

放射性廃棄物処分安全研究の成果 (平成 3 年度～平成 7 年度)

平成 9 年 2 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 Evaluatin and Patent Office, Power Reactor and Nuclear
Fuel Development Corporation 9-13, 1-chome, Akasaka, Minato-ku,
Tokyo 107, Japan

© 1997 動力炉・核燃料開発事業団

(Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)

放射性廃棄物処分安全研究の成果 (平成 3 年度～平成 7 年度)

編集；安全部安全研究課

要　　旨

動燃事業団における安全研究は、昭和61年3月25日に定めた「安全研究の基本方針」及び「安全研究基本計画（平成3年度～平成7年度）」（平成3年3月策定）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きており、現在も引き続き「安全研究基本計画（平成8年度～平成12年度）」（平成8年3月策定）に基づき実施している。一方、これら事業団の安全研究は、一部の自主研究項目を除き、原子力安全委員会の定める「安全研究年次計画」にも登録されている。

放射性廃棄物処分分野の安全研究は、

- (1) 高レベル廃棄物地層処分の安全性に関する基本的な研究
- (2) 高レベル廃棄物の多重バリアシステムの安全評価に関する研究
- (3) 高レベル廃棄物処分の総合安全評価手法に関する研究
- (4) TRU廃棄物に関する研究
- (5) 低レベル放射性廃棄物処分の安全研究

の5分野で構成している。

本報告書は、安全研究基本計画（平成3年度～平成7年度）に基づき実施した平成7年度までの放射性廃棄物処分分野における安全研究（20件）の5年間の成果について、取りまとめたものである。

なお、このほか①動力炉、②核燃料施設等、③環境放射能の各分野についても別冊として、取りまとめている。

目 次

(1) 高レベル廃棄物地層処分の安全性に関する基本的な研究	
① 安全に関する基本的考え方と安全評価の考え方等に関する研究	
(廃 1 - 1)	1
② 安全評価シナリオに関する基礎的な研究 (廃 1 - 2)	11
③ 地層処分システムの長期安定性に関する研究 (廃 1 - 3)	17
④ 安全評価に用いる解析手法・モデル・データの品質保証に関する研究	
(廃 1 - 4)	33
(2) 高レベル廃棄物の多重バリアシステムの安全評価に関する研究	
⑤ 人工バリア要素の安全評価に関する研究 (廃 2 - 1)	41
⑥ 人工バリアシステムにおける放射性核種の移行に関する研究 (廃 2 - 2)	47
⑦ 人工バリアのナチュラルアナログ研究 (廃 2 - 3)	57
⑧ 地下水の水理地質学的特性に関する研究 (廃 2 - 4)	65
⑨ 地下水の地球化学的特性に関する研究 (廃 2 - 5)	75
⑩ 天然バリアにおける放射性核種の移行に関する研究 (廃 2 - 6)	87
⑪ 天然バリアのナチュラルアナログ研究 (廃 2 - 7)	93
⑫ 地質環境予測に関する研究 (廃 2 - 8)	103
⑬ 地層処分システムの地震動特性に関する研究 (廃 2 - 9)	115
⑭ 人工バリアとその周辺岩盤との相互作用に関する研究 (廃 2 - 10)	121
(3) 高レベル廃棄物処分の総合安全評価手法に関する研究	
⑮ 地層処分システムの総合安全評価手法に関する研究 (廃 3 - 1)	133
⑯ 地層処分システムの確率論的評価手法に関する研究 (廃 3 - 2)	139
(4) TRU廃棄物に関する研究	
⑰ TRU廃棄物処分の安全確保方策の研究 (廃 4 - 1)	147
(5) 低レベル放射性廃棄物処分の安全研究	
⑱ ウラン廃棄物に係る安全性の研究 (廃 5 - 1)	153
⑲ 回収ウラン廃棄物に係る安全性の研究 (廃 5 - 2)	159
⑳ トリチウム廃棄物の処分の安全性に係る研究 (廃 5 - 3)	161

安全に関する基本的考え方と安全評価の考え方等に関する研究

平成3年度～平成7年度

本社・環境技術開発推進本部・処分研究グループ 原 啓二、梅木博之

宮原 要、内藤守正

I. 研究の概要

我が国における高レベル放射性廃棄物地層処分の安全基準策定に資するため、IAEA、OECD／NEA等の国際的な場で示されている安全原則を調査するとともに、各国の安全基準とその考え方、及び最近の各国の安全評価報告書で具体的に示されている評価の考え方について調査・検討を行った^{(1) (2) (3)}。これより、以下の考え方が整理された。

- ① 安全基準の策定にあたっては、「将来世代に過度の負担をかけない」、「現在の世代と同じレベルの放射線防護が、将来の世代に対しても適用されるべき」といった倫理的観点や、安全指標、時間枠について充分な議論に基づく配慮を行うことが重要である。また、制度的管理や将来の人間活動に対する考え方を議論しておく必要がある。さらには、確率論的評価・決定論的評価といった安全評価の方法論について検討しておくことが肝要である。特に、技術論の枠をこえるような議論については、規制面でのルール化を図るよう適切な措置が求められる。
- ② 当面、我が国で進める研究開発においては性能評価を行う際の安全性の指標については、線量が最大となる時間までの評価を行うとともに、人間の生活様式・環境の変化に伴う予測の不確実性を考慮し、線量に併せて放射性核種放出率等の別の指標による評価を行っておくことが適切と考えられる。

II. 研究成果

1. 地層処分の安全性に係る基本的考え方

IAEAによる放射性廃棄物管理の原則において、「放射性廃棄物管理の目的は、将来世代に過度の負担をかけることなく、現在から将来にわたり、人間の健康と環境を守るように放射性廃棄物を取り扱うことである。」と述べられている⁽⁴⁾。また、OECD／NEAがまとめた地層処分の倫理的側面に関する国際的意見集約では、「世代間の公平性を配慮し、今日適用しているリスク基準を遠い将来に適用し、かつ将来世代に残す責任を限定する。」との見解を示している⁽⁵⁾。

このような将来世代に過度の負担をかけないとの原則に併せて、地層処分の安全性は、処分場閉鎖後の短期間を除いて、制度的管理に依存するものではないとの考え方が示されている⁽⁶⁾。制度的管理の目的としては、人間侵入の防止、処分施設の維持、環境モニタリングが挙げられる⁽⁷⁾。手法としては、能動的管理（人間によるサイトの管理・保守、環境放射線のモニタリング等）と受動的管理（フェンス、マーカー、記録の保管等）に分けられる。将来の人間侵入による、処分場の人工バリアの破壊や、公衆のメンバーが許容限度以上に被曝するような、理にかなわないリスクに対して、能動的な制度的管理に基づく処分場閉鎖後監視システムを考えることは合理的とはされていない⁽⁸⁾。この背景は、将来の社会に関する社会的、制度的、技術的状態を予測する科学的根拠がないことである。また、受動的な制度的管理についても長期的な信頼性を予測

するための技術的根拠がない。ただし、処分場閉鎖後初期の一定期間について、このような制度的管理が効果を有することは認めることができると考えられている⁽⁸⁾。将来の意図的な人間侵入については、そうした活動を起こす将来の社会に責任があり、また、それに対し防護しようと試みるのは無意味との観点から、評価する必要はないと考えられている〔例えば⁽⁹⁾〕。また、意図しない侵入でも処分場の存在を認識する場合は、意図的なものと同じとみなすことができ、評価する必要はない。意図せず処分場の存在を認識しない場合についてのみ評価する必要があると考えられている。

2. 地層処分の安全評価、基準、指針等に係る基本的考え方

(1) 安全基準の基本的考え方及び各国における基準の現状

上記1.で示した、現在の世代と同じレベルの放射線防護が、将来の世代に対しても適用されるべきとの原則を保証するためには、予測モデルを用いた性能評価による将来世代への放射線影響の推定結果を被ばく線量やリスクといった定量的な指標で示すことが考えられる。一方、予測結果の不確実性は時間とともに増大するから、現世代の生活様式を前提とする上記の定量的指標による評価は、遠い将来においてピークが問題とならないことを、定性的な考察を含め、別の指標により合わせて示す必要が生じる^{(6) (7)}。

放射線による人間への影響に関する安全指標としては、線量及びリスク（ある線量の被ばくを受ける確率とその被ばくによる健康への有害な影響を引き起こす確率の積）が挙げられる。また、付加的な安全指標としては、核種のフランクス、濃度、潜在的毒性指数などが考えられる。フランクスと濃度については、性能評価の結果から得られ、天然の放射性核種によるそれぞれの値と比較できるが、潜在的毒性指数は、インベントリそのものの潜在的危険性であり、性能評価に基づく放射線影響の指標とはならない。将来の予測の不確実性を考慮した指標の組み合わせにより、将来世代への影響が問題とならず、世代間の公平の原則が保証されることを示しておくことが重要となる。評価においては、利用可能な科学的知識を最も有効に用いても、解析の限界を越えるような領域に対し、知識に基づいた判断や合理的な仮定によって解析を補うべきとの考え方がある⁽⁸⁾。また、科学・技術の問題ではなく社会におけるルールとして設定すべき領域が存在することを認め、これも考慮して基準を決定すべきとの考え方が示されている⁽⁸⁾。

高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全基準については、国際機関等において基本的考え方の検討が進められるとともに、これまで既に法的に規定している国もある。各国の安全基準を図-1に示す。これをみると、高レベル放射性廃棄物処分について個人に対する最大の線量は、0.1～0.3 mSv／年の間にある。一方、リスクについては、基準を設定していない国、突発的な事象に対してのみ設定している国、及び考慮するすべての事象に対し設定している国があるが、設定している国においては、個人に対する最大のリスクは、10⁻⁵～10⁻⁶／年の間にある。国によっては、通常の緩慢な放射性核種放出シナリオに対しては線量を適用し、突発的な事象の影響に対してはリスクを適用している例がある。

なお、ICRP Pub. 46では、年個人線量の規制免除基準を0.01mSv／年としており、これは人間が日常のいろいろな活動によって経験するリスク間の比較研究に基づき、10⁻⁶／年の以下の死亡確率が個人の行動決定において考慮されないことから導かれたものである⁽¹⁰⁾。

制度的管理の期間を基準に取り入れている国もあり、例えば米国では100年間を定めている

⁽¹¹⁾。我が国においては、特に地層処分の社会的受動性の観点も考慮して、制度的管理の有効性について検討しておく必要がある。

将来の人間侵入については、その発生する確率あるいは、侵入が発生したことを探知する確率を予測することは不可能であり、また、将来どのような資源が発見されるかについても予測することはできない。例示的に想定された人間侵入シナリオに対して推定されるリスクは、擾乱のない処分場に対して設定されたリスク限度を越えないことを、規制側は要求すべきと考えられている⁽⁸⁾。

(2) 性能評価における時間枠

今日適用される個人線量及びリスクの上限は、原則的には期限なしに適用されるべきである。しかし、環境条件と将来の人間の生活様式の変化に付随する不確実性により、この原則を長期に渡って満足させることを保証することは難しいと考えられている⁽⁶⁾。

諸外国においては安全基準の中に、評価の時間枠を設定している例があり（表-1参照）、これらは次の3つに分類できる。

- 時間枠を、それ以降の時間は安全評価を要求しない「カットオフ」として設定しているもの（米国、ドイツ）
- ある時間の前後で評価方法を区別しているもの（カナダ、ドイツ、フランス）
- 線量やリスクが最大（ピーク）となる時間まで評価するもの（スイス）

時間枠の検討の視点としては、潜在的毒性、地質環境の特性、将来の人間活動が考えられている⁽¹²⁾。放射性廃棄物の毒性は、放射性核種の崩壊に応じて時間とともに減少する。高レベル放射性廃棄物の発生元となるウラン燃料を生成するのに必要となる量の天然ウラン等（ウラン+娘核種）の毒性と、毒性指標を用いて比較することができる。両者の毒性指数の交点においては、それぞれの毒性が同等となるが、この点は、放射線防護上の規制値、炉内での燃料の履歴、再処理プロセス諸元により変動する。また、この比較はインベントリの毒性に関するものであり、放射線影響の観点の比較ではないことに注意を要する。多重バリアシステムの効果を考慮した影響解析の結果では、地層中に存在する放射性核種による影響のレベルを下回ることが示されている。

将来の地質環境の予測については、過去の地質学的事象の証拠から求めた継続的規則性の延長として捉えられ、その確度は得られた証拠の多さに依存する。例えば氷河は地表の現象であり、それによって地下深部に及ぶ地質環境の変化が生ずるとは考えにくく、処分場からの放射性核種の移行経路が大きく変更される可能性はほとんどないと考えられる。今後1万年後頃までに氷河期が到来すると考えられているが、地質環境は氷河期を越えてさらに長期にわたり安定とみなせると考えている。これに対し、このような期間での生物圏の形態や人間の生活様式については充分に信頼性の高い予測を行うことが難しい⁽¹²⁾。よって、ドイツのように、次期氷河期以降は線量の評価を考えず、放射性核種放出率の変化の算出にとどめる例もある。一方、米国科学アカデミーは⁽⁸⁾、ユッカマウンテンの処分場計画に対し、サイトが地質学的に安定あるいは大きく変化しない時間領域に対しては、性能の評価ができるとしている。また、リスクが最大となる時期を考慮できるような期間にわたる個人の防護を考えるべきとし、カットオフとしての時間枠は、地質学的安定性によってのみ制限されるべきと考え、100万年で評価を打ち切ることを勧告している。

3. 安全評価、基準・指針等の設定手順、設定方法等の検討

(1) 安全評価の方法論及び基準との対応

地層処分システムの性能評価にあたり、シナリオの設定やモデルを用いた解析の仕方には、決定論的方法と確率論的方法がある。これら2つの方法の主要な相違は、確率論的方法においては、確率が定量化され、これによってリスクが推定されるという点である。各国の包括的性能評価における方法論を比較すると、確率論的方法のみを単独で採用している報告書はない。決定論的方法と確率論的方法を組み合わせている性能評価報告書のうち、SKB91（スウェーデン）⁽¹³⁾では、地下水流动解析において、パラメータの空間的分布を取り扱うために統計モデルを使用している。EIS（カナダ）⁽¹⁴⁾では、規制当局（AECB）の指針（R-104）⁽¹⁵⁾により、リスク評価に併せて個人線量の評価を確率論的方法により行うことが勧告されている。また、TSPA1993（米国）⁽¹⁶⁾では、基準の要請によりパラメータ値の不確定性（例えば、地層中の透水係数の空間分布）に対する確率密度関数の付与や、いくつかの事象（たとえば、火成活動）に対する発生確率を定義する必要性から確率論的方法を採用している。

一方、決定論的方法のみを採用している性能評価報告書（TVO-92：フィンランド⁽¹⁷⁾、H-3：日本[1]、Kristallin-I：スイス⁽¹⁸⁾）については、その採用理由として、解析の対象としているプロセスがいかにモデル化されているかを理解することが容易であることがあげられている。特にスイスでは、発生の可能性が極めて低いシナリオに対しては、リスク基準の適用が定められているが、評価上はすべての考えうるシナリオについて決定論的に扱い、それぞれ線量を算出している。

本研究においては、当面、地層処分の安全性を確保する上で検討が必要となるシナリオを明確にし、各々のシナリオについて人間環境への影響の違いを明らかにすることが肝要であり、基本的に決定論的評価を行うことが適切と考えられる。なお、突発的な事象（一部の天然現象や人間活動に起因するシナリオ）による影響の発生については、サイト選定や処分場の設計により避け、影響発生の頻度を無視できるほど小さくするというのが安全確保の基本的な考え方であるが、頻度が低くても影響が大きいと考えられる事象については、確率論的評価の適用についても検討することが肝要と考えられる。

(2) 安全評価の枠組みに関する検討

H-3レポートを含め、各国の包括的性能評価の考え方及び結果を比較すると、カナダでは非常に良質な岩盤が重要な役割を果たしているが、スウェーデン、フィンランドにおいては銅製キャニスターの長期的な閉じ込め性能が評価結果を支配しており、スイス及びH-3レポートでは強力な人工バリアの総合的な性能に依存している。地質学的特徴はそれぞれ異なるものの、適切な地層に人工バリアを構築するという共通した処分概念の下で、ほとんどの国が安全を確保する要素としてニアフィールドにおける核種閉じ込め性能を重視している。また、各国ともICRPの勧告に基づき例示的に取り上げた規制のガイドラインを、十分な裕度をもって充たしている（図-2参照）。異なる処分概念や評価手法がそれぞれ地層処分の安全性を示しているという事実は、今後求められる処分概念や評価手法の最適化に対して柔軟性が存在していることを併せて示している^{(2) (3)}。

我が国においては、H-3レポートと同様に地域を特定しない性能評価を当面行うこととなるが、長期の予測を行う上で、特にニアフィールドにおける核種閉じ込め性能に影響を及ぼす地質環境の安定性の研究が重要となる。地質環境に影響を及ぼす事象には、隆起・沈降・侵食や

気候・海水準変化のような継続的、緩慢、かつ広域的事象と、地震・断層、火山噴火のような突発的、急激かつ局所的事象がある。事象の規則性については前者の方が長期にわたり、かなりの確度で追跡出来る特徴がある。地質環境が安定な期間については、今後の研究開発により、より詳細に検討を進めるとともに、このような地質環境の安定性の議論を踏まえ、性能評価上は時間枠に応じて、上述した事象を適宜取り込んだ評価を行うことが重要と考えられる。また、これらの天然事象や将来の人間活動により、高レベル放射性廃棄物と人間との物理的距離が接近することによって影響を及ぼす接近シナリオについては、サイト選定や処分場の設計により避けることから、発生の頻度を無視できるほど小さくするというのが基本的考え方であるが、頻度が低くても確率が大きいと考えられる事象については、確率論的評価の適用についても検討することとする。

今後予定される安全基準の策定においては、上記の各国における安全性と安全基準の基本的考え方、及び安全評価の考え方及び我が国における社会的な側面も勘案して検討することが妥当と考えられる。また、当面の我が国における性能評価においては、多重バリアシステムの長期的性能を把握するために、基本的に決定論的方法により個人線量を評価し、線量が最大となる時間までの評価を行う。また、人間の生活様式・環境の変化に伴う予測の不確実性を考慮し、線量に併せて放射性核種放出率等の別の指標による評価を行っておくことが適切と考えられる。

【主要レポート】

- (1) 動燃事業団：高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書－平成3年度、PNC TN 1 41092-081 (1992)
- (2) 梅木博之(1994)：スイスNagra Kristallin-Iと動燃H 3 レポートの比較、放射性廃棄物研究、Vol. 1, pp. 13-20.
- (3) Neall, F. B. (ed.), Baertschi, P., McKinley, I. G., Smith, P. A., Sumerling, T. and Umeki, H. (1994):Kristallin-I Results in Perspective, Nagra NTB 93-23.

【参考文献】

- (4) IAEA (1995): Safety Fundamentals: The Principles of Radioactive Waste Management, Safety Series No. 111-F.
- (5) NEA (1995): The Environmental and Ethical Basis of the Geological Disposal of Long -lived Radioactive Waste. Collective Opinion of the Radioactive Waste Management Committee; OECD/NEA, Paris, France.
- (6) IAEA (1989): Safety Principles and Technical Criteria for the Underground Disposal of High Level Radioactive Wastes, IAEA Safety Series No. 99.
- (7) NEA (1984): Long-Term Management of Radioactive Waste: Legal, Administrative and Financial Aspects; OECD/NEA, Paris, France.
- (8) NAS (1995): Technical Bases for Yucca Mountain Standards National Research Council; National Academy Press, Washington, D.C.
- (9) OECD/NEA (1995): Safety Assessment of Radioactive Waste Repositories: Future Human Actions at Disposal Sites. A Report of the NEA Working Group on Assessment of Future Human Actions at Radioactive Waste Disposal Sites; OECD/NEA, Paris, France.

- (10) ICRP (1985): Radiation Protection Principles for the Disposal of Solid Radioactive Waste, Annals of the ICRP, ICRP Pub. 46
 - (11) EPA(1985): Environmental Radiation Protection Standards for Management and Disposal of Spent Nuclear Fuel, High-Level, and Transuranic Radioactive Wastes, 40 CFR Part 191.
 - (12) IAEA (1994): Safety Indicators in Different Time Frames for the Safety Assessment of Underground Radioactive Waste Repositories, First Report of the INWAC Subgroup on Principles and Criteria for Radioactive Waste Disposal, IAEA-TECDOC-767.
 - (13) SKB (1992): SKB 91 - Final Disposal of Spent Nuclear Fuel. Importance of the Bedrock for Safety. SKB Technical Report TR 92-20.
 - (14) Goodwin, B. W. et al. (1994): The Disposal of Canada's Nuclear Fuel Waste: Postclosure Assessment of a Reference System; AECL-10717, COG-93-7.
 - (15) AECB(1987): Regulatory Policy Statement. Regulatory Objectives, Requirements and Guidelines for the Disposal of Radioactive Wastes - Long-Term Aspects, AECB Regulatory Documents R-104.
 - (16) Willson, M. L. et al.(1994): Total System Performance Assessment for Yucca Mountain (TSPA-1993), SAND93-2675, Sandia National Laboratories, SAND93-2675.
 - (17) Vieno, T. et al.(1992): TVO-92 Safety Analysis of Spent Fuel Disposal. Nuclear Waste Commission of Finnish Power Companies, Report YJT-92-33E.
 - (18) Nagra (1994): Kristallin-I Safety Assessment Report; Nagra Technical Report 93-22.
- [3] OECD/NEA (1982): Disposal of Radioactive Waste, An Overview of the Principles Involved.
- 8) NEA (1984): Long Term Radiation Protection Objectives for Radioactive Waste Disposal; OECD/NEA, Paris, France.

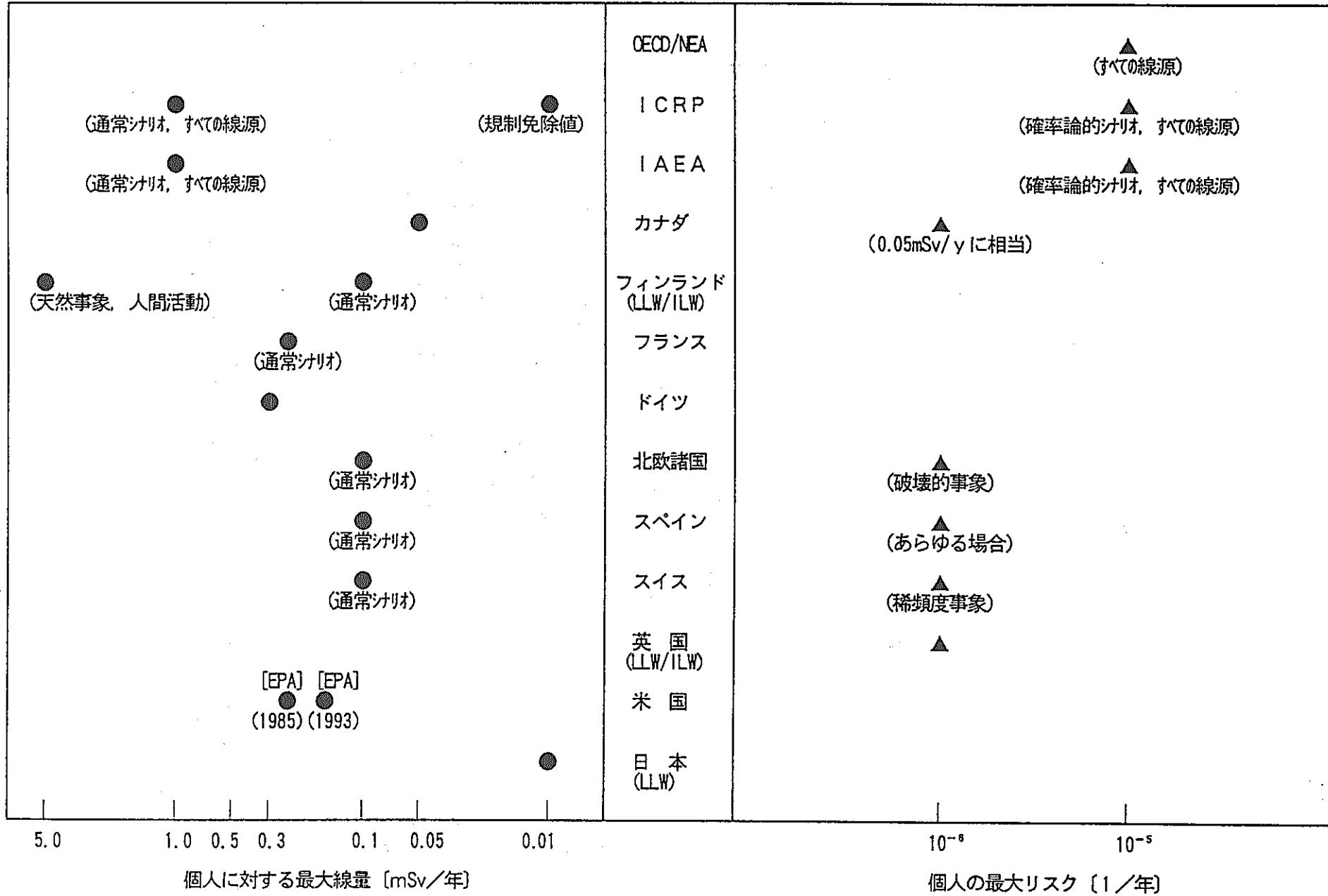


図-1 高レベル放射性廃棄物の地層処分における各国の安全基準値
(注) 日本のみ低レベル放射性廃棄物処分の基準値を参考として示した。

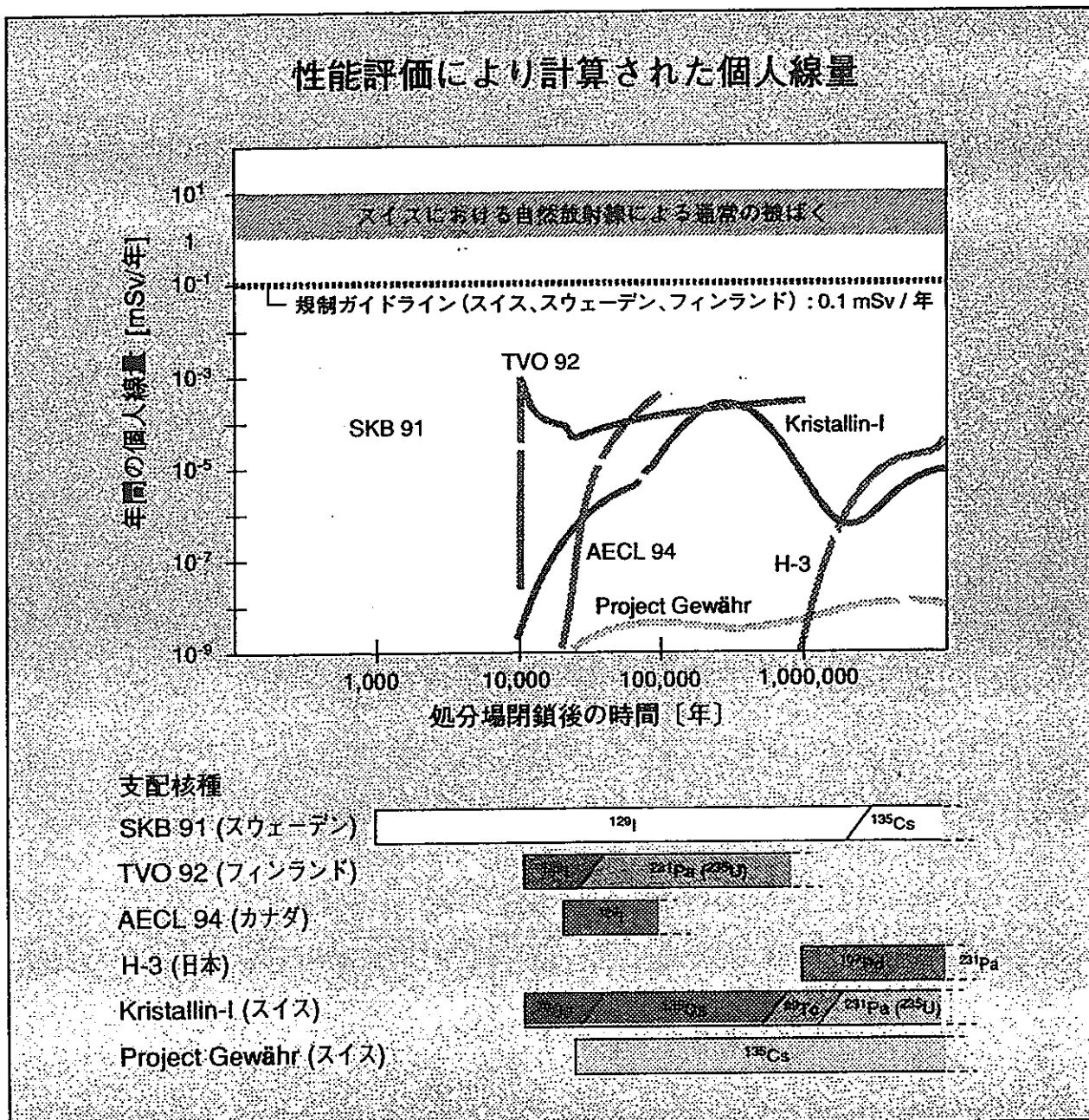


図-2 SKB 91, TVO 92, AECL 94, H-3, Project Gewähr, Kristallin-I のレファレンスケースに対する個人線量計算値と各ケースにおいて線量を最も支配する放射性核種

表1 諸外国における時間枠の設定

	時間枠の設定
カナダ (Regulation Documents R-104, 1987)	<ul style="list-style-type: none"> 目標達成を示す時間枠 $\Rightarrow 10^4$ 年 時間枠10^4 年を超えても急激な著しい影響の増加がないこと、かつその根拠も論理的に示すこと
フランス (Basic Safety Rule, BFS 111.2.F, 1991)	<ul style="list-style-type: none"> 10^4 年以降、線量限度は「参考値」として取り扱う 地質バリアの最低10^4 年にわたる安定性を証明すること 5万年以降においては、大規模な氷河期を考慮すること
ドイツ	<ul style="list-style-type: none"> 個人線量の計算の対象となる時間枠は10^4 年とするが、10^4 年以降10^6 年まで隔離性の潜在能力を放出率により評価すること
米国 (EPA 40CFR Part191, 1993)	<ul style="list-style-type: none"> 時間枠は1万年間 評価中のあらゆる被ばく経路からの個人線量 $\Rightarrow 0.15\text{mSv}/\text{年未満}$ 汚染の最大許容レベルを超えないよう、飲料用地下水水源を保護すること
(NAS レポート : Technical Bases for Yucca Mountain Standards, 1995)	<ul style="list-style-type: none"> 時間枠は、地質学的安定性によってのみ制限されるべき（ユッカマウンテンの場合約10^6 年）であり、またリスクが最大となる時期を含めるべきと提案（10^6 年以内で）
スイス (Regulation Documents R-21, 1993)	<ul style="list-style-type: none"> 処分場は数年以内にいつでも閉鎖できるように設計しなければならず、また閉鎖後、制度的管理を必要とせずに安全性を保証 線量やリスクの評価期間は、少なくともそれらが最大となる時点までを提案（ただし、遠い将来における線量は「指標値」として認識し、現在の生活習慣に基づくReference 生物圏に基づき評価）

安全評価シナリオに関する基礎的な研究

平成3年度～平成7年度

東海・環境技術開発部・地層処分開発室

大井貴夫

牧野仁史

I. 研究の概要

地層処分の長期的な安全評価において、考慮すべき事象、プロセス、特性を調査・検討し、我が国の自然環境、社会環境等の諸条件を考慮して安全評価の対象とすべき合理的な評価シナリオを設定することを目的とし、以下の研究を行った。

1. 我が国 地層処分の研究開発の進展に対応して、シナリオを合理的に設定・解析する手法を研究した。（シナリオを合理的に設定・解析する手法の研究開発）

この研究によって、我が国的事情（地質構造が複雑でサイトが特定されていないことからシナリオ設定においては地質環境を幅広く考慮する必要がある）に適したシナリオ開発手法として、O E C D / N E A によって整えられたシナリオ開発の一般的な枠組みを採用することが検討され、この考えに沿ってシナリオを開発することの有効性が得られたことから、その枠組みに沿ったシナリオ開発が進められた。また、シナリオ開発をサポートするために用いる感度解析手法が開発された。

2. 我が国 自然環境、社会環境、処分システム概念等を考慮して、処分システムの安全性に影響を与える可能性のある特性、事象、プロセス等を出来る限り広範囲に抽出し、相互の因果関係を明確にするとともに、これらの事象等の長期的発生確率の予測に資するデータを収集した。

（安全性に影響を与える可能性のある事象、プロセス、特性等の抽出並びにデータの収集）

この研究によって、安全性に影響を与える可能性のある重要な事象、プロセス、特性を、I A E A のチェックリスト等を参考にして 1 0 2 の F E P [特性 (Feature)、事象 (Event)、プロセス (Process)] リストとしてまとめた。また、わが国において特に重要な天然事象を抽出し、それぞれの事象の発生の可能性に関する情報を収集・整理した。また、人間侵入に関する情報として、過去のボーリングデータを収集・整理した。

3. 上記の抽出項目を類型化及びスクリーニングする基準の設定に関する研究を行うとともに、この基準に基づいて、我が国において想定し得る処分システムの諸条件を勘案して、事象等の類型化及びスクリーニングを行い、安全評価シナリオに採り入れる事象、プロセス、特性等のリストを作成した。（抽出項目の類型化及びスクリーニングの基準設定に関する研究及び重要項目のリスト化）

この研究によって、発生頻度の低い事象（長期的に進行するものも含める）およびそれらに関連する事象を類型化・リスト化した。さらに、それらの事象及びそれに関連するFEPの重要度を定量化するための手法の検討を行った。

4. 最終的なリストを組み合わせて、安全評価の予備的評価シナリオを作成するための研究及び、処分シナリオの長期的な安全性に影響を及ぼす可能性のあるシナリオを設定するための判断基準に関する研究を行った。（予備的評価シナリオの作成に関する研究）

この研究によって、評価シナリオを、接近シナリオと地下水シナリオに大別し、さらに地下水シナリオを基本ケースと変動ケース（発生頻度の低い事象が発端となり地下水シナリオに影響を及ぼすケースを含む）に細分化し、安全評価の予備的評価シナリオの作成に対する見通しを得た。

5. 安全評価シナリオでの想定事象の長期的な経時変化を定量的に予測するため、処分環境の長期的变化を予測するシミュレーション手法の開発を行った（シミュレーション手法の開発）。

この研究において、シナリオの構築を容易にするシナリオ開発支援ツールを開発し、各シナリオに対するシミュレーションを具体化する際に必要となるモデルの調査・検討を行った。

以上の成果は、安全評価の対象とすべき合理的な評価シナリオの構築に資するものである。

II. 研究成果

1. シナリオを合理的に設定・解析する手法の研究開発

① シナリオ設定手法の研究開発

放射性核種が人間に影響を及ぼすと考えられる道筋（シナリオ）には様々な現象がふくまれる。従来、地層処分システムの安全評価のためのシナリオ開発は、これらの個々の現象を扱う専門家の興味に大きく依存し、考慮すべきシナリオの網羅性等に関する議論は必ずしも明確にされていない場合が多かった。また、安全評価のためのシナリオとして、考慮すべき範囲を合理的に設定していくためには、方法論の枠組みを明確にして、体系的にシナリオを開発することによってできる限り客観性を保つ必要がある。

このようなシナリオ開発における問題点、必要性並びに我が国の処分事情（地質環境が複雑で、サイトが特定されていない）を踏まえ、シナリオを合理的に設定・解析する手法を研究した結果、安全評価のためのシナリオの範囲を合理的に設定していくための方法として米国サンディア国立研究所が基本的枠組みを提唱し、OECD/NEAにより整えられたシナリオ開発の一般的枠組みが、特に我が国のように地質環境を幅広く考慮した安全評価を進める上で、シナリオの抜け落ちを防止し、専門家の判断を適切に反映するという点で有効であるとの結論を得た。また、FEPリストからシナリオを組み上げる方法としては、インフルエンスダイアグラムのようなトップダウン的な方法が現実的であるとの結論を得た。以上の結論に基づき、上記手法に基づくシナリオ開発を進めた。

②シナリオの解析に関する手法の研究開発

FEPの分類・スクリーニング、更にシナリオの分類を行うためには、FEPまたはそれらに関連する個々の因子の安全評価指標に対する影響度の情報が必要になる。

そこで、シナリオ解析〔一連のシナリオ開発に係わる個々の工程（FEPの同定、分類、スクリーニング及びこれらに基づくシナリオの構築、分類）における詳細な分析〕に関連する手法の一つとして、FEPまたはそれらに関する個々の因子の安全評価指標に対する感度を網羅的に解析評価するための手法を地下水シナリオを対象とし開発した。

この手法の特徴は以下のようなものである。

従来は、非線型代数方程式や偏微分方程式を用いて、個々のFEPやそれに関連する因子を厳密に表現したモデルを用いて感度解析が行われてきた。しかし、この手法では、数多くのFEPが相互に複雑に絡み合うため、網羅的に現象を表現することまたはこれらの複雑なFEPの変動を含めた網羅的な解析を行うことは困難である。さらに、FEPが複雑に関連しあうことから、相互作用を考慮した上で真に主要なFEPを同定することは容易ではない。

そこで、定量的に厳密な結果を得ることよりも、むしろ概括的、網羅的にその特徴を把握することに重点を置き、現象を網羅的に扱える簡略化した型式に、FEPまたはFEPに関連する因子による時間、空間的な変化を含めた様々な影響を写像し、それを核種移行プロセスを表現する一般的な方程式と連立させて解くという工夫を取り入れた。

また、このような網羅的な解析結果から主要FEPまたはFEPに関連する因子を同定するため、感度解析結果の後処理として多変量解析の手法を取り入れ、複雑に関連しあうFEPの中から、主要なFEPまたはFEPに関連する因子を同定することができるようとした。

このような解析上の工夫により、様々な影響因子の安全評価指標に対する感度を網羅的に把握することが可能になった。また、個々の因子の詳細なモデル化が必要とされないため、効率的に影響の概要を把握することが可能になった。さらに、多変量解析の手法を取り入れることにより、影響因子間の相対的重要性の判定が可能になった。

図-1に緩衝材中で発生すると考えられる沈殿の生成速度が変化することによる緩衝材外側からの核種放出率の変動の解析例を示す。本研究によって開発された手法を用いることにより、地下水シナリオのFEPとして考えられ沈殿現象の影響が、地球化学的な反応の時間・空間変化を考慮して解析された。

2. 安全性に影響を与える可能性のある事象、プロセス、特性等の抽出並びにデータの収集

1. ①のシナリオ設定手法に基づき、地層処分システムの安全性に影響を与える可能性のある現象を、それを規定する要因である地層処分システムや地質環境の特性(Feature)、突発的な事象(Event)、緩慢に進行するプロセス(Process)という観点から抽出し、IAEAのチェックリスト

ト等を参考にして102のFEPリストとしてまとめた。さらに、リストアップされた特性、事象、プロセスに関する情報の収集を通して、FEPの相互関係及び因果関係を整理し直した。

これらFEPの整理の過程で、わが国の地質環境条件の長期的安定性に影響を及ぼす可能性のある天然事象（気候変動、海面変動、断層活動、火山活動、隆起・沈降、隕石の衝突）を抽出するとともに、わが国におけるこれらの事象の発生の可能性及びその影響の程度を検討するための既存情報の収集・整理を行った。また、人間が係わる事象（人間侵入）による影響を考慮するために、過去のボーリングデータの収集・整理も行った。

3. 抽出項目の類型化及びスクリーニングの基準設定に関する研究及び重要項目のリスト化

わが国の地質環境条件の長期的安定性に影響を及ぼす可能性のある天然事象（気候変動、海面変動、断層活動、火山活動、隆起・沈降、隕石の衝突）及び人間が係わる事象（人間侵入）の検討から、これらの事象の発生頻度は低い（長期的に進行するものも含める）もののそれらが起こった場合の直接的な人間への影響および核種移行媒体である地下水水理や周辺の環境条件を変動させる可能性の重大性から、これらの事象を検討することの重要性が示された。さらに、これらの事象およびそれに関連するプロセスに関連するデータ・情報は十分でなく、本質的に不確実であるものが多いことが示された。

そこで、このような事象の影響を検討するため、これらの事象による影響を4つの環境条件（水理、熱、機械、地球化学）の変動として扱い、これらの変動とこれらの変動によって影響を受ける核種移行プロセスとの関連を類型化・リスト化し、インフルエンスダイアグラムを作成するとともにこれらの影響を評価するための手順を整理した（図-2に火成活動を起点とするインフルエンスダイアグラムを示す）。

さらに、これらの重要度を定量的に評価することの必要性から、様々な専門家の主観的または直観的な判断を用いて事象を定量化するAHP法（Analytical Hierarchy Process）がデータや情報が十分でなく、本質的に不確実であるものに対する定量化を可能にし、これらの事象のスクリーニングまたは重要度分類において有用であることを確認した。

4. 予備的評価シナリオの作成に関する研究

シナリオを、処分場からの放射性核種が地下水を移行媒体として人間に影響を及ぼすシナリオ（地下水移行シナリオ）と人間と地層処分された高レベル廃棄物の物理的距離が接近することによって人間に影響を及ぼすシナリオ（接近シナリオ）とに大別した。さらに、前者の地下水移行シナリオに対しては、地質環境条件が定常でかつ他の要因の変動が緩やかで無視し得ることを想定した基本ケースと、地質環境条件が非定常でかつ他の要因の変動による影響を考慮した変動ケース（発生確率が稀な事象が発端となり地下水シナリオに影響を及ぼすケースを含む）とに細分化し、安全評価の予備的評価シナリオの作成に対する見通しを得た。

5. シミュレーション手法の開発

安全評価シナリオに取り入れるべき事象、プロセス、特性の情報に基づいてそれらの相互関係

を図示するとともに、個々の相互関係の重要度に基づいて注目すべき影響の伝搬経路を同定することができるシナリオ開発支援ツールの開発を行った。また、安全評価シナリオにおける想定事象の影響を定量的に予測するシミュレーション手法の開発の一貫として、シミュレーションを具体化する際に必要となる現象モデルの調査・検討を行った。

6. 結言

本研究により、以下の成果が得られた。

- (1)シナリオの抜け落ちを防止し、専門家の判断を適切に反映するという点で有効なO E C D / N E Aにより整えられたシナリオ開発の一般的枠組みに基づき、シナリオ開発を進めた。
- (2)シナリオの解析手法の一つとして、F E P またはそれらに関する個々の因子の安全評価指標に対する感度を網羅的に解析評価するための手法を地下水シナリオを対象として開発した。
- (3)安全性に影響を与える可能性のある現象を事象、プロセス、特性等の観点から抽出し、1 0 2 の F E P リストとしてまとめた。また、リストアップされた特性、事象、プロセスに関する情報の収集を通して、F E P の相互関係及び因果関係を整理した。
- (4)発生頻度が低い天然事象を対象とした検討から、これらの事象とこれらの事象によって影響を受ける核種移行プロセスとの関連を類型化・リスト化し、インフルエンスダイアグラムを作成するとともにこれらの影響を評価するための手順・手法を整理した。
- (5)主要なシナリオを分類・整理し、安全評価の予備的評価シナリオの作成に対する見通しを得た。
- (6)シナリオの開発を容易にするツールを開発するとともに、シミュレーションを具体化するために必要なモデルの調査・検討を行った。

以上の成果は、FEP の同定、分類、スクリーニング及びこれらに基づくシナリオの構築、分類の個々のシナリオ開発工程の効率的な実施に反映されるものであり、安全評価の対象とすべき評価シナリオの合理的な構築に資するものである。

主要レポート

- (1)動燃技報N o. 8 5 (高レベル放射性廃棄物の地層処分研究開発特集), pp14-22,
PNC TN1340 93-001
- (2)地層処分研究開発の現状(平成5年度), pp61-65, PNC TN1410 94-094

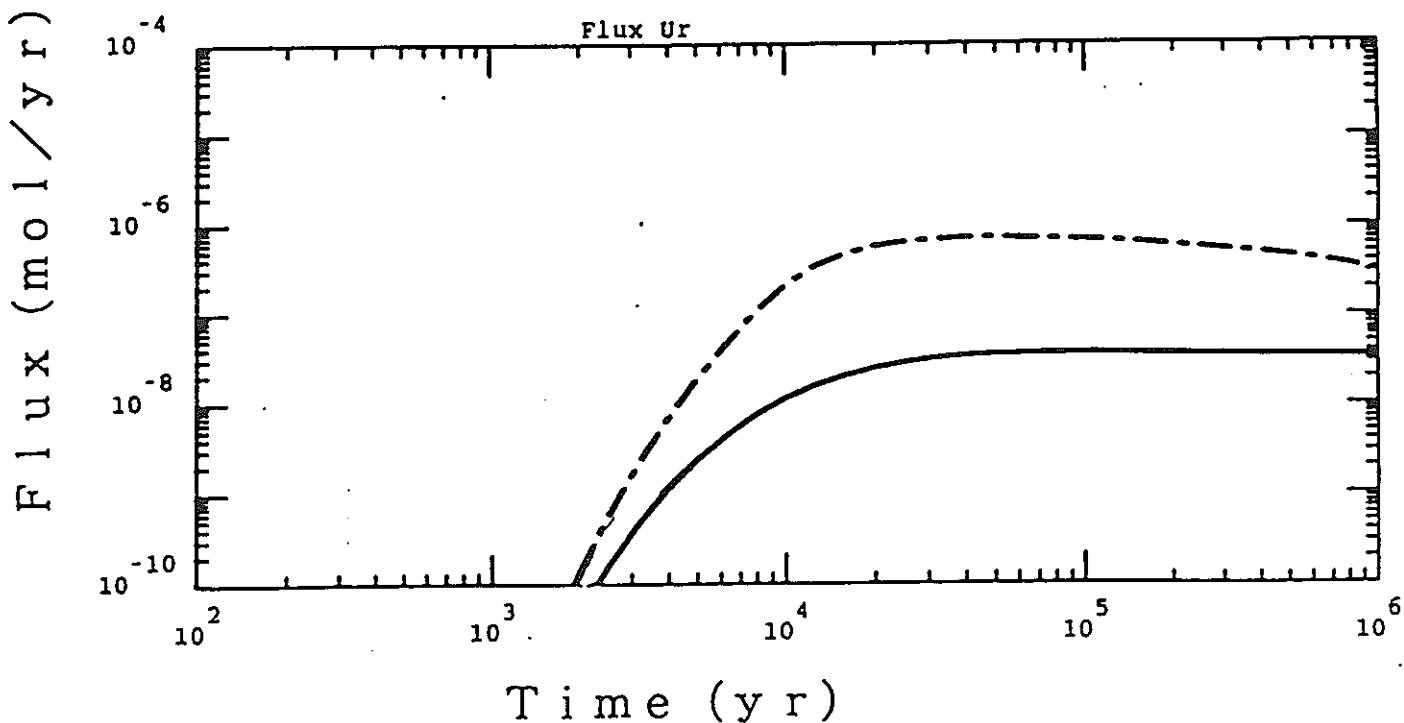


図-1 沈殿速度が変化することによる核種放出率の変動の例 (U-233の場合)
 (-: 沈殿速度が速い場合、---: 沈殿速度が遅い (1/1000) 場合)

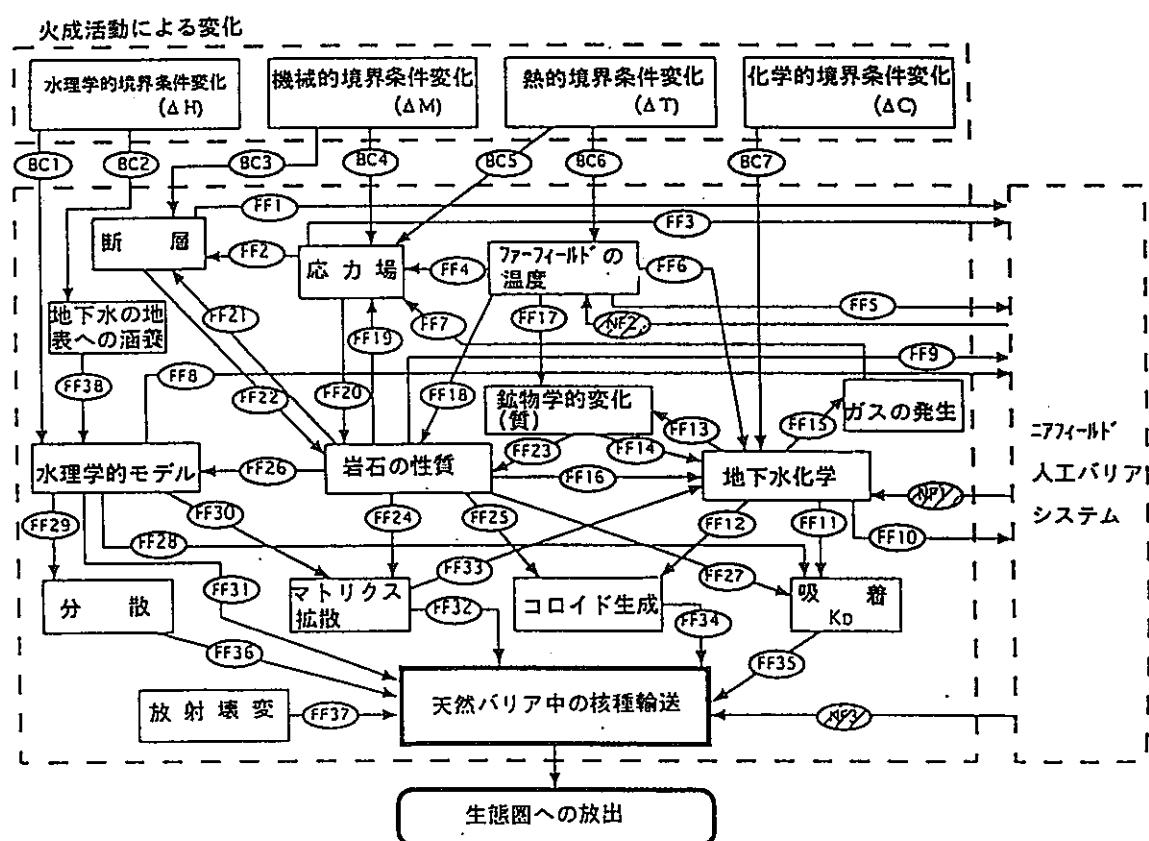


図-2 火成活動を起点とするインフルエンスダイアグラムの例

地層処分システムの長期安定性に関する研究

平成3年度～平成7年度

東濃・地質安定性研究室 石丸恒存、梅田浩司
藤原治

I. 研究の概要

本研究は、地層処分システムの長期安定性に影響を及ぼす事象を抽出し、将来の発生確率や規模を評価することによって、地層処分の安全性を評価する期間の合理的設定に資することを目的とする。そのために、地層処分システムの長期挙動を予測する上で影響を与える以下の事象を対象として、系統的に情報を収集するとともに事象の長期変動予測モデルの開発を行う。

1. 自然環境の変化予測に必要なデータの収集

地質環境の長期的な安定性を評価するためには、さまざまな天然現象が地質環境に与える影響を評価する必要がある。我が国における地質環境の安定性を評価する上で特に重要な現象として、①気候変動／海面変動、②断層運動／地震、③隆起／沈降／侵食、④火山活動、および⑤隕石の衝突の5項目を抽出した。これらの各現象について、我が国における発生の可能性や規模（影響の程度）・規則性・地域性などの特徴を把握することを目的として、地球科学のそれぞれの分野に蓄積されている情報の収集・整理を行った。

2. 長期変動予測モデルの開発

第四紀における侵食速度と地形・地質との関係を解析し、侵食速度を定式化した。

3. 処分場環境の変化の予測モデルの開発

火山活動に伴う貫入岩の処分場環境への影響評価に関して、我が国の火山のデータに基づき、確率論的手法を用いた既存の性能評価コード（RIP モデル：Repository Integration Program）を用いたケーススタディを実施し、火山活動の影響評価に必要な入力データ項目に関する情報を得た。

II. 研究成果

1. 自然環境の変化予測に必要なデータの収集^{(1) (2) (3) (4) (5)}

(1) 気候変動／海面変動⁽⁶⁾

将来の気候・海面変動を予測するため、第四紀における気温や海面の変動幅と変動周期について現状の知見を整理した。

(a) 過去の気候変動と海面変動

第四紀には温暖な間氷期と寒冷な氷期が地球規模で繰り返しており、氷期－間氷期の気候変化の程度は、氷河の体積の変化量すなわち海面の変動量を見積もることによって把握することができる。このような海面の変動量は、深海底の堆積物に含まれる酸素同位体比の研究によって明らかにされている。世界的な海面変動は約70万年前以降、約10万年周期でほぼ同じ振幅で起こっており（図-1）、変動幅は現在比+6m～-130mの間である。また、海面が

最低位に達してから再び最高位に達する（この間の海面の上昇量は130～140m）のに要する時間は1万数千年である。海面の最も高い時期は1万数千年間継続する。最高位に達した海面は約10万年かかるて再び最低位に達する。このように海面変動は非対称な鋸刃状の変動をしており、12～13万年前に最高位に達した海面は、約2万年前に最も低くなり、その後急速に上昇して5～6千年前に最高位に達している。

氷期と間氷期の気温の差は中緯度の大陸周辺で最大となり、年平均で約10°Cに達するとされている⁽²¹⁾。花粉などの研究によると日本海側の平均気温は、約2万年の現在比-8°Cから次第に上昇し、約6千年前には現在比+2～3°Cに達した。

第四紀における地球規模での変動パターンに基づけば、今後、地球の気候は、約10万年後に想定される最寒冷期に向けて寒冷化し、海面も低下していくと考えられる。最寒冷期における海面は、現在よりも百数10m低下していると予想される。また、温暖期のピークからすでに5～6千年を経過していることから、今後数千～1万年以内には寒冷化が始まり、海面は数m～数十m低下すると予想される。

(b) 我が国における氷河の分布

気候変動による影響として欧米諸国では、寒冷化に伴う氷河による荷重、氷河の移動に伴う侵食あるいは地層の凍結などが重視されており、地形や堆積物に残された痕跡によって、過去における氷河の拡大範囲が調べられている。

日本列島における氷河の分布は、最寒冷期でも日本アルプスや北海道の高山の一部に限られる⁽²²⁾。

(c) 温室効果による温暖化

過去何十万年にわたって繰り返されて来た地球規模での気候変動パターンが、現在を境にして突然変化するとは考えにくい。したがって、ここでは人間活動が気候変動に与える影響について検討した。

人間活動に伴う大気中二酸化炭素濃度の増加などによる温室効果によって、地球の気温や海面の上昇が起こると考えられる。温暖化に対して何らの対策も講じなかった場合、二酸化炭素などの温室効果をもたらすガス（二酸化炭素など）の大気中濃度は、21世紀半ばに工業化以前の約2倍に達し、地球全体の平均気温が数°C上昇する可能性がある⁽²³⁾⁽²⁴⁾。このような温暖化現象が長期化すれば、高緯度地域の氷河が融解し、大規模な海面上昇が起こる可能性がある。現在の大陸氷河（約2,400万km³⁽²⁵⁾）が全て融解した場合の海面上昇量は約66mと推定される。

なお、二酸化炭素などの増加と気候変化との因果関係については、未だ不明な点も多く、今後の研究によってより正確な予測が可能になることが期待される。

(2) 断層運動／地震

本研究では、主に活断層（断層は、すでに活動を停止した地質断層と最近の地質時代に繰り返し活動し今後も活動する可能性のある活断層に区別される）に着目して情報の整理を行った。

(a) 地震活動

地震は断層運動に伴って発生するものであるが、地震を起こした断層の変位が地表に現れるることは少ない。震源が比較的浅く規模が大きい場合には、地下の断層の変位が地表に現れることがある。地震に伴って地表に現れた断層は地震断層と呼ばれる。地震断層の多くは既存の活断層が再活動したものであり、兵庫県南部地震（平成7年1月17日）の際に活動した

野島断層もその一つである。

(b) 日本列島における活断層の分布

「新編日本の活断層」⁽²⁶⁾によれば、日本列島に分布する活断層は約2,000本である。その分布密度は場所によって大きく異なり、数十km²の範囲に全く活断層が存在しないところもあれば、10本以上の活断層が密集しているところもある。分布密度の高い地域は、近畿三角地帯と称される敦賀－鳴門海峡－伊勢湾口に囲まれた地域、糸魚川－静岡構造線以西の飛騨－木曽－美濃地域、東北地方中央部の脊梁山脈、四国－九州の中央構造線沿い、伊豆－箱根地域などである(図-2)。逆に、東北日本の太平洋側や四国－紀伊半島の太平洋側などでは、活断層の分布密度は低い。活断層の方向は、大まかに見れば、日本列島の形に沿う方向が優勢で、東北日本では南北～北東－南西方向が、西南日本では東西～北東－南西方向が卓越している。分布密度の高い近畿三角地帯や飛騨－木曽－美濃地域では、日本列島の方向に斜交する活断層も発達している。

(c) 断層による変位^{(7) (8) (9) (10)}

断層によるずれ(変位)の大きさは、大規模なものでは1,000mを越えるものがある。ただし、一回の活動による変位は数10cmからせいぜい数m程度であり、大規模な変位は非常に長い期間にわたって断層運動が繰り返された結果である。

一定期間における断層の変位量を平均変位速度と呼び、一般に千年当たりの変位量で表す。「新編日本の活断層」によれば、日本の活断層の平均変位速度は0.01～10m/千年の範囲にあり、その大部分が5m/千年以下である。平均変位速度が5m/千年を上回るものは、中央構造線系や糸魚川－静岡構造線系など数例である。

(3) 隆起／沈降／侵食⁽¹¹⁾

文献調査により、第四紀における日本列島の隆起・沈降量を取りまとめた。また事例研究と文献調査により第四紀における侵食量を取りまとめた。

(a) 第四紀における隆起・沈降^{(12) (13) (14) (15) (16)}

第四紀を通じた累積隆起量は、地形学および地質学的手法によって見積もられている(図-3)。日本列島の大部分は第四紀を通じて数100m以上隆起しているのに対し、沈降した地域はわずかである。隆起が顕著な地域は日高山脈、奥羽山脈、日本アルプス、紀伊山地、四国山地、九州山地であり、これらの山地の中央部では累積隆起量が1,000mを越える。山地の急速な隆起は第四紀後半から始まったとされており⁽²⁷⁾、隆起に要した時間を100万年と仮定して図-3に示す累積隆起量を隆起速度に換算すると、大部分の地域で隆起速度は数10cm～1m/千年となる。また、本州中部の山地などの隆起速度は最大で数m/千年に及ぶと推定されている^{(28) (29) (30)}。

過去約12万年間の海岸部の隆起量は、海岸段丘の高度から求められている⁽³¹⁾。それによると、隆起速度は多くの地域で0.5m/千年以下である。隆起速度は太平洋や日本海に面した半島部で大きく、南関東、四国南部、男鹿半島、能登半島などでは1m/千年以上に達する。

(b) 現在における隆起・沈降

水準測量によって求められた日本列島の過去70年間の上下変動量を図-4に示す。日本列島は現在も年間1mmのオーダーで上下変動しており、そのパターンは、第四紀を通じての変動パターンと類似している。このことは、日本列島では第四紀の後半以降、同様のパターンで隆起・沈降運動が進行していることを示している。

(4) 火山活動⁽¹⁷⁾⁽¹⁸⁾

日本は世界有数の火山国であり、実際に世界の活火山の約1割が世界の陸地の0.25%足らずの日本列島に分布している⁽³²⁾。現在活動を停止している死火山や休火山を含めると、日本列島に現存する火山（群）は200余りにのぼる。

(a) 火山活動の規則性

火山には1回の噴火毎に火道を変えることにより形成された単成火山群と、休止期をはさんでマグマがほとんど同じ火道を通って噴出を繰り返す複成火山とがある（火山の寿命については、単成火山が1回の噴火期間が数日から数年であるのに対し、複成火山の寿命は数千年から数十万年に及ぶとされている⁽³⁴⁾⁽³⁵⁾）。

火山活動の時間的な変化は、火山噴出物の量や年代からある程度推定できる。火山噴出物などに関する研究の結果、火山噴火の規模と噴火前の休止期の長さとの間に正の相関があることが分かってきており⁽³³⁾、休止期が数千～数万年と長い火山ほど大噴火を起こす可能性が高く、数十～百数十年間隔で頻繁に噴火する火山は、大噴火を起こす可能性が低いと考えられる。

(b) 火山活動の場とその規制要因

日本列島における火山の分布は偏在的であり、いわゆる火山帯と称される地域にだけ分布がみられる（図-5）。このような火山の分布は、プレートの位置と動きに密接に関係していることが知られている。例えば東北日本における現在の火山の分布は日本海側だけに限られており、太平洋側の火山の分布しない地域と明瞭に一線を画することができる。この一線は火山フロントと呼ばれ、太平洋プレートが北米プレートに沈み込んでいる場所（日本海溝）と平行している。西南日本においては火山フロントの存在は東北日本ほど明瞭ではないが、火山の分布は中国地方の日本海沿岸から阿蘇山－桜島を結ぶラインよりも大陸側に限られている。

なお、マグマの発生メカニズムについては、プレートの沈み込みに関連させたいいくつかのモデルが提唱されている⁽³⁶⁾。

(c) 火山活動の場の時間的变化

日本列島に現存する火山は、すべて第四紀に形成されたもので、それ以前の火山は火山体として地形的に確認することはできない。ただし、火山噴出物の分布と年代から過去における火山の分布を推定することは可能である。

図-6は新第三紀の火山岩の分布と現在の火山の分布を重ねたものである。新第三紀の火山岩の分布範囲は、おおむね当時の火山活動域を表していると考えることができる。現在の火山の分布は新第三紀の火山岩分布地域とほとんど一致しており、日本列島における火山活動の場が、新第三紀から第四紀にかけて大きくは変化していないことを示している。ただし、現在は火山が分布していない西南日本および東北・関東地方の太平洋側に、新第三紀火山岩の小規模な分布が知られている。これらは、1200～1800万年前頃に起こった火山活動によるものと考えられており、その原因に関しては、日本海の拡大や四国海盆の沈み込みに関連づけた解釈がなされている⁽³⁷⁾。

以上のことから、1200～1800万年前頃に太平洋側で特異的な火山活動があったが、それ以降、日本列島における火山活動の場は大きく変化していないと言える。

(5) 領石の衝突⁽¹⁸⁾

本研究では、領石の衝突によって生成したと考えられる月面および地球上のクレーターに着目して、クレーターの形状および領石の衝突確率を検討した。

(a) 領石の衝突の記録

地球には多くの領石が降り注いでおり、大部分は大気圏を通過する間に燃え尽きてしまうが、大きなものは地表に落下することがある。大規模な領石の衝突で形成されたと考えられるクレーターは、地球上で百数十個が確認されている⁽¹⁸⁾。領石の衝突で形成されたクレーターの中には、その後の侵食などで消滅したもの、あるいは未だ確認されていないものが多数存在すると考えられる。

(b) クレーターの形状

主に月面のクレーターを対象とした研究^{(39) (40)}によると、クレーターの形状は直径の小さいものから順に、おわん型クレーター・平底クレーター・中央丘をもつクレーター・多重リング状クレーターなどに分類され、規模が大きいものほど複雑な形状となる。また、一般にクレーターの深さは直径に比例し、直径10数km以下のクレーターでは、両者の比はおおむね1:5である。

(c) 領石の衝突確率

地球に落下する領石の起源は、火星と木星の間の軌道を回る小惑星とする説が有力である。これらの小惑星の中には、公転軌道が地球の公転軌道と交差するものがあり、アポロ群小惑星と呼ばれる。アポロ群小惑星は長い年月の間には地球と接近し、衝突する可能性がある。水谷⁽⁴⁰⁾によるとアポロ群小惑星の地球への衝突確率は、 $0.64 \sim 14.84 \times 10^{-9}$ /年であり、平均は 4.46×10^{-9} /年である。

地球上のクレーターの数と形成年代から領石の衝突確率を試算した例^{(41) (42)}によると、直径10kmおよび20km以上のクレーターが生成するような領石の衝突確率は、 $10^{-14}/\text{km}^2 \cdot \text{年}$ および $10^{-15}/\text{km}^2 \cdot \text{年}$ のオーダーである。

2. 長期変動予測モデルの開発⁽²⁰⁾

第四紀の侵食量を調査・解析し、侵食速度の定式化を行った。

山地部の侵食速度はダムに堆積した土砂の量から推定できる⁽⁴³⁾。ダムの堆砂量に基づくと、大部分の山地で侵食速度は0.5m/千年以下である(図-7)。ダム流域の侵食速度と地形の起伏の大きさとの関係を図-8に示す。Ohmori(1978)⁽⁴⁴⁾が示したように、地形の起伏が大きいほど侵食速度は大きくなる。この図からは、起伏の大きな山地中央部では侵食速度が年間数mmに達する地域があるが、起伏の小さい平野部では侵食速度は0.1m/千年以下であることが示唆される。

平野周辺における侵食速度は、段丘の年代と侵食量を調べることによって推定できる。幾つかの地域について段丘の形成後の経過年数と侵食量との回帰式を作成した。段丘の形成直後は侵食速度は非常に速いが、段丘形成から時間とともに侵食速度は次第に遅くなっていく(図-9)。回帰式から求めた平野周辺の過去10万年間の侵食速度は0.05~0.1m/千年で、ダムの堆砂量から求めた山地中央部の侵食速度より小さく、起伏が小さいほど侵食速度も小さいことが確認された。また、過去10万年間の侵食量は、海岸段丘の標高から求めた隆起量の2割程度であることが明らかになった。

3. 処分場環境の変化の予測モデルの開発

火山活動に伴う貫入岩の処分場環境への影響評価に関して、我が国の火山のデータに基づき、

確率論的手法を用いた既存の性能評価コード (RIP モデル : Repository Integration Program) を用いたケーススタディを実施し、火山活動の影響評価に必要な入力データ項目に関する情報を得た。 RIPモデルを用いた火山活動の影響評価には、火山の噴火頻度、噴出物の量、貫入岩の貫入確率などのデータが必要である。貫入確率は、貫入岩の分布、長さなどのフィールドデータに基づいてFracMan (割れ目分布の3次元解析コード) を用いて求めた。

4. 結言

気候・海面変動、断層活動、火山活動、隆起・侵食について、将来変化予測に必要な、日本列島における各現象の分布や地質時代の変動範囲、変動規模に関する既存情報の収集を行い、各現象の過去の時間的・空間的変遷を明らかにした。このうち隆起・侵食については、第四紀における内陸部の侵食速度の定式化による長期的な地形変化モデルを構築した。さらに火山活動については、貫入岩の処分場環境への影響評価に関して、確率論的手法を用いた既存の性能評価コード (RIP モデル : Repository Integration Program) によるケーススタディを行い、同コードの日本列島における火山活動への適用性についての見通しを得た。

今後は、さらにデータの収集を継続し、上記以外の事象について、長期変動モデルを構築するとともに天然事象が地質環境に及ぼす岩盤力学的、水理学的、地球化学的な影響の規模や範囲を明らかにする。

