



JP0150184

JAERI-Research

2000-052



地層中における地下水の移行性と
放射性核種の移行挙動

—カナダ原子力公社との協力研究の成果—

2001年1月

小川 弘道・長尾 誠也・山口 徹治・向井 雅之
宗像 雅広・坂本 義昭・中山 真一・武田 聖司
木村 英雄・熊田 政弘・村岡 進

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公開している研究報告書です。

入手の問い合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越し下さい。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 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行っております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 〒319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 2001

編集兼発行 日本原子力研究所

地層中における地下水の移行性と放射性核種の移行挙動
—カナダ原子力公社との協力研究の成果—

日本原子力研究所東海研究所燃料サイクル安全工学部

小川 弘道・長尾 誠也・山口 徹治・向井 雅之・宗像 雅広

坂本 義昭・中山 真一・武田 聖司・木村 英雄・熊田 政弘⁺・村岡 進

(2000年10月4日受理)

日本原子力研究所は、カナダ原子力公社 (AECL: Atomic Energy of Canada Limited) との協力研究協定フェーズ I (昭和 62 年～平成 5 年) をベースに、我が国の高レベル放射性廃棄物地層処分
の安全評価手法確立に寄与するために協力研究協定フェーズ II を実施した。フェーズ II 研究では、①AECL が所有する地下研究施設 (URL: Underground Research Laboratory) の 240 m レベル
から採取した花崗岩ブロック (1 m × 1 m × 1 m) の亀裂媒体を用いた核種移行実験、②地下水
から分離精製した有機物を用いた核種移行への影響評価研究、③地下水流動が異なる 2 つの地下
環境における環境同位体を用いた地下水流動の研究、④地下水流動に関するパラメータの評価手
法の開発と不均質帯水層中での核種移行モデルの開発を進めた。その結果、亀裂内での核種移行
の遅延性には現場の地下環境と亀裂中の移行経路が関与していること、地下水中の高分子有機酸
である腐植物質は、放射性核種との錯形成により砂及び花崗岩における核種の移行を促進させる
ことなどを明らかにした。また、地下水の長期流動解析への ³⁶Cl、¹²⁹I の適用性を地下研究施設
での調査を基に検証するとともに、開発した地質統計学的モデルの 3 次元的な地下水流動及びト
レーサー移行解析に関する有効性を明らかにした。本報告書は、協力研究協定フェーズ II の成果
概要を取りまとめたものである。

東海研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

⁺環境科学研究部

Studies on Groundwater Flow and Radionuclide Migration at Underground Environments
-Final Report of Collaboration Research between JAERI and AECL-

Hikomichi OGAWA, Seiya NAGAO, Tetsuji YAMAGUCHI, Masayuki MUKAI, Masahiro MUNAKATA,
Yoshiaki SAKAMOTO, Shinichi NAKAYAMA, Seiji TAKEDA, Hideo KIMURA, Masahiro KUMADA*,
and Susumu MURAOKA

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

(Received October 4, 2000)

The Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI) conducted a collaboration program Phase II with the Atomic Energy of Canada Limited (AECL) from 1994 to 1998. The program was started to contribute the establishment of safety assessment methodology for the geological disposal of high-level radioactive wastes on the basis of the results from the Phase I program (1987-1993). The Phase II program consisted of following experimental items: ① radionuclide migration experiments for quarried blocks (1m x 1m x 1m) of granite with natural fracture under *in-situ* geochemical conditions at 240 m level of Underground Research Laboratory of AECL; ② study on the effects of dissolved organic materials extracted from natural groundwaters on radionuclide migration; ③ study on groundwater flow using environmental isotopes at two different geologic environments; ④ development of groundwater flow and radionuclide transport model for heterogeneous geological media. The mobility of radionuclides was retarded in the fracture by the deep geological conditions and the fracture paths. The groundwater humic substances with high molecular size were enhanced for the mobility of radionuclides in the sand and granitic media due to the complexation. The application of ^{36}Cl and ^{129}I for the analysis on the long-term groundwater flow can

* Department of Environmental Sciences

be validated on the basis of investigation at the URL site. Moreover, the geostatistical model for the analysis on groundwater flow and radionuclide migration was developed, and was able to describe the groundwater flow and the migration of environmental tracers at AECL sites. This report summarizes the results of the Phase II program between JAERI and AECL.

Keywords: Groundwater Flow, Radionuclide Transport Model, Radionuclide Mobility, Natural Fractures, In-situ Migration Experiments, Dissolved Organic Materials, Actinide-humus Complexes, Environmental Isotopes, Stochastic Parameter Estimation, Geostatistical Modeling

This is a blank page.

目 次

1. 協力研究の総括的まとめ	1
2. 協力研究の全体概要	3
2.1 協力研究の目的	3
2.2 研究項目の必要性とその意義	4
2.2.1 亀裂媒体における核種移行実験	4
2.2.2 地下水中の溶存有機物の影響評価研究	4
2.2.3 環境同位体による地下水流動の研究	5
2.2.4 地下水の流れおよび核種移行に関する研究	5
2.3 サイトの地質環境とこれまでのフィールド試験の概要	5
2.3.1 チョークリバー研究所周辺域の特徴	5
2.3.2 地下実験施設の概要と周辺域の特徴	6
3. 亀裂媒体における核種移行実験	11
3.1 はじめに	11
3.2 切り出し岩盤核種移行実験施設の設計・建設	11
3.3 亀裂の水理特性の解析	12
3.4 移行実験	13
3.4.1 試料と方法	13
3.4.2 放射性核種の移行挙動	14
3.4.3 コロイドの移行挙動	16
3.4.4 放射性核種の収着性と拡散現象	16
3.5 結論	17
4. 地下水中の溶存有機物の影響評価研究	51
4.1 はじめに	51
4.2 地下水腐植物質の濃縮と特性分析	52
4.2.1 地下水採取地点及び採取方法	52
4.2.2 地下水腐植物質の分離・精製方法	52
4.2.3 腐植物質の特性分析方法	52
4.2.4 地下水腐植物質の特性	53
4.3 アクチノイド-腐植物質錯体の特性	53
4.3.1 錯体実験方法	53
4.3.2 錯体の分子サイズ分布	53
4.4 腐植物質存在下におけるアクチノイドの吸着特性	54
4.4.1 吸着実験方法	54
4.4.2 Np の吸着特性	54
4.4.3 Pu の吸着特性	55

4.5	アクチノイド-腐植物質錯体の移行特性	55
4.5.1	実験方法	55
4.5.2	室内カラム実験結果	55
4.5.3	フィールドカラム実験結果	56
4.6	結論	56
5.	環境同位体による地下水流動の研究	65
5.1	はじめに	65
5.2	地下水の研究に適用される環境同位体	66
5.3	カナダのサイトにおける研究	66
5.3.1	サイトの位置と地質	66
5.3.2	地下水試料と同位体の測定方法	67
5.3.3	^{14}C 及び ^3He を用いた涵養域地下水の浸透状況の把握とその適用性	68
5.3.4	^4He 及び Ar を用いた地下水と岩石間の相互作用による流動域の区分	68
5.3.5	^{36}Cl を用いた地下水中の塩類の起源と滞留時間の推定法	69
5.3.6	^{129}I を用いた深部地下水の滞留時間の推定手法	70
5.4	日本のサイトにおける研究	71
5.4.1	サイトの位置及び地下水サンプル	71
5.4.2	調査結果	71
5.5	結論	71
6.	地下水の流れおよび核種移行に関する研究	81
6.1	はじめに	81
6.2	モデルの概要説明	82
6.3	自然帯水層中での流れと核種移行に関するパラメータ評価手法の開発	83
6.3.1	研究の背景とパラメータ評価手法開発の必要性	83
6.3.2	帯水層スケールにおける流速・分散長の推定	84
6.3.3	有効粒径による透水係数の空間的不均質分布特性の評価	84
6.3.4	統計的パラメータ評価手法の開発	85
6.4	自然帯水層中での流れと核種移行モデルの開発と妥当性検証	85
6.4.1	これまでの研究の経過と既存モデルの問題点	85
6.4.2	地質統計学的地下水流・核種移行のモデル化	86
6.4.3	環境トレーサーによる広域的核種移行のモデル化	88
6.5	結論	88
7.	まとめと今後の展開	99
7.1	まとめ	99
7.2	今後の展開	100

Contents

1 . Executive Summary	1
2 . Outline	3
2.1 Purpose	3
2.2 Concept and Scope of Experimental Items	4
2.2.1 Quarried Block Radionuclide Migration Experiments	4
2.2.2 Effects of Dissolved Organic Materials on Radionuclide Migration	4
2.2.3 Study on groundwater flow using environmental isotopes	5
2.2.4 Development of Groundwater Flow and Radionuclide Transport Model	5
2.3 Geology of the Area and Previous Studies	5
2.3.1 Chalk River Laboratories	5
2.3.2 Underground Research Laboratory	6
3 . Quarried Block Radionuclide Migration Experiments	11
3.1 Introduction	11
3.2 Construction and Installation	11
3.3 Hydraulic Characteristics of Fractures	12
3.4 Migration Experiments	13
3.4.1 Materials and Methods	13
3.4.2 Migration Behavior of Radionuclides	14
3.4.3 Migration Behavior of Colloids	16
3.4.4 Sorption and Diffusion of Radionuclides	16
3.5 Conclusions	17
4 . Effects of Dissolved Organic Materials on Radionuclide Migration	51
4.1 Introduction	51
4.2 Isolation and Characterization of Groundwater Humic Substances	52
4.2.1 Sampling Locations and Methods	52
4.2.2 Isolation and Purification Procedures	52
4.2.3 Analytical Methods	52
4.2.4 Characteristics of Groundwater Humic Substances	53
4.3 Characteristics of Actinides-Humus Complexes	53
4.3.1 Complexation Experimental Procedure	53
4.3.2 Molecular Size Distribution of Actinides-Humus Complexes	53
4.4 Sorption of Actinides in the Presence of Humic Substances	54
4.4.1 Sorption Experimental Procedures	54
4.4.2 Sorption Behavior of Np	54
4.4.3 Sorption Behavior of Pu	55
4.5 Migration Behavior of Actinides-Humus Complexes	55

4.5.1	Migration Experimental Procedures	55
4.5.2	Laboratory Column Experiments	55
4.5.3	Field Column Experiments	56
4.6	Conclusions	56
5.	Study on Groundwater Flow using Environmental Isotopes	65
5.1	Introduction	65
5.2	Environmental isotopes used in groundwater studies.....	66
5.3	Study in Canadian site	66
5.3.1	Location and geology	66
5.3.2	Groundwater samples and measurement method	67
5.3.3	Understanding groundwater infiltration in recharge area using ^{14}C and ^4He and their applicability	68
5.3.4	Defining flow areas using He and Ar by the extent of water-rock interaction	68
5.3.5	Estimating method using ^{36}Cl for origin of salt and residence time of groundwater	69
5.3.6	Estimating method using ^{129}I for residence time of deep groundwater	70
5.4	Study in Japanese site	71
5.4.1	Site location and groundwater sample	71
5.4.2	Results	71
5.5	Conclusions	71
6.	Development of Groundwater Flow and Radionuclide Transport Model	81
6.1	Introduction	81
6.2	Outline of Groundwater Flow and Radionuclide Transport Model	82
6.3	Estimation Methods of Flow and Transport Parameters in Natural Aquifer	83
6.3.1	Development for Estimation Models of Flow and Transport Parameters	83
6.3.2	Parameter Estimation of Velocity and Dispersivity in a Scale of Aquifer	84
6.3.3	Estimation of Flow Parameters based on the Grain Size Distribution Data	84
6.3.4	Development of Stochastic Parameter Estimation	85
6.4	Validation Study of Groundwater Flow and Radionuclide Transport Model in Natural Aquifer	85
6.4.1	Subjects for Flow and Transport Modeling Studies	85
6.4.2	Modeling of Groundwater Flow and Radionuclide transport using Geostatistical Technique	86
6.4.3	Geostatistical Modeling of Groundwater Flow and Transport	88
6.5	Conclusions	88
7.	Summary of Results and Suggestions for Future Work	99
7.1	Summary	99
7.2	Future Work	100

1. 協力研究の総括的まとめ

本協力研究では、地下環境下における放射性核種の移行挙動及び地下水流動解析に関して以下の4つの研究テーマを設定して検討を進め、以下の結果を得た。

亀裂媒体における核種移行実験

カナダのマニトバ州ラク・ド・ボネにほど近いカナダ原子力公社(AECL)の地下実験施設(URL)の240メートルレベル坑道内に建設した実験室において、亀裂(1m×1m)の状態を保存したまま採取した花崗岩ブロックとその場の地下水を使って、 ^3H 、Br、 ^{85}Sr 、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 、 ^{237}Np 、 ^{238}Pu 及び4種類のサイズのコロイドを対象に亀裂における溶存物質の移行試験を行った。非吸着性のトレーサーの ^3H 及びBrの流出曲線に2つのピークが見られたことや核種移行実験後の亀裂表面の観察で2つの移行経路が見られたことから、亀裂内の物質移行に対して機械的分散が影響することを明らかにした。また、非吸着性トレーサーの流出曲線が尾を引いていたことから、マトリクス拡散の影響が示唆された。一方、 ^{85}Sr 、 ^{237}Np 、 ^{238}Pu の移行実験の結果は、元素それぞれに特徴的な収着による遅延効果を示すものであったが、還元反応に伴う大きな収着が期待された $^{99\text{m}}\text{Tc}$ と ^{237}Np の遅延は予想を下回った。また、亀裂内におけるコロイドの移行は、主に、沈着とよどみ領域への拡散により支配されていると推定された。そのため、コロイドの移行評価では、岩石マトリクス内への拡散とマトリクス内での鉱物への吸着だけを考慮した既往のモデルを適用する場合に注意が必要であると考えられる。

地下水中の溶存有機物の影響評価研究

本研究では、地下水中の溶存有機物のうち有機物の大部分を占め、長寿命核種のアクチノイドとの錯形成能が高い、高分子電解質の有機酸である腐植物質に着目し、砂層及び花崗岩亀裂帯の地下水から分離濃縮した腐植物質を用い、アクチノイドの移行に及ぼす腐植物質の影響を検討した。分離精製した腐植物質は、主に、分子サイズ1万 daltons 以下のフルボ酸により構成され、地表水(河川水)の腐植物質とは構造、分子サイズ等が異なっていた。この地下水腐植物質を用いて、砂及び花崗岩への吸着特性を調べた結果、地下水腐植物質は、地下水の腐植物質の濃度レベルでアクチノイドのNp及びPuと錯形成し、NpとPuの砂及び花崗岩への収着量を減少させた。また、Np-腐植物質錯体及びPu-腐植物質錯体は、Np及びPuに比べて砂及び花崗岩中での移行性が促進された。以上の結果より、地下水に存在する腐植物質は、砂層と花崗岩層でアクチノイドのキャリアとして作用し、アクチノイドの移行量を増加させる可能性が示唆された。

環境同位体による地下水流動の研究

本研究では、カナダ及び日本のサイトにおける調査を通して、同位体を用いて地下水の流動、水質形成、起源等を明らかにする手法の適用性を検討した。カナダのサイトでは、地下水の流動が地形の起伏と一致する少数の透水性の高い亀裂に支配されているため、地下水の流動が、涵養

域、中間域、流出域に明瞭に区分しやすい。このため、D、 ^{18}O 、 ^3H 、 ^4He 、 ^{14}C 、 ^{40}Ar 、 ^{36}Cl 、 ^{129}I の同位体を用い、個々の同位体の適応性とその範囲を調査し、複数の同位体で広範囲な流動域の調査に適応させるための検討を行った。一方、日本では、地表近傍で地下水の水平方向へ流動が卓越しているサイトを対象に ^3H 、 ^{14}C を適用した地下水の混合調査を実施し、起源が違う水の同位体比が異なる特性を活用し、地下水の混合割合を簡単なモデルで見積もることができることを明らかにした。

地下水の流れおよび核種移行に関する研究

本研究の目的は、地質媒体中での地下水流および核種移行のモデル化を行うことであり、自然環境条件下での帯水層において、流れと核種移行に関わるパラメータの空間的不均質分布特性を評価するための地質統計学的手法を開発した。地質統計学的モデルを用いて Twin Lake トレーサー試験の解析を行った結果、トレーサーの移行を良好に再現でき、本手法の有効性を確認した。加えて、この解析で得られた知見を、環境トレーサーを用いた広域的 3 次元地下水流・トレーサー移行試験結果の解析に適用し、地下水流・核種移行に関する情報を得るための本手法の有効性を確認した。

2. 協力研究の全体概要

処分安全研究室 小川弘道、長尾誠也

2.1 協力研究の目的

地下深部における放射性核種の移行について信頼性の高い予測を可能とするためには、環境条件での核種の挙動を理解することが重要である。そのため、これまでに放射性核種の土壌、岩石との吸脱着特性に関して多くの検討が行われており、対象とする放射性核種の土壌、岩石に対する分配係数を取得することに加えて、吸着する物質の同定やその吸着機構の検討などのより、地質媒体による放射性核種の吸着性が異なる理由を明らかにし、吸着特性の普遍性を整備する試みが行われてきた。放射性廃棄物の安全評価においては、これらのデータをもとに核種の移行挙動が推定される。

こうした手法の妥当性を検証する1つの方法は、想定される地質環境（原位置）で得られた試験結果あるいは自然で起こっている現象を解明し、実験室で得られた結果と比較検討することが考えられている。これまで、いくつかのサイトでフィールド試験が行われ、放射性核種の移行挙動を調べる研究が進められてきた。ここで注意しなければならないことは、対象とする地域の地質状況、地下水の特性、地下水の流動特性等の移行に関係するパラメータが原位置の実験で取得されなければ本当の意味での比較、解析はできない点である。

原研では、昭和62年から平成5年までの5年間、カナダ原子力公社(AECL)と協力研究を実施し、浅地中あるいは深地層において、現場の環境を維持した状態で移行挙動実験を行い、以下の成果を得た⁽¹⁻¹⁰⁾。

- 1) 実験対象とした地域の浅地層を構成する砂に対して、I及びSrの移行は分配係数により評価できる。
- 2) Tc、Np、Pu及びAmは一部が砂に吸着せずに移行する。
- 3) これらのアクチノイドの最大50%が負の電荷を有しており、いたことから、地下水で負の電荷を持ったコロイドとして移行したと考えられる。
- 4) アクチノイドは還元環境により、溶解度の低い化学形として存在するため、花崗岩カラム内をほとんど移行しない。

今回のAECLとの協力研究は、これまでのフェーズI等の成果をふまえ、平成6年から平成10年までの約5年間、以下の4つの研究項目に焦点を絞り検討を進めた。

1. 亀裂媒体における核種移行実験

JAERI 山口徹治、中山真一、熊田政弘

AECL T.T.Vandergraaf, D.Drew, K.Ticknor, P.Vilks

2. 地下水中の溶存有機物の影響評価

JAERI 長尾誠也、坂本義昭

AECL R.R.Rao, J.L.Young, R.W.D.Killey

3. 環境同位体による地下水流動の研究

JAERI 熊田政弘、向井雅之

AECL R.J.Cornett, M.Gascoyne, T.G.Kotzer, G.M.Milton

4. 地下水の流れおよび核種移行に関する研究

JAERI 宗像雅広、武田聖司、木村英雄

AECL G.Moltyaner, M.Klukas, A.Wills, L.Yamazaki, M.Scrimgeour

(各項目に記載した氏名は、それぞれの研究の実施担当者である。なお、敬称は省略した。)

2.2 研究項目の必要性とその意義

2.2.1 亀裂媒体における核種移行実験

岩石の亀裂帯は、放射性核種の主要な移行経路の1つと考えられており、これまでも亀裂帯を模擬した小さい系でのカラム実験、あるいはより大規模なフィールド試験が進められてきた。しかし、実環境の亀裂帯での核種移行挙動とコロイドの移行挙動を定量的に評価するためには、既知の亀裂について原位置でしかも亀裂帯を乱さず放射性核種等の移行データを取得することが重要である。そこで、本研究では、AECLが所有している地下実験施設を活用し、地下環境が維持されている新鮮な亀裂面を確保するために新たに実験室を構築し、亀裂面をなるべく乱さずに岩盤より切り出し、その状態を維持した試験ブロックを作成する手法を検討した。また、亀裂面より地下水を直接、亀裂面に流入させ、放射性核種の移行挙動を実験した。実環境の状態を維持した亀裂中の核種の移行実験は、本研究が初めてであり、実験により得られる亀裂内における地下水の移行経路さらに核種の移行挙動は、安全評価における岩石の亀裂の取り扱い、考え方を検討する上において非常に貴重なデータになると考えられる。

2.2.2 地下水中の溶存有機物の影響評価研究

近年、地下環境下における放射性核種の移行に地下水中の有機物が関与することが報告され、その影響を定量的に評価することが求められている。これまでの研究でも、地下水中の有機物の大部分を占める腐植物質（フミン酸とフルボ酸で構成）が着目され、試薬のフミン酸を用いた検討が行われてきた。しかし、試薬のフミン酸と地下水中の腐植物質とではその特性が大きく異なることが指摘されており、実際の有機物の影響評価を行うためには、大量の地下水から分離精製したフミン酸、フルボ酸を用いる必要がある。そこで、本研究では、浅地中と深地層のあわせて4層から地下水を1万～2万L採取し、地下水腐植物質を分離精製し、放射性核種の土壌、岩石への吸着に及ぼす腐植物質の影響を検討した。なお、浅地中の地下水を採取した地点では、原研とAECLとの協力研究フェーズI等により、アクチノイドの移行に高分子の腐植物質のような有機物が関与していることがフィールドでの試験により報告されている。そのため、本研究で地下水を採取した2地点は、地下環境における放射性核種の移行に及ぼす影響を評価するには適した地域と位置づけることができる。また、本研究で得られる成果は、フェーズIの報告データの妥当性を検証することにもつながる。

2.2.3 環境同位体による地下水流動の研究

高レベル放射性廃棄物の安全評価においては、長期、広範囲の地下水流動解析手法の開発が望まれている。現状は、土壌、岩石の透水係数及び地下水の水頭空間分布より地下水の流動特性を求める手法が取られているが、現在の地層状態での地下水流動特性であり、長期にわたる流動特性を必ずしも表しているとはいえない。環境同位体を用いたトレーサー移行解析では、用いる同位体に応じて適用できる時間間隔を選ぶことができ、長期間の平滑化された地下水流動を推測することが可能である。しかしながら、地下水流動の調査手法としての同位体法の適用性を検討するためには、水理特性や地質環境が比較的良好に調べられている地域での検証が必要である。そのため、本検討では、これまで、地質環境、地下水流動等の情報が蓄積されている AECL の URL 周辺をフィールドとし、同位体法の適用性を検討することとした。なお、この研究項目では地下水流動解析のモデル化と言うよりは手法の開発が主であり、「地下水の流れ及び核種移行のモデル化に関する研究」を対象とした領域に比べてより広い空間領域を想定した。

2.2.4 地下水の流れおよび核種移行に関する研究

地層中における地下水の動き、及び放射性核種の移行のモデル化には、地層の持つ不均質性を評価することが重要となる。地質媒体の不均質性を正確にとらえるためには、必然的にボーリング調査等のデータ取得作業が増大するため、理想的には、必要最小限の取得データから地下水流動を正確にモデル化できることが望ましい。また、不均質媒体中での地下水の動き及び放射性核種の移行をモデル化した場合、その結果の妥当性を実環境でのトレーサー試験結果と比較検討する必要がある。今回対象とした AECL のチョークリバー研究所では、過去にトリチウム、ヨウ素等を用いたフィールド試験が行われ、放射性核種の移行性及び周辺の地層に関するデータが調べられている。このため、この地点を対象に、限られた地質調査データから自然帯水層中での地下水流動を正確に解析できるモデルを開発し、実測データとの比較検討により原研で開発した地下水流動モデルの妥当性検証を行った。

上記の研究項目を実施する上で、フィールドでの試験を基に解析を進めるとともに、実験室等で得られたデータの妥当性を検証することが重要である。今回、協力研究を進めた AECL は、浅地中ではチョークリバー研究所内におけるフィールドテストサイト、深地層では地下実験施設を有し、地質や地下水流動等のデータも取得、整備されている。そのため、理想的なフィールド試験場あるいはそれに相当する実験施設と位置づけることができ、AECL との共同研究に意義を見出すことができる。以下に、対象としたサイトの特性等について説明する。

2.3 サイトの地質環境とこれまでのフィールド試験の概要

2.3.1 チョークリバー研究所周辺域の特徴

チョークリバー研究所は、オンタリオ州オタワの北西約 190 km、オタワ川南岸に位置している (Fig. 2-1)。周辺域の地質は、砂質の堆積層とその下に先カンブリア時代に形成された花

崗岩とモンゾナイト（閃長岩と閃緑岩との中間に位置する粒状の深成岩）の基盤岩で構成されている^(7,11)。研究所の敷地は約 37 km²で、中にはいくつかのフィールドテストサイトがある。今回対象としたのは、Glass Block サイト、Wallace ポイント、また、モデル解析では、Twin Lake サイトであった。以下にそれぞれのサイトの特徴及び AECL においてこれまでに行った主なフィールド試験の概要を報告する。

Glass Block サイト

Lower Perch Lake basin の湿地帯の端に位置している。ここでは、1960-1979 年までガラス固化体埋設試験が行われ、ガラス固化体からの放射性核種の浸出率、浸出した放射性核種の帯水層での挙動が調査されている。また、1990-1993 年に原研との協力研究フェーズ I の一環として、アクチノイドを対象とした移行挙動に関する検討が行われた⁽⁷⁾。これらの研究において、地下水中のアクチノイドの存在形態を大容量カラムを用いて検討した結果、Eu、Am は有機形の溶存形態として移行している可能性が示唆された^(12,13)。

Wallace ポイント

フェーズ I でのフィールドカラム試験は、基盤岩直上の観測用ボーリング孔内で行った。還元環境下での放射性核種の移行を Downhole Column Experiment により評価し、有機物の影響が示唆された⁽¹⁴⁾。

Twin Lake サイト

Twin Lake 付近に位置するサイトであり、地層は、砂質堆積物、氷河由来の漂礫土、さらにその下に結晶質岩で構成されている。今回、地下水流動の解析に用いたデータは、このサイトで 1982~1983 年に行われた Twin Lake Tracer Test⁽¹⁵⁾において取得された。

2.3.2 地下実験施設(URL)の概要と周辺域の特徴

URL サイトはマニトバ州ウィニペグの北東約 100km に位置し、カナダ中央部に分布するカナダ盾状地の周縁部のラク・ド・ボネ底盤と呼ばれる花崗岩質の大規模岩帯に建設された (Fig.2-2)。この花崗岩は約 26 億年前に形成され、斜行する複数の亀裂帯の存在で特徴づけられる。また、地表から上部亀裂帯までは、鉛直方向の節理が顕著に存在しており、深部の灰色の花崗岩と比較して透水性が高くなっている⁽¹⁶⁻¹⁸⁾。地形は、URL 周囲が標高が高く、北北西方向の湿地帯に向かって緩やかに下る傾斜面上になだらかな複数の起伏が存在する地形となっている。亀裂帯は、上から 3、2、1 と名付けられた 3 つの顕著なものと、その間の副次的なものが同一方向に走っている。URL は亀裂帯 2 と 3 を貫いて、深度 420m まで掘削されており、深度 240 m と 420m に実験室などの施設を有する水平坑道が建設されている。AECL ではこの施設において、高レベル廃棄物の地層処分に関連した地層における地下水及び放射性核種の移行特性、トンネル密封システムの検討、モニタリング手法の評価等の研究を進めている。

原位置試験はいずれも適切な地下実験施設が必要であり、浅地中の実験施設をもつ中国輻射防護院（燃料サイクル安全工学部処分安全研究室と協力研究により建設。現在、共同研究中）、結晶質岩の深地層では AECL の地下実験施設(URL)、スイス NAGRA のグリムゼル岩盤試験場、スウェーデン SKB の Hard Rock Laboratory と数少ないのが現状である。URL では、高レベル放射性廃棄物の地層処分に関する R&D の一環として、亀裂媒体における地下水及び核種移行試験

を実施しているため、今回の研究に適した施設と位置づけることができる。

研究項目の切り出し岩盤では、240mレベルに新たに掘削し整備した実験室で行った。有機物評価研究ではこの地点からも地下水を採取し、有機物を分離精製した。また、環境同位体はURLとその周辺域で地下水を採取し、同位体を測定した。

参考文献

- 5) Young, J.L., Champ, D. R., Jirovec, J. O., Molyaner, G. L.: Transport and Mass Exchange Processes in Sand and Gravel Aquifers: Field and Modelling Studies, Vol. 2 (ed. G. Molyaner), AECL-Report, AECL-10308, p.713-724 (1990).
- 6) Champ, D. R., Jirovec, J. O., Young, J. L., Kumata, M.: Transport and Mass Exchange Processes in Sand and Gravel Aquifers: Field and Modelling Studies, Vol. 2 (ed. G. Molyaner), AECL-Report, AECL-10308, p.725-736 (1990).
- 7) Killey, R. W. D., Champ, D. R., Nakamura, H., Sakamoto, Y.: Transport and Mass Exchange Processes in Sand and Gravel Aquifers: Field and Modelling Studies, Vol. 2 (ed. G. Molyaner), AECL-Report, AECL-10308, p.850-866 (1990).
- 8) Kumata, M., Vandergraaf, T. T.: Proc. of the Third Int. Symposium on Advanced Nucl. Energy Res.- Global Environ. And Nucl. Energy-, JAERI, p.414-419 (1991).
- 9) Kumata, M., Vandergraaf, T. T.: Radioactive Waste Management and the Nuclear Fuel Cycle, **17**, 107 (1993).
- 10) 中山真一, Vandergraaf, T. T., 熊田政弘: 放射性廃棄物研究, **1**, 67 (1994).
- 11) Killey, R.W.D., Klukas, M., Sakamoto, Y., Munch, J.H., Young, J.L., Welch, S.J., Risto, B.A., Eyvindson, S., Molyaner, G.L.: Atomic Energy of Canada Limited, Report AECL-RC-1513
- 12) (1995) Sakamoto, Y., Nakamura, H., Killey, R. W. D., Champ, D. R.: Proc. of 10th Pacific Basin Nucl. Conf., Vol. 2, p.1343-1350 (1996).
- 13) Kumata, M., Vandergraaf, T. T.: J. Contam. Hydrol., **35**, 31 (1998).
- (10)坂本義昭: 京都大学原子炉実験所 KURRI-HR-44 「天然バリア Kd」 専門研究会報告書, p.68-77 (2000).
- (11) Jackson, R.E., Inch, K.J.: National Hydrology Research Inst., NHRI Paper No.7, Inland Waters Directorate, Environmental Canada (1980).
- (12) Champ, D.R., Jirovec, J.O., Young, J.L., Kumata, M.: Atomic Energy of Canada Limited, Report, AECL-10308 (ed. G.Molyaner), Vol.2, 725 (1985).
- (13) Robertson, D.E., Bergeron, M.P., Myers, D.A., Abel, K.H., Thomas, C.W., Champ, D.R., Killey, R.W.D., Molyaner, G.L., Young, J.L.: NUREG/CR-4879, PNL-6175, Vol.1, 121 (1987).
- (14) Champ, D.R., Molyaner, G.L., Young, J.L., Lapcevic, P.: Atomic Energy of Canada Limited Report, AECL-8905, 43 (1985).
- (15) Killey, R.W.D., Molyaner, G.L.: Water Resour. Res., **24**, 1585-1612 (1988).

- (16) Stone, D., Kamineni, D.C., Brown, A.: Atomic Energy of Canada Limited Technical Report, TR-243, URL-EXO-001-R1 (1984).
- (17) McCrank, G.F.D.: Atomic Energy of Canada Limited Report, AECL-7816 (1985).
- (18) Brown, A., Sonawala, N.M., Everitt, R.A., Kamineni, D.C.: Can. J. Earth Sci., **26**, 404-425 (1989).

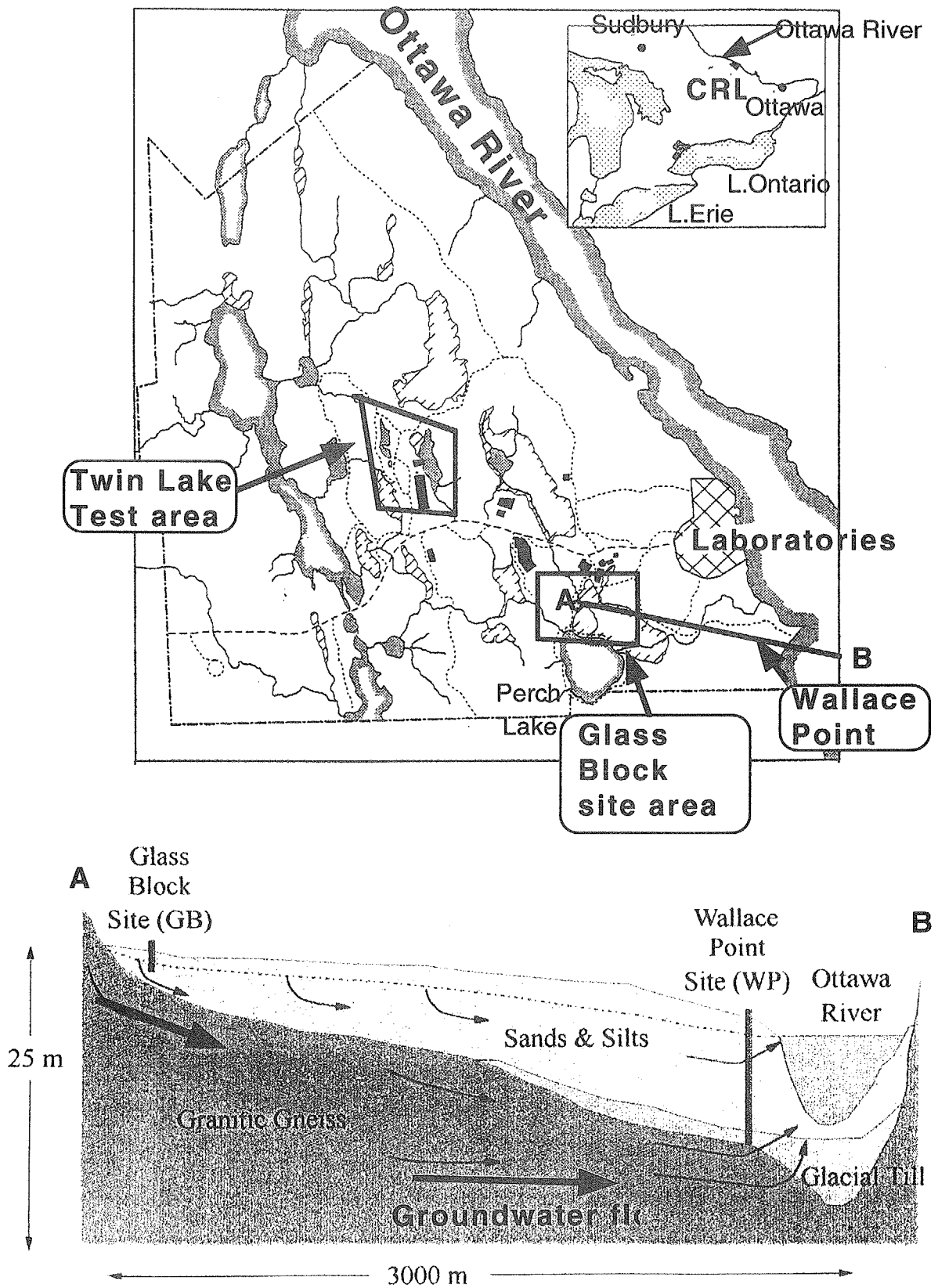


Fig.2-1 Location of the Chalk River Research Area including Chalk River Laboratories (CRL). The area is located approximately 190 km northwest of Ottawa, on the southern bank of Ottawa River.

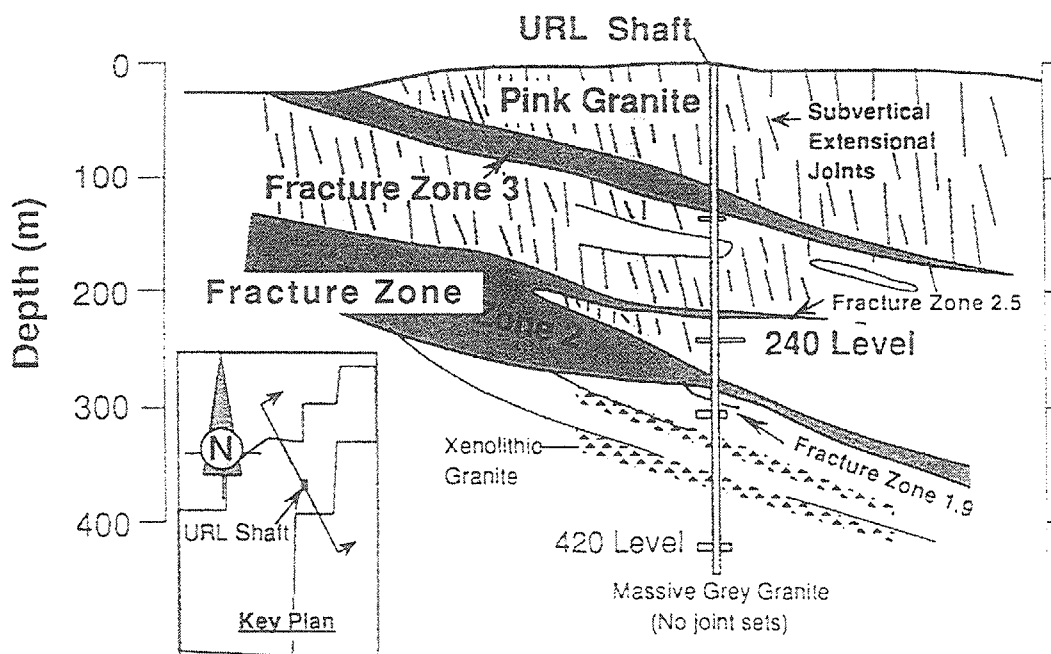
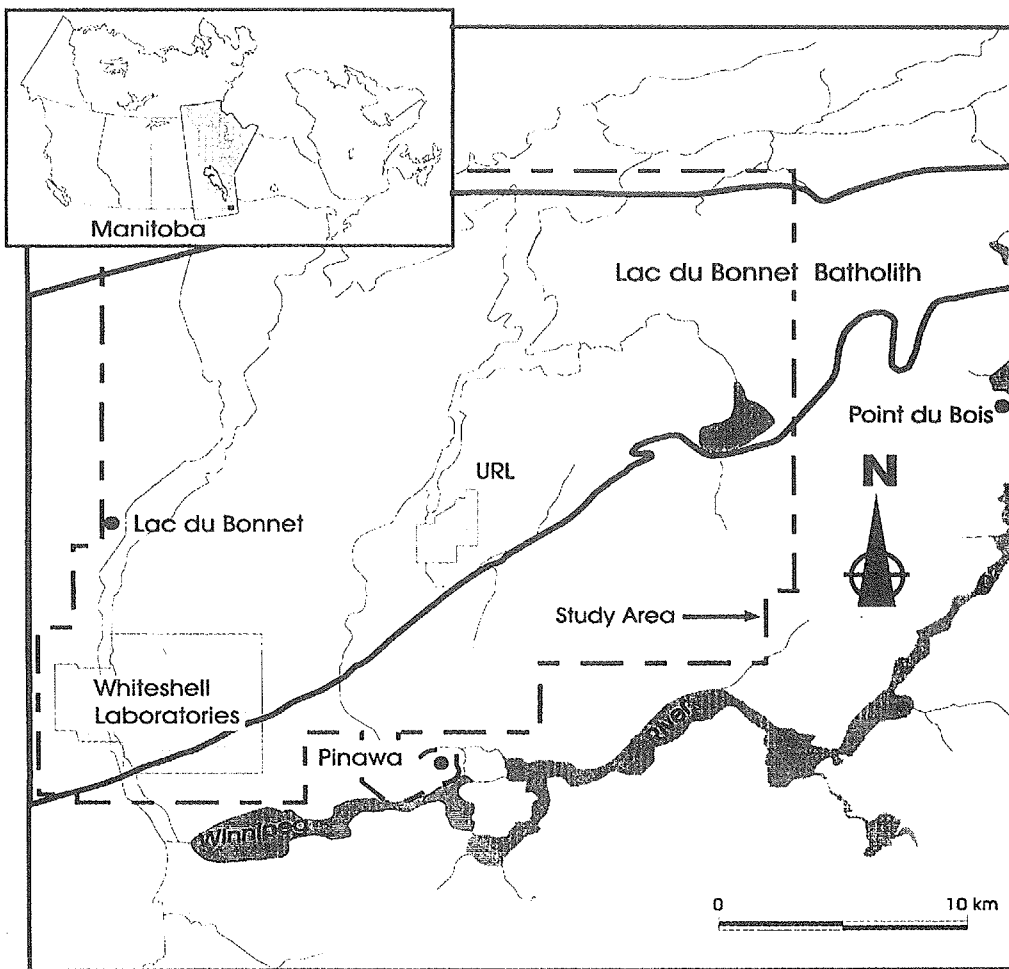


Fig.2-2 Location of Whiteshell Research Area (dotted line) including the Whiteshell Laboratories and the URL. The area is located north-east of Winnipeg, Manitoba, Canada.

