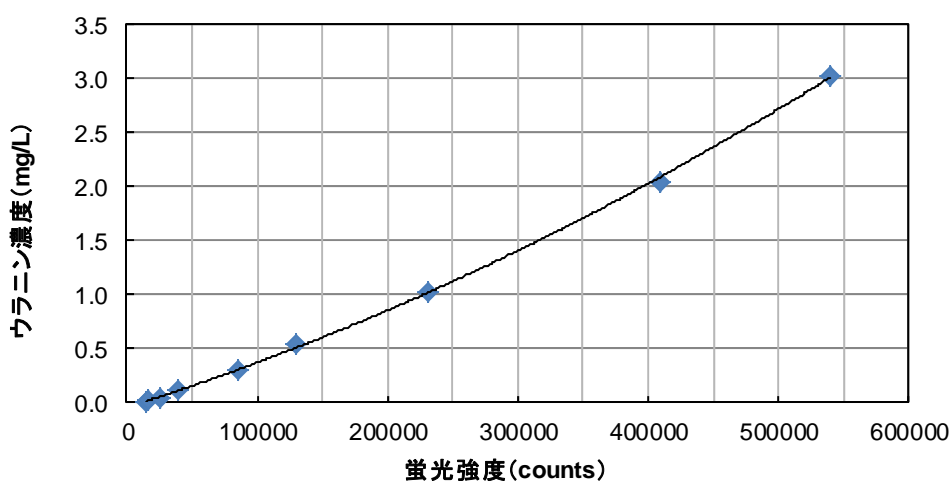


図 6.4.4-7 蛍光濃度センサーVer. 3.0 の検量線

蛍光濃度センサー	Integral Time	Average	加圧条件 (MPa)
Ver.1.0	40	5	1.0
近似式 $y=6.28E-13x^2 \times 1.35E-6x - 0.02$			

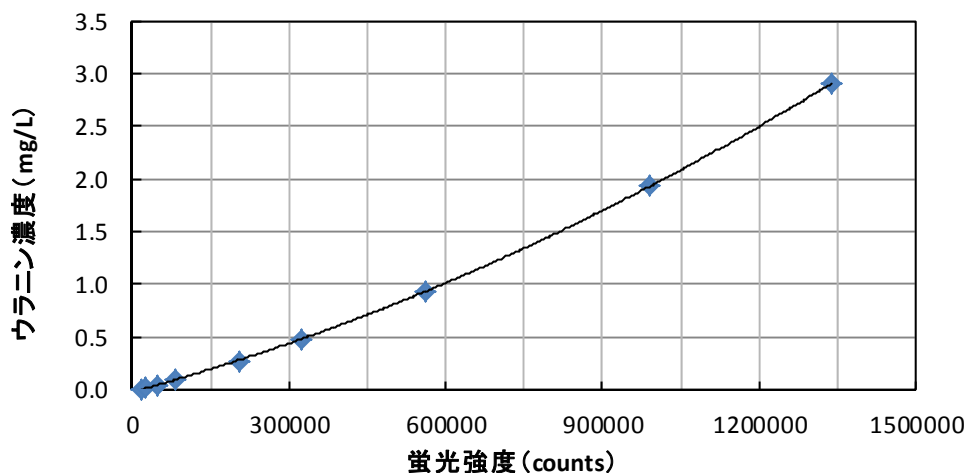


図 6.4.4-8 蛍光濃度センサーVer. 1.0 の検量線



#### 6.4.4.2 蛍光濃度センサーのデータ補正

蛍光濃度センサーで得られたウラニンの蛍光強度は、キャリブレーションで得られた検量線から濃度に変換する。本来であればキャリブレーションは試験毎に実施し、その都度検量線を更新するのが理想的ではあるが、本試験では蛍光濃度センサーが孔内装置内に組み込まれており、試験毎に孔内から装置を回収して検量線を作成することは非現実的であるため、孔内設置前に作成した検量線を全試験結果に適用した。

そのため、試験結果の中には濃度が負の値になるなど、明らかに現実と矛盾した値が得られることがあった。これは、実際の試験では水理場の変化や配線の組替え等により、検量線作成時の計測環境が維持されていないためと考えられる。そこで、今年度は揚水中にサンプリングした水の濃度を蛍光分光光度計により計測し、その値に蛍光濃度センサーの値をフィッティングさせることにより補正した。具体的には、蛍光濃度センサーで得られた蛍光強度の破過曲線と、蛍光分光光度計で得られた濃度の破過曲線から蛍光濃度と濃度の相関図を作成し、線形近似式を求めた。また、孔内の蛍光濃度センサーとサンプリング箇所との距離差による破過曲線のピーク時間のずれは、それぞれの破過曲線のピーク到達時間を一致させることで調整し、近似式の誤差が小さくなることを確認した。ただし、揚水孔の孔内から地上までのチューブ内分散による影響は考慮していないため、実際の試験孔内の濃度と比べると過少評価している可能性があることに留意する必要がある。

なお、試験孔内に設置した蛍光濃度センサーは光源からの距離が離れていることや、接続された光ケーブルが長くなることから計測値のノイズが顕著であった。従って、本報告書では、移動平均を用いて平滑化したデータを記載した。

#### 6.4.4.3 トレーサー試験装置の孔内設置

##### (1) トレーサー試験装置の挿入

トレーサー試験装置に用いたケーブル類は、蛍光濃度センサーの光ファイバー、P2 圧力センサーの電気信号ケーブル、および圧力測定やパッカー拡張など計 12 本のチューブから構成される。これらのケーブルやチューブの束は、作業中の破損を予防するため蛇腹管内に収納した。

図 6.4.4-9 にトレーサー試験装置の挿入作業状況およびケーブル束を収納した蛇腹管を示す。



図 6.4.4-9 (左) トレーサー試験装置の挿入状況、 (右) ケーブル束を収納した蛇腹管

トレーサー試験装置の挿入手順を以下に示す。

- ① 光ファイバー、圧力センサーケーブル、その他チューブを束ね、蛇腹管内に収納した。
- ② ピストンパッカーを組み立てた (P2 圧力センサーの取り付け、蛍光濃度センサーの組込、および各ケーブル、チューブ類の末端を所定の部位へ接続する)。
- ③ 挿入中にケーブル、チューブ等がキンクしないよう、巻かれた蛇腹管を解いた。
- ④ ピストンパッカーを孔口から挿入した。
- ⑤ 次に接続するロッドの内部に蛇腹管を通し、そのロッドを孔口の装置へ接続した。
- ⑥ 以降、接続するロッドあるいはパッカーに蛇腹管を通し、孔口装置への接続を繰り返した。  
挿入中は、ピストンパッカーの注水／揚水ポート部が孔壁を引きずり目詰まりしないよう、水平器を用いてポートが水平に向くように随時確認した。
- ⑦ 所定の残尺深度に合わせ、ロッドホルダーで装置を固定した。

## (2) パッカー拡張

トレーサー試験装置のパッカーは、間隙水圧環境が約 1.5MPa と高いため水圧拡張とした。パッカー拡張の圧力源にはコンプレッサーを用い、図 6. 4. 4-10 のパッカー拡張用タンクを用いて拡張した。

設置した 3 本のパッカー（ピストンパッカー、中間パッカー、孔口パッカー）いずれの拡張にも、同一のパッカー拡張用タンクを用いた。



図 6. 4. 4-10 パッカー拡張用タンク

パッカー拡張は以下の作業手順で実施した。

- ① パッカー浮き上がり防止のため、拡張前に圧力計測用ラインを全て開放した。
- ② 水を入れたパッカー拡張用タンク内をコンプレッサーにて約 2.5MPa まで加圧した。
- ③ パッカー拡張用タンクの送水バルブを開け、ピストンパッカーを拡張した。拡張水量は拡張前のタンク水位と残量水位との差から把握し、過剰膨張や未拡張等の問題がないことを確認した。
- ④ パッカー拡張用タンクの水を補充し、中間パッカー、孔口パッカーの順に拡張した。拡張水量の把握はピストンパッカー拡張時と同様とした。
- ⑤ 各パッカーの拡張を確認した後、圧力計測用ラインのバルブを閉鎖して各区間を閉塞状態として間隙水圧の測定が可能となるようにした。

#### 6.4.4.4 水位計測

##### (1) 計測方法

トレーサー試験ではバックグラウンドの地下水流れの影響を受けることから、試験孔周辺の水理場を把握することを目的に、トレーサー試験区間および試験区間と連通性が高いと考えられる周辺孔の数区間を対象として、各試験の実施前に水位計測を実施した。水位計測は、圧力計（絶対圧計）（図 6.4.4-11）あるいはスタンドパイプ（図 6.4.4-12）によって実施した。

圧力計での計測は、圧力計の個体差による計測誤差をなくすため、すべての計測区間で同一の圧力計を用いて実施した。具体的には、各計測区間に接続されたチューブを 5 方バルブに集約し、各区間の計測毎に圧力計への接続を切り替えた。計測は 1 区間につき 2～5 分程度行い、その間の平均値を記録した。

スタンドパイプで水位を計測する場合は、安定した状態の水位を目視により記録した。

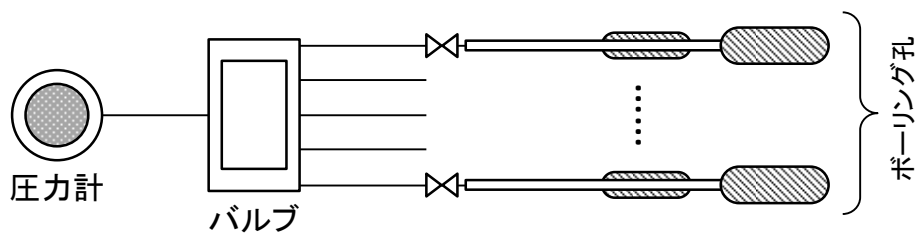


図 6.4.4-11 圧力計による水位計測の概念図

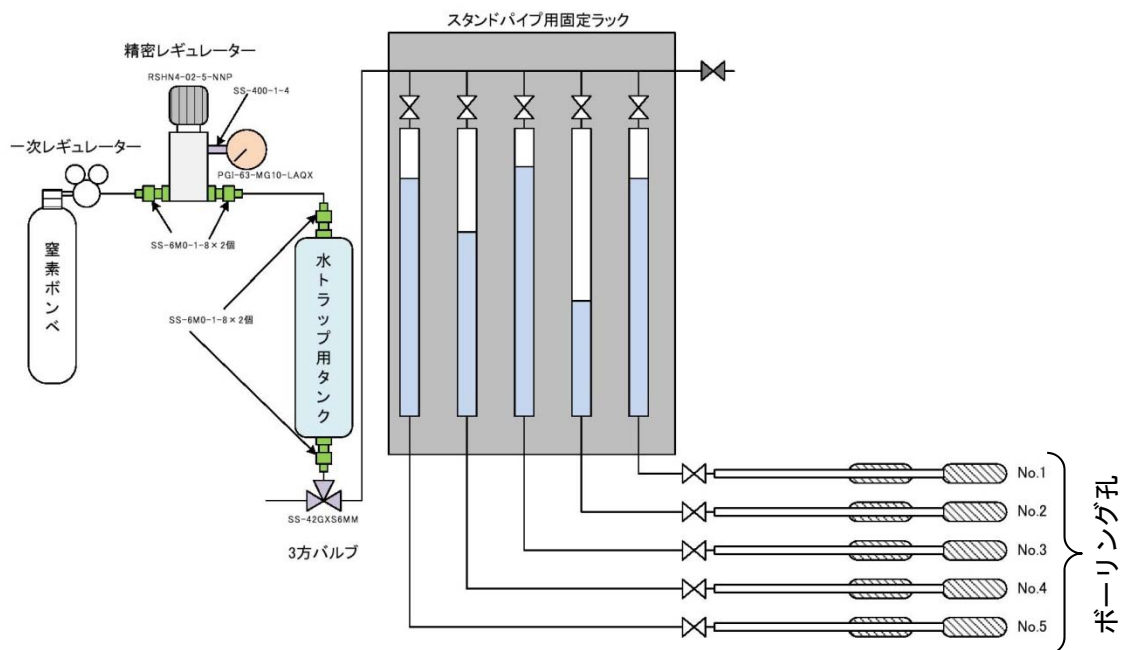


図 6.4.4-12 スタンドパイプを用いた水位計測装置の概念図

(2) 計測対象区間

計測対象区間を表 6. 4. 4-2 に示す。12MI30 号孔は、複数の区間を計測対象としているが Int3 を主対象とし、その他の区間については必要に応じて計測を行った。また、12MI31 号孔と 13MI37 号孔は、モニタリング装置設置時には表内に示す区間 Int3、Int2 を、トレーサー試験装置設置時にはトレーサー試験対象区間（以下、D1 と呼ぶ）を計測対象区間とした。

表 6. 4. 4-2 水位計測対象区間

ボーリング孔	設置装置	区間	上端深度 (mabh)	下端深度 (mabh)	区間長 (m)
12MI30	モニタリング装置	Int 2	24.27	24.57	0.30
		Int 3	21.99	23.82	1.83
		Int 4	20.19	20.79	0.60
		Int 5	11.39	18.99	7.60
12MI31	モニタリング装置	Int 3	20.37	22.20	1.83
	トレーサー試験装置	D1	21.82	21.98	0.16
13MI36	モニタリング装置	Int 1	19.82	22.55	2.73
13MI37	モニタリング装置	Int 2	22.82	23.42	0.60
	トレーサー試験装置	D1	23.04	23.24	0.20
14MI49	モニタリング装置	Int 1	19.07	22.47	3.40

(3) 計測期間

水位計測期間中に水理場に影響を与えたと考えられるイベントログを表 6. 4. 4-3 に示す。水位計測結果は、イベント実施時期で区分した表 6. 4. 4-4 に示す 5 つの期間に分けてデータを整理した。

表 6. 4. 4-3 12MI31 号孔、13MI37 号孔の試験期間中の主要なイベントログ

日付	対象孔	イベント
10/23	12MI31 号孔	トレーサー試験装置の設置
11/6	13MI37 号孔	トレーサー試験装置の設置
11/13	12MI30 号孔	モニタリング装置のパッカー追加圧
12/3	12MI31 号孔	トレーサー試験装置の回収
12/15	13MI37 号孔	トレーサー試験装置の回収

表 6. 4. 4-4 水位計測期間における条件

期間名称	期間	条件概要	計測回数
Period-1	10/16～ 10/22	<p>【実施試験】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・12MI31 号孔を対象としたポイント希釈試験</li> </ul> <p>【条件】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・トレーサー試験装置の設置前</li> <li>・全ボーリング孔にモニタリング装置を設置</li> <li>・12MI30 号孔パッカー圧（圧力追加前）</li> </ul>	1(1)
Period-2	10/23～11/5	<p>【実施試験】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・12MI31 号孔を対象としたポイント希釈試験</li> <li>・12MI31 号孔を注水孔としたダイポール試験</li> <li>・12MI31 号孔を対象とした単孔トレーサー試験</li> </ul> <p>【条件】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・12MI31 号孔にのみトレーサー試験装置を設置</li> <li>・その他ボーリング孔にはモニタリング装置を設置</li> <li>・12MI30 号孔パッカー圧（圧力追加前）</li> </ul>	5(1)
Period-3	11/6～11/12	<p>【実施試験】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・12MI31 号孔を注水孔としたダイポール試験</li> </ul> <p>【条件】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・12MI31 号孔、13MI37 号孔にトレーサー試験装置を設置</li> <li>・その他ボーリング孔にはモニタリング装置を設置</li> <li>・12MI30 号孔パッカー圧（圧力追加前）</li> </ul>	4(1)
Period-4	11/13～12/3	<p>【実施試験】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・12MI31 号孔を注水孔としたダイポール試験</li> <li>・13MI37 号孔を注水孔としたダイポール試験</li> <li>・13MI37 号孔間を対象とした単孔トレーサー試験</li> </ul> <p>【条件】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・12MI31 号孔、13MI37 号孔にトレーサー試験装置を設置</li> <li>・その他ボーリング孔にはモニタリング装置を設置</li> <li>・12MI30 号孔パッカー圧（圧力追加後）</li> </ul>	8(0)
Period-5	12/4～12/14	<p>【実施試験】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・13MI37 号孔間を対象としたポイント希釈試験</li> <li>・13MI37 号孔間を対象とした単孔トレーサー試験</li> </ul> <p>【条件】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・13MI37 号孔にのみトレーサー試験装置を設置</li> <li>・その他ボーリング孔にはモニタリング装置を設置</li> <li>・12MI30 号孔パッカー圧（圧力追加後）</li> </ul>	4(1)

\*計測回数の括弧内数値は、スタンドパイプ方式の計測回数

#### (4) 計測結果

絶対圧表記による水位計測結果を図 6.4.4-13 に、水頭差表記による水位計測結果を図 6.4.4-14 に示す。なお、図 6.4.4-14 に示す水頭差とは、計測区間中の最大値との差を表す。また、圧力計の計測値を表 6.4.4-5 に、水頭差を表 6.4.4-6 に示す。表中の計測値は、期間中の平均である。

各期間で常に水位が最も高かったのは 14MI49-Int1 であった。次に 13MI36-Int1 が高く、14MI49-Int1 との差はほぼない。一方、水位が最も低かったのは Period-1～3 では 12MI30-Int3、Period-4 では 12MI31-D1、Period-5 では 12MI31-Int3 であった。絶対圧を見ると全区間が同じ傾向で変化していることから、各区間を通過する亀裂が水理的に連続していると考えられる。また、絶対圧が変化しても水頭差の関係に変化は見られないことから、相対的に水理場は変化していないと考えられる。なお、同じ期間において絶対圧の計測結果に若干の幅が認められるのは、気圧の影響や近接孔での採水作業に伴う孔口の開放が原因であると考えられる。

圧力計による計測結果とスタンドパイプによる計測結果では、概ね同様の結果が得られた。圧力計による計測は、スタンドパイプ方式と比較して、水位調整や計測区間の切り替えおよび水位安定の判断が容易であり、計測者による誤差が少ない。従って、圧力計の計測結果を基に考察を行うこととした。

表 6.4.4-7 に孔間トレーサー試験の試験区間間 (12MI31-D1 と 13MI37-D1) の水頭差、および 12MI30-Int3 と 12MI31 号孔の試験区間の間の水頭差を示す。孔間試験では、注入孔から揚水孔以外の方向に流れるトレーサー量が多くなると、トレーサーの回収率が低下してしまう。トレーサー試験中はポンプを用いて人為的に流速場を形成するため、基本的には注入孔と揚水孔の間に生じる水頭差を駆動力とした流れが支配的になるが、バックグラウンド(自然状態)の地下水流動場における水頭差についても確認することとした。水位計測結果(図 6.4.4-14、表 6.4.4-6)より、Period-1～3 では 12MI30-Int3 の水位が最も低くなっている。12MI30-Int3 は 12MI31-D1 からの圧力応答が最も大きく、回収率に影響を及ぼす可能性があることから、12MI30-Int3 の水位が低下している原因について調査した。その結果、12MI30 号孔のモニタリング装置のパッカー圧が 1.6MPa まで低下していることが判明し、Int-3 の水位が低下してしまっている可能性が高いと考えられた。そのため、12MI30 号孔のパッカー圧力を追加したところ、Period-4 では 12MI30-Int3 と 12MI31 号孔の試験区間との水頭差が減小し、孔間トレーサー試験の試験区間間の水頭差とほぼ同等になった。従って、12MI30-Int3 の水位低下は、12MI30 号孔のパッカー圧の低下が原因であったことが確認できた。

水位計測結果(圧力)

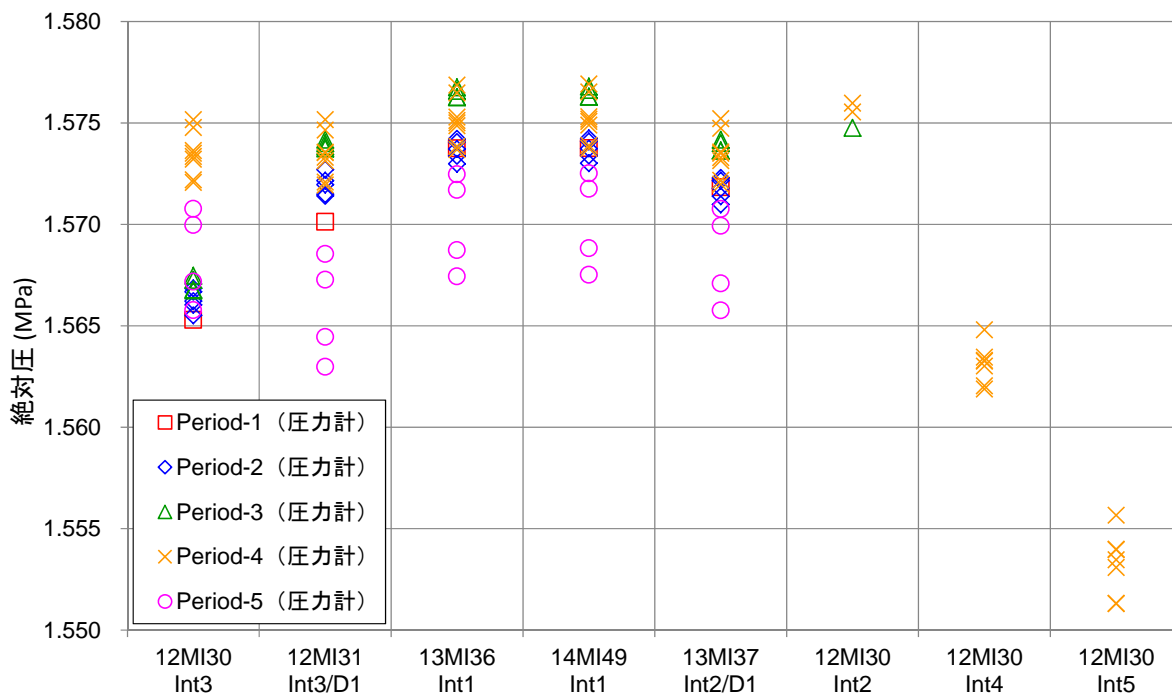


図 6. 4. 4-13 水位計測結果 (絶対圧)

水位計測結果(水頭差)

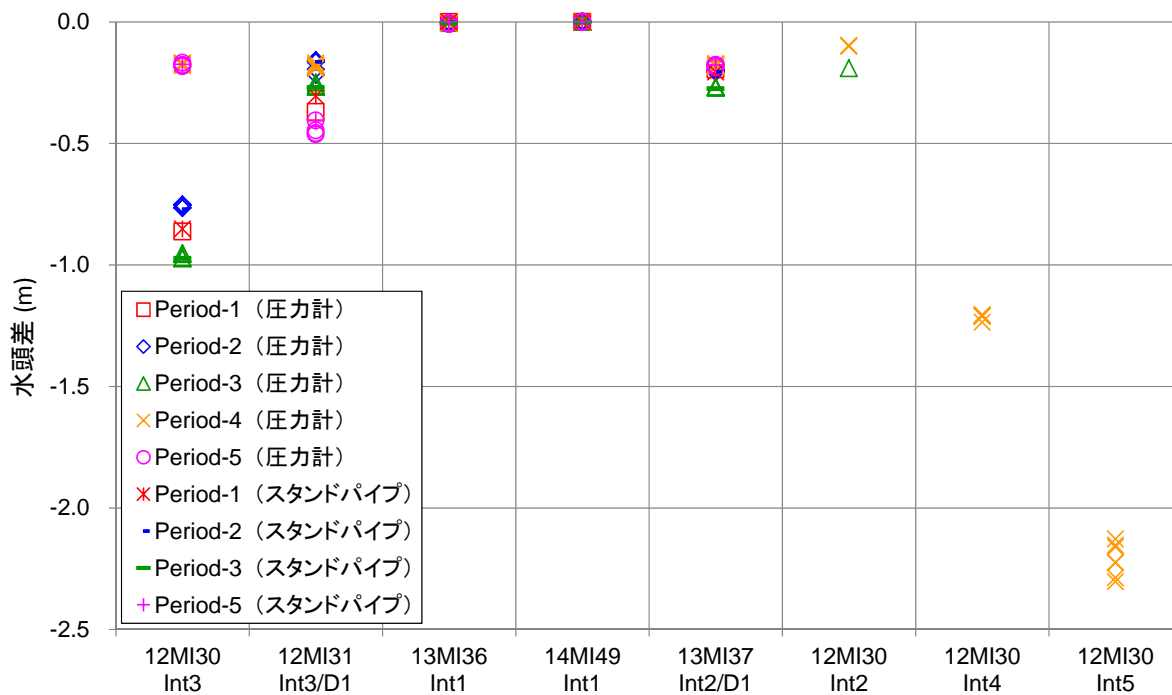


図 6. 4. 4-14 水位計測結果 (水頭差)



表 6. 4. 4-5 水位計測値（絶対圧(MPa)）\*1,\*2

期間	12MI30 Int3	12MI31 Int3/D1	13MI36 Int1	14MI49 Int1	13MI37 Int2/D1	12MI30 Int2	12MI30 Int4	12MI30 Int5
Period-1	1.565	1.570	1.574	1.574	1.572	-	-	-
Period-2	1.566	1.572	1.574	1.574	1.572	-	-	-
Period-3	1.567	1.574	1.576	1.576	1.574	1.575	-	-
Period-4	1.573	1.573	1.575	1.575	1.573	1.576	1.563	1.553
Period-5	1.568	1.566	1.570	1.570	1.568	-	-	-

表 6. 4. 4-6 水位計測値（水頭差(m)）\*1,\*2

期間	12MI30 Int3	12MI31 Int3/D1	13MI36 Int1	14MI49 Int1	13MI37 Int2/D1	12MI30 Int2	12MI30 Int4	12MI30 Int5
Period-1	-0.863 (-0.852)	-0.371 (-0.305)	-0.001 (-0.001)	0 (0)	-0.196 (-0.206)	-	-	-
Period-2	-0.759 (-0.770)	-0.179 (-0.165)	-0.002 (0)	0 (0)	-0.202 (-0.205)	-	-	-
Period-3	-0.962 (-0.973)	-0.261 (-0.269)	-0.003 (-0.004)	0 (0)	-0.269 (-0.275)	-0.190	-	-
Period-4	-0.174	-0.181	-0.005	0	-0.178	-0.099	-1.213	-2.212
Period-5	-0.177 (-0.175)	-0.443 (-0.407)	-0.007 (0)	0 (0)	-0.180 (-0.177)	-	-	-

表 6. 4. 4-7 孔間トレーサー試験の試験区間間および 12MI30-Int3 と 12MI31-D 間の水頭差(m)\*1

期間	12MI31-D1 ⇔ 13MI37-D1	12MI30-Int3 ⇔ 12MI31-D1
Period-1	0.175 (12MI31-D1 ← 13MI37-D1)	0.492 (12MI30-Int3 ← 12MI31-D1)
Period-2	0.023 (12MI31-D1 → 13MI37-D1)	0.580 (12MI30-Int3 ← 12MI31-D1)
Period-3	0.008 (12MI31-D1 → 13MI37-D1)	0.701 (12MI30-Int3 ← 12MI31-D1)
Period-4	0.003 (12MI31-D1 ← 13MI37-D1)	0.007 (12MI30-Int3 → 12MI31-D1)
Period-5	0.263 (12MI31-D1 ← 13MI37-D1)	0.266 (12MI30-Int3 → 12MI31-D1)

\*1 Period-1 : 全ボーリング孔にモニタリング装置設置、12MI30 号孔パッカー圧(追加圧前)  
 Period-2 : 12MI31 号孔のみトレーサー試験装置設置、12MI30 号孔パッカー圧(追加圧前)  
 Period-3 : 12MI31 号、13MI37 号孔のみトレーサー試験装置設置、12MI30 号孔パッカー圧(追加圧前)  
 Period-4 : 12MI31 号、13MI37 号孔のみトレーサー試験装置設置、12MI30 号孔パッカー圧(追加圧後)  
 Period-5 : 13MI37 号孔のみトレーサー試験装置設置、12MI30 号孔パッカー圧(追加圧後)

\*2 括弧内数値はスタンドパイプ計測値、青文字はトレーサー試験区間(D1)における計測値

#### 6.4.5 原位置試験結果

実施した単孔トレーサー試験、ダイポール試験の結果を試験ごとに示す。なお、試験名は表 6.4.5-1 に従い 7 から 9 桁の英数字で表記した。

表 6.4.5-1 試験名の読み方

1, 2 桁目	試験実施年度	14 : 2014 年 15 : 2015 年
3 桁目	試験種目	S : 単孔トレーサー試験 W : ダイポール試験
4~7 桁目	[単孔トレーサー試験] 4, 5 桁目を試験対象孔 6, 7 桁目はブランク (以下前詰めで記入) [ダイポール試験] 4, 5 桁目を注水孔 6, 7 桁目を揚水孔	31 : 12MI31 号孔 37 : 13MI37 号孔
8 桁目	[単孔トレーサー試験] 12MI31 号孔と 13MI37 号孔の内、 試験対象外のボーリング孔に設置された装置 [ダイポール試験] 揚水孔に設置した装置	T : トレーサー試験装置 M : モニタリング装置
9 桁目	同実施年度の同種試験における試験番号	1, 2, 3 ...

#### 6.4.5.1 単孔トレーサー試験結果

##### (1) 試験条件

##### a. 試験ケース

単孔トレーサー試験は、ポイント希釈試験と同様に 12MI31 号孔の 21.82~21.98mabh(以下、12MI31D1 と呼ぶ)と 13MI37 号孔の 23.04~23.24mabh (以下、13MI37D1 と呼ぶ) の 2 区間を対象とし、12MI31D1 で 3 回、13MI37D1 で 10 回実施した。表 6.4.5-2 に 12MI31D1、表 6.4.5-3 に 12MI37D1 における試験条件を示す。なお、試験の注水流量、揚水流量は試験区間の間隙水圧をモニタリングし過剰に増減圧する場合は流量を調整して対処した。

表 6.4.5-2 単孔トレーサー試験実施ケース (試験孔 12MI31)

対象孔-区間		12MI31 - D1			
試験名		15S31M1	15S31M2	15S31M3	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	10/29 14:10	10/30 13:10	11/2 9:50	
	終了 (計測終了)	10/29 16:00	10/30 16:40	11/2 16:25	
	実施時間	1:50	3:30	6:35	
トレーサー	ウラニン	○	○	○	
	アミノ G 酸	-	○	○	
	δ D	-	○	○	
	I <sup>-</sup>	-	○	○	
	R b <sup>+</sup>	-	○	○	
	B a <sup>2+</sup>	-	○	○	
蛍光濃度 センサー	C1(12MI31 号孔内)	Ver. 3.1	Ver. 3.1	Ver. 3.1	
	C3' (地上)	Ver. 3.1	Ver. 3.1	-	
	C3(地上)	Ver. 1	Ver. 1	Ver. 1	
試験条件	注水流量	mL/min	33.4	27.6	22.9
	揚水流量	mL/min	54.6	49.0	49.3
	トレーサー 注入	min	15	40	40
	チェイサー 注入	min	25	50	55
	トレーサー 回収(揚 水)	min	70	120	180
	待機	min	0	0	120

※ 注水流量はトレーサー注入開始から完了の流量計による計測値の平均値。  
揚水流量は揚水開始から試験終了までの流量計による計測値の平均値。

表 6.4.5-3 単孔トレーサー試験実施ケース (試験孔 13MI37)

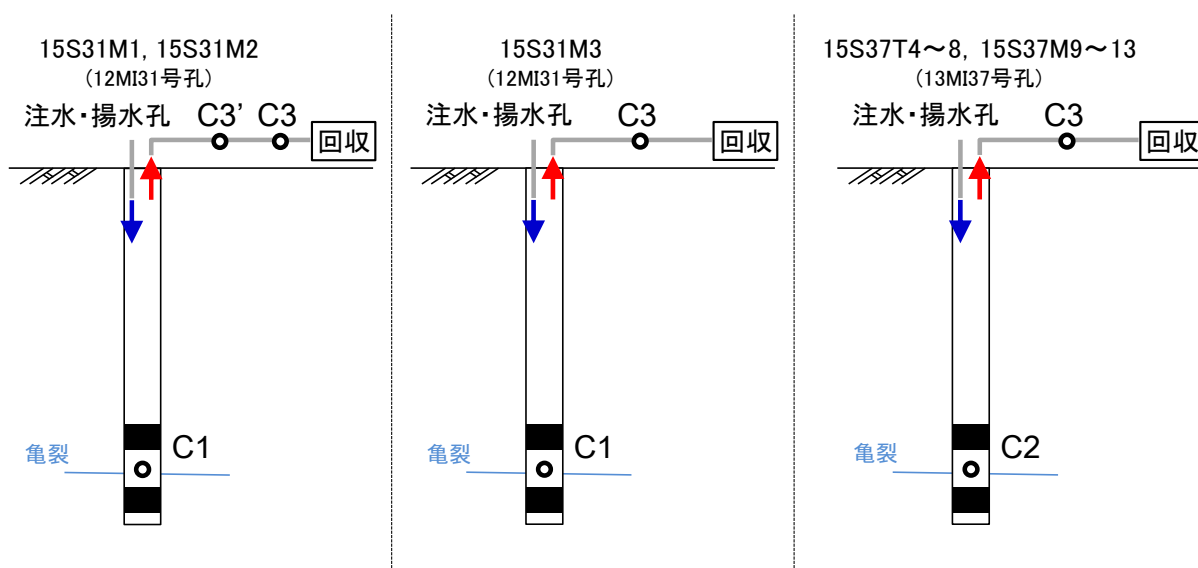
対象孔-区間		12MI37 - D1										
試験名		15S37T4	15S37T5	15S37T6	15S37T7	15S37T8	15S37M9	15S37M10	15S37M11	15S37M12	15S37M13	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	11/16 10:00	11/17 9:30	11/18 9:25	11/18 16:05	11/20 8:55	12/7 11:55	12/8 8:42	12/9 8:42	12/10 8:12	12/11 8:42	
	終了 (計測終了)	11/16 12:25	11/17 13:55	11/18 11:37:30	11/19 15:50	11/20 14:27	12/7 15:30	12/8 12:00	12/9 13:00	12/10 15:30	12/11 14:00	
	実施時間	2:25	4:25	2:12:30	23:45	5:22	3:35	3:18	4:18	7:18	5:18	
トレーサー	ウラン	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
	アミノ G 酸	-	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
	δ D	-	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
	I <sup>-</sup>	-	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
	R b <sup>+</sup>	-	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
	B a <sup>2+</sup>	-	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
蛍光濃度 センサー	C2(13MI37号孔内)	Ver. 3.0	Ver. 3.0	Ver. 3.0	Ver. 3.0	Ver. 3.0	Ver. 3.0	Ver. 3.0	Ver. 3.0	Ver. 3.0	Ver. 3.0	
	C3(地上)	Ver. 1	Ver. 1	Ver. 1	Ver. 1	Ver. 1	Ver. 1	Ver. 1	Ver. 1	Ver. 1	Ver. 1	
試験条件	注水流量	mL/min	98.2	97.7	208	208	203	97.8	209	199	196	201
	揚水流量	mL/min	200	199	199	203	201	198	198	199	200	199
	トレーサー 注入	min	10	10	5	5	5	20	10	10	10	10
	チェイサー 注入	min	15	15	7.5	7.5	7.5	15	7.5	7.5	7.5	7.5
	トレーサー 回収(揚 水)	min	120	240	120	440	200	180	180	180	180	180
	待機	min	0	0	0	962.5	120	0	0	60	240	120

b. 使用したトレーサー

試験には非吸着性トレーサーとして、ウラン、アミノ G 酸、重水素（以下、 $\delta D$  と記載）、ヨウ素（以下  $I^-$  と記載）を用い、吸着性トレーサーとしてルビジウム（以下、 $Rb^+$  と記載）、バリウム（以下、 $Ba^{2+}$  と記載）を用い、それぞれのトレーサーを原位置でサンプリングされた地下水を溶媒として混合した。15S31M1、15S37T4、15S37T5、15S37T6 はアミノ G 酸、 $I^-$  を除く非吸着性トレーサーのみ、その他の試験条件については全種類のトレーサーを使用した。

c. 蛍光濃度センサー配置位置と名称

蛍光濃度センサーは孔内および地上に設置した。単孔トレーサー試験の試験結果では 12MI31 号孔内に設置した蛍光濃度センサーを「C1」、13MI37 号孔の孔内に設置した蛍光濃度センサーを「C2」、地上に設置された蛍光濃度センサーを「C3」、「C3'」としてまとめた。図 6. 4. 5-1 に各試験ケースにおける蛍光濃度センサーの配置概要図を示す。



\*C1: 12MI31 号孔の孔内に設置した蛍光濃度センサー

\*C2: 13MI37 号孔の孔内に設置した蛍光濃度センサー

\*C3、C3' : 地上に設置した蛍光濃度センサー

図 6. 4. 5-1 単孔トレーサー試験における蛍光濃度センサー配置概要図

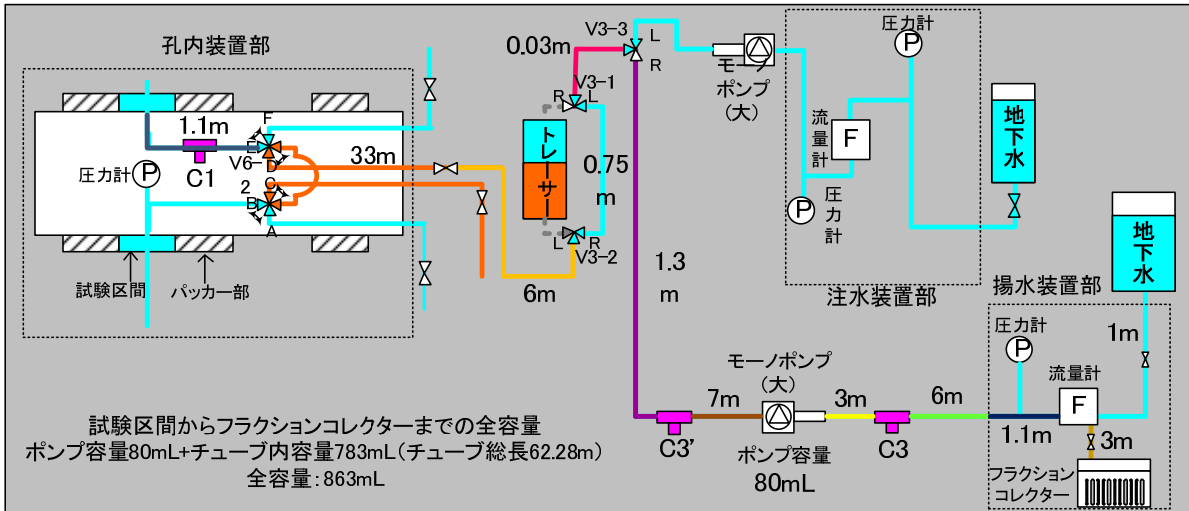
d. 試験区間からフラクシオンコレクターまでの容量

試験に用いた配管は内径 4mm のチューブを用いており単位長さ当たりの容量を 12.57mL とした。各試験における試験区間からフラクシオンコレクターまでの容量を表 6.4.5-4 に示す。図 6.4.5-2 に試験区間からフラクシオンコレクターまでの容量および各区間におけるチューブ長を示す。

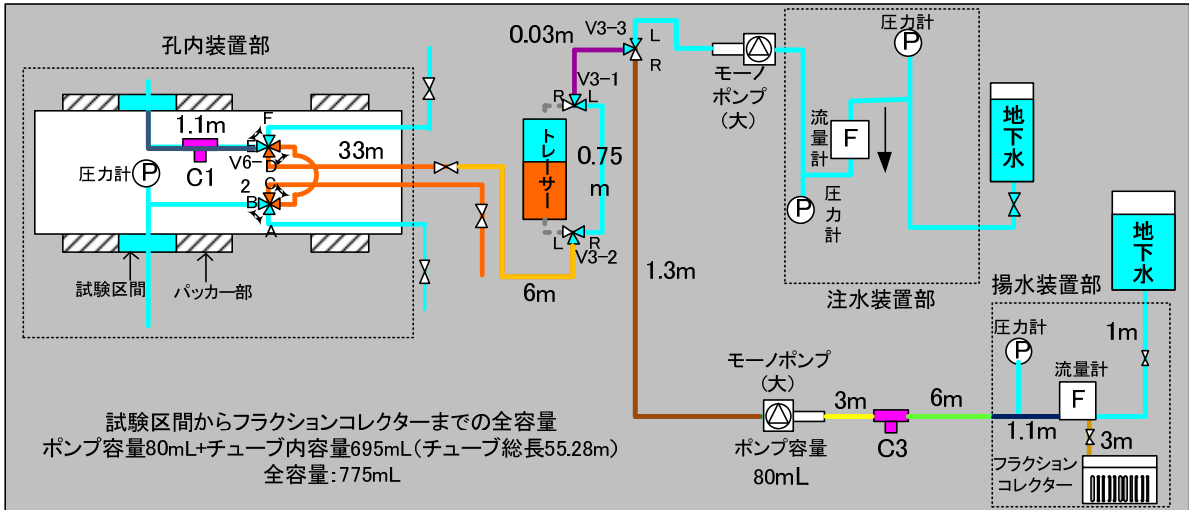
表 6.4.5-4 試験区間からフラクシオンコレクターまでの容量

試験名	試験区間から フラクシオンコレクター までの容量(mL)	チューブ容量(mL) (チューブ長さ(m))	ポンプ容量(mL)
15S31M1 15S31M2	863	783 (62.28)	80
15S31M3	775	695 (55.28)	80
15S37T4~15S37T 8 15S37M9~15S37M13	815	735 (58.45)	80

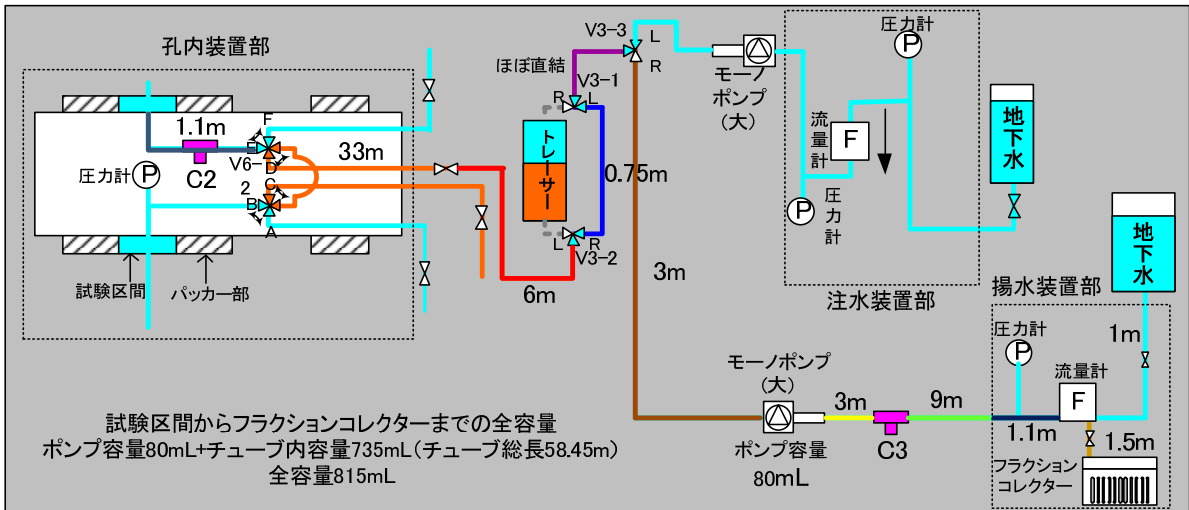
\*試験区間からフラクシオンコレクターまでの容量 = チューブ容量 + ポンプ容量



15S31M1、15S31M2 における試験区間からフラクションコレクターまでの全容量



15S31M3 における試験区間からフラクションコレクターまでの全容量



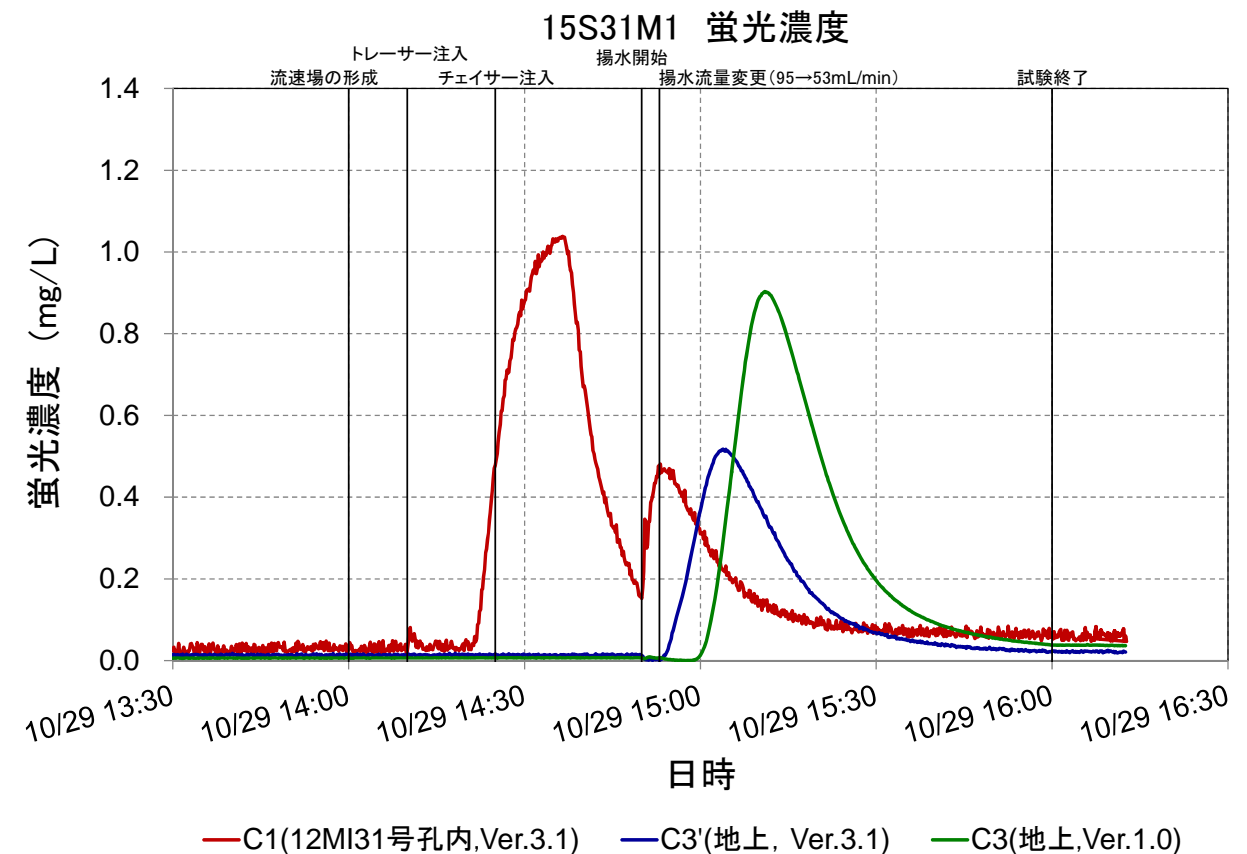
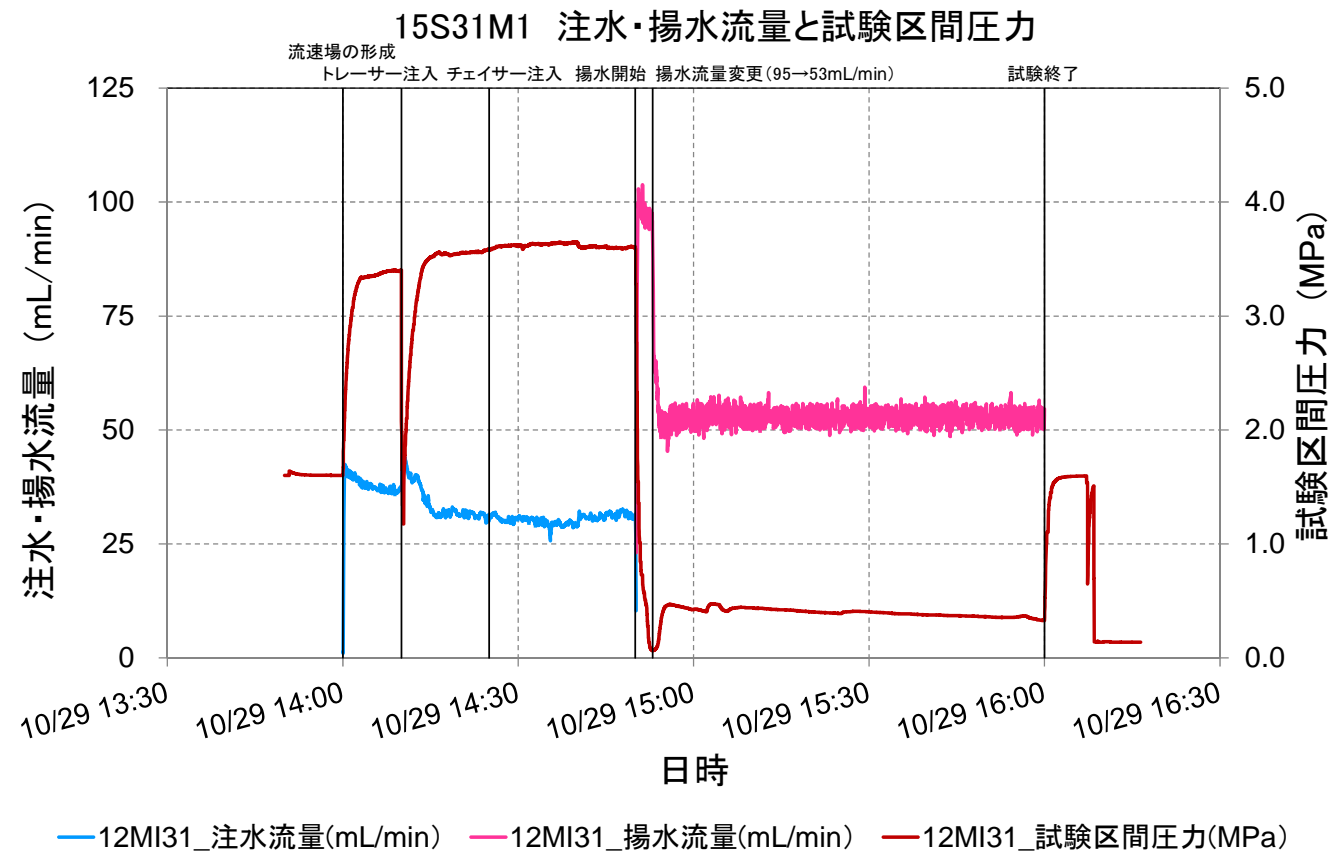
15S37T4~15S37T8、15S37M9~15S37 M13 における試験区間からフラクションコレクターまでの全容量

図 6. 4. 5-2 各試験ケースにおける試験区間からフラクションコレクターまでの全容量

(2) 試験結果

各試験条件における試験結果について、蛍光濃度センサーで計測したウラニンの濃度変化と、試験対象区間の間隙水圧変化を図 6.4.5-3～図 6.4.5-15 に示す。なお、間隙水圧や流量のデータの振幅はモータポンプの脈動によるものである。





\*現地の蛍光分光光度計で計測していないためフィッティングはしていない。

15S31M1\_試験条件

対象孔-区間		12MI31 - D1	
試験名		15S31M1	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	10/29 14:10	
	終了 (計測終了)	10/29 16:00	
	実施時間	1:50	
使用したトレーサー		ウラニン	
蛍光濃度センサー	C1 (12MI31 号孔内)	Ver. 3. 1	
	C3' (地上)	Ver. 3. 1	
	C3 (地上)	Ver. 1	
試験条件	注水流量	mL/min	33. 4
	揚水流量	mL/min	54. 6
	トレーサー注入	min	15
	チェイサー注入	min	25
	トレーサー回収 (揚水)	min	70
	待機	min	0

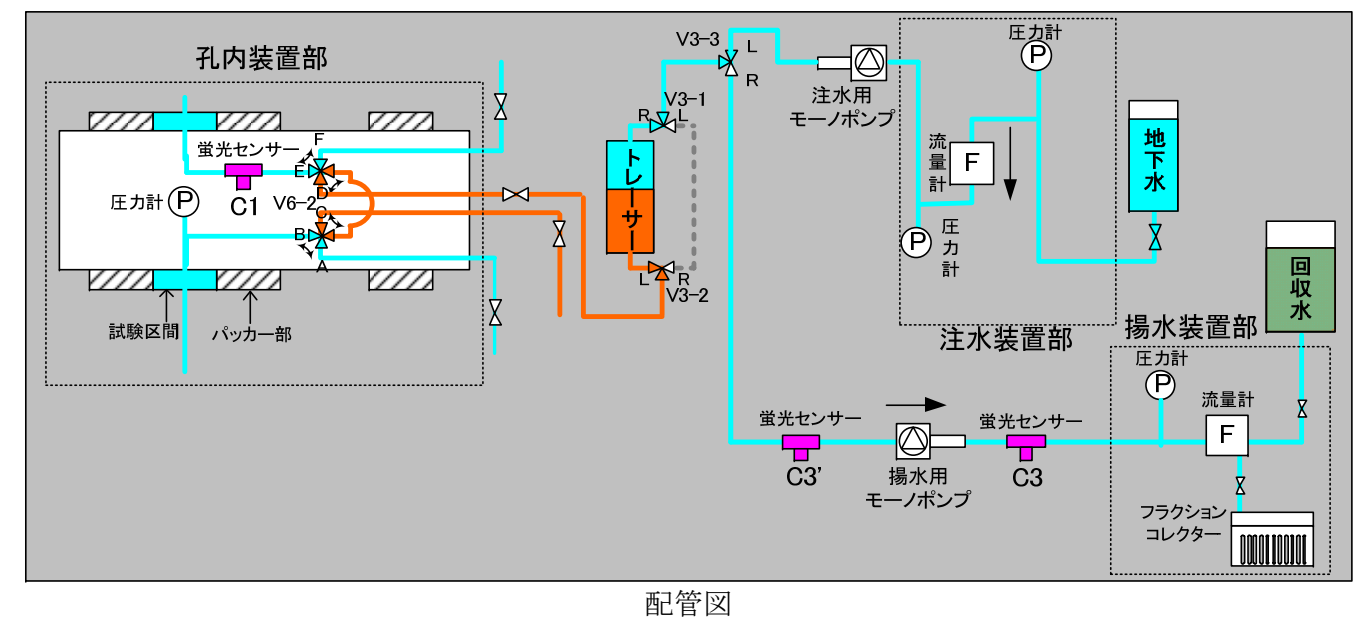
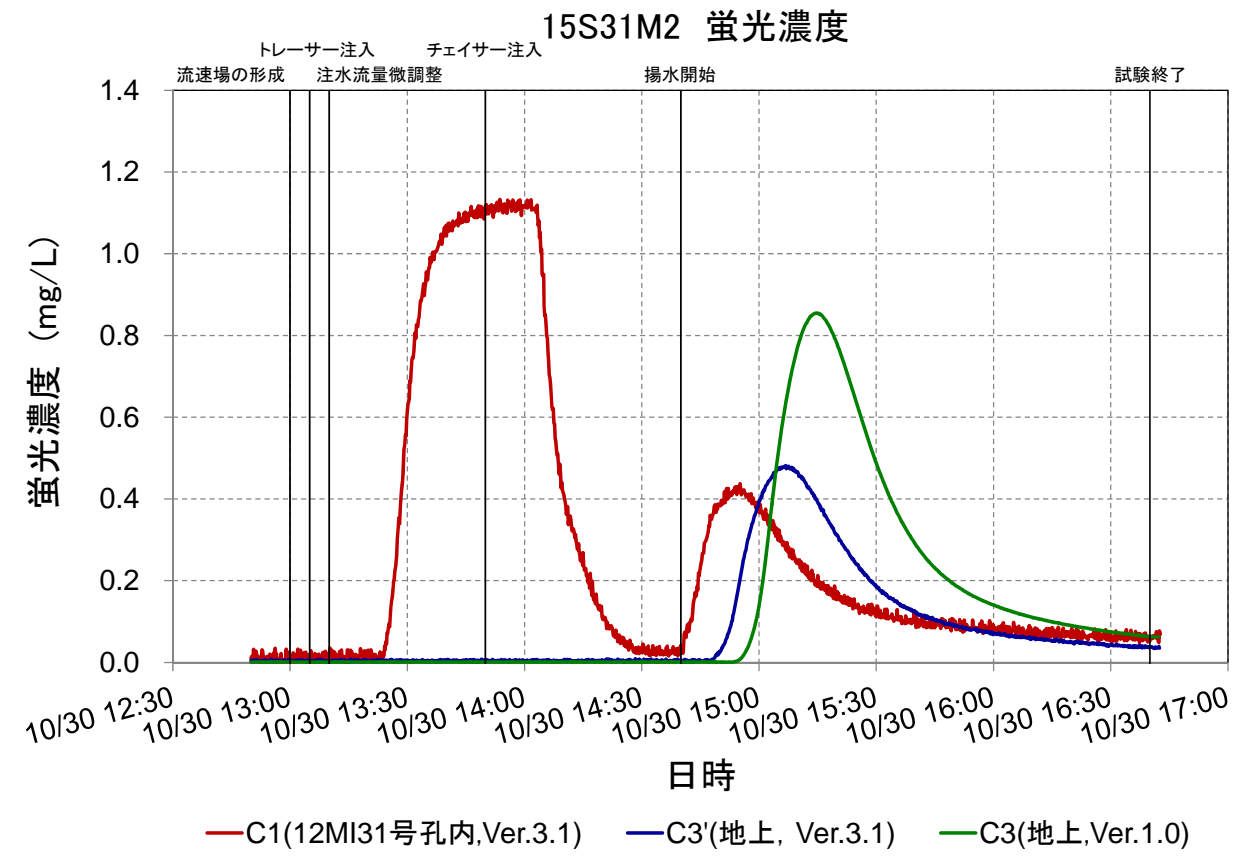
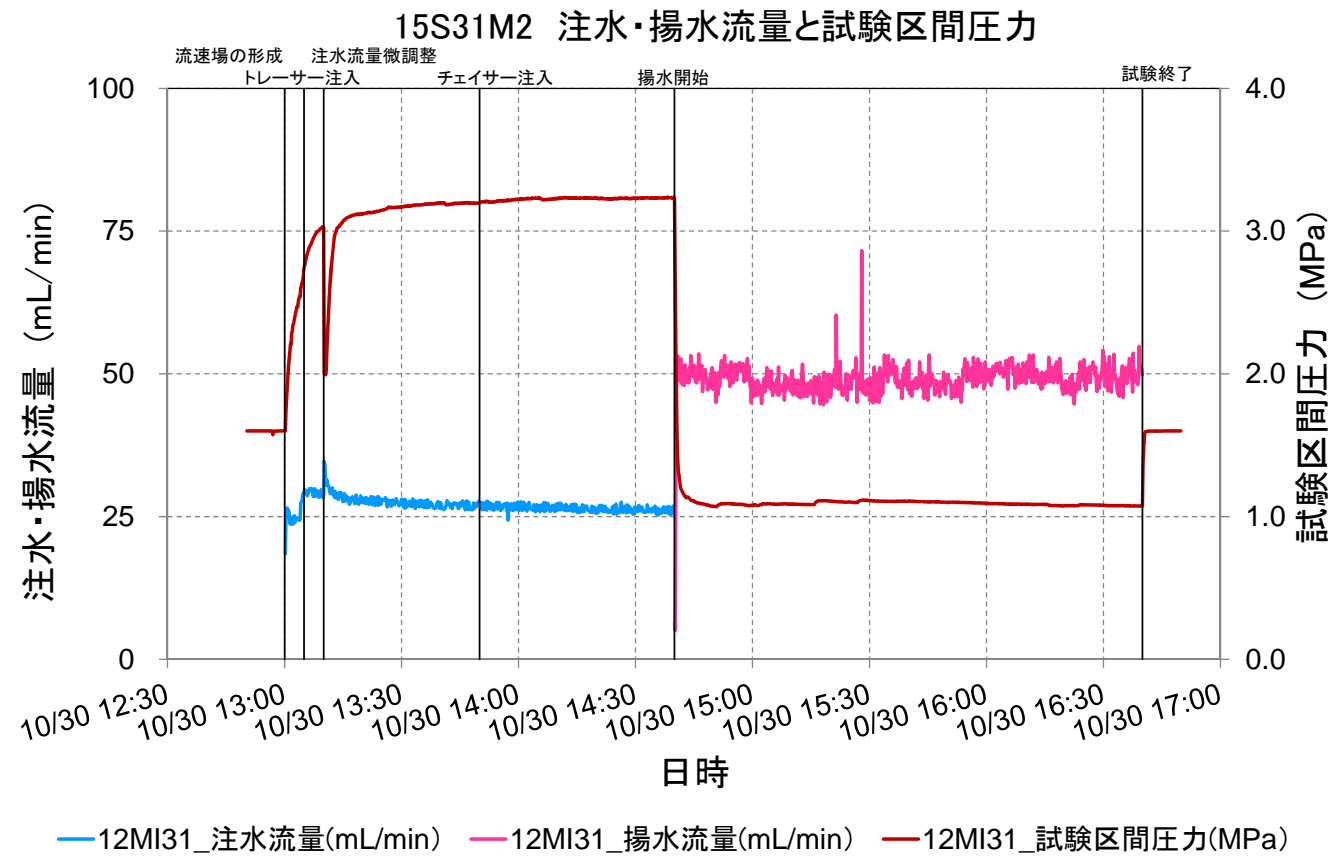


図 6. 4. 5-3 15S31M1\_単孔トレーサー試験結果



\*現地の蛍光分光光度計で計測していないためフィッティングはしていない。

15S31M2\_試験条件

対象孔-区間		12MI31 - D1	
試験名		15S31M2	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	10/30 13:10	
	終了 (計測終了)	10/30 16:40	
	実施時間	3:30	
使用したトレーサー		ウラン、アミノ G 酸 $\delta D$ 、 $I^-$ 、 $Rb^+$ 、 $Ba^{2+}$	
蛍光濃度センサー	C1 (12MI31 号孔内)	Ver. 3.1	
	C3' (地上)	Ver. 3.1	
	C3 (地上)	Ver. 1	
試験条件	注水流量	mL/min	27.6
	揚水流量	mL/min	49.0
	トレーサー注入	min	40
	チェイサー注入	min	50
	トレーサー回収 (揚水)	min	120
	待機	min	0

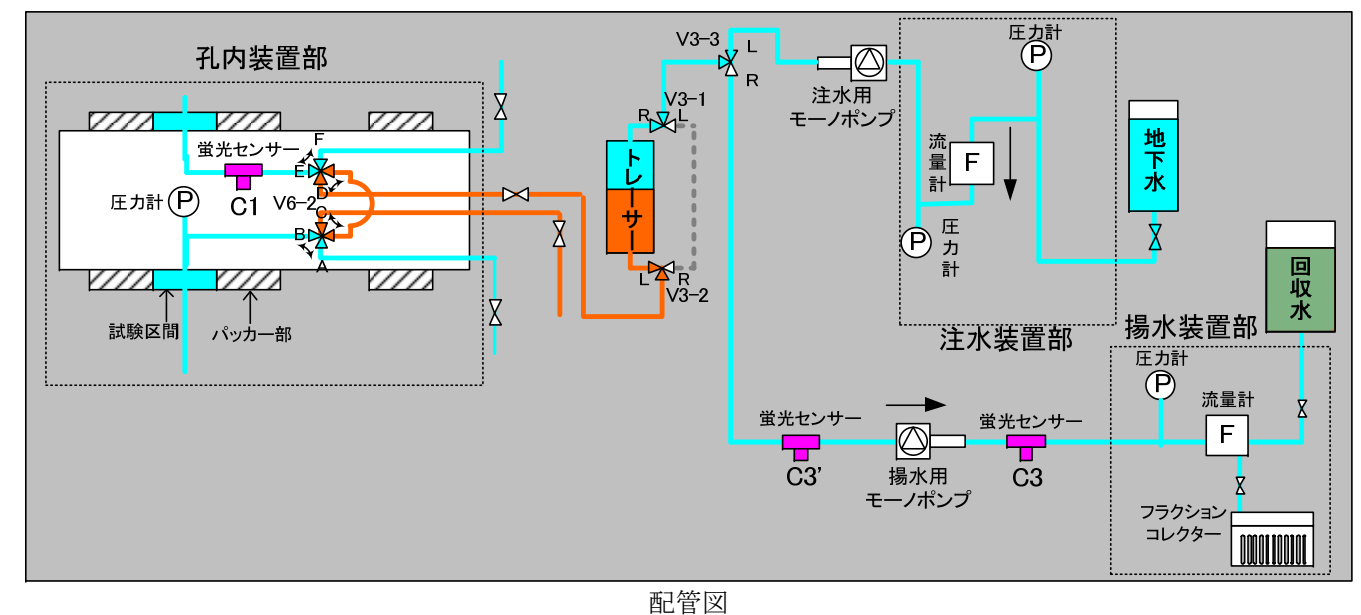
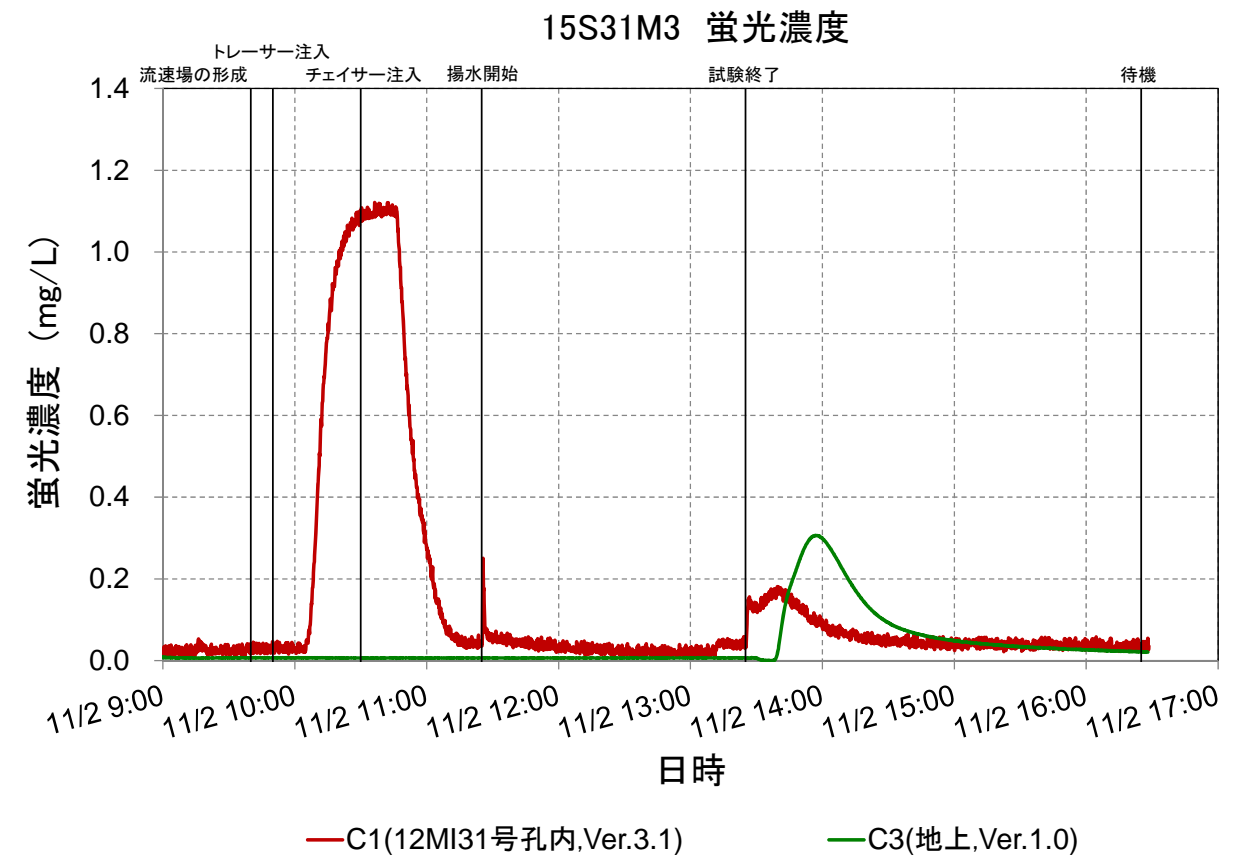
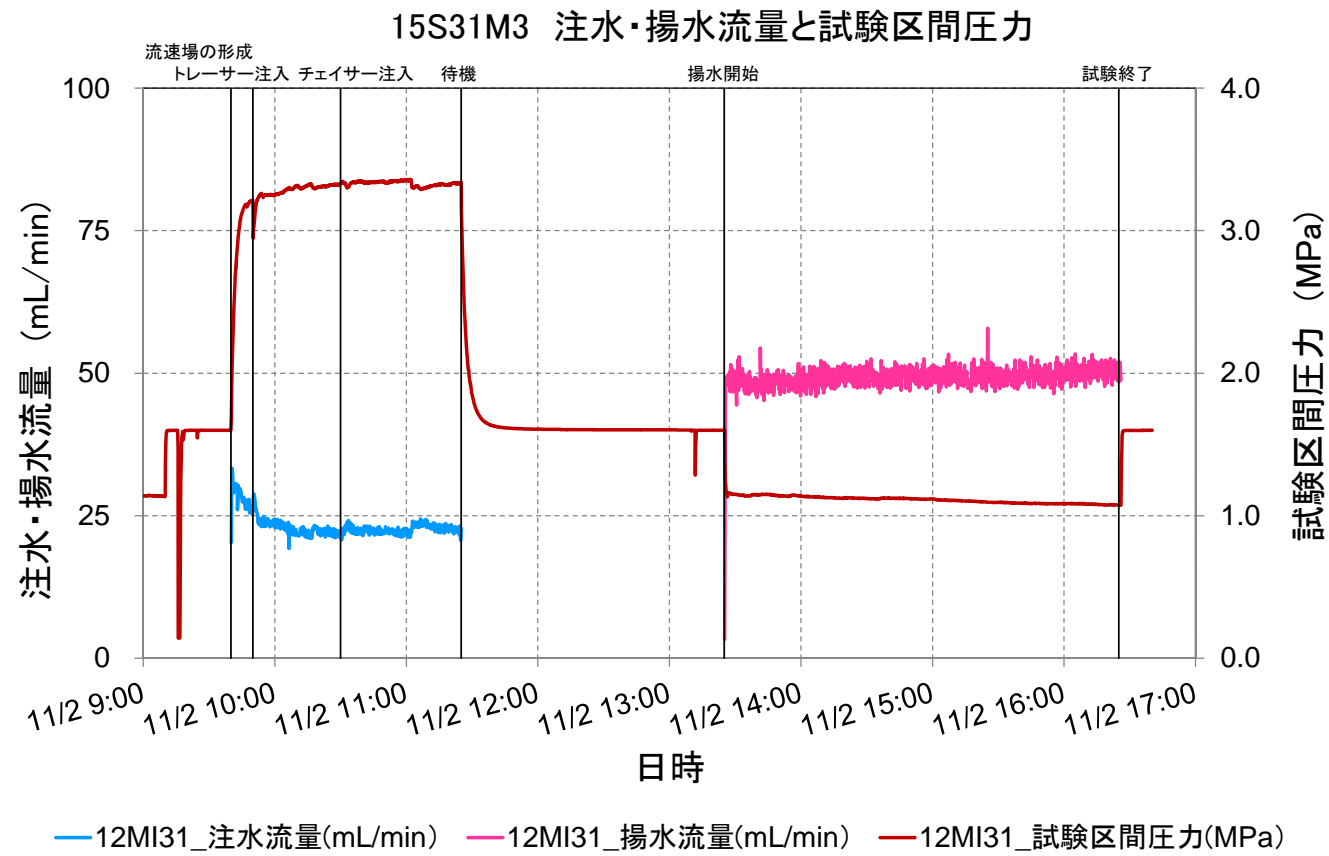


図 6. 4. 5-4 15S31M2\_単孔トレーサー試験結果



\*現地の蛍光分光光度計で計測していないためフィッティングはしていない。

15S31M3\_試験条件

対象孔-区間		12MI31 - D1	
試験名		15S31M3	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	11/2 9:50	
	終了 (計測終了)	11/2 16:25	
	実施時間	6:35	
使用したトレーサー		ウラン、アミノ G 酸 $\delta D$ 、 $I^-$ 、 $Rb^+$ 、 $Ba^{2+}$	
蛍光濃度センサー	C1 (12MI31 号孔内)	Ver. 3. 1	
	C3 (地上)	Ver. 1	
試験条件	注水流量	mL/min	22. 9
	揚水流量	mL/min	49. 3
	トレーサー注入	min	40
	チェイサー注入	min	55
	トレーサー回収 (揚水)	min	180
	待機	min	120

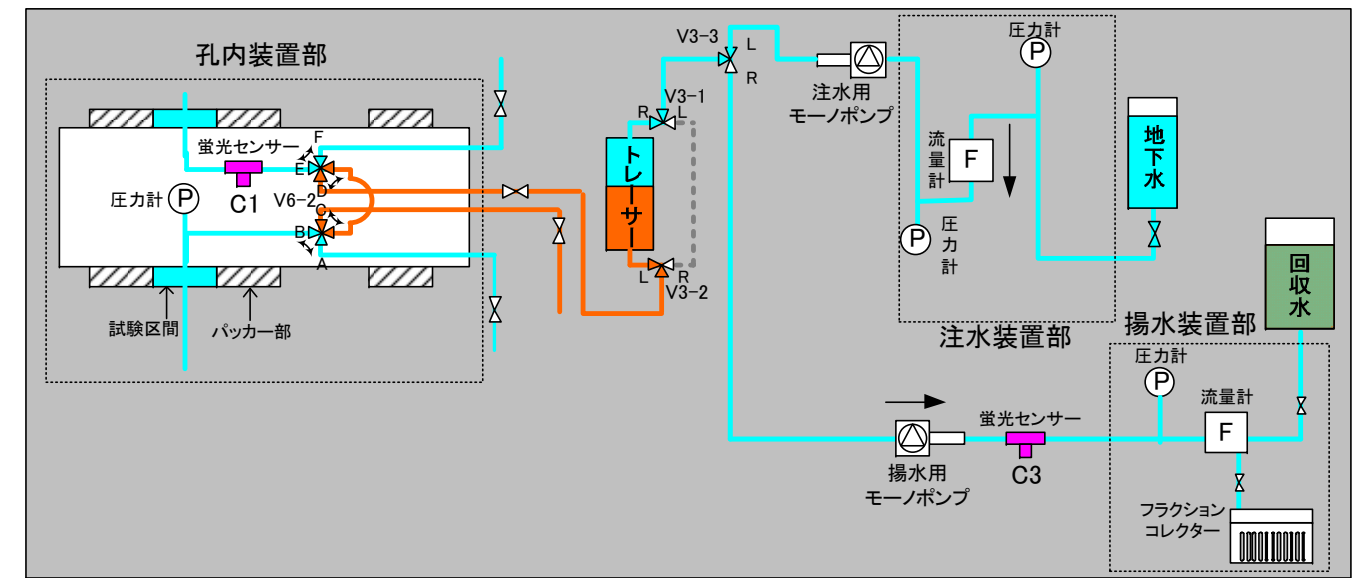
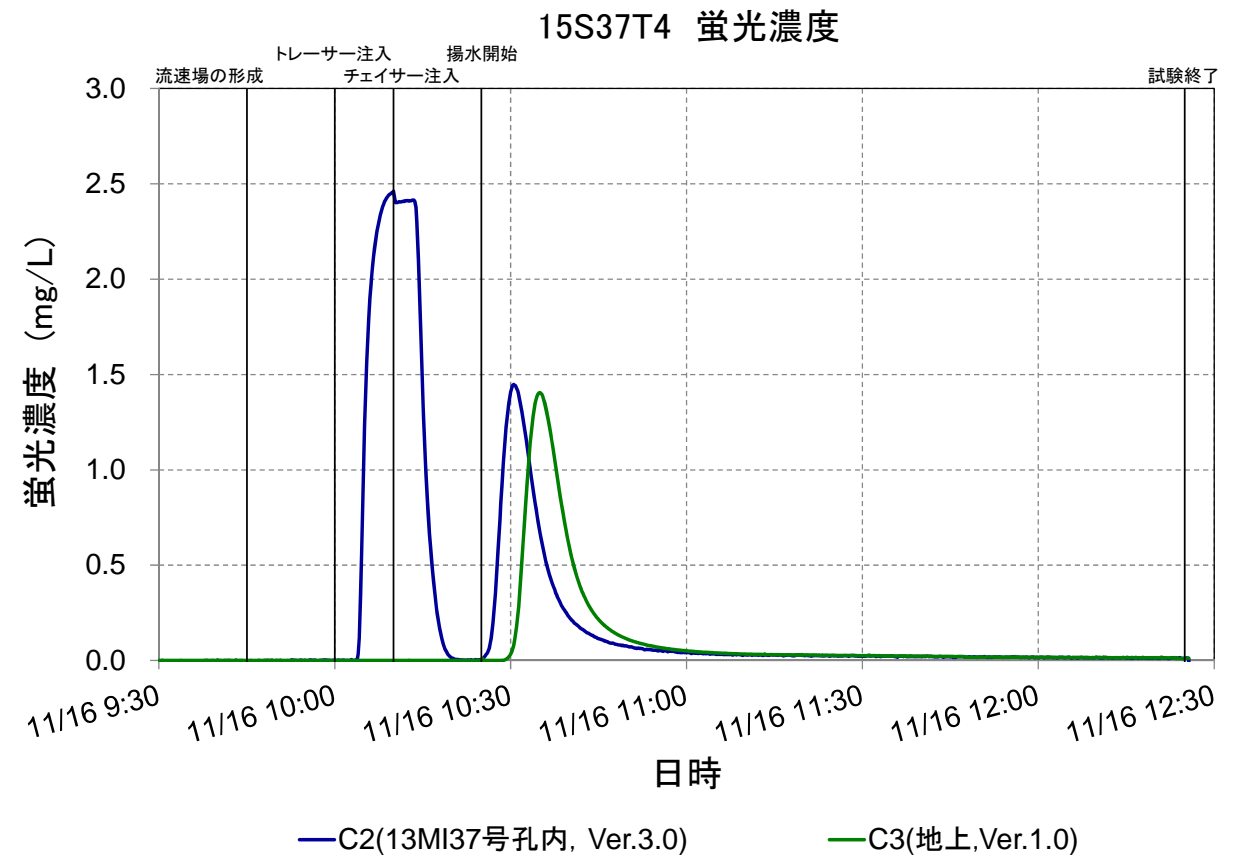
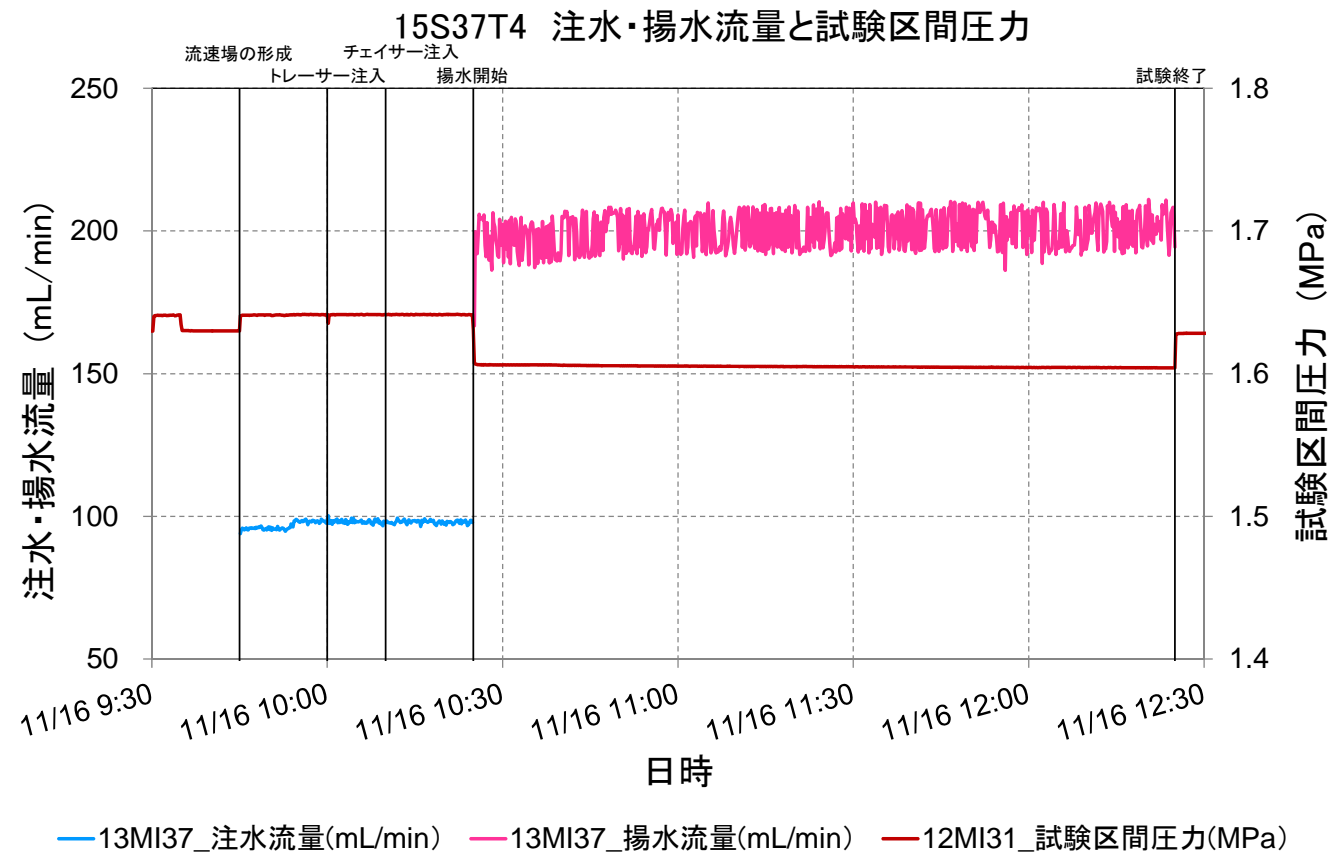


図 6. 4. 5-5 15S31M3\_単孔トレーサー試験結果



対象孔-区間		12MI37 - D1	
試験名		15S37T4	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	11/16 10:00	
	終了 (計測終了)	11/16 12:25	
	実施時間	2:25	
使用したトレーサー		ウラニン	
蛍光濃度センサー	C2 (13MI37 号孔内)	Ver. 3.0	
	C3 (地上)	Ver. 1	
試験条件	注水流量	mL/min	98.2
	揚水流量	mL/min	200
	トレーサー注入	min	10
	チェイサー注入	min	15
	トレーサー回収 (揚水)	min	120
	待機	min	0

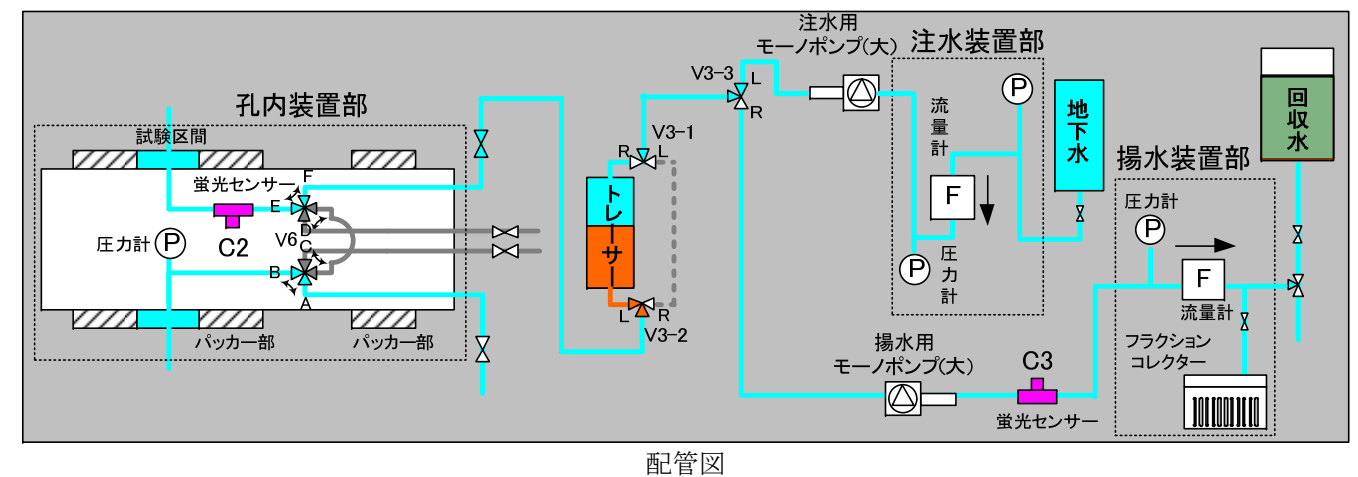
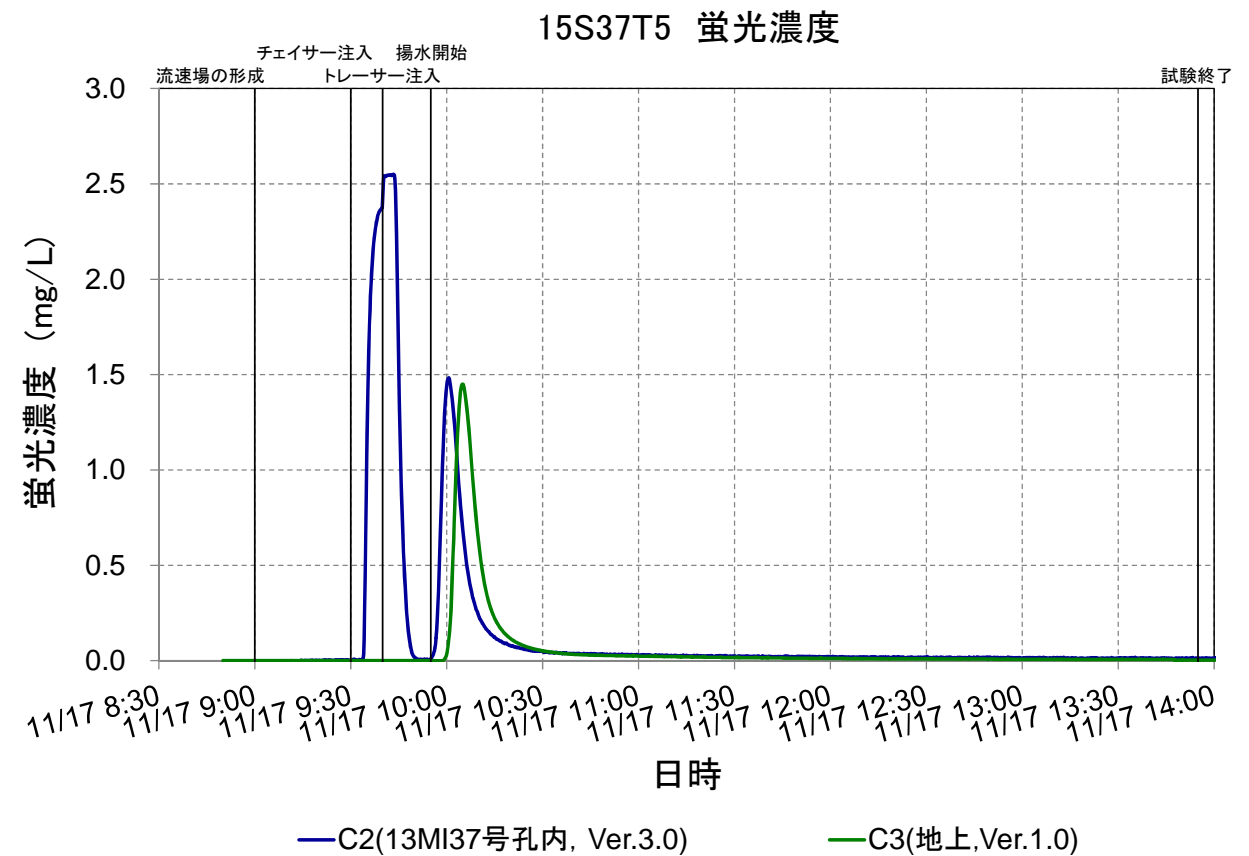
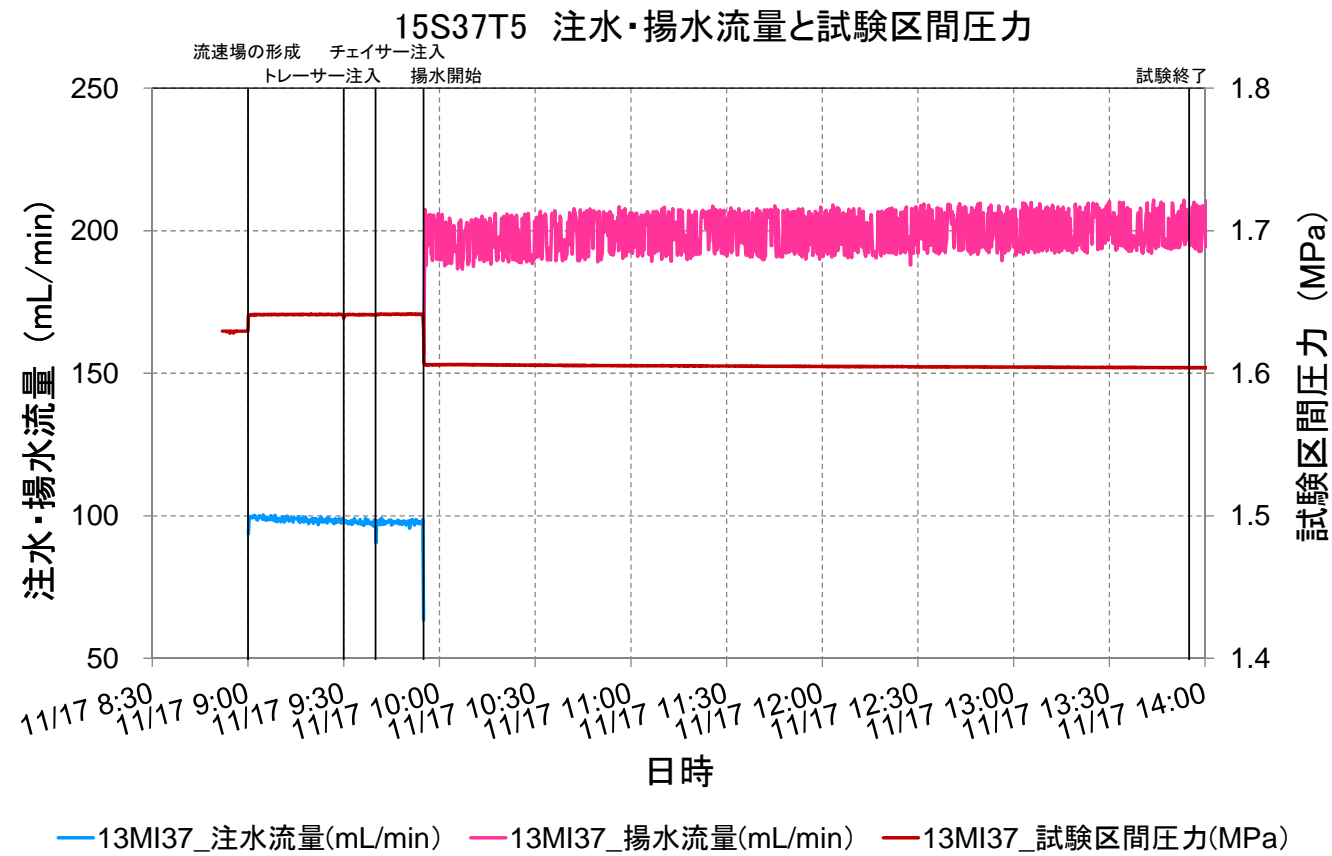


図 6. 4. 5-6 15S37T4\_単孔トレーサー試験結果



15S37T5_試験条件			
対象孔-区間		12MI37 - D1	
試験名		15S37T5	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	11/17 9:30	
	終了 (計測終了)	11/17 13:55	
	実施時間	4:25	
使用したトレーサー		ウラニン	
蛍光濃度センサー	C2 (13MI37 号孔内)	Ver. 3.0	
	C3 (地上)	Ver. 1	
試験条件	注水流量	mL/min	97.7
	揚水流量	mL/min	199
	トレーサー注入	min	10
	チェイサー注入	min	15
	トレーサー回収 (揚水)	min	240
	待機	min	0

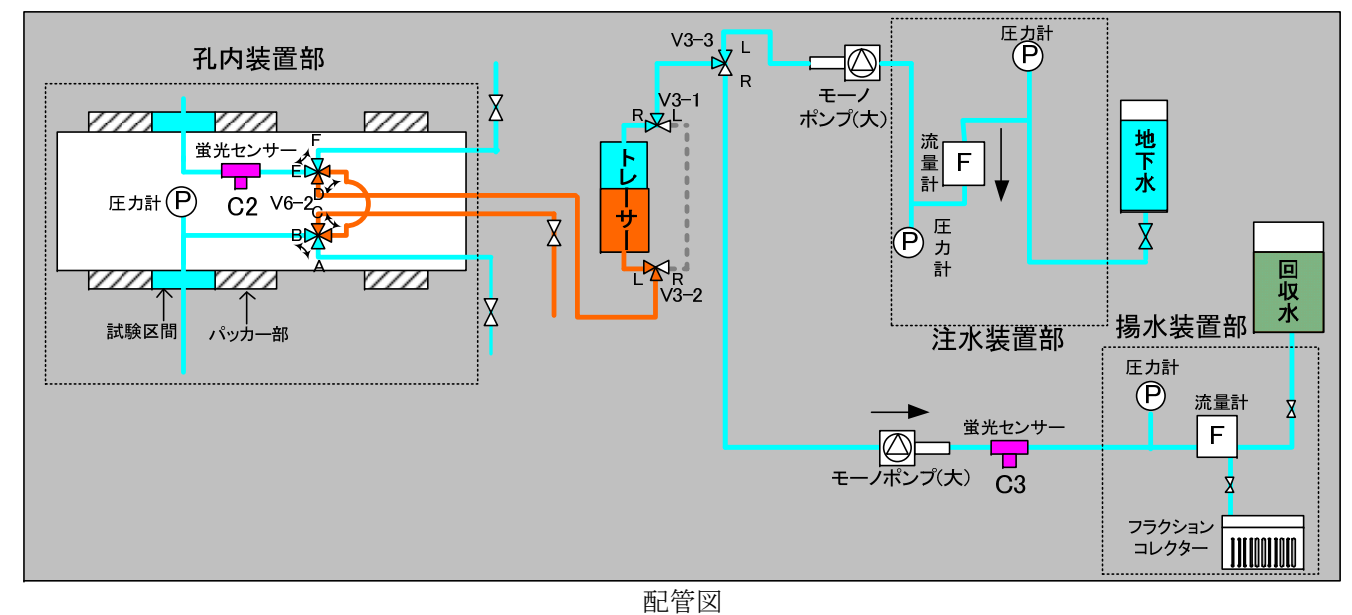
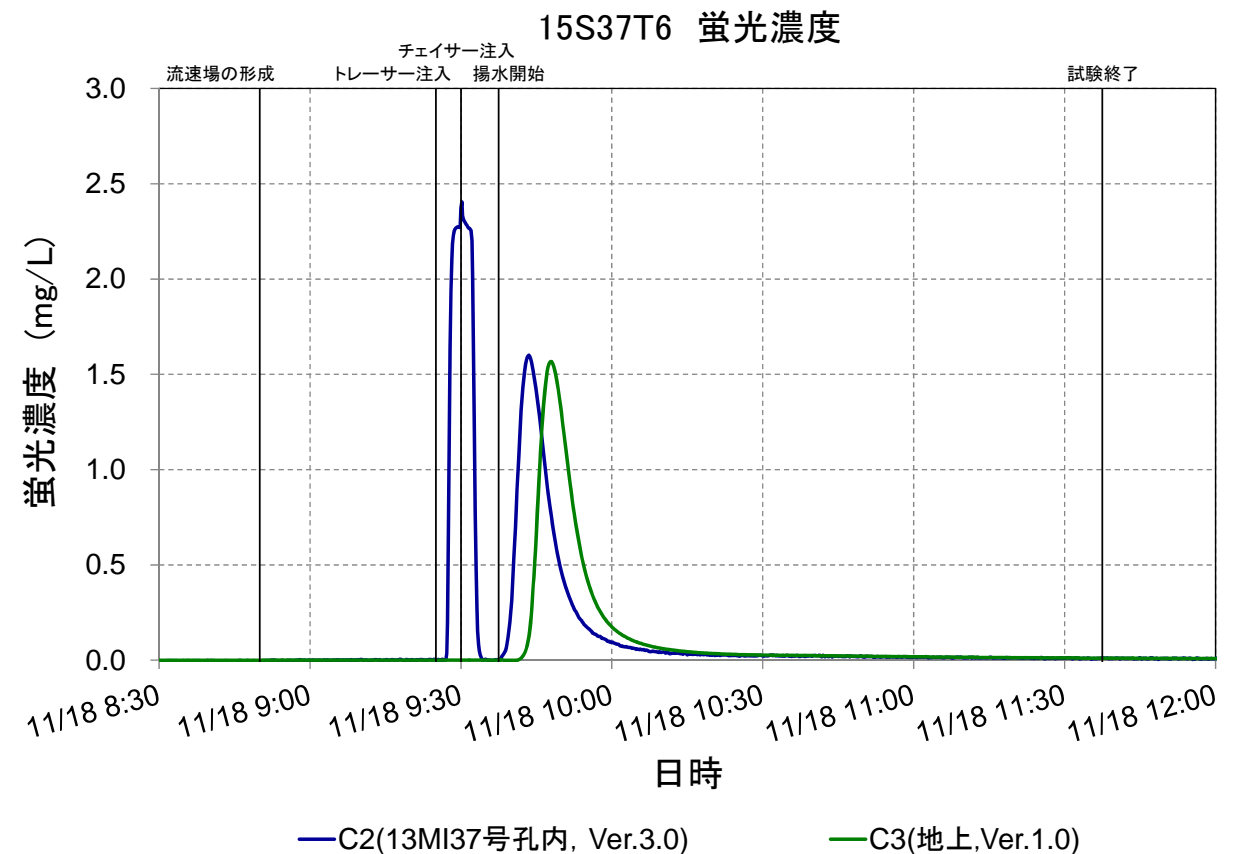
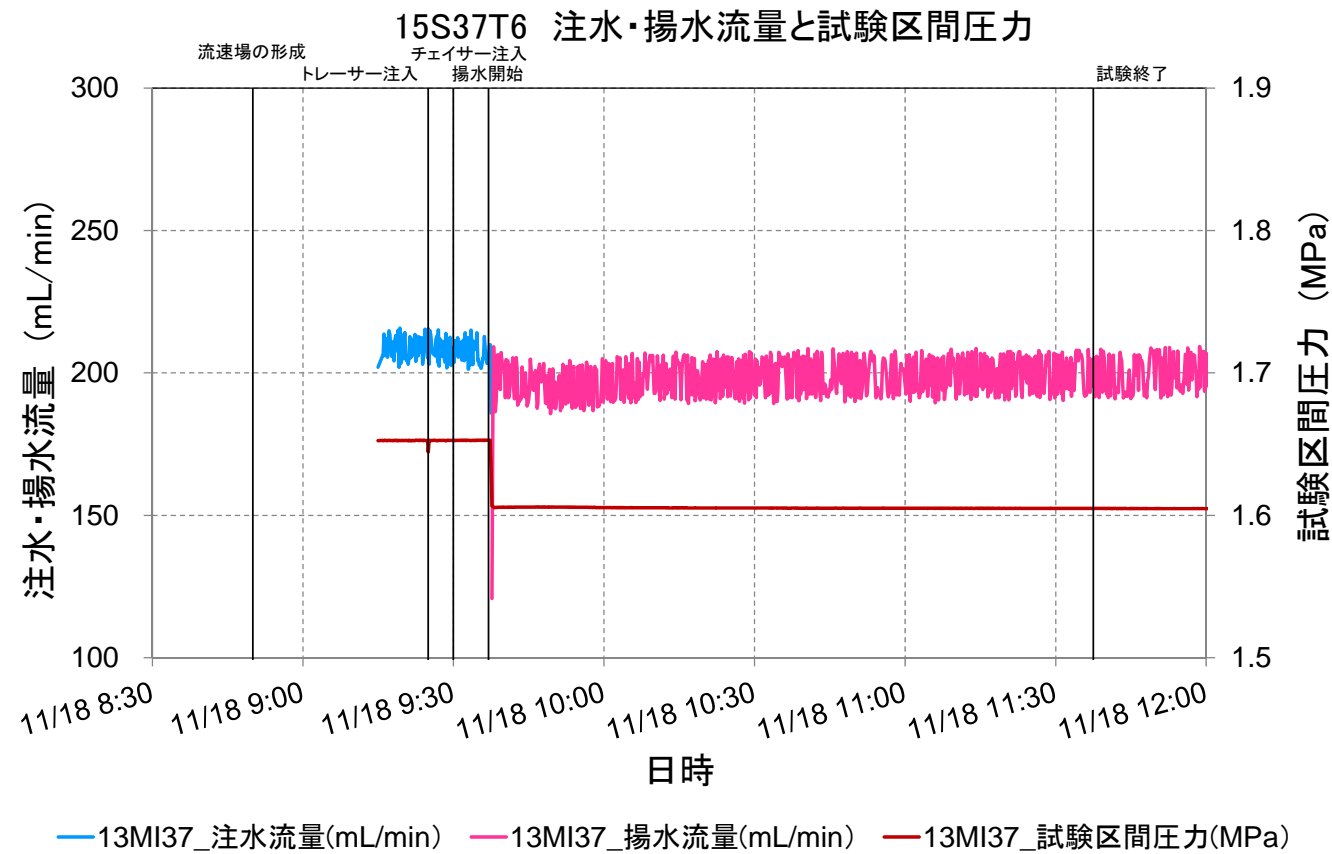


図 6.4.5-7 15S37T5\_単孔トレーサー試験結果



15S37T6_試験条件			
対象孔-区間		12MI37 - D1	
試験名		15S37T6	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	11/18 9:25	
	終了 (計測終了)	11/18 11:37:30	
	実施時間	2:12:30	
使用したトレーサー		ウラニン	
蛍光濃度センサー	C2 (13MI37 号孔内)	Ver. 3.0	
	C3 (地上)	Ver. 1	
試験条件	注水流量	mL/min	208
	揚水流量	mL/min	199
	トレーサー注入	min	5
	チェイサー注入	min	7.5
	トレーサー回収 (揚水)	min	120
	待機	min	0

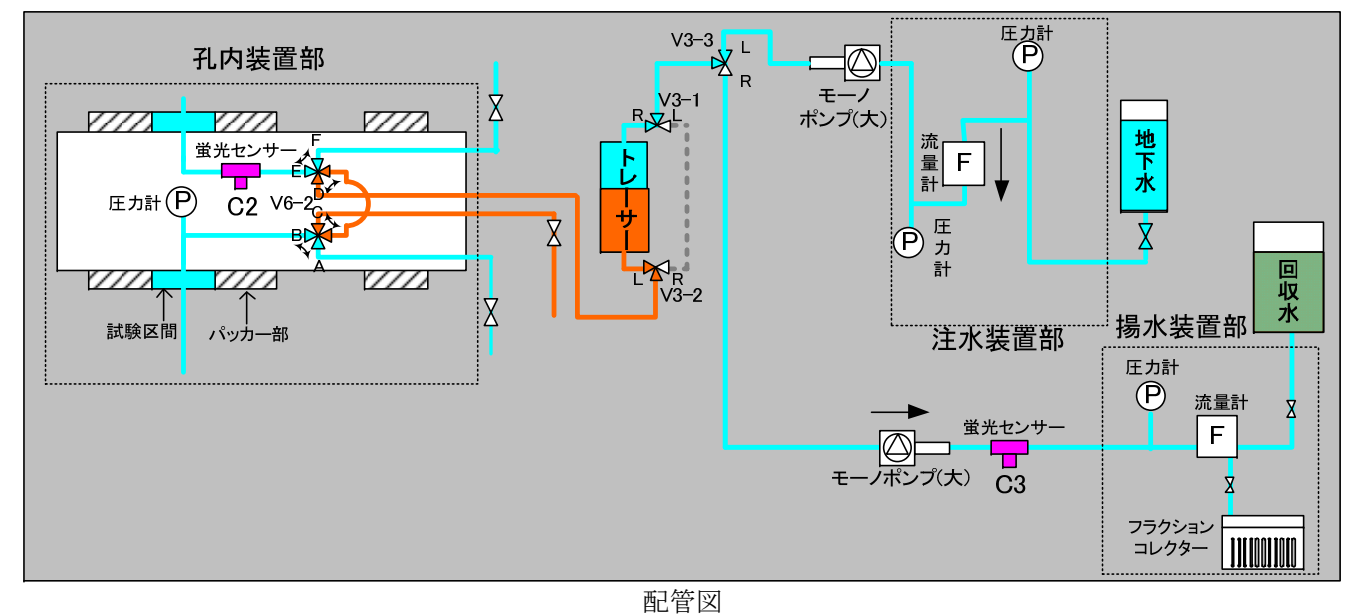
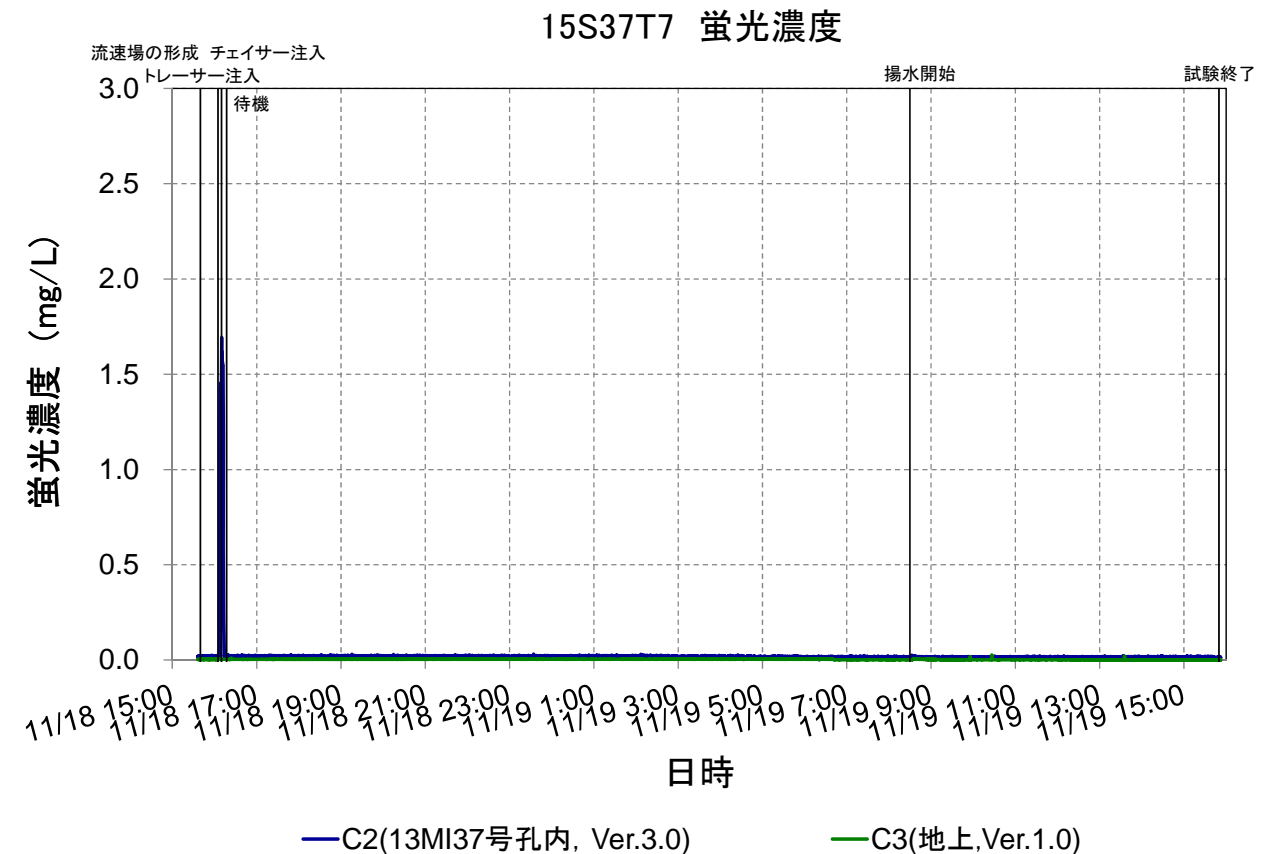
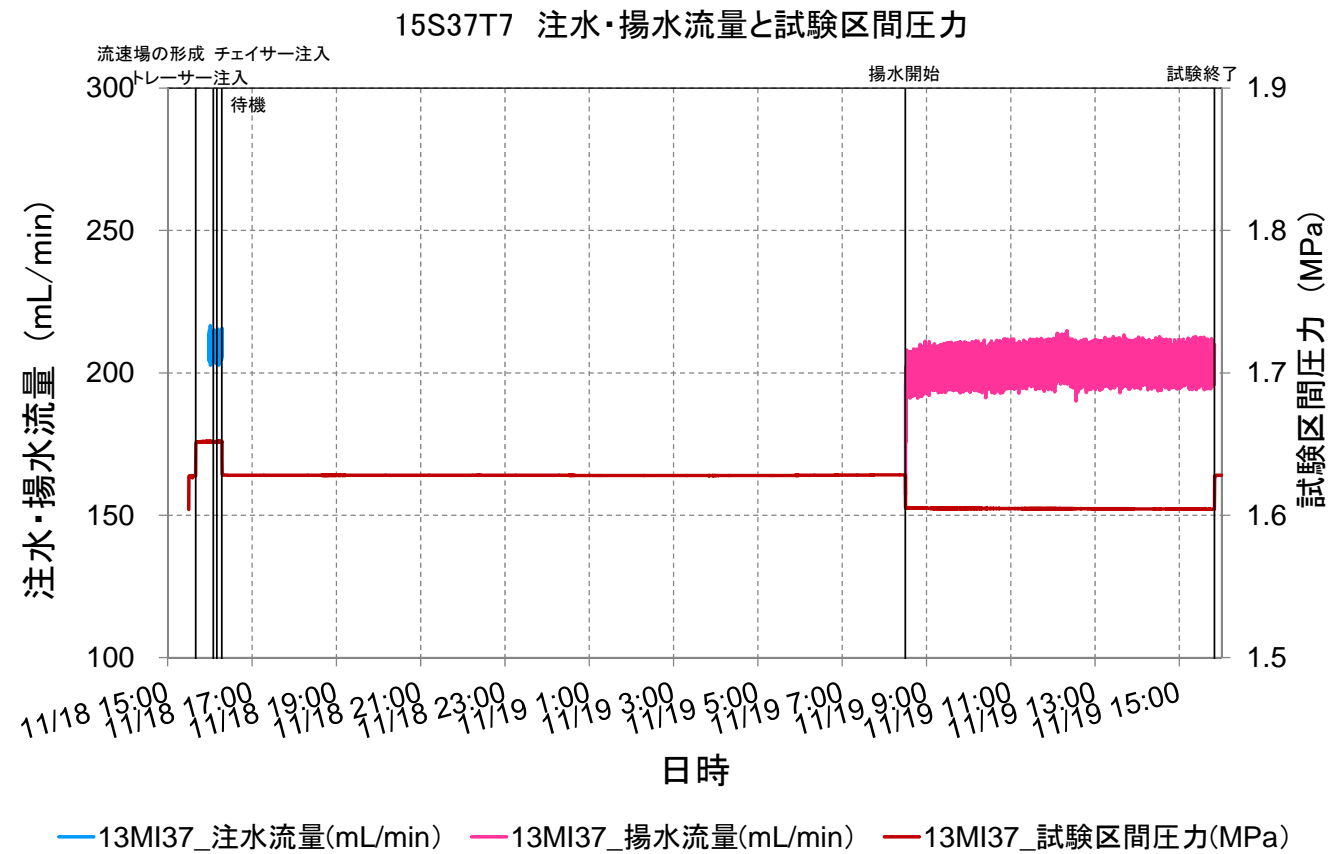


図 6.4.5-8 15S37T6\_単孔トレーサー試験結果



\*蛍光濃度センサー、蛍光分光光度計ともに明確な破過曲線が得られなかったためフィッティングしていない。

15S37T7\_試験条件

対象孔-区間		12MI37 - D1	
試験名		15S37T7	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	11/18 16:05	
	終了 (計測終了)	11/19 15:50	
	実施時間	23:45	
使用したトレーサー		ウラン、アミノ G 酸 $\delta D$ 、 $I^-$ 、 $Rb^+$ 、 $Ba^{2+}$	
蛍光濃度センサー	C2(13MI37号孔内)	Ver. 3.0	
	C3(地上)	Ver. 1	
試験条件	注水流量	mL/min	208
	揚水流量	mL/min	203
	トレーサー注入	min	5
	チェイサー注入	min	7.5
	トレーサー回収 (揚水)	min	440
	待機	min	962.5

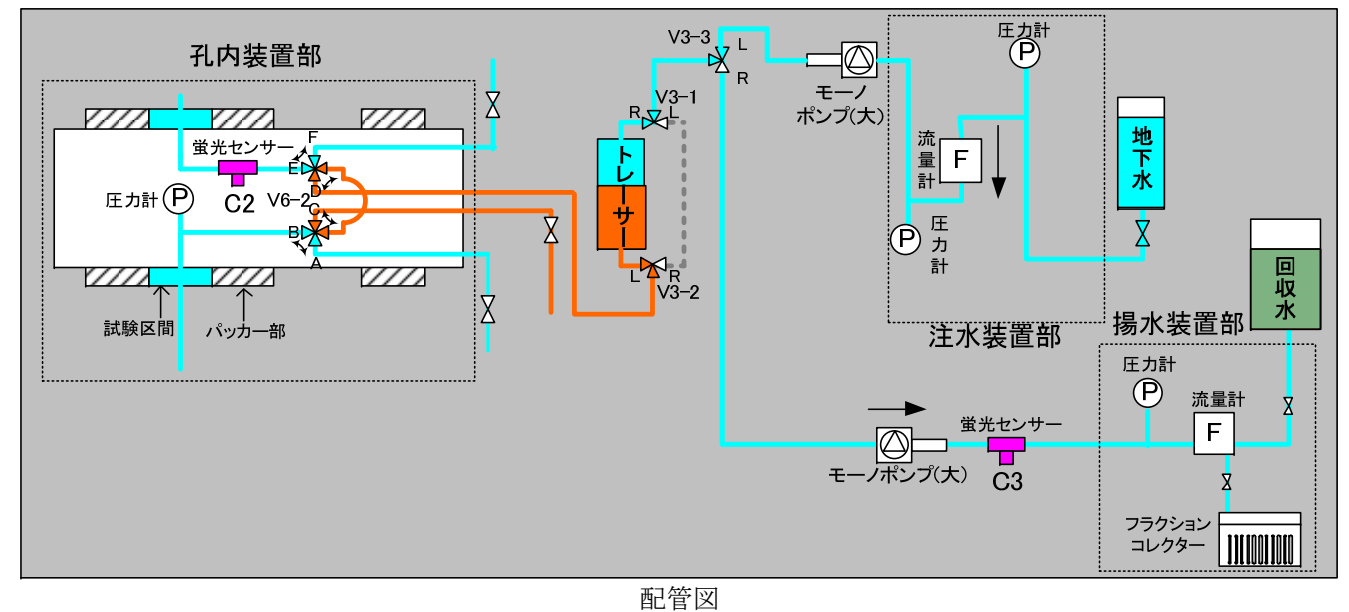
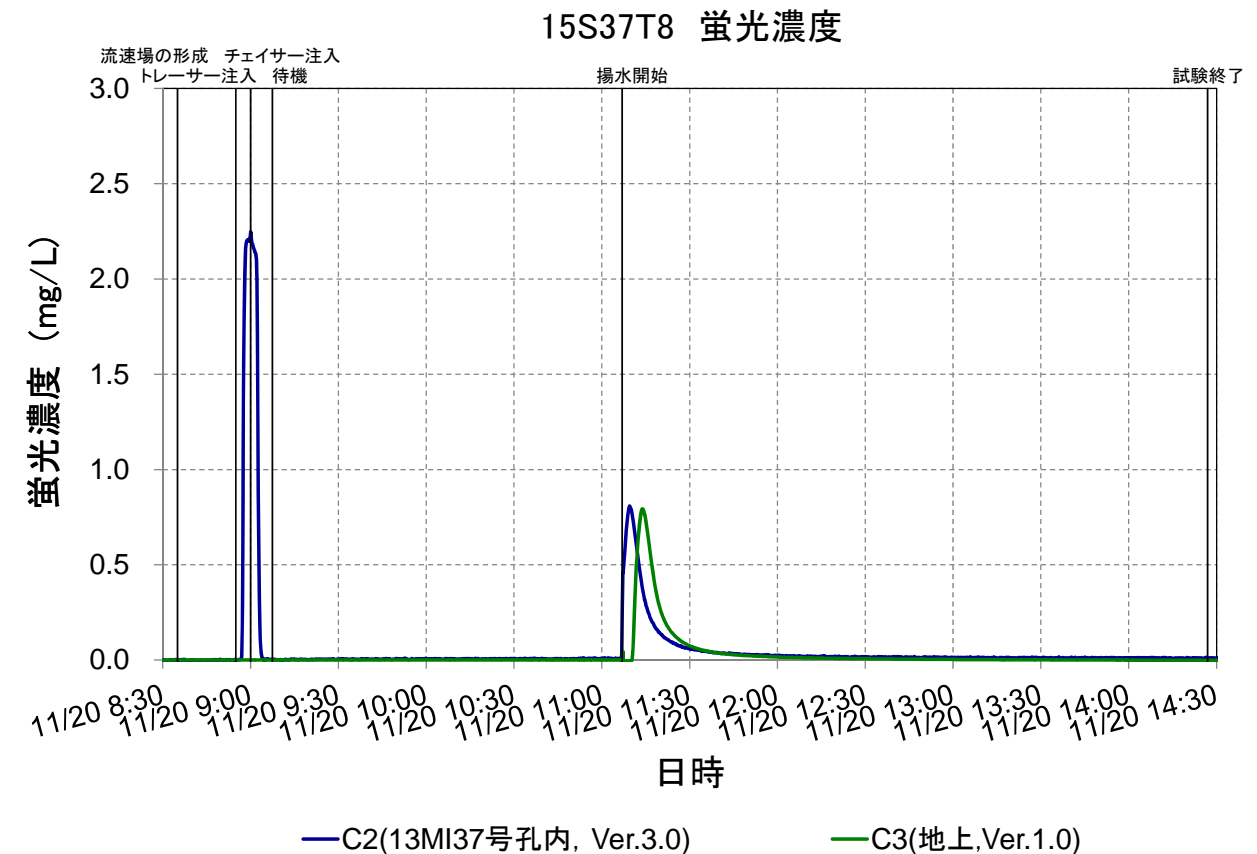
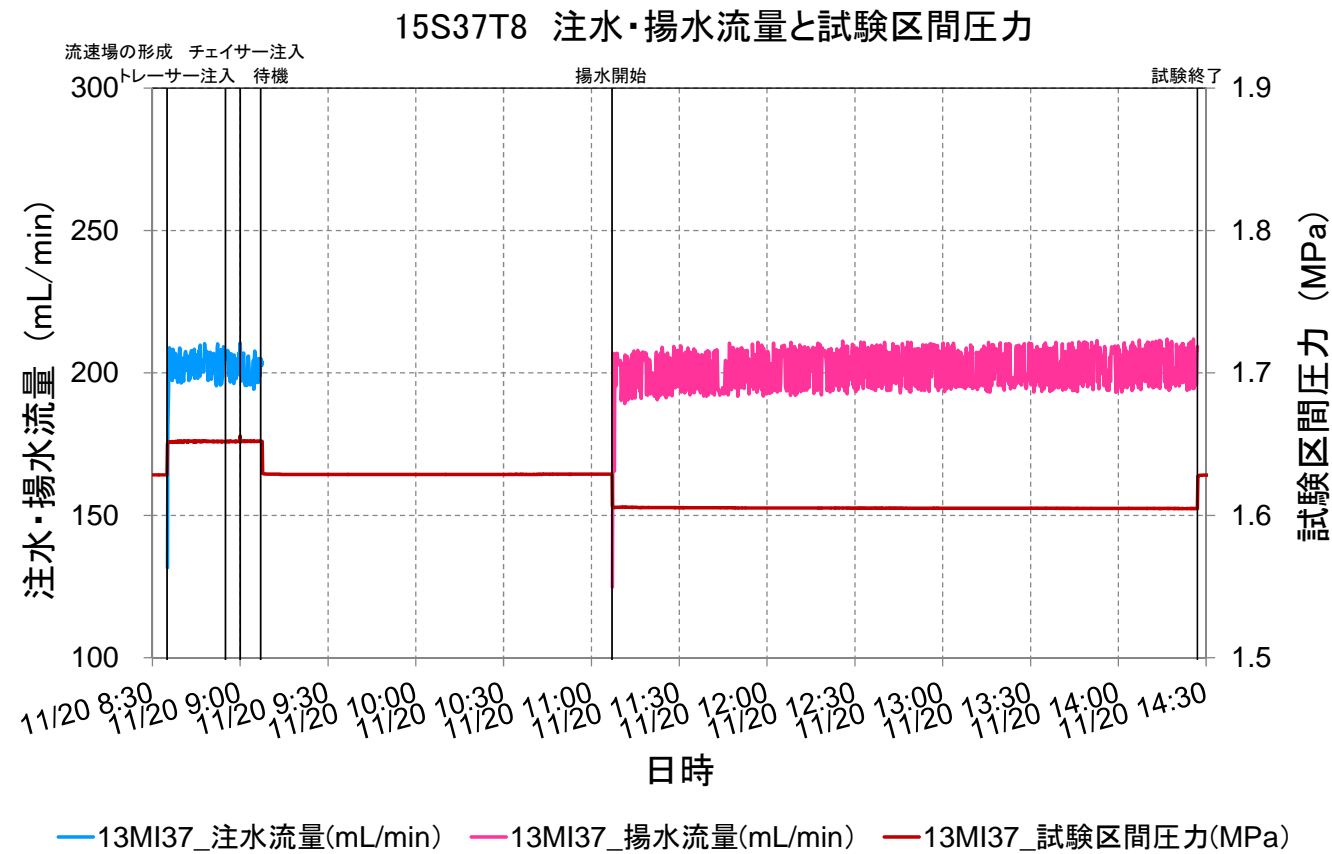


図 6.4.5-9 15S37T7\_単孔トレーサー試験結果



15S37T8_試験条件		
対象孔-区間		12MI37 - D1
試験名		15S37T8
試験時間	開始 (トレーサー注入)	11/20 8:55
	終了 (計測終了)	11/20 14:27
	実施時間	5:22
使用したトレーサー		ウラニン、アミノ G 酸 $\delta D$ 、 $I^-$ 、 $Rb^+$ 、 $Ba^{2+}$
蛍光濃度センサー	C2 (13MI37 号孔内)	Ver. 3.0
	C3 (地上)	Ver. 1
試験条件	注水流量	mL/min 203
	揚水流量	mL/min 201
	トレーサー注入	min 5
	チェイサー注入	min 7.5
	トレーサー回収 (揚水)	min 200
	待機	min 120

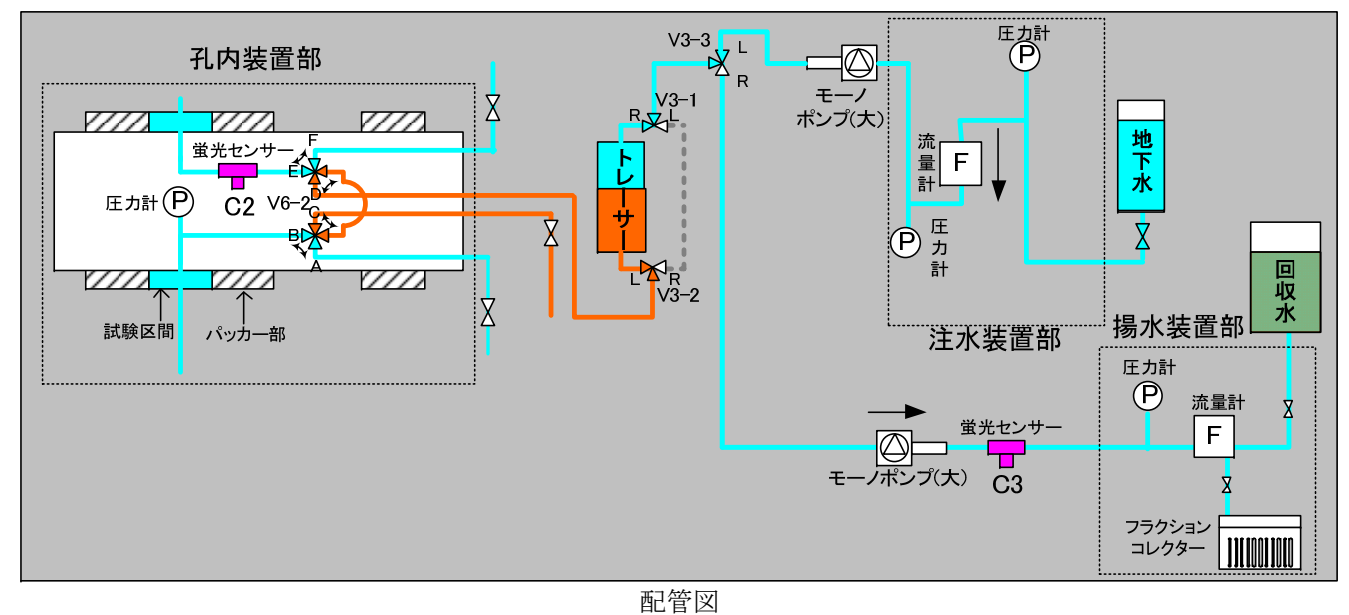
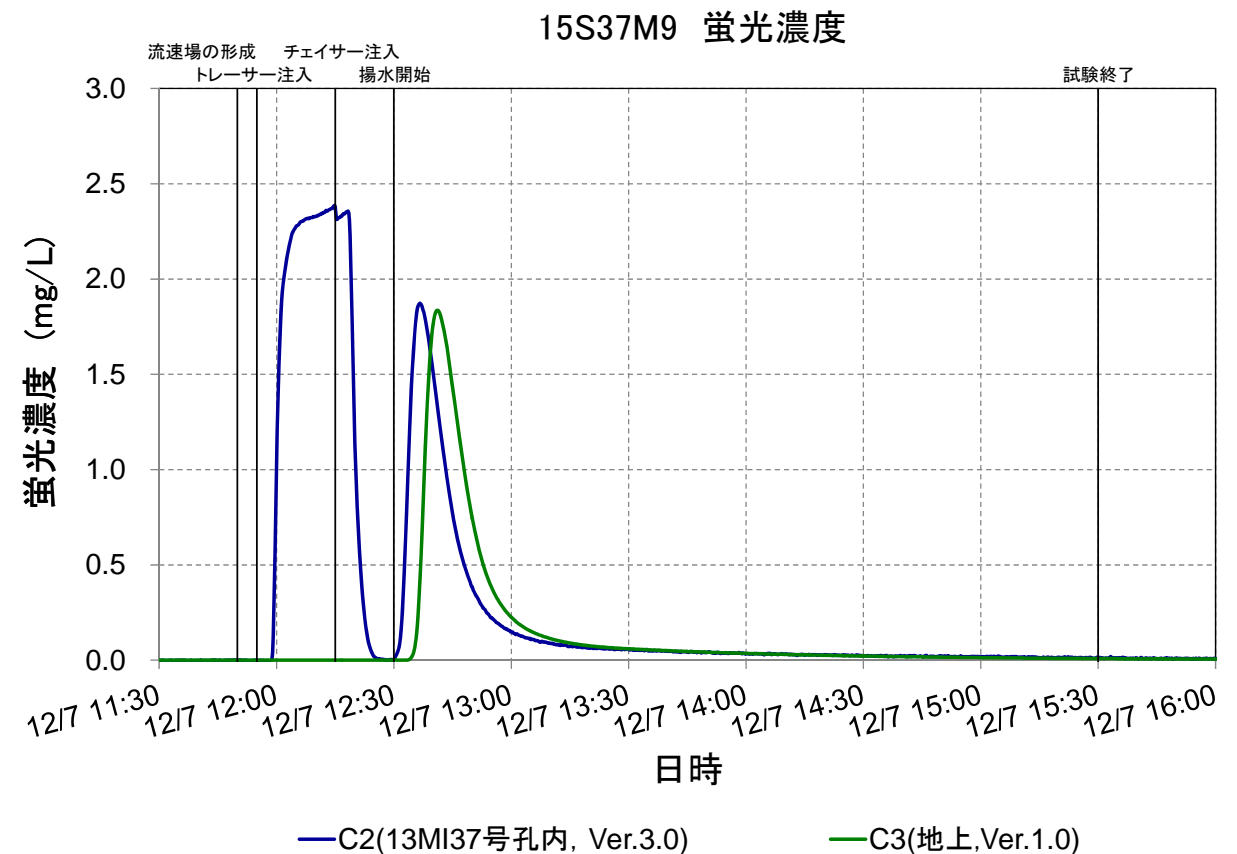
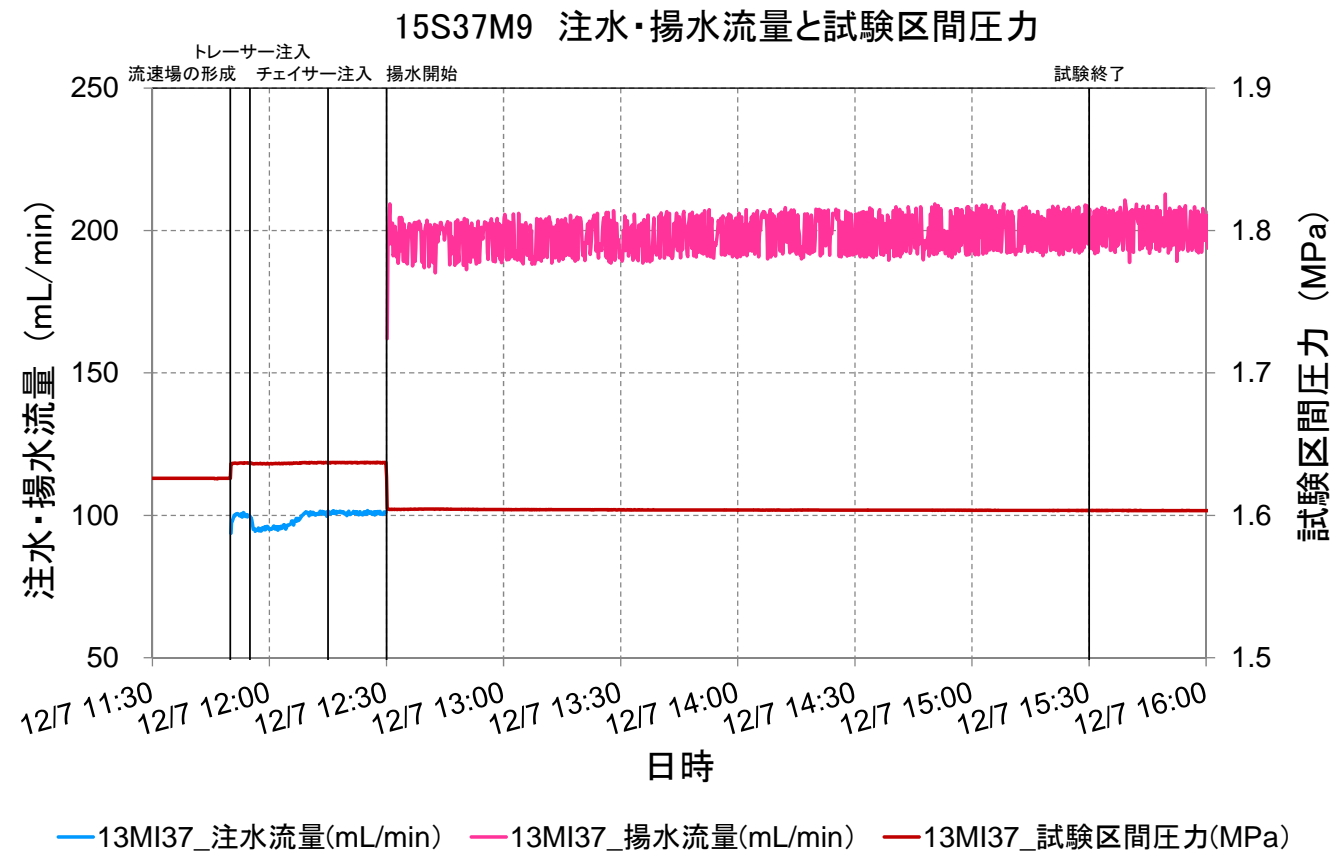


図 6.4.5-10 15S37T8\_単孔トレーサー試験結果





15S37M9_試験条件			
対象孔-区間		12MI37 - D1	
試験名		15S37M9	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	12/7 11:55	
	終了 (計測終了)	12/7 15:30	
	実施時間	3:35	
使用したトレーサー		ウラニン、アミノ G 酸 $\delta D$ 、 $I^-$ 、 $Rb^+$ 、 $Ba^{2+}$	
蛍光濃度センサー	C2 (13MI37 号孔内)	Ver. 3.0	
	C3 (地上)	Ver. 1	
試験条件	注水流量	mL/min	97.8
	揚水流量	mL/min	198
	トレーサー注入	min	20
	チェイサー注入	min	15
	トレーサー回収 (揚水)	min	180
	待機	min	0

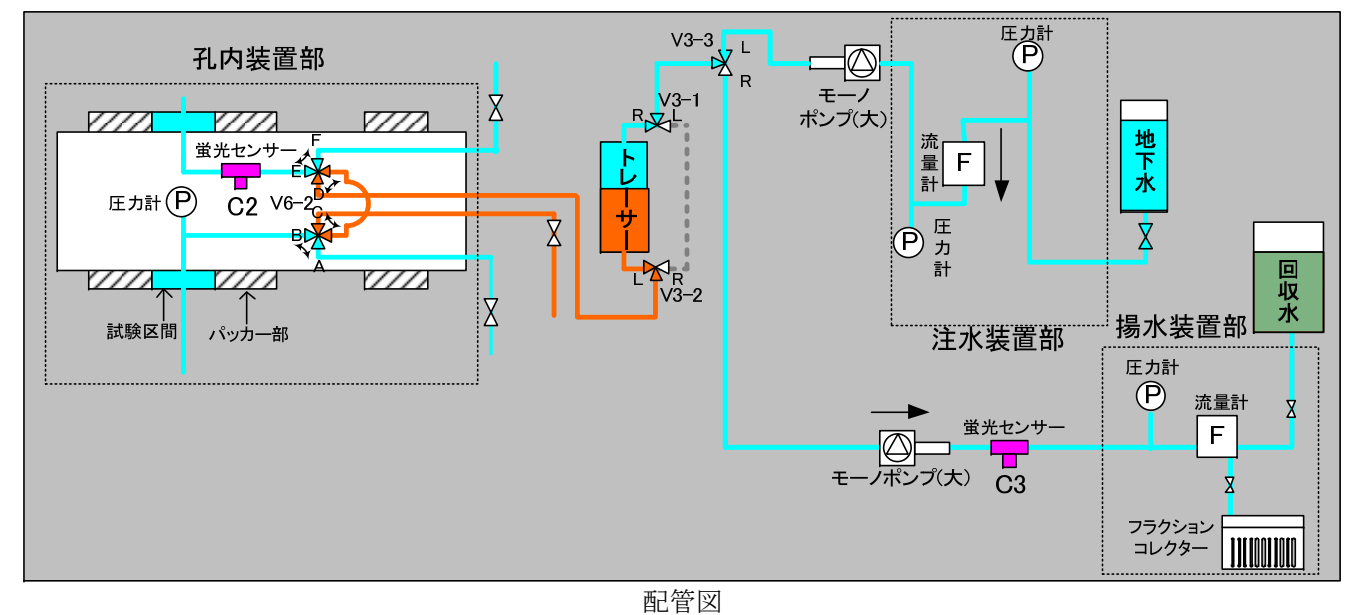
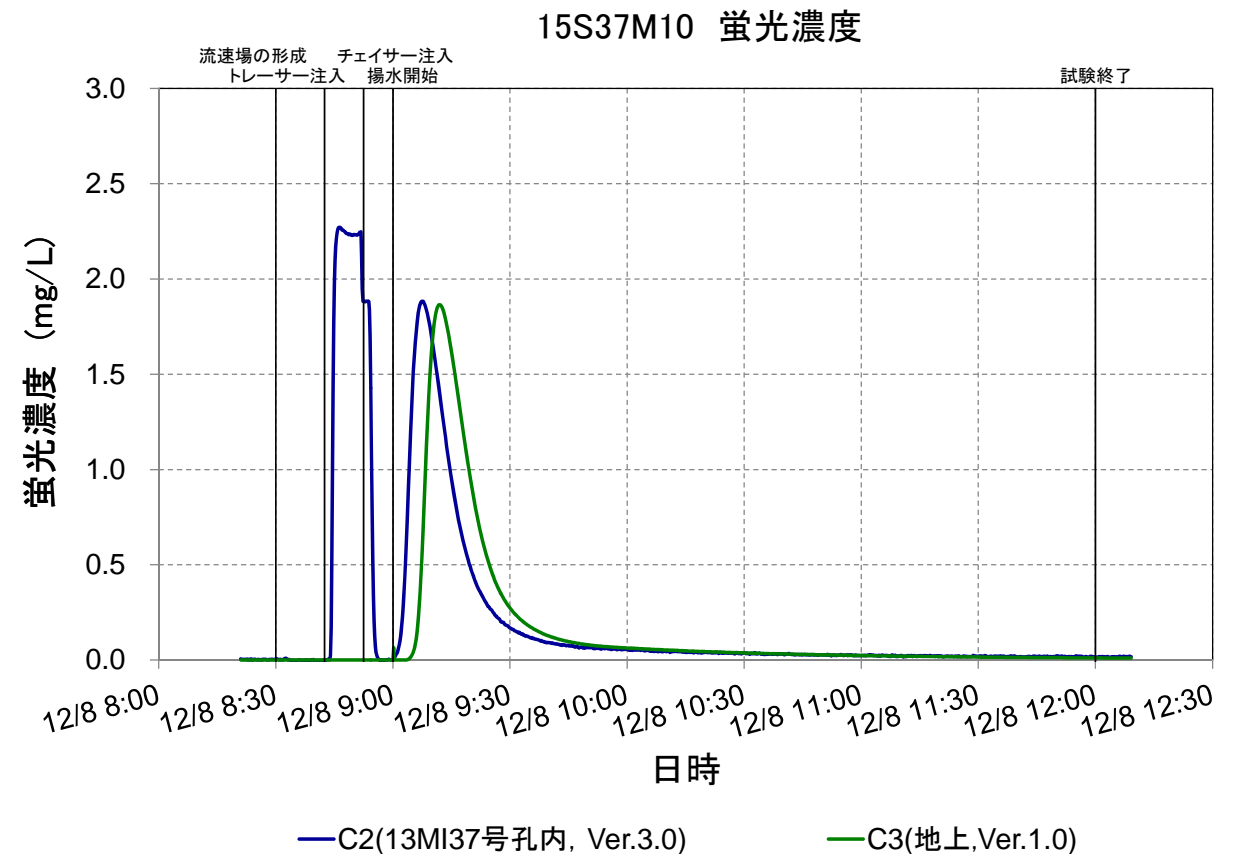
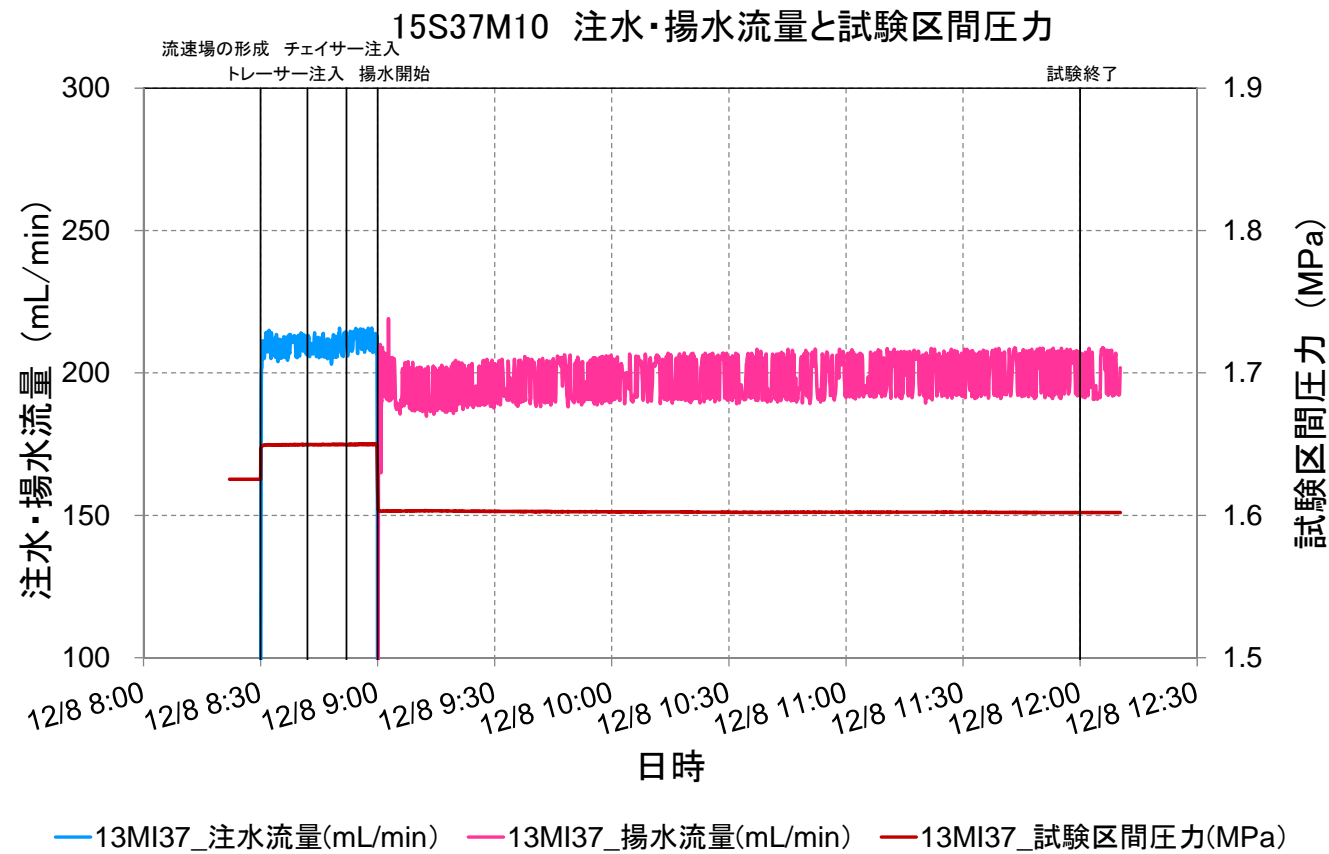


図 6.4.5-11 15S37M9\_単孔トレーサー試験結果



15S37M10_試験条件		
対象孔-区間		12MI37 - D1
試験名		15S37M10
試験時間	開始 (トレーサー注入)	12/8 8:42
	終了 (計測終了)	12/8 12:00
	実施時間	3:18
使用したトレーサー		ウラン、アミノ G 酸 $\delta D$ 、 $I^-$ 、 $Rb^+$ 、 $Ba^{2+}$
蛍光濃度センサー	C2 (13MI37 号孔内)	Ver. 3.0
	C3 (地上)	Ver. 1
試験条件	注水流量	mL/min 209
	揚水流量	mL/min 198
	トレーサー注入	min 10
	チェイサー注入	min 7.5
	トレーサー回収 (揚水)	min 180
	待機	min 0

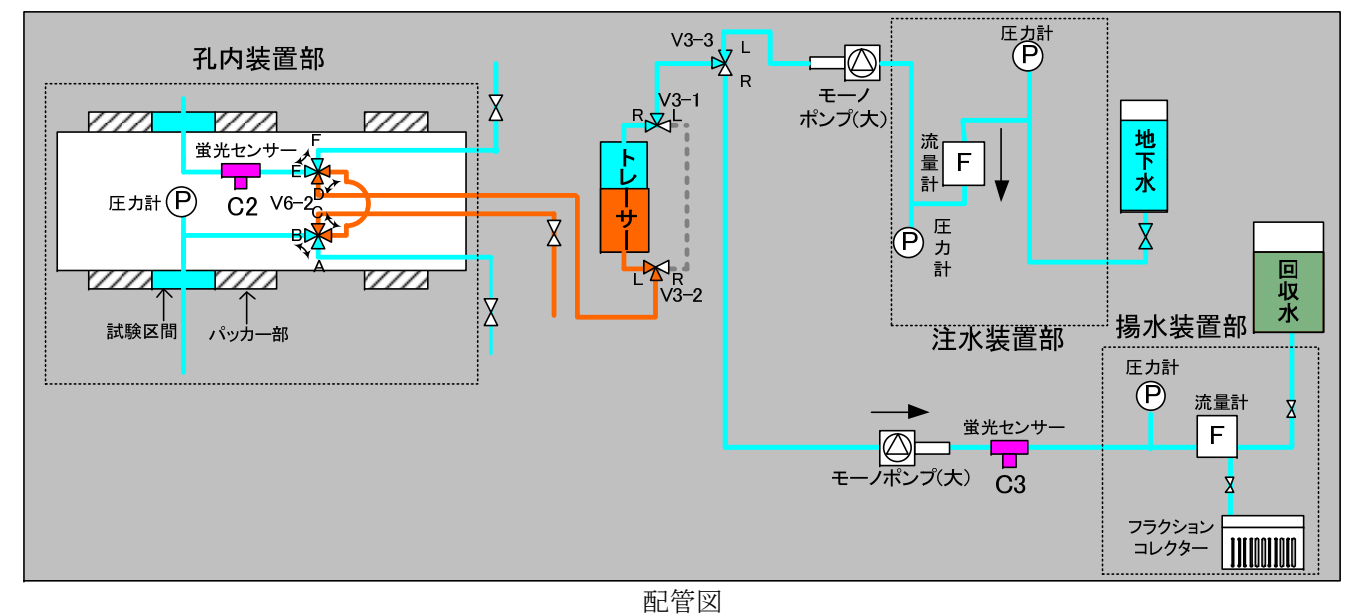
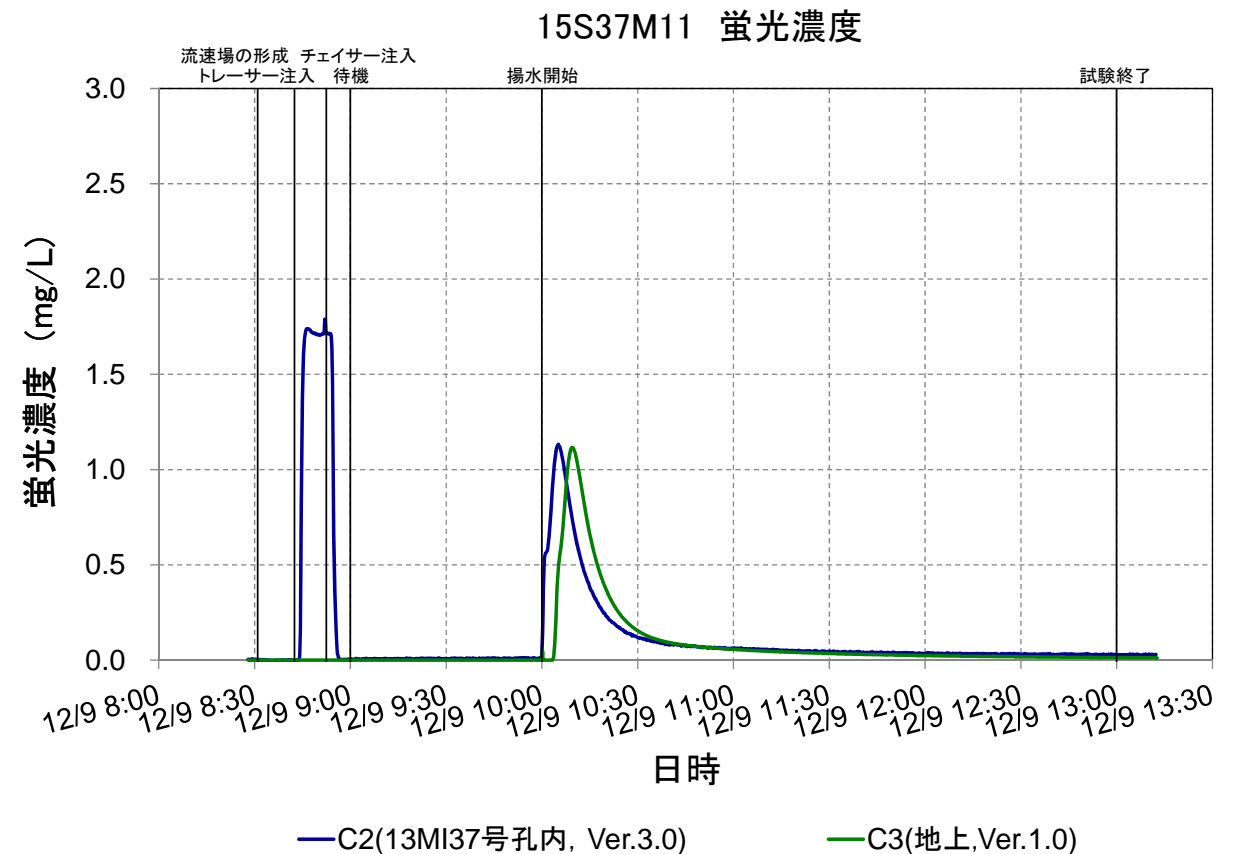
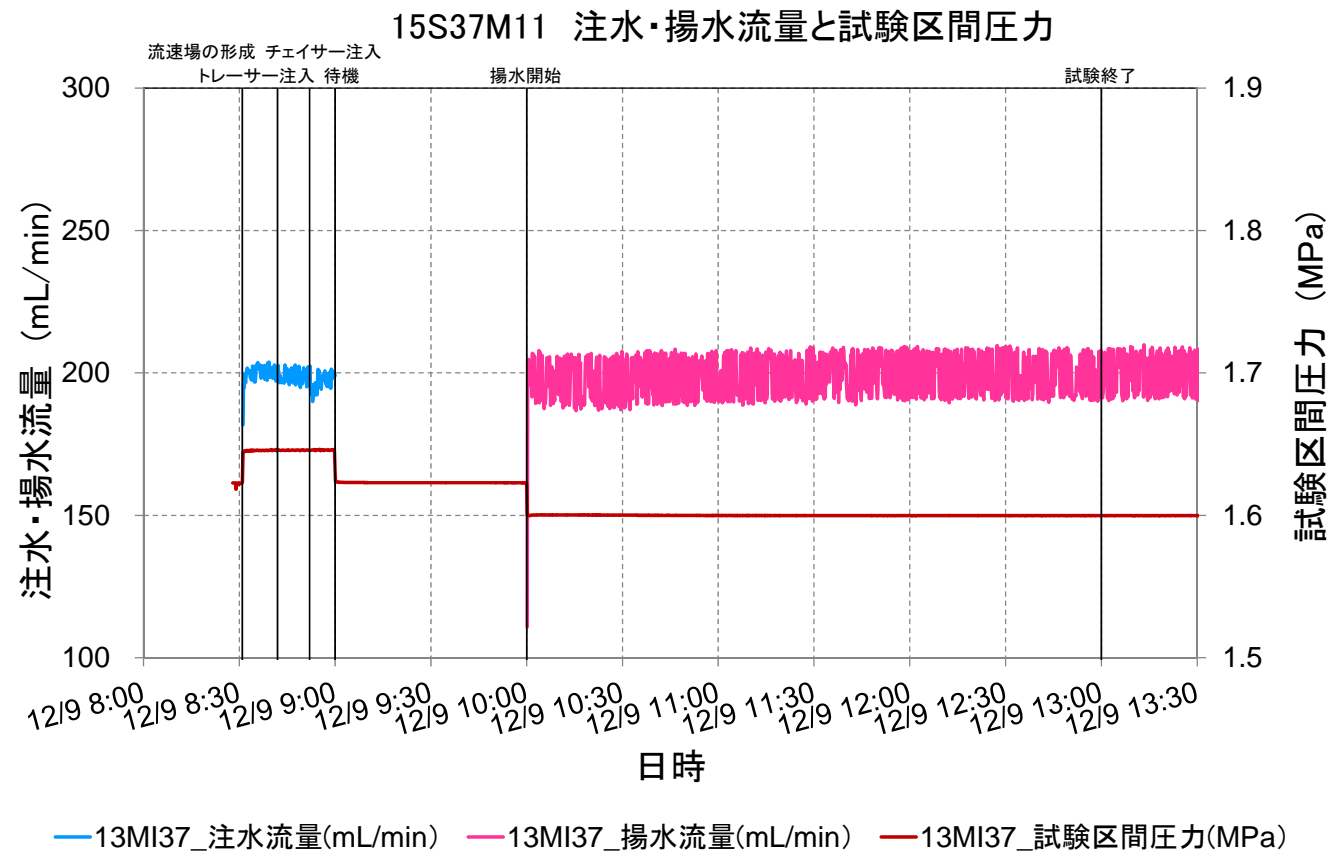


図 6.4.5-12 15S37M10\_単孔トレーサー試験結果



15S37M11_試験条件			
対象孔-区間		12MI37 - D1	
試験名		15S37M11	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	12/9 8:42	
	終了 (計測終了)	12/9 13:00	
	実施時間	4:18	
使用したトレーサー		ウラン、アミノ G 酸 $\delta D$ 、 $I^-$ 、 $Rb^+$ 、 $Ba^{2+}$	
蛍光濃度センサー	C2 (13MI37 号孔内)	Ver. 3.0	
	C3 (地上)	Ver. 1	
試験条件	注水流量	mL/min	199
	揚水流量	mL/min	199
	トレーサー注入	min	10
	チェイサー注入	min	7.5
	トレーサー回収 (揚水)	min	180
	待機	min	60

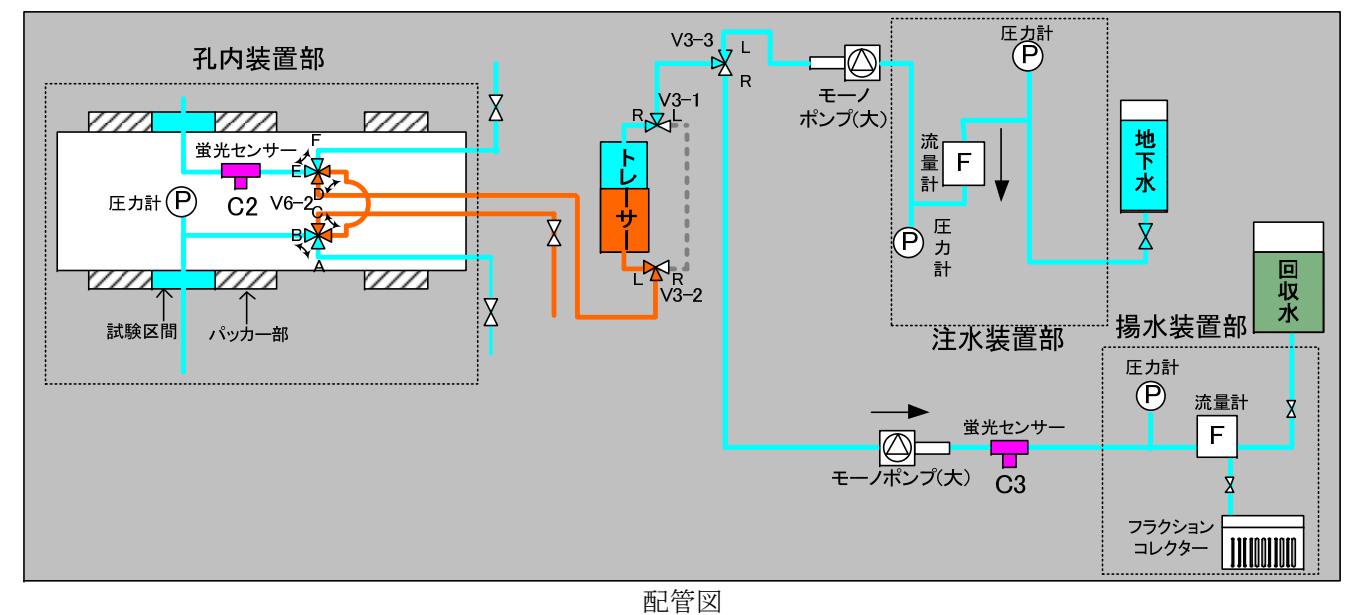
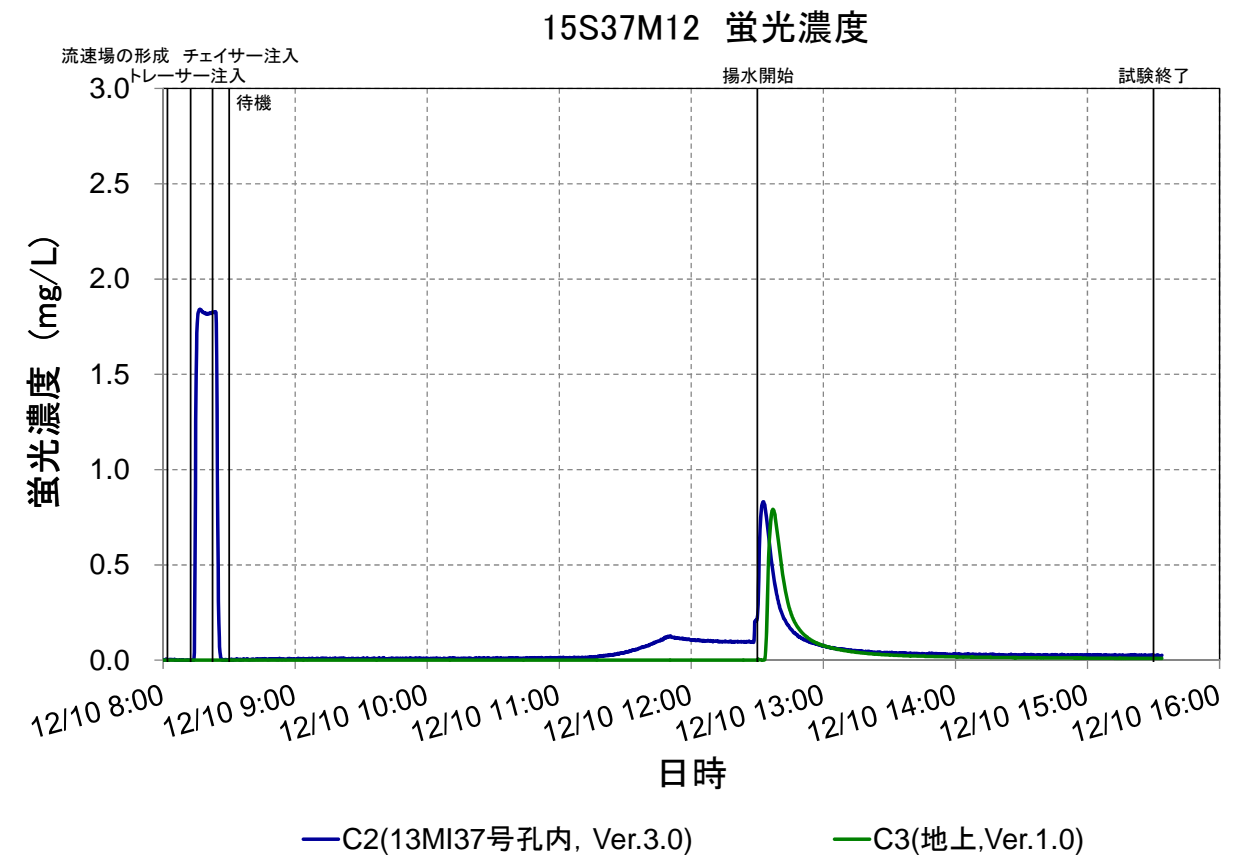
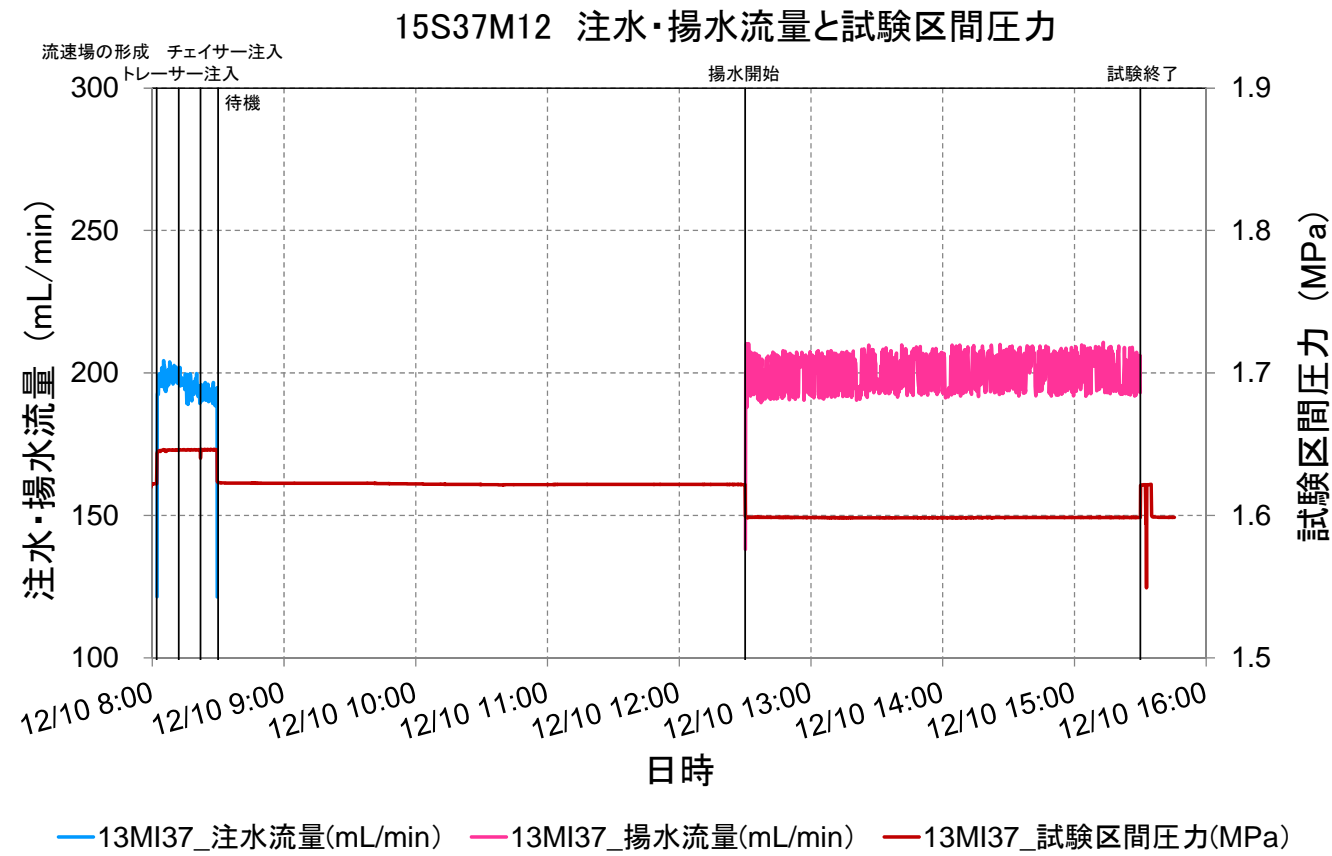


図 6.4.5-13 15S37M11\_単孔トレーサー試験結果



15S37M12_試験条件		
対象孔-区間		12MI37 - D1
試験名		15S37M12
試験時間	開始 (トレーサー注入)	12/10 8:12
	終了 (計測終了)	12/10 15:30
	実施時間	7:18
使用したトレーサー		ウラニン、アミノ G 酸 $\delta D$ 、 $I^-$ 、 $Rb^+$ 、 $Ba^{2+}$
蛍光濃度センサー	C2 (13MI37 号孔内)	Ver. 3.0
	C3 (地上)	Ver. 1
試験条件	注水流量	mL/min 196
	揚水流量	mL/min 200
	トレーサー注入	min 10
	チェイサー注入	min 7.5
	トレーサー回収 (揚水)	min 180
	待機	min 240

