

放射性廃棄物管理のためのアナログカタログ（和訳版）

— A Catalogue of Analogues for Radioactive Waste Management —

2019年9月
原子力発電環境整備機構

2019年9月 初版発行

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記へお問い合わせください。

〒108-0014 東京都港区芝4丁目1番地23号 三田NNビル2階
原子力発電環境整備機構 技術部
電話 03-6371-4004 (技術部) FAX 03-6371-4102

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Science and Technology Department
Nuclear Waste Management Organization of Japan
Mita NN Bldg. 1-23, Shiba 4-chome, Minato-ku, Tokyo 108-0014 Japan

©原子力発電環境整備機構

(Nuclear Waste Management Organization of Japan) 2018

放射性廃棄物管理のためのアナログカタログ

—A Catalogue of Analogues for Radioactive Waste Management—

2019年9月
原子力発電環境整備機構

この「A Catalogue of Analogues for Radioactive Waste Management」の日本語版は、原子力発電環境整備機構（NUMO）によって作成されたものであり、Radioactive Waste Management (RWM)はその内容を保証しない。日本語版を作成するにあたっては、内容に影響を及ぼさない範囲で、日本語版の読者にとって読みやすくなるよう若干の編集を加えてある。仮に、元の英語版と日本語版の間で齟齬がある場合は、英語版の内容が優先されるものとする。

This Japanese translation of “A Catalogue of Analogues for Radioactive Waste Management” is an unofficial translation by Nuclear Waste Management Organization of Japan (NUMO); hence, Radioactive Waste Management (RWM) does not guarantee the accuracy or reliability. In creating Japanese version, some edits have been added to make it easier for Japanese reader to understand, to the extent that they do not affect the contents. In case of any inconsistency between the English version and the Japanese version, the English version shall prevail.



**British
Geological Survey**
NATURAL ENVIRONMENT RESEARCH COUNCIL



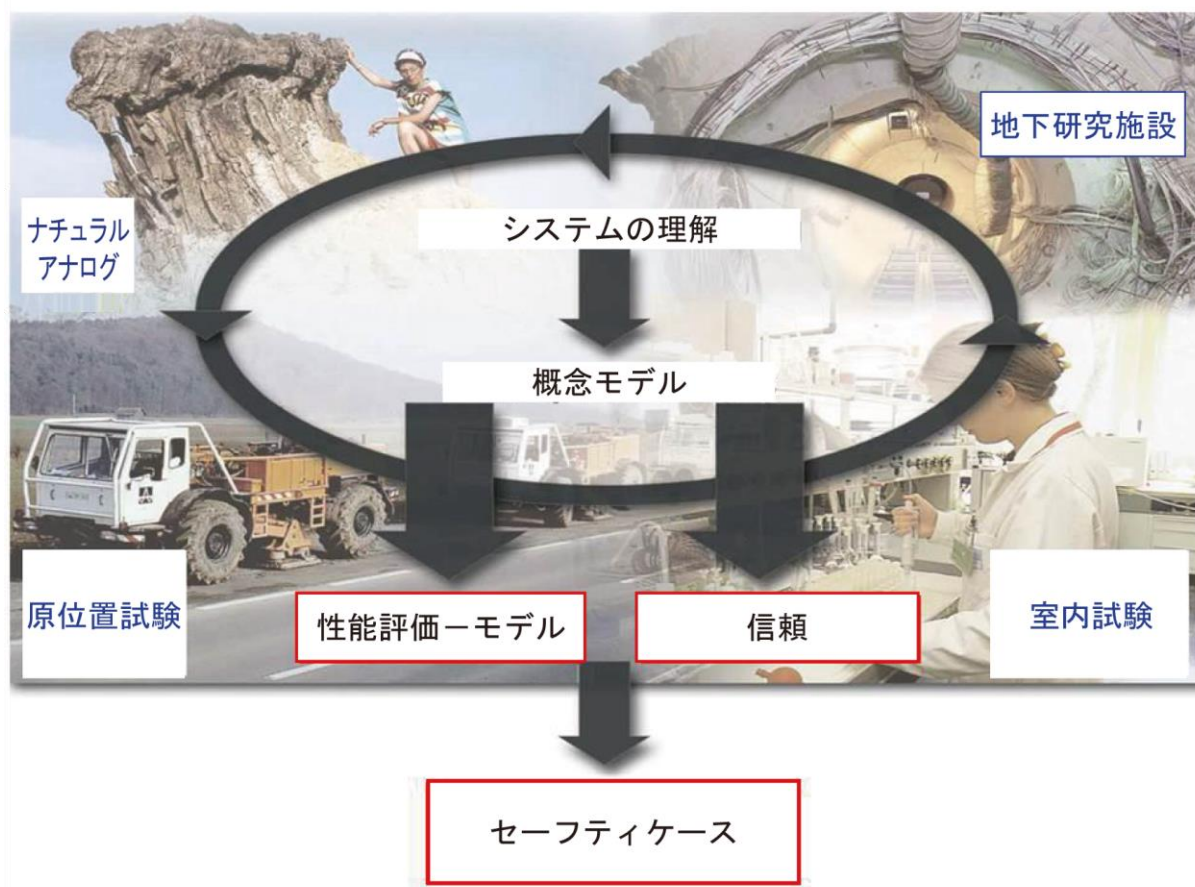
英国地質調査所 (BGS)

放射性廃棄物管理のためのアナログカタログ

A Catalogue of Analogues for Radioactive Waste Management

Minerals and Waste Programme

Commissioned Report CR/15/106



英国地質調査所 (BGS)

COMMISSIONED REPORT CR/15/106

放射性廃棄物管理のための ナチュラルアナログカタログ

A Catalogue of Analogues for Radioactive Waste Management

A.E. Milodowski, W.R. Alexander, J.M. West, R.P Shaw, F.M.
McEvoy, J.M. Scheidegger and L.P. Field

キーワード

ナチュラルアナログ, 放射性廃棄物管理, セメント, コンクリート, 腐食, 鋼鉄, 銅, ベントナイト, ガラス, 閉じ込め, 放射性核種移行

表紙

図はナチュラルアナログ研究, 原位置試験, 室内試験の相互作用を示しており, またそれらのシステム理解や, 概念モデル開発へのインプットを示している (©Bedrock Geosciences)。

書誌参照

MILODOWSKI, A. E., ALEXANDER, WEST, J.M., SHAW, R.P., MCEVOY, F.M., SCHEIDEGGER, J.M. AND FIELD, L.P. 2015. A Catalogue of Analogues for Radioactive Waste Management. *British Geological Survey Commissioned Report*, CR/15/106. 184pp.

序文

本報告書は、放射性廃棄物管理会社（RWM社）からの委託により英国地質調査所（BGS）が実施した研究の成果物である。本書は長期の時間スケールにわたる放射性廃棄物の地層処分施設（GDF）システムの性能を示す自然環境、考古学的、人工的システムからの事例のカタログであり、セーフティケースの裏付けに利用が可能である。本書は、各アナログシステムに関し、それぞれ独立した情報シートとしての要約説明に加え、詳細な追加情報を確認できる参考文献を記載している。

本カタログを準備するにあたっては、関連する国内外の広範な報告書からの情報を使用した。なお、このカタログは一般の読者を想定している。

謝辞

Lauren Selby, Martin Gillespie, Alicja Lacinska, Jeremy Rushton, Richard A Shaw (BGS) に対し、本報告書に使用された図の一部の作成の支援、アナログデータ情報シートの提供、およびレビュー過程における貢献に感謝申し上げます。Simon Norris と Cherry Tweed (RWM 社) に対し、プロジェクト期間中の支援と激励に感謝申し上げます。

目次

1. 序論.....	1
1.1 概要	1
1.2 セーフティケースにおけるナチュラルアナログの利用.....	2
1.3 アナログカタログの目的と範囲	6
1.4 カタログ構成.....	6
2. 人工バリアシステム	7
2.1 廃棄物形態.....	7
事例1：ガラス固化された高レベル放射性廃棄物のアナログとしての天然ガラス.....	7
2.2 容器の性能.....	13
事例2：英国 サウス・デヴォンのリトルハム湾：ペルム期泥岩の天然銅の腐食.....	13
事例3：インテシュルの古代ローマ軍の釘：鉄腐食.....	17
2.3 ニアフィールドのバリア材料に関するアナログ	21
事例4：古代のセメント：セメント系材料の寿命.....	21
事例5：ハドリアヌスの城壁のセメント：セメント系材料の寿命	25
事例6：北アイルランド：セメントのアナログ.....	29
事例7：マッカリン：ケイ酸カルシウム水和物相の寿命.....	34
事例8：マッカリン：アルカリ影響領域のアナログ	39
事例9：オマーン：セメント環境における微生物の生存.....	45
事例10：ヨルダンのマッカリン：セメント環境における微生物の生存.....	48
事例11：イタリア トディのドウナロッバ森林：粘土層の長期隔離特性.....	52
事例12：フィリピン：粘土の長期隔離特性.....	56
事例13：キプロス：粘土の長期隔離特性.....	62
事例14：火成貫入による泥岩の変質：粘土バリアの熱安定性	70
事例15：人工バリアシステム：コロイド.....	77
事例16：ベントナイト：地層処分施設の深度で洗掘は起こりうるか？	82
事例17：放射線分解.....	89
3. 天然バリアシステム	93
3.1 亀裂性結晶質母岩の長期性能.....	93
事例18：セラフィールド：地下水システムへの将来の気候変動影響の予測のための古水理地質学の利用.....	93
事例19：スウェーデンのエスポとラクセマー：深部地下水システムの長期安定性.....	100
事例20：ルパン鉱山：永久凍土環境のナチュラルアナログ	106

事例 21：東濃：母岩の安定性のナチュラルアナログ	112
3.2 母岩としての岩塩の長期性能.....	118
事例 22：岩塩中の地層処分施設のナチュラルアナログ.....	118
3.3 長期隔離の概念.....	122
事例 23：マトリクス拡散：母岩の長期隔離特性.....	122
4. 自然システムにおける放射性核種移行.....	127
4.1 自然システムにおける遅延.....	127
事例 24：ポソス・デ・カルダス：ブラジルのモロ・デ・フェロ およびオサム・ウツミ鉱山 － 序論.....	127
事例 25：ポソス・デ・カルダス：ブラジルのモロ・デ・フェロ－ 放射性核種移行.....	130
事例 26：ポソス・デ・カルダス：ブラジルのオサム・ウツミ鉱山－ 放射性核種移行.....	133
事例 27：ポソス・デ・カルダス：ブラジルのオサム・ウツミ鉱山－ 酸化還元フロント	136
事例 28：エル・ペロカルプロジェクト：放射性廃棄物の処分場からのウランの可動化と移行の アナログ.....	140
事例 29：スコットランドのニードルズ・アイ：ウランの可動化と移行.....	144
事例 30：スコットランドのブロブスタ：ウランの可動化と移行.....	152
事例 31：サウステラス鉱山：ウランの可動化と移行.....	158
事例 32：オーストラリアのアリゲーターリバー：ウランの可動化と移行.....	162
事例 33：スコットランドのローモンド湖：ハロゲン移行の研究.....	166
4.2 自然システムにおけるコロイド移行.....	170
事例 34：ブラジルのモロ・デ・フェロおよびポソス・デ・カルダス－ コロイド輸送.....	170
4.3 全体システム性能.....	175
事例 35：オクロ－ 地層処分施設の長期挙動のナチュラルアナログ	175
事例 36：カナダのシガーレイク－ 地層処分施設全体へのナチュラルアナログといえるか.....	182
5. 用語集.....	187
6. 謝辞.....	187

要旨

自然、考古学および古い産業のシステムは、放射性廃棄物の地層処分施設のセーフティケースの裏付けとなる補足的な論拠として重要な情報源である。これらのシステムは、地層処分施設を忠実に再現することはできないかもしれない。しかし、地層処分施設閉鎖後の時間枠に相当する非常に長い時間スケールに係わる人工バリア、天然バリアの長期プロセスの多くの側面に影響を及ぼす、物理的、化学的な挙動に関する知見と情報源である。アナログ（類似例）は様々な地層処分施設の性能の理解に有益であり、ある種の材料（物質）は長期間存続しうることを示す論拠となる。しかし、アナログは特定の地層処分環境において、そうした材料が必要な期間にわたり必要な性能を持続するという決定的な証拠ではない。なぜなら、類似の材料が持続してきた条件は、地層処分施設内で生じ、または変遷することが予想される条件とは一致しない可能性があるためである。

このアナログのカタログは、長期の時間スケールの地層処分施設システムの性能のある側面を表す自然環境からの事例（考古学および古い産業サイトを含む）を掲載しており、それらは、セーフティケースの裏付けに利用できる。特に本書には、各アナログシステムに関し、独立した情報シートとして、一連の要約説明に加え、詳細情報をさらに確認できる参考文献を掲載している。アナログは、地層処分施設の安全性を確保するための主要なバリアごとに分類することができる。本書は、既知のアナログを包括的に一覧にしたものではなく、地層処分施設の主要な安全バリア機能に関連する事例を整理したものである。

1. 序論

1.1 概要

英国における放射性廃棄物の地層処分施設開発計画の成功のためには、建設、操業、閉鎖後の全段階で適切な規制安全基準を満たす施設の性能評価が必要となる。これに対応するセーフティケースは、長期の安全を達成・維持できると実証することを総合的な目的とした、定量的および定性的両方の様々な論拠や証拠などで構成されている。

放射性廃棄物の地層処分施設の安全性能に影響しうる超長期プロセスの全てを室内試験で再現することや、それを外挿することは不可能である。こうした中で、いくつかの自然システム（考古学的システムや近代の産業システムを含む）は、地層処分施設の性能の理解を証明するうえでの「アナログ（類似現象）」として有益である。また地層処分施設閉鎖後の時間スケールに相当する長い期間、特定の材料は存在し続けることの証拠となる。また、それらのうちの特定のプロセスは、セーフティケースで考慮される時間スケールと比べて、遅い速度で起こると推定される。

「ナチュラルアナログ」という言葉の一般的な定義は、「地層処分場で生じることが予想される物質やプロセスに類似した事象¹」である。この定義は国際原子力機関（IAEA）の評価グループによって、後に改訂されている²。この改訂の意味することは、ナチュラルアナログの理解と適用については成熟中であるということである。ナチュラルアナログ研究とは、要約すると、処分場で生じる、もしくは処分場が存在することにより生じる物質とプロセスの長期挙動に関する類似例や直接的な類似例からの情報を利用することにより、適切な性能評価モデルの開発と検証を行うものである。

アナログ（自然アナログ、考古学アナログ、産業アナログ）は、地層処分施設の性能の理解の論証に有用であり、特定の物質は長期間存続するという証拠となる。しかしながら、そうした物質は特定の地層処分環境において、必要な期間、存続するという決定的な証拠にはならない。なぜなら、アナログ物質が存続した条件は、地層処分システムで生じ、変遷すると想定される条件と一致しない可能性があるからである。したがって、アナログはその点を踏まえて使用されるべきであり、セーフティケースにおいては補足的な論拠としてのみ用いることができる。それにもかかわらず、適切なアナログは、論理的、数学的な論拠を裏付けるための長期間の実証的な証明として有益となりうる。

こうした理由から、自然アナログ、考古学アナログ、産業アナログの研究は、安全性を示すための様々な根拠の一つとして利用され、それらが統合することにより、セーフティケースで考慮されるプロセスの理解の信頼性を構築することに役立つ。また、他のサイトではなく、実際の地層処分

¹ Côme, B. & Chapman, N.A. (editors) (1986) Natural Analogue Working Group; First Meeting, Brussels, November 1985. *CEC Nuclear Science and Technology Report*, EUR 10315, Commission of the European Communities, Luxembourg.

² IAEA (1989) Natural Analogues in Performance Assessments for the Disposal of Radioactive wastes. *IAEA Technical Report*, 304, International Atomic Energy Agency, Vienna.

サイトにおける自然システムの調査から得た情報（「セルフアナログ」と呼ばれる）は、地質バリアの長期性能の観点からセーフティケースの貴重な情報となる。

放射性廃棄物管理会社（RWM 社）（日本の実施主体に相当）は、英国地質調査所（BGS）に、セーフティケースの裏付けに利用可能な、長期の時間スケールにわたり処分システムが有する可能性のある性能を示すための自然システム、考古学システム、産業システムのアナログ事例のカタログの作成を委託した。カタログ作成においては、広範囲にわたる関連する国内外の研究事例に関する論文・報告書からの情報を使用した。セーフティケースの裏付けとなる地層処分システムの様々な機能を示すため、多岐にわたるアナログを事例として採用しているものの、本カタログは既知のアナログ全てを網羅したものではない。

1.2 セーフティケースにおけるナチュラルアナログの利用

アナログは、定性的なデータから定量的なデータまで多岐にわたるデータにより、セーフティケースの裏付けに利用することができる。例として以下のようにセーフティケースの多くの側面に対して適用することが可能である。

- ・ アナログは、地層処分施設とその長期変遷に関連するメカニズムやプロセスを明らかにし、セーフティケースの信頼性を高める。
- ・ アナログは、室内の条件や室内試験の短期的な時間スケールでは容易に研究できない、長期の（地質的に長期の）時間スケールで起こると想定されるプロセスの影響について、定性的な理解を与える。
- ・ アナログは、地層処分施設の母岩（地層処分場を取り囲む地下岩盤）や人工バリア材料の長期にわたる性能に関する、予測モデルや室内試験結果の外挿の検証に利用できる。

これまでの過去 30 年間で作成された多くのセーフティケースでは、概念モデル開発の裏付けとして、モデルの検証として、または定量的なデータの直接的なインプットとしてなど、様々な形でアナログが利用されている（下表参照）。

セーフティケースにおけるアナログ利用の事例（Alexander and McKinley, 1999 および Grundfelt and Smellie, 2004 に基づき、追加的な情報を含めて作成）：

セーフティケース/ 安全評価	概念モデルの開発	モデルの検証	直接的な データのインプット
KBS-3 (1983)	・ 使用済燃料の放射線分解酸化		・ 銅の最大孔食係数 ・ $T < 100^{\circ}\text{C}$ のベントナイトの安定性
Projekt Gewähr (1985)	・ ホウケイ酸ガラスの安定性 ・ セメントとコンクリートの安定性 ・ ビチューメンの安定性		・ 鉄の長期腐食速度 ・ 使用済燃料の腐食速度 ・ ベントナイトのイライト化作用の予測速度

	・ 放射性核種の移行		
SKB-91 (1992)	・ ベントナイトの長期安定性 ・ マトリクス拡散の概念 ・ コロイドの影響の特定	・ 酸化還元フロントの進行 ・ 放射性核種の溶解度	・ 放射線分解酸化の速度
TVO (1992)	・ 地層処分施設への氷河の影響の特定 ・ 銅の腐食プロセス ・ コロイドと微生物の影響	・ 使用済燃料の拡散	・ マトリクス拡散の深度
Kristallin-1 (1994)	・ ベントナイトのイライト化の温度依存性 ・ キャニスタの放射線分解酸化 ・ ガラス腐食速度 ・ 使用済燃料の放射線分解酸化 ・ 微生物による放射性核種の移行遅延	・ 放射性核種の溶解度 ・ キャニスタの腐食速度 ・ 酸化還元フロントの進行	・ ベントナイトの熱変質 ・ 鉄の長期腐食速度 ・ マトリクス拡散の深度 ・ 酸化還元フロントの進行速度予測
AECL EIS (1994)	・ 使用済燃料と銅製キャニスタの腐食速度 ・ ベントナイトの長期挙動 ・ 放射性核種の遅延作用	・ 放射性核種の溶解度 ・ 放射性核種のコロイドと有機錯体形成 ・ 銅の腐食速度	・ 使用済燃料の安定性 ・ 放射線分解のパラメータ ・ 銅製キャニスタの腐食速度 ・ ベントナイトのイライト化速度 ・ マトリクス拡散の深度
NRC IPA (1995)	・ 地層処分施設の崩壊シナリオの開発 ・ ソースタームモデルの開発 ・ ガス相の移行 ・ 放射性核種の移行における大・小規模の亀裂の相対的重要性	・ 不飽和媒体における放射性核種移行 ・ 亀裂性媒体における放射性核種移行	・ 使用済燃料の腐食に伴う二次相の同定と関連性
SFR (1998)	・ セメント系材料の長期安定性 ・ セメント系地層処分施設の周辺の高アルカリ影響領域の進行	・ 高アルカリ条件の熱力学的データベースのブラインド予測モデル (BPM) の検証	・ 高アルカリ影響領域内の二次ケイ酸カルシウム水和物 (CSH), CASHとゼオライトの変遷 ・ 母岩中のアルミノケイ酸塩反応によるpHの緩衝 ・ K/Na/CaOH流出のパラメータ
TILA-99 (1999)	・ 使用済燃料の溶解モデルに想定される保守性への裏付け		・ 銅製キャニスタの腐食速度
SR-97 (1999)	・ 氷河シナリオにおける永久凍土データの組み	・ 使用済燃料の放射線分解酸化	・ ベントナイトのイライト化速度

	<ul style="list-style-type: none"> 込み 氷河シナリオにおける後氷期の地殻変動情報の組み込み 	<ul style="list-style-type: none"> マトリクス拡散による放射性核種の移行遅延 酸化還元フロントの進行 様々な地下水の混合 	<ul style="list-style-type: none"> ベントナイトの熱的安定性 微生物活動のバリアとしてのベントナイト 深部地下水における低いコロイド群数 母岩におけるガス移行 酸化性地表水の最大浸透深度 母岩による長期の酸化還元緩衝能力
H-12 (2000)	<ul style="list-style-type: none"> ベントナイトの温度依存鉱化 		<ul style="list-style-type: none"> 鋼製キャニスタの保守的な腐食速度 ガラス固化体の保守的な溶解速度 マトリクス拡散の深度 東濃サイトの母岩安定性
Opalinus Clay (2002)	<ul style="list-style-type: none"> ニアフィールドからの高アルカリ性浸出液とファーフィールドとの相互作用 母岩とベントナイトの高温相互作用 ベントナイトの化学変化 放射線分解の影響 		<ul style="list-style-type: none"> 放射性核種の溶解度 鋼製キャニスタの腐食速度 使用済燃料の溶解速度
TRU-II (2007)	<ul style="list-style-type: none"> セメント系材料の放射性核種の移行遅延における二次鉱物結晶化の影響 		
Posiva (2012) Posiva (2013). Safety Case-2012: Complementary Considerations. <i>Posiva Report 2012-11</i> , Posiva, Eurajoki, Finland.	<ul style="list-style-type: none"> オルキオトにおける使用済核燃料処分のセーフティケースへのインプットのための、ウラン移行、銅腐食、鉄腐食、ベントナイト緩衝材の熱的・力学的・化学的変質およびセメントと岩石の相互作用に関する、ナチュラルアナログからの補足的データの利用 		<ul style="list-style-type: none"> 銅製キャニスタの腐食速度
SKB: Forsmark (2014) Sidborn, M., Marsic, Crawford, N.J., Joyce, S., Hartley L., Idiart, A., de Vries, L.M., Maia, F., Molinero, J., Svensson,	<ul style="list-style-type: none"> OPCグラウトからの高アルカリブルームとそのベントナイト埋め戻し材料との相互作用に関する変遷モデル、地層処分施設の母岩にお 	<ul style="list-style-type: none"> ナチュラルアナログ研究からの情報と、室内試験、地下研究施設 (URL) における試験およびモデル研究との統合 	

U., Vidstrand, P. and Alexander, W.R. (2014). Potential alkaline conditions for deposition holes of a repository in Forsmark as a consequence of OPC grouting. <i>SKB Report SKB R-12-17</i> , SKB, Stockholm, Sweden.	けるアルカリ影響領域内の地球化学的環境の変遷モデルの開発 ・ 気候変動の影響の評価のための概念モデルの開発		
--	--	--	--

その他の有用な事例	
各国の処分プログラムの裏付けに利用されるアナログに関する昨今の概観	Alexander, W.R., McKinley, I.G. and Kawamura, H. (2013). The process of defining an optimal natural analogue programme to support national disposal programmes. Proc. NEA-GRS Workshop on natural analogues for Safety Cases of repositories in rock salt. 4 – 6 September, 2012, Braunschweig, Germany. NEA/OECD, Paris, France.
	Alexander, W.R., Reijonen, H.M., McKinley, I.G. (2015). Natural analogues: studies of geological processes relevant to radioactive waste disposal in deep geological repositories. <i>Swiss Journal of Geosciences</i> 108, 75-100.
	Reijonen, H.M. and Alexander, W.R. (2015). Bentonite analogue research related to geological disposal of radioactive waste – current status and future outlook. <i>Swiss Journal of Geosciences</i> 108, 101-110.
キプロス ナチュラルアナログプロジェクト(CNAP)	Milodowski, A.E., Norris, S. and Alexander, W.R. (2016). Minimal alteration of montmorillonite following long-term interaction with natural alkaline groundwater: implications for geological disposal of radioactive waste. <i>Applied Geochemistry</i> , 66 , 184-197.
ステークホルダーコミュニケーション	Alexander, W.R. (2013). An assessment of the long-term durability of proposed shaft seal materials under highly saline groundwater conditions using natural analogues. Bedrock Geosciences Technical Report BG13-04 for NWMO, Toronto, Canada (in press).

残念ながら、全てのセーフティケースがアナログ情報の使用箇所を明確に記述しているわけではなく、多くは非明示的である。また、使用した関連報告書の一部は公にはされていない補足文書である場合もある。

アナログは、セーフティケースので得られた結果の信頼性を向上させるためにも利用される。またアナログは、複雑な課題や長期の時間スケールで作用する地質プロセスを単純な方法で示すために用いることができる、地層処分施設において生じるプロセスやメカニズムの明白な例ともなる。

1.3 アナログカタログの目的と範囲

本アナログカタログの主な目的は、地層処分施設のセーフティケースの裏付けのために利用できるアナログシステムのデータ例を提示することである。その範囲は、英国における処分に関するあらゆる観点を含む。様々な種類の廃棄物と地層処分の対象となり得る母岩が考慮され、データ例は4つの主要なセクションとして、人工バリアシステム、天然バリアシステム、自然システムにおける放射性核種の移行、ナチュラルアナログとセーフティケース、に分けている。

各アナログの事例では、以下の情報を示す。

- ・ アナログシステムが表現するもしくは適用できる地層処分施設の特定の構成要素の説明
- ・ アナログ事例の地球科学的特性の概要説明
- ・ 安全性に関わる主要な見解
- ・ アナログの利用限界に関する概要
- ・ システムを表す図表（適切な承諾手続きを行い、著作権基準に従った、RWM社の出版物で使用可能な図表）
- ・ 詳細情報が得られる参考文献リスト

1.4 カタログ構成

アナログ事例は以下の4つのセクションに分け、さらに主要な安全バリア機能ごとに分類した。

1. 人工バリアシステム
 - ・ 廃棄物形態
 - ・ 容器の性能
 - ・ ニアフィールドのバリア材料
2. 天然バリアシステム
 - ・ 粘土質母岩の長期性能
 - ・ 亀裂性結晶質母岩の長期性能
 - ・ 岩塩母岩の長期性能
 - ・ 長期の隔離概念
3. 自然システム（主に地下地質環境）における放射性核種の移行
 - ・ 自然システムにおける遅延作用
 - ・ 自然システムにおけるコロイド移行
4. 全システム性能

2. 人工バリアシステム

2.1 廃棄物形態

事例 1：ガラス固化された高レベル放射性廃棄物のアナログとしての天然ガラス

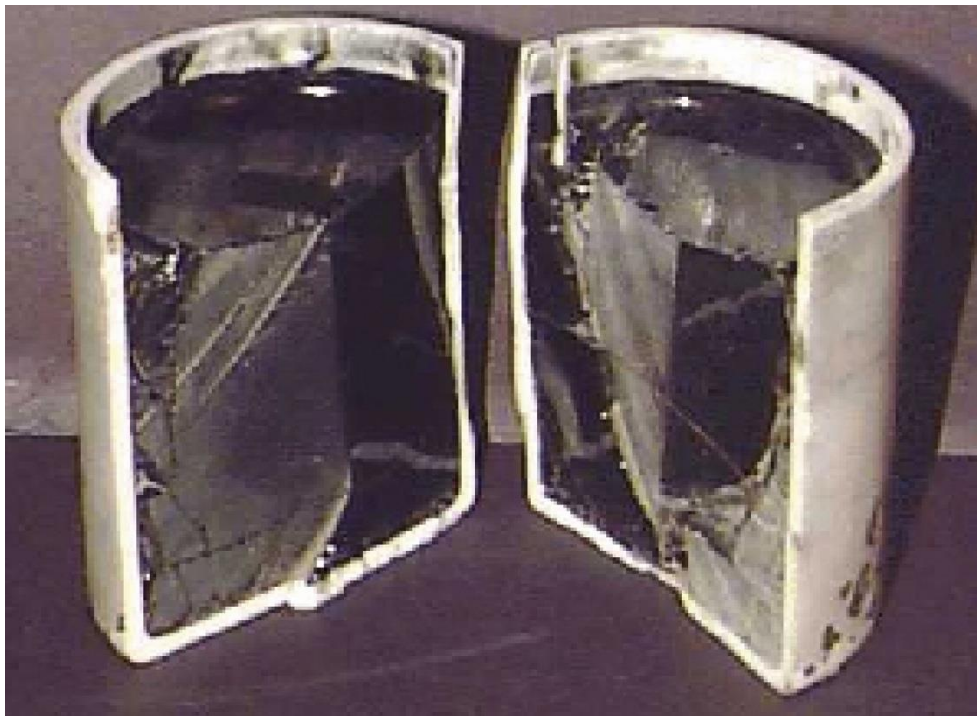
概要

ガラスは、1950年代に高レベル放射性廃棄物の処分のための固化材料として、提案された。英国内で発生した高レベル放射性廃棄物の処分では、高レベル放射性廃棄物をホウケイ酸ガラス中に溶かし込ませる（ガラス固化）。現在運転中のガラス固化施設は、セラフィールド（英国）、マルクールとラ・アーグ（フランス）、サバンナリバー（米国）および六ヶ所村（日本）にある。プラズマオーブンを使用した低中レベル放射性廃棄物（L/ILW）のガラス固化も、台湾とスイスで現在実施されている。

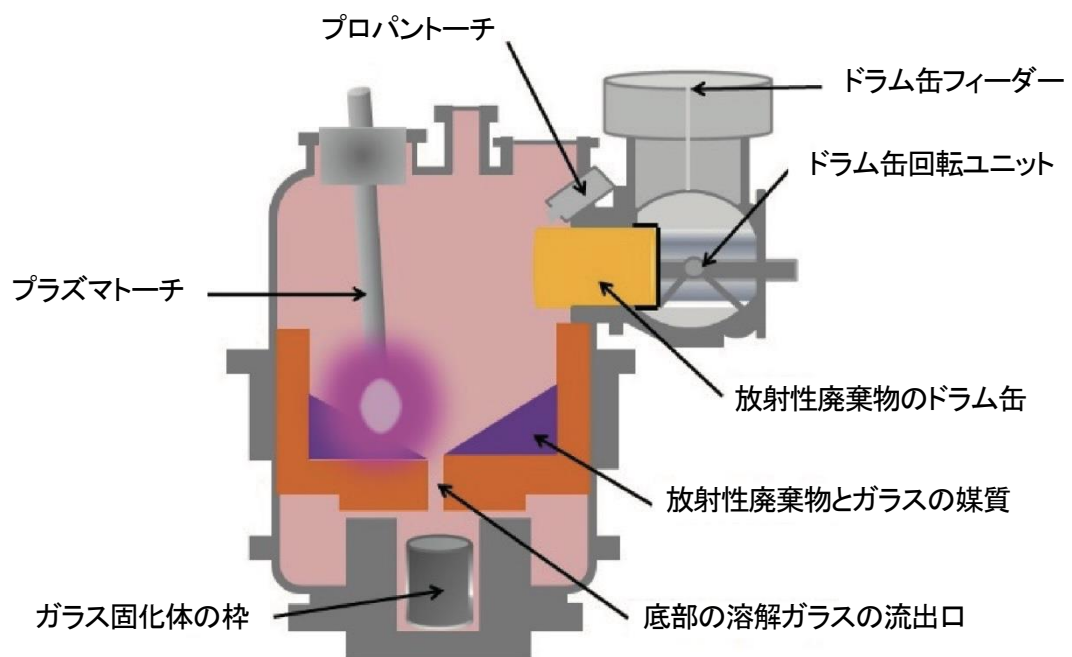
なぜ、ガラスに廃棄物を入れるのか？

液体状の高レベル放射性廃棄物をガラスと混合してできたガラス固化体は、最終処分の前に貯蔵用の金属製容器に封入される。廃棄物形態としてガラスが注目された理由は、深地層処分施設で予想される条件下において物理的および化学的な耐久性があることや、生産が容易であること、またガラス固化のプロセスによる廃棄物組成への影響が比較的少ないことにある。

ホウケイ酸ガラス（15～25 wt% の酸化ホウ素（ B_2O_3 ）を含むガラス）によるガラス固化体は、その安定性と、製造中の揮発による廃棄物の損失を最小限に抑え、かつ比較的低い温度（約1,100℃）で形成されることから、最も一般的な廃棄物形態として選択されている。しかし、比較的安定した廃棄物形態ではあるものの、ガラスは時間とともに変質するので、地層処分施設の条件下におけるホウケイ酸ガラスの廃棄物形態の耐久性に関する相当数の室内試験とモデルの構築作業が行われている。



ガラス固化された高レベル放射性廃棄物の入った鋼製キャニスタの断面図
<http://nuclearstreet.com/images/img/dw117.jpg>



スイスの中間貯蔵施設 (ZWILAG) におけるプラズマオーブンを使用した低中レベル放射性廃棄物のガラス固化設備の模式図 (www.zwilag.chを修正)

廃棄物ガラスのナチュラルアナログ

半世紀にわたって、天然ガラスはガラス固化された高レベル放射性廃棄物のアナログとして研究

されてきた。特に溶解プロセスとその速度の特定、および固体の二次変質生成物の性質の解明に重点が置かれてきた。二次変質生成物は天然においても比較的よく見られるもので、火山ガラス、隕石衝突によるガラスやテクタイト等がある。これらは、溶岩が急速に冷えることによって（例えば、海水に浸水した時）、溶解中に結晶が形成されないため生じる。



スコットランドのRoss of Mull（マル島）の黒曜石。約6,000万年前のガラス中のガラスマトリクス内の失透化によって、灰白色化した球帯が見られる（© Bedrock Geosciences）

天然ガラスの多くは、低シリカ質（玄武岩組成）から高シリカ質（黒曜石組成）の「通常の」火成岩と同様の組成をしている。黒曜石は、廃棄物の隔離のためのマトリクスとして数十年前に検討されていた高シリカ質で低アルカリ性の廃棄物ガラス組成に近いので、以前は現在よりも詳細に調査されていた。一方で、玄武岩ガラスは現在の組成により近いので、今日において、一般的にホウケイ酸の高レベル放射性廃棄物ガラスの最も適切なアナログと考えられている。

古代ガラスと同様、天然ガラスには、ガラス固化された高レベル放射性廃棄物にあるような高濃度の酸化ホウ素（ B_2O_3 ）や放射性核種が含まれない。なお、ウランが豊富な天然ガラスも見つかっているが、現在まで、そうしたガラスの体系的なナチュラルアナログ研究は行われていない。海水に触れた天然ガラスの表面変質生成物にウランが豊富なのは、海水からの溶解ウランの吸着によるが、おそらくこれは、ガラス固化された高レベル放射性廃棄物から溶出する放射性核種の吸着に関して予想される作用と類似した現象であると考えられる。

天然ガラスは、地層処分施設のような受動的な還元条件下とは大きく異なっており、海底または陸上の化学反応の進みやすい酸化条件下で見つかることが多い。この違いから、セーフティケースにおいて、天然ガラスから算出される変質速度を、人工の廃棄物を含有するガラスに直接適用するのは現実的ではない。しかし、玄武岩ガラスの自然における変質と室内試験におけるホウケイ酸ガラスの変質を比較することにより、二種類のガラスは同じ速度ではなくとも、同様のメカニズムで変質することを定性的に示すことができる。

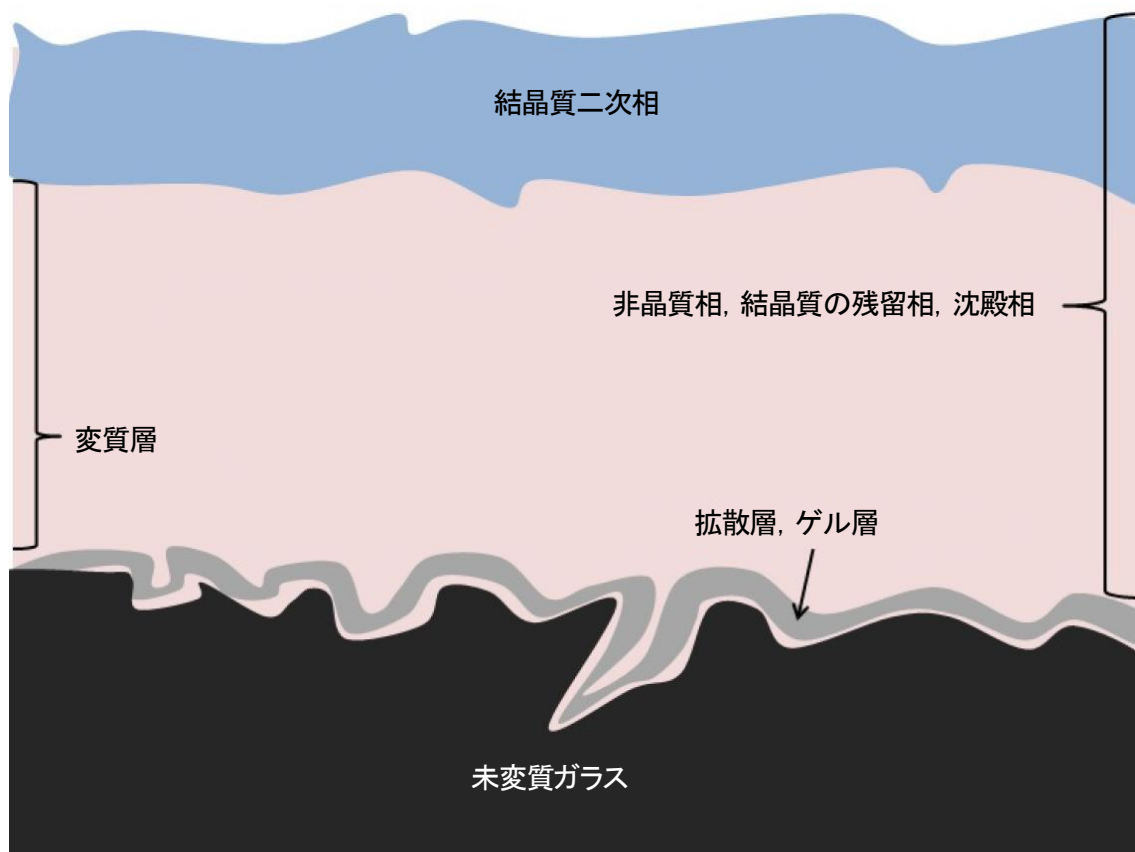


キプロスの玄武岩質の枕状溶岩。溶けた溶岩が海水と接触したため、枕状溶岩の外側がガラス固化している。これらは約2億年前の溶岩で、各枕状溶岩の周りの白い縁は、失透化したガラス部分を示す。

(© Bedrock Geosciences)

一般的に、天然に見られる自然ガラスの古さは2,500万年に満たない。しかし、数少ない例外として、カナダでは11億年前、月では37億年前のガラスが見つかっている。このように極端に長い期間存続した理由は、非常に乾燥した環境条件にあることによる。

北アメリカで発見された425個の天然ガラスは、半分以上が200万年に満たない古さだが、中には4,000万年前のものもある。ガラスと地下水組成に関するデータは得られていないが、天然ガラスの平均的な古さである約200万年という時間は、放射性廃棄物の処分対象とする期間より大幅に長い。こうしたデータは、ガラス固化された高レベル放射性廃棄物の変質は、英国の深地層処分施設で対象とする時間スケールにおいて、深刻な問題となる可能性は低いという結論を定性的に裏付けることができる。



ガラスが地下水中で溶解する時に形成される3つの変質層の概要図。外側の層は、ガラスを実質的に閉じ込められるほど硬化し、それ以上の変質を停止させる可能性がある。(Lutze and Ewing, 1988を修正)

不確実性と相違

- 天然ガラスの多くが発見される地表近傍の環境は、深地層処分の施設環境と異なっており、一般的に地下深部で予想されるよりはるかに風化が激しい。
- ガラスの変質を支配する境界条件は、特定することが困難な場合が多い。例えば、地下水の化学的性質がサンプルの存続期間中、時間の経過とともにどのように変化してきたのかを正確に把握することは困難である。これは、多くのアナログシステムにいえの共通の課題である。
- 放射性核種を多く含む天然ガラスの研究は、その存在がほとんど確認されていないことから現在まで実施されていない。したがって、ガラス固化された高レベル放射性廃棄物との直接的な類似性は低い。

適応性 - 得られた知見

- 玄武岩ガラスのナチュラルアナログ研究は、ガラス固化された高レベル放射性廃棄物の変遷の概念モデルを拘束するために、セーフティケースにおいて用いることのできる、ガラスの変質プロセスにおける有益な定性的知見となり得る。
- 天然ガラスが研究されたのは、より風化が激しい環境条件であることから、変質速度はガラス固化された高レベル放射性廃棄物よりはるかに大きいと予想される。しかしながら、これ

らは高レベル放射性廃棄物の溶解の上限値として活用可能である。

- 天然ガラスの一般的な存続期間の長さから、地層処分施設の安全性が最重要視される期間に、慎重に設計された高レベル放射性廃棄物のガラス固化体の、急速な変質が起こる可能性は低いという信頼性を向上させることができる。
- 天然ガラスの表面変質生成物による溶解ウランの吸着によって、ガラス固化された高レベル放射性廃棄物から溶出する放射性核種も、廃棄物の表面に形成される類似の二次変質相によって遅延あるいは固定される可能性が示唆される。

参考文献

ANDERSON, E.M. AND RADLEY, E.G. 1915 The pitchstones of Mull and their genesis. *Quarterly Journal of the Geological Society*. **71**, 205-217.