〔主要レポート〕

- (1) Shimizu, et al. : Natural processes and events relevant to long-term stability of geological environment in Japan. In "Waste Disposal and Geology, Scientific Perspectives". Proc. Workshop WC-1 of the 29th Int. Geol. Cong. (1992)
- (2) 清水, 石丸: 地質環境の安定性に関する研究. 動燃技報第85号 (1993)
- (3) 地層処分研究開発の現状—日本における地質環境の長期安定性. PNC TN1410 94-094 (1994)
- (4) 武田: 地質環境の長期安定性. 第3回地層処分研究開発報告会公開資料 (1995)
- (5) 武田: 地層処分における地質環境の安定性. 地質ニュース499号 (1995)
- (6) 清水: 地質環境の長期的隔離性能に係わる天然事象について(I) -気候変動・海面変動-. PNC TN7410 91-010 (1991)
- (7) 荒木, 石丸, 藤原: 音波探査による神戸沖海域の活断層調査—活断層の分布および累積変位量の調査手法の検討-. 日本応用地質学会中部支部平成7年度支部研究発表会講演予稿集 (1995)
- (8) 荒木, 石丸, 藤原: 神戸沖にみられる大阪湾断層の完新世における累積変位について. 地球惑星科学連合会1996年合同大会予稿集 (1996)
- (9) 石丸, 中山, 安藤: 野島断層周辺(淡路島北西部)を対象とした空中電磁探査. 地球惑星科学連合会1996年合同大会予稿集 (1996)
- (10) 伊藤ほか: 3次元反射法地震探査による淡路島北淡町小倉地域の野島断層の地下構造調査. 地球惑星科学連合会1996年合同大会予稿集 (1996)
- (11) 清水, 石丸: 地質環境の長期的隔離性能に係わる天然事象について(II)-日本列島における隆起・沈降・侵食の規則性-. 日本原子力学会1992年春の年会要旨集 (1992)
- (12) 藤原ほか: 房総半島南部の完新統のイベント堆積物と段丘形成との関係. 日本第四紀学会1995年大会要旨集 (1996)
- (13) 藤原, 増田: 地殻変動の将来予測に関する研究(1)-堆積環境の復元による第四紀の隆起運動の解

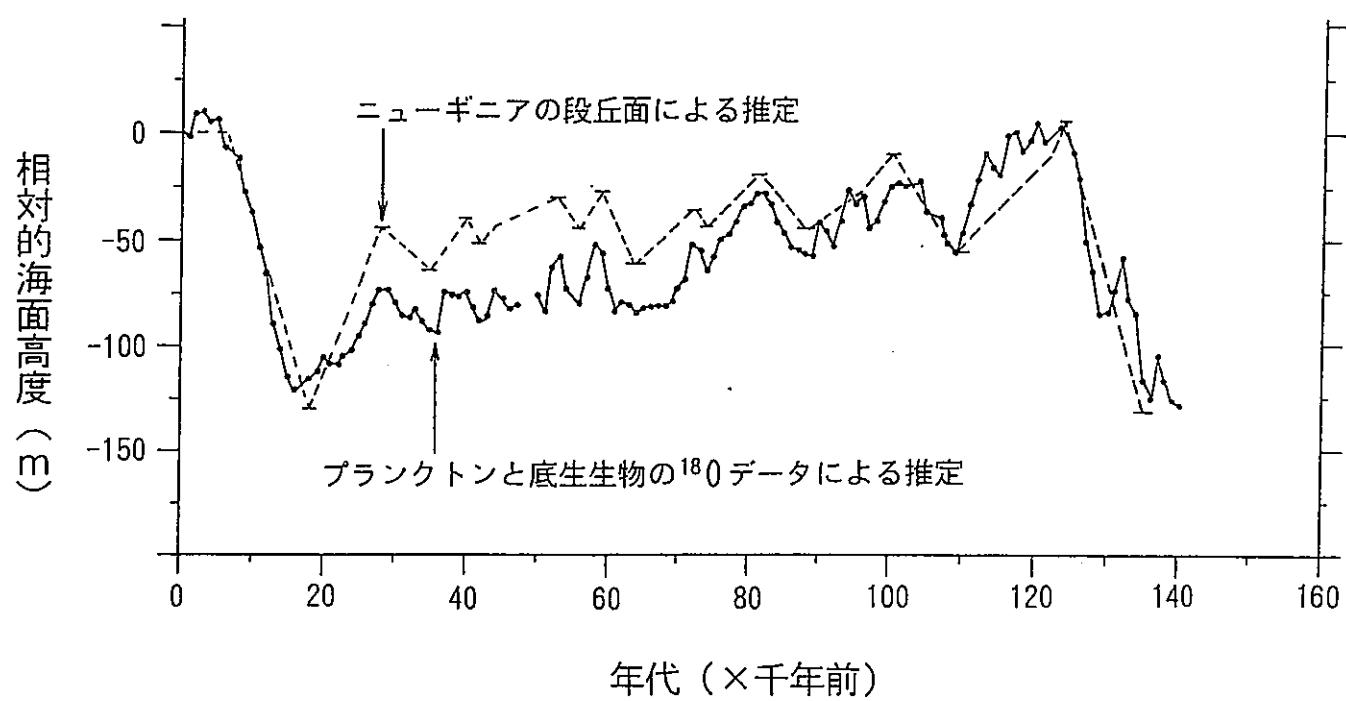
析精度の向上－．日本原子力学会1995年秋の大会予稿集（1995）

- (14) 藤原, 増田, 酒井：津波堆積物からみた房総半島南部の隆起運動の周期. 地球惑星科学連合会
1996年合同大会予稿集（1996）
- (15) 藤原ほか：房総半島南部の完新統の津波堆積物と段丘形成との関係. 日本地質第103 年年会要旨
集（1996）
- (16) 藤原ほか：海浜堆積物からみた下総台地の隆起運動像. 堆積学研究第4巻（1996）
- (17) 石丸, 清水：地質環境の長期的隔離性能に係わる天然事象について(II)－火山活動－. PNC
TN7410 91-031 (1991)
- (18) 梅田, 向山：日本列島における第四紀火山地形－火山地形定量化の試み－. 地球惑星科学関連學
会1996年合同大会予稿集（1996）
- (19) 石丸, 清水：地質環境の長期隔離性能に係わる天然事象について(III)－隕石の衝突－. 日本原
子力学会1992年秋の大会予稿集（1992）
- (20) 藤原ほか：地質環境の長期隔離性能に係わる天然事象(IV)－我が国の山地部における地盤の侵食
速度－. 日本原子力学会1993年春の年会要旨集（1993）

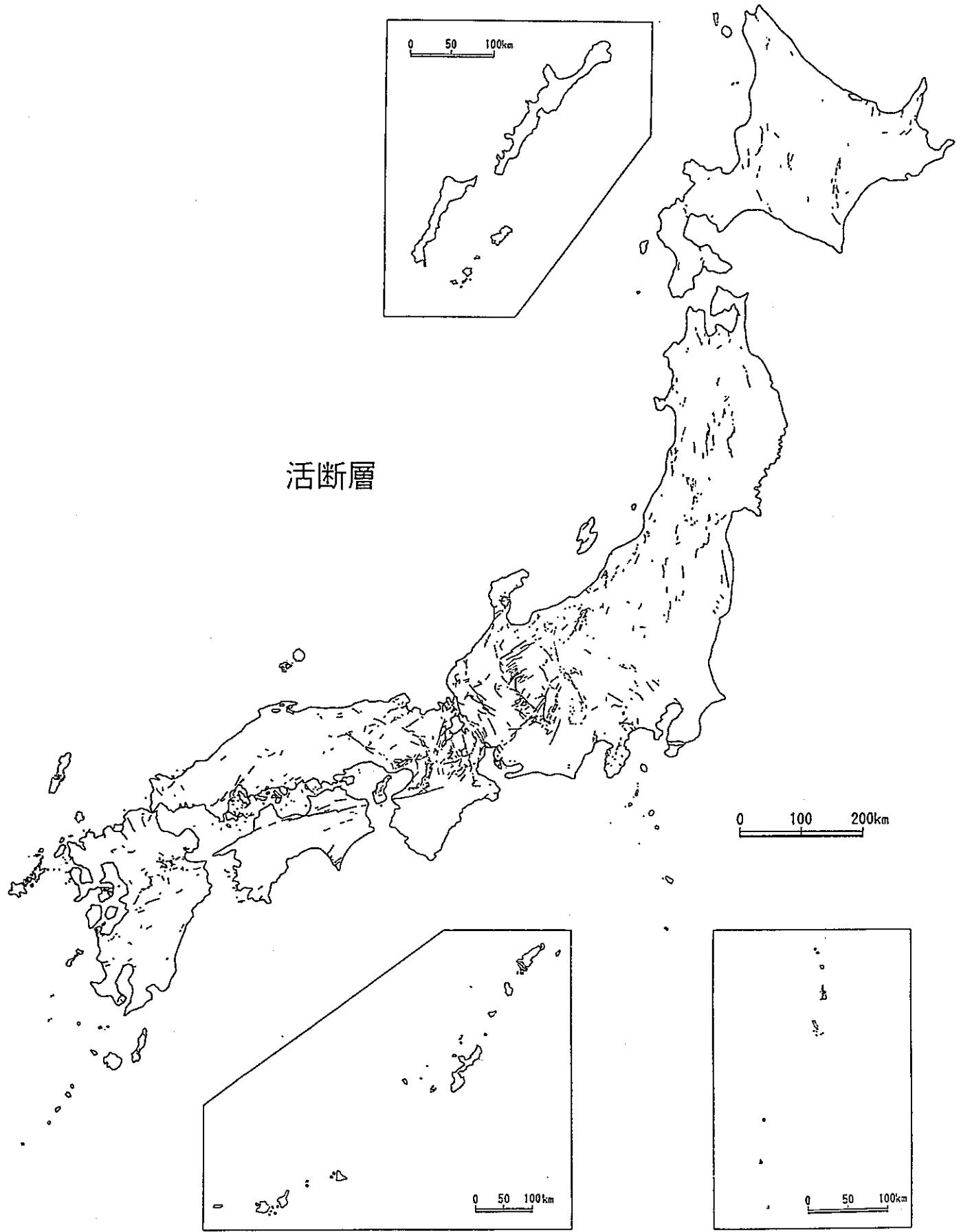
〔参考文献〕

- (21) 小林：氷期, 地学事典増補改訂版, 平凡社 (1981)
- (22) 小疇：山地・水河, 日本第四紀地図解説, 東京大学出版会 (1987)
- (23) 真鍋：二酸化炭素と気候変化, 科学第55巻 (1985)
- (24) 松野：温室効果ガスの増加による気候変化の推定, 科学第59巻 (1989)
- (25) 成瀬：第四紀, 岩波書店 (1982)
- (26) 活断層研究会（編）：新編日本の活断層, 分布図と資料, 東京大学出版会 (1991)
- (27) 藤田, 太田：第四紀地殻変動, 日本の第四紀研究, 東京大学出版会 (1977)
- (28) 大森：四国山地の第四紀地殻変動と地形, 変動地形とテクトニクス, 古今書院 (1990)
- (29) 貝塚：関東の第四紀変動, 地学雑誌第96巻 (1987)
- (30) Ohmori : Mean Quaternary uplift rates in the Central Japanese mountains estimated by
means of geomorphological analysis, Bull. Dept. Geogr., Univ. Tokyo, 19 (1987)
- (31) Ota et al. : Last interclacial shoreline map of Japan, IGCP 274 (1992)
- (32) 貝塚, 松田, 中村：日本列島の構造と地震・火山, 科学第46巻 (1976)
- (33) 町田：火山の爆発的活動史と将来予測, 百年・千年・万年後の日本の自然と人類, 古今書院
(1987)
- (34) 中村：火山の構造と噴火と地震の関係, 火山第20巻 (1975)
- (35) 中村：火山とプレートテクトニクス, 東京大学出版会 (1989)
- (36) 棚山・久城：沈み込みと火山帯, 科学第51巻 (1981)
- (37) 高橋：マグマ活動からみたフォッサマグナ地域の18～12Ma期のテクトニクス, 月刊地球第11巻
(1989)
- (38) Grieve, Robertson : The terrestrial cratering record I, Current status of observations.
Icarus 38 (1979)
- (39) Pike : Depth/diameter relations of fresh lunar craters from spacecraft data, Geophys.
Res. Lett., 1 (1974)

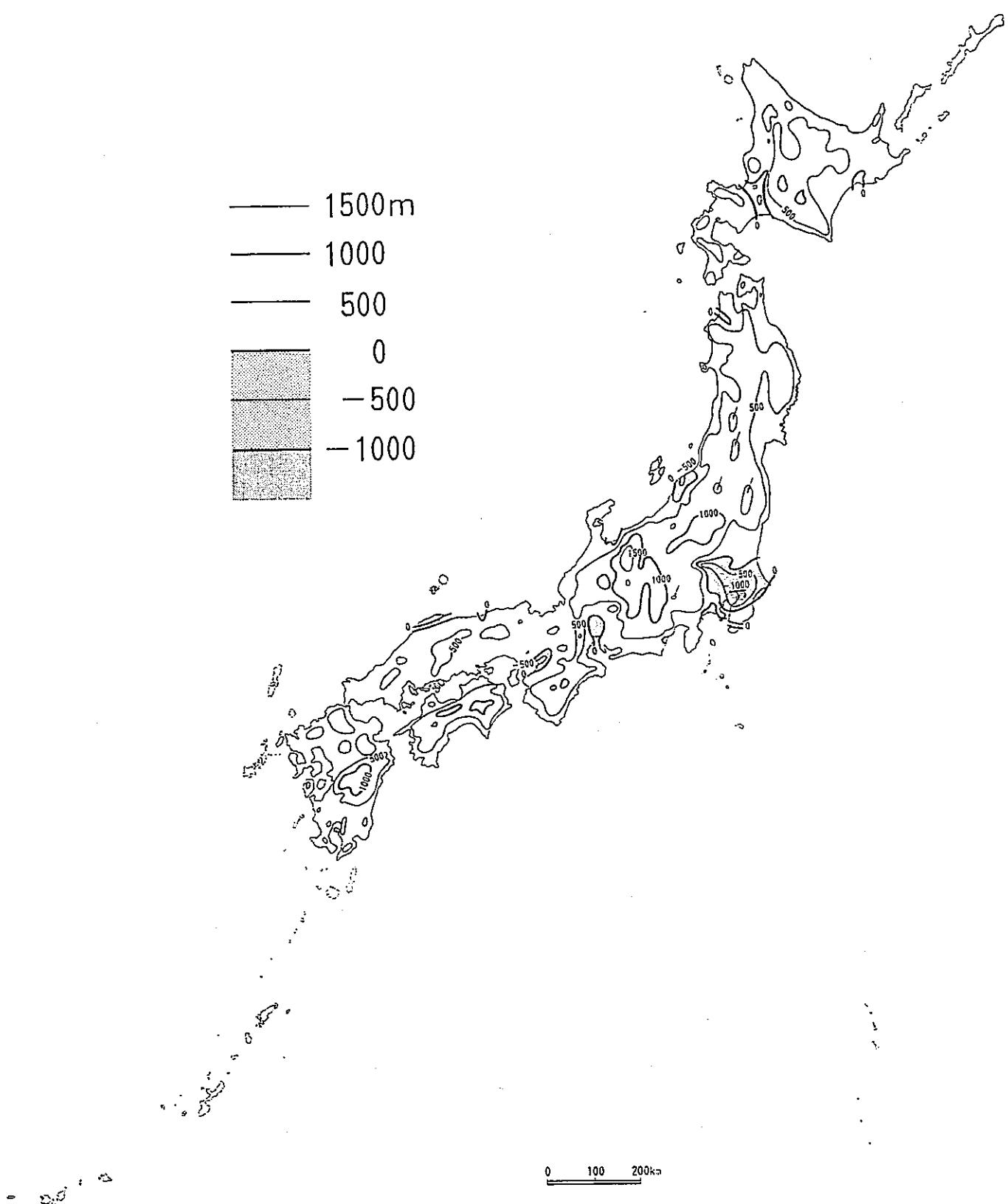
- (40)水谷：クレーターの科学、東京大学出版会（1980）
- (41)Shoemaker : Astronomically observable crater-forming projectiles. Impact and Explosion Cratering (Roddy et al. eds.), Pergamon, Elmsford, N.Y. (1977)
- (42)Grieve, Dence : The terrestrial cratering record II, The crater production rate. Icarus 38 (1979)
- (43)Yoshikawa : Denudation and tectonic movement in contemporary Japan. Bull. Dept. Geogr. Univ. Tokyo, 6 (1974)
- (44)Ohmori : Relief structure of the Japanese mountains and their stages in geomorphic development. Bull. Dept. Geogr. Univ. Tokyo, 10 (1978)



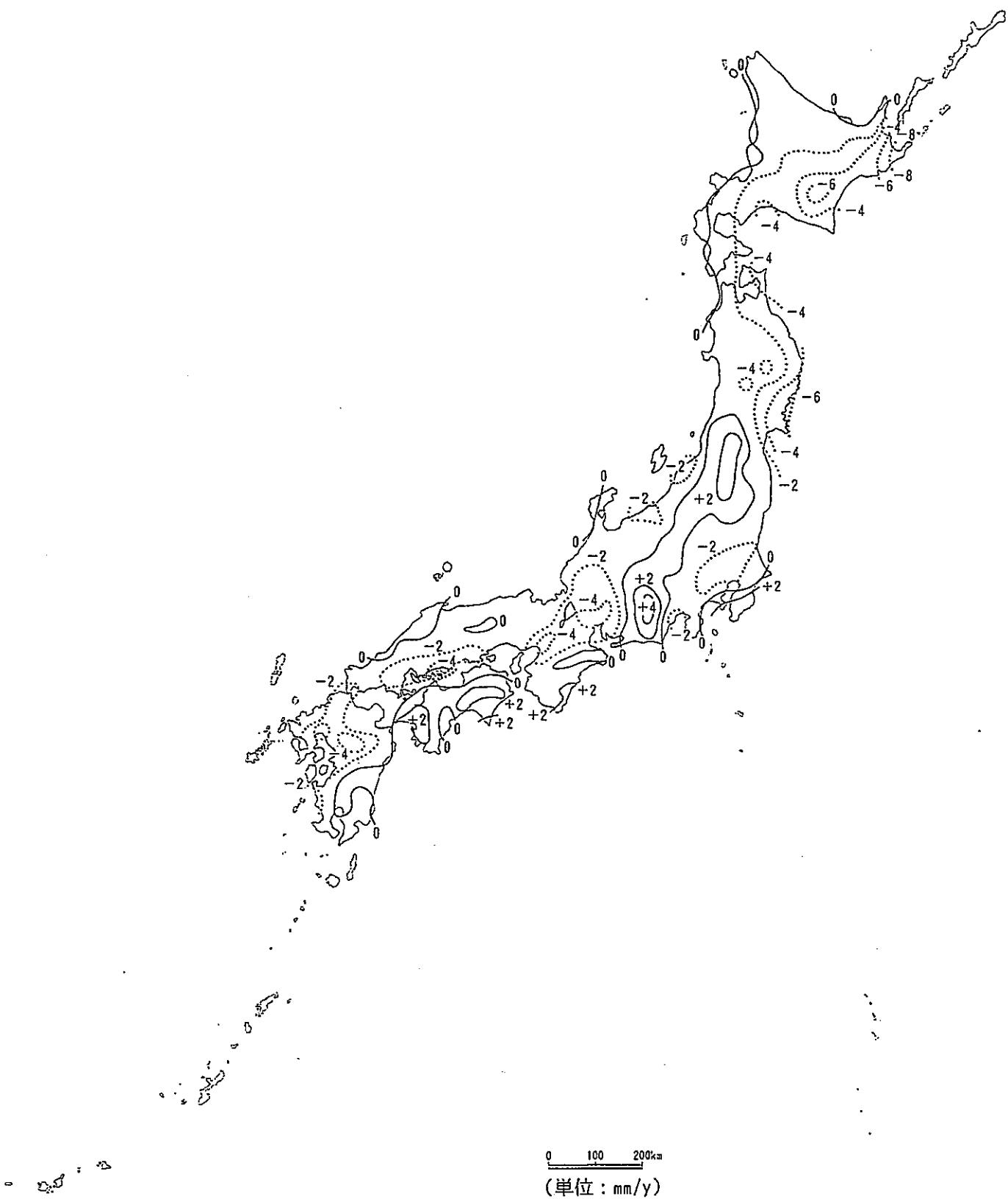
図一1 第四紀における世界的な海面変動 (Shackleton, 1978)



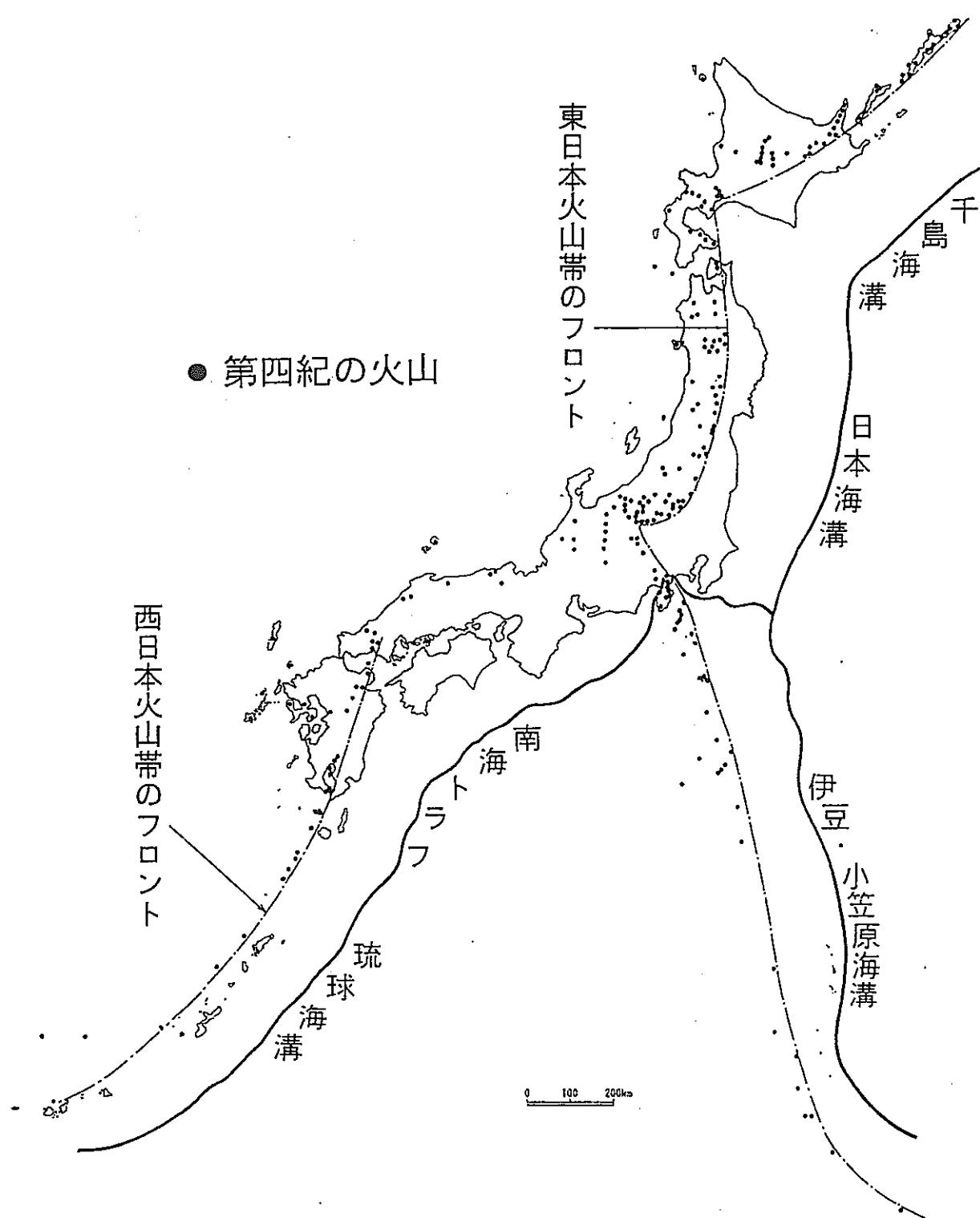
図—2 日本列島における活断層の分布 (活断層研究会, 1991)



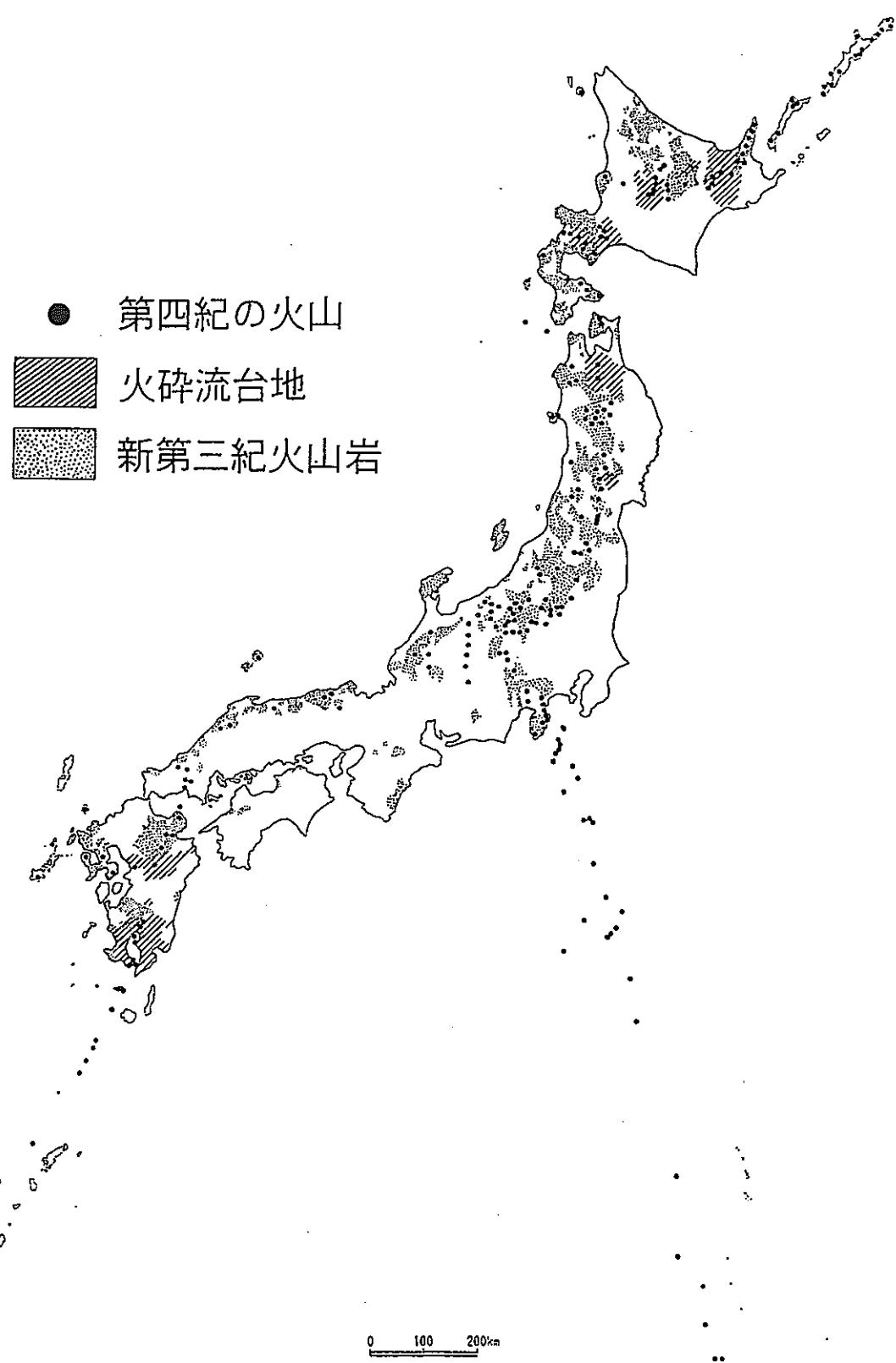
図—3 第四紀における隆起・沈降量 (第四紀地殻変動研究グループ, 1968)



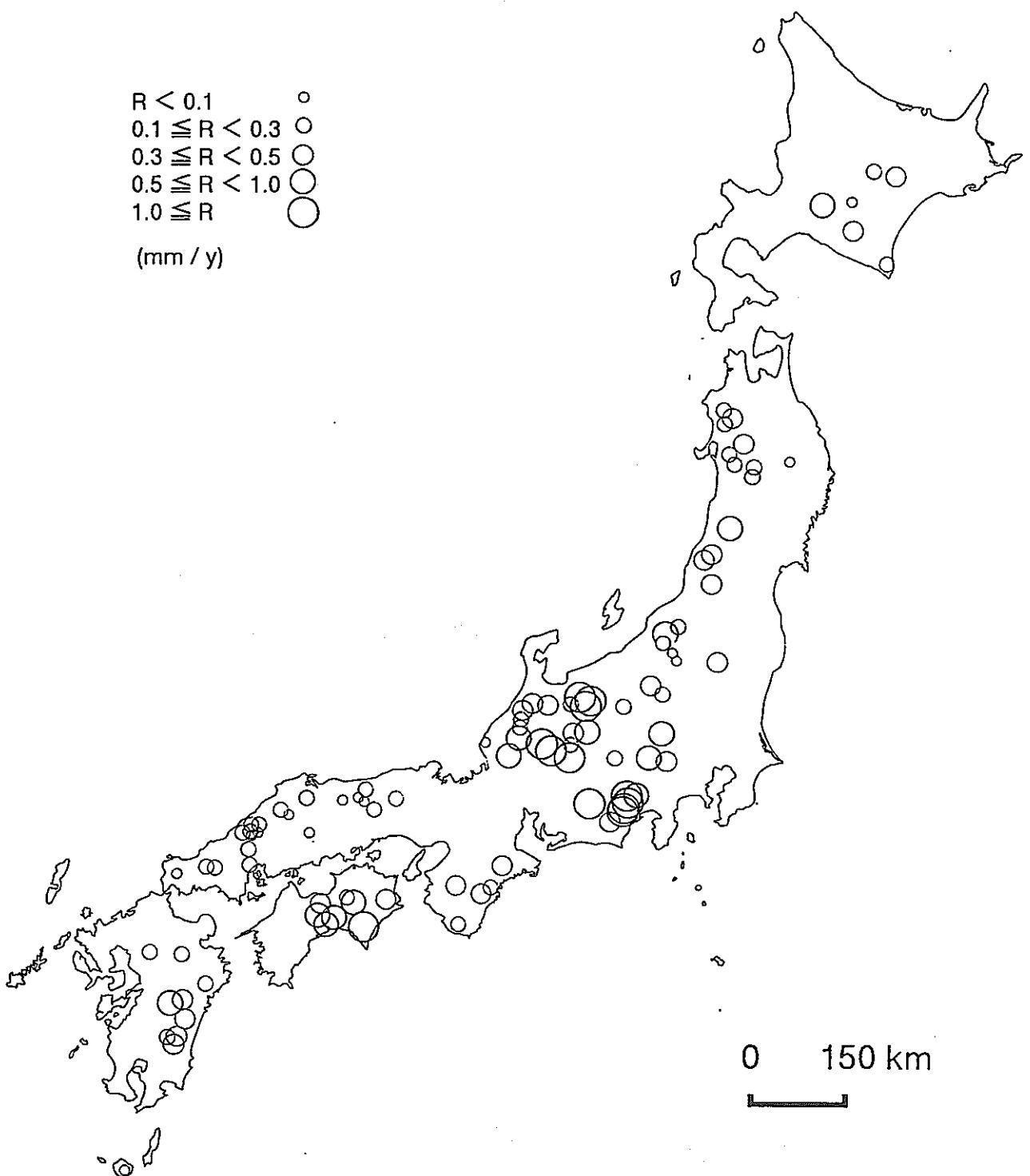
図—4 過去 70 年間の隆起・沈降量 (檀原, 1971)



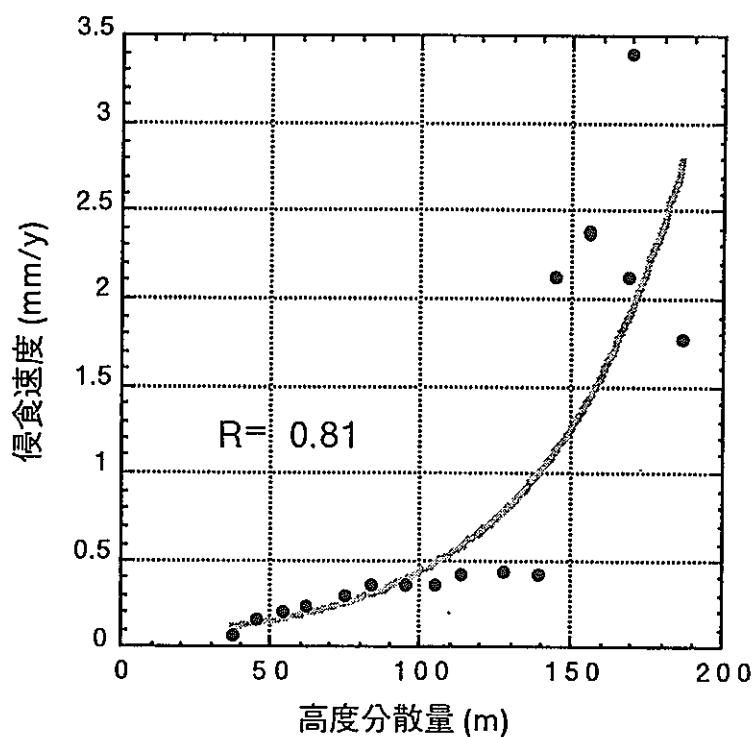
図—5 日本の火山分布と第四紀の火山フロント
(Tanaka and Nozawa (eds.), 1977)



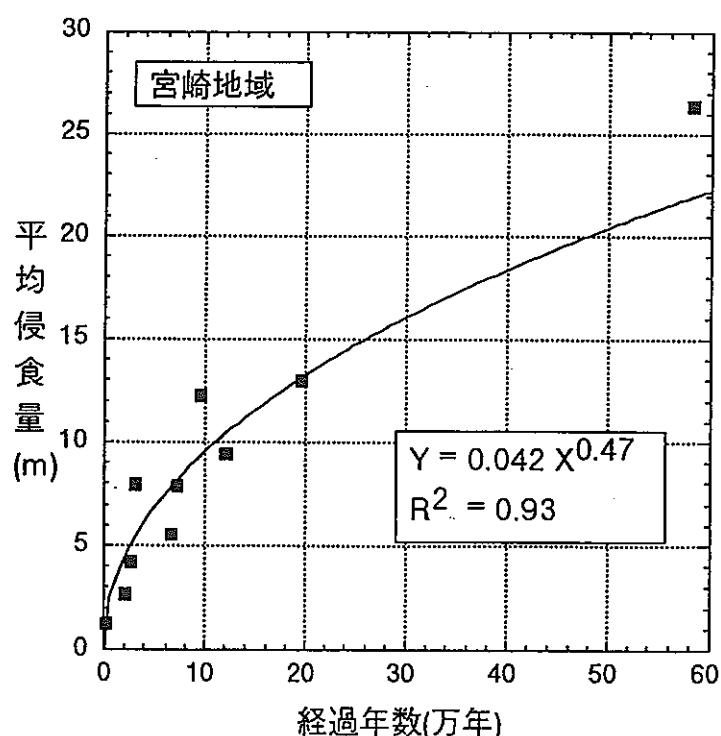
図一6 新第三紀の火山岩分布と現在の火山分布



図一7 ダム堆砂量から求めた山地の侵食速度



図—8 侵食速度と地形の起伏の大きさとの関係
(侵食速度はダムの堆砂量から算出)



図—9 平野周辺の侵食量
(侵食量は段丘の侵食量から算出)

安全評価に用いる解析手法・モデル・データの品質保証に関する研究

平成3年度～平成7年度

東海・環境技術開発部・地層処分開発室 畑中 耕一郎

牧野 仁史

I. 研究の概要

本研究では、モデルやパラメータを用いた地層処分システムの安全評価の信頼性を向上させるとともに、信頼度を定量的に評価することを目的として、総合的な解析手法で用いられる個々の解析モデル並びにデータの品質を保証するプログラム／手法の開発を行った。

1. 安全評価に使用される地層中の水理／核種移行モデルについて、国際的な確証研究プログラムINTRAVALに参加し、原位置で実施された放射性核種を使用したトレーサ試験の解析を通して、解析手法と解析モデルの妥当性についての検討を行った。また、模擬の多孔質岩盤を使用した室内試験を実施し、地下水流动及び物質移動に関するモデル／コードの品質を保証するための試験データ（トレーサ濃度、圧力及び流量）の取得及び比較解析を実施した。

2. 安全評価上重要な溶解度の設定のために必要な反応の平衡定数等の熱力学データ（以下、熱力学データ）の品質の把握とその品質を適切に維持する手法について検討した。その中で、品質把握のために有効なアプローチを検討するとともに、溶解度及び関連する核種移行解析の結果から優先度が高いと判断されたウランとプルトニウムを中心に動燃の熱力学データの品質について最新の知見や検証計算に基づく検討を行い、溶解度評価結果の信頼性向上に資する熱力学データの更新と検討課題の抽出を行った。また個々のデータの品質を適切に維持するための手法の検討を行い、データベースシステムを用いた熱力学データの集中的な履歴管理を実現した。

II. 研究成果

1. モデル／コードの品質保証

(1) スウェーデンのフィンションサイトにおけるトレーサ試験の解析¹⁾

地層中の水理・核種移行モデルに関する国際確証研究プロジェクトINTRAVALでのテストケースであるスウェーデンのフィンションサイトの破碎帯を対象としたトレーサ試験の解析を行った。トレーザの移行経路となる破碎帯は地表面下200m～300mに存在し、トレーザとしてはI、Gd、In、Tmが使用された。破碎帯には合計8本の孔井が掘削されており、実測された透水量係数は 10^{-1} ～ 10^{-3} (m²/s)の範囲にあり、透水性について不均質性を有している。したがって、透水場の設定にあたっては対象とする破碎帯を水平2次元で近似し透水量係数の空間的相関性を表わすバリオグラムを作成し、これに基づき不均質透水場を推定した。不均質透水場の推定にはトレンドを考慮したクリージング法*を採用した（*：透水量係数の空間的相関性を表わす川ガラムに基づき、場の最適な透水量係数分布を最小二乗的に推定する手法）。この不均質透水場における流れに関しては、破碎帯を水平2次元で近似し、破碎帯垂直方向には平均化した準3次元的な定常モデルを使用し、トレーザ移動に関しては、水平2次元領域内の移流・分散及び周辺岩盤（垂直方向）への拡散のプロセスを考慮した2重空隙構造を

持つモデルを使用した。

トレーサ試験は単一孔のみを使用した揚水型と、揚水孔と注水孔の2孔を使用したダイポール型の2種類の試験が実施されているが、モデル検証の手順として、本解析では、まずダイポール試験データを用いて移行パラメータ（縦方向分散率、横方向分散率、破碎帯の空隙率）を推定し、推定したパラメータを使用して揚水試験の結果を予測した。Inのケースについて推定したパラメータを表-1にダイポール試験によるモデル較正結果を図-1に、揚水トレーサ試験予測結果を図-2に示す。

モデル較正で未知パラメータを推定するに当たっては非線形最小二乗法の一一種であるLevenberg - Marquardt 法を使用し、良好な較正結果が得られるパラメータ値を推定できた。揚水型トレーサ試験の予測解析では厳密な観測結果との一致は見られないものの、試験条件下での破碎帯中のトレーサの移行挙動の傾向は再現できているものと考えられる。したがって、本解析で採用した原位置試験に基づくモデル検証の手順についてはほぼ妥当であると思われる。しかしながら、本解析において、トレーサの種類により推定されたパラメータ値に若干の相違がみられた。これはトレーサの化学形態が異なることにより、トレーサの移行に寄与する有効な空隙の大きさが異なること、錯体など比較的分子量の大きいトレーサを使用しているために見かけ上移行に遅れが生じること等が考えられる。一方、縦方向分散率については、移行距離の大きさに比例し、その値は移行距離のほぼ1/10になることが多い論文で報告されている^{6) 7)}。本解析の場合、モデル較正を行うダイポール間隔が168mであり、推定された縦方向分散率は10m 前後であるので、移行距離の約1/16になっている。これらの解析結果から、トレーサの化学的形態（例えばイオン、錯体）により、非吸着性のトレーサであっても移行挙動に変化がみられ、これは核種移行上、有効空隙率の変化で説明がつくことがわかった。また、試験スケールの1/10程度で分散率が得られたことは、諸外国の研究機関により実施された本トレーサ試験の解析結果とほぼ同様であり、本解析手法の妥当性が確かめられた。

(2) 岩盤の不均質性を模擬した多孔質媒体中の室内トレーサ試験^{2) 3) 4)}

不均質性を有する岩盤中の水理及び物質移動プロセスモデルの妥当性を確認するため、不均質な多孔質岩盤を粒径の異なるガラスビーズで模擬した室内トレーサ試験装置（略称MACRO）を製作した。具体的には、試験装置のフローセル（高さ1m、長さ2m、深さ0.1m）内を格子状に741 個のブロック（5cm × 5cm × 10cm）に分割し、各ブロックに粒径の異なる6種類のガラスビーズ（0.1 ~ 0.8mm、透水係数 8.92×10^{-6} ~ 3.58×10^{-3} m/s）を充填することによって図-3に示すような不均質透水係数場を作成した。図中の凡例は、ブロックを構成するガラスビーズの粒径を表わしている。この不均質場は、透水係数と距離の相関関係がべき乗則に従う自己アファインなフラクタル特性に基づいて発生させたものであり、フラクタル次元は2.7を仮定している。試験は、上流側と下流側の水頭差およびトレーサ注入点の水頭を種々変化させた水理条件を設定し、各水理条件下でフローセル内の流れが定常になったのを確認したのちにトレーサ注入を開始した。トレーサとしては、NaCl溶液および染料を使用し、NaCl溶液についてはフローセル内で測定した導電率の変化より、染料については目視観察によりトレーサの移行状態を確認した。計測したデータは、トレーサ注入流量とフローセルからの排水流量およびフローセル内の導電率と圧力である。

本試験は不均質場が既知であることを考慮し、移流プロセスのみでモデル化を行った。解析手法はパーティクルトラッキング法（または粒子追跡法と呼ばれ、個々の粒子の位置を時間ステップ毎に追跡していく方法）であり、巨視的な分散の影響は考慮していない。ブロック内の分散現象については計算格子内で濃度が平均化されると仮定して表現した。

不均質媒体中の染料トレーサの移行状況の観測結果とその時間に対応する計算結果の比較を図-4に

示し、フローセル内部に設置した各計測点における導電率計で計測したNaCl濃度と計算値の比較を図-5に示す。これらの図より、観測結果と計算結果は比較的良好な一致を示しており、ダルシー則やフィック則といった基本的な物理法則が成立する範囲内において、透水係数場が既知であれば、移流プロセスのみでトレーサ濃度の予測が可能であることがわかった。

ただし、計算においては拡散の影響は移流の影響に比べて十分小さいと考えて無視しているため、計算結果には数値的な分散の影響が時間が経過するにつれて現れている。すなわち、パーティクルトランкиングのアルゴリズムを使っている以上、移流による数値的な不安定性は生じないものの、計算を簡略化するために生じる数値的な分散が影響するので、このような影響が生じないようモデルの解法を改良してゆくことが今後必要となる。また、本試験から得られる成果に基づき原位置での水理トレーサ試験等の解析を行う場合には、利用できるデータも制限されるため既存のデータを有効に活用した最適透水係数場の推定及びモデル選定の手法を明らかにしていくことも今後の課題となろう。

2. 品質保証プログラム

安全評価で用いられるデータの品質を把握し適切に管理していくことは、評価結果の信頼性を担保する上で重要な課題である。

評価に用いられるデータの中でも、地球化学解析コードを用いて溶解度を算出する際に使用される熱力学データの信頼性は、溶解度及び溶解度を重要パラメータとして用いる核種移行解析の結果に影響を与えるため、熱力学データの品質を把握するとともに、その品質を向上していくことが重要である。また、個々のデータの品質を適切に維持していくためには、熱力学データの適切な管理が必要不可欠である。

(1) 热力学データの品質を把握するためのアプローチ

熱力学データの品質を把握するためのアプローチを検討し、以下のことが適用可能であるという結論を得た。

- ①参考可能な他の熱力学データと比較し、その差異を把握すること。
- ②想定される地球化学環境下において溶解度に対する影響度の大きなデータを抽出すること。
- ③各熱力学データがどのような実験から得られたものであるかを把握するとともに、それらの実験条件・手法が適切であるかどうかをレビューすること。
- ④現在の熱力学データを用いて、それらの熱力学データの取得とは無関係な溶解度試験結果や天然環境における濃度実測値を予測できるかどうかをチェックすること。

以上のアプローチは、いずれか一つのアプローチをとれば品質が把握できるというものではなく、対象とする熱力学データの品質レベルあるいは各アプローチの適用性を勘案して、組み合わせあるいは組み換えを柔軟に行いながら適用していくべきものである。また、各アプローチの適用に当たっては、品質のレベルを定めるための基準あるいは指針の設定が必要になるものもある。このような基準あるいは指針も、対象とする熱力学データの特徴を踏まえながら柔軟に設定していく必要がある。上記アプローチの中では、③と④に対して基準あるいは指針を満たしている場合、その品質レベルは高いと判断できる。更に、熱力学データの品質を把握することにより、これまで品質が不明確であったデータに対してある品質レベルを付与することは、広義の意味では熱力学データの品質向上に資することになる。

(2) 热力学データの品質把握の例

上記のアプローチについての検討結果を踏まえ、これまでの溶解度及び関連する核種移行解析の結

果から優先度が高いと判断されたウラン、プルトニウムを中心に動燃の熱力学データの品質の把握を行った。

まず、ウランの熱力学データについては、諸外国の研究機関により作成・編集された熱力学データベース、公開されている個々の熱力学データ及びOECD/NEAが取りまとめた熱力学データについてのレビュー結果等を比較対象としてその差異を検討するとともに、主要なデータについては実験条件にまで逆上ったレビューを行った。また、地層科学研究の一環として実施された東濃ウラン鉱床における地下水中的U濃度測定結果及びウラン存在形態の観察結果と動燃の熱力学データを用いた予測結果とを比較することにより、④のアプローチによる熱力学データの妥当性評価を試みた。その結果、溶解度評価上重要なウラン酸化物(UO_2 (cr)、 UO_2 (am)、 UO_2 (s))及び加水分解種($U(OH)_4$ (aq)等)については、固相と水溶性化学種の個々の熱力学データの品質に加えて、それらデータ間の整合性が重要になることが明らかとなり、その観点からウラン熱力学データの見直しを行った。また、溶解度評価における固相設定に関して、結晶性の固相の適用に注意を要することが明らかとなった。

プルトニウムについては、諸外国の研究機関により作成・編集された熱力学データベース及び公開されている個々の熱力学データを比較対象として、溶解度評価上重要となる水溶性化学種の抽出及びそれに関する熱力学データの相違がどの程度溶解度評価結果に影響を与えるかについての解析的な検討を行った⁵⁾。この結果、炭酸錯体の濃度が溶解度を支配すること及びそれに関する熱力学データが大きな不確実性を持っているという結論を得た。炭酸錯体の熱力学データについては、これまでに実験条件にまで逆上ったレビューを行うとともに新規データの取得のための検討を行っている。

他の元素についても、上記アプローチに基づく検討を段階的に開始しており、Cm、Am、Thについては、第一段階の検討を終了している。

(3) 热力学データの管理手法の検討

熱力学データの品質を適切に維持する手法としては、データベースによる集中的な履歴管理が有効である。そこで、解析内容全体の品質管理システムの開発と整合をとりながら、熱力学データをデータベースシステムで管理する機能を実現し、熱力学データのバージョンの集中的な管理を実現した。

3. 結言

データの品質を保証するプログラムの開発として、安全評価で用いられる主要なデータの一つである熱力学データを対象とした検討を行い、アプローチ法や実施手順を含む品質保証プログラム及びデータベースシステムを用いた履歴管理システムを具体化した。今後、熱力学データ以外のデータについても、個別の研究開発の進捗に合わせて品質保証プログラム及び管理システムの開発・改良を進めしていく。

主要レポート

- 1) 畑中耕一郎他、「破碎帶中の不均質性を考慮した物質移動モデルの適用性に関する検討」、日本原子力学会」、1994春の大会予稿集、P. 84 (1994).
- 2) 畑中耕一郎他、「不均質多孔質媒体中の物質移動現象に関する実験的研究」、日本原子力学会、1995秋の大会予稿集、P. 655 (1995).
- 3) K. HATANAKA, et. al., "Experimental Study on Groundwater Flow and Mass Transport in a Heterogeneous Porous Media", Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol 412, pp. 739-746 (1996).

- 4) 畑中耕一郎他、「不均質多孔質媒体中の水理/ 物質移動に関する研究（I）」、動燃技術資料、PNC TN8410 95-377 (1995).
 5) 牧野仁史他、「元素の溶解度に対する地下水組成の影響評価」、日本原子力学会、1992春の大会 (1992).

参考文献

- 6) Lynn W. Gelhar, et.al., "A Critical Review of Data on Field Scale Dispersion in Aquifers", Water Resour. Res., Vol. 8, No. 7, pp. 1955-1974 (1992).
 7) W. Kinzelbach, "Groundwater Modelling", Developments in Water Science 25, Elsevier, (1986)/

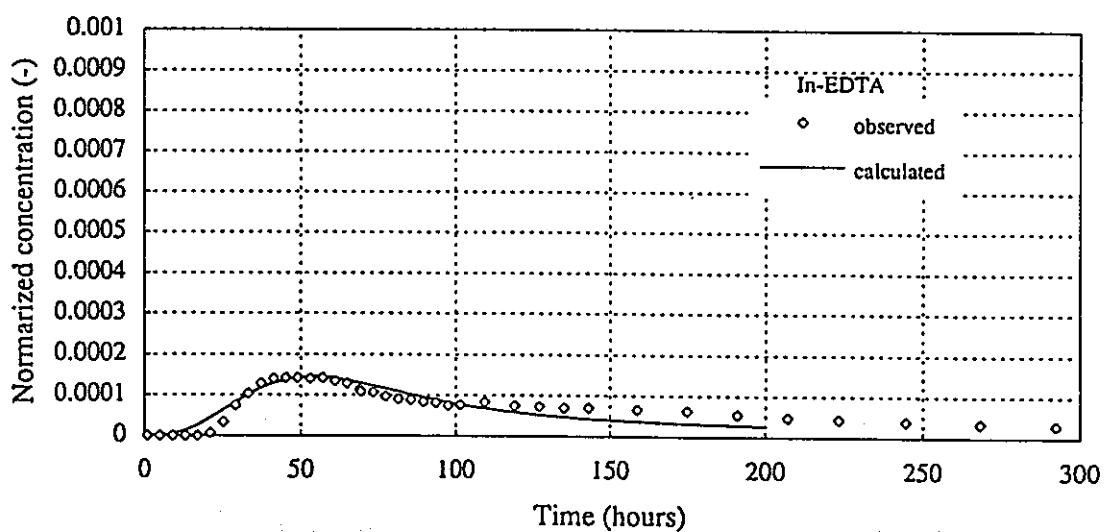


図-1 ダイポール試験データによるモデル較正結果

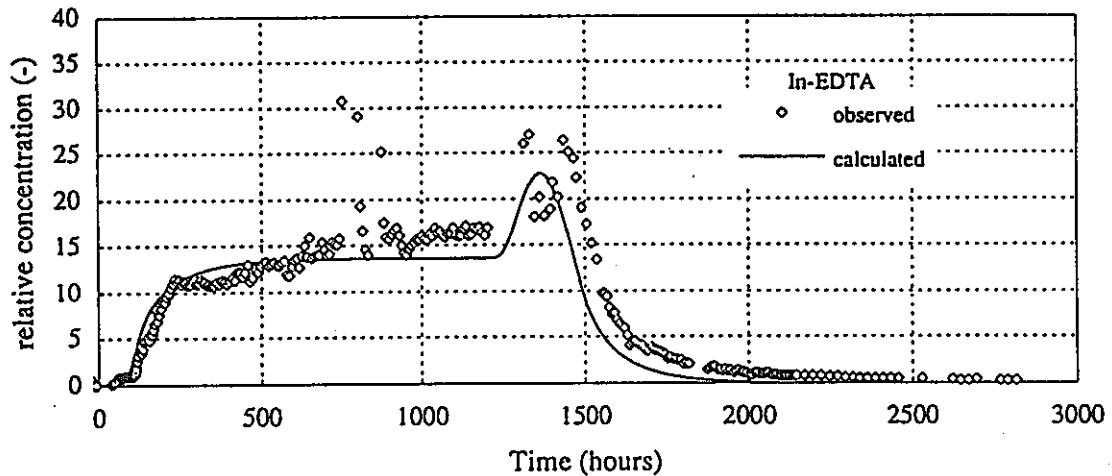


図-2 推定したパラメータを使用した揚水型トレーサ試験予測結果

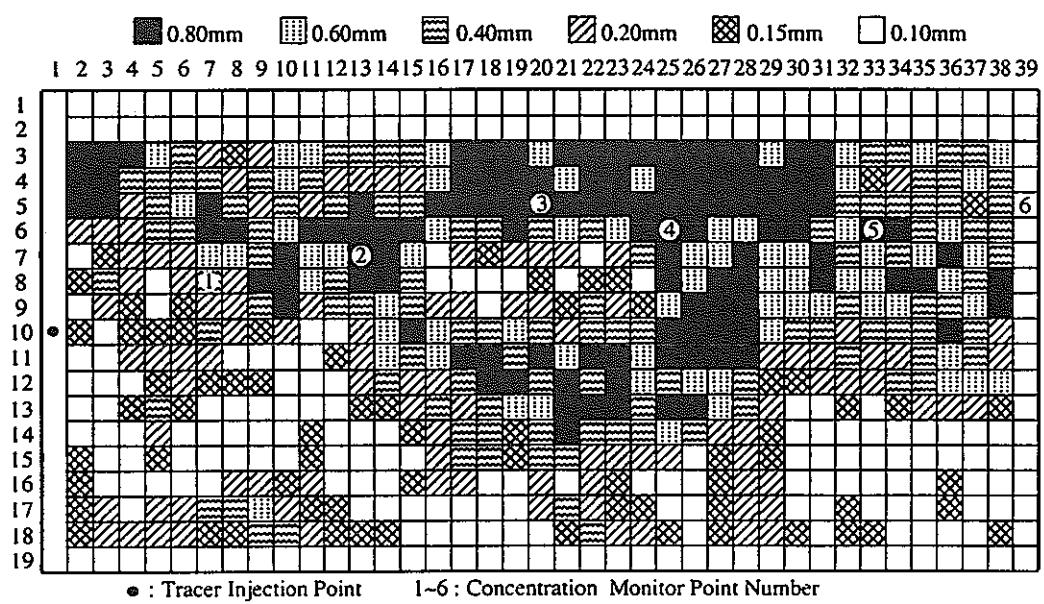


図-3 不均質透水係数場

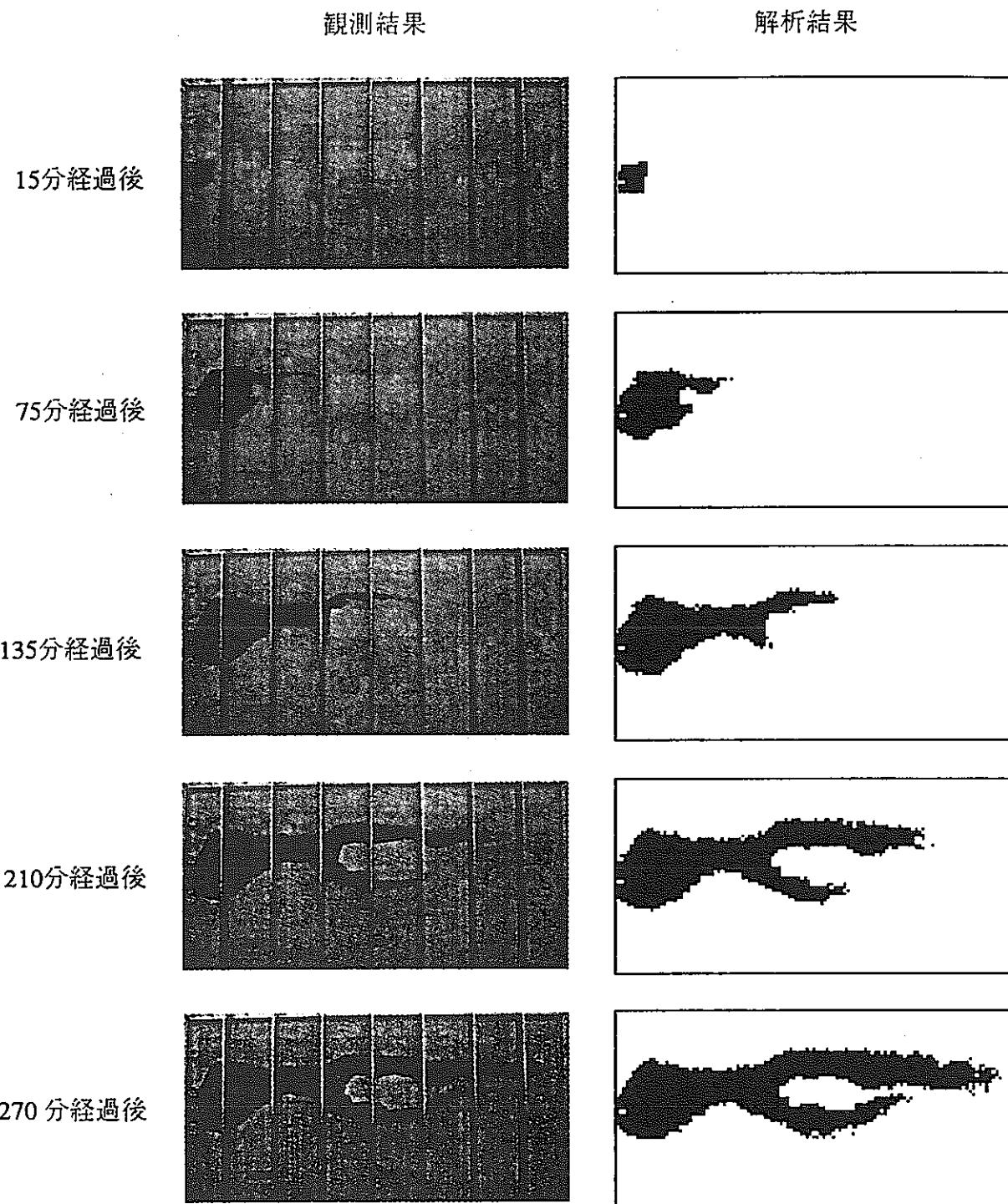


図-4 染料トレーサの移行状況の観測結果と解析結果の比較

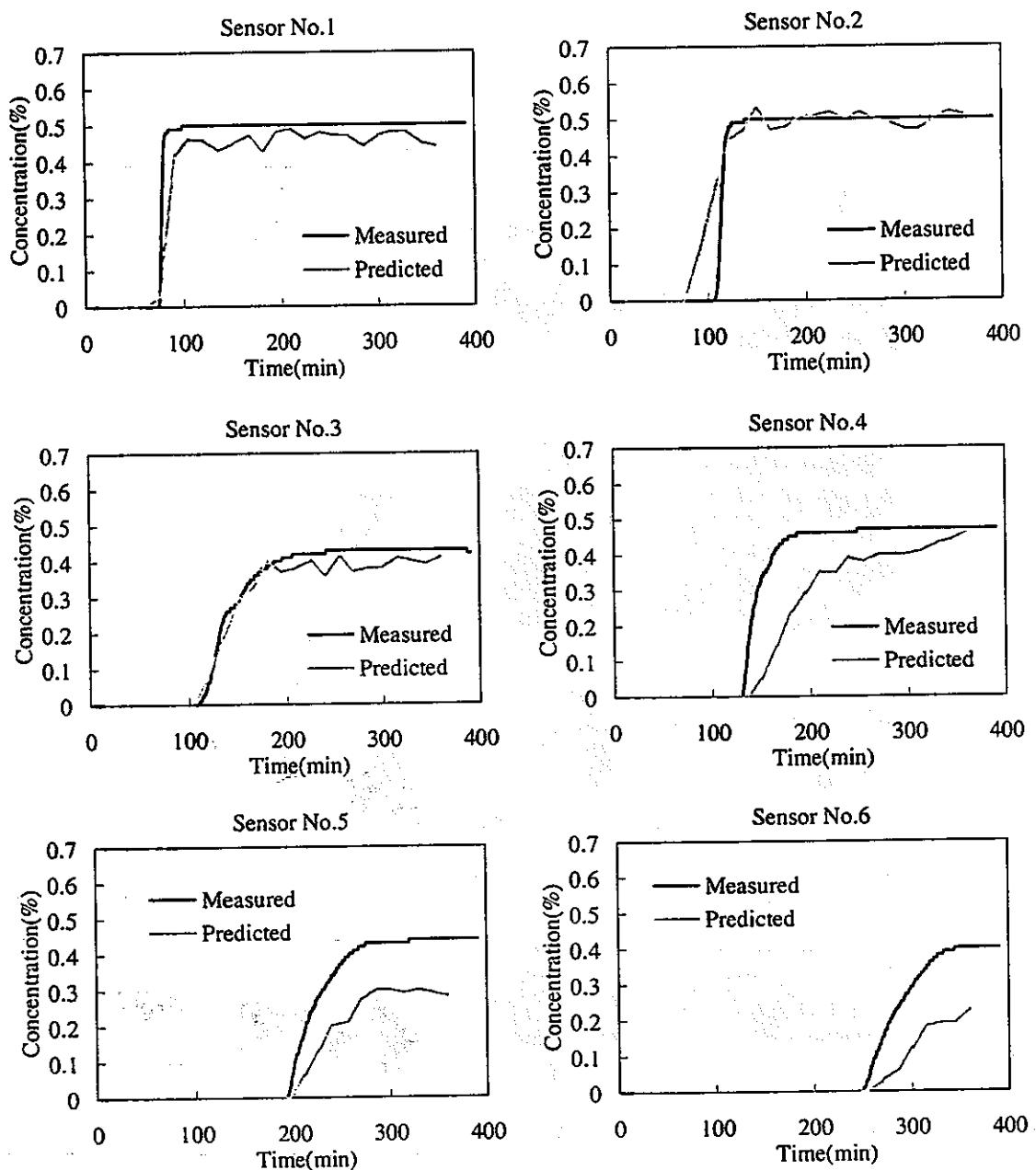


図-5 計測点におけるNaCl濃度測定値と計算値の比較

表-1 ダイポール試験により推定したパラメータ(In)

縦方向分散率(㎟)	横方向分散率(㎟)	空隙率(-)
8.0	3.78×10^{-2}	4.82×10^{-3}

人工バリア要素の安全評価に関する研究

平成3年度～平成7年度

東海・環境技術開発部・地層処分開発室

柴田 雅博、濵谷 朝紀

谷口 直樹

I. 研究の概要

本研究は、地層処分で想定される環境条件を考慮して、人工バリアを構成する要素である、ガラス固化体、オーバーパックおよび緩衝材の耐久性、核種封じ込め機能を明らかにすることを目的とする。研究では、データ取得の為の各種の試験研究と、予測の為のモデル開発、予測計算等を実施し、安全評価に資することを図っている。

1. ガラス固化体からの放射性核種の浸出機構の解明、および長期浸出量予測モデルの開発を行った。

具体的には、本研究では可溶性元素の溶解速度および難溶性元素の溶解挙動を把握するために、実際の高レベル放射性廃液を固化した実ガラス等を用い、蒸留水系およびベントナイト共存液で、長期間の浸出試験を行った^(1, 2)。さらに、圧縮ベントナイト中にガラスを埋め込んだ浸出・移行に関する複合系試験を行い、¹³⁷Cs、²³⁹Puの圧縮ベントナイト中の移行挙動について実験結果および解析結果について取りまとめた^(3, 4)。また、実際の高レベル放射性ガラス固化体の長期の耐放射線性を把握するために、実ガラス固化体に²⁴⁴Cmを添加したα加速試験を実施した⁽⁵⁾。

2. オーバーパックの候補材料である炭素鋼について、これまでの腐食試験で蓄積されたデータおよび解析に基づいて炭素鋼オーバーパックの腐食寿命予測を行った⁽⁶⁾。また、炭素鋼の腐食形態として全面腐食と局部腐食を考慮し、局部腐食の発生条件を電気化学的手法を用いて評価するとともに⁽⁷⁾、腐食メカニズムに基づく全面腐食モデルと局部腐食モデルの開発を行った⁽⁸⁾。さらに、鉄-水-ベントナイト反応試験と地球化学コードによる解析を実施し、腐食とともに化学的環境の変化の評価を行った⁽⁹⁾。
3. 緩衝材の鉱物学的な長期安定性を調べるために、主成分鉱物であるスメクタイトのイライト化変質について、変質初期の結晶化学的变化に着目した試験研究を実施した⁽¹⁰⁾。また、イライト化に関する変質速度式および変質速度定数の調査を行い、処分場で想定される温度変化を考慮したイライト化率の計算を実施し、変質可能性の検討を行った⁽¹¹⁾。さらに、緩衝材間隙水の化学的性質を明らかにする為に、ベントナイト-地下水の化学的相互作用に関する研究を進め、支配的な反応を実験的に明らかにするとともに、ベントナイト間隙水組成推定の為の反応のモデル化と予測計算を実施した^(12, 13, 14)。

II. 研究成果

1. ガラス固化体からの核種浸出挙動の評価

(1) ガラスの長期浸出試験

実ガラスを用いて、室温、蒸留水でのMCC-1⁽¹⁵⁾に準拠した約3年間の長期静的浸出試験およびMCC-3⁽¹⁵⁾に拠る試験を行った。その結果、ガラスからの核種の浸出挙動は可溶性元素の場合、ガラスと調和溶解していることが確認され、ガラスからの浸出挙動はGrambowの一次反応モデル⁽¹⁶⁾を用いた場合、Siとの調和溶解およびBとの残存溶解を考慮することで説明でき

ることが示された（図-1）。難溶性元素は、ガラスとは調和溶解せず、ガラス表面変質層内に形成した固相形態の溶解度に向かう一次反応モデルによって説明できる結果が得られた⁽¹⁾。ベントナイト共存液系では、可溶性元素の場合は同様に、Siとの調和溶解が考えられ、Siが飽和に達した後は、ベントナイトへ線型吸着することで説明できることが明らかとなった⁽²⁾。

(2) ベントナイトへの埋め込み試験

圧縮ベントナイト中のPu含有ガラス埋め込み試験では、圧縮ベントナイト中の²³⁸Puの濃度プロファイルは、圧縮密度および拡散時間によって異なることが示された。本結果について、Puのガラスからの浸出モデル、みかけの拡散係数測定試験によって得られた分配係数、圧縮ベントナイトの形状因子から得られるみかけの拡散係数をそれぞれ用いて計算を行った結果、計算結果は実験結果とほぼ一桁の範囲内で一致した⁽³⁾（図-2）。また、圧縮ベントナイト中における実ガラス埋め込み試験では、圧縮ベントナイト中の¹³⁷Csの濃度プロファイルは、圧縮密度および拡散時間によって異なる結果が得られた。本試験結果を、個別試験から得られたモデルを用いて解析を行ったところ、圧縮ベントナイト中の実ガラス固化体からの¹³⁷Csの浸出挙動は、Siの初期浸出速度およびBの残存溶解速度によって評価可能であり、移行挙動については、イオン交換モデルによって得られる分配係数、拡散モデルから得られる拡散係数をそれぞれ用いることによって評価できることがわかった⁽⁴⁾（図-3）。

(3) 放射線の影響評価試験

ガラス固化体の α 線に対する長期耐久性の知見を得るために、ガラス固化技術開発施設(TVF)仕様ガラスに²⁴⁴Cmを添加してガラス固化体を作製し、MCC-1法準拠による浸出試験およびEPMA観察等を行った。その結果、20万年相当時においても、物性変化は無く、浸出率および重量減少量も²⁴⁴Cmを添加していないガラス固化体とほぼ同オーダーの値を示し、ガラス固化体は放射線に対する長期耐久性を有していることが明らかとなった⁽⁵⁾（図-4）。

2. オーバーパックの腐食挙動評価

(1) 炭素鋼オーバーパックの腐食寿命評価

処分環境下において炭素鋼オーバーパックは酸素または水の還元による腐食を受けると考えられる。酸素による腐食については溶存酸素濃度をパラメータとした淡水系、海水系での浸漬試験結果を極値統計解析し、解析結果に基づいて腐食深さを評価した。水の還元による腐食については窒素ガスを通気した人工海水中で炭素鋼の浸漬試験を行い、腐食速度を評価した。酸素および水の還元による腐食のほか、バクテリアによる影響を考慮して炭素鋼オーバーパックの千年間の腐食深さを32mmと評価した⁽⁶⁾。

(2) 炭素鋼オーバーパックの全面腐食モデルの開発

処分環境下において炭素鋼が不動態化しない場合には全面腐食が進行する。腐食に関与する酸化性物質として溶存酸素と水を考慮して、地下水で飽和したベントナイト中における全面腐食速度を保守的に評価するモデルを作成した。鉄のアノード溶解反応と水の還元反応は活性化律速であると仮定した。また、酸素の還元反応は溶存酸素のベントナイト中における拡散律速を仮定した。アノード反応とカソード反応の速度式を連立させることにより、鉄の溶解反応速度の経時変化を計算した結果を図-5に示す。この図より酸素による腐食は 10^{-3} 年程度でほとんどほとんど無視できることがわかる。よって地下水で飽和したベントナイト中では水の還元による腐食が支配的になることが示された⁽⁸⁾。

(3) 炭素鋼オーバーパックの局部腐食発生条件の評価

処分環境において炭素鋼が不働態化した場合には、不働態皮膜を破壊する作用のある化学種の存在下で孔食、すきま腐食などの局部腐食の生起／進展する可能性がある。よって炭素鋼の不働態化を促進する作用のある炭酸／炭酸水素イオンと、炭素鋼の不働態皮膜を破壊する作用のある塩化物イオンを含む水溶液中で炭素鋼の孔食、すきま腐食の発生臨界電位を電気化学的に測定した。測定結果に基づいて図-6に示すように炭素鋼の腐食マップを作成し、環境条件と腐食形態の関係を整理した。その結果、すきま腐食は孔食よりも緩い条件で発生し得ることが確認された。また、臨界電位に及ぼすイオン濃度の影響を評価した⁽¹⁾。その結果、塩化物イオンは臨界電位を卑化させ、炭酸／炭酸水素イオンは臨界電位を貴化させる作用のあることがわかった。

(4) 炭素鋼オーバーパックの局部腐食モデルの開発

処分環境において孔食、すきま腐食などの局部腐食が生起した場合を想定してその進展期間および進展速度を評価するモデル開発を行った。局部腐食の進展期間を評価するモデルにおいては、局部腐食の進展には、不働態を維持できるだけの酸素の供給が最低限必要であるとしてベントナイト中の酸素の輸送に基づいて進展可能期間を評価するモデルを作成した。モデルによる計算の結果、地下水で飽和したベントナイト中では局部腐食は速やかに停止することが示された。局部腐食の進展速度を評価するモデルについては、孔食、すきま腐食の進展している部分を平行な側面をもつピットで表現し、ピット内の化学種の拡散、電気泳動、化学反応を考慮した質量保存の方程式を支配方程式とするモデルの開発を行った⁽⁸⁾。

(5) 鉄—水—ベントナイト混合系における化学的相互作用に関する研究

オーバーパックの腐食による周囲の化学的環境への影響を評価するため、鉄—水—ベントナイト反応試験を実施し、混合溶液中の化学的特性の変化を測定するとともに腐食生成物の分析を行った。また、地球化学コードによる解析を行った。試験および解析の結果、鉄—水—ベントナイト混合系において溶液の化学特性を支配する腐食生成物が水酸化第一鉄である可能性が示唆された⁽⁹⁾。

3. 緩衝材の長期安定性評価

(1) スメクタイトのイライト化変質

溶液条件、温度、期間をパラーメータとしたスメクタイトの変質試験を実施し、生成物のイライト化率および粘土結晶の構造内での電荷の分布を調べた。その結果、3年までの試験では、カリウム濃度が高く(10,000ppm)、温度の高い条件(200°C以上)でのみ、イライト化が認められた⁽¹⁰⁾。ただし、イライト化は起きていないと判定される試料においても、一部に粘土結晶の構造内での電荷分布の変化が認められるものがあり、イライト化に至らない微細な変化の評価を検討する必要性を示唆した⁽¹⁰⁾。

また、イライト化に関して報告されている既存の変質速度式の調査を行い、処分環境で緩衝材が曝される温度の時間変化を考慮した、イライト化率の時間変化を計算した。これは、従来の最高温度一定での評価に比べ、より現実的な解析条件である。この結果から、温度の比較的高い一時期を除き、イライト化の進行は遅く、現在の処分場設計条件では、イライト化は大きな影響を及ぼさないと考えられることを示した⁽¹¹⁾（図-7）。

(2) 緩衝材空隙水組成のモデル化

ベントナイトおよびベントナイト構成鉱物の浸漬試験を、大気条件および低酸素条件下で実施し、溶液組成の変化、ベントナイトの浸出陽イオンの変化等を調べた。その結果、ベントナ

イトと接触する溶液を支配する反応は、スメクタイトの陽イオン交換反応、方解石の溶解反応であり、大気条件では黄鉄鉱の酸化反応も寄与することを明らかにした（図-8）。これらの知見は、我々が従来より実施していた地球化学計算コードによるベントナイト間隙水組成のモデル化（図-9）において、考慮した地球化学反応が、ベントナイト-水反応を支配していることが実験的に裏付けられるものであった^(12, 13, 14)。

4. 結言

- (1) ベントナイトへの埋め込み試験等を含む、実ガラス等を用いた様々な浸出試験から、可溶性元素、難溶性元素、それぞれの溶解挙動を明らかにし、モデル化を行った。また、 α 線による加速試験では、ガラスが長期の耐放射線性を有することが明らかとなった。
- (2) 腐食試験データに基づいて炭素鋼オーバーパックの腐食寿命を評価した。また、環境と腐食形態の関係を整理するとともに炭素鋼オーバーパックの全面腐食と局部腐食モデルを開発した。さらに、腐食による化学的環境への影響を調査した。
- (3) イライト化の前駆的な結晶化学的変化を明らかにした。また、イライト化の反応速度的予測評価を実施した。さらに、ベントナイト間隙水を規定する反応を実験的に明らかにし、モデルで考慮すべき地球化学反応を明らかにした。

主要レポート

- (1) 油井三和 他：「ガラス固化体からの元素の浸出挙動と人工バリア空隙水中の溶解度評価」PNC TN 8410 92-161, 1992年
- (2) 芦田敬 他：「ベントナイト共存液中における高レベルガラス固化体からの元素の浸出挙動」日本原子力学会1992年秋の大会。
- (3) T. Ashida et al., "Migration of Pu release from Pu-doped glass in compacted bentonite." Radiochimica Acta., 66/67, pp. 359-362, 1993.
- (4) T. Ashida et al., "Migration behavior of Cs release from fully radioactive waste glass in compacted bentonite." proceeding of MIGRATION 95, 1995.
- (5) T. Banba et al., "Effects of alpha decay on the properties of actual nuclear waste glass." Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVIII part1, eds. T. Murakami and R. C. Ewing, pp. 1397-1404, 1994.
- (6) 石川博久, 本田明, 鶴留浩二, 井上邦博, 小畠政道, 佐々木憲明: 「オーバーパックの候補材料選定と炭素鋼オーバーパックの寿命評価」, PNC TN8410 92-139, 1992年。
- (7) 谷口直樹, 川崎学, 本田明: 「NaCl-NaHCO₃-Na₂CO₃水溶液中における炭素鋼の局部腐食発生臨界電位の検討」, 第40回腐食防食討論会講演集 B-203, 1993年。
- (8) A. Honda, N. Taniguchi, Hirohisa Ishikawa, A. R. Hoch, F. M. Porter, S. M. Sharland, "A Modelling Study for Long-Term Life Prediction of Carbon Steel Overpack for Geological Isolation of High-Level Radioactive Waste." Draft Proceeding of International Symposium on Plant Aging and Life Prediction of Corrodible Structures, 1995.
- (9) 楠戸伊緒里, 本田明, 油井三和: 「鉄-水-ベントナイト混合系における化学的相互作用に関する研究」, 第42回腐食防食討論会講演集 A-216, 1995年。
- (10) M. Shibata, M. Yui, H. Ishikawa, T. Watanabe, "The alteration of charge location in expandable layers at the initial stage of illitisation of smectite." Proceedings of the

- (1) 石川博久, 柴田雅博, 藤田朝雄: 「放射性廃棄物地層処分における緩衝材のイライト化変質シミュレーション」, 粘土科学 第34巻, pp. 149-156, 1994年.
- (2) 油井三和 他 :「高レベル廃棄物地層処分の人工バリアシステムによる地下水の化学的緩衝作用とモデル化」PNC TN 8410 92-162, 1992年
- (3) 佐々木康雄, 柴田雅博, 油井三和, 石川博久 :「ベントナイト-地下水反応に関する研究」動燃技報 No. 92, PNC TN 8410 94-407, 1994年
- (4) Y. Sasaki, M. Shibata, M. Yui, "Experimental Studies on the interaction of groundwater with bentonite." Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVIII part1, eds. T. Murakami and R. C. Ewing, pp. 337-344, 1994.