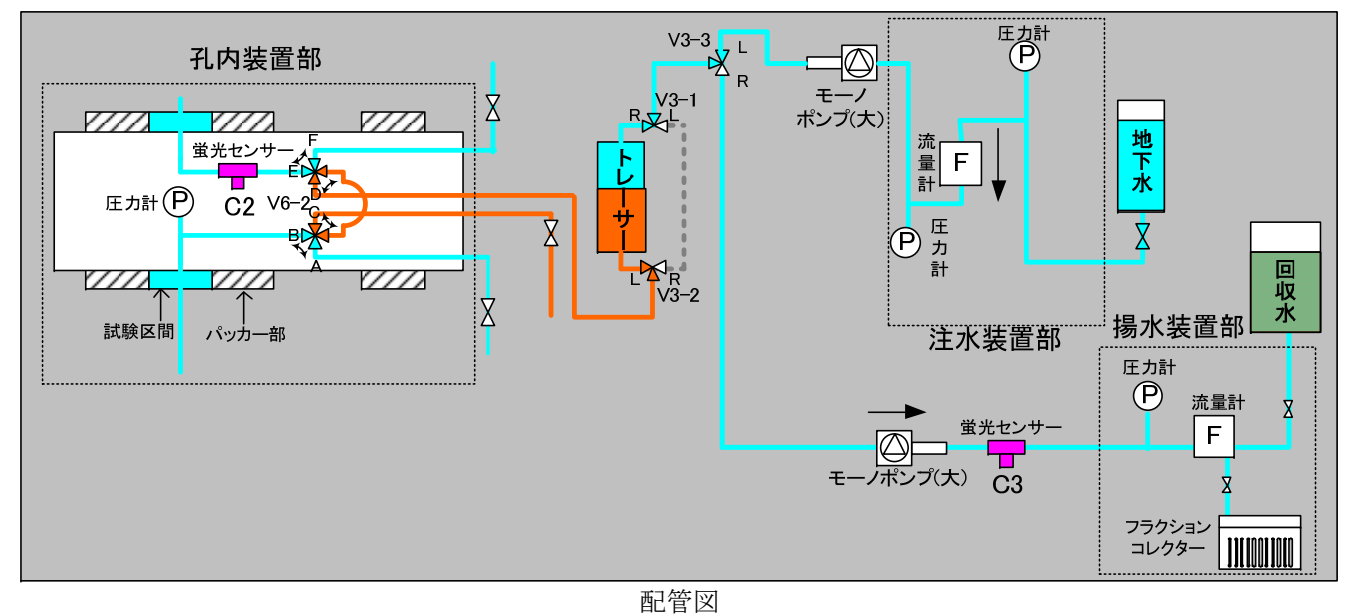
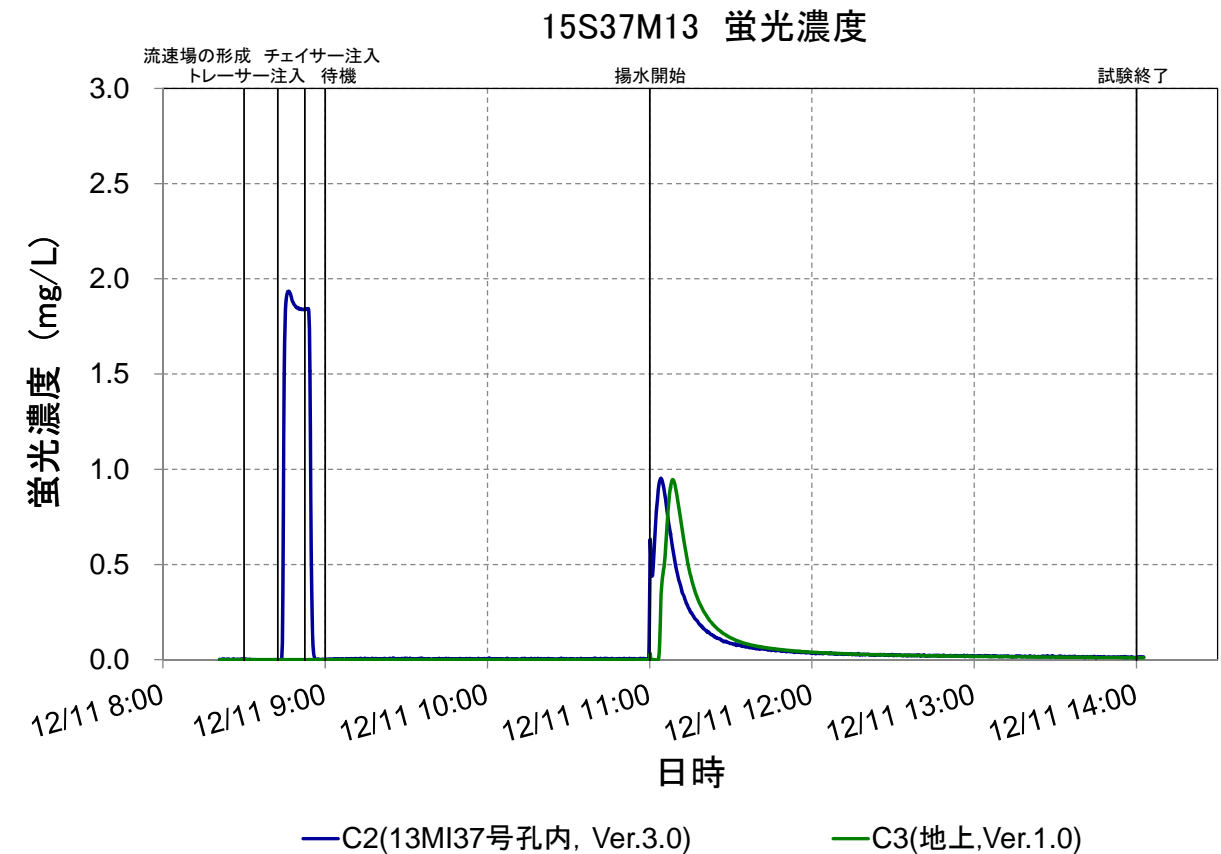
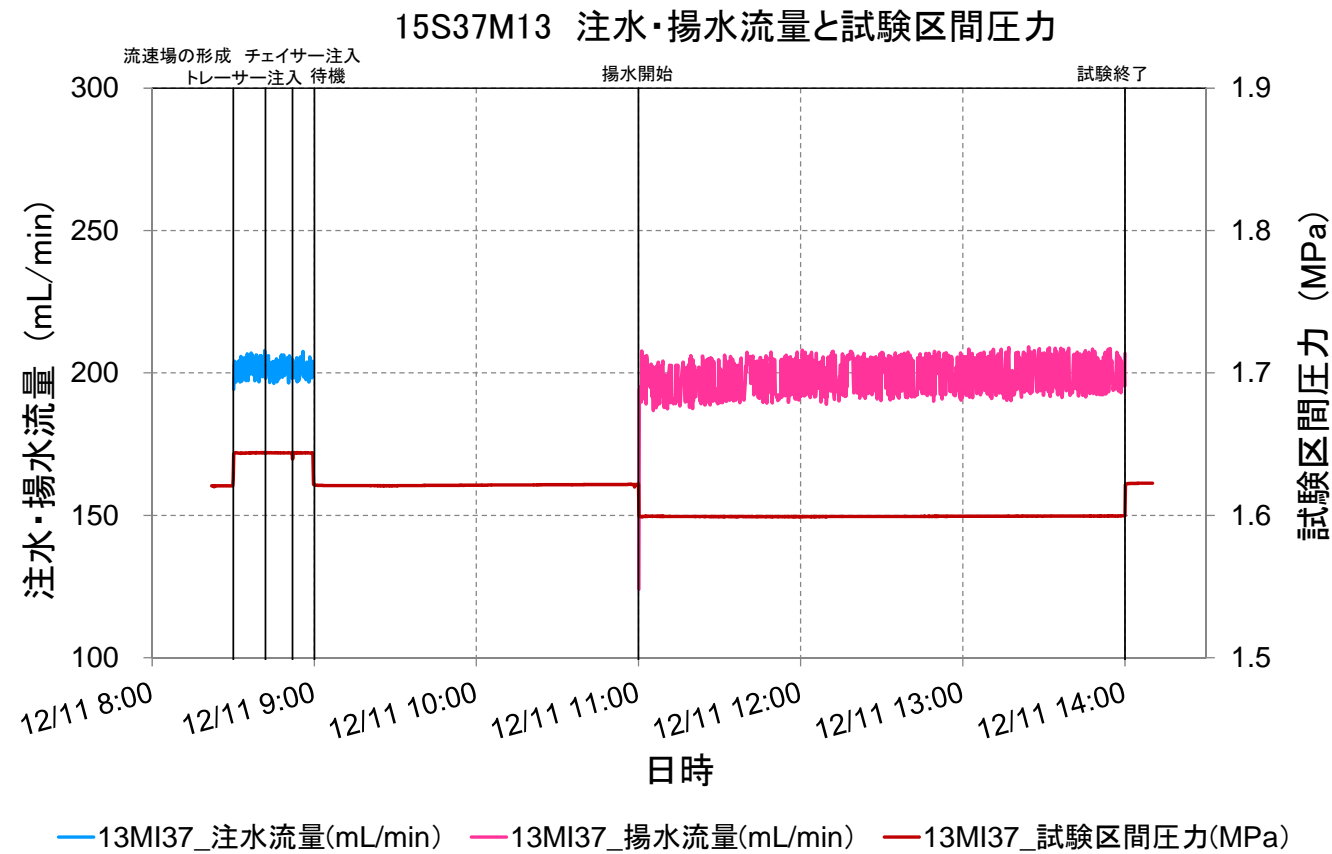


図 6.4.5-14 15S37M12\_単孔トレーサー試験結果



15S37M13_試験条件		
対象孔-区間		12MI37 - D1
試験名		15S37M13
試験時間	開始 (トレーサー注入)	12/11 8:42
	終了 (計測終了)	12/11 14:00
	実施時間	5:18
使用したトレーサー		ウラン、アミノ G 酸 $\delta D$ 、 $I^-$ 、 $Rb^+$ 、 $Ba^{2+}$
蛍光濃度センサー	C2 (13MI37 号孔内)	Ver. 3.0
	C3 (地上)	Ver. 1
試験条件	注水流量	mL/min 201
	揚水流量	mL/min 199
	トレーサー注入	min 10
	チェイサー注入	min 7.5
	トレーサー回収 (揚水)	min 180
	待機	min 120

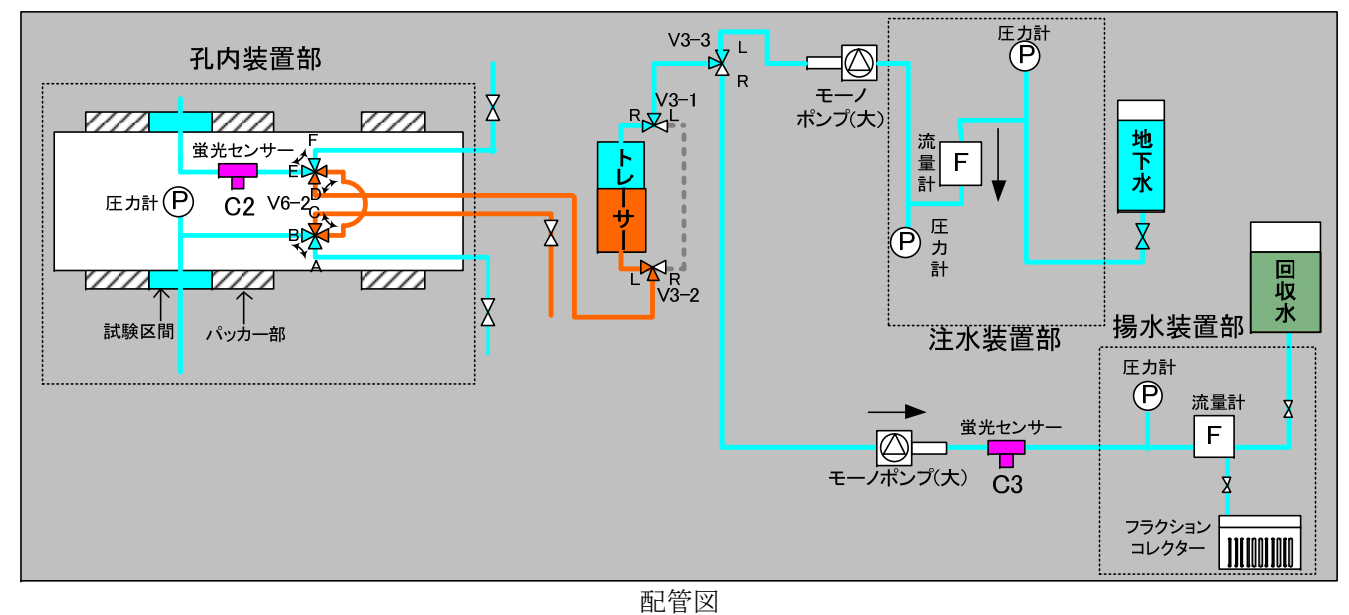


図 6.4.5-15 15S37M13\_単孔トレーサー試験結果

### 6.4.5.2 ダイポール試験

#### (1) 試験条件

##### a. 試験ケース

ダイポール試験では試験ごとにダイポール比を変えながら、12MI31 号孔にトレーサーを注入して 13MI37 号孔から揚水する試験を 7 ケース、12MI37 号孔にトレーサーを注入して 12MI31 号孔から揚水する試験を 3 ケース実施した。12MI37 号孔を揚水孔とした試験ケースを表 6.4.5-5 に、12MI31 号孔を揚水孔とした試験ケースを表 6.4.5-6 に示す。

表 6.4.5-5 13MI37 を揚水孔としたダイポール試験実施ケース

注水孔-区間		12MI31 - D1							
揚水孔-区間		13MI37 - D1							
試験名		15W3137 M1	15W3137 T2	15W3137 T3	15W3137 T4	15W3137 T5	15W3137 T6	15W3137 T8	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	10/28 14:25	11/9 12:50	11/10 10:00	11/11 09:10	11/12 09:30	11/24 09:10	11/26 09:10	
	終了 (計測終了)	10/28 16:05	11/9 16:00	11/10 15:00	11/11 15:30	11/13 16:00	11/24 13:55	11/27 16:00	
	実施時間	1:40	3:10	5:00	6:20	30:30	4:45	30:50	
トレーサー	ウラン	○	○	○	○	○	○	○	
	アミノ G 酸	-	-	-	-	○	-	○	
	$\delta D$	-	○	○	○	○	○	○	
	$I^-$	-	-	-	-	○	-	○	
	$Rb^+$	-	-	-	-	○	-	○	
	$Ba^{2+}$	-	-	-	-	○	-	○	
蛍光濃度 センサー	C1 (12MI31 号孔内)	Ver. 3.1	Ver. 3.1	Ver. 3.1	Ver. 3.1	Ver. 3.1	Ver. 3.1	Ver. 3.1	
	C2 (13MI37 号孔内)	Ver. 3.0	Ver. 3.0	Ver. 3.0	Ver. 3.0	Ver. 3.0	Ver. 3.0	Ver. 3.0	
	C3 (地上)	Ver. 1	Ver. 1	Ver. 1	Ver. 1	Ver. 1	Ver. 1	Ver. 1	
試験条件	注入流量	mL/min	73.8	18.2	15.2	9.80	10.0	19.6	19.1
	揚水流量	mL/min	394	398	302	201	203	200	207
	ダイポール比	-	5.34	21.9	19.9	20.5	20.3	10.2	10.8
	トレーサー 注入	min	10	40	60	120	180	20	180
	トレーサー 回収 (揚 水)	min	100	190	300	380	1830	285	1850
備考		11/13 16:10 に 12MI30 号孔のパッカー圧を追加した。							

表 6.4.5-6 12MI31 を揚水孔としたダイポール試験実施ケース

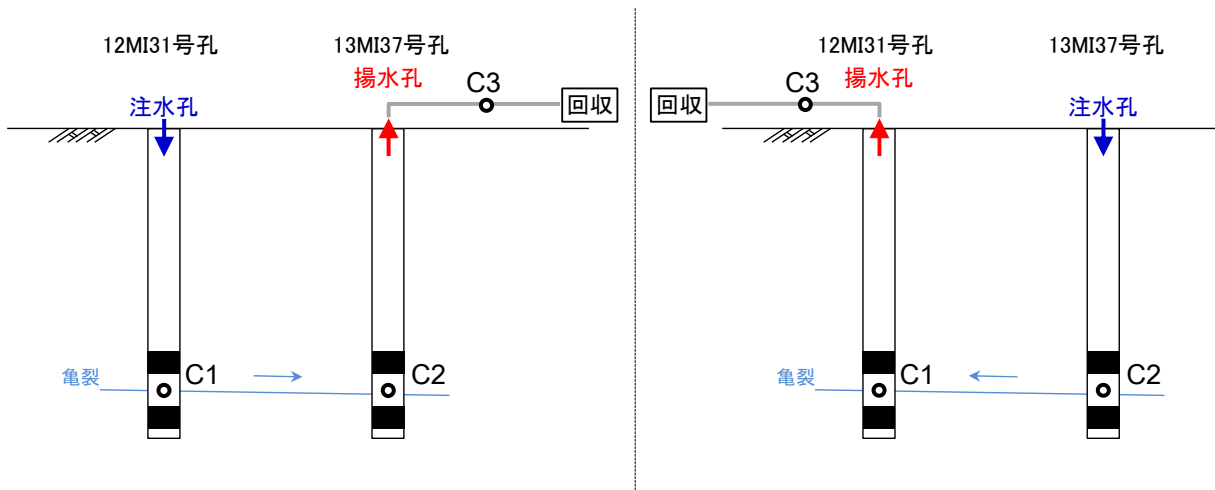
注水孔-区間		13MI37 - D1			
揚水孔-区間		12MI31 - D1			
試験名		15W37317T7	15W37317T9	15W3731T10	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	11/25 10:00	11/30 9:10	12/1 9:00	
	終了 (計測終了)	11/26 8:00	11/30 16:00	12/2 15:00	
	実施時間	22:00	6:50	30:00	
トレーサー	ウラニン	○	○	○	
	アミノ G 酸	—	—	○	
	δ D	○	○	○	
	I <sup>-</sup>	—	—	○	
	Rb <sup>+</sup>	—	—	○	
	Ba <sup>2+</sup>	—	—	○	
蛍光濃度 センサー	C1 (12MI31 号孔内)	Ver. 3.1	Ver. 3.1	Ver. 3.1	
	C2 (13MI37 号孔内)	Ver. 3.0	Ver. 3.0	Ver. 3.0	
	C3 (地上)	Ver. 1	Ver. 1	Ver. 1	
試験条件	注入流量	mL/min	10.4	20.8	19.2
	揚水流量	mL/min	98.3	103	104
	ダイポール比	—	9.45	4.95	5.42
	トレーサー 注入	min	60	30	180
	トレーサー 回収 (揚 水)	min	1220	410	1800

b. 使用したトレーサー

トレーサーについては単孔トレーサー試験と同様に非収着性トレーサーとして、ウラニン、アミノ G 酸、δ D、I<sup>-</sup>を、収着性トレーサーとして Rb<sup>+</sup>、Ba<sup>2+</sup>を用い、原位置でサンプリングされた地下水を溶媒として混合した。

c. 蛍光濃度センサー配置位置と名称

蛍光濃度センサーは揚水孔と注水孔の孔内および地上に設置した。ダイポール試験の試験結果では単孔トレーサー試験と同様に 12MI31 号孔内に設置した蛍光濃度センサーを「C1」、13MI37 号孔の孔内に設置した蛍光濃度センサーを「C2」、地上に設置された蛍光濃度センサーを「C3」として記載した。図 6.4.5-16 に各試験ケースにおける蛍光濃度センサーの配置概要図を示す。



\*C1: 12MI31 号孔の孔内に設置した蛍光濃度センサー

\*C2: 13MI37 号孔の孔内に設置した蛍光濃度センサー

\*C3: 地上に設置した蛍光濃度センサー

図 6.4.5-16 ダイポール試験における蛍光濃度センサー配置概要図



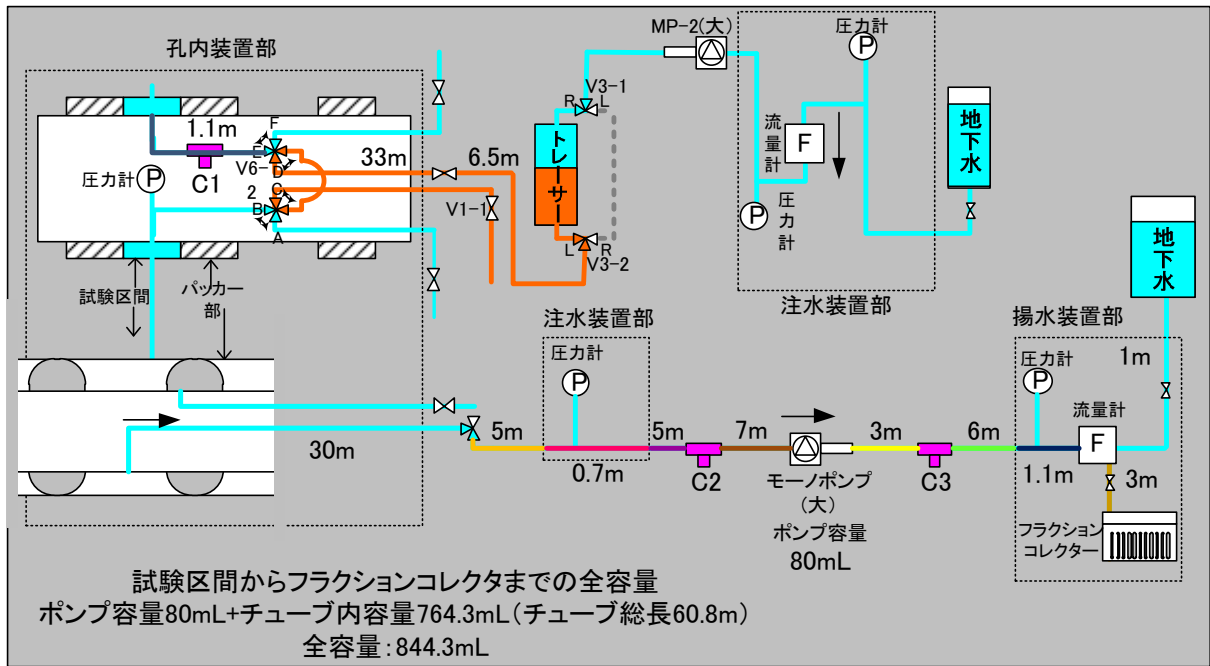
d. 試験区間容量

試験に用いた配管は内径 4mm のチューブであり、単位長さ当たりの容量を 12.57mL とした。各試験における試験区間からフラクションコレクターまでの容量を表 6.4.5-7 に示す。図 6.4.5-17 に試験区間からフラクションコレクターまでの容量および各区間におけるチューブ長を示す。

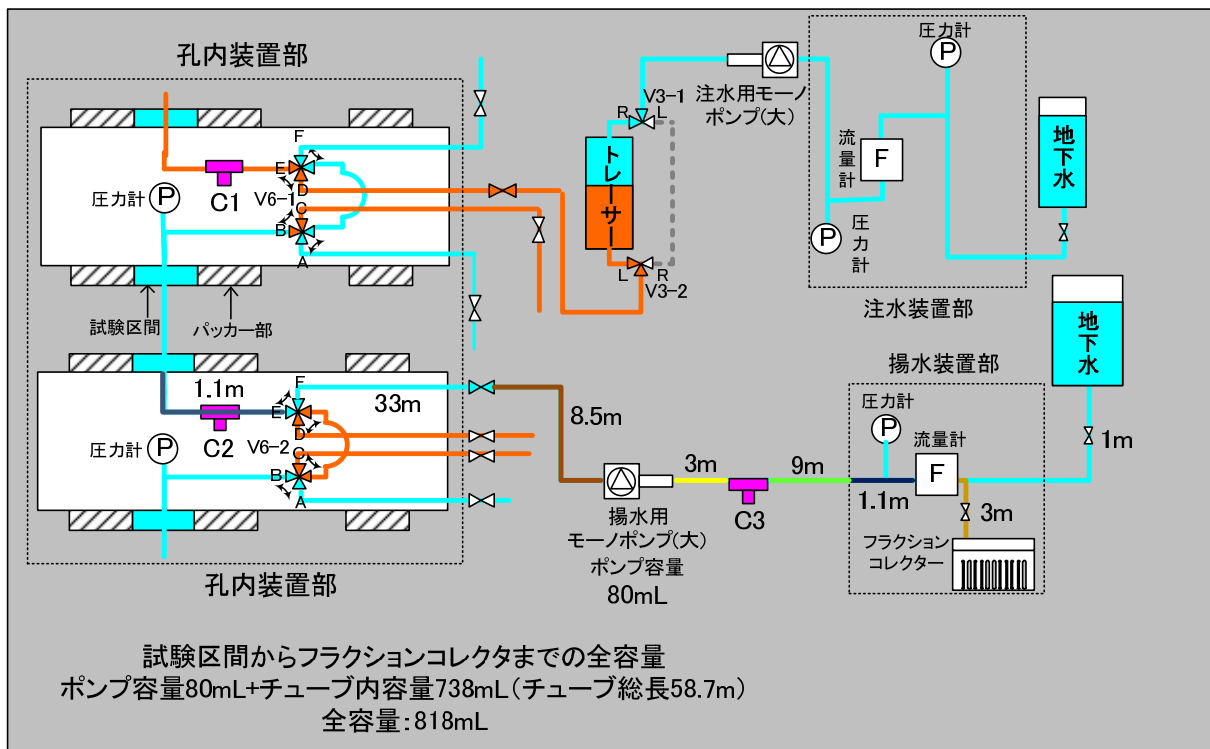
表 6.4.5-7 試験区間からフラクションコレクターまでの容量

試験名	試験区間から フラクションコレクター までの容量(mL)	チューブ容量(mL) (チューブ長さ(m))	ポンプ容量(mL)
15W3137M1	844	764 (60.8)	80.00
15W3137T2～15W3137T6 15W3731T7 15W3137T8 15W3731T9 15W3731T10 (153137M1 以外)	818	738 (58.7)	80.00

\*試験区間からフラクションコレクターまでの容量 = チューブ容量 + ポンプ容量



15W3137M1 における試験区間からフラクシオンコレクターまでの全容量

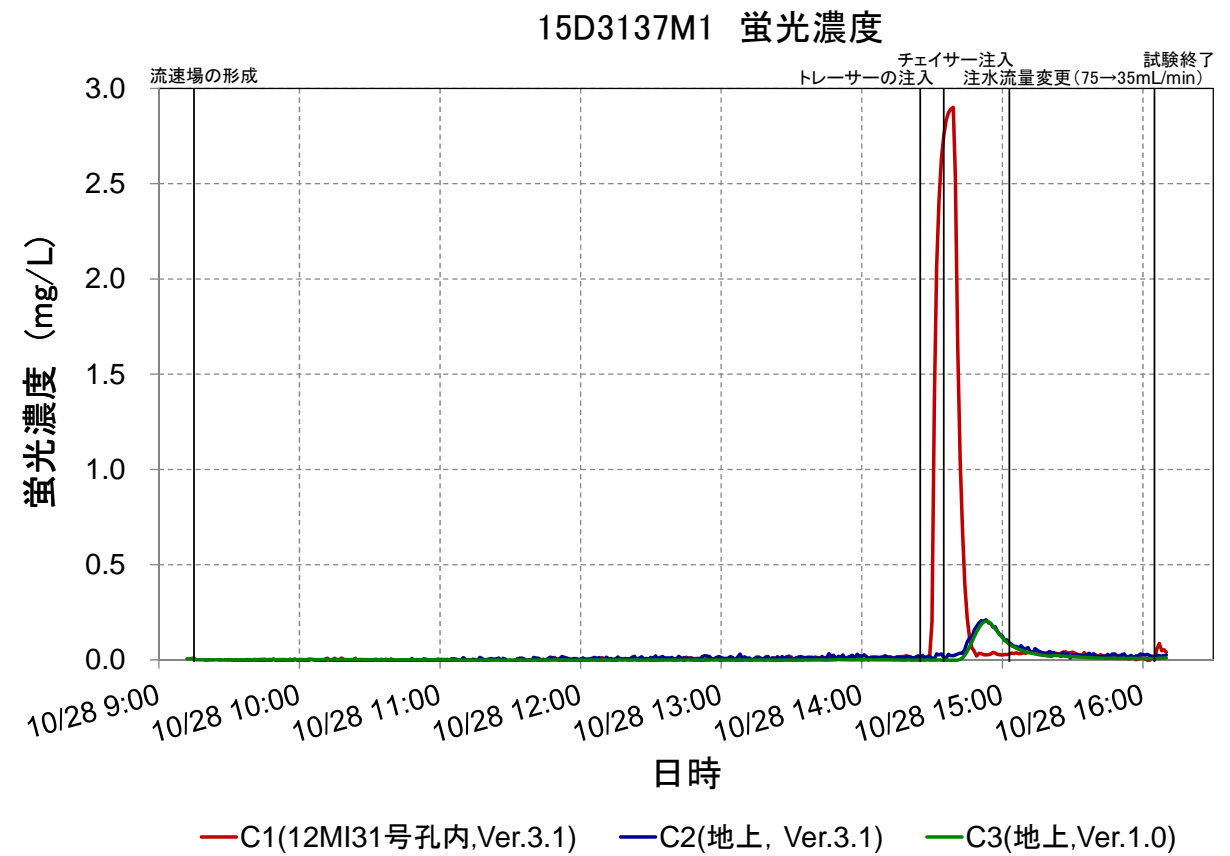
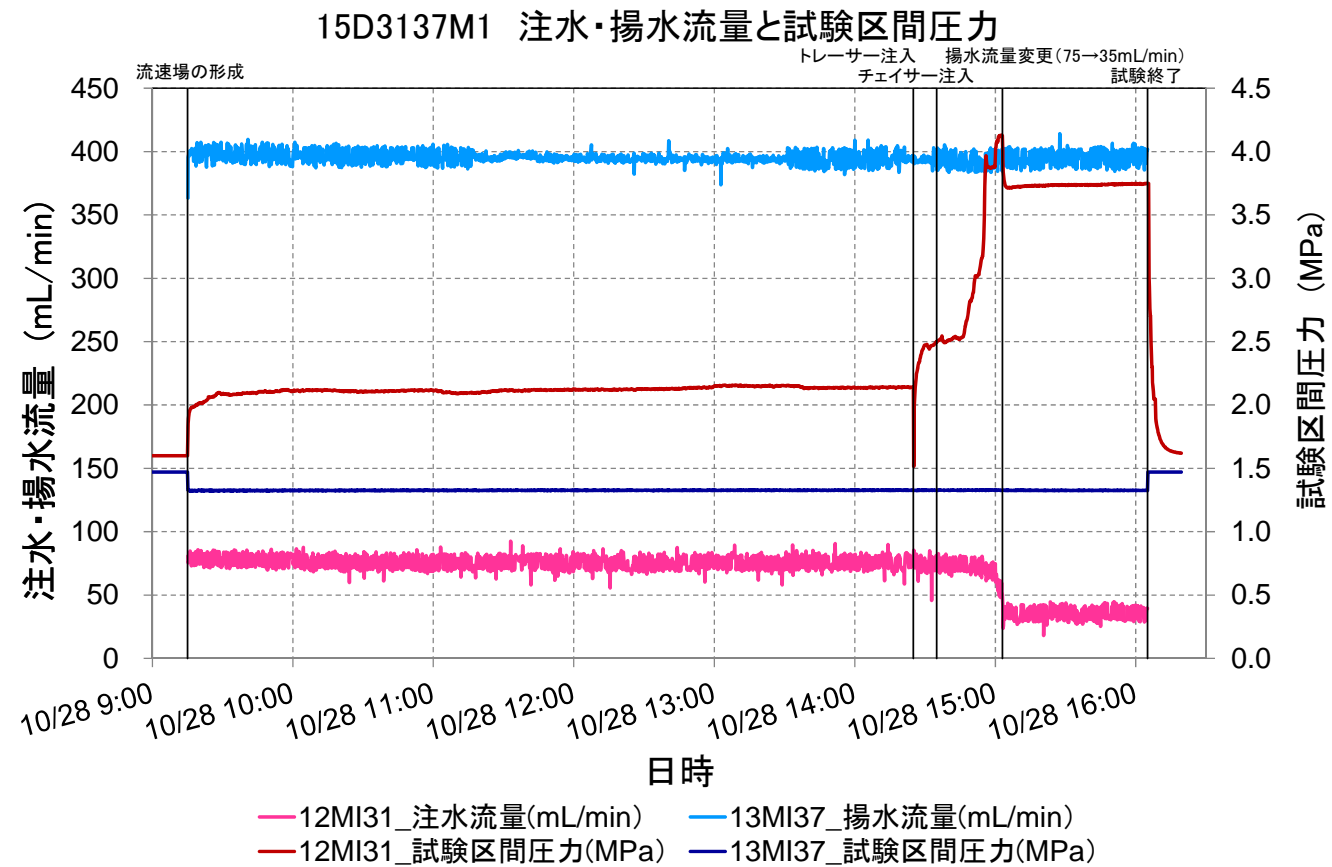


15W3137M1 以外の試験における試験区間からフラクシオンコレクターまでの全容量

図 6. 4. 5-17 各試験ケースにおける試験区間からフラクシオンコレクターまでの全容量

(2) 試験結果

ダイポール試験で得られた蛍光濃度および試験区間の圧力、流量をまとめたものを図 6.4.5-18～図 6.4.5-27 に示す。なお、間隙水圧や流量のデータの振幅はモノポンプの脈動によるものである。



15W3137M1_試験条件			
注水孔-区間		12MI31 - D1	
揚水孔-区間		13MI37 - D1	
試験名		15W3137M1	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	10/28 14:25	
	終了 (計測終了)	10/28 16:05	
	実施時間	1:40	
使用したトレーサー		ウラニン	
蛍光濃度センサー	C1 (12MI31号孔内)	Ver. 3.1	
	C2 (13MI37号孔内)	Ver. 3.0	
	C3 (地上)	Ver. 1	
試験条件	注水流量	mL/min	73.8
	揚水流量	mL/min	394
	ダイポール比	-	5.34
	トレーサー注入	min	10
	トレーサー回収 (揚水)	min	100

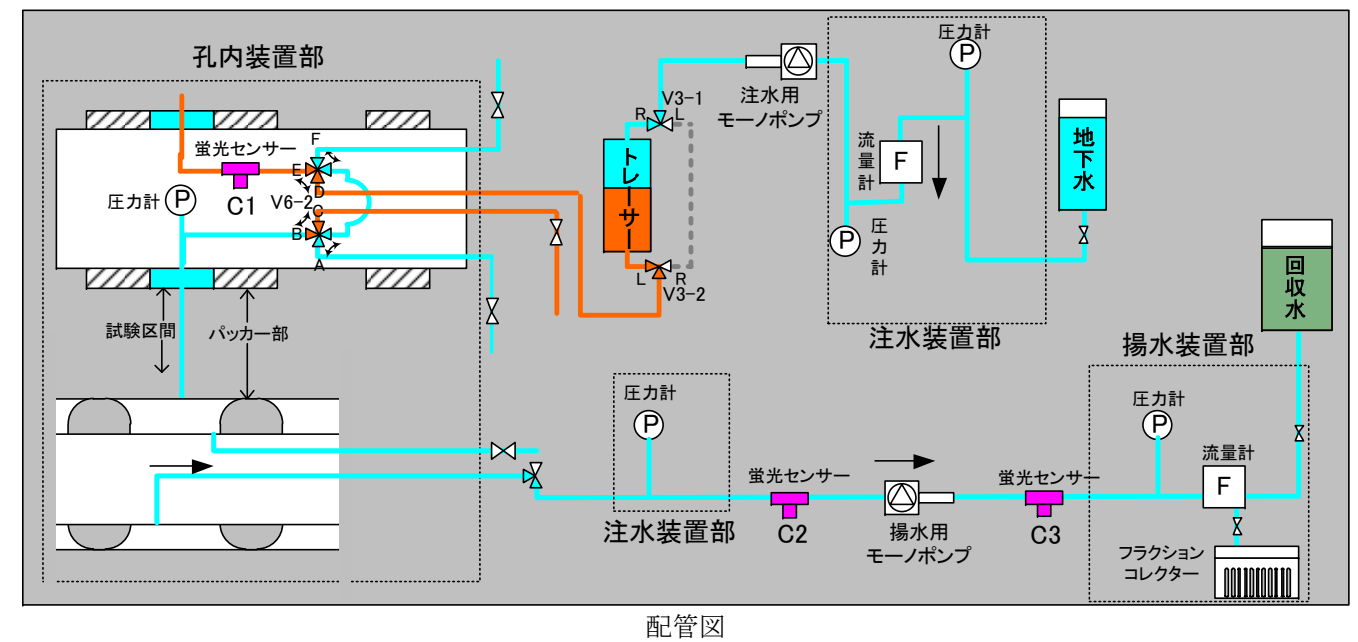
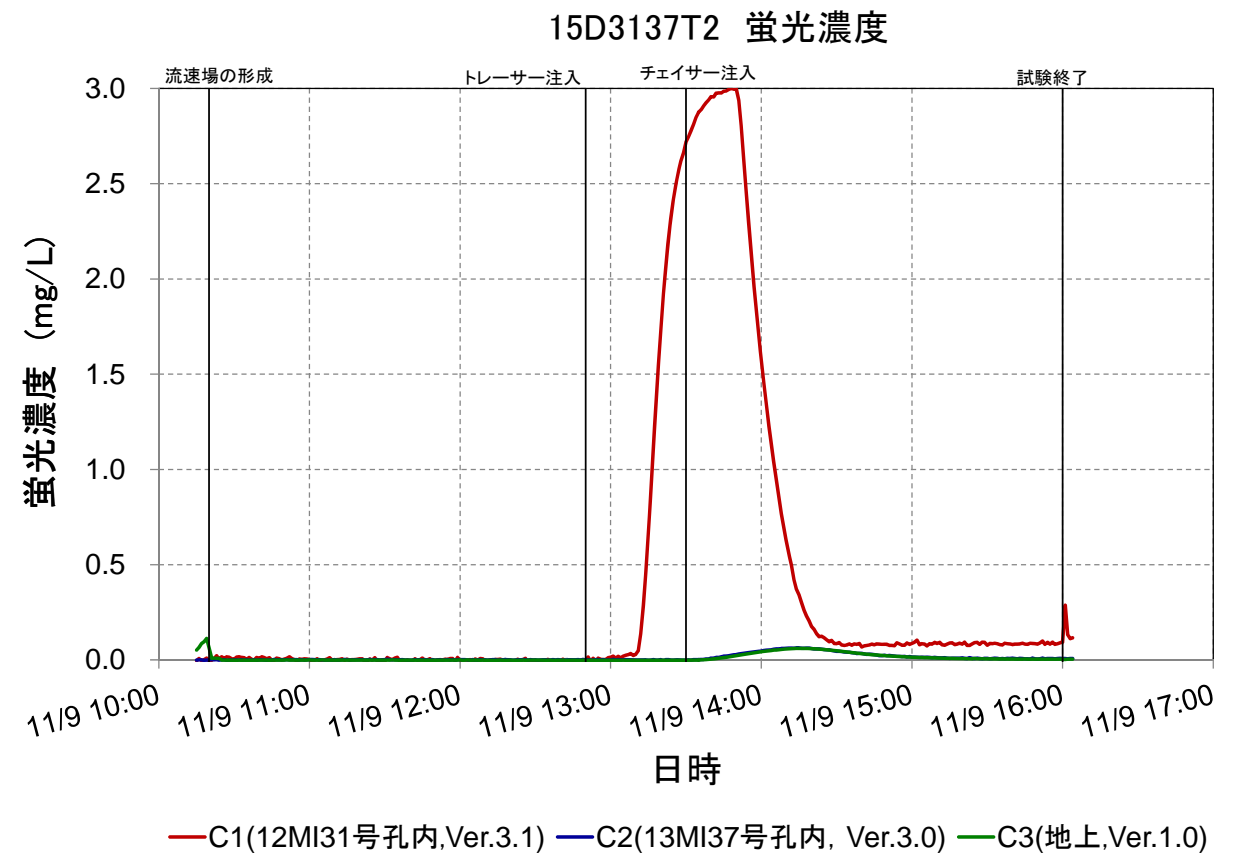
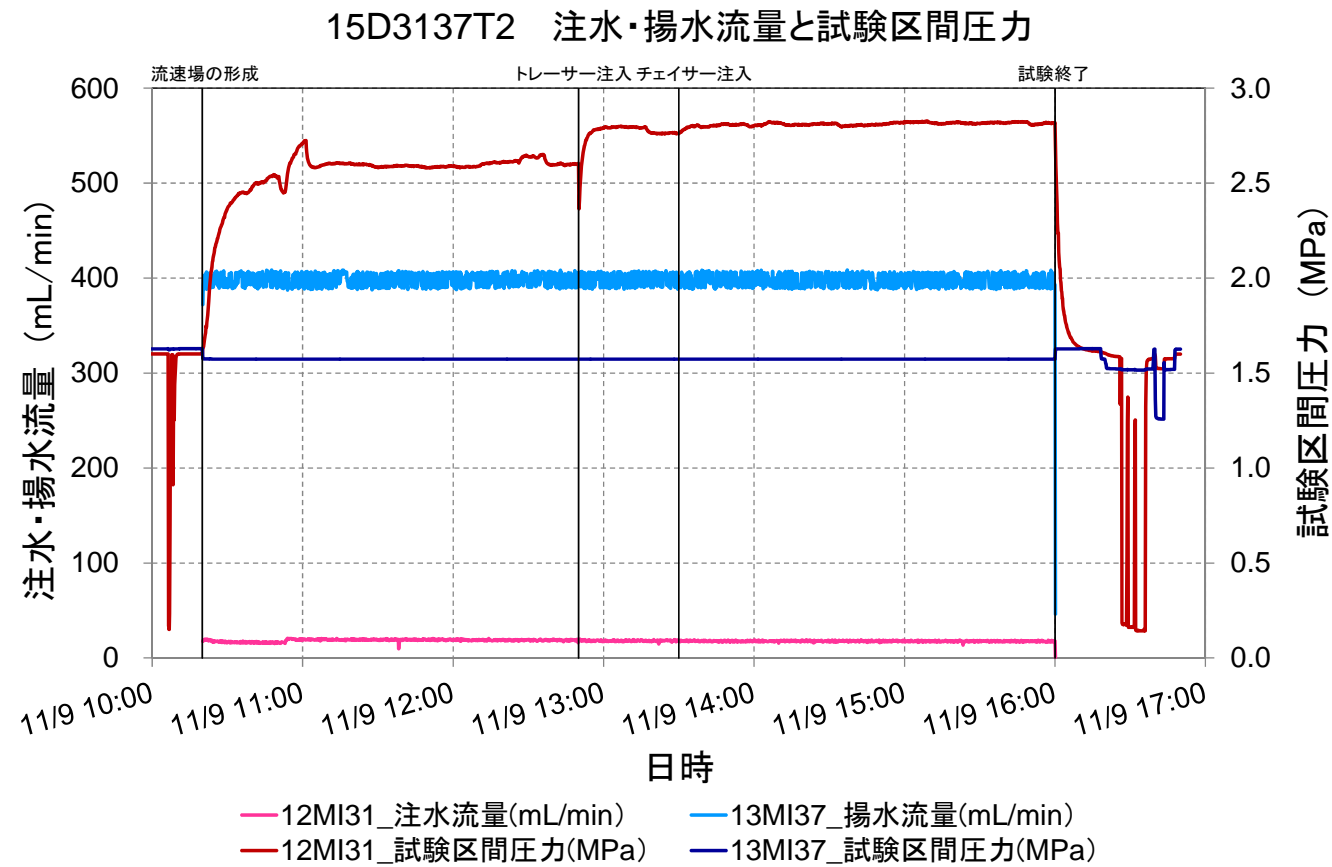


図 6.4.5-18 ダイポール試験 15W3137M1 結果



15W3137T2\_試験条件

注水孔-区間		12MI31 - D1	
揚水孔-区間		13MI37 - D1	
試験名		15W3137T2	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	11/9 12:50	
	終了 (計測終了)	11/9 16:00	
	実施時間	3:10	
使用したトレーサー		ウランin、 $\delta D$	
蛍光濃度センサー	C1 (12MI31号孔内)	Ver. 3.1	
	C2 (13MI37号孔内)	Ver. 3.0	
	C3 (地上)	Ver. 1	
試験条件	注水流量	mL/min	18.2
	揚水流量	mL/min	398
	ダイポール比	-	21.9
	トレーサー注入	min	40
	トレーサー回収 (揚水)	min	190

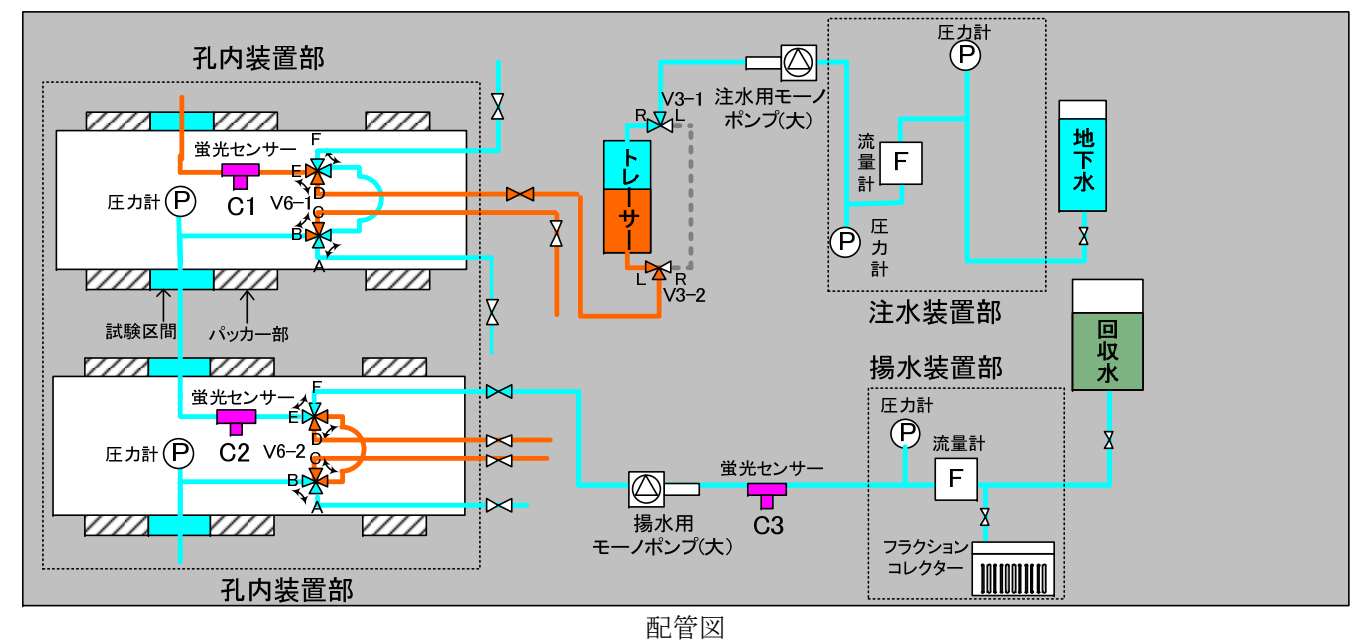
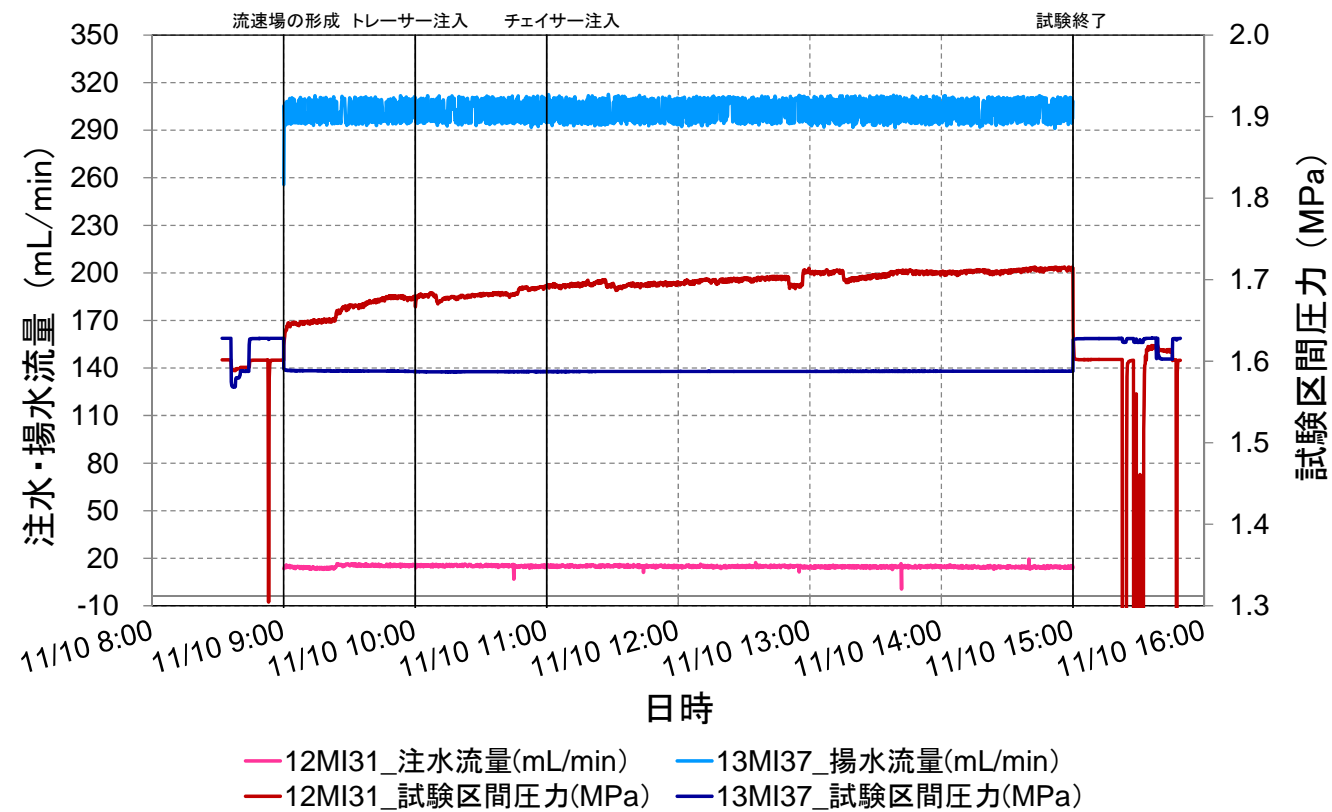
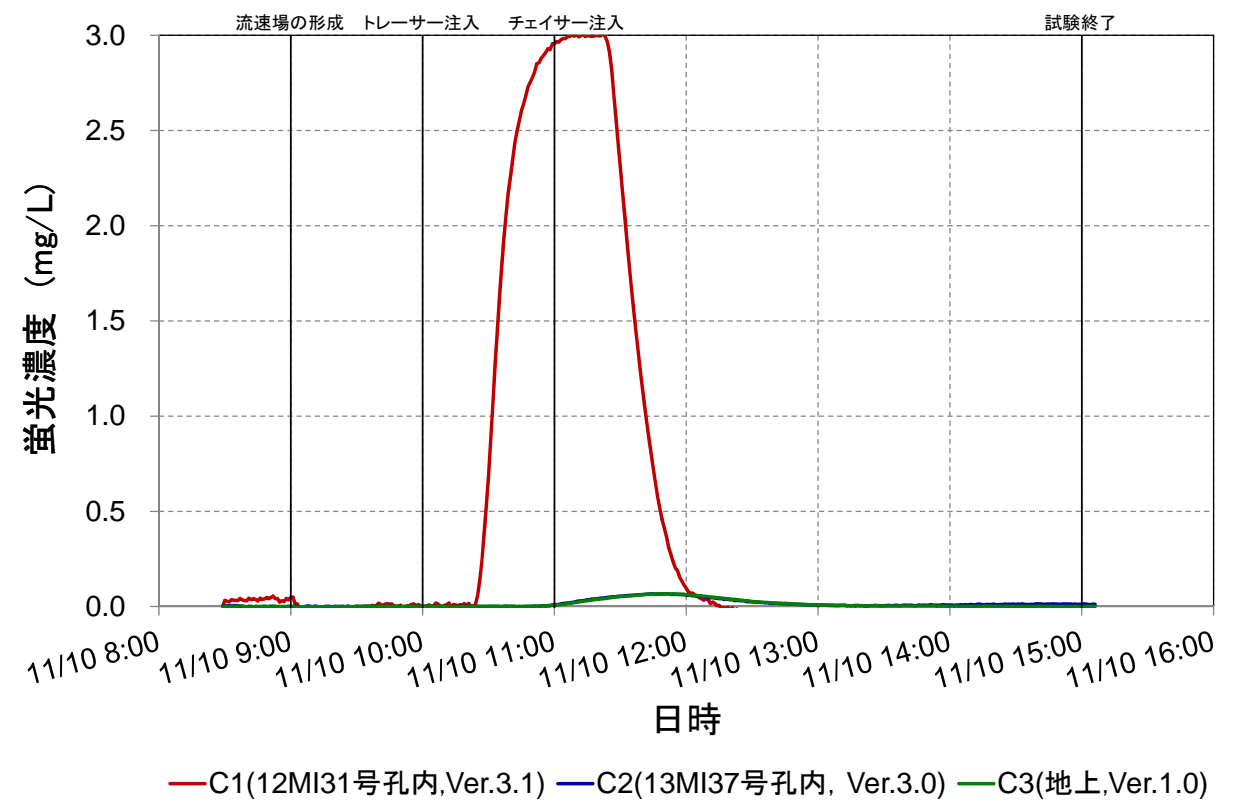


図 6.4.5-19 ダイポール試験 15W3137T2 結果

15D3137T3 注水・揚水流量と試験区間圧力



15D3137T3 蛍光濃度



15W3137T3_試験条件			
注水孔-区間		12MI31 - D1	
揚水孔-区間		13MI37 - D1	
試験名		15W3137T3	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	11/10 10:00	
	終了 (計測終了)	11/10 15:00	
	実施時間	5:00	
使用したトレーサー		ウラニン、 $\delta D$	
蛍光濃度センサー	C1 (12MI31 号孔内)	Ver. 3.1	
	C2 (13MI37 号孔内)	Ver. 3.0	
	C3 (地上)	Ver. 1	
試験条件	注水流量	mL/min	15.2
	揚水流量	mL/min	302
	ダイポール比	-	19.9
	トレーサー注入	min	60
	トレーサー回収 (揚水)	min	300

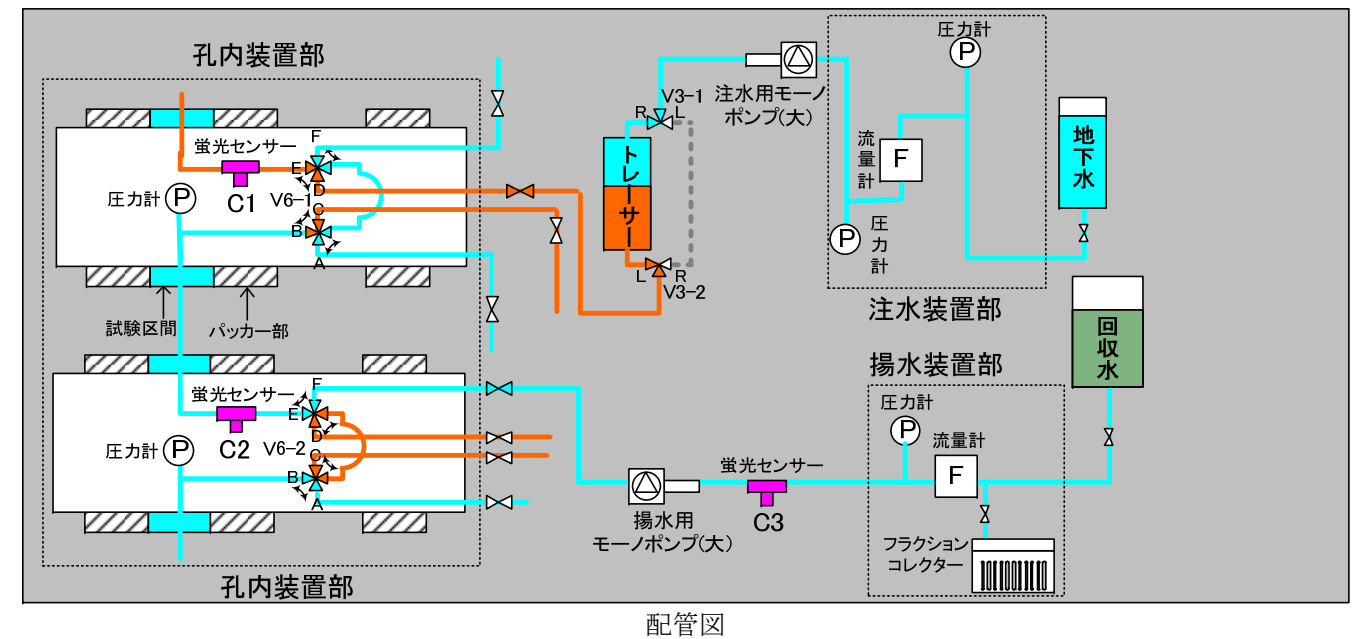
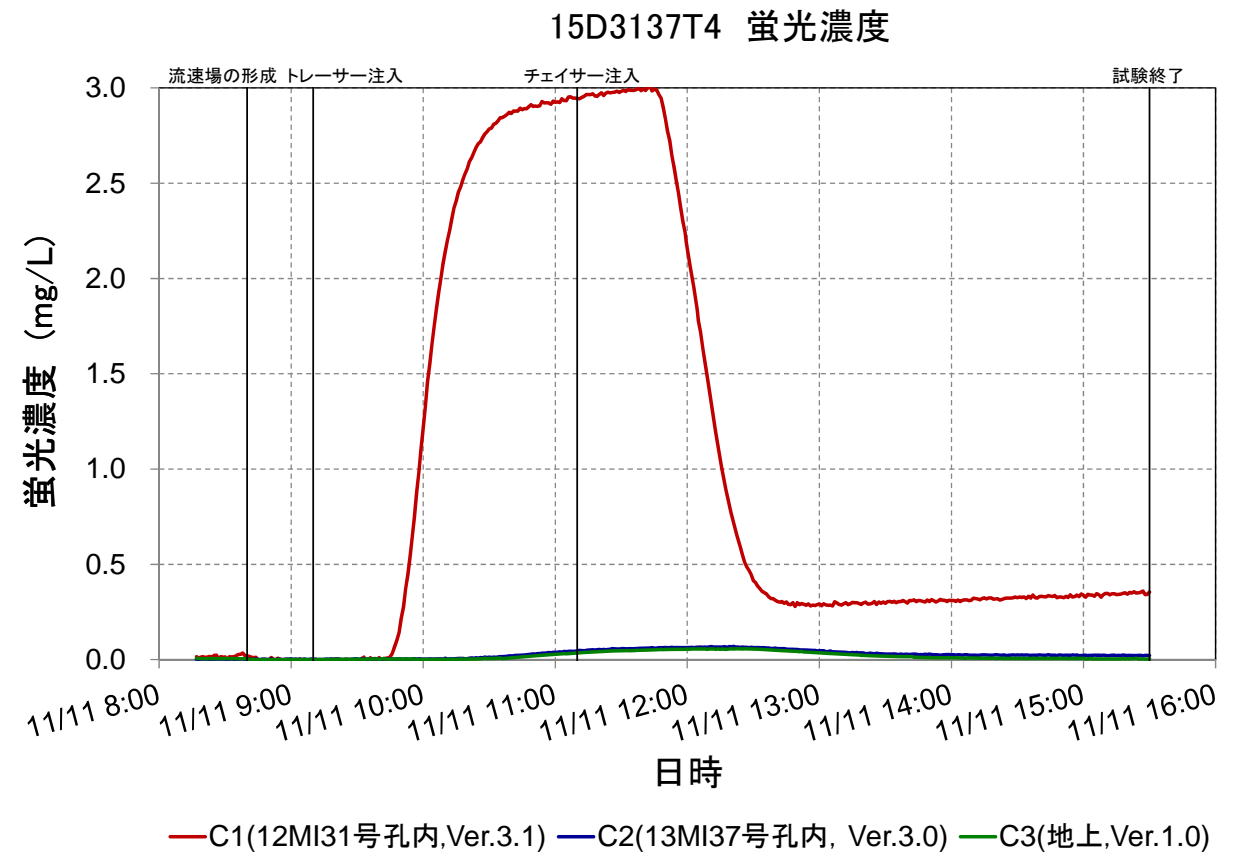
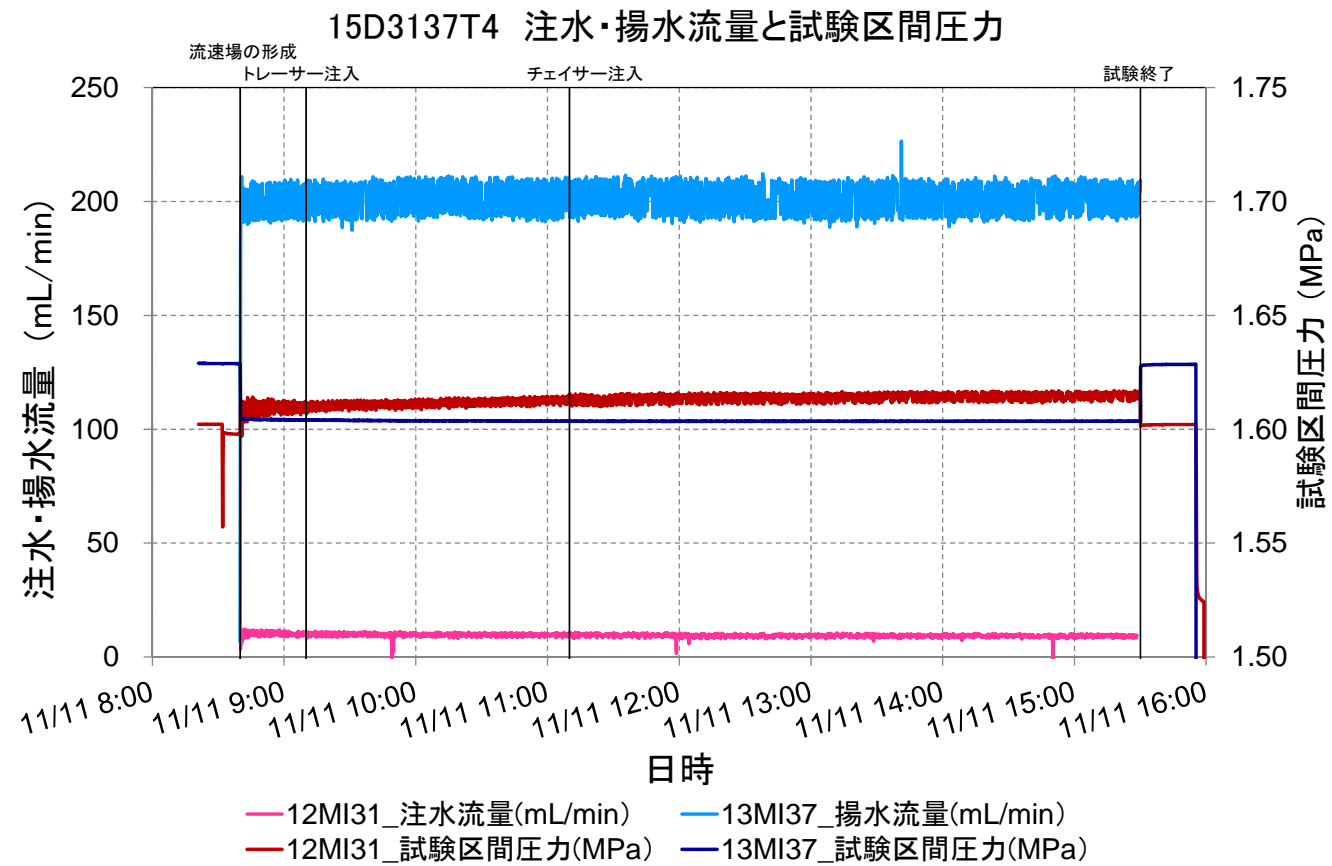


図 6.4.5-20 ダイポール試験 15W3137T3 結果



15W3137T4\_試験条件

注水孔-区間		12MI31 - D1	
揚水孔-区間		13MI37 - D1	
試験名		15W3137T4	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	11/11 9:10	
	終了 (計測終了)	11/11 15:30	
	実施時間	6:20	
使用したトレーサー		ウラン、アミノ G 酸 $\delta D$ 、 $I^-$ 、 $Rb^+$ 、 $Ba^{2+}$	
蛍光濃度 センサー	C1 (12MI31 号孔内)	Ver. 3.1	
	C2 (13MI37 号孔内)	Ver. 3.0	
	C3 (地上)	Ver. 1	
試験条件	注水流量	mL/min	9.80
	揚水流量	mL/min	201
	ダイポール比	-	20.5
	トレーサー注入	min	120
	トレーサー回収 (揚水)	min	130

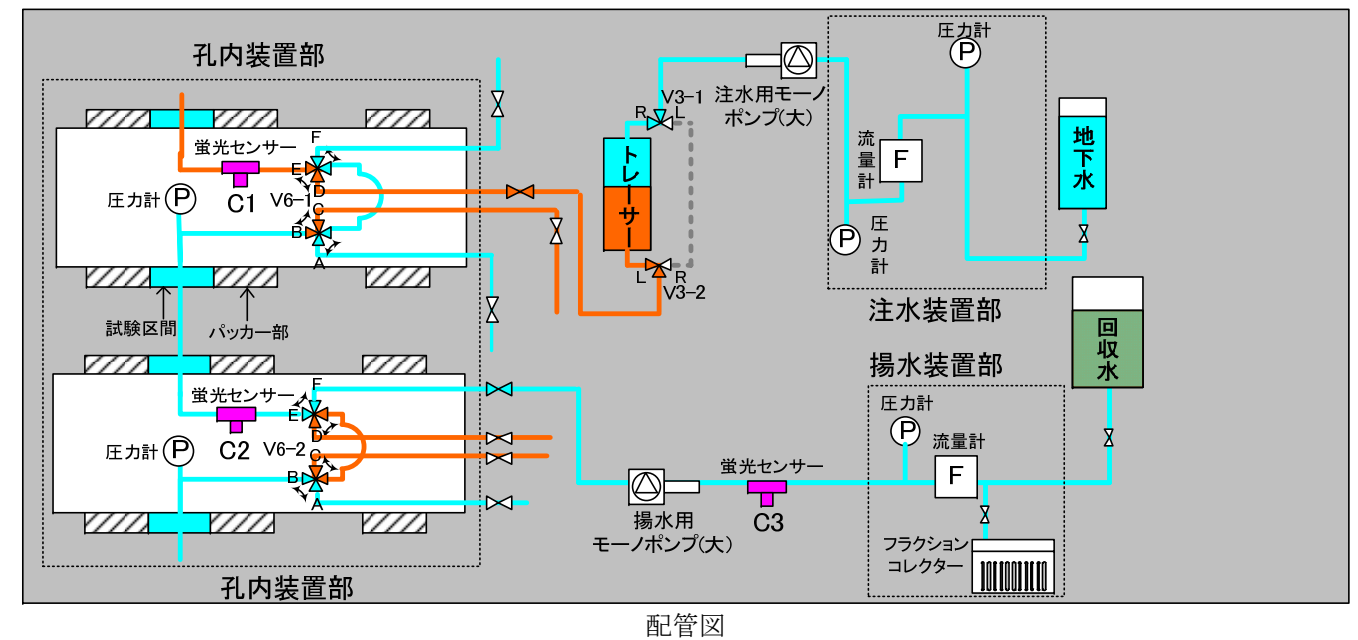
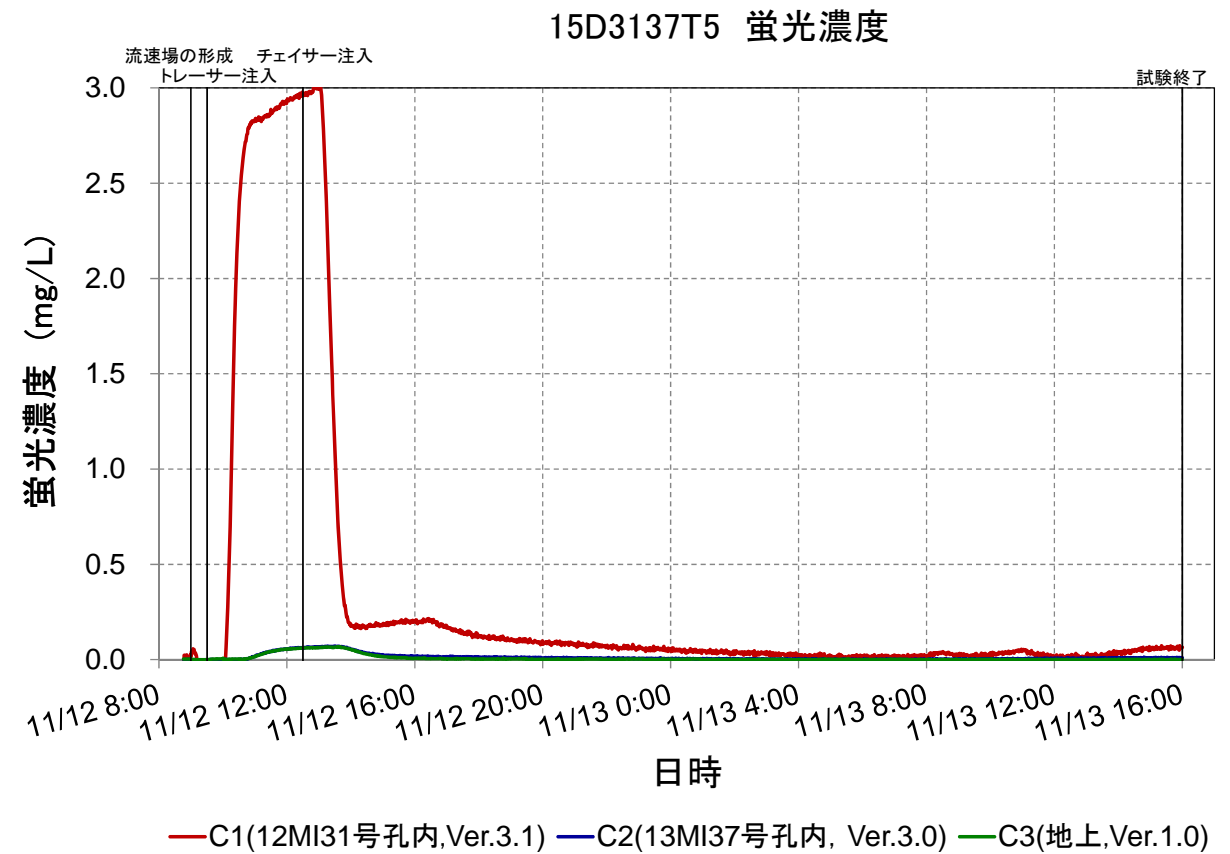
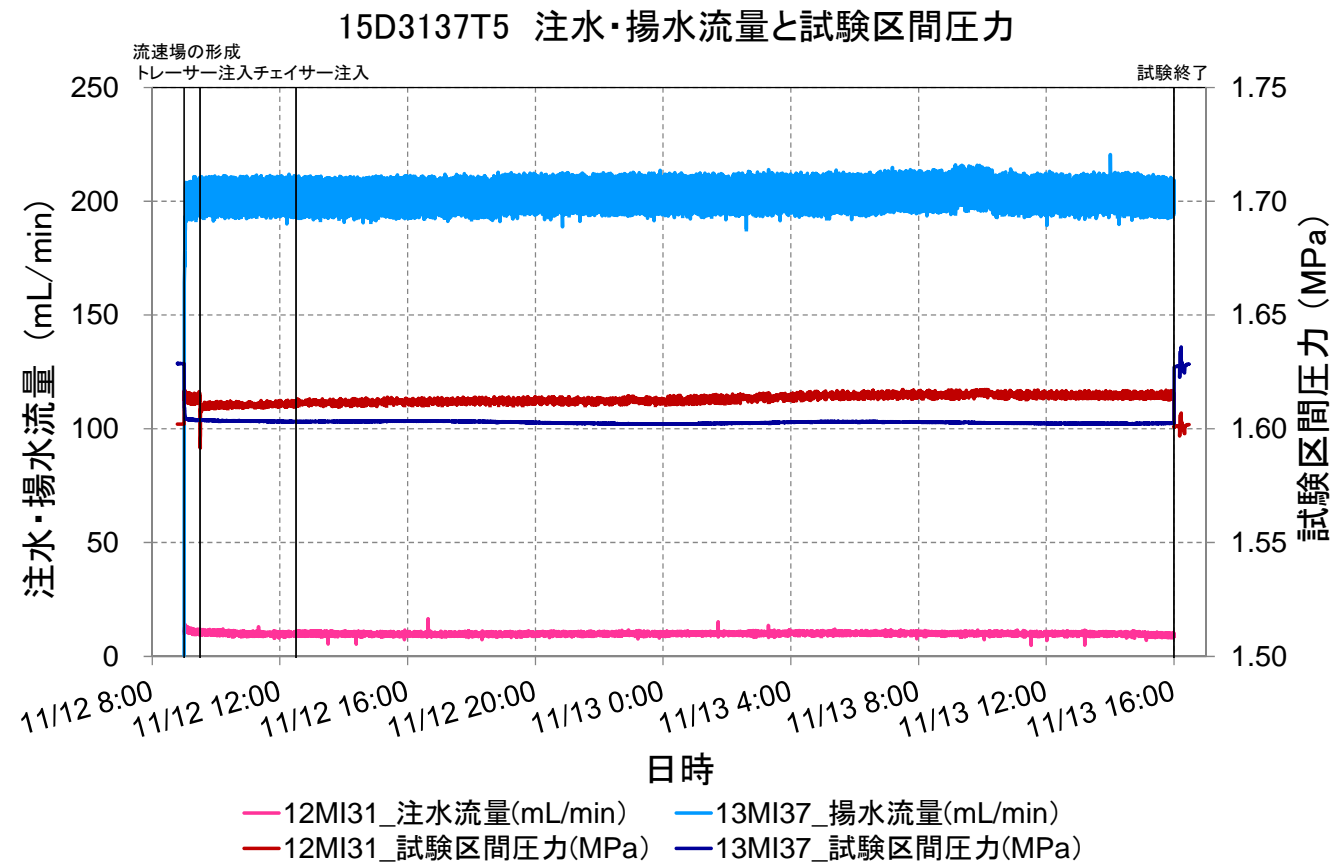


図 6.4.5-21 ダイポール試験 15W3137T4 結果



15W3137T5\_試験条件

注水孔-区間		12MI31 - D1	
揚水孔-区間		13MI37 - D1	
試験名		15W3137T5	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	11/12 9:30	
	終了 (計測終了)	11/13 16:00	
	実施時間	30:30	
使用したトレーサー		ウラン、アミノ G 酸 $\delta D$ 、 $I^-$ 、 $Rb^+$ 、 $Ba^{2+}$	
蛍光濃度 センサー	C1 (12MI31 号孔内)	Ver. 3.1	
	C2 (13MI37 号孔内)	Ver. 3.0	
	C3 (地上)	Ver. 1	
試験条件	注水流量	mL/min	10.0
	揚水流量	mL/min	203
	ダイポール比	-	20.3
	トレーサー注入	min	180
	トレーサー回収 (揚水)	min	1830

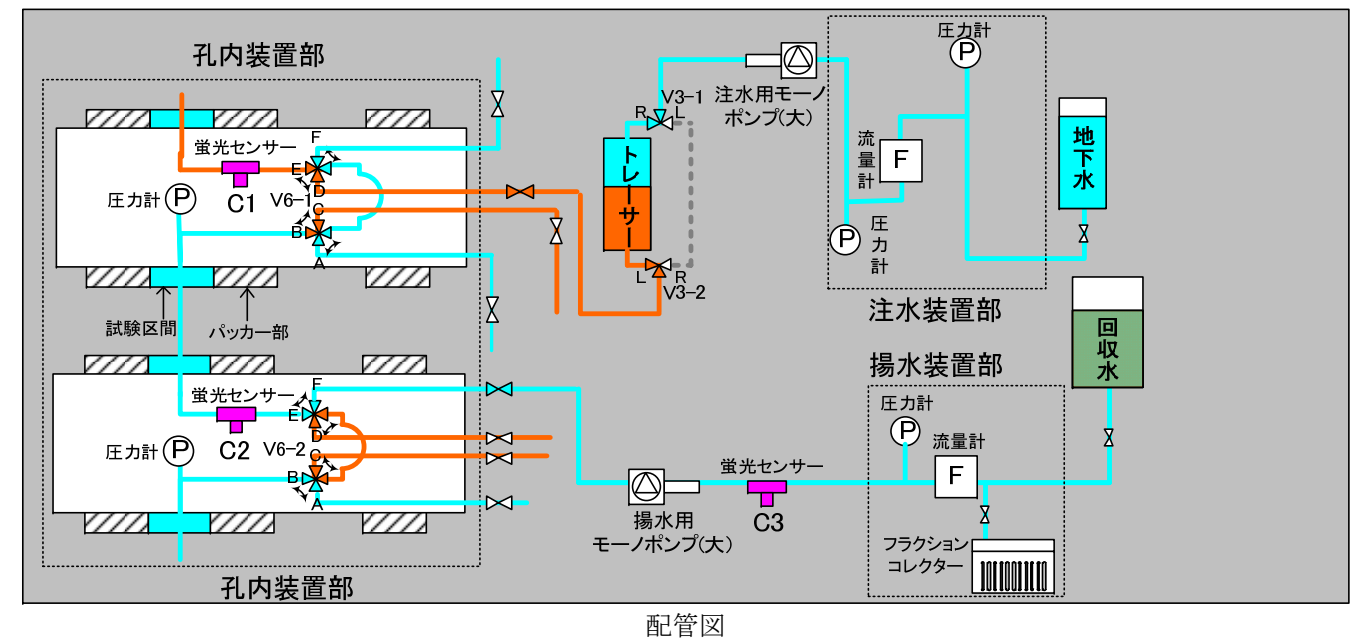
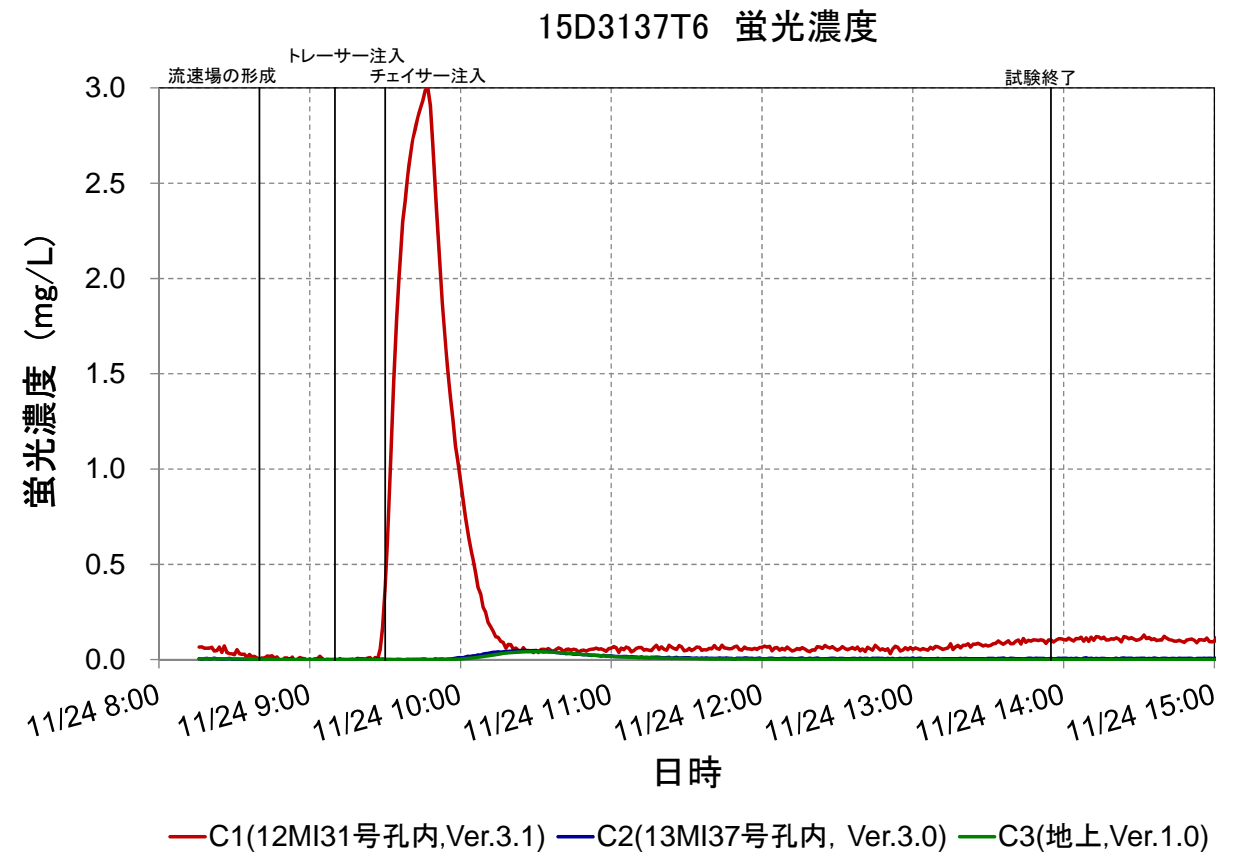
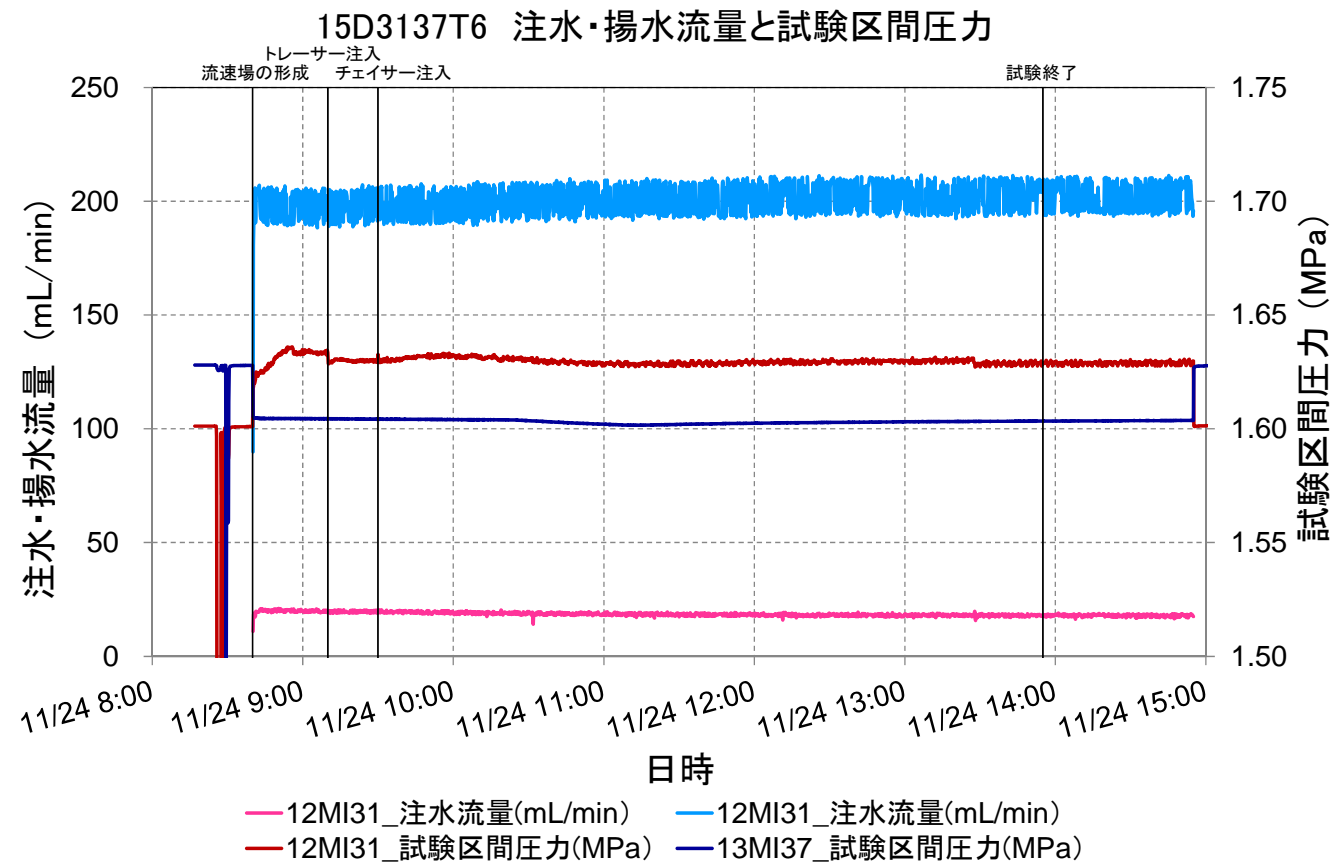


図 6.4.5-22 ダイポール試験 15W3137T5 結果





15W3137T6_試験条件			
注水孔-区間		12MI31 - D1	
揚水孔-区間		13MI37 - D1	
試験名		15W3137T6	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	11/24 9:10	
	終了 (計測終了)	11/24 13:55	
	実施時間	4:45	
使用したトレーサー		ウラニン、 $\delta D$	
蛍光濃度センサー	C1 (12MI31号孔内)	Ver. 3.1	
	C2 (13MI37号孔内)	Ver. 3.0	
	C3 (地上)	Ver. 1	
試験条件	注水流量	mL/min	19.6
	揚水流量	mL/min	200
	ダイポール比	-	10.2
	トレーサー注入	min	20
	トレーサー回収 (揚水)	min	285

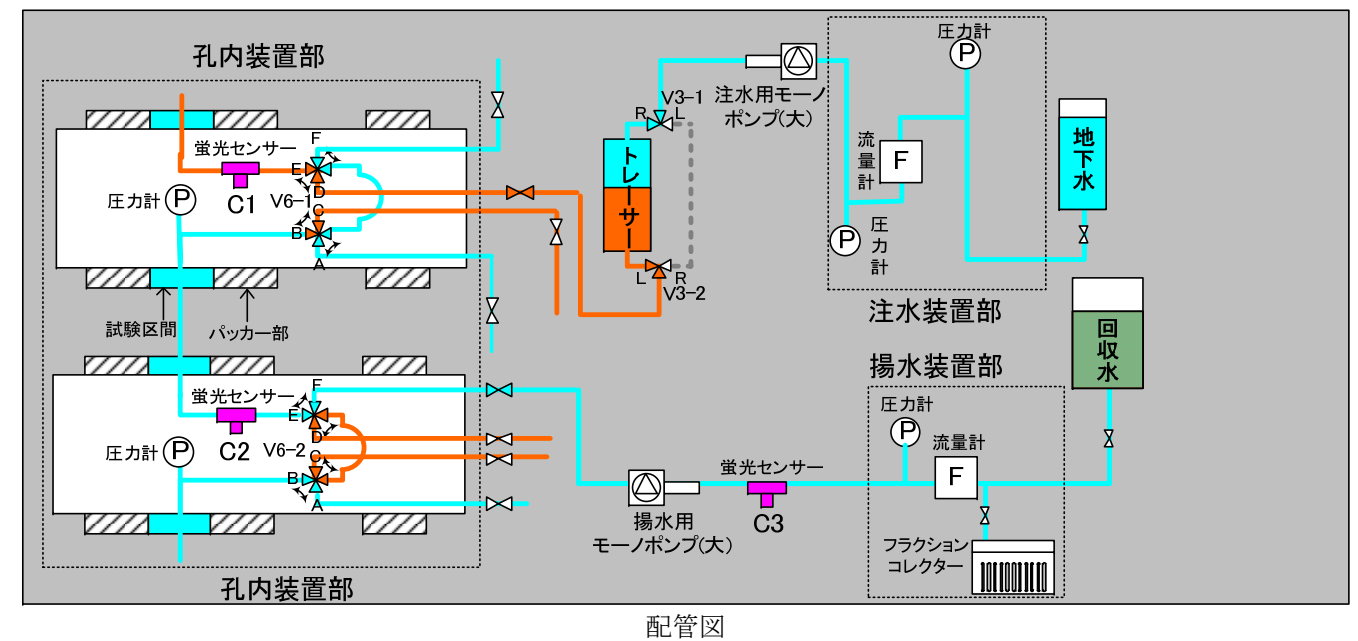
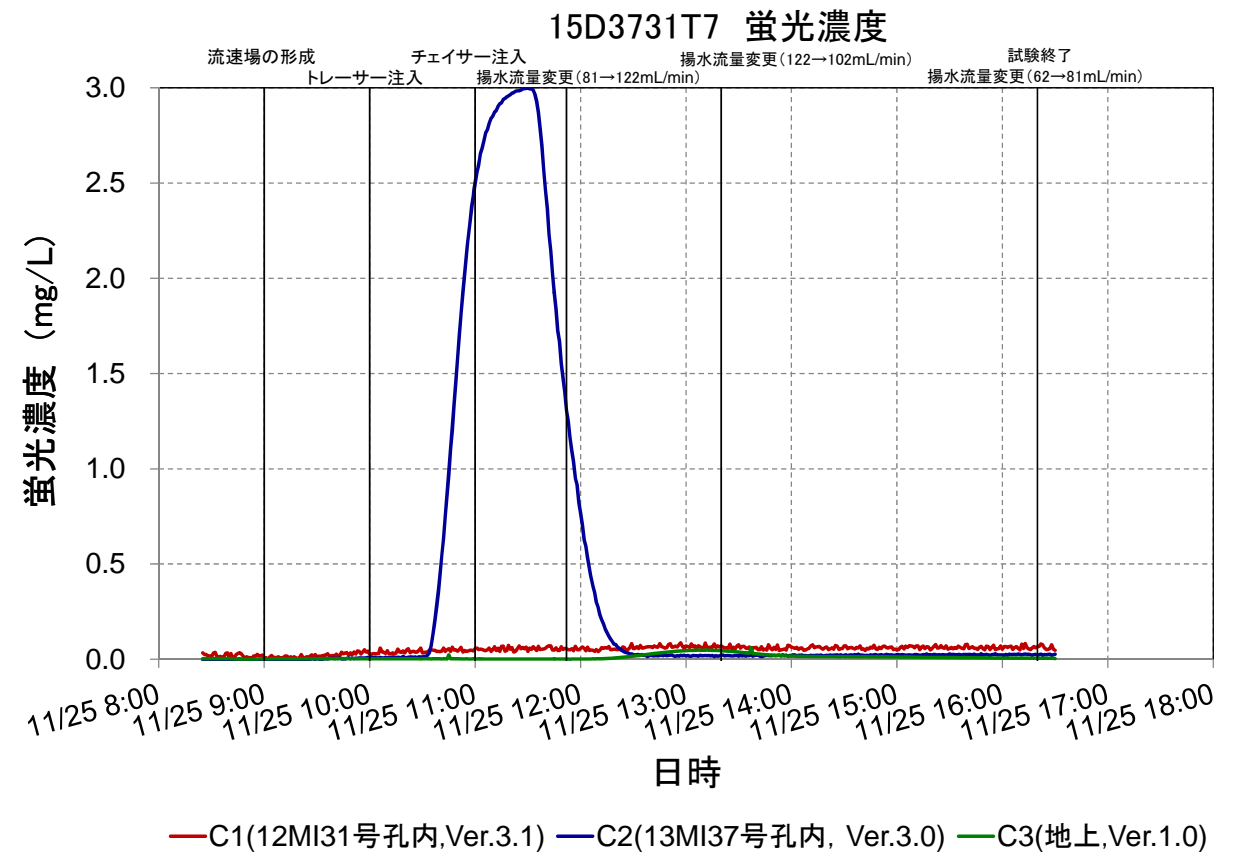
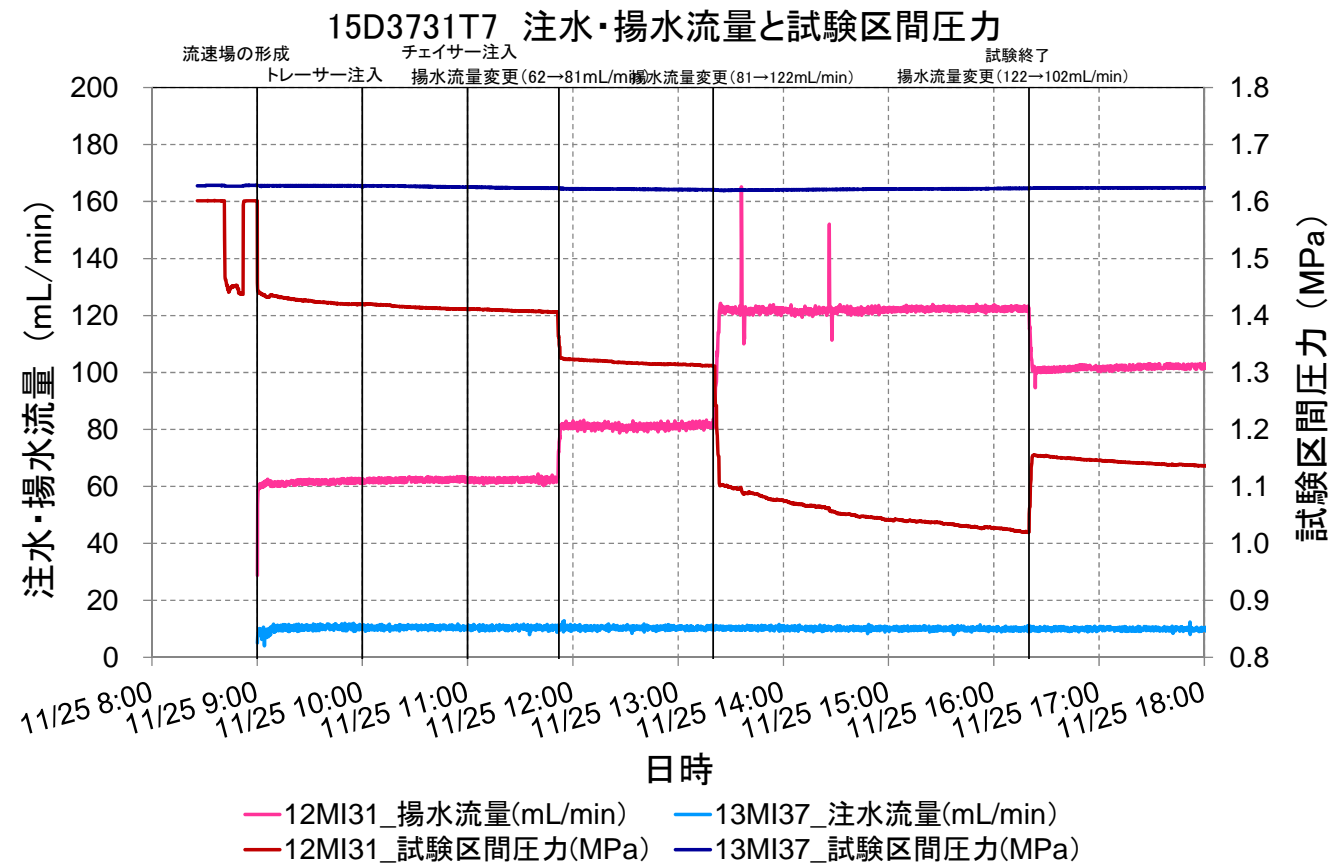


図 6.4.5-23 ダイポール試験 15W3137T6 結果



15W37131T7\_試験条件

注水孔-区間		12MI31 - D1	
揚水孔-区間		13MI37 - D1	
試験名		15W3137T7	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	11/25 10:00	
	終了 (計測終了)	11/25 16:20	
	実施時間	22:00	
使用したトレーサー		ウラン、アミノ G 酸 $\delta D$ 、 $I^-$ 、 $Rb^+$ 、 $Ba^{2+}$	
蛍光濃度センサー	C1 (12MI31 号孔内)	Ver. 3.1	
	C2 (13MI37 号孔内)	Ver. 3.0	
	C3 (地上)	Ver. 1	
試験条件	注水流量	mL/min	10.4
	揚水流量	mL/min	98.3
	ダイポール比	-	9.45
	トレーサー注入	min	60
	トレーサー回収 (揚水)	min	1220

\*揚水流量は、揚水回収開始時間 (11:40) から試験終了 (16:20) までの流量計の平均値

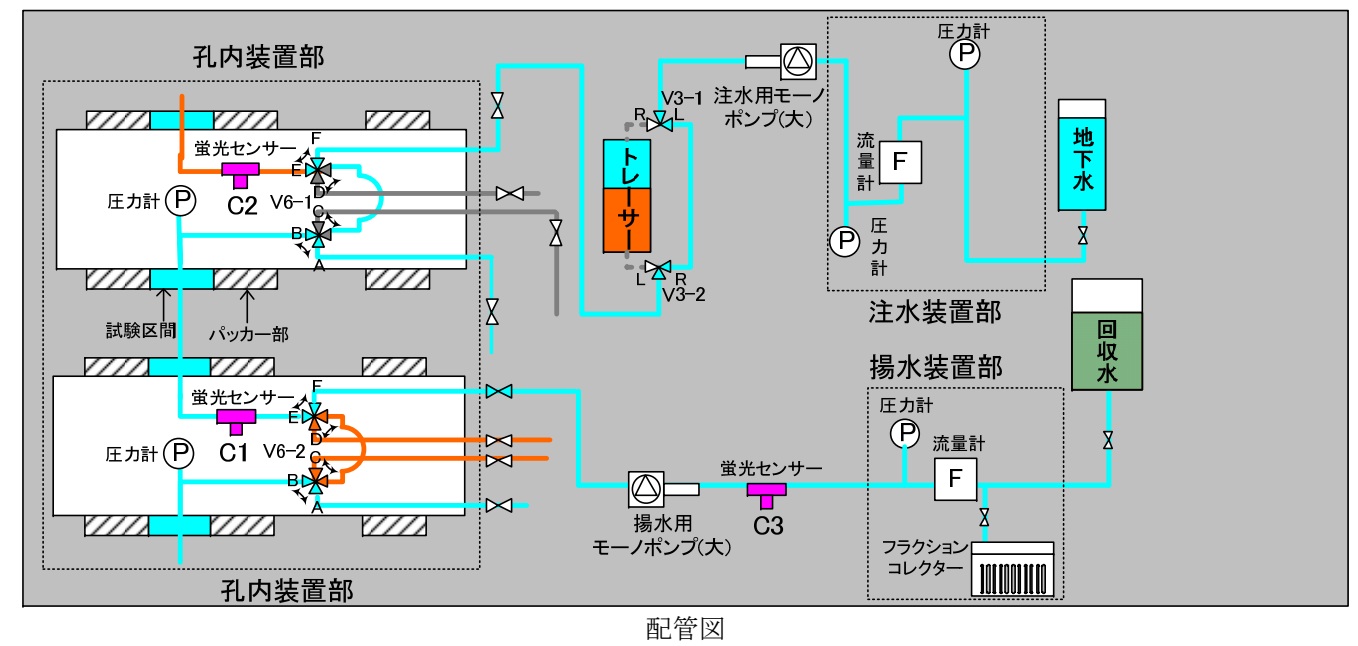
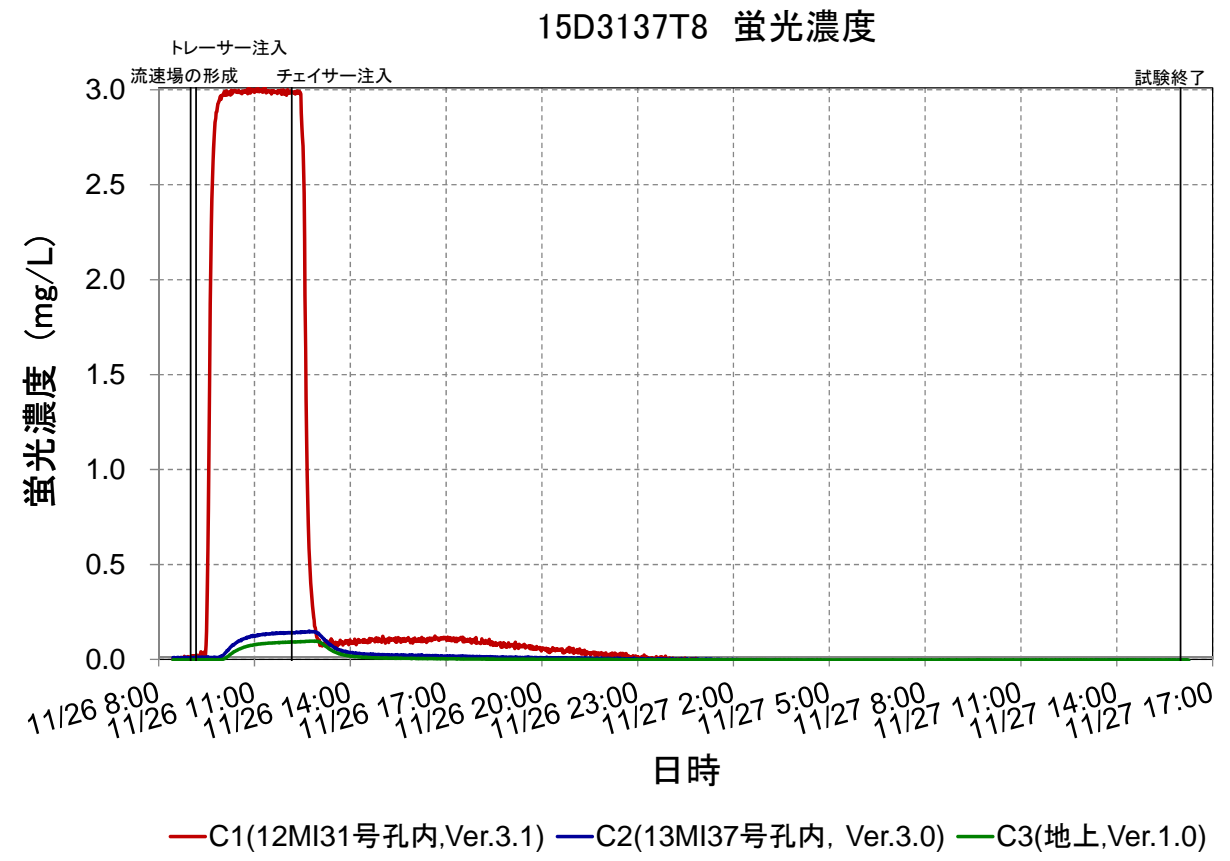
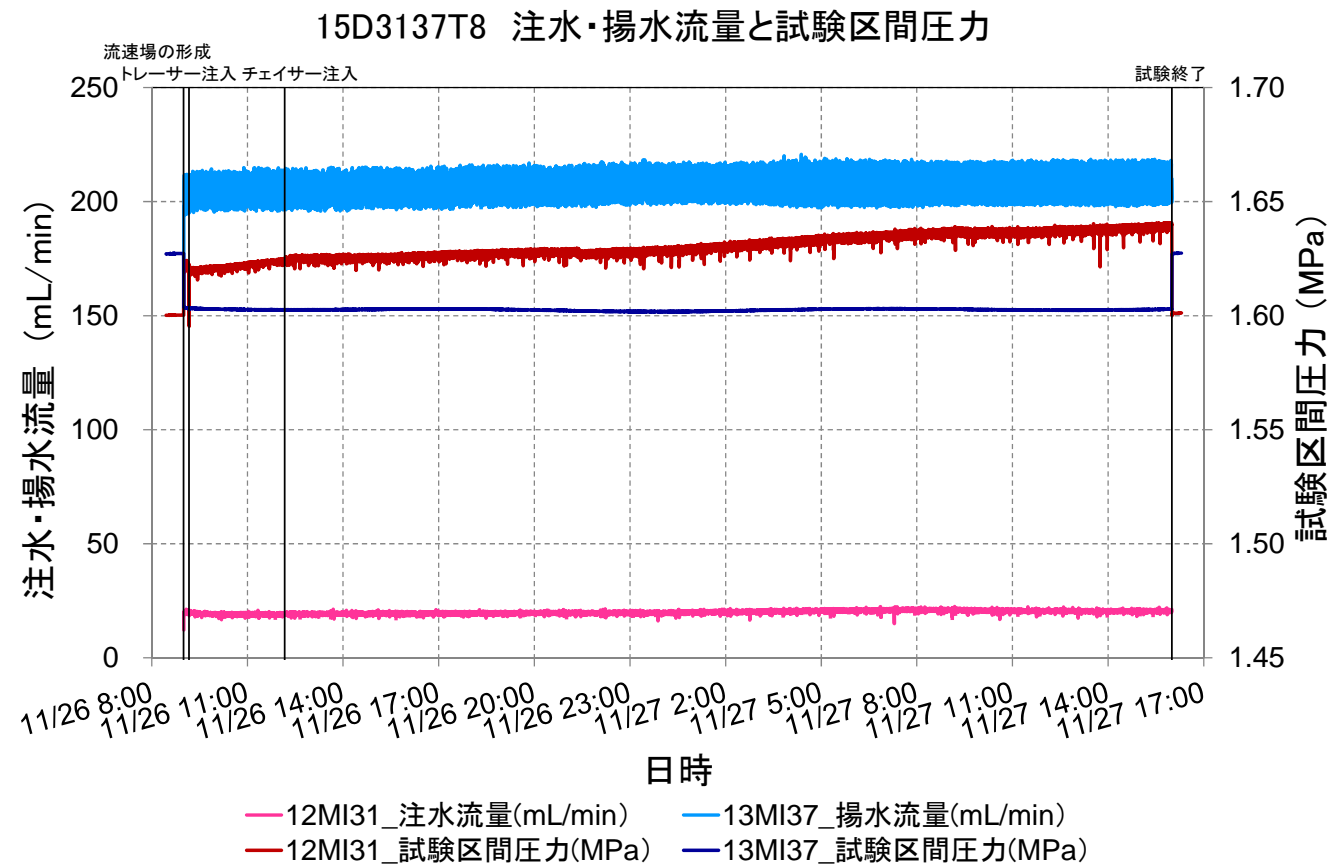


図 6.4.5-24 ダイポール試験 15W3731T7 結果



15W3137T8\_試験条件

注水孔-区間		12MI31 - D1	
揚水孔-区間		13MI37 - D1	
試験名		15W3137T8	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	11/26 9:10	
	終了 (計測終了)	11/27 16:00	
	実施時間	30:50	
使用したトレーサー		ウラン、アミノ G 酸 $\delta D$ 、 $I^-$ 、 $Rb^+$ 、 $Ba^{2+}$	
蛍光濃度 センサー	C1 (12MI31 号孔内)	Ver. 3.1	
	C2 (13MI37 号孔内)	Ver. 3.0	
	C3 (地上)	Ver. 1	
試験条件	注水流量	mL/min	19.1
	揚水流量	mL/min	207
	ダイポール比	-	10.8
	トレーサー注入	min	180
	トレーサー回収 (揚水)	min	1850

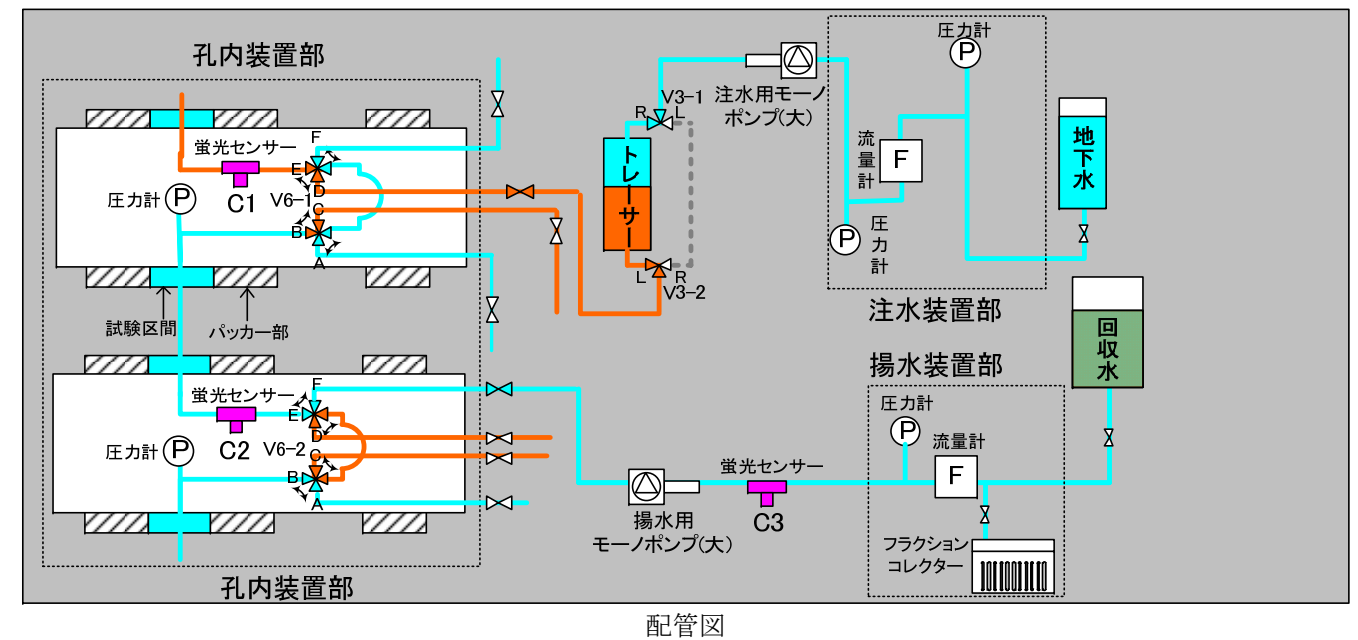
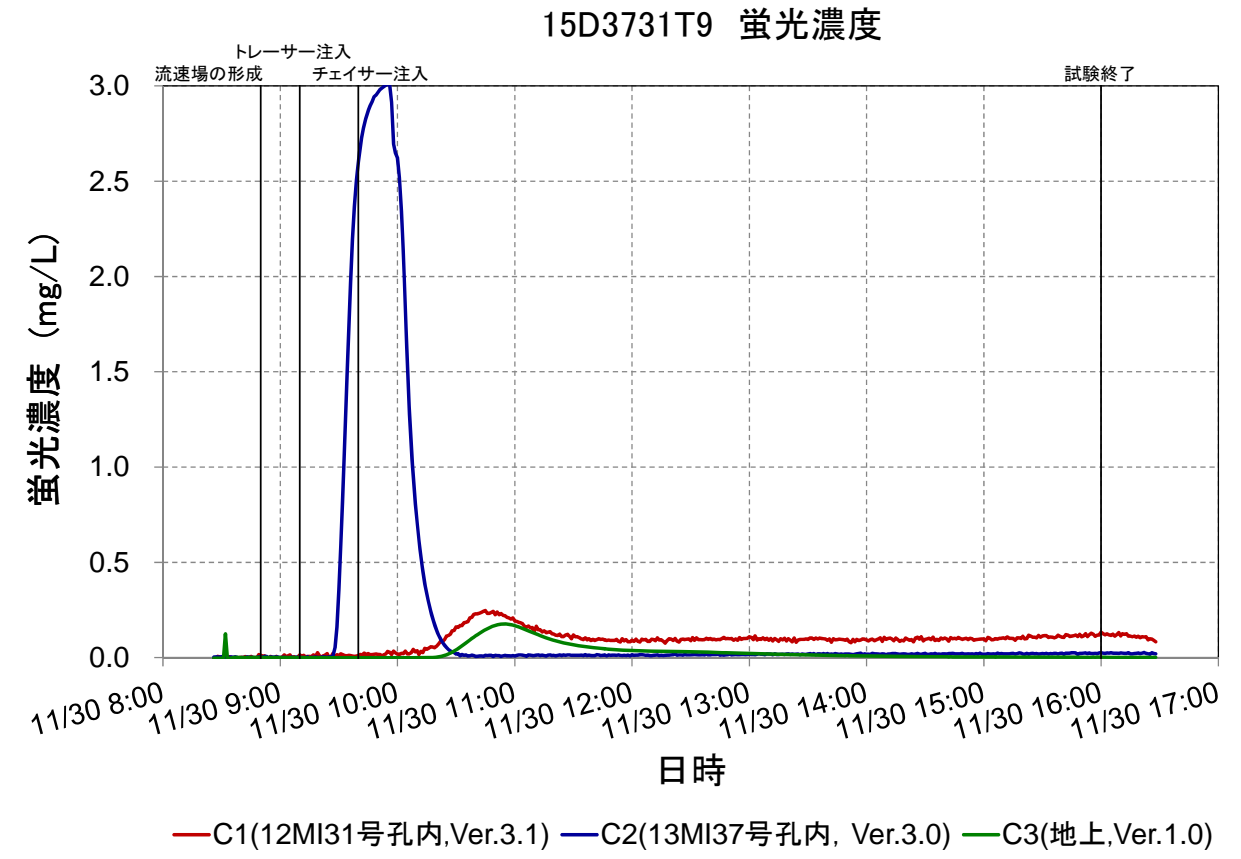
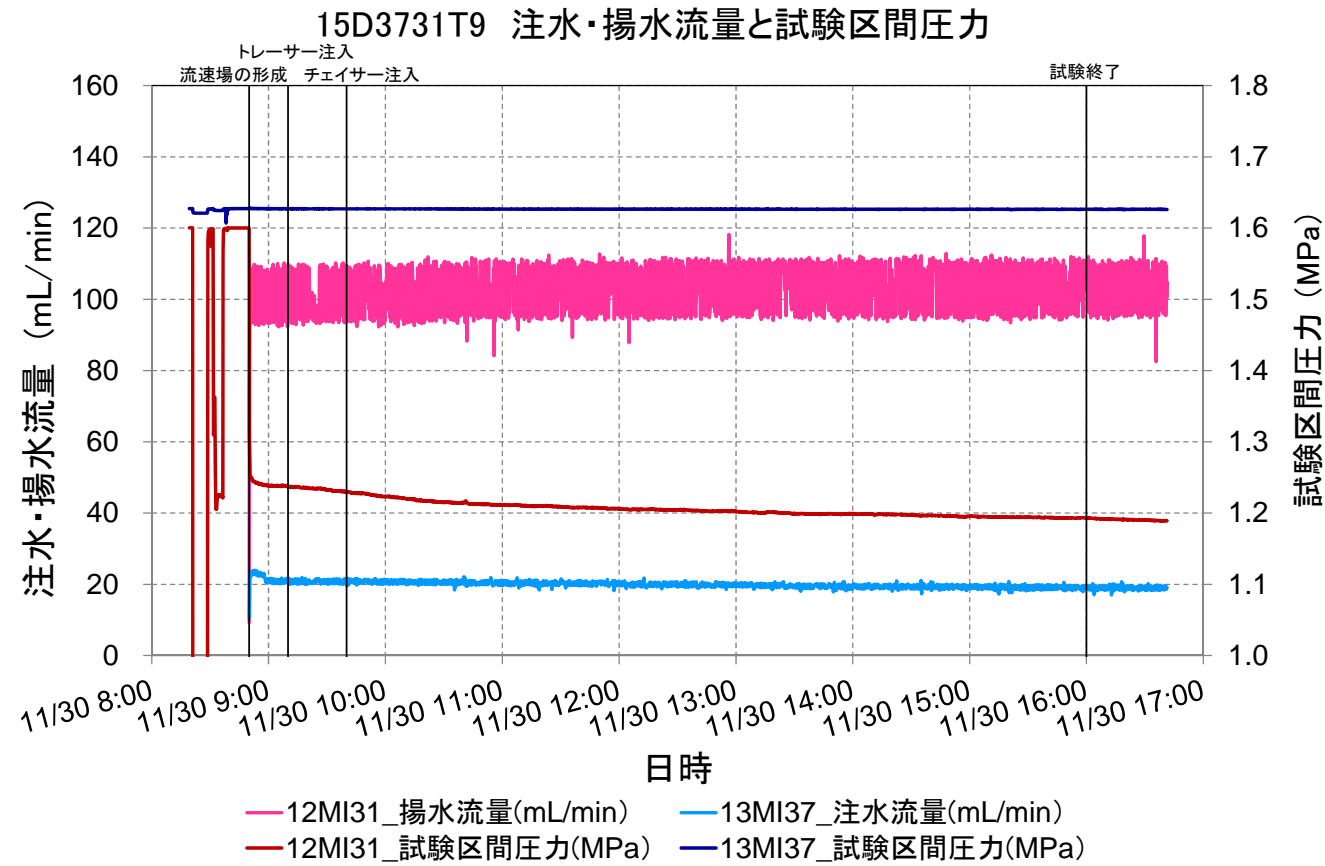


図 6.4.5-25 ダイポール試験 15W3137T8 結果



15W3731T9_試験条件			
注水孔-区間		12MI31 - D1	
揚水孔-区間		13MI37 - D1	
試験名		15W3137T9	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	11/30 9:10	
	終了 (計測終了)	11/30 16:00	
	実施時間	6:50	
使用したトレーサー		ウラニン、 $\delta D$	
蛍光濃度センサー	C1 (12MI31号孔内)	Ver. 3.1	
	C2 (13MI37号孔内)	Ver. 3.0	
	C3 (地上)	Ver. 1	
試験条件	注水流量	mL/min	20.8
	揚水流量	mL/min	103
	ダイポール比	-	4.95
	トレーサー注入	min	30
	トレーサー回収 (揚水)	min	410

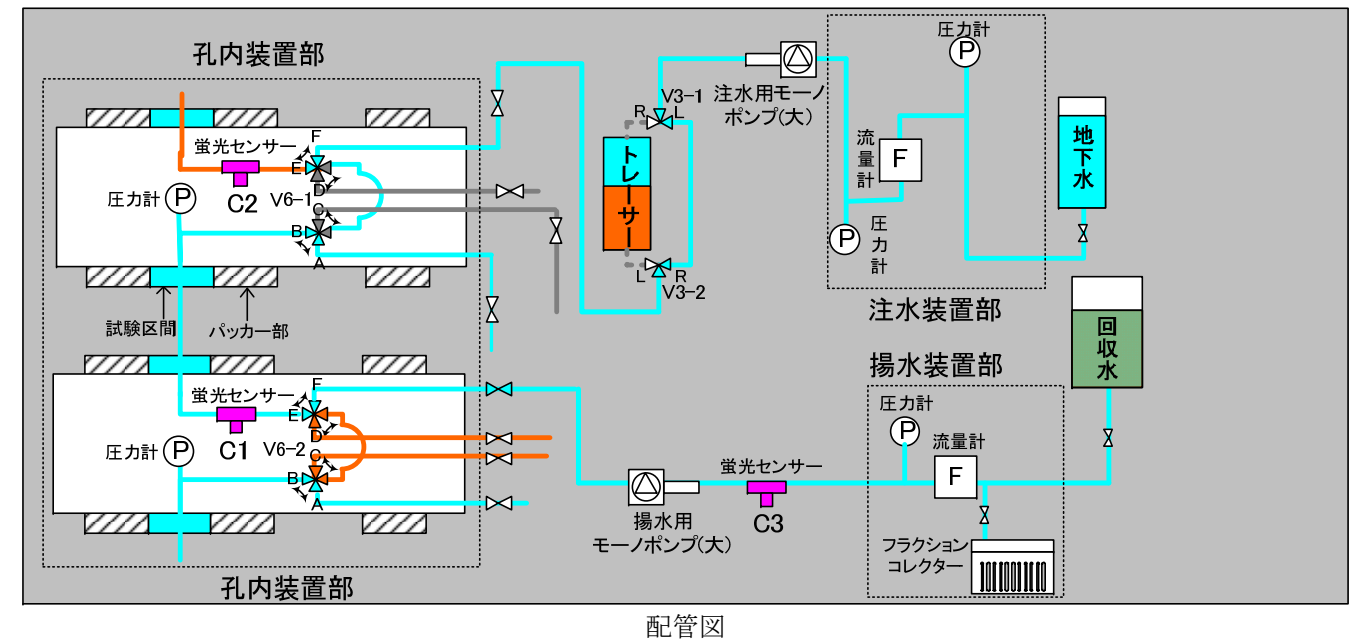
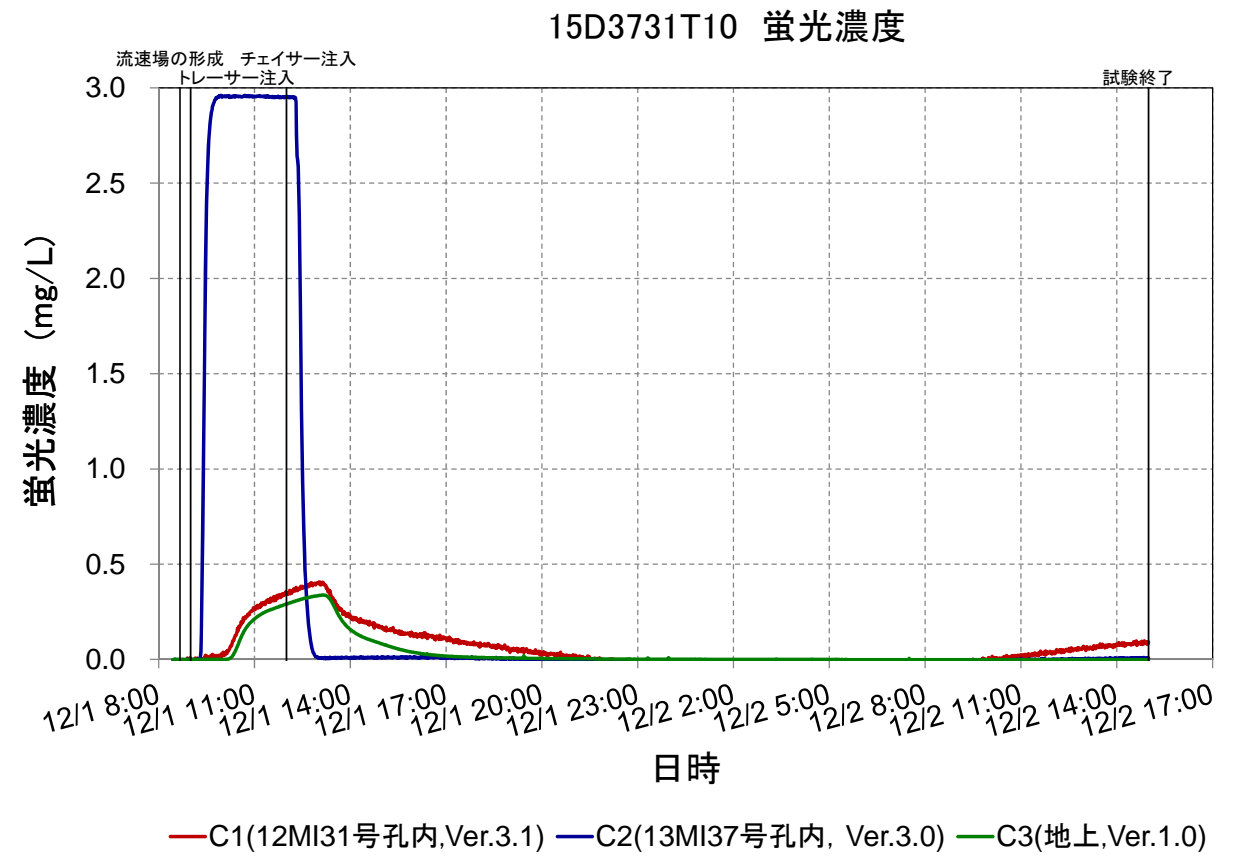
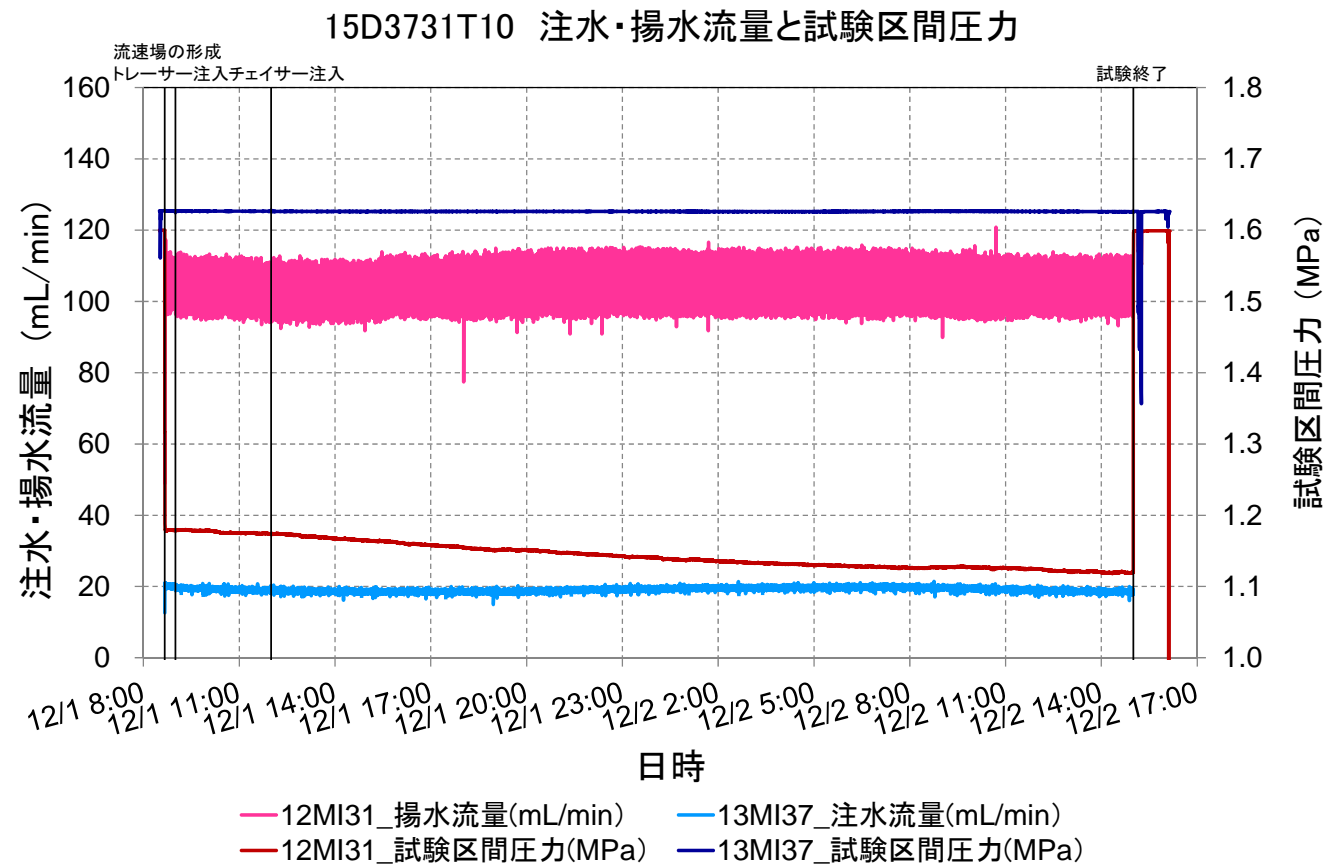


図 6. 4. 5-26 ダイポール試験 15W3731T9 結果 (流量-圧力のグラフのイベントが抜けていたので追記)



15W3731T10\_試験条件

注水孔-区間		12MI31 - D1	
揚水孔-区間		13MI37 - D1	
試験名		15W3137T10	
試験時間	開始 (トレーサー注入)	12/1 9:00	
	終了 (計測終了)	12/2 15:00	
	実施時間	30:00	
使用したトレーサー		ウラニン、アミノ G 酸 $\delta D$ 、 $I^-$ 、 $Rb^+$ 、 $Ba^{2+}$	
蛍光濃度 センサー	C1 (12MI31 号孔内)	Ver. 3.1	
	C2 (13MI37 号孔内)	Ver. 3.0	
	C3 (地上)	Ver. 1	
試験条件	注水流量	mL/min	19.2
	揚水流量	mL/min	104
	ダイポール比	-	5.42
	トレーサー注入	min	180
	トレーサー回収 (揚水)	min	1800

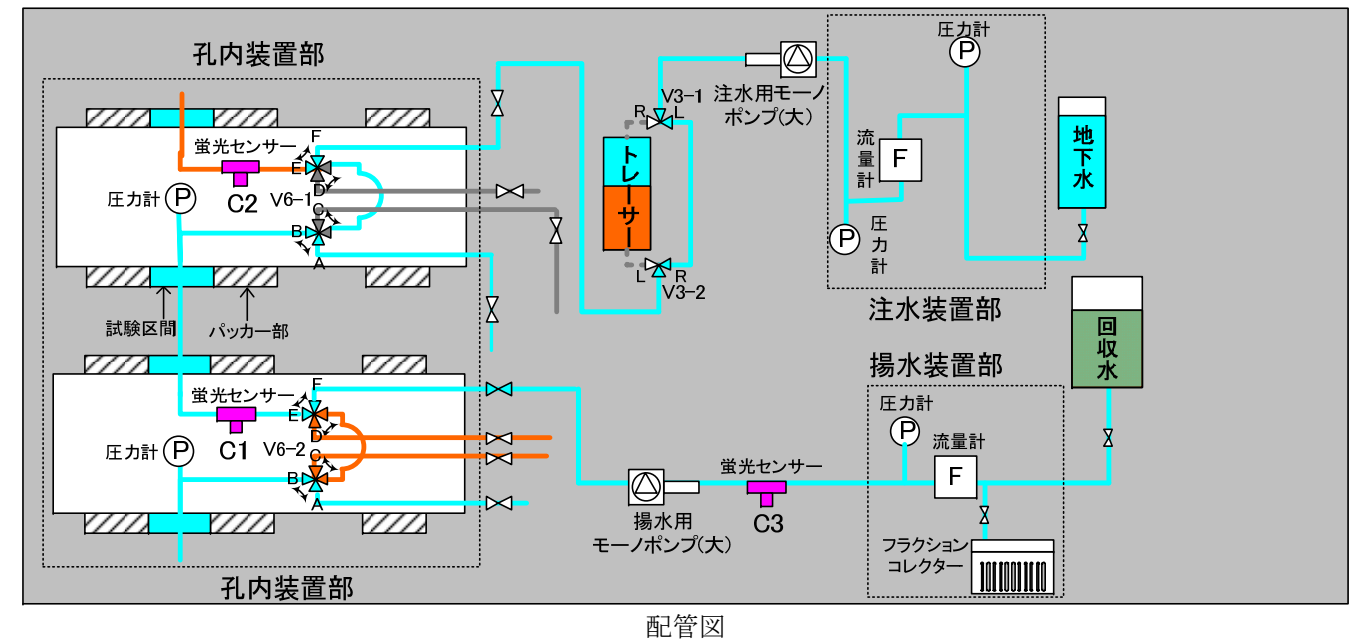


図 6.4.5-27 ダイポール試験 15W3731T10 結果

#### 6.4.6 試験装置の適用性の確認

##### (1) ウラニン原液作成方法の変更

今年度は、アミノG酸とは別にウラニン単独で濃度1,000mg/Lの原液を作成し、比較的ばらつきの少ない濃度で試験用トレーサー溶液を作成することができた。同様に、今回使用した6種類のトレーサーを用いたカクテルは、それぞれ個別に作成した原液を希釈した後に混合した。その結果、沈殿物や濁り等の問題は確認されなかった。

##### (2) 孔内用光ファイバーの保護方法とロッド径の変更

光ファイバーの保護とロッド径の変更は、改善目的が類似しているため本項でまとめる。

今年度の試験では、前回使用したJFTロッドからモニタリング装置と同サイズの内径φ50.5mmのロッドへ変更した。ロッド内径の拡大に伴い、光ファイバーやチューブを保護する蛇腹管の外径は約φ40mmとした。ロッド内へ収納したチューブ類の断面概念を図6.4.6-1に、今回使用したロッドの構造を図6.4.6-2に示す。

蛇腹管内へのチューブ類の収納作業は事前に屋外の作業場にて実施した。その結果、装置挿入作業の効率性は著しく改善した。また、蛇腹管内に十分なスペースが確保できたことや、ロッドのOリング構造の変更により、光ファイバーを破損することなく装置を挿入することができた。

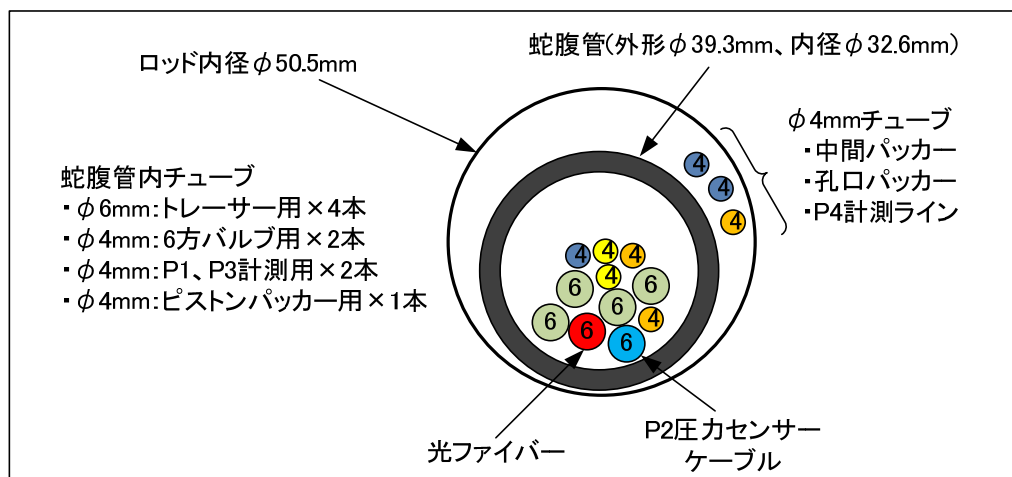


図 6.4.6-1 ロッド内に収納したチューブ類の断面概念

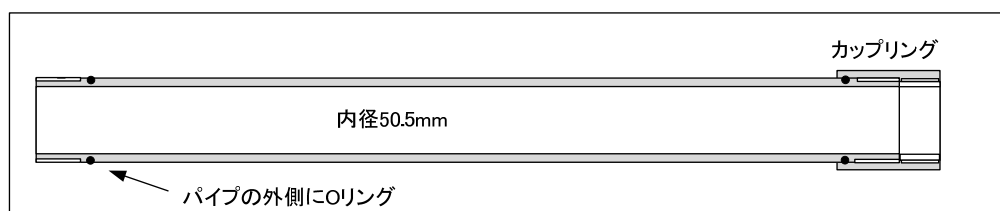


図 6.4.6-2 使用したロッドの構造

### (3) 光ファイバーの接続箇所数の変更

昨年度の試験では、蛍光濃度センサーの Ver. 3.0 について、高出力の光源に変更したにも関わらずウラニンの蛍光濃度が 0.1mg/L 未満では濃度変化率が減少する事象が生じた。よって、光ファイバーの接続箇所を 10 か所から 4 か所に変更した。この変更により、ウラニン濃度 0.01mg/L の低濃度の判別が可能となった。

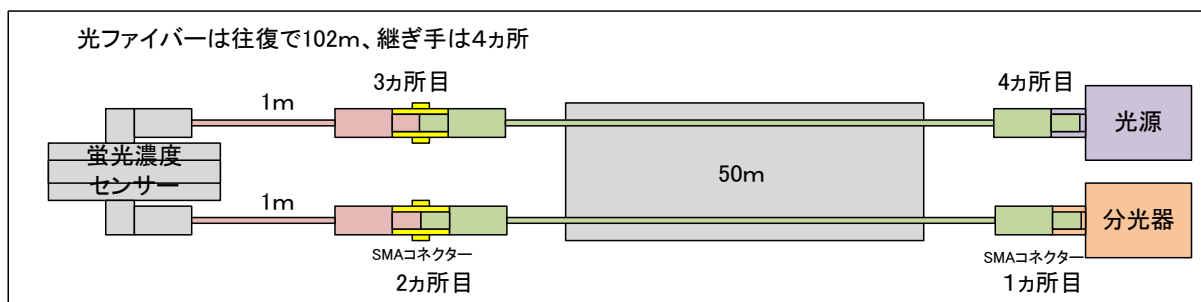


図 6.4.6-3 接続箇所を 4 か所とした光ファイバーの概念

### (4) 中間パッカーの設置

昨年度のトレーサー試験装置は、試験区間を形成するピストンパッカーと孔口パッカーの 2 連パッカーとしており、孔口パッカーだけでは孔周辺の間隙水圧の低下を抑えられず孔口方向へ向かう地下水流れの存在が懸念された。今年度は、孔口パッカーとピストンパッカーの間に中間パッカーを設けた 3 連パッカーとし、さらに孔口パッカーの設置深度を孔口ケーシング直下の浅い深度に設置した。

3 連パッカーのトレーサー試験装置の設置概念を図 6.4.6-4 に示す。

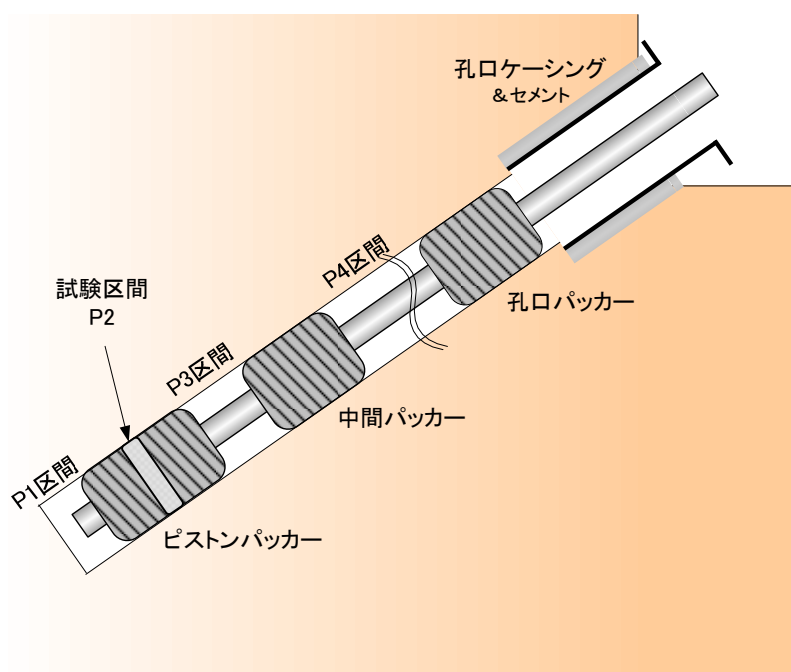


図 6.4.6-4 3 連パッカーのトレーサー試験装置の設置概念

3 連パッカーによる間隙水圧保持の効果は、トレーサー試験毎に計測した周辺孔の水圧計測区間の結果を基に、試験区間との水位差（動水勾配）への影響の有無から確認した。

図 6.4.6-5、図 6.4.6-6 は、それぞれ 12MI31 号孔 P2 区間、13MI37 号孔 P2 区間と、各計測区間との水位差を表す。また、表 6.4.6-1 にトレーサー試験孔の水圧計測区間を、表 6.4.4-3（再掲）に試験期間中の主要なイベントログを示す。

図 6.4.6-5、図 6.4.6-6 より、動水勾配が最も大きな変化を示した区間は 12MI30 号孔 Int3 である。ただし、この変化は 12MI30 号孔のモニタリング装置のパッカー追加圧による遮へい性の改善による影響であり、本検証とは無関係の事象である。

トレーサー試験装置の入れ替えを行った 10 月 23 日、11 月 6 日、12 月 3 日頃に着目すると、試験装置の設置・回収前後で動水勾配に顕著な変化がないことが判る。また、トレーサー試験装置の設置期間内においても、パッカー追加圧の時期を除き動水勾配にほとんど変化は認められなかった。以上より、中間パッカーの追加と孔口パッカーの設置深度の変更により、周辺計測孔を含めた水理場の安定性は大きく改善したものと考えられる。

表 6.4.6-1 12MI31 号孔、13MI37 号孔の水圧計測区間一覧

区間名	12MI31 号孔	13MI37 号孔
試験区間下位 P1	22.54~26.00mabh	23.78~25.45mabh
試験区間 P2	21.82~21.98mabh	23.04~23.24mabh
試験区間上位 P3	15.60~21.27mabh	20.89~22.51mabh
中間 P~孔口 P 間 P4	7.46~14.60mabh	6.75~19.89mabh

表 6.4.4-3（再掲） 試験期間中の主要なイベントログ

日付	対象孔	イベント
10/23	12MI31 号孔	トレーサー試験装置の設置
11/6	13MI37 号孔	トレーサー試験装置の設置
11/13	12MI30 号孔	モニタリング装置のパッカー追加圧
12/3	12MI31 号孔	トレーサー試験装置の回収
12/15	13MI37 号孔	トレーサー試験装置の回収



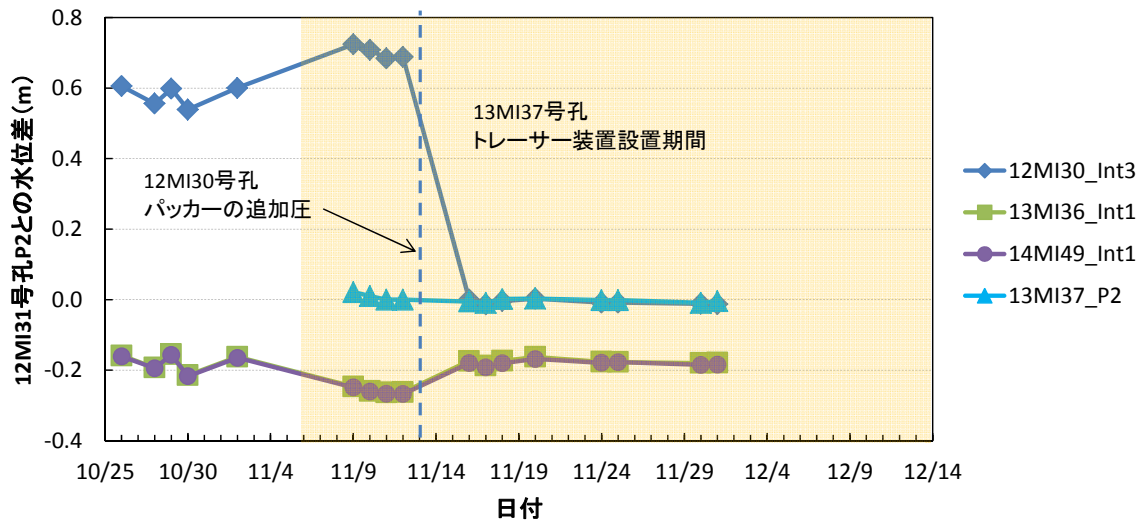


図 6.4.6-5 試験期間中の 12MI31 号孔 P2 区間と周辺孔計測区間の水位差

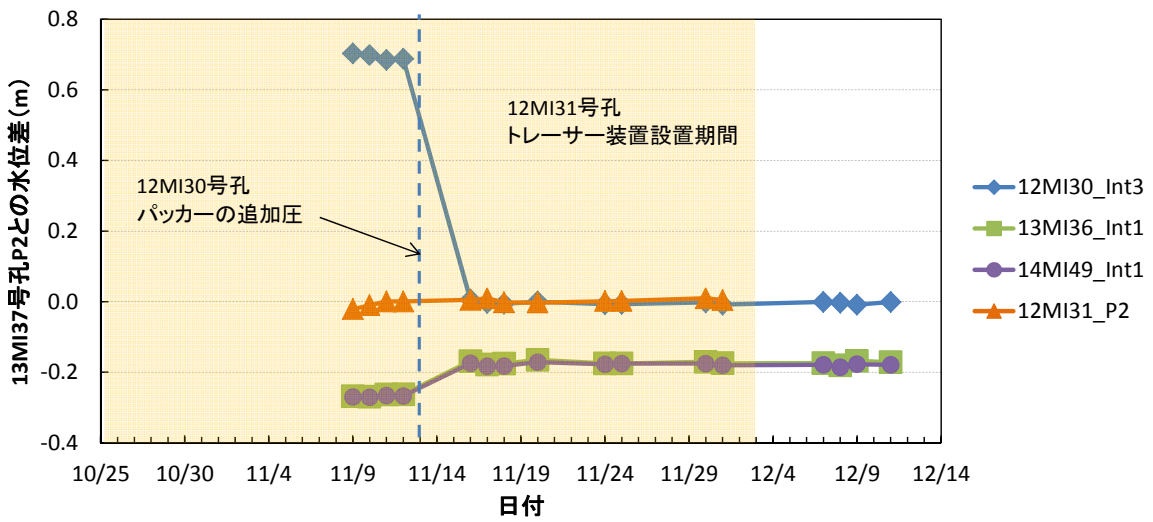


図 6.4.6-6 試験期間中の 13MI37 号孔 P2 区間と周辺孔計測区間の水位差

#### 6.4.7 適用性試験で新たに顕在化した問題点とその対応方針

今年度の原位置適用性試験によって顕在化した問題点とその対応方針について以下に示す。

##### 6.4.7.1 蛍光濃度センサーについて

蛍光濃度センサーは、僅かな試験環境の変化に応じて計測値が顕著に反応する。本試験において試験孔内に設置した蛍光濃度センサーで確認された不可解な挙動を以下に示す。

- a) バルブの切り替え時（一瞬の圧力変化）に蛍光濃度センサーが反応し、蛍光強度の値が変化する。
- b) 一定条件下において蛍光強度が変動する。

a)については、単孔トレーサー試験のC2（13MI37号孔試験区間に設置された蛍光濃度センサー（Ver. 3.0））で見られた（例えば、図6.4.5-7や図6.4.5-12）。同条件下で使用されたC1（12MI31号孔試験区間に設置された蛍光濃度センサー（Ver. 3.1））ではこのような現象は確認されなかったため、蛍光濃度センサー（Ver. 3.0）の固有の問題であると考えられる。

b)は、ダイポール試験のC1（12MI31号孔試験区間に設置された蛍光濃度センサー（Ver. 3.1））で見られた。例えば試験ケース15W3731T10（図6.4.5-27）では、トレーサー通過後の12月1日23時以降に蛍光強度はトレーサー通過前の蛍光強度よりも小さくなっており、さらに時間が経過すると蛍光強度が再び上昇している（12月2日12時以降）。C1は揚水孔側の試験区間に設置されており、揚水孔地上部に設置されたC3と同様の傾向を示すはずであるが、C3では前述したような挙動は確認されていない。C1は試験孔内に設置されているため、厳密には試験実施者が把握できていない何らかの影響を受けている可能性はあるものの、同様の条件下で使用されたC2（13MI37号孔試験区間に設置された蛍光濃度センサー（Ver. 3.0））ではこのような現象が確認されなかったため、やはり蛍光濃度センサー（Ver. 3.1）の固有の問題であると考えられる。

ただし、これらの現象については、圧力あるいは温度による影響の有無を検証する必要がある。また、6.4.4.2にも示したように検量線の精度が不確かな場合は化学分析結果とフィッティングする等、蛍光強度から蛍光濃度への変換について別途対応が必要である。

#### 6.4.7.2 6方バルブの作動不良

今回の適用性試験では、トレーサーを理想的な濃度形状で試験区間へ注入するために用いた6方バルブの故障と作動不良が発生した。故障したのはトレーサー試験装置1号機（12MI31号孔に設置）の6方バルブであり、作動不良を起こしたのはトレーサー試験装置2号機（13MI37号孔に設置）の6方バルブである。

##### (1) 1号機の6方バルブの故障について

###### a. 故障の経緯

1号機の6方バルブは、昨年度の瑞浪のトレーサー試験にも使用しており、昨年度は故障せずに作動していた。本年度は、今回の試験前の9月にバルブのメンテナンス（洗浄とOリングの交換）を実施した。また、メンテナンス後は室内でのポイント希釈実験にも使用している。

1号機の6方バルブが故障するまでの経緯を時系列で示す。

- ・ 10/22 坑道内で装置の組立：バルブ位置F-E側
- ・ 10/23 12MI31号孔へ装置を設置：バルブ位置F-E側
- ・ 10/25 透水試験の揚水準備：バルブ位置F-E側、揚水量70～80mL/min
- ・ 10/26 11:30～12:40 透水試験：バルブ位置F-E側、揚水量78mL/min  
15:07 ポイント希釈試験の流速場の形成：バルブ位置F-E側、地下水循環流量100mL/min、  
バルブ位置D-C側、トレーサー循環流量100mL/min、  
\*この時点までは6方バルブに問題はなく、トレーサーは濃度が変化することなく循環  
15:30 トレーサーの置換を行うための6方バルブの切り替え：バルブ位置A-F側、閉鎖  
バルブ位置D-E側、トレーサー循環流量100mL/min、
- ・ 10/27 8:20 ポイント希釈試験終了  
13:10 ダイポール試験の準備としてのバルブ切り替え：バルブ位置F-E側、地下水注水流量0cc/min、バルブ位置D-C側、トレーサー循環流量80mL/min、

10/26のトレーサー置換後、トレーサーをチューブ内に注入し地上へ回収するという循環を試みたが、チューブ内の容積に相当する量のトレーサーを注入した後も地上でトレーサー濃度が上昇しなかったこと、および循環ラインを解放したところ地下水が湧出したことから、6方バルブが故障したことが判明した。

故障したバルブを現場で修理するには日数がかかり、予定している試験の遂行が困難となる恐れがあった。それに対し、理想的な濃度形状でのトレーサーの注入はできないものの、修理をしなくても試験は可能であると考えられた。そのため、修理はせずに6方バルブの回路上問題の無いB-Cラインを用いてその後の試験を実施することとした。

b. 故障の原因

現場試験終了後、1号機の6方バルブを分解したところ、図 6.4.7-1 に示す2カ所のOリングが傷んでおり、特に3番目のOリングは破断していた。

6方バルブが故障したのは10/26 15:30、もしくは10/27 13:10のバルブ切り替え時と考えられる。仮に故障が10/26であった場合、バルブ切り替え後はトレーサーを循環するだけであったため、バルブが故障していても試験の進行に問題はなく、その時点では故障を認識できなかったことになる。

今回の1号機の6方バルブの故障については、割れ目内に介在する充填鉱物が透水試験時に6方バルブのF-E通路部に溜り、ポイント希釈試験のバルブ切り替え時に3番Oリングが充填物により破損した可能性が高い。その根拠を以下に示す。

- ・ 1号機が設置された12MI31号孔の試験区間は、単孔トレーサー試験において揚水時と注水時とで水压の応答が異なり、割れ目に充填物が多く含まれると推定された。
- ・ 6方バルブが故障した2日後の10/29には、回収した地下水を採取するフラクションコレクターの3方バルブが細粒分により作動不良を起こした。
- ・ 装置回収後、試験区間の形成に使用したメッシュ部に大量の細粒分が付着していた(図 6.4.7-2)。
- ・ 昨年度の原位置試験と本年度の室内試験においてバルブ動作に問題はなかった。

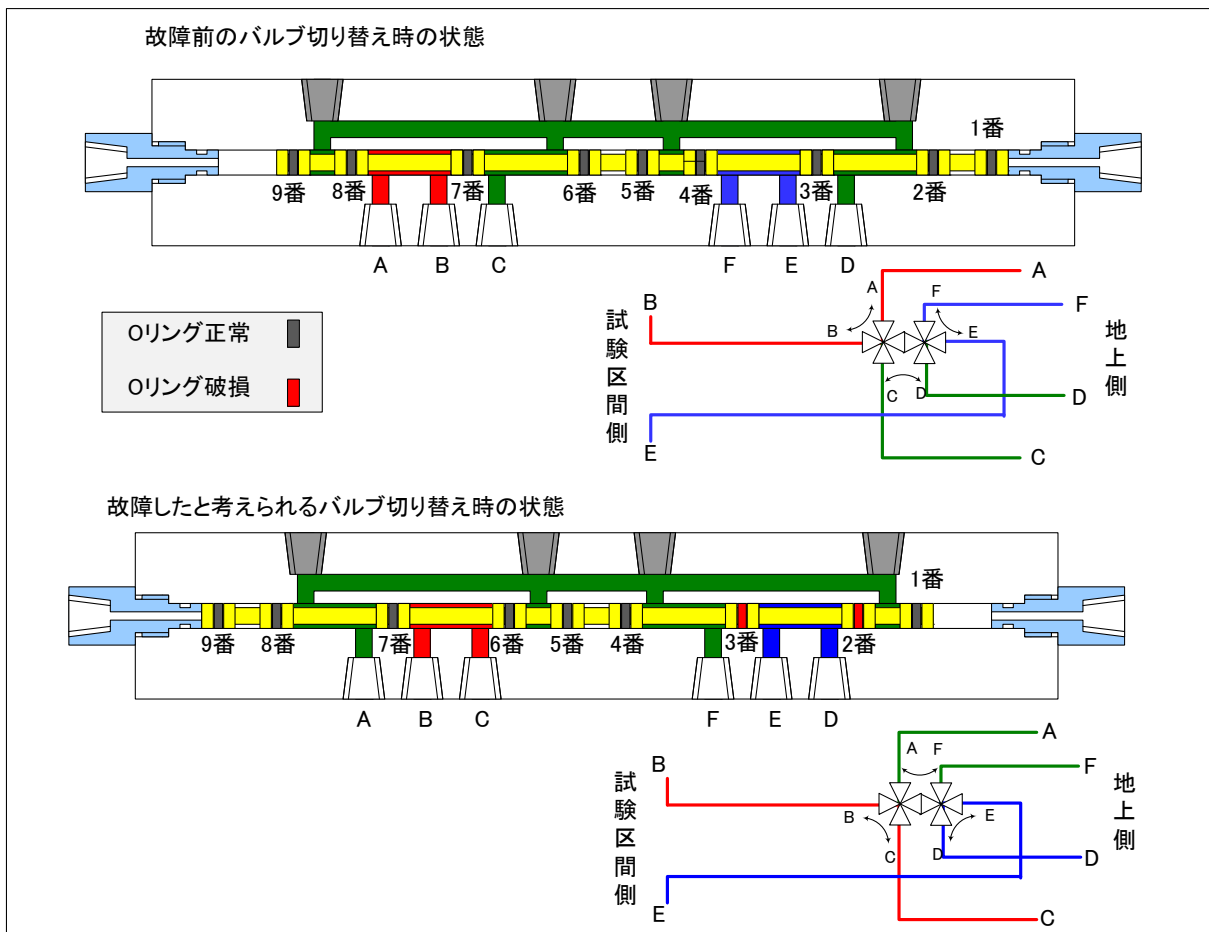
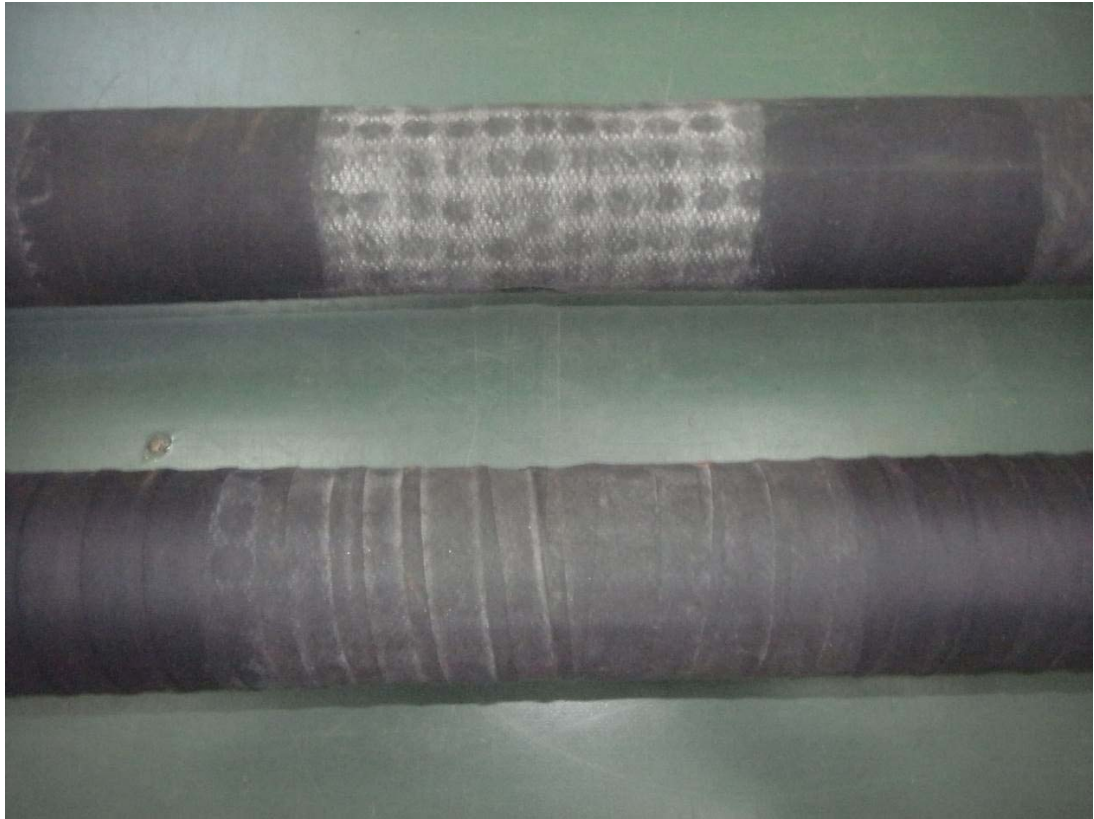


図 6.4.7-1 6方バルブの内部構造とOリング破損箇所



上側：12MI31 号孔の状態 下側：13MI37 号孔の状態

図 6.4.7-2 試験区間（メッシュ部）のラバーに付着した細粒分（白色の部分）



図 6.4.7-3 破損した3番0リングの状態

### c. 今後の対策

割れ目内の介在物である細粒分が故障の原因とすると、対策としては次の2点が考えられる。

- ① 試験装置の流路内に小型フィルターを設置し6方バルブ内への細粒分が入るを止める。
- ② 6方バルブを細粒分が流入してもOリングが切れにくい構造にする。

対策①については、故障の原因で示したフラクシオンコレクターの3方バルブでは、故障前には140 $\mu$ のフィルターを設置していたが、故障したため40 $\mu$ のフィルターに変更した。構造的には3方バルブより6方バルブの方が大型のため単純に比較することはできないが、フィルターは効果があると考えられる。ただし、フィルターが目詰まりした場合に交換が困難であることが短所である。

バルブの構造を変える②の方法としては、現有の6方バルブに使用しているOリング(S4:直径1.5mm)を1段階太いOリング(P3:直径1.9mm)に変更するのが簡単である。その他の構造変更としては、6方バルブの設置位置をパッカーマンドレルからパッカー上部に移すことが考えられその場合外径の制約が $\phi$ 30mmから $\phi$ 50mmに広がるため、更に太いOリングを使用することができる。ただし、いずれにしても濁水を通した実験等で効果を検証する必要がある。

### (2) 2号機の6方バルブの作動不良について

#### a. 作動不良の経緯

2号機の6方バルブは、本年度2号機に実装したバルブである。試験実績は無いものの耐圧試験、作動試験には昨年度合格しており、2号機に実装するに当たりメンテナンスとOリングの交換を実施している。

2号機の6方バルブが作動不良を起こすまでの経緯を時系列で示す。

- ・ 11/5 坑道内で装置の組立：バルブ位置F-E側
- ・ 11/6 13MI37号孔へ装置を設置：バルブ位置F-E側  
透水試験の揚水準備：バルブ位置F-E側、揚水量400mL/min
- ・ 11/9 8:55~9:55透水試験：バルブ位置F-E側、揚水量400mL/min
- ・ 11/9~11/9~11/13 ダイポール試験：バルブ位置F-E側
- ・ 11/26 単孔トレーサー試験の準備のため6方バルブを切り替えようとして、2~3MPaでバルブ駆動ライン（通常の駆動圧2~3MPa）を加圧したが、バルブは切り替わらなかった。
- ・ 11/30 再度、6方バルブを切り替えようとして、4MPaでバルブ駆動ラインを加圧したが、バルブは切り替わらなかった。バルブ駆動ラインの耐圧が5MPaであるため、バルブを無理に駆動させずに1号機と同様に試験を継続した。

#### b. 作動不良の原因

現場試験終了後、坑外にて2号機の6方バルブの作動検査を実施した。3MPaでバルブ駆動ラインを加圧してもバルブが駆動しないため、4MPaで数回加圧と減圧を繰り返したところ、正常に駆動するようになった。再駆動後は通常のライン圧(2~3MPa)で作動した。なお、バルブの切り替えに伴い、通水ラインに漏えい等の不具合がないかを確認したが、見あたらなかった。

以上の結果より、作動不良の原因としては、バルブが新品であったためにOリングとピストン部の馴染みが取れていないこと、水圧をかけた状態で作動させずに10日間放置したため固結してしまっていた可能性などが考えられる。さらに、現場では30m長の4mmチューブを使用しており、室内検査の時と比較してチューブの弾性変形の影響が大きくなり圧力が伝わり難かったことも考えられる。

#### c. 今後の対策

装置をボーリング孔内に設置する前後にバルブを作動させ、水圧等に馴染ませることが必要と考える。

## 6.5 化学分析

化学分析では、原位置試験で採水したサンプリング試料の濃度分析を実施した。化学分析は現地と室内で別途に実施しており、現地では蛍光トレーサーのウラニンのみを対象に分析を実施したが、室内ではこれに加えその他のトレーサーについても分析を実施した。これにより、現地と室内の分析結果の比較や、非吸着性トレーサーと吸着性トレーサーの破過曲線の比較による物質移行の遅延効果に関する調査を行った。

### 6.5.1 分析項目

トレーサー試験で採取した試料について室内分析で実施した分析項目と分析方法を表6.5.1-1に示す。なお、現地ではウラニンのみを対象としており、分析方法については室内分析と同様に蛍光分光光度計を用いた。

表6.5.1-1 分析項目と分析方法

分析項目	分析法	使用装置
Rb <sup>+</sup> 、Ba <sup>2+</sup> 、I <sup>-</sup>	ICP質量分析法(ICP-MS)	Agilent Technologies社製 Agilent 7500Ce
水素同位体比(δD)	元素分析-質量分析法	Los Gatos Research社製 水同位体分析装置DLT-100
ウラニン、アミノG	蛍光分光分析法	日立ハイテクノロジーズ社製 日立分光蛍光光度計F-7000

### 6.5.2 前処理方法

室内分析では、試料を0.45μmPTFEフィルターでろ過し、目的の分析項目の予想濃度、マトリクスや妨害元素と装置への負荷を考慮して希釈した。各希釈方法を、表6.5.2-1に示す。ウラニンがpH9で安定することから、蛍光測定用の前処理では、pH調整も兼ねて2倍以上の希釈を行った。

これに対して、現地の分析では基本的に前処理は行わず、予想濃度が大きいときのみ、現地の地下水を用いて10倍に希釈した。

表6.5.2-1 希釈方法

分析法	希釈方法
ICP質量分析法(ICP-MS)	1%硝酸溶液となるように61%硝酸を添加し、超純水で希釈
元素分析-質量分析法	トレーサーを添加していない瑞浪地下水で希釈
蛍光分光分析法	0.05mol/L四ホウ酸ナトリウム水溶液を用いて希釈



### 6.5.3 単孔トレーサー試験の分析結果

#### (1) 室内分析結果における回収率

回収率は、フラクシオンコレクターでサンプリングした試料の各濃度から以下の式より近似的に求めた。

$$Recovery^n = \left\{ \left( \frac{C^n + C^{n-1}}{2} - C_B \right) \times Q_{ext}(T^n - T^{n-1}) \right\} / M_0 \quad (6.5.3-1)$$

ここに、 $Recovery^n$ ：揚水開始から試料 n までの回収率[-]、 $C^n$ ：試料 n の濃度[ML<sup>-3</sup>]、 $C_B$ ：バックグラウンド濃度[ML<sup>-3</sup>]、 $T^n$ ：試料 n をサンプリングした時間[T]、 $Q_{ext}$ ：揚水流量[L<sup>3</sup>T<sup>-1</sup>]、 $M_0$ ：注入トレーサー量[M]を表す。

なお、回収率を計算する際は、バックグラウンド濃度を考慮し注入量、回収量から差し引いて計算した。バックグラウンド濃度は 12MI31 号孔については 2013 年に、13MI37 号孔は 2014 年に採水を行った結果に基づき決定した。回収率の計算に用いた 12MI31 号孔および 13MI37 号孔のバックグラウンド濃度を表 6.5.3-1 に示す。

12MI31 号孔で実施した試験の回収率を表 6.5.3-2 に、13MI37 号孔で実施した試験の回収率を表 6.5.3-3 に示す。

表 6.5.3-1 単孔トレーサー試験の回収率の計算に用いたバックグラウンド濃度

		12MI31号孔	13MI37号孔
ウラニン	μg/L	0.00	0.00
アミノG酸	μg/L	0.00	0.00
δ D	‰	-59.88	-59.26
I <sup>-</sup>	μg/L	74.95	36.98
R b <sup>+</sup>	μg/L	4.25	3.15
B a <sup>2+</sup>	μg/L	1.18	0.93

表 6.5.3-2 12MI31-D1 における回収率

試験名		15S31M2	15S31M3	
試験実施日		10/30	11/2	
対象区間		12MI31-D1		
試験条件	注水流量	mL/min	27.6	22.9
	揚水流量	mL/min	49.0	49.3
	トレーサー注入開始		10/30 13:10:00	11/2 9:50:00
	チェイサー注入開始		10/30 13:50:00	11/2 10:30:00
	待機切り替え		10/30 14:40:00	11/2 11:25:00
	揚水開始		10/30 14:40:00	11/2 13:25:00
	トレーサー注入時間	min	40.0	40.0
	チェイサー注入時間	min	50.0	55.0
	待機時間	min	0.0	120.0
	トレーサー量	L	1.1	0.9
	チェイサー量	L	1.4	1.3
	60分回収率	ウラニン	%	31.3
アミノG酸		%	32.3	18.9
$\delta D$		%	31.4	17.1
$I^-$		%	29.6	18.7
$Rb^+$		%	17.2	15.7
$Ba^{2+}$		%	14.0	17.0
120分回収率	ウラニン	%	48.2	23.8
	アミノG酸	%	50.3	27.2
	$\delta D$	%	48.6	24.0
	$I^-$	%	47.5	27.2
	$Rb^+$	%	33.1	28.4
	$Ba^{2+}$	%	30.0	31.9

表 6.5.3-3 13MI37-D1 における回収率

試験名		15S37T5	15S37T6	15S37T7	15S37T8	15S37M9	15S37M10	15S37M11	15S37M12	15S37M13	
試験実施日		11/17	11/18	11/18-11/19	11/20	12/7	12/8	12/9	12/10	12/11	
対象区間		13MI37-D1 (※12MI31 号孔はトレーサー試験装置)				13MI37-D1 (※12MI31 号孔はモニタリング装置)					
試験条件	注水流量	mL/min	97.7	208.2	208.0	203.2	97.8	209.3	199.1	195.6	201.5
	揚水流量	mL/min	199.4	198.9	202.7	201.4	198.4	198.1	198.7	200.1	198.5
	トレーサー注入開始		11/17 9:30:00	11/18 9:25:00	11/18 16:05:00	11/20 8:55:00	12/7 11:55:00	12/8 8:42:30	12/9 8:42:30	12/10 8:12:30	12/11 8:42:30
	チェイサー注入開始		11/17 9:40:00	11/18 9:30:00	11/18 16:10:00	11/20 9:00:00	12/7 12:15:00	12/8 8:52:30	12/9 8:52:30	12/10 8:22:30	12/11 8:52:30
	待機切り替え		11/17 9:55:00	11/18 9:37:30	11/18 16:17:30	11/20 9:07:30	12/7 12:30:00	12/8 9:00:00	12/9 9:00:00	12/10 8:30:00	12/11 9:00:00
	揚水開始		11/17 9:55:00	11/18 9:37:30	11/19 8:30:00	11/20 11:07:00	12/7 12:30:00	12/8 9:00:00	12/9 10:00:00	12/10 12:30:00	12/11 11:00:00
	トレーサー注入時間	min	10.0	5.0	5.0	5.0	20.0	10.0	10.0	10.0	10.0
	チェイサー注入時間	min	15.0	7.5	7.5	7.5	15.0	7.5	7.5	7.5	7.5
	待機時間	min	0.0	0.0	972.5	119.5	0.0	0.0	60.0	240.0	120.0
	トレーサー量	L	1.0	1.0	1.0	1.0	2.0	2.1	2.0	2.0	2.0
チェイサー量	L	1.5	1.6	1.6	1.5	1.5	1.6	1.5	1.5	1.5	
60 分回収率	ウラン	%	74.7	82.2	1.4	44.9	77.6	79.6	57.4	30.0	41.5
	アミノG酸	%	79.8	88.4	1.3	47.4	69.9	82.0	59.9	31.2	42.6
	$\delta D$	%	83.7	85.7	0.9	36.7	83.3	82.0	53.4	29.6	42.1
	$I^-$	%	75.6	98.8	10.9	69.5	75.6	79.2	60.1	41.6	51.2
	$Rb^+$	%	70.0	64.5	14.4	44.0	70.9	67.6	48.7	33.0	40.4
	$Ba^{2+}$	%	61.5	57.4	17.7	42.4	65.5	59.7	45.2	32.6	38.4
120 分回収率	ウラン	%	79.8	86.6	2.2	47.9	83.5	85.3	63.7	32.5	45.4
	アミノG酸	%	87.9	95.3	1.6	51.6	76.3	88.1	66.8	34.1	47.0
	$\delta D$	%	86.3	91.1	3.1	42.1	89.6	86.7	57.8	30.1	44.4
	$I^-$	%	101.7	118.3	21.4	82.6	86.6	90.3	73.7	53.1	62.7
	$Rb^+$	%	79.6	73.8	21.3	56.6	84.1	79.4	62.3	44.7	53.1
	$Ba^{2+}$	%	74.5	69.1	27.1	57.6	82.0	74.0	61.2	46.8	53.3

## (2) 室内分析結果における破過曲線

揚水を行ってトレーサーを回収する際は、フラクシオンコレクターを用いてトレーサーをサンプリングした。表 6.5.3-4 にフラクシオンコレクターの設定条件を整理する。「インターバル」はサンプリング間隔のことを意味しており、「分画時間」は一つのサンプルにつき採水を行っている時間を意味する。例えば、インターバル 60 秒、分画時間 15 秒という設定の場合、採水開始から 0～15 秒の間に採水を行って 15～60 秒までは採水を行わない。60 秒になったら次のサンプルへ移動し再び 60～75 秒の間採水を行う。以上の手順が繰り返して実行される。

フラクシオンコレクターの分析結果を基に破過曲線を作成する際は、分画時間の半分の時間と濃度の関係を整理した。つまり、インターバル 60 秒、分画時間 15 秒であれば、8 秒、68 秒、128 秒・・・というように破過曲線を作成した。

表 6.5.3-4 フラクシオンコレクターの設定

	採水本数	インターバル	分画時間
15S31M2	120 本	60 秒	60 秒
15S31M3	120 本	60 秒	30 秒
15S37T5	120 本	60 秒	30 秒
15S37T6	120 本	60 秒	25 秒
15S37T7	200 本	60 秒 (80 本) 180 秒 (120 本)	25 秒 (80 本) 20 秒 (120 本)
15S37T8	120 本	60 秒 (100 本) 300 秒 (20 本)	20 秒
15S37M9	120 本	60 秒	20 秒
15S37M10	120 本	60 秒	20 秒
15S37M11	120 本	60 秒	20 秒
15S37M12	120 本	60 秒	20 秒
15S37M13	120 本	60 秒	20 秒

破過曲線および回収率の経時変化を示したものを図 6.5.3-1～図 6.5.3-11 に示す。破過曲線は I、Rb、Ba については分析結果からバックグラウンド濃度を差し引き、トレーサー原液濃度で割って比濃度  $C/C_0$  として整理した。ウラン、アミノ G 酸については各試料の分析結果をトレーサー原液濃度で割って比濃度  $C/C_0$  として整理した。 $\delta D$  については、混入率を計算しているため、分析結果をそのまま掲載した。なお、それぞれの破過曲線は、チューブ分散等の補正は行っていない。

