

JAERI-Research
96-011



高レベル放射性廃棄物地層処分の安全性研究

1996年3月

環境安全研究部

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刊している研究報告書です。

入手の問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

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

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1996

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 株式会社原子力資料サービス

高レベル放射性廃棄物地層処分の安全性研究

日本原子力研究所東海研究所
環境安全研究部

(1996年1月31日受理)

日本原子力研究所、環境安全研究部では、高レベル放射性廃棄物地層処分の安全性研究を行っている。高レベル放射性廃棄物の処分では、人工バリア、天然バリアによる多重バリアシステムにより、長期にわたる安全性を確保することになっている。このため、人工バリアについては、ガラス固化体、キャニスター、オーバーパック及び緩衝材に関する研究を進めるとともに、セラミック固化体等の新技術開発を進めてきた。また、天然バリアについては、地下水水理、岩盤特性、アクチニド元素の溶液化学、吸着、固定、移行及び拡散挙動、鉱物の変質及びナチュラルアナログに係る研究を進めるとともに、原位置における試験を実施し、地層中における放射性核種の移行挙動について解明すべく研究を進めている。さらに、安全評価を行うための方法論の確立及び安全評価コードの開発を進めている。

本報告書は、これまでに得た成果をまとめたものである。

Study on Assessment Safety of Geological Disposal of High Level Radioactive
Waste

Department of Environmental Safety Research

Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received January 31, 1996)

Department of Environmental Safety Research of Japan Atomic Energy Research Institute has conducted the study on safety of geological disposal of high level radioactive waste. The long-term safety of the geological disposal is proposed to be secured by the multi barrier system which consists of engineered and natural barriers. Thus, in order to clarify the performance of the engineered barrier, we have studied on the long-term behaviors of waste forms, canister, overpack, back fill materials. We have developed a new waste form, i.e. ceramic waste form. And in order to clarify the performance of the natural barrier, we have studied on the hydrology, rock properties, geochemistry of actinides, sorption and fixation of radionuclides on and to rocks and/or minerals, alteration of minerals, dispersion behavior of radionuclides. Natural analogue studies and in-situ experiments have also been conducted. According to the methodology for the assessment established, the assessment model has been developed.

This report summarizes the results obtained by the above studies.

Keywords: Waste, Disposal, Performance Assessment, Engineered Barrier, Natural Barrier, Assessment Model.

目 次

はじめに	1
1. 概 要	2
2. 地層処分の基本概要と安全評価	5
2.1 地層処分の基本的概要とシナリオ	5
2.2 放射線防護	6
2.3 モデルの基本的概念	7
3. 人工バリアに関する研究	15
3.1 廃棄物固化に関する研究	15
ガラス固化体	15
新セラミック固化体の開発	21
3.2 キャニスター、オーバーパックに関する研究	26
腐食に関する研究	26
鉄鉱物の生成に関する研究	32
3.3 緩衝材に関する研究	34
吸着に関する研究	34
緩衝材の長期挙動に関する研究	37
4. 天然バリアに関する研究	40
4.1 地下水水理と岩盤特性に関する研究	40
環境同位体による深部地下水流特性把握に関する研究	40
水槽を用いた物理モデル実験による比抵抗トモグラフィの基礎的研究	44
岩石中の亀裂と微細構造に関するフラクタル解析	47
4.2 アクチニド元素の地球化学	48
アクチニド元素の溶解度	48
アクチニド元素の化学形への溶存有機物の影響	52
4.3 吸着に関する研究	55
鉱物への放射性核種の吸着に関する研究	55
吸着への溶存有機物の影響	58
4.4 固 定	60
非晶質鉄鉱物の結晶化過程における元素の再分配	60
スメクタイトの変質過程における元素の再分配	63
4.5 放射性核種の移行及び拡散	66
移行に関する研究	66
拡散に関する研究	67

4.6	鉱物の変質に関する研究	70
	花崗岩の風化・熱水変質に伴う鉄の挙動	70
4.7	ナチュラアナログ研究	72
	オーストラリア, クンガラウラン鉱床における研究	72
	ガボン共和国, オクロウラン鉱床における研究	75
	ウラン鉱物の変質機構解明研究	78
4.8	原位置試験	80
	亀裂を有する花崗岩の原位置試験	80
	深地下条件下における Tc の挙動	84
5.	安全評価モデルに関する研究	88
5.1	安全評価モデルの開発	88
5.2	評価モデルの妥当性検証	96
5.3	感度解析	102
5.4	予備的な安全解析	113
	おわりに	124

Contents

Introduction	1
1. Outline	2
2. Basic Concept of Geologic Disposal and Safety Assessment	5
2.1 Basic Descriptions of a Disposal System and Scenarios	5
2.2 Radiation Protection Aspects	6
2.3 Basic Descriptions of Modeling	7
3. Research on Engineered Barrier	15
3.1 Waste Forms	15
Glass Waste Form	15
Development of New Ceramic Waste Form	21
3.2 Canister and Overpack	26
Crystalization Kinetics of Goethite	26
Study on Corrosion	32
3.3 Buffer Material	34
Study on Sorption Behavior	34
Long-term Behavior of Backfill Material	37
4. Research on Natural Barrier	40
4.1 Study on Hydrology and Rock Properties	40
Study on Exploration of Deep Underground Hydrology by Environmental Isotopes	40
Basic Research on Applicability of Resistivity Tomography by Model Tank Experiments	44
Fractal Analysis of Fractures and Microstructures in Rocks	47
4.2 Geochemistry of Actinides	48
Solubility of Actinides	48
Effects of Humic Substances on Chemical Forms of Actinides	52
4.3 Sorption	55
Sorption Behavior of Radionuclides on Minerals	55
Effects of Humic Substances on Sorption Behaviors of Actinides	58
4.4 Fixation	60
Redistribution of Radionuclides during Crystallization of Amorphous Iron Minerals	60
Redistribution of Radionuclides during Alteration of Smectite to Illite	63

4.5	Migration and Diffusion	66
	Study on Migration	66
	Study on Diffusion	67
4.6	Alteration of Minerals	70
	Behavior of Iron during Weathering and Hydrothermal Alteration of Granite	70
4.7	Natural Analogue Study	72
	Natural Analogue Study at Koongarra, Australia	72
	Natural Analogue Study at Oklo, Gabon	75
	Alteration of Uranium Minerals	78
4.8	In-situ Experiments	80
	In-situ Experiments in Fractured Granite	80
	Technetium Behavior under Deep Geological Conditions	84
5.	Research on Safety Assessment Model	88
5.1	Construction of Assessment Model	88
5.2	Validation of Assessment Model	96
5.3	Sensitivity Analysis Methodology	102
5.4	Preliminary Assessment and Feasibility	113
Remarks	124

はじめに

原研においては、我が国における放射性廃棄物の処理処分に係る「原子力施設から発生する放射性廃棄物については、将来にわたって人間及びその生活環境に有為な影響のないように安全に処分されなければならない」との基本的考えに基づき各種試験研究を進めている。

環境安全研究部は、放射性廃棄物地層処分に関する研究の主導的立場にあり、低レベル放射性廃棄物、高レベル放射性廃棄物及びTRU廃棄物等の処分システムを構成する人工バリア、天然バリア及び生態圏における放射性核種の移行挙動について研究を進めるとともに、処分に伴い公衆が受ける被曝線量を評価する総合安全評価モデルの開発を進めている。また、新技術開発として、放射性廃棄物の減容性、耐久性等に注目したセラミック固化体等の高性能固化体の開発を進めている。

本報告書は、環境安全研究部がこれまでに実施してきた研究から、特に、高レベル放射性廃棄物地層処分に関する研究について、その成果をまとめ集大成したものである。

1. 概要

環境安全研究部は、高レベル放射性廃棄物地層処分に関する研究として、処分の一般概念に基づいた安全評価研究を進める一方、安全評価に必要となる広範なデータの蓄積を図るとともに、様々な過程における核種移行機構を解明すべく研究を進めてきた。

第2章の地層処分の基本概念と安全評価では、人工バリア及び天然バリアから構成される多重バリアシステムにより安全性を確保するわが国の地層処分の基本概念と、安全評価の基本的考え方及び安全評価シナリオについて述べる。

第3章の人工バリアに関する研究では、ガラス固化体及び新セラミック固化体、金属容器材及び緩衝材の各人工バリアについての試験研究を進めた。

廃棄物固化に関する研究では、ガラス固化体の性能評価の一環として、固化体の熱的安定性、放射線耐久性について検討した。また、ガラス固化体の溶解に際して、ガラス基質の溶解に規制される核種と、核種自身あるいは変質層構成物質の溶解度に規制される核種が存在することを実験的に明らかにした。

新セラミック固化体の開発では、天然の岩石との共存性にすぐれ、地下深くの熱水条件下でも安定なセラミック固化体として開発されたシンロック（多相チタン酸塩セラミック）を高濃度TRU廃棄物用固化体の代表として、その有効性を確認した。さらに、TRU含有セラミック固化体の長期安定性を評価するための耐放射線性評価手法を開発した。

キャニスター、オーバーパックに関する研究では、ステンレス鋼等の金属容器材の性能評価を行い、応力腐食割れの初期段階においてはガンマ線の影響が認められること等を明らかにした。また、オーバーパックの腐食生成物である鉄化合物の結晶化過程を明らかにする研究では、ゲータイトとヘマタイトが共存する場合の鉱物相を定量評価する手法を開発し、非晶質水酸化鉄の結晶化速度を求めた。

緩衝材に関する研究では、緩衝材構成鉱物への放射性核種の吸着挙動を解明する研究を進め、アルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、遷移金属及びアクチニド元素の分配係数を求めるとともに、核種の吸着形態を考慮した核種移行モデルの構築に必要な基礎データを得た。さらに、緩衝材の長期挙動に関する研究では、スメクタイトのイライト化過程の解明に取り組み、劣化に対する化学組成の影響及びイライト化の律速段階を明らかにした。

第4章の天然バリアに関する研究では、核種の移行媒体となる地下水水理及び水理に密接に関連する岩盤特性に関する研究を始めとして、高レベル放射性廃棄物に含まれる核種の中でも、安全評価に重要なアクチニド元素についての地球化学的研究、地層中での核種の挙動を明らかにするための吸着、固定、移行及び拡散についての各化学的プロセスの研究を進めた。また、実際の地下環境中における実験的研究を実施するとともに、地質学的時間スケールでの挙動を予測するのに必要な鉱物の変質に関する研究及びナチュラルアナログ研究を進めた。

地下水水理及び岩盤特性に関する研究では、環境同位体を用い地下水流動特性を把握する水文学的手法が、処分サイトを含む領域の地下水流解析に適用可能であることを示した。また、比抵抗トモグラフィを用いた岩盤中亀裂解析に必要な基礎的研究を進めた。

アクチニド元素の地球化学特性の解明に関する研究では、中性付近の地下水中におけるアクチニド元素の溶解度、加水分解、錯体形成などに関する基本的なデータを求め、熱力学的データベースの作成に寄与した。また、アクチニド元素の化学形への腐植物質の影響を解明する研究を進め、Np(IV)-フミン酸錯体の錯形成定数を得るとともに、錯形成しやすいフミン酸の分子量を明らかにして、Npがフミン酸を核とするコロイドにより地下水中を移行する可能性のあることを示し、地下水中の有機物質を分析する必要性を示した。

吸着に関する研究では、鉱物への元素の分配比を求め、岩石などの鉱物の混合物の分配係数を予測するための基礎的データを得た。また、アクチニド元素としてNp(IV)の地質媒体（岩石やその構成鉱物）への吸着に及ぼすフミン酸の影響を調べ、フミン酸が存在する場合の核種の鉱物への吸着機構を明らかにした。

核種の固定に関する研究では、非晶質鉄鉱物の結晶化過程における元素の再分配機構、スメクタイトの変質過程における元素の再分配機構について検討し、天然に広く分布する鉄鉱物へのアクチニド元素（Np(IV)）の結晶化過程における取り込みを確認するとともに、スメクタイトの変質過程における元素（遷移金属等）の再分配機構を明らかにし、天然バリア中における元素の移行遅延機構の解明に寄与した。

放射性核種の移行及び拡散に関する研究では、亀裂中の核種移行においては粘土鉱物等への吸着による遅延効果が期待できることを明らかにするとともに、花崗岩等についてイオンの実効拡散係数を求め、吸着性の高い核種では岩石表面吸着層を拡散する、いわゆる表面拡散の存在を示唆するとともに、岩石マトリックス拡散を考慮した核種移行評価を行うためのデータを得た。

鉱物の変質に関する研究では、花崗岩の風化・熱水変質に伴う鉄の挙動について検討し、風化の初期段階における雲母鉱物の変質過程を明らかにした。

ナチュラルアナログ研究では、オーストラリアのクングラウラン鉱床、ガボン共和国のオクロウラン鉱床を対象とした天然試料の観察を中心に、地質学的時間における鉱物の変質と希土類元素、ウラン等天然に存在する元素の移行挙動について検討し、鉱物の変質による核種移行の阻止機構が存在することを示した。また、安全評価で用いられるKdモデルに基づく移行予測について、パラメータの変化を考慮すべきことを示し、手法の適用への必要な条件を明らかにした。

原位置試験では、亀裂を有する花崗岩の岩盤特性に関する試験を行うとともに、深地下条件におけるテクネチウム、ネプツニウム、プルトニウム等の挙動を解明するためのデータを取得した。また、深地下では、放射性核種が室内実験からの予測とは異なる挙動をすることを明らかにした。

第5章の安全評価モデルに関する研究では、地層処分の総合安全評価モデル（GSRW）を開発した。また、核種移行モデルの検証を行うとともに、GSRWを用いた感度解析及び予備的安全解析を行った。

処分の安全評価において重要となるパラメータ、移行経路を抽出するための感度解析では、ソースタームにおいては、放射性核種の溶解度が重要であること、緩衝材が長期的に安定であれば厚さは0.5 m以上であればよいこと、天然バリアでは、Np等の分配係

数、地下水流及び生態圏までの距離が大きく影響することを明らかにした。さらに、日本における一般的な地層を仮定した予備的安全評価を行い、個人被曝線量が 10^5 S v以下という結果を得た。一方、安全評価上重要となる放射性核種の抽出を行い、FPでは、Tc-99、I-129、Se-79、Cs-135であり、 α -放射性核種では、Np-237の娘核種であるTh-229及びU-233、U-235の娘核種であるPa-231が重要であることを明らかにした。

2. 地層処分の基本概念と安全評価

環境影響解析研究室 木村英雄

2.1 地層処分の基本的概念とシナリオ

我が国では、高レベル放射性廃棄物は、安定な形態に固化（ガラス固化）し、金属製の容器に封入し、透水性の低い緩衝材で覆い、数百メートルの地下深部の安定な岩盤中に処分するとの方針が原子力委員会によって決定されている（図2-1）。地層処分は廃棄物を深地層に埋設することによって、長期にわたって人間の生活圏から隔離しようとするもので、高レベル放射性廃棄物の処分方策として国際的に有望視されているものである。

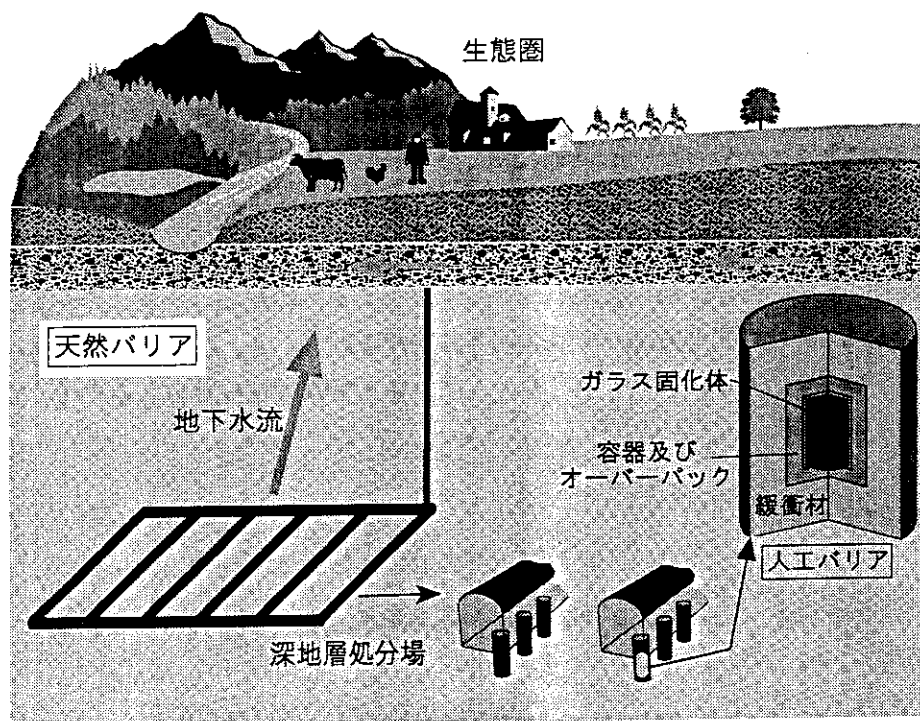


図2-1 地層処分の概念図

処分システムの安全性は、人工バリア（固化体、容器、緩衝材、処分場構造物等による閉じ込め性能）、天然バリア（核種の岩石への吸脱着による遅延効果及び地層中における分散効果など）すなわち多重バリアの性能に依存している。ここで、処分場からの漏出した放射性核種が生態圏へ到達するまでの移行シナリオとしては、以下のものが考えられる。

- 容器：固化体が地下水と一定期間（～数千年）接触しないようにする。
- 固化体：放射性核種を固化体マトリックスに閉じ込める。容器破損後は、地下水と接触し、固化体マトリックスの溶解及び含まれる化学種の溶解度に応じて、放射性核種が固化体から浸出する。
- 緩衝材：放射性核種は遅延メカニズムによって移行が遅延しながら周辺岩石へ拡散移行する。

○処分場構造物：コンクリート製で、そのアルカリ成分により、ある期間溶解度の低下が期待できる。

○地層：処分場から漏出した放射性核種は、様々な遅延メカニズムにより移行が遅延されながら、生態圏に移行する。

○生態圏：生態圏に移行した放射性核種は、地表水（帯水層、河川、湖沼、近海など）で希釈され、様々な経路を移行した後、最終的に人間に摂取される。

これは、地下水移行シナリオと呼ばれるものであり、処分システムの性能が確率的事象の影響を受けないという仮定に基づく基本シナリオである。シナリオでは、処分場閉鎖後、処分場の人工構造物は全て地下水で最終的に再飽和されることを想定している。この地下水と人工構造物との接触により、金属容器の腐食、ガラス固化体の溶解が起こる。これらの過程を経て、緩衝材への放射性核種の漏出が始まる。緩衝材中では、止水効果（難透水性）により地下水流は無視でき、主に拡散によって岩石層へ移行する。引き続き地層中における移行は、亀裂あるいは多孔質媒体間隙中の地下水を媒体として行われる。その移行プロセスは、移流、分子拡散及び機械分散を含んだ分散、岩石鉱物との相互作用による遅延、放射性壊変などに支配される。放射性核種は地層から隣接した帯水層へ移行し、大量の地下水、さらにその他の地表水によって希釈される。

地層処分の安全評価モデルは、このような考え方をすなわちシナリオに基づいて構築される。シナリオは処分サイトに大きく依存する部分（例えば、マトリックス拡散のような亀裂媒体に特有な現象のモデル化は、岩盤亀裂の存在状態などに大きく依存する）がある。我が国では、処分候補サイトは決定されていないため、詳細なシナリオ（サイトに特有なシナリオ）を設定することは困難であり、現在は一般的な基本シナリオのみが設定されている。同様に、地震等の確率的事象を想定した確率的シナリオについても、サイトに大きく依存する部分があるので、現段階では設定することには困難が伴う。

2.2 放射線防護

国際放射線防護委員会（ICRP）は放射線防護の基本原則として以下の3つを勧告している。

【行為の正当化】

いかなる行為もその導入が正味でプラスの便益を生むものでなければ採用してはならない。

【防護の最適化】

全ての被曝は経済的及び社会的な要因を考慮に入れながら、合理的に達成できる限り低く保たれなければならない(ALARA)。最適化に際しては、個人の線量が線量限度あるいは潜在的被曝に対してはリスク限度を越えないようにしなければならない。

【個人線量限度】

公衆の構成員としてあるいは職業に従事する結果として通常の生活の間に個人が受ける線量は、委員会が勧告する線量限度を超えてはならない。

放射性廃棄物の処分は、それ自体で正当化される独立した行為というよりはむしろ、原子力発電全体として正当化されなければならない一行為の一部分と考えられる。

放射性廃棄物地中処分に関して、国際機関が提唱する安全基準としては、以下のものがあげられる。

- (a) ICRP: Publication No. 46, "Radiation Protection Principles for the Disposal of Solid Radioactive Wastes"²⁾,
- (b) IAEA: Safety Series No.60, "Criteria for Underground Disposal of Solid Radioactive Wastes"³⁾,
- (c) OECD/NEA: "Long-Term Radiation Protection Objectives for Radioactive Waste"⁴⁾

これらの報告書は、放射性廃棄物処分に関して将来世代にも現在の防護基準が適用されるという考え方で共通しており、その原則は以下の通りである。

- ・防護の最適化(ALARA)
- ・個人線量またはリスクの制限
- ・将来世代の防護

これらの原則は、高レベル放射性廃棄物処分場の安全規制に適用されるべきものである。ここで、最後の原則は2番目の原則から導かれるものであるが、高レベル放射性廃棄物処分に起因する極めて長期的な放射線影響を考慮すると、別途掲げることの意味がある。

ICRPの提唱する個人線量限度は、基本シナリオに含まれる起こりうる事象(likely events)に対して適用されるものであり、破壊的(確率的)シナリオに含まれる起こりにくい事象(less likely events)に起因する潜在的被曝に対して、直接適用することはできない。ここで、基本シナリオとは、地質学的、地球化学的研究等により将来起こることが予想される一連の事象であり、その事象の発生確率が1であると想定されるものである。一方破壊的シナリオは、潜在的に生態圏への放射性核種の直接放出をもたらすような事象を取り扱う。例えば、地震、造山活動、氷河による浸食等の事象である。個人線量限度は、理想的には、被曝の可能性及び被曝による損害を考慮して、リスク限度によって補足されるべきものである。ICRPが勧告している個人リスク限度は 10^{-5} であり、これは個人線量限度 $1\text{mSv}/\text{年}$ に相当する。

我が国の現行の原子力施設の安全基準は、個人線量に基づいて規制されており、その公衆に対する線量限度はICRPの勧告値 $1\text{mSv}/\text{年}$ と同じである。一方目標線量値は、原子炉平常運転時で $50\mu\text{Sv}/\text{年}$ であり、実質的にはこの値が許認可申請に用いられている。低レベル放射性廃棄物の浅地層処分では、目標線量値は $10\mu\text{Sv}/\text{年}$ である。高レベル放射性廃棄物深地層処分に関しては、現在まだ安全基準は特に策定されていないが、長期的評価で問題となる確率的シナリオを評価するための数値目標(確率的指標:例えばリスク目標、または線量目標に対応したリスク概念)を付加することにより、現行の枠組みを大きく変更することなく、深地層処分に対応することができると考えられる⁵⁾。

2.3 モデルの基本的概念

地層処分の安全評価手法は、処分システムの長期的な挙動を解析するモデル及び処分に伴う放射線影響を評価するモデルから構成されている。図2-2に一般的なモデル化のフロー図を示す⁶⁾。モデル化の第一段階は、処分システムで起こりうる現象・プロセスを物理・化学的に理解するこ

とである。第二段階は、処分システムにおいて重要であると考えられるメカニズムの同定及びそれらの関係に基づいて、概念モデルを構築することである。この過程では、処分システムを抽象的に理解することが大切である。第三段階は、構築した概念モデルを数学モデルに変換することである。この過程では、モデル適用の際の実用性を考慮して、簡略化及び近似が行われる。しかしながら、その簡略化及び近似は、モデルの妥当性検証を行うことを想定して行わなければならない。次の段階は、数学モデルを解析解あるいは数値解法を用いて計算コードに変換することである。最後の段階は、作成された計算コードの検証及び使われているモデルの妥当性検証である。計算コードの検証は、計算コードが意図したように正しく計算できることを確認することである。この作業は、厳密解との比較、あるいは計算コードの相互比較計算によって行われる。一方、モデルの妥当性検証は、モデルが対象としたシステムを適切に表現していることを確認することである。この作業は、通常、実験結果と計算結果を比較することによって行われる。(5.2章参照)

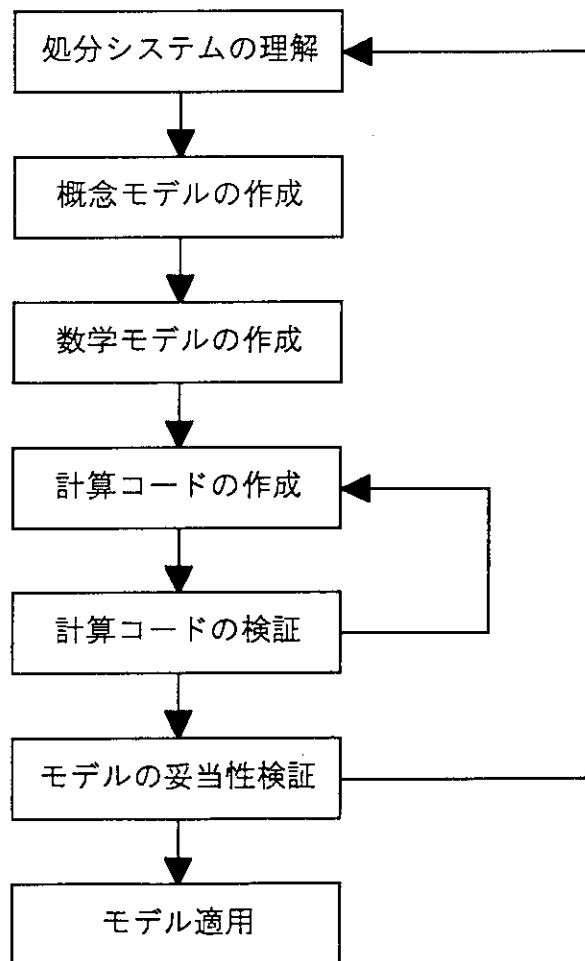


図2-2 モデル化のフロー

地層処分の安全評価モデルは、基本シナリオ（地下水移行シナリオ）に基づけば、一般に以下の3つのモデルに分けられる。

○ソースタームモデル

○天然バリアモデル

○生態圏モデル

以下にその概略を述べる。

〈ソースタームモデル〉

ソースタームモデルは、処分廃棄体から周辺地層へ漏出する放射性核種のフラックスを解析する。処分場の人工バリアは、金属容器に入れられたガラス固化体、及び緩衝材（ベントナイト）から成る。そこで、ソースタームモデルは以下のプロセスを仮定して解析を行う（図2-3）⁷⁾。

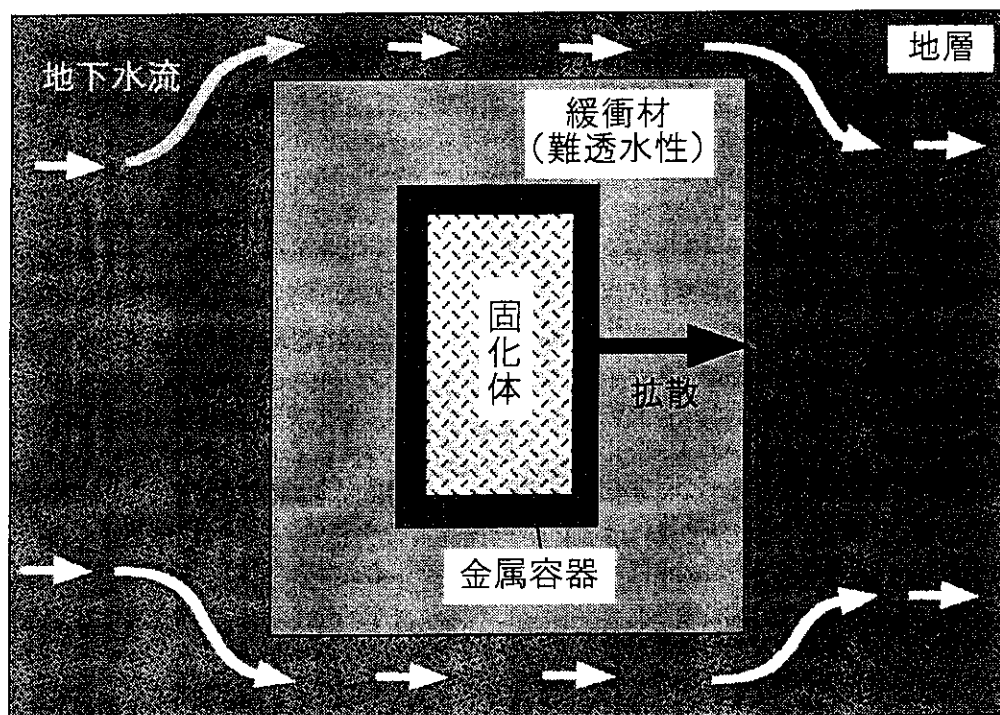


図2-3 ソースタームモデルの概念図

- ・ガラス固化体からの浸出開始時間は、金属容器の腐食速度によって決まる。
- ・ガラス固化体と緩衝材との境界における放射性核種のフラックスは、ガラス固化体の主成分であるシリカ (SiO₂) の溶解度及びその拡散に支配される固化体の溶解速度、あるいは放射性核種の溶解度及びその拡散に支配される核種の浸出速度によって決定される。
- ・緩衝材中における放射性核種の拡散移行では、遅延効果を考慮する。（緩衝材は長期的に安定

であると仮定する。)

金属容器が腐食により破損するまで、廃棄物固化体は地下水と接触しないので、いっさいの放射性物質の漏出はないものとする。破損に要する時間は、容器が存在する領域の電気化学的雰囲気支配される腐食速度に依存する。

金属容器破損後、廃棄物固化体と地下水が接触し、放射性核種の浸出が始まる。この浸出は、評価すべき放射性核種の溶解度が固化体の主成分であるシリカの溶解度よりも高い場合 (Csなど)、固化体の溶解に比例して含まれる放射性核種も漏出する (調和溶解モデル) と考える、逆に評価すべき放射性核種の溶解度がシリカの溶解度よりも低い場合 (多くの α 核種など)、その核種の溶解度に律速されて浸出する (溶解度律速モデル) と考える。

引き続き緩衝材中では、難透水性のため拡散によって放射性核種は移行するものとする。ここで、放射性核種は緩衝材とその間隙中の地下水と間に分配平衡が成り立っていると仮定し、吸脱着により移行が遅延されるものとする。

〈天然バリアモデル〉

天然バリアモデルは、天然バリアである地層中 (岩盤) における地下水を媒体とした放射性核種の移行を解析する。地層での移行モデルは、地下水中の放射性核種濃度は十分低いと考えられるので、移行の要因となる地下水流を解析するモデル (地下水流解析モデル) と、その地下水流に乗って移動する放射性核種を解析するモデル (核種移行解析モデル) とに分けて考えることができる。天然バリアモデルは、基本的に処分サイトの水文学的、地球化学的条件等に依存する部分が多いので、その多様性を考慮して様々な評価モデルが開発されている。これらのモデルは、処分サイトのある程度忠実にかつ詳細に解析するという意味で、詳細モデルと呼ばれている。しかしながら、具体的処分サイトを想定しないで地層処分の一般的な可能性を検討する場合、あるいは処分に伴う環境影響をより簡略明瞭に表現したい場合などには、簡略化した評価モデルが用いられる。当然のことながら、安全審査で簡略化したモデルを用いる場合、その評価結果は、より詳細なモデルでその妥当性が裏付けられたものでなければならない。

以下に、天然バリアモデルの概略を示す。

・地下水流解析モデル

地下水流解析モデルは、核種移行の要因となる地下水流速の分布を計算するものである。地下水流解析はサイトの地形、岩盤の透水性などを考慮して行われるため、地下水流解析モデルには基本的に簡略化したモデルは存在しない。天然バリア中の移行を簡略化した核種移行モデルで評価する場合には、地下水流解析結果に基づいて地下水流路及び地下水流速を決定するか、専門家の判断で移行距離及び地下水流速を決定することになる。

岩盤は水文学的に二つのユニットすなわち亀裂と多孔質体ブロックに分類できる。この亀裂の規模及び頻度により、岩盤は多孔質媒体あるいは亀裂性媒体として表現される。亀裂が小さくその頻度も少ない場合、あるいは卓越亀裂が存在せず亀裂密度が高い場合などは、原理的に多孔質媒体として近似することが可能である。卓越亀裂が存在する場合でも、異方性を考慮し等価な多孔質媒体として表現しようとするモデルも提案されている (Stochastic continuum model)⁹⁾。一

方、亀裂を直接的に表現するモデルも多く提案されている。これは、亀裂ネットワークモデルと呼ばれるもので、地下水流はネットワーク状に表現された亀裂群のみを流れると考えるものである⁹⁾。Stochastic continuum model及び亀裂ネットワークモデルは、いずれも岩盤を様々な情報をもとに確率・統計的に把握しようとするものであり、現在各国で地下実験施設等を用いた妥当性検証研究が進められている。

多孔質媒体中の地下水流の支配方程式は、連続の式（質量保存）とダルシー則により与えられる。地層処分の場合、地下深部であるため不飽和を考慮する必要がないので、透水係数は地下水流圧力の影響を受けないと考えられ、線形方程式を解けばよいことになる。一方、亀裂を直接的に表現したモデルでは、基本的に支配方程式として同じものが適用されるが、地下水流圧力で透水性が変化することを想定したモデル（非ダルシーモデル）も提案されている。この場合、非線形方程式を解かなければならない。

・核種移行解析モデル

核種移行解析モデルは、地下水流解析モデルで計算された地下水流速場、あるいは専門家が判断した地下水流速及び移行距離をもとに、放射性核種の移行を解析するものである。したがって、その目的に応じて、詳細なモデルから簡略化されたモデルまで開発されている。

多孔質媒体の地層中における核種移行では、地下水流による移流-分散効果のほかに、地層構成物質との相互作用による吸脱着、ろ過、沈殿-溶解、凝集、錯体形成などの化学反応を考慮しなければならない。しかしながら、現在用いられているほとんどの解析モデルでは、複雑な化学反応は実際のサイトでの詳細な化学データが必要となるので考慮されておらず、それらの効果が包括的に反映された平衡吸着理論に基づく分配係数（ K_d ）を用いた核種輸送方程式が多く採用されている。

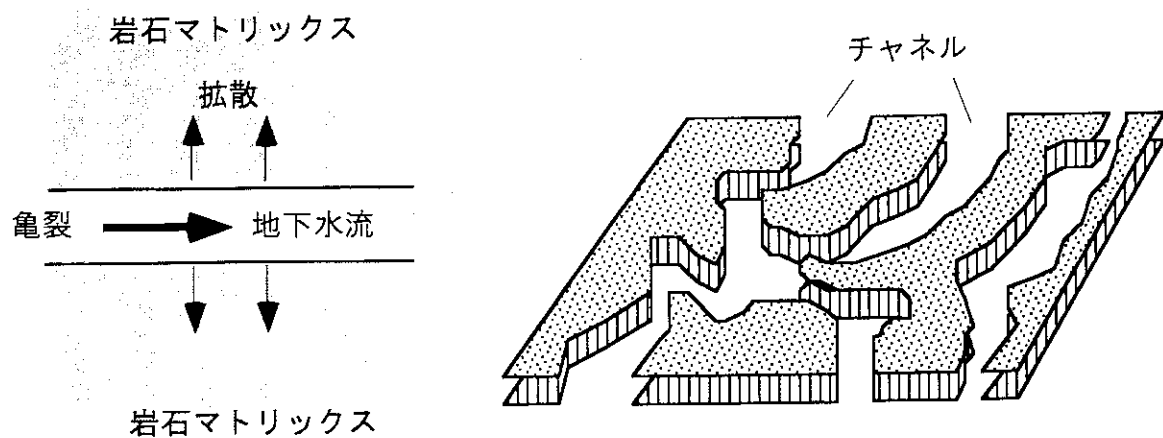


図2-4 マトリックス拡散及びチャネリング現象の概念図

亀裂を直接的に表現した核種移行解析モデルにおいては、多孔質媒体で考慮した移流-分散及び平衡吸着などの現象のほかに、以下の現象

- ①亀裂要素群には流れに寄与しない亀裂要素（淀み領域）も存在する、この淀み領域への拡散効果により、核種移行が遅延される現象
 - ②淀み領域への拡散と同様に、亀裂のない岩石部分（多孔質媒体、岩石マトリックスと呼ばれる）への拡散効果により、核種移行が遅延される現象（マトリックス拡散）
 - ③同一亀裂内で亀裂幅が一定でないために起こるチャネリング（水路の生成）という一種の分散現象（図2-4参照）¹⁰⁾。
- も考慮しなければならない。

〈生態圏モデル〉

地下水によって人間の生活環境にもたらされた放射性核種は、生態圏内の様々な経路を経て、環境媒体（土壌、植物、大気、河川、湖沼など）あるいは摂取物（農畜水産物、飲料水）に移行し、最終的には人間に被曝を与える。将来世代に対する長期的な放射線影響を考える場合、生態圏の環境条件は地層よりも外的事象（気候変動、氷河など）の影響を受けやすいものと考えられる。しかしながら、その変化を予測することは極めて困難であるので、生態圏モデルは、現在の環境条件は将来も変化しないとの仮定に基づいて構築される。

生態圏モデルは、様々な環境媒体中の放射性核種の移行を解析する移行サブモデルと人間の被曝線量を評価する線量評価サブモデルとから構成される。移行サブモデルは、環境媒体中における放射性核種の濃度の時間変化を考慮するために、通常動的なコンパートメントモデルが用いられる。地下水移行シナリオに基づく線量評価サブモデルでは、被曝経路として図2-5に示すように、汚染された浮遊物質による吸入被曝、汚染された食物及び飲料水の摂取による内部被曝、汚染土壌からの直達γ線による外部被曝を考える。

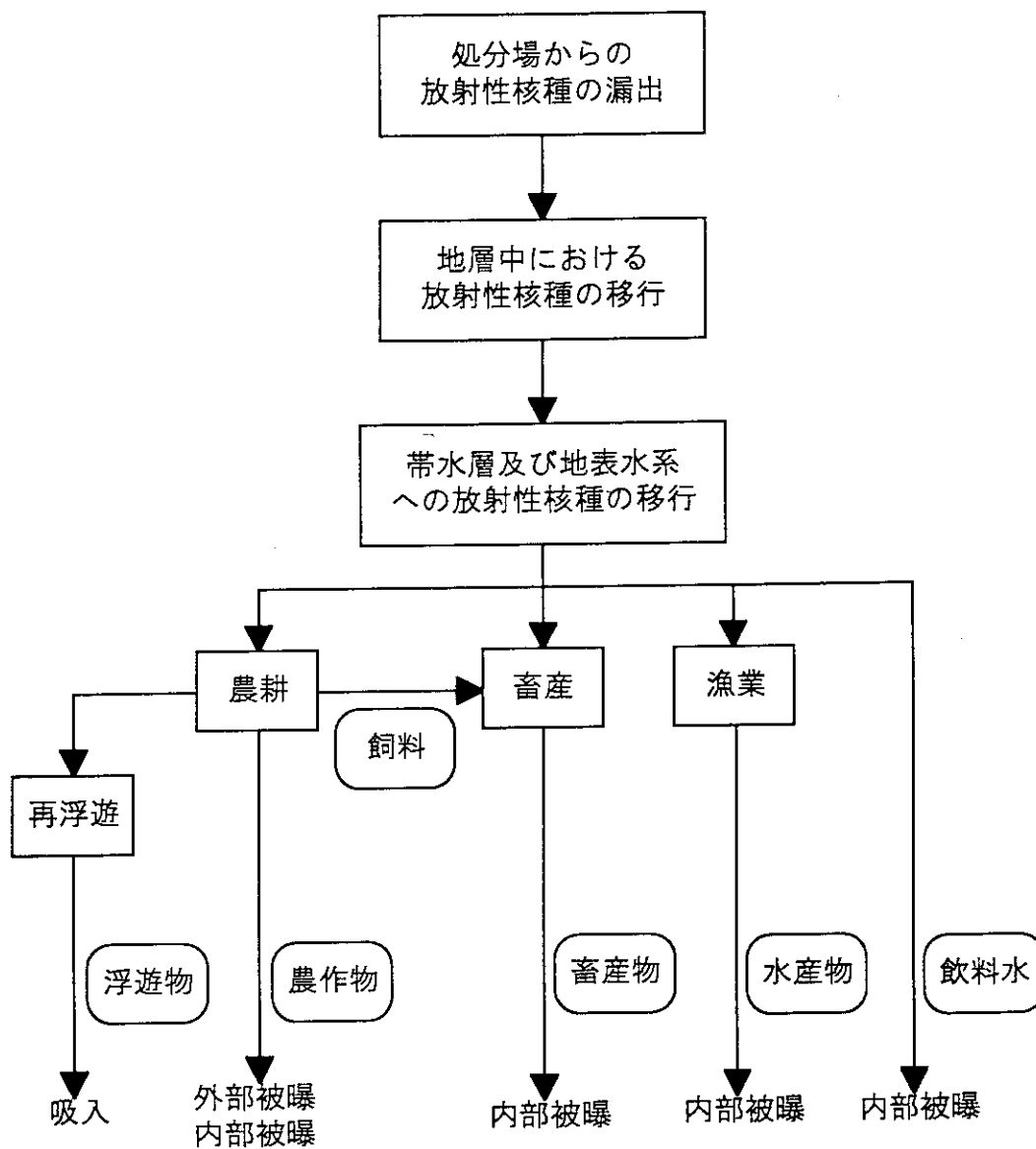


図2-5 地下水移行シナリオにおける被曝経路

参考文献

- (1) ICRP: "1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection", ICRP Publication 60, Annals of the ICRP, Volume 21 No. 1 - 3 (1991).
- (2) ICRP: "Radiation Protection Principles for the Disposal of Solid Radioactive Waste", ICRP Publication 46, Annals of the ICRP, Volume 15 No. 4 (1985).
- (3) IAEA: "Criteria for Underground Disposal of Solid Radioactive Wastes", Safety Series No.60, Recommendations (1983).
- (4) OECD/NEA: "Long-Term Radiation Protection Objectives for Radioactive Waste", (1984).
- (5) Kimura, H. and H. Matsuzuru; Radiation Protection and Safety Assessment Aspects of Geologic Disposal of High-Level Radioactive Waste, Hoken Butsuri, 28, 273-282 (1993).
- (6) Matsuzuru, H. and H. Kimura; Methodology of Safety Assessment for Radioactive Waste Disposal, The Third Int. Sym. on Advanced Nuclear Energy Research, Mito, 326-338 (1991).
- (7) Kimura, H. et al., JAERI-M 92-161 (1992).
- (8) Neuman, S.P.; A Proposed Conceptual Framework and Methodology for Investigating Flow and Transport in Swedish Crystalline Rocks, SKB Arbestrapport 88-37 (1988).
- (9) Schwartz, F. W. and L. Smith; Overview of the Stochastic Modeling of Dispersion in Fractured Media, "Advances in Transport Phenomena in Porous Media", NATO ASI Series, 727-750 Martinus Nijhoff Publishers (1987).
- (10) Kimura, H. and M. Munakata; Analysis of Tracer Movement in Single Fracture in Granite Core (INTRAVAL Case 2), J. Nucl. Scie. and Technol., 28(12), 1115-1127 (1991).