参考文献

- (5) G. B. Mellinger, "Standardized Test Methods for Use in Waste Compliance Testing in the Department of Energy's Waste Acceptance Process." Scientific Basis for Nuclear Waste Management X, eds. J. K. Bates and W. B. Seefeldt, pp. 483-490, 1987.
- (6) B. Grambow, "A General Rate Equation for Nuclear Waste Glass Corrosion." Scientific Basis for Nuclear Waste Management VIII, eds. C. M. Jantzen, J. A. Stone and R. C. Ewing, pp. 15-27, 1985.

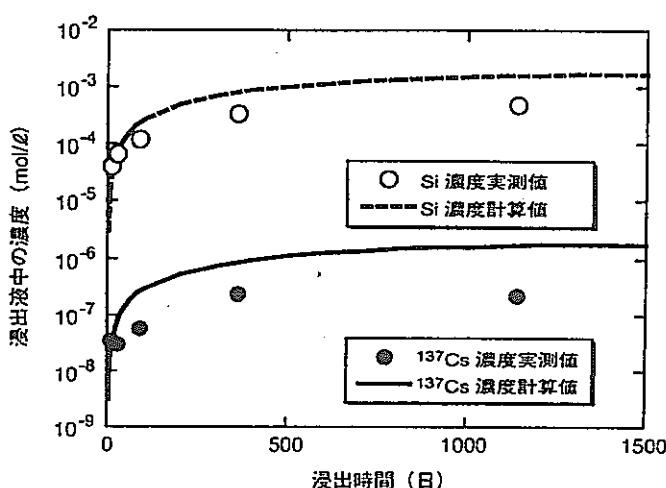


図-1 実ガラス固化体を用いたMCC-1法浸出試験結果と一次溶解反応モデルによる計算値との比較

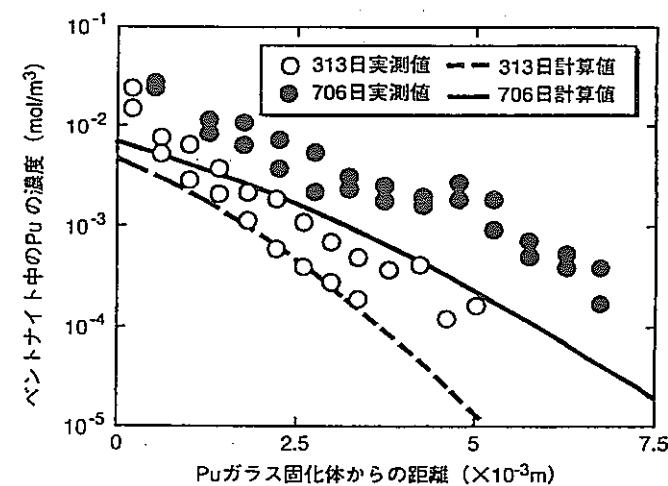


図-2 Puの濃度プロファイルの実測値と計算値の比較
(ベントナイト乾燥密度200 kg/m³)

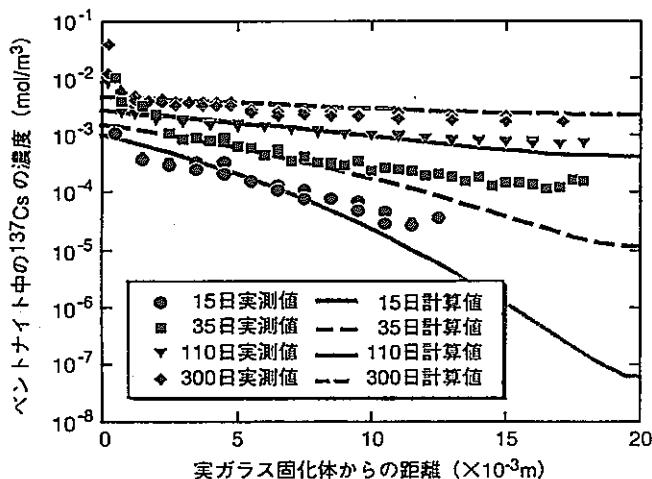


図-3 ^{137}Cs の濃度プロファイルの実測値と計算値の比較
(ベントナイト乾燥密度1,000 kg/m³)

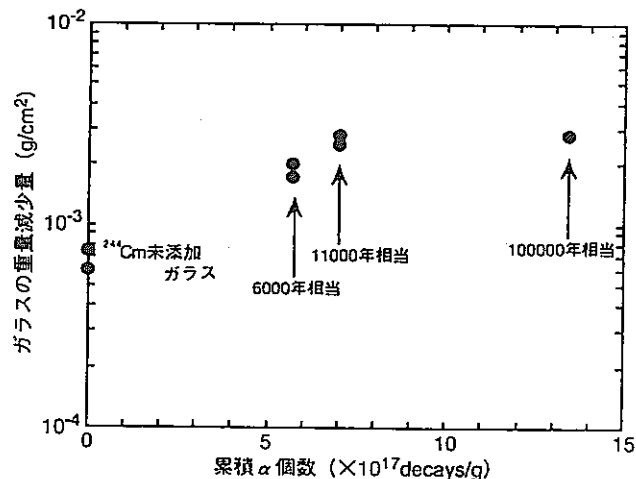


図-4 α 加速試験における加速年時と
浸出試験での重量減少量

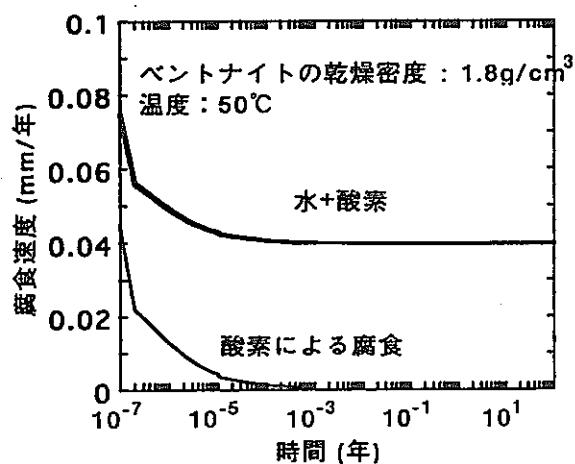


図-5 50°Cにおける全面腐食速度の経時変化の計算結果

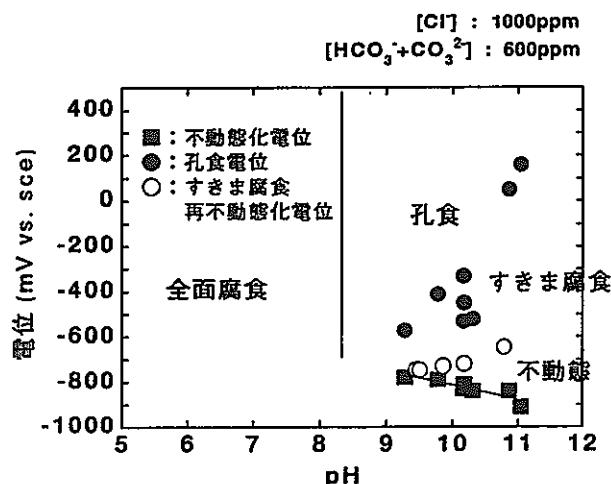


図-6 NaCl-Na₂CO₃-NaHCO₃水溶液系における電位-pH実測腐食図の一例

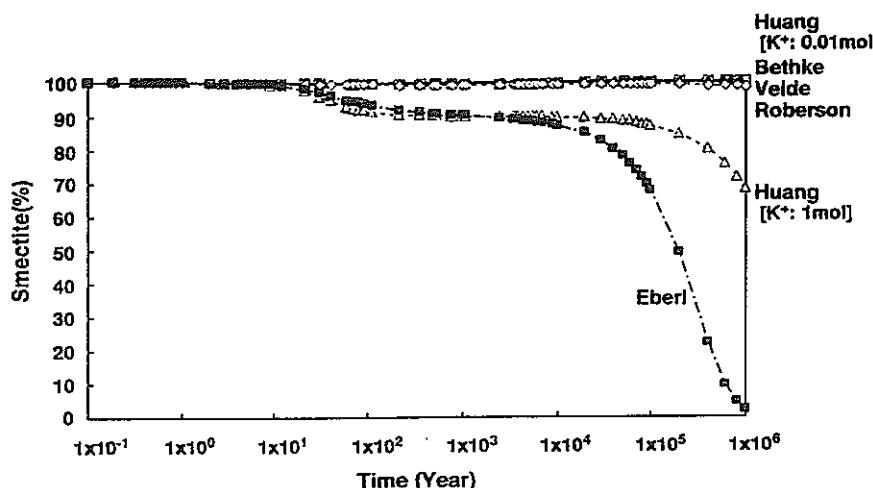


図-7 様々な反応速度モデルを用いて計算されたスメクタイトのイライト化の時間変化
[処分環境での緩衝材温度変化を考慮,
埋設密度：1本／40m²（緩衝材最高温度約130°C）の場合]

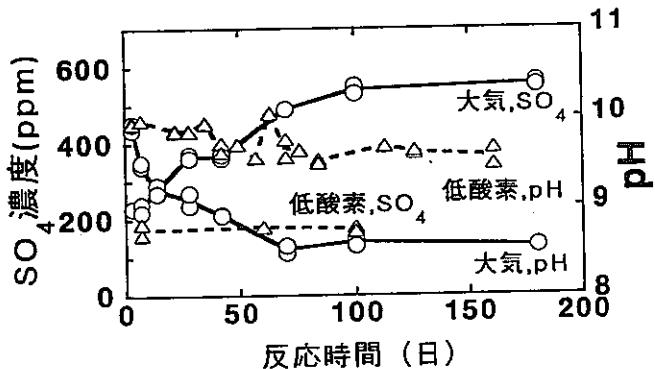


図-8 雰囲気の違いによるpH, SO₄濃度の違い
(クニゲルV1-蒸留水,液固比10ml/g)

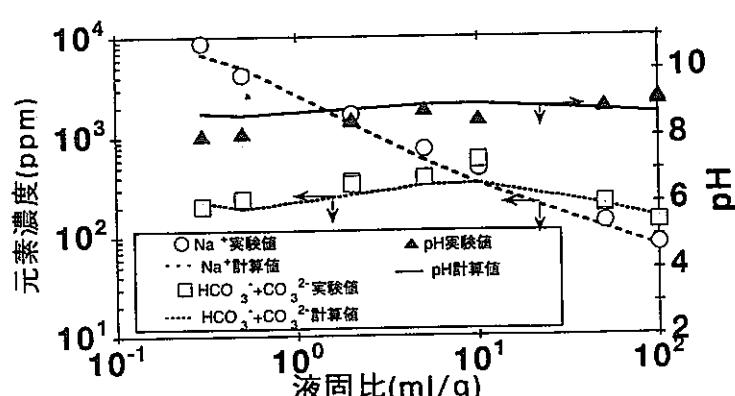


図-9 クニゲルV1-蒸留水反応におけるpH及び元素濃度の実験値と計算値との比較（実験値は180日, 大気条件, 25°C）

人工バリアシステムにおける放射性核種の移行に関する研究

平成3年度～平成7年度

東海・環境技術開発部・地層処分開発室

吉川 英樹、瀧谷 朝紀

佐藤 治夫、瀧谷 早苗

I. 研究の概要

本研究は、地層処分システムにおける人工バリアの核種移行に関する挙動を明らかにし、人工バリアシステムの長期的な閉じ込め性能を評価することを目的とする。人工バリア中での核種移行に関する性能を明らかにするため、緩衝材中の核種移行挙動について、浸出・吸着・拡散・溶解挙動に関する試験を実施すると共に、想定される処分環境における挙動を説明するためのモデルの構築を行っている。

1. 核種の吸着に関する研究

人工バリアの核種移行に関する挙動を明らかにするため、放射性核種の緩衝材への吸・脱着挙動を検討し、吸着モデルを確立した。放射性核種あるいは非放射性核種を含んだトレーサーを用いて、Cs, Se, Pu, Am, Sn, Niのベントナイトに対する分配係数を測定するとともに、ベントナイトへの吸着モデルとしてイオン交換モデル及び表面錯体モデルの適用性を検討した。さらに、本モデルでは圧縮ベントナイト中のCs, Seの移行挙動の解析にも適用した。また、EXAFS(広域X線吸収微細構造分析装置)を用いて、Niと隣接する原子との距離および配位数を測定することによって吸着箇所の同定を行った。性能評価に用いるためのベントナイトへの主要14核種の分配係数について、実測値及びOECD/NEAの吸着データベースを基に取りまとめた。

2. 核種の浸出に関する研究

鉄が共存することによるガラスの溶解速度へ与える影響について、実験的にデータを得ることを目的として、室温及び低酸素濃度下で、炭素鋼及びマグネタイト共存下でのガラスの浸出試験を実施した。炭素鋼及びマグネタイト共存下では、ガラスの主成分であるSi, Na, B等の元素の浸出濃度が非鉄共存系と比較して増加しており、溶解速度が加速されることが分かった。この原因の一つとして、溶存している鉄イオンとの錯体反応が考えられた。Fe²⁺イオン濃度をパラメーターとした浸出試験を実施した結果、鉄イオンによるガラスの溶解速度への影響は見られなかった。

3. ベントナイト中の核種の拡散に関する研究

ベントナイト中の核種の拡散について、スメクタイト含有率がほぼ50wt%の粗製Na型ベントナイト(クニゲルV1)中の見掛けの拡散係数をHTO, ⁹⁰Tc, ¹³⁷Cs, ²³⁷Np, ²⁴¹Am, Se, Zr, Ni, Smについて、乾燥密度(400～2,000kg/m³)をパラメーターに取得した^{(8), (12), (14), (15), (17), (1), (18), (20)}。また、Niは、処分場の地温の影響を検討するための例として、温度(25, 60, 90 °C)をパラメーターに行った⁽²⁰⁾。Smは、Ac, Am, Cmなどの三価の代表的な元素として、pHの変動に依存して化学種の変化が拡散に及ぼす影響についても検討するための例として行った。

同種のベントナイト中のHTO, ⁹⁰Tc, ¹³⁷Cs, ²³⁷Np, Uの実効拡散係数を乾燥密度(400～2,000kg/m³)をパラメーターに測定した^{(16), (17), (1), (18)}。

固定層および拡散二重層に基づいた一般的な電気二重層理論によるモデルを適用し、イオンと

スメクタイト表面との静電的相互作用をモデル化した。このモデルに基づいて、実効拡散係数を求め、分配係数と複合させることにより各核種の見掛けの拡散係数を説明した^{(14), (15), (16), (17), (1), (18), (19), (20)}。

自由水中のイオンの拡散係数をCs⁺, Pb²⁺, Sm³⁺, Ni²⁺, SeO₄²⁻, TcO₄⁻について電気伝導率測定に基づいて求めた⁽¹⁷⁾。また、地層処分システムにおける概略的安全評価のための拡散係数のデータをまとめると共に、入力データを設定した^{(9), (10), (11)}。

4. 核種の溶解挙動に関する研究

溶解挙動に関する研究では、ガラス固化体中に多量に含まれ、三価のアクチニド元素の類似元素として重要なNd及びSmについて、溶解度測定を行い熱力学データを取得した^{(21), (22), (23), (24)}。また、ベントナイトへ分配係数が低いため、放出率が高くなると予想されるSeについても溶解度測定を行い、既存の熱力学データの信頼性を確認した。三価のアクチニド元素の内、データが不足しているCsについては、新規データの調査や確認データとの比較を行い、熱力学データベースの更新を行った^{(25), (26)}。

II. 研究成果

1. 核種の収着に関する研究

ベントナイト（クニゲルV 1）に対するCsの分配係数を測定した結果、分配係数はCs濃度および間隙水のイオン濃度に依存することがわかった。Csの収着挙動について、スメクタイト層間の交換性陽イオンとのイオン交換すると仮定し、収着をモデル化した。その結果、Csの収着挙動はイオン交換モデルを用いて説明できることがわかった⁽¹⁾。一方、ベントナイトに対するSeの分配係数を測定した結果、Seの収着率はきわめて小さいことがわかった。また、ベントナイト構成鉱物である黄鉄鉱、 α -FeOOHへのSeの収着率はpHに依存し、pH<6ではほぼ100%を示した。これらの結果をSeとベントナイト中に存在する α -FeOOHの表面水和基との表面錯体生成反応を考えて解析した結果、実験値とよく一致した⁽²⁾（図-1）。これらのモデルを圧縮ベントナイト中のCs及びSeの分配係数についても適用した結果、これらのモデルと拡散モデルを組み合わせることによって圧縮ベントナイトに対しても適用可能であることが示された⁽³⁾（図-2）。ベントナイトに対するPu及びAmの分配係数のpH依存性を測定した結果、分配係数はpH 4~10の領域で非常に高い値を示し、pH依存性が確認された。これらの結果について、イオン交換モデルを適用して解析を行った結果、実験結果を説明できることがわかった⁽⁴⁾。さらに、難溶性元素の収着挙動を把握するために、Snの α -FeOOHへの収着形態をイオン交換、表面吸着、固相内への取り込みなどのいずれかが判別できる試薬を用いた逐次添加法により調べた結果、収着は不可逆な反応であることが分かった⁽⁵⁾。ベントナイトへの核種の収着メカニズムを把握するためにベントナイトへのNiの分配係数をpH及び間隙水イオン濃度依存性について測定を行うとともに、脱離実験を行った。また、Niの収着形態についてNi-OおよびNi-Si(Al)の結合距離および配位数をEXAFSを用いて測定した（表-1）。その結果、Niはスメクタイトの層間または鉱物の結晶端面に存在する表面水和基へ収着している可能性が高いことが示された。この結果を基に、分配係数をイオン交換モデルおよび表面錯体モデルを組み合わせたモデルを用いて評価した結果、計算結果と実測値は一致することがわかった⁽⁶⁾。

安全評価に用いるためのベントナイトへ主要14核種の分配係数を実測値とOECD/NRAの収着データベースを基にして取りまとめた。その結果、分配係数は試験条件でかなりばらついていること

が分かった。これらを基に保守的に分配係数を設定し、高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書へ反映した⁽¹⁾（表-2）。

2. 核種の浸出に関する研究

炭素鋼及びマグнетサイト共存下でのガラスの浸出試験は、高純度Ar雰囲気のグローブボックスを用いて、酸素濃度を1ppm以下に制御した環境下で実施した。試験に使用したガラス、炭素鋼及びマグネットサイトはそれぞれP0798 ガラス、JIS 3101 SS41(神戸製鋼社製) 及び和光純薬社製試薬を使用した。試験は、ブロック法および粉末法に準拠し、浸漬期間30、90、364 日で行った。試験後の浸漬液試料はICP 発光分光分析装置によりSi, Na, B, Fe 等の元素を分析した。図-3 に規格化浸出濃度の経時変化を示す。炭素鋼及びマグネットサイト共存下におけるSiの浸出量の時間変化に基づき、一次反応モデルを用いてガラスの初期溶解速度を算出した。その結果、非鉄共存下でのそれと比較して、1.5 ~ 4.3 倍程度の加速性があることが分かった。この原因として、溶存鉄イオンとの錯体反応及び腐食生成物等の鉄化合物の影響が挙げられる。そこで、溶存鉄イオン濃度をパラメーター（0.05~1ppm）としてガラスの浸出試験を室温及び低酸素濃度下で実施した。試験は、ブロック法および粉末法に準拠し、浸漬期間30、90日にて行った。その結果、ガラスの溶解速度への影響は見られなかった。今後は、他に考えられる原因について調査する予定である。

3. ベントナイト中での核種の拡散に関する研究

(1) ベントナイト中での核種の見掛けの拡散係数の取得

スマクタイト含有率がほぼ50wt%の粗製Na型ベントナイト（クニゲルV1）中での見掛けの拡散係数をHTO, ⁹⁹Tc, ¹³⁷Cs, ²³⁷Np, ²⁴¹Am, Se, Zr, Ni, Smについてベントナイト密度400 ~ 2,000(kg/m³)の範囲で測定し、データを取得した。図-4 に見掛けの拡散係数の密度依存性を示す。この結果より、Niを除いてベントナイト密度の増加に伴って拡散係数が減少することが分かった^{(8), (12), (14), (15), (17), (1), (18), (20)}。また、これらの拡散係数は、ベントナイト密度の増加に伴って拡散経路が増加する効果を含んでいることを非吸着性核種を用いた拡散試験より定量的に調べた⁽¹²⁾。Niの見掛けの拡散係数は、ベントナイト密度に依存せず、ほぼ同じ値を示した。一方、温度上昇に伴って拡散係数は増加した。温度依存性により求めた拡散の活性化エネルギー(17.3kJ/mol)は、Ni²⁺イオンの自由水中の拡散係数のそれとほぼ同じ値(20.2kJ/mol)であった⁽²⁰⁾。SmについてはpHをパラメーター(8及び11)とした拡散試験も実施したが、pHの影響は認められなかった。

(2) ベントナイト中での核種の実効拡散係数の取得

粗製Na型ベントナイト（クニゲルV1）中でのHTO, ⁹⁹Tc, ¹³⁷Cs, ²³⁷Np, Uの実効拡散係数を乾燥密度(400~2,000kg/m³)の範囲で測定し、データを取得した。図-5 に実効拡散係数の密度依存性を示す。これより、実効拡散係数は、ベントナイト密度の増加に伴って減少することが分かった。また、実効拡散係数は、陽イオン>中性化学種>陰イオンの順で小さくなっている、拡散化学種の電荷が影響している可能性が示唆された^{(16), (17), (1), (19)}。

(3) 電気二重層理論に基づいた拡散モデル

実効拡散係数および見掛けの拡散係数を説明するため、電気二重層理論に基づいた拡散モデルを検討した。ベントナイトの主要構成鉱物であるモンモリロナイト粒子表面と拡散化学種との電気的相互作用を上記理論を用いてモデル化した。ベントナイトは層状構造をなしていることから、間隙構造として1対のモンモリロナイト平行平板を仮定した。図-6 に1対のモンモリロナイト粒子間のポテンシャル分布の概念を示す。間隙水と接触しているベントナイト表面

は負に帯電していることが知られている。従って、モンモリロナイト粒子表面より電位分布が生じ、この層間をイオンが通過する場合、表面付近で静電的相互作用が生じることが考えられる。この相互作用を収斂度を用いて表した。実効拡散係数は、収斂度、間隙率、屈曲度、イオンの自由水中の拡散係数などに分解されるので、これらのパラメーターを用いて実効拡散係数を推定した。図-7に解析結果および実測値との比較の1例を示す⁽¹⁾。解析値についても陽イオンと陰イオンとの差が現れており、その傾向は実測値と同様に実効拡散係数が陽イオン>中性化学種>陰イオンとなっている。ベントナイト中の核種の見掛けの拡散係数について、上記電気二重層理論に基づいて実効拡散係数を求め、Csはスメクタイトの層間イオンとのイオン交換、Seはスメクタイト結晶との表面錯体、Niはイオン交換および表面錯体反応を考慮して分配係数を求めた結果を複合させ、見掛けの拡散係数をほぼ説明した(図-8参照)⁽²⁾。

(4) 自由水中のイオンの拡散係数の取得

拡散係数の基本パラメーターの一つの自由水中のイオンの拡散係数をCs⁺, Pb²⁺, Sm³⁺, Ni²⁺, SeO₄²⁻, TcO₄⁻について測定した。特に、TcO₄⁻イオンの自由水中のイオンの拡散係数を初めて取得した⁽¹³⁾。その結果、得られた拡散係数は、他のイオンと同様な値であることが分かった。

4. 核種の溶解挙動に関する研究

Nd及びSmの水酸化物と炭酸塩について、雰囲気を制御した条件で溶解度を測定し、熱力学データを取得すると共に、熱力学データベースに導入した。Smの水酸化物と炭酸塩の溶解度測定結果を図-9、10に示す。NdについてもSmと同様の結果が得られた^{(21), (22), (23), (24)}。

Seについては、低酸素濃度下および還元条件下における溶解度測定を行い、既存の熱力学データの信頼性を確認した。一方、溶解度試験では、熱力学データを用いて予測された溶解度制限固相Fe₂Se₃とは異なる準安定な固相Seが観察されたため、溶解度制限固相の設定についてより詳細な検討が必要であると考えられる。

Cmについては、既存熱力学データベースの出典や新規データを調査すると共に、確証データとの比較を行うことにより信頼性を検討し、新規データの更新を行った^{(25), (26)}。

5. 結言

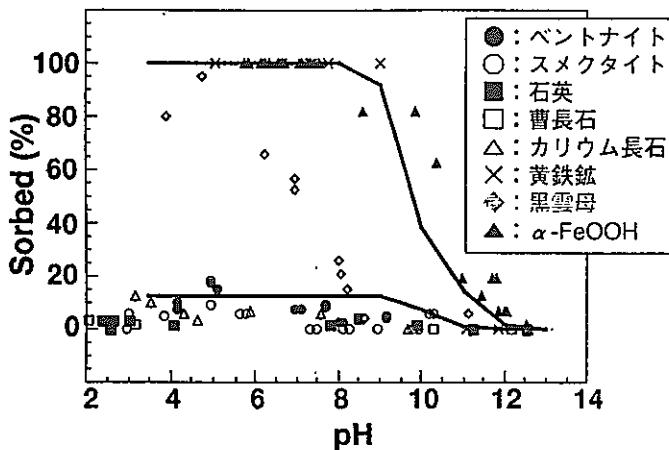
- (1) 核種の吸着に関する研究では、Cs, Se, Pu, Am, Sn, Niのベントナイトに対する分配係数を取得すると共に、これらの核種の吸着挙動をイオン交換および表面錯体モデルにより説明した。また、安全評価に用いるためのベントナイトへの主要14核種の分配係数を取りまとめた。
- (2) 炭素鋼およびマグネタイト共存下でのガラスの浸出試験を実施し、非鉄共存系と比較して可溶性元素の浸出速度が加速されることが分かった。
- (3) 粗製Na型ベントナイト中の見掛けの拡散係数および実効拡散係数をベントナイト密度をパラメーターに取得すると共に、電気二重層理論に基づいた拡散モデルを構築した。また、自由水中のイオンの拡散係数を電気伝導率を測定することにより取得した。
- (4) 溶解挙動に関する研究では、三価のアクチニド元素の類似元素のNd, Smについて熱力学データを取得した。また、Seは、既存の熱力学データの信頼性を確認すると共に、Cmについて熱力学データの更新を行った。

主要レポート

- (1) 佐藤治夫・瀧谷朝紀、「緩衝材及び岩石への核種の吸着・拡散メカニズム」動燃技術資料

- (公開) PNC TN8410 94-284 (1994)
- (2) 濵谷朝紀 他, 「Seの岩石及び鉱物に対する吸着挙動に関する研究」動燃技術資料 (公開) PNC TN8410 95-395 (1994)
- (3) T. Shibutani et al., "Experimental and Modelling Studies on Sorption of Cesium and Selenium in Compacted Bentonite", Abstract, MIGRATION '95, p. 38.
- (4) T. Shibutani et al., "Sorption mechanism of Pu, Am and Se on sodium-bentonite". Mat Res. Soc. Symp. Proc. vol. 333, pp. 725-730 (1993).
- (5) 小田治恵 他, 日本原子力学会1994年春の大会「ゲーサイトへのSnの吸着挙動」
- (6) 濵谷朝紀 他, 日本原子力学会1996年春の大会「ベントナイトに対するNiの吸着挙動に関する研究」
- (7) 濵谷朝紀 他, 「ベントナイト及び岩石中での核種の分配係数」動燃技術資料 (公開) PNC TN8410 92-163(1992)
- (8) 佐藤治夫 他, 日本原子力学会1991年秋の大会「クニゲルV1中における核種の拡散・吸着機構の研究」
- (9) 「高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書—平成3年度」動燃技術資料 (公開) PNC TN 1410 92-081(1992)
- (10) Haruo Sato et al., "Effect of Dry Density on Diffusion of Some Radionuclides in Compacted Sodium Bentonite" Journal of Nuclear Science and Technology, 29(9), pp. 873-882(1992).
- (11) 佐藤治夫 他, 「ベントナイト及び岩体中での核種の実効拡散係数」動燃技術資料 (公開) PNC TN 8410 92-164 (1992)
- (12) Sato et al., "Study on Retardation Mechanism of ^3H , ^{99}Tc , ^{137}Cs , ^{237}Np and ^{241}Am in Compacted Sodium Bentonite" Mat. Res. Soc. Symp. Vol. 294, pp. 403-408(1993).
- (13) 佐藤治夫 他, 日本原子力学会1993年春の年会「 TcO_4^- イオンの無限希釈溶液中の拡散係数の電気伝導率測定に基づく評価」
- (14) 佐藤治夫 他, 日本原子力学会1994年春の年会「ベントナイト中のSeの見かけの拡散係数測定及び電気二重層理論によるモデル化」
- (15) H. Sato et al., "Diffusion Behavior for Se and Zr in Sodium-bentonite", MRS '94, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XV III.
- (16) H. Kato et al., "Estimation of Effective Diffusivity in Compacted Bentonite", MRS '94, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVIII.
- (17) 「地層処分研究開発の現状(平成5年度)」動燃技術資料 (公開) PNC TN1410 94-094 (1994)
- (18) H. Sato et al., "Diffusion Behavior for Se and Zr in Sodium-bentonite", Scientific Basis for Nuclear waste Management XVIII, Vol. 353 (1995).
- (19) H. Kato et al., "Estimation of Effective Diffusion in Compacted Bentonite", Scientific Basis for Nuclear waste Management XVIII Vol. 353(1995).
- (20) 佐藤治夫 他, 地層処分研究情報交換会「圧縮ベントナイトにおけるCs, Se, Niの移行挙動」(1996)
- (21) 濵谷早苗 他, 日本原子力学会1995年春の年会「水酸化炭酸サマリウム($\text{SmOHCO}_3(\text{cr})$)の溶解度測定と加水分解平衡定数の算出」

- (22) 濵谷早苗 他, 「水酸化サマリウム(SmOHCO_3) の溶解度測定と加水分解定数の算出」 動燃技術資料 (公開) PNC TN8410 95-031 (1995)
- (23) 濵谷早苗 他, 第39回放射化学討論会「水酸化サマリウムの溶解度測定と加水分解定数の算出 – Unified Theory の適用妥当性について –」 (1995)
- (24) 濱谷早苗 他, 「低二酸化炭素雰囲気下における水酸化サマリウムの溶解度測定及び加水分解定数の算出」 動燃技術資料 (公開) PNC TN8410 95-204 (1995)
- (25) 濱谷早苗 他, 日本原子力学会1996年春の大会「地層処分性能評価のためのPNC-TDB の整備とその現状」
- (26) 芦田敬 他, 「高レベル廃棄物地層処分システムの性能評価のためのCmに関する熱力学データ整備」 動燃技術資料 (公開) PNC TN8410 95-402 (1996)



(実線は表面錯体モデルによる解析結果)

図-1 モデルによる解析値と実測値との比較

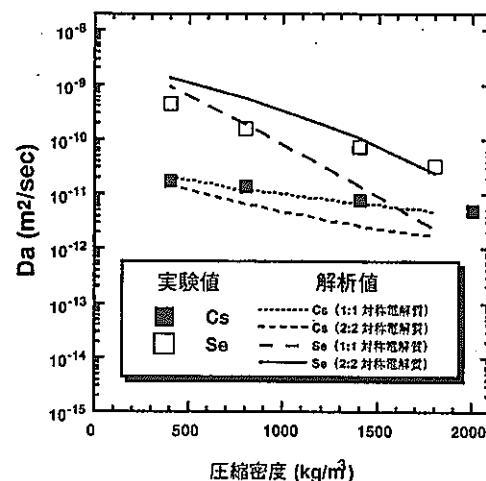


図-2 Se及びCsのモデルによる見掛けの拡散係数の解析値と実測値との比較

表-1 結合距離および配位数

	ベントナイト		スメクタイト	
	配位数(個)	結合距離(Å)	配位数(個)	結合距離(Å)
Ni-O	3.6	1.68	2.2	1.61
Ni-O	7.0	2.11	8.7	2.11
Ni-Al(Si)	1.1	2.62	0.7	2.61
Ni-Al(Si)	3.3	2.94	1.1	2.93
Ni-Al(Si)	3.0	3.29	1.3	3.28

Ni-Al原子対の配位数は相対値

表-2 分配係数の範囲と設定値

	性能評価に用いた分配係数			単位 (m³/kg)
	各元素のベントナイトへのKd値			
圧縮ベントナイト中のKd (クニビアF, $\rho=1.8$)	NEA/SDB中のKd値 () 内はアナログデータ () :理由は上記参照	Kd設定値		
Se (0.001~0.006) ¹⁾		0.001 (②)		
Zr	(ベントナイト+石英混合物 0.05-1.585)	0.1 (③-②)		
Tc	0.0011	0.0026-0.026	0.001 (①)	
Pd	(粘土, Co:0.0012-75)	0.001 (③-②)		
Sn	(凝灰岩, Sn: 0.14-0.595)	0.1 (③-②)		
Cs	0.02 (3.4) ¹⁾	0.004-5.707	地下水地下水水 0.01 (①) 海水地下水水 0.001 (①)	
Ra		0.696-56 ³⁾	地下水地下水水 0.1 (②) 海水地下水水 0.001 (③)	
Ac	(Am:0.208-14.568)	10 (③)		
Th	(Np:0.006-0.163)	0.1 (③)		
Pa	(Np:0.006-0.163)	0.1 (③)		
U	0.0013-0.63	0.1 (②)		
Np	0.16	0.005-0.163	0.1 (①)	
Pu	88 ²⁾	0.44-20	10 (①)	
Am	38	0.208-14.568	10 (①)	
各元素の岩石へのKd設定値				
カコウ岩類	凝灰岩類・泥岩類	玄武岩類		
0.001-0.05	0.001-0.025	0.001-0.05		
1-5				
0.005-0.05	0.0001-0.025	0.001-0.005		
0.001-0.025				
0.05	0.1-0.5	(Np:0.05-0.25)		
0.001-1	0.001-10	0.05-1		
0.05-5	0.5-5	1-5		
(Am:0.25-10)	(Am:0.025-25)	(Am:0.01-1)		
0.5-5	0.1-1	(Np:0.05-0.25)		
(Np:0.01-0.1)	(Np:0.001-0.05)	(Np:0.05-0.25)		
0.0001-0.1	0.0001-0.5	(Np:0.05-0.25)		
0.01-0.1	0.005-0.5	0.05-0.25		
0.05-25	0.05-2.5	0.025-0.5		
0.25-10	0.025-25	0.01-1		

1) パッチ法によるKd値 (クニゲルV1のデータ)。 2) クニビアF乾燥密度0.2g/cm³のデータ。 3) Sheppard et al. (1984)

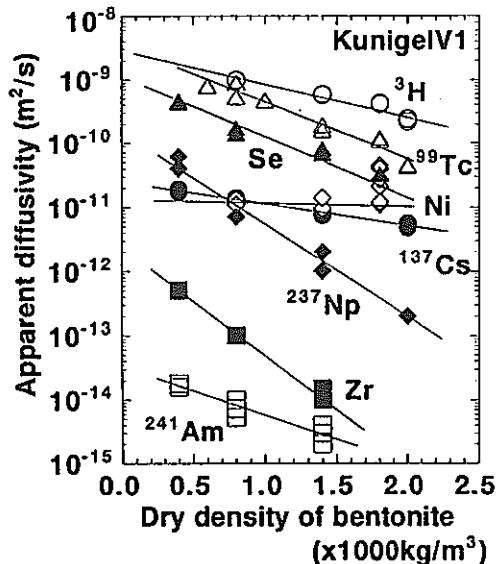
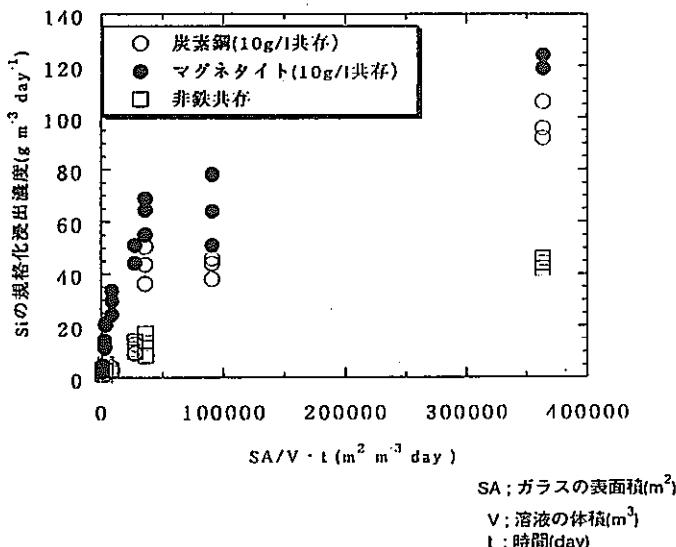


図-3 鉄共存下でのガラスの浸出試験結果

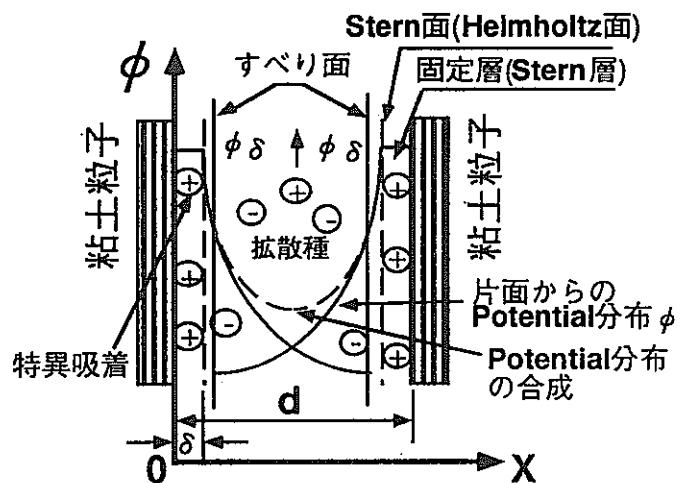
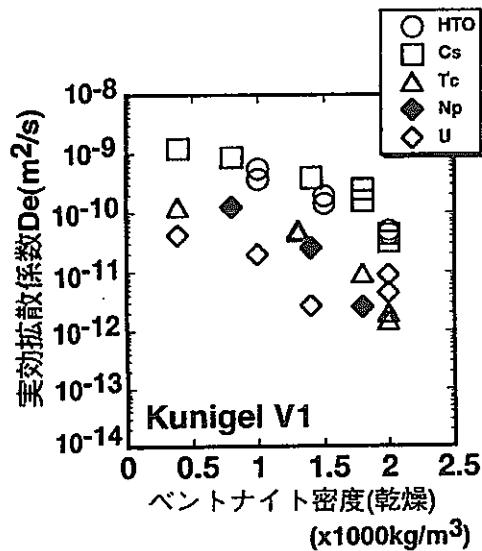
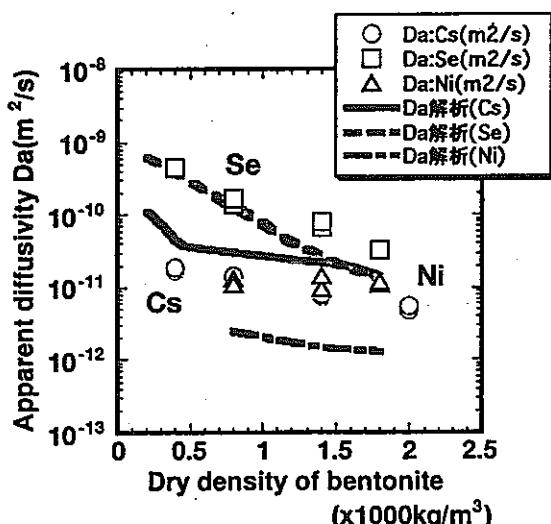
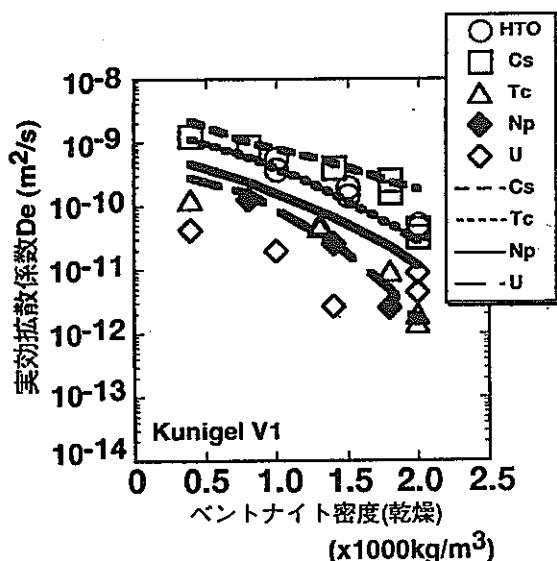


図-6 一対のモンモリロナイト粒子間のポテンシャル分布の概念図



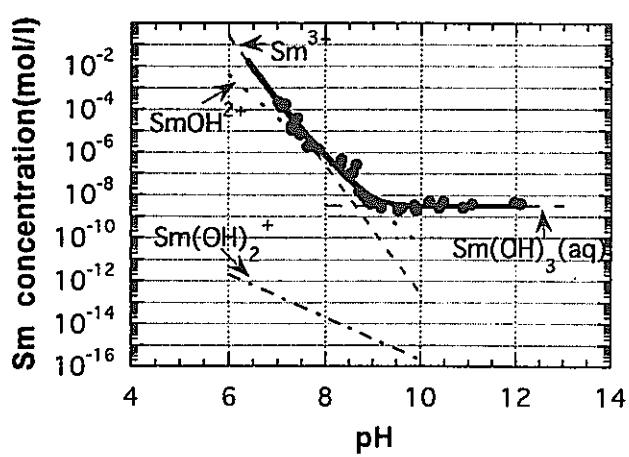


図-9 $\text{Sm}(\text{OH})_3(\text{cr})$ の溶解度測定結果

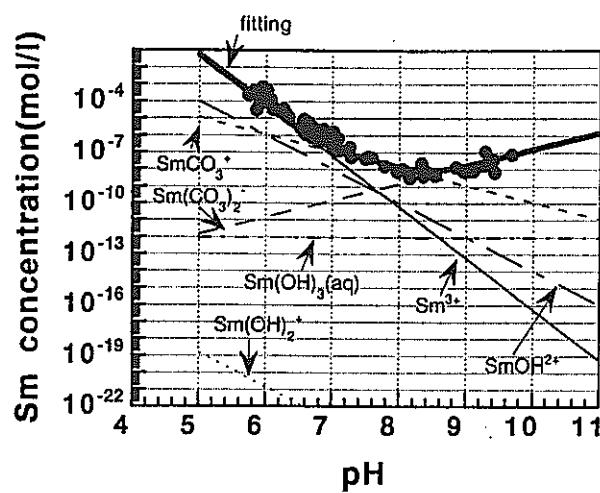


図-10 $\text{SmOHCO}_3(\text{cr})$ の溶解度測定結果

人工バリアのナチュラルアナログ研究

平成3年度～平成7年度

東海・環境技術開発部・地層処分開発室 三ツ井 誠一郎

I. 研究の概要

本研究は人工バリアの各構成要素に関して、履歴の明らかな天然類似現象（ナチュラルアナログ）を抽出し、それらの挙動を明らかにすることにより、人工バリアの長期的な核種閉じ込め機能評価の信頼性の向上に係わるデータを取得することを目的とする。

1. ガラスの溶解に関する研究

処分環境におけるガラス固化体の長期溶解挙動について、ガラス+水単純系のナチュラルアナログとしてスコリア層を構成する火山ガラスの変質を調査し、地下水中のSi成分濃度と変質速度の関係を検討した。その結果、地下水中的Si成分濃度の増加に伴い、火山ガラスの変質速度が低下することがわかった。また、ガラス+ベントナイト+水複合系のナチュラルアナログとして、100万年間泥質岩に包まれていた火山ガラスの変質を調査し、ほとんど変質が進行していないことがわかった。さらに、廃棄物の変質過程におけるアクチニドの浸出挙動のナチュラルアナログとして、火山ガラスからの希土類元素の浸出挙動を調査し、変質が進行しても希土類元素がほとんど浸出しないことがわかった。このほか、各種条件での模擬廃棄物ガラスおよび合成火山ガラスを用いた浸出試験を実施し、両ガラスの溶解速度の差は1桁程度であり、また溶解メカニズムはほぼ同一であることがわかった。

2. 金属の腐食に関する研究

ベントナイトに包まれた炭素鋼オーバーパックの長期腐食挙動についてのナチュラルアナログとして、粘土質土壤中に埋設されていた鋼管の腐食を調査し、経験的腐食モデル式を作成した。また、ベントナイトに包まれた銅オーバーパックの長期腐食挙動についてのナチュラルアナログとして、シルト質砂層中に約1,800年間埋蔵されていた銅鐸の腐食を調査し、平均腐食深さを推定した。

3. ベントナイトの変質に関する研究

熱によるベントナイトのイライト化変質について、貫入岩からの熱によるイライト化変質作用を受けた天然ベントナイトの、イライト化変質の温度-時間条件、ならびに化学的環境条件の調査を継続して実施し、処分環境で想定される温度条件では少なくとも200万年間はイライト化が起こらないことがわかった。また、ベントナイトのイライト化、炭素鋼オーバーパック/ベントナイト相互作用、Ca型化のナチュラルアナログとして、いずれも有望な新規調査地域を選定することができた。

II. 研究成果

1. ガラスの溶解に関する研究

(1)ガラス+水単純系のナチュラルアナログ研究

富士山の宝永スコリア、伊豆半島の高塚山スコリアおよび兵庫県の神鍋山スコリアについて、スコリアと接触していた地下水の水質、変質期間、変質層の厚さおよびその構成鉱物を調査した。その結果、スコリアの埋没深度が増加するに従い、地下水中のSi成分濃度が増加することがわかった。また、変質層の厚さを変質期間で除して算出した変質速度は、数 $\mu\text{m}/1,000\text{年}$ から数 $\text{nm}/1,000\text{年}$ まで、地下水中のSi成分濃度の増加に伴って低下することがわかった（図-1）^{(1), (11)}。

(2)ガラス+ベントナイト+水複合系のナチュラルアナログ研究

泥質岩に含有される、火山ガラスの変質環境条件ならびに変質状態を調査した。泥質岩の鉱物組成および透水係数を調査した結果、ベントナイトの主要構成成分であるスメクタイトを含有すること、透水係数が $8.35 \times 10^{-11} \text{ m/s}$ であることなど、圧縮ベントナイトに類似した性質を有することが明らかとなり、泥質岩中の火山ガラスが圧縮ベントナイト中の廃棄物ガラスのナチュラルアナログと見なせることができた。また、光学顕微鏡を用いて観察した結果、火山ガラスの変質は確認されなかった（図-2）^{(2), (11)}。

(3)廃棄物ガラスの変質過程におけるアクチニドの浸出に関するナチュラルアナログ研究

LaやCeなどの希土類元素は、3価のアクチニドの化学的アナログ元素として有効であると考えられている⁽¹⁶⁾。この点に着目して、玄武岩質火山ガラスについて、変質の程度と希土類元素の濃度の関係を調査した。その結果、火山ガラス中の希土類元素濃度は、変質の程度に関わらずほぼ一定であり、変質が進行してもガラスから浸出しにくい傾向があることが明らかとなった（図-3）。このことから、廃棄物ガラスの変質が進行しても、3価のアクチニドはガラスから浸出しにくいことが示唆される。

(4)模擬廃棄物ガラスと合成火山ガラスの溶解挙動比較試験

廃棄物ガラスと火山ガラスでは化学組成が異なるので、火山ガラスの調査結果に基づいて、廃棄物ガラスの長期溶解挙動を議論するには、両ガラスの溶解メカニズムに差異がないこと、さらには溶解速度にどの程度の差があるかを確認する必要がある。そこで、模擬廃棄物ガラスと合成火山ガラスを、各種条件でのブロック法の浸出試験に供し、両ガラスの溶解メカニズムや溶解速度を比較した。その結果、蒸留水を用いた浸出試験で求めた模擬廃棄物ガラスの初期溶解速度は、合成火山ガラスの約3倍であり、この差は両ガラスの化学組成の違いで説明できることが明らかとなった（図-4）^{(7), (13), (14), (17)}。また、非晶質SiO₂飽和溶液を用いた浸出試験によって、ガラス+ベントナイト+水複合系での両ガラスの溶解メカニズムはいずれも水和反応であることが明らかとなった^{(13), (14), (15)}。

2. 金属の腐食に関する研究

(1)ベントナイト中の炭素鋼オーバーパックの腐食に関するナチュラルアナログ研究

粘土質土壤中に20~70年程度埋設されていた10数件の鋼管の腐食について、埋設環境条件および極値統計手法による最大孔食深さを調査した。その結果、埋設期間と最大孔食深さの関係から求めた経験的腐食モデル式は、 $H=0.46Y^{0.51}$ （H：最大孔食深さ [mm]、Y：埋設期間 [年]）となり（図-5），この式から求めた1,000年後の炭素鋼オーバーパックの最大孔食深さは約2cmとなった^{(3), (8)}。

(2)ベントナイト中の銅オーバーパックの腐食に関するナチュラルアナログ研究

シルト質砂層から出土した銅鐸について、埋蔵環境条件および平均腐食深さを調査した。この銅鐸は1,800年間埋蔵されていたにも関わらず、出土時には金属光沢を呈していたものである（図-6）。

調査の結果、銅鐸の埋蔵環境は酸素の影響を受けにくい条件であり、これが銅鐸の保存状態が良好であった要因の一つであることがわかった。また、シルト質砂層の透水係数が圧縮ベントナイトの透水俓と較べて1~2桁程度高いこと、ならびに遺跡の地下水の酸化還元電位が+8mV vs S.H.E.で、ベントナイトによる緩衝を受けた地下水の酸化還元電位(-240~-400mV vs S.H.E.)より高いことなどの点では、銅鐸の埋蔵環境の方が地層処分環境よりも腐食に厳しいことが明らかとなった。さらに、周辺のシルト質砂層に溶出した銅成分量から、銅鐸の平均腐食深さを保守的に見積もった結果、約2mmとなった。以上のことから、処分環境における低酸素濃度条件での銅オーバーパックの腐食を考えた場合、オーバーパックの健全性が期待されている期間(1,000年)に必要な腐食代は、数cm程度で充分であると推定できる^(1,2)。

3. ベントナイトの変質に関する研究

(1)ベントナイトのイライト化変質に関するナチュラルアナログ研究

ベントナイトに含有されるスメクタイトは、数百°Cの温度条件下ではイライト化変質することが地質学的な現象として知られている^(1,8)。この変質について、前年次計画より継続して、ベントナイト鉱床における貫入岩からの熱によるベントナイトのイライト化変質の、化学的環境条件および温度一時間条件を調査した。化学的環境条件については、地球化学および地質学的証拠によりイライト化変質に関与した水が海水起源の地下水であることがわかった^{(4), (10)}。また、貫入岩の放射年代測定に基づく鉱床地域の温度分布の経時変化の計算から、温度一時間条件とイライト化率の関係を求めた結果、処分環境で想定される条件では200万年間はイライト化が進行しない可能性が示された(表-1)⁽⁵⁾。

半深成岩であるひん岩に貫入されている泥質岩に対して、スメクタイトのイライト化の程度を調査した。その結果、泥質岩に含有される粘土鉱物種は、ひん岩に近づくに従い、スメクタイトからイライト/スメクタイト混合層鉱物、さらにイライトへと変化することがわかった(図-7)。また、変質の温度一時間条件を把握するための基礎データとして、ひん岩の放射年代測定を実施した結果、ひん岩の冷却速度は約600°C/100万年であることがわかった。

(2)炭素鋼オーバーパック/ベントナイト相互作用に関するナチュラルアナログ研究

処分環境におけるベントナイトは、オーバーパックとの相互作用により、Fe型化や緑泥石化等の変質を被る可能性がある^(1,9)。相互作用によるこれらの変質の可能性を評価するため、ベントナイト鉱床において、ベントナイト原鉱と支保鋼が接触している部分を調査した。ベントナイトは、支保鋼に近づくに従い、白色から黄灰色、暗緑色へと色調が変化し、これは支保鋼から供給された鉄成分によるものであることが、ベントナイトの蛍光X線による化学組成分析でわかった。また、X線回折分析、陽イオン交換容量および浸出陽イオン分析により、暗緑色を呈したベントナイトはFe型化している可能性が示された。

(3)ベントナイトのCa型化に関するナチュラルアナログ研究

地質学的な現象の一つとして、天水が浸透したNa型のベントナイトは、Ca型化にイオン型が変化することが知られている^(2,0)。このことから、地下水の水質によっては、緩衝材の候補材料であるNa型のベントナイトについても同様な変質が進行する可能性が考えられる。これについて、ベントナイト鉱床で露天掘りされているベントナイトの天水による変質、ならびにベントナイト鉱床の坑道内のベントナイトの地下水による変質を調査した。陽イオン交換容量および浸出陽イオン分析により、天水もしくは地下水が浸透しているベントナイトは、一部Ca型化が進行していることがわかった。

4. 結言

人工バリア構成要素の長期的核種閉じ込め機能評価の信頼性を向上させる目的で、履歴の明らかなナチュラルアナログを抽出、調査し、主として各人工バリア構成要素単独の条件での長期挙動を明らかにした。今後、室内サポート試験によって変質および腐食速度に関する天然試料と人工バリア構成要素の差を明らかにするとともに、複数の人工バリアが共存した条件に相当するナチュラルアナログを調査し、複合系での長期挙動を明らかにしてゆく。

主要レポート

- (1) 湯佐泰久 他, 「廃棄物ガラスの長期浸出挙動に関するナチュラルアナログ研究」, 日本原子力学会誌(1991)
- (2) 亀井玄人 他, 「火山ガラスのナチュラルアナログ研究(Ⅲ) - 数百万年間, 泥質岩に埋没されていた火山ガラスの変質速度と環境条件 -」, 日本原子力学会1991年秋の大会(1991)
- (3) 玉田明宏 他, 「金属製オーバーパックのナチュラルアナログ研究」, 第38回腐食防食討論会(1991)
- (4) 亀井玄人 他, 「イライト化作用の化学的環境条件 - 新潟県村上鉱床地域における変質作用の研究」, 日本資源地質学会(1991)
- (5) Kamei, G. et al., "Natural analogue study on the long-term durability of bentonite - Time-temperature condition and water chemistry on illitization at the Murakami deposit, Japan. -", Mat. Res. Soc. Symp. Proc. (1991)
- (6) Kamei, G. et al., "Natural analogue studies of engineered barrier materials at PNC Tokai, Japan. -Their Framework and Recent Activities-", The Third International Symposium on Advanced Nuclear Energy Research -Global Environment and Nuclear Energy- (1991)
- (7) 笹本 広 他, 「火山ガラスのナチュラルアナログ研究(IV) - 環境条件を変数とした廃棄物ガラスと火山ガラスの浸出比較試験 -」, 日本原子力学会1992年秋の大会(1992)
- (8) 亀井玄人, 「人工バリア材の長期耐久性に関するナチュラルアナログ研究」, 放射性廃棄物処分の高度化に関するセメント・コンクリート研究懇談会(1992)
- (9) 玉田明宏・亀井玄人, 「土中埋設鋼の長期腐食挙動の評価」, 腐食防食' 93 (1993)
- (10) 亀井玄人 他, 「新潟県村上粘土鉱床における変質帯の生成過程」, 資源地質学会誌(1993)
- (11) 動燃事業団, 「地層処分研究開発の現状(平成5年度)」, 動燃技術資料(公開), PNC TN1410 94-094 (1994)
- (12) 三ツ井誠一郎 他, 「緩衝材中の銅オーバーパックの腐食に関する考古学的アナログ研究」, 日本原子力学会1995年春の年会(1995)
- (13) 三ツ井誠一郎・山中 裕, 「廃棄物ガラスと火山ガラスの溶解挙動比較試験 大阪工業技術研究所-動燃事業団共同研究成果報告書」, 動燃技術資料(公開), PNC TN8410 95-192 (1995)
- (14) 三ツ井誠一郎 他, 「廃棄物ガラスと火山ガラスの溶解挙動の比較」, 放射性廃棄物研究誌(1996)
- (15) 三ツ井誠一郎 他, 「Si飽和条件における廃棄物ガラスと火山ガラスの溶解挙動の比較」, 地球惑星科学関連学会合同大会(1996)

参考文献

- (16) Chapman, N. A. et al., "The potential of natural analogues in assessing systems for deep disposal of high-level radioactive waste", SKB Technical Report, TR 84-16(1984)
- (17) Plodinec, M. J. et al., "Thermodynamic approach to prediction of the stability of proposed radwaste glasses", Advances in Ceramics(1984)
- (18) Pusch, R. and Karnland, O., "Geological evidence of smectite longevity -The Sardinian and Gotland cases", SKB Technical Report, TR 88-26(1988)
- (19) Grauer, R., "Bentonite as backfill material in the high-level waste repository:chemical aspects", Nagra Technical Report, NTB 86-12E(1986)
- (20) 宇野泰章・武司秀夫, 「新潟県中条酸性白土鉱床中のモンモリロナイトの交換性陽イオンと構造式」, 鉱物学雑誌特別号(1979)

