



JAEA-Data/Code

2021-021

DOI:10.11484/jaea-data-code-2021-021

幌延深地層研究計画で得られた地下水の水質データ (2021年度)

Data of Groundwater Chemistry Obtained
in the Horonobe Underground Research Laboratory Project
(FY2021)

宮川 和也

Kazuya MIYAKAWA

核燃料・バックエンド研究開発部門
幌延深地層研究センター
深地層研究部

Horonobe Underground Research Department
Horonobe Underground Research Center
Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development

March 2022

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Data/Code

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。本レポートはクリエイティブ・コモンズ表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。本レポートの成果（データを含む）に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の条件で利用してください。（<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja>）
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト（<https://www.jaea.go.jp>）より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 JAEA イノベーションハブ 研究成果利活用課
〒 319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地 4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en>).
Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under the same terms and conditions as CC-BY.
For inquiries regarding this report, please contact Institutional Repository and Utilization Section, JAEA Innovation Hub, Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

幌延深地層研究計画で得られた地下水の水質データ (2021 年度)

日本原子力研究開発機構
核燃料・バックエンド研究開発部門 幌延深地層研究センター 深地層研究部

宮川 和也

(2021 年 12 月 6 日受理)

幌延深地層研究計画において、2019 年度までは主に地下施設建設時の坑道掘削に伴う地下水の水質変化の調査や地球化学モデルの構築および見直しを目的として、2020 年度からは必須の課題へ対応するため、地下水の水質データを取得している。2021 年度は、引き続き必須の課題に対応するため、地下施設を利用して得られた地下水の水質データを取得している。地下施設の 140m, 250m および 350m 調査坑道から掘削されたボーリング孔や 3 本の立坑に設置されている集水リングなどから 54 試料の地下水を採取し、分析を実施した。

本報告は、2021 年度に得られた地下水の水質データとして、物理化学パラメータ（電気伝導度や pH）や溶存成分（ Na^+ , K^+ , Li^+ , NH_4^+ , Cl^- , Br^- , NO_3^- , SO_4^{2-} , PO_4^{3-} , Ca^{2+} , Mg^{2+} , Sr^{2+} , P, Total-Mn, Si, Total-Fe, Al, B, F⁻, I⁻, アルカリ度, 全有機炭素, 全無機炭素, CO_3^{2-} , HCO_3^- , Ba, Fe^{2+} , 硫化物), 酸素水素同位体比およびトリチウムの測定・分析結果を取りまとめたものである。

Data of Groundwater Chemistry Obtained in the Horonobe Underground Research Laboratory Project
(FY2021)

Kazuya MIYAKAWA

Horonobe Underground Research Department
Horonobe Underground Research Center
Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development
Japan Atomic Energy Agency
Horonobe-cho, Teshio-gun, Hokkaido

(Received December 6, 2021)

In the Horonobe underground research laboratory (HURL) project, groundwater chemistry was analyzed to investigate changes due to the excavation of the underground facility and to review geochemical models until the fiscal year 2019. From the fiscal year 2020, to proceed remaining important issues deduced from the conclusion of the investigations during the fiscal year 2015–2019, primary data such as groundwater chemistry need to be successively acquired. Here, the chemical analysis of 54 groundwater samples in 2021 from boreholes drilled in the 140 m, 250 m, 350 m gallery in the HURL, and water rings settled in three vertical shafts is presented. Analytical results include groundwater chemistry such as physicochemical parameters (pH, electrical conductivity), dissolved ions (Na^+ , K^+ , Li^+ , NH_4^+ , Cl^- , Br^- , NO_3^- , SO_4^{2-} , PO_4^{3-} , Ca^{2+} , Mg^{2+} , Sr^{2+} , P, Total-Mn, Si, Total-Fe, Al, B, F^- , I^- , alkalinity, total organic carbon, total inorganic carbon, CO_3^{2-} , HCO_3^- , Ba, Fe^{2+} , sulfide), $\delta^{18}\text{O}$, δD , and tritium content along with a detailed description of analytical methods.

Keywords: Groundwater, Chemistry, Horonobe URL

目次

1. はじめに	1
2. 採取箇所および採取方法	1
3. 測定・分析方法	3
3.1 物理化学パラメータの測定	4
3.1.1 pH および水温	4
3.1.2 電気伝導度	5
3.2 地下水中の溶存成分の分析	5
3.2.1 Na ⁺ , K ⁺ , Li ⁺	5
3.2.2 NH ₄ ⁺ , Cl ⁻ , Br ⁻ , NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ , PO ₄ ³⁻	5
3.2.3 Ca ²⁺ , Mg ²⁺ , Sr ²⁺ , P, Total-Mn, Si, Total-Fe, Al, B	6
3.2.4 F ⁻	7
3.2.5 I ⁻	7
3.2.6 アルカリ度 (P-Alkalinity および M-Alkalinity)	8
3.2.7 全有機炭素 (TOC) , 全無機炭素 (TIC)	9
3.2.8 CO ₃ ²⁻ , HCO ₃ ⁻	9
3.2.9 Ba	10
3.2.10 Fe ²⁺ および全鉄 (Fe ²⁺ HACH および Total-Fe HACH)	11
3.2.11 硫化物 (H ₂ S, HS ⁻ など) (HS ⁻ HACH)	11
3.3 同位体の分析	11
3.3.1 酸素同位体比 (δ ¹⁸ O)	11
3.3.2 水素同位体比 (δD)	12
3.3.3 トリチウム (³ H)	12
4. 測定・分析結果	13
4.1 イオンバランス	13
4.2 ヘキサダイアグラム (スティブダイアグラム)	14
5. おわりに	22
謝辞	22
参考文献	23

Contents

1. Introduction	1
2. Sampling locations and methods	1
3. Analytical methods	3
3.1 Physico-chemical parameters	4
3.1.1 pH and water temperature	4
3.1.2 Electrical conductivity	5
3.2 Dissolved components in groundwater	5
3.2.1 Na ⁺ , K ⁺ , Li ⁺	5
3.2.2 NH ₄ ⁺ , Cl ⁻ , Br ⁻ , NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ , PO ₄ ³⁻	5
3.2.3 Ca ²⁺ , Mg ²⁺ , Sr ²⁺ , P, Total-Mn, Si, Total-Fe, Al, B	6
3.2.4 F ⁻	7
3.2.5 I ⁻	7
3.2.6 P-Alkalinity and M-Alkalinity	8
3.2.7 Total organic carbon (TOC), Total inorganic carbon (TIC)	9
3.2.8 CO ₃ ²⁻ , HCO ₃ ⁻	9
3.2.9 Ba	10
3.2.10 Fe ²⁺ and total Fe (Fe ²⁺ HACH and Total-Fe HACH)	11
3.2.11 Sulfide (H ₂ S, HS ⁻ etc.) (HS ⁻ HACH)	11
3.3 Isotope analysis	11
3.3.1 Oxygen isotope ratio (δ ¹⁸ O)	11
3.3.2 Hydrogen isotope ratio (δD)	12
3.3.3 Tritium (³ H)	12
4. Results	13
4.1 Ion balance	13
4.2 Hexadiagram (stiff diagram)	14
5. Summary	22
Acknowledgement	22
References	23

1. はじめに

幌延深地層研究計画では、2001年3月より、地上からの調査研究段階（第1段階）に着手し、2006年3月に第1段階の調査研究が終了し、その後、坑道掘削時の調査研究段階（第2段階）の調査研究が開始された¹⁾。2010年度からは、地下施設における坑道の整備に伴い、第2段階の調査研究と並行し、地下施設での調査研究段階（第3段階）が開始されている¹⁾。深度350mの調査坑道掘削の終了までの期間（2005年4月～2014年6月）に行われた第2段階の調査研究の成果については、佐藤他により取りまとめられている²⁾。2015年度以降は原子力機構改革により抽出された必須の課題に取り組んでおり、その成果は、第3段階の調査研究の成果として中山他により取りまとめられている³⁾。2020年度からは、令和2年度以降の幌延深地層研究計画として、中山他により取りまとめられた必須の課題の研究成果³⁾のうち、引き続き研究開発が必要と考えられる課題に取り組んでいる⁴⁾。

幌延深地層研究計画における深地層の科学的研究では、地下の地質環境特性を調査するための技術開発や、得られた地質環境特性に基づく地質環境のモデル化技術の整備が進められた。地質環境モデルの1つに、地下水の地球化学モデルがある。その構築に必要なベースラインデータとして、2001年度～2010年度の第1段階及び第2段階の調査において得られた地下施設周辺の地表から地下に至る領域の地表水（河川水）や地下水のデータが天野他により取りまとめられている⁵⁾。天野他は、第1段階における地上からのボーリング調査等を通して得られた水試料（河川水、雨水、地下水、岩石コアからの抽出水）や、第2段階における地下施設建設時の調査を通じて得られた水試料（立坑壁面からの湧水、坑道から掘削されたボーリング孔からの湧水）を対象に、地下水の物理化学パラメータ（pH、酸化還元電位、電気伝導度）、水質（溶存成分、水の酸素・水素同位体）、溶存ガス、有機物および微生物について、幅広く既存の情報を収集・整理している⁵⁾。2011年度以降も、地下施設近傍にある既存の地上からのボーリング孔や地下施設内からの採水は、継続して行われている。2013年度からは、深度350mに掘削された周回坑道（調査坑道）を利用した第3段階の調査研究が本格的に開始され、350m調査坑道から掘削されたボーリング孔からの採水も行われている。これらの2011年度～2013年度において得られた水試料の分析結果については、笹本他により取りまとめられている⁶⁾。第2段階の調査研究の終了後も引き続き第3段階の調査研究が継続され、主に地下施設の建設が地下水の水質に与える影響の調査を目的として水質データが取得されてきた。2014年度～2019年度において得られた地下水の分析結果は、宮川他により取りまとめられている^{7),8)}。

2020年度以降は、令和2年度以降の幌延深地層研究計画において取り組んでいる必須の課題への対応に必要な地下水の地球化学に関するデータを対象を絞り、引き続きデータが取得されている⁹⁾。本報告書では、2021年度に得られた地下水試料の分析結果を報告する。