3. 亀裂媒体における核種移行実験

処分安全研究室： 山口徹治、中山真一

陸域環境研究グループ： 熊田政弘

3.1 はじめに

放射性廃棄物処分場周辺の岩盤は、放射性核種の移行に対してバリア性能を持つと考えられている。そのバリア性能はいくつかの現象が複合的に作用して発揮される。亀裂性の岩盤中では放射性核種は、亀裂開口部を地下水の流れに沿って移流し、移行に伴う機械的分散と分子拡散により希釈されるとともに、亀裂表面から岩石マトリクス内へ拡散し、マトリクス内で鉱物表面に吸着されると考えられる。このようなバリア性能を考慮して移行モデルが構築され、移行評価が行われる。この考え方を説得力のあるものにするためにはまず、個々の現象を実験的に確認することが重要である。原研は AECL と協力して、カナダマニトバ州ラク・ド・ボネにほど近い AECL の地下実験施設(URL)の 240 メートルレベルにおいて、その場の条件における一次元核種移行実験を 1987 年から行い^(1,2)、吸着によって移行が遅延される効果を確認した。AECL はホワイトシエル研究所において 2 次元の核種移行実験を行い、亀裂内の移行に関する知見を蓄積してきた⁽³⁻⁵⁾。また原研では、健全な岩石の小試料を用いてマトリクス拡散に関する研究を行ってきた⁽⁶⁾。このように個々の現象の理解が進んできた今、物理的なバリア効果（機械的分散、分子拡散、マトリクス拡散）や化学的なバリア効果（吸着）が複合的に作用して核種の移行を遅延させることを亀裂内移行実験で確認することによって、亀裂性岩盤の持つバリア性能の考え方の妥当性を明確にすることができると考えられる。

そこで、URL の 240 メートルレベルの天然の亀裂をその場の条件を保ったまま切り出し、核種移行実験を行った。花崗岩の亀裂(1 m×1 m)についての水理特性試験及び T, Br, Sr, Tc, Np, Pu, 4 種類のサイズのコロイドの移行実験並びにそれをサポートする室内試験を行った。実験で得られた、天然の亀裂内における吸着性及び非吸着性の溶存物質の移行挙動に関する知見から、亀裂性媒体中における核種移行の考え方について考察した。

3.2 切り出し岩盤核種移行実験施設の設計・建設

原位置条件において亀裂岩盤内核種移行実験を行うためには、空気にさらされていない天然の透水亀裂を含む岩石ブロックを採取しなければならない。また、その岩石ブロックの採取の影響が及ばない上流側から地下水を採取して速やかに実験に供する必要がある。そのために新しい坑道を掘削し、実験室を建設することとした。

URL の 240m レベルには透水亀裂が 1 本だけ存在し、この亀裂(JZ-2)は Room 209 を横切り 240m レベルの少し下まで続いている (Fig.2-2)。Room 209 は、240m レベルの建設時からずっと空気にさらされているため、Room 209 から十分に離れた空気にさらされていないと考えられる場所

に新たに坑道を掘削した (Fig.3-1)。坑道掘削後、次のような手順で実験室を整備した：(1)床へのコンクリートの打設、(2)配電盤、Room 217, 218, 219 の仕切り壁、給排気設備、クレーン、放射性物質を扱うためのフード等の設置、(3)地下水採取孔 JE-6 の掘削、(4)切り出したブロックまで地下水を誘導するためのステンレス配管、(5)試験機器 (pH; Eh; 電気伝導度のプローブ、切り出したブロックを移動するための電動フォークリフト及び2台の起重機、水理特性試験に用いられるピストンポンプ(Model LC5000, ISCO, Omaha, NE, USA)、移行試験においてトレーサを含む液を注入するための溶液ループ、移行試験において亀裂からの流出液を採取するためのフラクシオンコレクター(Model Retriever II, ISCO, Omaha, NE, USA)等) の設置、(6)Room 219 と Room 218 に放射線モニタ (α 、 β/γ 、トリチウム) の設置。また、この実験室で放射性物質を扱うため、AECB から許可(IAEA Class B radioisotope facility)を取得した。

掘削した坑道(Room 219)壁面から、高周波レーダーを用いて亀裂 (JZ-2)の所在を確認した後、亀裂を横切るような部屋(Joint Zone Access Chamber, JZAC)を掘削した。この掘削では岩盤へのダメージを軽減するため、爆破を使わない機械的破壊法(mechanical rock breaking technique)を用いた。こうして掘削された JZAC の壁面は凸凹があり、試験に使うブロックの面としては適当でなかったため、ブロックを切り出す部分については凹凸をダイヤモンドワイヤーで切り落とし、平滑な壁面を出した。

ブロックの辺となるところに試験孔 (96 mm ϕ または 200 mm ϕ) をあけ、それらの試験孔にダイヤモンドワイヤーをとおしてブロックの面 (1 m \times 1 m) を1面ずつ切断していった。切りくずがブロックに入らないようにするため、ブロックへの地下水の流入が途切れないような順序で切断を行った。鉛直面を切断したあと、亀裂が開いてしまうのを防ぐため鉄製のバンドを巻いて残りの面 (上面と底面) を切断した。切り出したブロックはすぐに表面をシリコンコーティングし、ステンレスの枠にはめ込み、ステンレスタンク内に置いて地下水に浸けた。続いて二つ目のブロックを同様に切り出し、もう一つのタンク内に保管した。その後ブロックには Fig. 3.2 に示すように、厚さ 6.4 mm のステンレス板をアンカーボルトで固定し、このステンレス板に試験液の注入及び排出ポートを3カ所設けた。水漏れを防ぐため、ステンレス板とブロックの隙間はネオプレンの充填材で塞いだ。このようにして合計 12 個のポートを設けた。その様子を Fig. 3.3 に示す。

3.3 亀裂の水理特性の解析

ステンレスタンクからブロックを搬出し、12 個のポートのうちから 2 個を選びその一つからもう一つに向かってポンプを使って流速 75~400 ml/h で地下水を流した。この時の注入口と出口の差圧は水柱(~100 cm)で測定し、12 個のポートのうちから 2 個を選ぶすべての組み合わせについて実施した。解析においては、亀裂の形状は 1000 mm \times 1000 mm とみなし、二つのポート間で測定された透水係数はこの二つのポートをつなぐ直線上の透水係数であると仮定した。透水係数が亀裂の開口幅の三乗に比例すると仮定すると、亀裂開口幅 b (μ m)は次式で与えられる。

$$b = (6 \mu Q \ln(L/d) / \Delta h \pi \rho g)^{1/3}$$

ただし、 μ : 水の粘性係数 (g/cm/s)、 Q : 流量 (cm³/s)、 L : ポート間の距離 (cm)、 d : ポートの直径 (cm)、 Δh : 水頭差 (cm)、 ρ : 地下水の密度 (g/cm³)、 g : 重力加速度 (cm/s²)。

このようにして決まる亀裂開口幅を2つのポート自身及びその間を4等分する点に割り付け、亀裂上のたくさんの地点に対して亀裂開口幅を与え、そのデータを Surfer for Windows v. 6.04 (Golden Software Inc., Golden, CO, USA)で処理して亀裂の開口幅分布図 (Fig. 3.3) を作成した。これらの亀裂開口幅分布から、ほとんど亀裂が閉じてしまっているポートを避け、できるだけ移行距離が長くなるように、移行実験で用いるトレーサーの注入口と出口を選んだ。即ち、ブロック A を使った移行実験ではポート3を注入口、ポート9を出口として、ブロック B ではポート1を注入口、ポート7を出口として用いることにした。

3.4 移行実験

3.4.1 試料と方法

試験に用いた地下水 (試験孔 JE-6 から採取) の組成を Table 3-1 に示す。pH は 8.5、Eh は -220 ~ -160 mV (vs. NHE) であり、2 価鉄の濃度 (フェナントロリン比色分析法で測定) は 0.05 mg/L であった。また、微生物活動は多価元素の酸化還元反応に影響が大きいと考えられるため、JE-6 地下水及びそれを一時蓄えたタンクの水について微生物活動の分析を行った。なお、比較のためにフェーズ II の一次元核種移行実験の時に用いた JE-2 地下水及びその時のタンクの水についても分析を行った。

はじめに非吸着性のトレーサーである Br の移行実験を流速 5 ml/h で行った。次に放射性核種の移行実験に備えてブロックをフードの中へ移し、ステンレスタンクに入れて地下水に浸した。移動後にも Br イオンの移行実験を行い、移行特性に変化がないことを確認した。2つのブロック(A,B)のうち、ブロック A では JE-6 地下水をそのまま使って移行実験を行い、ブロック B では比較のために酸素バブリングした地下水を通水して移行実験を行った。

地下水にトリチウム水を添加してトリチウム濃度を 1000 Bq/ml とした溶液 100 ml を注入用のリザーバにセットし、二つのブロックに注入した。流出液をサンプリングし、液体シンチレーションカウンターで分析した。流速は 5 ml/h だけでなく、比較のために 50 ml/h, 100 ml/h, 200 ml/h でも実験を行った。次にトリチウム水と ⁸⁵Sr を添加した地下水 100 ml をブロックに注入し、Sr の移行実験を行った。注入液中の ⁸⁵Sr 濃度は 1110 Bq/ml、トリチウム濃度は 1000 Bq/ml である。続いて ²³⁷Np と ²³⁸Pu を地下水に加え、0.45 μ m のフィルターで濾過し、アクチニド元素の移行実験の注入液とした。調製操作はホワイトシエル研究所において雰囲気調整下で行った。注入液中のトリチウム濃度は 1000 Bq/ml、²³⁷Np 濃度は 100 Bq/ml (1.6x10⁻⁵ mol/l)、²³⁸Pu 濃度は 100 Bq/ml (6.6x10⁻¹⁰ mol/l) である。この溶液 100 ml を二つのブロックそれぞれに注入した。さらに、^{95m}TcO₄⁻ 濃度 4000 Bq/ml、トリチウム濃度 1000 Bq/ml に調製した地下水を注入し、Tc の移行実験を行った。

Table 3-2 に示すような、カルボキシ基を導入した4種類のポリスチレン微粒子(IDC, Portland, OR, USA)を使って、コロイドの移行実験を行った。コロイド粒子を蛍光染料でラベリングする

ことにより、低いコロイド濃度での移行実験が可能となった。地下水 200 ml に KBr を溶解して 1000 mg/l の濃度としたものに 10~50 ml のコロイド保存溶液を加え、さらに地下水を加えて 500 ml の注入液とした。コロイド粒子の濃度は蛍光スペクトル計 SFM 25 (Kontron Instruments) で測定した。蛍光を検出する際の干渉を考慮し、赤色(0.034 μm)と青色(1.0 μm)のコロイドを一緒に注入し、次にナイルレッド(0.19 μm)を注入し、最後に黄緑(0.56 μm)を注入した。この3つの移行実験それぞれに Br を一緒に注入している。

移行実験終了後に亀裂を開き、亀裂面について γ スキャン、 α スキャン及び紫外線照射下で蛍光コロイドの観察を行った。 γ 線については、約 100 cm \times 100 cm の亀裂表面を 3 cm 刻みで直径 1cm にコリメートした検出器で測定した。約 1000 点についての測定結果を Surfer for Windows で処理し、亀裂面内における核種分布図を作成した。 α 線については、直径 2.5 cm の検出器で 5 cm 刻みのスキャンを行い、約 400 点についての測定結果を γ スキャンの結果と同様に Surfer for Windows で処理した。

移行実験を補完する実験のひとつとして、Sr, Tc, Np, Pu のバッチ収着実験を通常の大気下と高純度窒素ガス雰囲気下で行った。亀裂の表面によく見られる鉱物(長石、黒雲母、方解石、石英)粉末、亀裂帯から採取したサンプルの小片及び未変質の花崗岩(grey granite)に対する収着を調べた。4種類の鉱物試料の特性は Table 3-3 に示すとおりである。亀裂帯から採取したサンプルは亀裂表面(1 cm²)以外をエポキシでコーティングした。花崗岩試料は 1 cm x 1 cm x 1 cm の大きさに切断したものを用いた。溶液としては、放射性核種を JE-6 地下水に加え、必要に応じて NaOH で pH を 8.0~8.5 に調整したものを用いた。各放射性元素の初期濃度は Table 3-4 に示したとおりである。試験容器 (20 ml 用ポリエチレン容器、ただし Pu については壁面への吸着の少ないポリカーボネート遠沈管) に溶液 20ml と固体を入れ、手で攪拌し収着させた。少量の溶液を 0.1、1、10 日後にサンプリングして放射能を測定し、収着の分配係数 Rd を得た。溶液を吸い出し、新しい JE-6 地下水に入れ替えて 10 日間の脱離試験を行った。

移行実験を補完するもう一つの実験として、Sr, I, Pu の花崗岩内拡散実験を行った。JZ-2 を横切る試験孔のコアから花崗岩試料を採取して実験に供した。水銀圧入法及び水飽和法で、花崗岩試料内でトレーサーの拡散経路になりうる微小間隙の構造を解析した。Fig.3-4 に示すような試験容器の片方のリザーバ(ソース側)にトレーサーを含む地下水を入れ、もう片方(測定側)にはトレーサーを含まない地下水を入れた。実験は高純度窒素雰囲気下で実施した。実験手法については Yamaguchi et al.⁽⁶⁾等に詳しい。トレーサーの拡散の度合いは、測定側リザーバにおけるトレーサー濃度の経時増加、ソース側におけるトレーサー濃度の経時減少、拡散を終了した後の花崗岩の分析から求めた。

3.4.2 放射性核種の移行挙動

Br の移行実験の結果を Fig. 3.5 に示した。Br 濃度のピークが 400 ml 程度のところに現れていることから、この亀裂の容積は 400 ml (亀裂容積のすべてが Br の移行に寄与しているわけではないことを考えると 400 ml 以上)と考えられる。これは亀裂幅の平均値として 400 μm に相当するが、水理特性試験から推定された値(最も開いている部分で 230 μm)よりかなり大きい。注入口から出口まで亀裂幅は一定ではなく、水理特性試験では亀裂幅の狭い部分で流量が決まっ

てしまうために、亀裂幅を平均値より小さく評価する傾向があると考えられる。切り出した亀裂の状態を乱すことなく、その開口幅分布を水理特性試験から精度よく推定するのは困難であり、陽電子発光断層撮影などの特殊な手法を用いることが必要である。

トリチウムの移行実験の結果を Fig. 3-6 に示した。ブロック A からの流出曲線は流出量 350 ml において極大値 0.3 をもっている。これはすべての流速に共通である。ただし、流出量 500~600 ml にもう一つのピークを持っていることから、2つ以上の経路があることがうかがわれる。亀裂表面の α スキンの結果(Fig. 3-7)にはその2つの移行経路がはっきりと表れている。ブロック B からの流出曲線は流出量 400 ml において極大値 0.2 をとり、流出量 600 ml において極大値 0.3 をとっている。これも複数の経路の存在を示している。亀裂表面のスキン結果(Fig. 3-8)にはその2つの移行経路が表れている。複数の経路を通して地下水が流れることにより、放射性核種の濃度は単一経路の場合に比べて分散され、流出曲線のピーク濃度は下がることになる。これは巨視的な機械的分散効果として移行モデルで考慮されるバリア効果のひとつである。

Sr の移行実験の結果(ブロック A)を Fig. 3-9 に示した。トリチウムのピークは 325 ml に、 ^{85}Sr のピークは 585 ml に現れており、これから計算される遅延係数は 1.8 である。ブロック B についてはトリチウムのピークが 225 ml に、 ^{85}Sr のピークが 430 ml に現れた。これから計算される遅延係数は 1.9 であった。移行実験終了時には Sr 及び一緒に注入したトリチウムについて、注入した量の 72~75 %が回収された。これは Sr の収着が可逆的であることを示している。しかし後述するバッチ収着実験では、Sr の収着量が少なかったために、脱離実験から正確な分配係数を得ることができず、収着の可逆性を議論することはできなかった。

アクチニド元素の移行実験では、どちらのブロックについても、Pu は全く流出せず、Np は一部のみがほとんど遅延されずに流出した。亀裂面の α スキンによる ^{237}Np の分布図(Fig. 3-10)と比較すると、 α スキン (Fig. 3-7) において注入口付近の濃度の高い部分が Pu によるものであることがわかる。 ^{237}Np のブロック A からの流出曲線を Fig. 3-9 に示した。実験終了時における Np の回収率は約 10%にとどまっておき、収着により地下水から除去されたと考えられる。一方、流出した Np の成分はほとんど遅延を受けていなかった。Np は亀裂内を地下水とほぼ同じ速さで移動しながら、非可逆的な吸着で除去されていったと考えられる。実験が行われた酸化還元電位(-220~160 mV vs. NHE)においては Np は+5 価よりも+4 価として安定であるので、分配係数の大きい+4 価に還元された成分が収着されたという考え方が有力である。この実験条件下で還元反応の速度は、すべての Np を滞留時間(約 80 時間)内に還元するほど速くはないようである。

Tc の移行実験の結果を Fig. 3-11 に示した。Tc の流出曲線は、テーリングがトリチウム水のそれよりも小さいことが特徴である。実験終了時までにはブロック A では注入量の 35 %が回収された。ブロック B では 60 %であった。Tc も Np と同様に、測定された地下水の酸化還元条件(-220~160 mV vs. NHE)においては+7 価よりも+4 価として安定であるので、分配係数の大きい+4 価に還元されて大きく遅延されることが期待されたが、この実験条件下で還元反応の速度は、すべての Tc を滞留時間内に還元するほど速くはないようである。ブロック A よりも酸素バブリングで酸化した地下水を用いたブロック B で回収率が高いのは、還元作用が弱かったためかもしれない。Fig. 3-12 にはブロック A の亀裂表面における $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の分布を示した。 ^{237}Np の分布(Fig. 3-10)

と ^{95m}Tc の分布は類似しており、ここが放射性核種の移行経路であったことがわかる。URL の 240メートルレベルにおいて原研が過去に行った原位置条件における一次元核種移行実験では、Tcの移行に対して強い遅延が見られ、低い原子価に還元されるのに伴って収着による大きな遅延を受けるものと考えられた。しかし今回の実験ではそれが再現されなかった。地下水中の微生物の分析の結果(Table 3-5)、フェーズⅡの実験で用いた地下水には硫酸還元菌(SRB)の活動が検出されたのに対し、今回の地下水にはそれが見られないことがわかった。これが、今回の実験で Tc についてそれほど強い収着が見られなかった原因の一つかもしれない。

3.4.3 コロイドの移行挙動

Fig.3-13 はブロック A の亀裂面を紫外線照射下で撮影したものである。上面(Upper fracture surface)の右上部(下面の左上部に対応)にコロイドの沈着した箇所があるのがわかる。またこの図は、コロイドが亀裂の上面よりも主に下面に沈着したことを示している。上面の右上部(下面の左上部に対応)の一部にコロイドが見られない範囲があるのは、この範囲では亀裂が隙間なく閉じていたことを示している。コロイドの流出曲線を Fig.3-14 に示した。1.0 μm のコロイドの流出曲線は非常になだらかなカーブを描いており、低い濃度でしか流出しないようである。0.56 μm のコロイドの流出曲線は 1.0 μm のものよりはシャープだが、依然なだらかなカーブを描いている。0.19 μm のコロイドは 0.56 μm のものと比べて、よりシャープで流出濃度の高い流出曲線を描いている。0.034 μm のコロイドの流出曲線は最もシャープなピークを描いた。コロイドが初めて検出されるまでの時間及びコロイド濃度が極大をとるまでの時間という観点で比較すると、コロイドの移動の速さは 1.0 μm < 0.56 μm < 0.034 μm < 0.19 μm の順になる。また、1000 ml 流出した時点での回収率という観点で比較すると、コロイドの移動の速さは 1.0 μm < 0.034 μm < 0.56 μm < 0.19 μm の順になる。これらの結果から、この4つの粒径のうち最も動きやすいコロイドサイズは 0.19 μm であると言える。フィルトレーションの理論によれば、粒子の濃度を与えたときに、最も動きやすい粒径が二つの要因で決まるとされている。それらは凝集と拡散による流路からのロスである。つまり大きすぎる粒子は凝集するので動きにくく、小さすぎる粒子は狭いすきまにも入り得るためによどみ領域への拡散によって流路から失われやすい。コロイドが移行する時そのサイズは、沈着のしやすさと水みちから拡散で失われる度合いに関係すると考えられる。

3.4.4 放射性核種の収着性と拡散現象

Sr のバッチ収着実験の結果を Table 3-6 と Table 3-7 に示した。収着反応は時間とともに進んでいくようである。ただし石英と亀裂の小片には収着が見られなかった。はじめの 11 日間の収着実験において収着量が少ないため、脱着実験からは誤差の大きい結果しか得られなかった。Tc についての結果を Table 3-8 と Table 3-9 に示した。大気条件下ではほとんど収着しなかった。窒素雰囲気下では収着が見られた場合があり、脱離試験からは大きめの分配係数が得られた。Table 3-10 と Table 3-11 に Np についての結果を示した。黒雲母と方解石には収着が見られたが、その他の試料には収着がほとんど見られなかった。Table 3-12 及び Table 3-13 に Pu についての結果を示した。大気条件下でも窒素雰囲気下でも高い分配係数が得られた。収着反応は時間とともに

進んでおり、脱離実験ではさらに大きな分配係数を示した。これは、移行実験で Pu が注入口付近に留まったことと調和的である。Pu 以外の元素についてはバッチ収着実験から得られる分配係数と移行実験の結果とに、明確な相関を見いだすことはできなかった。

非吸着性のトレーサーについても流出曲線がテーリングする(Fig. 3-5, 3-6)理由の1つとして、亀裂から岩石マトリクス内への拡散の効果が考えられる。花崗岩の微小間隙構造の解析及び実験室における拡散実験の結果もマトリクス拡散の存在を示していた。即ち、花崗岩内の微小間隙構造を解析した結果(Fig. 3-15)⁽⁷⁾に示すような、トレーサーの拡散経路になりうる間隙(間隙率 = 0.004 ± 0.001 、最頻直径 340 nm)が存在することがわかった⁽⁸⁾。I イオンの拡散実験においては実験期間を通じてソース側の濃度に大きな変化はなく、測定側においては Fig. 3-16 に示すように I イオン濃度が上昇した。この結果から実効拡散係数 $D_e = (4.4 \pm 0.7) \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ が得られた。Sr については Fig. 3-17 に示すように、ソース側における濃度の減少と、測定側における濃度の上昇が見られた。このデータより実効拡散係数 $D_e = (2.1 \pm 0.2) \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ 及び見かけの拡散係数 $D_a = (1.3 \pm 0.6) \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ が得られた。Sr について観察された大きな拡散係数は、流出曲線の大きなテーリング(Fig. 3-9)と調和的である。しかし、移行実験で用いた流速において、岩石マトリクス内への拡散が移行挙動にどれほどの影響を与えるかについては、定量的な解析が必要である。Pu についてはソース側の濃度が Table 3-14 に示すように減少し、測定側では試験期間中には検出されなかった。移行実験で Pu が注入口付近に留まったことと調和的である。なお、Pu の拡散実験に使った花崗岩を分析したところ、Pu はソース側の溶液との界面から $0.23 \mu\text{m}$ よりは深く浸入していたが、 $1000 \mu\text{m}$ には達していなかった。この結果から Pu の見かけの拡散係数は $10^{-21} \text{ m}^2/\text{s} < D_a < 10^{-15} \text{ m}^2/\text{s}$ と見積もられた。実効拡散係数と分配係数^(9,10)の文献値から見積もられる D_e は $7 \times 10^{-17} \text{ m}^2/\text{s}$ である。

3.5 結論

亀裂性媒体中で放射性核種は、亀裂開口部を地下水の流れに沿って移流し、移流に伴う機械的分散と分子拡散により希釈されるとともに、亀裂表面から岩石マトリクス内へ拡散し、マトリクス内で鉱物表面に吸着されると考えられている。この考え方に基づいて移行モデルが構築され、移行評価が行われる。本研究の結果から、亀裂性媒体中における核種移行の考え方を検証した。

亀裂表面の α スキャン及び γ スキャン並びに紫外線照射下でのコロイドの観察の結果、亀裂内で核種は限られた部分を移行しているだけであり、移行実験の期間ずっと閉じたままであった部分があることがわかった。即ち亀裂面全てではなく開口部だけが核種移行に直接寄与している。亀裂開口幅は、亀裂開口部をモデル化する際のパラメータの一つであるが、これを水理特性試験(透水試験)から推定するのには誤差が大きいことがわかった。

亀裂表面の α スキャン及び γ スキャンで、亀裂内に二つの移行経路が見られたこと及びトリチウムの流出曲線に二つのピークが見られたことから、亀裂内の物質移行に対して巨視的な機械的分散が効果的であることが確認された。花崗岩の微小間隙構造の解析結果や、拡散実験の結果から、マトリクス拡散の存在が示され、マトリクス拡散を亀裂内における核種移行の評価において

遅延機構として期待してよいと考えられた。

Pu がブロックから全く流出せず注入口付近にとどまっていたこと、Np の流出量がわずかであったこと、Sr の流出曲線にトリチウムに比べて明確な遅延が見られたこと等、亀裂内の核種移行に対し吸着が遅延効果を及ぼす証拠が得られた。一方、Pu についてはほとんど移行が見えないほどの強い吸着、Np については非可逆的な吸着、Sr については可逆的な吸着、といったように元素によって吸着のあり方は様々であった。また、流出した Np の成分はごくわずかの遅延しか受けていなかったことは、分配係数の小さい化学種がそのまま亀裂内を移行してしまうこともあり得ることを示唆している。バッチ吸着実験の結果は必ずしも移行挙動を説明するものではなかった。評価に用いる分配係数を選定する際には注意が必要である。

コロイドは、ブロックからの流出曲線においても、亀裂面における分布においても、無機イオンとはかなり異なる移行挙動を示した。コロイドはそのサイズによっては岩石マトリクス内の微小間隙(最頻値 $0.34 \mu\text{m}$)内へは拡散できないのは明らかである。コロイドの移行実験において主にコロイドの移行に影響していたのは、沈着とよどみ領域への拡散であったと推定される。コロイドの移行の評価に、岩石マトリクス内への拡散とマトリクス内での鉱物への吸着を考慮した通常モデルを適用する場合には注意が必要である。ただし、注入したコロイドの回収率は、非吸着性のトレーサーに比べて何桁も低かった。コロイド形態での核種移行は、移行挙動全体に対する寄与という意味ではそれほど大きくないかもしれない。

参考文献

- (1) Kumata, M., Vandergraaf, T. T.: 1992. "Abstract of 29th International Geological Congress", Kyoto, Japan, 919 (1992).
- (2) Kumata, M., Vandergraaf, T. T.: 1993. Radioactive Waste Management and the Nuclear Fuel Cycle, **17**, 107 (1993).
- (3) Vandergraaf, T. T., Grondin, D. M., Drew, D. J.: Scientific Basis for Nuclear Waste Management XI, **112**, 159 (1988).
- (4) Vandergraaf, T. T., Drew, D. J.: "Proceedings in the Third International Symposium on Advanced Nuclear Energy Research – Global Environment and Nuclear Energy", 385 (1991).
- (5) Vandergraaf, T. T., Drew, D. J., Masuda, S.: J. Contam. Hydrol. **21**, 153 (1996).
- (6) Yamaguchi, T., Sakamoto, Y., Nakayama, S., Vandergraaf, T. T.: J. Contam. Hydrol., **26**, 109 (1997).
- (7) Agterberg, F. P., Katsube, T. J., Lew, S. N.: "Current Research, Part A", Geological Survey of Canada, Paper 84-1A, 29 (1984).
- (8) Yamaguchi, T., Isobe, H., Nakayama, S.: Radioactive Waste Res., **3** (2), 99 (1997).
- (9) Yamaguchi, T. and Nakayama, S.: J. Contam. Hydrol., **35**, 55 (1998).
- (10) Vandergraaf, T. T., Ticknor, K. V.: AECL-10546, COG-92-59 (1994).

Table 3-1 Chemical composition of groundwater from borehole JE-6 sampled 96/05/29.

Ion	Concentration ($\pm 2s$)	Method
Na	102 \pm 10	FAA
K	1.13 \pm 0.01	FAA
Ca	15.4 \pm 0.5	ICP-ES
Mg	6.5 \pm 0.2	ICP-ES
Si	0.8 \pm 0.1	ICP-ES
Sr	0.178 \pm 0.005	ICP-ES
B	0.578 \pm 0.17	ICP-ES
Cl	60.7 \pm 3.1	IC
Br	0.3 \pm 0.1	IC
F	5.42 \pm 0.27	IC
SO ₄	49.4 \pm 2.5	IC
Alkalinity*	188 \pm 10	titrimetry

*as mg/L HCO₃

Table 3-2 Properties of colloid tracers used in Migration Experiments.

Parameter	Red	Nile Red	Yellow Green	Blue
Batch Number	F-17121-6971	2-FLN-200.2	2-FLY-500.1	2-FLB-1K.2
Mean Diameter (μm)	0.034 \pm 15.4 %	0.19 \pm 0.005	0.56 \pm 0.011	1.0 \pm 0.025
Percent Solids (g/100 mL)	2.0 \pm 0.1	2.0 \pm 0.1	2.0 \pm 0.1	2.0 \pm 0.1
Particles Per mL	9.3 $\times 10^{14}$	5.3 $\times 10^{12}$	2.1 $\times 10^{11}$	3.6 $\times 10^{10}$
Carboxyl Content $\mu\text{Eq/g}$	451	688.8	195.3	127.8
Specific Surface Area (cm^2/g)	-	3.0 $\times 10^5$	1.0 $\times 10^5$	5.7 $\times 10^4$
Density of Polystyrene at 20°C (g/cm^3)	1.055	1.055	1.055	1.055
Excitation/Emission Wavelength (nm)	580/605	520/580	490/515	360/415
Dye Content (mg/g)		3.0	3.0	20.0

Table 3-3 Minerals used in sorption studies.

Mineral	Source	Particle Size (μm)	Specific Surface Area (m^2/g)
Albite	Bancroft, Ontario	106 - 180	0.31 ± 0.01
Biotite	Bancroft, Ontario	180 - 850	n. a.
Calcite	Fisher Scientific	<45	0.69 ± 0.13
Quartz	Hot Springs, Arkansas	106 - 180	0.01 ± 0.01

n. a. - not available

Table 3-4 Initial element concentrations in contact solutions used in batch sorption studies.

Element	Air	N_2
Sr	5.3×10^{-7}	5.3×10^{-7}
Tc	2.03×10^{-11}	2.03×10^{-11}
Np	3.72×10^{-5}	3.56×10^{-5}
Pu	1.06×10^{-9}	8.62×10^{-10}

Table 3-5 Results from microbiological analyses of groundwater associated with Quarried Block Migration Experiments.

	QBRMF		First JAERI Facility	
	Borehole JE-6	Exp. Tank TK-1	Borehole JE-1	Exp. Tank TK-1
BARTS ¹ analysis				
IRB ²	4.0×10^3 cfu/mL ⁹	$< 5 \times 10^0$ cfu/mL	4.0×10^3 cfu/mL	5.8×10^0 cfu/mL
SRB ³	anaerobic bacteria; no SRB found (< 2.5 cfu/mL)	anaerobic bacteria; no SRB found (< 2.5 cfu/mL)	2.5×10^2 cfu/mL	2.5×10^1 cfu/mL
SLYM ⁴	$< 7.9 \times 10^0$ cfu/mL	$< 2 \times 10^1$ cfu/mL	1.6×10^2 cfu/mL	not determined
DN ⁵	aggressive denitrifiers present	no denitrifiers found	aggressive denitrifiers present	not determined
FLOR ⁶	3.2×10^2 cfu/mL	not detected	1.0×10^2 cfu/mL	not determined
TAB ⁷	$< 3.2 \times 10^3$	$< 1 \times 10^0$	1.6×10^3	no aerobes found
Total Counts (acidine orange)	$(1.9 \pm 0.7) \times 10^4$ bacteria/mL	$(7.24 \pm 0.6) \times 10^3$ bacteria/mL	$(1.45 \pm 0.9) \times 10^4$ bacteria/mL	$(1.9 \pm 1.4) \times 10^4$ bacteria/mL
Aerobic plates	$(8.3 \pm 2.5) \times 10^0$ cfu/mL	$(2.3 \pm 0.5) \times 10^0$ cfu/mL	not determined	$(7.9 \pm 0.4) \times 10^1$ cfu/mL
API ⁸	<i>Pseudomonas paucimobilis</i> <i>Rhodococcus equi</i> one unidentified species	<i>Pseudomonas vesicularis</i> and one unidentified species	not determined	not determined

- 1: Biological Activity Reaction Tests
- 2: Iron-reducing bacteria
- 3: Sulfate-reducing bacteria
- 4: Slime-producing bacteria
- 5: Denitrifiers
- 6: Fluorescent pseudomonas
- 7: Total Aerobic Bacteria
- 8: Analytical Profile index
- 9: cfu/mL: colony-forming units/mL

Table 3-6 Sorption/desorption of Sr on mineral poeders and rock coupons (in air).

Solid	0.1 d Sorption R_d (mL/g)	1.0 d Sorption R_d (mL/g)	11 d Sorption R_d (mL/g)	10 d Desorption $R_{d\text{des}}$ (mL/g)
Albite	2.22 ± 0.29	5.25 ± 0.13	5.72 ± 1.29	0
Biotite	3.39 ± 0.74	6.22 ± 0.57	7.23 ± 0.01	0
Calcite	0.70 ± 0.57	0.50 ± 0.21	1.95 ± 0.93	0
Quartz	0.32 ± 0.32	0	0	0
	R_a (cm)	R_a (cm)	R_a (cm)	$R_{a\text{des}}$ (cm)
Slab 1 Coupons	0.54 ± 0.41	0	0	0
Slab 3 Coupons	0.15 ± 0.22	0	0	0
Grey Granite	0.05 ± 0.09	0.13 ± 0.02	0.23 ± 0.00	0

Table 3-7 Sorption/desorption of Sr on mineral powders and rock coupons (in N₂).

Solid	0.1 d Sorption R_d (mL/g)	1.0 d Sorption R_d (mL/g)	11 d Sorption R_d (mL/g)	10 d Desorption $R_{d\text{des}}$ (mL/g)
Albite	3.21 ± 1.01	5.72 ± 0.23	7.75 ± 1.52	117 ± 70
Biotite	3.76 ± 0.76	6.81 ± 0.51	13.33 ± 1.96	263 ± 36
Calcite	2.05 ± 0.74	0.86 ± 0.44	2.74 ± 0.01	0
Quartz	0.09 ± 0.21	0.18 ± 0.35	0.66 ± 0.80	0
	R_a (cm)	R_a (cm)	R_a (cm)	$R_{a\text{des}}$ (cm)
Slab 1 Coupons	0.14 ± 0.67	0.13 ± 0.24	0.89 ± 0.04	37.5 ± 8.5
Slab 3 Coupons	0	0.11 ± 0.23	1.49 ± 0.90	62.2 ± 58.1
Grey Granite	0.06 ± 0.07	0.17 ± 0.06	0.52 ± 0.19	2.98 ± 2.35

Table 3-8 Sorption/desorption of Tc on mineral powders and rock coupons (in air).

Solid	0.1 d Sorption	1.0 d Sorption	11 d Sorption	10 d Desorption
	R_d (mL/g)	R_d (mL/g)	R_d (mL/g)	$R_{d\text{des}}$ (mL/g)
Albite	0	0.26 ± 0.45	0	0
Biotite	0	0	1.62 ± 0.51	0
Calcite	0	0.36 ± 0.42	0	0
Quartz	0.33 ± 0.33	0	0	0
	R_a (cm)	R_a (cm)	R_a (cm)	$R_{a\text{des}}$ (cm)
Slab 1 Coupons	0.32 ± 0.51	0.09 ± 0.42	0	n. d.
Slab 3 Coupons	0.09 ± 0.55	0	0	n. d.
Grey Granite	0.10 ± 0.02	0.00 ± 0.11	0.03 ± 0.01	n. d.

n.d. - not determined

Table 3-9 Sorption/desorption of Tc on mineral powders and rock coupons (in N₂).

Solid	0.1 d Sorption	1.0 d Sorption	11 d Sorption	10 d Desorption
	R_d (mL/g)	R_d (mL/g)	R_d (mL/g)	$R_{d\text{des}}$ (mL/g)
Albite	0.02 ± 1.58	2.75 ± 0.57	4.05 ± 0.42	1000 ± 235
Biotite	0	0	7.08 ± 0.85	916 ± 135
Calcite	0	0	0	0
Quartz	0	1.64 ± 0.50	1.83 ± 0.18	305 ± 317
	R_a (cm)	R_a (cm)	R_a (cm)	$R_{a\text{des}}$ (cm)
Slab 1 Coupons	0	0	0	n. d.
Slab 3 Coupons	0	0	0	n. d.
Grey Granite	0	0	0.23 ± 0.14	n. d.

n.d. - not determined

Table 3-10 Sorption/desorption of Np on mineral powders and rock coupons (in air).

Solid	0.1 d Sorption R_d (mL/g)	1.0 d Sorption R_d (mL/g)	10 d Sorption R_d (mL/g)	11 d Desorption $R_{d\text{des}}$ (mL/g)
Albite	n. d.	n. d.	1.24 ± 1.15	n. d.
Biotite	n. d.	n. d.	3.10 ± 1.22	n. d.
Calcite	n. d.	n. d.	5.35 ± 1.76	n. d.
Quartz	n. d.	n. d.	0.86 ± 0.00	n. d.
	R_a (cm)	R_a (cm)	R_a (cm)	$R_{a\text{des}}$ (cm)
Slab 1 Coupons	n. d.	n. d.	1.24 ± 1.15	n. d.
Slab 3 Coupons	n. d.	n. d.	0.57 ± 1.15	n. d.
Grey Granite	n. d.	n. d.	0.21 ± 0.25	n. d.

n. d. - not determined

Table 3-11 Sorption/desorption of Np on mineral powders and rock coupons (in N₂).

Solid	0.1 d Sorption R_d (mL/g)	1.0 d Sorption R_d (mL/g)	10 d Sorption R_d (mL/g)	11 d Desorption $R_{d\text{des}}$ (mL/g)
Albite	n. d.	n. d.	0	n. d.
Biotite	n. d.	n. d.	3.14 ± 0.72	n. d.
Calcite	n. d.	n. d.	7.76 ± 2.19	n. d.
Quartz	n. d.	n. d.	0.86 ± 0.58	n. d.
	R_a (cm)	R_a (cm)	R_a (cm)	$R_{a\text{des}}$ (cm)
Slab 1 Coupons	n. d.	n. d.	1.24 ± 1.06	n. d.
Slab 3 Coupons	n. d.	n. d.	0.53 ± 0.58	n. d.
Grey Granite	n. d.	n. d.	0.14 ± 0.10	n. d.

n. d. - not determined

Table 3-12 Sorption/desorption of Pu on mineral powders and rock coupons (in air).

Solid	0.1 d Sorption R_d (mL/g)	1.0 d Sorption R_d (mL/g)	10 d Sorption R_d (mL/g)	10 d Desorption $R_{d\text{des}}$ (mL/g)
Albite	5.98 ± 1.18	14.4 ± 1.2	58.0 ± 1.6	5520 ± 330
Biotite	25.4 ± 2.9	51.8 ± 7.5	298 ± 31	19500 ± 1770
Calcite	237 ± 40	618 ± 41	1230 ± 90	40100 ± 3180
Quartz	3.44 ± 1.02	9.93 ± 0.48	34.5 ± 6.3	3920 ± 470
	R_a (cm)	R_a (cm)	R_a (cm)	$R_{a\text{des}}$ (cm)
Slab 1 Coupons	0.39 ± 0.79	4.04 ± 1.06	22.1 ± 5.2	230 ± 36
Slab 3 Coupons	0.87 ± 0.77	3.48 ± 1.01	21.2 ± 7.3	174 ± 38
Grey Granite	0.41 ± 0.00	1.29 ± 0.33	4.25 ± 1.10	48.7 ± 3.0

Table 3-13 Sorption/desorption of Pu on mineral powders and rock coupons (in N₂).