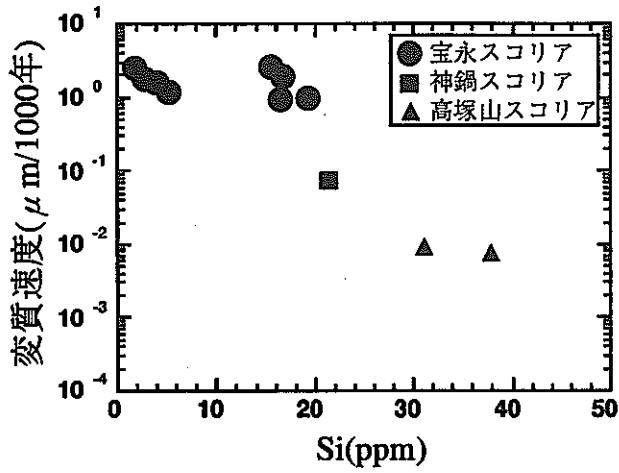


図-1 間隙水中のSi成分濃度と火山ガラスの
変質速度の関係

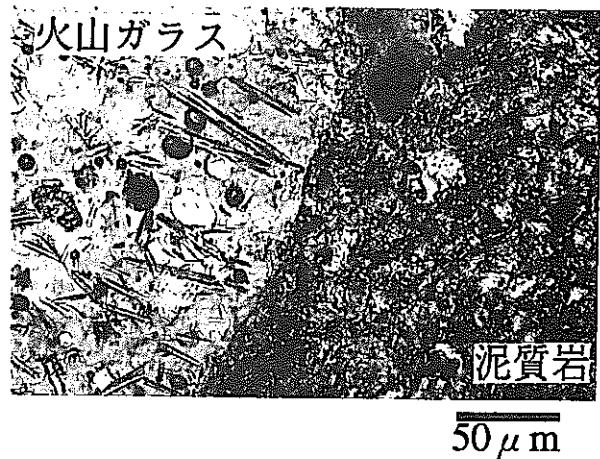


図-2 鴨川スコリアの光学顕微鏡写真
光学顕微鏡下では変質が認められない。

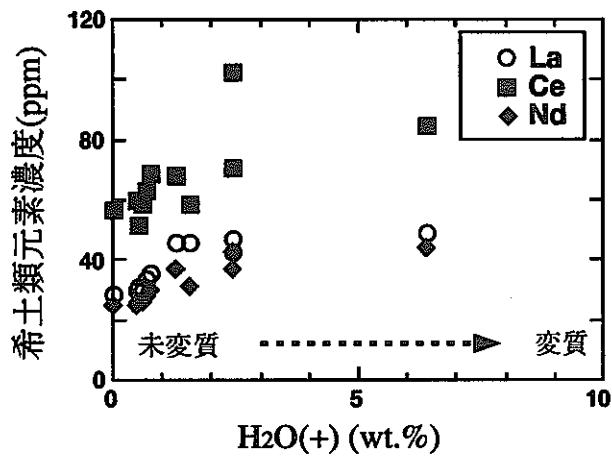


図-3 火山ガラスの変質の程度と希土類元素
濃度の関係

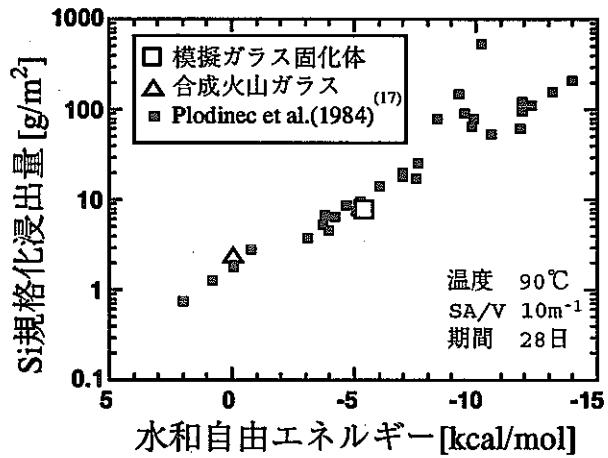


図-4 ガラス水和自由エネルギーとSi規格化
浸出量の関係

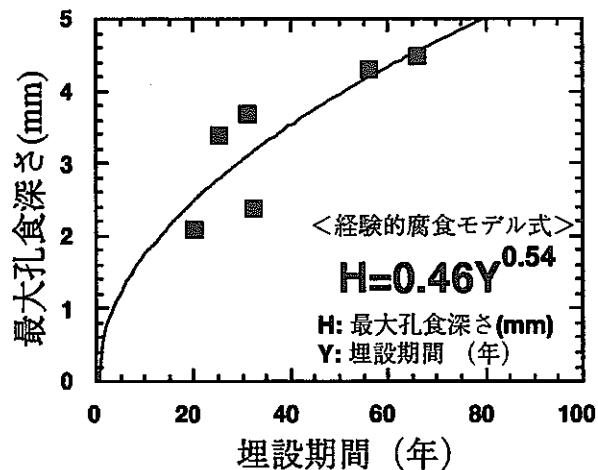
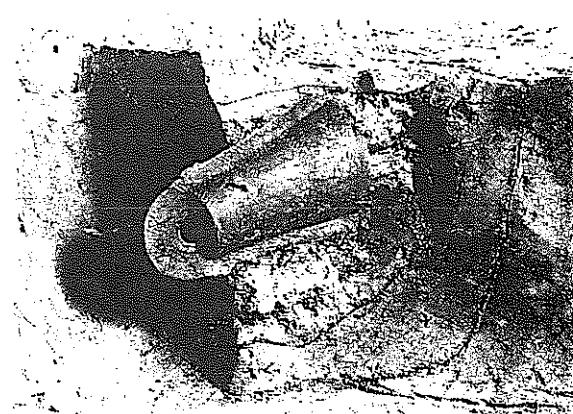


図-5 土壤埋設鋼管の最大孔食深さの経時変化



(財) 大阪府文化財調査研究センター提供

図-6 銅鐸の出土状況

表-1 溫度-時間条件とイライト化率の関係

イライト化率 (%) *	温度-時間条件
80%	340→100°C, 350万年
40%	240→100°C, 300万年
0%	160→100°C, 200万年

* : イライト／スメクタイト混合層鉱物に含有されるイライトの割合

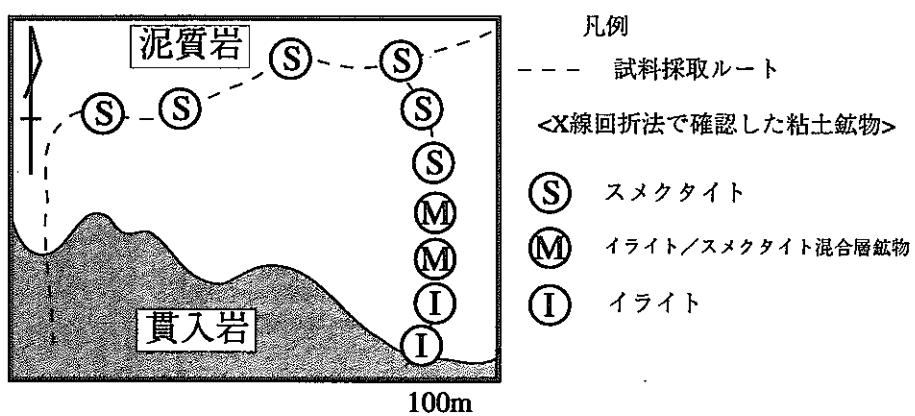


図-7 ひん岩接触部における粘土鉱物分布

地下水の水理地質学的特性に関する研究

平成3年度～平成7年度

東濃・地質環境研究室 前川 恵輔

三枝 博光

I. 研究の概要

地下水流动は、地下水の地球化学特性ならびに物質の移行現象を支配する主要な因子の一つであり、地層処分システムにおける放射性核種の移行挙動を評価する上で必要不可欠な情報である。地層処分研究開発⁽¹⁸⁾の基盤となる地層科学研究の一環として、ウラン鉱床を有する岐阜県東濃地域（図-1）において、地下水流动特性評価に必要な調査、解析、評価技術などの要素技術の開発とその評価・体系化、および地下水流动に関する現象の把握を目的とした研究を実施している。

1. 地下水流動特性評価のための要素技術開発

(1) 調査技術開発

地質構造調査技術として、各種調査手法の導入・開発ならびにデータ解析技術の開発を実施し、各手法の適用範囲を明らかにした。

水理調査技術としては、試錐孔を利用した深度1,000mまで対応可能な水理調査機器および地球化学調査機器を開発し、適用試験によりそれらの基本性能を確認した。また、表層水理定数観測システムを構築し、表層部から地下深部への地下水涵養量を算定した。

(2) 解析技術開発

地球統計解析手法やフラクタル理論（一般的な地球統計解析ではサンプルの離間距離と統計量との関係を定型の関数で近似するのに対し、フラクタル理論による解析手法はべき乗形式の関数で近似する）を応用した、透水係数などの水理定数の空間分布の推定手法を開発した。

(3) 評価技術開発

地下水の間隙水圧などの観測データを用いて地下水流动解析の結果に対する妥当性の評価を行った。

2. 要素技術の評価・体系化のための調査研究

(1) 立坑掘削に伴う地下水流动影響調査研究

東濃鉱山の第2立坑掘削に伴う周辺領域の地下水流动への影響を予測するための調査解析を通じて、地下水流动解析手法および地下水流动特性評価プロセスの妥当性を確認した。

(2) 深部地下水調査研究

東濃鉱山を中心とする約10km四方の領域を対象とした調査解析によって、対象領域内の岩盤の透水性を把握し、また、堆積岩層中の地下水の起源・年代を推定した。透水係数などの水理定数の空間分布を推定する手法については、その有効性を確認した。

II. 研究成果

1. 地下水流動特性評価のための要素技術開発

地下水流动特性評価における要素技術開発は、表層から地下深部までの水理学的データを取得

するための「調査技術開発」、岩盤中の地下水流动のモデル化やシミュレーションを行うための「解析技術開発」および、解析結果の妥当性を検討するための「評価技術開発」から構成されている。

(1) 調査技術開発

(a) 地質構造調査技術

対象領域の地質構造を把握することは、地下水流动を規制する地層の透水係数などの空間的分布を把握する上で重要である。対象領域の地質構造を効率的に調査するためには、概略的な調査から開始し、精密な調査を必要とする地域を順次絞り込みながら各々の段階で最適な調査手法を用いる必要がある。すなわち、調査手法の体系化が重要である。こうした観点から、地質構造調査に関する技術については、リモートセンシング利用技術開発や物理探査機器の導入・開発ならびにデータ解析技術の開発を実施し、各手法の適用範囲を明らかにした。また、調査用試錐孔を掘削する際に地下深部岩盤の透水性や地下水の水質に影響を及ぼさないような保孔用泥材の開発などの保孔技術に関する技術開発を実施した（表-1）。

(b) 水理調査技術

地下水流动解析を行うためには、対象領域内の岩盤の透水性や地下水涵養量および試錐孔における間隙水圧などの水理学的情報が必要である。とくに地下数百m以深の地下水流动を把握するためには、従来の土木分野で不透水層として扱われる極めて水を通しにくい（透水係数で 10^{-6} cm/sec以下の）岩盤（難透水性岩盤）を対象として精度よくデータを取得する必要がある。そのため、試錐孔を利用した深度1,000mまでの難透水性岩盤に適用可能な透水試験装置を開発し、その適応試験結果から基本性能を確認した⁽¹⁾（表-2）。また、地下水流动解析の上部境界条件として必要となる表層部から深部岩盤への地下水涵養量を把握するため、気象、河川流出量、自由地下水面、土壤水分を長期間連続計測でき、これらのデータを包括的に管理・処理できる表層水理定数観測システムを製作し、東濃鉱山周辺に設置した（図-2）。これまでの観測結果から、表層部から深部岩盤への地下水涵養量として0.57mm/日という値を得ている⁽²⁾。

(c) 地下水の地球化学調査技術

地下水や地表水の水質・同位体組成に基づく地下水循環機構に関する情報は、地下水流动解析結果の妥当性を評価する一助となる。これらの情報を取得するために、深度1,000mまでの地下水を、地層中に存在していた状態を保持したまま採取することができる採水装置を開発した⁽³⁾。また地下水を空気に触れない状態でその物理化学パラメータ（酸化還元電位、電気伝導度、pH、水温、溶在酸素濃度）を連続的に計測できる装置（水質連続モニタリング装置）、地層中に存在している地下水を、空気に触れずに圧力を保持したままの状態（被圧不活性状態）で採取できる装置（パッカー式地下水サンプラー）の開発、ならびに試錐孔内の複数の区間において地下水の間隙水圧測定および被圧状態を保持したままの採水が可能な地下水モニタリング装置（MPシステム：Multiple Piezometer System）の適用試験を行った。

(2) 解析技術開発

地表から地下深部までの地下水流动を把握するためには、調査試験データに基づいて水理地質構造モデルを構築し、対象領域の特性を十分に反映した境界条件などを設定する必要がある。このため、既存の地下水流动解析プログラムを有効に活用することを基本として、解析目的、調査対象領域、対象岩種に応じて適切な解析が行えるよう、既存プログラムの改良ならびに新

規プログラムの開発を実施している。水理地質構造のモデル化手法としては、国土数値情報（建設省国土地理院発行）などのデジタル標高データに基づく地形モデル化プログラムの開発、および地球統計解析手法やフラクタル理論を応用し、点在する調査試験データから地層の堆積構造や割れ目分布、透水係数などの水理定数の空間分布を推定するための手法の開発を実施した。また、地下水流动解析プログラムに入力する格子モデルを作成する際の作業の効率化と品質保証のために、試錐調査などから得られた地質情報に基づいて、コンピュータ上でモデルを作成することのできる3次元地質解析システムを導入した。解析手法としては、東濃鉱山第2立坑（直径6m、深さ150m）の掘削に伴う地下水流动影響調査研究や深部地下水調査研究での地下水流动解析に使用した有限要素法による3次元非定常飽和不飽和浸透流解析プログラムTAGSAC(Three dimensional Analysis of Groundwater flow SAitama university Code)^{(4) (5)}、および花崗岩などの亀裂性岩盤をネットワークモデルによって表現し、パーティクルトラッキングによる物質移行解析が可能なDon-Chan(Donen-Channeling)モデル⁽⁶⁾を開発した。

（3）評価技術開発

地下水流动解析結果の妥当性の評価は、試錐孔で計測した間隙水圧の分布、および地下水の涵養域と流出域に掘削した試錐孔間の水頭差から求めた動水勾配（単位距離当たりの全水頭の変化量）との比較などの方法によって実施した。また、地下水の地球化学調査結果から解析結果の妥当性を評価する手法も検討中である。これらの方法による評価結果の信頼性は、評価に用いたデータ数、試錐孔の本数に依存するため、解析対象領域が広範囲であるほど評価に利用する試錐孔の代表性が問題となる。このため、対象領域と同じ精度で広い範囲にわたって調査することのできるリモートセンシング技術を用いた地下水流动解析結果の評価方法を検討した。この方法は、衛星データから求めた植生の活性度の差異に基づいて地下水の流出域を推定し、地下水流动解析で推定した浸出点の分布との比較によって評価するものである⁽⁷⁾。

2. 要素技術の評価・体系化のための調査研究

地下水流动特性評価プロセスを確立するためには、各要素技術の有効性を確認しその適用性を把握するとともに、各要素技術の体系化が必要であることから、実際の調査研究を通じて、各要素技術の評価および地下水流动特性評価プロセスの構築に向けた検討を実施した。

（1）立坑掘削に伴う地下水流动影響調査研究⁽⁴⁾

本調査研究の目的は、東濃鉱山の第2立坑掘削に伴う周辺領域の地下水流动への影響を予測するための調査解析を通じて、①断層などの不連続な構造を有する不均質な堆積岩層に対して対象を多孔質媒体と仮定した解析手法（ダルシー則に基づく有限要素法による3次元非定常飽和不飽和浸透流解析手法）によって対象領域内の地下水流动が表現できること、および②調査解析手法の有効性と地下水流动特性評価プロセスの妥当性、を確認することである。

本調査研究では、立坑掘削に伴う地下水流动への影響を把握するため、「対象領域の水理地質構造の把握⇒水理地質構造モデルの構築⇒地下水流动予測解析⇒長期観測値との比較検証」という一連の地下水流动特性評価プロセスを設定した（図-3）。この評価プロセスに基づき、立坑掘削前に第2立坑周辺領域（図-4）の各試錐孔で実施した岩芯観察、物理検査、透水試験結果などから、この領域（300m×300m×深さ300m）の水理地質構造モデルを構築した（図-5）。この水理地質構造モデルと地下水流动解析プログラムTAGSACによって、立坑掘削に伴う地下水流动への影響の予測解析を行った。その結果、第2立坑内への地下水の湧水量は掘削の進行とともに増加し、掘削の中止により減少すること、掘削が断層を過ぎ透水性の高い岩層

(礫岩層)に達した時点から湧水量は急激に増加し、最大30ℓ／分となることが予測された。また、既存坑道内への湧水の量は掘削終了近くから緩やかに減少すること、および第2立坑の掘削によって間隙水圧が変化する範囲が第2立坑より約100m以内であることが予測できた。

以上の予測解析結果を実際の観測値と比較することにより、地下水流動特性評価プロセスの妥当性を検討した。湧水量については、解析値は実測値よりも1.5～2倍程度大きな値を示しているが、定性的な変化の傾向は一致した(図-6)。また、第2立坑近傍での間隙水圧の測定結果から、第2立坑の掘削に伴う間隙水圧への影響範囲は100m前後であり、予測解析の結果とほぼ一致した。これらの結果から、本調査研究で設定した地下水流動特性評価プロセスの妥当性を確認することができた。

(2) 深部地下水調査研究

本調査研究の目的は、要素技術の有効性・適用性の確認と地下水流動特性評価プロセスの確立である。本調査研究は、東濃鉱山を中心とする約10km四方の領域(図-7)を対象に、表層水理調査(渴水期の河川水調査、地質踏査、リモートセンシング解析など)、深層水理調査(試錐孔および既存坑道を利用した水理試験や地下水採水分析など)、およびこれらの調査結果に基づく水理地質構造モデルの構築ならびに地下水流動解析結果の評価から構成される。

(a) 表層水理調査

- ① 人工衛星画像や空中写真から判読したリニアメント(断層などを反映していると考えられる直線的な地形構造)と花崗岩露頭で見られる割れ目とは、卓越方向が調和的であることが明らかとなった⁽⁸⁾。
- ② 人工衛星画像を用いたリニアメント解析により、東濃鉱山を中心とした約50km四方の領域が四つの地質構造区に区分でき、各地質構造区でリニアメントの分布特性が異なることから、岩盤中の割れ目分布特性も異なることが予想された⁽⁹⁾。
- ③ 人工衛星データを用いて抽出した植生の高活性度領域は、表層の未固結砂礫層と堆積岩層および未固結砂礫層と花崗岩との不整合部分に位置しており、対象領域での水理地質構造モデルにおける透水性の高い領域と一致した⁽⁷⁾。
- ④ 渴水期の河川水調査(流出高、電気伝導度、水質)の結果から、表層の未固結砂礫層は高い貯留能を有し、表層部の地下水流出に大きく関与していることから、表層部の水質と地質との間には密接な関係があることが明らかとなった⁽¹⁰⁾。
- ⑤ 表層水理観測結果から、自由地下水水面の年間変動は尾根部で最大10mであった⁽¹¹⁾。
- ⑥ 地質踏査および河川水調査結果から、対象領域の表層部における水理地質構造は八つのタイプに分類できることが明らかとなった⁽¹¹⁾。

(b) 深層水理調査

- ① 岩芯観察やボアホールテレビジョンによる試錐孔孔壁の観察結果から、対象領域の地質構造は表層部より順に、未固結砂礫層、堆積岩層、風化花崗岩(層厚約20m)となっており、基盤花崗岩中には高角度の割れ目帯が発達することが明らかとなった⁽¹²⁾。
- ② 試錐孔を利用した原位置透水試験の結果から、対象領域に分布する堆積岩の透水係数は $10^{-6} \sim 10^{-8}$ cm/sec、花崗岩の健全部分は $10^{-8} \sim 10^{-9}$ cm/sec、花崗岩の割れ目部分では、貯留効果が認められる場合は $10^{-8} \sim 10^{-9}$ cm/sec、貯留効果が認められない場合は $10^{-3} \sim 10^{-4}$ cm/secであることが分かった。また、RQD(掘削長との比率で表される長さ0.1m以上の採取コア片の総長)が50%以下の割れ目部分の透水性は、深度が深くなるほど低くなる傾向

が認められた^{(13) (14)}。

③ 地下水の地球化学調査により、表層の未固結砂礫層中の地下水は現在の天水が涵養したものであり、それよりも深部にある堆積岩および花崗岩中の地下水は現在よりも気温が低かった時代の天水に由来するものと推定された。特に堆積岩層最下部の地下水の年代は、炭素14濃度の分析・解析の結果、1万数千年と推定された⁽¹⁵⁾。

(c) 水理地質構造モデルの構築

① 堆積岩中の透水係数を、電気検層により得られる見かけ比抵抗値から推定する手法を開発し、有効性を確認した(図-8)⁽¹⁶⁾。

② 地球統計解析手法によって推定した花崗岩の割れ目帯の分布と、試錐孔間のレーダー調査によって検出した割れ目帯の分布とが良く一致したことから、地球統計解析手法によつて花崗岩における割れ目帯の3次元分布を推定する手法の有効性を確認できた⁽¹⁶⁾。

③ ウラン鉱化部を含む堆積岩層の鉛直2次元断面(100m×100m)の透水係数分布をフラクタルモデルによって推定した結果、堆積環境に対応した層構造を示す分布パターンが得られた。この透水係数分布を用いてパーティクルトラッキングによるウラン鉱化部の分布を推定した結果、試錐孔で実施したγ線検層においてγ線強度が高かった部分とほぼ一致したことにより、本手法の有効性を確認できた(図-9)⁽¹⁷⁾。

④ 対象領域の岩盤を透水性によって7層に区分した水理地質構造モデルを構築した⁽⁵⁾。

(d) 地下水流動解析結果とその妥当性の確認

地下水流動解析の結果、対象領域の地下水流動は北から南へ向い、深度500m以深では静水圧分布を示すことが予測できた。この結果は、試錐孔における間隙水圧の観測結果と一致した⁽⁵⁾。また、解析によって求めた動水勾配は、地下水の流動方向に位置する2本の試錐孔での水頭差から算出した動水勾配と一致した⁽¹¹⁾。

3. 結言

地下水流動特性評価に必要な調査、解析、評価技術などの要素技術の開発を実施し、各手法の適用範囲や基本性能を確認した。また、立坑掘削に伴う地下水流動影響調査研究を通じて、地下水流動解析手法および地下水流動特性プロセスの妥当性を確認するとともに、東濃鉱山周辺領域を対象とした調査解析において、要素技術の有効性・適用性の確認を行った。

今後は、表層における空中物理調査、地表物理調査、および地表調査、水収支観測や、中・深層における、深度1000m程度の試錐孔を利用した水理調査、地下水の採水・化学分析を実施することによって対象領域の水理地質構造モデルを構築し、その妥当性を検証していくとともに、地下水流動モデルの開発および適用性の評価を実施する予定である。

[主要レポート]

- (1) 中野ほか：1,000m対応水理試験装置の開発。日本地下水学会秋季講演会要旨集(1995)
- (2) 中野、中島、柳澤：表層部における水収支の調査研究。動燃技報第78号(1991)
- (3) 濱ほか：1,000m対応採水装置の開発。地下水学会秋季講演会要旨集(1995)
- (4) 柳澤ほか：立坑掘削に伴う地下水流動影響調査研究。応用地質第33巻5号(1992)
- (5) 柳澤ほか：我が国を対象とした地下水流動解析－その1中部日本を対象とした地下水流動解析。PNC TN7410 92-019 (1992)
- (6) 田中ほか：地質構造を基礎としたフラクチャーネットワークモデルの開発(その1)－解析の考え方

方. 応用地質第35巻3号 (1994)

(7)小出, 柳澤: 植生を指標にした地下水流出域の抽出. 日本写真測量学会秋季学術講演会論文集 (1994)

(8)小林, 小出: リニアメント判読による地質構造区分の手法について. 日本写真測量学会秋季学術講演会論文集 (1995)

(9)小出, 柳澤: リニアメント分布特性による広域地下水流动調査領域の検討. 第 229回地質調査所発表会要旨集 (1994)

(10)尾方ほか: 河川水の流量および水質による表層部の地下水流动の推定. 応用地質第36巻1号 (1995)

(11)動燃事業団: 地層処分研究開発の現状 (平成5年度). (1994)

(12)吉田ほか: 深部花崗岩中の割れ目解析. 応用地質第30巻3号 (1992)

(13)尾方ほか: 堆積岩の地質学的特性および透水係数, 見かけ比抵抗相互の関係とその水理地質構造モデル化への適用. 応用地質第32巻6号 (1992)

(14)柳澤, 西垣, 平田: 動燃式低水圧制御水理試験機 (動燃式JFT) の原理と適用例. 地下水学会誌第30巻3号 (1988)

(15)太田, 瀬尾, 水谷: 東濃地域における深部地下水の地球化学的研究 (Ⅲ) -地下水の起源・年齢について. 日本原子力学会1992春の大会講演要旨集 (1992)

(16)尾方, 柳澤: 地球統計解析手法を用いた三次元透水係数分布の推定. 日本原子力学会1994春の大会講演要旨集 (1994)

(17)Clark et al. : A natural analogue study of uranium migration in the Tono mine. MRS1995 Fall meeting (1995)

[参考文献]

(18)佐久間: 高レベル放射性廃棄物と地層処分. 応用地質第32巻6号 (1992)

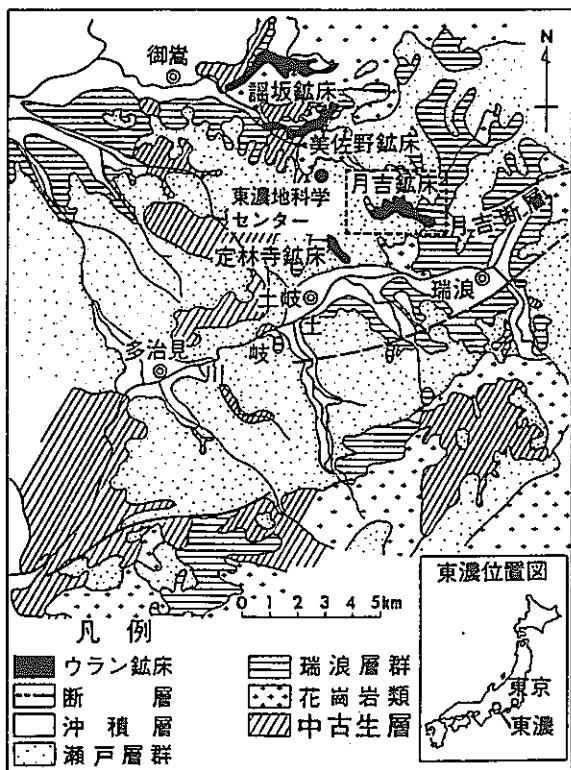


図-1 岐阜県東濃地域の地質図

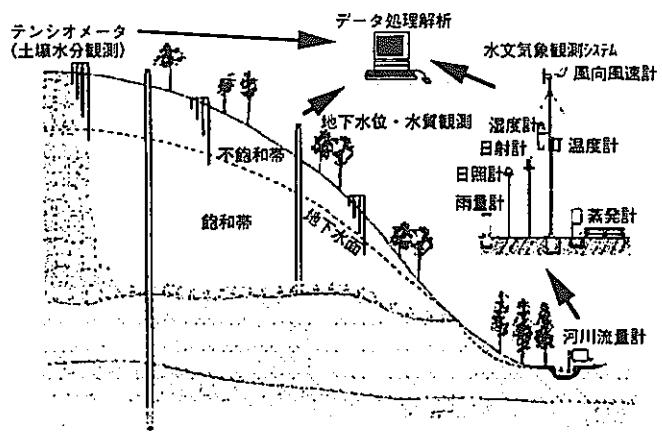


図-2 表層水理定数観測システム

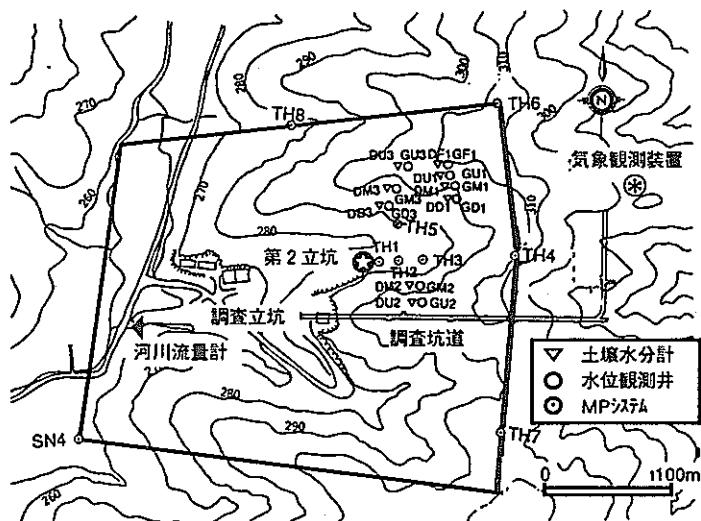


図-4 東濃鉱山における観測施設および解析領域位置図

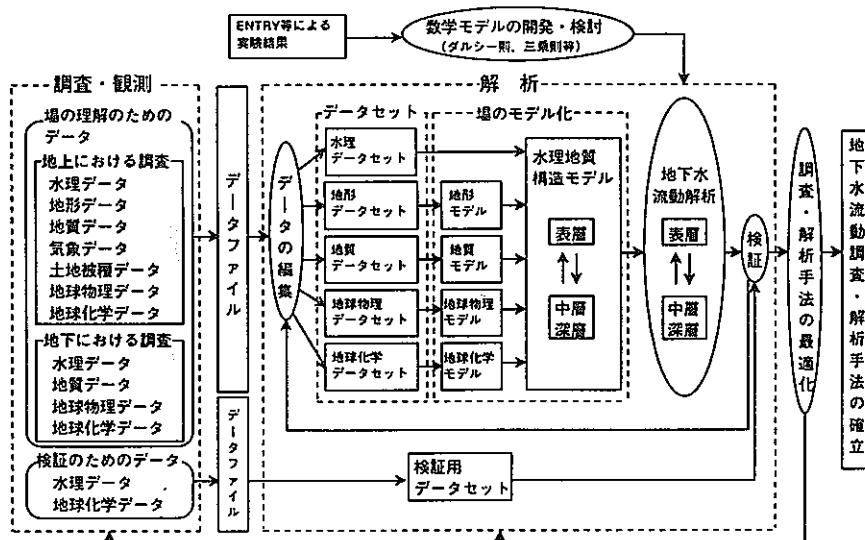


図-3 地下水流動特性評価プロセス

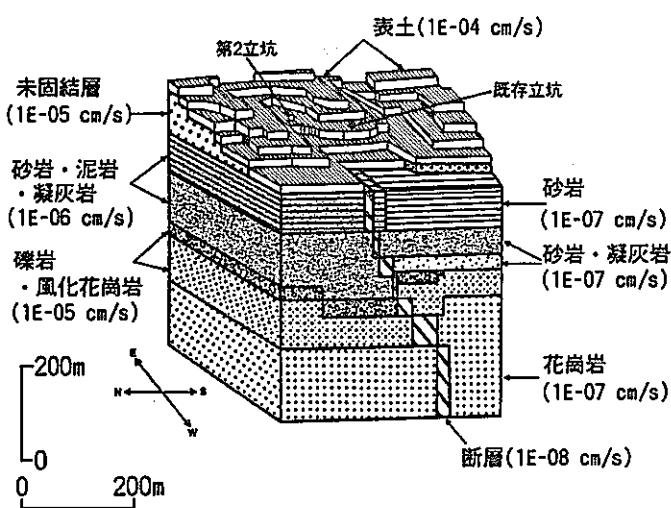


図-5 東濃鉱山第2立坑周辺の水理地質構造モデル（カッコ内の数字は設定した透水係数を示す）

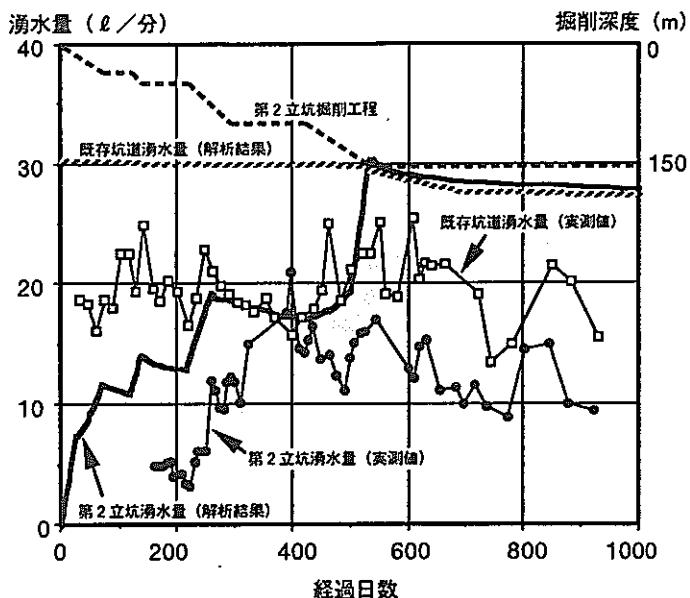


図-6 淹水量の解析値と実測値の比較

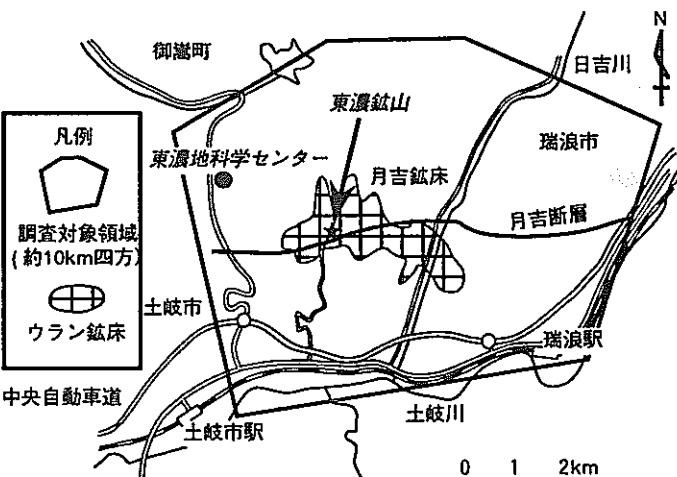


図-7 深部地下水調査研究領域

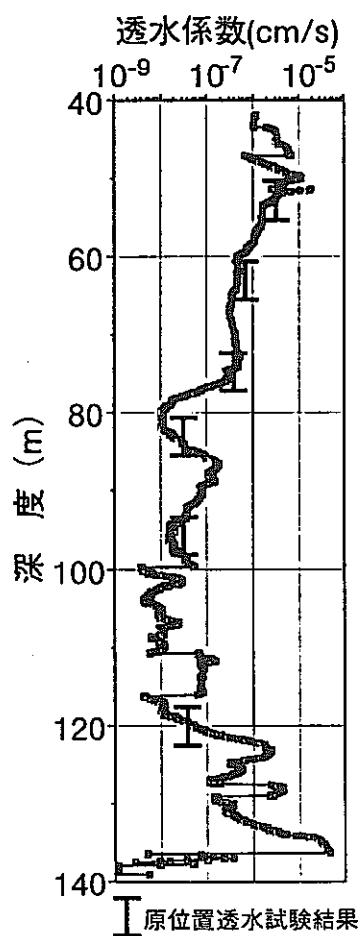


図-8 電気検層による透水係数値の推定

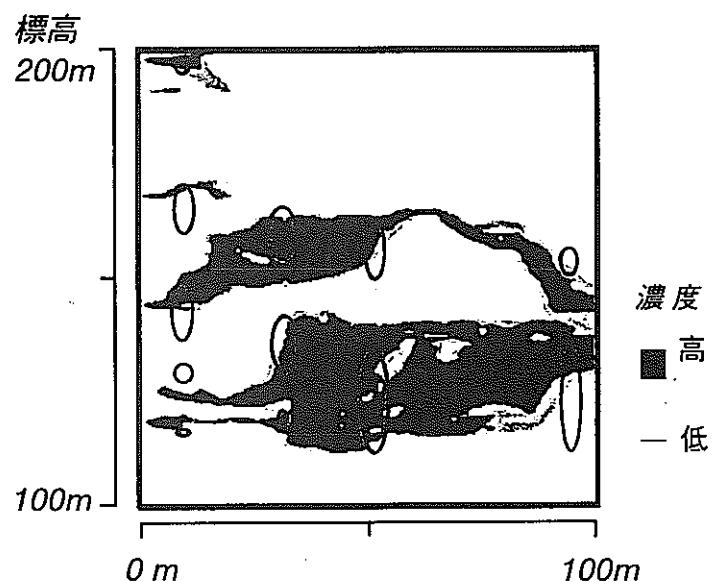


図-9 パーティクルトラッキングによるウラン分布の推定
(楕円内はウラン鉱化部)

表-1 地質構造調査技術開発の現状

物理探査技術開発						
項目	測定/解析原理	データ取得仕様	対象岩盤	対象スケール	適用例	備考
リモートセンシング (1)ナットによる割れ目分布特性の推定手法の開発	ナットの情報から結晶質岩中の割れ目分布特性を推定する	シドット、SPOT等の衛星画像や航空写真を利用	結晶質岩	数十km × 数十km	広域地下水流通調査研究	
リモートセンシング (2)植物情報による表層部の水文学的特性の推定手法の開発	植生の活性度の違いから、地下水の流出域を推定する	シドット、SPOT等の衛星画像を利用	堆積岩～結晶質岩	数km × 数km	広域地下水流通調査研究	
電磁波調査法	岩盤の比抵抗値から、岩相の違いや割れ目帯の位置・変質帯の位置・規模等を推定する	地表に送信機・受信機を展開してデータを取得	堆積岩～結晶質岩	数km × 数km 深度～1000m		今後の調査へ利用
レーダー法 (1)シグナル反射法技術開発	割れ目帯で反射してくる電磁波を観測することにより、割れ目帯の位置を推定する	地表から掘削されたボーリング孔(～1000m)を利用	結晶質岩	ボーリング孔から数十mの範囲	広域地下水流通調査研究	
レーダー法 (2)シグナル反射法機器開発	割れ目帯で反射してくる電磁波を観測することにより、割れ目帯の位置・規模を推定する	坑道壁面から掘削されたボーリング孔(～50m)を利用	結晶質岩	ボーリング孔から十数mの範囲	釜石原位置試験 ・適用試験を計画中	(1)との違い 孔内装置の小型化 分解能の向上
レーダー法 (3)モカイ調査技術開発	岩盤中の電磁波の速度や振幅の変化から、割れ目帯や変質帯の位置・規模等を推定する	地表または坑道から掘削されたボーリング孔を利用	結晶質岩	孔間距離～数十m	釜石原位置試験 広域地下水流通調査	
VSP法 (1)ロードトS波VSP法	S波の偏向異方性から亀裂の卓越方向を推定する	地表から掘削されたボーリング孔(～1000m)を利用	結晶質岩	ボーリング孔近傍	広域地下水流通調査研究	適用性を評価中
VSP法 (2)M和W VSP法	W波の発生深度や振幅から透水性割れ目の位置や規模を推定する	地表から掘削されたボーリング孔を利用	結晶質岩	ボーリング孔近傍	広域地下水流通調査研究	適用試験を実施中
弾性波トモグラフィ	岩盤中の弾性波の速度や振幅の変化から、岩相の違いや割れ目帯・変質帯の位置・規模等を推定する	地表または坑道から掘削されたボーリング孔を利用	堆積岩～結晶質岩			データ解析手法の高度化並びに最適調査仕様の解明、適用性の検討を実施中
比抵抗トモグラフィ	岩盤の比抵抗値から、岩相の違いや割れ目帯の位置・変質帯の位置・規模等を推定する	地表または坑道から掘削されたボーリング孔を利用	堆積岩～結晶質岩			データ解析手法の高度化並びに最適調査仕様の解明、適用性の検討を実施中

ボーリング孔掘削技術開発

項目	目的	進捗状況	今後の予定	備考
岩石固化剤の開発	地層水に影響を与えない岩石固化材の開発	・野外試験の結果、ウレタン(2液混合タイプ)は微細な割れ目にも浸透し、固結性も良好であることを確認 ・室内試験の結果、ウレタンは地下水の物理化学パラメータおよび主要化学成分に影響を与えないことを確認	前述の地層でのウレタンによる保孔効果の確認	
掘削資材の開癡	地層水に影響を与えない掘削資材の開発	・炭素鋼ケーシングの腐食試験を実施し、金属イオンの溶解がほとんど無く、また、塩素イオン濃度やpHは炭素鋼の腐食挙動および溶出挙動には顕著な影響を及ぼさないことを確認	他の掘削資材の特性の把握	

表-2 水理学的・地球化学的調査機器開発の現状

(開発状況の凡例)			開 発 状 況	水 理 試 験				地球化学パラメータの測定				採 水		測定可能深度 (m)	使用可能試錐孔径 (mm)	備 考				
実	実用	設計	設計中	間隙水圧	透水係数測定			蒸発量測定	3次元水理特性	水温	電気伝導度	pH	Eh	溶存酸素	コロイド	有機物等の濃度	連続採水	バッヂ採水		
水 理 学 的 調 査 機 器	○-測定可能 △-改良により測定可能			測定可能な岩盤の透水係数(cm/s) 『10の乗幂の指數で示す』	定常法	非定常法														
	200m対応低圧ルジオン水理試験装置			実	○	-3~-7	○											200	66~100	地表, 坑道内
	200m対応動燃式低水圧制御水理試験装置			実	○	-4~-9	△	○										200	66~100	地表, 坑道内
	500m対応動燃式低水圧制御水理試験装置			実	○	-4~-9	△	○										500	66~100	地表, 坑道内
	1,000m対応水理試験装置(1号機)			実	○	-4~-10	○	○										1,000	66~100	地表
	表層水理定数測定システム			実	地下水位, 土壌水分, 河川流量, 気象観測データを収集														地表	
	室内透水試験装置			実	-4~-12		○	○												室内
	試錐孔間水理試験装置			製	○	-4~-7	○		○									数10	66~100	坑道内
地 球 化 学 的 調 査 機 器	蒸発量測定装置			実	難透水性岩盤				○									坑 壁		坑道内
	水理学的緩み領域計測装置			実	○	-5~-9	○	△										2	55~66	坑道内
	100m対応パッカ式地下水サンプラー			実	○											○	100	76~140	地表, 坑道内	
	500m対応パッカ式地下水サンプラー			実	○											○	500	76~140	地表	
	1,000m対応採水装置(1号機)			実	○											○ ○	1,000	76~140	地表	
	地球化学検層ユニット(1号機)			実	○					○ ○ ○ ○ ○							1,000	76~140	地表	
	水質連続モニタリング装置			実						○ ○ ○ ○ ○						△	(60)	76~140	坑道内の湧水孔	

地下水の地球化学的特性に関する研究

平成3年度～平成7年度

東濃・地質環境研究室 岩月輝希

I. 研究の概要

地下水の地球化学特性は地質環境中での放射性核種の移行挙動を規制する因子であり、地層処分システムの安全性を評価する上で必要不可欠な情報である。

地層科学研究の一環として、東濃鉱山坑道（図-1）および周辺の試錐孔を利用した地下水の地球化学特性調査、表層から地下深部にわたる地下水の水質形成機構や起源・年代などに関する調査研究を実施している。さらに地下水の採取手法、原位置における物理化学パラメータの測定手法に係わる技術開発を実施中である。

1. 地下水の地球化学特性

本研究では、東濃地域の表層水および深部地下水の物理化学パラメータ値、主要溶存化学成分濃度、微量溶存化学成分濃度、溶存ガス濃度、各種同位体濃度および地下水中の有機物、微生物およびコロイドの種類や成分についてデータセットを作成し、データセットに基づき以下の解析を行った。

(1) 水質形成機構のモデル化

地下水の起源、地下水-岩石間の地球化学的反応プロセスなどを考慮し、化学平衡論に基づいて深部地下水の水質形成機構のモデル化を行った。モデル化は、①水質形成に寄与すると思われる水-岩石反応の抽出、②化学平衡論に基づく水質形成モデルの構築、③モデルの妥当性評価という手順で行った。その結果、堆積岩中の地下水の水質形成機構を化学平衡論によるモデル化が可能であった。

(2) 地下水の起源・年代の把握

岐阜県東濃地域の堆積岩中の地下水を対象に、トリチウム濃度、¹⁴C濃度から地下水の年代の推定を行った。¹⁴C濃度に基づく地下水の年代推定では、¹⁴Cを含まないデッドカーボンの地下水中への混入を補正し、ピストン流モデル（地表から浸透した天水（降雨や降雪など）が途中で異なった¹⁴C濃度を持つ地下水と混合することなく鉛直方向に浸透していくモデル）に基づいて年代を推定し、地下水の年代値の三次元的な分布の把握を試みた。その結果、堆積岩下部の地下水の年代が1万数千年であることが明らかになった。

(3) 地下水の酸化還元電位の把握

東濃鉱山調査坑道内に掘削した試錐孔からの湧水を対象として、酸化還元電位を含めた物理化学パラメータ（電気伝導度(EC), pH, 溶存酸素濃度(DO), 水温)を約1年間連続的に計測した。また、地下水の水質などから理論的に酸化還元電位を推定し、実測値と比較することにより、実測値の妥当性を評価した。

2. 地球化学特性調査機器の開発

深部地下水の地球化学特性を把握するためには、地層中に本来存在している地下水（以下地層

水と呼ぶ) のみを採取する技術を確立することが重要である。従来のような試錐孔全体を利用した採水方法では、地層水の混合や試錐孔掘削時に試錐ロッドと岩石の摩擦を軽減するために用いられる掘削水の混入を避けることができず、また、地下水の溶存化学成分や物理化学パラメータには、大気と接触することによって濃度やパラメータ値が変化するものがある。このため、掘削水の混入や大気との接触のない地層水を採取し、信頼性の高いデータを取得するために、①採水地点の掘削水を除去した上で地層水のみを採水する方法、②原位置で物理化学パラメータ値を測定する方法などの開発を行った。

II. 研究成果

1. 地下水の地球化学特性

(1) 水質形成機構のモデル化^{(1), (2), (3), (4), (5), (6)}

東濃鉱山の第2立坑周辺の堆積岩および花崗岩(瑞浪層群生俵累層、明世累層、土岐夾炭累層、土岐花崗岩)を対象とした野外調査を行い、地下水の物理化学パラメータに関するデータセットを作成した(表-1)。また、水-岩石反応に関する室内試験および理論的解析を実施した。データセット、室内試験結果、理論的解析結果に基づき、深部地下水の水質形成機構のモデル化を行った。

(a) 野外調査

野外調査により明らかになった地下水の地球化学特性は以下のとおりである。

①堆積岩中の地下水は深度とともに、中性から弱アルカリ性へと変化する(図-2)。

②堆積岩中の溶存酸素濃度は、どの深度においても0.3ppm以下と非常に低い。

③標高約200mより浅部においては、深度とともに Na^+ , HCO_3^- の濃度が増加する傾向にあり、 Si , Ca^{2+} の濃度は減少傾向にある。また、標高約200mより深部では、 Na^+ , HCO_3^- 濃度に大きな変化は認められず、 Si , Ca^{2+} は低濃度である。つまり、深度のより深いところの地下水は $\text{Na}^+ - \text{Ca}^{2+} - \text{HCO}_3^-$ 型であり、より深いところの地下水は $\text{Na}^+ - \text{HCO}_3^-$ 型の水質といえる(図-2)。

④地下水中の溶存炭酸の炭素同位体比は、深度とともに方解石の炭素同位体比の値に近づく(図-3)。

以上の結果より、地下水中の HCO_3^- イオン濃度の増加は、方解石の溶解反応に起因すると考えられる。また、方解石の溶解反応は、一般的に数日～数週間で平衡状態に達すると考えられており、標高200m以深の地下水においては方解石の溶解反応が平衡に達している可能性が考えられる。

(b) 室内試験

堆積岩試料と地下水試料を用いた水-岩石反応試験を行った結果、時間の経過とともに地下水中の Na^+ イオンが増加し、 Ca^{2+} イオンが減少する傾向が認められた(図-4)。また、 Na^+ イオンの増加量と Ca^{2+} イオンの減少量は当量的にはほぼ等しいことから、地下水-岩石間で Na^+ イオンと Ca^{2+} イオンの交換反応が起こっていると考えられる。また、この反応は図-4にみられるように約3日で Na^+ イオンと Ca^{2+} イオン濃度が一定に達していることから、3日以内に反応が平衡状態に達すると考えられる。

(c) 理論的解析

野外調査と室内試験の結果から、 $\text{Na}^+ - \text{Ca}^{2+} - \text{HCO}_3^-$ 型から $\text{Na}^+ - \text{HCO}_3^-$ 型への水質変化

に寄与する主要な水-岩石反応として、方解石の溶解反応と地下水-粘土鉱物間のイオン交換反応が考えられる。すなわち、堆積岩中の地下水の水質形成に関しては、方解石の溶解反応と地下水-粘土鉱物間のイオン交換反応により水質が形成され、これらの反応は平衡状態に達しているとモデル化することができる。このモデルは以下の理由から妥当と考えられる。

- ・各深度の Ca^{2+} イオン、 Na^+ イオン、 HCO_3^- イオンの濃度は、方解石の溶解により地下水中に供給された HCO_3^- イオンと Ca^{2+} イオンのうち、 Ca^{2+} イオンが粘土鉱物中の Na^+ イオンとイオン交換し、地下水中に Na^+ イオンが供給されると仮定することで、その濃度の変化を定量的に説明できる（表-2）。
- ・地下水組成データを用いた熱力学的解析から、堆積岩の各層準の地下水組成は、モンモリロナイトの安定領域にプロットされる（図-5）。また、これらのプロットは $(\text{pH} + \log [\text{Na}^+]) - (2\text{pH} + \log [\text{Ca}^{2+}])$ のグラフ上で Ca モンモリロナイトと Na モンモリロナイトの境界線と同じ $2:1$ の傾きをもつことから、粘土鉱物-地下水間のイオン交換反応は平衡状態に達していると考えられる。
- ・地球化学計算コードPHREEQEにより、化学平衡論に基づいて堆積岩の各構成鉱物の地下水に対する飽和指数を計算した結果（表-3）、方解石の溶解反応はいずれの深度においても飽和平衡状態に達していると考えられる。

(2) 地下水の起源・年代の把握^{(2), (7), (8)}

堆積岩中の地下水の起源・年代を解明するために地下水の水素・酸素の安定同位体組成、トリチウム濃度および ^{14}C 濃度を測定した。

(a) 地下水の起源

水素・酸素の安定同位体比の測定結果（ $\delta \text{D} - \delta^{18}\text{O}$ 図）を図-6に示す。この結果から地下水の起源について以下のことが考えられる。

- ①地下水の δ 値（海水の水素・酸素同位体比を基準とした地下水の水素・酸素同位体比）が、現在の中部地方の天水の範囲（図-6で2本の天水線にはさまれた領域）に入ることから、これらの地下水の起源は天水であると考えられる。
- ②堆積岩最下部の地下水の安定同位体組成は、現在の天水や表層の瀬戸層群中の地下水のそれとは異なり、 $\delta^{18}\text{O}$ 値が約1‰低い。この理由として、天水の降った時代の年平均気温が現在よりも約2~3℃低かったことが可能性として考えられる⁽¹⁷⁾。

(b) 地下水の年代

- ①トリチウム濃度を測定した結果（図-7）、地表水および表層（瀬戸層群）中の地下水のトリチウム濃度は、現在の東濃地域の降水とほぼ等しいのに対して、堆積岩（瑞浪層群）中の地下水中的トリチウム濃度は、深度によらず非常に低い（3 TU以下）ことが明らかになった。これらの結果は、瀬戸層群中の地下水は現在の降水が涵養したものであり、一方、瑞浪層群中の地下水は少なくとも40年以上地層中に滞留していることを示している。
- ②地下水中の ^{14}C 濃度測定値から年代を求める場合には、地下水が岩体中を流動する間に岩石との反応によって供給されるデッドカーボンを考慮する必要がある。本研究においては、調査領域において考えられる以下の三つの反応によるデッドカーボンの供給を補正し、地下水の ^{14}C 年代を求めた。
 - ・堆積岩中の堆積性有機物の酸化による二酸化炭素の供給
 - ・堆積岩中の堆積性有機物のメタン醸酵による二酸化炭素の供給

・貝化石および方解石の溶解による重炭酸イオンの供給

計算の結果、堆積岩最下部層中の地下水の¹⁴C年代として、1万数千年の値を得ることができた(図-7)。この年代は、ウルム氷期末期に相当し、当時は現在よりも気温が2~3℃低かったと考えられ、この結果は地下水の水素・酸素同位体比の測定結果と矛盾しない。したがって、堆積岩最下部の地下水は、1万数千年前の現在よりも寒い時期の降水に由来すると結論することができる。

(3) 地下水の酸化還元電位^{(3), (9), (10)}

地下水の酸化還元電位は、地層中での物質の移行や化学的挙動を支配する要因の一つとして重要である。東濃鉱山調査坑道内に掘削した試錐孔からの湧水を対象として、2.(1)に詳述する装置(図-8)を用いて約1年間上記の物理化学パラメータを連続計測した結果、湧水の酸化還元電位は約-300mVと非常に還元性を示す値が取得された。

また、東濃地域の地下水組成および鉱物のデータに基づき地球化学計算コードPHREEQEを用いて酸化還元電位を理論的に推定し、実測値との比較を行った。酸化還元電位推定の手順を以下に示す。

- ①地球化学計算コードに地下水組成データを入力する。
- ②pH, 酸化還元電位をパラメータとして地下水中で安定な化学種の解析を行う。その結果、溶液中の化学種の濃度、活量および水-岩石反応に関与し得る鉱物の飽和指数が求められる。
- ③沈殿する可能性のある過飽和鉱物(飽和指数が1以上)を選定する。
- ④酸化還元反応に寄与する可能性のある鉱物を選定する。
- ⑤④で選定した鉱物と実際に観察された鉱物を比較し、酸化還元反応に寄与している鉱物を抽出する。
- ⑥抽出した鉱物を対象としてEh-pH線図を作成し、実測したpH値から酸化還元電位を推定する。

上記の手順により酸化還元反応に寄与する可能性のある鉱物として黄鉄鉱を抽出した。この鉱物に関するEh-pH線図を図-9に示す。黄鉄鉱が地下水と平衡であると仮定すれば、連続モニタリング装置により酸化還元電位を実測した地下水のpH9付近では、酸化還元電位は-290mVとなる。この値は実測値とほぼ一致することから、連続モニタリング装置により実測された酸化還元電位の値は妥当であると考えることができる。

2. 地球化学的特性調査機器の開発

地球化学特性調査技術として、以下の地下水の採水装置、原位置物理化学パラメータ測定装置の開発・適用試験を行った。

(1) 水質連続モニタリング装置(図-8)

地下水の物理化学パラメータ値は、地下水を大気に開放して測定した場合、大気中の酸素や二酸化炭素の影響によって変化する可能性がある。特に、酸化還元電位は測定にともなう様々な因子(大気、共存イオン、測定電極の種類、測定時間など)によって影響を受けるため、信頼性の高い測定値を得ることは容易ではない。上記の課題を解決するために、地下水を大気に触れさせずに酸化還元電位を含めた物理化学パラメータ(電気伝導度(EC), pH, 溶存酸素濃度(DO), 水温)を連続的に測定できる水質連続モニタリング装置を開発し、同装置を用いて測定を行った(図-8)。本装置は、地下水との反応性が低いアクリル性のフローセル構造を有しており、各パラメータ測定用の電極を備えている。特に、酸化還元電位測定用に2種類の金属電極(金、白金)を用いており、参照電極として甘こう電極を用いている。現場における性能

試験の結果、信頼性のあるデータ取得するためには数ヶ月要するとの知見を得た。

(2) パッカー式地下水サンプラー（図-10）

従来の試錐孔全体を利用したつるべ式の採水方法では、掘削水の混入や地層水の混合を避けることができない。このため、試錐孔内において採水区間の上下をパッカー（遮水性能を有する風船状の硬質ゴム）で区切ることによって、任意の深度から地下水を採取できる装置を開発した⁽¹¹⁾。

本装置はスウェーデン BAT社が開発した BAT式地下水モニターシステムに遮水用のラバーパッカーを組み合わせたもので、地下水が存在していた環境を保持した状態での採取ができるように設計したものであり、既に国内特許を取得している。本装置は、①試錐孔内の採水区間を区切るラバーパッカ部分、②採水区間から地下水を採取し、地上へ回収する部分（地下水サンプラー）、③昇降装置、から構成されている。地下水サンプラーは容量 500mlのステンレス製ボトルであり、深度500mまでの採水に適用することが可能である。この装置を用いた採水においては、予備採水終了の判断基準が重要となる。地層水の化学組成が一定であるとの仮定に基づいて、採取した試料水の物理化学パラメータ値および主要化学成分濃度が採水量とともに一定の値に達した時点で採水区間が地層水と完全に置き変わったと判断した。この基準が妥当であるかどうかを検討するために、採取した試料水について上記のパラメータなどを連続測定した結果、採水区間の 5 倍程度採水すると、ほぼ一定の値が得られることが分かった。また、予備採水の過程で取得したデータを 2 成分混合を仮定した計算式で取り扱うことによって、地層水の化学組成を推定することが可能となった^{(12), (13)}。

(3) MPシステム（図-11）

MP(Multiple Piezometer) システムは、カナダにおいて開発された地下水モニタリングシステムで、試錐孔内に複数のパッカーを設置することによって、多区間での水圧計測および地下水採取が可能なシステムである。本システムは、① 1 本の試錐孔内で同時に多数の測定・採水区間を設定できる、②各区間における間隙水圧や透水係数の測定および採水が可能である、③被圧・不活性状態を保存したままの地下水が採水可能である、などの特長がある。カナダではすでに深度1,000mまでの機器が実用化されており、国内においては深度500mまでの設置例がある。本研究では、深度1,000mまで掘削された試錐孔において国内で初めて1,000mのMPシステムを設置し、適用試験を行った。その結果、約100kgf/cm²の水圧下で温度や水圧などの定常測定が可能であることが明らかになった。

(4) 深度1,000m対応地下水の地球化学特性調査機器（図-12）^{(14), (15), (16)}

本装置は、①試錐孔内の調査区間に残る掘削水を迅速に除去して地層水に置換した上で、原位置における地下水のpH、酸化還元電位、電気伝導度などの物理化学パラメータの測定および大気と全く接触させずに被圧状態での地下水の採水が可能であること、②深度1,000mまでの温度条件（日本の平均地温勾配（約 3 °C/100m）から推定すると地上気温+30°Cとなる）および水圧100kgf/cm²の条件に耐え得る構造であること、③選定した調査深度に確実に装置を設置するために、材料の伸びなどに起因する深度誤差を低減することを基本概念として開発したものであり、深度1,000mの地下水採水と原位置物理化学パラメータの測定が可能である。本装置は地上部、中継部、孔内部から構成されており、地上部は電源部とデータ収録装置から、中継部、孔内部はそれぞれケーシングパイプ、複合ケーブル、パッカーシステムおよび孔内システムなどから構成されている。現場における本装置の適用試験の結果、深度1,000mにおいて

以下の機能・性能が確認された。①間隙水圧 92kgf/cm^2 の条件下で、平均採水速度47ml/ 分（ポンプ式採水）で採水が可能（表-4）、②前記の間隙水圧条件下でパッカーが十分な遮水性能を有している、③水温35°C、間隙水圧 92kgf/cm^2 の環境条件下で孔内部が確実に制御でき、正常にデータを表示・収録できることが確認された。

3. 結言

深部地下水の地球化学特性に関する調査研究においては、主に堆積岩中の地下水について水質や起源、年代といった地球化学特性値の分布、水質形成機構、地下水の酸化還元電位などを把握した。花崗岩中の地下水については数地点で物理化学パラメータを把握しており、今後その水質、起源、年代を把握していく予定である。

地球化学的特性調査機器の開発においては、原位置において地下水のpHや酸化還元電位などの物理化学パラメータを測定する装置の製作を終了しており、今後これらの装置を用いて、複数の試錐孔で現位置の地下水の物理化学パラメータを把握していく予定である。

〔主要レポート〕

- (1)太田、瀬尾：東濃地域における深部地下水の地球化学的研究（Ⅱ）。日本原子力学会1991年春の大会予稿集（1991）
- (2)太田、瀬尾、水谷：東濃地域における深部地下水の地球化学的研究（Ⅲ）。日本原子力学会1992年春の大会予稿集（1992）
- (3)濱、瀬尾、太田：東農地域における深部地下水の地球化学的研究（IV）。日本原子力学会1992年春の大会予稿集（1992）
- (4)Seo, Yoshida : Natural analogue studies of the Tono uranium deposit in Japan. Proc. the CBC Natural analogue working group 5th meeting (1992)
- (5)Iwatsuki et al. : Hydrogeochemical investigation of groundwater in the Tono area, Japan. Proc. 18th Int. Symp. on Scientific Basis for Nuclear Waste Management. Vol. 357 (1994)
- (6)岩月、瀬尾、濱：東濃地域における地下水の地球化学的研究。日本地球化学会1995年会講演要旨集（1995）
- (7)水谷、瀬尾、太田：岐阜県東濃鉱山深層地下水の ^{14}C 年代。名古屋大学年代測定資料研究センター 加速器質量分析と炭素同位体の学術的応用シンポジウム論文集（1992）
- (8)瀬尾、水谷、太田：岐阜県東濃地域における地下水の ^{14}C 年代と起源について。日本地下水学会、1992年秋季講演会講演要旨集（1992）
- (9)岩月、濱、瀬尾：東濃地域における地下水の地球化学的研究－地下水の硫黄濃度と酸化還元電位について－。日本原子力学会中部支部第25会研究発表会講演予稿集（1993）
- (10)根山ほか：実測された地下水Ehの地球化学モデルによる評価。日本原子力学会1990年秋の大会予稿集（1990）
- (11)柳澤ほか：パッカー式地下水サンプラーの開発。日本地下水学会1991年度秋季講演会要旨集（1991）
- (12)濱、湯佐、太田：東濃地域における深部地下水の地球化学的研究（V）。日本原子力学会1993年春の年会予稿集（1993）
- (13)Hama, Seo, Yusa : A sampling procedure of formation water and its application to geochemical investigation of groundwater in the Tono area, Japan. Proc. the OECD/NEA

SEDE CLAY CLUB Workshop England, 1994 (1994)

(14) 豊嶋ほか : 1,000m対応採水装置の開発. 日本原子力学会中部支部第27回研究発表会講演予稿集 (1995)

(15) 濱ほか : 1,000m対応採水装置の開発, 日本地下水学会1995年秋季講演会講演要旨 (1995)

(16) 濱, 瀬尾, 豊嶋 : 1,000m対応採水装置の開発. 日本原子力学会1996春の年会要旨集 (1996)

[参考文献]

(17) Yurtsever : Worldwide survey stable isotope in precipitation. Rept. sect. Isotope Hydrol., IAIA, November 1975, 40 (1975)