2. 採取箇所および採取方法

北海道道北地方の幌延町に位置する幌延深地層研究センター地下施設の東立坑、西立坑および換気立坑の集水リング（Fig. 1a）、各調査坑道から掘削されたボーリング孔（Fig. 1b）から地下水を採取した。集水リングの地下水の採取方法については、立坑壁面からの湧水が覆工コンクリートとの隙間を通り流れ落ちたものを、立坑の壁面に深度30～40m間隔で設置されている集水リン

グで受け、そこから各調査坑道まで伸びる採水ホースを流れた地下水を、大気開放条件で採取した。集水リングの試料は、一つ上の深度に設置されている集水リングとの間の立坑壁面からの湧水を集めたものである。各調査坑道から掘削されたボーリング孔からの地下水の採取方法については、パッカーで区切られた採水区間等のボーリング孔内から伸びるチューブを通し、大気解放条件で自然に湧出する地下水を採取した。この他に、350m 調査坑道の試験坑道 4 において実施されている人工バリア性能確認試験の注入水を採取した。また、試験坑道 4 では、人工バリア性能確認試験の実施箇所周辺の壁面から水が滲み出しており、これを採取した (Fig. 1b, EBS-leakage)。Fig. 2 に、人工バリア性能確認試験の実施箇所周辺壁面から滲み出す水の採取箇所の写真を示す。

また、地下施設内においては、作業用として外部から供給されている水を使用している。この水は、幌延町内の深度約 50m から採水された地下水であり、深度 140~350m から採取された地下水とは起源が異なるため、分析に供した。

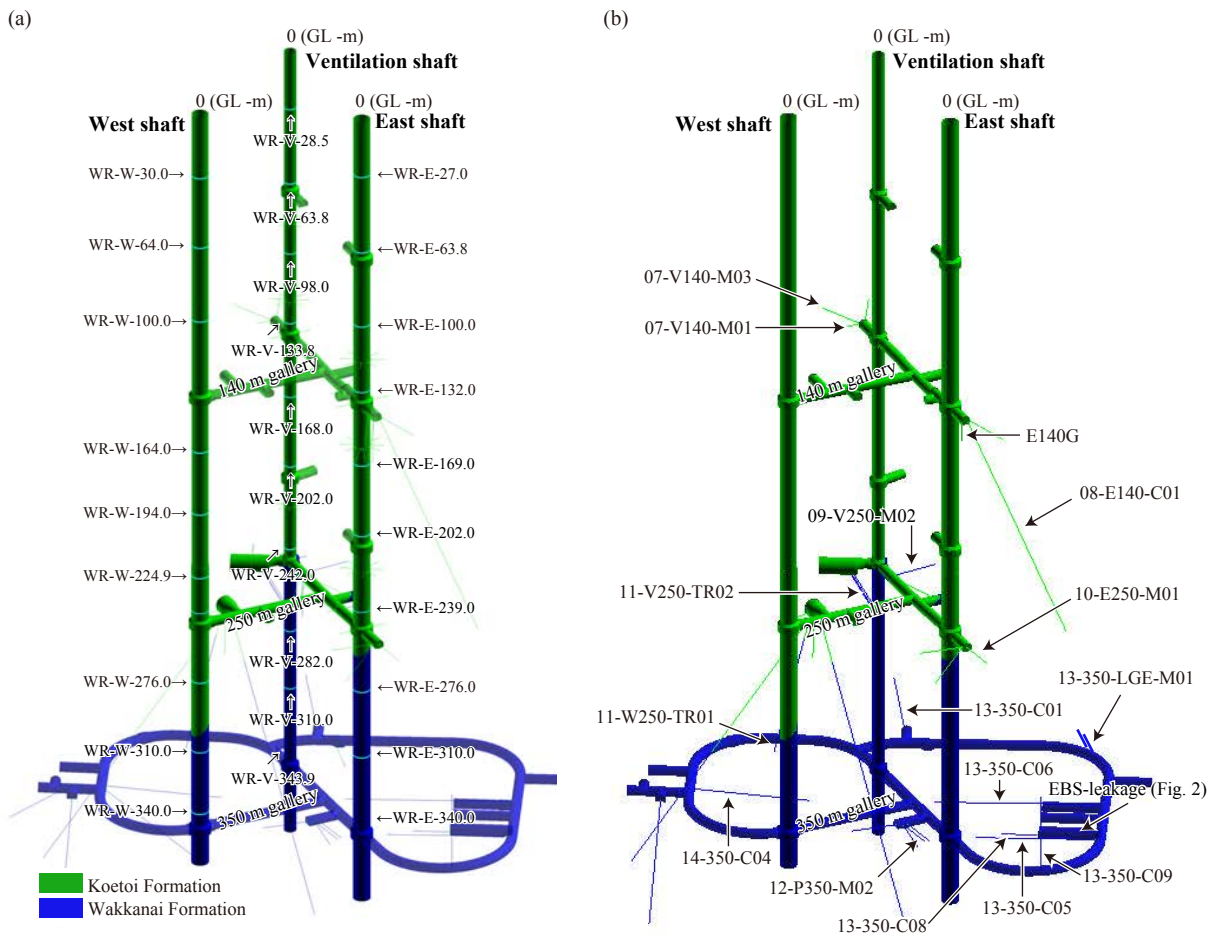


Fig. 1 Schematic illustration of the Horonobe underground research laboratory and location maps of (a) water rings and (b) boreholes



Fig. 2 Picture of sampling point of the EBS-leakage water

3. 測定・分析方法

日本原子力研究開発機構（原子力機構）により採取された試料は、九電産業株式会社へ搬送後に測定・分析された。ただし、3.2.10 項および 3.2.11 項に示される Fe^{2+} および全鉄濃度と硫化物濃度については、試料の採取直後に地下施設に於いて原子力機構が分析した。測定・分析項目は次のとおりである：①物理化学パラメータ（pH, 電気伝導度, 水温），②地下水中の溶存成分（ Na^+ , K^+ , NH_4^+ , Li^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , Sr^{2+} , Total-Mn, Si, Total-Fe, Al, B, Ba, Fe^{2+} , F^- , Cl^- , Br^- , NO_3^- , SO_4^{2-} , PO_4^{3-} , HCO_3^- , CO_3^{2-} , I^- , P, アルカリ度, 全有機炭素, 全無機炭素, 硫化物（ H_2S , HS^- など）），③同位体（酸素同位体比, 水素同位体比, トリチウム）。Table 1 に、分析項目と分析方法の一覧を示す。

Table 1 List of analytical methods

Analytical species	Analytical method	Reference
pH		JIS K 0102 12.1
Electric conductivity (EC)	Glass electrode method	JIS K 0102 13
Temperature		JIS K 0102 7.2
HCO ₃ ⁻	Calculated from pH and TIC content	JIS K 0102 22.2
CO ₃ ²⁻		JIS K 0102 25.1
Alkalinity	Neutralization titration	JIS K 0102 15
Total organic carbon (TOC)	Combustion catalytic oxidation and nondispersive infrared detection	JIS K 0102 22.2
Total inorganic carbon (TIC)		
Na ⁺	Atomic absorption spectrometry	JIS K 0102 48.2
K ⁺		JIS K 0102 49.2
Li ⁺		JIS K 0121
NH ₄ ⁺		JIS K 0102 42.5
Cl ⁻	Ion chromatography	JIS K 0102 35.3
Br ⁻		JIS K 0102 37.2
NO ₃ ⁻		JIS K 0102 43.2.5
SO ₄ ²⁻		JIS K 0102 41.3
PO ₄ ³⁻		JIS K 0102 46.1.3
Ca ²⁺		JIS K 0102 50.3
Mg ²⁺		JIS K 0102 51.3
Sr ²⁺	JIS K 0116	
P	Inductively coupled plasma atomic emission spectrometry	JIS K 0116
Si		JIS K 0116
Total Mn		JIS K 0102 56.4
Total Fe		JIS K 0102 57.4
Al		JIS K 0102 58.4
B		JIS K 0102 47.3
F ⁻	Lanthanide alizarin complexone spectrophotometry	JIS K 0102 34.1
Γ	Ferric thiocyanate complex spectrophotometry	
Ba	Inductively coupled plasma mass spectrometry	JIS K 0116
Oxygen isotope ratio (δ ¹⁸ O)	Mass spectrometry	MEXT's radiation measurement method ¹⁰⁾
Hydrogen isotope ratio (δD)		
Tritium	Scintillation counter method	
Fe ²⁺ and total Fe	Phenanthroline absorptiometry	JIS K 0400 57.10
Sulfide (H ₂ S, HS ⁻ , etc.)	Methylene blue absorptiometry	JIS K 0102 39.1

3.1 物理化学パラメータの測定

3.1.1 pH および水温

ガラス電極法 (pH: JIS K 0102 12.1, 水温: JIS K 0102 7.2 に基づく) により測定した。測定には、東亜ディーケーケー製マルチ水質計 MM-60R+pH 電極 (GST-5721C) を用いた。pH 標準液として、次の 3 種類の試薬を用いた。(1) フタル酸塩 pH 標準液 (富士フイルム和光純薬製 JCSS pH 標

準液第 2 種 pH4.01 (25°C)), (2) 中性リン酸塩 pH 標準液 (富士フイルム和光純薬製 JCSS pH 標準液第 2 種 pH6.86 (25°C)), (3) ホウ酸塩 pH 標準液 (富士フイルム和光純薬製 JCSS pH 標準液第 2 種 pH9.18 (25°C))。

測定手順は次のとおりである。測定の前に、検出部を水で 3 回以上繰り返し洗い、洗浄後にきれいな柔らかい紙で拭いた。試料の測定後も同様に、検出部を洗浄した。中性リン酸塩 pH 標準液をビーカーに採り、検出部を浸して pH6.86 (25°C) に校正した。フタル酸塩 pH 標準液をビーカーに採り、検出部を浸して pH4.01 (25°C) に校正した。ホウ酸塩 pH 標準液をビーカーに採り、検出部を浸して pH9.18 (25°C) に校正した。試料をビーカーに採り、検出部を浸して pH 値と測定温度を記録した。測定は 3 回繰り返し、平均値を算出した。品質管理の指標として、3 回の測定値の変動が±0.1 以内であることを確認した。