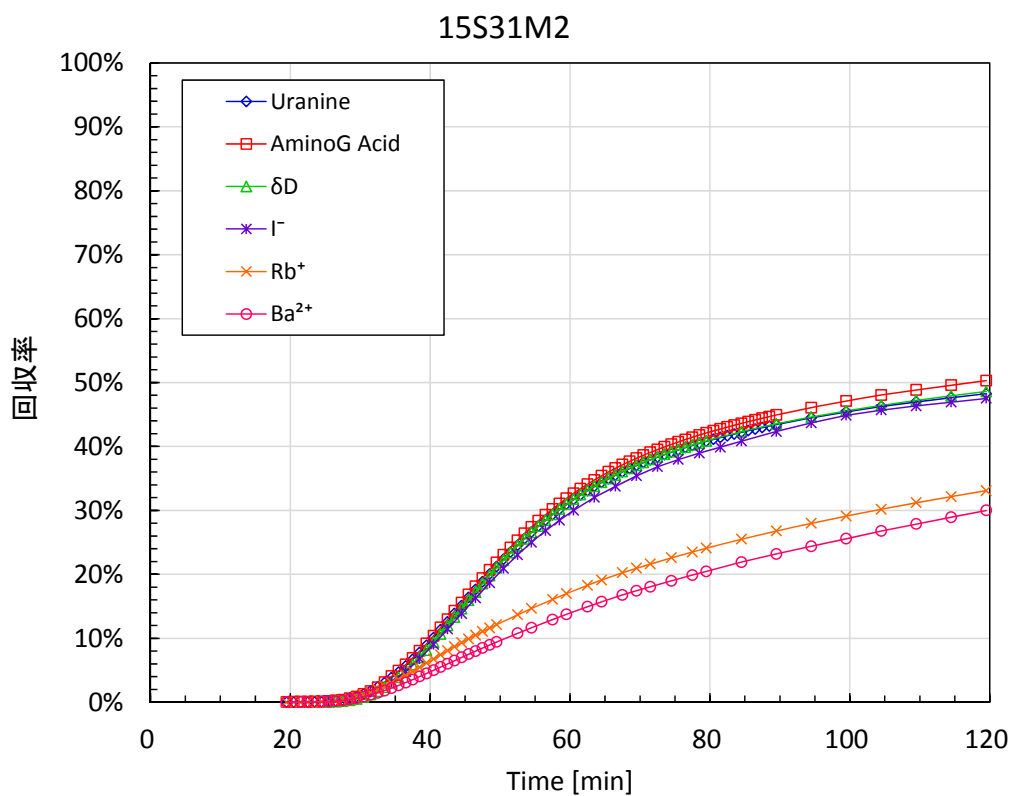
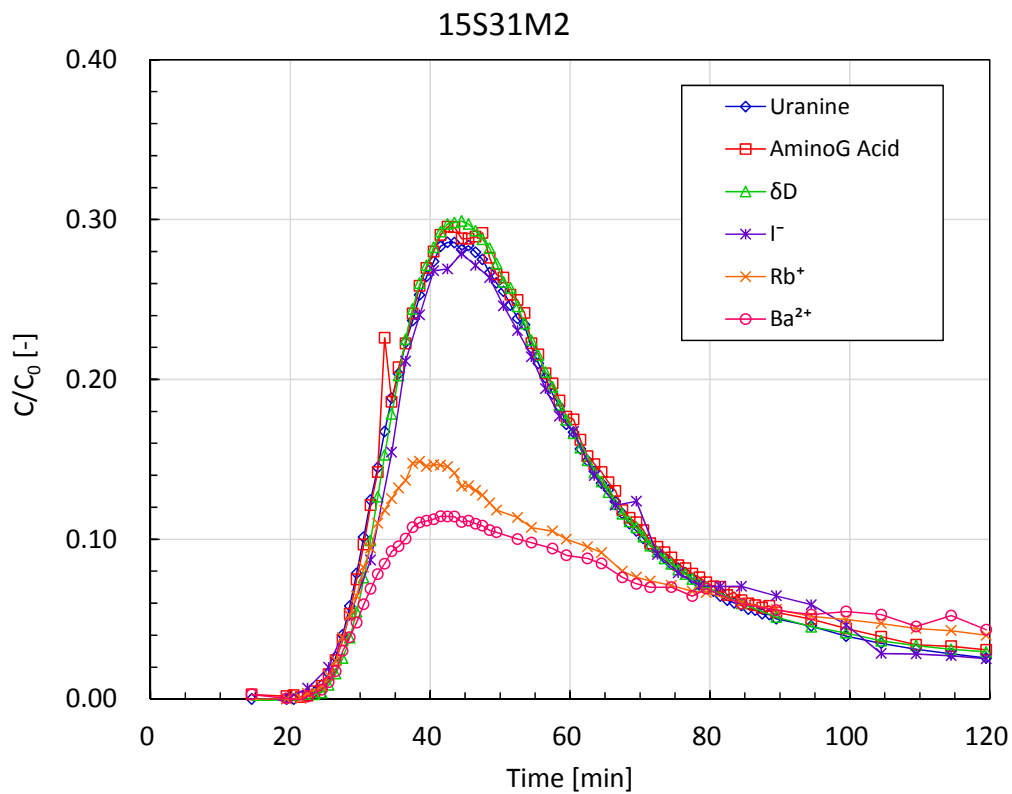


図 6. 5. 3-1 15S31M2 破過曲線 (上) および回収率の経時変化 (下)

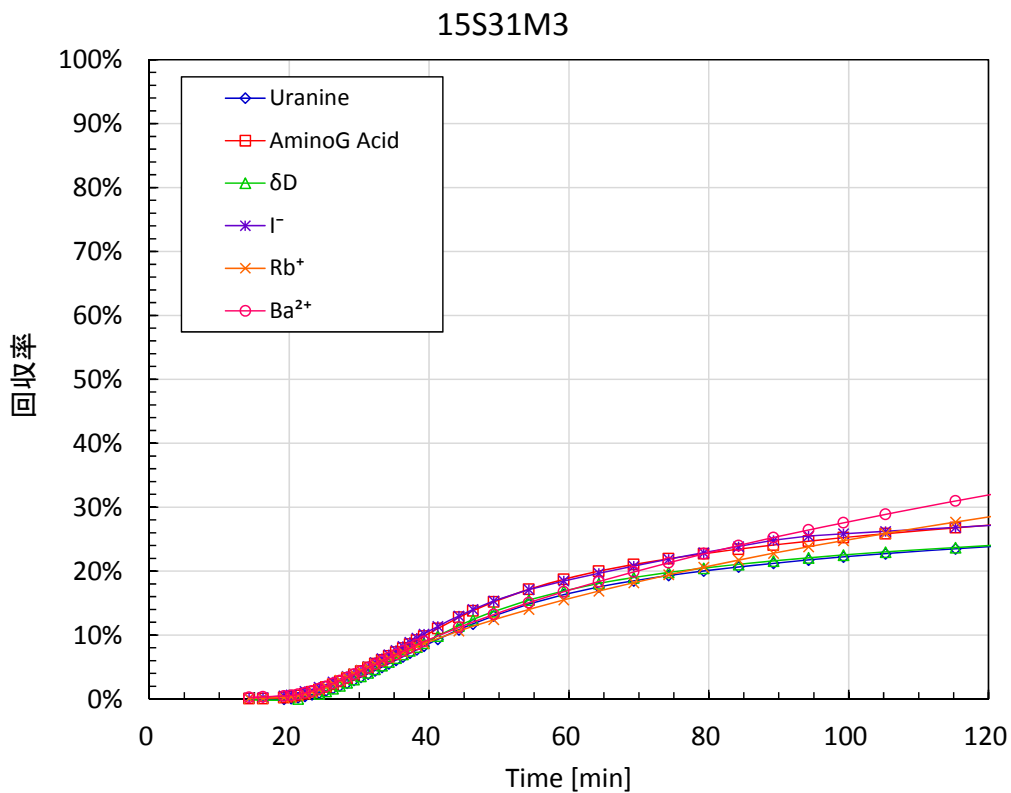
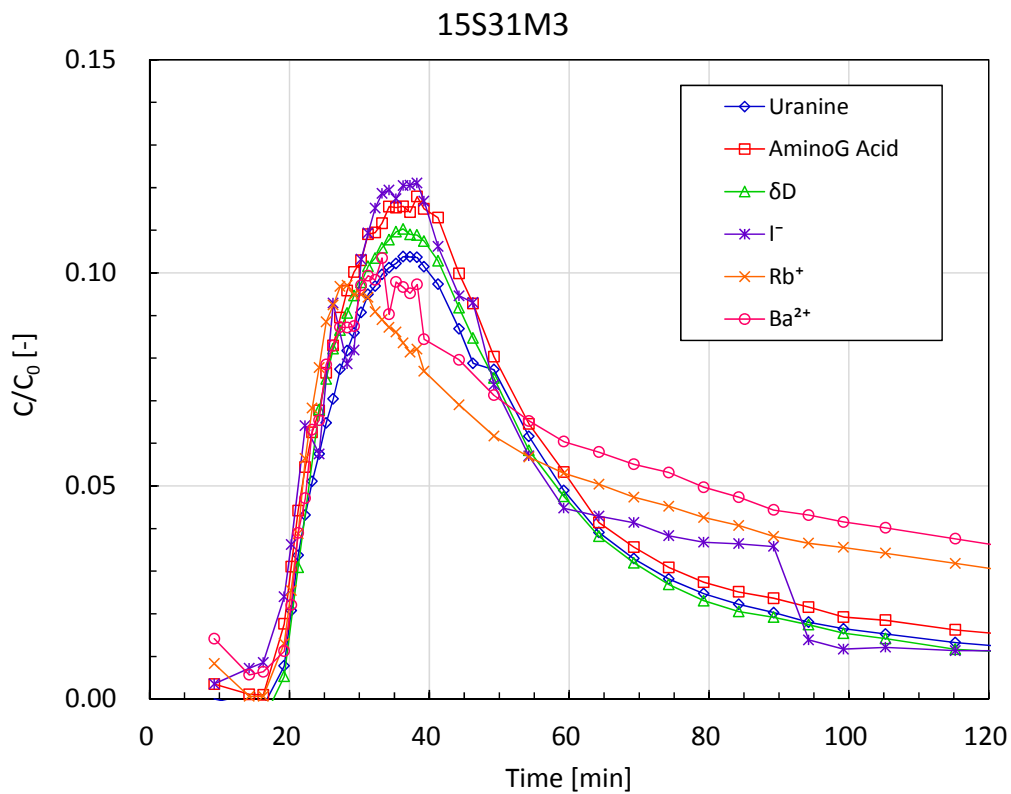


図 6.5.3-2 15S31M3 破過曲線 (上) および回収率の経時変化 (下)

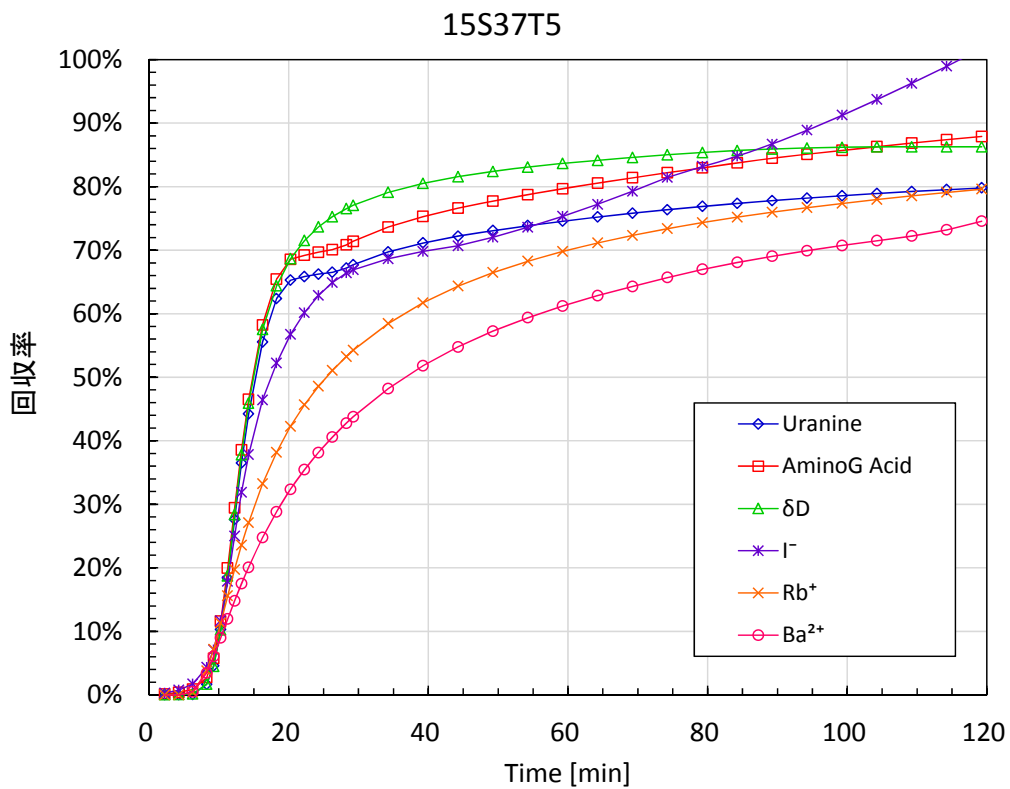
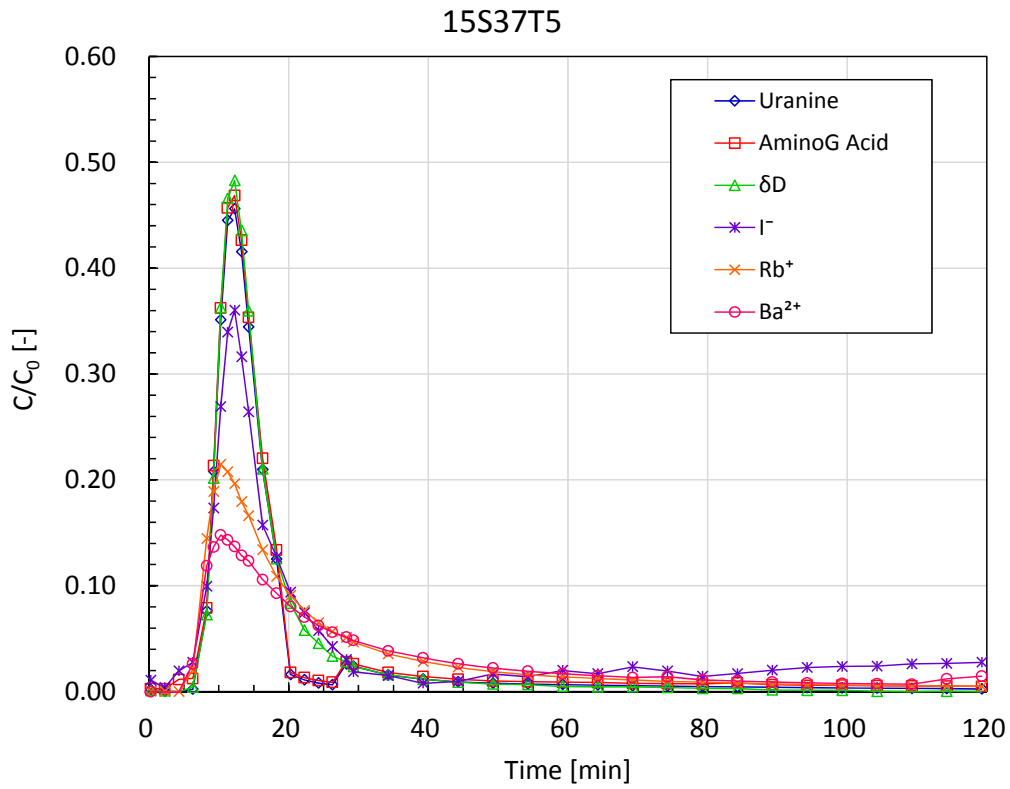


図 6.5.3-3 15S37T5 破過曲線 (上) および回収率の経時変化 (下)

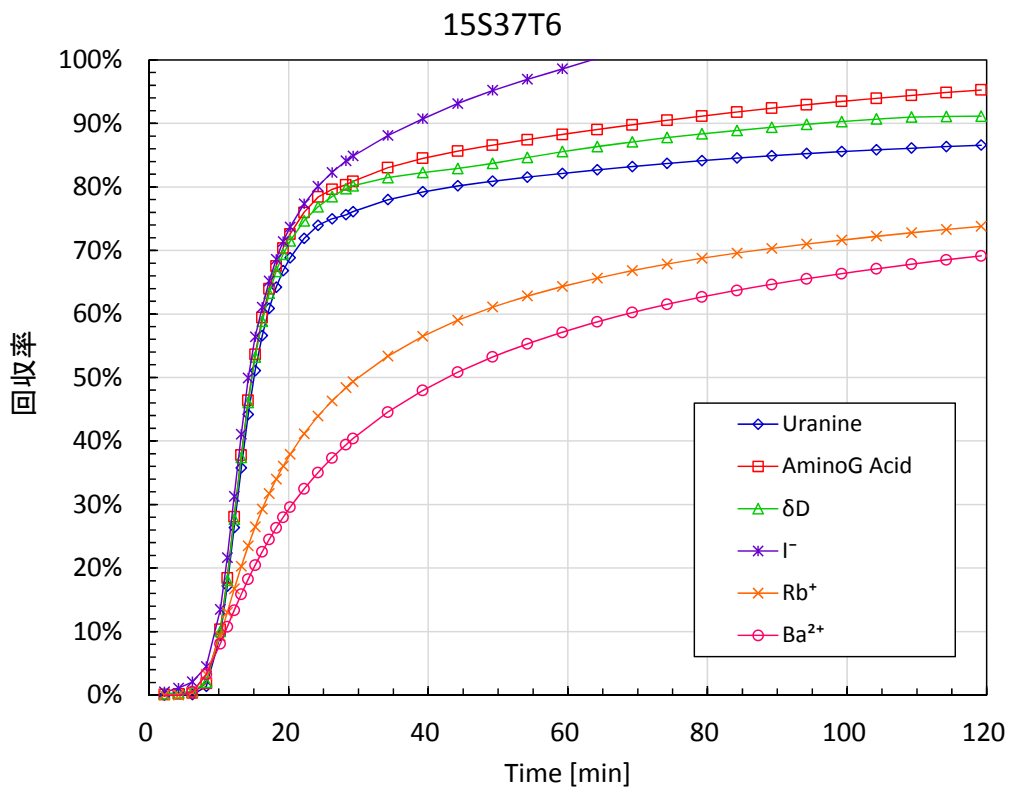
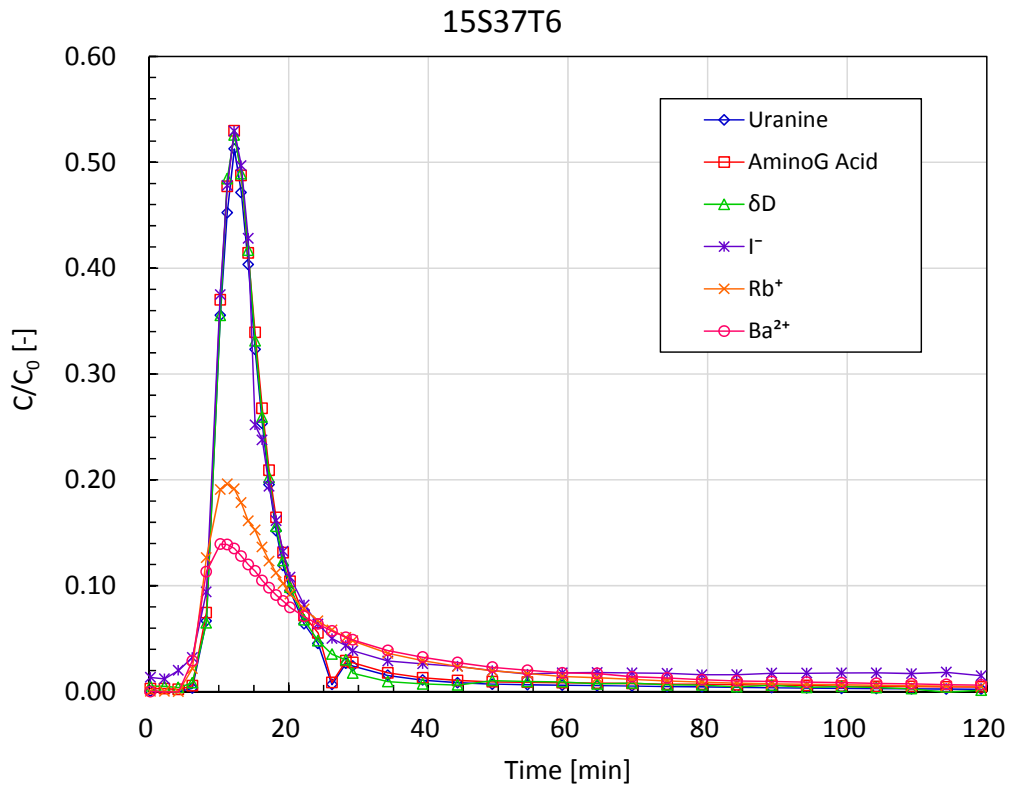


図 6.5.3-4 15S37T6 破過曲線 (上) および回収率の経時変化 (下)



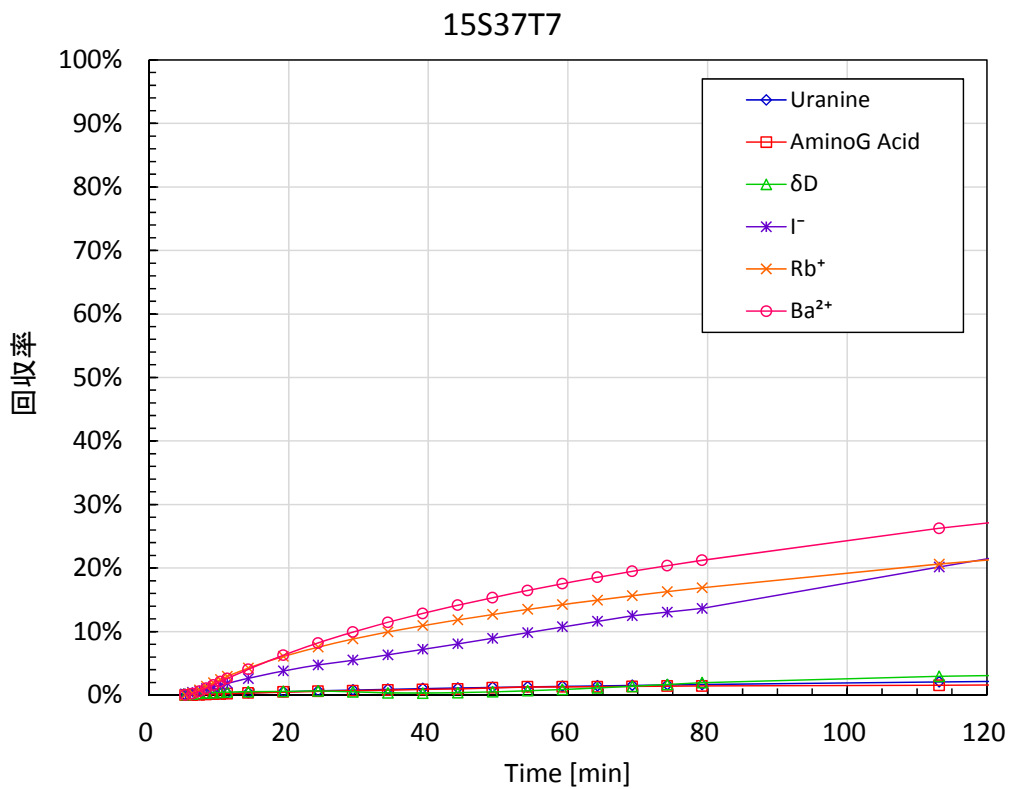
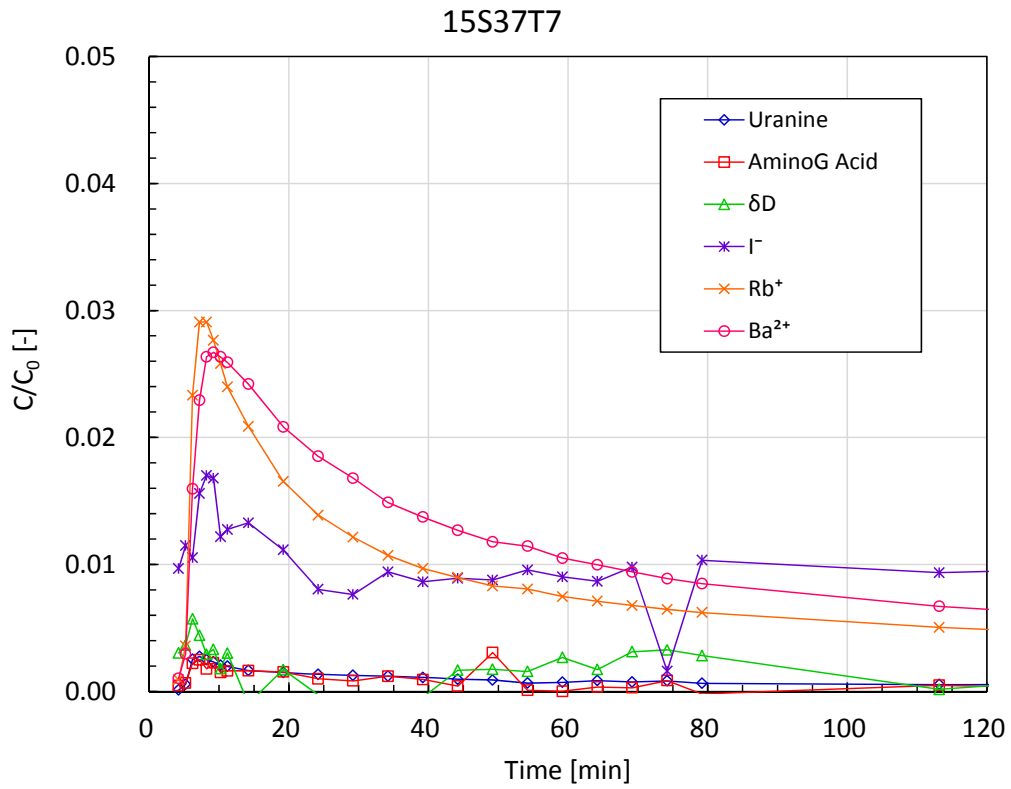


図 6.5.3-5 15S37T7 破過曲線 (上) および回収率の経時変化 (下)

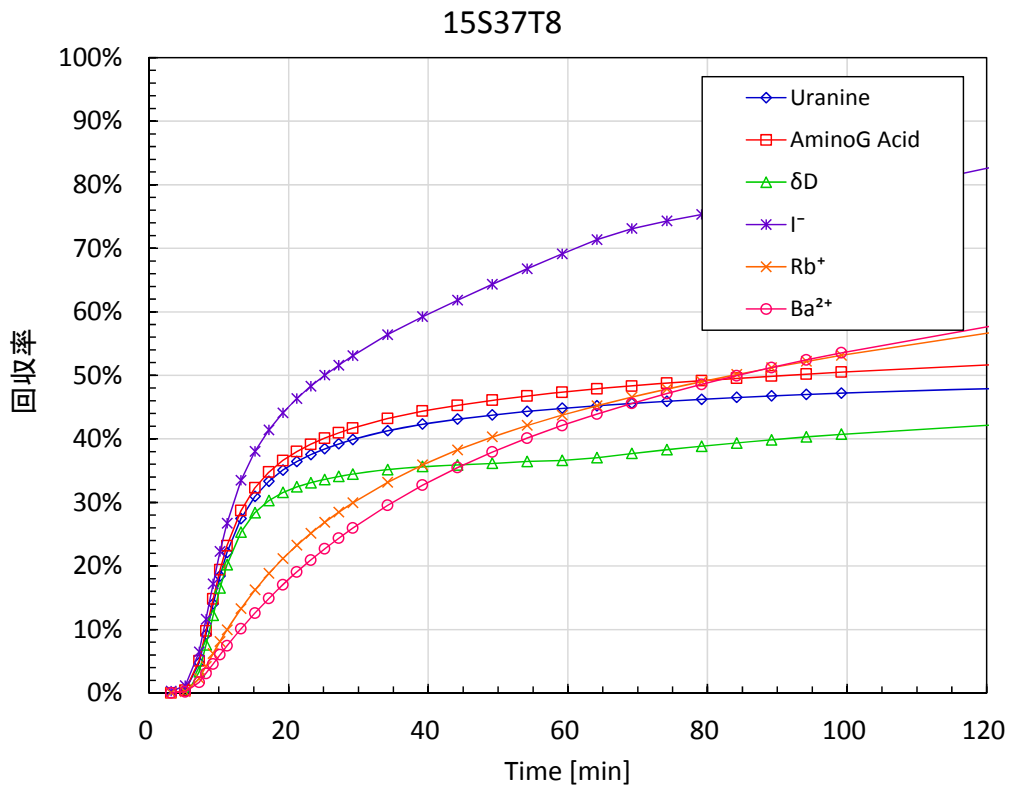
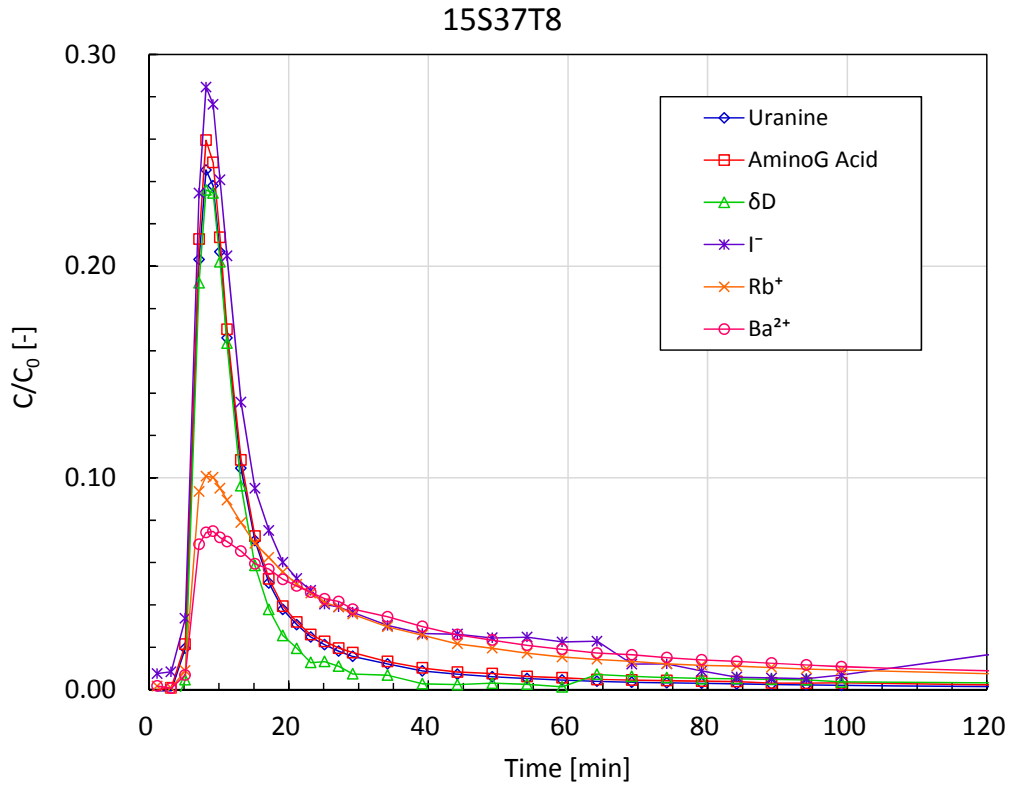


図 6. 5. 3-6 15S37T8 破過曲線 (上) および回収率の経時変化 (下)

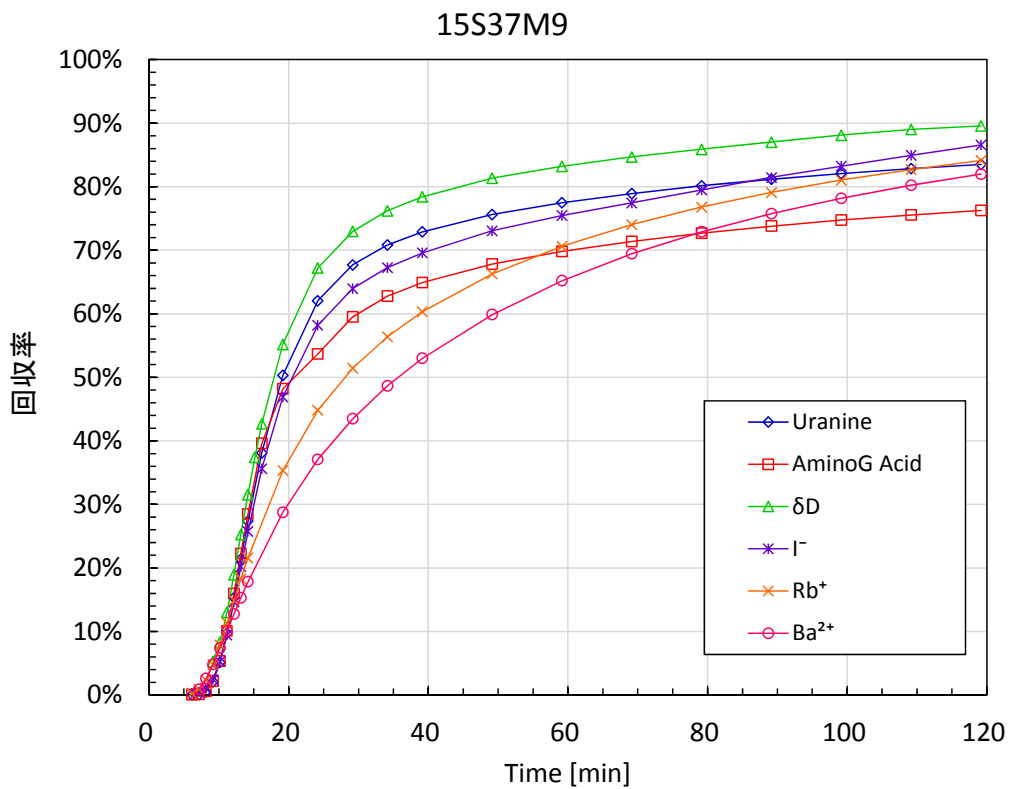
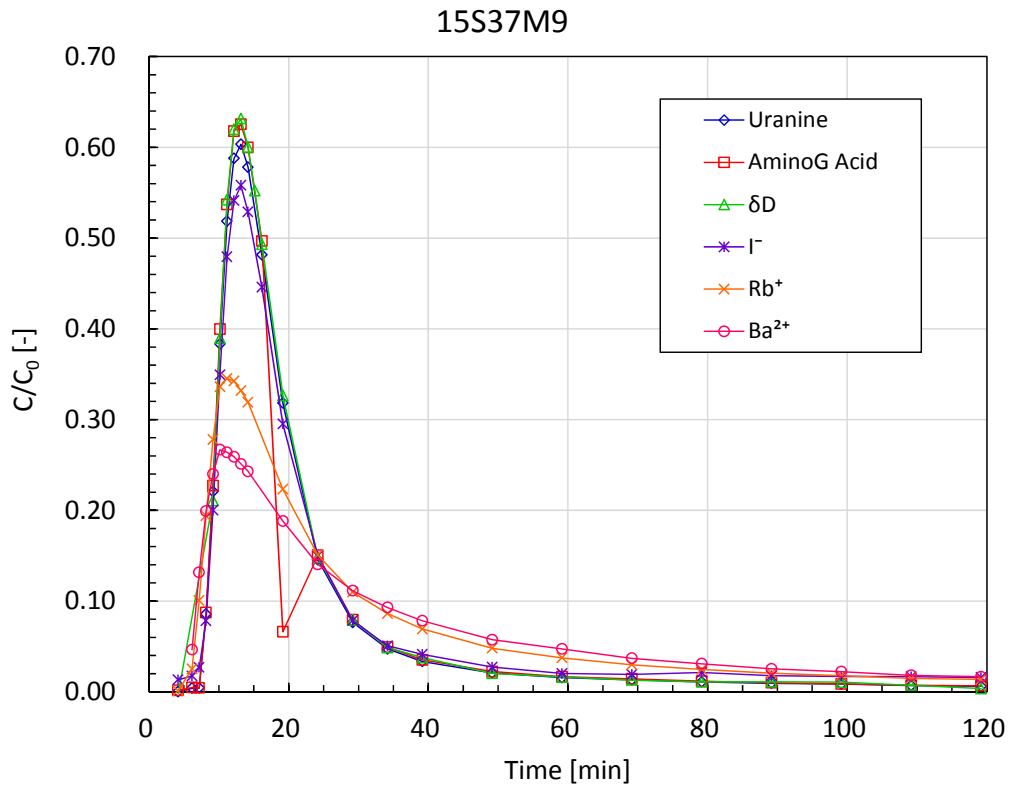


図 6.5.3-7 15S37M9 破過曲線 (上) および回収率の経時変化 (下)

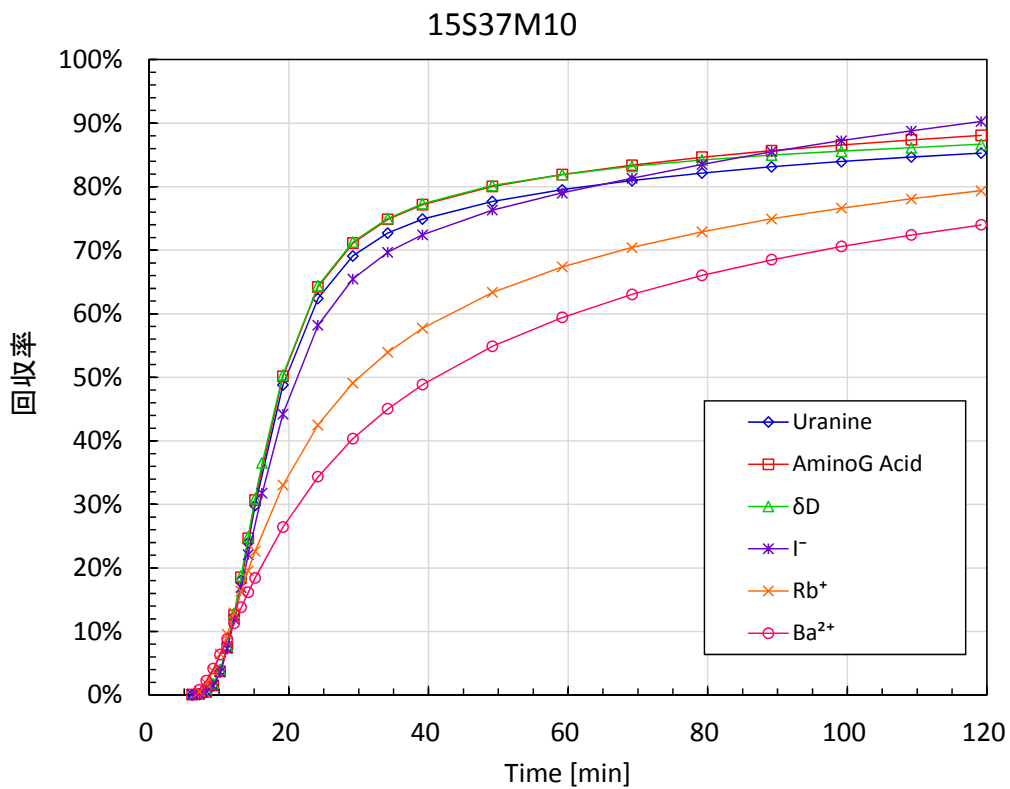
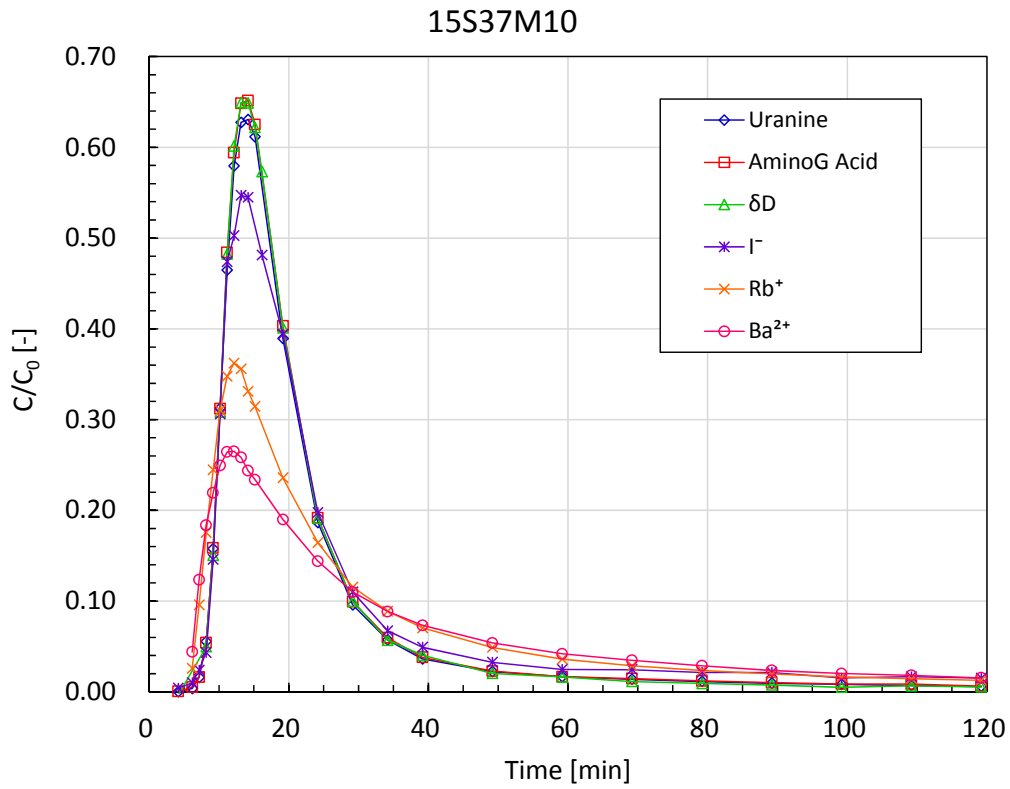


図 6.5.3-8 15S37M10 破過曲線 (上) および回収率の経時変化 (下)

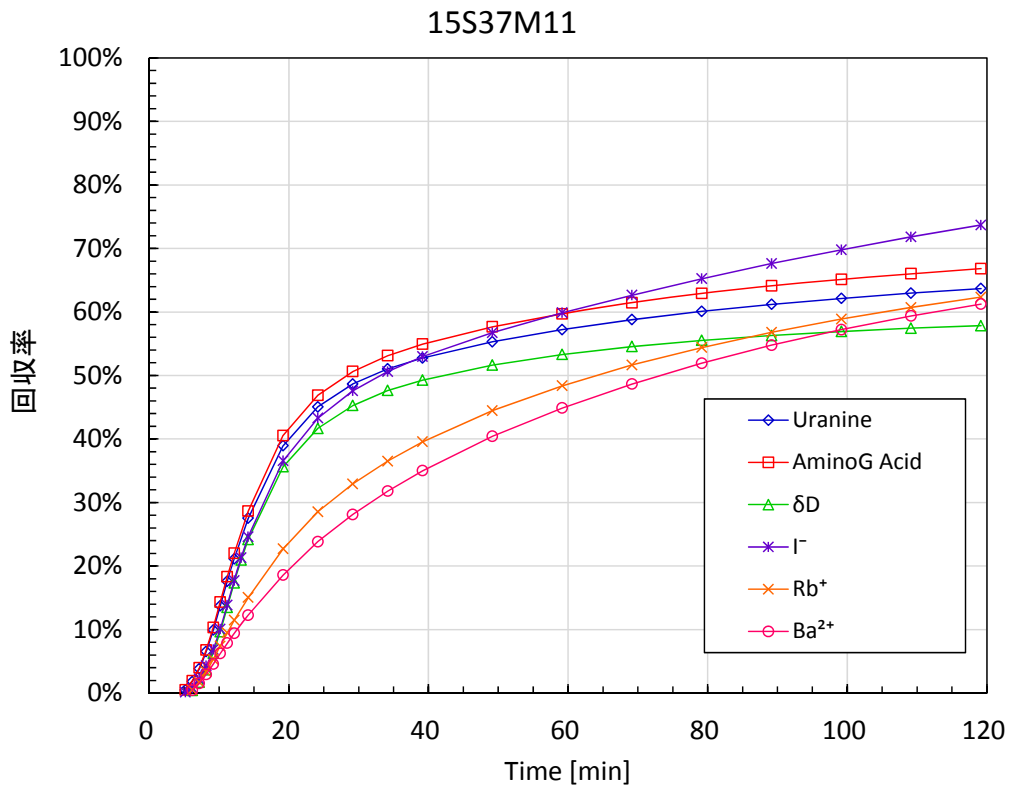
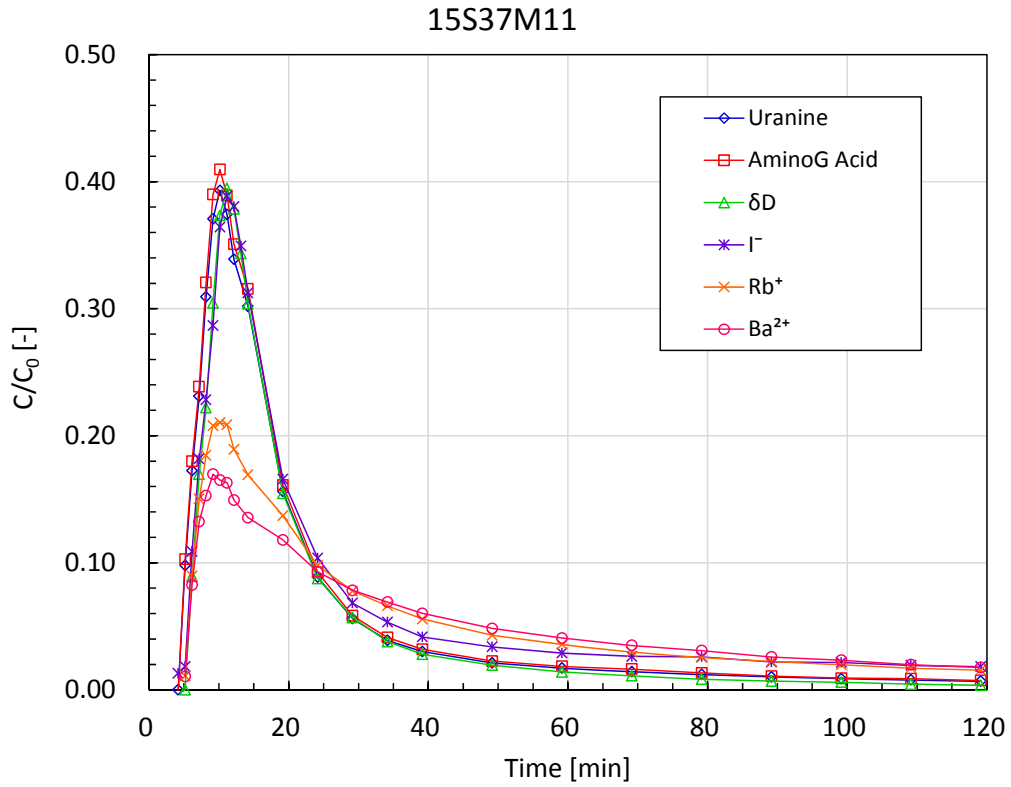


図 6.5.3-9 15S37M11 破過曲線（上）および回収率の経時変化（下）

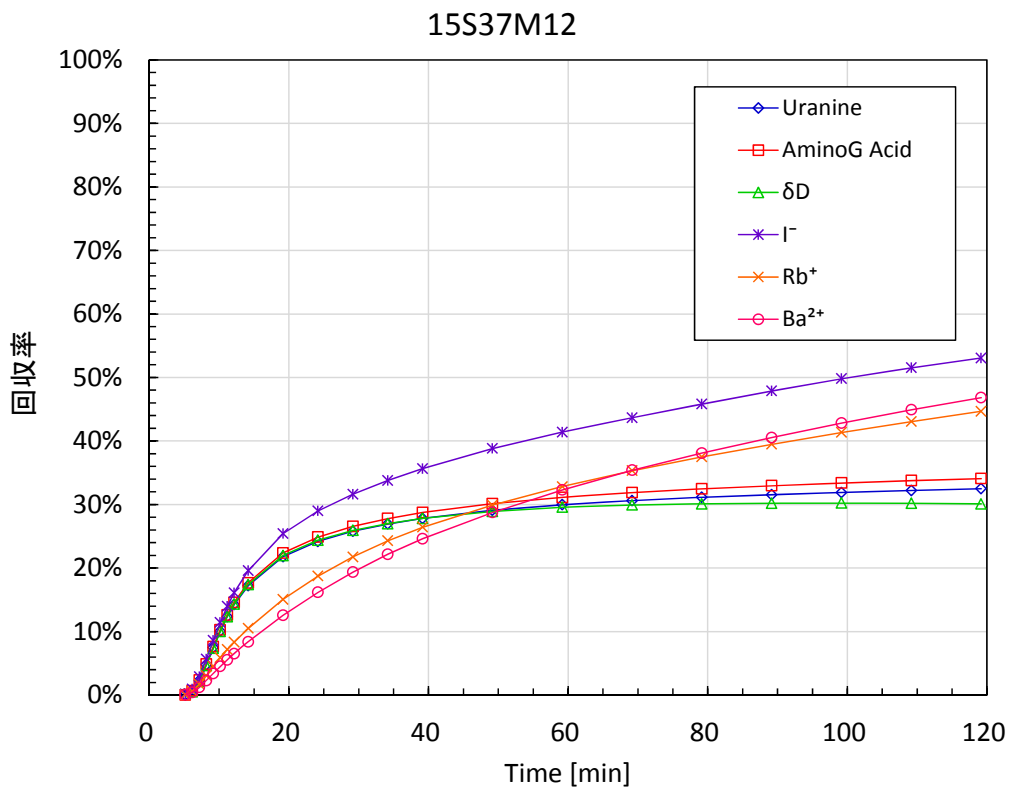
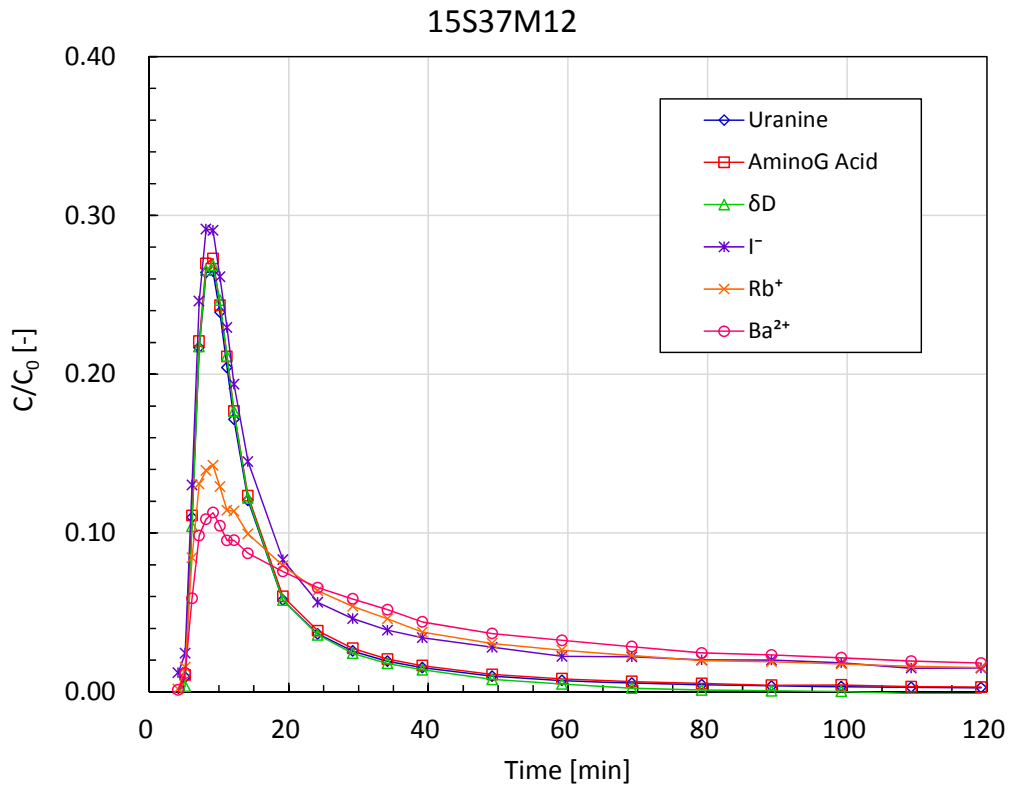


図 6.5.3-10 15S37M12 破過曲線 (上) および回収率の経時変化 (下)

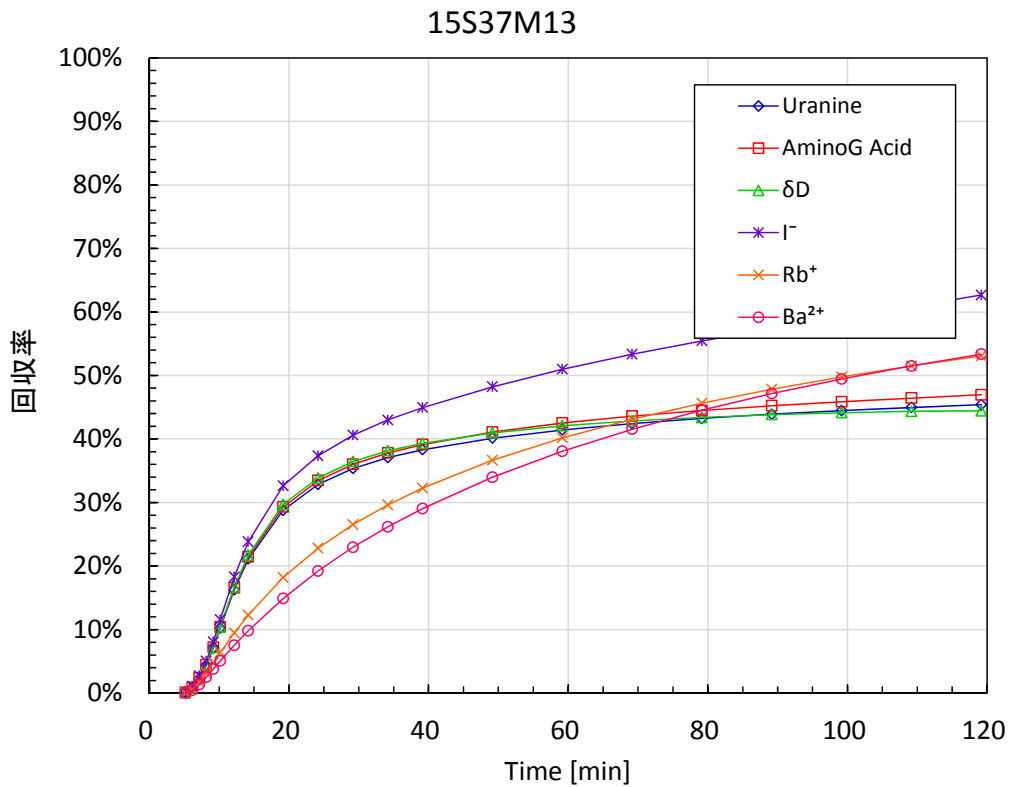
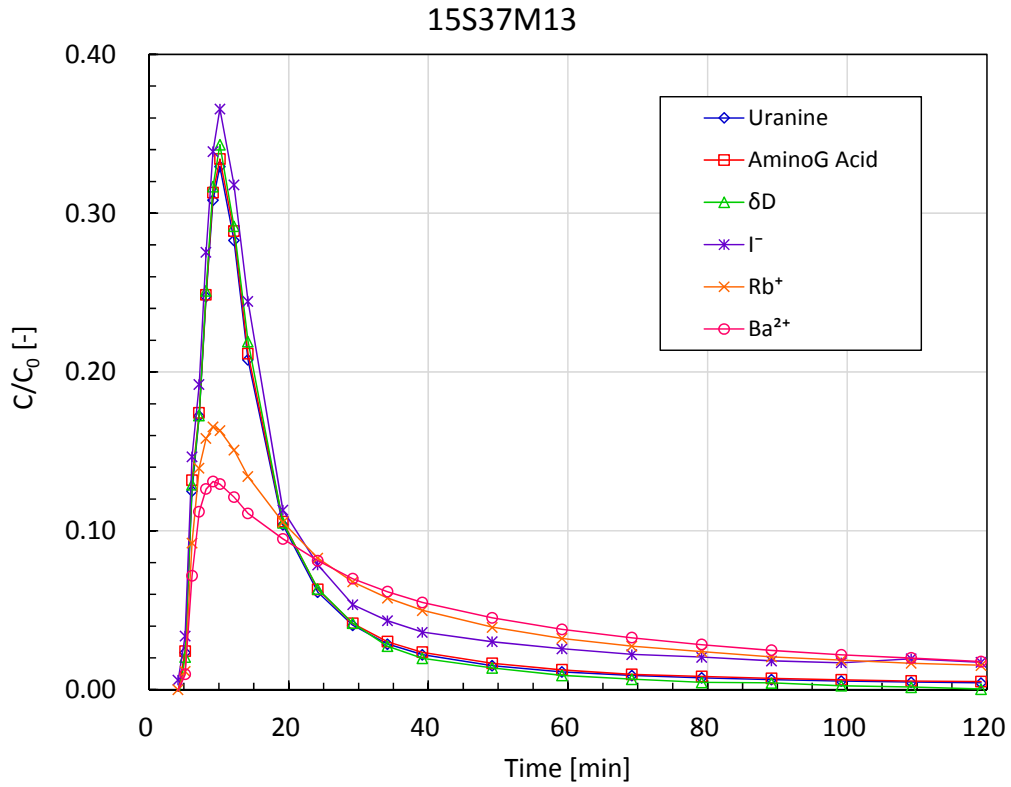


図 6.5.3-11 15S37M13 破過曲線 (上) および回収率の経時変化 (下)

### (3) 室内分析結果の現地分析結果との比較

現地および室内の化学分析で得られたウラニンの破過曲線を図 6.5.3-13 に、回収率の経時変化を図 6.5.3-14 に示す。破過曲線の濃度は比濃度とし、回収率は式(6.5.3-1)より求めた。なお、現地の分析結果は手作業でサンプリングを行っており、サンプリングのインターバルや分画時間が正確に一定ではないため時間軸の補正は行わず、サンプリング時間をプロットした。

破過曲線、回収率の経時変化ともに現地と室内の分析でほぼ同様の結果が得られていることがわかる。ただし、破過曲線を見ると 15S37M11 を除くすべてのケースで現地分析結果が、室内分析結果よりも僅かではあるが濃度が上昇する時間が早い。これは、室内分析はフラクシオンコレクターでサンプリングしているのに対し、現地分析ではフラクシオンコレクターとは別に揚水を回収しているチューブよりサンプリングしていることから、サンプリングの時間差が反映されたと考えられる。また、破過曲線における比濃度のピーク値を見ると概ね一致しているものの一部の結果では現地分析結果が室内の分析結果より大きくなっている。これは濃度で見るとより顕著になる。図 6.5.3-12 に、室内分析と現地分析より得られたウラニンのトレーサー原液濃度を示す。この結果からも現地分析結果が室内分析結果よりも平均して 1.07 倍程度大きくなっている。この原因としては現地から室内までの輸送間における蛍光強度の減衰や、前処理（試料の希釈、pH 調整等）の差異、分析装置の個体差によるものであると考えられる。

これらのことからウラニンをトレーサーとした場合、現地分析でも室内分析でも安定した分析結果が得られることがわかった。ただし、サンプリングの時間や試料の状態、分析の条件の僅かな差異に応じて分析結果は顕著に変化するため、試験の評価者はこれら条件を詳細に把握しておくことが必要である。

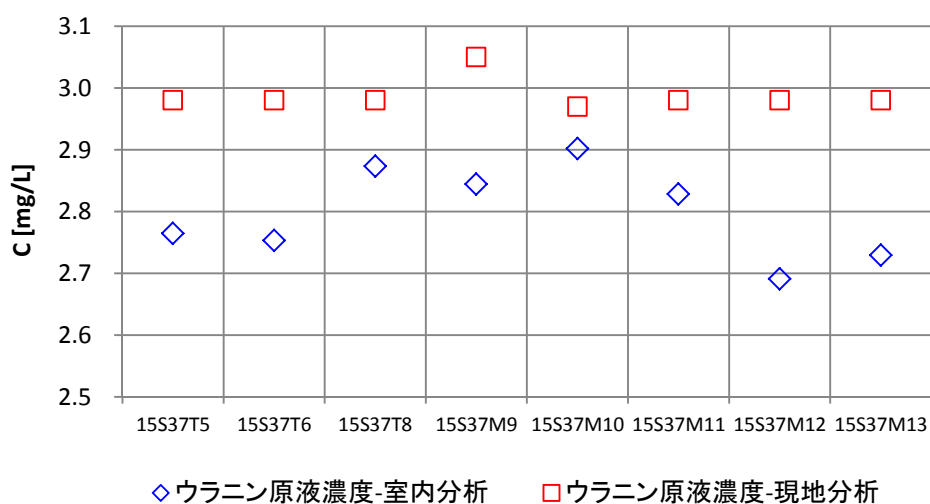


図 6.5.3-12 ウラニン原液濃度の室内分析結果と現地分析結果の比較



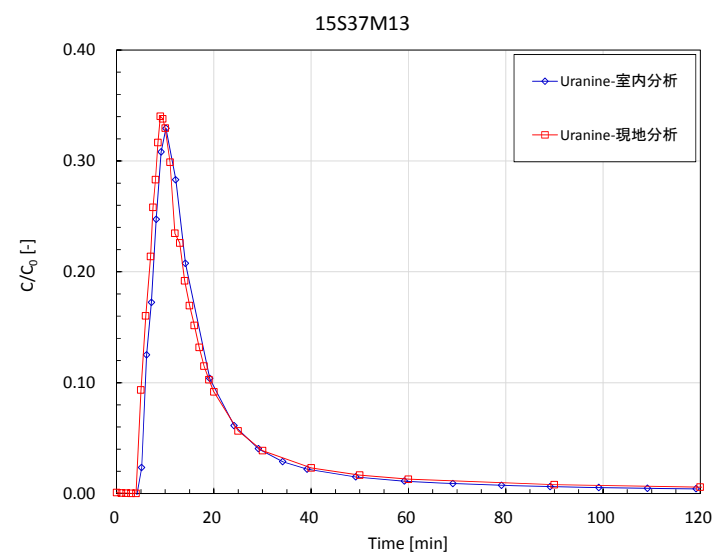
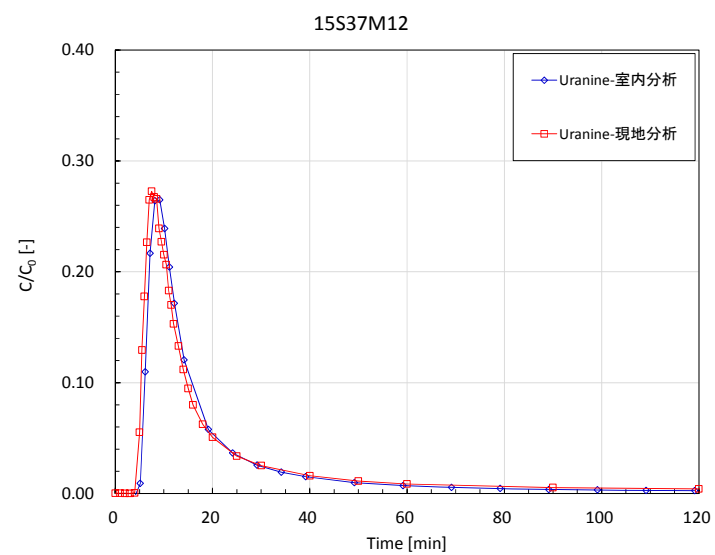
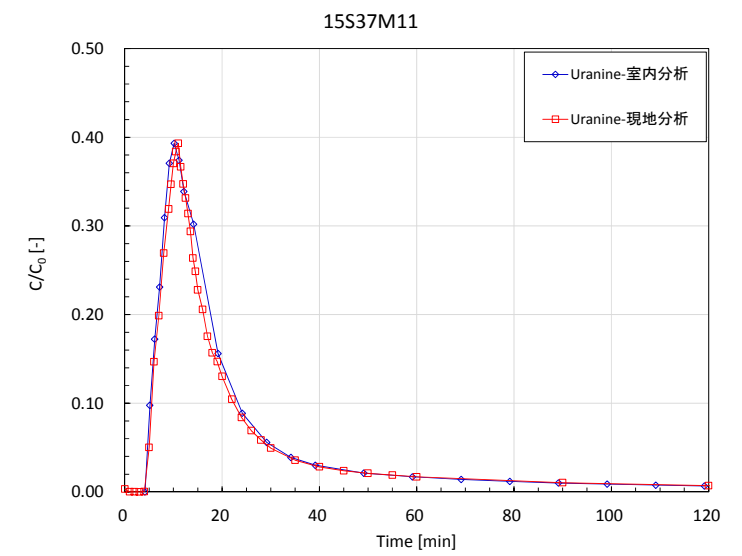
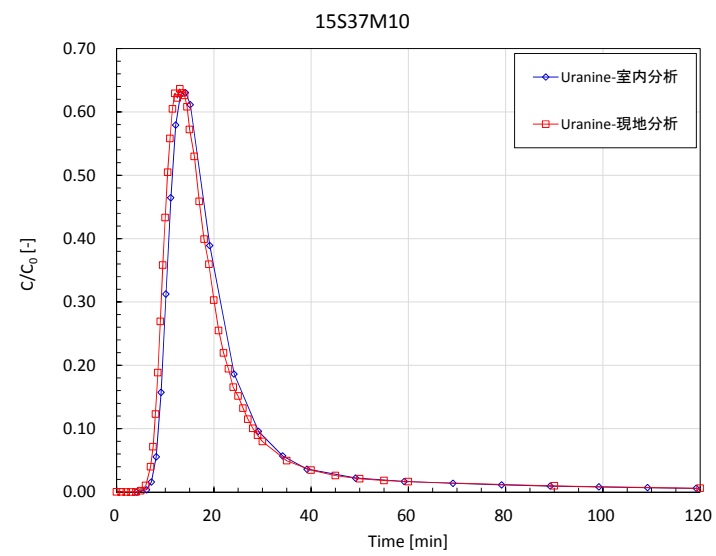
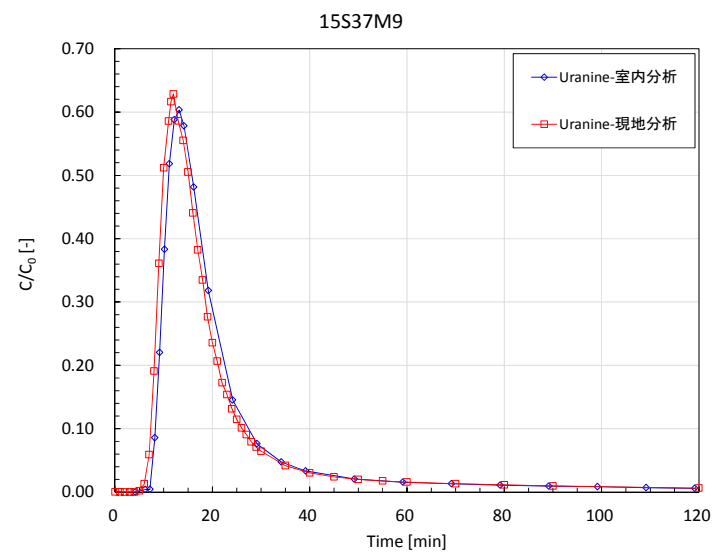
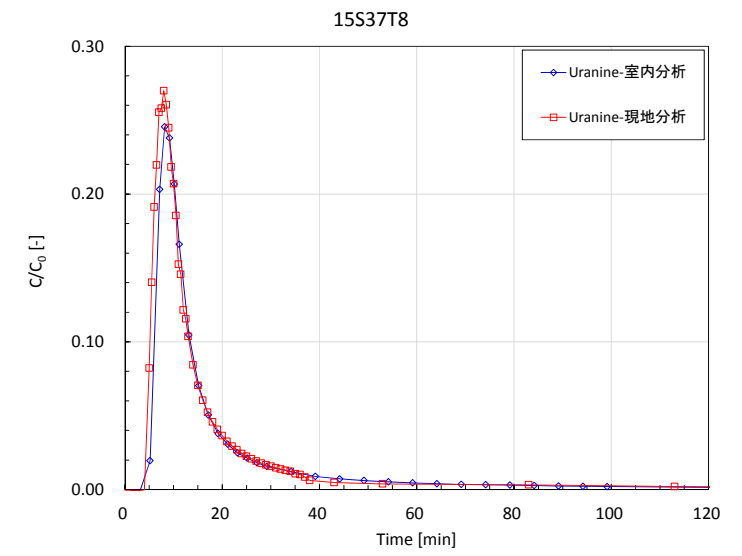
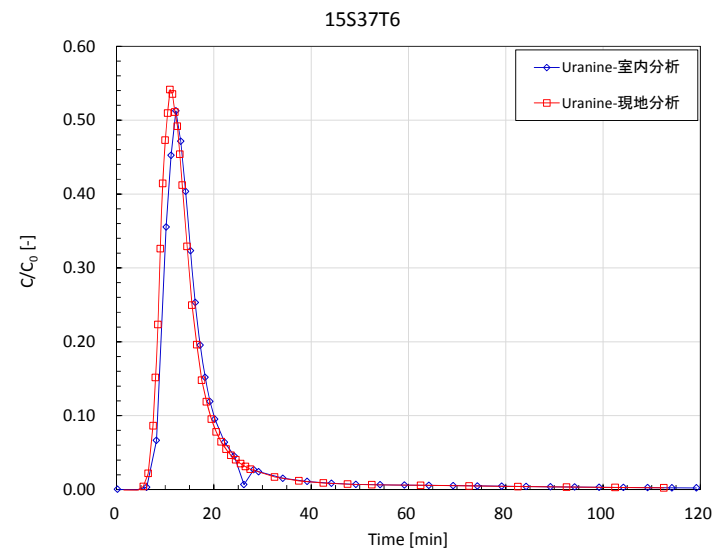
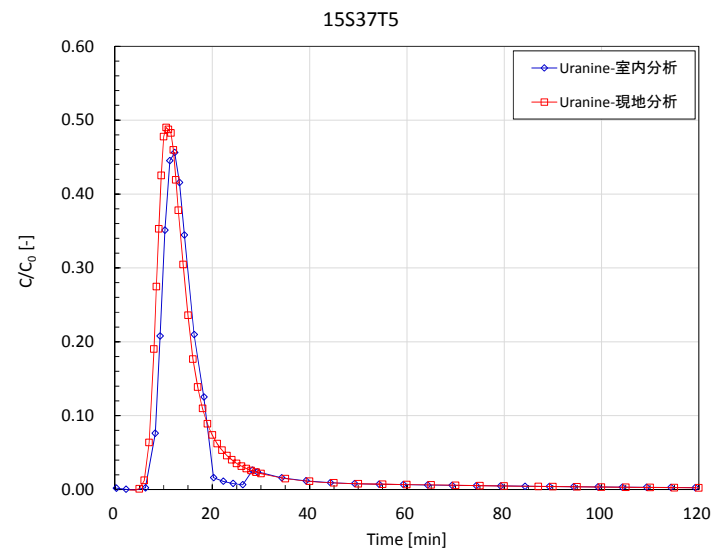


図 6.5.3-13 室内分析結果と現地分析結果のウラニンの破過曲線

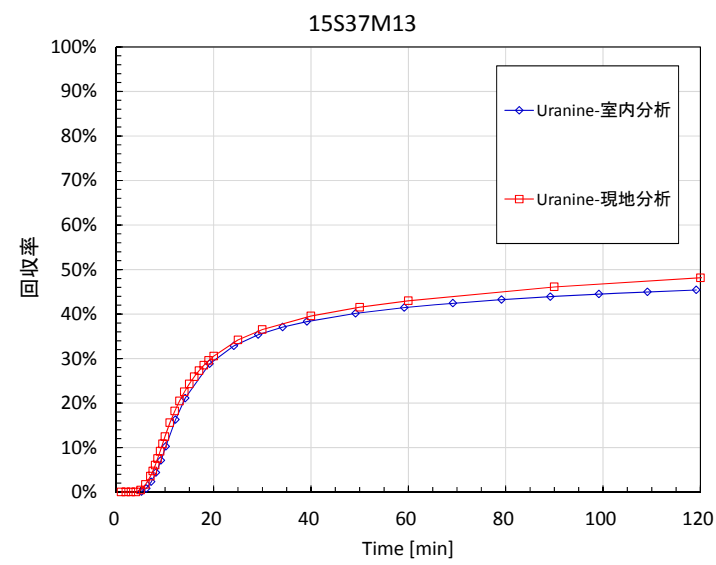
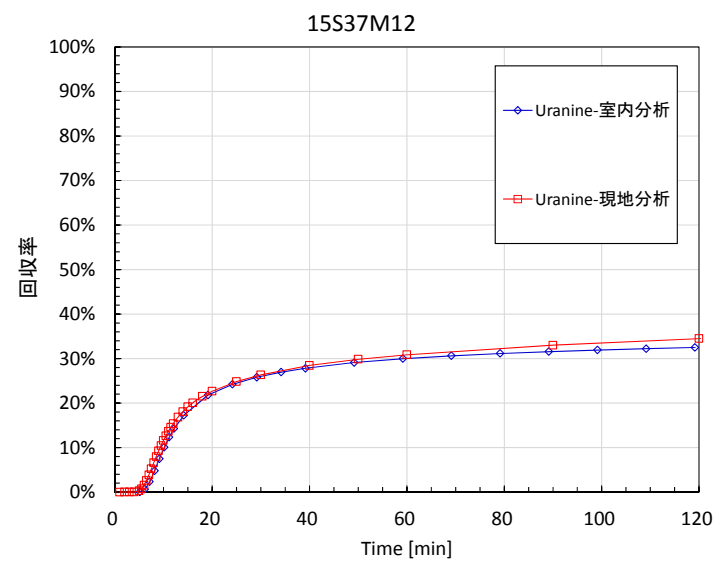
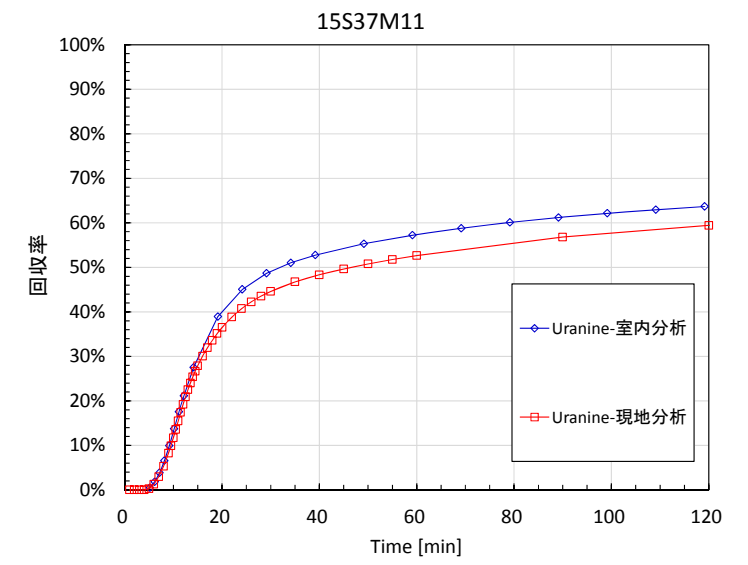
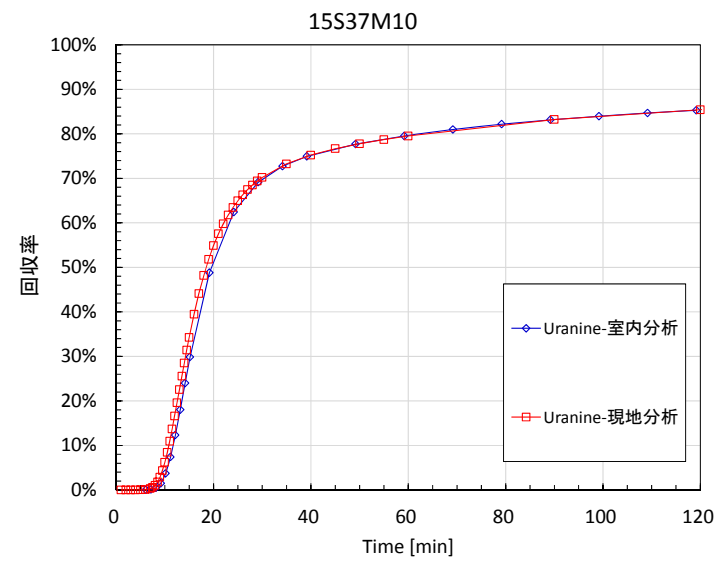
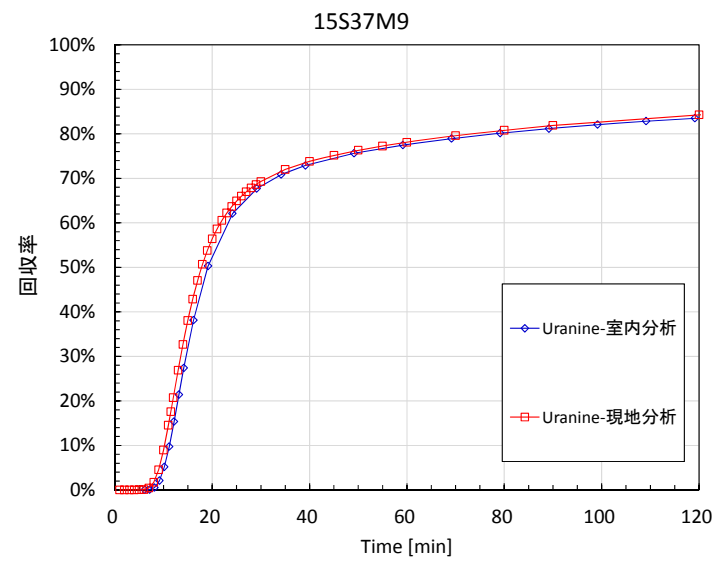
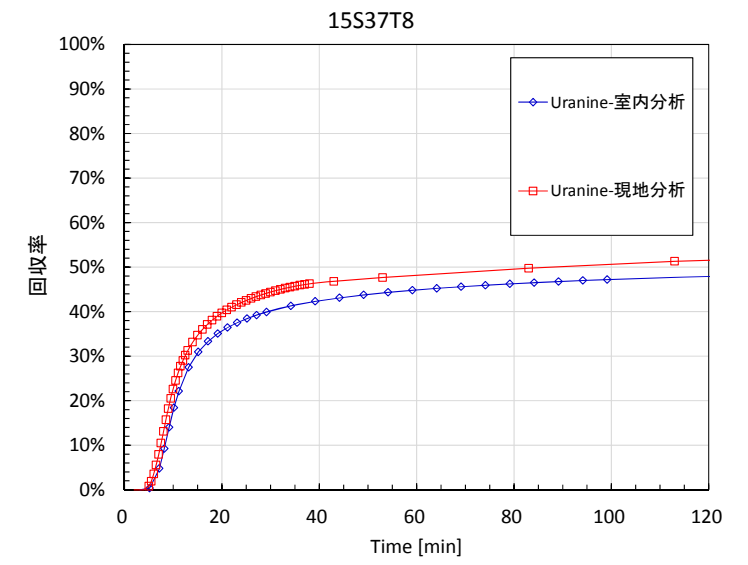
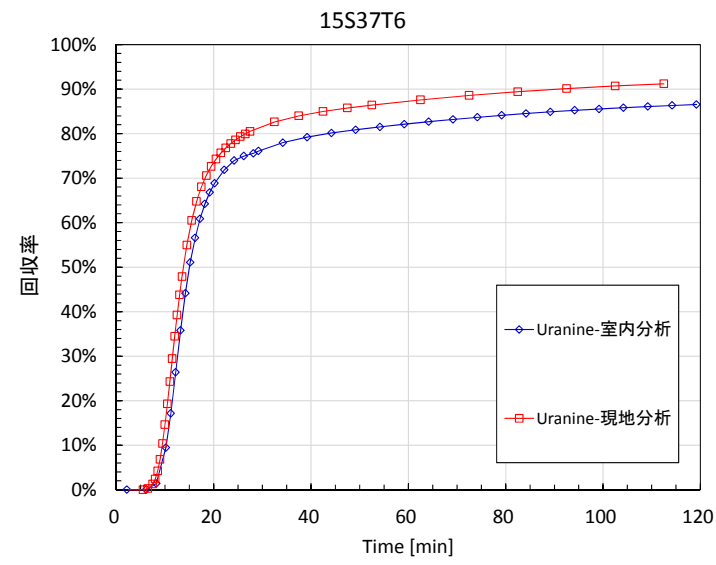
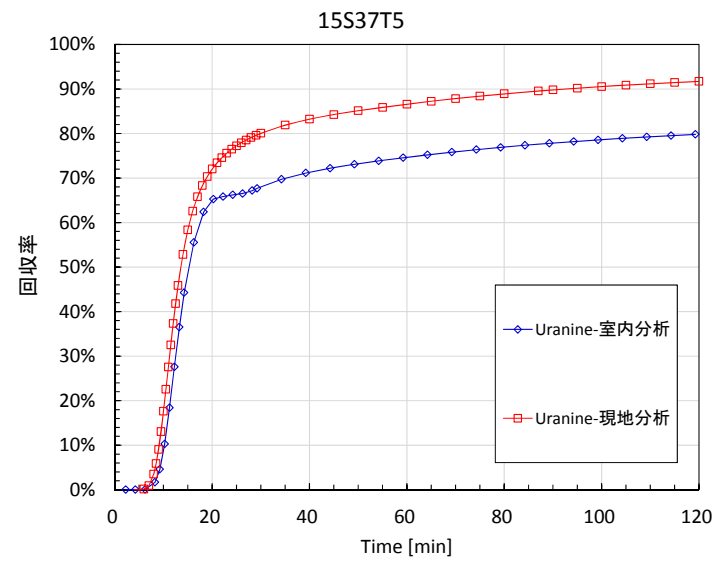


図 6. 5. 3-14 室内分析結果と現地分析結果のウラニンの回収率

#### 6.5.4 ダイポール試験の分析結果

##### (1) 室内分析結果における回収率

単孔トレーサー試験と同様にフラクションコレクターでサンプリングした各試料の濃度から回収率を求めた。回収率の計算には式(6.5.3-1)を用い、バックグラウンド濃度については揚水孔の値とした(表6.5.3-1 参照)。回収率を算出する時間は、非収着性トレーサーが破過曲線のピーク前後となるトレーサー注開始から240分後、480分後、収着性トレーサーは遅延効果により非収着性トレーサーよりも破過曲線のピークが生じる時間が遅くなるためトレーサー注開始から900分後、1800分後とした。

室内分析結果から求めたダイポール試験の回収率を表6.5.4-1に示す。

表 6. 5. 4-1 ダイポール試験の回収率

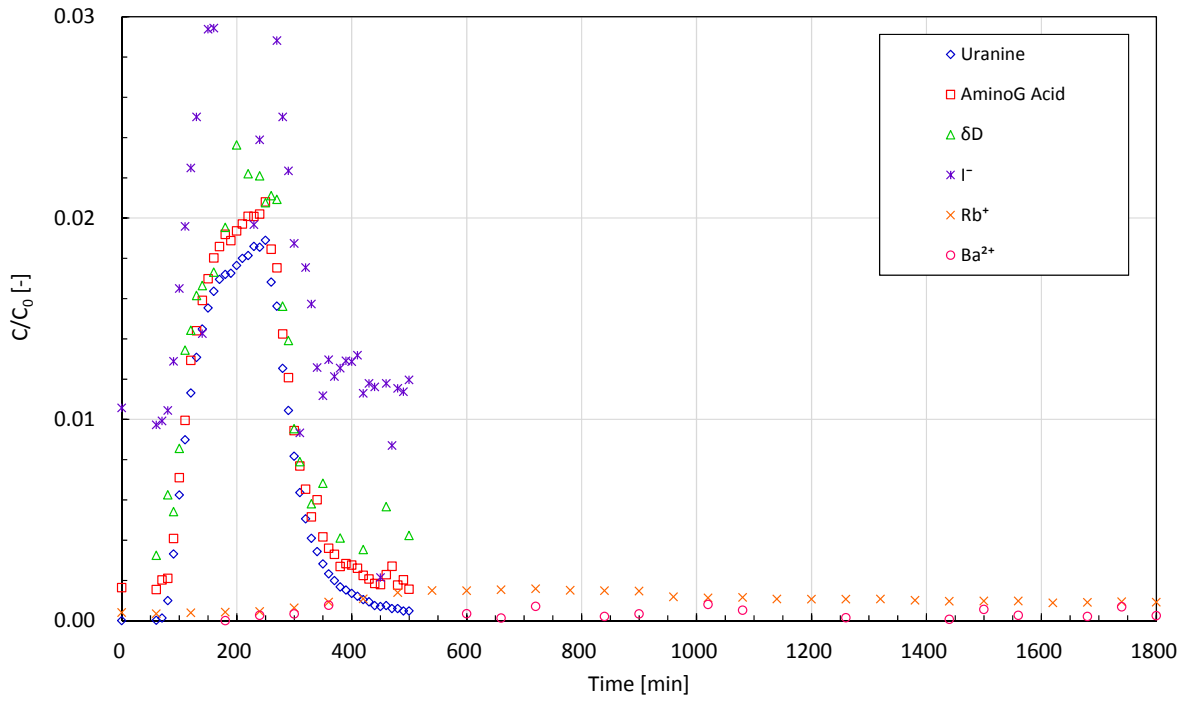
試験名			15W3137T5	15W3137T8	15W3731T10
試験実施日			11/12-11/13	11/26-11/27	12/1-12/2
注水区間			12MI31-D1		13MI37-D1
揚水区間			13MI37-D1		12MI31-D1
試験条件	注水流量	mL/min	10.0	19.7	19.2
	揚水流量	mL/min	203	207	200
	ダイポール比	-	20.3	10.5	10.4
	トレーサー注入開始		11/12 9:30	11/26 9:10	12/1 9:00
	チェイサー注入開始		11/13 16:00	11/27 16:00	12/2 15:00
	トレーサー注入時間	min	180	180	10
	トレーサー量	L	1.80	3.55	0.192
240 分回収率	ウラニン	%	25.1	41.2	36.0
	アミノG酸	%	29.2	42.8	39.0
	δ D	%	31.8	37.8	35.8
	I <sup>-</sup>	%	53.2	42.1	38.1
480 分回収率	ウラニン	%	39.6	52.6	61.8
	アミノG酸	%	47.7	55.1	67.1
	δ D	%	54.7	47.5	64.5
	I <sup>-</sup>	%	95.4	54.6	63.2
900 分回収率	R b <sup>+</sup>	%	10.6	17.9	18.8
	B a <sup>2+</sup>	%	1.66	3.92	9.93
1800 分回収率	R b <sup>+</sup>	%	21.1	29.9	34.0
	B a <sup>2+</sup>	%	3.89	10.5	18.8

## (2) 室内分析結果における破過曲線

単孔トレーサー試験は、注入したトレーサーが試験区間周辺に留まっているケースが多く揚水開始直後のサンプリングから濃度が急激に上昇する傾向がある。そのため、サンプリング時間をより正確に設定する必要があることから分画時間を考慮して破過曲線を作成した。一方、ダイポール試験は揚水孔と注水孔の試験区間の距離と設定したポンプの注水・揚水流量の関係から単孔トレーサー試験よりも緩やかに濃度が上昇するような破過曲線となっている。そのため、破過曲線を作成するうえでサンプリング時間に対する感度は小さいことから分画時間を考慮していない。破過曲線の濃度には単孔トレーサー試験と同様に  $I^-$ 、 $Rb^+$ 、 $Ba^{2+}$  は分析結果からバックグラウンド濃度を差し引き、トレーサー原液濃度で除して比濃度  $C/C_0$  として整理した。ウラニン、アミノ G 酸は各試料の分析結果をトレーサー原液濃度で除して比濃度  $C/C_0$  として整理した。 $\delta D$  については、混入率を計算しているため、分析結果をそのまま掲載した。なお、それぞれの破過曲線は、チューブ分散等の補正は行っていない。

破過曲線および回収率の経時変化を示したものを図 6.5.4-1～図 6.5.4-3 に示す。

15W3137T5



15W3137T5

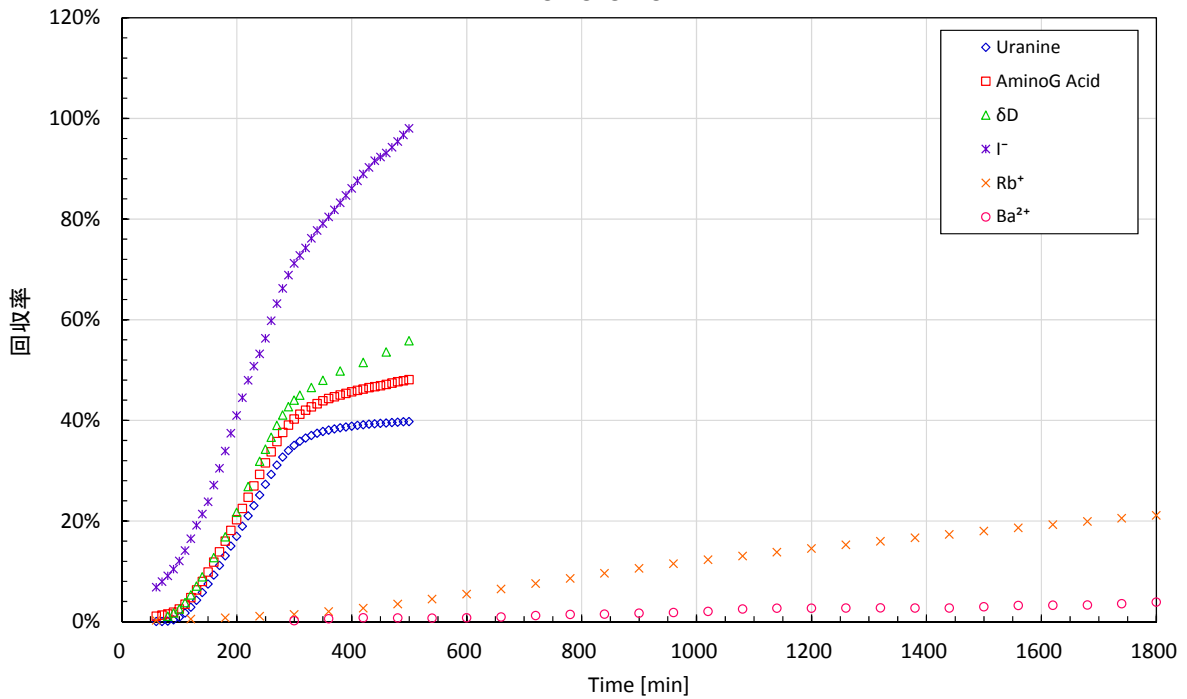


図 6.5.4-1 15T3137T5 破過曲線 (上) および回収率の経時変化 (下)

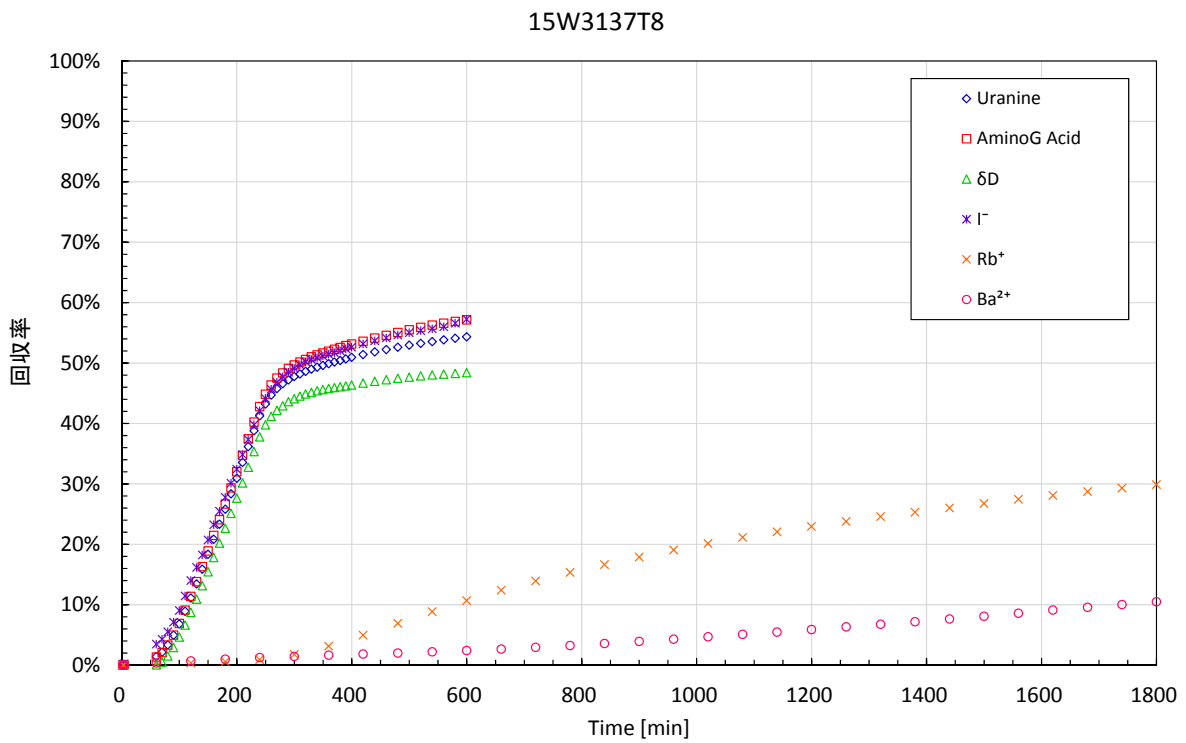
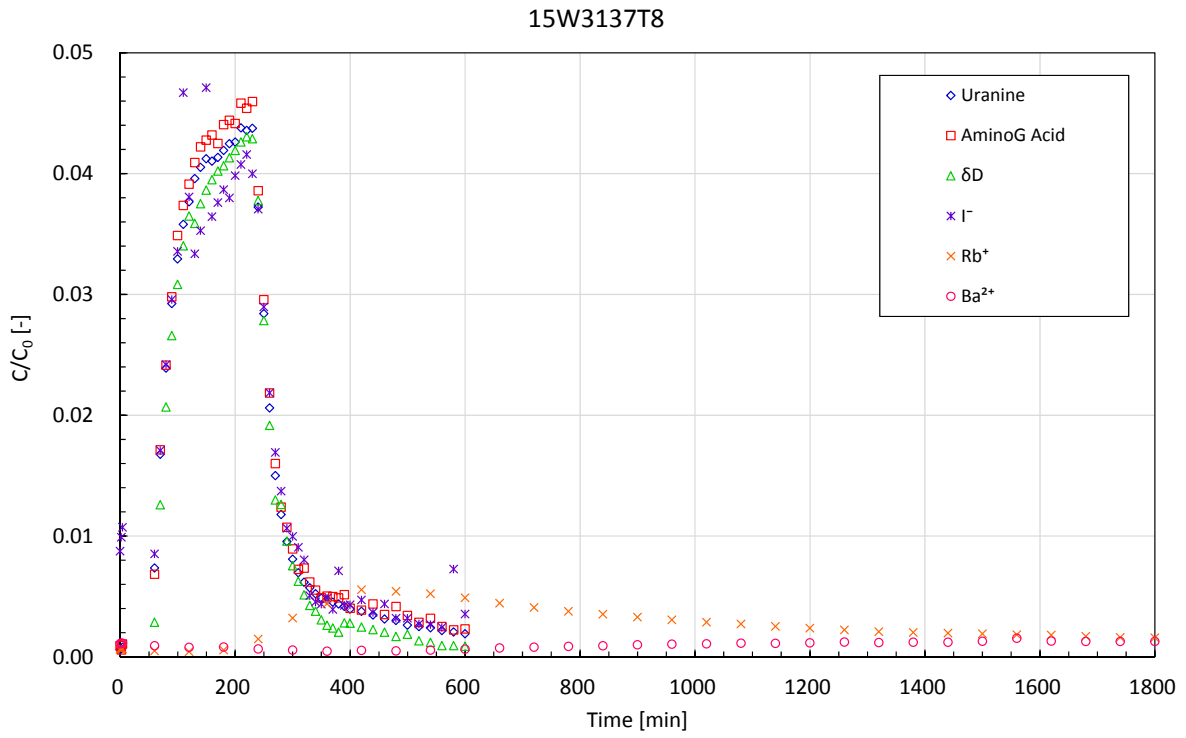


図 6.5.4-2 15T3137T8 破過曲線 (上) および回収率の経時変化 (下)

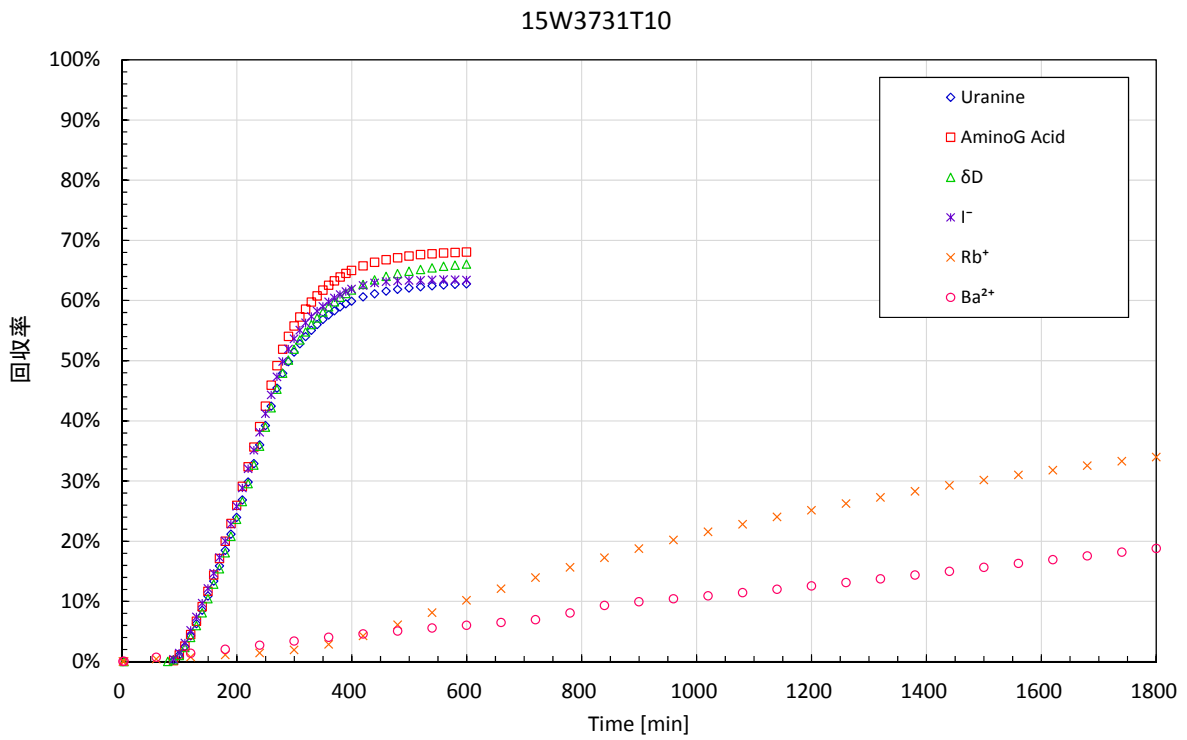
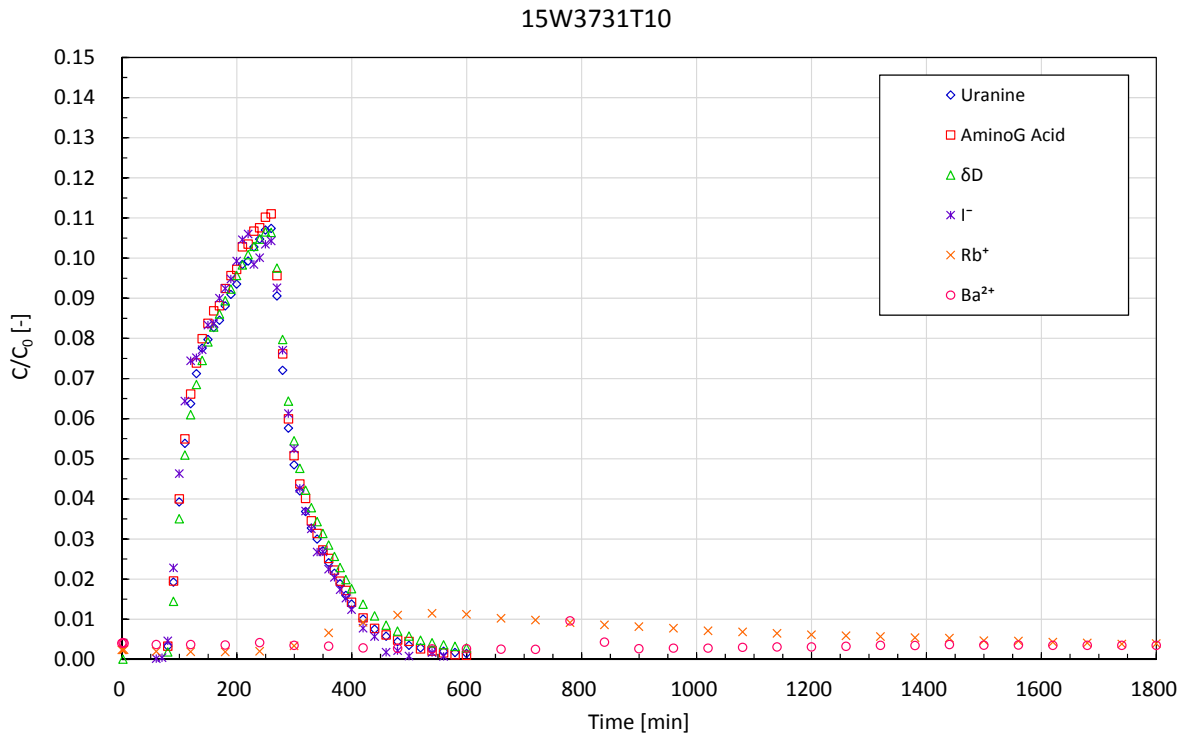


図 6.5.4-3 15T3731T10 破過曲線 (上) および回収率の経時変化 (下)



### (3) 現地分析結果との比較

現地および室内の化学分析で得られたウラニンの破過曲線を図 6.5.4-5 に、回収率の経時変化を図 6.5.4-6 に示す。破過曲線の濃度は比濃度とし、回収率は式(6.5.3-1)より求めた。なお、現地の分析結果は手作業でサンプリングを行っており、サンプリングのインターバルや分画時間が正確に一定ではないため時間軸の補正は行わず、サンプリング時間をプロットした。また、図 6.5.4-4 に室内分析と現地分析より得られたウラニンのトレーサー原液濃度を示す。

これらの図より単孔トレーサー試験と同様に全体的に現地試験結果が室内試験結果よりも大きくなる傾向があるものの、2 つの結果は概ね一致している。ダイポール試験は、単孔トレーサー試験に比べて破過曲線の濃度最大値が小さいため分析の精度が結果に大きく反映するが、このような場合でも現地、室内の分析において安定した結果が得られることがわかった。

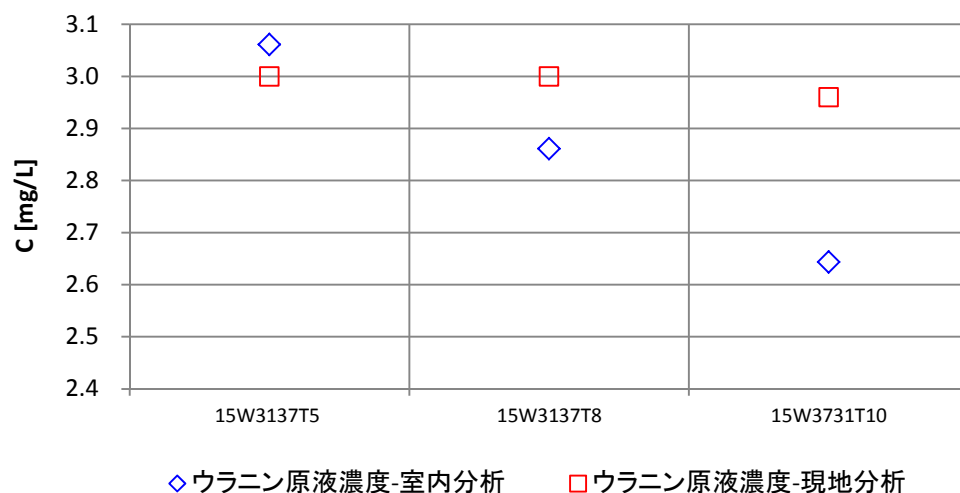


図 6.5.4-4 ウラニウム原液濃度の室内分析結果と現地分析結果の比較

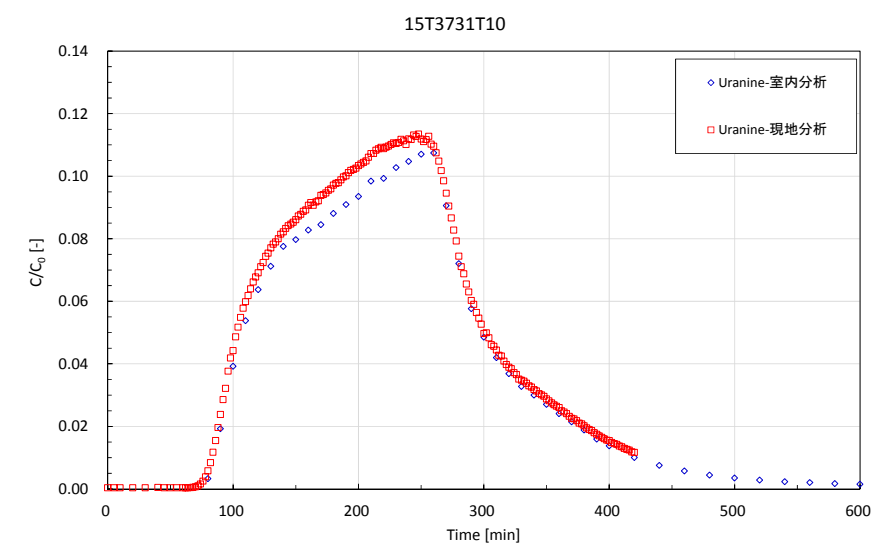
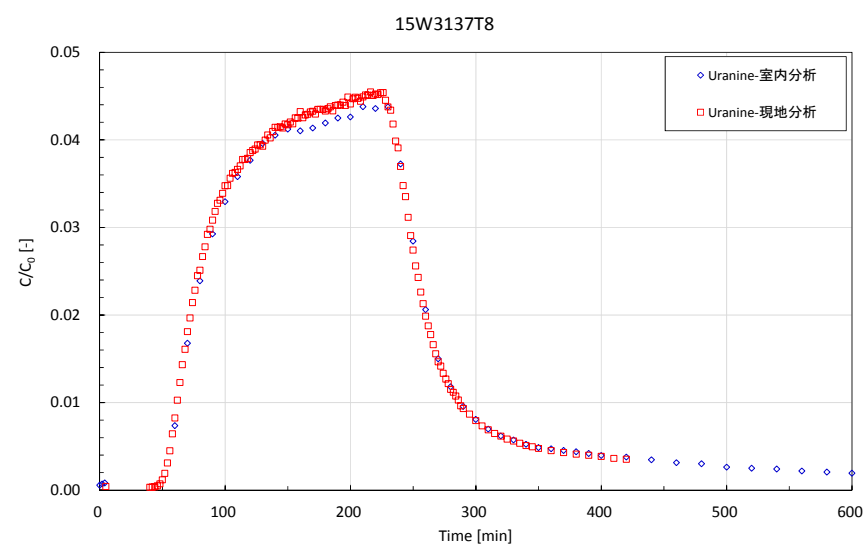
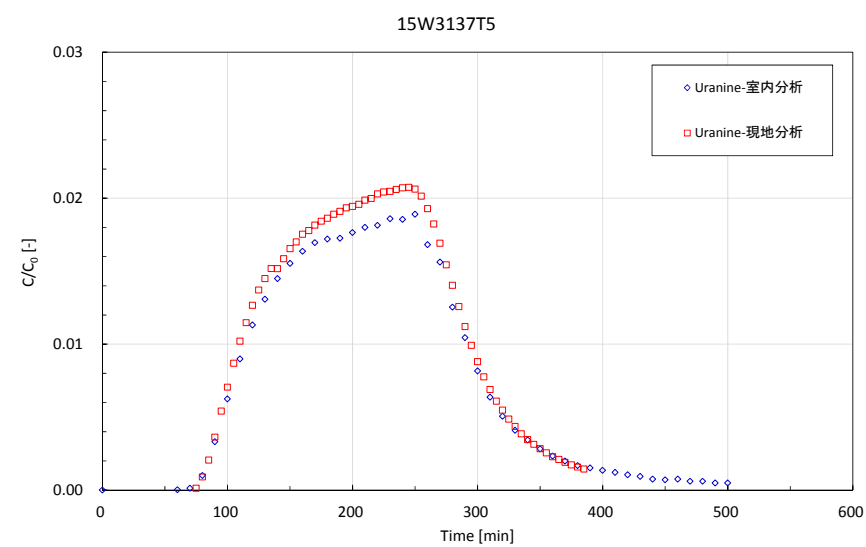


図 6.5.4-5 室内分析結果と現地分析結果のウラニンの破過曲線

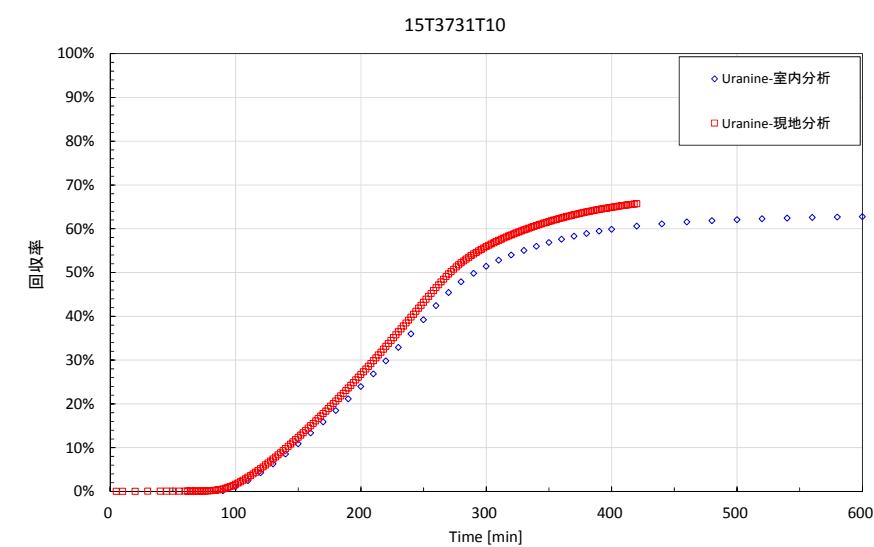
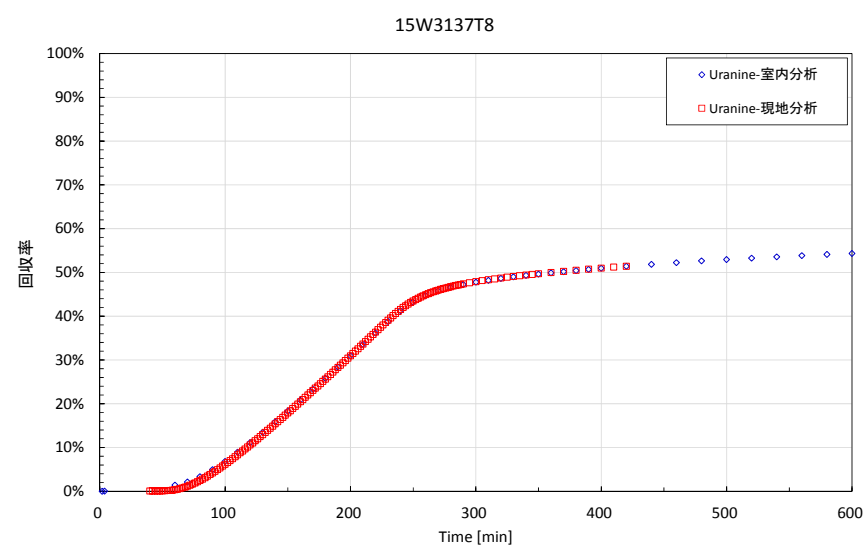
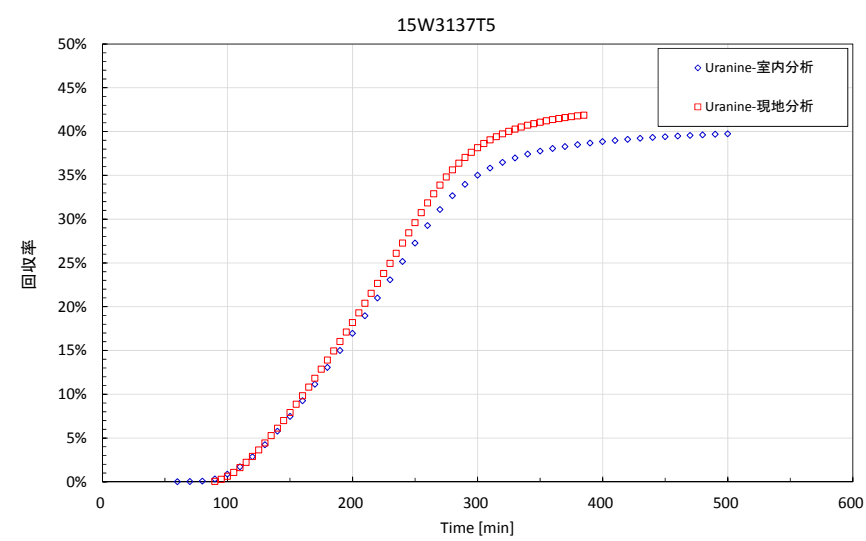


図 6.5.4-6 室内分析結果と現地分析結果のウラニンの回収率

## 6.6 原位置試験の評価

### 6.6.1 単孔トレーサー試験の評価

#### 6.6.1.1 回収率

図 6.6.1-1 に単孔トレーサー試験における非収着性トレーサーの回収率を示す。昨年と同様にウラン、アミノ G 酸、 $\delta D$  の回収率は概ね一致する傾向にある。一方、I については、昨年度行った試験では、他の非収着性トレーサーの回収率とは大きく異なる結果となっていた。今年度は試験条件によっては一致するケースも見られたが、中には回収率が 100% を超えてしまう試験条件も見られた。図 6.5.3-1～図 6.5.3-11 に示した破過曲線を見ると、I の破過曲線は他の非収着性トレーサーと比較すると時間が経過しても濃度が下がりきっておらず、I のバックグラウンド濃度が高いことが関係していると考えられるが、詳細については不明である。このような要因から I については回収率が過剰に大きくなったと考えられる。

図 6.6.1-2 に単孔トレーサー試験における非収着性トレーサーと収着性トレーサーの回収率を比較した図を示す。この図よりチェイサー注入終了後、揚水開始までの待機時間を設けなかった試験では非収着性トレーサーが、待機時間を設けた試験では収着性トレーサーの回収率が大きくなる傾向があることがわかる。待機時間を長くすると非収着性トレーサーは相当の量がバックグラウンドの地下水流れによって回収不能な範囲まで流されてしまうが、収着性トレーサーは試験孔周辺の岩盤に収着することで回収可能な範囲に留まっていたと考えられる。

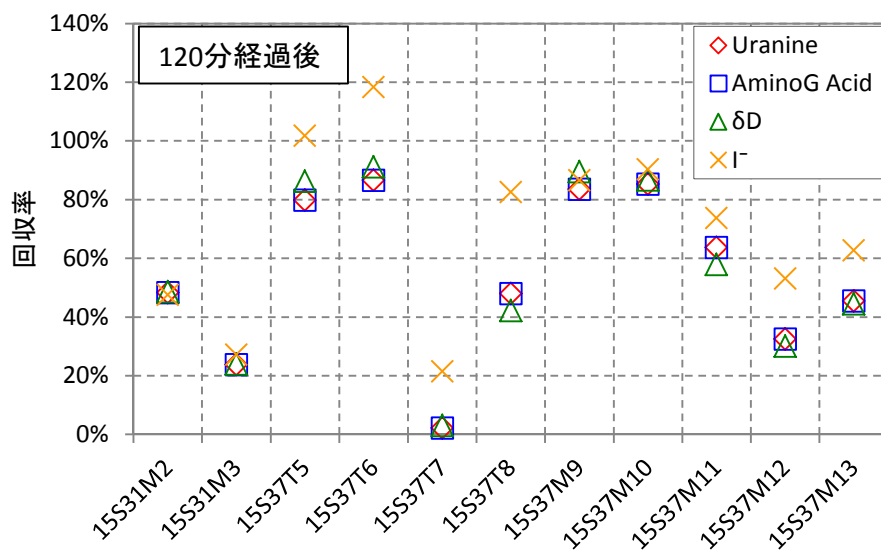
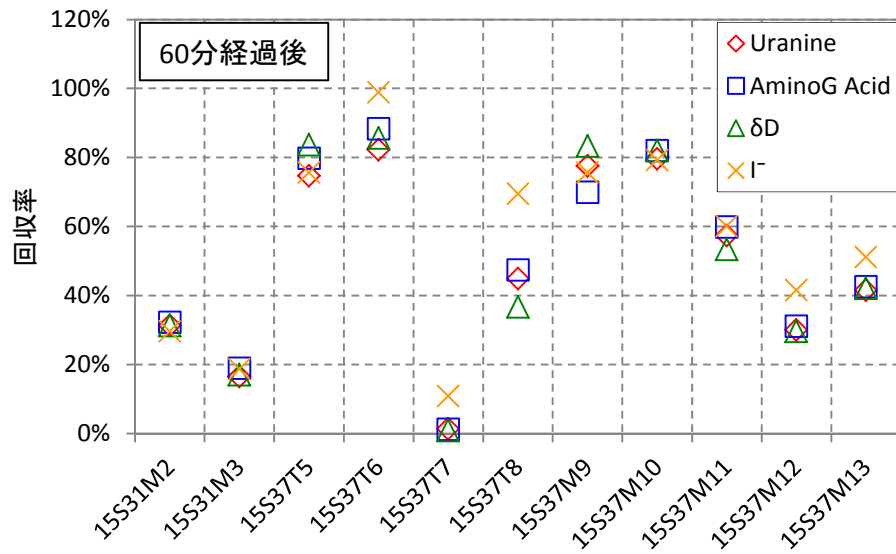
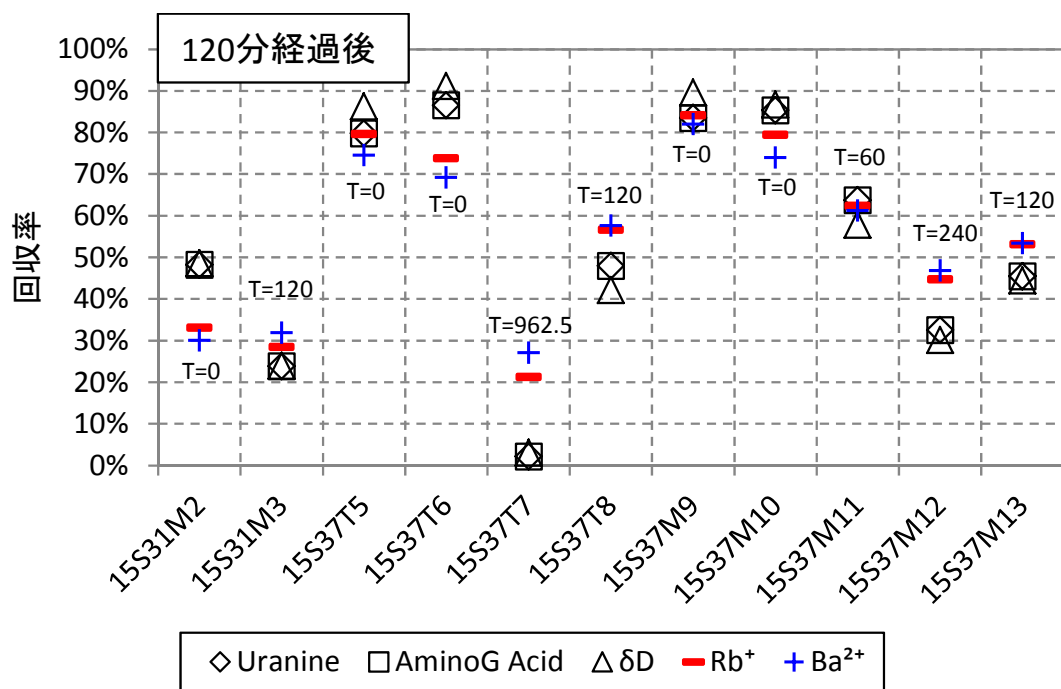
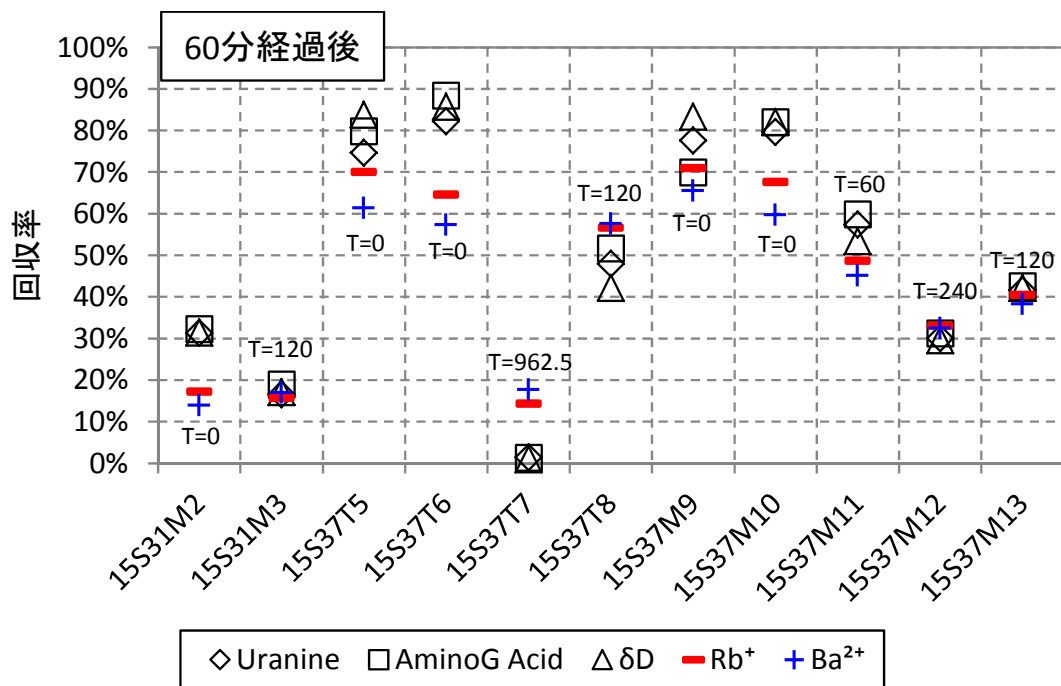


図 6. 6. 1-1 単孔トレーサー試験における非附着性トレーサーの回収率



\*非収着性トレーサーIはグラフには表示していない。

\*図中「T」はチェイサー注入終了後から揚水開始までの待機時間(min)である。

図 6.6.1-2 単孔トレーサー試験における非収着性トレーサーと収着性トレーサーの回収率の比較

### 6.6.1.2 破過曲線

#### (1) 注入量と注入流量による影響

注入流量や注入量の違いによる破過曲線の違いを確認することを目的に、注入量は同じであるが注入流量が異なる試験、注入流量は同じであるが注入量が異なる試験について比較を行う。13MI37号孔で行った試験のうち、待機時間を設けていない試験結果について、ウラニン、 $\delta D$ 、 $Rb^+$ 、 $Ba^{2+}$ の結果を、図 6.6.1-3～図 6.6.1-6 に整理する。図 6.6.1-3～図 6.6.1-6 は、縦軸を比濃度  $C/C_0$  とし、横軸を揚水量  $V_{ext}$  と注入量  $V_{inj}$  の比である  $V_{ext}/V_{inj}$  として示した。ここで、揚水量  $V_{ext}$  は式(6.6.1-1)で、注入量  $V_{inj}$  は式(6.6.1-2)で計算される値である。

$$V_{ext} = Q_{ext} \times T_{ext} \quad (6.6.1-1)$$

$$V_{inj} = V_{tr} + V_{ch} = Q_{inj} \times T_{tr} + (Q_{inj} \times T_{ch} - V_{tube}) \quad (6.6.1-2)$$

ここに、 $V_{ext}$ 、 $V_{inj}$ ：揚水量[L<sup>3</sup>]、注入量[L<sup>3</sup>]、 $Q_{ext}$ 、 $Q_{inj}$ ：揚水流量[L<sup>3</sup>T<sup>-1</sup>]、注入流量[L<sup>3</sup>T<sup>-1</sup>]、 $T_{ext}$ ：揚水開始からの経過時間[T]、 $V_{tr}$ 、 $V_{ch}$ ：トレーサー量、チェイサー量[L<sup>3</sup>]、 $T_{tr}$ 、 $T_{ch}$ ：トレーサー注入時間、チェイサー注入時間、 $V_{tube}$ ：トレーサー置換タンクから試験区間までのデッドボリューム容量[L<sup>3</sup>]を表す。

式(6.6.1-2)において、トレーサー注入量 $V_{tr}$ とチェイサー注入量 $V_{ch}$ の合計値からトレーサー置換タンクから試験区間までのデッドボリューム容量 $V_{tube}$ を引いたのは、チェイサー注入終了時点ではトレーサー置換タンクから試験区間までのチューブ内のチェイサー（地下水）は割れ目内に注入されておらず、チューブ内に残留するチェイサーの容量を考慮するためである。トレーサー置換タンクから試験区間までのチューブ長は 40.1m、容量は 504mL であることから、注入流量とチェイサー注入時間の積から 504mL を差し引いた。この時、いずれの試験条件もチェイサー注入量は約 1L である。

注入量が約 2L の試験条件（15S37M9、15S37M10）はトレーサー注入量とチェイサー注入量の比がおおよそ 2：1 であり、注入量を約 1L とした試験条件（15S37T5、15S37T6）はトレーサー注入量とチェイサー注入量の比がおおよそ 1：1 である。いずれのトレーサーにおいても、トレーサー注入量とチェイサー注入量の比を 2：1 としたほうが破過曲線のピーク濃度は高くなり、ピーク出現時間も早くなった。

注入流量と回収率の関係を図 6.6.1-7 に示す。図 6.6.1-7 から、注入量が約 2L とした場合の  $\delta D$  の結果を除き、概ね以下に示す傾向が確認された。

#### ➤ 非吸着性トレーサー（ウラニン、 $\delta D$ ）

注入流量が大きい試験条件(15S37T6、15S37M10)の方が、注入流量の小さい試験条件(15S37T5、15S37M9)よりも回収率が高い。

#### ➤ 吸着性トレーサー

注入流量が大きい試験条件(15S37T6、15S37M10)の方が、注入流量の小さい試験条件(15S37T5、15S37M9)よりも回収率が小さい。

同じ量のトレーサーを注入する場合、非収着性トレーサーでは、注入流量を大きくした方が注入に要する時間が短いため、注入時間中にバックグラウンド地下水流れによって流されるトレーサー量は少なく、注入流量が大きい試験条件の方が回収率は高くなったと考えられる。一方、収着性トレーサーについては、非収着性トレーサーとは逆に、注入流量が小さい試験条件の方が回収率は高くなった。これは、同じトレーサー量を注入する場合、注入流量が小さい試験条件の方が岩盤とトレーサーの接触時間が長くなり、収着の効果が高まってバックグラウンド地下水流れによって流されにくくなった可能性が考えられる。

## (2) 待機時間の影響

待機時間が破過曲線に与える影響について、図 6.6.1-8～図 6.6.1-11 に示す。待機時間が長い試験条件ほど、非収着性トレーサーと収着性トレーサーともに回収率は低下しピーク濃度が減少しているが、これはバックグラウンド地下水流れによってトレーサーが流されたためであると考えられる。また、待機時間を設けた試験条件では、待機時間を設けていない試験条件よりもピーク出現時間が早くなる傾向が確認された。

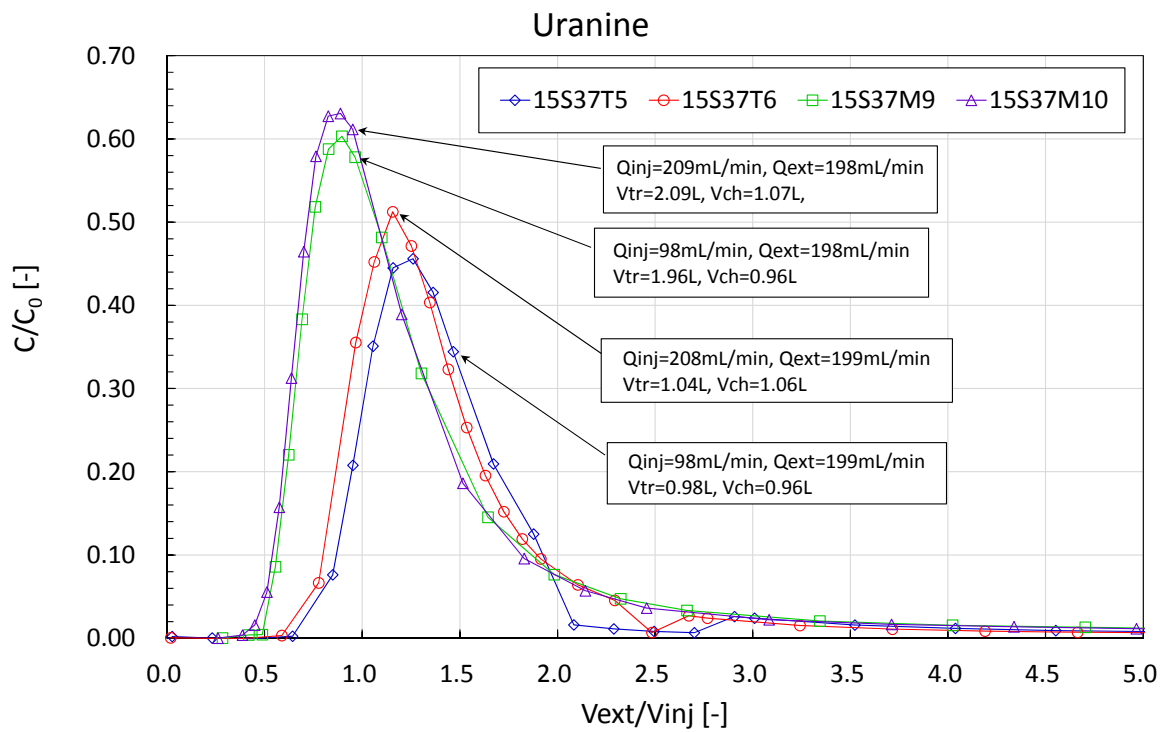


図 6.6.1-3 注入流量と注入量が破過曲線に与える影響（ウラニン）

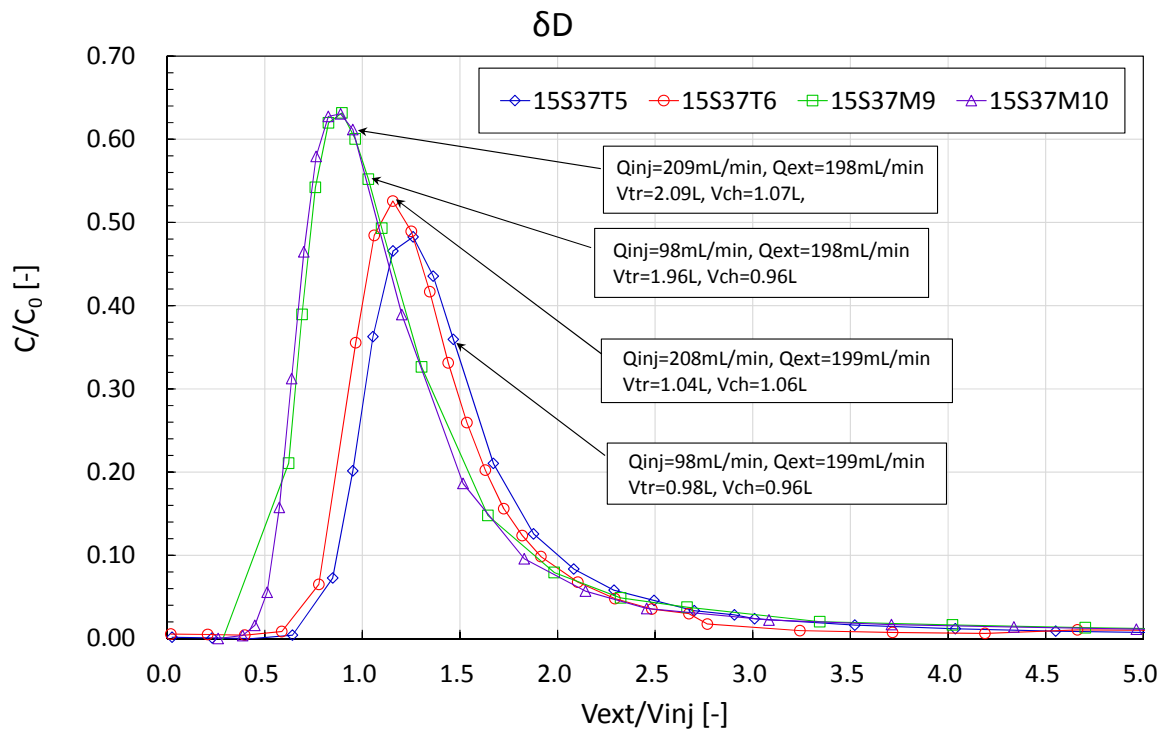


図 6.6.1-4 注入流量と注入量が破過曲線に与える影響（ $\delta D$ ）

※図中の凡例は、 $Q_{inj}$ ：注入流量、 $Q_{ext}$ ：揚水流量、 $V_{tr}$ ：注入トレーサー量、 $V_{ch}$ ：注入チェイサー量を表す。



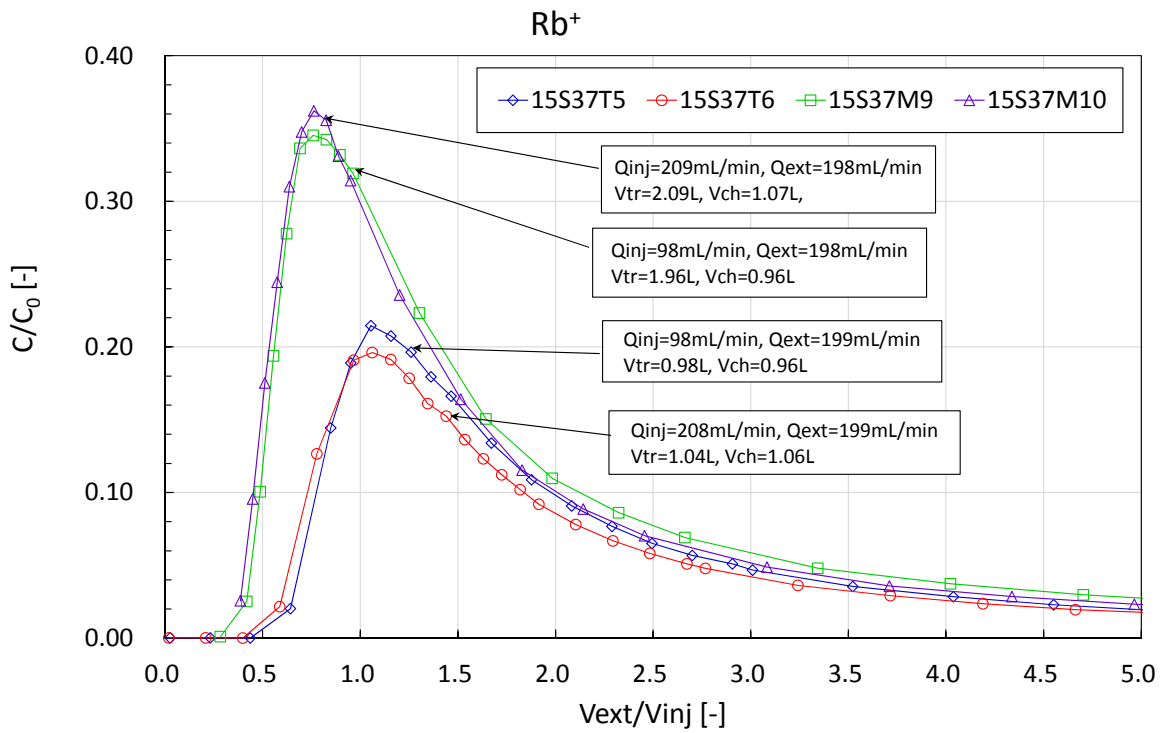


図 6.6.1-5 注入流量と注入量が破過曲線に与える影響 (Rb<sup>+</sup>)

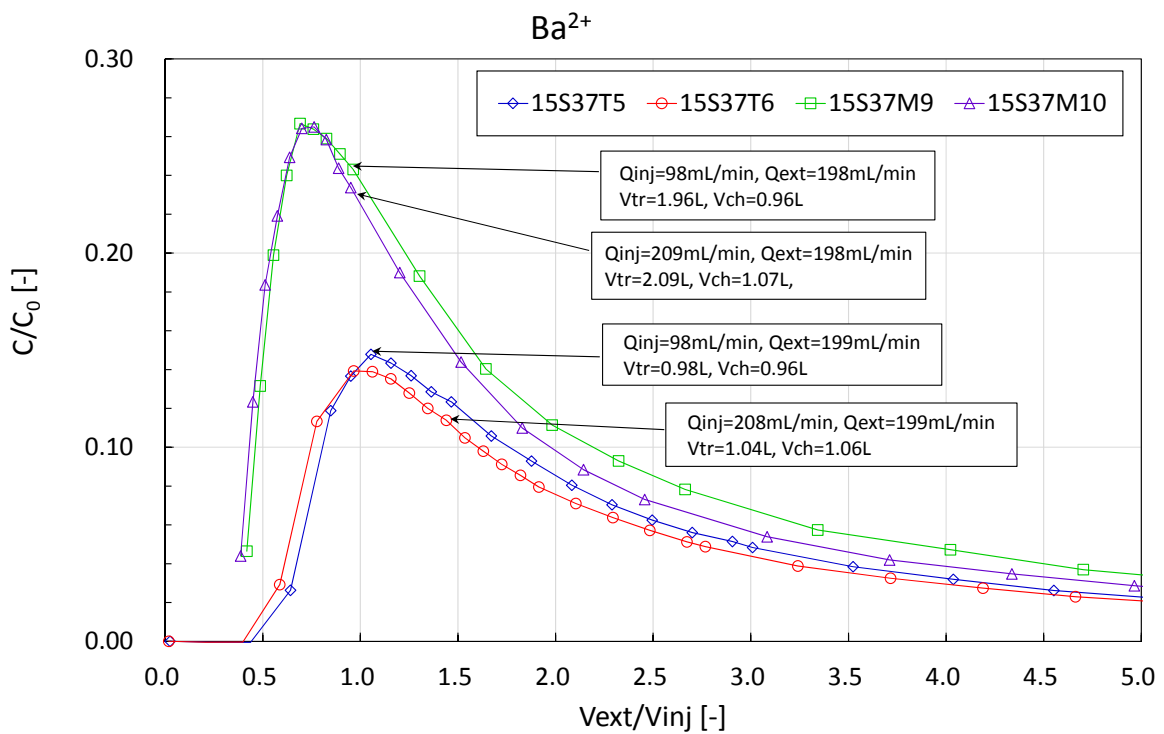


図 6.6.1-6 注入流量と注入量が破過曲線に与える影響 (Ba<sup>2+</sup>)

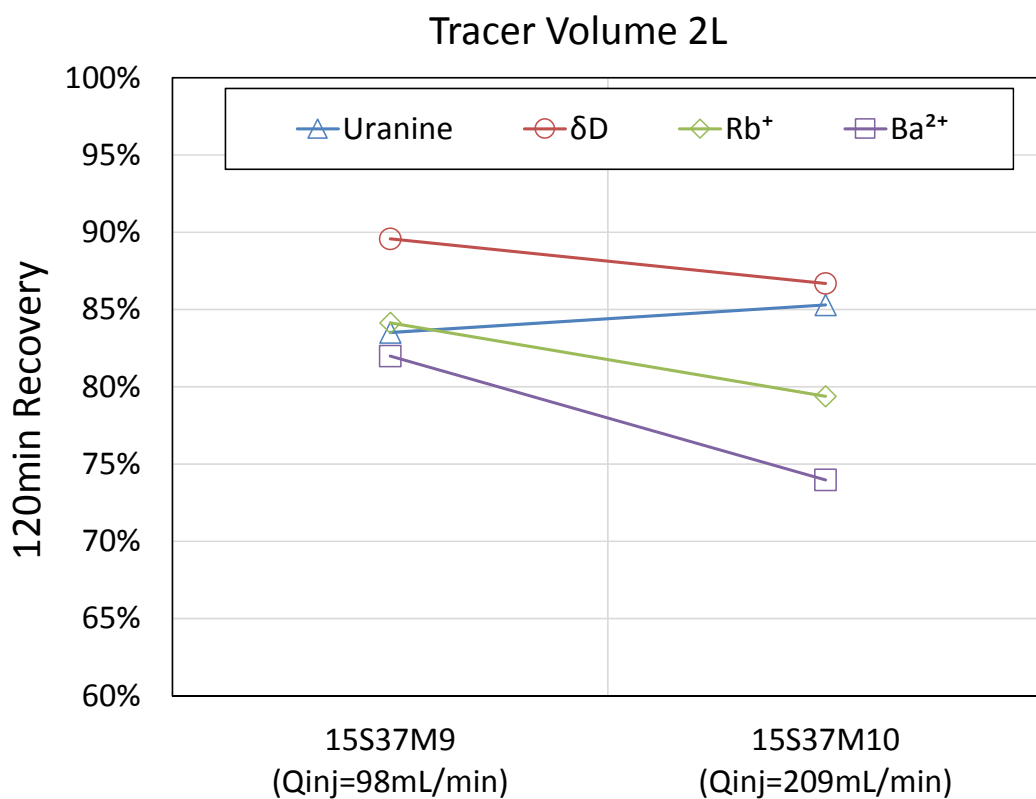
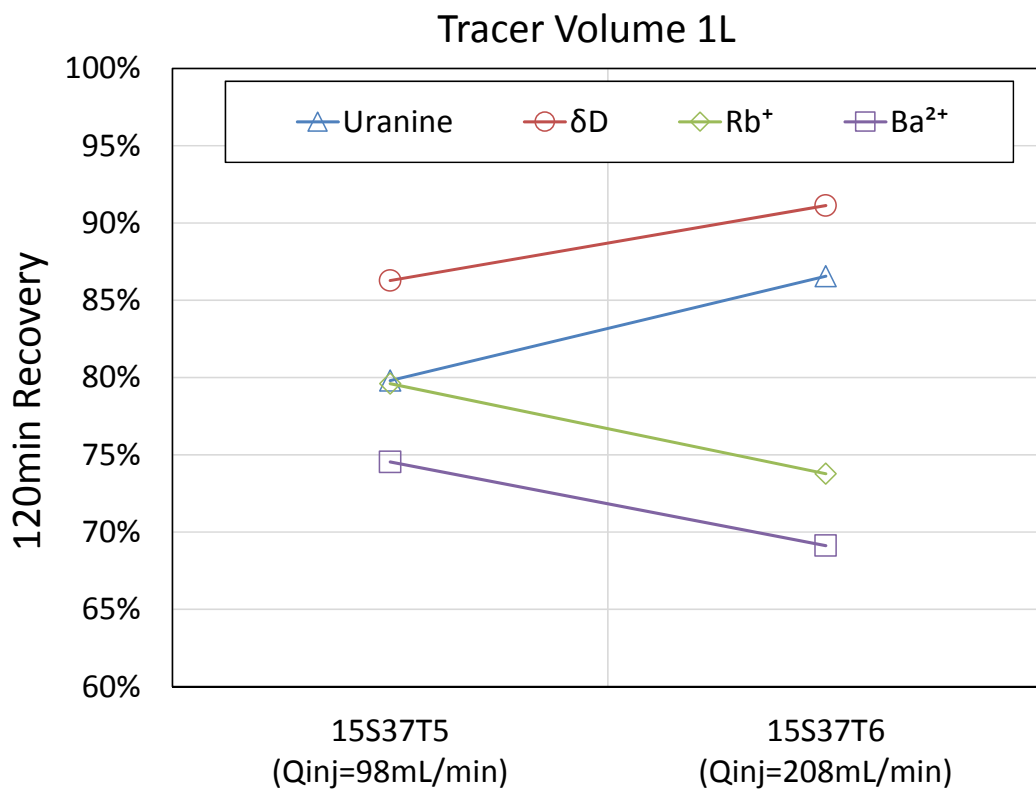


図 6.6.1-7 注入流量と回収率の関係

(上) トレーサー注入量約 1L、(下) トレーサー注入量約 2L

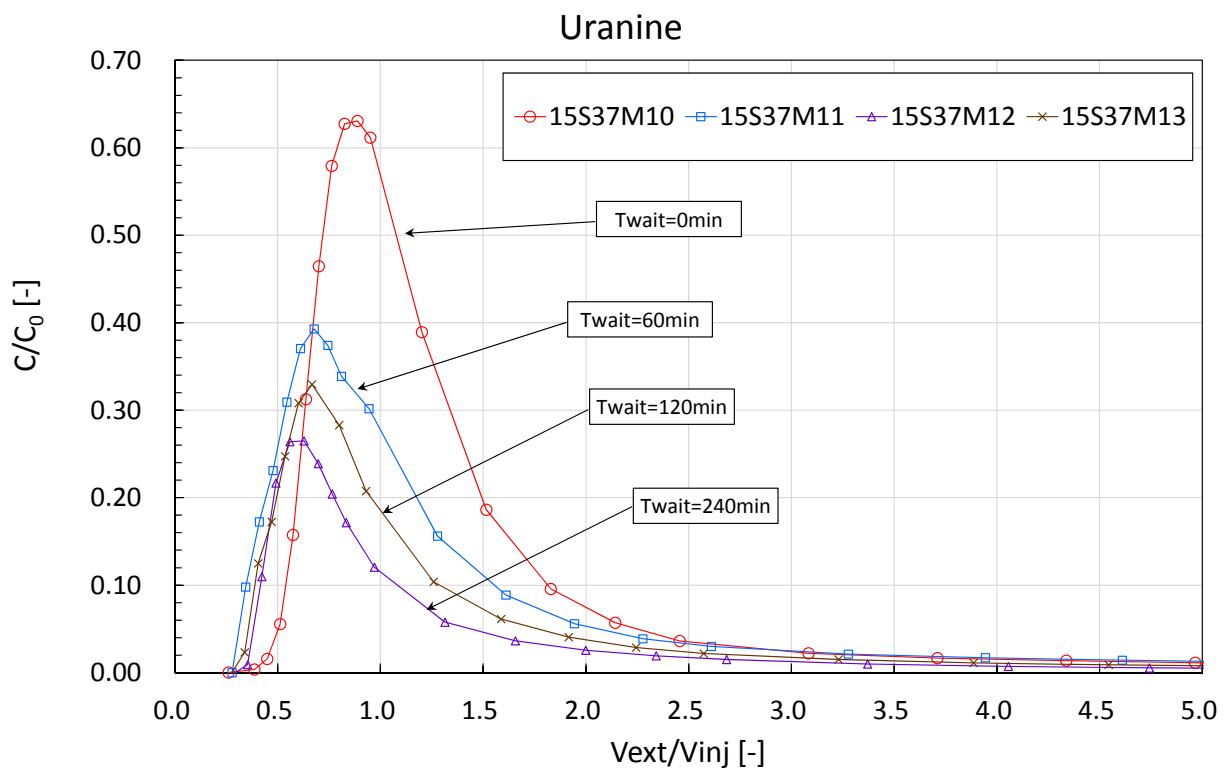
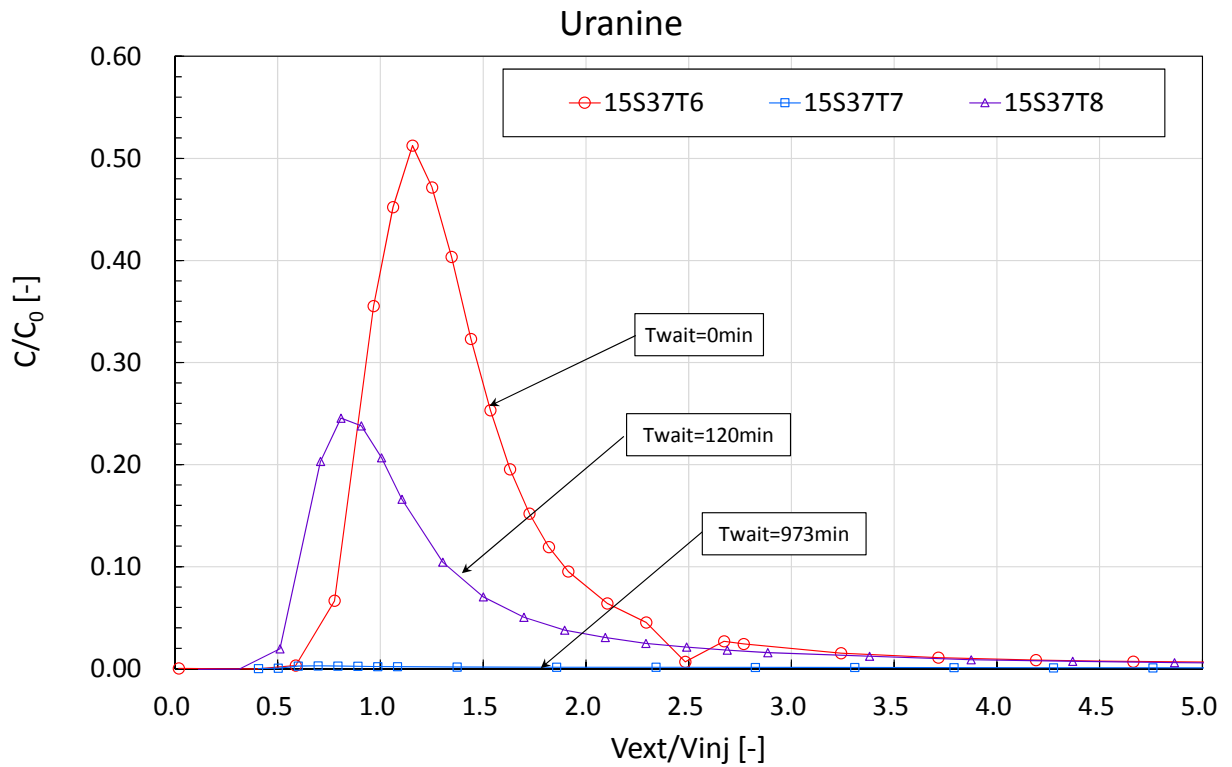


図 6.6.1-8 待機時間による影響 (ウラニン)

(上) トレーサー注入量約 1L、(下) トレーサー注入量約 2L

※図中の凡例は、 $T_{wait}$  : 待機時間を表す。

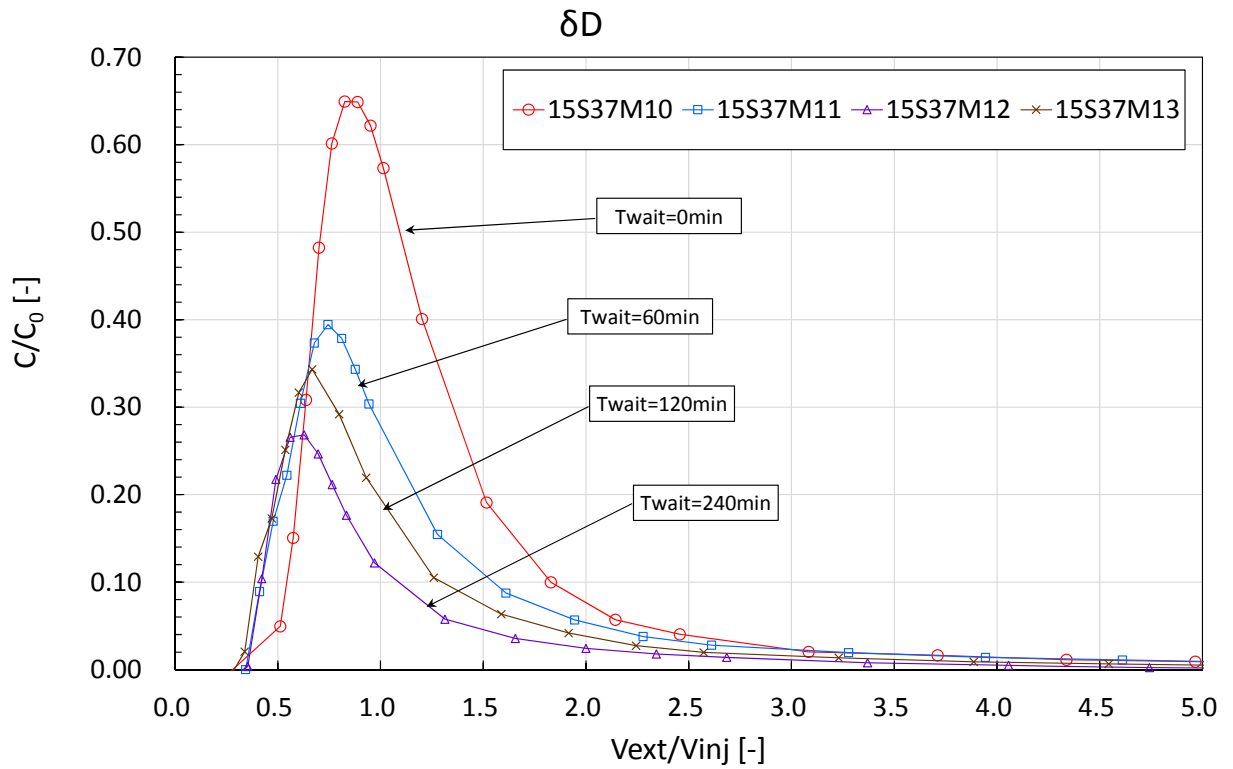
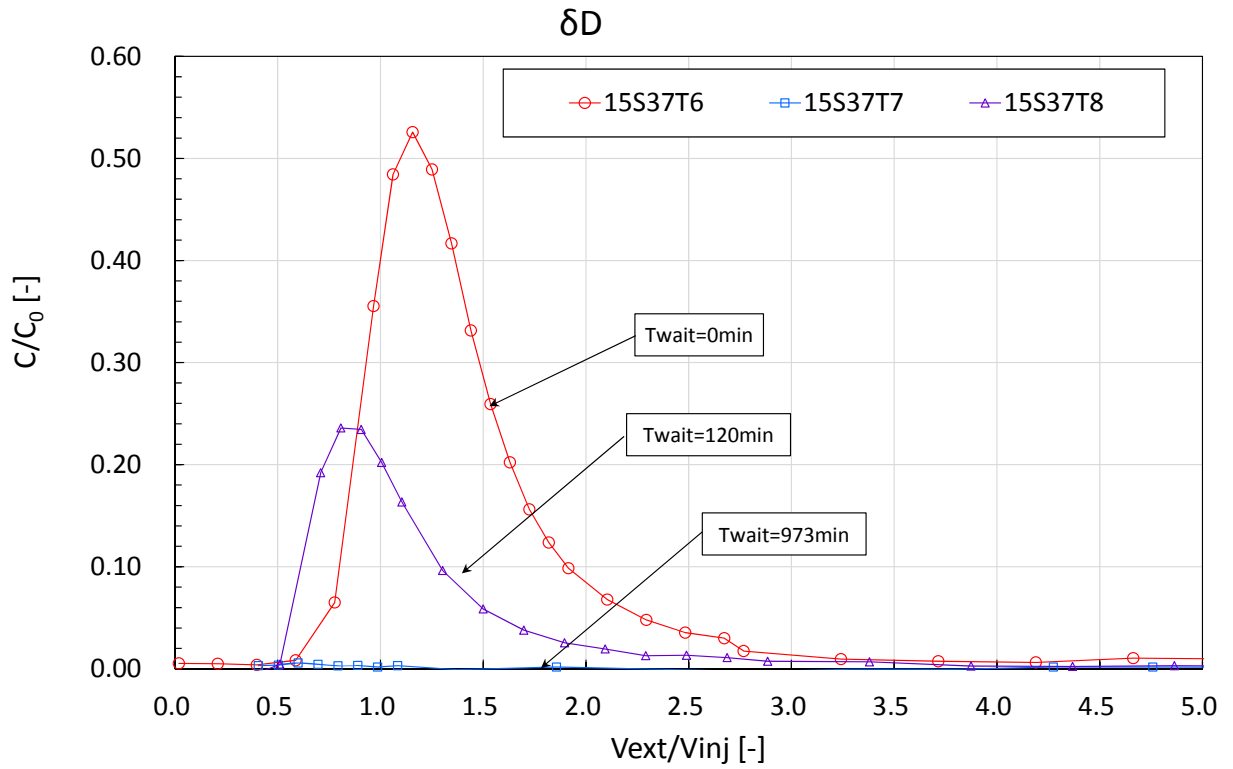


図 6.6.1-9 待機時間による影響 ( $\delta D$ )

(上) トレーサ注入量約 1L、(下) トレーサー注入量約 2L

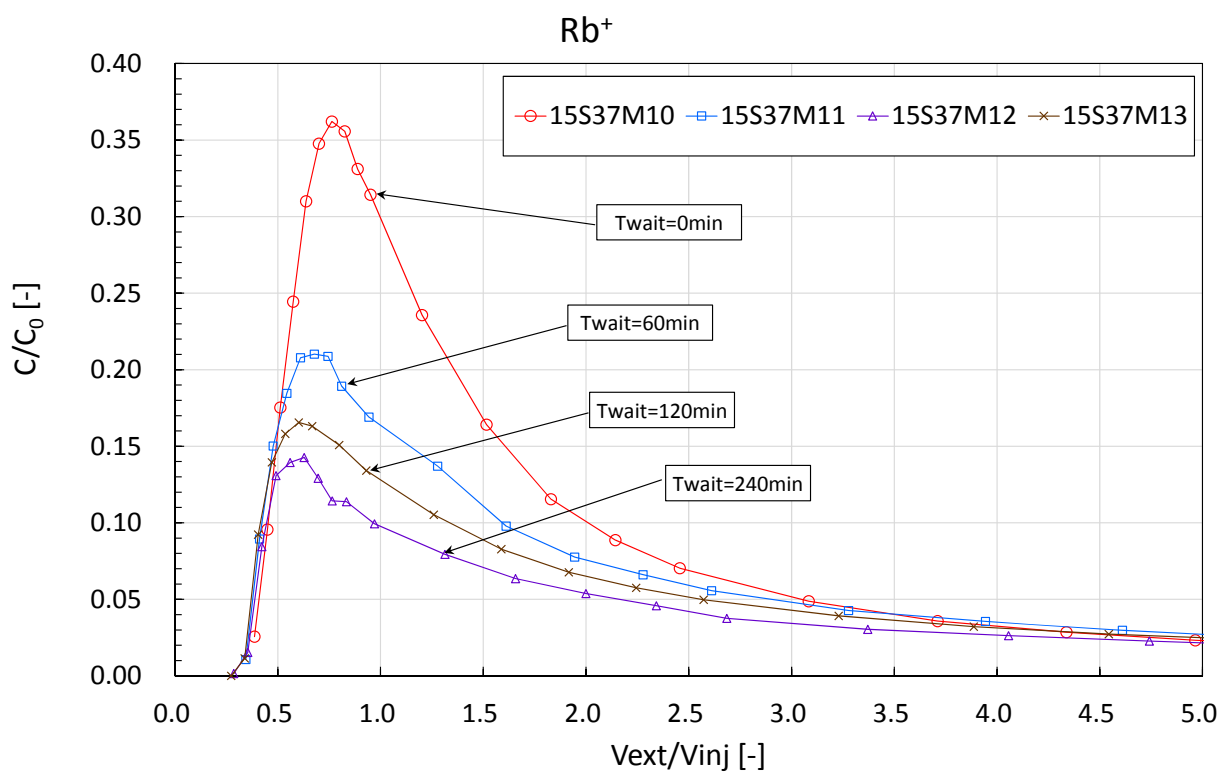
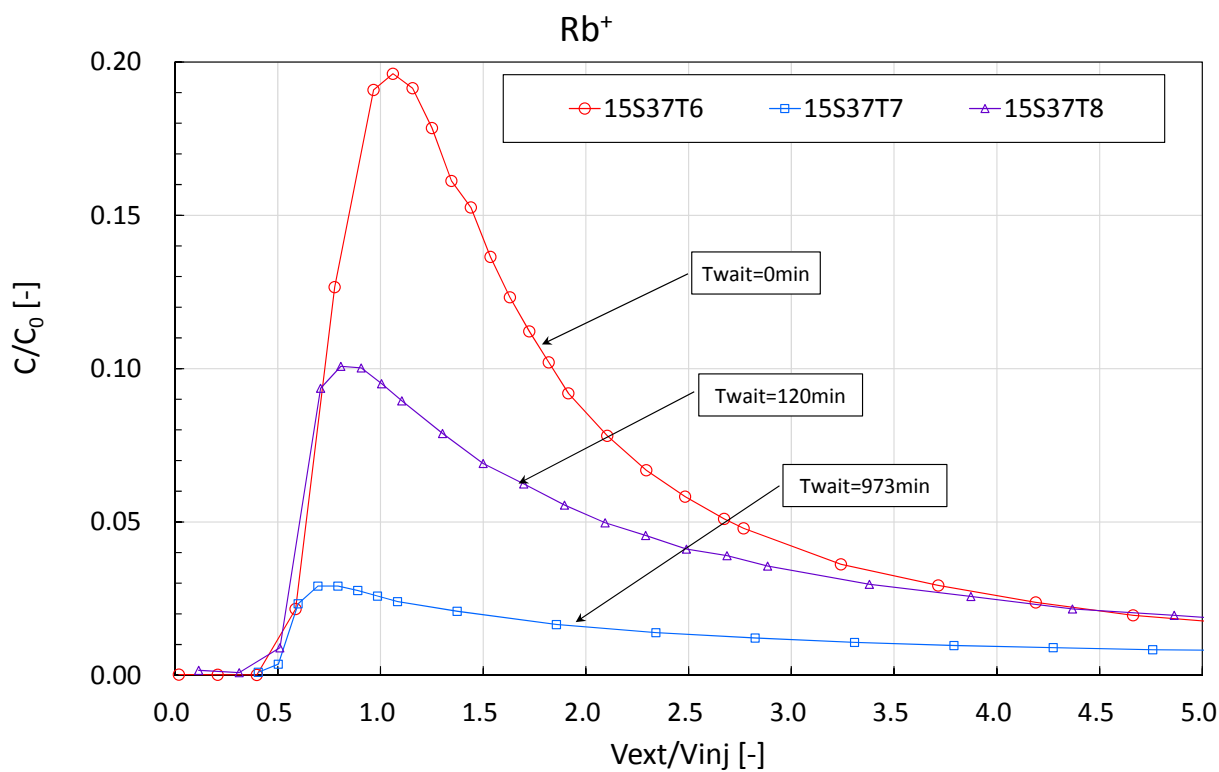


図 6.6.1-10 待機時間による影響 (Rb<sup>+</sup>)

(上) トレーサー注入量約 1L、(下) トレーサー注入量約 2L

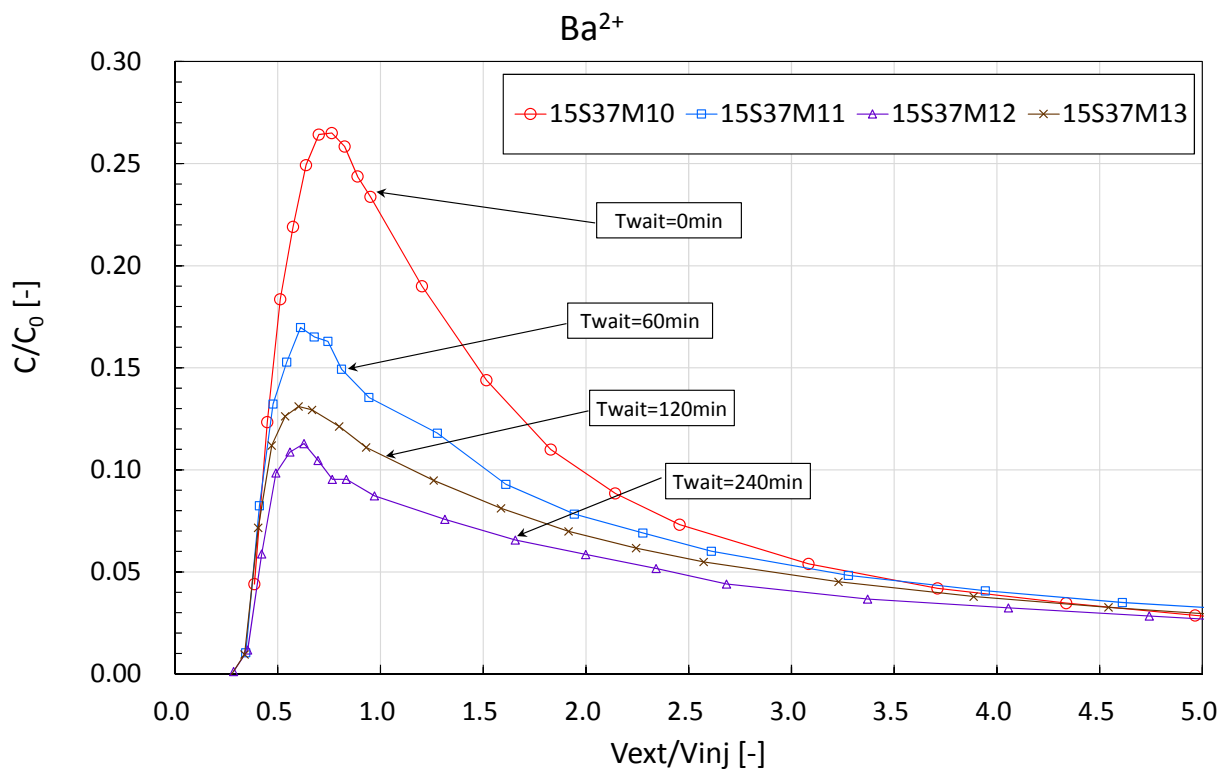
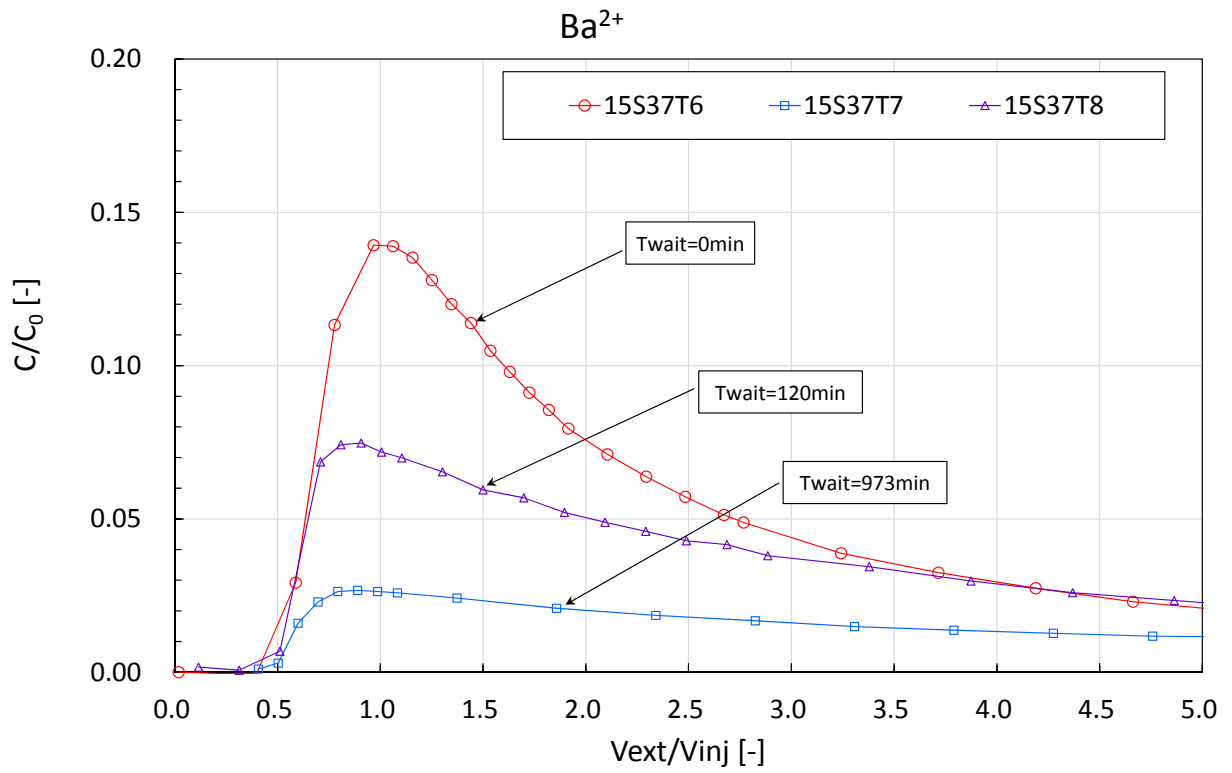