3. 人工バリアに関する研究

地層処分では、ガラス固化体、金属容器、緩衝材等、それぞれのバリアが放射性核種の移行を遅延あるいは阻止することで安全性を確保する。そのため原研では、処分場からの放射性核種の漏出の原点であるガラス固化体の性能評価の一環として固化体の熱的安定性、放射線耐久性を検討してきた。さらに、容器の腐食機構を解明する研究に取り組むとともに、腐食物の鉱物化機構について研究を進めてきた。緩衝材の機能を向上させるための研究として、緩衝材構成鉱物への放射性核種の吸着挙動解明、及び長期安定性に関する研究も行っている。さらに、固化体からの放射性核種の浸出は、溶解度に規制されることを明らかにしたことから、溶解度をより低減化することは、処分の安全性向上のため重要と考え、新固化法の技術開発に取り組んでいる。

3. 1 廃棄物固化に関する研究

ガラス固化体の性能評価の一環として、浸出挙動に影響を与えると考えられる固化体の結晶化への熱的影響、及び放射線損傷の影響を検討する必要がある。さらに、現在のガラス固化体に代わるはるかに性能の良い第2世代固化体の開発が必要である。このため、ガラス固化体の浸出に影響を与える熱的安定性、放射線耐久性を調べるとともに、天然の岩石との共存性にすぐれ、より長期間安定なセラミック固化体の開発を進める。

ガラス固化体

人工バリア研究室 馬場恒孝

[目的]

ガラス固化体の浸出に影響を与える可能性のある固化体の熱的安定性、放射線耐久性（ α 崩壊）を調べるとともに、浸出現象を実験的に検討し、その機構を解明する研究を進める。さらに、ガラス固化体からの浸出量を予測する浸出モデルを検討するとともに、処分環境条件が固化体の浸出挙動に及ぼす影響を明らかにする。

[実験方法]

熱的安定性

模擬廃棄物含有ガラス固化体を失透させるため熱処理し、ガラス固化体中で形成される結晶相の種類を走査型及び透過型分析電子顕微鏡、X線回折等で同定するとともに、それら結晶相の割合を測定した。また、失透した試料の浸出実験をソックスレー法で行い、固化体の浸出に及ぼす失透の影響を調べた。

放射線耐久性

動燃事業団東海再処理工場の高レベル放射性廃液を使用して ^{244}Cm を添加したガラス固化

体を作製し、 α 崩壊による影響を加速し、所定の経過年数に相当したガラス固化体の物性評価試験（密度、浸出率、微細構造等の測定・観察）を行った。

浸出特性

試料として模擬廃棄物含有ホウケイ酸ガラスを用い、ソックスレー型及びMCC-1法浸出試験装置で100（または90） $^{\circ}$ Cで最長約1年までの実験を行った。溶液中へ浸出した各元素の量をICP発光分析、原子吸光分析により測定し、浸出期間中に固化体表面に形成された表面層のキャラクタリゼーションを、走査型及び透過型分析電子顕微鏡、X線回折等によって実施した。

[成果の概要]

熱的安定性

模擬廃棄物含有ガラス固化体に最大結晶化温度700 $^{\circ}$ Cで1,000時間の熱処理を施し、ガラス固化体中で形成される結晶相の種類((RE)B SiO₅, (Sr, Ba, RE)MoO₄, SiO₂, (Ru, Rh)O₂等)を同定するとともに、それら結晶相の割合は5 vol%程度であること、結晶化（失透）が必ずしも浸出を促進させる要因ではないこと等を明らかにした。また、転移温度近傍の510 $^{\circ}$ Cでの熱処理では結晶相の増加はほとんど観察されていない。これらの結果により、固化体を転移温度以下で保持すれば熱的な要因での性能変化はほとんど考慮する必要がないことを明らかにした。

放射線耐久性（ α 崩壊による影響）

²⁴⁴Cm添加実ガラス固化体試料の成分分析から、Cmがガラス固化体内に均一に分布していること、加速年時で約6千年、1万1千年における走査型電子顕微鏡観察の結果、試料に微細クラックなどの発生のないこと、浸出試験結果でもこれまでの類似組成試料について同条件で行ってきた試験結果と著しい差異がないこと、密度では約1万年相当時で約0.5%減少すること等の結果を得ている。

浸出特性

表3-1のような組成を持つ非放射性模擬廃棄物含有ガラス固化体を、ソックスレー型及びMCC-1法浸出試験装置により長時間、浸出させるとその表面が褐色に変化してくる。表面層を走査型及び透過型分析電子顕微鏡により観察、分析した結果から、Na, Csなど可溶性の元素は残らず浸出し、難溶性の水酸化物または水和物を形成するFe、希土類元素などは層内に残ることがわかった。また、Si, Al, Ca, Srなど比較的水に溶けにくい水酸化物を作る元素は部分的にこの層内に残る（図3-1）。変質層内に残る元素は時間の経過とともに、新たに(Ca, Ba, La, Ce, Nd)_x(Mn, Fe, Zr, Mg, Ni, Al)_y(Si, Al)_z(O, OH)_mなる化学形をもつケイ酸塩鉱物を形成することを明らかにした。これら変質層の解析結果は浸出液の元素分析から得られた結果とも調和している。

さらに、²³⁷Np及び²³⁸Puを含有させた固化体試料でそれらの浸出挙動を調べた結果、Np, PuとFe, Srはそれぞれ類似の浸出挙動を示すことが明らかになり、両元素は変質層内でそれ

それぞれの酸化物の水和物、 $\text{PuO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ 及び $\text{NpO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ を形成して残ることがわかった。このような実験結果を基に、ガラス固化体の浸出機構は図3-2に示すように考えられる。

固化体中の元素は、基本的には非晶質であるガラス中での拡散、水分子の浸入によるSi-O結合の破壊などによって生ずるガラス構造の変質、変質層の形成及び層内での水和、鉱物形成などの結晶化による固定化過程を経て水へは溶解によって浸出する。しかし、それぞれの過程で受ける影響の程度が元素の種類によって異なると考えられる。その違いから固化体中に含まれる元素を次の3つの群に分けて整理した。Ⅰ群はNa, Cs, B等からなり、それらの浸出はガラス中の拡散及び水によるガラス構造の変質過程に依存する。Ⅱ群はFe、希土類元素、Pu等からなり、それらはガラス及び変質層中でほとんど移動せず、層中での鉱物の形成の際に構成成分として取り込まれる。それゆえ、この群の元素の浸出は変質層の構成物質（例えばケイ酸塩鉱物）の水による溶解によって支配され、その浸出量は非常に少ない。Ⅲ群はSi, Al, Ca, Sr, Np, Mg, Ba等からなるが、それらの元素は必ずしも同一の浸出挙動を示すわけではない。しかし、この群の元素の浸出は水によるガラス構造の変質過程に依存し、しかもこれらの元素は変質層中での生成結晶の構成成分として一部が取り込まれることで共通している。

さらに、拡散を基本として変質層の成長、進化を移動境界及び結晶化反応として表す拡散モデルを提案した。

表3-1 固化ガラスの組成例

成 分		組 成 (wt %)
ガ ラ ス 添 加 物	SiO_2	46.7
	B_2O_3	14.3
	Al_2O_3	5.0
	Li_2O	3.0
	CaO	3.0
	ZnO	3.0
廃 棄 物	Na_2O	9.6
	P_2O_5	0.3
	Fe_2O_3	1.9
	NiO	0.5
	Cr_2O_3	0.5
	F.P.酸化物	9.8
	アクチニド酸化物	2.4
合 計	100.0	

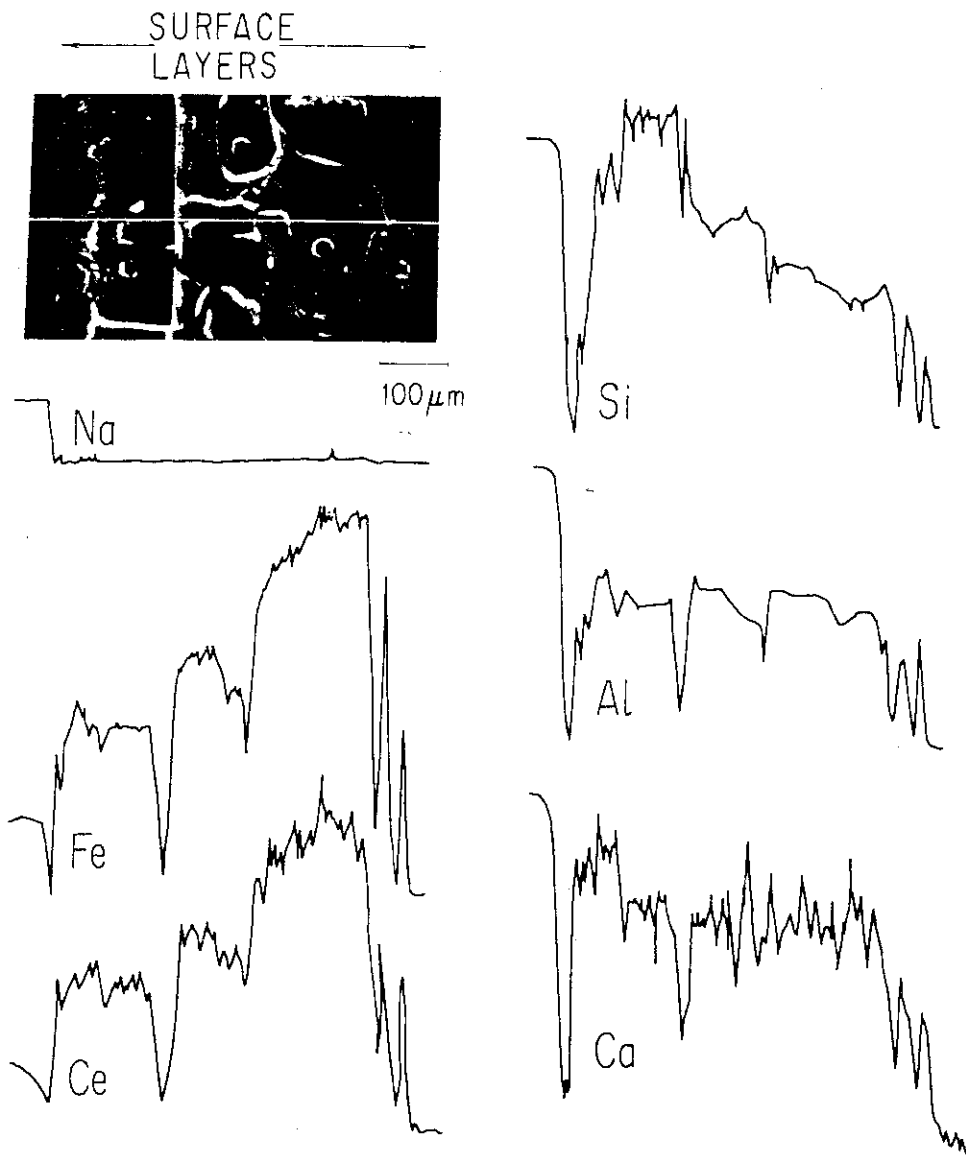


図3-1 ガラス固化体表面に形成された変質層断面のSEM写真と主な元素分布

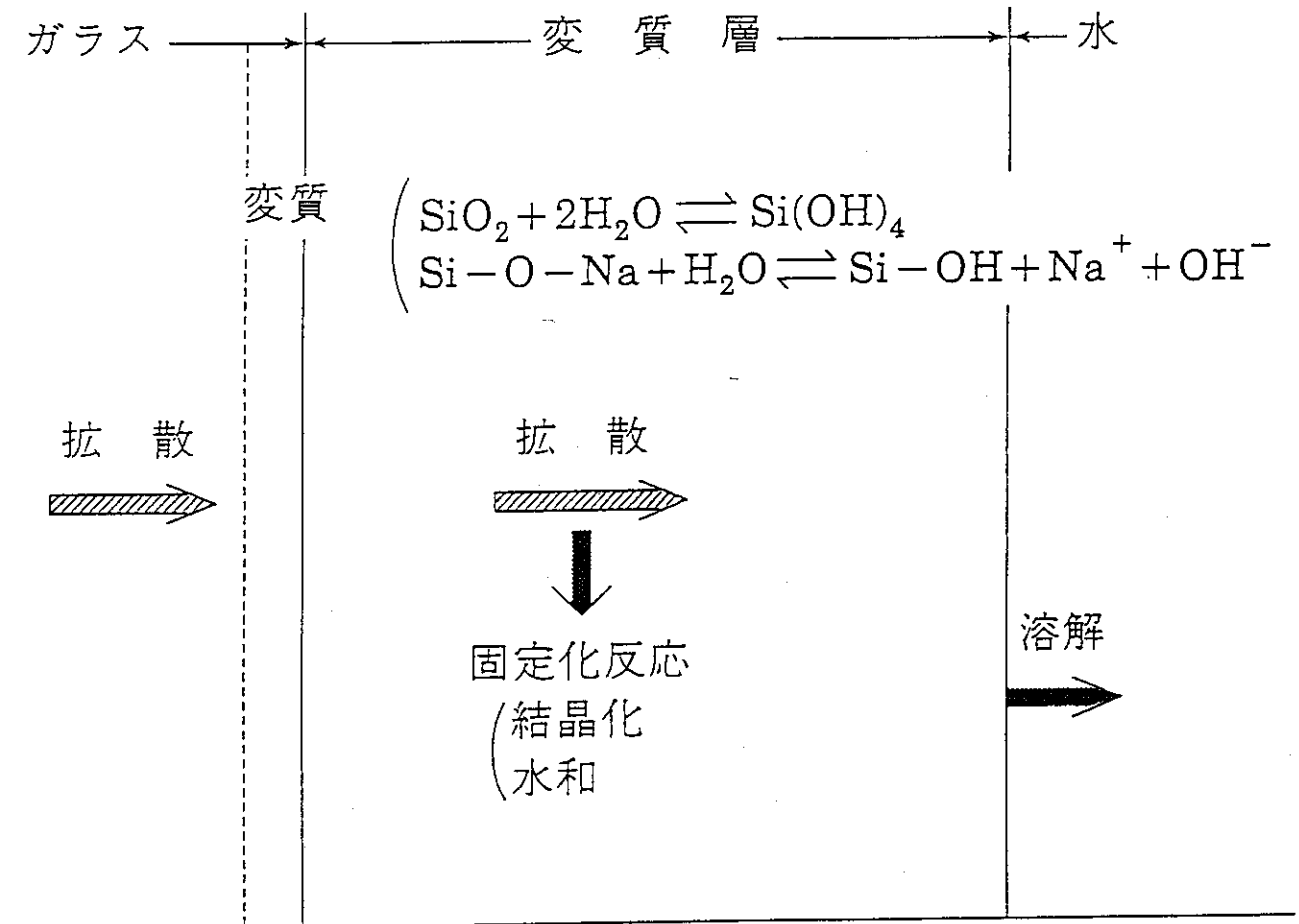


図 3-2 ガラス固化体の浸出機構

[公表した成果]

1. H. Mitamura, T. Banba, H. Kamizono, Y. Kiriya, M. Kumata, T. Murakami and S. Tashiro; Segregation of the Elements of the Platinum Group in a Simulated High-Level Waste Glass, Nucl. Chem. Waste Manage., 4, 245-251 (1983).
2. T. Murakami and T. Banba; The Leaching Behavior of a Glass Waste Form - Part I: The Characteristics of Surface Layers, Nucl. Technol., 67, 419 (1984).
3. T. Banba and T. Murakami; The Leaching Behavior of a Glass Waste Form - Part II: The Leaching Mechanisms, Nucl. Technol., 70, 243 (1985).
4. H. Mitamura, T. Murakami, T. Banba and T. Amaya; Small Calciner for Drying and Calcination of Synroc Slurry, Nucl. Technol., 73, 384-388 (1986).
5. H. Mitamura, T. Murakami and T. Banba; Effects of Crystalline Phases on Leaching of a Devitrified Simulated High Level Waste Glass, Nucl. Chem. Waste Manage., 6, 223-231 (1986).
6. H. Mitamura, T. Murakami and T. Banba; Crystalline Phase in a Devitrified Simulated High-Level Waste Glass Containing the Elements of the Platinum Group, J. Nucl. Mater., 136, 104-116 (1986).
7. T. Banba, T. Murakami and H. Kimura; The Leaching Behavior of a Glass Waste Form - Part III: The Mathematical Leaching Model, Nucl. Technol., 76, 243 (1987).
8. S. Nakayama and T. Banba; Release of Neptunium from Neptunium-Doped Borosilicate Waste Glass, J. Nucl. Sci. Technol., 26, 607-615 (1989).
9. T. Banba, K. Nukaga and T. Sagawa; Temperature Effect on Plutonium Leaching Rate of Nuclear Waste Glass, J. Nucl. Sci. Technol., 26, 705 (1989).
10. P. Cheron, Ph. Chevalier, R. Do Quang, T. Tanguy, M. Sourrouille, S. Woigner, M. Senoo, T. Banba, K. Kuramoto, T. Yamaguchi, K. Shimizu, C. Fillet, N. Jacquet-Francillon, J. Godard, J.L. Dussoy, F. Pacaud and J.G. Charbonnel; Examination and Testing of an Active Glass Sample Produced by COGEMA, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 353, 55 (1995).
11. T. Banba, S. Matsumoto, T. Tsuboi, E.R. Vance, B.D. Begg and K.P. Hart; Effects of Alpha Decay on the Properties of Actual Nuclear Waste Glass, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 353, 1397 (1995).

[今後の展開]

高レベル放射性廃棄物に含まれる長半減期TRU核種に注目し、処分環境を模擬した条件下でTRU核種等の浸出試験を実施し、処分環境下でのガラス固化体の浸出挙動を解明する。

具体的には、酸化還元雰囲気の下でPu, Cm等のTRU核種を含有させたガラス固化体試料の浸出試験を実施し、雰囲気条件がTRU核種の浸出に及ぼす影響を定量的に明らかにし、モデルの検証に用いる。また、緩衝材消失時を仮定し、地下水流速がガラス固化体の浸出に与える影響を明らかにするため、TRU核種等を含有するガラス固化体試料を用いて低流速条件下での浸出試験をWASTEフットセル内で実施する。

新セラミック固化体の開発

人工バリア研究室 三田村久吉

〔目的〕

核燃料サイクルから発生する高レベル放射性廃棄物の処理処分において、処分地選定条件の許容性をより幅広いものとするためには、現在のガラス固化体に代わるはるかに性能の良い第2世代固化体の開発が必要である。このため、天然の岩石との共存性にすぐれ、地下深くの熱水条件下でも安定なセラミック固化体として開発されたシンロック（多相チタン酸塩セラミック）及びジルコニア基・アルミニウム基セラミックを第2世代固化体の代表例として取り上げ、核燃料サイクル廃棄物固化への適用性評価を行う。

＜シンロックの開発＞

〔実験方法〕

TRU核種の α 崩壊による長期間の放射線損傷を受けたシンロックの長期安定性を評価するため、WASTEFのホットセルを使い、短半減期のTRUを添加して α 加速試験を行った。

固化母材と10%の模擬廃棄物のスラリー状混合物に、 ^{244}Cm 溶解液を添加し、還元ガス雰囲気中で仮焼した後、チタン粉末を添加し、黒鉛型枠を使って $1,200^{\circ}\text{C}\cdot 29\text{MPa}$ でホットプレスを行い、約2cm径、高さ1cmのペレット状試料を作製した。固化体の α 比放射能は1g当り0.6-0.7Ciであった。作製試料の一部については表面研磨後、発熱量測定や定期的な密度測定などを行い、他の試料についてはさらに切断・研磨を行って、X線回折測定及び浸出試験を行った。浸出液中の溶出成分の定量には、 γ 線測定法、原子吸光法並びにICP分析法を用いた。

〔成果の概要〕

Cm 添加シンロックの主要な構成鉱物は、ホランダイト（H）相、ペロブスカイト（P）相、ジルコノライト（Z）相で、NaやFeなどの不純物の多い廃棄物を固化したシンロックではその他にフロイデンバーガイト（F）相が生成していた。

Cm 添加試料の密度は線量の増加と共に徐々に減少しており、プロセス不純物の少ない廃棄物を固化したシンロックでは10万年の加速年数が経過しても同じ様な速度で減少し続けていた。一方、NaやFeなどの不純物の多い廃棄物を固化したシンロックでは、亀裂が生じた結果、1万年を過ぎた頃からより大きな見かけ密度の減少が見られた。これにより、固化体の相構成の変化により機械的強度が変化することが確認できた。

固化体の熱的安定性を検討するため、 Cm 添加試料を 200°C に保管し続けた場合、室温に保管し続けたものと比べて密度の減少量が約半分と少なくなり、放射線損傷の熱回復が起きていることが分かった。これにより、処分時の温度上昇はセラミック固化体の安定性の有利に働くことが確認できた。

より高温での熱処理による放射線損傷の回復減少をX線回折で調べた結果、アクチニドの母相であるP相とZ相の回復が著しいことが分かる。これは、アクチニド母相がアルファ崩

壊による反跳核のためにより大きな放射線損傷を受けていたことが確認できた。

α 崩壊線量の増加による構成鉱物相の耐浸出性における変化を調べるため、検知手段としてそれぞれの可溶性成分に着目し、Na, Cs, Sr, Caの浸出率を比較した。NaやFeなどの不純物の多い廃棄物を含むシンロックでは、3万年経過後にNa, Cs浸出率はほぼ10倍、Sr, Caはほぼ100倍増加していた。このことから、亀裂の発生により、表面積が10倍増加し、さらにアクチニド母相の耐浸出性が1/10になることが確認できた。

[公表した成果]

1. H. Mitamura, S. Matsumoto, W. J. Buykx and S. Tashiro; "Fabrication of Curium-Doped SYNROC for an Alpha Radiation Stability Test," Nucl. Technol., 85, 109 (1989).
2. H. Mitamura, Y. Togashi, S. Matsumoto, Y. Tamura, S. Tashiro, T. Miyazaki; "Well-Type NaI(Tl) Spectrometry for Quantitative Analysis of ^{244}Cm Leached from Curium-Doped Synroc," Appl. Radiat. Isot., 41[9], 839 (1990).
3. T. Miyazaki, T. J. White, H. Mitamura, S. Matsumoto, K. Nukaga, Y. Togashi, T. Sagawa and S. Tashiro; Self-Irradiation Damage of a Curium-Doped Titanate Ceramic Containing Sodium-Rich High Level Nuclear Waste, J. Am. Ceram. Soc., Vol. 73, 3433 (1990).
4. H. Mitamura, S. Matsumoto, Y. Tamura, Y. Togashi, K. P. Hart, E. R. Vance and T. J. White; Aging Effects on Curium-Doped Titanate Ceramic Containing Sodium-Bearing High-Level Nuclear Waste, J. Am. Ceram. Soc., 75, 392 (1992).
5. H. Mitamura, S. Matsumoto, T. Tsuboi, M. Hashimoto, Y. Togashi, H. Kanazawa, M. W. A. Stewart, E. R. Vance, K. P. Hart, C. J. Ball and T. J. White; "Alpha-Decay Damage Effects in Curium-Doped Titanate Ceramic Containing Sodium-Free High-Level Nuclear Waste," J. Am. Ceram. Soc., 77[9], 2255 (1994).

<ジルコニウム基・アルミニウム基セラミック>

人工バリア研究室 蔵本賢一

[実験方法]

固化母材自身が難溶性で、しかもTRU核種により置換され結晶構造中に固溶する固化体として、ジルコニウム基及びアルミニウム基セラミックを取り上げた。母材とTRU模擬元素の所定量の試薬を混合し、仮焼した後、ボールミルで粉碎した。一軸加圧によりペレット状に成形し、ジルコニウム基固化体に関しては酸化性雰囲気下で、アルミニウム及び複合固化体については還元性雰囲気下で、通常焼結を行った。結晶学的相安定性評価のため粉末X線回折測定(XRD)を行うとともに、ペレット試料を用いてSEM観察・EDX分析を行った。化学的耐久性の評価には75 μm 以下に分級した粉碎試料を用い、表面積を測定した後、1つは固化体の耐久性に及ぼすTRU含有量の影響をみるために0.1M硝酸溶液を用い、もう1つは固化体の一般的な耐久性をみるために脱イオン水を用いて、150 $^{\circ}\text{C}$ 及び90 $^{\circ}\text{C}$ での浸出試験を行った。粉碎した際にできる微粉などの溶解しやすい部分を取り除くために予備浸出を行った後、最大114日の試験を行った。

[成果の概要]

ジルコニウム基セラミック

ジルコニウム基セラミックとしては、(A) 8 mol%の Y_2O_3 を含む安定化ジルコニア、(B) パイロクロール型 $La_2Zr_2O_7$ を候補材として選び、これらに3価、4価のTRU模擬廃棄物としてそれぞれNd, Ceを加え、固化体特性を調べた。

固化体(A)では、XRDによる格子定数の測定から、Ndが19.4%、Ceが48.2%及び(Nd+Ce)が(24.1+24.1)%のモル比まで固溶することを確認した。また、Nd及びCeの添加量が増えるに従い、固化体の格子定数は直線的に増加し、しかもCeよりもNdのイオン半径が大きいため、Nd添加試料の格子定数の変化量がより大きくなることが分かった。浸出試験の結果から、固化体の耐久性は良好で、NdよりもCeを含有した方が浸出率は低く、しかもCe添加量が増えるに従って浸出率はさらに減少した。逆に、Nd含有の場合はNd添加量の増加とともに浸出率は増加した。一方、Nd, Ceの両元素を含有した場合、Ceの浸出率は増加したが、Ndの浸出率は減少した。図3-3で明らかのように脱イオン水中での浸出率は $10^{-7} g \cdot m^{-2} \cdot day^{-1}$ 以下の低い値を示すことが分かった。

一方、固化体(B)では、Ndを加えた場合、Ndが100%のモル比となる $Nd_2Zr_2O_7$ の組成まで全域固溶することが明らかとなり、3価のTRUを多量に含有することが可能であることが示唆された。4価主体のCeについても同様に格子定数の測定から、Ceが27%のモル比まで固溶することを確認した。浸出試験の結果から、Nd固溶させた場合、90°C、脱イオン水中で浸出率が $10^{-5} g \cdot m^{-2} \cdot day^{-1}$ 以下となり、良好な化学的耐久性を有することが分かった。Ceを含有する系での結晶相は含有量により大きく変化するが、90°C、脱イオン水中でのCeの浸出率は、Ndを含む場合と同様に比較的一定の低い値を示すことが分かった。

アルミニウム基セラミック

Ndを含有する固化体はペロブスカイト(P)相及びアルミナ相から成り、Ceを含有する固化体はマグネットブランバイト(MP)相から成り、Nd, Ce両元素を含有した固化体にはこれら3相が混在していることを確認した。

固化体内でP相及びMP相はそれぞれ、数 μm の多面体及び板状粒子の形をしており、固化体の密度はMP相の減少に従って増加する傾向にあった。このことから、高密度の固化体を作製するにはMP相を抑制する必要があることが分かった。

図3-3に示すように、Ndを含有するアルミニウム基セラミックの脱イオン水中での化学的耐久性は、P相の比較的高い溶解性に支配されて低下することが明らかとなった。

ジルコニウム基-アルミニウム基複合固化体

Ndを含有する複合固化体ではジルコニア相とP相、Ceを含有する複合固化体ではジルコニア相とMP相、Nd, Ce両元素を含有する複合固化体ではジルコニア相、P相、MP相が混在し、各相ともNd及びCeを含んでいることを確認した。図3-3に示すように、Ceを含有する複合固化体は、浸出率が十分低い値を取っているものの、Ndを含有する複合固化体では、P相の比較的高い溶解性に支配されて浸出率が高くなることが明らかとなった。

[公表した成果]

1. H. Kamizono, I. Hayakawa and S. Muraoka; "Durability of zirconia-containing ceramic waste forms

- in water", J. Am. Ceram. Soc., 74, 863-864 (1991).
2. I. Hayakawa and H. Kamizono; "Leaching of Al₂O₃-based nuclear waste forms", J. Nucl. Sci. Technol., 30, 673-679 (1993)
 3. T. Yanagi, Y. Makino, K. Kuramoto and S. Muraoka; "Accommodation of cerium and neodymium oxide into alumina", J. Nucl. Sci. Technol., 31, 1092-1096 (1994)
 4. S. Muraoka, H. Mitamura, S. Matsumoto, E. R. Vance, K. P. Hart :JAERI/ANSTO Co-operative Research on Radiation Damage and Actinide Behaviour in Synroc, Proceedings of 9th Pacific Basin Nuclear Conference, Sydney, 873-877 (1994)
 5. K. Kuramoto, Y. Makino, T. Yanagi, S. Muraoka and Y. Ito; "Development of zirconia- and alumina-based ceramic waste forms for high concentrated TRU elements", in Proceedings of Global 1995, Versailles, 1838-1845 (1995).

[成果の寄与]

TRU含有セラミック固化体の長期安定性を評価するための耐放射線性評価手法の開発、さらには長期安定性に優れた新セラミック固化体の開発への糸口を与えた。

[今後の展開]

シンロック固化体の開発に関しては、構成鉱物についての α 加速試験を行うとともに、シンロックの核燃料サイクル廃棄物固化体への適用性評価を行う。さらに、多相セラミック固化体の特徴を生かし、Puのワンスルー型燃焼における核燃料であるとともに、そのまま廃棄物固化体となる新セラミック固化体の開発を行う。

ジルコニウム基セラミック固化体の製造に関連して、固化体焼結時の微構造変化についてシミュレーションを行い、理論的側面から固化体作成の最適化を行う。さらに、固化体の焼結時収縮特性を精密解析し、焼結プロセスの改良を計る。併せて、固化体の曲げ強度と靱性を解析し、固化体の微構造と強度特性との関係を理解することにより、強度特性を向上させる微構造制御を行う。特性評価に関連しては、TRU添加試料を作製し、固化体におけるTRU核種の固溶・溶出機構及び固化体特性への放射線損傷の影響を明らかにする。

[参考文献]

- [1] (Eds.) W. Lutze and R. C. Ewing: "Radioactive Waste Forms for the Future," Elsevier Science Publishing, New York, NY, 1988.

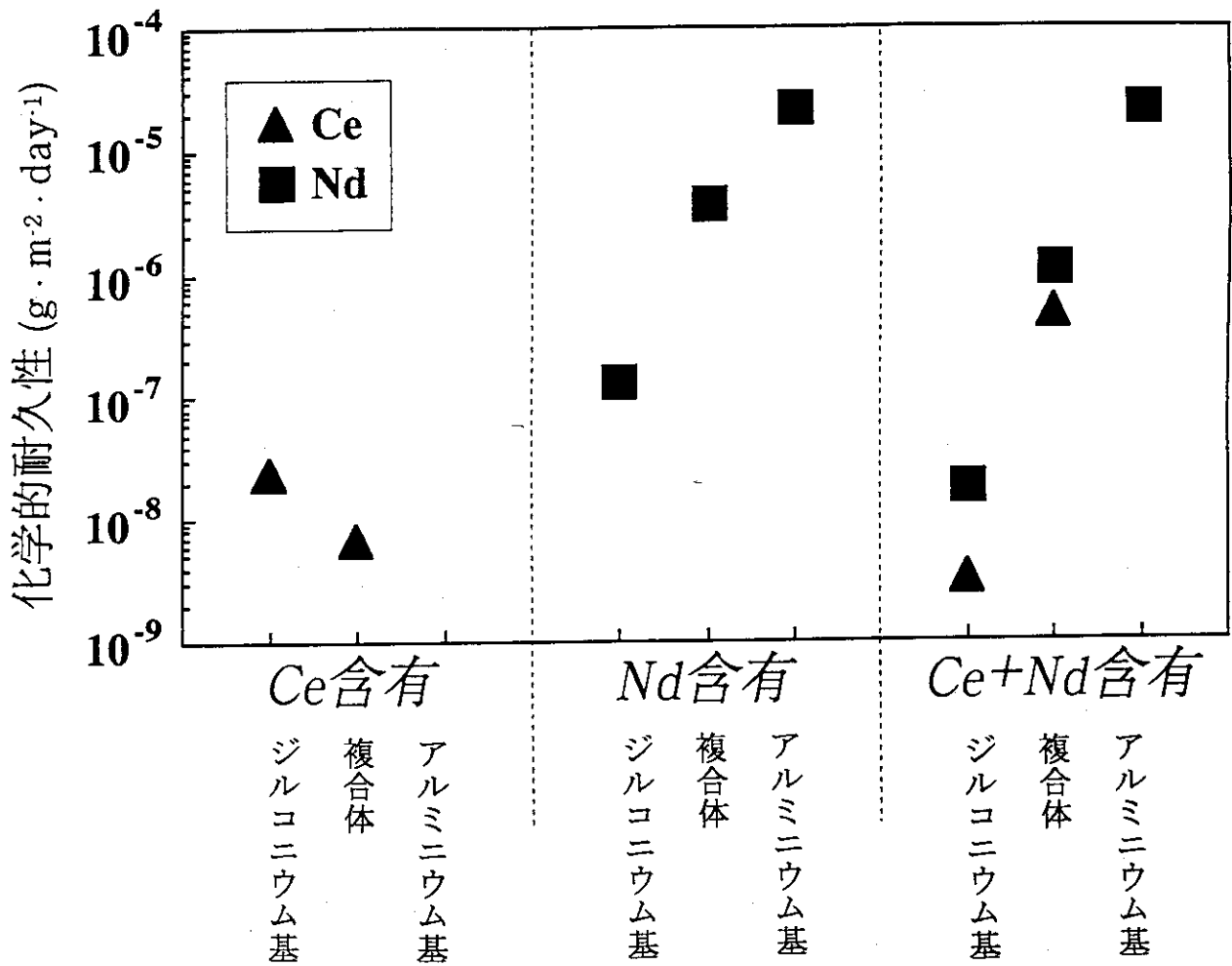


図3-3 安定化ジルコニウム基セラミック、アルミニウム基セラミック及びジルコニウム基-アルミニウム基複合固化体の化学的耐久性
 アルミニウム基セラミックにおけるCe含有及びCe+Nd含有試料のCeの浸出率はそれぞれ $<7.5 \times 10^{-9}$ 、 $<1.5 \times 10^{-8} \text{ g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$

3. 2 キャニスター、オーバーパックに関する研究

キャニスター、オーバーパック等のガラス固化体の金属容器が健全であれば、廃棄物処分場からの放射性核種の漏出はない。容器の健全性を損なう原因の一つは腐食であり、ガラス固化体からの熱及び γ 線に曝される金属容器材の応力腐食割れは、容器材の性能を考える上で重要な項目の一つである。また、オーバーパック材に炭素鋼等を用いた場合の容器表面に形成される鉄の腐食生成物は、核種の移行に対する遅延効果が期待される。そこで、本研究では、腐食に関する研究と鉄鉱物の生成に関する研究を進めている。

腐食に関する研究

天然バリア研究室 熊田政弘、村岡進

高レベル廃液ガラス固化体に含まれている多量の核分裂生成物により、キャニスター及びオーバーパックは γ 線にさらされ、キャニスターが受ける γ 線吸収線量率を例えばDCHAIN codeを用いて計算すると、 5.6×10^5 rad/hになる¹⁾。

キャニスター材料としては、SUS304をはじめとするオーステナイト系のステンレス鋼が、オーバーパック材料としてはインコネル600などのニッケルベース合金などが、それぞれ有望視されている²⁾。これらの金属材料は、通常の大気環境下あるいは水溶液中においてはすぐれた耐食性を示すものであるが、 γ 線照射環境下での耐食性については、十分な情報がなかった。

そこで、原研では、昭和56年からキャニスター材の腐食に関する研究を開始し、特に、 γ 線照射下における応力腐食割れの研究を進めるとともに、天然の地下水中における腐食について検討を行った。

〈ガラス固化体金属容器の応力腐食割れに及ぼす γ 線照射の影響〉

[目的]

ガラス固化体のキャニスター及びオーバーパック材料として考えられているステンレス鋼等の合金及び低炭素鋼について、応力腐食割れ感受性に対する γ 線照射の影響を調べた。

[実験方法]

1. ダブルUベント法

①第一次試験：SUS304、SUS304L、SUS304EL、SUS309S、Incoloy 825、Inconel 600、Inconel 625及びSMA50の8種類について、溶接あるいは熔融ガラスの充填による熱影響を模擬した鋭敏化のための熱処理を施し、試験片をダブルUベンドの形状に加工して試験片へ定ひずみ応力を付加した。さらに、応力腐食割れの促進をおこなうために、頂部にVノッチを入れた試験片を作成した(図3-4)。

これらの試験片を $310^{\circ} \times 150^{\circ} \times 400^{\text{h}}$ mmのアルミニウム製水槽に入れ、約15ℓのイオン交換水を満たして投げ込みパイプヒータにより沸騰状態にした。水槽から若干放出する水の減少

を補なうため、外部から約20/dのイオン交換水を自動的に補給した。原子炉化学部の⁶⁰Co放射線源から約35cmの距離に水槽を設置し、試験期間中約 1.1×10^5 R/hの照射線量率で試験片を γ 線照射した。

②第二次試験：鋼種をSUS304に限定し、試験容器として、パイレックスガラス製のフラスコ(10)とコンデンサを使用して、蒸気がほとんど完全に還流されるようにし、補給水から試験水槽中へ、応力腐食割れの誘因となる溶存酸素などの混入を防いだ。

また、比較のため、非照射下においても γ 線照射下での試験と同様の試験を同時に行った。

応力腐食割れにおよぼす因子のなかで、もっとも大きな影響を与える因子の一つである塩素イオン濃度をJISK1010の吸光光度法により測定した。

試験後、各試験片の目視観察及び試験片長手方向切断面の光学顕微鏡観察により、割れの有無、割れ深さ及び割れ数を測定することによって応力腐食割れ感受性の評価を行うとともに、走査型電子顕微鏡による応力腐食割れの破面形態の観察、顕微鏡組織観察及びかたさ測定を行い、 γ 線照射の影響を調べた。

2. 極低歪引張試験 (SSRT) 法

試験体の鋼種は、鋭敏化のために熱処理を施したSUS304鋼及び1020炭素鋼である。腐食環境は、玄武岩層の地下水を模擬した90℃の水溶液で、セル空間をArガスで充填した。 γ 線源は⁶⁰Coを使用し、約 3.3×10^4 R/hrの照射線量率で照射を行った。照射下、非照射下の歪速度は $10^{-7} \sim 10^{-6}$ /secに制御し、破断時間、最大荷重及び破断時荷重を測定した。テスト期間中連続して自然電位を測定するために、テストセルと標準電極間を塩橋で結合した。試験終了後、破断面及び割れの縦断面を顕微鏡で観察し、割れの形態を調べた。

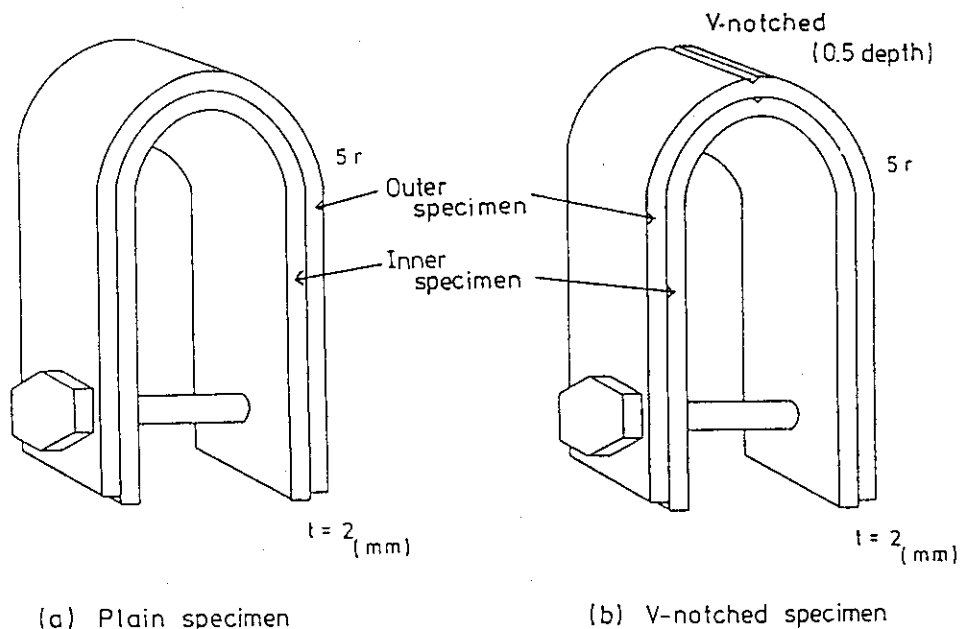


図3-4 応力腐食割れ試験に用いたダブルUベント試験片模式図

[成果の概要]

1. ダブルUベント法

①第一次試験では、 γ 線照射、非照射の区別なくSUS304、SUS304L及びSUS309Sに応力腐食割れが生じ、他の合金に割れは生じなかった。SUS304に生じた応力腐食割れは、7日、14日及び30日間の浸漬試験では、ダブルUベンドの内側試験片に限り認められ、ダブルUベンド試験片の間隙が応力腐食割れを加速していることを示した。60日、90日及び180日間の浸漬試験で生じた応力腐食割れは、VノッチなしのダブルUベンド試験片では、内側試験片に限られた。一方、ノッチ付きのダブルUベンド試験片では、内外の試験片ともに割れを生じた。これらの応力腐食割れの形態は、すべて典型的な粒界割れであり、14日間以上の浸漬時間では、いずれも厚さ2mmの試験片を貫通した。

SUS304の7日、14日及び30日間の浸漬試験によって生じた応力腐食割れの割れ数は、全体に γ 線を照射しない場合に比べて、 γ 線を照射した場合のほうが数が多く、 γ 線照射によって応力腐食割れ感受性が高まる傾向が認められた。

γ 線照射及び非照射下のそれぞれについて、浸漬試験後の試験水を採取して塩素イオン濃度を測定した結果、0.2~3.8ppmの塩素イオンが測定され、通常、比抵抗が $5 \times 10^6 \Omega \cdot \text{cm}$ 以上のイオン交換水中の塩素イオン濃度は0.1ppm以下であることから、これらの塩素イオンは補給水から混入したものと考えられた。

本試験において、SUS304、SUS304L及びSUS309Sの3鋼種が粒界応力腐食割れ感受性を示した。試験鋼は、いずれも溶体化熱処理後、鋭敏化熱処理を施したので、C含有量の比較的多いこれらの鋼種では、Cr炭化物の粒界析出に基づくCr欠乏層の生成によって、応力腐食割れ感受性を示したものと思われる。キャニスターは、その中にガラス固化体が入っているので、溶接などによる熱影響部を熱処理などによって取り除くのは困難と考えられ、キャニスター材料としてこれらの材料を採用するに当たっては、水分が存在する環境下では応力腐食割れを引き起こしやすくなるので注意を要する。

Incoloy-825及びInconel-625は、いずれもTi、Nbのような安定化元素が多量に含まれていることによって上記熱処理ではCr欠乏層は生成しないと考えられ、応力腐食割れは生じなかった。Inconel-600は、Incoloy-825及びInconel-625と異なり安定元素は含まれていないが、応力腐食割れは生じなかった。Inconel-600は、高Ni含有量のため、C及びCrの拡散が速く、そのため、700°C前後で長時間加熱されると、Cr欠乏層へのCrの再拡散によって欠乏層が回復し、粒界応力腐食割れ感受性が低下するとの報告がある²⁾。本試験においても、700°C×100minの熱処理でCr欠乏層の回復が生じているものと思われること、及び試験環境温度が低い(100°C)ことのため応力腐食割れが生じなかったものと推察される。

②第二次試験では、SUS304鋼について、 γ 線照射をしない場合でも比較的短時間で応力腐食割れを起こした原因が、補給水から混入したと思われる塩素イオン、及び溶存酸素と考えられたので、水を補給しない方法によって、応力腐食割れ試験をおこなった結果、Vノッチなし試験片では、 γ 線照射の場合の内側試験片にのみ応力腐食割れが生じた。7日間の浸漬試験では0.8~1.1mm深さの割れが発生し、14日間、30日間と浸漬が長くなるとともに割れは深くなり、60日間の浸漬時間では2mmの試験片を貫通した。一方、Vノッチ付きでは、内側試験片だけでなく、外側試験片のノッチ底部からも応力腐食割れが生じた。試験水中の

塩素イオン濃度は、 γ 線照射及び非照射下ともに、0.7ppm以下であった。

試験後のSUS304の光学顕微鏡組織観察では、 γ 線照射下と非照射下において、それらの組織に差異は認められなかった。応力腐食割れ破面の走査電顕による観察においても差異は認められなかった。各供試鋼試験片についてかたさを測定した結果、 γ 線照射と非照射下の場合とでは、それらのかたさにもほとんど差異がなく、いずれも通常のバラツキの範囲内であった。

本研究においては、 γ 線照射による環境条件の変化について解明するには至らなかったが、外部からの塩素イオン、溶存酸素の混入を防止した条件下において、 γ 線照射の場合に限り応力腐食割れが生じた。割れ形態は、非照射下での溶存酸素を含む高温高压水中におけるSUS304の粒界応力腐食割れ³⁾と同様であった。また、VノッチなしのダブルUバンド試験片では、内側試験片にのみ応力腐食割れが生じるという隙間の応力腐食割れ加速効果⁴⁾が認められた。この隙間腐食の発生には酸化剤の存在が不可欠であることから、 γ 線の照射によって、 O_2 などの酸化剤として作用する物質が生成し、これらが、SUS304の応力腐食割れに対して影響をおよぼしたものと考えられる。

2. 極低歪引張試験 (SSRT) 法

SUS304鋼では、照射下において破断時間が短くなる傾向が見られた。破断面及び縦断面を顕微鏡 (SEM及び光学顕微鏡) で観察した結果、 γ 線照射下、非照射下ともに、典型的な粒界割れが見られた。1020炭素鋼では、破断時間、最大荷重、破断時荷重とも照射下、非照射下で顕著な差は見られなかった。割れの縦断面を顕微鏡で観察した結果、照射下、非照射下とも一部には応力腐食割れが観察されたが、有意な差は見られなかった。今後、溶液のpHなどの影響についても検討していくとともに、十分な試験体数にしていく必要があると考えられる。

[公表した成果]

1. 降矢 喬、泊里治夫、藤原和雄、熊田政弘、村岡 進、中村治人、荒木邦夫 高レベル廃棄物ガラス固化体容器用ステンレス鋼の応力腐食割れにおよぼすガンマ線照射の影響、FAPIG、vol.111、71-75 (1985).

<花崗岩岩盤中における金属材料の腐食割れ試験>

[目的]

キャニスターやオーバーパックの候補材料と考えられる金属について、天然の地下水条件下で応力腐食割れ (Stress Corrosion Cracking-SCC) に主眼をおいた耐久性試験を実施し、腐食に及ぼす地下水条件の影響を調べる。

[実験方法]

花崗岩岩盤中に設けたボーリング孔内にヒータを挿入して75°C (70~80°C) における高温試験及びヒータを入れない常温試験 (20~25°C) を実施するとともに、比較のため純水を満

たした容器を恒温槽内に設置して75°Cの条件で、鋭敏化処理を施したダブルUベントタイプ試験片を用いた応力腐食割れ試験を行った。

試験に用いた金属材料は、SUS-304、SUS-304L、SUS-304EL、SUS-309S、Inconel-600、Inconel-625、Incoloy-825、Hastelloy-C、Ti-6Al-4V、Titaniumの10種で、SUS-304L、SUS-304EL、Inconel-600、Inconel-625、Incoloy-825、Hastelloy-Cの6種類の金属材料については、肉厚2mmの大型ダブルUベント試験片を用い、さらに応力腐食割れが促進されるようにVノッチを入れた大型ダブルUベント試験片も用いた。他の4種類についてはVノッチのない小型ダブルUベント試験片を用いた。

岩盤内の試験では、途中試験孔を変更した。開始から7カ月までは試験室壁面から水平下向き約4°に穿孔したφ66、長さ約7mのボーリング孔内で、8カ月以降は、試験室壁面から水平下向き約6°に穿孔したφ66、長さ約6mのボーリング孔を試験孔として試験を継続した。試験片を所定の保持治具にステンレス鋼線で吊し、試験孔内にしみだしてきた岩盤中の地下水の中に完全に浸した。高温試験では、その保持治具に螺旋状に巻いたニクロムヒーターを取り付けたものを使用し、試験片を3本のヒーター支持棒の1本に吊下げた。ヒーター出力を調整して試験孔内の水温を約75°Cに保持した。

室内比較試験は、金属種類別に3～6個の試験片を純水に満たしたテフロン容器に入れ、75°Cに設定した恒温水槽内に容器ごと置いて試験した。

試験開始当初は、肉眼観察による記述記録を行っていたが、その後、肉眼観察による記述・スケッチ併用記録、ルーペ観察による記述・スケッチ併用記録、ライト付ルーペ観察による記述・スケッチ併用記録の各方法に順次切り替え、その正確さの向上に努めた。肉眼観察法はルーペ観察法よりも、またルーペ観察法はライト付ルーペ観察法よりも過大評価しがちであった。原位置における高温試験孔と常温試験孔からサンプリングした地下水中のCl⁻及びSO₄²⁻濃度はそれぞれ約3.5ppm、及び約3ppmと安定した値を示していた。

[成果の概要]

今回実施した10種の金属材料の応力腐食割れに対する耐久性能を単純に比較することはできない。しかし、同じタイプの試験片を用いて実施したSUS-304L、SUS-304EL、Inconel-600、Inconel-625、Incoloy-825、Hastelloy-Cの6種について比較した場合、応力腐食割れ感受性の度合は、今回の試験条件、及び試験時間内において、SUS-304L > Hastelloy-C > SUS-304EL、Inconel-600、Inconel-625、Incoloy-825の順であった。

早期に応力腐食割れを起こしたSUS-304Lなどについては、観察間隔を短くして再度試験してみることも必要と考えられる。原位置で行う試験におけるすべての試験について、試験条件・環境を的確に精度良く把握することは困難であると考えられる。このような観点から、本試験における改善点は多いと思われる。

[成果の寄与]

高レベルガラス固化体容器用金属材料の応力腐食割れに及ぼすγ線照射の影響等の試験研究を通して、少なくとも、応力腐食割れの初期段階においては、γ線照射の影響が認められる等、キャニスター材及びオーバーパック材の評価においてはγ線照射の影響が無視できないことを明らかとし、材料選定に際しての一つの指針を与えるなど処分の安全評価に寄与した。

[今後の展開]

γ 線照射の影響及び花崗岩岩盤中における金属材料の腐食割れ試験のいずれにおいても、割れの発生を定量的に評価するために試験体数を増やして統計的に処理できるようにする必要がある。また、天然条件での腐食試験では、できるだけ長期のデータを取得するとともに、溶存酸素、Eh、pHなどの地球化学的見地から考えて、地下深部における耐久性試験などが有用と考えられる。

参考文献

- 1) 田坂完二：JAERI-1250(1977).
- 2) 降矢 喬、他：JAERI-M、82-007(1982).
- 3) M. Kowaka, et al. : Nuclear Technology Vol.55, p.394(1981).
- 4) 藤原和雄、他：防食技術、Vol.30、p.270(1981).
- 5) K. Fujiwara, et al. : Corrosion、Vol.38、No.2、p.69(1982).

