

動燃における安全研究の成果
(昭和61年度～平成2年度)
(高レベル廃棄物処分分野)

1992年4月

動力炉・核燃料開発事業団

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団

技術協力部 技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to: Technical Evaluation and Patent Office, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 9-13, 1-chome, Akasaka, Minato-ku, Tokyo 107, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)1995

動燃事業団における安全研究の成果
(昭和61年度～平成2年度)
(高レベル廃棄物処分分野)

安全研究委員会

要 旨

本報告書は、平成2年度までの高レベル廃棄物処分に係わる安全研究の5年間の成果について、とりまとめを行なったものである。

高レベル廃棄物処分分野の安全研究として、(1)人工バリアに係る研究、(2)天然バリアに係る研究、(3)総合安全評価に係る研究、が実施された。

本報告書は、上記3分野の研究に、「TRU廃棄物の安全性評価に関する研究」を加え、「動燃における安全研究の成果（昭和61年度～平成2年度）（高レベル廃棄物処分分野）」として、とりまとめを行なった。

目 次

1. 高レベル廃棄物処分の安全研究成果の概要	2
2. 個別研究課題ごとの研究成果	3
1) 人工バリアに係る研究	
① 地層処分施設の耐震性に係る信頼性評価に関する研究	4
② オーバーパック, 緩衝材等の人工バリア材料性能の信頼性評価に関する研究	6
③ 人工バリアシステム性能の信頼性評価に関する研究	9
④ 人工バリアに係るナチュラル・アナログ研究	11
2) 天然バリアに係る研究	
① 天然バリアへの核種吸着特性評価に関する研究	14
② 天然バリアの熱的・力学的・水理学的特性の信頼性評価に関する研究	17
③ 天然バリアに係るナチュラル・アナログ研究	20
3) 総合安全評価に係る研究	
① 地層処分システム性能の信頼性評価に関する研究	23
4) TRU核種を含む放射性廃棄物に係る研究	
① TRU廃棄物処分システム性能の信頼性評価に関する研究	26

はじめに

動燃事業団における安全研究は、近年、原子力安全委員会の定める安全研究年次計画（昭和61年度～平成2年度）に基づき、プロジェクトの開発と密接なかかわりを持ちつつ推進しており、現在も引き続き安全研究年次計画（平成3年度～平成7年度）（以下、「年次計画」という。）に基づき実施している。

本報告書は、前「年次計画」の区切りである平成2年度末までの5年間の成果について、「年次計画」の趣旨に従って研究成果の集約・とりまとめを行なったものである。

高レベル廃棄物処分分野の安全研究としては、

- (1) 人工バリアに係る研究
- (2) 天然バリアに係る研究
- (3) 総合安全評価に係る研究

の3分野の研究が実施された。さらに、「年次計画」においては、長期間の隔離を要するとの観点で高レベル廃棄物と類似性を有するTRU廃棄物に関する研究課題も含まれているので、本報告書では、この分野の研究も合わせて「動燃における安全研究の成果（昭和61年度～平成2年度）（高レベル廃棄物処分分野）」とし、研究成果の概要と個別研究課題ごとの報告書とで構成した。

1. 高レベル廃棄物処分の安全研究成果の概要

高レベル廃棄物処分分野の安全研究として、(1)人工バリアに係る研究、(2)天然バリアに係る研究、(3)総合安全評価に係る研究が実施された。また、TRU廃棄物に係る研究も実施された。以下にこれら4分野それぞれの研究成果の概要を記す。

(1) 人工バリアに係る研究

地層処分施設の耐震性に係る信頼性に関し、地下深部における地震特性を実測把握するとともに、人工バリア材の基本特性に関し、オーバーパック材の腐食、緩衝材等の水理・熱特性等の把握、及び緩衝材中の核種移行挙動の試験、ガラス固化体の浸出挙動について実固化体および模擬固化体を用いた試験をそれぞれ進め、人工バリアシステムの基本性能の確認及び性能評価のモデル化に資した。なお、ここで得られた知見は、性能評価研究施設の設計並びに試験方法・試験条件の設定等に反映された。

(2) 天然バリアに係る研究

天然バリアの核種吸着の基本特性につき岩石への吸着試験等により把握し、また天然バリアの力学的・水理学的特性について既存坑道等で実測した。また、東濃鉱山天然ウラン鉱床の試料あるいは火山ガラス、土壤中に埋設された金属試料を分析して天然バリア及び人工バリアについてのナチュラルアナログ研究を行い、それらの長期的安定性に関する挙動把握を進め、長期性能評価のモデル化に資した。

上記の研究により、天然バリアの吸着機構を考慮した長期閉じ込め性能評価のモデル化に資するデータが蓄積された。

(3) 総合安全評価に係る研究

ニアフィールド総合性能評価モデル「AREST-PNC」を開発し、コーディングを行なった。また、このモデル等を用いて解析を実施して人工バリア及び天然バリアの性能の概括的評価を行い、地層表面への核種移行の機構についての知見を得た。

(4) TRU廃棄物に係る研究

TRU廃棄物固化体の浸出挙動を把握するとともに、TRU核種の人工バリア、天然バリア中での移行挙動に関し、核種放出に対する感度解析を行った。また、ベントナイト中でのPuの拡散係数を取得した。

2. 個別研究課題ごとの研究成果

前記1.では、4つの分野における研究成果の概要を記した。本章では、これら分野の個別課題ごとの研究成果について記載する。各分野における個別研究課題は以下に示すとおりである。

1) 人工バリアに係る研究

- ① 地層処分施設の耐震性に係る信頼性評価に関する研究
- ② オーバーパック、緩衝材等の人工バリア材料性能の信頼性評価に関する研究
- ③ 人工バリアシステム性能の信頼性評価に関する研究
- ④ 人工バリアに係るナチュラル・アナログ研究

2) 天然バリアに係る研究

- ① 天然バリアへの核種吸着特性評価に関する研究
- ② 天然バリアの熱的・力学的・水理学的特性の信頼性評価に関する研究
- ③ 天然バリアに係るナチュラル・アナログ研究

3) 総合安全評価に係る研究

- ① 地層処分システム性能の信頼性評価に関する研究

4) TRU核種を含む放射性廃棄物に係る研究

- ① TRU廃棄物処分システム性能の信頼性評価に関する研究

地層処分施設の耐震性に係る信頼性評価に関する研究

環境技術開発推進本部 新見 健

I. 研究目的

地下における地震の影響を評価し、処分場の地震に対する信頼性を評価するとともに、地層処分システムの設計・性能評価に反映する。

II. 概要

1. 研究内容の概要

- i) 地下における地震の加速度・波形を観察し、深さと地震加速度の大きさの関係を明らかにするとともに、岩盤内の地震の影響を解析する。
- ii) 地震加速度と岩盤条件との関連性を示し、耐震モデルの作成に反映する。
- iii) 原位置における観測と室内実験により、地震の影響を評価する。
- iv) 地層処分システムの耐震設計を試行する。

2. 得られた成果の概要

- i)
 - ① 宮城県細倉鉾山における地震観測記録を解析した結果、地下深部では地表に比べ加速度で約1/2減少していることが分かった。
 - ② 結晶質岩のモデル地区岩手県釜石鉾山に地震計、地下水流量計、間隙水圧計を設置し観測を開始した。地震観測記録の解析により地中での加速度の減少を確認した。
- ii) 地震波の評価モデルとして、重複反射理論を適用し、母岩の物性を考慮し解析した結果、深度依存した地震動特性をシミュレーションすることができた。
- iii) 細倉鉾山に設置した間隙水圧計の地震時における挙動を解析した結果、地震時に間隙水圧が増加するが、その影響は一過性であることがわかった。
- iv) 細倉鉾山、釜石鉾山での地震観測結果、並びに地下地震動に関する既往文献調査により、地下深部における耐震設計入力地震動に関する基礎的資料を集積した。想定している地層処分システムを対象として、処分空洞の地震時安定性の試算を実施した。

III. 研究内容

- i) 宮城県細倉鉾山（凝灰岩，昭和63年度まで），岩手県釜石鉾山（花崗岩，平成元年度より）にそれぞれ地震観測アレー網を設置し，地震加速度波を取得するとともに特性を考察した。
- ii) 上記の場で得られた地震波を解析するための理論及び岩盤モデルについて研究し，一部解析を実施した。
- iii) 地震による地下水の影響を研究するために，細倉鉾山に間隙水圧計を，釜石鉾山に水量計と間隙水圧計をそれぞれ設置し，観測を実施し，地震との関係を考察した。
- iv) 地層処分システムのうち，地下空洞の耐震性を評価する目的で，耐震設計手法について調査し，試算を実施した。

IV. 研究成果

i)

