

動燃事業団におけるナチュラルアナログ研究

1989年7月



環境技術開発推進本部処分研究グループ
中部事業所環境地質課
東海事業所環境技術開発部地層処分開発室

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団

技術協力部 技術管理室

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

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

動燃事業団におけるナチュラルアナログ研究

財津知久* 落合洋治** 武田精悦**

亀井玄人*** 新井隆*** 湯佐泰久***

要 旨

放射性廃棄物の地層処分に関する研究の一環として、東海事業所環境技術開発部地層処分開発室は人工バリアに関するナチュラルアナログ研究を、中部事業所環境地質課は天然バリアに関するナチュラルアナログ研究を実施している。

前者のテーマとしては廃棄物ガラスの安定性、パッケージを構成する金属の腐食、緩衝材（ベントナイト）の長期安定性、コンクリートの化学的変質がある。これらの研究はナチュラルアナログ（天然類似物）の分析だけでなく、環境条件の定量的把握および室内変質試験からなり、処分システムの性能評価に必要なモデルの開発・改良・確証に役立てる目的としている。

後者のテーマは、現在、東濃ウラン鉱床においてウランやラジウム等の核種の存在状態、遷延・移行現象等を地質環境との関連において解明することであり、これらの研究は天然バリアにおける核種の移行に関する長期にわたる現象やメカニズムの理解に役立つと期待される。

* : 環境技術開発推進本部処分研究グループ

** : 中部事業所環境地質課

***: 東海事業所環境技術開発部地区処分開発室

目 次

I 総 論	1
1. はじめに	1
2. ナチュラルアナログ研究の意義と現状の問題点	1
3. ナチュラルアナログ研究の性能評価との関連性	2
4. ナチュラルアナログ研究の方向性	2
II 人工バリアに関するナチュラルアナログ研究	2
1. はじめに	2
2. ガラスのナチュラルアナログ研究	10
3. ベントナイトのナチュラルアナログ研究	14
4. 金属のナチュラルアナログ研究	19
5. コンクリートのナチュラルアナログ研究	24
6. 今後の計画	28
III 天然バリアに関するナチュラルアナログ研究	
1. はじめに	34
2. 天然バリアのナチュラルアナログ研究	38
3. 今後の計画	48
IV 文 献	50

図 目 次

図 I - 1 地層処分における各研究手法の特徴	4
図 I - 2 ナチュラルアナログ研究の役割	4
図 I - 3 性能評価研究の流れ	5
図 I - 4 地下水による放射性核種移行シナリオ	6
図 I - 5 天然類似物の性質	7
図 II - 1 性能評価と人工バリアのナチュラルアナログ研究との関係	9
図 II - 2 地下水流速とガラスからの元素の放出率の関係	13
図 II - 3 100 %スメクタイトから20%スメクタイト(イライト/スメクタイト混合層中) に変化するのに必要な時間変化(Eberl and Hower ^[10])	18
図 II - 4 炭素鋼の腐食進展モデルの一例	22
図 II - 5 コンクリートの変質とその処分に与える影響	26
図 II - 6 コンクリート間隔水の pH の経時変化の推定例	26
図 III - 1 ファーフィールドにおける核種移行評価の進め方	36
図 III - 2 核種の運延に係わるメカニズム	37
図 III - 3 東濃地域におけるナチュラルアナログ研究	47

表 目 次

表II-1	ナチュラルアナログ研究の性能評価との関連（I）	12
表II-2	ナチュラルアナログ研究の性能評価との関連（II）	17
表II-3	ナチュラルアナログ研究の性能評価との関連（III）	23
表II-4	ナチュラルアナログ研究の性能評価との関連（IV）	27
表II-5	ガラスのナチュラルアナログ研究スケジュール	30
表II-6	ベントナイトのナチュラルアナログ研究スケジュール	31
表II-7	金属のナチュラルアナログ研究スケジュール	32
表II-8	コンクリートのナチュラルアナログ研究スケジュール	33
表III-1	ナチュラルアナログ研究の主要課題（I）	42
表III-2	ナチュラルアナログ研究の主要課題（II）	43
表III-3	ナチュラルアナログ研究の主要課題（III）	44
表III-4	ナチュラルアナログ研究の主要課題（IV）	45
表III-5	ナチュラルアナログ研究の主要課題（V）	46
表III-6	天然バリアのナチュラルアナログ研究スケジュール	49

I 総 論

1. はじめに

地層処分が我が国において実現できることを立証するためには、極めて長期にわたる諸現象を理解し、予測する必要がある。そのために、(1)室内試験や原位置試験（野外試験とも言う）により、諸現象を解明すること、(2)ナチュラルアナログ研究により、これらの現象が長期にわたってどのように進行するかを理解すること、さらに、(3)このような理解に基づいてモデルを構築し、その解析により長期現象の予測をすることが重要となる。従って、我が国における地層処分の実現性を立証する上では、室内試験、原位置試験、ナチュラルアナログ研究等の各試験研究を有機的に進めることと、それに基づくモデルの開発が地層処分の研究開発の重要な柱となる。

動燃事業団は東海事業所環境技術開発部地層処分開発室において、人工バリアのナチュラルアナログ研究を、中部事業所環境地質課においては天然バリアに関するナチュラルアナログ研究を実施しており、一部の成果についてはすでに原子力学会や国際会議等で発表している^{1)～6)}。

本報告はこれらのナチュラルアナログ研究についてまとめたものである。

2. ナチュラル・アナログ研究の意義と現状の問題点

現象のモデル化やそのモデルの確証に際しては、室内実験、原位置試験の結果が用いられるが、このような人間の行う実験では常に時間的制約がある。ナチュラルアナログは自然が十分な時間をかけて行った実験であるとみなすことができ、地層処分システムの非常に長期の挙動を予測するために有効な、そして、他の方法では得られない貴重なデータをナチュラルアナログ研究から得ることができる。図I-1にナチュラルアナログ研究の特徴を室内試験や原位置試験とともに示した。

しかし、ナチュラルアナログ研究でどのようなデータが得られ、それが性能評価にどのように反映されるかについては、よく知られているとは言い難い。ナチュラルアナログはもともと条件を制御して行った“実験”ではない。また初期条件や境界条件等を定量的に把握できる天然の現象は少ないとも言える。

世界的にみても今までに発表されたナチュラルアナログ研究の多くは、この点に関しては定性的といわざる得ない。（なおナチュラルアナログ研究の世界の現状については

山川⁷⁾がまとめているのでそれを参照されたい。)

3. ナチュラルアナログ研究の性能評価との関連性

ナチュラルアナログ研究の性能評価への寄与の仕方は、(1)シナリオに関するもの、(2)モデルに関するもの、(3)データに関するものに分けられる(図I-2)。

また一方では、性能評価研究を進めていく手順(図I-3)の中でナチュラルアナログ研究は、(1)現象の理解のための研究、ないしは(2)性能評価モデルの確証のための研究として位置付けられる。そして、これを前述のシナリオ、モデル、データと関連させた場合、現象の理解はシナリオを知るための研究であり、性能評価モデルの確証のためのナチュラルアナログ研究はモデル及びデータに関するものであると言える。

また、ナチュラルアナログ研究は“現象の理解”に関しては、定性的な研究でも止むを得ない場合があるが、“モデルの確証”的の研究にはそのデータはできるだけ定量的な数値であることが望まれる。

4. ナチュラルアナログ研究の方向性

地下水移行シナリオを図I-4に示す。ニアフィールドとファーフィールドを相対的に比較した場合、ニアフィールドのシナリオの方がファーフィールドのシナリオより比較的解明されていると言えるが、ファーフィールドについてはどのような現象が支配的で、どのように核種が移行していくかについての理解はまだ十分とは言えない。すなわち、ニアフィールドに関しては、シナリオに基づき各現象をどのようにモデル化し、そのモデルをどのように確証するかが研究開発の現在の課題である。一方、ファーフィールドに関しては、どのような現象が核種移行に支配的であるかを解明する事を目的としているのが現状であって、シナリオの確定ないしはモデルの確証にはまだ到っていないといえる。

人工バリアに関するナチュラルアナログ研究は、自然環境の中に長期間存在していたバリア材料の“類似物”が、どのような地球化学的条件の下で、どのくらいの時間で、どの程度変質したのか、ということを把握することにより、処分環境下における人工バリア材の長期的な耐久性の予測に役立てようとするものである。この研究は変質モデルおよびデータ取得のための研究であることから、初期条件、境界条件等の条件を定量的に把握することが求められる。

このようなことから研究に際して配慮すべき事項は、

- ① 変質部と未変質部とが共存し、変質の進行状況が定量的に把握できること。
- ② 変質時間ならびに温度履歴が明らかであること。
- ③ 変質に関与した地下水の量が把握でき、水の性質（pH、Eh、各種イオン濃度等）も明らかであること。

である。研究対象物は図 I - 5 に示すとおり、古い物ほど研究の対象としての適性が低くなる傾向がある。このような観点から、比較的年代の若い対象物から研究を行い、徐々に年代の古い対象物に研究のテーマを移していくというアプローチをとる必要があると言える。

また、人工バリアのナチュラルアナログ研究は、天然の類似物または類似の人工物を利用するため、

- ① 研究対象と人工バリア材が必ずしも同一ではない。
- ② 研究対象の置かれた環境が処分場の環境とは異なっている。

という点に十分注意して研究を行うことが重要である。モデルの確証の信頼性を高めるためには、温度、組成などをパラメータとした地層処分システムとの対比試験を行い、これらのパラメータの影響を定量的に評価しておく必要がある。

天然バリアのナチュラルアナログ研究に関しては、東濃ウラン鉱床の研究は、その成果を日本の地質環境と関連させて理解しうるという意味で極めて重要であり、大陸地域と比較した場合、地殻変動が多いとされている我が国固有の自然環境のもとで、長期間にわたり、放射性物質を隔離することが可能であることを科学的根拠をもって示すことが期待される。

	<u>規 模</u>	<u>時 間</u>	<u>条 件</u>	<u>現 象</u>	<u>バリア</u>	<u>対象核種</u>
室内試験	小規模	短 期	制御可	单 一	単独 →複合	非放射性 →放射性
原位置試験	中規模	短 期			単独 →複合	非放射性 (→放射性)
ナチュラル アナログ	小～大 規模	長 期	制御なし	複 合	単独 (複合)	放射性 (非放射性)

