

JAERI-M  
94-061

ナチュラルアナログ研究の現状  
－原研の成果を中心として－

1994年3月

関根 敬一

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。  
入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1994

---

編集兼発行　日本原子力研究所  
印　　刷　　株原子力資料サービス

ナチュラルアナログ研究の現状

－ 原研の成果を中心として －

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

関根 敬一

(1994年2月25日受理)

本報告は1993年9月原子力安全委員会にて著者が報告した資料をもとに原稿を起こしたものである。その内容は天然鉱物の変質研究としての天然ガラスの変質、豪州クンガラウラン鉱床をサイトとして行われたアリゲータリバーアナログプロジェクト研究としてのウラン鉱物の変質、ウラン・トリウム系列核種の移行、緑泥石の変質、ウランの固定化、鉱物の変質とウランの移行である。

Status of Natural Analogue Studies  
- Based on the Results Obtained by JAERI -

Keiichi SEKINE

Department of Environmental Safety Research  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received February 25, 1994)

This report is based on the materials for the meeting at the Nuclear Safety Commission of Japan held on September 1993. Details are as follows:

Alteration of glass as the study of alteration of natural minerals; alteration of uranium minerals, migration of uranium and thorium series radionuclides, alteration of chlorite, fixation of uranium alteration of minerals and migration of uranium as the study of alligator rivers analogue project held at Koongarra uranium deposit, Australia.

Keywords: Natural Analogue, Uranium Deposite, Mineral Alteration, Uranium Migration, Nuclides Migration

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 原研の成果 .....	2
2.1 天然ガラスの変質 .....	2
2.2 アリゲーター・リバーアナログプロジェクト .....	3
2.2.1 ウラン鉱物の変質 .....	3
2.2.2 ウラン・トリウム系列核種の移行 .....	4
2.2.3 緑泥石の変質 .....	4
2.2.4 ウランの固定化 .....	5
2.2.5 鉱物の変質とウランの移行 .....	5
3. おわりに .....	6
謝 辞 .....	6
文 献 .....	7

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Results Obtained by JAERI .....	2
2.1 Alteration of Natural Glass .....	2
2.2 Alligator Rivers Analogue Project .....	3
2.2.1 Alteration of Uranium Minerals .....	3
2.2.2 Migration of Uranium Thorium Series Radionuclides .....	4
2.2.3 Alteration of Chlorite .....	4
2.2.4 Fixation of Uranium .....	5
2.2.5 Alteration of Minerals and Migration of Uranium .....	5
3. Conclusions .....	6
Acknowledgements .....	6
References .....	7

## 1. はじめに

高レベル放射性廃棄物（H L W）は、長期にわたり放射能が残留するため（Fig. 1）、その処分には長期的な安全確保を図らねばならない。この安全確保のため、H L Wの処分は、廃棄物と地下水の接触を制限し、廃棄物が地下水と接触したとしても廃棄物からの放射性核種の溶出および移行を抑制し、さらに放射性核種が移行したとしてもそれが生活環境まで影響を及ぼさないことを提示することが必要な基本条件である。これらの条件を満たすためその処分方法としては、地質学的に安定に存在している地層を適切に選び、H L Wに適切な処理を施して地下数百メートルに埋設処分するものとなっている（Fig. 2）。しかし、長期的な安全確保を、実験室で実証することは難しい。そこで自然現象を観察し、実験室では解明できない地質学的に長期にわたる現象に関する情報を学び、例えば数万年から数百万年のH L Wの将来の安全評価（概念モデルの開発、モデルの確証等（Fig. 3））を科学的に解析予測するため役立てる研究として、ナチュラルアナログ研究（Fig. 4）が注目されてきている。

次に、ナチュラルアナログ研究がウラン鉱床で行われた成果のいくつかを簡単に以下に紹介する（Fig. 5）。

**オクロ：**中央アフリカのガボンにある約20億年前に生成したと考えられているウラン鉱床。天然原子炉で有名。したがって、H L Wの処分に関し放射性核種の移行挙動研究に適す。FPでは、希ガス、アルカリ金属、アルカリ土類金属、ヨウ素等の元素はほとんど飛散。しかし、白金属元素、希土類元素（REE）、超ウラン元素（TRU）はほとんど動いていない。このTRUが動きにくいと言う結果は、H L Wの長期貯蔵に関し重要な実験事実を提供したことになる。

**シガーレイク：**H L Wの処分条件に非常に良く似たウラン鉱床。即ち、地下450mにあるウラン酸化物（ウラニナイト）からなる鉱床が粘土層に囲まれている。ウランの動いた形跡はほとんどない。

**オサムウツミ：**1990年に終了したポソスデカルダスプロジェクトのサイトとして利用された鉱床である。酸化帯、還元帯でのウランの遅延、固定機構を明らかにしている。

**東濃：**岐阜県にある我が国唯一の稼行対象品位を有する未採掘の約1000万年前の鉱床。動燃が中心となって、ウラン鉱床の生成・保存に関与した地質学的・地球化学的環境条件を把握すること、及び天然ウラン系列核種の移行遅延に関する研究を目的とし、ナチュラルアナログ研究が進められている。

**クンガラ：**豪州アリゲーターリバー地区にある鉱床の一つ。アリゲーターリバーアナログプロジェクト（A R A P）が実施された。詳しくは後述する。

## 2. 原研の成果

原研で行ったナチュラルアナログの研究内容は、その内容から天然鉱物の変質と長寿命放射性核種の移行挙動に分けられる(Fig. 6)。天然鉱物の変質の研究は、主に廃棄物固化体に対応する天然類似物の長期にわたる変質を調べることにより、廃棄物固化体の変質を予測しようとするもので、天然ガラスの変質とウラン鉱物の変質がこれに含まれる。長寿命放射性核種の移行挙動の研究は、A R A Pとして行ったもので、ウラン・トリウム系列核種の移行、ウランの固定化及び鉱物の変質とウランの移行が含まれる。

### 2.1 天然ガラスの変質<sup>1, 2</sup>

天然ガラスと廃棄物ガラスの類似性と浸出挙動について紹介する。廃棄物ガラスがどの様に変化し、どの様に溶け出すかと言う課題に対し、1. ガラスの変質及び浸出一溶け出す機構と速度、2. 変質及び浸出に及ぼす地下水の環境因子、3. 変質析出層の組成、4. 安全評価上重要な元素の浸出挙動、等について、鉱物学的、化学的に、天然ガラスについて調べた。廃棄物ガラスの耐久性を知るのになぜナチュラルアナログ研究が必要かと言うと、天然ガラスでは、漠然とした条件ではあるが、数百年から数百万年に達する変質した表面の記録を持つガラスが手に入るのに對し、廃棄物ガラスでは、明確な条件のもとでの表面の変質層と反応する溶液についての情報が手に入るが、時間の情報としてはせいぜい10年ぐらいである。従つて、安全評価に必要な1万～10万年後の評価をするには、どうしても長期にわたる反応の記録を持っている天然ガラスの研究が必要になるためである(Fig. 7)。天然ガラスとして玄武岩ガラスが廃棄物ガラスのSiO<sub>2</sub>の割合が4～50%でほぼ同じで、また、変質の性質がよく似ていることが知られ多くの研究がなされている(Fig. 8)。成果の一つとしての変質速度は、地下水中的ケイ酸塩濃度に影響されると言われ千年で0.1～20ミクロンのデータが報告されている。