- ① 堆積岩のモデル地区宮城県細倉鉾山の地下約 400mまでの深度に設置し立体アレー観測システムによる地震観測記録を解析した結果、地下深部では地表に比較し、加速度で約 1/2 減少していることがわかった。
- ② 堆積岩中における地震波特性として、地下のスペクトル形状が地上に比べ平坦であること、地震力の衰減は震源距離の短い地震ほど大きくなっていることが明らかとなった。
- ③ 結晶質岩のモデル地区、岩手県釜石鉾山の地下約 550mまでの深度に設置した立体アレー観測システムによる地震観測記録を解析した結果、堆積岩地区と同様、地中での地震加速度の減少が確認された。

ii) 非均質地盤の波動特性を解析する方法として、重複反射理論及び任意の形状の問題に適用できる境界要素法を導入し、細倉鉾山で観測された測定結果のシミュレーション計算を実施し、地中での振幅低減の要因を分析した。

- ① 重複反射理論を用いた層状モデルにおいて地震波動の特性が再現できることが確認できた。
- ② 振幅低減の要因として
 - ・ 低周波成分が地表面近くでcosin 曲線状モードを形状し、増幅されるとともに、深さ方向に急激に減衰する。
 - ・ 地表面の局所的な形状に伴って、表面波が生じ、地表面近くで増幅されることがわかった。

iii) 細倉鉾山に設置した間隙水圧計の地震時における記録を分析した結果、

- ① 地震時における間隙水圧の増加が観測された。これは地震力による岩盤内応力が変化し、岩盤内の地下水圧を変化させると推定された。
- ② 今回の地震規模 (M5.8) では、一度上昇した間隙水は、地震終了後、平常時の圧力が回復した。このことから影響は一過性であり、岩盤応力の変化は弾性限度内であることが推定される。

iv) 従来地下空洞の耐震性検討に用いられている手法について調査した。

- ① 地下深部での地震の影響は小さいとの通説から、これまで重要構造物についてのみ耐震性が評価されている (地下発電所、石油地下備蓄施設等)。
- ② 評価方法は、静的震度法、応答変位法、及び動的解析法があり、いずれも入力地震動の特性に依存する。
- ③ 地下1,000 mの空洞を仮定し、応答変位法により解析を実施した結果 (入力地震動は地表で 450gal, 重複反射理論で深部基盤面に逆合成, 母岩は花崗岩), 地震時の岩盤応力の増加は通常時の約10%程度であることが求められた。

オーバーパック、緩衝材等の人工バリア材料性能の 信頼性評価に関する研究

東海・環境技術開発部 石川 博久

I. 研究目的

オーバーパック、緩衝材、埋め戻し材、グラウト材等の人工バリアの信頼性評価を行う。また、施行技術について信頼性評価を行う。

II. 概要

1. 研究内容の概要

- i) オーバーパック候補材である金属材料に対して、処分想定される環境条件をパラメータに腐食試験を実施し長期的な健全性を評価し、その材料の信頼性評価を行う。
- ii) 緩衝材、シール材、プラグ材の候補材であるベントナイトについて、基本特性の評価試験を行いそれらの適用性を評価するとともに、材料の信頼性評価を行う。
- iii) 処分環境下におけるベントナイトの変質挙動に関する試験を行い、長期的な健全性の評価を行う。

2. 得られた成果の概要

- i) オーバーパックの候補材として炭素鋼については、腐食挙動に影響を与える因子として、溶存酸素濃度、温度、陰イオン濃度をパラメータとした試験及び圧縮ベントナイト中での腐食試験を実施した。その結果、溶存酸素濃度が低い場合及び圧縮ベントナイト中では、炭素鋼の腐食速度は非常に小さいことがわかった。温度及び陰イオン濃度の違いによる腐食速度の差は大きくなかった。チタンについては、隙間腐食の発生限界条件を長期浸漬試験及び電気化学試験から求めた。
- ii) 緩衝材、シール材、プラグ材に関する基本特性として、候補材となる国産ベントナイトについて鉱物組成、膨潤圧、水分拡散係数、透水係数、陽イオン交換容量、圧縮強度、熱伝導率等を測定し比較検討した。その結果、Na型の国産ベントナイトで良好な性能を持つことがわかった。
- iii) 緩衝材の処分環境下における長期安定性を評価するために、ベントナイトの変質に及ぼす因子である温度、カリウム濃度の影響を評価する試験を実施した結果、400℃以上及びカリウム濃度5,000ppm以上ではイライト化が見られたが、180℃以下、100ppm以下ではほとんど変質が見られなかった。

III. 研究内容

- i) オーバーパック候補材である金属材料について、炭素鋼及びチタンの腐食試験を実施した。炭素鋼については、腐食に影響ある因子として、陰イオン、温度、溶存酸素濃度等をパラメータに試験を行い、さらに処分条件に近い環境として圧縮ベントナイト中での腐食試験を実施した。チタンについては、処分環境で局部腐食の中で一番起こりやすいと考えられる隙間腐食についてその発生条件をNaCl濃度及び温度をパラメータとして電気化学試験及び浸漬試験により測定した。

- ii) 緩衝材, シール材, プラグ材の候補材であるベントナイトについて, 基本特性として鉱物組成, 膨潤特性, 水理特性, 熱特性等の評価試験を行い, 各種国産及び海外産ベントナイトの特性を比較評価し, 適正及び信頼性を評価した。
- iii) 処分環境下におけるベントナイトの変質挙動を評価するために, 加速的な条件でベントナイトのイライト化に関する評価試験を実施し, 長期的な健全性の評価を行った。

IV. 研究成果

- i) オーバーパックスの候補材である炭素鋼について, 腐食挙動に影響のある因子の評価試験を実施した。

陰イオンの種類及び濃度をパラメータとした試験においては, 陰イオンの種類及び濃度に依らずほぼ一定の腐食速度を示した。

温度をパラメータとした試験では, 80℃付近が腐食速度として最大値を示すものの50℃以上の温度では腐食速度に大きな差異はみられず, 処分場で想定される温度範囲(100℃以下)においては, 腐食速度に対する温度の影響は小さいことが認められた。

試験液中の溶存酸素濃度をパラメータとした試験では, 溶存酸素の低下とともに腐食速度は顕著に低下し, 純窒素を液中に吹き込み脱気した系では, 大気平衡液に比べ腐食速度は2桁程度低かった。

溶存酸素濃度をパラメータとした試験において, 自然浸漬電位及び分極特性の測定を実施した。溶存酸素が低い条件では, 自然浸漬電位が経時的に変化し時間とともに高くなる傾向がみられた。一方, 大気条件下では, このような自然浸漬電位の変化はみられなかった。これは, 試験片表面の腐食生成物の生成状況に伴う変化と考えられる。

ベントナイト中の炭素鋼の腐食試験としては, 圧縮ベントナイト中の腐食試験とベントナイトスラリー(ベントナイト粉末と水溶液を混合した系)中での腐食試験を行い, ベントナイトの影響を評価した。その結果, ベントナイトスラリー中に比べ, 圧縮ベントナイト中では腐食速度は著しく低下した。これは, 圧縮ベントナイト中では, 腐食に寄与する酸素の拡散が抑制され腐食速度が低くなるものと考えられる。また, ベントナイトスラリー中と溶液中の腐食速度の比較では, ベントナイトスラリー中の方がやや腐食速度が大きい。これは, ベントナイトと試験片との間の接触状態またはベントナイトスラリーの不均質性に起因するものと考えられる。

チタンの隙間腐食については, 隙間腐食が発生する臨界条件を求めるために, 温度及びNaCl濃度をパラメータとして試験した。材料としては, 工業用純チタン及び(ASTM)G12チタンの2種類を用い加速的な条件も考慮して温度は最大250℃, NaCl濃度は最大10%まで試験した。試験方法は, 電気化学的方法である再不動態化法と, 浸漬試験の2つで評価し比較した。

隙間腐食の発生条件で比較すると, (ASTM)G12チタンの方が工業用純チタンに比べ隙間腐食が発生しにくいことが認められた。電気化学試験と浸漬試験結果の比較では, NaCl濃度が低い領域では両者の隙間腐食発生条件は良い一致をみたが, 高濃度側では電気化学試験の方が隙間腐食発生臨界条件が低い値を示した。

一般に温度が低くなると, 浸漬試験で隙間腐食が発生するまでの時間が長くなると言われており, より長期の試験で確認する必要があるが, 保守側の値としては電気化学試験で求めた隙間腐食発生臨界条件が妥当と考えられる。

- ii) 国産ベントナイト7種類, 米産ベントナイト1種類の計8種類について, 基本特性の評価試

験を行った。

鉱物組成や不純物の分析の結果、国産ベントナイトは緩衝材として不適當な程度に多くの不純物を含むものはなく、陽イオン交換容量でもても良好な値を示した。

膨潤特性では、Na型ベントナイトがCa型ベントナイトに比べ良い膨潤性能を示し、亀裂等のシール効果が高いことが認められた。

水理特性としては、水分拡散係数及び透水係数について、ベントナイトの種類でやや差はあるものの、米国産ベントナイトと並ぶ低透水性の国産ベントナイトがある。

圧縮強度やベントナイトが吸水または乾燥した場合の状態を考慮して、締め固め試験及びコンシステンシー限界の測定を実施した。その結果、圧縮ベントナイト成型時の含水比や締め固め圧力を適正に設定することにより、良好な性能を持つ圧縮ベントナイトを成型することが可能であることがわかった。