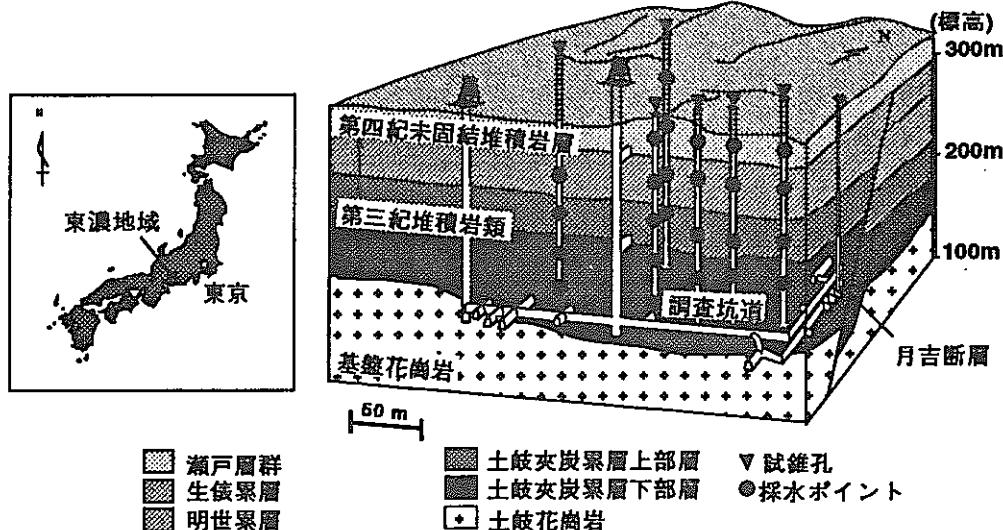


図-1 地下水の地球化学特性調査領域

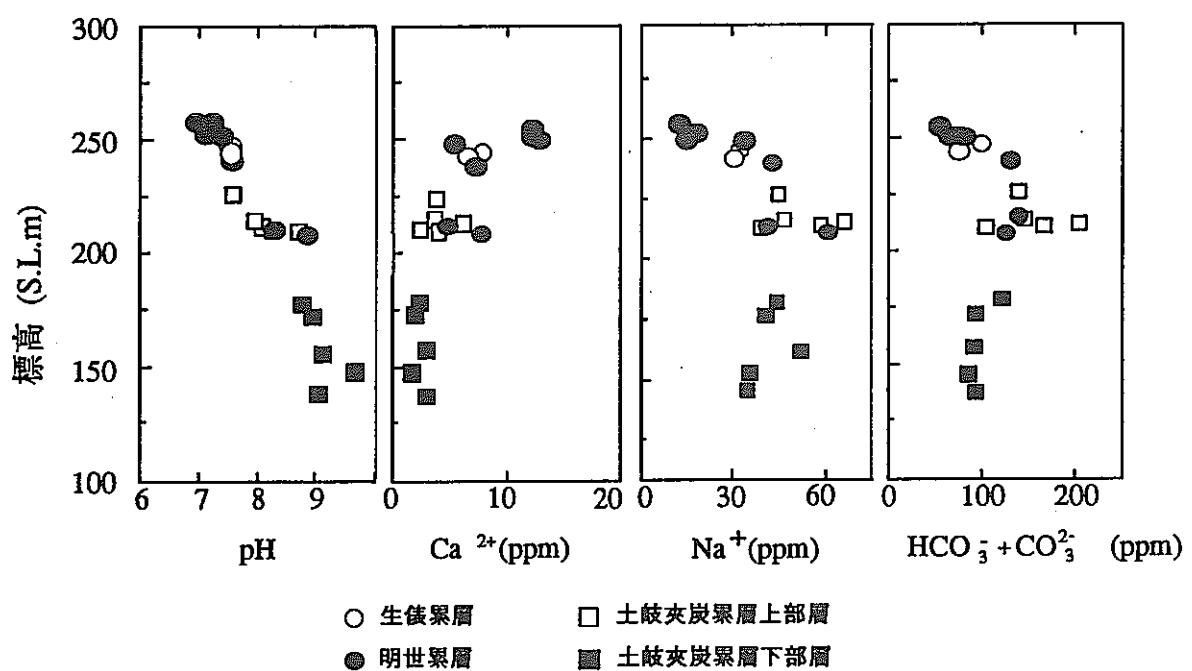


図-2 堆積岩における地下水組成の深度分布

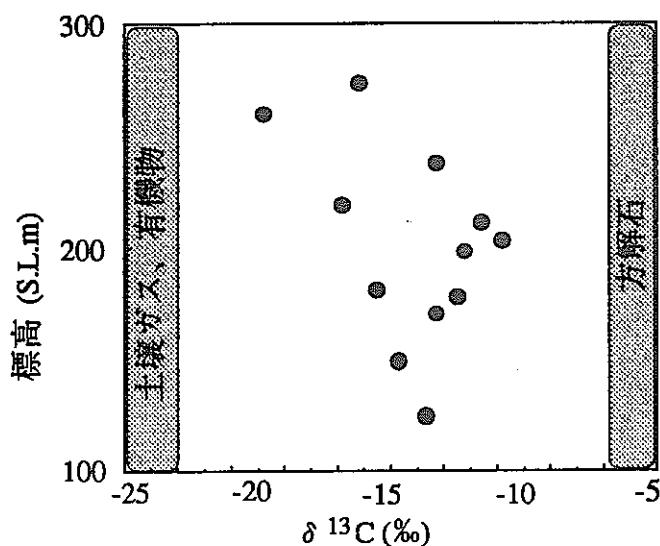


図-3 地下水中の炭酸水素イオンの炭素同位体比

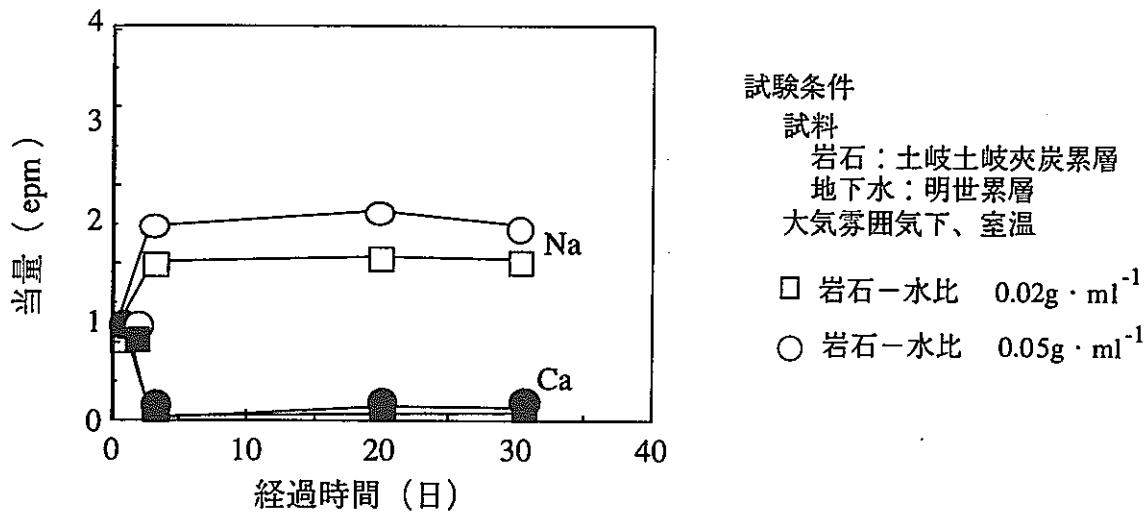


図-4 水-岩石反応試験結果

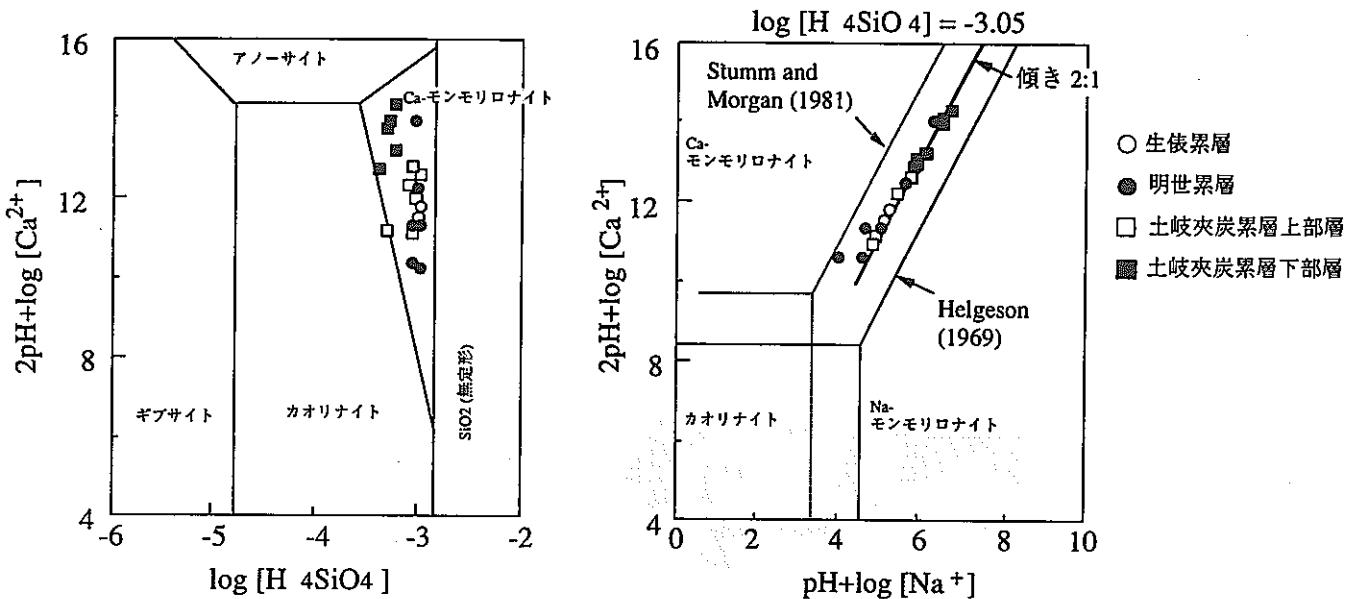


図-5 堆積岩中の地下水の熱力学的解析図

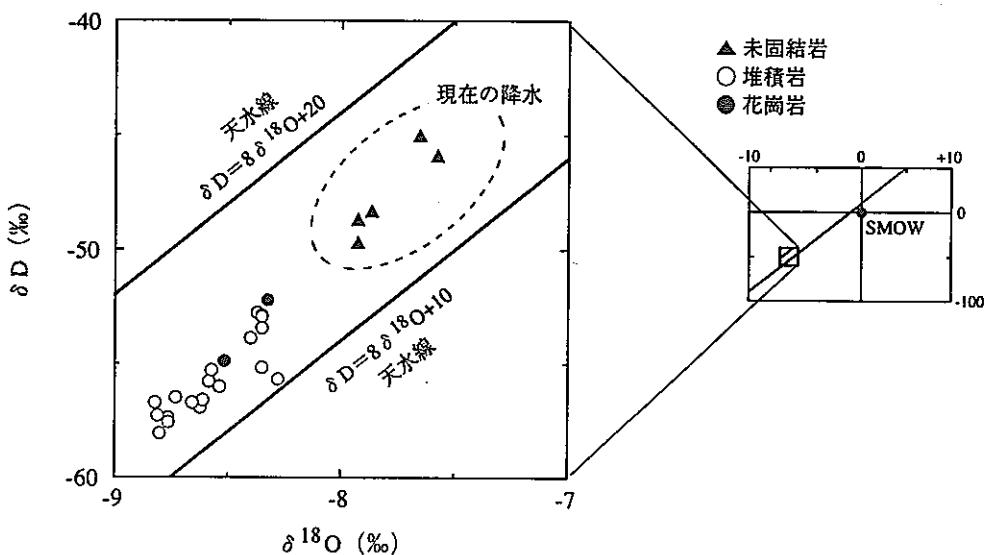


図-6 東濃地域の地下水の同位体組成
(δ 値：海水の水素・酸素同位体比に対する地下水の水素・酸素同位体比の偏差)

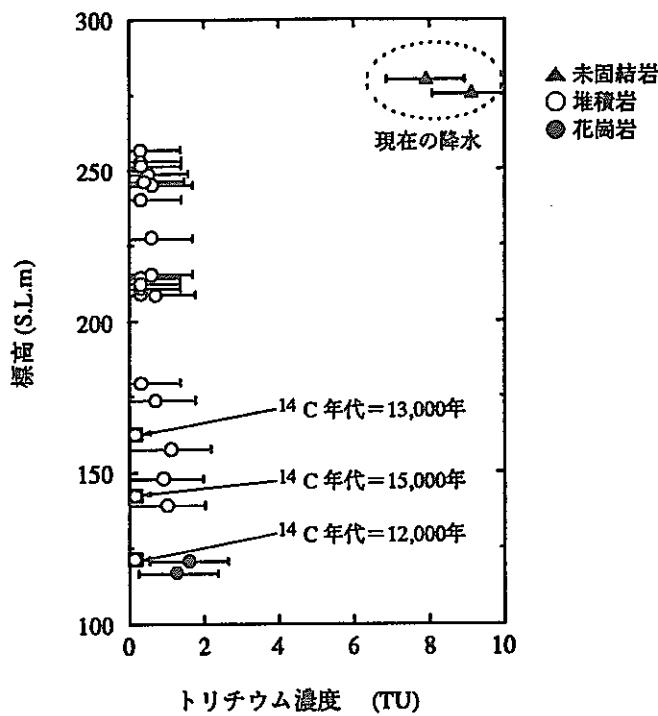


図-7 東濃地域の地下水の中のトリチウムおよび¹⁴C年代

- ・ゴムパッカーで区切った採水区間の地下水を自然湧水圧あるいはポンプによりモニタリング装置へ導く。
- ・温度、電気伝導度、溶存酸素、酸化還元電位、pHを連続的に測定する。

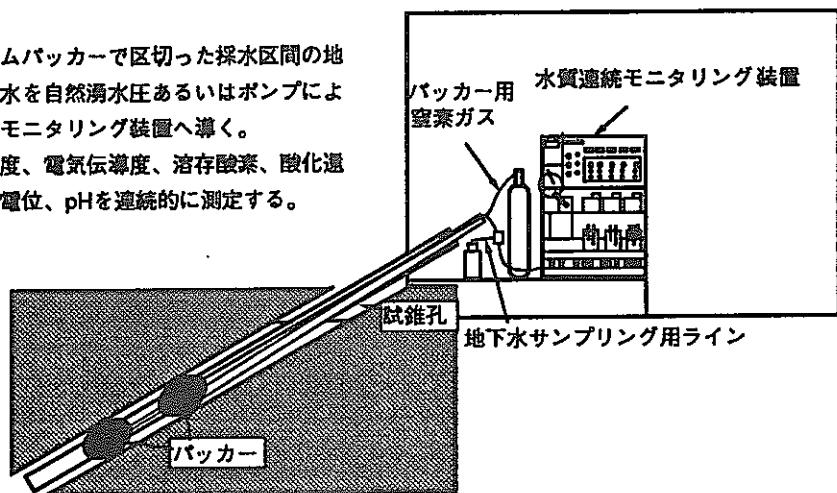


図-8 水質連続モニタリング装置の概念図

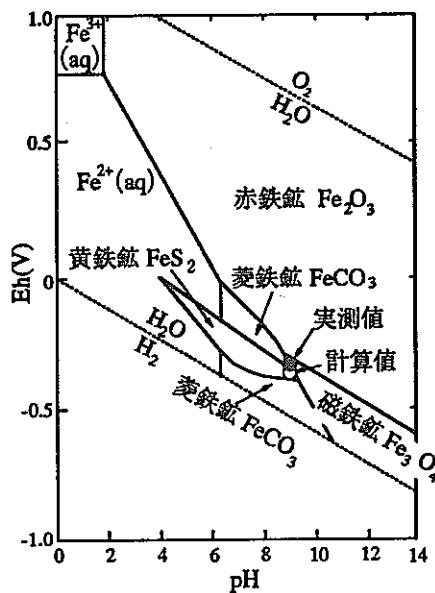


図-9 黄鉄鉱のEh-pH線図
(Garrels and Christ, 1965).

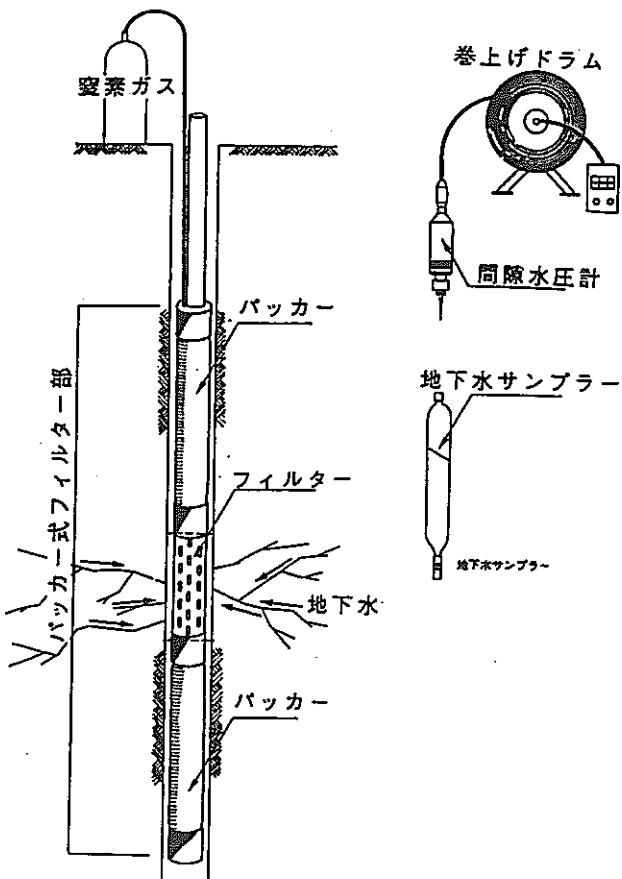


図-10 パッカー式地下水サンプラー概念図

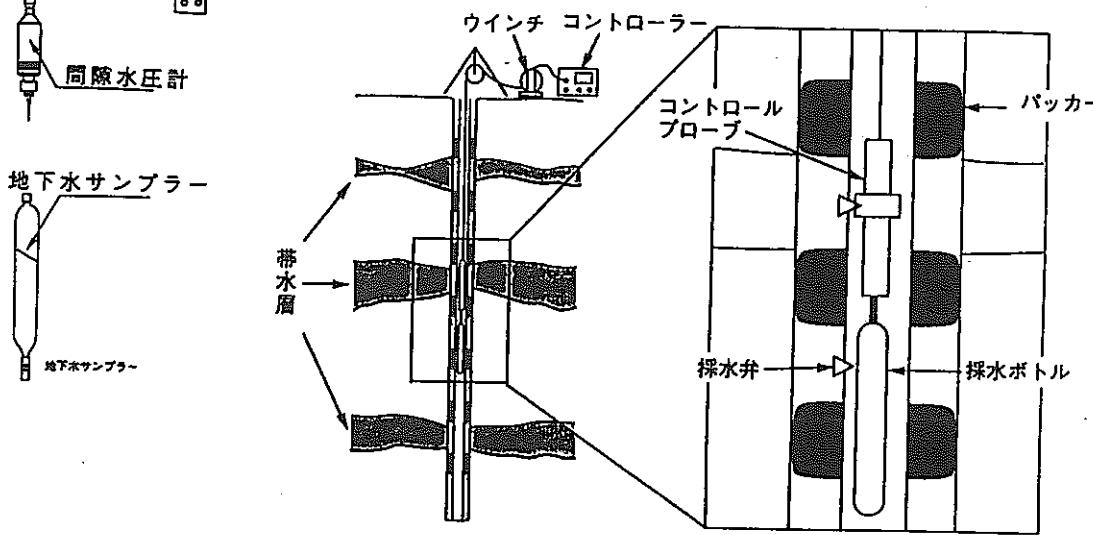


図-11 深度1,000m対応MPシステム概念図

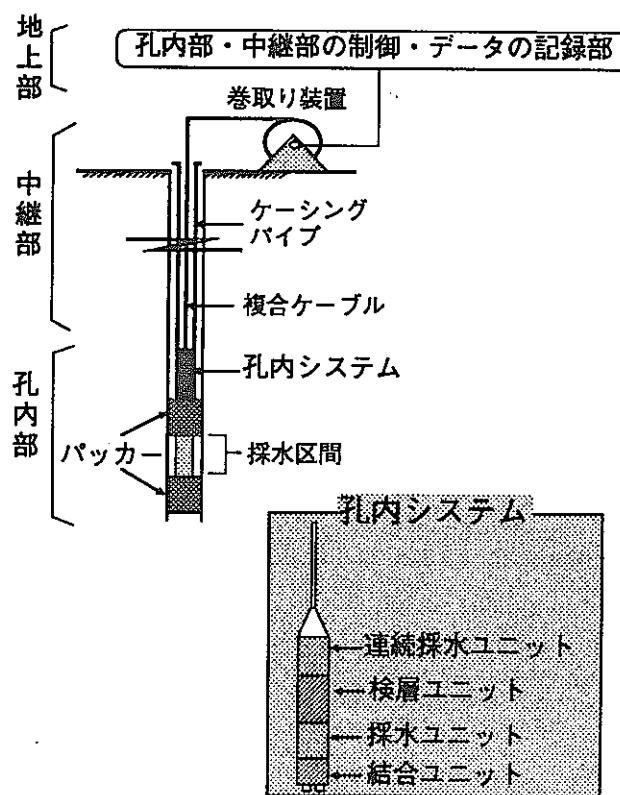


図-12 深度1,000m対応地下水の地球化学特性調査機器概念図

表-1 深部地下水の物理化学パラメータデータセット（例）

岩相	堆積岩	花崗岩	花崗岩
サンプリング地点	G.L. -153～-155m	G.L. -160～-195m	G.L. -839m
水温	18.5°C	18.0°C	30.0°C
酸化還元電位 (Eh)	-300 mV	12mV	未測定
pH	9.1～9.2	8.2	9.2
溶存酸素濃度	0.0 ppb	0.0 ppb	未測定
電気伝導度	168 μ S/cm	180 μ S/cm	198 μ S/cm

表-2 各深度におけるNa, Ca, HCO₃イオン濃度

深度(m)	Ca(mM)	Na(mM)	HCO ₃ (mM)	$\delta^{13}\text{C}$ (‰)	Calcite起源のHCO ₃ の割合	Calcite起源のCa(mM)、HCO ₃ (mM)	Calciteの溶解とイオン交換反応に由来するNa(mM)
32.8	0.3	0.6	1.1	-20.1	0.25	0.27	0.54
61.0	0.2	1.4	1.7	-17.4	0.38	0.65	1.50
132.0	0.2	3.2	2.1	-13.4	0.58	1.20	2.60

表-3 各深度における鉱物の飽和指数 (Saturation Index)

深度	石英	アルバイト	アノーサイト	カリ長石	黄鉄鉱	方解石	カオリナイト
G.L.-61.0m	0.86	1.26	-3.11	3.05	-51.29	-0.85	2.77
G.L.-85.0m	0.79	1.40	-3.43	2.91	-65.60	-0.19	1.18
G.L.-132.0m	-0.56	-2.54	-5.86	-0.99	-67.38	0.25	-0.29

(SI=log IAP-log K、+は過飽和、-は未飽和を表す。 | SI | ≤ 1 を飽和平衡状態とした。)

表-4 地下水採水機能試験結果

採水区間	G.L.-966～973m
岩相	花崗岩
採水区間体積	27 L
地下水温	35°C
間隙水圧	92kgf/cm ²
透水係数	約10cm/sec ⁻¹
ポンプ式採水量 (平均採水速度)	267 L (94.7時間) (47 ml/分)
バッチ式採水量	15 L/30回

天然バリアにおける放射性核種の移行に関する研究

平成3年度～平成7年度

東海・環境技術開発部・地層処分開発室

瀧谷 朝紀、畠中耕一郎

佐藤 治夫

東濃・地質環境研究室

吉田 英一

I. 研究の概要

本研究は、地下深部から地表に至る放射性核種の移行挙動を把握することを目的として行った。

1. 地質環境中の物質の移動を把握することを目的に、地層科学研究の一環として、東濃ウラン鉱床の堆積岩と天然ウランを用いた収着試験、天然ウラン系列核種の放射非平衡状態の調査および釜石鉱山での割れ目と、割れ目周辺の微視的構造の調査を実施した^{(1), (2)}。
2. 天然バリア中の核種移行挙動を把握するために、花崗閃緑岩、凝灰岩、玄武岩、泥岩の屈曲度をNaClをトレーサーとした拡散試験より求めるとともに^{(3), (4), (5)}、間隙率、密度、細孔径分布、細孔内比表面積を水銀圧入法により測定した^{(6), (7)}。間隙率及び密度については別途水中飽和法によっても測定を行った。さらに、花崗閃緑岩、玄武岩、泥岩中のCs、Ni、Sm、Clの実効拡散係数(De)および見掛けの拡散係数(Da)を取得すると共に、間隙率および屈曲度に基づいてDeを予測するためのモデルを検討した^{(6), (8), (9), (10)}。花崗閃緑岩の未変質部、変質部、割れ目充填鉱物中のNa、Cs、ClのDeおよびDaを取得した。また、未変質部、変質部については、HTO及びSeのDeおよびDaを取得した⁽¹¹⁾。さらに、同岩石の間隙率、密度、細孔径分布、細孔内比表面積を水銀圧入法により測定した⁽¹¹⁾。間隙率及び密度については別途水中飽和法によって測定を行った。
3. 天然バリア中の放射性核種移行遅延機能を定量的に評価するために、流線法及びランダムウォーク法により、核種が優先的に流れる移行経路を同定するプログラムの開発を行った。これらの手法は3次元不均質場に適用できるものであり、流線法はMatanga⁽¹³⁾らが提唱している3次元流線理論に基づいており、核種移行経路としての流線を決定論的に算出できる。また、ランダムウォーク法は地下水流れ場に基づき、移流と分散／拡散により核種に相当する粒子をラグランジエ的に追跡して行くことにより確率論的に移行経路が決定される。このようにして決定した移行経路に関する情報（トラベルタイム、経路長さ、経路に沿った流速分布等）は、天然バリア性能を評価するにあたっての重要なパラメータとなる。
4. スイスグリムゼル試験サイトで実施された非収着性／収着性のトレーサーを用いた試験の解析を行い、移行モデル検証の手法を改良・確立した。また室内試験により得られるデータの原位置での適用性について確認し、性能評価を行うまでの保守的仮定の妥当性について検討した⁽¹²⁾。

II. 研究成果

1. 堆積岩中の核種移行挙動および結晶質岩中の核種移行経路

東濃ウラン鉱床から採取した岩石試料を用い、地質環境を模擬した条件下で調査・試験を行った結果、堆積岩中のウランは、主に鉱物表面への錯体形成によって収着していると考えられる。また、酸化条件に比べ還元条件でのウランの収着係数が2～3オーダー大きいことから、ウラン

の収着に酸化還元条件が関与していることが実験的に確かめられた。ウラン系列核種の放射平衡非平衡状態についての調査から、東濃ウラン鉱床中のウランは数十万年以内の間、移行していないことが示された。釜石原位置試験研究から、結晶質岩中の主たる移行経路として確認された割れ目構造は大きく3つのタイプに分類可能であることが認められた（図-1）。これらの割れ目には、割れ目充填鉱物が介在しており、これらの鉱物は地球化学的に物質（核種）の収着材として有効と考えられる黒雲母や粘土鉱物から成り、物質（核種）の収着や遅延に寄与すると考えられる。また、これらの割れ目周辺における物質（核種）の微視的移行経路は、充填鉱物部では多孔質構造を有し、割れ目周辺の母岩ではネットワーク状の微小割れ目であることが判明した。

2. 岩石中の空隙特性および核種の拡散挙動

花崗閃緑岩、凝灰岩、玄武岩、泥岩の屈曲度をNaをトレーサーとしてThrough-diffusion法により測定した。その結果、屈曲度は、玄武岩>泥岩>花崗閃緑岩=凝灰岩の順となった。また、岩石の間隙率は、凝灰岩>玄武岩>花崗閃緑岩>泥岩の順となった。凝灰岩は、同一岩石コアより採取されたにもかかわらず、間隙率および密度にはバラツキが認められ、凝灰岩サンプルが不均一であることが示唆された。

花崗閃緑岩、玄武岩、泥岩中でのCs、Ni、Sm、Clについて、Through-diffusion法による拡散試験を実施し、De及びDaを取得した。その結果、CsのDe及びDaは、他の元素と比較して大きい値が得られている。また、全ての元素について、De及びDaは、花崗閃緑岩>泥岩>玄武岩の傾向を示した。間隙率及び屈曲度を用いて各元素についてのDeを見積もり、実測値と比較した結果、玄武岩中でのCsのDeが実測値よりも約1/10になったものの、その他の元素についてはほぼ一致し、Deが核種の電荷及び空隙構造によって支配されていることが示唆された（図-2）。

釜石鉱山より採取した花崗閃緑岩未変質部、変質部、割れ目充填鉱物について、イオンの電荷をパラメーターにThrough-diffusion法による拡散試験を実施した。未変質部、変質部、割れ目充填鉱物については、Na、Cs、ClのDeを取得した。未変質部、変質部については、HTO及びSeのDe及びDaを取得した。また、各岩石について、水中飽和法により間隙率および密度、水銀圧入法により細孔径分布、間隙率、密度、間隙内比表面積を測定した。図-3にDeと間隙率の関係を示す。Deは、割れ目充填鉱物>変質部>未変質部の順となり、間隙率と同様な傾向が得られ、Deと間隙率に相関関係があることが示された。

3. 選択的な核種移行経路のモデル化

選択的な核種移行経路のモデル化において、場の詳細化は不均質性を取り込むことを意味し、不均質性を考慮した水理解析を行うと地下水が優先的に流れる経路が生じる。このような経路が比較的密に存在する場合は、その体積内で平均化を行ってもシステム全体の挙動に大きな影響を及ぼさないが、経路が散在する場合は、平均化することはシステムの挙動を低めに評価することにつながる。従って、このような場合は各移行経路に関する情報（トラベルタイム、経路長、経路に沿った流速分布）を抽出することが必要であり、これを行うために流線法とランダムウォーク法に基づく選択的な核種移行経路同定プログラムの開発を行った。

流線法に基づくプログラムは、Matangaが提唱している理論に基づくものであり、基本的には2次元の場合の流れ関数の理論の3次元領域への拡張である。3次元領域において直交する2つの流れ関数面に関する方程式を誘導し、2つの流れ関数面の交線を流線と定義している。この流線はその接線方向と流れの方向が平行であるという流線の条件を満たす。流線法では理論的背景のもとで決定論的に流れ関数面の方程式を解くことにより移行経路を決定できる。

ランダムウォーク法に基づくプログラムは、地下水水流速データに基づき、移流と分散による移動距離を確率論的に決定し、核種の移行経路をラグランジエ的に追跡していく手法であり、地下水水流速に関する非定常状態にも対応できる。

流線法及びランダムウォーク法により決定された選択的な核種移行経路及びトラベルタイム、経路長、経路に沿った流速分布等の経路情報は、3次元領域での不均質性の影響を含んでおり、天然バリアの性能を評価するための重要なパラメータとなる。したがって、これら2つの手法を用いて選択的移行経路を決定することにより、天然バリア中の性能を、不均質性を考慮して評価することが可能となった。

4. グリムゼル試験サイトにおけるトレーサー試験解析

Nagra（スイス放射性廃棄物処分共同組合）と動燃は、核種移行モデルの開発と確証及び室内試験データの原位置の条件への適用性の確認を目的として、スイスのグリムゼル試験サイトにおいて非吸着性トレーサー及び放射性（吸着性）トレーサーを使用してダイポール型（2孔間）のトレーサー試験を実施している。試験対象はサイトに存在する平面で近似できる破碎帯であり、坑道から破碎帯へ向けて水理調査、データ採取のために8本の試錐孔が掘削されている。破碎帯の透水量係数は $1.3 \times 10^{-6} \sim 4.2 \times 10^{-8}$ (m²/s)の範囲にある。トレーサーとしては異なる地球化学的な挙動をもつ非吸着性トレーサー(³/⁴He, ⁸²Br, ¹²³I, ウラニン)，弱吸着性トレーサー(²²/²⁴Na, ⁸⁶Rb, ⁸⁵Sr)，強吸着性トレーサー(¹³⁷Cs, ^{99m}Tc)がそれぞれ用いられた。解析は5段階のステップ(STEP1:水理データに基づく水理条件設定, STEP2:非吸着性トレーサーの破過曲線を使用した移行モデルの較正, STEP3:弱吸着性トレーサー試験の予測解析, STEP4:予測結果と実測値の比較, モデル較正, STEP5:強吸着性トレーサー試験の予測, モデル検証)を行った。

水理条件設定に関しては、8本の試錐孔で測定された透水量係数データを用いてバリオグラムを作成し、これに基づき平面2次元で近似した破碎帯内の透水量係数場を推定した。破碎帯内の地下水流动に関しては、トレーサー試験が定常状態に達したダイポールの流れ場で実施されることから、平面2次元の定常流れモデルを、トレーサー移行に関しては、破碎帯中の2次元領域内での移流と分散、及び周辺岩盤中への1次元方向への拡散をプロセスとして考慮した。また、試験では非吸着性に加えて、吸着性の放射性トレーサーも使用することから、移行モデルには吸着及び核種の崩壊の影響も考慮した。図-4は非吸着性のウラニンをトレーサーとして使用した場合のモデル較正結果の一例を示している。モデル較正はパラメータを試行錯誤的に変化させることにより行った。モデル較正の結果、推定されたパラメータを表-1に示す。

表-1に示すパラメータを用いて、吸着性の放射性トレーサー²²Naの破過曲線を予測した結果を図-5に示す。非放射性・非吸着性のウラニンに比べて、核種の崩壊（半減期2.6年）と遅延の影響を考慮した点が異なる。²²Naを用いたトレーサー試験もウラニンと同じ条件で実施された。予測解析では、破碎帯の岩石を用いて実験室で分配係数の測定試験を行った結果に基づき3ケース(Kd=0.35, 2.3, 3.5(10⁻³m³/kg))実施した。Kd=0.35は実験室で測定された分配係数値の最小値である。Kd=0は非吸着性のウラニンのケースに相当する。図-5からわかるように、²²Naの遅延をKdモデルで説明する場合、Kd値は0～0.35(10⁻³m³/kg)の範囲内にあり、実験室で測定されたKd値よりも十分小さい値である。つまり、実験室で測定されたKd値をそのまま核種移行評価や予測計算に使用することは結果を過小に見積もることになる。この原因として、室内試験と原位置試験ではスケールも大きく異なり、また地下水あるいは地下水に溶けた核種が媒体である岩石表面に接する面積等も大きく異なるために、室内試験で測定されるパラメータが原位置スケール

において大きく変化することが考えられる。したがって、室内試験で得られる分配係数、空隙率等の物質移動パラメータを原位置に外挿する適切な方法を今後検討していく必要がある。

5. 結言

本研究により、天然の岩石中の核種移行経路についての知見が得られた。また、室内実験からは岩石の空隙特性と核種の拡散挙動に相関関係があることが示された。さらに、核種移行モデルを用いた解析から、原位置での堆積岩中の核種挙動はある程度予測可能であるものの、 K_d 等の物質移行パラメーターの原位置への適用性については検討の余地があることがわかった。また、新規コード開発によって、不均一性を考慮した核種移行経路の抽出が可能となった。

主要レポート

- (1) 天野健治 他, 釜石鉱山における栗橋花崗閃緑岩中の割れ目形態と空隙構造。日本応用地質学会中部支部研究報告会要旨集, pp. 9-12, (1995).
- (2) Osawa, H. et al., : Development of a Conceptual Flow-Path Model of Nuclide Migration in Crystalline Rock - A Case Study at the Kamaishi In-Situ Test Site, Japan-, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVIII, pp. 1267-1273, (1994).
- (3) 佐藤治夫 他, 日本原子力学会1992年秋の大会「岩石中のイオンの拡散係数の測定」(1992).
- (4) 佐藤治夫 他, 「岩石の間隙構造に関する研究」動燃技術資料(公開) PNC TN8410 92-222
- (5) Sato, H. : Through-diffusion Experiments on NaCl Through Tuff, PNC Technical report (to be published)
- (6) Sato, H., Shibutani, T. and Yui, M. : Experiments and Modelling on Diffusion of Cs, Ni and Sm in Granodiorite, Fifth International Conference on the Chemistry and Migration in the Geosphere "MIGRATION' 95" (1995).
- (7) Sato, H. : Proosity, Density and Pore-Size Distribution on Tuff, PNC Technical report (to be published)
- (8) 佐藤治夫 他, 日本原子力学会1993年秋の大会「花崗閃緑岩中のCs, Ni, Smの拡散機構に関する研究」(1993).
- (9) 佐藤治夫 他 「緩衝材及び岩石への核種の吸着・拡散メカニズム」動燃技術資料 PNC TN8410 94-284 (1994年 9月)
- (10) 「地層処分研究開発の現状(平成5年度)」動燃技術資料 PNC TN1410 94-094 (1994年11月)
- (11) 佐藤治夫 他 亀裂岩中における吸着・拡散係数「地層 処分研究情報交換会」INTEGRATE' 96 (1996)
- (12) Umeki, H. et al., : THE NAGRA/PNC TESTSITE RADIONUCLIDE MIGRATION EXPERIMENT : RIGOROUS FIELD TESTING OF TRANSPORT MODELS, XVIII International Symposium on the Scientific Basis for Nuclear Waste Management, 1994.

参考文献

- (13) Matanga, G. B., : Stream Functions in Three-Dimensional Groundwater Flow, Water Resources Research, vol. 29, No. 9, pp. 3125-3133, 1993.

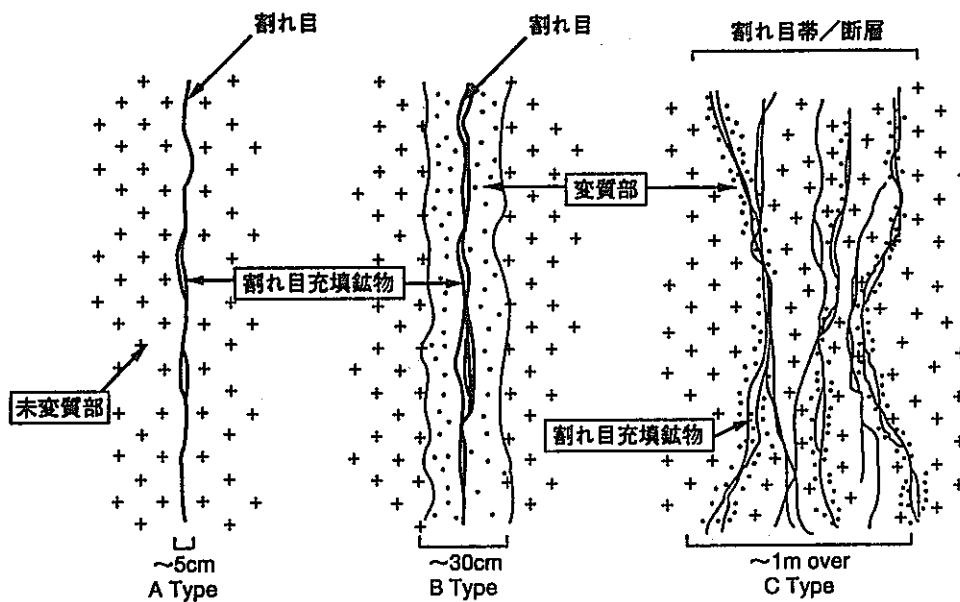


図-1 金石原位置試験場における割れ目タイプ

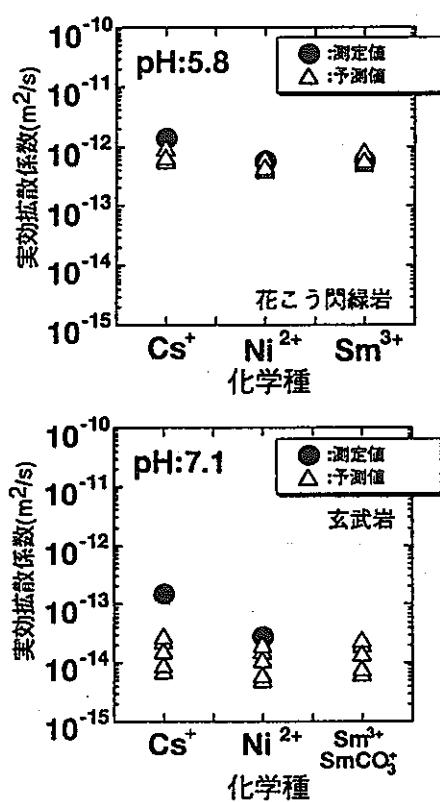


図-2 実測値と解析値の比較
(花崗閃綠岩と玄武岩の例)

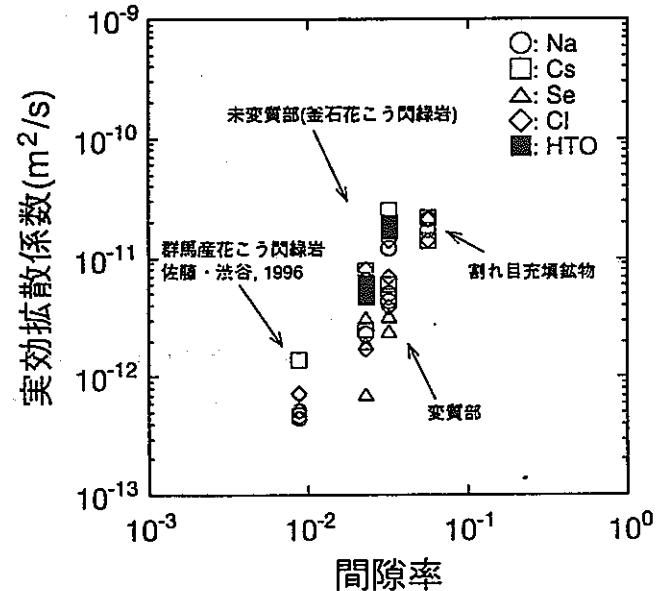


図-3 実効拡散係数と間隙率

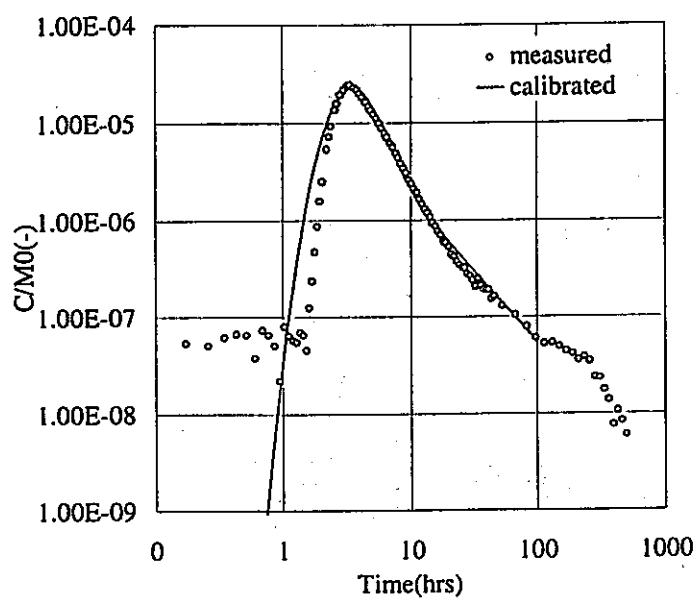


図-4 モデルの較正結果（ウラニン）

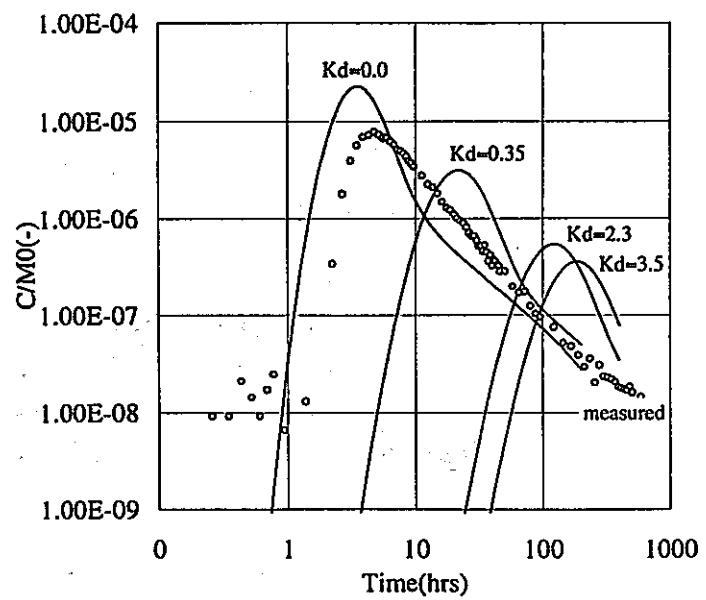


図-5 モデルによる予測結果(^{22}Na)

表-1 モデル較正により推定したパラメータ

パラメータ	推 定 値
流れ方向分散率(m)	0.25
破碎帶の空隙率(-)	1.3×10^{-1}
周辺岩盤の拡散係数(m^2/s)	5.0×10^{-1}
物質移行開口幅(m)	1.0×10^{-2}

天然バリアのナチュラルアナログ研究

平成3年度～平成7年度

東濃・地質環境研究室 花 室 孝 広

I. 研究の概要

高レベル放射性廃棄物の地層処分により生ずると想定される現象と類似した天然現象を抽出し、放射性核種の移行挙動を明らかにすることは、天然バリアの核種遅延機能を評価し、高レベル放射性廃棄物処分の安全性を評価するための基礎的な情報を得るために有効な研究手法と考えられている。本研究課題においては、東濃ウラン鉱床とその周辺に分布する岩石および地下水を対象として実施している地層科学研究の成果に基づき、ナチュラルアナログ研究の観点から以下の項目を実施した。

1. 堆積岩中の核種移行経路調査

堆積岩中を放射性核種が移行する際の移行経路とその構造を把握するため、堆積岩の微小領域における移行経路構造の観察、染色剤を含むレジン（樹脂）を岩石に浸透させてその分布を調査する染色試験、および天然放射性核種であるウランの分布調査を実施した。その結果、堆積岩中の鉱物粒子中の微小割れ目や黒雲母の劈開、岩石基質中の空隙が3次元的に連結しており、この空隙がウランの移行経路として機能し得ることが確認された。

2. 花崗岩中の核種のマトリックス拡散に関する研究

花崗岩の割れ目における放射性核種のマトリックス拡散（割れ目から岩石マトリックス部に向けた拡散）は、放射性核種の移行を遅延させると考えられている。本研究では、東濃地域に掘削された試錐孔から採取された岩石試料に認められる割れ目付近の赤褐色変質部周辺のウラン分布調査を実施した。その結果、赤褐色変質部には、鉄成分が濃集（沈殿）しており、またウランの濃集とともに、長期間にわたる保持が確認されたことから、酸化的な環境下で形成されうる赤褐色変質部（鉄酸化鉱物により形成）には核種を長期にわたって保持する能力が期待できることが明らかになった。

3. コロイド研究

地下水中のコロイドが放射性核種の移行に果たす役割を検討するため、東濃鉱山坑内に掘削された試錐孔より採水した地下水中のコロイドの化学分析を実施した。その結果、コロイドの粒度の違いによるウラン含有量の顕著な差異は認められず、コロイドによる選択的なウラン移行への寄与がないことが明らかとなった。

4. ウラン含有試料の放射非平衡調査

ウラン系列核種 (^{238}U , ^{234}U , ^{230}Th などの壊変系列) の長期的な移行挙動を把握するために、堆積岩全岩中および分離した鉱物中のウラン系列核種の放射非平衡調査 ($^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 放射能比の調査) を実施した。その結果、鉱物ごとにウランの移行・濃集に果たす役割が異なること、および還元的な環境においてもウランが少なくとも微小スケールで移行していることが明らかになった。

5. 堆積岩試料を用いた収・脱着試験

堆積岩の有する放射性核種の収着特性を把握するため、ウラン濃集部およびウラン濃集の認められない堆積岩および分離した主要構成鉱物について、酸化／還元条件での収・脱着試験を実施した。その結果、ウラン濃集部では収着サイトへのウラン濃集に伴うウラン収着能力の低下が推定されるとともに、主要構成鉱物のウラン収着能力の差がウランの移行・濃集を規制する重要な要因であることが示された。

II. 研究成果

1. 堆積岩中の核種移行経路調査

堆積岩中を放射性核種が移行する際の移行経路とその構造を把握するために、東濃ウラン鉱床から採取した堆積岩試料を用いて、微小領域における移行経路構造の観察、赤色レジンを用いた染色試験、および天然放射性核種であるウランの分布調査を実施した。東濃ウラン鉱床の堆積岩（ウラン濃集部）のSEM（走査型電子顕微鏡）を用いた微視的観察の結果、黒雲母の劈開、石英や長石などの粒子中の微小な割れ目、および岩石基質中の空隙が認められた（図-1）。また、赤色の染色剤を含むレジンを岩石に浸透させてその分布を調査する染色試験の結果、前述の空隙に沿って赤色レジンが分布したことから、前述の空隙が3次元的に連結しており、レジン（物質）の移行経路として機能していることが確認された。これらの結果から、堆積岩中には数～100 μ mスケールの3次元的に連結した空隙が存在しており、この連結した空隙は物質の移行経路としての役割を果たしているものと考えられる。

α -オートラジオグラフ（ α 線検出板を岩石試料に密着させ、岩石中の α 線源の分布を調査する手法）やEPMA（電子プローブマイクロアナライザ）を用いたウラン分布調査から、前述の空隙に沿ってウランが分布することが確認された（図-2）。この結果から、ウランは空隙を通じて移行し、空隙に沿って濃集したと考えることができる。また、石英粒子を対象としたカソードルミネッセンス調査（ α 線損傷の痕跡を電子線照射により検出）を行った結果、石英と他の鉱物との粒界および粒子中の微小な割れ目にはカソードルミネッセンスが分布している、すなわち、ウランから放出された α 線によって損傷を受けている⁽¹⁸⁾ことから、鉱物粒界および粒子中の微小な割れ目に沿ってウランが移行し、一時的にウランが保持されていたことが考えられる⁽¹⁹⁾。以上の結果により、黒雲母の劈開、石英や長石などの粒子中に見られる微小な割れ目、および岩石基質中の空隙が堆積岩中に3次元的に連結して存在しており、ウランの移行経路としても機能していることが明らかになった。したがって、これらの空隙の構造および分布は、ウランの移行を物理的に規制する要因として重要であると考えられる^{(15), (16), (18), (24)}。

2. 花崗岩中の核種のマトリックス拡散に関する研究

東濃地域において掘削された試錐孔により得られた割れ目周辺に赤褐色変質部を伴う花崗岩試料を用いて、割れ目周辺の主要元素濃度分析、ウラン含有量分析、ウラン分布調査およびウラン系列核種の放射非平衡調査を実施した。その結果、赤褐色変質部には、酸化環境下で生成されたことを示す3価鉄の濃集と共に、母岩部分に比べてウランが最大2倍程度まで濃集しており、ウラン含有量は、割れ目表面から母岩部にかけて徐々に減少していることが確認された。また、 α -オートラジオグラフやEPMAによる割れ目周辺のウラン分布調査の結果、ウランは初生的な重鉱物（モナズ石など）中に認められるほか、結晶粒界や結晶粒子中の微小割れ目、黒雲母周辺など、鉄酸化鉱物に沿って分布していることが明らかになった。以上の結果から、割れ目中を地下水に

よって移行したウランは、割れ目表面から岩石マトリックス部へ拡散し、前述のような濃度プロファイルをもったと考えられる。

また、放射非平衡調査の結果から、赤褐色変質部で濃集しているウラン系列核種はほぼ放射平衡状態にあることから、赤褐色変質部でのウラン系列核種は長期間安定に保存されてきたと推定される（図-3）。したがって、割れ目付近に鉄が濃集している場合、鉄濃集部には、ウランを濃集させるとともに長期にわたって安定に保持する機能が期待される⁽²⁶⁾。

3. コロイド研究

地下水中のコロイドが放射性核種の移行に果たす役割を検討するため、東濃鉱山坑内に掘削された試錐孔より採水した地下水中のコロイド粒子の化学分析を実施した。その結果、東濃鉱山坑内の試錐孔から得られた地下水中のコロイド粒子（図-4）として、珪素に富む粒子、カルシウムに富む粒子、粘土鉱物粒子のほか、硫黄に富む粒子が観察されたが、これらの全コロイド粒子の地下水中の重量濃度は 5 mg / l 未満であった。

また、ポアサイズの異なるフィルターによって分離した地下水試料の元素分析の結果、粒度の異なるコロイド相および地下水中のウラン濃度に大きな違いが見られず（図-5）、トリウムおよび希土類元素などの微量元素は検出限界以下 (< 10 ppt) であった。これらの結果、すなわち、東濃鉱山においては、コロイドの粒度の違いによるウラン含有量の顕著な差異が認められないことから、コロイドによる選択的なウラン移行への寄与はなく、ウランをはじめとする微量元素の移行に対するコロイドの役割はほとんど認められないと考えられる⁽²⁷⁾。

4. ウラン含有試料の放射非平衡調査

ウラン系列核種の長期的な移行挙動を把握するために、堆積岩全岩中および分離した鉱物中のウラン系列核種の放射非平衡調査を実施した。その結果、東濃ウラン鉱床の堆積岩中の主要構成鉱物（石英、長石、黒雲母、黄鉄鉱、粘土鉱物、亜炭）は、同一の岩石から分離したものであっても、異なる $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 、 $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 放射能比を持つことが確認された（図-6）。これらの主要構成鉱物のうち、黄鉄鉱に含まれるウラン系列核種は放射平衡に達しているのに対し、他の鉱物中のウラン系列核種は放射非平衡を示している。 ^{238}U 、 ^{234}U 、 ^{230}Th のウラン系列核種が放射平衡に達するのに要する時間は、 ^{238}U 、 ^{234}U 、 ^{230}Th の 3 核種の場合約 170 万年と見積もられており、これらのウラン系列核種が放射非平衡であるということは、過去約 170 万年の間にウラン系列核種が岩石、鉱物と化学的反応（例えば吸着、溶脱）を起こしていることを示している。

今回の結果では、黄鉄鉱中のウラン系列核種が約 170 万年の間保持されているのに対し、他の鉱物中のウラン系列核種は、過去約 170 万年の間に岩石、鉱物と化学的反応を起こしていると考えられる。黄鉄鉱の周囲には前述の移行経路が認められず、黄鉄鉱へのウランの濃集は還元環境下での黄鉄鉱の生成に伴うと考えられることから⁽²⁸⁾、黄鉄鉱中のウランは現在まで化学的な反応を起さずに保持してきたものと考えられる⁽¹⁵⁾。また、粘土鉱物の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比は 1 よりも小さく、炭質物の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比は 1 よりも大きな値を示す傾向にあることから、これらの鉱物における放射非平衡は ^{238}U の崩壊に伴う α 反跳効果⁽²⁹⁾ による ^{234}U の選択的な移行によって説明される。つまり、粘土鉱物から選択的に ^{234}U が溶脱し、逆に炭質物では ^{234}U が選択的に濃集していると考えられる。以上の結果から、地質環境下においては、鉱物ごとでウランの移行・濃集に果たす役割が異なり、堆積岩中の鉱物の種類（化学的特性）、量および分布はウランの移行・濃集を支配するものと考えられる^{(13), (18), (24)}。

5. 堆積岩試料を用いた吸・脱着試験

ウラン濃集部の堆積岩とウラン非濃集部の堆積岩を用いて、ウラン(UO_2^{2+})のバッチ式吸着試験(表-1:A)を行った結果、ウラン非濃集部におけるウランの吸着係数は、ウラン濃集部のそれに比べ1~2オーダー高いことが明らかになった。この結果は、ウランがすでに濃集している堆積岩では、ウランの吸着サイトにはすでにウランが濃集しているためにウランの吸着能力が低下しているものと考えられる。また、ウラン濃集部の堆積岩の透水係数はウラン非濃集部の堆積岩に比べて2~3オーダー高い値を示しており、ウランは堆積岩中の透水性の高い部分に濃集したものと考えられる。以上の結果から、堆積岩中のウランの保持現象は、堆積岩のウラン吸着能力に大きな差がない場合には、移行経路の有無に大きく影響されることが示される^{(17), (18)}。

酸化・還元条件の違いによる岩石および構成鉱物のウラン吸着能力の違いを調べるために実施したバッチ式吸着試験(表-1:B)の結果、還元条件における堆積岩および主要構成鉱物に対するウラン($(UO_2)_{aq}$)の吸着係数は、酸化条件(ウラン: UO_2^{2+})の場合よりも2~3オーダー大きな値を示した(表-2)。また、還元条件における黒雲母に対するウランの吸着係数は、石英に対する吸着係数に比べて、最大で4オーダー大きい値となった。実際にウランの濃集している堆積岩から分離した構成鉱物のウラン含有量を測定した結果、黒雲母のウラン含有量は石英よりも2~3オーダー高い値を示すことから、地層中のウランの移行・濃集を規制する要因として、酸化還元条件の違いおよび鉱物ごとの吸着能力の違いがあると考えられる。一方、バッチ式吸着試験によって取得された酸化条件におけるウランの吸着係数は表面錯体モデルを用いて計算した値とほぼ一致する。これは、酸化条件における岩石に対するウランの吸着は、鉱物表面における錯体の形成反応が支配的であることを示すと考えられる^{(14), (24)}。

6. 結言

これまでの研究により、堆積岩中の物質移行経路、花崗岩割れ目からのマトリックス拡散、地下水中のコロイドの核種移行への寄与、東濃ウラン鉱床におけるウラン系列核種の長期挙動および堆積岩全岩・主要構成鉱物のウラン吸着特性など、天然バリアの核種遅延機能に関する知見が得られた。

今後、上記の知見をもとに、東濃ウラン鉱床およびその周辺の岩石(堆積岩や花崗岩など)中の核種移行経路の概念モデルを構築するための移行経路調査を継続するとともに、断層周辺のウラン系列核種の長期的な挙動を把握するための放射非平衡調査などを実施する。また、室内試験などにより物質の吸着・拡散などに関する定量的データを取得するとともに、核種移行モデルの構築およびモデル解析を実施し、天然バリアの核種遅延機能を評価する予定である。

[主要レポート]

- (1) 野原, 落合: 東濃ウラン鉱床における天然ウラン系列核種放射非平衡研究—断層および割れ目に沿った核種の挙動—. 日本原子力学会1992年春の年会予稿集(1992)
- (2) 吉田, Put, 武田: 堆積岩における核種移行試験—岩石組織と核種移行挙動との関係について—. 日本原子力学会1991年秋の大会予稿集(1991)
- (3) Yoshida, Yui, Ashida : A study on sorption of uranium in the Tono uranium deposit in Japan. Abst. MIGRATION '91 (1991)
- (4) Yoshida, Yui, Shibutani : A study of influence factor on uranium fixation in the Tono uranium deposit, Japan. PNC TN7410 91-061 (1991)

- (5) 児玉ほか：地層中における物質の移行・挙動に関する研究（その2）－岩石の構造とウラン濃集の相関について－. 日本原子力学会中部支部第24回研究発表会講演予稿集（1992）
- (6) Nohara et al. : Uranium-series disequilibrium studies in the Tono uranium deposit, Japan. *Radiochim. Acta* 58/59 (1992)
- (7) 太田, 吉田, 児玉：地層中における物質の移行・挙動に関する研究（その1）－岩石の収着能力とウラン濃集との相関について－. 日本原子力学会中部支部第24回研究発表会講演予稿集（1992）
- (8) Seo, Yoshida : Natural analogue studies of the Tono uranium deposit in Japan. Proc. of 5th CEC NAWG Meeting (1992)
- (9) 吉田：堆積岩中の物質移行特性に関する研究－東濃ウラン鉱床を例にした物質の移行・挙動解析－. 日本原子力学会1992年秋の大会予稿集（1992）
- (10) Yoshida et al. : Influence of micro path structure on nuclide migration in sedimentary rock. Abst. 29th IGC (1992)
- (11) Yusa et al. : Geological and geochemical indicators of palaeohydrogeology in Tono uranium deposit, Japan. *Paleohydrogeological Methods and their Applications, NBA Workshop* (1992)
- (12) 山名, 石丸：東濃鉱山第2立坑壁面の観察による瑞浪層群の地質層序学的調査報告. PNC TN7420 92-011 (1992)
- (13) 児玉ほか：堆積岩中の物質移行に関する研究－移行経路の構造とウランの分布との相関について－. 日本原子力学会1993年秋の大会予稿集（1993）
- (14) 太田, 児玉, 吉田：堆積岩中の物質移行に関する研究(IV)－岩石の収着能力とウランの収着メカニズムについて－. 日本原子力学会1994年春の大会予稿集（1994）
- (15) Yoshida, Kodama, Ota : Role of microscopic flow-paths on nuclide migration in sedimentary rocks -A case study from the Tono uranium deposit, central Japan-. *Radiochimica Acta*, 66/67 (1993)
- (16) Yoshida, Yui, Shibutani : Flow-path structure in relation to nuclide migration in sedimentary rocks -An approach with field investigations and support experiments of natural uranium nuclide migration at the Tono uranium deposit, central Japan-. *J. Nucl. Sci. Tech.*, 31(8) (1993)
- (17) 湯佐, 吉田：天然放射性核種の地層中の挙動－東濃ウラン鉱床における事例研究－. 放射線第20卷 (1994)
- (18) Yoshida et al. : Data compilation of geoscientific studies of Tono uranium deposits, central Japan. PNC TN7410 94-015 (1994)
- (19) Yoshida : Relation between U-series nuclide migration and microstructural properties of sedimentary rocks. *Applied Geochemistry*, 9 (1994)
- (20) Yoshida, Sakuma, Yusa : The Tono Natural Analogue Study Program. preprint of CEC 6th NAWG meeting (1994)
- (21) Ota, Yoshida : Influence of microscopic heterogeneity on diffusion for sedimentary rocks. *GEOVAL'94 Validation Through Model Testing* (1994)
- (22) Osawa et al. : Development of a conceptual flow-path model of nuclide migration in

crystalline rock - A case study at the Kamaishi in-situ test site, Japan -. Proc. of
18th Int. Symp. on the Scientific Basis for Nuclear Waste Management (1994)

- (23) 花室, 太田, 吉田 : 東濃地域の堆積岩を用いたウランの拡散試験. 日本原子力学会中部支部第26回研究発表会講演予稿集 (1994)
- (24) 花室, 太田, 吉田 : 東濃地域の岩石中におけるウランの移行・保持に関する研究-移行経路の構造と構成鉱物の収着・遅延特性についての検討-. 動燃技報第93号 (1995)
- (25) 吉田, 湯佐 : 放射性核種の地層中での挙動-東濃ウラン鉱床における天然ウラン系列核種を例にして-. 95年同位元素研究発表会要旨集 (1995)
- (26) 花室, 吉田 : 花崗岩割れ目からの物質のマトリックス拡散に関する研究. 日本原子力学会1995年秋の大会講演要旨集 (1995)
- (27) Seo, Moulin : Study of colloids in groundwater at the Tono uranium deposit, Japan.
Migration' 95 Abstract No. PB3-06 (1995)

[参考文献]

- (28) Wersin et al. : Interaction between aqueous uranium (VI) and sulfide minerals:
spectroscopic evidence for sorption and reduction. Geochim. Cosmochim. Acta 58,
2829-2843 (1994)
- (29) Kigoshi : Alpha-recoil thorium-234: dissolution into water and the uranium-234 /
uranium-238 disequilibrium in nature. Science 173, 47-48 (1971)

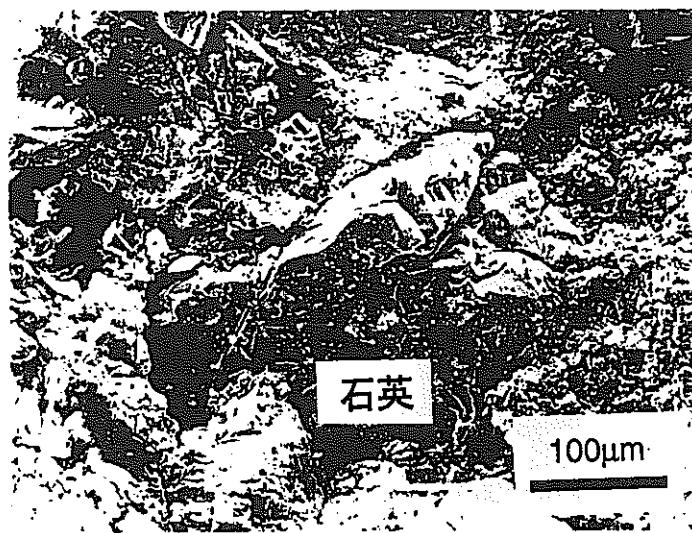


図-1. S E Mによる堆積岩組織の観察
(石英粒子周辺の微小な空隙)

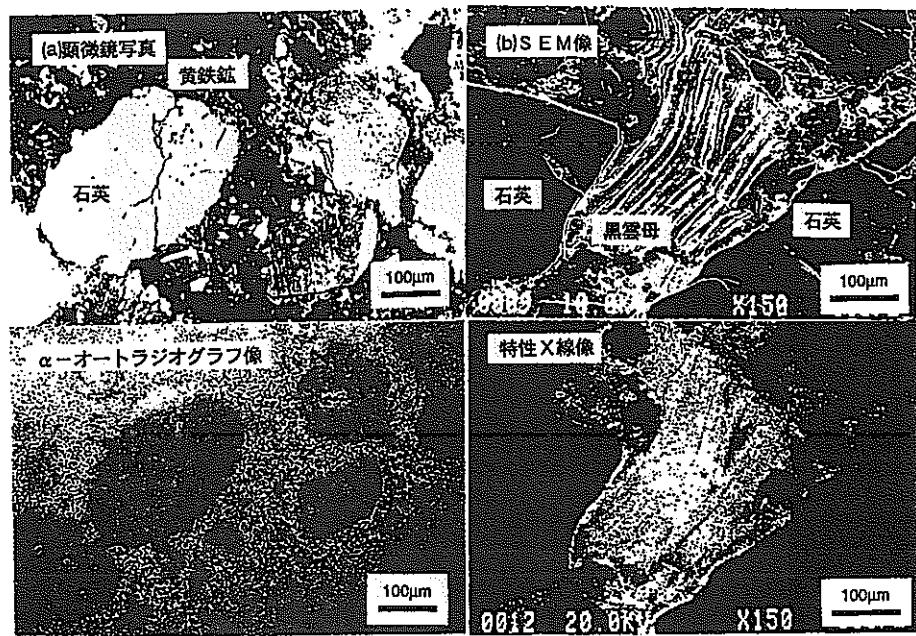


図-2. 堆積岩中のウランの分布
(a) : α -オートラジオグラフ像および(b) : 特性X線像とともに白い点は
ウランの分布を示している。)

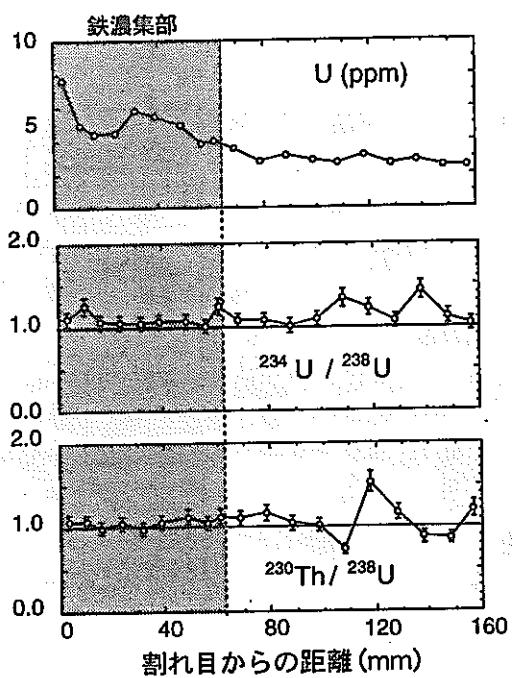


図-3. 花崗岩中の割れ目からのウラン含有量およびウラン放射能比の分布

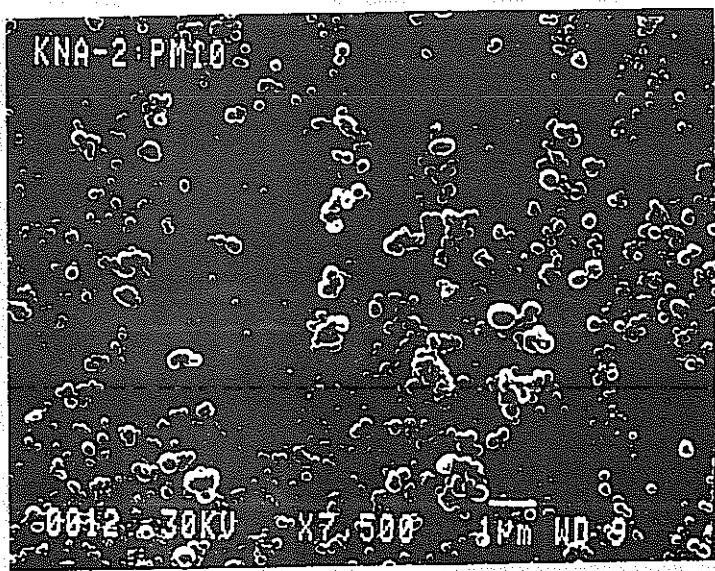


図-4. 東濃地域の地下水中に見られるコロイド粒子

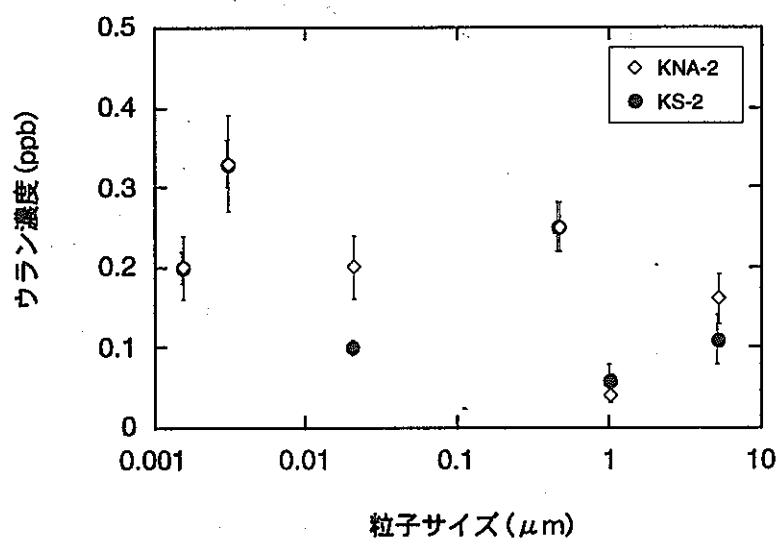


図-5. 地下水中のコロイド粒子サイズとウラン濃度

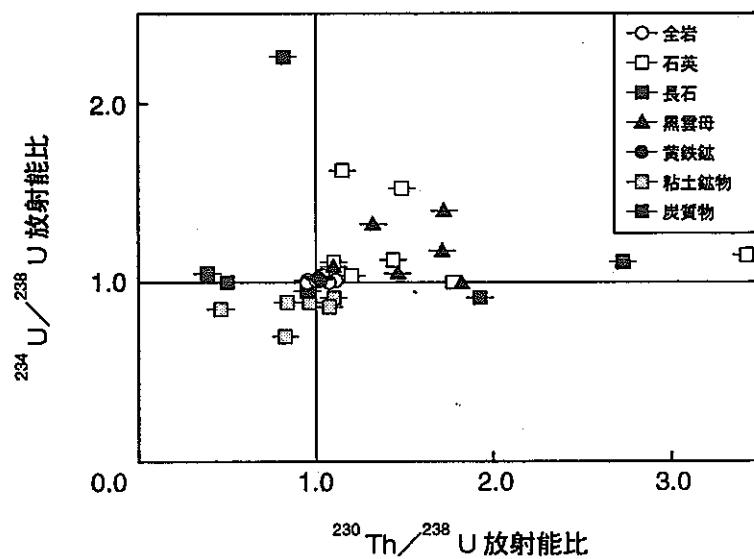


図-6. 堆積岩全岩および主要構成鉱物の放射非平衡調査結果

表-1. バッチ式収着試験の試験条件

	A	B
雰囲気	窒素雰囲気	大気下（酸化条件） アルゴン雰囲気（還元条件）
岩石試料	凝灰質砂岩 (ウラン濃集部／非濃集部)	凝灰質砂岩・シルト岩・泥岩 石英・黒雲母・炭質物（堆積岩より分離）
溶液	ウラン溶液	ウラン溶液
固液比	2 : 5	1 : 10

表-2. 岩石および主要構成鉱物に対するウランの収着係数

	収着係数(ml/g)	
	酸化条件	還元条件
凝灰質シルト岩	14	170
凝灰質中粒砂岩	1	300
凝灰質細粒砂岩	2	1,000
炭質物を含む凝灰質泥岩	30	1,800
石英	<1	5
黒雲母	2	8,000
炭質物	200	—