鉄鉱物の生成に関する研究

地質環境研究室 永野哲志

[目的]

オーバーパックの腐食生成物である鉄化合物は、地下水中の核種を吸着、固定し、処分場周辺岩盤への移行を阻止することが期待できる。固定能の大きさや地球表層中での多さから、鉄鉱物の代表的なものとしては、ゲータイトやヘマタイトが考えられるため、非晶質水酸化鉄の結晶化速度を求めるとともに結晶化機構について明らかにする。

[実験方法]

硝酸鉄水溶液に水酸化ナトリウムを加えpHを調製した後、生成した非晶質沈殿物をオーブン内で熟成させる。沈殿物の色の変化を色彩色差計で追跡し、生成される結晶相や結晶化の速度を調べた。

[成果の概要]

茶色の非晶質鉄水酸化物の熟成試料を色彩色差計で測定し、その値をa^{*}-b^{*}座標系上に表記した。ゲータイトでは、結晶化とともに原点近くからb^{*}軸に平行な変色のパターンを示し、ヘマタイトではa^{*}軸とb^{*}軸の中間に位置するパターンを示した。一方、混合相の場合はこれらのパターンの中間に位置する。ゲータイトではb^{*}値が、ヘマタイトではa^{*}値とb^{*}値がX線粉末回折法(XRD)で求めた結晶化度と線型の関係にあることがわかった。したがって、色彩色差計を用いた方法により、非晶質鉄鉱物のゲータイト、ヘマタイトへの結晶化度を定量的に測定できることを明らかにした。

b^{*}値を基にゲータイトの結晶化曲線を作成し、結晶化曲線からこの結晶化反応が一次反応であることを仮定して、反応速度定数を求めた。反応速度定数は、熟成温度が及びpHが高いほど大きな値を示した。この結果から、ゲータイトの結晶化に関する従来からのモデル(非晶質鉄水酸化物の溶解+溶解した成分のゲータイトとしての再沈殿)が妥当であることを明らかにした。

[公表した成果]

1. T. Nagano, S. Nakashima, S. Nakayama, K. Osada and M. Senoo; Color variations associated with rapid formation of goethite from proto-ferrihydrate at pH13 and 40, *Clays Clay Min.*, 40, 600-607 (1992).
2. T. Nagano, S. Nakashima, S. Nakayama and M. Senoo; The use of colors to quantify the effects of pH and temperature on the crystallization kinetics of goethite under highly alkaline conditions, *Clays Clay Min.*, 42, 226-234 (1994).

[成果の寄与]

オーバーパック材の酸化により生成する鉄鉱物であるゲータイト、ヘマタイトを定量的に評価できるようになり、非晶質水酸化鉄の結晶化速度を求めるとともに結晶化機構を検討するための基礎を築いた。

[今後の展開]

3価のアクチニド元素と類似の挙動を示すと考えられるランタニド元素及びアクチニド元素を対象として、鉄鉱物の生成過程における元素の分配に関する研究を進める。また、深地下の還元環境下で優勢と考えられる2価の鉄鉱物について、その生成機構及び金属元素との相互作用に関する研究を開始する。

3. 3 緩衝材に関する研究

緩衝材には、水の浸入を防ぐこと（止水性）、放射性核種の漏出を防ぐこと（吸着性）、及び化学的に安定な状態を確保すること（緩衝性）が期待されている。これらの性能は、処分安全性を長期にわたって確保する上で、長期間保たれる必要がある。このため、核種の吸着性及び緩衝材の長期安定性に関する研究を行っている。

吸着に関する研究

人工バリア研究室 香西直文

[目的]

放射性核種移行モデルの構築及びデータベースに寄与するため、放射性核種の緩衝材への吸着挙動を解明するとともに、緩衝材の核種吸着能を向上させるための研究を行う。

[実験方法]

アルカリ金属イオン (^{137}Cs)、アルカリ土類金属イオンの代表として、 ^{85}Sr 、遷移金属イオン (^{60}Co) 及びアクチノイド元素 (^{237}Np , ^{241}Am) を用いた。緩衝材の候補材料であるベントナイト及び主成分であるスメクタイトを用いた。

実験はバッチ法により行った。核種の濃度が希薄であると、核種がどのように吸着しているか（吸着形態）を分析する際、機器分析が困難である。そこで、核種を吸着させた鉱物に数種類の試薬溶液を逐次加える選択的抽出法により、試薬と脱離される核種との関係から核種の吸着形態を検討した。

[成果の概要]

SrのNa型スメクタイトへの分配係数 (K_d) はpH 5.5で約 $10^2 \text{ mol} \cdot \text{g}^{-1}$ であった。スメクタイトに吸着したSrの大部分は1M KCl溶液で脱離したので、イオン交換的に吸着すると考えられる。

Cs及びCoのスメクタイトへの吸着量は非常に大きい ($K_d > 10^3 \text{ mol} \cdot \text{g}^{-1}$)。1M KCl溶液との接触後もCsが約50%、Coが約97%スメクタイトに残っていたので、イオン交換とは異なる機構により吸着（特異吸着）すると考えられる。1M KCl溶液で脱離されるような可逆的な吸着をしているCsは脱水和していることも示唆された。Csのベントナイトへの吸着量はスメクタイトに比べ小さい（約 $5 \times 10^2 \text{ mol} \cdot \text{g}^{-1}$ ）。これは、このベントナイトのスメクタイト含有量が約50%であることによるものと考えられる。

遷移金属イオンであるCoのスメクタイトへの吸着量は非常に大きい ($K_d > 10^3 \text{ mol} \cdot \text{g}^{-1}$)。吸着したCoは、1M KCl溶液により約97%スメクタイトに残っていたので、イオン交換とは異なる機構により吸着（特異吸着）すると考えられる。1M NH_4Cl 溶液では脱離されず、1M $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ 溶液により約70%が脱離された。酢酸溶液の方が塩化物溶液よりも脱離する能力が大きいことから、Coはスメクタイトにイオン交換反応ではなく、表面における、例えばシラノール基と錯形成していることが示唆される。

異なる pH における Np の吸着・脱離実験結果を図3-5に示す。Np は、pH5~8の範囲で Na 型スメクタイトにほぼ一定量 ($K_d = 2 \times 10^1 \text{ mol} \cdot \text{g}^{-1}$) 吸着した。吸着した Np の大部分は 1M KCl 溶液で脱離され、イオン交換的に吸着すると考えられる。pH5以下では、pHの低下とともに吸着量が急増し、pH2で約 $2 \times 10^2 \text{ mol} \cdot \text{g}^{-1}$ に達した。この pH 範囲では、吸着した Np の大部分は、1M KCl 溶液との接触後もスメクタイトに残り、1M HCl 溶液との接触により全て脱離された。このような Np の特異吸着の発現がスメクタイトの層間陽イオンに影響されること、カオリナイト等では特異吸着が生じないことなどから、スメクタイトへの Np の特異吸着はスメクタイトの層間において生じているものと考えている。また、ベントナイトへの Np の吸着量は、pH7以下でほぼ一定 ($K_d = 1 \times 10^1 \text{ mol} \cdot \text{g}^{-1}$) であった。これは、ベントナイトに吸着している Ca などの層間陽イオンが Np の特異吸着を妨げるため、Np はイオン交換的にのみ吸着したと考えられる。

Am のスメクタイトへの吸着量は、pH2~8の範囲で一定であり非常に大きい ($K_d > 10^3 \text{ mol} \cdot \text{g}^{-1}$)。pH5以下では、吸着した Am の大部分が 1M KCl 溶液で脱離され、イオン交換的に吸着すると考えられる。pH7以上では、1M KCl 溶液では脱離不可能で、1M HCl 溶液によって完全に脱離された。この pH 範囲では Am は水酸化物となり、スメクタイト表面と錯体を形成する可能性が示唆される。Na 型スメクタイトと Ca 型スメクタイトの間には、Am の吸着脱離挙動の違いはほとんど現れなかった。さらに、Am のベントナイトへの吸着挙動はスメクタイトとほぼ同じであった。

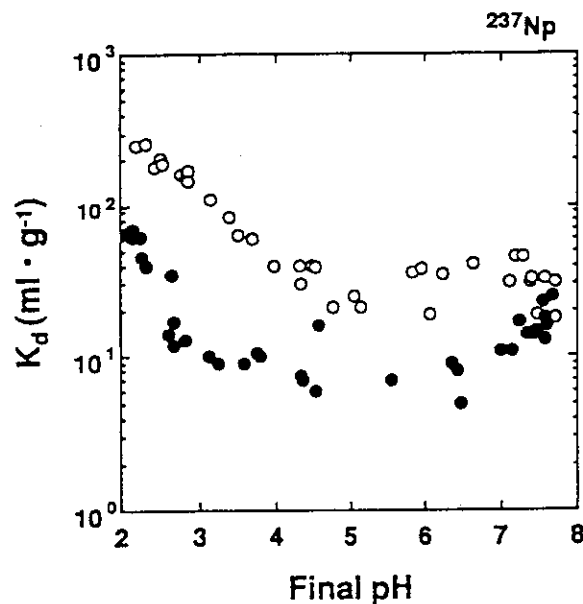


図3-5 ^{237}Np のスメクタイトへの吸着
○: Na 型スメクタイト ●: Ca 型スメクタイト

[公表した成果]

1. N. Kozai, T. Ohnuki and S. Muraoka; Sorption characteristics of Neptunium by sodium smectite, J. Nucl. Sci. & Tech., 30 1153-1159 (1993).
2. T. Ohnuki; Sorption Characteristics of Strontium on Sandy Soils and Their Components, Radiochimica Acta, 64,237-245 (1994).
3. T. Ohnuki; Sorption Characteristics of Cesium on Sandy Soils and Their Components, Radiochimica Acta, 65, 75-80 (1994).
4. 香西直文、大貫敏彦、村岡進;スメクタイトへのネプツニウムの吸着に及ぼすカルシウムイオンの影響、原子力学会誌、36、955-957(1994).
5. T. Ohnuki and N. Kozai; Sorption Characteristics of Radio active Cesium and Strontium on Smectite, Radiochimica Acta, 66/67 327-331 (1994).
6. T. Ohnuki and N. Kozai; Sorption Characteristics of Cobalt on the Mixture of Smectite and Managanese dioxide, Radiochimica Acta, 68, 203-207 (1995).
7. N. Kozai, T. Ohnuki and S. Muraoka; Sorption behavior of Neptunium on bentonite -effect of calcium ion on the sorption-, Sci. Bas. Nucl. Was. Manag. XVIII, 1021-1028 (1995).

[成果の寄与]

Kd等は、データベースの構築に寄与するものである。また、核種の緩衝材への吸着形態に関する情報は、吸着現象の解明に役立つとともに、核種の吸着形態を考慮した核種移行モデルの構築に寄与できる。

[今後の展開]

TRUなどの長寿命核種に重点をおき、それらの緩衝材への吸着挙動を解明するための研究を進める。これまでに有効性を確認した選択的抽出法等を用いて、核種の吸着形態を明らかにする。これまでの実験はすべて大気中で行ってきたが、地層処分施設は還元雰囲気であると考えられるので、類似した雰囲気下での実験を計画している。

さらに、緩衝材の核種吸着能を向上させるため、核種の吸着・固定力に優れた添加材等を開発する。

緩衝材の長期挙動に関する研究

地質環境研究室 佐藤 努

〔目的〕

ベントナイトの主成分であるスメクタイトは、天然で観察されているように、イライトなどの鉱物へと変質して止水性が劣化する。このため、スメクタイト→イライト変換反応の機構や速度を明らかにし、緩衝材の性能評価上問題となる反応因子とその影響を定量的に示す。

〔実験方法〕

ナチュラルアナログ的手法と速度因子解析を中心とした室内実験を組み合わせることによってその速度や機構を解明し、これを処分場環境下におけるベントナイトの長期挙動を予測するために適用する。このため、天然において反応が進行した試料と実験的に合成した試料を用いる。

天然試料は、続成作用及び熱水変質作用により堆積岩中のスメクタイトがイライト化した試料を岩石ごと採取し、粘土部分を分取して実験試料とした。試料の合成はオートクレーブによる熱水反応による。反応温度や時間を変えることにより、イライト化度の異なる試料を合成する。合成実験に用いる出発物質のスメクタイトは、結晶化学的性質の異なる試料を用いた。

各実験試料は、様々な処理を施した後、X線回折分析を行うとともに、電子顕微鏡観察等により、反応中間生成物のキャラクタリゼーションを行い、得られたデータをもとに機構論的・速度論的考察を行った。また、中間生成物の的確なキャラクタリゼーションのため、その微細組織を液体窒素温度で凍結した状態で透過形電子顕微鏡により観察する新しい方法の開発も行った。

〔成果の概要〕

(1)天然におけるスメクタイト→イライト反応 (S-I反応)

スメクタイトからイライトへの反応経路は、モンモリロナイト→バイデライト→*VS*→イライトであり、反応経路にバイデライトの経由があることを実証した (*VS*はスメクタイトとイライト成分が混在する中間生成物)。また、スメクタイトからイライトへの反応経路の途中で層電荷の変化様式を明らかにした。通常、層電荷は化学組成の分析値から見積もられるが、*VS*のような中間生成物ではスメクタイトとイライト成分が混在していて、各成分の層電荷を見積もることは困難とされてきた。しかし、本研究では、スメクタイトの膨張性は層電荷の大きさに影響されること、*VS*のイライト成分には膨張性がないことに着目し、X線回折による膨張性の測定によってスメクタイト成分のみの層電荷を見積もる方法を考案し、S-I反応にともなうスメクタイト成分の層電荷の変化を明らかにした。

S-I反応の変質程度が異なる*VS*の微細組織を、液体窒素温度で凍結した状態で透過形電子顕微鏡により観察した。従来までの方法によると、高真空下でスメクタイトの構造内に保持されていた水分子が放出されて収縮し、イライトと同じ1.0 nmの周期になってしまうため二者の区別ができなかった。しかし、本研究で初めて*VS*に応用した試料凍結法により、電子顕

微鏡観察下で両者の区別が可能になった。試料凍結法による一連の微細組織の観察から、イライト化の機構は、スメクタイトが部分的に溶解し、IS層を安定相として形成し、IS層のスメクタイト層が選択的に溶解してイライト層へ変化するものとして説明できた。

(2)室内におけるS-I反応の熱水実験

本熱水実験によって、①熱水実験によるS-I反応にともなうスメクタイト成分の減少とそれともなう構造変化、②S-I反応の速度、③出発物質の結晶化学的性質の判定とS-I反応の速度に及ぼす影響を明らかにするとともに、④天然と熱水実験におけるイライト化の経時変化の比較を行ってきた。これまでに得られた結果をまとめると、以下ようになる。

1) イライト化の速度は出発物質の化学組成によって影響され、層電荷の高いものほどその速度が速い。

2) S-I反応には速度の異なる一次反応が2種類存在し、イライト化の速度は2段階目の反応が律速段階である。

3) 天然と熱水実験とにおけるイライト化の経時変化の比較をした結果、熱水実験の反応(2段階目の反応)は天然のそれと本質的に同じであり、両者の速度の違いは頻度因子の違いに帰着できる。

1)から3)の結果から、S-I反応の全体像を考察すると、S-I反応は、
—出発物質(前駆物質)であるモンモリロナイトが反応の初期にバイデライトに変化し、四面体層中のSiがAlで置換(solid-state substitution)されることにより層電荷が増加する(1段階目の反応)

—層電荷が増加して全層電荷が0.85以上になったスメクタイト層は溶解し、逐次IS層を析出する(2段階目の反応)

—形成されたIS層のスメクタイトが選択的に溶解し、イライトへ変換する(3段階目の反応: 熱水実験では反応がこの段階まで進行していないため未確認)。

[公表した成果]

1. 佐藤努、磯部博志、渡辺隆; 第三紀頁岩・砂岩中におけるスメクタイトーイライト変換反応, 粘土科学, 31, 32-37 (1991).
2. T. Murakami, T. Sato and T. Watanabe; Microstructure of interstratified illite/smectite at 123K: A new method for HRTEM examination, Am. Mineral., 78, 465-468 (1993).
3. T. Sato, T. Murakami, H. Işobe and T. Ohnuki; Effect of crystallochemistry of starting materials on the rate of smectite to illite reaction, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVIII, 239-246 (1995).
4. T. Sato, T. Murakami and T. Watanabe; Change in layer charge of smectite layers in illite/smectite during diagenetic alteration, Clays Clay Miner. (in print).

[成果の寄与]

地層処分の安全性研究として以下のような内容を示唆する。

- 1) イライト化の速度は出発物質の化学組成によって影響されることを明らかにしたことにより、長期安定性の高いベントナイトの選定に対する判定材料を提供した。

2)イライト化の反応経路と律速段階を明らかにした。今後、この律速段階の速度式を正確に導き出すことにより、ベントナイトの劣化の速度が判明する。

[今後の展開]

熱水実験によって生成される中間生成物に対して物性試験（特に透水係数と分配係数の測定）を実施し、物性の変化を求めていくとともに、これまでの成果をもとに、スメクタイト→イライト変換反応の機構・速度を明らかにし、考えられる地質学的な事象に即した物性の変化の予測を図る。

4. 天然バリアに関する研究

放射性核種は地層中を地下水とともに移行するため、地下水水理を把握することは、天然バリアを解明する上で不可欠である。このため、地下水理特性を測定あるいは予測する手法を検討している。地下水の主な移行経路となる亀裂中では、様々な一次鉱物が地下水と反応することにより、二次鉱物が生成している。放射性核種はこれら一次鉱物、二次鉱物に吸着される。ある鉱物は放射性核種を選択的に収着（可逆的、非可逆的吸着、沈殿、鉱物の構造中への取り込みなど）する。核種の移行経路としては、亀裂から岩石マトリックス中に拡散することも考えられる。さらに、放射性核種の地下水中における存在形態によりその挙動が異なるため、存在形態等の地球化学的特性を知ることは、その挙動を予測する上で重要である。地質学的時間スケールでの挙動は、室内実験だけでは予測できないため、天然で過去に起こった事象を観測し、未来を予測する研究、すなわちナチュラルアナログ研究が必要となる。さらに、岩盤特性、元素の挙動に関しては、実際の深地下条件におけるデータを取得する必要があるため、原位置試験を実施している。

4. 1 地下水水理と岩盤特性に関する研究

天然バリア研究室 熊田政弘

高レベル放射性廃棄物等の地層処分の安全性評価のためには、放射性核種の移行媒体となる地下水の処分場周辺における地下水流解析並びに処分場を含む広域における長期にわたる地下水流予測が必要である。

処分場として選定される地下の領域は、透水性が非常に低く、地下水流速も大変遅いことが想定されるが、数千年から数百万年の長期を考えると、地下水流を評価する必要がある。1980年代に入るまで低透水性領域における地下水流は、ほとんど関心が持たれていなかったが、廃棄物の地層処分等に関連してにわかに関心の対象となった。人工的なトレーサを用いる実験的手法では時間的空間的な制約を受けるのに対して、天然に存在する同位体を用いる環境同位体水文学的手法では非常に遅い流路を通る長期にわたる地下水流を知ることができる。スイス及びスウェーデンでは、放射性廃棄物処分に関連して大がかりな水文地質学的研究が実施され、地下水流に関する検討が行われている。このような例は世界的にも少なく、地下深部を対象とした広域にわたる長期の地下水流に関する研究は今後期待されている。

また、地下水流は岩盤の力学的、水理学的構造に依存して流動するので、地下深部の岩盤特性の把握は重要な課題である。これら岩盤特性の分布を可視化（画像化）するというジオトモグラフィ技術が地下水流研究に有効である。

環境同位体による深部地下水流特性把握に関する研究

〔目的〕

深部岩盤中の地下水流を把握するための手法として、地下水に含まれる環境同位体を天然のトレーサーとして利用する手法の有効性の検証を行うとともに、研究対象地域における深部地下水流の実態を把握する。

[実験方法]

数多い環境同位体の中でも酸素及び水素の安定同位体比 ($^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ 及びD/H) の変動を利用した。同位体比は、重い同位体の軽い同位体に対する比が標準物質とどれだけ違っているかという相対的な差、デルタ (δ) として表わされ、千倍したパーミル (千分率: ‰) 値で表わす。

$$\delta (\text{‰}) = \frac{R_{\text{試料}} - R_{\text{STD}}}{R_{\text{STD}}} \times 1000$$

ここで $R_{\text{試料}}$ 及び R_{STD} は、それぞれ試料及び標準物質 (国際的にはSMOW: Standard Mean Ocean Waterを用いる) の同位体比 ($^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ あるいはD/H) で、質量分析計により測定する。通常、酸素の場合には、 $\delta^{18}\text{O}$ 、水素の場合は、 δD と表わす。

同位体組成の異なる水は、それぞれわずかではあるが蒸気圧及び氷点が異なっている。従って、大気循環の過程で蒸発、濃縮、凍結、溶解等の現象が起きると同位体分別が生じ、「重い水」や「軽い水」ができてくる。ある地域のある時刻に降る雨水中の ^{18}O 及び ^2H の量は、大気中の水蒸気の濃縮-降水の履歴に依存し、一般的にはその地域の緯度によって決まってくる。このようにして同位体分別された降水を世界的規模で見ると、 $\delta^{18}\text{O}$ と δD の間には直線関係がある¹⁾ことが知られており、この直線を天水線 (Meteoric Water Line) と呼んでいる。降水を起源とする地下水は、酸素・水素の安定同位体比を正確に調べることによりそれ以外の起源の地下水と区別することができる。

研究対象領域として、関東平野の武蔵野台地西部を選定し、酸素・水素の安定同位体比の他、一般水質等を測定し、水文地質学的な解析を行った。

[成果の概要]

1964年1月から1979年12月までの東京における降水中の酸素 ($\delta^{18}\text{O}$) 及び水素 (δD) の安定同位体比をプロットすると $\delta\text{D}=6.99\delta^{18}\text{O}+5.56$ という直線上に回帰される。これを研究領域の天水線 (Local Meteoric Water Line) と呼ぶ。研究対象領域から採取した地下水試料の酸素・水素の安定同位体比は、ほぼL.M.W.L.に沿って分布しており (図4-1)、地域の地下水は天水 (降水) を起源としていることは明らかである。これを地表水、不圧地下水及び被圧地下水と分類して詳しく見ると、表層水として地域の南部に流れる多摩川から採取した試料が、他の試料とは異なる酸素同位体比を持っている。これは、本地域の地下水が多摩川の河川水を起源としないことを示している。従って、本地域における地下水流としては、台地表面に降った雨水が地下に浸透し、水頭差によって東方へ移動することが考えられ、多摩川を源とするような地下水流はほとんど無視できると推測された。

地下水中の酸素・水素の安定同位体比を測定し、試料を地表水、不圧地下水及び被圧地下水と分類して起源解析することにより研究地域の地下水の大局的な経路を推定することができた。

[公表した成果]

1. 嶋田純、S.Dapaah-S、吉原幹雄、熊田政弘、渡部和男、大内操、妹尾宗明; 環境同位体を用いた西部武蔵野台地における地下水の涵養・流動特性, 日本地理学会1994年度秋季学術大会予稿集、146-147 (1994).

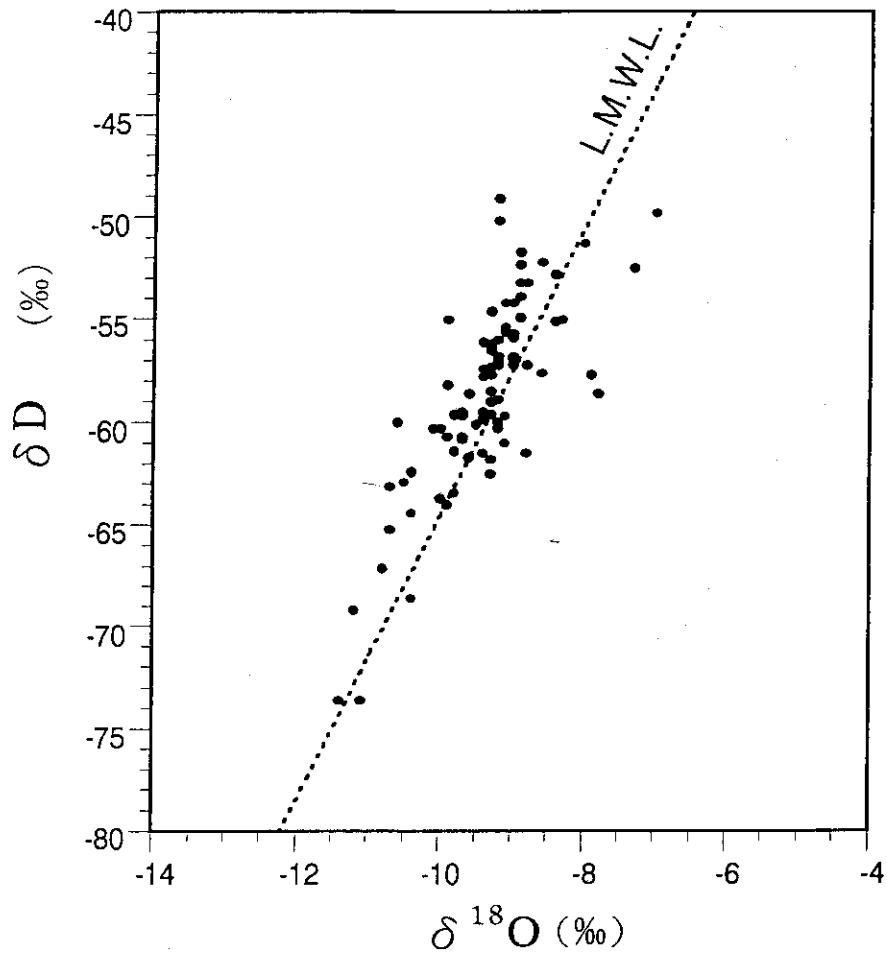


図4-1 研究地域の地下水の水素及び酸素の同位体比

採取した地下水中の水素・酸素の安定同位体比はL.M.W.L. (点線) で示した東京都の降水中の水素及び酸素の安定同位体比の関係を示した天水線 (Local Meteoric Water Line: $\delta D = 6.99 \delta^{18}O + 5.56$) にほぼ沿って分布しており、ほとんどが調査地域の降水を起源としている。

$$\delta D (\text{‰}) = \frac{(D/H)_{\text{試料}} - (D/H)_{\text{SMOW}}}{(D/H)_{\text{SMOW}}} \times 1000$$

SMOW : standard mean ocean water

[成果の寄与]

同位体水文学的手法は、処分サイトを含む領域の地下水流解析の手段として活用できることが示唆された。

[今後の展開]

長期にわたる地下水流解析を可能とするため、 ^{14}C 等の環境中の放射性同位体を用いた地下水年代測定から対象領域の地下水の滞留時間を推定する。

水槽を用いた物理モデル実験による比抵抗トモグラフィの基礎的研究

[目的]

岩盤亀裂の調査手段として有効な比抵抗トモグラフィは、水みちとなる岩盤割目の分布を比抵抗分布として検出するものである。比抵抗トモグラフィの検出限界などの特性を明らかにするため、水槽を用いた物理モデル実験を行い、3次元空間における2次元断面内での比抵抗トモグラフィについて基礎的な研究を行う。

[実験方法]

比抵抗トモグラフィの物理モデルシミュレーション実験として、実験用水槽 (2(L)×2(W)×2.2(D) m) 内に電解質溶液 (NaCl 溶液:30Ωm) を満たして均質な地質媒体を表わし、亀裂帯 (低比抵抗体) として銅の角柱を水平に釣り下げた。2本のボーリング孔及び孔間の地表で囲まれた解析領域内に、水平方向に一本の亀裂帯が存在する場合を想定して、61個の電極をコの字型に配置した多点電極を銅の角柱を取り囲むように設置した (図4-2)。水槽内では、電極を地表下 (電解質溶液中) に配置すると均質媒質としての近似範囲が、深度方向で極端に狭くなるので、解析対象領域を水槽中央部の20cm×20cmの範囲に設定した。61個の電極を用いて、ひとつの電極から電流を流したときの電位の分布を残りの60個の電極を用いて測定した。電極を流す電極を順に替え、その都度他の60の電極で電位を測定し、合計3,660のデータを得た。

比抵抗トモグラフィ解析コードとして、電位分布から見掛比抵抗分布を求める逆解析計算コードを開発し、3,660のデータを用いて解析断面内の電位分布から逆解析により見掛比抵抗分布を求めた。

測定断面を2cm×2cmの解析ブロック123個に分割し、見掛比抵抗から各ブロックの比抵抗を再構成して画像化した。

[成果の概要]

無限の地質媒質を物理モデル実験でシミュレートするため、解析コードでは、2つの遠電極と電流電極及び電位電極の4つの電極を用いて映像法により壁面の影響を考慮した。

コの字型の61個の電極からなる多点電極のすべての電極を点電極とみなすと、垂直方向に並べた電極のサイズが大きいため、位置精度が悪く、解析断面内に明瞭な画像として亀裂帯を再構成することができなかった。そこで、単点用電極をコンピュータコントロールにより亀裂を取り囲むような位置に制御し、電極位置の精度を向上させることにより良好な画像を得ることができるようになった。この方法で3電極法による物理モデル実験を行い、解析断面の1%程度以下の低比抵抗異常体は検出限界以下であることを明らかとした。

[公表した成果]

1. 熊田政弘、千葉昭彦; 多点測定用電気探査装置を用いた簡単な水平探査実験、物理探査学会第86回学術講演論文集、365-369 (1992).
2. 熊田政弘、千葉昭彦; 接地抵抗が水平探査の見掛比抵抗に及ぼす影響について、物理探査学会第87回学術講演論文集、177-182 (1992).
3. 千葉昭彦、熊田政弘; 岩石試料の比抵抗測定について、物理探査学会第88回学術講演論文集、221-226 (1993)

4. M. Kumata, A. Chiba and R. Kubota; Model Tank Experiments for Resistivity Tomography, SEG 63th Annual Meeting, Expanded Abstracts, 1309-1311 (1993).
5. 千葉昭彦、熊田政弘; 花崗岩及び凝灰岩試料の比抵抗測定—間隙水の比抵抗が岩石比抵抗に及ぼす影響について—, 物理探査, vol.47, No.3, 161-172 (1994).
6. 熊田政弘、飯博行、岩本宏、千葉昭彦; 間隙率の異なる花崗岩試料の比抵抗測定結果、物理探査学会第91回学術講演論文集, pp.298-300 (1994).
7. 岩本宏、熊田政弘、飯博行、千葉昭彦; 花崗岩の比抵抗と間隙率及び間隙水との関係、第50回土木学会年次学術講演会講演概要集、第3部(A)、pp.64-65 (1995).
8. 野口康二、妹尾宗明、熊田政弘、千葉昭彦; 岩盤物性と地下水流動に関する研究、第3回原研・大学プロジェクト共同研究成果発表会報文集, pp.119-128 (1995).
9. M. Kumata, H. Ii and A. Chiba; Physical Model Simulation Tests for Resistivity Tomography, Proc. 3rd SEGJ/SEG Int. Symp., 343-350 (1995).

[成果の寄与]

岩盤亀裂の評価技術として室内実験により比抵抗トモグラフィについての基礎的な研究を進めるための準備が整い、今後の野外適用性への発展の基礎ができた。さらに、野外における適用性を検討することにより将来のサイト評価の際に有用な技術となることが期待される。

[今後の展開]

比抵抗トモグラフィ解析コードの改良を継続するとともに、野外実験場を選定して野外における適用性の検討を進めていく予定である。

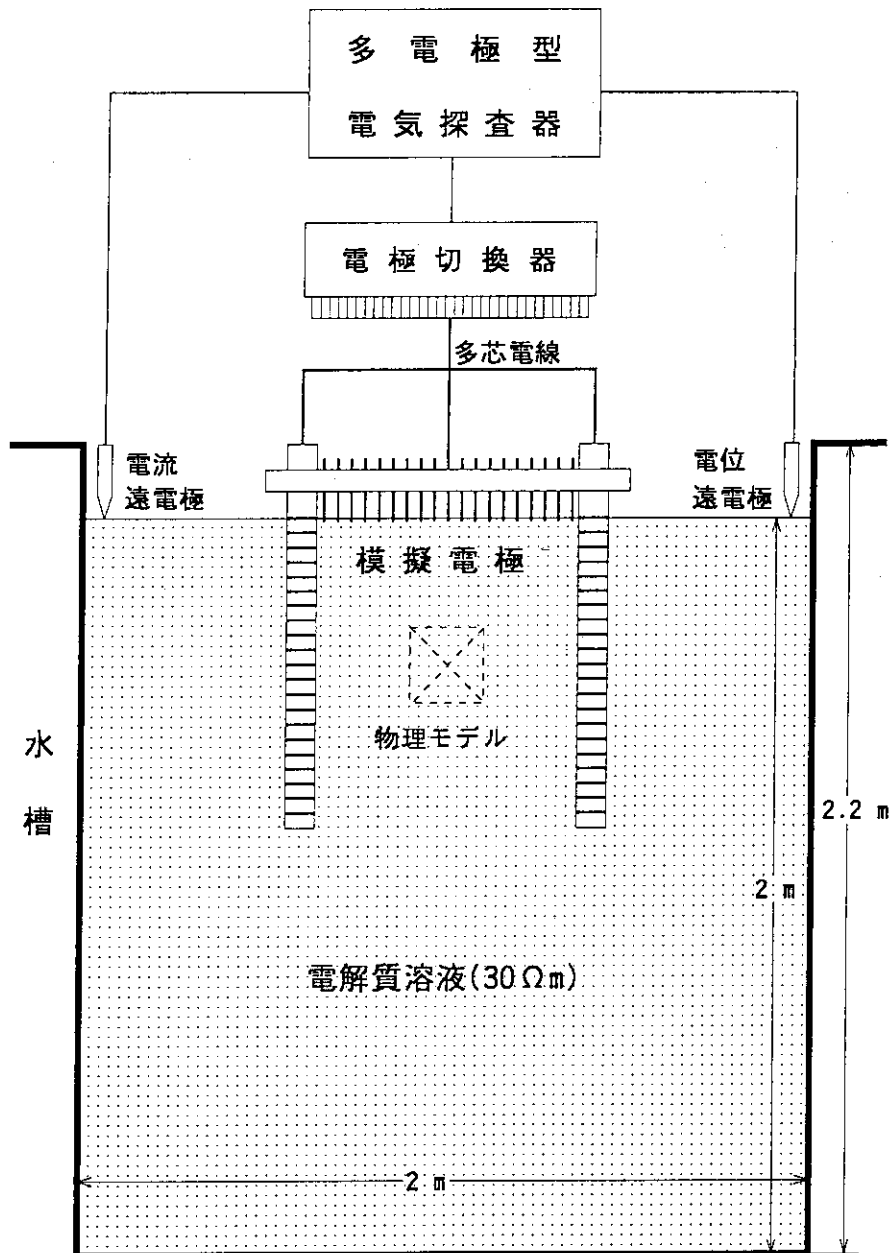


図4-2 比抵抗トモグラフィ用物理モデル実験装置概念図

2×2×2.2m の水槽に電解質溶液(NaCl溶液)を満たして均質な地質媒質を表現し、61個の電極からなるコの字型の多点模擬電極で囲まれた解析断面内に角柱状の模擬亀裂を置いて見掛比抵抗を測定した。

岩石中の亀裂と微細構造に関するフラクタル解析

[目的]

岩盤特性に大きな影響を与える亀裂は、フラクタルの性質を持っていることが多くの研究者により示唆されている。フラクタル幾何学では、全てのスケールにおいて不規則なものをフラクタル次元Dで関連づける²⁾。本研究では、ボーリング孔から採取したコア試料の亀裂及び鉱物の微細亀裂についてフラクタル解析を行い、その適用性を検討する。

[実験方法]

中央フランスのAuriant孔から採取した深度1,000mまでの花崗閃緑岩質のボーリングコア及び四国で採取した深度550mまでの花崗閃緑岩質のボーリングコアについて、深度方向に亀裂頻度及び亀裂の傾斜角度 (dip) を測定し、 $P = x^{-D}$ で表されるCantor's dust法³⁾によりフラクタル解析した。ここで、P; 確率、D; フラクタル次元、x; 測定した単位長さ (無次元) である。

また、稲田花崗岩中の石英、斜長石及びカリ長石を対象に、岩石薄片試料を用いてマイクロクラックについて0-180° 方位のフラクタル解析を行った。

[成果の概要]

花崗岩中の亀裂分布は粒子スケールから1キロメートルスケールまでフラクタル形態を呈しており、フラクタル次元は岩石の種類及び物理特性に依存している等、地下水の通路となる亀裂の岩盤内における分布をフラクタル幾何学により特徴づけることができた。破碎帯、引っ張り割れ目、及び圧縮割れ目はそれぞれ異なるフラクタル次元を示し、複雑な系における成因が異なる亀裂タイプの分類に有効であることが明らかとなった。四国のコアの場合には、フラクタルが比抵抗あるいは間隙率などの岩盤物性と相関があることが示唆され、岩盤の透水性とも相関があることが期待された。稲田花崗岩中の鉱物の亀裂についてのフラクタル解析では、鉱物中の微細亀裂はフラクタル形態を呈するが、鉱物によりフラクタル次元が異なる。石英は長石より低いフラクタル次元を示し、異なるモードの破壊が行われたことを示唆している。

[公表した成果]

1. T. Merceron, B. Velde, S. Nakashima, A. Badri and G. Touchard; Fractal Analysis of Fractures and Microstructures in Rocks, Proc. 3rd Int. Symp. Advanced Nuclear Energy Research, Ibaraki, Japan, 283-291 (1991).

[成果の寄与]

地下水の水みちとなる岩盤中の複雑な亀裂がフラクタル幾何学により成因別に分類でき、透水性との関連があることが示唆され、ボーリングコアを用いた岩盤特性の評価手法としての可能性が示された。

参考文献

- 1) H. Craig; Geoch. Cosmoch. Acta, vol.12, 133-149 (1961).
- 2) B.B. Mandelbrot; "The Fractal Geometry of Nature," New York, 468 (1982).
- 3) B. Velde, et al.; Technophysics, vol.179, 345~352 (1990).

4. 2 アクチニド元素の地球化学

アクチニド元素は人間に対する危険度が高いため、地層中における挙動を支配する重要因子である溶解度などの化学的特性は安全評価上重要なデータである。しかし、中性水溶液中の溶解度が低く測定が困難であり、信頼性の高いデータの取得がまだ不十分である。そのため、Np, Pu等の溶解度を求める研究を進めている。

また、地層中における有機物質は、有機物質-核種の結合体を生成した場合、核種の移行に影響する。有機物質の一つである腐植物質とNpとの錯生成反応について研究を進めている。

アクチニド元素の溶解度

地質環境研究室 中山真一

[目的]

アクチニド元素の中性付近の地下水における溶解度、加水分解、錯体形成などに関する基本的なデータを求める。このため、Np(IV)とNp(V)については溶解度及び加水分解に、Pu(IV)については炭酸錯体に着目して基本的なデータを取得する。

[実験方法]

Np(IV)の溶解度測定は固液平衡による。還元剤として $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 溶液、金属銅粉、または金属鉄粉を添加した NaClO_4 にNp(IV)を加え、溶液のpHを5から14に調整した(過飽和側)。未飽和側からの測定では、こうして生成した沈殿物に水溶液を加え同様にpHを調整した。イオン強度は NaClO_4 を用いて調整し、温度を $25.0 \pm 0.2^\circ\text{C}$ に保った。採取した溶液を、分画分子量10000のフィルターでろ過した後、TTA抽出法を用いてNp(IV)とNp(V)を分離し、Np(IV)の濃度を測定した。サンプリングは最長119日まで行った。実験期間中の試料溶液の静置とTTA抽出分離までをAr雰囲気($\text{O}_2 < 1\text{ppm}$)グローブボックス内で行った。

Np(V)の加水分解に関する研究も不活性ガス(>99.995% Ar)で充填したグローブボックス内で行った。Np(V)は炭酸錯体を作りやすいので、炭酸をできるだけ除去した。実験はイオン強度を NaClO_4 で調整した $10^{-2} \sim 10^{-3}\text{M}$ のNp(V)溶液を目的のpHに調整し、溶液中のNp(V)の濃度変化を追跡することで行った(過飽和側)。溶液のpHは7~13.5、イオン強度は0.01, 0.05, 0.10, 0.40, 0.80とした。採取した溶液を、分画分子量10,000のフィルターでろ過した後、Np(V)の濃度を測定した。

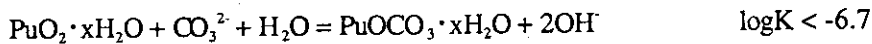
Pu(IV)の炭酸錯体に関する研究では、まず、KCl溶液にPuを加え、 NaHCO_3 によって全炭酸イオン濃度を0.001~0.1Mに調整した。さらにPuをPu(IV)に揃えるため NaNO_2 を添加した。溶液のpHは9から13とした。採取した溶液を、分画分子量10,000のフィルターでろ過した後Pu(IV)濃度、全炭酸イオン濃度、pH及びEhを測定し、Pu(IV)濃度の全炭酸イオン濃度への依存性を調べた。サンプリングは最長140日まで行い、測定値に大きな変動がないことを確かめ、溶液が平衡に達しているとみなした。溶解度を制限している固相、すなわち溶液と平衡にある固相が水酸化物であるか、炭酸塩であるかは、フィルター上に残った固体を酸に溶かし発生する二酸化炭素量を定量することによって推定した。

[成果の概要]

Np(IV)の溶解度の測定結果を文献値とともに表4-1に示す。未飽和側、過飽和側双方の溶解度の測定値に有意な差はなく、調べたpH範囲で $\text{NpO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ の溶解度は一定値を示した。その結果、水または0.1M NaClO_4 のようにイオン強度の低い溶液中では、1カ月以内では溶解度は $10^{-7.62}\text{M}$ であったが、100日程度では $<10^{-9.0}\text{M}$ と低下する。イオン強度が高い1M NaClO_4 溶液では最初の数日以内に十分に低下する。

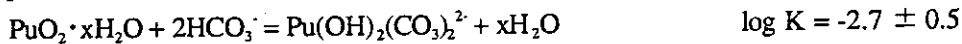
Np(V)化合物のイオン強度の異なる水溶液中における溶解度を図4-3に示す。溶解度はpHが10~11付近で最低値 $10^{-5.5} \sim 10^{-6.5}\text{mol/l}$ となる。高pH側に見られる凹型のpH依存性は、Np(V)の加水分解によるものであり、その曲線の左上がり部では NpO_2^+ として、底部では NpO_2OH として、右上がり部では $\text{NpO}_2(\text{OH})_2^-$ として溶解している。一方、低pH側では溶解度が一定という新たな事実が見られた。この実験からNp(V)の溶解度及び加水分解定数の値並びにそのイオン強度依存性を正確に知ることができた。

Pu(IV)の溶解度制限固相を調べたところ、沈殿した固体からは炭酸イオンが検出されなかった(検出限界以下)ため、炭酸塩よりも水和酸化物 $\text{PuO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ が優勢であると推定した。これにより、この水和酸化物と炭酸塩化合物 $\text{PuOCO}_3 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ との交換反応の定数(K)の上限値を

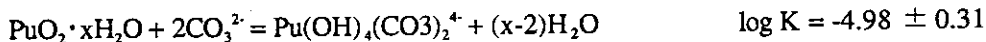


で求めることができた。図4-4にPu(IV)の炭酸イオン濃度依存性を示す。Pu(IV)濃度は全炭酸イオン濃度の2乗に比例して増加する。炭酸は $9.4 < \text{pH} < 10.1$ では重炭酸イオン HCO_3^- 、pH12, 13では炭酸イオン CO_3^{2-} として存在することを考慮すれば、Pu(IV)の炭酸錯体生成反応及び生成定数を以下のように求めることができた。

$9.4 < \text{pH} < 10.1$ では、



pH12, 13では、



である。

[公表した成果]

1. H. Itagaki, S. Nakayama, S. Tanaka and M. Yamawaki; Effect of ionic strength on the solubility of neptunium(V) hydroxide, *Radiochim. Acta*, 58/59, 61-66 (1992).
2. T. Yamaguchi, Y. Sakamoto and T. Ohnuki; Effect of complexation on solubility of Pu(IV) in aqueous carbonate system, *Radiochim. Acta*, 66/67, 9-14 (1994).
3. S. Nakayama, T. Yamaguchi, K. Sekine; Solubility of Neptunium(IV) hydrous oxide under reducing conditions, *Radiochimica Acta* (in print).