HAVLOVA, V., LACIOK, A., CERVINKA, R. AND VOKAL, R. 2008 Natural analogue evidence relevant to UK HLW glass waste forms. *UK Nirex Report 509009, RWM Ltd, Harwell, UK*.

JUDD, J.W. AND COLE, G.A.J. 1883 On the Basalt-Glass (Tachylyte) of the Western Isles of Scotland. *Quarterly Journal of the Geological Society* **39**, 444-465.

LUTZE, W. AND EWING, R.C. (editors). 1988. *Radioactive Waste Forms for the Future*. North Holland, New York, USA.

MacDougall, J.D. 1977. Uranium in marine basalts: concentration, distribution and implications. *Earth and Planetary Science Letters*, **35**, 65-70.

MARSHALL, R.R. 1961 Devitrification of natural glass. *Bulletin of the Geological Society of America*, **72**, 1493-1520.

MILLER, W.M., ALEXANDER, W.R., CHAPMAN, N.A., MCKINLEY, I.G. AND SMELLIE, J.A.T.. 2000. *Geological Disposal of Radioactive Wastes and Natural Analogues*. Waste Management Series, Vol. 2, Pergamon, Amsterdam, The Netherlands.

2.2 容器の性能

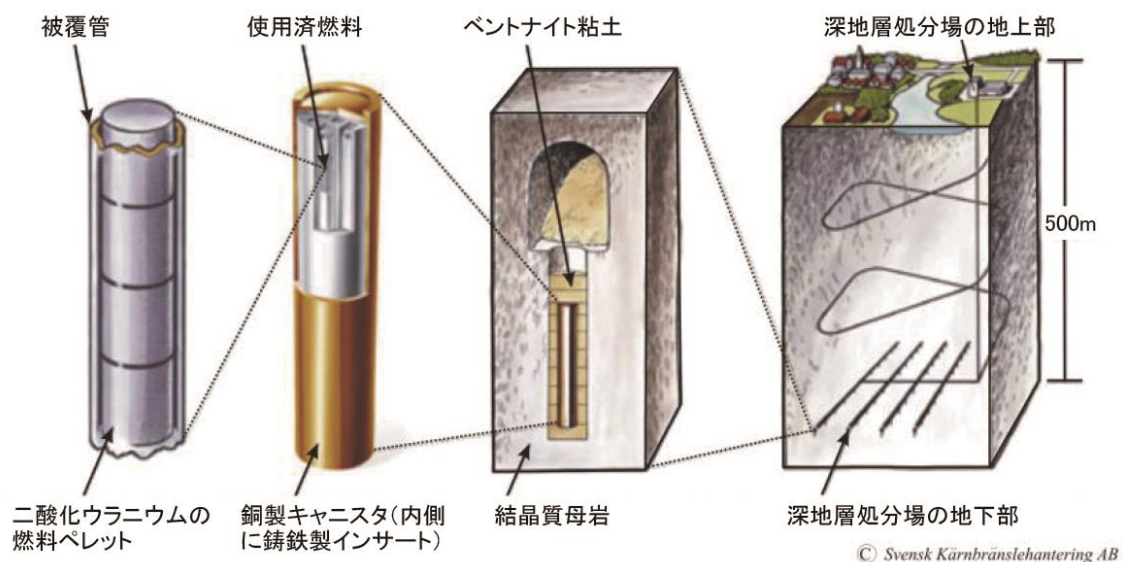
事例2：英国 サウス・デヴォンのリトルハム湾：ペルム期泥岩の天然銅の腐食

概要

銅は、高レベル放射性廃棄物と使用済燃料を閉じ込める素材として、放射性廃棄物の地層処分施設で使用される可能性のある材料である。

地層処分施設における銅製廃棄物キャニスタの使用

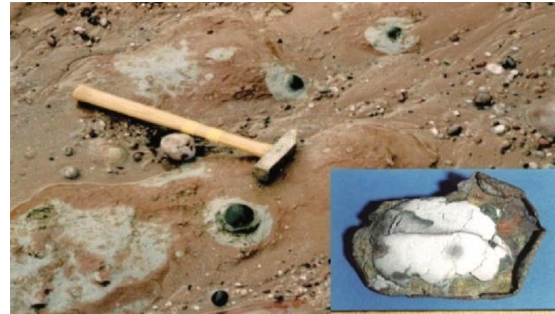
- ・ スウェーデン、フィンランド、カナダにおける高レベル放射性廃棄物と使用済燃料処分のための地層処分施設の概念では、廃棄物を定置するために鋳鉄製インサートと共に銅製キャニスタが使われる。
- ・ 各キャニスタは地下 400～700 m の花崗岩を掘削した穴に定置され、容器を保護するための締め固めたベントナイト（粘土の一種）と共に定置される。
- ・ 地層処分環境で持続すると予測される、弱アルカリ性で還元状態の地下水環境下における銅の耐食性の高さは、理論的および試験的研究で示されていることから、銅がキャニスタの外側部分の材料に選ばれている。その結果として、銅によって長期間の廃棄物の隔離と保護が可能となると予想される。



スウェーデン SKB社の処分概念 KBS-3

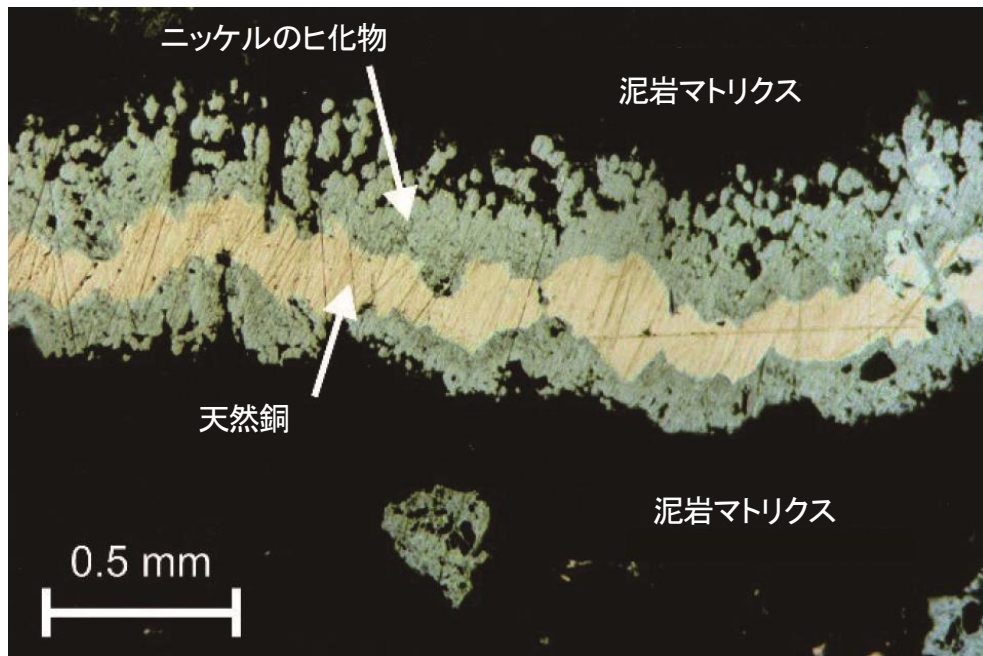
リトルハム湾のナチュラルアナログ研究

英国の南西、サウス・デヴォンにあるリトルハム湾のペルム期（約3億～2億5,000万年前）のリトルハム泥岩層に、天然銅の層が残っている。これらは、銅製キャニスタを使用する地層処分施設における、粘土に覆われた銅の長期安定性の理解のために研究されてきた。



左: リトルハム湾のナチュラルアナログサイトの位置 (©British Geological Survey)

上: 赤泥岩中の灰色の還元領域に囲まれた、黒色をしたウランとバナジウムが豊富なコンクリーションは、保存状態のよい天然銅の薄い層を含むことがある (INSET) (©British Geological Survey)



腐食によって、部分的に灰銀色のニッケルヒ化物に置換された、泥岩内の天然銅の薄い層が見られる銅コンクリーションの薄片の反射光顕微鏡画像 (Milodowski et al., 2000より)

- リトルハム湾の銅は純度が99.9%で、シルト質粘土マトリクス中に不連続なプレート状（上限は直径160 mm，厚さ4 mm）に存在する。各プレートは、厚さ<0.1～2 mmの薄い銅の層

が堆積して形成される。

- これらの層は、透水性の高い砂岩と、透水性の低いシルト岩の層理面に沿った泥岩内で成長する。続成作用の構成成分の研究から、約 1 億 7,500 万年前、地層の圧縮状態が上限に到達する以前に、銅がすでに形成されていたことが分かる。
- 銅は堆積後、硫化鉱物、酸化鉱物によって変質・腐食したが、詳細研究によればこの現象のほとんどは銅の堆積直後に生じたことが示されている。
- 銅の初期の層の 30～80 % は、リトルハム泥岩層の粘土内に未変質のまま保存されていた。隆起と侵食によってプレート状の銅が現在の風化環境にさらされるまでの 1 億 7,000 万年以上の間、それ以上の変質は認められていない。

不確実性と相違

- リトルハム泥岩層の天然粘土は、地層処分施設の目的に合うように設計されたベントナイト粘土のバリアシステムとは異なる鉱物組成をしており、地層処分施設のような高い閉じ込め機能を持たない。
- リトルハム湾の泥岩層は、慎重に設計されたベントナイトの緩衝材よりも透水性が高いものと思われる。よって、人工バリアシステムの人工ベントナイトバリアにおける銅の性能は、本アナログで示されるものより実際には高いと考えられる。
- 鉱物の集合体の観察から、地中の間隙水が還元状態を保ったため、隆起と侵食によって現在の酸化された地上近傍の風化環境に鉱物がさらされるまで、銅と卑金属の硫化鉱物およびヒ化鉱物が存続したことが分かる。
- 同年代頃の岩石中の地下水研究が、英国内より深い場所から得られた高濃度の塩水を対象に実施されている。さらに、岩塩と硬石膏の堆積物およびマトリクスセメント鉱物は、上部を覆う三畳紀層にかつて存在していたとされ、東部の盆地深部に未だに残っている。したがって、ペルム期のリトルハム泥岩層の間隙水も、硫酸塩が豊富で、塩分濃度が高く、おそらく岩塩と硬石膏で飽和状態であった可能性が高い。こうした高塩分濃度で硫酸塩が豊富な地下水は、多くの地層処分環境下で見られる塩分濃度の低い地下水よりも、銅の腐食性が高い。
- ナチュラルアナログ研究からは、セーフティケース評価を裏付ける銅の腐食速度に関する定量的な情報を示すことはできないが、何百万年もの間、銅が粘土マトリクスに閉じ込められ、存続していたという事実は、放射性廃棄物の地層処分施設における銅製キャニスタの使用概念に関する強力な定性的裏付けとなる。

適用性 - 得られた知見

- リトルハム湾のナチュラルアナログ研究から、締め固められた粘土環境中に埋設された銅金属は、1 億 7,000 万年以上の間、安定して耐食性を保つことが分かる。
- この特定の事例において、埋設中の銅の初期の腐食と変質後、少なくとも 1 億 7,000 万年の間、隆起と侵食によって現在の地上近傍の風化環境にさらされて変質するまで、残存する銅（初期の銅質量の 30～80 %）は自然に圧縮された泥岩中で不活性のまま、それ以上の腐食が制限された状態にあった。これは放射性廃棄物管理のセーフティケースで想定される時間スケール（最大 100 万年）をはるかに超えるものである。

- ・ 自然環境における銅金属の存続は、銅製キャニスタが数万年間、地層処分環境で耐食性を保つことのできる可能性があるという予測の裏付けとなる。

参考文献

- ARCOS, D., GRANDIA, F. AND DOMENECH, C. 2006. Geochemical evolution of the near field of a KBS-3 repository. *SKB Technical Report*, **TR-06-16**, 90pp. Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB) - Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company, Stockholm, Sweden.
- HARRISON, R.K. 1975. Concretionary concentrations of the rarer elements in Permo-Triassic red beds of south-west England. *Bulletin of the Geological Survey of Great Britain*, **52**. 1-26.
- KING, F., AHONEN, L., TAXÉN, C., VUORINEN, U. AND WERME, L. 2001. Copper corrosion under expected conditions in a deep geologic repository. *SKB Technical Report*, **TR-01-23**. Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB) - Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company, Stockholm, Sweden. [Also published as *Posiva Oy, Report*, **POSIVA 2002-01**, Helsinki].
- MILODOWSKI, A.E., STYLES, M.T., HARDS, V.L. 2000. A natural analogue for copper waste canisters: The copper-uranium mineralised concretions in the Permian mudrocks of south Devon, United Kingdom. *SKB Technical Report*, **TR-00-11**, 90pp. Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB) - Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company, Stockholm, Sweden.
- MILODOWSKI A.E., STYLES M.T., HORSTWOOD, M.S.A. AND KEMP, S.J. 2002. Alteration of uraniferous and native copper concretions in the Permian mudrocks of south Devon, United Kingdom. *SKB Technical Report*, **TR-02-09**. Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB) - Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company, Stockholm, Sweden.
- WERME, L. 1998. Design premises for canister for spent nuclear fuel. *SKB Technical Report*, **TR-98-08**. Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB) - Swedish Nuclear Fuel and Waste Management.

事例3：インテシュルの古代ローマ軍の釘：鉄腐食

鉄や鋼は、放射性廃棄物の地層処分施設において高レベル放射性廃棄物、使用済燃料、低中レベル放射性廃棄物を閉じ込めるキャニスタの材料として使用される可能性がある。考古学アナログであるローマ帝国の遠方の前哨基地の考古学的な発掘から、数千年間にわたる鉄の安定性に関する知見が得られる。

概要

高レベル放射性廃棄物と低中レベル放射性廃棄物の処分場からの放射性核種の早期の放出と可動化を防止するための多重バリア層の一つが、使用済核燃料を含む様々な種類の放射性廃棄物を閉じ込める金属製キャニスタである。キャニスタに用いられる金属は、以下に対する耐久性を有している必要がある。

- ・ 腐食：酸化反応や、化学反応、電気化学反応による金属の変質。
- ・ 圧力：キャニスタは地下に埋設され、圧縮環境にさらされる。廃棄物の一部はガスを発生させるため、内部の加圧が起こりうる。
- ・ 熱影響：閉じ込めた廃棄物の一部は発熱し、最高 125 °C 程度まで温度が上昇する可能性がある。
- ・ 放射線：金属への放射線照射は、物理的特性に影響を及ぼす可能性がある。

耐久性は、半減期の短い放射性核分裂生成物が、大幅に減衰するのに十分な長さの期間、確保されている必要がある。鉄や銅をベースとした金属はキャニスタに必要な特性の多くを有することから、キャニスタ部材の主要な候補材料となる。また、金属は放射性廃棄物の地層処分施設において、建設部材としてもおそらく使用される。

鉄と鋼の使用

鉄を主成分とする金属は、地層処分システムのうち、特にキャニスタ構造に不可欠である。処分概念によっては、キャニスタは銅などの異なる金属製のキャニスタに封入される。他の事例では、キャニスタは締め固めた粘土（ベントナイト）でシールされるか、あるいはセメントでおおわれる。これらのシール材および埋め戻し材は、地層処分施設の閉鎖後、周辺の岩盤から供給される水で徐々に飽和状態になる。

地層処分施設内で持続する、高温、弱アルカリ性で還元状態の化学的環境における、鉄の腐食プロセスと腐食速度を理解するために、自然アナログや考古学アナログ、また実験的な研究が利用されてきた。

インテシュルのナチュラルアナログ研究

場所

スコットランド，ダンケルドのパーシヤー付近，テイ川の土手に位置する牧草地の全く目立たない場所で，ローマ帝国軍の最北の要塞跡が発見された。ここは，西暦83～86年までの間，ローマ軍が占領し，その後撤退している。現在，現地ですべてに見て確認できる証拠は，要塞の防御線の一部であった比較的保存状態のよい溝だけである。1960年期の発掘の間（活動期間 1952～65年），ファブリカ（要塞の工房）の地下に約100万本という大規模な鉄釘の集積物が発掘されている。いくつかの釘は，元々の状態に近いままで発掘された。ローマ軍が要塞を放棄する際，釘は地元の部族に見つからないように，融氷流水堆積物中に掘削した深さ3.66 mの穴に埋設され，厚さ1.83 mの砂利で埋め戻された。



釘

最初に発見された時，釘の集積物の外側部分，特に上部は腐食して不透水性のクラスト（堅い外皮）状になっていた。クラストの内側にある多くの釘には腐食生成物（スケール）である薄い緑青が見られたものの，中心部分にある釘のいくつかは，ほとんど錆びていなかった。いくつかの釘は，孔状の腐食が進んでいたと報告されている。また，釘自体は低炭素鋼できており，洗練された金属加工技術により製作されていた。釘の内部は，炭素含有量のばらつきによってできた層と，酸化鉄（ウスタイト）で飽和したケイ酸塩（ファイアライト）を含む薄い非金属含有物の存在によって，緻密な層状となっている。こうした層構造は，鍛冶職人が多くの薄い層を「摩擦圧接」することにより（例えば薄い層を折り曲げることにより），釘を作り上げたためと考えられている。非金属含有物は，このプロセスの



ために意図的に適用された低融解点の鉍滓の残留物である。釘は用途によって形、大きさ、硬さが異なる。腐食の程度は、鉄釘の組成の違いを系統的には反映していない。

何が起こったか？

外側にある釘が地中の水と反応することで、中心部分にある釘を以下の二つの理由により保存させることになった。

- ・ 反応生成物（すなわち錆）が、不透水性のクラストを形成し、釘の集積物に通る地下水の動きを大幅に制限した。
- ・ 釘の集積物の外側の腐食によって、地下水の酸化還元状態が低下したため、水が中心部分の釘に到達するまでに化学的に還元され、錆を発生させることができなかった。

いくつかの釘自身の表面のスケールによって形成された薄いコーティング層の存在によっても、中心部分の釘がさらに保護されていた。このスケールによってコーティングされた表面は、コーティングのない表面よりも腐食が少なかった。

不確実性と相違

- ・ 釘の組成と内部の組織は、処分場で使用することが想定される鉄系金属とは異なる。
- ・ 地層処分施設的环境と異なり、釘の埋設環境は浅く、深部ではない。また、低温で、比較的透水性の高い堆積物の中で、地表水にさらされていた（より反応性が高かった）。
- ・ 釘は考古学的な発掘によって発見された。したがって、釘の集積物中や周辺の堆積物中の腐食現象の体系的な研究は実施されていない。同様に地下水、土壌および堆積物の化学的性質の情報も存在しない。

この研究が、浅地で不飽和の土壌環境における、鉄腐食の基礎的な知見となる一方で、実際の地層処分施設への定量的データの適用は難しいかもしれない。

適用性 - 得られた知見

- ・ インテシュルの釘は、低炭素鋼は数千年間の耐食性を有する可能性があることを示す。
- ・ 低炭素鋼が耐食性を有していたのは、生成物（例えば錆）が付着あるいは近くに残り、保護的なコーティング層とクラストを形成する傾向があることに一部起因する。
- ・ 地層処分施設で予想されるよりも、はるかに強い酸化性環境において、ローマ軍の釘が保存されていることから、地層処分施設の鉄系の構造物は、数千年間存続するという予測に対する信頼性が向上する（例えば、Posiva, 2012）。

参考文献

- ANGUS, N.S., BROWN, G.T. AND CLEERE, H.F. 1962. The iron nails from the Roman legionary fortress at Inchtuthil, Perthshire. *Journal of Iron and Steel Institute*, **200**, 956-968.
- CROSSLAND, I. *Corrosion of Iron-Based Alloys – Evidence from Nature and Archaeology*, Report prepared for United Kingdom Nirex Limited, Crossland Report CCL/2006/2, 2006.
- MAPELLI, C., NICODEMI, W., RIVA, R.F., VEDANI, M. AND GARIBOLDI, E. 2009. Nails of the Roman Legionary at Inchtuthil. *La Metallurgia Italiana*, January 2009, 51-58.
- MILLER, W.M., ALEXANDER, W.R., CHAPMAN, N.A., MCKINLEY, I.G. AND SMELLIE, J.A.T.. 2000. *Geological Disposal of Radioactive Wastes and Natural Analogues*. Waste Management Series, Vol. 2, Pergamon, Amsterdam, The Netherlands.
- PITTS, L. AND ST JOSEPH, A. 1985. Inchtuthil: The Roman Legionary Fortress Excavations 1952-65. *Britannia Monograph Series No. 6*. Allan Sutton Pub. Ltd.
- POSIVA. 2012. Safety Case for the Disposal of Spent Nuclear Fuel at Olkiluoto – Complementary Considerations 2012. *Posiva Report, 2012-11*, Posiva Oy, Olkiluoto, FI-27160 Eurajoki, Finland.
- The Story of Inchtuthil*: <http://www.glasgowsteelnail.com/romans2.HTM>
- Ordnance Survey Historical Map: Roman Britain*. 5th Edition 2001. ISBN 978-0-319-29029-3.

謝辞

アバディーンのマリシャール大学博物館に対し、所有するインテシュルの釘の利用と撮影の許可を頂いたことに感謝の意を表します（釘の一つは上記に掲載）。同様に、グラスゴーのハンテリアン博物館に対し、所有するインテシュルの釘の利用と撮影の許可を頂いたことに感謝の意を表します。最後にデルヴィン地所に対し、要塞跡への立ち入りと撮影の許可を頂いたことに感謝の意を表します。

2.3 ニアフィールドのバリア材料に関するアナログ

事例4：古代のセメント：セメント系材料の寿命

概要

セメントとコンクリートは、放射性廃棄物の地層処分施設、特に低中レベル放射性廃棄物 (L/ILW) においては、多重バリアの閉じ込め機能を発揮する材料として使用される。

地層処分施設のセメントとコンクリート

セメントとコンクリートは以下の用途に用いられる。

- ・ トンネル支保工
- ・ 立坑とトンネルの力学プラグと止水プラグ
- ・ 低中レベル放射性廃棄物の固化材
- ・ コンクリート製の廃棄物閉じ込め容器
- ・ セメント系緩衝材と埋め戻し材
- ・ 廃棄物を定置するためのコンクリート構造物（貯蔵庫）

処分場によっては、セメントの使用量が膨大となる。例えば、スイスにおける低中レベル放射性廃棄物の地層処分施設では、最大150万トンのセメントが使用される予定であり、これは地層処分施設で使われる全材料の総容量の約90%を占める。また、このセメントの使用量は、英仏海峡トンネルなどの主要なインフラプロジェクトに匹敵する。

処分場のセメント系材料の多くは、数千から数十万年の間、機能する必要がある。セメントの耐久性に関する室内試験は有益だが、処分環境では遷移または変質速度が非常に遅いため、長期の裏付けるデータも必要である。現在までに分かっている最古の人工コンクリートは、約9,000年前のもので、現在のガリラヤにある新石器時代の建物の床に使用されている。古代のセメントの研究は、セメントの寿命の有益な知見となる。

人工セメントとコンクリート

現在までに分かっている最古の人工コンクリートは約9,000年前のもので、現在のガリラヤにある新石器時代の建物の床に使用されている。エジプト人とギリシャ人は様々な種類のセメントを用いていたが、本当に耐久性のある材料は、ローマ人によって最初に開発された。そのポゾラン石灰コンクリートは、セメントを乾燥させずに固めて硬化させる、上質なケイ酸塩とアルミニウムを含む材料（ポゾラン）を使用した。

水和した現在のポルトランドセメントの主な組成成分は、ケイ酸カルシウム水和物 (CSH) , アルミン酸カルシウム水和物 (CAH) および水酸化カルシウム (ポルトランドライト, $\text{Ca}(\text{OH})_2$) である。そして、硫酸塩が存在すれば、エトリンガイト ($\text{Ca}_6\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3(\text{OH})_{12}\cdot 26\text{H}_2\text{O}$) などのカルシウムと硫酸アルミニウムの水和物も含む (Hewlett, 1988を参照)。また、石灰系でポゾランを含む古代

のセメントは、地層処分施設の人工バリアシステムにおいて、ベントナイトや他の粘土と共存させるために開発されている低pHセメントの類似例となる。

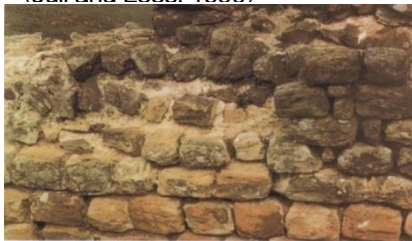
現存のローマ時代のセメントとコンクリートに関しては多くの事例があり、最も有名な例として、英国北部のハドリアヌスの城壁がある。ハドリアヌスの城壁のセメントモルタルの研究によってわかるのは、特定材料の使用が二次相を生成させ、モルタルの透水性を低下させたことである。透水性が減ったことにより、長期間にわたり、厳しい気候条件の中、ローマ帝国から遠く離れた北部前哨基地におけるモルタルの存続が可能となったと考えられている。



英国北部にある、1,900年前のハドリアヌスの城壁の一部。巨大な岩石のブロックがローマ時代のモルタルで固着されている (Miller et al., 2000)

(上)ハドリアヌスの城壁の拡大写真。
岩石のブロックをモルタルで接着している

(下) 壁に穴を開けたコアの断面図
(Jull and Lees, 1990)



ローマ帝国の水道 (Aqua Claudia) , ローマ人の水の供給源。
カリグラ帝によって西暦38年に使用が開始され、52年、クラウディアス帝の統治下で停止された

古代の人工セメントの事例は、旧ローマ帝国全土から見つかった。セメントの性質の詳細は、

使用した地域ごとに少しずつ異なる。しかし、地域の気候条件にかかわらず、驚くべき耐久性を示すという点において共通である。

不確実性と限界

- これまでの古代のモルタル研究は、現在の（ポルトランド）セメントとの類似性に焦点を当ててきた。なぜなら、こうした研究は低 pH セメントに関心が集まる以前に実施されたためである。このことによって一部の情報については、低 pH セメントの長期挙動のために外挿することが困難となっている。
- 深地層処分施設と同様の環境における材料の研究事例はない。そのため、データによる長期挙動の外挿は困難である。
- 研究対象となった多くの建造物の年代は極めて有用であり、地表近傍の極低・低レベル放射性廃棄物の処分場とは直接的な関連性がある。しかしながら、時間スケールは深地層処分施設にとっては短い。
- 最も有力な考古学的遺跡群の多くは、現在何らかの形で保護下にある（例えば、ハドリアヌスの城壁は現在、ユネスコ世界遺産の登録地でもある）。そのため追加的なサンプルの採取は制限されており、非破壊試験が必要となるかもしれない。
- セメントの変質は硫酸塩、塩化物およびマグネシウムとの反応によって生じる可能性がある（Hewlett, 1998 参照）が、現状では観察も研究もされていない。

適用性 - 得られた知見

- 上記の限界はあるものの、セメント系材料は深地層処分施設で想定される条件よりも、はるかに過酷な条件で、何千年間も存続しうるということが言える。
- 実際に使用された建設方法と、現在の建設技術の関連性は低い。しかし、紀元前 27 年頃のマルクス・ウィトルウィウス・ポッリオの著作の中で、セメント生産時や建設作業中の品質管理が最優先事項であることが明確に述べられている。このことが、ローマ帝国の多くの古代のセメントやコンクリートの驚くべき寿命の長さを保証してきたであろうし、現在の地層処分施設の事業者に対する教訓である。

参考文献

CROSSLAND, I. *Long-term Properties of Cement - Evidence from Nature and Archaeology*, Report prepared for United Kingdom Nirex Limited, Crossland Report CCL/2006/01, 2006.

GANI, M.S.J. 1997. *Cement and Concrete*. Chapman and Hall, London, UK.

HARRIS, A. W., *A review of ancient and historical analogues for cementitious materials*, A report produced for UK Nirex Ltd, TE 2867 Task Sheet 39, RWMD(02)P020 Issue 1, 2002.

HEWLETT, P.C. 1998. *Lea's Chemistry of Cement and Concrete (Fourth Edition)*. Arnold, London, UK.

HODGKINSON, E. S. AND HUGHES, C.R. 1999. The mineralogy and geochemistry of cement/rock reactions: high resolution

studies of experimental and analogue materials. In: METCALFE, R. AND ROCHELLE, C. A. 1999. *Chemical containment of waste in the Geosphere*. Geological Society of London, Special Publication, **157**, 195-211.

JULL, S.P. AND LEES, T.P. 1990. Studies of historic concrete. *CEC Nuclear Science and Technology Report*, **EUR 12972**, CEC, Luxembourg.

MILLER, W.M., ALEXANDER, W.R., CHAPMAN, N.A., MCKINLEY, I.G. AND SMELLIE, J.A.T. 2000 *Geological disposal of radioactive wastes and natural analogues*. Waste Management Series, Vol. 2, Pergamon, Amsterdam, The Netherlands.

POLLIO, M.V. ca. 27 BC. *De Architectura, Books I to X*. Translated as "*Ten Books on Architecture*" by MORGAN, M.H. (1914), Harvard University Press, Cambridge, USA.

RAYMENT, D. L. AND PETTIFER, K. 1987. Examination of durable mortar from Hadrian's Wall. *Materials Science and Technology*, **3**, 997-1004.

SAVAGE, D. *Analogue Evidence Relevant to the Alkaline Disturbed Zone*, Report prepared for United Kingdom Nirex Limited, QRS-1300A-1, Version 2.0, 2005.

SMELLIE, J. A. T. AND KARLSSON, F. 1999. The use of natural analogues to assess radionuclide transport. *Engineering Geology*, **52**, 193-220.

事例5：ハドリアヌスの城壁のセメント：セメント系材料の寿命

ハドリアヌスの城壁に現存するローマ時代のセメントの調査によって、数百年、数千年間のセメントの安定性に関する貴重な知見が得られている。



概要

放射性廃棄物の地層処分施設は設計の種類にかかわらず構造物の一部として、大量のコンクリートとセメントを使用する。しかし、実際に使用される量は処分施設の概念に依存する。コンクリートとセメントの二つの主な役割は以下のとおりである。

- ・ 物理的な支持と閉じ込め：コンクリートはトンネルの支保工として広範囲で使用される。また、コンクリートは、地層処分施設の坑道のプラグや埋め戻し材に使用される。セメントは、地層処分施設の母岩にある自然の亀裂を塞ぐためにも使用される。
- ・ 化学的閉じ込め：初期においてはカリウム、ナトリウムおよび水酸化物イオン（一般的には、 $\text{pH} > 12$ ）が高濃度であるため、地層処分施設で使用されるセメントとコンクリートから高アルカリ水が生成される。そして、地層処分施設の他の材料と相互作用を起こす。多くの放射性元素はアルカリ条件下では溶解しにくいいため、高アルカリ水によって移行が抑えられる。セメント自体が、放射性元素を収着する広い表面積を有する。また、原子炉の解体などに伴い、セメントやコンクリートが廃棄物そのものとなることもある。

セメントとコンクリートとは、どんなものか？

セメントは、ゆっくりとした速さで変質し続ける化合物の複雑な混合体である。

- ・ 現在のコンクリートは、大部分がポルトランドセメントである（主要成分は、ケイ酸カルシウム水和物（CSH）、アルミン酸カルシウム水和物（CAH）および水酸化カルシウム（ポルトランドイト）で、さらに水和カルシウム硫酸アルミニウムを含む場合と含まない場合がある）。
- ・ 古いセメントは、一般的に水酸化カルシウム（水和石灰）系で、ポゾラン（非結晶質のシリカ含有物質、例：火山灰）を含むものと含まないものがある。
- ・ セメントは異なる組成のケイ酸カルシウム水和物（CSH）を生じる水和反応によって硬化する。

- こうしたケイ酸カルシウム水和物（CSH）はゲルを形成しており、混合された骨材（砂と砂利）を結合させる。
- ケイ酸カルシウム水和物（CSH）のゲルは（熱力学的に）不安定で、結晶性の高い形態に変質し、地層処分環境における緩衝材の性質に影響を及ぼすおそれがある。
- 変質速度は、一般的に非常に遅いため、実験で計測するのは困難である。
- 上記の変質を予測したり、モデル化することは非常に困難である。
- 最終的にセメントとコンクリートの物理的、化学的特性を決定するのは、ゲルとそれらが変質した化合物である。

したがって、古代セメント（数百～数千年前）および建設用セメント（数十～数百年前）は、放射性廃棄物の処分場における材料の使用に相当する長期間にわたるセメント質素材の変質、特にケイ酸カルシウム水和物（CSH）ゲルの理解に非常に重要である。

ハドリアヌスの城壁のアナログ研究

シカモア・ギャップ周辺にある城壁の中心から、ローマ時代のモルタルのサンプルが採取された。このモルタルは西暦200年頃のセプティミウス・セウェルス帝統治下での城壁再建から、原型のまま残っているものである。複数の研究者が幅広い技術によるサンプル分析を実施してきた（光学顕微鏡法、電子顕微鏡法、電子線マイクロアナリシス法、X線回折および湿式化学）。そして、以下のことが判明した。



- 壁の端部に近いセメントは、その多くが炭酸塩化している（炭酸塩鉱物への変質過程）。
- 城壁の中心近くのセメントは、ケイ酸カルシウム水和物（CSH）を多く含む。
- ケイ酸カルシウム水和物（CSH）はカルシウムとシリコンのモル比が、0.34～1.25 のケイ酸アルミン酸カルシウム水和物である。
- ケイ酸カルシウム水和物（CSH）は、水和ゲルと、繊維質同士が絡み合った状態の層形態を含む結晶相から半結晶性相である。
- セメントと壁の骨材間の反応の証拠として、間隙率の減少と増加の両方が見られる。

ケイ酸カルシウム水和物（CSH）の存在は予想外であった。なぜなら、セメントは石灰系であり、ポゾランのゆっくりとした付加もないという条件では、大容量のケイ酸カルシウム水和物（CSH）が生じるはずがないからである。しかし、その後の研究で、そのセメントは製造過程で、大規模のケイ酸材料（チャート：シリカの低結晶形）の分布する、ケイ酸カルシウム（ポルトランドセメントに含まれる）が偶然生成された地域で採れた石灰岩で作られたことが示唆された。

不確実性と限界

- ・ 現存する古代の建造物は、地表近傍条件におけるセメントの挙動の影響を受けている。そのため、地層処分環境における挙動に直接適用できない可能性がある。
- ・ ケイ酸カルシウム水和物 (CSH) の組成は、カルシウムとシリコンのモル比 (1.2~2.0) がさらに高い現在のセメントとわずかに異なる。
- ・ セメントは大気にさらされており、地層処分施設で予想される大量のケイ酸塩鉱物とそれに付随する地下水は周辺にはない。
- ・ 古代のセメントには、類似種が少量しかないか、もしくは全くない。よって、地層処分施設の化学的閉じ込めに関する情報はわずかである。
- ・ セメントの変質は硫酸塩、塩化物およびマグネシウムの侵食などの働きによって生じる可能性がある (Hewlett, 1998) が、ここでは観察も研究もされていない。

適用性 - 得られた知見

- ・ ハドリアヌスの城壁のモルタルで確認された化合物は、現在の (ポルトランド) セメントに見られるものとよく似ている。この理由の一つに原材料の偶然的な特性があり、それによってこのセメントは有益なアナログとされている。
- ・ ケイ酸カルシウム水和物 (CSH) は、理論的には不安定とされているが、約 2,000 年近くの間、ほぼ完全なまま残っていることがわかる。
- ・ 炭酸化 (炭酸塩鉱物への変質過程) は、大気にさらされたセメント変質の主要な反応現象である。
- ・ 炭酸化から保護される場所では、ケイ酸カルシウム水和物 (CSH) のゲルによって、数百年、数千年間のセメントとコンクリートの存続と安定が可能となる。

参考文献

CROSSLAND, I. *Long-term Properties of Cement - Evidence from Nature and Archaeology*, Report prepared for United Kingdom Nirex Limited, Crossland Report CCL/2006/01, 2006.

HARRIS, A. W., *A review of ancient and historical analogues for cementitious materials*, A report produced for UK Nirex Ltd, TE 2867 Task Sheet 39, RWMD(02)P020 Issue 1, 2002.

HEWLETT, P.C. 1998. *Lea's Chemistry of Cement and Concrete (Fourth Edition)*. Arnold, London, UK.

HODGKINSON, E. S. AND HUGHES, C.R. 1999. The mineralogy and geochemistry of cement/rock reactions: high resolution studies of experimental and analogue materials. In: METCALFE, R. AND ROCHELLE, C. A. 1999. *Chemical containment of waste in the Geosphere*. Geological Society of London, Special Publication, **157**, 195-211.

RAYMENT, D. L. AND PETTIFER, K. 1987. Examination of durable mortar from Hadrian's Wall. *Materials Science and Technology*, **3**, 997-1004.

SAVAGE, D. *Analogue Evidence Relevant to the Alkaline Disturbed Zone*, Report prepared for United Kingdom Nirex

Limited, QRS-1300A-1, Version 2.0, 2005.

SMELLIE, J. A. T. AND KARLSSON, F. 1999. The use of natural analogues to assess radionuclide transport. *Engineering Geology*, **52**, 193-220.