Fig. 9は、天然ガラスと廃棄物ガラスの含有元素の浸出挙動に関する研究結果を示したものである。浸出試験の結果、表面に生成する変質層に残存するまたは溶け出す元素は、化学的性質により3群に分かれる。第一群は、アルカリ金属元素で変質層にほとんど残らず溶け出す元素群で、廃棄物ガラスの核分裂生成物(FP)のCsもこの群に入る。第2群は、一部が変質層に残り一部が溶け出す元素群でMg, Caのアルカリ土類元素とAl, Si等の元素でFPのSrがこの群に属する。第3群は、Mn, Fe等で変質層にほぼ全部残る元素群で、FPのZr, REEがこの群に属する。REEがこの群に属することから安全評価上重要なTRUもこの群

に入り変質層に残り浸出しにくいと予想される。

## 2.2 アリゲーターリバーアナログプロジェクト

オーストラリア北部の都市ダーウィンの東約200kmにあるアリゲーターリバー地区(Fig. 10)にあるウラン鉱床クンガラで、その地区名を冠したアリゲーターリバーANAログプロジェクトが実施(1987~1992年)された。OECD/NEA主催でオーストラリア原子力科学技術機構(ANSTO)を幹事機関として5ヵ国6機関、日本から動燃と原研が参加した(Fig. 11)。プロジェクトの研究テーマは、1. 核種移行のモデル化、2. クンガラにおける地質水文学、3. ウラン/トリウム系列核種の非平衡、4. コロイドと地下水研究、である(Fig. 12)。

次にこのプロジェクトで原研が行なった成果を中心に紹介する。

原研は3のウラン/トリウム系列核種の非平衡に関する項目を中心に、1. ウラン鉱物の変質、2. ウラン・トリウム系列核種の移行、3. ウランの固定化、4. 鉱物の変質とウランの移行、という観点から化学的に、鉱物学的に研究を進めた。

Fig. 13は、クンガラ鉱床の断面を示す。鉱床母岩である緑泥石の中に、約18億年前に生成したと考えられる1次鉱床があり、その後、地形が隆起し風化帯に地下水により移動してできたと考えられる2次鉱床がある。研究は主としてこの2次鉱床を対象に行なわれた。その理由は、この2次鉱床でウラン系列核種が移行したメカニズムを明らかにすることにより、TRU核種の移行挙動を類推することが可能であろうと考えたからである。

### 2.2.1 ウラン鉱物の変質<sup>3</sup>

ウラン鉱床周辺において採取した鉱物試料を走査型電子顕微鏡等を用いて分析した結果、カソライト、キューライト、スクロドウスカイトおよびサレアイトの結晶が観察された。その内、カソライト、スクロドウスカイトおよびサレアイトは、鉱物固有の結晶面が発達した自形結晶であることが確認された。従って、これらの自形ウラン鉱物が独立に結晶成長したものと考えられる。これらの結果を整理して、Fig. 14に示すようなウラン鉱物の変質過程を考えた。すなわち、還元条件下において形成されたウラン一次鉱床中ウラニナイトが地下水と接触して溶解し、まずスクロドウスカイトの様なウランケイ酸塩鉱物に変質し、その後サレアイトのようなウランリン酸塩鉱物に変質することが明らかになった。この過程で初期のウラニナイト中の鉛は散逸せずにキューライトなどのウラン鉛酸化物鉱物として留まっている。しかし、スクロドウスカイト中で生成した放射壊変起源の鉛はウラン鉛ケイ酸塩で

あるカソライトとして析出している。

### 2.2.2 ウラン・トリウム系列核種の移行<sup>4, 5, 6</sup>

Fig. 15は地下水中のウラン濃度を求め、それを断層から地下水下流方向に取った距離に対してプロットしたもので、この図から地下水が鉱床を横切るや、ウラン濃度は急激におおよそ3桁上昇し、その後徐々に減少し鉱床から約200mの所で再びバックグラウンドレベルに戻っていることが分かる。このことは、一旦溶けたウランが岩石の間隙を通過するとともに吸着あるいは沈殿等の地球化学プロセスを経て減少していることが推察される。

この推論の正しさを示す実験事実を次に紹介する。Fig. 16は、風化帯岩石薄片試料の顕微鏡写真とその $\alpha$ トラックを示したもので、この図からフラクチャーに詰つた風化生成物の像と $\alpha$ トラックの像が一致することから、 $\alpha$ 核種が風化生成物である鉄鉱物、粘土鉱物に濃集していることが分かる。

それではいったいこのウランはどのような所に付いて居るのか、さらに詳しく見てみることとする。

2次鉱床の岩石を採取し、どう言う鉱物にウランが多く含まれているかを知るために5段階選択的抽出法を適用した。すなわち、粉碎した岩石に初めは非常にマイルドな試薬を作用させその試薬によって解け出てくる相（鉱物）に含まれるウランを定量する。次にやや反応の激しい試薬を作用させ解け出てくる相（鉱物）に含まれるウランを同様に定量する。この様に順次試薬をマイルドなものから激しい試薬に変えて5段階（吸着相、非晶質鉄相、結晶質鉄相、粘土鉱物相、残査鉱物相）選択的抽出法を適用した。その結果がFig. 17である。この図から2次鉱床岩石中には結晶質鉄相にその大部分のウランが存在することが分かる。

次に核種移行に対する遅延機構をウランを例に先に述べた地球化学的プロセスを考慮して模式化したのがFig. 18である。即ち、ウランを含んだ地下水が割れ目を通って移動するとき、ウランのあるものは鉱物の変質部に吸着し、あるものは溶解度以下となり、沈殿し、また一旦吸着したウランが再溶出して移動していくと言うものである。

### 2.2.3 緑泥石の変質<sup>5</sup>

風化帯25メートルまでの岩石試料の深相、中相、表層のX線回折を行なった。その結果、風化帯の境界に近い深相では、母岩の石英緑泥石片岩の特徴的な石英と緑泥石のピークが見えるのに対し、中層表層では、変質し易い緑泥石のピークは消

え、代って粘土鉱物のカオリナイトと鉄鉱物のピークが現れている。さらに、電子顕微鏡、X線マイクロアナライザー等での化学分析のデータを加え緑泥石の変質を調べた。その結果、Fig. 19に示すように、緑泥石が、酸素を含む地下水と反応しFeとMgが溶け出し、バーミキュライトに変質し、さらに、バーミキュライトからカオリナイトという粘土鉱物になる変質過程を明らかにした。また、緑泥石の変質に際し溶け出した鉄は、針鉄鉱、赤鉄鉱になりウランの分布と移行に関し密接な関係を持つ鉱物になる。

#### 2.2.4 ウランの固定化<sup>7</sup>

ウラン系列核種の放射能比を測定することにより、いろいろな情報を手に入れることが出来る。Fig. 20は縦軸にウラン-234/238と横軸にトリウム-230/ウラン-238の放射能比を示してある。クンガラ2次鉱床のデータをプロットすると○で示したように上流側から下流に向かって左下がりに直線的に並ぶことが分かった。この結果はウラン-238の方がウラン-234よりも早く動いていることを示し、クンガラ鉱床特有の現象を示している。一般的には、ウラン鉱物中ウラン-238が $\alpha$ 崩壊の影響を受けウラン-234の方がウラン-238より動き易いと言われている。