[成果の寄与]

Np(IV), Np(V), Pu(IV)のデータは、熱力学的データベースの作成に寄与した。

[今後の展開]

4価のアクチノイド元素の炭酸錯体生成について実験的研究を行う。また、熱分析、赤外吸光分析、X線回折法などの手法を用い、沈殿の結晶化が溶解度に及ぼす影響を調べる。

表 4-1 $\text{NpO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ の溶解度

Solution	Saturation Direction	Reductant	Equilibration (day)	Temperature (°C)	pH	$\log[\text{Np(IV)}] (\text{M}^{(e)})$	Reference
0.05 M $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$	under	0.05 M $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$	9-12	RT ^(b)	11.24-14.18	< -8.3	[1]
water	under	Fe, Zn	NR ^(c)	RT	6.2-8.4	< -8.3	[1]
concrete water	over	10^{-3} or 10^{-4} M $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$	1, 3	RT	9.9-13.0	-8.1	[2]
0.1 M $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$	over	0.1 M $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$	1-3 weeks	RT	8.5-12.5	-8.5 ± 0.1	[3]
NR	under	NR	3-4	RT	6.05-12.05	-8.28 ± 0.23	[4]
water or 0.1 M NaClO_4	over	0.05 M $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$	10-28	25	7.87-13.67	-7.62 ± 0.15	This study
	over	0.05 M $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$	51, 106, 119	25	8.33-13.55	< -9.0	This study
	over & under	Fe	6-9	25	7.22-12.07	-7.01 ± 0.28	This study
	over & under	Cu	9-10	25	7.91-11.36	-7.53 ± 0.32	This study
	under	Cu	119	25	8.41-9.40	-8.66 ± 0.43	This study
1 M NaClO_4	over & under	0.05 M $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$, Fe	45	25	5.30-11.38	< -8.9	This study

(a) M: mol/l; (b) RT: Room temperature. The experiments of Refs. [1-4] were performed under inert gas atmosphere and the temperature of the atmosphere is not controlled; (c) NR: Not reported.

参考文献

- [1] Rai, D., Ryan, J. L.: Neptunium(IV) Hydrrous Oxide Solubility under Reducing and Carbonate Conditions. *Inorg. Chem.* **24**, 247 (1985).
 [2] Ewart, F. T., Gore, S. J. M., Williams, S. J.: The Solubility of Neptunium(IV) at High pH. AERE R 11975, Harwell, UK (1985).
 [3] Pratopo, M. I., Moriyama, H., Higashi, K.: The Behavior of Neptunium under Reducing Conditions. In: *Proc. of the 1989 Joint International Waste Management Conference*. Vol. 2, High Level Radioactive Waste and Spent Fuel Management (S. C. Slate et al., ed.), Kyoto, Japan, October 22-28, 1989, The American Society of Mechanical Engineers.
 [4] Eriksen, T. E., Ndalamba, P., Cui, D., Bruno, J., Caceci, M., Spahiu, K.: Solubility of the Redox-sensitive Radionuclides ^{99}Tc and ^{237}Np under Reducing Conditions in Neutral to Alkaline Solutions. Effect of Carbonate. SKB Technical Report 93-18 (1993).

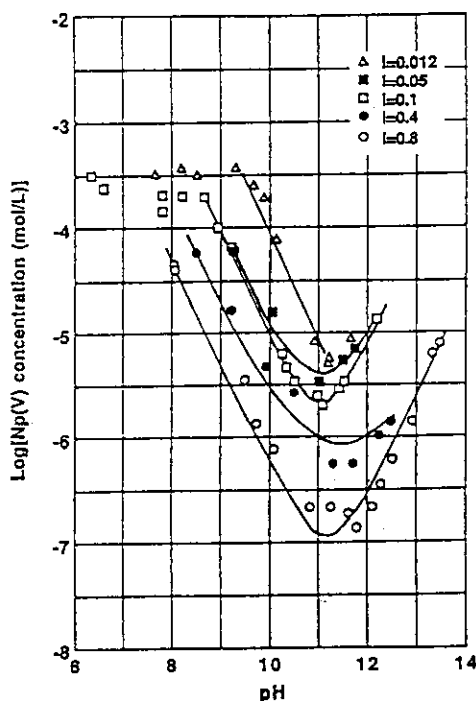


図4-3 NaClO₄水溶液中におけるNp(V)の溶解度
 イオン強度 I=0.10、pH7.80、10.20並びに10.50及び I=0.80、pH12.50の
 試料は不飽和側からの測定であり、他の試料は過飽和側からの測定結
 果である。

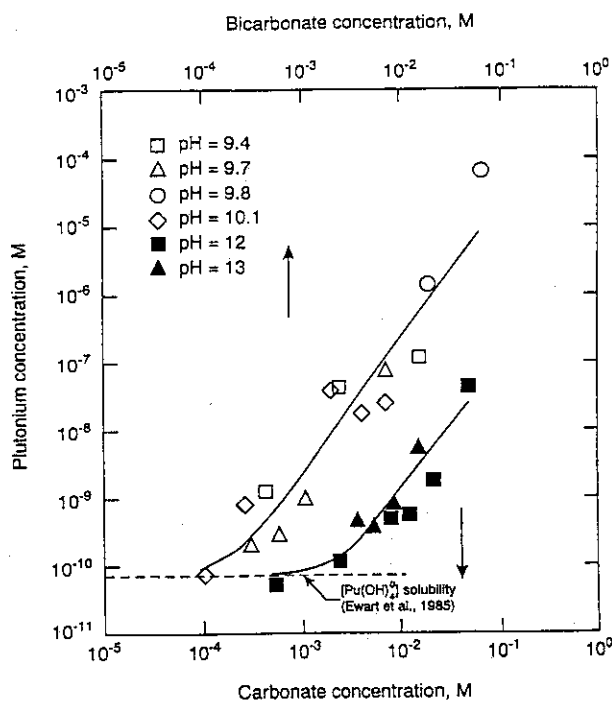


図4-4 pH9.4~10.1におけるPu(IV)の溶解度の重碳酸イオン濃度依存性
 及びpH12,13における重碳酸イオン濃度依存性
 実線はフィッティングの結果を、破線は文献値から加水分解
 種Pu(OH)₄⁰の寄与を示す。

アクチノイド元素の化学形への溶存有機物の影響

天然バリア研究室 坂本義昭

[目的]

アクチノイド元素としてNp(V)を取り上げ、Np(V)-フミン酸錯体の錯形成定数を測定し、溶液中でのNp(V)の化学形を推定する。さらに、フミン酸の分子量分布が及ぼすNp(V)の錯形成への影響についても調べ、錯形成の機構を明らかにする。

[実験方法]

フミン酸は、プロトン化したものである。酸塩基滴定により測定されたフミン酸の水素イオン交換容量は5.1meq/g、pKaは4.0であった。このフミン酸を0.005Mの水酸化ナトリウム溶液に溶解させ、イオン強度0.1M(NaClO₄)の種々の濃度のフミン酸溶液(80~600 mg/l)を作成した。この溶液に²³⁷Np溶液を添加し(Np:1.2x10⁻⁴M)、7日間25℃で振とうした。振とう後、0.45 μmのフィルターでろ過した。この溶液を紫外可視分光光度計を用いて吸収スペクトルを測定し、NpO₂⁺とNp(V)-humate濃度比から錯形成定数を求めた。この方法により、pH5.3~8.7までの錯形成定数を求め、そのpH依存性を調べた。

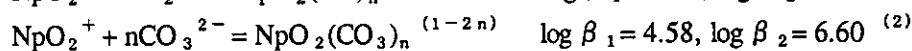
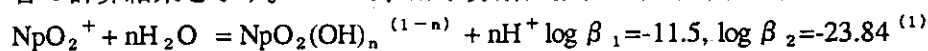
フミン酸の分子量分布がNp(V)-humateの錯形成に及ぼす影響を調べるため、イオン強度0.015~0.105Mに調整した200 mg/lのフミン酸を含む溶液にNpO₂⁺を添加し(Np:6.0x10⁻⁶M, pH8.3)、7日間25℃で振とうした。振とう後、水溶液を0.45 μmのフィルターでろ過した。さらに分画分子量100,000、30,000、10,000、5,000 daltonsで逐次限外ろ過を行った。各ろ液中のNp濃度を液体シンチレーション測定器で測定し、各フィルターで分画されるNp(V)の割合を求めた。また、紫外可視分光光度計を用いてフミン酸濃度を測定し、フミン酸自体の分画の割合を求めた。

[成果の概要]

フミン酸濃度とNp(V)-humate/Np(V)の濃度比を両対数上でプロットすると、概ね傾き1で比例する結果が得られた。このことは、フミン酸とNpO₂⁺の錯形成は、フミン酸の官能基との1:1の反応で生じることを示している。従って、Np(V)-humateの形成をNpO₂⁺とフミン酸の1:1反応によるものであるとして、図4-5(a)のようにpHに対して錯形成定数をプロットした結果、

$$\log \beta_1 = (0.35 \pm 0.03 \text{pH}) + 0.04 \pm 0.01$$

と算出した。この値を用いて、地下水中にフミン酸が存在した場合のNp(V)の化学形のpH依存性をMINTEQAにより計算した。図4-5(b)にフミン酸濃度が32mg/l、炭酸イオン濃度が1x10⁻⁴Mの場合の計算結果を示す。ここで、加水分解定数及び炭酸錯体形成定数は、



とした。酸性領域では、ほとんどNp(V)-humateが存在しないのに対し、アルカリ領域でNp(V)-humateの割合が増加し、Np(V)の地下水での化学形に影響を及ぼす可能性があることがわかる。

さらに、フミン酸及びフミン酸存在下でのNp(V)の分子量分布のイオン強度依存性を調べた結果を図4-6に示す。フミン酸の分子量分布は、図4-6(a)に示したようにイオン強度により変化する。特に、30,000-100,000 daltonsの割合がイオン強度とともに低下する傾向を示した。この傾向は、high performance gel permeation chromatographyにより得られた結果とほぼ一致している。し

かし、図4-6(b)に示すようにフミン酸を含む溶液中でのNp(V)-フミン酸錯体の分子量分布はイオン強度の影響をそれほど受けなかった。この結果は、Np(V)とフミン酸の錯形成反応がフミン酸の官能基との単純な相互作用に基づくだけではないことを示している。この結果は、Am(III)について得られた、Am(III)の錯形成が特定の分子量にあるフミン酸との相互作用に支配されている結果と一致した。

[公表した成果]

1. Y. Sakamoto, S. Nagao, T. Ohnuki, M. Senoo, A. Ohashi, S. Sato and H. Ohashi; Influence of humic acid on sorption of neptunium(V) onto soil, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVIII, 997 (1995).
2. T. Tanaka and M. Senoo; Molecular size and functional groups of humic substance complexing with ^{60}Co and ^{241}Am , Radioisotopes, 44, 99 (1995).
3. T. Tanaka and M. Senoo; Sorption of ^{60}Co , ^{85}Sr , ^{137}Cs , ^{237}Np and ^{241}Am on soil under coexistence of humic acid; effects of molecular size of humic acid, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVIII, 1013 (1995).
4. Y. Sakamoto, S. Nagao, T. Tanaka and M. Senoo; Molecular weight distribution of Np(V)-humate, presented in Migration '95.
5. S. Nagao and M. Senoo; Application of high performance gel permeation chromatography to aquatic humic substances in natural waters, Proceeding of 7th International Conference of International Humic Substances Society, in press.

[成果の寄与]

本研究で得られたフミン酸とNp(V)の錯形成定数のpH依存性は、地下水中のNp(V)の化学形を推定するためのデータベースの構築に寄与する。

[今後の展開]

天然地下水中の有機物の分析を行うとともに、種々のフミン酸、フルボ酸とアクチノイド元素の錯形成に関する研究を行う。

参考文献

1. V. Neck, J. I. Kim and B. Kanellakopoulos; Solubility and hydrolysis behavior of neptunium(V), Radiochimica Acta, 56, 25 (1992).
2. V. Neck, J. I. Kim and B. Kanellakopoulos; Solid-liquid equilibrium reactions of neptunium(V) in carbonate solution at different ionic strength, Radiochimica Acta, 65, 29 (1994).

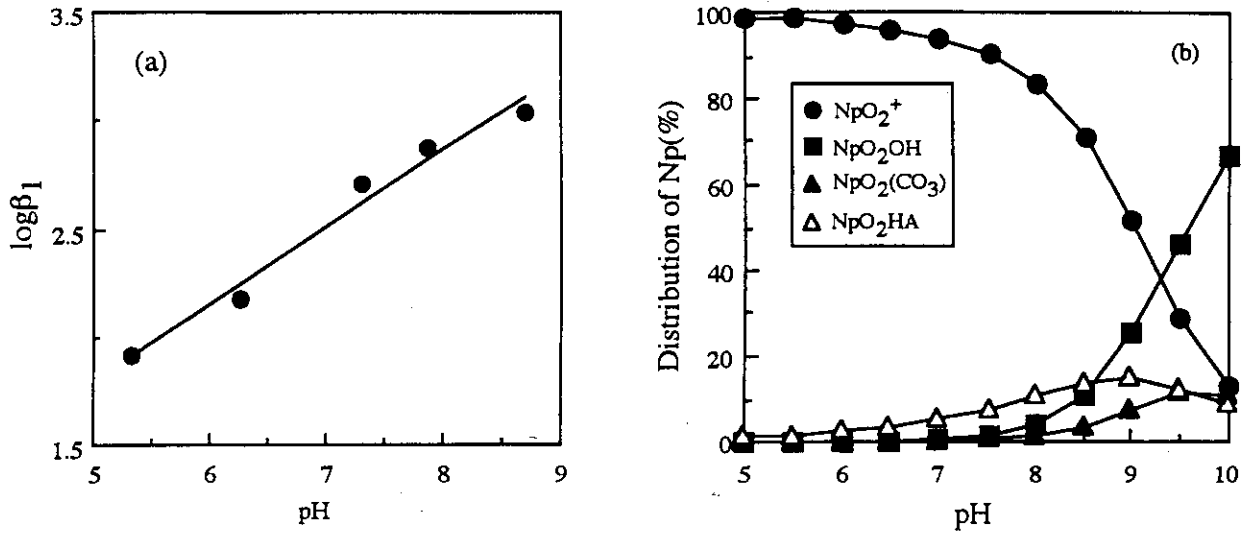


図 4-5 Np(V)-フミン酸錯体形成定数とNp(V)の化学形のpH依存性
 (a)Np(V)-フミン酸錯体形成定数
 (b)Np(V)の化学形(HA:32mg/l、全炭酸濃度 $1 \times 10^{-4}\text{M}$)

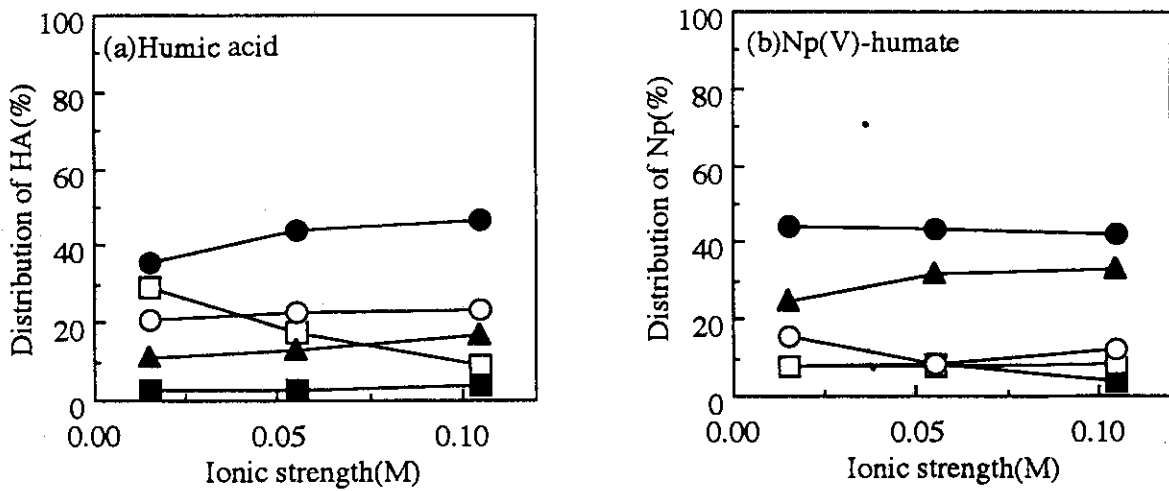


図 4-6 フミン酸及びNp(V)-humateの分子量分布のイオン強度依存性
 (a)フミン酸(200mg/l、pH8.3)
 (b)Np(V)-humate(HA:200mg/l、pH8.4)
 ■ 100,000 daltons-0.45 μm □ 30,000-100,000 daltons ● 10,000-30,000 daltons
 ○ 5,000-10,000 daltons ▲ <5,000 daltons

4. 3 吸着に関する研究

地層の有する放射性核種の移行を遅延させる機構の一つとして、放射性核種の岩石への吸着がある。そこで、核種の岩石への分配係数を求めている。しかしながら、核種の岩石への吸着には、イオン交換反応、表面錯体形成等様々な機構が関与している。また、アクチニド元素の吸着に及ぼすものとしては、pH、炭酸イオン及び地下水中の溶存有機物等がある。そこで、構成鉱物への放射性核種の分配係数を求めるとともに、それらの影響等を考慮した吸着機構を明らかにする研究を進めている。

鉱物への放射性核種の吸着に関する研究

地質環境研究室 大貫敏彦

[目的]

放射性核種の岩石への吸着挙動を解明するため、粘土鉱物、鉱物及び金属酸化物への吸着特性を検討する。

[実験手法]

放射性核種濃度が希薄な場合の吸着形態を知るため、選択的抽出法（核種を吸着させた状態で鉱物に異なる試薬溶液を加える脱離実験）により、試薬と脱離される核種濃度との関係から核種の吸着形態を検討した。抽出試薬としては、(1) 1M KCl 溶液（可逆的に吸着した核種を抽出する）、(2) 1MKCl 溶液により抽出できない元素については、様々な脱離試薬（1M HCl 溶液、1M $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ 溶液、1M NH_4Cl 及び 1M $\text{NH}_2\text{OH} \cdot \text{HCl}$ 溶液）を用いた。元素としては、アルカリ金属イオン（ ^{137}Cs ）、アルカリ土類金属イオンの代表として、 ^{85}Sr 、遷移金属イオン（ ^{60}Co ）及びアクチニド元素（ ^{237}Np ）を用いた。鉱物としては、一次鉱物（長石、輝石、角せん石、石英、黒雲母）、粘土鉱物（カオリナイト、ハロイサイト、セリサイト、イライト、モンモリロナイト、クロライト）、金属酸化物（鉄鉱物、マンガン酸化物、チタン酸化物）を用いた。

[成果の概要]

各鉱物に対する吸着実験で得られたストロンチウムの分配比は、粘土鉱物及びマンガン酸化物については $40 (\text{ml} \cdot \text{g}^{-1})$ 以上、クロライト及び石英を除く一次鉱物については約 7-15 ($\text{ml} \cdot \text{g}^{-1}$) であったが、石英、鉄鉱物及びチタン酸化物については $1 (\text{ml} \cdot \text{g}^{-1})$ 以下であった。1M KCl 溶液により、マンガン鉱物を除く全ての鉱物に吸着したストロンチウムは 90% 以上脱離したが、マンガン鉱物に吸着したストロンチウムは約 50% が脱離した。さらに、1M HCl 溶液により 90% 以上が脱離した。これらの結果から、ストロンチウムの一次鉱物及び粘土鉱物への吸着は、他の陽イオンと交換可能な可逆的な吸着（イオン交換吸着）であり、マンガン酸化物への吸着は、より強固な結合をしている化学吸着であると考えられる。

各鉱物に対するセシウムの分配比は、粘土鉱物及びマンガン酸化物で $500 (\text{ml} \cdot \text{g}^{-1})$ 以上、石英を除く一次鉱物で約 $100 (\text{ml} \cdot \text{g}^{-1})$ 、石英、鉄鉱物及びチタン酸化物については $1 (\text{ml} \cdot \text{g}^{-1})$ 以下であった。ハロイサイトに吸着したセシウムは 1M KCl 溶液により約 90% が脱離したが、マンガン酸化物及び雲母鉱物の一種であるイライト及びセリサイトからは、それぞれ約 30、10 及び 30% が脱離した。脱離溶液を 1M $\text{NH}_2\text{OH} \cdot \text{HCl}$ 溶液に変えた場合、マンガン酸化物からは

全量脱離したが、イライト及びセリサイトからは20及び50%が脱離した。これらの結果から、セシウムは、マンガン酸化物及び雲母鉱物には特異吸着される。雲母鉱物への特異吸着には、層間への取り込みが関与し、マンガン酸化物への特異吸着には静電相互作用による強い化学吸着が関与すると考えられる。

各構成成分に対するコバルトの分配比は、2:1型粘土鉱物(モンモリロナイト、イライト等)及びマンガン酸化物で4,000 ($\text{ml} \cdot \text{g}^{-1}$)以上、他の粘土鉱物、石英以外の一次鉱物で200 ($\text{ml} \cdot \text{g}^{-1}$)以下、石英、鉄鉱物では1 ($\text{ml} \cdot \text{g}^{-1}$)以下であった。

モンモリロナイトに吸着したコバルトは、1 M KCl, 1 M NH_4Cl 溶液によっては脱離しなかったが、1 M $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ 溶液により約70%が脱離した(Co^{2+} と CH_3COO^- との錯形成定数は $\beta_1=1.46$ である)。一方、マンガン酸化物に吸着したコバルトは、1 M KCl, 1 M NH_4Cl 及び1 M $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ 溶液によっては0.1%以下しか脱離されなかったが、1 M HCl及び1 M $\text{NH}_2\text{OH} \cdot \text{HCl}$ 溶液によって90%以上が脱離された。これらの結果は、コバルトはモンモリロナイト、マンガン酸化物へ特異吸着することを示している。モンモリロナイトへはシラノール基等との錯形成によって、また、マンガン酸化物へは結晶中のマンガンをコバルトとの同型置換によって説明できる。

マンガン酸化物、モンモリロナイトの混合物へのコバルトの吸着について、脱離試薬として1 M $\text{NH}_2\text{OH} \cdot \text{HCl}$ 溶液を用いて検討したところ、マンガン酸化物により多くのコバルトが分配されることが分かった。このことは、マンガン酸化物へのコバルトの特異吸着能がモンモリロナイトへのそれよりも大きいことを示している。

酸化性雰囲気におけるネプツニウムの含鉄鉱物への分配係数のpH依存性は、磁鉄鉱、黒雲母及び赤鉄鉱に対しアルカリ側でpHの上昇とともに増加した。一方、表面に水酸基を有する針鉄鉱への分配係数は中性付近で増加した。これらの結果から、酸化性雰囲気におけるネプツニウムの含鉄鉱物への吸着では、表面の水酸基への吸着が支配的であると考えられる。

[公表した成果]

1. T. Ohnuki; Adsorption of Radioactive Cobalt by Mixture of Manganese Oxide and Montmorillonite, *J. Nuclear Science & Technology*, 27, 1068-1071(1990).
2. S. Nakayama and Y. Sakamoto; Sorption of Neptunium on Naturally-Occurring Iron-Containing Minerals, *Radiochimica Acta*, 52/53, 153-157 (1991).
3. T. Ohnuki; Migration Characteristics of Cobalt-60 through Sandy Soil in High pH Solution, *J. Nuclear Science & Technology*, 29, 996-1003 (1992).
4. T. Ohnuki; Sorption Characteristics of Strontium on Sandy Soils and Their Components, *Radiochimica Acta*, 64, 237-245 (1994).
5. T. Ohnuki; Sorption Characteristics of Cesium on Sandy Soils and Their Components, *Radiochimica Acta*, 65, 75-80 (1994).
6. T. Ohnuki and N. Kozai; Sorption Characteristics of Radioactive Cesium and Strontium on Smectite, *Radiochimica Acta*, 66/67, 327-331 (1994).
7. T. Ohnuki and N. Kozai; Sorption Characteristics of Cobalt on the Mixture of Smectite and Manganese Dioxide, *Radiochimica Acta*, 68, 203-207 (1995).

[成果の寄与]

岩石の特性と鉱物への吸着特性を結びつけ、吸着に関するデータベースの作成に寄与した。

[今後の展開]

選択的抽出法を用いて、岩石へのTRU核種の吸着を解明していく。

吸着への溶存有機物の影響

天然バリア研究室 坂本義昭

[目的]

アクチニド元素としてNp(V)の地質媒体(岩石やその構成鉱物)への吸着に及ぼす溶存有機物の影響を調べ、吸着機構を解明する。

[実験方法]

Np(V)の針鉄鉱と鉱物の混合物試料(以下、試料)への吸着をバッチ法により調べた。フミン酸を含まない系におけるNp(V)の吸着形態を調べるため、吸着実験終了後、1.0M KCl溶液による脱離実験を行った。固液分離後溶液中の放射能濃度を測定して、脱離されたNp(V)の量を求めた。

水素イオン交換容量は5.1meq/g、pKaは4.0のフミン酸を0.005Mの水酸化ナトリウム溶液に溶解させ、イオン強度0.1M(NaClO₄)のフミン酸溶液(5~320mg/l)を作成した。この溶液に²³⁷Np溶液及び針鉄鉱を添加し、3~7日間25℃で振とうした。固液比は1g:10とした。振とう後、0.45μmのフィルターでろ過した。この溶液中のNp濃度を液体シンチレーションカウンターで測定し、分配係数を求めた。また、この時のフミン酸の吸着率を紫外可視分光光度計により求めた。

[成果の概要]

Np(V)の針鉄鉱及び試料に対する分配係数はpHとともに増加した(図4-7(a))。脱離実験結果(図4-7(b))から、pH7.5まではNpO₂⁺は試料に可逆的に吸着しているが、それ以上のpHでは表面において比較的強い吸着を示す表面錯体の形成等が支配的であると考えられる。

土壌試料の場合には、フミン酸濃度が32mg/lとなっても分配係数はフミン酸が無い場合とほぼ同程度であり、それ以上のフミン酸濃度で分配係数が減少した(図4-8)。針鉄鉱の場合には、フミン酸濃度が10mg/lまでNp(V)の分配係数が増加した。それ以上のフミン酸濃度において分配係数が減少する傾向を示した。フミン酸濃度が高い領域におけるNp(V)の分配係数の減少は、Np(V)-humateの形成によりNp(V)の吸着が阻害されたためである。針鉄鉱において、フミン酸濃度が10mg/lまでの領域でNp(V)の分配係数が増加したのは、針鉄鉱表面へのフミン酸の吸着量が増すことにより、針鉄鉱の吸着サイトが見かけ上増えたためと考えられる(図4-9)。

[公表した成果]

1. Y.Sakamoto, S. Nagao, T. Ohnuki, M. Senoo, A. Ohashi, S. Sato and H. Ohashi; Influence of humic acid on sorption of neptunium(V) onto soil. Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVIII, 997 (1995).

[成果の寄与]

地下水中に存在する有機物質の核種移行に及ぼす影響の解明に寄与した。さらに、フミン酸が存在する場合の核種の鉱物への吸着機構を明らかにした。

[今後の展開]

還元状態で天然有機物が存在する系におけるアクチニド元素の地層中の吸着・移行挙動について実験的に明らかにする研究を行う。

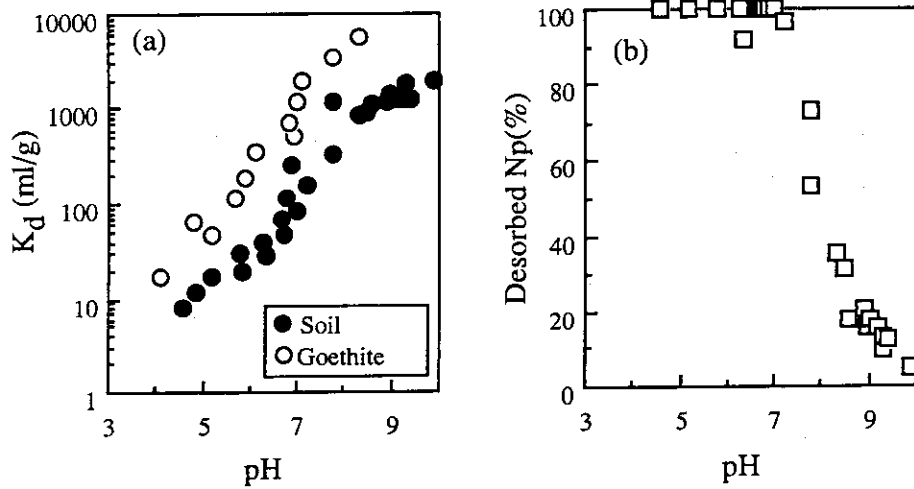


図4-7 土壌及び針鉄鉱へのNp(V)の吸着のpH依存性
(a)分配係数
(b)土壌試料からの1M KClでの脱離率

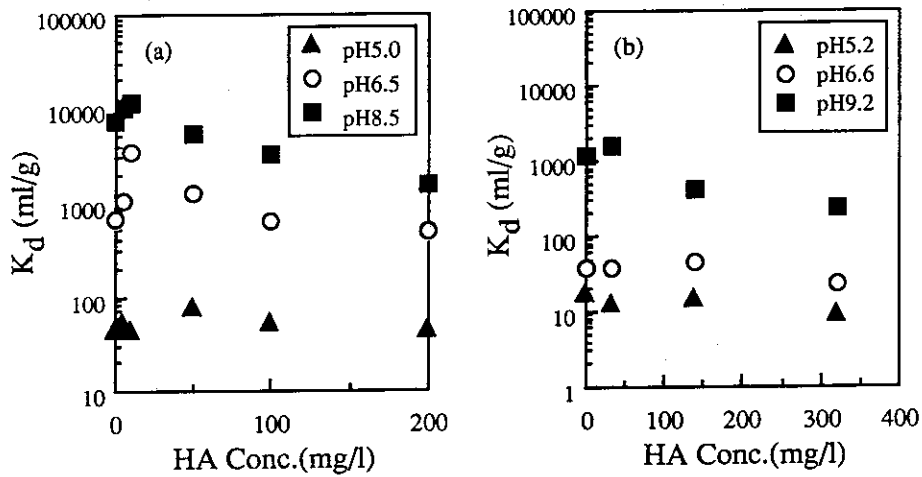


図4-8 Np(V)の分配係数のフミン酸濃度依存性
(a)針鉄鉱、(b)土壌試料

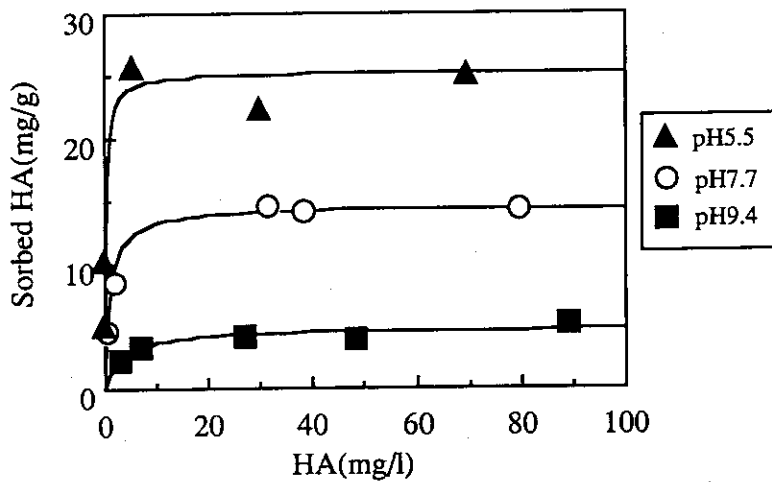


図4-9 針鉄鉱に対するフミン酸の吸着等温線
実線は、Langmuir型吸着を仮定した場合の解析結果

4. 4 固定

オーストラリアのクンガラウラン鉱床におけるナチュラルアナログ研究から、緑泥石の変質過程におけるウランの固定が示唆された。アクチノイド元素についても同様に、鉱物の変質過程における変質鉱物中への取り込みが起こるかどうかを確認し、その機構及び固定の条件等を明らかにする必要がある。

天然に存在する鉱物の内、廃棄物処分に関連し天然にも広く存在する鉱物として、鉄鉱物とスメクタイトを取り上げた。これら鉱物の結晶化学及び変質機構については、解析に必要なデータ、たとえば結晶化度を測定する手法とうの多くの知見を取得している。

非晶質鉄鉱物の結晶化過程における元素の再分配

天然バリア研究室 坂本義昭

[目的]

放射性核種が一旦非晶質鉄酸化物へ吸着した後、変質過程が生じた場合に、吸着した放射性核種 (Sr、Np(V)) の再分配挙動を調べる。

[実験方法]

Srの再分配

硝酸第二鉄を脱イオン水に溶解させ、pHを12に調整して非晶質鉄酸化物の沈殿物を作成した。これを脱イオン水で洗浄し、上澄み溶液を除いた。ここに、 $3 \times 10^{-3} \text{M}$ (pH12) に調整したSr溶液を加え、40°C、12~168時間、オープンで保持した (dynamic condition)。その後、遠心分離を行い、 $0.45 \mu\text{m}$ のフィルターでろ過し、ロ液中のSr濃度をICPで測定した。

生成した鉄沈殿物をフリーズドライにより乾燥させ、Srの逐次抽出を行い、その吸着形態について調べた。逐次抽出は、

- ① 1M MgCl_2 (室温、1時間)
- ② $0.04 \text{M NH}_2\text{OH} \cdot \text{HCl}$ in $25\% \text{CH}_3\text{COOH}$ (90°C、5時間)
- ③ HF-HClO₄溶液で全溶解

により行った。

鉄沈殿物の結晶化の度合いとして、固体中における針鉄鉱の割合をFT-IR(890 cm^{-1})で測定した。また、Srを含まない条件で作成した鉄沈殿物試料へのSrの吸着 (static condition) 及び逐次抽出を行い、吸着形態について結晶化過程が共存する場合と比較した。

Np(V)の再分配

Srの場合と同様に非晶質鉄水酸化物の沈殿物を作成した。この場合、Np(V)の加水分解の影響を避けるため、初期pHを7.7とした。 ^{237}Np を含む溶液をpH7.7に調整し、非晶質鉄水酸化物の沈殿物に添加し、90°Cで0.5~198時間オープン中で保持した。その後、遠心分離を行い、 $0.45 \mu\text{m}$ のフィルターでろ過し、ロ液中の ^{237}Np の濃度を液体シンチレーションカウンターで測定した。

固液分離した固相について、次のような逐次抽出を行った。

- ① 1M MgCl_2 (室温、1時間)
- ② 1M HCl (室温、24時間)

③ 6M HCl (室温、24時間、全溶解)

鉄沈澱物の結晶化の度合いとして、固体中における針鉄鉱及び赤鉄鉱の割合をX線回折法により求めた。また、Np(V)を含まない条件で結晶化させた試料を作成し、Np(V)の吸着及び逐次抽出実験を行った。

[成果の概要]

鉄沈澱物の結晶化過程におけるSrの吸着量の変化を図4-10に示す。鉄沈澱物の結晶化度は、pH12において約100時間で概ね100%となった。非晶質鉄沈澱物へのSrの吸着量は100%であったが、結晶化の進行とともに減少した。全て針鉄鉱に変質した後は、Srの吸着量は53%まで減少した。これは、Srの非晶質鉄沈澱物及び結晶質の針鉄鉱に対する分配係数がそれぞれ4000ml/g及び80ml/gと対応している。

Srの吸着形態を逐次抽出で調べた結果を、図4-11に示す。static conditionにおけるSrの主な吸着形態は、 NH_2OH 及び1M MgCl_2 で脱離される可逆的な吸着形態であった。一方、dynamic conditionの場合には、可逆的な形態が60%以上をどの場合にも占めるが、結晶化度が大きくなると、residual成分、つまり不可逆な成分が増加する結果となった。この成分は、static conditionでは、図4-11に示すように認められないことから、鉄沈澱物の結晶化過程においてSrの一部が取り込まれることにより、このような不可逆な形態になったものと思われる。

また、このようなSrの再分配過程を鉱物相への取り込みを考慮したモデルを用いて解析した結果、一旦非晶質水酸化鉄に吸着したSrの内、結晶化の進行により95%は針鉄鉱の可逆的な吸着サイトに移行するが、5%が不可逆なサイトに取り込まれることにより、図4-10のような現象が生じたことを示した。

Np(V)の結果を、図4-12及び図4-13に示す。Np(V)の場合にも、結晶化の進行とともに可逆的な成分である1M MgCl_2 で脱離される成分が減少し、不可逆な成分が増加する結果となった。図4-13に示すようにstatic conditionにおける吸着実験では、このようなNp(V)の成分は生じないことから、結晶質の針鉄鉱と赤鉄鉱の混合物に取り込まれたと考えられる。

[公表した成果]

1. T. Ohnuki, T. Murakami and N. Yanase; A modelling study on the fractionation of uranium among minerals during rock weathering, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVI, 527 (1993).
2. Y. Sakamoto and M. Senoo; Redistribution of strontium during crystallization of amorphous ferrihydrite to goethite, Radioactive Waste Management and Environmental Restoration, 18, 265 (1994).
3. Y. Sakamoto, T. Ohnuki and M. Senoo; Redistribution of neptunium(V) during the alteration of ferrihydrite, Radiochimica Acta, 66/67, 289 (1994).

[成果の寄与]

天然に広く分布する鉄鉱物へのアクチニド元素の結晶化過程における取り込みを確認し、天然バリア中におけるアクチニド元素の移行遅延機構の解明に寄与した。

[今後の計画]

元素の固定化に関する基礎的な研究を行い、現象のモデル化を進める。

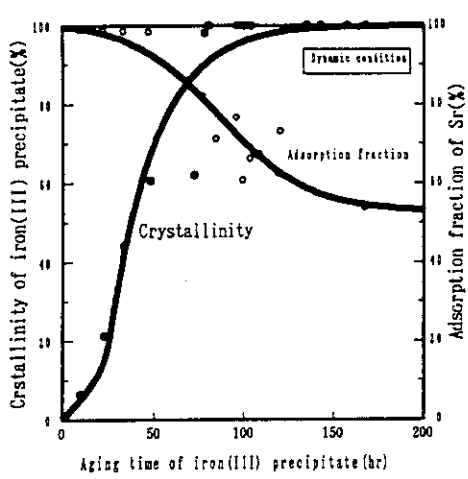


図 4-10 保持時間に対する鉄沈殿物の crystallinity と Sr の吸着率

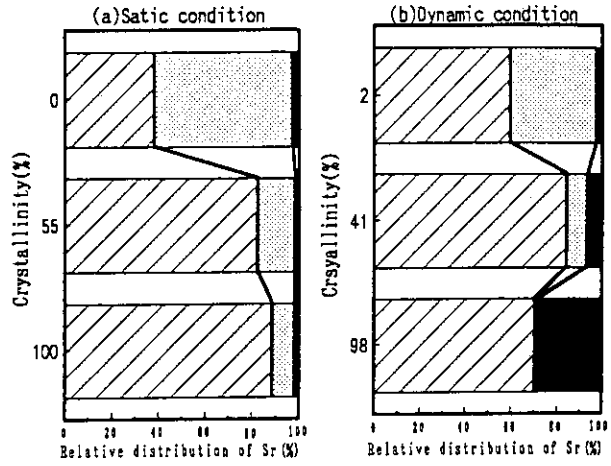


図 4-11 各 crystallinity に対する Sr の脱離の割合

□ Reversible ■ NO₂OH ■ Residual

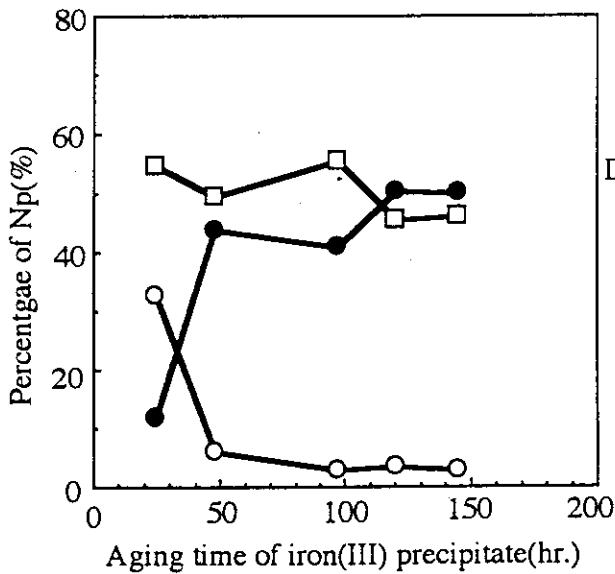


図 4-12 鉄沈殿物の保持時間に対する Np(V) の各フラクションの割合

○ MgCl fraction □ 1M HCl fraction
● 6M HCl fraction

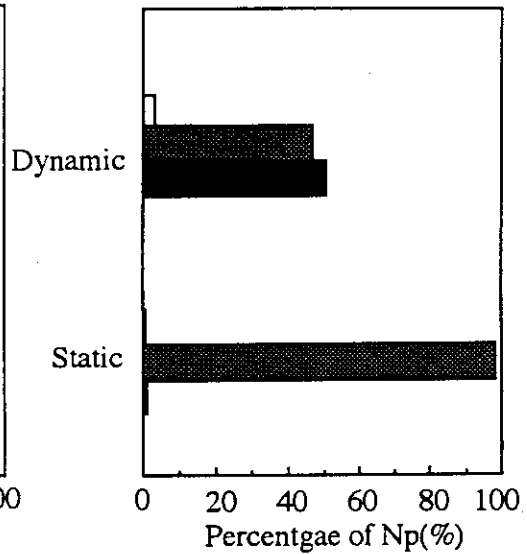


図 4-13 dynamic condition と static condition における Np(V) の各フラクションの割合

□ MgCl fraction ■ 1M HCl fraction
■ 6M HCl fraction

スメクタイトの変質過程における元素の再分配

地質環境研究室 大貫敏彦

[目的]

天然に広く分布するスメクタイトのイライト化過程における元素の再分配機構を解明する。

[実験方法]

実験に供したスメクタイトはクニピアF (粒径: $2\mu\text{m}$ 以下、陽イオン交換容量: $92\text{ meq}\cdot 100\text{g}^{-1}$ 、比表面積: $13.8\text{ m}^2\cdot\text{g}^{-1}$) で、交換性陽イオンを K^+ に変えたものである。

予め放射性Sr、Cs及びCoを含んだ水溶液とスメクタイトとを平衡に達するまで接触させ、テフロン製容器内に密封し熱水変質させる実験(動的条件)、及び熱水変質により得たイライト/スメクタイト(I/S)混合層鉱物に各元素を吸着させる実験(静的条件)を行なった。熱水変質実験は、 200°C (蒸気圧条件)、20日間行なった。変質させた試料のX線回折パターンを得て、生成したイライト層の割合(変質度)により整理した。

熱水変質実験により得られたI/S混合層鉱物は、遠心分離($10,000\text{ rpm}$ 、1時間)による固液分離の後、固体試料と、異なる脱離試薬溶液 50 ml をバッチ法により順次接触させる選択的抽出実験に供し、Sr、Cs、Coの収着形態について検討した。脱離試薬としては1:1 M KCl、2:1 M HCl、3:6 M HCl 溶液を用い、反応温度 20°C 、反応時間16時間として順次反応させ脱離されたSr、Cs、Co濃度を γ 線スペクトロメトリーにより測定した。I/S混合層鉱物は各試薬と2度接触させた。各試薬により脱離されなかったSr、Cs濃度も γ 線測定により求めた。

また、スメクタイトに収着されたSr、Cs、Coの収着形態についても選択的抽出法により検討した。

[成果の概要]

静的条件下におけるスメクタイトに対する分配係数は、イライト層の増加とともに指数関数的に減少した(図4-14)。この結果から、I/S混合層鉱物の分配係数には、加成則が成立しない。このことは、I/S混合層への吸着は、スメクタイトとイライトの単純な混合物への吸着として扱えないことが分かった。

一方、動的条件下における実験において次のような結果が得られた。

- ・分配係数はイライト層が増加しても減少しない。
- ・Srでは90%以上が1M KCl 溶液により脱離されたが、Cs及びCoは1%以下しか脱離されない。
- ・Cs及びCoは1M HClでも6M HClでも5%以下しか脱離されない。

さらに、CoについてはI/S混合層の可視光スペクトルと、 Co^{2+} を吸着したスメクタイトのスペクトル及び八面体にCoを有するスメクタイトであるCo-サポナイトのスペクトルと比較した結果、動的条件下において得られたI/S混合中Coのピーク波数が、スメクタイトに吸着された Co^{2+} とは異なり、Co-サポナイトのものとは一致した。

これらの結果から、アルカリ土類金属イオンであるSr、アルカリ金属イオンであるCs及び遷移金属であるCoのスメクタイト→イライト過程における再分配機構を表すと図4-15のようになる。Srは、スメクタイトへ他の陽イオンと交換可能な吸着をするが、イライト化によってもその吸着特性は変わらない。しかし、Csはイライト化に伴い他の陽イオンでは交換されない吸着特性を示す。可能なサイトとしては、Kが固定されているSi四面体の酸素の六員環に囲まれた

空間が想定される。一方、Coは、イライト化に伴い八面体のAlあるいはMgと同型置換されるものと考えられる。

[公表した成果]

1. 大貫敏彦、村上隆、佐藤努、磯部博志; スメクタイトーイライト変質過程におけるSr及びCsの再分配、原子力誌、Vol. 34, pp. 1139-1142 (1992).
2. T. Ohnuki, T. Murakami, H. Isobe and T. Sato; Redistribution of Co in Illite/Smectite Interstratified Minerals during the Smectite to Illite Conversion Int. Geol. Cong. Kyoto, Aug. 29, (1992).
3. T. Ohnuki, T. Murakami, T. Sato and H. Isobe; Redistribution of Strontium and Cesium during Alteration of Smectite to Illite, Radiochimica Acta, 66/67, 323-326 (1994).