熱特性としては、ベントナイトとケイ砂の混合比を変えて熱伝導率の測定を行った。ケイ砂の混合比が大きい程熱伝導率は大きいですが、国産ベントナイトでケイ砂を混合しなくても十分な熱伝導率を持つ圧縮ベントナイトが認められた。

iii) 処分環境下における緩衝材の長期安定性を評価するために、ベントナイトの変質について試験し評価した。

ベントナイトの変質の中で、特に処分環境下で考えられるのはイライト化であるが、一般にイライト化が起こる要因としては、カリウムイオンの寄与及び熱（温度）の影響が挙げられる。したがって、加速的条件として高温及び高カリウム濃度での変質試験を実施し、それらの因子がイライト化に及ぼす影響を評価した。その結果 400℃以上及びカリウム濃度5000ppm 以上では、比較的短時間で顕著なイライト化が観察されたが、低温（180℃以下）、低濃度（100ppm以下）条件ではほとんどイライト化の徴候は認められなかった。

人工バリアシステム性能の信頼性評価に関する研究

東海・環境技術開発部 油井三和

I. 研究目的

人工バリアの地層処分環境下における試験を実施し、人工バリア相互間及び人工バリアと天然バリアの相互影響を評価し、設計、性能の信頼性評価に資する。

II. 概要

1. 研究内容の概要

- i) 廃棄物の定置により、処分環境条件が変化を受けるニアフィールド（処分場近傍）環境下で、放射性核種が長期的に人工バリアから浸出、移行する現象、機構を把握する。
- ii) ガラス固化体／オーバーパック／緩衝材の複合実験系について、熱、応力、放射線等の影響因子を考慮した解析オーバーパック原位置試験を行う。
- iii) 実廃液を用いたガラス固化体の性能試験及びガラス固化体の性能向上に関する基礎的研究を行う。

2. 得られた成果の概要

- i) ベントナイト（緩衝材）中の核種の移行試験を行った。その結果、次のことがわかった。
①ベントナイトの密度を大きくすると拡散は遅くなった。②実高レベルガラス固化体を用いた試験では、ベントナイトを共存させた方が共存しない場合より浸出量が少なかった。③Amの拡散速度は実高レベルガラス固化体を用いた実験とR Iを用いた場合とで大きな差はなかった。④粗製ベントナイトと精製ベントナイトの2種類のベントナイトで実験した結果、どの核種も粗製ベントナイトの方が拡散速度が速かった。⑤人工海水及び蒸留水では、人工海水の方が拡散速度が速かった。⑥鉄共存下での ^{99}Tc の拡散試験では、共存した場合の方が拡散速度が遅かった。
- ii) 模擬ガラス固化体及び実高レベルガラス固化体を用いた浸出試験を行い、ガラス固化体の浸出特性に及ぼす種々の環境因子の影響を明らかにした。また、実高レベルガラス固化体からのPu, Amの浸出挙動をP H R E E Q Eコード及び一次反応式を用いて評価し、浸出反応における支配的な生成化学種等を同定することができた。
- iii) 再処理工場高レベル放射性廃液ガラス固化体の浸出特性等の物性は、模擬ガラス固化体の物性と同等であることを確認した。ガラス固化体組成の多少の変動はガラス固化体の物性にほとんど影響しないことを確認した。

III. 研究内容

- i) 緩衝材（ベントナイト）中での放射性核種の拡散試験を実施し、 ^3H , ^{90}Sr , ^{99}Tc , ^{129}I , ^{137}Cs , ^{237}Np , ^{241}Am 等のみかけの拡散係数をベントナイト密度をパラメータとして求めた。また、実高レベルガラス固化体を用いて拡散試験を実施し、放射性核種を用いた試験結果と比較した。さらに、ベントナイト種をかえて、人工海水系及び蒸留水系での試験、並びに ^{99}Tc について鉄含有による影響についても調べた。

- ii) ガラス固化体の浸出特性に及ぼす種々の環境因子の影響を、模擬ガラス固化体、実ガラス固化体を用いた浸出試験により、評価、解析を行った。実ガラス固化体からのPu, Amの浸出挙動の評価には、PHREEQEコードによる計算及び一次反応式を用いた。さらに緩衝材（ベントナイト）共存下での試験を行い、ベントナイトの共存の影響を調べた。
- iii) 再処理工場高レベル放射性廃液の組成分析、ガラス固化試験及び作製したガラス固化体の物性評価試験を行った。

IV. 研究成果

- i) ベントナイト（緩衝材）中の核種の拡散試験を行った。 ^3H , ^{90}Sr , ^{99}Tc , ^{129}I , ^{137}Cs , ^{237}Np , ^{241}Am 及び実高レベルガラス固化体を用いてベントナイト密度をパラメータとして実施した。その結果、①ベントナイト密度を大きくするとみかけの拡散係数は、小さくなる傾向がみられた。②実高レベルガラス固化体を用いて得られたAmの拡散係数は、単核種を含むRIを用いてそれと一致した。

粗製ベントナイト（クニゲルV1）と精製ベントナイト（クニピアF）による拡散係数の違いを調べた。その結果、粗製ベントナイト中での拡散の方が速かった。

鉄含有の影響を調べるために、鉄共存下での ^{99}Tc の拡散試験を実施した。その結果、鉄含有がない場合より一桁小さい拡散係数が得られた。

- ii) ガラス固化体の浸出特性に及ぼす種々の環境因子の影響を評価するため、模擬ガラス固化体を用いて浸出試験を行った。その結果、温度、地下水流速、溶液中のSi濃度、pH等に浸出特性は依存することがわかった。また、圧力については、ガラスの浸出特性に大きな影響を与えないこともわかった。さらに、大型ガラス固化体を用いた浸出試験を行った結果、固化体に内在するクラックやスケール効果が全体の浸出挙動に及ぼす影響は少ないことがわかった。

実ガラス固化体を用いた浸出試験では、緩衝材の候補材の1つであるベントナイトを共存させた系で放射性核種の浸出特性を評価した。その結果、浸出液中での $^{238+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{244}Cm は浸出液中の量に比べ、ベントナイトに吸着した量の方が大きく、 ^{144}Ce , ^{154}Eu , ^{156}Eu は浸出液中の量、ベントナイト吸着量に比べ、ガラス表面に生成した皮膜中に最も多く存在することがわかった。

また、MCC-3法による浸出試験で飽和に達した時のPu, Amの濃度を試験条件を加味し、PHREEQEコードで計算した結果、Puについては $\text{Pu}(\text{OH})_4(\text{aq})$, Amについては $\text{Am}(\text{OH})_3(\text{aq})$ が支配的であったことからガラス溶解におけるPu, Amの液中溶出濃度は、これらの化学種を生成する一次反応によって支配されていると考えられる。

- iii) 再処理工場高レベル放射性廃液を用いて作製した実ガラス固化体について、浸出特性等の物性評価試験を実施した。その結果、浸出特性等の物性は模擬ガラス固化体の物性とはほぼ同等であった。また、実ガラス固化体の組成が多少変動しても物性にほとんど影響しないことを確認した。

人工バリアに係るナチュラル・アナログ研究

東海・環境技術開発部 亀井玄人

I. 研究目的

人工バリアの性能を評価する上で有益な地層処分と類似の自然現象に関する調査・研究を行い、長期にわたる人工バリア性能の信頼性評価に資する。

II. 概要

1. 研究内容の概要

- i) 天然ガラス（黒耀石、玄武岩質ガラス等の火山性ガラス）について、温度、水分、地質等の異なる環境下における存在状況等の調査検討を行う。これら天然ガラスと廃棄物含有ホウケイ酸ガラスとについて水に対する浸出メカニズム、表面変化層の形成とその組成変化、各元素の浸出率、ガラスとしての安定性等に関して比較研究を行い、両者の類似点、相違点を明らかにすることにより、廃棄物含有ガラス固化体の長期にわたる変化プロセスを解明し、その安定性の評価に役立てる。
- ii) 廃棄物パッケージを構成する各種金属（鉄、銅等）の長期にわたる腐食の要因、プロセス、メカニズム等の検討を行うため、鉄鉱床、銅鉱床等についての類似の地質現象のほか、鉄剣・銅鐸等の歴史的出土品の保存状況についての調査・検討を行う。
- iii) ベントナイト等の緩衝材の長期安定性等の性能評価を行ううえで、ベントナイトと水の化学反応、温度の影響についての検討が重要である。このため、粘土質岩の続成作用、地下温度上昇にともなう粘土質岩の変質等の類似の地質現象について研究する。

2. 得られた成果の概要

- i) 火山ガラスを調査・研究した結果、①変質速度は水質に依存しない。②ガラスの SiO_2 濃度の高いものほど、変質速度が小さい、ということがわかった。また、玄武岩質火山ガラスと廃棄物ガラスの予備的な浸出実験の結果、変質速度や変質物も同様であり、変質メカニズムも似ていると考えられる。
- ii) 土壤中での金属の腐食については、環境条件の影響が大きいことがわかった。また、ベントナイト中での腐食環境は、粘土土壌と類似している事がわかった。数十年～百年間、土壤中に埋設された鉄管等の腐食状態と環境条件についてデータを取得した。
- iii) イライト化変質の条件として、① 240万年以上の期間で② 250～100℃程度の温度条件下で③海水に比較的類似した水質条件（たとえば K^+ は数100ppm）下で、40%程度しかイライト化変質がおこらなかった。これらに基づき処分環境のような温度条件下ではイライト化変質はきわめて起こりにくいであろうと推定された。