そこでウラン-238の方が動き易いと言うクンガラ鉱床特有の現象を説明するため、ウラン-238の娘核種でウラン-238や234に比べて半減期の非常に短いので一般的には無視されてしまうトリウム-234（半減期24日）に注目したモデルをこれまでに明らかにされた事実を考慮して考え、その概念をFig. 21に示した。すなわち母岩である緑泥石が変質する際、溶け出す鉄の非晶質鉄鉱物にウランより加水分解し易いトリウム-234が取込まれそのまま結晶質の鉄鉱物に固定され、その状態でウラン-234に崩壊しウラン-234も固定される、と言うモデルである。このモデルをコード化しトリウムの固定速度を非晶質鉄の結晶化速度にほぼ等しい20/年として計算するとFig. 20に示す直線になり観測点が全てその直線に乗っている。このことはこのモデルの妥当性を示しているものと思われる。

#### 2.2.5 鉱物の変質とウランの移行<sup>8</sup>

鉱物の変質の影響がウランの移行にどのような影響を与えているかを岩石の様々な分析及びモデル計算により示した(Fig. 22)。以下に順を追って説明する。

クンガラウラン鉱床近辺で地表より25メートル以浅までは風化帯で、緑泥石が風化を受けている。それより深い所は未風化帯で緑泥石は風化されていない。25

メートル附近は遷移帯と呼ばれ、緑泥石に変化が見られるものの完全には風化されてない所が存在する。風化は地表面に対して、ほぼ平衡に進行していると考えられる。

次に前述したように、緑泥石の変質の主要過程は緑泥石→バーミキュライト→カオリナイトとなることを明らかにした(Fig. 18)が、さらに固相の分析からこの過程における化学組成の変化を詳細に求めた。

一方、クンガラにおける風化は2百万年前から始ったと考えられている。以上のこと考慮してクンガラに於ける変質過程を模式的に表すとFig. 23になる。

次に、緑泥石の変質反応を一次の不可逆反応と考え、鉱物組成の時間変化を数式化した。X線回折、岩石の化学分析、密度測定より求めた鉱物組成観測値に計算値をフィットさせ、鉱物組成の時間変化を最適化した。計算結果をFig. 24に示す。

一方、ウランの移行は岩石の空隙率及びウラン分配係数の時間変化に密接に関連するので、これらを鉱物の変質の効果として、ウランの移行モデルに取り入れた。すなわち、別の実験より各鉱物へのウランの分配係数及び各鉱物の密度を求め、Fig. 24に示した鉱物組成の時間変化を考慮した各種鉱物の密度及び各種鉱物へのウラン分配係数を基に岩石の空隙率、分配係数の時間変化を計算した。その結果鉱物の変質の影響が、空隙率、分配係数の時間変化にはっきり表れている。

この二つのパラメータの時間変化を考慮したウラン濃度の計算値は観測値ときわめてよく一致した(Fig. 25)。

以上の事柄をまとめるとFig. 26, 27となる。また、今後の計画をFig. 28に示した。

### 3. おわりに

ナチュラルアナログは、これまでの研究を通じて放射性核種の放出と移行に影響を及ぼす重要なプロセスを明らかにし、HLWの処分に関する安全評価モデルの開発と確証等に利用されている。現在のところナチュラルアナログの役目は、定性的または半定量的であるが、さらに定量性を、また、一般性をもたらすために今後とも種々の自然環境下での研究が継続される研究分野である。

### 謝辞

本報告は研究協力者・共同研究者の協力があって始めて実現した。以下にお名前を記して謝意を表す。岸田昌美、小林義威、大貫敏彦、柳瀬信之、磯部博志、佐藤努、木村英雄、上野 隆、馬場恒孝(以上原研)、村上 隆(愛大)

メートル附近は遷移帯と呼ばれ、緑泥石に変化が見られるものの完全には風化されてない所が存在する。風化は地表面に対して、ほぼ平衡に進行していると考えられる。

次に前述したように、緑泥石の変質の主要過程は緑泥石→バーミキュライト→カオリナイトとなることを明らかにした(Fig. 18)が、さらに固相の分析からこの過程における化学組成の変化を詳細に求めた。

一方、クンガラにおける風化は2百万年前から始ったと考えられている。以上のこと考慮してクンガラに於ける変質過程を模式的に表すとFig. 23になる。

次に、緑泥石の変質反応を一次の不可逆反応と考え、鉱物組成の時間変化を数式化した。X線回折、岩石の化学分析、密度測定より求めた鉱物組成観測値に計算値をフィットさせ、鉱物組成の時間変化を最適化した。計算結果をFig. 24に示す。

一方、ウランの移行は岩石の空隙率及びウラン分配係数の時間変化に密接に関連するので、これらを鉱物の変質の効果として、ウランの移行モデルに取り入れた。すなわち、別の実験より各鉱物へのウランの分配係数及び各鉱物の密度を求め、Fig. 24に示した鉱物組成の時間変化を考慮した各種鉱物の密度及び各種鉱物へのウラン分配係数を基に岩石の空隙率、分配係数の時間変化を計算した。その結果鉱物の変質の影響が、空隙率、分配係数の時間変化にはっきり表れている。

この二つのパラメータの時間変化を考慮したウラン濃度の計算値は観測値ときわめてよく一致した(Fig. 25)。

以上の事柄をまとめるとFig. 26, 27となる。また、今後の計画をFig. 28に示した。

### 3. おわりに

ナチュラルアナログは、これまでの研究を通じて放射性核種の放出と移行に影響を及ぼす重要なプロセスを明らかにし、HLWの処分に関する安全評価モデルの開発と確証等に利用されている。現在のところナチュラルアナログの役目は、定性的または半定量的であるが、さらに定量性を、また、一般性をもたらすために今後とも種々の自然環境下での研究が継続される研究分野である。

### 謝辞

本報告は研究協力者・共同研究者の協力があって始めて実現した。以下にお名前を記して謝意を表す。岸田昌美、小林義威、大貫敏彦、柳瀬信之、磯部博志、佐藤努、木村英雄、上野 隆、馬場恒孝（以上原研）、村上 隆（愛大）

メートル附近は遷移帯と呼ばれ、緑泥石に変化が見られるものの完全には風化されてない所が存在する。風化は地表面に対して、ほぼ平衡に進行していると考えられる。

次に前述したように、緑泥石の変質の主要過程は緑泥石→バーミキュライト→カオリナイトとなることを明らかにした(Fig. 18)が、さらに固相の分析からこの過程における化学組成の変化を詳細に求めた。

一方、クンガラにおける風化は2百万年前から始ったと考えられている。以上のこと考慮してクンガラに於ける変質過程を模式的に表すとFig. 23になる。

次に、緑泥石の変質反応を一次の不可逆反応と考え、鉱物組成の時間変化を数式化した。X線回折、岩石の化学分析、密度測定より求めた鉱物組成観測値に計算値をフィットさせ、鉱物組成の時間変化を最適化した。計算結果をFig. 24に示す。

一方、ウランの移行は岩石の空隙率及びウラン分配係数の時間変化に密接に関連するので、これらを鉱物の変質の効果として、ウランの移行モデルに取り入れた。すなわち、別の実験より各鉱物へのウランの分配係数及び各鉱物の密度を求め、Fig. 24に示した鉱物組成の時間変化を考慮した各種鉱物の密度及び各種鉱物へのウラン分配係数を基に岩石の空隙率、分配係数の時間変化を計算した。その結果鉱物の変質の影響が、空隙率、分配係数の時間変化にはっきり表れている。