3.1.2 電気伝導度

JIS K 0102 13 に基づき、電気伝導度の測定を行った。測定に用いた装置は、東亜ディーケーケー製マルチ水質計 MM-60R であり、電極には低濃度用導電率電極 (CT-57101C) および高濃度用導電率電極 (CT-57101A) を用いた。

測定手順は次のとおりである。検出部を水で 3 回以上繰り返し洗った。試料でセルを 2, 3 回洗浄した後、検出部を試料溶液で満たし、電気伝導度を測定した。測定値が±3%で一致するまで数回測定し、電気伝導度 (mS/m) (25°C 自動補正值) を読み取った。品質管理として、塩化カリウム標準液の数回測定の変動が±3%であることを確認した。また、0.744 g/L 塩化カリウム標準液の電気伝導度が 140.8 mS/m (25°C) ±10%以内であり、7.437 g/L 塩化カリウム標準液の電気伝導率が 1286 mS/m (25°C) ±10%以内であることを確認した。

3.2 地下水中の溶存成分の分析

3.2.1 Na⁺, K⁺, Li⁺

フレイム原子吸光法 (Na⁺: JIS K 0102 48.2, K⁺: JIS K 0102 49.2, Li⁺: JIS K 0121 に基づく) により分析した。測定装置は、サーモフィッシャーサイエンティフィック製原子吸光度計 SOLAAR-M5 AA system である。吸光度を測定した波長は、Na⁺については 589.6 nm, K⁺については 766.5 nm, Li⁺については 670.8 nm である。用いた試薬は次のとおりである。(1) 塩酸 特級 (富士フイルム和光純薬製), (2) 塩化ナトリウム 容量分析用標準物質 (富士フイルム和光純薬製), (3) 塩化カリウム 99.9% (富士フイルム和光純薬製), (4) 1000 mg/L リチウム標準液 (富士フイルム和光純薬製)。

分析手順は次のとおりである。試料を試薬 (1) で pH2 以下に調整し、試料溶液とした。各成分元素の標準試料を段階的に希釈して標準溶液とし、検量線を作成した。試料溶液および試薬 (2) ~ (4) を用いて作成した標準溶液を測定し、検量線から濃度換算した。品質管理として、硝酸添加後の試料溶液の pH が 2 以下であることを確認した。また、試料溶液の測定前後における標準溶液の測定値の違いが、相対標準偏差の±5%以内であることを確認した。

定量下限については、Na⁺と K⁺は 0.02 mg/L, Li⁺は 0.01 mg/L である。

3.2.2 NH₄⁺, Cl⁻, Br⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻, PO₄³⁻

イオンクロマトグラフ法 (NH₄⁺: JIS K 0102 42.5, Cl⁻: JIS K 0102 35.3, Br⁻: JIS K 0102 37.2, NO₃⁻:

JIS K 0102 43.2.5, SO_4^{2-} : JIS K 0102 41.3, PO_4^{3-} : JIS K 0102 46.1.3 に基づく) により分析した。測定装置は、日本ダイオネクス製イオンクロマトグラフ ICS-1100 を用いた。

NH_4^+ の場合：分離カラムには、IonPac CG-12A/CS-12A を用いた。溶離液には、22 mM メタンスルホン酸を用い、その流量は 1.0 mL/min とした。サプレッサーには、CSRS-300 (4 mm) を用いた。検出器は電気伝導度検出器であり、試料の注入量は 50.0 μL である。用いた試薬は次のとおりである。(1) 1000 mg/L NH_4^+ 標準液 (富士フィルム和光純薬製), (2) メタンスルホン酸 (日本ダイオネクス製専用試薬 EGC II MSA)。

Cl^- , Br^- , NO_3^- , SO_4^{2-} , PO_4^{3-} の場合：分離カラムには、IonPac AG-12A/AS-12A を用いた。溶離液には、2.7 mM 炭酸ナトリウム水溶液および 0.3 mM 炭酸水素ナトリウム水溶液を用い、その流量は 1.0 mL/min とした。サプレッサーには、ASRS-300 (4 mm) を用いた。検出器は電気伝導度検出器 (Cl^- , Br^- , SO_4^{2-} , PO_4^{2-}) および UV 検出器 (NO_3^-) であり、試料の注入量は 50.0 μL である。用いた試薬は次のとおりである。(3) 1000 mg/L Cl^- 標準液 (富士フィルム和光純薬製), (4) 1000 mg/L Br^- 標準液 (富士フィルム和光純薬製), (5) 1000 mg/L NO_3^- 標準液 (富士フィルム和光純薬製), (6) 1000 mg/L SO_4^{2-} 標準液 (富士フィルム和光純薬製), (7) 1000 mg/L PO_4^{3-} 標準液 (富士フィルム和光純薬製), (8) 炭酸ナトリウム (富士フィルム和光純薬製), (9) 炭酸水素ナトリウム (富士フィルム和光純薬製)。

分析手順は次のとおりである。試料を 0.45 μm および 0.2 μm のフィルターでろ過し、ろ液を試料溶液とした。溶離液の作成には、試薬 (2) または試薬 (8) および (9) を用いた。試薬 (1), (3) ~ (7) それぞれを段階的に希釈して標準溶液とし、検量線を作成した。試料溶液を測定し、検量線から濃度換算した。品質管理として、クロマトグラムベースラインが安定していることを確認した。また、試料溶液の測定前後における標準溶液の測定値の違いが、相対標準偏差の $\pm 5\%$ 以内であることを確認した。

定量下限については、 NH_4^+ , Cl^- , Br^- , NO_3^- , SO_4^{2-} は 0.1 mg/L, PO_4^{3-} は 0.3 mg/L である。

3.2.3 Ca^{2+} , Mg^{2+} , Sr^{2+} , P, Total-Mn, Si, Total-Fe, Al, B

ICP 発光分光分析法 (Ca^{2+} : JIS K 0102 50.3, Mg^{2+} : JIS K 0102 51.3, Sr^{2+} , P, Si: JIS K 0116, Total-Mn: JIS K 0102 56.4, Total-Fe: JIS K 0102 57.4, Al: JIS K 0102 58.4, B: JIS K 0102 47.3 に基づく) により分析した。用いた測定装置は、パーキンエルマー製 ICP 発光分光分析装置 Avio500 である。測定した波長は、 Ca^{2+} については 317.9 nm, Mg^{2+} については 285.2 nm, Sr^{2+} については 407.8 nm, P については 213.6 nm, Total-Mn については 257.6 nm, Si については 251.6 nm, Total-Fe については 259.9 nm, Al については 396.2 nm, B については 249.7 nm である。ただし、元素間干渉によるスペクトルの重なりがある場合には他の干渉のない分析線を使用した。用いた試薬は次のとおりである。

(1) 硝酸 試薬特級 (富士フィルム和光純薬製), (2) 1000 mg/L ICP マルチエレメントスタンダード IV (Merck 製), (3) 1000 mg/L リン標準液 (富士フィルム和光純薬製), (4) 1000 mg/L ケイ素標準液 (富士フィルム和光純薬製)。

分析手順は次のとおりである。試料を試薬 (1) で pH2 以下に調整し、0.45 μm のフィルターでろ過し、ろ液を試料溶液とした。ろ過前には、試料を十分に振り混ぜ、攪拌を行った。試薬 (2) ~ (4) をそれぞれ段階的に希釈して標準溶液とし、検量線を作成した。試料溶液を測定し、検量線から濃度換算した。品質管理として、硝酸添加後の試料溶液の pH が 2 以下であることを確認した。また、試料溶液の測定前後における標準溶液の測定値の違いが、相対標準偏差の $\pm 5\%$ 以内

であることを確認した。

定量下限については、 Ca^{2+} は 0.01 mg/L、 Mg^{2+} は 0.001 mg/L、 Sr^{2+} は 0.01 mg/L、Total-Mn は 0.05 mg/L、Total-Fe は 0.03 mg/L、Si, P は 0.1 mg/L、Al, B は 0.01 mg/L である。

3.2.4 F⁻

ランタン-アリザリンコンプレキソン吸光光度法（JIS K 0102 34.1 に基づく）により分析した。用いた装置は、日立ハイテクサイエンス製の分光光度計 U-2900 である。吸光度を測定した波長は、620 nm である。用いた試薬は次のとおりである。(1) 水酸化ナトリウム 特級（富士フィルム和光純薬製）、(2) 二酸化ケイ素 特級（富士フィルム和光純薬製）、(3) リン酸 特級（富士フィルム和光純薬製）、(4) 過塩素酸 特級（富士フィルム和光純薬製）、(5) 硫酸 特級（富士フィルム和光純薬製）、(6) 1000 mg/L ふっ素標準液（富士フィルム和光純薬製）、(7) アルフッソン（同仁化学研究所製）、(8) アセトン 特級（富士フィルム和光純薬製）。

分析手順は次のとおりである。はじめに、水蒸気蒸留操作を行った。試料 5~100 mL を 200 mL コニカルビーカーに計り取り、フェノールフタレイン指示薬を 2,3 滴加えた。100 g/L の水酸化ナトリウム水溶液（試薬 (1)）を、試料が微紅色に変化するまで加えた。沸騰石を数個入れた後、電熱器で加熱して試料量が 10 mL 以下になるまで濃縮した。試料を蒸留フラスコに移し、二酸化ケイ素（試薬 (2)）を 0.25 g、リン酸（試薬 (3)）を 0.5 mL、過塩素酸（試薬 (4)）を 12 mL を加えた。水蒸気蒸留装置を用いて 190±5°C、1.0~1.6 mL/min の条件で蒸留操作を行った。受け器には容積 100 mL の共栓付メスシリンダーを用い、吸収液として 20 g/L の水酸化ナトリウム水溶液（試薬 (1)）20 mL とフェノールフタレイン指示薬 2 滴を加えたものを用いた。受け器に 80 mL まで蒸留を続けた後、硫酸（試薬 (5)）で中和して 100 mL に定容した。