事例6：北アイルランド：セメントのアナログ

概要

地層処分施設におけるセメントとコンクリートの使用

セメントとコンクリートは、低中レベル放射性廃棄物の地層処分施設のいくつかの処分概念で幅広く使用される。また、高レベル放射性廃棄物と使用済燃料の地層処分施設の一部でも使用される。セメントとコンクリートは、例えば、原子炉の閉鎖などによって、廃棄物の一部にもなる。

- ・ セメントとコンクリートは、セメントの構造健全性（力学的な強さ）および水圧特性（地下水の動きを封じる止水性）が重要となるトンネル支保工、止水プラグ、グラウトなどの構造上の目的に使用される。
- ・ セメントとコンクリートには、掘削されたトンネルと坑道の埋め戻し、緩衝材または廃棄物マトリクス材料、そして低中レベル放射性廃棄物の廃棄物容器などの閉じ込めのための用途もある。ここでは、セメントの化学的特性、特にセメントマトリクス内の高アルカリ性間隙水が重要である。セメントの主な役割は、地層処分施設内で間隙水を高 pH（約 pH12）に保つことである。高 pH アルカリ性間隙水では、多くの放射性元素の溶解度が非常に低いため、放射性核種の移行は制限される。
- ・ セメントは、放射性元素の収着の表面積が大きい。そして、コロイド移行にも影響を与える。
- ・ さらに、地層処分施設のセメントから浸出したアルカリ性間隙水は、隣接する母岩と相互作用する可能性がある。その結果、母岩鉱物の溶解および新たな二次変質相の沈殿が起きると、地層処分施設に隣接する母岩の間隙率と透水性が変化する可能性がある。

セメントの主要な化合物は、非晶質のケイ酸カルシウム水和物（CSH）相であり、固化していないポルトランドイト（ $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ）の溶解の後、ケイ酸カルシウム水和物（CSH）相の解離が高 pH を保つ主要な緩衝機能となる（Atkinson, 1985, Atkinson and Hearne, 1989）。よって、地層処分環境下のこうした水和物相の寿命は、セメントの地球化学的変遷と、ニアフィールド環境において pH を支配する可能性が高い相の理解に重要である。

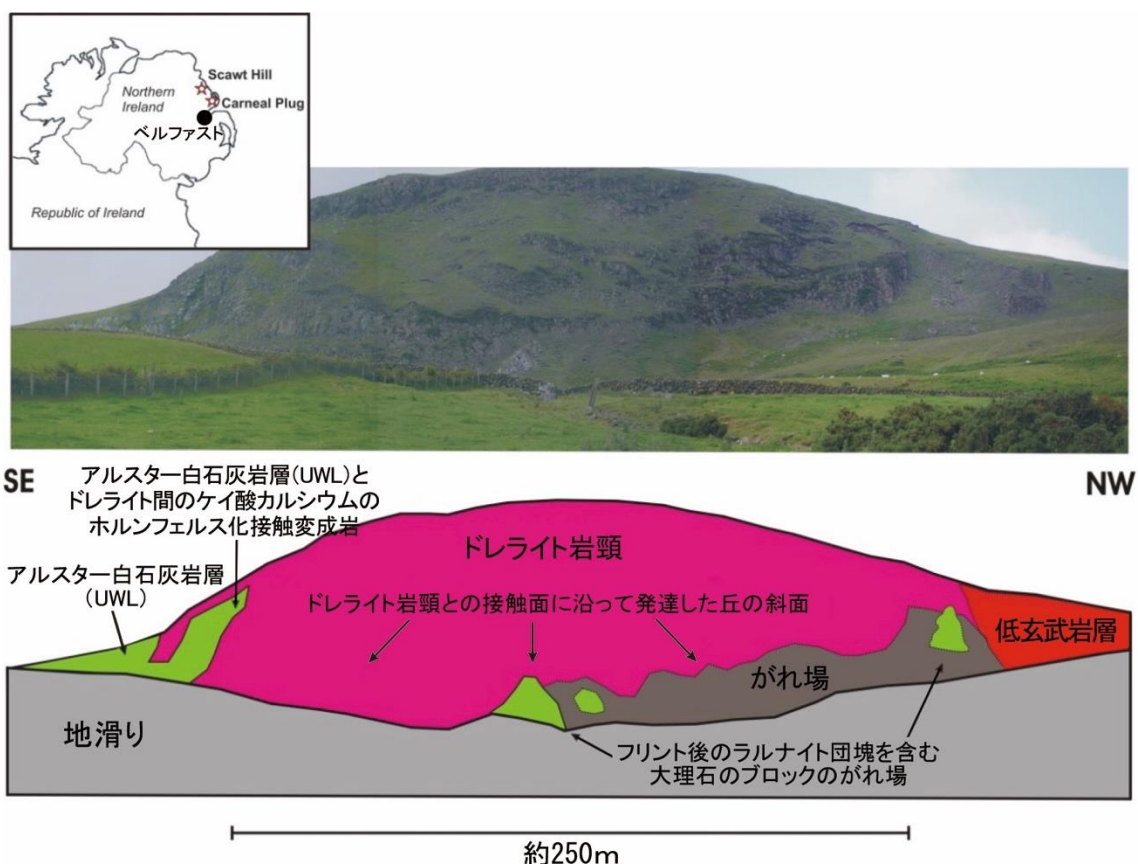
スカウト・ヒルとカーニール岩脈のアナログサイト

北アイルランドの第三紀（古第三紀）アントリウム溶岩群には、少なくとも30のドレライト岩脈が貫入している。これらは、アントリウム高原の地上にそびえ、現地において目立つ陸標となっている（Mitchell, 2004）。こうした小規模な岩脈の貫入は、大体が円形または細長く、主要な古第三紀岩脈群と平行な北北西－南南東の方向に生じている。岩脈は、主にアルカリ性のカンラン石が豊富なドレライトで構成されており、大きさは直径50 mから1 kmまで様々である。岩脈のうち4つは、白亜紀後期のアルスター白色石灰岩層の、特にチャート含有の石灰石中に貫入している。こうした貫入に伴う熱変成帯では、母石灰岩とチャート岩塊との高温（約1,100 °C）で、低圧（< 700 m 岩石を占める）の変成作用の結果、ラルナイト（ $\beta\text{-Ca}_2\text{SiO}_4$ ）などの鉱物を含む複合ケイ酸カルシウム鉱物の集合体が形成された。ラルナイトの岩塊は地下水と反応して水和され、ポルトランドセメントクリンカーに見られる相に類似した、天然のケイ酸カルシウム水和物（CSH）ゲルと鉱物を形成し

た。

スカウト・ヒルとカーニール岩脈におけるラルナイトと関連するケイ酸カルシウム水和物(CSH)の変質生成物(結晶質のトバモライトと非晶質のCSHゲルを含む)は、ケイ酸カルシウム水和物(CSH)の発生と存続期間に関するナチュラルアナログとして研究されてきた(Milodowski et al., 1989)。

アントリウム県にあるスカウト・ヒルは、東に向けたアントリウム玄武岩の急斜面な崖の端にあり、非常に目立った形をしている。そして、石灰岩と早期の古代三紀溶岩に貫入したやや大きいドレライト岩脈によって形成されている。カーニール岩脈はもっと小さく、直径約100~120 mでラーンの南にある。岩脈の東側部分はせん断されており、このせん断作用はドレライト中に含まれる石灰岩中の、交代作用を受けた捕獲岩にも及んでいる。



アナログサイトの位置と簡略化したスカウト・ヒルの地質横断面図 (Milodowski et al., 2011)
(©British Geological Survey)

ラルナイト岩塊の鉱物組成とその水和生成物

ラルナイト岩塊は、その大部分が初期の団塊チャートの形態を保っている。しかし、熱変成作用中の鉱物学的反応によって起こる質量変化に伴い、角礫化作用が生じている。チャートは、結晶質鉱物(例:トバモライト)を含有するケイ酸カルシウム岩石と、ポルトランドセメントクリンカーで見られる相に類似した非晶質のケイ酸カルシウム水和物(CSH)ゲルに置換されている。

スカウト・ヒルでは、団塊の鉱物組成が比較的単純であり、大部分が粗結晶の石英の未変質コア

かケイ酸カルシウム鉱物（ラルナイトまたはラルナイトとスパーライト（ $\text{Ca}_5(\text{SiO}_4)_2\text{CO}_3$ ））のどちらかである。カーニール岩脈には、ドレライトからの鉄とマグネシウムの流体の交代作用による複雑な鉱物の集合体がある。その岩塊は、石英の反応縁に囲まれた再結晶化した石英のコアと、炭酸塩含有鉱物を含む多くの他の鉱物によって組成される。



ケイ酸カルシウム（ラルナイト） 団塊の水和と変質によって形成された極水和とゲル状の相が、スカウト・ヒルの割った直後の大理石のブロックで確認できる（©British Geological Survey）

ラルナイト団塊の水和は、結晶質および非晶質のケイ酸カルシウム水和物（CSH）相を含む反応縁、およびポルトランドセメントクリンカーで見られるものと類似した鉱物を生成する。こうした相は、次に炭酸カルシウムに置換される可能性がある。水和と炭素化の年代測定は困難であるが、二段階の炭酸塩化が確認された。

- ・ 一番早い段階の炭酸塩生成は、ケイ酸カルシウム水和物（CSH）ゲルの形成と組成上、同時期と思われる。早期の炭酸カルシウムの安定した炭素（C）と酸素（O）の同位体研究は、変成作用中に形成した炭酸塩がそれらと類似していることを示している。
- ・ その後、鉄のオキシ水酸化物で着色された方解石が、ケイ酸カルシウム水和物（CSH）を置換する。安定した同位体傾向は隕石に由来することを示唆する。これは、さらに後に浅層でケイ酸カルシウム水和物（CSH）相が酸化地下水に接触した時、形成されたと解釈されている。

この証拠から、岩脈貫入直後の後退性水和の時期が、ケイ酸カルシウム水和物（CSH）相形成の

年代（つまり、約5,800万年前）と推測されるとMilodowskiほかは解釈している（1989）。

不確実性と限界

- ・ これらのナチュラルアナログ研究からは、ケイ酸カルシウム水和物（CSH）ゲルの直接的な年代測定はできない。地質学的、地形学的、岩石学的考察に基づくと、ケイ酸カルシウム水和物（CSH）ゲルは大気中の二酸化炭素、または酸化状態の浅層地下水による後期の炭酸化と変質以前に生じたと解釈されている。
- ・ ケイ酸カルシウム水和物（CSH）水和縁の後期炭酸化は、ラーン台地の急な坂を支える氷の消滅した最終氷河期（最高2万4,000～2万年前）の終わり、氷の覆いが後退したすぐ後の大きな地滑りによって、ラルナイト団塊が大気にさらされた時に起こった可能性が高い（Mitchell, 2004; Milodowski et al., 2009; 2011）。
- ・ このナチュラルアナログシステムの境界条件は、ほとんどわかっていない。特にケイ酸カルシウム水和物（CSH）相と相互作用する過去の地下水の年代と構成は不明である。
- ・ セメントの変質は、硫酸塩、塩化物およびマグネシウムの侵食などの作用によって生じる可能性がある（Hewlett, 1998）が、ここでは観察されていない。

適用性 - 得られた知見

- ・ ケイ酸カルシウム水和物（CSH）は理論上は不安定にもかかわらず、より結晶化した形態に変質することなく、おそらく数百万年間、未変質のまま残ることがわかる。このナチュラルアナログ研究は、古代のセメントの時間スケールを超えて、自然の地圏環境におけるケイ酸カルシウム水和物（CSH）相の存続性の知見を拡充する。
- ・ 炭酸化（炭酸塩鉱物への変質過程）は、大気にさらされたセメントの変質の主要な作用である。
- ・ 炭酸化から保護される場所では、低結晶質のケイ酸カルシウム水和物（CSH）ゲルであっても数百万年間存続する。
- ・ 本アナログ研究は、自然環境におけるケイ酸カルシウム水和物（CSH）相の長期存続性と、それによる長期間の高pHを保つ緩衝機能の可能性についての議論の裏付けとなる。

参考文献

ATKINSON, A. 1985 The time-dependence of pH within a repository for radioactive waste disposal. UKAEA.

ATKINSON, A. AND HEARNE, J.A. 1989. The hydrothermal chemistry of Portland cement and its relevance to radioactive waste disposal. *Nirex Report, NSS/R187*.

CROSSLAND, I. *Long-term Properties of Cement - Evidence from Nature and Archaeology*, Report prepared for United Kingdom Nirex Limited, Crossland Report CCL/2006/01, 2006.

HARRIS, A. W., *A review of ancient and historical analogues for cementitious materials*, A report produced for UK Nirex Ltd, TE 2867 Task Sheet 39, RWMD(02)P020 Issue 1, 2002.

HEWLETT, P.C. 1998. *Lea's Chemistry of Cement and Concrete (Fourth Edition)*. Arnold, London, UK.

- MILODOWSKI, A.E., NANCARROW, P.H.A. AND SPIRO, B. 1989. A mineralogical and stable isotope study of natural analogues of Ordinary Portland cement (OPC) and CaO-SiO₂-H₂O (CSH) compounds. *Nirex Report*, **NSS/R340**.
- MILODOWSKI, A.E., LACINSKA, A. AND WAGNER, D. 2009. A natural analogue study of CO₂-cement interaction: carbonate alteration of calcium silicate hydrate-bearing rocks from Northern Ireland. *British Geological Survey Report*, **CR/09/096**, 28p.
- MILODOWSKI, A.E., ROCHELLE, C.A., LACINSKA, A. AND WAGNER, D. 2011. A natural analogue study of CO₂-cement interaction: Carbonation of calcium silicate hydrate-bearing rocks from Northern Ireland. *Energy Procedia*, **4**, 5235-5242.
- MITCHELL, W.I. 2004. *The Geology of Northern Ireland*. Geological Survey of Northern Ireland, Belfast.
- SABINE, P.A. 1975. Metamorphic processes at high temperatures and low pressure: the Petrogenesis of the metasomatized and assimilated rocks of Carneal Plug, Co. Antrim. *Philosophical Transactions of the Royal Society, London*, **280(A)**, 225-265.
- SABINE, P.A., BECKINSALE, R.D., EVANS, J.D. AND WALSH, J.N. 1982. Geochemical and strontium-isotope studies of reactions between basic magma, Chalk, and flint, and the role of groundwater, in the Carneal Plug, Co. Antrim, Northern Ireland. *Journal of Petrology*, **23**, 427-446.
- SABINE, P.A., STYLES, M.T. AND YOUNG, B.R. 1985. The nature and paragenesis of natural bredigite and associated minerals from Carneal and Scawt Hill, Co. Antrim. *Mineralogical Magazine*, **49**, 663-670.
- SAVAGE, D. *Analogue Evidence Relevant to the Alkaline Disturbed Zone*, Report prepared for United Kingdom Nirex Limited, QRS-1300A-1, Version 2.0, 2005.
- TILLEY, C.E. AND ALDERMAN, A.R. 1934. Progressive metamorphism in the flint nodules of the Scawt Hill contact-zone. *Mineralogical Magazine*, **23**, 513-518.
- TILLEY, C.E. AND VINCENT, H.C.G. 1948. The occurrence of an orthorhombic high-temperature form of Ca₂SiO₄ (bredigite) in the Scawt Hill contact-zone and as a constituent of slags. *Mineralogical Magazine*, **28**, 255-271.

事例7：マッカリン：ケイ酸カルシウム水和物相の寿命

概要

地層処分施設におけるセメントとコンクリートの使用

セメントとコンクリートは、低中レベル放射性廃棄物の地層処分施設の処分概念で幅広く使用される。また、高レベル放射性廃棄物と使用済燃料の地層処分施設の一部でも使用される。セメントとコンクリートは、例えば、原子炉の閉鎖などによって、廃棄物の一部にもなる。

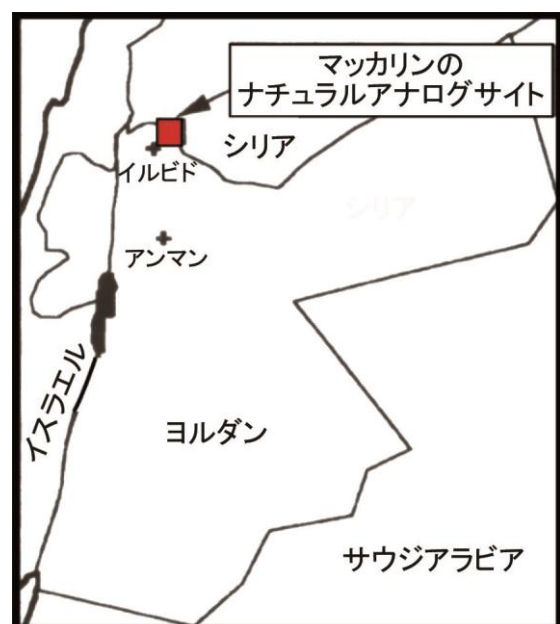
- ・ セメントとコンクリートは、セメントの構造健全性（力学的な強さ）および水圧特性（地下水の動きを封じる止水性）が重要となるトンネル支保工、止水プラグ、グラウトなどの構造上の目的に使用される。
- ・ セメントとコンクリートには、掘削されたトンネルと坑道の埋め戻し、緩衝材または廃棄物マトリクス材料、そして低中レベル放射性廃棄物の廃棄物容器などの閉じ込めのための用途もある。ここでは、セメントの化学的特性、特にセメントマトリクス内の高アルカリ性間隙水が重要である。セメントの主な役割は、地層処分施設内で間隙水を高 pH（約 pH12）に保つことである。高 pH アルカリ性間隙水では、多くの放射性元素の溶解度が非常に低いため、放射性核種の移行は制限される。
- ・ セメントは、放射性元素の収着の表面積が大きい。そして、コロイドろ過にも影響を与える。
- ・ さらに、地層処分施設のセメントから浸出したアルカリ性間隙水は、隣接する母岩と相互作用する。その結果、母岩鉱物の溶解および新たな二次変質相の沈殿が起きると、地層処分施設に隣接する母岩の間隙率と透水性が変化する可能性がある。

セメントの主要な化合物は、非晶質のケイ酸カルシウム水和物（CSH）相であり、固化していないポルトランドイト（ $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ）の溶解の後、ケイ酸カルシウム水和物（CSH）相の解離は高pHを保つ主要な緩衝機能（Atkinson, 1985; Atkinson and Hearne, 1989）となる。よって、地層処分環境下の水和物相の寿命は、地球化学的変遷とニアフィールド環境でpHを支配する可能性が高い相の理解に重要である。

マッカリンのアナログ

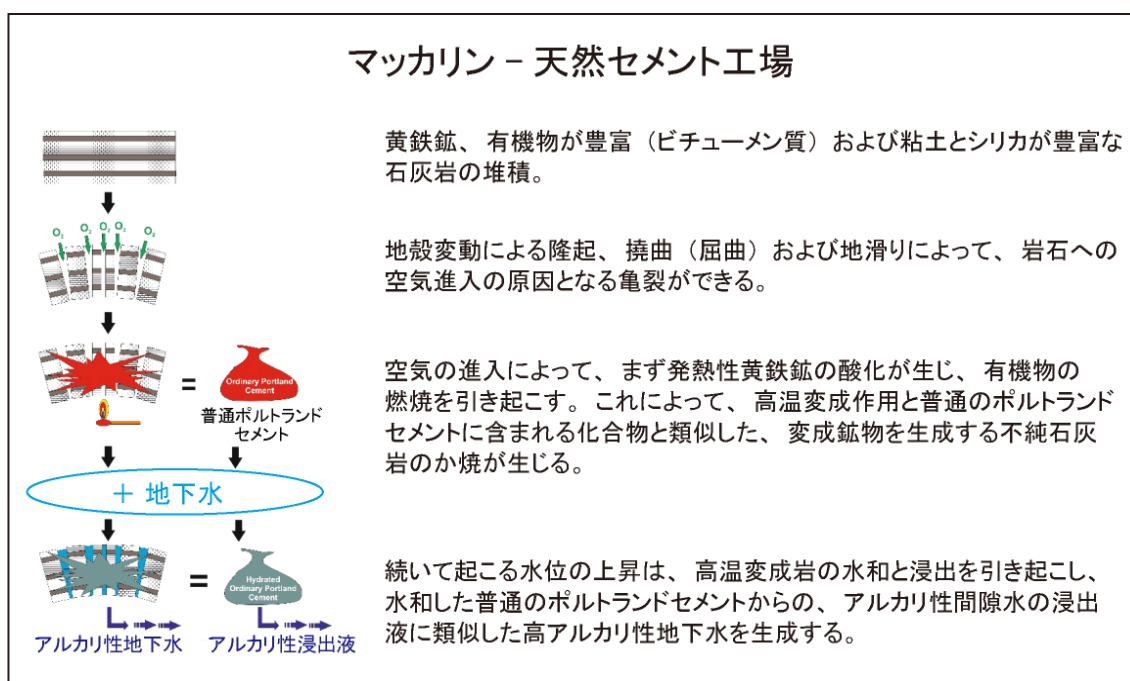
マッカリンの研究対象地域は、イルビドの地方都市の16 km北、シリアとヨルダンの国境線上のヤルムーク川渓谷に位置する。この地域は、1989年～2005年の16年間、セメントを使用した地層処分環境のアナログとして、詳細に研究されてきた。

「天然のセメントの様な」岩石の不連続レンズ状層は、マッカリンの白亜紀後期と古第三紀堆積岩内で確認でき、またヨルダン中央部とイスラエル



内の複数の場所でも見られる。これらは、高温で低圧の熱変成作用によって形成された。組成成分は、有機物が豊富な泥質石灰岩（マール）とチョーク（ビチューメン質のマール層）で、最大25 wt.%の有機炭素を含む。変成作用は、有機物の自発的な原位置燃焼によって生じた（高温変成作用）。

燃焼は、岩盤中への酸素の進入を可能とする亀裂が多く存在する領域で起きたものと考えられる。発熱に伴う黄鉄鉱の自発的な酸化によって引き起こされたと思われるこの燃焼は、地殻変動または地滑りによって始まったと考えられる。この高温変成作用によって、複合ケイ酸カルシウムとアルミン酸カルシウムフェライトの鉱物集合体である大理石の「ポッド」が生成された。



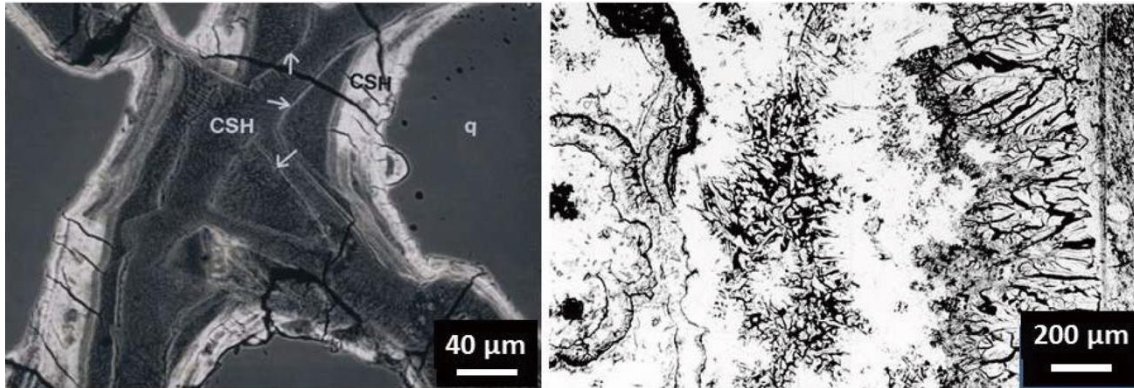
マッカリンとヨルダン中央部における、ナチュラルアナログセメントの生成プロセス

続いて起こる変成岩への地下水の浸透は、変成集合体の水和，変質，浸出を起こす。水和生成物の組成成分は、水和ポルトランドセメントに含まれる相によく似た様々なセメント類似のケイ酸カルシウム水和物（CSH）鉱物とゲルである（組成成分は、結晶質のケイ酸カルシウム水和物（CSH）鉱物であるトバモライト（ $\text{Ca}_5\text{Si}_6\text{O}_{16}[\text{OH}]_{2.2-8}\text{H}_2\text{O}$ ），ジェナイト（ $\text{Ca}_9\text{H}_2\text{Si}_6\text{O}_{18}[\text{OH}]_{8.6}\text{H}_2\text{O}$ ），アフウィライト（ $\text{Ca}_3(\text{SiO}_3\text{OH})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ）等および非晶質のCSHゲルとアルミン酸のCSHゲル（CASH）および結晶質カルシウム硫酸アルミニウムおよびシリコ硫酸塩であるエトリンガイト（ $\text{Ca}_6\text{Al}_2[\text{SO}_4]_3[\text{OH}]_{12.25}\text{H}_2\text{O}$ ），ソーマサイト（ $\text{Ca}_6\text{Si}_2[\text{SO}_4]_2[\text{CO}_3]_2[\text{OH}]_{12.24}\text{H}_2\text{O}$ ）である）。この点においてマッカリンのセメントは、ポルトランドセメントに非常によく似ており、ポルトランドタイプのセメントから浸出が予想される高pH間隙水と同様の組成を持つ、天然の高アルカリ性地下水（最高pH12.9）の生じる独特な天然サイトである。

天然セメント相の寿命と変成特性

ケイ酸カルシウム水和物（CSH）とCASH鉱物および非晶質ゲルは、大理石の「ポッド」中の高

温の熱変成作用鉱物（例：ラルナイト、スパーライトおよびエルスタダイト）から直接形成された低温後退性水和生成物として生じる。これらは、高pH地下水が変成岩から浸出し、周辺のマールとチョーク質母岩の亀裂に沿って沈殿する脈状鉱物としても生じる。



左: 高pH地下水と亀裂のあるチャート（フリント）団塊の相互作用によって形成された、成長帯のトバモライト型ケイ酸カルシウム水和物（CSH）ゲルの後方散乱走査型電子顕微鏡写真。バンディング（帯）は、水と度の変化およびゲルのカルシウムとシリカの比率を表す

右: 高密度のジェナイト（白）と、繊維質のソーマサイトとエトリンガイト（灰色）の連続した変成を示す、複雑なシマ状（帯状）鉱脈の後方散乱走査型電子顕微鏡写真

ケイ酸カルシウム水和物（CSH）とCASH鉱物のいくつかは、地下水組成の変遷を反映した複雑な帯状またはメッシュ状の充填構造を示す。連続する亀裂を流れる様々な種類の地下水によって、ケイ酸カルシウム水和物（CSH）とエトリンガイト・ソーマサイト鉱物相間の変質および炭酸カルシウム相による後期置換が生じる。

不確実性と限界

- マッカリンの燃焼変成作用の正確な年代は不明である。しかしながら、隆起と地滑りにより岩石に亀裂が生じた後に起こったものと考えられる。また、これは燃焼を促進する空気の入るため、岩石が地下水面より上にあり、不飽和状態の時に起こったものと思われる。
- 脈充填セメント鉱物（ケイ酸カルシウム水和物（CSH）とポルトランダイト）の後期炭酸化と方解石とアラゴナイトによるセメント鉱物置換の時期は不明である。炭酸塩鉱物は、検出可能な ^{14}C を含んでおり、このことは最高寿命が約5万年（すなわち、 ^{14}C （半減期 5,700年）の8~9半減期と同等であり、これは測定の実質的な限界）であることを示唆している。しかし、 ^{14}C の起源は不明であり、そのため炭酸変成はより最近起こったと考えられる。例えば、炭酸塩鉱物は重炭酸の混合源から沈殿した可能性がある。具体的には、現在の（ ^{14}C 含有の）大気中の二酸化炭素（ CO_2 ）を含む地下水と、地質学的に古い重炭酸を含む地下水（ ^{14}C を含まない）との混合と溶解・沈殿である。
- 放射分析のための完全な鉱物相の分離は困難なため、ケイ酸カルシウム水和物（CSH）鉱物の年代測定は制限される。二次亀裂充填鉱物の $^{230}\text{Th}/\text{U}$ 年代測定によって、高アルカリ性地下水の亀裂流動システムは、8~10万年間程度作用し、そして、準安定ケイ酸カルシウム水和物（CSH）鉱物の一部は、この期間中存続することがわかっている。

- ・ 硫酸塩、ケイ酸カルシウム水和物 (CSH) および CASH 鉱物間の反応がマッカリンで観察されてきた。セメントの変質は硫酸塩、塩化物およびマグネシウムの侵食などの作用によって起きる可能性がある (Hewlett, 1998) が、ここでは観察されていない。

適用性 - 得られた知見

- ・ ケイ酸カルシウム水和物 (CSH) と CASH (推測では、準安定非晶質相とゲルを含む) は、地下水、特に硫酸塩が豊富な重炭酸地下水から隔離された条件であれば、数十年から数十年間安定すると考えられる。
- ・ ケイ酸カルシウム水和物 (CSH) と CASH 鉱物とゲルは、硫酸塩が豊富な地下水と反応し、変質生成物としてエトリンサイト、ソーマサイト、石膏を形成する。ケイ酸カルシウム水和物 (CSH) と CASH 相が含有するウラン、セシウム、ストロンチウムなどの微量元素は、このプロセス中に溶出され、二次硫酸塩鉱物には吸着されない。反対に、クロムなどの元素は二次鉱物中に濃集する。
- ・ エトリンサイトとソーマサイトによるケイ酸カルシウム水和物 (CSH) と CASH の置換に伴う鉱物充填は、亀裂を塞ぐため、アルカリ性地下水の流れを止める。ただし、地殻変動または地滑りによる亀裂の再活性化によって、地下水の流動が復活し、新たな鉱化と変質が起こる可能性はある。
- ・ ケイ酸カルシウム水和物 (CSH) , CASH, エトリンサイト, ソーマサイトが重炭酸地下水に触れると炭酸カルシウムに変質する。炭酸カルシウムは、炭酸化反応によって生成した変質物として確認される。
- ・ マッカリンのナチュラルアナログ研究によって、古代のセメントの時間スケールを超えて、自然の地質環境におけるケイ酸カルシウム水和物 (CSH) 相の存続についての知見が大きく向上する。そして、自然環境における、ケイ酸カルシウム水和物 (CSH) 相の長期安定性の可能性のセーフティケース関連する高 pH の長期緩衝の裏付けとなる。

参考文献

ALEXANDER,W.R. (editor). 1992. A natural analogue study of cement buffered, hyperalkaline groundwaters and their interaction with a repository host rock. I: definition of source terms. *Nagra Technical Report, NTB 91-10*, Nagra, Wettingen, Switzerland.

ALEXANDER,W.R. AND SMELLIE, J.A.T. 1998. Maqarin natural analogue project. ANDRA, CEA, Nagra, Nirex and SKB synthesis report on Phases I, II and III. *Nagra Unpublished Project Report, NTB 98-08*, Nagra, Wettingen, Switzerland.

ATKINSON, A. 1985 The time-dependence of pH within a repository for radioactive waste disposal. *UKAEA.*

Technical Report, AERE-R11777, Harwell, U.K.

ATKINSON, A. AND HEARNE, J.A. 1989. The hydrothermal chemistry of Portland cement and its relevance to radioactive waste disposal. *Nirex Report, NSS/R187*.

CLARK, I.D., FRITZ, P.,MILODOWSKI, A.E. AND KHOURY, H.N. 1992. Sampling and analytical methods in W.R.Alexander

- (editor) A natural analogue study of cement buffered hyperalkaline groundwaters and their interaction with a repository host rock. *Nagra Technical Report, NTB 91-10*, Wettingen, Switzerland.
- CLARK, I., FIRTZ, P. SEIDLITZ, H., KHOURY, H., TRIMBORN, P., MILODOWSKI, A.E., AND PEARCE, J. 1993. Recarbonation of metamorphosed marls, Jordan. *Applied Geochemistry*, **8**, 473-481.
- CROSSLAND, I. *Long-term Properties of Cement - Evidence from Nature and Archaeology*, Report prepared for United Kingdom Nirex Limited, Crossland Report CCL/2006/01, 2006.
- HARRIS, A. W., *A review of ancient and historical analogues for cementitious materials*, A report produced for UK Nirex Ltd, TE 2867 Task Sheet 39, RWMD(02)P020 Issue 1, 2002.
- HEWLETT, P.C. 1998. *Lea's Chemistry of Cement and Concrete (Fourth Edition)*. Arnold, London, UK.
- KHOURY, H.N. SALAMEH, E., CLARK, I., FRITZ, P., BAJALI, W., MILODOWSKI, A., CAVE, M. AND ALEXANDER, W.R. 1992. A natural analogue of high pH cement pore waters from the Maqarin area of northern Jordan 1: Introduction to the site. *Journal of Geochemical Exploration*, **46**, 117-132.
- LINKLATER C.M. (EDITOR). 1998. A natural analogue study of analogue cement buffered, hyperalkaline groundwaters and their interaction with a repository host rock: Phase II. *Nirex Science Report, S-98-003*, UK Nirex, Harwell, U.K.
- MILODOWSKI A.E., PEARCE J.M., HUGHES C.R. AND KHOURY H.N. 1992. A preliminary mineralogical investigation of a natural analogue of a cement-buffered hyperalkaline groundwater interaction with marl, Maqarin, northern Jordan – *Nagra Internal Report*. Nagra, Wettingen, Switzerland.
- MILODOWSKI, A.E., HYSLOP, E.K., KHOURY, H.N., HUGHES, C.R., MÄDER, U.K., GRIFFAULT, L.Y. AND TROTIGNON, L. 2001. Mineralogical alteration by hyperalkaline groundwater in northern Jordan. *Proceedings of the 10th International Water Rock Interaction Symposium, Villasimius, Italy (June 10-15, 2001)*. Balkema, Amsterdam, The Netherlands.
- PITTY, A. AND ALEXANDER, R. (EDITORS). 2011. A natural analogue study of cement buffered, hyperalkaline groundwaters and their interaction with a repository host rock IV: an examination of the Khushaym Matruk (central Jordan) and Maqarin (northern Jordan) sites. *NDA Technical Report*, NDA, Moor Row, UK.
- SAVAGE, D. *Analogue Evidence Relevant to the Alkaline Disturbed Zone*, Report prepared for United Kingdom Nirex Limited, QRS-1300A-1, Version 2.0, 2005.
- SMELLIE, J.A.T. (Editor). 1998. Maqarin natural analogue study: Phase III, *SKB Technical Report, TR-98-04*, Volumes I and II, SKB, Stockholm, Sweden.

事例8：マッカリン：アルカリ影響領域のアナログ

概要

地層処分施設におけるセメントとコンクリートの使用

セメントとコンクリートは、低中レベル放射性廃棄物の地層処分施設のいくつかの処分概念で幅広く使用される。また、高レベル放射性廃棄物と使用済燃料の地層処分施設の一部でも使用される。セメントとコンクリートは、例えば、原子炉の閉鎖などによって、廃棄物の一部にもなる。

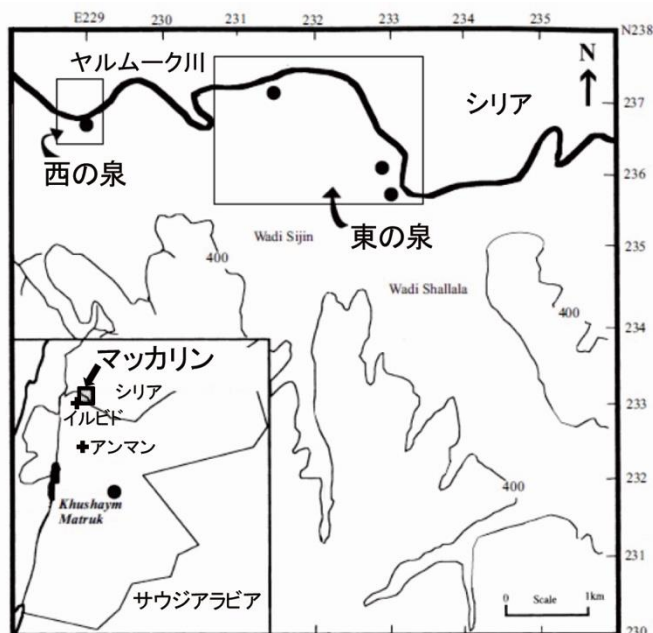
- ・ セメントとコンクリートは、セメントの構造健全性（力学的な強さ）および水圧特性（地下水の動きを封じる止水性）が重要となるトンネルの支保工、止水プラグ、グラウトなどの構造上の目的に使用される。
- ・ セメントとコンクリートには、掘削されたトンネルと坑道の埋め戻し、緩衝材または廃棄物マトリクス材料、そして低中レベル放射性廃棄物の廃棄物容器の閉じ込めのための用途もある。ここでは、セメントの化学的特性、特にセメントマトリクス内の高アルカリ性間隙水が重要である。セメントの主な役割は、地層処分施設内で間隙水を高pH（約pH12）に保つことである。高pHアルカリ性間隙水では、多くの放射性元素の溶解度が非常に低いため、放射性核種の移行は制限される。地層処分施設のセメントから浸出したアルカリ性間隙水は、施設周辺の母岩と相互作用する。その結果、母岩鉱物の溶解および新たな二次変質相の沈殿が起きると、地層処分施設周辺の母岩の間隙率と透水性が変化する可能性がある。

ヨルダン北部、および中央部で生じる天然のセメント（約50万年～200万年前のもの）と、高アルカリ性地下水流（プリューム）（原位置における最高pH値 12.9は、天然水で最も高い測定値）は、セメントを使用した放射性廃棄物の地層処分施設の長期変遷の理想的なナチュラルアナログである。

マッカリンのナチュラルアナログ

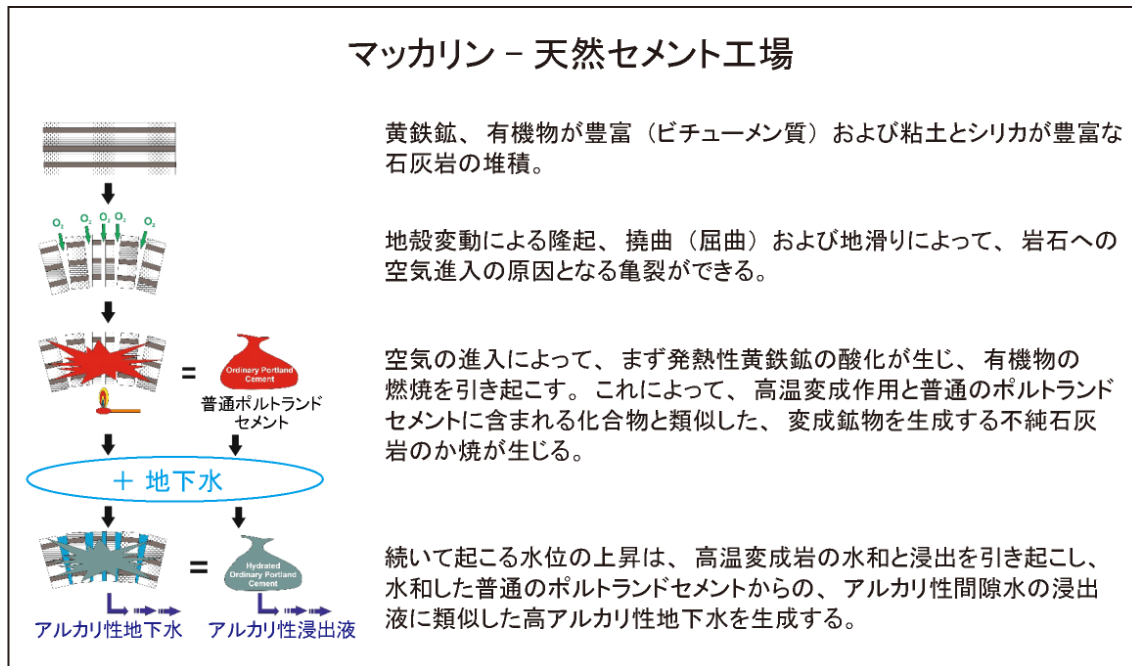
マッカリンのナチュラルアナログ研究対象地域は、イルビドの地方都市の16 km 北、シリアとヨルダンの国境線上のヤルムーク川渓谷に位置する。

「天然のセメントの様な」岩石の不連続レンズ状層は、マッカリンの白亜紀後期と古第三紀の堆積シーケンス内で確認でき、またヨルダン中央部とイスラエル内の複数の場所でも見られる。これらは、高温で低圧の熱変成作用によって形成されたと考えられている。組成成分は有機物が豊富な泥質石灰岩（マール）とチョーク（ビチューメン質のマール層）で、最大25 wt.%の有機炭素を含む。変成作用は有機物の自発的な原位置で



の燃焼（発熱）作用によって生じた（高温変成作用）。

燃焼（発熱作用）は、岩盤中への酸素の進入を可能とする亀裂の多く存在する領域で起きたものと思われる。発熱性黄鉄鉱の自発的な酸化によって引き起こされたと思われるこの現象は、地殻変動または地滑りに伴う酸素の浸透によって始まったと考えられる。高温変成作用によって、複合ケイ酸カルシウムとアルミン酸カルシウムフェライトの鉱物集合体である大理石の「ポッド」が生成された。