Solid	0.1 d Sorption R_d (mL/g)	1.0 d Sorption R_d (mL/g)	10 d Sorption R_d (mL/g)	10 d Desorption $R_{d\text{des}}$ (mL/g)
Albite	5.21 ± 1.36	19.1 ± 2.5	78.6 ± 14.0	6340 ± 1410
Biotite	21.7 ± 1.4	45.5 ± 1.0	151 ± 22	19100 ± 3200
Calcite	146 ± 6	616 ± 64	4070 ± 410	380000
Quartz	3.64 ± 0.0	17.8 ± 1.4	71.3 ± 12.8	6550 ± 160
	R_a (cm)	R_a (cm)	R_a (cm)	$R_{a\text{des}}$ (cm)
Slab 1 Coupons	0.47 ± 0.98	4.98 ± 1.31	53.2 ± 46.3	1050 ± 130
Slab 3 Coupons	1.03 ± 0.98	5.94 ± 0.37	148 ± 77	3700 ± 2200
Grey Granite	0.15 ± 0.30	1.35 ± 0.52	24.0 ± 31.3	$857 \pm 1400^*$

* - Based on 2 measurements

Table 3-14 Concentration of ²³⁸Pu obtained in Pu sorption experiments.

Time day	F3			F6			F9			HT (blank test)		
	Bq/mL	mol/L	2σ(%)	Bq/mL	mol/L	2σ(%)	Bq/mL	mol/L	2σ(%)	Bq/mL	mol/L	2σ(%)
0	58.60	3.9E-010	5	69.50	4.6E-010	5	69.50	4.6E-010	5	58.60	3.9E-010	5
0.25	47.70	3.2E-010	5	57.00	3.8E-010	5	61.00	4.0E-010	5	57.60	3.8E-010	5
1	11.60	7.7E-011	5	49.65	3.3E-010	5	51.50	3.4E-010	5	49.10	3.3E-010	5
5	2.82	1.9E-011	12							30.50	2.0E-010	5
11	0.89	5.9E-012	36							4.80	3.2E-011	8
13				5.65	3.7E-011	5	6.33	4.2E-011	5			
15	0.68	4.5E-012	46							3.22	2.1E-011	11
20	0.48	3.2E-012	65	2.30	1.5E-011	5	3.76	2.5E-011	5	2.29	1.5E-011	15
28	0.59	3.9E-012	12							1.57	1.0E-011	21
30				1.38	9.1E-012	6	2.09	1.4E-011	7			
34				1.28	8.5E-012	6	1.78	1.2E-011	6			
40	0.49	3.3E-012	14	1.15	7.6E-012	7	1.46	9.7E-012	5	1.42	9.4E-012	22
47				0.99	6.6E-012	8	1.25	8.3E-012	5			
50	0.50	3.3E-012	13							1.33	8.8E-012	24
56	0.48	3.1E-012	14							1.26	8.3E-012	25
68	0.37	2.4E-012	18	0.80	5.3E-012	9	0.83	5.5E-012	9	0.79	5.2E-012	40
78	0.36	2.4E-012	19							0.53	3.5E-012	60
90	0.36	2.4E-012	19							0.63	4.2E-012	51
102	0.32	2.1E-012	21							0.71	4.7E-012	10
123	0.21	1.4E-012	32							0.70	4.6E-012	11
153				0.56	3.7E-012	5	0.55	3.6E-012	5			
173				0.51	3.9E-012	5	0.53	3.5E-012	5			
190				0.38	2.5E-012	5	0.43	2.9E-012	5			
208	0.17	1.2E-012	5	0.36	2.4E-012	5	0.47	3.1E-012	5	0.39	2.6E-012	5
209												
228	0.15	1.0E-012	5							0.32	2.1E-012	5
245	0.59	3.9E-012	5	0.30	2.0E-012	5	0.27	1.8E-012	5	0.34	2.3E-012	5
264	0.29	1.9E-012	5							0.31	2.1E-012	5
300	0.19	1.3E-012	5							0.80	5.3E-012	5
945				2.02	1.3E-011	5	0.56	3.7E-012	5			
1000	5.72	3.8E-011	5							0.86	5.7E-012	5

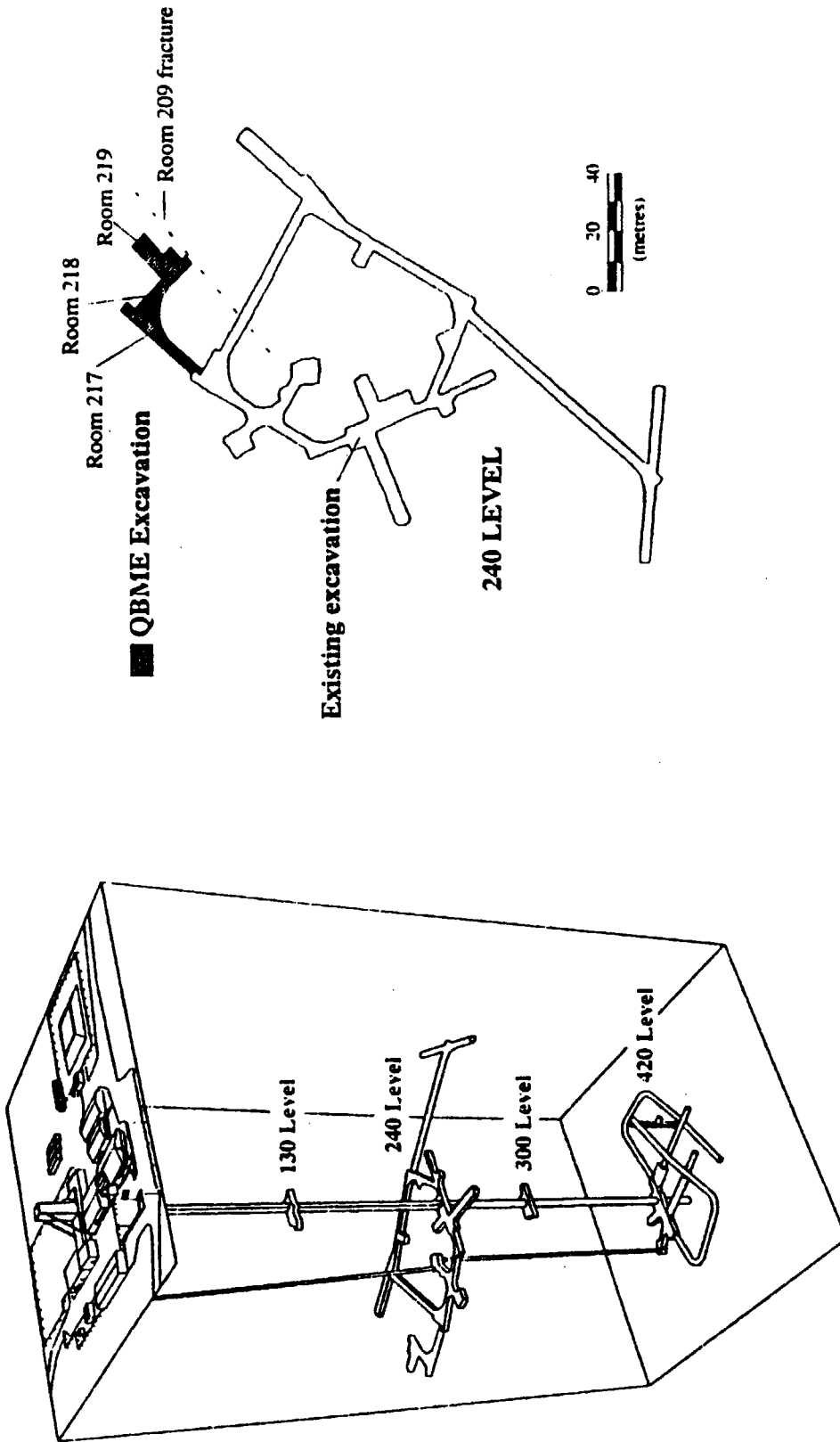


Fig.3-1 Isometric view of the Underground Research Laboratory and plan view of the 240m level showing locations of the QBME excavation.

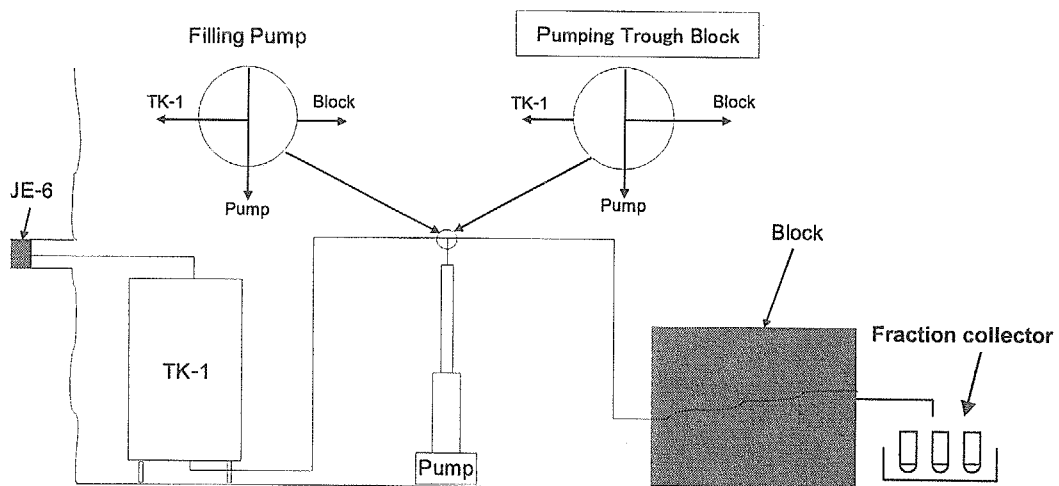
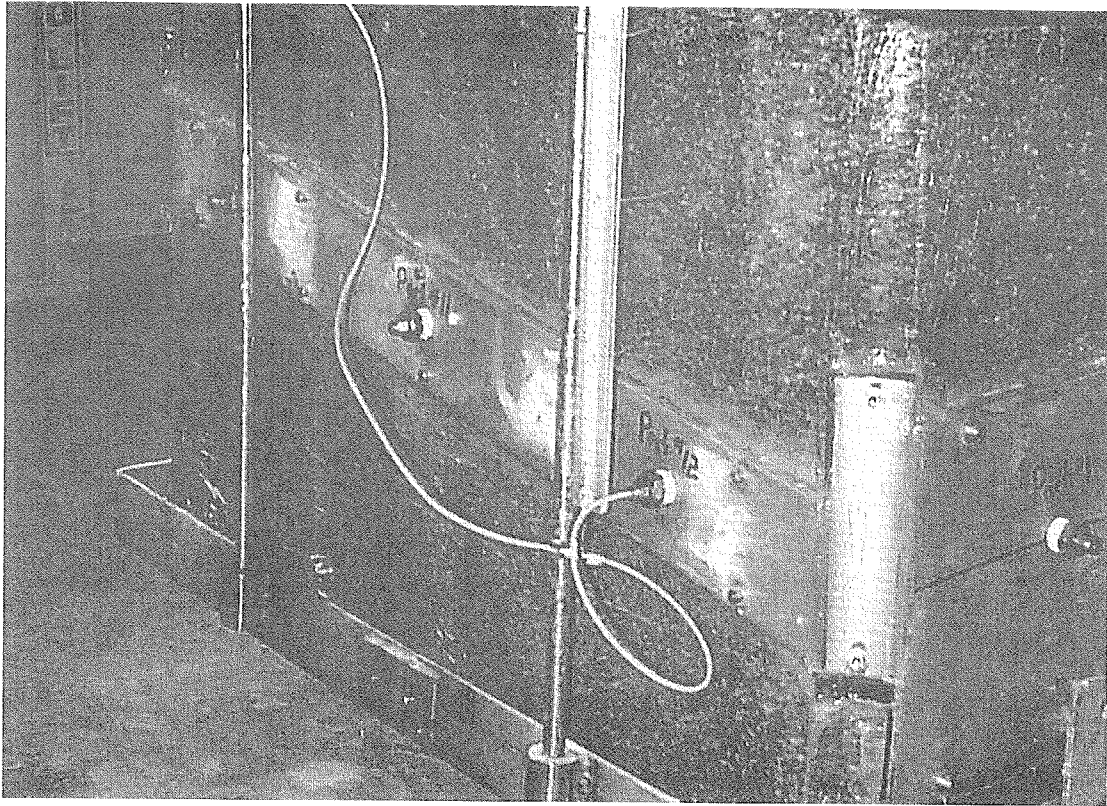


Fig.3-2 Steel plates anchored to sides of quarried blocks and schematic of the experimental system pumping groundwater through quarried blocks.

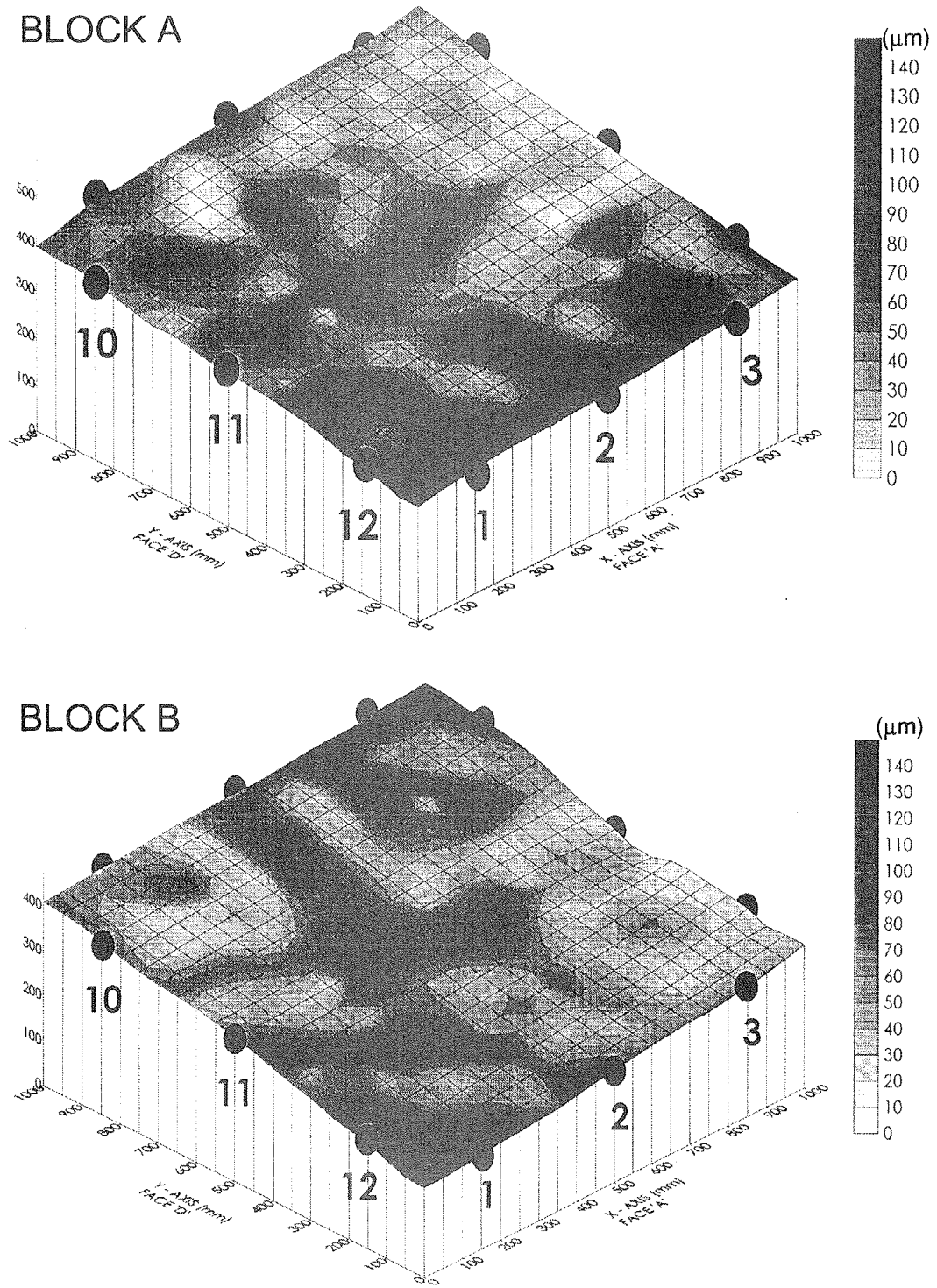


Fig.3-3 Calculated fracture aperture distributions.

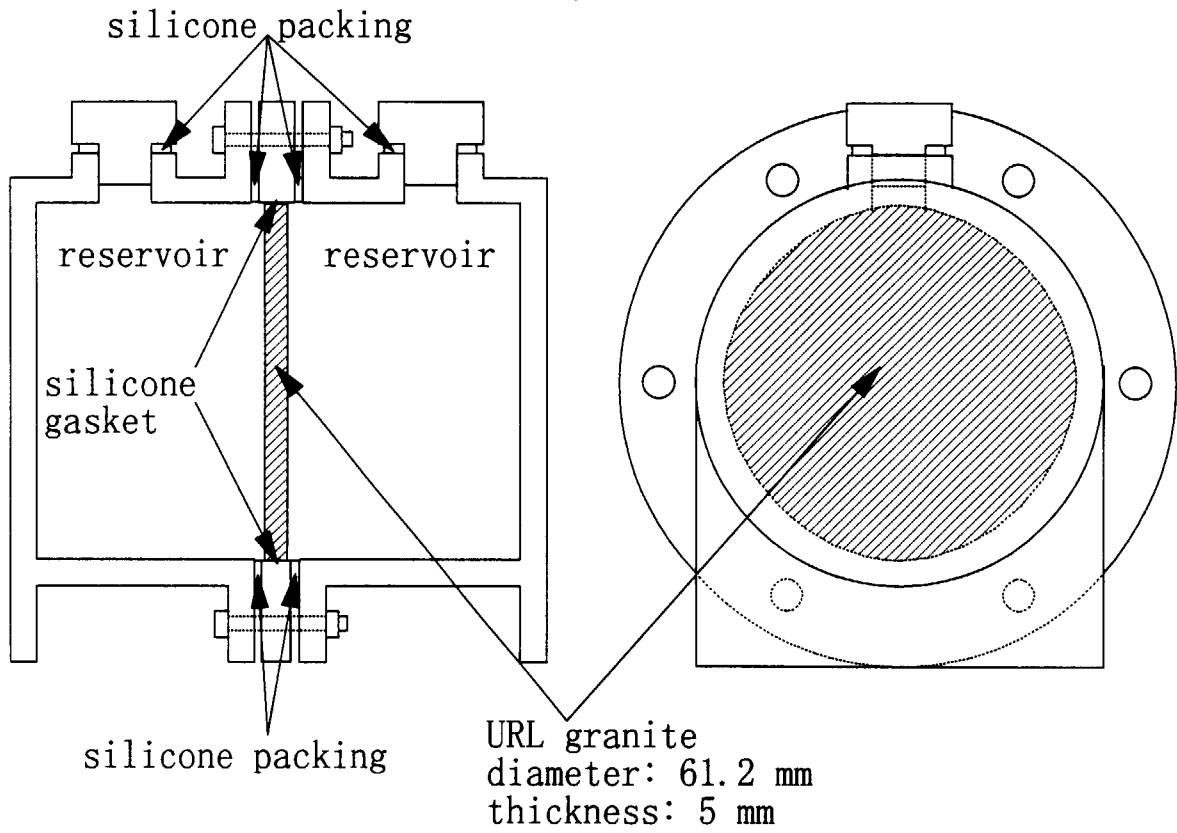


Fig.3-4 Diffusion cells.

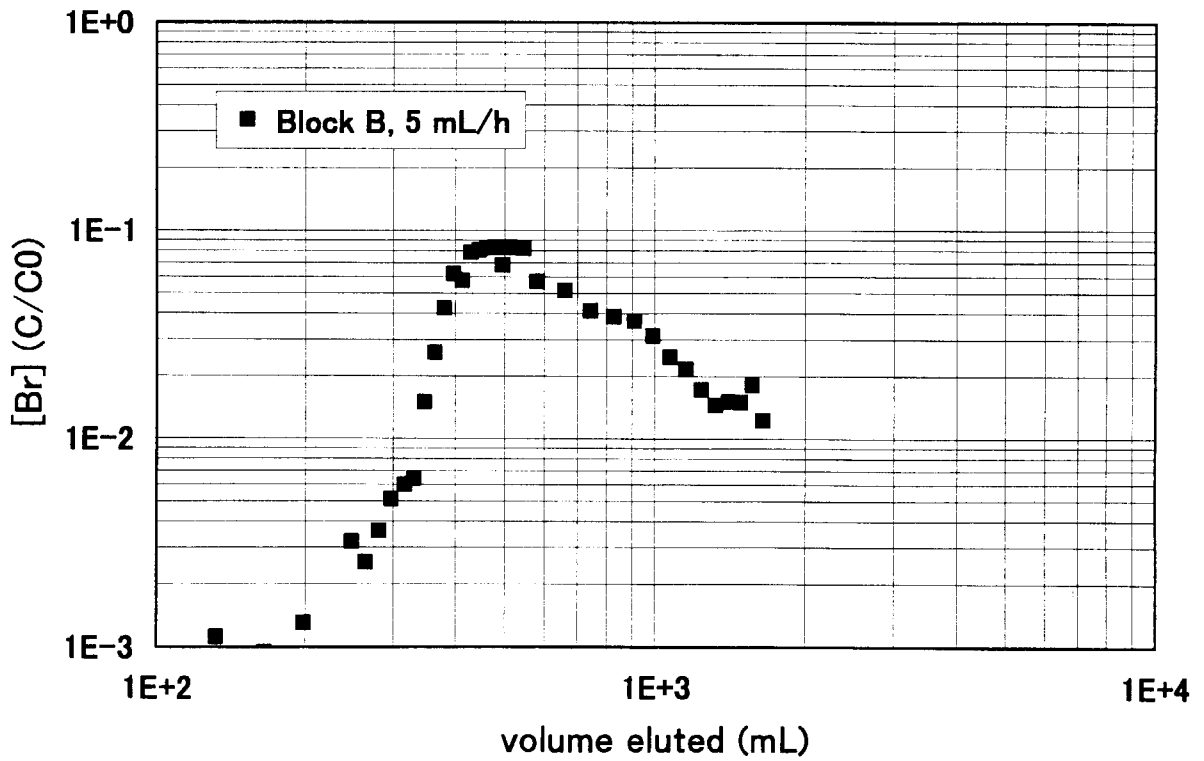
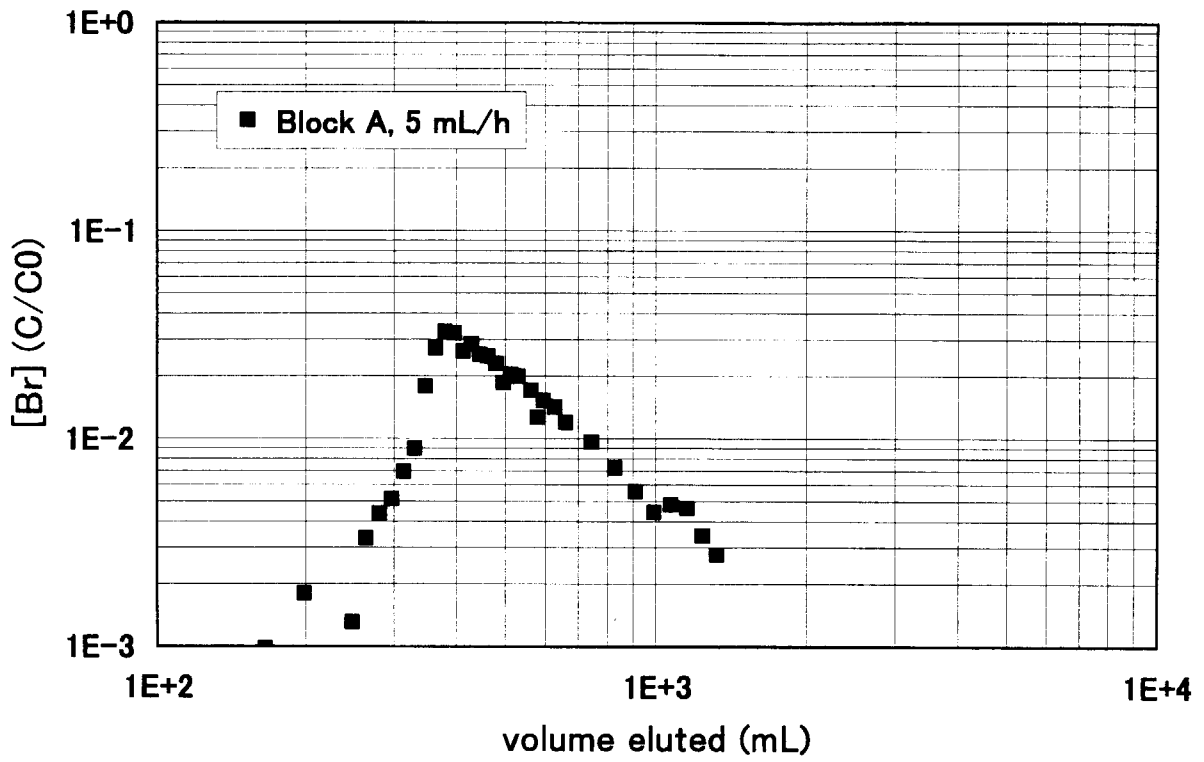


Fig.3-5 Elution profiles for Br.

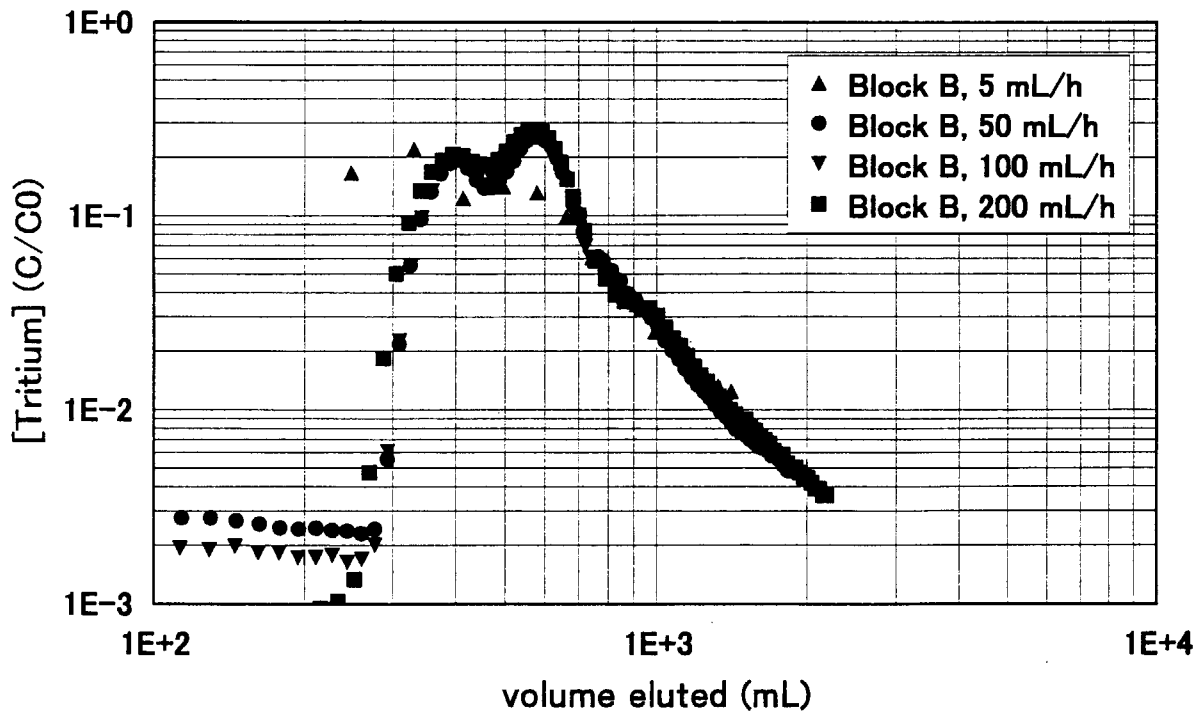
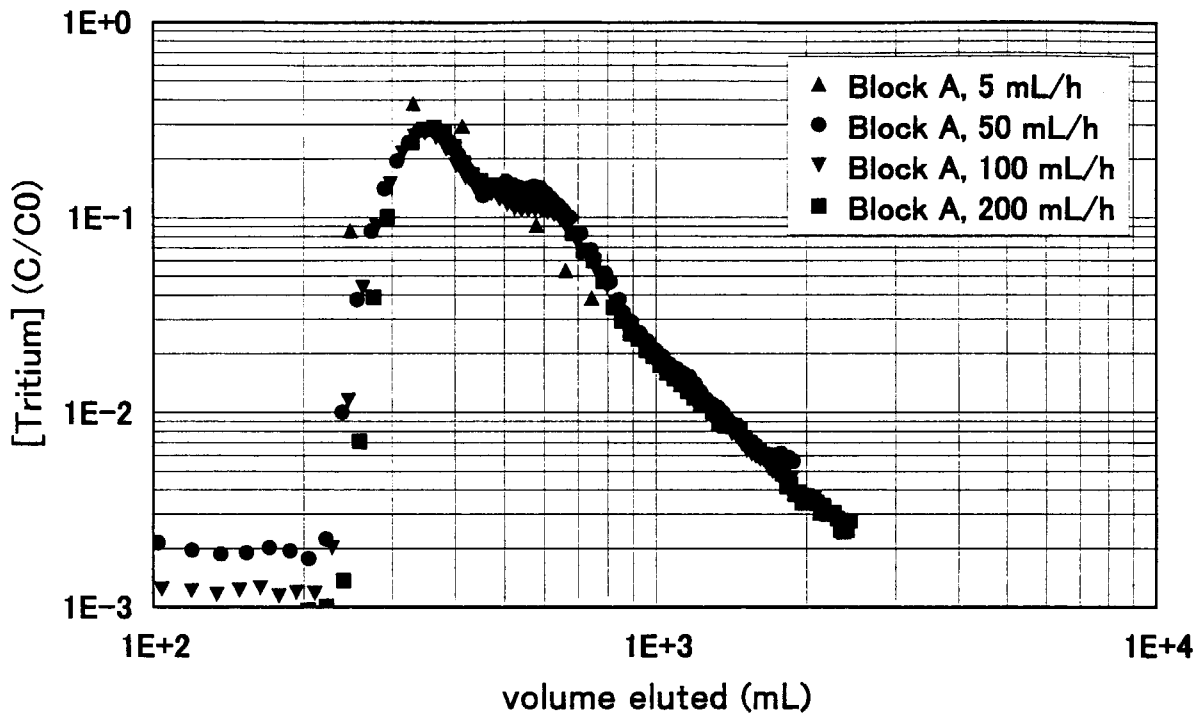


Fig.3-6 Elution profiles for tritium.

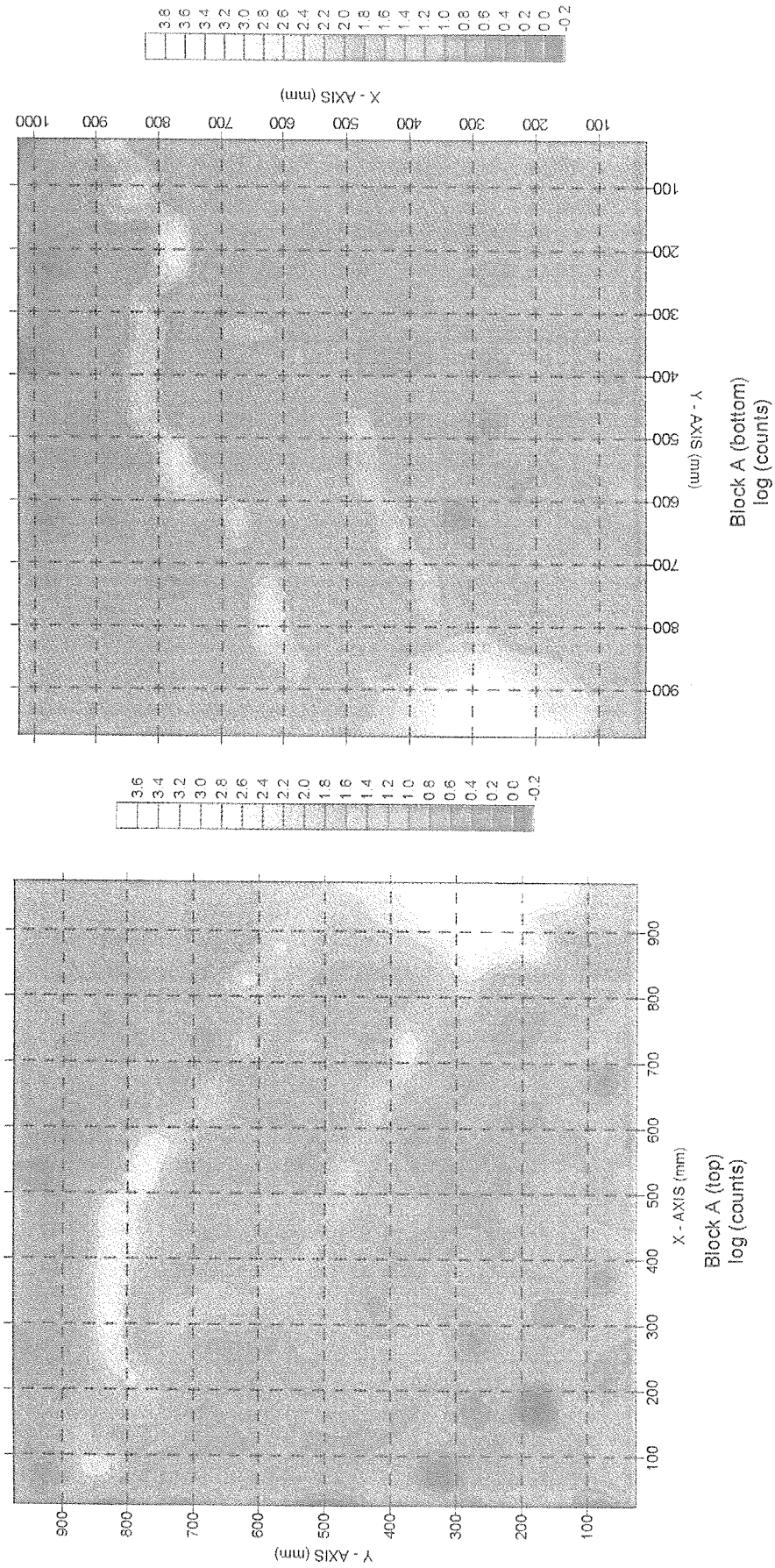


Fig.3-7 Spatial distribution of alpha-emitting radionuclides on fracture surface of Block A. The unit is arbitrary.

This is a blank page.

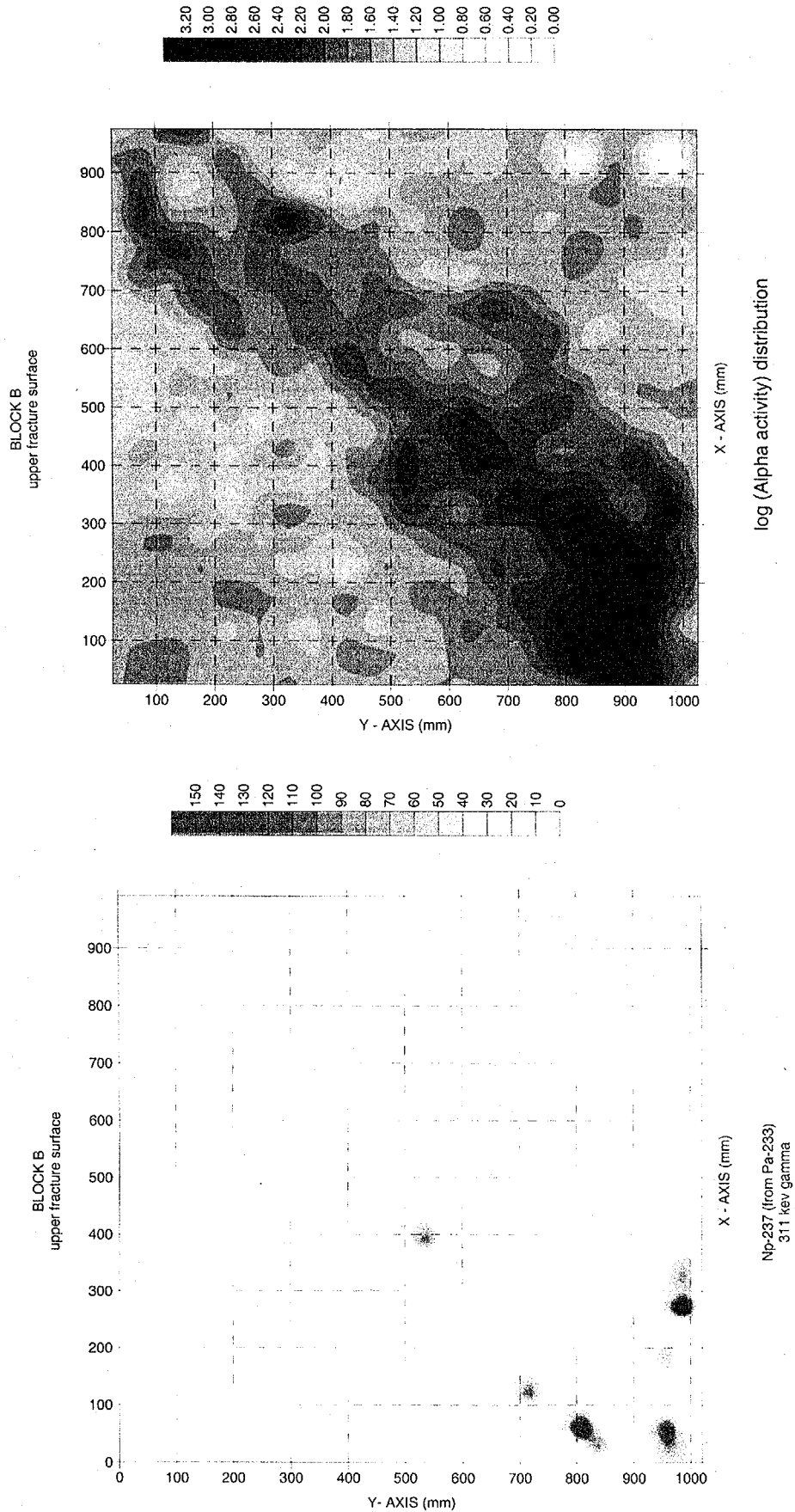
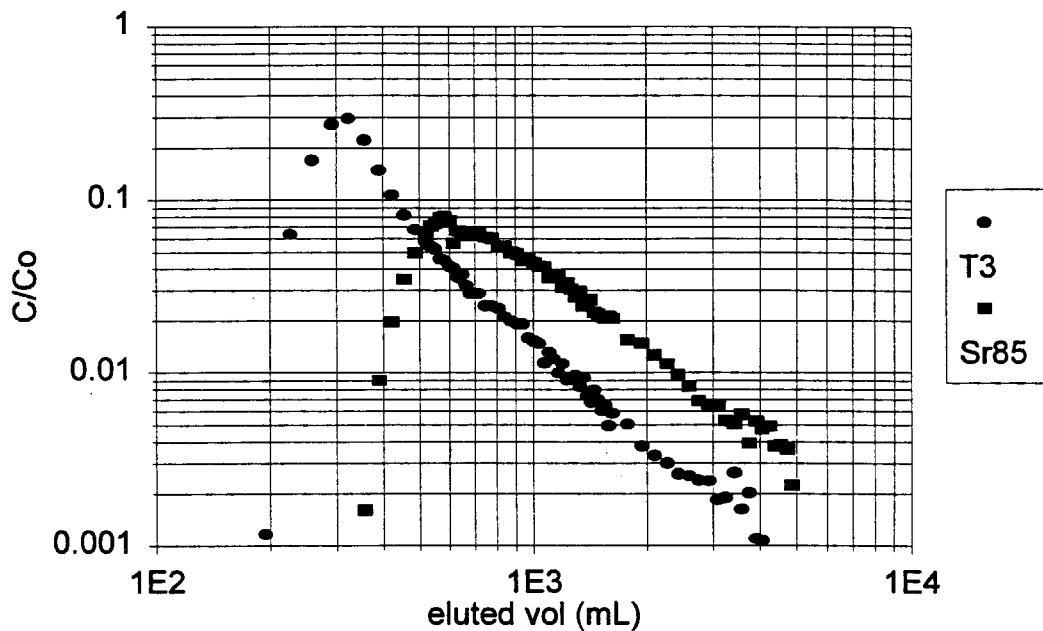


Fig.3-8 Spatial distribution of alpha-emitting radionuclides on upper fracture surface of Block B. The unit is arbitrary.

This is a blank page.