地質環境予測に関する研究

平成3年度～平成7年度

東濃・地質安定性研究室 石丸恒存、長谷川 健

岩月輝希、佐藤稔紀

I. 研究の概要

本研究は、地層処分環境の評価に資するために、地質調査、ボーリング調査、物理探査などに基づく地球科学的情報から地下深部の地質環境を解明し、さらに地質環境の変化に関する実証的データを基に、地質環境の長期予測をするための手法を開発することを目的としている。

1. 地球物理学的調査技術の開発

地層科学研究の一環として、地表から地下深部までの地質環境（特に地質構造や岩盤の水理特性）に関する情報を非破壊で取得するために必要不可欠な調査技術である地球物理学的調査技術の開発を実施した。

2. 地下水と岩石の相互反応メカニズムの推定

深部地質環境を把握するためには、地下深部の岩石と地下水の相互反応メカニズムを明らかにすることが重要である。本研究では、地層科学研究の一環として、岐阜県東濃鉱山で得られた堆積岩および花崗岩試料と地下水試料を用いたバッチ式水-岩石反応試験を行い、試験結果から地下水と岩石の反応メカニズムを推定し、地下水の水質形成に寄与する水-岩石反応について考察した。また、熱力学的解析により地下水および鉱物組成データから地下水の水質変化について予測できる可能性が示された。

3. 核種の挙動と地質環境の安定性の解明

広域的な地球化学的手法による地質調査により、地域特性を精密に評価する技術を開発するとともに、指標となる核種の挙動と地質環境の安定性を明らかにすることを目的として、東濃ウラン鉱床を対象としたナチュラル・アノログ研究および岩石試料を用いた収着・拡散試験などの調査・研究を実施した。その結果、長期間にわたるウラン鉱床の保持・保存などの地質環境の安定性に関する知見や、放射性核種の挙動に係わる定量的データが取得された。

4. 種々の封圧・温度環境下における岩石の変形・破壊特性および透水特性の把握

地層の変形のメカニズムおよびその温度依存性をモデル化することによって、地下環境の変化を長期にわたって予測するための情報数値モデルを開発することを目的として、種々の封圧・温度環境下における岩石の変形特性および破壊後挙動を把握するための室内試験を実施した。その結果、花崗岩と砂岩の標準的な岩石試料について、熱特性や変形特性および破壊後挙動に関する知見が蓄積された。また、地質環境が異なるいくつかの岩石について、一軸圧縮強度やヤング率などの力学特性データが取得された。

5. 地質環境データベースの開発

日本全国を対象とした地質環境の特性および安定性に関する基礎データについては、蓄積されたデータを利用目的に応じて機能的に管理することが必要である。このような作業を効率的・効

果的に支援して行くため、データベースやグラフィックスを主体としたコンピュータ支援システム（地質環境データベースシステム）の開発・整備を実施した。

地質環境に関する調査研究は、現在、地域および岩種を特定せずに全国規模で実施している段階にあるため、地質環境データベースシステムにおいては、まず日本全体を対象とした各種分布図など地図データの管理およびこれを用いた解析処理を支援するシステム（地図データ管理システム）の整備を優先的に進めた。

II. 研究成果

1. 地球物理学的調査技術の開発

(1) リモートセンシング利用技術開発⁽¹⁾⁽²⁾

表層部の水文特性が規制する森林の状態を、人工衛星で取得されたデータから算出した植生の活性度（正規化植生指標）で区分できることを明らかにした。図-1は、植生の高活性度（正の植生異常）を持つ地域とその地域の地質学的特徴の関係を表しており正の植生異常部分は未固結砂礫層や新第三紀堆積岩層と花崗岩との境界に多く分布していることを示している。これらの地域は地下から地表への水の出口、すなわち地下水の流出域であると考えられることから、正規化植生指標から地表における地下水の地流出域を抽出できる可能性が示された。

(2) トモグラフィ調査技術開発

(a) レーダートモグラフィ調査技術の開発⁽³⁾

結晶質岩盤中では地下水は主に割れ目（帯）を流れると考えられるため、結晶質岩の水理特性を評価するためには、割れ目（帯）すなわち「水みち」の位置・規模・その透水性を把握することが必要不可欠である。これらの情報を非破壊でかつ3次元的に把握するための調査技術開発の一環として、レーダートモグラフィ調査技術の適用試験を釜石鉱山において実施した。データの解析の結果、図-2に示したように、結晶質岩中に認められる電磁波速度の遅い部分の3次元的なつながりを推定することができた。電磁波速度の遅い部分は含水量の多い部分であると考えられるため、これらは湧水割れ目を含む割れ目（帯）であると推定される。また、トモグラフィ調査終了後、調査対象領域に水平坑道を掘削し、壁面観察を実施した。壁面観察結果とレーダートモグラフィで推定された割れ目（帯）の位置は、非常に良く一致しており、レーダートモグラフィ調査により「水みち」の位置と規模を推定できることを確認した。

(b) 弹性波トモグラフィ調査技術の開発⁽⁴⁾

岩盤の力学特性の指標の一つである弾性波速度に着目し、調査対象領域の弾性波速度分布を把握するための技術開発の一環として、弾性波トモグラフィのデータ解析プログラムの開発を行った。さらに、開発したプログラムを用いて実測データの解析やモデル解析を実施した。図-3は速度構造モデルとして幅の広い低速度帯を想定し、この低速度帯が解析によりどのように再現されるのかを示したものである。試錐孔GT-3とGT-1で挟まれた断面では低速度帯はほぼ正しく再現されているが、GT-2とGT-3で挟まれた断面では、低速度帯は実際よりも大きく解析されており、さらにその上部に高速度の偽像が現れている。実測データの解析でも、モデルとして想定したものとほぼ同じ形状の低速度帯の上部に、地質観察結果と整合しない高速度部が解析されたが、今回のモデル解析により、この高速度部は偽像であることが確認できた。このように、実測データを解析する際はモデル解析を並行して行うことによ

り、解の不確実性を小さくできることが明らかになった。

(c) 比抵抗トモグラフィ調査技術の開発⁽⁵⁾⁽⁶⁾

岩盤の含水量や粘土鉱物の含有量を表す指標となると考えられる比抵抗値に着目し、調査対象領域の比抵抗分布を把握するための技術開発の一環として、比抵抗トモグラフィのデータ解析プログラムの開発を行った。開発したプログラムを用いてモデル解析を実施した結果、掘削が坑道周辺の岩盤に及ぼす影響の範囲が坑道径の1/6倍以上あり、かつその部分の比抵抗変化が±50%以上に及ぶ場合、掘削影響領域を比抵抗トモグラフィで把握可能であることが明らかになった。

(3) 物理検層データから岩盤（堆積岩）の透水性を推定する手法⁽⁷⁾

物理検層は、試錐孔中に測定器を下ろして孔壁周辺の岩盤の物性値を深度方向に連続的に測定可能である。従って、物理検層で得られるデータから岩盤の透水性を推定することができれば、地表から地下深部までの岩盤の透水性を連続的に把握することが可能になり、岩盤全体の透水性の評価が容易になる。ここでは、物理検層のうち、電気検層データから堆積岩の透水係数を推定するための変換式を導いた。図-4にこの式を用いて推定した東濃地域の堆積岩の透水係数の分布を示す。推定結果は、実際に原位置において実施した透水試験結果とよく一致しており、電気検層の結果から堆積岩の透水係数を推定する手法を確立できた。

(4) ハイドロフォンVSP(Vertical Seismic Profile)調査技術開発⁽⁸⁾

結晶質岩盤中では地下水は主に割れ目（帯）を流れると考えられるが、全ての割れ目（帯）が岩盤の透水性に関与しているのではなく、むしろ少数の割れ目（帯）が岩盤の透水性を支配しているものと考えられている。ハイドロフォンVSP調査法は、試錐孔内に挿入された圧力型受振器であるハイドロフォンを用いてチューブ波（試錐孔内の液体中を孔軸方向に伝わる音波）を観測することにより、透水性割れ目に関する情報を得ようとする調査法である。透水性の割れ目（帯）を選択的に抽出するための技術開発の一環として、岐阜県東濃地域の土岐花崗岩中に掘削された試錐孔を用いて、本調査法の適用試験を行った。試験の結果、透水性割れ目から発生したと考えられるチューブ波を多数観測できた。その一例を図-5に示す。さらに、物理検層などにおいて全く異常が認められない深度からもチューブ波が発生しており、これらは物理検層などにより検出できない結晶質岩中の透水性割れ目から発生しているものと考えられる。これまでに実施した適用試験により、ハイドロフォンVSP調査が、結晶質岩中に存在する透水性割れ目の調査に有効な技術であることが確認できた。

2. 地下水と岩石の相互反応メカニズムの推定

(1) 地下水と花崗岩の相互反応メカニズム⁽⁹⁾

花崗岩中の地下水の水質形成機構を把握するために、花崗岩と割れ目充填鉱物を用いたバッチ式水-岩石反応試験を実施した。その結果、以下のことが明らかになった（表-1）。

- ・花崗岩とイオン交換水、および花崗岩に炭酸塩鉱物やカオリン鉱物、雲母鉱物などを加えた混合物とイオン交換水との水-岩石（鉱物）反応の結果、イオン交換水の水質はカルシウム-炭酸水素イオン型になる。
- ・花崗岩にスメクタイトや沸石類などを加えた混合物とイオン交換水との水-岩石（鉱物）反応の結果、イオン交換水の水質はナトリウム-炭酸水素イオン型になる。

以上の結果から、実際の花崗岩中に認められる地下水（ナトリウム-炭酸水素イオン型）の水質形成にはスメクタイトと沸石類の水-岩石（鉱物）反応が寄与している可能性が実験的に

確かめられた。

(2) 地下水と堆積岩の相互反応メカニズム

堆積岩中の地下水の水質形成機構を把握するために、堆積岩を用いたバッチ式水－岩石反応試験および陽イオン交換容量の測定を行った（図-6）。その結果、堆積岩中の地下水の水質形成では、粘土鉱物（スメクタイト）によるイオン交換反応が主要な反応として寄与していることが明らかとなった。また、その反応の結果、地下水はナトリウム－炭酸水素イオン型の水質になるものと考えられる。

以上の結果から、東濃地域の堆積岩および花崗岩中の地下水について、その水質形成にはスメクタイト等の粘土鉱物が強く寄与していると考えられる。また、バッチ式水－岩石反応試験により地下水の水質形成に寄与する主要な岩石（鉱物）として、花崗岩中ではスメクタイトと沸石類、堆積岩中ではスメクタイト等の粘土鉱物が挙げられたことから、地層中の鉱物組成を把握することにより、その地層中に存在する地下水の水質を予測できる可能性が示された。

3. 核種の挙動と地質環境の安定性の解明

広域的な地球化学的手法による地質調査により、地域特性を精密に評価する技術を開発するとともに、指標となる核種の挙動と地質環境の安定性を明らかにすることを目的として、東濃ウラン鉱床を対象としたナチュラル・アナログ研究および岩石試料を用いた収着・拡散試験などの調査・研究を実施した。その結果、長期間にわたるウラン鉱床の保持・保存などの地質環境の安定性に関する知見や、放射性核種の挙動に係わる定量的データが取得された。

なお、研究成果の詳細については、研究課題「○2-6 天然バリアにおける放射性核種の移行に関する研究」および「○2-7 天然バリアのナチュラルアナログ研究」と重複するため、記述は省略する。

4. 種々の封圧・温度環境下における岩石の変形・破壊特性および透水特性の把握

(1) 封圧環境下における室内試験（透水試験、三軸圧縮試験）

力学・水理特性の封圧依存性を把握するために、数種類の岩石・岩相を対象に、様々な封圧条件下での圧縮試験・透水試験を実施した。その結果、日本の花崗岩の標準試料である稻田花崗岩では、有効封圧の増加に伴い、透水係数が（1オーダー程度）低下することが分かった。また、堆積岩においては、有効封圧の増加に伴い、透水係数がわずかに増加することが分かった。

(2) 温度環境下における室内試験（一軸圧縮試験、三軸圧縮試験、圧裂引張試験）

力学特性の温度依存性を把握するために、標準的な岩石試料とされている稻田花崗岩と白浜砂岩および数種類の地質条件が異なる岩石を対象に、室温から200℃程度までの種々の温度条件下で、一軸圧縮試験、三軸圧縮試験、圧裂引張試験の室内試験を実施した。その結果、稻田花崗岩では、圧縮強度とヤング率は、温度上昇に伴い減少する傾向が認められた⁽¹⁰⁾（図-7, 8）。一方、白浜砂岩では、圧縮強度は温度上昇に伴い、徐々に低下する傾向が認められたが、ヤング率は温度に依存しないことが明らかになった。また、岩種によって、力学特性の温度依存性は一様ではないとの結果が得られた。

(3) 岩石の破壊後の挙動と透水性（三軸圧縮過程における透水試験）

岩石の破壊後の挙動と透水性を把握するため、稻田花崗岩を用いた三軸圧縮過程における透水試験を実施した。その結果、破壊強度点以降、透水係数が1～3オーダー上昇したが⁽¹¹⁾、供試体に対する載荷方向が異なる場合、この透水係数の変化は異なることが明らかとなった。

いわゆるrift面（図中 "A" plane）と呼ばれるマイクロクラックの方向が卓越している方向に直交して載荷した場合、その他の方向（図中 "B", "C" plane）に直交して載荷した場合と比較して破壊後の透水係数の増加率が大きくなる結果も得られた（図-9）^{(12) (13)}。

以上の試験により、花崗岩と砂岩の標準的な岩石試料について、熱特性や変形特性および破壊後挙動に関する知見が蓄積された。また、地質環境が異なるいくつかの岩石について、一軸圧縮強度やヤング率などの力学特性データが取得された。

5. 地質環境データベースの開発⁽¹⁴⁾

地質環境データベースシステムにおいては、まず日本全体を対象とした各種分布図など地図データの管理およびこれを用いた解析処理を支援するシステム（地図データ管理システム）の整備を優先的に進めた。

地図データ管理システムの開発にあたっては、図形・画像情報の処理に係わる機能の整備が主要な開発要件となるため、コンピュータ・グラフィックスに関する現在の技術動向などと支援すべき作業内容を調査検討した上で、データの管理方法や実現すべき機能を設定した。また、調査の進展やコンピュータ技術の進歩に伴う機能の改良や拡張に対応できるよう、システム全体をいくつかのサブシステムに分割し、機能単位で、プログラムを独立させた。これまでの作業により、データの管理、検索、表示、編集、統計・演算処理に係わる基本的な機能を整備した。地図データ管理システムを利用することによって、対象範囲（地域名や緯度・経度）と情報の種類によって検索した複数の地図情報を、位置や投影法を統一して重ね合わせて表示することができる。また、属性の種類や値（例えば、温泉の種別や泉温）に応じて、地図上への表示の有無や表示方法（形状や色）を設定・変更することも可能である。

データ入力は、これまでに、断層、火山、地殻の変動、温泉、地下資源、地質、地形に関する全国分布図など、地質環境の特性や安定性を把握する上で参考となる既存の地図情報の入力を行った。また、地質環境調査研究により得られた日本全国のリニアメント分布や試錐データ等の一部を入力し、日本の地質環境に関するデータが蓄積された。今後も、地質環境調査研究によって取得・収集されるデータの入力を継続していく。

これまでに整備した主な機能を以下にまとめる。

- ・データ管理機能：入力した地図情報をデータベース上に保存。
- ・検索機能：対象とする領域（地域名や緯度・経度）及び情報の種類によって任意のデータを検索。
- ・表示機能：検索した地図情報を画面上に表示。表示した地図情報を拡大・縮小、表示範囲を水平・垂直移動。
- ・重合表示機能：複数の地図情報を、位置・投影法等を統一して重ね合わせて表示。
- ・属性表示機能：属性の種類や範囲によって、地図上への表示の有無や表示方法（形状や色）を設定・変更。
- ・編集機能：入力データの幾何形状や属性を変更。
- ・統計・演算機能：領域内のポイントデータ及びラインデータの密度の算出。データ間の幾何的論理演算（AND演算やOR演算）を実行。
- ・出力機能：モニター表示画面をハードコピーとして出力。また、入力された地図情報をデータにより出力。

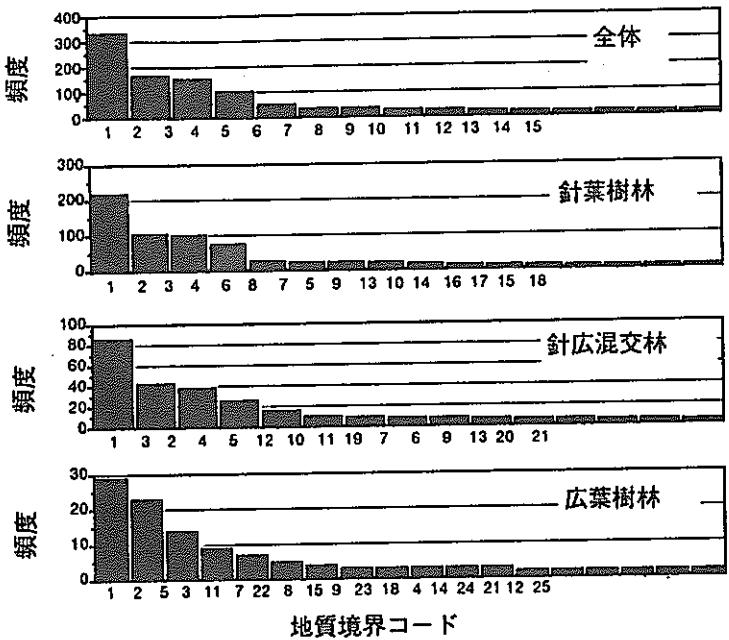
6. 結言

地球物理学的調査技術の開発については、物理探査手法を用いた地表から地下深部までの調査技術の適用試験を行った。地下水と岩石の相互反応メカニズムの推定については、東濃地域の岩石試料を用いてバッチ式水-岩石反応試験を行い、堆積岩中の地下水の水質形成メカニズムを明らかにした。核種の挙動と地質環境の安定性の解明については、東濃ウラン鉱床を対象としたナチュラル・アナログ研究や岩石試料を用いた収着・拡散試験などを行い、地質環境の安定性や地質環境中での放射性核種の挙動について明らかにした。岩石の変形・破壊特性および透水特性の把握については、花崗岩と砂岩の標準的な岩石試料について室内試験を行い、岩石の熱特性や変形特性および破壊後挙動を明らかにした。地質環境データベースの開発については、地図データ管理システムのシステム環境の整備および日本の地質環境に関するデータの蓄積を行った。

今後は、様々な調査手法により、地下深部の地質環境に関するデータを収集し、地質環境データベースシステムの拡張・整備を行う。また、地質環境の適性を評価する際の適切な調査技術・解析手法を確立を目指す。

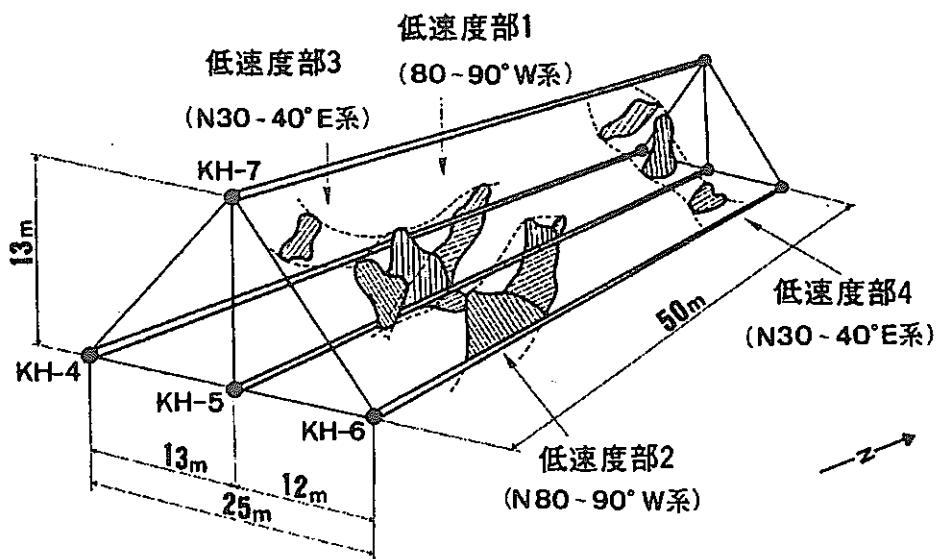
[主要レポート]

- (1)小出, 柳澤: リモートセンシングによる広域の水文特性の把握 (I) - SPOT衛星データによる林相区分-, 日本原子力学会中部支部第25回研究発表会 (1993)
- (2)小出, 柳澤: 植生を指標とした地下水流出域の抽出. 日本写真測量学会秋期学術講演会 (1994)
- (3)仙波ほか: ボアホールレーダーによる花崗岩岩盤特性調査-釜石原位置試験場における調査結果について. 応用地質32巻 6号 (1992)
- (4)長谷川, 仙波, 杉原: 弹性波を用いた岩盤特性調査法の開発-断層のある堆積岩盤への弾性波トモグラフィの適用とモデル解析-. 日本原子力学会中部支部第24回研究発表会 (1992)
- (5)藪内, 長谷川: 比抵抗トモグラフィの逆解析手法の検討-坑道壁面から掘削した試錐孔を利用する場合-. 日本原子力学会中部支部第26回研究発表会 (1994)
- (6)藪内, 長谷川: 比抵抗トモグラフィによる坑道周辺の比抵抗分布の解析手法について (その1). 物理探査学会第92回学術講演会 (1995)
- (7)尾方ほか: 堆積岩の地質学的特性および透水係数, 見かけ比抵抗相互の関係とその水理地質構造モデル化への適用. 応用地質32巻 6号 (1992)
- (8)Kiguchi et al. : Detection of Permeable Fracture in Granitic Rock by Hydrophone VSP -Case Study for the Granitic Rock, Gifu Prefecture, Japan. Proc. 3rd SEGJ/SEG Int. Symp. Geotom. -Fracture Imaging- (1995)
- (9)佐藤, 小坂, 小室: 花崗岩類の地下水経路における鉱物-水反応の実験的評価. 第2回環境地質学シンポジウム論文集 (1992)
- (10)木山ほか: 岩石の力学特性に及ぼす温度の影響. 土木学会第50回年次大会 (1995)
- (11)喜多ほか: クラスⅡ岩石の破壊後をふくむ透水係数変化. 資源・素材学会平成7年度春季大会講演予稿集 (1995)
- (12)楠田: 三軸圧縮試験によって形成されるクラックの可視化と評価. 資源・素材学会平成7年度春季大会講演予稿集 (1995)
- (13)Kiyama et al. : Permeability in anisotropic granite under hydrostatic compression and triaxial compression. 2nd North American Rock Mechanics Symp. (1996)



地質境界	地質（地層）名	コード	地質（地層）名
上一下			
1	土岐砂礫層／土岐花崗岩	1 4	明世累層中部／土岐花崗岩
2	土岐砂礫層／生侵累層	1 5	低位段丘堆積層／土岐夾炭
3	土岐砂礫層／明世累層下部	1 6	土岐夾炭層／土岐花崗岩
4	石英斑岩／土岐花崗岩	1 7	明世累層下部／土岐夾炭層
5	明世累層下部／土岐花崗岩	1 8	明世累層中部／明世累層下部／土岐花崗岩
6	明世累層中部／明世累層下部	1 9	土岐砂礫層／土岐口陶土層
7	高位段丘堆積層／明世累層中部	2 0	土岐砂礫層／明世累層下部／土岐花崗岩
8	沖積層／土岐花崗岩	2 1	低位段丘堆積層／本郷累層
9	低位段丘堆積層／明世累層下部	2 2	低位段丘堆積層／土岐夾炭層／土岐花崗岩
10	土岐砂礫層／明世累層中部	2 3	土岐砂礫層／生侵累層／土岐花崗岩
11	明世累層下部／本郷累層	2 4	低位段丘堆積層／土岐花崗岩
12	沖積層／明世累層下部	2 5	土岐砂礫層／生侵累層／明世累層下部
13	沖積層／明世累層中部		

図一 1 正植生異常部分における地質（地層）境界



図一 2 トモグラフィ解析結果から推定される低速度部
(102~105m/μ s)の3次元的連続

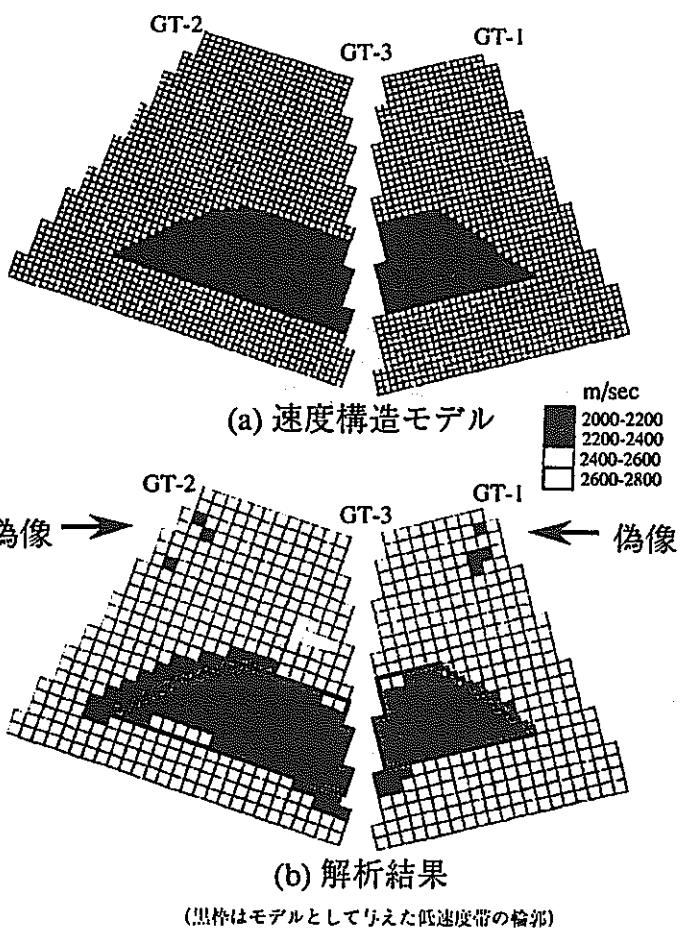


図-3 幅の広い低速度帯のモデル解析結果

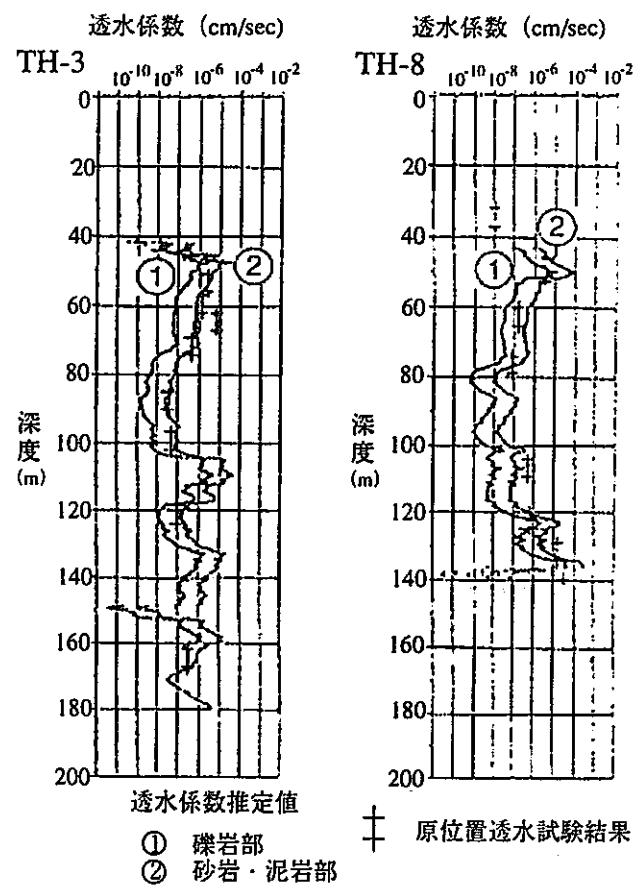


図-4 電気検層値による透水係数値の推定

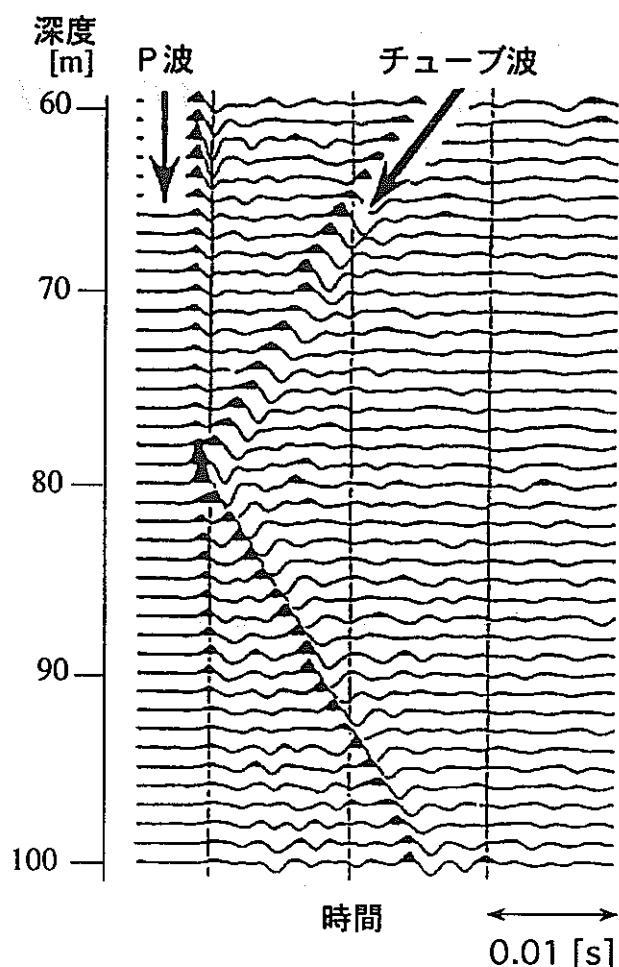


図-5 ハイドロフォンVSP記録の一例

表-1 バッチ式水-岩石反応試験で確認された固相と液相の水質型の関係

固相	液相		形成された液相の水質型		
	イオン交換水	地下水	カルシウム-炭酸水素イオン型	ナトリウム-炭酸水素イオン型	ナトリウム-硫酸イオン型
花崗岩	○		○		
スメクタイト	○				○
炭酸塩鉱物	○		○		
カオリン鉱物	○		○		
雲母鉱物	○		○		
沸石類	○		○		
花崗岩+スメクタイト	○			○	○
花崗岩+炭酸塩鉱物	○		○		
花崗岩+カオリン鉱物	○		○		
花崗岩+雲母鉱物	○		○		
花崗岩+沸石類	○			○	○
花崗岩+スメクタイト+炭酸塩鉱物	○			○	
花崗岩+スメクタイト+沸石類	○			○	
花崗岩+炭酸塩鉱物+沸石類	○		○		
花崗岩+スメクタイト+炭酸塩鉱物+沸石類	○			○	
明世累層の堆積岩	○		○		
明世累層の堆積岩		明世累層		○	
土岐夾炭累層の堆積岩	○			○	
土岐夾炭累層の堆積岩		明世累層		○	
土岐夾炭累層の堆積岩		土岐夾炭累層		○	

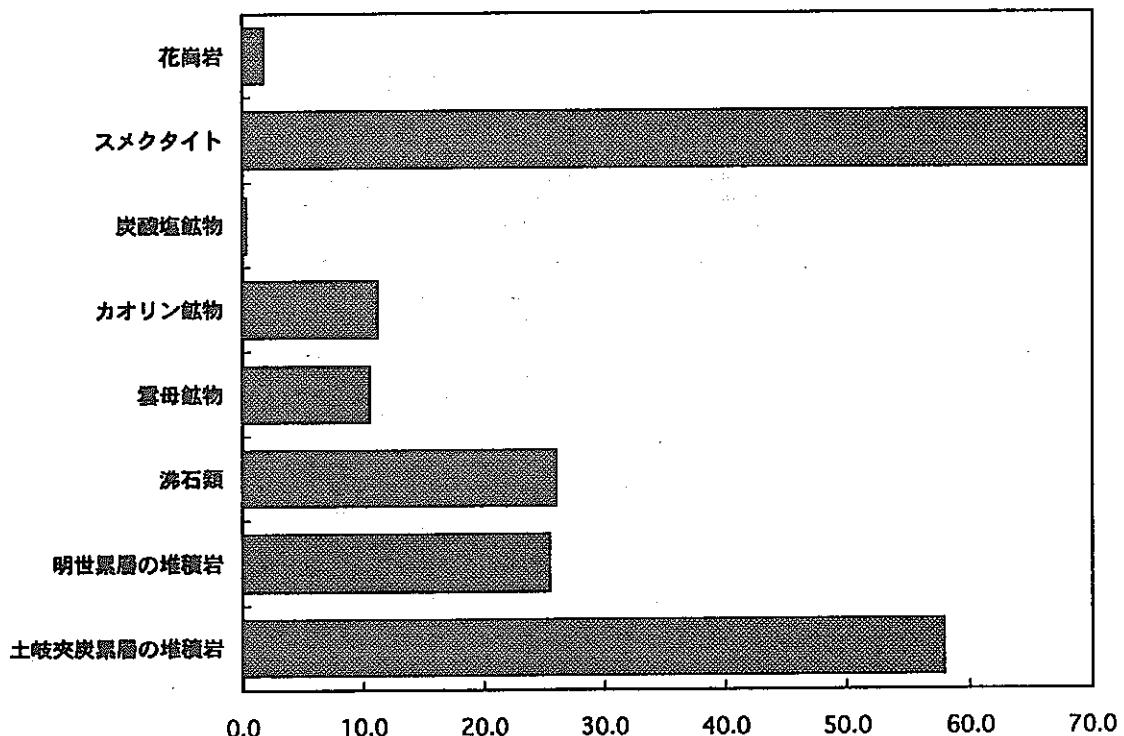


図-6 バッチ式水-岩石反応試験に用いた固相の陽イオン交換容量 (meq/100g)

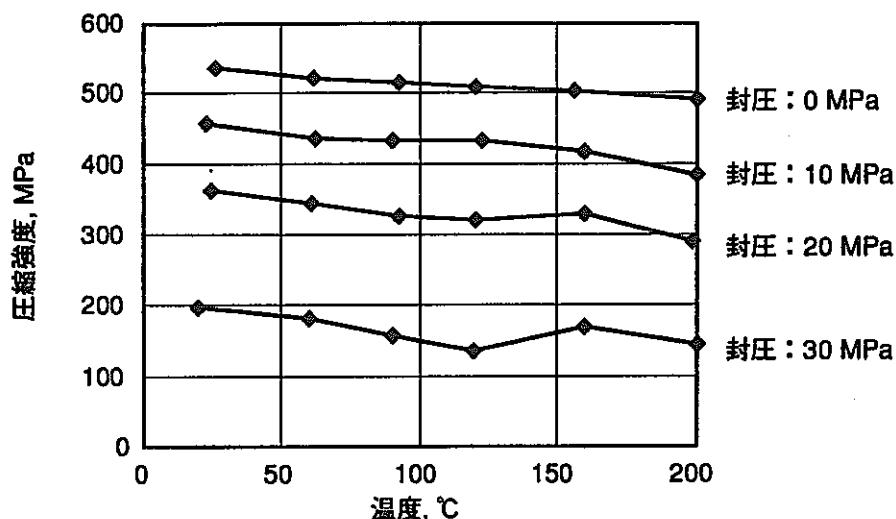


図-7 稲田花崗岩の破壊強度の温度依存性

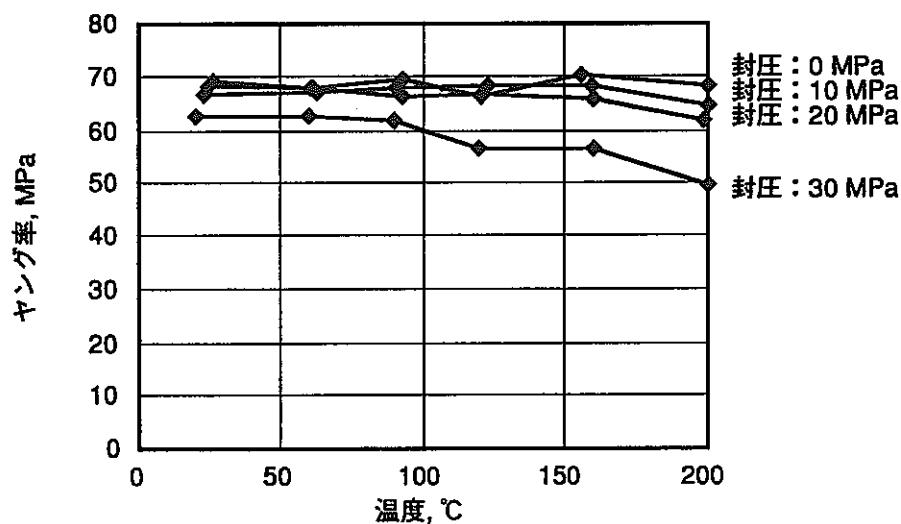


図-8 稲田花崗岩のヤング率の温度依存性

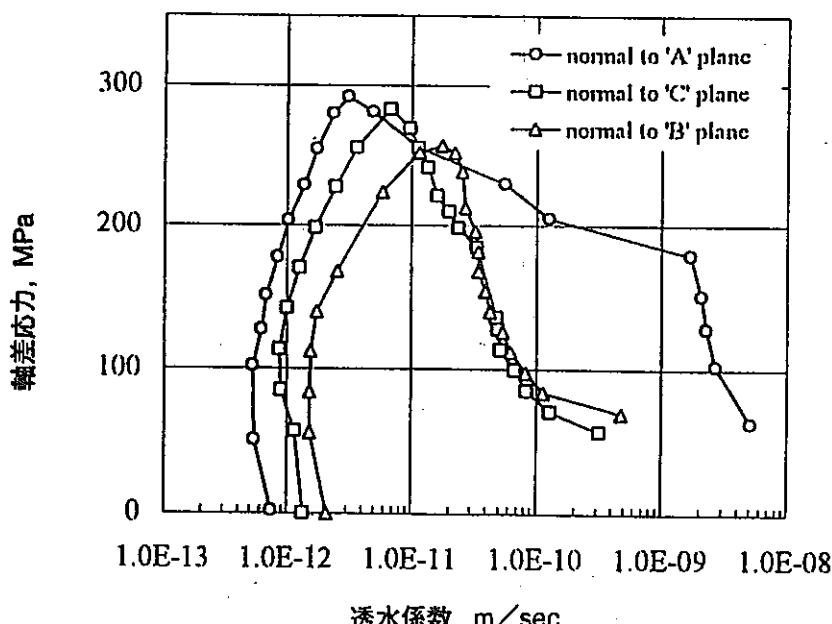


図-9 稲田花崗岩の三軸圧縮過程における軸差応力と透水係数の関係
(封圧: 10 MPa, 間隙水圧: 5 MPa)

地層処分システムの地震動特性に関する研究

平成3年度～平成7年度

東濃・地質安定性研究室 石丸恒存、天野健治
杉田裕

I. 研究の概要

地下深部における地震動特性を把握することは、地層処分システムの長期安定性、耐震システム設計・開発および人工バリアの性能評価を行う上で必要不可欠である。本研究は、地下深部の地震動特性についての一般的な情報を取得するとともに、地震動が地質環境に与える影響について明らかにすることを目的とする。

1. 地震観測およびデータセットの作成

地層科学研究の一環として、岩手県釜石鉱山において、地表および坑道内に地震計を設置し、地表部から地下深部における地震波の観測を行い、地下深部における加速度振幅データを取得・整理した。また、地下深部の地震動特性を評価するための基礎資料となるデータセットの作成・整備を実施した。これまで（平成2年2月～平成7年12月）に合計249回の地震データを蓄積した。

2. 地震動特性の一般化

釜石鉱山において取得された上記の地震データを用い、地下深部から地表部にかけての地震動特性を一般化するための解析を実施した。解析においては直下型および中／遠距離大規模地震の地震動を用いた。その結果、地下深部（深度約700～800m）における加速度振幅（南北、東西、鉛直成分）は地表部に比べ約半分から3分の1程度にとどまる傾向が認められた。本研究において取得された実測データは、地下空洞の耐震設計や処分技術の開発などに活用していく。

3. 地下水流動に対する地震動の影響の把握

釜石鉱山において、地下水の水圧観測、物理化学パラメータ（pH、電気伝導度）測定、および水質調査を行い、地震との応答関係について調査を実施した。その結果、地下水流動に対する地震の影響について、加速度振幅の大きさよりも岩盤内に蓄積したひずみの方が水圧変化の支配要因になっている可能性があることがわかった。また、地震後に特に地下水中的硫酸、炭酸水素イオン濃度が変化する例も確認された。

II. 研究成果^{(1) (2)}

1. 地震観測およびデータセットの作成

岩手県釜石鉱山において実施している地震観測では、平成2年2月より観測を開始して以来、年間20～50回の地震を記録し、平成7年12月31日までに249回の地震記録を得ている。鉱山内には地表および地下深部（坑道内）の7地点に地震計を設置したが、これらの全ての地点の地震計で同時に観測された地震は同期間に48回あった。

これまでの観測結果について、例えば、平成7年1月から平成7年12月までの1年間では、38

回の地震が観測されており、観測された地震の震央位置は、青森県から宮城県にかけての太平洋側、とくに三陸沖に集中している。地震の規模は、マグニチュード (M) < 4 の地震が16回（不明のものを8個含む）、 $M = 4 \sim 5$ が11回、 $M > 5$ が8回であった。この1年間で観測された地震のうち、マグニチュードが最大のものは平成7年1月7日に発生した岩手県北東沖地震 ($M = 7.0$) で、震央距離は121kmであった。また、加速度振幅が最大の地震は、同じく岩手県北東沖地震で、地表近くに設置した地震計で35galが観測された。一方、釜石鉱山坑道内で観測された地震動の加速度振幅はほとんどが5gal以下であった。

以上に示したような地震データ（日時、場所／震央距離、規模、観測された加速度振幅など）を整理し、地下深部の地震動特性を評価するための基礎資料となるデータセットの作成・整備を実施した。

2. 地震動特性の一般化^{(3) (4)}

地震動の地下低減特性の研究では、地表付近から鉛直方向の異なる深度において地震動がどのように異なるかを把握するために、釜石鉱山の地表部から深度約700mまでの間の標高の異なる4レベル坑道内に地震計を設置し、地震観測を実施した。この際、平面アレイ観測網として550mレベル坑道（標高550m）に一辺の長さが800m前後の三角形を形成するように地震計を3地点に配置した（図-1）。地震計を設置した地点の地質（岩種）は花崗閃緑岩、閃緑岩などである。

平成2年2月以来の地震観測では、各地震の最大加速度振幅は、地表部に比べて地下深部では $1/2 \sim 1/3$ に減衰する結果が得られた（図-2）。最も深部（250mレベル坑道）に設置した地震計K-6の最大加速度を基準とした場合、K-2（550mレベル坑道）、K-5（725mレベル坑道）およびK-1（地表部）での最大加速度振幅の増加率は、南北、鉛直成分について地震計K-2、K-5で1～2倍、地表付近のK-1で2～3倍である。また、東西成分の最大加速度は、K-1で2～4倍であり、南北、鉛直成分の最大加速度振幅より大きい観測結果が得られた。すなわち、地下深部ほど地震動は小さくなるとの一般的傾向が確認された。このような実測データは、日本国内のみならず世界的にみても貴重なものであり、地下空洞の耐震設計や処分技術の開発などを進める上で有効であると言える。

3. 地下水流動に対する地震動の影響の把握^{(5) (6)}

釜石鉱山においては1. および2. で述べてきた地震観測とあわせて、地震が地下水の流動特性・化学的特性に及ぼす影響を把握することを目的として、坑道内から掘削された試錐孔内での水圧観測や、坑道からの湧水の量とpH、電気伝導度の連続測定、地震前後の湧水の水質分析を実施した。

水圧観測は、550mレベル坑道に掘削されて試錐孔の口元に圧力センサーを設置し、平成2年2月から連続観測を開始した。KWP-1孔における平成3年11月～平成6年12月の水圧の観測結果（図-3）では、KWP-1孔の水圧はいずれも冬季（11月～2月）が低く、春季（4月～5月）に急激に上昇する傾向が認められた。年間の水圧変化量は1kg/cm²程度で、1ヶ月単位の雨量変化と良く対応している。また、さらに細かくみると、潮汐作用による太陰半日周期（M2分潮）に対応した周期的な波状の水圧変化が観測されている（図-4）。地震と水圧変化の応答に関しては、地震時にステップ状に水圧が変化する現象が観測されている。平成5年7月12日22時19分に発生した地震では、水圧が急激に上昇した後、1週間程度で本来の値（傾向）に戻ったことが確認された（図-4）。このような地震時の水圧の変化は平成6年12月までに20例観測された。これまでに観測された最大の変化幅は0.35kgf/cm²であったが、ほとんどの場合は約0.1kgf/cm²であった。

cm^2 以内の変化で、1%程度の水圧変動であった。

地震の加速度振幅と水圧変化の関係については、相関関係が認められていない。たとえば、最大加速度振幅が18gal以上で水圧が変化しない場合がある一方、2gal以下の小さな加速度振幅を生じた地震において水圧が変化したことがある。したがって、加速度振幅の大きさは必ずしも地下水の水圧変化の支配要因とはなっていないと考えられる。また、地下水の水圧変化と地震のマグニチュードおよび震源距離との関係について整理・解析した結果、水圧変化のあった地震は、Dobrovolsky et al. (1979)の提唱したモデルに基いて、震央距離とマグニチュードから求められた岩盤のひずみの理論値 (ε) が 10^{-8} を越えたレベルにあてはまる(図-5)。この結果は、水圧変化の発生が理論的な岩盤のひずみ量の大きさに依存している可能性が高いことを示している。

また、自動採水装置を製作・導入し、550mレベル坑道内のK0-10地点の湧水(地下水)を4時間毎に自動採水した。4gal以上の地震動を観測した後に採水ビンを回収し、地震前後の地下水の水質分析を行った。平成6年12月までに、10回の地震について地震前後の地下水を採取し、その水質について調査した。その結果、10回中4回の場合について、地震後に硫酸イオン濃度の一時的な低下(最大4mg/l)と炭酸水素イオン濃度の増加傾向が認められたが、他の6回の地震においては明確な変化は認められなかった。なお、湧水量およびpH、電気伝導度には現在までに地震による変化が観測されていない。

以上の結果は地下深部の地質環境、特に地下水は地震に対して緩衝性と回復性を有する可能性があることを示しており、地質環境の長期安定性という観点から見ても注目すべき現象であると考えられる。

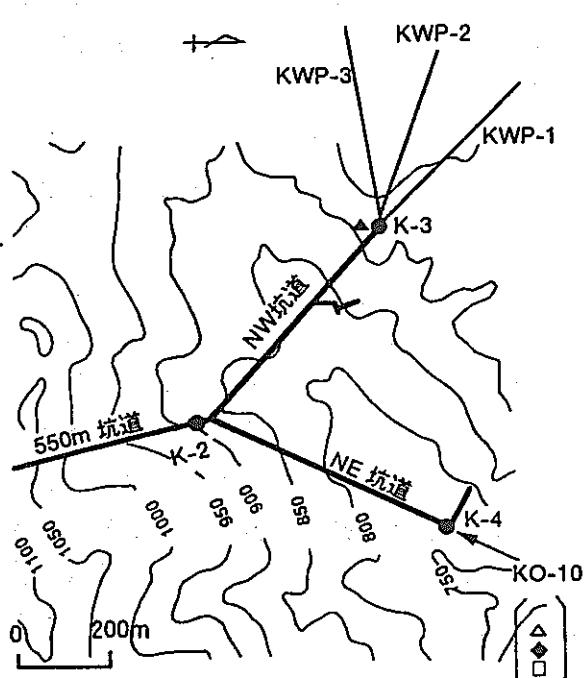
4. 結言

釜石鉱山において地表部から地下深部における地震波の観測、および地下深部の地震動特性を評価するための基礎資料となるデータセットの作成・整備を行い、地下深部の地震動特性を明らかにした。また、地下深部から地表部にかけての地震動特性に関する解析を実施し、地下深部(深度約700~800m)における加速度振幅特性の一般的傾向を把握した。さらに、地下水の水圧観測および水質調査の結果、地震に伴う地下水の水圧・水質の変化(特に地震規模と水圧変化との関連性)についての知見を得た。

今後は、花崗岩以外の岩盤についての地震動特性の把握し、地震動の地下低減特性のモデル化およびモデル解析の実施する。また、地震が地下水流动に与える変化の定量的データを蓄積し、これらの変化の特徴を評価するための手法を確立する。

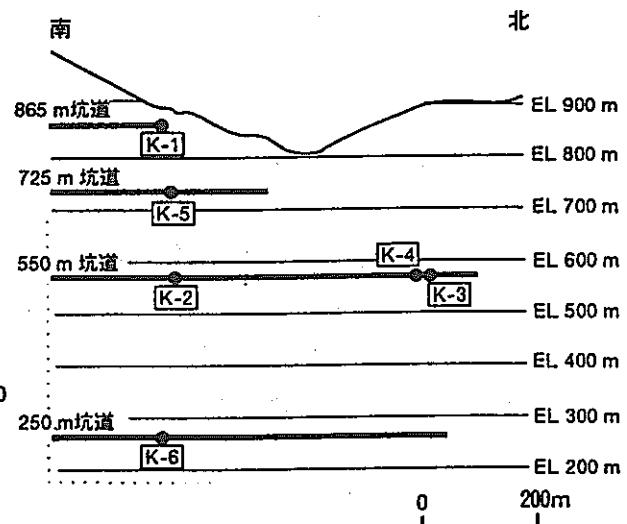
[主要レポート]

- (1)動力炉・核燃料開発事業団：地層処分研究開発の現状。PNC TN1410 94-094 (1994)
- (2)Shimizu et al. : Earthquake-related ground motion and groundwater pressure change at the Kamaishi Mine. Eng. Geol. (1996) in press
- (3)駒田：地下深部地震観測結果とその考察。日本材料学会 (1991)
- (4)駒田ほか：岩盤地下構造物の耐震性評価のための地下深部地震動特性。第13回西日本岩盤工学シンポジウム (1992)
- (5)安池ほか：地球潮汐が横坑内湧水量、電気伝導度量に与える影響について。日本水文科学会1991年度学術大会 (1991)
- (6)安池、大隅：水質データの多変量解析による地下水の混合状況の推定法。原子力発電 (1993)



(a) 標高550mの坑道レベルの平面図

凡例	
●: 地震計	▲: 水圧観測孔
□: 滲水量測定	△: 電気伝導度測定
◆: 自動採水装置	



(b) 断面図(南北方向)

図-1 地震、地下水の水理・水質観測システム位置図

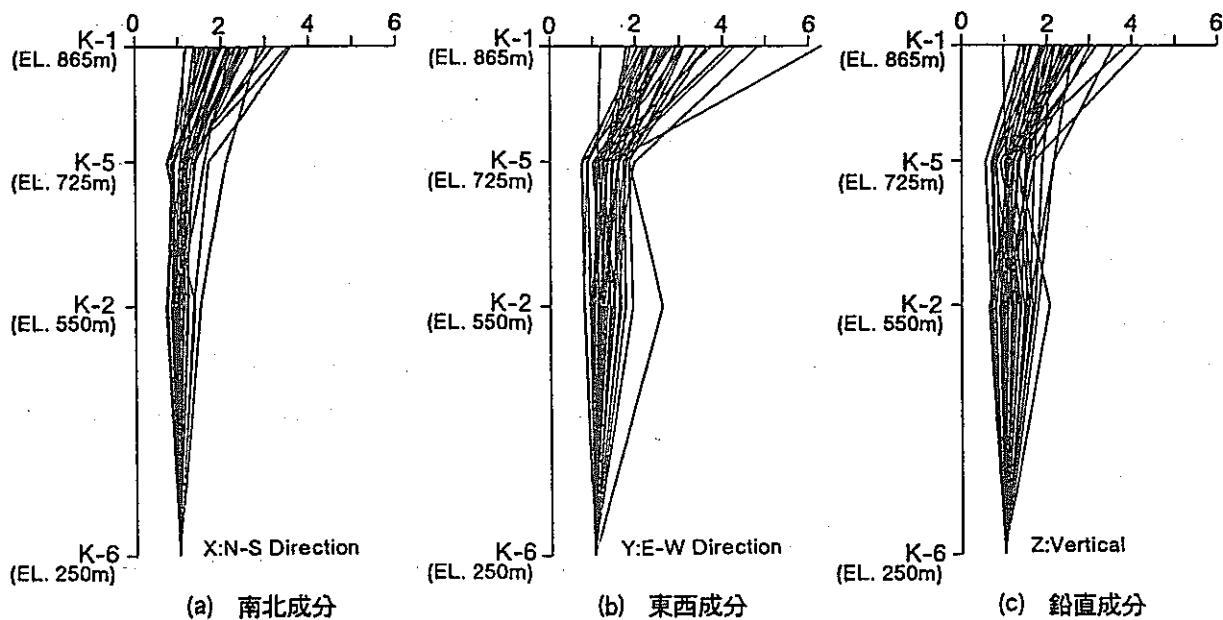


図-2 K-6点を基準とした加速度振幅の増加率
(1991年1月～1994年12月に観測された地震)

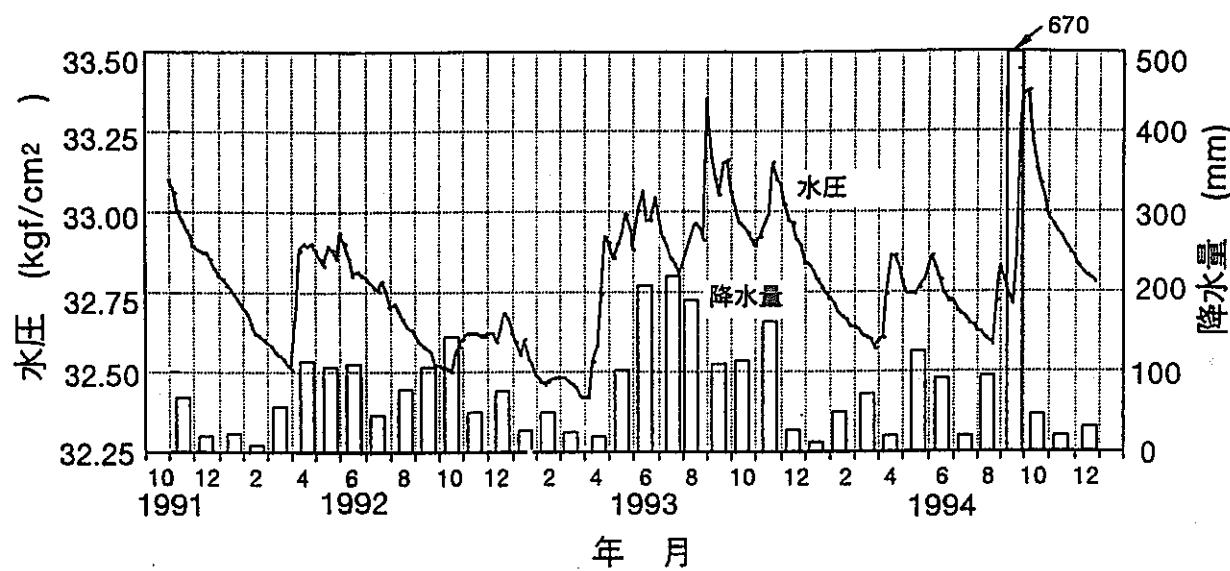


図-3 KWP-1孔の水圧の長期変化と降水量

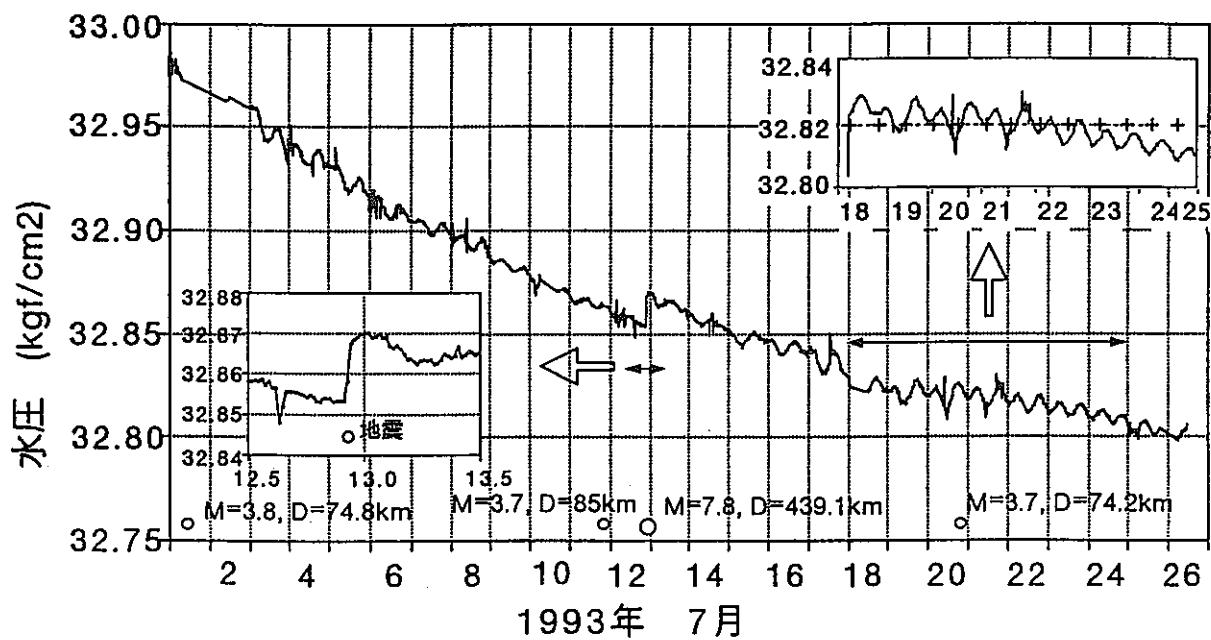


図-4 KWP-1孔の1993年7月の水圧変化

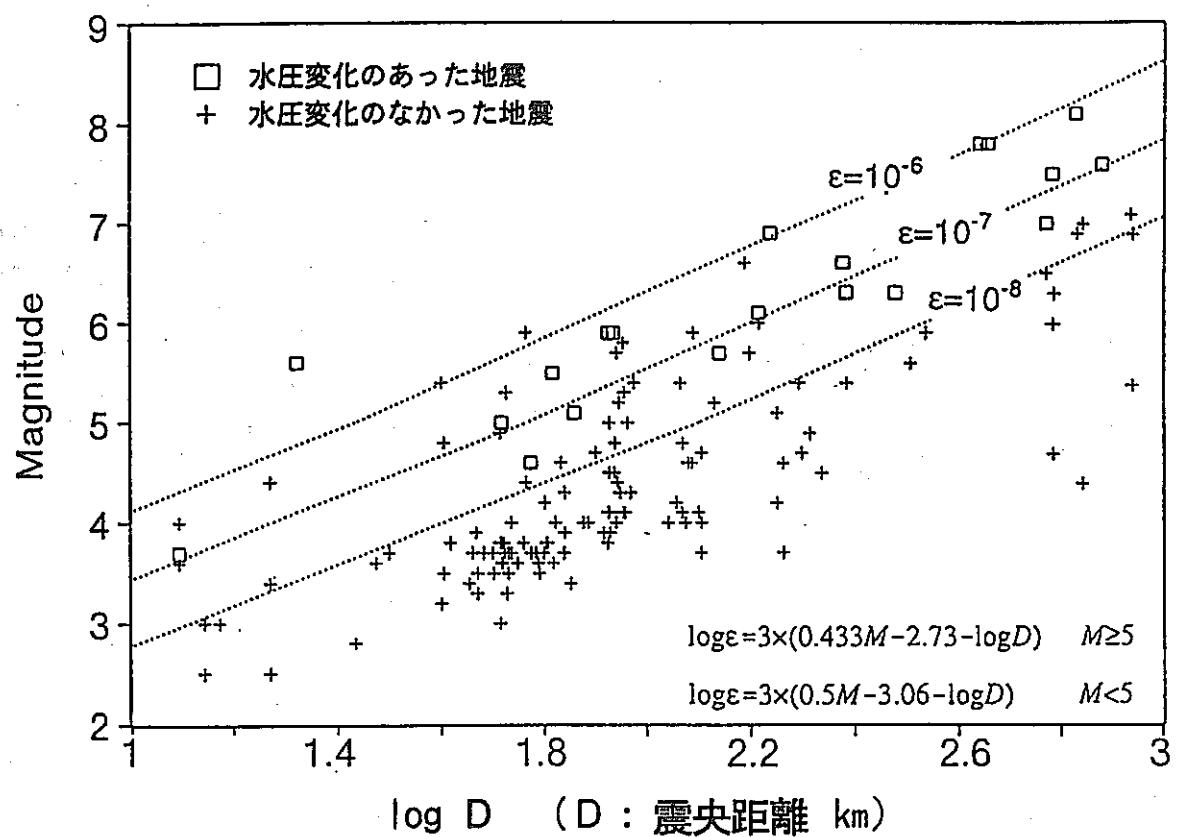


図-5 水圧変化と地殻ひずみの関係

人工バリアとその周辺岩盤との相互作用に関する研究

平成3年度～平成7年度

東濃・地質環境研究室

石島 文代、松井 裕哉

東海・環境技術開発部・地層処分開発室

藤田 朝雄

I. 研究の概要

人工バリアとその周辺岩盤との相互作用を明らかにすることは、処分場の長期的な性能評価を行う上で非常に重要である。周辺岩盤については、地層科学研究の一環として、釜石鉱山および東濃鉱山の地下坑道を利用した掘削影響に関する試験研究を実施している。また、人工バリアについては、工学規模試験設備を利用した人工バリアと周辺岩盤との連成挙動に関する試験研究を実施している。これらの試験研究の目的は、処分場の建設に起因する岩盤のゆるみ領域や、それに伴う水理地質条件の変化、人工バリア材の混入による地下水の化学的変化、廃棄物の定置による熱の影響などに関する定量的データを取得し、処分場の周辺岩盤と人工バリアとの相互作用の長期的評価に資することである。

1. 原位置試験による研究

(1) 結晶質岩における試験（釜石鉱山）

(a) 250mレベル坑道における掘削影響調査

既存坑道の周辺に安定して存在すると考えられる掘削損傷領域の範囲、およびその領域の岩盤物性を把握するため、250mレベル坑道（土被り730m）において、岩盤物性試験（孔内載荷試験、透水試験、地球物理学的調査など）や岩石コア試料を用いた力学試験などを実施し、坑道壁面からの距離と岩盤物性の変化との関係について検討した。その結果、坑道壁面から1m以内の領域で弾性波の伝播速度などの岩盤物性が変化しており、この変化は割れ目の開口やヘーアクラックの発生により生じた可能性が大きいなどの知見が得られた。

(b) 250mレベル坑道における新規坑道掘削を伴う掘削影響試験

国内外の類似の研究成果および前項(a)の掘削影響調査の結果に基づき、平成7年度より3ヶ年計画で、新規坑道掘削を伴う掘削影響試験を実施している。平成7年度は、通常発破とスムースプラスティング工法により坑道を掘削し、平成8年度に掘削する試験坑道掘削時の発破パターンの設計に必要な基礎データを取得した。また、平成8年度の試験坑道掘削時に使用する予定の測定機器を用いた予備計測を行い、取得したデータに基づき、各試験に用いた機器の仕様や測定レイアウトの有効性を検討した。

(2) 堆積岩における試験（東濃鉱山）

(a) 立坑掘削影響試験

平成元年度から行っている立坑掘削影響試験では、平成3年7月に立坑の掘削を終了し、掘削中および掘削後における坑道周辺岩盤の岩盤物性の変化の計測や立坑周辺の応力測定などを実施し、その計測・測定結果と坑道掘削前に取得したデータとを比較することにより、坑道掘削が岩盤に及ぼす影響について評価した。その結果、立坑から約1mの範囲で岩盤物性

(変形係数、透水係数など)が変化していること、立坑掘削に伴うひずみ変化が数値解析で評価できることなどの知見が得られた。

(b) 機械掘削影響評価試験

ゆるみ領域(坑道周辺岩盤において、坑道掘削によりその特性が変化する領域)の範囲や特性の工法依存性を評価するために、平成7年度に機械(ロードヘッダ)による水平坑道の掘削を実施し、掘削中の周辺岩盤のひずみ・振動・変位などの変化を計測した。なお、平成5～6年度は坑道掘削前の岩盤物性や初期応力状態などの計測と予測解析を行った。

2. 工学規模試験による研究

人工バリアシステムの工学規模試験体として、緩衝材大型試験設備BIG-BEN(Big Bentonite Facility)および熱-水-応力連成試験設備COUPLE(Laboratory-scale test on coupled thermo-hydro-mechanical processes in near field)を製作し、処分環境を模擬した熱・水・力学の連成系による試験を実施して、緩衝材とその周辺岩盤の温度・水分・応力変化などを把握した。また、熱-水-応力連成解析コードTHAMBSを開発し、解析結果と試験結果の比較を行った。

II. 研究成果

1. 原位置試験による研究

(1) 結晶質岩における試験(釜石鉱山)

(a) 250mレベル坑道における掘削影響調査

本調査は、釜石鉱山250mレベル坑道の周辺岩盤を対象として、ゆるみ領域の範囲とその岩盤物性の把握、および既存の調査手法の有効性を確認する目的で実施した。実施項目は、調査用試錐孔の掘削および孔内壁面観察、岩石コア試料を用いた室内試験(物理試験、力学試験、弾性波伝播速度測定)、地球物理学的調査(PS検層、弾性波屈折法、レーダー反射法、レーダートモグラフィ)、ゆるみ領域透水試験装置を用いた透水試験、孔内載荷試験、応力測定である。

PS検層および弾性波屈折法による調査の結果、坑道壁面から1mの範囲内には、1m以深に比べ弾性波伝播速度が最大で50%程度低下した領域が認められた(図-1)。また、孔内壁面観察の結果から、坑道壁面から1mの範囲内に開口幅数mmの割れ目や開口幅1mm以下のヘーアクラックが集中する部分が存在することが確認された(図-2)。一方、岩石コア試料を用いた室内試験においては、坑道壁面からの弾性波伝播速度や岩盤物性の深度変化は認められなかった(図-3)。

以上の結果から、坑道壁面から約1mの範囲内には開口した割れ目やヘーアクラックが集中的に発生し、それらの発生によって弾性波伝播速度が低下した可能性が大きいと考えられる。岩石コア試料を用いた室内試験で弾性波伝播速度や岩盤物性の変化が認められなかつたのは、割れ目の無いマトリックス部から試料を採取したためと考えられる。また、孔内載荷試験より得られた岩盤の変形係数も坑道壁面から約1mの範囲で低下しており、前述の低速度帶の範囲とほぼ一致する結果が得られた。

(b) 250mレベル坑道における新規坑道掘削を伴う掘削影響試験

本試験は3ヶ年計画として策定されており、平成7年度は、その初年度として、計測坑道の掘削、調査用試錐孔の掘削と孔内壁面観察、予備計測、および予測解析を実施した。

計測坑道の掘削では、平成8年度に実施予定の試験坑道掘削に使用する2種類の掘削工法

(全断面の通常発破およびスムースプラスティング) を試行した。

孔内壁面観察では、各試錐孔において連続性のある割れ目が確認され、それらは計測坑道にはほぼ平行であることが明らかになった。

予備計測では、今回初めて実施する調査手法 (AE測定、振動測定、Pac-exによる測定)について、平成8年度の試験坑道掘削時に使用する場合の調査仕様 (調査数量、試験条件など) の決定や調査機器の精度の確認を目的として実施した。