次に、比色操作を行い、フッ素濃度を定量した。試薬 (6) を段階的に希釈して、検量線用の標準溶液を作成した（検量線範囲 0.1~1.0 mg/L）。試料を容積 50 mL のメスフラスコに取り（最大 30 mL）、50 g/L アルフッソン水溶液（試薬 (7)）5 mL とアセトン（試薬 (8)）10 mL を加えて 1 時間放置した。620 nm の吸光度を測定し、試料のフッ素濃度を定量した。品質管理として、試料溶液の測定前後における標準溶液の測定値の違いが、相対標準偏差の±10%以内であることを確認した。

定量下限については、0.1 mg/L である。

3.2.5 I⁻

接触反応法により分析した。用いた分析装置は、日立ハイテクサイエンス製の分光光度計 U-2900 である。吸光度を測定した波長は、480 nm である。用いた試薬は、(1) ヨウ素酸カリウム 特級（富士フィルム和光純薬製）、(2) チオシアン酸カリウム 特級（富士フィルム和光純薬製）、(3) 亜硝酸ナトリウム 特級（富士フィルム和光純薬製）、(4) 硫酸アンモニウム鉄 (III)・12 水（鉄ミョウバン）特級（富士フィルム和光純薬製）、(5) 硝酸 特級（富士フィルム和光純薬製）、(6) 水酸化ナトリウム 特級（富士フィルム和光純薬製）である。

試薬の調整法は次のとおりである。チオシアン酸カリウム（試薬 (2)）0.243 g と亜硝酸ナトリウム（試薬 (3)）0.0242 g を水で溶解させ、500 mL のチオシアン酸カリウム-亜硝酸ナトリウム混合溶液とした。鉄ミョウバン（試薬 (4)）6.0 g を 7 N 硝酸に溶解させ、100 mL の鉄-ミョウバン-硝酸混合溶液とした。

分析手順は次のとおりである。ヨウ素酸カリウム（試薬（1））1.686 g を 1 L の水に溶かし、1000 mg/L ヨウ素溶液とした。これを段階的に希釈して検量線用の標準溶液とした。アルカリ処理として、試料量の 1%相当量の 20%水酸化ナトリウム水溶液（試薬（6））を試料に加え、これを硝酸（試薬（5））で中和したのち 50 mL に定容した。このうち 10 mL を共栓付き試験管に分取し、30°C の恒温槽で 30 分間放置した。チオシアン酸カリウム-亜硝酸ナトリウム混液を 1 mL 添加し振り混ぜた後、30°C の恒温槽で 10 分間放置した。鉄-ミョウバン-硝酸混合溶液を 2 mL 加えて振り混ぜた後、30°C の恒温槽に 20 分間（正確に 20 分±5 秒）置くことで、溶液中のヨウ素を反応させた。試料溶液および標準溶液についてこの反応処理を行った後に、480 nm の吸光度を測定し、検量線の作成および濃度の換算、測定を行なった。なお、鉄-ミョウバン-硝酸混合溶液の添加および吸光度の測定については、ストップウォッチを用いて各試料について正確に時間を計測し、測定を行うことで、各試料の反応時間を合わせるように注意した。品質管理として、試料溶液の測定前後における標準溶液の測定値の違いが、相対標準偏差の±10%以内であることを確認した。

定量下限については、0.1 mg/L である。

3.2.6 アルカリ度（P-Alkalinity および M-Alkalinity）

滴定法（JIS K 0102 15 に基づく）により測定した。用いた試薬は、0.1 mol/L 塩酸（関東化学製容量分析用）である。

P アルカリ度（酸消費量（pH8.3））の測定手順は次のとおりである。試料 20～100 mL をビーカーに取り、試料に pH 計の電極を浸した。マグネチックスターラーで攪拌しながら 0.1 mol/L 塩酸を用いて試料の pH が 8.3 になるまで滴定した。次式によって P アルカリ度を算出した。

$$P \text{ アルカリ度 (CaCO}_3 \text{ mg/L)} = a \times f \times 1000/v \times 5.004,$$

$$P \text{ アルカリ度 (mEq/L)} = a \times f \times 0.1 \times 1000/v,$$

a : 滴定に要した 0.1 mol/L 塩酸の量 (mL),

f : 0.1 mol/L 塩酸のファクター,

v : 用いた試料量 (mL),

5.004 : 0.1 mol/L 塩酸 1 mL の炭酸カルシウム相当量 (mg),

0.1 : 0.1 mol/L 塩酸 1 mL の水素イオン濃度相当量 (mmol)。

M アルカリ度（酸消費量（pH4.8））の測定手順は次のとおりである。試料 20～100 mL をビーカーに採り、試料に pH 計の電極を浸した。マグネチックスターラーで攪拌しながら 0.1 mol/L 塩酸を用いて試料の pH が 4.8 になるまで滴定した。次式によって M アルカリ度を算出した。

$$M \text{ アルカリ度 (CaCO}_3 \text{ mg/L)} = a \times f \times 1000/v \times 5.004,$$

$$M \text{ アルカリ度 (mEq/L)} = a \times f \times 0.1 \times 1000/v,$$

a : 滴定に要した 0.1 mol/L 塩酸の量 (mL),

f : 0.1 mol/L 塩酸のファクター,

v : 用いた試料量 (mL),

5.004 : 0.1 mol/L 塩酸 1 mL の炭酸カルシウム相当量 (mg),

0.1 : 0.1 mol/L 塩酸 1 mL の水素イオン濃度相当量 (mmol)。

品質管理として、pH 電極で終点（pH=8.3 または 4.9）の pH を確認した。

定量下限については、1 mg/L または 0.02 mEq/L である。

3.2.7 全有機炭素 (TOC) , 全無機炭素 (TIC)

燃焼酸化-赤外線式 TOC 自動計測法 (JIS K 0102 22.2 に基づく) により分析した。用いた測定装置は、島津製作所製全有機体炭素計 TOC-VCTH である。キャリアーガスには酸素ガスを用いた。用いた試薬は次のとおりである。(1) フタル酸水素カリウム 特級 (富士フィルム和光純薬製), (2) 炭酸水素ナトリウム 特級 (富士フィルム和光純薬製), (3) 炭酸ナトリウム 特級 (富士フィルム和光純薬製), (4) リン酸溶液 (富士フィルム和光純薬製), (5) 塩酸 特級 (富士フィルム和光純薬製)。

分析手順は次のとおりである。TOC の場合: フタル酸水素カリウム (試薬 (1)) を 120°C で約 1 時間加熱し、デシケーター中で放冷した。その 2.125 g を測り取り、水で溶かして全量を 1000 mL に調整し、これを TOC 標準溶液とした。TOC 標準溶液の一定量 (50 μL) を測定して指示値を読み取った。この操作を数回繰り返す、指示値が一定になることを確かめた。リン酸溶液 (試薬 (4)) は、分析装置内で試料を酸化し、無機炭素を除去することに用いられる。TOC 標準溶液を調製し、検量線を作成した。空試験として、TOC 標準溶液の調製に用いた水と同量の水を測定して検量線を補正した。試料に塩酸 (試薬 (5)) を加えて pH を 3 以下に調整したものを試料溶液とし、これに通気して無機炭素と揮発性有機化合物を除去した溶液について、同様に測定し、これを TOC 濃度とした。ここで検出された TOC は、地下水中に溶存しているメタンガスなどの揮発性有機化合物を含まないことから、不揮発性有機体炭素 (Non-Purgeable Organic Carbon: NPOC) の意味になる。品質管理として、試料溶液の測定前後における標準溶液の測定値の違いが、標準値の±10%以内であることを確認した。

TIC の場合: デシケーター中で 18 時間乾燥させた炭酸水素ナトリウム (試薬 (2)) を 3.497 g, 600°C で 1 時間加熱してデシケーター中で放冷した炭酸ナトリウム (試薬 (3)) を 4.412 g それぞれ測り取り、両者を水で 1000 mL に定容し、これを TIC 標準溶液とした。TIC 標準溶液の一定量 (50 μL) を測定して指示値を読み取った。この操作を数回繰り返す、指示値が一定になることを確かめた。TIC 標準溶液を調製し、検量線を作成した。空試験として、TIC 標準溶液の調製に用いた水と同量の水を測定して検量線を補正した。試料の TIC 測定を行い、各検量線から濃度を換算した。品質管理として、試料の測定前後における標準溶液の測定値の違いが、標準値の±10%以内であることを確認した。

定量下限については、0.3 mg/L である。

3.2.8 CO_3^{2-} , HCO_3^-

試料中の全炭酸濃度と試料の pH から、次式によって算出した。全炭酸濃度は TIC 濃度から計算した。各 pH における炭酸イオンおよび炭酸水素イオンの存在割合については Table 2 を参照されたい。定量下限については、それぞれ 1 mg/L である。

$$\text{CO}_3^{2-} = C \times b \times 1.364,$$

$$\text{HCO}_3^- = C \times a \times 1.387,$$

CO_3^{2-} : 炭酸イオン (mg CO_3^{2-} /L) ,

HCO_3^- : 炭酸水素イオン (mg HCO_3^- /L) ,

C: 全炭酸 (mg CO_2 /L) ,

a: 全炭酸に対する炭酸水素イオンの存在割合,

b: 全炭酸に対する炭酸イオンの存在割合,

- 1.364: 全炭酸の量を炭酸イオン相当量に換算する場合の係数 (60.01/44.01) ,
 1.387: 全炭酸の量を炭酸水素イオン相当量に換算する場合の係数 (61.02/44.01) 。