III. 研究内容

- i) 変質期間 280年から 45000年に及ぶ天然ガラス（主として玄武岩質火山ガラス）を対象として、①変質層の厚さから変質速度を求め、②変質層の構成物質を決定し、③変質の環境条件（温度、水質の変速）を気候データ等から推定した。また、予備的室内浸出比較試験を行い、廃棄物ガラ

スと火山ガラスの浸出挙動の類似性を確認した。

- ii) 金属の土壤中での腐食について文献調査を行った。ベントナイト中での腐食環境を対比試験により実測した。長期間（数十年～百年）土壤に埋設されていた金属材料（鉄管等）の掘上げ調査を行い、腐食速度及び形態、生成物、埋設環境を測定、評価した。
- iii) 火成岩体がベントナイト層に貫入し、岩体の周辺がイライト化している事例を地質学的、地球化学的手法により調査した。地質調査、X線回析分析により、ベントナイト層や貫入岩体の分布と、イライト化の程度を把握し、放射年代測定と熱解析コードを用いた計算により、変質の温度、時間条件を推定した。全岩化学分析、安定同位体分析等により、イライト化に関与した水質を推定した。

IV. 研究成果

- i) 富士山や伊豆大島の火山ガラスの調査の結果、変質期間が2800程度までの試料では、地下水の水質がCa-HCO₃型であってもNa-Cl型であっても、変質速度は2～3 μm/1000y程度であることがわかった。

ガラスのSiO₂組成が64wt%程度のガラス（軽石）の変質速度は50～54wt%（スコリア）の1/10以下であった。このような差は、ガラスの水和自由エネルギーの違いで説明可能であることがわかった。

廃棄物ガラスと天然ガラスの浸出挙動の差を把握するために予備的な浸出試験を行った。その結果、両者の浸出速度の差は1桁以内におさまることがわかった。これらのことから、天然ガラスの長期変質事例の調査結果が、廃棄物ガラスの長期変質挙動予測のため、十分適用できるものと考えられた。

- ii) 土壤中での埋設鋼構造物の腐食事例では、数十年間での平均的な腐食速度は、多くの場合、0.05mm/y以下であること、また土壤環境因子の中で、埋設物または、金属プローブと土壤との電気的な関係を示す管対地電位、プローブ分極抵抗などと腐食量との相関が強いことがわかった。ベントナイト中での腐食環境は、一般土壤の中では、中性～弱アルカリの粘土土壤と比較的類似している事がわかった。

数十年～百年間土中に埋設されていた鉄・鋼管のサンプルについて調査した結果、粘土土壤中での最大孔食速度は約0.05mm/yとなり、環境条件（プローブ分極抵抗）からの推定値と比較的良く一致した。実測データから粘土土壤中腐食の評価式として、 $P(\text{mm}) = 0.213t^{0.74}$ （ t ：経過年、 P ：最大孔食深さ）の経験式が得られた。

- iii) 天然環境におけるスメクタイト（ベントナイトの主成分鉱物）のイライト化変質は①接触変成作用②続成作用③広域変成作用④熱水変質作用に伴って認められる。これらのうちで変質の期間をもっとも明瞭に把握できるという理由から①の事例、すなわち、ベントナイト層に火成岩体が貫入し、次第に冷却していく過程でベントナイトがイライトに変化した事例を選定、調査した。

火成岩体の冷却速度は、70°C/100万年と推定され、イライト化変質が40%程度進行した位置における熱履歴を、熱解析コードTRUMPによって計算した。その結果、この位置では250°Cから100°Cまで冷却するのに約240万年かかったことが推定された。イライト化変質の大部分が100°C以上の条件下で起こったとすると、250～100°C程度の条件下で240万年程度の期間に約40%のイライト化変質が起こったと結論づけられる。また、活性化エネルギーは約27kcal/molと見積もられた。このとき、ベントナイト層中に存在した水の組成が、岩石の化学組成やイライトの

水素及び酸素同位体分析(D/H, $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$)等の手法で推定され、特にイライト化変質を促進するとされる K^+ 濃度は数百ppm程度であって、海水に類似した組成をもっていたものと考えられた。

本研究で得られた活性化エネルギーの値に基づけば、処分環境のような温度条件下では、イライト化変質は数万年かかってもほとんど起こらないといえる。

天然バリアへの核種吸着特性評価に関する研究

中部・環境地質課 吉田 英一

I. 研究目的

地層処分における天然バリアと核種の相互作用に関する調査・試験を実施し、吸着機構を解明するとともに、長期的な天然バリアの閉じ込め性能の評価等に必要な基礎的データの収集・整備を行う。

II. 概要

1. 研究内容の概要

- i) 核種の深地層地下水中的での溶解度及び溶存状態、深地層中での鉱物化反応等の固定機構、岩石中への拡散及び岩石への吸着等についての基礎的研究を行う。
- ii) 各種の岩石を対象として、実験室内で非放射性核種及び放射性核種を用いた岩石-核種の相互作用に関する評価を行い、分配係数を測定するとともに、各種パラメータの影響を検討する。
- iii) 原位置での核種移行試験の方法を開発し、原位置及び室内における試験データの関連性について検討する。
- iv) 諸外国との国際協力及び大学等関係機関との研究協力を通じて、広範なデータの蓄積、評価解析を行う。

2. 得られた成果の概要

- i) ^{99}Tc について単一割れ目を持つ花崗岩での移行試験及び花崗岩の板状試料を用いた表面吸着試験（バッチ法）を実施した。その結果、遅延係数及び表面吸着係数は、バッチ法から得られた値の方が小さかった。
- ii) 実高レベルガラス固化体の溶出液等を用い、花崗岩、凝灰岩への吸着試験を実施した。また、 ^{137}Cs を用いて、種々の粒度の花崗岩に対する吸着量の経時変化及びアクチニドを用いた吸着試験を実施した。その結果、RIによる試験で得られた値と比較して、Cs, Puについてはほぼ同じであったが、その他のアクチニド元素については若干低い値を示した。Csの粒度依存性試験では、顕著な粒度依存は認められなかった。
- iii) ウラン鉱床と地下水のそれぞれのウラン濃度から化学平衡を仮定し、ウランの分配係数が $10^4 \sim 10^7 \text{ mg/l}$ と見積もられた。これは室内実験の結果に較べると大きい値を示す。
- iv) 大学関係者等の協力により、核種と岩石との相互作用に関する各種知見（吸着挙動、コロイド化学）を得、それらを取りまとめた。ベルギーモル研究所との共同研究において、Sr, Eu, Uの挙動について原位置試験及び室内試験を実施した結果、Srの拡散係数は、両者でよい一致を示し、またEuはほとんど移行しないことがわかった。Uの吸着は、粘土質中の有機物及びチタン酸化物に集中していることがわかった。

III. 研究内容

- i) 単一割れ目を持つ花崗岩を用いて、 ^{99}Tc の移行試験及び花崗岩の板状試料を用いて、表面吸着試験をバッチ法にて実施した。両試験から得られた遅延及び表面吸着係数を比較するとともに、

両者から求められる破過曲線を比較した。

- ii) 実高レベルガラス固化体の溶出液等を用い、花崗岩、凝灰岩への吸着試験を実施した。また、 ^{137}Cs を用いて種々の粒度の花崗岩に対する吸着量の経時変化及びアクチニドを用いての吸着試験を実施した。さらに、OECD/NEAのSDB (Sorption Data Base)を用いて、花崗岩類、玄武岩類、凝灰岩類、泥岩類について核種の分配係数を調査し、データセットとしてまとめた。
- iii) 原位置での核種移行試験の方法を開発し、原位置及び室内における試験データの関連性について検討した。
- iv) ベルギーモル原子力研究所との共同研究により、粘土質岩中におけるSr, Eu, Uについての移行挙動について解析・評価を行った。

また、大学関係者の協力を得て、FP, TRU核種などの分配係数・CECなどについての室内試験を行い、岩種・鉱物種などとの関係について考察した。

IV. 研究成果

- i) 単一割れ目を持つ花崗岩を用いて、 ^{99}Tc の移行試験を実施した。試験は、室温、大気下にて行った。試験期間が短期であったため、マトリックス拡散は起こっていないと仮定し、移流、分散、吸着の複合式で、遅延係数、表面吸着係数及び割れ目水中での分散係数を求めた。

その結果、割れ目水の流速 $3.7 \times 10^{-3} \text{ m/s}$ で、遅延係数約40、割れ目水中の分散係数約 $1.0 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$ 及び表面吸着係数約 $2.0 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2$ が得られた。この結果から遅延が認められた。この遅延には、解析状考慮していないマトリックス拡散あるいは割れ目表面への吸着があると考えた。

遅延に対する吸着の寄与を調べるために、花崗岩の板状試料を用いて、表面吸着試験をバッチ法にて実施した。試験は、先に述べたのと同条件にて実施した。

その結果、遅延係数及び表面吸着係数はそれぞれ約20及び $1.0 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2$ であり、移行試験と比較して約半分とバッチ法から得られた値の方が小さかった。