AB(Acoustic Emission) 測定は、岩盤中の破壊音の分布から、破壊領域の範囲を推定する手法である。今回の測定では、AE発生位置の2次元位置評定を試み、AE発生位置が坑道壁面から約1.4mの範囲内であるという結果を得た (図-4)。

振動測定では、通常土木工学分野で用いられている3種類の振動計測装置の有効性を比較した結果、測定レンジが10,000G (G:重力加速度) の加速度計が最も有効であることが確認された。

Pac-ex(Packer-extensometer) と呼ばれる計測装置は、AECL(カナダ)が開発したものであり、同一地点の割れ目や割れ目帯の間隙水圧の変化と、その割れ目の変位を同時に測定することが可能である。この装置の耐衝撃性や精度を把握するため、計測坑道壁面から2m離れた位置にある単一割れ目を対象とし、計測坑道掘削前後の透水試験および坑道掘削中の割れ目の開口幅や間隙水圧の変化の計測を実施した。その結果、Pac-exが坑道掘削に伴う割れ目の開口幅の変化を0.01mm以下の精度で計測でき、また、間隙水圧の変化をモニタリングできることが確認された (図-5)。

予測解析では、結晶質岩を対象とした岩盤のモデル化手法の適用性を検討するため、FEM解析モデル (岩盤を連続体として扱ったモデル) とDEM解析モデル (割れ目情報を取り込んだモデル) の2種類のモデルを用い、試験坑道掘削時の周辺岩盤の変形挙動の予測を行った。その結果、①坑道掘削時の周辺岩盤の変位分布に有為な差は認められること、②坑道周辺岩盤の応力状態はFEM解析モデルとDEM解析モデルで異なり、特にDEMモデルでは不連続な応力分布状態が生じること、などがわかった。両モデルの妥当性については、試験坑道掘削時に得られる実測値と比較して判断する予定である。

(2) 堆積岩における試験 (東濃鉱山)

(a) 立坑掘削影響試験⁽⁸⁾⁽⁷⁾⁽⁸⁾

本試験では、平成元年度から平成3年度にかけて、深度150mの立坑 (第2立坑) を掘削した。掘削の前後には、第2立坑の周辺岩盤において、変形挙動調査 (覆工応力、岩盤内変位、内空変位など) および力学的・水理学的变化調査 (孔内載荷試験、透水試験、弾性波トモグラフィなど) を実施し、立坑掘削に伴う岩盤物性の変化や、その範囲を評価した。坑道掘削前後に実施した孔内載荷試験および透水試験の結果を図-6、7に示す。立坑壁面から約1mの範囲内で、岩盤の変形性や透水性が変化しており、また、立坑掘削中のひずみ変化の連続測定の結果、半径方向のひずみは引張側に、接線方向のひずみは圧縮側に変化すること、さらにこのような変化が数値解析で表現できることが明らかになった (図-8)。

(b) 機械掘削影響評価試験

本試験では、平成5~6年度に事前調査および事前解析を行い、平成7年度に機械 (ロードヘッダ) による坑道の掘削と、掘削中および掘削直後の岩盤特性の計測を実施した。試験のレイアウトを図-9に示す。平成8~9年度には、掘削後の調査および事後解析を実施し、

機械掘削によって生じるゆるみ領域の変形性や透水性などの岩盤特性やその範囲を把握し、発破掘削の場合と比較することにより、ゆるみ領域の発生に関する工法依存性を評価する予定である。

坑道掘削前の調査では、力学試験、孔内載荷試験、透水試験、弾性波トモグラフィ、比抵抗トモグラフィ、および初期応力測定を行い、坑道掘削前の岩盤物性や初期応力状態を把握した。

坑道掘削中の調査では、坑道周辺岩盤の変位、ひずみ変化、振動などを測定した。変位測定では、内空変位および岩盤内変位を測定し、発破掘削の場合と比較した。その結果、内空変位・岩盤内変位とも発破掘削よりも機械掘削の場合の方が変位量が小さいことが明らかになった。また、振動計測では、発破掘削と機械掘削のそれぞれの場合において、3方向（坑道軸方向、鉛直方向、坑道半径方向）の坑道周辺岩盤の振動加速度を計測した。その結果、発破掘削時の最大加速度が約6,000Gであるのに対し、機械掘削時の最大加速度は約2.5Gと3オーダー小さくなることが分かった。さらに、最大加速度と振動の測定位置との関係を両対数グラフ上に示すと、振源との距離が離れるにつれて、最大加速度がほぼ直線的に減少する傾向が認められた⁽¹¹⁾（図-10、11）。これにより、既存の研究より言われている振動加速度と振源からの距離とのこのような関係が、坑壁のごく近傍においても同様に成り立つことが明らかになった。

2. 工学規模試験による研究

（1）工学規模試験

緩衝材大型試験設備BIG-BENにおいて、ヒーターを加熱する試験⁽¹²⁾と、ヒーターを加熱するとともに緩衝材に水を注入する試験（以後加熱・注水試験と呼ぶ）⁽¹³⁾を実施し、加熱に伴うオーバーパック、緩衝材、人工岩盤の温度変化と緩衝材中の水分変化に関するデータ、および加熱に伴う温度と緩衝材中の水分、応力変化に関するデータが得られた（図-12、13）。その結果、加熱に伴い緩衝材中の水分が高温部から低温部へ移動すること、および浸潤に伴い緩衝材が膨潤応力を発生することが確認された。また、試験後5ヶ月後と1年半後にボーリングによる緩衝材のサンプリングを行い、含水比を計測し、人工岩盤に近い部分以外での含水比分布の差は小さいとの結果を得た（図-14）。一方、熱-水-応力連成試験設備COUPLE⁽¹⁴⁾において、堆積岩体中にベントナイト及びヒーターを埋設し、ベントナイト中への水の浸潤挙動および応力変化に関するデータを取得した（図-15）。その結果、周辺部からベントナイト中に水が徐々に浸入し、今回のようなサイズ（岩石とベントナイトの境界からヒーターまでの厚さが8.5cm）のベントナイトの場合、約100日後にはヒーターの中心付近まで水が到達することが明らかになった。

（2）挙動予測コードの開発

岩盤中の熱、水分の移動や応力状況などの各挙動を連立させて一度に解を得ることが可能な熱-水-応力連成解析コードTHAMESを開発し、緩衝材大型試験設備BIG-BENにおける加熱・注水試験でのヒーター、オーバーパック、緩衝材、人工岩盤の温度および応力分布や緩衝材中の水分分布結果との比較を行った。THAMESは地下水の質量保存則に基づく連続の式とエネルギー保存則と力の釣り合い式を連立させて、温度、ポテンシャル、ひずみを与えるコードであり、このコードに緩衝材の浸潤に伴う膨潤圧の発生、温度勾配下における水分移動および水蒸気と液状水の移動を取り扱えるような改良を加えた。THAMESを用いて加熱・注水試験に対する予測

解析を行った結果、加熱・注水後5ヶ月後の緩衝材中の水分分布に関する解析結果は、試験結果とよく一致することが確認され、THAMESコードの有効性が示された（図-16）⁽¹⁵⁾。

3. 結言

釜石鉱山および東濃鉱山において掘削影響試験を実施し、掘削影響領域の岩盤物性と範囲や、掘削損傷や応力再配分などの掘削影響に関連した事象に関する知見が蓄積された。工学規模試験による研究では、加熱に伴うオーバーパック、緩衝材、人工岩盤の温度変化や水分変化に関するデータが取得されるとともに、熱-水-応力連成解析コードの有効性が確認された。

今後は、掘削影響試験では、掘削影響の工法依存性を評価する研究を行うとともに、掘削影響に関する事象と岩盤物性の変化との関係を評価する。一方、工学規模試験による研究では、岩盤および緩衝材の熱-水-応力連成挙動に関する定量的データを蓄積するとともに、同挙動に関するモデル解析を実施し、最終的には原位置試験結果と併せ、人工バリアと周辺岩盤の総合的なモデル化手法を開発する予定である。

[主要レポート]

- (1)福田、野口、穂刈：花崗岩盤における巨視的透水係数の評価。土木学会第24回岩盤力学に関するシンポジウム論文集（1992）
- (2)Takeda : Current status and future program of in-situ experiments of Kamaishi. Int. Symp. on In-situ Experiments at Kamaishi (1993)
- (3)松井、佐藤、杉原：弾性波を利用した既存坑道周りの掘削影響評価。第27回岩盤力学に関するシンポジウム論文集（1995）
- (4)松井：クラックテンソル理論を用いた掘削損傷のモデル化に関する研究。日本原子力学会1995年秋の大会（1995）
- (5)吉岡ほか：立坑掘削に伴う応力再配分の計測とその数値解析。土木学会第24回岩盤力学に関するシンポジウム論文集（1992）
- (6)杉原：立坑掘削影響試験。日本原子力学会第7回廃棄物セミナー資料集（1991）
- (7)立坑掘削影響試験ワークショップ-発表論文集-, PNC TN7410 92-052 (1992)
- (8)Kamemura, Sugihara : In-situ tests and numerical analysis of excavation disturbed zone around a drift in Neogene sedimentary rock. Int. Symp. on Assessment and Prevention of Failure Phenomena in Rock Engineering (1993)
- (9)杉原ほか：機械による掘削影響試験の事前調査・解析-平成5年度実施分-。PNC TN7410 94-049 (1994)
- (10)Sato, Matsui, Sugihara : Geoscientific studies at the Tono mine and the Kamaishi mine in Japan. Proc. ISRM Int. Cong. Rock Mechanics Vol. 1 (1995)
- (11)平成7年度地層科学研究成果報告会-要旨集-, PNC TN7410 96-037 (1996)
- (12)藤田ほか：大型緩衝材の熱-水-応力連成試験(1)-加熱試験-。日本原子力学会1991年秋の大会予稿集（1991）
- (13)藤田ほか：大型緩衝材の熱-水-応力連成試験(2)-加熱・注水試験-。日本原子力学会1993年春の大会予稿集（1993）
- (14)茂呂、杉田、菅野：熱-水-応力連成試験設備を用いた掘削前後の載荷試験について。土木学会第26回岩盤力学に関するシンポジウム論文集（1994）

(15) 茂呂ほか：緩衝材大型試験設備（BIG-BEN）における熱－水－応力連成試験、日本原子力学会放射性廃棄物部会放射性廃棄物研究第1巻1号（1994）

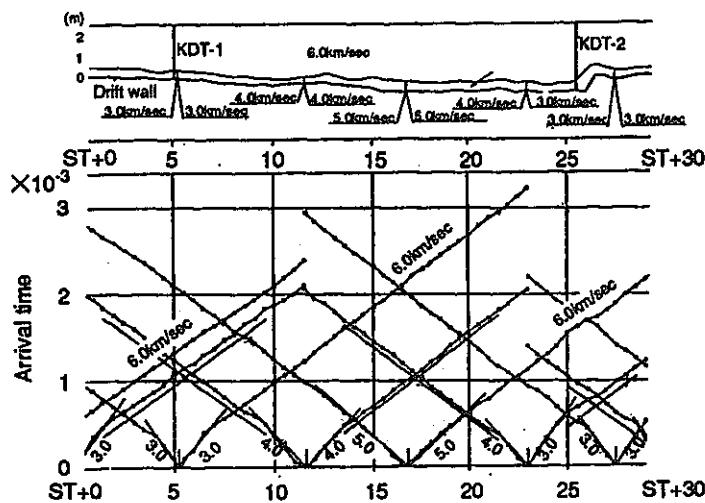


図 - 1 弾性波屈折法調査結果
(250m レベル坑道東側側壁)

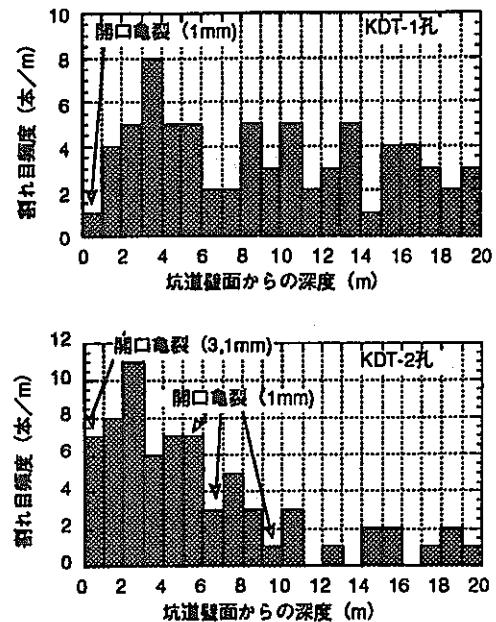


図 - 2 BTV観察結果

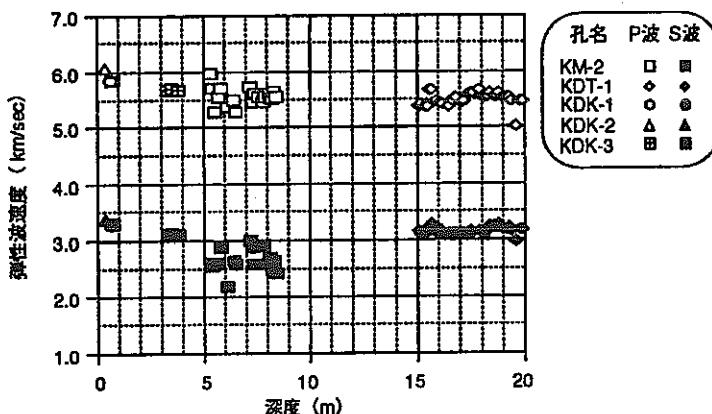


図 - 3 弾性波速度変化 (室内試験)

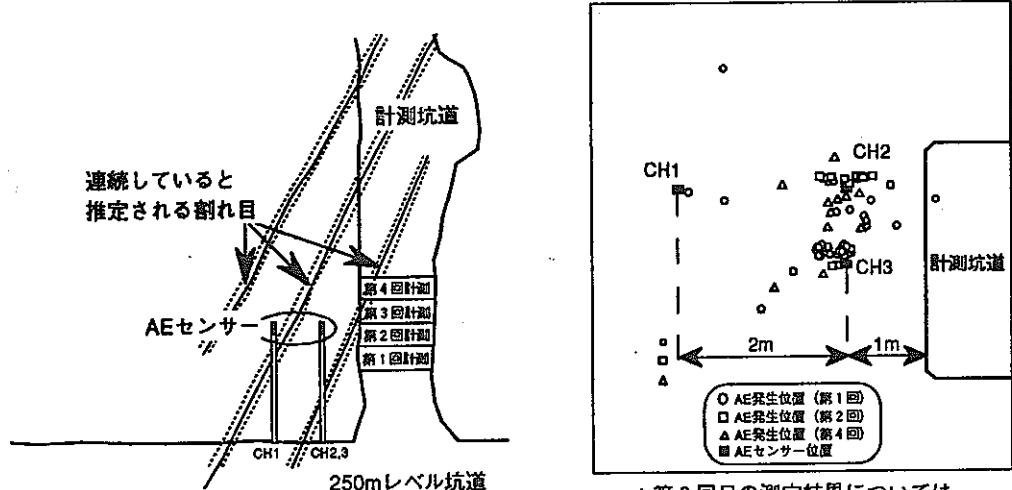


図 - 4 AE計測結果 (2次元位置評定結果)

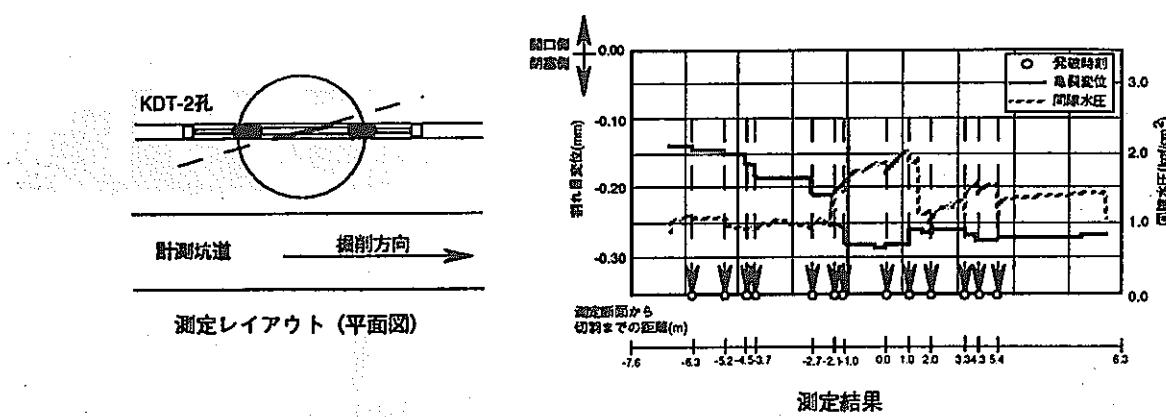


図-5 計測坑道掘削中の割れ目変位～間隙水圧変化

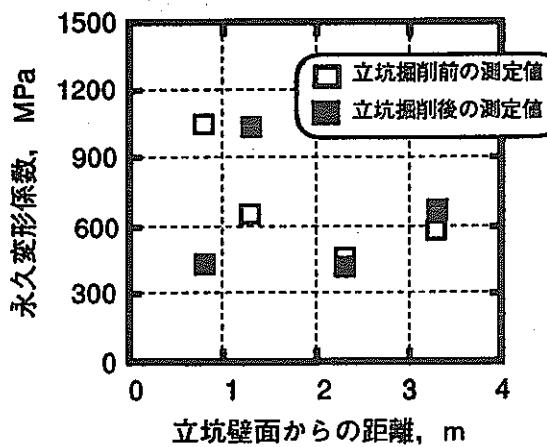


図-6 孔内載荷試験結果 (GL - 62.2m)

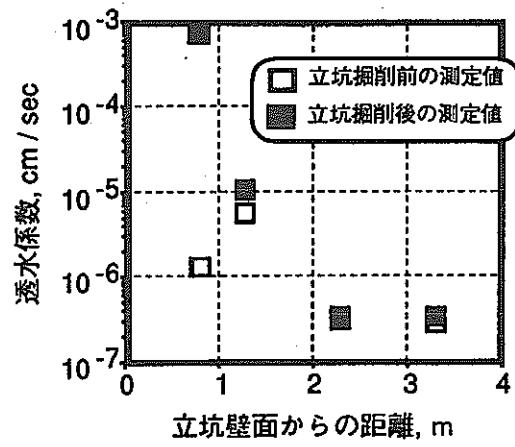


図-7 透水試験結果 (GL - 63.5~65.5m)

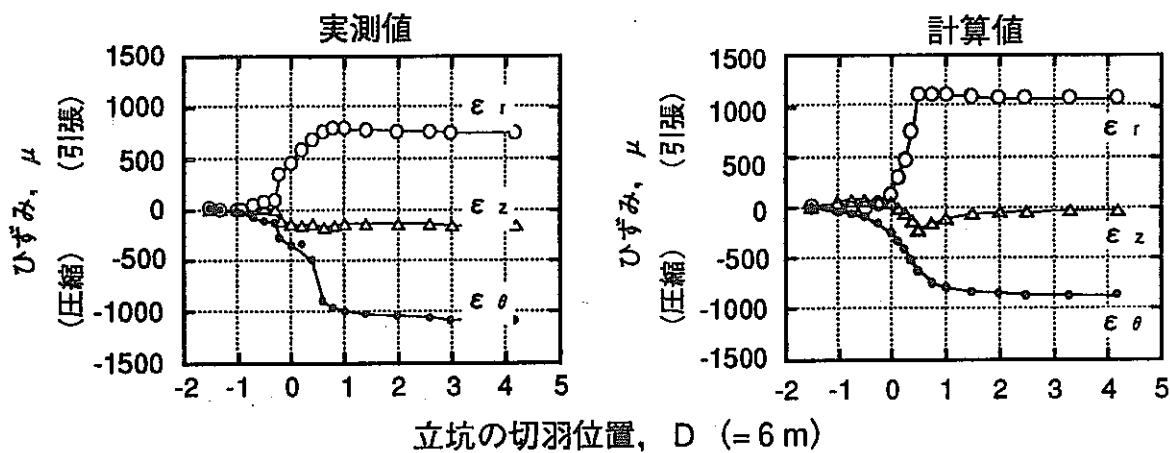


図-8 立坑掘削にともなうひずみ変化 (断層下盤側)

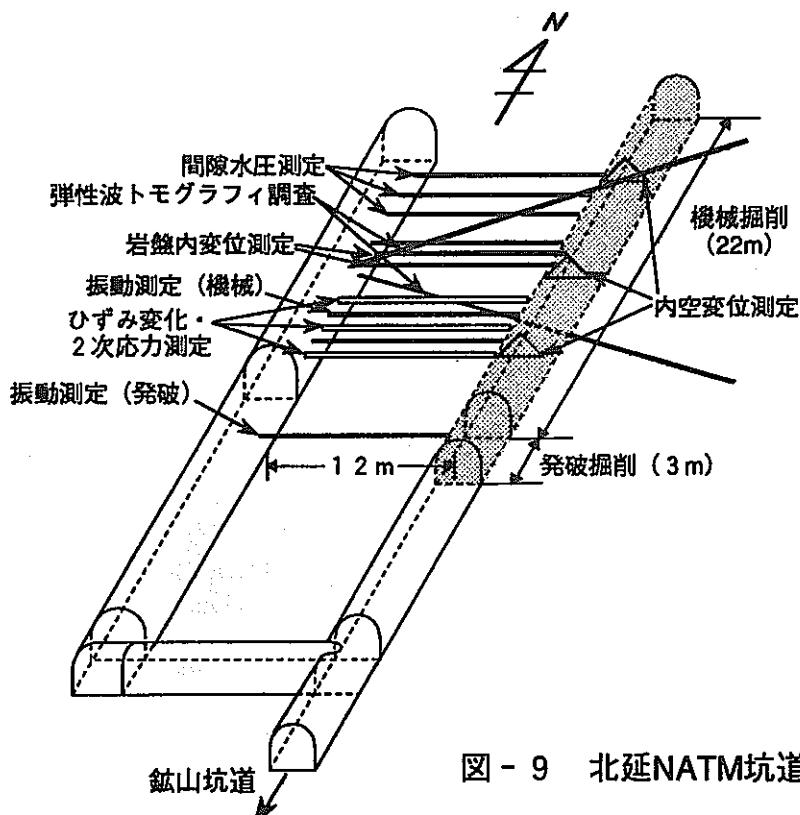


図-9 北延NATM坑道の調査位置図

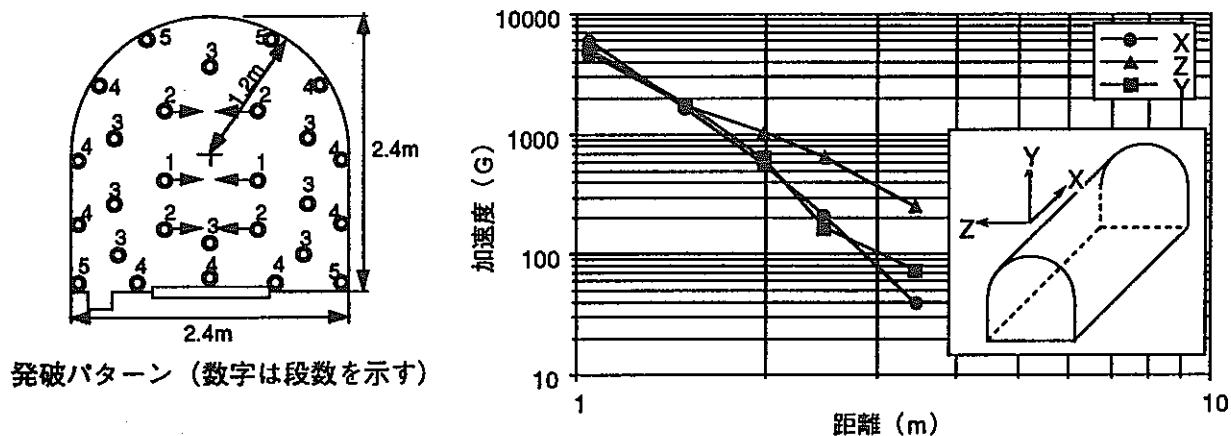


図-10 発破振動測定（第4段）加速度と距離の関係

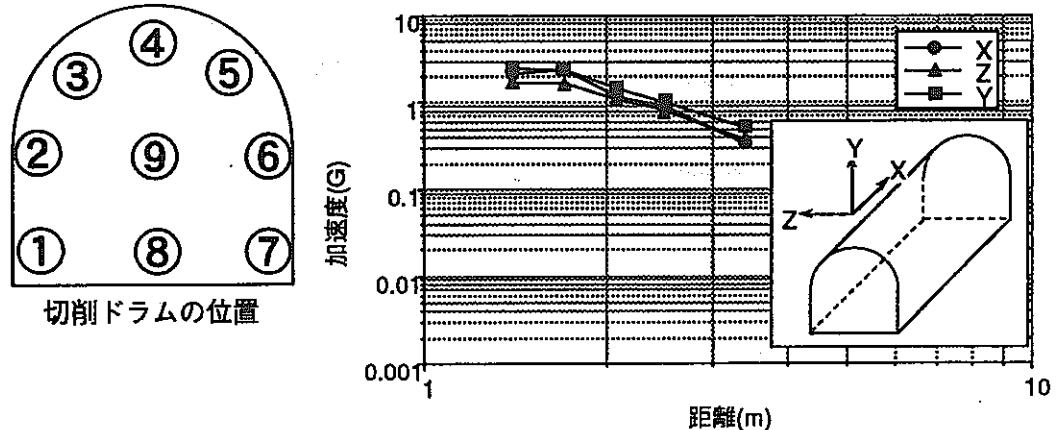


図-11 機械掘削時の岩盤振動測定（切削ドラム位置）
加速度と距離の関係

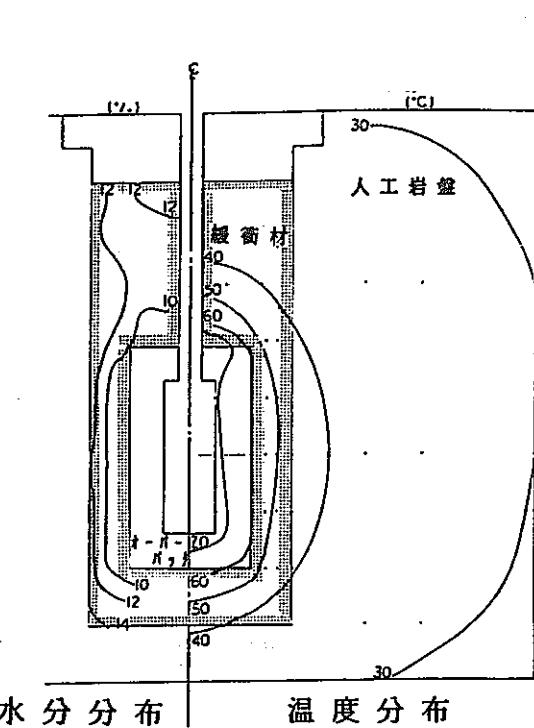


図-12 緩衝材の温度と水分（加熱試験）

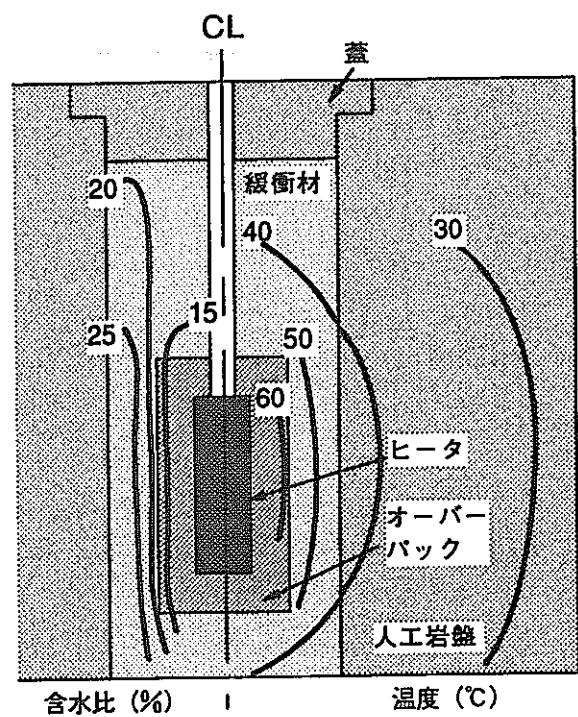


図-13 緩衝材の温度と水分（加熱・注水試験）

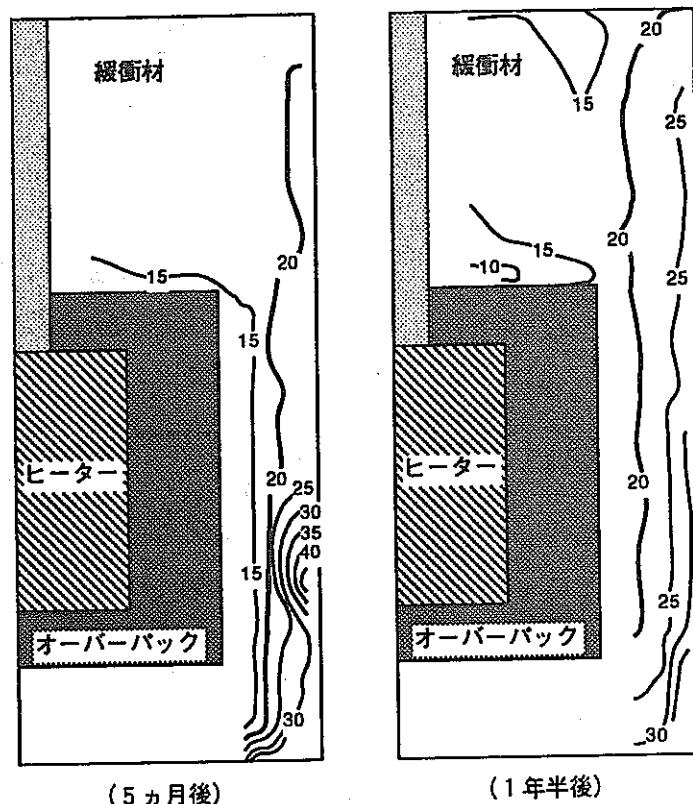


図-14 試験後の緩衝材の含水比分布

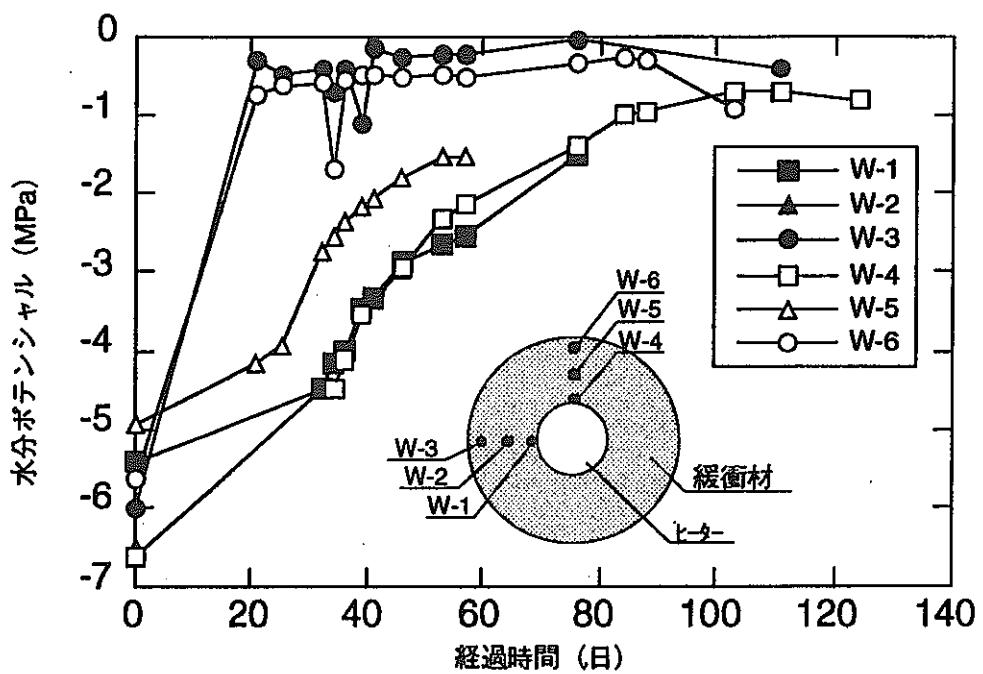


図-15 緩衝材中の水分ポテンシャルの経時変化

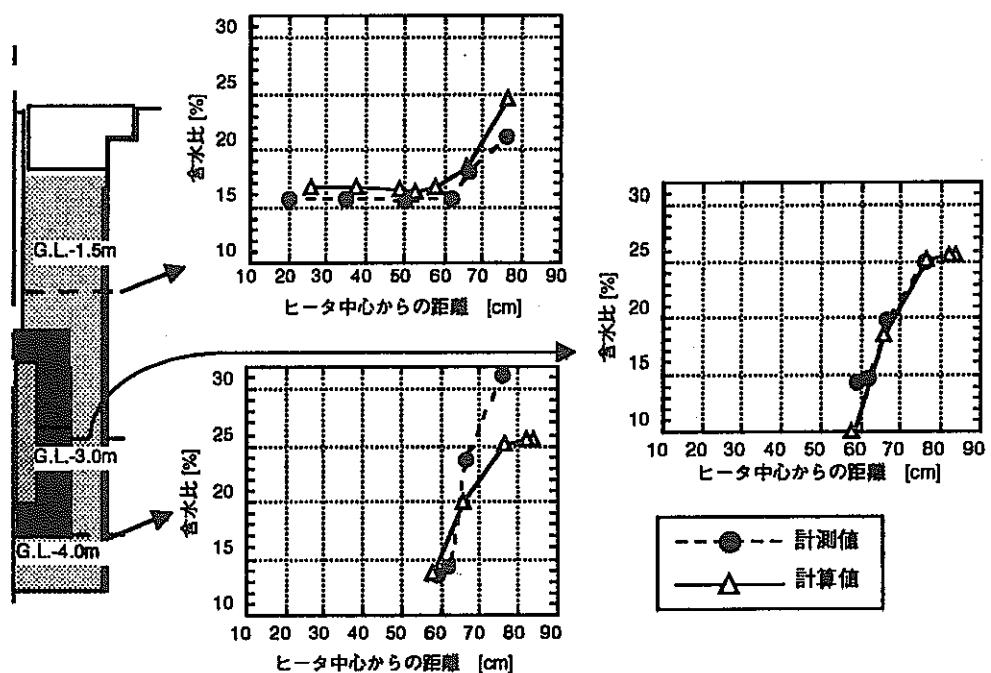


図-16 加熱・注水試験の結果と解析結果の比較（加熱・注水後 5 ヶ月）

地層処分システムの総合安全評価手法に関する研究

平成3年度～平成7年度

東海・環境技術開発部・地層処分開発室 大井貴夫

I. 研究の概要

高レベル放射性廃棄物の地層処分に伴う被ばく線量をシステムとして総合的に評価する手法を研究開発し、地層処分システムの安全性の総合的な評価に資することを目的とし、以下の研究を行った。

1. 廃棄体から人間環境に至る放射性核種の移行経路に介在する可能性のある種々の要素（人工バリア、天然バリア、一般環境・生態系等）について、統合化することを目的として個々の評価モデルを開発・整備した（評価モデルの開発・整備）。

開発したモデル・コードは、ニアフィールド総合性能評価コード「AREST-PNC」、ニアフィールドの核種移行評価コード、ニアフィールドとファーフィールドの連成解析コードで、整備したモデル・コードは、代表的生物圏モデル及び被ばく評価コードである。これらの開発・整備により、放射性核種の移行経路に介在する可能性のある種々の要素に対する一連の主要な評価モデルが整った。さらに、これら開発・整備されたコードを用いた感度解析から、放射性核種の移行に関連する現象の影響特性を把握した。

2. 上記の個別評価モデルを安全評価で対象とすべき評価シナリオ毎に連結し、処分に起因する被ばく線量を総合的に評価する計算コードとその管理システムを開発した。

（統合化システムの開発）

このシステムは、放射性核種の移行経路に介在する可能性のある種々の要素に対応する個別の評価コードをシナリオに則して結合（統合化）し、解析の簡約化、品質の向上の観点から、個々の計算に関連するデータやコードの受渡しを半自動化するとともに、データやコード及び計算の履歴を管理する機能を有するものである。このシステムの開発により、一連の解析を統合的に管理された環境下で行えるようになった。

3. 主として人工バリア及び天然バリアの評価に必要なモデルパラメータの最適値及びその分布を、国際共同研究等を含めた種々の安全評価研究の成果に基づいて収集・評価し、データベースとし構築・整備した（データベースの構築）。

2. の統合化システムの機能であるコードの結合やデータ、コード及び計算の履歴の管理はデータベースを介して行われるものである。そのため、データベースに搭載する個々のモデル・パラメータの収集・評価を進めるとともに、2. の統合化システムと共にすることを念頭に置き、デー

タベースシステムの調査・検討及び試用を実施した。この研究は、統合化システムの構築に資するのみでなく一連の解析の品質保証に資するものである。

II. 研究成果

1. 評価モデルの開発・整備

①ニアフィールド総合性能評価コード「AREST-PNC」の開発

「AREST-PNC」は地球化学反応と核種移行現象を連成させたコードである⁽¹⁾。このコードの開発により、ガラス固化体の発熱による地球化学環境の変化のみならず、オーバーパックの腐食により供給されるFeとガラスの溶解により供給されるSiとの共沈反応の影響等の処分環境中で生じうる地球化学反応と緩衝材中の物質移行との連成解析が可能になり、地球化学的環境の変化に応じた核種移行解析を行えるようになった。また、境界条件が異なる複数の核種移行モジュール（解析解コード4つと数値解コード1つ）を搭載しているため、モデルの違い（境界条件の違い）による影響の検討を容易に行えるようになった。さらに、インプットデータを確率論的に与えるインターフェース及びデータの範囲を指定することによって感度解析を自動的に行う機能を有しているため、これらの解析を容易に行えるようになった。

この開発・運用を通じて得られた知見（連成手法、感度解析及び確率論的評価手法）は、後述する他のコードの開発・改良やシステムの統合化並びに関連する他の研究に反映された。

②ニアフィールドの核種移行評価コードの開発

核種の溶解度は同位体存在比に基づいて元素の溶解度を分割することにより与えられると考えられる。この同位体存在比は、核種の崩壊・生成により、人工バリア中で時間空間的に変化する。この現象は、人工バリア中の沈殿現象と相互に関連しあい、核種移行に影響を与えるものと考えられる。そこで、これらの影響を考慮した人工バリア中の核種移行評価を行うため、1系列3連鎖の核種を対象として沈殿現象を扱う従来の評価コード「RELEASE」⁽²⁾を4系列5連鎖（計20核種）の核種の移行を同時に計算できるように改良し、複数の崩壊系列に属する同位体の移行を同時に解析できるようにした。このことにより、緩衝材中で核種が移行する際に生じると考えられる同位体存在比の時間空間変化を考慮することができるようになった。

このコードを用いた解析の結果、沈殿現象及び同位体存在比の時間空間変化に依存した崩壊連鎖上の親核種のパラメータの変動による娘核種の移行挙動への影響が明らかになり、人工バリア中の核種移行現象を現実的に評価するためには、沈殿現象並びに同位体存在比の時間空間変化を考慮する必要があることが示された^{(3), (4), (5), (6)}。図-1に沈殿現象及び同位体存在比のU-233の放出率への影響を示す。

また、これらの知見を反映させ、上記機能を有するとともに、現実性、計算精度及び解析の容易性の観点から、以下の機能を加えたニアフィールドの核種移行評価コード「MESHNO-T E」を開発した。

- ・ガラス固化体からの核種の溶出をガラスの溶解と一致させて解くことができる機能
- ・崩壊系列の枝分かれ及び入力パラメータの時間空間変化を考慮できる機能
- ・最適差分メッシュの自動設定機能

このコードを用いたガラス固化体の溶解及びそれに伴う緩衝材中の核種移行に関する感度解析から、ガラスの溶解に関連するパラメータ（ガラスの表面積、初期の溶解速度等）のガラスの溶解挙動または緩衝材中の核種移行挙動に対する影響特性が示された⁽¹⁾。

これらのコードの開発改良により、ニアフィールド内で生じると考えられる現象を詳細に取り込んだ核種移行解析を精度よく行えるようになった。

③ニアフィールドとファーフィールドの連成解析コードの開発

人工バリアとその周辺岩盤からなる領域の核種移行は、境界条件の設定の困難さから、保守的と考えられる仮定に基づき別々にモデル化され、評価されてきた。しかし、より現実的な評価を行うためにはこれらの領域を連続して扱う必要があると考えられる。ここでは、ニアフィールドの核種移行コードとファーフィールドの核種移行コードを連成し、その境界の地質媒体特性を取り込み、さらに、複数の固化体の相互作用による核種移行への影響を評価することができる連成解析コードの開発を行った。開発においては、②での研究成果を反映させ、人工バリア中の核種移行の詳細化及び計算速度の向上のための改良を逐次行った。これらの開発・改良により、人工バリア中とニアフィールド岩体中の核種移行の相互作用の影響特性並びに共存する廃棄体の影響特性が示された⁽²⁾。図-2に人工バリアとニアフィールド岩体中の核種移行の相互作用の影響を示す。

④代表的生物圏モデル及び被ばく評価コードの開発

生物圏評価に係わるモデルの妥当性を検証することを目的とした国際的ワークショップ、B IOMOVS IIの活動を参考にして、わが国の代表的生物圏モデルを構築するとともに、このモデルに基づき被ばく評価を行う解析コードAMBERを整備した。代表的生物圏モデルは、生物圏において起こる複雑な現象を網羅性を考慮して代表的に表したモデルである。このモデルに基づく被ばく評価コードAMBERの整備により、代表的な被ばく経路が網羅的に再現され、その経路に沿った被ばく評価が行えるようになった。図-3に地下水に放射性核種が放出することを想定したReference Biosphereモデル（代表的生物圏モデル）の例を示す。

2.統合化システムの開発

個別評価モデルを安全評価で対象とすべき評価シナリオ毎に連結し、処分に起因する被ばく線量を総合的に評価する計算コードとその管理システムを開発するために、以下の研究を行った。

- ・個別現象を表す個々のコードの内容調査及びスクリーニング
- ・個々のコードを必要に応じて合理的に結合させるための調査・検討

- ・個々のコードのシステムへの搭載並びにグラフィックユーザーインターフェース（G U I）の整備

- ・データ、モデル、解析結果の履歴の管理方法の検討

これらの検討に基づき、放射性核種の移行経路に介在する可能性のある種々の要素に対応する個別の評価コードをシナリオに則して連結（統合化）し、解析の簡約化、品質の向上の観点から、個々の計算に関連するデータやコードの受渡しを半自動化するとともに、データやコード及び計算の履歴を管理する機能を有するシステムを構築した。

これまでに、既に検証がなされている核種インベントリ解析コード「ORIGIN 2」、地球化学計算コード「PHREEQE」、人工バリア中の核種移行コード「MESHNOTE」、核種移行・地球化学連成解析コード「HYDROGEOCHEM」のシステムへの搭載を完了している。

3. データベースの構築

上記統合化システムの機能であるコードの結合及びデータ、コード及び計算の履歴の管理はデータベースを介して行われるものである。そこで、上記統合化システムと共にすることを念頭に置き、データベースシステムの調査・検討及び試用を実施した。

処分に起因する被ばく線量を総合的に評価するためには、様々なデータが必要となる。これらのデータは、以下の特性を有するものである。

- ①必ずしもモデルと1対1対応しているものではない
- ②研究の進展に合わせて逐次更新、拡張される
- ③計算の品質を保証するため、データのトレースが必要になる
- ④複数のユーザが共通して使用する可能性がある。

そこで、これらのデータの特性及びその使い方から、オブジェクト指向の考え方を採用することとし、上記統合化システムに組み込むオブジェクト指向型データベースを構築した。

また、併せて、データベースに搭載する個々のデータ（熱力学データ、放射性核種の半減期、濃度限度値等）の整備、検証を進めた。

この研究は、統合化システムの構築に資するのみでなく、一連の解析の品質保証に資するものである。

4. 結言

- (1)放射性核種が媒体中を移行する際に生じると考えられる現象を考慮した詳細な評価コードの開発・整備により、現実的な評価が可能になった。また、不確実性を有するより複雑な生物圈での核種の移行並びに被ばく評価を網羅的に扱えるようになった。さらに、これらのコードを用いた感度解析から、緩衝材中の核種移行挙動に対する関連パラメータの影響特性が示された。
- (2)統合化システムの開発ならびに既存コードのシステムへの搭載により、データ、モデル、解析結果の履歴が管理された状態で、人工バリア中の核種移行に係わる一連の解析を行えるようになっ

た。

(3)人工バリア及び天然バリアの評価に必要なモデルパラメータを収集・評価し、データベースの整備を進めるとともに、データベースシステムの調査・検討及び試用を実施した。

主要レポート

- (1)動燃技報No. 85(高レベル放射性廃棄物の地層処分研究開発特集)(PNC TN1340 93-001)
- (2)高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書(PNC TN1410 92-081)
- (3)地層処分研究の現状(平成5年度)(PNC TN1410 94-094)
- (4)大井貴夫 他、崩壊連鎖に伴う人工バリア中核種移行への影響要因の検討、日本原子力学会放射性廃棄物部会誌「放射性廃棄物研究」vol. 1 No. 2 p243-252(1995), (PNC TN8430 95-001)
- (5)大井貴夫 他、崩壊連鎖に伴う沈殿現象が人工バリア中の核種移行へ及ぼす影響の評価 (PNC TN 8410 95-198)
- (6)T. Ohi et. al., Effects of Transport Model Alternatives Incorporating Precipitation on the Performance of Engineered Barriers. (PNC TN8410 95-370)
- (7)牧野仁史 他、ガラス固化体の溶解及びそれに伴う緩衝材中の核種移行に関する感度解析、日本原子力学会1996年春の年会予稿集(1996)、(PNC TN8410 95-346)
- (8)吉田隆史 他、周辺岩体中の核種移行特性及び複数の廃棄体の存在を考慮したニアフィールド中の核種移行挙動に関する検討、日本原子力学会1996年春の年会予稿集(1996)

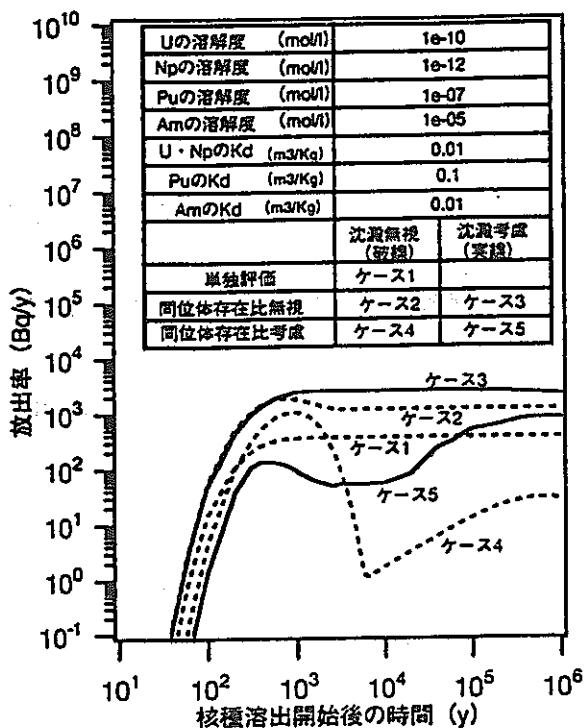


図-1 沈殿現象及び同位体存在比のU-233の放出率への影響

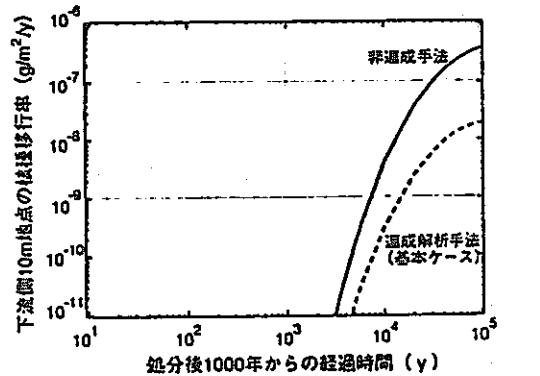
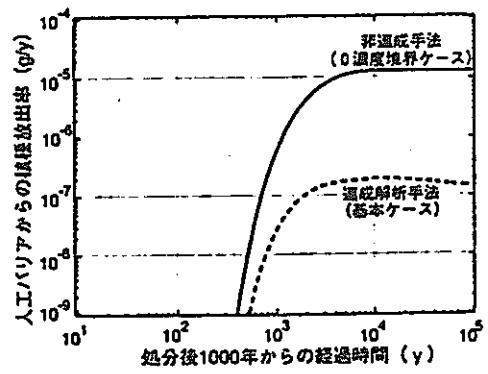


図-2 人工バリアとニアフィールド岩体中の核種移行の相互作用の影響

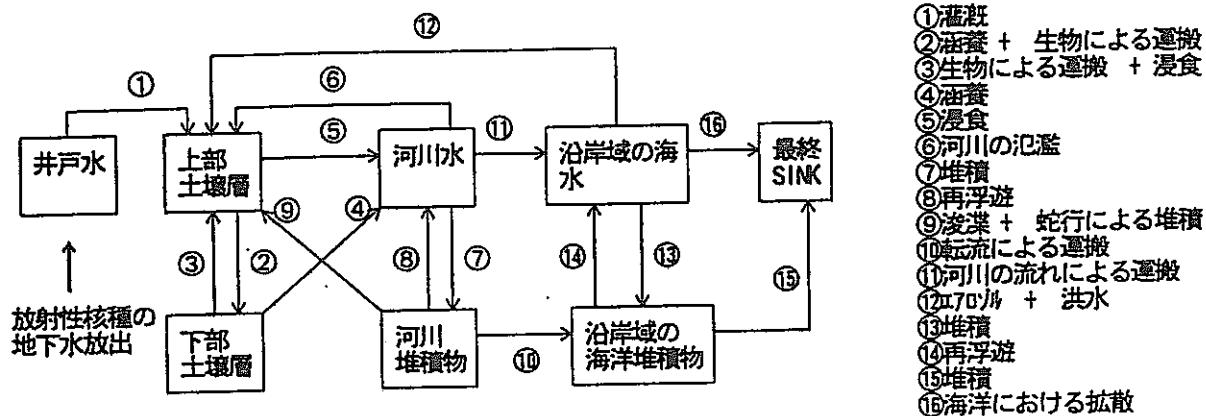


図-3 地下水に放射性核種が放出することを想定した代表的生物圏モデル

地層処分システムの確率論的評価手法に関する研究

平成3年度～平成7年度

東海・環境技術開発部・地層処分開発室

澤田 淳、大井貴夫

東濃・地質安定性研究室

石丸恒存

本社・環境技術開発推進本部・処分研究グループ

内藤守正

I. 研究の概要

地層処分システムの長期的な安全性の評価結果には、評価モデル、パラメータ値に起因する不確かさ及び評価シナリオの伴う不確かさが必然的に含まれる。そこで、地層処分システムの長期的な安全性を上記の種々の要因による不確かさを含めて評価し、安全評価手法の確立に資することを目的として、以下の研究を行った。

これら研究の概要を以下に示す。

1. 確率論的評価モデルの開発

処分場から人間に至る放射性核種の移行経路について、確率論的評価に適した評価モデルを開発することを目的として、花崗岩等の亀裂性を有する地質媒体において、主たる移行経路となる個々の亀裂を確率論的手法を用いて表現することができる亀裂ネットワークモデルの開発を行った。これにより、地質媒体が本来もつ不均質性を考慮した亀裂性岩盤のモデル化ならびにその評価が可能となった。

2. パラメータサンプリング手法及び感度解析・不確かさ解析手法の開発

(1)不均質岩盤特性の不確かさ解析手法の開発

評価に用いるモデルパラメータ値の確率分布関数から、パラメータ値をサンプリングする手法及び安全評価上重要なパラメータを抽出するための感度解析・不確かさ解析のための手法を開発することを目的として、以下の開発を行った。

坑道壁面やボーリング孔といった限られた調査範囲から得られた亀裂データを統計的に処理してその母集団の確率分布関数を推定する手法、ならびに、その確率分布関数からパラメータ値をサンプリングして亀裂ネットワークモデルを作成する手法の開発を行った。これにより、亀裂分布の不確かさを確率分布関数として定量的に把握するだけではなく、そのモデル化ならびに水理物質移行解析を通じて不確かさが与える影響を評価することが可能となった。

(2)不確かさ解析手法の検討

不確かさ解析に対して確率論を適用するため、既存の確率論モデル及びそれらに用いられるパラメータの分布型の調査を行った。また、確率論の適用が困難な場合の代替法としてファジ

ィ理論の適用性の検討を行った。

その結果、地層処分システムの性能の不確かさ解析の対象となるモデル、パラメータの同定に有用な情報となる既存の確率論的に扱われているモデル及びそのモデルで扱われているパラメータの確率分布関数の型の実例が示された。また、確率論的に扱うことが困難な事例、確率論の適用における問題点等に対して、ファジイ理論を適用することの有用性が示された。

3. 確率論的評価手法の開発

上記の評価モデル、サンプリング手法、感度解析、不確かさ解析手法を統合し、地層処分システム性能評価に確率論を取り入れた評価手法を開発していくことを目的に、米国で開発された確率論的評価コードR I P (Repository Integration Program)やカナダで開発されたSYVAC3-C C 3の調査を行うとともに、火山の噴火を発端事象とする事象を対象に確率論的評価手法の構築を試みた。これにより、確率論的評価手法の適用性、データ取得の枠組みなどが明らかとなった。

以上の結果は、地層処分システムの長期的な評価に影響を与える不確かさの取扱いに資するものである。

II. 研究成果

1. 確率論的評価モデルの開発

放射性廃棄物の地層処分の性能評価における地下水シナリオに基づき、放射性核種の移行経路となる亀裂性の地質媒体を対象にその支配要因となる亀裂構造のモデル（亀裂ネットワークモデル）を開発した。このモデルでは、花崗岩等の亀裂性の地質媒体の主たる移行経路となる亀裂を、それぞれ多角形平行平板で代表させ、それらによって亀裂のネットワークを構成する。したがって、岩盤が本来もつ不均質な移行経路を詳細に表現することができる。このモデルを実際の岩盤に適用する際に問題となるのは、対象となる岩盤中に存在する亀裂すべてを観測することができないということである。そこで、本モデルでは、坑道やボーリング孔等で調査される限られたデータを基に、それぞれのパラメータの母集団を確率分布関数として統計的に推定し、その確率分布関数からモンテカルロ法に基づき個々の亀裂のパラメータをサンプリングして亀裂を発生させ、それらによって構成される亀裂のネットワーク構造をモデル化する（詳細は2.(1)参照）。これにより、原位置で得られたデータを統計的に反映したモデルを構築することが可能になり、モデルの信頼性を担保することができる。

本モデルの開発に併せ、亀裂ネットワークに対して有限要素法による定常・非定常の岩盤浸透流解析と、粒子追跡法による物質移行解析を行うためのツールを開発した。亀裂中の流れは、連続の式とダルシー則からなる支配方程式をGalerkin法により有限要素方程式を求めている。また、物質移行解析においては亀裂内における移流・分散現象、亀裂に接する岩盤マトリクス中への拡散現象、亀裂表面及び岩盤マトリクス中の鉱物粒子表面への収着遲延、放射性核種の崩壊連鎖を考慮することができ、亀裂状媒体における水理・核種移行評価を詳細に評価することが可能となる。

本モデルの利点は、岩盤中の個々の亀裂を直接モデル化することでより詳細なモデル化が可能

となることであるが、反面、計算に要するリソースならびに時間を増大させる原因となる。そこで、複雑な亀裂のネットワーク構造に起因する選択的移行経路を抽出し、その移行経路の特性を既存の一次元核種移行解析コードへ受け渡すインターフェースを開発した。このインターフェースの開発により、計算容量と計算時間を低減することが可能となり、亀裂状媒体中の移行経路の不均質性を考慮した評価・感度解析等の効率化が可能となった。

2. パラメータサンプリング手法及び感度解析・不確かさ解析手法の開発

(1) 不均質岩盤特性の不確かさ解析手法の開発

岩盤内に分布する亀裂は坑道やボーリング孔等限られた調査範囲でのみ取得可能であり、その限られたデータを用いて対象岩盤に不均質に分布する亀裂を統計的に評価する。亀裂は、中心位置、半径、方向、透水量係数等の物性値等のパラメータで表され、それぞれのパラメータについてデータの母集団である確率分布関数を実測値の分布へのフィッティングにより推定する（図1参照）。

亀裂半径は坑道や露頭で観察されたトレース長を基に解析を行う。しかし、そのトレース長は露頭や坑道壁面で任意に設定した観測面内に現れた亀裂の長さを示しており、実際の亀裂の大きさを示してはいない。そのため亀裂半径分布、亀裂方向および亀裂の中心点と坑道との距離を任意に設定して亀裂を発生させ、データが観測された観測面を設定してトレース長をサンプリングし、このトレース長分布と実測されたトレース長分布を比較する。そして、実測されたトレース長分布を再現するまで、亀裂半径の平均値と標準偏差を少しづつ変化させながらシミュレーションを繰り返す。その際、シミュレーション結果と実測されたトレース長分布のフィッティングの判断には χ^2 検定、Kolmogorov-Smirnov検定等の定量的な評価方法を採用している。

亀裂中心位置については、坑道壁面や露頭で観測されたトレース図を用いて、図2に示すモデルから最も適合するモデルを選定することができる。

亀裂の透水性を示す透水量係数の分布は、単孔式透水試験結果を用いて解析を行う。透水試験のパッカー区間の透水量係数がその区間に交差する透水性の亀裂の透水量係数の総和にとしいと仮定し、各パッカー区間の透水量係数の分布をシミュレートし、実測された透水量係数分布とのフィッティングを行う。

亀裂ネットワークモデルを作成する際には、それぞれ推定した確率分布関数からモンテカルロ法でサンプリングを行い、個々の亀裂に対して、必要な各パラメータを個別に決定する。したがって、同じ確率分布関数を与えてもサンプリング時に用いる乱数が異なれば、全体としては与えられた確率分布関数を満たすが、まったく異なる亀裂パターンを作ることが可能となる（これら1つ1つの亀裂パターンをrealizationと呼ぶ）。この場合、数十個のrealizationを作成し、水理物質移行解析を行い、結果を統計的に処理した上で評価する。

実測された亀裂データは必ずしも既存の確率分布関数で表現されることは限らないため、その亀裂データを母集団としてモンテカルロ的にサンプリングする手法（bootstrap法）を開発した。さらに、亀裂の方向、大きさ、物性値等それぞれのデータを独立にサンプリングするだけではなく、特定の亀裂に対してすべてのパラメータを同時にサンプリングする手法（multi-bootstrap法）も開発した。これらの機能により、実測されたデータが既存の確率分布関数に当てはまらない場合においても実測データに基づいた不均質性を表現することが可能になり、ま

た、パラメータ間の相関性を保った亀裂モデルを作成することが可能となった。

ボーリング孔や坑道で観察される既知の亀裂の位置・方向・物性値等を制限条件として与え、統計的なモデルの自由度を制限するコンディショニング機能を開発した。また、クロスホール透水試験結果を再現可能なようにモデルに制限を加えるコンディショニング機能の開発検討を継続して実施している。

(2)不確かさ解析手法の検討

地層処分システムの性能の不確かさ解析に確率論を適用する観点から、パラメータサンプリングの対象となるモデルパラメータの確率分布関数の実例に関する調査を行った。また、発生した場合の影響が大きいと予想される稀頻度事象（発生頻度が稀なため、決定論的に扱うこと及び確率論的に扱うとしても、確率分布関数を定義することが困難な事象）によって生じる様々な事象の発生確率を定量化するための手法の検討を行った。また、不確かさ解析に対して適用可能な確率論以外の手法の検討として、パラメータだけでなく、シナリオ、モデルに含まれる不確かさに関する問題点を調査し、確率論以外に適用可能な代替手法の検討を行った。

その結果、確率論的に扱われているモデルの事例並びにそのモデルで扱われているパラメータの確率分布関数の型の実例が明らかになった。これらの情報は、地層処分システム性能評価における不確かさ解析手法に確率論を適用する場合の対象（モデル、パラメータ）の同定に反映される。また、稀頻度事象によって生じる様々な事象の発生確率の定量化を困難にする主な原因が、個々の事象に対する知識、情報の不確かさによるものであることから、その定量化においては、それらの事象に対する専門家の主観的な判断を効率的に活用する評価手法（効用関数法、解析分析法[AHP法]）の適用等が可能であることが判明した。さらに、シナリオ、モデル、パラメータに含まれる不確実性に対処するために確率論を適用する場合に、リスク希釈と呼ばれる新たな曖昧さが生じる可能性があることから、確率論に代わるものとしてファジィ理論を組み込むことが有用であることが示された。

3. 確率論的評価手法の開発

諸外国における確率論的評価コードとして、米国のR I PコードやカナダのSYVAC3-CC3について調査を行った。その結果、基本的に各評価コードとも、基本方程式で規定された核種移行モデルを中心に構成され、モデルパラメータに対して確率密度関数を入力しサンプリングによってパラメータ値を設定していく構成となっている。そのため解析にあたっては、確率密度関数をどのように設定してコードに付与していくかが重要である。

上記2.(2)での確率論を地層処分の性能評価に適用する手法の検討結果から、火山の噴火などの事象は過去の履歴に基づいて確率分布関数を設定することが可能であることが明らかとなっている。そこで、火山活動を発端とした事象を例に、データ取得から解析に至るまでの一連の確率論的評価手法の構築を試みた。想定するシナリオには、処分場から離れた位置で火山が噴火し、その際発生する貫入岩が処分場に侵入することによって、侵入を受けた部分に内包される放射性核種が処分場外へ直接運ばれるというものとした。

この評価に必要なデータは、火山の噴火頻度と貫入岩の幅・長さ・分布・方向であり、この観点から、日本の火山活動に関する情報として、①火山の噴火年代、②火山活動の開始／終了時期、③火山噴出物の量、④火山活動に伴う貫入岩の分布について、文献調査に基づき調査を

行った。その際、①については火山岩や火山灰の年代測定によってデータは豊富であると考えられるが、②のような時間的境界に関するフィールドデータや、③や④といった空間的なフィールドデータについては、多くの場合、侵食により山体が削られるかあるいは新規の噴出物に覆われるため得られにくいことが想定された。その結果、富士山の南東部（伊豆半島の西側の付け根）に位置する愛鷹火山について得られているデータが比較的そろっていることから、そのフィールドデータを用いて評価に必要なデータセットの構築を試みた。

火山噴火のモデル化にはポアソン過程を仮定した。愛鷹火山は今から約30万～40万年間活動してきた火山であることから、フィールドデータの総噴出量から1回あたりの平均噴出量を除算することにより、 $5 \times 10^{-4} \sim 5 \times 10^{-3}$ ／年の一様分布を仮定した火山噴火の確率密度関数を推定することができた。

火山噴火が発生した場合に貫入岩が処分場を交差する確率については、発生する貫入岩が断裂系亀裂に沿って進展するという事実に基づき、貫入岩の分布を断裂系亀裂の分布に置き換えることを仮定した。そこで、貫入岩のフィールドデータに基づき上記1.で実施した亀裂を統計的に発生させる亀裂ネットワークコードを用いて貫入岩が処分場と交差するシミュレーションを行うことによりその確率を求めた。この際、火道と処分場との距離を3点（10km, 20km, 30km）とり、方向としては 30° ごとに12方向を想定した。また、処分場の大きさなどについては、動燃事業団が平成4年9月に公表した「高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書」で想定したものとほぼ同じ仕様を採用した。その結果、たとえば処分場から10km離れた所で噴火が生じた場合、貫入岩が処分場と交差する確率密度関数に $3 \times 10^{-3} \sim 4 \times 10^{-2}$ の一様分布を推定することができた。

これらをもとに上記の確率論的評価コードに入力することによって、火山活動を発端とする事象が処分場に与える影響の解析を行うことができる。すなわち、噴火の発生や貫入岩の処分場への貫入をモンテカルロ法等により時間的にランダムに生じさせ、貫入岩が処分場と交差した貫入部分に存在する廃棄物インベントリを直接処分場外に放出させる場合を算出することが可能となる。

4. 結言

地層処分システムの長期的な安全性の評価を行ううえで、評価シナリオ、モデル、パラメータ値に必然的に伴う不確かさを定量的に取り扱うための確率論的評価手法について、上記1.～3.までの成果により、その基礎的な知見を得ることができた。今後、これら各要素の知見をもとに体系的な確率論的評価手法の枠組みを構築することが可能となる。

主要レポート

- [1] 内田・澤田、「亀裂ネットワーク水理物質移行モデルの開発」、動燃技法No. 90、PNC TN8410 9-091、1994.