図 6.6.1-11 待機時間による影響 ( $Ba^{2+}$ )

(上) トレーサー注入量約 1L、(下) トレーサー注入量約 2L

### 6.6.1.3 理論式を用いた簡易評価

待機時間を設けていない試験条件について、Gelhar and Collins(1971)やSchroth et al. (2001)によって示された理論式による単孔トレーサー試験の評価方法を用い、試験結果の簡易評価を行って物質移行パラメーターを評価する。

#### (1) 理論式と評価手順

Gelhar and Collins(1971)やSchroth et al. (2001)が示した理論式を式(6.6.1-3)、(6.6.1-4)に示す。

$$\frac{C}{C_0} = \frac{1}{2} \operatorname{erfc} \left[ \frac{\frac{V_{ext}}{V_{inj}} - 1}{\left( \frac{16}{3} \frac{\alpha_L}{\hat{r}_{max}} \left\{ 2 - \left| 1 - \frac{V_{ext}}{V_{inj}} \right|^{1/2} \left( 1 - \frac{V_{ext}}{V_{inj}} \right) \right\} \right)^{1/2}} \right] \quad (6.6.1-3)$$

ここで、 $\hat{r}_{max}$ はトレーサーの浸透範囲を表し、非吸着性トレーサーの $\hat{r}_{max}$ は式(6.6.1-4)で、吸着性トレーサーの $\hat{r}_{max}$ は式(6.6.1-5)で表される。

$$\hat{r}_{max,nr} = \sqrt{\frac{V_{inj}}{\pi b \varphi} + r_w^2} \quad (6.6.1-4)$$

$$\hat{r}_{max,r} = \sqrt{\frac{V_{inj}}{\pi b R \varphi} + r_w^2} \quad (6.6.1-5)$$

ここに、 $r_w$  : ボーリング孔径[L]、 $b$  : 割れ目幅[L]、 $\alpha_L$  : 縦分散長[L]、 $\varphi$  : 間隙率[-]、 $R$  : 遅延係数を表し、下付添え字の  $nr$  は非吸着性トレーサーを、 $r$  は吸着性トレーサーを意味している。 $V_{ext}$  や  $V_{inj}$  は式(6.6.1-1)、(6.6.1-2)で計算される値である。

ここで、式(6.6.1-3)において未知数であるのは $\alpha_L$ と $\hat{r}_{max,nr}$ であり、式(6.6.1-4)の右辺第2項は右辺第1項に比べて十分に小さい場合、式(6.6.1-7)で示される集中定数 $\tau$  (*lumped parameter*) が定義される。つまり、非吸着性トレーサーの理論式である式(6.6.1-3)の未知数は、割れ目幅、縦分散長、間隙率から成る集中定数に集約される。

$$\frac{\alpha_L}{\hat{r}_{max,nr}} = \frac{\alpha_L}{\sqrt{\frac{V_{inj}}{\pi b \varphi} + r_w^2}} \approx \frac{\alpha_L}{\sqrt{\frac{V_{inj}}{\pi b \varphi}}} \quad (6.6.1-6)$$

$$\Leftrightarrow \frac{\alpha_L^2}{V_{inj}/b\varphi} = \frac{\alpha_L^2 b \varphi}{V_{inj}} = \tau \quad (6.6.1-7)$$

非吸着性トレーサーの破過曲線を最も良好に再現する集中定数を用い、吸着性トレーサーの破過曲線の評価を行う。この時、式(6.6.1-3)内の未知数は $\hat{r}_{max,r}$ であり、吸着性トレーサーの破過曲線を最も良好に再現する $\hat{r}_{max,r}$ を評価する。非吸着性トレーサーの評価解析で用いた $\hat{r}_{max,nr}$ と吸着性トレーサーの評価解析で評価された $\hat{r}_{max,r}$ より、式(6.6.1-9)を用いて遅延係数を評価する。

$$\frac{\hat{t}_{max,nr}}{\hat{t}_{max,r}} = \frac{\sqrt{V_{inj}/\pi b\phi}}{\sqrt{V_{inj}/\pi bR\phi}} \quad (6.6.1-8)$$

$$\Leftrightarrow R = \left(\frac{\hat{t}_{max,nr}}{\hat{t}_{max,r}}\right)^2 \quad (6.6.1-9)$$

(2) 非収着性トレーサーの評価結果

非収着性トレーサーの試験結果としてウラニンの破過曲線と理論式を比較する。図 6.6.1-12 に非収着性トレーサーの評価結果を示す。集中定数は、 $0.25 \times 10^{-3}$  から  $1.50 \times 10^{-3}$  までの間で 6 通り設けて理論解を計算した。なお、式(6.6.1-3)で計算される理論解は、試験区間からフラクシオンコレクター間のチューブ分散の影響が考慮されていない。ここではチューブ分散の影響は考慮せず、試験区間からフラクシオンコレクターまでのデッドボリューム容量(15S37T5、15S37T6 は 774mL、15S37M9、15S37M10 は 815mL) と揚水流量から計算される時間遅れのみ考慮し、理論式で計算された破過曲線を補正して図示することとした。また、式(6.6.1-3)はチェイサー注入の効果が考慮されていないため、重ね合わせの法則を使ってチェイサーを入れた場合の理論解を計算した。例えば、トレーサー注入量が 2L、チェイサー注入量が 1L の場合、 $V_{inj}$  を 3L として理論式を計算した結果から  $V_{inj}$  を 1L として理論式を計算した結果を差し引くことで求める。

評価の結果、試験で得られた破過曲線を完全に再現することはできなかったが、これは、バックグラウンド地下水流れによってトレーサーが流される効果を考慮していないことや、注入から揚水に切り替えた際に瞬時に定常状態となること等、式(6.6.1-3)の理論式が様々な仮定に基づいて導出されたためである。しかし、ピーク濃度や破過曲線がピーク時間は、試験結果と概ね近い結果を得ることができた。



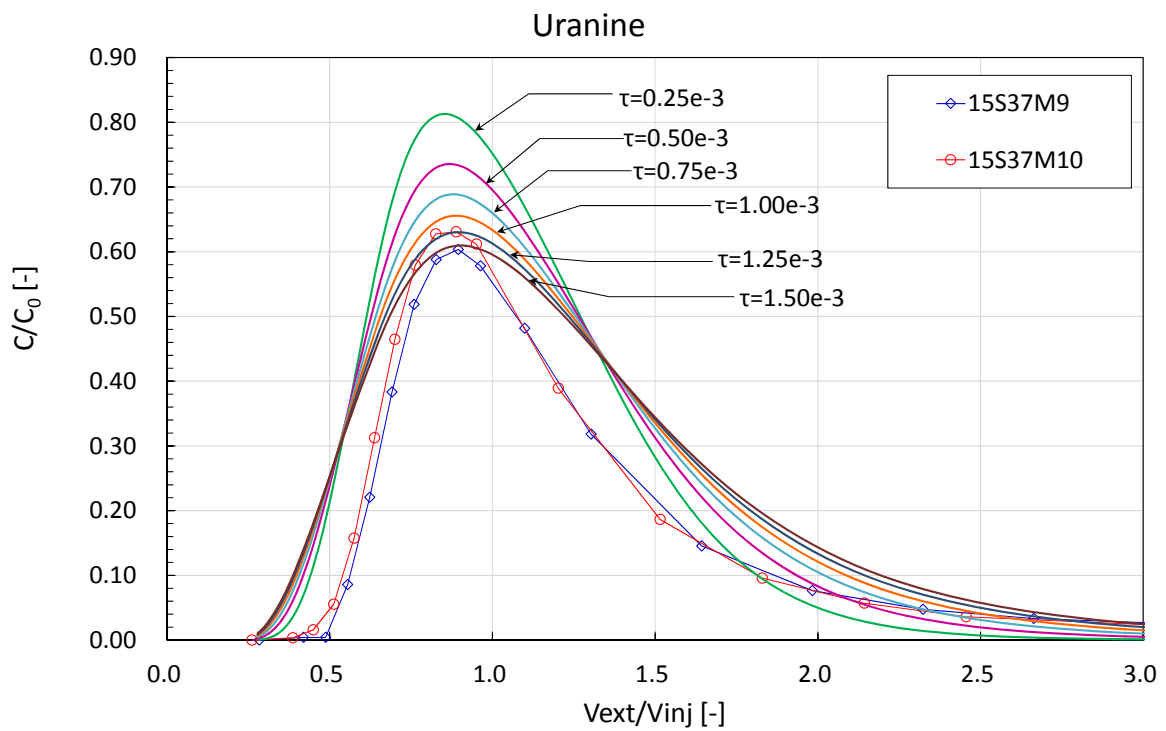
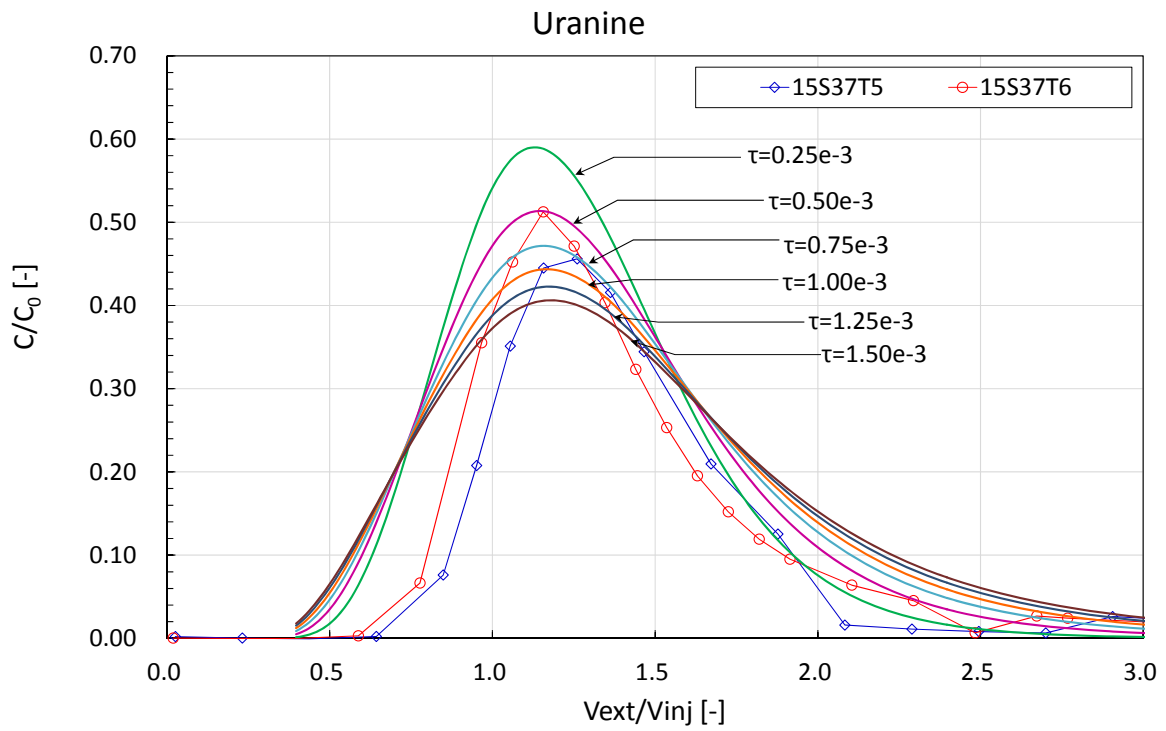


図 6.6.1-12 理論式を用いた非吸着性トレーサーの評価結果  
 (上) トレーサー注入量約 1L、(下) トレーサー注入量約 2L

単孔トレーサー試験では割れ目幅と縦分散長を区別して評価することができないが、割れ目幅を仮定し、式(6.6.1-7)から縦分散長を計算によって評価する。割れ目幅としては、対象とする割れ目で行った高精度BTV調査の結果から得られた0.70mmと透水量係数から逆算される水理的開口幅0.27mmを考え、間隙率は1.0を仮定する。この仮定に基づき、集中定数から縦分散長を計算により求めた結果を表6.6.1-1、表6.6.1-2に示す。なお、表6.6.1-1、表6.6.1-2には式(6.6.1-4)で計算されるトレーサー浸透範囲 $r_{max}$ も併せて示す。

理論式を用いて計算される破過曲線のうち、試験結果のピーク濃度の大きさを再現する条件を考えると、トレーサー注入量が約1Lの場合は集中定数が $7.50 \times 10^{-4}$ 、トレーサー注入量が約2Lの場合は集中定数が $1.25 \times 10^{-3}$ とした場合に試験結果に最も近いピーク濃度を再現する。この場合における縦分散長は、割れ目幅を0.27mm、0.70mであると仮定すると、トレーサー注入量が約1Lの場合は0.046~0.075m、トレーサー注入量が約2Lの場合は0.073~0.118mとなる。過去の報告では、縦分散長はトレーサー移行距離の約1/100~1/10となることが示されており、今回の結果もほぼ近い値が得られた。

表 6.6.1-1 トレーサー注入量 1L の場合における理論式による評価結果

集中定数 [-]	2.50E-04	5.00E-04	7.50E-04	1.00E-03	1.25E-03	1.50E-03
割れ目幅① [mm]:高精度BTV	0.70					
割れ目幅②[mm]:水理的開口幅	0.27					
$r_{max}$ [m]:割れ目幅①	0.95					
$r_{max}$ [m]:割れ目幅②	1.54					
縦分散長 [m]:割れ目幅①	0.027	0.038	0.046	0.053	0.060	0.065
縦分散長 [m]:割れ目幅②	0.043	0.061	0.075	0.086	0.097	0.106

表 6.6.1-2 トレーサー注入量 2L の場合における理論式による評価結果

集中定数 [-]	2.50E-04	5.00E-04	7.50E-04	1.00E-03	1.25E-03	1.50E-03
割れ目幅① [mm]:高精度BTV	0.70					
割れ目幅②[mm]:水理的開口幅	0.27					
$r_{max}$ [m]:割れ目幅①	1.17					
$r_{max}$ [m]:割れ目幅②	1.89					
縦分散長 [m]:割れ目幅①	0.033	0.046	0.057	0.065	0.073	0.080
縦分散長 [m]:割れ目幅②	0.053	0.075	0.092	0.106	0.118	0.129

### (3) 収着性トレーサーの評価結果

非収着性トレーサーの破過曲線について理論式を用いた評価を行った結果、トレーサー注入量が約 1L の場合における集中定数は  $7.50 \times 10^{-4}$ 、トレーサー注入量が約 2L の場合における集中定数は  $1.25 \times 10^{-3}$  と評価された。収着性トレーサーの評価では、集中定数を  $1.0e-3$  とし、遅延係数の評価を行う。遅延係数は 5~400 までの間で 7 通りについて計算する。計算結果を図 6.6.1-13、図 6.6.1-14 に示す。非収着性トレーサーの評価と同じく、チューブ分散の影響は考慮せず、試験区間からフラクシオンコレクターまでのデッドボリューム容量（15S37T5、15S37T6 は 774mL、15S37M9、15S37M10 は 815mL）と揚水流量から計算される時間遅れのみ考慮し、理論式で計算された破過曲線を補正して図示した。

いずれの結果も破過曲線の再現性はそれほど良くないが、ピーク濃度の大きさに着目すると、トレーサー注入量が約 1L の場合、 $Rb^+$  の遅延係数は 20~50 程度、 $Ba^{2+}$  の遅延係数は 100~200 程度となり、トレーサー注入量が約 2L の場合、 $Rb^+$  の遅延係数は 10~20 程度、 $Ba^{2+}$  の遅延係数は 50~100 程度と推定される。

理論式による評価では破過曲線の再現性があまり良くなかったが、ここで得られた値を参考にし、詳細な物質移行パラメーターについては、後述する数値解析を用いた評価解析によって求めることとする。

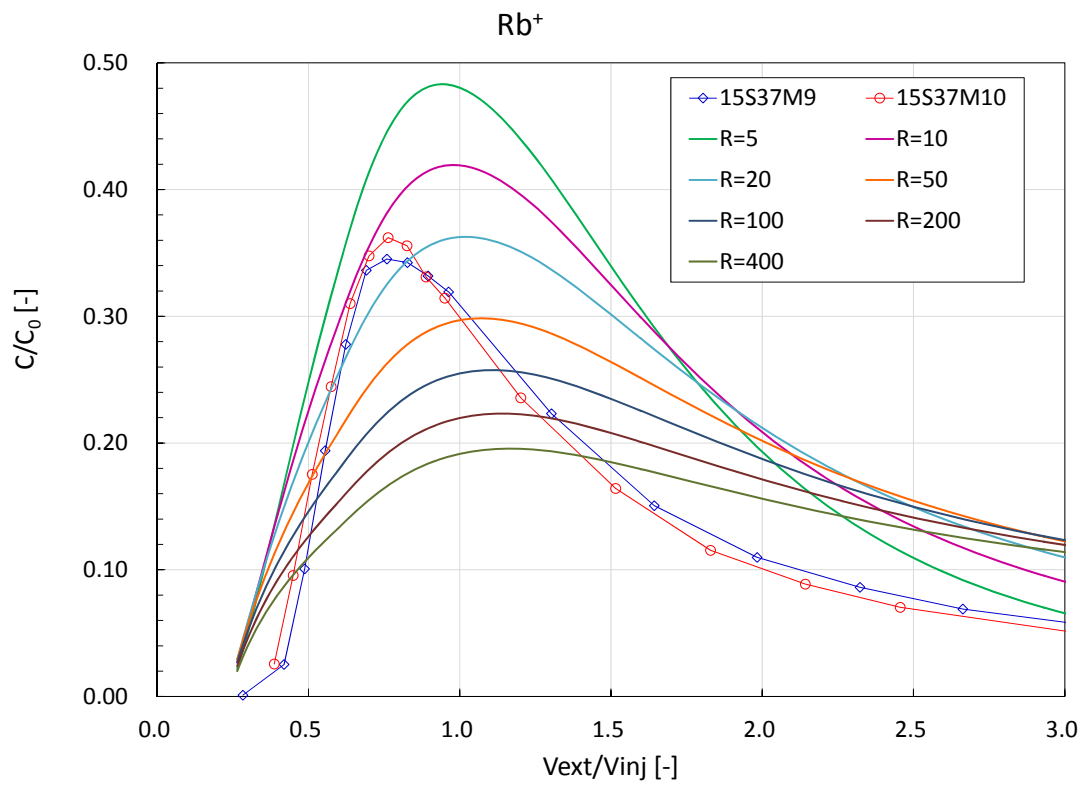
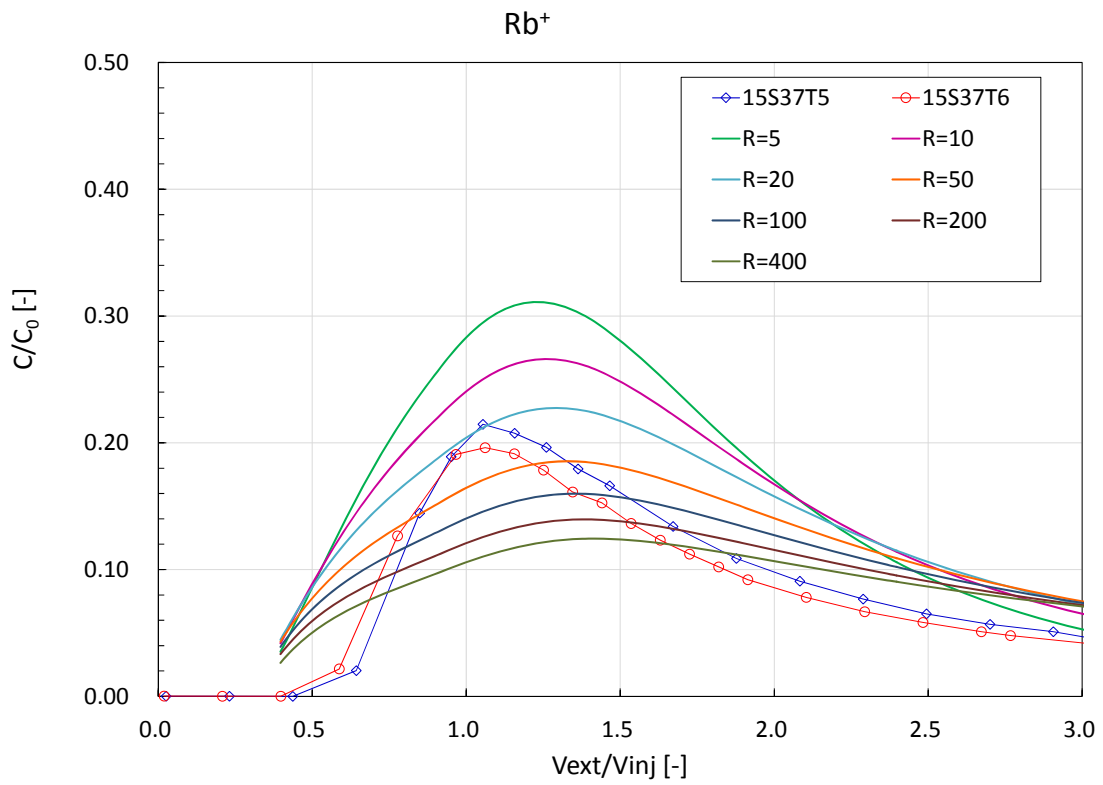


図 6.6.1-13 理論式を用いた収着性トレーサーの評価結果 ( $Rb^+$ )

(上) トレーサー注入量約 1L、(下) トレーサー注入量約 2L

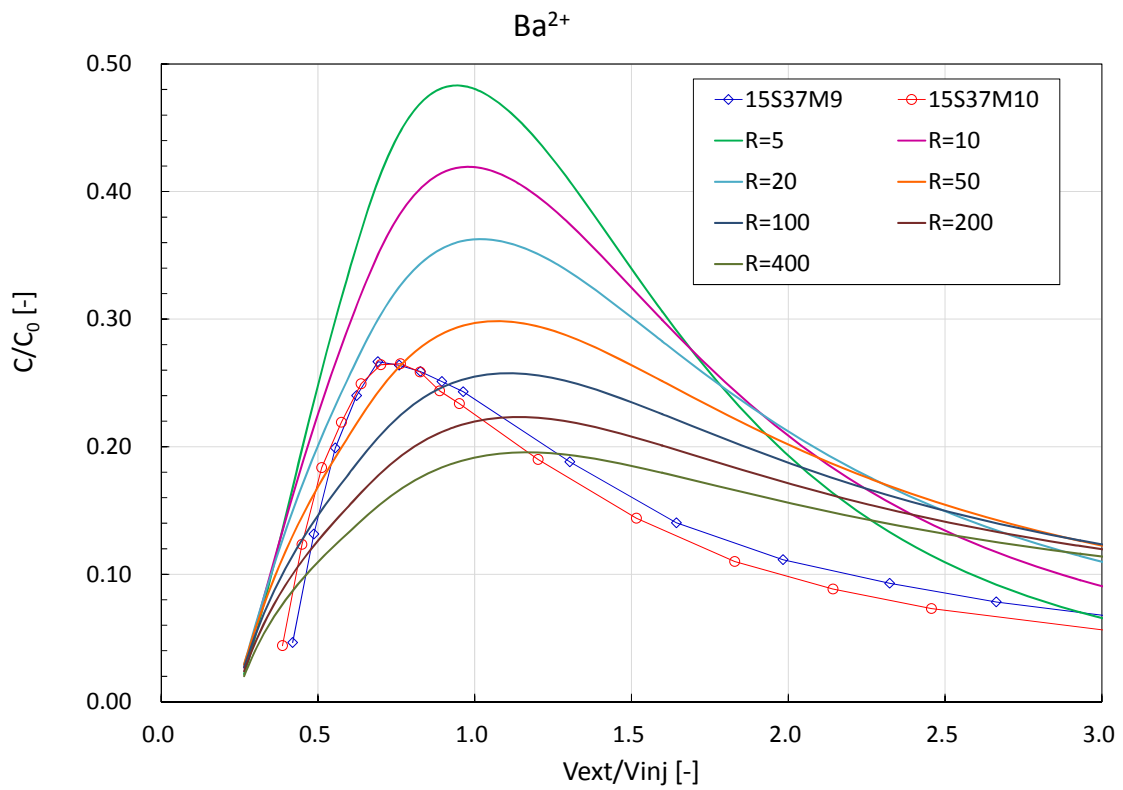
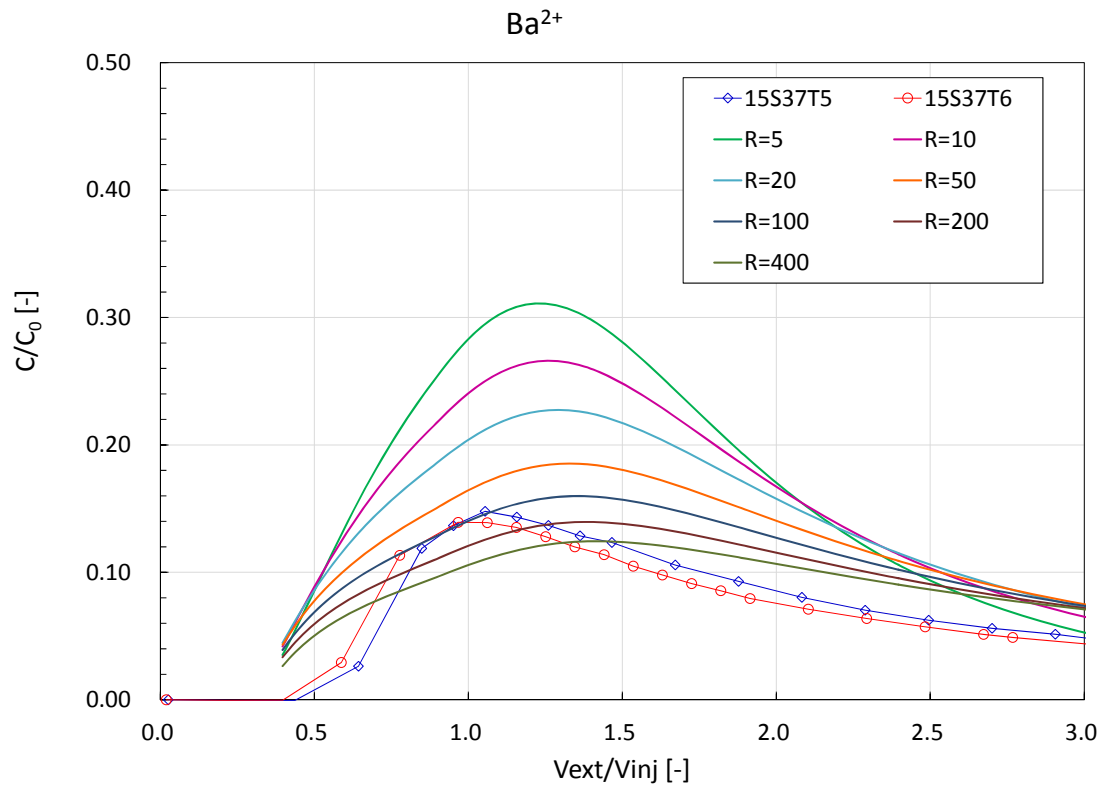


図 6.6.1-14 理論式を用いた収着性トレーサーの評価結果 ( $Ba^{2+}$ )

(上) トレーサー注入量約 1L、(下) トレーサー注入量約 2L

#### 6.6.1.4 図解法による回収率の評価

非収着性トレーサーの回収率から、バックグラウンド地下水流れの動水勾配を評価する。評価方法としては、2014年度に行った方法と同じく図解法を用いることとする。

##### (1) 計算方法

Bear and Jacob(1965)によると、地下水流れが一様な場における揚水範囲の経時変化は式(6.6.1-10)～(6.6.1-14)で表される。但し、式(6.6.1-10)～(6.6.1-14)は超越方程式(transcendental equation)と呼ばれており、単純に計算することはできない。そこで、McElwee(1991)が示した計算手法を用いて揚水範囲の経時変化を計算することとする。

$$\exp(\bar{x} - \bar{t}) = \cos \bar{y} + \frac{\bar{x}}{\bar{y}} \sin \bar{y} \quad (6.6.1-10)$$

ここで、 $q_0 = -k_s \frac{\partial h}{\partial s} = -\frac{T_s}{B} \frac{\partial h}{\partial s}$  (6.6.1-11)

$$\bar{x} = \frac{2\pi q_0 B}{Q} x \quad (6.6.1-12)$$

$$\bar{y} = \frac{2\pi q_0 B}{Q} y \quad (6.6.1-13)$$

$$\bar{t} = \frac{2\pi q_0^2 B}{\varphi Q} t \quad (6.6.1-14)$$

ここに、 $x, y$ : 直交座標[L]、 $t$ : 時間[T]、 $\bar{x}, \bar{y}, \bar{t}$ : 座標、時間の無次元数[-]、 $q_0$ : バックグラウンド地下水流れの流速[LT<sup>-1</sup>]、 $k_s$ : 透水係数[LT<sup>-1</sup>]、 $T_s$ : 透水量係数[L<sup>2</sup>T<sup>-1</sup>]、 $B$ : バックグラウンド地下水流れの動水勾配[-]、 $B$ : 帯水層厚さ[L]、 $Q$ : 揚水流量[L<sup>3</sup>T<sup>-1</sup>]、 $\varphi$ : 間隙率[-]を表す。

式(6.6.1-10)～(6.6.1-14)を用いた回収率計算方法について、以下に記す。

- ① 注入流量、トレーサー注入時間、チェイサー注入時間から、チェイサー注入終了時におけるトレーサーの浸透前線、チェイサーの浸透前線を McElwee(1991)の手法を用いて計算する。
- ② 揚水流量、回収率を評価する揚水時間（ここでは60分と120分）から、揚水終了時点における揚水範囲を McElwee(1991)の手法を用いて計算する。
- ③ ①で求めたトレーサー、チェイサーの浸透前線と2)で求めた揚水範囲の交点を求め、両者が共通する面積から回収率を計算する。

式(6.6.1-10)～(6.6.1-14)を用いて計算される結果は揚水範囲を表している。つまり、バックグラウンド地下水流れの上流側に向かって揚水範囲が広がる過程が求められる。一方、トレーサー

の浸透前線、チェイサー浸透前線は、注入によってバックグラウンド地下水流れの流れ方向に浸透前線が広がる。従って、トレーサーの浸透前線、チェイサーの浸透前線は、注入流量の絶対値を用いて式(6.6.1-10)～(6.6.1-14)より計算した後、 $x=0$ の軸に対して対称移動することによって求めることとする。図 6.6.1-15 に回収率の評価例を示す。トレーサー浸透前線、チェイサー浸透前線、揚水範囲で囲まれた部分(ハッチングされた部分)が回収可能なトレーサーの面積を表しており、この部分の面積を求め、トレーサー浸透範囲の面積に対する比率から、ある揚水時間における回収率を評価する。

表 6.6.1-3 に計算条件を示す。注入流量、注入時間、揚水流量は試験条件と同じとし、今回は待機時間を設けていない試験条件(15S37T5、15S37T6、15S37M9、15S37M10)について計算を行い、揚水開始から 60 分後と 120 分後における回収率を計算する。ここで示した方法によって評価される結果は、ある割れ目幅におけるトレーサー回収率とバックグラウンド地下水流れの動水勾配の関係である。つまり、割れ目幅を設定しなければならないが、ここでは、対象とする割れ目で行った高精度 BTV 調査の結果から得られた割れ目幅 0.70mm と、透水量係数から逆算される水理的開口幅 0.27mm について計算を行う。回収率は、動水勾配が 1～4%の時は 0.02%毎に、4～7%の時は 0.04%毎に計算した。

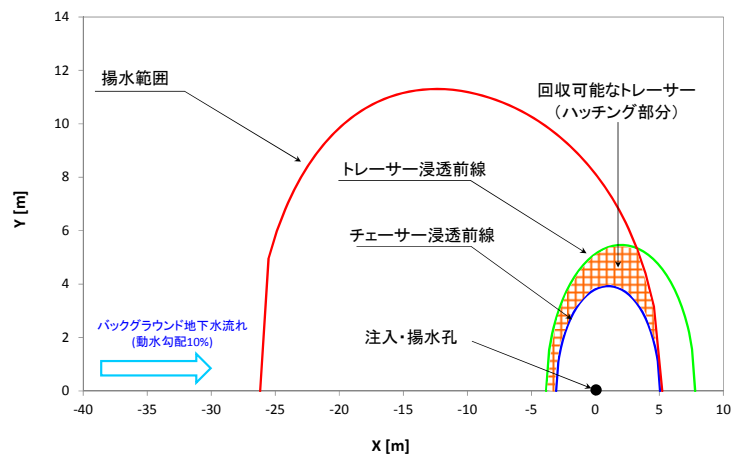


図 6.6.1-15 図解法による回収率評価例

図 6.6.1-16、図 6.6.1-17 に各試験条件における揚水開始から 60 分と 120 分時点の回収率を計算した結果を示す。また、図 6.6.1-16、図 6.6.1-17 で示した結果より、試験で得られたウランの回収率となるような動水勾配を求めた結果を表 6.6.1-3 に示す。いずれの計算結果も、割れ目幅が同じである場合、動水勾配が大きくなるほど回収率が減少する様子を再現できている。また、動水勾配が同じである場合、割れ目幅が小さいほど回収率が小さくなることを再現できて

いる。ここで得られた結果は、割れ目幅を仮定した場合の動水勾配であることから、割れ目幅が変わる場合は動水勾配も変わる可能性があることに注意しなければならない。

ここで得られた結果は、後に行う数値解析による評価解析の参考値として用いる。

表 6.6.1-3 図解法の計算条件と動水勾配の評価結果

試験条件名		15S37T5	15S37T6	15S37M9	15S37M10	
試験条件	注水流量	mL/min	97.7	208.2	97.8	209.3
	揚水流量	mL/min	199.4	198.9	198.4	198.1
	トレーサー注入時間	min	10.0	5.0	20.0	10.0
	チェイサー注入時間	min	15.0	7.5	15.0	7.5
60分回収率(ウラン)		-	74.7%	82.2%	77.6%	79.6%
120分回収率(ウラン)		-	79.8%	86.6%	83.5%	85.3%
動水勾配評価結果(0.27mm, 60分)		%	1.43	1.60	1.11	1.37
動水勾配評価結果(0.27mm, 120分)		%	1.50	1.65	1.26	1.43
平均値		%	1.47	1.63	1.18	1.40
動水勾配評価結果(0.70mm, 60分)		%	2.32	2.58	1.79	2.21
動水勾配評価結果(0.70mm, 120分)		%	2.40	2.64	2.01	2.30
平均値		%	2.36	2.61	1.90	2.25



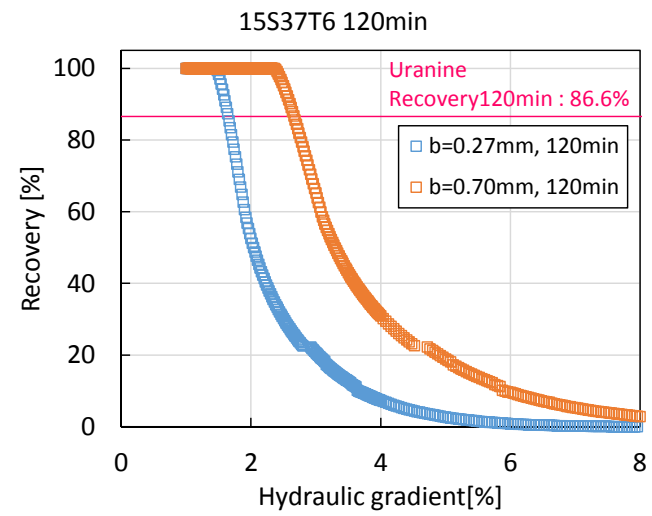
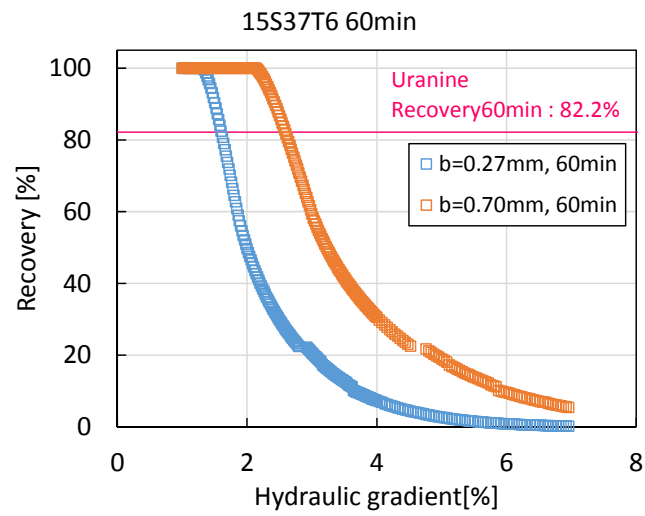
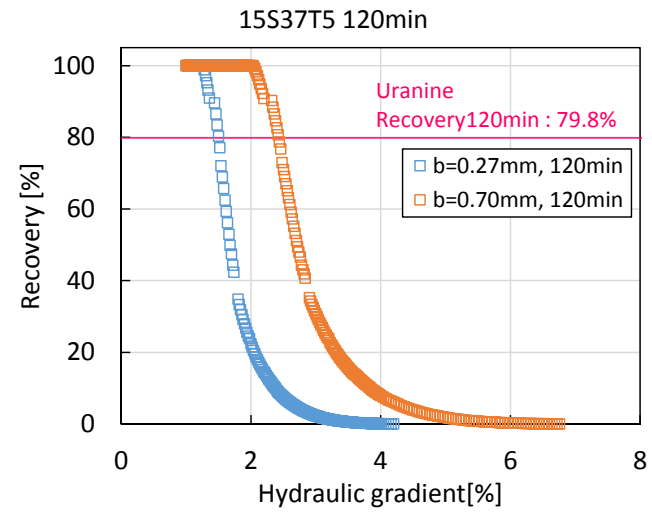
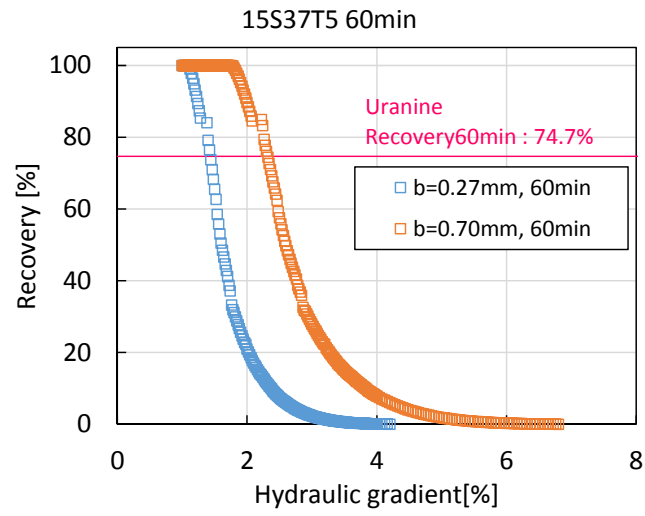


図 6.6.1-16 図解法による回収率計算結果 (15S37T5、15S37T6)

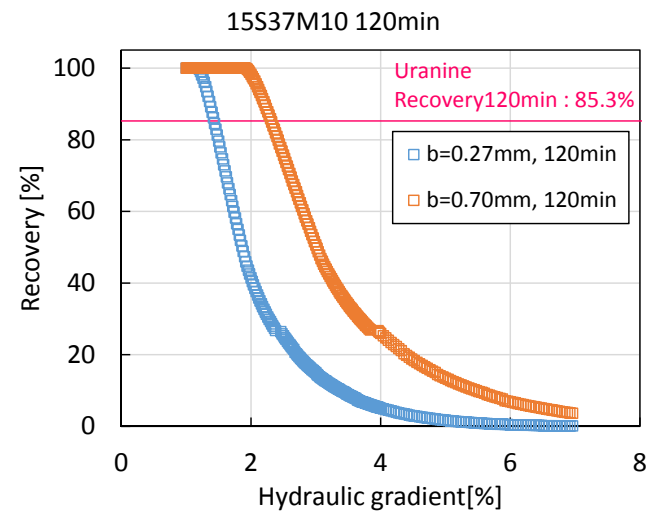
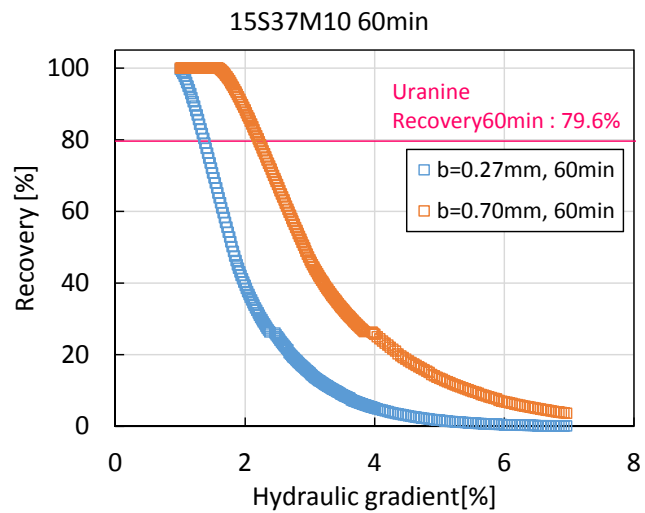
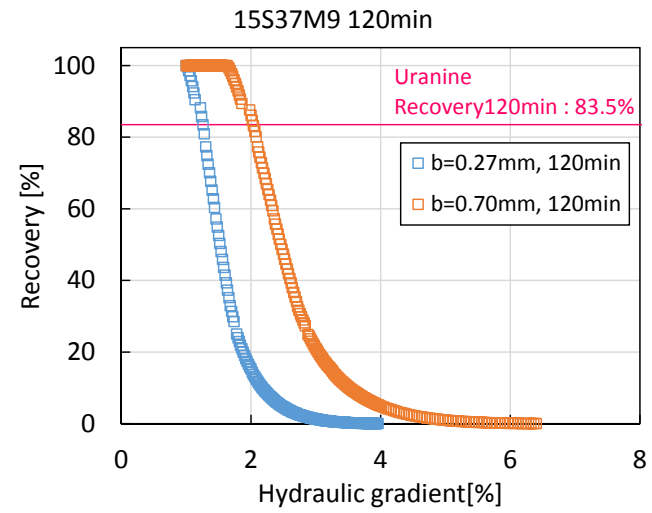
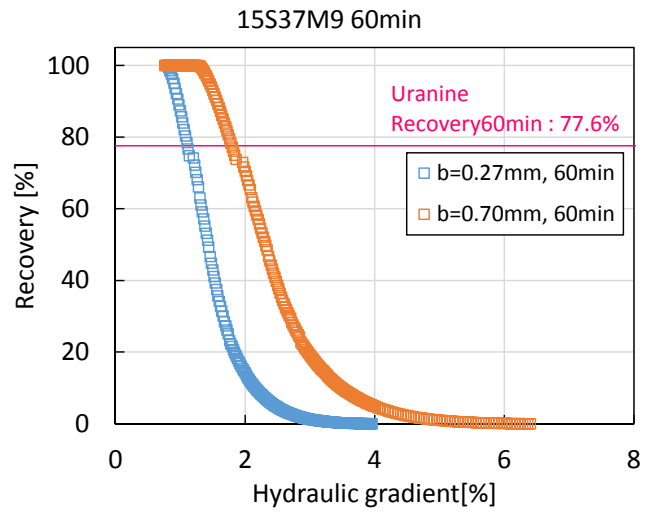


図 6.6.1-17 図解法による回収率計算結果 (15S37M9、15S37M10)

### 6.6.1.5 チューブ分散の評価

#### (1) 注入時のチューブ分散評価

2014年度に行った試験では、試験装置内に設置されたトレーサー循環バルブを用い、トレーサーを注入する直前まで地上に設置されたトレーサー置換タンクと試験孔内の間でトレーサーを循環させていた。これは、トレーサー注入時にチューブ分散の影響を受けたトレーサーが注入されるのを防ぎ、矩形波に近い濃度分布を持つトレーサーを注入することを目的としている。しかし、今年度行った試験では、トレーサー循環バルブの不具合のためにトレーサー注入ライン内でトレーサーを循環することができなかった。従って、今年度はチューブ分散の影響を受けたトレーサーが注入されており、評価解析の際にはチューブ分散の影響を考慮した濃度変化を注入条件として与える必要がある。そこで、ここでは注入時の試験区間に設置された蛍光センサーの計測結果から、チューブ分散の影響について評価することとする。なお、12MI31号孔で行った試験条件は除き、13MI37号孔で行った試験条件についてのみ、注入時のチューブ分散の影響を評価する。

図 6.6.1-18 に単孔トレーサー試験の配管図を再掲する。トレーサー置換タンクから試験区間までのチューブ長は40.1m (6+33+1.1m) であり、デッドボリューム量は504mLである。注入時は、この区間をトレーサーが移行することにより、チューブ分散の影響を受けると考えられる。

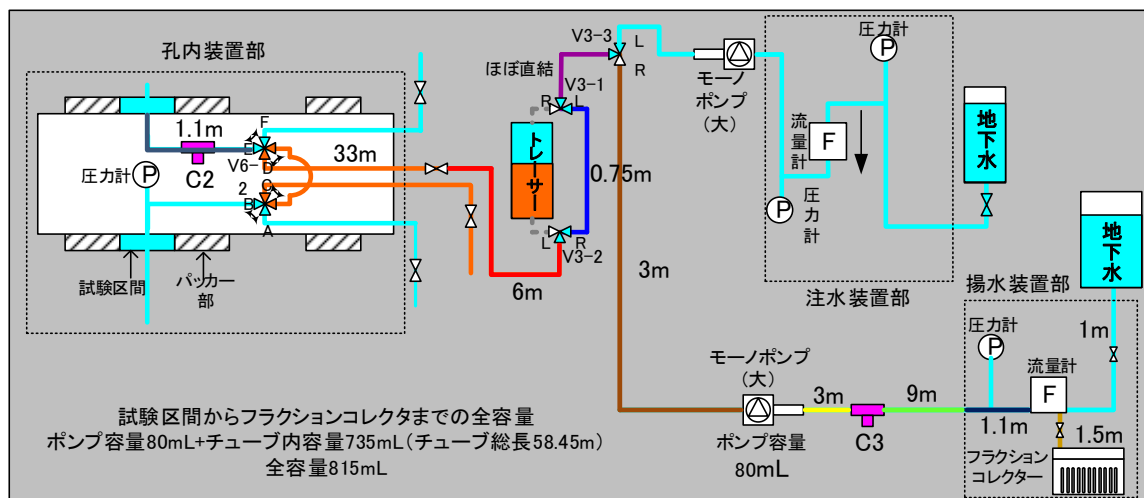


図 6.6.1-18 単孔トレーサー試験の配管図

#### a. 蛍光濃度センサーの計測結果の補正

6.4.4.2 で述べたように、試験区間に設置された蛍光濃度センサー (C2) の計測結果は、サンプリングによって得られた濃度によって補正されているが、揚水の際の試験区間からフラクションコレクターまでのチューブ分散を考慮していないため、実際の濃度よりも低い値となっている可能性がある。そこで、蛍光濃度センサーの破過曲線からトレーサー注入量を計算し、実際のトレーサー注入量に合うように、蛍光濃度センサーの値を補正する。また、全ての試験条件ではない

が、バルブの操作時に値が急激に変化する傾向が確認されている。そこで、バルブ操作直後の濃度急変部についても補正を行う。図 6.6.1-19 に 15S37T5 の結果を例として補正方法について述べる。

- 1) チェイサー注入に切り替えた直後に値が急変した場合は、急変部分のデータを取り除く。
- 2) チェイサー注入に切り替える直前の濃度から明らかな変動が認められる場合は、チェイサー注入直前の濃度との差を計算して補正する（図中の Ca の破過曲線）。
- 3) Ca の破過曲線からトレーサー注入量を計算し、実際に注入したトレーサー注入量に対する比  $\alpha$  を求める。
- 4) 実際のトレーサー注入量に合うように、3) で求めた係数  $\alpha$  を Ca の破過曲線に掛けて補正する（図中の Cb の破過曲線）。

表 6.6.1-4 に注入時の蛍光濃度センサーの破過曲線からトレーサー注入量を計算した結果を、図 6.6.1-20～図 6.6.1-22 に注入時の蛍光濃度センサーの破過曲線を補正した結果を示す。

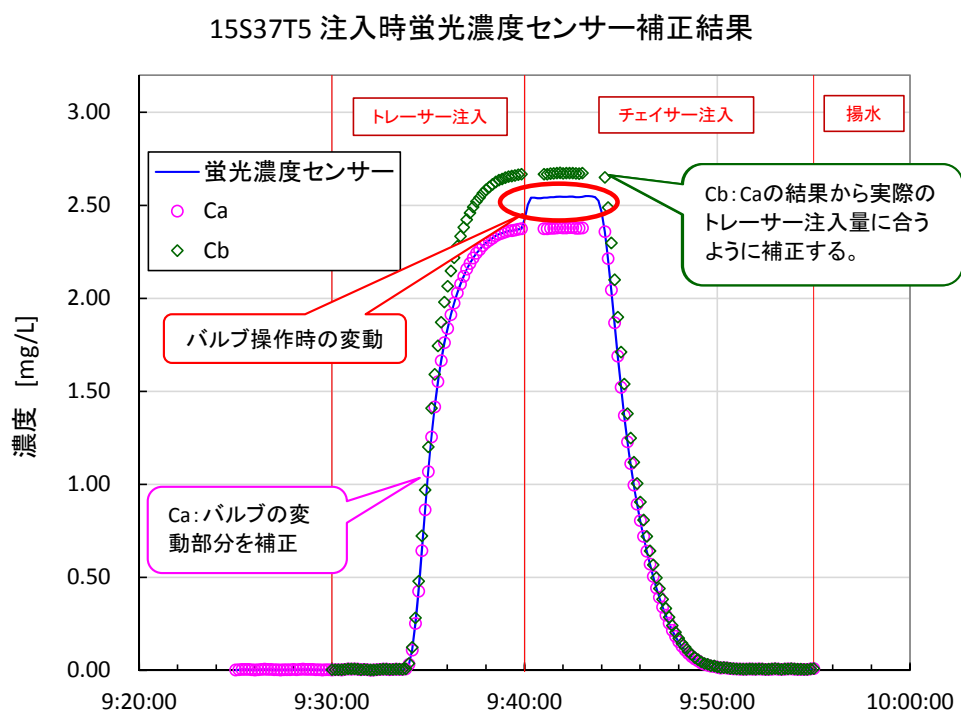


図 6.6.1-19 注入時における蛍光濃度センサーの補正方法

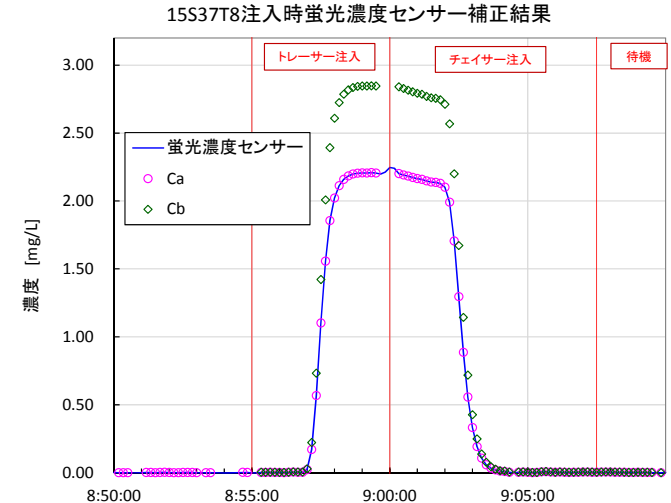
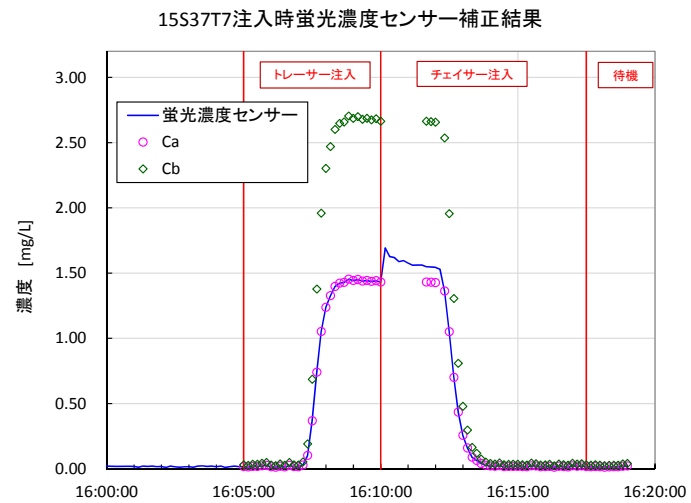
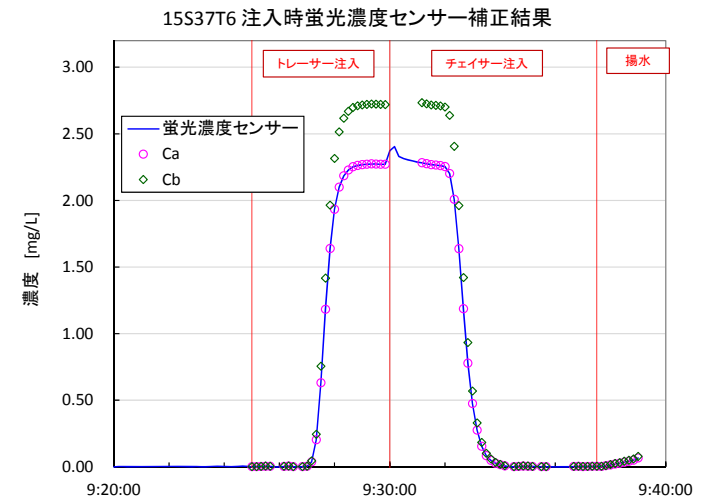
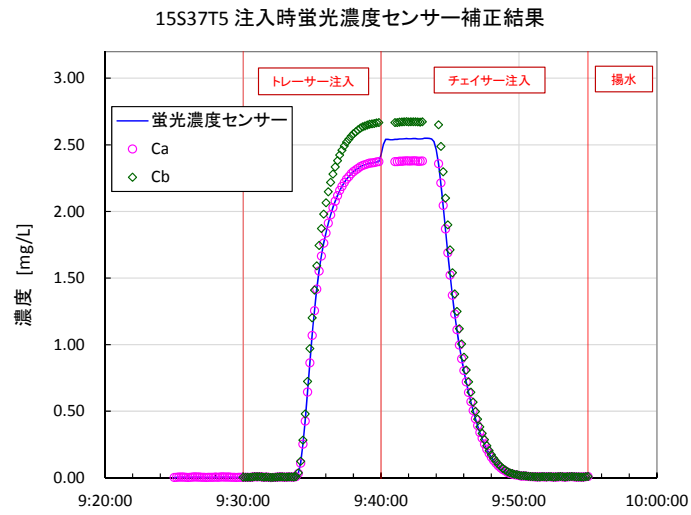


図 6.6.1-20 注入時蛍光濃度センサー補正結果 (15S37T5、15S37T6、5S37T7、5S37T8)

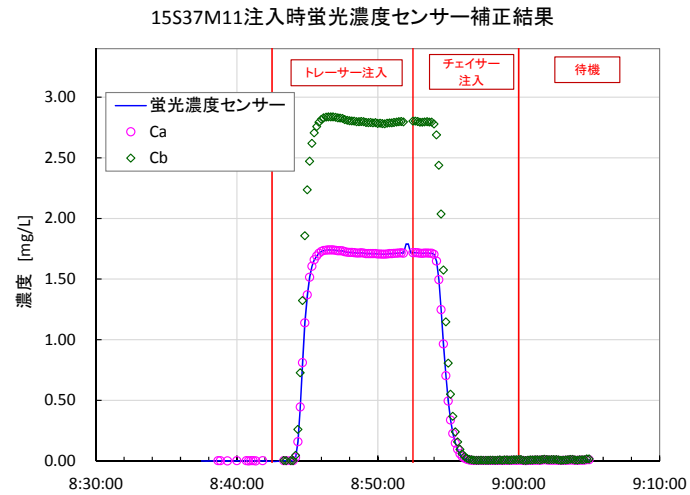
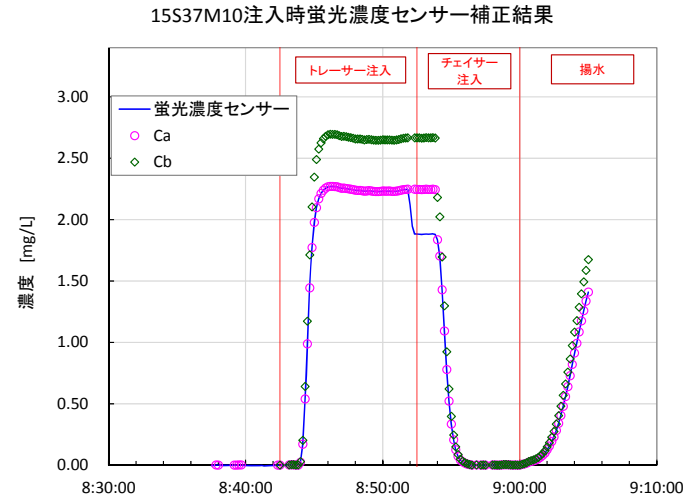
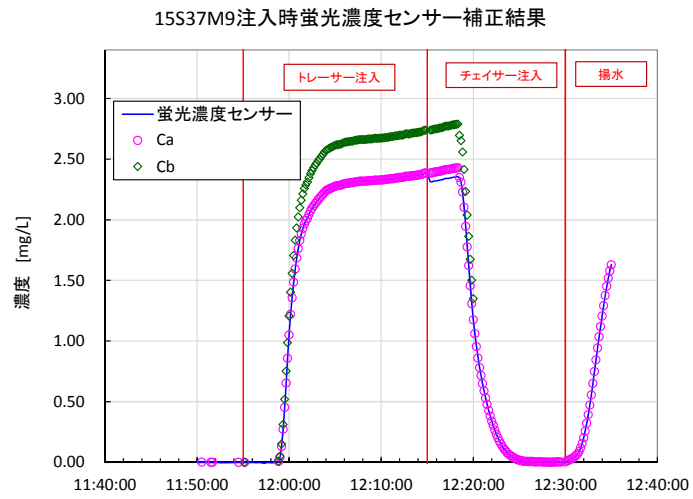


図 6.6.1-21 注入時蛍光濃度センサー補正結果 (15S37M9、15S37M10、5S37M11)

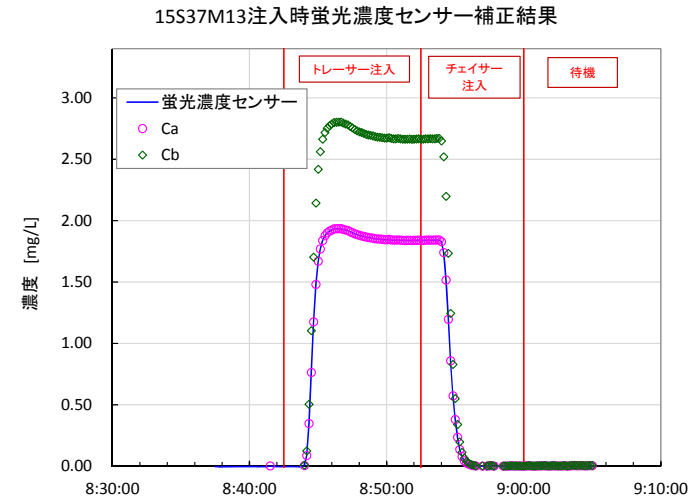
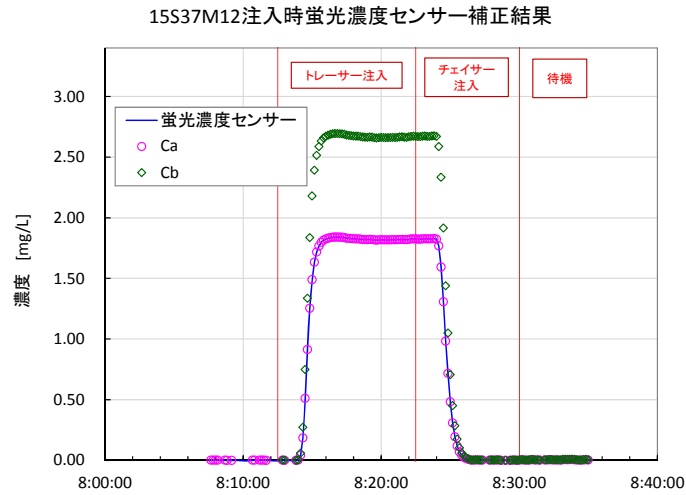


図 6. 6. 1-22 注入時蛍光濃度センサー補正結果 (15S37M12、15S37M13)

表 6. 6. 1-4 注入時の蛍光濃度センサーから計算されるトレーサー注入量

		15S37T5	15S37T6	15S37T7	15S37T8	15S37M9	15S37M10	15S37M11	15S37M12	15S37M13
注入流量	mL/min	98	208	208	203	98	209	199	196	201
トレーサー注入時間	min	10	5	5	5	20	10	10	10	10
注入濃度(ウラン)	mg/L	2.765	2.753	2.753	2.873	2.845	2.902	2.828	2.691	2.729
①実際のトレーサー注入量	mg	2.701	2.866	2.863	2.919	5.562	6.075	5.631	5.264	5.499
②破過曲線(Ca)から計算されるトレーサー注入量	mg	2.404	2.393	1.538	2.264	4.844	5.119	3.452	3.596	3.797
①/②	-	1.124	1.198	1.861	1.290	1.148	1.187	1.631	1.464	1.448

いずれの試験条件も、バルブ操作によって急変した部分を補正した破過曲線 (Ca) から計算したトレーサー注入量は、実際のトレーサー注入量よりも低かったが、これは揚水の際の試験区間からフラクションコレクターまでのチューブ分散を考慮していないためであると考えられる。

以上の補正結果で得られた蛍光濃度センサーの破過曲線 Cb を対象とし、チューブ分散の影響を評価する。

#### b. 計算方法

注入時のチューブ分散の計算方法の一例について、図 6.6.1-23 に示す。図 6.6.1-23 は、一様な流速場において、注入条件（注入時間は 600 秒）を入力条件とし、チューブ分散長を 0.01～5m とした場合の計算結果である。トレーサー移動の一次元理論式(6.6.1-15)と重ね合わせの法則から、以下の方法で計算した。

$$f(t) = \frac{C}{C_0} = \frac{1}{2} \operatorname{erfc} \left( \frac{L_{\text{tube}} - v_{\text{tube}} t}{2\sqrt{\alpha_{\text{tube}} v_{\text{tube}} t}} \right) \quad (6.6.1-15)$$

ここに、 $t$  : 時間[sec],  $\alpha_{\text{tube}}$  : チューブ分散長[m],  $L_{\text{tube}}$  : チューブ長[m],  $v_{\text{tube}}$  : チューブ内の流速[m/sec]表す。

- 1) 注入条件とする濃度の経時変化を  $n$  個に均等に分割する。
- 2) ある時間帯における平均濃度  $C_{0n}$  と時間幅  $\Delta t_n$  を計算する。

$$C_{0n} = 0.50 \times (C_n - C_{n-1}) \quad (6.6.1-16)$$

$$\Delta t_n = t_n - t_{n-1} \quad (6.6.1-17)$$

- 3) 平均濃度  $C_{0n}$  を使い、式(6.6.1-15)と重ね合わせの法則より、式(6.6.1-18)を使ってある時間帯における分散後の濃度を求める。

$$C_n = C_{0n} \{f(t_{n-1} + \Delta t_n) - f(t_{n-1})\} \quad (6.6.1-18)$$

- 4) 全ての時間帯で手順 2)、3) を行い、最後に全てを足し合わせ、分散後の破過曲線を求める。

以上の計算方法を使い、チューブ分散長を 0.01～5m として計算した結果が図 6.6.1-23 である。チューブ内の流速  $v_{\text{tube}}$  は注入流量をチューブ断面積で割った値とし、チューブ長はトレーサー置換タンクから試験区間までのチューブ長 40.1m とする。

チューブ分散長は、0.01～0.10m までは 0.01m 毎に、0.10～20.0m までは 0.20m 毎に値を変化させ、全部で 110 通りのチューブ分散長について計算した。



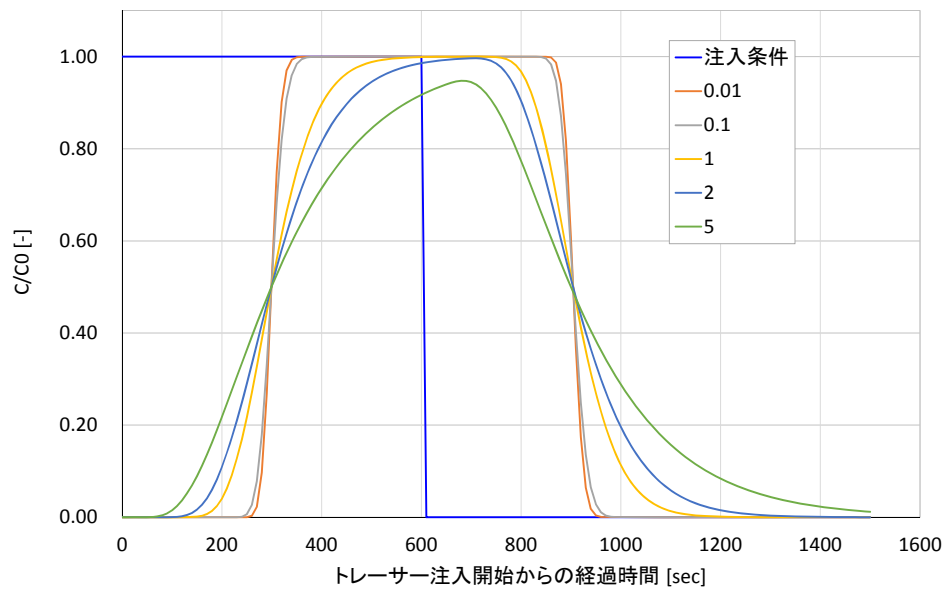


図 6.6.1-23 注入時のチューブ分散計算方法の一例

c. 計算結果

チューブ分散の計算結果を図 6.6.1-24～図 6.6.1-26 に示す。各図には、式(6.6.1-19)を使い、濃度によって重み付けをして誤差を計算し、最も誤差が小さくなった場合の計算結果を示した。また、チューブ長が 40.1m であることから、チューブ長の約 1/100 であるチューブ分散長が 0.40m として計算した結果も併せて示す。

$$\varepsilon = \frac{1}{N} \sum^N \sqrt{C_1 \times (C_1 - C_2)^2} \quad (6.6.1-19)$$

ここに、 $\varepsilon$  : 誤差[-]、 $N$  : データ数、 $C_1$  : 蛍光濃度センサーの濃度 ( $C_b$ )、 $C_2$  : チューブ分散を計算して得られた濃度を表す。

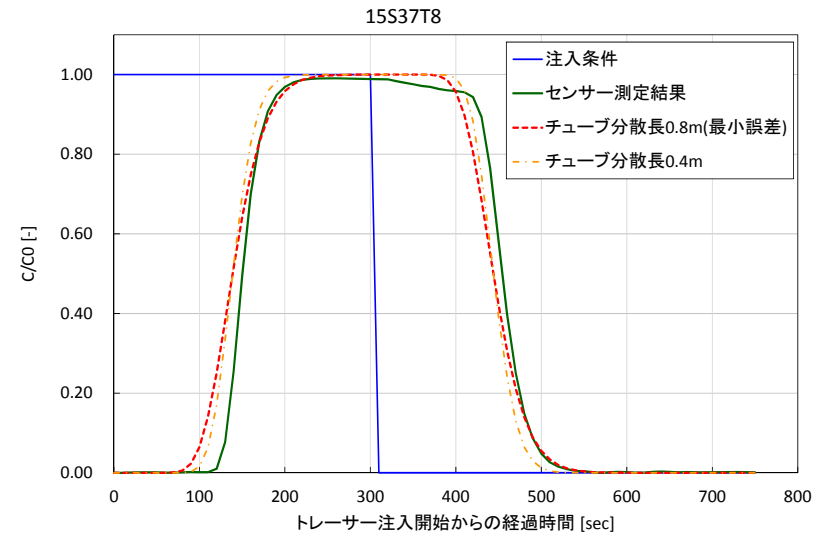
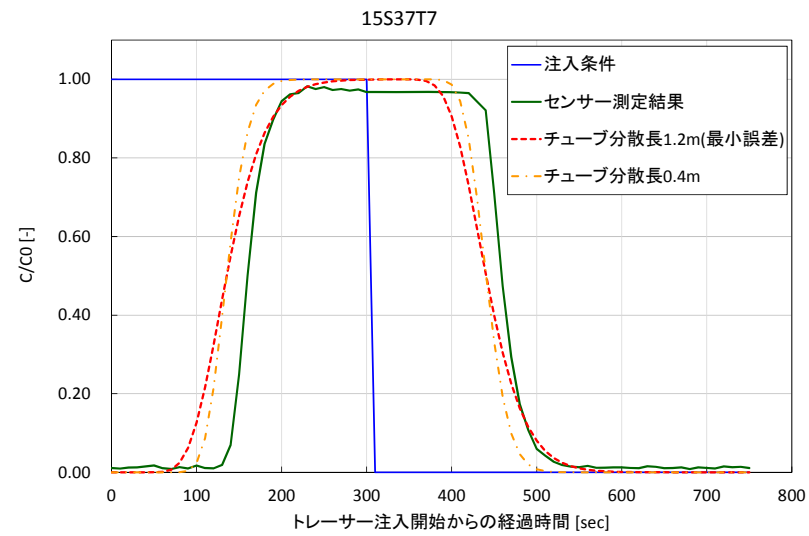
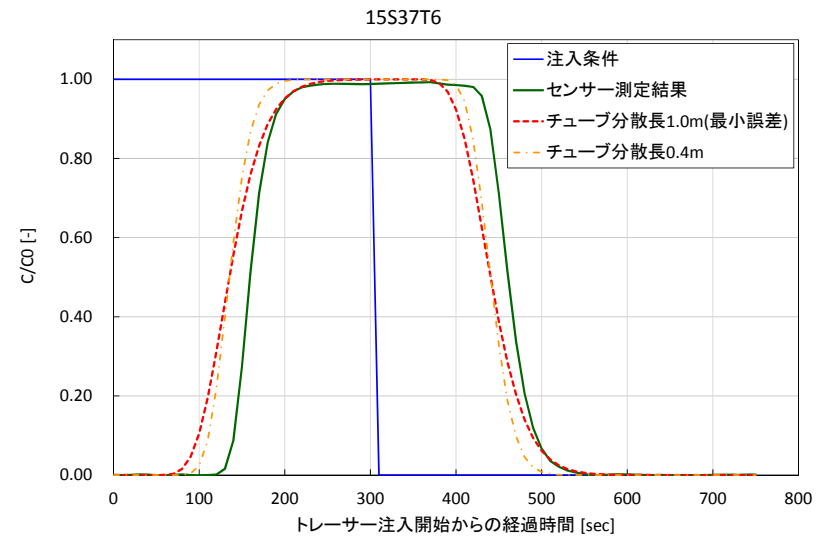
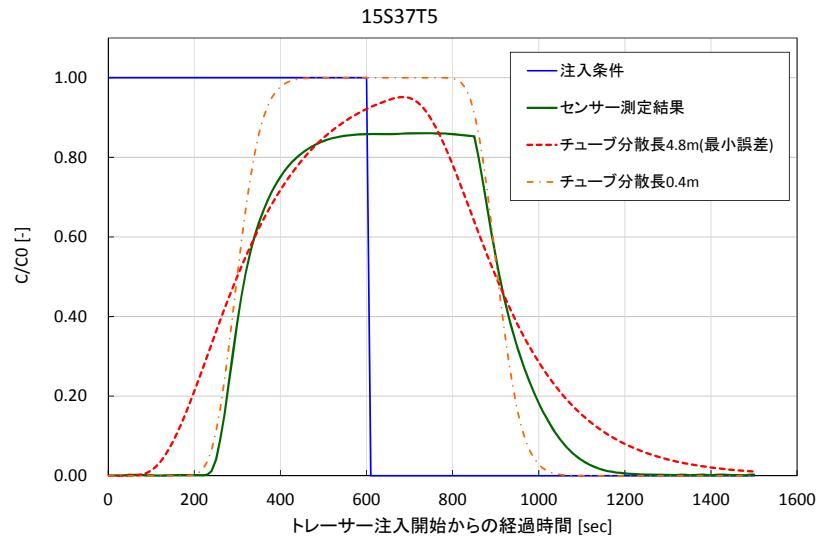


図 6.6.1-24 注入時のチューブ分散計算結果 (15S37T5、15S37T6、15S37T7、15S37T8)

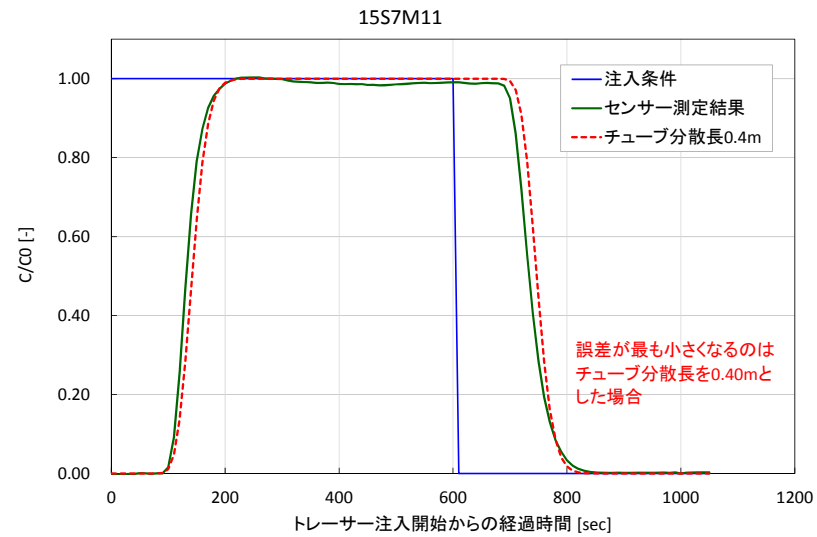
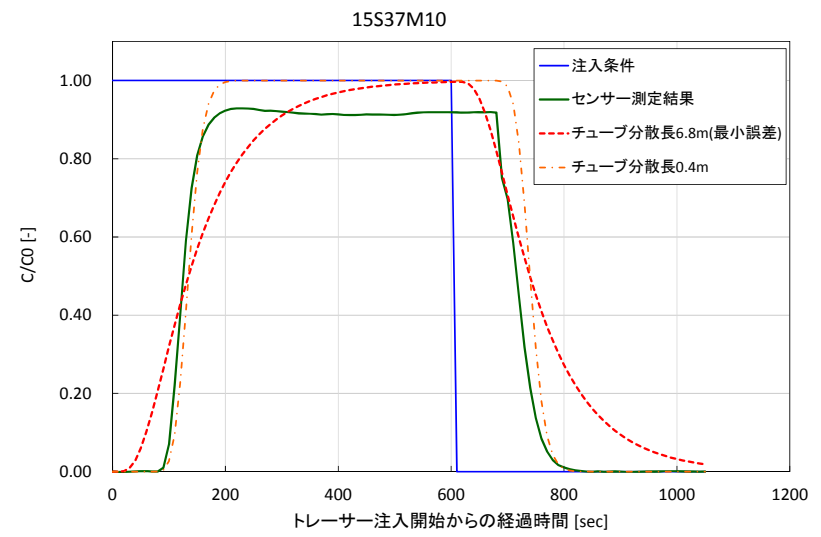
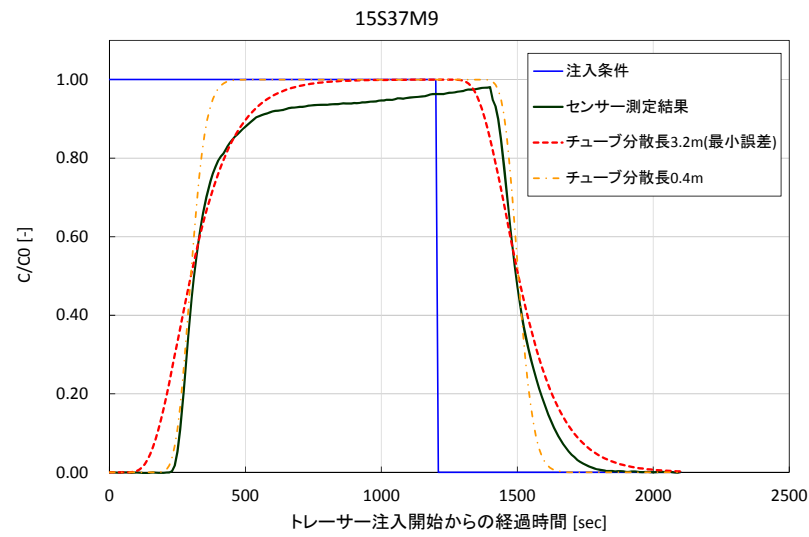


図 6. 6. 1-25 注入時のチューブ分散計算結果 (15S37M9、15S37M10、15S37M11)

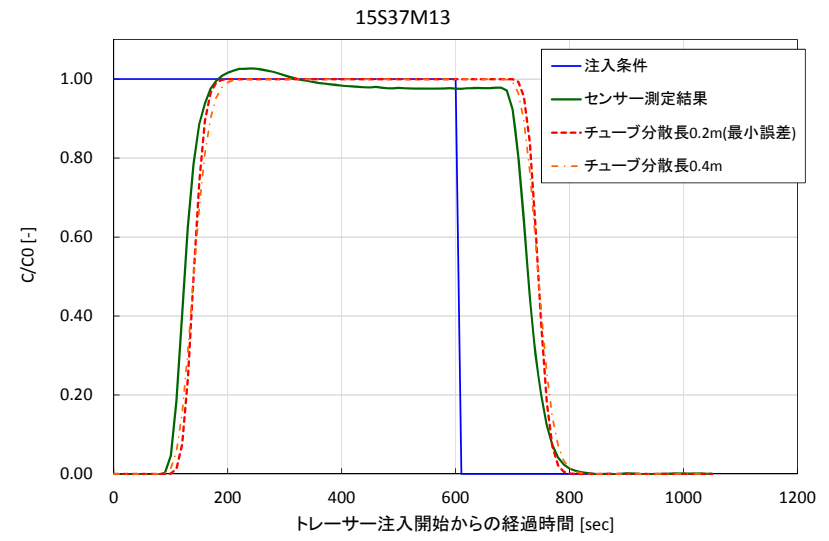
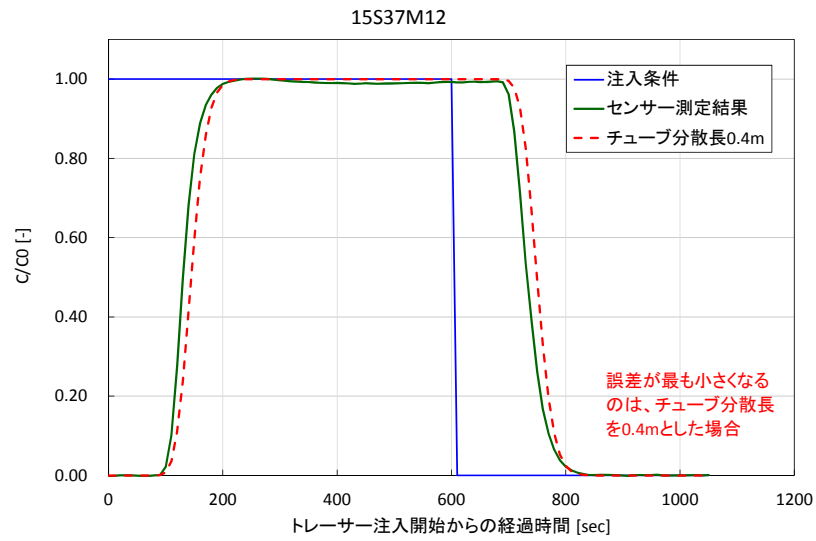


図 6. 6. 1-26 注入時のチューブ分散計算結果 (15S37M12、15S37M13)

d. チューブ分散長の評価結果

15S37M11、15S37M12 は、チューブ分散長が 0.4m の場合に最も誤差が小さくなり、蛍光濃度センサーの破過曲線を概ね良好に再現している。また、15S37T8、15S37M13 は、誤差が最も小さくなるチューブ分散長が 0.8m と 0.2m であるが、チューブ分散長を 0.4m として計算した結果とそれほど変わらない。また、蛍光濃度センサーの破過曲線についても概ね良好に再現している。

15S37M9 や 15S37M10 は、チューブ分散長が 3.2m、6.8m の場合に誤差が最も小さくなり、上述した結果で得られた値よりも大きなチューブ分散長が得られた。これは、蛍光濃度センサーの破過曲線において、ピーク時の濃度が  $C/C_0=1.0$  まで到達していないことが関係していると考えられる。つまり、計算でピーク時の濃度が  $C/C_0=1.0$  まで到達しない部分を再現しようとする、チューブ分散長を大きくしなければならず、チューブ分散長が大きく同定されたと考えられる。しかし、蛍光濃度センサーは、励起光がチューブ中心まで届かないことや、チューブ内のトレーサー分布に偏りがあるため、濃度が  $C/C_0=1.0$  まで到達しない場合も考えられる。従って、誤差は最も小さいものの、必ずしもチューブ分散長が 3.2m、6.8m という結果は確かでないと考えられる。実際に、チューブ分散長を 0.4m として計算した結果では、濃度の増加過程や減少過程を概ね良好に再現している。他の試験条件については、蛍光濃度センサーの破過曲線  $C_b$  の再現性がやや悪かったが、これについては、先ほど述べたような蛍光濃度センサーの不具合が理由として考えられるが、詳細については不明である。

以上のことから、全ての試験条件ではないが、チューブ分散長を 0.4m とした場合に、蛍光濃度センサーの破過曲線を概ね良好に再現することができた。この値はチューブ長 40.1m の約 1/100 であり、現実的な値と言える。従って、評価解析を行う際は、チューブ分散長を 0.4m としてチューブ分散の補正を行い、分散の影響を受けた濃度変化を注入条件として与える。

(2) 揚水時のチューブ分散評価

揚水時においても、注入時と同様にチューブ分散の影響をうけるため、揚水時のチューブ分散補正方法について検討を行う。今回は、13MI37 号孔で行った試験のうち、待機時間を設けていない試験条件（15S37T5、15S37T6、15S37M9、15S37M10）について、揚水時のチューブ分散補正について検討する。

a. デッドボリューム

図 6.6.1-27 に 15S37T5、15S37T6、15S37M9、15S37M10 の配管図を示す。

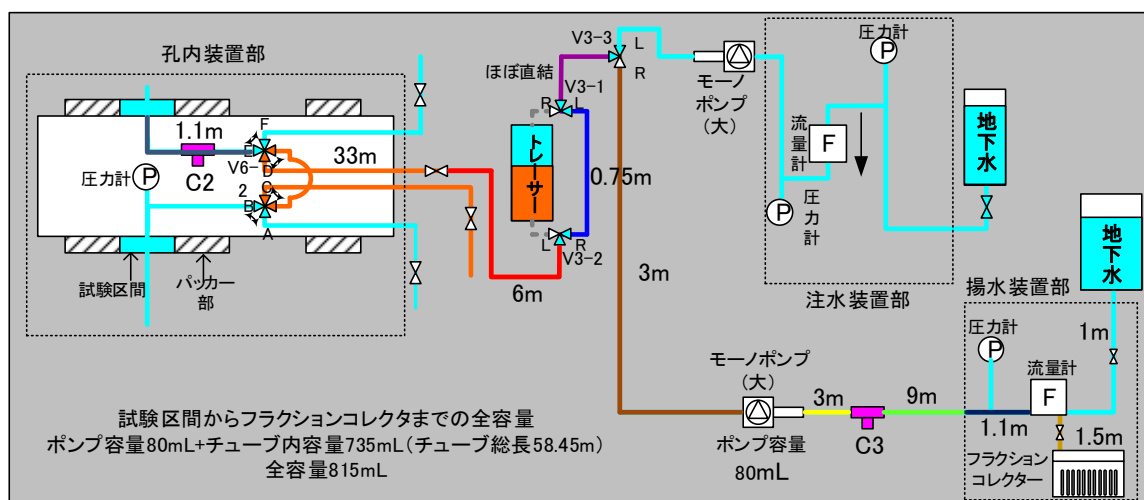


図 6.6.1-27 単孔トレーサー試験の配管図

チューブ長、デッドボリューム容量は以下に示す通りである。

- ・ 孔内に設置された蛍光濃度センサー (C2) から地上に設置された蛍光濃度センサー (C3) までは、チューブ長が 46.85m、モノポンプの容量は 80mL であり、C2 から C3 までのデッドボリュームは 669mL である。
- ・ C3 からフラクションコレクターまではチューブ長が 11.6m、容量は 146mL である。

b. ピーク時間

孔内に設置された蛍光濃度センサー (C2)、地上に設置された蛍光濃度センサー (C3)、フラクションコレクターによるサンプリングの 3 つの破過曲線から、揚水時における各々のピーク時間について整理した結果を表 6.6.1-5 に示す。表内のピーク時間は揚水開始からのピーク時間を表し、① C2 ピークと② C3 ピークは、C2 と C3 の破過曲線でピーク濃度を示した時間を表しており、③ サンプリングピークはフラクションコレクターによるサンプリングで得た破過曲線でピーク濃度を示した時間を表している。蛍光濃度センサーのピーク時間は 10 秒間隔として示された結果からピーク濃度を決定していることや、フラクションコレクターによるサンプリングは 60 秒間隔で行った破過曲線からピーク濃度を決定している。

表 6.6.1-5 各破過曲線のピーク時間

	揚水流量 mL/min	①C2ピーク sec	②C3ピーク sec	③サンプリングピーク sec	②-① sec	③-② sec	③-① sec	見かけ デッドボリューム量 mL	見かけ チューブ長 m
15S37T5	199	340	600	735	260	135	395	1313	104
15S37T6	199	360	620	732	260	112	372	1233	98
15S37M9	198	400	670	790	270	120	390	1290	103
15S37M10	198	460	710	850	250	140	390	1288	102

C2 センサーから C3 センサーまでのデッドボリューム容量は 669mL であり、分散の影響がなければ、揚水流量が約 200mL/min であることから、201 秒程度の時間差が生じる。一方、試験結果では C2 から C3 までのピーク時間の差は 250~270 秒であり、50~70 秒程度のギャップが生じた。この差については、計測間隔、蛍光濃度センサーの濃度追従性、モノポンプの送液機構等の影響が考えられるが、詳細は分かっていない。しかし、実際のデッドボリューム量と流量から算出される時間よりも長い時間を要している。

C3 センサーからフラクションコレクターまでのデッドボリューム容量は 146mL、揚水流量が約 200mL/min であるため、44 秒程度の時間差が生じる。しかし、この時間差はトレーサー回収タンクとフラクションコレクターで分岐されることを考慮していない。C3 センサーからフラクションコレクターまでは図 6.6.1-28 に示すような配管となっており、流量計の直後に設置されたバルブによってトレーサー回収タンクとフラクションコレクターに分岐される。フラクションコレクターの分画時間は 20~30 秒、実際にサンプリングされた量が 13~15mL であることから、バルブからフラクションコレクターまでの実質的な流量は 30~39mL/min である。つまり、C3 センサーから流量計まではデッドボリューム量が 127mL、揚水流量が約 200mL/min であり 38 秒程度の時間差が生じ、バルブからフラクションコレクターまでのデッドボリューム量が 19mL、流量が 30~39mL/min であることから 29~38 秒程度の時間差が生じ、合計すると C3 センサーからフラクションコレクターまでは 67~76 秒程度の時間差が生じることになる。しかし、表 6.6.1-5 に示したように、実際には 112~140 秒程度の時間差があることから、C3~フラクションコレクター間についても、実際よりも長い時間差が生じている。この差についても詳細は分からないため、今後検討する必要があると考えられる。

C2 センサーからフラクションコレクターまでを単一のチューブであると仮定し、C2 センサーの破過曲線とフラクションコレクターでサンプリングされた破過曲線のピーク時間差 (372~395 秒) と揚水流量から得られる見かけのデッドボリューム量は 1233~1313mL となり、見かけのデッドボリューム量をチューブ断面積で割った見かけチューブ長は 98~104m と実際の値よりも大きくなる。揚水時のチューブ分散を評価する際は、この見かけチューブ長の平均値 102m を用いて計算を行う。

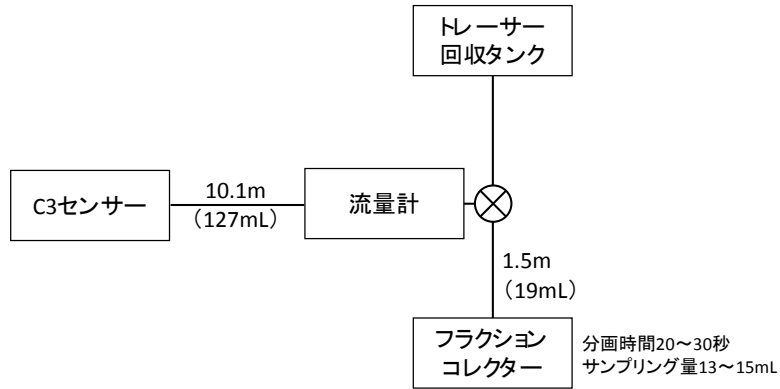


図 6.6.1-28 C3 センサーからフラクションコレクターまでの配管

c. チューブ分散長の評価

チューブ分散長の計算条件を表 6.6.1-6 に、評価結果を図 6.6.1-29 に示す。評価手順は以下の手順で行った。

- 1) 孔内に設置された蛍光濃度センサーC2 の破過曲線（図 6.6.1-29 内では C2 として表示）より、60 分と 120 分時点のトレーサー回収量を計算する。
- 2) 試験結果で得られた 60 分、120 分回収率より計算される 60 分、120 分におけるトレーサー回収量と手順 1) で求めた実際の 60 分、120 分時点のトレーサー回収量より補正係数を求め、C2 の破過曲線に掛けて補正する（図 6.6.1-29 内では C2\_r として表示）。
- 3) 補正されて得た破過曲線 C2\_r を入力条件とし、チューブ分散の計算を行う。

図 6.6.1-29 内に示した蛍光濃度センサーの破過曲線 C2 と C2 の補正によって得られた破過曲線 C2\_r は、図 6.6.1-20～図 6.6.1-22 で示した注入時の蛍光濃度センサーの結果より、Ca 破過曲線（トレーサー注入量によって補正する前の破過曲線）の最大濃度で割って比濃度  $C/C_0$  として示した。また、チューブ分散の計算方法は、前節で示した注入時のチューブ分散計算方法と同じである。また、チューブ内流速  $v_{tube}$  は揚水流量をチューブ断面積で割った値とした。チューブ長  $L_{tube}$ 、チューブ分散長  $\alpha_{tube}$  については、以下の値を用いて計算した。

- ・ Case1 ではチューブ長を 58.45m、チューブ分散長を 0.40m として計算する。
- ・ Case2 ではチューブ長を 102m、チューブ分散長を 0.40m として計算する。
- ・ Case3 ではチューブ長を 102m とし、チューブ分散長を 0.01～3.0m（0.01～0.1m までは 0.01m 毎に、0.1～3.0m までは 0.10m 毎）まで変化させた場合について計算する。

Case3 ではサンプリングによって得られた破過曲線との誤差を計算し、最も誤差が小さい場合の結果のみ図 6.6.1-29 に示した。なお、誤差の計算方法は式(6.6.1-19)で示した通りである。



表 6.6.1-6 揚水時のチューブ分散計算条件

試験条件名		15S37T5	15S37T6	15S37M9	15S37M10
注入流量	mL/min	97.7	208.2	97.8	209.3
揚水流量	mL/min	199.4	198.9	198.4	198.1
トレーサー注入時間	min	10.0	5.0	20.0	10.0
チューサー注入時間	min	15.0	7.5	15.0	7.5
60分回収率	-	74.7%	82.2%	77.6%	79.6%
120分回収率	-	79.8%	86.6%	83.5%	85.3%
①60分回収量(60分回収率より)	mg	2.017	2.356	4.316	4.838
②120分回収量(120分回収率より)	mg	2.156	2.481	4.645	5.181
③C2破過曲線から計算される回収量(60分)	mg	2.701	2.816	4.933	5.241
④C2破過曲線から計算される回収量(120分)	mg	2.993	2.991	5.366	5.669
①/③	-	0.747	0.837	0.875	0.923
②/④	-	0.720	0.829	0.866	0.914
平均		0.734	0.833	0.870	0.919
Case1:チューブ長	m	58.45	58.45	58.45	58.45
Case1:チューブ分散長	m	0.4	0.4	0.4	0.4
Case2:チューブ長	m	102	102	102	102
case2:チューブ分散長	m	0.4	0.4	0.4	0.4
Case3:チューブ長	m	102	102	102	102
Case3:チューブ分散長	m	0.01	2.3	2.2	3.0

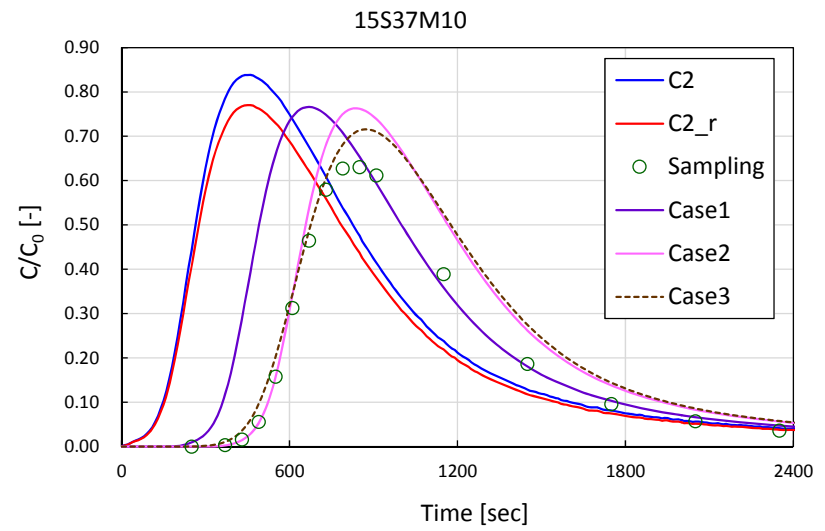
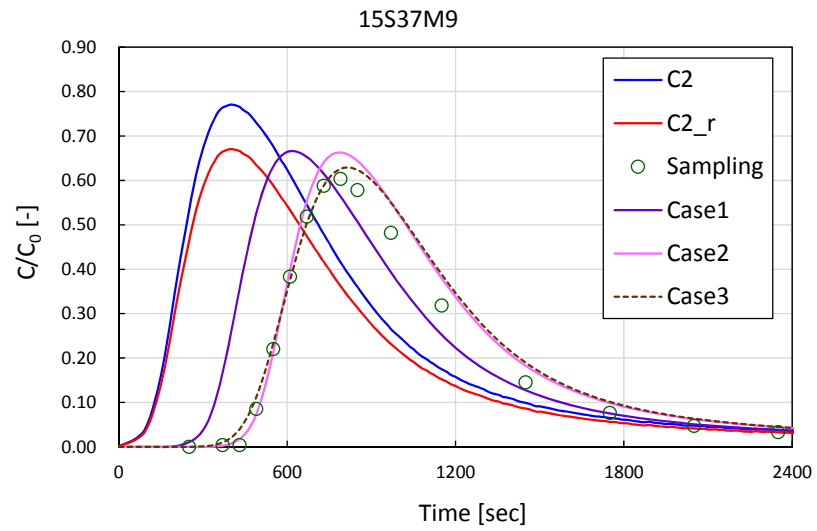
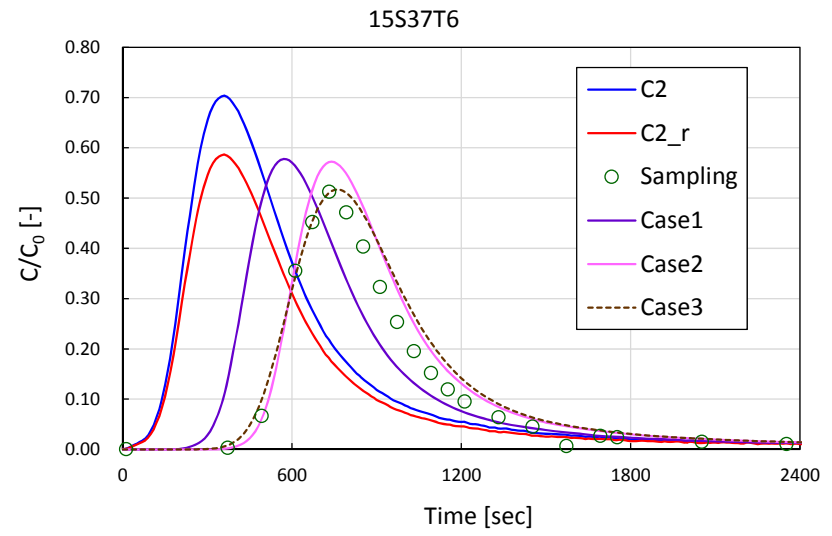
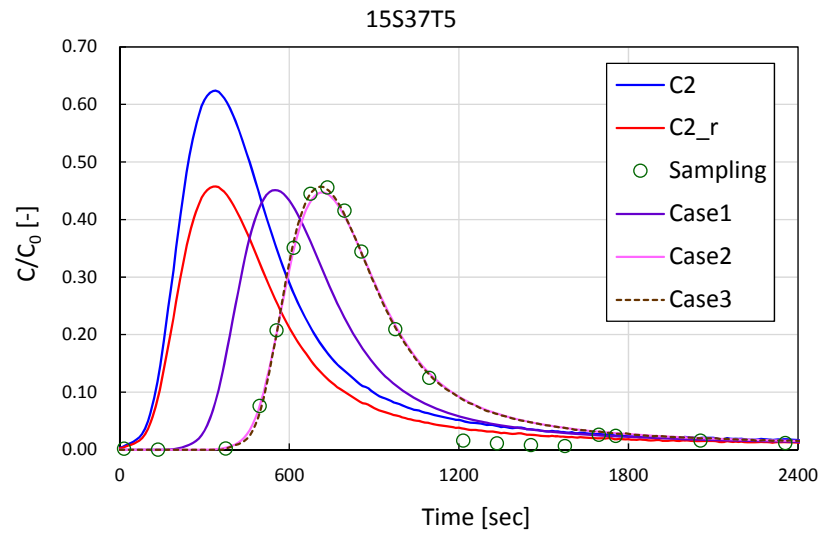


図 6. 6. 1-29 揚水時のチューブ分散評価結果

チューブ長を 58.45m とした場合は (Case1) 、いずれの試験条件もサンプリングによって得られた破過曲線を再現することはできなかった。ここではポンプ容量 80mL を考慮していないものの、揚水流量が 200mL/min である場合の通過時間は 24 秒であり、Case1 の破過曲線に 24 秒の時間遅れを考慮したとしても誤差はほとんど変わらない。従って、チューブ長を 58.45m とすることは適切ではないと考えられる。一方、チューブ長を 102m とした場合は (Case2、Case3) 、濃度が増加を開始する時間やピーク濃度を迎える時間を良好に再現している。以上のことから、実際のチューブ長は 58.45m であるが、孔内に設置された蛍光濃度センサーの破過曲線とフラクシオンコレクターのサンプリングによって得られた破過曲線の比較から計算される見かけのチューブ長 102m を用いることが最良であると考えられる。

チューブ分散長については、0.01~3.0m と試験条件によってバラつきがあるが、注入時のチューブ分散評価で得たチューブ分散長 0.40m を用いて計算した場合であっても (Case2) 、濃度の起ち上がり部分を再現できていると考えられるため、数値解析による評価解析を行う際には、チューブ分散長を 0.40m として計算することとする。

## 6.6.2 ダイポール試験の評価

### 6.6.2.1 回収率

12MI31 号孔を注水孔とし 13MI37 号孔を揚水孔としたケースである 15W3137T5 および 15W3137T8 と、逆に 13MI37 号孔を注水孔、12MI31 号孔を揚水孔としたケースである 15W3731T10 について、240 分経過後と 480 分経過後のトレーサー回収率を図 6.6.2-1 に示す。

非収着トレーサーのうち、ウラニン、アミノ G 酸、 $\delta D$  については、各ケースで概ね同じ回収率を示していたが、15W3137T5 ケースでは  $I^-$  の回収率だけ大きい結果となった。15W3137T5 は、図 6.5.4-1 の破過曲線と回収率の経時変化を見てもわかるように他の非収着性トレーサーと明らかに異なる挙動を示している。単孔トレーサー試験でも同様の傾向が見られており、回収濃度の絶対値が小さいダイポール試験では、バックグラウンド濃度の設定値の影響がより顕著にみられた結果である可能性がある。

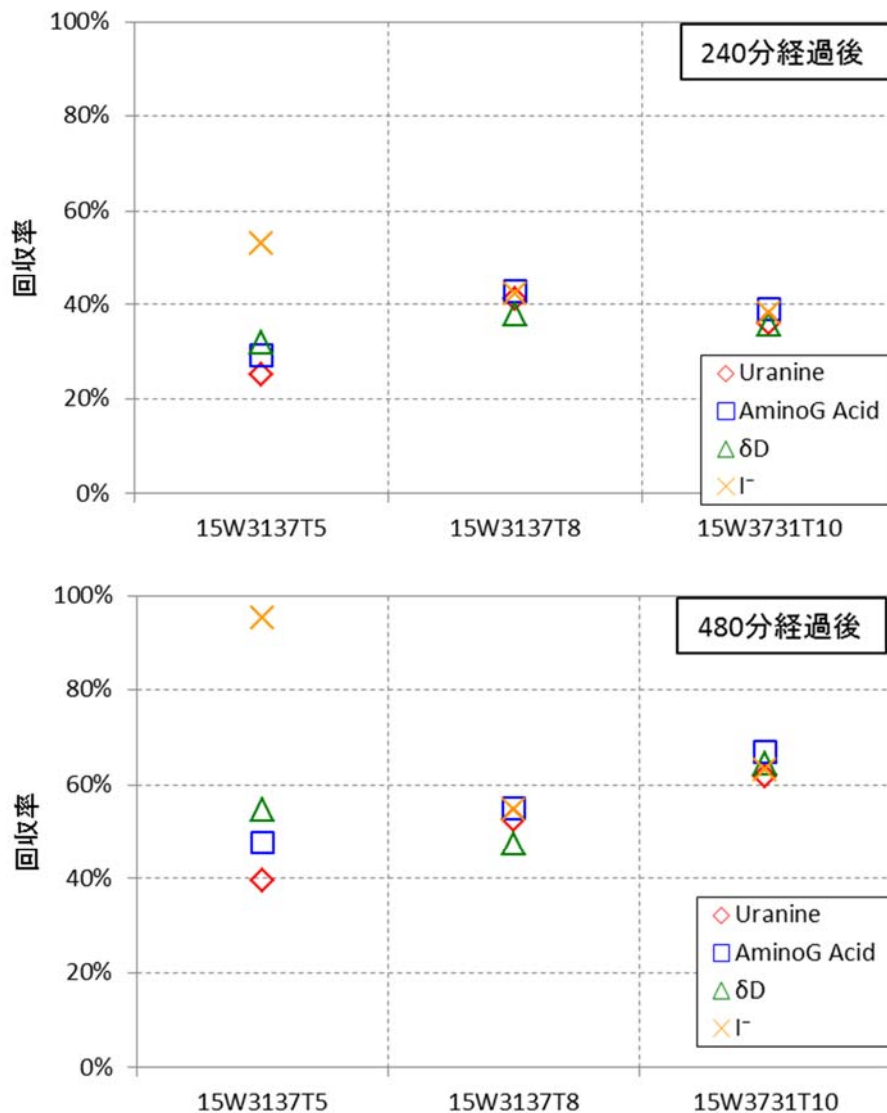


図 6.6.2-1 ダイポール試験における非収着性トレーサーの回収率

図 6.6.2-2 にダイポール試験における収着性トレーサーの回収率を示す。この図より  $Rb^+$  は  $Ba^+$  よりも全ケースで回収率が大きい結果となっている。ただし、回収率自体は最大でも 35%程度と全ケースで 480 分後の回収率が概ね 50%以上あった非収着性トレーサーよりも小さい。もし仮に試験区間が完全な一次元流れであり遅延効果が移流分散解析で一般的に用いられる瞬間的な吸脱着モデル（ヘンリーモデル）で表されるならば、ある一定以上の時間経過後では収着、非収着または分配係数に関わらず回収率は 100%になるはずである。本試験において収着性トレーサーの回収率が非収着性トレーサーよりも小さくなった原因としては、岩盤にトレーサーが収着することにより回収される収着性トレーサーの濃度が小さくなり、バックグラウンドの濃度の影響を受けやすくなったことや分析精度への要求が高くなってしまったこと、回収時間が十分でなかったことなどが考えられる。 $Rb^+$  と  $Ba^+$  で回収率に差が生じたのは収着性の違いによるものであり、収着性が小さいトレーサーの方が回収率は大きくなったと考えられる。

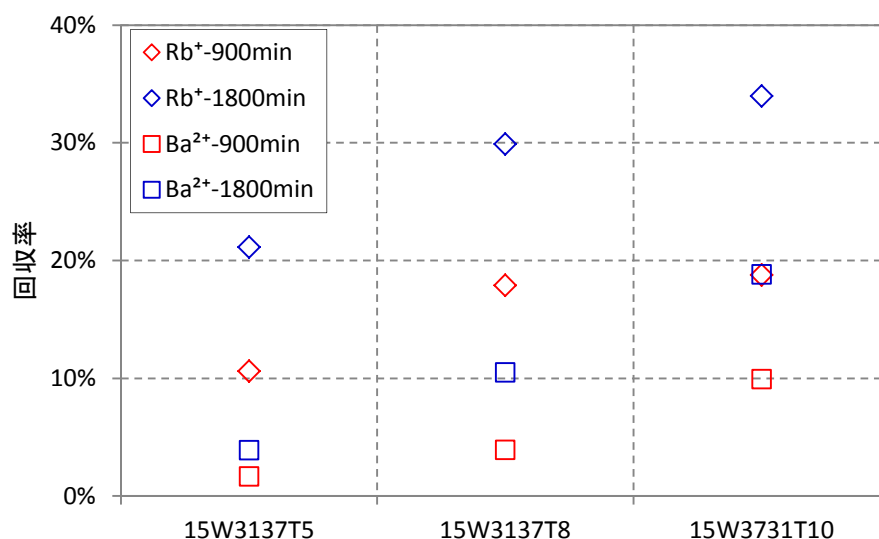


図 6.6.2-2 ダイポール試験における収着性トレーサーの回収率

### 6.6.2.2 破過曲線

ダイポール試験の現地分析より得られた非収着トレーサーであるウラニンの破過曲線について、注入流量を変え、ダイポール比が2倍異なるケースである15W3137T5（ダイポール比：約20）と15W3137T8（ダイポール比：約10）を比較したものを図6.6.2-3に、注水孔と揚水孔を入れ替え、かつダイポール比が2倍異なるケースである15W3137T8（ダイポール比：約10）と15W3731T10（ダイポール比：約5）を比較したものを図6.6.2-4に示す。

図6.6.2-3について、15W3137T5のトレーサー注入量は15W3137T8の約2分の1であり、ピーク濃度の大きさは注入量と同様に約2分の1となった。ただし、濃度がピークを迎える時刻については、15W3137T5が約245分、15W3137T8が約225分であり、その差はおよそ20分で誤差は10%にも満たない結果となった。また、破過曲線の形状については、ピーク値の大きさが異なるものの、概ね類似した形状となった。

これに対し、図6.6.2-4について、15W3137T8と15W3731T10は注入量は概ね同じであるが揚水量は15W3137T8は207mL/minで15W3731T10の104mL/minの2倍であり、注水孔と揚水孔が入れ替わっている。両ケースを比較すると、比濃度のピーク値は15W3137T8が0.045で15W3731T10の0.11の約2.4倍であり、ピーク時刻は15W3137T8が約225分、15W3731T10が約250分とおよそ25分の差であった。ただし、破過曲線の形状については、濃度の立ち上がり部分が両者で異なっておりトレーサー移行の非対称性が確認された。これは、対象割れ目内の透水性の不均質性が原因であると考えられる。

上記以外の比較として、注水／揚水の条件がほとんど同じで、トレーサーの投入時間だけが異なるケース間の比較を図6.6.2-5に示す。いずれも比濃度の立ち上がり部分は概ね同じ曲線を示しており、同じ注水／揚水条件であれば比濃度の変化が再現されている、すなわち流動場が変化していないことが確認された。

以上のケース間の比較により得られた破過曲線に関する特徴は、以下のとおりである。

- ・注水／揚水区間が同一でダイポール比が異なる場合、破過曲線の形状は概ね相似となる。
- ・注水・揚水区間が逆になると、トレーサー注入条件が同じであっても、破過曲線の形状は異なる。これは割れ目内の透水性の不均質性に起因すると考えられる。
- ・試験を繰り返し行っても、試験対象割れ目内の透水性にほぼ変化はない。

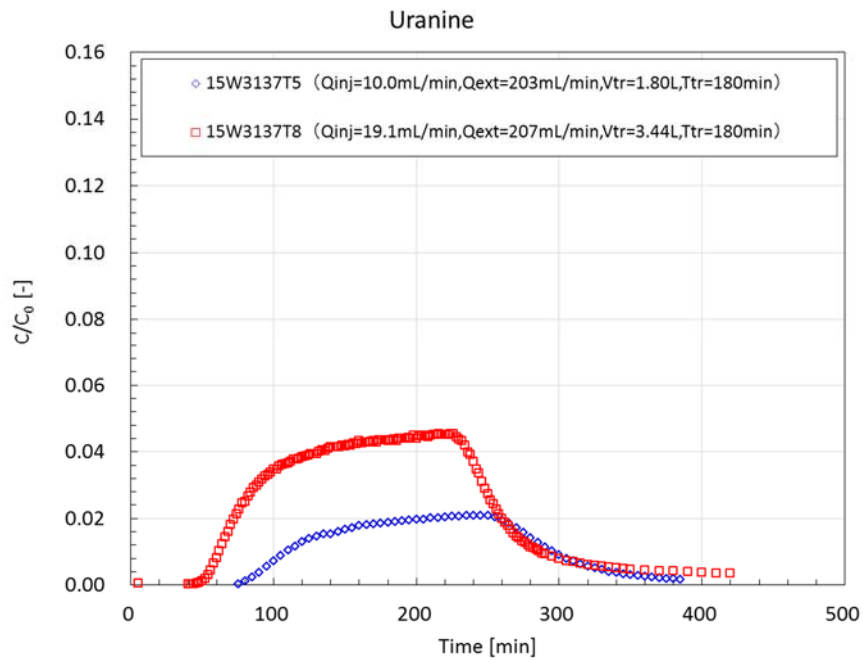


図 6.6.2-3 ダイポール比が 2 倍異なる 2 ケースのウラニンの破過曲線

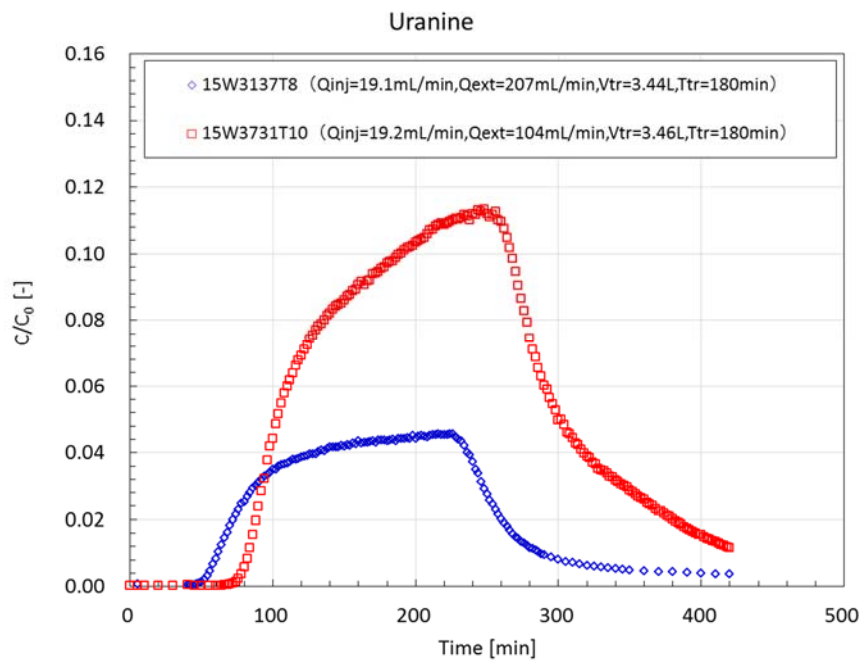


図 6.6.2-4 注水・揚水孔が逆でダイポール比が 2 倍異なる 2 ケースのウラニンの破過曲線

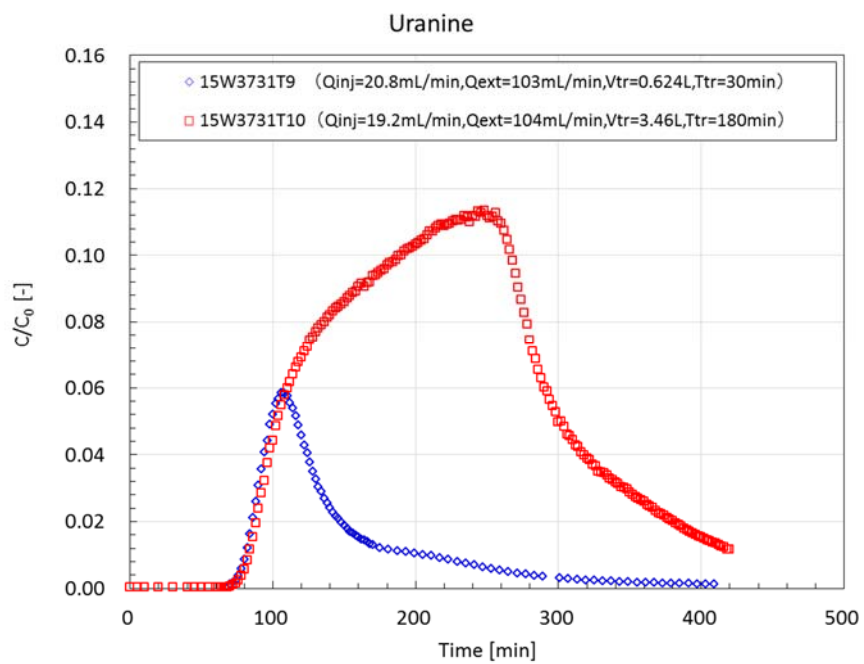
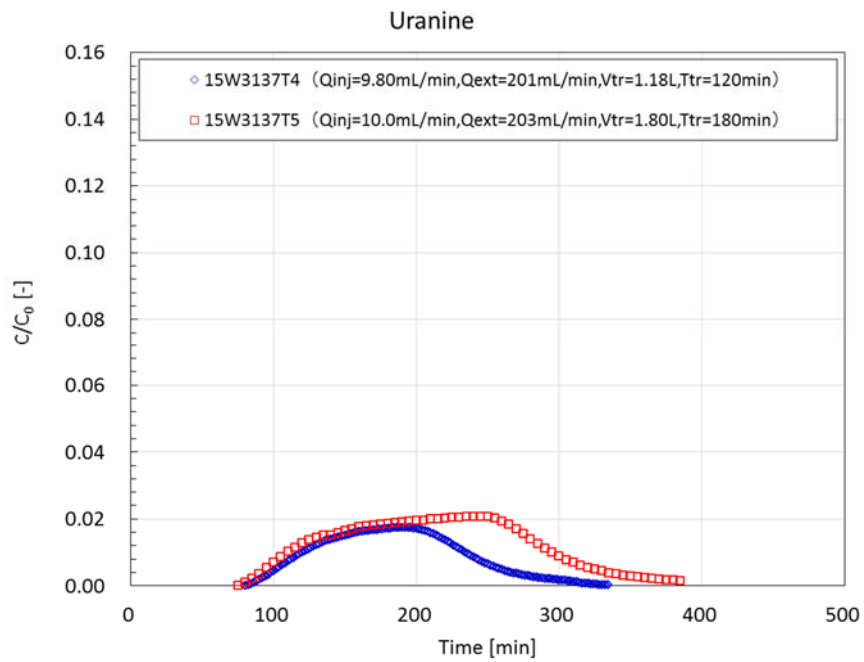


図 6.6.2-5 トレーサー注入時間が異なるケースの比較  
(上: 15W3137T4 と 15W3137T5、下: 15W3731T9 と 15W3731T10)



## 6.7 トレーサー試験結果の評価解析

### 6.7.1 単孔トレーサー試験の評価解析

#### 6.7.1.1 単孔トレーサー試験の評価解析の概要

数値解析を用いて評価解析を行い、試験で得られた破過曲線を再現するような物質移行パラメータを評価する。ここでは、岩盤に存在する割れ目のみを考慮したモデル（割れ目モデル）と、岩盤に存在する割れ目と岩盤マトリクスを考慮したモデル（複合モデル）の2種類のモデルを用いて解析を行う。

数値解析コードとして、(財)電力中央研究所が開発した岩盤中地下水流動・物質移行解析コード FEGM/FERM を用いた（河西ほか(1994)、河西ほか(1995)）。FEGM/FERM は、空間の離散化については有限要素法を、時間の離散化については差分法が用いられており、オイラー座標系で記述されている。FEGM における地下水流動に関する基礎方程式は以下の通りである。

$$\left(\theta\beta + \frac{\theta}{\varphi}\alpha + \frac{\partial\theta}{\partial h}\right)\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i}V_i + Q = 0 \quad (6.7.1-1)$$

$$\text{ここで、} \quad V_i = -k_r K_{ij} \frac{\partial H}{\partial x_j} \quad (6.7.1-2)$$

$\theta$  : 体積含水率 [L<sup>3</sup>/L<sup>3</sup>]、 $\beta$  : 流体の修正圧縮係数 [1/L]、 $\uparrow \varphi$  : 間隙率 [-]、 $\alpha$  : 媒体の修正圧縮係数 [1/L]、 $h$  : 圧力水頭 [L]、 $t$  : 時間 [T]、 $x_i$  : 座標 [L]、 $V_i$  : ダルシー流速 [L/T]、 $Q$  : 湧排水率 [L<sup>3</sup>/L<sup>3</sup>T]、 $k_r$  : 相対透水係数 [-]、 $K_{ij}$  : 飽和係数テンソル [L/T]、 $H$  : 全水頭 [L]

FEGM/FERM における物質移行に関する基礎方程式は、以下の通りである。

$$(\theta + \rho_a K_d) \frac{\partial C}{\partial t} + \left\{ \frac{\partial\theta}{\partial t} + \alpha(\theta + \rho_a K_d) \frac{\partial h}{\partial t} \right\} C \quad (6.7.1-3)$$

$$- \frac{\partial}{\partial x_i} \theta D_{ij} \frac{\partial}{\partial x_j} C + \frac{\partial}{\partial x_i} V_i C + M = 0$$

$$\text{ここで、} \quad \theta D_{ij} = \alpha_T \|\mathbf{V}\| \delta_{ij} + (\alpha_L - \alpha_T) \frac{V_i V_j}{\|\mathbf{V}\|} a_m \tau \delta_{ij} \quad (6.7.1-4)$$

$\rho_a$  : 媒体のみかけ密度 [M/L<sup>3</sup>]、 $K_d$  : 分配係数 [L<sup>3</sup>/M]、 $C$  : 物質濃度 [M/L<sup>3</sup>]、 $D_{ij}$  : 分散係数テンソル [L<sup>2</sup>/T]、 $M$  : 物質のソース [M/T]、 $\alpha_T$  : 流れ方向に直交する方向の分散長（横分散長） [L]、 $\alpha_L$  : 流れ方向の分散長（縦分散長） [L]、 $\mathbf{V}$  : ダルシー流速ベクトル、 $\delta_{ij}$  : クロネッカーのデルタ、 $a_m$  : 分子拡散係数 [L<sup>2</sup>/T]、 $\tau$  : 屈曲率 [-]

式(6.7.1-3)に示したように、FEGM/FERM では、吸着による遅延効果が分配係数として与えられる。従って、今回の解析では遅延係数を式(6.7.1-5)、(6.7.1-6)を用いて分配係数に変換して与えることとした。

$$R = 1 + \frac{\rho_d K_d}{\phi} \quad (6.7.1-5)$$

$$\Leftrightarrow K_d = \frac{\phi(R-1)}{\rho_d} \quad (6.7.1-6)$$

### 6.7.1.2 解析手順

FEGM/FERM による数値解析は、原位置試験の試験手順に基づき、以下の手順で行う。

- ① 定常解析：水を定流量で注入する。
- ② トレーサーとチェイサーの注入（非定常解析）：トレーサーを定流量で一定時間注入する。
- ③ トレーサーの回収（非定常解析）：定流量で揚水しトレーサーの回収を行う。

各手順では、一つ前の解析手順で得られた結果を初期条件とする。浸透流解析では、注入や揚水に関する条件はボーリング孔を構成する全ての節点に固定流量条件として与える。また、バックグラウンド地下水流れは x 方向に一樣な流れを想定し、モデル境界に位置する節点の座標から任意の動水勾配となるような圧力を計算で求め、固定圧力条件として与える。移流分散解析では、トレーサーやチェイサーの注入はボーリング孔を構成する全ての節点に固定濃度フラックス条件として与える。6.6.1.5(1)で述べたように、本年度の試験ではトレーサー循環バルブの不具合のため、トレーサー置換タンクから試験区間までの間において、チューブ分散の影響を受けたトレーサーが注入される。そこで、本解析では、注入時のチューブ分散を考慮した濃度経時変化を注入条件として与える。

数値解析結果からボーリング孔を構成する節点濃度の算術平均を時間毎に求め、その濃度の経時変化についてチューブ分散補正を行い、試験で得られた破過曲線との誤差を計算する。チューブ分散補正は、6.6.1.5(2)で示した方法を使って計算し、チューブ分散長は 0.40m、流速は揚水流量をチューブ断面積で除した値を用いる。数値解析結果をチューブ分散補正して得られた破過曲線と試験結果の誤差については、濃度による重みを考慮した次式を用いて計算する。

$$\varepsilon = \frac{1}{N} \sum \sqrt{C_1 \times (C_1 - C_2)^2} \quad (6.7.1-7)$$

ここに、 $\varepsilon$ ：誤差[-]、 $N$ ：データ数、 $C_1$ ：試験結果の破過曲線の濃度、 $C_2$ ：数値解析で得られた結果をチューブ分散補正して得られた濃度を表す。

### 6.7.1.3 割れ目モデルを用いた評価解析

#### (1) 評価解析の概要

ここで用いる解析モデルを図 6.7.1-1 に示す。解析モデルはボーリング孔（ $\phi 86\text{mm}$ ）に相当する部分を除いた半径 30m の円柱型モデルであり、節点数は 12,096、要素数は 5,976 である。

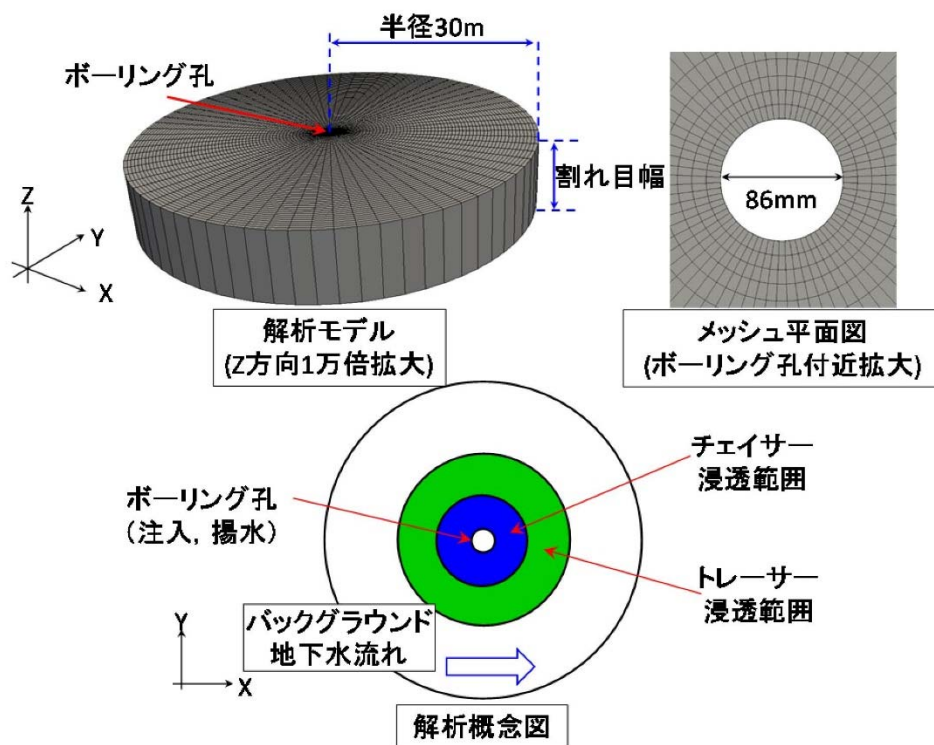


図 6.7.1-1 解析モデル（割れ目モデル）

6.6.1.3 で述べたように、単孔トレーサー試験の破過曲線は、割れ目幅や縦分散長を区別して評価せず、複合パラメーターである集中定数として評価する。従って、非収着性トレーサーの評価解析では集中定数とバックグラウンド地下水流れの動水勾配（以下、単に動水勾配と呼ぶ）の組み合わせを評価し、収着性トレーサーの評価解析では、非収着性トレーサーの評価解析で得られた集中定数と動水勾配の組み合わせを用い、遅延係数を評価する。

ここでは、13MI37 号孔で行った試験のうち、待機時間を設けていない 15S37T5、15S37T6、15S37M9、15S37M10 について評価解析を行う。評価解析を行う試験について、試験条件を表 6.7.1-1 に整理する。

表 6.7.1-1 評価解析を行う試験条件（割れ目モデル）

試験条件名			15S37T5	15S37T6	15S37M9	15S37M10
試験実施日			11/17	11/18	12/7	12/8
試験条件	注水流量	mL/min	97.7	208.2	97.8	209.3
	揚水流量	mL/min	199.4	198.9	198.4	198.1
	トレーサー注入時間	min	10.0	5.0	20.0	10.0
	チェイサー注入時間	min	15.0	7.5	15.0	7.5
	待機時間	min	0.0	0.0	0.0	0.0
	トレーサー量	L	0.98	1.04	1.96	2.09
	チェイサー量	L	1.47	1.56	1.47	1.57

(2) 非吸着性トレーサーの評価解析

a. 解析条件

非吸着性トレーサーの評価解析の解析条件を表 6.7.1-2 に示す。集中定数は、6.6.1.3 で行った理論式による評価を参考にし、 $1.0e-4$  から  $1.0e-2$  の間で 9 通りのパラメーターを設定した。但し、FEGM/FERM は集中定数としてパラメーターを設定することはできないため、割れ目幅を 0.70mm とし、解析モデルを作成し、与える集中定数の値から縦分散長の値を計算で求め入力値とした。なお、間隙率は全ての解析条件で 1.0 とした。

$$\tau = \frac{\alpha_L^2 b \varphi}{V_{inj}} \quad (6.7.1-8)$$

$$\Leftrightarrow \alpha_L = \sqrt{\frac{\tau V_{inj}}{b \varphi}} \quad (6.7.1-9)$$

$\tau$  : 集中定数[-]、 $b$  : 割れ目幅[L]、 $\alpha_L$  : 縦分散長[L]、 $\varphi$  : 間隙率[-]、 $V_{inj}$  : 注入量[L<sup>3</sup>]

動水勾配は、6.6.1.4 で示した図解法による回収率の評価で得られた動水勾配（15S37T5 と 15S37T6 は 2.61%、15S37M9 と 15S37M10 は 2.26%）を基準動水勾配とし、その基準動水勾配の 0～1.7 倍の値を設定した（10 通り）。

集中定数を 9 通り、動水勾配を 10 通り設定し、1 回の試験条件につき 90 回の解析を行い、各試験条件で得た非吸着性トレーサーの破過曲線を最も良好に再現する組み合わせを評価する。ここでは、ウラニンの破過曲線との誤差を計算する。

表 6.7.1-2 非収着性トレーサーの評価解析条件（割れ目モデル）

集中定数 (9通り)	1.00e-2, 7.00e-3, 5.00e-3, 3.00e-3, 1.00e-3, 7.00e-4, 5.00e-4, 3.00e-3 1.00e-4
動水勾配 (10通り)	i0*1.7, i0*1.5, i0*1.3, i0*1.1, i0*1.0, i0*0.9, i0*0.8, i0*0.5, i0*0.3, i0*0.1, i0*0.0

※i0は図解法による回収率評価（割れ目幅は0.70mmと仮定）で得られた動水勾配であり、15S37T5と15S37T6の基準動水勾配は2.61%、15S37M9と15S37M10の基準動水勾配は2.26%である。

b. 解析結果

非収着性トレーサーの評価解析結果を図6.7.1-2～図6.7.1-5、表6.7.1-3に示す。図6.7.1-2～図6.7.1-5は、縦軸が動水勾配、横軸が集中定数である誤差分布と、誤差が少ない集中定数と動水勾配の組み合わせで得た破過曲線を併せて示す。

表 6.7.1-3 非収着性トレーサーの評価解析結果（割れ目モデル）

	集中定数	動水勾配
15S37T5	1.0e-3	0.78%(i0*0.3)
	1.0e-4	1.31%(i0*0.5)
15S37T6	7.0e-4	1.31%(i0*0.5)
	1.0e-4	2.09%(i0*0.8)
15S37M9	1.0e-3	1.13%(i0*0.5)
	5.0e-4	1.13%(i0*0.5)
15S37M10	1.0e-3	1.13%(i0*0.5)
	1.0e-4	2.03%(i0*0.9)

いずれの試験条件も、濃度の起ち上がりから濃度がピークを迎えるまでは試験結果を良好に再現することができた。一方、テール部分については再現性がそれほど良くなく、この部分で誤差が大きくなり、試験結果の破過曲線を再現する集中定数と動水勾配の組み合わせが複数評価された。試験条件により差はあるが、集中定数が1.0e-3程度と1.0e-4程度の場合において誤差が小さくなった。

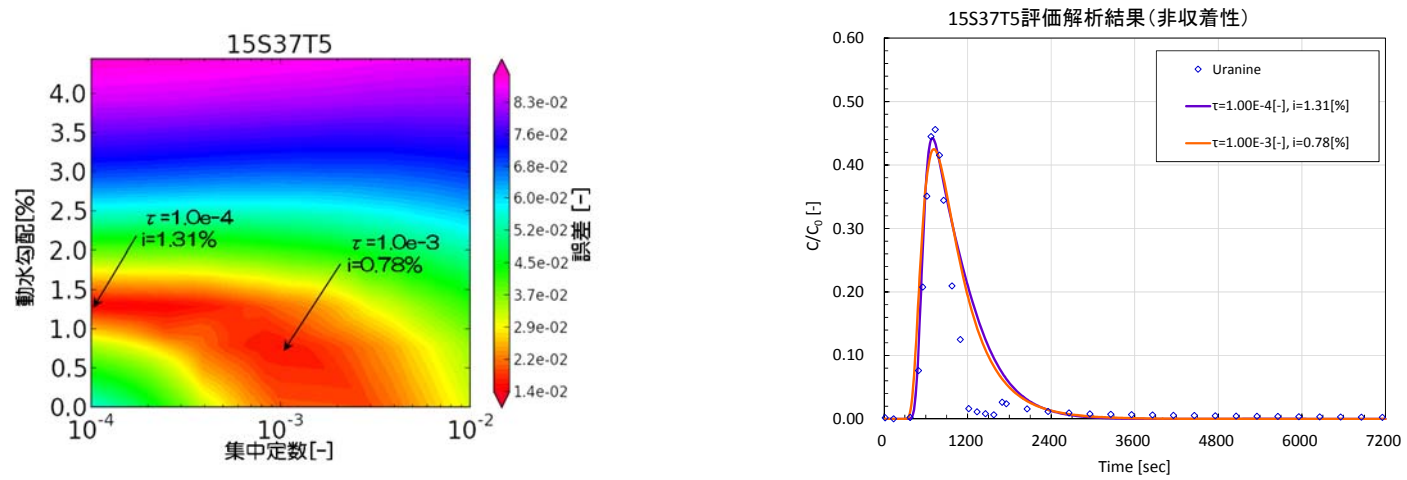


図 6.7.1-2 15S37T5 の非収着性トレーサー評価解析結果 (割れ目モデル)

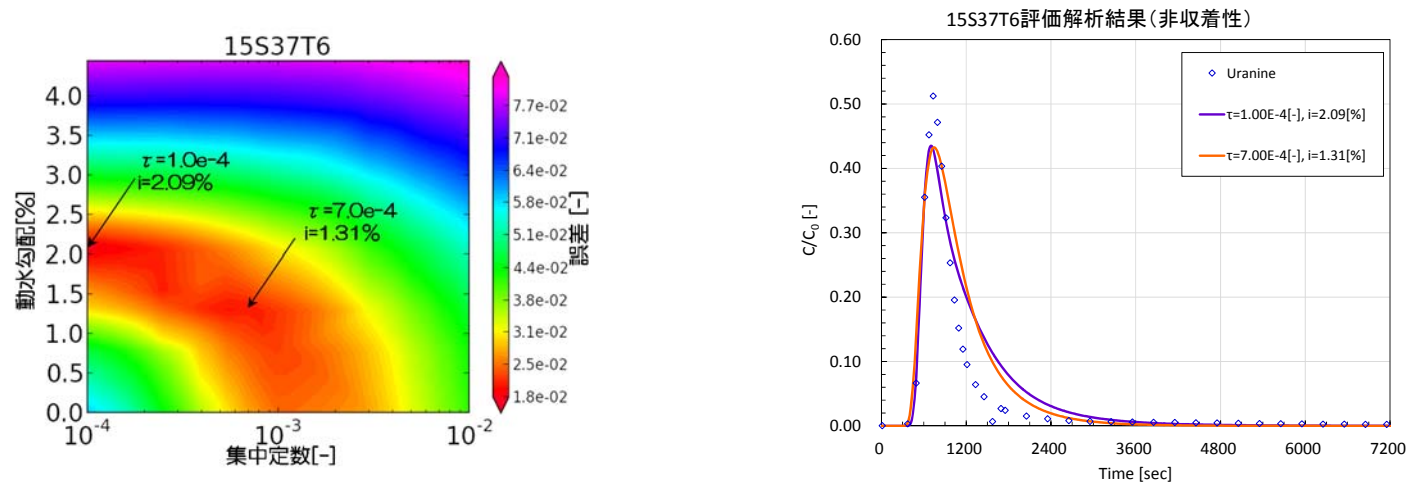


図 6.7.1-3 15S37T6 の非収着性トレーサー評価解析結果 (割れ目モデル)

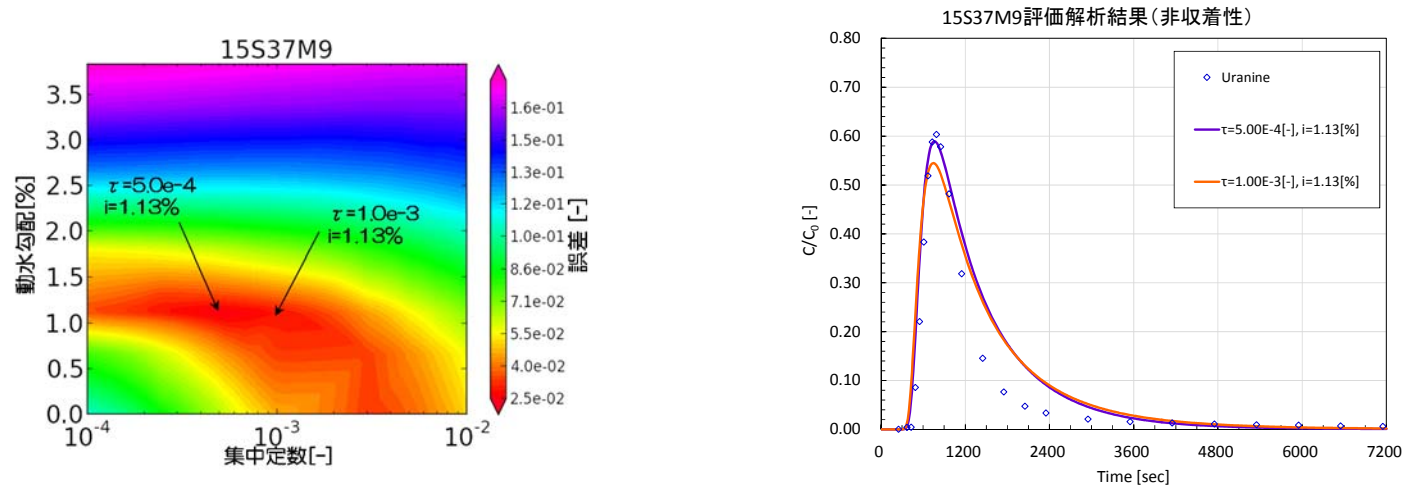


図 6.7.1-4 15S37M9 の非吸着性トレーサー評価解析結果 (割れ目モデル)

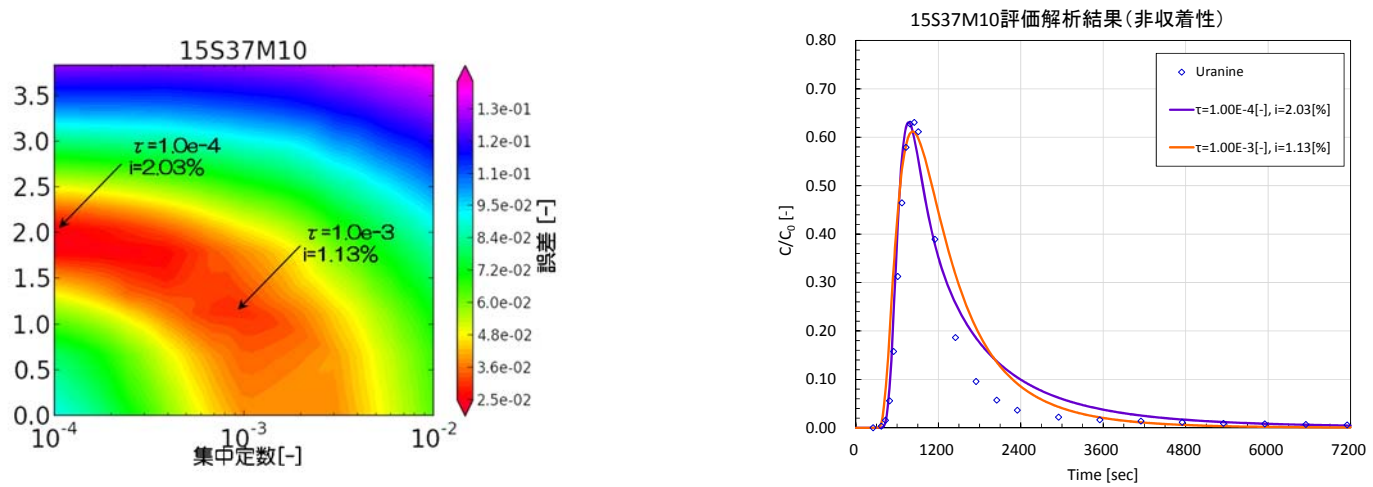


図 6.7.1-5 15S37M10 の非吸着性トレーサー評価解析結果 (割れ目モデル)

c. 考察

単孔トレーサー試験では割れ目幅を独立して評価することはできないが、透水量係数から逆算される水理学的開口幅 (0.27mm) と高精度 BTV 調査によって得た割れ目幅 (0.70mm) を仮定し、評価解析で得た集中定数から式 (6.7.1-9) を用いて縦分散長を計算する。なお、間隙率は 1.0 とする。計算結果を表 6.7.1-4 に示す。集中定数が  $1.0 \times 10^{-3}$  である場合、割れ目幅が 0.27mm の時の縦分散長は  $9.05 \times 10^{-3} \sim 1.36 \times 10^{-2}$  m、割れ目幅が 0.70mm の時の縦分散長は  $3.49 \times 10^{-3} \sim 5.23 \times 10^{-3}$  m となる。一方、集中定数が  $1.0 \times 10^{-4}$  である場合、割れ目幅が 0.27mm の時の縦分散長は  $9.05 \times 10^{-4} \sim 1.36 \times 10^{-3}$  m、割れ目幅が 0.70mm の時の縦分散長は  $3.49 \times 10^{-4} \sim 5.23 \times 10^{-4}$  m となる。

ここで、式 (6.7.1-10) を用いてトレーサー浸透距離を計算した結果についても表 6.7.1-4 に併せて示す。

$$r_b = \sqrt{\frac{V_{inj}}{\pi b \phi}} \quad (6.7.1-10)$$

$r_b$  : トレーサー移行距離 [L]

過去に行われたトレーサー試験では、縦分散長がトレーサー浸透距離の 1/100~1/10 程度となることが報告されている。今回の試験では、割れ目幅を 0.27~0.70mm と仮定すると、トレーサー浸透距離は 0.94~1.93m 程度となり、縦分散長は  $9.4 \times 10^{-3} \sim 1.93 \times 10^{-1}$  m 程度であると予測される。集中定数が  $1.0 \times 10^{-3}$  の場合、割れ目幅を仮定して得られる縦分散長は、トレーサー浸透距離から予測される縦分散長よりもやや小さい値が概ね近い値となった。一方、集中定数が  $1.0 \times 10^{-4}$  の場合、割れ目幅を仮定して得られる縦分散長は、トレーサー浸透距離から予測される縦分散長よりも 1~2 オーダー小さい値となり、過去の報告とは異なる傾向となることが確認された。

収着性トレーサーの評価解析では、表 6.7.1-3 に示した集中定数と動水勾配の組み合わせを用い、 $Rb^+$  と  $Ba^{2+}$  の遅延係数を評価する。



表 6.7.1-4 割れ目幅を仮定した場合における縦分散長計算結果

試験条件名			15S37T5	15S37T6	15S37M9	15S37M10
試験条件	注水流量	mL/min	97.7	208.2	97.8	209.3
	揚水流量	mL/min	199.4	198.9	198.4	198.1
	トレーサー注入時間	min	10.0	5.0	20.0	10.0
	チェイサー注入時間	min	15.0	7.5	15.0	7.5
トレーサー浸透距離(0.27mm)		m	1.512	1.573	1.855	1.930
トレーサー浸透距離(0.70mm)		m	0.939	0.977	1.152	1.199
評価①	集中定数	-	1.00E-03	7.00E-04	1.00E-03	1.00E-03
	縦分散長(割れ目幅 0.27mm)	m	9.05E-03	6.75E-03	1.27E-02	1.36E-02
	縦分散長(割れ目幅 0.70mm)	m	3.49E-03	2.60E-03	4.89E-03	5.23E-03
評価②	集中定数	-	1.00E-04	1.00E-04	5.00E-04	1.00E-04
	縦分散長(割れ目幅 0.27mm)	m	9.05E-04	9.64E-04	6.34E-03	1.36E-03
	縦分散長(割れ目幅 0.70mm)	m	3.49E-04	3.72E-04	2.44E-03	5.23E-04

(3) 収着性トレーサーの評価解析

a. 解析条件

非収着性トレーサーの評価解析で得られた集中定数と動水勾配の組み合わせを用い、遅延係数を変化させて収着性トレーサーの評価解析を行う。各試験条件の集中定数と動水勾配の組み合わせは表 6.7.1-3 に示した通りである。遅延係数については、2~2000 の間で 34 通り設定し、 $Rb^+$  と  $Ba^{2+}$  の破過曲線との誤差を計算する。

b. 解析結果

収着性トレーサーの評価解析結果を図 6.7.1-6~図 6.7.1-9 に示す。いずれの試験条件も、縦軸を誤差、横軸を遅延係数とする誤差分布と、誤差が最小となる遅延係数で得られた破過曲線の計算結果を示す。

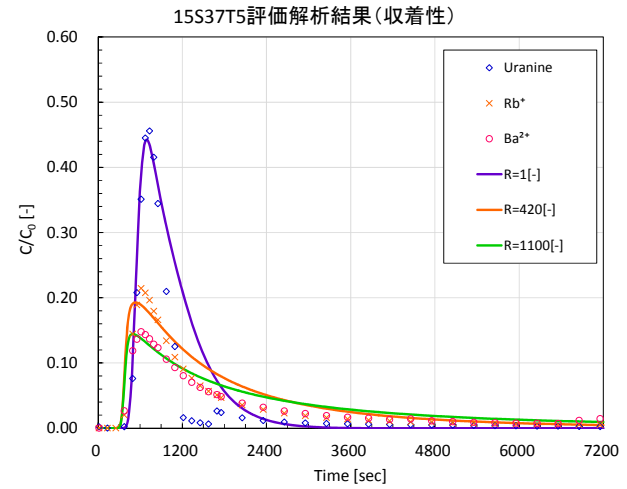
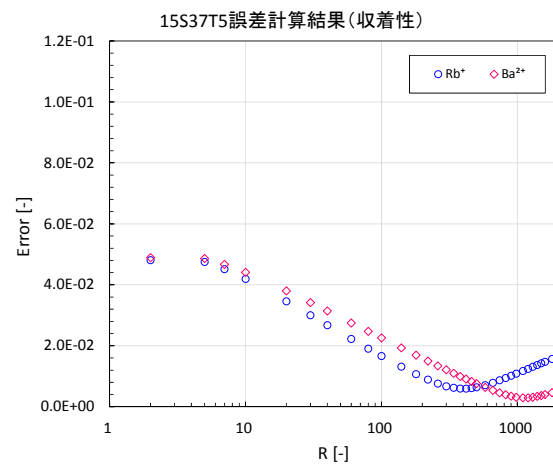
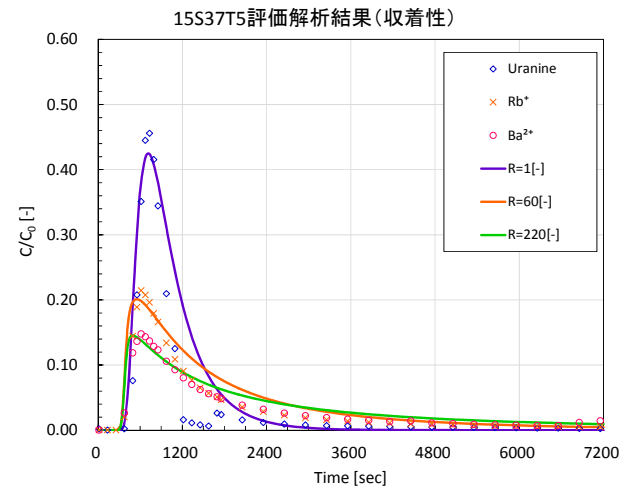
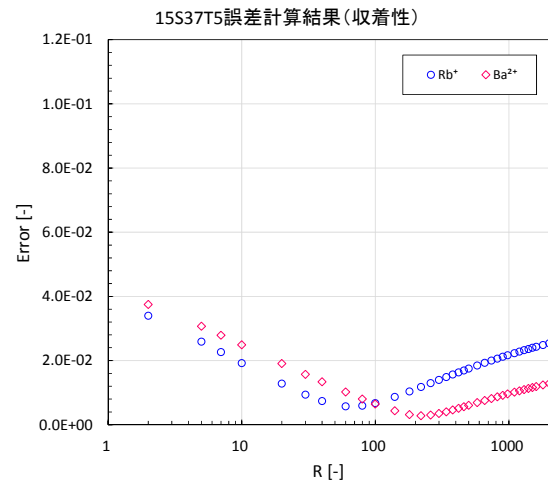


図 6.7.1-6 15S37T5 の収着性トレーサー評価解析結果 (割れ目モデル)

上：集中定数が 1.0e-3、下：集中定数が 1.0e-4

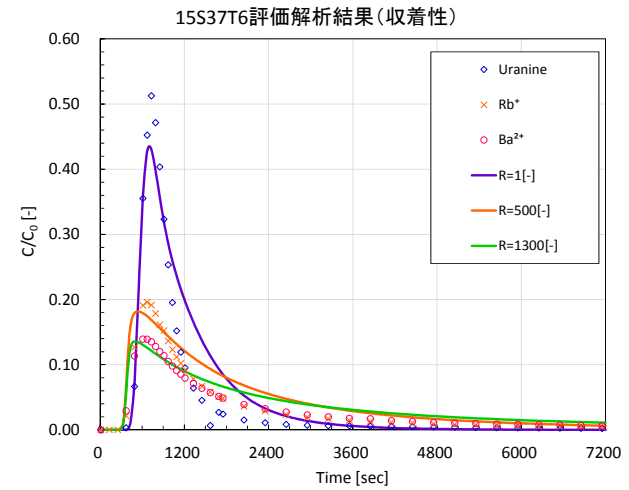
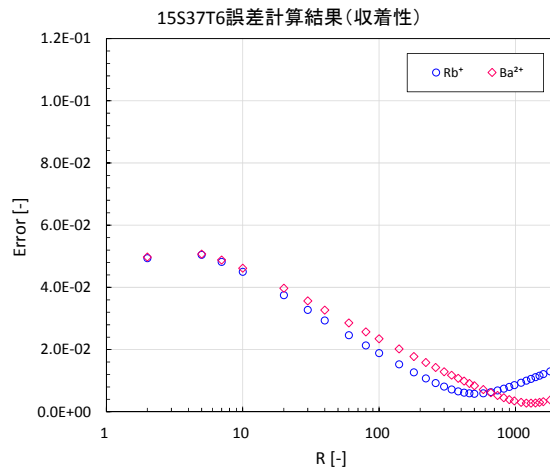
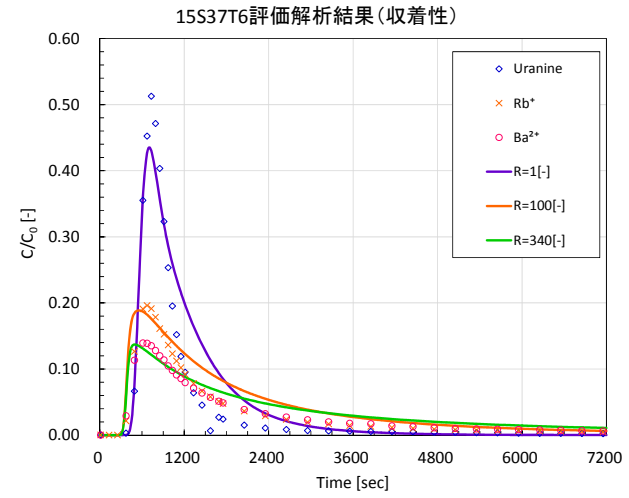
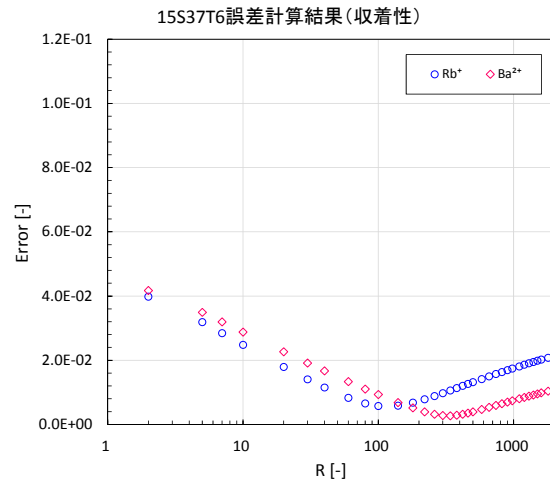


図 6.7.1-7 15S37T6 の収着性トレーサー評価解析結果 (割れ目モデル)

上：集中定数が  $7.0 \times 10^{-4}$ 、下：集中定数が  $1.0 \times 10^{-4}$

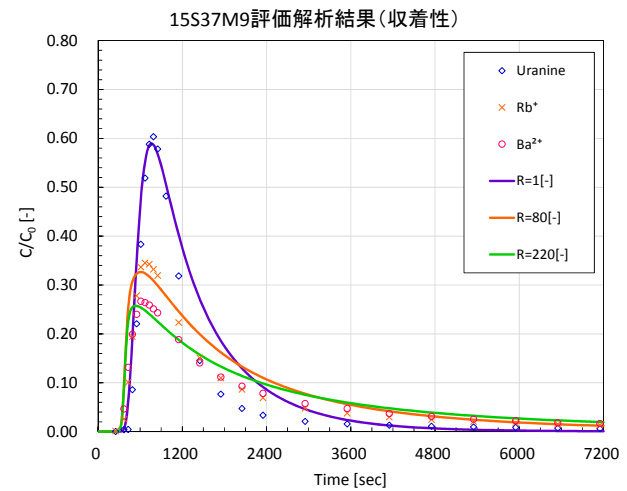
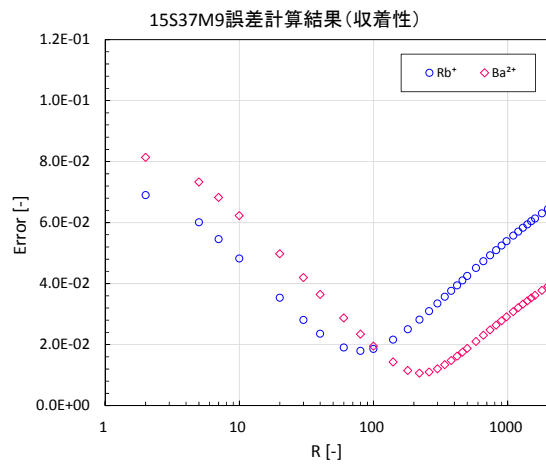
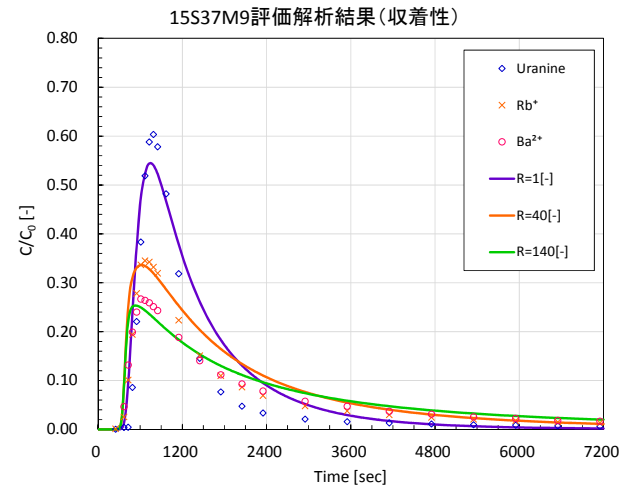
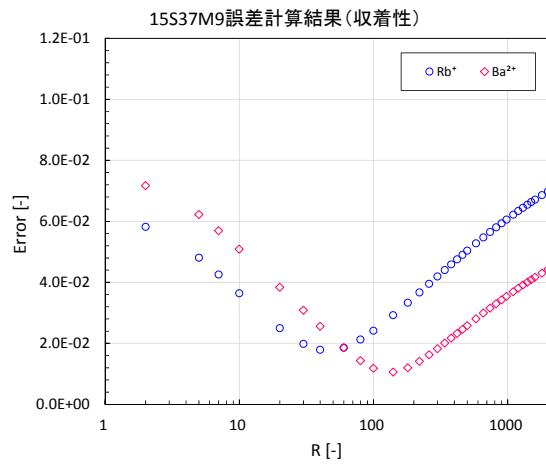


図 6.7.1-8 15S37M9 の収着性トレーサー評価解析結果 (割れ目モデル)

上：集中定数が 1.0e-3、下：集中定数が 5.0e-4

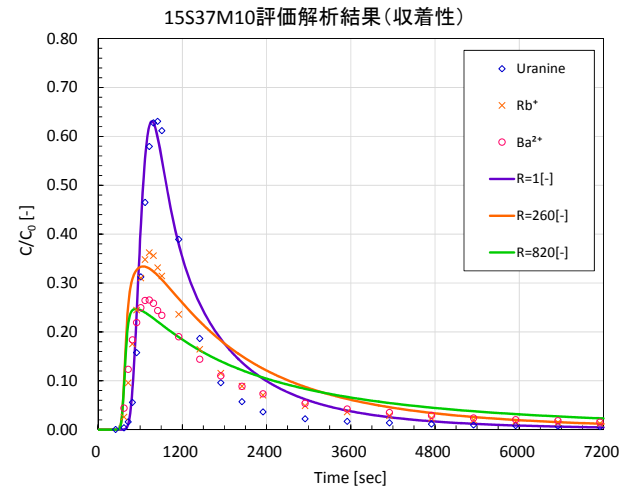
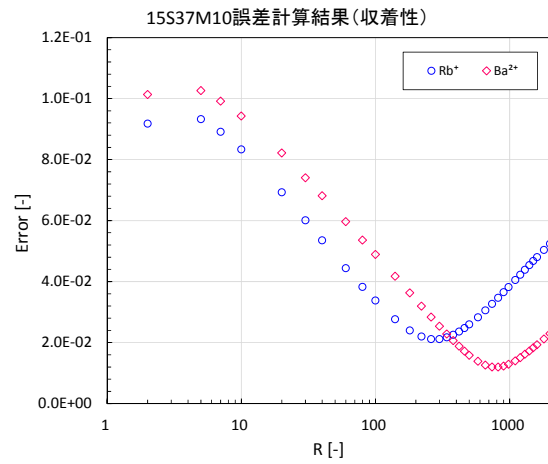
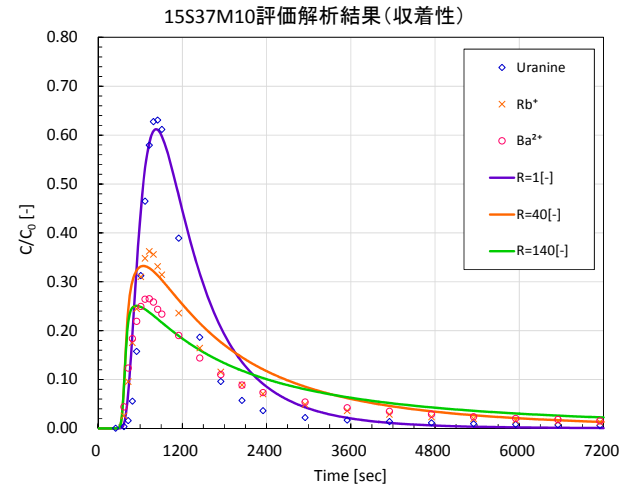
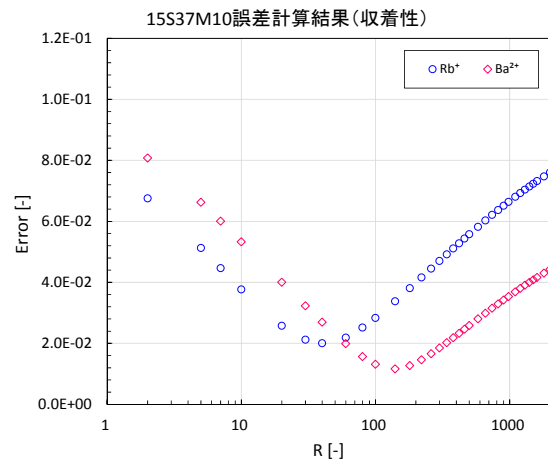


図 6.7.1-9 15S37M10 の収着性トレーサー評価解析結果 (割れ目モデル)

上：集中定数が 1.0e-3、下：集中定数が 1.0e-4

c. 考察

収着性トレーサーの評価解析で得られた遅延係数を表 6.7.1-5 に整理する。集中定数が  $1.0e-3$  の場合、 $Rb^+$ の遅延係数が 40~60、 $Ba^{2+}$ の遅延係数が 140~220 の場合に誤差が最も少なくなった。一方、集中定数が  $1.0e-4$  の場合は、 $Rb^+$ の遅延係数が 260~420、 $Ba^{2+}$ の遅延係数が 820~1300 の場合に誤差が最も小さくなった。

同一区間を対象として行われた孔間トレーサー試験の結果を参照すると、 $Rb^+$ のピーク濃度やピーク時間が非収着性トレーサーの  $1/420 \sim 1/260$  となっているとは考えにくい。また、割れ目幅を仮定し集中定数から計算される縦分散長についても、集中定数が  $1.0e-3$  とした場合の方が過去の報告に近い値である。以上のことから、今回の試験区間の物質移行パラメーターとしては、集中定数が  $1.0e-3$  程度、 $Rb^+$ の遅延係数が 40~60 程度、 $Ba^{2+}$ の遅延係数が 140~220 程度であると考えられる。

今回の試験では、15S37T5 と 15S37T6、15S37M9 と 15S37M10 は、それぞれトレーサー注入量が同じであるが注入流量が異なる試験条件である。つまり、15S37T6 より 15S37T5 の方が、15S37M10 より 15S37M9 の方がトレーサーと岩盤の接触時間を長く設けており、遅延効果に違いが出るのが期待された。しかし、評価解析で得た遅延係数に違いはほとんど無く、今回設けた程度の時間差では遅延効果に差が生じないと言える。

表 6.7.1-5 収着性トレーサーの評価解析結果（割れ目モデル）

試験条件名			15S37T5	15S37T6	15S37M9	15S37M10
試験 条件	注水流量	mL/min	97.7	208.2	97.8	209.3
	揚水流量	mL/min	199.4	198.9	198.4	198.1
	トレーサー注入時間	min	10.0	5.0	20.0	10.0
	チェイサー注入時間	min	15.0	7.5	15.0	7.5
評価①	集中定数	-	$1.00E-03$	$7.00E-04$	$1.00E-03$	$1.00E-03$
	$Rb^+$ 遅延係数	-	60	100	40	40
	$Ba^{2+}$ 遅延係数	-	220	340	140	140
評価②	集中定数	-	$1.00E-04$	$1.00E-04$	$5.00E-04$	$1.00E-04$
	$Rb^+$ 遅延係数	-	420	500	80	260
	$Ba^{2+}$ 遅延係数	-	1100	1300	220	820

#### 6.7.1.4 複合モデルを用いた解析

6.7.1.3 では、割れ目モデルを用いて評価解析を行って物質移行パラメーターを評価した。ここでは、15S37M10 の試験結果について、割れ目に加えて岩盤マトリクスも考慮した複合モデルを用いて解析を行い、マトリクス拡散が破過曲線に与える影響について検討する。

##### (1) 解析の概要

図 6.7.1-10 に解析モデルを示す。解析モデルは、半径を 30m とする円柱型のモデルであり、ボーリング孔 ( $\phi 86\text{mm}$ ) に相当する部分は除かれている。計算時間短縮のため、Z 軸方向に半分、 $\theta$  方向に半分の範囲を計算対象範囲とし、岩盤マトリクスの厚みは 5m とした。半径方向を 1~50cm、Z 軸方向を 0.1mm~5mm で空間分割した。解析モデルの節点数は 142,968、要素数は 134,460 である。



図 6.7.1-10 解析モデル (複合モデル)

単孔トレーサー試験における複合モデルによる解析は、Nordqvist (2008)が以下の手順を示している。

① 非吸着性トレーサーの解析

非吸着性トレーサーの結果に対して解析を行う。この時、割れ目モデルで変数とした集中定数と動水勾配に加え、非吸着性トレーサーのマトリクス拡散に関する複合パラメーターについても変数とする。集中定数 $\tau$ は式(6.7.1-11)で、非吸着性トレーサーのマトリクス拡散に関する複合パラメーター $A_{nr}$ は式(6.7.1-12)で表される。

$$\tau = \frac{\alpha_L^2 b \varphi}{V_{inj}} \quad (6.7.1-11)$$

$$A_{nr} = \frac{b}{2\varphi_m \sqrt{D_{p,nr}}} \quad (6.7.1-12)$$

ここで、 $D_{p,nr} = G \times D_{w,nr}$  (6.7.1-13)

$b$ : 割れ目幅[L],  $\alpha_L$ : 縦分散長[L],  $\varphi$ : 間隙率[-],  $V_{inj}$ : 注入量[L<sup>3</sup>],  $\varphi_m$ : マトリクスの間隙率,  $D_{p,nr}$ : 非吸着性トレーサーの実効拡散係数[L<sup>2</sup>T<sup>-1</sup>],  $G$ : 幾何学因子[-],  $D_{w,nr}$ : 非吸着性トレーサーの自由水中の拡散係数[L<sup>2</sup>T<sup>-1</sup>]

② 吸着性トレーサーの解析

吸着性トレーサーの結果に対して解析を行う。この時、非吸着性トレーサーの解析で得た集中定数、動水勾配の組み合わせを用い、吸着性トレーサーのマトリクス拡散に関する複合パラメーター $A_r$ を評価する。

$$A_r = \frac{b}{2\varphi_m \sqrt{R_m D_{p,r}}} \quad (6.7.1-14)$$

ここで、 $D_{p,r} = G \times D_{w,r}$  (6.7.1-15)

$R_m$ : マトリクスの遅延係数,  $D_{p,r}$ : 吸着性トレーサーの実効拡散係数[L<sup>2</sup>T<sup>-1</sup>],  $D_{w,r}$ : 吸着性トレーサーの自由水中の拡散係数[L<sup>2</sup>T<sup>-1</sup>]

③ マトリクス遅延係数の評価

式(6.7.1-12)～(6.7.1-15)と手順①、②で評価された $A_{nr}$ 、 $A_r$ より、式(6.7.1-17)を用いてマトリクスの遅延係数を計算で求める。

$$\frac{A_{nr}}{A_r} = \frac{b/2\varphi_m \sqrt{D_{p,nr}}}{b/2\varphi_m \sqrt{R_m D_{p,r}}} = \frac{\sqrt{R_m D_{p,r}}}{\sqrt{D_{p,nr}}} = \frac{\sqrt{R_m D_{w,r}}}{\sqrt{D_{w,nr}}} \quad (6.7.1-16)$$

$$\Leftrightarrow R_m = \frac{D_{w,nr}}{D_{w,r}} \left( \frac{A_{nr}}{A_r} \right)^2 \quad (6.7.1-17)$$



割れ目モデルを用いた評価解析で示したように、単孔トレーサー試験では、割れ目幅、縦分散長、間隙率を個々に評価せずに、複合パラメーターである集中定数として評価した。複合モデルを用いた解析でも同様に集中定数を用いるため、マトリクス拡散の効果は式( 6.7.1-12)、( 6.7.1-14)で示される複合パラメーターとして与えることとする。但し、FEGM/FERM では集中定数、マトリクス拡散に関する複合パラメーターを直接入力することはできない。そこで、集中定数については、割れ目幅を 0.70mm、割れ目の間隙率を 1.0 と固定し、縦分散長を変化させることで集中定数を定義する。また、マトリクス拡散に関する複合パラメーターは、割れ目幅を 0.70mm、マトリクスの間隙率を 0.01 と固定し、実効拡散係数を変化させることで  $A_{nr}$ 、 $A_r$  を定義する。なお、割れ目の透水係数は、試験区間を対象として行われた水理試験で得た透水量係数  $1.58 \times 10^{-5} \text{m}^2/\text{sec}$  を割れ目幅で割った値を用い、マトリクスの透水係数は  $1.0 \times 10^{-12} \text{m}^2/\text{sec}$  とし、割れ目に比べて充分低い値を用いた。

## (2) 非吸着性トレーサーの解析

### a. 解析条件

注入流量、揚水流量、注入時間については表 6.7.1-1 で示した値のうち評価対象とする 15S37M10 の値を用いる。複合モデルによる非吸着性トレーサーの解析条件を表 6.7.1-6 に整理する。