- ii) 実高レベルガラス固化体の溶出液を用い、花崗岩、凝灰岩への吸着試験を実施した。この試験から、Cs, Co, Pu, Am, Cmの分配係数が得られた。これらの多くの核種が共存する場合と、単一核種のみを含む場合について比較するためにRIトレーサを用いての吸着試験を実施した。その結果、Cs及びPuについてはほぼ同じであったが、その他のアクチニド元素については、実ガラス固化体の溶出液を用いた方が若干低い値を示した。

また、本試験において、核種の吸着現象に経時変化がみられた。この経時変化を内部拡散と仮定してCsについて数値計算により内部拡散の経時変化の評価を行った結果、分配係数が一定になるまでの試験期間と内部拡散が終了する時間がほぼ一致した。このことから、分配係数の時間依存性は内部拡散が寄与しているものと考えられる。

OECD/NEAのSDB (Sorption Data Base)を整理し、花崗岩類、玄武岩類、凝灰岩類、泥岩類について、核種の分配係数をまとめた。対象核種として、性能評価上重要と考えられている13核種についてまとめた。その結果、Csの分配係数が最もばらつきが大きく、吸着しやすい核種として、Am, Pu, Ra, Zr, Thが挙げられ、Se, Tc, Np, Uは吸着しにくい傾向であった。岩種の違いについては、泥岩が吸着しやすく、以下花崗岩、凝灰岩、玄武岩の順であった。また、PNCで得られたデータは、全体的にSDBデータより低い値であった。

- iii) 室内試験により、TRUなど9種類の核種に対する花崗岩・堆積岩に対する分配係数の値が得

られた。それによると、Uは $10^1 \sim 10^3$ mg/l, Thは $10^3 \sim 10^5$ mg/l, Npは $10^2 \sim 10^3$ mg/l, Puは $10^3 \sim 10^5$ mg/lである。

一方、堆積岩中の天然ウラン鉱床と地下水中のウラン濃度から化学平衡を仮定し、ウランの分配係数が $10^4 \sim 10^7$ mg/lと、上記実験より大きく見積もられた。この地下水は近くに炭質物が多量に存在することから考えてかなり還元性の性質を持っていると考えられる。

上記室内実験は酸化性の条件下で行われており、したがって還元性条件下では同一種類の同一岩種に対する分配係数は大きくなる可能性が高い。

iv) ベルギーのモルにあるベルギーモル原子力研究所と動燃事業団は、同研究所内にある原位置研究施設及び室内実験施設を利用して、粘土質岩における核種移行に関する試験を行っている。

^{85}Sr とEuについての原位置試験は以下の通り実施された。

- ① 粘土質岩中のコアを準備し、グローブボックス内でコア内にトレーサとしてSr・Eu核種を封入する。
- ② 地下で掘削した試錐孔内に、このコアを定置する。
- ③ 地下水がそのコア中を移動し、一定時間が経過したあと、コアを回収し、その放射能を測定する。
- ④ 移行に関するパラメータを計算し、モデルによる計算値と比較する。

結果は以下の通りであった。 ^{85}Sr については、その拡散係数値は $6.9 \times 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{s}$ であり、室内試験での値 $4.6 \times 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{s}$ ときわめてよい一致を示した。Euについては、ほとんど遅延せずに移行したのはごく一部であり、大部分は元の位置にとどまっていた(拡散係数： $1.5 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{s}$)。また、 ^{233}U についての室内試験を次のように行った。

- ① 粘土質岩のコアを準備し、グローブボックス内でコア中にトレーサとしてU核種を封入する。
- ② そのコアをステンレスチューブ内に密閉し、原位置より採水した地下水を透過させる。
- ③ 一定時間経過後コアを回収し、その放射能を測定する。
- ④ 移行に関するパラメータを計算し、モデルによる計算と比較する。

試験の結果、 ^{233}U の遅延係数及び拡散係数はそれぞれ128及び $1.1 \times 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{s}$ であった。また、 ^{233}U の吸着は粘土質岩中の有機物及びチタン酸化鉱物(TiO_2 : Anatase)に集中していることが確認された。

また、大学関係者の協力により、以下の試験を実施し、データを収集した。

- ① Cs, Srの分配係数

広範な岩石及び鉱物試料についてCs, Srの分配係数及びC E Cを測定した。

- ② Eu, Ru, Th, U, Np, Amの分配係数

2種類の花崗岩、2種類の凝灰岩、及び4種類の花崗岩構成鉱物について、分配係数をバッチ吸着法にて測定した。

天然バリアの熱的・力学的・水理学的特性の信頼性評価に関する研究

中部・環境地質課 柳澤孝一

I. 研究目的

結晶質岩及び堆積岩のそれぞれの地層について、天然バリア特性の信頼性を評価するための試験の方法及び評価モデルを開発するとともに、必要なデータを蓄積する。

II. 概要

1. 研究内容の概要

- i) 原位置において岩石の熱的・力学的・水理学的特性を評価するための試験方法、評価方法を開発する。
- ii) 岩石加熱試験、初期応力測定、透水試験等の試験を実施し、解析する。
- iii) 原位置及び室内における試験データの関連性について検討し、岩盤の規模について検討する。
- iv) 地表から地下における水理環境等を調査し、地下水挙動(経路・速度等)を明らかにする。
- v) OECD/NEA, カナダ, ベルギー等との国際協力を通じ、広汎なデータの蓄積を図る。

2. 得られた成果の概要

- i) 難透水性岩盤の透水係数を原位置で測定するための低圧岩盤透水試験機と動燃式JFT試験機を開発した。それぞれの透水係数の測定可能範囲は $10^{-6} \sim 10^{-8} \text{ cm/s}$ と $10^{-4} \sim 10^{-8} \text{ cm/s}$ である。後者は海外・国内での特許出願が受理された。
- ii) 東濃及び釜石鉾山の坑道を利用し、岩盤挙動の解析・評価としてFEMによる予備解析を行い、計測結果と比較した。両者は良い一致を示し、その手法が有効であることが明らかとなった。
- iii) 原位置及び室内における試験データを比較するため、室内岩石試験装置を開発した。透水係数測定可能範囲は $10^{-6} \sim 10^{-12} \text{ cm/s}$ である。
- iv) 場の理解—水理地質構造モデルの構築—地下水流動予測解析—長期観測値との比較検証という一連の水理学的調査解析システムを開発し、立坑掘削影響試験に適用した結果、現段階においてほぼ有効なことが明らかにされた。
- v) カナダAEC Lとの共同研究において試錐孔内での水理、トレーサー試験を実施し、割れ目中のトレーサーの移行に関するデータを取得した。

III. 研究内容

- i) 原位置において水理学的特性を評価するため、新たな透水試験装置を開発し、適用試験を実施した。
- ii) 東濃及び釜石鉾山において、掘削影響評価手法を確立するため、坑道掘削前に予備評価を行い、掘削中及び掘削後の測定値と比較することにより、評価手法の妥当性について考察した。
- iii) 原位置及び室内における試験データの関連性について検討するため、新たな透水試験装置を開発した。
- iv) 東濃鉾山における立坑掘削影響試験を通じて、地表から地下における水理環境等を調査し、地

下水挙動を評価する手法の開発を実施した。

v) カナダ A E C L との共同研究において、水理試験・トレーサ試験を実施した。

IV. 研究成果

i) 地質環境特性把握のためには、深部難透水性岩盤の水理学的特性を明らかにすることが必要不可欠である。そのため、水理学的特性調査機器として、深部岩盤における原位置でのボーリング孔を利用して透水係数・間隙水圧を測定できる機器を開発した。

(1) 低圧岩盤透水試験機（低圧ルジオン試験機）

低圧岩盤透水試験（低圧ルジオン試験）は、従来のルジオン試験の対象となっていなかった低透水域（1 Lu以下）を自然水頭に近い低圧の範囲で測定するために考案されたもので、測定範囲は透水係数 $10^{-6} \sim 10^{-8}$ cm/sオーダで定常方試験（パルスではなく、定常流を用いた試験）である。

(2) 低水圧制御水理機（動燃式 J F T 試験機）

難透水性岩盤における間隙水圧・透水係数の測定が可能である装置を開発した。

測定範囲は透水係数 $10^{-4} \sim 10^{-9}$ cm/sである。この試験機は海外・国内での特許出願が受理された。

ii) ① 東濃鉾山の北延べ 240m 坑道先端部において、掘削した坑道を計測坑道として利用し、これに平行に試験坑道を発破工法により掘削し、各種の計測を行った。岩盤挙動の解析・評価として岩石室内試験及び坑道での試験結果に基づき弾塑性理論に基づく F E M による予備解析を行い、計測結果と比較した。さらに上記の各種測定結果を考慮して、岩盤挙動シミュレーションを実施した。