図 I - 1 地層処分における各研究手法の特徴

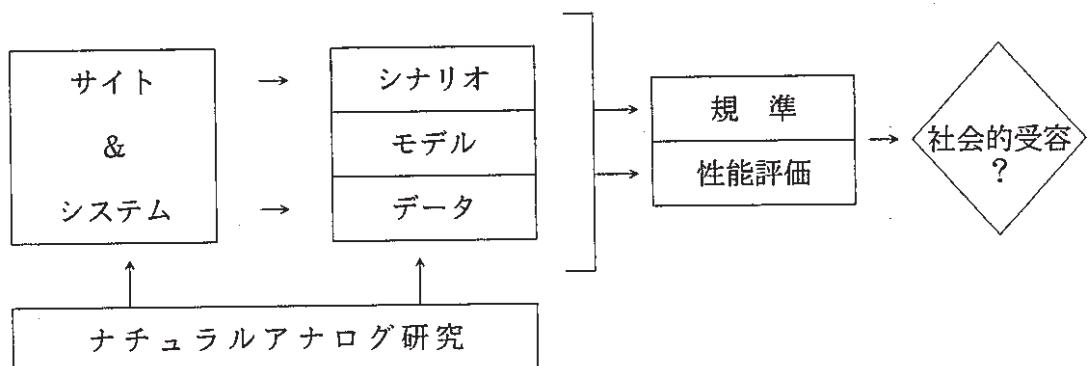


図 I - 2 ナチュラルアナログ研究の役割

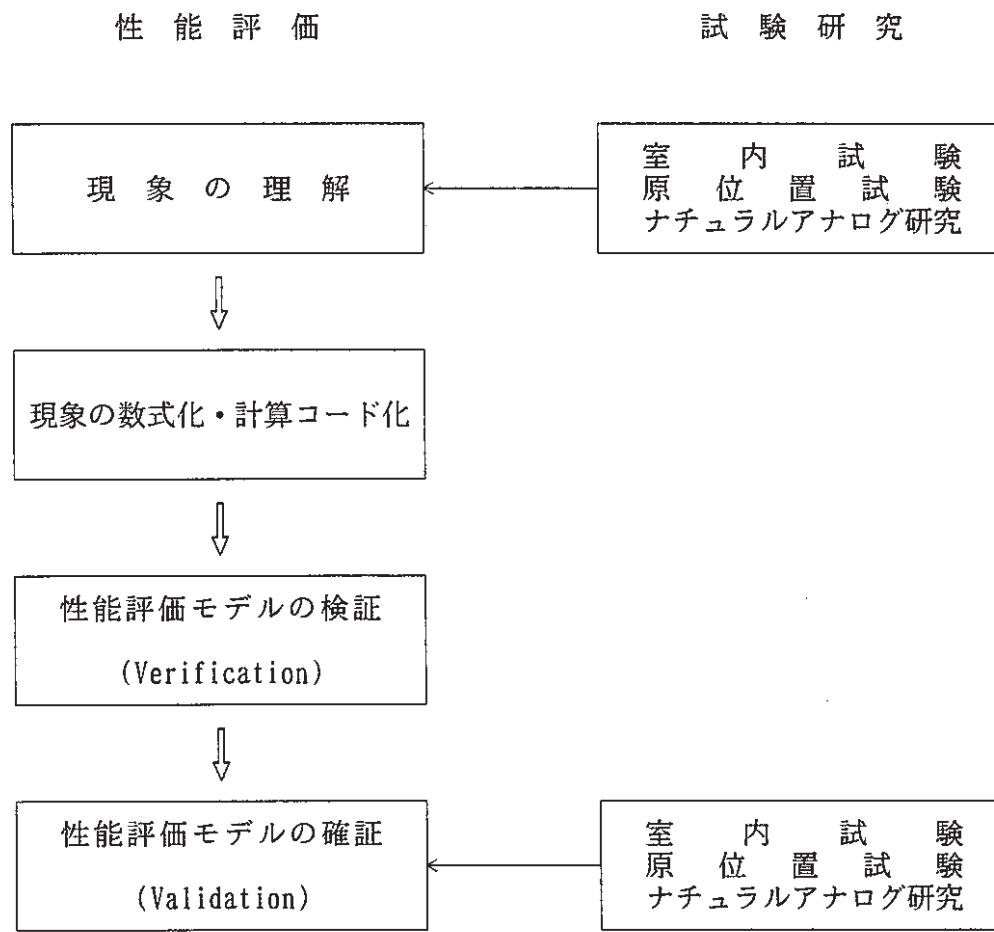


図 I - 3 性能評価研究の流れ

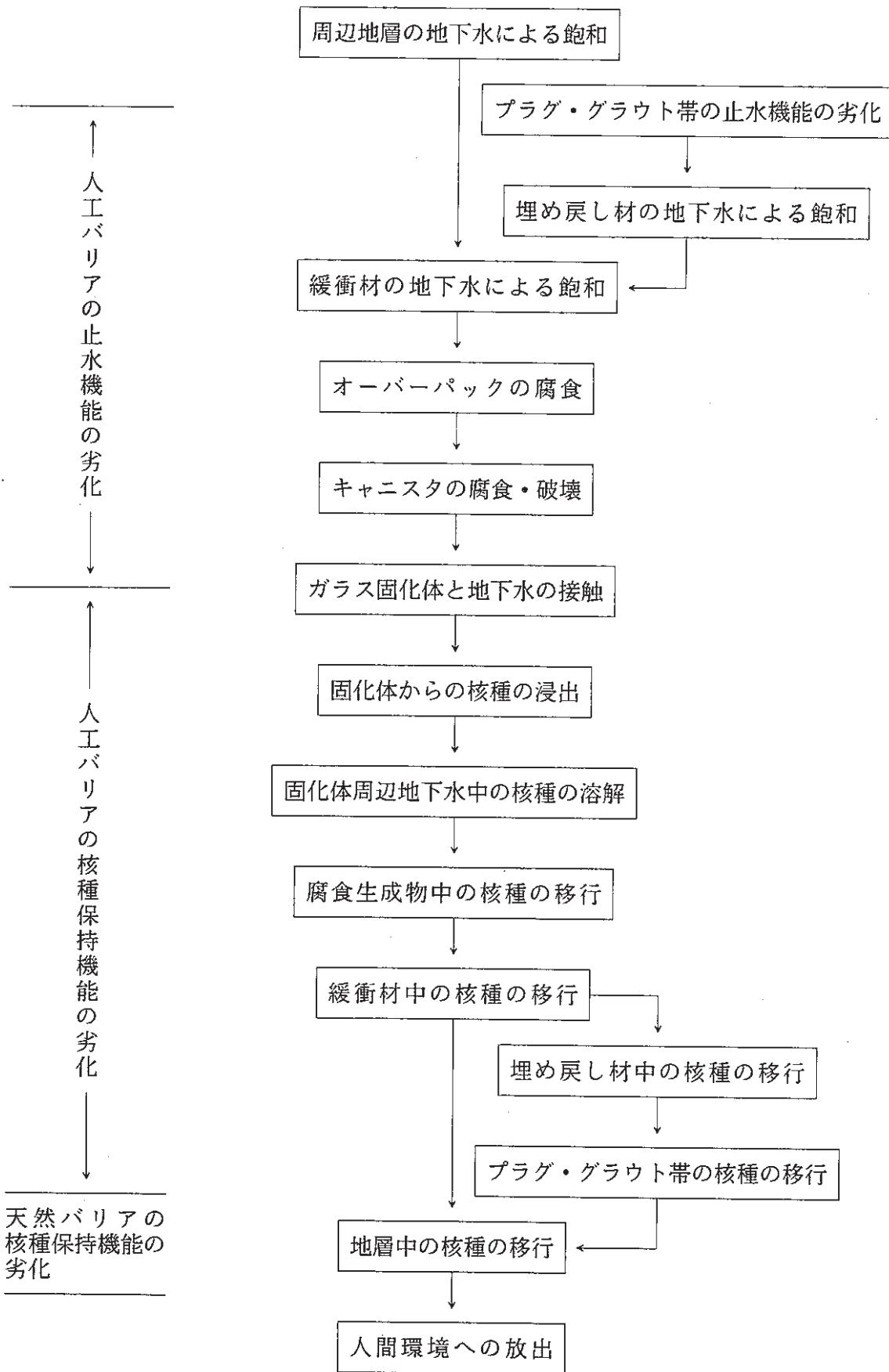


図 I - 4 地下水による放射性核種移行シナリオ

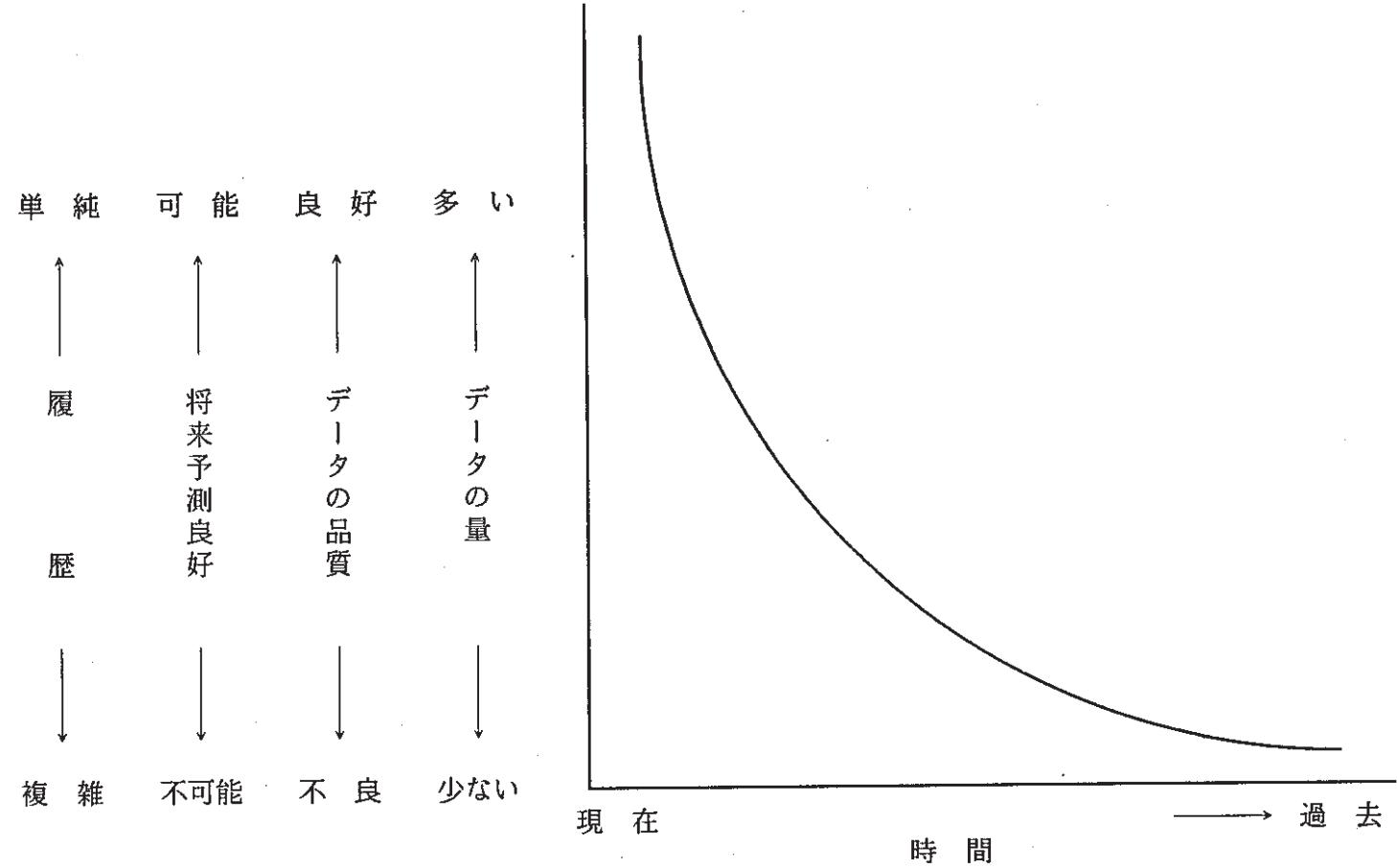


図 I - 5 天然類似物の性質

II 人工バリアのナチュラルアナログ研究

1. はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分における多重バリアシステムは、ガラス固化体*、オーバーパック、緩衝材からなる人工バリアと、岩盤または地層からなる天然バリアから構成される。人工バリア材の素材として、廃棄物の固化ガラスにはホウケイ酸ガラス、オーバーパックには金属、緩衝材にはベントナイトの使用が考えられている。また、グラウト材・埋め戻し材等としてコンクリートの使用も検討されている。

東海事業所では昭和61年度より、これらの人工バリア材料の長期耐久性の評価のためにナチュラルアナログ研究を行っている。このナチュラルアナログ研究では、長期間にわたって自然条件下で変質作用を受けた人工バリア材の類似物を対象として調査している。このような研究は室内実験では得ることのできない長期のデータが得られることに重要な意義がある。

地層処分システムの長期にわたる性能評価のためには、各人工バリアの長期間における変質挙動に関するモデルが必要である。図II-1に性能評価とナチュラルアナログ研究の関係を示す。

このようなモデルの開発または確証のためには、変質に関するデータが必要となる。室内変質試験と原位置試験では、人工バリア材と同一の試料を使える、試験条件が明確であり、必要に応じて条件を設定することができる、といったメリットがある。しかし、その試験期間は、長くても数十年以内であって、それらの結果に基づいて、数千年以上の変質現象を議論することは困難であることが多い。このような欠点を補完するのがナチュラルアナログ研究である。長期間にわたる変質現象の解明、すなわち変質モデルの開発または確証のためには、室内試験、原位置試験、及びナチュラルアナログ研究が三位一体となってすすめられなくてはならない。

本章では、東海事業所で進められている各人工バリア材のナチュラルアナログ研究の現況と、今後の計画について述べる。

また、各人工バリアのナチュラルアナログ研究と性能評価モデルとの関係を中心に表II-1～4に、ナチュラルアナログ研究の調査項目や、考えられるモデル、期待される成果等についてまとめた。

注) *ガラス固化体：「ガラス固化体」という用語は、キャニスターに詰められた廃棄物固化ガラスの意で用いられ、キャニスターを含む。
キャニスターを除いた、廃棄物を封じこめたガラスのみを指す用語としては本報告では「廃棄物ガラス」と記すことにする。