Block A T3 and Sr elution profiles



Block A T3 and Np elution profiles

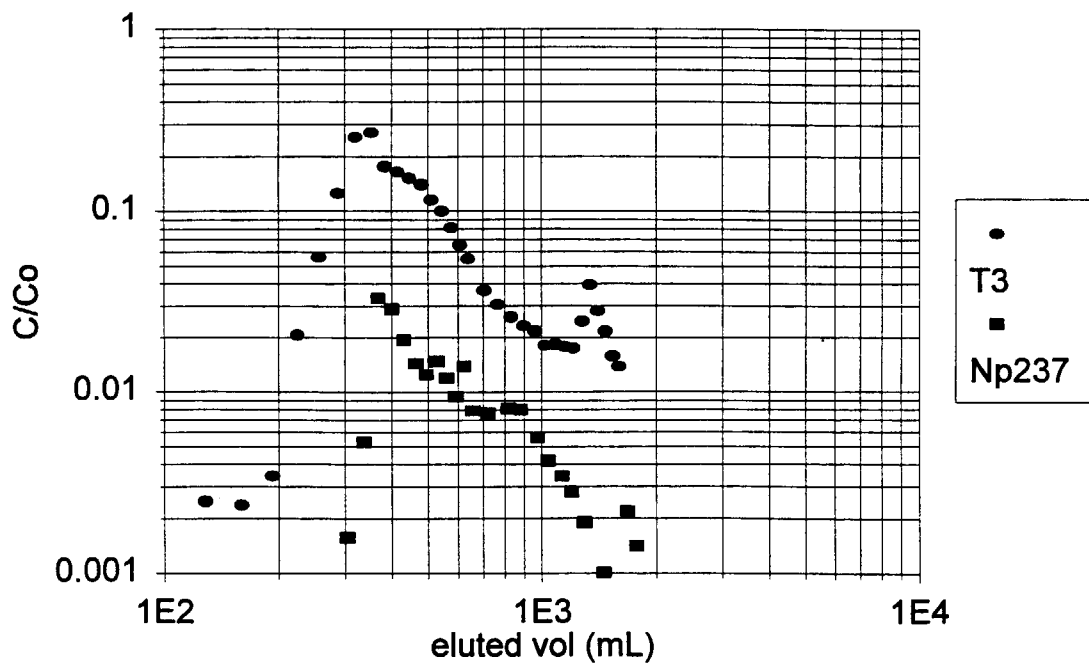


Fig.3-9 Elution profiles for ^{85}Sr and ^{237}Np obtained for Block A.

This is a blank page.

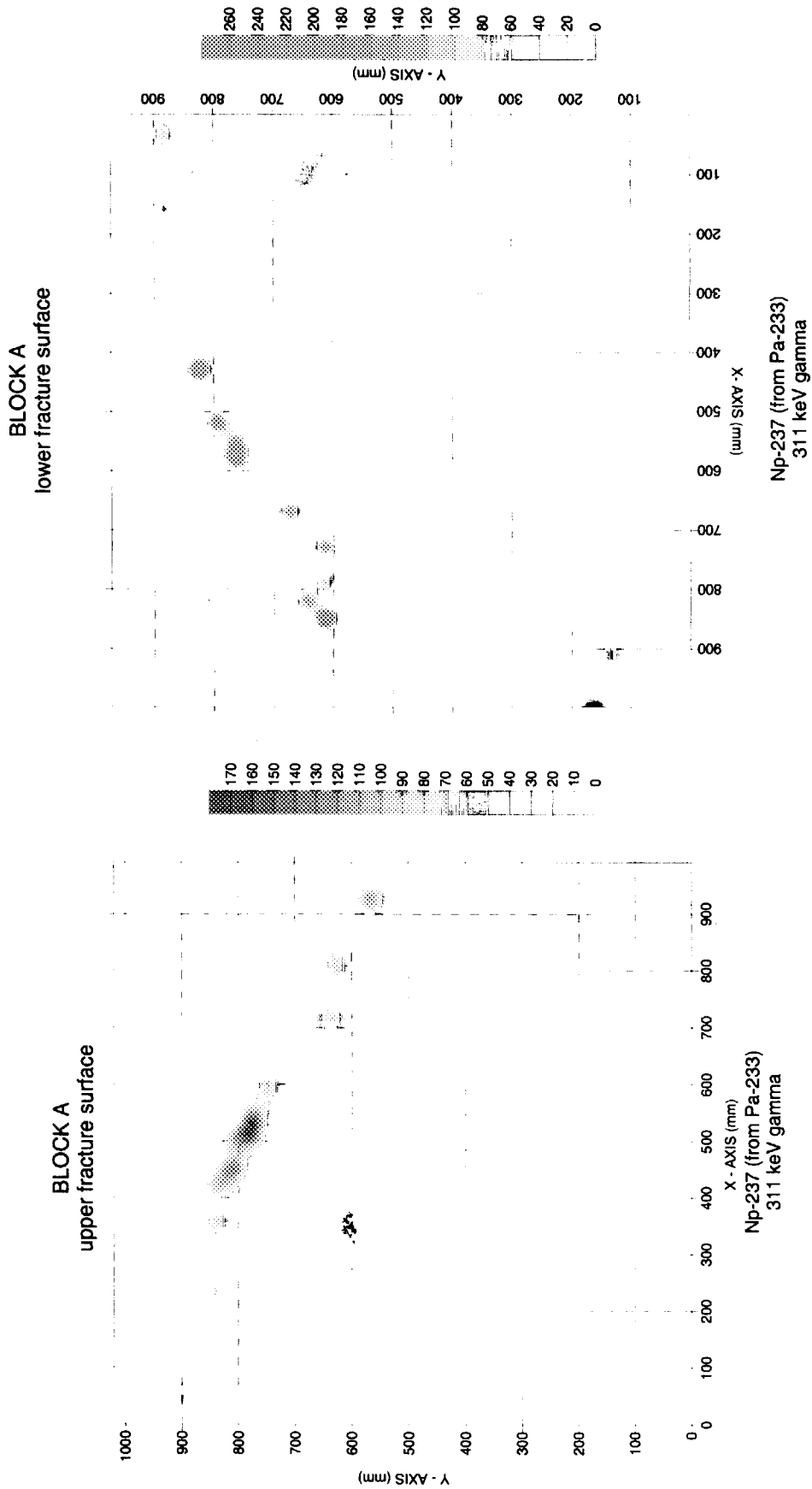


Fig.3-10 Spatial distribution of ²³⁷Np on fracture surfaces of Block A.

This is a blank page.

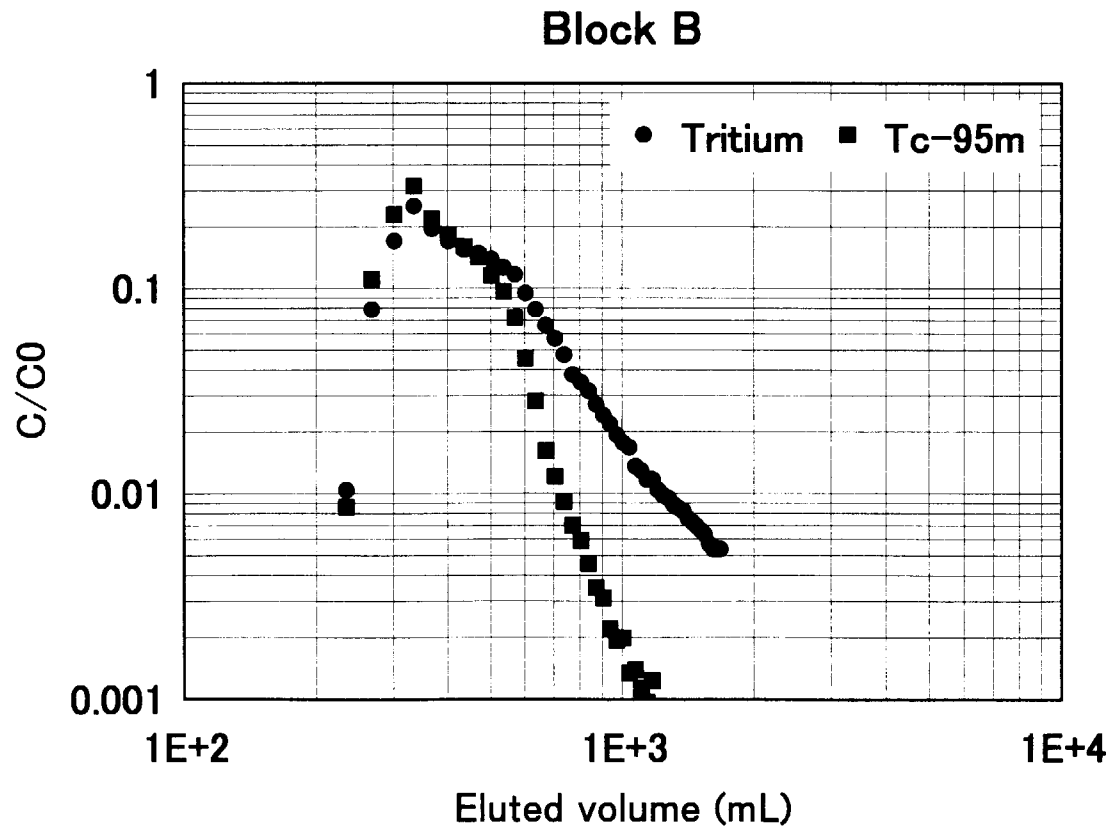
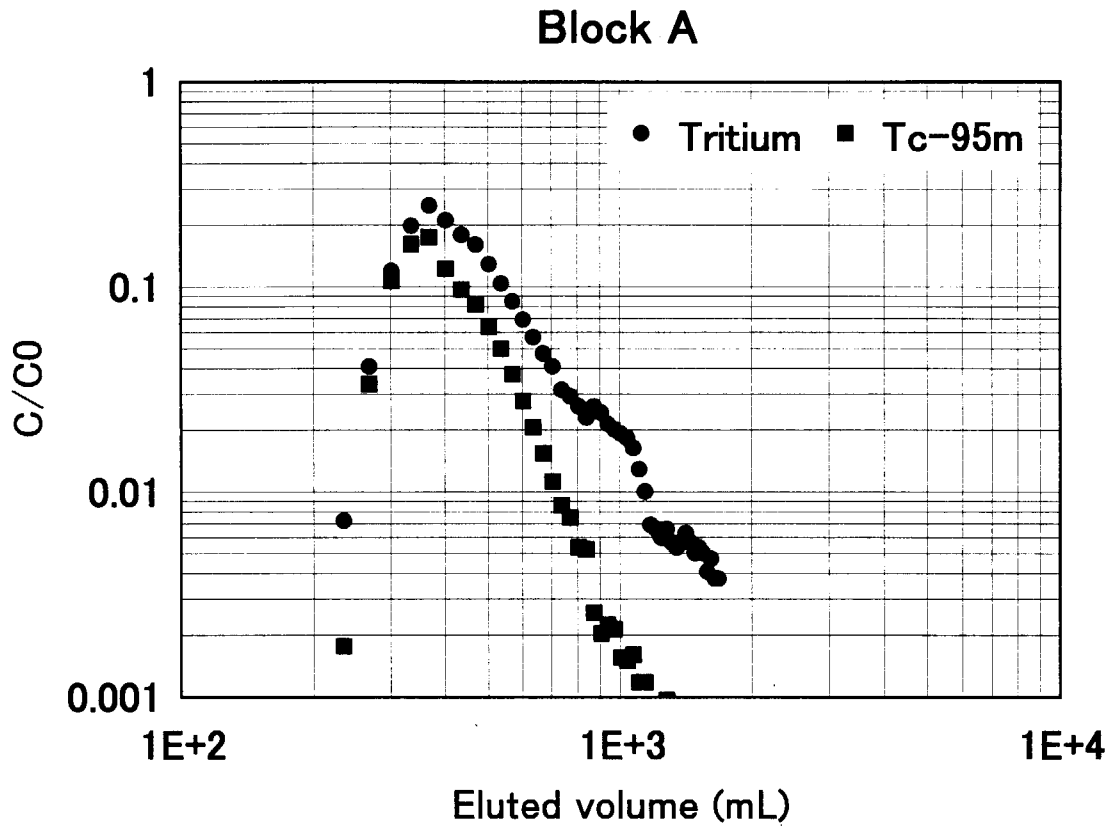


Fig.3-11 Elution profiles for ^{95m}Tc obtained for Block A and Block B.

This is a blank page.

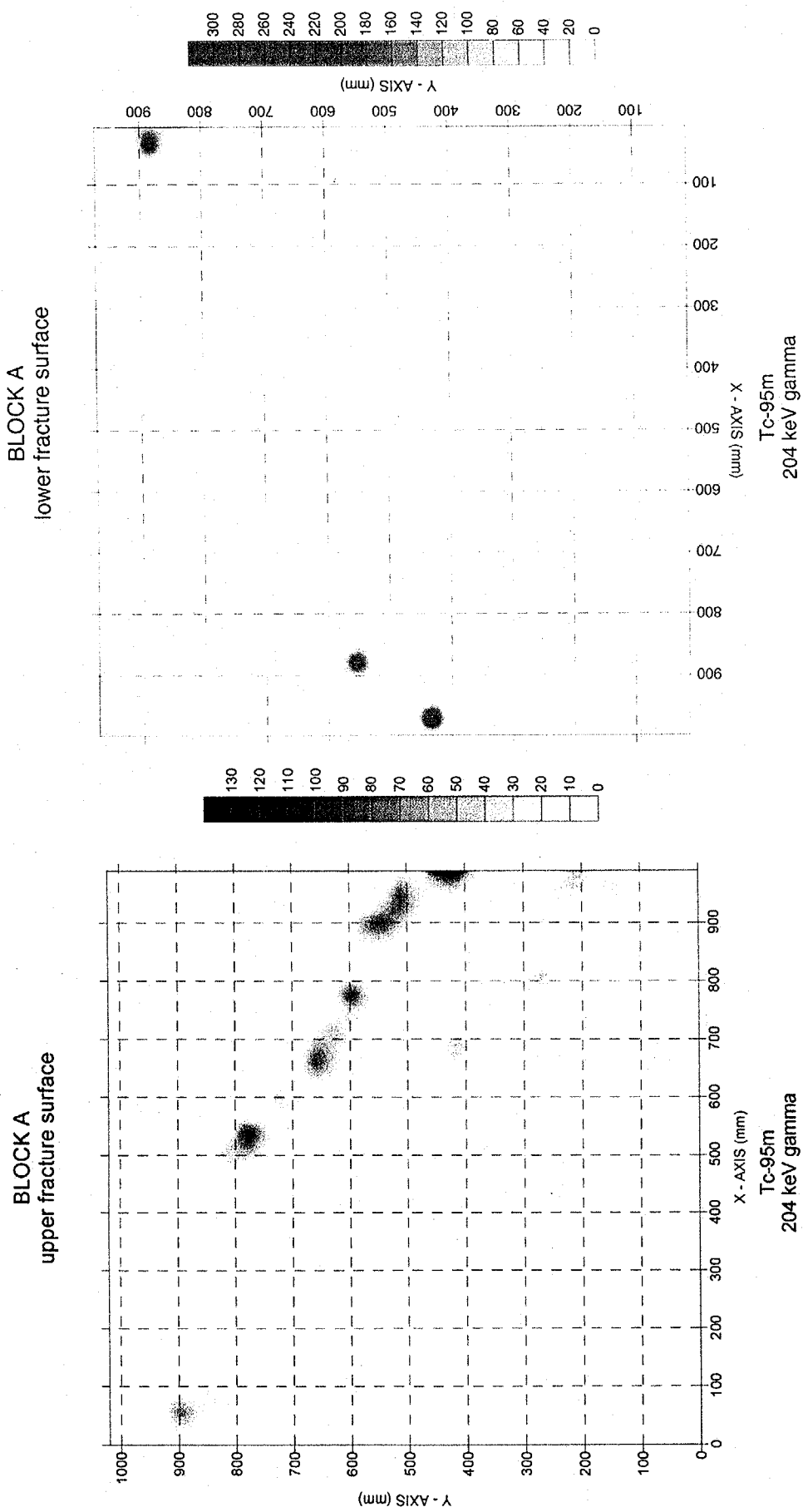


Fig.3-12 Spatial distribution of ^{95m}Tc on fracture surfaces of Block A.

This is a blank page.

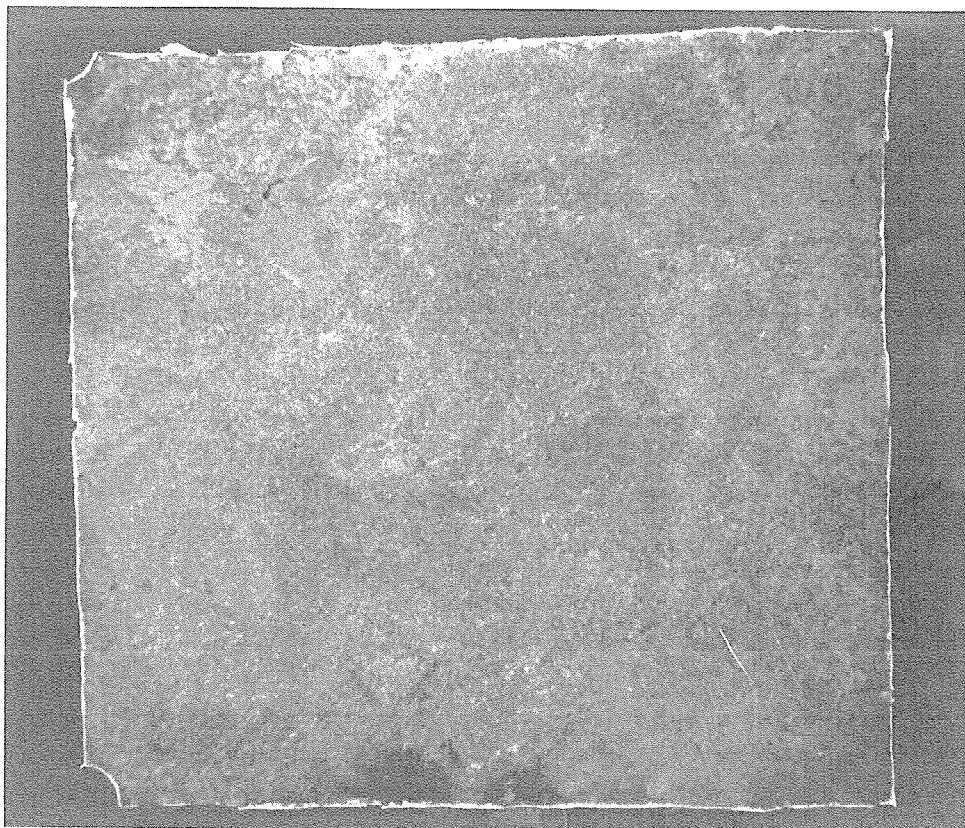
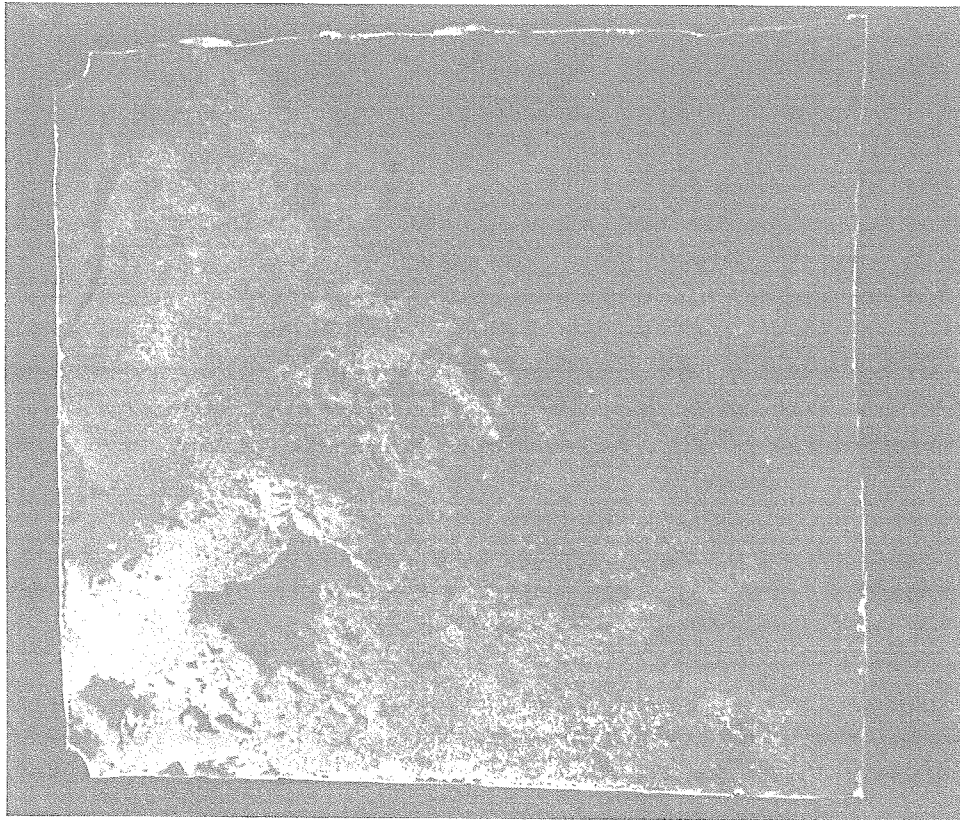


Fig.3-13 UV-illuminated photographs of fracture surfaces of Block A.

This is a blank page.

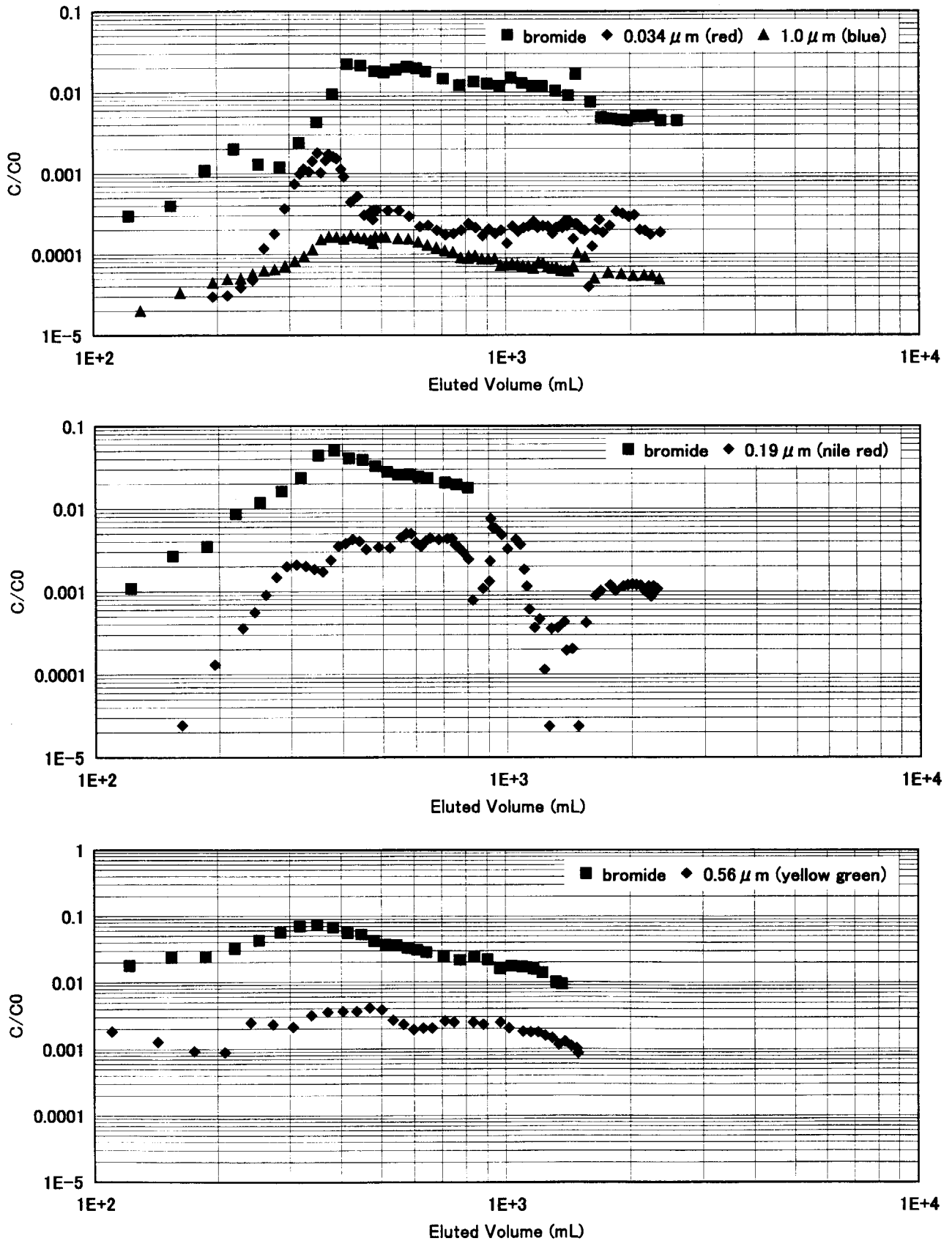


Fig.3-14 Elution profiles for colloid migration experiments in Block A.

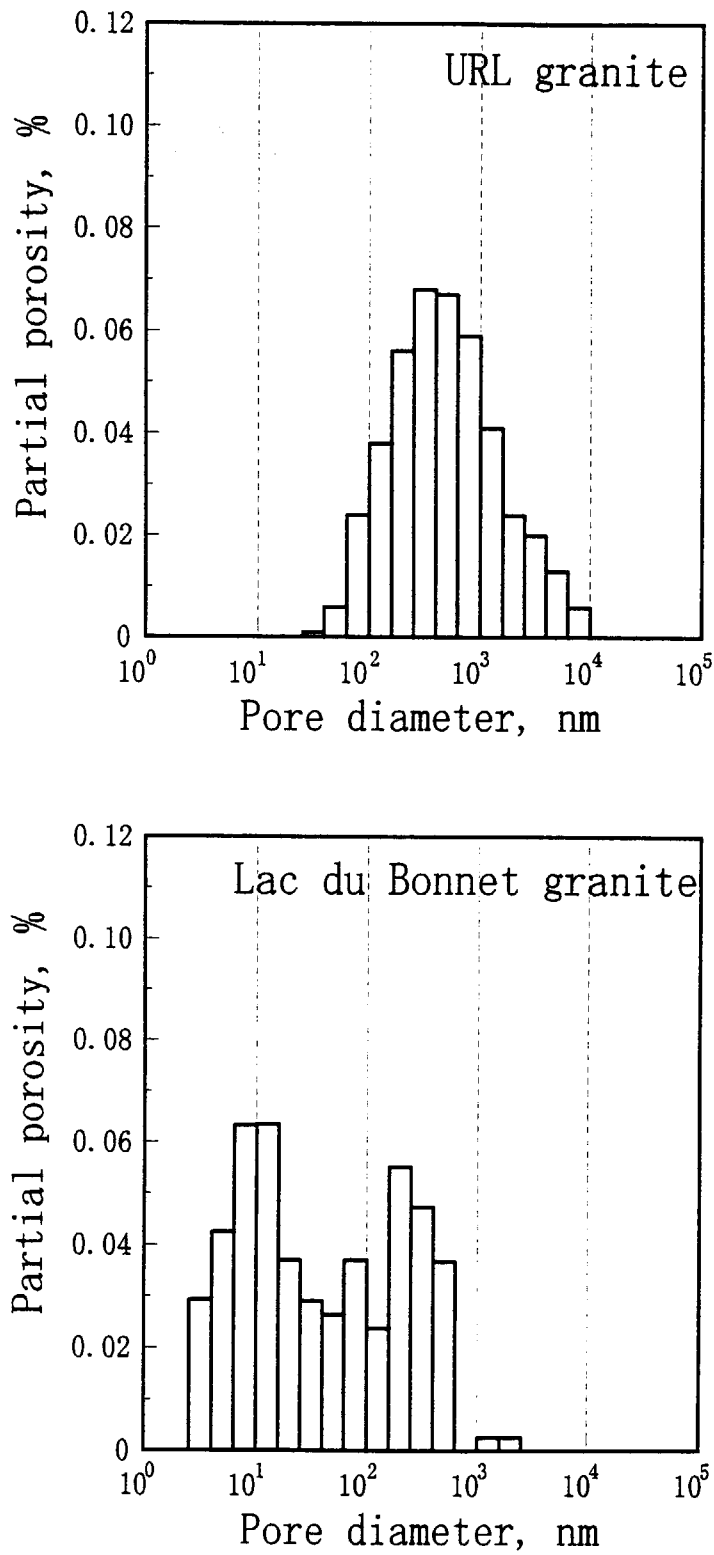


Fig.3-15 Pore size distribution for URL and Lac du Bonnet granite (data from Agterberg et al. 1984).

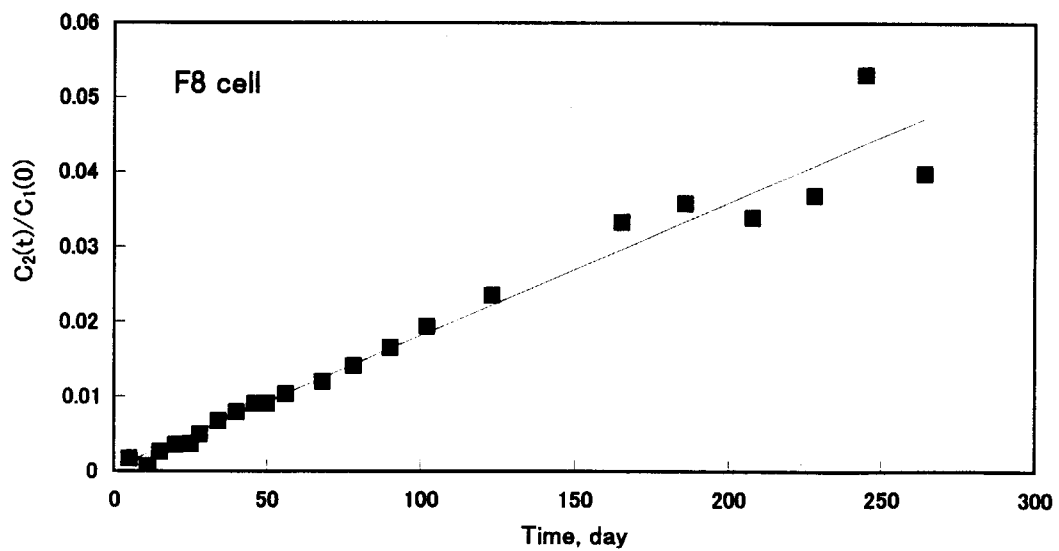
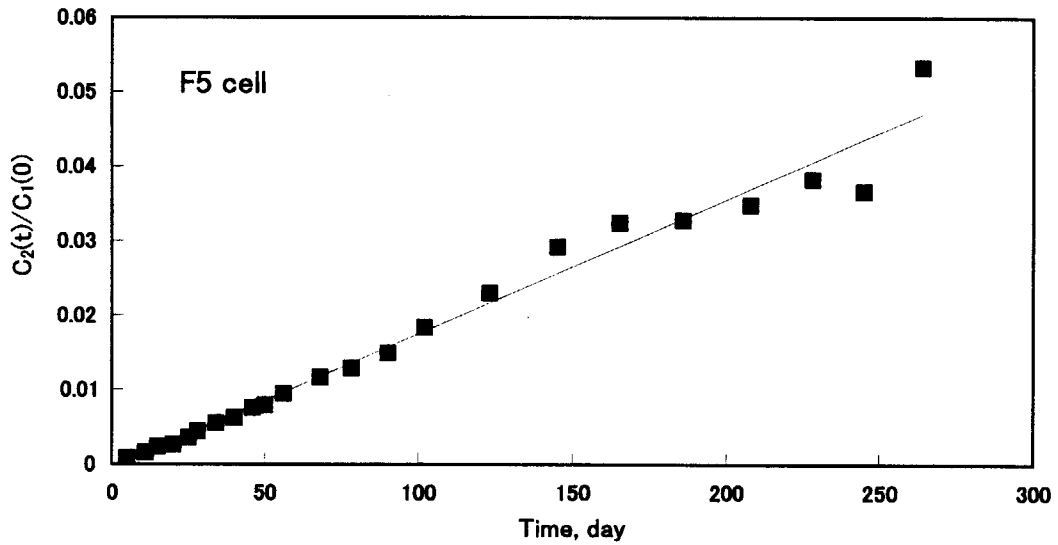
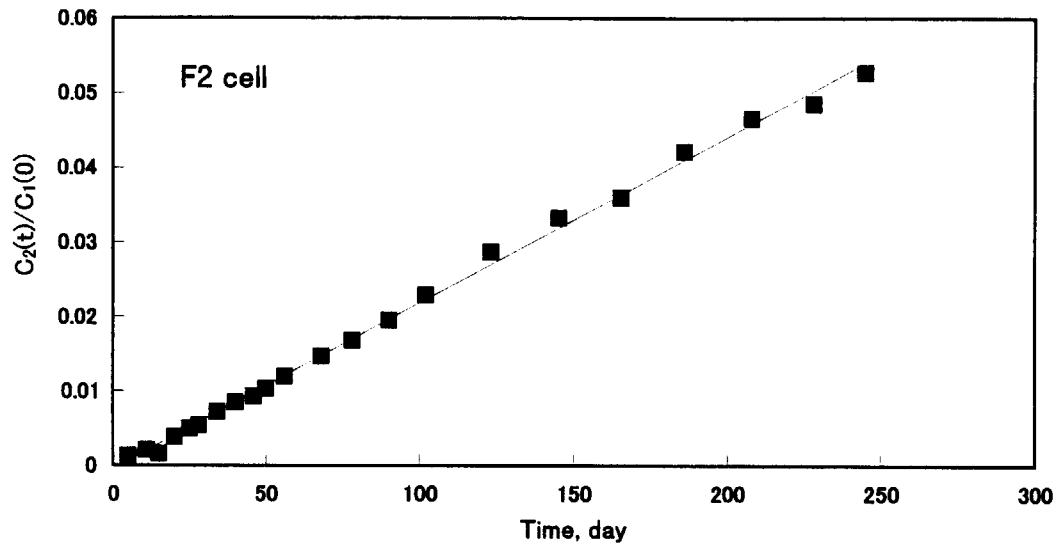


Fig.3-16 Diffusion curves for ^{125}I in through 5-mm thick granite disks.

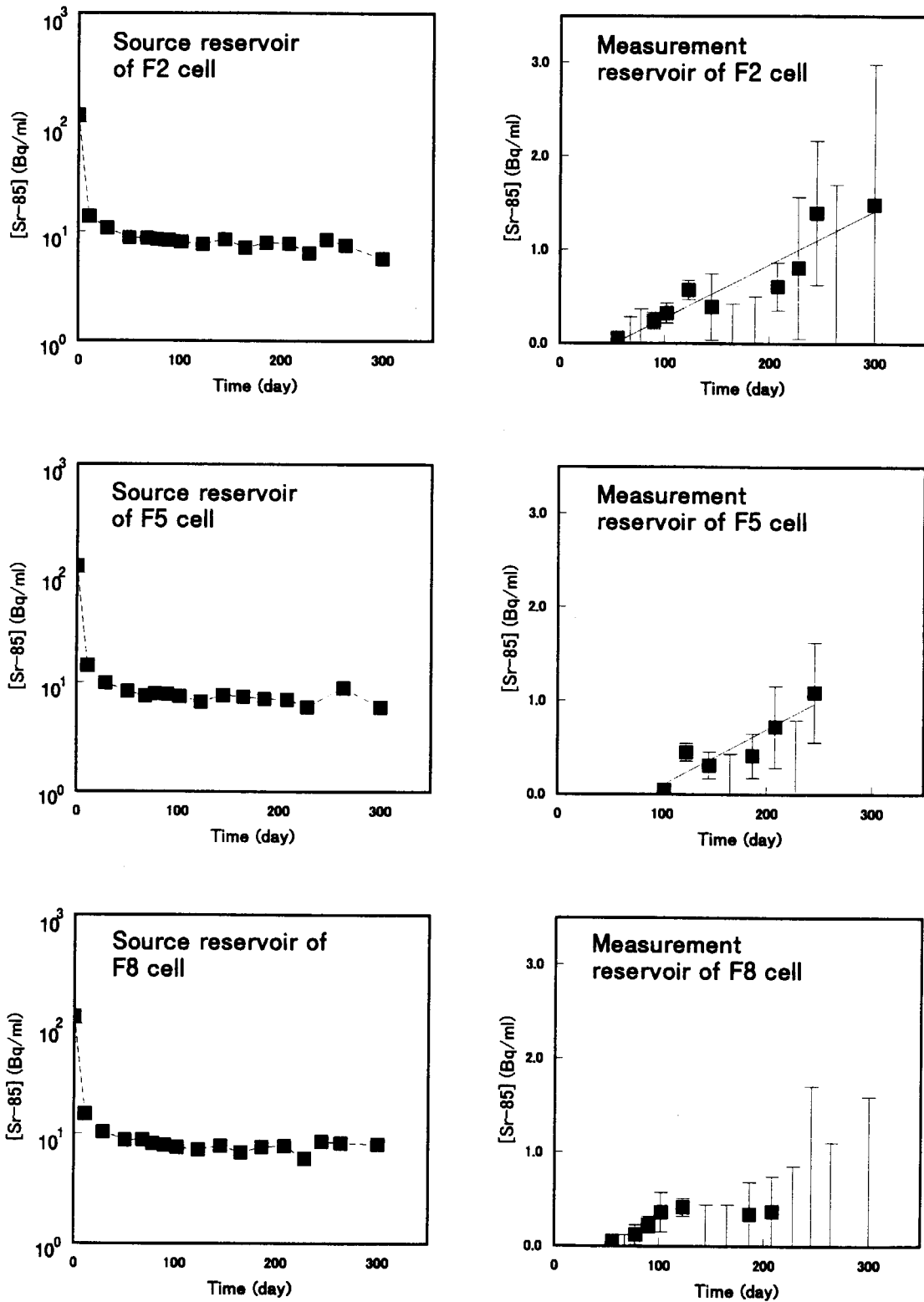


Fig.3-17 Concentration of ^{85}Sr in source and measurement reservoirs as a function of time.