結果は以下の通りである。

- 坑道内空変位測定では最終的には天盤沈下量が 2 ~ 3 mm, 水平変位 2.3mm となった。各変位とも、切羽離れ（坑道掘削面と計測面の距離）が 2 D（D = 坑道径、今回は 3 m）でほぼ収束し、3 D では完全に収束した。
- 岩盤内変位測定では、最終的試験坑道の側壁から 1.0m の地点で 1.5mm, 4.0m で 0.4 mm の変位が見られ、6.0m の地点はほとんど変位が見られなかった。
- 弾性波速度測定では、坑道周辺に厚さ 0.8m 程度の速度低下域が見られた。
- 初期応力測定では、南北方向と東西方向の応力は約 30kg/cm² と 14kg/cm² で、比が約 2:1 となり鉛直方向の応力は土被り圧の 2 / 3 程度で約 20kg/cm² となった。
- 透水係数では、試験坑道壁面から 0.5 ~ 1.0m の区間が掘削の影響により水理的に緩んでいると推定された。坑壁から 1.4 ~ 2.5m の区間では坑道掘削による透水性の変化はほとんどなかった。
- 以上の結果に基づき岩盤挙動の解析評価を行った。まず、予測解析と計測結果の比較では、変位量としては予測解析のほうが 2 倍ほど大きくなったものの、全体の傾向は比較的一致しており、概略の挙動予測ができた。さらに初期応力測定結果と坑道周辺 1 m の部分での発破損傷領域を考慮してシミュレーションを行ったところ、内空変位測定と岩盤内変位測定の結果とほぼ一致する結果が得られ、このことから、応力開放による緩み領域は、発破損傷領域内に含まれていると考えられる。

② 釜石鉾山において空洞の力学的安定性評価モデルを開発・確認するのに必要な掘削に伴う

岩盤挙動を把握し、掘削影響の評価に用いられる周辺岩盤の物性データ、特に透水性の変化に関するデータを取得するための坑道掘削影響試験を実施した。

調査・計測項目は、岩盤のひずみ・岩盤の応力・透水係数・ヤング率である。

周辺岩盤の鉛直方向の応力は、切羽通過後圧縮状態となり安定した。また、ひずみは、鉛直方向は圧縮側に、坑壁と直交方向（水平）は引張側に変化し安定した。これらの傾向は、弾性状態を仮定したFEM数値計算結果と一致し、計算モデルの有効性が確認された。また、塑性域や破壊などの緩み領域が発生していないことが解析により得られた。

岩盤の透水係数は、坑道掘削の前後で変化し、坑壁から2mの範囲で、透水係数が1桁低下した。これは、掘削によって割れ目の一部が閉じたことによって、かえって透水性が低下したことを示すものと考えられる。

孔内載荷試験による岩盤ヤング率は、坑道掘削の前後で特に変化を示さず、応力のひずみの計測結果と同様に岩盤に破壊が起きていないことを示した。

iii) 室内岩石透水試験装置

現有の室内透水試験装置は、①対象が高透水性岩石であるため低透水性岩石の測定は困難、②そのため低透水性岩石の透水試験結果の測定限界が大きいなどの欠点があり、これらの問題を解決するための新たな装置を開発した。その方法として、供試体片端に一定水圧を加え、他端より排出されると水量を計測し透水係数を求める定水位法と、供試体両端に貯留槽（圧力タンク）を設置し、試験開始と同時に相互の貯留槽に異なる水圧を加え、時間と共に変化する両貯留槽の圧力差を計測し、透水係数を求めるトランジェントパルス法を採用し、それぞれの試験手法について詳細な検討を行った。

この結果、定水位法においては $6.8 \times 10^{-5} \sim 10^{-8} \text{ cm/s}$ まで、トランジェントパルス法においては $5.5 \times 10^{-7} \sim 8.8 \times 10^{-12} \text{ cm/s}$ までを±10%以内の精度で測定可能となり、試験精度・信頼性・再現性において満足すべき結果が得られた。

iv) 東濃鉾山において立坑掘削の影響範囲、地形等の境界条件を勘案して、新立坑位置を中心とした約300m四方の地域を調査区域と設定し、本地域表面に広く分布する未固結岩層において、地表からの地下水涵養量を推測するため、観測装置を配置した。

岩盤中の水理地質状況を把握する目的で試錐孔を利用し、岩芯観察、ボアホールテレビによる試錐孔壁の観察、水理学的な代表点において原位置透水試験を行い透水係数の分布を調査し、さらに試錐孔内に配置されたマルチパッカー方式のケーシング（MPケーシングシステム）により層別に止水された各帯水層毎の間隙水圧を連続的に計測した。

こうした調査結果をもとに水理地質構造モデルを作成し、新立坑掘削前、掘削中、掘削後の水理学的変化を把握する目的で、新しく開発したプログラムTAGSACにより、多孔質モデルによる非定常飽和－不飽和三次元有限要素浸透流解析を実施した。

水理地質構造区分を基にTAGSACコードにより新立坑掘削前の地下水の流動状況を把握した。その結果、既存坑道の湧水量の観測値とTAGSACコードでの解析結果を比較すると、よく一致しており、本解析コードと水理地質構造区分は現状の地下水流れを十分に表現できるものであることが検証できた。

v) カナダ、マニトバ州ピナワにあるカナダ原子力公社（AECCL: Atomic Energy of Canada Limited）のホワイトシェル原子力研究所においてと、試錐孔を用いて地表下300～400mに存在する割れ目帯を対象とし、各種水理試験・トレーサ試験を実施し、データを取得した。

天然バリアに係るナチュラル・アナログ研究

中部・環境地質課 吉田 英一

I. 研究目的

天然の放射性核種の分布状態、地下深部の鉱物の存在状態等、天然事象の中から地層処分システムの性能を評価する上で類似の事象を抽出し、長期にわたる天然バリア中での核種移行等に関する安全性及び信頼性の評価に資する。

II. 概要

1. 研究内容の概要

1千万年以前に生成されたウラン鉱床等について、核種移行現象等地層中での核種挙動に関する調査を行い、長期的・地球科学的観点から天然バリアの安全性及び信頼性を把握する。

このため、東濃鉱山やオーストラリア等において以下の研究を行う。

- i) 溶液中核種の鉱物表面への吸着等による遅延メカニズムを明らかにするとともに、核種移行過程に大きな影響を与えるコロイド物質等の挙動も考慮しつつ、国内外のウラン鉱床等の地質現象について核種の移行、吸着データの収集、評価を行う。
- ii) 天然バリアの隔離機能に対する断層等の影響を推定するため、ウラン鉱床内の断層と天然核種の移行、挙動との関係について調査する。

2. 得られた成果の概要

- i) 天然ウラン系列核種の鉱床中での挙動を大局的に把握するため、東濃鉱山の月吉鉱床中の185個の岩石試料を分析した。それによると、 ^{234}U と ^{238}U 及び ^{230}Th と ^{234}U はほぼ放射平衡にあり、数十万年～百万年にそれらの核種に大きな移行がなかったと考えられる。

鉱床の分布を規制している基盤花崗岩の古河川構造における中流部と下流部で、 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ の放射能比 > 1 、 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ の放射能比 < 1 であることから、これらの地域では最近（数十万年以内）ウランの濃集が起こっていることがわかった。古河川構造の中流部においては、ウラン含有量が高い岩石中における ^{234}U の放射能が ^{230}Th の放射能よりも大きく、放射非平衡状態にあり最近（数十万年以内）ウランの濃集が起こったことがわかった。

ウランの産状の研究によって、ウランはパーミキュライト様鉱物に変質した黒雲母の部分に黄鉄鉱を伴ってコフィナイト石などのウラン一次鉱物として見出され、ウランの固定にはそれらの鉱物が重要な役割を果たしていることが明らかにされた。

オーストラリアにおけるコロイド研究からは、酸化帯ではFe、Tiコロイドは認められたが、還元帯ではウラン・トリチウムをはじめ、コロイドはほとんど認められなかった。

- ii) 同鉱床を切る断層を調査した結果、断層沿いには、断層形成後大きなウランの移行が起こらなかったと推定できた。

III. 研究内容

- i) 東濃鉱山においては、ウラン系列核種の分析から放射平衡-非平衡を利用し、天然核種の挙動について検討した。また、ウラン鉱石におけるウランの産状を明らかにすることにより、ウラン

の収着メカニズムについて考慮した。オーストラリアのクンガラ鉱床の研究では、酸化帯—還元帯（非酸化帯）でのコロイド挙動のちがいについて明らかにした。

ii) 天然バリアの隔離性能に対する断層等の影響を推定するために、東濃鉱山における断層の特性を断層沿いのウランの分布についての調査により、両者の関係について考察した。

IV. 研究成果

東濃鉱山の月吉鉱床中の岩石試料 185個を分析し、ウラン系列核種の放射平衡—非平衡の研究を行った。その結果、数十万年から百万年程度の期間、 ^{238}U 、 ^{234}U 及び ^{230}Th は、ほぼ放射平衡の状態にあることが明らかにされた。このことは、これらの核種に大きな移行はなかったことを意味する。

一方、 ^{226}Ra は、親核種である ^{230}Th と放射非平衡の状態にあり、鉱床内で移行していることがわかる。鉱床付近を流れる地下水は、還元条件にあるため、 ^{226}Ra が選択的に溶脱、移行したと考えられる。

