

炭酸塩鉱物の酸素・炭素同位体比を指標とした地下水水質の長期的変遷に関する研究

Study of long-term stability of groundwater chemistry based on oxygen and carbon isotopes in carbonate minerals

水野 崇 [1]; 濱 克宏 [1]

Mizuno Takashi[1]; Katsuhiko Hama[1]

[1] 原子力機構

[1] JAEA

高レベル放射性廃棄物の地層処分に関わる安全評価では、地下深部の地質環境について数万年スケールでの長期的変化を推定することが重要であり、地球化学の分野においては、地下水の水質（pH、酸化還元状態および化学組成）の長期的変化を推定することが大きな課題である。従来の研究により、地下水の滞留時間を越える時間スケールでの長期的変遷を推定するための指標として、二次鉱物が保存している水-岩石反応時における地下水の化学的環境を理解することが有効であることが知られている。特に炭酸塩鉱物（主に方解石）は岩石中に普遍的に産出する鉱物であり、低温環境下においても形成されるため、沈殿時の化学的環境を保存している可能性があり、過去の地下水の水質を推定するための指標として利用できる可能性が指摘されている。

本研究では、方解石を利用して地下水水質の長期的変遷を理解することを目的として、方解石の沈殿過程について結晶形とカソードルミネッセンスの微視的観察により確認し、酸素（ ^{18}O (SMOW), 以下 ^{18}O) および炭素同位体比（ ^{13}C (PDB), 以下 ^{13}C) の分析を行った。研究対象とした試料は、岐阜県東濃地域に分布する白亜紀の土岐花崗岩を対象として掘削したボーリング孔（DH-15号孔：垂直孔、掘削深度約1,012m）の岩芯より、割れ目表面に産する方解石を7深度（採取深度：約470m～996m）から採取した。方解石の沈殿過程を結晶形とカソードルミネッセンスの微視的観察により分類し、微小領域での同位体分析を行うために、これらの方解石から結晶形毎にマイクロドリルによって42試料を採取した。

方解石の沈殿過程を確認した結果、沈殿時期を古い世代からI～IVの4回に区分できた。Iの方解石は明瞭な結晶形を示さないこと、母岩の碎屑物を多く含むこと、結晶の割れ目に沿って産出することから、断層運動等による割れ目の活動に伴う熱水から沈殿した方解石である可能性が考えられる。IIの方解石はIの上位に沈殿しており、板状の自形を示す。IIIの方解石は伸長した自形を示し、IIの方解石の層の上位に沈殿している。IVはIIと同様に板状の結晶形を示し、IIIの表面に沈殿している。従来の知見に基づくと、IIおよびIVが示す結晶形は、淡水系の地下水が存在する環境下で沈殿したと考えられ、IIIが示す伸長した結晶形は塩水が存在する環境下で沈殿したと考えられる。各世代の同位体分析を行った結果、 ^{18}O および ^{13}C はそれぞれ、I: $-2.3\text{‰} \sim 18.3\text{‰}$; $-10.8\text{‰} \sim -7.5\text{‰}$, II: $17.7\text{‰} \sim 20.2\text{‰}$; $-56.5\text{‰} \sim -6.5\text{‰}$, III: $21.2\text{‰} \sim 23.6\text{‰}$; $-9.4\text{‰} \sim 0.0\text{‰}$, IV: $18.0\text{‰} \sim 20.4\text{‰}$; $-10.5\text{‰} \sim -4.7\text{‰}$ となった。Iが示す低い ^{18}O の値は、沈殿時の地下水の水温が高かったことを示す。IIおよびIVについては、同位体分別を考慮して算出した沈殿時の地下水の ^{18}O および ^{13}C の分布範囲が現在の地下水の分布範囲と整合的であることから、現在の東濃地域に分布している天水を起源とする淡水系の地下水と同様の淡水であったことを示唆する。ただし、IIの方解石では、 -50‰ 以下の非常に低い ^{13}C を示す試料も存在する。このような低い ^{13}C を示す炭素の起源として、メタンガスや有機物のメタン発酵によって生じた炭素が考えられる。この点については、メタン生成に関わる微生物の確認などを行う必要がある。IIIの示す値は、土岐花崗岩の上位に分布する瑞浪層群中の海成堆積岩から産する方解石の値（ ^{18}O : $20\text{‰} \sim 28\text{‰}$, ^{13}C : $-11\text{‰} \sim 3\text{‰}$ ）と調和的であり、海水起源の地下水から沈殿したことを示唆する。これらの結果は微視的観察の調査結果と整合的であり、異なる起源を持つ複数の地下水は、1) 熱水、2) 天水起源の地下水、3) 海水起源の地下水、4) 天水起源の地下水、の順で存在していたと考えられる。本研究で試料を採取した深度約470mから約1,000mの区間においては、いずれの深度においても各世代の方解石が認められることから、異なる起源の地下水の入れ替わりは、当該区間の全深度において起きたと考えられる。また、深度約470m以深の試料では、最も初期に沈殿していたと考えられる方解石が保存されていることから、長期にわたる地下水の入れ替わりにより化学組成（塩分濃度等）が変化してきたにも関わらず、方解石が溶解するような化学的条件の変化（pHの変化や地下水水質の変化による飽和度の低下）は起きていないと推定する事ができる。そのため本研究では、割れ目中の地下水の起源を明らかにしたことで、長期的な地下水の化学組成（塩分濃度等）の変化とその幅を推定することができる可能性が示された。