マッカリンとヨルダン中央部における、ナチュラルアナログセメントの生成プロセス

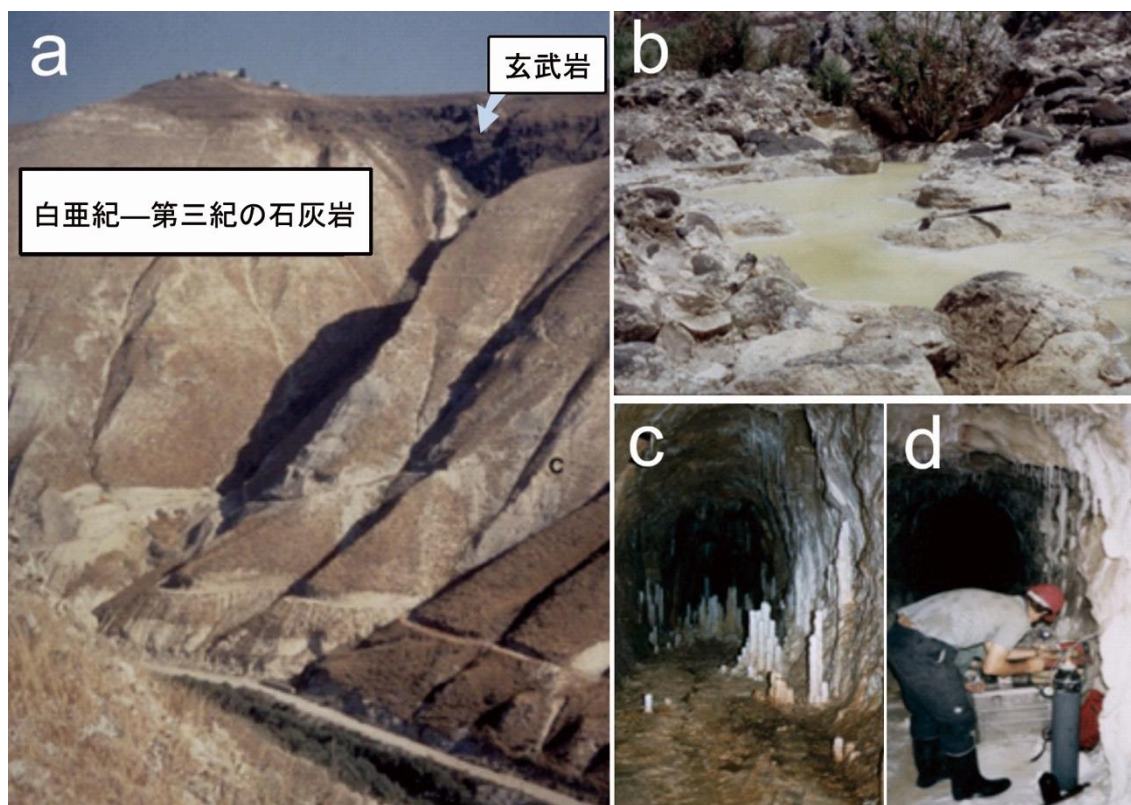
続いて起こる変成岩への地下水の浸透は、変成集合体の水和、変質、浸出を起こす。水和生成物の組成成分は、水和ポルトランドセメントに含まれる相によく似た様々なセメント類似のケイ酸カルシウム水和物（CSH）鉱物とゲルである（組成成分は、結晶質のケイ酸カルシウム水和物（CSH）鉱物であるトバモライト（ $\text{Ca}_5\text{Si}_6\text{O}_{16}[\text{OH}]_{2.2-8}\text{H}_2\text{O}$ ）、ジェナイト（ $\text{Ca}_9\text{H}_2\text{Si}_6\text{O}_{18}[\text{OH}]_{8.6}\text{H}_2\text{O}$ ）、アブウィライト（ $\text{Ca}_3(\text{SiO}_3\text{OH})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ）など、および非晶質のCSHゲルとアルミン酸のCSHゲル（CASH）、結晶質カルシウム硫酸アルミニウムおよびシリコ硫酸塩であるエトリングイト（ $\text{Ca}_6\text{Al}_2[\text{SO}_4]_3[\text{OH}]_{12.25}\text{H}_2\text{O}$ ）、ソーマサイト（ $\text{Ca}_6\text{Si}_2[\text{SO}_4]_2[\text{CO}_3]_2[\text{OH}]_{12.24}\text{H}_2\text{O}$ ）である）。この点においてマッカリンのセメントは、ポルトランドセメントに非常によく似ており、ポルトランドタイプのセメントから浸出が予想される高pH間隙水と同様の組成を持つ、天然の高アルカリ性地下水（最高pH12.9）の生じる独特な天然サイトである。

天然セメントは、シリアからイスラエル、ヨルダン、サウジアラビアまでの広い範囲で発見できる。しかし、天然セメントから浸出した地下水によって生成した、活性の高いアルカリプリウム（最高pH値12.9）が確認できるのは、ヨルダン北部のマッカリンのみであり、そうした意味で独特なサイトである。この地域は1989～2005年の16年間、セメントを使用した地層処分環境のアナログ

として詳細に研究された。

水理化学

この地域では水理化学的に特徴の異なる、二つの高pH地下水システムが確認されている。二つの離れた変成領域と水理的な排水システムと関連するこの場所は、「西の泉 (Western Springs)」と「東の泉 (Eastern Springs)」と呼ばれている。

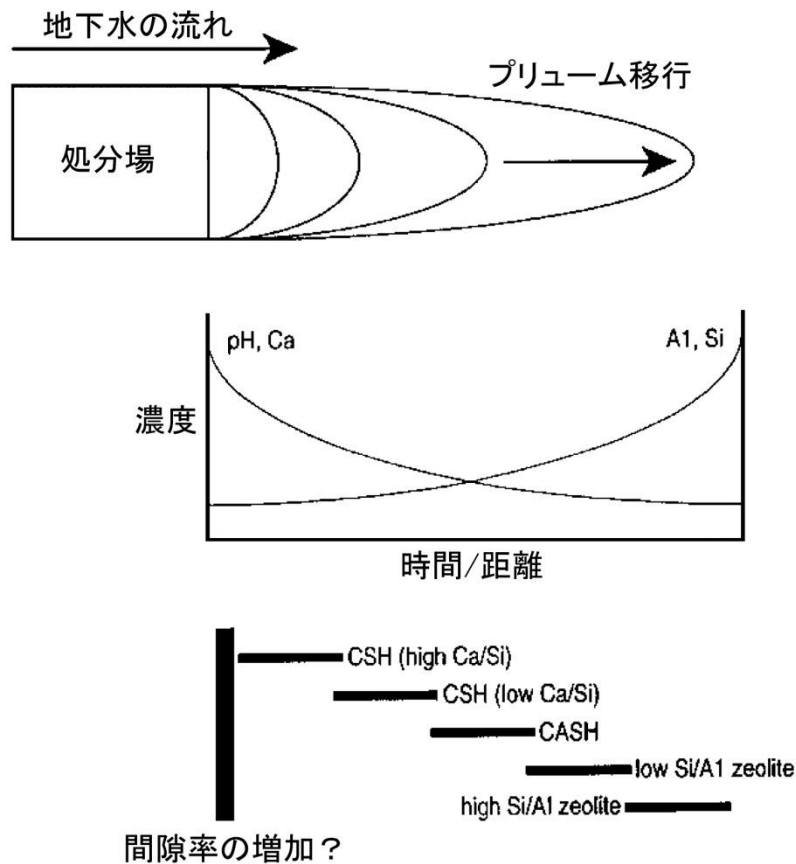


ヨルダン北部のマッカリンエリア (a) シリアに面したヤルムーク渓谷 (ワジ・ヤルムーク) では、有機物が豊富な泥質石灰岩 (マール) とチョーク (ピチューメン質のマール層) の、白亜紀—第三紀シーケンス上の、古代地表のくぼ地を充填する玄武岩質溶岩の流動が見られる (b) マッカリンの西の泉エリアにある、玄武岩質の崩積土から湧出する高アルカリ性の泉。明るい黄色は、クロム (クロム酸塩) の高濃縮によるもの (c) マッカリンの東の泉エリアにある、ダムサイト調査の坑道 (坑道 A-6) の壁の亀裂から湧出する高アルカリ性地下水 (d) 坑道 A-6におけるコロイドのサンプル採取

西の泉は、pH (12.9) が高く、カリウム (K) , ナトリウム (Na) , カルシウム (Ca) , 水酸化物イオン (OH⁻) および硫酸イオン (SO₄²⁻) を含むことが特徴であり、また、クロム (Cr) の濃度が高く鉍化が進んでいる。湧水には、セレン (Se) , レニウム (Re) およびその他の複数の金属元素に富んでいる。この地下水システムは、地質学的に、より若くセメントの水和と浸出の早い段階でポルトランドタイプのセメントから浸出する、高pHで、カリウム (K) が豊富な間隙水に類似している (「セメント浸出液」と呼ばれる)。

東の泉は、ポルトランドライト (Ca(OH)₂) の溶解によって中和されており、pH (12.0~12.5) がわずかに低く、低カリウム (K) , ナトリウム (Na) , Ca-OH-SO₄型の地下水が特徴である。この

地下水システムは、地質学的に古く（つまり、変成起源の岩石がより長い期間、浸出液（セメント浸出液）の影響を受けてきた）、変質の進んだセメント間隙水と類似している（「変質セメント浸出液」と呼ばれる）。



低中レベル放射性廃棄物の地層処分施設からのセメント浸出液プルームの変遷の概念モデル (Smellie, 1998)

不確実性と限界

- マッカリンの燃焼変成作用の正確な年代は不明である。しかしながら、隆起と地滑りにより岩石に亀裂が生じた後に起こったものと考えられる。また、これは燃焼を促進する空気の進入のため、岩石が地下水面より上にあり、不飽和状態の時に起こったものと考えられる。しかし、変成作用鉱物の水和の時間スケールに関しては、ケイ酸カルシウム水和物（CSH）鉱物のウラン系列核種の非平衡年代測定によって、高アルカリ性地下水の亀裂流動システムが、8～10万年間程度作用したことが示される。そして、準安定ケイ酸カルシウム水和物（CSH）鉱物の一部は、この期間中存続していたことがわかる。
- マッカリン（およびヨルダン中央部のその他の類似高温変成作用サイト）は、高 pH 浸出液と粘土鉱物間の化学的相互作用に関する、非常に価値のある知見であるが、堆積母岩中に含まれる粘土鉱物は少ない。よって、粘土鉱物を母岩とする地層処分施設に、直接関連のある物理的な特性変化に関する知見の外挿は困難である。
- マッカリンの粘土鉱物には、スメクタイトよりもイライトとカオリナイトが多く含まれる。

よって、マッカリンにおける粘土鉱物の変成と、地層処分施設におけるスメクタイトが豊富なベントナイト埋め戻し材や緩衝材との比較には限度がある。

- ・ マッカリンの亀裂を有する岩盤中の流動システムの動水勾配は、地層処分環境で予想されるよりもはるかに大きい。

適用性 - 得られた知見

- ・ マッカリンの詳細な地形学的な考察、および高 pH 地下水と関連するケイ酸カルシウム水和物 (CSH) と CASH の亀裂充填鉱物の天然ウラン系列核種の非平衡年代測定から、高温変成岩石（「天然セメント領域」）は、約 50 万年～200 万年前のものであり、高アルカリ性地下水システムは少なくとも 8～10 万年間作用することがわかる。こうした時間スケールは、地層処分施設で考慮されるセーフティケースの時間スケールと直接的な比較が可能である。
- ・ セメントで予想されるものと類似した鉱物から生じた高アルカリ性間隙流体の条件は、こうしたサイトにおいて長期間存続する（数十万年以上もの期間）可能性を示す。
- ・ マッカリンの研究は、ニアフィールドにおける長期のセメントと粘土の安定性と変質、およびニアフィールドと地圏における高 pH プリュームの変遷と拡大を説明するよい事例である。
- ・ マッカリンからのデータによって、高 pH 水と岩石の相互作用と放射性核種の移行の範囲を予測する、高アルカリ条件に使用可能な熱力学的データの適用性に関する試験および実証において、非常に価値があることが明確に示された。特に、モデルに含まれる特定の鉱物相の存在が確認された。
- ・ 高アルカリセメント浸出液とケイ酸塩岩間の反応によって、モル体積がより大きい二次相を生成する。マッカリン（およびヨルダン中央部の他のサイト）における観察から、二次反応生成物の体積の増加が、地下水の流道経路の閉塞につながる傾向があることがわかる。これは、マッカリンの大きな動水勾配条件においても同様である。
- ・ マッカリンで観察される化学反応と鉱物の沈殿は、産業セメント（つまり、「溶出源」）で観察され、予測される挙動および高アルカリプリュームの拡大に伴う鉱物反応の一連の変質プロセスと非常に似ている。単純化モデルアプローチを使用し、熱力学的データベースが不十分であったことにもかかわらず、モデルの結果はマッカリンの自然システムの観察と十分な相関関係を示している。

参考文献

ALEXANDER, W.R. (editor). 1992. A natural analogue study of cement buffered, hyperalkaline groundwaters and their interaction with a repository host rock. I: definition of source terms. *Nagra Technical Report, NTB 91-10*, Nagra, Wettingen, Switzerland.

ALEXANDER, W.R. AND SMELLIE, J.A.T. 1998. Maqarin natural analogue project. ANDRA, CEA, Nagra, Nirex and SKB synthesis report on Phases I, II and III. *Nagra Unpublished Project Report, NTB 98-08*, Nagra, Wettingen, Switzerland.

ATKINSON, A. 1985 The time-dependence of pH within a repository for radioactive waste disposal. *UKAEA*.

Technical Report, AERE-R11777, Harwell, U.K.

ATKINSON, A. AND HEARNE, J.A. 1989. The hydrothermal chemistry of Portland cement and its relevance to radioactive waste disposal. *Nirex Report, NSS/R187*.

CLARK, I.D., FRITZ, P., MILODOWSKI, A.E. AND KHOURY, H.N. 1992. Sampling and analytical methods in W.R.Alexander (editor) A natural analogue study of cement buffered hyperalkaline groundwaters and their interaction with a repository host rock. *Nagra Technical Report, NTB 91-10*, Wettingen, Switzerland.

CLARK, I., FIRTZ, P. SEIDLITZ, H., KHOURY, H., TRIMBORN, P., MILODOWSKI, A.E., AND PEARCE, J. 1993. Recarbonation of metamorphosed marls, Jordan. *Applied Geochemistry*, **8**, 473-481.

CROSSLAND, I. *Long-term Properties of Cement - Evidence from Nature and Archaeology*, Report prepared for United Kingdom Nirex Limited, Crossland Report CCL/2006/01, 2006.

事例9：オマーン：セメント環境における微生物の生存

概要

セメントとコンクリートは、低中レベル放射性廃棄物の地層処分施設のいくつかの処分概念で幅広く使用される。また、高レベル放射性廃棄物と使用済燃料の地層処分施設の一部でも使用される。セメントとコンクリートは、例えば、原子炉の閉鎖などによって、廃棄物の一部にもなる。

- ・ セメントとコンクリートは、セメントの構造健全性（力学的な強さ）、および水圧特性（地下水の動きを封じる止水性）が重要となるトンネル支保工、止水プラグ、グラウトなどの構造上の目的に使用される。
- ・ セメントとコンクリートには、掘削されたトンネルと坑道の埋め戻し、緩衝材または廃棄物マトリクス材料、そして低中レベル放射性廃棄物の廃棄物容器の閉じ込めのための用途もある。ここでは、セメントの化学的特性、特にセメントマトリクス内の高アルカリ性間隙水が重要である。セメントの主な役割は、地層処分施設内で間隙水を高 pH（約 pH12）に保つことである。高 pH アルカリ性間隙水では、多くの放射性元素の溶解度が非常に低いため、放射性核種の移行は制限される。地層処分施設のセメントから浸出したアルカリ性間隙水は、隣接する母岩と相互作用する。その結果、母岩鉱物の溶解および新たな二次変質相の沈殿が起きると、人工の地層処分施設に隣接する母岩の間隙率と透水性が変化する可能性がある。
- ・ セメントは、放射性元素の収着の表面積が大きい。そして、コロイド移行にも影響を与える。
- ・ 微生物は極端な地球化学的環境においても存在し、適応可能である。地層処分環境では、地球化学的特性に微生物がどう影響するのか理解することが、特に金属、セメント、廃棄物材料の腐食および放射性核種の移行への影響において重要である。オマーンのような天然の高 pH 地下水システムは、こうした環境でできた微生物群を研究するのに適している。

微生物分解

- ・ セメントとコンクリートの微生物分解は、通常は好気性条件下で観察され、地層処分施設の早い段階で起こりうる。そのため、地層処分施設の性能に短期的に影響する可能性がある。このことは、セーフティケースを評価する際に考慮する必要がある。
- ・ 微生物分解は、微生物の硫黄、硫化物、チオ硫酸塩の酸化、その結果のケイ酸カルシウム水和物（CSH）ゲルと水酸化カルシウム（ $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ）の溶解によって、コンクリートマトリクスを侵食する硫酸の生成によって生じる。コンクリートの嫌気性腐食は不明だが、有機物における微生物活動によって生成された有機酸は重要である可能性がある。微生物皮膜もまたコンクリートの表面で成長するが、これは材料の機能向上のために用いられる有機可塑剤を微生物が利用しているためと考えられる。

オマーンのパナアナログ研究

- ・ オマーンの研究サイトは、オマーン北部のサマイル・オフィオライト・ナッペにある。岩石（厚さ約 15 km）は、地殻変動で持ち上げられて山岳地帯を形成している海洋地殻と、上部マントル岩石によって構成される。隆起中およびそれ以降の天水の浸透のため、酸化鉄を形成する鉄が浸出し、超苦鉄質鉱物（マグネシウム（Mg）、鉄（Fe）の値が高い）が、蛇紋岩

鉱物に水和される蛇紋岩化作用が起きたと考えられている。こうした複合反応は循環水を大幅にアルカリ化し、還元するため、その結果、山脈の低部から湧出する水素ガスを含む高アルカリ泉ができた。

- ・ 複数の湧水の分析から、pH 値が 10~11.45 の Na-Cl-Ca-OH 溶液であることがわかっている。
- ・ 微生物群はアルカリ水中の環境で見つかったが、小規模である ($10^1 \sim 10^3$ cells/mL⁻¹)。しかし、環境に適応した様々な種が発見されており、ある種は酸を生成する。興味深いことに、生物活動に作用するのは、アルカリ pH ではなく栄養素として必要とされる炭素とリンの存在である。

不確実性と相違

- ・ 水酸化カリウムが最初にセメントから浸出するため、セメントを使用した地層処分施設のニアフィールド環境とアルカリ影響領域 (ADZ) の pH 値は、閉鎖後の早い段階において pH13 を上回る可能性がある。水酸化カリウムが減少し、セメント間隙水が水酸化カルシウムに中和された後、pH 値は下がり、その後、数万年間、約 pH12.5 が維持される。これはオマーンのナチュラルアナログシステムの地下水で記録された、pH 値 10~11.45 と比べかなり高い。
- ・ オマーンの湧水において微生物が発見されたが、微生物が地層処分施設のセメント間隙水でも生存し続けるという証拠にはならない。
- ・ オマーンの化学的性質は、地層処分施設のセメント系材料に直接的な類似性を持たない。アルカリ条件は、天然のセメント鉱物ではなく、超塩基性鉱物の変成と関連性がある。
- ・ 放射性廃棄物の処分場 (特に深地層処分場) 内とその周囲の条件は、本アナログにおける条件と異なることが考えられ、よって、処分場の微生物群も本アナログの研究内容とは大幅に異なる可能性がある。

適用性 - 得られた知見

- ・ 本オマーン研究から、小規模だが様々な種の微生物群が、最高 pH 値 11.45 の天然のアルカリシステムで生存し続けることがわかる。室内試験から、微生物活動の限界は、約 pH11 であることが示唆される。しかし、オマーンナチュラルアナログから、アルカリ pH 値の最高 11.45 は、微生物が存在しない状態を保証するものではない。ただし、重要なことは、地層処分施設では pH 値 12 を超えた状態が、数万年間存続することを想定することである。オマーン研究からは、さらに高い pH 値の地層処分施設で細菌が生存し続けるのかどうかは不明である。
- ・ こうした考察は、セメントを使用した処分場の人工バリア機能に、微生物が与える影響について研究する必要性を示している。
- ・ オマーンアルカリ性地下水に生息する鉄と硫酸塩代謝細菌を含む微生物群の一部は、鉄腐食とセメント系材料の変質を引き起こす。嫌気性地層処分環境では、これが人工バリア材料の変質に影響する可能性を示している。

参考文献

BATH, A. H., CHRISTOFI, N., NEAL, C., PHILP, J. C., CAVE, M. R., MCKINLEY, I.G. AND BERNER, U. 1987. Trace element and microbiological studies of alkaline groundwaters in Oman, Arabian Gulf: a natural analogue for cement pore-waters. *British Geological Survey, Technical Report, FLPU 87-2.*

SAVAGE, D. *Analogue Evidence Relevant to the Alkaline Disturbed Zone*, Report prepared for United Kingdom Nirex Limited, QRS-1300A-1, Version 2.0, 2005.

事例 10：ヨルダンのマッカリン：セメント環境における微生物の生存

概要

セメントとコンクリートは、低中レベル放射性廃棄物の地層処分施設のいくつかの処分概念で幅広く使用される。また、高レベル放射性廃棄物と使用済燃料の地層処分施設の一部でも使用される。セメントとコンクリートは、例えば、原子炉の閉鎖などによって、廃棄物の一部にもなる。

- ・ セメントとコンクリートは、セメントの構造健全性（力学的な強さ）および水圧特性（地下水の動きを封じる止水性）が重要となるトンネル支保工、止水プラグやグラウトなどの構造上の目的に使用される。
- ・ セメントとコンクリートには、掘削されたトンネルと坑道の埋め戻し、緩衝材または廃棄物マトリクス材料、そして低中レベル放射性廃棄物の廃棄物容器の閉じ込めのための用途もある。ここでは、セメントの化学的特性、特にセメントマトリクス内の高アルカリ性間隙水が重要である。セメントの主な役割は、地層処分施設内で間隙水を高 pH（約 pH12）に保つことである。高 pH アルカリ性間隙水では、多くの放射性元素の溶解度が非常に低いため、放射性核種の移行は制限される。地層処分施設のセメントから浸出したアルカリ性間隙水は、隣接する母岩と相互作用する。その結果、母岩鉱物の溶解および新たな二次変質相の沈殿が生じると、人工の地層処分施設に隣接する母岩の間隙率と透水性が変化する可能性がある。
- ・ セメントは、放射性元素の収着の表面積が大きい。そして、コロイド移行にも影響を与える。
- ・ 微生物は極端な地球化学的環境においても存在し、順応可能である。地層処分環境では、地球化学的特性に微生物がどう影響するのかを理解することが、特に金属、セメント、廃棄物材料の腐食および放射性核種の移行への影響において重要である。マッカリンのような天然の高 pH 地下水システムは、こうした環境でできた微生物群を研究するよい機会である。

微生物分解

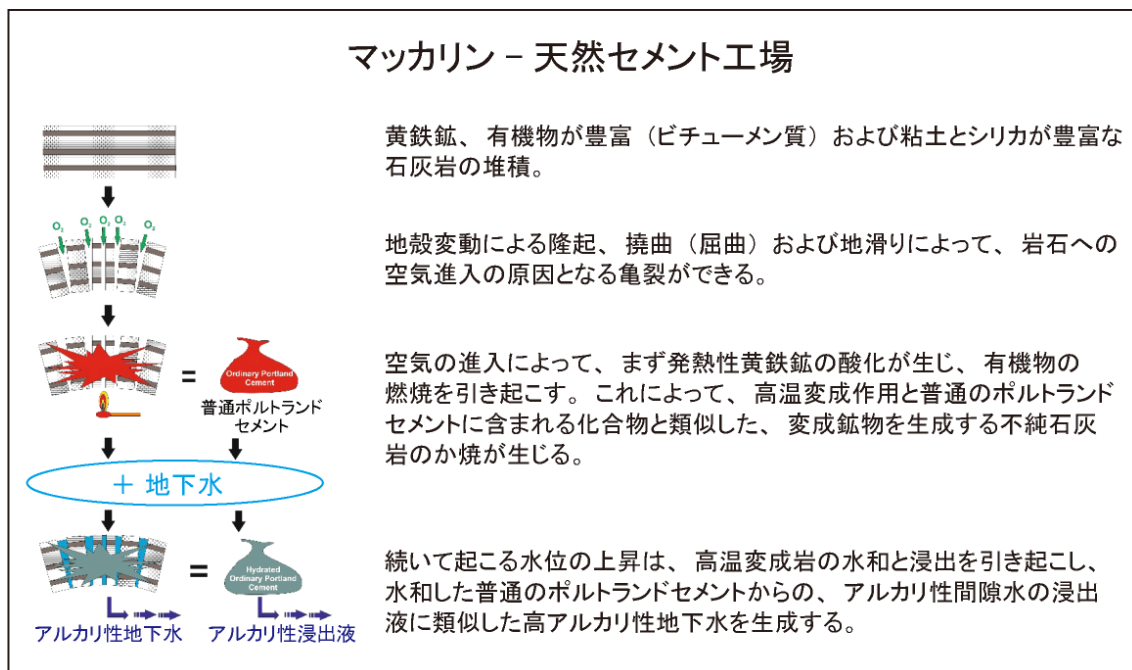
- ・ セメントとコンクリートの微生物分解は、通常は好気性条件下で観察され、地層処分施設の早い段階で起こりうる。そのため、地層処分施設の性能を短期的に低下させる可能性がある。このことは、セーフティケースを評価する際に考慮する必要がある。
- ・ 微生物分解は、微生物の硫黄、硫化物、チオ硫酸塩の酸化、その結果のケイ酸カルシウム水和物（CSH）ゲルと水酸化カルシウム（ $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ）の溶解による、コンクリートを侵食する硫酸の生成によって生じる。コンクリートの嫌気性腐食については不明だが、有機物における微生物活動によって生成された有機酸は重要である可能性がある。微生物皮膜もまたコンクリートの表面で成長するが、これは材料の機能向上のためによく用いられる有機可塑剤を微生物が利用しているためと考えられる。

マッカリンのナチュラルアナログ

- ・ マッカリンの研究サイトは、ヨルダン北部の粘土と有機物が豊富な石灰岩地域にある。そこにある高アルカリ泉は、後退変成と有機物が豊富な岩石の自発燃焼（高温変成作用）によってできた熱変成作用に伴うものである。高温変成岩石とその水和変質生成物は、多くの地層

処分施設のセメントとコンクリートで重要な要素であるポルトランドライト ($\text{Ca}(\text{OH})_2$) を含む窯で焼いたセメントクリンカーと類似した鉱物であり、水和によって変質した岩石内における主要な岩石形成鉱物である。このことから、マッカリンはセメントを使用した地層処分施設のアナログとなる。

- 湧水の分析から、以下の二つの高 pH タイプがあることがわかる。1. $\text{Ca}(\text{Na}, \text{K})\text{-OH}$: 地下水とセメントの相互作用の第一段階に、セメントを使用した地層処分施設で形成されることが予想される。2. $\text{Ca-K}(\text{Na})\text{-OH-SO}_4$: 溶解性カリウム/水酸化ナトリウム (K/NaOH) 相の浸出に続き、さらに変遷した水酸化カルシウム ($\text{Ca}(\text{OH})_2$) が豊富な間隙水。pH 値は、12.3～12.9 である。
- 微生物群はアルカリ水で見つかったが、小規模である ($10^3 \sim 10^5 \text{ cells/mL}^{-1}$)。しかし、小規模ではあるが、代謝が活発な様々な種が発見されている。興味深いことに単純化したモデル計算の結果から、高 pH ではなく栄養素とエネルギー供給源の存在が、微生物の成長と活動を支配していることがわかる。



マッカリンとヨルダン中央部における、ナチュラルアナログセメントの生成プロセス

不確実性と相違

- 微生物代謝の主要な栄養素とエネルギー源は、炭素、窒素、硫黄そして鉄である。硫酸塩を除いて、マッカリンの地下水ではこうした化学的な種の濃度は非常に低い。このことは、低中レベル放射性廃棄物で有機物（例：セルロース）の分解による栄養素を、容易に利用することのできる地層処分施設と対照的である。
- セメント系地層処分施設の閉鎖後環境と、マッカリンのナチュラルアナログサイトのもう一つの重要な相違は、マッカリンの地下水は好気性であるのに対し、地層処分環境は閉鎖後まもなく嫌気性へと変化することが予想されることである。マッカリンからは、そうした嫌気

性条件下における微生物活動の知見は得られない。よって、マッカリンの湧水における微生物の発見は、長期間、微生物が地層処分施設のセメント間隙水内で生存し、活動し続けるという証拠にはならない。

- ・ 放射性廃棄物の処分場（特に深地層処分場）内とその周囲の条件は、本アナログにおける条件と異なることが考えられ、よって、処分場の微生物群も本サイトにおける研究内容とは大幅に異なる可能性がある。

適用性 -得られた知見

- ・ マッカリンのナチュラルアナログサイトの高温変成作用を受けた大理石と、その水和変質生成物の鉱物組成と化学的性質は、地層処分施設で使用されるポルトランドタイプのセメントと極めて類似している。このことはアルカリ性地下水が、超塩基性火成岩の低温蛇紋岩化作用によって生成されるオマーンのアルカリ性のナチュラルアナログサイトとは異なる。
- ・ ポルトランドタイプによって中和されたマッカリンのアルカリ性地下水の pH 値は、pH12.3～pH12.9 である。これは、セメントから浸出する間隙水のアルカリ値が約 pH12.5 となり、またそれがポルトランドタイプの溶解によって中和されるセメントを使用した地層処分施設において、数万年続くと予想される pH 条件に極めて類似している。さらに、典型的なポルトランドセメントからの若いセメント間隙流体のカリウム濃度よりは低いが、カリウム濃度を上昇させるマッカリンの高 pH 地下水 (pH12.9) は、地層処分環境における pH 変遷の早期段階に関して、ある程度の類似比較対象となる。
- ・ マッカリンにおける微生物研究から、小規模ながらも生存し続ける様々な種の微生物群が、セメントを使用した地層処分環境で進行すると予想される高アルカリ pH 条件で生存可能であることがわかった。マッカリンにおける微生物の pH 許容値は、室内試験の観察結果より高いと考えられる。よって、高アルカリ pH 値は、地層処分施設における微生物の存在しない状態を保証するものではないことがわかる。
- ・ 単純化したモデル計算から、高 pH ではなく利用可能な栄養素とエネルギー供給源が非常に限定的であることが、微生物の成長と活動の鍵となることが示唆される。
- ・ こうした考察は、セメントを使用した処分場の人工バリア機能に、微生物が与える影響の可能性についての研究の必要性を示すものである。

参考文献

COOMBS, P., GARDNER, S., ROCHELLE, C.A AND WEST, J.M. 1998. Natural analogue for geochemistry and microbiology of cement porewaters and cement porewater host rock. Near-field interactions. In: Linklater, C.M. (Ed.). *A natural analogue study of cement buffered, hyperalkaline groundwaters and their interaction with a repository host rock Phase II*. Nirex Report, **S/98/003**, UK Nirex, Harwell, Oxon., UK.

PEDERSEN, K., ARLINGER, J., ERLANDSON, A-C. AND HALLBECK. L. 1998. Culturability and 16S rRNA gene diversity of microorganisms in the hyperalkaline groundwaters of Maqarin. In: Smellie, J. (Ed.), *Maqarin Natural Analogue Study: Phase III*. SKB Technical Report, **TR-98-04**, Sweden. (Volumes I and II).

PEDERSEN, K., NILSSON, E., ARLINGER, J., HALLBECK, L. AND O'NEILL, A. 2004. Distribution, diversity and activity of microorganisms in the hyper-alkaline spring waters of Maqarin in Jordan. *Extremophiles*, 8 (2), 151-164.

SAVAGE, D. *Analogue Evidence Relevant to the Alkaline Disturbed Zone*, Report prepared for United Kingdom Nirex Limited, QRS-1300A-1, Version 2.0, 2005.

WEST, J. M., DEGUELDRE, C., BRUETSCH, R., GARDNER, S., INCE, S. AND MILODOWSKI, A. E. 1992. Microbial and colloidal populations in the Maqarin groundwaters. In: Alexander, W.R. (Ed.). *A natural analogue study of cement-buffered hyperalkaline groundwaters and their interaction with a sedimentary host rock - I: Source-term description and geochemical code database validation*. NAGRA Technical Report, **NTB 91-10**, Nagra, Wettingen, Switzerland.

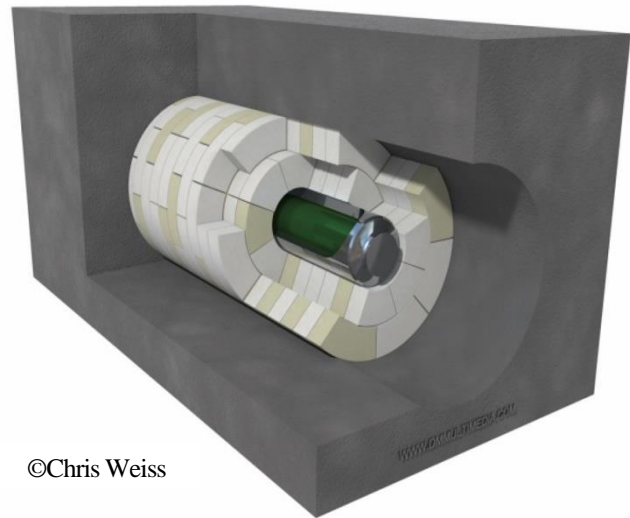
WEST, J.M., COOMBS, P., GARDNER, S.J. AND ROCHELLE, C.A. 1995. The microbiology of the Maqarin site, Jordan. A natural analogue for cementitious radioactive waste repositories. *Scientific Basis for Nuclear Waste Management*, **XVIII**, 181-189.

事例 11：イタリア トディのドウナロッバ森林：粘土層の長期隔離特性

概要

ベントナイト緩衝材の使用

放射性廃棄物の地層処分施設の人工バリアシステムは、シンプルで性質がよくわかっている材料を大量に使用することが特徴である。例えば、多くの高レベル放射性廃棄物、使用済燃料および低中レベル放射性廃棄物の地層処分施設の設計では、廃棄物パッケージまたはキャニスタを取り囲む埋め戻し材および緩衝材として、固化したベントナイトを使用する。ベントナイトの機能は以下のとおりである。



粘土母岩中の人工バリアシステムの例

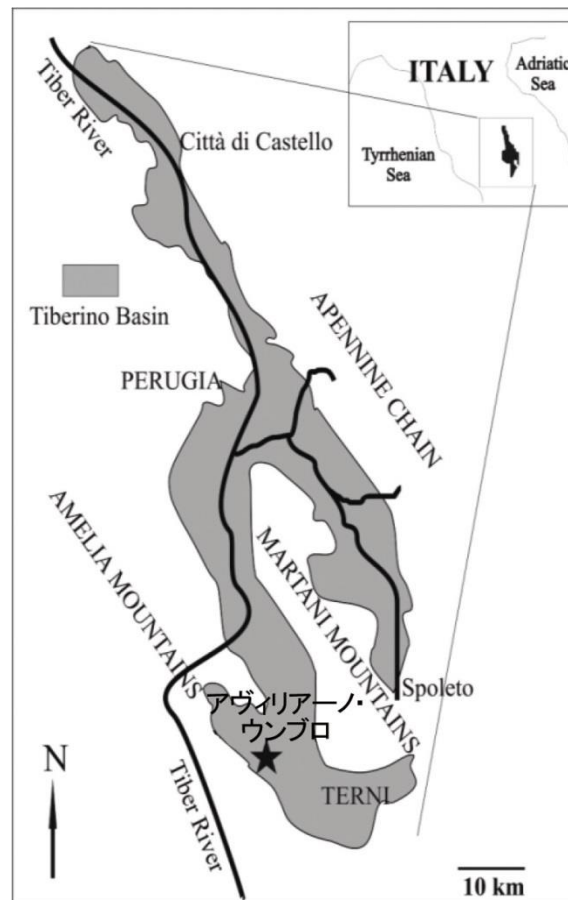
- ・ 廃棄物容器を地下水との反応から保護し、可能な限り健全な状態を保つ。これは、ベントナイト中のモンモリロナイトが水和された時、膨潤し、透水係数が極めて低い状態を生成するためである。
- ・ 放射性廃棄物からの放射性核種の移行を遅らせるため（ベントナイトによる透水係数の減少）、放射性廃棄物から出た放射性核種の大部分は、ベントナイト中で完全に減衰する。
- ・ pH 緩衝容量が極めて大きいため、放射性廃棄物から溶出する放射性核種の低溶解度を保つことができる。
- ・ 再飽和後の締め固められたベントナイトの微小空隙によってコロイド粒子をろ過する。
- ・ 放射性核種の収着特性が高いため、埋め戻し材内部の放射性核種の移行もより遅くなる。

ドウナロッバ森林のナチュラルアナログ研究

1970年代、イタリアのウンブロにあるドウナロッバとカバ・トッペティ (Cava Topetti) 採石場で、セコイアに似たタクソディオクシロン・ジプサセウム (*Taxodium gypsaceum*) 木の根と木の幹の下部が、石切り工によって周囲の粘土を掘り出した際に原型の直立姿勢のままで複数発見された。木は当初、沿岸湖の沼地で成長したものであり、現場の土と粘土の年代測定によって、上部鮮新世、約250万年前のものだということがわかっている。驚くべきことに木は石化しておらず、初期の性状を保っていた。



ドウナロッバ森林のセコイアに似たタクソディオクシロン・ジプサセウム (*Taxodioxylon gypsaceum*)
木の根 (Baldanza et al., 2009)



イタリア中央, ウンブリア州, テルニ (アヴィリアーノ・ウンブロの) ドウナロッバ化石森林のサ
イト地図 (Baldanza et al., 2009)

沈降量の大きい地域において、湖と近隣沿岸から粘土と砂がゆっくりと堆積し続けたことによって、幹は生きたまま埋まり、驚くほど質の高い保存が可能となった。しかし、石切り工はその発見の重要性を自覚しておらず、木がイタリア政府によって保護される前に、その多くを伐採し燃やしてしまった。現在、木は風化作用によって劣化し始めている。粘土は過去数千年間、風化から木を保護する役割を果たしていた。

不確実性と限界

- ・ 周囲の粘土の透水係数が非常に低いことから、木の保存が可能となった。地下水は、粘土中にある、より透水性の高い砂層内を選択的に流れるためである。
- ・ 粘土が過酸化水素水と木の相互作用を効果的に防いだため、好気性の分解プロセスが大幅に制限された。残念ながら、粘土のバリア性能の理解に関連性のある鉱物学、地球化学および水理学的な知見はほとんど公表されていないため、セーフティケースの裏付けとして本アナログを直接利用することは難しい。
- ・ そのため、ドゥナロッバ森林は、固化したベントナイト緩衝材などの粘土によって得られる効果的な隔離性能の定性的な実例としてしか利用できない。



サンプル採取されたドゥナロッバ森林の丸太
(Miller et al (2000)より)



ドゥナロッバ森林の化石木の事例
(Baldanza et al (2009)より)

適用性 - 得られた知見

- ・ 現在の地層処分施設的设计で用いられる人工のベントナイト粘土による緩衝材とは異なり、ドゥナロッバ森林の木を取り囲む天然の粘土は、木々を数千年の間、保護するために設計されたものではない。しかしながら、極めて高い効果を持つ。
- ・ 有機およびセルロースの廃棄物は、英国の廃棄物の大部分を占める。本ナチュラルアナログは、廃棄物の周囲の嫌気性条件が維持されれば、地層処分施設のニアフィールドにおける廃棄物の分解、そしてガスの発生は最小限に抑えられる可能性があることを示唆する。

参考文献

AMBROSETTI, P., BASILICI, G., CIANGHEROTTI, A.D., CODIPIETRO, G., CORONA, E., ESU, D., GIROTTI, O. LO MONACO, A., MENEGHINI, M., PAGANELLI, A. AND ROMAGNOLI, M. 1995. The Dunarobba Fossil Forest (Terni, Umbria, central Italy): lithostratigraphic, sedimentologic, palynologic, dendrochronologic and paleomalacologic characteristics. *Italian Journal of Quaternary Sciences*, **8**, 465-508.

AMBROSETTI, P., BARBIERI, M. ET AL. 1995. Analysis of the geoenvironmental conditions as morphological evolution factors of the sand-clay series of the Tiber Valley and Dunarobba Forest preservation (activity period: July 1993-July 1994). *Commission of the European Communities, Nuclear Science and Technology: Migration of radionuclides in the geosphere (Mirage Project-3rd Phase)*. Proceedings of the final meeting, Brussels, 15-17 November 1994. Report EUR 16218 EN, Luxembourg.