月吉鉱床全体でみると、最近百万年以内はウランの大きな移行は確認されていないが、鉱床内のウランと ^{230}Th の放射能比の分布を基盤花崗岩の古河川構造と対比させてみると、その中流部と下流部で若干放射非平衡が認められる。そこでは、 ^{230}Th に対する ^{234}U の放射能比が大きいことから、過去数十万年以内にウランの濃集が起きていることが示唆される。また、下流部では、 ^{238}U に対する ^{234}U の放射能比が大きいことから、ウランの濃集について優先的に起こったと考えられる。

i) 数十万年以内のウランの濃集が示唆される中流部では、ウラン含有量が高くない岩石中の ^{234}U の ^{230}Th に対する放射能比はほぼ1で濃集が認められないのに対し、ウラン含有量が特に高い部分でこの放射能比が高くなっており、これらの岩石中でウランの鉱化作用が現在、あるいは数十万年以内の最近まで継続していた可能性が示唆される。

月吉鉱床の富鉱部のウランの産状について顕微鏡、X線回折計E P M Aなどを用いて検討した。富鉱部は細—中礫岩、細—中粒砂岩中に存在する。これらの堆積岩類は、石英・長石・黒雲母・緑泥石・方解石・モンモリロン石・沸石・黄鉄鉱などから構成される。

ウランの富鉱部において、ウランは黒雲母・沸石及び炭質物に富む部分に存在する。黒雲母に富む部分について詳細な検討を行ったところ、黒雲母は一部変質しており、変質部はコフィナイト、ピッチブレンドがバーミキュライト様鉱物とともに見出され、また一部にはバーミキュライト様鉱物中に黒雲母の残品が認められることが明らかとなった。沸石に富む部分には、フランボイダル黄鉄鉱が認められ、その周辺にコフィナイトウランを伴う沸石が見出された。また、炭質物に富む部分ではウランを伴う炭質物が認められた。

このようにバーミキュライト様鉱物化した部分に黄鉄鉱を伴ってコフィナイトなどウランの一次鉱物が見出されたことは、吸着性の高いバーミキュライト様鉱物に選択的にウランが濃集し、還元環境下でウランが一次鉱物として固定されたことを示しているものと考えられる。

オーストラリアのクンガラ鉱床におけるコロイド研究から、地表に近い風化帯（酸化帯）では、Fe、Tiに富んだコロイドが多く、またMg、Siに富んだコロイド（粘土粒子）も存在することがわかった。そのなかにはU、Pbを含むものもあった。また、地下水中の希土類元素等の微量元素はほとんど1 ppb 以下である。

また、非固化帯（非酸化帯）では、Fe、Tiコロイドはなかったが、Mg、Si主成分とした粘土粒

子やバクテリアと思われる物質が見出された。また、ろ過サイズに関係なく、ウランをはじめ各微量元素の濃度に変化はない。このことから、コロイドに収着されている特定の微量元素はないと考えられる。

- ii) 東濃鉍山において、見かけ上鉍床を切る断層周辺の鉍物塑性や、ウランの分布について調べた。この断層は幅数10cmにわたって破碎されており、灰線～青灰色を呈している。この部分を構成する鉍物は、緑泥石、モンモリロン石、方解石であり、また石英・長石の破片が残されている。この断層沿いのウラン濃度の分布を見ると、一部において元のウラン濃度の分布が乱されているように見えるものの、大きくは乱されていないことがわかる。したがって、この断層の形成後、これに沿って大きなウランの移動は起こらなかったと推定される。

地層処分システム性能の信頼性評価に関する研究

東海・環境技術開発部 大井 貴夫

I. 研究目的

天然バリア及び人工バリアに関する研究から得られる成果をもとにして、地層処分システムの長期的な隔離性能の信頼性を評価する。また、その結果から個々のバリアの性能目標を明らかにし、個々のバリアの研究に反映する。

II. 概要

1. 研究内容の概要

- i) 決定論的及び確率論的な地層処分システム性能評価モデルを開発し、天然バリア及び人工バリアの性能目標を明らかにする。
- ii) 各種の仮想的状況に対して、地層処分システムの信頼性を評価する。
- iii) 地層に関する調査により、明らかになる地質条件を使って地層処分システムの性能評価を実施する。

2. 得られた成果の概要

- i) ① ニアフィールド総合性能評価モデルの開発を実施し、コーディングを行うとともに予備的解析を実施した。
- ② 水理特性試験の結果に基づいて、透水量係数の推定を実施した。また、併せて実施したトレーサ試験により、ホワイトシェルサイトにおける分散率の推定を行った。分散率の推定は、トレーサ試験によって得られた破過曲線と計算結果を比較することにより行い、縦方向分散率 5 (m)、横方向分散率 0.5 (m) のときにモデルの計算結果と実験値が最も良く一致した。
- ③ 統合化モデルを用いて、典型的な地質環境モデルを設定し、線量への寄与が最も大きいと考えられる Np-237 について計算を行った結果は、 10^{-9}Sv/y 程度であった。
- ii) シナリオ解析研究として既存の研究例を整理し、事象、特質及びプロセスの抽出を実施した。また、これらの間の相互関係を記述するためにインフルエンスタグラムを作成した。
- iii) 性能評価上必要な核種移行や地質環境に関するデータのデータベース化を図り、一部完了した。

III. 研究内容

i) 地層処分システム性能評価モデルの開発

本研究は、決定論的及び確率論的な地層処分システム性能評価モデルを開発し、人工バリアと天然バリア及び全体システムの性能目標を明らかにすることであり、以下の内容を含んでいる。

- ① 地球化学的条件を考慮した固化体周辺の核種移行に関する予備的解析（ニアフィールド総合性能評価モデルの開発）
- ② カナダ A E C L 原位置試験データに基づく水理・核種移行計算モデルの適合性の検討

③ 統合化モデルによる予備的性能評価解析

ii) 地層処分システムの性能評価シナリオの開発を目的として以下の研究を実施した。

① シナリオ解析を行ない、人間環境への放射性核種の放出・輸送を引き起こしたり、放出・輸送に影響を及ぼすような現象の抽出

② それらの現象の発生確率と影響の大きさを評価して、地下深部を高レベル放射性廃棄物の埋設場所とするという地層処分の基本的考え方が適切であることを明らかにすること。

iii) 性能評価上重要となる地質環境に関わる特性（地層、地下水、地球化学、物性）について、調査を実施し、データベースとしてとりまとめる。

IV. 研究成果

i) 地層処分システム性能評価モデルの開発

① 地球化学的条件を考慮した固化体周辺の核種移行に関する予備的解析（ニアフィールド総合性能評価モデルの開発）

ガラス固化体（ホウケイ酸ガラス）、オーバーパック（炭素鋼）、緩衝材（ベントナイト）及び周辺岩盤から構成される固化体周辺のバリア機能を地球化学的条件を考慮して評価するために固化体周辺の総合性能評価コード「AREST-PNC」を用いた予備的解析を行なった。

地球化学的条件がガラスの溶解に及ぼす影響を評価するため、長半減期の核種であり、溶解度の大きいCs-135と溶解度の小さいU-238及びガラスの主成分であり、溶解度の大きいB-11を対象として計算を実施した。

オーバーパックが処分後1000年で瞬時破損したと考えた場合の緩衝材からのCs-135、U-238、B-11の移行率の経時変化を計算した結果、Cs-135、B-11は溶解度が大きいために、U-238に比べ移行率は3桁程度高めになること、また、オーバーパック破損後約2000年の時期に、移行率が急激に低下していることがわかった。これは、オーバーパックの腐食に伴って生成される鉄と、ガラスから溶解するSiの沈澱が、オーバーパックの腐食の完了に伴い生成されなくなり、その結果、ガラスの溶解速度が減少するためである。

② カナダAECL原位置試験データに基づく水理・核種移行計算モデルの適合性の検討

天然バリア（地層）中の水理・核種移行特性測定技術開発の一環として、動燃とAECLとは、共同研究によりカナダホワイトシェル原子力研究所サイトにおける花崗岩岩盤中の割れ目帯を対象とした原位置の水理・トレーサ試験を実施している。本解析では、これまでに得られた原位置試験のデータをもとに、計算コード「FEMWATER」、「FEMWASTE-PNC」、「DIPOLE」を用いて、透水量係数、帯水層幅、縦方向・横方向の分散率を推定し、各コードに使用されている水理・核種移行モデルの適合性について検討を行なうとともに、AECLで開発した有限要素法による水理・核種計算コード「MOTIF」とのベンチマークを実施した。

パラメータの推定は以下のようにして行なった。まず、全ボーリング孔から得られた全水頭、ボーリング孔近傍の透水量係数及び亀裂情報から計算領域全体の透水量係数分布の推定を行なう。次に、この空間分布をもとに2孔間（注水井と揚水井）で行なわれたトレーサ試験を解析し、縦方向・横方向の分散率を推定する。

透水量係数の空間分布の推定は「MOTIF」コードを用いて行ない、 $1.6\text{E}-2$ 、 $9.0\text{E}-3$ 、 $1.3\text{E}-5$ (m^2/s)の3領域に分けられた。「DIPOLE」による揚水井における破過曲線の計算値と観測値とを比較検討した結果、破過曲線の立ち上がりの部分は良く一致しているがテールの部分はあま