Table 2 Abundance ratios of bicarbonate and carbonate ions at pH of 2.0–13.0

pH	Abundance ratio (25°C)		pH	Abundance ratio (25°C)		pH	Abundance ratio (25°C)	
	a(HCO ₃ ⁻)	b(CO ₃ ²⁻)		a(HCO ₃ ⁻)	b(CO ₃ ²⁻)		a(HCO ₃ ⁻)	b(CO ₃ ²⁻)
2.0	0.00004	-	6.0	0.30118	0.00001	10.0	0.68012	0.31972
2.1	0.00005	-	6.1	0.35174	0.00002	10.1	0.62814	0.37175
2.2	0.00007	-	6.2	0.40584	0.00003	10.2	0.57300	0.42692
2.3	0.00009	-	6.3	0.46233	0.00004	10.3	0.51597	0.48397
2.4	0.00011	-	6.4	0.51980	0.00006	10.4	0.45852	0.54144
2.5	0.00014	-	6.5	0.57675	0.00009	10.5	0.40215	0.59782
2.6	0.00017	-	6.6	0.63172	0.00012	10.6	0.34824	0.65174
2.7	0.00022	-	6.7	0.68345	0.00016	10.7	0.29796	0.70202
2.8	0.00027	-	6.8	0.73098	0.00022	10.8	0.25213	0.74786
2.9	0.00034	-	6.9	0.77371	0.00029	10.9	0.21123	0.78876
3.0	0.00043	-	7.0	0.81137	0.00038	11.0	0.17541	0.82459
3.1	0.00054	-	7.1	0.84396	0.00050	11.1	0.14455	0.85545
3.2	0.00068	-	7.2	0.87173	0.00065	11.2	0.11833	0.88166
3.3	0.00086	-	7.3	0.89508	0.00084	11.3	0.09634	0.90366
3.4	0.00108	-	7.4	0.91445	0.00108	11.4	0.07807	0.92193
3.5	0.00136	-	7.5	0.93036	0.00138	11.5	0.06303	0.93697
3.6	0.00171	-	7.6	0.94326	0.00177	11.6	0.05072	0.94928
3.7	0.00216	-	7.7	0.95361	0.00225	11.7	0.04072	0.95928
3.8	0.00271	-	7.8	0.96178	0.00285	11.8	0.03261	0.96739
3.9	0.00341	-	7.9	0.96811	0.00362	11.9	0.02608	0.97392
4.0	0.00429	-	8.0	0.97285	0.00457	12.0	0.02083	0.97917
4.1	0.00540	-	8.1	0.97623	0.00578	12.1	0.01662	0.98338
4.2	0.00678	-	8.2	0.97839	0.00729	12.2	0.01324	0.98676
4.3	0.00853	-	8.3	0.97942	0.00919	12.3	0.01055	0.98945
4.4	0.01071	-	8.4	0.97939	0.01156	12.4	0.00840	0.99160
4.5	0.01345	-	8.5	0.97828	0.01454	12.5	0.00668	0.99332
4.6	0.01687	-	8.6	0.97604	0.01827	12.6	0.00531	0.99469
4.7	0.02114	-	8.7	0.97258	0.02291	12.7	0.00423	0.99577
4.8	0.02647	-	8.8	0.96774	0.02870	12.8	0.00336	0.99664
4.9	0.03310	-	8.9	0.96130	0.03590	12.9	0.00267	0.99733
5.0	0.04132	-	9.0	0.95299	0.04480	13.0	0.00212	0.99788
5.1	0.05147	-	9.1	0.94248	0.05578			
5.2	0.06394	-	9.2	0.92939	0.06925			
5.3	0.07919	-	9.3	0.91328	0.08566			
5.4	0.09769	-	9.4	0.89365	0.10553			
5.5	0.11995	-	9.5	0.87002	0.12934			
5.6	0.14645	-	9.6	0.84194	0.15757			
5.7	0.17764	-	9.7	0.80901	0.19061			
5.8	0.21380	-	9.8	0.77102	0.22870			
5.9	0.25504	-	9.9	0.72796	0.27183			

3.2.9 Ba

ICP-質量分析法 (JIS K 0116 に基づく) により分析した。分析装置は、アジレント・テクノロジー製の Agilent8900 を用いた。標準試薬として、Ba 標準液 (JCSS) (富士フイルム和光純薬製) を用いた。試料を 10 倍希釈の 1M 硝酸溶液とし、ICP-MS で測定した。品質管理として、ICP-MS 装置のチューニングを行い、感度が安定していることを確認した。また、試料の測定前後における標準溶液の測定値の違いが、相対標準偏差の±10%以内であることを確認した。

定量下限については、Ba は 0.01 µg/L である。

3.2.10 Fe²⁺および全鉄 (Fe²⁺ HACH および Total-Fe HACH)

1,10-フェナントロリン吸光光度法 (JIS K 0400 57.10 に基づく) により分析した。用いた分析装置は、HACH (ハック) 製の吸光光度計 DR2800 である。

分析手順は次のとおりである。試料を 0.45 μm のフィルターでろ過し、ろ液を試料溶液とした。試料溶液に 1,10-フェナントロリン試薬 (HACH (ハック) 製 Cat.1037-69) を加え、攪拌後、3 分間静置した。波長 510 nm の吸光度を測定し、装置に付属の検量線を用いて 2 価鉄の濃度を求めた。全鉄については、試料溶液に 1,10-フェナントロリン試薬および次亜硫酸ナトリウム等の還元剤 (HACH (ハック) 製 Cat.21057-69) を加え、攪拌後、3 分間静置し、波長 510 nm の吸光度を測定し、装置に付属の検量線を用いて求めた。品質管理の指標として、同一試料に対して上記の分析手順を 3 回行い、ばらつきを記録した。なお、本分析は、試料採取直後に現場において実施した。

3.2.11 硫化物 (H₂S, HS⁻など) (HS⁻ HACH)

メチレンブルー吸光光度法 (JIS K 0102 に基づく) により分析した。用いた分析装置は、HACH (ハック) 製の吸光光度計 DR2800 である。

分析手順は次のとおりである。試料を 0.45 μm のフィルターでろ過し、ろ液を試料溶液とした。試料溶液に N,N-ジメチル-p-フェニレンジアミンを含む硫酸試薬および二クロム酸試薬 (HACH (ハック) 製 Cat.1816-32 および 1817-32) を加え、攪拌後、5 分間静置した。波長 665 nm の吸光度を測定し、装置に付属の検量線を用いて硫化物の濃度を求めた。品質管理の指標として、同一試料に対して上記の分析手順を 3 回行い、ばらつきを記録した。なお、本分析は、試料採取直後に現場において実施した。

3.3 同位体の分析

3.3.1 酸素同位体比 (δ¹⁸O)

質量分析法により測定した。前処理は、エレメンター・ジャパン製の MultiFlow Bio 平衡装置を用い、二酸化炭素-水平衡法により行った。測定装置は、エレメンター・ジャパン製 IsoPrime コンティニューアスフロー方式安定同位体比質量分析装置を用いた。1 試料の測定につき、測定回数を 3 回以上とした (測定精度±0.1‰)。一次標準試料には IAEA の標準物質である平均海水の VSMOW (Vienna Standard Mean Ocean Water) および南極の雪である VSLAP (Vienna Standard Light Antarctic Precipitation) を用いた。準一次標準試料にはグリーンランド氷床の雪である GISP (Greenland Ice Sheet Precipitation) を用いた。二次標準試料には九電産業水道水である KSW-5 を用いた。平衡ガスには 5%CO₂ と He (≧99.995%) の混合ガスを用いた。キャリアーガスには He ガス (≧99.999%) を用いた。リファレンスガスには CO₂ ガス (≧99.995%) を用いた。

分析手順は次のとおりである。キャリアーガス (He) とリファレンスガス (CO₂) の圧力が十分であることを確認し、リファレンスガスの一次弁を開けた。安定同位体比質量分析計の調整を行った後に、スタビリティチェック (リファレンスガスの同位体比の 10 回測定) を行い、標準偏差が 0.1‰以下であることを確認した。バイアル瓶内に試料及び二次標準試料を各 0.2 mL ずつ入れ、これを前処理装置に取り付け、前処理装置の温度調整スイッチを 40℃にした。He ガスによるフラッシュ、平衡ガスの導入、4.5 時間の平衡、測定の順に自動で測定を行った。二次標準試料 (一次標準試料の検量線で規格化済) の測定値と試料の測定値から、試料の酸素同位体比を VSMOW スケールとして千分率 (‰) に換算した。品質管理として、スタビリティチェック値および測定

バッチ毎の二次標準試料の実測値を管理項目とし、分析装置の異常がないことを確認した。

分析結果は、次式で表されるデルタ値 (δ) として示す。

$$\delta = (R)_{\text{sample}} / (R)_{\text{VSMOW}} - 1$$

R は酸素同位体比 ($^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$) の測定値である。

3.3.2 水素同位体比 (δD)

質量分析法により測定した。前処理は、エレメンター・ジャパン製の vario EL cube 元素分析計を用い、クロム還元法により行った。測定装置は、エレメンター・ジャパン製 IsoPrime コンティニューアスフロー方式安定同位体比質量分析装置を用いた。1 試料の測定につき、測定回数を 5 回以上とした (測定精度 $\pm 1\%$)。一次標準試料には VSMOW および VSLAP を用いた。準一次標準試料には GISP を用いた。二次標準試料には KSW-5 を用いた。クロム粉末は、vario EL cube 専用のもを用いた。キャリアーガスには、He ガス ($\geq 99.999\%$) を用いた。リファレンスガスには、 H_2 ガス ($\geq 99.995\%$) を用いた。