4. 地下水中の溶存有機物の影響評価研究

処分安全研究室 長尾誠也、坂本義昭

4.1 はじめに

放射性廃棄物の地層処分の安全評価において、放射性核種の吸脱着特性、機構等を明らかにし、地層中における放射性核種の移行挙動を予測、評価しなければならない。特に、長期にわたる安全評価においては、毒性や廃棄物に含まれる量、半減期を考慮すると、長寿命核種のうち、I、Tc、Se、アクチノイドとその娘核種が安全評価において重要な元素と位置づけられる。本研究では、これらの長寿命核種のうち、有機物との親和性が高いと考えられているアクチノイドに焦点を絞り、地中におけるアクチノイドの移行に及ぼす有機物の影響について検討を進めた。

これまで、アクチノイドの土壌、岩石への吸着特性及びその支配因子と考えられる溶存形態に関しては、地下水の化学的条件を考慮した検討が行われてきた。最近、フィールド試験あるいは条件を制御した室内実験において、アクチノイドの溶存状態の支配因子として、地下水中の溶存有機物の重要性が指摘されている⁽¹⁻⁴⁾。例えば、AECL、アメリカオークリッジ国立研究所におけるアクチノイド等のフィールド試験において、分配係数で予測される以上の移行が確認され、アクチノイドと高分子の溶存有機物との関係が報告されている^(5,6)。しかし、溶存有機物の影響について、有機物の特性を考慮した系統的な検討は行われてこなかった。

原研では、1987年から5年間、AECLとの協力研究フェーズ I において、同地域でアクチノイド等の長寿命核種等を用いたフィールドカラム試験を行い、地中を移行するアクチノイドの最大 50%が溶存有機物と錯体を形成している可能性を明らかにした。このため、このサイトは有機物の影響を検討するのは適切なフィールドと位置づけられる。

そこで本研究、フェーズ II では、地下水中の溶存有機物のうち有機物の大部分を占め⁽⁷⁾、アクチノイドとの錯形成能が高い^(1,2)、高分子電解質の有機酸である腐植物質に着目し、実際に地下水から腐植物質を分離濃縮し、その特性を調べた。また、分離した腐植物質を用いてアクチノイドの吸着移行挙動に及ぼす影響、機構等を解明することを目的に研究を進めた。検討した項目は以下の通りである。

1. 地下水腐植物質の簡易測定分析
2. 地下水腐植物質の分離精製および特性検討
3. アクチノイドと地下水腐植物質との錯体の特性
4. 腐植物質存在下におけるアクチノイドの吸着特性
5. アクチノイド-地下水腐植物質錯体の移行特性

なお、本報告書では、「1.地下水腐植物質の簡易測定分析」の結果は省略した。アクチノイドは Np、Pu、Am(Eu)を対象に検討を行ったが、ここでは、Np と Pu に焦点を絞って報告する。また、安全評価上重要なその他の元素、Co、I、Tc の吸着に及ぼす影響も検討したが、それらの

結果は別の箇所でまとめることとする。

4.2 地下水腐植物質の濃縮と特性分析

本研究で着目した腐植物質は、植物の遺骸等が分解されて形成される高分子電解質の暗色、無定形の有機物で、フミン酸とフルボ酸に分類される。分類の定義は、アルカリ溶液では溶存するが、酸性溶液では沈殿を形成するものをフミン酸、pH によらずに溶存する腐植物質をフルボ酸と呼ぶ。分子サイズは一般にはフミン酸の方がフルボ酸より高分子である。腐植物質が放射性核種の地中移行挙動に影響を及ぼす原因は、地下水中に腐植物質が 0.1~10mgC/L 程度存在し、溶存有機物の大部分を占めること^(7,8)、重金属等の原子価が高い元素との錯形成能が高いためである^(1,2)。アクチノイドと腐植物質が錯形成することにより、地下水におけるアクチノイドの溶解度を増加させたり、土壌、岩石への吸着量が増加あるいは減少させ、結果として、アクチノイドの移動に関与すると考えられている。

4.2.1 地下水採取地点及び採取方法

実験に用いた地下水は、カナダ、オンタリオ州チョークリバーにある AECL チョークリバー研究所およびマニトバ州ラク・ド・ボネにある地下実験施設(URL)で採取した。浅地層地下水は、チョークリバー研究所敷地内の2箇所、Glass Block site (以下 GB) では深さ約 3m、Wallace Point (以下 WP) では深さ約 18m からポンプによってそれぞれ 20,000 L と 10,000 L の地下水を砂層から採取した。また、地下実験施設の地下 240m の亀裂帯が存在する2地点 JE-6, HC-19 からも地下水約 10,000 L を採水した。採取した地下水の溶存有機炭素濃度は GB で 2.4mgC/L、WP では 1.7mgC/L、深地層の JE-6 で 0.5mgC/L、HC-19 では 0.4mgC/L であった。

4.2.2 地下水腐植物質の分離・精製方法

Fig. 4-1 には地下水から腐植物質を分離精製する方法を示した。採取した地下水は、孔径 50 μ m、及び 0.45 μ m のフィルターでろ過した後、逆浸透システムで試料溶液の液量を 10~100 倍に濃縮した。なお、この操作で分子サイズ 180 以下の有機物は排除される。濃縮した地下水は塩酸で pH1.5 に調整し、多孔質樹脂 XAD-7 に流し、樹脂に腐植物質を吸着させ、無機成分とは分離させた。樹脂から腐植物質を脱離させた後、イオン交換樹脂(Bio-Rad AG MP-50)で精製し、低温蒸留で液量を 20L から 1L まで減量してから真空凍結乾燥により粉末試料とした。この操作で 3~18g の腐植物質を得ることができた。

4.2.3 腐植物質の特性分析方法

腐植物質の主要な元素組成は Carlo Erba 社製 1108 元素分析計により測定した。¹³C-NMR スペクトルは Bruker 社製 DPX250 により測定し、構成有機炭素の割合を見積もった⁽⁹⁾。腐植物質の分子サイズは腐植物質溶液を限外濾過後、高速液体ゲル浸透クロマトグラフィーにより測定した⁽¹⁰⁾。

4.2.4 地下水腐植物質の特性

元素分析の結果は Table 4-1 にまとめた。これを見ると、元素組成としては窒素と硫黄が砂層の地下水腐植物質の方が若干高い値であった。

Table 4-2 には腐植物質の ^{13}C -NMR スペクトルから解析した形態別炭素の存在割合をまとめた。今回分離した地下水腐植物質は、WP は芳香族炭素、カルボキシル基炭素が高く、脂肪族炭素が低く、他の3つの腐植物質とは若干異なる特徴を示した。また、有機物濃度の高い地下水及び河川水の腐植物質^(11,12)に比べて脂肪族炭素の割合が10%程度高く、逆に芳香族炭素は5~10%低かった。

本研究で用いた地下水腐植物質の分子サイズは、大部分が分子サイズ1万 daltons 以下の比較的 low molecular weight の有機物により構成され、河川水及び泥岩層地下水のフミン酸、フルボ酸とは異なる分布であった(Fig.4-2)。また、GB、WP、JE-6 及び HC-19 の地下水腐植物質間を比較すると、WP は他の3試料とは異なり、分子サイズ5千 daltons 以上の割合が約10%高かった。

以上の結果より、得られた地下水腐植物質は主に脂肪族炭素化合物で構成された分子サイズ1万 daltons 以下のフルボ酸であり、砂層と花崗岩亀裂帯地下水で腐植物質の特性に多少の変動が認められた。

4.3 アクチノイド-腐植物質錯体の特性

分離濃縮した地下水腐植物質を用い、アクチノイドと腐植物質との会合性、錯形成に関して、腐植物質の簡易な特性のパラメータであり、腐植物質の土壌、岩石への吸着に関与し、アクチノイドとの錯形成の支配因子の1つと考えられている分子サイズの観点から検討した。

4.3.1 錯体実験方法

アクチノイドと腐植物質との錯体形成実験は以下の手順で行った。pH6 あるいは pH8、イオン強度 0.01M に調整した地下水腐植物質を含む過塩素酸ナトリウム(NaClO_4)溶液に Np 及び Pu を添加し、1週間振とうした。初期濃度は、地下水腐植物質が 10mg/L、Np は $8 \times 10^{-6}\text{M}$ 、Pu は $7 \times 10^{-9}\text{M}$ であった。実験終了後、pH を測定し、孔径 $0.45 \mu\text{m}$ のフィルターで濾過を行った濾液の Np、Pu の放射能濃度を測定した。また、濾液をさらに4種類の限外濾過フィルター(Millipore Ultra Free CL, 分画分子サイズ10万、3万、1万、5千 daltons)で限外濾過し、それぞれの分子サイズフラクションの放射能濃度を測定し、各分子サイズの Np 及び Pu の存在割合を見積もった。

4.3.2 錯体の分子サイズ分布

Fig.4-3 には、地下水腐植物質が存在しない場合とした場合の Pu の分子サイズ分布を示した。溶液の pH が 6 の場合、Pu は腐植物質が存在しない系において分子サイズ $0.45 \mu\text{m}$ 以上のフラクション A に 60%、分子サイズ5千 daltons 以下のフラクション F に 30%存在した。花崗岩地下水腐植物質(JE-6)が存在した場合、 $0.45 \mu\text{m}$ 以上のフラクション A には 55%とブランク実

験とほぼ一致するが、溶存態 Pu の分子サイズ分布が異なっていた。一方、砂層地下水腐植物質 (GB と WP) が存在した場合、pH6 では Pu の大部分が $0.45\mu\text{m}$ 以下の溶存態として存在し、分子サイズ 5 千 daltons 以下のフラクション F が 50~70% を占めた。pH8 では、孔径 $0.45\mu\text{m}$ のフィルターで捕集される粒子態の Pu は砂層上層の地下水腐植物質 GB では 65%、砂層下層の WP では 6%、花崗岩地下水では 29% と腐植物質試料により異なる分布であった。以上の結果は、Pu と腐植物質との錯形成は、腐植物質の特性 (官能基組成、官能基の解離特性等) に左右され、錯形成した Pu のサイズ分布が異なるため移行性が異なる可能性が考えられる。なお、Np の場合、腐植物質の有無に関わらず約 100% が分子サイズ 5 千 daltons 以下のフラクションに存在していた。

腐植物質の特性の違いによるアクチノイドの地中移行に及ぼす影響を調べるため、今回対象とした地下水腐植物質とともに、国際腐植物質学会で頒布している標準試料、Suwannee 川と Nordic フミン酸、フルボ酸と Pu との錯体の分子サイズを調べた。PH5~6、イオン強度 0.01M の実験条件において、Pu が錯形成する分子サイズは対象とした腐植物質に異なり、最大の存在割合を示す分子サイズは、Suwannee 川及び Nordic フミン酸で 10 万~3 万 daltons (46~57%)、フルボ酸では 3 万~1 万 daltons (57~64%) と今回対象とした地下水腐植物質に比べてより高分子の有機物と錯形成していることが明らかとなった。

4.4 腐植物質存在下におけるアクチノイドの吸着特性

アクチノイドの土壌、岩石への吸着に及ぼす腐植物質の影響を調べるため、アクチノイド—腐植物質錯体の吸着特性を腐植物質濃度の関数として検討した。

4.4.1 吸着実験方法

0.8g の砂あるいは粉碎した花崗岩をいれた 10mL の遠沈管に腐植物質濃度を任意に調整した 0.01M NaClO_4 溶液あるいは砂、花崗岩との 8mL 平衡水に Np 及び Pu のトレーサー溶液を添加し、7 日間室温で振とうした。Np と Pu の初期濃度はそれぞれ $1 \times 10^{-5}\text{M}$ 、 $1 \times 10^{-10}\text{M}$ であった。固液比は 1:10 に設定した。振とう終了後、遠心分離、孔径 $0.45\mu\text{m}$ のフィルターでろ過を行った溶液の放射能濃度を液体シンチレーション計測器で測定し、分配係数を計算した。

4.4.2 Np の吸着特性

Fig.4-4 には、Np の砂、花崗岩への分配係数を腐植物質の濃度の関数として表した。砂に関する結果をみると、GB と JE-6 の地下水腐植物質は、腐植物質濃度が 1~10mg/L で Np の分配係数が減少し、腐植物質濃度が 20mg/L 以上で増加する傾向であった。しかし、WP の地下水腐植物質が存在した場合、Np の分配係数は腐植物質濃度が 0~5mg/L 間でほぼ一定であり、腐植物質濃度が 10mg/L 以上で多少低い値を示した。これらの結果は、砂への分配係数がそれほど高くない Np でも腐植物質の影響を受け、その程度は腐植物質の特性に関係していることを示唆している。なお、花崗岩に対する Np の分配係数は、腐植物質の濃度に対してそれほど大き

な変動は認められなかった。

4.4.3 Puの吸着特性

Puの砂への分配係数は腐植物質の濃度が増加するにつれて減少した (Fig.4-5a)。最大でPuの分配係数は3桁、天然水の腐植物質濃度レベルでも1桁減少している。一方、花崗岩の場合、腐植物質濃度20mg/Lで7分の1程度まで減少したが、50mg/Lでは増加しその後減少した。腐植物質の存在により、最大で1桁程度Puの分配係数が低下した (Fig.4-5b)。

以上の結果は、地下水の腐植物質の濃度レベル (1~10mg/L) でも、腐植物質はNpの砂への吸着量及びPuの砂と花崗岩への吸着量を減少させ、検討に用いる腐植物質により、その影響が異なることが明らかとなった。

4.5 アクチノイド-腐植物質錯体の移行特性

アクチノイド-腐植物質錯体の移行特性を雰囲気を制御した室内でのカラム実験を行うとともに、実際のフィールドの地下水を使用し、原位置の条件で移行特性を調べ、地層中のアクチノイドの移行に及ぼす腐植物質の影響を検討した。

4.5.1 実験方法

室内カラム実験

カラム実験のシステムは、流入液ボトル、送液ポンプ、カラム、フラクションコレクターより構成されている。Glass Block siteから採取した砂は直径2.5cm、長さ2.5cmのアクリル製のカラムに詰め、0.01M NaClO₄で飽和した後、pH5.5、5x10⁻⁶MのNp濃度、有機物濃度20mg/Lに調整したイオン強度0.01MのNaClO₄溶液をカラムに流し、カラムから流出する溶出液をフラクションコレクターで採取した。溶出液は、Npの放射能濃度、紫外280nmの吸光度、pHを測定した。腐植物質自体の移行挙動も同様な実験で測定した。花崗岩の場合は粉碎した試料をカラムに詰め、pH9程度に調整したNaClO₄溶液で実験を行った。

フィールドカラム実験

内径5cm、長さ15cmのステンレス製のカラムにGlass Block siteから採取した砂を詰め、地下水でカラム内を飽和させた。流路を切り替えて10mLの放射性核種のトレーサー溶液をカラム注入し、再度コックを切り替えて地下水を流し、カラムからの流出液をフラクションコレクターで採取した。初期濃度はNpが2.9x10⁻³M、Puが4.9x10⁻⁶Mに設定した。溶出液は、Np及びPuの放射能濃度を測定した。Npの移行実験では、分離濃縮した地下水腐植物質を添加した地下水(DOC 11mg/L)と添加しない地下水(DOC 2mg/L)をカラムへ流した。一方、Puの移行挙動実験では、腐植物質を添加した地下水をカラムへ流し、腐植物質の影響を調べた。

4.5.2 室内カラム実験結果

Fig.4-6には、砂及び粉碎した花崗岩を詰めたカラムを移動するNp、腐植物質共存下のNp

及び腐植物質の破過曲線を示した。砂の場合、地下水腐植物質共存下の Np、Np、Aldrich フミン酸共存下の Np の順にカラムより流出している(Fig.4-6a)。これは、砂層における Np の移行は、地下水中の腐植物質との錯形成により促進されたが、Np-Aldrich フミン酸錯体では逆に一部が砂に吸着し、Np の移行が遅延されたことを示している。Aldrich フミン酸は今回対象としている地下水腐植物質に比べて高分子フラクション、脂肪族炭素の割合が高く^(11,13)、地下水腐植物質とは明らかに異なる特性を示すことから、腐植物質の特性の違いが Np の移行に及ぼす腐植物質の影響に関与していると考えられる。

一方、花崗岩の場合、Np-地下水腐植物質、Np-Aldrich フミン酸、Np の順にカラムから流出し、腐植物質の存在により多少 Np の移行が早くなっている(Fig.4-6b)。また、砂層での Np の破過曲線と同様に、腐植物質存在下では Np は破過には達せず、その割合は最大 20%程度であった。これらの結果は、Np-腐植物質錯体の移行に際して、砂あるいは花崗岩との吸着が早い成分と遅い成分等の少なくとも 2 成分の錯体の存在が考えられ、速度論的な解析を考慮する必要がある。

4.5.3 フィールドカラム実験結果

Fig.4-7 には、Np、Pu のフィールドカラム実験の結果を示した。地下水腐植物質を添加した地下水と地下水そのものをカラムに流した場合、Np の移行性はポア体積 1.3 までは急激に増加し、それ以上で徐々に増加した。この移行挙動は地下水腐植物質を添加した地下水をカラムに流した場合にも観測されたが、地下水腐植物質を添加した方が Np の回収率が約 20%減少した。Pu の場合には、地下水腐植物質との共存によりカラムからの Pu の流出が確認された。ここでは腐植物質未添加の実験は行っていないが、AECL との協力研究フェーズ I の結果では、Pu はカラムから流出しなかったことから考えると、やはり Np と同様に地下水の腐植物質と錯形成し、移行が促進されたと考えられる。この結果は、バッチ実験によりみられた Pu の分配係数の減少とも矛盾してはいない。

4.6 結論

本研究では、地下水中の溶存有機物のうち、有機物の大部分を占め、アクチノイドとの錯形成能が高い腐植物質に着目し、砂層及び花崗岩亀裂帯より分離精製した地下水中の腐植物質を用い、地層中におけるアクチノイドの移行挙動に及ぼす有機物の影響を検討し、以下の成果が得られた。

1. 地下水中の溶存腐植物質の特性

逆浸透法と XAD 樹脂濃縮法を組み合わせ、大量の地下水から腐植物質を分離濃縮する方法を確立した。この方法を砂層地下水及び花崗岩亀裂帯から採取した地下水に適用し、1 万～2 万 L の地下水から腐植物質を分離した。得られた腐植物質 4 試料は、大部分が分子サイズ 1 万 daltons 以下の有機物によって構成されたフルボ酸であることがわかった。

2. アクチノイドと地下水腐植物質の錯体の特性

Np は腐植物質の有無に関わらず、約 100%が分子サイズ 5 千 daltons 以下のフラクションに

存在した。一方、Pu は、腐植物質が共存しない場合にはポリマーを形成し沈着するが、腐植物質共存下では腐植物質と錯形成し、腐植物質の特性により錯形成する分子サイズが異なっていた。錯体の分子サイズが異なることは、地中におけるアクチノイドの移行挙動の違いに反映される可能性が考えられる。

3. アクチノイドの砂、花崗岩への吸着に及ぼす腐植物質の影響

地下水の腐植物質の濃度レベルにおいて、砂に対する Np の分配係数は、地下水腐植物質が共存した場合には約 5 分の 1 程度まで減少した。一方、花崗岩の場合、腐植物質の濃度による Np の分配係数の変動は、いずれの腐植物質でも認められなかった。

Pu の分配係数は、地下水腐植物質が共存した場合、砂では腐植物質の濃度とともに指数関数的に減少し、最大で 3 桁低い値を示した。花崗岩でも最大で 1 桁程度 Pu の分配係数が減少した。

4. アクチノイド-腐植物質錯体の移行挙動

砂層における Np の移行は、地下水中の腐植物質との錯形成により促進されたが、Np-Aldrich フミン酸錯体では逆に移行が遅延された。これは、腐植物質の特性により Np の移行に及ぼす腐植物質の影響が異なることを示唆している。一方、地下水腐植物質との錯体の場合、腐植物質の濃度(2mg/L と 11mg/L)の違いによる影響も認められた。Pu の場合、地下水腐植物質との共存によりカラムからの Pu の流出が確認された。

以上の結果より、アクチノイドの地中移行に及ぼす地下水中の有機物、特に腐植物質の影響を考慮する必要性が示唆された。地下水の腐植物質の影響は、もちろん単純なものではなく、腐植物質の種類により異なるため、これまでの報告例が少ない地下水腐植物質がどのような特性を有するかを把握し、各特性を有する腐植物質がアクチノイドの移行性に及ぼす影響を詳細に調べることにより、各地域の環境状況を考慮した地層中におけるアクチノイドの移行挙動を予測、評価することが可能になると考えられる。

謝 辞

神戸大学農学部の藤嶽暢英助教授には、腐植物質の ^{13}C -NMR スペクトルを測定していただいた。AECL の S.J.Welch 氏には地下水サンプリング及び腐植物質濃縮作業に参加していただき、P.J.Durepeau 氏と J.Dinaut 氏にはフィールドカラム実験の Pu の分析に従事していただいた。また、原研の田中忠夫副主任研究員には、Pu 錯体実験の 1 部を担当していただいた。ここに記して深く感謝する。

参考文献

- (1) Choppin, G.R., Allard, B.: "Handbook on the Physics and Chemistry of the Actinides (ed. A.J.Freeman and C.Keller)", Elsevier, 407 (1985).
- (2) Kim, J.I.: "Handbook on the Physics and Chemistry of the Actinides (ed. A.J.Freeman and C.Keller)", Elsevier, 413 (1986).
- (3) Moulin, V., Ouzounian, G.: Appl. Geochem., 1, 179 (1992)

- (4) Moulin, V., Moulin, C.: *Radiochim. Acta*, **10**, 573 (1995)
- (5) Champ, D. R., Young, J. L., Robertson, D. E., Abel, K. H.: *J. Water Poll. Res. Canada*, **19**, 35 (1984).
- (6) McCarthy, J. F., Czerwinski, K. R., Sanford, W. E., Jardine, P. M., Marsh, J. D.: *J. Contam. Hydrol.*, **30**, 49 (1998).
- (7) Thurman, E. M.: *Organic Geochemistry of Natural Waters*, Nijhoff and Junk Publishers (1985).
- (8) 長尾誠也: 放射性廃棄物研究、**1**, 231 (1985).
- (9) 藤嶽暢英、川東正幸、高橋竹彦: 1995年度日本腐植物質研究会年会要旨集、**5** (1995).
- (10) Nagao, S., Senoo, M.: "Humic Substances and Organic Matter in Soil and Water Environments: Characterization, Transformations, and Interactions (eds. C.E.Clapp, M. H. B. Hayes, N. Senesi and S. M. Griffith)", *IHSS*, **71** (1996).
- (11) Kim, J. I., Buckau, G., Li, G. H., Duschner, H., Psarros, N.: *Fresenius J. Anal. Chem.*, **338**, 245 (1990).
- (12) Malcolm, R. L.: "Humic Substances in Soil and Crop Sciences: Selected Readings (eds. P.MacCarthy, C.E.Clapp, R.L.Malcolm and P.R.Bloom)", *ASA & SSSA*, **13** (1990).
- (13) Malcolm, R. L., MacCarthy, P.: *Environ. Sci. Technol.*, **20**, 904 (1986).

Table 4-1 Elemental composition of the humic substances from groundwaters in sand layer (GB and WP) and fracture zone of granite at the URL site (JE-6 and HC-19).

Sample	C	H	N	O	S
	(%)				
Glass Block site	52.6	5.6	0.74	39.8	0.19
Wallace Point	52.2	5.3	0.77	40.5	0.15
JE-6	53.3	5.9	0.52	38.5	<0.01
HC-19	53.3	5.8	0.40	34.6	<0.01

Table 4-2 Distribution of carbon (C) of groundwater and stream humic substances.

Sample	Aliphatic-C	Aromatic-C	Carboxylic-C	Phenolic-C
	(%)			
Canada groundwater ^a				
Glass Block site	49.1	11.1	17.8	2.0
Wallace Point	44.4	16.9	22.7	4.4
JE-6	52.2	12.8	18.9	2.5
HC-19	49.1	15.9	17.8	4.1
Gorleben groundwater ^b				
Humic acid(HA)	38.0	41.0	13.0	---
Fulvic acid(FA)	48.0	23.0	16.0	---
River water ^c				
Suwannee HA	28.0	30.0	14.0	10.0
Missouri HA	35.0	29.0	17.0	5.0
Freemont HA	29.0	32.0	16.0	9.0
Suwannee FA	36.0	18.0	18.0	6.0
Missouri FA	48.0	14.0	17.0	3.0
Freemont FA	43.0	16.0	17.0	4.0

^a This work.^b Kim *et al.* (1990)⁽¹¹⁾.^c Malcolm (1990)⁽¹²⁾.

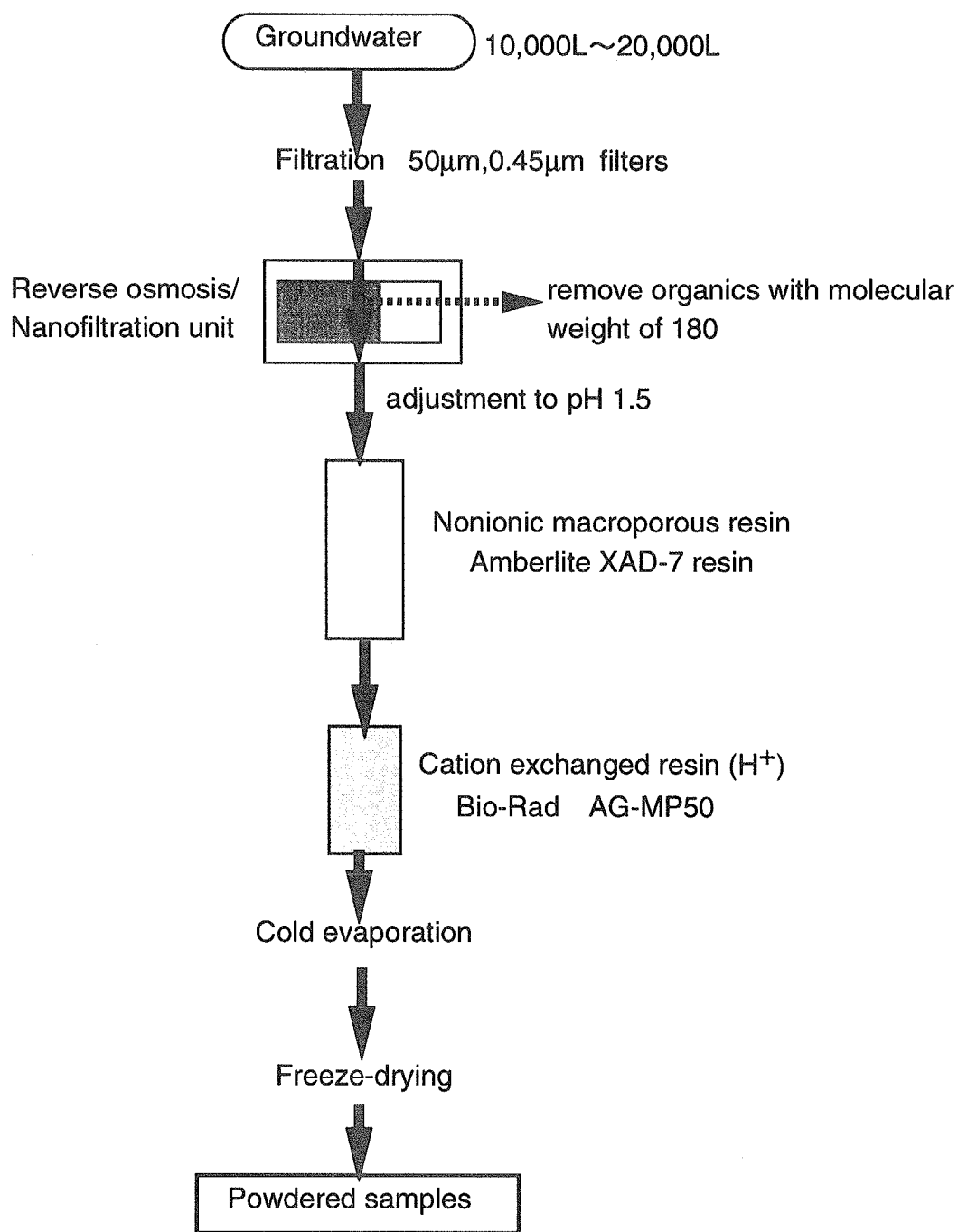


Fig.4-1 Schematic illustration of isolation and purification of humic substances from groundwater samples.

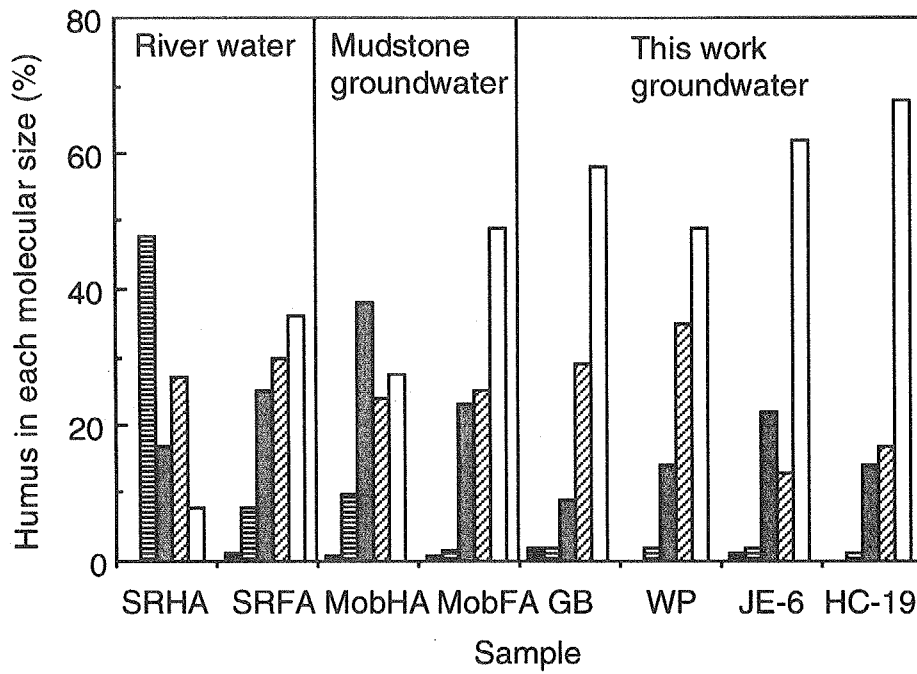


Fig.4-2 Molecular size distribution of humic substances from groundwater in sand, fracture zone of granite, and mudstone, and from Suwannee River (IHSS reference samples).

Molecular size ranges:

- 0.45µm-100k daltons; ▨ 100k-30k daltons; ▩ 30k-10k daltons;
- ▤ 10k-5k daltons; □ <5k daltons.

Sample name:

SRHA=Suwannee River humic acid.

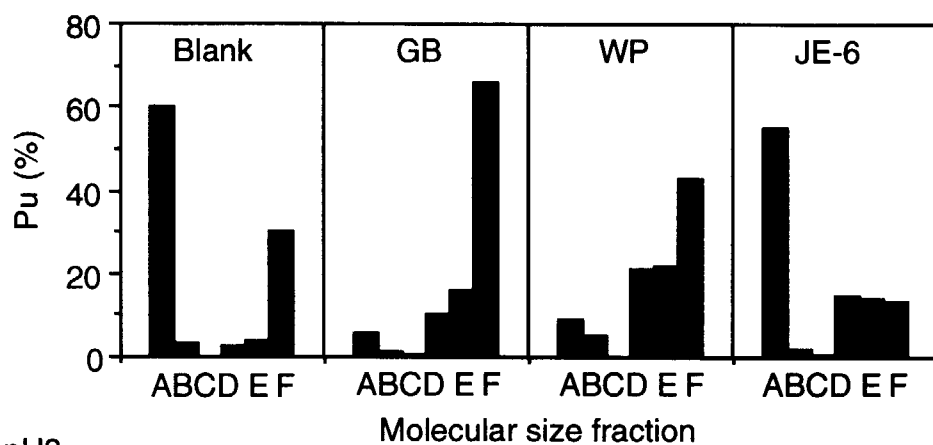
SRFA=Suwannee River fulvic acid.

Mob HA=Mobara groundwater humic acid.

Mob FA=Mobara groundwater fulvic acid.

GB,WP,JE-6 and HC-19 indicate humic substances isolated from the groundwater in this study.

(a) pH6



(b) pH8

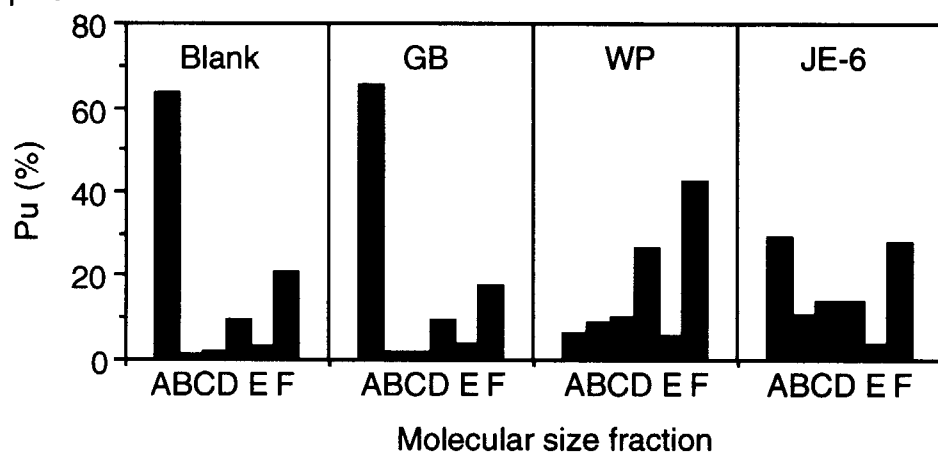


Fig.4-3 Molecular size distribution of Pu in the absence and presence of humic substances from Glass Block site (GB), Wallace Point (WP) and URL (JE-6) at pH 6 and 8.

Molecular size range

- A: >0.45 μ m
- B: 0.45 μ m-100,000 daltons
- C: 100,000-30,000 daltons
- D: 30,000-10,000 daltons
- E: 10,000-5,000 daltons
- F: <5,000 daltons

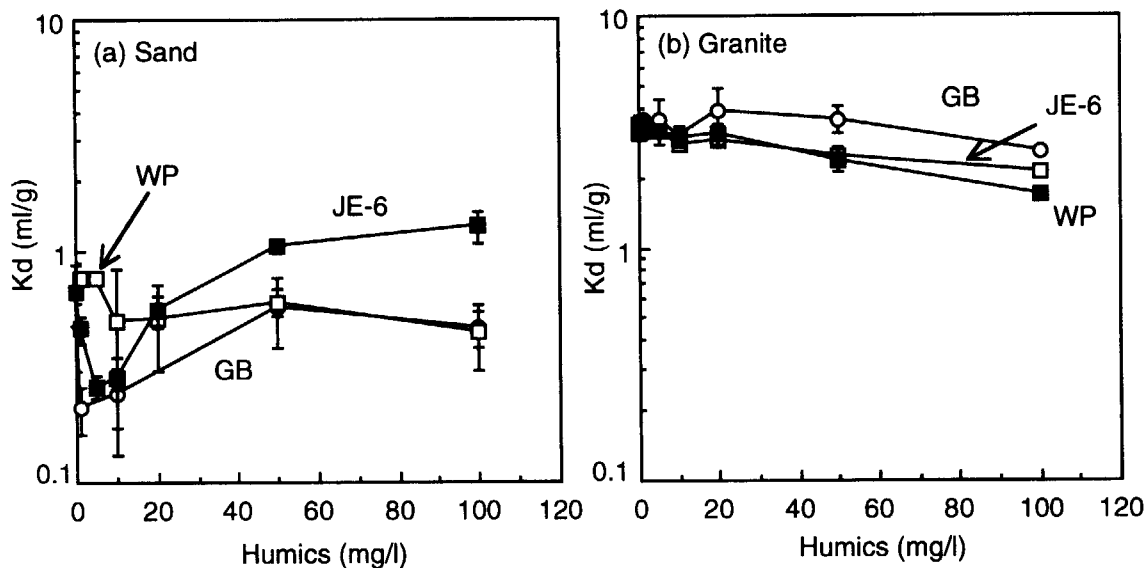


Fig.4-4 Distribution coefficient of Np in the presence of groundwater humus onto sand and granite.

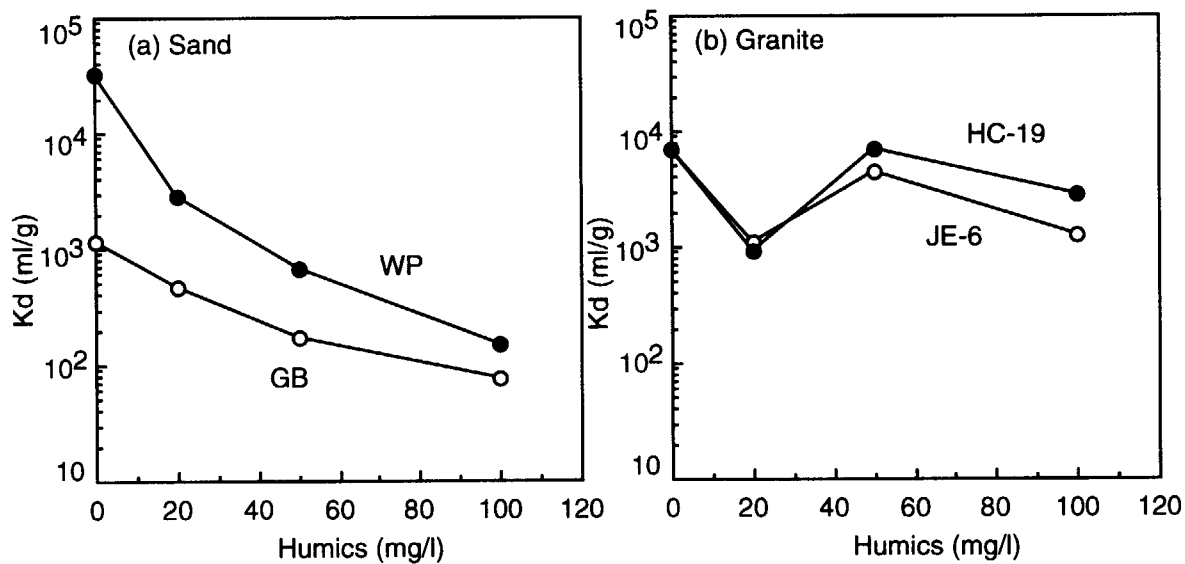


Fig.4-5 Distribution coefficient of Pu in the presence of groundwater humus onto sand and granite.

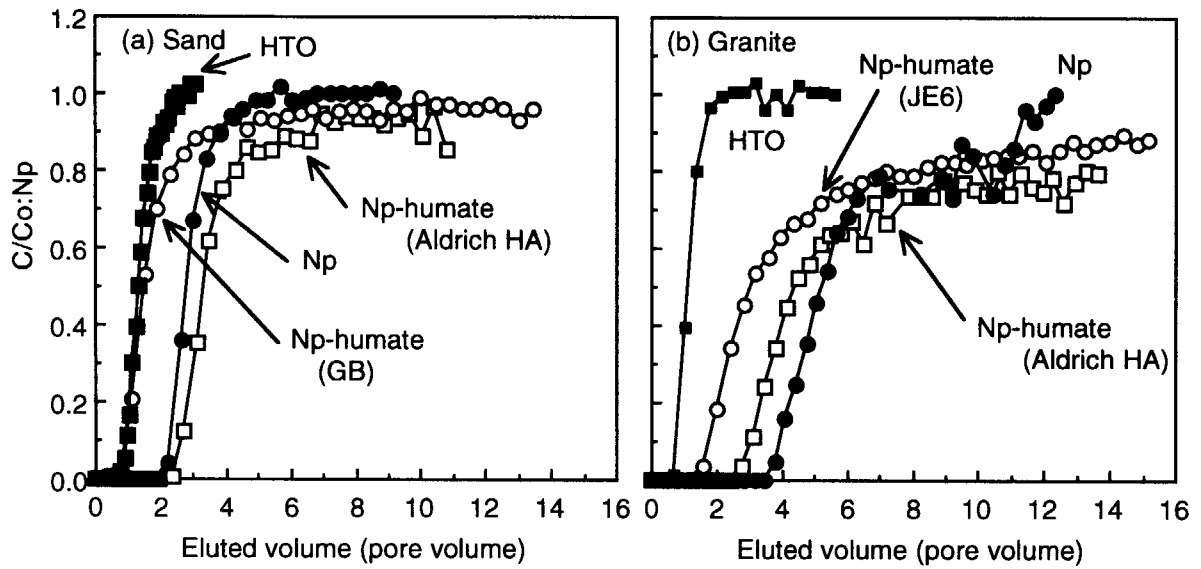


Fig.4-6 Elution profiles of Np in the absence and presence of groundwater humus from the column packed with sand (a) and granite (b).

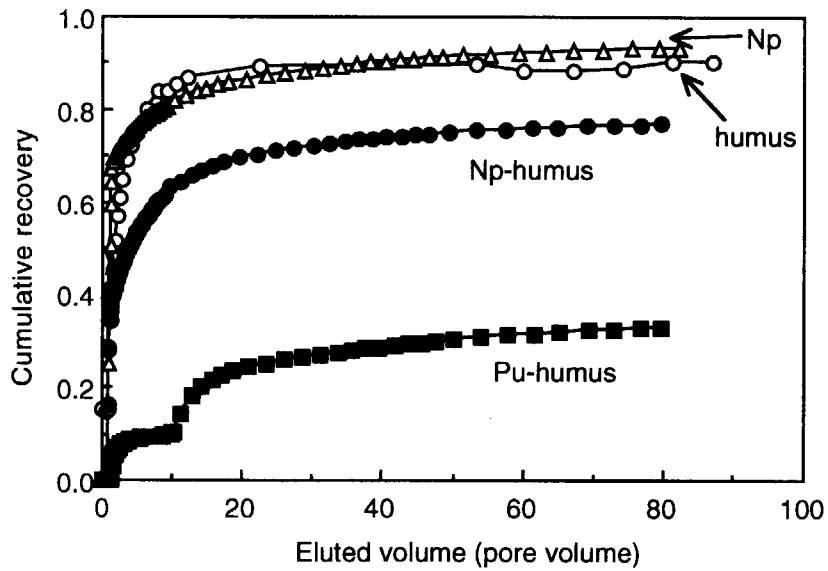


Fig.4-7 Elution profiles of Np (a) and Pu (b) in the presence of groundwater humus from the Glass Block site aquifer.