この二つのパラメータの時間変化を考慮したウラン濃度の計算値は観測値ときわめてよく一致した(Fig. 25)。

以上の事柄をまとめるとFig. 26, 27となる。また、今後の計画をFig. 28に示した。

### 3. おわりに

ナチュラルアナログは、これまでの研究を通じて放射性核種の放出と移行に影響を及ぼす重要なプロセスを明らかにし、HLWの処分に関する安全評価モデルの開発と確証等に利用されている。現在のところナチュラルアナログの役目は、定性的または半定量的であるが、さらに定量性を、また、一般性をもたらすために今後とも種々の自然環境下での研究が継続される研究分野である。

### 謝辞

本報告は研究協力者・共同研究者の協力があって始めて実現した。以下にお名前を記して謝意を表す。岸田昌美、小林義威、大貫敏彦、柳瀬信之、磯部博志、佐藤努、木村英雄、上野 隆、馬場恒孝(以上原研)、村上 隆(愛大)

## 文 献

- (1) T. Murakami, T. Banba, M. J. Jercinovic, and R. C. Ewing: Formation and evolution of alteration layers on borosilicate and basalt glasses: Initial stage, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XII, W. Lutze and R. C. Ewing, (Eds.), The Materials Research Society, Pittsburgh, PA (1989).
- (2) T. Banba, T. Murakami, and H. Isobe: Growth Rate of alteration layer and elemental mass losses during leaching of borosilicate nuclear waste glass, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XIII, V. M. Oversby and P. W. Brown, (Eds.), The Materials Research Society, Pittsburgh, PA (1990).
- (3) H. Isobe, T. Murakami, and R. C. Ewing: Alteration of uranium minerals in the Koongarra deposit, Australia: Unweathered zone, J. Nucl. Mater. 190, 174-187 (1992).
- (4) T. E. Payne, R. Edis, A. Herczeg, K. Sekine, T. Seo, T. D. Eaite, and N. Yanase: Alligator Rivers Analogue Project Final Report Vol. 7 "Chemistry and isotopic composition of groundwater", DOE/HMIP/PR/92/077 (in press) (1993).
- (5) T. Murakami, H. Isobe, T. Ohnuki, N. Yanase, T. Sato, H. Kimura, K. Sekine, R. Edis, A. J. Koppi, D. A. Klessa, C. Conoley, T. Nagano, S. Nakashima, and R. C. Ewing: Alligator Rivers Analogue Project Final Report Vol. 9 "Weathering and its effects on uranium redistribution", DOE/HMIP/PR/92/079, SKITR92:20-9 (1993).
- (6) R. Edis, L. Cao, J. Cashion, D. Klessa, A. J. Koppi, T. Murakami, T. Nightingale, T. Payne, A. Snelling, and N. Yanase: Alligator Rivers Analogue Project Final Report Vol. 8 "Chemistry and mineralogy of rocks and soils", DOE/HMIP/PR/92/078 (in press) (1993).
- (7) T. Ohnuki, S. Watanabe: Modelling study of effects of a short lived radionuclide fixation on decay chain radionuclides migration, J. Nucl. Sci. Technol. 30(8), 777-784 (1993).
- (8) T. Murakami, H. Kimura: A modelling study of the effect of rock alteration on the redistribution of uranium, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVI, C. G. Interrante, R. T. Pabalan, (Eds.), The Materials Research Society, Pittsburgh, PA (1993).

Fig. 1

## 毒性指標の経年変化

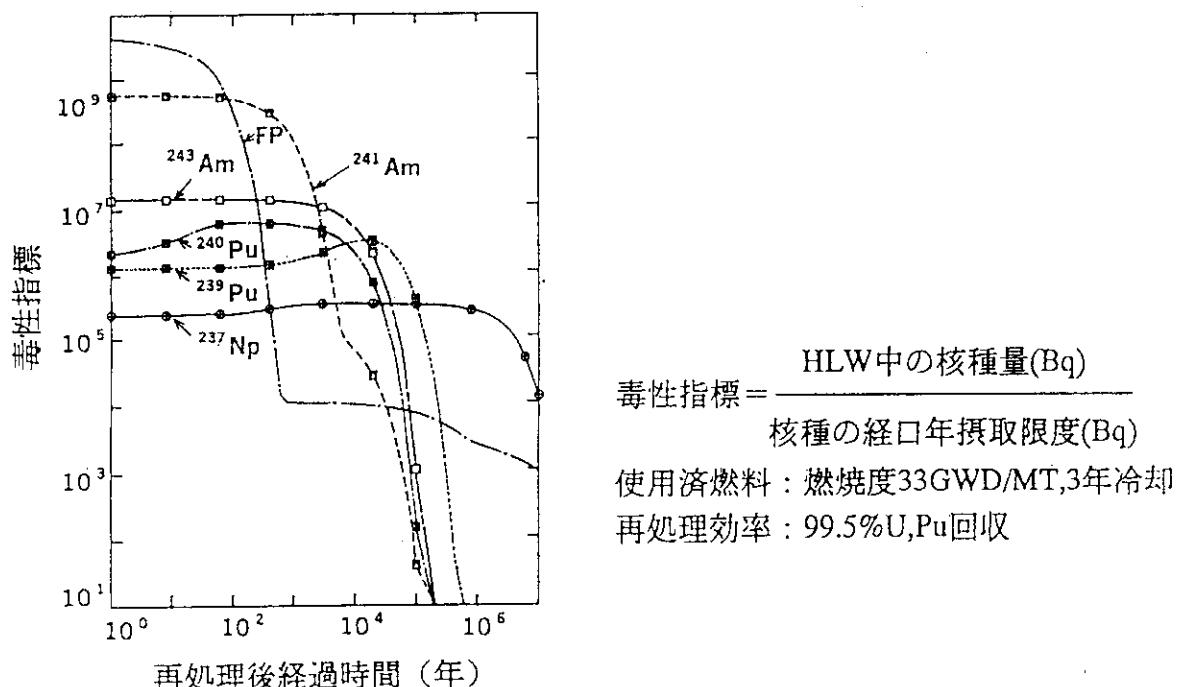
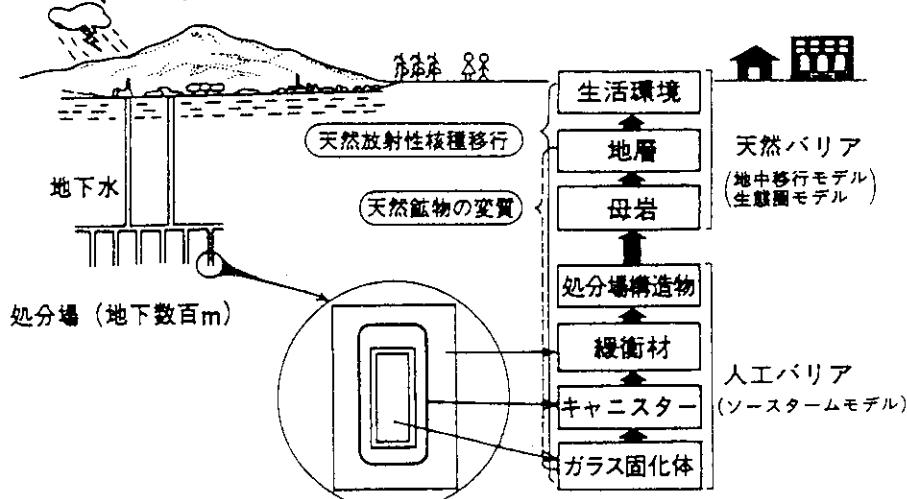