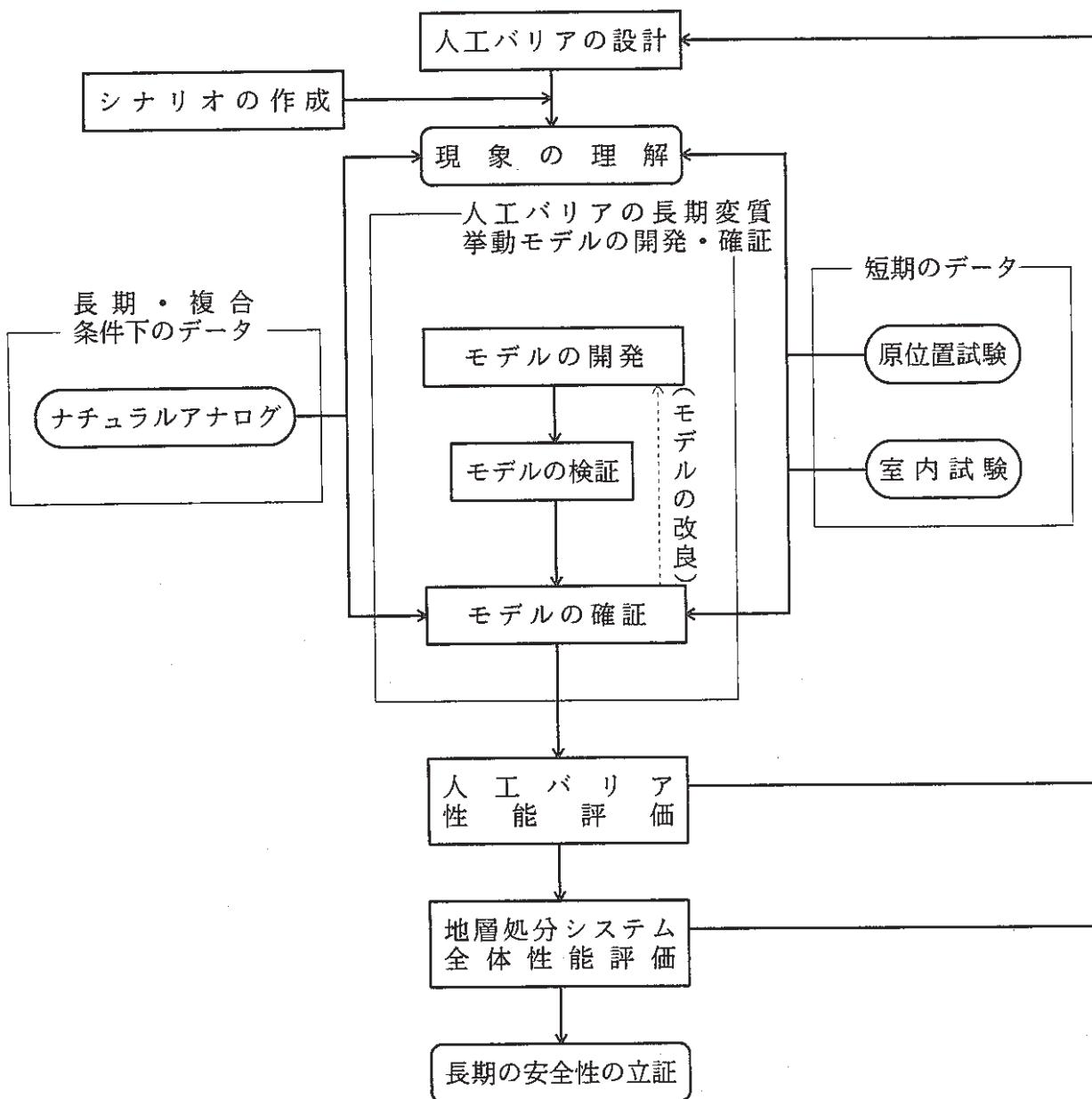


図 II - 1 性能評価と人工バリアのナチュラルアナログ研究との関係

2. ガラスのナチュラルアナログ研究と性能評価

ガラスのナチュラルアナログ研究の目的は、天然の玄武岩質ガラスの調査に基づいて、

- ① ガラスの浸出率が長期的にどのように変化するか。
- ② ガラスの変質の進行に伴ってどのような変質層が形成され、変質したガラスと平衡にある溶液の組成がどのように変化するか。

といった点を明らかにすることである。

この研究で得られた成果は、ガラス固化体から近傍の地下水への核種の放出量を求める性能評価モデルの開発・確証に反映される。

(1) 「ガラスの浸出」に関する性能評価モデルとの関連

ガラスの浸出率は、元素の種類、浸出液中にある元素の濃度、変質層の形成に伴う浸出の抑制等により複雑に変化する。性能評価では浸出率については、浸出液中の元素濃度に支配された一次反応モデルが用いられている³⁾。表II-1の4.①に一次反応モデルの式*を示した。実際の反応においては、この式の元素濃度(C)ばかりではなく、物質移動係数(k)や飽和濃度(C*)も変質の進行に伴って変化することが考えられる。

ガラスのナチュラルアナログ研究では、変質層の厚さ、変質期間、浸出液(地下水)組成等を調べることにより、このような浸出モデルの確証を行うことができる。そしてこのようなモデルの開発、確証を通じて種々の環境条件下でのガラスの長期の変質速度(浸出率及び変質層の形成速度)の評価手法を確立する。

(2) 「変質層の形成と浸出液の組成」に関する性能評価モデルとの関連

ガラスの変質層に生成する鉱物と浸出液の組成との間には密接な関連性がある。そしてこの浸出液の組成は核種の溶解度に大きな影響を与える可能性がある。したがって、変質層に形成される鉱物及びその鉱物と平衡にある浸出液の組成を求めるP H R E E Q EあるいはEQ3/6等の地球化学コードを用いたモデル(表II-1中の4.②、③)は、ガラス固化体からの核種の放出モデルの一部を構成するモデル(サブモデル)として重要な意味を持つ。

ナチュラルアナログ研究で得られる変質層構成鉱物や浸出液の組成は、このようなサブ

注) *同式はR E L E A S Eに用いられているガラスの浸出の一次反応モデルの式である。

モデルの開発及び確証に利用される。例えば、Crovisier⁹⁾は、地球化学コードを用いたモデルにより求めた玄武岩質ガラスの変質層に形成される鉱物の種類・組成・形成順序が自然条件下で変質した玄武岩質ガラスに観察されるものとよく一致することを示し、このようなモデルが長期の変質層の形成と浸出液の組成の変化の予測に有効であることを示した。

ガラスからの元素放出モデルは、表II-1の4.①～③のモデルを統合したものであり、地下水の流速等の条件により、元素の放出に浸出率が効くか溶解度が効くかが判定される。このモデルでは変質層が形成されることに伴う放出率の低下と、鉱物が形成されることに伴う、溶解度の低下（図II-2）が考慮に入れられることにより、ガラス固化体からの核種の放出の評価がより現実的なものとなる。このようなより詳細なモデル化により、放出率がより低い値になることが示されるものと期待される。

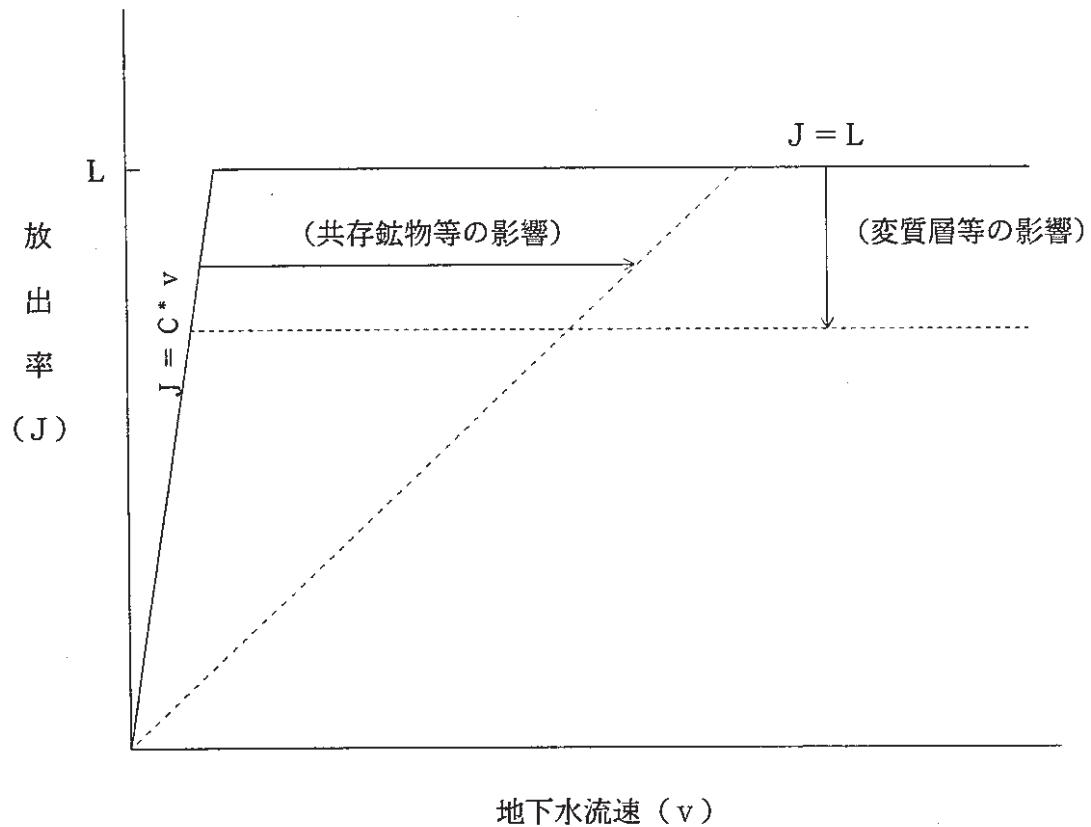
(3) ガラスに関するナチュラルアナログ研究における課題

以下に、今後の課題及び現時点での問題点とそれらの解決策について述べる。

- ① 廃棄物ガラスと天然ガラスの組成の差が変質に及ぼす影響について評価する必要がある。そのために、両方の試料について変質挙動を比較するための室内試験を計画中である。また、天然ガラスが変質した条件と処分条件との差についても、条件を変えた室内試験を行ってその影響を評価する予定である。
- ② 地層処分で移行挙動が問題となる核種が、天然ガラス中に含まれないか、または乏しいことが問題点のひとつである。その解決策として、化学的に類似する元素の挙動の調査をすすめる。
- ③ 年代の古い（3000年より古いもの）試料の環境条件の把握が必要である。年代の古いサンプルについては正確な環境条件の把握が困難になることはさけられないが、これまでも調査した比較的年代の若い（2800年より若い）試料についての結果と調和しているかどうか調べる。
- ④ 天然ガラスの表面積の見積りについて、手法を確立する必要がある。画像解析装置によって表面積を測定することも、解決策のひとつと考えられるので、これを検討・実施する。

表Ⅱ-1 ナチュラルアナログ研究の性能評価との関連(Ⅰ)

1. 研究名	ガラスのナチュラルアナログ研究
2. 調査項目	<ul style="list-style-type: none"> ① 変質期間 ○ ② 環境条件 <ul style="list-style-type: none"> a. 埋没深度とその履歴 ○ b. 変質温度 ○ c. 反応に関与した溶液の量・流速 ○ d. 反応に関与した溶液の組成 ○ (pH、Eh、溶存成分の濃度(特にSiO₂)) ③ 未変質ガラスの性状 <ul style="list-style-type: none"> a. ガラスの形状(表面積等) ○ b. ガラスの化学組成 ○ ④ 変質状態 <ul style="list-style-type: none"> a. 変質層の化学組成(希土類元素を含む△) b. 変質層の鉱物組成 ○ c. 変質層の厚さ ○ ⑤ ガラス固化体と天然ガラスの浸出挙動の比較試験 △
3. 得られるデータ	<ul style="list-style-type: none"> ① 変質層の厚さと変質期間の関係(特定の環境条件下での長期の変質速度) ② 溶液の組成(埋設深度・履歴、地下水水流速)と変質速度の関係 ③ 変質層に形成される鉱物の時間、環境条件との関係 ④ 変質層の鉱物と平衡にある溶液の組成 ⑤ 溶解度の低い元素や希土類元素の分布とガラスからの放出量 ⑥ ガラス固化体と天然ガラスの変質メカニズムの類似性
4. 性能評価との関連	<ul style="list-style-type: none"> ① ガラスの浸出モデル <ul style="list-style-type: none"> ・一次反応モデル $L = k(C^* - C)$ $L : \text{浸出率}$ $k : \text{物質移動係数}$ $C : \text{元素の濃度}$ $C^* : \text{飽和濃度}$ (モデル確証) ↔ 3.①、②、⑥ ② 表面変質層の形成モデル <ul style="list-style-type: none"> ・PHREEQE、EQ3/6によるモデル 化学種・鉱物に関しての反応式及び反応の平衡定数等の熱力学データの設定に基づく生成相の計算。 (モデル開発・確証) ↔ 3.③、⑥ ③ 溶液組成モデル <ul style="list-style-type: none"> ②の地球化学コードにより固相と平衡にある溶液の組成を求める。 (モデル開発・確証) ↔ 3.④～⑥ ④ 元素放出モデル <ul style="list-style-type: none"> 上記の①～③を考慮したガラスから近傍の溶液中への元素放出モデル(例えばRELEASE+PHREEQE)を開発する。 (モデル開発・確証) ↔ 3.①～⑥
5. 研究成果	<ul style="list-style-type: none"> ① ガラスの長期の変質速度の評価手法の確立。 ② 変質したガラスからの元素の放出速度の評価手法の確立。
6. 今後の課題	<ul style="list-style-type: none"> ① 年代の古いサンプルの環境条件の把握が困難。 ② ガラス固化体と天然ガラスの組成の差や、処分環境条件と試料の置かれていた環境条件の差の影響の検討が重要。 ③ 天然ガラス中の元素には地層処分で問題となる核種と類似の挙動をするものがない。 ④ 天然ガラスの表面積の見積もりが困難。