岩盤マトリクスへの拡散を考慮した場合、集中定数が同じであっても、マトリクス拡散を考慮しない場合の破過曲線と比較して、破過曲線のピーク濃度が下がることが予測される。そこで、割れ目モデルで評価された集中定数を基準にし、割れ目モデルで評価された値 ( $1.0 \text{e-}3$ ) とその値よりも小さい値 ( $7.0 \text{e-}4$ 、 $5.0 \text{e-}4$ ) を与えることとした。

マトリクス拡散に関する複合パラメーターは、 $3.50 \text{e}+05$ 、 $1.11 \text{e}+4$ 、 $3.50 \text{e}+04$  を与える。これらの値は、國丸ほか(2012)の室内試験結果を参考にし、実効拡散係数を  $1.0 \text{e-}14$ 、 $1.0 \text{e-}13$ 、 $1.0 \text{e-}12 \text{m}^2/\text{sec}$  とし、割れ目幅を 0.70mm、マトリクスの間隙率を 0.01 とした場合に、式( 6.7.1-12)によって計算される値である。

動水勾配については、割れ目モデルの評価解析で得た動水勾配 1.13%を参考とし、0.68% (基準動水勾配の 0.3 倍)、1.13% (基準動水勾配の 0.5 倍)、1.80% (基準動水勾配の 0.8 倍)、0% (基準動水勾配の 0 倍) の 4 通りについて計算を行う。

以上に示したように、集中定数について 3 通り、マトリクス拡散について 3 通り、動水勾配について 4 通りパラメーターを設定し、全部で 30 通りの計算を行う。

表 6.7.1-6 非収着性トレーサーの解析条件（複合モデル）

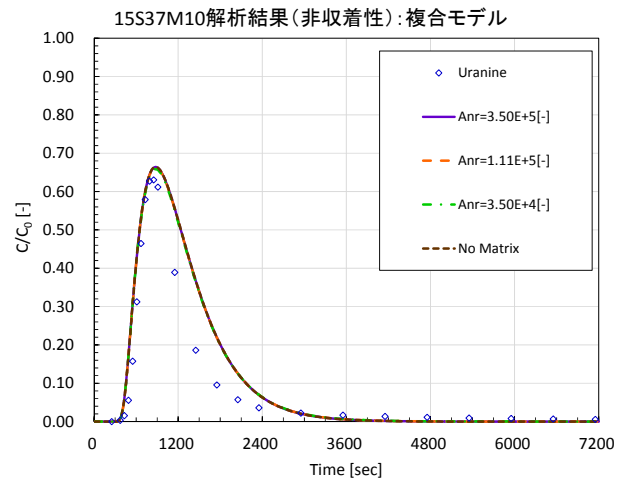
$\tau$ [-]	$A_{nr}$ [sec <sup>-1/2</sup> ]	$D_{p,nr}$ [m <sup>2</sup> /sec]	動水勾配 [%]
1.0e-3	3.50E+05	1.00E-14	0.00%(i0*0.0)
	1.11E+05	1.00E-13	1.13%(i0*0.5)
	3.50E+04	1.00E-12	
7.0e-4	3.50E+05	1.00E-14	0.00%(i0*0.0)
	1.11E+05	1.00E-13	0.68%(i0*0.3)
	3.50E+04	1.00E-12	1.13%(i0*0.5)
5.0e-4	3.50E+05	1.00E-14	1.80%(i0*0.8)
	1.11E+05	1.00E-13	0.00%(i0*0.0)
	3.50E+04	1.00E-12	0.68%(i0*0.3)

※i0は図解法による回収率評価（割れ目幅は0.70mmと仮定）で得られた動水勾配であり、15S37M10の基準動水勾配は2.26%である。

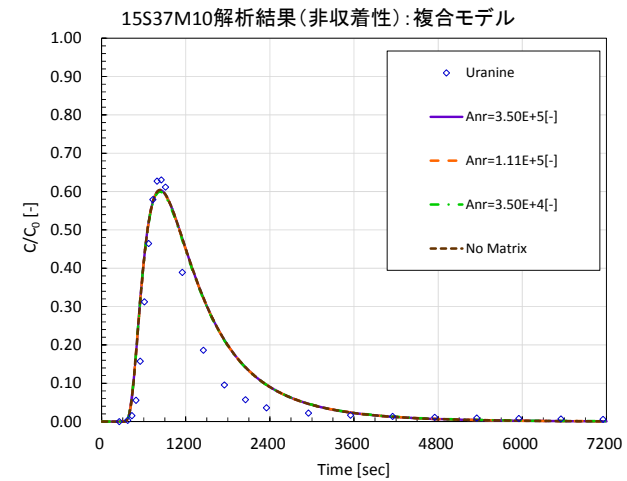
b. 解析結果

解析で得られた破過曲線を図 6.7.1-11～図 6.7.1-13 に示す。破過曲線は、集中定数と動水勾配が等しい組み合わせを同じグラフで整理し、マトリクスを考慮しない割れ目モデル（図中では No Matrix として凡例を表示）による解析結果も併せて示した。

解析の結果、拡散を考慮しない割れ目モデルと拡散を考慮した複合モデルの破過曲線はほぼ一致しており、今回の試験結果にマトリクス拡散が与える影響は少ないと考えられる。図 6.4.5-12 に示した試験結果の破過曲線においても、拡散係数が異なる蛍光染料（ウラニン、アミノG酸）と  $\delta$  D の破過曲線はほぼ一致し、ここで示した解析結果とも整合する。また、動水勾配を 0% とした解析条件の破過曲線においても、割れ目モデルと複合モデルの破過曲線はほぼ一致しており、今回の試験で得られた破過曲線にマトリクスへの拡散の影響はほぼ現れていないと考えられる。

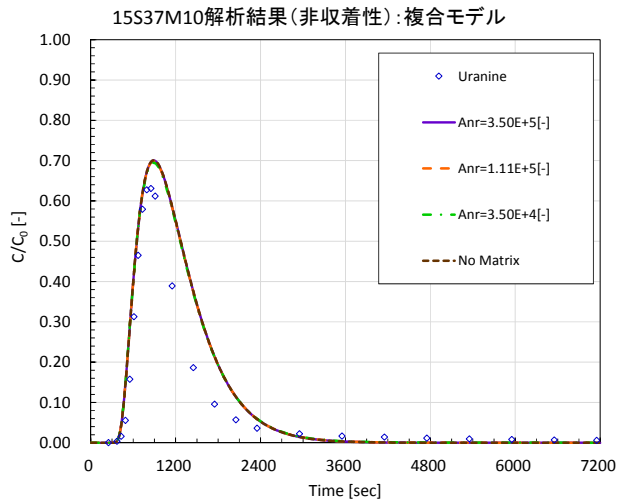


動水勾配 0%

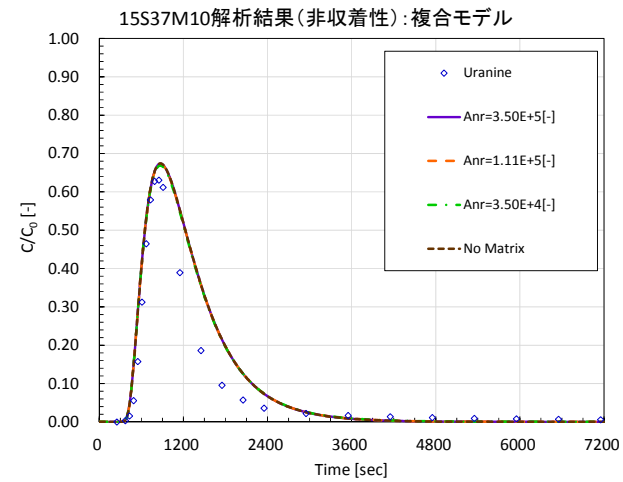


動水勾配 1.13%

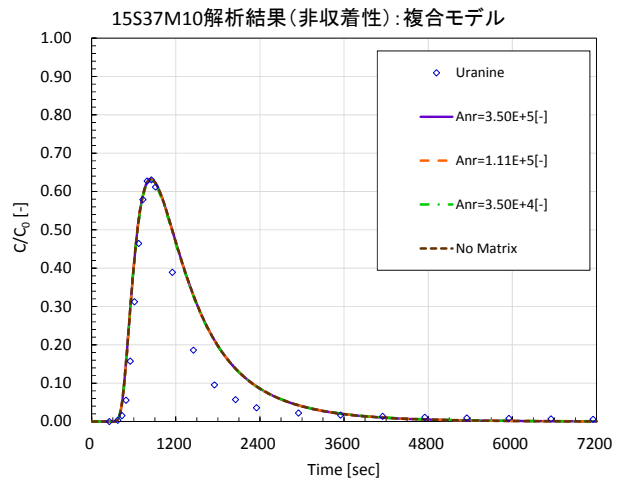
図 6.7.1-11 15S37M10 の非収着性トレーサー解析結果 (複合モデル、集中定数  $1.0e-3$ )



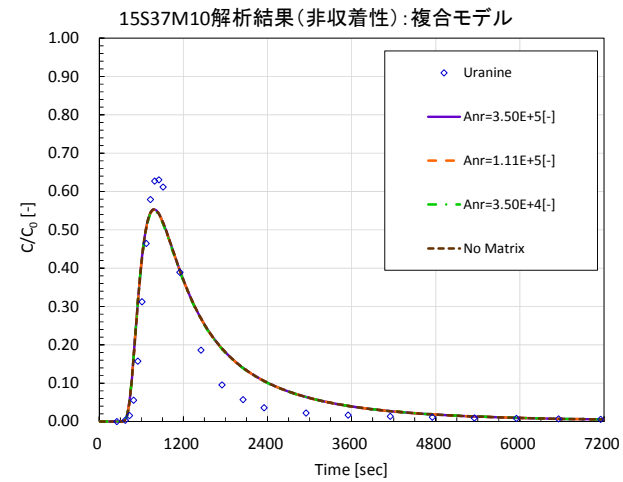
動水勾配 0%



動水勾配 0.68%

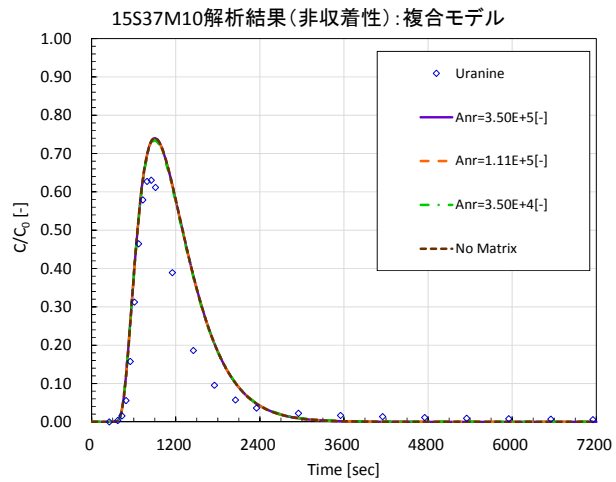


動水勾配 1.13%

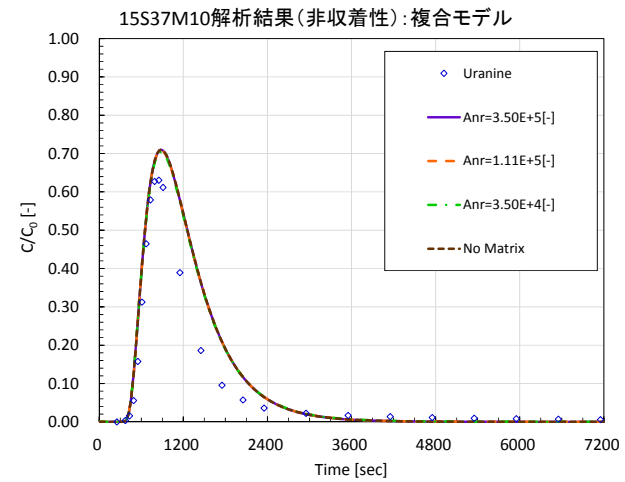


動水勾配 1.80%

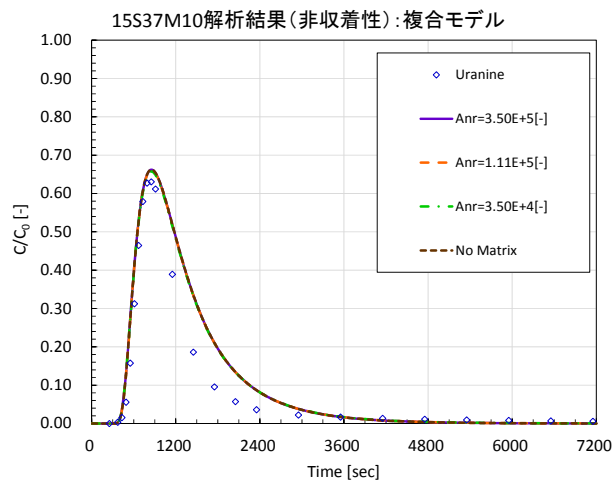
図 6.7.1-12 15S37M10 の非収着性トレーサー解析結果 (複合モデル、集中定数  $7.0 \times 10^{-4}$ )



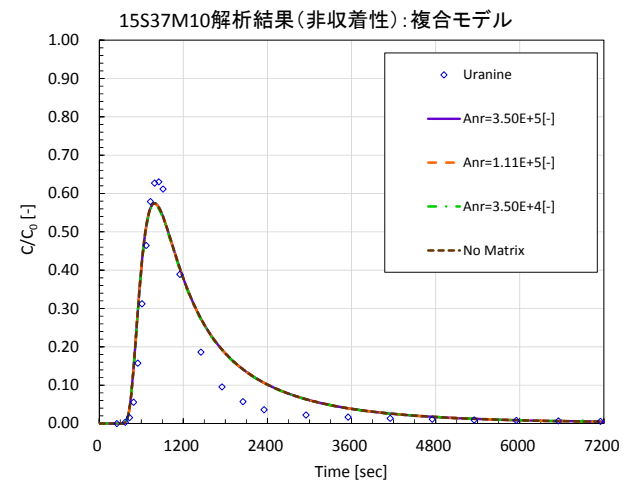
動水勾配 0%



動水勾配 0.68%



動水勾配 1.13%



動水勾配 1.80%

図 6.7.1-13 15S37M10 の非収着性トレーサー解析結果 (複合モデル、集中定数  $5.0 \times 10^{-4}$ )

### (3) 収着性トレーサーの解析

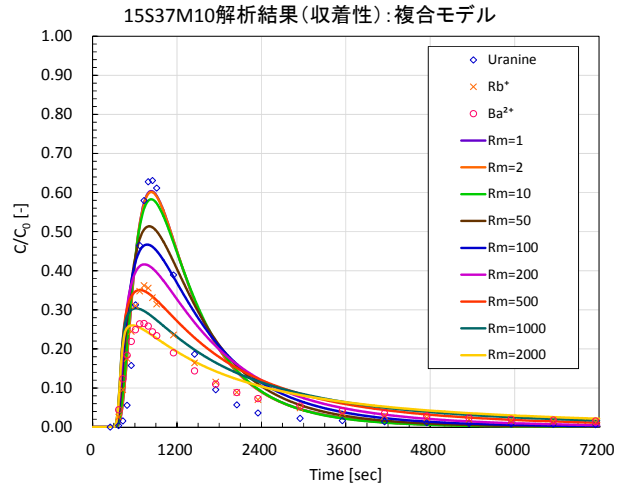
#### a. 解析条件

複合モデルを用いた非収着性トレーサーの解析を行った結果、複合モデルで得た破過曲線と割れ目モデルで得た破過曲線は概ね一致し、今回の試験で得られた破過曲線に拡散の影響はほとんど現れていないことを確認した。ここでは、わずかにマトリクスへ拡散したトレーサーが岩盤マトリクスの遅延効果によって収着されると考え、マトリクス遅延係数が破過曲線に与える影響について検討する。

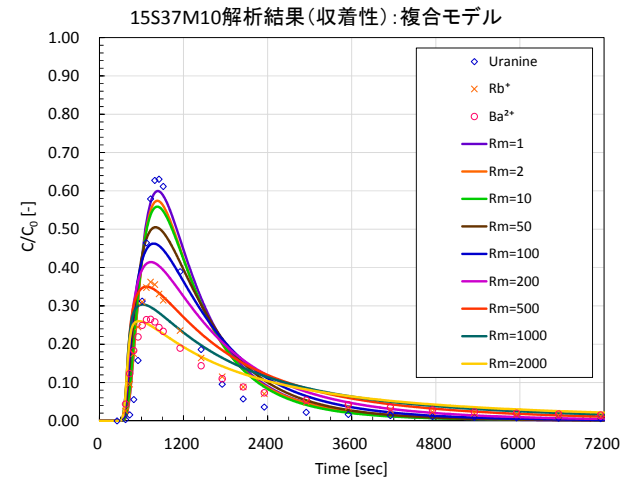
集中定数は  $1.0 \times 10^{-3}$ 、動水勾配は 1.13% とし、割れ目の遅延係数は 1 とする。実効拡散係数は  $1.0 \times 10^{-14}$ 、 $1.0 \times 10^{-12} \text{m}^2/\text{sec}$ 、マトリクスの遅延係数は 1 から 2000 の間で 12 通り与えることとし、全部で 24 通りの計算を行うこととした。

#### b. 解析結果

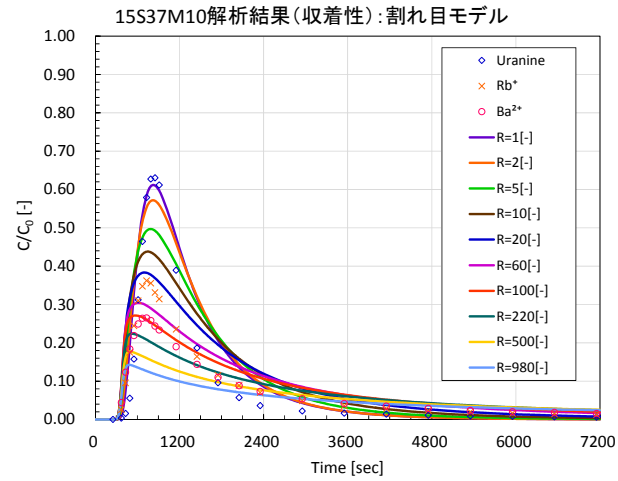
解析結果を図 6.7.1-14 に示す。図 6.7.1-14 には、複合モデルによる解析結果に加え、割れ目モデルを用いて割れ目部の遅延係数を変化させた場合の解析結果も併せて示す。なお、割れ目モデルによる解析結果は、複合モデルを用いた解析と同じ集中定数、同じ動水勾配である。複合モデルによる解析の結果、 $\text{Rb}^+$  のマトリクス遅延係数は 500 程度、 $\text{Ba}^{2+}$  のマトリクス遅延係数は 2000 程度の場合に誤差が最も小さくなった。割れ目モデルと複合モデルの破過曲線の形状は大きく異なるわけではなく、遅延係数を変化させることで試験結果の破過曲線のある程度再現できている。しかし、非収着性トレーサーの解析結果でも示したように、拡散係数の異なる蛍光染料と  $\delta D$  の破過曲線がほぼ一致していることや、動水勾配が仮に 0% であっても割れ目モデルと複合モデルの破過曲線はほぼ一致することを考慮すると、収着性トレーサーの破過曲線についても拡散の影響は少なく、割れ目モデルによる評価解析結果が妥当であると考えられる。



複合モデル :  $De=1.0e-14m^2/sec$



複合モデル :  $De=1.0e-12m^2/sec$



割れ目モデル (マトリクス拡散なし)

図 6.7.1-14 15S37M10 の収着性トレーサーの解析結果 (複合モデル)

## 6.7.2 孔間トレーサー試験の評価解析

### 6.7.2.1 原位置試験の評価解析

ここでは、現地で行った孔間トレーサー試験により得られた揚水孔側での非収着性トレーサーのウランと収着性トレーサー $Rb^+$ の破過曲線を数値解析により再現し、物質移行に関わるパラメーターを同定する。非収着性トレーサーの破過曲線からは割れ目の開口幅と分散長を同定し、収着性トレーサーの破過曲線からは収着特性を同定する。ただし、6種類のトレーサーをすべて用いて長時間の試験を行ったのは、12MI31号孔を注入孔とした15W3137T5試験、15W3137T8試験、13MI37号孔を注入孔とした15W3731T10試験の計3回であるが、12MI31号孔を注入孔とした試験については、より高い回収率の得られた15W3137T8試験のみ解析を行った。15W3731T10試験では試験初期において回収孔の $Rb^+$ の濃度に明らかにそれ以前に実施した試験の影響が見られたため、 $Rb^+$ の収着特性の同定は15W3137T8試験のみについて行った。また、より収着性の強い $Ba^{2+}$ についてはいずれの試験においても有意な破過曲線を取得することができなかつたため、 $Ba^{2+}$ については解析を実施しなかつた。

注水や揚水により生じる地下水流れに比べてバックグラウンドの地下水流れが十分に小さい場合には、非収着性トレーサーの回収率はほぼ100%になることが期待される。そのような場合には、バックグラウンドの地下水流れを無視して、注水や揚水により生じる地下水流れのみを考慮して破過曲線の評価解析を行えばよい。しかし、実際にはウランの回収率は、15W3137T8試験では600分経過後に53.8%、15W3731T10試験では600分後に63.3%であった。そのため、孔間トレーサー試験の評価解析では、バックグラウンドの地下水流れの影響についても考慮することとした。

昨年度までの孔間トレーサー試験の評価解析を通じて、バックグラウンドの地下水流れに比べて、割れ目の開口幅や分散長が孔間トレーサー試験の回収率に与える影響は小さいことがわかっている。そのため、ウランの移行に関する評価解析は、以下の手順により実施した。

- ①割れ目の開口幅や分散長を適当な値に設定し、15W3137T8試験と15W3731T10試験時のウランの移行に関する数値シミュレーションをバックグラウンドの地下水流れの方向と大きさをパラメーターとして実施し、ウランの回収率が実測値に一致するバックグラウンドの地下水流れの方向と大きさを試行錯誤的に同定した。
- ②①で得られたバックグラウンドの地下水流れの方向と大きさの下で、ウランの移行に関する数値シミュレーションを割れ目の開口幅と分散長をパラメーターとして実施し、ウランの破過曲線が試験結果に最も良く一致する割れ目の開口幅と分散長を試行錯誤的に同定した。その際、Gelhar(1992)に基づき、横分散長は縦分散長の10分の1とした。
- ①と②の手順を繰り返し、バックグラウンドの地下水流れの方向と大きさ、割れ目の開口幅と分散長を推定する。

解析では、単一の割れ目を想定し、解析領域は一辺の長さが30mの正方形とする。解析に使用した



有限要素メッシュを図 6.7.2-1、図 6.7.2-2 に示す。割れ目の中心付近に注水孔 1 本と揚水孔 1 本を配置している。ボーリングの直径は 86 mm で、孔間距離は 2.93 m である。ボーリング孔の周辺は、要素を細分化した。単一割れ目は 2 次元の四角形要素で表現し、節点数 38,768、要素数 38,685 である。一方、割れ目に隣接する岩石基質は 14 層の六面体要素で表現し、要素数は  $38,685 \times 14 = 541,590$  である。

割れ目の開口部分について、間隙率は 100 %とした。一方、國丸他(2012)は瑞浪超深地層研究所の種々のタイプの割れ目近傍の岩石試料に対し間隙率を測定しているが、今回のトレーサー試験の対象割れ目はそのうちのタイプ IV の割れ目と考えられ、岩石基質の間隙率は 0.3 %に設定した。自由水中のウランの分子拡散係数は、Autio et al. (2003)に基づき  $4.5 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{sec}$  とした。岩石基質におけるウランの実効拡散係数は、國丸他(2012)のタイプ IV の割れ目近傍の岩石試料を用いた拡散試験の結果から  $6.93 \times 10^{-14} \text{ m}^2/\text{sec}$  とした。

解析には、単孔トレーサー試験の評価解析と同様に、(一財)電力中央研究所が開発した岩盤中地下水流動・物質移行解析コード FEGM を用いる。

ウランの移行に関する数値シミュレーションの結果、図 6.7.2-3 に示すように、13MI37 号孔から 12MI31 号孔へ向かう方向に対し 55.8 度回転させた方向に、割れ目面に平行な単位幅あたり 12.6 mL/min のバックグラウンドの地下水流れがある場合に、600 分経過後の回収率が実測値に一致した。また、このバックグラウンドの地下水流れの下で計算した 15W3137T8 試験と 15W3731T10 試験の割れ目内での地下水流速の分布を図 6.7.2-4 および図 6.7.2-5 に示す。いずれの図においても、バックグラウンドの地下水流れと、トレーサー試験時の強制的な注水と揚水がつくる流れとが釣り合って生じる澱み点が見られる。注水孔や揚水孔から見てこの澱み点から離れた場所に流れたトレーサーは回収されないことになる。

また、15W3137T8 試験では、割れ目の開口幅を 0.3 mm、縦分散長を 2.5 m (横分散長は 0.25 m) とした場合に、数値シミュレーションによる揚水孔でのウランの破過曲線は試験結果に最も良く一致した(図 6.7.2-6)。一方、15W3731T10 試験では、割れ目の開口幅を 0.55 mm、縦分散長を 0.5 m (横分散長は 0.05 m) とした場合に、ウランの破過曲線は試験結果に最も良く一致した(図 6.7.2-7)。高解像度のボアホール TV を用いた孔壁観察によれば、試験対象割れ目の開口幅は 12MI31 号孔で 0.15 mm、13MI37 号孔で 0.7 mm であり、数値シミュレーションによる同定値はいずれもこれらの範囲に収まっている。また、同定された縦分散長は 2.5 m と 0.5 m と開きがあるが、孔間距離 2.93 m のそれぞれ 85 %と 17 %に相当し、Gelhar(1992)による移行距離と縦分散長との関係と調和的である。15W3137T8 試験では 12MI30 号孔を投入孔、13MI37 号孔を揚水孔とし、比較的にバックグラウンドの地下水流れに逆らう方向での試験であり、15W3731T10 試験ではバックグラウンドの地下水流れに沿う方向での試験であった。両試験の分散長の同定値の違いは、トレーサー時の強制的な流れの方向とバックグラウンド

の地下水流れの向きとの関係に起因する可能性がある。

続いて、15W3137T8 試験の吸着性トレーサー $\text{Rb}^+$ の評価解析を実施した。自由水中の $\text{Rb}^+$ の分子拡散係数は、Gray(1972)に基づき $2.03 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{sec}$ とした。國丸他(2012)のタイプ IV の割れ目近傍の岩石試料を用いた拡散試験によれば、同じ 1 価の陽イオンである $\text{Cs}^+$ の実効拡散係数は $1.10 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{sec}$ であった。自由水中の $\text{Cs}^+$ の分子拡散係数は $2.02 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{sec}$ であるため、分子拡散係数に比例して $\text{Rb}^+$ の実効拡散係数は $1.11 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{sec}$ に設定した。真密度は、國丸他(2012)のタイプ IV の割れ目近傍の岩石試料の値である $2650 \text{ kg}/\text{m}^3$ とした。昨年度、瑞浪の健岩部のディスク状の試料を用いて実施したバッチ吸着試験では、 $\text{Rb}^+$ の分配係数は $8.5 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{kg}$ であった。一方、國丸他(2012)のタイプ IV の割れ目近傍の岩石試料を用いた拡散試験によれば、 $\text{Cs}^+$ や $\text{Sr}^{2+}$ の分配係数は健岩部の約 1.3 倍の数値であった。そのため、ここでは $\text{Rb}^+$ の岩石基質に対する分配係数を $1.1 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{kg}$ に固定し、 $\text{Rb}^+$ の充填鉱物を含む割れ目表面への吸着係数を数値シミュレーションにより同定することとした。割れ目の開口幅、分散長については、15W3137T8 試験のウラニンの評価解析で同定された値を使用した。

15W3137T8 試験では、表面吸着係数を $2.8 \times 10^{-3} \text{ m}$ とした場合に、数値シミュレーションによる揚水孔での $\text{Rb}^+$ の破過曲線は試験結果に最も良く一致した(図 6.7.2-8)。この表面吸着係数の値は、割れ目表面への吸着だけでなく割れ目充填鉱物への吸着の効果も含んだものと考えられる。

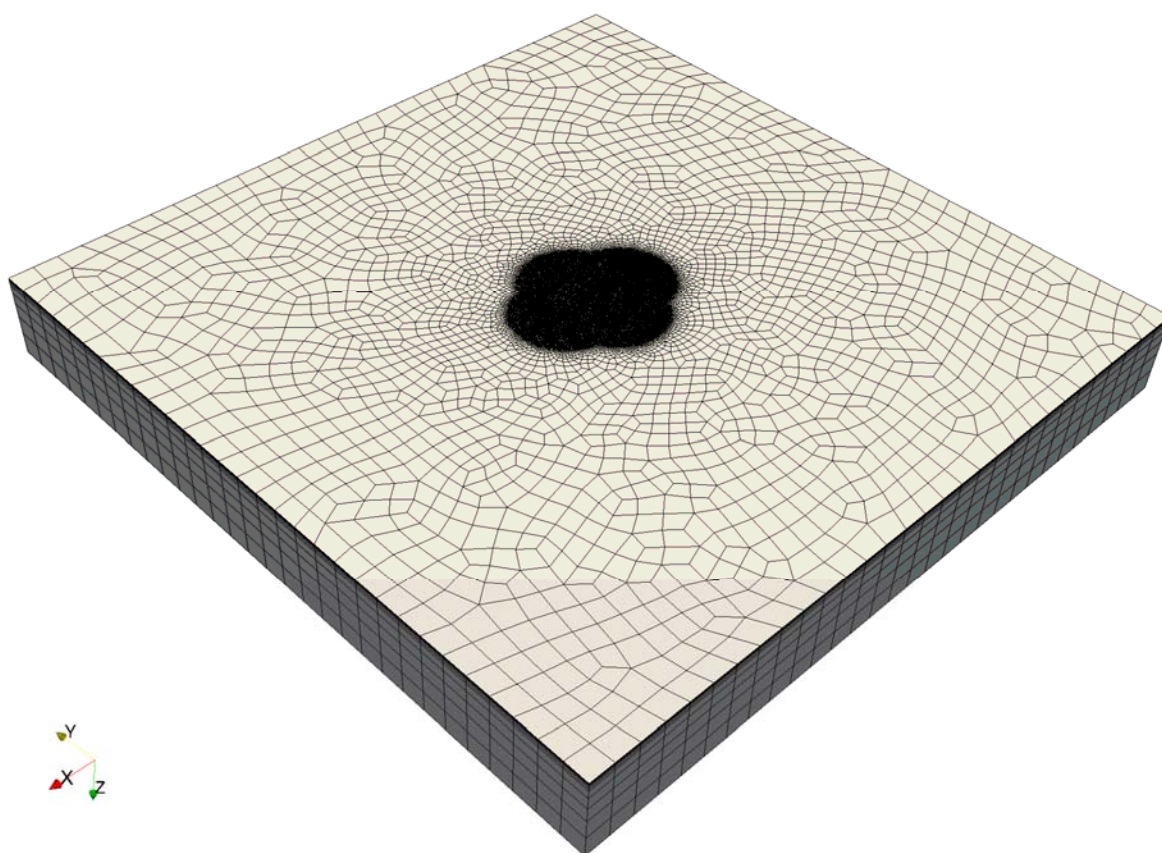


図 6.7.2-1 解析モデル (全体図)

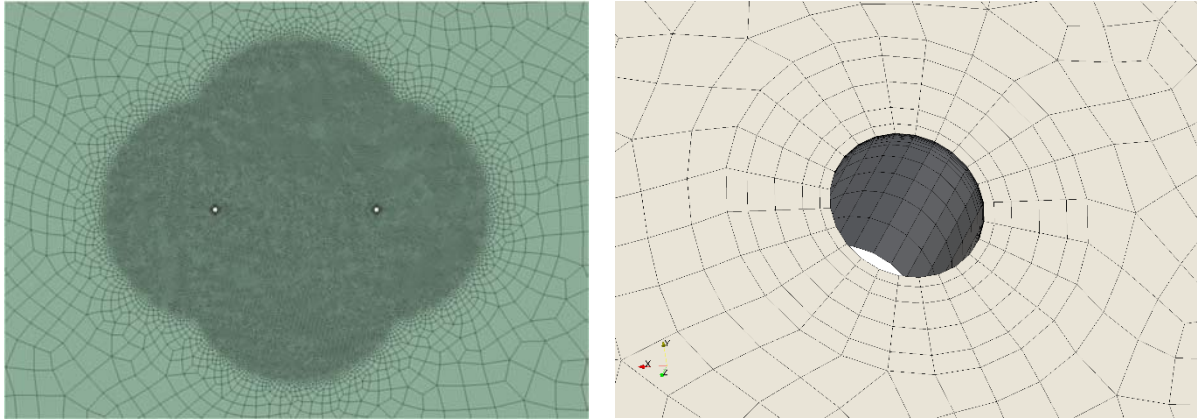


図 6.7.2-2 解析モデル（拡大図）

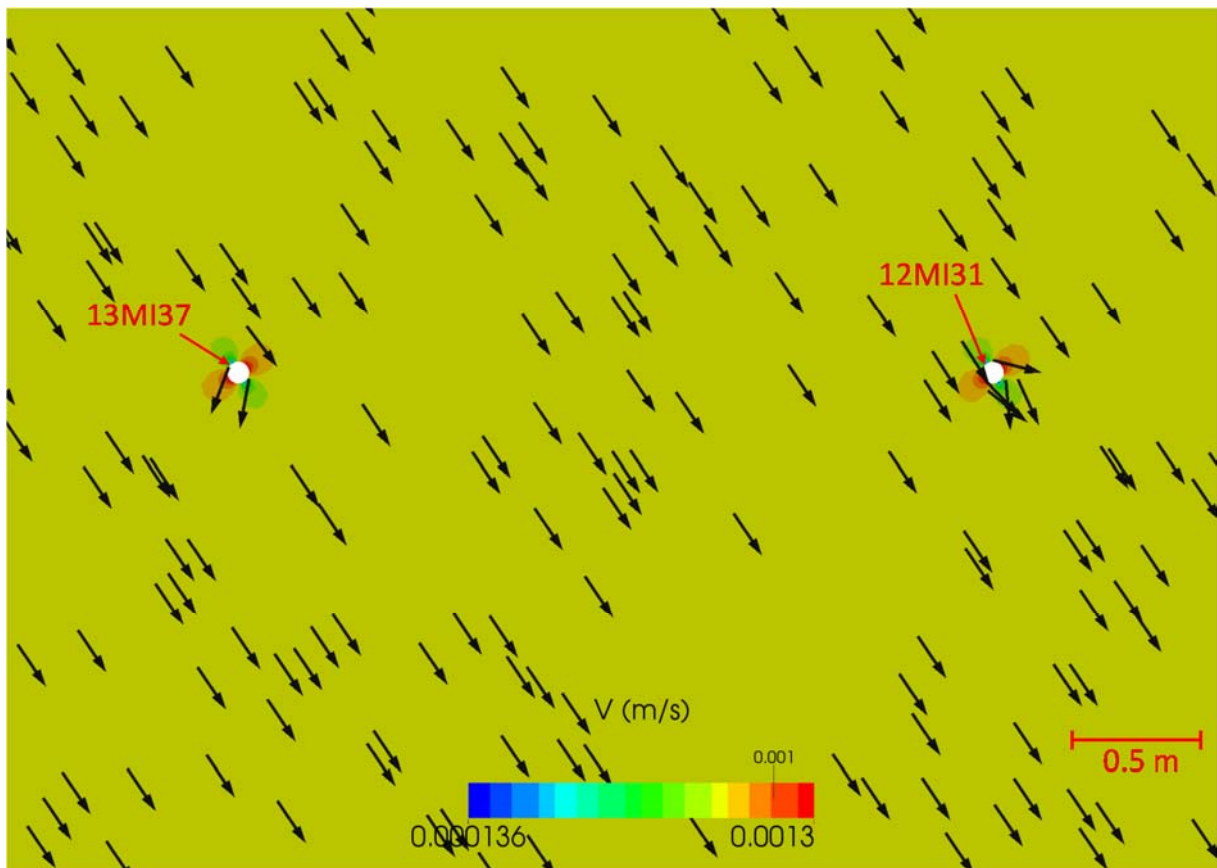


図 6.7.2-3 割れ目内のバックグラウンドの地下水流れの推定結果

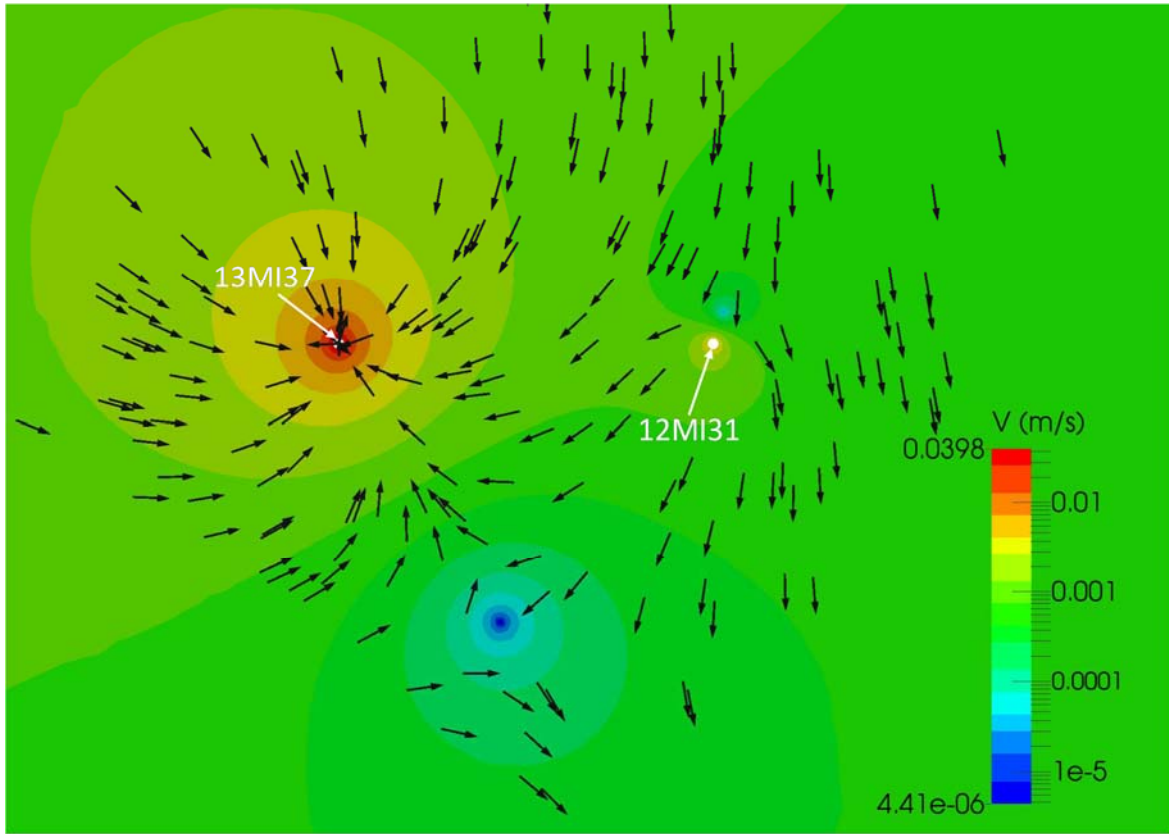


図 6.7.2-4 割れ目内の地下水流速分布の推定結果 (15W3137T8 試験)

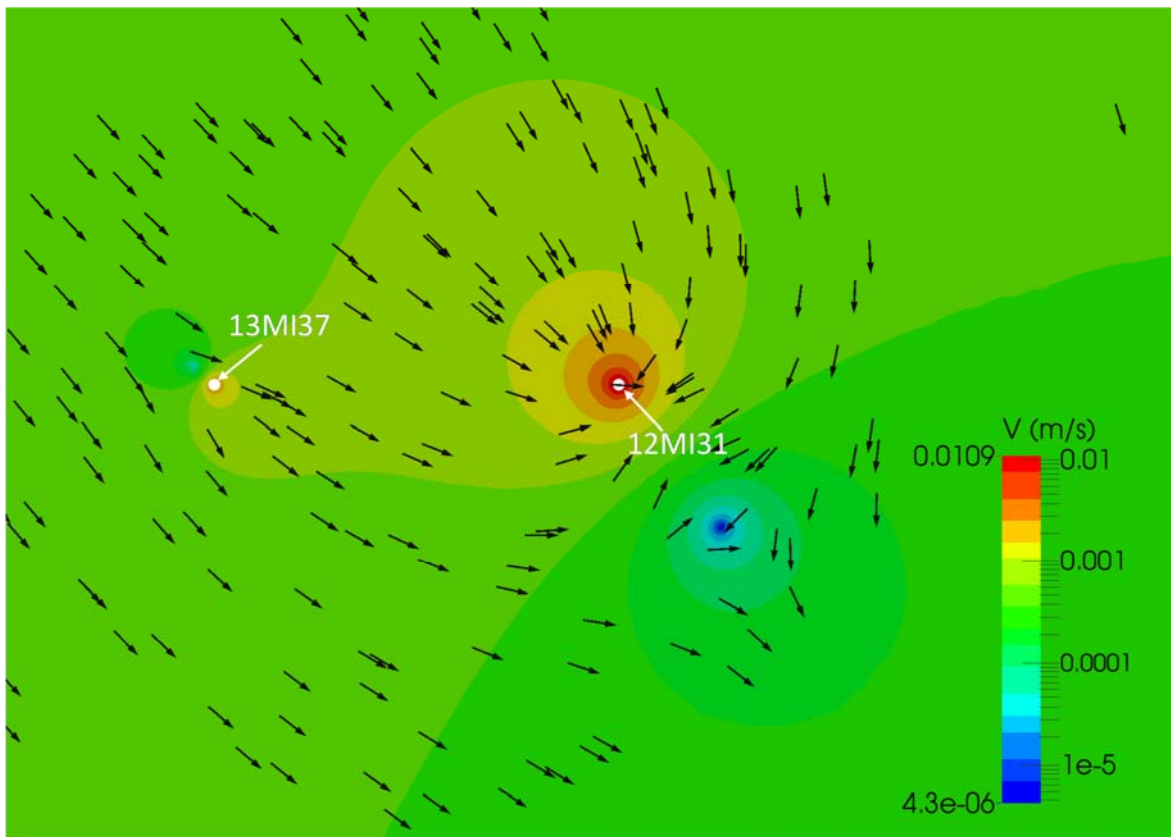


図 6.7.2-5 割れ目内の地下水流速分布の推定結果 (15W3731T10 試験)

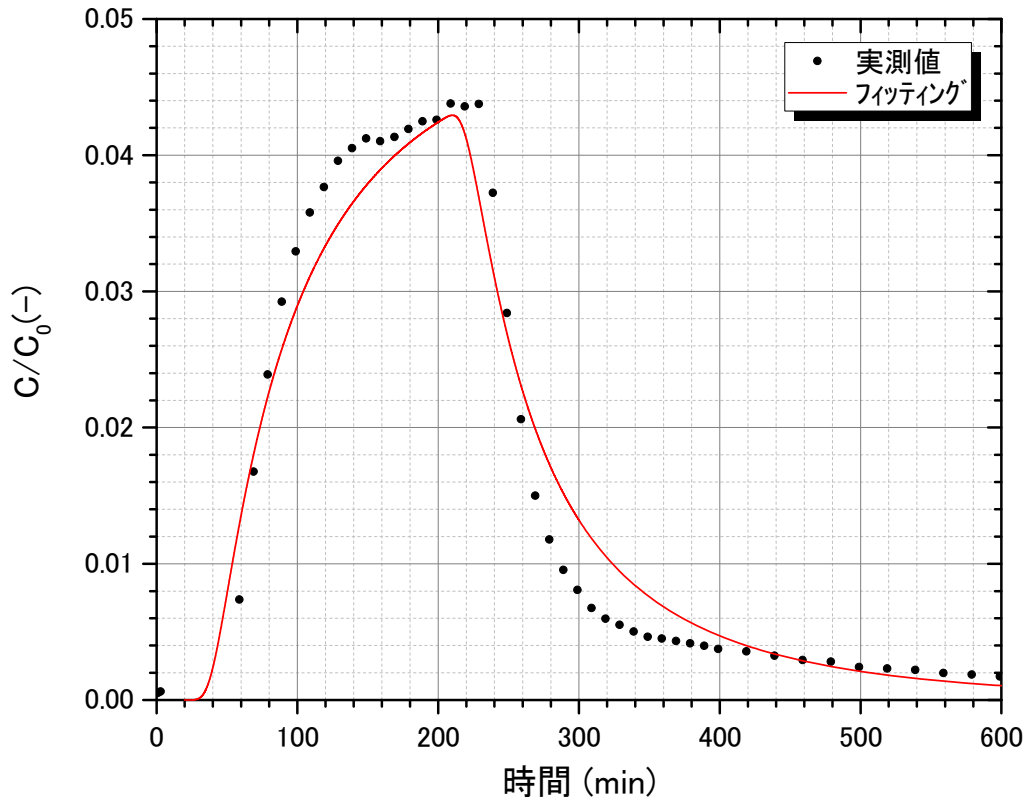


図 6.7.2-6 ウラニンの破過曲線のフィッティング (15W3137T8 試験)

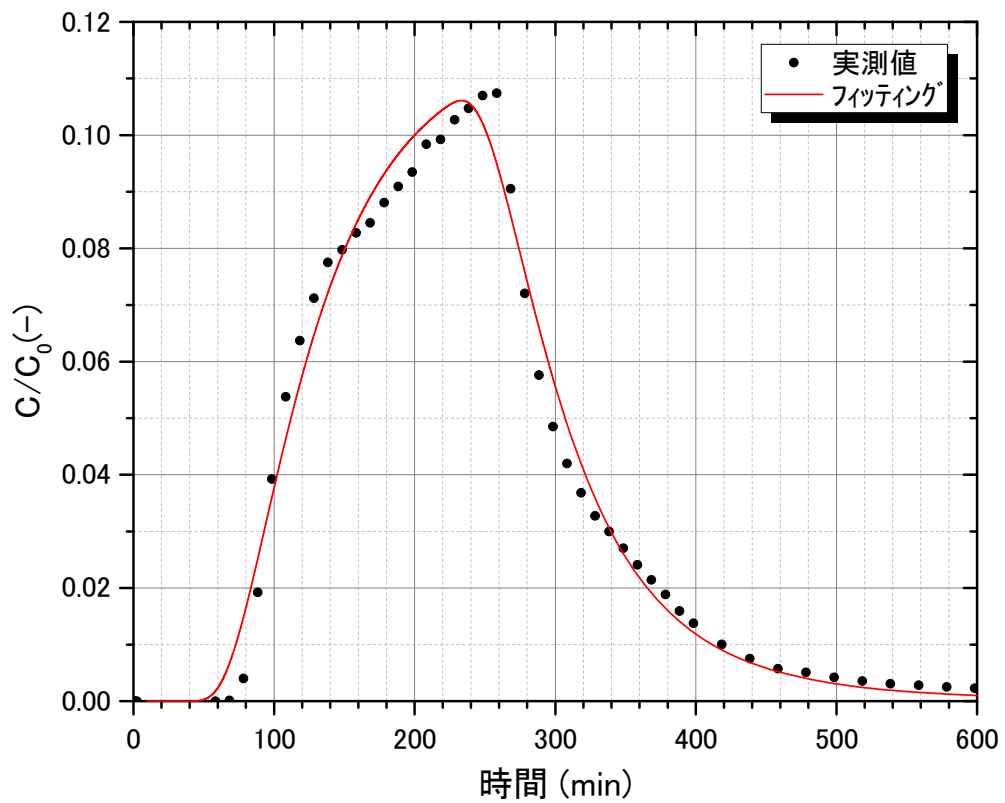


図 6.7.2-7 ウラニンの破過曲線のフィッティング (15W3731T10 試験)

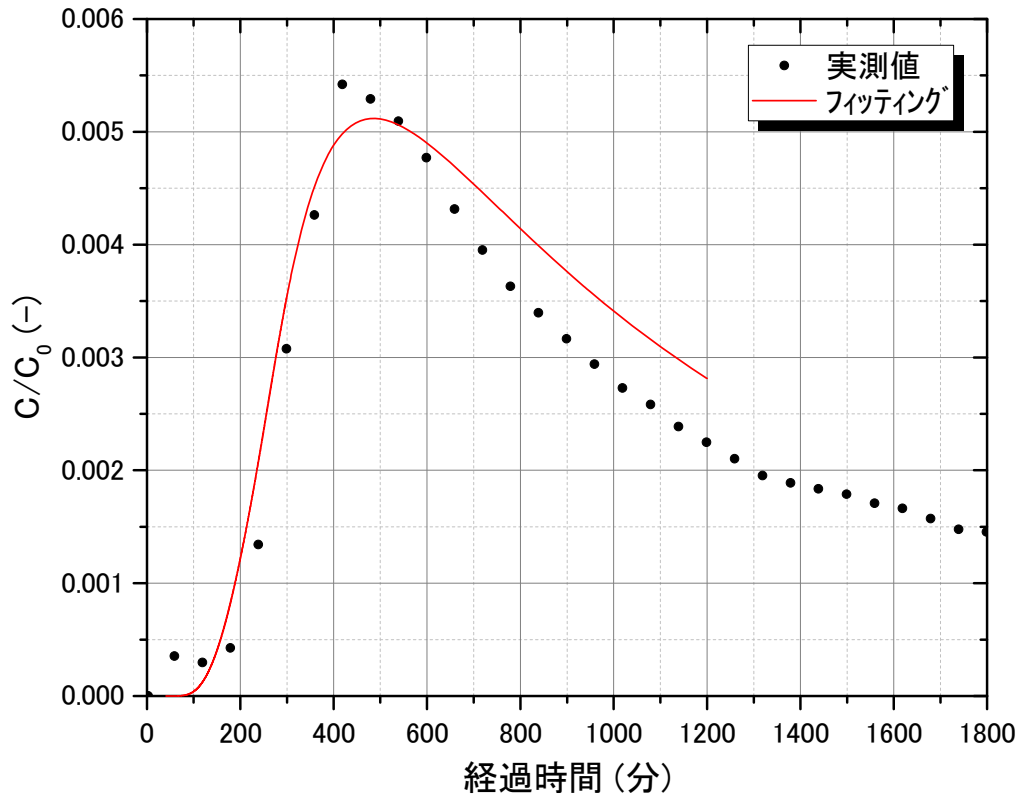


図 6.7.2-8 Rb<sup>+</sup>の破過曲線のフィッティング (15W3137T8 試験)

### 6.7.2.2 交差割れ目の影響評価解析

トレーサー試験の対象割れ目に他の割れ目が交差した場合に、揚水孔の濃度破過曲線に与える影響について評価解析を行った。

試験対象割れ目は一辺の長さが 30 m の水平な正方形とした。試験対象割れ目には、中央付近に 3 m の間隔で注水孔と揚水孔を設定した。一方、交差割れ目は高さ 30 m の鉛直な正方形あるいは長方形とした。交差位置としては、注水孔と揚水孔の中間で交差する場合（図 6.7.2-9）、揚水孔を挟んで注水孔とは反対側で揚水孔から 3 m の距離で交差する場合（図 6.7.2-10）の 2 通りを考えた。交差割れ目の横幅は、30 m で試験対象割れ目と横方向に完全に一致する場合、15 m で注水孔と揚水孔を結ぶ線分より片側だけで交差する場合、13.5 m で注水孔と揚水孔を結ぶ線分よりさらに 1.5 m 外れた位置より外側だけで交差する場合の 3 通りを想定した。

試験対象割れ目の透水量係数は  $1 \times 10^{-7}$  m<sup>2</sup>/sec、開口幅は 0.5 mm とした。一方、交差する割れ目の透水量係数は  $1 \times 10^{-7}$  m<sup>2</sup>/sec、 $1 \times 10^{-8}$  m<sup>2</sup>/sec、 $1 \times 10^{-9}$  m<sup>2</sup>/sec、 $1 \times 10^{-10}$  m<sup>2</sup>/sec の 4 通りを想定したが、開口幅はすべて 0.5 mm とした。

注水流量は 50 ml/min、揚水流量は 100 ml/min とし、注水孔からは 10 分間、非収着性トレーサーであるウラニンを一定濃度で注入するものとした。割れ目の縦分散長は孔間距離の 1/10 の 0.3 m、横分散長は孔間距離の 1/100 の 0.03 m とした。

解析に使用した有限要素メッシュを図 6.7.2-11、図 6.7.2-12 に示す。試験対象割れ目の周囲はすべて全水頭をゼロに設定した。一方、交差割れ目は、上下の水平境界は全水頭ゼロとし、鉛直境界は不透水に設定した。

注水孔と揚水孔の中間で割れ目が交差する場合の評価解析結果について述べる。交差割れ目の透水量係数が  $1 \times 10^{-7}$  m<sup>2</sup>/sec の場合には、図 6.7.2-13 に示すように、ピーク濃度は横幅 30 m の割れ目では交差割れ目が無い場合の 74 % となるが、横幅 15 m の割れ目では 85 % と影響は小さくなり、横幅 13.5 m の割れ目では 98 % と影響は非常に小さい。交差割れ目の透水量係数が  $1 \times 10^{-8}$  m<sup>2</sup>/sec の場合には、横幅 30 m の割れ目でもピーク濃度は交差割れ目が無い場合の 89 % と影響は弱まり、横幅 15 m の割れ目では 94 %、横幅 13.5 m の割れ目では 99.8 % と影響はほぼ無くなる（図 6.7.2-14）。交差割れ目の透水量係数が  $1 \times 10^{-9}$  m<sup>2</sup>/sec の場合には、横幅 30 m の割れ目でもピーク濃度は交差割れ目が無い場合の 96 % と影響は非常に弱まり（図 6.7.2-15）、交差割れ目の透水量係数が  $1 \times 10^{-10}$  m<sup>2</sup>/sec の場合には、横幅 30 m の割れ目でもピーク濃度は 98.6 % と交差割れ目の影響はほぼなくなる（図 6.7.2-16）。

次に、注水孔から見て揚水孔の反対側で割れ目が交差する場合の評価解析結果について述べる。交差割れ目の透水量係数が  $1 \times 10^{-7}$  m<sup>2</sup>/sec の場合でも、図 6.7.2-17 に示すように、ピーク濃度は横幅 30 m の割れ目で交差割れ目が無い場合の 94 %、横幅 15 m の割れ目で 96 %、横幅 13.5 m の割れ目で 97 % と影響は小さい。交差割れ目の透水量係数が  $1 \times 10^{-8}$  m<sup>2</sup>/sec の場合（図 6.7.2-18）には、ピーク濃度

は横幅 30 m の割れ目で交差割れ目が無い場合の 98.8 %、横幅 15 m の割れ目で 99.4 %、横幅 13.5 m の割れ目で 99.6 % となり、交差割れ目の透水量係数が  $1 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{sec}$  (図 6.7.2-19) や  $1 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{sec}$  (図 6.7.2-20) の場合には、横幅 30 m の割れ目でも影響はほぼゼロとなる。

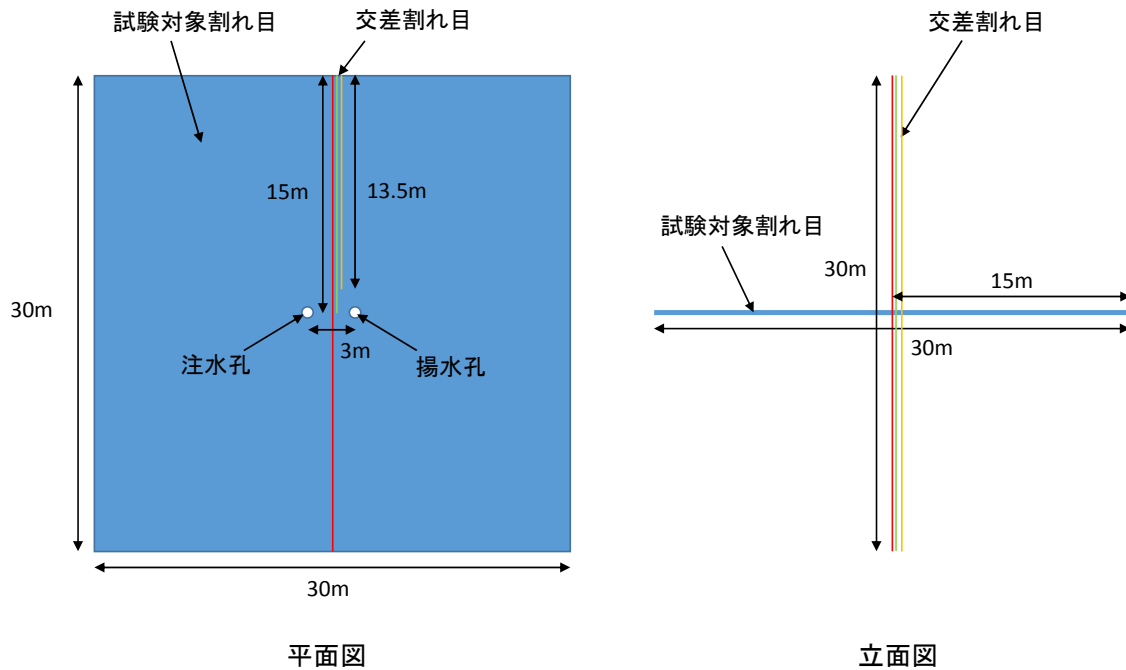


図 6.7.2-9 割れ目が注水孔と揚水孔の中間で交差する場合

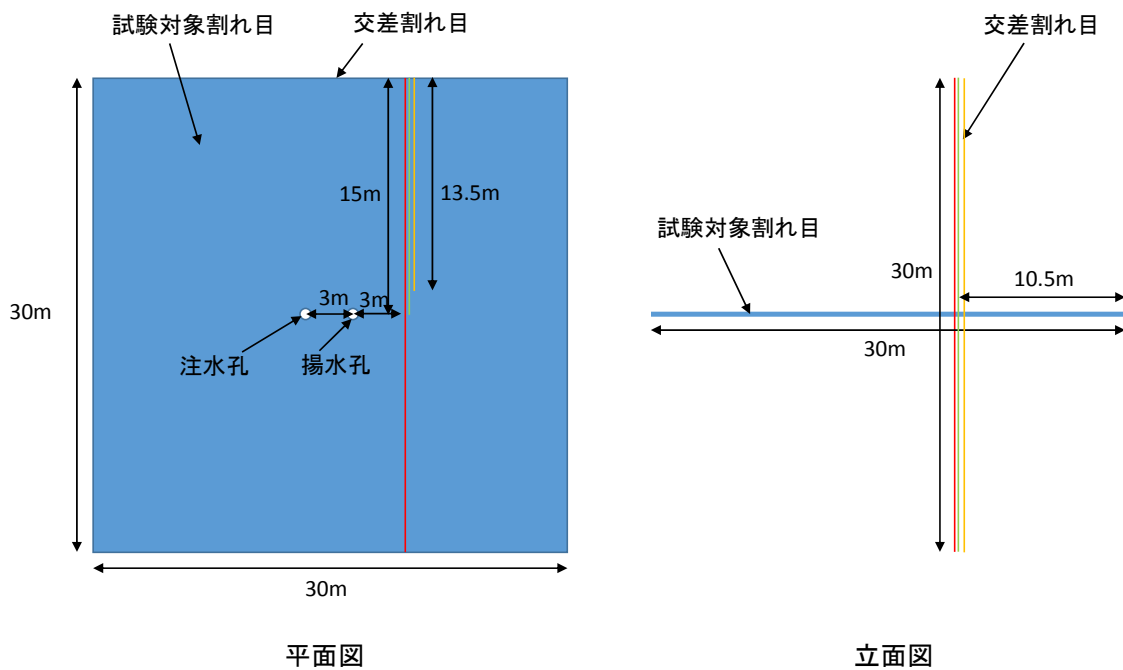
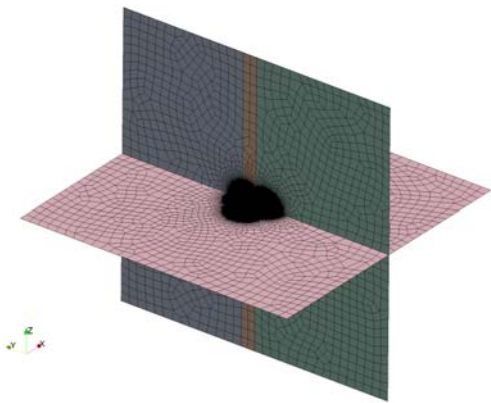
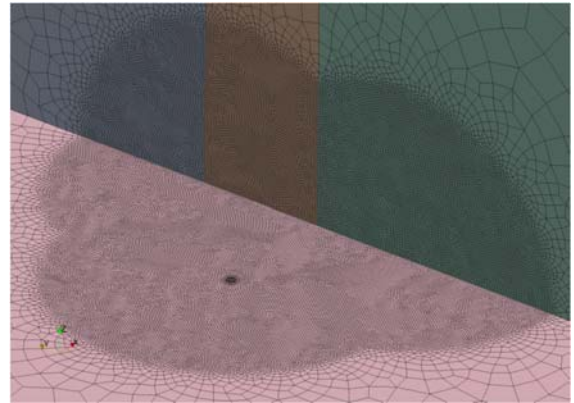


図 6.7.2-10 割れ目が揚水孔の反対側で交差する場合



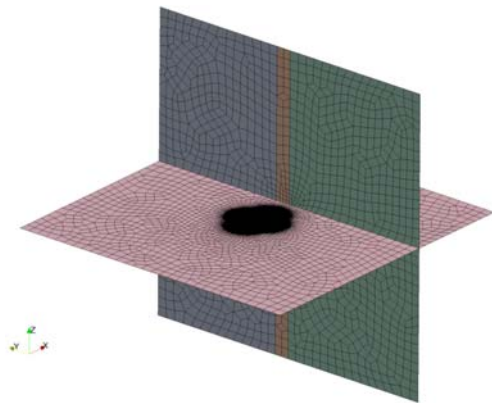


(a) 全体図

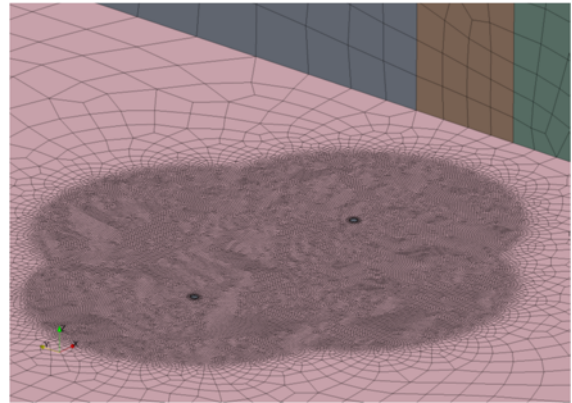


(b) 孔付近

図 6.7.2-11 解析に使用した有限要素メッシュ（割れ目が注水孔と揚水孔の中間で交差する場合）



(a) 全体図



(b) 孔付近

図 6.7.2-12 解析に使用した有限要素メッシュ（割れ目が揚水孔の反対側で交差する場合）

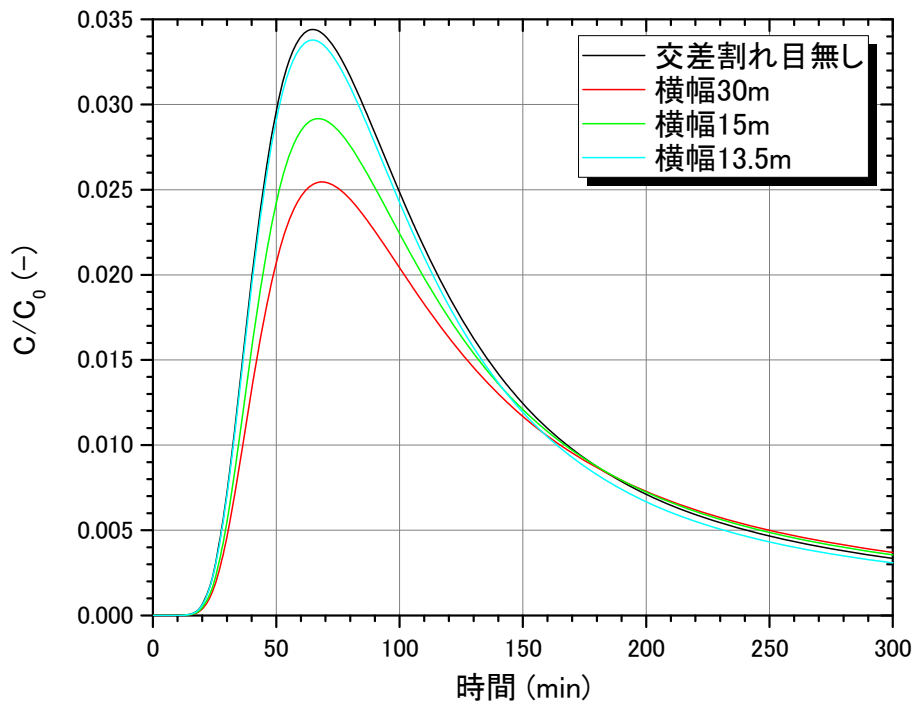


図 6.7.2-13 割れ目が注水孔と揚水孔の中間で交差する場合 (透水量係数:  $1 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{sec}$ )

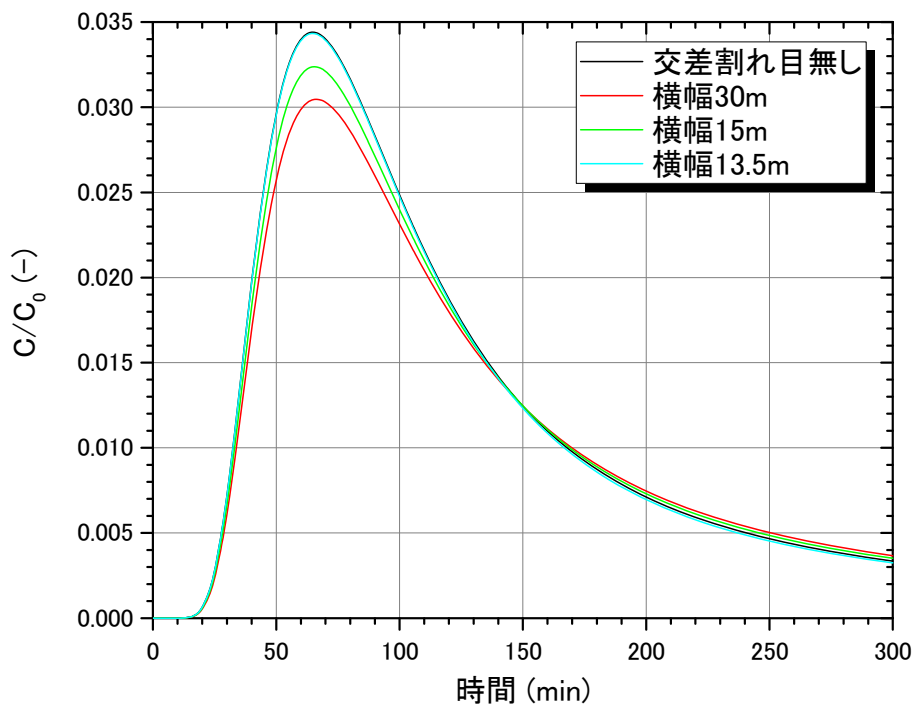


図 6.7.2-14 割れ目が注水孔と揚水孔の中間で交差する場合 (透水量係数:  $1 \times 10^{-8} \text{ m}^2/\text{sec}$ )

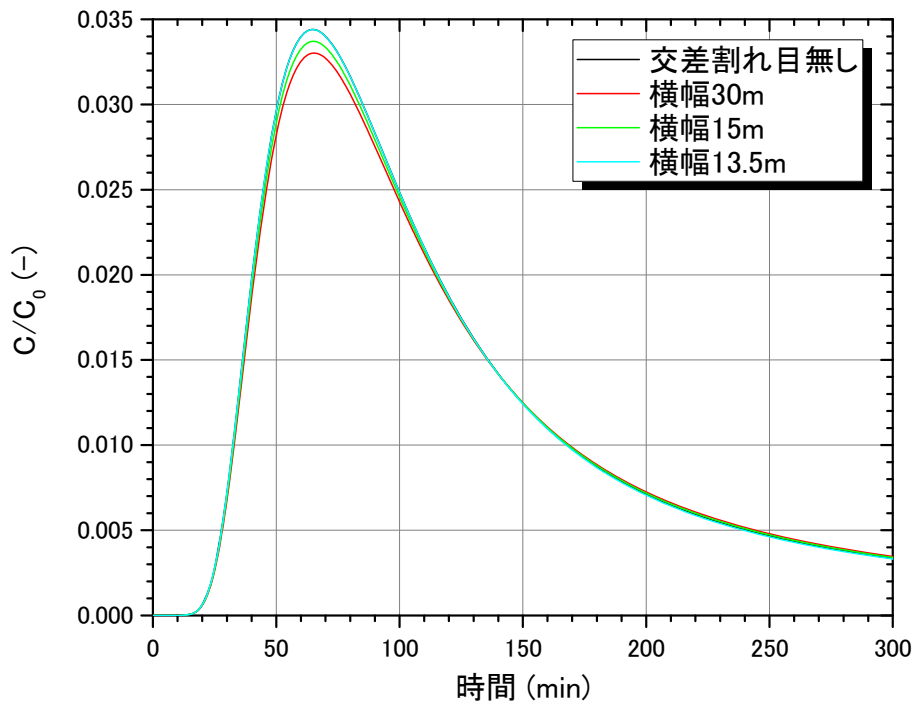


図 6.7.2-15 割れ目が注水孔と揚水孔の中間で交差する場合 (透水量係数 :  $1 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{sec}$ )

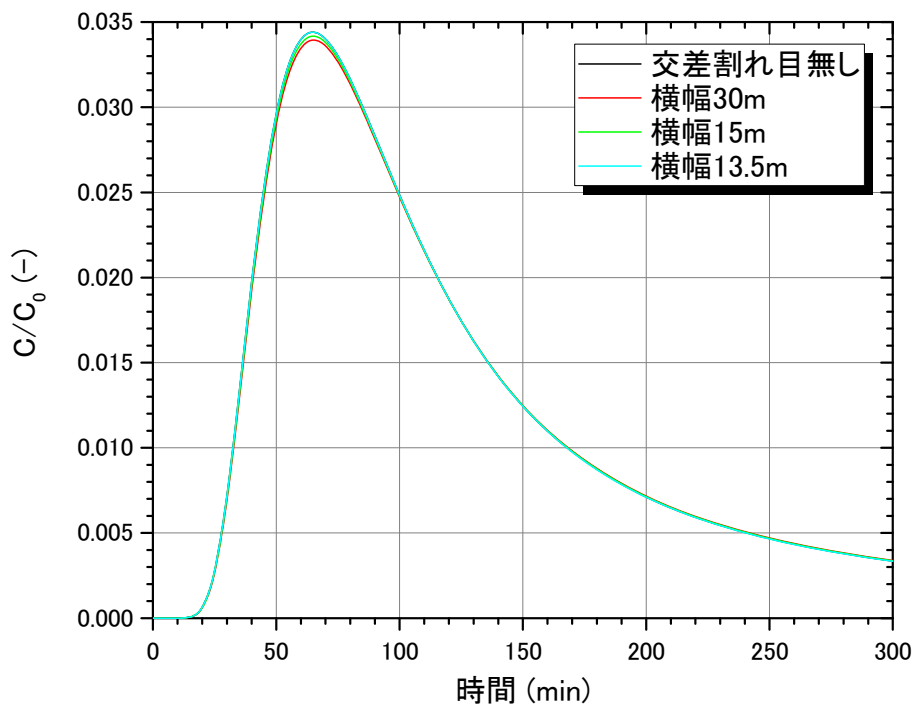


図 6.7.2-16 割れ目が注水孔と揚水孔の中間で交差する場合 (透水量係数 :  $1 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{sec}$ )

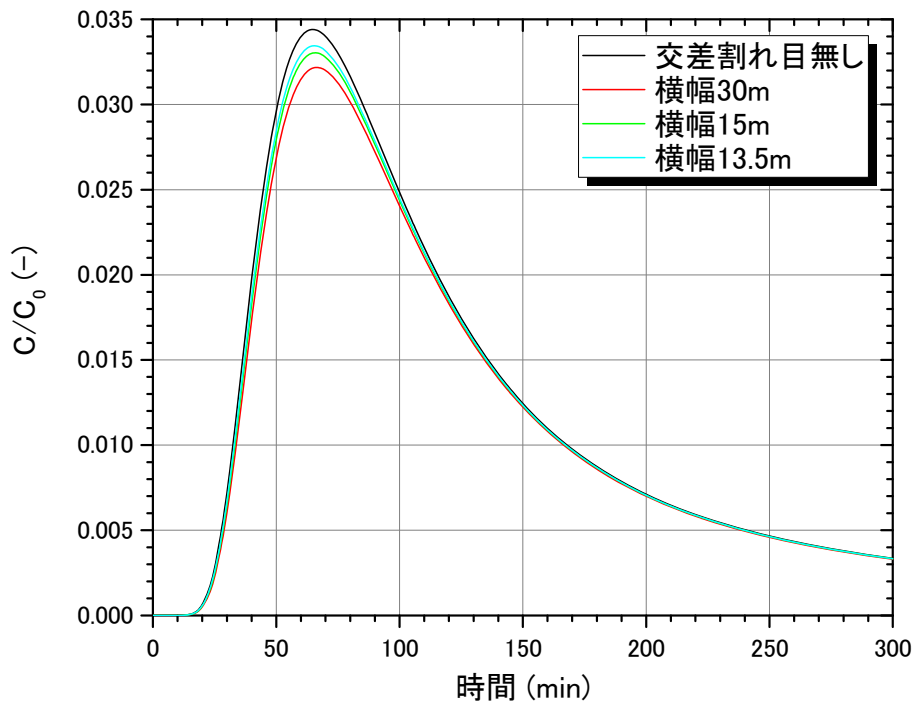


図 6.7.2-17 割れ目が揚水孔の反対側で交差する場合 (透水量係数:  $1 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{sec}$ )

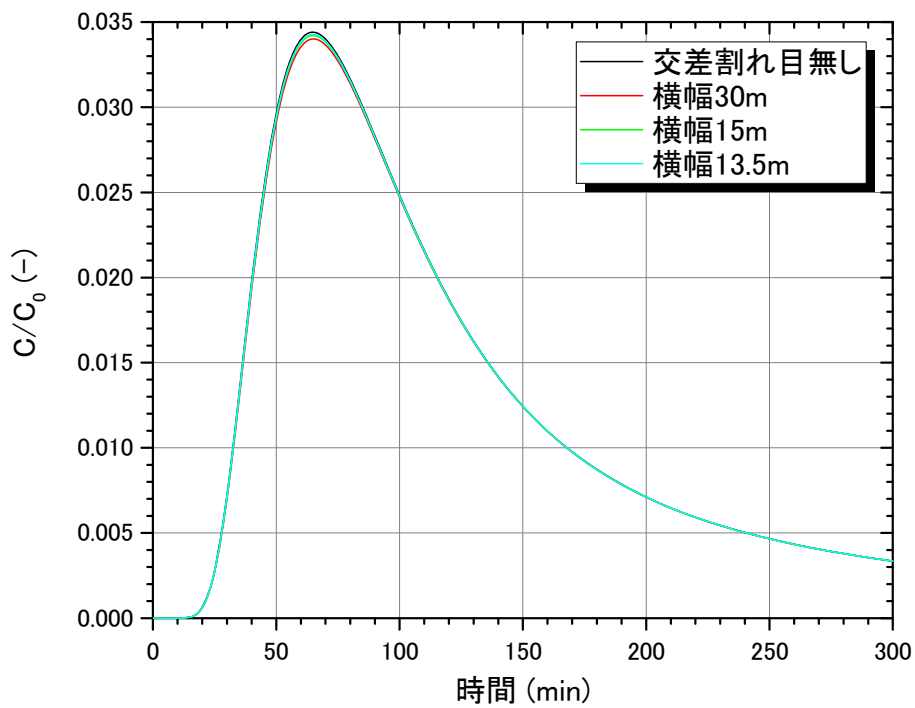


図 6.7.2-18 割れ目が揚水孔の反対側で交差する場合 (透水量係数:  $1 \times 10^{-8} \text{ m}^2/\text{sec}$ )

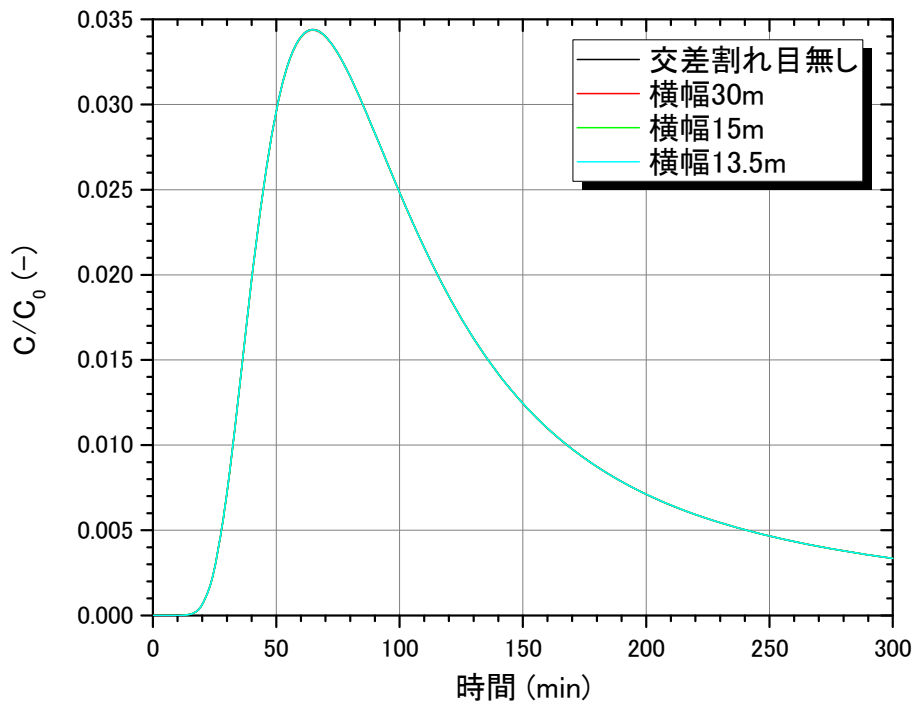


図 6.7.2-19 割れ目が揚水孔の反対側で交差する場合 (透水量係数 :  $1 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{sec}$ )

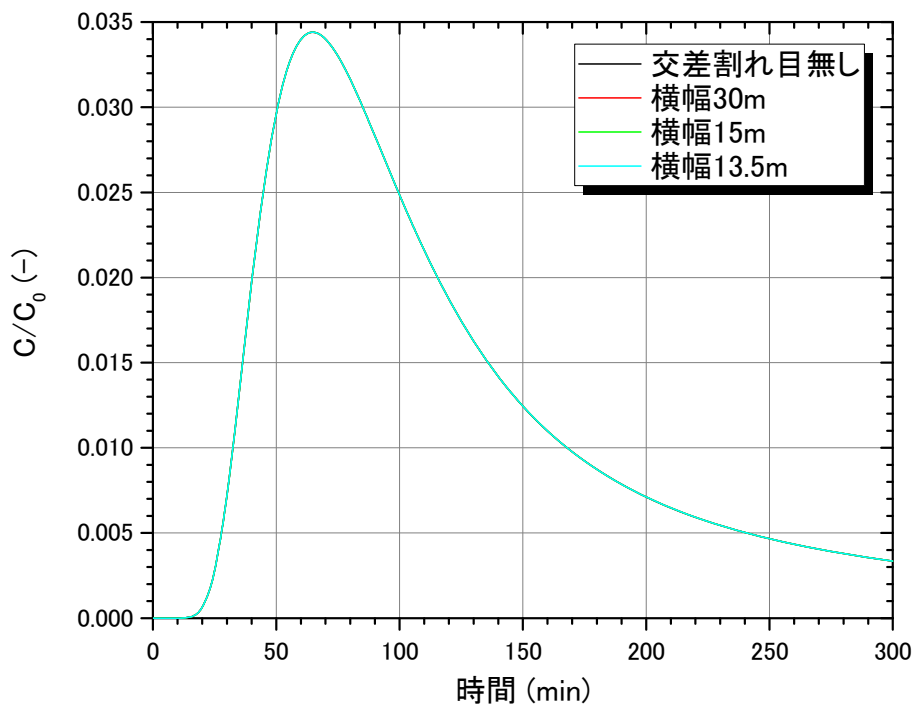


図 6.7.2-20 割れ目が揚水孔の反対側で交差する場合 (透水量係数 :  $1 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{sec}$ )

## 6.8 まとめと今後の課題

国内におけるトレーサー試験装置の適用性試験として、JAEA 瑞浪超深地層研究所の深度 300mボーリング横坑に掘削された 12MI31 号孔、13MI37 号孔の 2 孔を対象とし、単孔トレーサー試験および孔間トレーサー試験を実施した。

### 6.8.1 トレーサー試験装置の適用性確認

昨年度に判明した課題に対する対策項目について原位置で適用性確認を行った。

#### (1) ウラニン原液作成方法の変更

ウラニンとアミノG酸の原液を別々に作成し、それぞれを希釈した後に混合して使用するようにしたところ、沈殿や濁り等の問題は解消した。

#### (2) 孔内用光ファイバーの保護方法とロッド径の変更

ロッドには従来より太い内径 50.5mm のものを使用し、光ファイバー保護用として外径 39.3mm－内径 32.6mm の蛇腹管を用いた。光ファイバーとチューブの養生および蛇腹管への収納作業は、原位置試験前に屋外で実施した。この結果、2 孔とも光ファイバーを損傷することなく孔内装置を設置することができ、現地での挿入作業も効率的に行うことができた。

#### (3) 光ファイバーの接続箇所数の変更

光ファイバーの接続箇所を 10 カ所から 4 カ所に減らした結果、光源から分光器までの蛍光強度のロスが減り、0.1mg/L 未満の低濃度の計測ができるようになった。

#### (4) 中間パッカーの設置

孔口パッカーの設置深度を孔ロケーシング直下にし、ピストンパッカーと孔口パッカーの間に中間パッカーを設けた結果、周辺孔を含めた水理場の安定状況が大幅に改善した。

一方、今年度の適用性試験の結果、新たに顕在化した問題点とその対策について以下に示す。

#### (1) 蛍光濃度センサーについて

試験孔内に設置した蛍光濃度センサーによる計測の一部で、バルブの切り替え時に蛍光強度が変化する、また安定した状態であるにもかかわらず蛍光強度が変動するといった挙動が見られた。

これらの挙動は特定の蛍光濃度センサーでのみ確認されていることから、各センサーの特性に原因があると考えられる。これについては、圧力あるいは温度による影響の有無を室内試験で検証する必要があると考えられる。

#### (2) 6 方バルブの作動不良

1 号機、2 号機ともに作動不良等により、正常な使用ができなかった。

解体して調べたところ、1 号機はピストンシャフトの O リングの破損、2 号機はピストンシャフトの固結による作動不良と判明した。1 号機のトラブルの原因は地下水中の微粒子による O リングの破損（切断）、2 号機は O リングとピストンの馴染み不足と考えられる。

対策としては、バルブの取り付け位置を径の太いパッカー上部側へ移しバルブ径を拡大するなどしてピストンシャフトの O リングのサイズを大きくし強度を上げることが考えられる。フィルターの取り付けも有効と考えられるが、目詰まりが生じた場合に、フィルターを交換するために孔内装置を回収する必要が生じる。また、孔内装置を試験孔に設置する前後でバルブを適切な頻度で作動させ、バルブの固結を防ぐことが重要である。

## 6.8.2 トレーサー試験結果と評価解析

### (1) 単孔トレーサー試験

12MI31 号孔の 21.82~21.98mabh 区間および 13MI37 号孔の 23.04~23.24mabh 区間において単孔トレーサー試験を実施した。12MI31 号孔で行った試験では、注入流量が 20mL/min 程度であっても間隙水圧が 4MPa を越える可能性があったことや、注入時や揚水時に間隙水圧が不安定であったため、13MI37 号孔を中心に試験を行った。13MI37 号孔で行った試験のうち、待機時間を設けていない試験条件については、非収着性トレーサーの回収率は 80%以上となり、破過曲線の大部分において分析精度やバックグラウンド濃度等を考慮しても有意に高い濃度を得ることができた。一方で、待機時間を設けた試験条件については、待機時間を設けていない試験条件よりも回収率は低くなったが、240 分程度の待機時間を設けた場合であっても濃度のピークを判別することができる有意な破過曲線を得られることを確認した。原位置試験では、トレーサー注入量は同じであるが注入流量が異なる試験を行った。試験で得られた破過曲線を比較した結果、両者の破過曲線はほぼ一致した。バックグラウンド地下水流れの影響が大きい場合は、注入に要する時間が長いほど流されるトレーサー量が多くなり、両者の破過曲線は全く異なると考えられるため、今年度実施した試験においてはバックグラウンド地下水流れの影響は少なく、中間パッカーの効果が確認できた。

割れ目のみを考慮した割れ目モデルを用い、待機時間を設けていない試験条件について評価解析を行った。評価解析の結果、濃度の起ち上がり部分からピーク濃度付近までは破過曲線を良好に再現することができたが、テール部分の再現性がそれほど良くなく、試験結果の破過曲線を再現する集中定数と動水勾配の組み合わせが複数確認された。但し、割れ目幅を仮定して評価解析で得た集中定数から計算される縦分散長や、評価された遅延係数を総合的に検討した結果、集中定数は  $1.0 \times 10^{-3}$  程度である可能性が高いことを確認した。収着性トレーサーの評価解析では、 $Rb^+$  の遅延係数は 40~60 程度、 $Ba^{2+}$  の遅延係数は 140~220 程度という結果を得るとともに、複数の試験条件で近い結果となることを確認した。また、岩盤マトリクスへの拡散現象による破過曲線への影響を確認するため、割れ目と岩盤マトリクスを考慮した複合モデルを用いた解析を行い、割れ目モデルとの比較を行った。解析の結果、割れ目モデルによる解析結果と複合モデルによる解析結果はほぼ一致し、今回の試験結果において有意な拡散が生じている可能性は低く、割れ目モデ

ルによる評価が妥当であると考えられる。

今回の試験では、揚水流量を固定し、注入量は同じであるが注入流量が異なる試験条件を実施し、バックグラウンド地下水流れの影響を検証するとともに、試験の再現性についても確認することができた。但し、今回の評価結果のように、破過曲線の再現性がそれほど良くない場合、破過曲線を再現する動水勾配と集中定数の組み合わせが複数存在する事も考えられる。従って、揚水流量を変えた試験についても行い、異なるパターンの破過曲線についても評価解析を行い相互比較することができれば、評価されたパラメーターの信頼性はより高まると考えられる。今後は、待機時間を設けた試験条件についても評価解析を行い、今回得られた評価解析結果と比較して岩盤とトレーサーの接触時間の違いが遅延効果に与える影響について確認したいと考えている。

## (2) 孔間トレーサー試験

12MI31 号孔の 21.82~21.98mabh 区間と 13MI37 号孔の 23.04~23.24mabh 区間との間(孔間距離 2.93m)で、試験条件を変えた 10 種類のダイポール試験を実施した。

ケース間の比較により得られた破過曲線に関する特徴は、以下の通りである。

- ・注水・揚水区間が同一でダイポール比が異なる場合、破過曲線の形状は概ね相似となる。
- ・注水・揚水区間が逆になると、トレーサー注入条件が同じであっても、破過曲線の形状は異なる。これは割れ目内の透水性の不均質性に起因すると考えられる。
- ・試験を繰り返し行っても、試験対象割れ目内の透水性にほぼ変化はない。

今年度は、ピストンパッカーと孔口パッカーの間に中間パッカーを設けた結果、試験区間付近から孔口へ向かうような地下水の流れは防ぐことができたと考えられる。しかし、それ以外にも、試験区間周辺にはバックグラウンドの(自然状態での)地下水流れが存在し、孔間試験では単孔試験に比べてバックグラウンド流れの影響をより強く受ける。そのため、単孔試験に比べて回収率はより低く、非収着性のトレーサーでも回収率は多くの試験で 50%前後であった。特に、収着性のトレーサーでは回収率が低く、30 時間経過時点でも  $Rb^+$  で 21~34%程度であった。より収着性の強い  $Ba^{2+}$  では、回収率は 4~19%程度で、有意な破過曲線を得ることができなかった。

トレーサー試験の破過曲線を基に、数値シミュレーションによる評価解析を実施した。解析には、割れ目と周囲の岩石マトリクスを表現した 3 次元モデルを用い、割れ目内の移流分散現象に加えて岩石マトリクスへの拡散および収着現象を考慮した。まず、2 回の試験における非収着性トレーサーのウランの回収率から、バックグラウンドの地下水流れの方向と流量を推定した。バックグラウンドの地下水流れの方向は、2 つの試験区間を結ぶ線分を斜めに横切るような向きであった。また、流量は割れ目面に平行な単位幅あたり 12.6 mL/min で、単孔試験の評価結果と同程度の値であった。続いて、ウランの破過曲線の再現解析を通じて、割れ目の開口幅と分散長を同定した。割れ目の開口幅については、試験により異なる値が得られたが、いずれも高解像度のポアホール TV カメラによ



り観察された数値の範囲内であった。分散長についても、試験により異なる値が得られたが、いずれも Gelhar(1992)による移行距離と縦分散長との関係と調和的であった。両試験の分散長の同定値の違いは、トレーサー試験時の強制的な流れの方向とバックグラウンドの地下水流れの向きとの関係に起因する可能性がある。さらに、収着性トレーサーである  $Rb^+$  の破過曲線の再現解析を通じて、割れ目表面への収着特性を同定した。再現解析においては、岩石マトリクスへの分配係数には、室内試験の結果から推定された数値を設定した。再現解析により割れ目面への表面吸着係数を同定することができたが、その数値は割れ目充填鉱物への収着の効果も含まれているものと考えられる。

トレーサー試験の同定解析では、試験対象割れ目を単一の独立した割れ目としてモデル化した。しかし、実際には、試験対象割れ目に交差する他の割れ目も存在するものと考えられる。そこで、対象割れ目に他の割れ目が交差した場合に、揚水孔の濃度破過曲線に与える影響について評価解析を行った。その結果、同等の透水性を有する割れ目が投入孔と揚水孔の間で試験対象割れ目と交差する場合、単一割れ目の場合に比べて、破過曲線のピーク濃度は最大で 25% 程度低減することがわかった。しかし、交差する割れ目の透水性が小さいほど、影響は小さくなる。また、同等の透水性を有する割れ目であっても、揚水孔を挟んで投入孔と反対側で交差する場合には、破過曲線のピーク濃度は最大でも 6% 程度の低減にとどまることがわかった。

今回の試験では、ウラニンと  $Rb^+$  については破過曲線が得られ、割れ目の開口幅、分散長、表面吸着係数等の物質移行特性を同定することができたが、収着性の強い  $Ba^{2+}$  については有意な破過曲線を取得することができなかった。評価結果の信頼性を高めるためには、トレーサーの回収濃度・回収率を上げるとともに、収着性トレーサーについては岩盤との接触時間を十分確保できるように遅い流れ場での試験が望まれる。それには、水理的に独立した割れ目を試験対象に選ぶ、バックグラウンド流れの小さい割れ目を選ぶ、バックグラウンドの影響を打ち消す方向に注入孔、揚水孔を配置する、ダイポール比を 1 に近づけるなどの対応が必要と考えられる。

## 参考文献

- Autio, J., Hjerpe, T. and Siitari-Kauppi, M. (2003): Porosity, diffusivity and permeability of EDZ in crystalline rock and effect on the migration in a KBS-3 type repository, Proceedings of a Cluster Conference and Workshop, European Commission, Luxembourg, UER21028.
- Bear, J., Jacobs, M. (1965): On the movement of water bodies injected into the aquifers, Journal of Hydrology, Vol. 3, pp. 37-57.
- Gelhar, L. W., Collins, M. A. (1971): General analysis of longitudinal dispersion in nonuniform flow, Water Resources Research, Vol. 7, No. 6, pp. 1511-1521.
- McElwee, C. D. (1991): Capture Zones for simple aquifers, GroundWater -Computer Notes-, Vol. 29, No. 4, pp. 587-590.
- Nordqvist, R., Geosigma, AB (2008): Evaluation and modeling of SWIW tests performed within the SKB site characterization programme, SKB Report R-08-104.
- Schroth, M. H., Istok, J. D., Haggerty, R. (2001): In situ evaluation of solute retardation using single-well push-pull tests, Advances in Water Resources, 24(1), pp. 105-117.
- 河西基、田中靖治、五十嵐敏文(1994): 高レベル廃棄物処分の天然バリア性能評価手法の開発 (その1) -割れ目系岩盤中の地下水流動解析手法-, 電力中央研究所 研究報告 U93054.
- 河西基、田中靖治、五十嵐敏文(1995): 高レベル廃棄物処分の天然バリア性能評価手法の開発 (その2) -割れ目系岩盤中の熱および核種の移行解析手法-, 電力中央研究所 研究報告 U94053
- 國丸貴紀、森川佳太、舘幸男、久野義夫、細谷真一、下田紗音子、加藤博康、中澤俊之、生瀬博之、久保田政子: 花崗岩資料を用いた収着・拡散試験および間隙率測定、JAEA-Data/Code 2012-013, 2012.

## 7. 天然トレーサーを利用した調査技術の開発

### 7.1 背景

高レベル放射性廃棄物処分の処分では、「地下水シナリオ」の評価が重要になる。これは、施設から漏出した核種が地下水によって輸送されることを想定したシナリオである。このシナリオの評価、特に地下水の流動が十分に遅いことを示すために、天然に存在する安定同位体、放射性同位体、希ガスなどを用いた地下水年代測定技術を開発してきた。この技術は、概要調査の地表調査やボーリング調査において、候補岩体の地下水が、数万年～百万年のように非常に古いことを示すことにより、地下水の流動が十分に遅いことを示すためのものである。この数万年～百万年の地下水年代が評価できる技術を開発するとともに、国内の地点に適用し、開発してきた技術の妥当性を確認してきた。地下水年代測定技術は、概要調査段階の候補岩体の選定において有効な調査・評価技術になりうると考えられる。

精密調査段階においては、地下施設が建設され、より詳細な調査が実施される。この調査では、概要調査での調査結果の妥当性の確認が重要になる。また、候補岩体が十分な広がりを持つこと、水みちとなりうる高透水帯が存在しないことを確認する必要がある。この調査結果の妥当性の確認や水みちの評価にも、前述の天然に存在する安定同位体、放射性同位体、希ガスなどを用いた地下水年代測定技術は有効であると考えられる。精密調査段階での地下水年代測定技術の適用を想定した場合、概要調査段階での地表調査やボーリング調査とは異なり、坑道などによる調査が主に実施される。このため、坑道などにおいて地下水年代測定技術を適用する方法を整備しておく必要がある。坑道での採水では、採水時の圧力低下が顕著なため、特に溶存ガスについては圧力低下による脱ガスを抑制して採取する必要がある。また、坑道での調査においては、水みちなど局所的に地下水流動の早い部分の検出と、その特性評価も重要な評価事項となる。これは、このような局所的かつ選択的な地下水の流動経路が存在する場合には、主要な核種の漏洩経路となり得るためである。このような調査においても、若い地下水年代を評価できる地下水年代測定技術であれば、その水みちが有意な漏洩経路になり得るかどうかを確認することが可能であると考えられる。このため、従来の非常に古い地下水を評価する地下水年代測定技術だけでなく、若い地下水を評価するための地下水年代測定技術も重要になると考えられる。

一方で、地下施設建設に伴う地下水流動の擾乱は、天然の物質を利用した広域的なトレーサー試験とも見なすことができる。本研究では、トレーサー試験技術の開発を実施しており、数メートルスケールの比較的狭い範囲において、人工的に注入したトレーサーを用いて、割れ目や高透水帯の物質移行特性を評価している。ただし、人工的なトレーサー試験では、大きいスケールの物質移行特性の評価には多大な時間を要するため、天然トレーサーによる評価によって、トレーサー試験を補っていく必要がある。天然トレーサーによる評価では、人工トレーサーよりも大きいスケールでの物質移行現

象を評価可能であると考えられる。また、精密調査段階においては、地下水施設を建設して調査が行われるため、坑道にむけて地下水流動が発生し、このような比較的大きな地下水流動による物質移行特性を評価できる可能性がある。

以上のような概要調査における地下水年代測定結果の確認、水みちの特性評価、トレーサー試験技術の補間を目的として、精密調査における地下水年代測定の開発を行うこととした。

## 7.2 研究項目

精密調査における地下水年代測定法を開発するために、地下の適用性試験場における地下水調査、天然トレーサーによる調査、を実施する。

地下の適用性試験場における地下水調査では、JAEA が建設を進めている瑞浪超深地層研究所、幌延深地層研究センターにおいて、研究坑道内のボーリング孔などから地下水を採取し、主要溶存イオン、微量元素、同位体、希ガスなどを計測し、既存のボーリング調査結果との整合性を確認する。さらに、これらの経時的な変化を評価し、新しい地下水の流入を評価する。また、同位体や希ガスの評価に必要な岩石の分析を実施する。さらに、建設によって発生した擾乱を対象とした地下水流動・物質移行解析を行い、実測値と比較することにより、地下水流動や地下水水質・地下水年代の変化について検討する。

天然トレーサーによる調査では、これまでに整備してきた希ガス試料の採取方法、圧力制御型、循環型、原位置平衡型を原位置に適用し、相互比較を行い、その適用性を検討する。また、流れが速い地下水の指標となる物質、流れが遅い地下水の指標となる物質を調査する。

## 7.3 研究坑道における地下水調査

概要調査段階では、地上のボーリング孔などから地下水を採取するが、精密調査段階では坑道などを掘削して調査が実施される。精密調査段階においては、概要調査段階での調査結果の妥当性を確認する必要がある。また、精密調査段階では概要調査段階において十分に把握できなかった局所的な水みちの評価なども重要となる。このため、坑道などから地下水を採取し、主要溶存イオン、微量元素、同位体、希ガスなどを計測し、ボーリング調査段階での調査結果との比較を行った。また、調査結果の経時変化を確認することにより、トンネル掘削によって生じた地下水流動によって、水質・地下水年代がどのように変化したかを評価する。

ここでは、JAEA が建設を進めている瑞浪超深地層研究所、幌延深地層研究センターを対象に地下水の採水を実施し、これまで実施してきた地下水年代測定結果の妥当性の確認を行うとともに、水質・地下水年代の変化について評価する。

### 7.3.1 瑞浪における地下水調査

#### 7.3.1.1 採水地点

瑞浪超深地層研究所において、研究坑道から掘削されたボーリング孔、図 7.3.1-1 を対象に地下水調査を実施した。

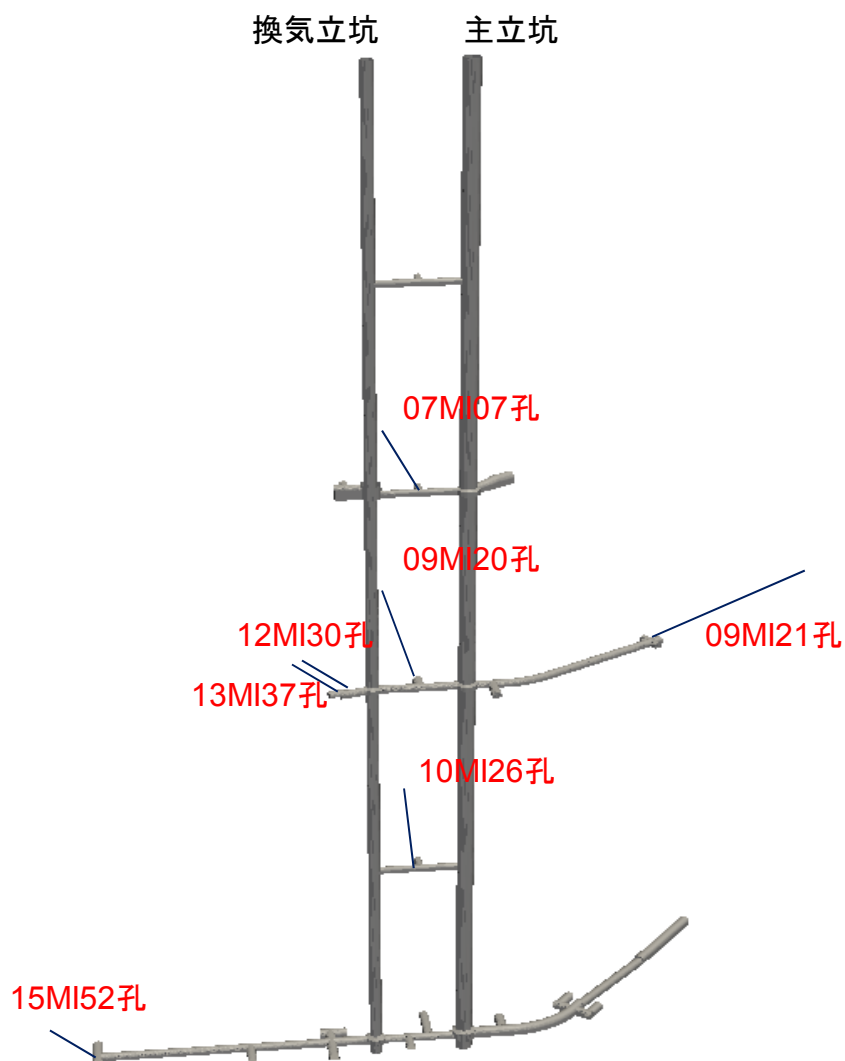


図 7.3.1-1 採水地点位置図

調査地点および区間は以下の通りである。

- ・深度 200 m ステージ：07MI07 号孔区間 1, 3, 5
- ・深度 300 m ステージ：09MI20 号孔区間 1, 3, 5
- ・深度 300m ボーリング横坑：12MI30 孔 区間 2, 13MI37 区間 5(図 7.3.1-2)
- ・深度 300 m 研究アクセス坑道：09MI20 号孔区間 2, 3

- ・深度 400 m ステージ：10MI26 号孔区間 1, 3, 5
- ・深度 500 m ステージ：15MI52 号孔区間 1, 5 (図 7.3.1-3)

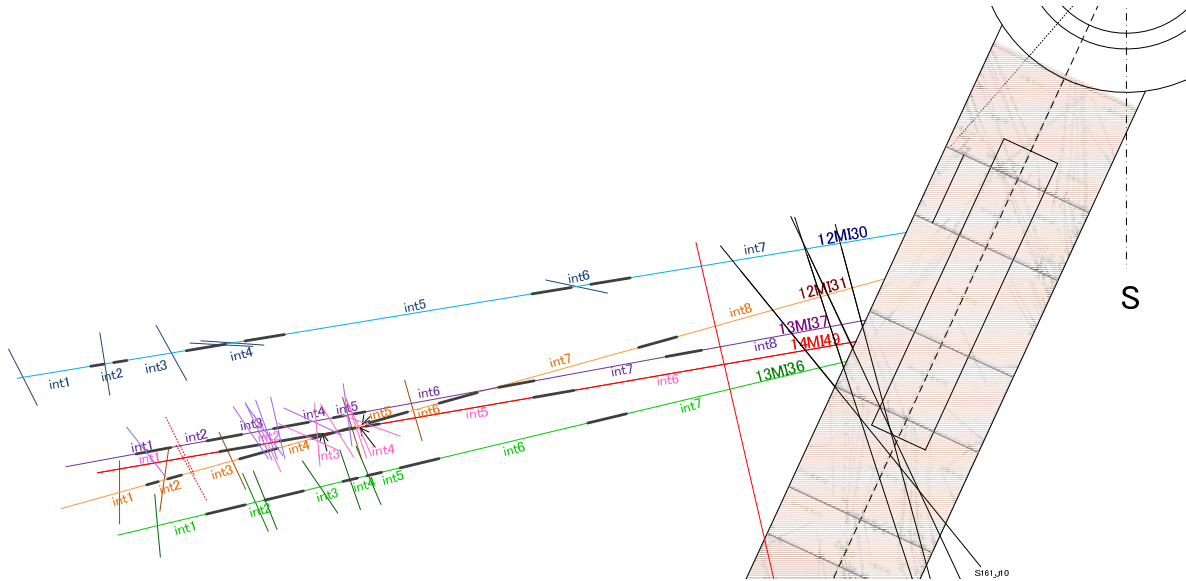


図 7.3.1-2 深度 300m ボーリング横坑でのボーリング孔の区間編成図

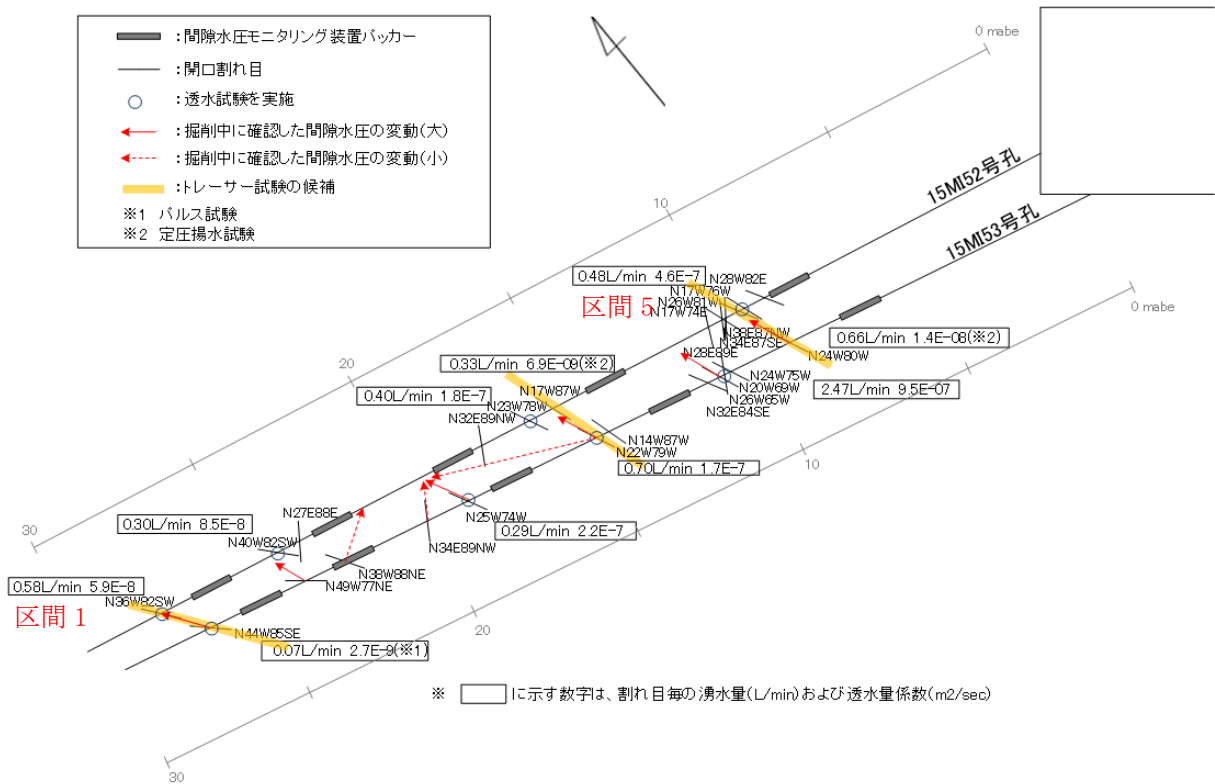


図 7.3.1-3 深度 500m 研究アクセス南坑道でのボーリング孔の区間編成図

### 7.3.1.2 採水方法

表 7.3.1-1 に分析項目、必要水量を示す。これらの項目について採水を実施した。

各採水区間の水圧が高く、湧出することから、各採水区間へ繋がっている外径 6mm 内径 4mm のナイロンチューブの圧力を解放して採水した。

希ガス採水は以下の手順により行った。試料採取時の概念図と写真を図 7.3.1-4 に示す。

- ① 銅管(外形 12mm、内径 10mm) の両側に自動閉鎖機構付きのワンタッチソケットカプラー(以後ソケットと称す) を接続する。
- ② 各採水区間へつながっているチューブに採水装置を接続する。採水装置は、1)をソケットのついたチューブで連結する。採水装置の下流端に圧力計とバルブを備えたものである。
- ③ 区間のバルブを解放し、圧力レギュレーターを確認する。
- ④ 圧力レギュレーターを調整し、銅管内とチューブ内の気泡とを排出する。このとき、3)で確認した圧力が大きく低下しないようにレギュレーターの下流のバルブを調節する。
- ⑤ 十分に地下水を通水後、レギュレーターバルブを閉める。
- ⑥ 上流側から順次チューブと銅管とを外す。銅管にはソケットがついているため、地下水と地下水圧は保持される。
- ⑦ ソケットが付いた状態で銅管の両端をクランプで締める。クランプが十分にしまったことを確認する。
- ⑧ 銅管からソケットを外し、採取深度、孔番、採取日、採取番号を記入する。

その他の主要溶存イオン、微量元素、TOC、水素酸素同位体比、 $^3\text{H}$ 、 $^{14}\text{C}$ 、 $^{36}\text{Cl}$ 、CFCs、SF<sub>6</sub>の採水方法について以下に説明する。

主要溶存イオンなど (Na、K、Mg、Ca、SO<sub>4</sub>、Cl、I、F、Si、B) の分析用サンプルは以下のように採取した。100ml のプラスチック製ボトルに容器の 1/10 程度地下水を入れ、フタをして共洗いをする。共洗いを 3 度実施した後、チューブの外側を地下水で洗浄し、ボトルの底までチューブを差し込んで、ボトル内を地下水で満たす。チューブを差し込んだままで、さらに容器の 3 倍量の地下水をオーバーフローさせる。その後、静かにチューブを引き抜き、気泡が入らないようにフタをする。ビニールテープでフタが閉まる方向(時計回り)に数回巻いて密封する。

微量元素 (Sr、Ba、Fe、Mn、Se、As、Se、Al、Cs) の分析用のサンプルの採取方法と使用ボトルは、主要溶存イオンと同じである。この試料では、使用ボトルの壁面への陽イオンの吸着を抑制するために、採取後に 2ml の水を捨て、そののち、濃硝酸 1ml を添加する。

TOC (TC、DIC、TOC(NPOC)) の分析用のサンプルは、50ml のゴム製内蓋つきの褐色ガラス製ねじ口ビン瓶に採取する。採取方法は、主要溶存イオンと同じである。

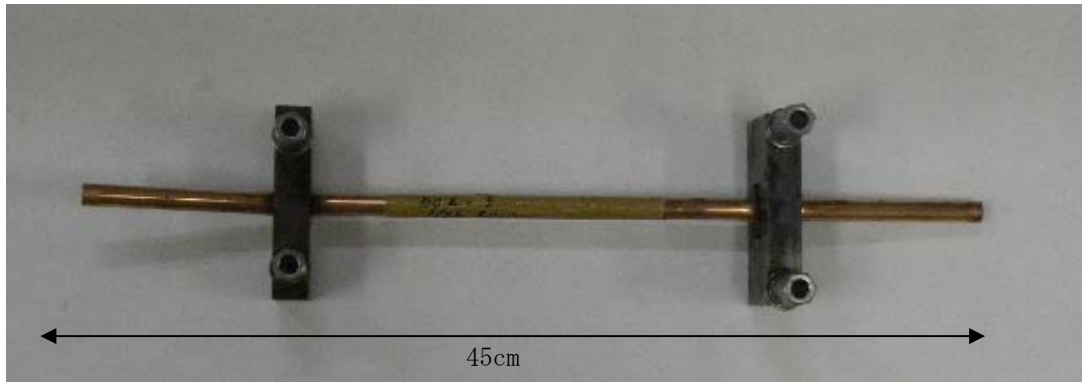
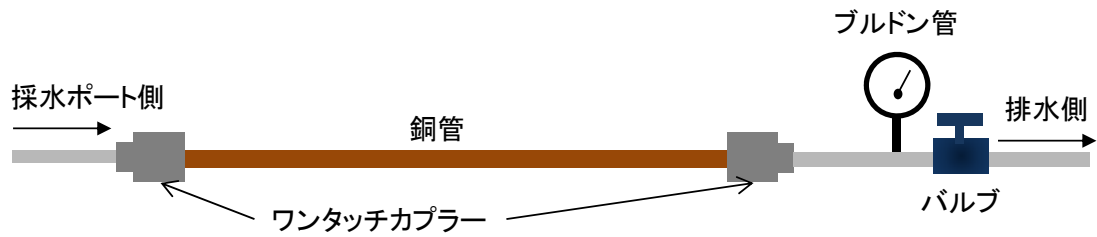


図 7.3.1-4 希ガス採取システムの概念図と銅管

上側) 希ガス採取システムの概念図

中側) 銅管の両側に接続した自動閉鎖機構付きのワンタッチソケットカプラー

下側) クランプにより密閉状になった銅管のサンプラー

水素・酸素同位体比の水素・酸素同位体比の測定用のサンプルは、採取容器が 25ml のガラス製ねじロバイアルビンに採取する。採取方法は主要溶存イオンと同じである。

$^3\text{H}$  試料の採水には、1L のプラスチック製ボトルを 2 本使用する。共洗いは行わず、チューブの外側をよく地下水で洗浄し、チューブを底まで入れ、ボトルからオーバーフローする直前にチューブを静かに引き抜きながら、容器を満たし、なるべく空気が入らないようにフタをする。

$^{14}\text{C}$  と  $\delta^{13}\text{C}$  の分析用の採取方法は、主要溶存イオンと同じであるが、炭酸ガスの脱ガスを防ぐために、採水容器には、1L のフロロバリアボトルを 2 本使用する。

$^{36}\text{Cl}$  試料には 1L のポリビンを使用する。作業者の皮膚に付着している塩分が混入する可能性があるため、作業時は地下水でよく洗浄したゴム製手袋を装着して行う。

CFCs の採取は USGS (2016a) の推奨する方法に準じ、125ml のガラス瓶とアルミホイルで被覆したパ



ッキン入りのキャップを用いる。また、空気の混入を防ぐため、採取を水中で行う。チューブは、ナイロンチューブやバイトンチューブなど低透気性でフロンが含まれないものを用いる。ガラス瓶の底までチューブを挿し込み、容器からオーバーフローさせたのち、チューブを挿したまま水が満たされた 5L ビーカーへガラス瓶を静かに沈める。さらに数回分のオーバーフローを行い、水中でフタをする。フタをする前にフタに空気などが残っていないことを確認する。

SF<sub>6</sub>の採取も USGS (2016b) の推奨する方法に準じて実施した。500ml or 1000ml のデュラン瓶の底までチューブを挿し込み、容器容量の数倍をオーバーフローさせたのち、空気が混入しないようにフタを示す。フタには PTFE 製のパッキンを用いた。

表 7.3.1-1 採水項目と採取目的および取得量

項目	目的	取得量	備考
主要溶存イオン	主要なイオン濃度評価	100mL×2 本	
微量元素	微量に含まれる金属元素を定量	100mL×1 本	
水素・酸素同位体比	水素・酸素同位体比を評価	10mL×2 本	
炭素同位体 ( <sup>14</sup> C、 $\delta^{13}$ C)	地下水年代測定のために地下水 中の無機炭素の <sup>14</sup> C、 <sup>13</sup> C を評価	1000mL×1 本	
炭素同位体 ( <sup>36</sup> Cl、 $\delta^{37}$ Cl)	地下水年代評価や、塩化物イオン の起源情報となる、塩化物イオン 同位体 ( <sup>36</sup> Cl、 <sup>37</sup> Cl) を評価	1000mL×2 本	
TOC	地下水中溶存有機炭素量を評価	50mL×1 本	
アルカリ度	アルカリ度を評価し、その結果か ら炭酸水素イオン濃度を評価	50mL×1 本	
希ガス濃度	地下水年代指標となる希ガス (He、Ne) 濃度を評価	銅管×3 本	地表でクラ ンプ留め
CFCs	溶存クロロフルオロカーボン量 から、若い地下水の混入を評価	125mL×3 本	ホイルで被 覆パッキン
SF <sub>6</sub>	六フッ化硫黄量から、若い地下水 の混入を評価	500mL or 1000ml ×2 本	PTFE 製パッ キン
トリチウム	トリチウム濃度から、若い地下水 の混入を評価	1000mL×2 本	

### 7.3.1.3 分析方法

#### (1) 地下水の分析

地下水の溶存成分の内、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{F}^-$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、アルカリ度、Br, I, Si, B, Fe, Se, Sr, Li, Mn, Zn, Ba, Al, Rb, Cu, As, Cs、水素酸素同位体、 $^3\text{H}$ 、炭素同位体( $^{14}\text{C}$ 、 $\delta^{13}\text{C}$ )、塩素同位体( $^{36}\text{Cl}$ 、 $\delta^{37}\text{Cl}$ )、希ガス、CFCs、 $\text{SF}_6$ を分析した。

陽イオン(Ca, Mg, Na, K)の定量分析には、イオンクロマトグラフィー(メトローム社製コンパクトプロフェッショナル IC881)を用いて検量線法により実施した(例えば、日本分析化学会北海道支部編、1994)。試料水中の各イオンを分離する分離カラムには、陽イオン交換樹脂が充填されているYS-50A、ガードカラムにはYS-Gを使用した。検量線は、元素ごとに関東化学製化学分析用標準溶液を既知の濃度に希釈した標準試料を調製した。

陰イオン(F, Cl,  $\text{NO}_3$ ,  $\text{SO}_4$ )の定量分析には、イオンクロマトグラフィー(メトローム社製コンパクトプロフェッショナル IC881  $\text{CO}_2$  サプレッサ付き)を用いて検量線法により実施した(例えば、日本分析化学会北海道支部編、1994)。試料水中の各イオンを分離する分離カラムには、陰イオン交換樹脂が充填されているA Supp 5-150、ガードカラムにはShodexSI-90Gを使用した。検量線は、元素ごとに和光純薬工業株式会社製化学分析用標準溶液を既知の濃度に希釈した標準試料を調製し作成した。

アルカリ度の測定は、酸標準液(0.01mol/L 硫酸)を用いてpH4.8まで滴定する手法(pH4.8アルカリ度)により実施した(例えば、半谷・小倉、1995)。試料20mLをビーカーにはかり取り、pHメーターで試料のpHを確認しながら、pH4.8になるまで酸標準液で滴定した。

微量元素(Br, I, Si, B, Fe, Se, Sr, Li, Mn, Zn, Ba, Al, Rb, Cu, As, Cs)の定量分析には、ICP-MS(誘導結合プラズマ-質量分析装置:Agilent Technologies 製Agilent7500CE)を用いて検量線法により実施した(例えば、社団法人日本分析化学会関東支部編、2008)。検量線は、元素ごとに和光純薬工業株式会社製化学分析用標準溶液を既知の濃度に希釈した標準試料を調製し作成した。

TOCおよびNPOC(Non-Purgeable Organic Carbon:不揮発性有機体炭素)の測定は、島津製作所製TOC-V CSHを用いた非分散型赤外分析計(Non-Dispersive Infrared Gas Analyzer:NDIR)で実施した(例えば、半谷・小倉、1995)。

TOCの定量分析は、試料中の全炭素(Total Carbon:TC)と無機体炭素(Inorganic Carbon:IC, またはTIC)をそれぞれ測定し、TC濃度からIC濃度を差し引いて求める方法(差し引き法)で実施した。検量線は、TC濃度用に和光純薬工業株式会社製フタル酸水素カリウム標準液、IC濃度用に和光純薬工業株式会社製炭酸ナトリウムおよび炭酸水素ナトリウムを混合した標準溶液をそれぞれ既知の濃度に希釈した標準試料を調製し作成した。

NPOCの定量分析は、試料水を酸性(pH3以下)にして通気処理し、試料水中のICを $\text{CO}_2$ として除去した後にTCを測定する方法(IC前処理法またはプレIC除去法)で実施した。検量線は、和光純薬工業株

式会社製フタル酸水素カリウム標準液を既知の濃度に希釈した標準試料を調製し作成した。

水素・酸素同位体の計測は、Los Gatos Research 社製のレーザー吸収ガス分析装置を用いて Off-axis ICOS 法 (Off-axis Integrated Cavity Output Spectroscopy) にて、試料中の水素同位体比および酸素同位体比の同時分析を実施した (山中・恩田、2011)。分析は手順書に準じた。

上記の分析は電力中央研究所で実施した。

$^3\text{H}$  分析は、電解濃縮 (アルカリ水溶液電解) - 液体シンチレーション計数法によって実施した (文部科学省、2002)。試料水を予め蒸留精製しアルカリ電解溶液とした後、電解濃縮を行う。電解終了後、電解液を中和・蒸留し、液体 (乳化) シンチレータを加え、低バックグラウンド液体シンチレーションカウンターにより計測する。分析は地球科学研究所で実施した。計測結果は、水素原子  $10^{18}$  個に対して  $^3\text{H}$  が 1 個存在する率である TU で示した。

$^{14}\text{C}$  分析は、グラファイト・ターゲット-加速器質量分析法 (AMS 法) で実施した (中村、2003)。沈殿法では、試料水 1 リットルにつき 1.2g の塩化ストロンチウムを加え、試料水中の無機炭素を炭酸ストロンチウムとして沈殿させる。沈殿物は中性になるまで洗浄し、乾燥させた後、リン酸と反応させ  $\text{CO}_2$  ガスを生成させる。得られた  $\text{CO}_2$  ガスを精製した後、コバルト触媒をもちいて  $600^\circ\text{C}$  に加熱しグラファイトを調製した。それらグラファイトをターゲットとし加速器質量分析 (AMS : Accelerator Mass Spectrometry) によって定量した。ガス化法では、試料水にリン酸を加えて  $\text{CO}_2$  をガスとして回収した後、グラファイトを生成する (Nakata et al., in press)。分析は Beta Analytic Inc. で実施した。

$^{36}\text{Cl}$  分析は、 $\text{AgCl}$ ・ターゲット-加速器質量分析法 (AMS 法) で実施した。水試料に含まれる塩化物イオンを塩化銀として回収し、それをターゲットとして AMS によって定量する (Fifield et al., 2010)。分析は、Australia National Univ. で実施した。試料は、水試料の pH を酸性側に調整した後に、過剰量の硝酸銀を加えることにより、水試料中の塩素イオンを白色の塩化銀として沈殿させ回収する。一般的に水試料の塩素イオン濃度が 20 mg/L 以上ならば、煩雑な手間をかけずに直接沈殿させることにより塩素イオンを回収することができる。 $^{36}\text{Cl}$  の分析では、 $^{36}\text{S}$  が AMS 測定に影響する可能性が指摘されている (Elmore et al., 1979)。この  $^{36}\text{S}$  の  $^{36}\text{Cl}$  測定への影響を小さくするために塩化銀の精製を行う。精製手順として、回収された塩化銀をアンモニア水に溶解させ、硝酸バリウムを加えることにより不純物として微量に含まれる硫酸イオンを硫酸バリウムとして沈殿させる。この工程は硫酸イオン濃度によっても異なるが概ね 3 回程度繰り返される。

$\delta^{37}\text{Cl}$  分析は、塩化銀-ヨウ化メチル ( $\text{AgCl}-\text{CH}_3\text{Cl}$ ) 変換-安定同位体比ガスクロマトグラフ質量分析法で実施した (Long et al., 1993)。試料水にから生成させた  $\text{AgCl}$  沈殿に、ヨウ化メチル ( $\text{CH}_3\text{I}$ ) を加え、塩化メチル ( $\text{CH}_3\text{Cl}$ ) に変換する。この  $\text{CH}_3\text{Cl}$  の同位体比をガスクロマトグラフ付同位体比質量分析計に導入し測定する。分析は Waterloo Univ. で実施した。

希ガスの定量は、希ガス質量分析装置 GV-5400 (GV instruments) とその前処理ラインを用いて行っ

た(馬原、1998)。地下水サンプルを封入した銅管を、直接装置へと接続する。これにより、銅管内の希ガスを散逸させることなく前処理ライン内へ導入することが可能である。抽出ライン内では、まず、サンプルに超音波をあてることで、地下水サンプルからガス成分のみを抽出する。抽出されたガス成分に対して、コールドトラップ(液体窒素温度)・チタンゲッターを作用させ、水分や反応性のガスを取り除き希ガス成分のみを取り出すことができる。さらに、ステージ内温度を20 Kまで低下させることができるクライオスタッドを用いて希ガスを各成分に単離し、希ガスごとに質量分析装置へと導入する。質量分析装置では希ガスをイオン化し、適切な磁力をかけることによって設定した質量数のみをカウントすることができる。既知量(0.13cc)の空気に含まれる希ガスにおけるカウント数と、サンプルに含まれる希ガスにおけるカウント数を比較し、サンプルに含まれる希ガス量および同位体比を決定した。分析は電力中央研究所で実施した。

CFCsの分析は、Purge and Trap法によって地下水中のCFCを分離・抽出した後に、GC-ECDにて検出・定量を行った(Plummer and Bunsenberg, 2006)。CFCはCFC-12, CFC-11, CFC-113を対象とした。

SF<sub>6</sub>の分析もCFCsと同様に、Purge and Trap法によって地下水中のCFCを分離・抽出した後に、GC-ECDにて検出・定量を行った(Bunsenberg and Plummer, 2000)。

## (2) 岩石の分析

<sup>4</sup>He年代測定では、岩石中に含まれるUおよびThが<sup>4</sup>Heの生成量を評価するうえで重要である。また、<sup>36</sup>Cl年代では、原位置での平衡値を求める際には、U・Thの壊変時に生成する中性子やそれに伴って発生する(α, n)反応による中性子による放射化が重要である。このため、今年度掘削した15MI52孔から岩石コアを採取し、主要鉱物や微量元素について分析した。

ここでは、岩石に含まれる主要鉱物の13鉱物(SiO<sub>2</sub>, TiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MnO, CaO, MgO, Na<sub>2</sub>O, K<sub>2</sub>O, Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, SrO, BaO)、微量元素の29成分(S, Zr, Ga, Co, B, Sr, Ba, As, P, Li, Be, Cr, V, Ni, Cu, Zn, Rb, Y, Nb, Pb, Cd, Sm, Eu, Gd, Dy, Yb, Lu, Th, U)を求めた。

主要鉱物は、ホウ酸リチウムを添加して約1100℃熔融させることでガラスビードを製作し、蛍光X線分析を実施した。CとSについては、燃焼法で推定した。微量元素については、Ba, Ce, Cr, Cs, Dy, Er, Eu, Ga, Gd, Hf, Ho, La, Lu, Nb, Nd, Pr, Rb, Sm, Sn, Sr, Ta, Tb, Th, Tm, U, V, W, Y, Yb, Zr, Ag, Cd, Co, Cu, Li, Mo, Ni, Pb, Sc, Znは酸で溶解したもの、As, Bi, Hg, Sb, Se, Te, Tlは王水で溶解したもの、BはHNO<sub>3</sub>とHFで溶解したものをを用いて、ICP-MSおよびICP-AESで定量した。

### 7.3.1.4 分析結果

原位置において、ポータブルのメーターを用いて、pH、ORP(酸化還元電位)、EC(電気伝導度)、DO(溶存酸素)、温度を分析した結果を表7.3.1-2に示す。採取状況を図7.3.1-5と図7.3.1-6に示す。

表 7.3.1-2 原位置計測結果

区間名	採水日	初期压力	採水時压力	流量	pH	ORP	T	DO	EC
		Mpa	MPa	ml/min		mV	°C	mg/l	mS/cm
07MI07#1	2015/11/16	0.8	0.4	470	8.64	-359	21.2	0.03	0.38
07MI07#3	2015/11/16	0.6	0.3	400	8.79	-377	21.1	0.04-0.00	0.43
07MI07#5	2015/11/16	0.5	0.4	350	8.71	-366	20.3	0.01	0.54
13MI30#2	2015/9/29	1.6	1.4	200	8.62	-370	24.0	0.00	0.64
13MI37#5	2015/9/29	1.5	1.3	150	8.47	-330	23.6	0.00	0.74
09MI20#1	2015/11/5	1.7	1.5	500	8.71	-342	22.7	0.00	0.36
09MI20#3	2015/11/5	1.8	1.4	700	8.79	-328	22.6	0.00	0.37
09MI20#5	2015/11/5	1.6	1.4	600	8.65	-322	22.4	0.00	0.38
09MI21#2	2015/11/5	1.8	1.2	300	8.84	-303	22.2	0.00	0.70
09MI21#3	2015/11/5	2.1	1.8	30	9.02	-199	20.5	0.40	0.62
10MI26#1	2015/11/16	2.4	1.8	300	8.28	-330	24.9	0.00	0.38
10MI26#3	2015/11/16	2.4	1.8	220	8.41	-275	23.7	0.00	0.54
10MI26#5	2015/11/16	2.4	1.8	480	8.65	-324	24.4	0.00	0.43
15MI52#1	2016/1/12	3.6	3.5	2800	8.59	-387	25.7	0.00	1.80
15MI52#5	2016/1/12	3.5	3.4	50	8.64	-382	27.0	0.00	1.92

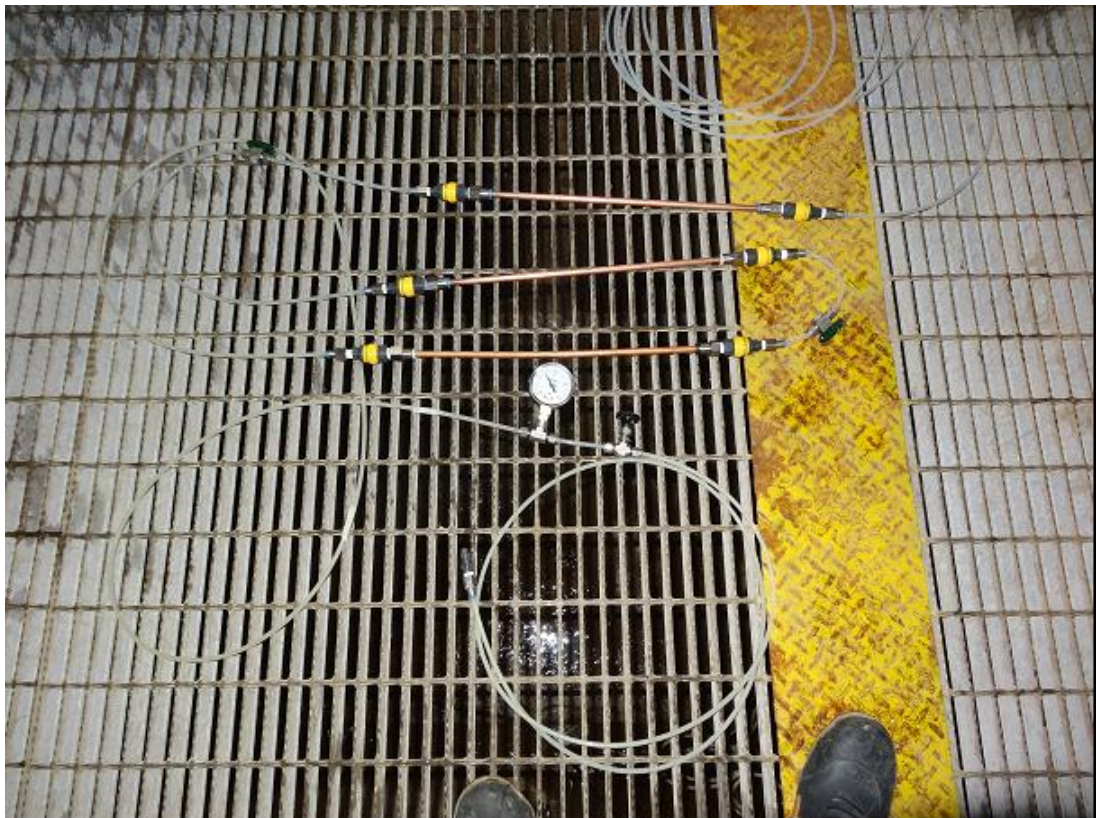


図 7.3.1-5 希ガス採取状況



図 7.3.1-6 採水状況

主要溶存イオン、微量元素、同位体、希ガスの分析結果を表 7.3.1-3 に示す。

なお、希ガスの分析結果は、脱ガスや空気の混入の恐れがあるため、Ne による補正を実施した。補正方法は、地下水中の Ne 量が大气平衡値であると仮定し、試料中の Ne 量が大气平衡値よりも大きければ、大气が混入したと仮定して、式(7.3.1-1)に示すように、過剰量に相当する He 量を差し引く。また、Ne 量が大气平衡値よりも小さければ、式(7.3.1-2)に示すように、脱ガスしたとして減少した Ne 量と同率で He 量を割り戻す。

$$He_c = He_m - (Ne_m - Ne_0) \frac{He_a}{Ne_a} \quad (7.3.1-1)$$

$$He_c = He_m \frac{Ne_0}{Ne_m} \quad (7.3.1-2)$$

ここに、 $He_c$  は脱ガス補正した He 濃度、 $He_m$  は地下水中の He 濃度、 $Ne_0$  は大气との溶解平衡に達した Ne 濃度 ( $2 \times 10^{-7}$  cc<sub>STP</sub>/g<sub>w</sub>)、 $Ne_m$  は地下水中の Ne 濃度の計測値、 $He_a/Ne_a$  は 0.288 である。

岩石の分析結果を表 7.3.1-4 に示す。なお、分析結果が定量限界以下であった一部の元素については表から削除した。

表 7.3.1-3 立坑内ボーリングから採取した地下水の分析結果

(1) 主要溶存イオン

サンプル名	Na	K	Mg	Ca	B	F	Cl	NO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub>	Si	ALK	TOC	TC	TIC	NPOC
	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	meq/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L
12MI31-1	110	0.52	0.1	26	1.2	9.4	150	<0.005	6.3	6.7	0.66	0.91	7.5	6.6	0.27
13MI37-5	120	0.61	0.19	33	1.2	9.0	190	<0.005	4.3	6.6	0.56	1.5	7.1	5.6	0.26
09MI21-2	120	0.18	0.082	28	1.3	8.9	190	<0.005	0.65	6.2	0.48	1.3	5.4	4.1	0.21
09MI21-3	110	0.23	0.24	31	1.3	9.1	180	0.018	0.86	7	0.56	1.1	6.3	5.3	0.24
07MI07#1	70	0.2	0.07	15	1.1	9.9	57	<0.005	12	6.9	1.1	0.66	12	12	0.33
07MI07#3	76	0.22	0.083	16	1.2	9.7	74	<0.005	10	6.9	1	0.91	12	11	0.32
07MI07#5	96	0.24	0.087	21	1.1	9.3	120	<0.005	7.1	6.6	0.75	1.1	9	8	0.25
09MI20#1	71	0.22	0.15	15	1.3	9.2	49	<0.005	16	7.1	1.3	1.2	17	16	0.36
09MI20#3	73	0.29	0.24	15	1.4	9.6	57	<0.005	13	6.8	1.2	1.1	16	14	0.56
09MI20#5	73	0.26	0.22	15	1.3	9.5	55	<0.005	14	6.8	1.2	0.80	16	15	0.4
10MI26#1	86	0.36	0.43	17	1.5	9.5	81	<0.005	14	6.7	1.2	1.4	16	15	0.31
10MI26#3	100	0.45	0.59	21	1.3	9.2	100	<0.005	10	6.7	1.4	1.2	20	18	0.3
10MI26#5	83	0.34	0.3	17	1.2	9.5	80	<0.005	12	6.6	1.1	1.2	15	14	0.28
15MI52#1	220	1.3	<0.025	130	9.1	5.1	540	<0.005	2.9	6.4	0.24	1.3	3	1.8	0.0
15MI52#5	220	1.2	0.19	150	9.1	5.2	580	<0.005	3.7	7	0.25	1	2.6	1.6	0.0

表 7.3.1-3 立坑内ボーリングから採取した地下水の分析結果 (続き)

(2) 微量元素

サンプル名	Br	I	Cs	Sr	Li	Al	Mn	Fe	Zn	Cu	As	Se	Rb	Ba
	μg/L	μg/L	μg/L	μg/L	μg/L	μg/L	μg/L	μg/L	μg/L	μg/L	μg/L	μg/L	μg/L	μg/L
12MI31-1	310	45	0.41	210	58	7.8	2.9	21	0.77	0.22	0.97	<0.1	2.6	1.1
13MI37-5	380	52	0.81	280	70	12	5.8	7.7	1.5	0.27	0.98	<0.1	3.4	1
09MI21-2	390	57	1.5	200	84	12	2.2	2.7	0.83	0.33	0.95	<0.1	2.4	0.67
09MI21-3	340	64	3.8	240	88	1700	69	850	13	3.9	1.2	<0.1	3.9	1.8
07MI07#1	110	15	0.49	85	41	7.4	1.8	3.8	0.6	<0.1	1.1	<0.1	1.6	0.33
07MI07#3	150	19	0.52	99	44	6.5	2	1.6	1.1	<0.1	1	<0.1	1.7	0.36
07MI07#5	240	35	0.64	140	48	7.3	2	1.7	0.94	<0.1	0.93	<0.1	2	0.51
09MI20#1	100	14	0.43	78	41	9.3	2.5	2.5	0.47	0.28	0.82	<0.1	1.4	0.34
09MI20#3	120	22	0.41	88	42	8.7	3.2	4.8	0.76	0.23	0.95	<0.1	1.4	0.4
09MI20#5	120	22	0.43	84	42	9.6	3.3	7.4	1.6	11	0.91	<0.1	1.4	0.35
10MI26#1	160	28	0.54	120	52	9.5	5.5	2.8	0.67	<0.1	0.85	<0.1	1.7	0.72
10MI26#3	200	37	0.59	160	55	7.3	12	7.7	0.28	0.12	1	<0.1	1.9	1.1
10MI26#5	160	23	0.45	120	50	7.9	4.9	2.2	0.32	0.15	0.9	<0.1	1.6	0.66
15MI52#1	1000	380	2.1	1300	180	15	11	6.2	0.39	0.14	1.1	<0.1	8.5	3.4
15MI52#5	1100	210	2.7	1700	200	46	11	11	0.74	0.23	1.1	<0.1	10	4.8



表 7.3.1-3 立坑内ボーリングから採取した地下水の分析結果 (続き)

(3) 同位体

サンプル名	<sup>3</sup> H	<sup>14</sup> C(沈殿法)	$\delta^{13}\text{C}$	<sup>14</sup> C(ガス化法)	$\delta^{13}\text{C}$	<sup>36</sup> Cl/Cl	$\delta^{37}\text{Cl}$	$\delta\text{D}$	$\delta^{18}\text{O}$
	T.U.	pMc (%)	‰	pMc (%)	‰	$\times 10^{-15}$	‰	‰	‰
12MI31-1	ND	28.4 ±0.1	-14.8	13.5 ±0.1	-17.3	42.8 ±3.3	-0.25 ±0.09	-58.8 ±0.2	-8.78 ±0.05
13MI37-5	ND	35.0 ±0.2	-15.9	10.9 ±0.1	-17.1	47.8 ±3.3	-0.21 ±0.09	-59.3 ±0.3	-8.76 ±0.08
09MI21-2	ND	21.3 ±0.1	-10.3	4.9 ±0.1	-15.1	N.M	N.M	-59.5 ±0.1	-8.97 ±0.02
09MI21-3	ND	19.5 ±0.1	-13.2	5.0 ±0.1	-16.9	42.7 ±2.9	-0.15 ±0.07	-59.8 ±0.2	-8.95 ±0.05
07MI07#1	0.7 ±0.1	28.9 ±0.1	-14.8	21.5 ±0.1	-15.8	49.4 ±3.1	-0.18 ±0.07	-56.0 ±0.2	-8.51 ±0.03
07MI07#3	0.7 ±0.1	25.0 ±0.1	-16.7	20.3 ±0.1	-15.8	N.M	N.M	-56.5 ±0.3	-8.57 ±0.00
07MI07#5	0.8 ±0.1	24.5 ±0.1	-14.7	16.6 ±0.1	-16.2	N.M	N.M	-57.8 ±0.2	-8.77 ±0.03
09MI20#1	0.3 ±0.1	28.6 ±0.1	-15.2	24.3 ±0.1	-15.8	46.9 ±3.3	-0.43 ±0.08	-56.8 ±0.4	-8.35 ±0.10
09MI20#3	0.5 ±0.1	25.0 ±0.1	-13.6	20.7 ±0.1	-14.7	N.M	N.M	-56.6 ±0.1	-8.43 ±0.07
09MI20#5	0.5 ±0.1	26.1 ±0.1	-14.6	22.0 ±0.1	-15.0	N.M	N.M	-56.3 ±0.1	-8.45 ±0.06
10MI26#1	0.6 ±0.1	16.7 ±0.1	-11.3	12.1 ±0.1	-12.2	46.8 ±3.2	-0.30 ±0.06	-57.2 ±0.2	-8.60 ±0.01
10MI26#3	0.6 ±0.1	15.9 ±0.1	-9.5	9.7 ±0.1	-10.2	N.M ±0.0	N.M	-58.2 ±0.2	-8.75 ±0.05
10MI26#5	0.8 ±0.1	22.5 ±0.1	-13.4	18.2 ±0.1	-14.8	N.M ±0.0	N.M	-57.2 ±0.2	-8.64 ±0.02
15MI52#1	ND	N.M	N.M	11.1 ±0.1	-16.2	45.8 ±2.7	N.M	-57.3 ±0.3	-8.77 ±0.05
15MI52#5	ND	N.M	N.M	12.6 ±0.1	-17.0	36.5 ±2.5	N.M	-57.7 ±0.4	-8.82 ±0.01

表 7.3.1-3 立坑内ボーリングから採取した地下水の分析結果 (続き)

(4) 溶存ガス

サンプル名	CFCs 濃度			SF <sub>6</sub> 濃度	計測値			補正值 (Ne補正)	
	CFC-12	CFC-11	CFC-113	fmol/kg	<sup>4</sup> He	<sup>3</sup> He/ <sup>4</sup> He	Ne	<sup>4</sup> He	<sup>3</sup> He/ <sup>4</sup> He
	pg/kg				cc <sub>STP</sub> /g <sub>w</sub>	-	cc <sub>STP</sub> /g <sub>w</sub>	cc <sub>STP</sub> /g <sub>w</sub>	-
12MI31-1	1.5	2.0	0.0	0.35	5.3E-5	5.0E-7	2.5E-7	5.3E-5	5.0E-7
13MI37-5	1.1	2.1	0.0	0.27	3.9E-5	5.4E-7	3.0E-7	3.9E-5	5.4E-7
09MI21-2	2.9	3.6	0.0	0.33	4.7E-5	4.6E-7	1.6E-7	5.8E-5	4.6E-7
09MI21-3	2.5	3.7	0.0	0.35	5.8E-5	3.8E-7	1.8E-7	6.6E-5	3.8E-7
07MI07#1	1.1	0.9	0.0	0.40	3.1E-5	4.7E-7	2.2E-7	3.1E-5	4.7E-7
07MI07#3	1.5	0.3	0.0	0.34	3.3E-5	3.9E-7	1.8E-7	3.5E-5	3.9E-7
07MI07#5	1.8	1.5	0.0	0.48	4.6E-5	4.1E-7	1.6E-7	5.6E-5	4.1E-7
09MI20#1	1.1	0.7	0.0	0.40	2.8E-5	4.1E-7	2.0E-7	2.8E-5	4.1E-7
09MI20#3	1.0	0.9	0.0	0.42	2.9E-5	4.4E-7	1.8E-7	3.1E-5	4.4E-7
09MI20#5	2.1	3.1	0.0	0.52	2.2E-5	4.0E-7	2.0E-7	2.2E-5	4.0E-7
10MI26#1	1.1	1.2	0.0	0.61	4.4E-5	4.5E-7	1.8E-7	4.9E-5	4.5E-7
10MI26#3	0.9	1.1	0.0	0.32	5.0E-5	5.3E-7	1.8E-7	5.4E-5	5.3E-7
10MI26#5	1.2	1.1	0.0	0.52	4.1E-5	4.9E-7	1.9E-7	4.2E-5	4.9E-7
15MI52#1	2.6	3.3	0.0	0.19	6.7E-5	3.9E-7	2.6E-7	6.7E-5	3.9E-7
15MI52#5	1.5	1.7	0.0	0.13	2.1E-4	5.0E-7	4.6E-7	2.1E-4	5.0E-7

表 7.3.1-4 主要成分と微量元素の含有量

サンプル番号	15MI53-4	15MI53-10	15MI53-14	15MI53-20	15MI53-25	平均値	標準偏差
深度 (m)	4.60-4.68m	10.28-10.36m	14.42-14.50m	20.44-20.52m	25.34-25.42m		
SiO <sub>2</sub>	%	75.45	75.1	76.32	74.48	74.82	75.23 ±0.70
TiO <sub>2</sub>	%	0.11	0.16	0.1	0.15	0.15	0.13 ±0.03
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	%	13.29	12.95	12.83	13.11	12.92	13.02 ±0.18
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	%	1.3	1.87	1.19	1.73	1.8	1.58 ±0.31
MnO	%	0.05	0.07	0.04	0.06	0.07	0.06 ±0.01
MgO	%	0.18	0.27	0.21	0.27	0.27	0.24 ±0.04
CaO	%	1.22	1.2	1.1	1.2	1.23	1.19 ±0.05
Na <sub>2</sub> O	%	3.61	3.54	3.18	3.49	3.44	3.45 ±0.16
K <sub>2</sub> O	%	4.55	4.31	5	4.53	4.48	4.57 ±0.26
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	%	0.02	0.04	0.02	0.03	0.03	0.03 ±0.01
BaO	%	0.04	0.04	0.06	0.04	0.04	0.04 ±0.01
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	%	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01 -
SrO	%	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01 ±0.00
LOI 1000	%	0.16	0.13	0.18	0.24	0.07	0.16 ±0.06
As	ppm	0.2	0.1	0.3	0.3	0.2	0.22 ±0.08
B	ppm	10	10	10	10	10	10 -
Ba	ppm	290	310	430	280	260	310 ±66
Bi	ppm	0.03	0.03	0.02	0.05	0.02	0.03 ±0.01
C	%	0.01	0.01	0.01	0.01	<0.01	0.01 ±0.00
Ce	ppm	39	50	34	48	44	43 ±6.5
Co	ppm	7	9	8	9	10	8.6 ±1.1
Cs	ppm	3.9	5.3	3.7	4	4.7	4.3 ±0.7
Dy	ppm	4.6	6.3	4.3	5.5	5.6	5.3 ±0.8
Er	ppm	3.4	4.6	3	3.7	4.2	3.8 ±0.6
Eu	ppm	0.38	0.51	0.49	0.52	0.45	0.47 ±0.06
Ga	ppm	15	16	15	16	16	16 ±0.8
Gd	ppm	3.6	5.4	3.6	5	4.3	4.4 ±0.8
Ge	ppm	<5	<5	<5	<5	<5	<5 -
Hf	ppm	3.2	4.7	3.2	4	4.5	3.9 ±0.7
Ho	ppm	0.95	1.4	0.94	1.2	1.3	1.1 ±0.2
In	ppm	0.02	0.027	0.014	0.021	0.025	0.021 ±0.01
La	ppm	19	24	17	24	22	21 ±3.1
Li	ppm	40	40	40	40	50	42 ±4.5
Lu	ppm	0.66	0.78	0.53	0.61	0.75	0.67 ±0.10
Mo	ppm	1	2	1	1	1	1.2 ±0.5
Nb	ppm	10	14	9.7	12	12	12 ±1.6
Nd	ppm	17	22	15	20	19	18 ±2.7
Ni	ppm	1	1	1	2	1	1.2 ±0.5
Pb	ppm	29	25	30	28	26	28 ±2.1
Pr	ppm	4.4	5.7	4	5.4	5	4.9 ±0.7
Rb	ppm	190	200	190	190	190	190 ±4.3
Sc	ppm	2.5	3.2	1.9	2.8	3	2.7 ±0.5
Se	ppm	0.7	0.8	0.6	0.8	0.8	0.74 ±0.1
Sm	ppm	4.1	5.3	3.5	4.3	4.1	4.3 ±0.7
Sn	ppm	2.0	4.0	2.0	3.0	3.0	2.8 ±0.8
Sr	ppm	89	95	110	100	94	97 ±6.9
Ta	ppm	1.7	1.9	1	1.3	1.5	1.5 ±0.4
Tb	ppm	0.7	1.1	0.66	0.84	0.82	0.82 ±0.2
Th	ppm	17	25	13	32	19	21 ±7.6
Tl	ppm	0.23	0.29	0.17	0.2	0.29	0.24 ±0.1
Tm	ppm	0.55	0.72	0.5	0.6	0.68	0.61 ±0.1
U	ppm	5.4	7.6	6.6	8	6.2	6.7 ±1.0
V	ppm	6	11	6	9	6	7.6 ±2.3
W	ppm	47	54	43	49	57	50 ±5.6
Y	ppm	32	42	29	36	40	36 ±5.3
Yb	ppm	4.1	4.8	3.4	4	4.4	4.1 ±0.5
Zn	ppm	26	36	23	34	35	31 ±5.9
Zr	ppm	86	130	79	120	130	110 ±25

### 7.3.1.5 考察

#### (1) 主要溶存イオンの経時変化

主要溶存イオンの時間的な変化をヘキサダイアグラムとして図 7.3.1-7 に示す。

主要溶存イオンは、ほとんどのボーリング孔では Na-Cl 型であるが、500m 研究アクセス南坑道奥に今年度掘削された 15MI52 孔では、水質が Na-Ca-Cl 型である。溶存イオン量は、立坑のステージから掘削されているボーリング孔では周辺に比べてやや低い傾向がある。200m ステージ (07MI07 孔)、300m ステージ (09MI20 孔)、400m ステージ (10MI26 孔) では少しずつ溶存イオン量が減少している。立坑から離れたアクセス坑道の先の 09MI21 孔と 300m ボーリング横坑ではほとんど水質が変化していない。これまでの調査結果から、これは浅層水の混合を反映していると考えられる。

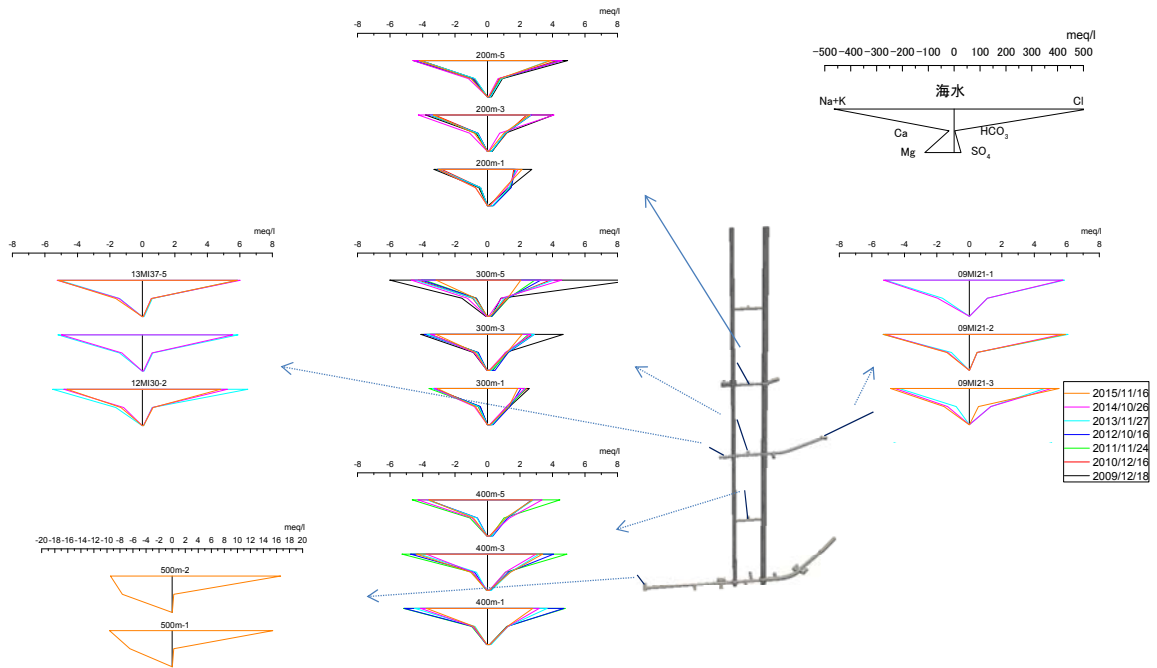


図 7.3.1-7 ヘキサダイアグラムの時間変化

## (2) 浅層水指標の比較

浅層水の指標として代表的な $^3\text{H}$ と $\delta\text{D}$ について、時間変化を図 7.3.1-8 に示す。

$^3\text{H}$ は、瑞浪付近の河川水の調査結果などから浅層水では $3.7\pm 1.0\text{ TU}$ である(JNC, 2003)。 $^3\text{H}$ は、半減期が 12.3 年のため、滞留時間が数万年の深層水には含まれないと考えられる。 $^3\text{H}$ 濃度は概ね 1.2TU 以下であり、浅層水の混合率は数十%以下と考えられる。各年度において少しずつ変化している。400m ステージの 10MI26 については変動があまり大きくない。今年度の調査結果は、全体に 1TU 以下と低い値になっている。ここには示していないが、300m アクセス坑道の 09MI21、300m ボーリング横坑の 12MI31、500m 研究アクセス南坑道の 15MI52 孔では、 $^3\text{H}$ は検出されていない。このため、 $^3\text{H}$ に基づく、浅層水の混合率は 07MI07 孔では 20~30%、09MI20 孔では 10~20%、10MI26 孔では 20%程度、その他の $^3\text{H}$ が検出されていないボーリング孔では浅層水の混合率が 10%以下である。これは、 $^3\text{H}$ の検出限界が 0.3TU のためである。

$\delta\text{D}$ は、涵養域と流出域のこれまでの調査結果から、涵養域では-50‰程度、流出域では-61‰程度である。流出域で水素同位体比が低いのは、Iwatsuki et al. (2005)にも示されているように、これらが氷期に涵養した地下水と考えられるためである。長谷川ほか(2010)でも、流出域では地下水年代が 2 万年を超えることから氷期の地下水である可能性が指摘されている。

$\delta\text{D}$ は、2012~2013 年を境に徐々に大きくなっているため、浅層水の混合率が増加してきていると考えられる。 $\delta\text{D}$ に基づく、浅層水の混合率は 07MI07 孔では 20~40%、09MI20 孔では 30~40%、10MI26 孔では 20~30%程度である。ここには示していないが、300m アクセス坑道の 09MI21 では 10%程度、300m ボーリング横坑の 12MI31 では 10~20%、500m 研究アクセス南坑道の 15MI52 孔では約 30%程度である。

今年度の結果では、浅層水指標である $^3\text{H}$ と $\delta\text{D}$ の相関がそれほど良くない。これについては後述する。

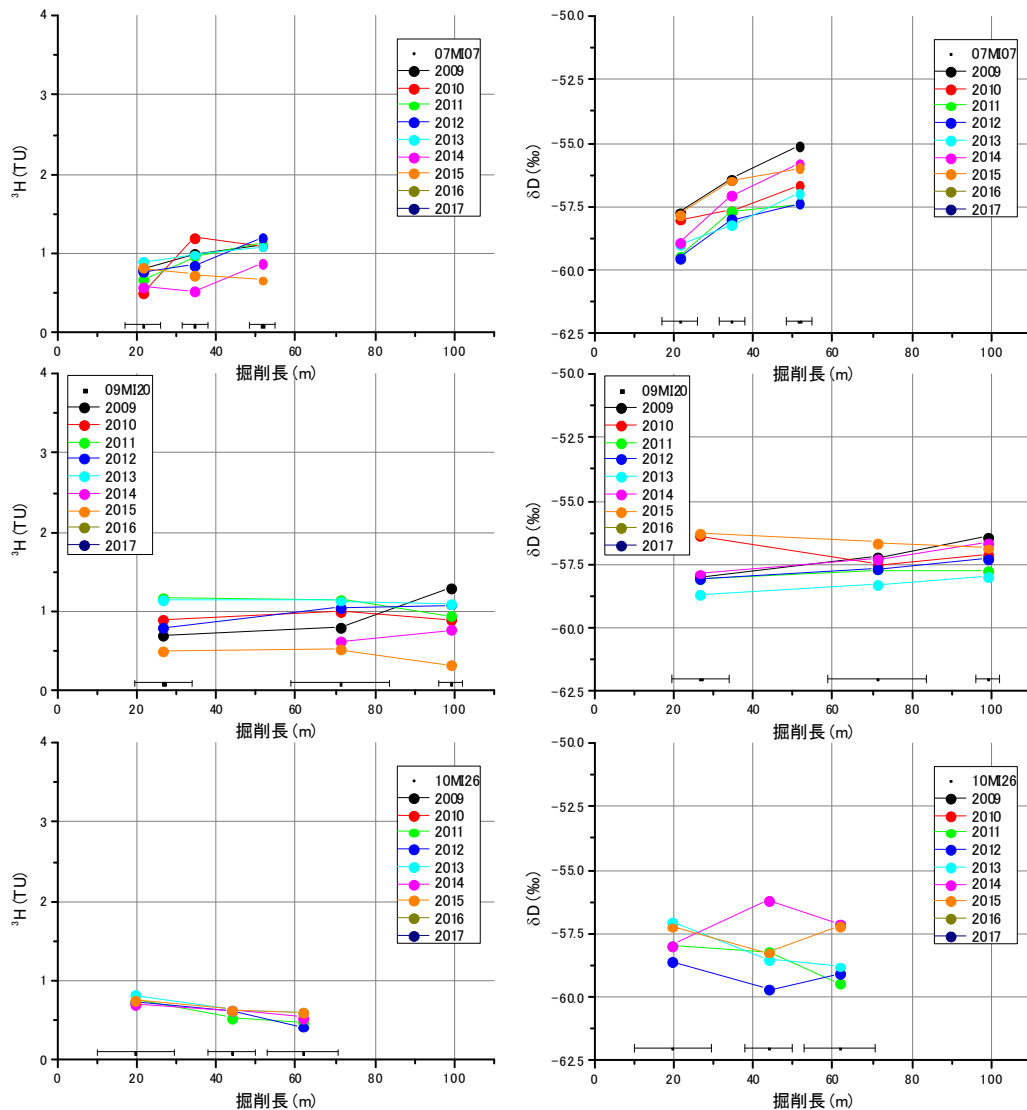


図 7.3.1-8 浅層水指標の経時変化( $^3\text{H}$  と  $\delta\text{D}$ )

### (3) 深層水指標の経時変化

深層水の指標として代表的な Cl と  $^4\text{He}$  について、時間変化を図 7.3.1-9 に示す。

Cl 濃度は、本地点が内陸に位置するため地表水では 0~1mg/l であることが涵養域のボーリング孔、河川水の調査結果などから知られている (JNC, 2003)。深層水では、100~1000mg/l であることが、流出域でのボーリング孔での調査結果から知られている。この Cl は、瑞浪層群が堆積時に取り込まれた海水が残留したもので、化石海水であると推定される。

Cl 濃度は、立坑に近いほど濃度が高く、立坑から離れると濃度が低下する傾向にあり、深部からのコーニングの影響がまだ残っていると考えられる。Cl 濃度は、徐々に低下する傾向に有り、今年度の調査結果はこれまでの調査結果で最も濃度分布が小さくなっている。これは混合が進ん

でいることと、深部の Cl は有限なため、徐々に濃度が低下していると考えられる。300m アクセス坑道の 09MI21、300m ボーリング横坑の 12MI31、500m 研究アクセス南坑道の 15MI52 孔では 200mg/l 程度と立坑周辺の 50~100mg/l に比べると 2 倍近い濃度がある。このことから、立坑周辺では濃度が低下しているが、周辺ではまだ濃度が維持されていると考えられる。

$^4\text{He}$  も涵養域から中間域では大気平衡値 ( $4.8 \times 10^{-8} \text{ cc}_{\text{STP}}/\text{g}_w$ )  $\sim 10^{-6} \text{ cc}_{\text{STP}}/\text{g}_w$  オーダーと濃度が低く、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  も  $10^{-8}$  オーダーと低いが、流出域では  $10^{-6} \text{ cc}_{\text{STP}}/\text{g}_w$  オーダーと濃度が高く、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  も  $10^{-7}$  オーダーと高い。これは涵養域から中間域は、原位置平衡で蓄積しており、流出域は外部フラックスが流入しているためと考えられる。

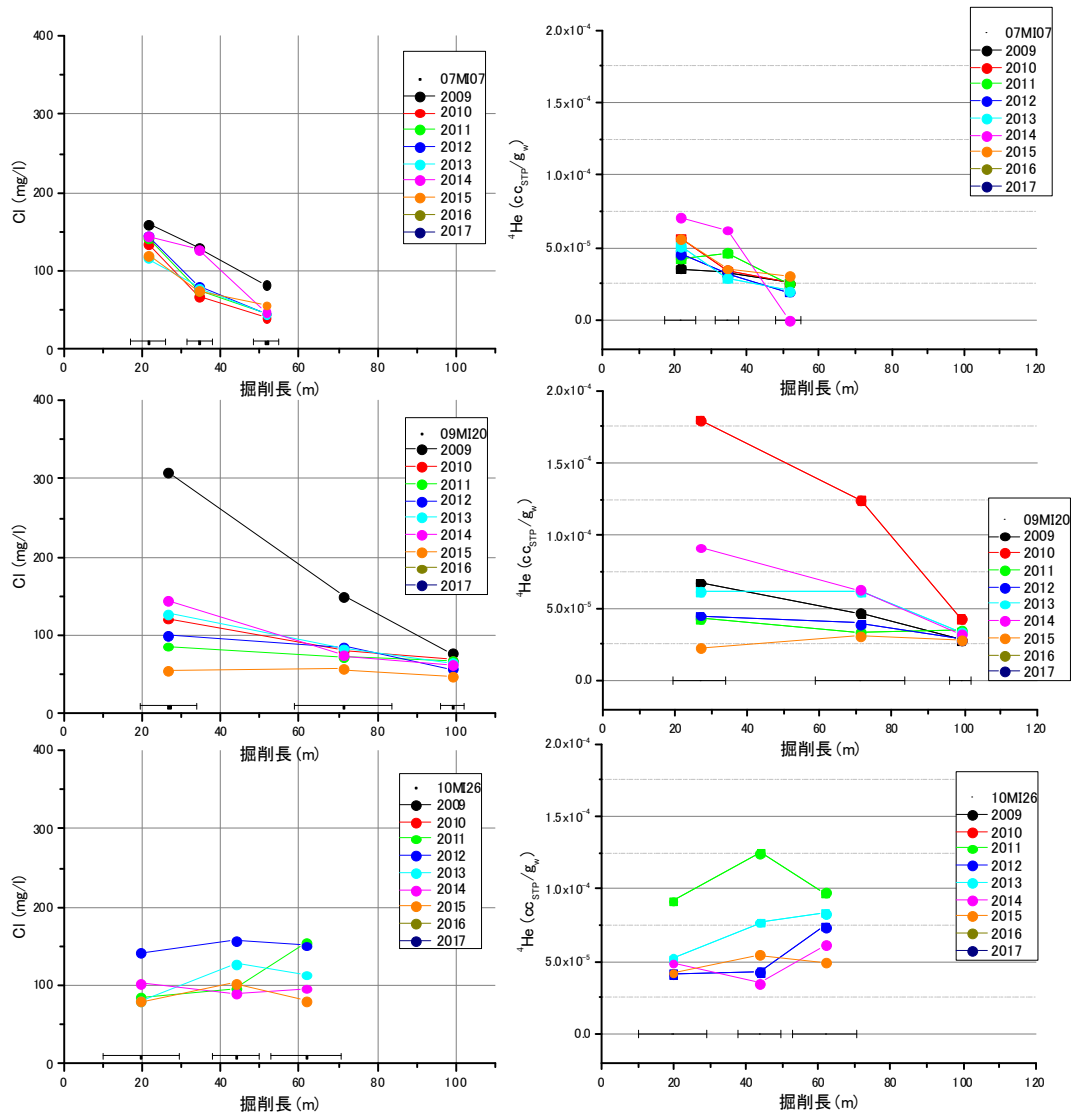


図 7.3.1-9 深層水指標の経時変化 (Cl と  $^4\text{He}$ )

$^4\text{He}$  濃度も Cl 濃度と整合的で低下傾向にある。今年度の調査結果は、これまでの調査結果で最も濃度が低い水準に有り、深層水が徐々に失われており、浅部からの流入が支配的になっていることを示している。300m アクセス坑道の 09MI21 と 300m ボーリング横坑の 12MI31 の  $^4\text{He}$  濃度は、立坑周辺と同じレベルであるが、500m 研究アクセス南坑道の 15MI52 孔では  $10^{-4}\text{cc}_{\text{STP}}/\text{g}_w$  程度の非常に高い  $^4\text{He}$  濃度が検出されている。このことから深部には古い地下水が残留していると考えられる。

#### (4) 前処理による $^{14}\text{C}$ 濃度の比較

これまで、 $^{14}\text{C}$  濃度の前処理は沈殿法で実施してきた。沈殿法は、地下水に水酸化ナトリウムもしくはアンモニウムを加えアルカリ性にした後、 $\text{BaCl}_2$  もしくは  $\text{SrCl}_2$  を加えて、 $\text{BaCO}_3$  もしくは  $\text{SrCO}_3$  の形態として沈殿させ、C を回収する方法である。一方で、ガス化法は、地下水にリン酸を加えて酸性にした後、ガス ( $\text{He}$  や  $\text{N}$ ) でバブリングして  $\text{CO}_2$  として C を回収する方法である。特に、瑞浪の地下水に沈殿法を用いた場合、沈殿が生成しない場合があることから、ガス化法を実施することとした。詳細については後述するが、沈殿法では、大気起源の  $\text{CO}_2$  が溶解することにより、 $^{14}\text{C}$  濃度が高く評価されることが明らかとなった。このため、同一試料を用いて沈殿法とガス化法とを比較した結果を図 7.3.1-10 に示す。さらに、図 7.3.1-11 に示すように同一試料についてガス化法と沈殿法で  $^{14}\text{C}$  と  $\delta^{13}\text{C}$  がどのように変化したかを確認した。大気の  $^{14}\text{C}$  と  $\delta^{13}\text{C}$  は、それぞれ  $104.3\text{pMC}$  と  $-6.5\text{‰}$  といわれている (Clark and Fritz, 1997)。大気混入による  $^{14}\text{C}$  と  $\delta^{13}\text{C}$  の変化は混入した大気量にもよるが概ね右上となる。図 7.3.1-11 にはその傾向が現れており大気混入を示唆している推測された。