5. 環境同位体による地下水流動の研究

処分安全研究室 向井雅之
陸域環境研究グループ 熊田政弘

5.1 はじめに

放射性廃棄物を地下深部に埋設処分する場合、地表から地下深部における広域かつ長期間にわたる地下水流動を評価の対象とする必要がある。広域地下水流動は、地下水の階層的な流動系のうち、最も流れの長さ及び時間のスケールが大きい地域流動系(Regional flow system)に相当する(Fig.5-1)。地域流動系は、大規模な高透水性・不透水性の地質構造の影響を受けながらも地形の起伏に従い、涵養域(Richarge area)、中間域(Intermediate area)、流出域(Discharge area)を通過する地下水循環が比較的顕著であるため、多くの地下環境下で確認できる場合が多い。

地下水流動を求める方法は2つのアプローチに大別される。1つは、ダルシー則に基づき対象サイト内の地下水の水頭と地層の透水係数の空間分布を求め、物理法則に基づいて地下水の流動分布を求めるもので、分析・統合的なアプローチである。この方法は、流動を支配するパラメータを直接取り扱うことで、サイト全域をカバーできる数学的な流動モデルを作成でき、移行計算を実施するためのツールとなる。もう1つは、地下水の流れに追従するトレーサ(人工及び環境トレーサ)の動きを調べ、地下水が実際に流動した結果から流速を求めるもので、実証試験的なアプローチといえる。この方法は、水頭と透水係数が空間の1点の瞬間値を記述するパラメータであるのに対し、トレーサが移動した距離と経過した時間に生じた変化に対応した値が得られる。環境トレーサの中でも環境同位体を使った場合には、現在までの長期間の地下水の流動が同位体の濃度、同位体間の比の分布に反映されるため、長期間の平滑化された地下水の流動を推測することが可能である。また、流動モデルの入力パラメータである水頭と透水係数の値の妥当性を評価することにもつながる。これら2つの手法が互いに補いあうことで広域地下水流動調査のような課題に対し、信頼性の高い評価を行うことができる。

環境同位体は、それぞれが有する性質が異なり、広域の地下水流動の特性や滞留時間等の適用範囲毎に用いる同位体を選択することができる。このため、これまでの環境同位体を使用した調査・研究は、課題となるサイトや流動系に適用できる同位体を限定して行われてきた。そこで本研究では、適用できる時間スケールが異なる数種類の同位体を用い、個々の同位体の適用性とその範囲を調査し、複数の同位体で広範囲な流動域の地下水流動特性の検討を行った。このためには、地下水の流動が地形の起伏と一致する透水性の高い少数の亀裂に支配され、地下水の流動が涵養域、中間域、流出域に明瞭に区別しやすい地域が必要であり、今回対象としたカナダのサイトは上記の条件を満たした地域である。また、地質年代の古い岩石で構成されているため、同位体を用いた地下水の滞留期間、地下水と岩石の相互作用、地下水の起源等を明らかにする手法の調査にも適している。一方、日本のサイトでは、水の起源により同位体の濃度や同位体比が異なる特性を活用し、地表近傍での地下水の水平方向への流動が卓越しているサイトを対象に ^3H 、 ^{14}C を用いて調査を行い、地下水流動特性の1つの指標となる地表水と地下水との混合状況を調べた。

5.2 地下水の研究に適用される環境同位体

地下水の流動調査に用いられる環境同位体には、地表から供給され壊変により減少して行く放射性の ^3H ($T_{1/2}=12.3$ 年)、 ^{14}C (5730年)、 ^{36}Cl (3.1×10^5 年)、 ^{129}I (1.6×10^7 年)、地中で放射壊変などにより生成される ^{40}Ar 、 ^4He のような希ガス、安定同位体のD、 ^{18}O 、 ^{87}Sr などがあり、それぞれの地下水の滞留時間、地下水と岩石の相互作用、地下水の起源の研究に適用される。それぞれの同位体の特徴は以下の通りである。

① ^3H 、 ^{14}C

大気圏で生成され、降水とともに地中に浸透する。 ^3H は供給濃度が低いため、過去の大気圏における原水爆実験に伴う高濃度の供給ピークを追跡する方法が適用されている。半減期の短い ^3H は100年程度の滞留時間の調査に限定される。

② ^{36}Cl 、 ^{129}I

大気圏上層で生成され、海水起源のものと混合し降水として地下に浸透する。塩素、ヨウ素は吸着性が低く、比較的長い半減期に従って濃度あるいは同位対比が減少する。このため、地中で ^{36}Cl 、 ^{129}I の生成がない場合には減少の程度から滞留時間を求める有力なツールとして使うことができ、特に ^{36}Cl についてはいくつかの調査例が報告されている^(1,2)。半減期の長い場合には、 10^7 年程度の非常に古い地下水への適用可能性がある。

③ ^{40}Ar 、 ^4He

不活性であるため、化学変化することなく岩石に蓄積され地下水中に放出される。地下水中濃度の増加する様子は、岩石中からガスが放出される機構に密接に関連しており、それらは岩石と地下水との様々な相互作用により変化する。

④D、 ^{18}O

地下で変化することなく、降水の浸透時におけるH、 ^{16}O との同位体比を保つ。これらの同位対比は、絶対比ではなく δ 値(ある標準試料の同位体比からのずれの相対値を千分率で表したもの：単位permil)で表す⁽³⁾。浸透時の気候が寒冷になると δ 値が小さくなる(水素、酸素中のD、 ^{18}O の割合が小さくなる)ため、これらの同位体は、地下水の起源となる降水温の指標となる。

地下水の滞留時間の研究に関しては、100年程度の滞留時間に用いる ^3H から、 10^7 年程度の非常に古い地下水に用いられる ^{129}I まで、同位体の半減期及び測定精度に応じて同位体が選択される。

5.3 カナダのサイトにおける研究

5.3.1 サイトの位置と地質

カナダのサイトの位置及び鉛直断面をFig.5-2に示す。サイトは、マニトバ州ウィニペグの北東約100kmに位置し、カナダ中央部に分布するカナダ盾状地の周縁部に建設された地下実験施設(URL)及びその周辺域である。URLはカナダ盾状地上に載るラク・ド・ボネ花崗岩体中に掘削されている。この花崗岩は約26億年前に形成され、斜行する複数の亀裂帯(Fracture Zone)の存

在で特徴づけられる。また、地表から上部亀裂帯までは、鉛直方向の節理が顕著に存在し、深部の灰色の花崗岩と比較して透水性が高くなっている。地形は、URL周囲の標高が高く、北北西方向の湿地帯に向かって緩やかに下る傾斜面上になだらかな複数の起伏が存在する地形となっている。亀裂帯は、上からFZ3、FZ2、FZ1と名付けられた3つの顕著なもの、その間の副次的なものが同一方向に走っている。URLはFZ2とFZ3を貫いて、深度420mまで掘削されており、深度240mと420mに実験室などの施設を有する水平坑道が建設されている。

5.3.2 地下水試料と同位体の測定方法

調査に使用した地下水試料は、深度240mと420mの水平坑道内及びURL敷地内に掘削されたサンプリング孔から、流動系が偏らないように30カ所を選択し、陽イオン、陰イオン、微量元素、環境同位体などの測定項目別にボトルに採取した。

^3H 濃度は、地下水試料に直接、液体シンチレーションカクテルに混合し、低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタにより測定した。地下水中の無機形 ^{14}C 濃度は、重炭酸及び炭酸形 ^{14}C を炭酸ストロンチウムとして沈殿させた後、真空ライン中で炭素を分離精製し、液体シンチレーションカクテルに捕集したものを測定した。 ^{14}C は大気圏で生成され、ほぼ一定の $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比で地下水に供給されるが、亀裂内に存在する ^{14}C 濃度の非常に低い炭素を含む炭酸塩鉱物との交換反応により、壊変で減少する以上に ^{14}C 濃度が低くなる。本研究では、炭酸塩鉱物との交換反応の影響を補正するため、交換反応速度が ^{12}C 、 ^{13}C 、 ^{14}C で大幅な違いがないという前提で、降水及び炭酸塩鉱物の $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比が異なっていることを利用し(1)式で補正した値を地下水中の濃度とした⁽³⁾。

$$C = C_m \times (\delta_R - \delta_0) / (\delta_R - \delta_S) \quad (1)$$

ここで、Cは補正後の ^{14}C 濃度、 C_m は ^{14}C 濃度の測定値、 δ_R は岩石中炭素の $\delta^{13}\text{C}$ 値、 δ_0 は涵養時の地下水の $\delta^{13}\text{C}$ 値、 δ_S は地下水試料の $\delta^{13}\text{C}$ 値である。涵養時の地下水の $\delta^{13}\text{C}$ 値は土壌を通過することにより土壌の $\delta^{13}\text{C}$ を反映するため、本研究では現場での測定値から、涵養される水の $\delta^{13}\text{C}$ 値として-25permilを用いた。

希ガスのHe及びArは、地下水試料採取に銅管を用い、試料採取後銅管両端をクランプ締めして、測定までの溶存ガスの散逸を防止した。地下水中のHe及びArガスは両者の沸点の違いを利用して分離し、活性炭を充填したガラス管内に捕集させた後、ガスをガス質量分析装置に送り込み、He及びAr濃度を測定した。

^{36}Cl 濃度は、地下水に硝酸銀を添加することにより沈殿させた塩化銀を回収し、チョークリバー研究所の加速器質量分析装置により測定した^(4,5)。

^{129}I については、陰イオン交換樹脂(Dowex AG 1-X8, 100-200mesh)を充填したカラムに地下水を通過させ、実験室にてヨウ素の抽出・精製の化学操作により測定試料のAgIを作成した後、⁽⁶⁾もチョークリバー研究所の加速器質量分析装置により測定した^(4,5)。地下水中のヨウ素濃度が低いため、陰イオン交換樹脂(Dowex AG 1-X8, 100-200mesh)を充填したカラムに地下水を通過させ、実験室にてヨウ素の抽出・精製の化学操作により測定試料のAgIを作成した⁽⁶⁾。

水素と酸素の δ 値は、原研東海研究所の分析センターの真空ラインにて、酸素は CO_2 平衡法、水素は白金触媒法で試料を作成し⁽⁷⁾、ガス質量分析装置により測定を行った。

5.3.3 ^{14}C 及び ^4He を用いた涵養域地下水の浸透状況の把握とその適用性

3つの流動域のうち涵養域は地表に供給された降水などが地下に浸透する地下水流動系の起点に相当する。涵養域では ^{14}C により2万年程度までの地下水の滞留時間の推定と、 ^4He による浸透水の追跡調査の適応性を検討した。

Fig.5-3は ^{14}C による滞留時間の補正後の値と地下水を採取した深度との関係を示したもので、地下水が属する流動域ごとに異なる記号を用いて表している。このうち、亀裂帯の相対的に浅いFZ1地下水は(Na,Ca) HCO_3 型、相対的に深いFZ2及びFZ3地下水は(Na,Ca)Cl型と特徴づけられる。

Fig.5-3から浸透域の地下水(Richarge waters)は、深度が深くなるにつれて滞留時間が直線的に増加する。この傾きは浸透域における地下水の浸透速度を表しており、年あたり20mmの値が求められた。涵養域よりも深い(Na,Ca) HCO_3 型及び(Na,Ca)Cl型のFZ watersは、亀裂内の岩石との接触時間が長いため、(1)式の分母が小さくなり十分な精度で補正を行えないため、滞留時間と深度との明瞭な関係を見いだすことはできなかった。このことは、(Na,Ca) HCO_3 型の水で大部分が占められるFig.5-3中の1で示した領域の地下水が-16~-20permilの軽い $\delta^{18}\text{O}$ 値を有していることから、降水温が低い氷河期の浸透水起源と考えることができる。

さらに深い地下水の調査を行う手法としてHeを使用した調査を行った。HeはU、Thの壊変にともなう α 線起源で生成される。また、Heは安定同位体で希ガスのため物理的、化学的に安定である。 ^{14}C と同様に縦軸に深度を取り、地下水中のHe濃度の分布を流動域別に表したのがFig.5-4である。深度とともに涵養域から深部まで指数関数的に濃度が増加する傾向が見られ、地下水が流動する時間に対して1つの関数を設定することができる。そのため、He濃度を利用した滞留時間の相対的な推定が涵養域より深い流動域まで適応できる可能性が示唆された。

5.3.4 He及びArを用いた地下水と岩石間の相互作用による流動域の区分

Fig.5-4における深度に対するHe濃度の増加についてさらに検討を進めるため、Heと同様に地中起源の希ガスであるArに着目した。採水した地下水が属する流動域ごとに異なる記号を用いて、He/Ar(HeとAr濃度の比)とAr濃度との関係をFig.5-5に示した。

この図から濃度の変化に2つのトレンドがあることが分かる。Ar濃度が一定でHe/Ar比が増加するトレンド(以下Tr1)では、He濃度のみが増加している。地表で浸透する水として10°Cの地下水を仮定すると、そのHe/Ar比はおおよそ 10^{-4} 程度、Ar濃度は 4×10^{-4} ($\text{cm}^3/\text{ml H}_2\text{O}$)程度である。この値は、Tr1の最下端付近に相当する位置にプロットされるため、Tr1は浸透水と深部の亀裂帯中の地下水を直線で結ぶように分布している。Tr1に属する地下水は、涵養域の地下水により構成されている。一方のトレンド(Tr2)では、He/Ar比がほぼ一定の状態Ar濃度が増加している。これはHeとArとの比が一定の割合で増加することを示している。Tr2に属する地下水は、十分な接触時間が推測できる亀裂帯中の地下水により構成されている。

このような2つのトレンドは、地中におけるHeおよびArガスの生成機構及び地下水への移行過程に関連している。Fig.5-6に示したようにU、Th等から岩石内に生成されたHeガス及び ^{40}K から生成されたArガスは、岩石内の拡散、ガスの移行経路となりうる微細な亀裂中の移行、岩石の溶解の移行経路により地下水中に放出されると考えられる。

Tr1では、より移動性の高いHeが岩石内拡散により地下水中へ放出される一方でArガスは岩石中に留まったため、地下水中のAr濃度がほぼ一定の状態のままHe濃度の上昇が観測されたものと考えられる。Tr1で増加するHe濃度（約 $2 \times 10^{-3} \text{cm}^3/\text{mlH}_2\text{O}$ ）は、Tr2で観測されたHe濃度の最大値（約 $2 \times 10^{-2} \text{cm}^3/\text{mlH}_2\text{O}$ ）の10%程度と小さな割合である。このことから地表に浸透した降水は数万年で涵養域を鉛直方向に流動する間に、花崗岩中に保持されているHeの10%程度が地下水へ溶け込んだと考えられる。

一方、地下深部の亀裂内の地下水で構成されるTr2では、He/Ar比の測定値は約2であり、この値はURLの花崗岩内のU、ThおよびK濃度からHe及びArガスの岩石内生成速度を計算して求めたHe/Ar比（約3）とほぼ一致する。したがって、Fig.5-6に示した機構で岩石内で生成されたHe、Arガスは、深地下環境においては、岩石内拡散とは異なり、分子サイズの違いにより岩石内から地下水中への移行速度が影響されにくい移行過程を経て地下水中に放出されたため、一定のHe/Ar比を有する地下水が生じたものと考えられることができる。このような移行過程として、地下水との長期接触により増加する岩石の溶解による放出や時間の経過と共に増加する微細な亀裂を通じた移動などの移行経路が考えられる。

URLの420mレベルで採取した花崗岩を、難He透過性のガラス管中で加熱し、放出されたHeガス量から見積もった花崗岩内部のHe残存量は、岩石中のU、Th濃度及び岩石の生成からの時間から推定されるHeガス生成量の4%であった。これは、96%のHeガスが地下水へ移行する可能性を示している。つまり、Tr2でのHe濃度の増加は、深地下での岩石からのガスの放出割合に起因すると考えることができる。

以上のことから、地下深部の亀裂帯では、Ar濃度の上昇に長期間継続した岩石と水の相互作用が深く関わっており、Ar濃度あるいはHe/Ar比が相互作用の程度の指標として使用できることを示唆している。

5.3.5 ^{36}Cl を用いた地下水中の塩類の起源と滞留時間の推定法

中間域に相当する深地下の亀裂帯中における地下水に関しては、その水質形成過程や塩類の起源とともに、地下水の滞留時間の推定という課題がある。長期の滞留時間に対応するためには半減期の長い同位体を適用する必要があるが、半減期が 3×10^5 年の ^{36}Cl は 10^6 年オーダの地下水の滞留時間の推定に適用しうる同位体として注目されている。

Fig.5-7には、URL地下水中の ^{36}Cl 濃度と塩素($^{35}+^{37}\text{Cl}$)濃度との関係及び $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ (^{36}Cl と塩素濃度との比)と塩素濃度との関係を示した。この図から ^{36}Cl が塩素濃度の増加にともなって増加しているのが分かる。この傾向は、亀裂帯中の地下水(FZwater)で特に顕著である。また、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比との関係では、塩素濃度が増加するに従って、比がほぼ一定になり、塩素と ^{36}Cl とが相互に関連しながら深部亀裂帯中で濃度が増加する傾向が存在する。

URLの場合、降水により供給された ^{36}Cl よりも遙かに高い濃度が地下水中に観測されたことから、地中での ^{36}Cl の生成がほとんどであることがわかる。URLの中間域程度の深地下での ^{36}Cl の生成は、ウランなどから放出された α 線と岩石内のNa、Al、Si等の軽い元素との反応で中性子が発生し、この中性子と岩石に含まれる ^{35}Cl とが反応することで ^{36}Cl が生成される過程がほとんどを占める⁽⁸⁾。 ^{36}Cl は半減期に従って壊変してしまうため、長時間経過後には、 ^{36}Cl の生成速度

と壊変速度とが平衡になる。平衡時の ^{36}Cl と ^{35}Cl との比は、岩石中のUとTh濃度、 α 線のターゲットとなる軽い元素の濃度、 ^{35}Cl の濃度などの多様な因子と相関を持つ⁽⁸⁾。そこで、これらの因子を組み込んで平衡時の ^{36}Cl と塩素の比を求めた結果、50~100CLU(Chloride Unit、1CLUは ^{36}Cl 原子：塩素原子= 10^{-15} ：1の比を表す)の値が得られた。この値は、Fig.5-7中で塩素濃度が増加することによる ^{36}Cl と塩素の比に近い。このことから地下深部の亀裂帯中地下水の塩素の起源として、 ^{36}Cl と ^{35}Cl とが平衡化した塩素が想定できる。 ^{36}Cl と ^{35}Cl との比の平衡化には150万年かかるため、これらの起源となる塩素は最低で150万年程度地中環境に存在していたと考えられる。

5.3.6 ^{129}I を用いた深部地下水の滞留時間の推定手法

^{129}I は ^{36}Cl と同様に大気圏上部で生成されて降水とともに地表に供給され、 ^{36}Cl よりも長い半減期で減衰するため、より長い地下水の滞留時間に対応できる可能性がある。 ^{129}I についても ^{36}Cl の場合と同様に地下水中の ^{129}I 濃度とヨウ素濃度との関係及び $^{129}\text{I}/\text{I}$ (^{129}I とヨウ素濃度との比)とヨウ素濃度との関係をFig.5-8に示した。

^{129}I 濃度とヨウ素濃度との関係から、塩素と同じようにヨウ素濃度に関連しつつ ^{129}I 濃度が上昇している。しかしながら、 $^{129}\text{I}/\text{I}$ 比との関係においては、塩素の場合のように一定の同位体比へと平衡化する傾向は認められない。このことは、地下水中の ^{129}I の増加とヨウ素の増加との相関がないことを示している。この現象は特に深度の深い亀裂中の地下水[FZ waters (Na,Ca)Cl]で顕著であり、ほぼ一定のヨウ素濃度でありながら、 ^{129}I 濃度に変化が観測されたことに反映されている。

仮に、地中での ^{129}I の増加が地下水の滞留時間に依りて増加するメカニズムによるのであれば、地下水中の ^{129}I 濃度から滞留時間を求められる可能性が考えられる。 ^{36}Cl の場合と同様に、 ^{129}I の場合も降水により供給されたものより高い濃度が地下水中に観測されており、地中での生成がほとんどである。中間域程度の深地下での ^{129}I の生成は、 ^{238}U などの自発核分裂によるものが大部分を占めているとされる⁽⁵⁾。したがって、地中の ^{129}I には時間とともに増加する特性が備わっていると同時に、 ^{36}Cl の場合と異なり軽い元素の濃度やターゲットの安定塩素の濃度など、複雑な過程を経ずに生成される。このため、岩石中から地下水中への ^{129}I の移行係数(emanation efficiency)をパラメータとして仮定することで、 ^{129}I 濃度から地下水の滞留時間を推定する比較的単純なモデルを考えることができる。

地中におけるヨウ素の生成をモデル化し⁽⁸⁾、地下水中のヨウ素濃度と滞留時間との関係を、いろいろなemanation efficiencyに対して計算してまとめたのがFig.5-9である⁽⁶⁾。計算に必要なウラン濃度、岩石の比重等の値はURLにおける平均的な値を用いた。花崗岩の年齢が2億年以上と非常に古いことから花崗岩内の ^{129}I 濃度は平衡と見なすことができる。この手法で不確定なパラメータはemanation efficiencyであるが、 ^{14}C を適応した手法で求めた滞留時間と比較することでその値を推定することができる。Fig.5-9中のaで示した範囲は氷河期起源の水を示しており、このうち地下水サンプルHC14-2の滞留時間が15000年と推定されている。この値を使うとemanation efficiencyは0.5となり、Stripa花崗岩について推定されたemanation efficiencyの値0.06~0.5⁽⁹⁾の上端に相当する。emanation efficiencyとして0.5を仮定した場合には、図中の1に属する深い深度の亀裂中の地下水の滞留時間は 10^6 ~ 10^7 年であると推定される。また図中

の2は比較的浅い亀裂帯中の地下水を示しており、 10^5 年前後の滞留時間であると推定される。このことから、深部亀裂帯中の地下水が上部亀裂帯中の地下水に比べ移行性が非常に低く、長期間滞留していると言うことができる。

5.4 日本のサイトにおける研究

5.4.1 サイトの位置及び地下水サンプル

日本におけるサイトは、関東平野北西部、栃木県今市市にある今市扇状地である(Fig.5-10)。ここは日光山地から流下した大谷川が創った扇状地であり、西北から東南に向かって傾斜している。サイトは、砂層、礫層、シルト層の堆積層が深度は50m内外の基底岩上に堆積した地層である。扇状地では透水性の高い堆積層に沿って地表面に平行に地下水が流動しているが、降水や深部の地下水の混合状態は上流部と下流部で異なることが想定される。このため上流部と下流部に1本ずつ掘削されたサンプリング孔から地下水を採取した。2本のボーリング孔は深度200m近くまで掘削されており、砂礫層中の水と基底岩中の水をダブルパッカー法で深度を区切って各5深度から採取した。調査に適応した同位体は ^3H 、 ^{14}C である。 ^3H 試料は低バック液体シンチレーションカウンタで、 ^{14}C 試料は、炭酸バリウムとして沈殿させたものを名古屋大学年代測定センターの加速器質量分析装置で測定した⁽¹⁰⁾。

5.4.2 調査結果

Fig.5-11は2つのボーリング孔から採取した地下水の ^3H と ^{14}C 濃度との関係を示したものである。各孔とも採水深度による濃度の違いは ^3H 、 ^{14}C ともに小さい。その一方で、IMHS孔の濃度はIMOS孔の濃度の半分ほどになっている。 ^{14}C 濃度が半分の水ならば滞留時間に約5000年の違いが存在し、IMHS孔の ^3H 濃度はほぼゼロでなければならない。IMHS孔の ^3H 濃度がゼロでないことから、数万年程度の水と降水との混合により地下水が形成されていると考えることができる。特に、IMOS孔では、現在の降水よりも ^3H 濃度が高いことから、1960年代の原水爆実験起源の成分が混合していることが考えられる。以上のことから、現在の降水、20~30年程度前の原水爆実験起源の成分が混合している水、 ^{14}C 濃度の非常に低い3万年以前の水の3種類の異なる起源の水を想定して、地下水の混合を検討した。地下水の水理ポテンシャルの鉛直分布から、IMHSでは2成分、IMOSでは3成分による混合とし、簡単なモデル計算を行った結果を模式的にFig.5-12に示す。この結果からIMOS孔における滞留時間の長い地下水の混合割合が10~20%程度あることが推定された。

5.5 結論

同位体を用いて地下水の流動、起源等を明らかにする手法の適用性を、カナダ及び日本のサイトにおける調査を通して検討した。

カナダでは、少数の透水性の高い亀裂に地下水の流動が支配され、涵養、中間、流出域が明瞭に区分されるサイトで、多様な同位体を用い、個々の同位体の適応性とその範囲を調査した。そして、 ^{14}C 、 ^3He により涵養域地下水の浸透速度を推定するとともに ^{14}C の適応限界を検討した。He、Arによる調査では流動域の区分と地下水と岩石間の相互作用の程度をHe/Ar比を指標にした明確化を行った。また、 ^{36}Cl による地下水中の塩類の起源とその放射壊変的平衡時間から塩類の滞留時間の推定を行った。さらに、 ^{129}I による深部地下水の滞留時間の推定手法について適応性を検討し、亀裂帯中地下水の滞留時間を求めた。

日本では、地下水の水平方向へ流動が卓越しているサイトで、 ^3H 、 ^{14}C を適用した地下水の混合状況の調査を実施し、起源が違う水の持つ同位体的特性の違いを利用することにより、地下水の混合割合を簡単なモデルで求められることを明らかにした。

これらのことから、調査対象となる流動域（涵養域、中間域、流出域）に適した同位体を用いて調査を行うことにより、水頭・透水係数による地下水流動状況を確認し、地下水流動モデルをより正確に構築するために有用である浸透速度、滞留時間、混合率のようなパラメータについて実証試験的な値が得られることを明らかにできた。

参考文献

- (1) Mazor, E.: Applied Chemical and Isotopic Groundwater Hydrology. Open University Press, Buckingham (1991).
- (2) Bentley, H. W., Phillips, F. M., Davis, S. N., Habermehl, M., Irey, P., Calf, G. E., Elmore, D., Gove, H. and Torgerson, T.: Water Resour. Res., **22**, 1991 (1986).
- (3) Phillips, F. M., Bentley, H. W., Davis, S. N., Elmore, D. and Swanick, G. B.: Water Resour. Res., **22**, 2003 (1986).
- (4) Cornett, R. J., Andrewa, H. R., Chant, L., Chaput, T., Imahori, Y., Jirovec, J., Kramer, S., Koslowsky, V. T., Milton, G. W., Milton, J. C. D.: Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., **B117**, 436 (1996).
- (5) Cornett, R. J., Chant, L., Andrews, H. R., Davies, W. G., Greiner, B. F., Imahori, Y., Koslowsky, V. T., Kotzer, T. G., Milton, J. C. D., Milton, G. M.: Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., **B123**, 249 (1997).
- (6) Kotzer, T., Gascoyne, M., Mukai, M., Ross, J., Waito, G., Cornett, R. J.: Radiochim. Acta, **82**, 313 (1998).
- (7) Natural Barrier Laboratory (Ed.): Research on radionuclide migration under subsurface geochemical conditions -JAERI/AECL Collaborative Program Year 1-, JAERI-Research 98-066, 39 (1998).
- (8) Fabryka-Martin, J.: PhD thesis, University of Arizona, 400 (1988).
- (9) Fabryka-Martin, J., Davis, S., Elmore, D. and Kubik, P.: Geochim. Cosmochim. Acta, **53**, 1817 (1989).
- (10) 嶋田純：岩盤内地下水が水循環過程に及ぼす影響の定量的評価に関する研究、平成5・6・7年度科学研究費補助金(一般研究A)研究成果報告書 (1996).

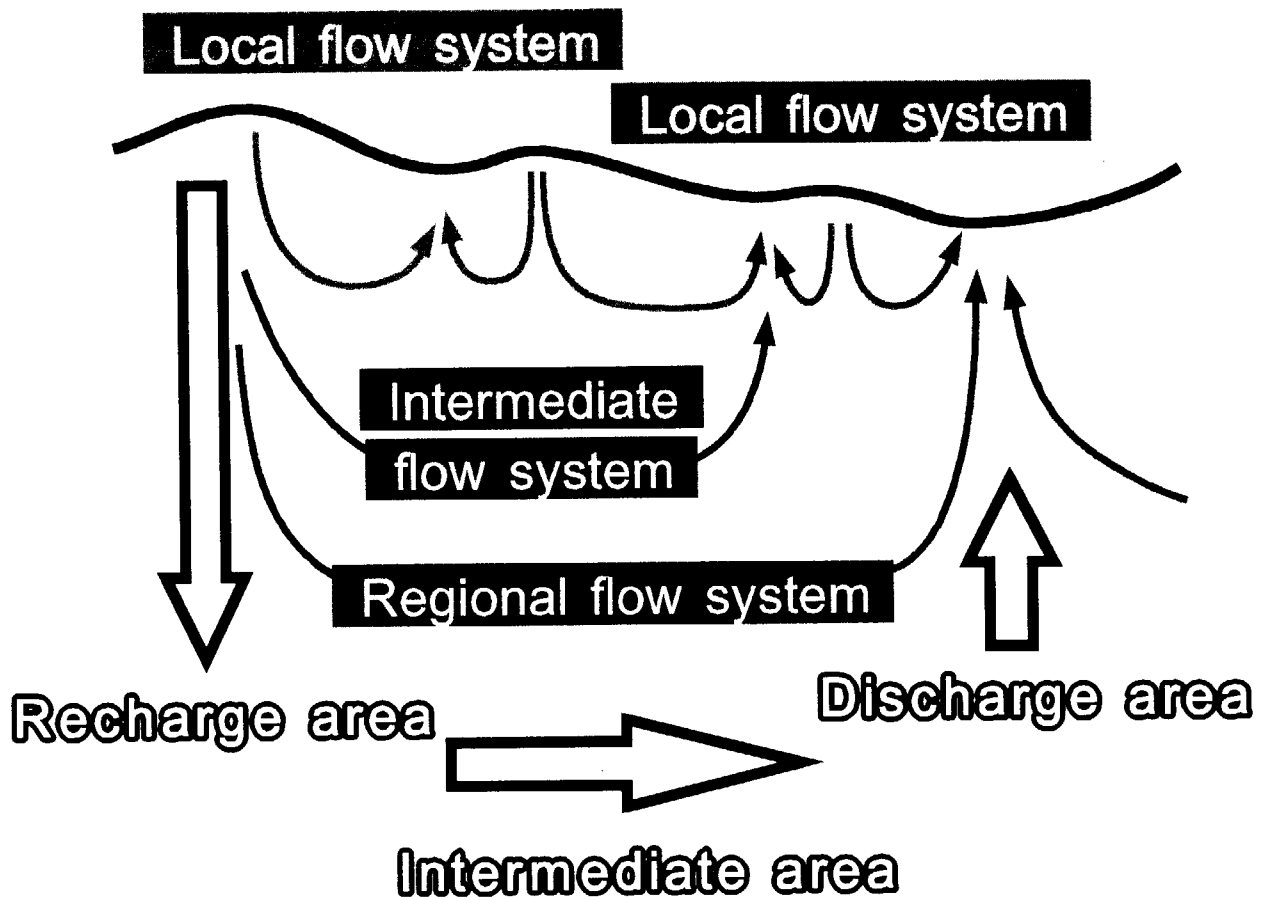


Fig.5-1 Schematic diagram of groundwater flow system in natural environment.

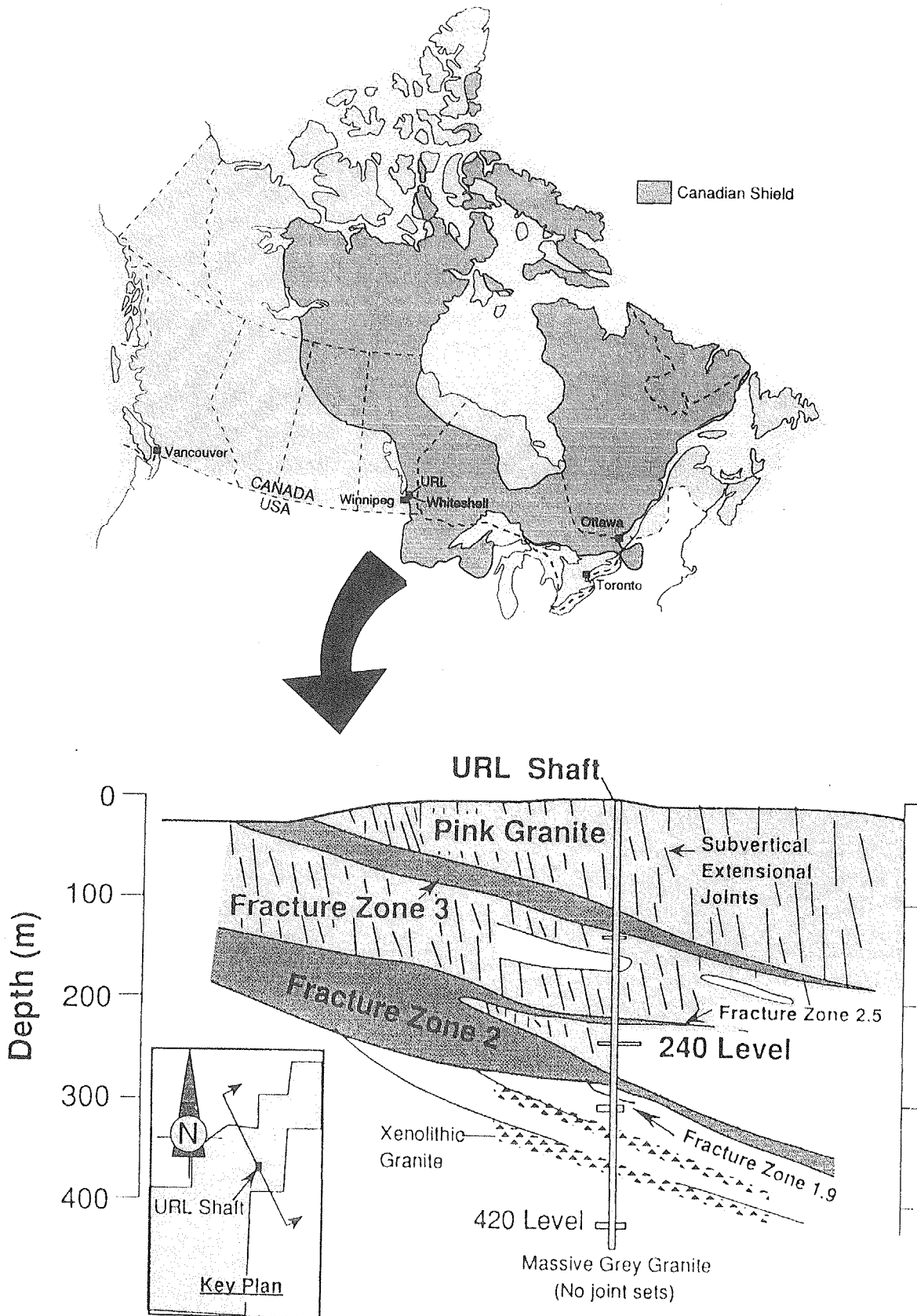


Fig.5-2 Location and vertical cross section of Canadian site.

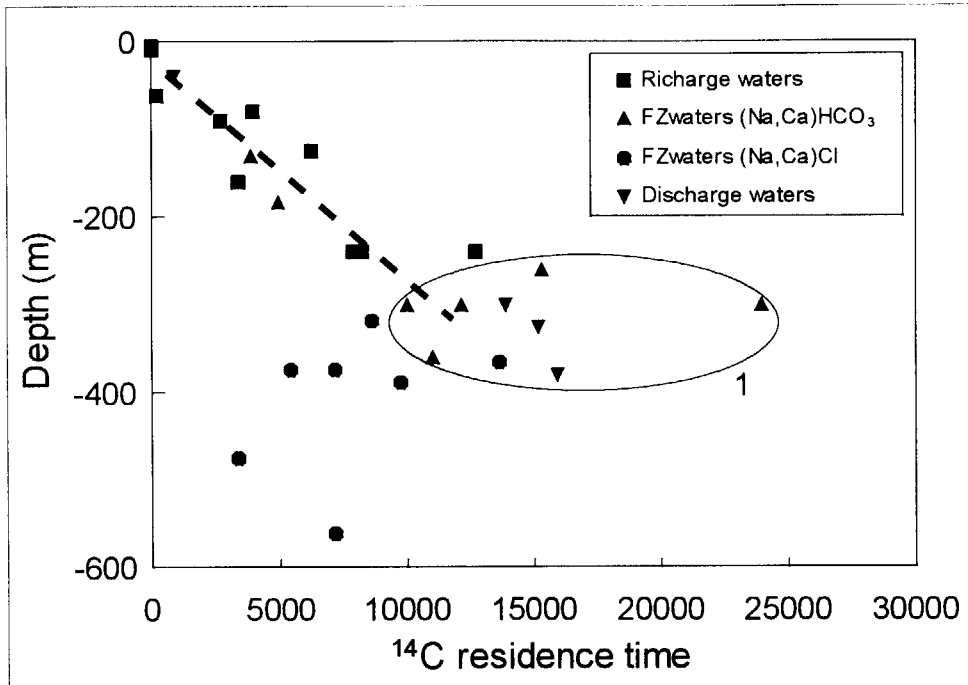


Fig.5-3 Relationship between residence time estimated using ^{14}C and depth of samples.

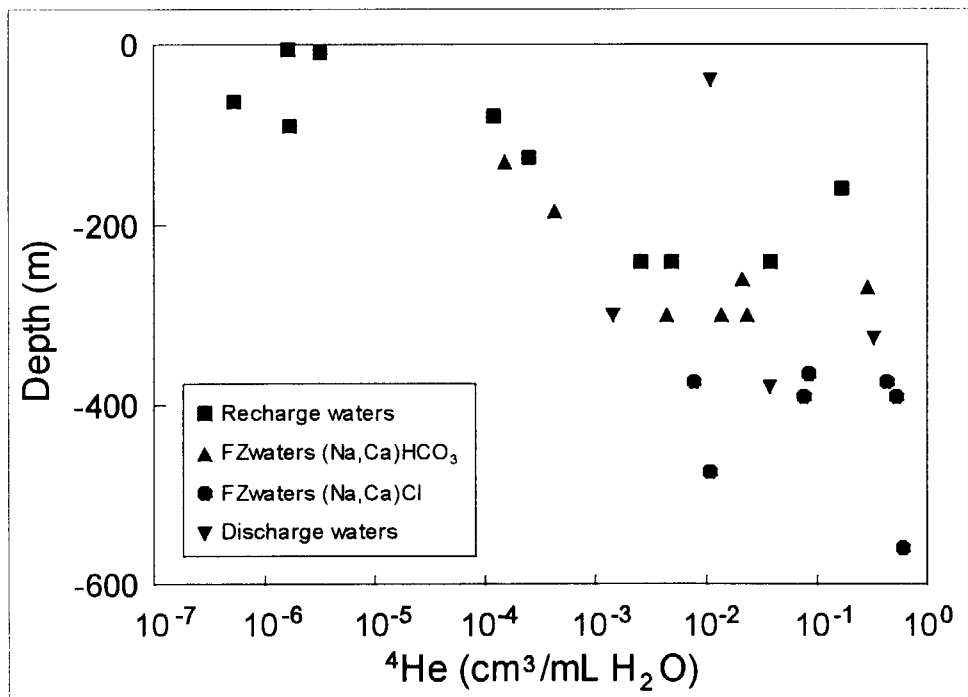


Fig.5-4 Relationship between ^4He concentration in groundwater samples and depth.

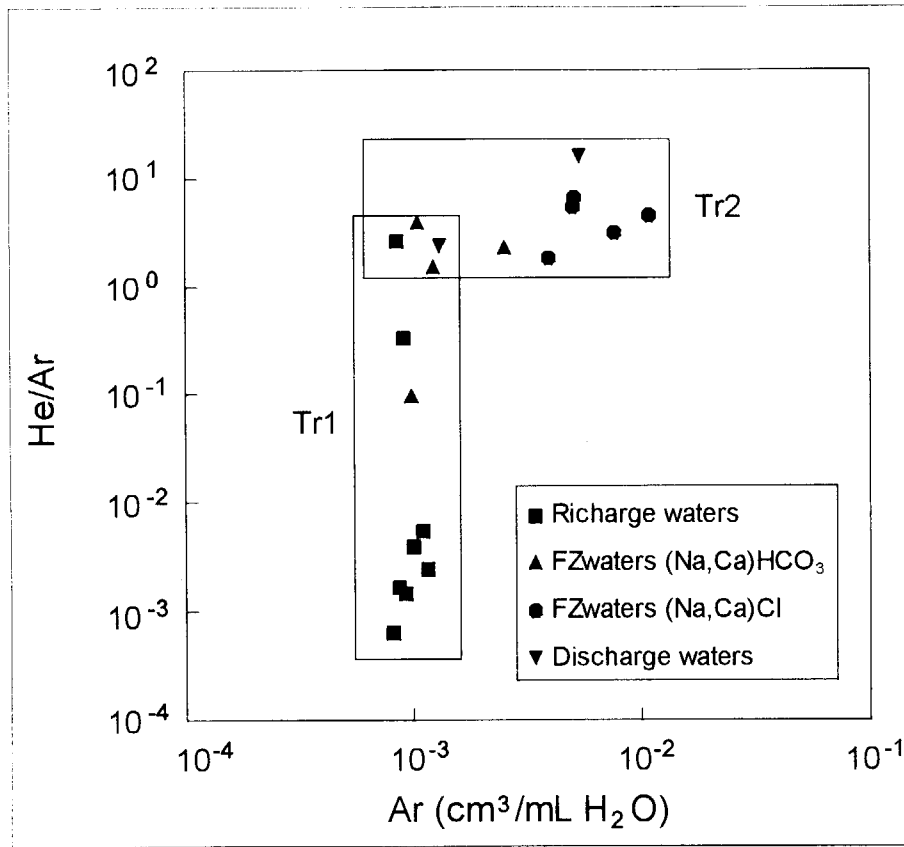


Fig.5-5 Relationship between ratio of He concentration to that of Ar (He/Ar) and concentration of Ar.