分析手順は次のとおりである。キャリアーガス (He) とリファレンスガス (H_2) の圧力が十分にあることを確認し、リファレンスガスの一次弁を開けた。安定同位体比質量分析装置の調整を行った後に、前処理装置の炉の温度を 1080°C にセットした。スタビリティチェック (リファレンスガスの同位体比の 10 回測定) を行い、標準偏差が 0.2% 以下であることを確認した。バイアル瓶内に試料及び二次標準試料をそれぞれ十分量 (約 2mL) 入れ、前処理装置のオートサンプラーにバイアル瓶を取り付けた後、自動測定をスタートさせた (サンプル分取 $0.5\ \mu\text{L}$ → 元素分析計内に導入 → H_2O を H_2 に還元 → 測定の順に進む)。二次標準試料 (一次標準試料の検量線で規格化済) の測定値と試料の測定値から試料の水素同位体比を SMOW スケールとして千分率 (%) に換算した。品質管理として、スタビリティチェック値および測定バッチ毎の二次標準試料の実測値を管理項目とし、分析装置の異常がないことを確認した。

分析結果は、次式で表されるデルタ値 (δ) として示す。

$$\delta = (R)_{\text{sample}} / (R)_{\text{VSMOW}} - 1$$

R は水素同位体比 (D/H) の測定値である。

3.3.3 トリチウム (^3H)

電解濃縮-液体シンチレーション測定法 (文部科学省放射能測定法¹⁰⁾ に基づく) により分析した。分析装置には、アロカ製 LSC-LB5 型低バックグラウンド液体シンチレーションカウンターを用いた。測定時間は 1000 分とした。用いた試薬は次のとおりである。(1) 乳化シンチレーター (パーキンエルマー製ウルチマゴールド LLT), (2) JCSS 校正付トリチウム標準溶液 (日本アイソトープ協会製), (3) 過酸化ナトリウム (関東化学製)。

分析手順は次のとおりである。約 1 L の試料水を、電気伝導率が $10\ \mu\text{S}/\text{cm}$ 以下になるまで蒸留した。蒸留した試料水 $800\sim 1000\ \text{mL}$ を電解セルに入れ、過酸化ナトリウム (試薬 (3)) を加え、約 1% のアルカリ溶液とした。直流電流を電極電流密度 $100\ \text{mA}/\text{cm}^2$ で通電し、目的の残存量になるまで電解濃縮を行った。電解濃縮液の蒸留を行い、蒸留後の電解濃縮液 $50\ \text{mL}$ を乳化シンチレーター (試薬 (1)) $50\ \text{mL}$ と混合した。低バックグラウンド液体シンチレーション測定器により、1000 分間測定を行った。同時に測定される外部標準チャンネル比 (ESCR) と、トリチウム標準溶液 (試薬 (2)) を使用して得られるクエンチング補正曲線 (ESCR と計数効率の関係式) から、試

料測定時の計数効率を得、電解濃縮液のトリチウム濃度を算出した。これをトリチウム濃縮率で除することにより試料のトリチウム濃度を得た。

トリチウム濃度は、試料の計数率からバックグラウンドの計数率を差し引いて正味計数率を求めた後、濃度既知のトリチウム標準溶液から得られたクエンチング補正曲線より求めた計数効率および測定に用いた試料量から計測用試料水中の濃度を求め、これに電解濃縮による体積濃縮率とトリチウム回収率および試料採取日までの減衰を補正することで、試料採取時のトリチウム濃度を算出した。なお、濃度計算に使用する計数値は、シグマ検定により異常値（標準偏差 $\pm 2\sigma$ を超える値）を棄却した後のデータのみを用いた。試料の正味計数率が、定量下限計数率以下の場合には、トリチウムは検出されなかったものとし、定量下限計数率に相当する濃度を基準日における定量下限値とした。トリチウム濃度の単位は、1秒間に1個の原子崩壊を起こす放射能を表すBq（ベクレル）として表す。なお、水素原子 10^{18} 個中のトリチウム原子数を表す単位であるTU（トリチウム単位）（ $1\text{ TU} = {}^3\text{H}/\text{H} = 10^{-18}$ ）との換算式は、 $1\text{ TU} \equiv 0.119\text{ Bq/L}$ である。

品質管理として、試料計測時におけるバックグラウンドの計数率とその前後における液体シンチレーション用基準試料（日本アイソトープ協会製）の測定値を管理項目とし、測定器の異常がないことを確認した。

定量下限は、約0.3 TU（約0.04 Bq/L）である。ただし、定量下限の値は、電解濃縮による濃縮比やトリチウムの回収率が各セルで僅かに異なることや、試料採取日から計測日までの経過時間が異なること、バックグラウンドの計数値がランダム誤差を持つことなどの要因により、計算上、試料によって差が生じる場合がある。

4. 測定・分析結果

測定・分析結果を、試料の採取箇所名、試料名及び採取箇所の深度情報や座標等と合わせてTable 3に示す。表中の測定日については、分析機関における試料の分析に要した期間を示している。ただし、トリチウムの分析に要した期間は含まれない。項目「Total-Fe HACH」と「Fe²⁺ HACH」および「HS⁻ HACH」は、3.2.10項と3.2.11項で述べた試料採取直後の現場での分析結果に該当する。ある試料中のある分析項目に対する空欄は、分析を実施していないことを意味する。Index no. 52の試料は、作業用として地下施設内に供給されている幌延町内の深度約50mから採水された地下水である。

4.1 イオンバランス

地下水中の溶存成分の分析結果について、全ての元素がイオンとして溶存していると仮定し、地下水の水質分析結果を評価するために、地下水中に溶存する陽イオンの総当量（ $\Sigma\text{ cation}$ ）と陰イオンの総当量（ $\Sigma\text{ anion}$ ）を計算し、電荷のバランスについて電気的中性が保たれているかどうかを確認した（Table 3）。計算では、陽イオンとしてNa⁺, K⁺, NH₄⁺, Li⁺, Ca²⁺, Mg²⁺、陰イオンとしてF⁻, Cl⁻, Br⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻, PO₄³⁻, HCO₃⁻, CO₃²⁻を用いた。Friedman and Erdmann¹¹⁾は、 $\Sigma\text{ anion}$ を基準として、次の各条件を満たす地下水に対し、それぞれ望ましいと考えられるイオンバランスの範囲を示している。(1) $\Sigma\text{ anion} = 0.0\text{--}3.0\text{ mEq/L}$ の場合： $|\Sigma\text{ anion} - \Sigma\text{ cation}| < 0.2\text{ mEq/L}$ 。(2) $\Sigma\text{ anion} = 3.0\text{--}10.0\text{ mEq/L}$ の場合： $|(\Sigma\text{ anion} - \Sigma\text{ cation})/(\Sigma\text{ anion} + \Sigma\text{ cation})| < 0.02$ 。(3) $\Sigma\text{ anion} = 10.0\text{--}800\text{ mEq/L}$ の場合： $|(\Sigma\text{ anion} - \Sigma\text{ cation})/(\Sigma\text{ anion} + \Sigma\text{ cation})| < 0.05$ 。今年度の分析結果のうち、イ

オンバランスが得られている 47 試料をこれらの基準に当てはめると、全ての分析結果が概ね基準を満たす。

4.2 ヘキサダイアグラム（ステップダイアグラム）

水質の分析結果をヘキサダイアグラムとして図示することは、一目で水質組成を把握できることから、起源の異なる地下水を判別などの観点で有効的である。ヘキサダイアグラムは、主要溶存成分である Na^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 HCO_3^- のそれぞれの濃度を当量値 (mEq/L) とし、陽イオンと陰イオンに分けて図示したものである。本年度の分析結果のヘキサダイアグラムを Fig. 3 に示す。