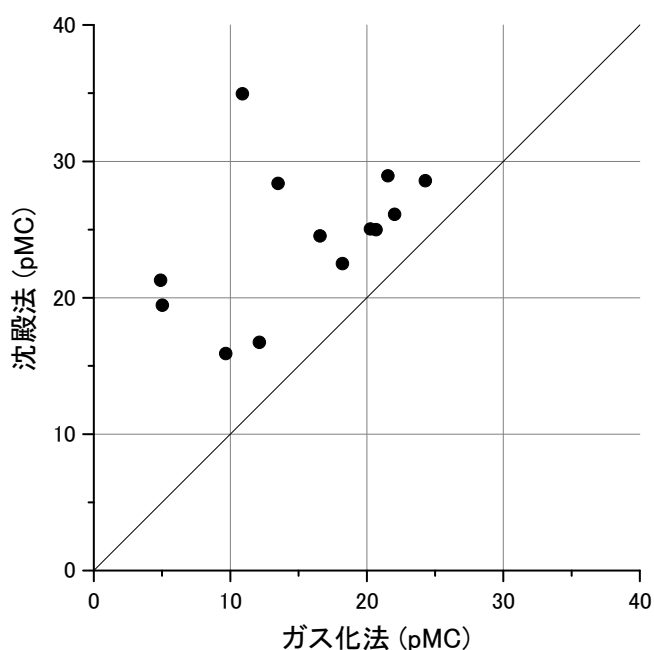


図 7.3.1-10 前処理方法による  $^{14}\text{C}$  濃度の比較



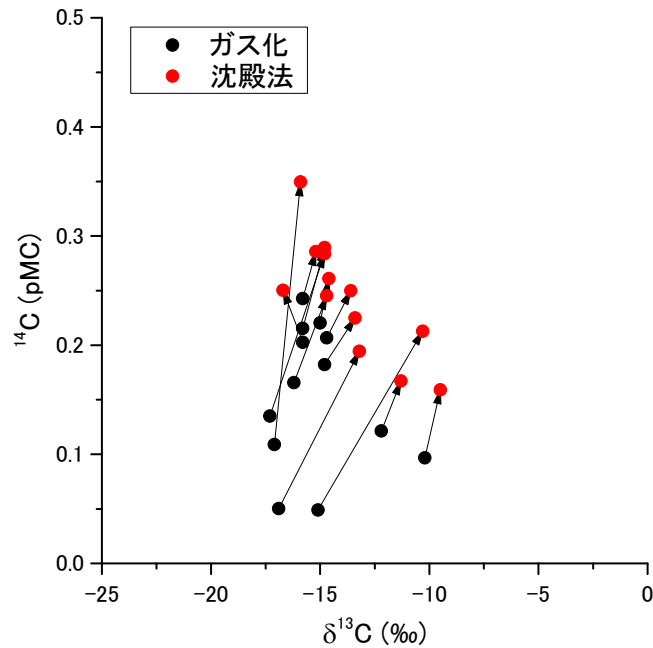


図 7.3.1-11 同一試料による前処理法による  $^{14}\text{C}$  と  $\delta^{13}\text{C}$  の変化

(5) 混合指標の相関の検討

浅層水や深層水の指標としては、浅層水に含まれ深層水に含まれないものとして、 $^3\text{H}$ 、CFCs、 $\text{SF}_6$  など、深層水で濃度が高いものとして、C1 と  $^4\text{He}$  などを用いて議論してきた。しかしながら、これらの指標が適切かどうかは判断が難しいため、相関分析を実施した。相関分析を実施した項目は、表 7.3.1-5 に示すとおりである。補正  $^{14}\text{C}$  とは、 $^{14}\text{C}$  濃度が鉱物の溶解などで希釈される可能性があることから、鉱物溶解による希積分を補正することである。ここでは、地下水と鉱物の 2 成分混合を仮定し、地下水の  $\delta^{13}\text{C}$  を  $-18\text{‰}$ 、鉱物の  $^{14}\text{C}$  と  $\delta^{13}\text{C}$  を 0 pMC と  $0\text{‰}$  として図 7.3.1-12 のように補正した。ここでは、これまでに評価してきたものだけでなく、F と B についても相関をとった。表 7.3.1-5 には相関係数 ( $R^2$ ) を示した。

相関分析の結果から特に  $\delta\text{D} \cdot \delta^{18}\text{O}$ 、 $^{14}\text{C}$ 、C1 とが他の項目と相関が高い。 $\delta\text{D} \cdot \delta^{18}\text{O}$  は、前述のように、浅層水と深層水とで値が大きく異なり、混合指標としてよく使われるように、地化学反応などの影響を受けにくいためであると考えられる。 $\delta\text{D}$  は、 $^{14}\text{C}$ 、補正  $^{14}\text{C}$ 、C1、F と相関が高い、 $\delta^{18}\text{O}$  は、 $^{14}\text{C}$ 、補正  $^{14}\text{C}$ 、C1、 $^4\text{He}$  と相関が高い。特に、補正  $^{14}\text{C}$  は  $\delta\text{D}$  と  $\delta^{18}\text{O}$  と相関係数が 0.9 を超えており、非常に高い相関を示している。これは、ガス化法により大気由来の  $^{14}\text{C}$  の寄与が減ったことにより、浅部と深部との  $^{14}\text{C}$  の差が明確に見えるようになったものと考えられる。浅部の  $^{14}\text{C}$  濃度は、初期の涵養状態、炭酸塩の溶解による希釈によって異なり、浅部と深部とで重炭酸量が異なる場合、混合の影響が異なるはずである。ただし、今年度の調査結果についてはその影響は明確ではない。また、 $\delta\text{D}$

や  $\delta^{18}\text{O}$  と Cl との相関が高い。Cl 濃度はボーリング調査の結果では深度依存性があり、深部ほど濃度が高いため、混合率の算出は難しいと考えられた。Cl 濃度は近年増減がそれほど明確でなく、深部からの濃度の高い Cl の供給が少なくなったため、混合指標として有効になったのではないかと考えられる。同様に、 $^4\text{He}$  についても相関係数が大きいのも、深部の He 濃度の高い地下水の流入が限定的になったためと考えられる。

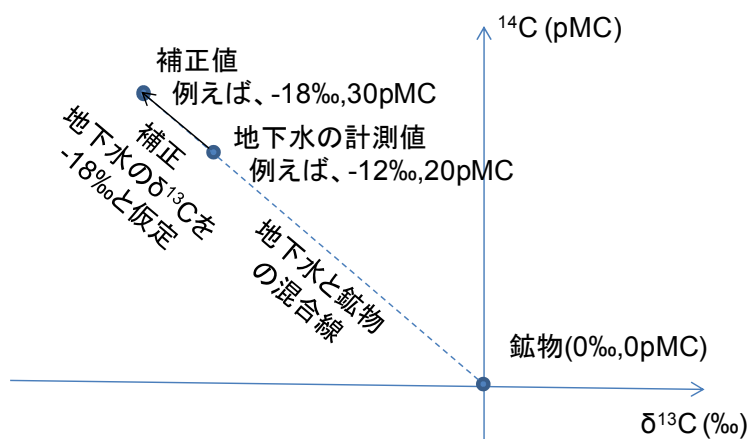


図 7.3.1-12 補正  $^{14}\text{C}$  算出方法の概念図

表 7.3.1-5 主要な成分の相関分析結果 ( $R^2$ )

	$^3\text{H}$	$^{14}\text{C}$	補正 $^{14}\text{C}$	$\delta\text{D}$	$\delta^{18}\text{O}$	$\text{SF}_6$	Cl	$^4\text{He}$	F	B
$^3\text{H}$	1.00	0.27	0.39	0.50	0.18	0.29	0.46	0.10	0.43	0.13
$^{14}\text{C}$		1.00	0.92	0.81	0.84	0.14	0.75	0.71	0.48	0.66
補正 $^{14}\text{C}$			1.00	0.90	0.90	0.22	0.91	0.69	0.51	0.59
$\delta\text{D}$				1.00	0.81	0.30	0.92	0.66	0.71	0.32
$\delta^{18}\text{O}$					1.00	0.18	0.84	0.77	0.42	0.44
$\text{SF}_6$						1.00	0.32	0.07	0.21	0.02
Cl							1.00	0.55	0.57	0.35
$^4\text{He}$								1.00	0.27	0.38
F									1.00	0.08
B										1.00

(6) 浅層水混合の概念モデル

混合指標の検討結果から、水素酸素同位体が混合指標として有望であると考えられた。この水素同位体と酸素同位体の関係を図 7.3.1-13 に示す。図から酸素同位体に基づけば、混合は 300m ステージ付近で 40~50%と最も大きく、次に 200m ステージでの 30~40%、400m ステージでの 20~30%、深度 500m

の 15MI52 孔と 300m ボーリング横坑の約 20%、300m アクセス坑道の 09MI21 孔の約 5%となる。

湧水量は、概ね 500~800 m<sup>3</sup>/日 で変動しており、平均を 600 m<sup>3</sup>/日 として 10 年間程度湧出していると考え、これまでに約 220 万 m<sup>3</sup> の湧水があったことになる。花崗岩の間隙率を 1~2% とすると、一辺 500m の立方体分と等価な領域の地下水が湧出したことになり、これは、立坑周辺の地下水が浅層水に入れ替わるには十分な湧水量と考えられる。しかしながら、浅層水の混合率は立坑周辺でも 30% 程度とそれほど大きくない。また、深部に Cl 濃度や He 濃度の高い地下水が存在し、ボーリング孔でのこれらの濃度の増加も顕著でないことから、深部からの地下水の流入はそれほど多くないと考えられた。

このため、浅層水の混合は、概念的に図 7.3.1-14 のようにかける。浅層水は主に立坑周辺で流入が激しく、立坑から少し離れると混合率が低下する。例えば、300m ステージと 300m ボーリング横坑ではかなり浅層水の混合率が異なる。また、浅層水の混合率は浅部から流れ込むため、200m ステージの方が 300m ステージよりも混合率が高くなるはずであるが、300m ステージの方が混合率の高い結果となっている。このため、必ずしも全体的に浅層水が混合しているわけではないと考えられる。

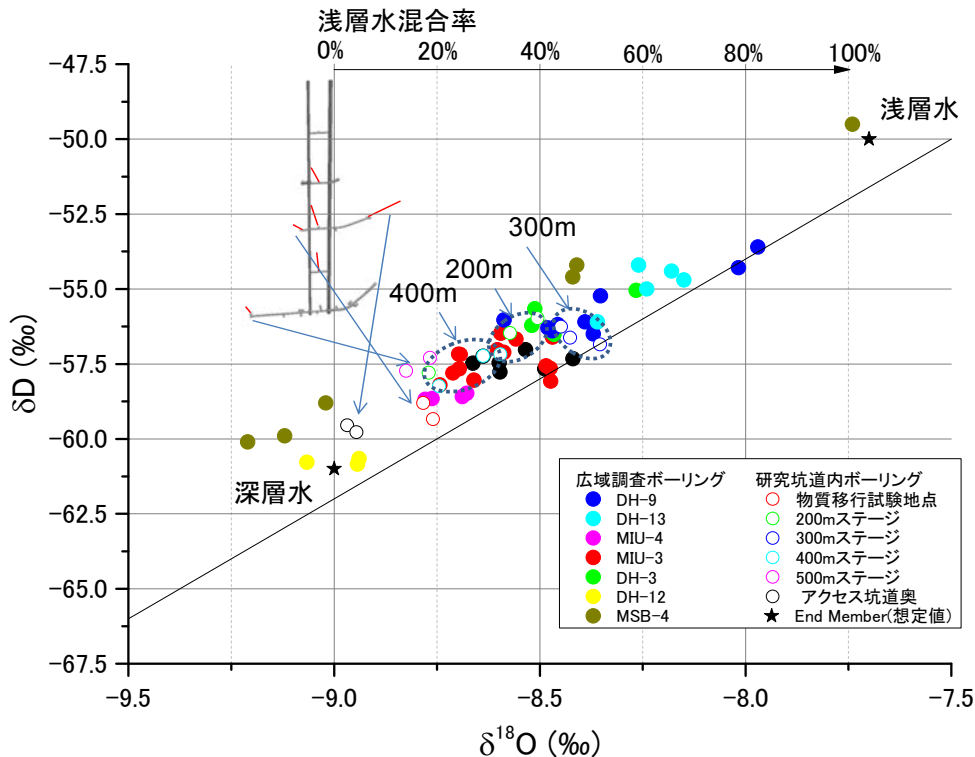


図 7.3.1-13 水素同位体と酸素同位体の関係

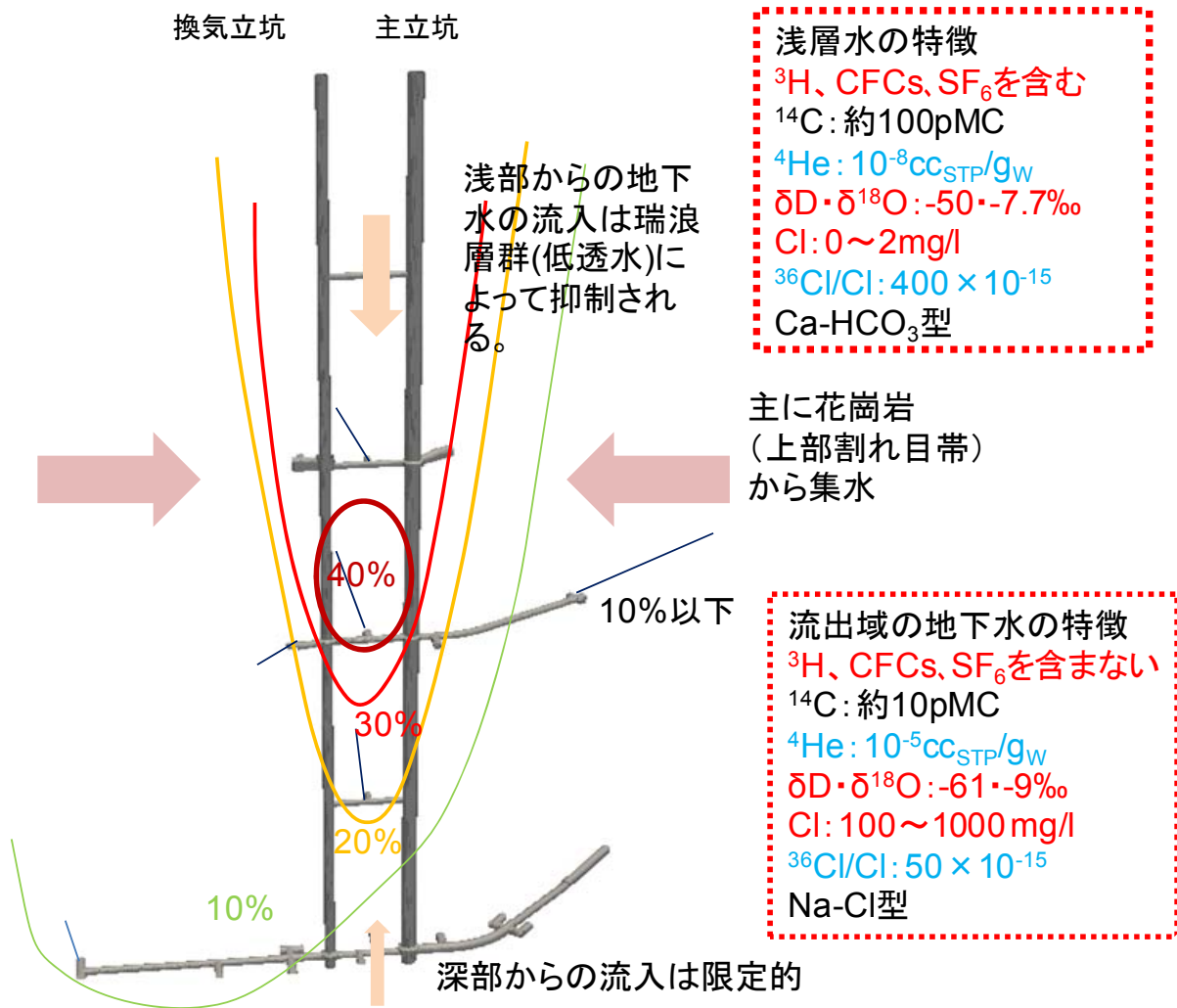


図 7.3.1-14 浅層水流入の概念モデル

### 7.3.2 瑞浪における地下水流動・物質移行解析

#### 7.3.2.1 掘削に伴う地下水流動・水質変化の概要

精密調査段階の施設建設においては、比較的広い範囲で地下水流動・物質移行現象が発生すると考えられる。これは、水理試験などよりも広い範囲で大きな地下水流動や水質変動を与えるため、地下水流動解析モデルの検証や、物質移行現象の評価に有効であると考えられている(Mahara et al. (2001)、長谷川ほか(2004))。ここでは、瑞浪超深地層研究所の建設を対象に、このような地下水流動・水質分布の変化に着目した地下水流動・物質移行解析を実施した。

瑞浪超深地層研究所は2005年から建設が開始され、これまでに、主立坑、換気立坑、研究坑道などが深度500mまで建設されている。湧水量は概ね500~800 m<sup>3</sup>/日で変動しており、図7.3.2-1のように示される(佐藤ほか(2013)、上野ほか(2014))。湧水量の平均を600 m<sup>3</sup>/日とすると、これまでに約200万m<sup>3</sup>の湧水があったことになる。花崗岩の間隙率を2%とすると、500mの立方体分と等価な領域の地下水が湧出したことになる。

湧水量は、主立坑、換気立坑などに数十メートル間隔で設置されたWater Ring(以下、WR)で、図7.3.2-2に示すように計測されている。WRによって湧水量が大きく異なることがわかり、特に、200m予備ステージや300m研究アクセス坑道からの流量が比較的大きいことがわかる。湧水量の深度方向分布の経時変化を、図7.3.2-3に示す。

地下水が湧出するため、図7.3.2-4に示すように、周辺のボーリング孔でも有意に水圧低下が発生している(毛屋・竹内(2010a, 2010b)、狩野ほか(2011a, 2011b)、狩野・竹内(2012a, 2012b, 2013a, 2013b)、別府ほか(2013, 2014))。研究施設周辺の水圧低下は、難透水性断層で規制されており、主立坑断層の北東側と南西側で2種類の水圧応答に分類できる。

立坑への湧水量と、周辺のボーリング孔での水圧低下をまとめた地下水流動の概念図を図7.3.2-5に示す。特に湧水量が多い地点とボーリング孔での水圧低下を概念的に示した。特徴的なのは、湧水量が多い地点が瑞浪層群と花崗岩の境界付近に集中していることである。これは、地層境界付近が高透水であることを示していると考えられる。予備ステージやアクセス坑道で湧水量が大きいことから、鉛直の構造をもつ割れ目などによって湧水が供給されていると考えられる。また、換気立坑の深度300mと深度400mでも湧水量が多くなっている。

水圧低下は、主立坑と換気立坑に近いボーリング孔で大きい。研究所に近い、MSB-2孔およびMSB-3孔では100m程度、その他のボーリング孔でも50m近い水圧低下が観測されている。ただし、MSB-1~4孔の浅部では、水圧低下が有意ではない。一方で、かなり離れたDH-15孔でも50m程度の水圧低下が発生している。このため、研究所建設に伴い花崗岩内ではかなり広い範囲で水圧低下が発生しているが、低透水性の瑞浪層群より上位層では水圧低下が限定的と推定される。

立坑の建設に伴い、周辺の水質も変化している(齋ほか(2010, 2011)、新宮ほか(2011, 2012)、大森

ほか(2013, 2014a, 2014b))。立坑への湧水の C1 濃度の変化を図 7.3.2-6 に示す。換気立坑に湧出する地下水の C1 濃度は、時間とともに増加し、その後低下する傾向が見られる。主立坑での C1 濃度は有意な変化は見られない。水野ほか(2013)は、研究坑道内から掘削した水質モニタリングボーリングでの C1 濃度の変化を示している。これらの結果でも、C1 濃度は時間的に上昇してから低下する傾向が確認されている。研究施設建設前の調査で、C1 濃度は深度方向に濃度が高くなる傾向があることが確認されている(三枝ほか、2007)。このため、この C1 濃度の変化は、建設によって深部から C1 濃度の高い地下水が流入し、その後浅部から C1 濃度の低い地下水が流入したと考えられている(水野ほか、2013)。

水素・酸素同位体比の深度分布の経時変化を、それぞれ図 7.3.2-7 と図 7.3.2-8 に示す。立坑周辺の地下水の水素・酸素同位体比は、現在の降水よりも有意に低い。これは、研究所が流出域に位置し、地下水年代も数万年以上前と考えられるため、氷期に涵養した地下水が残留していると考えられている(Iwatsuki et al., 2005)。ただし、立坑の掘削に伴い、水素・酸素同位体比が重い現在の降水が流入してくるため、浅部から徐々に水素・酸素同位体比は現在の降水の値に近づいている。水素・酸素同位体比は、浅部では $-50\text{‰} \cdot -7.7\text{‰}$ 、深部では $-61\text{‰} \cdot -9\text{‰}$ 程度が代表値ではないかと推測される。深部でも浅層水の流入によって徐々に重くなっている傾向が見られる。特に、湧水量の多い 200m 予備ステージと 300m 研究アクセス坑道に挟まれた主立坑の深度 200~300m 付近で値が大きくなっており、地表水の流入の可能性が考えられる。

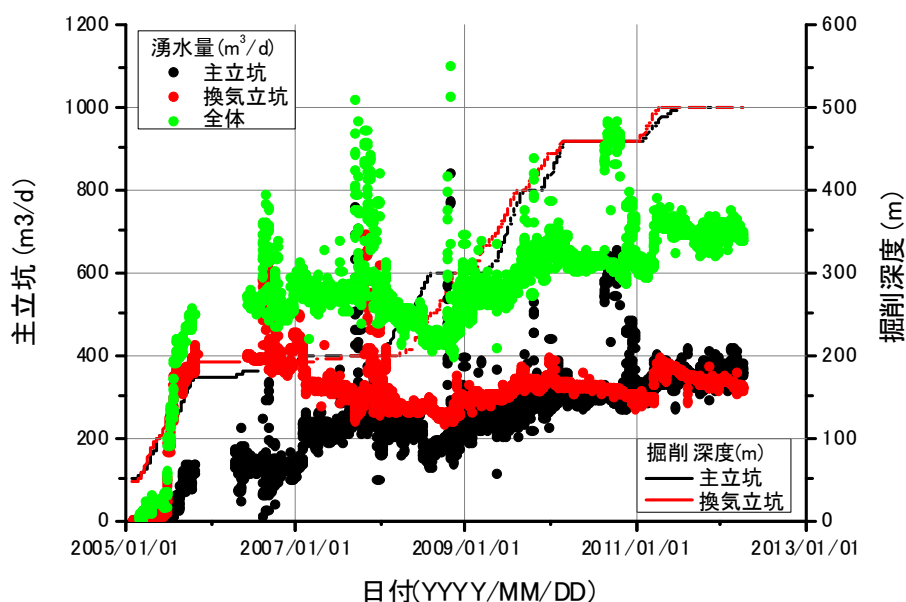
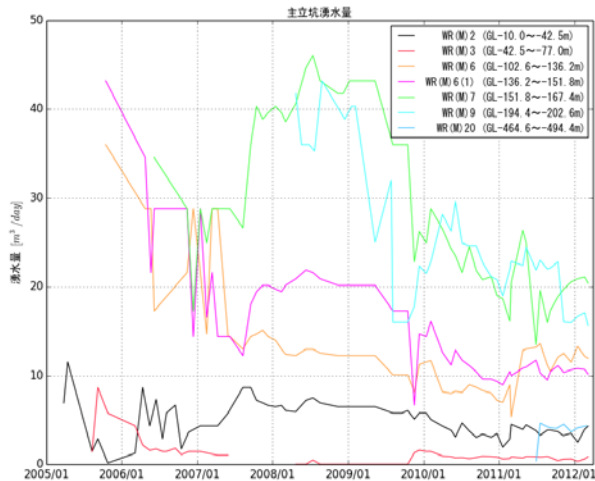
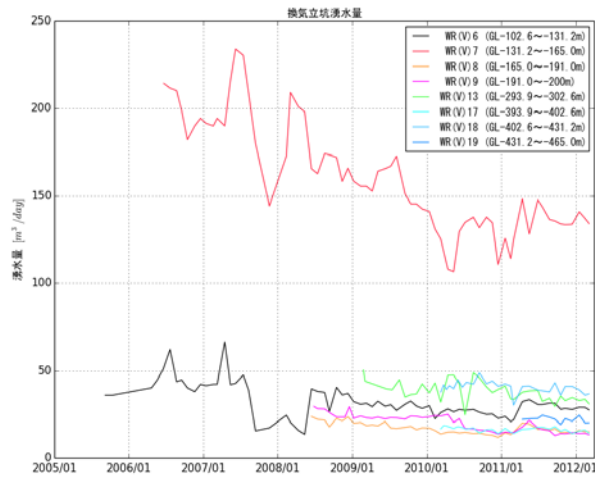


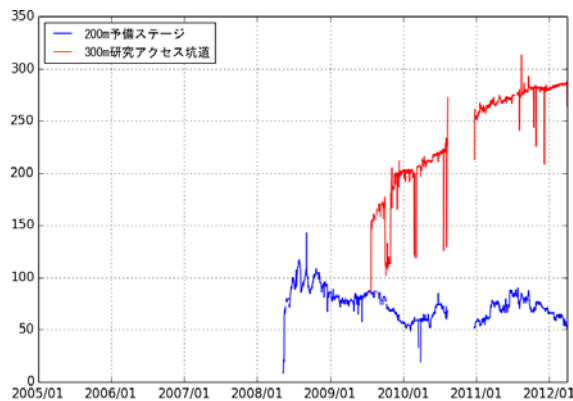
図 7.3.2-1 立坑への湧水量の経時変化



(1) 主立坑 WR 湧水量



(2) 換気立坑 WR 湧水量



(3) 200m 予備ステージ・300m 研究アクセス坑道の湧水量

図 7.3.2-2 主立坑・換気立坑、坑道などへの湧水量

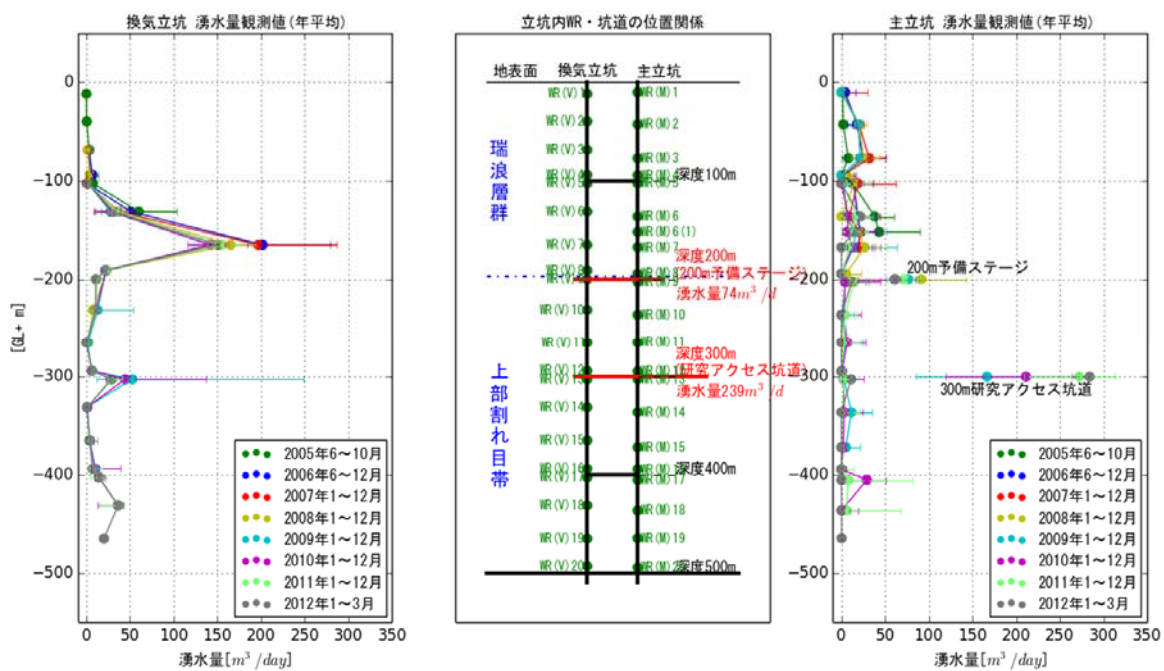


図 7.3.2-3 主立坑・換気立坑、坑道などへの湧水量の深度方向分布

主立坑断層の北東側

※MSB-3  
浅部では北東側  
深部では南西側

主立坑断層の南西側

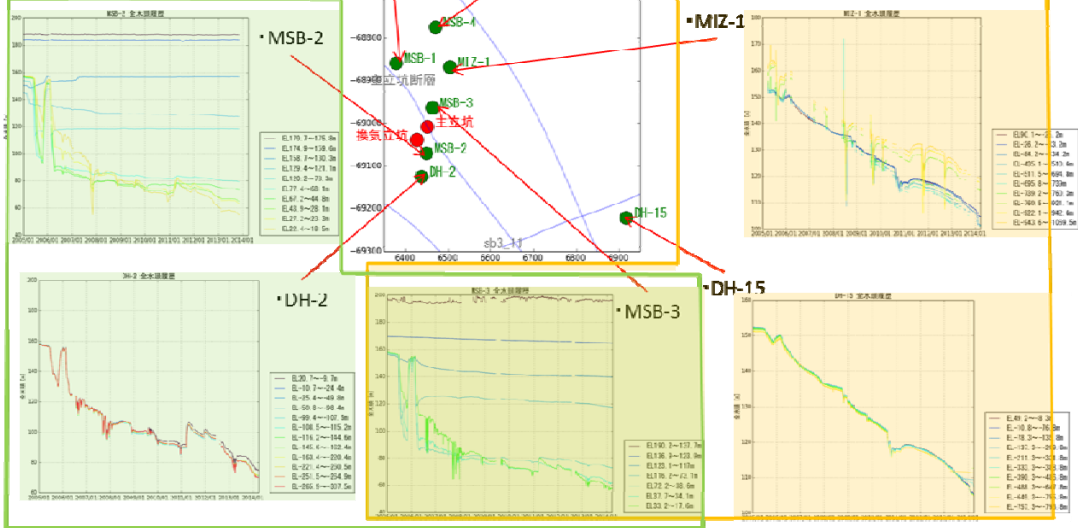


図 7.3.2-4 難透水断層を考慮したボーリング孔水圧挙動の分類

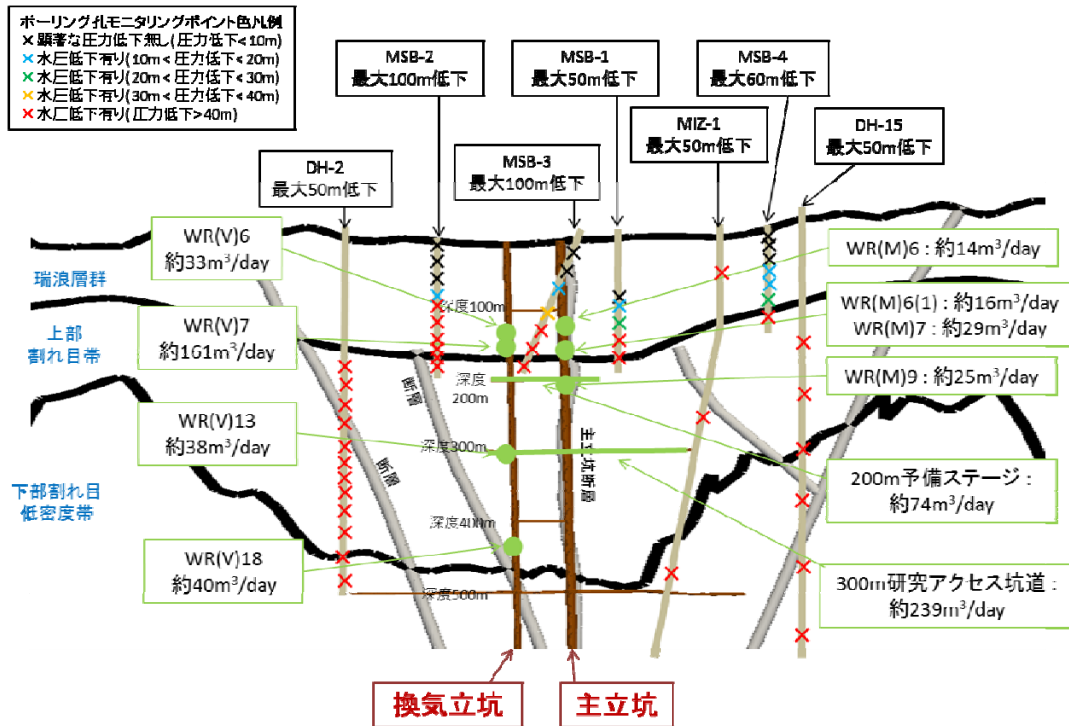
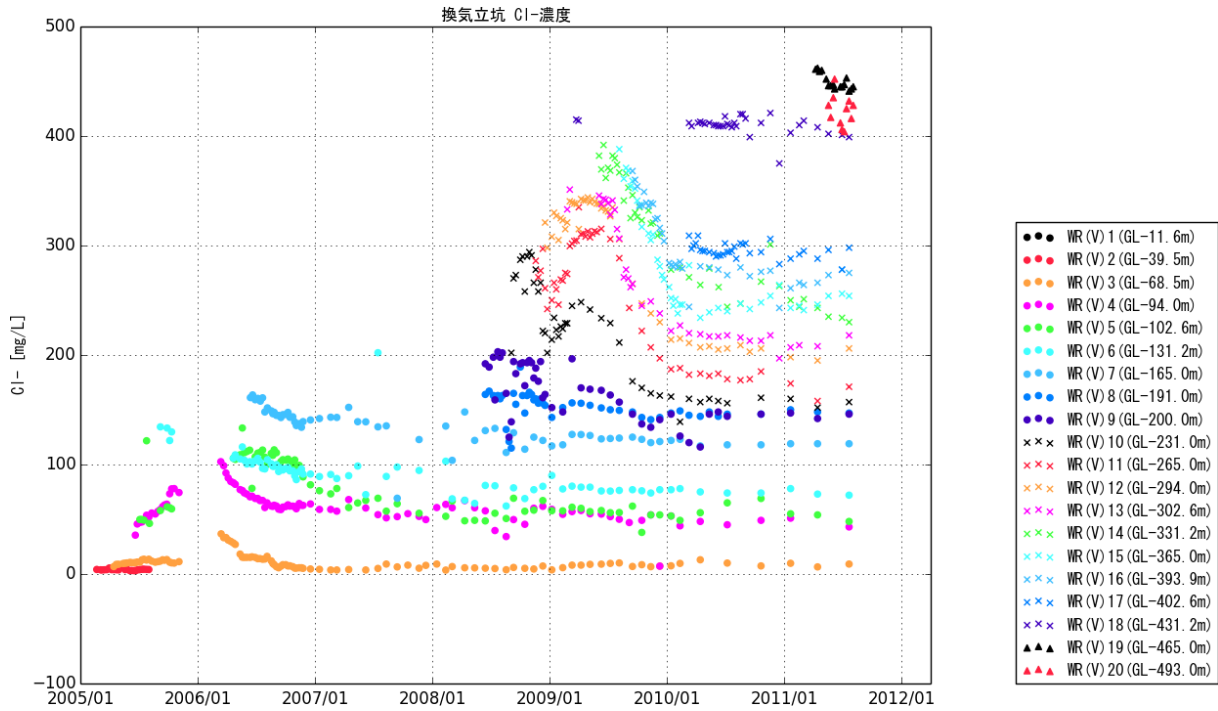
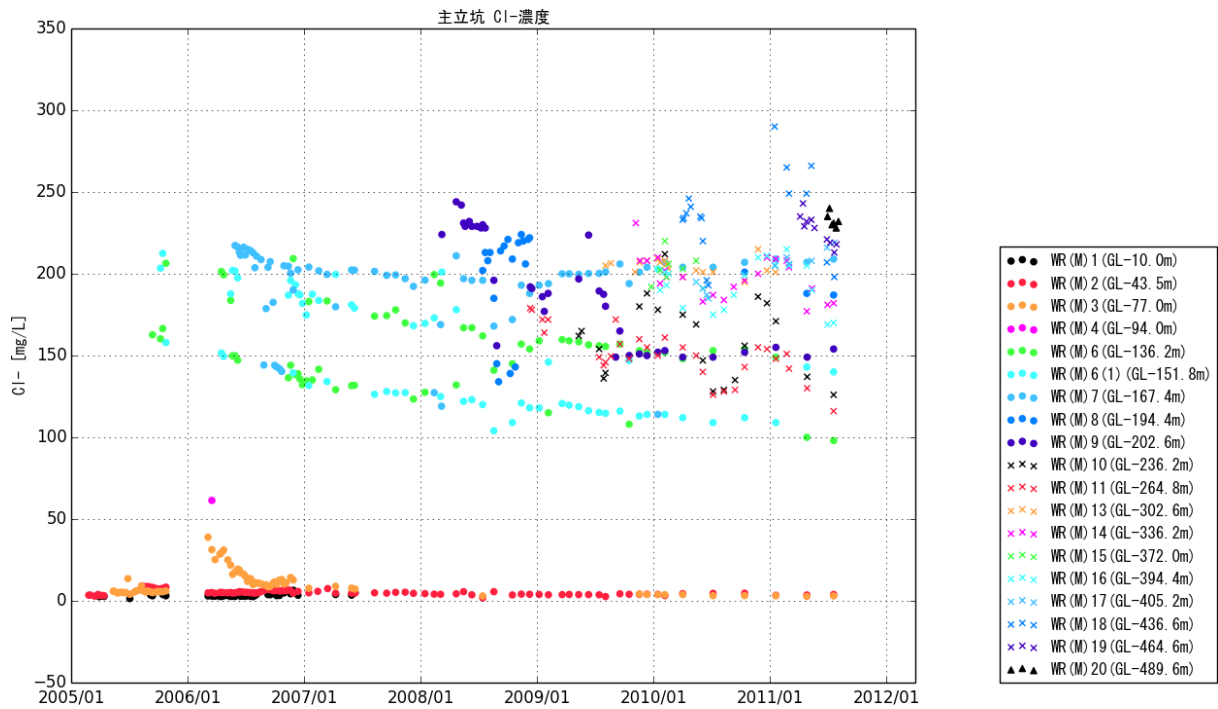


図 7.3.2-5 立坑周辺での地下水湧出と水圧低下の概念図





(1) 換気立坑



(2) 主立坑

図 7.3.2-6 立坑湧水の Cl 濃度の経時変化

浅層水の流入の影響を見るためにトリチウムの深度方向分布の経時変化を、図 7.3.2-9 に示す。トリチウムの半減期は、12.3 年と短く、地表水には 3.7 TU 程度含まれる。このため、新しい地下水には含まれるが、古い地下水には含まれず、地表水の流入の指標になる。トリチウムは、明確な深度依存分布が確認でき、地表付近で値が高く、深くなるほど値が小さくなる傾向がある。特に、湧水量の多い 200m 予備ステージと 300m 研究アクセス坑道付近で、1 TU 程度の値が観測されている。これは、水素・酸素同位体比と同様の傾向であり、地表面由来の水が深部にも流れ込んでいることを示している。

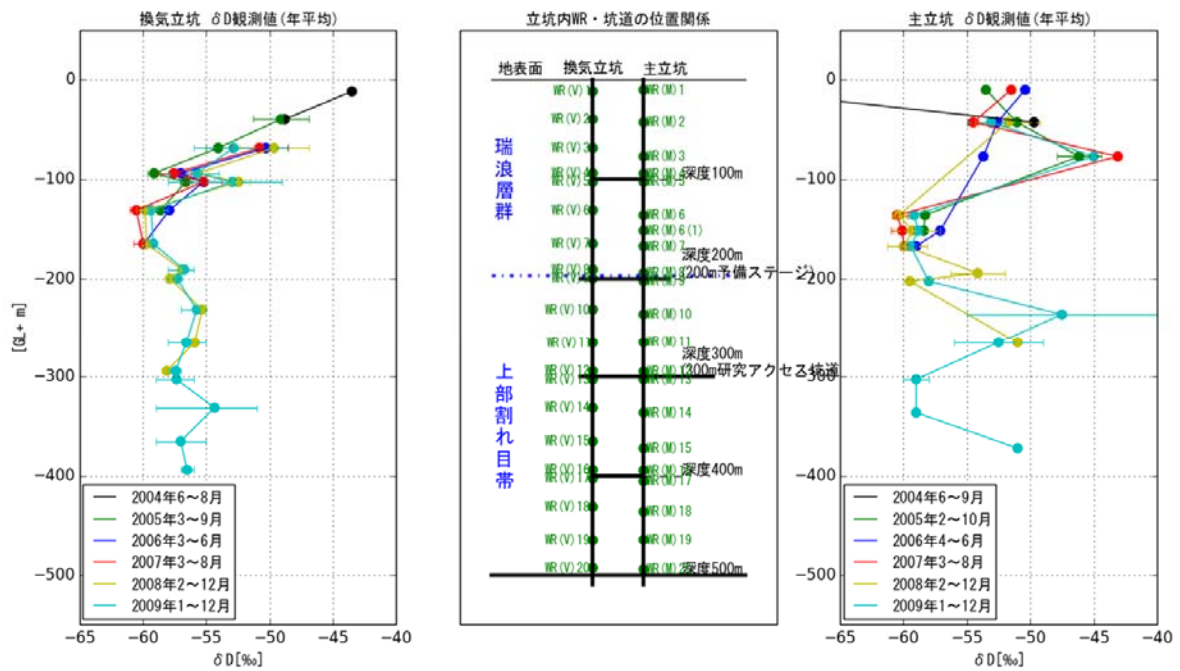


図 7.3.2-7 立坑湧水の  $\delta D$  濃度深度方向分布の経時変化

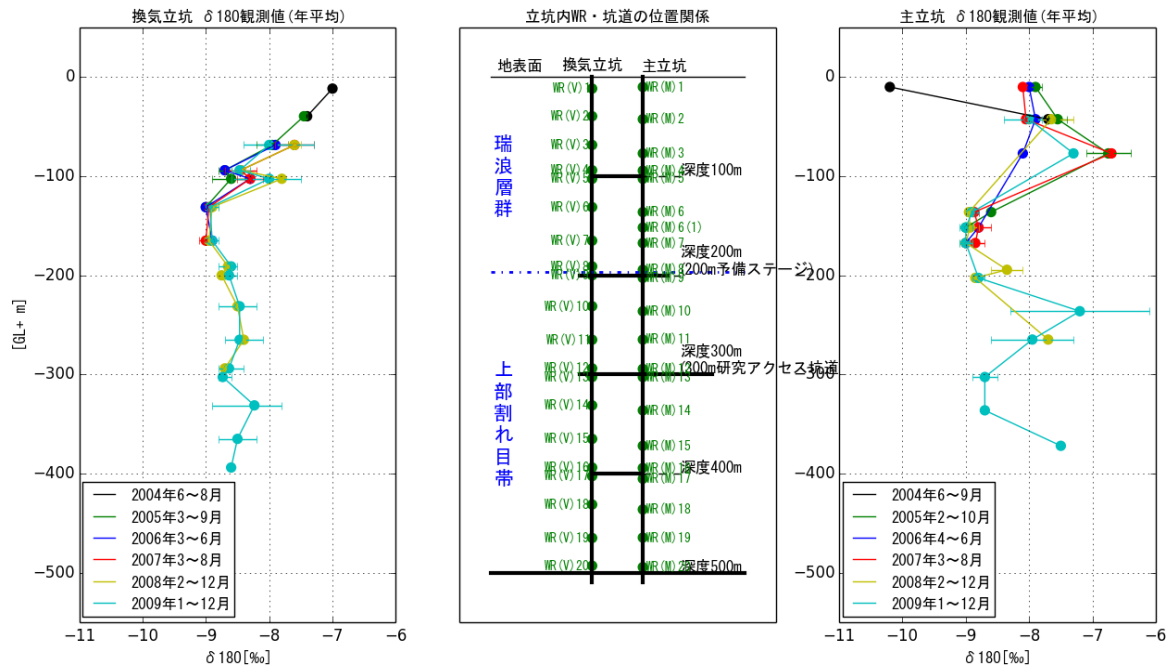


図 7.3.2-8 立坑湧水の δ<sup>18</sup>O 濃度深度方向分布の経時変化

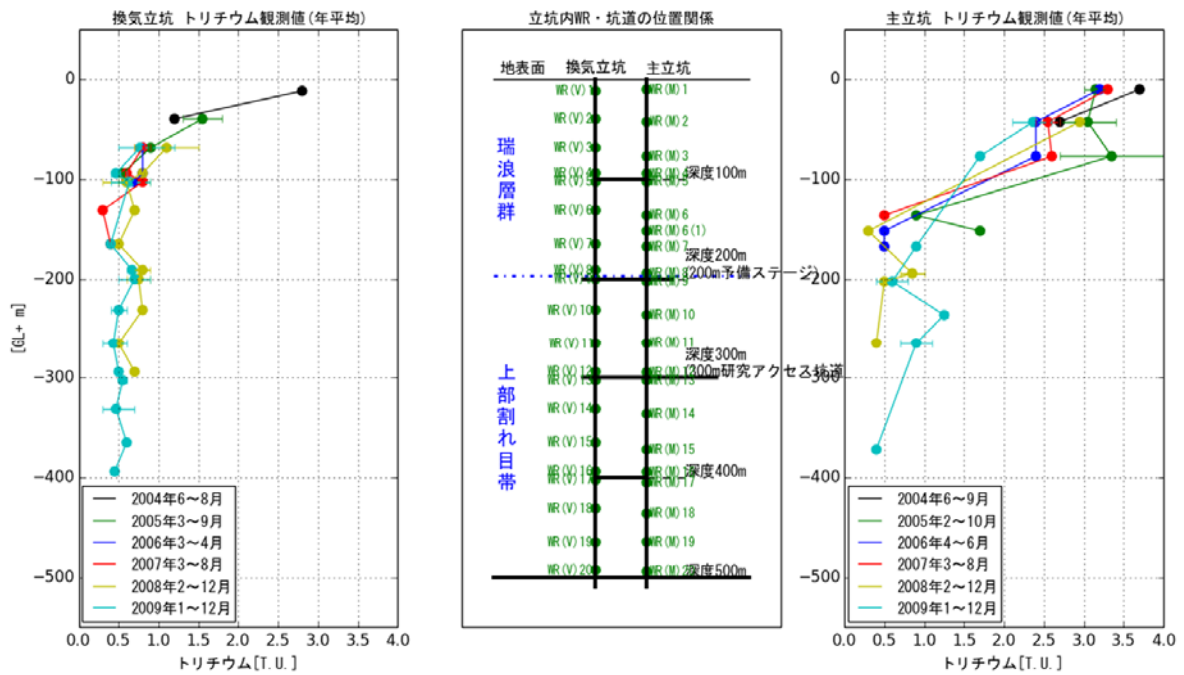
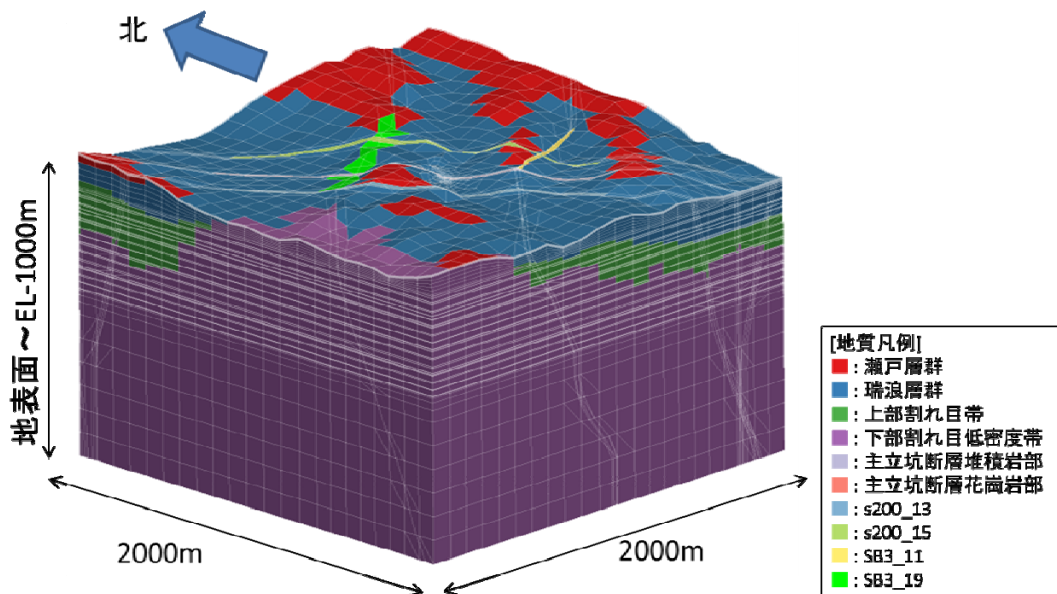


図 7.3.2-9 立坑湧水の <sup>3</sup>H 濃度深度方向分布の経時変化

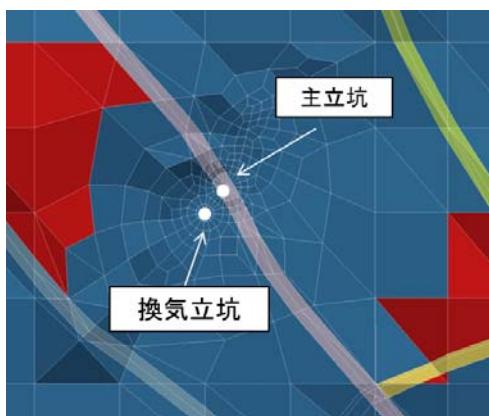
### 7.3.2.2 解析モデル

前述のように瑞浪超深地層研究所建設により、立坑に向けて地下水流動が発生している。この地下水流動が、水圧、水質・地下水年代分布にどのような影響を与えるかを検討するために、地下水流動・物質移行解析を実施する。

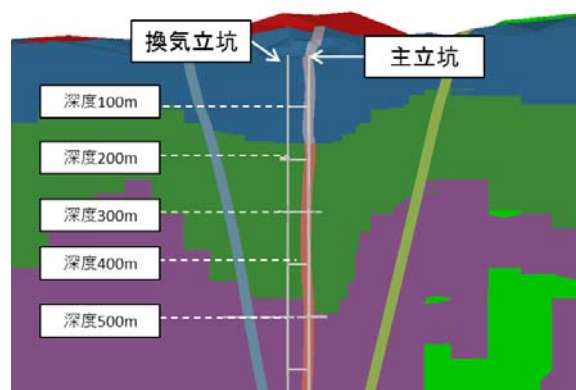
解析モデルは、JAEA が作成した地形・地質などを考慮したモデル(小坂ほか、2010)に基づいて作成した。解析モデル図を図 7.3.2-10 に示す。解析モデルは主要な地層と主立坑断層をモデル化した。今年度は、立坑周辺の低透水性の断層を陽にモデル化し、その他の断層については、スメアード法(長谷川ほか、2004)で間接的に表現することとした。陽にモデル化した断層を図 7.3.2-11 に示す。また、図 7.3.2-12 に示すように、昨年度のモデルでは断層による水理的なコンパートメントを十分に表現できていなかったため、今年度は断層の交差位置を考慮したモデルを作成した。



(1) 解析メッシュの全体図

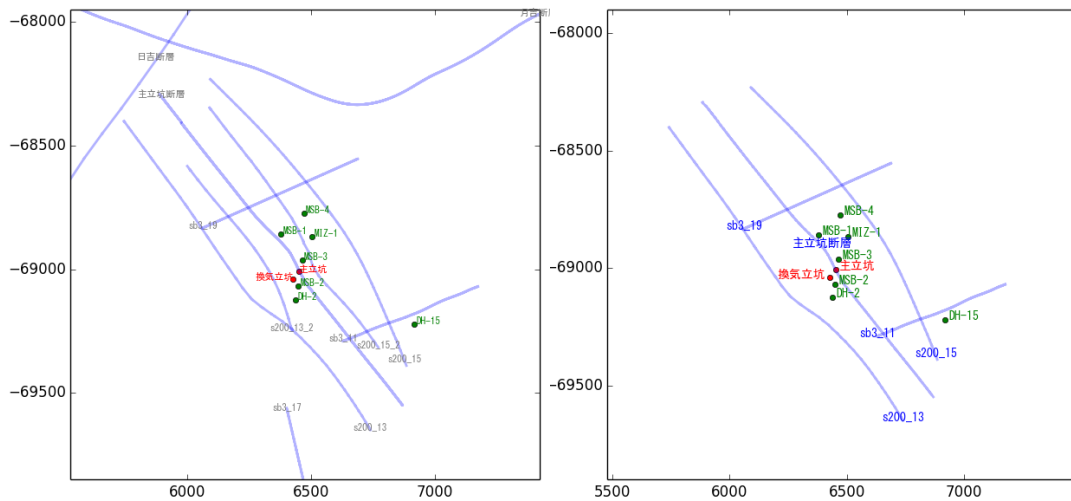


(2) 研究所周辺のメッシュ分割



(3) 研究所周辺でのメッシュ断面図

図 7.3.2-10 解析に用いた FEM 解析メッシュ



(1) 2014 年度モデルで考慮した断層

(2) 2015 年度モデルで考慮した断層

図 7.3.2-11 解析モデルで考慮した断層

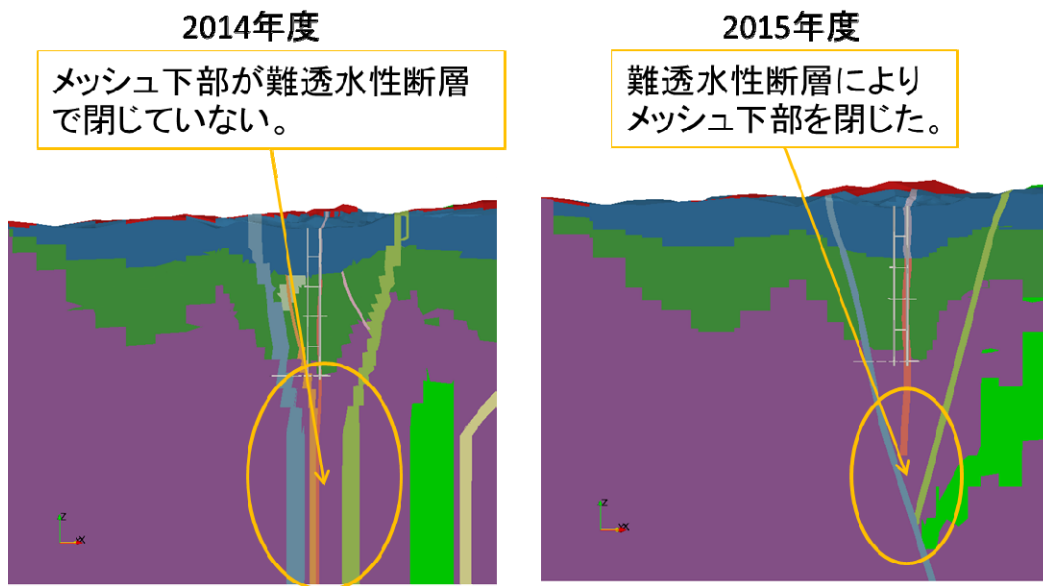


図 7.3.2-12 断層交差箇所におけるモデル化の変更点

### 7.3.2.3 解析条件

#### (1) 境界条件の設定

地下水流動・物質移行解析の境界条件は図 7.3.2-13 のように設定した。

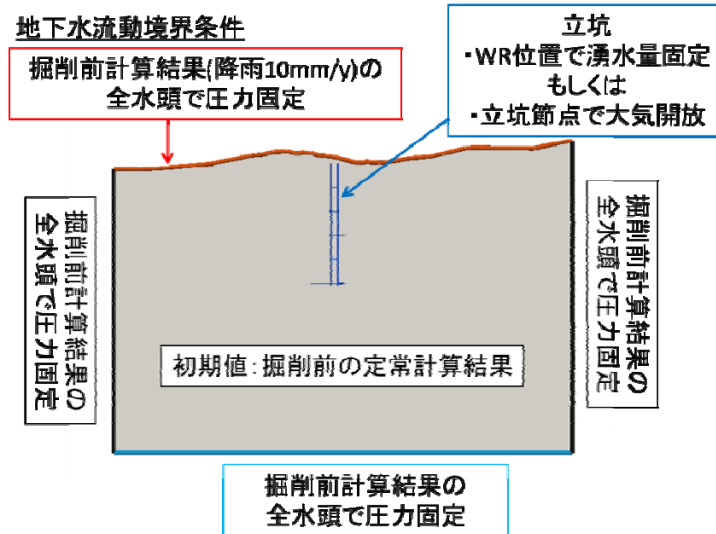
地下水流動解析の境界条件は、小坂ほか(2010)を参考に、涵養量を 10 mm/y と設定し、その他の境界条件を不透水境界条件としてより広域の地下水流動を実施した。その解析結果をモデル地表面・側面・底面に圧力固定条件として設定した。掘削後の状態を再現するため、掘削が終了している立坑位置の節点について、大気固定条件として圧力水頭 0m を設定したケースと、WR、200m 予備ステージ、

300m 研究アクセス坑道で観測されている湧水量を流量既知として設定したケースを実施した。なお、定常解析では、湧水量は時系列データの平均値を設定した。非定常解析では、WRなどで計測されている値を既知流量節点条件として与えた。掘削によって立坑は大気圧解放されるが、掘削によって損傷領域の透水係数の増加やグラウトの注入による透水係数の低下が考えられる。大気圧固定条件ではこれを直接評価する必要があるが、流量既知境界条件ではこれらが加味されるため、両方の境界条件を試した。

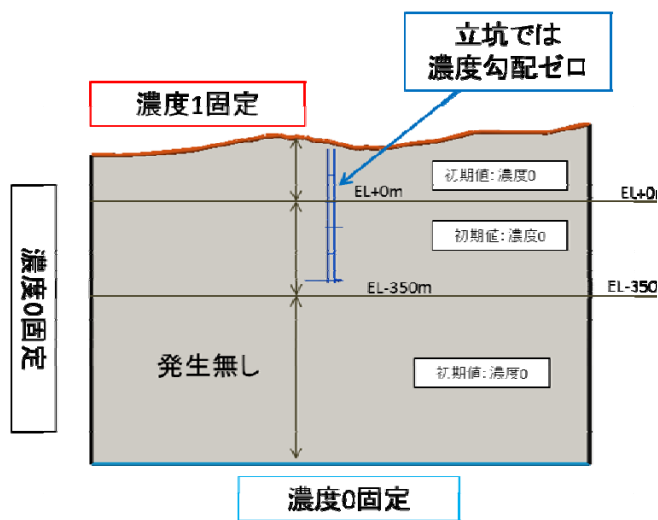
物質移行解析の境界条件は、浅層水と深層水の混合状況を評価するために、モデル地表面をトレーサー濃度 1 で固定し、その他を 0 で固定した。水素・酸素同位体比は、浅層水と深層水の混合率から、浅層水と深層水の代表値を用いて換算して表示した。立坑の境界条件は、濃度勾配  $0(\partial C/\partial x=0)$  の境界を設定した。このため、立坑へ湧出する地下水の濃度は、内部の濃度に依存することになる。

## (2) 物性値の設定

解析に用いた物性値には、既存の報告(小坂ほか, 2010、尾上ほか, 2014)を参考に、表 7.3.2-1 のように設定した。なお、物質移行解析に使用する分散長は、すべて一律に縦分散 100m、横分散 10m、分子拡散係数は影響が小さいとして無視した。



(1) 地下水流動解析の境界条件



(2) トレーサー濃度の境界条件

図 7.3.2-13 解析の境界条件図

表 7.3.2-1 瑞浪地域サイトスケールの物性と断層幅

地層名	透水係数 k[m/s]	断層幅 w[m]	間隙率 n[-]	比貯留係数 [1/m]	透水係数 校正値 [1/m]
瀬戸層群	1.0E-05	-	0.20	1.0E-06	1.0E-05
瑞浪層群	Kh: 1.0E-08 Kv: 1.0E-10	-	0.20	1.0E-06	1.0E-08
上部割れ目帯	2.0E-08	-	0.01	1.0E-06	1.0E-07
下部割れ目 低密度帯	2.0E-08	-	0.01	1.0E-06	1.0E-06
主立坑断層 (堆積岩部)	5.0E-08	1	0.01	1.0E-06	5.0E-07
主立坑断層 (花崗岩部)	3.2E-11	10	0.01	1.0E-06	1.0E-06
s200_13	3.2E-10	32	0.01	1.0E-06	3.2E-8
s200_15	1.0E-11	10	0.01	1.0E-06	1.0E-08
sb3_11	1.0E-11	12	0.01	1.0E-06	1.0E-08
sb3_19	1.0E-11	10	0.01	1.0E-06	1.0E-08



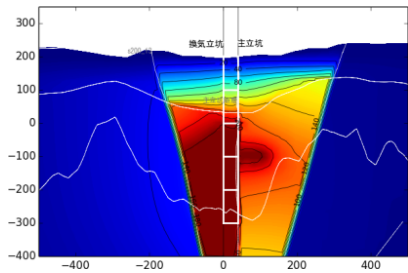
#### 7.3.2.4 解析結果

##### (1) 定常の地下水流動解析

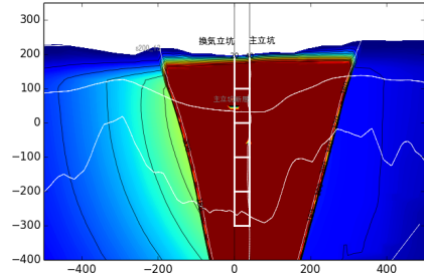
立坑掘削によって生じる地下水流動・物質移行は非定常現象ではあるが、非定常状態は計算負荷が大きいため、まずパラメータの感度などを定常解析で実施した後、非定常解析を実施することとした。表 7.3.2-1 の透水係数の設定を基本ケースとした。また、透水係数の感度解析を実施し、施設周辺の水圧低下の再現性をあげるために、透水係数を校正したケース(以下、校正ケース)でも解析した。校正ケースは、表 7.3.2-1 に示すように、主立坑断層堆積岩部が 10 倍、s200\_13 断層の透水係数が 100 倍、その他の遮水性断層が 1000 倍、上部割れ目帯の透水係数が 5 倍、瑞浪層群は  $1 \times 10^{-8} \text{m/s}$  と全体に透水係数を増加させている。

基本ケースで立坑の境界条件を大気圧固定条件と流量既知条件とした解析と、校正ケースで立坑の境界条件を流量既知条件とした解析を実施した。前述のように、定常解析の流量既知境界条件では流量の平均値を与えている。この結果を図 7.3.2-14 と図 7.3.2-15 に示す。図 7.3.2-14 には主立坑と換気立坑を通る鉛直断面での施設周辺の水圧低下分布、図 7.3.2-15 には周辺ボーリング孔での水圧低下の鉛直分布を示す。基本ケースでは、大気圧固定条件のほうが流量既知条件よりも水圧低下が小さくなるが、どちらも観測値より水圧低下が過大である。これは、施設周辺を囲むように存在する難透水性断層によるコンパートメント構造と瑞浪層群の透水係数異方性により、湧水量に対してコンパートメント構造内部への水の供給量が足りないことが原因と考えられる。そこで、コンパートメント構造外部とモデル地表面からの水の供給量を増やすため、難透水性断層の透水係数と瑞浪層群の透水係数異方性の感度解析を実施した。感度解析の結果、施設周辺の水圧低下量が観測値と比較的整合する透水係数の組合せを、前述の校正ケースとしている。

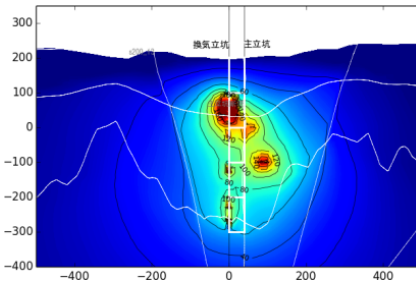
図 7.3.2-16 に、主立坑と換気立坑の基本ケースでの湧水量の計算結果を示す。大気圧固定境界条件では、解析値の湧水量は実測値に比べて少なく、湧水量が多い地点も異なる。これは、掘削による透水係数の増加やグラウトによる透水係数の低下などの影響を受けているためと考えられる。このため、流量既知境界条件の方がこれらの影響を考慮して境界条件が設定されるため、これ以降の解析は流量既知境界条件として実施した。



(1) 基本ケース，立坑大気圧固定条件



(2) 基本ケース，立坑湧水量既知条件



(3) 校正ケース，立坑湧水量既知条件

図 7.3.2-14 立坑周辺の水圧低下量分布

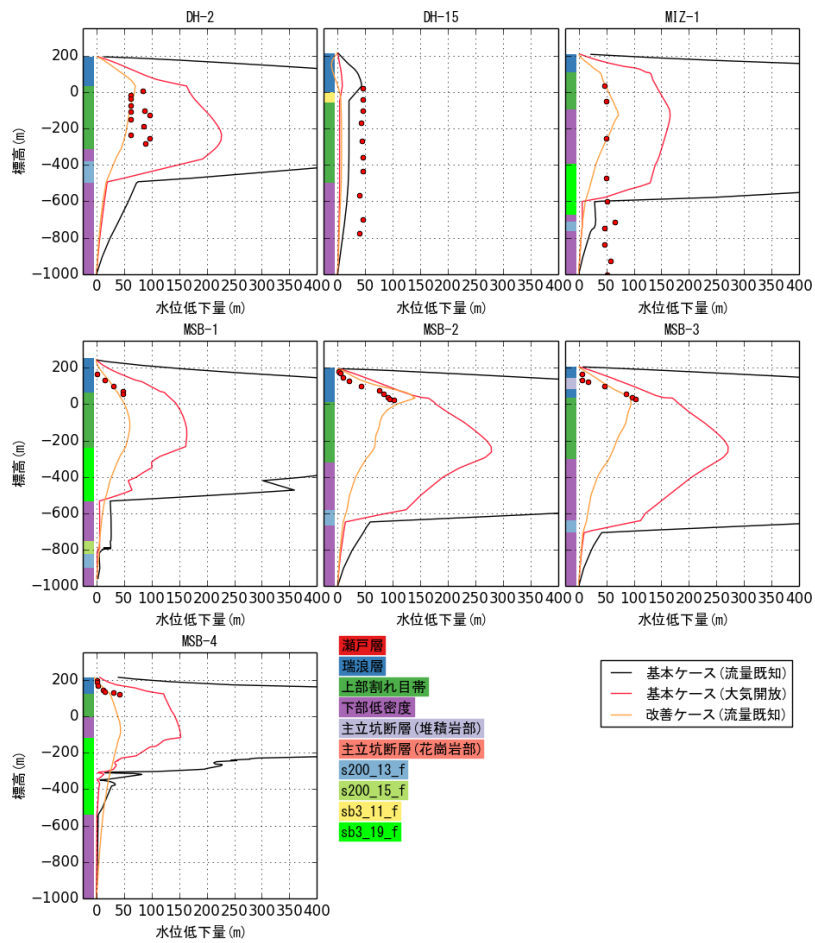
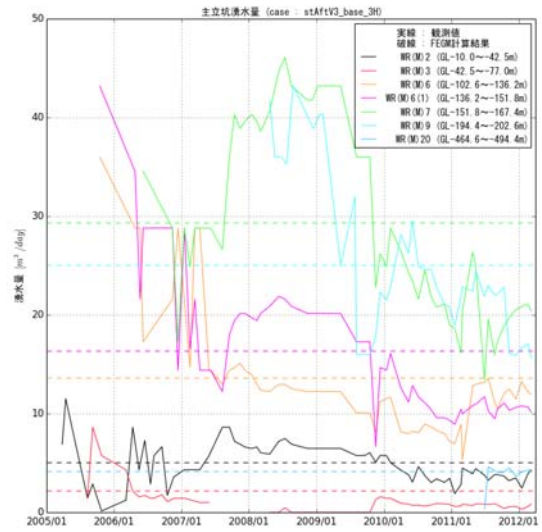
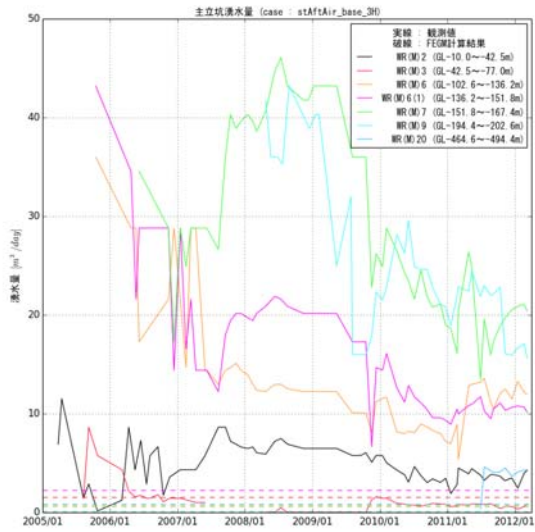
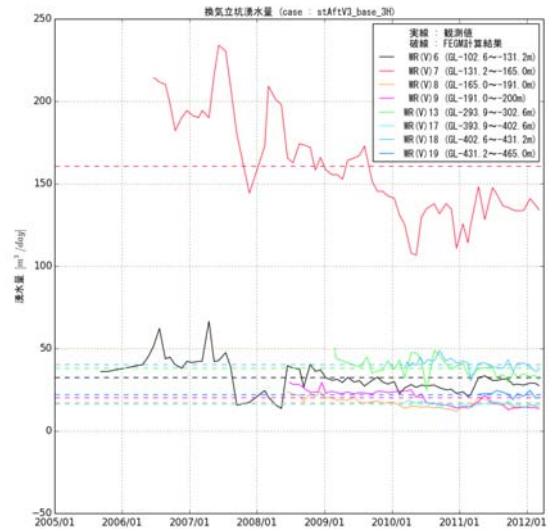
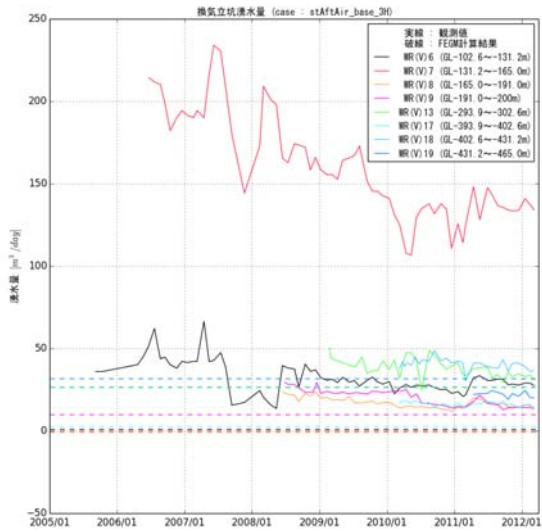


図 7.3.2-15 立坑周辺ボーリング孔の水圧低下



主立坑での湧水量



換気立坑での湧水量

(1) 圧力既知境界条件

(2) 流量既知境界条件

図 7.3.2-16 基本ケースでの主立坑と換気立坑での湧水量

(2) 定常の物質移行解析

物質移行解析では、まず、地表からの浅層水の流入を評価する定常物質移行解析を実施した。

図 7.3.2-17 に、立坑周辺での浅層水の混合率を示す。主立坑側の浅層水の流入が大きいのは、300m のアクセス坑道の湧水量が多いためと考えられる。校正ケースは全体的に基本ケースより浅層水が深くまで流入している。これは、基本ケースよりも瑞浪層群の透水係数が高く、上部からの供給が多くなるためと考えられる。逆に基本ケースでは横方向からの供給が多いことになる。

図 7.3.2-18 に、立坑での水素同位体比 ( $\delta D$ ) の鉛直分布を示す。定常解析のため、実測値のように時間的な変化はない。基本ケースでは、鉛直分布でも主立坑側の方が浅層水の浸入が進んでいるのが分かる。校正ケースは、基本ケースよりも浅層水の浸入が進んでいるのがわかる。この傾向は、図 7.3.2-17 に示されているとおりである。浅層水の浸入が実測値よりも深くなっているが、定常解析では最終的な状態を示しており、長時間経過すれば、最終的に浅層水の浸入がこの程度まで進むことを示している。

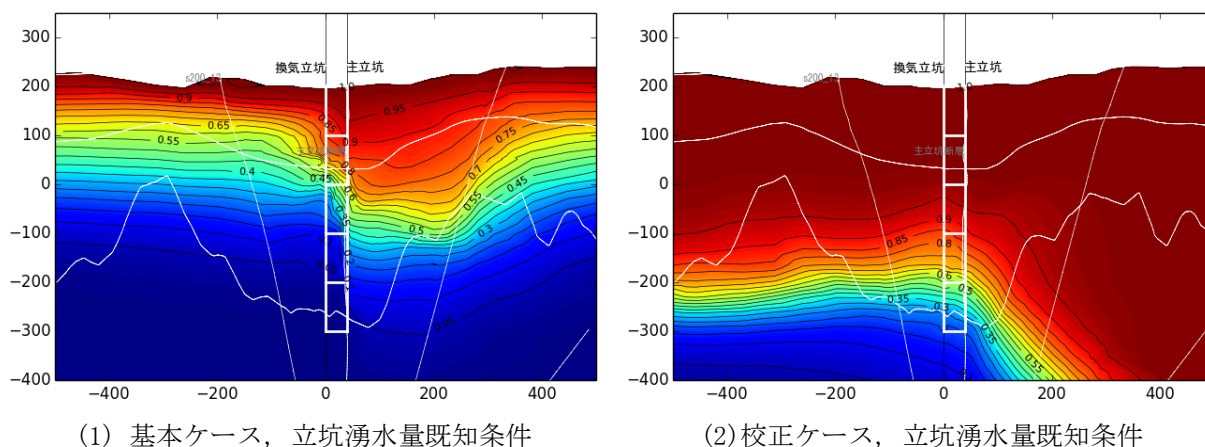
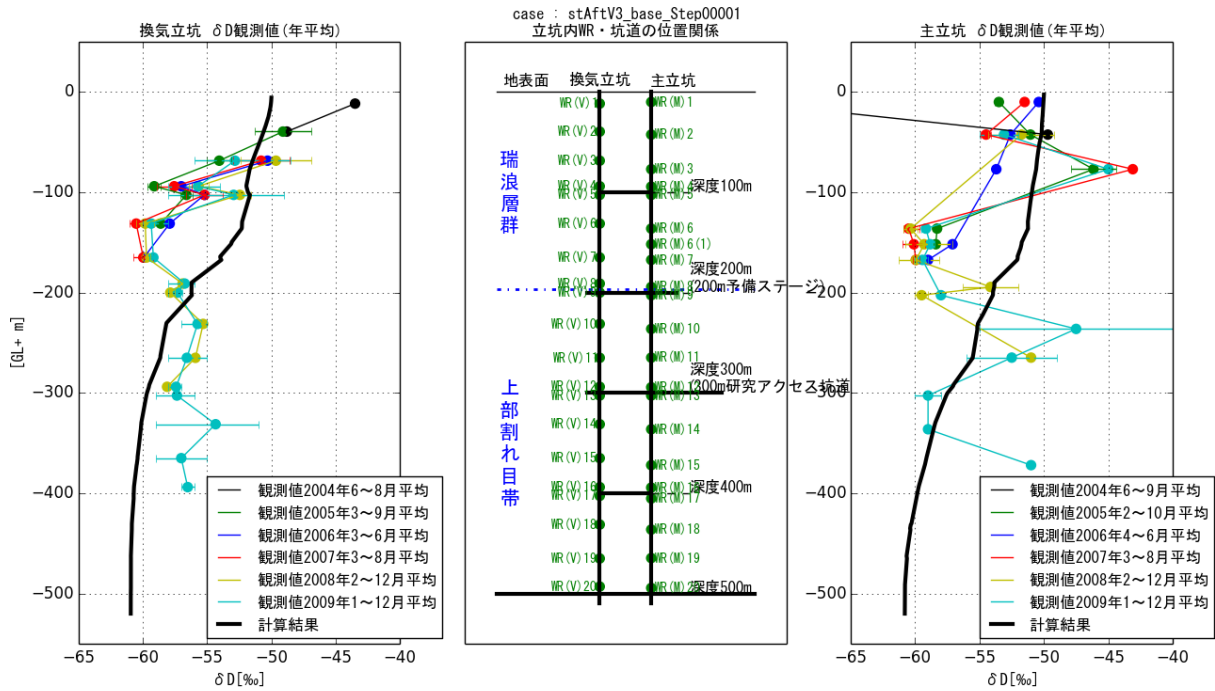
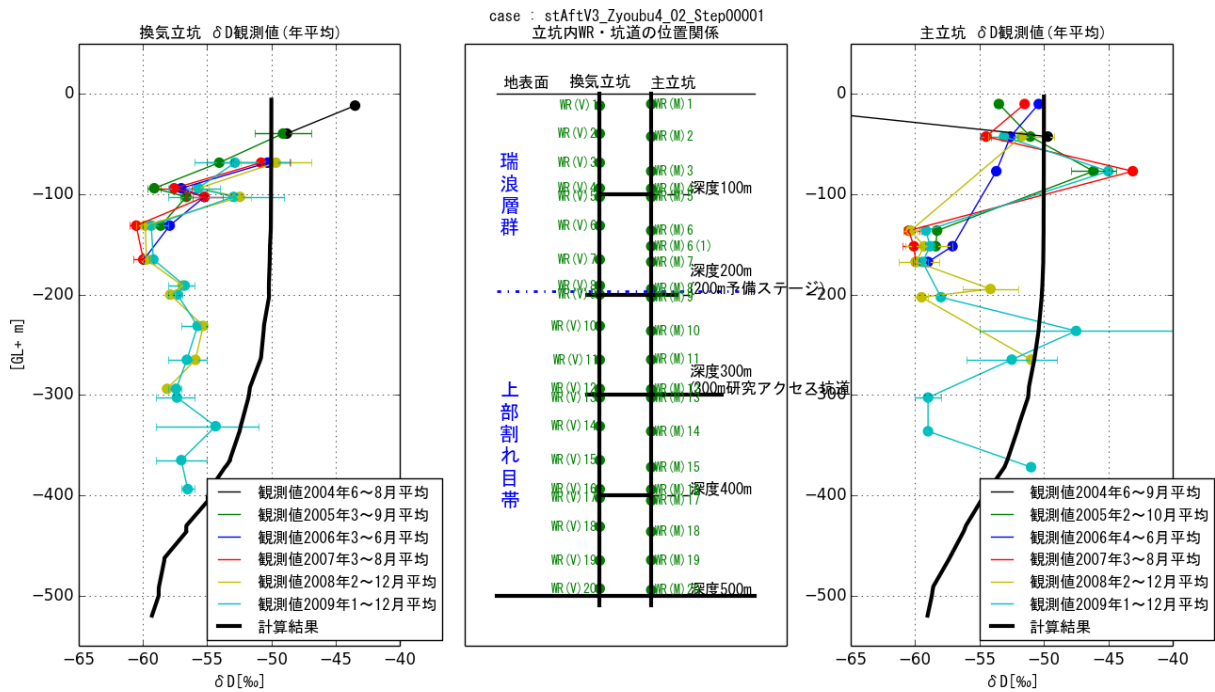


図 7.3.2-17 立坑周辺の浅層水流入分布



(1) 基本ケース，立坑湧水量既知条件



(2) 校正ケース，立坑湧水量既知条件

図 7.3.2-18 立坑の $\delta D$ 濃度深度方向分布の経時変化

### (3) 非定常の地下水流動解析

立坑掘削に伴う湧水量の変化を考慮した非定常の地下水流動解析を実施した。ここでは、立坑の境界条件として圧力固定条件は用いず、流量既知境界条件で、基本ケースと校正ケースでの解析を実施した。図 7.3.2-19 に立坑周辺の水圧低下量の鉛直断面図、図 7.3.2-20 と図 7.3.2-21 に基本ケースと校正ケースでのボーリング孔における実測値と解析値の比較結果を示す。基本ケースでは定常解析と同様にかかなり大きな水圧低下が発生している。これは、井戸理論式からもわかるように、瑞浪層群の透水係数を  $1 \times 10^{-8}$  m/s、厚さ 100 m、水圧低下 100 m、立坑径 7.3 m、影響圏半径 100 m として計算すると、 $20 \text{ m}^3/\text{day}$  程度の湧水量となる。これに対して瑞浪層群内の WR からだけでも約  $200 \text{ m}^3/\text{day}$  の湧水量があり、これは透水係数から推定される量の 10 倍近い。また、花崗岩も同様に、透水係数を  $2 \times 10^{-8}$  m/s、厚さ 100 m、水圧低下 100 m、立坑径 7.3 m、影響圏半径 100 m として計算すると、 $60 \text{ m}^3/\text{day}$  程度の湧水量となる。これに対して花崗岩の WR、アクセス坑道から約  $400 \text{ m}^3/\text{day}$  の湧水量がある。このように湧水量は、代表的な透水係数から考えられる量の 10 倍近い。このため、実測値に基づいた流量既知境界条件で計算すると水圧低下が過大になると考えられる。

校正ケースでは透水係数を 10~100 倍に上げているので、概ね実測値に近い水圧低下となっている。校正ケースの水圧低下から分かるように、実測値と解析値とでは、水圧低下の傾向は一致するものの、初期値が異なる。これは、堆積岩と花崗岩では水圧が 40m 程度堆積岩の方が高くなってことが原因である。

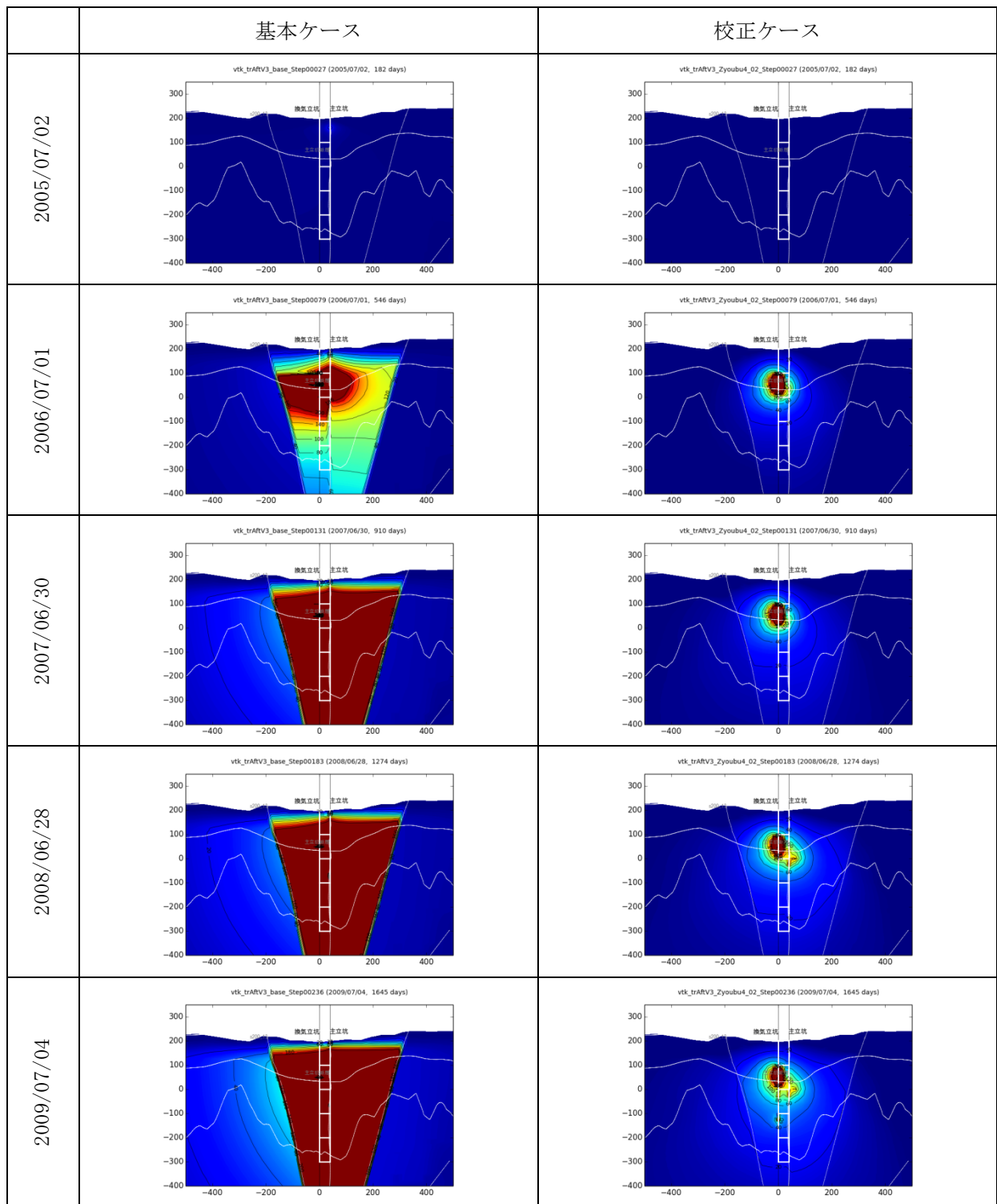


図 7.3.2-19 立坑周辺の水圧低下量分布の経時変化

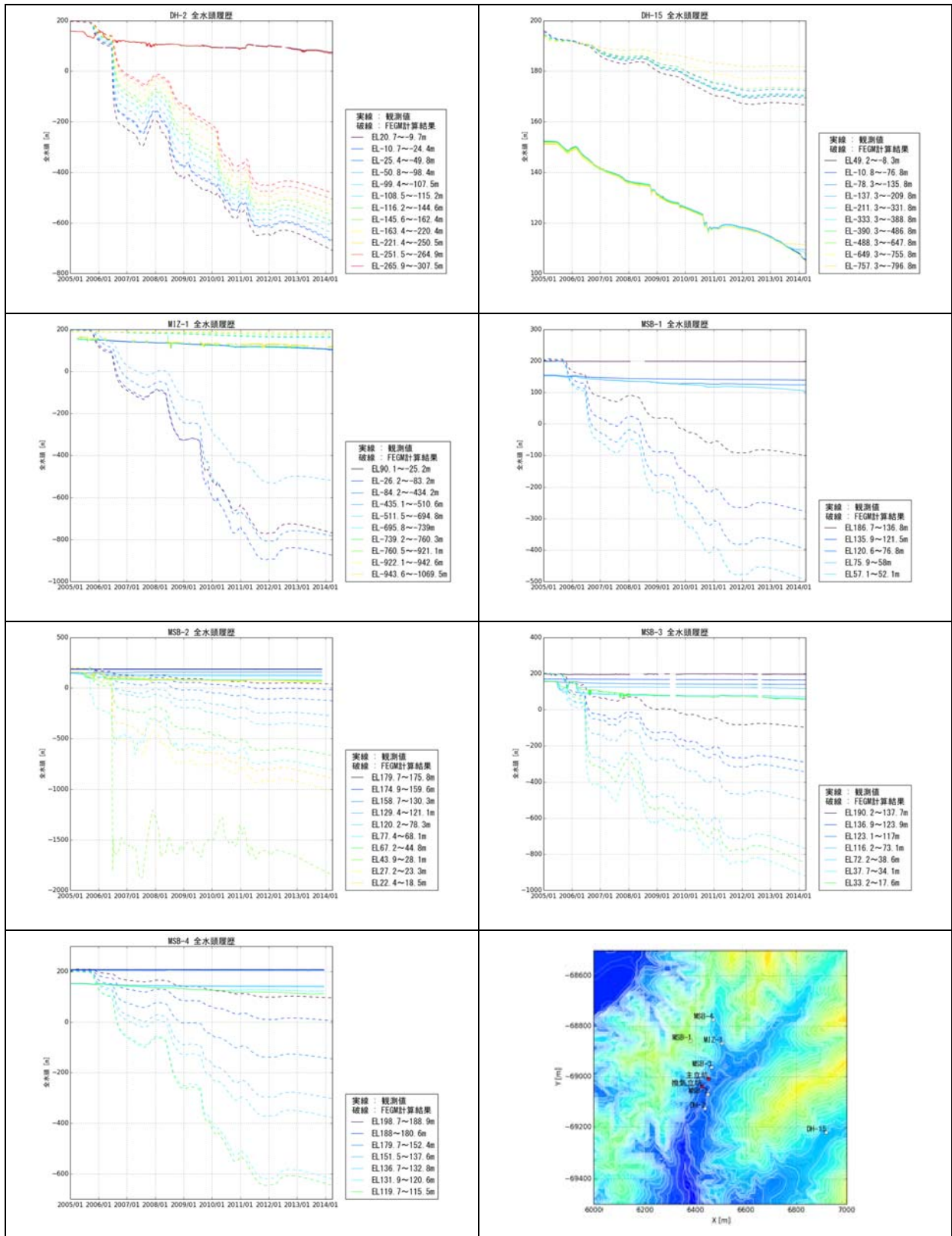


図 7.3.2-20 研究所周辺での水圧低下の経時変化と計算結果の比較(基本ケース)



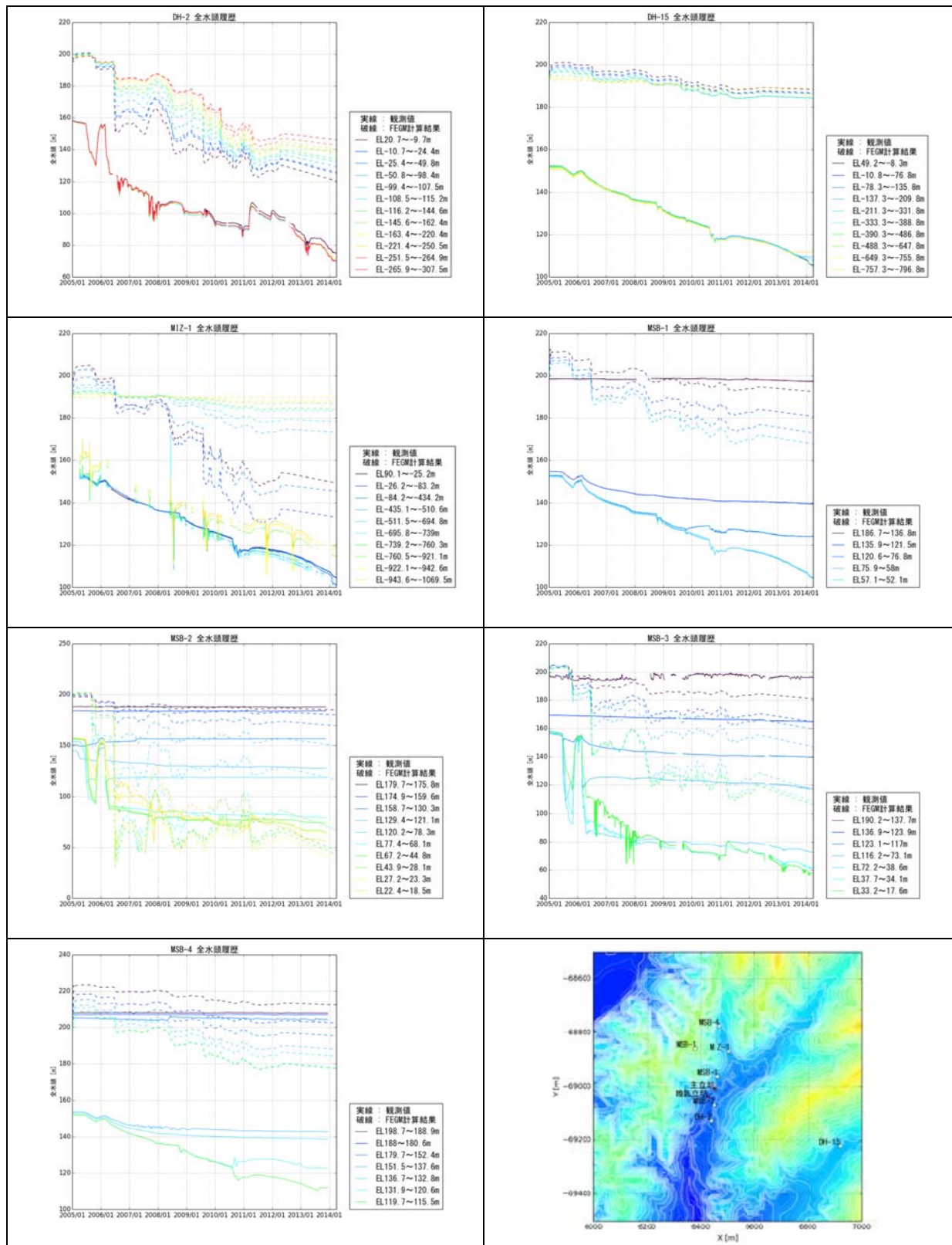


図 7.3.2-21 研究所周辺での水圧低下の経時変化と計算結果の比較(校正ケース)

#### (4) 非定常の物質移行解析

浅層水の流入を評価するため、非定常の物質移行解析を実施した。図 7.3.2-22 に、立坑周辺の浅層水流入率の鉛直断面図を示す。基本ケースと校正ケースの両方について、主立坑の上部のみ浅層水流入を確認できるが、他の部分では浅層水の流入がほとんどない。図 7.3.2-23 に、水素同位体比( $\delta D$ )の立坑での鉛直分布の経時変化を示す。換気立坑では、解析値が実測値に比べて、浅層水の流入が遅い結果となっている。換気立坑では、深度 100~200m の間において解析値が変化している。これは、この深度の WR で湧水量が非常に多い(200 m<sup>3</sup>/day)ためと考えられる。主立坑では、浅層水の浸入が確認できるが、深度 200~300m で観測されている浅層水の流入は表現できていない。

図 7.3.2-22 から明らかなように、全体に浅層水の流入が少ない。このため、浅層水の流入速度をあげるために、間隙率に対する感度解析を実施した。これは、間隙率を小さくすると実流速が速くなるため、物質の移行現象が速くなる。この感度を確認するため、校正ケースについて、モデル全体の間隙率を 1/10 倍および 1/100 倍とした感度解析を実施した。立坑の境界条件は、流量既知条件で立坑の湧水量と同じのため、物質の移行速度がそれぞれ 10 倍、100 倍になる。図 7.3.2-24 に立坑周辺の浅層水の流入率の鉛直断面図を示す。間隙率が小さいほど、地表水の流入が有意になるのがわかる。間隙率を 1/100 にしたケースでは、解析終了時間程度で定常の解析結果と同程度になっている。また、図 7.3.2-25 に立坑の  $\delta D$  濃度の深度分布を示す。この図から、間隙率を 1/100 にした場合、立坑の  $\delta D$  の変化が速くなりすぎている印象を受ける。一方で、立坑での局所的変化、換気立坑の 200~300m、主立坑の 200~300m の  $\delta D$  の変化はあまり表現できていない。このように現象が上手く再現できないのは、均質媒体的な変化ではなく、局所的に流れが速い部分が存在しているなどの可能性が高い。

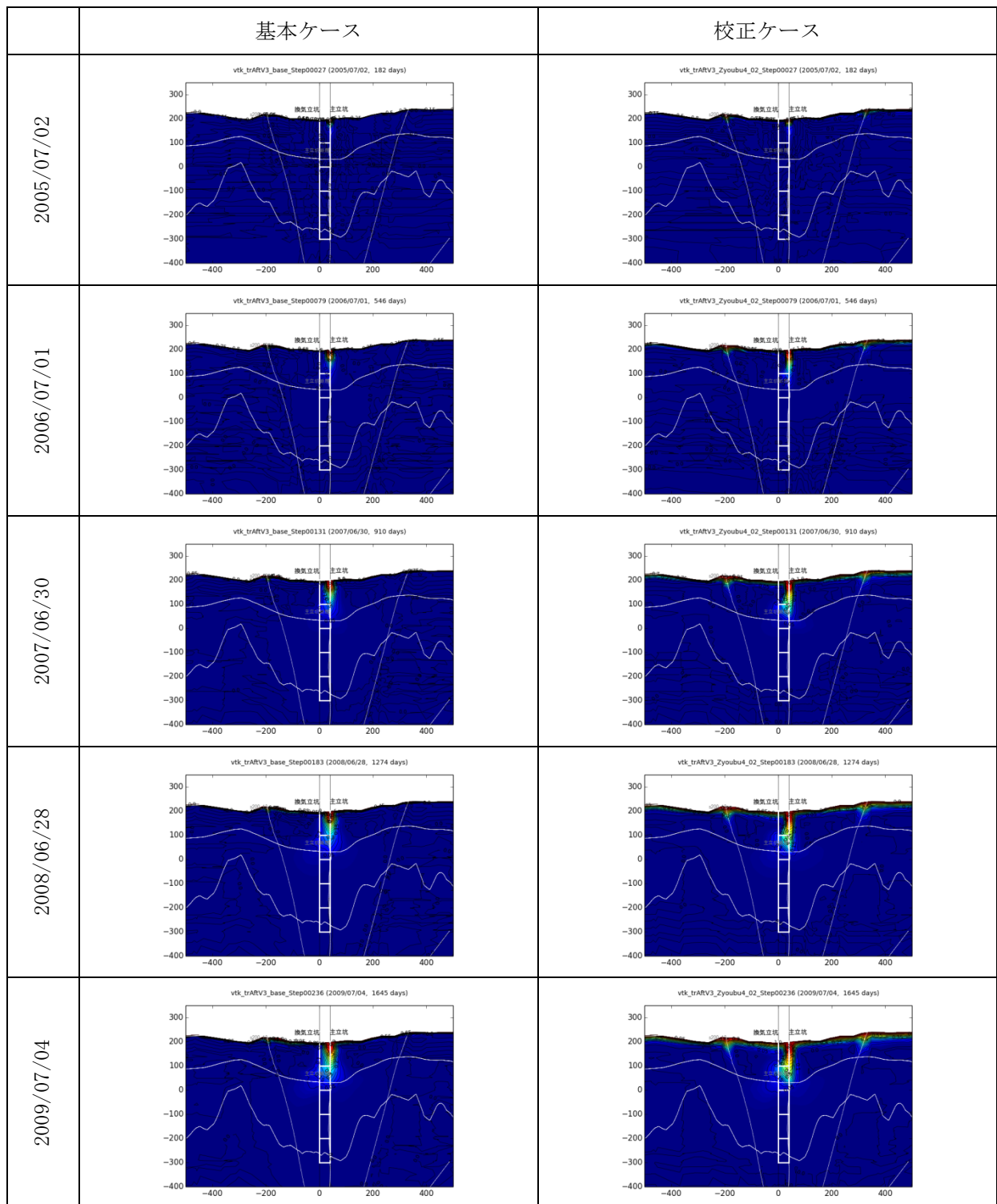
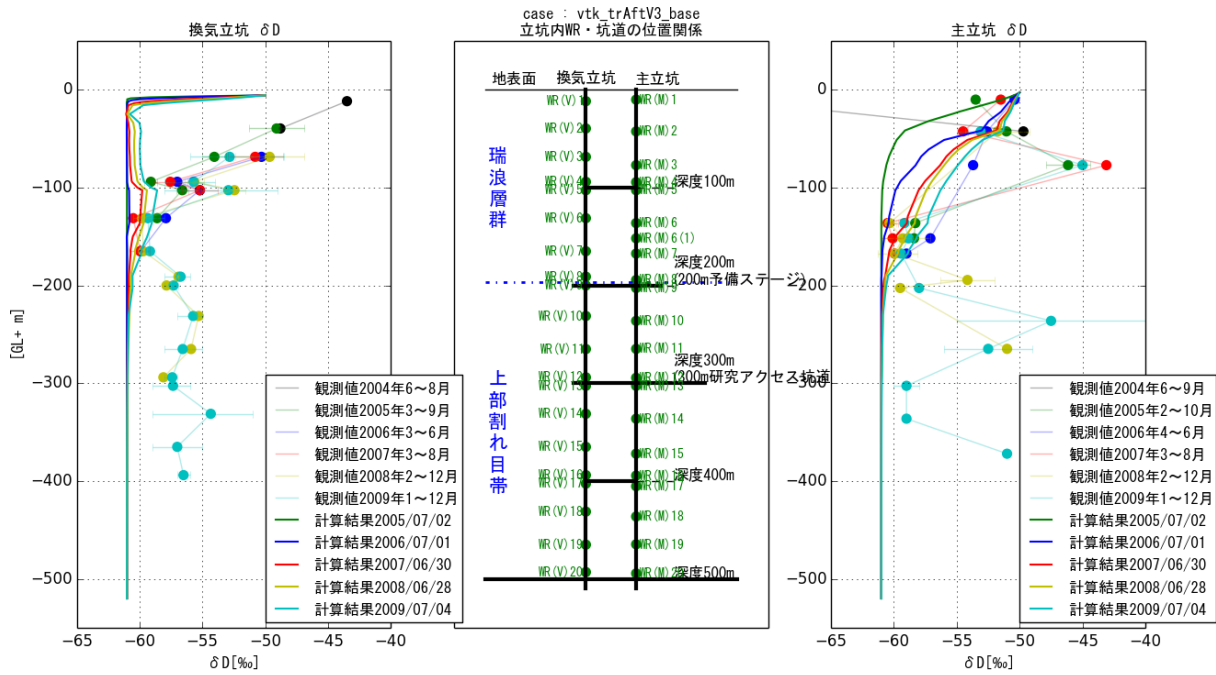
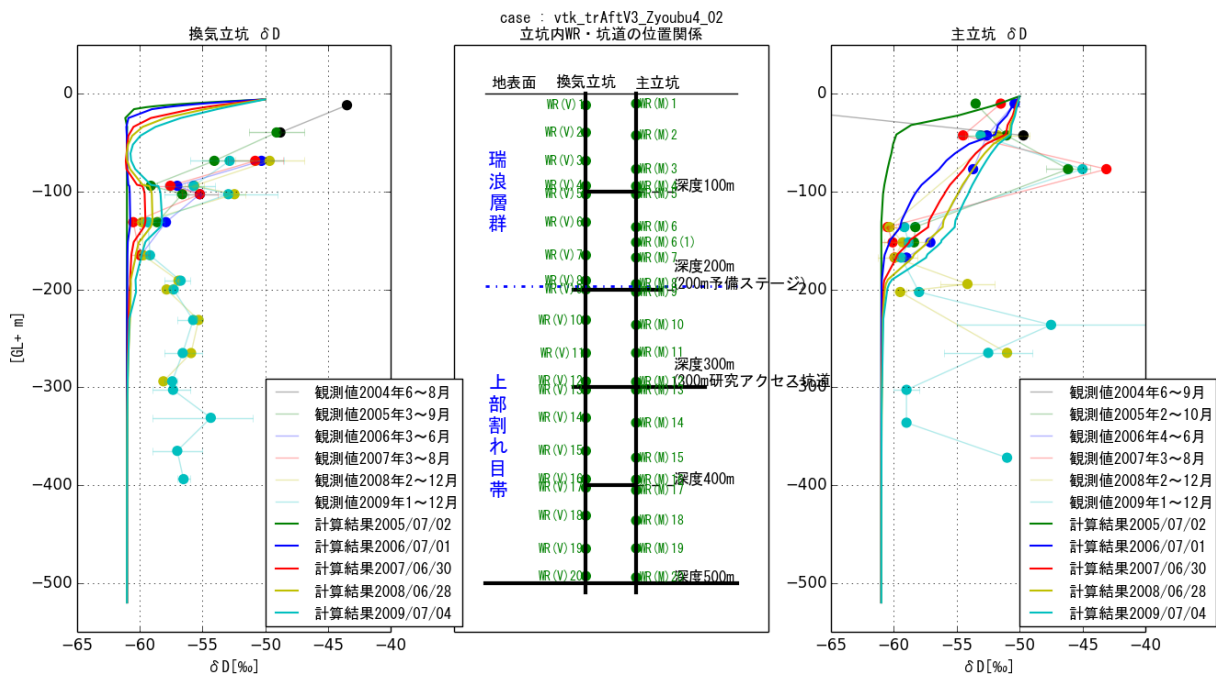


図 7.3.2-22 立坑周辺の浅層水の流入率の経時変化



(1) 基本ケース，立坑湧水量既知条件



(2) 校正ケース，立坑湧水量既知条件

図 7.3.2-23 立坑の $\delta D$ 濃度深度方向分布の経時変化

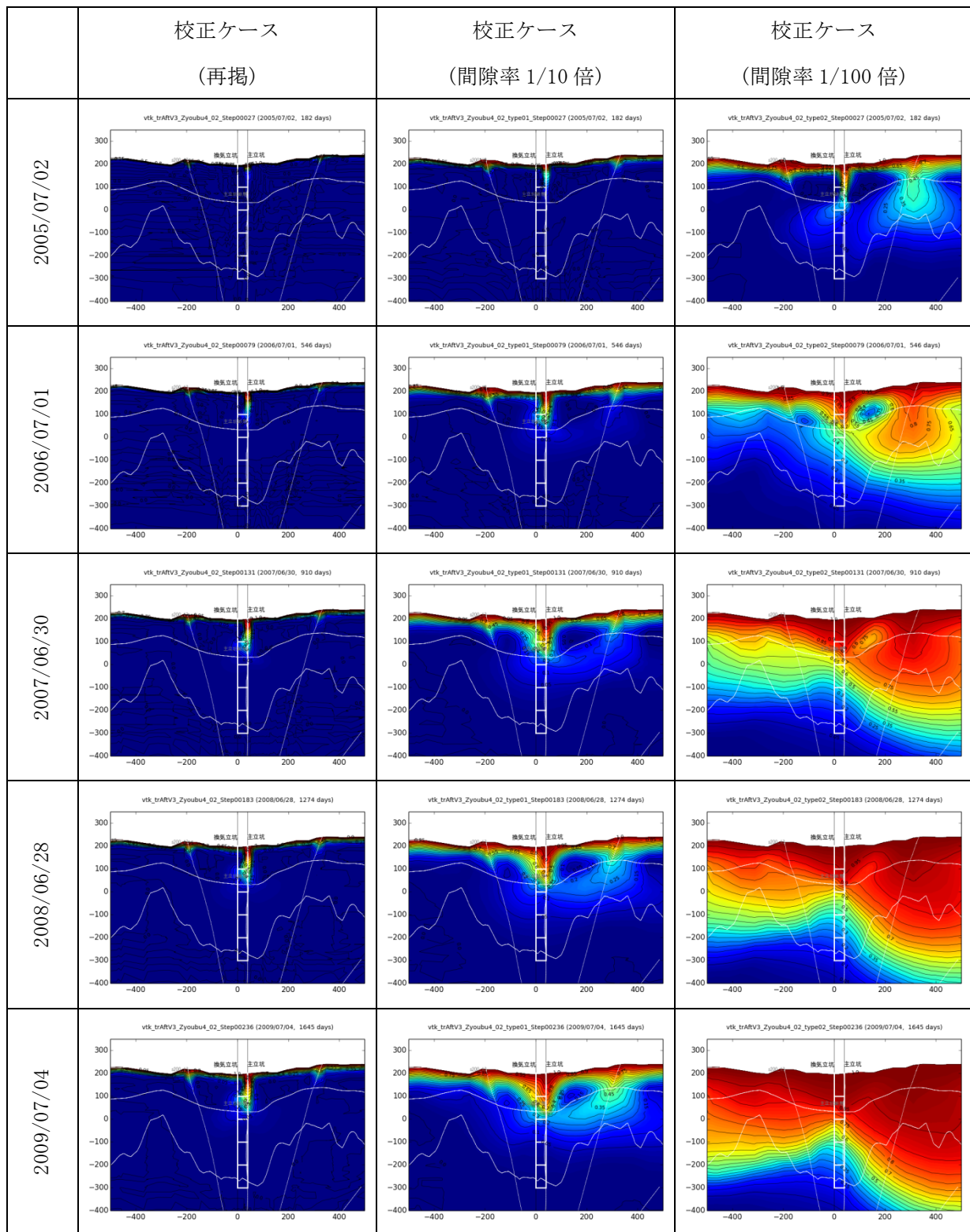
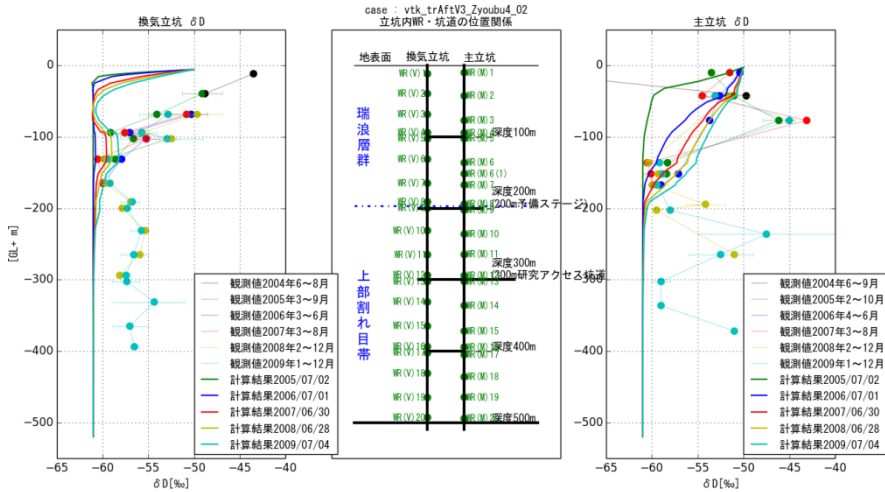
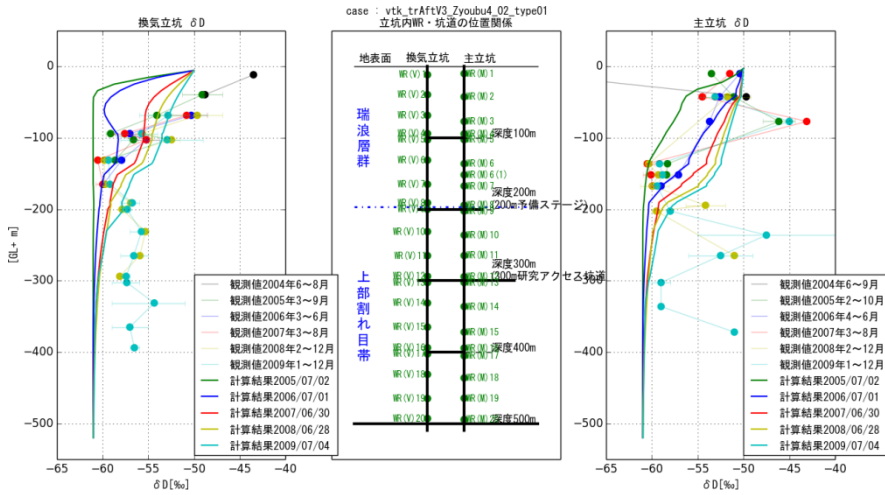


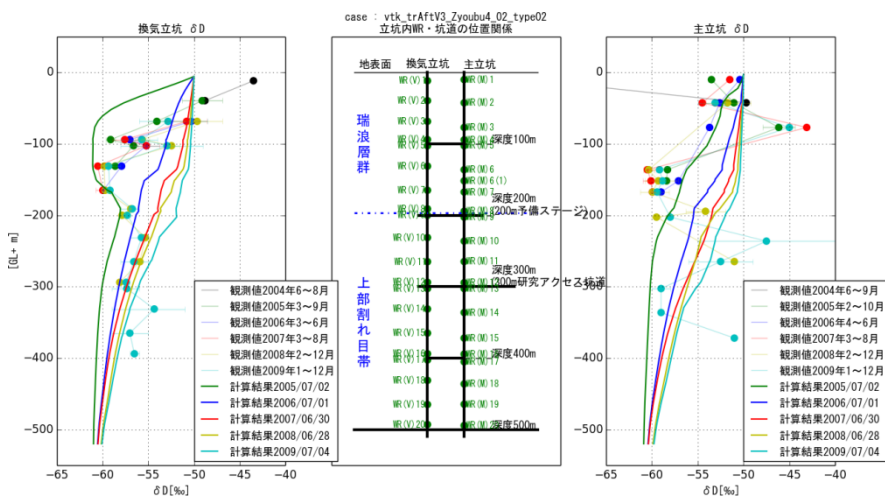
図 7.3.2-24 間隙率に対する感度結果 (立坑周辺の浅層水の流入率の経時変化)



(1) 校正ケース(再掲)



(2) 校正ケース, 間隙率 1/10 倍



(3) 校正ケース, 間隙率 1/100 倍

図 7.3.2-25 間隙率に対する感度結果 (立坑の  $\delta D$  濃度深度分布の経時変化)

#### 7.3.2.5 考察

立坑掘削による地下水流動の変化、水圧・水質を評価するために地下水流動・物質移行解析を実施した。立坑への湧水量を既知流量境界条件として定常と非定常の地下水流動・物質移行解析を実施した。既存の透水試験結果から推定される透水係数を用いて解析を実施したが、水圧低下が10倍程度過剰となった。このため、透水係数は1桁程度大きい値が必要と考えられた。ただし、湧水量が局所的に変動することから、高透水帯や断層など局所的な構造に起因した湧水となっている可能性がある。物質移行現象についても、堆積岩(20%)や花崗岩(2%)のような均質媒体的な間隙率を用いた解析では、浅層水の流入を表現できなかった。このため、実際の地下水流速は均質媒体を想定したものよりももっと速いと考えられた。水質についても局所的に変動しており、局所的な構造に起因している可能性がある。上記のように均質媒体的な評価では水圧低下および水質の変化を十分に再現することができなかったため、局所的な構造を考慮した解析を実施する必要がある。

本年度の解析モデルは、施設周辺に存在する難透水性断層によるコンパートメント構造の再現に重点を置いて作成されているため、高透水性断層や破碎帯などは考慮されていない。施設周辺では複雑に入り組んだ難透水・高透水の複数の断層の存在が確認されている(小坂ほか、2010)。また、瑞浪層群と上部割れ目帯の境界付近に高透水層である土岐夾炭累層(基底礫岩)が存在する可能性が、以前から示唆されている(小坂ほか、2010、尾上ほか、2014)。このように施設周辺の地質構造は地層・断層ともに複雑になっており、それらの影響により立坑掘削による地下水流動・水質の変化も複雑化していると考えられる。これらの地質構造が個々に、また複合的に、どの程度影響を及ぼすかを、今後確認していく必要がある。

### 7.3.3 幌延における地下水調査

#### 7.3.3.1 採水地点

幌延深地層研究センターの地下施設において、坑道内のボーリング孔から地下水を採取した。採取した地点は図 7.3.3-1 に示す通りである。採水区間は主に循環機能付きの地点とした。また、岩石分析用の試料として立坑から採取した岩石コアを用いた。このコアについては合わせてリーチングを行い、C1 とその同位体を調査した。

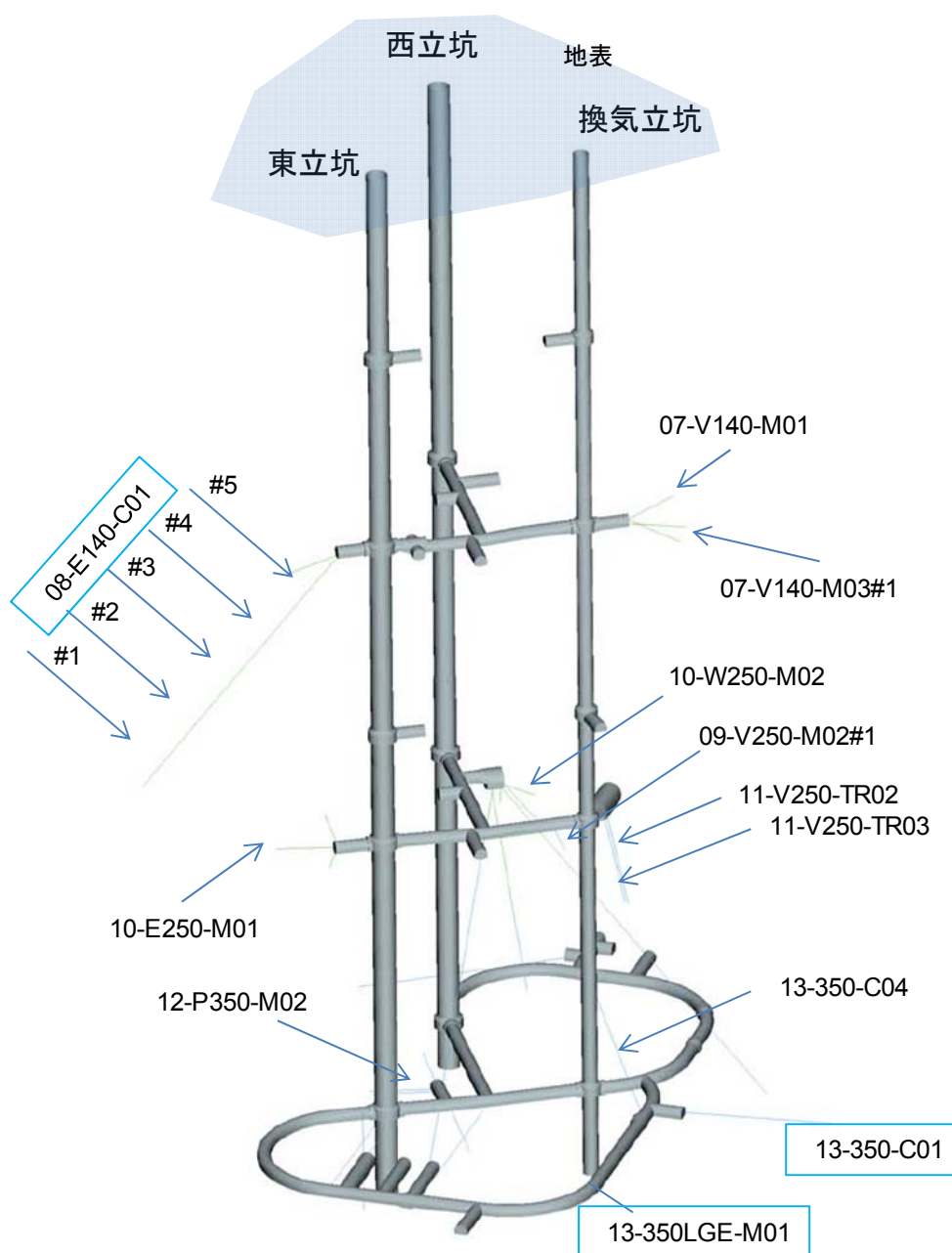


図 7.3.3-1 幌延深地層研究センターにおける採水地点

(JAEA 殿より提供)



### 7.3.3.2 採水方法

採水は、主要溶存イオン、水素酸素同位体比、塩素同位体比分析用と希ガス分析用途を分けて実施した。希ガス分析は、圧力制御式と循環式とで試料を採取した。この採水の概念図を図 7.3.3-2 に示す。圧力制御式は、前節で説明したとおりであるが、採水地点は湧水量が少なく、溶存ガス量が多い。これまでに数十分～数時間程度の地下水を流して採取したが、圧力低下によって脱ガスが顕著であった。このため、湧水量を可能な限り絞り、約1ヶ月間程度原位置にサンプラーを安置して採取した。湧水量は、水滴がぼたぼたと流れる程度の量(数 cc/min 程度)とした。循環式では、パッカーなどで区切られた区間から銅管を通水し、再度パッカー区間に戻す形態を数週間程度実施して採水した。これは、揚水した場合、圧力が低下してガスが分離し、ガスが地下水に溶存した状態で採取することが困難なためである。循環しているため圧力の低下を抑え、元の圧力で採取することが可能であると考えられる。装置は JAEA が設置したものを利用した。その他の分析用試料は、圧力を解放した状態で採取した。採水地点周辺は透水係数が低く、揚水可能量も少ないため、大量の試料を必要とする  $^3\text{H}$ 、 $^{14}\text{C}$ 、CFCs、 $\text{SF}_6$ などは実施していない。原位置での pH、ORP、DO、EC、温度などの計測には、数十 ml/min の流量を要し、安定までに時間を要することから実施しなかった。

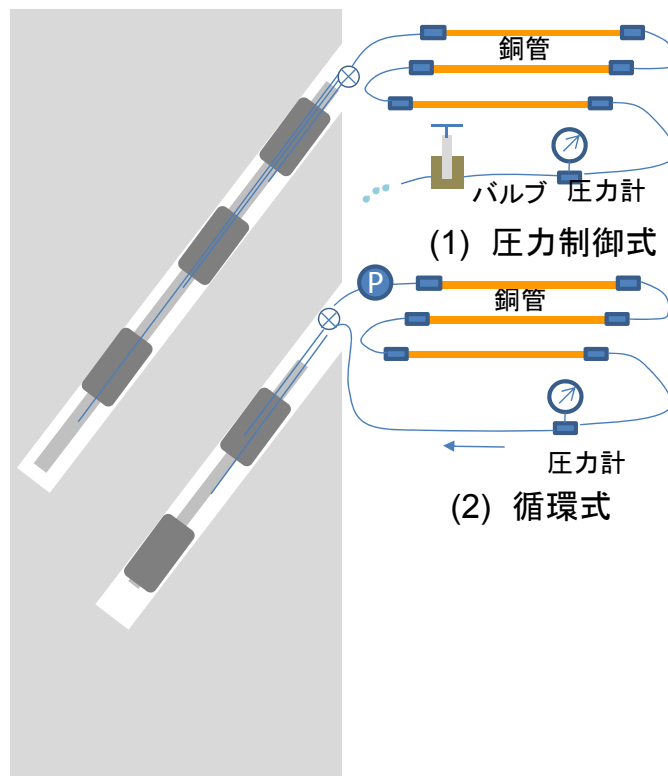


図 7.3.3-2 原位置での希ガス採水方法の概念図

### 7.3.3.3 分析方法

地下水の分析は7.3.1.3と同様に実施した。

### 7.3.3.4 分析結果

希ガス分析用のサンプル採取について、圧力制御式と循環式の採取状況をそれぞれ図7.3.3-3と図7.3.3-4に示す。また、ボーリング孔のサンプルを設置回収した期間を表7.3.3-1に示す。並行して平衡式サンプラーも試行しているがこの結果は後述する。

主要溶存イオン、微量元素、同位体、希ガスの分析結果を表7.3.3-2に示す。

なお、Heの脱ガスおよび空気混入の補正方法は、式(7.3.1-1)と式(7.3.1-2)に示すとおりである。

東立坑からサンプリングした岩石の主要鉱物と微量元素の分析結果を表7.3.3-3に示す。岩石のサンプリングは約10m間隔で実施したが、試料数が多いため、声間層、稚内層および全体の平均値と標準偏差を示した。また、この岩石コアに対してリーチングによって試料を採取し、Clとその同位体を分析した結果を表7.3.3-4に示す。



図 7.3.3-3 圧力制御式の設置状況



図 7.3.3-4 循環式の設置状況

表 7.3.3-1 希ガス用銅管の設置と採取時間

孔名	日付	2015/7/14	2015/8/6	2015/8/7	2015/9/7	2015/9/9	2015/10/7	2015/10/8	2015/11/10	2015/11/11	2015/12/21	2015/12/22	2016/1/12
07-V140-M01	圧力制御							0.15MPa 設置	0.2MPa 回収		採水	設置+平衡式	回収
07-V140-M03#1	圧力制御												
08-E140-C01#1	循環					設置		設置	1.65MPa 回収 ガス				
08-E140-C01#3	循環			設置	0.83MPa 回収								
08-E140-C01#5	循環					設置変更		0.6MPa 回収 採水					
09-V250-M02	循環			設置	0.35MPa 回収						採水	設置+平衡式	回収 採水
10-E250-M01	圧力制御					設置		0.7MPa 回収 採水		0.7MPa 設置+平衡式	0.62MPa 回収		
11-V250-TR02	圧力制御	0MPa 設置 採水	回収										
11-V250-TR03	圧力制御	設置 採水	回収							設置	0MPa 回収		
12-P350-M02	圧力制御							0.7MPa 設置+平衡式	0.45MPa 回収				
13-350-C01	循環	設置	回収	設置+平衡式	回収								
13-350LGE-M01	循環	設置 採水	0.8MPa 回収	設置+平衡式	回収	設置+平衡式	回収 採水	0.8MPa 設置+平衡式	0.72MPa 回収	設置+平衡式	回収		
14-350-C04#5	循環					設置+平衡式	1.3MPa 回収 採水			設置	回収		

表 7.3.3-2 幌延立坑内ボーリングから採取した地下水試料の分析結果

(1) 主要溶存イオン

サンプル名	Na	K	Mg	Ca	B	F	Cl	NO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub>	Si	ALK	TOC	TC	TIC	NPOC	採取日
	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	meq/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	
11-V250-TR02	3000	75	72	140	72	<5	3700	<2.5	<25	31	43	11	540	530	14	2015/7/14
11-V250-TR03	4200	81	100	140	100	<5	5900	<2.5	<25	26	41	12	540	530	13	2015/7/14
13-350LGE-M01	2700	72	65	130	67	<5	3300	7.1	<25	26	44	14	570	560	17	2015/7/14
08-E140-C01#5	2700	85	56	110	100	<5	2700	3.4	<25	33	54	53	740	690	29	2015/10/7
10-E250-M01	1800	52	36	74	60	<5	1600	<2.5	<25	34	41	40	560	520	15	2015/10/7
13-350LGE-M01	4000	72	94	160	99	<5	5200	<2.5	<25	25	47	47	660	610	17	2015/10/7
14-350-C04#5	3700	88	92	160	99	<5	4700	<2.5	<25	24	49	56	690	640	22	2015/10/7
07-V140-M01	3300	110	81	150	110	<5	4100	<2.5	<50	31	52	41	640	600	26	2015/12/21
09-V250-M02#1	1900	52	41	83	49	<5	1900	3.3	<50	29	37	37	470	440	12	2015/12/21
09-V250-M02#1	1900	51	39	81	47	<5	1900	<2.5	<50	27	38	28	460	440	9.7	2016/1/12

(2) 微量元素

サンプル名	Br	I	Cs	Sr	Li	Al	Mn	Fe	Zn	Cu	As	Se	Rb	Ba	採取日
	mg/L	mg/L	μg/L	μg/L	μg/L	μg/L	μg/L	μg/L	μg/L	μg/L	μg/L	μg/L	μg/L	μg/L	
11-V250-TR02	25	12	<2	1300	7.8	<10	41	39	21	380	<2	<2	41	820	2015/7/14
11-V250-TR03	41	11	<2	2000	10	<10	7.8	30	25	1300	<2	<2	46	1500	2015/7/14
13-350LGE-M01	23	18	<2	1200	6.7	<10	86	47	3000	75	<2	<2	37	620	2015/7/14
08-E140-C01#5	20	8.7	<2	1000	8.3	6.9	5.8	32	15	12	<2	<2	30	690	2015/10/7
10-E250-M01	12	5.5	<2	470	4.7	14	27	22	13	360	<2	<2	25	340	2015/10/7
13-350LGE-M01	39	17	<2	2000	11	8.7	4	26	7	57	<2	<2	41	1500	2015/10/7
14-350-C04#5	35	15	<2	1800	9.9	15	28	31	26	290	<2	<2	50	1500	2015/10/7
07-V140-M01	32	15	<2	1700	11	7.3	33	77	27	5	<2	<2	38	1200	2015/12/21
09-V250-M02#1	13	7.7	<2	590	4.7	5.7	23	40	22	<2	<2	<2	25	410	2015/12/21
09-V250-M02#1	14	6	<2	580	4.9	20	24	37	8	27	<2	<2	25	390	2016/1/12

表 7.3.3-2 幌延立坑内ボーリングから採取した地下水試料の分析結果 (続き)

(3) 同位体

サンプル名	Cl	$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$	$\delta^{37}\text{Cl}$	$\delta\text{D}$	$\delta^{18}\text{O}$	採取日
	mg/l	$\times 10^{-15}$	‰	‰	‰	
11-V250-TR02	3700	N. M.	N. M.	-50.6 ± 0.9	-3.90 ± 0.01	2015/7/14
11-V250-TR03	5900	4.5 ± 0.8	-1.24 ± 0.11	-52.9 ± 1.0	-4.65 ± 0.02	2015/7/14
13-350LGE-M01	3300	N. M.	-0.79 ± 0.08	-36.9 ± 1.0	-0.76 ± 0.07	2015/7/14
08-E140-C01#5	2700	4.3 ± 0.8	-1.83 ± 0.08	-47.4 ± 0.1	-2.93 ± 0.18	2015/10/7
10-E250-M01	1600	2.2 ± 0.6	-1.07 ± 0.08	-60.7 ± 0.4	-6.25 ± 0.07	2015/10/7
13-350LGE-M01	5200	4.0 ± 0.8	-1.05 ± 0.10	-37.9 ± 1.0	-0.82 ± 0.08	2015/10/7
14-350-C04#5	4700	4.0 ± 0.8	-1.07 ± 0.09	-41.5 ± 0.3	-1.46 ± 0.05	2015/10/7
07-V140-M01	4100	2.9 ± 0.7	-2.17 ± 0.11	-44.6 ± 1.0	-2.32 ± 0.09	2015/12/21
09-V250-M02#1	1900	4.5 ± 0.8	-1.24 ± 0.08	-62.2 ± 0.3	-6.87 ± 0.03	2015/12/21
09-V250-M02#1	1900	N. M.	N. M.	-61.2 ± 0.3	-6.79 ± 0.14	2016/1/12

(4) 希ガス

	計測値			補正值 (Ne補正)		特記事項	採取日
	$^4\text{He}$	$^3\text{He}/^4\text{He}$	Ne	$^4\text{He}$	$^3\text{He}/^4\text{He}$		
	cc <sub>STP</sub> /g <sub>w</sub>	-	cc <sub>STP</sub> /g <sub>w</sub>	cc <sub>STP</sub> /g <sub>w</sub>	-		
07-V140-M01	9.4E-08	1.4E-07	1.6E-08	1.2E-06	1.4E-07		2016/1/12
08-E140-C01#1	2.2E-07	1.3E-07	3.0E-08	1.5E-06	1.3E-07		2015/9/9
08-E140-C01#1	5.2E-04	1.1E-07	1.3E-05	5.2E-04	9.8E-08	空気混入?	2015/11/10
08-E140-C01#3	7.1E-04	1.1E-07	6.5E-06	7.1E-04	1.0E-07	空気混入?	2015/9/7
08-E140-C01#3	2.2E-07	2.2E-07	4.1E-08	1.1E-06	2.2E-07		2015/9/7
09-V250-M02#1	6.8E-08	8.2E-07	9.0E-08	1.5E-07	8.2E-07		2016/1/12
10-E250-M01	5.2E-06	9.8E-08	1.2E-07	8.4E-06	9.8E-08		2015/9/9
10-E250-M01	1.7E-06	1.1E-07	4.5E-08	7.7E-06	1.1E-07		2015/9/9
10-E250-M01	3.3E-07	1.1E-07	7.6E-08	8.6E-07	1.1E-07		2016/12/21
11-V250-TR03	2.5E-05	1.2E-07	2.5E-06	2.4E-05	8.5E-08	空気混入?	2015/12/21
12-P350-M02	1.2E-07	1.7E-07	5.0E-08	5.0E-07	1.7E-07		2015/11/12
13-350LGE-M01	2.3E-05	1.1E-07	2.3E-06	2.2E-05	7.1E-08	空気混入?	2016/12/21
14-350-C04#5	1.9E-07	3.0E-07	1.2E-07	3.2E-07	3.0E-07		2015/12/21

表 7.3.3-3 主要鉱物と微量元素の分析結果

		声間層	(n=23)	稚内層	(n=11)	全体	(n=34)
		平均値	標準偏差	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差
SiO <sub>2</sub>	%	72.91	±1.57	74.59	±2.20	73.45	±1.93
TiO <sub>2</sub>	%	0.44	±0.03	0.43	±0.04	0.44	±0.03
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	%	9.63	±0.75	9.32	±0.97	9.53	±0.83
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	%	3.71	±0.34	3.43	±0.33	3.62	±0.36
MnO	%	0.02	±0.00	0.02	±0.00	0.02	±0.00
MgO	%	1.40	±0.14	1.29	±0.19	1.37	±0.16
CaO	%	0.48	±0.07	0.48	±0.05	0.48	±0.06
Na <sub>2</sub> O	%	1.47	±0.08	1.52	±0.12	1.49	±0.10
K <sub>2</sub> O	%	1.67	±0.14	1.62	±0.16	1.66	±0.14
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	%	0.07	±0.01	0.06	±0.01	0.07	±0.01
BaO	%	0.03	±0.00	0.03	±0.00	0.03	±0.00
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	%	0.01	±0.00	0.01	±0.00	0.01	±0.00
SrO	%	0.01	±0.00	0.01	±0.00	0.01	±0.00
LOI	%	7.31	±0.21	6.07	±0.51	6.91	±0.67
As	ppm	9.0	±1.87	7.3	±1.16	8.5	±1.86
B	ppm	303.5	±23.47	219.1	±23.43	276.2	±46.25
Ba	ppm	298.9	±25.19	300.4	±27.91	299.4	±25.68
Bi	ppm	0.2	±0.0	0.2	±0.0	0.2	±0.0
C	%	1.6	±0.1	1.6	±0.1	1.6	±0.1
Ce	ppm	38.0	±4.2	36.2	±3.3	37.5	±3.9
Co	ppm	6.3	±0.8	5.7	±1.2	6.1	±1.0
Cs	ppm	6.2	±0.8	5.7	±0.6	6.0	±0.7
Dy	ppm	2.6	±0.2	2.4	±0.2	2.5	±0.3
Er	ppm	1.6	±0.1	1.5	±0.1	1.6	±0.1
Eu	ppm	0.7	±0.1	0.6	±0.1	0.7	±0.1
Ga	ppm	12.0	±1.1	11.5	±1.3	11.8	±1.2
Gd	ppm	2.8	±0.3	2.6	±0.2	2.7	±0.3
Ge	ppm	<5	<5	<5	<5	<5	<5
Hf	ppm	2.8	±0.2	2.8	±0.3	2.8	±0.2
Ho	ppm	0.5	±0.0	0.5	±0.0	0.5	±0.0
In	ppm	0.0	±0.0	0.0	±0.0	0.0	±0.0
La	ppm	18.5	±2.0	17.7	±1.5	18.3	±1.9
Li	ppm	50.9	±10.8	35.5	±5.2	45.9	±11.8
Lu	ppm	0.2	±0.0	0.2	±0.0	0.2	±0.0
Mo	ppm	5.3	±1.6	5.1	±1.2	5.3	±1.5
Nb	ppm	7.4	±0.7	7.1	±0.7	7.3	±0.7
Nd	ppm	16.5	±1.7	15.9	±1.4	16.3	±1.6
Ni	ppm	32.0	±3.2	30.3	±4.5	31.5	±3.7
Pb	ppm	11.6	±2.9	9.7	±2.1	11.0	±2.8
Pr	ppm	4.4	±0.5	4.2	±0.4	4.3	±0.4
Rb	ppm	75.7	±8.7	70.4	±7.5	74.0	±8.6
Sc	ppm	3.7	±0.3	3.6	±0.3	3.7	±0.3
Se	ppm	2.1	±0.2	1.9	±0.2	2.0	±0.3
Sm	ppm	3.2	±0.4	3.0	±0.3	3.1	±0.3
Sn	ppm	1.8	±0.4	1.5	±0.5	1.7	±0.5
Sr	ppm	81.8	±6.6	87.9	±9.3	83.8	±8.0
Ta	ppm	0.4	±0.1	0.4	±0.1	0.4	±0.1
Tb	ppm	0.4	±0.0	0.4	±0.0	0.4	±0.0
Th	ppm	7.0	±0.8	6.6	±0.6	6.9	±0.8
Tl	ppm	0.1	±0.0	0.1	±0.0	0.1	±0.0
Tm	ppm	0.2	±0.0	0.2	±0.0	0.2	±0.0
U	ppm	4.0	±0.4	3.4	±0.6	3.8	±0.5
V	ppm	82.6	±7.2	75.4	±9.9	80.2	±8.7
W	ppm	4.0	±1.0	3.5	±0.5	3.8	±0.9
Y	ppm	14.4	±1.2	13.8	±1.0	14.2	±1.1
Yb	ppm	1.6	±0.1	1.5	±0.1	1.6	±0.1
Zn	ppm	80.3	±8.5	72.7	±6.7	77.9	±8.6
Zr	ppm	97.5	±7.5	100.5	±11.1	98.5	±8.7

表 7.3.3-4 東立坑でのリーチング結果

深度	間隙率	Cl	$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$	$\delta^{37}\text{Cl}$
m	-	mg/l	$\times 10^{-15}$	‰
29	64.3	1,161 ±10	3.1 ±0.7	-1.27 ±0.07
40	59.6	1,660 ±15	3.2 ±0.8	-1.08 ±0.04
52.7	59.6	1,752 ±34	2.5 ±0.7	-1.31 ±0.06
60	59.0	1,900 ±9	2.9 ±0.7	-1.69 ±0.10
70	59.4	2,100 ±7	3.5 ±0.8	-1.80 ±0.06
80	57.9	2,180 ±8	2.8 ±0.7	-1.32 ±0.07
90	61.9	2,518 ±17	3.4 ±0.7	-1.91 ±0.02
100	60.8	2,656 ±24	3.6 ±0.8	-1.85 ±0.08
110	59.2	2,662 ±17	3.1 ±0.8	-1.88 ±0.09
118	59.6	2,670 ±13	3.2 ±0.8	-1.72 ±0.10
130	60.2	2,109 ±11	3.2 ±0.8	-2.15 ±0.10
139	56.1	2,314 ±15	3.6 ±0.8	-2.01 ±0.08
150	56.5	1,906 ±18	3.4 ±0.8	-2.14 ±0.08
160	58.7	1,890 ±11	3.3 ±0.8	-2.11 ±0.10
170	56.4	1,465 ±3	3.8 ±0.9	-2.02 ±0.09
190	57.8	1,244 ±10	4.5 ±0.9	-1.96 ±0.07
200	57.1	1,148 ±3	5.1 ±1.1	-1.76 ±0.07
210	55.5	1,019 ±3	too much sulfur	-1.79 ±0.09
220	55.1	951 ±11	5.1 ±1.2	-1.76 ±0.07
230	52.1	1,035 ±4	3.6 ±1.0	-1.54 ±0.10
240	53.1	982 ±18	5.9 ±1.1	0.22 ±0.07
250	49.2	1,003 ±5	4.2 ±0.9	-1.44 ±0.08
261	48.1	1,191 ±5	too much sulfur	-0.72 ±0.08
271	44.0	1,139 ±13	4.2 ±0.8	-0.98 ±0.11
281	35.7	1,848 ±103	4.3 ±0.8	-0.02 ±0.10
291	44.1	1,230 ±14	4.3 ±0.8	0.08 ±0.07
301	42.5	1,401 ±5	3.9 ±0.8	-1.94 ±0.09
320	42.2	2,214 ±8	5.1 ±0.8	-0.72 ±0.75
330	43.1	2,481 ±15	5.7 ±0.9	-1.89 ±0.08
340	39.8	2,499 ±30	3.9 ±0.8	-1.90 ±0.09
350	42.1	3,093 ±9	4.9 ±0.9	-1.19 ±0.10
361	38.3	3,569 ±60	3.2 ±0.8	-0.61 ±0.11
371	38.9	3,809 ±29	4.8 ±0.9	0.38 ±0.06
380	37.7	3,853 ±33	5.0 ±0.9	-0.49 ±0.10

Too much sulfur は  $^{36}\text{S}$  の影響で計測ができなかったことを意味する。



### 7.3.3.5 考察

#### (1) 水質の経時変化

主要溶存イオンをヘキサダイアグラムとして図 7.3.3-5 に示す。図には 2013 年～採取したデータをあわせて示した。水質の形態は、概ね Na-Cl 型である。浅部においては  $\text{HCO}_3$  濃度が高く、Na- $(\text{HCO}_3)$ -Cl 型となっているものがある。浅部と深部とでそれほど溶存イオン量に変化しないが、深度 250m のボーリング孔においては、溶存イオン濃度が低く  $\text{HCO}_3$  濃度が高いものが見られる。これは、深度 250m 付近は、声間層と稚内層の境界で比較的透水係数が高く、地下水の流動性も高いため、このような水質になっていると考えられる。ヘキサダイアグラムの時間的な変化はほとんどない。

図 7.3.3-6 に水素・酸素同位体比の関係を示す。この図には立坑での調査結果だけでなく、立坑周辺に掘削された広域調査用ボーリングのデータもあわせて示した。幌延地域の地下水は、地表水と深層水の混合線上に位置する。立坑での水素酸素同位体比は、図 7.3.3-6 にも示したように、立坑の深度 140m から深度 250m に向けて軽くなり、深度 250m から深度の増加とともに重くなる傾向を示す。前述のように、深度 250m 付近が声間層と稚内層の地層境界にあたり、透水係数が高いため、浅層水の混合が進んでいると考えられる。ただし、立坑掘削前に実施した先行ボーリングでも混合線上に位置していることから、立坑掘削による影響ではないと考えられる。

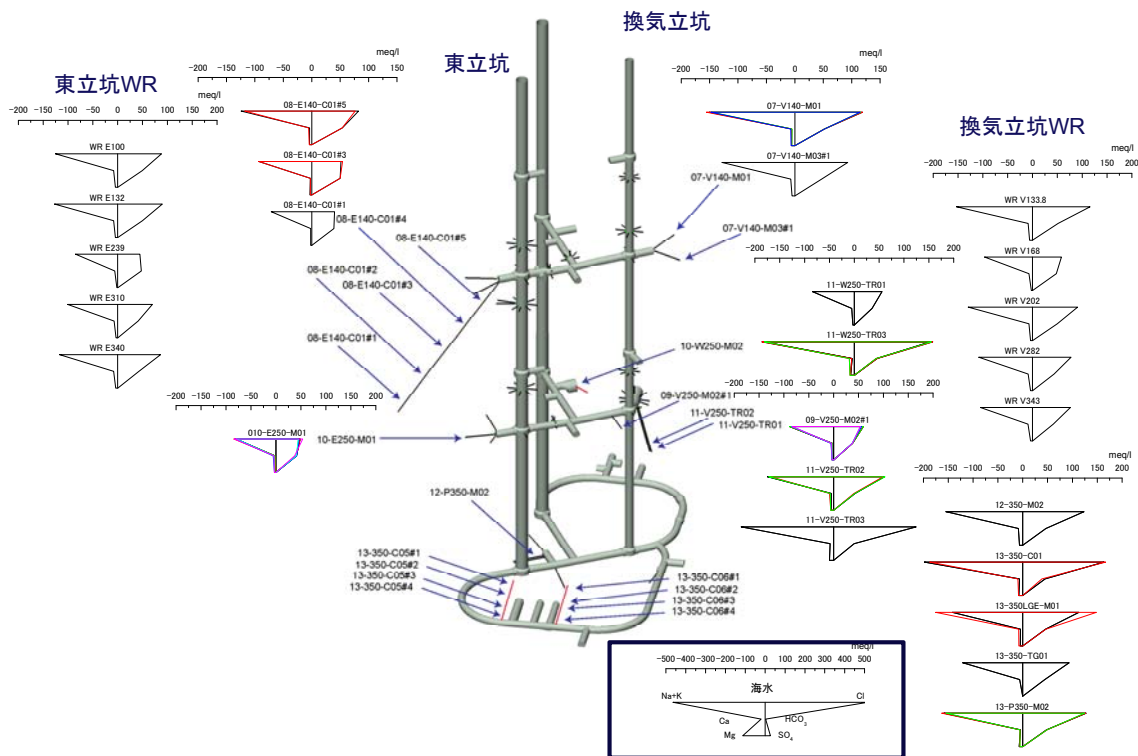


図 7.3.3-5 幌延立坑での水質のヘキサダイアグラム

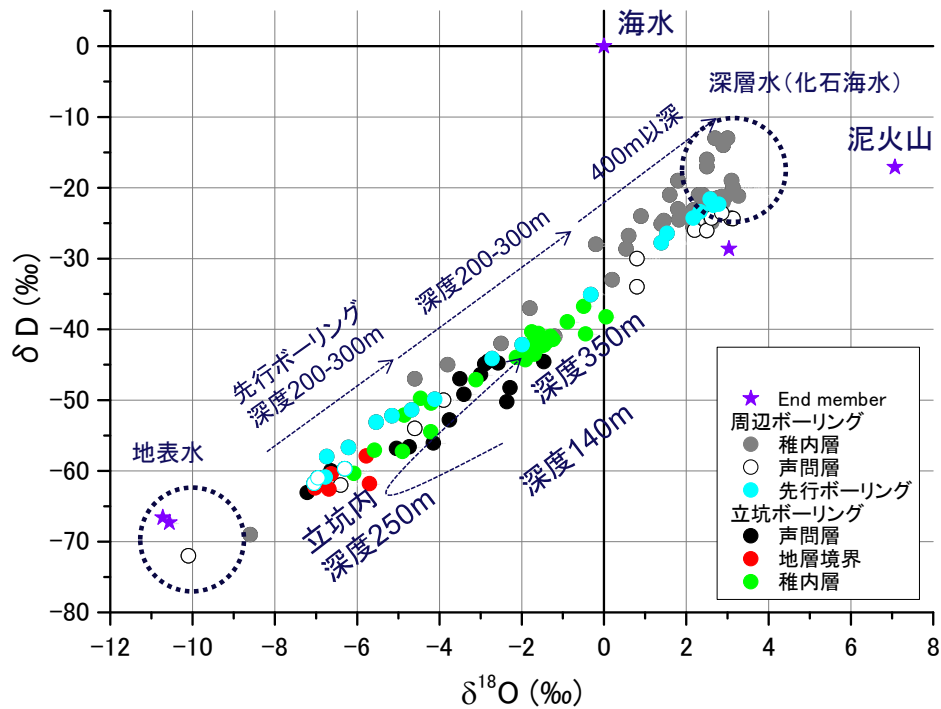


図 7.3.3-6 水素酸素同位体の関係

(2)  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  の分布と平衡値

立坑内における  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  の分布を図 7.3.3-7 に示す。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  の計測値は  $2\sim 5\times 10^{-15}$  程度の値となっている。深部ほど  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  が大きくなる傾向にある。 $^{36}\text{Cl}$  年代を求めるためには、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  の平衡値が必要となることから、岩石の分析結果に基づいて平衡値を計算した。ここでは、東立坑から採取した岩石コア(表 7.3.3-3)を用いて平衡計算を実施した。

$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  の原位置平衡値を求めるには、岩石からの中性子生成とそれによる Cl の放射化を計算する。中性子生成には、ウランの自核分裂による中性子生成とウラン・トリウムの変換による ( $\alpha, n$ ) 反応がある。この生成した中性子の各元素の吸収に基づいて、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  の原位置平衡値を計算する。

Phillips(1999)は、36 試料について、このような放射化計算を行い、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  の地下水の値と岩石の値を比較すると、平均誤差は 3%、絶対誤差は 33%であったと報告している。このため、放射化解析によって平衡値が推定できるとものと考えられる。

中性子生成 ( $P$ : atoms/s·g) は、ミューオンによるもの、自発核分裂によるもの、 $\alpha$ -n 反応によるものがある (Andrews et al., 1986)。

$$P = P_{n,\mu} + P_{n,sf} + P_{n,\alpha} \quad (7.3.3-3)$$

ここに、 $P$  は中性子生成率 (atm/g·y) であり、 $P_{n,\mu}$  はミューオンによるもの、 $P_{n,sf}$  は自発核分裂によるものと  $P_{n,\alpha}$  は  $\alpha$ -n 反応によるものである。

ミューオンによる中性子生成は、地下 100m 以深では無視できる。

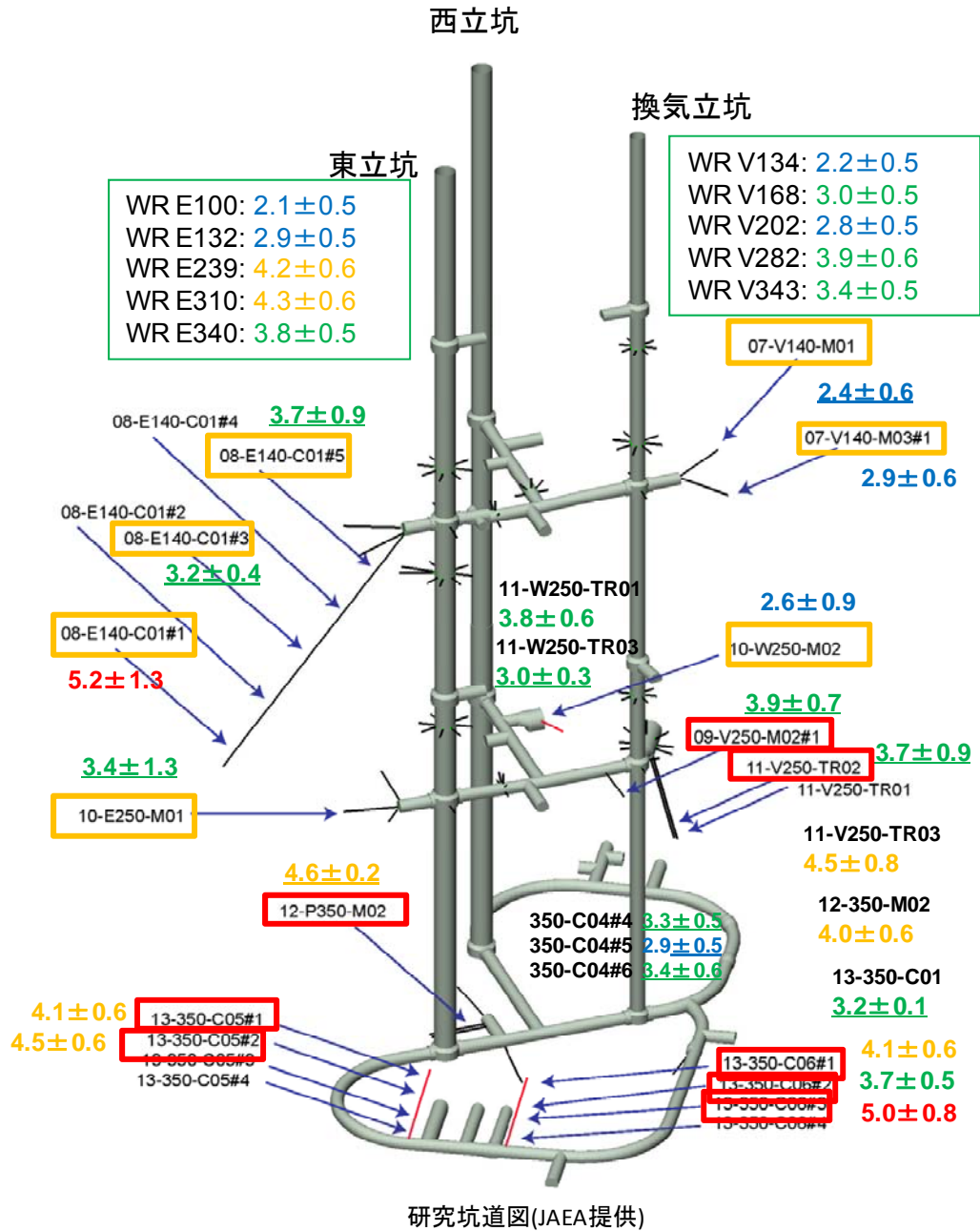


図 7.3.3-7 幌延研究坑道内での  $^{36}\text{Cl}/\text{C1}$  の分布図

自発核分裂による中性子生成率は、U 濃度に比例して以下のように表される (Phillips, 2013)。

$$P_{n,sf} = 0.429[U] \quad (7.3.3-4)$$

ここに、[U]はウラン濃度(ppm)である。

$\alpha$ -n 反応による中性子生成率は以下のように表される (Phillips, 2013)。

$$P_{n,\alpha} = \frac{[U] \sum N_i S_i Y_i^U + [Th] \sum N_i S_i Y_i^{Th}}{\sum N_i S_i} \quad (7.3.3-5)$$

ここに、[U]と[Th]はウランとトリウムの濃度(ppm)、 $N_i$  は i 元素の濃度(ppm/g)、 $S_i$  は質量阻止能

(Mass Stopping Power :  $\text{MeV}\cdot\text{cm}^2/\text{mg}$ )、 $Y_i^{\text{U}}$  と  $Y_i^{\text{Th}}$  は放射平衡状態でのウランとトリウムの中の各 1ppm あたりの  $i$  元素に対する中性子生成速度である ( $\text{atm}/\text{g}\cdot\text{y}\cdot\text{ppm}$ )。

上式の  $N_i$ 、 $S_i$ 、 $Y_i^{\text{U}}$  と  $Y_i^{\text{Th}}$  は、Heaton et al. (1990) によれば、表 7.3.3-5 のように与えられる。

表 7.3.3-5 各元素における質量阻止能と中性子生成速度および吸収断面積

元素名	Si	$Y_i^{\text{Th}}$	$Y_i^{\text{U}}$	$\sigma_i$	元素名	$\sigma_i$
	$\text{MeV}\cdot\text{cm}^2\cdot\text{mg}^{-1}$	$\text{n}\cdot\text{y}^{-1}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{ppm}^{-1}$	$\text{n}\cdot\text{y}^{-1}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{ppm}^{-1}$	$10^{-24}\text{ cm}^2\text{ atm}^{-1}$		$10^{-24}\text{ cm}^2\text{ atm}^{-1}$
H	1.587	0.000	0.000	0.332	Co	37.210
Li	0.574	10.373	23.680	0.045	Ni	4.465
Be	0.557	90.867	263.828	0.008	Cu	3.786
B	0.56	19.674	62.076	0.104	Zn	1.062
C	0.583	0.177	0.451	0.004	Ga	2.803
N	0.565	1.103	1.920	0.075	As	4.153
O	0.541	0.083	0.234	0.000	Rb	0.380
F	0.495	16.192	40.974	0.010	Sr	1.305
Na	0.511	5.873	12.396	0.531	Y	1.284
Mg	0.486	2.534	5.771	0.063	Zr	0.196
Al	0.449	2.549	5.053	0.230	Nb	1.142
Si	0.462	0.334	0.680	0.165	Cd	2468.000
P	0.443	0.573	0.856	0.166	Ba	1.183
S	0.442	0.103	0.173	0.514	Sm	5676.000
Cl	0.431	0.793	1.297	33.150	Eu	4547.000
K	0.428	0.080	0.115	2.058	Gd	48630.000
Ca	0.438	0.026	0.038	0.429	Dy	942.400
Sc	0.393	0.564	0.728	—	Yb	34.900
Ti	0.383	0.524	0.573	6.419	Lu	0.000
V	0.368	0.406	0.437	5.018	Pb	6.893
Cr	0.364	0.249	0.245	3.144	Th	7.338
Mn	0.349	0.185	0.148	13.280	U	3.380
Fe	0.351	0.203	0.182	2.565		

質量阻止能と中性子生成速度は Heaton et al. (1990)、吸収断面積は Shibata et al. (2004) を参照

Andrews et al. (1986) によれば、地中での中性子フラックスは、ウラン・トリウムによる中性子の生成と各元素による中性子の吸収に基づいて以下のように計算できる。

$$\phi = \frac{P}{\sigma_m} \quad (7.3.3-6)$$

ここに  $\phi$  は中性子フラックス ( $\text{atoms}/\text{cm}^2\cdot\text{s}$ )、 $\sigma_m$  は巨視的吸収断面積 ( $\text{cm}^2/\text{g}$ ) である。

巨視的吸収断面積 ( $\sigma_m$ ) は以下の式で計算できる。

$$\sigma_m = \sum N_i \sigma_i \quad (7.3.3-7)$$

ここに、 $N_i$  は原子密度 ( $\text{atm}/\text{g}$ )、 $\sigma_i$  は各元素の原子あたりの吸収断面積 ( $\text{cm}^2/\text{atm}$ ) である。

$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  の平衡値は、 $\text{Cl}$  の中性子の吸収反応に着目することとなる。Lehmann and Lossli (1991) によれば、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  の平衡値は以下の式で計算できる。これは、岩石中の  $^{36}\text{Cl}$  の生成量は、岩石中の  $\text{Cl}$  量に比例するためである。

$$\frac{{}^{36}\text{Cl}}{\text{Cl}} = \phi \cdot 4.55 \times 10^{-5} \quad (7.3.3-8)$$

ここに、 $\phi$ は中性子フラックスである。

ただし、Shiabata et al. (2011)に基づいて吸収断面積などを計算すると、上式の係数は  $4.55 \times 10^{-5}$  から  $4.52 \times 10^{-5}$  と少し異なる値となる。 ${}^{36}\text{Cl}$  の生成率は、 ${}^{35}\text{Cl}$  に捕獲される中性子の率のため、 $P \sigma_{\text{Cl-35}} / \sigma_m$  となる。平衡濃度は、この  ${}^{36}\text{Cl}$  の生成率を壊変定数( $\lambda$ )で除したもの ( $P \sigma_{\text{Cl-35}} / \sigma \lambda$ )となる。さらにこれを Cl の原子数で割ることで  ${}^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  の平衡値が求められる。このため、式では以下のように表される。

$$\frac{{}^{36}\text{Cl}}{\text{Cl}} = \frac{P \sigma_{\text{Cl-35}}}{\lambda \sigma_m} \frac{1}{\text{Cl原子量}} \quad (7.3.3-9)$$

ここに、 ${}^{35}\text{Cl}$  の捕獲断面積 ( $43.6 \times 10^{-24} \text{ cm}^2/\text{atm}$ )、 ${}^{35}\text{Cl}$  の Cl における存在比率 0.757 を考慮すると以下のように表される。

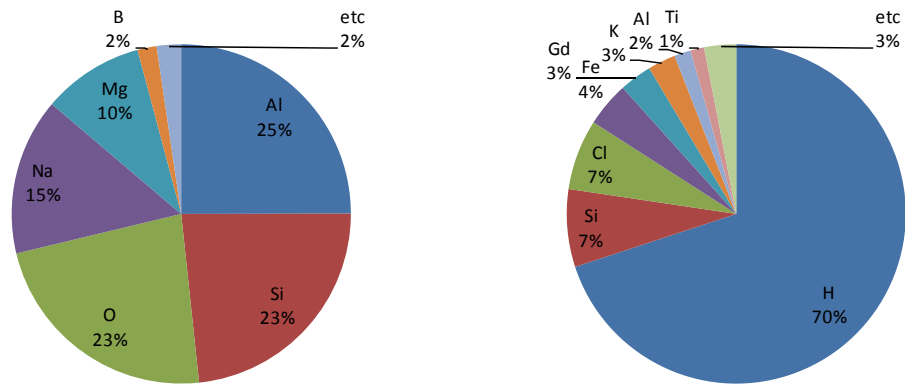
$$\frac{{}^{36}\text{Cl}}{\text{Cl}} = \frac{43.6 \times 10^{-24} \times \text{Cl原子量} \times 0.757}{\lambda} \frac{P}{\sigma_m} \frac{1}{\text{Cl原子量}} = \frac{43.6 \times 10^{-24} \times 0.757}{\lambda} \frac{P}{\sigma_m} \quad (7.3.3-10)$$

ここに、 $P/\sigma_m$ は $\phi$ 、 $\lambda (= \ln 2/T)$ は  $7.3 \times 10^{-14}$  (1/s) であるため、以下のように表される。

$$\frac{{}^{36}\text{Cl}}{\text{Cl}} = 4.52 \times 10^{-10} \Phi \quad (7.3.3-11)$$

なお、主要鉱物分析時の強熱減量 (lg-loss) は、有機物 ( $\text{CH}_2\text{O}$ ) として取り扱った。この強熱減量を水で扱う場合は、有機物で扱う場合に比べて、放射平衡値が小さくなる。これは、水 ( $\text{H}_2\text{O}$ ) の方が、中性子の吸収断面積が大きい H の量が増え、結果として H による中性子の捕獲率が増えるためである。C の計測値と強熱減量を比較すると、有機物の量は強熱減量の 1/3~1/2 程度となるが、ここでは有機物として評価した。 ${}^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  の平衡値は、間隙率に依存性が高い。これは前述のように、水が中性子の吸収断面積が大きい H の存在比率が高くなるためである。このため、間隙率が大きいほど平衡値が小さく、間隙率が小さいほど平衡値が大きい。

上記の式に基づいて  ${}^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  の原位置平衡値を計算した。声問層・稚内層ともに岩石の主要鉱物および微量元素の含有率がほぼ同じのため、これらの平均値を用いて、平衡値を計算した。主要鉱物と微量元素の平均値を用いると、図 7.3.3-8 に示すように ( $\alpha, n$ ) 反応では, Al, O, Si, Na, Mg の寄与が大きく、マクロ断面積では H, Cl, Si の寄与が大きい。特に H と Cl の寄与が大きいことから、間隙率と間隙の水が原位置平衡値を決定するうえで重要であると考えられる。このため、間隙率と間隙水の Cl 濃度とをパラメータとして、平衡値の変化を調査した。この結果を図 7.3.3-9 に示す。



(1) (α, n)反応への元素の寄与率      (2)中性子吸収への元素の寄与率

図 7.3.3-8 放射化解析への各元素の寄与率

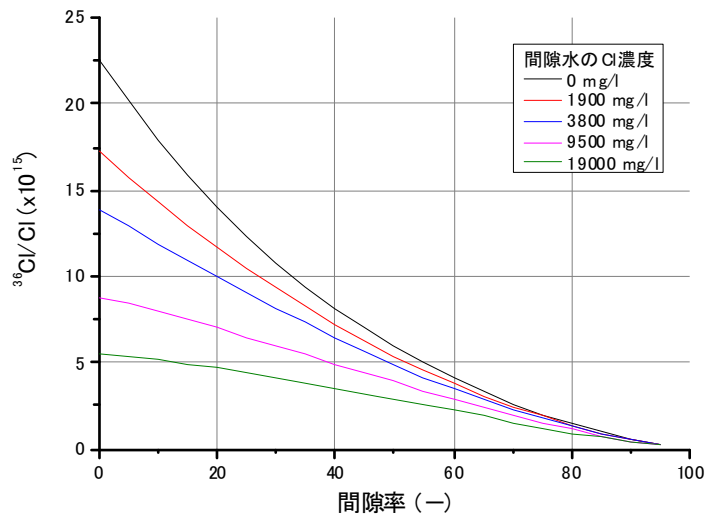


図 7.3.3-9  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  の平衡値と間隙率および間隙水の Cl 濃度の関係

$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  の平衡値は、間隙率の増加とともに低下しているのがわかる。これは間隙率の増加に伴い水量が増加し、吸収断面積の大きい H が増え、H による中性子の捕獲率が上がるためである。また、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  の平衡値は、間隙水の Cl 濃度が大きいほど小さくなる。これは、間隙水の Cl 濃度が上がることにより、マクロ断面積が増え、中性子フラックスが減るためである。稚内層の間隙率は 30%程度であり、声問層の間隙率は 60%程度であるため、間隙水の Cl 濃度にもよるが平衡値は 2~3 倍程度異なることがわかる。また、間隙水の Cl 濃度も平衡値に影響を与え、間隙水が海水の 1/2 程度の場合 (9500 mg/l) と 1/5 程度の場合では平衡値が変化する。

これらの結果から、間隙水が 1/5~1/2 海水であれば、平衡値は、間隙率が 50~60%程度の声問層では  $3\sim5\times 10^{-15}$ 、間隙率が 30%程度の稚内層であれば、 $6\sim8\times 10^{-15}$  となる。

$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  の計測値は  $2\sim 5\times 10^{-15}$  程度であり、声問層の平衡値程度の値を示している。この結果から、声問層の地下水の Cl は、原位置平衡に近く百万年以上前から声問層内にあると考えられる。ただし、立坑周辺での地下水は、図 7.3.3-6 の水素・酸素同位体比から、深層地下水と浅層地下水が混合している。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  は Cl を含まない降水によっては希釈されない。これは降水が Cl を含まないためである。このため、声問層の地下水は新しい地下水の流入で希釈されており、平均的な滞留時間は  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  から得られた滞留時間よりも若い可能性がある。

一方で、稚内層の地下水の Cl は、稚内層の原位置平衡値よりも明らかに低く、声問層での平衡値に近い。立坑周辺での地下水は、図 7.3.3-6 の水素・酸素同位体比の分布から、深層地下水と浅層地下水が混合している。このため、稚内層内の地下水は、声問層から流入したものが混合している可能性が高い。声問層から地下水が流入した場合でも、100 万年程度経過すれば、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  は稚内層の平衡値に達する。このため、稚内層の地下水は声問層から流入してから 100 万年は経過していないと推定される。

### (3) $^4\text{He}$ の蓄積

これまで計測した  $^4\text{He}$  濃度と  $^3\text{He}/^4\text{He}$  の分布を図 7.3.3-10 に示す。 $^4\text{He}$  濃度は、バラツキは大きいものの、深度 140m 坑道のボーリング孔では、 $120\sim 480\times 10^{-8}$  程度を示しているのに対して、深度 250m 坑道では  $33\sim 86\times 10^{-8}$  程度、深度 350m 坑道では  $2.2\sim 260\times 10^{-8}$  程度である。

$^3\text{He}/^4\text{He}$  は原位置で  $^4\text{He}$  が蓄積するとその比率が低下する。図 7.3.3-10 によれば、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  は概ね  $10\sim 103\times 10^{-8}$  程度である。特に  $10\sim 20\times 10^{-8}$  程度が多く  $^4\text{He}$  が原位置生成で蓄積している傾向を示している。

ウラン・トリウム量に基づいて、He の生成速度を計算すると声問層では  $1\times 10^{-12}\text{cc}_{\text{STP}}/\text{g}_w\text{y}$  程度、稚内層では  $2\times 10^{-12}\text{cc}_{\text{STP}}/\text{g}_w\text{y}$  程度の生成量となる。このため、原位置生成に基づいて  $^4\text{He}$  の蓄積時間を計算すると、声問層では数百万年、稚内層では数～百万年程度となる。ただし、 $^4\text{He}$  の蓄積は原位置生成だけでなく、外部からのフラックスの影響を受けている可能性があり、上記の蓄積時間は最大値である。

$^4\text{He}$  濃度に基づくと、地下水は、浅部で古く、深部で若い傾向になる。ただし、バラツキが大きいことから脱ガスの影響をかなり受けていると考えられる。脱ガスの影響は、地下水圧が大きい深部ほど影響が大きいと考えられる。また、図 7.3.3-6 の水素・酸素同位体比の分布から、立坑周辺では浅層水の影響を受けており、深部ではこのような混合の影響をうけて  $^4\text{He}$  濃度が低下している可能性もある。

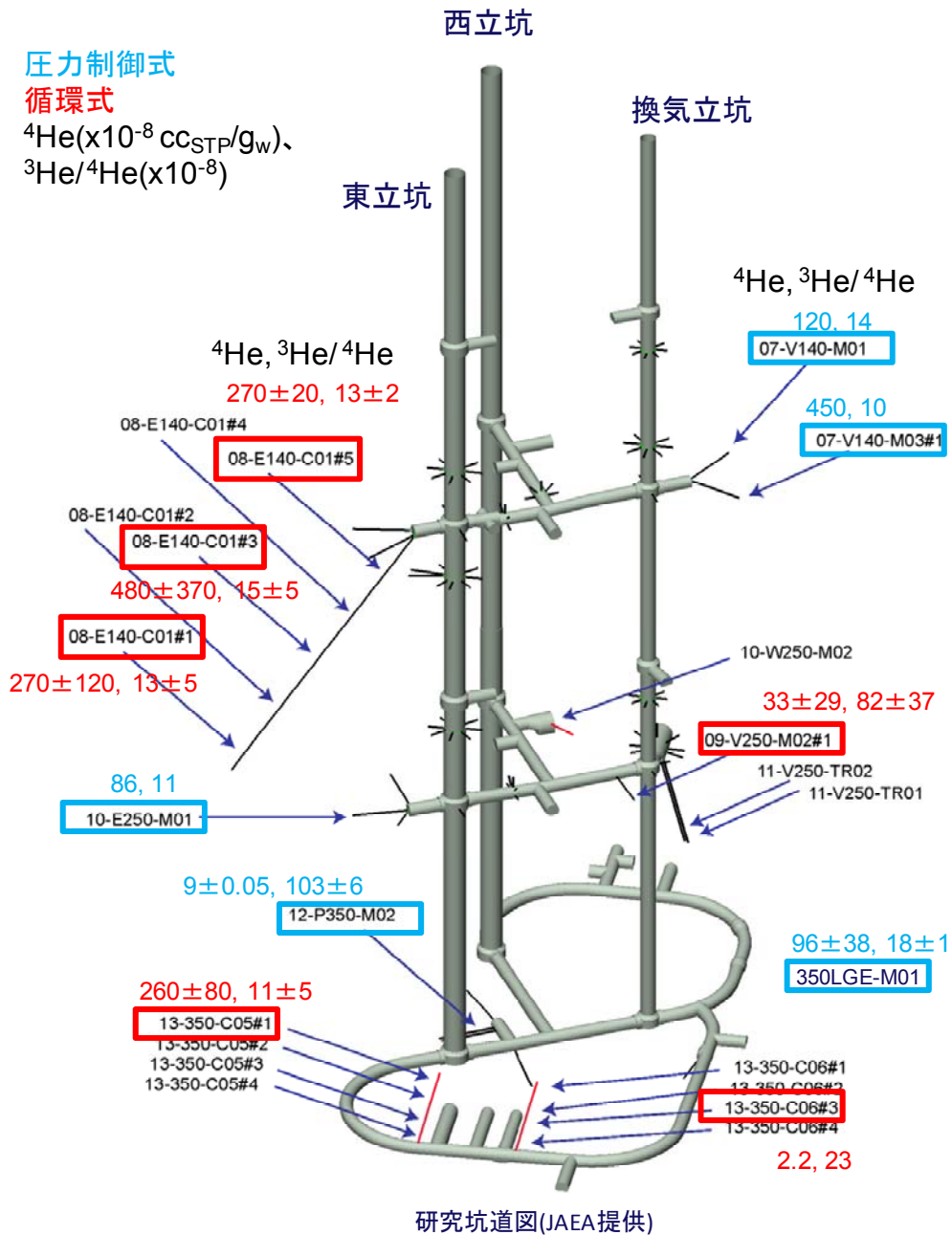


図 7.3.3-10 幌延研究坑道での  ${}^4\text{He}$  濃度の分布

(Ne 補正した値、複数計測値がある場合には平均値と誤差を表示)