[成果の寄与]

スメクタイトの変質過程における元素の再分配機構を明らかにし、天然バリア中における元素の移行遅延機構の解明に寄与した。

[今後の計画]

安全評価で用いられる元素の移行パラメータである分配係数等の選定に貢献するため、鉱物の変質過程におけるアクチニド元素の再分配機構を明らかにする。

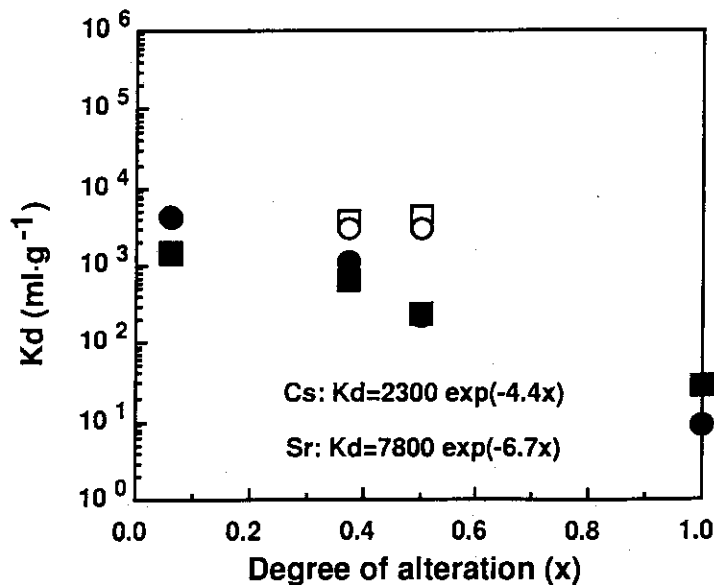


図4-14 CsおよびSrのI/S混合層鉱物に対する分配係数
 静的条件下●(Sr)、■(Cs)および動的条件下○(Sr)、□(Cs)

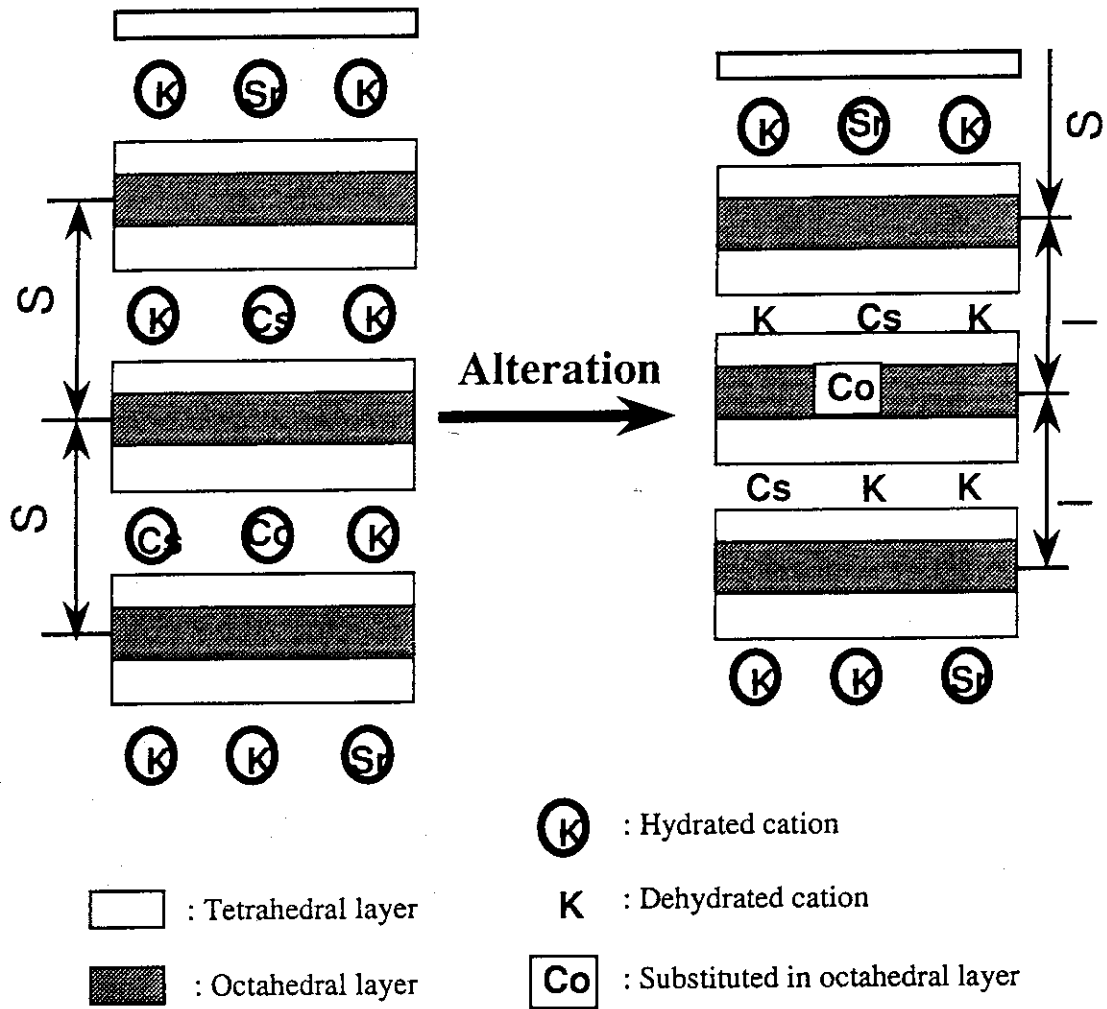


図4-15 スメクタイト→イライト過程におけるSr, Cs及びCoの再分配機構の概念図。変質過程においてSrは吸着形態を変えず、Cs及びCoの一部は固定される。

4. 5 放射性核種の移行及び拡散

深地層中における放射性核種の移行挙動を評価する場合、亀裂中の移行挙動及び岩石中の拡散が重要となる。結晶質岩では、岩石マトリックス部への拡散現象により移行が遅延されることは安全評価上重要な遅延機構である。しかし、不均質性を有する花崗岩のような媒体中の拡散に関しては実験結果と理論による予測との整合性を取ることが難しい。したがって、岩石中の拡散機構を解明する研究を進めてきた。

移行に関する研究

地質環境研究室 大貫敏彦

[目的]

放射性核種の亀裂中移行における、亀裂充填鉱物の役割を明らかにする。

[実験方法]

粒径4.0~6.0mmの健全な花崗岩及び破碎帯で採取した花崗岩を内径1.9cm、長さ47cmのカラム内に充填し、Cs水溶液及び模擬ガラス固化体からの浸出液に ^{134}Cs 添加させた溶液を0.17ml/minの流量で上部から供給し、流出曲線及びカラム内濃度分布を得た。流出曲線及びカラム内濃度分布について、一次元移流拡散方程式の解をフィッティングし、遅延係数を求めた。

[得られた成果]

Csを使用したカラム実験及び浸出液を使用した健全な花崗岩を用いたカラム実験において得られた流出曲線及びカラム内濃度分布は、吸着に瞬時平衡を仮定した一次元移流拡散方程式の解によりフィッティングできた。一方、破碎帯で採取した花崗岩を用いた場合には、フィッティングにより得られた遅延係数が健全な花崗岩のカラム実験で得られた値よりも大きくなった。この理由としては、破碎花崗岩に含まれる粘土鉱物への核種の吸着が考えられる。

[公表した成果]

1. 岩井孝幸、雨貝信治、中山真一; 新鮮な花崗岩及び破碎花崗岩中におけるセシウムの移行、応用地質, Vol. 32, 55-63 (1991).

[成果の寄与]

核種の地層中移行では、亀裂が移行経路となると考えられるが、亀裂には粘土鉱物などの充填鉱物が存在するため、核種の移行の遅延が期待できることを示した。

拡散に関する研究

地質環境研究室 山口徹治

[目的]

深地層結晶質岩中において放射性核種が移行する際には、岩石マトリックス部への拡散現象により移行が遅延される。不均質性を有する花崗岩のような媒体中におけるイオンの拡散に関しては、実験結果と理論との整合性を取ることが難しい。このため、日本の代表的な花崗岩等についてイオンの実効拡散係数を求め、理論的に裏付ける。

[実験方法]

透過拡散法(through-diffusion)と呼ばれる方法を用いる。実験容器は、直径が4 cm、厚さが5 mm程度の円盤状の岩石試料で完全に仕切られているふたつの部屋(各々120 mL)から構成されている。実験開始時に、一方の部屋には対象とするイオンを含む溶液を、他方にはそれを含まない溶液を入れる。時間の経過とともに一方に溶存していたイオンは岩石試料中を拡散により透過し、もう一方の部屋に蓄積してくる。イオンの濃度の時間変化を測定し、拡散方程式の解とフィッティングすることによって実効拡散係数(D_e)を求めた。

[成果の概要]

非吸着性のヨウ素イオン(I^-)の実効拡散係数は、花崗岩(稲田産)については $2 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ 、凝灰岩(伊豆産)については $7 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ であった。この差は、岩石の間隙率の違い(花崗岩: 1%以下、凝灰岩: 25%)を反映している。さらに、間隙率の異なる数種の岩石についてヨウ素の実効拡散係数、間隙率及び間隙孔径を測定し、間隙率と拡散係数の定量的な関係を求めた。その結果、ヨウ素の実効拡散係数は有効間隙率(ϵ_{eff} : 半径5 nm以上の間隙率)との間に図4-16に示すような関係があることが分かった。多孔質媒体中におけるイオンの実効拡散係数は媒体の間隙率に比例するとされているが、この結果はこの理論を支持するものである。

花崗岩中におけるネプツニウムとウラニン(蛍光物質、 $\text{C}_{20}\text{H}_{10}\text{O}_5\text{Na}_2$)の実効拡散係数はそれぞれ $2.5 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ 及び $4.4 \times 10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$ であった。

花崗岩中におけるストロンチウムの実効拡散係数を測定し、吸着性のイオンでは、間隙水中の拡散と表面拡散(吸着したイオンが岩石の表面層を拡散する現象)のふたつの拡散機構を考慮した式でよく説明できることが示された。

花崗岩中におけるウラニルイオンの実効拡散係数は、 $(3.6 \pm 1.2) \times 10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$ であり、この値はウラニンの値に近く、ストロンチウムやネプツニウムの値より1桁小さく、ヨウ素の値よりも2桁小さい。花崗岩中におけるイオンの実効拡散係数の大小関係は、自由水中の拡散係数の大小関係と一致しているが、岩石中における実効拡散係数と自由水中における拡散係数が正比例するとする理論とは一致しなかった(図4-17)。

[公表した成果]

1. 喜多治之、岩井孝幸、中嶋悟; 花崗岩及び凝灰岩間隙水中のイオンの拡散係数の測定、応用地質、Vol. 3、84-90(1989).
2. 西山勝栄、中嶋悟、多田隆治、内田隆; 岩石間隙水中のイオンの拡散と間隙の性質、鉱山地質、Vol. 40、pp. 323-336(1990).

3. 熊田政弘、岩井孝幸、佐川民雄、鈴木隆次、西山勝栄; 岩石コアを用いた放射性核種の拡散実験、JAERI-M 90-179 (1990).
4. T. Yamaguchi, Y. Sakamoto and M. Senoo; Consideration on Effective Diffusivity of Strontium in Granite, Journal of Nuclear Science and Technology, 30, 796-803 (1992).
5. T. Yamaguchi, Y. Sakamoto, S. Nakayama and T. T. Vandergraaf; Effective diffusivity of the Uranyl Ion in Granite from Inada, Ibaraki, Japan, Migration'95, Saint Malo, France (1995).

[成果の寄与]

岩石マトリックス拡散を考慮した核種移行評価に寄与した。

[今後の展開]

還元性の地下環境下におけるアクチニド元素の拡散挙動に関して定量的な知見を得るための実験を継続する。さらに、濃度プロファイル法の併用を試み、アクチニドの岩石中における拡散に関して、より信頼性の高いデータを取得する。

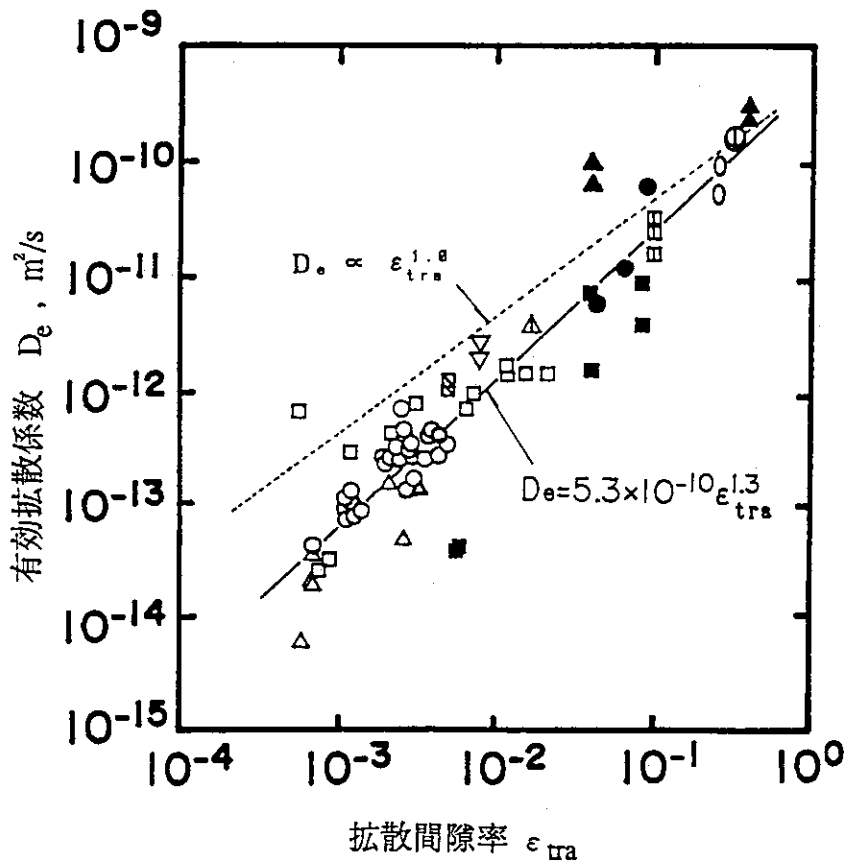


図4-16 : 岩石中におけるヨウの有効拡散係数と間隙率との相関

- , ⊙ 女川産珪質堆積岩
- ▲ 蒲野沢産珪質堆積岩
- 串木野産安山岩
- △ 北茨城産石灰岩
- ▽ 稲田産花崗岩
- 伊豆産凝灰岩
- , △ 花崗岩と片麻岩 (Skagius and Neretnieks 1986)
- , ▣ 砂岩と硬石膏 (Bradbury et al. 1986)
- 花崗岩 (Bradbury et al. 1982)

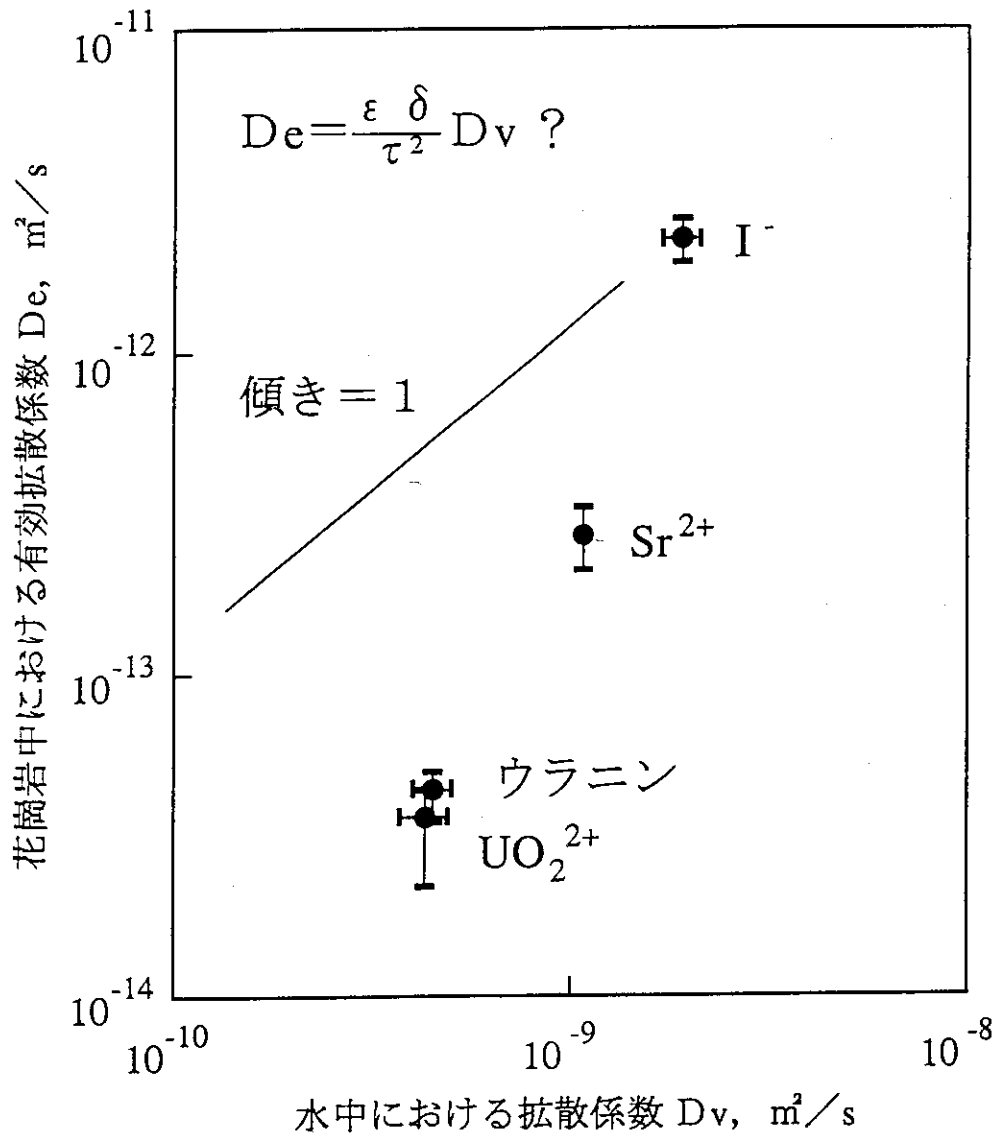


図4-17 : 稲田花崗岩における有効拡散係数と自由水中における拡散係数の比較

4. 6 鉱物の変質に関する研究

放射性廃棄物処分の安全評価期間では、鉱物は岩石-水反応により他の鉱物に変化(変質)し、それに伴って、吸着性等が変化する。そこで、日本における代表的な岩石である花崗岩の風化、熱水変質過程を明らかにする。

花崗岩の風化・熱水変質に伴う鉄の挙動

地質環境研究室 永野哲志

[目的]

花崗岩の風化及び熱水変質を受けた岩石中の鉄や水の存在形態を分析し、岩石の変質に伴う鉄の挙動を検討する。

[実験方法]

風化や熱水変質を受けた花崗岩を採取し、X線回折法、可視光域拡散反射法及び顕微赤外分光法などにより岩石中の鉄や水の存在形態を分析する。

[成果の概要]

花崗岩は石英、黒雲母、斜長石及び曹長石の4種類の鉱物で構成されており、X線回折法による定量分析の結果、黒雲母の含有率は風化の進行に伴い減少していくことがわかった。風化花崗岩の粉末試料の拡散反射スペクトルは500nm付近にFeOOHに特有な吸収帯を示し、吸収帯の面積により定量分析を行ったところ、風化の進行に伴いFeOOHが増加していくことがわかった。風化による岩石中の鉄の総量の変化は認められなかった。以上の結果は、風化の進行に伴い黒雲母中のFe(II)が地下水に溶出し、大部分が流されることなく直ちに黒雲母周辺で酸化・沈殿しFeOOHへ結晶化したことを示唆している。

熱水変質を受けて赤色化した花崗岩を電子顕微鏡で分析すると構成鉱物である長石中に1 μ mより小さな鉄の濃集部が散在していることがわかった。赤色部の拡散反射スペクトルはFeOOHとFe₂O₃の混ざったものと同じパターンを示しており、従って、熱水変質の際には2種類の鉄鉱物が生成することがわかった。顕微赤外分光法により、赤色化した花崗岩の微小領域の水の分析を試みた。その結果、亀裂周辺の赤い長石は亀裂から遠くの白い長石よりも水和しており、さらに赤い長石の表面には水和相が存在することが見いだされた。以上の結果より、地下水が花崗岩中の亀裂に侵入し、長石の表面に水和相を形成する一方で、地下水とともに流れてきた鉄イオンはこの水和相を通して長石内部に拡散し、酸化物や水酸化物として沈殿したことが推測される。

[公表した成果]

1. T. Nagano and S. Nakashima; Study of colors and degree of weathering of granitic rocks by visible diffuse reflectance spectroscopy, *Geochem. J.*, 23, 75-83 (1989).
2. S. Nakashima and T. Nagano; Long-term reaction path modeling of radionuclide fixation in geosphere by spectroscopic methods, *Proc. 1989 Joint Intl. Waste Manag. Conf.*, 2, 341-346, Oct., 22-28, 1989, Kyoto, Japan.

3. S. Nakashima, S. Ohki and S. Ochiai; Infrared microspectroscopy analysis of the chemical state and spatial distribution of hydrous species in minerals, *Geochem. J.*, 23, 57-64 (1989).

[成果の寄与]

花崗岩の風化の初期段階における雲母鉱物の変質過程を明らかにし、放射性核種の地下水-岩石圏での長期的な挙動を評価するための基礎的な知見を得た。

[今後の展開]

風化した花崗岩と新鮮な花崗岩の元素に対する酸化還元力の違いを調べる。その後、これらの花崗岩を使って酸化還元環境に敏感な放射性核種との化学反応、たとえば表面での酸化還元反応の可能性などについて調べていく。

4. 7 ナチュラルアナログ研究

放射性廃棄物地層処分の安全評価では、長期間における放射性核種の挙動を予測する必要がある。このような未来において生じる事象を予測するためには、過去に生じた事象を解明する研究、すなわちナチュラルアナログ研究が必要となる。このため、オーストラリアのクンガラウラン鉱床、ガボン共和国のオクロウラン鉱床を対象とした天然試料の観察を中心に、地質学的時間における鉱物の変質と希土類元素、ウラン等天然に存在する元素の移行挙動を明らかにする研究を行っている。

オーストラリア、クンガラウラン鉱床における研究

地質環境研究室 大貫敏彦、柳瀬信之
磯部博志、佐藤 努

〔目的〕

地質学的時間における鉱物の変質の機構の解明と、ウラン系列核種の移行の関係を明らかにして、地質環境の変化が核種移行に及ぼす影響を明らかにする。

〔研究手法〕

オーストラリア原子力科学機構（ANSTO）を中心とした国際協力研究により、天然ウラン系列核種の移行挙動を検討する。クンガラウラン鉱床は、オーストラリア北部に位置している。グラファイト層を含む石英緑泥石片岩中に約16億年前に形成された鉱床が、約100-300万年前に、還元雰囲気（還元）のウラン一次鉱床に酸化雰囲気（酸化）の地下水が接触し、ウラン系列核種が一次鉱床から地下水下流側に約100m移行し、二次鉱床を形成している。

鉱物の観測手法として、マイクロ領域では電子顕微鏡観察、センチメートル領域では偏光顕微鏡観察と α トラック法によるウランの分布の観測、メートル領域ではX線回折による鉱物組成と全岩分析によるウラン濃度分布とを比較する。また、選択的抽出法によりウランの収着している鉱物を同定する。さらに、モデルを用いたウランの一次元濃度分布を解析し、実測値と比較する。

〔成果の概要〕

深さ位置の異なる岩石試料のX線回折パターンから、どの位置においても石英のピークは観察されたが、緑泥石のピークは25mより深い位置で、緑泥石/バーミキュライトのピークは20m~25mで、カオリナイトのピークは20mよりも浅い位置で観察された。このことから、緑泥石は、緑泥石 \Rightarrow バーミキュライト \Rightarrow カオリナイトと変質したことが分かった。岩石試料を電子顕微鏡で調べた結果、変質とともに鉄鉱物が析出したこと、変質の初期の段階ではマイクロ領域で鉱物内に存在していた鉄が鉱物粒界に析出し、鉄鉱物の脈を形成したことがわかった。

緑泥石とその風化生成物の存在比とウラン濃度の深さ方向のマクロな関係から、鉱物の変質の程度によりウラン濃度が上昇していることがわかった。緑泥石、バーミキュライト及びカオリナイトへのウラン分配係数を測定した結果、分配係数はオーダー的には差はなかった。このことから、鉱物の変質の程度とウラン濃度の分布との対応を鉱物の存在比のみから説明するのは困難であることが分かった。

選択的抽出法により、風化帯の試料に含まれるウランは、吸着しているものが約30%、結晶質の鉄鉱物（ゲーサイトとヘマタイト）に約50%、非晶質の鉄鉱物（フェリハイドライト）と粘土鉱物にそれぞれ約10%分配していることが明らかとなった。

鉱物の変質とウランの関係をセンチメートル領域内で調べるため、 α トラック法を用い、光学顕微鏡により岩石の鉱物学的組織とそれに対応するウラン分布密度（フィルム上にエッチピットとして表現される）を比較した結果、変質していない鉱物ではウラン（正確にはアルファ線放射粒子）の分布密度は低いが、変質度に比例してウランの密度が高くなった。この結果と、選択的抽出法による結果から、変質に伴う鉄鉱物の増加とともにウラン濃度が高くなったと考えられる。岩石の割れ目等は地下水の優先経路となり、鉱物の変質は不均一に起こるので、ウランの分布密度は数mmあるいは数cmの空間距離の差で大きく異なる。同一鉱物粒子でも変質に極端な不均一性があるような場合、同じ鉱物粒内で数十ミクロンしか距離がなくても、その部分に変質しているかないかでウランの分布密度が異なる。

これらの観測結果に基づいて、緑泥石の変質過程において、ウランの一部が鉄鉱物に取り込まれると仮定したモデルを構築し、ウランの一次元濃度分布を計算した結果、観察結果と一致した（図4-18）。計算では、上述した緑泥石の変質の速度論的考察において得られた鉱物組成の経時変化を用いた。一方、ウランがすべての鉱物に他のイオンと交換可能な吸着をすると仮定したモデル（いわゆるKdモデル）を用いた計算結果は、観察された分布と一致しないものの、下流側のウラン濃度のピークをよく再現している。

以上の結果から、以下の2点が示唆された。

- i) 一次鉱物に吸着されたウランは、鉱物に変質する過程で二次鉱物に取り込まれる可能性がある。
- ii) Kdモデルは、媒体の変化によるパラメータの変化を考慮するならば、保守的ではあるが長期的な移行予測は可能である。

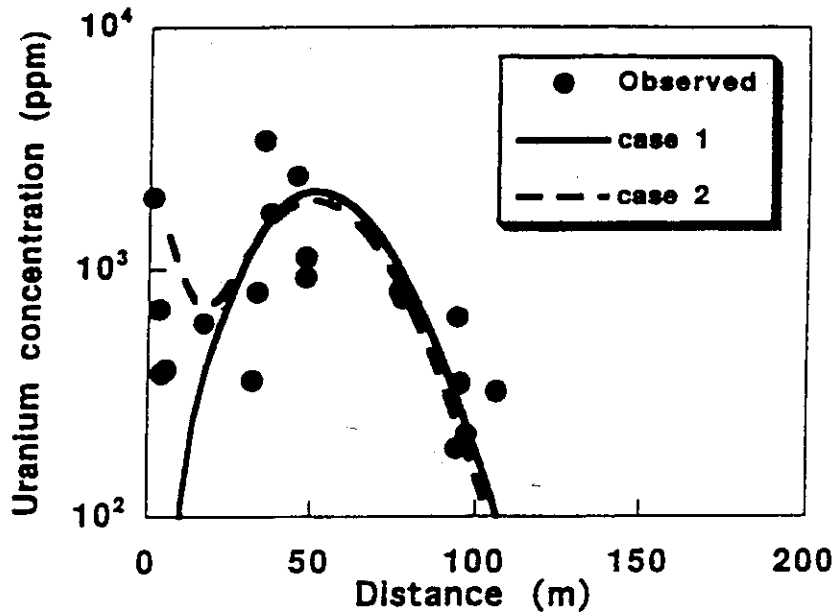


図4-18 オーストラリア、クンガラウラン鉱床におけるウランの一次元濃度分布
 Case 1は、ウランが全て鉱物に他のイオンと交換可能な吸着をするとしたモデルによる計算結果、
 Case 2は、緑泥石の変質過程においてウランの一部が鉄鉱物に取り込まれると仮定したモデルによる
 計算結果。ウランが移行する際鉱物に吸着されるだけでなく、一部が固定されることを示唆している。

ガボン共和国、オクロウラン鉱床における研究

地質環境研究室 大貫敏彦、磯部博志

〔目的〕

ウラン系列核種、TRU及び核分裂生成核種の分布、鉱物組成、吸着の形態について解析し、それらの移行挙動を定量的に検討し、核種移行及び固定化機構を解明する。

〔研究手法〕

ガボン共和国のオクロ鉱床は、世界で唯一、天然で核分裂連鎖反応が生じたウラン鉱床として知られ、「天然原子炉」と呼ばれている。オクロ鉱床では、地表下約50mから500mにわたって10ヶ所以上の原子炉ゾーンが存在している。深い部分は還元的な条件が残っているが、浅い部分の鉱床は地表からの風化の影響を受けている。また、鉱床中心部を火成岩が貫いており、ウランや核分裂生成物などの移行に対する影響についても興味が持たれている。

原子炉ゾーンNo. 2の中心部及びその直下で採取した岩石試料から光学顕微鏡用の薄片を作成し、偏光顕微鏡観察、走査電子顕微鏡による反射電子像観察、電子線マイクロアナライザ(EPMA)による分析などを行った。

〔成果の概要〕

原子炉ゾーン直下では、主要な鉱物は核分裂に伴う熱水変質によって生じたイライトであるが、その中には酸化雰囲気地下水との反応によって生じたと思われる鉄(II)鉱物が広く分布している。鉄鉱物には、イライト中に存在している粒状のものと、イライトや粒状鉄鉱物を横切る脈状のものが存在している。また、パイライト(pyrite, FeS_2)の粒子のまわりには、やはり酸化によって生じた鉄鉱物の変質層が存在している。

EPMA分析の結果、脈状鉄鉱物及びパイライトの変質層にウランが存在していることが確認された。また、微小なウラニルリン酸塩鉱物が脈状鉄鉱物と共存していることが観察された。これらのことは、イライト中で酸化鉄を析出させるような変質過程の内、粒状鉄鉱物を作った最初の過程ではウランは移行しなかったことを示している。一方、脈状の鉄鉱物やパイライト周囲の変質層を作った過程は、ウランの移行を伴い、鉄鉱物中に取り込まれると共に一部はウラン鉱物として析出したものと考えられる。

〔公表した成果〕

1. T. Ohnuki, T. Murakami, K. Sekine, N. Yanase, H. Isobe and Y. Kobayashi; Migration Behavior of Uranium Series Nuclides in Altered Quartz-Chlorite Schist, *Sci. Bas. Nucl. Was. Manag.* XIII, 607-614 (1990).
2. T. Ohnuki, S. Watanabe and T. Murakami; Study on Role of ^{234}Th in Uranium Series Nucleides Migration, *Sci. Bas. Nucl. Was. Manag.* XIV, 733-740 (1991).
3. N. Yanase, T. Nightingale, T. Payne and P. Duerden; Uranium Distribution in Mineral Phases of Rock by Sequential Extraction Procedure., *Radiochim. Acta*, 52/53, 373-380 (1991).
4. N. Yanase, K. Sekine, T. Murakami, H. Isobe, T. Ohnuki and Y. Kobayashi; Natural Analogue Study at the Koongarra Uranium Deposit, Australia --Distribution of Uranium in Rock--, *The Third Inter. Symp. Adv. Nucl. Res. -Glob. Environ. Nucl. Energy-* (1991).

5. T. Murakami, H. Isobe, T. Ohnuki, N. Yanase, T. Sato, et al.; Weathering and its effects on uranium redistribution, ARAP Final Report Vol. 9 (1992).
6. T. Ohnuki, T. Murakami and N. Yanase; A Modelling Study on the Fractionation of Uranium Among Minerals During Rock Weathering, Sci. Bas. Nucl. Was. Manag. XVI, 527-533 (1993).
7. T. Ohnuki and S. Watanabe; Modeling Study of Effects of Short-Lived Radionuclide Fixation on Decay Chain Radionuclides Migration, J. Nucl. Sci. & Tech., 30, 777-784 (1993).
8. T. Ohnuki; Study on Geochemical Process for the Prediction of Long-Term Radionuclide Migration: Mineral Alteration and Uranium-Mineral Association, Proceedings of Technical Session in International Workshop on Research & Development of Geological Disposal, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation, Tokai, Japan, I-95-I-104 (1993).
9. T. Murakami, T. Ohnuki, H. Isobe, T. Sato, N. Yanase and H. Kimura; Significance of the effect of mineral alteration on nuclide migration, Scientific Basis of Nuclear Waste Management XVII, 645-652 (1994).
10. T. Ohnuki, T. Murakami, H. Isobe, T. Sato and N. Yanase; Modelling study on uranium migration in the rock under weathering condition, Scientific Basis of Nuclear Waste Management XVIII, 1227-1234 (1995).
11. T. Murakami, K. Tsuzuki, T. Sato, H. Isobe and T. Ohnuki; Uranium Fixation During Uranium Migration Under an Oxidizing Condition, Scientific Basis of Nuclear Waste Management XVIII, 1219-1226 (1995).
12. N. Yanase and K. Sekine; Measurement of Uranium Series Radionuclides in Rock and Groundwater at the Koongarra Ore Deposit, Australia, by Gamma Spectroscopy, Scientific Basis of Nuclear Waste Management XVIII, 1235-1242 (1995).
13. N. Yanase, T. Payne and K. Sekine; Groundwater Geochemistry in the Koongarra Ore Deposit, Australia (I): Implications for Uranium Migration, Geochemical J., 29, 1-29 (1995).
14. N. Yanase, T. Payne and K. Sekine; Groundwater Geochemistry in the Koongarra Ore Deposit, Australia (II), Activity Ratios and Migration Mechanisms of Uranium Series Radionuclides, Geochemical J., 29, 31-54 (1995).
15. H. Isobe, T. Ohnuki, T. Murakami and F. Gauthie-Lafayette; Migration behavior of uranium under oxidizing condition in the Oklo natural reactor zone 2, Gabon, Scientific Basis of Nuclear Waste Management XVIII, 1211-1218 (1995).

[成果の寄与]

これらの事象は、処分場に酸化性の地下水が浸入した場合に生じ得る事象に類似していると考えられる。放射性核種移行モデルでは、放射性核種の地中移行に対する遅延能としては、これまで鉱物表面へのイオン交換的な吸着が主要なものと考えられてきた。しかし、本研究により表面吸着以外にも核種移行の阻止機構が存在することを示した。この成果は、地層の有する新たな移行阻止機構の解明につながるものである。また、安全評価で用いられるKdモデルに基づく移行予測について、媒体の変化によるパラメータの変化を考慮するならば、保守的ではあるが長期的な移行予測は可能であることを示した。

[今後の展開]

クンガラにおけるナチュラルアナログ研究では、二次鉱床より下流領域におけるウラン系列放射性核種の移行挙動を検討し、ウラン濃度が希薄な場合における遅延機構を解明する。一方、オクロにおける研究では、ウラン鉱物の変質機構を検討するとともに、核分裂生成放射性核種の同位体分布を測定し、TRU元素の移行挙動を検討する。

ウラン鉱物の変質機構解明研究

地質環境研究室 磯部博志

[目的]

ウラン鉱物の鉱物学的な観察と、ウランや鉛の同位体分析や放射能比の測定から、過去に起こった天然のウランの移行挙動を定量的に理解し、将来の処分場周辺での核種の移行挙動の予測に寄与する。

[実験]

観察には、アリゲータリバーアナログプロジェクトに参加することで入手したオーストラリア、クンガラ鉱床の試料を用いた。これらについて、岩石試料から光学顕微鏡用の薄片を作成し、偏光顕微鏡で観察した後、走査電子顕微鏡による反射電子像観察、電子線マイクロアナライザ(EPMA)による分析を行った。また、顕微可視分光計による、微小領域の吸光、蛍光スペクトルの測定を行った。

[成果の概要]

偏光顕微鏡及び走査電子顕微鏡による観察結果から、一次鉱床では、ウラニナイト(UO_2)と共存してキューライト($\text{Pb}_3\text{U}_3\text{O}_{11}\cdot 5\text{H}_2\text{O}$)、ウォルセンドーファイト($\text{PbU}_2\text{O}_7\cdot 2\text{H}_2\text{O}$)などのウラン-鉛酸化物が、ウラニルけい酸塩鉱物としてはカソライト($\text{PbSiUO}_6\cdot 2\text{H}_2\text{O}$)、スクロドウスカイト($\text{MgSi}_2\text{U}_2\text{O}_{11}\cdot 7\text{H}_2\text{O}$)が主要なウラン鉱物であることがわかった。ウラニナイトは、肉眼的には黒色の塊として観察されるが、一部は初生のウラニナイトの外形を保ったままキューライトとスクロドウスカイトが共生する組織に変化している。キューライトは、茶色ないし橙色の塊として観察され、その成分は未変質のウラニナイトよりも大きく鉛に富んでいる。その内部にはさらに鉛の多いウォルセンドーファイトが存在することもある。ウラニルけい酸塩鉱物は、酸化鉱物の外側に黄色の広い脈をなして存在し、針状結晶が脈の壁から成長している組織が観察される。その中でも、カソライトはスクロドウスカイト脈中に放射状の集合体として成長している組織がしばしば観察される。

これは、鉛を含むウラニナイトが地下水からSi、Mgの供給を受けてウラニルけい酸塩鉱物を形成する場合、鉛はけい酸塩鉱物を作らずにもとのウラニナイトの領域にU-Pb酸化物として留まり、その濃度が未変質のウラニナイトよりも高くなっていることを示している。一方、スクロドウスカイト中でもウランの崩壊により鉛は生産されるが、その鉛は容易にスクロドウスカイトから抜け出てカソライトとして析出されると思われる。このような移行挙動の違いは、ウラン鉱物の変質による体積変化が地下水の移動性に影響を与え、その効果が鉱物相に現れたものと思われる。

2次鉱床域では、ウランは主にりん酸塩鉱物として存在している。最も主要な鉱物相はMgウラニルりん酸塩であるサレアイト($\text{MgU}_2\text{P}_2\text{O}_{12}\cdot 10\text{H}_2\text{O}$)である。サレアイトは、母岩の脈の中に黄緑色の肉眼的な平板結晶としてしばしば見られる。さらに、サレアイトは雲母や粘土鉱物と共存している場合や、アパタイトを置換して成長している組織が観察される。ここでも、Caりん酸塩を置換しているにも関わらず、Caウラニルりん酸塩であるオーツナイトは存在しない。また、サレアイトは母岩の風化生成物である鉄鉱物の中に、nmオーダーの微小な結晶として存在する場合もある。これらは、クンガラ鉱床におけるサレアイトの形成過程が単一ではなく、地

下水中の各イオンの濃度や共存鉱物によって、非平衡論的な過程を含む複数の機構が働いていることを示している。

ウランはIIやVとともに存在する相もあり、また、鉛を含むウラニルりん酸塩鉱物も存在している。これらは、風化帯中のグラファイト層近傍など、局所的な非平衡状態によって環境が変化していると思われる領域に、微小な結晶でしか観察されない場合が多い。ウラニルけい酸塩やウラニルりん酸塩などの二次鉱物の形成には、緑泥石などの母岩鉱物の風化、変質が、SiやMgの供給や、鉄鉱物の析出を通して大きく関わっている。クンガラ鉱床での主要なウラン鉱物の変質過程を、図4-19に模式的に示す。

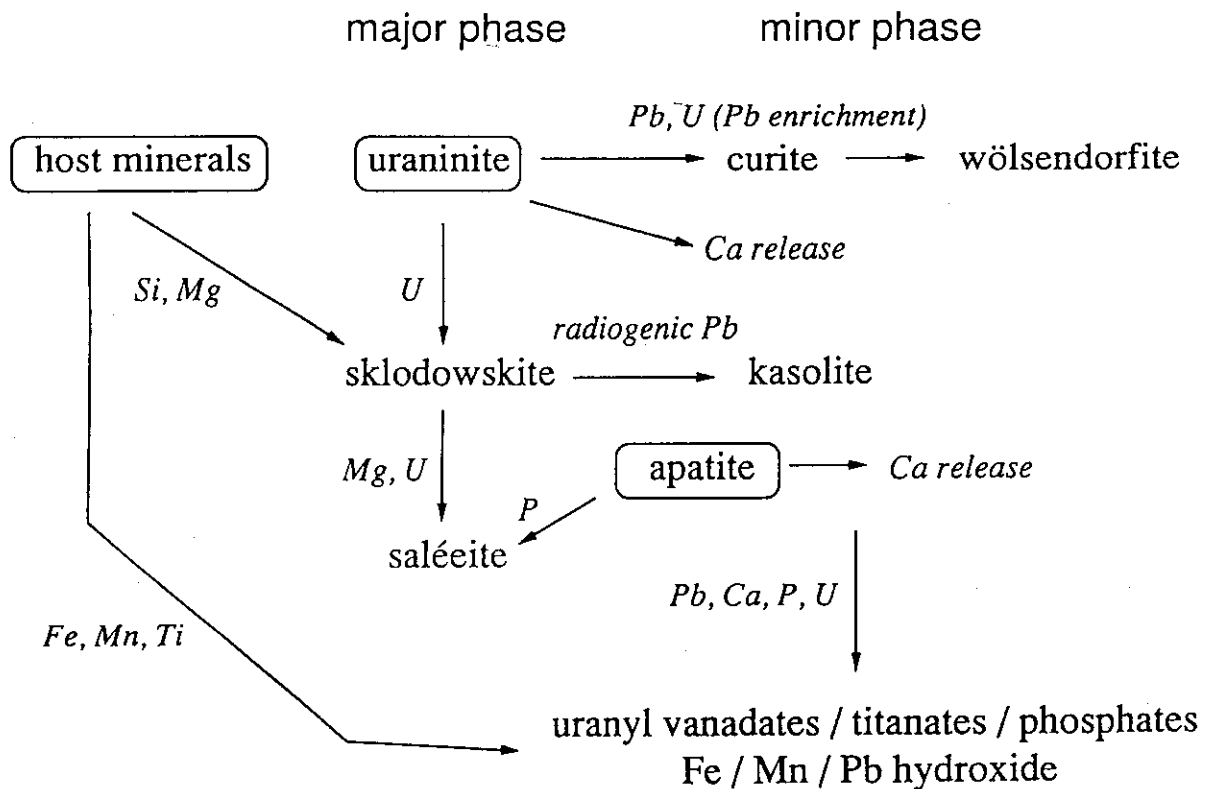


図4-19 クンガラ鉱床におけるウラン鉱物の変質過程の模式図

[公表した成果]

1. H. Isobe, T. Murakami and R. C. Ewing; Alteration of uranium minerals in the Koongarra deposit, Australia: Unweathered zone, J. Nucl. Mater. 190, 174-187 (1992).
2. H. Isobe, R. C. Ewing and T. Murakami; Formation of secondary uranium minerals in the Koongarra

4. 8 原位置試験

天然バリア研究室 熊田政弘

高レベル放射性廃棄物等の地層処分においては、廃棄物を地下深部の安定な岩盤中に処分することになっており、地下深部の岩盤特性の把握が必要であるとともに、地層中の放射性核種の移行を地下深部の地球化学的条件のもとでの複合的な化学的プロセスの結果として捉える必要がある。

真の岩盤特性を知るためには実際の地下深部において実規模のスケールでの実験、いわゆる原位置試験が必要である。昭和50年代前半には、緩衝材を用いない高レベル放射性廃棄物地層処分の概念に基づき、高レベル放射性廃棄物に含まれる核種の崩壊に伴う発熱が周辺岩盤に与える影響を調べる岩盤特性試験を開始した。古い金属鉱山の坑道を利用し、電気ヒータを用いて岩盤を加熱する岩盤加熱試験を実施するとともに、コア試料を用いた室内実験による熱伝導率測定等から岩盤の熱特性を調べた。また、昭和50年代後半から60年代前半にかけては、固化体周囲に緩衝材を設ける現在の処分概念に基づき、新たに花崗岩岩盤中に専用の実験坑道を掘削して、亀裂性岩盤を対象とした原位置試験を実施した。これらの試験は、いずれもこれまでに実施された経験のない未知のものであり、実験手法の開発に多くの努力を注いだ。

原位置条件下核種移行実験は、カナダ原子力公社(AECCL)の協力を得て、テクネチウム、ネプツニウム等について実核種を用いてカナダの地下実験施設で実施した。現在(平成7年)は、花崗岩岩盤中の地下240m実験坑道から採取した天然の亀裂を含む大型岩盤試料と付近の深層地下水を用いて、深地下条件下亀裂岩盤中核種移行実験を実施している(平成5年度~9年度の予定)。

亀裂を有する花崗岩の原位置試験

[目的]

高レベル放射性廃棄物等の地層処分の候補岩の一つに挙げられている花崗岩などの亀裂性岩盤を対象として、地下の実験坑道において岩盤の熱特性、亀裂を通る岩盤水理特性等を計測する実験手法に関する試験研究を行い、処分サイト評価手法の開発に資する。

[実験方法]

花崗岩の石切場を利用して、地表から崖壁に約40mの横坑を導入坑道として掘進し、断面4×4m、長さ20mの実験室を土被り40m程度の花崗岩岩盤中に掘削した。室内の亀裂分布を調査した後、電気ヒータを用いた岩盤の熱特性試験、亀裂を通る溶質の移行試験等を実施した。

亀裂のない岩盤部分を対象にした加熱試験では、直径66mmの水平孔を実験室壁面から7m奥まで掘削し、出力2.4KWまでの長さ1mの電気ヒータを埋め込んで加熱を行った。加熱に伴う岩盤温度の時間変化をヒータ孔周囲に掘削した16本のボーリング孔内に設置した温度センサーにより計測し、計算コードによる温度変化予測と比較した。亀裂を含む岩盤部分を対象とした加熱試験では、実験室床面に直径1m、深さ5mの大きな模擬処分孔を掘削し、孔底に特別に製作した大型の電気ヒータ(直径40cm、長さ1.5m)を設置して実験室を縦断している垂直な亀裂を含む岩盤の加熱を行った(図4-20)。

亀裂を通る溶質の移行試験では、実験室を縦断している垂直な亀裂を対象として、実験室天

盤から5 m上部の位置からおよそ9,000ppmの臭化カリウムを含む地下水を注入し、39のセクションに分けた実験室内壁に流出する溶液を回収して各ブロックごとに流出液曲線を求めた(図4-21)。

[成果の概要]

電気ヒータを用いた岩盤の熱特性試験では、ヒータ出力に伴う周辺岩盤温度の変化を精度良く計測することができた。特に、亀裂のない岩盤部分を対象にした加熱試験から、亀裂のない岩盤部分では、岩盤の熱特性はコア試料の熱特性に基づく計算により十分予測できることを確認した。一方、亀裂を含む岩盤部分を対象とした加熱試験では、岩盤温度の低下が認められ、亀裂性岩盤における温度予測には地下水流動を考慮できる計算モデルが必要であることを確認した。さらに、岩盤の加熱に伴ってヒータ孔近傍の亀裂は閉じて地下水が通り難くなるが、加熱を中止すると地下水の通り易さはある程度回復するなどダイナミックな岩盤の動きを捉えることに成功した。

亀裂を通るトレーサ試験では、天然の岩盤亀裂を対象としたにも関わらず、ほとんどのセクションで流出液を回収することができた。いくつかのセクションで得られた流出液曲線については1次元亀裂モデルを適用して、亀裂部とマトリックス部とを想定することによりカーブフィッティングからフローパラメータを求めた(表4-2)。

表4-2 カーブフィッティングから求めたフローパラメータ

セクションの組み合わせ	1R1-1R2	3R1-3R2	4R1-4R2
亀裂中の地下水流速 (m/h)	0.10	0.12	0.10
亀裂中の分散係数 (m ² /h)	0.05	0.06	0.05
マトリックス拡散係数 (m ² /h)	0.0001	0.0002	0.001
亀裂幅 (m)	0.001	0.001	0.0007
流路方向の分散長 (m)	0.5	0.5	0.5

[公表した成果]

1. M. Kumata; In-situ experiments in JAERI, Proc. Workshop Jointly Organized by the CEC and OECD/NEA, Brussels, 239-243 (1985).
2. M. Kumata, H. Kimura, K. Shimooka, A. Nakagoshi, S. Muraoka and H. Nakamura; In-Situ Experiments in Fractured Granite, Proc. 2nd Int. Conf. Radioactive Waste Management, Manitoba, Canada, 326-333 (1986).