り一致していないことがわかった。

③ 統合化モデルによる予備的性能評価解析

本解析では、地下水移行シナリオに基づく核種移行を計算し、地層処分システム性能を概括的に評価した。評価対象とした核種は崩壊系列をなすAm-241, Np-237, U-233の3核種である。計算は以下の流れに沿って実施した。括弧内は計算に使用した計算コードを示している。

- ① インベントリ計算 (ORIGEN-2)
- ② 水理計算 (FEMWATER)
- ③ 緩衝材中の核種移行計算 (RELEASE)
- ④ 地層中の核種移行計算
(FEMWASTE-PNC)
- ⑤ 線量当量率計算

予備的性能評価計算から得られた、地表面に移行した核種の年間移行量から求めた線量当量率の経時変化によると、Np, Uによる線量当量率は、ともに10万年程度になると定常に達し、それぞれ、 $1.0E-10$ Sv/y, $1.0E-12$ Sv/yと極めて小さいことがわかった。

ii) 地層処分システムの性能評価シナリオの開発

シナリオ解析研究の一部として、既存の研究の調査と整理、解析の起点となる事象、及びその特質やプロセスの明確化を行なった。その結果、研究を進めるにあたっての課題の抽出や事象について、相互の因果関係や選別方法に関する知見が得られた。

iii) 地層環境の重要な要素である地層・地下水・断裂系に関する基礎データの整備を目的とした調査を実施した。

地層に関しては、地質図幅の判読等により地質環境としての特性を考慮した地層の水平的・垂直的分布、規模や均質性、また地層の熱・水理・物理・力学等の特性について情報収集した。

地下水に関しては、全国各地の地下水に関する文献を調査し、水質に関わるデータの収集と解析を実施し、その結果、濃度やpH等は幅広い分布を示すこと、そのため採取した地下水が含まれる地層の種類や海水・温泉水等を起源とした地下水であるかどうかの識別が重要であること等が明らかになった。また、水質の深度方向に関する変化に係わる情報も得られた。

リニアメントとしての断裂系の分布は岩石の種類よりも地域による地質構造上の特徴の違いをより強く反映する結果が得られている。

種々の地質環境データを一元的に管理し、研究に適切に反映させるために、データベースとラフィクスを主体としたコンピュータ支援システムの開発を実施し、一部完成した。

TRU廃棄物処分システム性能の信頼性評価に関する研究

東海・環境技術開発部 原 啓 二
東海・環境施設部 大 内 優

I. 研究目的

TRU核種の処分環境下における核種溶出から移行までの挙動を把握し、処分システム性能の信頼性評価に資する。

II. 概 要

1. 研究内容の概要

- i) 処分環境下におけるTRU廃棄物固化体（セメント、アスファルト、セラミック等の固化体）の浸出特性及び安全性に関する試験を行う。
- ii) 固化体パッケージ材料、コンクリート埋め戻し材等の人工バリア材料の処分環境下における健全性、両立性に関する試験を行う。
- iii) 高レベル放射性廃棄物の成果も活用しつつ、浸出したTRU核種の人工バリア、天然バリア及び生物環境下での移行挙動に関する試験を行う。
- iv) TRU核種を含む廃棄物の特性に応じたいくつかの処分システムを設定し、その性能評価を実施する。

2. 得られた成果の概要

- i) プルトニウム廃棄物処理開発施設の焼却灰溶融プロセスから発生するマイクロ波溶融固化体について密度、鉍物組成等の測定を行ない、実固化体の基本物性を明らかにした。また、実固化体による浸出試験を行い試験手法を確立するとともに、浸出率（温度90℃、蒸留水、28日間）として、 $\sim 10^{-6} \text{g} / \text{cm}^2 \cdot \text{d}$ という値が得られた。
- ii) ポルトランドセメントは、カルシウムの溶出、硫酸イオンの侵入等により化学的変化を生じる。この変化した領域のトリチウム拡散係数は元の部分よりも小さな値を示し、劣化の過程に認められる変化は核種の拡散の観点から、大きく性能を劣化させるものではないことがわかった。
- iii) 人工バリア、天然バリアに関する各種パラメータの核種放出に対する感度評価を行い、重要なパラメータを明らかにするとともに、人工バリア材料の候補材であるベントナイト中でのPuのみかけの拡散係数を取得した。
- iv) 廃棄物の発生予想量及び特性を明らかにするとともに、処分システムの性能をパラメータとした感度解析の結果から、人工バリアの仕様等の影響度を把握することができた。

III) 研究内容

- i) プルトニウム廃棄物処理開発施設の焼却灰溶融プロセスから発生するマイクロ波溶融固化体について、固化体密度、鉍物組成、浸出率等の測定、評価を行った。浸出率はMCC-1法に準拠した方法で、浸出温度90℃、浸出液として蒸留水を用い、浸出時間に対する累積重量減少量として求めた。

- ii) 普通ポルトランドセメントに対し、地下水中で劣化に影響を及ぼすと考えられている硫酸マグネシウム溶液の浸漬試験を行い、材料の化学的変化の評価を行った。また浸漬後の供試体に対し、放射性核種の拡散を評価する観点から、トリチウムの拡散試験を行った。
- iii) アスファルト固化体を処分した時の人工バリア及び天然バリア中の核種移行について試算を行い核種放出に対する感度解析を実施した。また、人工バリア材料の候補材であるベントナイト中でのPuのみかけの拡散係数測定試験を実施した。
- iv) 諸外国のTRU廃棄物の処分方策、安全確保に係る基本要件について調査及び我が国における廃棄物の発生量、特性を検討するとともに、これらの結果をもとに人工バリアの仕様をパラメータとした安全評価の試算を行いその影響度について検討した。

IV. 研究成果

- i) プルトニウム廃棄物処理開発施設の焼却灰溶融プロセスから発生するマイクロ波溶融固化体（実固化体）の浸出試験を通して実固化体の浸出試験手法を確立するとともに、マイクロ波溶融固化体について以下の諸物性を把握できた。

① 固化体密度及び物性

可燃物焼却灰の主成分はSi, Mg等であり、これをマイクロ波で加熱（1200～1400℃）溶融した場合、得られる固化体にはフォステライト（ Mg_2SiO_4 ）等の結晶鉱物相が形成される。また、これら固化体の密度は $2.2\sim 3.0\text{g/cm}^3$ であった。このパラッキは焼却灰性状、加熱条件等によるものと考えられる。

② マイクロ波溶融固化体浸出率

浸出温度90℃、浸出液、蒸留水、浸漬時間28日間での固化体の浸出率は $\sim 10^{-5}\text{g/cm}^3\cdot\text{d}$ であった。また、浸出の初期段階でアルカリ金属やアルカリ土類元素が溶出し、液をアルカリ性にし、その結果、浸出が極めて抑制される傾向を見出した。

- ii) ポルトランドセメントの硫酸マグネシウム溶液への浸漬により、接液面からのセメント中のカルシウムの溶出、溶液中の硫酸イオンのセメント中への侵入等が認められた。浸漬期間の増加と共に化学的に変化している領域は拡大する。また、浸漬液の温度上昇及び硫酸マグネシウム濃度の上昇は加速要因として働くことがわかった。

浸漬後の試料に対するトリチウム拡散試験からは、化学的に変化している層は変化していない部分よりも小さなトリチウム拡散係数を示すことが明らかとなった。これは、硫酸イオンの侵入に伴い、エトリンガイト等の膨張性の硫酸塩が生成され、セメント中の空隙に変化を及ぼしているためと推定される。

- iii) TRU廃棄物のうち、アスファルト固化体の処分を想定し人工バリア及び天然バリア中の核種移行について、試算を行い核種放出に対する感度解析を実施した。その結果、各種パラメータの中から重要なパラメータを抽出し、今後行うべき研究内容の立案に反映することができた。

人工バリア材料の候補材であるベントナイト中でのTRUの移行挙動を評価するため、圧密ベントナイト中でのPuの拡散係数測定試験を実施した。その結果、H型ベントナイト中でのPuのみかけの拡散係数は、 $10^{-13}\sim 10^{-12}\text{m}^2/\text{s}$ 、Na型ベントナイトで $10^{-14}\text{m}^2/\text{s}$ であり、F核種に比べ低いことがわかった。

諸外国の処分方策、安全確保の基本要件の調査及び廃棄物特性の調査・検討を行い、処分システムの性能評価の条件方法を整理した。これらをもとに解析モデルを設定し、固化体、充填材の

バリア機能をパラメータとした処分システムの安全評価の試算を実施した結果、被曝線量は廃棄物の種類、評価モデルにより異なるが、 10^4 年までは ^{14}C 等の放射化生成物及び ^{129}I 等の核分裂生成物核種が支配的であり、その後は ^{237}Np 等の長半減期のアクチニド核種が支配的という結果が得られた。

また、人工バリア等の処分システムの問題を検討する上で必要な、固化体、充填材のバリア機能の安全性に対する影響度を把握することができた。