BALDANZA, A., SABATINO, G., TRISCARI, M. CRISTINA DE ANGELIS, M. 2009. The Dunarobba Fossil Forest (Umbria, Italy): mineralogical transformations evidences as possible decay effects. *Per. Mineral.* **78**, 51-60.

MILLER, W.M., ALEXANDER, W.R., CHAPMAN, N.A., MCKINLEY, I.G. AND SMELLIE, J.A.T. 2000 *Geological Disposal of Radioactive Wastes and Natural Analogues*. Waste Management Series, Vol. 2, Pergamon, Amsterdam. The Netherlands.

WILSON, J. SAVAGE, D. BOND, A. WATSON, S. PUSCH, R. AND BENNET. D. 2011. Bentonite: a review of key properties, processes and issues for consideration in the UK context. *Quintessa Report, QRS-1378ZG-1.1*. Quintessa, Henley-on-Thames, UK.

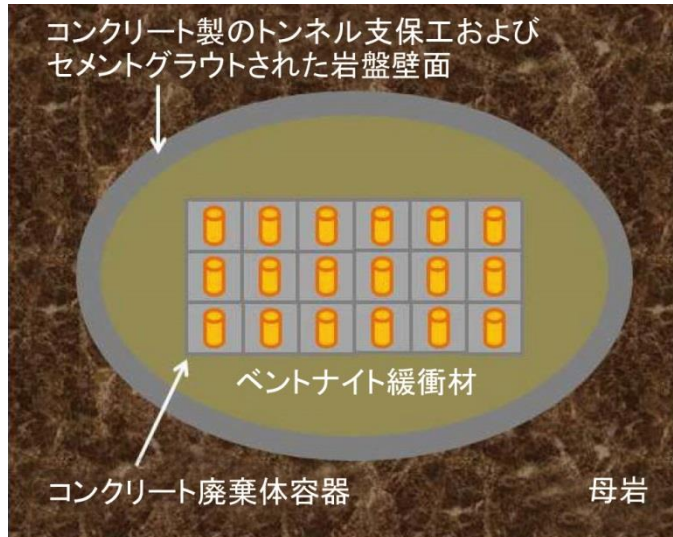
Traces of the Future – DVD available at:

http://www.nagra.ch/g3.cms/s_page/83220/s_name/shopproductdetail/s_level/10220/s_product/6001

事例 12：フィリピン：粘土の長期隔離特性

概要

ベントナイト埋め戻し材の使用



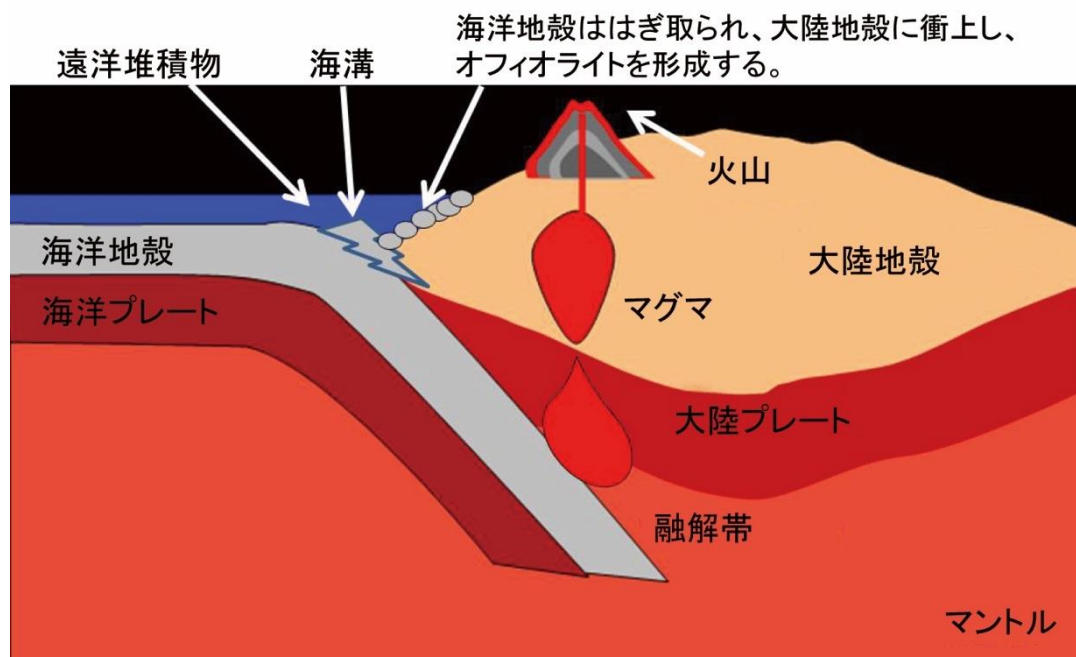
地層処分施設におけるトンネルの断面図。セメント系廃棄体（オレンジ）は、コンクリート容器（灰色）に格納され、さらにベントナイトの保護層（緑色）に取り囲まれている。建設と作業期間中の安全のために必要となる、コンクリートのトンネル支保工（灰色）も見られる

放射性廃棄物の地層処分施設の人工バリアシステムは、シンプルで性質がよくわかっている材料を大量に使用することを特徴とする。例えば、多くの高レベル放射性廃棄物、使用済燃料および低中レベル放射性廃棄物の地層処分施設の設計では、廃棄物パッケージまたはキャニスタを取り囲む埋め戻し材および緩衝材として、固めたベントナイト粘土を使用する。ベントナイトは地層処分施設の設計において、重要なバリアの役割を果たす。ベントナイトが選ばれた理由は、地層処分環境下における可塑性、膨潤性、コロイドろ過、低透水係数などの好ましい特性およびその安定性にある。一部の設計では、ベントナイトとコンクリートの併用が考えられるが、これは将来問題となる可能性がある。なぜなら、地層処分施設のコンクリート建設材料（例：トンネル支保工（その一部は閉鎖前に撤去されるが）やグラウトなど）およびセメント系廃棄体から出る浸出液による高pH条件下において、ベントナイトは不安定なためである。この事実から、いくつかの国では、低pHセメントなどの支保工材料および止水材料の代替使用を考えている。最近では、こうしたセメントの低pH（一般的にpH10～11の間）浸出液によるベントナイトの変質率は、「標準」 OPC（普通のポルトランドセメント）が主成分のセメント浸出液（一般的に、当初はpH>13）によるものより、低いと想定されてきた。現在、室内試験でこの仮説が検証されている（例：Heikola et al., 2013）。しかし、こうした短期的な試験は、数千年～数百万年にわたってベントナイト反応の評価が可能な、長期のナチュラルアナログによる裏付けが必要である。

フィリピンのナチュラルアナログ研究

天然のアルカリ性地下水

オフィオライトとして知られる火成岩型と関連する低pHセメントと同様のpH域の天然の地下水が、世界各地で発見されている。オフィオライトは、古代の海洋地殻が、世界各地に存在する多くの深い海溝（現在一番深いとされているのは、マリアナ海溝）の一つに沈み込んだ時に形成される層状複合岩体である。通常、この地殻は、地球のマントルに沈み込み、そこで溶け、いわゆる「環太平洋火山帯」として点在する多くの火山として再び出現する。しかし、全ての海洋地殻がこうした形で消滅するわけではなく、その一部は、プレートにはぎ取られ、その結果オフィオライトとして地上に露出する。

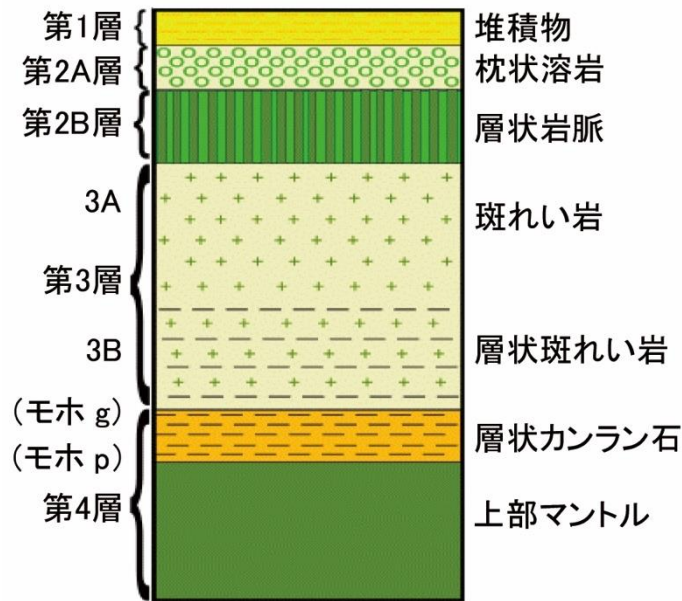


海洋プレートが深い海溝に引きずり込まれ、上部の大陸地殻の下に沈み込むことによってオフィオライトが形成される。その結果、海洋地殻と上部堆積物は、はぎ取られ、大陸の上にオフィオライトを形成する

ほぼ中性のpH地下水とオフィオライト中の鉱物との反応によって、世界各地のオフィオライトに共通した特徴である、天然のアルカリ性（そして多くが熱水の）地下水が生成される。

オフィオライトに共通する特徴の一つが、通常、海洋地殻の最上層に見られるベントナイトの存在である。アルカリ性地下水とベントナイトの偶然的な組み合わせによって、こうした領域は低pHセメントとベントナイトを併用した地層処分施設とほぼ同一の環境における、ベントナイトの長期的な変質の研究に適した天然の実験室となっている。

海洋地殻 オフィオライトモデル

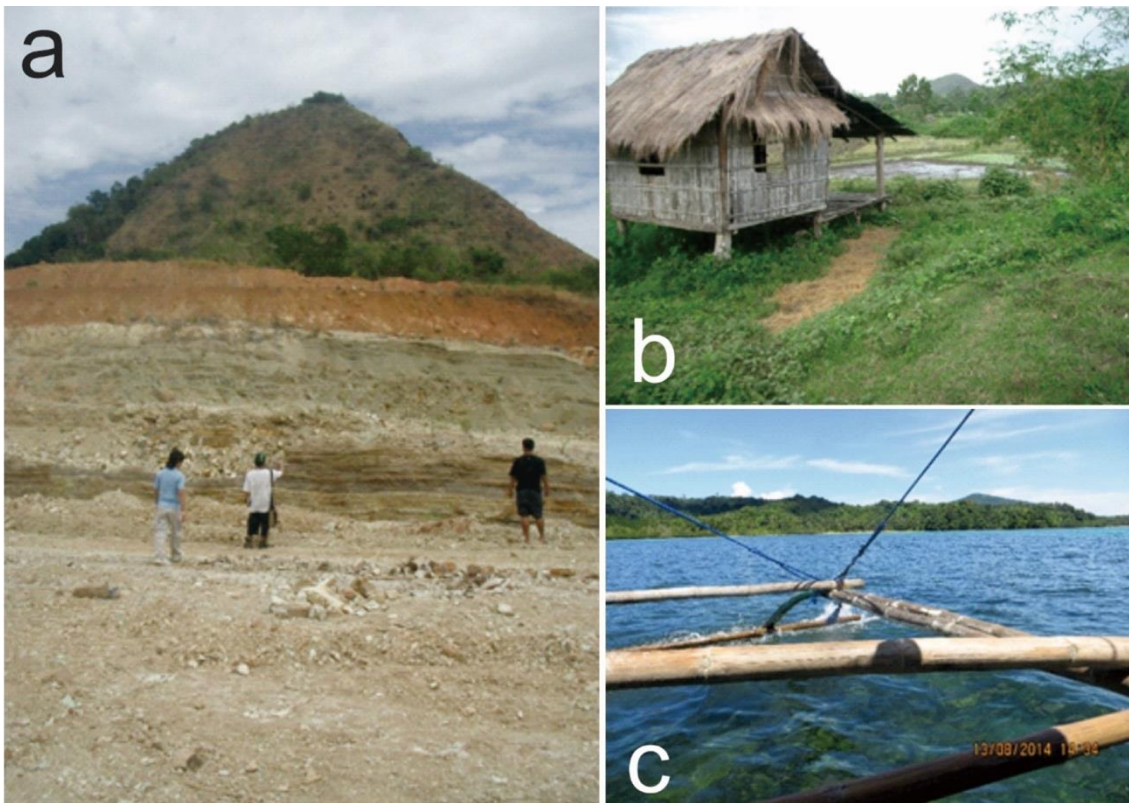


オフィオライトの図式断面図。第1層はベントナイトを含み、高アルカリ性地下水は火成層の第2～4層で生成される

フィリピンでは、関連するアルカリ性地下水とベントナイト粘土とともに、少なくとも20のオフィオライトの存在がわかっている。

ベントナイト調査に適した場所が、首都のマニラから150 km北にあるルソン島西部のマンガタレム地域にある。ここでは鉱物が豊富なサンバレスオフィオライトが、多量のアルカリ性地下水を生成しており、広がったベントナイト層の底部とごくわずかに反応しているように見える。

マンガタレムの研究（詳細は、以下を参照。塚田他（2012）、藤井他（2014））に続き、さらに約30 km南にあるビッグビガで掘削が行われた。ここでも、ベントナイト層下にアルカリ性地下水が存在するにもかかわらず、ベントナイトに大きな変質はほとんど見られなかった。今日までの調査結果により、数百万年間、ベントナイトには反応がほとんど生じなかったことが示され、これはキプロスのナチュラルアナログ研究と共通している。キプロスの場合も、反応の規模はベントナイトに多大な影響（損傷）を与えるほどではないとされ、そのため地層処分施設における低pHセメントとベントナイトの併用の実現可能性を示唆している。



フィリピンのナチュラルアナログプロジェクト (a) マンガタレム： 底部ではある程度のベントナイトの変質があるものの、マンガタレムでは厚い堆積物は影響を受けないままである（写真提供：マニラ, Sailes Industriesの厚意による） (b) ビッグビガ（ルソン）の典型的な水田地域：ビッグビガ（ルソン）にある小さな村の水田近くで大規模な掘削が行われた。ベントナイトの下部のアルカリ性地下水との接触にもかかわらず、粘土の反応や変質はわずかしか観察されていない（©Bedrock Geosciences） (c) パラワン, ウルガン湾。アナログサイトのいくつかは、海からのみアクセスが可能である（©Bedrock Geosciences）

これらのサイトにおける研究は継続されており、プロジェクトチームは、現在、フィリピン南西のパラワン諸島にある多数のサイトを中心に活動している。ここでは、複数のサイトに行くためには、川岸に密集したマングローブの森林のある小道を通り抜け、釣り用ボートを用いなければならない。その他のサイトでは、該当地域に徒歩で行き、ベントナイト中の反応の可能性のある領域を調査するために、堆積物にボーリング孔を開け、溝を掘り、サンプルを採取することが可能である。



フィリピン南西のパラワン諸島 (a) ベントナイトのサンプル採取に使用する小型の掘削装置 (©Bedrock Geosciences) (b) パラワン, Narra : モンスーンによる雨はあるものの, JCBの掘削チームが掘った溝からサンプルの収集が可能であり, 最後の採取は手作業によって行われた (©Bedrock Geosciences)

不確実性と限界

- ・ ベントナイト反応の年代は不明のため, 現象の発生時期については不確実性が残る。
- ・ 反応の空間的広がり, ベントナイトの透水性と反応性に依存しており, オフィオライト中に見られる反応が限定的なのは, アルカリ水との反応性がないからではなく, ベントナイトの低透水性が原因である可能性がある。
- ・ 加えて, この反応に影響するアルカリ性地下水の量が不明なため, セメント間隙水の生成容量が正確にわかる地層処分施設と, 直接比較することは現時点では不可能である。

適用性 - 得られた知見

- ・ 天然のアルカリ性地下水と接触したベントナイトは, これまでにフィリピン全土のサイトから広範囲にサンプルが採取されている。ベントナイト底部にごくわずかな反応があるにもかかわらず, 物質の大部分は未変質のままである。このことは, ベントナイト粘土のバリアを利用する処分場設計における, 建設用のセメントとコンクリートの使用は, ベントナイトに悪影響を与えないことを示唆している。
- ・ また, ベントナイトのバリア材料と, 建設と安全のために必要な低 pH セメントおよびコンクリートを組み合わせた, 地層処分施設の設計が可能であることを示唆している。

参考文献

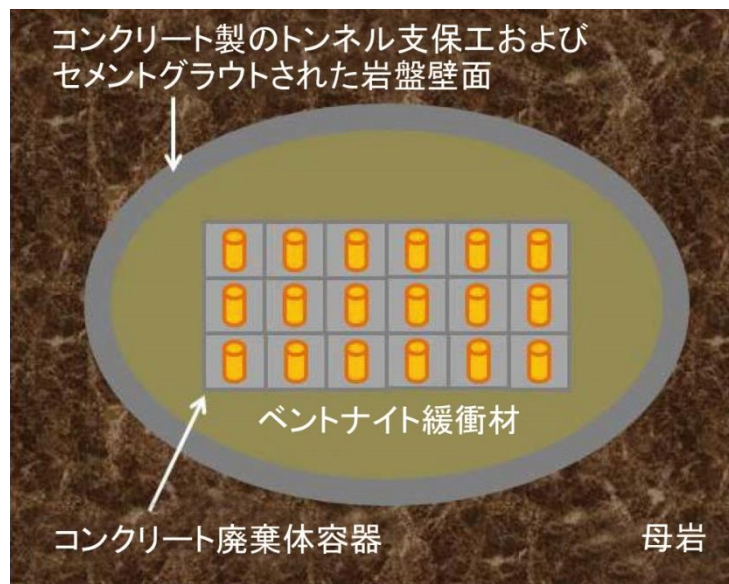
- ALEXANDER, W.R., ARCILLA, C.A., MCKINLEY, I.G., KAWAMURA, H., TAKAHASHI, Y., AOKI K. AND MIYOSHI S. 2008 A new natural analogue study of the interaction of low-alkali cement leachates and the bentonite buffer. *Scientific Basis for Nuclear Waste Management*, **XXXI**, 493-500.
- FUJII, N., YAMAKAWA, M., SHIKAZONO, N. AND SATO, T. 2015. Geochemical and mineralogical characterisation of bentonite interacted with alkaline fluids generating in Zambales Ophiolite, northwestern Luzon, Philippines. *Journal of the Geological Society of Japan*, **120**, 361-375 (in Japanese with English abstract).
- HAWORTH, A., SHARLAND, S.M., TASKER, P.W. AND TWEED, C.J. 1987. Evolution of the groundwater chemistry around a nuclear waste repository. *Scientific Basis for Nuclear Waste Management*, **XI**, 425-434.
- HEIKOLA, T., KUMPULAINEN, S., VUORINEN, U., KIVIRANTA, L. AND KORKEAKOSKI, P. 2013. Influence of alkaline and saline solutions on chemical, mineralogical and physical properties of two different bentonites – batch experiments at 25 °C. *Clay Minerals* **48**, 309-329.
- METCALFE, R. AND WALKER, C. 2004. Proceedings of the International Workshop on Bentonite-Cement Interaction in Repository Environments 14–16 April 2004, Tokyo, Japan. *NUMO Technical Report*, **NUMO-TR-04-05**, NUMO, Tokyo, Japan.
- REIJONEN, H.M. AND ALEXANDER, W.R. 2015. Bentonite analogue research related to geological disposal of radioactive waste – current status and future outlook. *Swiss Journal of Geosciences*, **108**, 101-110. [DOI 10.1007/s00015-015-0185-0].
- TSUKADA, Y., NAKABAYASHI, R. ET AL. 2012. Natural analogue study for interaction between alkaline groundwater and bentonite at Mangataram region in the Philippines. *Clays in natural and engineered barriers for radioactive waste confinement – 5 (book of abstracts)*, Montpellier, September, 2012. ANDRA, Paris, France.
https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:44048905
- WILSON, J. SAVAGE, D. BOND, A. WATSON, S. PUSCH, R. AND BENNET. D. 2011. Bentonite: a review of key properties, processes and issues for consideration in the UK context. *Quintessa Report*, **QRS-1378ZG-1.1**. Quintessa, Henley-on-Thames, UK.

事例 13 : キプロス : 粘土の長期隔離特性

概要

ベントナイト埋め戻し材の使用

放射性廃棄物の地層処分施設の人工バリアシステムは、比較的シンプルでその特徴がよく知られた材料を大量に使用することが特徴である。例えば、多くの高レベル放射性廃棄物、使用済燃料および低中レベル放射性廃棄物の地層処分施設の設計では、廃棄物パッケージまたはキャニスタを取り囲む埋め戻し材および緩衝材として、固めたベントナイト粘土を使用する。ベントナイトは地層処分施設の設計において、重要なバリアの役割を果たす。ベントナイトが選ばれた理由は、地質環境下における可塑性、膨潤性、コロイドろ過、低透水係数などの好ましい特性およびその安定性にある。一部の設計では、ベントナイトとコンクリートの併用が考えられるが、これは将来問題となる可能性がある。なぜなら、地層処分施設のコンクリート建設材料（例：トンネル支保工（その一部は閉鎖前に撤去されるが）、グラウトなど）およびセメント系廃棄体から出る浸出液による高pH条件下において、ベントナイトは不安定なためである。この事実から、いくつかの国では低pHセメントなどの建設および止水材料の代替使用を考えている。最近では、こうしたセメントの低pH（一般的にpH10～11の間）浸出液によるベントナイトの変質率は、「標準」 OPC（普通のポルトランドセメント）が主成分のセメント浸出液（一般的に、当初はpH>13）によるものよりも低いと想定されてきた。現在、室内試験でこの仮説が検証されている（例：Heikola et al., 2013）。しかし、こうした短期的な試験は、数千年～数百万年にわたる、ベントナイト反応の評価が可能な長期のナチュラルアナログによる裏付けが必要である。



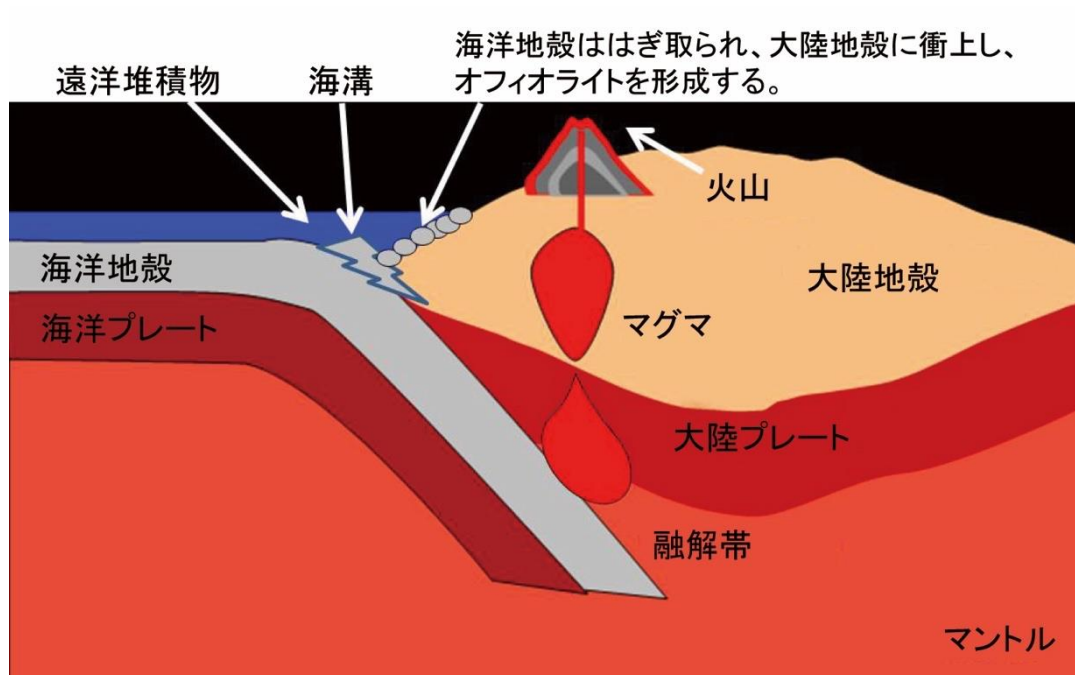
地層処分施設トンネルの断面図。セメント系廃棄体（オレンジ）は、コンクリート容器（灰色）に格納され、さらにベントナイトの緩衝材（緑色）に取り囲まれている。建設と作業期間中の作業従事者の安全のために必要なコンクリートのトンネル支保工（灰色）も見られる

キプロスのナチュラルアナログ研究

天然アルカリ性地下水

低pHセメントと同じpH域の天然の地下水が、キプロス島のトルードスのオフィオライト複合体から見つかっている。オフィオライトは、古代の海洋地殻がはぎ取られ、大陸プレートの端に衝上した時に形成され、最終的に（オフィオライトとして）地上に露出した。

ほぼ中性のpH地下水と、オフィオライト中の塩基性および超塩基性岩に含まれるカンラン石と輝石の低温反応によって、世界各地のオフィオライトに共通の特徴である高アルカリ性地下水が生成される。



海洋プレートが深い海溝に引きずり込まれ、上部の大陸地殻の下に沈み込むプレートテクトニクスの結果、オフィオライトが形成される。海洋地殻と上部堆積物は、はぎ取られ、大陸の上にオフィオライトを形成する

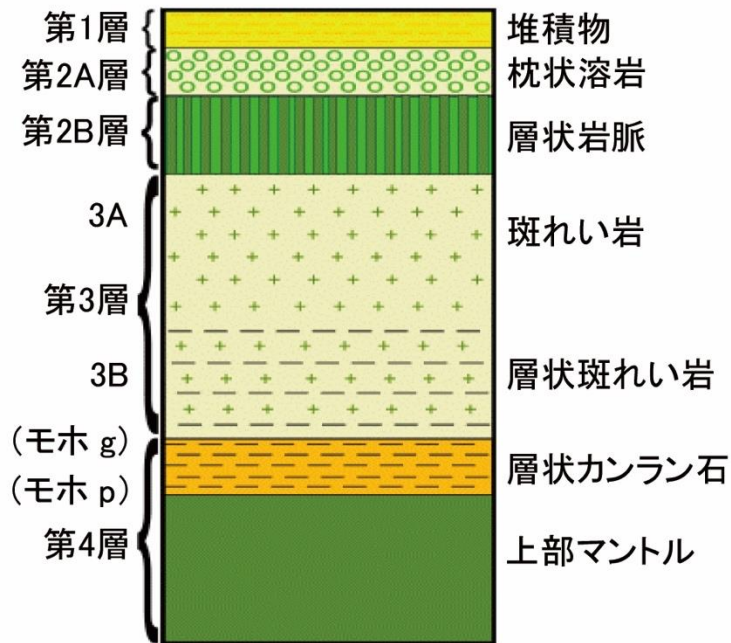


トルードス山, アッラス泉。アルカリ性地下水が, ハルツバージャイト中の高角度の亀裂を流れる。トラバーチン(トウファ)は, 大気中の二酸化炭素(CO_2)と反応するカルシウム(Ca)が豊富なアルカリ性地下水として, ハルツバージャイトの表面に沈積する。茶色の染みは, トラバーチン層の表面を覆うバイオフィルム, またはバクテリアマットによるものである(Alexander and Milodowski, 2011より)

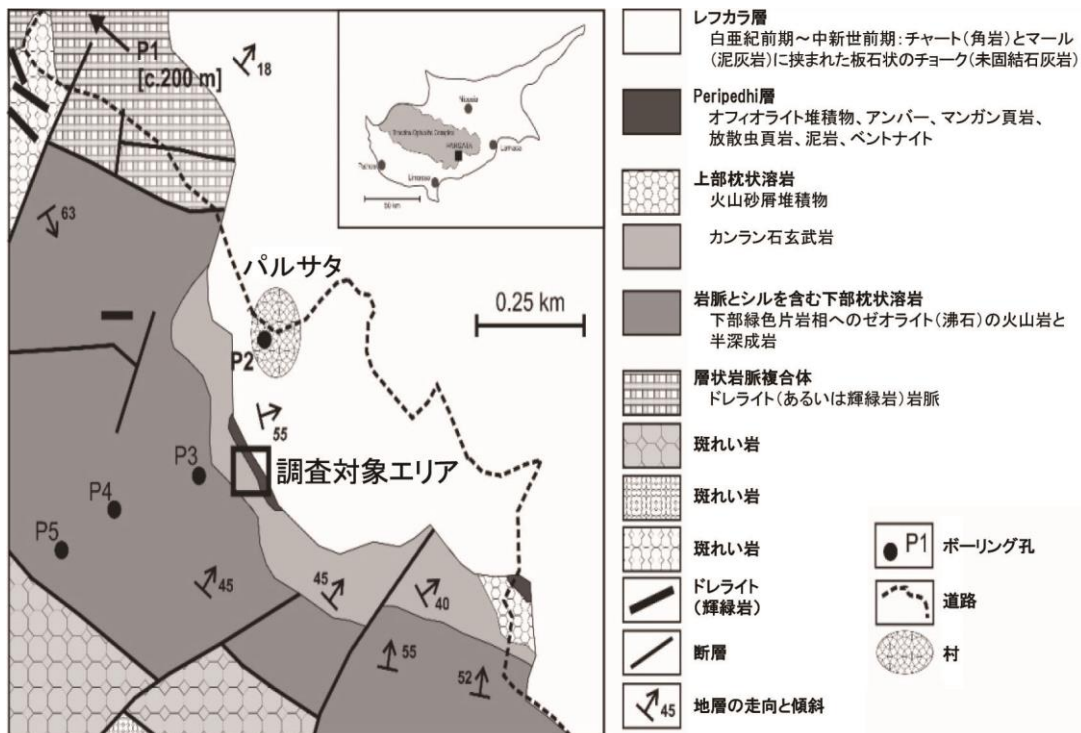
地質学的設定 : パルサタ

ベントナイトは, 多くの場合, 海洋地殻を形成する火成岩の最上層に位置する堆積物層序中に存在する。これは, キプロスのトルードス山塊の南斜面で見られる。現地には, アルカリ性地下水の循環とベントナイト堆積物という偶然的な組み合わせによって, 低pHセメントとベントナイトを併用した地層処分施設と類似した地球化学的条件下で, ベントナイトの長期的な反応を研究するための天然の実験材料として有効である。

海洋地殻 オフィオライトモデル

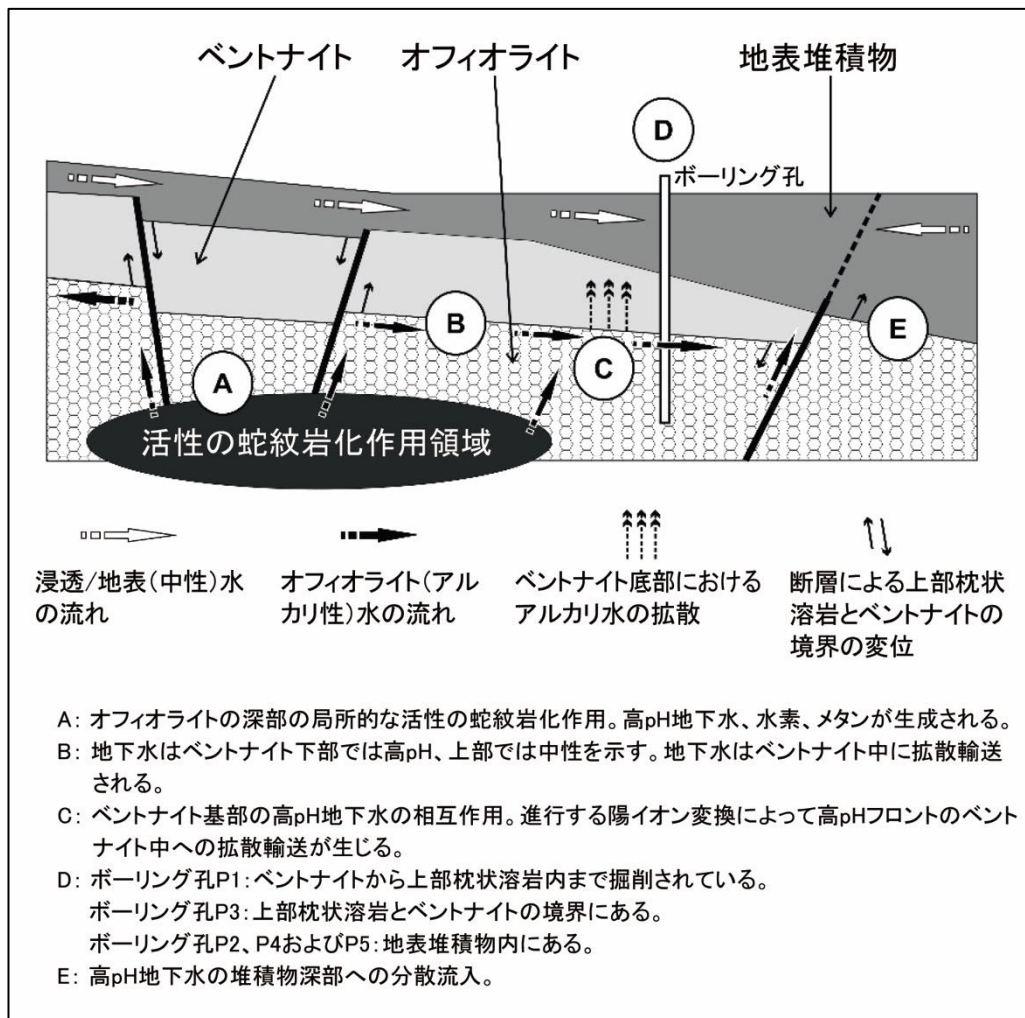


オフィオライトの図式断面図。第1層はベントナイトを含み、高アルカリ性地下水は火成層の第2～4層で生成される



パルサタ地域の地図と母岩の地質。研究サイトと地下水のサンプル採取に使用したボーリング孔の位置を示す (Alexander and Milodowski, 2015)

本アナログサイトは、リマソールの東北東にあるパルサタの廃村の近くに位置する。村は、リマソール森林に流れ出るヴァシリコスバレーの上の台地にある。パルサタでは、白亜紀後期のベントナイトに富む堆積物（Peripedhi層）が、オフィオライト層序の最上部で上部枕状溶岩から成る、カンラン石玄武岩の不規則な古チャンネルを充填する。下層の超塩基性岩中では、現在活性の低温の蛇紋岩化作用によって生成されたアルカリ性（ $\text{pH} \leq 11$ ）地下水が、亀裂を有する透水性の枕状溶岩中を流れており、下層のベントナイトの底部まで浸透している。アルカリ性地下水とベントナイトの相互作用を研究するため、上層と下層の境界を貫いて、トレンチとボーリング孔によるサンプル採取を行った。



キプロスアナログにおけるアルカリ性地下水の流動システムの概念図

不確実性と限界

- キプロスでのベントナイトの長期変質に関するナチュラルアナログでは、パリゴルスカイトが、アルカリ性地下水によるベントナイトの変質生成物として確認された。これは人工バリアシステムにおける、セメント間隙の流体とベントナイトの相互作用の地球化学的モデルと対照的な結果である。つまり、ガラスおよび非晶質シリカの溶解に伴う超高濃度シリカ環境

下のみにおいて、パリゴルスカイトが安定であることを示唆している。キプロスのベントナイトは、大量の非晶質シリカとガラスを含んでおり、地層処分施設で使用される典型的なベントナイト組成とは異なる。

- ・ パルサタの観察は、最近の別の鉱物学的研究と類似した結果を示している。その研究では、英国のセラフィールドエリアでの、「早期に生じた」（カリウム (K) とカルシウム (Ca) が豊富)、「変質し形成された」（カルシウム (Ca) が豊富)セメント間隙の流体と、石英が豊富なオルドビス紀の安山岩質変成火成岩の相互作用について長期（15年間）に渡って調査を行った試験研究において、パリゴルスカイトとセピオライトに似た繊維状のマグネシウム (Mg) に富むケイ酸塩が、変質生成物として確認されている (Moyce et al., 2014)。
- ・ 他の自然現象からの熱力学的データと鉱物組成の観察から、パリゴルスカイトは、シリカの溶解度が非常に高い環境下においてのみ安定することがわかる。よって、パルサタのアナログサイトにおけるその形成は、高濃度の非晶質の（生体の）シリカと残存ガラスによるものと考えられる。これらはパリゴルスカイトの安定化に必要な高濃度シリカ活性の生じる、高 pH 地下水で溶解する。
- ・ 高濃度シリカは、大部分の加工ベントナイトには含まれていないが、処分場で使用する加工されたベントナイトの一般的な要件で求められるスメクタイトの含有量は、>75 %程度であるため、高濃度シリカを含む可能性が全くないわけではない。さらに、地層処分施設的设计では、高シリカ値の混合物を生成するために、シリカ砂または現地の地層処分施設の母岩を混ぜた加工済のベントナイトの使用が考えられる。こうした設計では、ベントナイトの膨潤性は求められない。残念ながら、現在、ベントナイト反応のモデルは、ケイ砂、非晶質材料およびガラスの溶解を含んでいない。

適用性 - 得られた知見

- ・ 本アナログの現地での条件は、地層処分施設で予想されるものと類似である。
- ・ 研究結果から、アルカリ性地下水によるベントナイトの鉱物組成の限定的な変質が、 $10^5 \sim 10^6$ 年間発生してきたことがわかる。スメクタイトから繊維状のパリゴルスカイトへの変質と置換は、ごくわずかに観察されたのみであり、これらは通常小亀裂に沿った箇所である。
- ・ ベントナイトとアルカリ性地下水の相互作用による主な影響は、流体からのカルシウムイオン (Ca^{2+}) による、ベントナイト中の交換可能なナトリウムイオン (Na^+) との置換である。結果として、これはベントナイトの膨潤挙動と可塑性に影響する可能性がある。
- ・ 本研究から、地層処分施設内においてベントナイト粘土のバリア材料は、低アルカリセメントおよびコンクリートとの併用が実現可能であること、そして、地層処分施設内におけるベントナイトと、低アルカリセメントからの浸出液の長期的反応は、いずれも限定的であることが示唆される。

参考文献

- ALEXANDER, W.R. AND MILODOWSKI, A.E. 2008. Low-alkali cement leachate/bentonite interaction natural analogue study. Cyprus Natural Analogue Project (CNAP) Phase I. *Bedrock Geosciences Technical Report*, **BG08-01**, Bedrock Geosciences, Auenstein, Switzerland.
- ALEXANDER, W.R. AND MILODOWSKI, A.E. 2009. Cyprus Natural Analogue Project (CNAP) Phase II Reconnaissance Trip Report November-December 2008. *Bedrock Geosciences Technical Report*, **BG08-02**, Bedrock Geosciences, Auenstein, Switzerland.
- ALEXANDER, W.R. AND MILODOWSKI, A.E. (EDITORS). 2011. Cyprus Natural Analogue Project (CNAP) Phase II Final Report. *Posiva Working Report*, **WR 2011-08**, Posiva, Eurajoki, Finland.
- ALEXANDER, W.R., MILODOWSKI, A.E. AND PITY, A.F. (EDITORS) 2011. Cyprus Natural Analogue Project (CNAP) Phase III Final Report. *Posiva Working Report*, **WR 2011-77**, Posiva, Eurajoki, Finland.
- ALEXANDER, W.R. MILODOWSKI, A.E. CONSTANTINOU, C.A. RIGAS, M. TWEED, C. SELLIN, P. KORKEAKOSKI, P. AND PUIGDOMENECH . I. 2011. Reaction of bentonite in low-alkali cement leachates: results from the Cyprus Natural Analogue Project. *Proceedings of ICEM 2011 Conference, Reims, France, September, 2011*, ASME, Washington, USA.
- ALEXANDER, W.R. MILODOWSKI, A.E. PITY, A.F. HARDIE, S. KORKEAKOSKI, P. RIGAS, M. SELLIN, P. AND TWEED, C. 2012. Reaction of bentonite in low-alkali cement leachates: results from the Cyprus Natural Analogue Project. Extended abstract in: *Proceedings of the Conference on the Geological Disposal of Radioactive Waste: Underpinning Science and Technology for Radioactive Waste 18 - 20 October 2011, Loughborough, UK*. Mineralogical Magazine, December 2012, **76(8)**, 149–152.
- ALEXANDER, W.R. AND MILODOWSKI, A.E. (EDITORS). 2013. Cyprus Natural Analogue Project (CNAP) Phase IV Final Report. *Bedrock Geosciences Technical Report*, **BG13-02**, Bedrock Geosciences, Auenstein, Switzerland.
- ALEXANDER, W.R. AND MILODOWSKI, A.E. (EDITORS). 2013. Cyprus Natural Analogue Project (CNAP) Phase IV Final Report. *Posiva Working Report*, Posiva, Eurajoki, Finland (in press).
- ALEXANDER, W.R. MILODOWSKI, A.E. PITY, A.F., HARDY, S.M.L., KEMP, S.J., RUSHTON, J.C., SIATHAS, A., SIATHAS, A., MACKENZIE, A.B., KORKEAKOSKI, P., NORRIS, S., SELLIN, P. AND RIGAS, M. 2013. Bentonite reactivity in alkaline solutions: results of the Cyprus Natural Analogue Project (CNAP). *Clay Minerals*, **48**, 235–249.
- GASS, I.D., MACCLEOD, C.J., MURTON, B.J., PANAYIOTOU, A., SIMONIAN, K.O. AND XENOPHONTOS, C. 1994. The Geology of the Southern Troodos Transform Fault Zone. *Geological Survey Department Memoir*, **No.9**, Geological Survey Department, Lefkosia, Cyprus.
- HEIKOLA, T., KUMPULAINEN, S., VUORINEN, U., KIVIRANTA, L. AND KORKEAKOSKI, P. 2013. Influence of alkaline and saline solutions on chemical, mineralogical and physical properties of two different bentonites – batch experiments at 25 °C. *Clay Minerals* **48**, 309-329.
- MILODOWSKI, A. E., NORRIS, S. AND W.R. ALEXANDER, 2016. Minimal alteration of montmorillonite following long-term

interaction with natural alkaline groundwater: Implications for geological disposal of radioactive waste. *Applied Geochemistry*, 66, 184-197.