L : 初期放出率

C^* : 各種の元素の飽和濃度

図 II - 2 地下水流速とガラスからの元素の放出率の関係

3. ベントナイトのナチュラルアナログ研究

ベントナイトのナチュラルアナログ研究は、ベントナイトの熱的・化学的変質モデルの開発、確証を目的とする。

ベントナイトは、粘土鉱物の一種であるスメクタイト（モンモリロナイト）を主成分としており、その変質はスメクタイトの変質の問題に帰着できる。スメクタイトの変質には、環境条件によって、イライト化、カオリン化、緑泥石化、あるいは沸石化など、種々のパターンがある。

このような多様な変質系列のうち、地下深部での地層処分における変質挙動を考える上で最も生じ易いと考えられているのは、スメクタイトのイライト化である。

スメクタイトのイライト化は、スメクタイト→イライト／スメクタイト混合層鉱物→イライトの変質パターンを示す。

本研究は、長期間にわたって、イライト化が進行した天然のベントナイト鉱床を研究対象にして、スメクタイトのイライト化に関するモデルを開発及び確証しようとするものである。

(1) スメクタイトのイライト化に関する一次反応モデル

スメクタイトがスメクタイト／イライト混合層に変化する反応速度モデルとしては、一般に次の(1)式で示すようなモデルが実験に基づいて提唱されており、これを確証することも目的の一つである。

$$\ell_n (S/S_0) = -k t \quad \text{--- (1)}$$

ここで

S_0 : スメクタイトの最初の濃度

S : " の t 時間後の濃度

k : 速度定数

速度定数 k は、アレニウスの式によって反応の活性化エネルギー E と関係づけられる。

$$k = A \cdot \exp(-E/R T) \quad \text{--- (2)}$$

ここで

A : 頻度定数

R : 気体定数

T : 絶対温度

そこで、(1)式は、

$$\ell \cdot (S/S_0) = -A \cdot t \cdot \exp(-E/RT) \quad (3)$$

となる（表II-2参照）。

Eberlら¹⁰⁾は、K-バイデライト（スメクタイトの一種）相当の出発物質を用いたオートクレーブ実験を行い、反応の活性化エネルギーEを19.6kcal/molと決定した。彼らは、これをスメクタイトの構造中のSi-O結合を切断するのに必要なエネルギーとみなした。

(3) ナチュラルアナログの研究対象と手法

東海事業所では、モデルの確証にあたり、熱源である火成岩体の貫入によって、スメクタイト→イライトの変化がみられるベントナイト鉱床を対象として研究を進めている。

具体的には互いにイライト化の程度の異なる試料について、それぞれ熱履歴*を解明する。イライト化の程度についてはX線回折(XRD)分析により把握する。また、活性化エネルギーについては室内実験によって得られた値に基づき設定する(文献から)。

(4) ベントナイトのナチュラルアナログ研究における課題

(3)に記した方法は、ベントナイトが長期間高温にさらされた際に生じたイライト化の定量的評価を行う上で有効であるが、次のような問題が残されている。

- ・変質に関与した水について、水質を把握することが困難である。
- ・モンモリロナイトのイライト化にあたっては変質に関与した水に伴われるK⁺濃度が重要な要因とされるが、これが、イライト化の一次反応モデルにどのように影響しているのか(例えば活性化エネルギーEに対して)確かめる必要がある。

(3)式に示された一次反応モデルについてみると、これにEberlら¹⁰⁾の示したE=19.6kcal/molを代入すれば、例えば80°Cくらいの温度でスメクタイトは10⁴~10⁵年で20%ぐらいの膨潤層をもつイライト/スメクタイト混合層鉱物になる。この時イライトの割合は80%ぐらいになる(図II-3参照)。

しかし、この変化は天然の事例と比較すると速すぎるようである。例えば、Robertson

注) *熱履歴解明のためには、同一試料から複数種の鉱物を分離し、それぞれの放射年代を測定する。放射性核種が鉱物中に固定される温度(閉止温度)は鉱物ごとに、また核種ごとに決まっており、同一試料中の複数の鉱物について放射年代を求めれば、それぞれの閉止温度を適用することにより、その試料の熱履歴曲線を得る。

ら¹¹⁾ はpH=9の条件下でK⁺以外にNa⁺が共存すると、活性化エネルギーは約30kcal/molに増加することを実験により示した。また、Mg²⁺やCa²⁺も反応を遅らせる因子であることが知られている。いずれにしても反応に関与した水の組成を把握することが、ナチュラルアナログ研究においては不可欠である。

直接的手法で、これらの地下水の組成を復元することは困難なので、間接的手法で推定する。

ベントナイト鉱床には、もともと海底に堆積した火山ガラスが変質し、スメクタイトに変わってきたものが多く、本研究の対象も、例外ではない。したがって、ベントナイト鉱床中にいわば“間隙水”として含まれる水は、海水起源の水であると考える。火成岩の貫入に伴って、このような“間隙水”が熱水となり、ベントナイト中を移動するにつれて、イライト化が進行したものと仮定する。このような仮定が正しいかどうかは例えば、

- ① イライト化していないベントナイトより“間隙水”を抽出して分析する。
- ② イライトの構造水の水素同位体比（重水素／軽水素比）を測定し、海水のそれと比較する。

等の試験が有効であると考えられ、現在、それらを実施中である。

表 II - 2 ナチュラルアナログ研究の性能評価との関連 (II)

1. 研究名	ベントナイトのナチュラルアナログ研究
2. 調査項目 (計画中)	<p>対象：火成岩体の貫入により一部イライ化しているベントナイト鉱床</p> <p>① 変質鉱物の分析 (XRD)</p> <p>② 変質期間 _____</p> <p>③ 環境条件 a. 変質温度 _____ b. 反応に関与した溶液の組成 (特に K^+) (間接的な推定法を検討中) c. 貫入岩体の規模、変質の及んだ範囲</p> <p>イライ化の程度と環境条件の関係の明確化を目的とする。</p>
3. 得られるデータ	<p>① 試料のイライ化の程度 (イライ / ベントナイト比)</p> <p>② 貫入岩体 (熱源) および粘土試料の絶対年代</p> <p>粘土試料の熱履歴 (熱履歴曲線の作成には鉱物の閉止温度を利用する)</p>
4. 性能評価との関連 <input type="checkbox"/> 現象の理解 (定性的) <input checked="" type="radio"/> モデル開発 <input checked="" type="radio"/> モデル確認 <input type="checkbox"/> 入力データ	<p>① ベントナイトの化学的変質モデル • イライ化の一次反応モデル</p> $\ln(S/S_0) = -A \cdot t \cdot \exp(-E/RT) \quad \text{--- (3)}$ <p>ここで S_0 : スメクタイトの最初の濃度 t : 変質時間 S : t 時間後の濃度 A : 頻度定数 E : 活性化エネルギー R : ガス定数 T : 絶対温度</p> <p>Eberらは実験により、$E = 19.6 \text{ kcal/mol}$とした (純水中)。 仮に $E = 19.6 \text{ kcal/mol}$とし、(1)式で計算すると約 80°C の場合、モンモリロナイトは $10^4 \sim 10^5$ 年で 20% くらいの膨潤層をもつイライ / モンモリロナイト混合層鉱物へ変換する。</p>
5. 研究成果	ベントナイトが長期間高温に曝された際に生じるイライ化の定量的評価手法の確立。
6. 課題と解決策	<p>① K^+ 濃度が(3)式の E や A にどのように影響するかに関してはいまのところ具体的なデータがない。</p> <p>② 変質に関与した水の組成の正確な復元が困難。→ベントナイトの間隙水の分析や、イライの構造水の水素同位体分析等で推定する。</p>

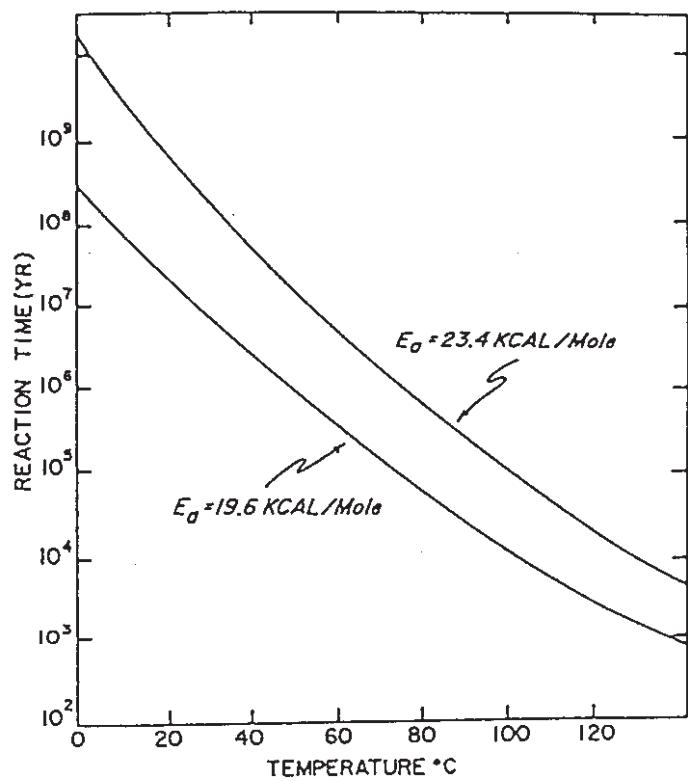


図 II - 3 100 % スメクタイトから20%スメクタイト（伊利タイト／スメクタイト混合層中）に変化するのに必要な時間変化 (Eberl and Hower¹⁰)

4. 金属のナチュラルアナログ研究と性能評価

オーバーパックの開発研究では、炭素鋼、チタン及び銅に関して処分環境下での腐食挙動を把握するための試験を実施している。これらの材質のなかで、①炭素鋼はオーバーパックの有力候補材である、②炭素鋼は長期間にわたり自然条件下で腐食した試料が存在する、③長期腐食挙動の予測は短期の実験だけでは困難である、ことから炭素鋼の腐食に関してナチュラルアナログ研究を行うものとする。

炭素鋼のナチュラルアナログ研究の目的は、

- ① 土中または塩分濃度が高い環境下で長期間放置された炭素鋼には、どのようなタイプの腐食が生じるか。
- ② どの程度の腐食速度か。
- ③ 孔食が発生する場合、最大孔食深さの進展速度はどの程度か。
- ④ どのような腐食生成物が生じるか。

といった問題についての解答を、土中、海中または海底埋設物（鉄、炭素鋼製）の調査に基づいて示すことである。

(1) 期待される成果

- ① 室内実験結果に基づいて作成される炭素鋼の腐食モデルの確証または改良に用いる。
- ② 長期間にわたりほとんど腐食しない環境が存在することを実証する。

(2) 炭素鋼の腐食に関する性能評価モデルとの関連

炭素鋼の腐食は、環境の温度、地下水の組成、pH、Eh、溶存酸素濃度、土中の水分率等の影響を受ける。さらに、時間的変化に関しては、図II-4に示すように腐食の初期段階では均一腐食であっても、孔食などの局部腐食が生じると最大腐食深さの進展速度は、均一腐食速度より大きくなり、その評価も難しい。

性能評価では、炭素鋼の腐食速度を予測することが可能な腐食モデルによりオーバーパックの寿命またはオーバーパックに必要な腐食代を定める計画である。腐食モデルとして海外ではいくつかのモデルが提唱されている。これを大別すると次の2種類となる。

① 経験式によるモデル

$$\text{例: } P = K \cdot t^n \cdot [O]^a \cdot [Cl]^b \cdot \exp \left\{ \frac{A}{T} \right\} \quad (4)$$

ここで P : 腐食速度 (mm/yr)

t : 時間 (yr)

$[O]$: 地下水中の溶存酸素濃度 (ppm)

$[Cl]$: 地下水中の塩素イオン濃度 (ppm)

T : 温度 (K)

K 、 n 、 a 、 b 、 A : 定数 (実験結果から求める)

② メカニズムに基づくモデル

$$\text{例: } \frac{dh}{dt} = \frac{M}{\rho} \left[\left| \frac{Z_+}{Z_-} \right| + 1 \right] D \frac{C+(O)}{h} \times \left\{ \exp \left(\frac{Z_- - F}{RT} \Delta \phi \right) - 1 \right\} \quad (5)$$

ここで h : 孔食深さ

M : 金属の原子量

ρ : 金属の密度

Z_+ 、 Z_- : カチオン、アニオンの電荷数

D : 孔食内金属イオンの拡散係数

$C+(O)$: 孔食開口部のカチオン濃度

F : ファラディ定数

R : ガス定数

T : 温度

$\Delta \phi$: 孔食内の電位勾配

未知数は D 、 $C+(O)$ 、及び $\Delta \phi$ である。

地球化学モデルは、腐食モデルを解析するために必要な境界条件 (例えば(4)式の $[O]$ や $[Cl]$ または(5)式の $C+(O)$) 及びオーバーパックの腐食に伴う上記環境条件の変化を計算するために使用される。