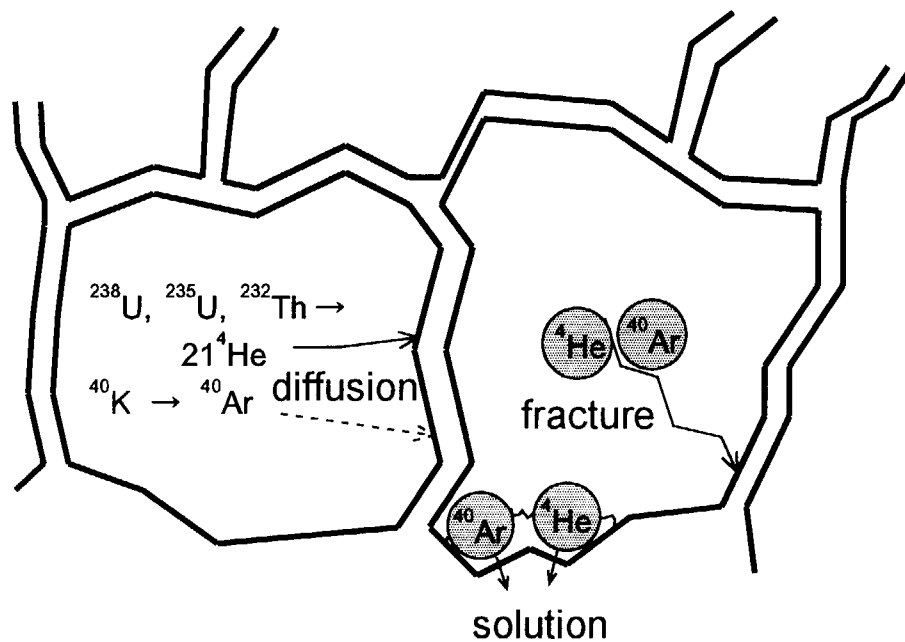


Fig.5-6 Process of ^4He and ^{40}Ar generation and their transfer to groundwater in underground environment.

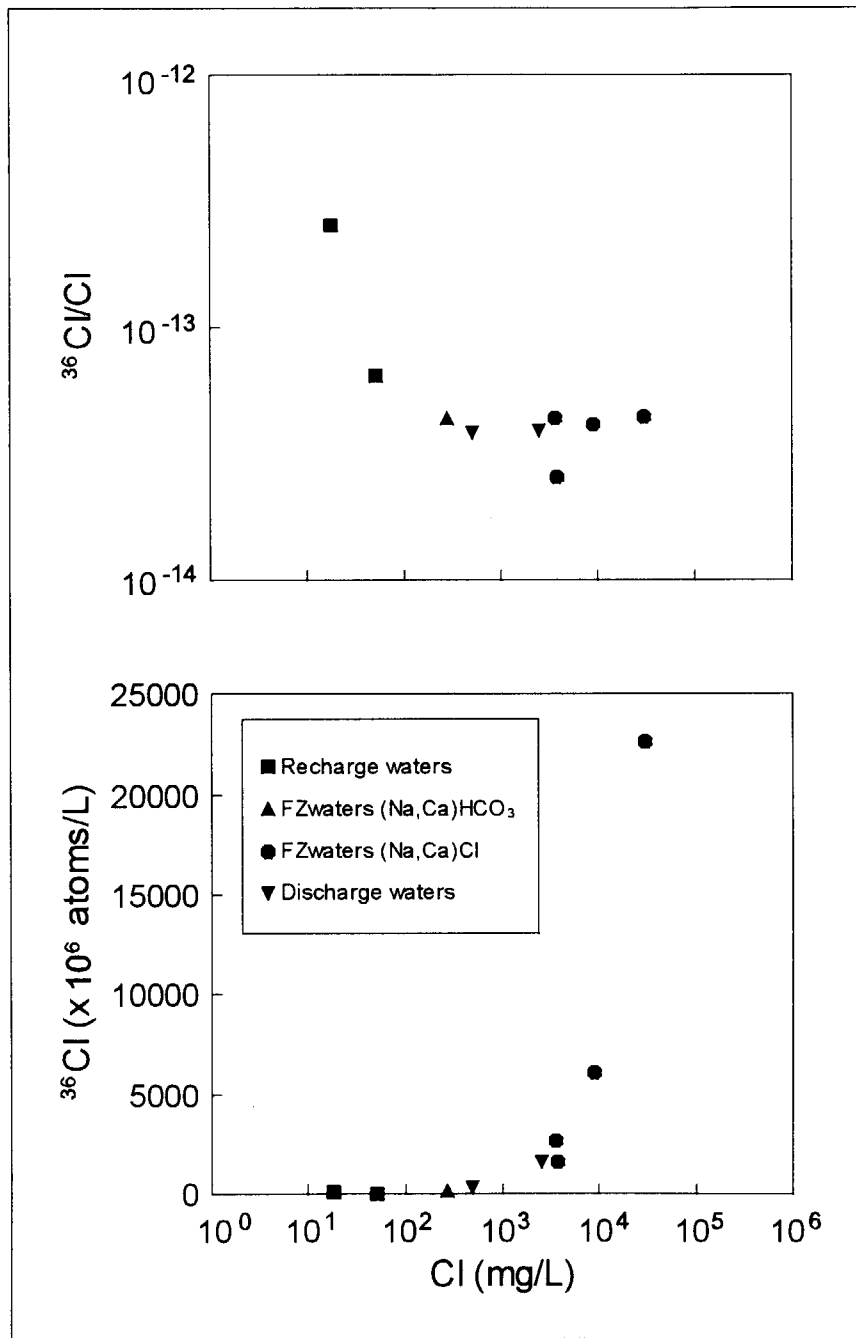


Fig.5-7 Relationship between ^{36}Cl and Cl concentration in groundwaters, and between ratio of ^{36}Cl to Cl ($^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$) and Cl concentration in groundwaters.

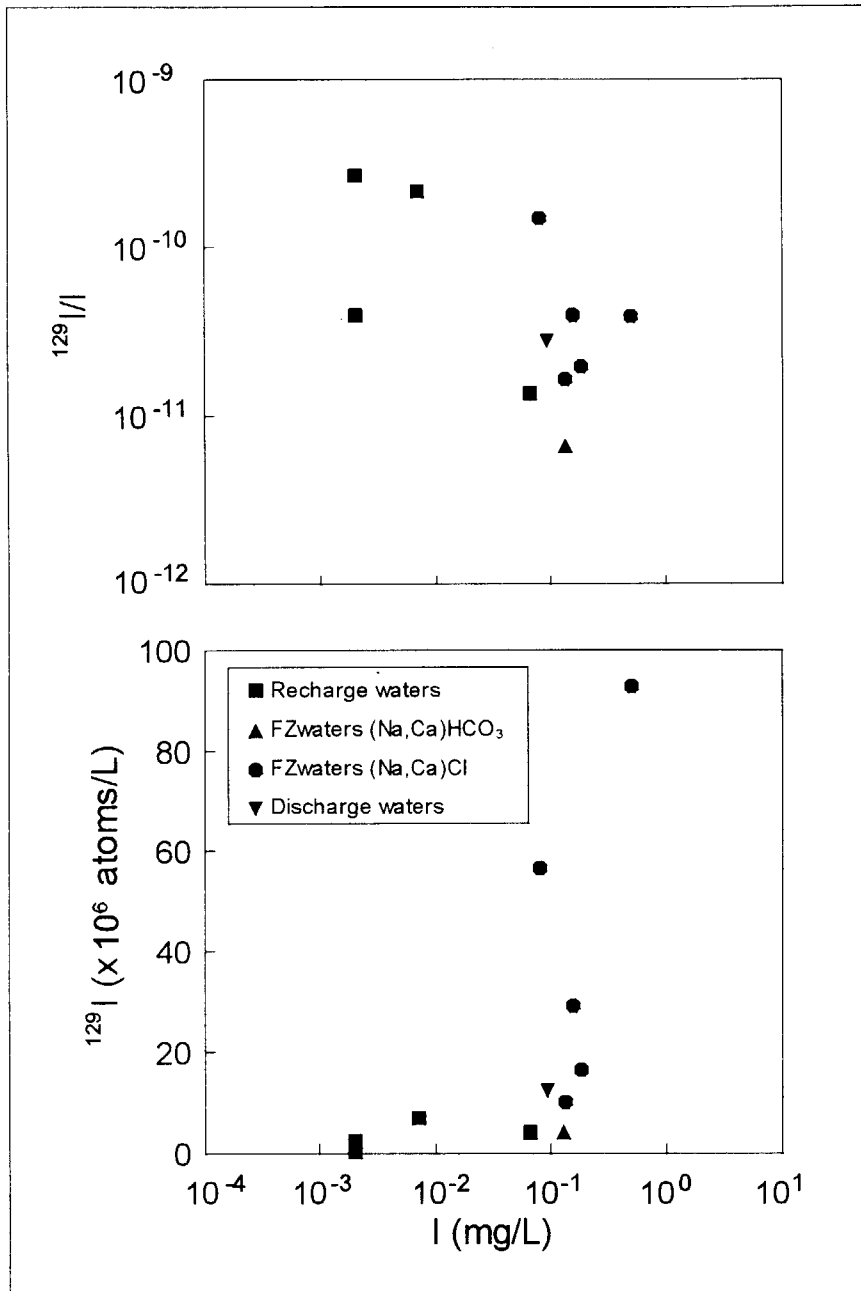
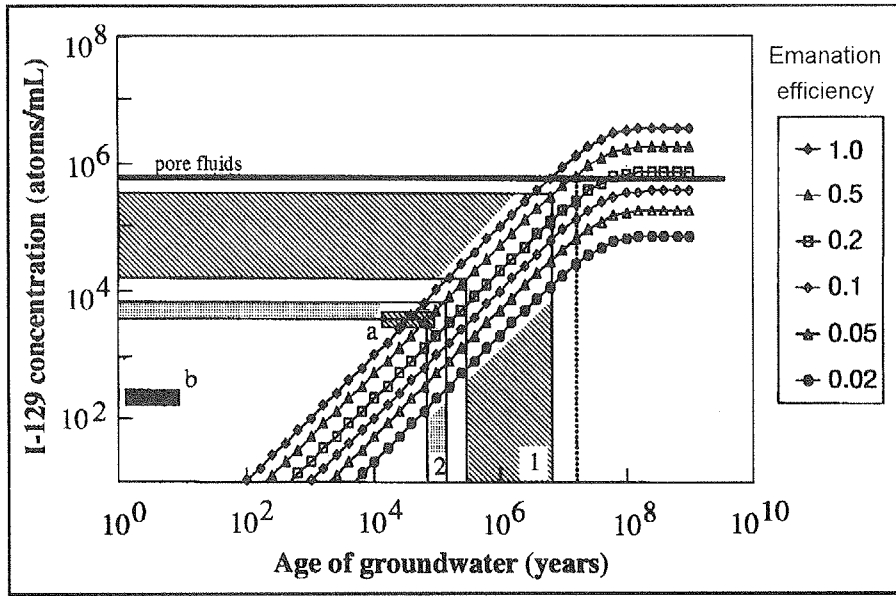


Fig.5-8 Relationship between ^{129}I and I concentration in groundwaters, and between ratio of ^{129}I to I ($^{129}\text{I}/\text{I}$) and I concentration in groundwaters.



- 1: (Na,Ca)Cl waters in fractures in deeper and more central portions of the Batholith
- 2: (Na,Ca)HCO₃ waters in shallower fracture systems
- a: Sample HC14-2, groundwater of glacial origin
- b: Sample O-118-2, recent surficial recharge waters containing anthropogenic ³H and ¹⁴C

Fig.5-9 Relationship between residence time of groundwater and ¹²⁹I concentration calculated with various values of emanation efficiency.

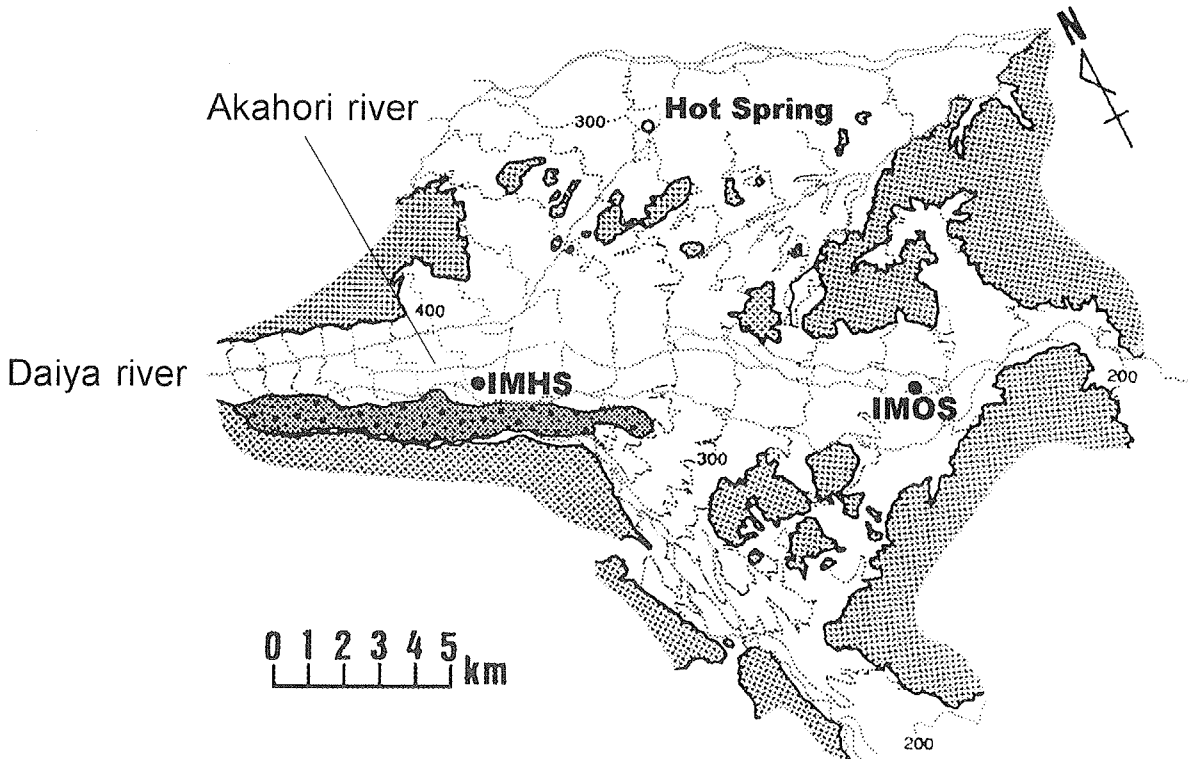


Fig.5-10 Location of boreholes in Japanese site.

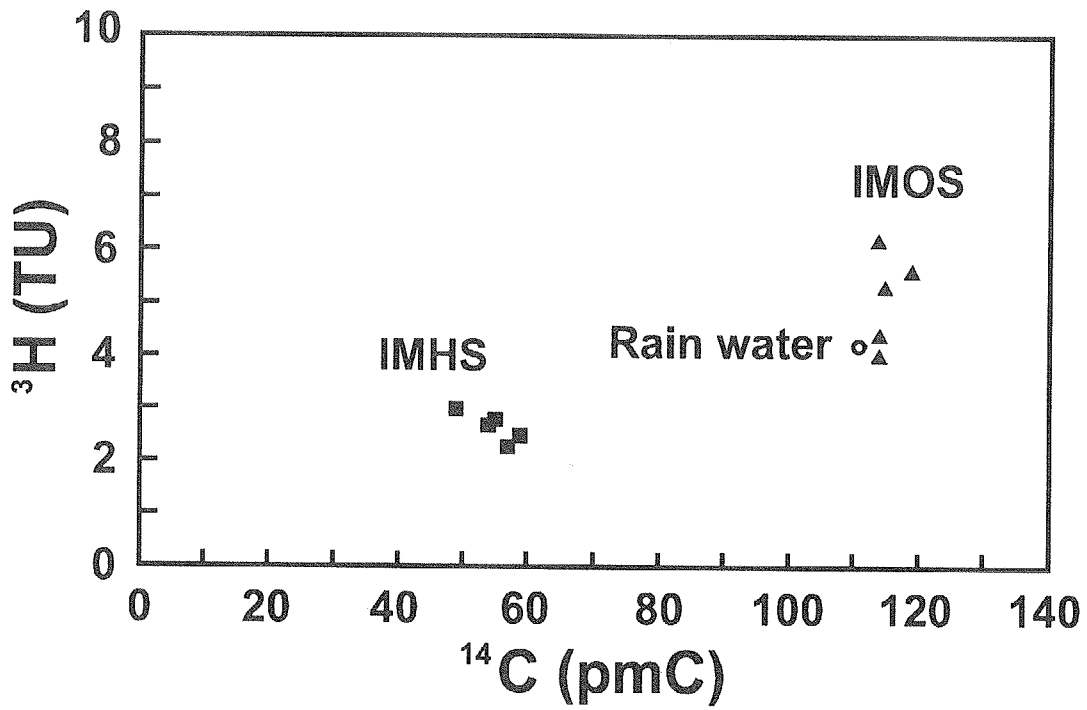


Fig.5-11 Relationship between concentration of ^3H and ^{14}C in groundwater samples taken from IMHS and IMOS boreholes.

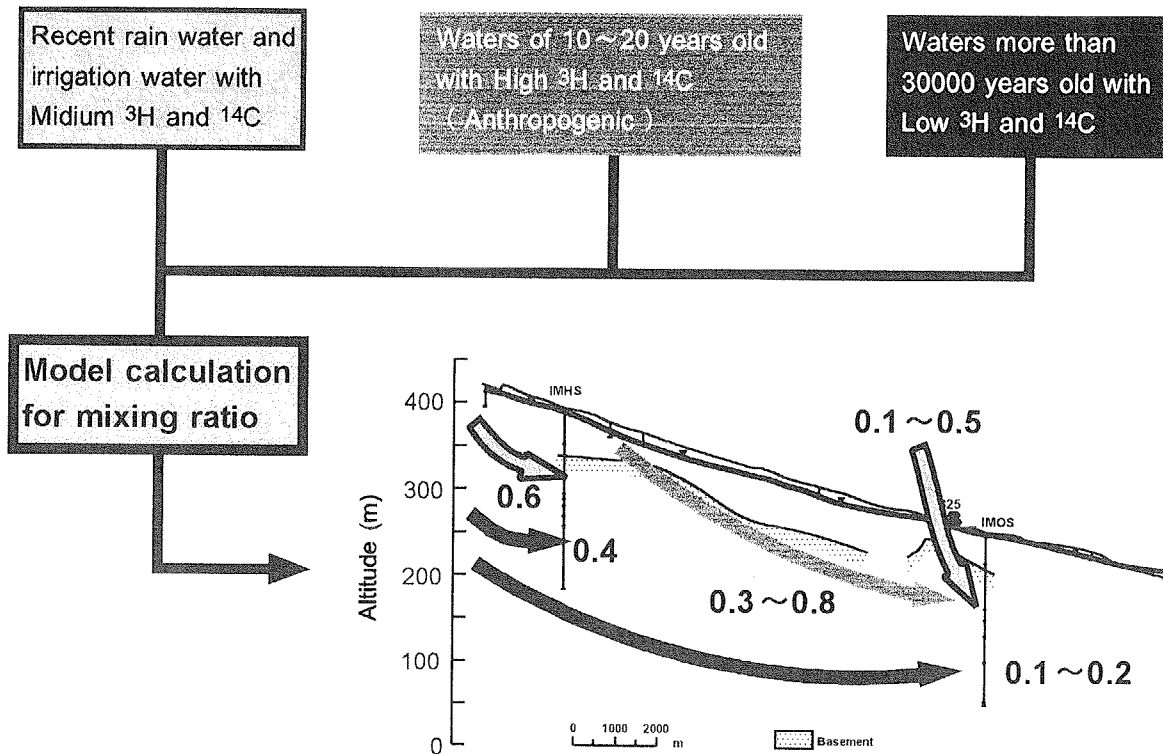


Fig.5-12 Schematic illustration of calculation and result of groundwater mixing model.

6. 地下水の流れおよび核種移行に関する研究

廃棄物安全評価研究室 宗像雅広、武田聖司、木村英雄

6.1 はじめに

地下水の流れおよび核種移行に関する研究では、地質媒体中での地下水流および核種移行のモデル化を行うことを目的に協力研究を進めた。モデル化を行う際に基本的に重要な点は、流れと移行に関わる様々な物理パラメータの定性的理解と定量化である。地下水の流れと核種移行に関わるパラメータは、地質媒体に関して、土の成分構成・形状・密度・圧縮率、間隙率、分配係数等があり、地下水に関しては流体の密度・粘性・圧縮率、水頭圧、拡散係数、分散長等が考えられる。これらの内、透水係数は流れと核種移行に大きく影響するパラメータである。原位置試験において測定される透水係数は、測定する位置によって大小様々に変動しており、これはパラメータの空間的不均質分布特性と考えられている。地下水流動解析を行う際には、この空間的不均質分布特性の取り扱い方で地下水流速の評価結果が大きく変動する可能性がある。さらに、地下水流速に大きく依存する核種移行現象も同様に影響を受ける。このため、地層処分安全評価における地下水流および核種移行モデルの妥当性検証のために、地層パラメータの不均質分布特性を適切に評価することが重要となる。

地下水流解析を実施する場合、透水係数などのパラメータを決定する方法としては、原位置や室内試験での測定データ等を参考に平均値や最頻値を採用する方法、専門家による工学的判断による方法等がある。地層処分安全評価においては、保守的結果を導くとの観点から、測定データの最大値や 95%タイル値をとる方法によりパラメータを設定している。これらの決定手法では、地層モデルの簡単化のために一つの地層中でのパラメータの値は一定、つまり空間的に均質に分布していると仮定している。そのため、空間的なパラメータ値の不均質分布の影響を考慮した安全評価は行われていない。多数のボーリング調査、原位置試験、サンプリング試料による室内試験等を行うことで、空間的なパラメータの不均質分布を表現できる詳細な地層モデルを構築することは可能ではあるが、必要なデータ数を得るためにかかるコストや解析に伴うコストを考えると現実的ではない。

近年、地下水の流れや核種移行の数値解析的研究において、透水係数などのパラメータの持つ不確かさが及ぼす影響について確率論的枠組みの中で評価する研究が報告されている⁽¹⁾。また、地質統計学の分野で応用が試みられている Conditional Simulation は、不十分な数のボーリング調査の結果から鉱脈の全体像を推定する等に用いられてきた。最近では、透水係数等のパラメータの空間的分布特性を評価する際にも適用されている⁽²⁾。これらの研究成果を踏まえ、今後の地層処分に関する核種移行評価研究を進める上で、地下水の流れと核種移行に関するパラメータの空間的不均質分布特性を評価する手法の開発、および不均質な地層中での流れと核種移行モデルの開発と妥当性検証が重要である。

AECL では、これまでに自然帯水層中において数 m から数百 m スケールの一連のトレーサ

一試験、およびサイト周辺域でのボーリング調査を実施した。チョークリバー研究所敷地内の Twin Lake 下流側の領域において実施された放射性核種を用いた野外トレーサー移行試験 (Twin Lake トレーサー試験)^(3,4)では、地表面下 6~20m に位置するおよそ 10m 厚の砂質帯水層中にトレーサー(I-131)を注入孔より投入した後に、移行距離 40m 地点までの各観測孔での濃度経時変化を測定した。観測孔は水平方向に 2~5m 間隔で設置、鉛直方向には 0.1m 以内の間隔で測定を行った。各観測孔での水頭値、濃度および、採取された試料に対する粒度試験、透水性試験、物性値は Twin Lake データベースとしてまとめられた。

本協力研究では、これらの実験結果や地下水調査の結果を利用して、(I) 自然帯水層中での流れと核種移行に関するパラメータ評価手法の開発及び、(II) 流れと核種移行モデルの開発と妥当性検証の研究を行った。

6.2 モデルの概要説明

Fig.6-1 に本協力研究における研究項目と研究の構成を示した。研究項目のうち、(I)については AECL が、(II)については JAERI が主たる担当として研究を進めた。Fig.6-1 に示すように、地層媒体中での地下水流および核種移行のモデル化を実現し、これら現象の正確な予測を行うには、大別して 2 つの研究テーマが存在する。1 つは地下の見えない所の地層媒体パラメータを正確に把握する手法の確立に関する研究である。他方は、現象のモデル化が数学的に正しいかどうか、また、その数学的モデルが予測や評価に用いる際に現象を妥当に表現できるかといった、モデル開発とその妥当性に関する研究である。

(I)の 1)、(I)の 3)の研究項目では、野外トレーサー実験で測定された濃度分布結果を利用してパラメータ値を推定している。特に(I)の 3)では、濃度の空間的分布をパラメータの空間的不均質分布特性と関連づけて解析することで、新しいパラメータ評価手法を示した。(I)の 2)の研究項目では土壌サンプリングの試料の物性値から帯水層中の透水係数を推定し、その適応性を検討した。

(II)の 1)の研究項目では、(I)の 3) で得られた地層中でのパラメータの空間的不均質分布特性を表すパラメータを利用して、透水係数の空間的不均質分布特性を考慮するための、地質統計学的手法を用いた空間分布特性実現モデルを開発した。また、流れと核種移行のモデルとを組み合わせることで、不均質地層媒体中での流れと核種移行予測システムの妥当性検証を行った。(II)の 3)では(I)の各研究で得られたパラメータ測定スケールとモデルの解析スケールとの整合性を検証するために、サイトスケールでの地下水流・トレーサー移行モデルの有効性を検討した。

Fig.6-2 は、各研究項目の成果が、放射性廃棄物処分場安全評価モデルの開発にどのように寄与するかを概略的に示した図である。JAERI/AECL 協力研究プログラムでの研究成果は、地層中での地下水流・核種移行現象を正確に把握するための予測モデル開発および妥当性の検証研究(流れと核種移行の詳細評価モデルシステムの開発)の有益情報として利用され、安全評価モデルの妥当性検証研究に用いられた。放射性廃棄物処分施設から公衆に至る核種の移行経路上で、地層媒体中での地下水流および核種移行現象の予測は、安全評価指標となる公衆への被曝線量に

対する影響度合いが大きい。そのため、安全評価手法の信頼性向上を図るには、地質媒体のパラメータ評価手法の研究、安全評価モデルの基本となる詳細評価モデルの開発・検証研究を継続的に推進し、不確かさが含まれる項目について、不確かさの範囲・影響についての評価を進めなければならない。本研究は、Fig.6-2 中に示された「安全評価モデルの構築・最適化」に寄与する研究である。本研究では、安全評価用データに含まれる不確かさに対する考え方およびその定量化の評価手法を示し、地層データの不確かさを考慮したモデリングの検討を進めたことで、安全評価手法の信頼性向上に資することが出来た。次節以降に各研究項目の詳細および成果について述べる。

6.3 自然帯水層中での流れと核種移行に関するパラメータ評価手法の開発

6.3.1 研究の背景とパラメータ評価手法開発の必要性

この研究項目における目的は、自然帯水層中での流れと核種移行に関わるパラメータの空間的不均質特性を考慮した評価手法の開発である。流れ・核種移行に関与する透水係数等のパラメータ値、特に、分散長は、パラメータを評価する際の観測スケールによって変動する。例えば、Gelhar⁽⁵⁾は核種移行における分散長が核種の移行距離に対し正の相関を示し、移行距離の 1/10 倍を中心に分布していることを明らかにした。この様に、パラメータの空間的変動を考慮するためには、様々な実験スケールで行われるトレーサー実験に対し、各スケールでのパラメータ値の評価と流れ・核種移行モデルの適応性を評価しなければならない。

AECL は 1982 年に実施した 40m スケールの野外トレーサー試験結果に対し、局所的スケール(2~5m)での流れと核種移行に関わるパラメータ、帯水層の不均質特性を求める試みを実施した^(3,4)。透水係数の空間的不均質分布については、Fig.6-3 に示す結果を得た。Fig.6-3 は、流路に沿った鉛直 2 次元断面内での透水係数の分布を示し、A, D, E の高流速領域、B の中流速領域、C, F の低流速領域に細分された。また、AECL では数値解析的研究を行い⁽⁶⁾、トレーサーブリュームの挙動を定性的に評価し、地下水流速の空間的変動がトレーサーの分散・移行挙動に大きく影響している事を明らかにした。但し、数値解析上の技術的制約に加え、透水係数等のパラメータの空間分布不均質性の評価が不十分であったため、トレーサー挙動を精度良く模擬することは出来なかった。

そこで、本研究項目では、上記成果を踏まえて、1)帯水層スケールでのパラメータ評価、2)サンプリング試料の有効粒径分析に基づいた透水係数の評価手法の開発、3)統計的パラメータ評価手法の開発を行った。1)は観測スケールがパラメータ評価結果にどのように影響するか調べる研究であり、各観測スケールで得られたパラメータ値から求めた地下水の流れと核種移行のモデルへの適応性評価を行った。また、1)および上述した局所的スケールでのパラメータ評価はトレーサー試験結果からの逆解析的手法によるため、トレーサー試験の観測スケール、データの取得数に依存し、パラメータ測定に関するコストも膨大になる。この問題を解決するために、より小さい観測スケールでの透水係数評価手法として、2)のサンプリング試料の有効粒径分析に基づいた透水係数評価手法の検討を行った。土質工学の分野において、土壌物性値と透水係数の関係、特に粒径、粒度分布との関係については古くから研究されており、透水係数の概略値を得るために

粒径、粒度分布を用いた多くの推定式が提案されている。ここでは、比較的均質な砂質土壌に対する推定式である Hazen の経験式を基に、1)に比べ小さいスケール (2~5cm の観測スケール) での透水係数の評価および適用性の検討を行った。さらに、上記 1),2)の評価手法は、1つの測定位置においてパラメータ値が1つの値に決定する決定論的評価手法である。これに対して、3)の評価手法は、パラメータの値と共に、パラメータの空間的変動特性を統計的に評価する統計論的パラメータ評価手法である。トレーサー試験の濃度経時変化データを地質統計学的に解析することで、透水係数や分散長の値、透水係数の空間的分布に関する相関構造を解析し、後述する地質統計学的地下水流・核種移行モデルのための情報を得るために実施した研究項目である。以上のように、本研究項目では、異なるスケール、異なる評価手法によって帯水層の透水係数等のパラメータの評価手法の検討、およびパラメータの不均質分布特性を解析した。

6.3.2 帯水層スケールにおける流速・分散長の推定

帯水層スケールでの地下水の流速、分散長を求めるために、Twin Lake トレーサー試験におけるトレーサー濃度の経時変化データ (破過曲線) に対し時間的モーメント法⁽⁷⁾及び1次元核種移流分散解に基づく fitting を適用した⁽⁸⁾。Fig.6-3 に示した各流速領域から8地点 (C, F の低流速領域)、11地点 (B の中流速領域)、7地点 (A, D, E の高流速領域) における破過曲線を用いて AECL の既存研究^(3,4)によって評価された流速、分散長データとの比較検証をおこない、観測および評価スケールの影響について調査した。トレーサー注入孔から、各領域の破過曲線評価地点までの距離が2~40m の帯水層スケールでのパラメータ評価結果と、AECL の既存研究による局所スケールでのパラメータ評価結果を Table6-1 に示す。また、実験サイト領域のマクロ的スケールで求めた流速・縦方向分散長についても表中に示す。これらパラメータ値は、各サンプリング孔において観測される深度毎のトレーサー濃度を鉛直方向において単純平均して求めた平均濃度について、トレーサー注入孔からの距離と経過時間の関数として得られる1次元移流分散方程式の解で fitting して求めた。

Table 6-1 を見て分かる様に、平均流速は各評価スケール間で大きな違いは認められない。しかし、縦方向分散長については評価スケールが大きくなるにつれ、評価結果も大きな値を示した。この結果は、この実験サイトにおいて、トレーサー分散特性を評価する場合、その評価スケールが影響する事を意味している。このことは、核種移行解析においては、分散長データの評価スケールに留意する必要がある、解析モデルのスケールへの適合性を検討する必要性が生じる。なお、これらのパラメータ情報は、後述する地下水流・核種移行のモデル化において用い、スケール毎の分散長データの適応性を検討する。

6.3.3 有効粒径による透水係数の空間的不均質分布特性の評価

透水係数の空間的不均質分布特性は、Twin Lake トレーサー試験サイトにおいて、各観測孔で深度毎にサンプリングされた砂質土の有効粒径の測定値を基に評価した。各観測孔から採取された487の試料について粒径分布を測定し、粒径加積曲線の10%、すなわち d_{10} (単位 mm) を用いた Hazen の経験式：

$$k_{\text{Hazen}} = Cd_{10}^2 \quad (1)$$

で透水係数を求めた⁽⁹⁾。ここに k_{Hazen} は透水係数(cm/s)、 C は媒体特性定数(砂質土壌については $C=1.16$)である。この種の実験式では、他に粒径加積曲線の 20%、すなわち d_{20} を用いた Creager の実験式も提案されているが、本研究では砂質土壌に対する適用例の多い Hazen の実験式を用いる。

Fig.6-4 は観測孔の 11W2S および 12W2S における透水係数の鉛直分布図である。砂質土の有効粒径より得られた透水係数の測定スケールは 2~5cm である。図に示す太実線は、Fig.6-3 に示す透水係数領域の値に対応しており、太点線は既存研究においてダルシー則を基に評価された透水係数である。有効粒径より得られた透水係数(k_{Hazen})は、深度の変化につれ不規則に変動しているものの、太実線と比較した場合、概ね良好な一致を示している。このように、土壌の有効粒径に基づく透水係数評価手法により、観測孔における小さいスケール(2~5cm)での透水係数値の鉛直方向空間的不均質分布特性を捉えることができた。

6.3.4 統計的パラメータ評価手法の開発

地下水・核種移行モデルに使用される透水係数等のパラメータの空間的変動特性を統計的に評価する手法を検討した⁽¹⁰⁾。この手法は、トレーサー濃度の経時変化データ(破過曲線)に対し時間的モーメント法を適用し、更に、2地点間で観測されるトレーサー濃度値の空間的相関構造を考慮して、透水係数の対数値の空間分布特性を表すパラメータを求める手法である。そのため、求まるパラメータは、平均流速、透水係数の対数値の標準偏差、透水係数値の空間的分布特性を表すパラメータである相関距離、分散長等である。

パラメータ値の評価結果を Table 6-2 に示す。流れ方向平均流速は 1.15 m/day であり、前節での他の手法による評価結果と同等な値を示している。縦方向分散長の平均値は 0.3m となり、前述したマクロ的スケールで評価された値に一致している。この手法は、観測された 1 地点におけるトレーサー濃度の経時変化データを取り扱うと共に、帯水層全体での統計量を求めているため、マクロ的スケールで評価された値と同等の値を示すと考えられる。この手法の利点は、空間的不均質分布特性を表す相関長が得られることであり、透水係数対数値の鉛直方向相関距離(流れに垂直な方向)の平均値は 0.47m と推定できた。透水係数対数値の流れ方向相関距離(流れに平行な方向)の平均値はサンプリング数が少ないため不確かではあるが 1.5 m と推定できた。この空間的不均質分布特性を表すパラメータ(地質統計学的パラメータ)は、後述する地質統計学的地下水・核種移行解析において用いた。

6.4 自然帯水層中での流れと核種移行モデルの開発と妥当性検証

6.4.1 これまでの研究の経過と既存モデルの問題点

局所的スケールでのパラメータ評価に関する研究と同時に、AECL は 1982 年に実施した 40m

スケールの野外トレーサー試験結果に対し、流れと核種移行の数値解析的研究を 1987 年に実施している^(11,12)。AECL が実施した解析結果⁽¹¹⁾は、2 次元鉛直断面内でのトレーサープルームの帯水層中での挙動を定性的ではあるが模擬することができた。しかしながら、解析結果における濃度分布は観測結果のそれに比べ分散の影響が大きく現れていた。また、観測結果において注入孔から比較的離れた付近でのトレーサー挙動を精度よく模擬できておらず、原因として、数値解析上の技術的制約（解析に用いる節点数、要素数の制限、計算機の演算能力等）に加え、透水係数等のパラメータの空間的不均質分布特性評価が不十分であることが考えられる。

本研究項目では、流れに大きく影響するパラメータである透水係数の空間的不均質分布特性を考慮するために、地質統計学的手法を用いた透水係数の空間分布特性実現モデルを開発し、Twin Lake トレーサー試験の核種移行の結果に対し適用した。パラメータ空間分布特性実現モデルにより得られたデータセットを用いて、地下水流れと核種移行シミュレーションを実施した結果、パラメータ値の空間的不均質分布特性が、自然帯水層中での流れとトレーサー移行の評価に影響を及ぼすことが明らかになった。

また、パラメータ評価手法の研究で得られた Twin Lake サイトでのスケール毎の透水係数の空間分布特性、核種移行に関わる分散長データ等や、AECL が実施している環境モニタリングデータベースを利用して、AECL サイトを含む広域的地下水流動領域における 3 次元地下水流・トレーサー移行解析を実施し、広域的地下水流・核種移行モデルの開発を行った。AECL サイトでの地下水中で観測されたトリチウム、塩素イオンを環境トレーサーとして地下水流動解析・トレーサー移行解析を実施した結果、サイト内で観測されているトレーサー濃度の分布・経時変化を適切に表すことができ、広域的な地下水流・核種移行モデルの適用性と有効性を示した。

6.4.2 地質統計学的地下水流・核種移行のモデル化

地質統計学的モデルを用いた地下水流れ・核種移行モデルによる解析は、現実の帯水層中でのパラメータの空間的分布と類似した、仮想的なパラメータの空間分布を地質統計学的モデルにより推定する事（リアライゼーション）から始まる⁽¹³⁾。透水係数の空間的不均質分布の特徴を求めるには、サンプリングで得られた土壌試料の室内透水試験結果の統計値を求め、次に、測定値とその測定位置とで決定される空間的相関構造を指数関数で表現する。ここで、パラメータ間の相関構造は相関強さマトリックス A

$$A = \sigma^2 \exp\left(-\frac{2\Delta x_{ij}}{\lambda_x} - \frac{2\Delta y_{ij}}{\lambda_y} - \frac{2\Delta z_{ij}}{\lambda_z}\right) \quad (2)$$

と表せる。ここに σ^2 は透水係数の対数値の分散、 λ_x 、 λ_y 、 λ_z は相関長の各方向成分、 Δx_{ij} 、

Δy_{ij} 、 Δz_{ij} は i 、 j 間の距離の各方向成分である。(2)式は、隣り合うサンプリング試料同士のパラメータ値は相関しているが、距離が遠く離れたサンプリング試料同士のパラメータ値には相関

は見られないことを意味する。また、サンプリングデータから推定された透水係数の統計値およびバリオグラム $\gamma(\mathbf{h})$ (地質統計学的解析によって得られるパラメータ間の距離と共分散値との関係を表す) との間には、定常性を仮定すれば、

$$\gamma(\mathbf{h}) = C(0) - C(\mathbf{h}) \quad (3)$$

となる。ここに、 C はパラメータ間の共分散マトリックス、 \mathbf{h} は距離ベクトルである。バリオグラムについては様々な関数形が提案されているが、最も一般的に用いられている指数関数形を仮定して(2)式と(3)式が近似的に等しいとすれば、空間的不均質分布特性を表すパラメータである相関長を求めることができる。この fitting により、透水係数対数値の空間的分布を特徴づける相関長は、水平方向(流れ方向)、鉛直方向(流れに垂直で鉛直方向)でそれぞれ、5.0m、0.5mであった⁽¹⁴⁾。前述した統計的パラメータ評価手法で得られた相関距離を(2)式中の相関長に等しいと仮定して比較すれば、水平方向(流れ方向)、鉛直方向(流れに垂直で鉛直方向)でそれぞれ、1.5m、0.47m (Table 6-2)となり、地質統計的データ数が多い鉛直方向においては、良く一致している。水平方向(流れ方向)について一致しない原因は、地質統計学的に解析するためのデータ数が少ないことが一因と考えられる。

次に、計算した相関長データを用いて相関強さ A を作成した後、観測データを用いた Conditional Simulation を行って、統計的に相似な透水係数の空間的不均質分布特性を求めた。Fig.6-5 は、Twin Lake サイトの透水係数の空間的変動のリアライゼーションの一例である。この図は、現実の帯水層中での透水係数の空間分布と同じ地質統計学的性質を持つ仮想的な空間分布をモデルにより推定したサンプルである。透水係数値の大小は濃淡で表されており、仮想帯水層中にも色の濃い薄層状の部分が散見される。これは、測定結果で認められた低流速領域部分に相当しており、モデルが有効に透水係数の空間分布を表現している事を意味している。リアライゼーションは 30 セットを出力し、個々のリアライゼーションに対し地下水流解析および核種移行解析を実施した。核種移行解析には移流分散方程式を基にしたランダムウォークモデルを用いている。個々の核種移行解析結果は最終的に平均化され、トレーサー濃度の空間分布を得ることが出来る。