MOYCE, E.B.A., ROCHELLE, C.A., MORRIS, K., MILODOWSKI, A.E., CHEN, X., THORNTON, S., SMALL, J.S. AND SHAW, S. 2014. Rock alteration in alkaline cement waters over 15 years and its relevance to the geological disposal of nuclear waste. *Applied Geochemistry*, **50**, 91-105.

WILSON, J. SAVAGE, D. BOND, A. WATSON, S. PUSCH, R. AND BENNET. D. 2011. Bentonite: a review of key properties, processes and issues for consideration in the UK context. *Quintessa Report*, **QRS-1378ZG-1.1**. Quintessa, Henley-on-Thames, UK.

事例 14：火成貫入による泥岩の変質：粘土バリアの熱安定性

概要

放射性壊変によって、熱エネルギーが生じる。自然系では、自然に発生した放射性元素（主にウラン、トリウム、カリウム）の壊変によって、地球の様な惑星の内部の熱が保たれる。高レベル放射性廃棄物と使用済燃料の放射性壊変もまた熱を生じる。岩盤は比較的良好な断熱材となるため、使用済燃料や高レベル放射性廃棄物は、地下深部に埋設されると温度上昇し、放射性廃棄物の地層処分施設的设计概念によっては、100°C前後まで温度上昇する可能性がある。この発熱によって、キャニスタを取り囲む緩衝材、さらには周囲の岩盤の力学的および化学的特性が変化する可能性があるため、長期の発熱を考慮して深地層処分施設を設計することが重要である。これは、特に粘土が豊富な材料（例えば、ベントナイト緩衝材および泥岩）の場合であり、発熱によって、本来備わっている低透水性に影響を及ぼし、地下水の流動の抑制や放射性核種の移行を遅延させる能力に影響を与える可能性がある。

地層処分施設閉鎖後の発熱が高い期間は、数千年間続く可能性がある。しかしながら、温度上昇やそれに伴う埋め戻し材中や周囲の岩盤中の温度勾配による影響は、高発熱の期間よりも長期的な影響を与える可能性がある。

長期間の発熱によって、地層処分施設で使用される材料や周囲の岩盤がどのように挙動するのかを理解するためには、数十年、数百年、数千年にわたって同様に熱にさらされた天然の熱的アナログを研究する必要がある。

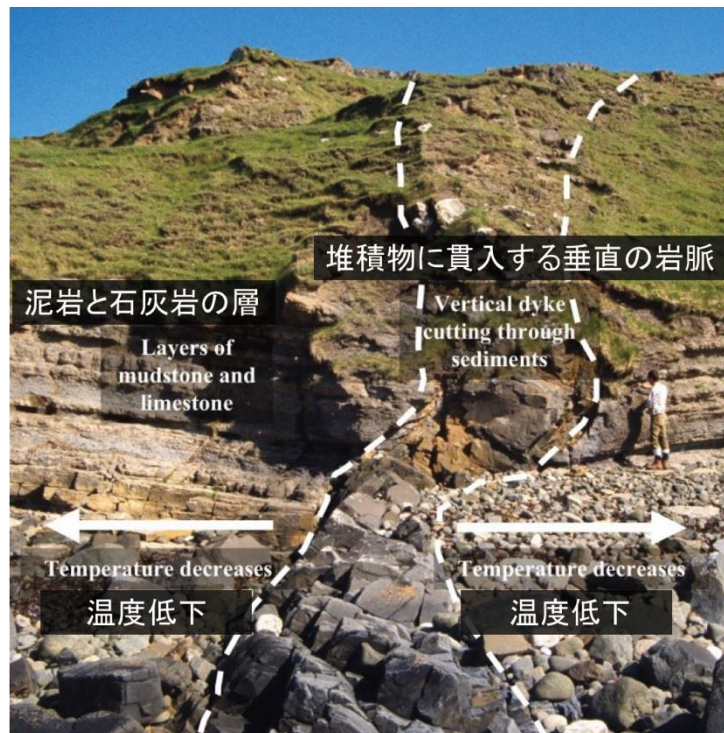
粘土の熱的アナログ：自然の実験

火成岩が貫入した粘土と泥岩の複数事例が、地層処分施設の人工粘土バリアの熱影響のアナログとして研究されてきた。粘土が豊富に含まれる堆積岩への約800~1,200°Cの溶岩の貫入によって、局所的に高い温度勾配が生じ、その一部は発熱性の放射性廃棄物に隣接した岩盤と類似している可能性がある。古温度の復元と、鉱物学および流体化学的变化の観察によって、地層処分施設の温度と関連性のある領域を推定することができる。これらの領域からサンプルを採取し、ベントナイト特性に変化があったかどうか評価するために試験を行うことが可能である。

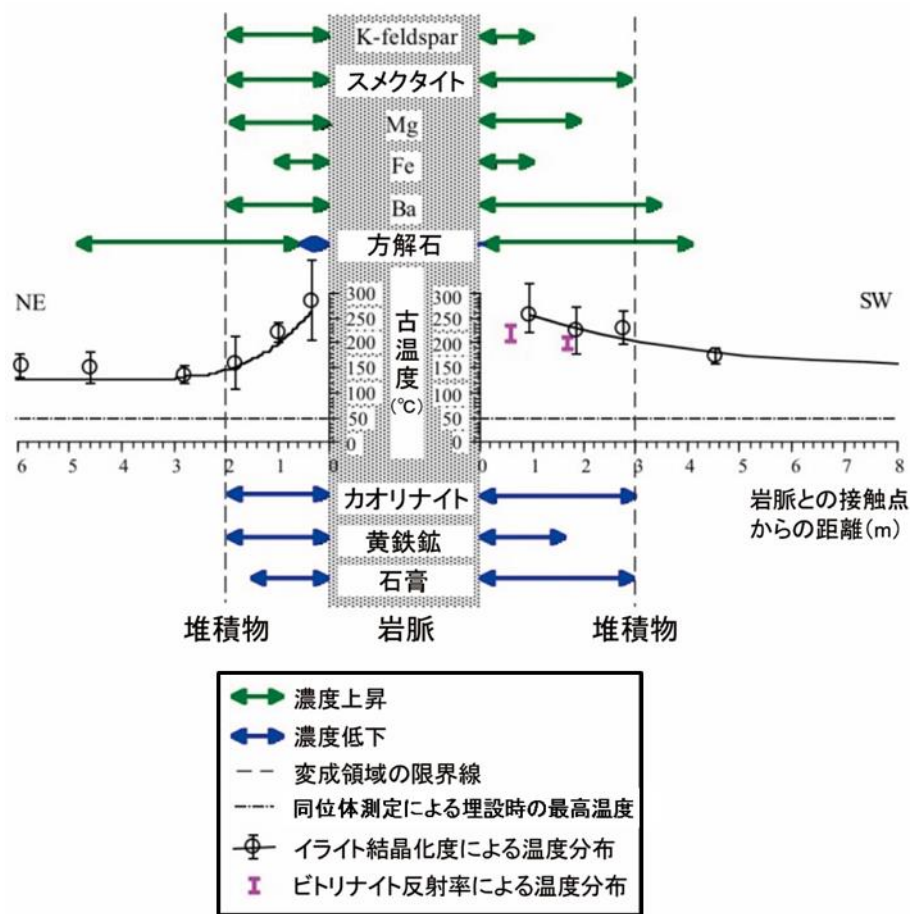
スコットランド スカイ島

スコットランドのスカイ島北部では、ジュラ紀の泥岩に貫入する第三紀の玄武岩岩脈とシル（訳注：地層面に平行な板状貫入岩体）の研究がなされた。これらの貫入岩は、20 cm~数mの厚さで、約7,000万年前に生じたものである（写真参照）。粘土から採取されたサンプルにより、加熱がおおよそ貫入岩脈の幅一つ分の範囲内で生じていることが分かっている。スメクタイトは高温では不安定であるが、泥岩内のスメクタイトは貫入物との接触点に向かって増加している。このことは、岩石が冷却されると加熱後の事象もしくは逆反応による事象によってスメクタイトが形成されることを示す。その結果、高音および低温両方の鉱物の集合体が観察されており、これらのアナログの複雑

な性質を示している。フィールドでの観察によって、貫入物との接触点の近くでは泥岩の物理的特性が変化している（例えば、硬化し、脆くなっている）ことも明らかになった。泥岩中の亀裂ネットワークも観察されたが、これはおそらく粘土の熱収縮が原因と考えられる。地層処分施設の周辺に同様の亀裂が生じれば、放射性核種の移行が促進される可能性がある。しかしながら、スカイ島で取得されたデータは、鉱物（例えば、方解石やシリカ）が亀裂に沈殿し、その結果亀裂が閉塞されることも示している。



ジュラ紀の泥岩と石灰岩の地層に貫入する、第三紀のドレライト岩脈 スカイ島
(© British Geological Survey)



ジュラ紀の泥岩のドレイイト岩脈との接触点で観察された鉱物学的変成の分布 スカイ島
 (© British Geological Survey)

南フランス コル・ドウ・パーサス (Col du Perthus)

このサイトは、南フランスのモンペリエの約 50km 西北西に位置する。ローレー村から約 1km 西にあるこのジュラ紀の粘土層は、約 200 万年前に貫入した幅 1 m の玄武岩岩脈によって分断されている。

粘土層から採取されたサンプルから、スカイ島における観察と同様に、およそ貫入岩脈の幅一つの範囲内で温度上昇が生じていることが明らかとなっている。この領域における加熱は、おそらく 100~250 °C であるが、数年間しか継続していないと推測される。この領域においては、イライト-スメクタイト泥岩内のイライト含有率が増加するため、初期の粘土よりも膨潤性が下がる。地層処分環境における緩衝材の膨潤性の低下は、閉じ込め効果の低下につながる。

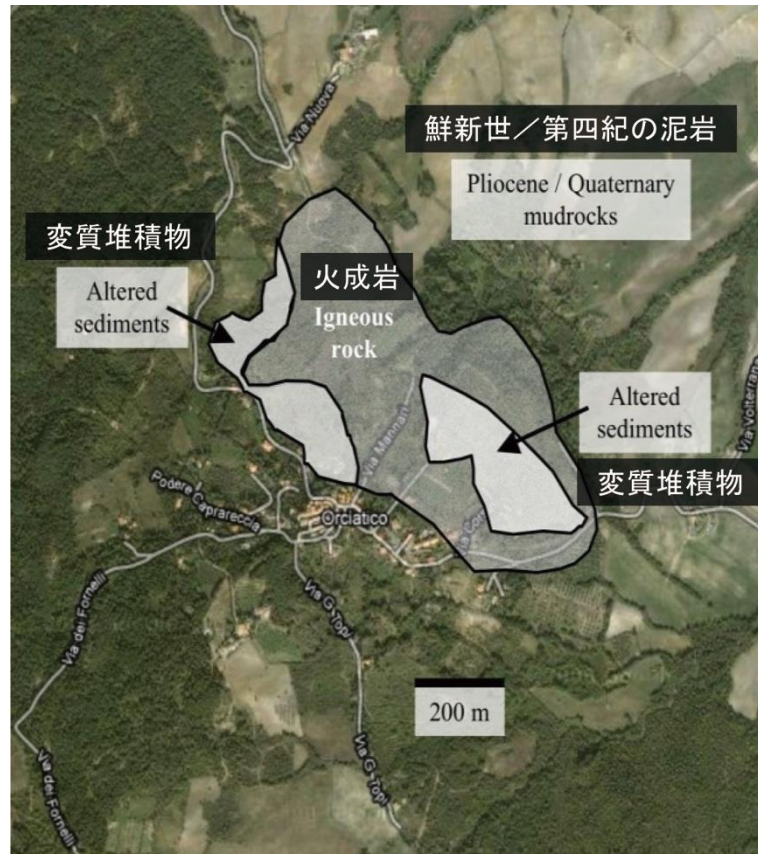


南フランス コル・ドウ・パーサス (Col du Perthus) の泥岩に貫入する塩基性岩脈

イタリア中央 オルシアチコ (Orciatico)

オルシアチコ (Orciatico) 村は、イタリア ピサの約40 km南東に位置する。村のすぐ北と東には、約400万年前に鮮新世の海成堆積物の浅い深度に貫入した、小さいシルとラコリス (訳注：上面が鏡餅状に膨らんだ貫入岩体) がある。

様々な温度に加熱された複数の岩石サンプルを採取するため、貫入岩の南東側の泥岩にボーリング孔が掘削された。イライトが豊富な粘土層は、貫入部から最大数メートル離れた部分まで変質した。スカイ島のアナログサイトと同様に、その後の低温再水和反応のため、初期の温度が最も高い、貫入部との接触点に非常に近い領域で、膨潤性のある粘土含有率が増加している。熱変質領域は前述の南フランスのアナログよりもはるかに広く、対象とする温度範囲から多くのサンプルが採取可能であった。これらの力学特性試験から、加熱によって粘土の強度の増加と過圧密が起こったことが示されている。しかしながら、加熱された粘土層は、可塑性が低く、脆性破壊しやすくなり、熱変質を受けていない粘土層と比べ透水性が高い。



イタリア中央 オルシアチコ (Orciatico) の主要な地質特性

南スペイン カボ・デ・ガタ (Cabo de Gata)

南スペインのアルメリアにあるカボ・デ・ガタ (Cabo de Gata) では、ベントナイト中のデイサイト貫入露頭が確認される。これらは、火砕岩 (約1,160万年前) が低温 (<70°C) の塩水によってベントナイトに変質し、その後、約1,130万~1,080万年前にデイサイトが貫入したものである。

このサイトがアナログの対象となっている理由は、スメクタイトが非常に豊富な岩石であり、ベントナイト緩衝材との直接的な比較が可能のためである。

ベントナイト中の熱影響はおそらく数十年続いたと考えられるが、貫入部周辺の熱的特性分布の特定はこれまでできていない。したがって、現時点では、観察されたベントナイト特性の変化を特定の温度によるものとすることはできない。

不確実性と限界

- ・ ナチュラルアナログにおける熱と流体の変遷は、複数の貫入と水熱の事象が関わっており複雑で拘束性に乏しいが、地層処分施設のモデルに適用するためには、概念的または数値的モデリングを容易にするために単純である必要があり、単独の熱事象として表現されることが理想的である。
- ・ 本ナチュラルアナログにおける最高温度は、地層処分施設内の予想温度よりはるかに高い。

高温による変質は岩石内で維持されやすいが、最も関連性の高い温度領域 (<150 °C) の多くは特定が困難である。古温度を特定するための手法の改良が望まれる。

- 小規模の火成貫入による加熱は数年間と考えられるのに対し、地層処分施設内の温度上昇はそれよりもはるかに長く続く。
- 大規模の火成貫入は、長期の加熱と広い領域における加熱を伴うため、力学試験に適した材料の採取が容易になる。しかしながら、これらはさらに複雑な構造を持つ可能性があるため、正確な熱的モデルの構築が困難となりうる。
- スメクタイトが豊富な岩石よりも、熱影響を受けたイライトが豊富な岩石（候補母岩の中で代表的なもの）の事例の方がより多く存在する。スメクタイトが豊富な岩石の追加事例の調査によって、ベントナイト緩衝材や埋め戻し材への熱影響の理解が深まるであろう。

適用性 - 得られた知見

貫入の規模および初期の泥岩の組成の違いにもかかわらず、初期の鉱物学的、地球化学的データは、前述のサイトと同様のプロセスが作用してきたことを示唆している。これまでの研究から以下のことが言える。

- 熱影響を受けた粘土層は、可塑性が低下し、脆性破壊を起こしやすくなるため、その結果、初期の粘土と比べ透水性が高くなる。
- 加熱によって、粘土の強度と過圧密比が増加する。
- 加熱によって、アナログ環境にあるスメクタイトがイライト化するため、粘土の膨潤率が減少する。しかしながら、イライト化は水熱プロセスによるものと考えられ、水熱プロセスによるイライト化は地層処分環境とは関連性がないと考えられる。

参考文献

GERA, F., HUECKEL T. AND PEANO, A. 1996. Critical issues in modelling the long-term hydro-thermo-mechanical performance of natural clay barriers. *Engineering Geology*, **41**, 17-33.

Güven, N. 1990. Longevity of bentonite as buffer material in a nuclear-waste repository. *Engineering Geology*, **28**, 233-247.

Horseman, S.T. and McEwen, T.J. 1996. Thermal constraints on disposal of heat-emitting waste in argillaceous rocks. *Engineering Geology*, **41**, 5-16.

Pellegrini, R., Horseman, S., Kemp, S., Rochelle, C., Boisson, J.-Y., Lombardi, S., Bouchet A., and Parneix J.-C., 1999. Natural analogues of the thermo-hydro-chemical and thermo-hydro-mechanical response of clay barriers final report of EC project no. FI-4W/CT95/0014. *Nuclear Science and Technology Series*, **EUR 19114**, ISBN 92-828-7317-X, Office for Official Publications of the European Communities, 110p.

Pérez del Villar, L., Delgado, A., Reyes, E., Pelayo, M., Fernández-Soler, J.M., Cózar, J.S., Tsige M. and Quejido, A.J. 2005. Thermochemically induced transformations in Al-smectites: A Spanish natural analogue of the bentonite barrier

behaviour in a radwaste disposal. *Applied Geochemistry*, **20**, 2252-2282.

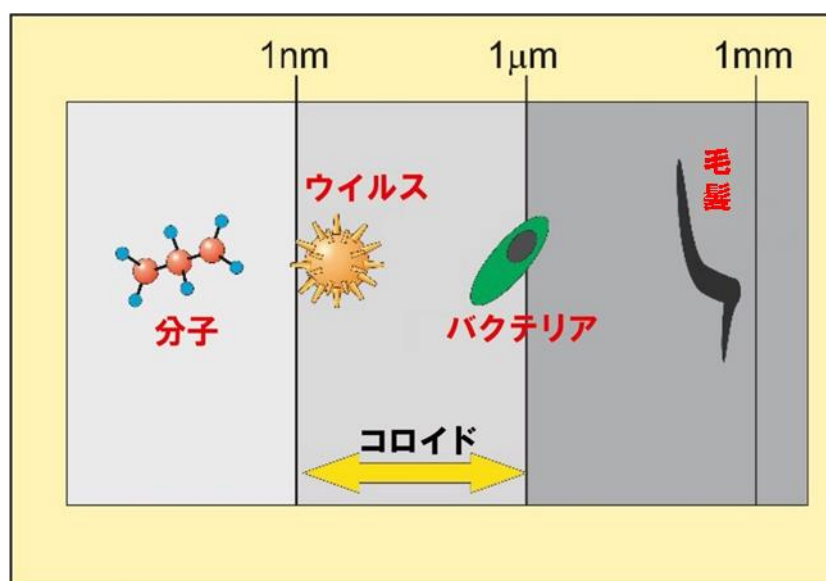
WILSON, J. SAVAGE, D. BOND, A. WATSON, S. PUSCH, R. AND BENNET. D. 2011. Bentonite: a review of key properties, processes and issues for consideration in the UK context. *Quintessa Report*, **QRS-1378ZG-1.1**. Quintessa, Henley-on-Thames, UK.

事例 15 : 人工バリアシステム : コロイド

概要

なぜ人工バリアシステムのコロイドを研究するのか

放射性廃棄物の地層処分施設の人工バリアシステムでコロイド（またはナノ粒子）が生成される可能性があることを示唆する室内試験および地下研究施設の試験結果が得られている。コロイドには、低レベル放射性廃棄物や中レベル放射性廃棄物の処分場の廃棄物、容器、埋め戻し材から発生したセメントや金属のコロイド、高レベル放射性廃棄物の処分場のガラス、金属、粘土のコロイドがあり、それらは材料の経年変化によって生じる。コロイドは、地下水の流れによるベントナイトとセメントの埋め戻し材のエロージョンによっても、生成される可能性がある。コロイドが放射性核種を伴い、地下水の流れによって移行すれば、人工バリアシステムの放射性核種を閉じ込める機能が低下する可能性がある。その結果、人工バリアシステムから周囲の母岩への放射性核種の流出量が増える。このことから、セーフティケースでは、コロイドの発生の程度と、コロイドの可動化が放射性核種の移行に与える影響を評価することが重要である。



コロイドのスケールを示す概念図

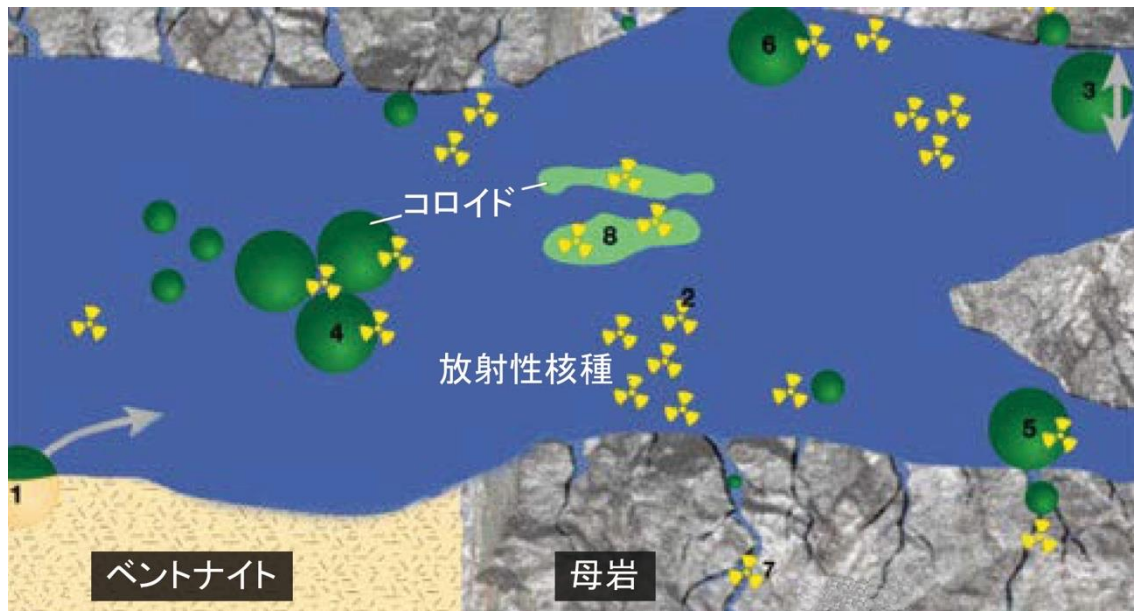
コロイドの重要性

コロイドは、人工バリアシステムの間隙水や地下水に溶解した放射性核種の移行に影響する可能性がある。例えば、

- ・ 天然のコロイドや地層処分施設由来のコロイドの岩石表面における収着／脱離
- ・ 無機コロイド（例：ベントナイト、キャニスタの錆、セメント）への放射性核種の収着
- ・ 人工バリアシステムと母岩中の間隙と微小亀裂におけるコロイドのろ過
- ・ 人工バリアシステムと母岩中のコロイドの大きさよりも小さい間隙によるコロイド浸透の

防止

- ・ 人工バリア材と母岩中の間隙内への放射性核種の拡散
- ・ 有機コロイド（例えば、セルロースを多く含む廃棄物や地下水から生じる）への放射性核種の収着または取り込み



想定されるコロイドの生成メカニズムと母岩の亀裂中での放射性核種の移行（例として、高レベル放射性廃棄物の地層処分施設におけるベントナイト/母岩境界でのコロイド生成）（Möri, 2003）

コロイドは、人工バリアシステムにおける間隙水や地下水中の放射性核種の移行において様々な影響を与える可能性がある（上記参照）。それらのうち、いくつか（例えばコロイドへの核種の収着）は移行速度を増加させる可能性があるが、いくつか（例えば放射性核種を収着したコロイドのろ過）は人工バリアシステム中の全体的な移行を減少させるでことになる。これらのプロセスは地表水や浅地中地下水において生じることが示されているが、人工バリアシステムの間隙水（および深地層の地下水）で、コロイドの数、コロイドへの放射性核種の収着率、コロイドの移行プロセスなどを特定することが困難であることから、深地層処分施設からの放射性核種の放出に対するコロイドの影響を定量的に定義するのは、非常に困難であることが明らかにされている。

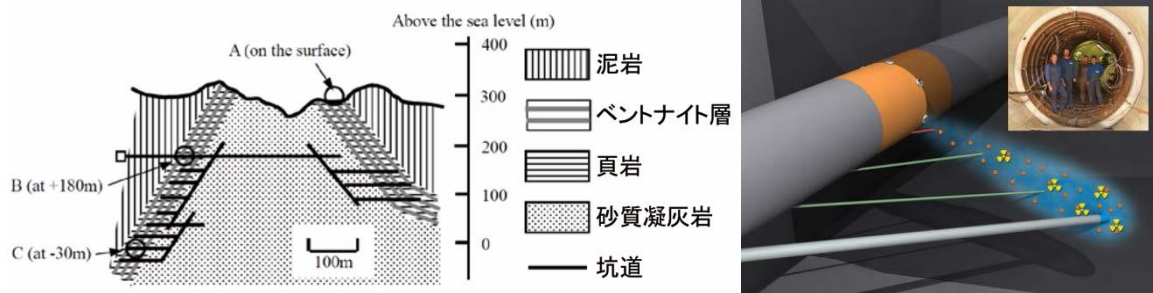
人工バリアシステムのコロイドのナチュラルアナログ

室内あるいはフィールドにおいて、人工バリアシステムのコロイドの研究に関していくつかの試みが行われてきた。近年では、低レベル放射性廃棄物や中レベル放射性廃棄物の地層処分施設におけるセメントコロイドの調査が実施されてきた。最近では、高レベル放射性廃棄物の地層処分施設における緩衝材由来のベントナイトコロイドの生成に焦点が当てられている。

高レベル放射性廃棄物の処分システムにおけるコロイドのナチュラルアナログ

一般に、廃棄物と容器の変質の過程で生成されたガラスや金属のコロイドは、ベントナイト中の非常に微細な細孔によってろ過されると仮定するのが合理的である。これには、サイトスペシフィックなセーフティケースでの検証が必要となる。このことから、地下水の流れによる物理的な洗堀や、進行する氷床の前面でかなりの深度まで汲み上げられた非常に希薄な氷河水によって凝集状態にあるコロイドが分散されることで生成されるベントナイトコロイドに、多くの研究の焦点が当てられている。

ベントナイトの洗堀については、数年間にわたる室内試験が実施されてきており、またスイスのグリムゼル地下岩盤研究所で実施中のコロイド研究の一環として再度詳細な調査が行われている。日本の月布ベントナイト鉱山におけるベントナイト洗堀のナチュラルアナログ研究から、トンネル内の様々な深度で収集された地下水中のコロイドは、非常に低い濃度であることが分かっている。しかしながら、これはナトリウムが豊富な地下水で想定されることであり、そうした条件下でコロイドは凝固し、地下水中に沈殿する傾向があるためである。



左：日本の月布ベントナイト鉱山の断面図。A～Cは、地下水の採取ポイント（Kuno et al., 2002）。右：グリムゼルにおいて、ボーリング孔（図中最前面の灰色の円筒部）内の亀裂部分に放射性核種を含んだベントナイトを注入している。ベントナイト洗堀とコロイド生成の程度を評価するため、トンネル（図中後方のオレンジの円筒部）内で地下水が採取される（www.grimzel.com）。

低中レベル放射性廃棄物の処分システムにおけるコロイドのナチュラルアナログ

過去15年間、セメントコロイドの室内試験はわずかながら実施されており、ナチュラルアナログ研究も1件のみ存在する。この研究は、天然のセメント領域を通るトンネル中のセメントと母岩の境界で地下水のサンプルが収集されたヨルダンのナチュラルアナログ研究の一部である。現地観察されたコロイドの数は、室内試験で観察されたものより1～3桁少なかった。



ヨルダン北部のマッカリンにある天然セメントを通るトンネル内で、コロイドは初期の条件下で収集された。トンネルの壁を覆う厚く白い物質は炭酸塩で、カルシウムが豊富で、二酸化炭素 (CO₂) の少ない高アルカリ性セメント水が、空気と接触した時に沈殿するものである (© Bedrock Geosciences)

不確実性と限界

- ・ 人工バリアシステムのコロイドのナチュラルアナログ研究は、今日まで非常に限られた数しか実施されていないため、そのデータは統計的には十分ではない。
- ・ 現地でのコロイドのサンプル採取は容易ではなく、何らかの形の人為的影響を避けることはほぼ不可能である。
- ・ 人工バリアシステムのコロイドのアナログデータと室内試験のデータの比較は、共通の室内試験方法がないために非常に困難である。したがって、様々な室内試験方法で測定されたコロイドの数について、容易に説明することはできない。
- ・ 人工バリアの室内コロイド試験は、概して地層処分施設を十分に再現しておらず、その結果はあまり重要視されない。

適用性 - 得られた知見

- ・ 現地でのサンプル採取は難しいが、自然系の中で得られたデータは、これまでの室内試験よりも深地層処分施設との関連性が高くなる。
- ・ このことから、現地で測定された少ないコロイド数は、室内試験で測定された多いコロイド数よりも現実的と考えられる。
- ・ より地層処分施設に関連性のある人工バリアシステムのアナログ研究が望まれる。一つの問題は、人工バリアシステムのアナログに取り組む様々な研究グループは、それぞれ様々な手法を採用していることから、相互比較が困難となっていることである。したがって、様々なデータについて意味のある相互比較を可能にするためには、共通の室内試験手法が必要不可欠である。

参考文献

AUQUÉ, L.F., GIMENO, M.J., GÓMEZ, J.B., PUIGDOMENECH, I. SMELLIE, J.A.T. AND TULLBORG, E-L. 2006.s Groundwater chemistry around a repository for spent nuclear fuel over a glacial cycle. Evaluation for SR-Can. *SKB Technical Report, TR-06-31*, SKB, Stockholm, Sweden.

Grimsel URL – www.grimse.com (see CRR and CFM projects).

KUNO, Y., KAMEI G. AND OHTANI, H. 2002. Natural Colloids in Groundwater from a Bentonite Mine - Correlation between Colloid Generation and Groundwater Chemistry. *Material Research Society Symposium Proceedings*, 713.

MÖRI, A. (ed). 2003. The CRR final project report series: 1 - description of the field phase - methodologies and raw data. *Nagra Technical Report, NTB 03-01*. Nagra, Wettingen, Switzerland.

Nantes (2010) Proc. Conference on Clays in natural and engineered barriers for radioactive waste confinement. 4th International meeting, March, 2010, Nantes, France. *Special Issue of Andra's Science and Technology Report Series*, Andra, Paris, France.

PUURA, E. 2010. Impact of the changes in the chemical composition of pore water on chemical and physical stability of natural clays: a review of natural cases and related laboratory experiments and the ideas on natural analogues for bentonite erosion/non-erosion. *SKB Technical Report, TR-10-24*, SKB, Stockholm, Sweden.

SWANTON, S. AND ALEXANDER, W.R. 2010. Review of the behaviour of colloids in the near field of a cementitious repository. *NDA Technical Report* (in press), NDA, Moor Row, UK.

SWANTON, S. BERRY, J.A. KELLY, M.J. AND ALEXANDER, W.R. 2010. Review of colloids in the geosphere and their treatment in performance assessment. *NDA Technical Report* NDA, Moor Row, UK.

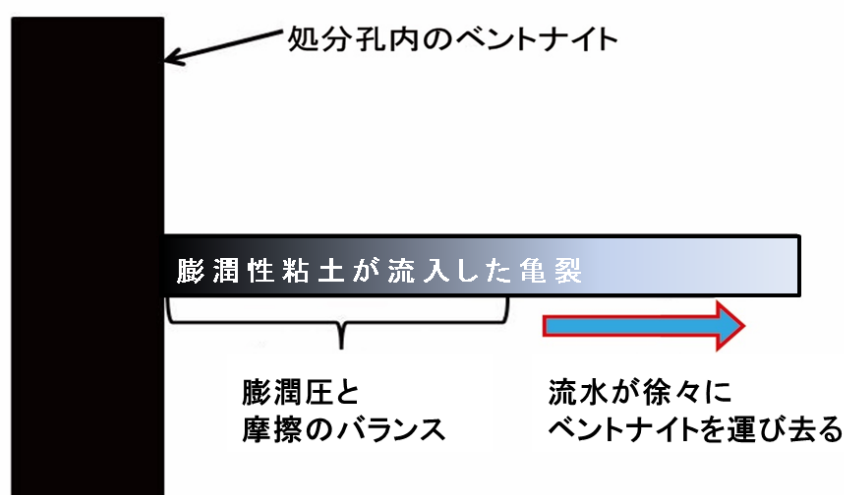
事例 16 : ベントナイト : 地層処分施設の深度で洗掘は起こりうるか？

概要

地層処分施設におけるベントナイトの役割

放射性廃棄物の地層処分施設の人工バリアシステムは、比較的シンプルでその特徴がよくわかっている材料を大量に使用することが特徴である。例えば、高レベル放射性廃棄物や使用済燃料の地層処分施設の多く、また低レベルから中レベルの放射性廃棄物の地層処分施設の中には、廃棄物パッケージやキャニスタの周辺の埋め戻し材や緩衝材として、圧縮ベントナイト粘土を使用するものがある。ベントナイトが選ばれた理由は、廃棄物の隔離と閉じ込めに好ましい特性があるからで、具体的には、可塑性、膨潤性、コロイドろ過能、低い透水係数、主要な放射性核種の移行遅延性、および地層処分の地質環境におけるその安定性である。しかしながら、変化する地下水条件下のベントナイトの寿命、特にその重要なバリア機能に資する膨潤性の粘土成分（スメクタイト）の安定性に関する研究はほとんどない（Reijonen and Alexander, 2015）。

薄められた地下水はベントナイト洗掘を引き起こす可能性があり、塩水の地下水は人工バリアシステム中のベントナイトの膨潤圧を低下させる可能性があるため、広範な塩分濃度の地下水を対象としたベントナイトの安定性が研究対象となる。例えば、高緯度にある地層処分施設サイトは遠い将来、氷河作用を受ける可能性があり、そのような事象が起こると、氷河の下の希薄な地表水が厚い氷体（数百～数千m）の下で受ける高圧によって母岩中に押し下げられる可能性がある。さらに、長期の温暖な気候の期間に生成される多量の地表水が地下深部に流入することによって、深部の地下水が希釈される可能性もある。



人工バリアシステム中のベントナイトは膨潤し、地層処分施設の母岩の亀裂内に押し出される可能性があり、そのため全体的なベントナイトの密度が減少する。これによって、ガス破過、ベントナイト洗掘、ベントナイトと地下水の境界におけるコロイド生成が起こりうる

懸念事項は何か？

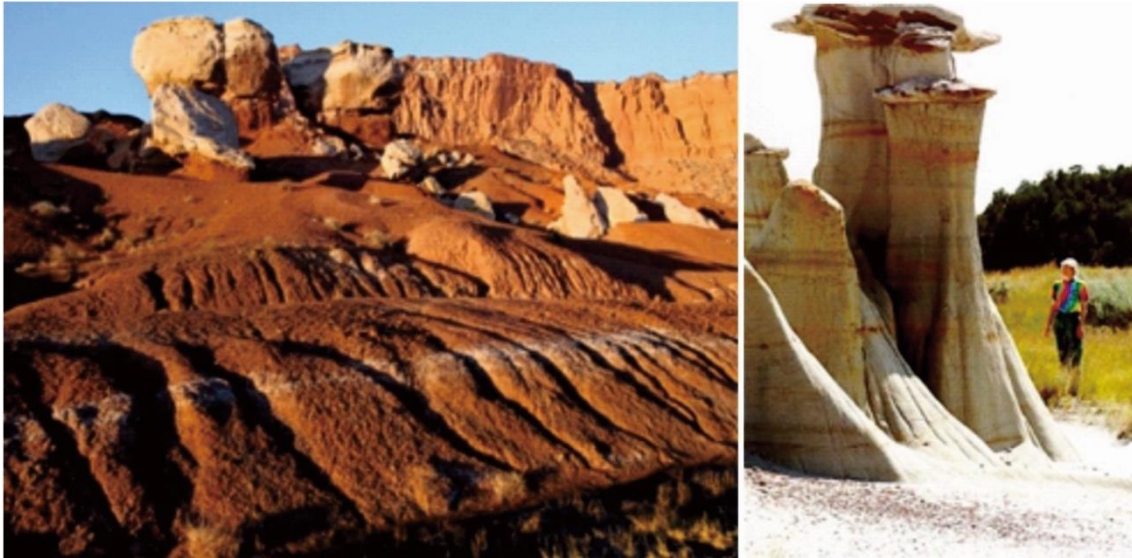
地層処分施設内で使用されるベントナイトは、初期には圧縮され乾燥しているが、その後周囲の岩盤からの地下水の吸収によって飽和するため、高い膨潤圧が発生する。そして、膨潤したベントナイトは、周囲の岩盤の亀裂に入り込む。亀裂への押し出しによって、ベントナイトの密度が非常に低くなれば、地下水の流動または滞留した地下水中の粒子の拡散によって、ベントナイト中のコロイドと同等の大きさの粘土粒子は、分離して浮遊し、緩衝材から離れていく。

ベントナイトが地下水と接触する領域における、こうした粘土粒子の発生は、以下の複数の理由から重要である。

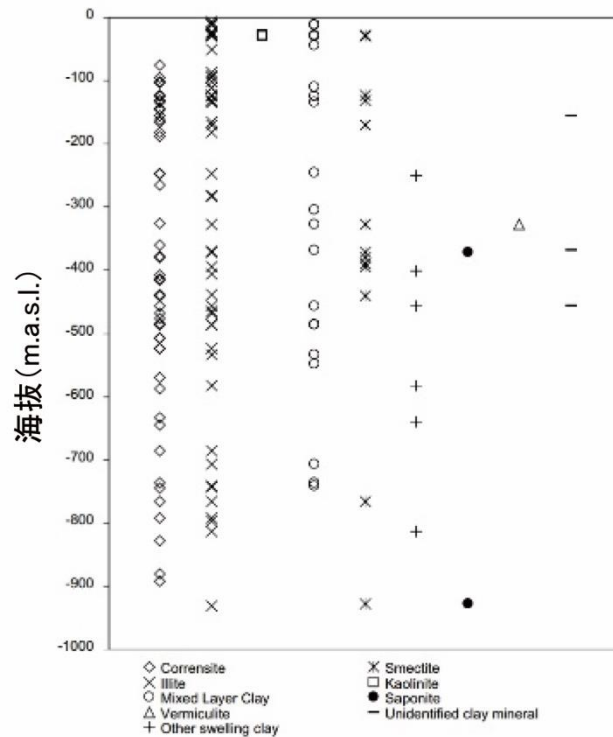
- ・ もし多量のベントナイトが、この侵食プロセスによって除去されれば、ベントナイトのバリア特性が損なわれる恐れがある。例えば、低膨潤圧によって、廃棄物から生成されたガスが人工バリアシステムから噴出し、これに伴い廃棄物から溶出された放射性核種が移行する可能性がある。
- ・ 廃棄物パッケージから溶出する放射性核種の大部分は、ベントナイトに強く収着すると考えられるものの、ベントナイトコロイドの流出が、地層処分施設の母岩から地表への放射性核種の移行に影響する可能性がある (Alexander et al., 2011)。
- ・ 廃棄物キャニスタの周囲からベントナイトが物理的に洗掘され、除去されることにより、地下水がより容易にキャニスタへ到達するようになり、その結果腐食が速くなる。