Fig. 2

高レベル廃棄物処分場の長期  
にわたる安全評価の概念

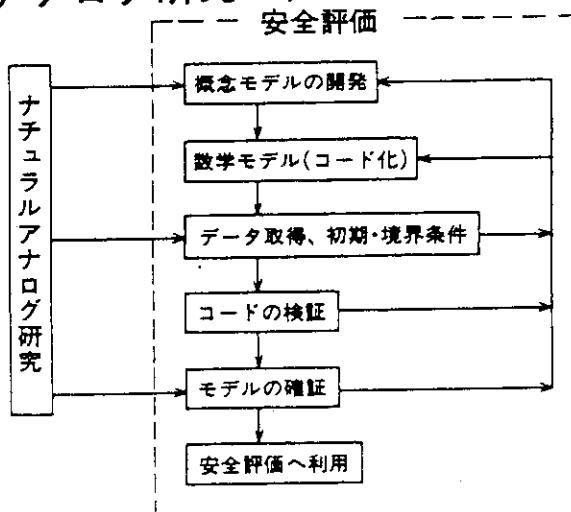
(○内はナチュラルアナログの成果を利用)



出典：PAG I S Summary (1989) 等

Fig. 3

### 安全評価におけるナチュラル アナログ研究の役割



出典：IAEA TECHNICAL REPORTS  
SERIES № 304 (1989)

Fig. 4

### “ナチュラルアナログ (自然類似物)”とは何か

長期にわたるその履歴が明らかにされている天然鉱物あるいは鉱床のうち、放射性廃棄物固化体からの放射性核種の挙動予測に利用可能なものを指す。

Fig. 5

**放射性核種移行挙動に関する  
ナチュラルアナログ研究のサイト**

鉱床名	国名	地質年代(億年)
オクロ	ガボン	20
シガーレイク	カナダ	13
オサムウツミ	ブラジル	0.8
東濃	日本	0.1
クンガラ	オーストラリア	18

Fig. 6

**原研に於けるナチュラルアナログ研究の内容**

**天然鉱物の変質**

1. 天然ガラスの変質
2. ウラン鉱物の変質

**長寿命放射性核種の移行挙動**

1. ウラン・トリウム系列核種の移行
2. ウランの固定化
3. 鉱物の変質とウランの移行

Fig. 7

**廃棄物ガラスの変質におけるナチュラル  
アナログ研究の必要性  
—反応機構と速度—**

種類	実験場	分析対象	反応時間
天然ガラス (玄武岩質ガラス)	自然環境、 不明確な 変質条件	表面の変質、 析出相	数百万年
廃棄物ガラス (ホウケイ酸ガラス)	実験室、 明確な実 験条件	表面の変質、 析出相、液相	十年

Fig. 8

**天然ガラスと廃棄物ガラスの浸出  
試験後の電子顕微鏡写真**

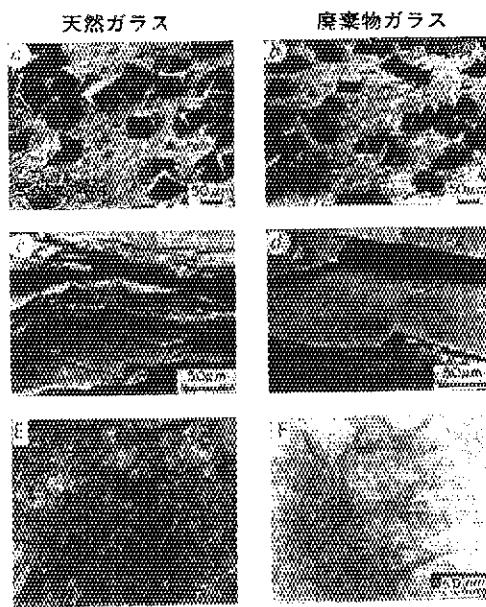
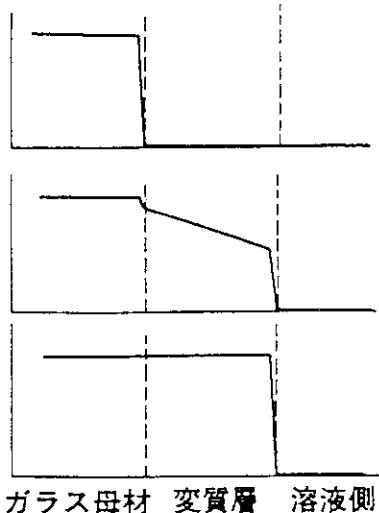


写真 a, b, c, d 出典：

W. Lutze et al.,  
*Nature*, 314,  
252 (1985)

Fig. 9 天然ガラス・廃棄物ガラス含有元素の浸出挙動

母材及び変質層内の元素量



	天然ガラス	廃棄物ガラス
第一群 (溶出変質)	Na,K	Na,K,Cs,B
第二群 (一部残留)	Mg,Ca,Al,Si, Sr	Mg,Ca,Al,Si, Sr
第三群 (全部残留)	Mn,Fe	Mn,Fe,Ni, Zr,Y,REE

Fig. 10 アリゲーターリバーアナログプロジェクト  
サイト“KOONGARRA”

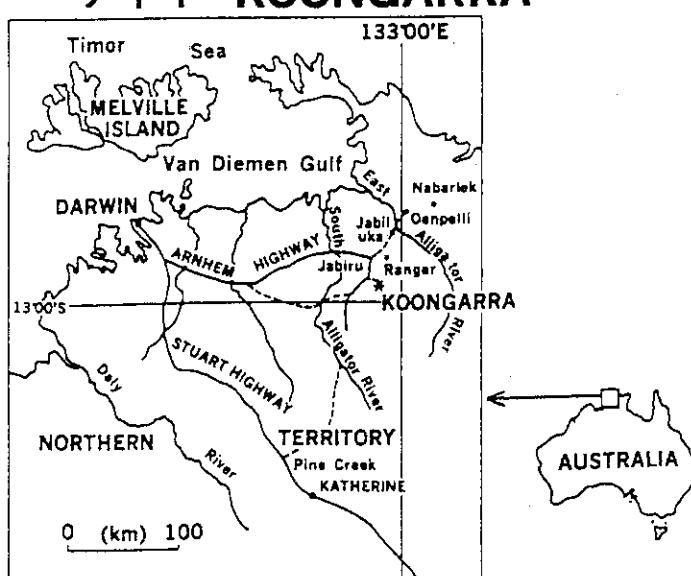


Fig. 11

## 国際アリゲーター・リバー アナログプロジェクト

I 期 間 1987年より5ヶ年

II 主 催 OECD/NEA

- III 参加機関
- 1) ANSTO(豪) 幹事参加機関
  - 2) JAERI(日)
  - 3) USNRC(米)
  - 4) UKDOE(英)
  - 5) SKI(スウェーデン)
  - 6) PNC(日)