[成果の寄与]

処分サイト評価技術の確立に寄与した。

[今後の展開]

亀裂性岩盤の水理の解析のために必要なネットワークモデルによる計算コードを開発する。

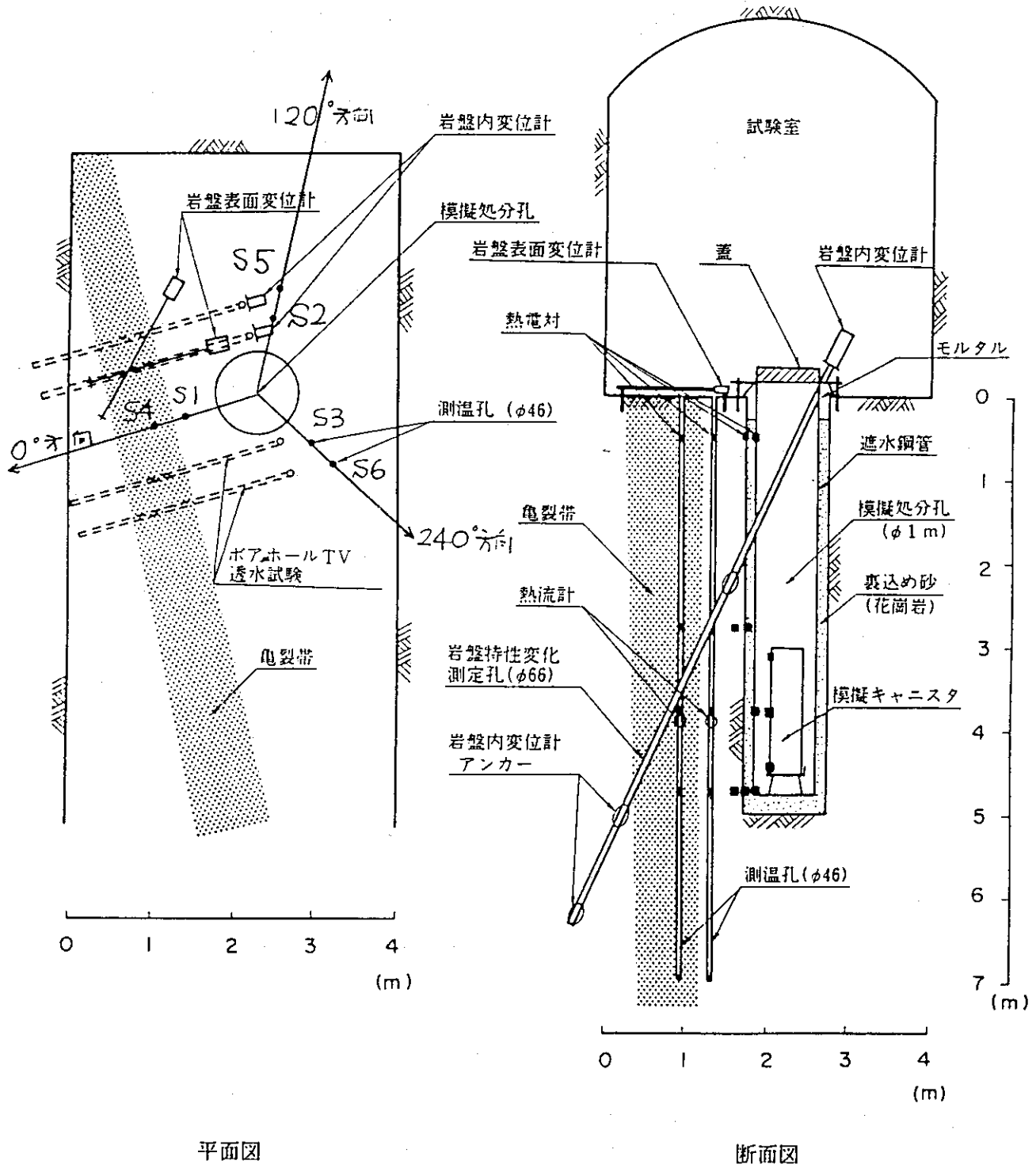


図4-20 亀裂を含む岩盤の加熱試験概念図

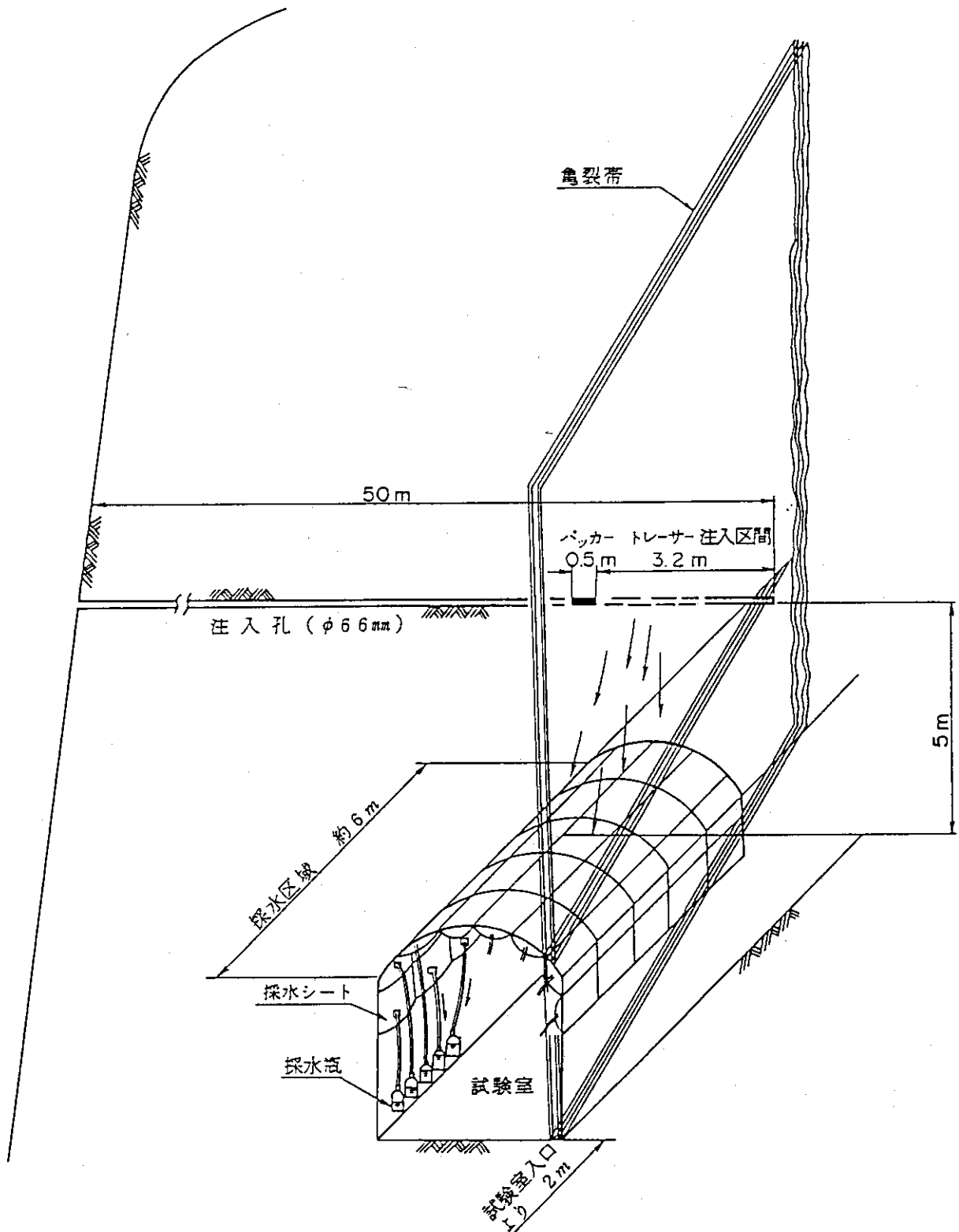


図4-21 亀裂を通る溶質の移行試験概念図

深地下条件下におけるTcの挙動

[目的]

酸化還元電位により優勢な化学形が変化するテクネチウムやネプツニウムが深地層中、特に亀裂帯中でどのような挙動をするかを実際の深地下条件下でカラム実験を行い実験的に捉える。

[実験方法]

カナダマニトバ州の地下実験施設において、地下240m実験坑道に専用の実験室を開設し、地下250m付近に存在する亀裂帯までボーリング孔を掘削して亀裂帯の岩石試料を回収した。回収した岩石試料を酸化させないように地下水中で粉碎、ふるい分けし、20-80メッシュ部分を内壁面をテフロンコーティングした直径2.54cm、長さ20cmのステンレス製カラムに充填した。試験期間中カラムを嫌気性のチャンバー内に設置して実験系に酸素が侵入するのを防いだ。さらに、岩石試料を採取した亀裂帯の地下水を空気に触れることなく約0.7MPaの圧力でカラムに導入した。カラムから流出する地下水のpH、Eh及び電気伝導度をインラインでモニターし、定常状態になったことを確認してから ^{99}Tc 、 $^{95\text{m}}\text{Tc}$ 及び ^3H を含む地下水およそ110 mLカラムに注入した。注入液中の ^{99}Tc 及び $^{95\text{m}}\text{Tc}$ の濃度はそれぞれ、 1.9×10^{-6} 及び 3.9×10^{-12} mol/Lであった。テクネチウムを含む地下水は、2 mL/hの流速でカラムに注入し、全量を注入するのに約55時間を要した。全量注入後、注入前と同様に亀裂帯の地下水を約4カ月間流し続けた。注入直後から流出液中のテクネチウム濃度を計測し、破過曲線を求めた。さらに、試験終了後カラム内の濃度分布を測定した。

[成果の概要]

注入液中のおよそ7%のテクネチウムが注入直後から約90時間の間にトリチウムとともに流出した(図4-22)。それ以降、約4カ月の間テクネチウムの流出はほとんど観察されなかった。テクネチウムのカラム内分布から、テクネチウムの大部分がカラム入り口付近に留まり、カラム内部へもほとんど移行していないことが分かった(図4-23)。カラム入り口付近のテクネチウムを含む試料を採取して重液分離法により比重の異なる4つのグループに分け、それぞれを鉱物学的に調べた。その結果、テクネチウムは、黒雲母、赤鉄鉱、磁鉄鉱を主体とする含鉄鉱物に選択的に吸着していることが明らかとなった。

実験に用いた亀裂帯の地下水のEhは約160mVであり、pHは9であった。これをテクネチウムのEh-pHダイアグラム¹⁾上に投影すると、地下水のEh-pH条件は、 TcO_4^- と $\text{TcO}(\text{OH})_2$ との境界付近に位置するが、まだ7価のテクネチウムが優勢な領域にある(図4-24)。これらのことから、注入したテクネチウムのほとんどが流出せずにカラム内に強く吸着したのは、黒雲母や鉄鉱物などの含鉄鉱物表面において7価のテクネチウムが還元されて4価の非常に溶けにくい化学形に変化して鉱物表面に留まったためと考えられ、比較的穏やかな還元環境であって、熱力学的には7価のテクネチウムが優勢な領域であっても、鉱物表面における還元作用によりテクネチウムの化学形が変化することが示唆された。

[公表した成果]

1. 熊田政弘、T.T.Vandergraaf; 深地層条件下における放射性核種の移行実験, 放射性廃棄物連絡会論文集、VI、1-10、(1991).

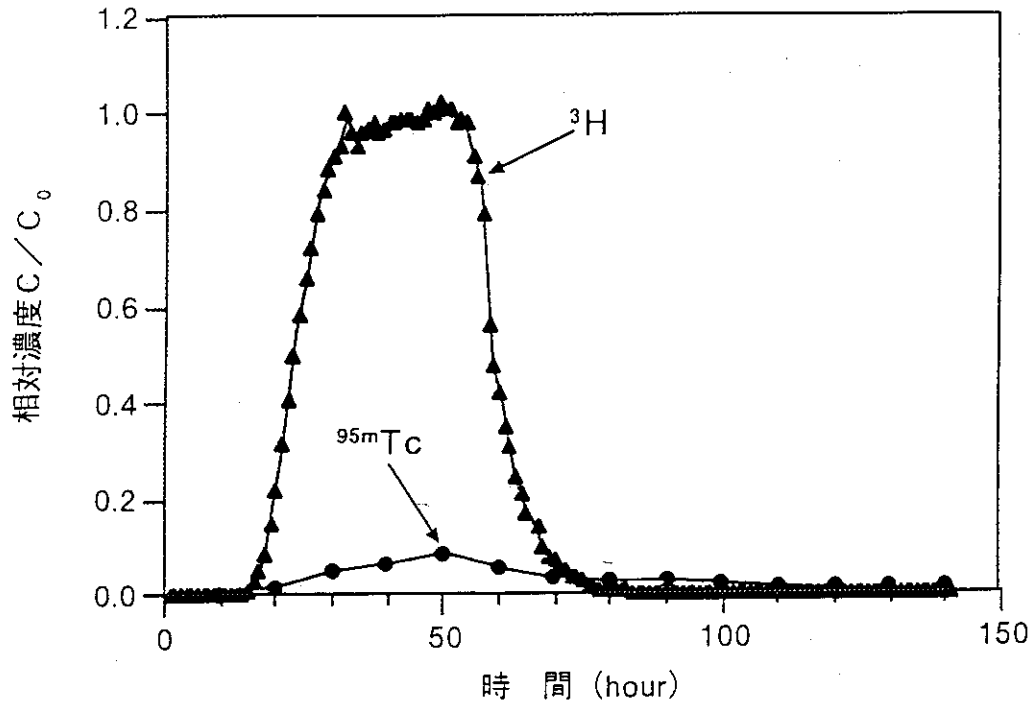


図4-22 注入後6日までのテクネチウムとトリチウムの破過曲線

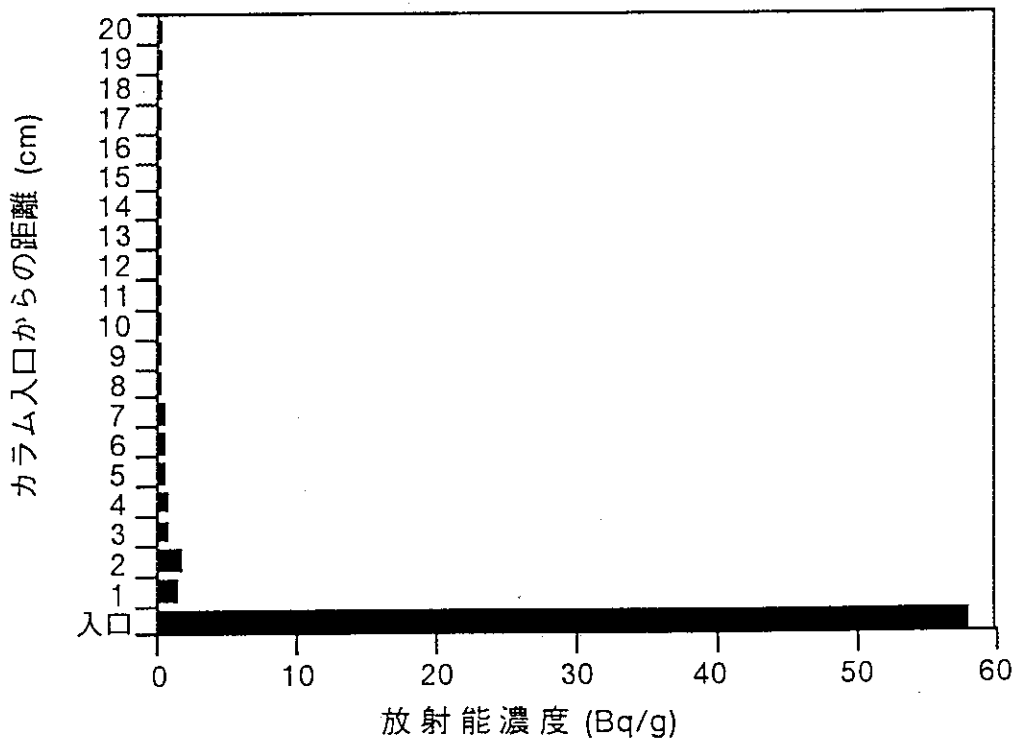


図4-23 テクネチウムのカラム内分布 (注入後約4カ月)
 入口: カラム入口部分から採取した試料

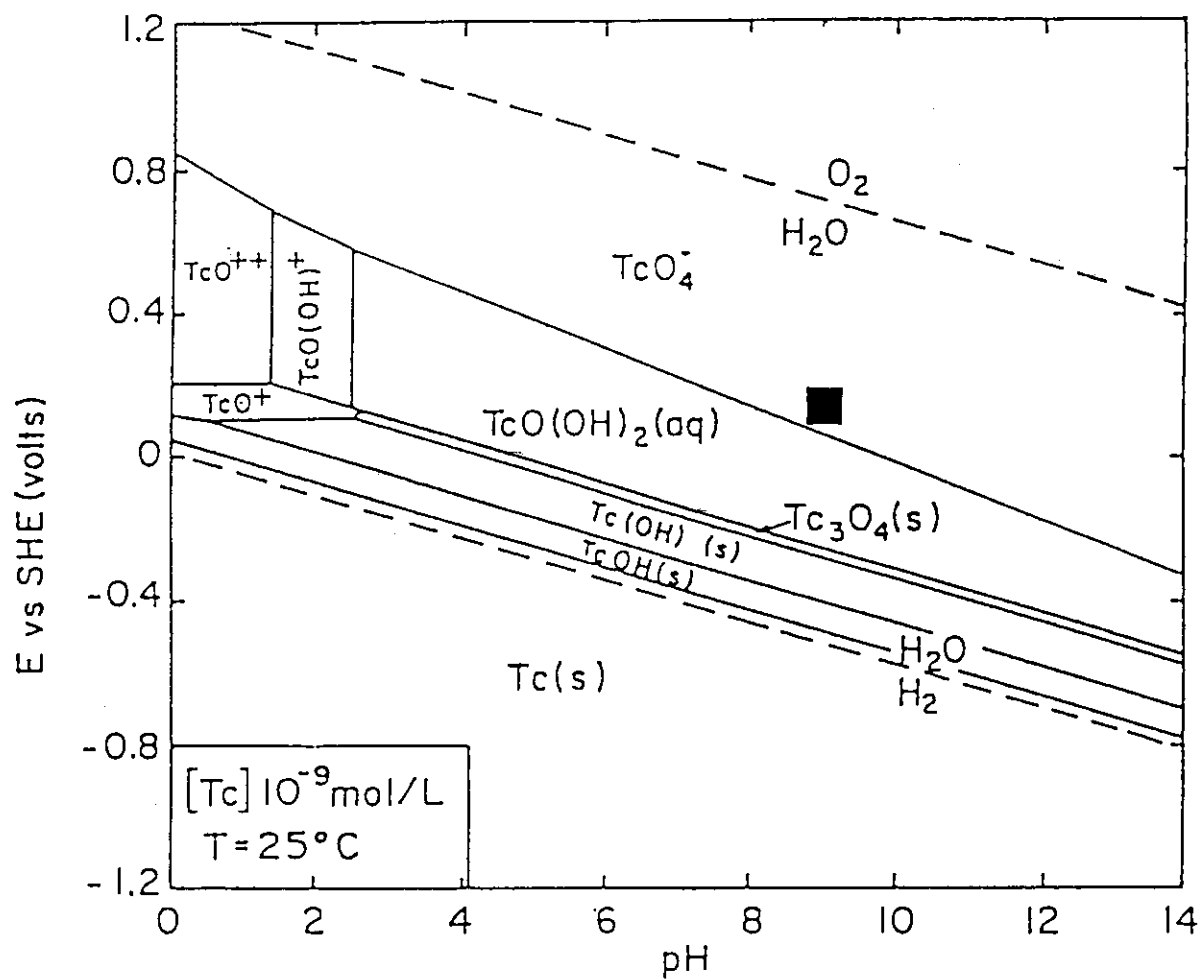


図4-24 テクネチウムのEh-pHダイアグラム上に投影した地下水のEh-pH条件 (T.T.Vandergraaf et al. : 1984 に加筆)

2. M. Kumata and T.T.Vandergraaf; Nuclides Migration Tests Under Deep Geological Conditions, Proc. 3rd Int. Symp. Advanced Nucl. Energy Res., 414-419 (1991).
3. M. Kumata and T.T.Vandergraaf; Migration Behaviour of Long-lived Radionuclides Under Deep Geological Conditions, Proc. 29th Int. Geological Congress, vol.3, 919 (1992).
4. M. Kumata and T.T.Vandergraaf; Technetium Behaviour Under Deep Geological Conditions, Radioactive Waste Management and the Nuclear Fuel Cycle, 17(2), 107-117 (1993).
5. M. Kumata, T.T.Vandergraaf and D.G.Juhnke; The Migration Behaviour of Neptunium under Deep Geological Conditions, Proc. 4th Int. Conf. Migration'93, December 12-17, SC, USA (1993).
6. 中山真一、T.T.Vandergraaf、熊田政弘; 深地層条件下における放射性核種の移行実験 ; Canada, Manitoba州 Lac du Bonnet 付近の花崗岩及び地下水を用いたネプツニウム及びプルトニウムのカラム実験, 放射性廃棄物研究, 1(1), 67-76 (1994).
7. T. T. Vandergraaf, D.J. Drew and M.Kumata; Radionuclide Migration Experiments under In Situ Conditions, Proc. 6th Int. Conf. High Level Radioactive Waste Management, April 30-May 5, Nevada, USA (1995).

[成果の寄与]

原位置の地球化学的な条件を反映させた実験システムを確立し、信頼性の高い移行データを取得した。これらは、評価モデルを構築するのに貴重なデータである。

[今後の展開]

高レベル廃棄物等に含まれるNp、Pu等の長寿命核種について、深地下条件下における亀裂岩盤中核種移行実験を実施する。

参考文献

- 1) Vandergraaf, T. T., et al.; in Geochemical Behavior of Disposed Radioactive Waste, ACS Symposium Series 246, 25-43 (1984).

5. 安全評価モデルに関する研究

環境影響解析研究室 木村英雄

5.1 安全評価モデルの開発

原研では地層処分の安全評価のため、各バリアに対応する詳細モデルを開発するとともに、簡略化した評価モデルを結合した地層処分の総合安全評価モデル (GSRW コード) を開発した。本コードは、基本シナリオ (地下水移行シナリオ) に基づく決定論的安全評価手法である。GSRW は、ソースタームモデル、天然バリアモデル及び生態圏モデルから構成されており、高レベル放射性廃棄物の地層処分に伴う放射線影響を評価する。

GSRW コードは、高レベル放射性廃棄物地層処分の一般的安全性を評価することを目的として、開発されたものである。そのため、コードの柔軟性及び実用性を考慮したうえで、処分システムの中で起こりうる様々なメカニズムのうち、結果として重大な影響を与えると思われる主要なメカニズムをモデルに数多く取り入れている。その際、安全評価の観点から重要なメカニズムは、計算に必要とされるデータの取得性を考慮して、可能な範囲でモデル化されている。また、コード化に際しては、感度解析、不確かさ解析等を意識して、計算精度の安定性及び計算時間の短縮が図れるように解析解を可能な範囲で用いるようにした。さらに、GSRW のサブモデルはモジュール化されており、必要に応じて個々のサブモデルを更新することが可能となっている。

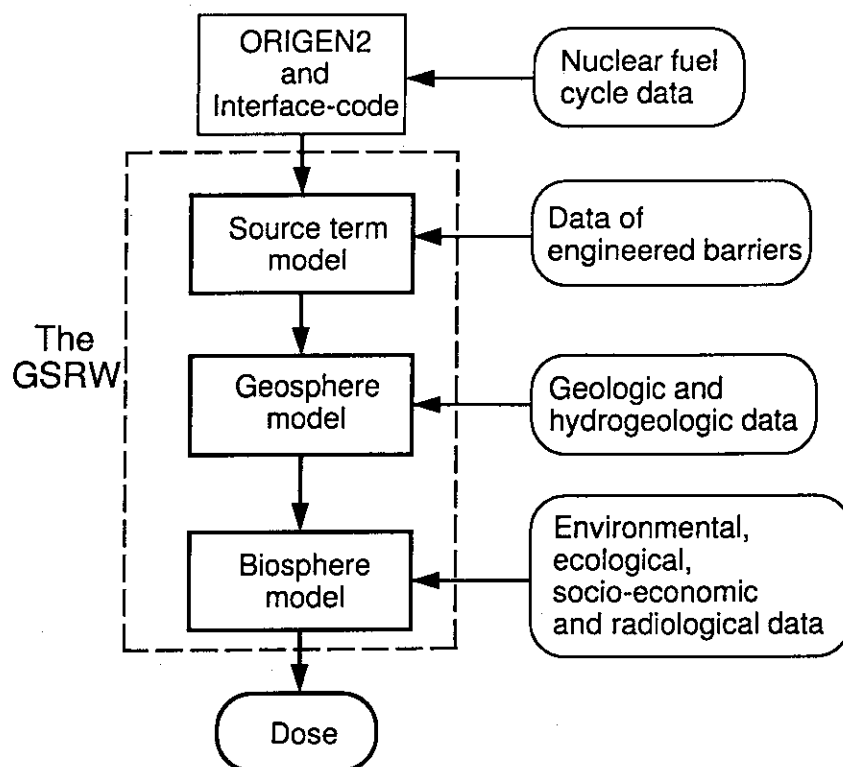


図 5-1 GSRW コードの構成

GSRW コードは図 5-1 に示すように、ソースタームモデル、天然バリアモデル、生態圏モデルの 3 つのモデルから構成されている。ORIGEN2 及びインターフェイスコードは、高レベル放射性廃棄物に含まれる放射性核種のインベントリーを時間の関数として計算するものである。最初のモデルは、処分施設からの放射性核種の漏洩を評価するものであり、2 種類のモデル（モデル 1 及びモデル 2）が用いられている。モデル 1 は、ガラス固化体の溶解を解析し、その溶解に比例して含まれる放射性核種が浸出するのを評価する。モデル 2 は、固化体と緩衝材の境界における放射性核種の濃度は溶解度で制限されると仮定し、核種の浸出を評価する。2 番目のモデルは、地層中における放射性核種の移行を解析するものであり、一次元移流、3 次元分散あるいは 1 次元分散、平衡吸着及び放射性壊変を考慮した輸送方程式を解析解で解くものである。3 番目のモデルは、生態圏における放射性核種の移行及び人間に対する放射線影響を評価するものであり、動的なコンパートメントモデル及び線量換算係数法が用いられている。

〈ソースタームモデル〉

GSRW におけるソースタームとは、処分ユニットの境界（緩衝材と岩盤の境界）における放射性核種の漏出率の時間変化を意味する。ここで処分ユニットは、ガラス固化体、金属容器（オーバーパックも含む）、緩衝材から構成されている。放射性核種の漏出は、金属容器が破損した後、開始される。金属容器の劣化は、地下水と金属との接触により腐食するために起こる。このモデルでは、容器の破損に関して単純な方法を用いている。すなわち、容器の劣化は時間的に進行するが、容器の寿命（処分後、固化体の一部が地下水と接触するまでの時間）までは容器としての機能は健全であり、それ以降は容器は存在しないものとする。したがって、容器の寿命は放射性核種の漏出開始時間の遅れとして表現される。

金属容器の破損後、ガラス固化体は地下水と接触し、放射性核種の浸出が始まる。放射性核種の浸出は、対象となる核種により 2 つのモデルを使い分ける。すなわち、ガラス固化体の主成分であるアモルファスシリカよりも溶解度の高い核種に対しては、モデル 1 の調和溶解モデルを用い、逆にアモルファスシリカよりも溶解度の低い核種に対しては、モデル 2 の溶解度律速モデルを用いる。

[モデル 1（調和溶解モデル）]

このモデルでは、解析解を得るため、ガラス固化体は球形又は回転楕円体として近似される。引き続き緩衝材中の移行は、一次元拡散でモデル化されており、固化体と緩衝材との境界における放射性核種のフラックスは、シリカの溶解速度と含まれる放射性核種の存在比の積として表現されその値で拘束される、もう一方の緩衝材と岩盤の境界では、地下水流による移流効果のため、核種濃度は 0 であると仮定する。この仮定は、濃度勾配が大きくなるため十分保守的であると考えられる。

様々な形状の固化体からの質量輸送に関する解析解が、Chambre'らによって求められている¹⁾。低溶解度の化学種 i の固化体表面における地下水濃度が飽和濃度（溶解度） $N_i^{sat}(\text{kg/m}^3)$ にあるとすると、多孔質媒体で囲まれたこの固化体からの化学種 i の溶解速度 f_i の定常解は次式で与え

ここで K_i^B : 核種 i の緩衝材中の遅延係数 (-)、
 N_i : 緩衝材間隙水中における核種 i の濃度 (atom/m³)、
 $D_{f,i}$: 間隙中の拡散係数 (m²/s)、
 λ_i : 核種 i の崩壊定数 (1/s)。

境界条件はそれぞれ、固化体と緩衝材の境界で

$$-\varepsilon D_{f,i} \left. \frac{\partial N_i}{\partial x} \right|_{x=0} = S_i(t)/S \quad (7)$$

緩衝材と岩盤の境界で

$$N_i(L,t) = 0 \quad (8)$$

である ($x=L$)。ここで ε は緩衝材の間隙率 (-)、 S は緩衝材内側の面積 (m²)、 L は緩衝材の厚さ (m) である。また $t=0$ では緩衝材中の核種濃度は 0 であると仮定する。式 (6) の解析解は 3 つまでの崩壊連鎖に対して求められ、その解をもとに、緩衝材と岩盤の境界における核種フラックスを計算する。

[モデル 2 (溶解限度モデル)]

このモデルでは、解析解を得るために、有限円柱状のガラス固化体は球形として近似される。緩衝材中の放射性核種の移行は、球座標系における一次元拡散方程式によって表されるものとする。固化体表面 (固化体と緩衝材との境界) における放射性核種の濃度はその化学種の溶解度にあるものとし、一方、緩衝材と岩盤との境界では、放射性核種の濃度は、地下水の移流効果のため 0 であると仮定する。そして、放射性核種の漏洩率は、緩衝材からの拡散フラックスによって求める。拡散方程式は次式で与えられる。

$$K_i^B \frac{\partial N_i}{\partial t} = D_{f,i} \frac{1}{r} \frac{\partial^2}{\partial r^2} (rN_i) - \lambda_i K_i^B N_i + \lambda_{i-1} K_{i-1}^B N_{i-1}. \quad (9)$$

境界条件はそれぞれ、固化体表面 ($r=R_0$) で

$$N_i(R_0,t) = N_i^{sat}(t) \quad (10)$$

緩衝材と岩盤の境界 ($r = R_1$) で

$$N_i(R_1,t) = 0 \quad (11)$$

られる。

$$f_i = \frac{\beta D_e N_i^{\text{sat}}}{n_i} \quad (1)$$

ここで f_i : 化学種 i の溶解速度 (1/s)、

β : 固化体の形状因子 (1/m²)、 (= 3/r² 半径 r の球)、

D_e : 間隙水中における実効拡散係数 (m²/s)、

n_i : 固化体内における化学種 i の濃度 (kg/m³)。

ここで、溶解速度はいかなる時でも定常解で近似できると仮定すると、球形固化体からのシリカ成分の溶解速度 $m(t)$ は次式で与えられる。

$$m(t) = f_i M(t) = f_i n_s \frac{4}{3} \pi r(t)^3 = 4\pi r(t) D_e N_s^{\text{sat}} \quad (2)$$

ここでサフィックス s はシリカ成分を意味する。また $M(t)$ はガラス固化体中のシリカ成分の質量 (kg) である。その結果、浸出時間 T (固化体の溶解開始から溶解の終了するまでの時間) は次式で与えられる。

$$T = \frac{\rho r_0^2}{2D_e N_s^{\text{sat}}}, \quad (3)$$

ここで ρ : 固化体密度 (kg/m³)、

r_0 : 固化体半径 (m)、

そして半径 r 時間依存性は次式で与えられる。

$$r(t) = \sqrt{r_0^2 - \frac{2D_e N_s^{\text{sat}}}{\rho} t}. \quad (4)$$

放射性核種 i の浸出率 $S_i(t)$ はシリカの溶解速度 $m(t)$ 及び Bateman 方程式で表される存在比 $R_i(t)$ の積の形で表現される。

$$S_i(t) = m(t) R_i(t) \quad (5)$$

核種 i の浸出率 $S_i(t)$ は固化体と緩衝材との境界における核種フラックスとして用いられる。平衡吸着及び崩壊連鎖を考慮した拡散方程式は次式で表される。

$$K_i^B \frac{\partial N_i}{\partial t} = D_{f,i} \frac{\partial^2 N_i}{\partial x^2} - \lambda_i K_i^B N_i + \lambda_{i-1} K_{i-1}^B N_{i-1} \quad (6)$$

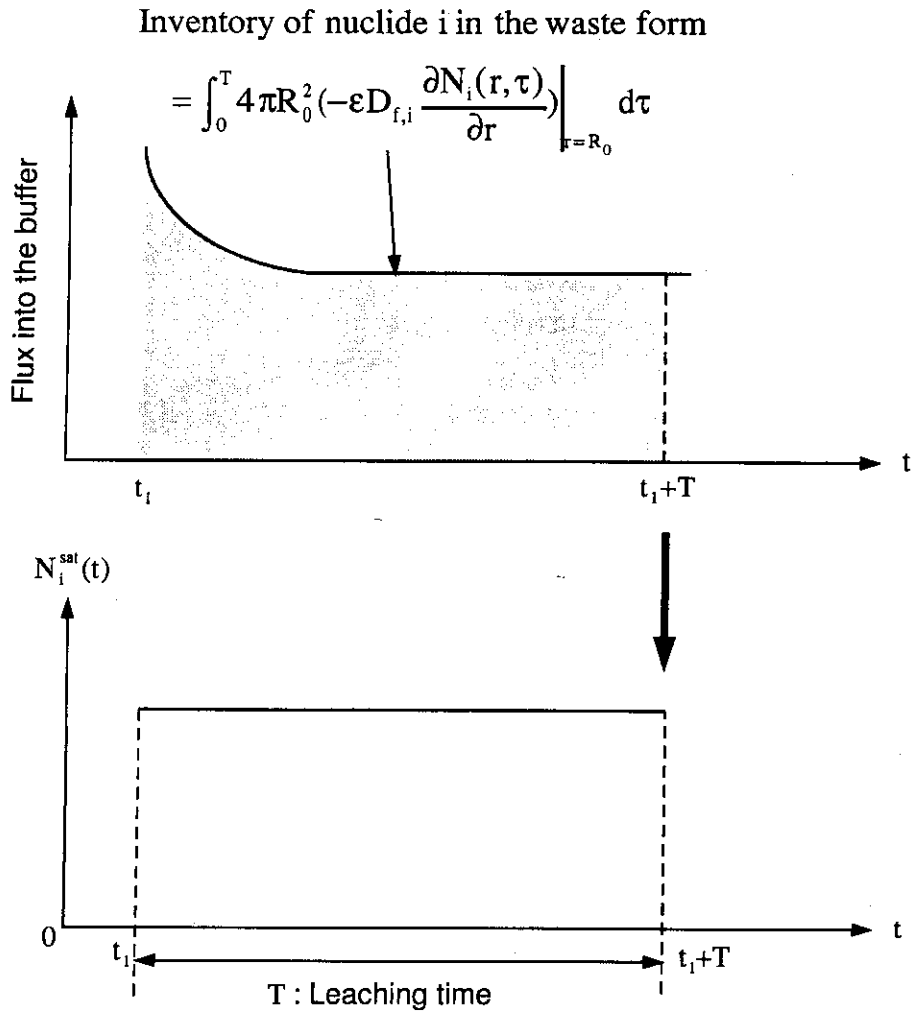


図 5-2 モデル 2 における浸出時間の評価法

ここで R_0 は球形固化体の半径 (m)、 $N_i^{sat}(t)$ は時間 t における核種 i の溶解度 (kg/m^3)、そして R_1 は R_0 と緩衝材厚さ L (m) の和である。また $t=0$ では緩衝材中の核種濃度は 0 であると仮定する。式 (9) の解析解は 3 つまでの崩壊連鎖に対して求められ、その解をもとに、緩衝材と岩盤の境界における核種フラックスを計算する。このモデルでは、溶解度は時間依存性を考慮している、これは化学的環境が変化した場合 (例えば地殻変動など) の影響を考慮するためである。このモデルの浸出時間 T は、図 5-2 に示すように、固化体と緩衝材との境界における浸出開始時間から時間 T までの核種フラックスを積分し、その積分量が固化体内に存在する放射性核種の量と等しいとして求める。固化体表面における放射性核種のフラックス解には、 $\delta(r-R_0)$ のような Dirac の δ 関数が含まれるが、フラックスの積分が固化体の近傍で行われると仮定すればこの項を無視することができる。

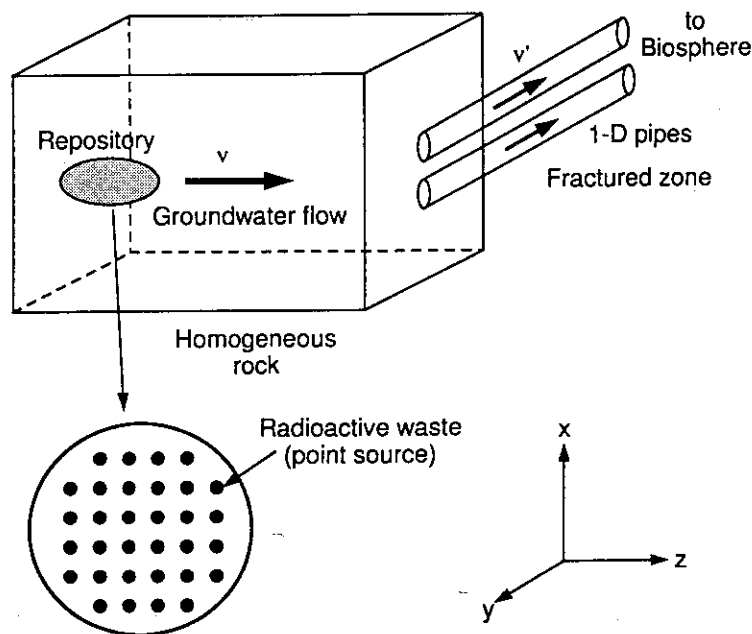


図 5-3 天然バリアモデルの概念図

〈天然バリアモデル〉

高レベル放射性廃棄物は、図5-3に示すように、深地層の卓越した亀裂の存在しない安定な岩盤（均質岩体）中に処分されるであろう。したがって、卓越した亀裂のない安定な岩盤の大きさはサイトに依存するものであるが、そのような岩盤は均質であると仮定することができ、そこで放射性核種の移行は、1次元移流、3次元分散モデルで表現できるものと考えられる。ここで、流れに垂直な方向の分散は、廃棄体の3次元的な広がりの影響を考慮するために、導入した。廃棄物パッケージは、処分場の中に適切な間隔を置いて設置されるであろう。したがって、処分場内の廃棄物パッケージは、その大きさは均質岩体の大きさに比べれば十分小さいので、ポイントソースの3次元配列として表現することが可能である。ここで、個々のポイントソースからの放射性核種の湧き出し量は、ソースタームモデルで与えられる。

均質岩体を移行してきた放射性核種は、いくつかの経路を通して生態圏に移行するものと考えられる。この生態圏への移行経路は、おそらくいくつかの亀裂帯から構成され、そこを放射性核種が1次元的（パイプ状）に移行するものと考えられる。そして、この1次元パイプ中の移行は、1次元移流、1次元分散モデルで表現することが可能であると考えられる。本評価手法では、この1次元パイプを複数考慮できるようにコード化してある。

このようにして、GSRWコードの天然バリアモデルは、2つに分けることができる。すなわち、均質岩体中の核種移行を解析する1次元移流-3次元分散モデルと、亀裂帯中の核種移行を解析する1次元移流-分散モデルである。

〔1次元移流-3次元分散モデル〕

本モデルでは、解析解を得るために、一様な1次元的な地下水流速場を仮定した。最初に、均

質な無限多孔質媒体中において、ポイントソースから放出される放射性核種の移行を解析する。崩壊連鎖を持つ放射性核種の平衡吸着を仮定した輸送方程式は次式で与えられる。

$$K_i^G \frac{\partial N_i^G}{\partial t} = D_x \frac{\partial^2 N_i^G}{\partial x^2} + D_y \frac{\partial^2 N_i^G}{\partial y^2} + D_z \frac{\partial^2 N_i^G}{\partial z^2} - v_z \frac{\partial N_i^G}{\partial z} - \lambda_i K_i^G N_i^G + \lambda_{i-1} K_{i-1}^G N_{i-1}^G + S_i \quad (12)$$

$$D_x = \alpha_x v_z, \quad D_y = \alpha_y v_z, \quad D_z = \alpha_z v_z \quad (13)$$

ここで、

- K_i^G : 核種 i の遅延係数 (-)、
- N_i^G : 核種 i の地下水中濃度 (atom/m³)、
- D_x : x 軸方向の分散係数 (m²/s)、
- D_y : y 軸方向の分散係数 (m²/s)、
- D_z : z 軸方向の分散係数 (m²/s)、
- v_z : 地下水流速 (m/s)、
- S_i : 核種 i のソースターム (atom/m³s)、
- α_x : x 方向の分散長 (m)、
- α_y : y 方向の分散長 (m)、
- α_z : z 方向の分散長 (m)。

無限媒体に対して、解くべき初期条件及び境界条件は次式の通りである。

$$N_i^G(x, y, z, 0) = 0 \quad \text{for any } x, y, z, \quad (14)$$

$$N_i^G(\pm\infty, y, z, t) = N_i^G(x, \pm\infty, z, t) = N_i^G(x, y, \pm\infty, t) = 0 \quad (15)$$

式 (12) の崩壊連鎖に関する回帰的な解析解は、Pigford らによって求められている³⁾。このモデルでは、バンドリリースされる 4 つまでの崩壊連鎖核種に対する解析解が使われている。しかしながら、ポイントソースからの放出 (ソースタームフラックス) は一定ではないので、図 5-4 に示すように、その放出をいくつかのバンドリリース (このモデルではソースにおける放射性壊変を考慮しないので、Pigford らの定義するバンドリリースとは異なる) に分割して表現し、放出の時間変化に対応することとする。

有限の大きさのポイントソースの配列を想定すると、当然のことながら、下流側のポイントソースでは上流側のポイントソースから放射性核種フラックスの影響を受けることになるが、本モデルではその影響を無視することとし、ソース下流域における放射性核種濃度はポイントソースの重ね合わせによって求めることとする。この仮定は、実際の下流側ソースでは上流側のフラックスの影響のため漏洩率が小さくなるので保守的であると考えることができる。

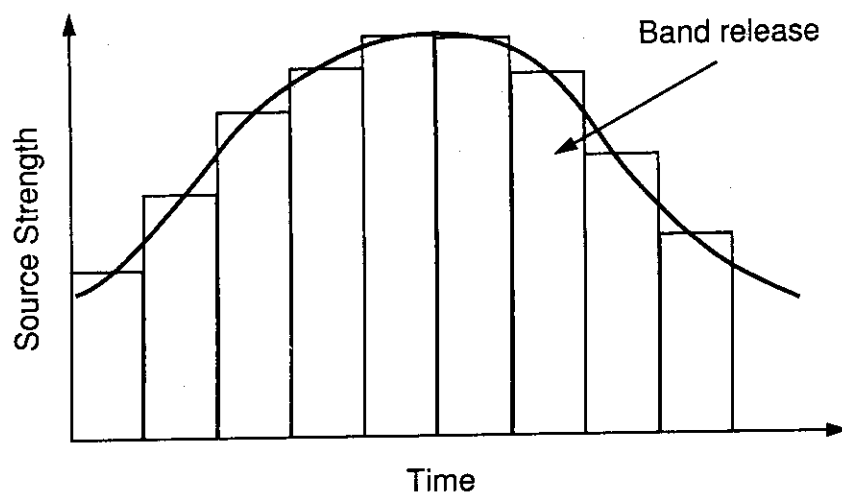


図 5-4 ポイントソースからの核種放出の計算法

[1次元移流-分散モデル]

このモデルは2つの手法で解かれる。すなわち、均質媒体を仮定した場合の解析解と、多層媒体を仮定した場合の数値解である。両者とも移流-分散の他に、多孔質媒体における平衡吸着と崩壊連鎖を考慮している。この場合の支配方程式は式(12)において流れに垂直な方向(xとy方向)の分散を無視した形であり、この方程式の解析解は、式(12)の解析解とよく似たものとなっている。多層媒体に対する数値解の場合は、陰解法に基づく通常の有限差分法を用いている。

(生態圏モデル)

GSRWコードの生態圏モデルは、様々な環境媒体における放射性核種の移行を解析する線形動的コンパートメントモデルと、それに伴う放射線影響を解析する被曝評価モデルとから構成される。このモデルで想定している生態圏は、主に水圏(地表水系:河川、湖沼、近海など)及び陸圏(土壌)から構成されている。生態圏における放射性核種の移行経路は、図5-5に示す。処分場から漏出した放射性核種により汚染された深層地下水は、隣接した帯水層を通して地表水系に流出するものとする。汚染された水は、最終的には、井戸あるいは地表水の利用、水産物の摂取により公衆に被曝をもたらす。また、汚染水は農業の様々な目的にも利用されることが考えられる。例えば、灌漑水は農耕地の地表土壌の汚染及びそれに伴う再浮遊による大気汚染、汚染された飼料及び水による農作物及び家畜の汚染をもたらすと考えられる。本モデルで想定している被曝経路は以下の通りである。