ベントナイト洗掘のナチュラルアナログ研究

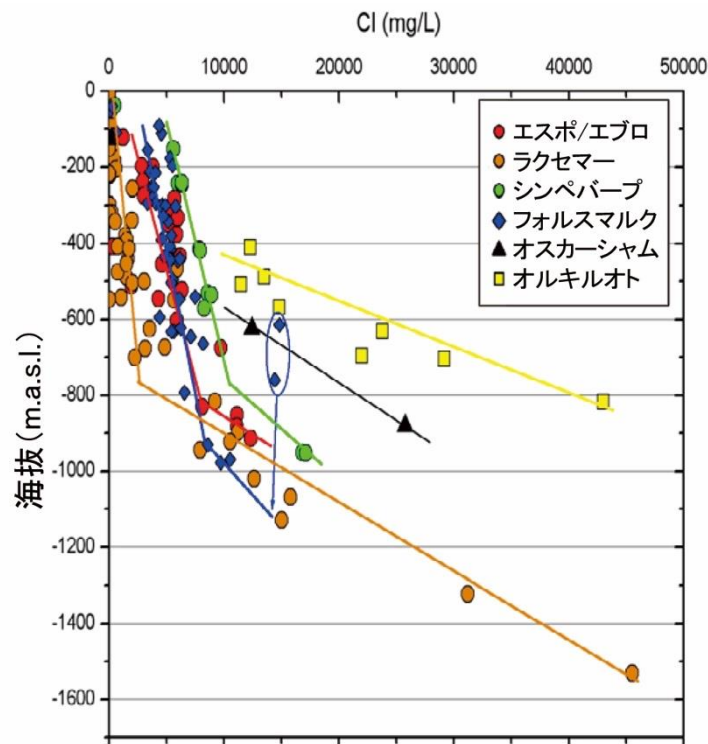
Reijonen and Alexander (2015) は、ベントナイト洗掘のナチュラルアナログ研究は少ないが、氷河期の侵食プロセスまたはベントナイト堆積物中への地表水の浸潤は、研究対象となりうると述べている。ベントナイト堆積物は、多くの場合広大であり、侵食プロセスは比較的速い地表水の排水と、その結果として生じる斜面の不安定性が主要な部分を占める。したがって、地表のベントナイト堆積物の多くは、コロイド移行による侵食量を評価することは、不可能ではないにしても困難である。そのため、地下水の流れが非常に遅いと予想される地下のベントナイト堆積物を研究するほうが、地層処分施設で予想される条件を厳密に再現している可能性が高いため、より有益であると考えられる。



米国ノースダコタにおける地表のベントナイト堆積物の侵食事例。左の写真では、ベントナイト中に深い溝があることから、流れの速い地表水は物質を大量に除去することがわかる。このことは右の写真でより明確に確認できる。ベントナイト堆積物の元々の表面は、写真内の右側に立っている人物より約3m高い位置にある（写真の出典：Bluemle, 1991）



スウェーデン フォルスマルクにおいて、XRDで確認された様々な粘土鉱物の深度分布 (Sandström et al. 2008)



スウェーデンとフィンランドの様々なサイトにおける現在の地下水の塩素濃度（塩分濃度）の深度依存性 (Smellie et al. 2008)

現在までのベントナイトコロイドの唯一のナチュラルアナログ研究として、Kuno et al. (2002) は、日本のベントナイト鉱山を流れる地下水によるベントナイト洗掘の調査を実施し、その洗掘の程度が分析装置の測定限界以下であったことを示している。この結果は有望である一方、コロイドの検出限界値が高く (1 mgL^{-1} , Alexander et al., 2011の考察を参照)，地下水の正確な流速も測定されていないことから、本研究の有用性には限界がある。正確な流速が測定されていないのは、稼働中の鉱山へのアクセスおよびサンプル採取が常に困難であることと、ベントナイト鉱山がいずれにせよ希少である点から理解できる。このことから、地層処分施設のベントナイト洗掘によって起こりうる結果を調べるという代替アプローチを講じることとなった。

人工バリアシステムのベントナイト洗掘による影響を評価するために、天然の母岩のス멕タイト（ベントナイト中の主要な粘土鉱物）を使用できる可能性については、当初、Arthur and Savage (2012) によって、スウェーデンのフォルスマルクの地層処分施設の候補サイトに関する情報のレビューを行った際に提起された。彼らは以下のように述べている。

「サイトの鉱物学的データ・・・から、全ての深度においてフォルスマルクの亀裂にス멕タイトとカルサイトが生じることがわかる。過去の氷河活動によって、これらが除去および溶解された証拠はない。このナチュラルアナログは、過去の氷河活動の間に、これらの鉱物は溶解、洗掘されなかった可能性があることを示している。」

言い換えれば、氷河の影響にもかかわらずフォルスマルクにス멕タイトが継続的に存在するこ

とは、結局のところ希薄な系でもスメクタイトは安定性である可能性があることを示唆している。今日までスメクタイトは、フィンランド、スウェーデン、スイス、カナダなど、複数の国々の地層処分施設の候補サイトから発見されている。例えば、フィンランドでは、地層処分施設の候補サイトとして検討された他の4地域とともに、フィンランド西部のオルキルオトにおける地層処分施設の候補サイトから採取された亀裂性の物質からスメクタイトが見つかった。

フォルスマルクの地層処分施設の候補サイトでは、調査によって母岩全体からスメクタイトが見つかった。フォルスマルクの亀裂系の年代測定から、スメクタイトは少なくとも、2億5,000万年間存在していたことが示唆されている。

実際に、スメクタイトはフィンランドとスウェーデンの少なくとも5つの他の地層処分施設候補サイトの母岩で確認されており、フェノスカディアン盾状地の硬い結晶質岩中に広く豊富に鉱物が存在していることを示している。これらのサイトにおける母岩の深部地下水は、地層処分施設のサイト調査中に詳細に研究されている。調査データによって希薄な水の存在領域が分かり、また母岩の鉱物組成と比較することで、希薄な水の存在下でスメクタイトが存続していた領域を調べることも可能である。

この知見は、短期の室内試験と現在実施中の地下研究施設での研究から得られている、地層処分施設における希薄な水によるベントナイト洗掘は深刻な問題とはならないという結論を、将来的に氷河作用を受ける期間でさえも深刻な問題とならないということを裏付ける。

不確実性と限界

- Kuno et al. (2002) の研究データは不完全であり、人工バリアシステムのベントナイト洗掘は問題ではないかもしれないということを概略的に示すものとして以外では、有用性はあまりない。
- スウェーデンとフィンランドにおける、地層処分施設のサイト特性調査中に収集されたデータは、ベントナイトの洗掘プロセスの検討をサポートすることを意図したものではなく、直接的な利用はできない。例えば、人工バリアシステム（および既存の室内試験と地下研究施設における試験）のベントナイトとの比較を可能にするために、スメクタイトの膨潤特性と粒子の大きさの把握が必要となるが、こうしたパラメータは測定されていない。
- フォルスマルクのスメクタイトは年代測定されているが、他の地層処分サイトのスメクタイトの年代についてはほとんど分かっていないため、地層処分に適用可能な非常に長期の時間スケール（数千～数十万年間）での関連性についても分かっていない。
- 英国の地層処分施設にとって、候補サイトにおける天然のスメクタイトの寿命を評価することは有益であろう。しかしながら、深部地下水と母岩内に存在する粘土の種類は、サイト特性調査中に調べられる可能性が高いため、既存の室内試験、地下研究施設およびナチュラルアナログによるデータと比較するための原位置データは容易に用意できる。

適用性 - 得られた知見

- ・ 現在入手可能なデータに基づくと、地層処分施設の人工バリアシステムにおけるベントナイトの洗掘が、深刻な問題となるとは考えにくい。しかしながら、今日まで収集されたデータは、概略的であるため結論づけることはできない。
- ・ 地層処分施設の候補サイトに存在する天然のス멕タイトに特化した研究が、より確証的な証拠のために必要である。そうした研究は、Reijonen and Alexander (2015) によってフィンランド、スウェーデンおよびカナダのサイトに対して提案された。これは、既存の室内試験と現在実施中の地下研究施設の試験の裏付けとなる、ナチュラルアナログのデータベースを大幅に向上させるであろう。

参考文献

- ALEXANDER, W.R., BERRY, J.A., KELLY M.J. AND SWANTON, S. 2011. Review of colloids in the geosphere and their treatment in performance assessment. *Serco Report Serco/TAS/002924/01*, Serco, Didcot, UK.
- ARTHUR, R. AND SAVAGE, D. 2012. Equilibrium constraints on buffer erosion based on the chemistry and chemical evolution of glacial meltwaters. *Proceedings of the 5th International meeting on Clays in Natural and Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement*. 22-25 October, 2012, Montpellier, France.
- BLUEMLE, J.P. 1991. The face of North Dakota, revised edition: *North Dakota Geological Survey Educational Series 21*, North Dakota Geological Survey, USA.
- CHAPMAN, N.A. BALDWIN, T. NEALL, F. MATHIESON, J. AND WHITE, M. 2009. Design Options for the UK's HLW Geological Disposal Facility. *Radwaste Solutions*, **16**, 44-54.
- KUNO, Y., KAMEI G. AND OHTANI, H. 2002. Natural Colloids in Groundwater from a Bentonite Mine - Correlation between Colloid Generation and Groundwater Chemistry. *Material Research Society Symposium Proceedings*, 713MISSANA, T. (EDITOR) 2015. Proceedings of the 3rd annual workshop of the EU BELBAR project. Ciemat, Madrid, Spain. ISBN: 978-84-7834-831-5.
- MÖRI, A. (EDITOR). 2004. The CRR final project report series I: description of the field phase – methodologies and raw data. *Nagra Technical Report, NTB 03-01*, Nagra, Wettingen, Switzerland.
- NERETNIEKS, I. LIU, L. AND MORENO L. 2009. Mechanisms and models for bentonite erosion. *SKB Technical Report TR-09-35*, SKB, Stockholm, Sweden.
- POSIVA 2012. Safety case for the disposal of spent nuclear fuel at Olkiluoto – Design Basis 2012. *Posiva Report, R-2012-03*. Posiva, Eurajoki, Finland.
- REIJONEN, H.M. AND ALEXANDER, W.R. 2015. Bentonite analogue research related to geological disposal of radioactive waste – current status and future outlook. *Swiss Journal of Geosciences*, **108**, 101-110. [DOI 10.1007/s00015-015-0185-0].
- SANDSTRÖM, B., TULLBORG, E-L., J. SMELLIE, .A.T., MACKENZIE, A.B. AND SUKSI, J. 2008. Fracture mineralogy of the Forsmark site: final report. *SKB Technical Report, R-08-102*, SKB, Stockholm, Sweden.

SCHATZ, T. KANERVA, N. MARTIKAINEN, J. SANE, P. AND KOSKINEN, K. 2013. Buffer erosion in dilute groundwater. *Posiva Report, WR-2012-44*. Posiva, Eurajoki, Finland.

SMELLIE, J.A.T., TULLBORG, E-L., NILSSON, A-C., SANDSTRÖM, B., WABER, H.N., GIMENO, M. AND GASCOYNE, M. 2008. Explorative analysis of major components and isotopes. SDM-Site Forsmark. *SKB Report, R-08-84*, SKB, Stockholm, Sweden.

VIDSTRAND, P. FOLLIN, S. AND ZUGEK, N. 2010. Groundwater flow modelling of periods with periglacial and glacial climate conditions Forsmark. *SKB Report, R-09-21*, SKB, Stockholm, Sweden.

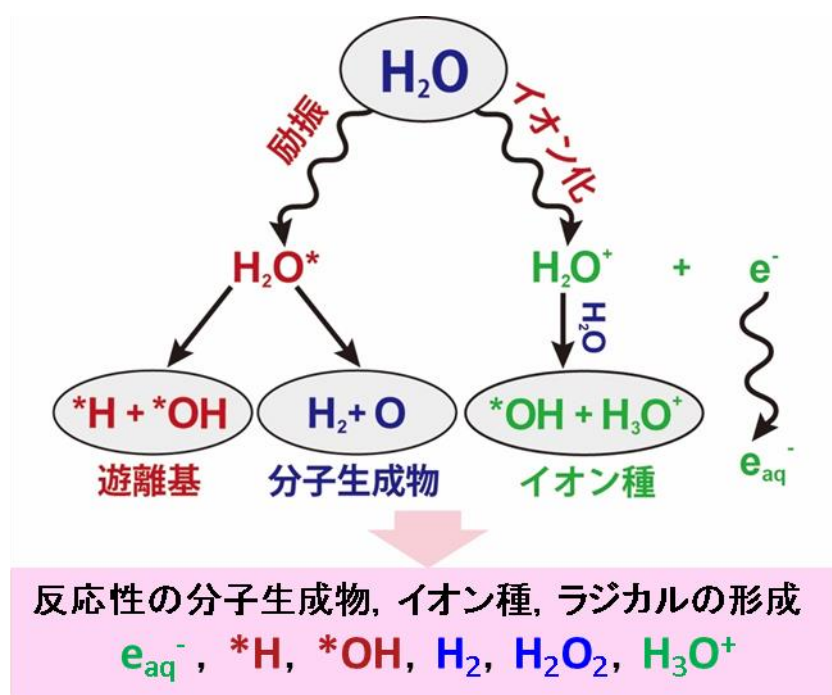
WILSON, J. SAVAGE, D. BOND, A. WATSON, S. PUSCH, R. AND BENNET. D. 2011. Bentonite: a review of key properties, processes and issues for consideration in the UK context. *Quintessa Report, QRS-1378ZG-1.1*. Quintessa, Henley-on-Thames, UK.

事例 17：放射線分解

概要

放射線分解の特性

大規模な放射線場が、使用済燃料、高レベル放射性廃棄物、および一部の高線量の中レベル放射性廃棄物の地層処分施設のニアフィールド内に存在しうる。そして、これらは廃棄物または人工バリアシステム中のいくつかの材料（例：セルロース、ピッチューメンおよび他の有機材料）の放射線分解を引き起こす可能性がある。重要な問題となる可能性があるのは、閉鎖後の地層処分施設で再飽和した結果、人工バリアシステム内に存在する地下水の放射線分解である。放射線分解とは、放射線の作用によって水分子が、その構成要素である酸素（活性酸化剤）、水素（還元剤）および他の化学種に分解することである。地下水がキャニスタ内の廃棄物と接触すると、この影響が顕著になる。これは、いくつかの中レベル放射性廃棄物の設計において通気口を設けているキャニスタから、もしくは高レベル放射性廃棄物用や使用済燃料用の、完全に密閉されキャニスタの割れ目や穴から、水が侵入した時に起こる。



水の放射線分解による反応種の形成を示す概念図 (Nilson, 2008の図を参考に作成)

多くのセーフティケースでは、ニアフィールドで酸化剤（酸素、過酸化水素、水酸化物など）が増加することを想定している。なぜなら、主要な還元剤である水素ガスは比較的不活性であり、人工バリアシステムの外側に速やかに拡散していくからである。その一方で、酸化剤は反応性が高く、ゆっくりと拡散する。これによって、廃棄物から、人工バリアシステム、最終的には母岩まで移行する、ゆっくりと動く酸化還元フロントが形成される。酸化還元フロントとは、一方を酸化性の（酸化剤が豊富な）岩と地下水に、もう一方を還元性の（還元剤が豊富な）岩と地下水に分ける境界で

ある。酸化還元フロントの移行の程度は、放射線分解によるキャニスタ内での酸化剤の生成と、人工バリアシステム内の鉄物質（例：廃棄物キャニスタの鋼、ベントナイト緩衝材に含まれる黄鉄鉱）や岩石内の鉄物質（例：黄鉄鉱）による酸化剤の消費のバランスによって決まる。

鋼製キャニスタは、車が錆びて最終的にはバラバラになってしまうのと同じように、最終的には腐食する。しかしながら、放射性廃棄物処分における懸念は、水の放射線分解によって生成する酸化剤や他の反応種が、金属製キャニスタの腐食を促進し、キャニスタの早期の破壊につながることである。さらに、酸化性の領域では使用済燃料の溶解が加速され、廃棄物から溶出した放射性核種のいくつかは、長期間溶解したまま、ベントナイトを通り抜けて母岩中へ拡散し、その結果、地層処分施設からの放射性核種の流出が増加する。



岩石中の小規模の酸化還元フロント（注：ナイフはスケールの比較のため設置）。左側のオレンジがかった赤の部分が酸化領域で、右側の灰色の部分が還元領域（Waber et al., 1990）。

ナチュラアナログ研究で取り組むことができる放射線分解に最も関連のある事項は、以下のとおりである。

- ・ 地下水の放射線分解に関わるプロセス
- ・ 放射線分解が自然界でどの程度起こりうるか
- ・ 鋼製キャニスタをはじめとした人工バリアシステムの構成要素の腐食により生成した、還元された鉄腐食相が酸素を吸収する可能性

放射線分解のアナログ研究

地層処分施設と関連する条件下での放射線分解の詳細なアナログ調査は、オクロにある天然の核分裂原子炉で初めて実施された。この研究は、放射線分解が原子炉領域内で起こり、酸化還元フロントが形成され、それが母岩内まで移行したことを示した。

原子炉領域の放射性核種のインベントリから、約80%のモリブデン、約35%のテクネチウムおよび約25%のルテニウムが失われていることがわかった。放射線分解によって、これらの元素は酸化形態へ変換され、拡大する酸化還元フロントの後方で原子炉領域の外へ移行したことが示唆される。その後、これらの元素は還元され、酸化還元フロント移行の限界を示す堆積領域に沈殿する。残念ながら、この現象のいくつかの重要な部分に関するデータが欠如していること（例えば、水素ガスに関する挙動）、また処分場と比較した際のいくつかの相違点（例えば、オクロ天然原子炉における最高温度は600℃であり、地層処分施設で予想される温度よりはるかに高いため、一部の反応速度を上昇させた可能性がある）から、地層処分施設のセーフティケース評価に直接的には使用することはできない。しかしながら、研究結果はこのプロセスが地層処分施設で起こりうることを示唆している。



- (a) 長年の間、使用済燃料の腐食について室内試験が実施されてきた (EU-JRC)
 (b) シガーレイク鉱体のコア部分。右側にあるのが、黒い還元ウラン鉱石。そして、その鉱石と周囲の酸化した粘土（白）の間にあるのが、酸化還元フロントと推測される赤い酸化鉄部分 (©John Smellie, Conterra)

カナダのシガーレイクにおける放射線分解研究では、放射線分解による生成物がウラン鉱石の酸化と変質に影響しうるかどうか、および人工バリアシステムのアナログにおいて、放射線分解は鉱石と粘土の境界で酸化鉄領域を形成するかどうかを検証することに焦点が置かれている。シガーレイクにおける調査から、放射線分解による生成物が地下水と鉱物の両方に存在していたことが示された。これらのデータは、使用済燃料の腐食モデルの検証に用いられた。仮に使用済燃料の腐食が特定の閾レベルを越えれば、放射性核種の放出の可能性が大幅に高まる。予備的な検証の結果、室内試験により得られた腐食速度を使用したモデルによる予測よりも、腐食が顕著ではないことがわかった。これにより、スウェーデンの地層処分システムの全体のプロセスが再検討され、現在のモデルではシガーレイクでの観測結果をより厳密に再現するようになった。これはナチュラルアナログのデータを、性能評価モデルの開発と改良に使用した好事例である。

1990年代の研究によって、放射線分解は高放射線場ではない多くの自然環境中で生じる可能性があることが示され、それ以降、酸化還元フロント中、またはその周囲における放射性核種のトラップに関するより詳細な調査が行われるようになった。

不確実性と限界

- ・ 現在、自然環境における放射線分解の事例は多数知られているが、地層処分施設と関連性があるデータは、オクロとシガーレイクのデータのみである。しかしながら、オクロの研究は分析したサンプルの少なさが問題視されているため、実質的に放射線分解モデルの裏付けに使用できるアナログはシガーレイクのデータのみである。
- ・ 他の鉱体における定性的なデータは、地層処分施設における放射線分解に関する完全なメカニズムの理解は未だに不足していることを示唆している。

適用性 - 得られた知見

- ・ 前世代の使用済燃料の腐食モデルをナチュラルアナログのデータと比較して検証した結果、短期の室内試験データに基づいたそのモデルは腐食速度を過大評価していることが分かった。これにより、ナチュラルアナログデータをより厳密に近似するモデルの改良に至った。

参考文献

FINCH, R.J.AND EWING, R.C. 1992. The corrosion of uraninite under oxidising conditions. *Journal Nuclear Materials*, **190**, 133-156.

HOFMANN, B.A. 1999. Geochemistry of natural redox fronts - a review. *Nagra Technical Report*, **NTB 99-05**, Nagra, Wettingen, Switzerland.

NILSON, S., 2008 Influence of fission products and irradiation on the rate of spent nuclear fuel –matrix dissolution. Licentiate thesis KTH Stockholm.

SMELLIE, J.A.T.AND KARLSSON, F. (eds) 1996. The Cigar Lake analogue project: a re-appraisal of some key issues and their relevance to repository performance assessment. *SKB Technical Report*, **TR 96-08**, SKB, Stockholm, Sweden.

WABER, N., SCHORSCHER, H.D., MACKENZIE A.B.AND PETERS T. 1990. Mineralogy petrology and geochemistry of the Poços de Caldas analogue study sites, Minas Gerais, Brazil I: Osamu Utsumi uranium mine. *SKB Technical Report*, **TR 90-11**, SKB, Stockholm.

POSIVA 2012. Safety case for the disposal of spent nuclear fuel at Olkiluoto synthesis. *Posiva Technical Report*. **2012-12**. Posiva Oy, Olkiluoto, FI-27160 Eurajoki, Finland.

3. 天然バリアシステム

3.1 亀裂性結晶質母岩の長期性能

事例18 : セラフィールド : 地下水システムへの将来の気候変動影響の予測のための古水理地質学の利用
概要

放射性廃棄物の地層処分施設 (GDF) のためのセーフティケースにおける重要な要件は、一般的には100万年に至る廃棄物が有害である間、気候変動が地層処分施設の深度の地下水システムの化学的性質に悪影響を及ぼさないことを論証することである。よって、将来の気候変動が深部地下水システムに影響を及ぼす可能性は、地層処分施設のセーフティケースの主要なテーマとなる。ヨーロッパ北部における過去260万年間 (第四紀) の気候は、氷河期と現在よりも温暖な気候条件との間で変化した。

現在の気候は、第四紀の大半の期間続いた典型的な気候ではなく、現在の地下水条件は、長期的な地層処分施設の安全性を評価する際の基準でもないとも言える。よって、過去の第四紀の気候変動影響 (すなわち、「古水理地質学」) の研究は、現在の地下水システムの将来の気候変動への反応予測のための、有益な知見となる可能性がある。英国において特に懸念されるのは、氷河期に地層処分施設の深度まで酸化した地下水が浸透することによって、一部の超ウラン放射性核種の移動性が増す可能性があることである。

フランドリアン	10,000-0 年前	温暖
ディベンシアン	11,000-10,000 年	周氷河
	14,000-11,000 年	寒冷/温暖
	25,000-14,000 年	氷河
	50,000-25,000 年	周氷河
	60,000-50,000 年	温暖/寒冷
	70,000-60,000 年	氷河
	110,000-70,000 年	周氷河/寒冷
イプスウィッチア	130,000-70,000 年	温暖/やや暑い
ウォルストニアン	270,000-130,000	氷河/温暖/周氷河
ホクソニアン	319,000-400,000	温暖/やや暑い
アングリアン	400,000-460,000	氷河
クローマリアン	460,000-880,000	温暖/氷河/温暖

過去900,000年間の英国の気候状態 (Milodowski et al., 2005より)

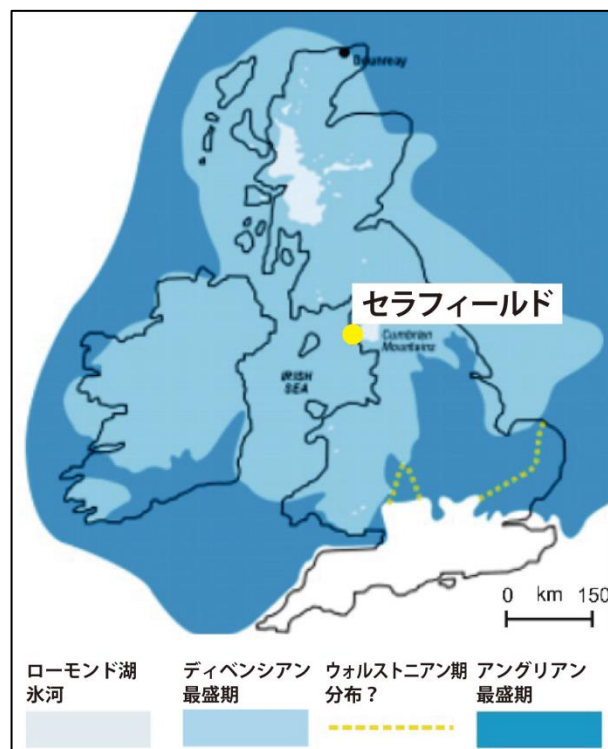
セラフィールド

セラフィールドは、英国北西部の西カンブリアにある。沿岸部の地下水システムは、浅層淡水、深部塩水およびブライン（高濃度の塩水）によって構成され、第四紀中の複数回の氷河作用と周氷河作用の影響を受けている。セラフィールドは、古水理地質学研究の最前線であり、初期には英国のNirex社、そして最近では欧州共同体（EC）が出資した「EQUIP」と「PADAMOT」プロジェクトが実施されている。

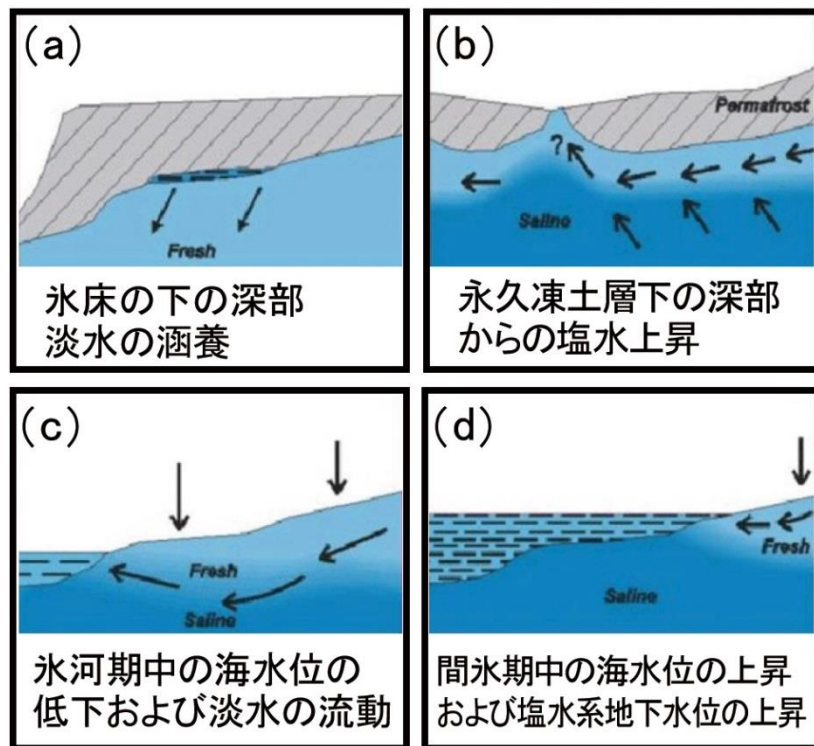
西カンブリアのセラフィールドにあるペルム紀—三畳紀、石炭紀およびオルドビス紀の一連の層序からなる地層に掘られた23本の深層ボーリング孔中の亀裂鉱化作用の詳細な岩石学的分析によって、ME1～ME9と呼ばれる複雑な鉱化現象が確認された。鉱化の大部分は地質年代が古い（古生代—中生代）が、一番新しい（ME9）方解石（CaCO₃）鉱化の分布は、現在の地下水流動と密接に相関している。また、過去の地下水流動の起源と年代を解明するために、塩素36の研究を含む地下水の地球化学特性の詳細調査が行われてきた。

地下水のシナリオ

化学組成と地下水流動は、地層処分施設と放射性核種の閉じ込め性能、放射性核種の移動性、および地下水中の移動速度に影響する主な要因である。また、（サイト特性によっては）地層処分施設相当の深度から地表までの移動も、上記に含まれる可能性がある。



セラフィールドの位置。イギリス諸島の西カンブリアにおける第四紀の氷河作用の範囲（Milodowski et al., 2005より）



気候変動状態に応じた、ヨーロッパ北部の沿岸地域における地下水の変化予測の一般的なシナリオ図 (Milodowski et al., 2005より)

セラフィールドにおける古水理地質学的研究

現在までの古水理地質学的研究は、主に一番新しい (ME9) 方解石鉱化に焦点を当ててきた。この鉱化は現在の地下水システムと密接に関係しており、サイト全体の亀裂の少なくとも深さ1.5 kmまで進行している。方解石は、理想的な研究対象である。なぜなら、対象の深度範囲と時間スケール内において、低温で結晶が成長し、そして、過去の地下水条件の情報を、以下のように様々な形で記録できるからである。

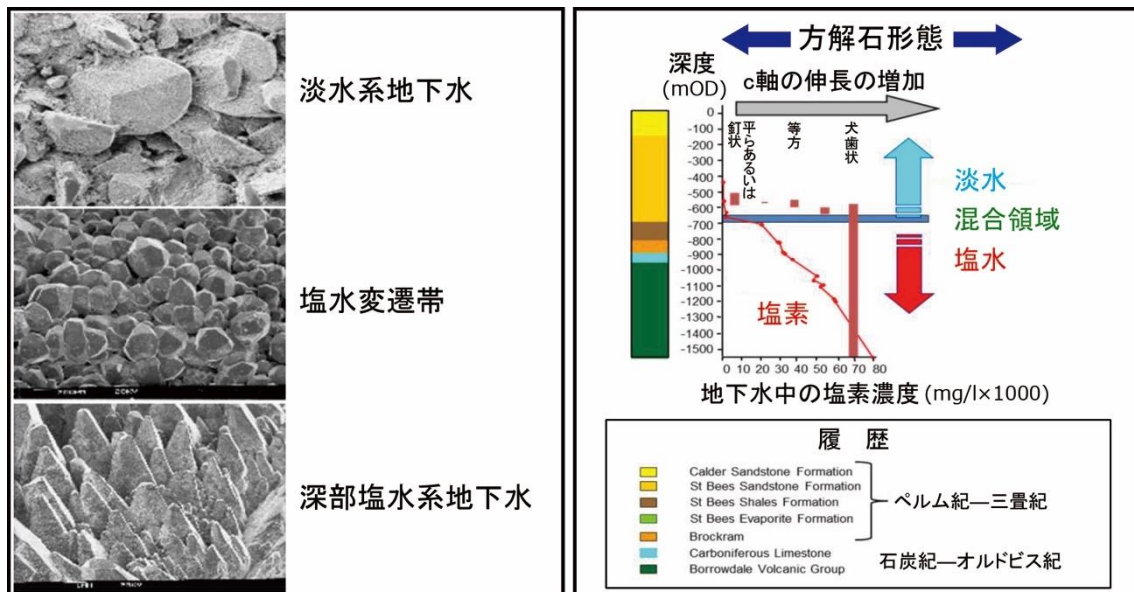
- ・ 結晶形状が、地下水の塩分濃度によって体系的に変化する。
- ・ 成長帯には、地下水組成の物理的および化学的な記録が残されている。
- ・ 結晶は一部の地下水条件で溶解し、表面が溶食する。
- ・ 微量元素は、地下水の酸化（「酸化還元」）状態を反映している。
- ・ 酸素と炭素の安定同位体は、地下水温度と溶解炭素源を反映する。
- ・ 流体包有物（成長結晶に閉じ込められた小規模の地下水）によって、過去の地下水の化学組成と温度が明らかになる。

ME9方解石の分布は、地下水流動と相関することが明らかになっている。その結晶形態は、地下水の塩分濃度の変化によって体系的に変化する。具体的には、淡水帯では「釘頭状の」結晶が、塩分濃度が上がると「犬歯状の」結晶に変わる。

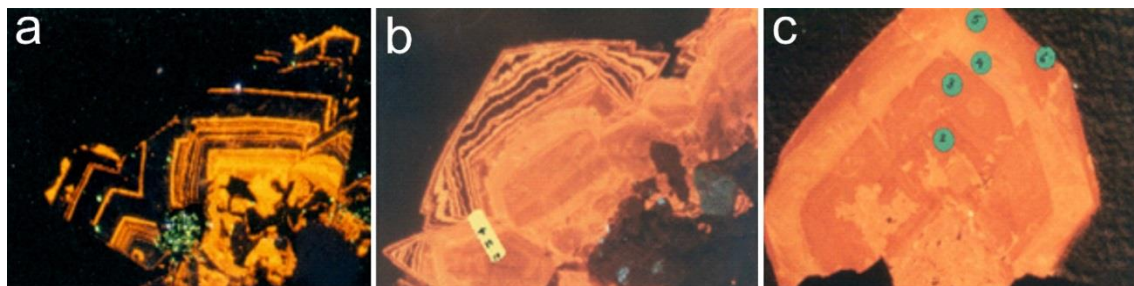
こうした一番新しい方解石結晶の岩石学および微量化学的分析によって、結晶は鉄とマンガン

の量の変化を反映して、顕著な成長帯となることが明らかになった。カソードルミネッセンスや化学的な累帯構造特性における変化も、現在の淡水と塩水系地下水領域の位置と密接に相関していることが、塩水系方解石のコア上において、淡水系方解石の過度の成長が見られる淡水と塩水の境界に成長した方解石の結晶によってわかる。

また、この一番新しい方解石の流体含有物データとストロンチウム同位体比も、比較的最近の地下水からの低温 (<80°C) 沈殿と整合している。



左：現在の地下水の塩分濃度の深度変化を反映した、方解石形態の組織変化を示すSEM画像
 右：セラフィールド BH 10Aからの方解石の形態型ごとの分布 (©British Geological Survey)



カソードルミネッセンス (CL) 画像：(a) 淡水帯 (セラフィールド BH PRZ2, 243 m)，(b) 塩水変遷帯の真上の形態変遷帯 (セラフィールド BH 10A, 558 m)，(c) 塩水変遷帯 (セラフィールド BH RCF1, 885 m) (Milodowski et al., 2005より)

炭素と酸素の安定同位体分析から、非常に様々な成長帯があること、また、氷河による涵養水を大量に含む地下水から沈殿した方解石が存在していたことがわかる。

現在の地下水流動システムにおいて、沈殿した方解石の希土類元素 (REE) の地球化学的パターンから、酸化条件 (すなわち、セリウムはCe⁴⁺として挙動) を示す淡水帯内だけに、著しい負のセリウム異常があるのがわかる。しかし、塩水帯の深部では方解石中のセリウムは還元され (すなわ

ち、 Ce^{3+} ），そして別の3価希土類元素として挙動する。これにより，方解石が含有する Fe^{2+} と Mn^{2+} の存在とともに，氷河の涵養水の進入にもかかわらず，鉍化作用中に地下水が還元状態を保ってきたことがわかる。

不確実性と相違

- ・ 将来の気候変遷は，過去のパターンや，その影響と一致しない可能性がある。
- ・ 人為的影響，特に温室効果ガス排出は，地球圏における将来の気候変動の自然パターンとその影響の規模を大幅に変更する可能性がある。
- ・ 一番新しい（ME9）方解石鉍化が第四紀中に形成され，現在の地下水の流動システムと相関していることは実証できるが，個々の成長帯の正確な年代測定は未だに不可能である。よって，具体的な氷河活動の影響は特定できない。

適用性 - 得られた知見

- ・ 英国に関して，現在の気候は温度あるいは降水量の点から，第四紀の気候を代表していない。過去の気候変動とその影響を，将来の気候変動と影響の予測のために参考にすべきである。
- ・ 古水理地質学的研究は，過去の地下水への気候変動影響の直接的な証拠となる。また，気候変動の原因に応じた将来の地下水変遷のサイトスペシフィックなモデルの想定範囲を設定する際に，重要な役割を果たす。
- ・ 深部地下水システムにおける現在の亀裂間隙率の大部分の分布は，二次的に生じたものであり，これは初生的な亀裂構造と広域応力パターンではなく，地質年代が古く（中生代），反応性あるいは可溶性の亀裂鉍物の分布と溶解に支配される。
- ・ 第四紀以前の鉍物が溶解し，第四紀鉍物が成長するに従って，地下水の流動経路の位置と形状も変遷し続けた。こうしたプロセスは現在も続いており，天水起源の地下水の動水勾配によって東から西に広がっている。
- ・ 一番新しい方解石鉍化には，第三紀の隆起以降，淡水系と塩水系地下水の境界の深度が，サイトの中央と東部にある数十メートルの境界深度の正味の増加を伴いながら変動していることを示す証拠がある。しかし，淡水は現在の深度より大幅に深い場所までは到達していない。
- ・ サイト全体での地下水の塩分濃度の範囲は，第四紀中，ほぼ安定し続けた。しかし，サイトの一部における現在の塩分濃度は，以前よりも大幅に低い。
- ・ 酸化還元条件は，淡水帯において一番変動している。酸化還元の擾乱の規模と頻度は，深度とともに減っている。淡水帯の下では若干の還元状態が標準であった。
- ・ セラフィールドの研究から，氷河の涵養水起源の地下水は地層処分施設深度まで浸透するが，岩盤自体に浅い深度においても新しい淡水から非常に効率的に酸素を取り除く機能があるため，地下水の還元条件が保たれることがわかった。深部地下水を保護する同様の性質が，フォルスマルク（スウェーデン），オルキルト（フィンランド）および幌延（日本）を含む世界各地の多くの沿岸部のサイトで観察されてきた。このことにより，将来，気候変動が生じた際に，他のサイトの深部でも還元条件が保たれるという考えに対する信頼性が向上する。

参考文献

- AMANO, K., NIIZATO, T., YOKOTA, H., OTA, K., LANYON, B. AND ALEXANDER, W.R. 2011. *Development of comprehensive techniques for coastal site characterisation: integrated palaeohydrogeological approach for development of site evolution models*. Proc. ICEM 2011 Conference, Reims, France, September, 2011, ASME, Washington, USA.
- BATH, A., MILODOWSKI, A.E., RUOTSALAINEN, P., TULLBORG, E.-L., CORTÉS RUIZ, A. AND ARANYOSSY, J.-F. 2000. *Evidence from mineralogy and geochemistry for the evolution of groundwater systems during the Quaternary for use in radioactive waste repository safety assessment (EQUIP project)*. **Report EUR 19613**, D-G for Research, European Commission, Brussels.
- BATH, A.H., RICHARDS, H., METCALFE, R., MCCARTNEY, R., DEGNAN, P., LITTLEBOY, A. 2006. Geochemical indicators of deep groundwater movements at Sellafield, UK. *Journal of Geochemical Exploration*, **90**, 24-44.
- DEGNAN, P., BATH, A., CORTES, A., DELGADO, J., HASZLEDINE, R.S., MILODOWSKI, A.E., PUIGDOMENECH, I., RECREO, F., SILAR, J., TORRES, T. AND TULLBORG, E.-L. 2005. PADAMOT: Project Overview Report. *PADAMOT Project Technical Report, EU FP5 CONTRACT NO. FIKW-CT2001-20129*. 105 pp.
- METCALFE, R., CRAWFORD, M.B., BATH, A.H., LITTLEBOY, A.K., DEGNAN, P.J. AND RICHARDS, H.G. 2007. Characteristics of deep groundwater flow in a basin marginal setting at Sellafield, Northwest England: 36Cl and halide evidence. *Applied Geochemistry*, **22**, 128-151.
- MILODOWSKI, A.E., GILLESPIE, M.R. AND METCALFE, R. 1997. Relationship between mineralogical transformations and groundwater chemistry at Sellafield, NW England: a tool for studying Quaternary palaeohydrogeology. In: HENDRY, J., CAREY, P., PARNELL, J., RUFFELL, A. AND WORDEN, R. (editors), *GEOFLUIDS II '97: Contributions to the Second International Conference on Fluid Evolution, Migration and Interaction in Sedimentary Basins and Orogenic Belts (Belfast, Northern Ireland, March 10th – 14th, 1997)*. Queens University, Belfast, 30-33.
- MILODOWSKI, A.E., GILLESPIE, M.R., NADEN, J., FORTEY, N.J., SHEPHERD, T.J., PEARCE, J.M. AND METCALFE, R. 1998. The petrology and paragenesis of fracture mineralization in the Sellafield area, west Cumbria. *Proceedings of the Yorkshire Geological Society*, **52**, 215-241.
- MILODOWSKI, A.E. TULLBORG, E.-L., BUIL, B., GÓMEZ, P., TURRERO, M.-J., HASZELDINE, S., ENGLAND, G., GILLESPIE, M.R., TORRES, T., ORTIZ, J.E., ZACHARIÁŠ, SILAR, J., CHVÁTAL, M., STRNAD, L., ŠEBEK, O. BOUCH, J.E., CHENERY, S.R., CHENERY, C., SHEPHERD, T.J. AND MCKERVEY, J.A. 2005. Application of Mineralogical, Petrological and Geochemical Tools for Evaluating the Palaeohydrogeological Evolution of the PADAMOT Study Sites. *PADAMOT Project Technical Report, WP2, EU FP5 CONTRACT NO. FIKW-CT2001-20129*.
- NIREX 1997. Sellafield Geological and Hydrogeological Investigations: An assessment of the influence of basinal processes on the hydrogeology of the Sellafield area. *United Kingdom Nirex Limited Report, SA/97/055*.