Fig. 12

## IV プロジェクトの主な研究項目

- 1) 核種移行のモデル化
- 2) クンガラにおける地質水文学
- 3) ウラン/トリウム系列核種の非平衡
- 4) コロイドと地下水

Fig. 13

## クンガラウラン鉱床断面図

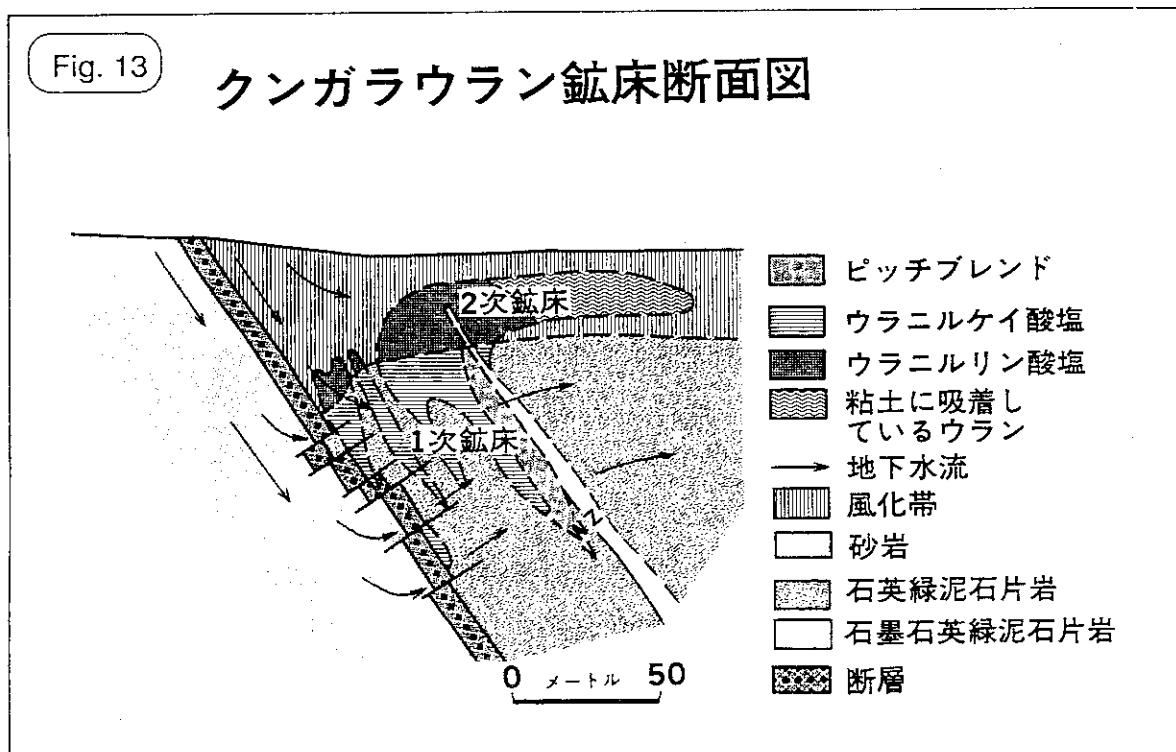
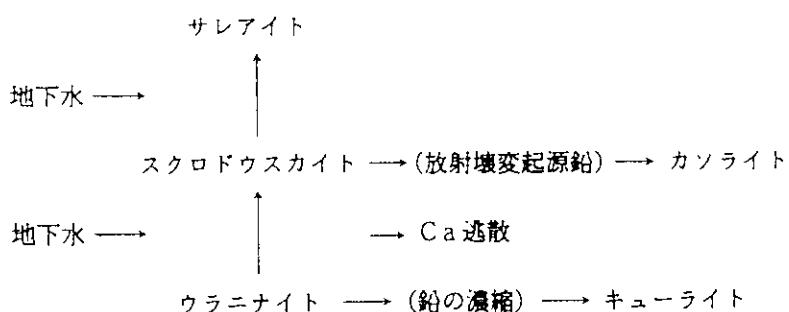


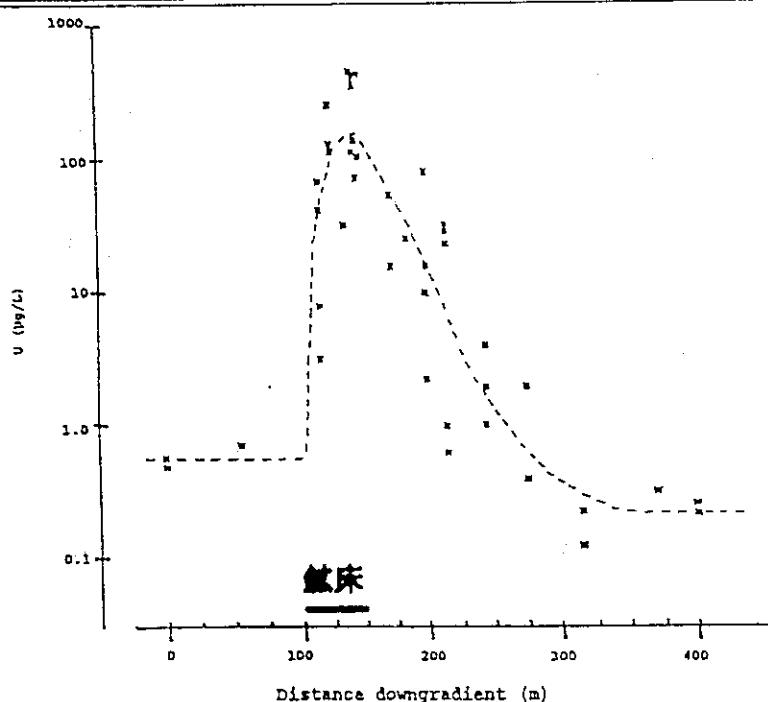
Fig. 14



## クンガラ鉱床におけるウラン鉱物の変質過程の概念図

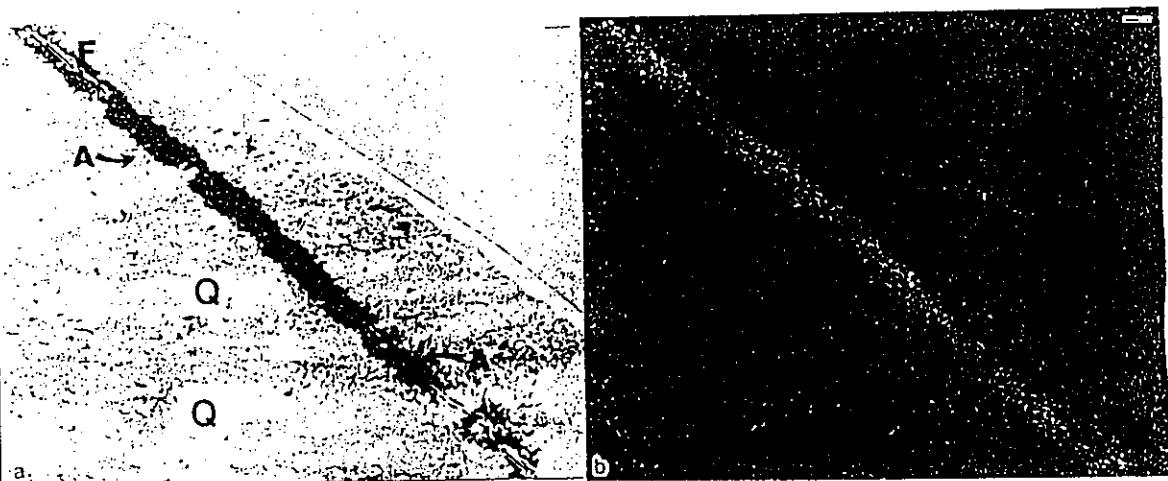
ウランは、ウラニナイトからスクロドウスカイト（ウランMgケイ酸塩）、サレアイト（ウランMgリン酸塩）と変化していくが、この過程で初期のウラニナイト中の鉛は散逸せずにキューライトなどのウラン鉛酸化物鉱物として留まっている。しかし、スクロドウスカイト中で生成した放射壊変起源の鉛は、ウラン鉛ケイ酸塩であるカソライトとして析出している。一方、Caはケイ酸塩、リン酸塩を形成する過程で容易に散逸していることが観察された。