Fig.6-6 は Twin Lake トレーサー試験で得られた 2 次元鉛直断面内におけるトレーサープルームの経時変化(a)と地質統計学的モデルを用いた解析結果(b)および地質統計学的モデルによって発生させた透水係数の空間的分布の一例(c)を示した図である。これら鉛直断面は Fig.6-5 中に示した主たる流れの方向を示す線 (A-B) 直下の断面に対応している。地下水は右側から左側にほぼ水平方向に流れ、観測時間は右から順に 4.44 日、13.39 日、25.16 日である。Fig.6-6 (c)に示すように、リアライゼーションの結果、透水係数値の小さい、つまり、地下性の流れにくい薄層状分布の存在を推定することが出来る(透水係数値の小さい部分は淡いグレー色で表示されている)。この推定された透水係数の空間的分布特性を考慮した地下水流解析を行うことによって、空間的に変動している地下水流れの状況を統計的に捉え、引き続き、核種移行解析により、Fig.6-6 (b)に示すトレーサープルームの動きを精度よく示すことができた。また、観測孔で測定された鉛直方向濃度分布、破過曲線と解析結果とを比較しても、良好な一致を示しモデルが適応可能であるとの確認ができた。加えて、この解析において、分散長データに関して各評価スケールで得ら

れた値(Table 6-1 参照)を用いて感度解析を実施し、局所的スケールでの評価値(縦方向分散長 0.02m、横方向分散長 0.001m)が最良の一致を示した。これは、解析モデルの要素サイズが、流れ方向に 0.2~1.0m、流れと垂直で水平方向に 0.2~1.0m、鉛直方向に 0.1~0.5m と、局所的スケールと同程度であるためと考えられる。

このように、本手法による解析結果は、トレーサーの移行の様子を良好に再現でき、地質統計学的手法を用いる自然帯水層中での地下水流・核種移行モデルの有効性が明らかになった。

6.4.3 環境トレーサーによる広域的核種移行のモデル化

Twin Lake トレーサー試験の解析で得られた地下水流れと核種移行に関するパラメータ及びモデルを広域スケールに対して適用し、本研究で開発したモデルの妥当性と適応性を評価した⁽¹⁵⁾。

Lake233 サイトでのサンプリング孔において観測される塩素(冬季に道路に散布される食塩が起因)およびトリチウム(研究炉の運転に起因)に着目し、これらを環境トレーサーとして地下水流・核種移行モデルによる濃度分布を解析した。Twin Lake から Lake233 までの領域を含んだおよそ 500m x 1km の領域に対し深さ 30m 以下に存在する母岩を下部不透水境界として 3 次元地下水流・核種移行解析を実施した。

前述した流れと核種移行に関するパラメータ評価手法で得られた情報を基に、各評価スケールで得られたパラメータ値を用いた塩素についての感度解析を実施した。その結果、帯水層スケールでの分散長(縦方向が 0.34m、横方向が 0.034m)を用いた解析結果が、精度よく観測データをシミュレートできた。

また、トリチウムの環境中移行解析では、ソースタームが不確かなため、Case A および Case B の 2 種類のソースタームを仮定した。Case A は上流にある Lake233 中で測定されたトリチウム濃度と降雨の影響を考慮した場合であり、Case B は地下水中のトリチウム濃度とトリチウムとヘリウム 3 の同位体元素比 ($^3\text{H}/^3\text{He}$) から逆算した場合である。Fig.6-7 は地下水中のトリチウム濃度観測結果と Case A および Case B によるシミュレーション結果の比較を示した図である。解析結果の最大誤差は、それぞれ 20% (Case A)、10% (Case B) であり、数百 m スケールでのトレーサー移行を精度よくシミュレート出来ている。よって、帯水層スケールでの分散長を用いたトリチウムの移行解析では、水理および核種移行に関するパラメータの広域スケールへの適応性およびモデルの妥当性を確認することができた。

6.5 結論

放射性廃棄物地層処分施設からの核種移行の安全評価を行う場合、地下水の流れと核種移行に関するパラメータの評価とモデルの開発は重要な研究項目である。本協力研究では、AECL サイトでのトレーサー試験、室内試験、野外観測データを利用して、パラメータの評価手法の開発と不均質帯水層中での核種移行モデルの開発を進めた。その結果、本研究計画は透水係数等のパラメータ評価手法の開発、および地下水流・核種移行モデルの開発・妥当性検証において有効に機

能し、以下に示すような結論が得られた。

流れと核種移行に関するパラメータ評価手法の開発では、

- 砂質土壌の有効粒径を利用した数センチスケールでの透水係数および空間的不均質分布特性評価手法、帯水層スケール（2～40m）およびマクロ的スケールでの地下水流速と分散長評価手法、地下水流速と分散長等と同時にこれらパラメータの空間的不均質分布特性を求める統計的パラメータ評価手法等を開発し、Twin Lake サイトへ適用した。それぞれのスケールで透水係数、分散長を評価した結果、これら手法を用いることで各スケールでのパラメータ値の空間的不均質分布特性を明らかにした。
- 各スケールにおいて評価された平均透水係数あるいは平均地下水流速は大きく変動しないが、核種移行に関わる分散長についてはスケール依存性が存在した。
- 上記結果より、核種移行解析においては、透水係数等のパラメータ等の空間的不均質分布特性、解析モデルのスケールと分散長の評価スケールについて留意する必要がある。

流れと核種移行モデルの開発と妥当性検証では、

- Twin Lake トレーサー試験について地質統計学的モデルを用いた地下水・核種移行解析を実施した結果、観測孔で測定された鉛直方向濃度分布、破過曲線等の実験値と良好な一致を示した。これにより、地質統計学的モデルを用いた解析が、透水係数等のパラメータが空間的に不均質分布特性を有する帯水層中での核種移行を評価するのに有効であることを示した。
- 環境トレーサーを用いた広域 3 次元移行解析は、帯水層実験スケールの知見を基に実施し、環境モニタリングデータを定性的に説明できた。この結果、広域的な地下水流動および核種移行に関する情報を得るために環境トレーサーを用いる手法の有効性が確認でき、広域スケールへのモデルの適応性が明らかになった。
- 帯水層スケール、広域的スケールでの地下水流および核種移行解析では、透水係数等のパラメータの空間的不均質分布特性、解析モデルのスケールと分散長の評価スケールを考慮する事で、実験データ・環境モニタリングデータを良好に説明できる。適切な地下水流・核種移行解析を実施するためには、パラメータ等を評価するスケールと解析時のモデルスケールについて、その適用範囲を考慮する必要がある。

今後は、有効粒径スケール、広域的スケールでのパラメータ不均質分布特性の評価およびそのモデル化に関する研究を進めることで、各スケールでの地下水流・核種移行解析に使用する際のパラメータ評価手法を確立し、パラメータ値の決定に起因する解析結果の不確かさを低減させることが重要となる。また、採用するパラメータの評価スケールと解析モデルのスケールとの関係を明確にすることで、地下水流・核種移行の詳細解析の精度向上を図り、地層処分施設の総合的安全評価モデルの最適化を進めていく予定である。

参考文献

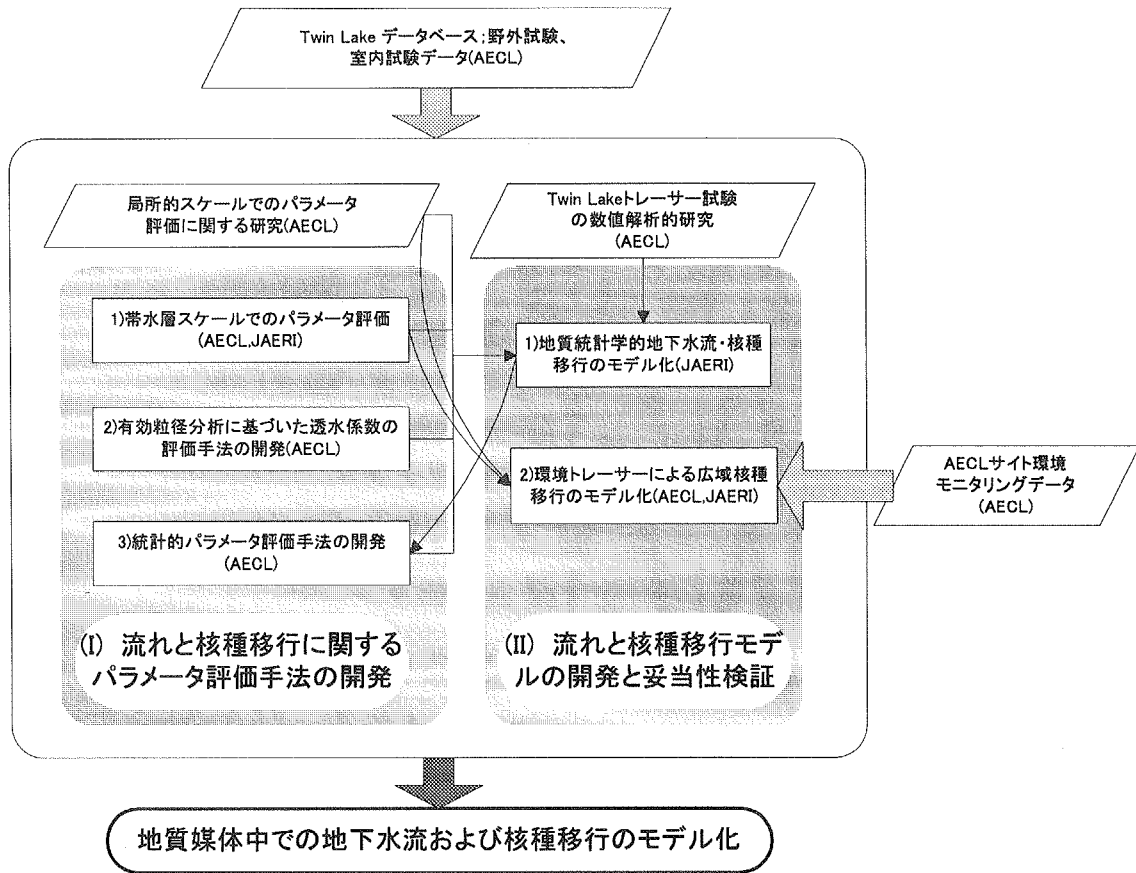
- (1) Freeze R. A. : Water Resour. Res., **11**, 725 (1975).
- (2) Clifton P. M., Neuman S. P. : Water Resour. Res., **18**, 1215 (1982).
- (3) Moltyaner, G. L., Killey, R. W. D. : Water Resour. Res., **24**, 1613 (1988).
- (4) Moltyaner, G. L., Killey, R. W. D. : Water Resour. Res., **24**, 1628 (1988).
- (5) Gelhar, L. W. Welty, C., Rehfeldt, K. R. : Water Resour. Res., **28**, 1955 (1992).
- (6) Moltyaner, G. L., Poisson J. M. : Dispersion of contaminants in saturated porous media – Validation of numerical models, AECL-9220, AECL, (1987).
- (7) Van der Laan, E. : J. Contam. Hydrol., **7**, 51 (1991).
- (8) Takeda, S., Moltyaner, G. L.: Estimation of longitudinal and transverse dispersivities in the Twin Lake natural gradient tracer tests, JAERI-Research, 98-031, JAERI, (1998).
- (9) Pfeleiderer, S., Moltyaner, G. L. : Water Resour. Res., **29**, 4151 (1993).
- (10) Dagan, G., Indelman, P., Moltyaner, G. L.: Water Resour. Res., **33**, 559 (1997).
- (11) Moltyaner, G. L., Poisson J. M. : Dispersion of contaminants in saturated porous media : validation of numerical models, AECL-9520, AECL, (1987).
- (12) Moltyaner, G. L., Wills, C. A. : Method of moments analysis of the Twin Lake tracer test data, AECL-9521, AECL, (1987).
- (13) Journel A. G., Huijbregts CH. J. : Mining Geostatistics, Academic Press, (1978).
- (14) Munakata, M., Kimura H. : Geostatistical analysis of solute transport in a heterogeneous aquifer, Proceedings of “Improvement of Environmental Transfer Models and Parameters”, Feb. 5-6, Tokyo, Japan(1996).
- (15) Takeda, S. Klukas, M. H., Moltyaner, G. L., Kotzer, T., Yamazaki, L. : Advection Dispersion Modeling of Tritium and Chloride Migration in a Shallow Sandy Aquifer at the Chalk River Laboratory Site, Research Coordination Meeting on Use of Isotopes for Analyses of Flow and Transport Dynamics, in Virginia(1998)

Table 6-1 Summary of the estimated values (average flow velocity, dispersion length) in a different scale of measurement at high-, intermediate-, and low-velocity zone.

評価スケール	評価パラメータ	高流速領域	中流速領域	低流速領域
局所的スケール (2~5m) ^(1,2)	平均流速(m/day)	1.61	1.20	0.84
	縦方向分散長(m)	2.38E-2	1.25E-2	3.64E-2
帯水層スケール (2-40m) ⁽³⁾	平均流速(m/day)	1.28	1.16	0.997
	縦方向分散長(m)	8.81E-2	5.27E-2	6.20E-2
マクロ的スケール (40m以上)	平均流速(m/day)	1.17		
	縦方向分散長(m)	3.4E-1		

Table 6-2 Estimated values of parameter using stochastic analysis.

パラメータ	値
パラメータの流れ方向平均流速	1.15 m/day
流れと垂直で水平方向平均流速	0.19 m/day
流れと垂直で鉛直方向平均流速	0.09 m/day
透水係数対数値の標準偏差	0.09
透水係数対数値の水平方向相関距離（流れ方向）の平均値	1.50 m
透水係数対数値の水平方向相関距離（流れ方向）の標準偏差	0.59 m
透水係数対数値の鉛直方向相関距離（流れに垂直な方向）の平均値	0.47 m
透水係数対数値の鉛直方向相関距離（流れに垂直な方向）の標準偏差	0.09 m
マクロ的分散係数（流れ方向）の平均値	0.34 m ² /day
マクロ的分散係数（流れ方向）の標準偏差	0.04 m ² /day
縦方向分散長の平均値	0.3 m
縦方向分散長の標準偏差	0.04 m



AECL等によって実施された既存の研究およびデータ
 本協力研究における研究項目
 ()内に主たる研究担当機関を示す

Fig.6-1 Strategy of research work in JAERI/AECL cooperation research program 2 “Development of groundwater flow and radionuclide transport model”.

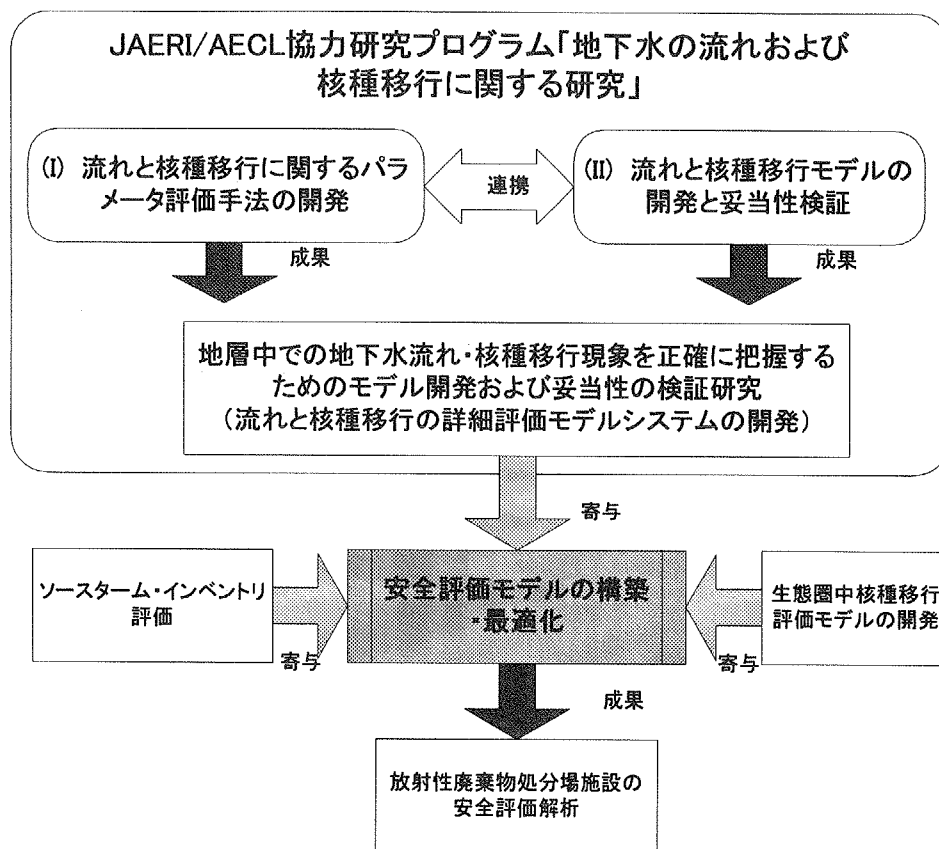


Fig. 6-2 The contribution of research results by JAERI/AECL cooperation research program to the development research of safety assessment model of the radioactive waste disposal facilities.

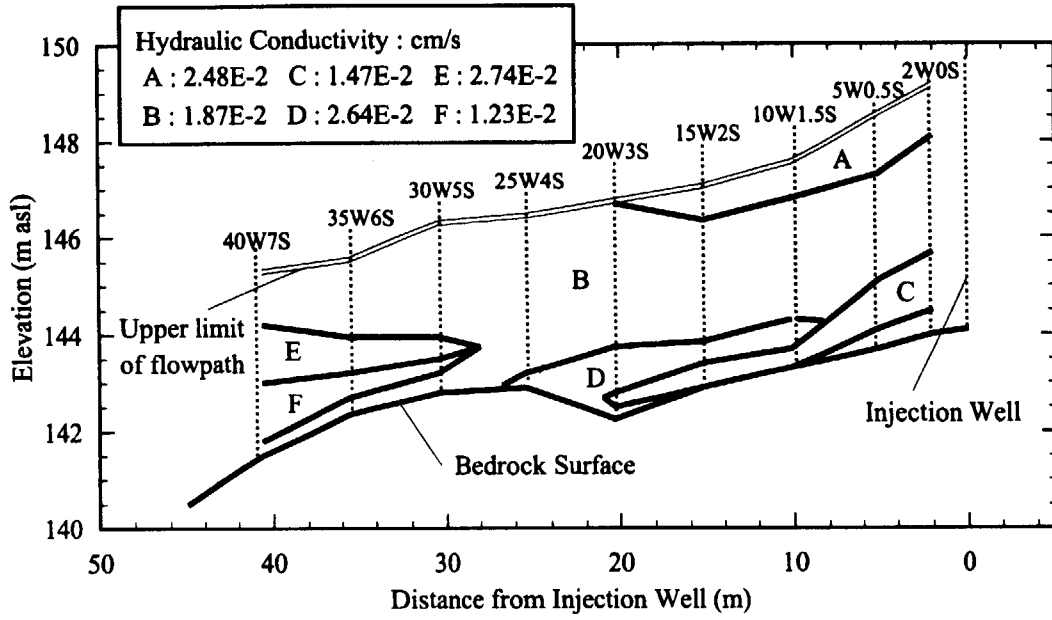


Fig.6-3 Spatial distribution of hydraulic conductivity obtained from Twin Lake tracer test in vertical cross-section along with flow path.

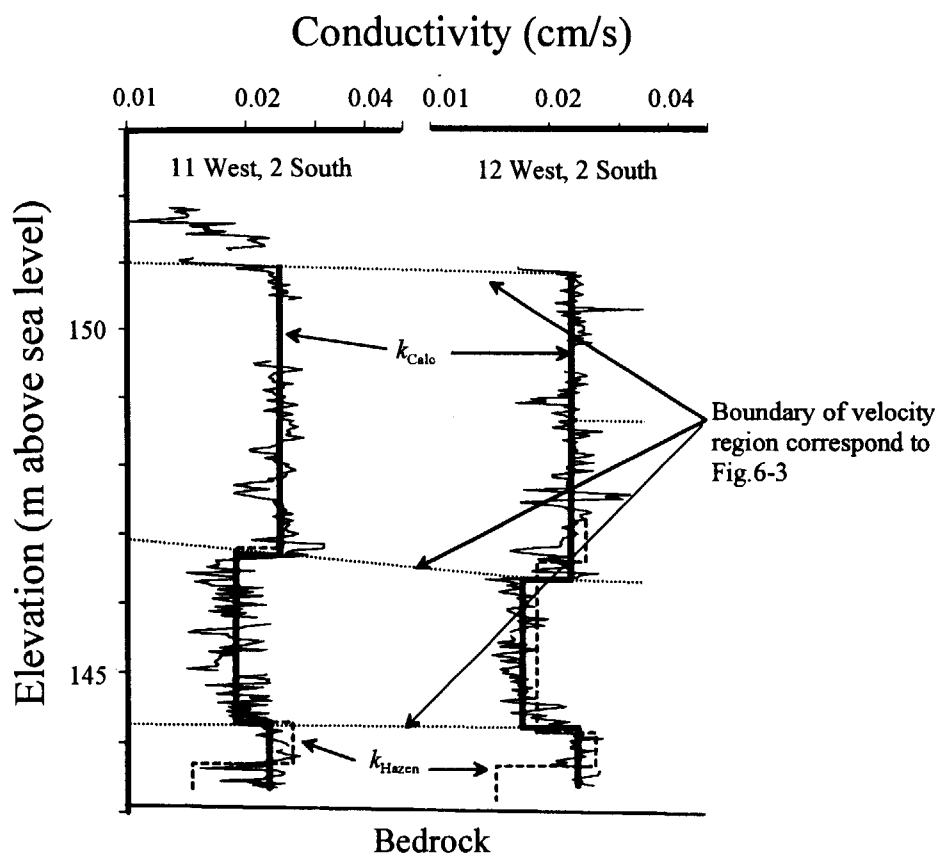


Fig. 6-4 Comparison of vertical profile of hydraulic conductivity obtained from effective grain-size data (k_{Hazen}) with that obtained from previous researchers (k_{calc}). Solid lines represent obtained values from Hazen's equation, thick lines represent log segments as defined through well zonation in Fig. 6-3, and thick dashed lines represent conductivity profiles defined previously on the basis of a tracer experiments.

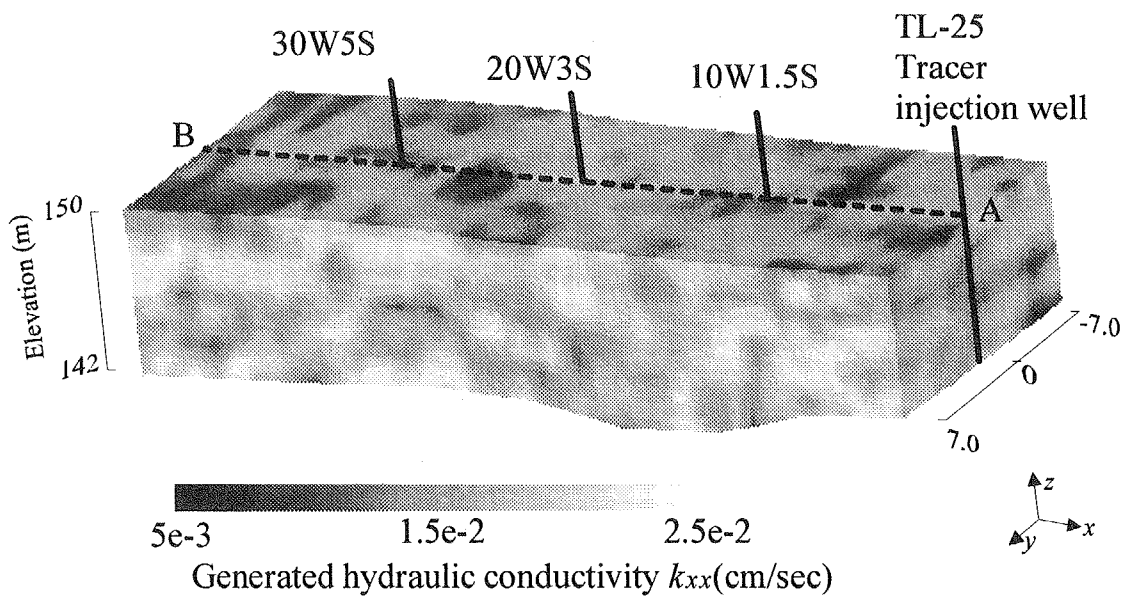


Fig. 6-5 One example of 3D realization of the spatial distribution of hydraulic conductivity (x-component parallel to the flow direction).

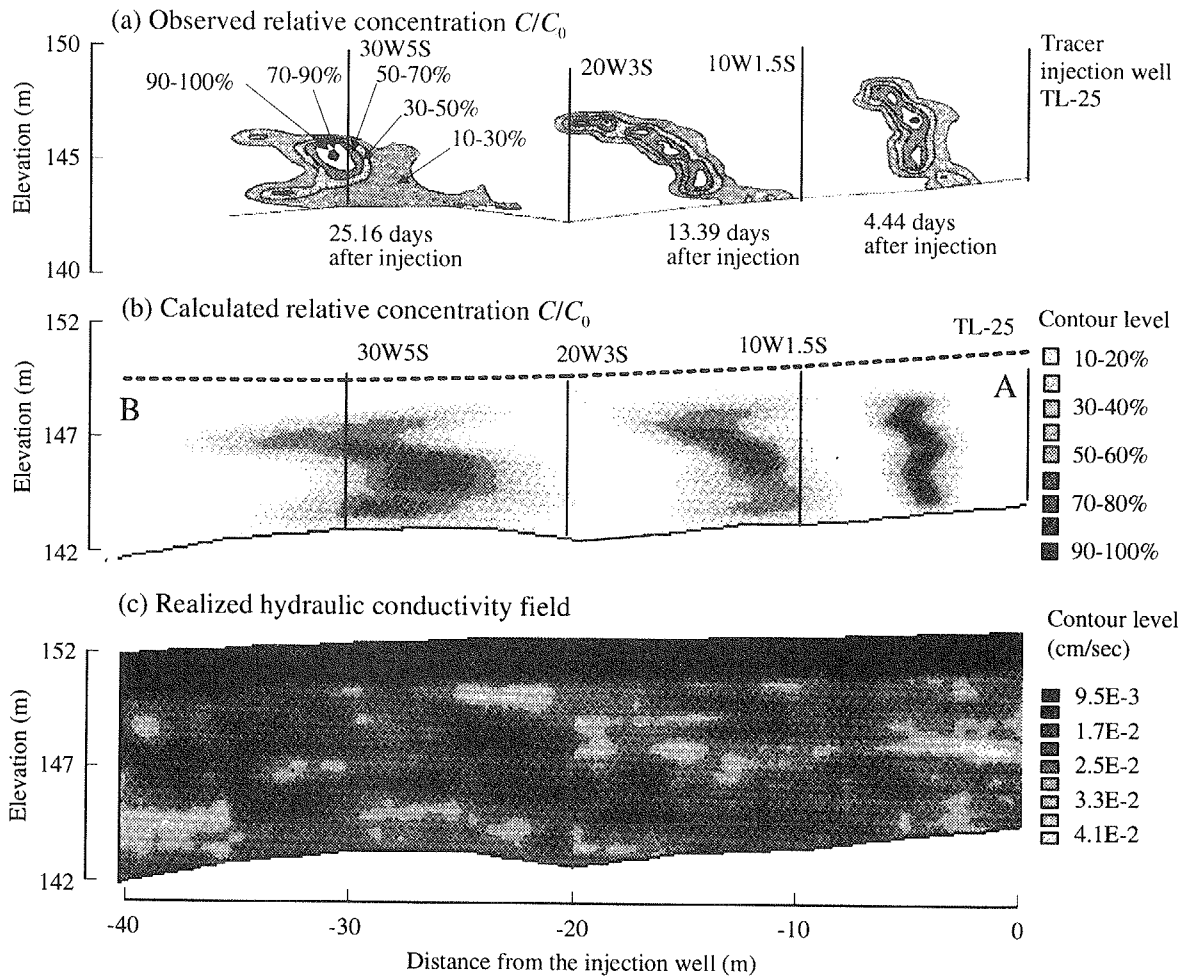


Fig. 6-6 Concentration distribution of tracer plume obtained from (a) observation, (b) calculation at 4.44, 13.39 and 25.16 days after injection and (c) one example of realized hydraulic conductivity (x component) used for calculation of (b). Illustrations of plumes of (a) and (b) are drawn by contours representing 10-20%, --- and 90-100% of the relative maximum concentration in vertical cross-section along the flow path in Twin Lake tracer test.

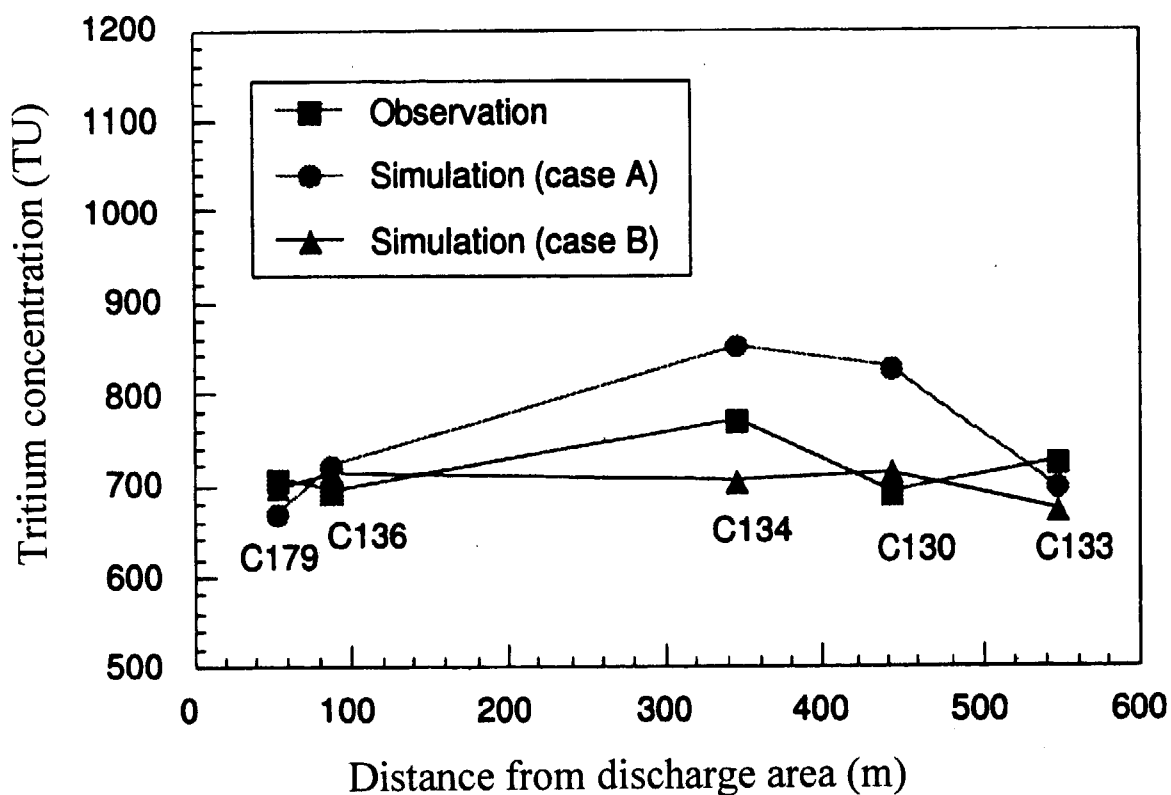


Fig. 6-7 Simulated concentration-distance profile obtained from regional groundwater flow and radionuclide transport analysis using tritium in the groundwater in the AECL site as the environment tracer, and measured tritium concentration-distance profile. Two type of source term was assumed as case A and B. C130 to C136 indicate the well number.

7. まとめと今後の展開

処分安全研究室 長尾誠也、山口徹治、向井雅之
廃棄物安全評価研究室 宗像雅広

7.1 まとめ

本協力研究の目的は、浅地層あるいは深地層中における放射性核種の移行挙動を予測するために、地層及び地下水の流動特性が把握されている2つのサイトで現場の環境を維持した状態で試験を実施し、砂層あるいは花崗岩亀裂帯での放射性核種の移行挙動を把握するとともに、同位体あるいは非吸着性のトレーサーを用いて地下水の流動をモデルにより解析することにある。各研究項目について得られた成果は以下の通りである。

1. 亀裂媒体における核種移行実験

- a. 現場の亀裂状態を保持して岩盤から切り出し、移行試験を実施する手法を開発した。
- b. Tc, Np, Pu の遅延が確認され、その移行性には違いが認められた。
- c. コロイドの移行性は、その粒径に依存することを明らかにした。

2. 地下水中の溶存有機物の影響評価研究

- a. 大量の地下水から有機物（腐植物質）を分離精製する方法を確立した。
- b. 各種のスペクトル、質量分析等により砂層、花崗岩亀裂帯の地下水腐植物質の特性を評価した。
- c. 地下水の有機物の濃度レベルで、アクチノイドは腐植物質と錯形成し、移行性が促進されることを明らかにした。

3. 環境同位体による地下水流動解析

環境同位体の適用性とその範囲について検討した。

- a. ^{14}C 、 ^4He により涵養域地下水の浸透速度を見積もるとともにその適用範囲を提示した。
- b. ^{36}Cl による地下水中の塩類の起源とその放射壊変的平衡時間から塩類の滞留時間の推定を行い、妥当性を確認した。
- c. ^{129}I による深部地下水の滞留時間の推定手法を確立した。

4. 地下水の流れおよび核種移行に関する研究

- a. 帯水層における地下水流動と核種移行に関わるパラメータの空間的不均質分布特性を評価する地質統計学的手法を開発した。
- b. 地質統計学的モデルによるトレーサー試験の解析結果が実験値と一致し、妥当性を確認した。
- c. 環境トレーサーを用いた広域3次元地下水流を本手法により解析し、有効性を確認した。

7.2 今後の展開

今後の原研における研究の方向性を明確にするために、今回の協力研究で得られた結果を基に検討課題を各研究項目について抽出整理した。

1. 亀裂媒体における核種移行実験

今回の協力研究により、原位置での環境と亀裂の状態を維持した実験システムにより、実際に地下環境下で生じている現象を把握することが出来た。今後は、得られたデータを基にして、核種の移行解析を行う予定である。また、現象面をより詳しくしかも定量的に解析するために、現在、整備中の還元グローブボックスにおいて、還元環境における放射性核種の土壌、岩石に対する分配係数、拡散等のデータを取得し、放射性核種の亀裂媒体での遅延現象を解明するとともに、吸着した核種の安定性を検討し、長期的な評価に対応出来るデータセットを構築する予定である。

2. 地下水中の溶存有機物の影響評価研究

有機物の影響評価研究では、砂層、花崗岩亀裂帯での地下水有機物の影響についてのデータセットを取得することができた。これらの有機物を用いた影響研究結果は、放射性核種の移行挙動に及ぼす有機物の影響を定量的に評価するための1つの指標として用いることができる。しかし、地下環境により地下水の有機物の特性はある幅を有することから、今後は、日本の地下水を対象として、地下水有機物の特性を調べ、それらの放射性核種の移行に及ぼす影響を評価する予定である。また、その影響の普遍性、一般則を求めるために、放射性核種-腐植物質錯体の分子サイズをパラメータとした定量的評価を進めている。当面は分配係数について、有機物の影響をどの程度の裕度を設定すればよいか提案する予定である。

3. 環境同位体による地下水流動の研究

今回は、透水性の高い亀裂に地下水流動が支配されているフィールドにおいて、各種の環境同位体を用い、その適用性を検討するとともに、日本においては水平方向の地下水流動が卓越している扇状地域を対象に検討を行った。今後は、より複雑な地下環境に適用した場合の妥当性を検討するとともに、地下水の長期流動の解析と評価手法を確立する予定である。

4. 地下水の流れおよび核種移行に関する研究

地下水流動のモデル解析では、砂層からなる帯水層での地下水流動解析を地質統計学的手法によりおこない、この手法の有効性と妥当性を検証することが出来た。今後は、不均質性が顕著な地質環境における地下水流動解析に適用するために流動に関与する物理的なパラメータの推定の精度を高める。広域流動の適用範囲を広げるために、上記の環境同位体で得られた成果を取り込み、モデル解析を行う予定である。また、今回の検討項目で得られた1, 2の成果を考慮し、安全評価上重要な核種移行解析を実施し、地層中における核種移行挙動を予測する。

上記の検討課題については、平成11年度に行われた組織再編により、いくつかの研究室で継続して検討が進められている。項目1，2は燃料サイクル安全工学部処分安全研究室で、項目4は同研究部の廃棄物安全評価研究室で継続して研究が進められている。項目3については、環境科学研究部の陸域環境研究グループに引き継がれている。

謝 辞

本研究を進めるに際し、旧環境安全研究部の森内茂部長、川上部長、妹尾宗明天然バリア研究室長（現在、放射性廃棄物対策推進室長）等、多くの方々の協力を得た。ここに感謝の意を表す。

This is a blank page.

国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N·m
工率, 放射束	ワット	W	J/s
電気量, 電荷	クーロン	C	A·s
電位, 電圧, 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束	ルーメン	lm	cd·sr
照射度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分, 時, 日	min, h, d
度, 分, 秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

1 eV = 1.60218 × 10⁻¹⁹ J
 1 u = 1.66054 × 10⁻²⁷ kg

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バー	bar
ガリ	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

1 Å = 0.1 nm = 10⁻¹⁰ m
 1 bar = 100 kPa = 10⁻⁵ MPa
 1 Gal = 0.01 m/s²
 1 Ci = 3.7 × 10¹⁰ Bq
 1 R = 2.58 × 10⁻⁴ C/kg
 1 rad = 0.01 Gy
 1 rem = 0.01 Sv

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹⁸	エクサ	E
10 ¹⁵	ペタ	P
10 ¹²	テラ	T
10 ⁹	ギガ	G
10 ⁶	メガ	M
10 ³	キロ	k
10 ²	ヘクト	h
10 ¹	デカ	da
10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	アト	a

(注)

- 表1-5は「国際単位系」第5版, 国際度量衡局 1985年刊行による。ただし, 1 eV および 1 uの値は CODATA の 1986年推奨値によった。
- 表4には海里, ノット, アール, ヘクトールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- bar は, JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令では bar, barn および「血圧の単位」mmHg を表2のカテゴリーに入れている。

換算表

力	N (=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘度 1 Pa·s (N·s/m²) = 10 P (ポアズ) (g/(cm·s))

動粘度 1 m²/s = 10⁴ St (ストークス) (cm²/s)

圧	MPa (=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg (Torr)	lbf/in ² (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 ³	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322 × 10 ⁻⁴	1.35951 × 10 ⁻³	1.31579 × 10 ⁻³	1	1.93368 × 10 ⁻²
	6.89476 × 10 ⁻³	7.03070 × 10 ⁻²	6.80460 × 10 ⁻²	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J (=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal (計量法)	Btu	ft·lbf	eV	1 cal = 4.18605 J (計量法) = 4.184 J (熱化学) = 4.1855 J (15 °C) = 4.1868 J (国際蒸気表)
	1	0.101972	2.77778 × 10 ⁻⁷	0.238889	9.47813 × 10 ⁻⁴	0.737562	6.24150 × 10 ¹⁸	
	9.80665	1	2.72407 × 10 ⁻⁶	2.34270	9.29487 × 10 ⁻³	7.23301	6.12082 × 10 ¹⁹	
	3.6 × 10 ⁶	3.67098 × 10 ⁵	1	8.59999 × 10 ⁶	3412.13	2.65522 × 10 ⁶	2.24694 × 10 ²⁵	
	4.18605	0.426858	1.16279 × 10 ⁻⁶	1	3.96759 × 10 ⁻³	3.08747	2.61272 × 10 ¹⁹	仕事率 1 PS (仏馬力)
	1055.06	107.586	2.93072 × 10 ⁻⁴	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 ²¹	= 75 kgf·m/s
	1.35582	0.138255	3.76616 × 10 ⁻⁷	0.323890	1.28506 × 10 ⁻³	1	8.46233 × 10 ¹⁸	= 735.499 W
	1.60218 × 10 ⁻¹⁹	1.63377 × 10 ⁻²⁰	4.45050 × 10 ⁻²⁶	3.82743 × 10 ⁻²⁰	1.51857 × 10 ⁻²²	1.18171 × 10 ⁻¹⁹	1	

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270 × 10 ⁻¹¹
	3.7 × 10 ¹⁰	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58 × 10 ⁻⁴	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

地層中における地下水の移行性と放射性核種の移行挙動

—カナダ原子力公社との協力研究の成果—