- ・ 地表に付着した放射性核種による外部被曝
- ・ 汚染土壌からの再浮遊物質の吸入による内部被曝
- ・ 食物(穀物、畜産物、水産物)及び飲料水の摂取による内部被曝

線量評価サブモデルは、環境媒体中の移行モデルの結果に基づき、線量換算係数法を用いて、個人に対する預託実効線量当量(内部被曝)及び実効線量当量(外部被曝)を算定する。

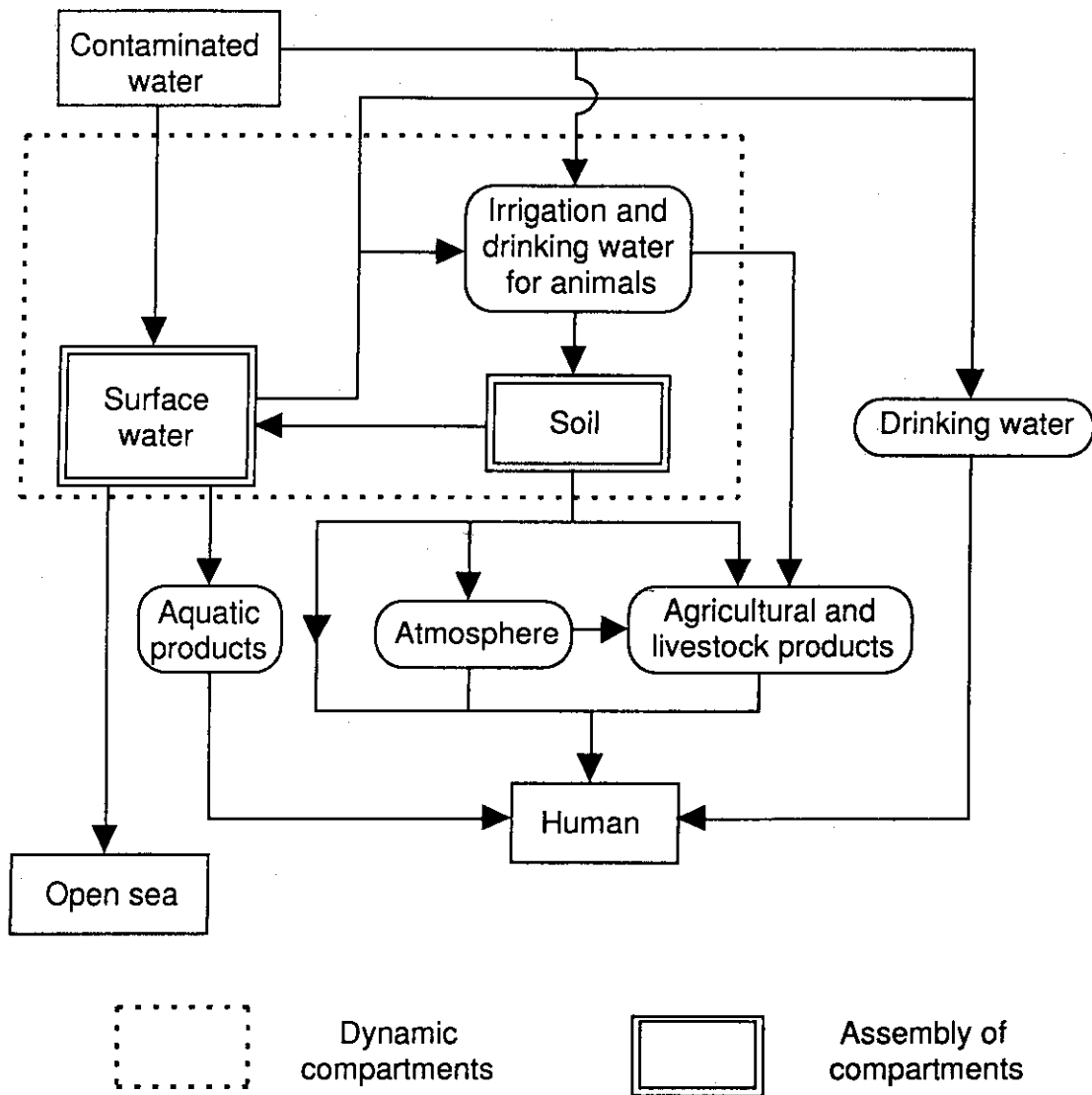


図 5-5 地下水シナリオに含まれる移行及び被曝経路

5.2 評価モデルの妥当性検証

安全評価に用いられる全てのモデルは、評価の十分な信頼性を得るために、その妥当性が検証されなければならない。原研におけるモデルの妥当性検証は、天然バリアにおける地下水流解析及び核種移行解析モデルに重点をおいて研究を進めている。モデルの妥当性検証研究は、我が国における原位置試験データが少ないこともあり、HYDROCOIN（地下水流解析計算モデルの国際比較研究）やINTRAVAL（地中核種移行計算モデルの妥当性検証に関する国際協力研究）のような国際協力研究として進められている。特に複雑な天然バリアモデルに関しては、妥当性検証の一般的な手法及びその規格は必ずしも確立しておらず、ほとんどの評価手法はモデルキャリブレーションとして適用されているのが現状であり、今後の研究の進展が期待されている分野である。

モデルの妥当性検証は、実験結果とモデルの解析結果との比較検討によって進められる。もし、実験結果とモデルの解析結果に不一致が見られた場合、原因としては

- ・不適切なモデルの使用
- ・評価対象系の初期条件及び境界条件に関する不十分なデータ
- ・モデルパラメータ値が不適當
- ・比較すべき実験データの不十分な精度

などがあげられる。これらの原因により、天然バリアモデルの妥当性を検証するために、概念モデルを定義することが困難かつ複雑なものとなってしまう。それゆえ、モデル妥当性検証の意味を明確にするためには、モデル妥当性検証に用いられるあらゆるデータは、厳格な品質保証プログラムに基づいて管理されなければならない。モデル妥当性検証において、もう一つ重要な点はデータの取得性である。地層処分の安全評価では、評価モデルは処分システムをカバーする極めて広い空間及び評価期間に対応した長い時間スケールに対して、その妥当性が検証されなければならない。そのため、様々な種類のデータ、特に地層に適用されるモデルのパラメータを、一連の室内実験、様々なスケールの原位置試験及びナチュラルアナログ研究を通して、取得することが必須である。

〈天然バリアモデルの妥当性検証〉

ここでは、天然バリアモデルの妥当性検証研究の一例として、INTRAVAL 国際協力研究の解析課題の一つであるスウェーデンのフィンションサイトにおけるトレーサー実験の解析結果について述べる。

[トレーサー試験の概要]

トレーサー実験は、スウェーデンのフィンションサイトの結晶質岩中の亀裂帯で行われた^{9), 10)}の⁹⁾。実験は、深さ約300mのほぼ水平な厚さ約100mで数km程度の広がりを持つ亀裂帯 (Zone 2) を対象に実施された (図5-6及び5-7参照)。この亀裂帯には、3つの透水性の高い層が存在する。この実験の目的は、主要な亀裂帯における核種の移行特性を把握するために重要なパラメータを決定すること、及び核種移行モデルの妥当性検証を行うために実験データを提供することである。トレーサー試験としては2種類実施された。すなわち、揚水試験 (Radially Converging Test) 及び注揚水試験 (Dipole Test) である。揚水試験は、亀裂帯を貫通するボアホールを複数本使用し、中心のボアホールにパッカーを設置し、その亀裂領域から地下水を揚水し (ボアホールBFI02)、地下水流が定常になったとみなせる時点で周辺のボアホール (BFI01, KFI06, KFI11) からトレーサーを投入し、亀裂帯を移行してきたトレーサーを回収し、トレーサー濃度の時間変化を測定する試験である (図5-8参照)。注揚水試験は、同様に亀裂帯を貫通する2つのボアホールを使用し、一方から水を注入し (ボアホールBFI01)、他方から地下水を揚水し (ボアホールBFI02)、地下水流が定常になったとみなせる時点で注入側にトレーサーを投入し、揚水側でサンプリングを行う試験である。トレーサーとしては、非吸着性のDTPA, EDTA 錯体、放射性核種

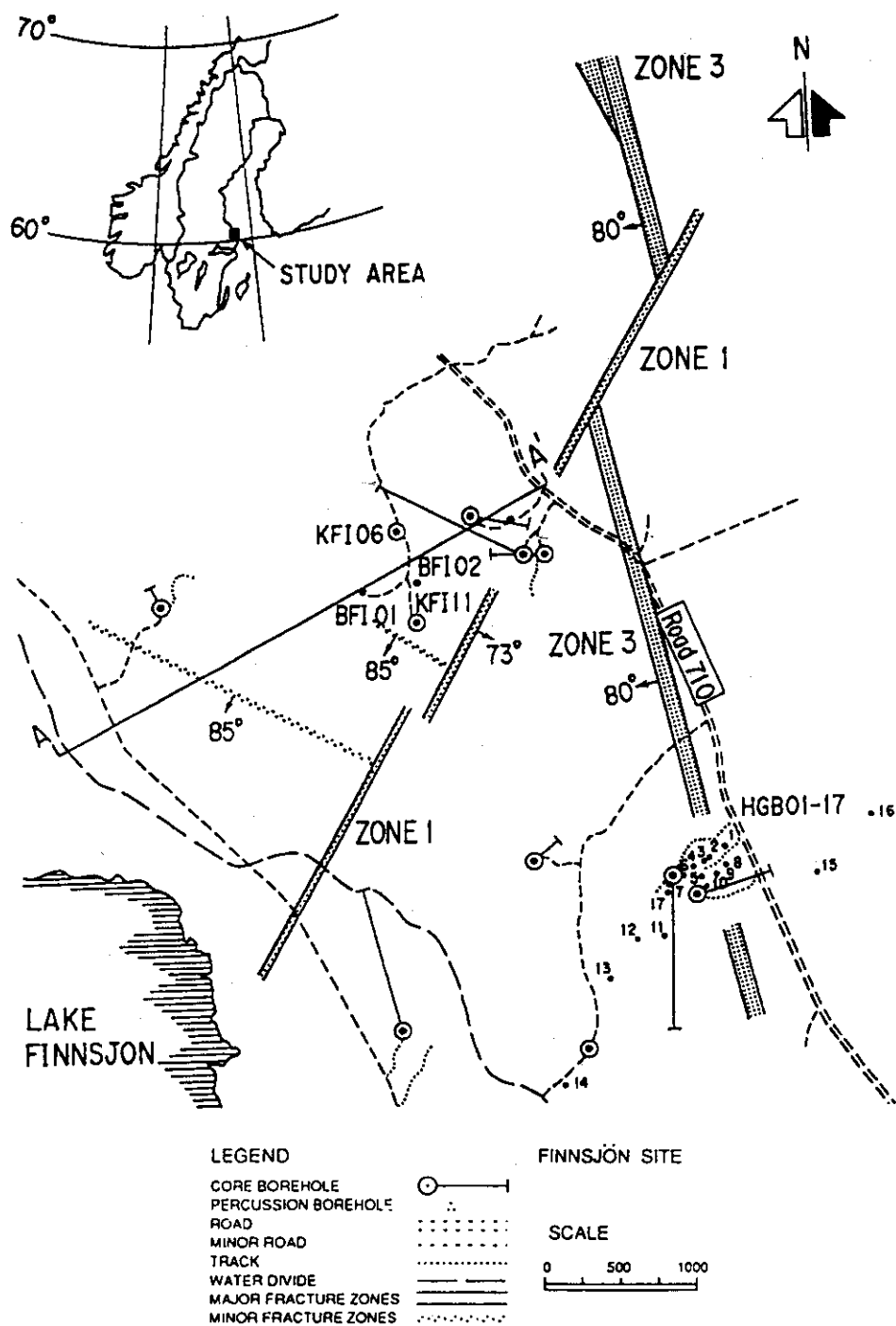


図 5-6 フィンションサイトの地図とボアホールの位置

I-131 などが使用された。

[解析モデル]

揚水トレーサー実験の結果、トレーサーは亀裂帯の中の複数の経路を通過して移行していると考えられたため、チャネリングモデル (Variable aperture channeling model) を用いて解析すること

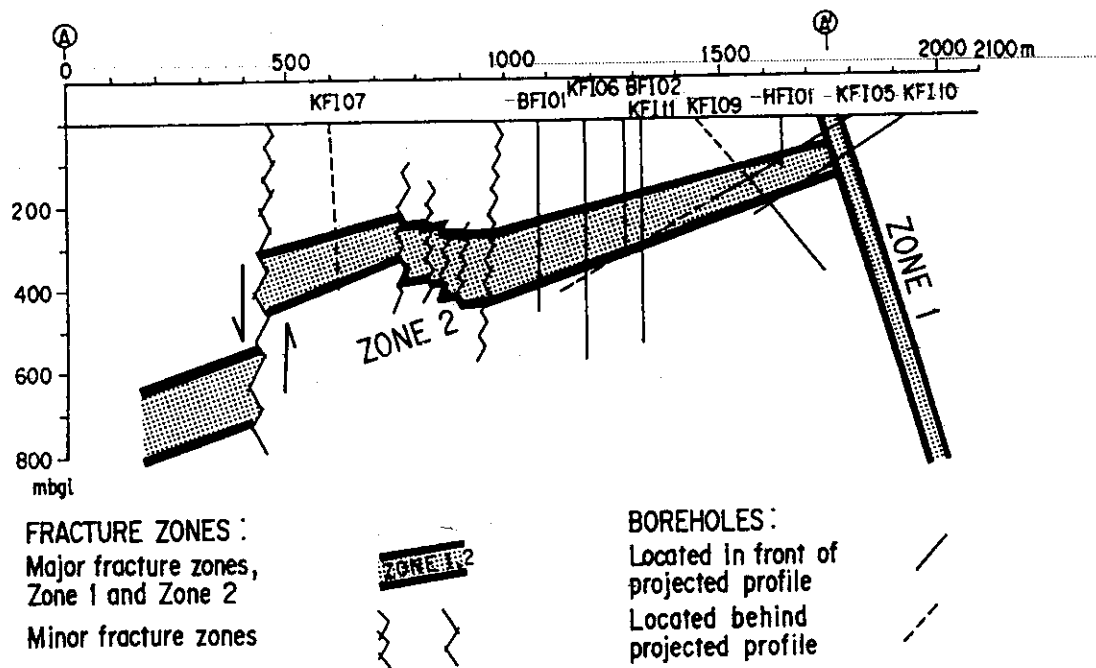


図5-7 フィンシオンサイトの断面図

とした。また、注揚水試験では、チャネリングモデルの他に等価な多孔質媒体近似モデル (Equivalent porous medium model) も用いて解析を実施した。

解析では、亀裂帯 (Zone 2) の透水性の高い上部のみをモデル化の対象とした。これは、様々な深さから投入されたトレーサー実験の結果、亀裂帯の上部の透水性の高い部分とその他の透水性の高い部分との水理的なつながりは弱いと判断できたためである。チャネリングモデルは以下の仮定に基づいている。

- ・亀裂帯内の地下水流は定常状態にある。
- ・亀裂帯内の地下水流は2次的に表現できる。
- ・亀裂帯は亀裂開口幅が場所によって異なる1つの亀裂として表現できる。
(揚水試験では、対象領域を100x100の正方形亀裂要素に分割した)
- ・亀裂開口幅の確率分布は対数正規分布で表現され、各亀裂要素間には相関関係がある。
- ・各亀裂要素間の移行は1次的に表現できる。2つの亀裂要素間の透水性は、それぞれの亀裂開口幅で決まる。

・マトリックス拡散の影響を考慮する。

一方、多孔質媒体近似モデルでは以下の仮定を設けた。

- ・亀裂帯内の地下水流は定常状態にある。
- ・亀裂帯は2次的に表現できる。
- ・亀裂帯は多孔質媒体として近似可能である。
- ・チャネリングは無視する、すなわち亀裂開口幅は一定である。
- ・マトリックス拡散を考慮する。

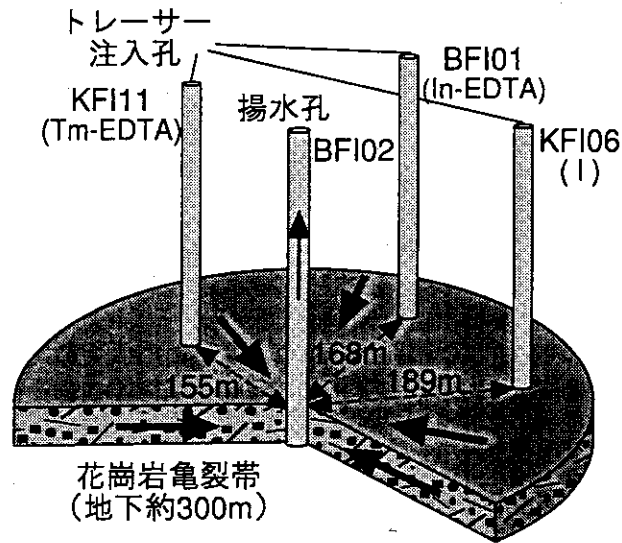


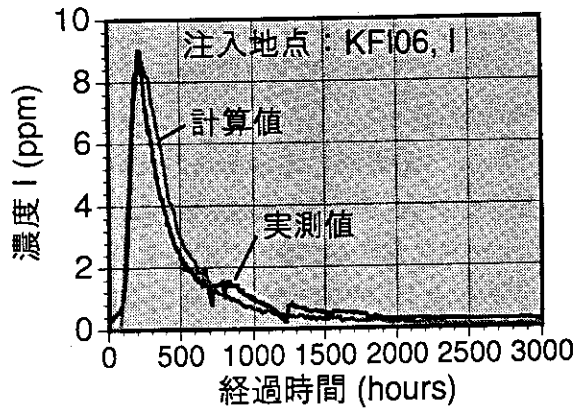
図 5-8 揚水トレーサー試験の概念図

解析は、チャネリングモデルは確率・統計モデルであるため、揚水孔での地下水圧力を拘束した条件付シミュレーション (Conditional simulation) を実施し、複数回の計算結果の平均をとり、計算結果とした。

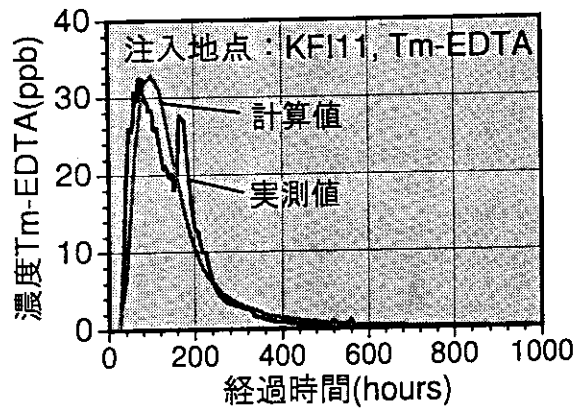
[解析結果]

チャネリングモデルで様々な条件を仮定して解析した結果、この亀裂帯を一つの亀裂特性で表現することはできないことが判明した。すなわち、部分的に亀裂開口幅の大きな領域が存在すると仮定しないと、各ボアホールからの破過曲線を統一的に説明することができない。図 5-9 にチャネリングモデルで計算された揚水試験の場合の破過曲線を測定された破過曲線とともに示す。マトリックス拡散に関しては、この亀裂帯ではその影響は少ないという結果が得られた。すなわち、このような透水性の高い亀裂帯では、亀裂開口幅 (モデルで推定された開口幅 0.001 m) が比較的大きいため、その影響が少ないものと思われる。

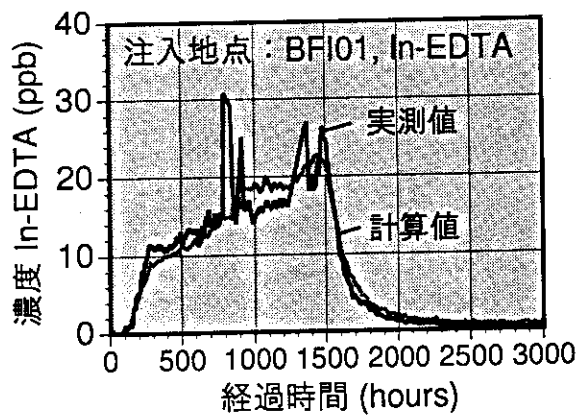
チャネリングモデルによる解析結果は、実験結果を統一的によく再現できたが、そのためには実験的に確認されていない仮定を設定しなければならず、その点では、モデルの妥当性検証は不十分で、部分的妥当性検証あるいはモデルキャリブレーションの段階にあるといえる。チャネリングモデルは基本的には、一般的なモデルではあるが、その使用に当たっては、地質統計学的データ及び知見が必要であり、完全な妥当性検証には、今後の研究成果に期待されるところが大きい。



(a) KFI06 ホール、トレーサー：I



(b) KFI11 ホール、トレーサー：Tm-EDTA



(c) BFI01 ホール、トレーサー：In-EDTA

図 5-9 揚水トレーサー試験の解析結果及び実験結果

5.3 感度解析

感度解析・不確かさ解析は、地層処分に起因する放射線影響を支配する重要なパラメータ及び移行経路を明らかにするためには必須である。原研では、多数のパラメータについての感度解析を効率的かつ精度高く行うために、自動感度解析手法 (PRESANA、SANA) を開発した。この手法は、M. Berz によって開発された DA (Differential Algebras) 法⁹⁾ を用いたものであり、対象となる評価コードをこの計算コードシステムに通すことにより、感度解析コードに自動変換するものである (図 5-10 参照)。この生成された感度解析コードを使用して計算を実行すれば、指定された出力変数に対する指定された多数の入力パラメータの感度が同時に求められる。

ここでは、この自動感度解析手法を地層処分の一般的安全評価手法 GSRW コードに適用して感度解析を行った結果について述べる。感度解析は、放射線影響の大きな TRU 核種 (Np-237 崩壊系列) と FP 核種 (Cs-135) に対して行った。図 5-11 に想定した概念処分場を示す。これは実際の処分場ではなく、感度解析のために想定したものである。計算に使用した入力パラメータを

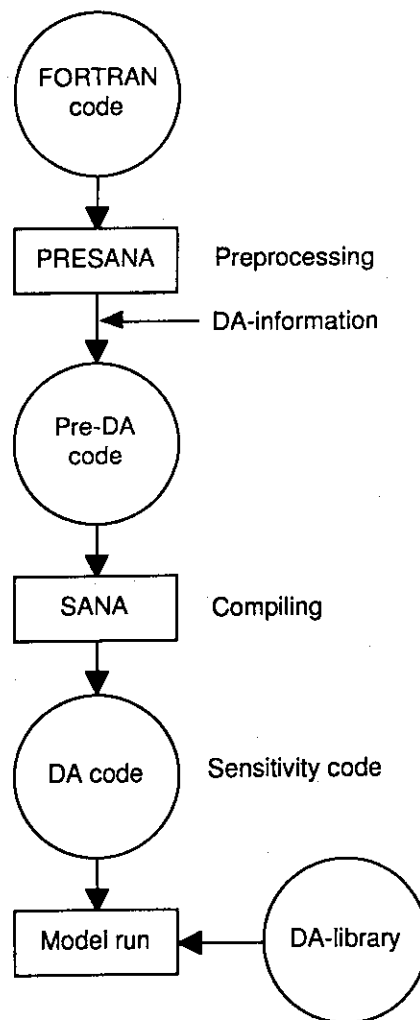


図 5-10 DA 法による感度解析のフロー

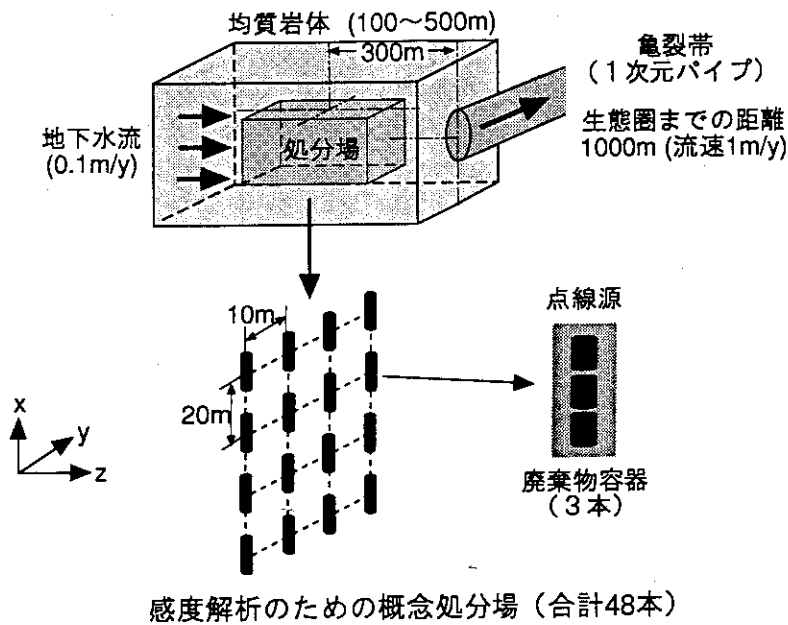


図 5-11 感度解析で想定した概念処分場

表 5-1 に示す。均質岩体中の移行距離は標準値として 300 m を設定し、さらに 100~500 m の範囲で変化させた。またその地下水流速は 0.1 m/y を標準値として、同様に 0.01~1 m/y の範囲で変化させた。亀裂帯中の移行距離は 1000 m を想定し、地下水流速としては 1 m/y を設定した。流れ方向の分散長は、均質岩体及び亀裂帯とも移行距離の 1/10 とした、また均質岩体における流れに垂直な方向の分散長は、移行距離の 1/50 とした。ここで、廃棄体の空間的配置の影響をみるため、16 個のポイントソースを想定している。また、処分場及びその周辺均質岩体は深地下にある

表 5-1 感度解析で使用した入力パラメータ

元素	溶解度 (mol/l)	分配係数(m ³ /Kg)		
		緩衝材 間隙率0.3 密度1,500 kg/m ³	均質岩体 間隙率0.03 密度2,300 kg/m ³	亀裂帯 間隙率0.1 密度2,000 kg/m ³
Cs	-	0.002	0.005	0.005
Th	2E-8	0.002	0.01	0.01
U	1E-5	0.1	0.01	0.002
Np	4E-9	0.1	0.1	0.001
SiO ₂	5E-4	-	-	-

ので、その化学的雰囲気は還元性であると、一方、亀裂帯は地表近くの帯水層と連絡しているので酸化性雰囲気にあるものとした。

感度解析の対象となった出力項目は、亀裂帯出口における放射性核種の濃度である。これは、地下水を飲料水として摂取する場合、被曝線量に線形に寄与するためである。一方感度解析のパラメータ (GSRW コードの入力パラメータ) としては、以下のものを設定した。

○ソースタームモデル

- ・化学種 i の溶解度 (N_i^{sat})
- ・緩衝材の厚さ (L_B)
- ・固化体の密度 (ρ)
- ・緩衝材中の核種 i の遅延係数 (K_i^B)
- ・緩衝材中の核種 i の拡散係数 ($D_{f,i}$)
- ・固化体の半径 (球形近似、 R_0)

○天然バリアモデル

- ・廃棄体の設置間隔 x 及び y 方向 ($\Delta x, \Delta y$)
- ・均質岩体中の分散長 ($\alpha_x, \alpha_y, \alpha_z$)
- ・均質岩体中の地下水流速 (v_h)
- ・均質岩体中における遅延係数 ($K_h^G(i)$)
- ・均質岩体中の移行距離 (L_h)
- ・亀裂帯中の分散長 (α_f)

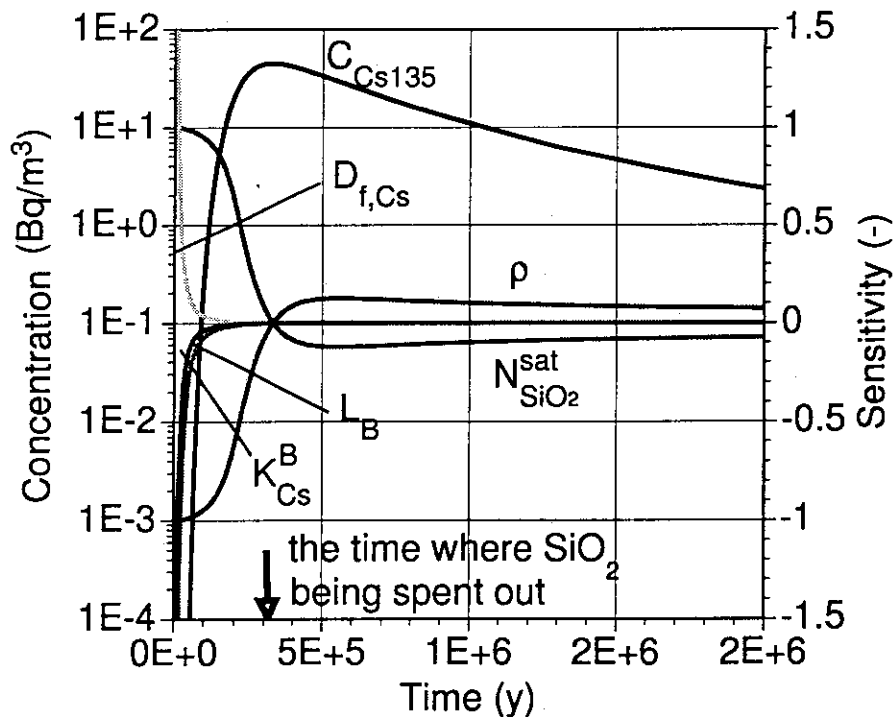


図 5-12 ^{135}Cs の亀裂帯出口における濃度及びモデル 1 のパラメータの感度の時間変化

- ・亀裂帯中の地下水流速 (v_f)
- ・亀裂帯中における遅延係数 ($K_f^G(i)$)
- ・亀裂帯中の移行距離 (L_f)

〈感度解析結果〉

ここで計算される感度は、入力パラメータの変化に対する出力変数（亀裂帯出口における核種濃度）の変化割合（-）である。

[ソースタームモデル]

最初にモデル1の感度について述べる。図5-12に、Cs-135の亀裂帯出口における濃度の時間変化とともに、入力パラメータ（Csの緩衝材中拡散係数、Csの緩衝材中遅延係数、緩衝材厚さ、固化体密度、シリカの実効拡散係数、シリカの溶解度）の感度を示す。ここで正の感度はそのパラメータの増加に伴い核種濃度が上昇することを意味し、負の感度は逆に濃度が低下することを意味する。この図で、シリカの実効拡散係数の感度は、シリカの溶解度の感度と全く同一であり、グラフに示していない。これは、モデル1の数学モデルから期待されることであり、コードが正常に機能していることがわかる。このモデルでは、緩衝材の遅延係数及び厚さは、初期のみでCsのピーク濃度にほとんど影響しないことがわかる。

次に、モデル2の感度について述べる。図5-13に亀裂帯出口におけるNp-237の濃度変化とともに、モデル2のパラメータ（Npの緩衝材中拡散係数及び遅延係数、緩衝材厚さ、固化体半

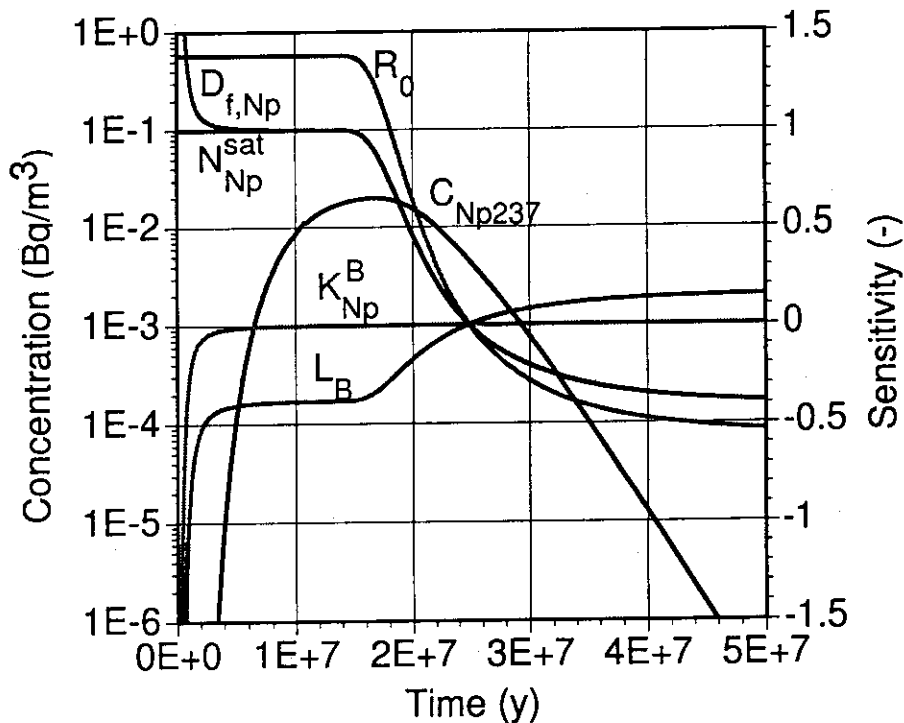


図 5-13 ^{237}Np の亀裂帯出口における濃度及びモデル2のパラメータの感度の時間変化

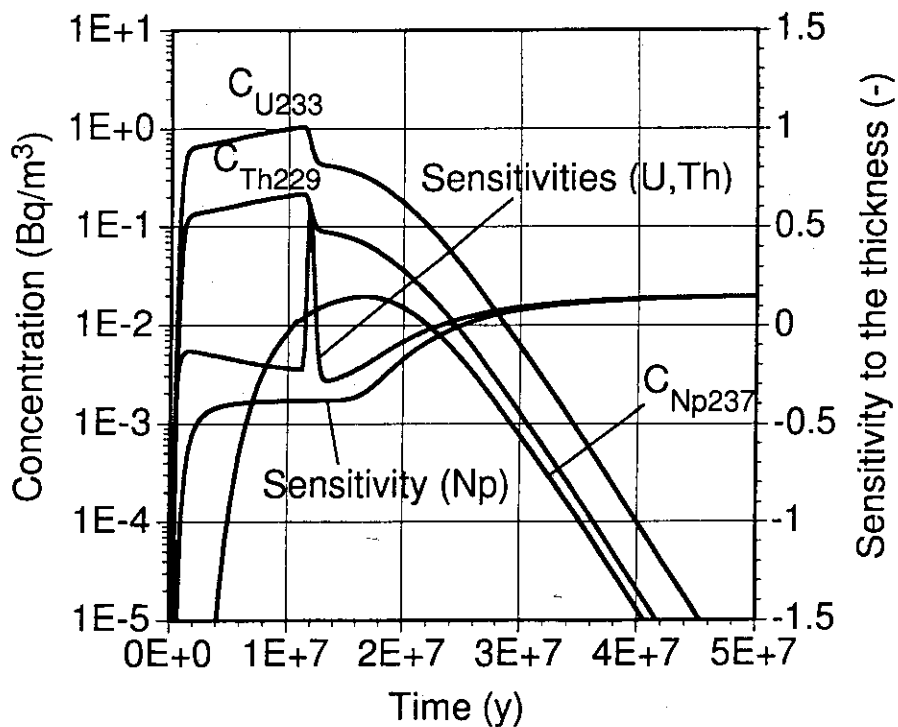


図 5-14 ^{237}Np , ^{233}U 及び ^{229}Th の亀裂帯出口における濃度とモデル 2 のパラメータの感度の時間変化

径、Np の溶解度) の感度の時間変化を示す。ここで、固化体半径と Np の溶解度の感度は、Np-237 の固化体からの漏出が続く限り、正の値で一定になっており、漏出フラックスと比例関係にあることがわかる。全てのパラメータの感度は、同じ時点で 0 になっている、この時刻はもし Np-237 が放射性壊変をしないとすればそのピーク濃度になる時間であり、実際は崩壊があるのでピーク濃度はそれよりも前の時間になっている。遅延係数は、このモデルにおいても、ピーク濃度に対して感度が低いことがわかる。

図 5-14 に Np-237, U-233 及び Th-229 の濃度の時間変化とともに、緩衝材厚さのそれぞれの核種に対する感度を示す。娘核種の U-233 及び Th-229 濃度変化は、2 つの破過曲線から構成されていることがわかる。すなわち、緩衝材中で Np-237 が崩壊して生じた娘核種が移行したものと、地層中で親核種から崩壊して生じた娘核種が移行したもの (過渡平衡) である。このことは、娘核種の感度曲線の不連続性 (微分不可能) となってあらわれている。この不連続性は、娘核種の最初の破過曲線において、急激に濃度が減少するために起こるものと考えられる。

パラメータの処分システムの性能に対する影響は、パラメータ同士に相関がある。感度に関するこのマルチパラメトリックな影響をみるため、Np の溶解度 (拡散係数) 及び緩衝材厚さを変化させた場合の Np-237 のピーク濃度時における感度の変化を計算する。その結果を図 5-15a 及び 5-15b に 3 次元的に示す。これらの図から、溶解度が高い場合、緩衝材厚さ及び溶解度それ自体も感度が低いことがわかる、そして、溶解度の低下とともに、それぞれの感度は高くなることがわかる。ここで、緩衝材厚さの感度は、緩衝材厚さが増加するとともに、低下しており、厚さが大きい領域ほど感度変化は小さくなっている。これは、安全評価観点から言えば、緩衝材厚さは

少なくとも0.5 m以上あればよいことになる。なぜなら、緩衝材厚さをこれ以上厚くしても、大きな性能向上は期待できないからである。

[天然バリアモデル]

天然バリアモデルは、2つのモデルから構成されている。すなわち、均質岩体中の1次元移流3次元分散による核種移行を解析する3次元モデルと、亀裂帯中の1次元移流分散による核種移行を解析する1次元モデルである。

図5-16aにNp-237の濃度変化とともに、3次元モデルのパラメータ（分散長、Npの遅延係数、移行距離、地下水流速、廃棄体の間隔）の感度の時間変化を示す。流れに垂直な方向の分散及び廃棄体の間隔の感度は相対的に低く、重要ではないことがわかる。他のパラメータ、流れ方向の分散、遅延係数、移行距離及び地下水流速の感度は高く、しかもその値は、ソースタームモデルのパラメータよりも大きくなっている。娘核種の場合の重要なパラメータの感度変化を図5-16b及び5-16cに示す。ここでも、ソースタームモデルの場合にみられた不連続性があらわれている。Thの遅延係数を除いて、パラメータの感度変化は娘核種のU-233とTh-229とで同じになっている。Npの遅延係数の感度は、緩衝材で生成した娘核種が移行してくることを反映して、初期は低くなっていることがわかる。一方、Np-237がピーク濃度に達した後は、Npの遅延係数が支配的になっていることがわかる。Thの遅延係数は、Th-229の均質岩体中における移行時間と比べその半減期が短いので、それ自体の破過曲線に何の影響も与えていない。3次元モデルにおけるパラメータの重要度は、移行距離、地下水流速、遅延係数、流れ方向分散の順に大きいといえる。

図5-17a、5-17b及び5-17cにNp-237、U-233及びTh-229の濃度変化とともに、1次元モデルのパラメータ（分散長、移行距離、地下水流速、遅延係数）の感度変化を示す。これらのパラメータは、Th-229濃度に対するU及びThの遅延係数を除いて（過渡平衡のため）、ソースターム及び3次元モデルのパラメータと比較すると感度が低い。これは均質岩体と比較すると、亀裂帯における地下水流速が大きく、遅延係数が小さいためである。

ソースタームモデルの場合と同様に、3次元モデルのパラメータの感度に関するマルチパラメトリックな影響をみるため、均質岩体の移行距離及び地下水流速を変化させた場合のNp-237のピーク濃度時における感度の変化を計算する。その結果を図5-18a及び5-18bに3次元的に示す。両方の図から、移行距離の増大、地下水流速の減少とともに、地下水流速及び移行距離の感度が高くなっているのがわかる。地下水流速の感度変化図で、地下水流速が大きい領域で感度が負になっている。またこれは、移行距離が小さくなるほど顕著になっている。この現象は、分散が地下水流速に依存する分散効果のためである。移行距離の感度変化図で、地下水流速が大きい場合（ $\sim 1\text{m/y}$ ）感度変化は小さくなっている。移行距離が100mから500mに変化した場合、感度は-0.8から-2に変化している。この変化は、低流速（ $\sim 0.01\text{m/y}$ ）の領域の変化に比べ著しく小さい。このことから、処分場はできる限り地下水流速の小さな岩体に設置すべきであることがいえる。