現時点では、どのタイプの腐食モデルを採用するかについては未定である。今後室内試験

等により腐食データを蓄積し、日本の処分条件に適用可能な腐食モデルを選定するとともに、必要であればモデルの改良を行う予定である。

炭素鋼のナチュラルアナログ研究は、室内試験では確認が難しい長期間の腐食挙動について環境条件と腐食モデルから予想される腐食量の比較を行うために実施する。

金属ナチュラルアナログ研究における課題と解決策を表II-3に示す。

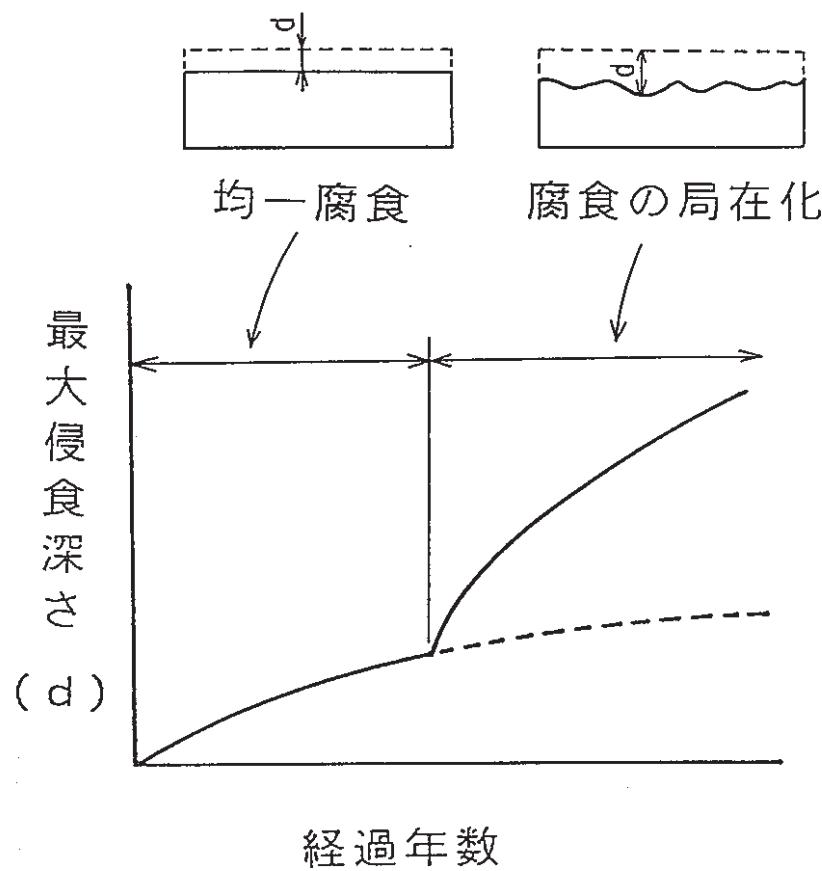


図 II - 4 炭素鋼の腐食進展モデルの一例

表Ⅱ-3 ナチュラルアナログ研究の性能評価との関連（Ⅲ）

1. 研究名	金属のナチュラルアナログ研究
2. 調査項目 (計画中)	<ul style="list-style-type: none"> ① 腐食期間 ② 環境条件 <ul style="list-style-type: none"> a. 温度 b. 反応に関与した溶液の組成 (pH、Eh、溶存成分の濃度) c. 環境中の自然電位 d. バクテリア ③ 腐食挙動 <ul style="list-style-type: none"> a. 孔食発生の有無 b. 孔食深さ c. 均一腐食深さ
3. 得られるデータ	<ul style="list-style-type: none"> ① 孔食が発生する環境条件 ② 腐食速度（孔食及び均一腐食）と環境条件の関係
4. 性能評価との関連 <ul style="list-style-type: none"> (○) 現象の理解 (定性的) (○) モデル開発 (○) モデル確証 () 入力データ 	<ul style="list-style-type: none"> ① 処分場の環境条件における孔食の発生の判定（現象の理解）\Leftarrow 3.① 既存の腐食モデルでは孔食が発生する環境条件を求める事が出来ない。 室内試験から求めた孔食発生条件を確認する。 ② 腐食モデル\Leftarrow 3.② 動燃事業団では当面以下の2種類のモデルの適用性を調べることとしている。 <ul style="list-style-type: none"> a. 経験式による腐食モデル <p style="text-align: right;">(モデル確証・開発)</p> $\text{Ex. } P (\text{mm}/\text{yr}) = k \cdot t^n \cdot [O]^a \cdot [Cl]^b \cdot \exp \left\{ \frac{A}{T} \right\}$ <p style="text-align: center;">P : 腐食速度 O : 地下水中の溶存酸素濃度 t : 時間 Cl : 地下水中の溶存塩素濃度 T : 温度 k, A, n, a, b : 定数</p> <ul style="list-style-type: none"> b. 腐食メカニズムに基づく数学的腐食モデル (モデル確証・開発) (酸素、水、イオンの拡散や金属の電位などを考慮する) b. のモデルの確証を行うためには土壤中の酸素、水、イオンの拡散係数等を測定する必要がある。
5. 研究成果	<ul style="list-style-type: none"> ① 室内試験結果に基づいて作成する炭素鋼の腐食モデルの確証または改良に用いる。 ② 長期間にわたりほとんど腐食しない環境が存在することを実証する。
6. 課題と解決策	<ul style="list-style-type: none"> ① 年代の古い（数百年以上）試料の入手 <ul style="list-style-type: none"> a. 考古学者の協力を得る。 b. 考古学的価値が小さい試料をみつける。 c. 非破壊検査の可能性を検討する。 ② 試料の原寸法の把握 —— 評価項目を限定する。 ③ 環境条件の履歴の把握 —— 埋設場所及び地質条件から推定する。推定可能なものについては調査しない。 ④ マクロセルの影響評価 —— 試料の腐食状態及び埋設地点の地質環境から推定可能。

5. コンクリートのナチュラルアナログ研究と性能評価との関連

コンクリートは低・中レベル放射性廃棄物の処分においては、処分場のpHを高く保持するという化学的影響の観点や止水性の観点から人工バリアとしての性能が評価されている。高レベル放射性廃棄物の処分におけるセメントの利用法としては、グラウト材、プラグ材等としての利用が検討されており、いずれも強度や止水性がその基本的性能として求められている。周辺の地下水への化学的影響の問題は、高レベル放射性廃棄物の処分を対象として考えた場合にも、pH、 SiO_2 濃度、Ca濃度に大きく影響するため、性能評価上重要な項目と考えられる。また、コンクリート自体の化学的変質は、図II-5に示したように上述の物理的変質や化学的影響の直接的原因となるものであり、十分な検討を行ってモデル化していく必要がある。コンクリートのナチュラルアナログ研究の目的は、

- ① コンクリートの化学的変質
- ② 処分場の化学的環境条件の変化
- ③ コンクリートの物理的变化

に関するモデルの開発・確証を行うことである。

(1) 「コンクリートの化学的変質」に関する性能評価モデルとの関連

コンクリートの化学的変質は、コンクリート中に含まれている Ca^{2+} 、 Si^{4+} イオン等が溶出し、地下水中の SO_4^{2-} 、 HCO_3^- 、 Cl^- イオン等がコンクリート中に侵入して様々な鉱物が溶解・沈澱する反応としてとらえることができる。表II-4、4.①に示したように、本研究で得られるコンクリート変質部～未変質部の鉱物学的及び化学的データは、鉱物の溶解・沈澱反応をPHREEQE等でモデル化し、コンクリート中のイオンの拡散を考慮した化学的変質モデルの開発・確証に役立てていく計画である。

(2) 「処分場の化学的環境条件の変化」に関する性能評価モデルとの関連

このテーマに関しては、Atkison ら¹²⁾により実験に基づく研究成果が発表されており、コンクリートの間隙水の組成変化のモデル化も行われているので、本研究によりこのモデルの確証を試みる（モデルに基づく計算結果例図II-6）。

(3) 「コンクリートの物理的变化」に関する性能評価モデルとの関連

このテーマに関連して、かなり多くの経験式が提案されているが、化学的変質との関係については明確にされておらず、また環境条件の面から見ても地下構造物の変質に関するデータはほとんどない。本研究ではコンクリート中の種々の物質の沈澱や溶解（前述の(2)）とそれに伴う間隙率の変化及び強度や透水係数の変化といった化学的変質と物理的变化の関係を明確にしながら物理的变化モデルの開発（確証）を進める。（表II-4、4.(3)）

本研究の成果は、高レベル廃棄物の処分におけるコンクリートの利用可能性という問題をはじめとして、核種の化学的挙動、処分場の地下水の流動、処分場からの核種の放出等の性能評価項目に大きな影響を与えるものと思われる。

(4) コンクリートのナチュラルアナログ研究における課題と対応

これまでのナチュラルアナログ研究では、

- ① 処分場の地下水の化学組成にコンクリートが与える影響の評価
- ② コンクリートの透水性、物理特性の長期的評価

について手法の検討に着手した。

一方、ポルトランドセメントは、150年より古い試料が得られず、長期の評価が困難である。これについては、ローマ時代のセメントや天然のセメント類似物の調査についてその可能性や有効性を検討する。

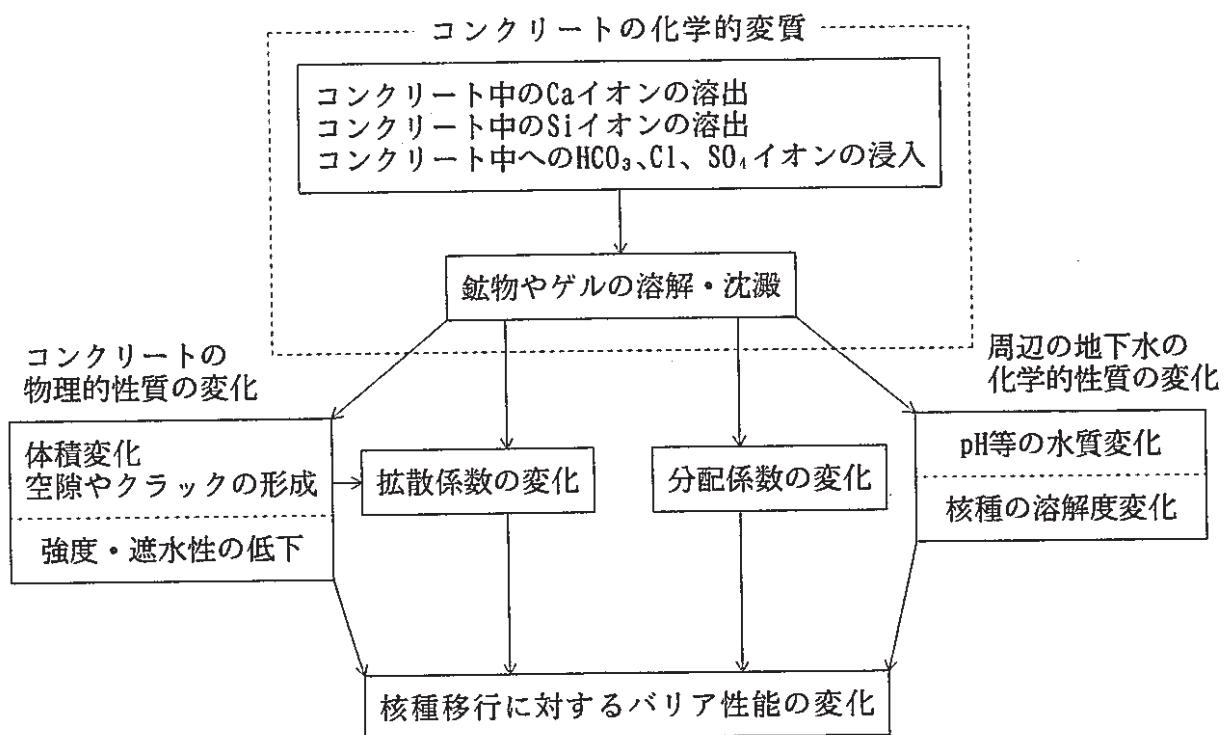


図 II - 5 コンクリートの変質とその処分に与える影響

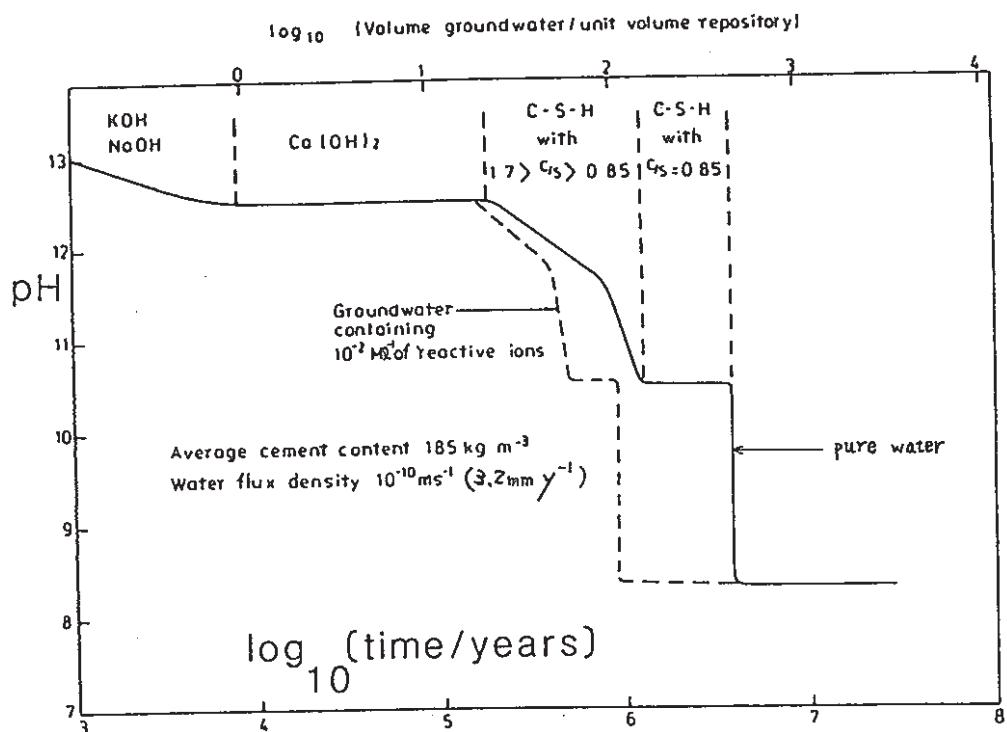


図 II - 6 コンクリート間隔水のpHの経時変化の推定例^{1,2)}

表Ⅱ-4 ナチュラルアナログ研究の性能評価との関連(IV)