Fig. 15



断層からの距離と地下水水中ウラン濃度

Fig. 16



薄片試料の顕微鏡写真とその  $\alpha$  トラック

Fig. 17

### 5段階選択的抽出法による二次鉱床の 鉱物相におけるウランの分布

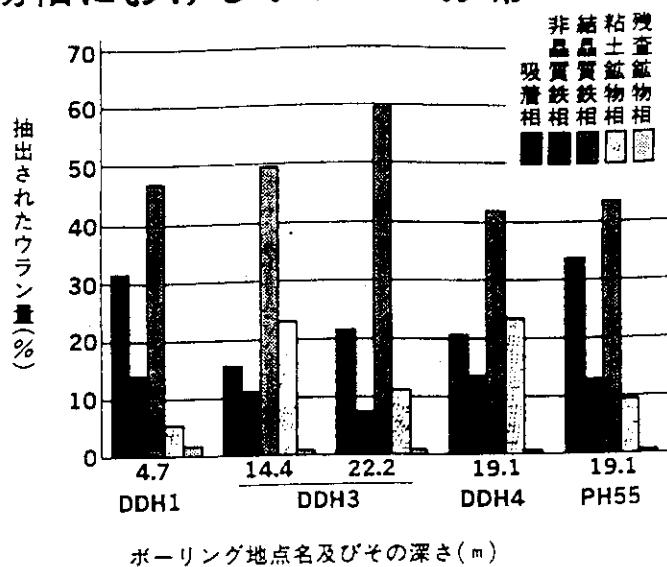
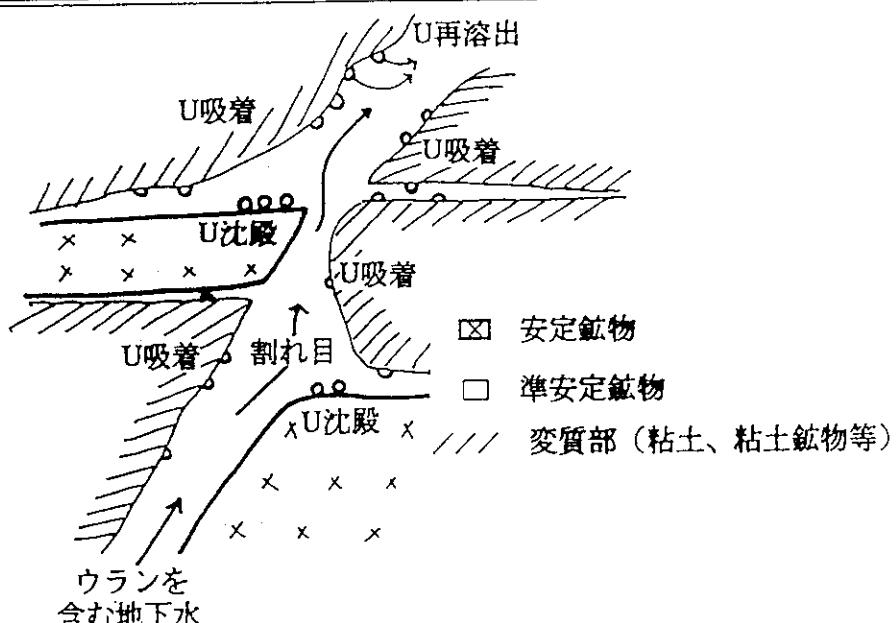


Fig. 18



ウラン移行の地球化学的プロセス

- 核種移行に対する遅延機構 -

Fig. 19

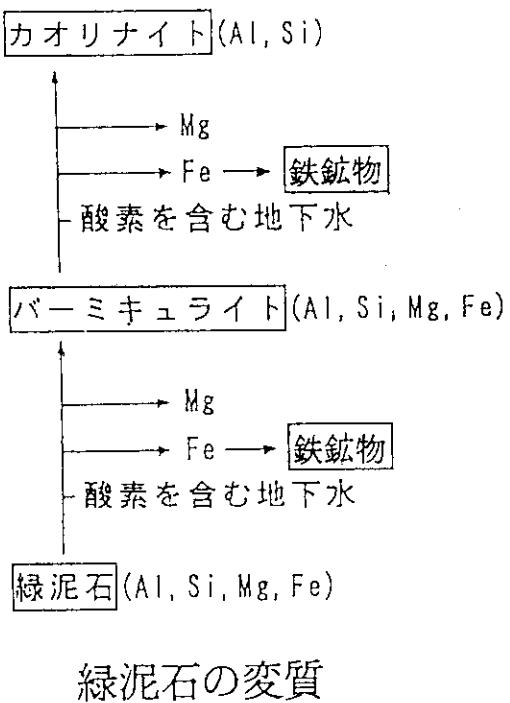


Fig. 20

### 岩石(固相)中 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ と $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 放射能比の関係 —観測値と計算結果—