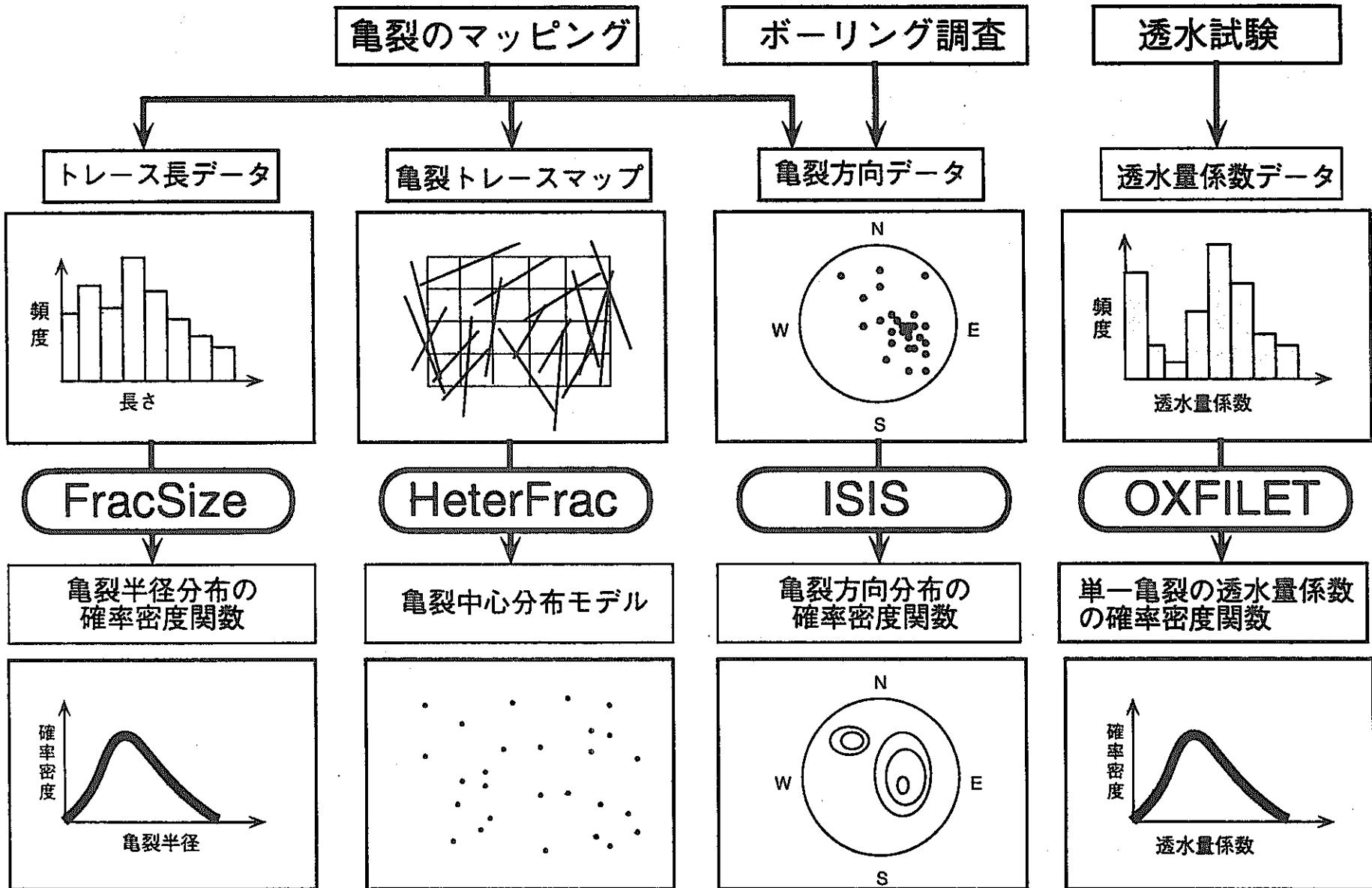
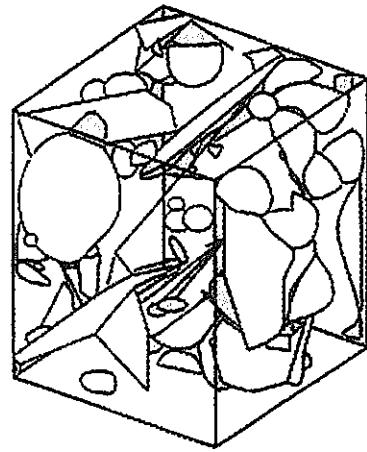
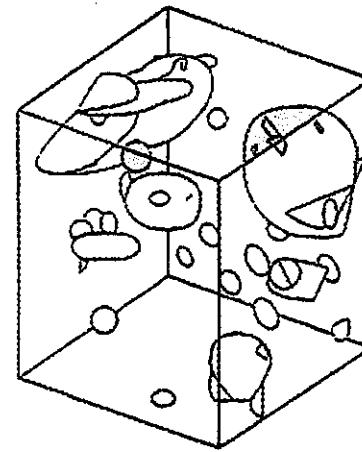


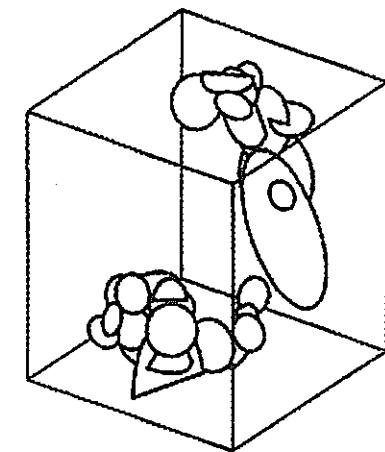
図-1 入力データ作成の流れ



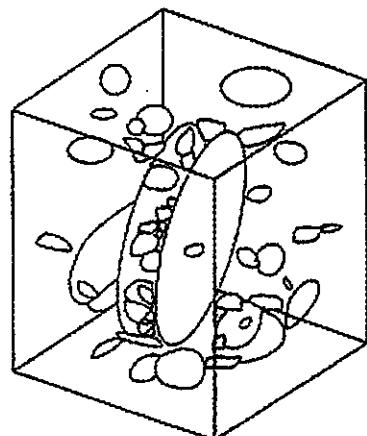
**Enhanced Baecher Model, BART
(Stationary Poisson Point Process)**



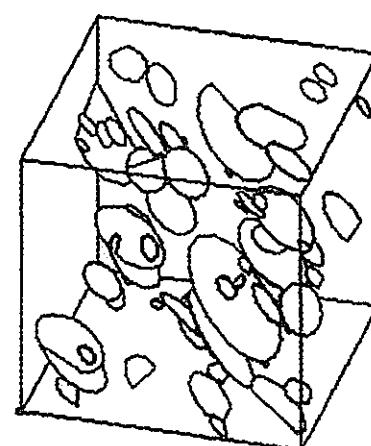
**Nearest Neighbor
(Non-Stationary Poisson Point Process)**



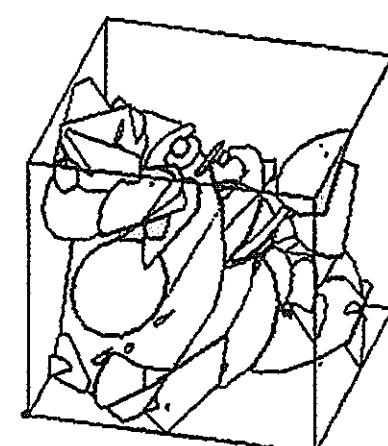
Levy-Lee Model



War Zone Model



Fractal POCS Model



Fractal Box Model

図-2 亀裂分布モデルの概念図

T R U 廃棄物処分の安全確保方策の研究

平成3年度～平成7年度

東海・環境技術開発部・地層処分開発室 三原守弘

伊藤勝

I. 研究の概要

本研究はT R U廃棄物処分の方策、規制、安全評価手法等の基本的な考え方について、調査・研究し、T R U廃棄物処分に関する基本理念と具体的方策を明らかにすることを目的とする。このため、具体的に以下の研究について実施した。

1. T R U廃棄物の物性測定試験

動燃東海事業所のプルトニウム廃棄物処理施設の焼却灰をマイクロ波溶融した固化体について、焼却灰・スラグの成分、核種分析及び固化体浸出試験を実施した。固化体の浸出試験では、温度を40°C、70°Cとして、浸漬液を蒸留水とし浸漬期間28日における重量減少率で規格化した浸出率を求めた。40°Cでは 10^{-6} g/cm² 日であり、70°Cでは 10^{-5} g/cm² 日であった。

2. 人工バリア候補材料に対する核種の移行特性試験

T R U廃棄物の特性を考慮して、処分の安全確保方策を検討するため、処分システムの人工バリア候補材料であるベントナイトやセメント材料について核種の拡散・収着試験、変質試験、バリア材料の間隙水での核種の溶解度の評価を実施した。ベントナイトに対しては、拡散・収着試験を実施し、核種移行パラメータの形状因子及びPuの分配係数を取得した。形状因子は乾燥密度1.2～1.8g/cm³の範囲では、10⁻²オーダであった⁽¹⁾。分配係数はpH4～10の範囲で10³ mol/g以上であった⁽²⁾。ベントナイトは、I-129などの陰イオンとして存在する核種をほとんど収着しないことから、陰イオンの元素を収着する材料の調査・開発を行ったが、長期間安定に存在し地下深部環境で収着能力の高い人工バリア候補材料の開発を行うことができなかった。

また、セメントペーストの配合を変化させ、長期的な化学挙動を調べるための変質試験を実施した。その結果、セメントペーストのCa/Si モル比を調整することによって、浸漬液のpHを10.5～12.5の範囲に設定することができた。Ca/Si モル比が小さいと、変質にともなう浸漬液のpH変動が小さいことが分かった。

圧縮ベントナイト中でのPu含有固化体の浸出試験を行い、圧縮ベントナイトの間隙水でのPuの溶解度は 10^{-9} mol/lオーダであると推定した⁽³⁾。

3. 人工バリアシステムに対する予備的な性能評価試算及び性能評価モデルの整備

T R U廃棄物処分のシナリオ、評価基準、評価期間を検討するために人工バリアシステムに対する予備的な性能評価試算及び性能評価モデルの整備を行った。動燃東海事業所再処理工場から発生する低レベル濃縮廃液の固化体（アスファルト固化体）は、高レベル放射性廃棄物と比較して非発熱性であるが、発生量が多いという特徴を有する点を考慮して処分システムを仮設定した。固化体

にはI-129 及び有機物の含有を仮定して人工バリア中の核種移行計算を実施した⁽⁴⁾。人工バリア材からの核種の放出率を希釈水量で除し、かつ線量当量に換算した。その結果、I-129 のように地下水に対して可溶性の核種はインベントリに依存して線量当量を支配する核種になること、一方、難溶性核種のTRU核種はインベントリに依存せず、線量当量は溶解度によって支配されることが分かった。また、有機物の影響を受け溶解度が上昇することを考えた場合はインベントリに依存するが、TRU核種は線量当量を支配する核種にならないことが分かった。

性能評価モデルの整備に関しては、より詳細に人工バリアシステムの性能評価を行うため人工バリア材の化学的特性を時間・空間的に求める地球化学と物質移行とを連成させたTRACE (TRAnsport and Chemical Evolution modelling code)コードの整備を行った。

II. 研究成果

1. TRU廃棄物の物性測定試験

動燃東海事業所のプルトニウム廃棄物処理施設の焼却灰をマイクロ波溶融した固化体について浸出試験を実施した。浸出試験はMCC-1 静的浸出試験法に準拠して行われた。試験装置を図-1に示す。浸漬温度を40°C、70°Cとし浸漬期間を28日とした。重量減少率で規格化した浸出率を求めた結果、40°Cでは $10^{-6} \text{ g/cm}^2 \text{ 日}$ であり、70°Cでは $10^{-5} \text{ g/cm}^2 \text{ 日}$ であった。これらの値は、ホウケイ酸ガラス程度の浸出率⁽⁵⁾である。

2. 人工バリア候補材料に対する核種の移行特性試験

(1) 人工バリア候補材料に対する核種の拡散・吸着試験

人工バリア候補材料のベントナイトについて、核種移行パラメータの形状因子と分配係数を取得し、ベントナイトの核種移行遅延機能について調べた。

(a) 拡散試験

定常拡散試験法によって拡散試験を実施し、形状因子（実効拡散係数と自己拡散係数との比）を求めた。TRU廃棄物の処分ではセメント系材料と圧縮成形ベントナイトとの利用による人工バリアシステムが考えられるので、ベントナイトはセメント系材料から溶出するカルシウム成分によって長期的にはカルシウム型化すると考えられる。ここではナトリウム型ベントナイトをカルシウム型化させたベントナイトを用いた。ベントナイトの乾燥密度については、 $1.2 \sim 1.8 \text{ g/cm}^3$ の範囲で実施した。トレーサには、非吸着性でイオン半径の小さなトリチウムを用いた。試験結果を図-2に示す。乾燥密度が大きくなるにともない形状因子は小さくなり、 10^{-2} オーダであることが分かる。ナトリウム型とカルシウム型との形状因子の差異はみられず、ナトリウム型ベントナイトがカルシウム型化しても核種の拡散係数は大きく異なることが示唆される。

(b) 吸着試験

TRU核種として代表的な元素であるPuについて吸着試験をバッチ法により実施した。試験溶液のpHを4～10に変化させ、液固比を 50 mL/g とした。液と固相の分離については、分子量10,000の限外濾過を行った。試験期間については30日とした。試験結果及びベントナイトへのPuの吸着機構をイオン交換と仮定し解析を行った結果を図-3に示す。どのpHにおいても分配係数は 10^3 mL/g 以上であり、ベントナイトのPuの移行遅延機能は大きいものと考えられる。さらに、Puのベントナイトへの吸着挙動をイオン交換モデルで説明できることが分

かった。

溶液中にて陰イオンとして存在するI-129などの核種に対する分配係数は、ほぼ 0 ml/g であり、ベントナイトによる移行遅延はほとんど期待できない。I-129の半減期は 10^7 年オーダであることを考慮に入れて、長期間、地下深部環境に安定に存在し、かつ、陰イオンとして存在する元素を収着する材料の調査・開発を行った。還元性（酸化還元電位-20～-460mV）でセメントの影響(pH12程度)を受けた溶液中でヨウ素を最も収着する材料は、天然にも鉱物として存在するハイドロタルサイトであり、分配係数は 10^3 ml/g であったが、炭酸イオンが共存する系ではほとんど収着せず、人工バリア材として機能しにくいことが分かった。

(2)人工バリア候補材料の変質試験

人工バリア候補材料のセメント系材料は地下水との接触により、その構成成分が地下水に浸出し、長期的には変質していくものと考えられる。セメント系材料の浸出液の化学挙動（特に核種の溶解度に影響を及ぼすpHを指標）について着目し、変質試験を実施して浸出液のpHの変化を調べた。試験に使用した試料は、普通ポルトランドセメント(Ca/Siモル比3.24)及びセメント構成物質の浸出の抑制を目的とし普通ポルトランドセメントにシリカフュームを混合したもの(Ca/Siモル比0.78及び0.26)に水を加えて硬化させ粉碎したものである。試験手法は、容器に蒸留水及び粉碎セメントペーストを入れ、浸出液のpHが一定となった時点で蒸留水を入れ換える方法である。試験結果を図-4に示す。Ca/Siモル比を調整することによって、初期における浸漬液のpHを10.5～12.5の範囲で設定することができた。Ca/Siモル比が大きな試料については、初期はpH12.5程度であるが、徐々にpHは低下し11程度になるが、Ca/Siモル比が小さな試料の浸漬液のpHは、ほぼ10.5と一定の値を示した。このことからCa/Siモル比が小さなセメント系材料は、変質にともなう間隙水のpH変動が小さくなることが分かった。

(3)人工バリア候補材料の間隙水での核種の溶解度の評価

人工バリアシステム中の核種の移行評価を行うには、固化体の浸出率と同様に人工バリア材料の間隙水での核種の溶解度が重要なパラメータとなる。ここでは、圧縮ベントナイトの間隙水におけるPuの溶解度を評価した。ベントナイトの乾燥密度を 0.2 g/cm^3 とし、水で飽和させたものにPuを含有させた固化体を接触させ、所定期間経過後、ベントナイトをスライスし、Puの濃度分布を調べた。固化体表面にてPuの固相を非晶質のPu(OH)₂として溶解度を算出し、ベントナイト中のPuの移行計算を行ったものと実験結果とを比較したところ、Puの濃度分布がほぼ一致していることから、圧縮ベントナイト間隙水でのPuの溶解度を 10^{-9} mol/l オーダと推定した。

3. 人工バリアシステムに対する性能評価試算及び性能評価モデルの整備

(1)人工バリアシステムに対する性能評価試算

TRU廃棄物である動燃東海事業所再処理工場から発生する低レベル濃縮廃液の固化体（アスファルト固化体）について、高レベル放射性廃棄物と比較して非発熱性であるが発生量が多い特徴を考慮して処分システムを仮設定した。処分方法は地層処分として、固化体の周囲をセメント系材料にて充填し、その周りを圧縮ベントナイトで囲むシステムである。アスファルト固化体の特徴であるI-129及び有機物の含有を仮定して人工バリア中の核種移行計算を実施し、人工バリアシステムの核種閉じ込め性能を把握することとした。人工バリア材からの核種の放出率を希釈

水量で除し、さらに、線量当量に換算した。I-129 のように地下水に対して可溶性の核種はインベントリに依存して線量当量を支配する核種になること、難溶性核種のTRU核種についてはインベントリに依存せず溶解度によって支配されるが、有機物の影響を受け溶解度が上昇した場合でもTRU核種は線量当量を支配する核種にならないことが分かった。

(2)性能評価モデルの整備

人工バリアシステムの性能評価を行うために、人工バリア材の化学的特性を時間・空間的に求める地球化学と物質移行とを連成させたコードの整備を行った。地球化学反応については化学平衡論によるモデルを採用し、PHREEQE コード (PH REdox EQuilibrium Equations) を用いた。このコードは、米国地質調査所にて開発されたもので、実験との比較によってコードの妥当性が評価されている。物質移行モデルについては、拡散・移流・分散モデルを採用し、有限差分法によって解を得る手法とした。さらに、複数領域での物質の移行が扱えるようにコードを改良した。整備されたコードをTRACE (TRAnsport and Chemical Evolution modelling code)とした。

4. 結言

- (1)動燃東海事業所のプルトニウム廃棄物処理施設の焼却灰をマイクロ波溶融した固化体について
浸出試験を実施し、その性状を把握した。
- (2)人工バリア候補材料に対する核種の移行特性試験を実施し、バリア材料の核種の移行遅延機能、
長期的な化学挙動及び人工バリア間隙水でのPuの溶解度の評価を行った。処分環境で陰イオン
として存在するI-129 に対しては、移行遅延させる材料の開発をめざしたが、開発は非常に困
難であった。
- (3)処分の人工バリアシステムに対する性能評価試算を行い、線量当量を支配する核種を選定する
とともに、人工バリアシステムの化学的特性について評価を行うためのコードの整備を行った。

主要レポート

- (1) 三原守弘、伊藤勝、加藤博康、上田真三、「ナトリウム型ベントナイトのカルシウム型化に
伴う形状因子の変化」、日本原子力学会1995秋の大会
- (2) T. Shibutani, H. Yoshikawa, M. Yui, "Sorption Mechanism of Pu, Am and Se on Sodium
Bentonite", MRS Symp. Proc. Vol. 333(1993).
- (3) 小原幸利、油井三和、「圧縮ベントナイト／ガラス複合系に与えるCs、Puの溶解挙動」、
動燃事業団主催地層処分情報交換会、1996年2月。
- (4) 三原守弘他、吉川英樹、油井三和、「TRU廃棄物の特性を考慮した人工バリア材中の核種
移行解析」、日本原子力学会1994秋の大会

参考文献

- (5) D. G. ブルッキンズ「放射性廃棄物処分の基礎－地球化学的アプローチー」, 1987 年.

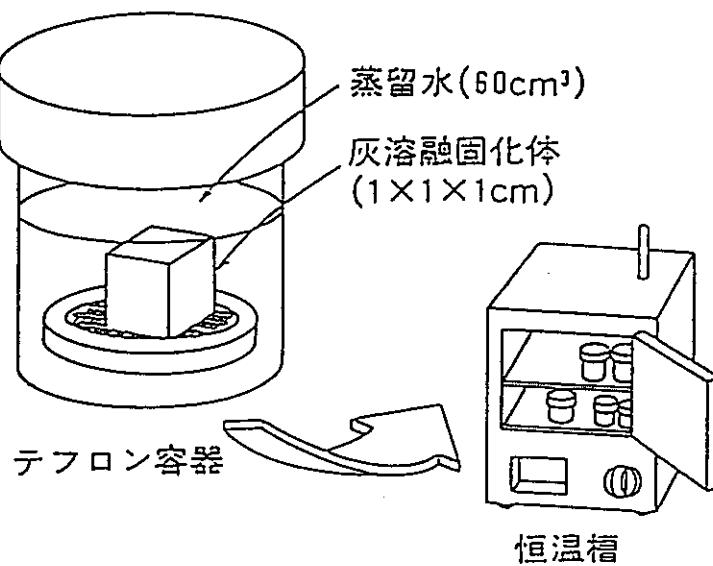


図-1 MCC-1試験装置の例

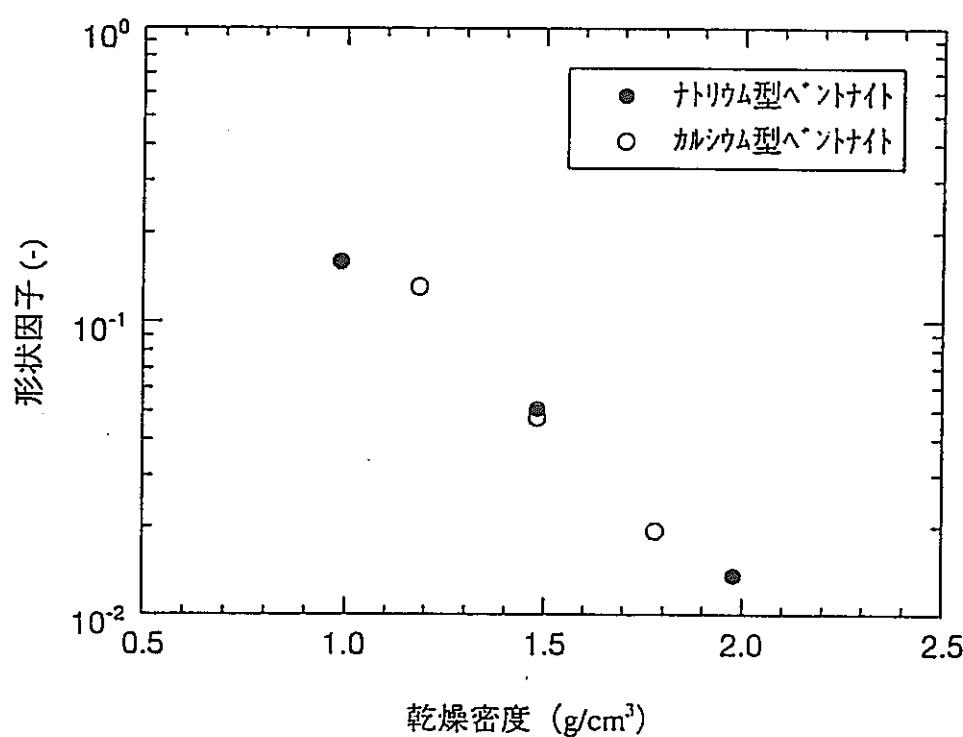


図-2 圧縮ベントナイトの形状因子

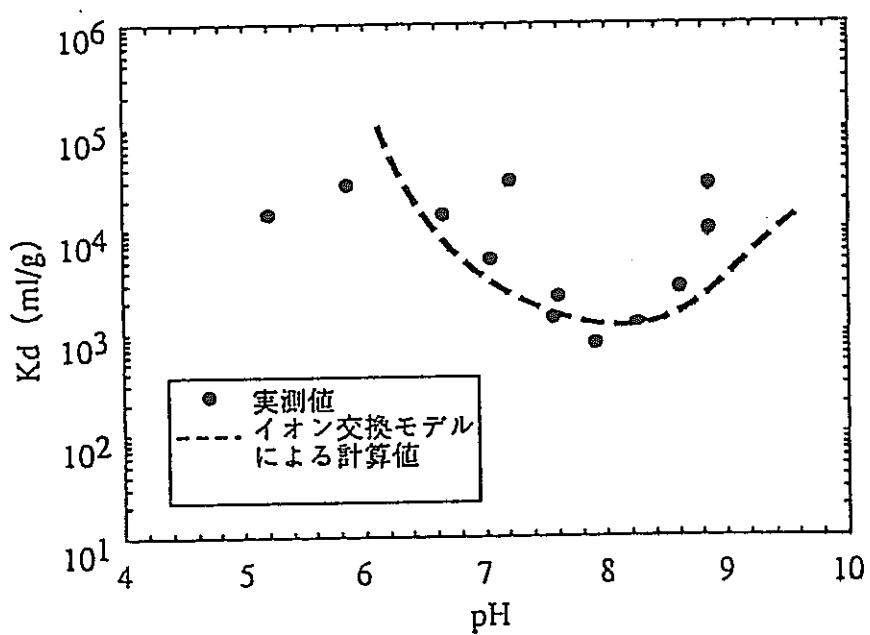


図-3 ベントナイトに対するPuの分配係数(K_d)

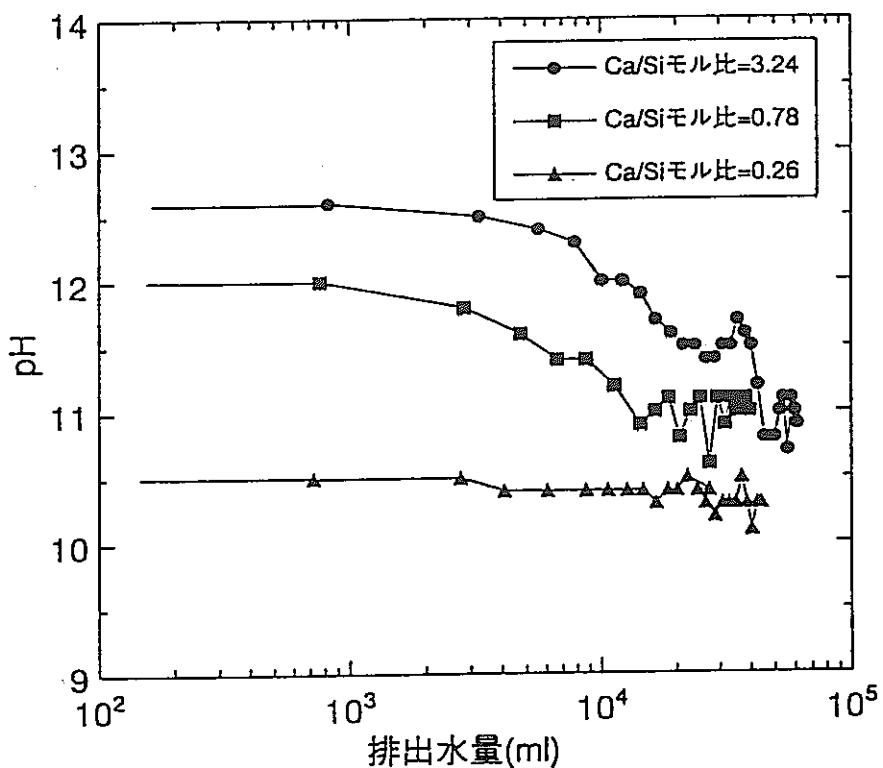


図-4 セメントペーストの変質試験結果

ウラン廃棄物に係る安全性の研究

平成元年度～平成5年度

本社・環境技術開発推進本部

間野正

東海・環境技術開発部・地層処分開発室

伊藤勝

I. 研究の概要

ウランの濃縮、加工工程等により発生する主としてウランによって汚染された廃棄物に関して、ウラン濃度が比較的低い大部分の廃棄物については、段階的管理を伴わない簡易な方法による浅地中処分が期待される。

本研究では、ウラン廃棄物に含まれる放射性核種のインベントリーを調査すると共に、ウラン廃棄物を処分場の形態を設定しない条件での簡易な処分する場合と、六ヶ所埋設センターの事業許可申請書（以後、申請書と記す）を参考として具体的な処分施設を設定した場合の2つの処分概念をもとに被ばく線量の試算を行った。

II. 研究成果

1. ウラン廃棄物に含まれる放射性核種のインベントリー調査

事業団は、核燃料サイクルの幅広い分野にわたって研究開発を行っているため、多種多様な廃棄物が発生し、200 ℥ ドラム缶に入れて保管されている。このうち、可燃性の廃棄物はほとんど全量が焼却処理され焼却灰の形で保管されている。放射能濃度はサンプリングにより分析されており、それによると焼却灰については最大で約 100 nCi/g程度で、コンクリート片については最大約 5 nCi/gであった。他の雑固体については、ドラム缶の表面線量率のデータによれば、0.2 mR/h程度であった。

2. ウラン廃棄物に含まれる放射性核種の人工バリア及び天然バリアにおける挙動特性

人工バリアとして代表的なセメント及び土壌に対する分配係数について調査した。

分配係数は土壤によって様々な値を示すので、一概に一般値を決めることはできない。このため、種々の文献を集約した加藤と戸田の報告⁽¹⁾に示されている核種ごとの平均的な値に基づき、記載されていない元素については U S N R C の評価⁽²⁾や元素ごとの化学的な特徴を参考に、表-1に示す値を設定した。

3. ウラン廃棄物の処分における安全評価モデルの研究及び試計算

(1) 試計算で使用したシナリオ

(a) 処分場の形態を設定しない場合

掘削土壌中に $1 \mu\text{g/g}$ -soil の濃度のウランが存在すると考えて被ばく線量を求めた。

被ばく線量の算出で考慮した被ばくシナリオは次の 3 種類である。

1) 外部被ばく（処分施設の掘削に伴う放射線被ばく）

掘削土は無限に広がっており、そこに立ち入った人は掘削土からの放射線によって外部被ばくする。

2) 吸入被ばく（処分施設の掘削に伴う浮遊塵の吸入攝取）

掘削土が広がったところに立ち入った人は、そこから舞い上がった粉塵に含まれる放射性物質を吸入して内部被曝する。

3) 経口攝取被ばく（処分施設の掘削土と平衡な水の経口攝取）

掘削土中に井戸を掘りこの井戸水を攝取して内部被ばくする。

(b) 処分場の形態を設定した場合

申請書の値を参考に具体的な濃度として 200ℓ ドラム缶あたり 500 g のウランが含まれていると仮定してその被ばく線量を求めた。

1) 外部被ばく

- ・処分施設の掘削に伴う建設機器の遮蔽下での放射線による外部被ばく
- ・居住に伴う処分施設の掘削土からの客土を透過した放射線による外部被ばく

2) 吸入被ばく

- ・処分施設の掘削に伴う浮遊塵の吸入攝取による内部被ばく

3) 経口攝取被ばく

- ・処分施設の端における井戸水の飲用に伴う内部被ばく

(2) 計算結果

(a) 処分場の形態を設定しない場合の試算結果

ウラン濃度 $1 \mu\text{g/g-soil}$ の処分を行った場合の被ばく線量の試算結果から、ウランの種類及び評価シナリオ毎に濃度上限値を求めた（表-3）。ここに挙げた被ばく線量の値は1000万年までの間に最大となる値であり、評価期間については何ら考慮していない点に留意が必要である。さらに、ウラン濃度 $1 \mu\text{g/g-soil}$ の処分によってもたらされる線量を基に、基準線量である $10 \mu\text{Sv/y}$ 相当の濃度に換算して、濃度上限値を求めた（表-4）。

これらの濃度上限値は、処分施設を含めて廃棄物が均一混合された状況での濃度であり、廃棄体中の濃度を表したものではない。なお、現行の政令で定められている濃度上限値では、廃棄体の平均濃度上限値から廃棄物の濃度分布を考慮して一桁上の値が設定されている。

この結果より、ウランの種類によらず上限値を定めたとした場合、濃度上限値は次のような値となる。

- ・経口摂取シナリオが棄却できれば、 0.006Bq/g-soil 程度
- ・経口摂取シナリオが棄却できなければ、 0.001Bq/g-soil 程度

(b) 処分場の形態を設定した場合の試算結果

各シナリオにおける試算結果を表-5に示した。この試算では、1000年ごろまでは $20 \mu\text{Sv/y}$ を下回るが、娘核種の影響が現れる10万年以降には $300 \mu\text{Sv/y}$ 程度になった。

この結果は天然ウランを対象にしたものであり、濃縮ウランでは(a)の結果に示されるように、この値よりもさらに高い被ばく線量となる。

4. まとめ

- (1) ウラン廃棄物中の放射性物質のインベントリーは、焼却灰、コンクリート片についてサンプリングした結果、焼却灰中の濃度は高いものの、量的に多いコンクリート片の濃度は

かなり低い。

- (2) 雜固体については、表面線量率のデータしかなく、放射能濃度の分析が必要である。
- (3) 簡易な浅地中処分法を雑多な濃度のウラン廃棄物全体に適用した場合、ウランの娘核種の影響について、自然界に広く存在するウランから娘核種が生じていることも考慮した許容線量の考え方等を検討する必要がある。

参考文献

(1) 加藤正平、藪田肇：放射性廃棄物浅地中処分の安全性評価に用いる分配係数、

日本原子力学会誌 vol. 28 № 4 (1986) の Table 1

(2) U. S. NRC : Update of Part 61 impacts analysis methodology,

NUREG/CR-4370 (1986) の Table 4-11

表-1 核種の土壤に対する分配係数

元素	設定値 (m l / g)	設定理由
U	15	文献(1)の対数平均値(1.2)より設定
Pa	15	文献(2)を参考にUと同じ値に設定
Th	10000	文献(1)の対数平均値(4.9)より保守的に設定
Ac	10	文献(2)を参考にUの2/3に設定
Ra	100	文献(1)の対数平均値(2.78)より保守的に設定
Fr	200	文献(1)の値(200)より設定
Rn	0	希ガスなので保守的に設定
At	0	保守的に設定
Po	100	文献(1)の対数平均値(2.2)より保守的に設定
Bi	10000	文献(1)の対数平均値(4.5)より保守的に設定
Pb	400	文献(1)の値(400)より設定
Tl	0	文献(1)の値(2)より保守的に設定
Hg	0	保守的に設定

表-2 核種のセメント系材料に対する分配係数

元素	設定値 (m l / g)
U	15
Pa	15
Th	10000
Ac	10
Ra	100
Pb	400

*)NRPB-M137 の値を使用

表-3 初期濃度 $1 \mu\text{g/g-soil}$ の時の各シナリオでの最大被ばく線量

	初期濃度 (Bq/g-soil)	外部被ばく ($\mu\text{Sv/y}$)	吸入被ばく ($\mu\text{Sv/y}$)	経口摂取 ($\mu\text{Sv/y}$)	最大値 ($\mu\text{Sv/y}$)
天然U	0.025	43	3.2	200	200
濃縮U	0.111	200	15	1000	1000
劣化U	0.016	43	2.5	140	140

* 初期濃度 ($1 \mu\text{g/g-soil}$)

表-4 上記の被ばく線量より求めた各被ばく路線での濃度上限値 ($10 \mu\text{Sv/y}$ 基準)

		外部被ばく	吸入被ばく	経口摂取	最大値
天然U	放射能濃度	0.0058	0.078	0.0013	0.0013
	重量濃度	0.23	3.1	0.05	0.05
濃縮U	放射能濃度	0.0056	0.074	0.0011	0.0011
	重量濃度	0.05	0.67	0.01	0.01
劣化U	放射能濃度	0.0058	0.064	0.0011	0.0011
	重量濃度	0.23	4.0	0.071	0.071

単位：放射能濃度(Bq/g-soil)、重量濃度 ($\mu\text{g/g-soil}$)

表-5 各シナリオにおける被ばく線量

シナリオ	被ばく線量 ($\mu\text{Sv/y}$)
掘削に伴う外部被ばく	4 ~ 100
掘削に伴う吸入被ばく	7 ~ 30
居住に伴う外部被ばく	10 ~ 300
近接井戸水の飲用被ばく(0m)	20 ~ 70
300 m下流の井戸の飲用被ばく	20 ~ 200

回収ウラン廃棄物に係る安全性の研究

平成元年度～平成5年度

本社・環境技術開発推進本部

間野正

東海・環境技術開発部・地層処分開発室

伊藤勝

I. 研究の概要

本研究課題は、使用済燃料の再処理により回収されたウランの濃縮、加工工程等により発生する主として回収ウランにより汚染された廃棄物の処分の安全評価に資することを目的として設定した。当初は、回収ウラン廃棄物を対象に「ウラン廃棄物に係る安全性の研究」と同じ研究内容を予定していた。すなわち、

- (1) 回収ウラン廃棄物に含まれる放射性核種のインベントリー調査を行い、
- (2) 回収ウラン廃棄物に含まれる放射性核種の人工バリア及び天然バリアにおける挙動特性の研究を行うとともに、
- (3) 回収ウラン廃棄物の処理・処分における安全評価モデルの研究及びデータベースの拡充を行うことにより、その処分の安全評価に資することとした。

II. 研究成果

回収ウラン廃棄物の処分の安全性に関する研究を効率的に進めていくために、回収ウラン廃棄物と他のウラン廃棄物との特性の相違点を調査した。主な相違点は、ウラン同位体組成及び微量に含まれる核分裂生成物(FP)であるが、予備検討の結果、前者についてはウラン廃棄物を対象とした核種毎の評価を適用することが可能であること、後者についてはFP等の含有量が検出限界以下であり無視できるほど小さいことが文献調査⁽¹⁾により判明した。

以上の予備検討結果より、「回収ウラン廃棄物に係る安全性の研究」として「ウラン廃棄物に係る安全性の研究」と独立に研究を実施する必要ないと判断した。

参考文献

- (1) I. Yasuda et. al., "CONVERSION OF REPROCESSED URANIUM IN JAPAN", PROCEEDINGS OF A TECHNICAL COMMITTEE MEETING ON ADVANCES IN URANIUM AND CONVERSION ORGANIZED BY THE INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, 1986.

トリチウム廃棄物の処分の安全性に係る研究

平成元年度～平成5年度

本社・動力炉開発推進本部・ふげん計画管理課 新澤達也

I. 概要

重水炉（A T R）においては、重水（減速材）の中性子吸収によってトリチウムが生成し重水系内に蓄積し平衡濃度に達する。この重水中のトリチウムについて、水／水素同位体交換反応法を用い分離濃縮できることを実証した。トリチウムの固定化については、チタンスポンジ等の金属吸収材を用いた方法が考えられる。

A T Rの重水系は漏えい対策を施したクローズドタイプになっていること、また、機器等の開放点検時には、残留重水（トリチウムを含む）を重水系に戻していることから、環境及び固体廃棄物へのトリチウムの移行は十分低く抑えられており、軽水炉から発生する廃棄物と比べても、処分に係る安全性を考慮する上で、トリチウム濃縮を必要とする状況にはないことが明らかとなり、浸出特性等について特別の研究を行う必要はないとの結論を得た。

II. 研究成果

1. トリチウム・インベントリ

(1) 「ふげん」におけるトリチウムの生成・蓄積

「ふげん」におけるトリチウムは、表-1に示すとおり大部分が重水と炉心内中性子との反応により生成する。重水中のトリチウム濃度の推移の実績値及び予測値は、図-1に示すとおりである。重水からヘリウム（重水のカバーガス）に移行する水蒸気状のトリチウムについては、脱湿塔により吸着回収し、重水系内に重水として戻される。炉心部で重水が放射線分解して発生するガス状のトリチウム（ヘリウム中に移行）は、再結合器により水蒸気に変換される。図-2に重水・ヘリウム系の系統構成を示す。

(2) 重水リサイクル（系統装荷→劣化→精製→系統装荷）におけるマスバランス

「ふげん」における重水運用の基本サイクルを図-3に示す。重水系統内には約135tの重水が装荷されており、その濃度は99.7%以上に維持されている。重水系は軽水の混入による重水劣化の防止対策及び漏洩防止対策が施されているが、次のような操作により劣化重水が発生する。

- i) 重水浄化系のイオン交換樹脂の交換
- ii) 重水の水質管理に必要なサンプリング分析
- iii) 重水系機器の開放点検等のメンテナンス

劣化重水のほとんどは、重水浄化系のイオン交換樹脂の軽水化と重水化によって発生する。これらの劣化重水は、重水リサイクルによる運用を効率的に行うため、高濃度劣化重水と低濃度劣化重水に分けて精製している。

トリチウムのマスバランスについては、重水精製装置でのトリチウム濃縮がほとんど

ないため、重水リサイクルにおいて重水とトリチウムの比率はほぼ一定であり、劣化重水が発生した時点での重水とトリチウムの比率に応じて分布する。

(3) 廃棄物（気体、液体、固体）中のインベントリ

(a) 気体廃棄物

「ふげん」では、重水系機器の開放点検、重水サンプリング分析等の重水取扱作業時には、既設の非常用ガス処理系（モレキュラーシーブにより回収する装置）により気体廃棄物への移行を低減しており、その移行量は重水系統内装荷重水量に対し、重水として年間約1/20,000（約7kg）に抑えられている。

(b) 液体廃棄物

液体廃棄物への移行は、重水浄化系の樹脂交換、非常用ガス処理系水のドレン等によるもので、その移行量は重水系統内装荷重水量に対し、重水として年間約1/7,000（約20kg）である。液体廃棄物への移行量については、非常用ガス処理系水のドレン水を劣化重水として回収することにより約70%が低減できる。

(c) 固体廃棄物

固体廃棄物への移行は、主に重水系機器開放点検等のメンテナンス時に使用したウエス等の可燃性雑固体廃棄物に移行する。その移行量は重水系統内装荷重水量に対し、重水として年間約1/20,000（約7kg）である。移行したトリチウムは、そのほとんどを乾燥・吸着（モレキュラーシーブによる吸着）により劣化重水として回収することが可能であり、焼却時の気体廃棄物への移行は十分低く抑えられる。

2. ATRにおけるトリチウムの環境への影響

(1) 環境へのソーススター

(a) 気体トリチウム

環境に移行するトリチウムとしては、重水機器室等の換気系を通じて排気筒から移行する気体トリチウムと液体廃棄物処理系を通じて復水器冷却水放水口から移行する液体トリチウムが想定される。気体トリチウムの環境への移行量は、昭和63年度より重水取扱フードの排ガスを非常用ガス処理系（モレキュラーシーブにより水蒸気状のトリチウムを回収する装置）により液体側に移行させており、放出管理目標値の $1.8 \times 10^{13} \text{Bq}/\text{年}$ に対し $1.2 \times 10^{13} \text{Bq}$ （平成2年度実績）に抑えられている。液体トリチウムの環境への移行量は、現段階では非常用ガス処理系のドレン水（気体トリチウムの回収分を含む。）の全量が環境に移行しているものの、放出管理目標値の $1.1 \times 10^{13} \text{Bq}/\text{年}$ に対し $3.3 \times 10^{12} \text{Bq}$ （平成2年度実績）に抑えられている。

トリチウムの環境への移行量は、重水中のトリチウムの蓄積によって増加する傾向にあるが、非常用ガス処理系のドレン水を劣化重水として回収することによって、今後更に低減させることとしている。

(2) 環境中での拡散

(a) 気体トリチウム

「ふげん」における気体トリチウムの環境への移行量は、放出管理目標値を十分下回っており、周辺監視区域境界（浦底地区）での大気中トリチウム濃度についても、

その実測値（3ヶ月平均濃度）は濃度限度の $5 \times 10^{-3} \text{Bq}/\text{cm}^3 \text{air}$ に対し、 $1 \times 10^{-7} \text{Bq}/\text{cm}^3 \text{air}$ 以下であり十分低いレベルである。また、主排気筒からのトリチウム放出量をもとに大気中トリチウム濃度を原子炉設置許可申請時の周辺公衆の被ばく評価に用いた拡散モデルにより試算した結果、実測値と良く一致した。

(b) 液体トリチウム

液体廃棄物は、液体廃棄物処理系のサンプルタンクにおいてその濃度を確認し、復水器冷却水等の希釈水量を考慮して、復水器冷却水放水路での濃度が周辺監視区域境界における濃度限度を十分下回るよう希釈方法をその都度設定しており、環境での濃度は十分低く管理されている。海洋でのトリチウム濃度の実測値は、周辺監視区域外の濃度限度の $6 \times 10^1 \text{Bq}/\text{cm}^3$ に対し $3 \times 10^{-3} \text{Bq}/\text{cm}^3$ 以下でありバックグラウンドレベルに抑えられている。

3. トリチウムの回収、濃縮

(1) 重水からの分離・濃縮

「ふげん」の減速材である重水からトリチウムを分離除去することにより、トリチウムの環境への移行量の低減、トリチウムによる内部被ばくの低減、重水系機器点検の効率化等の効果が期待できる。現状では、環境への移行量及びトリチウムによる内部被ばく量ともに十分低く管理されており、重水、軽水からのトリチウム分離の必要はないが、ATR技術の高度化研究として、重水からのトリチウム分離に関する基礎試験、予備試験を実施しその性能を確認した。

「ふげん」では、疏水性白金触媒を用いた「水・水素同位体交換反応法」に基づくプロセスとして、低濃度劣化重水の精製を目的とした重水精製装置Ⅱを設置しており、疏水性白金触媒（我が国で独自に開発されたKOGEL触媒）のD-T系での分離性能並びに重水精製装置ⅡでのD-T分離予備試験が終了している。これにより当該触媒が実際に供し得ることを明らかにするとともに、基礎性能に関するデータが得られている。また、D-T分離予備試験では、疏水性白金触媒を用いた「水・水素同位体交換反応法」に基づくプロセスにH-D分離とD-T分離の両機能を持たせ得ることを実証した。

図-4に重水精製装置Ⅱによる劣化重水の精製と重水中トリチウム分離除去の概念図を示す。

(2) 廃棄物からの回収、濃縮

「ふげん」では、トリチウムによる内部被ばくの低減を図る観点から、重水系機器の開放点検に際し、乾燥空気を用いて点検対象機器を事前に乾燥している。乾燥排ガスにはトリチウムを含む重水蒸気が含まれるため、既設の非常用ガス処理系（モレキュラーシップを用いた大型除湿装置）により重水蒸気を回収し、液体廃棄物処理系にドレンしている。

乾燥後の機器内部に若干の重水が残留する場合には、乾燥ウエスにより拭き取ることとしており、これによって可燃性雑固体廃棄物にトリチウムが移行する。この使用済ウエスは、脱水処理した後、グローブボックス化した専用乾燥器により乾燥処理し、可燃性雑固体廃棄物としてドラム缶等に詰め貯蔵保管している。乾燥排ガスには、トリチウムを含む重水蒸気が含まれるため、非常用ガス処理系により処理している。

このように、気体廃棄物及び可燃性雑固体廃棄物に移行したトリチウムは非常用ガス処理系で処理しているが、そのドレン水（モレキュラーシープ再生後の凝縮水）は、重水系機器室等の空気も多量に吸引しているため、空気中の軽水分により重水が希釈され、重水濃度が0.1%以下（天然水中の重水含有量は0.02%）に低下しており、再濃縮せずに液体廃棄物処理系に廃棄してきた。これによるトリチウムの環境への移行は約70%にのぼることから、当該重水蒸気を小型の除湿装置により外気を隔離した状態で劣化重水として回収し、重水精製装置により再濃縮して系統に再装荷する方法を検討した。図-5に定期点検時のトリチウム移行低減対策の概念図を示す。

4. トリチウムの固定化及び処分

ATRでは、運転に伴って重水中にトリチウムが蓄積するが、トリチウムの漏洩箇所が限られており、発生源において十分回収できるため、トリチウム分離を行わずとも作業環境及び環境へのトリチウムの移行は十分低く抑えられる。また、トリチウム分離により重水中のトリチウム濃度を低下させるためには、「ふげん」の場合でも約160tの系統重水を処理できる大規模な装置が必要となる他、トリチウムの濃縮・固定化・保管等の新たな施設・設備も必要となる。これらのことから、通常の重水系機器の開放点検等の作業に対するトリチウム漏洩対策として、今後トリチウム分離・濃縮を実施する可能性は低く、ATRを対象としたトリチウムの固定化、固化体からの侵出挙動に関する研究並びに処分に係わる安全評価モデルの研究は実施していない。

なお、ATRでは液体廃棄物の濃縮・固化処理によって若干のトリチウムを含む固化体が発生するが、重水系から発生する重水廃液を重水ドレン処理系において別に処理しているため、固化体中のトリチウムの濃度は軽水炉と同レベルに抑えられており、新たに安全評価を必要とするものではない。

5. 結言

環境に移行するトリチウムとしては気体状トリチウムと液体状トリチウムが想定されるが、気体状トリチウムをモレキュラーシープ等により液体側に移行させることにより液体状のトリチウムとして回収・濃縮が可能である。これにより、環境及び放射性固体廃棄物中へのトリチウム移行は、十分低く抑えることができる。

〔主要レポート〕

- (1) 動燃：新型転換炉「ふげん」技術成果の概要、(TN1410 91-052)
- (2) 塚本、吉村、他：新型転換炉ふげん発電所における放射性廃棄物処理技術、動燃技報 No. 77
- (3) 新型転換炉ふげん発電所：重水取扱技術と重水管理技術、動燃技報 No. 69
- (4) 清田、塚本、他：放出放射能低減対策と周辺環境モニタリング、水／水素同位体交換反応法による重水精製装置の開発、(SN3410 89-021)

表-1 トリチウム生成量の計算値

生 成 反 応	トリチウム生成量 (GBq/year)
$^2\text{H} (\text{n}, \gamma) ^3\text{H}$	約 7×10^8
$^3\text{He} (\text{n}, \text{p}) ^3\text{H}$	約 4×10^4 以下
$^7\text{Li} (\text{n}, \text{n} + \alpha) ^3\text{H}$	約 4×10^2 以下
$^{10}\text{B} (\text{n}, 2\alpha) ^3\text{H}$	約 4×10^2 以下

計算条件 : 熱中性子束 5.6×10^{13} ($\text{1/cm}^2/\text{sec}$)

高速中性子束 : 1.1×10^{13} ($\text{1/cm}^2/\text{sec}$)

運転時間 : 365/年で定格出力運転

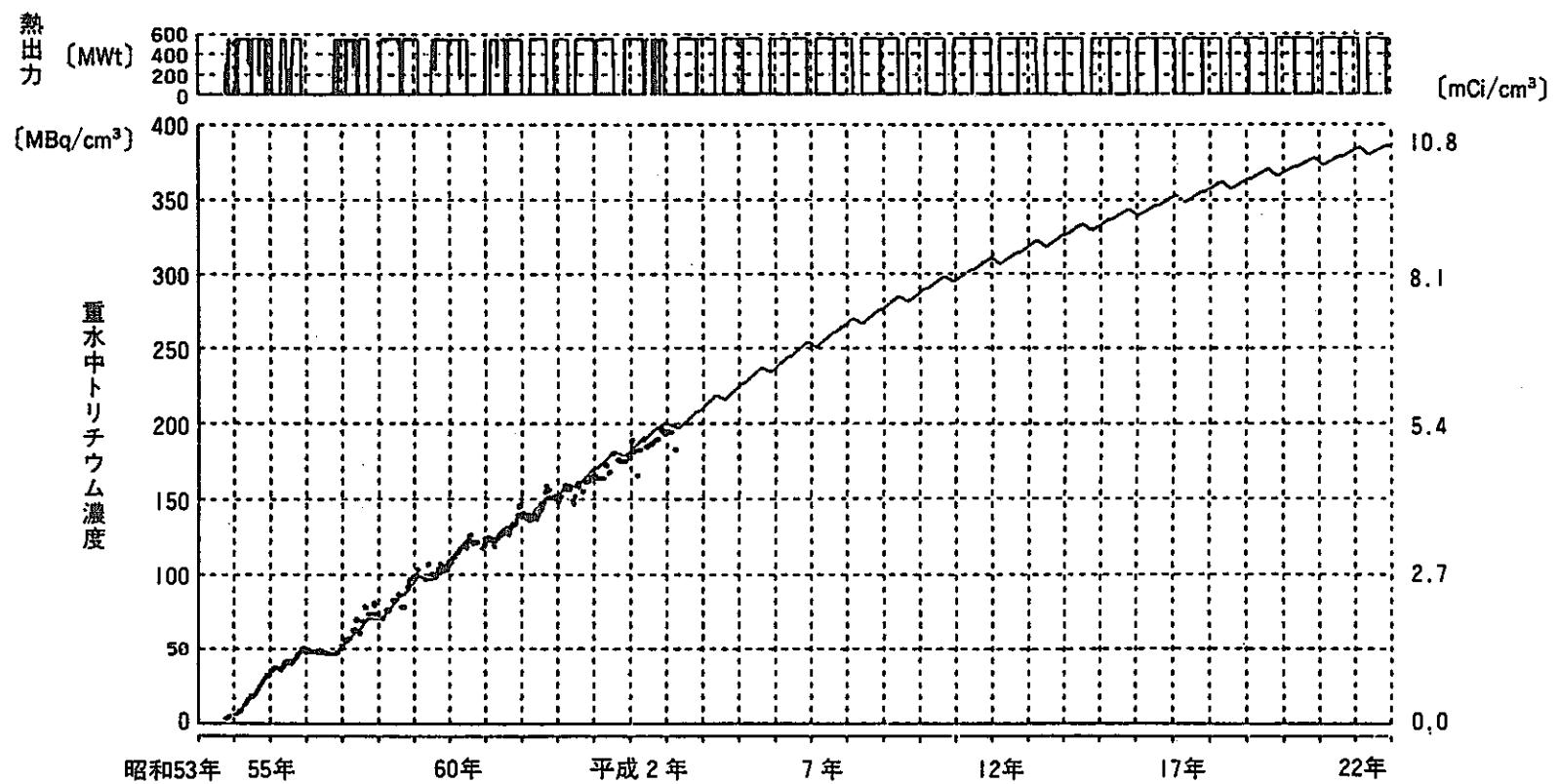


図-1 重水中のトリチウム濃度上昇予測

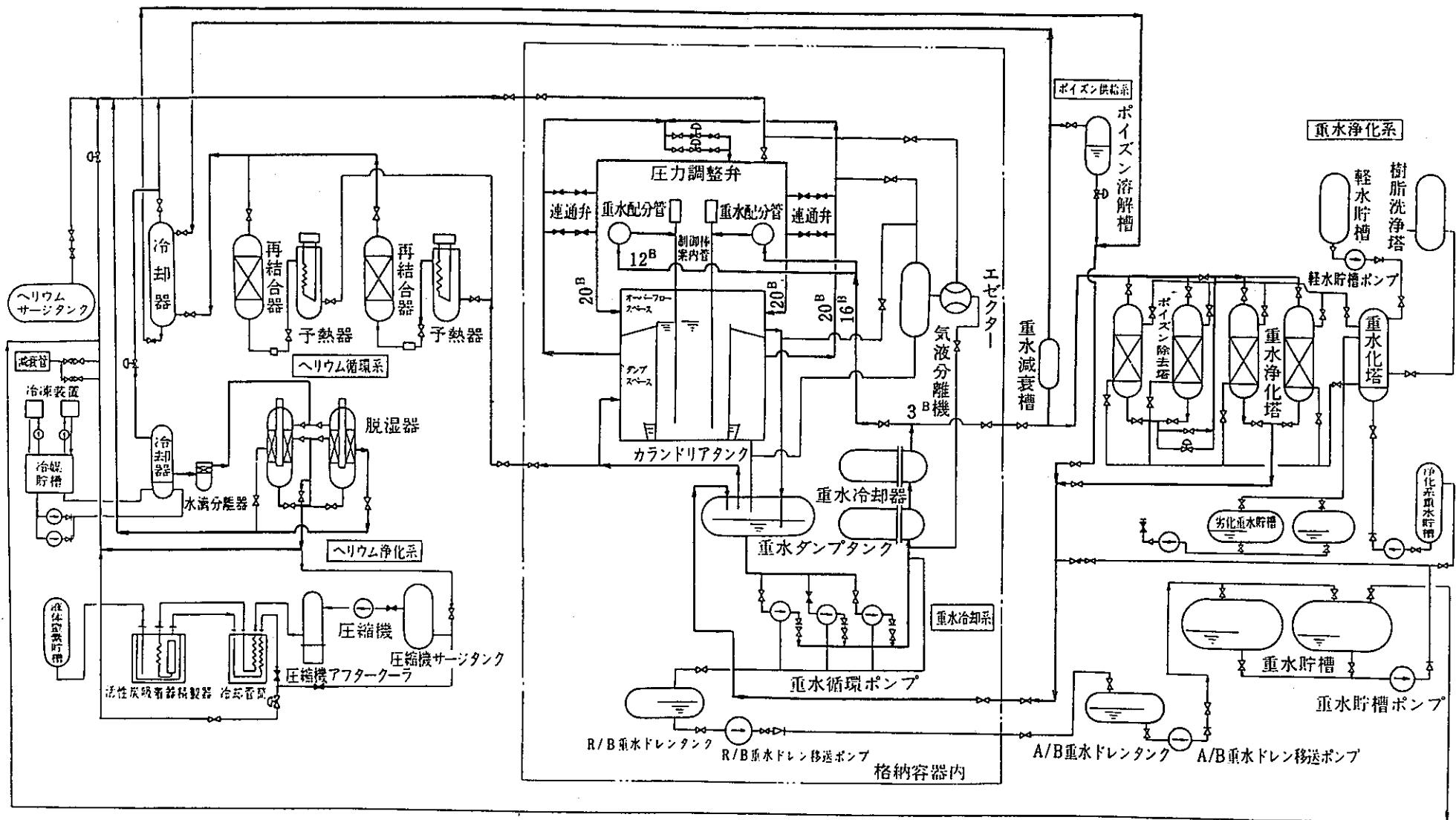


図-2 重水・ヘリウム系の概略系統

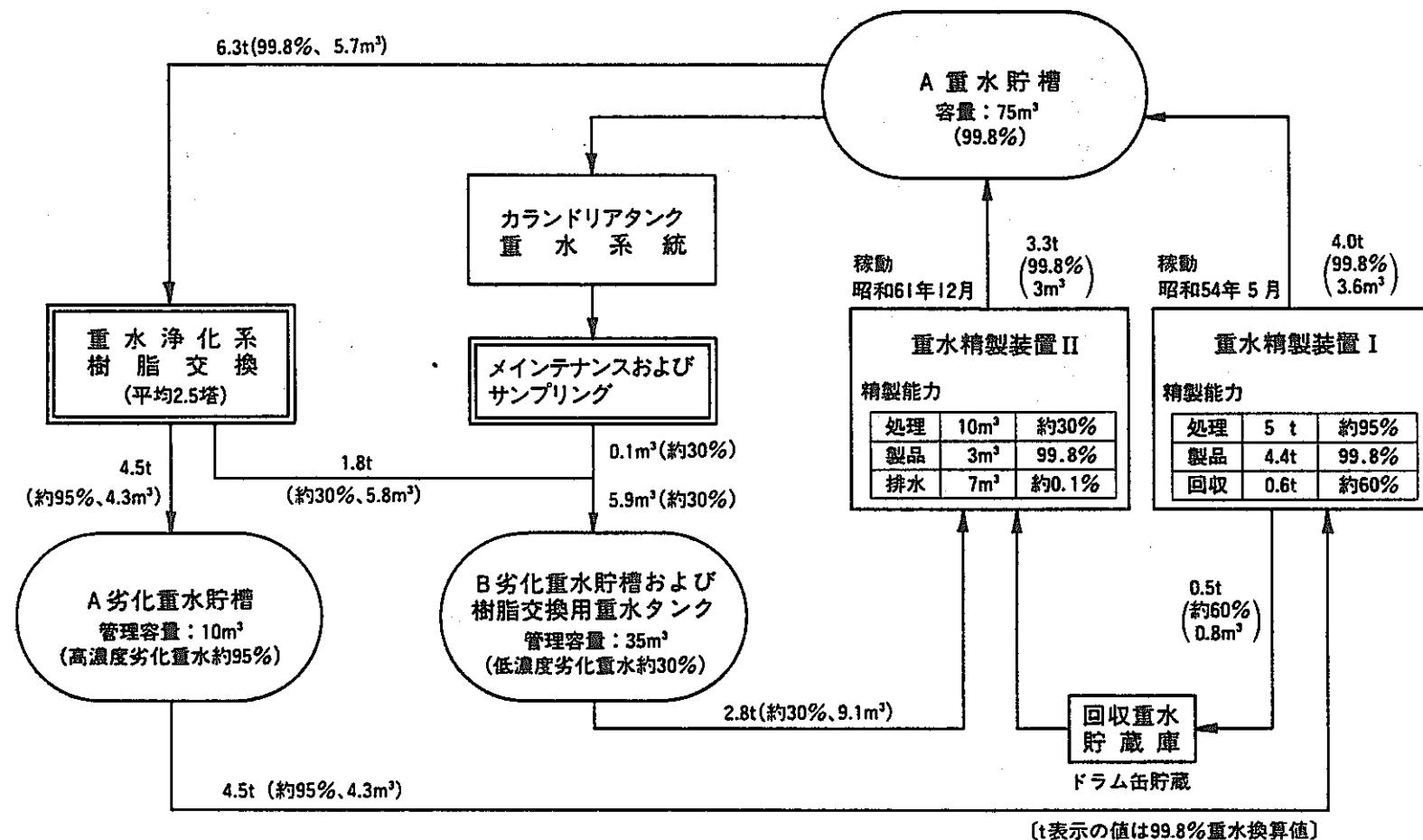


図-3 「ふげん」の重水運用サイクル

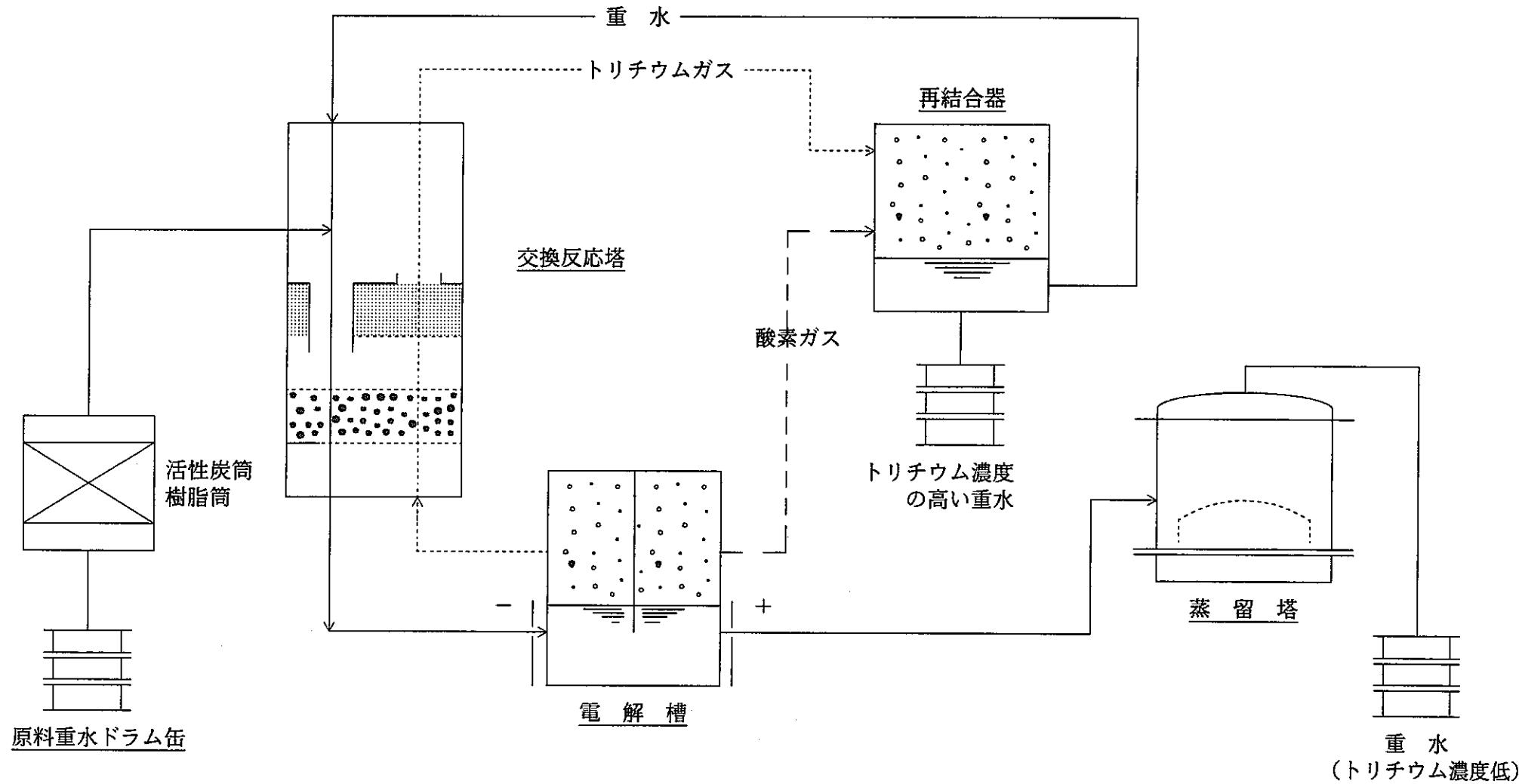
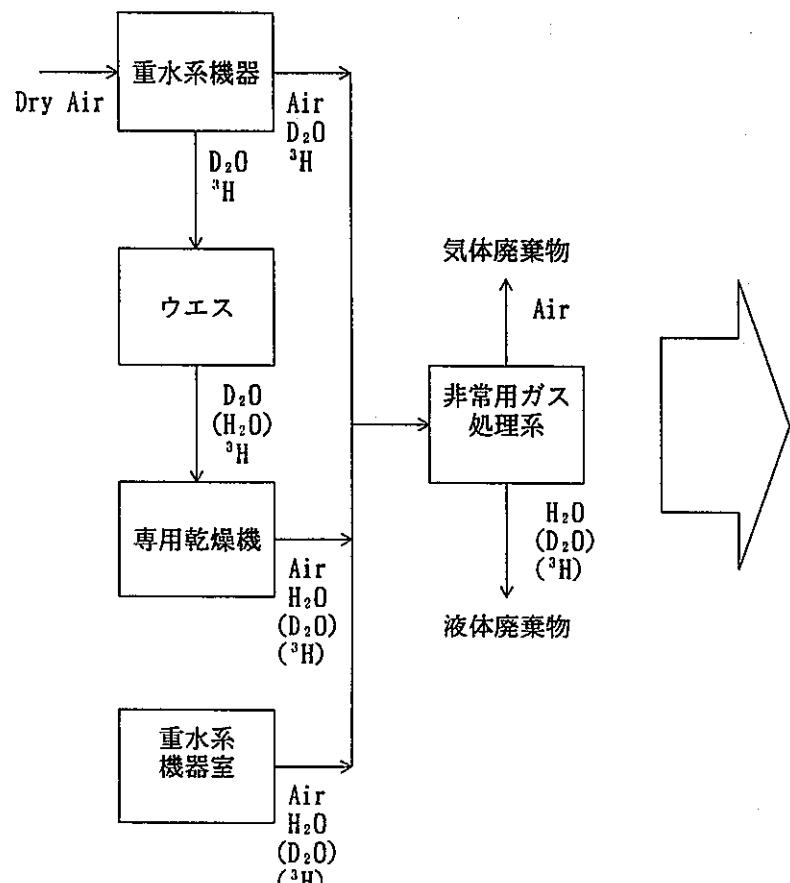
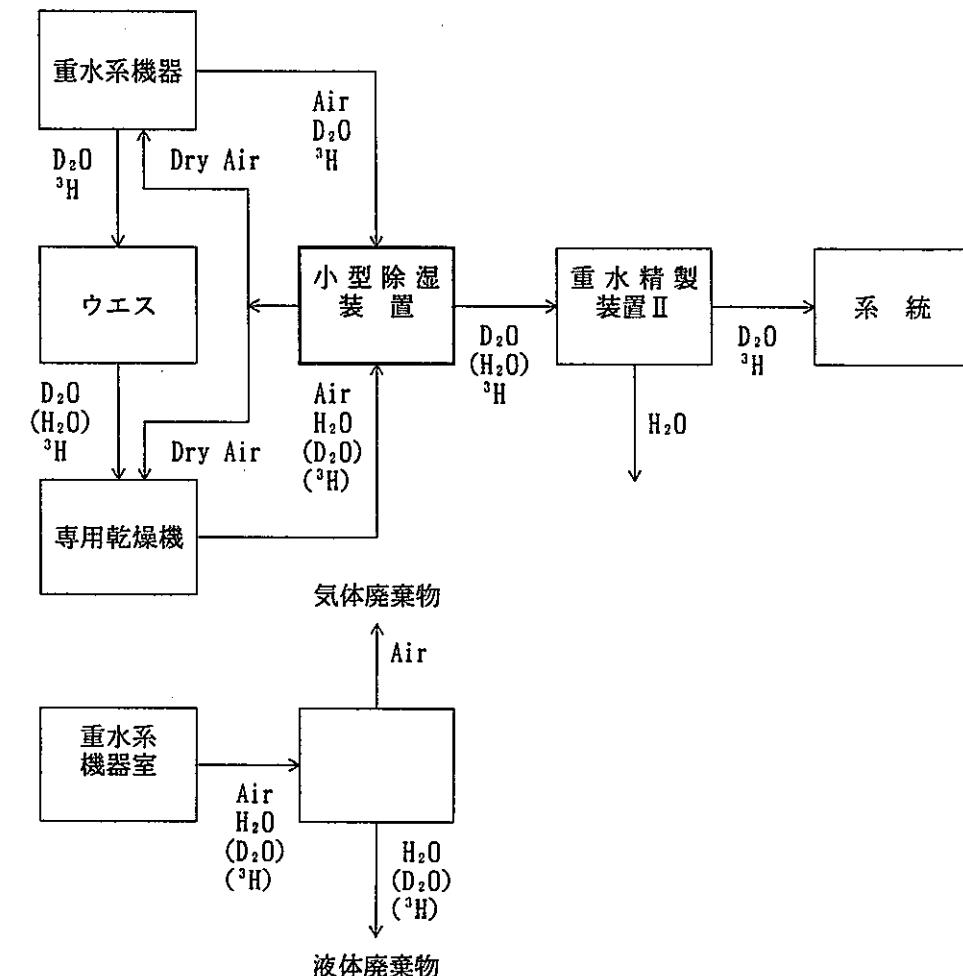


図-4 水・水素同位体交換反応法による重水中のトリチウム分離の概念図



(從來)



(対策実施後)

図-5 定期点検時の液体トリチウム放出量の低減対策