Sensitivity to N_{Np}^{sat} and $D_{f,Np}$ at Peak-Concentration

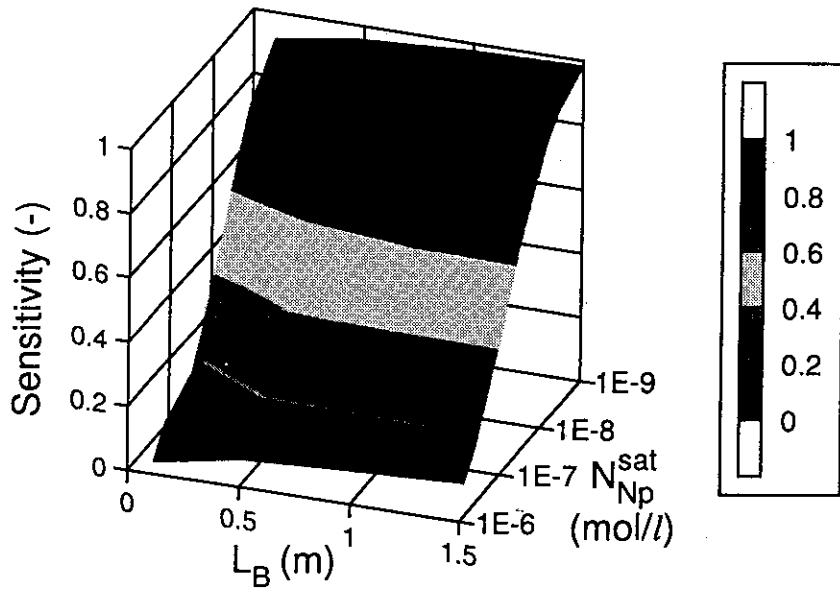


図 5-15a 緩衝材厚さ及び溶解度を変化させた場合における ^{237}Np のピーク濃度に対する緩衝材拡散係数 (Np の溶解度) の感度変化

Sensitivity to L_B at Peak-Concentration

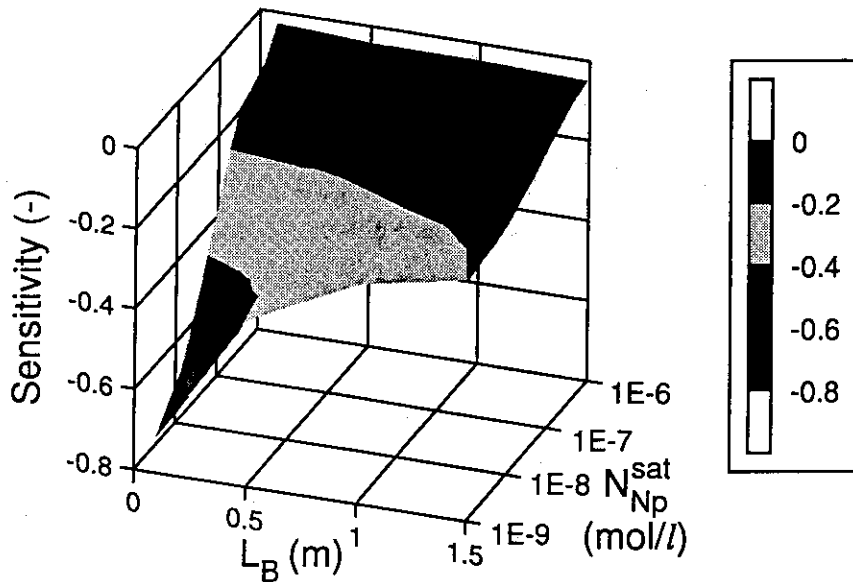


図 5-15b 緩衝材厚さ及び溶解度を変化させた場合における ^{237}Np のピーク濃度に対する緩衝材厚さの感度変化

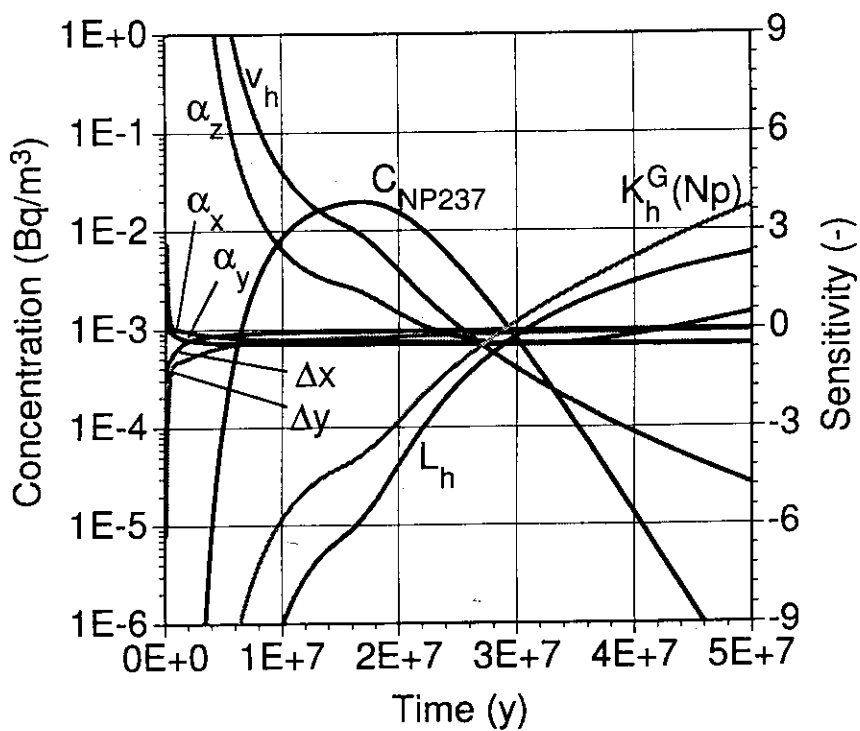


図 16a 亀裂帯出口における ^{237}Np の濃度及び天然バリア 3次元モデルのパラメータの感度の時間変化

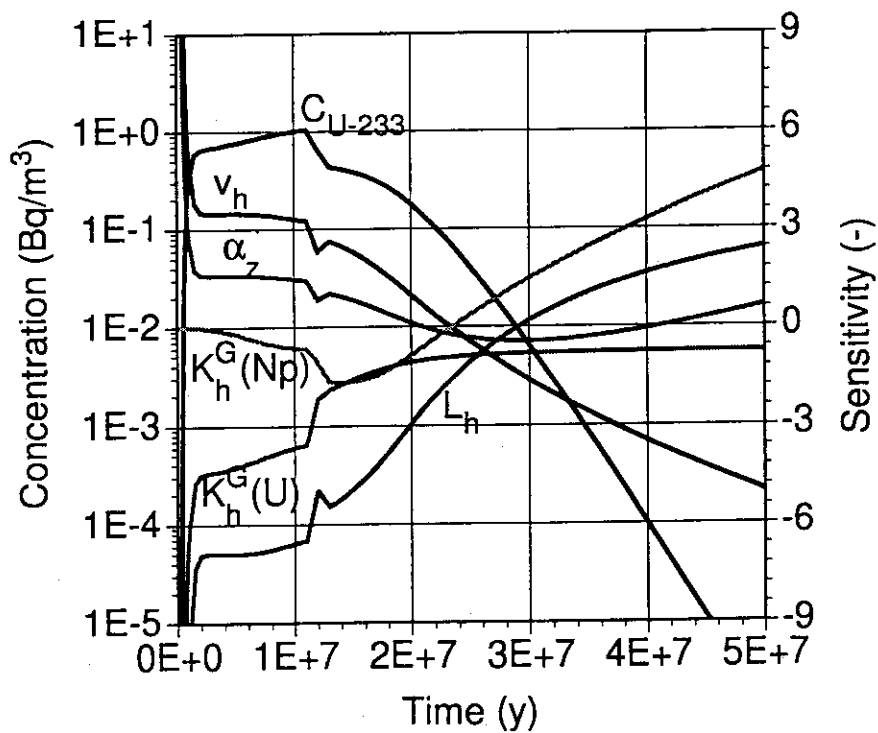


図 16b 亀裂帯出口における ^{233}U の濃度及び天然バリア 3次元モデルのパラメータの感度の時間変化

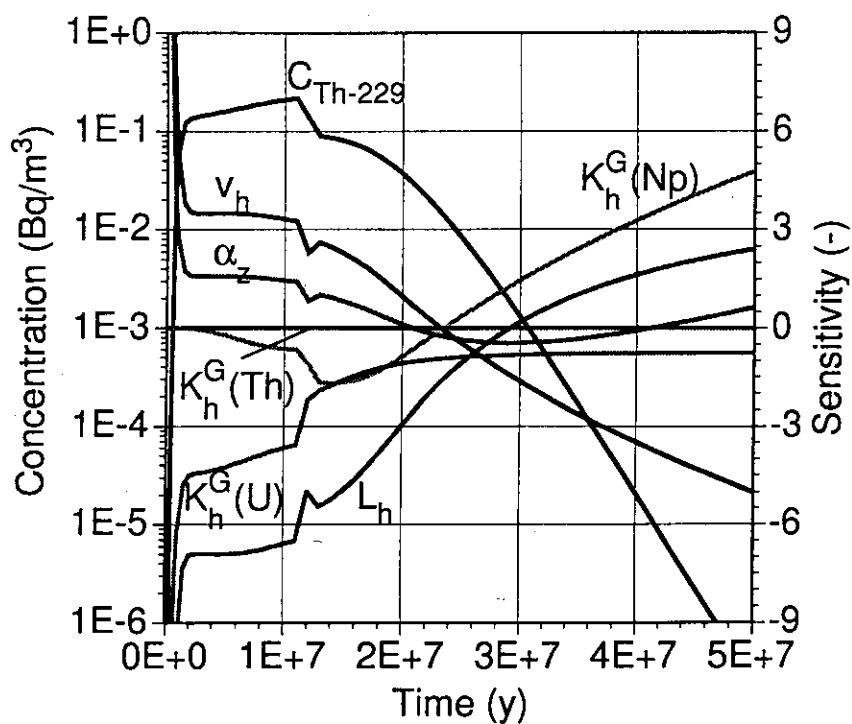


図 16c 亀裂帯出口における ^{229}Th の濃度及び天然バリア 3次元モデルのパラメータの感度の時間変化

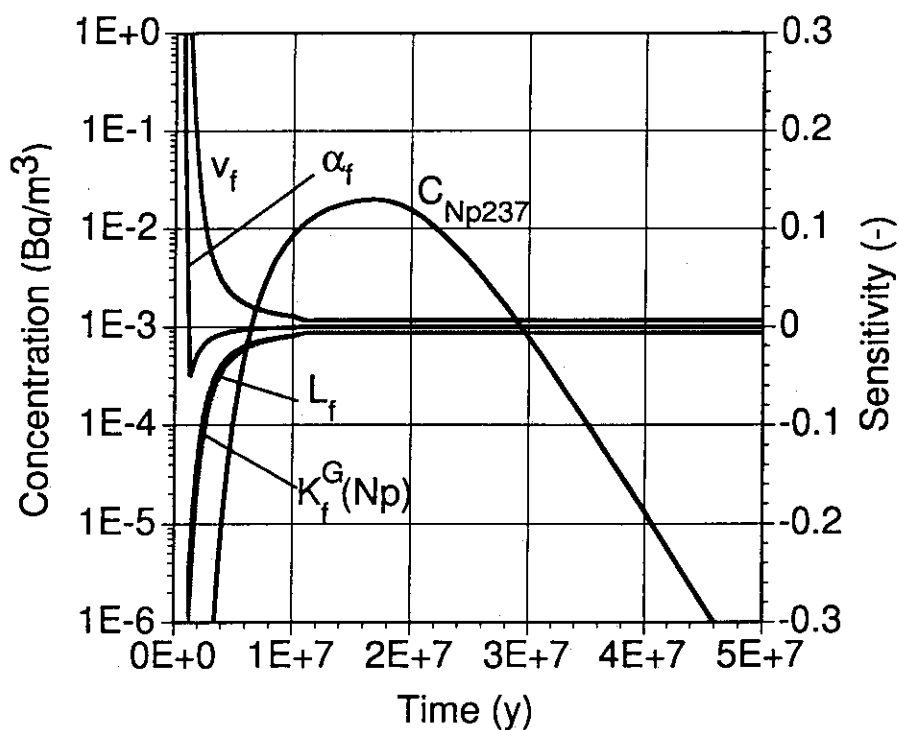


図 17a 亀裂帯出口における ^{237}Np の濃度及び天然バリア 1次元モデルのパラメータの感度の時間変化

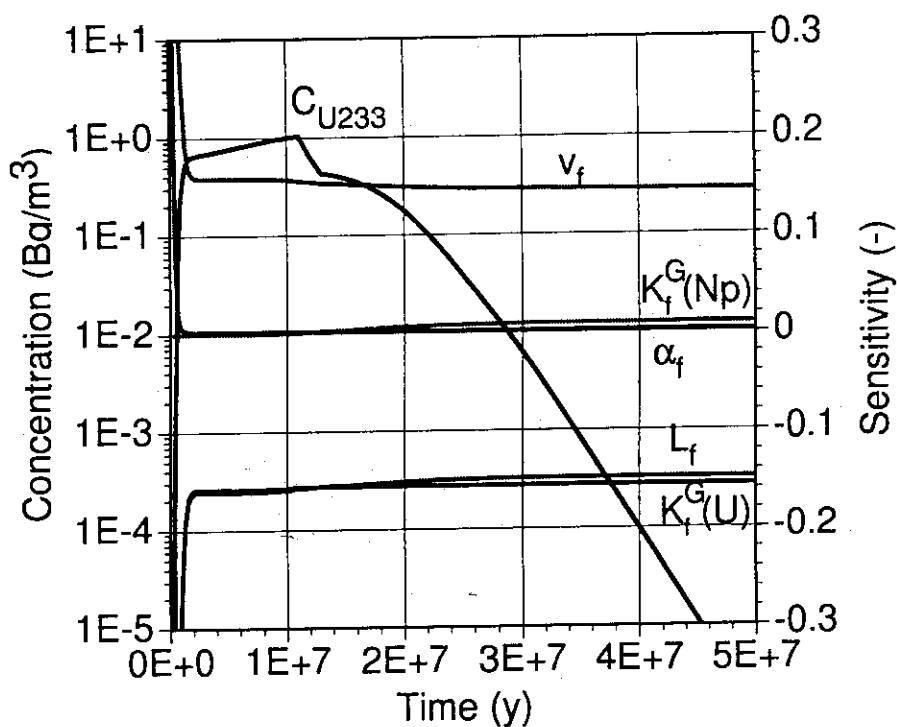


図 17b 亀裂帯出口における ^{233}U の濃度及び天然バリア 1 次元モデルのパラメータの感度の時間変化

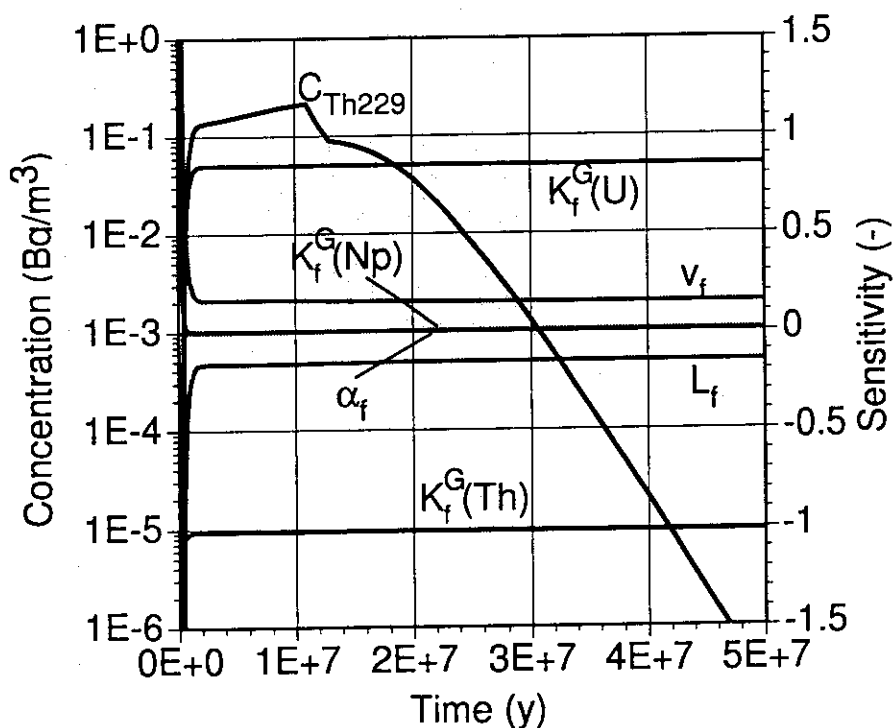


図 17c 亀裂帯出口における ^{229}Th の濃度及び天然バリア 1 次元モデルのパラメータの感度の時間変化

Sensitivity to v_h at Peak-Concentration

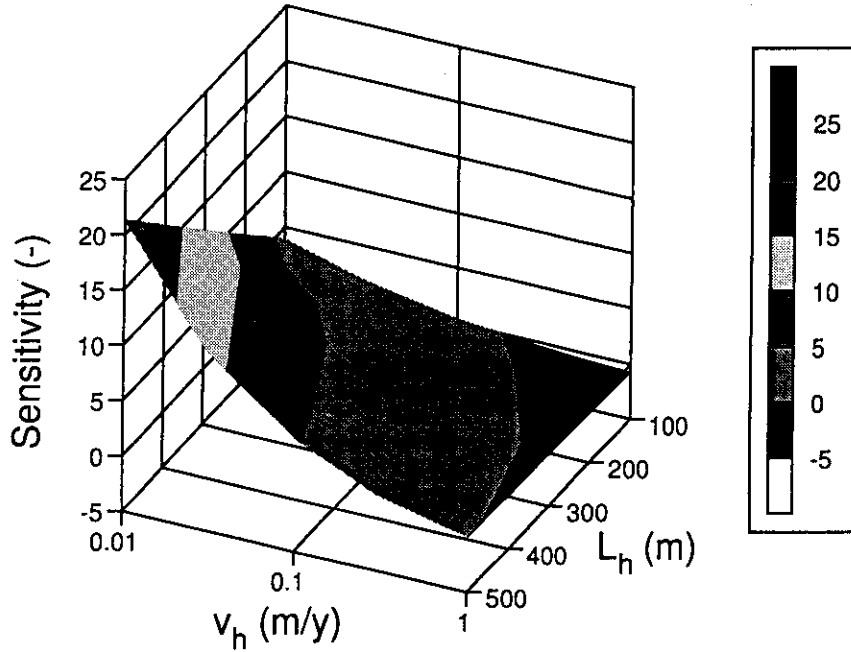


図 18a 均質岩体の移行距離及び地下水流速を変化させた場合の ^{237}Np のピーク濃度時における均質岩体地下水流速の感度変化

Sensitivity to L_h at Peak-Concentration

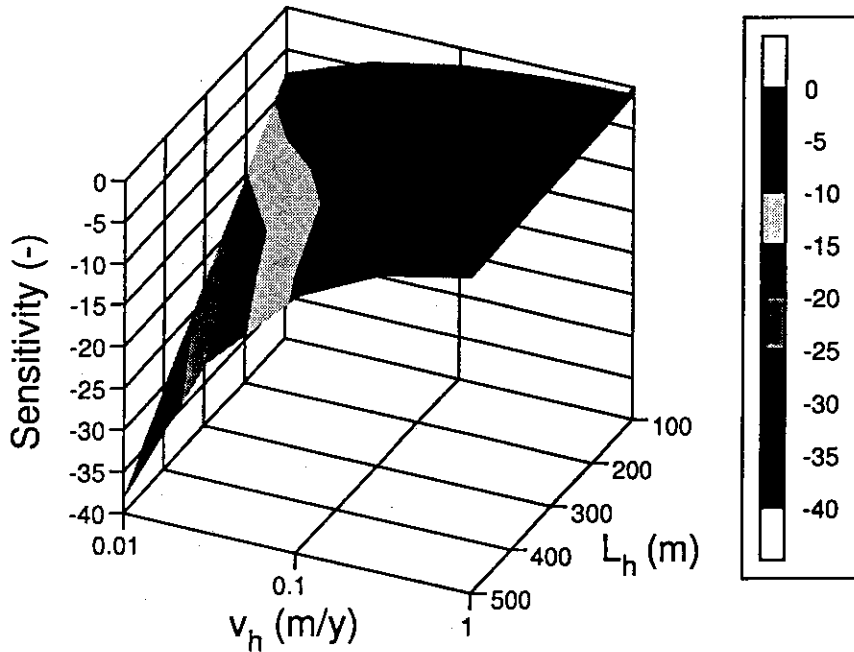


図 18b 均質岩体の移行距離及び地下水流速を変化させた場合の ^{237}Np のピーク濃度時における均質岩体移行距離の感度変化

5.4 予備的な安全解析

我が国における高レベル放射性廃棄物地層処分の可能性を検討するために、我が国における一般的な地質環境条件を想定した概念処分場を設定し、その処分に伴う放射線影響を評価した。

〈インベントリー及びソースターム〉

我が国では、1993年末までに46基の原子炉が17サイトで稼働しており、総発電量は約37,000 MWeである。ほとんどの原子炉は軽水炉であり、全ての使用済核燃料は再処理され、核分裂性のU及びPuは取り出される。本評価では、高レベル放射性廃棄物のインベントリーを算出するにあたって、以下の仮定を設定した。

- ・炉型はBWR。
- ・核燃料はU-235を3%含む。
- ・燃焼率は27,500 MWD/MTUで比出力は25.9 MW/MTUである。
- ・照射期間は5年。
- ・ガラス固化体の発生割合は0.12 m³/MTU。
- ・ガラス固化体の容積は0.16 m³。
- ・U、Pu及びIのガラス固化体への移行率はともに1%。

この評価では、再処理の回収率は簡単のため1%を想定した。なおIはほとんどが再処理過程で除去されてしまうが、安全評価上重要なため、回収されたIも処分されることを想定しその1%が固化体に含まれるものと仮定した。表5-2に計算されたガラス固化体一本当たりの核種インベ

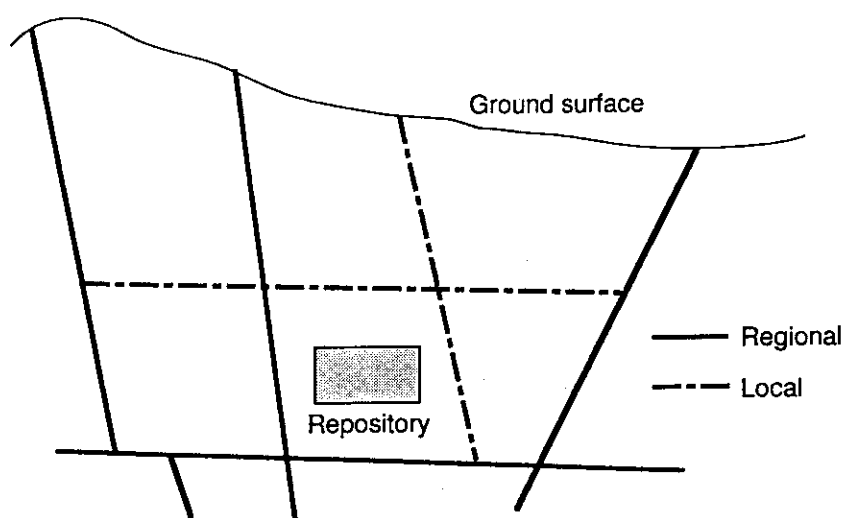


図 5-19 想定される高レベル廃棄物処分場の位置

表 5-2 高レベル廃棄物（ガラス固化体 0.16 m³）に含まれる主な放射性核種のインベントリー

Nuclide	No. of atoms	Activities (Bq)
Se-79	4.9682E+22	1.678E+10
Zr-93	5.2852E+24	7.732E+10
Nb-94	5.0859E+18	5.582E+6
Tc-99	5.3363E+24	5.525E+11
Pd-107	1.2451E+24	3.904E+9
Sn-126	1.3365E+23	1.467E+10
I-129	9.0089E+21	1.236E+7
Cs-135	1.9418E+24	2.030E+10
Cf-252	8.0224E+4	6.670E-4
Cm-248	3.2465E+16	2.096E+3
Pu-244	3.2611E+17	8.729E+1
Pu-240	8.7480E+22	2.927E+11
Np-236	7.5536E+17	1.382E+5
U-236	1.3268E+23	1.245E+8
Th-232	6.2262E+18	9.762E+0
Cm-245	1.0754E+21	2.777E+9
Pu-241	1.8249E+18	2.782E+9
Am-241	1.7035E+23	8.655E+12
U-237	1.6306E+15	1.935E+9
Np-237	1.8478E+24	1.895E+10
Pa-233	6.9579E+11	2.067E+5
U-233	5.1606E+20	7.124E+7
Th-229	1.0186E+18	3.063E+6
Cm-250	8.5196E+7	2.527E-4
Cm-246	9.5383E+19	4.380E+8
Am-242m	1.5168E+19	2.361E+9
Am-242	1.9686E+14	2.361E+9
Pu-242	1.2390E+22	7.233E+8
U-238	3.2052E+25	1.574E+8
Cm-242	1.4962E+14	7.363E+6
Pu-238	1.1590E+18	2.901E+8
U-234	3.2490E+21	2.911E+8
Th-230	8.2069E+18	2.389E+6
Ra-226	3.0435E+16	4.175E+5
Cm-247	8.1976E+17	1.139E+3
Am-243	1.4915E+23	4.442E+11
Np-239	5.8312E+2	1.991E-3
Pu-239	1.7080E+23	1.556E+11
U-235	3.2307E+23	1.007E+7
Pa-231	3.9786E+17	2.662E+5

表 5-3 日本の花崗岩の透水係数及び空隙率

rock type	hydraulic conductivity (m/s)	porosity (-)
fractured zone	1E-7 ~ 1E-6	0.1 ~ 0.25
rock mass	1E-12 ~ 1E-9	0.003 ~ 0.05

ントリーを示す。

ソースタームモデルでは、金属容器の寿命として1000年を仮定した。また、高レベル放射性廃棄物に含まれる核種のうちI及びCsについては、その溶解度が著しく高いので、この2元素は調和溶解モデル（モデル1）を使用することとした。その他の核種は全て溶解度律速モデルで評価することとした。なお、半減期50年未満の核種は、容器寿命を考慮し評価対象から除外した。

緩衝材については、その厚さを0.5m、空隙率を0.3とした。また拡散係数については、全ての核種に対して 10^{-10} m²/sを仮定した。

（水理学的条件）

高レベル放射性廃棄物の処分場は、図5-19に示すように、亀裂帯の存在しない安定な岩体中に建設されるものと考えられる。これは、生態圏への短絡的な移行経路を避けるために必要な立地条件であると考えられる。この岩体は、当然様々な亀裂帯（Regional fracture zone, Local fracture zone）によって囲まれることになるであろう。したがって、処分場を漏出した放射性核種は、卓越した亀裂のない岩体を移行した後、亀裂帯を通して生態圏に移行するものと考えられる。本評価では、このような岩盤層として、花崗岩均質岩体及び花崗岩亀裂帯を仮定する

基本的に、処分場から生態圏への移行経路は、特定のサイトの特性調査に基づいた詳細な地下水流解析によって決定されなければならない。しかしながら、現時点では我が国において、そのような深地層処分場に特有でかつ詳細なデータは得られていないので、本解析では、典型的な水理学的条件を想定して、解析を実施することとした。地下水流速 v （実流速、m/y）は、次式で与えられる。

$$v = \frac{k}{\phi} I \quad (16)$$

ここで、

k : 透水係数 (m/s)

ϕ : 空隙率 (-)

I : 動水勾配 (-)

我が国の花崗岩層の透水係数及び空隙率のデータを表5-3に示す¹⁰⁾。動水勾配は当然のことながらサイトの水理学的条件に依存するが、ここではSKI¹¹⁾の評価で仮定された0.005を考慮して、0.01と仮定した。これは、処分場は動水勾配の低いところに建設されることを想定したものであ

表 5-4 還元雰囲気における元素の溶解度

Element	Solubility Limits (mol/l)	
	Realistic	Conservative
Se	3E-8	1E-7
Zr	1E-10	1E-9
Nb*	1E-9	1E-5
Tc	2E-9	1E-6
Pd*	2E-7	2E-6
Sn	1E-11	1E-9
I	x	x
Cs	x	x
Th	2E-9	2E-8
Pa	2E-8	1E-5
U	4E-8	1E-5
Np	4E-9	4E-9
Pu	4E-8	3E-5
Am	4E-7	1E-3
SiO ₂ **	5E-4	5E-4

x : congruent leaching

* : SKB-91

** : PSI-Bericht Nr. 74

る。その結果、地下水流速は、均質岩体で0.00006から0.1 m/y、亀裂帯で0.1から3 m/y という値が得られる。解析では、保守的かつ丸めた地下水流速値として、均質岩体0.1 m/y、亀裂帯1 m/yを仮定した。

〈地球化学的条件〉

深地層中の地下水は、酸素濃度が低いので、特別の電気化学的条件すなわち還元雰囲気にあると考えられる。放射性核種の溶解度及び吸着特性を決定する化学的雰囲気は、サイトの特性に大きく依存している。サイト特性を反映させた溶解度等を求めるには、通常EQ3/6¹²⁾あるいはPHREEQE¹³⁾のような地球化学計算コードが使用される。本解析では、このような状況を考慮して、SKI、SKB¹⁴⁾及びPSI¹⁵⁾の報告書から地球化学データを引用することとする。評価に用いた元素の溶解度を表5-4に示す。また、同じく分配係数を表5-5に示す。これらの表で、realisticは標準値であり、conservativeは溶解度に関しては上限値、分配係数に関しては下限値を採用したもの

表 5-5 ベントナイト及び花崗岩の分配係数

Element	Kd-values (m ³ /kg)							
	Buffer material (reducing conditions)		Granite [homogeneous-rock] (reducing conditions)		Granite [fractured-zone] (oxidising conditions)			
	Realistic	Conservative	Realistic	Conservative	Realistic	Conservative	Realistic	Conservative
Se	0.01	0.01	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001
Zr	0.1	0.02	4	0.1	4	0.1	4	0.1
Nb	0.1	0.02	4	0.1	4	0.1	4	0.1
Tc	0.05	0	0.005	0	0.0002	0	0.0002	0
Pd	0.01	0.002	0.01	0.002	0.005	0.001	0.005	0.001
Sn	0.1	0.01	0.01	0.001	0.01	0.001	0.01	0.001
I	0	0	0	0	0	0	0	0
Cs	0.02	0.002	0.05	0.005	0.05	0.005	0.05	0.005
Ra	-	-	0.1	0.005	0.1	0.005	0.1	0.005
Ac	-	-	-	-	0.5	-	0.5	0.01
Th	1	0.002	5	0.01	5	0.01	5	0.01
Pa	-	-	0.1	0.01	0.01	0.01	0.01	0.001
U	0.2	0.1	5	0.01	0.01	0.01	0.01	0.002
Np	1	0.1	5	0.1	0.01	0.1	0.01	0.001
Pu	1.5	0.1	5	0.5	3	0.5	3	1
Am	2	0.25	5	0.5	5	0.5	5	0.5

表 5-6 想定した緩衝材及び花崗岩の空隙率及び密度

material/rock	porosity (-)	density (kg/m ³)
Buffer	0.3	1500
Granite (homogeneous)	0.03	2300
Granite (fractured zone)	0.1	2000

である。さらに評価では、均質岩体は還元雰囲気、亀裂帯は生態圏と接続しているため酸化雰囲気にあるものと仮定した。遅延係数を算出するために用いた密度及び空隙率のデータを表 5-6 に示す。以上の値は他の評価 (SKI, SKB など) と比較すると相対的に保守的な値となっている。

〈解析結果〉

想定した概念処分場を図 5-20 に示す。処分場は、均質な花崗岩岩体に 4000 本の処分孔が掘削され、それぞれの処分孔には、縦置きに、3 本のガラス固化体入り容器が緩衝材で覆われた形で処分される。1 つの処分孔からの放射性核種フラックスは、ポイントソースとして扱われ、その

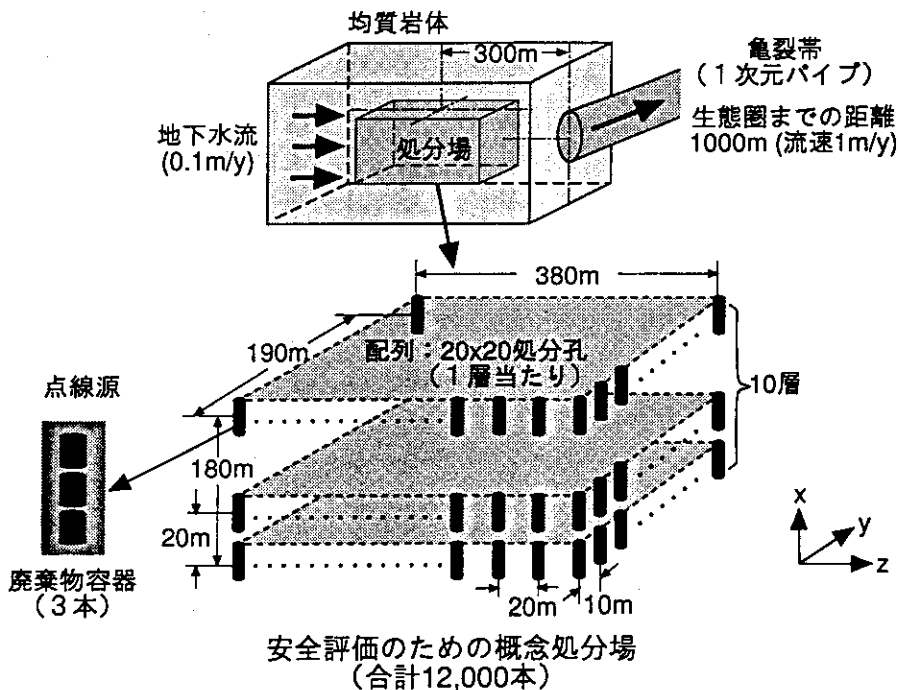


図 5-20 安全解析で想定した概念処分場

強さは1つの容器からの放射性核種フラックスの3倍であると仮定する。結果的に処分総量は、ガラス固化体12000本、使用済核燃料換算で16000 MTUである。均質岩体の移行距離は、図に示すように、最小で110 m最大で490 mとなっており、亀裂帯の移行距離は1000 mである。

本評価では、処分場を漏出した放射性核種は、天然バリアである地層を移行し、隣接した帯水層に達し、その汚染された帯水層の地下水は飲料水として人間に摂取されるものと考え、その個人線量を算出する。帯水層に移行する際に、汚染地下水は希釈係数 10^3 で希釈されると仮定した。この値は、均質岩体中のダルシー流速0.0003 m/yと我が国平均降雨浸透率0.001 m/dayとの比から算出した。また、他の被曝経路は、今回の評価では簡単化のため無視した。

今回の評価では、高レベル放射性廃棄物地層処分に伴う潜在的な放射線影響の幅をとらえるため、2種類の解析を実施した。すなわち、保守的評価 (conservative、放射線影響の上限値を算出) 及び現実的評価 (realistic、現実的な放射線影響を算出) である。ここで、保守的評価は保守的な地球化学データを使用することであり、現実的評価は現実的な地球化学データを使用することである。

保守的評価結果を図5-21a及び5-21bに示す。FP核種からの線量は、Tc-99 (3.7×10^{-7} Sv)、Cs-135、Se-79、I-129の順で大きい。 α 核種からの線量は、Np-237の娘核種であるTh-229 (10^{-7} Sv)、U-235の娘核種であるPa231、Np-237の娘核種であるU-233、U-238の娘核種であるRa-226の順で大きい。FP核種の寄与が α 核種よりも若干大きい、個人線量としてはいずれも 10^{-7} Svのオーダーである。さらに、保守的な条件でも、合計した個人線量は、低レベル放射性廃棄物浅地層処分の線量目標値 10^{-5} Svと比べても十分低い値になっていることがわかる。

現実的評価結果を図5-22a及び5-22bに示す。FP核種からの線量は、I-129 (2.6×10^{-8} Sv)、Se-79、Cs-135の順で大きい。 α 核種からの線量は、U-235の娘核種であるPa231 (2×10^{-10} Sv)、U-234、U-238の順で大きい。現実的評価の場合、 α 核種からの線量は保守的な場合に比べると極めて小さくなっているのが特徴的である。さらに、ウラン (U-238及びU-235) の娘核種あるいはウランそのものによる線量寄与が、他の核種よりも大きくなっている。I-129による線量が一番の大きくなっているが、実際の高レベル廃棄物固化体には、再処理過程、ガラス固化過程を伴うのでほとんど存在せず、このような線量値にはならないと考えられる。しかしながら、そのような過程で放出されたI-129はフィルター等で回収されるため、何らかのかたちで処分されなければならない。この点では、I-129は使用済核燃料のみの問題ではなく、高レベル放射性廃棄物でも考慮しなければならない重要な問題であると考えられる。

〈予備的安全解析のまとめ〉

保守的及び現実的な地球化学的条件を想定して、地下水移行シナリオ (基本シナリオ) に基づいて、高レベル放射性廃棄物地層処分の安全解析を実施した。その結果、両ケースとも算出された個人線量は 10^{-7} Svのオーダーであり、本解析で想定した処分条件が評価期間内で変化しないとすれば、高レベル放射性廃棄物地層処分は可能であることがわかった。

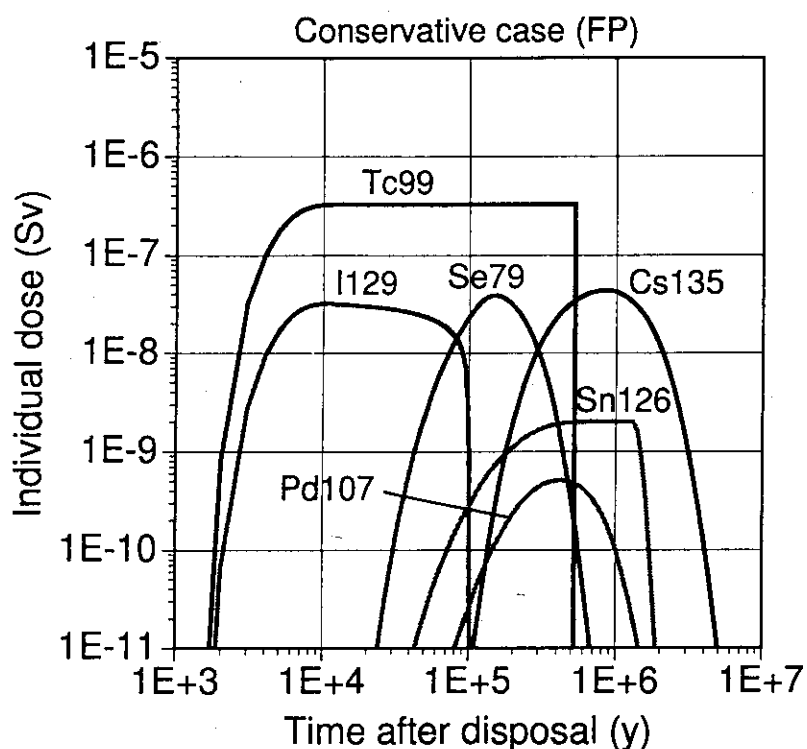


図 5-21a 保守的な仮定を用いた場合のFP核種からの個人被曝線量

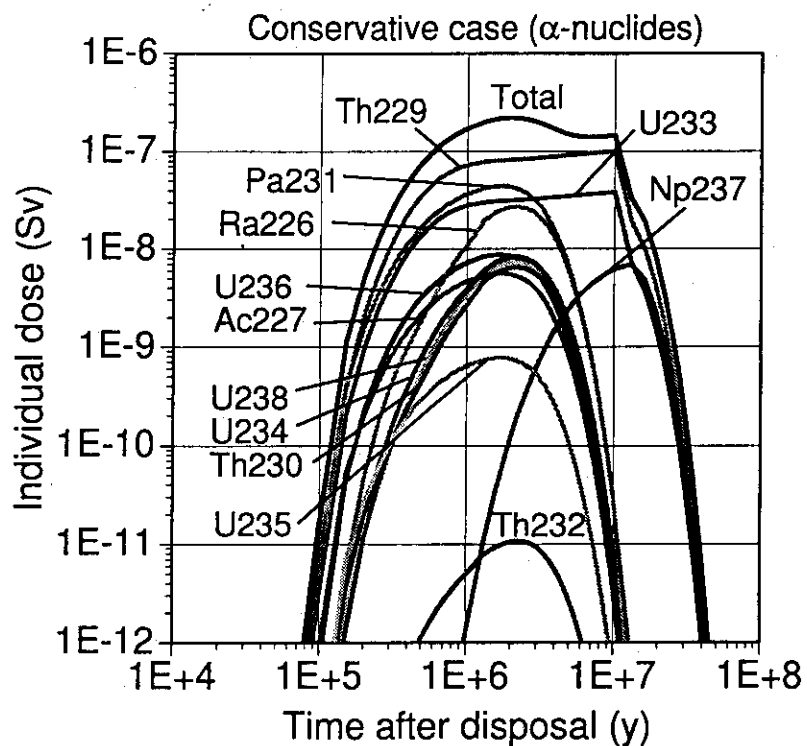


図 5-21b 保守的な仮定を用いた場合の α 核種からの個人被曝線量

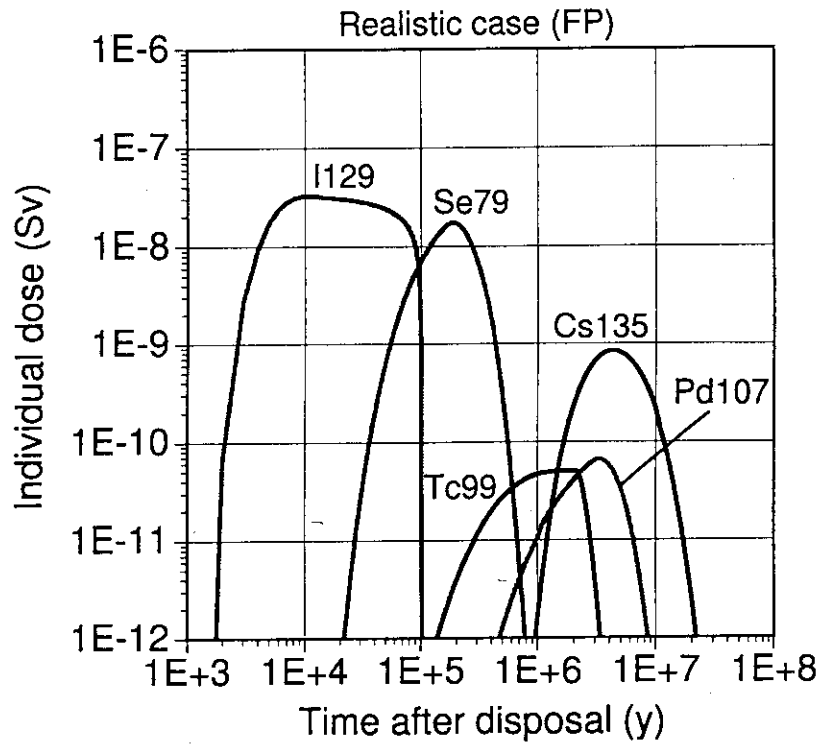


図 5-22a 現実的な仮定を用いた場合のFP核種からの個人被曝線量

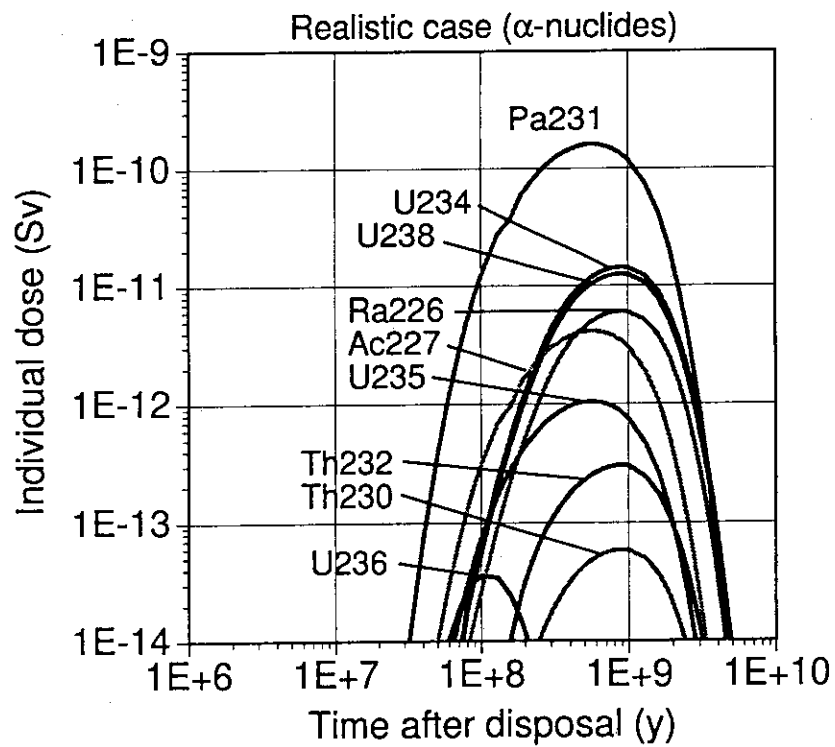


図 5-22b 現実的な仮定を用いた場合の α 核種からの個人被曝線量

[公表した成果]

1. H. Kimura, S. Muraoka, :Numerical Model of Radionuclide Migration in Geologic Media, J. Nucl. Sci. Technol., 20(6) pp503-510, (1983).
2. H. Kimura, S. Muraoka, :The 3D-SEEP Computer Code User's Manual, JAERI-M 86-091, (1986).
3. T. Banba, T. Murakami, H. Kimura, :The Leaching Behavior of A Glass Waste Form - Part III : The Mathematical Leaching Model, Nuclear Technology, vol.76 pp84-90, (1987).
4. H. Kimura, :The 2D-SEEP Computer Code User's Manual, JAERI-M 88-132, (1988).
5. H. Kimura, :Mixed Finite Element Simulations in Two-Dimensional Groundwater Flow Problems, J. Nucl. Sci. Technol., 26(7) pp 689-697, (1989).
6. 山下亮、木村英雄、:亀裂ネットワークにおけるマトリックス拡散を考慮した物質移行解析、土木学会論文集、412/III-12 pp69-77, (1989).
7. H. Kimura, A. Isono, :Sensitivity analysis of radionuclide transport model using the Differential Algebra method, The First International Conference on Supercomputing in Nuclear Applications (SNA '90), (1990).
8. R. Yamashita, H. Kimura, :Particle-Tracking Technique for Nuclide Decay Chain Transport in Fractured Porous Media, J. Nucl. Sci. Technol., 27(11) pp1041-1049, (1990).
9. H. Kimura, A. Isono, :SENSITIVITY ANALYSIS OF GROUNDWATER FLOW MODEL USING THE DIFFERENTIAL ALGEBRA METHOD, Validation of Geosphere Flow and Transport Models (GEOVAL-1990), (1990).
10. H. Kimura, M. Munakata, :Analysis of Tracer Movement in Single Fracture in Granite Core (INTRAVAL Case 2), J. Nucl. Sci. Technol., 28(12) pp1115-1127, (1991).
11. H. Matsuzuru, H. Kimura, :METHODOLOGY OF SAFETY ASSESSMENT FOR RADIOACTIVE WASTE DISPOSAL, The Third International Symposium on Advanced Nuclear Energy Research-Global Environment and Nuclear Energy-, (1991).
12. H. Kimura, :The MIG2DF Computer Code User's Manual, JAERI-M 92-115, (1992).
13. H. Kimura, T. Takahashi, S. Shima, H. Matsuzuru, :A Generic Safety Assessment Code for Geologic Disposal of Radioactive Waste:GSRW Computer Code User's Manual, JAERI-M-92-161,(1992).
14. H. Kimura, M. Munakata, :Validation studies of tracer tests in a fracture zone at the Finnsjon research area, Advances in Water Res. 15, pp63-74, (1992).
15. T. Murakami, H. Kimura, :A Modelling Study of the Effect of Rock Alteration on the Redistribution of Uranium, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVI, vol. 294 pp535-542, (1993).
16. H. Kimura, T. Takahashi, H. Matsuzuru, :Methodology for Safety Assessment of Geologic Disposal of High-level Radioactive Waste, ASME High Level Radioactive Waste and Spent Fuel Management Vol. 2 pp737-745, (1993).
17. H. Kimura, T. Takahashi, S. Shima, H. Matsuzuru, :Safety and Sensitivity Analyses of a Generic Geologic Disposal System for High-Level Radioactive Waste, JAERI-Research 94-028, (1994).
18. H. Kimura, T. Takahashi, S. Shima, H. Matsuzuru, :Methodology of Safety Assessment and Sensitivity Analysis for Geologic Disposal of High-Level Radioactive Waste, J. Nucl. Sci. Technol., 32(3), pp206-217, (1995).

19. H. Kimura, T. Takahashi, S. Shima, H. Matsuzuru, :Sensitivity Analysis of Geologic Disposal of High-Level Radioactive Waste for Conceptual Geologic Media, J. Nucl. Sci. Technol., 32(5), pp439-449, (1995).

参考文献

- (1) Chambre', P. L., et al., LBL-14842, UC-70, (1982).
- (2) Pigford, T.H., Chambre', P. L., : Near-field Mass Transfer in Geologic Disposal Systems : A Review, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 112, pp125-141, (1988).
- (3) Pigford, T. H., et al., LBL-11616, UC-70, (1980).
- (4) Harada, M., et al., LBL-10500, UC-70, (1980).
- (5) Andersson, P., :Tracer experiments in a fracture zone at Finnsjon research area - INTRAVALE test case description, Swedish Geological Co., IRAP 87354, (1987).
- (6) Andersson, J. E. et al., : Hydraulic interface tests and tracer tests within the Brandan area, Finnsjon study site, SKB Technical Report 89-12, (1988).
- (7) Andersson, P. et al., :Dipole tracer experiment in a low-angle fracture zone at the Finnsjon site, central Sweden -Experimental design and preliminary results, Swedish Geological Co., IRAP 90206, (1990).
- (8) Gustafsson, E. et al., :Radially converging tracer experiment in a low-angle fracture zone at the Finnsjon site, central Sweden, Swedish Geological Co., IRAP 88313, (1988).
- (9) Berz, M., : Differential Algebraic Description of Beam Dynamics to Very High Orders, SSC-152, LBL (1988).
- (10) 佐藤、渡辺、 : 岩盤の透水性に与える種々の Crack 性状の影響、埼玉大、地盤水理年報、Vol.4, pp104-118, (1978) .
- (11) SKI, SKI Project-90, SKI Technical Report 91:23, (1991).
- (12) Wolery, T. J., UCRL-52658, (1979).
- (13) Parkhurst, D. L. et al., U.S. Geol. Surv., NTIS PB 81-167801, (1980).
- (14) SKB, SKB91, SKB TR 92-20, (1992).
- (15) Eikenberg, J., PSI-Bericht Nr. 74, (1990).

おわりに

原子力施設から発生する放射性廃棄物の処理処分に関する研究については、平成6年に原子力委員会が策定した「原子力の研究、開発及び利用に関する長期計画」により、放射能レベル、放射性物質の種類等の多様性を十分踏まえた適切な区分管理と、区分に応じた合理的な処理処分に必要な研究開発を着実に進めるとの基本的考え方が示されている。これを受け、平成7年に原子力安全委員会が策定した「放射性廃棄物安全研究年次計画（平成8年度～12年度）」においては、放射性廃棄物の処分に係る各種基準等の整備、安全評価における安全裕度の定量的把握等を目的として、放射性廃棄物の処理処分に係る安全研究を長期的視点に立って計画的且つ総合的に推進するとしている。

原研では、国の定める各種の安全研究年次計画に沿い、我が国における核燃料サイクル施設の操業計画と整合を採りつつ、広範な安全性試験研究を実施してきた。

本報告書は、高レベル放射性廃棄物地層処分にに関する研究について、環境影響解析研究室、人工バリア研究室、天然バリア研究室、地質環境研究室の成果をまとめ、集大成したものである。これらの成果は、高レベル放射性廃棄物のみならず、TRU廃棄物、研究所廃棄物等の地層処分の実施においても有効であり、今後も広い視野で研究を進めて行く所存である。

なお、本報告書のまとめは、編集の任を得て、木村英雄、上菌裕史、熊田政弘、大貫敏彦が、また、事務局として今井美江子が当たった。