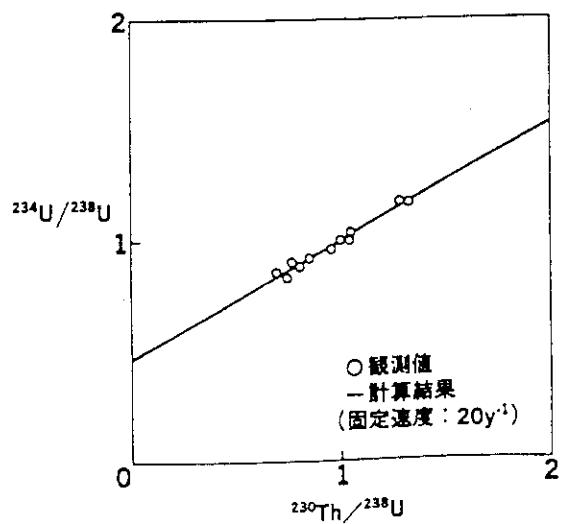


Fig. 21

## クンガラウラン鉱床に於ける 鉱物の変質とウラン系列核種移行モデル

易動度 U-238 > U-234

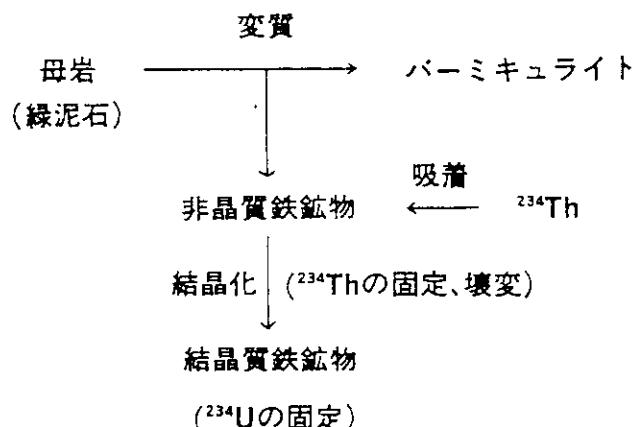
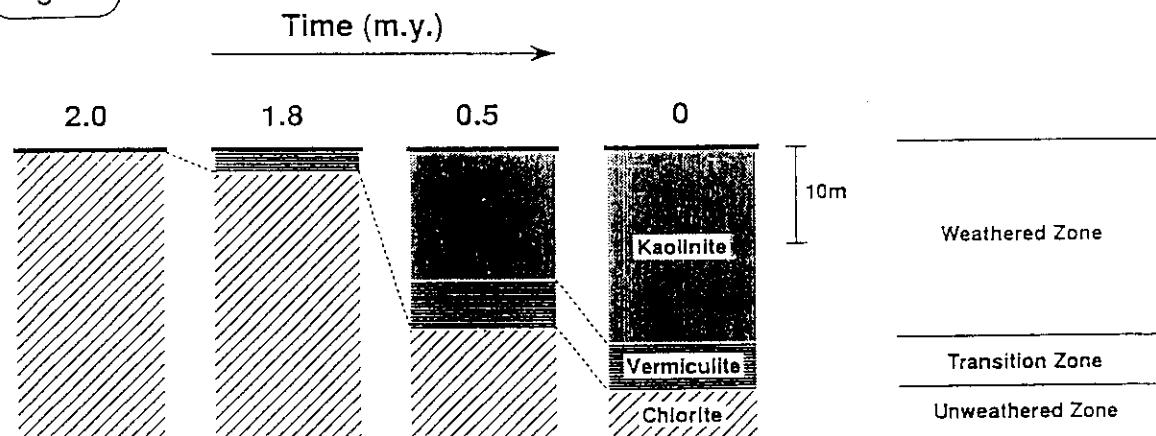


Fig. 22

## 鉱物の変質とウランの移行

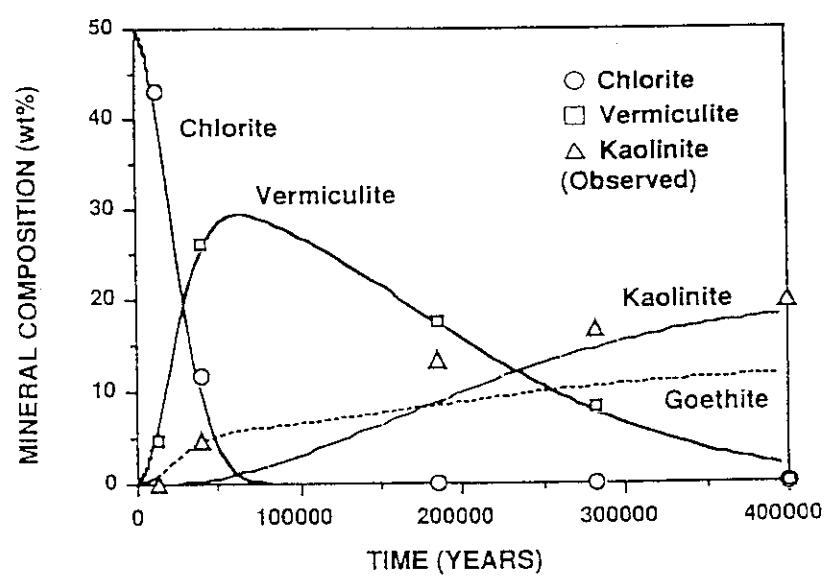
- (1) 緑泥石の風化過程とその速度
- (2) 緑泥石及びその風化生成物へのウランの分布
- (3) クンガラウラン鉱床周辺でのウラン再分布のモデル計算

Fig. 23



Schematic of weathering process at Koongarra.

Fig. 24



Variation of mineral composition in the transition zone.

計算されたウラン濃度と計算値と観測値との比較

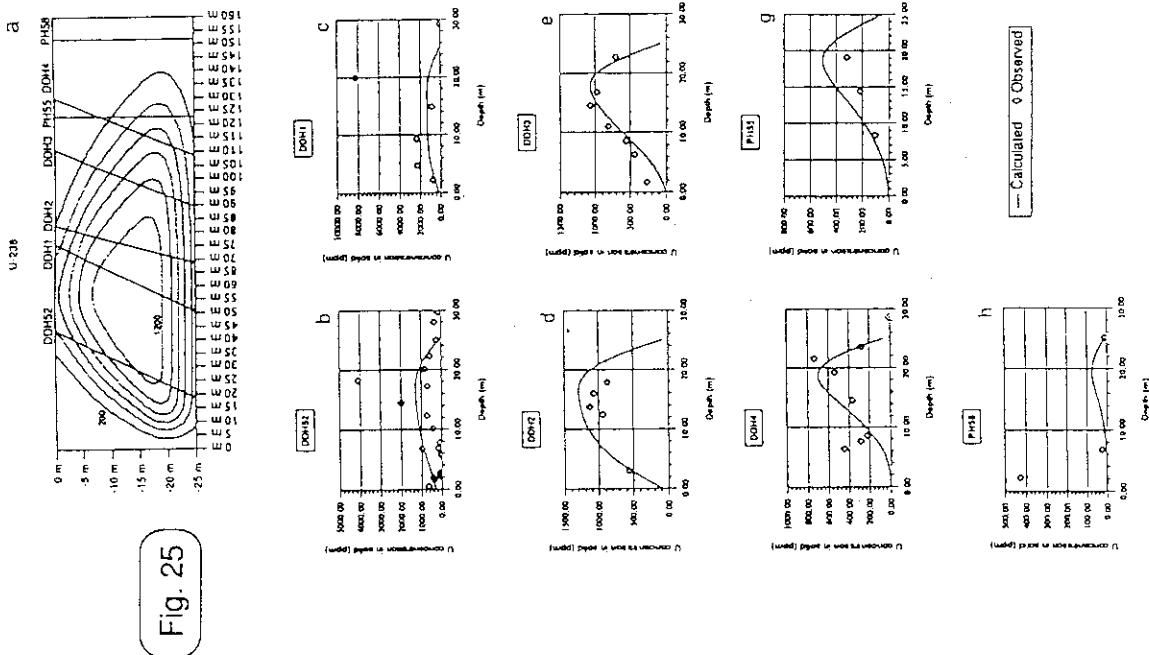


Fig. 26

## ま　と　め

### —天然・廃棄物ガラスの変質機構研究の成果—

- 1, 表面に不均質な変質層(数十~数百ミクロン)が生成する。
- 2, ガラスの構成元素は、浸出に際し化学的性質から3群にわかれれる。
- 3, ガラスの変質・浸出挙動は、熱力学的に予想される。
- 4, ガラスの変質速度は、およそ0.1~20ミクロン/千年である。

Fig. 27

## まとめ —ケンガラ鉱床における原研の成果—

- (1) ウラン鉱物が地下水により ウラニナイト → スクロドウスカイト → サレアイト となる変質過程を明らかにした
- (2) 見かけ上ウランの動きは '200 m / 1~3百万年' と考えられる
- (3) 風化帯の2次鉱床のウランの多くは、鉄鉱物に共存している
- (4) ウランの易動度 ( $U - 238 > U - 234$ ) は  $Th - 234$  の結晶質鉄鉱物への固定化モデルで説明できる
- (5) 鉱物の変質の影響を考慮することにより、現在のウランの分布を説明できた

Fig. 28

## 今後の計画

国内及び国際的にナチュラルアナログ研究を継続する。

1. 鉱物の変質機構と速度
2. 変質過程における鉱物とウラン、トリウム、希土類元素などの反応
3. 地球化学モデルによるウラン、トリウム、希土類元素などの移行の予測
4. 超ウラン元素の移行の予測