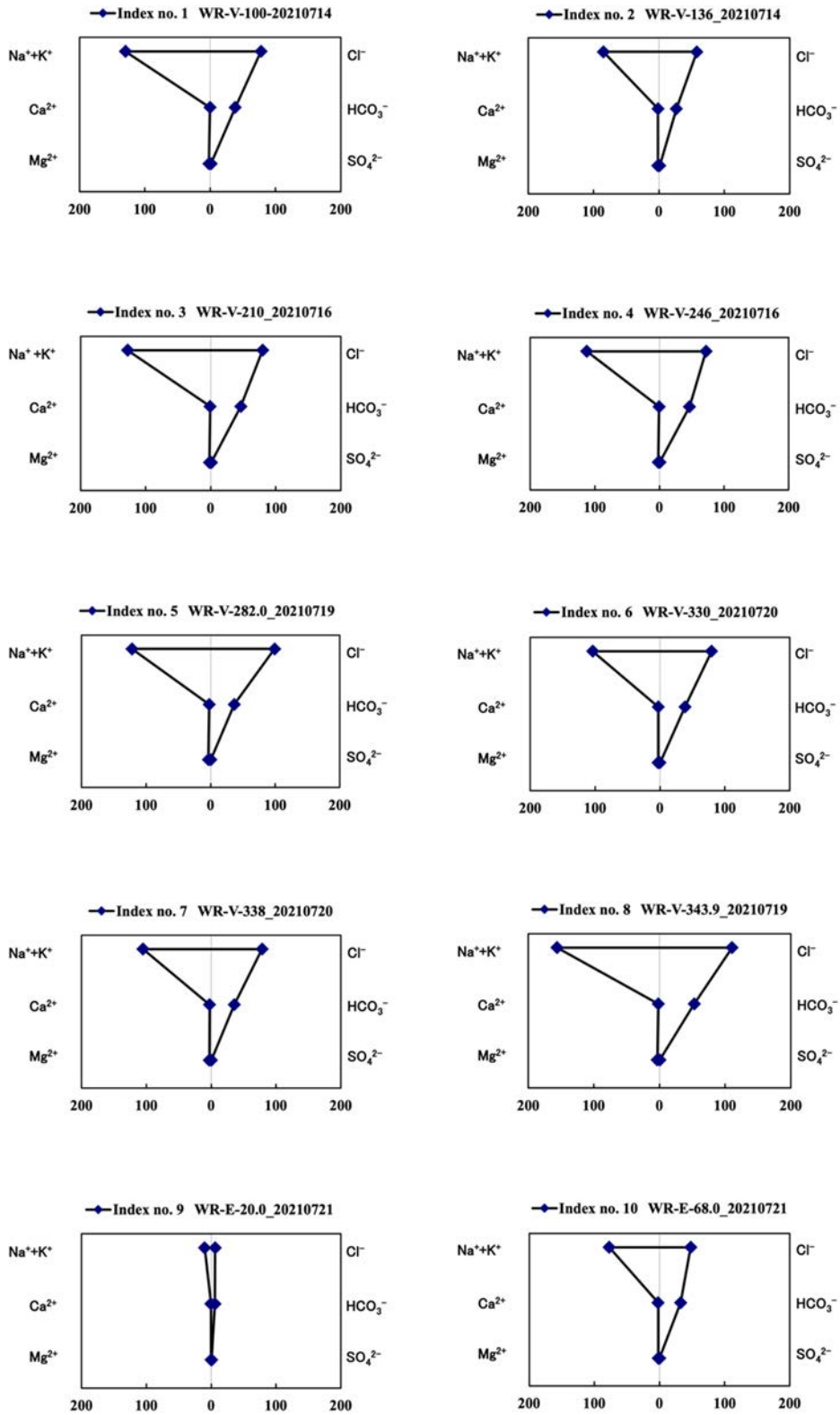


Fig. 3a Hexadiagrams (Stiff diagrams) for the data of index no. 1–10

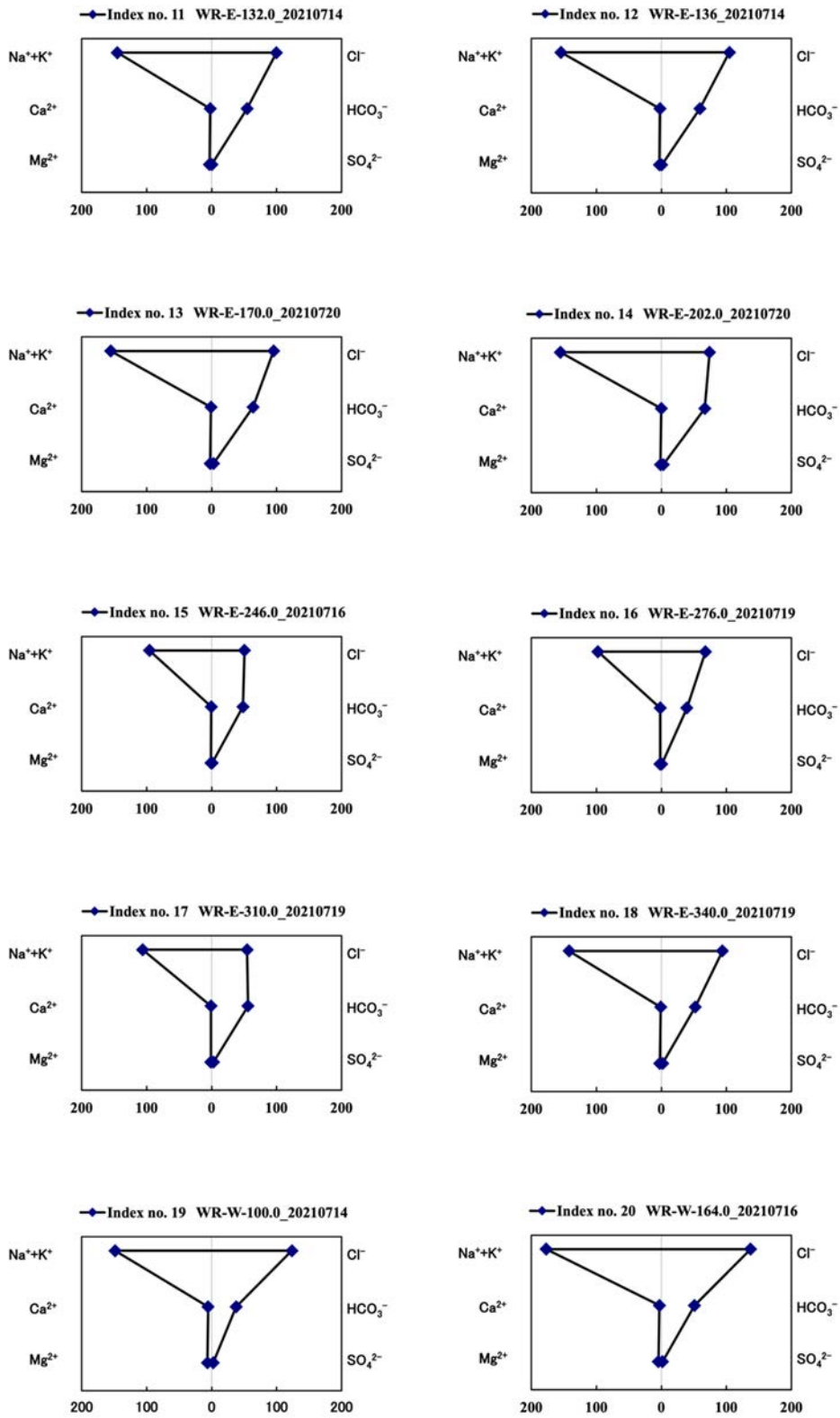


Fig. 3b Hexadiagrams (Stiff diagrams) for the data of index no. 11–20

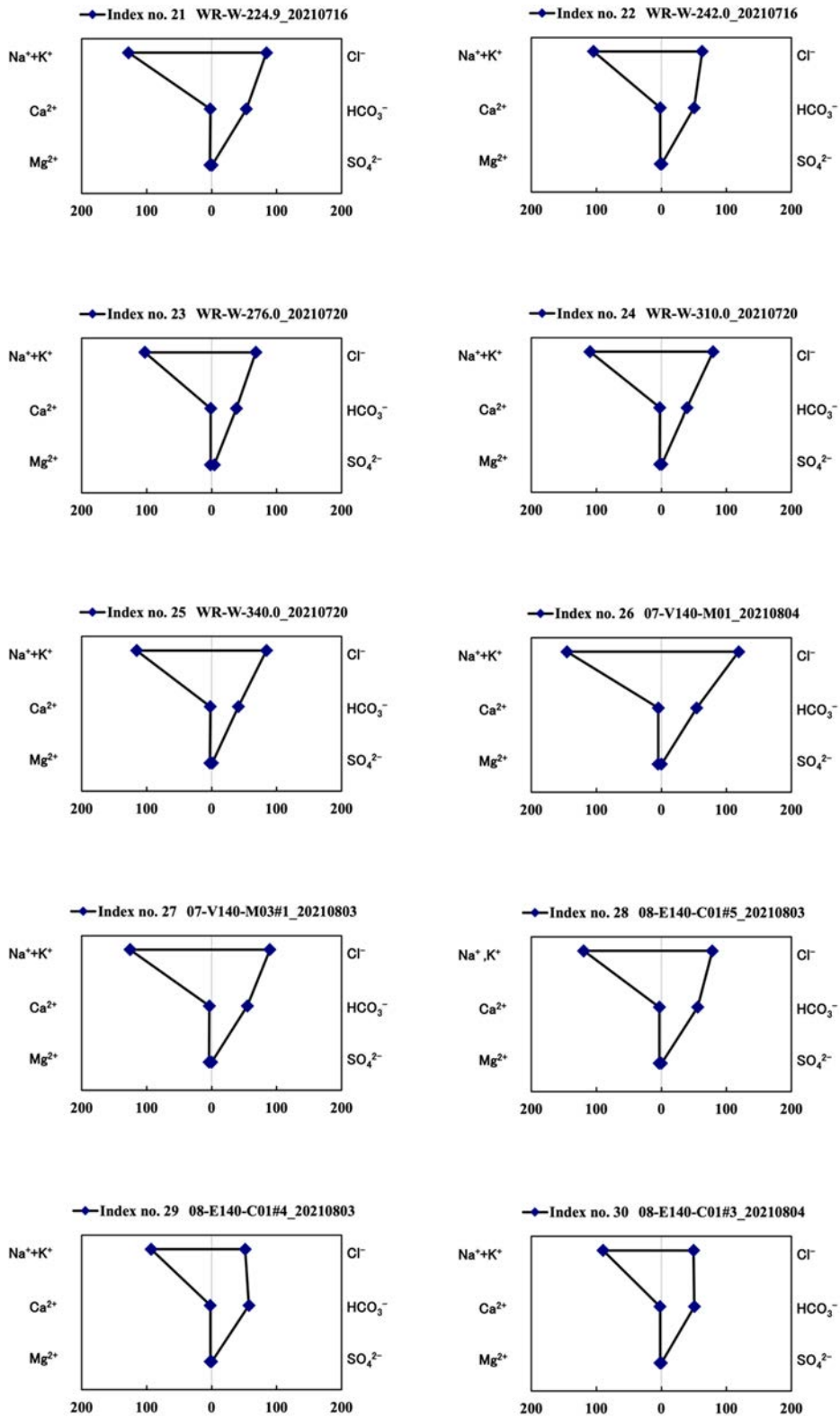


Fig. 3c Hexadiagrams (Stiff diagrams) for the data of index no. 21–30

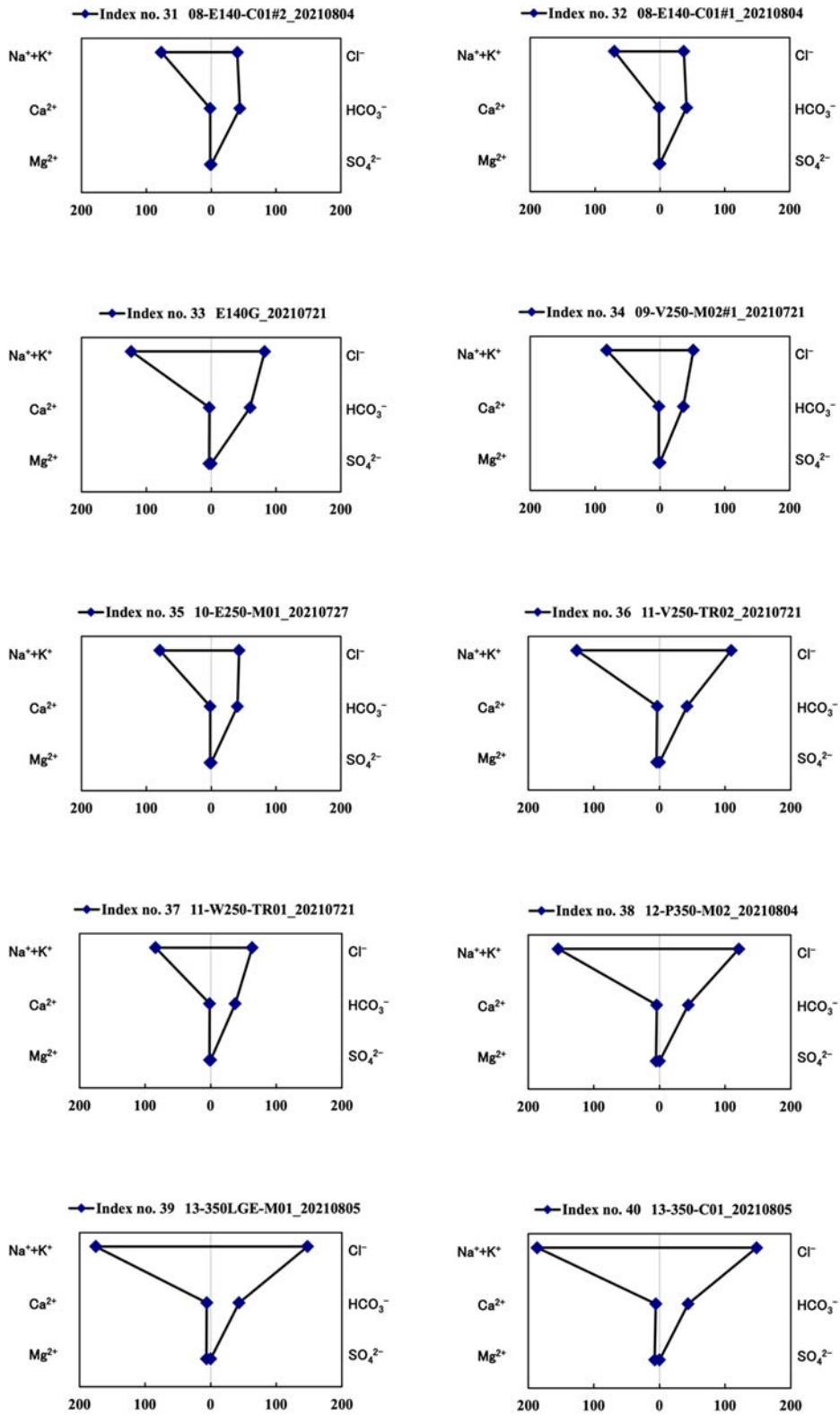


Fig. 3d Hexadiagrams (Stiff diagrams) for the data of index no. 31–40

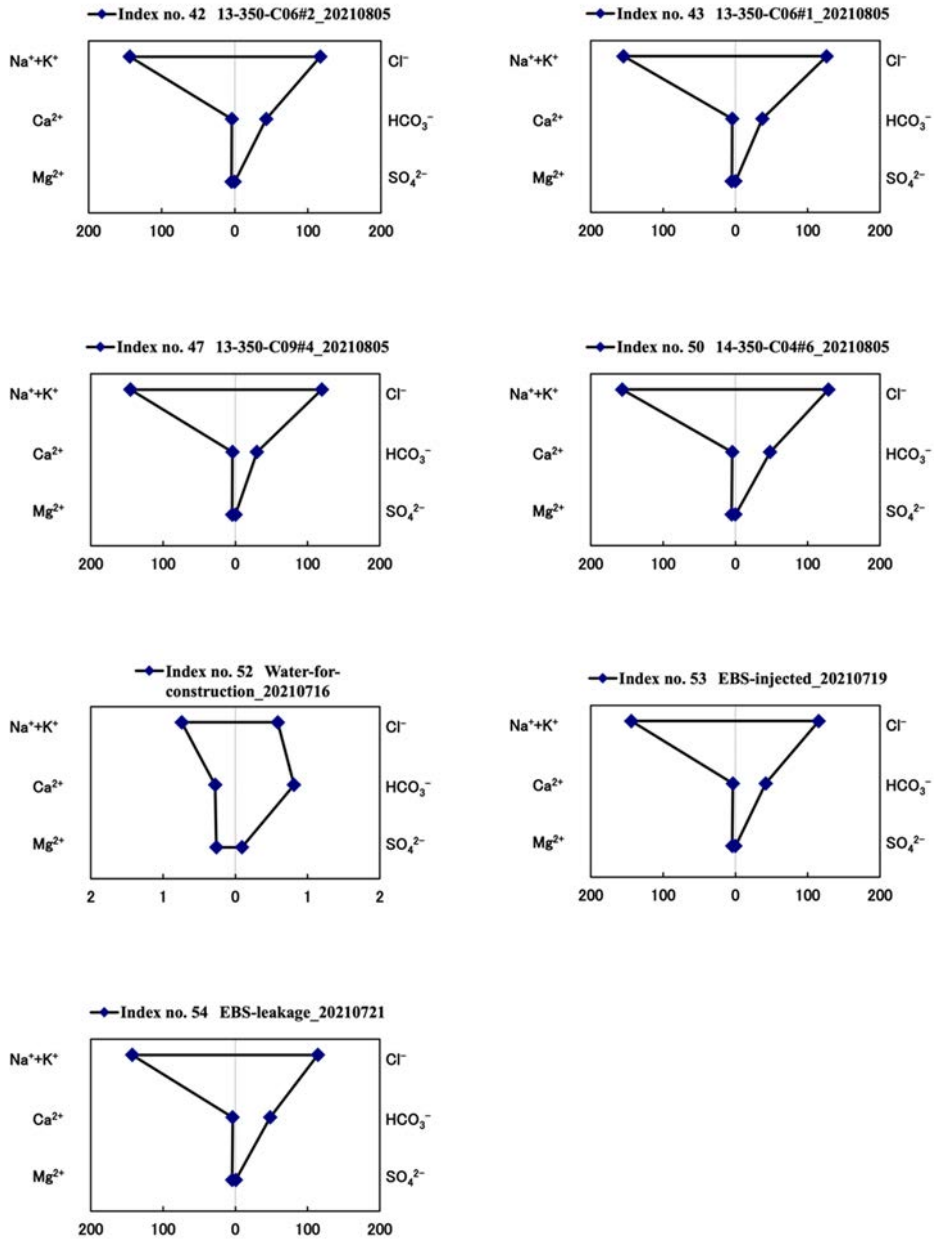


Fig. 3e Hexadiagrams (Stiff diagrams) for the data of index no. 42, 43, 47, 50, 52–54

5. おわりに

本報告書では、2021年度に分析された地下水の物理化学パラメータ及び水質の測定・分析結果をまとめた。令和2年度以降の幌延深地層研究計画では、必須の課題に対応する地下水の地球化学に関するデータを取得するために、今後も継続して地下水の調査を実施し、得られた結果を適宜取りまとめ、公開を図る。

謝辞

本報告書で取りまとめの対象としたデータについて、試料の分析の際には、九電産業株式会社の諸氏に協力を頂いた。この場を借りて、深く御礼申し上げる。

参考文献

- 1) 日本原子力研究開発機構 幌延深地層研究センター：“幌延深地層研究計画 地下施設での調査研究段階（第3段階）計画-その1：深度350mまでの調査研究計画”，平成22年7月（2010），16 p.
- 2) 佐藤稔紀，笹本広，石井英一，松岡稔幸，早野明，宮川和也，藤田朝雄，棚井憲治，中山雅，武田匡樹，横田秀晴，青柳和平，大野宏和，茂田直孝，花室孝広，伊藤洋昭：“幌延深地層研究計画における坑道掘削（地下施設建設）時の調査研究段階（第2段階：深度350mまで）研究成果報告書”，JAEA-Research 2016-025 (2017), 313 p.