1. 研究名	コンクリートのナチュラルアナログ研究
2. 調査項目 (計画中)	<ul style="list-style-type: none"> ① 変質期間 ② 環境条件 <ul style="list-style-type: none"> a. 変質温度 b. 反応に関与した溶液の組成 (pH、Eh、溶存成分の濃度) ③ 変質状態 <ul style="list-style-type: none"> a. 化学組成・鉱物組成の変化(Ca、Siイオン等の溶出、SO₄、HCO₃、Clイオン等の浸入) b. コンクリートの間隙水及び近傍の地下水の化学組成 c. 物理特性の変化(間隙率、透水性、強度)
3. 得られるデータ	<ul style="list-style-type: none"> ① 変質生成鉱物とその分布 ② Ca、Siイオン等の溶出速度 ③ SO₄、HCO₃、Clイオン等の浸入速度 ④ コンクリートの間隙水及び近傍の地下水の化学組成の変化 ⑤ 化学・鉱物学的変化と物理特性の変化の関係
4. 性能評価との関連 () 現象の理解 (定性的) (○) モデル開発 (○) モデル確認 () 入力データ	<ul style="list-style-type: none"> ① コンクリートの化学的変質モデル <ul style="list-style-type: none"> a. 化学平衡モデル(PHREEQEによるモデル) b. 拡散+局所化学平衡モデル (モデル開発・確証) ↔ 3.① ↔ 3.②、③ ② ニアフィールドの化学的環境条件の変化モデル <ul style="list-style-type: none"> • Atkinson^{1,2)} のモデル(Simple mass transfer model) (モデル確認) ↔ 3.④ ③ コンクリートの物理的変質モデル (モデル開発・確認) <ul style="list-style-type: none"> • 間隙率変化モデル • 強度変化モデル • 透水係数・拡散係数変化モデル ↔ 3.⑤
5. 研究成果	<ul style="list-style-type: none"> ① コンクリートが処分場の地下水の化学組成に与える影響の評価手法の確立 (→核種の化学的挙動、核種の放出に影響) ② コンクリートの透水・拡散特性の長期的評価手法の確立 (→処分場の地下水流动、核種の放出に影響)
6. 課題と対策	<ul style="list-style-type: none"> ① 近代のポルトランドセメントは、150年以上経過したものは得られない。従って長期の評価が困難。(ローマ時代のサンプル等は組成等が現代のコンクリートとかなり異なる) →可能性を検討する。

6. 今後の計画

今後とも、ガラス、ベントナイト、金属及びコンクリートのナチュラルアナログ研究については、それぞれの開発、確証を目的として研究をすすめていく。

表II-5～II-8に、それぞれの研究計画を示す。

(1) ガラス

ガラスについては当面、富士山及び伊豆大島からの噴出した数千～数百年前の火山ガラスを対象に、変質速度、環境条件、変質生成物等を調査項目として研究をすすめる。

処分環境条件との地下水の組成や温度の差、天然ガラスの組成の固化ガラスとの差の影響については、室内での変質試験によって評価する。

これらのデータを総合し、平成3年度を目途に、ガラス組織崩壊モデル、溶液組成モデル及び表面変質層形成モデルの開発及び確証状況をまとめることとする。

(2) ベントナイト

今後とも、ベントナイトのイライト化モデルの確証を目的として研究をすすめる。

当面、ベントナイト鉱床に火成岩体が貫入し、一部がイライトに置換しているフィールドを対象とする。このようなフィールドは、イライト化の開始時間が明瞭で、熱履歴が比較的把握しやすい等の長所がある反面、変質に関与した水の組成が把握しにくい、という短所がある。これについては、ベントナイト鉱床の成因が、海底での火山噴出物堆積→スメクタイト化に求められることから、ベントナイト鉱床中に滞留する“間隙水”を海水に等しいと仮定する、など前提条件を設定し、さらにこれを立証した上で、議論をすすめることとする。

一方、海底での堆積作用と、これにひきつづく続成作用によるスメクタイト→イライト化のみられるフィールドについても、今後、研究対象とする。

このようなフィールドでは、変質に関与した水は、海水と考えてよいであろう。（ただし、堆積後の間隙水の組成変化について検討する必要はあると思われる。）

このような調査・研究には、例えば海底油田のボーリングコア等が有効な試料として考えられる。

(3) 金属

金属については、対象を炭素鋼に絞り、数十年～千数百年間土中に埋設されていたものを試料として調査をすすめる。

その際、環境条件を把握するとともに、その履歴を明確にする必要がある。

また、どのような腐食生成物を生じるかについて明らかにする。

これらの成果は、平成3年度を目途にとりまとめるものとする。

(4) コンクリート

コンクリートについては、平成3年度を目途に、トンネル壁を構成するコンクリートを試料として、地下水との相互作用を中心に調査をすすめる。

調査項目は、

- ① コンクリートの化学的変質
- ② 周辺の地下水の化学的環境の変化
- ③ コンクリートの物理的性質の変化

であり、それぞれのモデルについての確証を行う。

また、千数百年以上経過した古代のコンクリート（例えば、ローマ時代のもの）等についても調査を行うことも検討中である。その際、環境条件が把握できることが不可欠な条件である。

平成3年度以降の研究対象候補としては、天然のコンクリート類似物、例えば石灰岩が高温の変成作用を受けて生成されたコンクリート類似物等が考えられる。

表Ⅱ－5 ガラスのナチュラルアナログ研究スケジュール

	6 2	6 3	1	2	3
・文献調査・研究対象の選定等					
			富士火山および伊豆大島火山の噴火物の調査		
・変質の地下水組成依存性に関する調査				富士山および伊豆大島の湧水、火山ガラス間隙水の対比	
・変質の温度依存性に関する調査					温度を変数とした火山ガラスの室内浸出試験
・変質のガラス組成依存性に関する調査				ガラスの組成を変数とした火山ガラスの室内浸出試験 (AIのかわりにBを添加した合成火山ガラス等を試料とする)	
・変質モデルの開発・確証					ガラス組織崩壊モデル・溶液組成モデル 表面変質層形成モデル・元素放出モデル
・まとめ					
・他地域の調査					高アルカリ、低SiO ₂ 組成の玄武岩質ガラスの調査

表Ⅱ-6 ベントナイトのナチュラルアナログ研究スケジュール

	6 2	6 3	1	2	3
・文献調査・対象の選定等					
・ベントナイトのイライト化に関する調査				温度依存性、時間依存性、変質に関与した水の組成に関する調査	
・イライト化に関する一次反応モデルの開発・確証			■	■	
・まとめ					■
・ベントナイト中の核種移行に関する調査					時間依存性に関する調査等

表Ⅱ-7 金属のナチュラルアナログ研究スケジュール

	6 2	6 3	1	2	3
・文献調査・対象の選定等		---			
・変質の環境依存性に関する調査		---			
・変質の時間依存性に関する調査			---		
・腐食モデルの確証				環境条件依存性の確証 時間依存性の確証	
・まとめ				---	

表Ⅱ-8 コンクリートのナチュラルアナログ研究スケジュール

	6 2	6 3	1	2	3
・文献調査・対象の選定等			---		
・変質の地下水組成依存性に関する調査			トンネルのコンクリートの調査	他の対象の調査	
・変質の地下水流量依存性に関する調査		同上		同上	
・変質の時間依存性に関する調査		同上		同上 (とくに千数百年以上の古い試料の調査)	
・変質モデルの開発・確証			• コンクリートの化学的変質モデル • ニアフィールドの化学的環境条件の変化モデル • コンクリートの物理的变化モデル		
・まとめ				---	

III 天然バリアのナチュラルアナログ研究

1. はじめに

総論で述べられているようにナチュラルアナログの役割には、性能評価モデルの確証の他に天然における現象の理解のためのものもあると言われている¹³⁾。地層処分のファーフィールドにおける核種移行シナリオに含まれている（考慮すべき）事象は可能な限り現実に起こりうる事象に近いことが望ましい。したがって、そのシナリオは基本的には、なるべく現実に起こる事象を連結することによって示されるべきである。

ナチュラルアナログはこのような自然界での現象を理解する上で重要であり、その意味ではシナリオの決定にとっても極めて有用である。

ファーフィールドにおける核種移行を評価するには、核種の輸送媒体である地下水の流動モデルと、核種が地質媒体に捕捉されるモデルとが結合されて、はじめて核種移行の評価が可能になる¹⁴⁾。

ファーフィールドにおける核種移行モデルには、簡易モデルと詳細モデルの2つによるものがある。簡易モデルは、平成3年度作成予定の中間報告書までにその確立を目標としているもので、地下水の流動モデルにおいて結晶質岩を多孔質媒体として扱っている。また、地層中での核種収着反応は分配係数Kdで表現される。

詳細モデルは、第2段階の最終目標とするものである（図III-1）。その中においては、イオン状核種およびコロイド状核種の収着、鉱物化、沈澱、分子ふるい効果など核種の遅延に係わる詳細なプロセス¹⁵⁾が我が国のシナリオの中に組み入れられる予定である（図III-2）。したがって、ナチュラルアナログ研究によって、このような現象を我が国地質環境条件において観察することで、そのプロセスを選択・モデル化し、シナリオを決定することができよう。

天然バリアのナチュラルアナログ研究では、核種の移行を解明することと共に、それに関係する環境条件（特に地下水の物理、化学的条件）を明らかにすることが必要不可欠である。東濃地域は現在“tentative”な原位置試験の場とされ、その調査研究において地下水の水理・地球化学特性が解明されつつある。また、オーストラリアのクンガラ鉱床地域での研究（アリゲータリバーナチュラルアナログプロジェクト）は国際プロジェクトとして行われており、地下水およびコロイドの調査研究は動燃の分担課題となっている。

天然バリアのナチュラルアナログ研究のテーマはいろいろあるが、最も重要なものは地質環境中における核種移行に関するものである。また、我が国においては、処分場の隔離性能に与える地殻変動等の影響は特に無視できないため、地殻変動の核種移行へ与える影響に関するナチュラルアナログもテーマの1つとして挙げることができる。

地層処分を行う廃棄物の中で、ファーフィールドを移行する重要な核種はTRUであるプルトニウム、ネプツニウムなどと想定されており、それらはウラン、トリウムにそれぞれ化学的挙動が類似していることが知られている¹⁶⁾。²³⁰Th もウラン系列の1つであるので、天然のウラン鉱床にはウランだけでなくトリウムも存在する。

このため、天然バリアでの核種移行に関するナチュラルアナログ研究の場としてウラン鉱床地域が最も適当な地域であると考えられており、事業団においては現在、東濃地域とクンガラ鉱床地域がその対象として選択されている。

東濃ウラン鉱床は我が国最大のウラン鉱床であり、地下水と共に存する環境下に約一千万年にわたってウランが保存されてきている。また、これまでに探査坑道によってウラン鉱床の分布、産状、地下水組成等に関するデータの蓄積がある。

更に調査坑道が開削されており、鉱床や月吉断層を直接観察できる、などの利点があることから東濃ウラン鉱床はナチュラルアナログ研究の場として恰好の場であると言える¹⁷⁾。

(計画)