(4) 立坑での C1 と C1 同位体の分布

初期の分布を把握するために実施したリーチング結果を図 7.3.3-11 に示す。C1 濃度分布は、比較的連続的な分布をしており、C1 濃度は浅部で低く、深度 100m 付近で増加し、深度 250m 付近で低下し、また深部に向けて増加する。これは、水素・酸素同位体比などが深度 250m 付近で浅層水に近づくのと調和的である。幌延の深部地下水の C1 濃度は、海水の 1/4~1/2 程度 (5,000~10000mg/l) であり、それと比較すると、深度 250m 付近の 1000mg/l は 1/5~1/10 であり、かなり希釈されていると考えられ



る。この希釈の影響は、深度 400m 程度まで影響しており、この影響で  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  が平衡値よりも低く、 $^4\text{He}$  濃度が低くなっている可能性がある。

$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  は深度とともに増加する傾向がある。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  の平衡値は、前述のように間隙率に依存する。立坑周辺では、間隙率は深度 100m で 60%程度、深度 200m で 55%程度、深度 300m で 40%程度と現状最深部の深度 380m でも 40%に近い。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  の平衡値は、図 7.3.3-9 に示すように、浅部では  $3\sim 4\times 10^{-15}$  となり、深部でも  $5\sim 7\times 10^{-15}$  程度になる。このため、どの深度でも原位置平衡値に近いと考えられる。

$\delta^{37}\text{Cl}$  の分布は浅部でやや重く、深度 150m 付近でやや軽くなり、また深部に向けて増加する。深度 250m 以深からバラツキが大きい。 $\text{Cl}$  濃度の分布から、深度 100m から上下に向けて拡散する場合には、150m 付近で  $\delta^{37}\text{Cl}$  が重くなるはずである。また、深度 250m 付近に浅層水の侵入があったとすると、250m 付近は  $\delta^{37}\text{Cl}$  が軽くなるが、その傾向も明確ではない。このため、分布の形成要因については検討する必要がある。

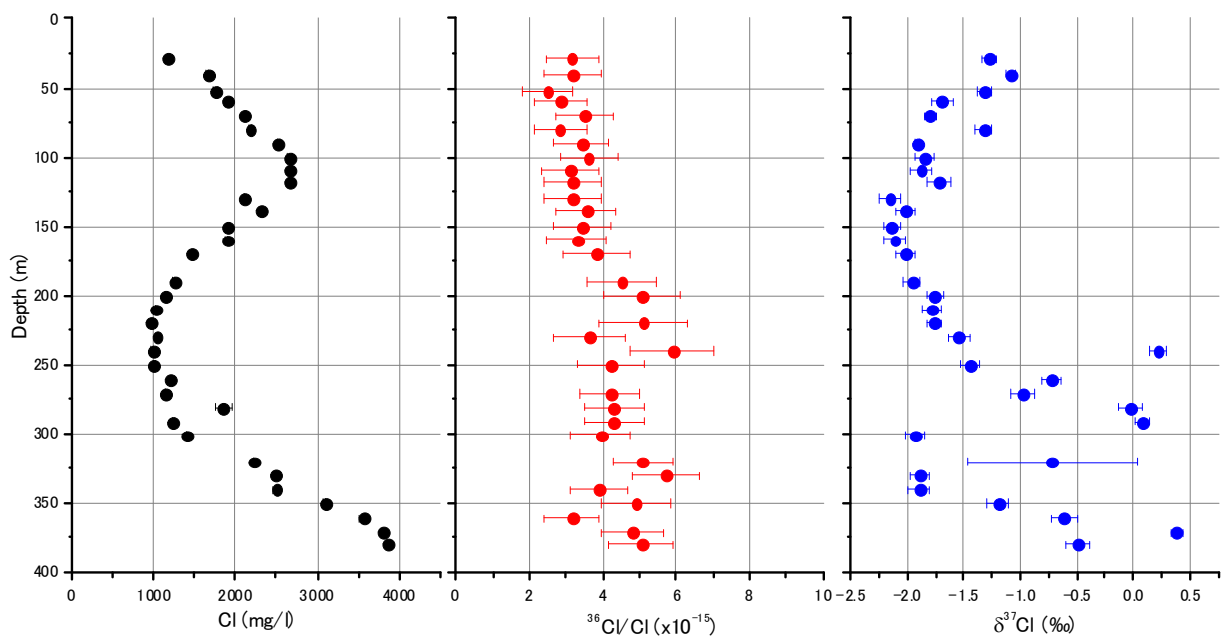


図 7.3.3-11 東立坑での Cl 濃度と Cl 同位体の分布

### 7.3.4 幌延における地下水流動・物質移行解析

#### 7.3.4.1 地下水流動・水質変化の概要

幌延深地層研究センターの掘削に伴う水質・地下水年代の変化を評価するために地下水流動・物質移行解析を実施した。立坑掘削の進捗を図 7.3.4-1 に示す(日本原子力研究開発機構、2014)。また、立坑への湧水量を図 7.3.4-2 に示す(熊谷ほか(2008)、山崎ほか(2008)、佐野ほか(2009)、稲垣ほか(2010, 2011, 2012, 2013)、稲垣(2014))。図に示す様に、湧水量は東立坑と西立坑を併せて約 200m<sup>3</sup>/日(2010/1/1 時点)である。5年間程度継続したと考えると 40 万 m<sup>3</sup>の湧水量となり、これは間隙率を 50%と考えると 100 m の立方体分と等価な領域の地下水が湧出したことになる。

声間層と稚内層の境界付近に透水係数が高い領域があり、これが地下施設の建設地点では約 250 m 深度に存在することから、図 7.3.4-2 に示すように、掘削深度が 250m 程度で湧水量が急激に増加する傾向が見られている(日本原子力研究開発機構、2011)。

水圧低下は図 7.3.4-3 に示すように、地下施設周辺のボーリング孔で大きい(吉野ほか、2015)。先行ボーリングでは、100 m 以上の水圧低下が観測されている。ただし、水圧低下が有意に発生するのは、声間層と稚内層の境界付近の 250 m 深度、断層の影響がある深度 350 m 付近のみである。HDB-3 孔は地下施設から 100m 以上離れているが、深度 401m 区間では、350m 調査坑道における 13-350-C03 孔(仮称)を掘削の際、F1 断層と推定される断層付近を掘削した後に水圧低下が発生しており、この断層の影響を受けていると考えられる(日本原子力研究開発機構、2013)。立坑とボーリング孔の関係を図 7.3.4-4 に示した。図は、湧水量の多い地点と水圧低下の大きい地点とを概念的に示したものである。

これらの結果から、声間層と稚内層の間のゾーンと断層の掘削による湧水が、地下施設周辺の水圧応答に大きな影響を与えていると推定される。

立坑の集水リングにおける塩分濃度の変化が、天野ほか(2012)や日本原子力研究開発機構(2014)に示されている。この結果から、浅部では地下施設建設に伴い一時的に塩分濃度が増加した後、やや減少する傾向を示す。一方、深部では塩分濃度に顕著な変化は認められていない。これは、湧水量に対して、間隙率が大きいため、地下水の移動が小さいためと考えられる。

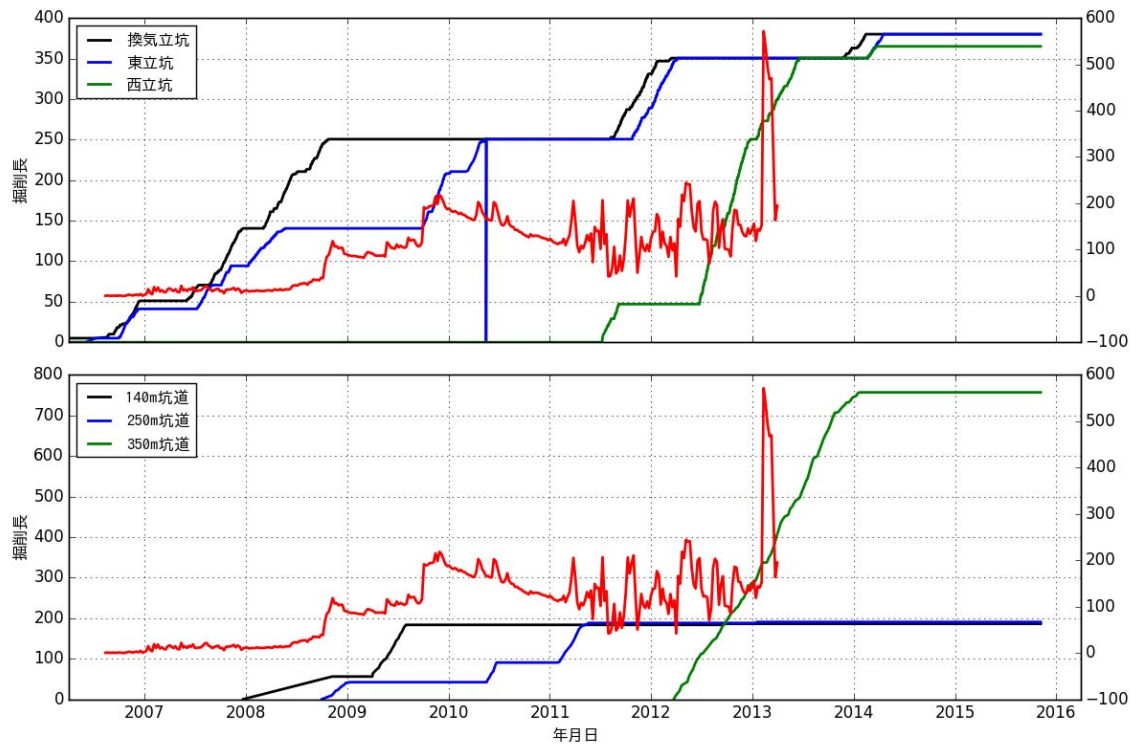


図 7.3.4-1 立坑掘削の進捗

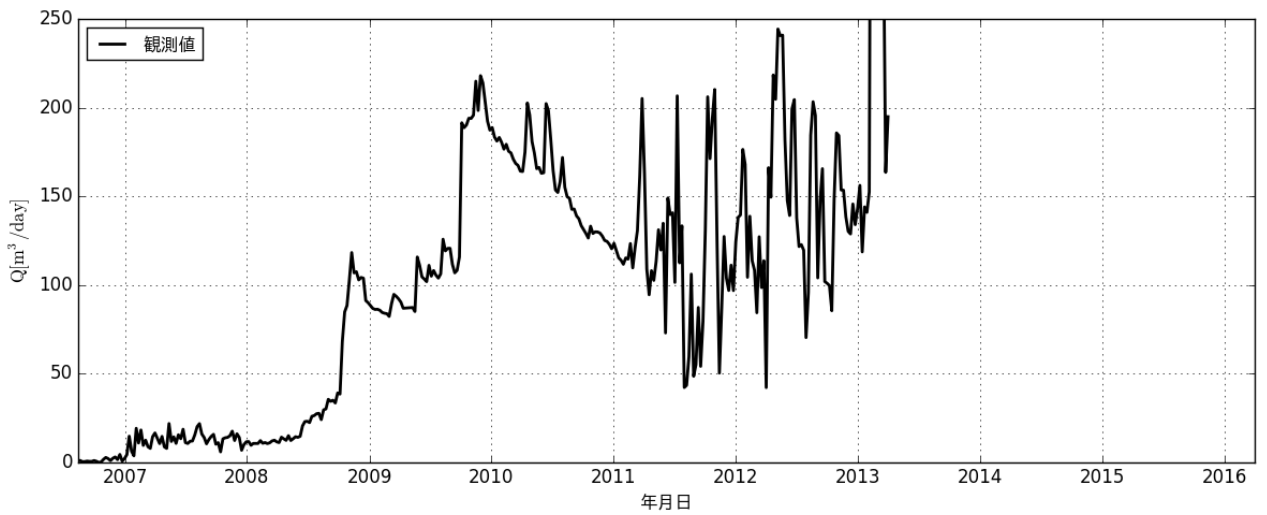


図 7.3.4-2 湧水量の時間変化

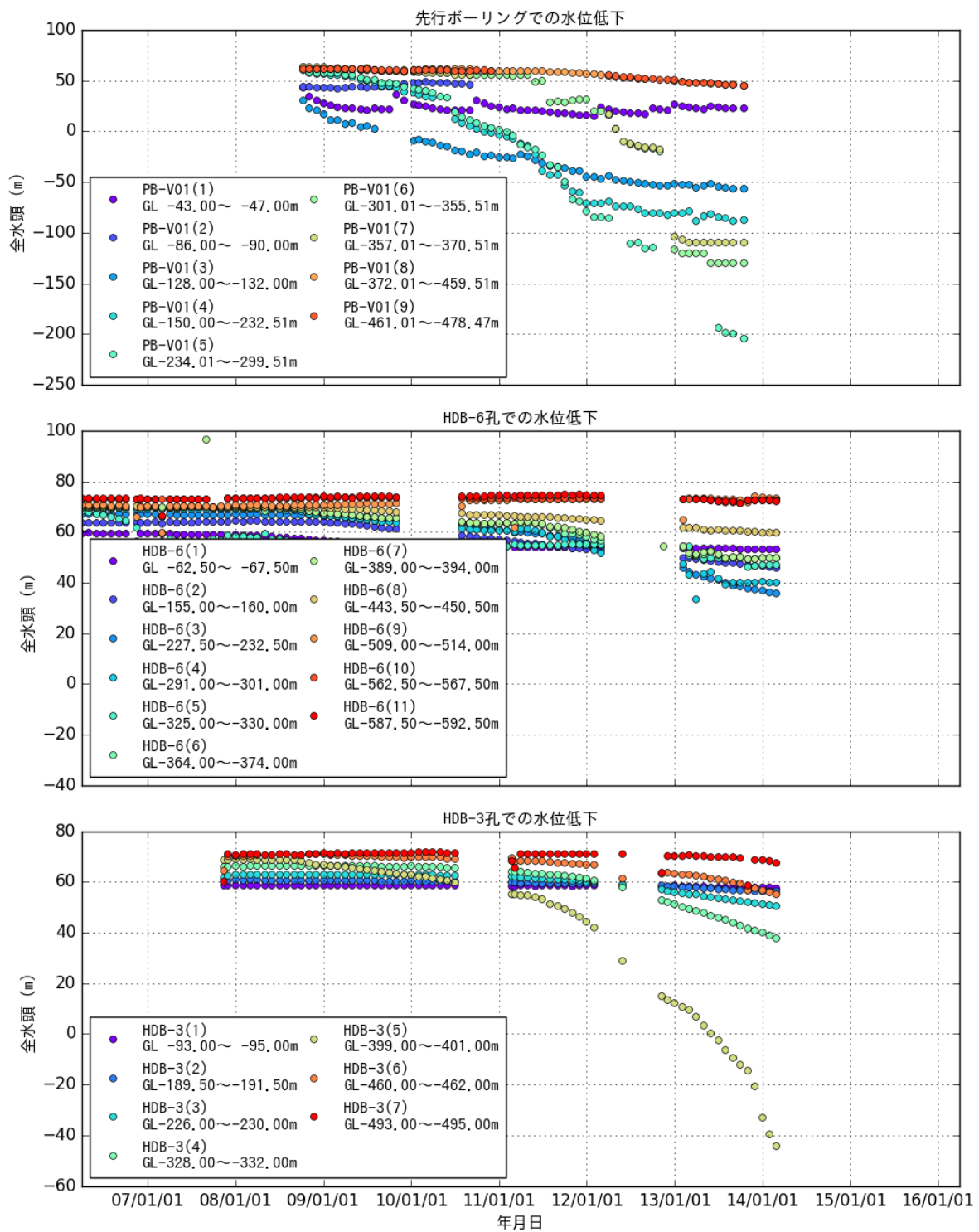


図 7.3.4-3 立坑周辺のボーリング孔における水圧低下

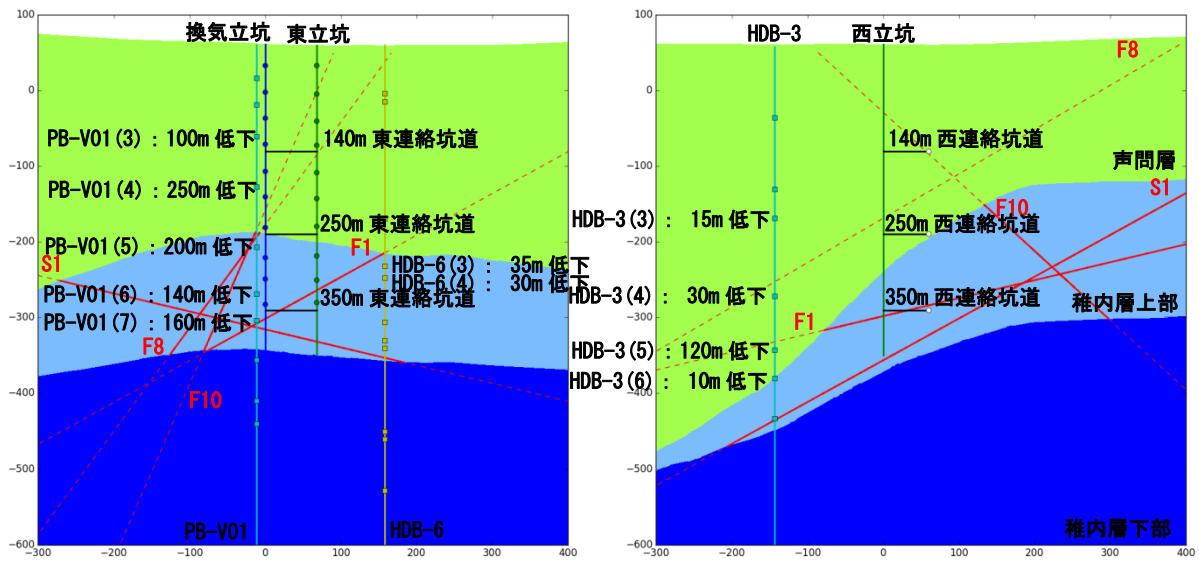


図 7.3.4-4 立坑周辺での水圧低下の概念図

#### 7.3.4.2 解析モデル

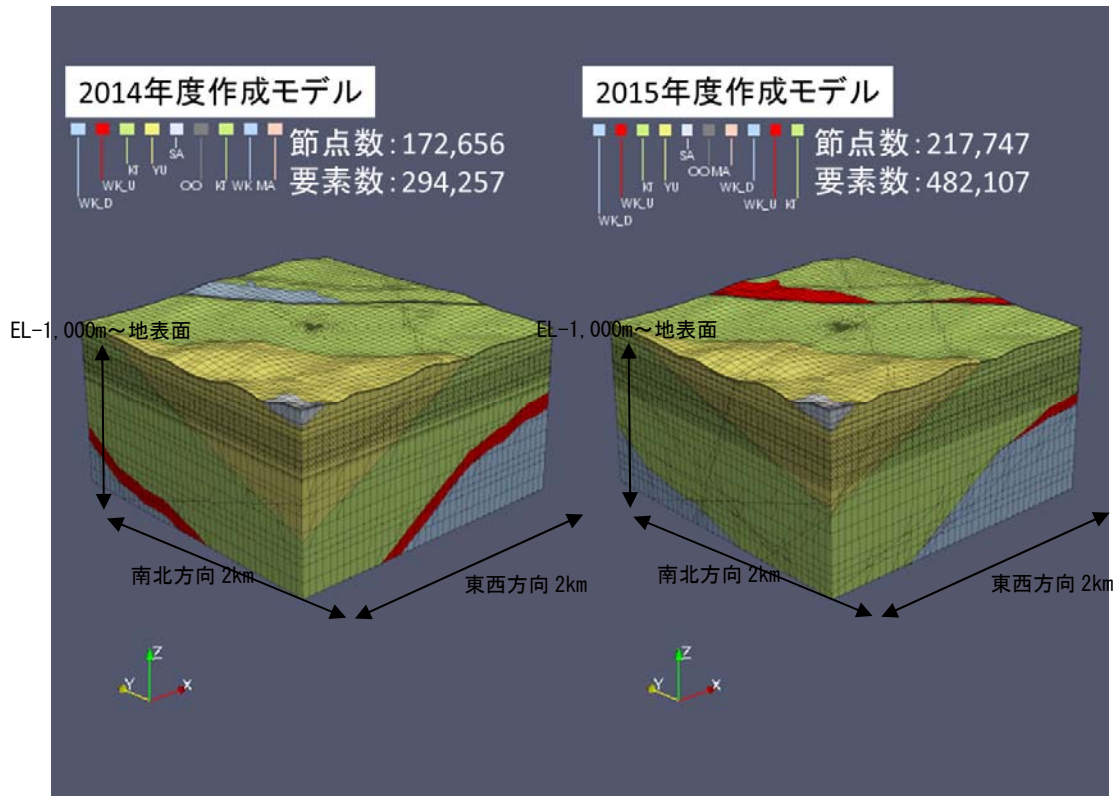
幌延深地層研究センターにおける地下施設の建設が、水質・地下水年代分布にどのような影響を与えるかを検討するために、地下水流動・物質移行解析を実施する。

解析モデルは、日本原子力研究開発機構(2011)で作成した地形・地質などを考慮したモデルに基づいて作成した。解析モデルを図 7.3.4-5 に示す。解析モデルでは、主要な地層と大曲断層、主要な断層をモデル化した。

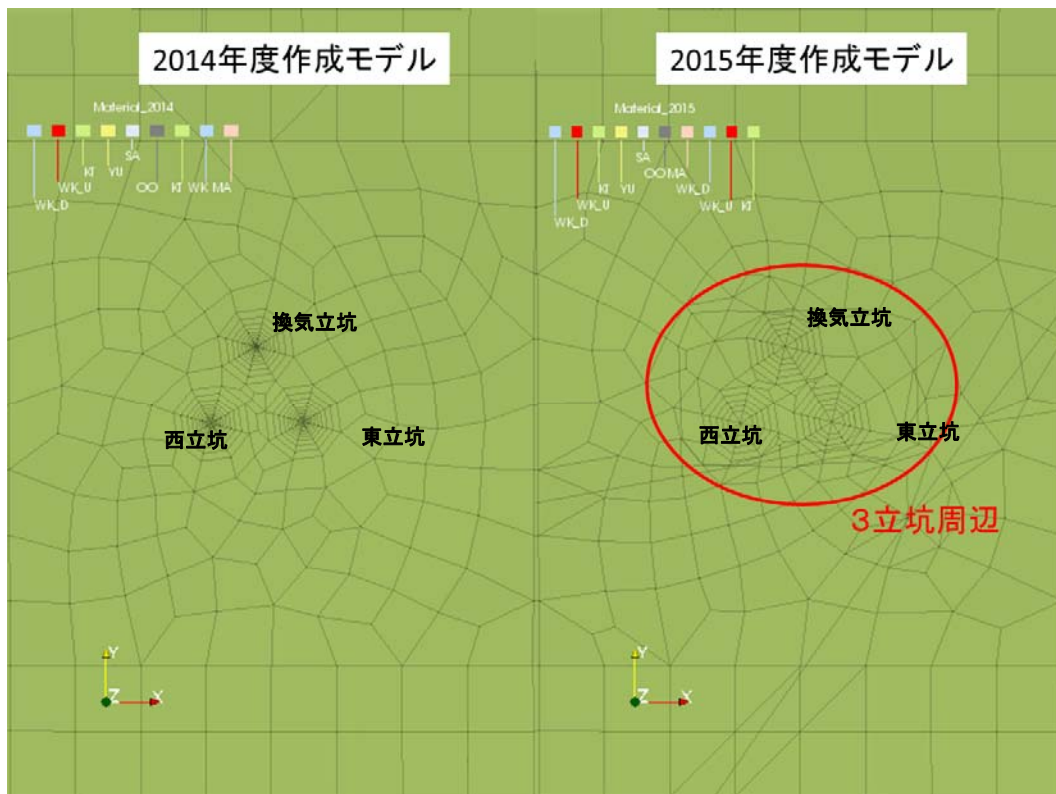
断層については、図 7.3.4-6 に示すように、板要素で表現したモデルと、スメアード法で表現した 2 つのモデルを作成した。スメアード法は、断層などの不連続面と交差する立体要素の透水係数テンソルに不連続面の透水係数を考慮する方法であり、メッシュを組み直さずに断層の影響を表現することが可能となる(長谷川ほか、2004)。

今年度は F1 だけでなく、広がりが大きいと考えられる F8、F10 についてもモデル化した。また、F1 と接続されている可能性が高い S1 についてもモデル化した。さらに、今年度は換気立坑、東立坑、西立坑、140、250、350 m の東連絡坑道、西連絡坑道の他に、図 7.3.4-7 に示す 350 m の東周回坑道と西周回坑道についてもモデル化した。これは、350 m 周回坑道の体積が他の立坑や連絡坑道より大きいためである。

今年度は調査坑内からの水の流出量は流出箇所等が不明瞭なため、流量の境界条件は坑道全体の湧水量を設定した。

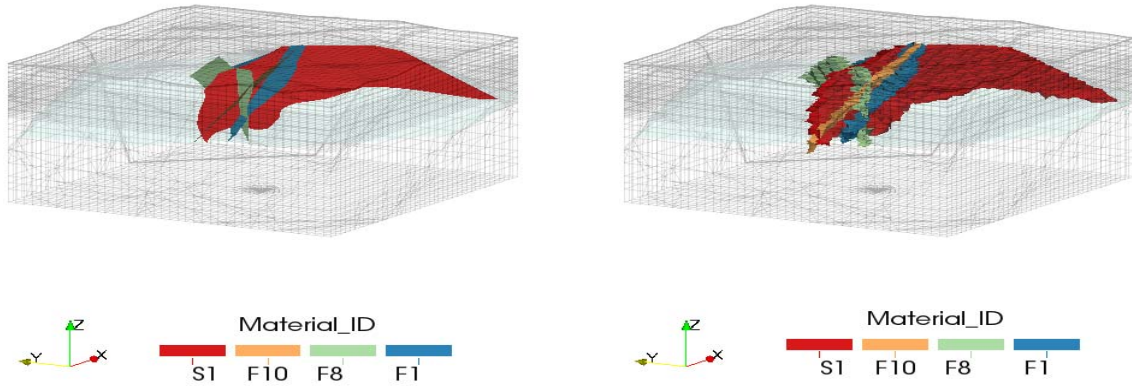


(1) 解析メッシュの全体図



(2) 研究所周辺のメッシュ分割

図 7.3.4-5 解析に用いた FEM 解析メッシュ



(1) 板要素による表現

(2) スメアドフラクチャーを設定した要素

図 7.3.4-6 断層のモデル化方法の概念図



図 7.3.4-7 350m 坑道のモデル化

### 7.3.4.3 解析条件

#### (1) 境界・初期条件の設定

地下水流動の初期・境界条件には、操上ほか(2008)や操上(2007)に記載されている HDB-1~11 孔の全観測区間の全水頭の観測値に基づいてクリギングで推定したものをを用いた。物質移行解析の初期・境界条件も、地下水流動解析と同様に、ボーリング孔での調査結果(天野ほか、2012)に基づいてクリギングで推定したものをを用いた。これらの推定結果を図 7.3.4-8~図 7.3.4-11 に示す。

地表面の境界条件は、圧力既知境界条件と降雨境界条件の両方を用いた。圧力既知境界条件では、前述のようにクリギングで圧力・水質ともに推定した値を与える。降雨境界条件は、降雨量と降雨の水質を与える。立坑については大気圧解放とする圧力固定条件と湧水量を与える流量既知境界条件の両方を実施した。ただし、流量既知境界条件については、湧水量と湧水箇所との対応が不明確なため、立坑全体での湧水量が実測値と一致するように設定した。

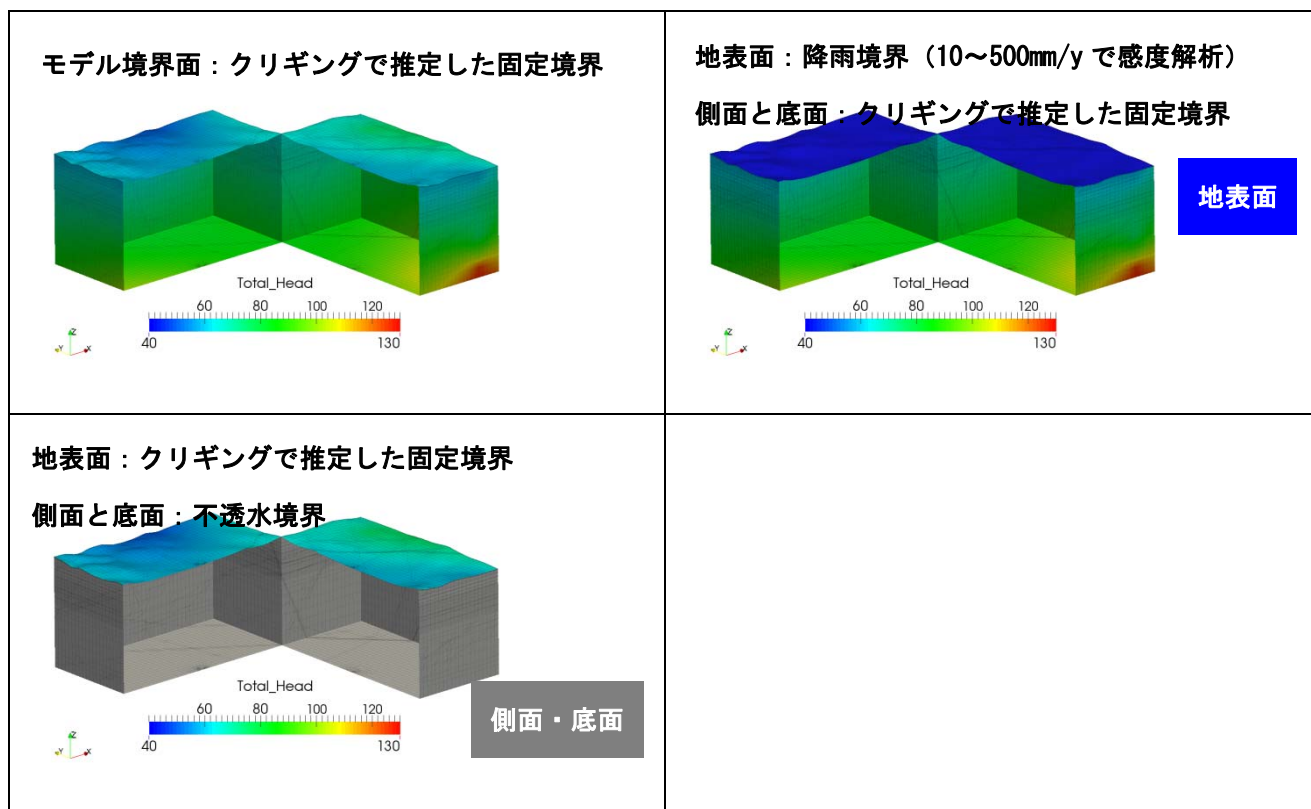


図 7.3.4-8 全水頭の初期・境界条件の分布図



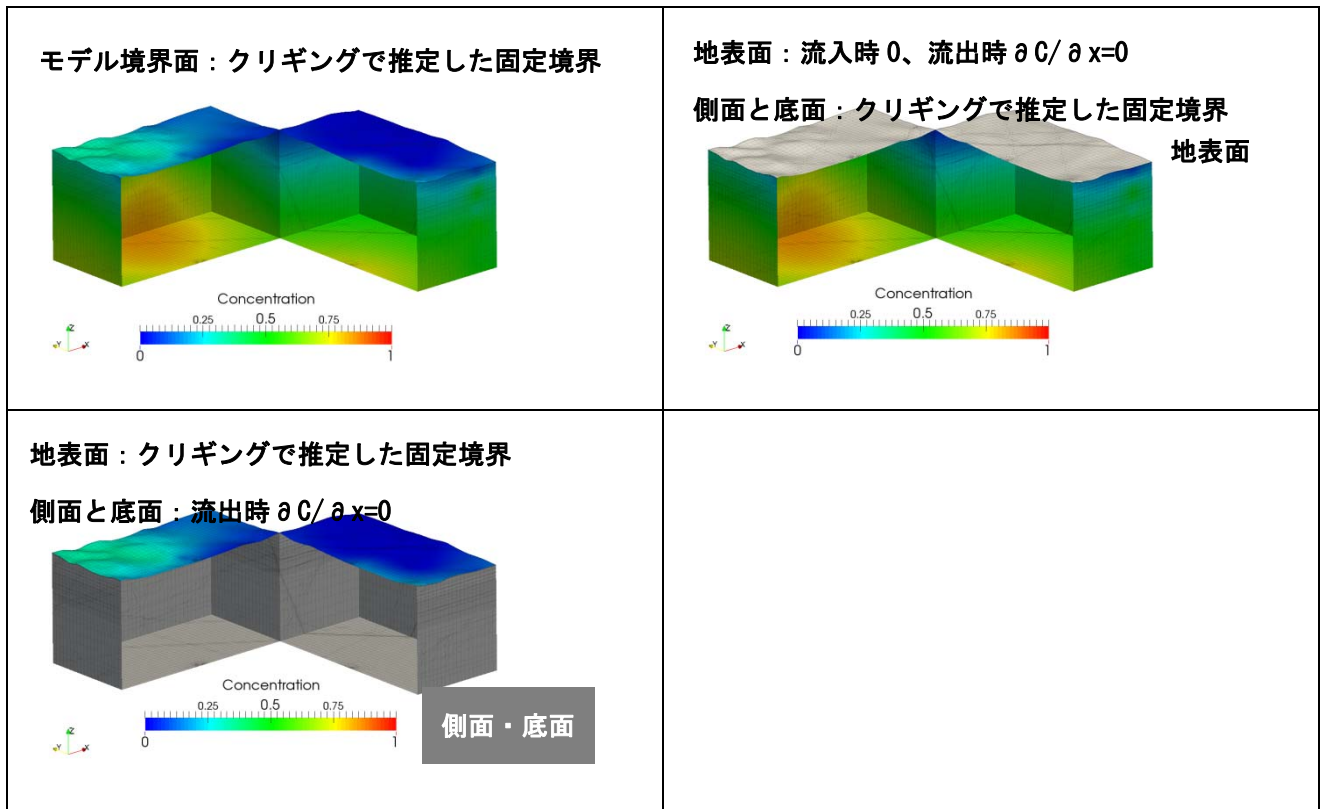


図 7.3.4-9 塩分濃度の初期・境界条件の分布図（海水の塩分濃度 19,000mg/l で正規化）

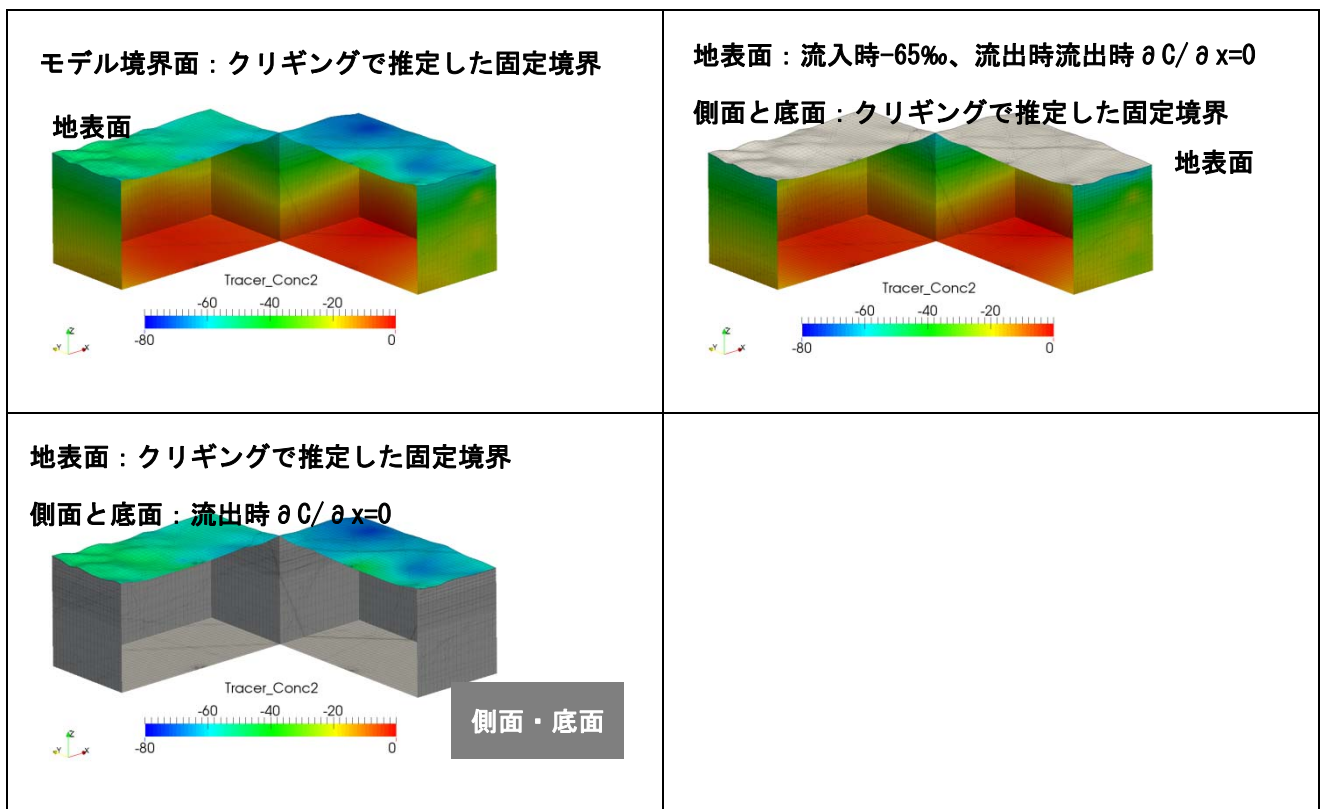


図 7.3.4-10 水素同位体比（ $\delta D$ ）の初期・境界条件の分布図

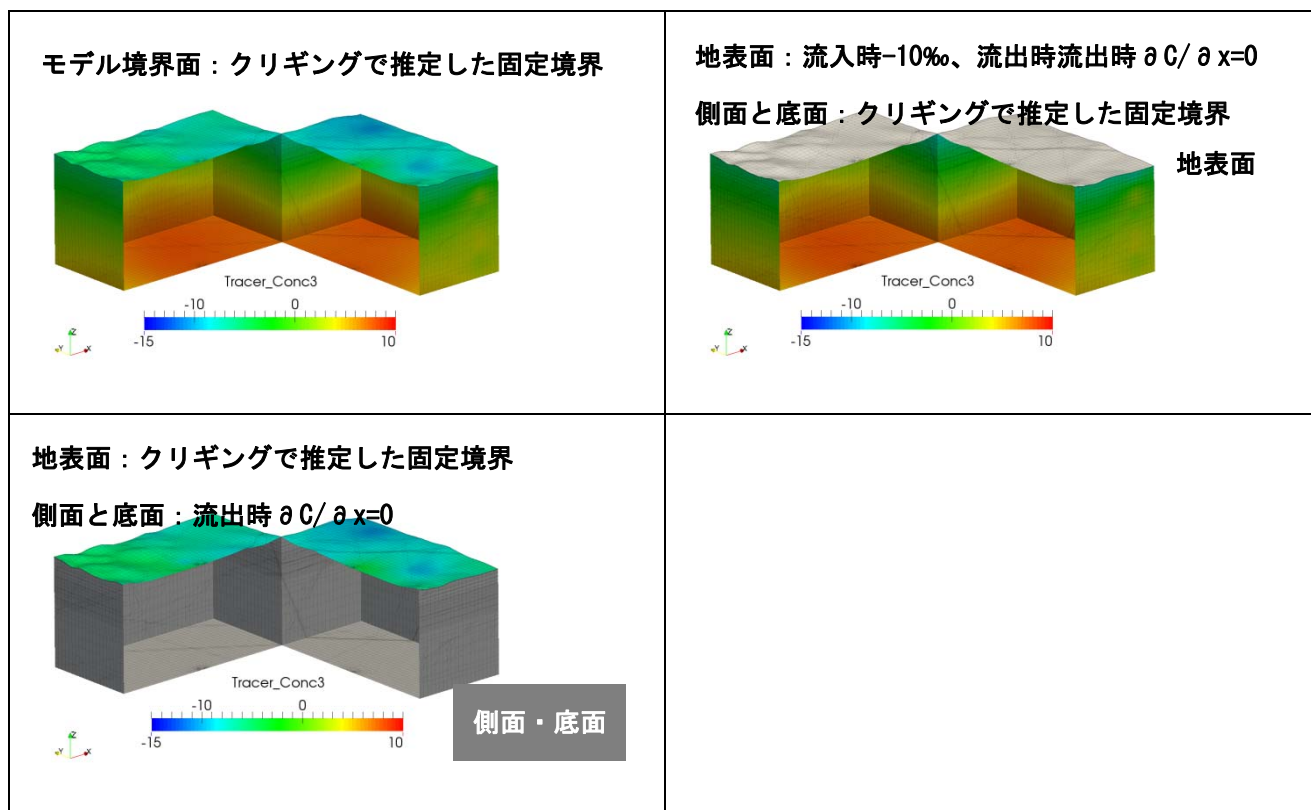


図 7.3.4-11 酸素同位体比 ( $\delta^{18}O$ ) の初期・境界条件の分布図

(2) 物性値の設定

解析に用いた物性値を表 7.3.4-1 に示す。透水係数は今井ほか(2001, 2002)を参考に設定した。勇知層、声間層、稚内層の比貯留係数は、操上ほか(2008)や操上(2007)を参考に、間隙率は今井ほか(2001, 2002)や下茂ほか(2004)を参考に設定した。その他の地層については実測値がないため、推定値とした。

F1、F8、F10、S1 の各断層については水圧低下量と湧水量の関係から、透水量係数と貯留係数を算出し設定した。

分散長(縦・横)、分子拡散係数は、すべての地層について縦分散長 100m、横分散長 10m、分子拡散係数  $1.0 \times 10^{-9} \text{m}^2/\text{s}$  とした。

表 7.3.4-1 解析に用いた物性値

地層名	透水係数 (m/s)	比貯留係数 (1/m)	間隙率 (%)	備考
更別層	$1.00 \times 10^{-6}$	$1.00 \times 10^{-6}$	45	
勇知層	$9.35 \times 10^{-10}$	$1.00 \times 10^{-6}$	45	
声問層	$6.46 \times 10^{-9}$	$1.00 \times 10^{-6}$	50	
稚内層・上部	$5.89 \times 10^{-10}$	$1.00 \times 10^{-6}$	40	
稚内層・下部	$5.89 \times 10^{-10}$	$1.00 \times 10^{-6}$	40	
増幌層	$5.00 \times 10^{-11}$	$1.00 \times 10^{-6}$	10	
大曲断層	$1.00 \times 10^{-6}$	$1.00 \times 10^{-6}$	30	
F1	$1.20 \times 10^{-6}$	$3.70 \times 10^{-4}$	100	亀裂幅 1m
F8	$1.60 \times 10^{-6}$	$6.50 \times 10^{-4}$	100	亀裂幅 1m
F10	$1.75 \times 10^{-5}$	$2.80 \times 10^{-7}$	100	亀裂幅 1m
S1	$1.80 \times 10^{-5}$	$5.40 \times 10^{-8}$	100	亀裂幅 1m

#### 7.3.4.4 解析結果

立坑掘削によって生じる地下水流動・物質移行は非定常現象ではあるが、非定常状態は計算負荷が大きいため、まずパラメータの感度などの定常解析を実施した後、非定常解析を実施することとした。

##### (1) 定常解析結果

##### a. 地表面境界条件の感度解析

定常解析は、立坑掘削前の状態と立坑掘削後の状態で実施した。解析モデルは、前述の断層をスマード法と板要素で表現したものを用いた。また、地表面の境界条件は、降雨境界条件（流量既知境界条件）と圧力既知境界条件（クリッピングで推定）の両方で実施し、その影響を調べた。

HDB-1、HDB-3、HDB-6、HDB-8、PB-V01（先行ボーリング）での全水頭および塩化物イオン濃度の観測値と解析結果を図 7.3.4-12 に示す。

掘削前の状態の解析結果は、地表面に涵養量を設定した場合（流量既知境界条件）で、声問層の浅部において実測値が観測値より水圧が高くなる傾向を示す。これは、声問層の透水係数が非常に低く、降雨量 10 mm/y を十分に涵養できないためである。掘削後の状態の解析は、流量既知境界条件（スマード要素）で、PB-V01 と HDB-6 において実測値が解析値より水圧が低下している。このため、境界条件は圧力既知境界条件に設定した方が実測値に近いと考えられた。

塩化物イオン濃度の解析では、どのケースも HDB-3 の声問層浅部で原位置の塩化物イオン濃度

が高い状況を再現できなかった。また、掘削前の状態の解析結果は、どのケースも PB-V01、HDB-6、HDB-1 において塩化物イオン濃度が高い解析結果となった。浅部での塩化物イオン濃度が観測値でより高い結果となっていることから、現在も化石海水の洗い出し過程にあり、定常解析では再現できないと考えられた。

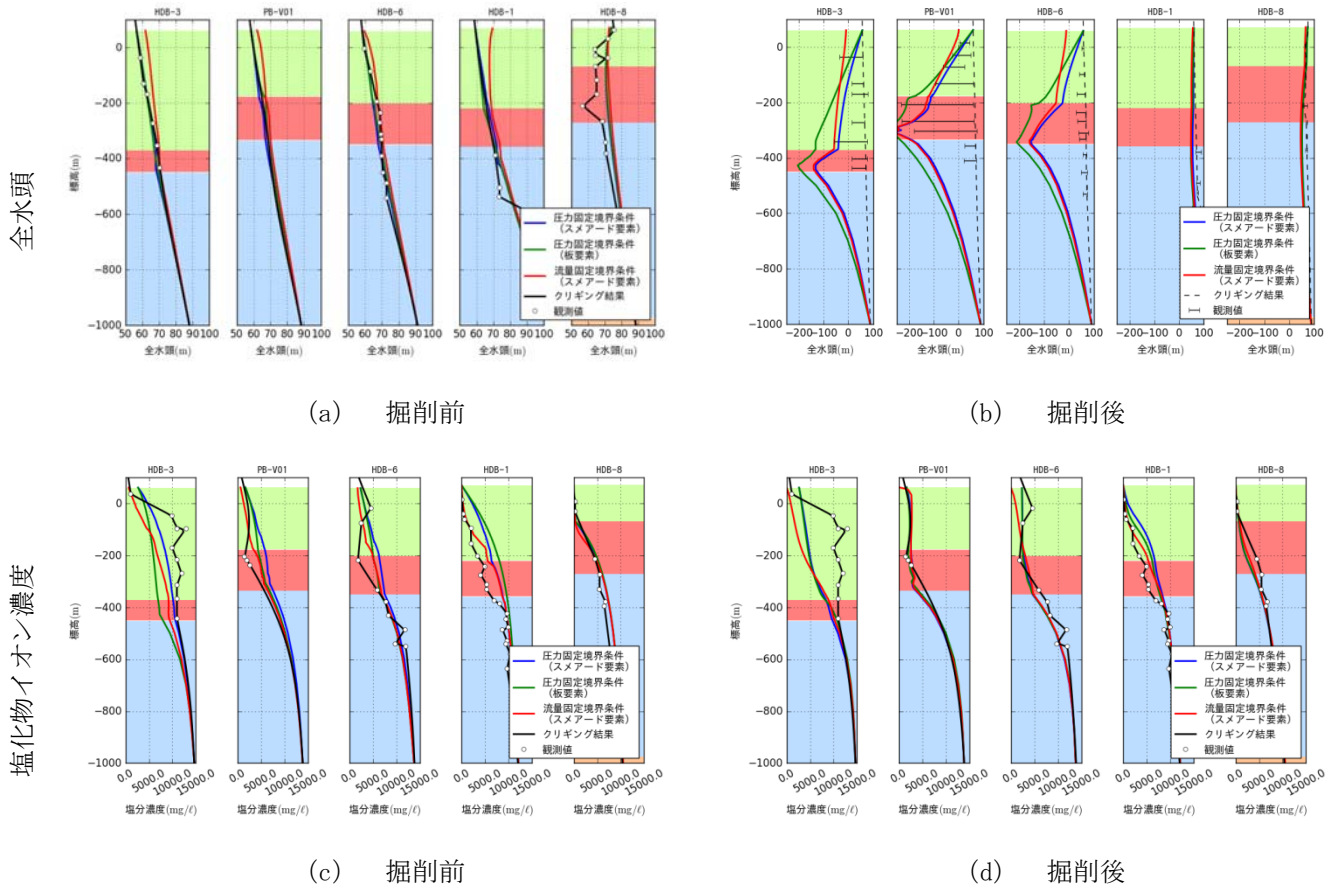


図 7.3.4-12 地表面境界条件の感度解析におけるボーリング孔鉛直プロフィール

### b. 立坑の境界条件の感度解析

立坑の境界条件を設定するために、掘削後の立坑を圧力既知境界条件で大気圧開放とした場合と湧水量で流量既知境界条件とした場合の解析を実施した。なお、湧水量は平均的な湧水量として 200 m<sup>3</sup>/日を与えた。

立坑掘削後の解析結果を先ほどと同様に図 7.3.4-13 に示す。流量既知境界では稚内層上部の断層を板要素で表現したケースがスミアード要素で表現したケースより水圧低下が若干大きかった。流量既知境界と大気開放の圧力既知境界を比較すると、大気圧開放したケースの方が深部でより大きい水圧低下を示した。また、HDB-3 孔、PB-V01 孔で大気開放に設定した方が掘削の影響による水圧低下を再現している。これは、立坑全体で流量を与えていることで、透水係数が大き

い地層あるいは断層から地下水が吸い出され、全体の圧力低下が少なくなるためと考えられる。このため、圧力既知および濃度既知境界条件で解析した方が、解析値が実測値に近い挙動をすると考えられた。

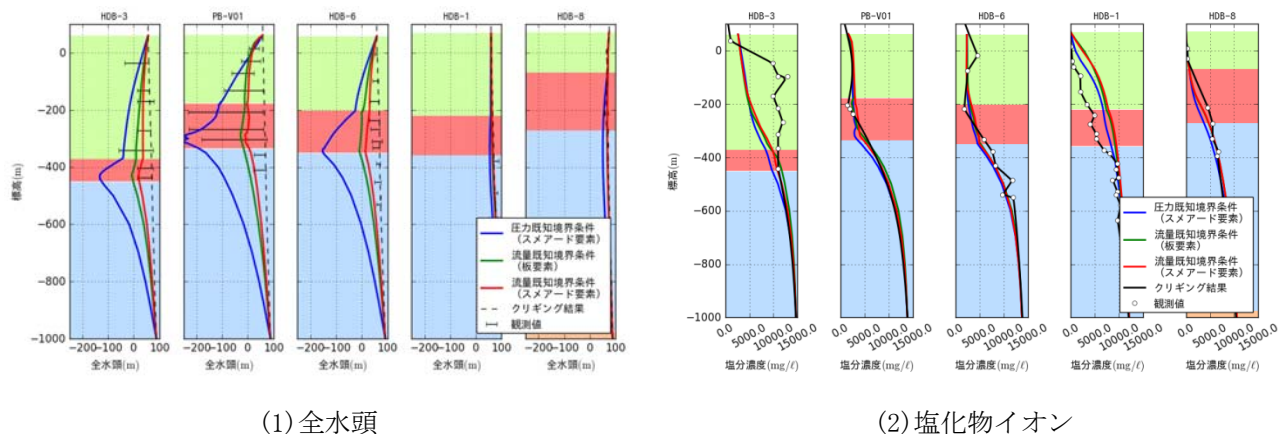


図 7.3.4-13 立坑境界条件の感度解析におけるボーリング孔鉛直プロファイル

## (2) 非定常計算結果解析

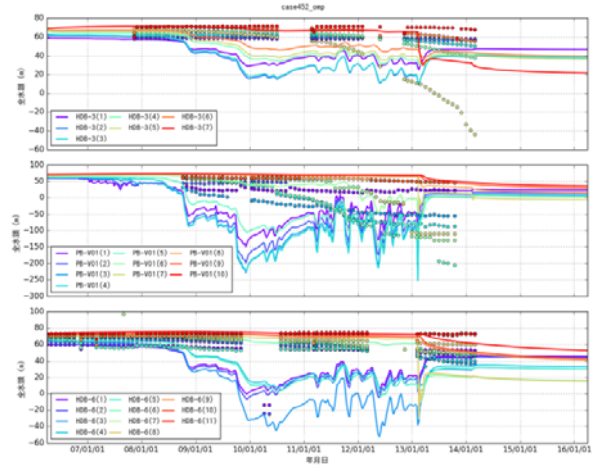
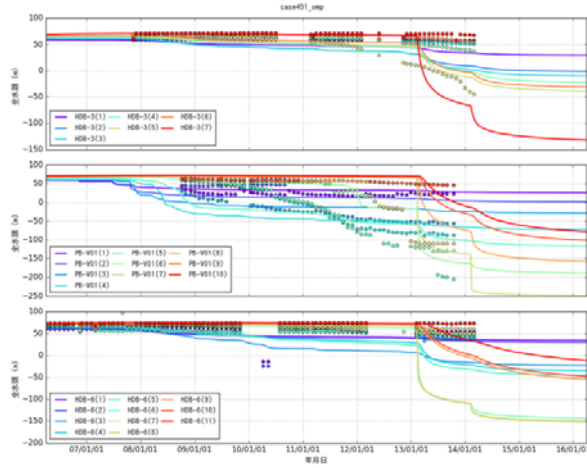
非定常的な水圧低下や水質変化を評価するために、立坑の掘削状況の変化を考慮した地下水流動・物質移行解析を実施した。非定常解析では2006年4月1日～2016年4月02日の期間を7日刻み(522ステップ)に設定し、立坑・調査坑掘削を考慮して境界条件を変化させた。周辺のモデル境界はすべてクリギング推定値で固定した圧力既知および濃度既知境界条件に設定した。なお、非定常解析では、解析メッシュにはスメアドモデルを用いた。

### a. 立坑の境界条件の感度解析

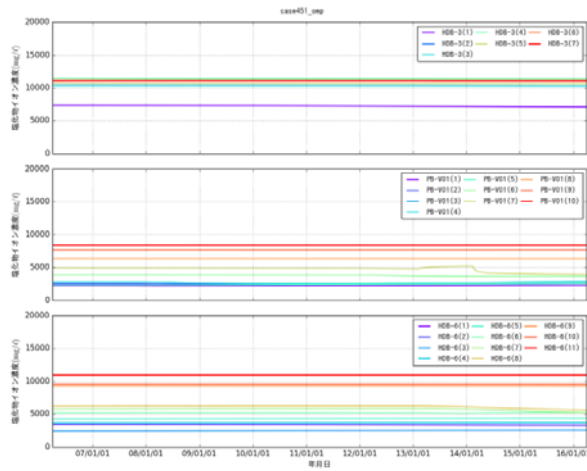
立坑の境界条件は、圧力既知境界条件と流量既知境界条件を用いた。この結果を図 7.3.4-14 に示す。立坑を圧力既知境界(大気圧開放)に設定した場合は、2013年度以降でボーリング孔での水圧が非常に大きく変化する。また、圧力既知境界条件での湧水量は実測値の1/4程度であった。大気解放条件は、もっとも地下水の湧水量が多くなる境界条件であるが、湧水量の解析結果は実測値よりも少なくなった。次に、流量既知境界条件では、湧水量の変動にあわせて、ボーリング孔で水圧低下が実測値よりも顕著に表れた。これらの結果から、実際の透水係数は、設定値よりも大きいと推定される。

一方で水質については、最も近い先行ボーリングでも、立坑掘削の影響はほとんど現れていない。

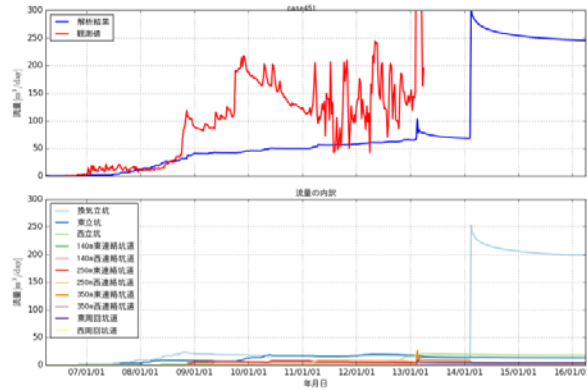
全水頭



塩化物イオン濃度



流量



立坑圧力既知境界 (大気開放)

立坑流量既知境界

図 7.3.4-14 非定常での立坑境界条件の感度解析

b. 透水係数の感度解析

前述の立坑の境界条件の感度解析結果から、透水係数の設定値が小さい可能性が示唆されたため、声問層、稚内層の透水性を 10 倍に設定した解析を実施した。なお、立坑の境界条件は、大気

圧解放とした。この結果を図 7.3.4-15 に示す。声間層の透水性を大きく設定した場合は、湧水量は基本ケースに比べて非常に多い結果となった。稚内層の透水性を大きくした場合は、稚内層に立坑が到達後に、基本ケースより若干流量が多い結果となった。ただし、透水係数の感度解析では、圧力既知境界条件のため、圧力に大きな変化はない。また、流量がかなり大きくなっても、ボーリング孔での水質にはほとんど影響がなかった。

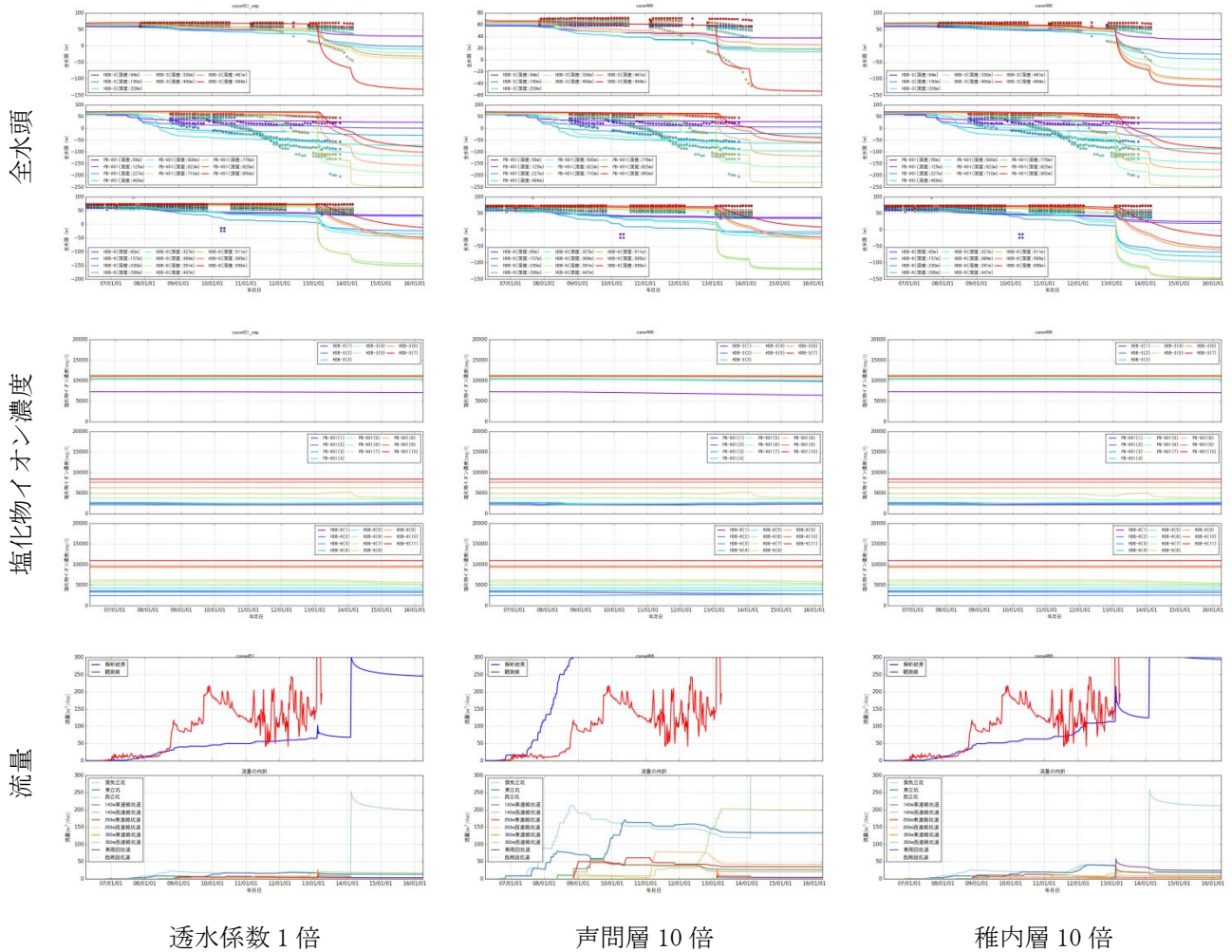


図 7.3.4-15 非正常での透水係数の感度解析結果

c. 比貯留係数の感度解析

これまでの感度解析結果から、実測値に比べて解析値では圧力変化が速くかつ大きいことから貯留係数の感度解析を実施した。これまでの解析結果の圧力応答が速いため、比貯留係数の設定値が過小であると考えられるため、比貯留係数を 10、100 倍に設定した感度解析を実施した。解析結果を図 7.3.4-16 に示す。比貯留係数を大きくするほど水圧低下しなくなり、水圧低下の反応も緩やかになる。ただし、比貯留係数を大きくしても 2013 年度以降の過剰な水圧低下は改善さ

れず、透水係数や比貯留係数のみでは表現できないことがわかった。これらの水圧低下は断層によって発生していると考えられた。このため、断層の有無について感度解析を実施した。

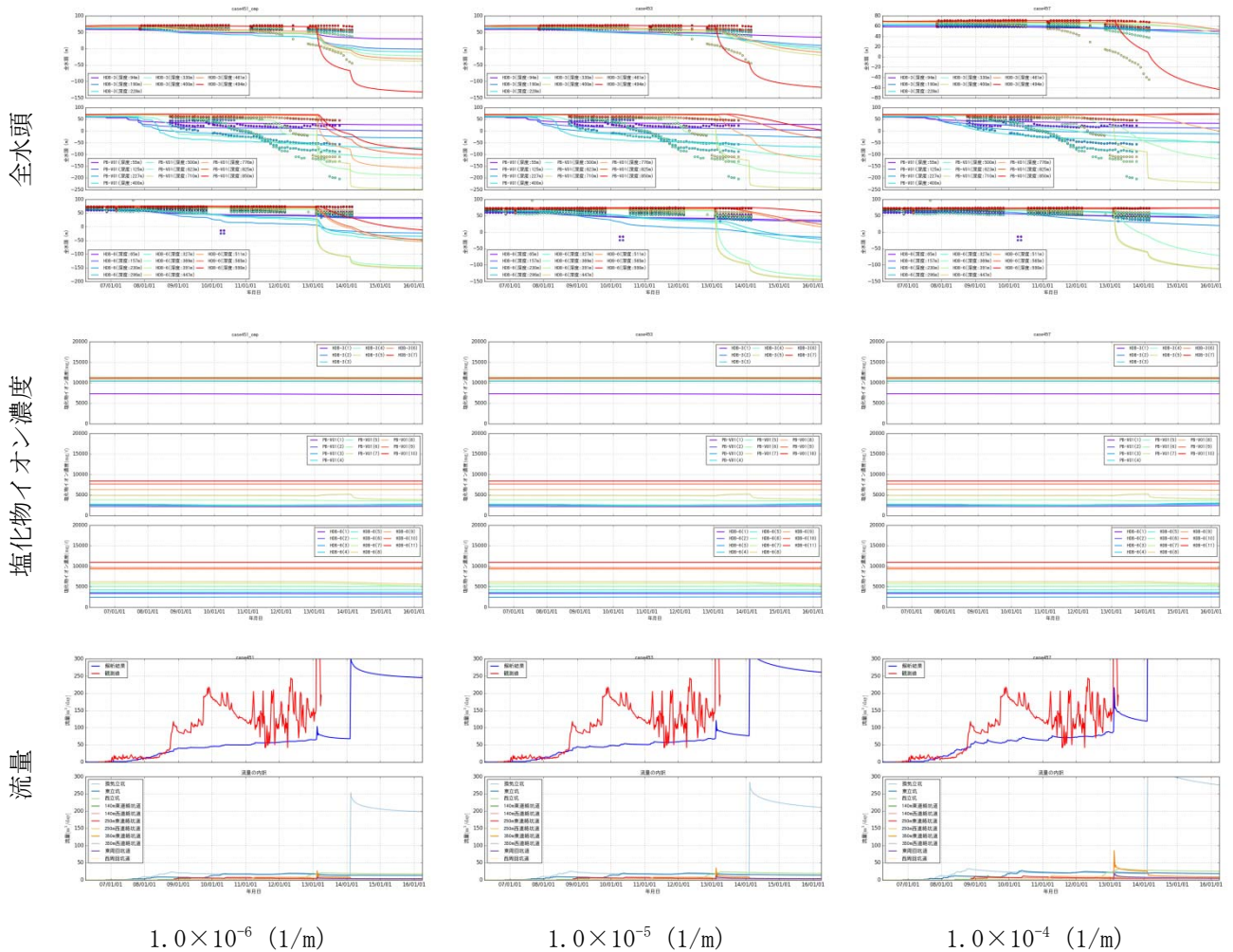


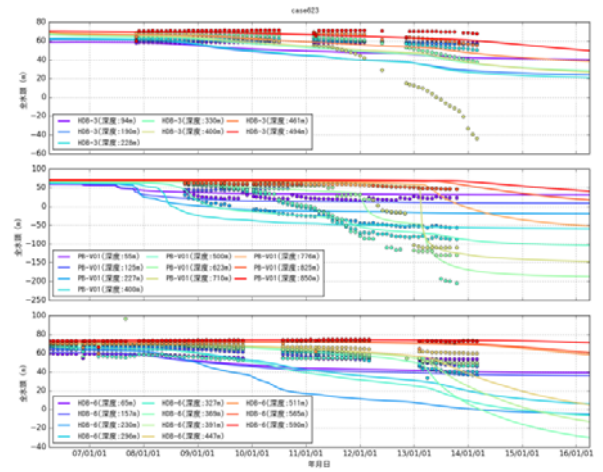
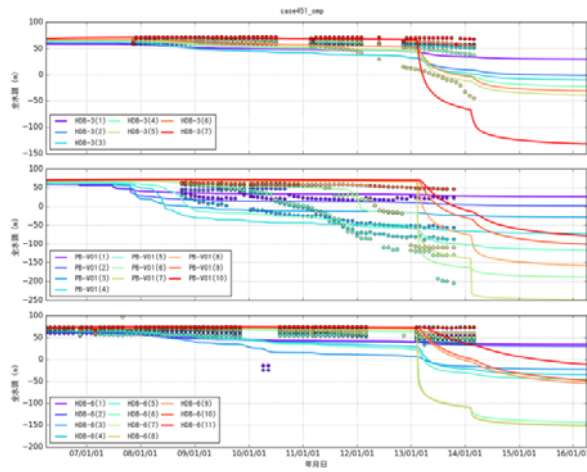
図 7.3.4-16 非定常での比貯留係数の感度解析結果

d. 断層の有無の影響確認

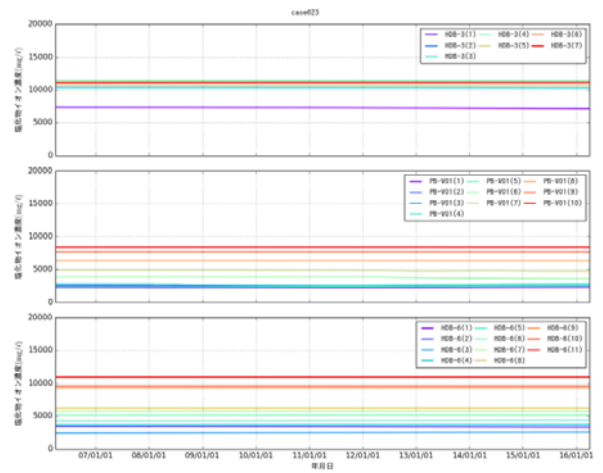
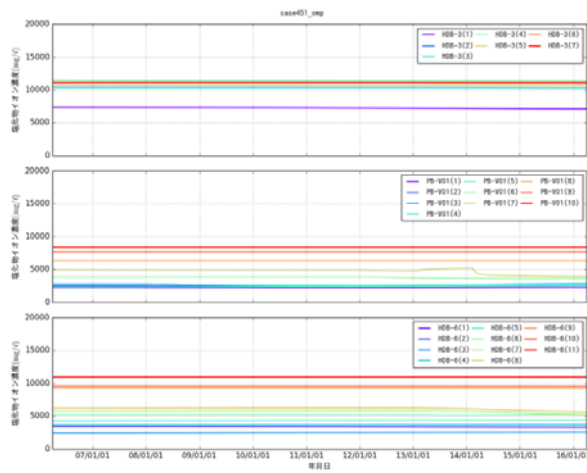
立坑境界条件の感度解析、透水性の感度解析、比貯留係数の感度解析を実施してきたが、2013年度以降の過大な水圧低下は改善されなかったため、この水圧低下が断層に起因していると考え、F1断層以外を取り除いた解析を実施した。解析結果を図 7.3.4-17 に示す。F1断層以外を取り除いた結果、すべての観測孔において2013年度以降の過大な水圧低下が改善される結果となった。このため、F1断層以外の断層の影響を過大評価していることがわかった。ただし、F1断層のみでは、HDB-3孔(5)の水圧低下は過小評価となっており、HDB-3孔(7)での水圧低下は過大評価となっている。このため、これらの水圧低下に対応する断層などの水理構造を考慮する必要があると考えられた。



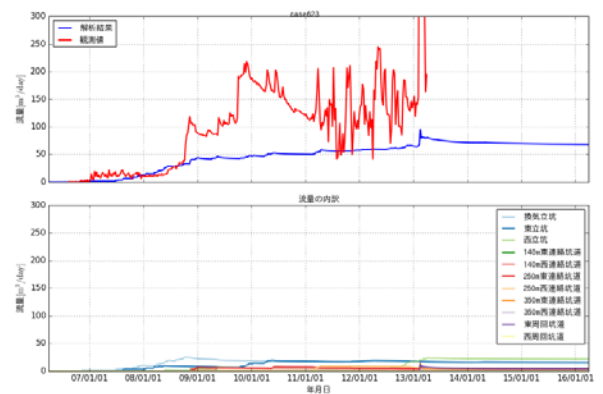
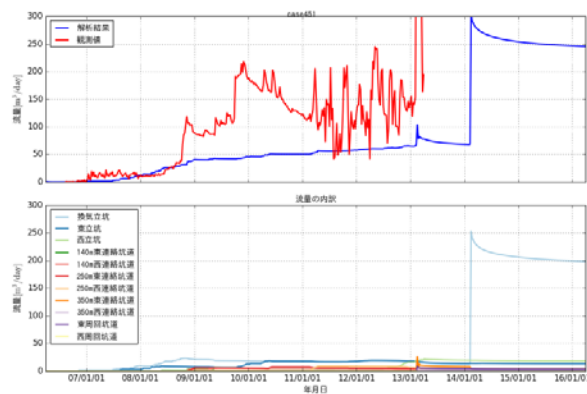
全水頭



塩化物イオン濃度



流量



基本ケース

F1 断層のみ

図 7.3.4-17 非定常での断層の有無に関する感度解析

7.3.4.5 考察

幌延深地層研究所の研究坑道の掘削を対象に地下水流動・物質移行解析を実施した。解析の境界条件には HDB-1～11 までの実測値に基づいてクリッキングで推定した圧力分布と濃度分布を用いた。立坑の境界条件には、湧水している箇所が不明確なため、主に圧力既知境界条件を用いた。基本的な透

水係数を用いた解析結果では、流量が数分の一程度であったため、声間層の透水係数は少し大きく  $10^{-8}$  m/s オーダーではないかと推測された。また、水圧の反応などから貯留係数もやや大きく  $10^{-5}$  1/m オーダーではないかと推測された。F1 断層の影響は明確であるが、それ以外の断層については影響が明確でなかったため、今後、その影響を検討する必要がある。ボーリング孔での水質の変化は、解析では明確にならなかった。これは、間隙率が大きく、地下水の実流速が遅いためと考えられた。

最後に、F1 断層のみを考慮したモデルでの水圧分布と C1 濃度分布を図 7.3.4-18 に示す。立坑周辺で水圧低下は起きるものの、水質はほとんど変化していないことがわかる。また、最大の水圧低下が観測されている地点は、F1 断層を延長した先にあることから、F1 断層を延ばすなど幾何学的な形状を見直す必要があると考えられる。

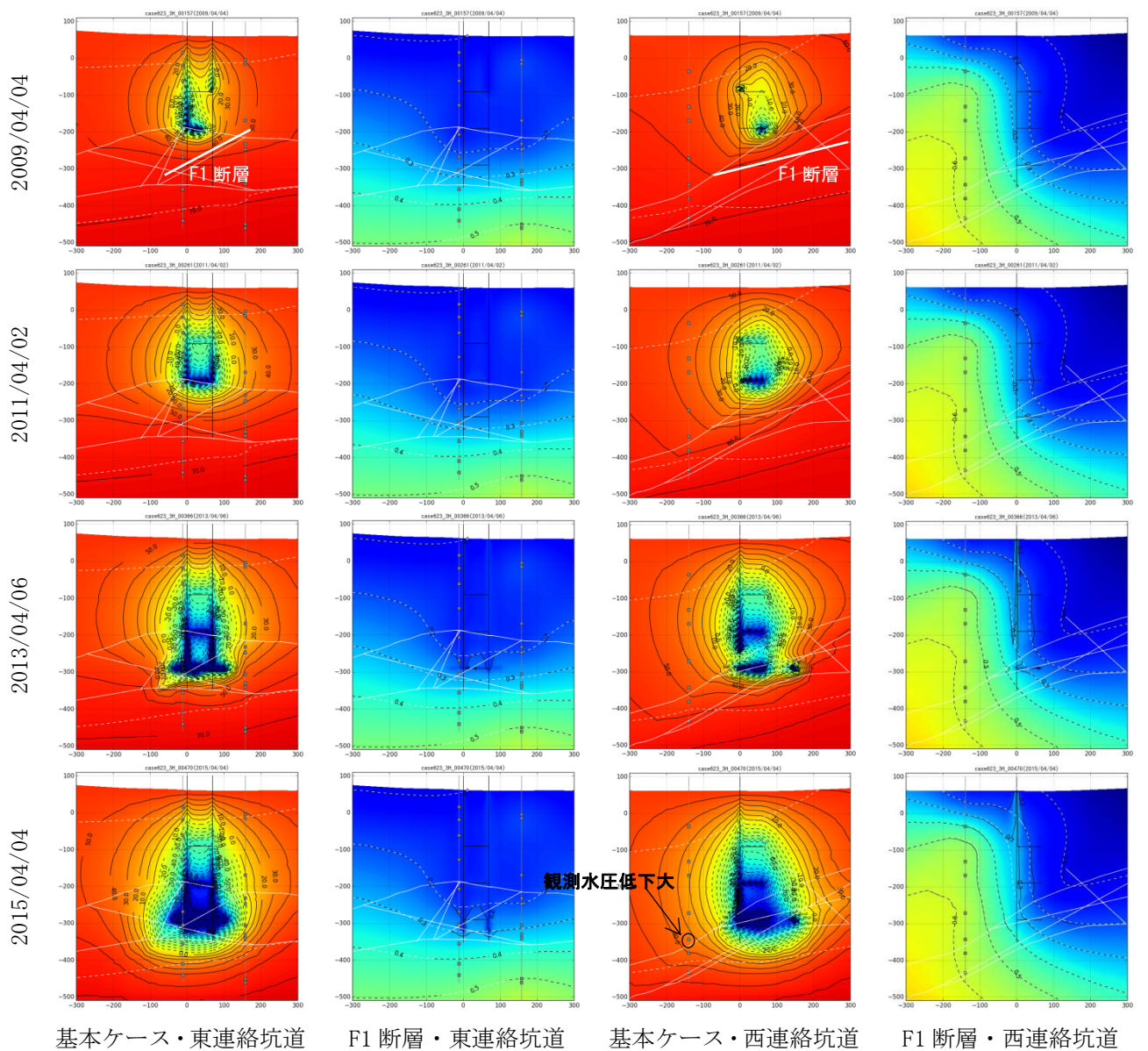


図 7.3.4-18 F1 断層のみの場合の全水頭と C1 濃度の経時変化

## 7.4 天然トレーサーの調査

### 7.4.1 希ガス採水方法

坑道内で溶存ガス分析用の地下水を採取する際には、坑道内と地下水との水圧差が大きく、圧力低下による脱ガスを起こす可能性がある。溶存ガスを多く含む地下水では、脱ガスによる補正を実施しても、結果にバラツキが大きく、適切に溶存ガス量を評価できない場合がある。このため、溶存ガスを採取する方法を検討している。

溶存ガスの採取方法としては、圧力制御式、循環式、原位置平衡式が代表的と考えられる。圧力制御式、循環式については、それぞれ瑞浪での採水と幌延での採水で実施している(図 7.3.3-2 参照)。圧力制御式については、比較的流量の大きい地点では実績があり、瑞浪での調査結果では、同地点からのサンプルでの結果を比較するとバラツキの小さい結果となっており、適用性が高い。幌延での採水では、圧力制御式と循環式とを適用しているが、脱ガスの影響が大きく、サンプル間でのバラツキも大きい。このため、原位置平衡式の溶存ガス採取方法について検討を実施している。原位置平衡式サンプリングは、Sheldon et al. (2003)により考案された方法であり、ガス透過性のサンプラーを原位置に長期間安置することにより、原位置とサンプラー内とが平衡になることを利用してサンプリングを行う方法である。

本節では、この原位置平衡式サンプラーを試作し、室内試験を経て、原位置に適用した結果について説明する。

#### 7.4.1.1 原位置平衡式サンプラーの室内試験

原位置平衡式サンプラーでは、メンブレンを通して地下水中のガスとサンプラーのガスとが十分に交換する必要がある。これまでに、ガス透過性の高いシリコンゴムを用いて試験を実施してきた。この結果、シリコンゴムはガスの透過性が高く、シリコンゴムの面積、サンプラーの容量にもよるが、サンプラーを1週間程度安置することにより、水中からガスを取り込み平衡に達することが確認された。ただし、採取後2時間程度で密閉しなければ、シリコンゴムを通して大気と交換し、10%程度濃度が低下する可能性が示唆された。このため、今年度は、ボーリング孔などに設置することを想定して、サンプラーを試作し、性能試験を実施した。

##### (1) サンプラーの試作

Sheldon et al. (2003)のサンプラー(図 7.4.1-1)を参考にして製作した。このサンプラーは、シリコン内部にバネが入っている、シリコンと銅管を結束バンドで締め付けている、銅管端部はコールドクランプと呼ばれる押し切りになっている、などの特徴がある。ただし、ここでは図 7.4.1-2 に示すサンプラーを用いた。シリコン内部にバネを入れるとシリコンの状態が円形に保たれるため、ガスとの交換という面で有利だと考えられる。ただし、バネによってシリコンゴムが傷つき、ガスが漏れる

ことがあったため、バネは入れないこととした。結束バンドについては、どの程度の性能が期待できるかが不明確なため、従来のチューブと管との接続と同様に、シリコンゴム内部にスリーブを入れ、ねじ込むことによって締め付けるタイプの接続を用いることとした。

大気中に放置するとシリコンゴムを通じてガスが漏れるため、銅管を原位置で素早く締めるために、プーラーを利用した図 7.4.1-3 に示す装置を用いた。当初、Swagelok の Quick Connects を用いて原位置で脱着することにより、銅管内のサンプルを保持することを考えたが、外側から高圧がかかると、漏水する可能性があるため、このような形式とした。



図 7.4.1-1 Sheldon et al. (2003) のサンプラー



図 7.4.1-2 試作したサンプラー



図 7.4.1-3 サンプラーの銅管かしめ器

## (2) 室内試験

昨年度と同様に、大気と平衡になる時間を調査するために、シリコンゴムを介したガスの交換試験を実施した。試験の系を図 7.4.1-4 に示す。試験系はサンプラー、圧力計測装置、真空ポンプで構成される。試験手順を以下に示す。

- ① 真空ポンプ、サンプラー、圧力計を接続する。
- ② 真空ポンプでサンプラー内の大気を排除する。
- ③ 大気を排除したことを圧力計で確認し、真空ポンプ側のバルブを閉じる。
- ④ サンプラー内の圧力を計測し、交換がどの程度の速度で起こっているかを調べる。
- ⑤ 室内試験は、サンプラーを水槽に浸漬し、メンブレン部分が水没する状態で試験をした。

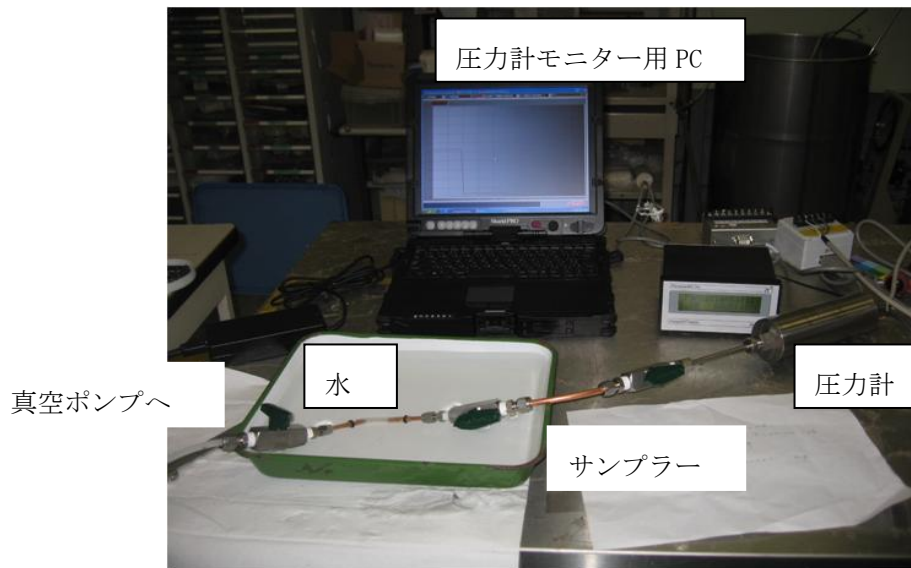


図 7. 4. 1-4 原位置平衡式サンプラーによる室内試験写真

サンプラーには、図 7. 4. 1-2 で示した原位置で用いるのと同じサイズの外径 8mm、内径 6mm、長さ 100mm のシリコンチューブを、外径 6mm、内径 4mm、長さ 100mm の銅管 2 本を用いた。試験は、サンプラー内を真空引きした後に水につけて実施した。この試験の圧力変化を図 7. 4. 1-5 に示す。

試験は 3 回繰り返して実施した。どの試験結果も概ね 10 日程度で大気と交換し、大気圧まで回復していることがわかる。圧力に変動が大きいのは、温度や大気圧の変化などの影響を受けているためと考えられる。

サンプル内の圧力の変化は、昨年度導いたように以下の式で与えられる。

フラックスの式は、メンブレンを通して拡散により大気サンプルに浸入するため以下のように与えられる。

$$F = -D \frac{\partial P}{\partial x} = -D \frac{Pa - Ps}{L} \quad (7. 4. 1-1)$$

ここに、F はフラックス、D はゴムの拡散係数、P は圧力であり、Pa は大気圧、Ps はサンプラー内の圧力、L はメンブレンの厚みである。

圧力の時間変化は次式で表される。

$$V \frac{\partial Ps}{\partial t} = -DA \frac{Pa - Ps}{L} \quad (7. 4. 1-2)$$

ここに、V はサンプラーの体積、A はメンブレンの表面積である。

上式を積分すると次式が得られる。

$$\log(Pa - Ps) = -\frac{DA}{VL} t + C_1 \quad \left( \frac{\partial Ps}{Pa - Ps} = -\frac{DA}{VL} \partial t \right) \quad (7. 4. 1-3)$$

ここに、 $C_1$ は積分定数である。

初期状態を  $t=0$  ;  $P_s=0$  とすると、 $C_1=\log Pa$  となり次式が得られる。

$$\log(Pa - Ps) = -\frac{DA}{VL}t + \log Pa \quad (7.4.1-4)$$

展開すると次式になる。

$$Pa - Ps = Pa \cdot \exp\left(-\frac{DA}{VL}t\right) \quad (Pa - Ps = Pa \cdot \exp\left(-\frac{DA}{VL}t\right)) \quad (7.4.1-5)$$

サンプラー内の圧力と大気との差圧がフラックスの起動力となるため、上式で圧力変化は表される。この式は、指数関数型の減少関数で放射性物質の放射壊変による濃度変化と同じであり、 $DA/VL$  が壊変定数、 $\ln(2)VL/DA$  が半減期に対応する。このため、圧力が  $(Pa-Ps)/2Pa$  になる時間がわかれば、その5倍程度の時間で  $(Pa-Ps)/Pa$  は  $1/2^5$  になる。

図 7.4.1-5 では、2日間程度で、大気圧の半分程度まで回復しているため、10日間程度で大気圧まで回復することがわかる。このため、原位置に10日間程度安置できれば、地下水中の溶存ガスと交換が完了すると想定される。

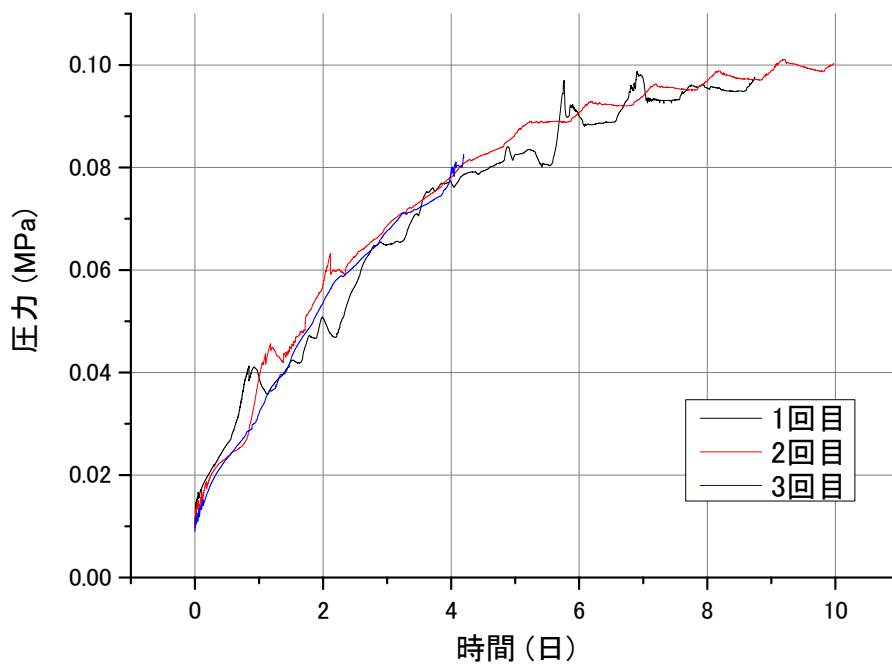


図 7.4.1-5 サンプラー内での圧力の経時変化

#### 7.4.1.2 サンプラーの原位置への適用

##### (1) 原位置へのサンプラーの設置

平衡式サンプラーを原位置に適用する方法には、図 7.4.1-6 に示すように、(1)ボーリング孔内に設置する方法と、圧力容器を設置し、(2)地下水を通水あるいは(3)地下水を循環する方法がある。ボーリング孔内に直接設置する方法は、パッカーを取り出すなど水理的擾乱が激しく、低透水の場合には圧力が回復するまでに時間を要する。また、他の方法と比較するにも図 7.4.1-6(2)および(3)の方が簡単に実施できると考えられる。このため、より簡便かつ水理的な擾乱の少ない、圧力容器を設置し、地下水を循環する方法と通水する方法で実施することとした。

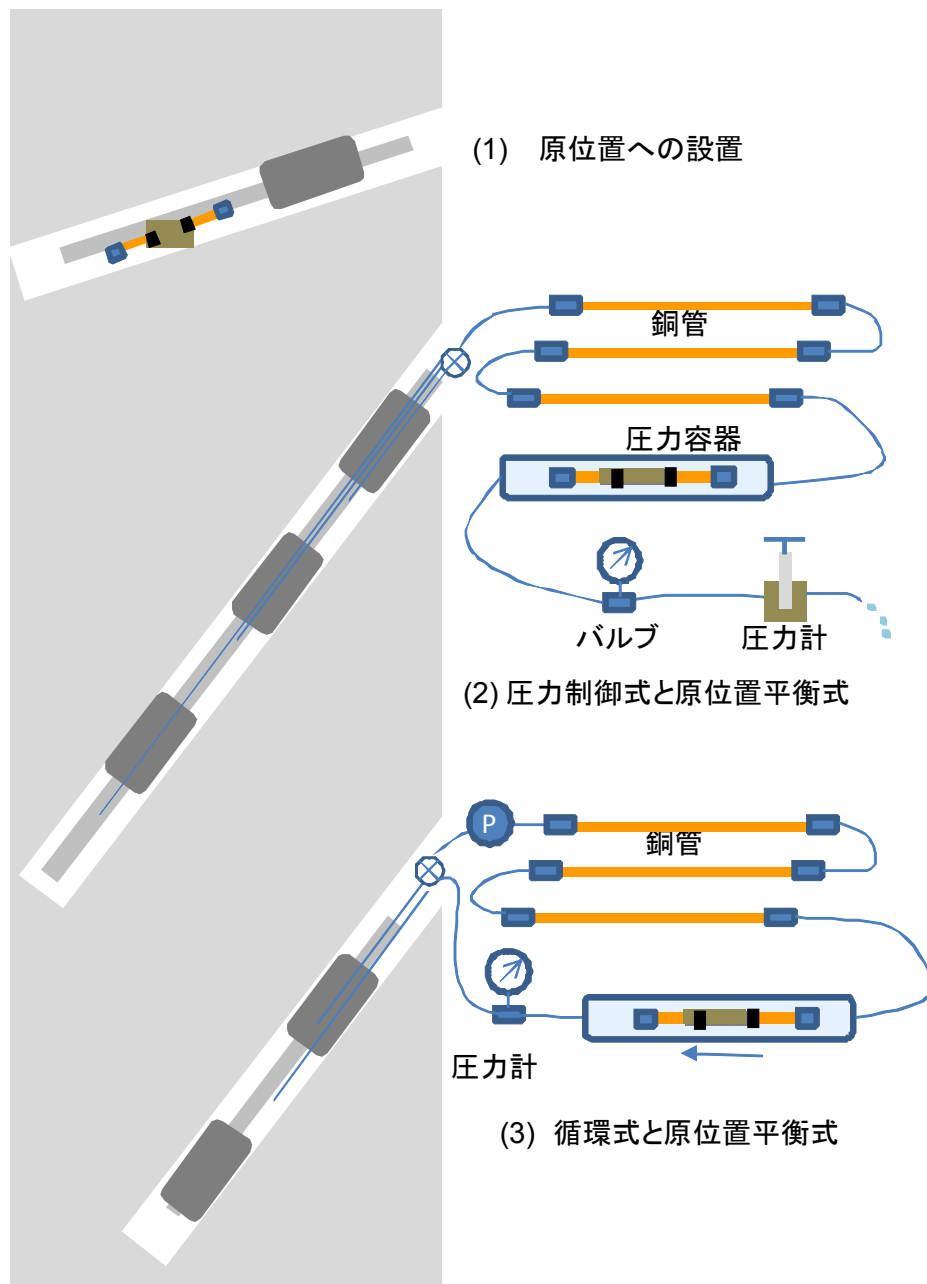


図 7.4.1-6 原位置への平衡式サンプラーの適用方法



設置時の状態を図 7.4.1-7 に示す。ここでは、鋼管を圧力容器として用いて設置した。



図 7.4.1-7 原位置平衡式サンプラーの適用例

## (2) 各サンプラーでの結果の比較

瑞浪と幌延で平衡式サンプラーを試行した結果を表 7.4.1-1 に示す。瑞浪については約 10 日間、幌延については約 30 日間、平衡式サンプラーを設置した。平衡式サンプラーは初期段階ではサンプラー内に地下水が流入し、サンプリングが上手くいかなかった。これは、前述のように Quick Connects の接続部分から地下水が流入したためである。シリコンと銅管の接続部分を直接接続にして、地下水の流入は回避できる様になったが、特にガスの多い幌延では、図 7.4.1-8 に示すようにサンプル回収後にシリコン部分が膨張するものが多かった。サンプラー内の内圧は地下水圧程度になると考えられるため、シリコンの耐久性について注意が必要である。

平衡式サンプラーではガス態をそのまま計測するため、単位水量の溶存量がわからない。このため、濃度比や同位体比で他の計測値と比較する必要がある。表 7.4.1-1 に示すように、瑞浪での試験では、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は平衡式と圧力制御式とで比較的近い値であった。ただし、平衡式の方が圧力制御式よりも値が大きい。また、 $^4\text{He}/\text{Ne}$  比は平衡式の方が圧力制御式よりも低かった。 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比が近いことから、シリコン部分を通じて地下水中のガスと銅管内のガスが十分に交換していると考えられた。一方で、 $^4\text{He}/\text{Ne}$  比が圧力制御式に比べて平衡式が低い。これは、平衡式サンプラーには初期状態で大気が入っており、これが数%程度残留しているためと考えられた。室内試験結果からも明らかのように、10 日程度経過すればガスは数パーセントまで低下するが、Ne は地下水中にあまり含まれないため、この数パーセントが有意な量になってしまうようである。このため、平衡式サンプラーは初期に真空引きして大気を除去してから設置する必要があると考えられた。

幌延については、圧力制御式、循環式、平衡式を比較したが、圧力制御式や循環式で安定した計測

値を得ることができていないため、比較が難しい。比較的整合すると考えられた  $^3\text{He}/^4\text{He}$  についても、瑞浪と比べると整合性がない。原因は明確ではないが、今後データを蓄積し原因について検討する必要がある。また、脱ガスを抑制するのは困難なため、今後はガスを回収し分析するなど、代表値を求める方法を検討する必要があると考えられる。

表 7.4.1-1 サンプラー適用結果

(1) 瑞浪

試料名	採取方法	$^4\text{He}$	$^3\text{He}/^4\text{He}$	$^4\text{He}/\text{Ne}$	Ne
		cc <sub>STP</sub> /g <sub>w</sub>	-		cc <sub>STP</sub> /g <sub>w</sub>
09MI20#3	圧力制御式	2.9E-5	4.4E-7	155	1.8E-7
	平衡式	5.1E-4	5.5E-7	43	1.2E-5
09MI21#3	圧力制御式	5.8E-5	3.8E-7	328	1.8E-7
	平衡式	4.8E-4	4.8E-7	44	1.1E-5

(2) 幌延

試料名	採取方法	$^4\text{He}$	$^3\text{He}/^4\text{He}$	$^4\text{He}/\text{Ne}$	Ne
		cc <sub>STP</sub> /g <sub>w</sub>	-		cc <sub>STP</sub> /g <sub>w</sub>
07-V140-M01	圧力制御式	9.4E-8	1.4E-7	5.9	1.6E-8
	平衡式	3.7E-6	1.4E-6	0.4	1.0E-5
09-V250-M02#1	循環式	6.8E-8	8.2E-7	0.8	9.0E-8
	平衡式	5.9E-7	1.1E-6	6.7	8.8E-8
10-E250-M01	圧力制御式	3.3E-7	1.1E-7	4.3	7.6E-8
	平衡式	4.8E-7	5.2E-7	0.6	7.5E-7
13-350LGE-M01	循環式	2.3E-5	1.1E-7	10.0	2.3E-6
	平衡式	7.4E-6	2.1E-7	2.1	3.5E-6



図 7.4.1-8 サンプラーのシリコンゴムの膨張

### 7.4.1.3 脱ガスの補正

幌延地区での試料採取においては、メタンガスを多く含むため、脱ガスが発生し計測値にバラツキが大きい場合が多い。このため、脱ガスの補正方法について検討した。

Lippmann et al. (2003)は脱ガスの補正方法について、①Ne 量補正、②拡散補正、③溶解度補正という3つの方法を示している。これらの計算方法を以下に示す。

#### (1) Ne 量補正

Ne 量補正では、He が Ne と同じ脱ガス率として計算する。計算式は以下で表される。

$$He_c = He_m \frac{Ne_0}{Ne_m} \quad (7.4.1-6)$$

ここに、 $He_c$  は脱ガス補正した He 濃度、 $He_m$  は地下水中の He 濃度、 $Ne_0$  は大気との溶解平衡に達した Ne 濃度、 $Ne_m$  は地下水中の Ne 濃度の計測値である。

#### (2) 拡散補正

拡散補正では、拡散によって脱ガスが発生するとした場合、補正した He 濃度は次式で与えられる。

$$He_c = He_m \left/ \left( \frac{Ne_m}{Ne_0} \right)^{\sqrt{\frac{D-He}{D-Ne}}} \right. \quad (7.4.1-7)$$

ここに、 $D-He$  は He の拡散係数、 $D-Ne$  は Ne の拡散係数である。

#### (3) 溶解度補正

溶解度補正では、同じ溶解平衡状態にあるとした場合、補正した He 濃度は次式で与えられる。

$$He_c = He_m \left[ 1 + \frac{\beta_{Ne}}{\beta_{He}} \left( \frac{Ne_0}{Ne_m} - 1 \right) \right] \quad (7.4.1-8)$$

ここに、 $\beta_{Ne}$  は Ne の溶解度、 $\beta_{He}$  は He の溶解度である。

最後に、計測した Ne 濃度が大気と溶解平衡にある He 濃度よりも高い場合には、Ne 増加量に相当する大気が混入したとして、以下の式で補正した。

$$He_c = He_m - (Ne_m - Ne_0) \frac{He_a}{Ne_a} \quad (7.4.1-9)$$

ここに、 $Ne_a$  は大気中の Ne 濃度、 $He_a$  は大気中の He 濃度である。

ここでは、幌延立坑での He 濃度の計測結果( ${}^4\text{He}$ ,  ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ )について、上記の3つの方法による補正を実施した。 ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ については、 ${}^3\text{He}$ 濃度を ${}^4\text{He}$ 濃度と ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ の積から求めて、上記の方法による補正を実施した。なお、Ne濃度が大気と溶解平衡にある He濃度よりも高い場合には、式(7.4.1-9)を用いて補正した。

なお上記補正を実施するにあたり、パラメータとして表 7.4.1-2 の値を用いた。

表 7.4.1-2 脱ガス補正に用いたパラメータ

	Ne	<sup>4</sup> He	<sup>3</sup> He
大気中の濃度	18.2 ppm	5.24 ppm	7.34 ppt
大気との溶解平衡値 ( $cc_{STP}/g_w$ )	$2.0 \times 10^{-7}$	$4.8 \times 10^{-8}$	$6.72 \times 10^{-14}$
水への溶解度 (20°C)*	$1.10 \times 10^{-2}$	$9.16 \times 10^{-3}$	$9.16 \times 10^{-2}$
自由水中での拡散係数 (20°C)	$3.8 \times 10^{-9}$	$5.8 \times 10^{-9}$	$6.7 \times 10^{-9}^{**}$

\*水への溶解度は大気中の濃度と大気との溶解平衡値から推定した。

\*\*<sup>3</sup>He の拡散係数は、Graham の法則 ( $D_{He-3}/D_{He-4} = (m_4/m_3)^{1/2}$ ) から <sup>4</sup>He と <sup>3</sup>He の質量 (m) の比に基づいて推定した。

分析結果を①Ne 量補正、②拡散補正、③溶解度補正という 3 つの方法で補正した結果を表 7.3.1-1 に示す。Ne 濃度は大気と溶解平衡に達した水であれば  $2.0 \times 10^{-7} cc_{STP}/g_w$  であるが、幌延立坑の結果では概ねその 1/10 程度であり、脱ガスが激しいことがわかる。この計測値から元の値を推定することになる。Ne 濃度が 1/10 ( $2.0 \times 10^{-8} cc_{STP}/g_w$ ) とすると、①Ne 補正では、単純に 10 倍される。②拡散補正では 10 倍に拡散係数比がかかるため、十数倍程度となる。③溶解度補正は、溶解度比を約 10 倍したものとなる。ただし、これらの算出方法は静的な状態、すなわち、拡散で漏洩する、溶解度比に従うことを仮定しているが、メタンを含むような地下水では、減圧によってメタンが過飽和になるため、バブリングに近い現象が発生し、脱ガスが起こると考えられる。このような動的な脱ガスでは、初期の溶存量を予測することが難しいため、補正值にバラツキが大きいと考えられる。また、採取した試料に気泡が入るとガスの絶対量はかなり大きく値が変化する。これはガスが生成するとガスが連行し、周辺の溶存ガスを集める可能性が高いためである。表 7.3.1-1 には Ne 濃度が高いものは一般的には、コンタミ (空気混入) が疑われるが、<sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He が大気の数値でなく地下水の数値に近いことから、ガスが連行して Ne 濃度が上がっている可能性がある。このような場合には、<sup>4</sup>He/Ne 比からもとの <sup>4</sup>He 濃度を求める必要があると考えられる。ただし、このような試料では大気の影響を否定はできない。このように、ガスの多い試料では、代表的な計測値を求めることは難しいのではないかと考えられた。このため、今後は直接ガスを捕集して分析を行うなど新しいサンプリング方法を再検討する必要があるのではないかと考えられる。

表 7.4.1-3 各補正方法による補正結果

採水日	サンプル名	$^4\text{He}$ ( $\times 10^{-8} \text{cc}_{\text{STP}}/\text{g}_w$ )				$^3\text{He}/^4\text{He}$ ( $\times 10^{-8}$ )				Ne ( $\times 10^{-8} \text{cc}_{\text{STP}}/\text{g}_w$ )	特記事項
		実測値	①Ne量補正	②拡散補正	③溶解度補正	実測値	①Ne量補正	②拡散補正	③溶解度補正		
2016/1/12	07-V140-M01	9	119	216	141	14	14	18	14	2	
2015/9/9	08-E140-C01#1	22	151	236	176	13	13	16	13	3	
2015/11/10	08-E140-C01#1	52,419	52,061	52,061	52,061	11	10	10	10	1,263	×コンタミ
2015/9/7	08-E140-C01#3	71,368	71,188	71,188	71,188	11	10	10	10	648	×コンタミ
2015/9/7	08-E140-C01#3	22	107	155	124	22	22	26	22	4	
2016/1/12	09-V250-M02#1	7	15	18	17	82	82	88	82	9	
2016/12/21	10-E250-M01	33	86	108	97	11	11	12	11	8	
2015/9/9	10-E250-M01	520	840	940	904	10	10	10	10	12	
2015/9/9	10-E250-M01	173	770	1,095	890	11	11	12	11	4	
2015/12/21	11-V250-TR03	2,466	2,401	2,401	2,401	12	8	8	8	246	×コンタミ
2015/11/12	12-P350-M02 ②	12	50	70	58	17	17	20	17	5	
2016/12/21	13-350LGE-M01	2,280	2,220	2,220	2,220	11	7	7	7	227	×コンタミ
2015/12/21	14-350-C04#5	19	32	36	34	30	30	31	30	12	

#### 7.4.2 速い流れの指標となる物質

坑道などを掘削した場合に、湧水量が多い地点などが確認される場合がある。このような地点は水みちと呼ばれるが、核種の漏出などを想定すると、このような水みちをがどのような物質移行特性を有するかは、評価において非常に重要になる。水みちの評価では、従来のような半減期の長い核種だけでなく、比較的早い地下水流動を評価できる物質が重要になると考えられる。この代表的なものとして、 $^3\text{H}$ とフロン、 $\text{SF}_6$ などがあげられる。また、精密調査のように規模の大きな坑道を掘削した際には、地下での滞留時間が百万年を超えるような古い地下水に対して、比較的若い（～地下での滞留時間が数万年程度）地下水が混入する可能性が考えられる。このようなケースでは、数万年程度の地下水年代評価に有用な  $^{14}\text{C}$  が有用な指標になりうると考えられる。また、日本のように海に囲まれた国土においては、地下深部には海水を起源とした古い地下水（化石海水）が存在している可能性があり、掘削等の影響により化石海水と現海水が混合する可能性も考えられる。このため、現海水に対して化石海水が速く流入した可能性、化石海水に対して現海水が流入した可能性を検討するための指標となりうる物質・同位体比について検討する必要がある。

##### 7.4.2.1 新しい水の指標となる物質の適用性検討

$^3\text{H}$ 、CFCs、 $\text{SF}_6$ などは、新しい水には含まれるが古い水には含まれないことから、新しい水の指標になると考えられる。ここでは、このような新しい水の指標となる物質の適用性について瑞浪超深地層研究所での調査結果に基づいて検討した。

瑞浪における地下水調査では、前述のように水素・酸素同位体比（ $\delta\text{D} \cdot \delta^{18}\text{O}$ ）が地下水の混合指標として有効であった。これは、立坑周辺が流出域に位置し、地下水年代が数万年程度の氷期に涵養した地下水で水素酸素同位体比が軽いのに対して、新しい地下水が氷期後に涵養した地下水で水素・酸素同位体比が重いためである。

このため、 $^3\text{H}$ 、CFCs、 $\text{SF}_6$ が浅層水の指標となるかどうかを水素同位体との相関から検討した。水素同位体と  $^3\text{H}$ 、CFCs、 $\text{SF}_6$ の関係を図 7.4.2-1～図 7.4.2-3 に示す。図に示すように  $^3\text{H}$ と  $\delta\text{D}$ との相関はそれほど高くない。 $^3\text{H}$ は、半減期が12.3年と短いため、滞留時間が数十年程度の新しい水では濃度が低下し、それ以上では検出されない可能性もある。また、1960年代の原爆実験の影響で変動が大きい。浅層の地下水もある程度の滞留時間を持っており、 $^3\text{H}$ が一定濃度でないために、相関性が低い可能性がある。一方で、 $\delta\text{D}$ は涵養温度によって変化する指標であり、ここ数千年は温暖期でそれほど大きく変化していないと考えられる。それに対して  $^3\text{H}$ が一定と見なせる期間は数年程度である。この両方法の評価期間の差が、相関性の低さに表れているのではないかと考えられる。

$\delta\text{D}$ とCFCsについては図 7.4.2-2に示すように相関がほとんどない。これは、CFCsも  $^3\text{H}$ と同様に比較的新しい1960年以降の滞留時間を評価するもののためと考えられる。また、CFCsはこれまでに

指摘されているように微生物分解などの影響をうけ濃度が低下する可能性がある (IAEA, 2006; Kashiwaya et al, 2015)。この CFCs の濃度から算出される浅層水の混合率も 1%以下となっており、微生物分解の影響を強く受けていると考えられる。このため、新しい水の指標として適用が困難である。

$\delta D$  と  $SF_6$  についても図 7.4.2-3 に示すように相関がほとんどない。これは、 $SF_6$  についても、CFCs も  $^3H$  と同様に、1960 年以降の滞留時間を評価するための指標のためと考えられる。ただし、この  $SF_6$  の濃度から算出される浅層水の混合率は数～数十%となっている。このため、CFCs とは異なり微生物分解の影響を受けておらず、新しい水として何らかの意味があると考えられる。

ここでは、 $^3H$ 、CFCs、 $SF_6$  の新しい水の指標としての適用性を検討した。この結果、これらの指標は数十年程度の地下水を検出するための方法であり、本地点のように新しい水がどのぐらいの時間オーダーか分からない場合には適用が難しいと考えられた。逆に滞留性が高い湖沼や海域が新しい水の供給源になっている場合にはこれらの指標は有効ではないかと考えられる。

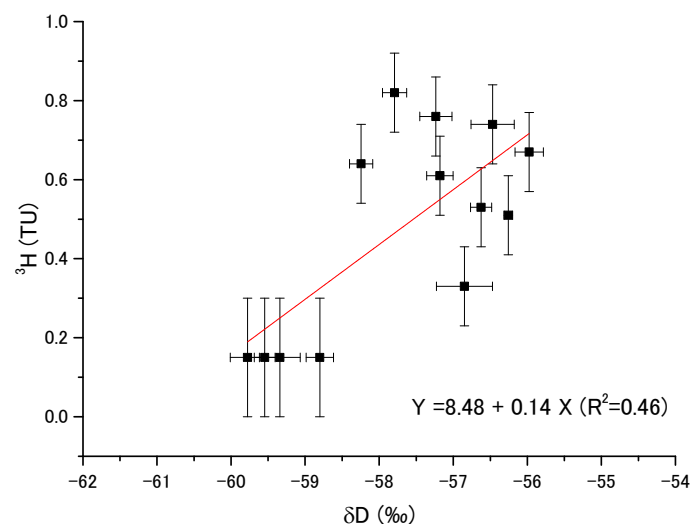


図 7.4.2-1  $\delta D$  と  $^3H$  の相関

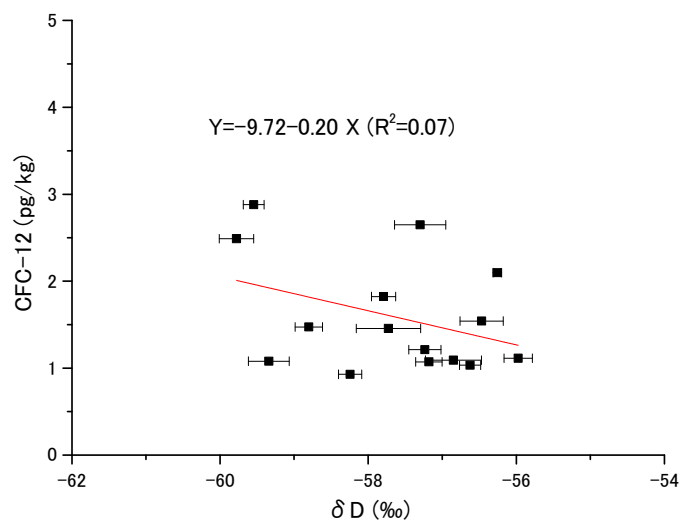


図 7.4.2-2  $\delta D$  と CFC-12 との相関

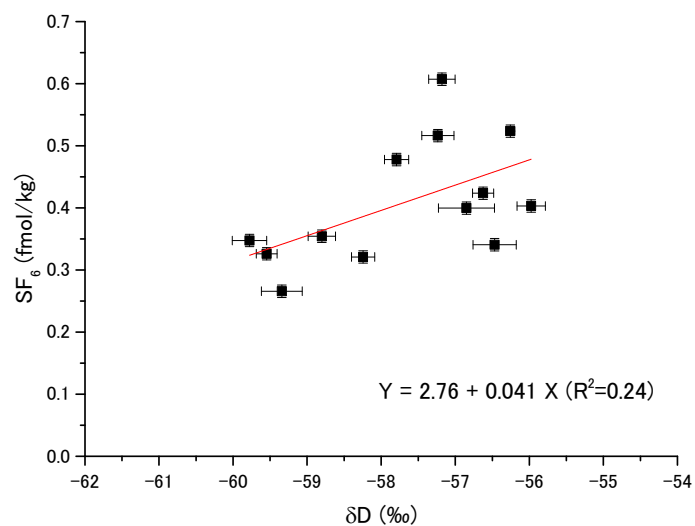


図 7.4.2-3  $\delta D$  と SF<sub>6</sub> との相関



#### 7.4.2.2 $^{14}\text{C}$ （無機）の測定の高精度化検討

##### (1) 検討の背景および目的

$^{14}\text{C}$  は、半減期が 5730 年であるため、3 万年以下程度の地下水滞留時間評価に頻繁に使われる同位体である。処分場を建設する際などには地下空間に対して周辺の地下水が流入することが考えられるが、その際地下での滞留時間がほとんどない地表水の混合は先述のように  $^3\text{H}$  や CFCs・ $\text{SF}_6$  などが有用な指標となる可能性が高い。一方で、処分場近辺の地下水年代が 3 万年を超えており、有意な  $^{14}\text{C}$  が検出されないようであれば、処分坑道掘削後に  $^{14}\text{C}$  が検出されるようになった場合処分場周辺に地下水年代数万年以下の若い地下水が流入していると推察することができる。このように、 $^{14}\text{C}$  を用いれば地表水よりも地下での経過時間が長くかつ 3 万年より若い地下水が、地下水年代 3 万年を超えるような古い地下水に流入した場合についての情報を得ることができると考えられる。 $^{14}\text{C}$  には地下水に溶存する無機炭素由来の  $^{14}\text{C}$  と有機物に含まれる  $^{14}\text{C}$  が存在する。ここではまず、無機  $^{14}\text{C}$  を利用する場合について検討する。

通常地下水から無機炭素を回収するには、下記のような手順で炭酸ストロンチウムの沈殿生成し、生じた沈殿を回収する方法が用いられる。①水酸化ナトリウムやアンモニアを用いて対象とする地下水をアルカリ化する、②アルカリ化した地下水に高濃度の塩化ストロンチウム溶液を添加する、③溶液を 1 晩程度静置し、炭酸ストロンチウム微粒子を沈殿させる。この手順で生成した炭酸ストロンチウム沈殿を抽出装置内でリン酸を用いて溶解させ、鉄などを用いて二酸化炭素を還元し、AMS のターゲットとなる黒鉛を精製する。しかし、今まで実施してきた地下水調査において、上記の手法では沈殿が生じないケースが見られた。これは、①無機 C 濃度が低く炭酸ストロンチウムの沈殿が上手く生成しない、②無機 C 濃度は十分あるものの沈殿が生じない、という 2 つのケースがある。②は主に海水を起源とした地下水において観察されることが多く、海水に含まれる成分が炭酸ストロンチウムの沈殿生成を妨害している可能性があると考えられる。このように沈殿が生じにくい地域の地下水から得られた  $^{14}\text{C}$  年代の値について検討したところ、 $^{14}\text{C}$  の分析値のばらつきが大きいかつ、He などその他の年代指標が示す年代より若い値を示す傾向にあることが分かった。

沈殿を用いない二酸化炭素の回収方法として、二酸化炭素のガス化追い出し方法が挙げられる。二酸化炭素は pH を 4.0 以下とするとほとんどが気体となり、液中には存在しにくくなる。pH を下げる、溶液と接触する気体部分の圧力を減じるなどして、二酸化炭素をガスとして取り出し、回収する方法である。この方法を用いれば、沈殿ができにくい試料においても二酸化炭素を効率よく回収することができると期待される。しかし、沈殿法とガス化法が同じサンプルに対して適用されその値を比較した例はほとんどなく、どちらの方法がどの程度精度よく  $^{14}\text{C}$  を分析できるのか、どのような試料に対してはどちらの方法を適用すべきかについてはさらに情報が必要であった。ここでは、過去の「地下水年代測定調査」において実施した情報を基に (Nakata et al., 2016)、ガス化法と沈殿法が  $^{14}\text{C}$  年

代に与える影響について議論するとともに、実際の地下水に両方の手法を適用した場合の  $^{14}\text{C}$  の違いについて明らかにした。結果から、それぞれの手法の地下水年代評価への適用性について議論した。

## (2) 室内試験による検討

まず、 $^{14}\text{C}$  の値が明らかな炭酸水素ナトリウム溶液を用いて、2つの手法による  $^{14}\text{C}$  の差異を確認するための試験を実施した。準備した炭酸水素ナトリウム溶液は、表 7.4.2-1 と表 7.4.2-2 に示した4種類である。一般に市販の炭酸水素ナトリウムは  $^{14}\text{C}$  をほとんど含まないことから、市販の炭酸水素ナトリウムを溶解した溶液は古い地下水を模擬した溶液として使うことができる。表における試料-1は市販の炭酸水素ナトリウムを使った模擬地下水である。一方、それよりも若い地下水を模擬するために、濃 NaOH を空気でバブリングして得た炭酸水素ナトリウムと炭酸ナトリウムの粉末を、市販の炭酸水素ナトリウム粉末と混ぜた粉末を準備した。この粉末を利用して作成した溶液が試料-2~4 である。試料-2 は作製した炭酸水素ナトリウム粉末の溶液であり、比較的若い地下水を模擬することができる。試料-3 では炭酸水素ナトリウムの量を減らして、無機炭素の濃度が低い地下水を模擬した。試料-4 では、模擬海水を用いて炭酸水素ナトリウム溶液を調整し、塩分濃度が高い地下水を模擬した。

表 7.4.2-1 準備したサンプルの一覧

溶液名	DIC濃度 (mg/L)	使用した炭酸水素 ナトリウム	塩分濃度 (g/L)	抽出法	試料名
試料-1	9	市販品	0.06	ガス化	試料1-1-1 試料1-2-1
				沈殿	試料1-1-2 試料1-2-1
				ガス化	試料2-1-1 試料2-2-1
				沈殿	試料2-1-2 試料2-2-2
試料-2	9	調製したもの*	0.06	ガス化	試料3-1-1 試料3-2-1
				沈殿	試料3-1-2 試料3-2-2
				ガス化	試料4-1-1 試料4-2-1
				沈殿	試料4-1-2 試料4-2-2
試料-3	4.5	調製したもの*	0.03	ガス化	試料4-1-1 試料4-2-1
				沈殿	試料4-1-2 試料4-2-2
				ガス化	試料4-1-1 試料4-2-1
				沈殿	試料4-1-2 試料4-2-2
試料-4	9	調製したもの*	41.16	ガス化	試料4-1-1 試料4-2-1
				沈殿	試料4-1-2 試料4-2-2
				ガス化	試料4-1-1 試料4-2-1
				沈殿	試料4-1-2 試料4-2-2

上記の溶液における無機<sup>14</sup>Cが取り得る範囲は、以下の式で予測することができる。

$$^{14}C_s = \frac{^{14}C_p \times [C]_p + ^{14}C_w \times [C]_w}{[C]_p + [C]_w}$$

ここで、<sup>14</sup>C<sub>w</sub>は溶液を調製するために使用した純水に溶解している無機炭素の<sup>14</sup>Cの値(pMC)、<sup>14</sup>C<sub>p</sub>は炭酸水素ナトリウム粉末における<sup>14</sup>Cの値(pMC)、[C]<sub>p</sub>・[C]<sub>w</sub>はそれぞれ溶液における炭酸水素ナトリウム由来の無機C濃度(mg/L)および溶液調製に用いた純水における無機C濃度(mg/L)である。<sup>14</sup>C<sub>w</sub>は大気由来のCの<sup>14</sup>Cであるため、100~110pMCの範囲にあると考えられる(Levin et al., 2013)。また、無機C濃度はTOC計を用いて分析しており、最大で5%程度の誤差を含むと考えられる。また、炭酸水素ナトリウム粉末は2回同じサンプルを測定し、2回の測定におけるばらつきを評価している。これらの値の幅や分析精度を考慮すると、溶液中の無機<sup>14</sup>Cが取り得る範囲を表7.4.2-2に示したように推定することができる。上記の推定値と分析値の比較結果を、表7.4.2-2に示した。

表 7.4.2-2 ガス化法と沈殿法から評価した  $^{14}\text{C}$  の値

サンプル名	抽出法	$\delta^{13}\text{C}$ (‰)	$^{14}\text{C}$ (pMC)	$^{14}\text{C}$ year B.P.	$^{14}\text{Cs}^*$ (pMC)	$^{14}\text{Cs}$ との差 (pMC)
試料-1-1-1	ガス化	-20	$2.0 \pm 0.1$	$31,430 \pm 180$	3.1 ~ 5.2	-1.1
試料-1-2-1		-19.3	$3.7 \pm 0.1$	$26,320 \pm 110$		-
試料-1-1-2	沈殿	-19.6	$9.0 \pm 0.1$	$19,290 \pm 70$		+3.8
試料-1-2-2		-20.2	$11.4 \pm 0.1$	$17,340 \pm 60$		+6.2
試料-2-1-1	ガス化	-19.9	$29.0 \pm 0.1$	$9,947 \pm 32$	26.0 ~28.0	+1
試料-2-2-1		-17.6	$28.7 \pm 0.1$	$10,025 \pm 32$		+0.7
試料-2-1-2	沈殿	-19	$33.3 \pm 0.1$	$8,842 \pm 33$		+5.3
試料-2-2-2		-17.1	$32.8 \pm 0.1$	$8,956 \pm 34$		+4.8
試料-3-1-1	ガス化	-19.3	$30.5 \pm 0.1$	$9,534 \pm 37$	26.0 ~29.0	+1.5
試料-3-2-1		-19.3	$30.3 \pm 0.1$	$9,591 \pm 37$		+1.2
試料-3-1-2	沈殿	-19.9	$39.5 \pm 0.2$	$7,459 \pm 32$		+10.5
試料-3-2-2		-19.7	$39.3 \pm 0.2$	$7,502 \pm 32$		+10.3
試料-4-1-1	ガス化	-17.8	$29.2 \pm 0.1$	$9,890 \pm 38$	26.0 ~28.0	+1.2
試料-4-2-1		-17.4	$29.9 \pm 0.1$	$9,706 \pm 38$		+1.9
試料-4-1-2	沈殿	-23.7	$62.6 \pm 0.2$	$3,770 \pm 22$		+34.6
試料-4-2-2		-27.3	$47.4 \pm 0.2$	$5,994 \pm 27$		+19.4

表 7.4.2-2 からわかるように、ガス化法で評価された  $^{14}\text{C}$  年代は、今回実施した全てのサンプルにおいて上記の式から予測される値に近い値を示した。一方で沈殿法はガス化法で評価された年代よりも常に若い年代を示し、予想される年代値の範囲から外れていた。以上のことから、沈殿法のプロセスで大気由来の  $^{14}\text{C}$  を多く含む無機 C が混入する可能性が高いと考えられた。試料-1~3 のガス化法サンプルからの  $^{14}\text{C}$  値のずれから計算して、沈殿法では 1L のサンプルについて 0.6~0.7mg の大気由来の無機 C が混入する可能性が高い。一方で、模擬海水を用いた試料では上記以上に  $^{14}\text{C}$  の値の差が沈殿法とガス化法で大きく、さらに  $^{14}\text{C}$  の値に影響を与えるような現象が起きていると推察された。溶液中の塩分濃度がどのように、沈殿法の  $^{14}\text{C}$  に影響を与えるのかは不明であるが、イオン濃度が高いサンプルに対して沈殿法を適用する場合には上記のような現象に留意する必要がある。

上記のように沈殿法では常に約 1mg 程度の大気由来 C が混入すると考えられるため、それを意識した適用が必要である。上記の混入が  $^{14}\text{C}$  を用いた地下水年代評価に与える影響は、対象とする地下水の無機 C 濃度、 $^{14}\text{C}$  濃度に依存する。図 7.4.2-4 には溶存する無機 C における  $^{14}\text{C}$  年代が 10・50・80pMC の場合における、沈殿法で評価される年代の予測値を示した。図に示されたように、無機 C 濃度が低い場合および  $^{14}\text{C}$  濃度が低い（つまり地下水年代が古い）場合、上記の混入が地下水年代に与える影響は大きくなる。 $^{14}\text{C}$  年代が 50pMC 程度であれば 10mg/L 以上の無機 C 濃度を持つ地下水であれば、10% 程度の誤差で評価することができるが、 $^{14}\text{C}$  年代が 10pMC 程度であれば 25mg/L 以上の濃度でなくては

10%程度の誤差を保つことができなくなる。沈殿法は、サンプルを減量して持ち帰ることができるうえ、沈殿を凍結乾燥するなどして長期間保管することも可能であるなど、長所も多い。このようなメリットを活かすためにも、沈殿法を適用する際には上記のような現象が起きうることを意識して使用する必要がある。また、約1mgという数字が大きく変化することはないと考えられるが、実験室の環境、使用した試薬のロットなどにより、依存性があるものと考えられる。このため、各研究機関において沈殿法によるずれの程度を把握しておくことが必要である。

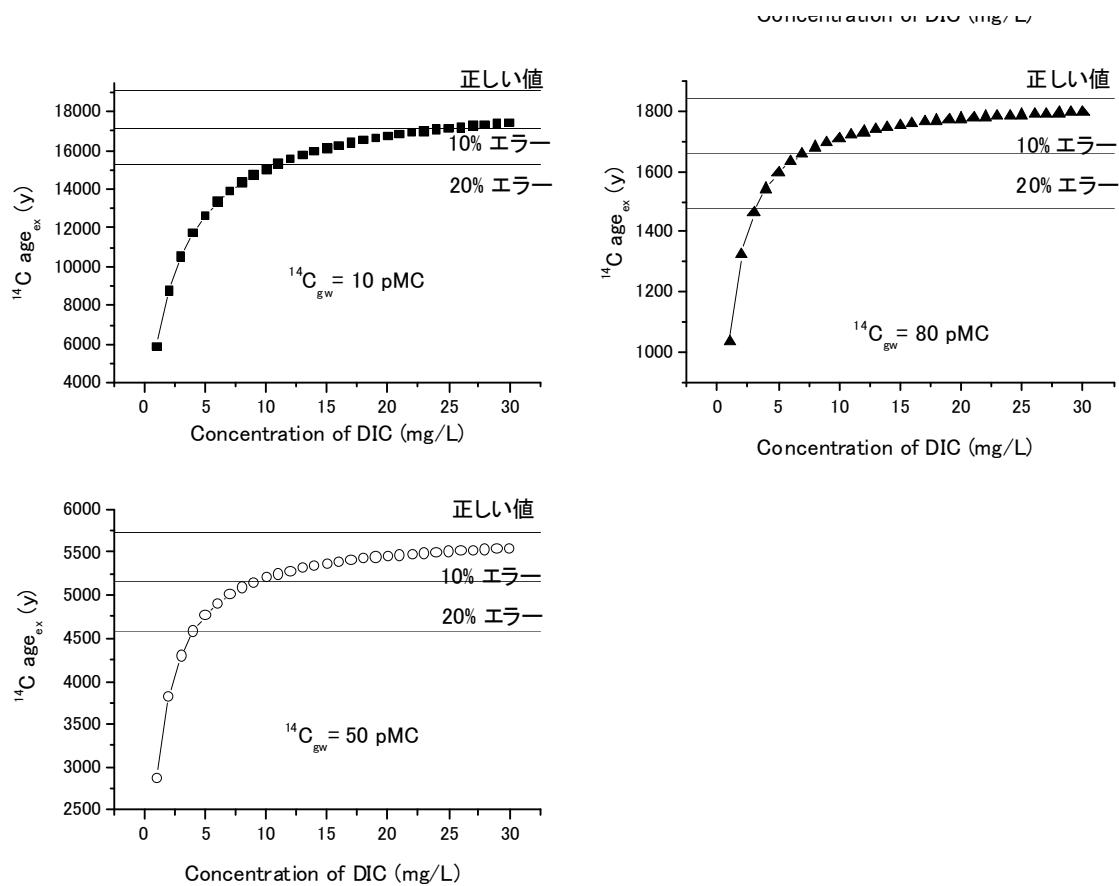


図 7.4.2-4 1mg の大気由来 C が混入した場合の  $^{14}\text{C}$  年代  
 左上： $^{14}\text{C}$  が 10pMC、左下： $^{14}\text{C}$  が 50pMC、右上： $^{14}\text{C}$  が 80pMC の場合

### (3) 地下水サンプルにおける比較

今年度取得した瑞浪地域立坑での地下水サンプルについて、ガス化法および沈殿法の両方の方法を適用し、どのような傾向が見られるのかを調べた。地下水サンプルは瑞浪地域立坑道の 200m~400m 地点で採取した。ガスを透過しにくい「フロロバリアポリエチレンボトル」を現地地下水で数度共洗いした後、チューブをボトルの底まで入れて地下水を十分にオーバーフローさせた後で地下水を採取した。採取した地下水には水銀を添加する、水酸化ナトリウムを添加するなどの処理は実施せず、フタをして地表へと搬送した。フロロバリア PE ボトルに採取した地下水は、そのままアメリカの Beta Analytic 社に送付し、Beta 社にて沈殿法・ガス化法による溶液からの無機 C の回収と  $^{14}\text{C}$  の分析を実施した。

分析結果を表 7.4.2-3 に示す。表から分かるように、全ての地下水試料において、沈殿法で処理した  $^{14}\text{C}$  の年代がガス化法で処理した  $^{14}\text{C}$  の年代値より若くなることが分かった。また、図 7.4.2-5 にはガス化法で評価された  $^{14}\text{C}$  年代（ただし、補正計算はしていない）を横軸に、ガス化法年代と沈殿法年代の差を縦軸にプロットしたものを示した。前述の炭酸水素ナトリウム溶液の結果でも示されたように、地下水においても年代が古くなるとガス化法と沈殿法の差異が顕著になる傾向が見られた。特に、24000 年程度の地下水年代とガス化法で評価された 09MI21 号孔は、ガス化法では 12000~13000 年と評価されており、評価される年代が 2 倍にもなっていた。さらに、図 7.4.2-6 にはガス化法と沈殿法で評価された  $^{14}\text{C}$  値 (pMC) の差と  $\delta^{13}\text{C}$  の差の関係を示した。図から分かるように、 $\delta^{13}\text{C}$  の差と  $^{14}\text{C}$  値の差の間には相関があり、沈殿法とガス化法による  $^{14}\text{C}$  の値の差が、大気からの  $^{14}\text{C}$  を多く含む C の混入である可能性が高いことが示唆された。

以上のように、ガス化法と沈殿法で  $^{14}\text{C}$  値の値に有意に差があり沈殿法の方が若く評価される傾向にあること、上記が沈殿法における大気由来 C の混入が原因である可能性が高いこと、古い地下水ほど影響を受けやすいこと、と言った現象が実地下水においても確認された。今回得られた情報から、今後の分析においては  $^{14}\text{C}$  年代の用途や必要とされる精度を検討した上で、ガス化法・沈殿法を選定していく予定である。

表 7.4.2-3 実地下水サンプルにおける  $^{14}\text{C}$  分析値の比較

DIC回収法	試料名	$^{14}\text{C}$ 測定値				$\delta^{13}\text{C}$ ‰
		year B.P.	$d^{14}\text{C}$ (‰)	pMc (%)	‰	
ガス化法	瑞浪 200m-1	12,330 ±50	-784.6 ±1.3	21.5% ±0.1%	-15.8	
	瑞浪 200m-2	12,820 ±50	-797.3 ±1.2	20.3% ±0.1%	-15.8	
	瑞浪 200m-3	14,440 ±60	-834.3 ±1.2	16.6% ±0.1%	-16.2	
	瑞浪 300m-1	11,370 ±50	-757.2 ±1.3	24.3% ±0.1%	-15.8	
	瑞浪 300m-2	12,660 ±40	-793.2 ±1.0	20.7% ±0.1%	-14.7	
	瑞浪 300m-3	12,150 ±40	-779.6 ±1.0	22.0% ±0.1%	-15.0	
	瑞浪 400m-1	16,940 ±70	-878.6 ±1.0	12.1% ±0.1%	-12.2	
	瑞浪 400m-2	18,760 ±80	-903.2 ±0.9	9.7% ±0.1%	-10.2	
	瑞浪 400m-3	13,680 ±40	-817.8 ±1.0	18.2% ±0.1%	-14.8	
	09MI21-2	24,230 ±100	-951.0 ±0.6	4.9% ±0.1%	-15.1	
09MI21-3	24,030 ±110	-949.8 ±0.7	5.0% ±0.1%	-16.9		
沈殿法	瑞浪 200m-1	9,960 ±40	-710.6 ±1.4	28.9% ±0.1%	-14.8	
	瑞浪 200m-2	11,120 ±50	-749.6 ±1.4	25.0% ±0.1%	-16.7	
	瑞浪 200m-3	11,290 ±50	-754.7 ±1.4	24.5% ±0.1%	-14.7	
	瑞浪 300m-1	10,060 ±30	-714.2 ±1.2	28.6% ±0.1%	-15.2	
	瑞浪 300m-2	11,140 ±30	-750.1 ±1.0	25.0% ±0.1%	-13.6	
	瑞浪 300m-3	10,790 ±30	-738.9 ±1.1	26.1% ±0.1%	-14.6	
	瑞浪 400m-1	14,360 ±40	-832.7 ±0.9	16.7% ±0.1%	-11.3	
	瑞浪 400m-2	14,760 ±50	-840.9 ±0.9	15.9% ±0.1%	-9.5	
	瑞浪 400m-3	11,980 ±40	-775.0 ±1.0	22.5% ±0.1%	-13.4	
	09MI21-2	12,430 ±40	-787.2 ±1.0	21.3% ±0.1%	-10.3	
09MI21-3	13,150 ±50	-805.5 ±1.2	19.5% ±0.1%	-13.2		

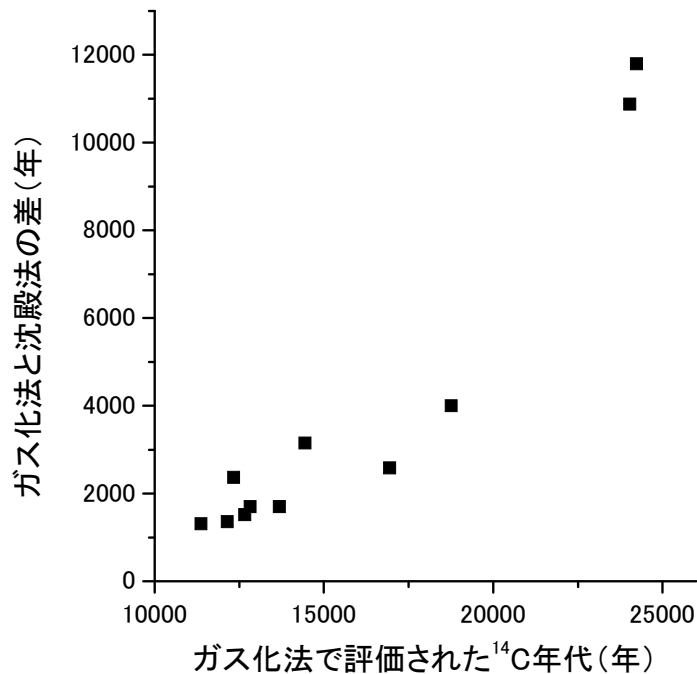


図 7.4.2-5 地下水試料におけるガス化法と沈殿法年代の差

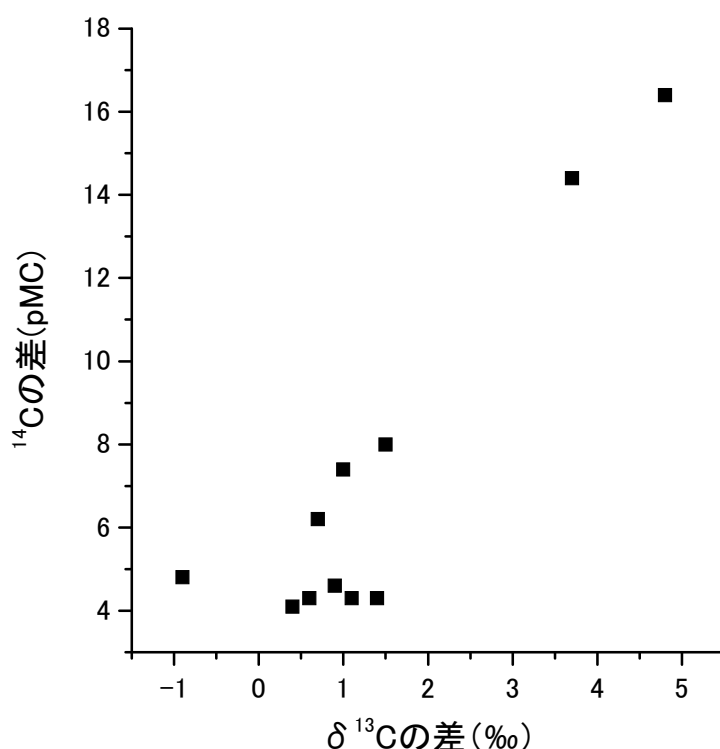


図 7.4.2-6 沈殿法とガス化法における  $\delta^{13}\text{C}$  および  $^{14}\text{C}$  の差の関係

#### 7.4.2.3 $^{14}\text{C}$ (有機) の地下水混合・流入指標としての利用検討

##### (1) 検討の背景および目的

先述のように  $^{14}\text{C}$  は、比較的若い地下水が古い地下水に流入していることを示すために有効な指標の一つであると考えられる。無機  $^{14}\text{C}$  に加えて、有機物に含まれる  $^{14}\text{C}$  は、地下水に溶存する有機物 (DOC: Dissolved Organic Carbon) が岩石と相互作用を起こしにくく地下水流動とともに移動する可能性が高いため (Wassenaar, 1999; 1991)、無機  $^{14}\text{C}$  より地下水流動状況を反映しやすい可能性がある。実際、地下水年代の評価法開発において、瑞浪地域の地下水における有機  $^{14}\text{C}$  年代と He 年代を比較して、両者は良く一致することから、有機  $^{14}\text{C}$  年代が地下水年代の指標として有用であることが分かった (図 7.4.2-7: 富岡ら, 2007)。上記の性質から、1 万年程度の年代を持つ若い地下水が処分場候補岩体の地下水に流入した場合、有機  $^{14}\text{C}$  が検出されることが予測され、有機  $^{14}\text{C}$  の有無によって若い地下水の流入の有無を判断することが可能であると考えられる。

さらに、起源の地下と地表とで有機物の起源が異なる場合、種々の性質が異なる可能性がある。例えば地下水が海水起源であり溶存する有機物も海水起源である場合、地表から流入する有機物とは性質が異なる可能性がある。このような場合、ある性質で2つの有機物を分離することができれば、それぞれの年代と地下水-地表水の混合割合等の情報を得ることができると考えられる。今年度の有機



$^{14}\text{C}$  を用いた検討では、①海水系の地下水に地表由来の有機物が流入しているサイト、②同じ地表由来の地下水だが古い地下水に新しい地下水が流入している可能性があるサイト、で取得した有機物について、種々の性質によって分離することを試みた。分離前後の有機物で  $^{14}\text{C}$  を分析することで、起源や年代の異なる有機物がどのような性質を持ち、どのような手法で分離することができるかについて、情報を得ることができる可能性がある。

そこで今年度は、①海水系の地下水に地表由来有機物が流入している可能性があるサイトで取得した有機物の分離試験、②古い地下水に新しい地下水が流入している可能性があるサイトにおける溶存有機物の取得試験、を実施した。さらに、液体に溶存した状態で存在する有機物を二酸化炭素として回収するために、有機物に紫外線を照射して分解・二酸化炭素として回収する方法を検討した。

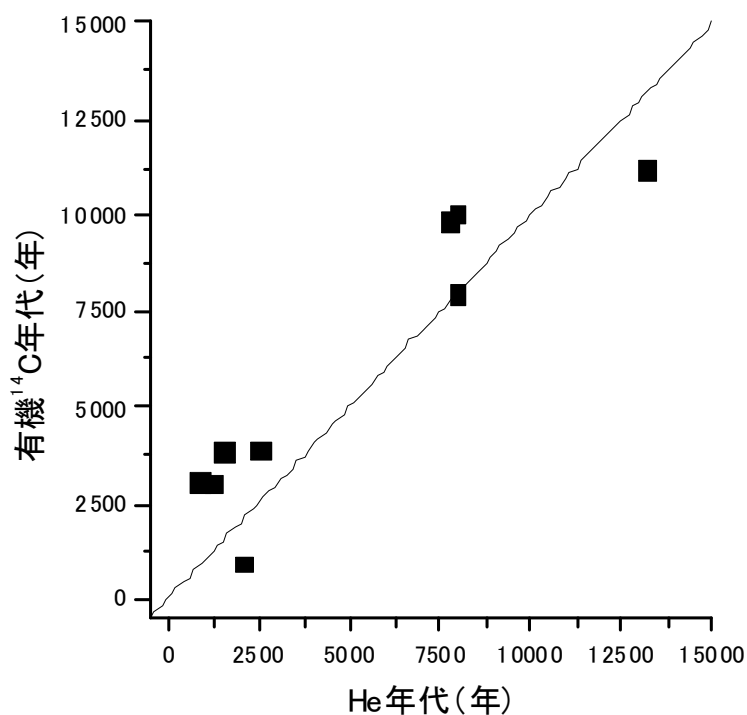


図 7.4.2-7 瑞浪地域の地下水における He 年代と有機  $^{14}\text{C}$  年代の関係 (富岡ら 2007 に加筆)

#### (2) 海水起源有機物と地表由来有機物の分離検討

海水起源の地下水に地表水が流入している可能性があるサイトにおいて、膜を用いた方法によって有機物を濃縮した。地表水が流入していると考えられるのは、採取地点における  $\text{Cl}$  濃度が海水の  $1/6$  程度であるためである。現場で膜を使って有機物を濃縮した地下水を実験室に持ち帰り、以下のステップで有機物を精製した。

#### 1) 粘土鉱物や炭酸塩鉱物の除去

濃縮液にフッ化水素酸を加えて pH を 1.0 程度にし、この状態で 24 時間程度攪拌した。24 時間後水酸化ナトリウムを用いて溶液の pH を中性付近に戻した。この操作によって粘土鉱物や炭酸塩を除去することができると思われる。

#### 2) 硫酸イオンの低減

溶液に塩化バリウム溶液を加えて、硫酸バリウムの沈殿を生成させ、液中の硫酸イオン濃度を低減した。

#### 3) 二価陽イオンの低減

溶液に炭酸水素ナトリウム溶液を添加し、二価イオンを炭酸塩として沈殿させた。これによって溶液中二価陽イオンの濃度を低減させた。

#### 4) 透析

地下水から有機物を濃縮したのと同じ膜を用いて 3) で得られた溶液を透析した。有機物濃縮に用いた膜は 1 価のイオンは通過できるが 2 価のイオンが通過できない程度の孔径を持つが、3) までの処理によって 2 価以上のイオン濃度は十分に低減しており、透析を進めることが可能となった。

#### 5) 凍結乾燥

上記の 4) で得られた溶液を凍結乾燥し、有機物を粉体として採取することを試みた。ただし、対象とした有機物を含む試料においては、有機物は乾固することなく、若干湿った状態となった。これは海水由来の有機物に特徴的な性質であるとされている。

上記の粉体（やや湿った状態の）試料について、以下種々の性質での分離を試みた結果についてまとめる。

##### a. 熱分解温度の差異を利用した分離の試み

海水由来の有機物と地表由来の有機物では、熱に対する耐性が異なる可能性がある。温度による分解挙動を明らかにすれば、この可能性について検討可能である。ここでは、上記粉体の試料について、TG-MS 分析を実施し、地下水から濃縮した有機物の熱分解特性を把握した。TG-MS は室温～1000℃で実施し、昇温速度は 10℃/min で実施した。質量数は 1～100 を分析した。バックグラウンドガスとして、He ガスと純空気の 2 種類で分析を実施した。

それぞれのガスにおける TG スペクトルを図 7.4.2-8 に示した。図から分かるように、重量減少は 200～300℃付近と 800～900℃付近の 2 段階で生じており、このカーブは He 気流中でも大気気流中でも大きな変化がない。800～900℃付近では重量減少が生じているものの、この温度範囲で炭素に関係するような質量数は検出されなかった（空気気流中であっても二酸化炭素に由来する質量数 14 が検出されなかった）。また、有機物であれば空気を入れることで発熱反応等が起き、

より低温で重量減少が起きるようなケースが多いが、この試料ではそれが確認されなかった。以上のことから、800~900℃付近は有機物由来ではなく、無機の鉱物由来の重量減少である可能性が高いと考えられる。このため、有機物由来の重量減少は200~300℃に集中しており、顕著に複数のピークが観察されるわけではない。

以上のことから、今回採取した試料は熱に対する挙動が比較的単一的であり、熱に対する挙動の差異を利用して、2種類以上の成分を分離することは難しいことが分かった。

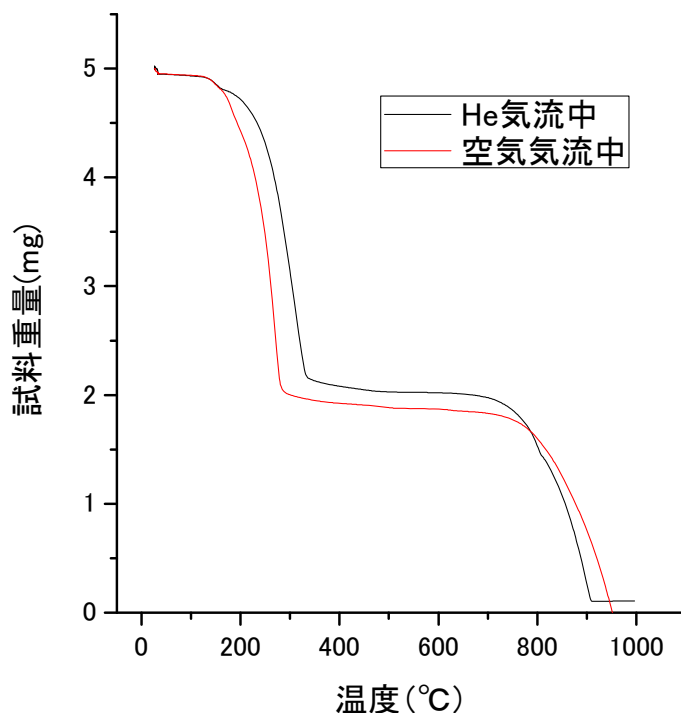


図 7.4.2-8 沈殿法とガス化法における  $\delta^{13}\text{C}$  および  $^{14}\text{C}$  の差の関係

#### b. 疎水的吸着の差異を利用した分離の試み

海水由来の有機物は一般的に分子量が小さく、芳香環を構造に多く持たないことから地表由来の有機物と比較したとき、疎水的な吸着をする成分の割合が異なると推察された。このため、ここでは、疎水性の樹脂である「DAX-8 樹脂」への吸着挙動の差異から性質の異なる有機物の分離を試みた。

最初の試験では、DAX 樹脂を用いて有機物を回収する手順通りに、溶液の pH を 2.0 として DAX 樹脂に疎水的な成分を吸着させその後 0.1M の水酸化ナトリウム溶液を用いてこれを脱離・回収する試験を実施した。

試験ではまず海水と地表水が混合している可能性がある地下水から有機物を、膜を用いて濃縮し、濃縮した溶液をサンプルとして使用した。濃縮液の TOC 濃度は 810mg/L と評価されたのに対

して、pH を 2 に調整した溶液では 800mg/L であり、pH 調整時にはほとんど有機物濃度に変化がなかった。内径 1cm、DAX 樹脂の充填高さ 10cm のカラムに合計 20mL の有機物濃縮液を滴下した。このときカラム下流から流れる溶液とさらに 10mL の pH=2 溶液でカラムを洗浄した溶液の混合溶液について、TOC 濃度を評価したところ 24.1mg/L であり、約 4.5% 程度の有機物が DAX 樹脂に吸着せずに流出したことがわかった。一方、カラムに吸着した有機物を脱離させて回収するために、0.1M の水酸化ナトリウム溶液 20mL を 2 回にわたって滴下すると、それぞれの溶液における TOC 濃度は 48.8 および 8.6mg/L となった。これはそれぞれ元の溶液に対して 6.1% および 1.1% の有機物量に相当する。上記のように、DAX 樹脂に吸着しない成分が 4.5%、樹脂に吸着したあと水酸化ナトリウム溶液で脱離できるものが 7.2% 程度となった。陸由来の有機物はフェノールかカルボキシル基などの官能基を持ち、これらが pH に応じて酸乖離特性を持つため、DAX 樹脂に吸着させた後脱離させることが可能である。一方、pH に応じた酸乖離特性を示さないような有機物の場合、pH によって電荷を持つなどの作用がないため、一度疎水的に吸着した有機物は樹脂から脱離させることが困難になる。一般的に海水由来の有機物は芳香環が少なく、フェノールやカルボキシル基などの官能基が少ないと考えられる。このため、海由来の有機物は DAX 樹脂に吸着しないか、吸着すると脱離させることが困難になる可能性がある。濃縮した有機物はほとんどが海由来のものであり、上記の理由から脱離させることが困難になったと考えられる。

このように、DAX 樹脂への吸着挙動を利用して、ある程度は濃縮した有機物が分離可能であると考えられるが、量的に多くの割合を占める成分は DAX 樹脂に吸着して pH の変化では脱離させることが困難である。このため、有機物を分離しそれぞれの成分における  $^{14}\text{C}$  を測定する方法としては、DAX 樹脂による方法は不向きであると考えられた。また、対象とした有機物はそのほとんどが海由来の有機物であり、「海水系の地下水と地表由来の地下水の混合指標」を評価する上で、今回の試料は適切ではなかった可能性が示唆された。

#### c. 分子量の大きさによる分離の試み

地下水中の有機物は地下中で分解等の反応により、大きさが変化する可能性がある。このため、起源の異なる有機物においてはその分子量が大きく異なる可能性がある。今年度は対象溶液中有機物が大きさによって分離できる可能性について検討するため、サイズ排除クロマトグラフでの分離を試みた。

サイズ排除クロマトグラフに使用したカラムは、Shodex 社製「Asahipak GS-320 HQ」である（プルランでの排除限界 40000）。このカラムにおけるプルランによる校正曲線を図 5.3.2-10（Shodex 社ホームページより引用）に示した。前述の DAX 樹脂への吸着試験の結果から、対象とする有機物は低い pH で疎水性が相対的に強くなる有機物を含んでいることが示唆された。このため、測定はアルカリ性の溶液で実施するのが良いと考えられた。このため、ここではハウ砂溶液を用いて

サンプルの pH を 9.0 に調整し、溶離液も 0.025mol/L のホウ砂水溶液にして測定を実施した。有機物の検出は 254nm の吸光強度を用いた。

サイズ排除クロマトの結果を図 7.4.2-9 に示した。クロマトグラフ中に観察されるピークは全てが 10 分以降のものであり、溶液中に含まれる有機物の分子量が 1000 以下のものが主要な成分であることがわかる。サイズ排除クロマトグラフィにおけるピークは遅延時間 13 分のピーク、14 分のピーク、17 分のピークが主要なものである。以上のことから、海水起源の地下水から採取された有機物の多くは 1000 以下の分子量であり、極端に分子量の異なる分子量の有機物は検出されなかった。上述の DAX 樹脂の結果も併せて考えると、有機物の多くは海水由来のものであり、陸由来の有機物が混入している割合は小さいと考えられる。

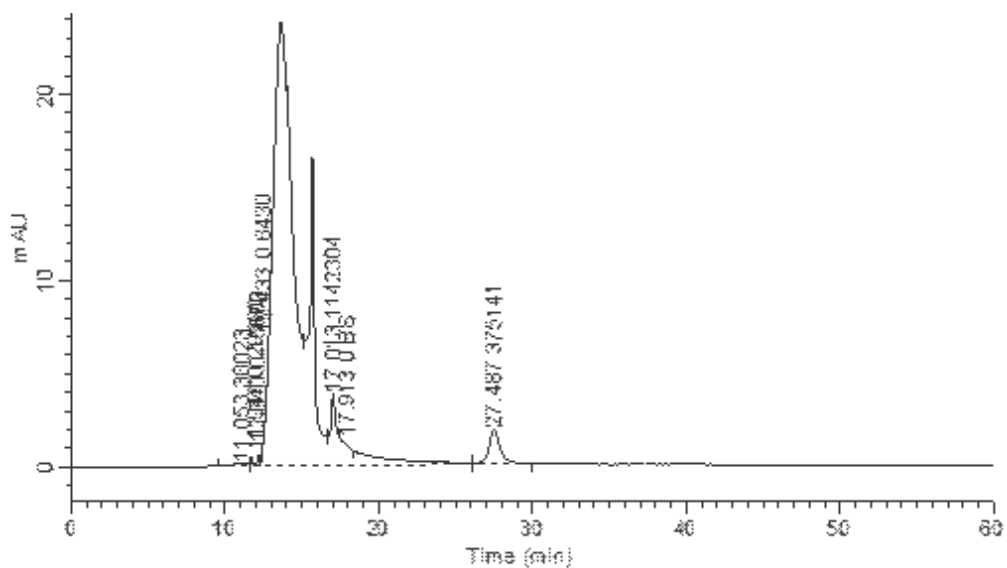


図 7.4.2-9 サイズ排除クロマトグラフィ測定結果（有機物濃縮液）

以上の結果から、有機物を濃縮した地下水においては、地表由来と海水由来の地下水が混合していることが期待されたが、濃縮した有機物の性質は比較的単一的であり、ほとんどが海水を起源とする古い有機物である可能性が高いと考えられた。今回海水由来の地下水を採取・精製するノウハウを得ることができたため、これを利用して今後他のサイト（陸水由来と海水由来の地下水が混合している可能性が高いサイト）において同様の検討を実施していく予定である。

### (3) 古い地下水と若い地下水が混合していると考えられるサイトでの有機物採取

瑞浪立坑においては、掘削によって比較的若い地表の水が地下へと流れ込んでいる可能性が高い。これは、地下数百メートルの深度からも、トリチウムや CFC・SF<sub>6</sub> など数十年以内の地下水年代の指標となるような物質が検出されているためである。このため、立坑の地下水は場所によっては新しい有

機物と古い有機物が混合している箇所が存在すると考えられる。有機物の地下における長期間の変遷は明らかになっていないが、地表付近の新しい有機物と比較して官能基や分子量などなにかしらの変化が生じている可能性が高い。このため、性質の差異を用いて地下水に長時間存在した有機物と、新しい有機物を分離できる可能性がある。

ここでは、新しい有機物と古い有機物を分離して、それぞれの年代を分析することを最終的な目標として検討を実施した。今年度は検討に用いる試料を確保するため、瑞浪地域立坑深度 200m において、有機物の濃縮を実施した。

有機物の濃縮は膜を使って実施した。有機物を濃縮するための膜としては一般的に逆浸透膜などが利用される。目の細かい膜は分子量の小さな有機物も採取できるというメリットをもつ一方で、膜が目詰まりを起こす「ファウリング」が起きやすいというデメリットも存在する。また、イオンも膜内に濃縮されていくため、溶解度を越えた塩が析出してファウリングを起こす可能性もあるうえ、イオン濃度が高くなることで同じ処理量を保つためにはより高い圧力が必要とされるようになる。このような事態を防ぐため、有機物濃縮に用いる膜は種々のイオンは通過し、目的とする有機物は透過しないようなものを選定することが難しい。本試験では、東レ社製「UTC60」膜を選定した。蛍光染料であるウラニンと種々のイオンを含む溶液を用いて試験をしたところ、UTC60 はウラニンの阻止率が高い一方で、塩化物イオン・ナトリウムイオンの透過率は高い値を示した。ただし、二価イオンの透過率が高くはないため、二価イオンによるファウリングが生じる可能性はある。有機物を濃縮した試験系の概念図を図 7.4.2-10 に示した。地下水は  $10 \rightarrow 1 \rightarrow 0.45 \mu\text{m}$  のフィルタを通過させた後、多連式ダイヤフラムポンプを用いて UTC60 の膜モジュールへと送り込んだ。膜モジュールは「クロスフロー式」と呼ばれるろ過形式で地下水をろ過する仕組みであり（図 7.4.2-11）、水の流れる方向とろ過の方向が直交しているため、ファウリングを起こしにくい構造になっている。

実際に濃縮しているときの濃縮液の様子を図 7.4.2-12 に示した。濃縮開始時、地下水は肉眼では無色透明であったが、やがて着色が確認され、約 4 トンを処理した後では明確に着色した様子が観察された。

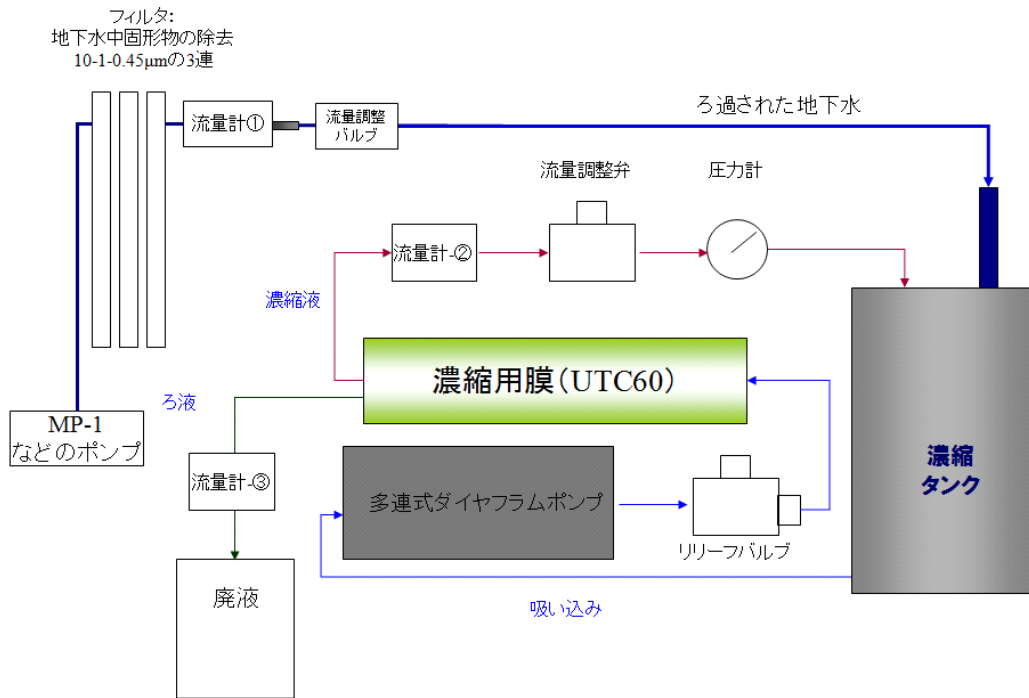


図 7.4.2-10 有機物濃縮用試験系の概念図

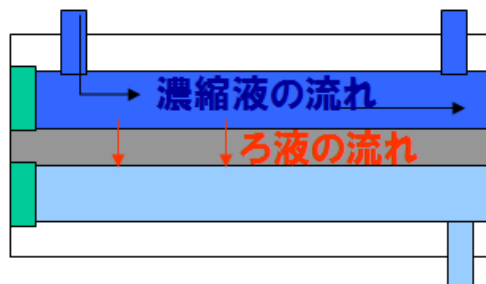
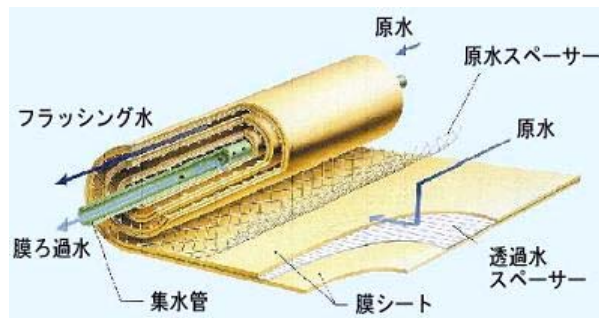


図 7.4.2-11 クロスフロー方式の概念図



図 7.4.2-12 有機物濃縮に於ける濃縮液の様子

上図：1.5 トン程度の地下水を濃縮したとき、下図：4.0 トン程度の地下水を濃縮したとき

有機物濃縮装置を作動させて、有機物を濃縮したときの処理量と種々のパラメータを表 7.4.2-4 にまとめた。表に示したように、運転中の膜圧は常に 0.15MPa、処理速度も 1.1~1.4L/min で安定しており、対象とした地下水に対する処理が大きなトラブルなく実施されたことがわかる。一方で、濃縮液の EC は処理量の増加と共に上昇する傾向が見られた。使用した膜は 1 価のイオンが通過できるものの、2 価のイオンは通過しにくい膜であり、カルシウム・マグネシウム・硫酸イオンなどが濃縮されていると推察された。

濃縮の結果得られた溶液における主要イオン濃度と TOC 濃度を表 7.4.2-5 に示した。表から分かるように、ほぼ全てのイオンにおいてイオン濃度が増加しているが、特に 2 価イオンの増加割合が大きいことがわかる。また、TOC については、104 倍であった。今回の処理では 5042L の地下水を濃縮処理し、最終的には 30L にして実験室へと移送した。このため、地下水の体積から算出される濃縮率は 167 倍である。TOC と体積の濃縮率の比較から、今回使用した膜による有機物の回収率は TOC 濃度をベースにして 62.4%である。今回濃縮した有機物については黄色が強く、近くで使用しているウラニンが混入している可能性が危惧された。この可能性について検討するため、濃縮液の 3 次元蛍光分析を実施したが、ウラニンの成分はほとんど検出されなかった。このため、黄色は天然の有機物由来である



と考えられた。

表 7.4.2-4 有機物濃縮時の状況まとめ

総処理量 (L)	膜内流速 (L/min)	膜圧力 (MPa)	濃縮速度 (L/min)	濃縮液EC (mS/cm)	濃縮液pH
138	12.96	0.15	1.46	0.7	8.59
1230	13.25	0.15	1.1	1.1	8.47
1336	13.41	0.15	1.42	1.22	8.61
1402	13.95	0.15	1.41	1.28	8.59
1682	13.69	0.15	1.41	1.42	8.52
1760	13.68	0.15	1.35	1.4	8.55
3159	13.83	0.15	1.31	1.92	8.44
3243	13.11	0.15	1.31	1.81	8.45
3467	13.73	0.15	1.31	1.85	8.45
3590	13.13	0.15	1.31	2.06	8.43
5042	濃縮終了				

表 7.4.2-5 有機物濃縮前後の溶液中イオン・TOC 濃度

イオン種	濃度(mg/L)		濃度比 (後/前)
	濃縮後	濃縮前	
Na	1054	70	15.1
K	5.41	0.2	27.1
Mg	9.35	0.07	133.6
Ca	721	15	48.1
F	10.9	9.9	1.1
Cl	3.56	57	0.1
SO <sub>4</sub>	3928	11.8	332.9
TOC	52	0.5	104.0

上述の膜濃縮で得られた有機物について、DAX 樹脂による分離を試みた。濃縮した有機物の中に比較的若い年代の有機物と古い年代の有機物が混在しており、これらの疎水性が異なっている場合、DAX 樹脂で分離した有機物の各成分において <sup>14</sup>C 年代は異なっているはずである。ここでは、これを確認するための予備的な検討として、得られた有機物が DAX 樹脂で分離可能かどうかを検討した。試験手順は以下に示すとおりである。

#### 1) カラムの準備

内径 1cm のテフロンカラムに高さが 10cm となるように、DAX 樹脂を充填した。このカラムの上部から純水 10mL×2 回、0.1mol/L 水酸化ナトリウム溶液 10mL×2 回、純水 10mL×2 回をそれぞれ流した後、pH=2 の塩酸溶液をカラムから流れる溶液の pH が 2 になるまで流し、カラムをコンディショニングした。

#### 2) サンプルの滴下

瑞浪地下水から有機物を濃縮した液 50mL に pH ガラス電極を入れ、塩酸を滴下して pH を 2.0 とした。pH 調整後の溶液を 10mL はかり取り、カラムに流した後さらに 10mL の溶液をカラムに流した。カラム内樹脂空隙に残存する溶液を流すため、10mL の塩酸溶液 (pH=2) を流し、合計 30mL の溶液を「DAX に吸着しなかった成分」として回収した (サンプル A)。

#### 3) 純水による回収

上記のカラムに純水 5mL を加え、カラムに流した。この操作を 4 回繰り返し、合計 20mL の溶液を回収した (サンプル B)。

#### 4) $1 \times 10^{-5}$ (mol/L) 水酸化ナトリウム溶液による回収

$1 \times 10^{-5}$  (mol/L) 水酸化ナトリウム溶液により 3) の純水と同様の回収を実施した (サンプル C)

#### 5) $1 \times 10^{-3}$ (mol/L) 水酸化ナトリウム溶液による回収

$1 \times 10^{-3}$  (mol/L) 水酸化ナトリウム溶液により 3) の純水と同様の回収を実施した (サンプル D)

#### 6) $1 \times 10^{-1}$ (mol/L) 水酸化ナトリウム溶液による回収

$1 \times 10^{-1}$  (mol/L) 水酸化ナトリウム溶液により 3) の純水と同様の回収を実施した (サンプル E)

#### 7) 分析

各サンプルの TOC 濃度を分析した。アルカリ溶液の TOC 濃度分析では水酸化ナトリウム溶液に混入する IC が TOC の分析の妨害要素とならないように、溶液を塩酸溶液で希釈し、pH を中性付近に戻してから分析した。

上記の試験結果を表にまとめた。表 7.4.2-6 に示した回収率とは濃縮液原液に含まれる有機物量を基準として、各サンプルで回収した有機物量を示したものである。総回収率は 87%程度であり、ほとんどの有機物が DAX 樹脂に吸着した後も 0.1M 水酸化ナトリウム溶液で回収可能であることがわかる。DAX 樹脂に吸着しない成分は疎水性が弱い成分 (親水性が強い成分) であり、地下水中で経年変化した有機物は親水性が強くなることが予想されることから、ここには古い地下水由来の成分が含まれている可能性がある。一方、0.1M 水酸化ナトリウム溶液でしか回収できない成分は比較的疎水性が高く、比較的新しい年代の有機物が多く含まれていると考えられる。

このように、瑞浪地下水から濃縮した有機物では DAX への吸着挙動が異なる有機物が混在している

ことが確認できた。今後の検討において分離した成分における  $^{14}\text{C}$  を分析していく。その結果から、有機  $^{14}\text{C}$  が古い地下水に対する新しい地下水の流入評価に有用であるかを議論する。

表 7.4.2-6 DAX への吸着・脱離挙動による瑞浪有機物の分離

サンプル名	サンプル概要	TOC平均値 (mg/L)	液量 (mL)	回収率 (%)
—	濃縮液原液	56.5	20	—
A	DAXに吸着しない成分	7.2	30	19.1
B	純水で回収	7.2	20	12.7
C	pH=9で回収	3.1	20	5.5
D	pH=11で回収	9.0	20	15.9
E	pH=13で回収	19.0	20	33.6
		回収率合計		86.7

#### (4) まとめ

ここでは、有機  $^{14}\text{C}$  が古い地下水に対する新しい地下水の流入指標となりうる可能性を検討した。

海水由来の地下水から濃縮した有機物について、DAX 樹脂への吸着挙動や熱に対する耐性および大きさの分布から分離し、それぞれの  $^{14}\text{C}$  を分析することを試みた。しかし、採取した地点の有機物はその性質が均一であり、ほぼ全てが海水由来の有機物で構成されていることがわかった。しかし、海水起源地下水の有機物について、共存するイオン濃度の低減法などを検討することができた。この方法は今後海水由来の地下水について検討するときに、有用であると考えられる。

また、瑞浪地域の立坑では、古い地下水に新しい表層水が混入している可能性が示唆されている。このため、古い有機物と新しい有機物を分離・回収しそれぞれの  $^{14}\text{C}$  を測定可能か検討した。まず、瑞浪地域の地下水に対して膜によって濃縮する方法を適用し、地下水から有機物を濃縮した溶液を取得した。濃縮した有機物に対して、DAX-8 樹脂を用いた分離方法を適用したところ、瑞浪立坑で取得した有機物は DAX 樹脂への吸着・脱離挙動が異なる有機物が混在しており、それらを分離可能であることがわかった。今後の試験において各フラクションの  $^{14}\text{C}$  を分析できる程度のサンプル量が処理できるように試験系をスケールアップし、各フラクションの  $^{14}\text{C}$  を分析していく予定である。

#### 7.4.2.4 $^{87}\text{Sr}$ 化石海水評価法としての利用検討

##### (1) 検討の背景および目的

海に囲まれた日本において沿岸域に処分サイトを選定した場合、処分場の建設によって古い海水(化石海水)に新しい海水が混入する場合があると考えられる。このため、古い海水と新しい海水が混合

していることを評価したり、それらの混合割合を評価するための指標を確立することは、精密調査において重要であると考えられる。ここでは、ストロンチウム (Sr) の安定同位体の比率である  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  に着目し、これが海水と化石海水の指標となりうる可能性について検討した。

$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  および Sr は (1) 岩石中に含まれることが多く、岩石-地下水相互作用の結果地下水中にも有意な量が存在することが多いこと、(2)  $^{87}\text{Rb}$  が放射壊変して  $^{87}\text{Sr}$  となるため、地下水が接触する岩石の種類によって  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  が異なっていること、(3) ある程度原子量が大きいこと、様々な反応において同位体分別がほとんど起きないと考えて良い、という特徴のため、地下水調査で幅広く用いられている (McNutt, 1999)。上記のような理由から長い時間岩石と接触した地下水における  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  と海水における  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  は異なっている可能性がある。また、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  は温泉への海水の混入評価に用いられた例もあり (由佐ら, 2004) 海水と地下水の区別に利用できる可能性が高いと考えられる。

本研究では、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  が海水と化石海水の混合・混入指標として利用できる可能性を検討することを  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  検討における目的とした。今年度は海水起源と考えられる地下水とその地下水と接触している岩石を対象として、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  の海水・化石海水混合指標としての有用性について検討した。