- 3) 中山雅，雑賀敦，木村駿，望月陽人，青柳和平，大野宏和，宮川和也，武田匡樹，早野明，松岡稔幸，櫻井彰孝，宮良信勝，石井英一，杉田裕，笹本広，棚井憲治，佐藤稔紀，大澤英昭，北山彩水，谷口直樹：“幌延深地層研究計画における地下施設での調査研究段階（第3段階：必須の課題2015-2019年度）研究成果報告書”，JAEA-Research 2019-013 (2020), 276 p.
- 4) 中山雅，雑賀敦：“幌延深地層研究計画 令和2年度調査研究計画”，JAEA-Review 2020-022 (2020), 34 p.
- 5) 天野由記，山本陽一，南條功，村上裕晃，横田秀晴，山崎雅則，國丸貴紀，大山隆弘，岩月輝希：“幌延深地層研究計画における地下水，河川水および降水の水質データ（2001～2010年度）”，JAEA-Data/Code 2011-023 (2012), 312 p.
- 6) 笹本広，山本信幸，宮川和也，水野崇：“幌延深地層研究計画で得られた地下水の水質データ（2011年度～2013年度）”，JAEA-Data/Code 2014-033 (2015), 43 p.
- 7) 宮川和也，女澤徹也，望月陽人，笹本広：“幌延深地層研究計画で得られた地下水の水質データ（2014年度～2016年度）”，JAEA-Data/Code 2017-012 (2017), 60 p.
- 8) 宮川和也，女澤徹也，望月陽人，笹本広：“幌延深地層研究計画で得られた地下水の水質データ（2017年度～2019年度）”，JAEA-Data/Code 2020-001 (2020), 41 p.
- 9) 宮川和也：“幌延深地層研究計画で得られた地下水の水質データ（2020年度）”，JAEA-Data/Code 2021-003 (2021), 25 p.
- 10) 文部科学省：“トリチウム分析法（2訂）”，放射能測定法シリーズ9 (2002), 127 p.
- 11) Friedman, L.C. and Erdmann, D.E. : “Quality assurance practices for the chemical and biological analyses of water and fluvial sediments (Tech. Water Resources Inc., Book 5, Chapter A6)”, 1982, 181 p.

This is a blank page.