地質環境調査

昭和63年

第2段階前半

深部地質環境調査
*各岩種の水理学的・
地球化学的特性

日本の深部地質環境に
おけるデータの供給

釜石

人形

— 96 —

平成3年

第2段階後半

性能評価に関する調査・研究

— 東濃地域 (Reference Site) を例にした調査・研究 —

地 窓

地下水調査・研究

- 地下水理調査・研究
- *透水係数
- *間隙水圧
- ↓
- *ポテンシャル分布
- *流線ベクトル

- 地下化学調査・研究
- *pH-Eh
- *化学組成

- 核種移行調査・研究
- *遅延係数
- *拡散係数
- *空隙率

生 物 窓

- 生物圏における核種
移行調査・研究
- *生物圏における
核種移行率

- ナチュラル・アナログ研究
- *水理的、地球化
的環境下における
核種移行時間及び
距離の見積もり

パラメータ V_i 地下水流動
←
パラメータ k_d ; 遅延係数
 D ; 拡散係数, n ; 空隙率

東濃地域を例とした3次元核種移行評価手法の確立

簡易モデルに対する確認

ファーフィールドにおける核種移行モデルの確立 (簡易モデル)

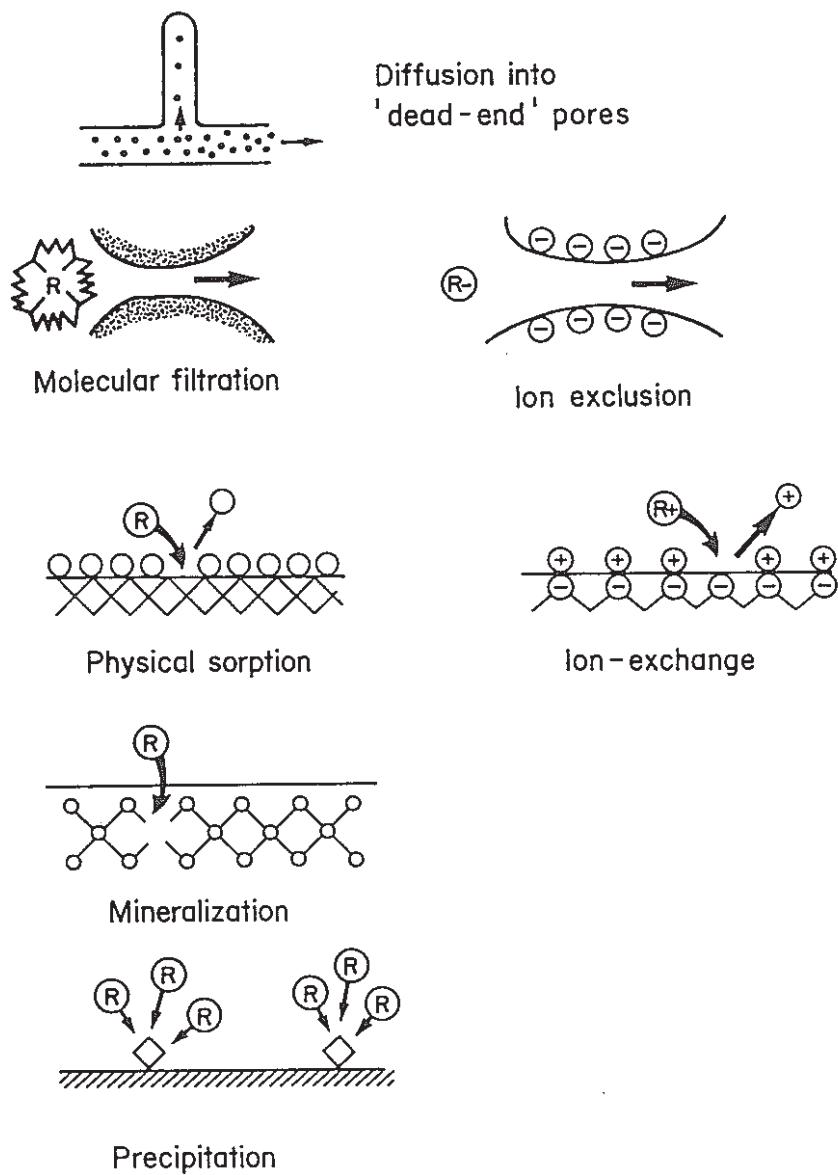
詳細モデルの開発

中間報告書の作成

各プロセスにおける
移行モデルの確認

ファーフィールドにおける核種移行詳細モデルの確立

図 III-1 ファーフィールドにおける核種移行評価の進め方



図III－2 核種の遅延に係わるメカニズム

2. 性能評価との関連における天然バリアのナチュラルアナログ研究

東濃地域における性能評価との関連における天然バリアのナチュラルアナログ研究は、大きく分けて

- (1) ウラン鉱床の形成とそれに関する地質事象の時間間隔の研究
- (2) 地質環境における核種移行の研究
- (3) 地殻変動の核種移行に与える影響の研究

の3つから成る。第2段階前半においては、これらの研究は主に性能評価においてファーフィールドにおける核種の移行を数式化、モデル化する前の段階にあり、天然において実際に生じた現象を理解することが目的である。

なお、ナチュラルアナログ研究も含めた東濃地域における調査研究の実施計画のフレームを表III-1～5および図III-3に示す。

(1) ウラン鉱床の形成とそれに関する地質事象の時間間隔の研究

天然バリア中の核種移行に関する地質現象の時代を決定し、確証の対象とする時間範囲を明らかにする。

東濃地域を対象とした研究においては、

- ① ウラン鉱床の形成年代
- ② ウラン鉱床形成後、堆積した地層の年代
- ③ ウラン鉱床生成後の地史（地質環境の変遷）
- ④ 断層の年代

の4つの年代等を研究項目とする。

得られるデータは、ウラン鉱床、断層及び地層の絶対年代とウラン鉱床生成後の地史（相対年代）である。

また、本地域に適する年代測定手法も同時に確立する。

試験方法としては、K-Ar法、Rb-Sr法、U-Pb法、フィッショントラック法などを適用し、鉱床・断層・地層の絶対年代を決定することと、地質学的手法を用いて鉱床、断層の相対年代を求める。

現在、予察的な調査によって一部の鉱床、地層年代についての次のような結果が得ら

れている。

ウラン鉱床21号露頭U-Pb法、8.4~13.4 (m.y.)

ウラン鉱床和合露頭フィッショントラック法、9.0 (m.y.)

この研究の問題点は、月吉断層のような古い断層の絶対年代手法が確立されていない点である。しかし、ESR法による活断層の年代決定法や、地質層序学的手法によって、月吉断層の生成年代を決定することが可能であろう。

(2) 地質環境における核種移行の研究

本テーマはさらに次のように細分される。

- ① 地質環境における核種移行の地球・化学的現象
- ② 生物圏における核種移行
- ③ 核種移行におけるコロイド、有機物の役割

① 地質環境における核種移行の地球・化学的現象

核種が地質媒体に捕捉されるプロセスには、図III-2に示したような多くのプロセスが考えられる。しかし、既存のファーフィールド核種移行モデルでは、個々の遅延、固定化プロセスを表現した詳細モデルは使われておらず、核種の収着現象を包括的に表現するパラメーターである分配係数Kdと岩体中へのマトリックス拡散係数Dが重要なパラメーターとして認識されている¹⁸⁾。

本研究テーマは東濃ウラン鉱床において、ウラン系核種に関するこれらのパラメーターを取得するとともに、超長期にわたる移行距離を見積もることを目標としている。

試験方法としては、立坑、ボーリング掘削、坑道壁面からの三次元的な鉱石試料の採取と放射非平衡(^{238}U / ^{234}U 、 ^{234}U / ^{230}Th など)の測定と解析によるウラン系核種の移行距離を見積もる。分配係数は、ウランが粘土鉱物・炭質物等に収着している鉱石を用いたウラン系核種の室内脱着試験による測定、(および原位置における)鉱石と地下水の採取・分析による測定によって求める。

拡散係数については富鉱化部の新鮮な花崗岩を用いて、ウラン系核種の濃度プロファイルをミクロオートラジオグラフィー等の手法により測定して求める。

現在得られている結果は、鉱床中では部分的にU、Raの溶脱はあるが、 ^{238}U - ^{234}U

$-^{230}\text{Th}$ 間はほぼ放射平衡にある⁽⁹⁾。

② 生物圏における核種移行

この研究は地表での物質（動植物、土壤、河川水）に地下の鉱床から移行する核種がどの程度含まれているか、調査するものである。これまで保安のための東濃鉱山周辺の魚、樹木、河川水、土壤中のウラン、ラジウム濃度のデータの蓄積があり、現在そのデータ解析を含め実施方法について計画中である。

この研究は核種が地質環境における移行を経て、最終的に生物圏へ放出される総合モデル、すなわち処分システム全体（ただし人工バリアを除く）を完結するナチュラルアナログ研究とみなすことができる。

③ 核種移行におけるコロイド、有機物の役割

コロイド、有機物は最近、核種移行におけるその役割の重要性について広く認められつつあり、この研究の成果は遅延係数の正しい評価に反映される。

この研究の目的は核種移行モデル全体では、遅延係数というパラメーター取得として位置づけられるが、遅延モデルという1つのサブモデルに対しては、モデル化のための現象の理解と見なすことができる。

本研究では東濃地域の他、オーストラリアクンガラ鉱床も対象としている。

具体的な内容としては、鉱体層準等の深層地下水中の天然に存在するコロイドを濃縮分離し、コロイドに収着されているウラン系核種濃度、コロイド組成、コロイドの界面エネルギー、電気的チャージ等を測定する。

現在は、不活性ガス雰囲気下での濃縮分離が可能な装置を試作中であり、本格的なコロイド調査は平成元年から開始する。

また本研究と関連して、地下水の地化学パラメーター（Eh、同位体組成、溶存元素）および滞留時間等の調査は昭和61年度から実施している。

この研究の問題点としては、コロイドを分離濃縮するためには大量の地下水を処理する必要があるが、鉱床帯から地下水を大量に採取するには長期間を要する点があげられる。

(3) 地殻変動が核種移行に与える影響

地殻変動の代表的なものには断層運動が考えられる。断層中での核種移行がどの程度なのかを検討することは、極めて重要である。

東濃地域においては、鉱床が断層によって切られており、処分場あるいはその周囲に断層が生じた場合の核種移行に与える断層の影響を見積もることができる。

具体的には、数kmオーダーのスケールにおいて鉱床の形と断層の位置関係について検討する一方、複数のボーリング掘削や断层面とその周辺といった数mオーダーでのウラン系列核種の分布と産状を三次元的に把握し、影響を調査する。

これまで坑道壁面での調査では、断層粘土は主にモンモリロナイト、緑泥石からなり方解石、長石、石英を含み、数十ppm程度のウランが存在する。鉱床レベルの断層周辺地下水の同位体および化学組成からは、断層部を通って浅層地下水が鉱床レベルには浸透していないという結果が得られている²⁰⁾。

表Ⅲ－1 ナチュラルアナログ研究の主要課題（I）

1. 研究名	ウラン鉱床の形成とそれに関連する地質事象の時間間隔
2. 調査項目	<p>対象　ウラン鉱床・断層とそれを含む地域の地層（東濃）</p> <ul style="list-style-type: none"> ① ウラン鉱床の年代 ② 断層の年代 ③ ウラン鉱床生成後、堆積した地層の年代 ④ ウラン鉱床生成後の地史（地質の変遷）
3. 得られるデータ	<ul style="list-style-type: none"> ① ウラン鉱床・断層地層の年代 ② 鉱床生成後、鉱床が置かれた地化学的環境の変遷
4. 性能評価との関連	<ul style="list-style-type: none"> ① 核種移行モデル 時間に関するデータ（モデル確証） 確証の対象とする時間範囲（モデル開発）
5. 研究成果	地質環境の変遷とウラン鉱床の移行保存期間の提示
6. 問題点	鉱床・断層の年代決定の手法が未確立

表III-2 ナチュラルアナログ研究の主要課題(Ⅱ)

1. 研究名	① 地質環境における地球・化学的現象
2. 調査項目	<p>対象 ウラン鉱床(東濃)</p> <p>① 鉱体内でのウラン系列核種の分布(放射非平衡)</p> <p>② 豊鉱化部の花崗岩礫中へのマトリックス拡散</p> <p>③ ウラン産状、収着形態</p>
3. 得られるデータ	<p>① 核種移行率(鉱床内での移行距離及び時間)</p> <p>② 核種の地層に対する分配係数</p> <p>③ 核種の結晶質岩中へのマトリックス拡散係数</p>
4. 性能評価との関連	① 核種移行モデルへのパラメーター提供
5. 研究成果	核種移行モデルへの現実的インプットパラメーターの取得
6. 問題点	核種移行距離の研究において初期条件の設定が困難