## (2) 試験方法/結果と考察

評価対象として、海水起源の地下水と2つの岩層が接触するサイトの地下水・岩石を選定した。このサイトは海沿いにあり、上部のA層、下部のB層から構成されている。A層は比較的透水性が高く、このためA層の地下水は堆積時から岩石に存在する古い地下水の成分と、現在の海水の成分が混合しているものと考えられる。一方B層は透水性が低く、堆積時の地下水が比較的多く残っていると考えられる。今回の検討では、①A層およびB層の比較的透水性の良いところから採取した地下水に存在する Sr、②A層およびB層の岩石に含まれる Sr、③海水の Sr、それぞれについて、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  を比較・評価することとした。これらの値の関係から、岩石のどの部分が海水起源の地下水の Sr と相互作用し、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  の値が形成されているのかを理解することが可能である。今年度は地下水・海水や岩石から Sr を抽出してそれらを分析可能な状態に精製する作業を実施した。以下には、操作手順と操作の結果得られた溶液の特性について記載する。

### a. 地下水および海水からの Sr の抽出・精製

地下水および海水からの Sr の抽出 (濃縮) ・精製は以下の手順で実施した。

#### (a) Sr の濃縮

瑞浪地域の地下水では、Sr 濃度と共存するイオンの濃度は共に低く、Mromac0T-65 というキレート樹脂を用いて地下水から Sr を濃縮した。Muromac0T-65 はキレート樹脂と呼ばれる種類の樹脂であり、2価以上のイオンに対して特に選択性がある。しかし、海水起源の地下水では Sr 濃度は瑞浪地域の地下水と比較して高いものの、共存するイオン濃度 (2 価以上のイオンを含む) も高く、キレート樹脂による Sr の回収率は低くなることが分かった。このため、海水起源の地下水

や海水に対しては、炭酸ストロンチウムの沈殿として Sr を回収する方法を採用した。まず水酸化ナトリウム溶液を用いて、溶液をアルカリ化した。次に、飽和炭酸水素ナトリウム溶液をサンプルに添加すると、白色の沈殿が生じることを目視で確認した。この沈殿を遠心分離で溶液と分けた後、沈殿には硝酸を加えて沈殿を完全に溶解させた。上澄み・沈殿それぞれに含まれる Sr 量を評価した結果を表に示した。

表 7.4.2-7 サンプルから炭酸沈殿を用いて Sr を抽出した結果

サンプル		Sr濃度(mg/L)	溶液量(g)	回収率(%)
A層地下水	試験前地下水	0.98	100.1	—
	上澄み液	0.057	108.4	6.4
	沈殿を溶解した液	12.4	8.8	86.7
B層地下水	試験前地下水	6.17	20.1	—
	上澄み液	0.135	22.8	2.5
	沈殿を溶解した液	13.5	9.5	80.6
海水	海水	8.29	20.0	—
	上澄み液	0.099	25.5	1.5
	沈殿を溶解した液	55.8	2.7	81.5

表 7.4.2-7 から分かるように、炭酸ストロンチウムの沈殿として回収する方法は海水および海水起源と考えられる地下水に対しては極めて有効であり、全てのサンプルで 80%を超える回収率が得られた。

#### (b) Sr の精製

上記で地下水や海水から濃縮した Sr 溶液は種々の共存イオンを含むため、これを低減するため Horwitz et al. (1992a, 1992b) の報告に従って Sr レジンを用いて共存イオン濃度を低減する処理を実施した。処理の概要は下記の通りである。

##### 1) Sr 樹脂の洗浄 :

Sr の精製には Eichrom 社製の樹脂である Sr レジン ([http://www.eichrom.com/products/info/sr\\_resin.cfm](http://www.eichrom.com/products/info/sr_resin.cfm)) を用いた。この樹脂は処理する溶液中の硝酸濃度が高くなると Sr に対して高い選択性を示すようになる樹脂であり (図 7.4.2-13)、Sr の精製に広く用いられている。樹脂は 60℃ 程度の温水に 1 日浸漬しては上澄み溶液を交換する作業を 10 回程度繰り返し、使用まで純水中で保管した。

##### 2) カラムの組み立てと樹脂のコンディショニング

内径 1cm の市販のテフロンカラムに、樹脂の充填部分の高さが 5cm となるように、洗浄済みの樹脂を充填した。樹脂には純水と 13M 硝酸を滴下し、コンディショニングした。

### 3) サンプルの滴下

一般に  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  の値を測定するのに必要とされる Sr の量は  $20\ \mu\text{g}$  程度である。サンプルの滴下量はサンプル溶液中に Sr が  $100\ \mu\text{g}$  含まれるように決定した。また、炭酸ストロンチウムの沈殿は13M硝酸で溶解させたため、サンプル溶液のバックグラウンドは13M程度の硝酸と考えて良い。濃硝酸で沈殿を溶解させたのは、先述のように Sr 樹脂は硝酸濃度が高いほど Sr に対して高い選択性を発揮するためである。

### 4) マトリックス成分の除去

硝酸濃度: 3.5M、シュウ酸濃度: 0.005mol/L (0.01M) となるような溶液を調製し、この溶液 1.0mL をカラム上部から滴下した。液面と樹脂面が一致するまでカラム下部のバルブを開けて溶液をカラムから流出させた。この操作を合計 3 回繰り返した。さらに上記硝酸+シュウ酸溶液を 6.0mL ずつ 5 回カラムに流した。この操作によって Sr 以外の種々の陽イオン濃度が低減されることが期待できる。

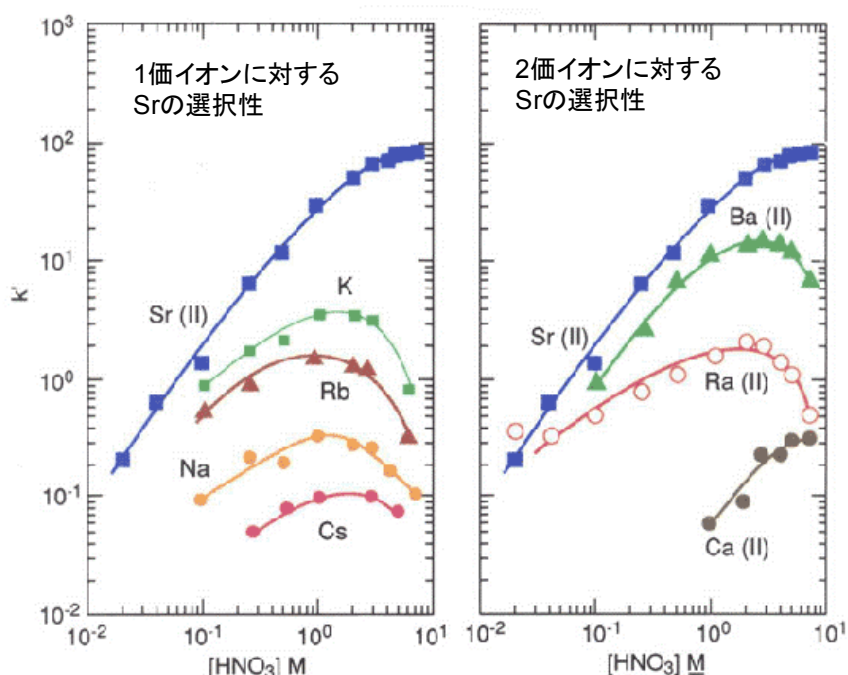


図 7.4.2-13 Sr 樹脂における硝酸濃度とイオン選択性の関係

### 5) Sr の回収

0.05M 硝酸溶液を 5mL ずつ 6 回カラムに滴下した。カラム下部から得られる溶液を 5mL ずつ採取し、それぞれに含まれる Sr 濃度を ICP-MS で分析した。Sr 濃度が高いフラクションを選んで  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  分析用のサンプルとした。

上記の処理によって、共存するイオンの濃度を大幅に低減することができた。表 7.4.2-8 には代表例として海水を Sr 樹脂で処理した場合の結果について示した。

上述の Sr 単離操作について表 7.4.2-9 にまとめた

表 7.4.2-8 Sr 樹脂処理前後の海水のイオン濃度

イオン種類	イオン濃度 (mg/L)	
	樹脂処理前	処理後
C	12	6.4
Na	8700	0.35
Mg	3900	<9.5E-3
Cl	35	<2.0
K	54	<2.9E-3
Ca	650	<1.1
Mn	0.059	<2.7E-3
Fe	2.7	<0.12
Sr	14	5.9
液量 (mL)	9.5	15

表 7.4.2-9 Sr 単離操作のまとめ

条件		
カラム	内径8mmテフロンチューブ 長さ20cm	
使用樹脂	Sr Spec樹脂	
樹脂高	2cm	
樹脂の洗浄	(1) 純水 500mL/ 樹脂 20g をガラスビーカーにはかり取る (2) 温度を50°Cにして一晩放置 (3) 上澄み交換 (4) (1)~(3)を5回繰り返し、洗浄後は純水中で保管する。	
手順		
0	樹脂洗浄	純水 5mL × 3回
1	樹脂コンディショニング	6.5mol/L硝酸 5mL × 3回
2	サンプル溶液滴下	減量処理後のサンプルを5mL以下3~5回に分けて滴下する。
3	他元素の排除1	3.5mol/L硝酸 + 0.005mol/Lリゅう酸溶液 0.5mL × 3回
4	他元素の排除1	3.5mol/L硝酸 + 0.005mol/Lリゅう酸溶液 3mL × 5回
5	Srの回収	0.05mol/L硝酸 5mL × 3回 3本に分けて取得する。

b. 岩石サンプルからの Sr の逐次抽出

岩石中の Sr の値と地下水中の Sr の値を比較するため、岩石に対して逐次的に薬液を作用させて Sr を抽出する「逐次抽出」を実施した。抽出に用いたのは、①交換性の Sr を抽出できると考えられる塩化アンモニウムを添加した模擬地下水、②炭酸塩成分に含まれる Sr を抽出できる酢酸ナトリウム、③鉄やマンガン鉱物など塩酸に溶出する鉱物に含まれる Sr を抽出できる 6.0mol/L

塩酸、である（伊藤，1981，1982）；金井ら，1993，1996）。逐次抽出および抽出した Sr の精製手順は以下の通りである。

1) 岩石の準備

上述の地下水と接触する岩石 200g を粉砕し、全ての岩石が 2mm メッシュを通過するようにした。粉砕した岩石は風乾させずポリ袋に入れて使用まで保管した。

2) 模擬地下水の調製

岩石と接触している地下水の組成を参考にして、主要なイオン濃度が地下水と同程度になるように、純水に試薬を溶解させて模擬地下水を調製した。模擬地下水の pH は地下水と同じく 7~8 になるように NaOH または HCl 溶液で調整した。

3) 岩石のリンズ

岩石間隙には地下水の Sr が多く含まれていると考えられるため、模擬地下水を用いて岩石粉末をリンズした。岩石 50g を 500mL の遠心ボトルに入れ、模擬地下水を口元まで満たした後、ハンドシェイクした。その後岩石粉末が沈降してからさらに 5000 回転×1 時間遠心分離し、上澄み液を交換する作業を 2 回実施した。

4) アンモニウムイオン入り模擬地下水による抽出

上記で調製した模擬地下水にさらにアンモニウムイオン濃度が 1.0mol/L になるように塩化アンモニウムを添加した溶液を、リンズ終了後の岩石と接触させた。この操作では、アンモニウムイオンとの交換によって抽出できる Sr イオンを得ることができると考えられる。アンモニウムイオンと交換可能な成分が確実に抽出できるように、溶液接触後 4 日後に上澄み液を交換してさらに 3 日間岩石と溶液を接触させた。4 日後、さらに 3 日後の 2 つの溶液を併せて 0.2  $\mu$ m のフィルタでろ過し、模擬地下水で抽出された Sr 溶液とした。

5) 酢酸カリウム溶液による抽出

上記で固液分離した固相に対して、模擬地下水 500mL を入れてリンズした。これは、模擬地下水で抽出された Sr の固相への影響を低減するためである。リンズ後の固相に対してさらに 0.1mol/L 酢酸カリウム溶液を加えた。このとき溶液の pH は酢酸を使って 5 に調整した。岩石粉末をよく分散させた後、1 回/日ハンドシェイクして 4 日間岩石と酢酸溶液を接触させた。4 日後上澄み溶液を新たに調製した酢酸カリウム溶液と交換し、さらに 3 日間岩石と溶液とを接触させた。4 日後、さらに 3 日後の酢酸カリウム溶液を併せて 0.2  $\mu$ m のフィルタでろ過したものを酢酸で抽出した Sr を含む溶液とした。

6) 塩酸での抽出

上記で固液分離した固相に対して、模擬地下水を入れてリンズした後、6.0mol/L 塩酸を入れ、上記と同様の手順で Sr を抽出した。



7) 模擬地下水における Sr の濃縮・精製

模擬地下水で抽出された Sr については、通常の地下水と同様に炭酸ストロンチウムの沈殿として Sr を回収した後、硝酸で溶解させて Sr 樹脂による精製を実施した。

8) 酢酸溶液における Sr の濃縮・精製

事前の検討により、酢酸溶液では炭酸ストロンチウムの沈殿を用いる方法による Sr の回収率が低いことがわかった。このため、酢酸溶液に対してはキレート樹脂である MuromacOT-65 樹脂と接触させて Sr を樹脂上に濃縮させた後、塩酸で回収した。塩酸溶液にさらに硝酸を入れて硝酸濃度を高めた後、Sr 樹脂を使って Sr 以外のイオン濃度を低減した。

9) 塩酸溶液における Sr の濃縮・精製

塩酸溶液に対しては、アルカリで性能を発揮するキレート樹脂や炭酸ストロンチウムの沈殿を使う方法での回収は困難である。このため、Sr 樹脂を直接作用する方法を以下のように適用した。塩酸溶液は必要な Sr 量が確実に確保できる液量をテフロン製ビーカーに取り分けた後、90℃で緩やかに蒸発乾固させた。蒸発乾固物に濃硝酸を少しずつ加えて溶解させ、この上澄み液をテフロン製フィルタでろ過したろ液を精製用のサンプルとした。この上澄み溶液の精製は Sr 樹脂を用いて、上記と同様の手法で実施した。

上記のように、地下水や岩石から Sr を抽出したうえで、Sr 樹脂を使って共存イオンの低減処理を実施し、同位体比分析用のサンプルを得ることができた。得られたサンプルの特性一覧を表 7.4.2-10 にまとめた。岩石および地下水の同位体比比較によって、現海水と化石海水の区分指標としての Sr 同位体比の有用性を議論する。

表 7.4.2-10 Sr 抽出・精製の結果得られたサンプルの一覧

大分類	中分類	サンプル名	サンプル重量 (溶液:g)	Sr濃度 ( $\mu\text{g/L}$ )	Sr含有量 ( $\mu\text{g}$ )
水サンプル		B層地下水	14.49	7893	114
		海水	14.54	7294	106
		A層地下水	14.41	5162	74
		A層下部地下水	15.13	7843	119
岩石抽出液	A層岩石	模擬地下水抽出	9.92	7088	70
		酢酸抽出	9.78	7353	72
		塩酸抽出	9.74	1889	18
	A層下部岩石	模擬地下水抽出	14.3	3573	51
		酢酸抽出	9.99	6416	64
		塩酸抽出	9.89	6184	61
	B層岩石	模擬地下水抽出	14.56	6961	101
		酢酸抽出	19.87	2549	51
		塩酸抽出	14.84	7668	114

### 7.4.3 遅い流れの指標となる物質

#### 7.4.3.1 拡散による塩化物イオンおよび臭化物イオンの同位体分別

地下水流動が非常に遅い場合には、拡散が支配的な物質輸送形態となる。このような場合には、拡散によって分別する物質を指標として評価するのが有効であると考えられる。このようなものの代表的なものに、 $\delta^{37}\text{Cl}$  と  $\delta^{81}\text{Br}$  がある。Cl は  $^{35}\text{Cl}$  と  $^{37}\text{Cl}$  の比率が 75.53% と 24.47% となっており、Br は  $^{79}\text{Br}$  と  $^{81}\text{Br}$  の比率が 50.69% と 49.31% となっている。これらは、質量数が異なるため、拡散係数によって分別することが知られている (Eggenkamp and Coleman., 2009)。前フェーズからこの評価方法を提案するとともに、岩盤を対象に分別係数の計測を実施している。昨年度までに、セラミックディスクや岩石について  $^{37}\text{Cl}$  の分別係数や  $^{81}\text{Br}$  の分別係数を計測してきた。今年度は  $^{37}\text{Cl}$  と  $^{81}\text{Br}$  の分別係数を同時に評価しその相関を検討した。

#### (1) 分別係数の計測方法

提案した分別係数の計測方法は、一般的に拡散係数を求める際に実施される Through-diffusion 試験と同じであり、定常状態では  $^{35}\text{Cl}$  と  $^{37}\text{Cl}$  のフラックス比が拡散係数比と同じになることを利用したものである。Through-diffusion 試験で拡散試験を実施し、高濃度と低濃度のタンクの同位体比の差をとると分別係数は次式で与えられる。

$$10^3 \ln \alpha = 10^3 \ln \frac{R_H}{R_L} \approx \delta^{37}\text{Cl}_H - \delta^{37}\text{Cl}_L \quad (7.4.3-1)$$

$\alpha$  は  $^{35}\text{Cl}$  と  $^{37}\text{Cl}$  の拡散係数比 ( $=D_{\text{Cl-}^{35}}/D_{\text{Cl-}^{37}}$ )、 $\delta^{37}\text{Cl}_H$  は高濃度タンクの  $\delta^{37}\text{Cl}$ 、 $\delta^{37}\text{Cl}_L$  は低濃度タンクの  $\delta^{37}\text{Cl}$  である。

ただし、フラックスが定常状態に達するのに時間がかかり、その誤差の影響を 5%以下にするためには以下の基準を満たす必要がある。

$$\frac{Dt}{nL^2} > 4 \quad (7.4.3-2)$$

ここに、D は拡散係数、t は時間、n は間隙率、L はサンプルの試料長である。

また、上式の基準で Through-Diffusion 試験を実施した場合、分析に必要な試料量を得るまでには、高濃度と低濃度タンクの濃度変化が有意となる可能性があるため、濃度変化を考慮して分別係数を決定する必要がある。これは、濃度変化の影響を定量化した標準曲線状に結果を図化することにより、考慮することができる。例を図 7.4.3-1 に示す。タンクの濃度が変化する場合、 $\delta^{37}\text{Cl}_H - \delta^{37}\text{Cl}_L$  は時間とともに少しずつ小さくなる。図中の標準曲線はこれを補正するためのものである。

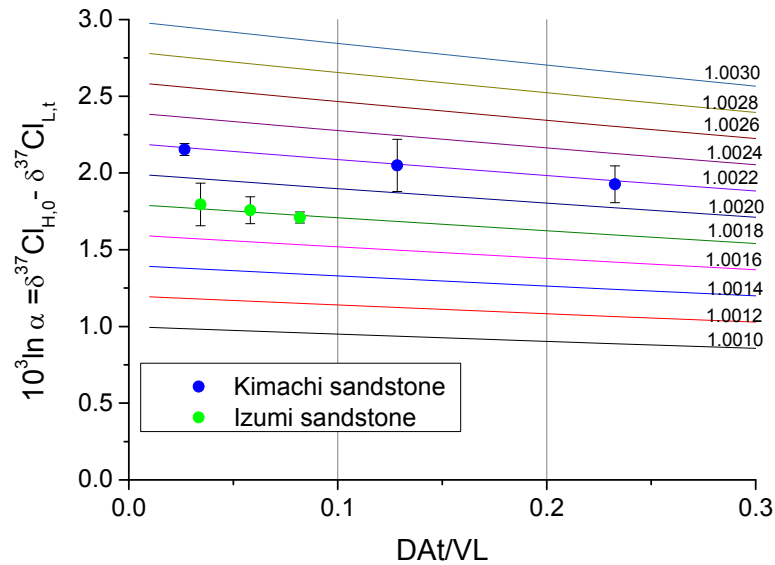


図 7.4.3-1 濃度変化を考慮した分別係数の評価方法

## (2) 拡散試験

### a. 検討の背景および目的

先述のように当所では、Cl・BrなどのConservativeなイオンが岩石マトリクスを拡散する場合のこれらのイオンの同位体分別係数を定量的に評価する方法について検討している。種々の岩石における分別係数の評価事例を蓄積するとともに、岩石・溶液のどのような性質がClやBrに影響を与えるのかが評価できれば、種々のサイトにおけるClやBrの分別係数の予測や、サイトにおける有用性の判断に役立つ。このため、今年度はClやBrの分別係数の評価事例を増やすとともに、溶液等の性質を変えた場合にこれが分配係数に与える影響についても明らかにすることを試みた。

### b. 試験方法

昨年度までの検討では、ClやBrについてそれぞれの物質毎に試験を実施し、それぞれにおけるClやBrの分別係数を評価してきた。これは、ClとBrが共存する試験系では、Br濃度がCl濃度よりも高い場合、抽出が困難になることがあるためである。今年度は、Cl濃度に対してBr濃度を1/2程度にするとともに、ClとBrを高濃度タンクに入れることにより、Cl濃度がBr濃度を下回ることがないようにして、同一の試験でそれぞれの計測を実施した。今年度の拡散試験では、合計8試験体の拡散試験を実施し、ClやBr同位体比測定用のサンプルを取得した。

拡散試験はThrough Diffusion法により実施した。Through Diffusion法における、拡散係数の取得とCl同位体分別係数の把握について、以下のその原理をまとめる。

Through Diffusion 法（概念図を図 7.4.3-2 に示す）で拡散試験を実施した場合、高濃度側のセルから、低濃度側のセルへと拡散が生じる。拡散が定常状態に達しており、高濃度側の  $C_1$  濃度が低濃度側の  $C_1$  濃度に比べて圧倒的に大きな場合には、拡散によって生じるフラックスは、下記の式で表現できる。

$$F_{Cl-35} = D_{Cl-35} \frac{C_{Cl-35}}{L} \quad (7.4.3-3a)$$

$$F_{Cl-37} = D_{Cl-37} \frac{C_{Cl-37}}{L} \quad (7.4.3-3b)$$

ここで  $F$  :  $^{35}\text{Cl}$ ・ $^{37}\text{Cl}$  それぞれのフラックス、 $D$  : それぞれの拡散係数、 $C$  : それぞれの高濃度側における濃度、 $L$  : 拡散試験に用いた試料の厚み、を表している。

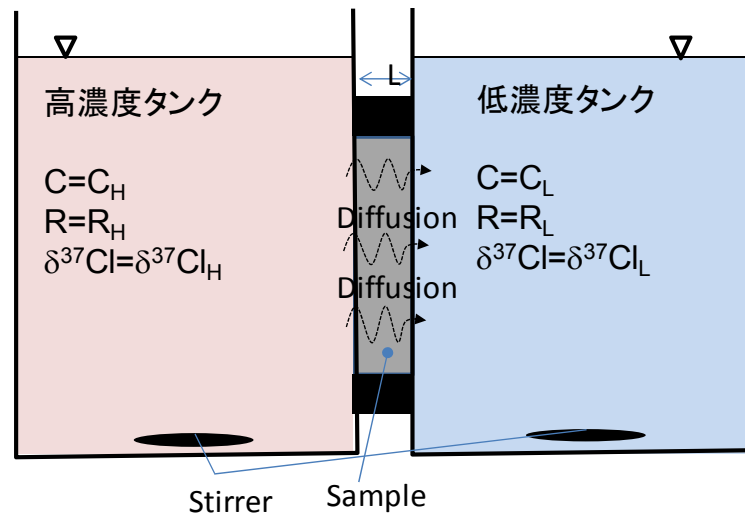


図 7.4.3-2 Through Diffusion 法における試験系の概念図

このとき、高濃度側から低濃度側に拡散する  $\text{Cl}$  における  $^{35}\text{Cl}$  と  $^{37}\text{Cl}$  の比率は、それぞれのフラックスの比率 ( $F_{Cl-37}/F_{Cl-35}$ ) になるため、上記の式(7.4.3-3)を利用して下記の式で与えられる。

$$\frac{F_{Cl-37}}{F_{Cl-35}} = \frac{D_{Cl-35} \frac{C_{Cl-35}}{L}}{D_{Cl-37} \frac{C_{Cl-37}}{L}} = \frac{1}{\alpha} R_H \quad (7.4.3-4)$$

ここで  $R_H$  は高濃度側における  $^{37}\text{Cl}$  と  $^{35}\text{Cl}$  の比率である。また、拡散が初めから定常状態であった場合には、低濃度側にはフラックスの比率 ( $F_{Cl-37}/F_{Cl-35}$ ) に従って  $^{35}\text{Cl}$  と  $^{37}\text{Cl}$  が供給されることになるため、低濃度側における  $^{35}\text{Cl}$  と  $^{37}\text{Cl}$  の比率を  $R_L$  とすると、 $R_L$  は ( $F_{Cl-37}/F_{Cl-35}$ ) に等しくなる。

$$\frac{F_{Cl-37}}{F_{Cl-35}} = R_L = \frac{1}{\alpha} R_H \quad (7.4.3-5)$$

式(7.4.3-5)から、拡散が定常状態であるときには $\alpha$ は低濃度側のClにおける $^{35}\text{Cl}$ と $^{37}\text{Cl}$ の比率に対する高濃度側の $^{35}\text{Cl}$ と $^{37}\text{Cl}$ の比率の比で表される(式(7.4.3-5))。このため、①拡散が定常状態に達した後で、②高濃度側に比べて低濃度側の濃度がゼロと見なせる状態で、高濃度側のセルにおける $^{37}\text{Cl}/^{35}\text{Cl}$ と低濃度側セルにおける $^{37}\text{Cl}/^{35}\text{Cl}$ のデータを取得すれば、 $\alpha$ を求めることができる。

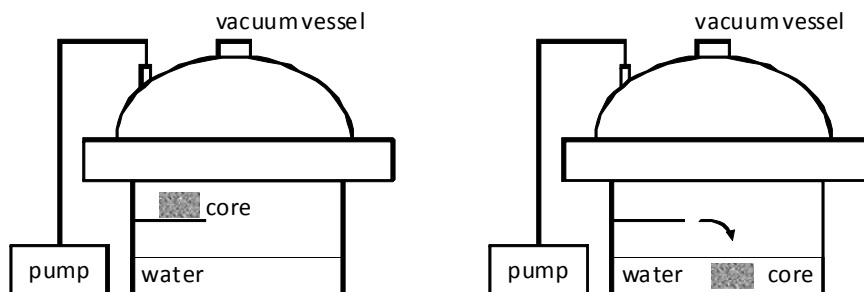
$$\alpha = \frac{R_H}{R_L} \quad (7.4.3-6)$$

しかし、現実的には拡散開始時から定常状態に達しているような拡散はあり得ず、初期の拡散では $^{35}\text{Cl}$ のフラックスが $^{37}\text{Cl}$ のフラックスを上回る非定常状態が生じる。このため、実際に上記の方法を適用するには、計算的に非定常状態の影響を排除するか、実験的に定常状態に達する前の溶液を排除する等の操作が必要である。

Through Diffusion法による拡散試験の手順は以下の通りである。

1) 岩石試料の準備・試料の飽和

岩石試料はコアカッター等を用いて外径5.0cm、厚み1.0cm(または0.5cm)のディスク状に整形した。ディスクの厚みはノギスを用いて試験前に正確な値を測定した。岩石試料は間隙水とイオン強度が同程度になるように調製した $\text{NaNO}_3$ の溶液に浸漬し、この状態で浸漬した容器の内部をロータリーポンプで吸引して岩石間隙が $\text{NaNO}_3$ 溶液で飽和されるようにした(図7.4.3-3)。今回試験に用いたのは天然の岩石であり、間隙水にClやBrイオンが含まれる。拡散試験前にこれらの影響を極力排除するため $\text{NaNO}_3$ 溶液への浸漬を続け、 $\text{NaNO}_3$ 溶液を定期的に交換することで、間隙水中のClやBr濃度を低下させた。イオン強度が間隙水と同程度になるようにしたのは、粘土の膨潤等によるスレーキングを防ぐためである。



※ 水を張った容器に岩石を入れ(まだ水には浸漬しない)、容器全体をポンプで脱気する(左図)。その後岩石コアを水に浸漬し、さらにポンプでの脱気を継続する(右図)。

図 7.4.3-3 岩石間隙を水で飽和させる試験手順の概念図

## 2) アクリル板やセルへの固定

内径 53mm の穴が空いたアクリルの板にエポキシ樹脂系の接着剤を用いて、岩石を固定した。固定が難しい試料については、ディスクをゴムスリーブで巻いて加圧し、固定する拡散セルを用いた。

## 3) 拡散セルの組み立て

上記の操作でアクリル板に固定した岩石を真ん中にして、それを挟み込むように 2 つのセルを合わせて拡散セルを組み立てた。一度  $\text{NaNO}_3$  溶液を両方のセルに入れて物理的な水漏れがないかを確認した。各セルの大きさは 350mL あるいは 500mL のものを使用した。

## 4) 溶液の調製

試験に用いる溶液として、臭化セシウムと塩化セシウムの混合液を用いた。塩化ストロンチウム 6 水和物 375.7g と臭化セシウム 133.2g を 5L の水に溶解させたものを「高濃度側」の試験溶液とした。低濃度側溶液としては純水等を用いるケースもあるが、本試験では圧力差の影響や浸透圧の影響を低減するため、「高濃度側」試験溶液とイオン濃度を合わせた硝酸ナトリウム溶液を「低濃度側」溶液として用いることにした。硝酸ナトリウムは 232g を 5L の純水に溶解させた。これは、硝酸イオンがその後の Br や Cl 同位体比測定分析の前処理に影響を与えにくいためである。

## 5) 試験の開始

低濃度側のセルには重水入りの硝酸ナトリウム溶液を、高濃度側のセルには塩化ストロンチウムと臭化セシウムの混合液を入れ、溶液を入れた時間を試験の開始時間とした。試験開始直後から、高濃度側・低濃度側のセルをスターラーで緩やかに撹拌した。

## 6) サンプルング

所定の時間経過後、低濃度側のセルから少量の試料を抜き取り、ろ過・希釈した後 IC で Cl 濃度を、ICP-MS で Cs・Sr・Br 濃度を定量するためのサンプルとした。また、同じタイミングで「高濃度側」試験溶液についてもサンプルングし、重水測定用のサンプルとした。

## 7) 分析

Cl 濃度は溶液を適切に希釈した後、IC により分析した。高い濃度の  $\text{NO}_3$  中 Cl 濃度を測定することになるが、IC により Cl と  $\text{NO}_3$  のピークが分離可能であることを確認できた。Cs・Sr・Br については ICP-MS により分析した。ICP-MS では共存するイオンの濃度が高くなると、イオン化の効率が落ちカウントが変化する可能性が考えられたため、イオン濃度が 0.01mol/L 以下に低下するように希釈するか、標準試料のイオン濃度をサンプルと合わせたものを調製し、これを用いて検量線を作成のうえ定量した。

b. 結果と考察

Through-Diffusion 法による拡散試験結果を図 7.4.3-4 に示す。図は、低濃度側での濃度と同位体比の時間変化を示している。それぞれ得られた拡散係数と試料の内容について表 7.4.3-1 にまとめる。

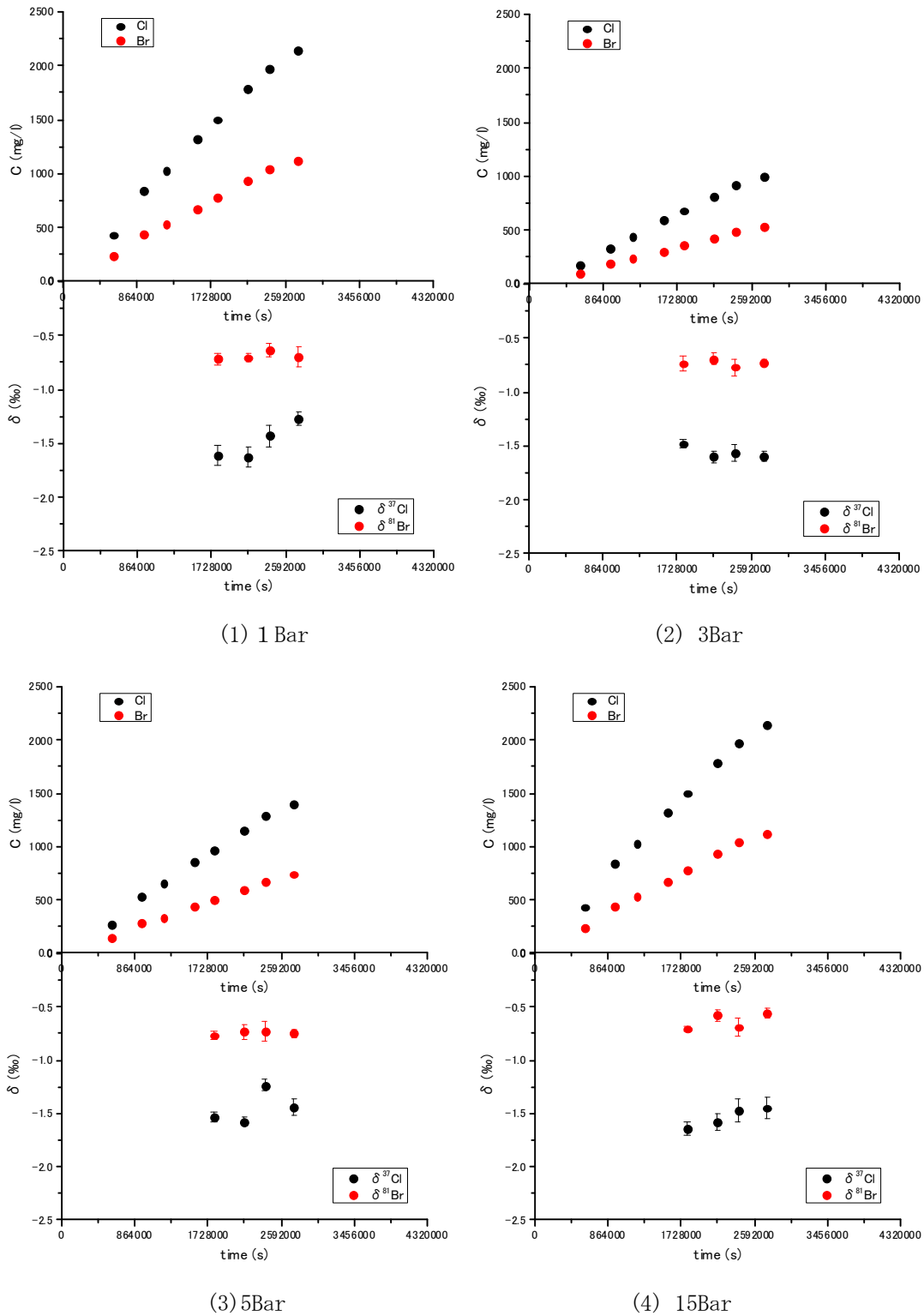
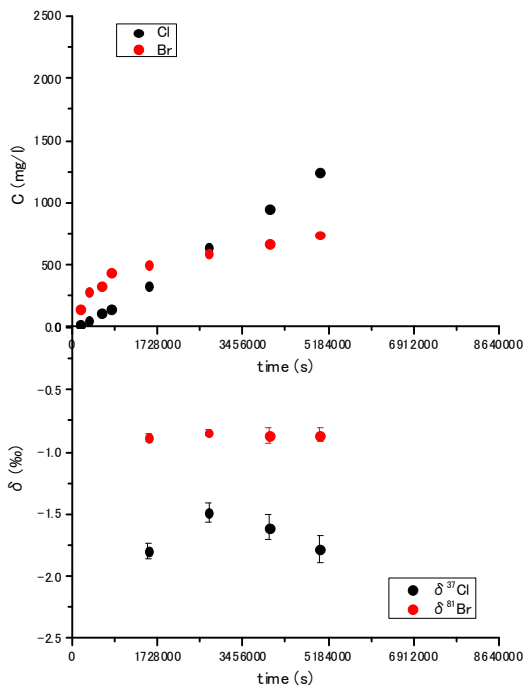
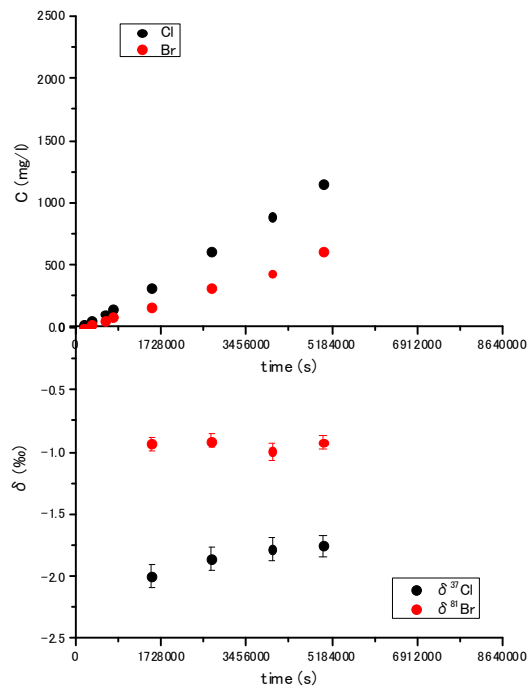


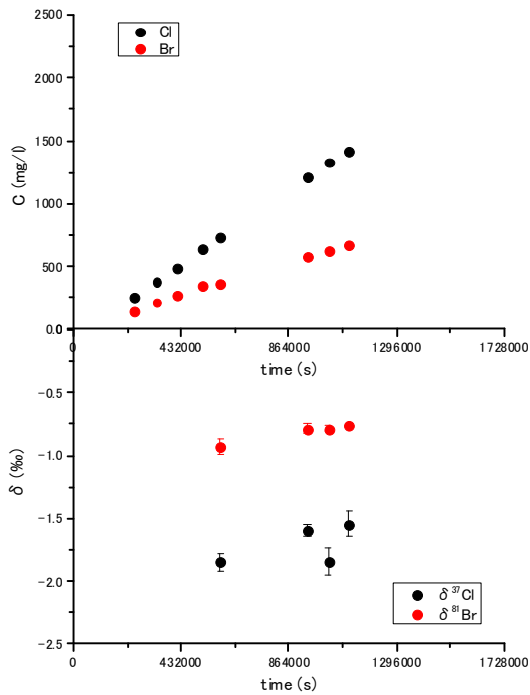
図 7.4.3-4 Through-Diffusion 法による拡散試験結果



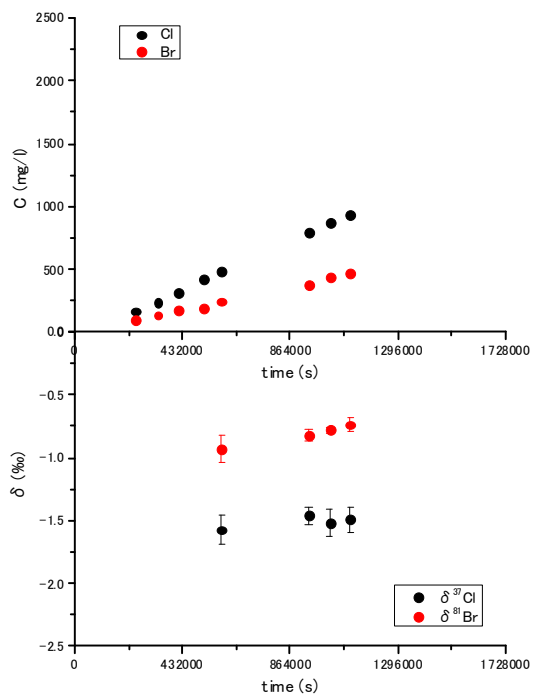
(5) 稚内層 1



(6) 稚内層 2



(7) 声間層



(8) 勇知層

図 7.4.3-4 Through-Diffusion 法による拡散試験結果 (続き)

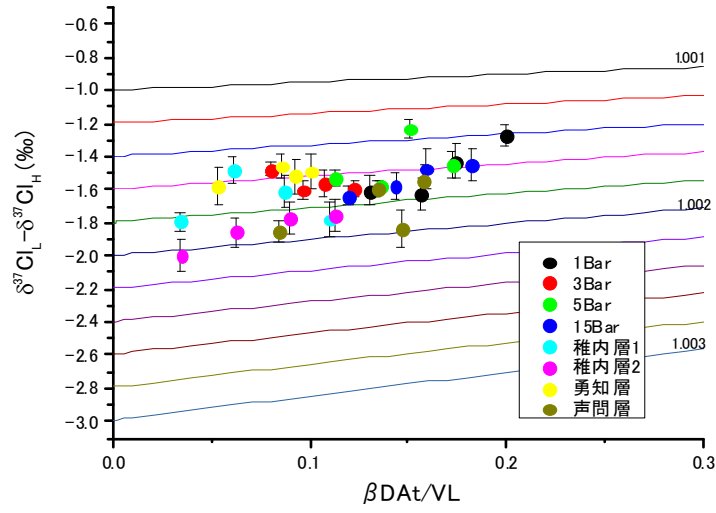


表 7.4.3-1 拡散試験結果

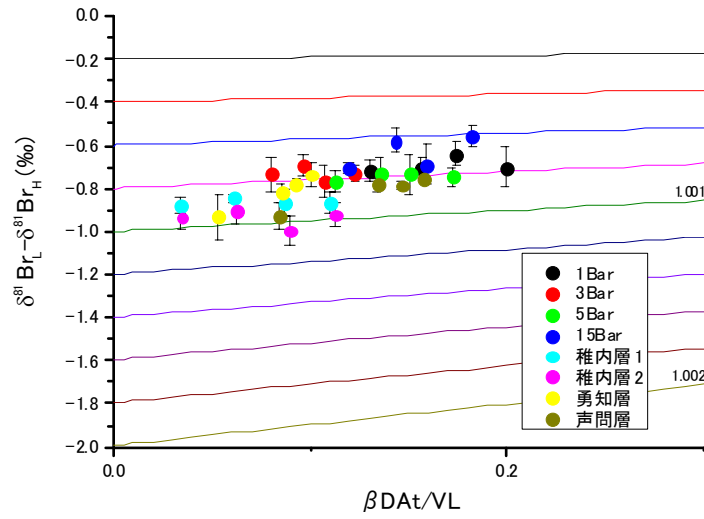
試料名	採取箇所	拡散係数 (m <sup>2</sup> /s)	
		Cl	Br
Ceramic	1Bar	8.5E-11	8.1E-11
Ceramic	3Bar	9.2E-11	7.9E-11
Ceramic	5Bar	5.7E-11	5.0E-11
Ceramic	15Bar	8.0E-11	7.7E-11
稚内層1	HDB-11 深度1008m	2.8E-11	3.3E-11
稚内層2	HDB-11 深度1008m	2.9E-11	3.0E-11
声間層	HCD-3 深度925m	1.8E-10	1.2E-10
勇知層	DD-1 深度1199m	1.2E-10	8.3E-11

拡散試験結果は、稚内層1の試料でややBr濃度の濃度勾配が変化しているが、その他は線形関係になる。濃度変化が大きくなると濃度変化が曲線的になるのは、高濃度側と低濃度側の濃度が近づきフラックスが減少するためである。ClとBrとで同程度の拡散係数となっており、セラミックディスクでは、拡散係数は $5\sim 10 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 、稚内層では $2\sim 3 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 、声間層と勇知層は $1\sim 2 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ となっている。

同位体比も概ね一定となっており、同位体分別はClとBrとではClがBrの倍程度である。これらの同位体分別を濃度の時間辺変化を考慮して評価するために、図7.4.3-5にまとめた。図から、<sup>37</sup>Clの分別は、-1.3~-2.1%程度であり、これは1.0013~1.0021の分別係数に相当する。Ceramicでは分別係数が小さく、岩石試料ではやや大きい傾向にある。<sup>81</sup>Brの分別は、-0.6~-1.1%程度であり、これは1.0006~1.0011の分別係数に相当する。Ceramicでは分別係数が小さく、岩石試料ではやや大きい傾向にある。<sup>37</sup>Clと<sup>81</sup>Brとでは、分別係数が2倍程度異なる結果となっている。このように室内試験から、<sup>37</sup>Clと<sup>81</sup>Brの両方の分別係数を求めることができた。



(1)  $^{37}\text{Cl}$



(2)  $^{81}\text{Br}$

図 7.4.3-5 濃度変化を考慮した同位体分別の標準曲線と実験結果

#### 7.4.3.2 低透水性岩盤における水素/酸素同位体比の分析方法検討

水の水素酸素同位体比は地下水の起源等を明らかにするための情報として有用であるほか、拡散によって同位体分別が起きるため、塩化物イオンや臭化物イオンの同位体比と併せて場の物質移行が拡散支配であることを判断するために有用な指標となりうる。

一般に場の物質移行が拡散支配となるような低透水性の岩盤においては、地下水は岩石間隙水として存在している可能性が高く、任意の地点から液体の状態地下水を採取することは困難であると考えられる。このため、岩石コアをサンプルとして取得しそこから目的とする成分や間隙水そのものを抽出する必要がある。水素酸素同位体比を分析するために間隙水を抽出する方法としては、1次元的な圧縮によって間隙水を抽出する「圧縮抽水法」(Waber and Smellie., 2001)、岩石試料を真空引きして水を蒸気として取り出す方法(Sacchi et al., 2001)、遠心分離による方法(Whelan and Barrow, 1980)、などが挙げられる。このうち、極めて透水性の低い岩石においては、遠心分離法を適用しても間隙水を抽出することはできない。また、水蒸気として抽出する方法については、抽出において同位体分別が起きる可能性がある。圧縮抽水は原理が単純であり、種々の岩石に適用できることが期待できるうえ、間隙水そのものを抽出する手法であることから抽出した間隙水は水素酸素同位体比分析だけでなく、イオン濃度評価にも適用することができる。しかし、圧縮抽水は圧縮圧力とともに抽出される間隙水のイオン濃度が変化する現象が確認されていることから(Nakata et al., 2015)、圧縮圧力とともに水素酸素同位体比が変化する可能性がある。このため、水素酸素同位体比の評価に圧縮抽水を適用するためには、圧縮圧力と同位体比の関係およびそのメカニズムを明らかにしていく必要がある。

上述のように圧縮抽水法は間隙水の抽出において適用性の高い手法であるが、実施に油圧ジャッキ等を組み込んだ特殊な装置が必要とされること、1つの岩石に対して間隙水を抽出するのに1週間程度を要する可能性があること、と言った問題点がある。このため、大規模な調査を実施した場合には、分析よりも圧縮抽水の操作が調査全体の進行を律速してしまう可能性もある。このため、①複数の試料に対して並行して適用可能であり、②比較的安価に実施可能であり、③水素酸素同位体比をある程度の精度で評価可能であるような手法の検討が必要である。

ここでは、上記のようなことを受けて、低透水性岩盤の間隙水に対して水素酸素同位体比を分析できる最適な手法を提案することを目的として検討を実施した。具体的な実施事項については、以下の通りである。

- ① 圧縮抽水における圧縮圧力と抽水された間隙水の水素酸素同位体比の関係を明らかにする
- ② 比較的安価で複数の試料に対して並行で適用できる、間隙水の水素酸素同位体比分析方法あるいはその前処理方法について検討する。具体的には「直接浸漬法」「同位体交換法」「水蒸気直接測定法」を1つの岩石に対して適用し、①の圧縮抽水で得られた水素酸素同位体比

の値と比較する。

③ ①および②の結果から、間隙水の水素酸素同位体比分析に有用と考えられる測定方法あるいはその前処理方法を提案する。

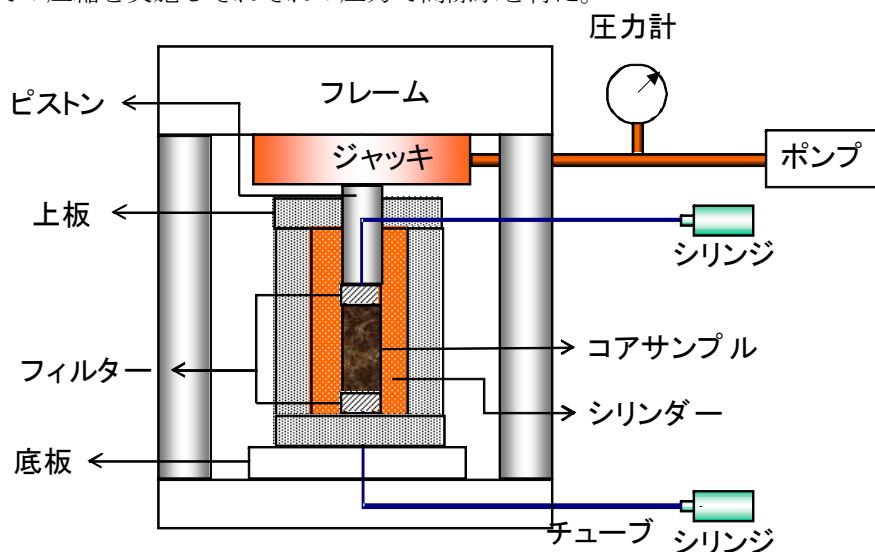
#### (1) 圧縮抽水の圧力と水素酸素同位体比の関係

前述のように圧縮抽水法では、既往の研究において、圧縮圧力の増加とともに抽出される間隙水におけるイオン濃度が変化する現象が観察されており、水素酸素同位体比の値も圧縮圧力に対する依存性がある可能性がある。ここでは2種類の岩石に対して圧縮抽水法を適用し、圧縮圧力と抽出される間隙水の水素酸素同位体比の値の関係を明らかにすることを試みた。

##### a. 試験方法

あるサイトで取得した凝灰岩、および北海道幌延地域で取得した珪質泥岩を圧縮抽水に供した。凝灰岩は地下空洞の孔壁からチェーンソーを用いて切りだし、現場で真空パックして実験室へと移送した。実験室では酸化の影響を受けている可能性がある孔壁側をトリミングした後、再度アルミ製のバックを用いて真空パックし、実験に使用するまで冷蔵庫にて保管した。珪質泥岩については、ボーリングコアを取得する予定である。

上記のブロックやコアは酸化されている可能性がある箇所や掘削水の影響を受けている箇所をトリミングした後、外径が5cmの円筒状になるように整形し、圧縮抽水に供した。圧縮抽水装置の概念図を図7.4.3-6に示す。今回の試験では圧縮圧力と水素酸素同位体比の関係を明らかにするため、圧縮圧力を上昇してその圧力で抽出される間隙水を取得したあと、さらに圧縮圧力を上昇させる「段階圧縮抽水」を実施した。凝灰岩の場合、25、50、75、100、150、200、280、300、400、500MPaでの圧縮を実施しそれぞれの圧力で間隙水を得た。



※ ジャッキで一次的に圧縮された岩石から間隙水が抽出される。抽出された間隙水はフィルター、チューブを通じてシリンジに採取される。

図 7.4.3-6 圧縮抽水装置の概念図

圧縮抽水で得られた間隙水は、Los Gatos Research 社製の水および水蒸気同位体比分析装置（モデル IWA-35-EP）を用いて同位体比を分析した。圧縮抽水で得られた間隙水の測定値と、同様に測定した実験室標準試料の値を比較して、間隙水の水素・酸素同位体比の値を決定した。実験室標準試料の値は、複数の分析機関によって得られた結果を平均して決定した。また、間隙水の起源について考察するための情報となると考えられたため、間隙水における塩化物イオンおよび臭化物イオン濃度について、イオンクロマトグラフィ（IC：メトローム社製コンパクトプロフェッショナル IC881(CO2 サプレッサ付き)）を用いて分析した。

上記のような岩石試料に加えて、間隙水を  $\delta D$  の高い水と交換させた試料についても圧縮抽水を実施した。これは、岩石コアのうち外部の水と交換可能な水を  $\delta D$  の高い水と交換することにより、外部の水と交換できない「閉鎖空隙」からの間隙水の影響をある程度定量的に評価するためである。閉鎖空隙の概念図を図 7.4.3-7 に示した。凝灰岩試料を 5cm の円筒状に整形した後、重水を添加して  $\delta D$  の値を 1100‰とした溶液に浸漬した。溶液における  $\delta D$  の経時変化が観察されなくなるまで重水溶液への浸漬を継続し、圧縮抽水に供する直前まで溶液内にてコアを保管した。浸漬した溶液における  $\delta D$  の変化を図 7.4.3-8 に示した。図からわかるように、溶液における  $\delta D$  の減少は 10 日程度で観察されなくなるが、重水を含む水が閉鎖空隙以外の空隙に拡散するのを確実にするため、さらに 2 週間程度コアを溶液に浸漬して圧縮抽水に供した。

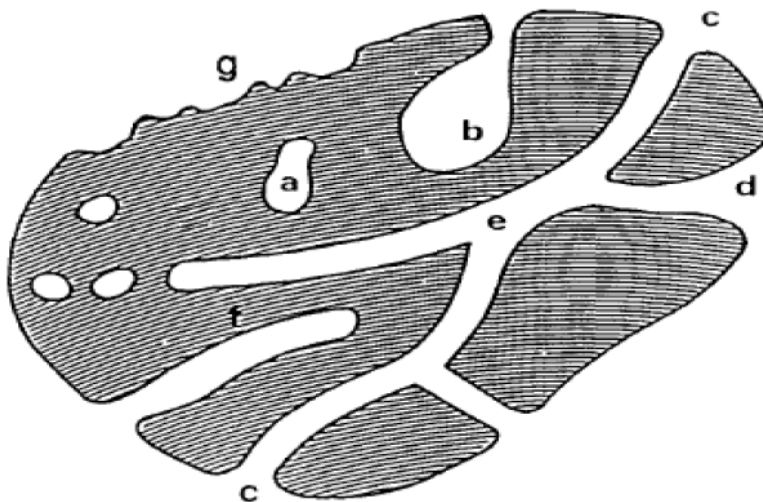
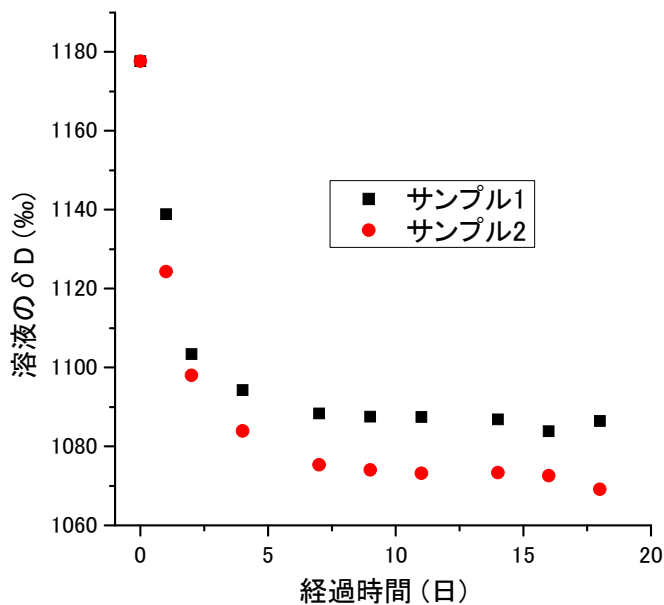


図 7.4.3-7 閉鎖空隙の概念図 (Evuomwan, 2009 に加筆)

(a)閉鎖空隙 (Closed pore) (b)～(f)開放空隙 (Opened pore) を形状によって分類。



※ 再現性を確認するため、サンプル 1・2 二つのサンプルを準備して試験を実施した。10 日間程度で  $\delta D$  の顕著な減少は終了することを確認した。

図 7.4.3-8 重水を含む溶液にコアを浸漬したときの溶液中  $\delta D$  の経時変化

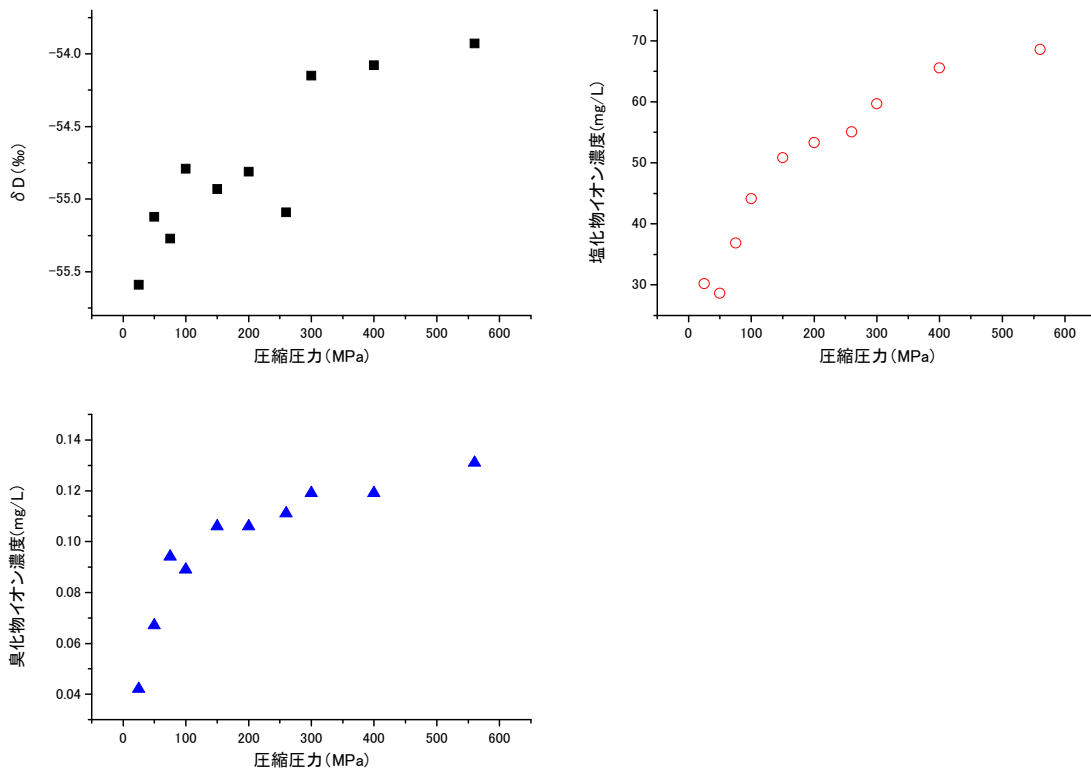
重水を含む溶液に浸漬した後の凝灰岩岩石コアについては、浸漬を行わなかった岩石試料と同様に 25、50、75、100、150、200、280、300、400、500MPa での段階圧縮を実施し、それぞれの圧力で得られた岩石の  $\delta D$  および塩化物イオン濃度を分析した。

#### c. 結果および考察

凝灰岩試料（重水を含む溶液に浸漬しない場合）における段階圧縮抽水の結果を表 7.4.3-2 にまとめた。また、 $\delta D$ 、塩化物・臭化物イオン濃度と圧縮圧力の関係を図 7.4.3-9 に示した。図から分かるように、圧縮圧力が上昇すると、塩化物イオンおよび臭化物イオンの濃度が上昇し、同様に水素同位体比の値が上昇した。酸素同位体比においてはわずかに上昇する傾向が見られるが、変化がわずかであり、顕著な違いではなかった。50MPa で抽出された間隙水と比較して、500MPa の抽出で得られた間隙水では、塩化物イオンおよび臭化物イオンの濃度が倍程度になっていることがわかった。この近辺で得られる地下水の塩化物イオン濃度は 30ppm 程度であり、低圧（50～75MPa）の圧縮で得られた間隙水における塩化物イオン濃度と近い値である。周辺の地下水における塩化物イオン濃度が低圧の圧縮で得られた間隙水と近いこと、圧縮圧力の上昇とともに塩化物イオン濃度が倍程度にまで上昇することから、岩石コアのうち水が流れにくい箇所においては塩化物イオン・臭化物イオン・および水素酸素同位体比が高い水が存在しており、これが高圧で抽出されたのではないかと推察された。

表 7.4.3-2 浸漬前コアを圧縮抽水して得られた間隙水の塩化物・臭化物イオン濃度と水素酸素同位体比

圧縮圧力 (MPa)	抽水した液量 (mL)	Cl (mg/L)	Br (mg/L)	$\delta D$ (‰)	$\delta^{18}O$ (‰)
25	24.8	30.8	0.04	-55.6	-8.9
50	13.2	30.2	0.06	-55.1	-8.9
75	6.8	38.3	0.07	-55.3	-9.0
100	1.9	44.7	0.08	-54.8	-9.0
150	5.2	49.6	0.09	-54.9	-9.1
200	3.3	53.4	0.09	-54.8	-9.0
260	1.4	55.8	0.09	-55.1	-8.9
300	1.2	60.5	0.10	-54.1	-9.2
400	1.8	66.0	0.10	-54.1	-9.0
500	1.9	70.3	0.10	-53.9	-9.0



※ 左上：圧力と  $\delta D$  の関係、右上：圧縮圧力と塩化物イオン濃度の関係、左下：圧縮圧力と臭化物イオン濃度の関係

図 7.4.3-9 圧縮圧力と  $\delta D$ 、塩化物イオン濃度、臭化物イオン濃度の関係

上記の推察について確認するため、外部と交換できる空隙の水と外部と交換できないような水が、どの圧力でどの程度の混合率で出てくるのかを確認するための試験を実施した。まず岩石コアを  $\delta D$  が高い水に浸漬し、拡散によって水が拡がることのできる空隙を  $\delta D$  が高い水で交換した岩石コアを作製した。 $\delta D$  が高い水に浸漬することによって、拡散に関与するような空隙（つまり閉鎖空隙でない空隙）には拡散によって  $\delta D$  が高い水が拡がり、平衡状態ではコアを浸漬している水と拡散に関与する空隙の間隙水における  $\delta D$  の値は等しくなると考えられる。このため、 $\delta D$  の値が浸漬時の溶液から低下している場合には、閉鎖空隙から抽出された間隙水が混入したものと考えることができる。

$\delta D$  の高い水に浸漬後、圧縮抽水したときの圧力と  $\delta D$  値の関係を図 7.4.3-10 に示した。図から分かるように、 $\delta D$  の値は圧縮圧力の増加とともに減少しており、上述の浸漬前コアの圧縮抽水における  $\delta D$ 、塩化物イオン濃度、臭化物イオン濃度の挙動と対になるような挙動を示している。また、岩石を圧縮抽水して得られる間隙水において、閉鎖空隙の混合割合  $x$  は以下の式で算出することができる。

$$D_p \times x + D_s \times (1-x) = D_{sq} \quad x = \frac{D_{sq} - D_s}{D_p - D_s}$$

ここで、 $D_p$ ：閉鎖空隙の間隙水における  $\delta D$  の値、 $x$ ：閉鎖空隙の間隙水混入割合、 $D_s$ ：コアを浸漬した溶液における  $\delta D$  の値、 $D_{sq}$ ：圧縮抽水で得られた間隙水の  $\delta D$  の値、である。一般に地下水における  $\delta D$  の値は海水由来の地下水で最も大きく、0‰程度である。一方、間隙水の  $\delta D$  の値は溶液に浸漬しない場合の圧縮抽水における  $\delta D$  の値から、-55～-54‰程度の値であると考えられる。このため、閉鎖空隙における  $\delta D$  の値は-55～0‰の範囲に存在すると考えられる。つまり、閉鎖空隙における  $\delta D$  の絶対値は溶液における  $\delta D$  の絶対値（1100 程度）に比べてかなり小さなものであり、式における  $D_p - D_s$  の値は  $-D_s$  に置き換えても値に大きな影響はないと考えられる。以上のことから、ある圧力で抽出された間隙水における閉鎖空隙の間隙水の混入割合  $x$  は以下の式で近似することができると考えられる。

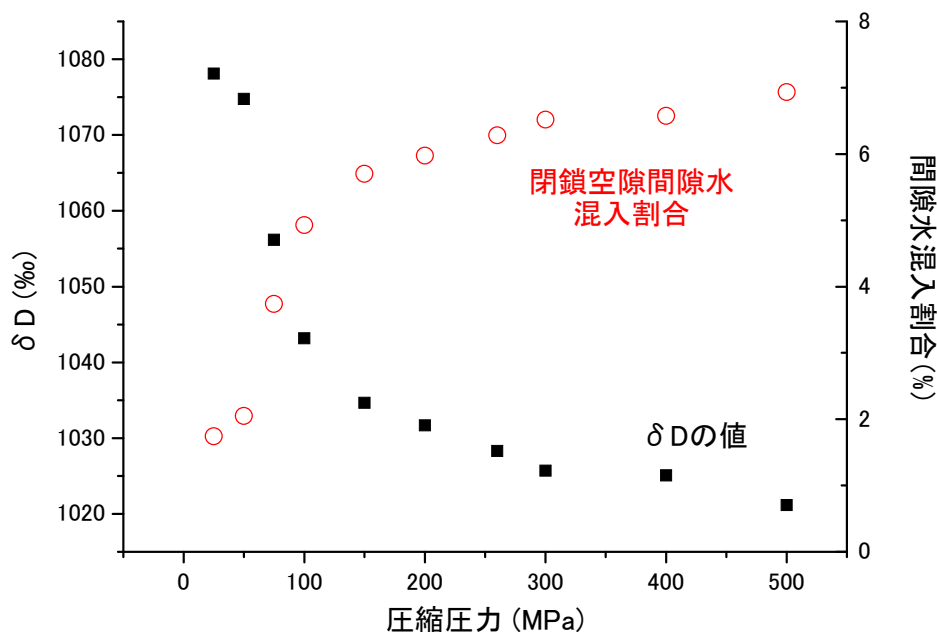
$$x = \frac{D_{sq} - D_s}{D_p - D_s} \approx \frac{D_{sq} - D_s}{-D_s}$$

圧縮圧力と混合率の関係を  $\delta D$  値とともに図 7.4.3-10 に示した（図中の  $x$  はパーセントで示している）。図から分かるように、閉鎖空隙の混入率は圧縮圧力の増加とともに増加することが分かる。このため、閉鎖空隙に塩分濃度が高く水素酸素同位体比が高い水が閉じこめられていた場合、定性的ではあるが圧縮抽水の結果を説明できる。

上記の結果から、圧縮抽水によって得られた間隙水を水素酸素同位体比の分析に用いた場合、抽出された間隙水の水素酸素同位体比は圧縮圧力に対して依存性を持つ場合がある。これは、1



つの岩石試料においても中に存在する間隙の流動性の違い（あるいは閉鎖空隙であるか開放した空隙であるかの違い）によって水素酸素同位体比が異なることがあり、圧縮圧力によって流動性の異なる間隙水が異なる比率で抽出されることで説明が可能な現象であることが分かった。このため、間隙水の水素酸素同位体比評価に圧縮抽水を適用する場合には、流動状態の異なる空隙から間隙水を抽出している可能性を考慮して評価を進める必要がある。前述のように圧縮抽水は適用できる岩石の種類が多いうえ、間隙水そのものを抽出できるためその間隙水を用いて溶存イオン濃度も評価することが出来るという利点を持つ。このため、低透水性岩盤における地下水の評価においては、最も適用する可能性が高い技術の一つであると考えられる。しかし、核種移行に関わる地下水は拡散等に関わる地下水であり、閉鎖空隙の間隙水は核種移行挙動等に関与しない可能性が高い。一方で、上述のように圧縮抽水によって閉鎖空隙の間隙水を抽出してしまう可能性がある。このため、圧縮抽水で得られた間隙水から評価された水素酸素同位体比は、後述の他の手法によってクロスチェックする方が良いと考えられる。



※ 左上：圧力と  $\delta D$  の関係、右上：圧縮圧力と塩化物イオン濃度の関係、左下：圧縮圧力と臭化物イオン濃度の関係

図 7.4.3-10 浸漬後岩石試料における圧縮圧力と  $\delta D$  および閉鎖空隙混入割合の関係

(2) 「直接浸漬法」「同位体交換法」の適用

前述のように圧縮抽水法は岩石の間隙水を抽出するのに有用な方法であるが、閉鎖空隙から間隙水を抽出しその影響を受けている可能性があるため何かしらの方法で値のクロスチェックをする必要がある。また、コアサンプルの数量が多い場合、抽水装置の製造など初期費用を要するうえ、圧縮抽水で全ての試料を処理するためには時間がかかるため、安価でかつ多くの岩石試料について並行で処理できるような手法の開発が必要であると考えられる。

ここでは岩石試料を同位体比および量が既知の水に浸漬して、リーチングにより岩石間隙水の水素酸素同位体比を抽出する「直接浸漬法」についてその適用性を検討した。直接浸漬法の概念図を図7.4.3-11に示した。

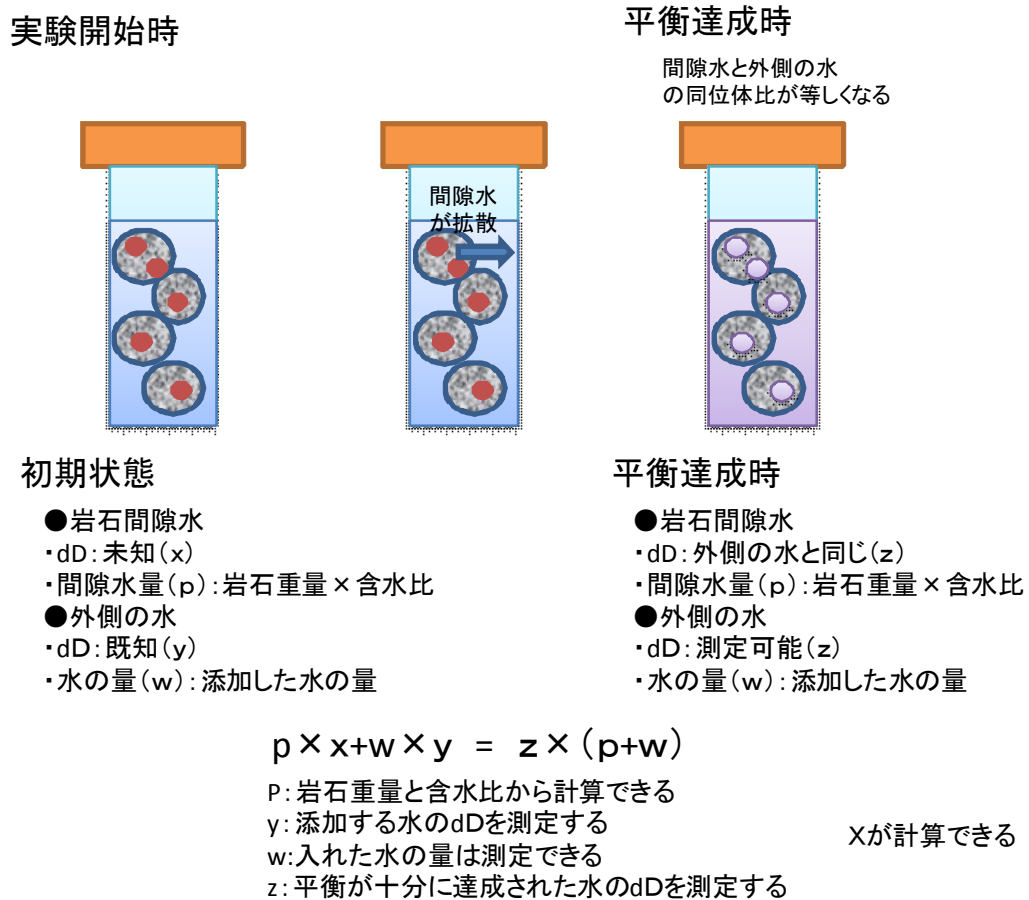


図 7.4.3-11 直接浸漬法の概念図

a. 試験方法

岩石は 7.4.3.2 (1) で記載した凝灰岩を使用した。凝灰岩のブロックをハンマーで粉碎し、1～2cmの塊になるようにした。50mLのプリプロピレン製遠沈管に約25g程度の岩石を入れ、予め水素酸素同位体比が分かっている水を岩石が完全に浸るように入れ(約30mL程度)、このとき添

加した水の量を記録した。1日に1回程度ハンドシェイクしながら、岩石と同位体比既知の水を接触させた。所定の時間（最大で21日）経過後、岩石周辺の溶液を1mL採取して、採取した水の水素酸素同位体比を分析した。

b. 結果と考察

図 7.4.3-12 には岩石を浸漬した溶液における水素酸素同位体比の経時変化を示した。浸漬した溶液は実験室で作製した純水であり、水素酸素同位体比はそれぞれ $-60.7\text{‰}$ 、 $-9.25\text{‰}$ であった。圧縮抽水で得られた凝灰岩の水素酸素同位体比の値はそれぞれ $-55.6\sim-53.9\text{‰}$ および $-9.2\sim-8.9\text{‰}$ であったが、岩石を浸漬した純水における水素同位体比の値は初期の純水と岩石間隙水の中間の値へと変化していることがわかる。一方酸素同位体比は圧縮抽水で得られた間隙水と純水の混合よりもさらに低い値を示し、14日目で大きく値が減少する様子が観察された。

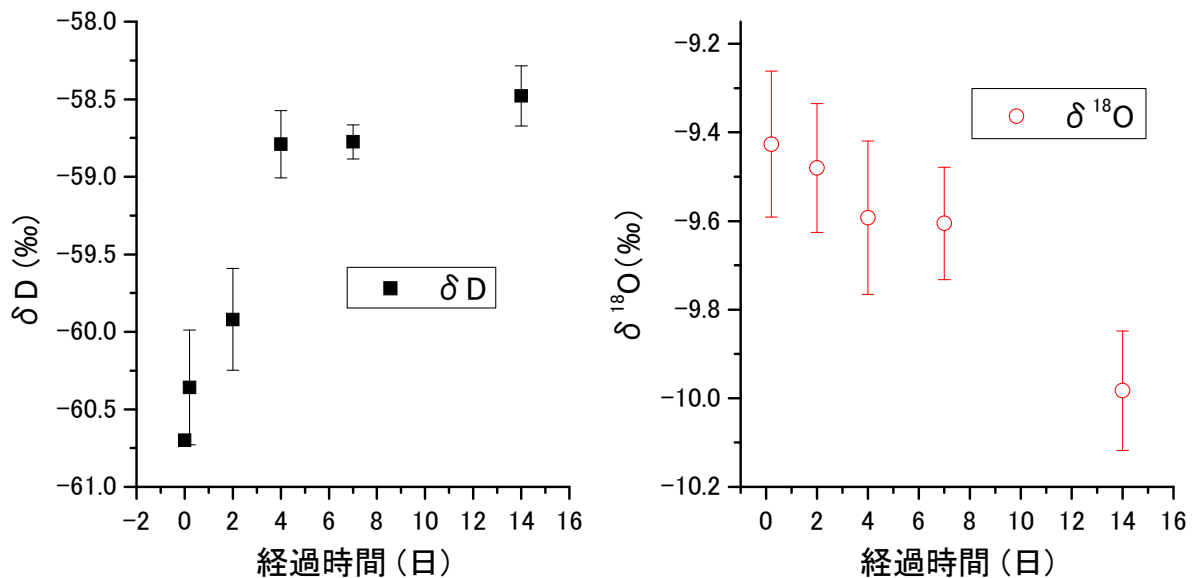


図 7.4.3-12 直接浸漬法における岩石を浸漬した溶液の水素酸素同位体比の経時変化  
(左：水素同位体比の経時変化、右：酸素同位体比の経時変化)

上記の測定値を使って、間隙水の値を算出した結果を図 7.4.3-13 および図 7.4.3-14 に示す。図で示している値の範囲は測定における誤差が間隙水の計算値に伝搬したときの値の範囲を示している。また、図中の横軸に並行な線で挟まれた範囲は圧縮抽水による水素酸素同位体比の範囲を示している。水素同位体比については浸漬開始後1週間程度で評価した値は圧縮抽水のそれと近くなった。一方で測定誤差の伝搬により、間隙水の評価値の範囲は1‰程度の幅を持つてしまうことがわかる。試験経過後14日目にやや同位体比が小さく評価されている理由については現在のところ類推できる材料がない。また、酸素同位体比についても浸漬7日目の評価値は圧縮抽水

で評価された値と近い値を示したが値のばらつきが大きく、評価値として 1‰程度の範囲を持つことが分かった。

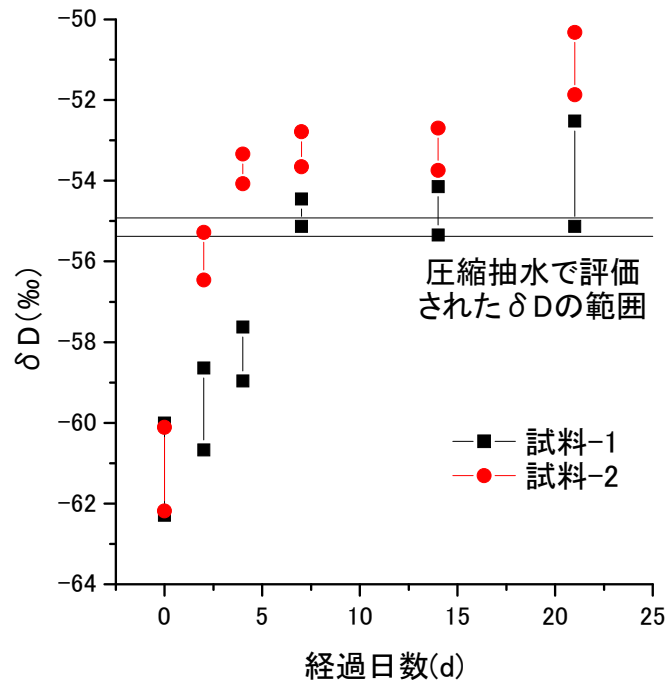


図 7.4.3-13 直接浸漬法における岩石を浸漬した溶液の水素同位体比の経時変化

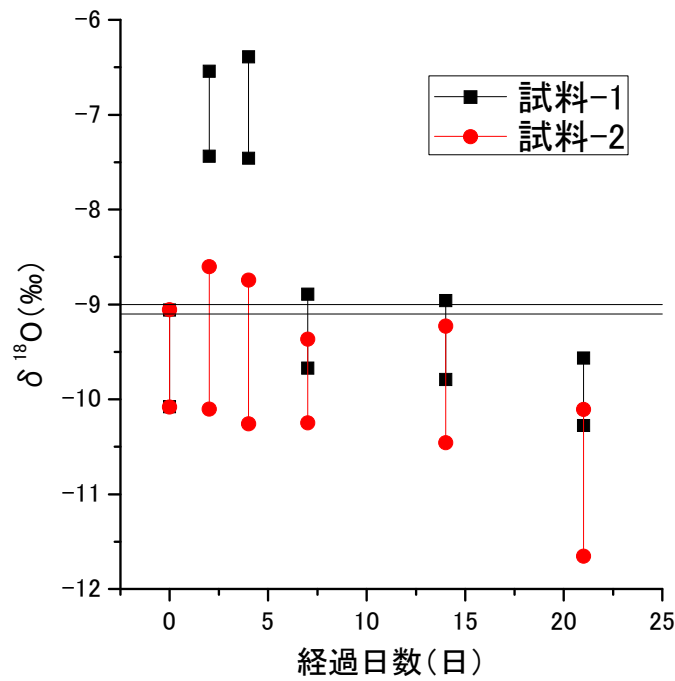


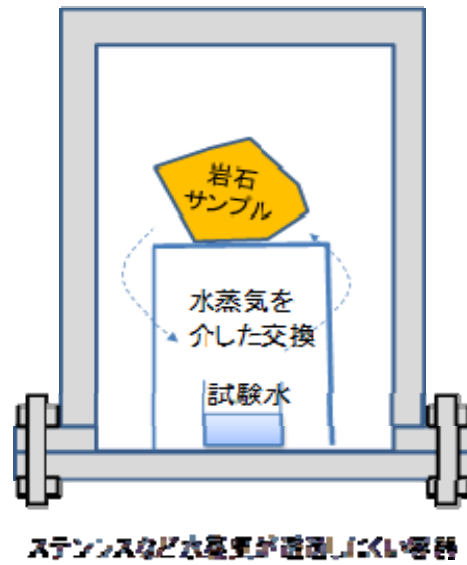
図 7.4.3-14 直接浸漬法における岩石を浸漬した溶液の酸素同位体比の経時変化

以上のように、凝灰岩に直接浸漬法を適用したところ、圧縮抽水で得られた値と直接浸漬法で得られた値はお互い近い値を示したことから相補的に、直接浸漬法によって間隙水の水素酸素同位体比を評価できる可能性があることを示すことができた。しかし、分析誤差が伝搬することにより評価値はある範囲を持ち、水素同位体比、酸素同位体比共に 1%程度の幅を持つことが分かった。特に酸素同位体比については分析の精度について確認するとともに、再現性を確認し、評価できる値の範囲がどの程度になるのかを確認する必要がある。直接浸漬法は粗く粉碎した岩石を水に浸漬するだけの単純な方法であり、適用範囲も広く、複数のサンプルを並行して処理するのもに適した方法であると考えられる。また、分析装置は一般的に塩分の影響を避けることが望ましいが、岩石を塩分を含まない水に浸漬することで塩分の影響を低減することも期待できる。しかしながら、上記のように値の評価値が幅を持つ、ばらつきが大きいなどの短所をもつ可能性がある。また、14日を超える浸漬によって圧縮抽水で評価された間隙水の値と、直接浸漬法で評価された値のずれが大きくなる現象も観察された。これについては、岩石の長時間の浸漬により本質的に水素や酸素同位体比がずれる反応等が起きている可能性も否定はできない。再現性について確認するとともに、種々の岩石において適用事例を増やし同様の傾向が観察されるかを確認していく必要があると考えられる。

### (3) 「同位体交換法」の適用

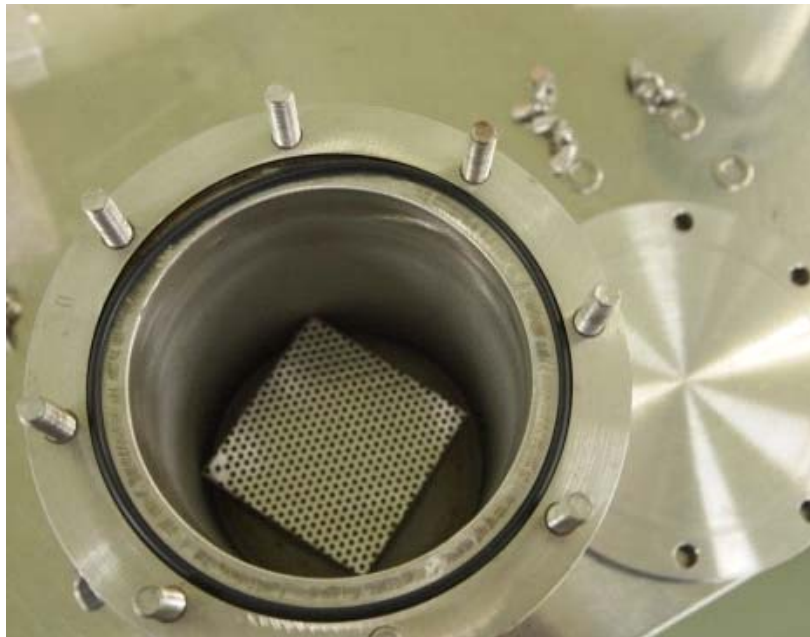
同位体交換法は密閉された容器に岩石と同位体比既知の水（試料水）をいれ、水蒸気を介した交換により間隙水の情報を試料水に取り出す方法である（概念図を図 7.4.3-15）に示した）。この方法はハイデルベルグ大学で開発され（Azu, 1999）、すでにスイスモンテリサイトの岩石に対して適用性が確認されている。また、電力中央研究所においても、同位体交換法の条件最適化について検討しており（中田ほか, 2007）、同位体交換法を実施するにはある程度の間隙水の量を確保することが重要であることを示した。

現在までに適用された同位体交換法は強固なステンレス容器を用いたものが多く（図 7.4.3-16）容器の個数によって処理できる試料数が制限されていた。また、ステンレス容器は一般的に高価であり、重量もあるため、取り扱いがしにくいという欠点もある。ここでは、より簡易に同位体交換法ができる試験系について検討した、検討した試験系を用いて先述の凝灰岩に対して同位体交換法を適用し、凝灰岩の間隙水における水素酸素同位体比評価を試みた。



※ 間隙水の同位体比が未知の岩石試料と同位体比・水量が既知の試験水をステンレス容器等に密封する。水蒸気を介して間隙水と試験水の交換反応が起こり、間隙水の情報試験水に抽出される。

図 7.4.3-15 同位体交換法の試験系概念図



※ 同位体交換法に用いる容器は水蒸気が透過しにくいため、ゴムパッキンを備えたステンレス容器であることが多かった。堅牢な作りで水蒸気は透過しにくいという利点をもつ一方で、高価で重いため扱いがしにくいという欠点もある。

図 7.4.3-16 従来の同位体交換法用試験容器

#### a. 試験系の確立と条件の最適化

同位体交換法では、密閉された空間に岩石と試料水を閉じこめる。水蒸気が試験系の外に漏出しなければ、試験が成立する。このため試験系は水蒸気が漏出しない範囲で、できるだけ簡易かつ安価なものを構築することが望ましい。ここでは、ディスポーザブルのシャーレや水蒸気を通過させにくいアルミバックを用いて、水蒸気が透過しにくい密閉空間を形成することを試みた。まず予備的な試験として、水と水との交換反応について、4つの条件で交換反応試験を実施した。1番目の条件では、分割シャーレを用い、それぞれ仕切られたスペースに同位体比の異なる水をいれ、フタをした。水蒸気が試験系の外にでることを防ぐため、フタをした分割シャーレをアルミバックに入れ、クローサーを使って密閉した。分割シャーレの1つのスペースに対し、それぞれ10mLの同位体比の異なる水を入れた。条件-2、3では同じ分割シャーレを用いて入れる溶液の量をそれぞれ5mLおよび2mLとした。また、条件4では小型の容器を2つアルミバック内に封入し、液量は2mLとした。水-水間の交換試験には、天然で得られる試料の中では重い同位体比を持つ海洋深層水と、比較的軽い同位体比を持つカナダで採取された氷河から採取したミネラルウォーターを用いた。これら2つの水は、日本で採取される地下水を十分にカバーするような広い範囲に存在しており、これら試料で交換が確認できれば日本で採取されるほぼ全ての地下水に対してこの手法が適用可能であることが確認できると期待されるためである。それぞれの条件について各5つの試料を準備した。封入から1・3・7・10・14日後にアルミバックから取り出し、海洋深層水・氷河水それぞれの側から水を採取して水素酸素同位体比を分析した。同位体比の分析においては、標準試料との比較による絶対値の決定は実施しておらず、海洋深層水・氷河水との相対的な値を比較の対象としている。このため、以下の水素酸素同位体比は絶対値を補正したものではない。また、上記の交換試験は室温を20℃に制御した部屋の中で実施した。

図 7.4.3-17～図 7.4.3-20 にはそれぞれの条件における水素酸素同位体比の経時変化を示した。図から分かるように、容器を密閉してから日数が経過するとともに、それぞれの水における同位体比はそれぞれの水における同位体比の平均値へと近づいていく。条件1・2・3では7～14日経過後に2種類の水における同位体比はそれぞれの試験前の水の同位体比平均値とほとんど一致した。このことから、シャーレとアルミバックを組み合わせることにより、ステンレス等の容器を使わなくても同位体交換法が実施できることが確認された。

水の量の影響について観察するため、条件1～3を比較すると、条件3においては7日程度でそれぞれの水の同位体比は平均値とほぼ等しくなるのに対して、条件2では10日間、条件1では14日間の時間を要していることが分かる。液量が2～10mLの範囲では十分な時間を確保すれば密閉した2種類の水の水素酸素同位体比はそれぞれの平均値に近づくことが示されているため、2～10mLの液量の範囲で液量は少ない方が試験時間を短縮することが可能であると考えられる。こ

のため、シャーレとアルミバックを用いた試験では溶液量あるいは岩石に含まれる水の量を 2～10mL に調整して試験を実施することにした。

また、液量は同じ 2mL で分割シャーレと小型容器 2 つを使った場合（条件 3 と 4）を比較すると、小型容器 2 つにそれぞれ溶液を入れた場合 14 日経過後も 2 つの溶液の水素酸素同位体比は等しくなっていないことが分かる。このように、水-水の同位体交換において、同位体交換の平衡を速く達成するには、できるだけ狭い空間に表面積を広くとった状態で 2 つの水を密閉することが重要であることがわかる。このため、岩石と試験水との同位体交換においても、可能な限り狭い空間に水や岩石の表面積をできるだけ確保した状態で、岩石と試験水を密閉することが、同位体交換法の平衡を速く達成するために有効であると考えられる。

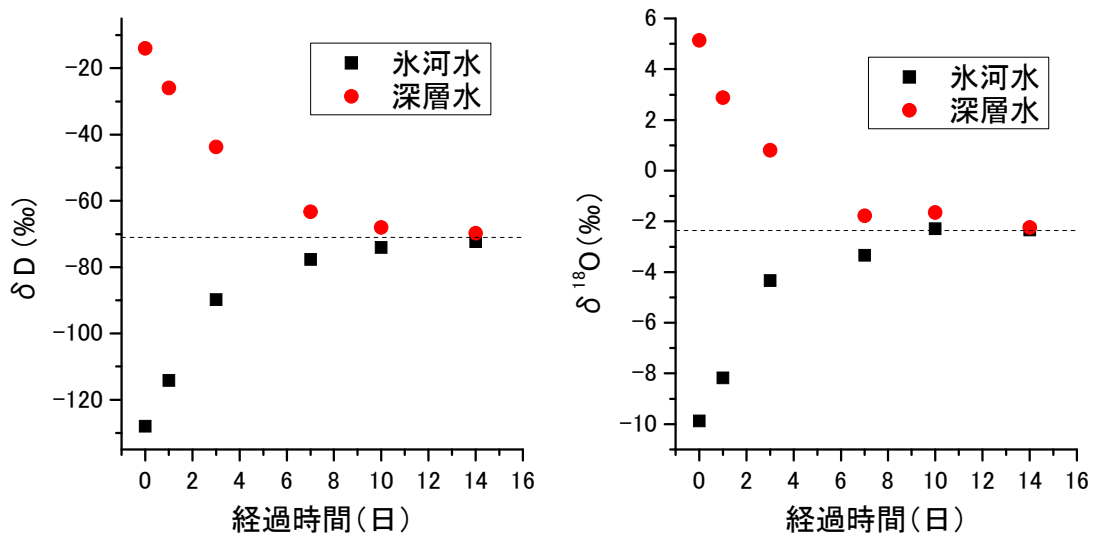


図 7.4.3-17 水-水間の同位体交換法における水素酸素同位体比の経時変化（条件 1）

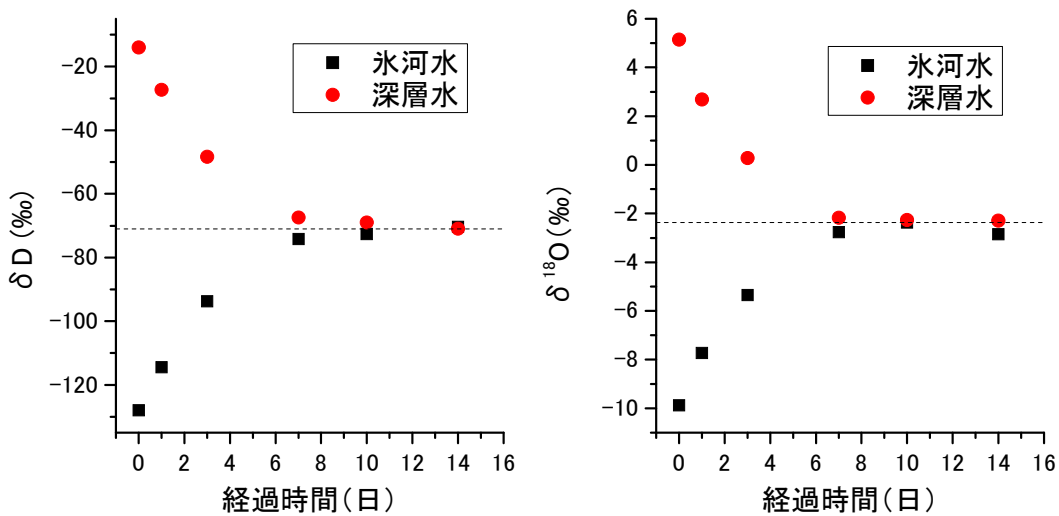


図 7.4.3-18 水-水間の同位体交換法における水素酸素同位体比の経時変化（条件 2）



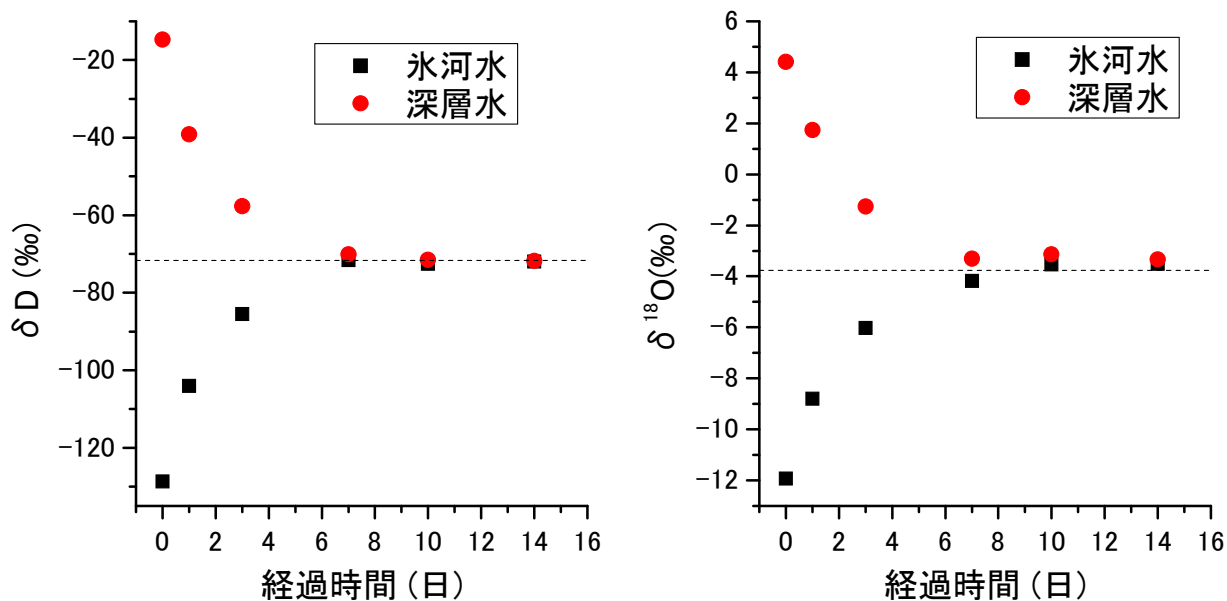


図 7.4.3-19 水-水間の同位体交換法における水素酸素同位体比の経時変化 (条件 3)

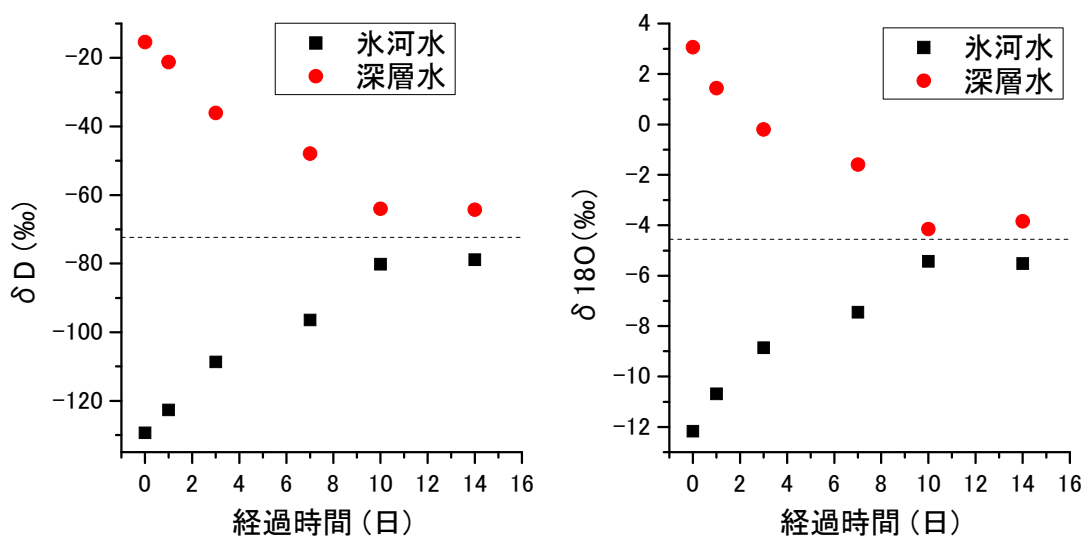


図 7.4.3-20 水-水間の同位体交換法における水素酸素同位体比の経時変化 (条件 2)

b. 実岩石試料への適用

上記のように水-水間の同位体交換試験により、岩石-水間での同位体交換法の試験系・条件について、最適なものを推察するための情報を得ることができた。水-水間の試験結果をもとにして、水-岩石間の試験については、以下のように条件を設定した。①試験容器として分割シャーレとアルミバックの組み合わせを利用する、②間隙水の量と試験水の量はほぼ等量になるように調整し2-10mLの間に設定する、③試験期間は10日以上を確保する。実岩石への適用試験の手順を以下

に示す。

#### 1) 岩石の整形

凝灰岩の岩石をカッターで切断し、分割シャーレに収まるような半月状の形状にした。整形した岩石は試験に使用するまで、間隙水の蒸発を防ぐためアルミバックに真空パックした。その際一部の岩石試料を取り分け、110℃で48時間以上乾燥させて乾燥前後の質量変化から試験対象の凝灰岩における含水比を評価した。

#### 2) 試験水の準備

試験水は2種類を準備し、それぞれの交換試験の結果から凝灰岩間隙水の水素酸素同位体比を評価した。準備した試験水は前述の海洋深層水および溶出した氷河を採取したと記載されているミネラルウォーターである。

#### 3) 試験の実施

半月状に整形した岩石を分割シャーレの片側に、試験水4mLを分割シャーレのもう片側にいれ、分割シャーレのふたをした(図7.4.3-21に分割シャーレの写真を示した)。上述の含水比分析の結果から含水比が0.37程度であることがわかったため、4gの間隙水量を確保するために岩石は11g程度になるように選定してシャーレに入れた。フタをしたシャーレをアルミバックに入れアルミバックの口を、クリップを使って閉鎖した。

#### 4) サンプルの取得と分析

上記のようなサンプルを1つの条件(試験水2種類のため2条件)合計10個準備し、1・2・4・7・14日後に2個ずつを開封した。シャーレごと重量を測定した後、試験水の一部を水素酸素同位体比分析用に確保し、さらに試験水を拭き取ったあとの岩石とシャーレの重量を測定することによって試験後の岩石の重量を評価した。水素酸素同位体比は前述のLGR社水素酸素同位体比分析装置を用いて実施した。



※ 実際の岩石試料は半月状に整形したディスク状のものを用いた

図 7.4.3-21 岩石試料および試験水を入れた分割シャーレの様子

図 7.4.3-22 および図 7.4.3-23 に試験水が氷河水および海洋深層水の場合の試験水における水素酸素同位体比の経時変化を示した。

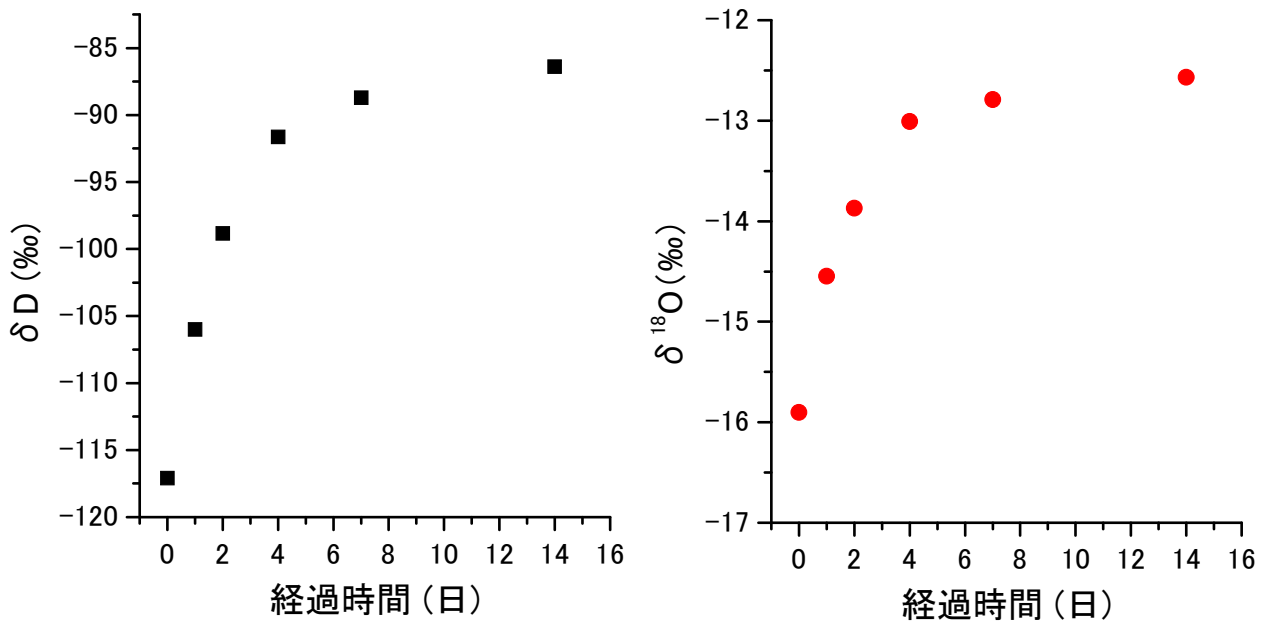


図 7.4.3-22 同位体交換法における試験水の水素酸素同位体比経時変化 (氷河水)  
(左図：水素同位体比 右図：酸素同位体比の経時変化)

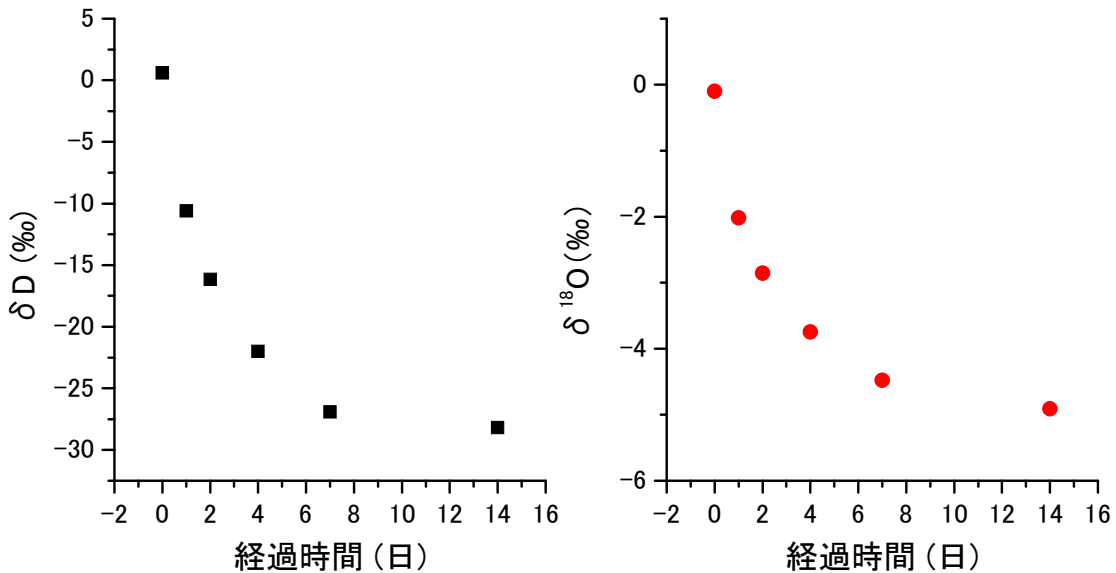


図 7.4.3-23 同位体交換法における試験水の水素酸素同位体比経時変化 (海洋深層水)  
(左図：水素同位体比 右図：酸素同位体比の経時変化)

前述の圧縮抽水や直接浸漬法の結果から、間隙水の水素同位体比は-56~-54‰、酸素同位体比は-9.0‰程度の値であると考えられる。試験水が氷河水・海洋深層水の場合ともに時間の経過とともに試験水の同位体比が変化し岩石間隙水の値に近づいていることがわかる。また、経時変化を見ると4日までの同位体比の変化が急激なのに対して、4日以降は変化が緩やかになっており反応が平衡に近づいていることが示唆された。7日から14日までの試験水における水素酸素同位体比の値もわずかに変化していることから、これだけのデータから14日が試験対象とした凝灰岩の平衡に十分な時間とは言い切れないが、変化が緩やかになっていることから平衡に近いと考え、7日以降のデータから、凝灰岩間隙水における水素酸素同位体比の値を算出した。間隙水の値の算出においては、下記の式を用いた。式では例として水素同位体比について記載しているが、酸素同位体比でも同様である。

$$\delta D_{TB} \times W_{TW} + x \times W_{PW} = \delta D_{TA} \times (W_{TW} + W_{PW})$$

$$x = \frac{\delta D_{TA} \times (W_{TW} + W_{PW}) - \delta D_{TB} \times W_{TW}}{W_{PW}}$$

ここで  $\delta D_{TB}$ 、 $\delta D_{TA}$ ：交換試験前および後の試験水の水素同位体比 (‰)、 $x$ ：交換試験前の岩石間隙水における水素同位体比 (‰)、 $W_{TW}$ ：試験水の重量 (g)、 $W_{PW}$ ：乾燥前後の重量差から算出した含水比を用いて計算した間隙水量 (g)、である。

評価した結果を表 7.4.3-3 に示した。試験は繰り返し回数として2回の試験を実施しており、表には2回の評価結果を示した。表から分かるように、評価された間隙水の値は氷河水を試験水とした場合も、海洋深層水を試験水とした場合も同程度の値となり、水素同位体比が-61‰程度、酸素同位体比が-10‰程度となった。これは圧縮抽水で評価された値と比較して有意に小さな値である。海洋深層水・氷河水二つの試料水を用いて、同程度の間隙水同位体比が得られたことから、この結果はミス等に起因するものではなく、同位体交換法による間隙水の評価値は圧縮抽水の場合とくらべて有意に小さくなる傾向があると考えられる。この原因として、①交換法で評価できる間隙水の値が本質的に圧縮抽水で評価できる値と異なっている可能性があること、②今回は水の量を乾燥重量によって算出しており拡散によって交換可能な水と比べて乾燥重量で評価される水の量が少ない可能性があること（例えば粘土の層間水など）、が挙げられる。今後再現性等を確認するとともに、交換可能な間隙水の量の評価を加えて、さらに正確な間隙水の値の評価を目指す。

また、表において同じ交換期間の試料について2つの試料の水素同位体比を比較すると、試料水分析値の差はわずかである（1以下程度：分析のばらつきより小さい）のに、最終的な間隙水の評価値は氷河水では4‰程度になっている。これは、初期の間隙水と試験水の水素酸素同位体比の値が大きく離れていた場合、誤差が大きく伝搬するためである。海洋深層水を試験水として

用いた場合には、誤差の伝搬は大きくない。誤差の伝搬を小さく抑えるために、初期の間隙水と大きく値が異なる試験水を用いることが重要であることがわかる。

表 7.4.3-3 浸漬前コアを圧縮抽水して得られた間隙水の塩化物・臭化物イオン濃度と水素酸素同位体比

初期試験水		氷河水			
交換期間(日)		7		14	
サンプル番号		1	2	1	2
試験水分析値	水素同位体比	-89.3	-88.1	-86.0	-86.8
	酸素同位体比	-12.9	-12.7	-12.6	-12.5
間隙水評価値	水素同位体比	-64.9	-60.8	-60.1	-65.0
	酸素同位体比	-10.3	-9.8	-10.2	-10.3
初期試験水		海洋深層水			
交換期間(日)		7		14	
サンプル番号		1	2	1	2
試験水分析値	水素同位体比	-26.7	-27.1	-28.3	-28.0
	酸素同位体比	-4.5	-4.4	-5.0	-4.8
間隙水評価値	水素同位体比	-56.6	-57.2	-61.2	-61.3
	酸素同位体比	-9.4	-9.1	-10.6	-10.3
(参考)圧縮抽水	水素同位体比	-56~-54			
	酸素同位体比	-9.2~-8.9			

以上のように、分割シャーレとアルミバックの簡易な試験系を用いて岩石間隙水の水素酸素同位体比を同位体交換法によって評価できる可能性が高いことが分かった。同位体交換法は並行して多くの試験を実施できるメリットがあるほか、水蒸気を介して試験水に情報を取り出すため塩分濃度が高いサンプルであっても、測定装置にその影響が及ばないという利点がある。一方で、試験期間として2週間以上を確保する必要があるほか、試験水分析における少しのばらつきが間隙水の評価値に大きな差を生じさせる原因になる可能性がある。さらに、今回この手法を適用した凝灰岩においては、圧縮抽水と同位体交換法で評価された間隙水の同位体比が異なっていた。圧縮抽水法と同位体交換法で本質的に同位体比の値が異なる可能性があるのか、さらにデータを拡充して検討を進める予定である。

#### (4) 「水蒸気直接測定法」の検討

近年、波長可変半導体レーザーを用いた波長スキャンキャビティリングダウン分光法(Wavelength-Scanned Cavity Ring-Down Spectroscopy: WS-CRDS 法)により水蒸気の  $\delta D \cdot \delta^{18}O$  を測定可能であることが発見され (Kerstel et al., 2002; Gianfrani et al., 2003; 山中・恩田, 2011) ,

WS-CRDS 法を基本原理とした測定装置が複数のメーカーから製品化されている。装置は基本的に水を液化する機構を備えており、液体サンプルにのみ対応する機種が多い。しかし、機種によっては水蒸気を直接導入し、分析する機構を備えており、水蒸気化した水サンプルを直接分析することも可能である。上述の水蒸気交換法は水蒸気を介して間隙水と試験水を反応させて、間隙水情報を試験水に抽出した。水蒸気を直接分析する手法はより直接的であり、分析に関わる時間や手間を省略することが可能であると考えられる。また、コアから水蒸気が発生すれば良いので、岩石の整形等の手間も簡略化できることが期待される。ここでは、水試料を用いた水蒸気直接測定について検討したあと、その手法を岩石間隙水に適用し他手法で得られた間隙水の値との比較を実施した。

a. 水試料への適用性試験

水蒸気直接測定法の適用性を確認するために、実験室で通常の分析の際に使用している水素酸素同位体比の実験室標準試料溶液を用いた試験を実施した。実験室標準試料は表 7.4.3-4 に示した 3 種類の水試料である。

表 7.4.3-4 実験に用いた実験室標準試料の水素酸素同位体比

標準試料名	水素同位体比 (‰)	酸素同位体比 (‰)
標準試料-1	-70.9	-9.7
標準試料-2	-35.0	-4.7
標準試料-3	0.7	0.2

試験方法を以下に示す。

1) 試験の準備

バルブの付いたノズルを備えたアルミバックの片側を開き、バックの中に小型の容器を入れた。容器にはキムワイブを入れた。試験に用いたアルミバックの写真を図 7.4.3-24 に示した。

2) 試料の添加

表に示した標準試料 3 種類を 1mL ずつ、小型容器の中に入れたキムワイブに滴下した。再現性確認のために同じ条件で 2 つずつの試料を準備した (合計 6 個の試料を準備)。開いていたアルミバックの片側をクリップで閉じ、ノズルの部分から中の空気を可能な限り除去した。

3) 窒素の封入

流量計をガスボンベにつなぎ、流速 500mL/min で 2 分間乾燥した窒素をアルミバック内に入れた。2 分後ノズルを閉じて容器を封じ、24 時間 20°C に温度を制御した部屋でアルミバックを静置

した。

#### 4) 測定

先述の LGR 社の水素酸素同位体比分析装置は、水蒸気を直接分析できる機能を備えている。水蒸気モードに装置を設定すると、装置内の陰圧によってサンプル取り込みポートから気体を取り込み、気体に含まれる水蒸気の水素酸素同位体比を測定する。ここでは、上記のアルミバックをバルブを閉じたままで接続し、その状態を1分間キープした（装置内の陰圧により、水蒸気密度や圧力が低下することを確認）。接続から1分後バルブを開け水蒸気密度、水素酸素同位体比の値が安定するまで、1分間この状態を保った。バルブを開けて1分後から100秒間、10秒ごとに水蒸気密度、水素酸素同位体比の値を読み取り、その平均値を水蒸気における水素酸素同位体比とした。



図 7.4.3-24 水蒸気直接測定法に用いたアルミバック

実験室標準試料における水蒸気分析の結果を、図 7.4.3-25 に示した。図からわかるように、実験室標準試料においては液として分析したときの分析値と水蒸気として分析したときの分析値との間に、線形関係が成立していることがわかる。用いた実験室標準試料は、日本における地下水の値をほぼカバーできる値の範囲をもつ（中田ほか，2015）。このため、実験室標準試料で線形性が成立することから、日本の地下水の水素酸素同位体比の範囲においては、液体と水蒸気の水素酸素同位体比の間に線形的な関係が成立するものと考えられた。

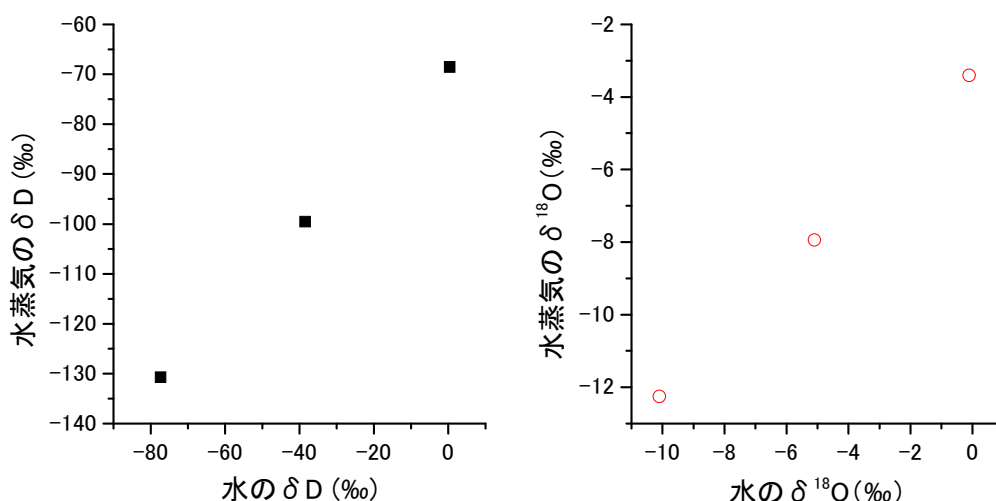


図 7.4.3-25 実験室標準試料とアルミバック内水蒸気の同位体比の関係

b. 水試料の量と同位体比の関係確認試験

20℃における飽和水蒸気圧は 23.39hPa であり、飽和水蒸気量は 17.3mg/L=0.017g/L である。水の量のある程度以上確保することができれば水蒸気量に対して水の量が圧倒的に多い系となり、添加する水の量と水蒸気における水素酸素同位体比の値には相関がなくなるものと推察される。しかし、岩石の含水比によっては上記のために十分な岩石量を確保することが現実的ではない可能性もある。このため、ここではアルミバックに封入する水の量と水蒸気における水素酸素同位体比の関係について明らかにするための試験を実施した。

試験方法は前述の通りであるが、加える水の量を 0.1~3.0mL まで変化させた。また、窒素ガス封入から 24 時間後に水蒸気の水素酸素同位体比を分析している。

アルミバックに封入した水の量と水蒸気における水素酸素同位体比の関係を図 7.4.3-26 に示した。図から明らかなように、水の量が 0.1~1.0g の場合には液量と水蒸気の水素酸素同位体比には相関があり、添加する水の量が少ないほど同位体比が大きくなる傾向を示した。一方で水の量 1g・2g・3g の試料間では水蒸気における水素酸素同位体比の値に顕著な違いは観察されず、一定の値を示した。このことから、間隙水の量を 1~3g に調整することで、水蒸気-液相間の同位体分別の影響を考慮することなく、水蒸気を分析することで岩石間隙水を評価することができると考えられる。



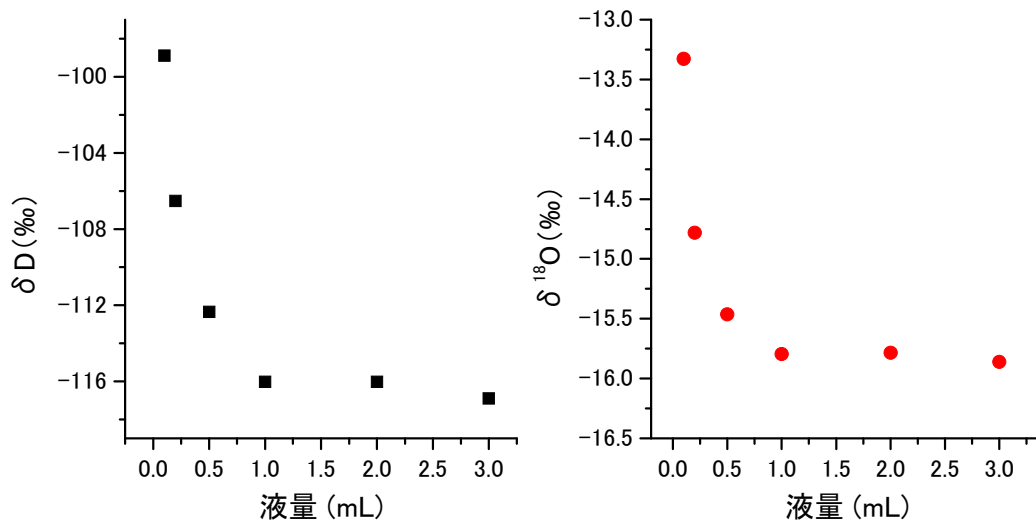


図 7.4.3-26 アルミバックに封入した水の量と水蒸気の水素酸素同位体比の関係  
(左図：水素同位体比 右図：酸素同位体比)

#### c. 実岩石間隙水への適用試験

上記のように水試料においては、アルミバック内で水蒸気を発生させて分析する方法について、実施可能である可能性が高いことが確認できた。ここでは、水試料で適用できた手法を岩石試料に適用し、他方法で得られた間隙水における水素酸素同位体比と比較した。

試験方法を以下に示す。

##### 1) 岩石の準備：

岩石としては、先述の凝灰岩を使用した。凝灰岩試料をハンマーで粉碎し、大きさ1~2cm角になるようにしたものを、試料として用いた。前述のようにこの凝灰岩における含水比は0.37なので2.7g程度の岩石には1gの間隙水が含まれていることになる。前述のように1gを超える水のが存在すれば、水の量と水蒸気同位体比との間に相関が無くなるため、岩石は1つのアルミバックにつき必ず2.7gを超えるように準備した。

##### 2) アルミバックへの岩石試料の封入

岩石内にシャーレを置き、そこに1)準備した岩石試料を2.7g以上になるように入れた。アルミバックの開いている側をクリップで閉鎖した後、できるだけノズル部分から中の空気を抜いた。

##### 3) 窒素ガスの封入

流速500mL/minで2分間、岩石を入れたアルミバックに窒素を入れた。2分後ノズルについているバルブを閉じ、アルミバックを閉鎖した。同様の手順で合計16個のサンプルを準備した。

#### 4) 標準試料の準備

水における確認試験と同じ手順で、標準試料-1 および 2 を封入したアルミバックをそれぞれ 4 つずつ準備した。2) および 3) で準備した岩石または水が封入されたアルミバックは 20°C に室温を制御した部屋で静置し、封入から 1・2・4・7 日後に標準試料を 1 セット（標準試料-1・2 を 1 つずつ）、岩石を入れた試料を 2 つ、それぞれ測定に供した。

#### 5) 測定

上記のアルミバックのバルブを閉じたままで接続し、その状態を 1 分間キープした（装置内の陰圧により、水蒸気密度や圧力が低下することを確認）。接続から 1 分後バルブを開け水蒸気密度（装置内の陰圧により、水蒸気密度や圧力が低下することを確認）。接続から 1 分後バルブを開け水蒸気密度、水素酸素同位体比の値が安定するまで、1 分間この状態を保った。バルブを開けて 1 分後から 100 秒間、10 秒ごとに水蒸気密度、水素酸素同位体比の値を読み取り、その平均値を水蒸気における水素酸素同位体比とした。

#### 6) 値付け

標準試料-1 および 2 の水蒸気における水素酸素同位体比分析の結果から、2 点で検量線を作成し、岩石試料の水蒸気測定における同位体比にこの検量線を適用して、間隙水における同位体比を算出した。

凝灰岩試料における水素酸素同位体比の分析結果を、図 7.4.3-27 に示した。図中の線で挟まれた部分が圧縮抽水で得られた間隙水の同位体比分析結果である。図から分かるように、いくらかのばらつきはあるものの、同位体比の値は 1~7 日では大きな変化が見られず、凝灰岩試料間隙水が蒸発しアルミバック内水蒸気が平衡状態に達するまで 1 日程度で十分であることが示唆されている。この期間は岩石によって差異があるものと推察されるが、同位体交換法よりも短い時間で間隙水-水蒸気が平衡に達する可能性が高いことを示していると考えられる。また、得られた同位体比の値はばらつきはあるものの、ほぼ圧縮抽水で得られた値や直接浸漬で得られた値と近い値を示した。このため、今回実施した水蒸気直接測定法を用いれば、岩石間隙水の水素酸素同位体比を圧縮抽水装置などの特別な設備等（水蒸気を分析することができる同位体比分析装置は必要である）を要することなく、短時間に評価できる可能性が高いことがわかった。水蒸気直接分析法は、多くのサンプルを並列で処理するのに有用であるほか、塩分の影響を除去してサンプルを試料に導入でき、かつ測定の前処理に要する時間も他手法と比較してかなり短い。このため、本手法は岩石間隙水の水素酸素同位体比を分析するために、かなり有用な方法となる可能性がある。今後再現性の確認や、塩分濃度の依存性、他岩石への適用を確認し精度や適用できる条件等を明らかにしていく予定である。

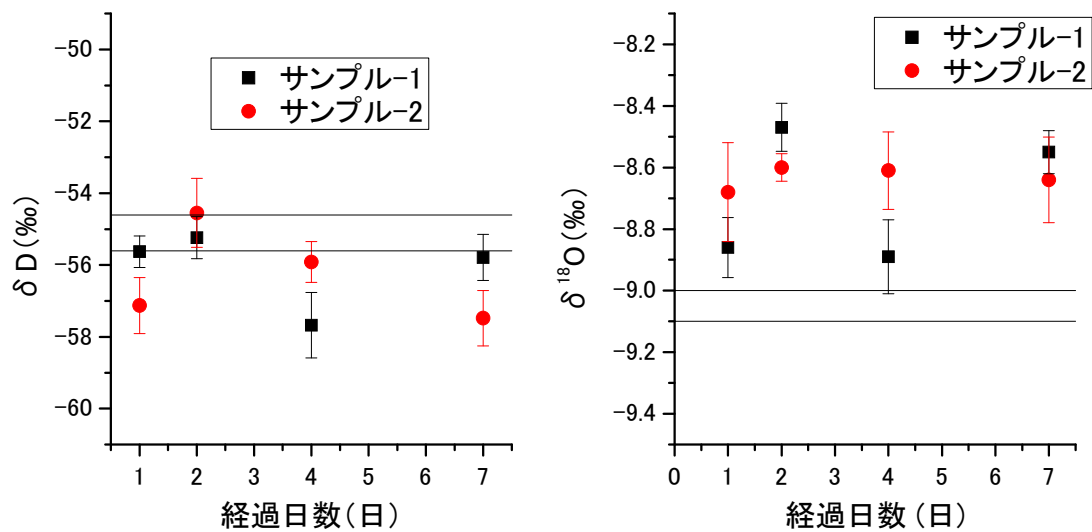


図 7.4.3-27 水蒸気直接分析法で評価された凝灰岩の水素酸素同位体比

(左図：水素同位体比 右図：酸素同位体比)

(5) まとめ

低透水性岩盤において間隙水の水素酸素同位体比を分析するための手法について、圧縮抽水法、直接浸漬法、同位体交換法、水蒸気直接分析法の4種類の手法の適用性を検討し、凝灰岩への適用結果を比較した。

圧縮抽水法においては、圧縮圧力と同位体比の間に相関関係があることがわかった。重水に浸漬したコアの圧縮抽水において、抽出された水における重水混入割合から、対象とした凝灰岩においては閉鎖空隙の抽出水への混入割合が圧縮圧力依存性を持つことを示し、これによって水素同位体比の圧力依存性が定性的に説明可能であることを示した。このケースのように閉鎖空隙に封入された間隙水の水素酸素同位体比が周辺の間隙水と異なり、閉鎖空隙の混合率が圧縮圧力に対して依存性を持つ場合には、圧縮抽水で評価された水素酸素同位体比は圧縮圧力依存性を持つことになる。圧縮抽水で抽出した水から水素酸素同位体比を評価する場合には、この可能性を考慮する必要がある。

直接浸漬法で評価された水素酸素同位体比は圧縮抽水法で評価された値と近く、相補的にこれらの方法が間隙水の水素酸素同位体比を評価するのに適用できる可能性があることを示すことができた。しかし、直接浸漬法は値のばらつきが大きく、酸素同位体比においては圧縮抽水で評価された値と差が見られた。

同位体交換法の検討においては、従来のような堅牢なステンレス容器を用いることなく、簡易かつ安価な分割シャーレとアルミバックの組み合わせにより、同位体交換法を実施可能であることを示すことができた。同位体交換法を凝灰岩へと適用した結果、圧縮抽水や直接浸漬法と比較して、間隙水の水素酸素同位体比はともにやや小さく評価された。この結果の再現性確認に加えて、「同位体交換

に關与できる間隙水の量」を正確に算出することが重要な課題であることが分かった。

水蒸気直接分析法においては、水素酸素同位体比が既知の水を所定の手順でアルミバックに封入し、アルミバック内で水蒸気化させて水蒸気の水素酸素同位体比を分析した。その結果、水として測定した水素酸素同位体比と、所定の手順で水蒸気化して分析した水素酸素同位体比の値を比較した。その結果、同位体比の間には線形性が確認され、同位体比が既知の水で水蒸気試料の検量線を作成し分析する方法が有効であることが分かった。また、水の量と水蒸気における水素酸素同位体比の間には関係があり、1Lのアルミバックに対して0.1～1gではバック内に入れた水の量が少ないほど水蒸気同位体比が増加する傾向が観察された。一方で1g～3gでは、入れた水の量に対する水蒸気同位体比の依存性はなく一定値をとることから、岩石間隙水の量は1g以上を確保することが必要であることが分かった。間隙水が1gを超えるように、上記の水の試験で確立された手法を適用したところ、岩石を入れたバック内の水蒸気を分析することで岩石間隙水の同位体比を分析することができた。評価された分析値は圧縮抽水や直接浸漬法で得られた値と近く、相補的に、水蒸気直接分析法が間隙水の水素酸素同位体比を分析するのに適した方法であることを示すことができた。水蒸気直接分析法は、他の手法と比較して前処理が早く終了する、特別な装置を必要としない、などの利点があり、低透水性岩盤の水素酸素同位体比を分析するのに、最適な手法の一つである可能性が高い。今後この方法の適用性やばらつきなどを評価していく予定である。

それぞれの手法の長所・短所を表 7.4.3-5 にまとめた。

表 7.4.3-5 各評価手法の長所と短所まとめ

	圧縮抽水	同位体交換	直接浸漬	水蒸気測定
メリット	・水が取り出せる ? 他分析	・塩分濃度除去	・極めて簡易 ・塩分濃度低減	・適用できる対象多 ・塩分濃度除去
デメリット	・塩分濃度影響 ・1週間/サンプル ・圧縮抽水装置	・ばらつき大 ・2週間/サンプル	・ばらつき最大 ・含水比低いと適用できない	・ばらつきあり ・水蒸気が測定できる装置必要
留意点	閉鎖空隙からの抽出	・誤差伝搬 ・水量確保	ばらつき	水量1g以上確保
適用可	比較的柔らかい岩石	含水比高め	含水比高い	ほぼ全て
適用不可	硬い岩石/花崗岩など	含水比低い	含水比低い	含水比極低(～1%)
適用性	○(他分析と併せて)	△	△	◎

## 参考文献

- Andrews J. N., Fontes J. C., Michelot J. L. and Elmore D. (1986): In-situ neutron flux,  $^{36}\text{Cl}$  production and groundwater evolution in crystalline rocks at Stripa, Sweden. *Earth Planet. Sci. Lett.* 77, 49-58.
- Abu, Z. M. (1999): Bestimmung der stabilen Isotope  $\text{dD}$  und  $\text{d18O}$  sowie des effektiven Porenwassergehalts von Opalinus-Ton mit der Isotopen-Austauschmethode, Diplomarbeit, Universität Heidelberg.
- Clark, I. and Fritz, P. (1997): *Environmental Isotopes in Hydrogeology*, CRC Press LLC, 327p.
- Eggenkamp, H.G.M., Coleman, M.L. (2009): The effect of aqueous diffusion on the fractionation of chlorine and bromine stable isotopes, *Geochim. Cosmochim. Acta* 73, 3539-3548.
- Elmore, D., Fulton, B.R., Clover, M. R., Marsden, J. R., Gove, H. E., Naylor, H., Purser, K. H., Kilius, L. R., Beukens, R. P. and Litherland, A.E. (1979): Analysis of  $\text{Cl-36}$  in environmental water samples using an electrostatic accelerator, *Nature*, 277, 22-25.
- Evbuomwan I.O. (2009): The structural characterisation of porous media for use as model reservoir rocks, adsorbents and catalysts, Ph.D Thesis, University of Bath.
- Fifield, L.K., Tims, S.G., Fujioka, T., Hoo, W.T. and Everett, S.E. (2010): Accelerator mass spectrometry with the 14UD accelerator at the Australian National University. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 268, 858-862.
- Heaton, R, Lee, H., Skensved, P. and Robertson, B.C. (1990): Alpha-induced neutron activity in materials, *Nuclear Geophysics*, 4, 4, 499-510.
- Horwitz, E.P., Dietz, M.L., and Chiarizia, R., (1992a): The application of novel extraction chromatographic materials to the characterization of radioactive waste solutions, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 161 (2), 575-583.
- Horwitz, E.P., Chiarizia, R., and Dietz, M., (1992b): Novel strontium-selective extraction chromatographic resin, *Solvent Extraction and Ion Exchange*, 10 (2), 313-336.
- Iwatsuki, T., Furue, R., Mie, H., Ioka, S., Mizuno, T. (2005): Hydrochemical baseline condition of groundwater at the Mizunami underground research laboratory (MIU), *Applied Geochemistry* 20, 2283-2302.
- JNC (2003): Data book on groundwater chemistry in the Tono area, Tono Geoscience Center, Japan Nuclear Cycle Development Institute, JNC TN 7450 2003-001.

- Kerstel, E. R. Th., Gagliardi, G., Gianfrani, L., Meijer, H. A. J., Van Trigt, R., and Ramaker, R., (2002) Determination of the  $2\text{H}/1\text{H}$ ,  $17\text{O}/16\text{O}$ , and  $18\text{O}/16\text{O}$  isotope ratios in water by means of tunable diode laser spectroscopy at  $1.39 \mu\text{m}$ . *Spectrochimica Acta - Part A Molecular and Biomolecular Spectroscopy*, 58, 2389-2396.
- Kashiwaya, K., Hasegawa, T., Nakata, K., Tomioka, Y., Mizuno, T. (2015): Multiple tracer study in Horonobe, northern Hokkaido, Japan: 2. Depletion of chlorofluorocarbons (CFCs) estimated using  $^3\text{H}/^3\text{He}$  index and lumped parameter models, *Journal of Hydrology*, 524, 111-122.
- Lehmann, B.E. and Loosli, H.H. (1991): Isotopes Formed by Underground Production, In: Pearson, F. J. (Eds), *Applied Isotope Hydrogeology- A Case Study in Northern Switzerland*, Studies in Environmental Science, Elsevier, p439.
- Levin, I., Kromer, B., Hammer, S. (2013): Atmospheric  $^{14}\text{CO}_2$  trend in western European background air from 2000 to 2012. *Tellus, Series B: Chemical and Physical Meteorology*, 65(1).
- Lippmann, J., Stute, M., Torgersen, T., Moser, D. P., Hall, J. A., Lin, L., Borcsik, M., Bellamy, R. E. S. and Onstott, T. C. (2003): Dating ultra-deep mine waters with noble gases and  $^{36}\text{Cl}$ , Witwatersrand Basin, South Africa, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 67, 23, 4597-4619.
- Long A., Eastoe C. J., Kaufmann R. S., Martin J. G., Wirt L. and Finley J. B. (1993): High-precision measurement of chlorine stable isotope ratios, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 57, 2907-2912.
- Mahara Y., Igarashi T., Hasegawa T., Miyakawa L., Tanaka Y. and Kiho K. (2001): Dynamic changes in hydrogeochemical conditions caused by tunnel excavation at the Aspo Hard Rock Laboratory (HRL), Sweden, *Applied Geochemistry*, Vol.16, pp.291-315, 2001.
- Nakata. K., Hasegawa, T., Higashihara, T. and Oyama, T. (2015): Chloride ion concentrations during the compression of rocks to extract pore water, *Geofluids*, DOI: 10.1111/gfl.12137.
- Nakata K., Hasegawa T., Iwatsuki T. and Kato T. : Comparison of  $^{14}\text{C}$  collected by precipitation and gas-strip methods for dating groundwater, *Radiocarbon* (in press) .
- Phillips F.M. (1999): Chlorine-36, *Environmental tracers in subsurface hydrology*. (Edited by Cook, P. and Herczeg, A. L.), pp.299-348, Kluwer Academic Publishers.
- Phillips F.M. (2013): Chlorine-36 Dating of old groundwater, *Isotope methods for dating old groundwater*, IAEA.

- Plummer L.N. and Bunsenberg(2006): Chlorofluorocarbons in the atmosphere (Chapter 2) in Use of chlorofluorocarbons in hydrology -a guide book-, IAEA.
- Sacchi, E., Michelot, J.-L., Pitsch, H., Lalieux, P., Aranyossi, J.-F. (2001): Extraction of water and solutes from argillaceous rocks for geochemical characterisation: Methods, processes, and current understanding, Hydrogeology Journal, 9, 17-33.
- Sheldon, A.L. and Solomon, D.K. (2003): Radiogenic helium in shallow groundwater within a caly till, southwestern Ontario, Water Resources Research, 39, 12, 1331, doi: 10.1029/2002WR001797.
- Shibata, K., Iwamoto, O., Nakagawa, T., Iwamoto, N., Ichihara, A., Kunieda, S., Chiba, S., Furutaka, K., Otuka, N., Ohsawa, T., Murata, T., Matsunobu, H., Zukeran, A., Kamada, S. and Katakura, J. (2011): "JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering, J. Nucl Sci. Technol, 48, 1, 1-30.
- USGS (2016a): <http://water.usgs.gov/lab/chlorofluorocarbons/sampling/bottles/> (2016/3/25 閲覧)
- USGS (2016b) : <http://water.usgs.gov/lab/sf6/sampling/> (2016/3/25 閲覧)
- Waber, H.N., Smellie, J.A.T. (2008): Characterisation of pore water in crystalline rocks, Applied Geochemistry, 23, 1834-1861.
- Wassenaar, L., Aravena, R., Fritz, P. (1990): The geochemistry and evolution of natural organic solutes in groundwater. Radiocarbon 31 (3), 865-876.
- Wassenaar, L., Aravena, R., Hendry, J., Fritz, P. (1991): Radiocarbon in dissolved organic carbon, a possible groundwater dating method: case studies from western Canada. Water Resour. Res. 27 (8), 1975-1986.
- Whelan, B.R., Barrow, N.J. (1980): A study of a method for displacing soil solution by centrifuging with an immiscible liquid, Journal of Environmental Quality, 9, 315-319.
- 天野 由記, 南條 功, 村上 裕晃, 藪内 聡, 横田 秀晴, 佐々木 祥人, 岩槻 輝希(2012):北海道幌延地域における深部地下水調査ー地上からの地球化学調査の妥当性評価と地下施設建設に伴う地球化学特性変化ー, 地下水学会誌 第54巻第4号 207~228
- 稲垣大介(2014):幌延深地層研究計画 平成24年度地下施設計測データ集、日本原子力研究開発機構。
- 稲垣 大介, 常盤 哲也, 村上 裕晃(2013): 幌延深地層研究計画, 平成23年度地下施設計測データ集, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Data/Code 2012-029.
- 稲垣 大介, 澤田 純之, 常盤 哲也, 津坂 仁和, 天野 由記, 新沼 寛明(2012):幌延深地層研究計画

- 平成 22 年度地下施設計測データ集 , 日本原子力研究開発機構, JAEA-Data/Code 2012-019.
- 稲垣 大介, 石井 英一, 新沼 寛明, 真田 祐幸, 津坂 仁和, 佐野 満昭, 澤田 純之 (2011): 幌延深地層研究計画平成 21 年度地下施設計測データ集 , 日本原子力研究開発機構, JAEA-Data/Code 2010-027.
- 伊藤和男 (1981): 河口域底でい中の金属の化学形に基づく選択的溶解 I. 鉄とマンガン, 分析化学, 30, 518-524.
- 伊藤和男 (1982): 河口域底でい中の金属の化学形に基づく選択的溶解 II. 亜鉛、銅および鉛, 分析化学, 31, 657-662.
- 今井 久, 前田 信行, 雨宮 清, 塩崎 功 (2001) : 堆積岩地域における広域地下水流動解析手法に関する検討, JNC TJ1410 2001-002.
- 今井 久, 前田 信行, 塩崎 功, 雨宮 清, 千々松 正和 (2002) : 幌延深地層研究計画における地下水流動解析に関する検討, JNC TJ1400 2002-004.
- 上野哲朗、佐藤 成二、竹内 竜史(2014) : 超深地層研究所計画における研究坑道での湧水量計測 (2012~2013 年度)データ集、日本原子力研究開発機構 バックエンド研究開発部門 東濃地科学センター、JAEA-Data/Code 2014-018.
- 大森 一秋, 新宮 信也, 増田 薫, 青才 大介, 乾 道春, 岩月 輝希(2014a): 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究 瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ 集(2012 年度), JAEA-Data/Code 2013-024
- 大森 一秋, 長谷川 隆, 宗本 隆志, 増田 薫, 青才 大介, 乾 道春, 岩月 輝希(2014b) : 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究 瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ 集(2013 年度), JAEA-Data/Code 2014-019.
- 大森 一秋, 新宮 信也, 萩原 大樹, 増田 薫, 飯塚 正俊, 乾 道春, 岩月 輝希(2013): 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究—瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集— (2011 年度) , JAEA-Data/Code 2013-001.
- 尾上 博則, 前村 庸之, 木村 仁, 菱谷 智幸, 水野 崇, 竹内 竜史, 岩月 輝希(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, 2014/06 JAEA-Research 2014-010.
- 金井豊 (1993): 選択的分別溶解法による堆積物中のキャラクタリゼーション, ぶんせき, 1993, p980-982.
- 金井豊, 奥山康子, 坂巻幸雄 (1996): 分別溶解法による堆積物中の元素の存在形態の研究—実験的検討と花崗岩質礫岩への応用, 地質調査月報, 47, 413-425.



狩野 智之, 毛屋 博道, 竹内 竜史(2011a): 広域地下水流動研究における地下水の水圧長期モニタリング, 2009年度, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Data/Code 2011-001.

狩野 智之, 毛屋 博道, 竹内 竜史(2011b): 超深地層研究所計画における地下水の水圧長期モニタリング, 2009年度, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Data/Code 2011-002.

狩野 智之, 竹内 竜史(2012a): 広域地下水流動研究における地下水の水圧長期モニタリング, 2010年度, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Data/Code 2012-001.

狩野 智之, 竹内 竜史(2012b): 超深地層研究所計画における地下水の水圧長期モニタリング, 2010年度, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Data/Code 2012-002.

狩野 智之, 竹内 竜史(2013a): 広域地下水流動研究における地下水の水圧長期モニタリング, 2011年度, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Data/Code 2013-002.

狩野 智之, 竹内 竜史(2013b): 超深地層研究所計画における地下水の水圧長期モニタリング, 2011年度, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Data/Code 2013-007.

熊谷 恭人, 舟木 泰智, 山崎 雅直, 山口 雄大, 尾留川 剛, 真田 祐幸, 阿部 寛信(2008): 幌延深地層研究計画平成 18 年度地下施設計測データ集, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Data/Code 2007-025.

操上広志 (2007) : 幌延深地層研究計画における地下水流動解析—平成 17 年度までの調査結果を踏まえた再解析—, JAEA-Research 2007-036.

操上広志・竹内竜史・藪内 聡・瀬尾昭治・戸村豪治・柴野一則・原 稔・國丸貴紀 (2008) : 幌延深地層研究計画の地上からの調査研究段階における地下水流動に関する調査研究, 土木学会論文集C, 64, 3, 680-695.

毛屋 博道, 竹内 竜史(2010a): 超深地層研究所計画における地下水の間隙水圧長期モニタリング(2005年度~2008年度)データ集, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Data/Code 2009-030.

毛屋 博道, 竹内 竜史(2010b): 広域地下水流動研究における地下水の間隙水圧長期モニタリング(2005年度-2008年度)データ集, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Data/Code 2009-031.

小坂 寛, 三枝 博光, 尾上 博則, 竹内 竜史(2010): 超深地層研究所計画(岩盤の水理に関する調査研究) 長期揚水試験計画策定のための水理地質構造のモデル化・地下水流動解析, JAEA-Research 2010-037

齋 正貴, 新宮 信也, 萩原 大樹, 水野 崇(2011): 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究 —瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集— (2008 年度), JAEA-Data/Code 2011-003

齋 正貴, 萩原 大樹, 松島 博之, 野田 正利, 納多 勝, 安藤 賢一, 田中 達也, 上田 正, 本田 ゆう子, 水野 崇(2010): 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研

- 究 - 瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集- (2004 年 4 月～ 2008 年 3 月), JAEA-Data/Code 2010-010.
- 三枝博光, 瀬野康弘, 中間茂雄, 鶴田忠彦, 岩月輝希, 天野健治, 竹内竜史, 松岡稔幸, 尾上博則, 水野崇, 大山卓也, 濱 克宏, 佐藤稔紀, 久慈雅栄, 黒田英高, 仙波 毅, 内田雅大, 杉原弘造, 坂巻昌工 (2007) : 超深地層研究所計画における地表からの調査予測研究段階 (第 1 段階) 研究成果報告書, JAEA-Research 2007-043.
- 佐野 満昭, 石井 英一, 新沼 寛明, 藤川 大輔, 真田 祐幸, 平賀 正人, 津坂 仁和, 山崎 雅直 (2009) : 幌延深地層研究計画平成 20 年度地下施設計測データ集, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Data/Code 2009-015.
- 佐藤成二, 尾方伸久, 竹内竜史, 武田匡樹 (2013) : 超深地層研究所計画における研究坑道での湧水量計測 (2004～2011 年度) データ集, 日本原子力研究開発機構 地層処分研究開発部門 東濃地科学研究ユニット, JAEA-Data/Code 2013-020.
- 下茂 道人, 熊本 創 (2004) : 亀裂を有する軟岩中の流れと移行現象に関する研究 (II), JNC TJ8400 2004-011.
- 新宮 信也, 萩原 大樹, 増田 薫, 飯塚 正俊, 乾 道春, 水野 崇 (2012) : 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究 - 瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集 - (2010 年度), JAEA-Data/Code 2012-003
- 新宮 信也, 齋 正貴, 萩原 大樹, 水野 崇 (2011) : 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究 瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集 (2009 年度), JAEA-Data/Code 2011-004
- 富岡 祐一, 中田 弘太郎, 長谷川 琢磨, 後藤 和幸 (2007) : 地下水年代測定評価技術の開発 (その 9) - 溶存有機物を用いた  $^{14}\text{C}$  地下水年代測定方法の開発 -. 電力中央研究所報告 N07039.
- 中村俊夫 (2003) : I. 加速器質量分析 (AMS) における環境中およびトレーサー放射性同位体の高感度測定, *Radioisotopes*, 52, 145-171.
- 中田 弘太郎, 長谷川 琢磨, 吉岡 麻里, 飯田 高弘 (2015) : 水素酸素同位体比測定用標準試料の準備とその保管方法についての検討. 日本地下水学会誌 第 57 号, 295-306.
- 日本原子力研究開発機構 (2011) : 幌延深地層研究計画 平成 22 年度調査研究成果報告, 日本原子力研究開発機構 幌延深地層研究センター.
- 日本原子力研究開発機構 (2013) : 幌延深地層研究計画 平成 24 年度調査研究成果報告, 日本原子力研究開発機構 幌延深地層研究センター.
- 日本原子力研究開発機構 (2014) : 幌延深地層研究計画 平成 25 年度調査研究成果報告, 日本原

- 原子力研究開発機構 幌延深地層研究センター.
- 日本分析化学会北海道支部編, 水の分析 第4版, 化学同人, 125-129 (1994).
- 長谷川琢磨, 田中靖治, 馬原保典, 五十嵐敏文(2004): Aspo Hard Rock Laboratory 建設に伴う地下水流動変化に着目した解析モデルの検証, 土木学会論文集, N. o. 757/III-66, pp. 189-202.
- 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), 一東濃地域における<sup>4</sup>Heと<sup>14</sup>C地下水年代測定の適用性検討一, 電力中央研究所報告, N10001.
- 半谷高久, 小倉紀雄 共著, 第3版 水質調査法, 丸善, 239-245 (1995).
- 別府 伸治, 狩野 智之, 竹内 竜史(2013): 広域地下水流動研究における地下水の水圧長期モニタリング, 2012年度, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Data/Code 2013-012.
- 別府 伸治, 狩野 智之, 竹内 竜史, 尾方 伸久(2014b): 超深地層研究所計画における地下水の水圧長期モニタリング, 2012年度, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Data/Code 2013-023.
- 馬原保典(1998): 溶存希ガスを用いた地下水年代測定法の開発一溶存希ガス地下水調査法の体系化一, 電力中央研究所 研究報告: U97052.
- 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, 1, 89-102.
- 文部科学省 科学技術・学術政策局原子力安全課防災環境対策室 (2002): 「放射能測定法シリーズ9 トリチウム分析法 平成14年改訂」, (財)日本分析センター.
- 山崎 雅直, 舟木 泰智, 山口 雄大, 新沼 寛明, 藤川 大輔, 真田 祐幸, 平賀 正人, 津坂 仁和 (2008): 幌延深地層研究計画平成19年度地下施設計測データ集, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Data/Code 2008-023.
- 山中勤, 恩田裕一: 波長スキャンキャビティリングダウン分光法を用いた水同位体分析計の測定精度について, 筑波大学陸域環境研究センター報告, 12, 31~40(2011).
- 由佐 悠紀, 柴田 知之, 芳川 雅子 (2004): 別府温泉南部域の温泉水への海水混入の検出(1)ストロンチウム同位体による試み. 大分県温泉調査研究会報告 第55号.
- 吉野 浩光, 岸 敦康, 横田 秀晴(2015): 幌延深地層研究計画における深層ボーリング孔を利用した長期水圧観測, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Data/Code 2015-014.

## 8. まとめと今後の課題

### 8.1 トレーサー試験に係わる室内試験

今年度は、以下の3つの事項について検討した。すなわち、①カラムを用いた模擬トレーサー試験、②人工割れ目モデルに対する種々の割れ目評価技術の適用試験、③トレーサーとしての蛍光染料の有用性・留意点検討、である。

原位置でのトレーサー試験では、現場の状況や確保できる試験時間等の関係から任意の条件で試験を実施できない場合がある。特に試験を実施する流速については、試験時間（工期）に直接影響がある他、バックグラウンドの流れによっては実施できる流速が限定される。そこで、①のカラムを用いた模擬トレーサー試験では、特に流速の依存性を明らかにすることを目的に検討を実施した。流速0.01～1.0mL/minでの試験を実施したところ、流速が遅いほど見かけの分配係数が増加し、0.01と1.0mL/minでは3倍程度の差があることが分かった。先述のように現場では任意の条件で試験ができない可能性があるため、室内および現場での流速依存性を明らかにし、試験実施可能な条件下で得られた分配係数を処分の安全評価にどのように用いていくかを検討することが課題である。

②の人工割れ目モデルに対する種々の割れ目評価技術の適用試験では、岩盤とアクリル板を用いて1次元あるいは2次元の割れ目モデルを構築し、透水試験、模擬トレーサー試験、高粘性流体試験、ラドン濃度測定試験、レジンを注入試験などを適用して割れ目幅を評価した。その結果、ラドン濃度測定試験を除き、上記の手法では想定された割れ目幅をほぼ正確に評価可能であることが分かった。ラドン濃度測定試験では、ラドンの分析に十分な量の試料水が得られるように試験系を大きくするとともに、試験系をラドンが漏気しにくいものに変更する必要がある。今後、割れ目の状態を意図的に変化させるなどしたうえで種々の評価法を適用し、各手法がどのような割れ目の特性をどのような分解能で捉えることができるのかを検討していく予定である。

③のトレーサーとしての蛍光染料については、トレーサーの選定に必要とされる情報、採取・保管・分析に必要とされる情報について、既往の研究で得られるものを整理するとともに、必要に応じて追加の試験を実施して結果をとりまとめた。分析においては、分析中の温度、分析中の励起光の照射、分析する溶液のpHなど、蛍光染料の強度が変わりうる要因がいくつか存在するため、それらの点に留意する必要がある。また、サンプルの保管については、微生物影響等がなければ3週間程度は室温・遮光・ポリプロピレンの容器、で蛍光強度が保たれることが分かった。地下水や岩石に蛍光染料が接触する場合は、まず幌延の地下水とウランが長時間接触すると、ウラン強度が減少し目視でも色に変色することが分かった。この現象は溶液に水銀を入れると防ぐことができることから、微生物が関与している可能性が高いと考えられた。岩石への蛍光染料の吸着挙動を調べた結果、幌延岩石では含まれる有機物による疎水的な吸着が、瑞浪岩石では陰イオンとしての粘土鉱物への吸着が、それぞれ主要な吸着メカニズムである可能性が示唆された。吸着メカニズムを推察するための情報は十分

とは言えないため、今後さらなる検討を実施する予定である。

## 8.2 ラドン濃度計測による割れ目調査技術の開発

我が国の溶存地下水のラドン濃度は多様であり、胚胎する地質によってその濃度が異なる。そのため、割れ目間隙幅などの割れ目特性を溶存ラドン濃度によって評価するためには、手法の適用範囲を確認しておく必要がある。

昨年度まで砂岩、泥岩などの堆積岩での適用性を検討してきたが、間隙率の大きい試料では、岩石内部からのフラックスの影響により、岩石表面からのラドンフラックスを正確に把握できない可能性が示された。花崗岩試料では厚さが7～10cm以上の試料であれば、厚さに関わらず一定のラドンフラックスを得られるが、今年度、砂岩資料で確認したところ、一部の砂岩では厚さ14cm以上の試料でもラドンフラックスは一定ではなかった。したがって、堆積岩表面からのフラックスを室内で計測する際は十分な厚さを有する試料を用いることが推奨されるものの、一部の堆積岩については正確なフラックスを測定することが難しい可能性があることがわかった。

また、昨年度までの JAEA 瑞浪超深地層研究所深度 300m ボーリング横坑でのボーリングコアの分析において、変質した試料の一部に周辺の2倍程度高いラドンの親核種ラジウムの濃度が確認された。そのため、変質によるラドン濃度への影響を把握することを目的として、未変質試料と変質試料のそれぞれについてラドンフラックスを測定したが、両者に顕著な差は認められなかった。一方で、すべての変質試料のラジウム濃度が高いわけではないことも明らかとなった。このため、コアの変質に着眼したアプローチではなく、地下水のラドン濃度が高い箇所の地質的特徴（変質、間隙率）について検討を行うことが重要と考える。

さらに、深度 300m ボーリング横坑の各ボーリング孔のモニタリング区間において溶存ラドン濃度を測定し、その結果から各区間の割れ目幅を推定した。室内試験で得られた岩石表面からのフラックスは、変質し間隙率が相対的に大きいコア試料では  $6.9 \times 10^{-3} \text{ Bq/cm}^2$  であり、変質がなく間隙率が小さい試料では  $8.0 \times 10^{-3} \text{ Bq/cm}^2$  であった。変質したコアのフラックスを基に推定すると間隙幅は 0.36mm～0.80mm となり、変質がないコアのフラックスを基に推定すると 0.41mm～0.93mm となった。これらの値は、別途実施したトレーサー試験による間隙幅と比較しても整合的である。しかしながら、これらの間隙幅は、簡易な採水によって得た溶存ラドン濃度を用いて推定した結果であり、推定精度を向上させるためには、対象割れ目と交差する2本のボーリング孔を通して地下水を一定期間循環し、割れ目内のラドン濃度を安定させた状態で測定することが必要である。このため、スイス Nagra のグリムゼルテストサイトで実施したラドン試験に使用した循環ポンプを、深度 500m まで適用可能となるように改良した。この改良により 5MPa まで耐圧性能が高められたため、今後は原位置で循環試験を実施し割れ目の間隙幅を評価したい。

### 8.3 割れ目の可視化技術の開発

JAEA 瑞浪超深地層研究所で採取した岩石コアにレジンを注入した試料に対して、高出力のマイクロフォーカス X 線 CT スキャナ、および平面研削とイメージスキャナの繰り返しによる可視化を試みた。高出力のマイクロフォーカス X 線 CT スキャナでは、X 線が十分に透過し装置特有のノイズ（アーチファクト）がほとんどなく、良好な画像が得られた。イメージスキャナによる可視化も撮影者の技能に依存せず良好な画像が得られたが、ブロック状に整形した試料が多少歪んでいたため位置合わせが正確にできず画像間でズレが生じた。そのため、ブロック状に整形する方法について技量に依存しない方法を再検討する必要がある。

また、レジンの流動特性を把握するために、鋼管を用いたレジンの一次元流動試験と、割れ目内未固結充填物に関する検討を実施した。主剤のみを用いた流動試験では、鋼管内にイソプロピルアルコールを満たした場合、浸潤フロント付近で樹脂が溶解したためか、イソプロピルアルコールを使用しない場合に比べて圧力勾配が小さく、出口までの到達時間に遅れが生じた。混合液を用いた流動試験でも、同様の結果が得られた。混合開始時刻が同じ混合液を使用し、硬化に伴う流動の違いを確認したところ、混合液の硬化が進むにつれて、圧力勾配が大きくなり、注入圧力も増加した。しかし、本試験は可使時間以内に完了しており、圧力が増加した理由は不明である。このため、耐圧性能が高いポンプを用いて再検討することを、今後の課題とする。そして、割れ目内に脆弱な未固結充填物質が存在する場合のレジンの充填過程、固化過程を確認するために、岩石模型を用いた室内レジ注入試験を実施した。岩石模型は平行平板割れ目と円孔を有し、その中に砂を充填させたものを用いた。その結果、流入口付近で充填が比較的緩い箇所の砂をレジンが押し流す現象が生じたと考えられ、本来の水みちとは違った経路となった可能性が高い。今後、この切断された岩石模型を研削にかけ、より詳しいレジンの充填状況を確認する必要がある。

さらに、レジンの特性が現場環境によって大きく変化するため、現場の温度、地下水等がレジンの特性に及ぼす影響について検討を行った。レジンの粘度と可使時間に対する環境温度の影響について検討するために、恒温恒湿槽内で 10~30℃まで 5℃間隔で温度を制御し測定したところ、環境温度の上昇に伴い粘度は低下し、逆に可使時間が短くなることを確認した。環境温度の違いにより、粘度は最大で約 6 倍、可使時間については約 2 倍も変化することが明らかになった。この粘度および可使時間の組み合わせから、地下水の温度（約 20℃）の条件下で管理することが最適であることがわかった。次に、割れ目内の地下水の存在がレジンの接着強度に与える影響を調べるために、花崗岩の盤石間の 1mm の隙間にレジンを注入し硬化後に引き剥がす試験を行った。隙間を空気、水、模擬海水のそれぞれで満たす 3 つの条件下で試験を行ったところ、模擬海水の場合は顕著な強度低下が認められ、塩分がレジンの硬化や接着強度に悪影響を及ぼすことが明らかになった。

一方、原位置レジ注入試験装置の試作に先立ち、原位置での地下水圧、レジンの品質確保（再現

性・均一な混合)を考慮して、装置の概念設計を行った。無脈動・連続移送、高い定量性、回転速度制御による瞬時の吐出量変更を特長とした2台のモノポンプと、スタティックミキサーを採用することにより、再現性に優れ均一な混合が可能となることが分かった。ただし、高圧での微小量の制御については脈動を引き起こす可能性が考えられ、問題点を洗い出し解決策を検討するために、検証実験を実施する必要がある。また、装置の詳細設計、試作あたっては、本概念設計をベースに細かな仕様や条件を付け加えて開発を進める必要がある。

#### 8.4 適用性試験場の地質環境調査

今年度は、JAEA 瑞浪超深地層研究所の深度 500m 研究アクセス南坑道 125m 計測横坑においてトレーサー試験技術等の適用性試験に適した割れ目を検出することを目的として、2本のボーリング孔(15MI52号孔、15MI53号孔)の掘削作業と、掘削したボーリング孔を用いた各種検層、透水試験、ポイント希釈試験、間隙水圧モニタリング装置の設置・計測を実施した。

以下に、調査結果についてまとめる。

- ・採取したコアは、主に粗粒～中粒の黒雲母花崗岩である。等粒状～斑状を呈し主要な造岩鉱物は石英・カリ長石・斜長石・黒雲母で、ごく微細な角閃石を含む。また、これ以外に石英脈が厚さ数 cm で散見される。母岩全体に及ぶ広範囲の変質は被っていない。変質は石英脈の貫入に伴う貫入面に並行な範囲や、開口割れ目・潜在割れ目を中心とした範囲に限定される。岩盤分類上良好である「B」級が大部分を占めている。
- ・フローメータ検層を実施した結果、15MI52号孔では 8.9～10.7mabh (0.8L/min)、14.8～18.2mabh (0.7L/min)、23.0～24.2mabh (0.6L/min)、27.2～28.7mabh (0.7L/min) の4深度において、15MI53号孔では 9.2～11.2mabh (2.8L/min)、14.8～15.2mabh (0.6L/min)、18.2～18.9mabh (0.5L/min)、23.3～24.3mabh (1.0L/min) の4深度において流量変化が確認された。
- ・掘削中の湧水量変化やコア観察結果、フローメータ・BTV 検層等の結果に基づき、湧水割れ目と判断した割れ目を対象に水理試験を実施した。その結果、15MI52号孔では  $8.47 \times 10^{-8} \sim 1.26 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{sec}$ 、15MI53号孔では  $2.69 \times 10^{-9} \sim 1.67 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{sec}$  の透水量係数が得られた。
- ・ボーリング掘削時や透水試験時に確認したボーリング孔間での間隙水圧の応答は、概ねそれぞれの割れ目に対応する一区間のみで確認された。
- ・ポイント希釈試験の結果、自然通過流量は 0.042～3.080mL/min の範囲であった。
- ・当該掘削個所の割れ目の卓越方向は NE 走向と NW 走向の高傾斜の割れ目であり、このうち NW 走向の割れ目は湧水割れ目、NE 走向の割れ目は充填割れ目が主体であった。

調査の結果、ボーリング掘削時や透水試験時の孔間での間隙水圧の応答や、割れ目の形状や走向傾斜などから、水理的に連続していると判断できる割れ目を複数確認した。これらの割れ目は、間隙水

圧の応答がそれぞれの割れ目に対応する一区間のみであることから、水理的に独立した単一割れ目である可能性が高い。また、透水量係数も  $10^{-8} \sim 10^{-7} \text{ m}^2/\text{sec}$  オーダーの割れ目が主体であり、トレーサー試験技術等の適用性試験の対象として適当であると判断される。

ただし、深度 500m 研究アクセス南坑道 125m 計測横坑においては、当該 2 孔のボーリング調査結果しか得られておらず、割れ目の規模やバックグラウンドの地下水流れの方向などを推定するには情報が不足している。このため、来年度以降もボーリング孔を追加掘削し調査を実施する必要があると考える。

#### 8.5 原位置トレーサー試験

トレーサー試験装置・技術の国内における適用性試験として、JAEA 瑞浪超深地層研究所の深度 300 m ボーリング横坑で、単孔および孔間のトレーサー試験を実施した。

昨年度判明した課題に対して対策を講じ、今年度の試験に臨んだ。ウラニンとアミノ G 酸の原液を別々に作成し、それぞれを希釈した後に混合して使用したところ、沈殿や濁り等の問題は解消した。ロッドには従来より太い径のものを使用し、光ファイバー保護用として蛇腹管を用いた。その結果、光ファイバーを損傷することなく孔内装置を設置でき、現地での挿入作業も効率的に行うことができた。光ファイバーの接続箇所を減らしたところ、光源から分光器までの蛍光強度のロスが減り、以前より低濃度のウラニンの計測が可能となった。ピストンパッカーと孔口パッカーの間に中間パッカーを設けた結果、周辺孔を含めた水理場の安定状況が大幅に改善した。

一方、孔内蛍光濃度センサーによる計測で、バルブ切り替え時の蛍光強度の変化や、安定した状態での蛍光強度の変動等の問題がみられた。また、地下水中の微粒子の混入による O リングの破損や、O リングとピストンの馴染み不足が原因と考えられるトラブルにより、6 方バルブが作動不良を起こすという新たな問題が生じた。

単孔トレーサー試験では、透水性の高い 13MI37 号孔を中心に試験を行った。待機時間を設けない試験では、非収着性トレーサーの回収率は 80% 以上であった。一方、240 分程度の待機時間を設けた試験でも、回収率は低くなったものの有意な破過曲線が得られた。

待機時間を設けない試験について評価解析を行ったところ、破過曲線を再現可能な複数の集中定数と動水勾配の組み合わせが見つかった。ただし、割れ目幅を仮定し集中定数から計算される縦分散長や、評価された遅延係数を総合的に検討することにより、集中定数を特定できる可能性が高いことがわかった。収着性トレーサーの評価解析では、複数の試験で同程度の  $\text{Rb}^+$  や  $\text{Ba}^{2+}$  の遅延係数が得られた。

今回の試験では揚水流量を固定し注入流量を変えた試験を実施したが、揚水流量を変えた試験も実施して評価解析を行い、相互比較することで評価解析の信頼性を高めたい。また、待機時間を設けた試験についても評価解析を行い、今回の評価解析結果と比較し岩盤とトレーサーの接触時間の違いが



遅延効果に与える影響について確認したい。

孔間試験では、非収着性トレーサーと収着性トレーサー $Rb^+$ については投入したすべての試験で破過曲線が得られたが、収着性の強い $Ba^{2+}$ では回収濃度がバックグラウンドの濃度に近く有意な破過曲線を得られなかった。

ウランの破過曲線の再現解析を通じて、割れ目の開口幅と分散長を同定したところ、開口幅は高解像度のポアホール TV カメラによる数値の範囲内であった。分散長についても、Gelhar (1992) による移行距離と縦分散長との関係と調和的であった。さらに、 $Rb^+$ の破過曲線の再現解析を通じて、充填鉱物への収着の効果も加味した割れ目面への表面吸着係数を同定することができた。また、対象割れ目に他の割れ目が交差した場合の影響について評価解析を行った。その結果、他の割れ目が投入孔と揚水孔の間で試験対象割れ目と交差する場合、破過曲線のピーク濃度は最大で 25%程度低減するが、揚水孔を挟んで投入孔と反対側で交差する場合には、ほとんど影響がないことがわかった。

評価結果の信頼性を高めるためには、トレーサーの回収濃度・回収率を上げるとともに、収着性トレーサーについては岩盤との接触時間を十分確保できるように遅い流れ場での試験が望まれる。それには、水理的に独立した割れ目を試験対象に選ぶ、バックグラウンド流れの小さい割れ目を選ぶ、バックグラウンドの影響を打ち消す方向に注入孔、揚水孔を配置する、ダイポール比を 1 に近づけるなどの対応が必要と考えられる。

## 8.6 天然トレーサーを利用した調査技術の開発

研究坑道における地下水調査では、JAEA の瑞浪超深地層研究所と幌延深地層研究センターの研究坑道から掘削されたボーリング孔を利用して、水質・地下水年代調査を実施した。

瑞浪での調査では、主要溶存イオン、同位体、溶存ガスなどを調査した。また、 $^{14}C$  年代の前処理方法については、調査結果を受け沈殿法からガス化法に変更し、その影響を調査した。これらの調査結果に基づいて相関分析を行い、浅層水や深層水の指標として、水素・酸素同位体比、 $^{14}C$ 、Cl などが有望であることがわかった。水素・酸素同位体比や  $^{14}C$  は、新しい水と古い水では濃度に差が出るのが分かっており、相互の相関も高いため、これらを指標として浅層水の混合が理解できると考えられた。また、研究坑道の掘削に伴う変化を評価するために、地下水流動・物質移行解析を実施した。その結果、現在の湧水量と水質の変化は、均質な透水係数や間隙率では表現できず、透水係数を 10 倍にし、間隙率も 1/10 倍程度にする必要があると考えられた。このため、均質媒体的な流れではなく、断層など局所的な流れが生じている可能性が示唆された。

幌延での調査では、主要溶存イオン、同位体、希ガスなどを調査した。主要溶存イオンの調査結果からは、立坑掘削による水質の時間的な変化は認められなかった。一方で、水素・酸素同位体比などから、立坑の深度 250m 付近(声問層と稚内層の境界付近)の地下水は浅層水の混合率が高いことがわか

った。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ については、立坑周辺の稚内層の地下水は、声問層の平衡値に近く浅層水の混合率も高いことから、声問層からの流入の影響を強く受けていると推定された。 $^4\text{He}$ については、声問層では数百万年程度の蓄積に相当する濃度であるが、稚内層では数十万年に相当する蓄積であった。稚内層では、脱ガスの影響を受けている可能性はあるが、浅層水の混合率も高いことから、数十万年程度の滞留時間である可能性がある。また、幌延地区についても立坑掘削に伴う地下水流動・物質移行解析を実施した。その結果、水圧の変化は主要な断層に沿って現れるものの、水質には有意な変化が現れないことが分かった。これは堆積岩で実流速が遅いためと考えられた。

天然トレーサーの調査では、希ガスの採水方法、速い流れや遅い流れの指標となる物質の調査を行った。希ガスの採水方法では、平衡式サンプラーを開発し適用した結果、瑞浪では適用性を確認できた。幌延では脱ガスが激しく、補正も難しいため、代表的な値をとるためにサンプリング方法を再検討する必要がある。無機 $^{14}\text{C}$ を用いた年代測定のための溶存無機C捕集方法については、サンプルのpHを下げてガス化し捕集する方法が、炭酸ストロンチウム等の沈殿で回収する方法よりも、正しい $^{14}\text{C}$ 年代を示すことが分かった。このため、今後の分析ではガス化法を利用していく予定である。また、有機 $^{14}\text{C}$ が若い地下水が流入する指標として有用であることを確認するために、2箇所取得した地下水中の有機物について、温度に対する耐性・疎水性・大きさ等の性質の違いを用いて分離する方法を検討した。今後は、特定の性質で分離した有機物についてそれぞれ $^{14}\text{C}$ を分析し、若い有機物と古い有機物を識別することが可能か、検討していく予定である。また、Srの同位体比( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ )については、現在の海水と古い海水(化石海水)の混合指標としての有用性を検討しており、現在の海水・比較的若い海水起源の地下水・古い海水起源の地下水と接触する岩石からSrを抽出し、同位体比を分析した。今後、同位体比の分析結果からSr同位体比の有用性を議論していく。

拡散の指標の検討では、ClとBrの拡散試験を行い、両物質の同位体分別を同時に評価することに成功した。Clの分別係数はBrの分別係数よりも倍程度大きいことが分かった。また、拡散等を議論するために有用な指標である岩石間隙水の同位体比( $\delta\text{D}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ )について、評価方法を検討した。岩石を密閉した袋に封入した上で、水蒸気を分析する方法はサンプルが少量ですむ上、簡易であることが分かった。このため、今後岩石試料が少量しか取得できない場合に適用していく予定である。

今後、研究坑道における地下水調査では、これまでの調査結果の妥当性と立坑掘削による変化を確認するために、引き続き調査を継続する。また、地下水だけでなく、岩石コアでも同様の結果が得られるかを検討する予定である。水質・地下水年代の変化に着目した地下水流動・物質移行解析も継続して検討し、現象を再現するためのパラメーターについて評価する。

天然トレーサーの調査では、幌延のような脱ガスが激しい環境で、代表性のある希ガスの分析結果が得られるような採取方法を再検討する。また、速い流れや遅い流れの指標となる物質の調査について、採取・分析方法の高度化を図るとともに、原位置に適用しその有用性を検討する。