表III-3 ナチュラルアナログ研究の主要課題（Ⅲ）

1. 研究名	② 生物圏における核種移行
2. 調査項目	<p>対象 地表における自然水・土壤・植物（東濃）</p> <p>① 地下水／地表水中の核種含有量 ② 土壤中の核種含有量 ③ 植物中の核種含有量</p>
3. 得られるデータ	<p>① 地表における自然水・土壤・植物中の核種含有量の分布 ② 地表での核種分布と地下での鉱体分布の位置関係 ③ 地下に存在する鉱体の地表への影響の程度 （ほとんど影響のないことが予想される）</p>
4. 性能評価との関連	① 生物圏における核種移行モデル ← モデル確証
5. 研究成果	ウラン鉱床周辺の生物圏におけるウラン系核種の分布に基づく、生物圏への影響範囲の設定
6. 問題点	既存データの利用可能性

表Ⅲ－4 ナチュラルアナログ研究の主要課題（IV）

1. 研究名	③ 核種移行におけるコロイド・有機物の役割
2. 調査項目	<p>対象 天然におけるコロイド・有機物（東濃、クンガラ鉱床）</p> <p>① 天然コロイド同定</p> <p>② コロイドの界面エネルギー、電気的チャージ等の測定 有機物の同定 有機物と天然核種との関係</p> <p>③ 地下水の地化学特性</p>
3. 得られるデータ	<p>① 無機、有機コロイドに吸着して存在するウラン系核種の割合 (コロイド、有機物依存性)</p> <p>② 天然に存在するコロイド種の組成と母岩組成との関係</p> <p>③ 地下水の地化学組成および滞留時間</p>
4. 性能評価との関連	① 核種移行モデルにおけるコロイド、有機物の寄与評価
5. 研究成果	深層地下水（還元性）中のコロイド有機物に関するデータ提供
6. 問題点	コロイドの特性変化を伴わない濃縮分離法と、コロイドの界面エネルギー、有機物組成等の測定技術が充分に確立されていない事

表III－5 ナチュラルアナログ研究の主要課題（V）

1. 研究名	地殻変動が核種移行に与える影響
2. 調査項目	<p>対象 ウラン鉱床とそれを切る断層</p> <p>① 断層中の鉱物の同定</p> <p>② 断層中の鉱物／岩石中の核種の含有量</p>
3. 得られるデータ	<p>① 断層中における生成鉱物の分布</p> <p>② 断層中におけるウラン系核種の分布</p> <p>③ 生成鉱物とウラン系核種含有量との関係</p> <p>④ 断層破碎帯の幅とウラン系核種含有量との関係</p>
4. 性能評価との関連	<p>① 断層（破碎）帯における核種移行モデルの必要性を明らかにする</p> <p>② 将来的には、断層（破碎）帯中における核種移行モデル</p>
5. 研究成果	断層運動によってひきおこされた核種移行規模の評価
6. 問題点	断層の活動時代の定量的見積りが困難

水理的・地球化学的環境における核種移行時間及び距離を見積もり、核種移行簡易モデル及び詳細モデルにおける各プロセスの移行モデルに対する確証を行う。

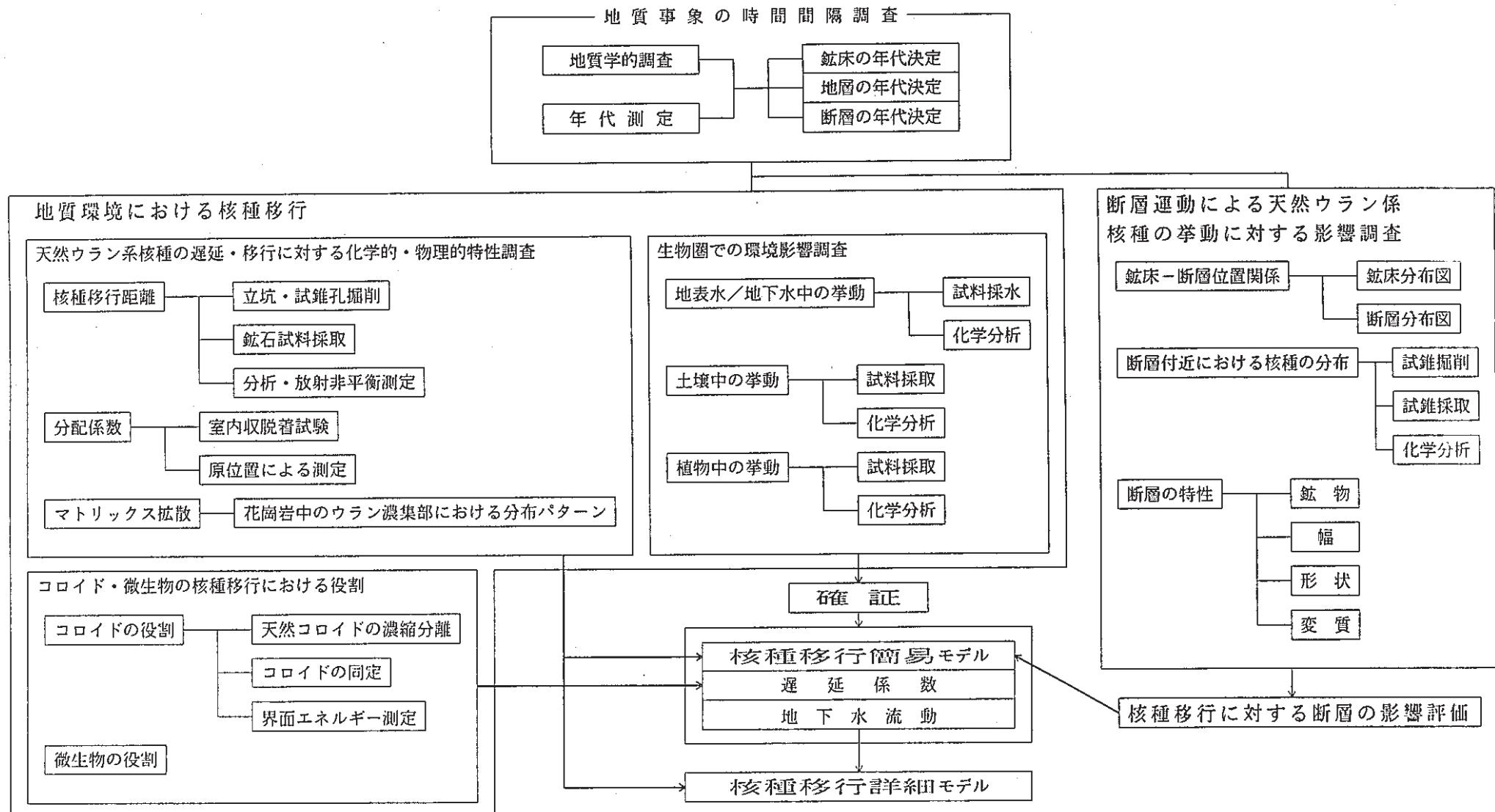


図 III-3 東濃地域におけるナチュラルアナログ研究

3. 今後の計画

当面の目標は、東濃ウラン鉱床についてウラン系列核種の長期にわたる移行現象を把握するとともに、地質事象の時間軸を明確化することによって、ファーフィールドにおける核種移行簡易モデルの確立・確証に反映させることである。この簡易モデルは飽和・不飽和三次元地下水流动モデル（T A G S A C）に基づいて実施される計画であり、地層中の核種の吸着パラメーターは分配係数Kdによって表現される。

詳細モデルについては、現在そのシナリオが必ずしも明確でないため、当面はそのシナリオに含まれる現象を調査し、核種移行に影響を与える重要な地化学反応プロセスを決定することが最大の課題である。本ナチュラルアナログ研究においてもまず、重要と考えられる現象（マトリックス拡散、コロイド移行など）を調査し、各現象の重要性を相互比較することによって詳細モデルによる全体のシナリオを構築する（詳細モデルの開発）。

この第2段階前半での詳細モデルに関するナチュラルアナログ研究は、現象の理解のための研究と位置づけられる。第2段階後半では、この詳細モデルの確証を目標として、ナチュラルアナログ研究が行われ、この詳細モデルが確立されることになろう。

表III-6に研究スケジュールの概要を示す。

表III-6 天然バリアのナチュラルアナログ研究スケジュール

年 度 項 目	1986	1987	1988	1989	1990	1991
地質事象の時間間隔調査		○		○		○
			鉱化年代、地層の年代の調査			
			○			○
				地質環境の変遷（地史）の調査		
地質環境における核種移行	① 物理化学現象調査	○		○		○
			鉱体内のウラン系核種の分布、移行および産状調査			
				○		
				マトリックス拡散調査		
② 生物圏における核種移行	○		○			○
			鉱床周辺環境調査			
③ コロイド・有機物の調査		○		○		○
				コロイドへの吸着割合調査、コロイド固定		
	○					
		地下水組成、起源、滞留時間調査				○
地殻変動の核種移行に与える影響調査		○		断層周辺ウラン系核種分布調査		○
			○			○
				断層周辺地化学パラメーター調査		

IV 文 献

- 1) Sato, C., Ochiai, Y. and Takeda, S. (1987) : Natural analogue study of Tono sandstone type uranium deposits in Japan. *Natural Analogues in Radioactive Waste Disposal* (eds. B. COME and C. A. CHAPMAN), 462-472.
- 2) Ochiai, Y., Yamakawa, M., Takeda, S. and Harashima, F. (1988) :Natural analogue study of Tono uranium deposits in Japan. *CEC 3rd Meeting Natural analogue Working Group*, 126-138.
- 3) 落合洋司, 山川 稔, 原島文雄, 武田精悦 (1988) : 東濃ウラン鉱床を利用したナチュラルアナログ研究(1)概要と予察結果、原子力学会「昭和63年年会」要旨集, 50.
- 4) 湯佐泰久, 新井 隆, 佐々木憲明, 角田直己, 高野 仁 (1988) : 火山ガラスのナチュラルアナログ研究 (I) 一降下堆積性玄武岩質ガラスについてのケーススタディー、原子力学会「昭和63年年会」要旨集, 41.
- 5) 湯佐泰久, 新井 隆, 亀井玄人, 佐々木憲明, 高野 仁, 桜本勇治 (1988) : 富士火山スコリア中の玄武岩質ガラスの風化変質—環境条件の検討とナチュラルアナログ研究—. 鉱山地質学会・岩石鉱物鉱床学会・鉱物学会連合講演会要旨集, 41.
- 6) Arai, T., Yusa, Y., Sasaki, N., Tunoda, N. and Takano, H. (1988): Natural analogue study of volcanic glass -A case study of basaltic glasses in pyroclastic fall deposits of Fuji Volcano, Japan. *Scientific Basis for Nuclear Waste Management*, 127, 73-80.
- 7) 山川 稔 (1988) : ナチュラルアナログ研究の世界の動向と動燃における研究の現状, 放射廃棄物管理専門研究会報告書, 昭和63年度京都大学原子炉実験所, 48-64.
- 8) NAGRA, Project Report NGB 85-09 (1985)
- 9) Crovisier, J. L., Advocat, T., Petit, J. C., and Fritz, B. (1988) : Alteration of basaltic glass in Iceland as a natural analogue for nuclear waste glasses : Geologicalmodelling with Dissol. *Mat. Res. Soc. Symp.*
- 10) Eberl, D. D., Hower, J. (1976) : Kinetic of illite formation. *Geol. Soc. Amer. Bull.* Vol. 87.

- 11) Robertson, H. E., Lahann, R. W. (1981) : Smectite to illite conversion Rates ; Effects of Solution chemistry. Clay and Clay minerals, Vol. 29.
- 12) Atkinson, A., Gonlt, D. J., Hearne, J. A. (1985) : An assessment of the long-term durability of concrete in radioactive waste repositories. Mat. Ret. Soc. Symp. Vol. 50.
- 13) Cadelli, N. (1987) : The role of natural analogues in Safety assessment and acceptability. Natural Analogues in Radioactive Waste Disposal, P12-21.
- 14) 福井正美 (1987) : 地質媒体中における放射性核種の収着、移行モデル。日本原子力学会誌, Vol. 29, P.498~507.
- 15) Mckinley, et al. (1984) : Radionuclide Sorption database for Safety assessments. NAGRA NTB 84-40.
- 16) Chapman, N. A., et al. (1984) : The potential role of natural analogues in assessing Systems in deep disposal of high level radioactive waste. SKB Technical Report 84-16.
- 17) Sato, C., et al. (1987) : Natural Analogue Study of Tono Uranium Deposit in Japan. Natural Analogues in Radioactivie Waste Disposal, P462-472.
- 18) 市川倫夫 (1987) : 核種の溶解・移行挙動の研究手法の調査研究。動燃委託研究報告書 PNC SJ4211 8805
- 19) 落合洋治 (1987) : 東濃ウラン鉱床を利用するナチュラルアナログ研究。昭和61年度成果報告書, P22 ~25.
- 20) Ochiai, Y., et al. (1988) : Natural Analogue Study on Tono Uranium Deposit in Japan. CEC Natural Analogues Working Group Third Meeting.