SHAW, R.P.; AUTON, C.A.; BAPTIE, B.; BROCKLEHURST, S.; DUTTON, M.; EVANS, D.J.; FIELD, L.P.; GREGORY, S.P.;
HENDERSON, E.; HUGHES, A.; MILODOWSKI, A.E.; PARKES, D.; REES, J.G.; SMALL, J.; SMITH, N.; TYE, A.; WEST, J.M..
2012 *Potential natural changes and implications for a UK GDF*. British Geological Survey, 198pp. (CR/12/127).

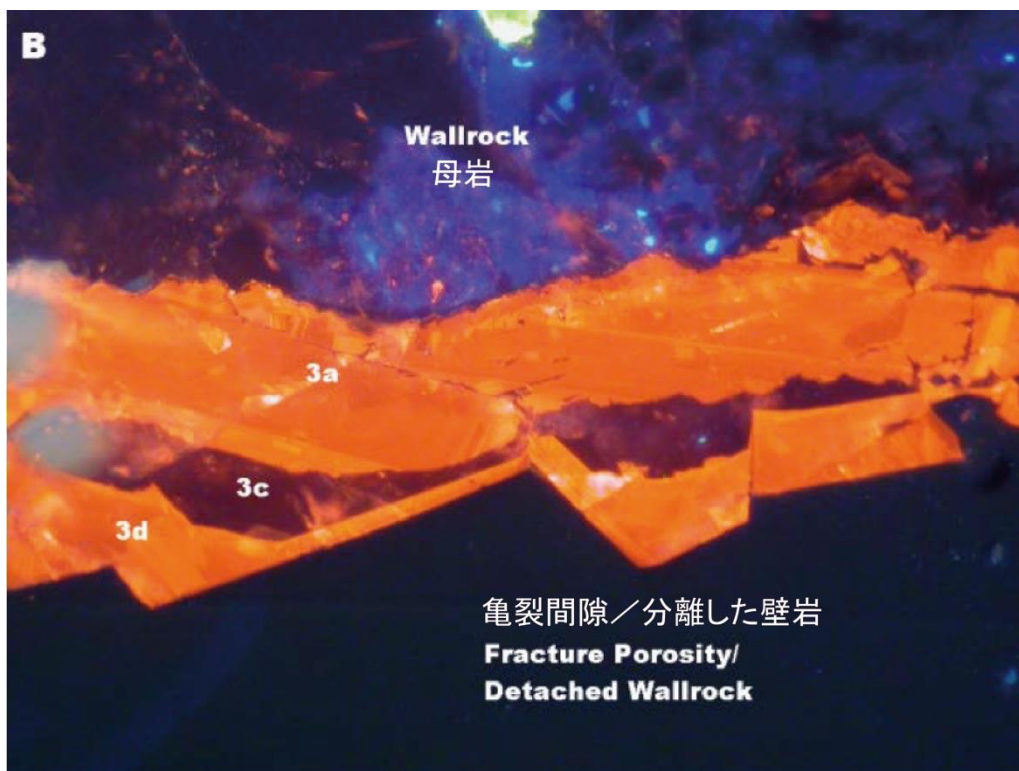
事例 19 : スウェーデンのエスポとラクセマー : 深部地下水システムの長期安定性

概要

放射性廃棄物の地層処分施設のためのセーフティケースにおける重要な要件は、100 万年といった廃棄物が有害である期間、気候変動が地層処分施設の深度の地下水システムの化学的性質に悪影響を及ぼさないことを示すことである。この観点から、深部地下水システムに将来的な気候変動が影響を及ぼす可能性について知ることは、地層処分施設のセーフティケースの中心的なテーマである。ヨーロッパ北部における過去 260 万年間（第四紀）の気候は、氷河期と現代よりも温暖な気候条件との間で変化した。ヨーロッパ北部において特に懸念されるのは、氷河期に地層処分施設の深度まで酸化性の地下水が浸透することによって、超ウラン放射性核種の移動性が増す可能性があることである。よって、還元条件が地層処分施設の深度で長い間保たれることを示すことが非常に重要となる。

地質的背景

エスポとラクセマーは、スウェーデン南東のバルト海沿岸にある。スウェーデン核燃料・廃棄物管理会社（SKB）は、低地のエスポ島に地下岩盤研究所を建設し、使用済核燃料の処分研究プログラムのための、手法の開発と試験のために調査を実施している。また、SKBは、地層処分施設のサイト調査に関連する地域調査も行ってきた。エスポとラクセマーは、古水理地質学研究の最前線であり、初期にはSKB、そして最近では欧州共同体（EC）出資の「EQUIP」と「PADAMOT」プロジェクトが実施されている。



ラクセマーの亀裂表面を覆う発光／非発光を生じる後期方解石帯のカソードルミネッセンス顕微鏡画像

亀裂充填鉱物に対する地球化学的研究、鉱物学的研究、安定同位体研究とウラン系列非平衡の研究によって、破碎、流体挙動および付随する鉱化現象についての長い履歴が確認されてきた。これらの大部分には地質年代が古いという特徴があるが、一番最近の鉱化は第四紀の地下水循環に伴うものである。

ラクセマー・シンペバープ・エスポ地域の亀裂の大部分は、古生代以前に形成され（下表の現象1～5参照）、その後再び活性化された。こうした亀裂現象に伴う方解石鉱化は、熱水の安定同位体特性を有することが特徴である。古生代の間、この地域は海成およびモラッセ堆積物の厚い層に覆われていた。この層は少なくとも4億年間存在していたが、石炭紀—ペルム紀以降減り続け、最終的に第三紀後期あるいは第四紀初期に取り除かれた。低温粘土鉱物の沸石と方解石は、この時期におそらく石膏と黄鉄鉱とともに亀裂内を充填した（下表の現象6参照）。

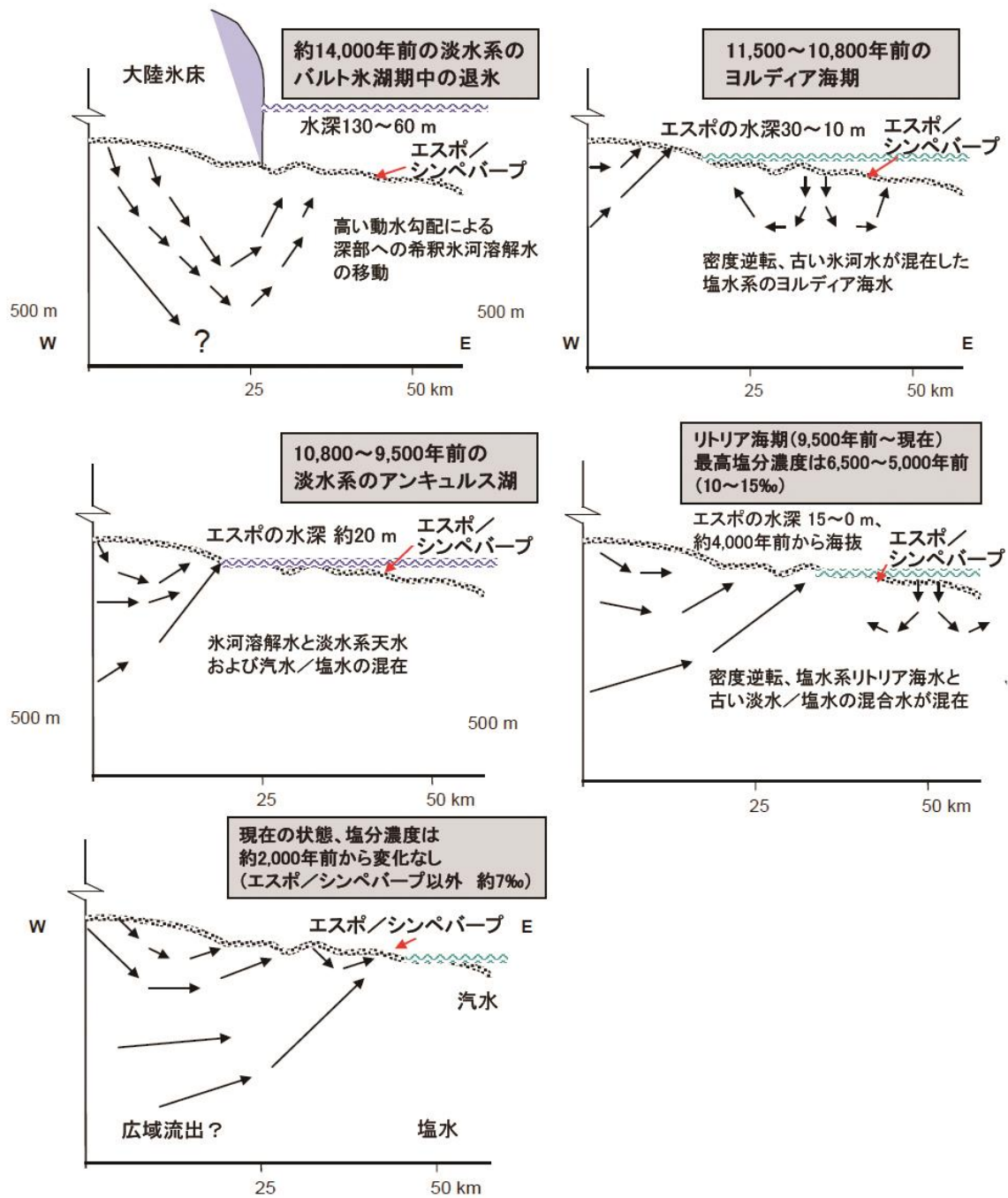
続いて起こる低温の亀裂内鉱物充填は、深部では方解石（一部、黄鉄鉱を含む）が、そして地上近傍では、酸化性で天水起源の地下水の変質作用（すなわち風化）の浸透に関わる針鉄鉱が支配する（下表の現象7参照）。

エスポとラクセマーの地質現象と亀裂鉱化履歴の要旨一覧（Milodowski et al.,2005より）

現象	影響／鉱化	備考
0	エスポ花崗岩の形成	約18億年前（Kornfält et al.,1997）
1	広域変形	16億6,000～14億5,000万年前
2	圧砕岩化作用・細粒緑簾岩、白雲母の形成および石英の再結晶化	一部の圧砕岩は、現象2の終期に属すると予想
3	圧砕岩の再活性化、および自形の緑簾岩と蛍石の形成	約14億5,000万年前の非造山期のGötemar貫入（Åhäll, 2001）
4	自形の石英、白雲母、赤鉄鉱、蛍石、方解石および球顆状緑泥石の成長	Götemar貫入に伴う晩期マグマ性熱水循環
5	葡萄石、濁沸石、方解石、緑泥石および蛍石	原生累代後期と予想される低温埋没変成作用
6	イライトが主成分の混合層粘土、方解石、緑泥石	スウェーデンのカレドニア以降の堆積層下への埋没に伴う鉱化と低温埋没変成作用
7	方解石、オキシ水酸化鉄、黄鉄鉱および粘土鉱物？（カオリナイト、スメクタイト、イライト—スメクタイトおよびコレンサイト）	最近の／第四紀の地下水循環に伴うと予想される鉱化

地下水のシナリオ

エスポ・ラクセマーはバルト海沿岸の低地に位置するため、この地域の後氷期の変遷は、世界的な海水準変動、周囲の地形からの淡水流出、および地表の氷河性アイソスタシーによる変動の複雑な相互作用の影響を顕著に受けている。よって、サイトでは最終氷期後に発達した、淡水あるいは汽水環境期に様々な現象が起きており、現在の地下水の化学的性質にも大きく影響してきた。



Esbo/シンペバープエリアの概念的後氷期シナリオ。図は、予測流線、密度逆転現象、非塩水、汽水および塩水の境界を示す。各ステージは以下のとおり。a) 退水, b) ヨルディア海期, c) アンキュルス湖期, d) リトリア海期, および e) 現在のバルト海期 (Milodowski et al., 2005より)

不確実性と限界

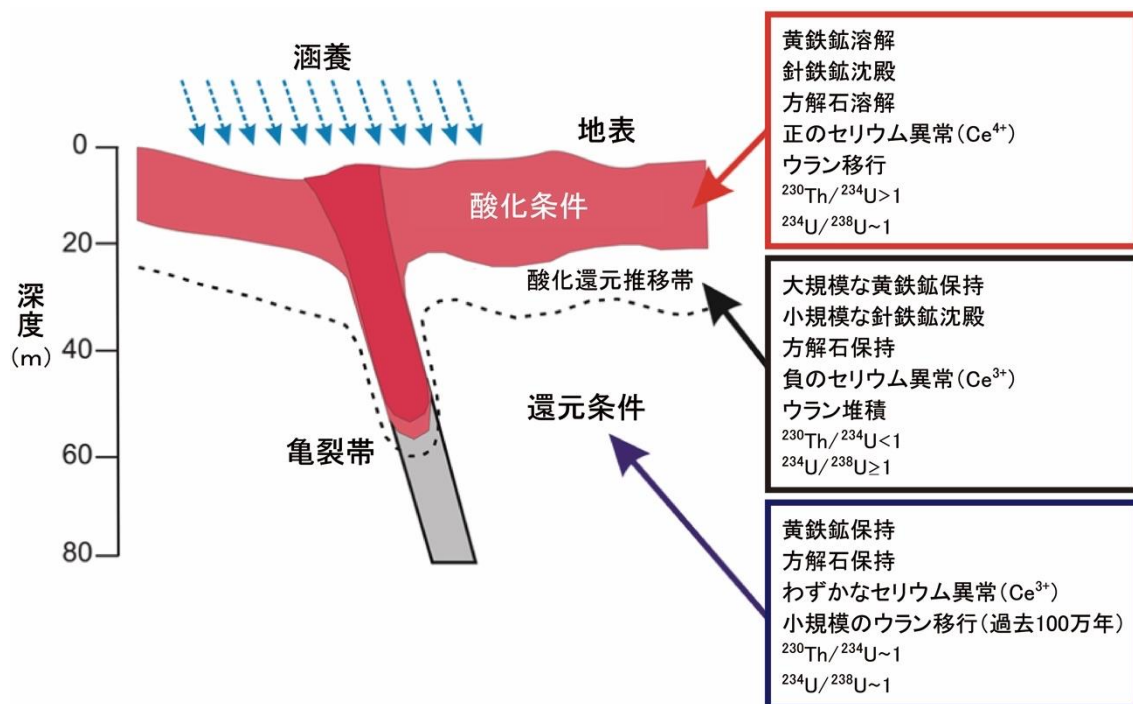
- 割れ目の再活性化は、Esbo・ラクセマー地域で見られ、現在の透水性割れ目とそれに伴う鉱化には非常に長く、複雑な履歴がある。
- このエリアの透水性割れ目が再活性化したため、複数の年代の方解石が同じ岩脈内でよく見

られる。そのため、各年代の方解石の特定と区別が、方解石を用いた古水理地質学調査を行うためには重要である。

- 後期の方解石充填は小規模であり、一番新しい年代の方解石は、過去の方解石鉱化の上に広がる薄板状、あるいは覆いのような形で存在するのみである。よって、この一番新しい方解石を分析のためにサンプル採取するのは困難である。
- この地域は、複数の氷期の影響を受けているため、亀裂鉱化の原因を、特定の事象や時期によるものと推定することは難しい。
- 亀裂の鉱物は、沈殿の記録を網羅的に残していない。理由は、以下のとおりである。(1) 生成鉱物は非常に小規模である可能性がある、(2) 不飽和化学的条件および／あるいは流動の欠如によって、堆積が起こっていない期間があった可能性がある、(3) 鉱物溶解の期間中に、過去の地下水システムの痕跡が消滅した可能性がある。

適用性 - 得られた知見

- 有益な古水理地質学の知見が、後期の方解石鉱化の地球化学的研究、そして黄鉄鉱、二次的な酸化鉄、オキシ水酸化鉄（例：針鉄鉱）等の酸化還元反応性のある鉱物、それから亀裂被覆層のウラン系列非平衡の詳細な分布図解析によって得られる。
- 過去の地下水からの沈殿物によって、様々な地下水システムを解明することが可能である。
- 後期の方解石鉱化は、現在の地下水流動経路と相関している可能性がある。
- 一番新しい方解石鉱化の形態は、沈殿が発生した地下水の塩分濃度を反映している。(1) 塩水または汽水系地下水領域に見られる結晶軸のc軸が伸長した、あるいは「犬歯状」の結晶形態、(2) 希釈地下水領域に見られる、結晶軸のc軸が平らな、あるいは「釘状」で等方の結晶形態。
- 汽水と海水から沈殿した低温方解石は、地下約 500 m でのみ確認できる一方で、天水／寒冷気候の涵養という特徴を持つ同位体的証拠のある方解石は、さらに地下深部まで達しており、地下 1,000 m まで達している可能性がある。こうした、「寒冷」方解石は、氷河地下水から沈殿したと解釈されている。
- 二次的な酸化鉄の分布と黄鉄鉱等の酸化還元反応に敏感な鉱物の保持機能によって、地下約 100 m では酸化が生じていないことがわかっている。ウラン系列非平衡の研究から、この状態が少なくとも過去 100 万年の間、続いていたことがわかる。
- ある深さで方解石が、還元鉄 (Fe^{2+}) そして、マンガン (Mn^{2+}) を含む。このことから、正のセリウム異常の欠如（すなわち、3 価希土類元素と関連した 4 価（酸化）セリウムの濃縮）とともに、地下水循環の間、還元条件が続いたことがわかる。
- 地球化学的証拠と鉱物学的観察結果から、氷河地下水が過去 100 万年の間に最高地下 1,000 m にまで到達した可能性がある一方で、本研究によって（氷床下で生じることが予想される）涵養地下水によって生じる酸素を消費する水と岩石の相互作用の結果、還元条件がこの深度において十分に維持されてきたことが示されている。他のエリアにおける実際の深度の範囲は、サイトスペシフィックな特徴によって決まる。



スウェーデン、ラクセマーエリアにおける、地表近傍の酸化還元フロントの図式モデル。各領域は深度間隔を表しており、地球化学的分析と亀裂被覆層のウラン系列非平衡によって、第四紀の酸化条件、還元条件、あるいはこれらの間の推移帯が示される (Drake et al., 2009の図を参考に作成)

参考文献

- BATH, A., MILODOWSKI, A.E., RUOTSALAINEN, P., TULLBORG, E.-L., CORTÉS RUIZ, A. AND ARANYOSSY, J.-F. 2000. *Evidence from mineralogy and geochemistry for the evolution of groundwater systems during the Quaternary for use in radioactive waste repository safety assessment (EQUIP project)*. Report EUR 19613, D-G for Research, European Commission, Brussels.
- DIDERIKSEN, K., CHRISTIANSEN, B.C., BAKER, J.A., FRANSEN, C., BALIC-ZUNIC, T., TULLBORG, E.-L., MØRUP, S. AND STIPP, S.L.S. 2007. Fe-oxide fracture fillings as a palaeo-redox indicator: structure, crystal form and Fe isotope composition. *Chemical Geology*, **244**, 330-343.
- DEGNAN, P., BATH, A., CORTES, A., DELGADO, J., HASZLEDINE, R.S., MILODOWSKI, A.E., PUIGDOMENECH, I., RECREO, F., SILAR, J., TORRES, T. AND TULLBORG, E.-L. 2005. PADAMOT: Project Overview Report. *PADAMOT Project Technical Report, EU FP5 CONTRACT NO. FIKW-CT2001-20129*. 105 pp.
- DRAKE, H AND TULLBORG E.-L. 2004. Fracture mineralogy and wall rock alteration. Results from drill core KSH01A+B. Oskarshamn site investigation. *SKB Report, P-04-250*. Svensk Kärnbränslehantering AB, Stockholm, Sweden.
- DRAKE, H. AND TULLBORG, E.-L. 2008. Oskarshamn site investigation. Fracture mineralogy. Results from drillcore KLX15A. *SKB Report, P-08-12*, Svensk Kärnbränslehantering AB, Stockholm, Sweden.
- DRAKE, H. AND TULLBORG, E.-L. 2008. Oskarshamn site investigation. Mineralogy in water conducting zones. Results from boreholes KLX07A+B and KLX08. *SKB Report, P-08-42*, Svensk Kärnbränslehantering AB, Stockholm, Sweden.

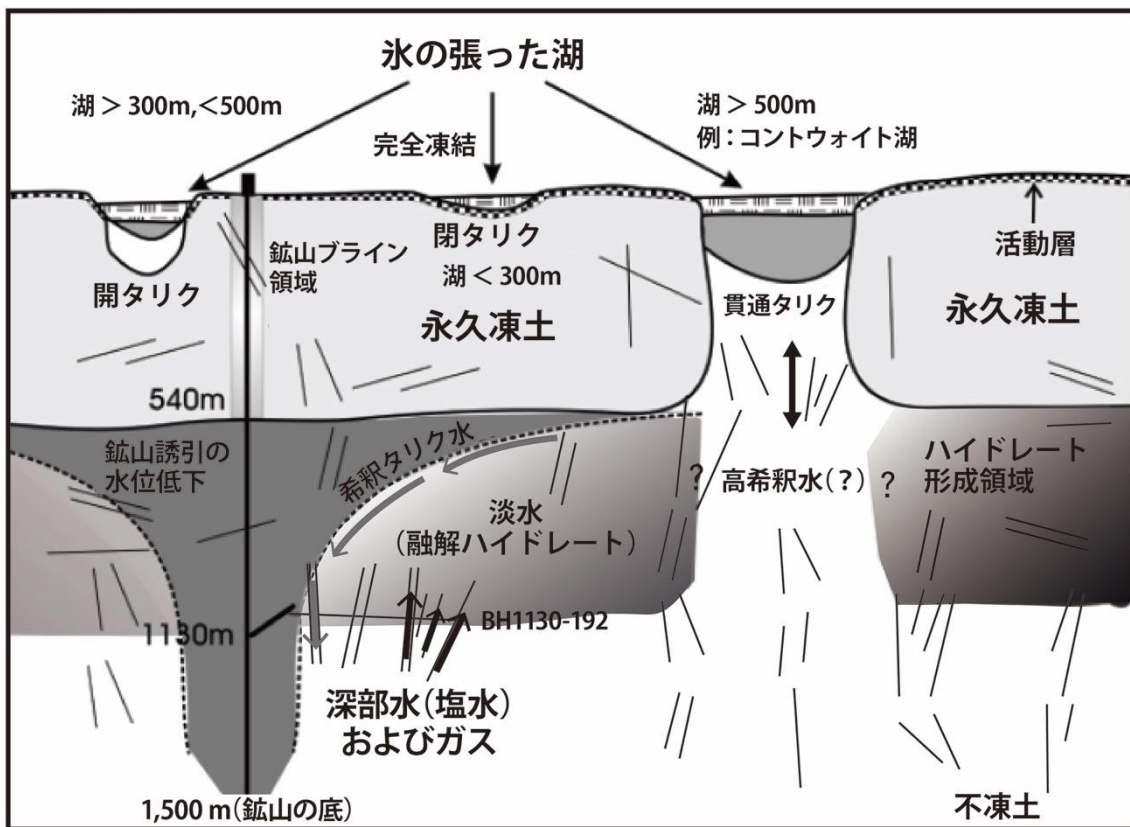
- DRAKE, H., AND TULLBORG, E.-L. 2009. Palaeohydrogeological events recorded by stable isotopes, fluid inclusions and trace elements in fracture minerals in crystalline rock, Simpevarp area, SE Sweden. *Applied Geochemistry*, **24**, 715-732.
- DRAKE, H., TULLBORG, E.-L. AND MACKENZIE, A.B. 2009. Detecting the near-surface redox front in crystalline bedrock using fracture mineral distribution, geochemistry and U-series disequilibrium. *Applied Geochemistry*, **24**, 1023-1039.
- MILODOWSKI A E, GILLESPIE M R, PEARCE J M, METCALFE R, 1998. Collaboration with the SKB EQUIP programme; Petrographic characterisation of calcites from Äspö and Laxemar deep boreholes by scanning electron microscopy, electron microprobe and cathodoluminescence petrography, *British Geological Survey, Technical Report, WG/98/45C*: British Geological Survey, Keyworth, Nottingham.
- MILODOWSKI, A.E. TULLBORG, E.-L., BUIL, B., GÓMEZ, P., TURRERO, M.-J., HASZELDINE, S., ENGLAND, G., GILLESPIE, M.R., TORRES, T., ORTIZ, J.E., ZACHARIÁŠ, SILAR, J., CHVÁTAL, M., STRNAD, L., ŠEBEK, O. BOUCH, J.E., CHENERY, S.R., CHENERY, C., SHEPHERD, T.J. AND MCKERVEY, J.A. 2005. Application of Mineralogical, Petrological and Geochemical Tools for Evaluating the Palaeohydrogeological Evolution of the PADAMOT Study Sites. *PADAMOT Project Technical Report, WP2, EU FP5 CONTRACT NO. FIKW-CT2001-20129*.
- TULLBORG, E.-L. 2004. Palaeohydrogeological evidences from fracture filling minerals - Results from the Äspö/Laxemar area. *Material Research Society Symposium*, Vol **807**, 873–878.
- WALLIN, B. AND PETERMAN Z, 1999. Calcite fracture fillings as indicators of Paleohydrology at Laxemar at the Äspö Hard Rock Laboratory, southern Sweden. *Applied Geochemistry*, **14**, 939-952.

事例 20：ルパン鉱山：永久凍土環境のナチュラルアナログ

概要

放射性廃棄物の深地層処分施設のセーフティケースでは、約100万年に至る時間スケールで、天然および人工バリアの性能が、氷河作用、海水準変動等の将来の気候変動に起因する、地下水の流動とその化学的性質の変化による悪影響を受けないことを示す必要がある。現在、永久凍土は北半球の約24%の範囲に広がっている。しかしながら、将来の長期気候変動を考慮すると、ほとんどの気候モデルが、今後数百万年の間に数回、北半球が氷河サイクルに戻ることを示唆している。その結果、永久凍土が乾燥条件下で、北、中央ヨーロッパおよび北アメリカに形成される。よって、地層処分施設の長期安全性への永久凍土の影響は、全てのサイトにおけるセーフティケース評価の対象とすべきものである（Ruskeemiemi et al., 2002）。

永久凍土とは、何か？どこにあるのか？



ルパン鉱山の概念モデル (Stotler et al., 2009aより)

- ・ 永久凍土は、0℃以下の温度が2年間以上続く、土壌、未固結堆積物および岩盤と定義される (Williams, 1970)。
- ・ 永久凍土は、面積に占める割合によって、連続的 (90～100%)、不連続的 (50～90%)、点状的 (10～50%) および隔離的 (<10%) と区分される (French, 2007)。

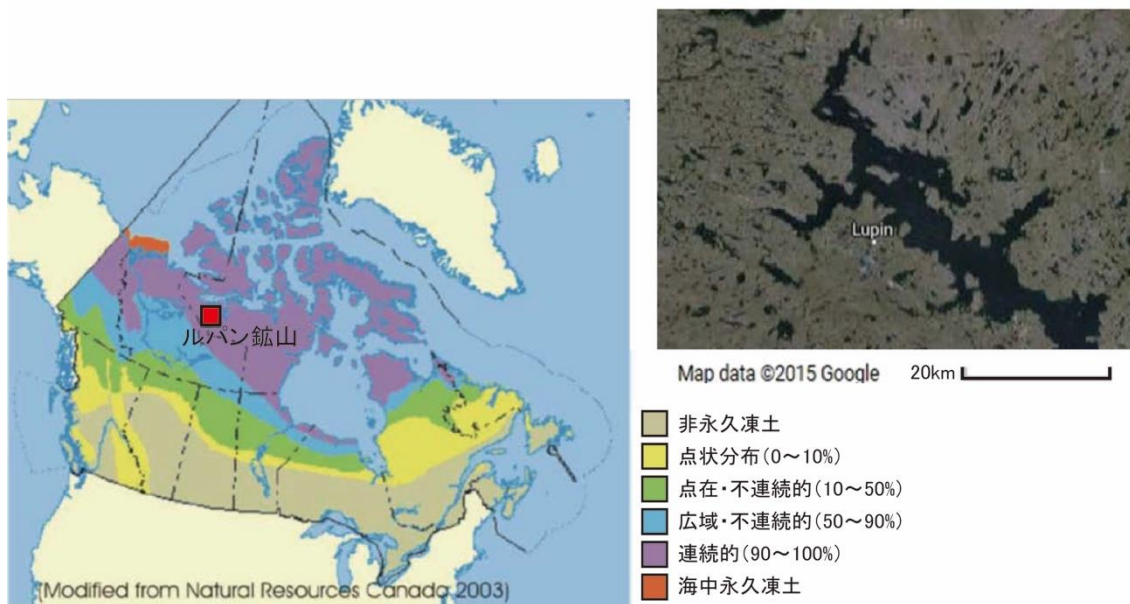
永久凍土の地層処分施設への影響とは？

地層処分施設への永久凍土の予測的影響は、以下のとおりである。

- ・ 地下水の流動方向と規模への影響
- ・ 涵養と流出の減少
- ・ 地表水の下方や高透水性亀裂帯の周囲のタリク（不凍土）を流れる地下水
- ・ 溶質の凍結と、永続的に 0 °C 以下にもかかわらず不凍領域であるクリオペグ（cryopeg）の形成による、塩分濃度上昇の結果生じる地下水の化学組成の変化
- ・ 凍結と融解による、岩盤と土壌の安定性への力学的影響（Ruskeemiemi et al., 2002）

ルパン鉱山：永久凍土環境への現在のアナログ

亀裂性岩盤環境における永久凍土の影響については、カナダのヌナブト準州にあるルパン金鉱山で、1982～2005年の間、研究が実施されていた。ルパン鉱山は、広域および接触変成作用を受けた始生代（太古代）の変成タービダイト（海底の混濁流堆積物）層中にある。角閃岩相の変成作用は、初生堆積構造を一部破壊し、結晶質岩を生成した（Stotler et al., 2009a）。



Stotler et al. (2009a) による永久凍土地帯の分布図、衛星画像（Google Earth）上のルパン鉱山の位置

ルパン鉱山は連続的な永久凍土地帯にあり、当鉱山地域の永久凍土の深度は、地表から400～600 mにまで及ぶ。深度が地域によって異なるのは、主要な岩種の間隙率と熱伝導率の違いが原因である（Stotler et al., 2009a）。

ルパン鉱山の永久凍土の推定深度は、540 mである（Ruskeemiemi et al., 2002）。しかしながら、地表水塊への温暖化影響により、湖や川の下には未凍結領域が存在する。

例えば、小さな湖の下には亜永久凍土タリクがあり、これは永久凍土を覆う未凍結領域である。大きな湖の下にある貫通タリクは、永久凍土層全体を貫き、亜永久凍土地下水—地表水の連結が生じている。ルパン鉱山近傍のコントウォイト湖の長さは100 kmを上回り、鉱山に近い場所の幅は2～5 kmである。ここでは湖岸線から30～60 mに位置するタリク境界が、地中レーダー探査で見ついている (Stotler et al., 2009b)。

永久凍土分布の地下水流動への影響

間隙は通常、飽和領域内の氷によって充填されるため、永久凍土は不透水性バリアとして機能する。

- ・ 永久凍土中の氷と水の飽和は、地下水流動にとって重要である。なぜなら、凍結媒体中の透水係数は、凍結領域に応じて桁違いに低下するからである (Kleinberg and Griffin, 2005)。
- ・ 永久凍土の透水係数低下によって、永久凍土下の帯水層への、またはそこからの永久凍土を貫通する未凍結領域への、水の涵養と流出が妨げられる (Williams, 1970; French, 2007)。

ルパン鉱山の亜永久凍土水は、塩分濃度が広範囲にわたるため、開タリクからの涵養水の深部地下水への影響については不明である (Stotler et al., 2009b)。

永久凍土による地下水の化学組成の変化

ルパン鉱山では、鉱業会社が永久凍土内での操業時に大量の塩溶液を使用しており、洗浄水には凍結防止のため、ナトリウムと塩化カルシウムが加えられていた (Ruskeenieni et al., 2002)。その結果、地下水の化学的性質の理解が複雑となっている。

- ・ 永久凍土内の地下水は、通常、高可変 SO_4 濃度と高 NO_3 濃度の Na-Cl あるいは Na-Cl- SO_4 型である。こうした流体は、掘削塩、発破による化学的残留物および天然流体の混合物と考えられている (Stotler et al., 2009a)。
- ・ 深部地下水は、汚染された永久凍土水とは異なり、サイトには非汚染深部地下水が存在する可能性がある。深部地下水の化学組成は、2～36 g/L の広範囲の TDS 値 (全溶存固体) を持つ Na-Ca あるいは Ca-Na-Cl である (Stotler et al., 2009a)。
- ・ 基部の永久凍土水は、最も希釈された深部亜永久凍土水と同様の塩分濃度を示す。氷とメタンの形成による原位置の低温濃度によって、残りの地下水流体が濃縮された可能性がある。鉱山ブライン、鉱山誘引の水位低下およびガス水和物の溶解によって、地下水の化学的性質への凍結影響の直接的な調査が複雑となった (Stotler et al., 2009b)。

鉱山の排水によって人工的な動水勾配が生じたため、鉱山を取り囲む領域が減圧された。この低圧が、永久凍土の基部下に不飽和領域が存在している原因と推定される。さらに、鉱山排水による水位低下によって、関連する希釈永久凍土水および／あるいはタリク水の下方流動が増えたと仮定される。深度 890～1,130 m では、地下水の汚染は確認されておらず、この深度における初期の希釈水源は、人為的な鉱山の減圧による、ガス水和物の溶解と関連性があると示唆される。しかしながら、貫通タリク下では地下温度が高いため、メタンハイドレートは存在しないと考えられる (Stotler

et al., 2009a; Stotler et al., 2009b)。

永久凍土のメタンハイドレートの安定性

地下水の流動とその化学的性質を考慮した際の永久凍土の重要な特徴の一つに、メタンハイドレートの存在がある。

- ・メタンハイドレートは、低温かつ十分なガス濃度のある圧力条件下で形成される。こうした安定化したガスと水の結晶構造は、地下水の地球化学特性と透水性に影響する (Stotler 2011)。
- ・メタンは、深部の垂永久凍土地下水に伴う主要な炭化水素ガスであり、同位体分析によって、熱分解起源が数百万～数十億年にわたることが示唆される (Stotler et al., 2009b)。
- ・圧力と温度の測定から、サイトのメタンハイドレートは、鉱業活動以前には安定していたことが示される。
- ・過去 120,000 年の氷河サイクル中の、地下の圧力と温度のモデル構築から、氷河期中に氷河の荷重によって地下の圧力が上昇した結果、ハイドレート安定領域が増加したことが示される。
- ・ガスハイドレートの存在は、氷河期中の涵養を制限した可能性がある (Stotler et al., 2010)。

不確実性と限界

ルパン鉱山で実施された研究以前の20年間の鉱業活動は、研究結果に影響を及ぼした。掘削流体による地下水汚染は、地下水の化学的性質への永久凍土の影響に関する調査を複雑にした。さらに、鉱山排水に起因する低水圧によって、永久凍土下に不飽和領域が生じた。

- ・ルパン鉱山の 160 km 北にあるボーリング孔の調査から、永久凍土内の非掘削流体の化学成分は塩分濃度が 20,000 mg/L 未満で、酸素安定同位体比 ($\delta^{18}\text{O}$) は、地域の地表水より約 5 % 低いことが示唆される。よって、流体の同位体組成は、氷形成に影響されると考えられてきた。ピエゾメータによる水頭は地表近傍にあり、したがって、ルパン鉱山の不飽和領域は鉱山排水により形成されたものである (Stotler et al., 2011)。
- ・サンプリングラインの凍結のため、地球化学的分析のための地下水のサンプル抽出には、問題があることがわかった。これによって、混入物のないサンプルの収集が難しくなった (Stotler et al., 2011)。

適用性 - 得られた知見

ルパン鉱山の研究によって、複数の重要な発見があった。

- ・本サイトの永久凍土の下方では、ブライン (高濃度塩水) は確認されていない。よって、永久凍土あるいはメタンハイドレート形成中の原位置の凍結から、そうした高濃度流体が生じることはないと思われる。
- ・地表の断熱、熱移流あるいは地層処分施設からの熱によって形成する貫通タリクは、広域ス

ケールの地下水システムにおいて中心的な役割を持つ。地層処分施設から発生した熱は、こうした貫通タリクの地下水流動経路を形成する可能性がある。地層処分施設のセーフティケースにおいて、タリクが永久凍土影響地域における深部地下水の流動システムに、どう影響するかを理解するために重要となる。

- メタンハイドレートは、現在、ルパン鉱山の永久凍土の下に存在し、氷床に覆われる期間中、地表まで広がる可能性がある。氷と同様にガス水和物の存在は透水係数を低下させるため、それが地表近傍に存在する場合、氷河下の涵養は限定されることになる。また、ガス水和物が固相である間は、地層処分施設の性能への影響は少ないが、その不安定化によって多量のメタンが放出される可能性がある (Ruskeemiemi et al., 2002; Stotler et al., 2010)。

参考文献

BUSBY, J.P., LEE, J.R., KENDER, S., WILLIAMSON, P. AND NORRIS, S., 2016. Regional modelling of permafrost thicknesses over the past 130 ka: implications for permafrost development in Great Britain. *Boreas*, 45(1), pp.46-60.

BUSBY, J.P., LEE, J.R., KENDER, S., WILLIAMSON, J.P. AND NORRIS, S., 2015. Modelling the potential for permafrost development on a radioactive waste geological disposal facility in Great Britain. *Proceedings of the Geologists' Association*, 126(6), pp.664-674.

FRENCH, H. M. 2007. *The Periglacial Environment*, Wiley-Blackwell.

KLEINBERG, R.L., AND GRIFFIN, D.D. 2005. NMR measurements of permafrost: unfrozen water assay, pore-scale distribution of ice, and hydraulic permeability of sediments, *Cold Regions Science and Technology*, 42, 63-77, [doi:10.1016/j.coldregions.2004.12.002].

RUSKEEMIEMI, T., PAANANEN M., AHONEN, L., KAIJA, J., KUIVAMÄKI, A., FRAPE, S., MOREN, L. AND DEGNAN, P. 2002. Permafrost at Lupin. Report of Phase I, *Permafrost Project GTK-SKB-POSIVA-NIREX-OPG*, Geological Survey of Finland, Nuclear Waste Disposal Research.

SHAW, R.P.; AUTON, C.A.; BAPTIE, B.; BROCKLEHURST, S.; DUTTON, M.; EVANS, D.J.; FIELD, L.P.; GREGORY, S.P.; HENDERSON, E.; HUGHES, A.; MILODOWSKI, A.E.; PARKES, D.; REES, J.G.; SMALL, J.; SMITH, N.; TYE, A.; WEST, J.M.. 2012 *Potential natural changes and implications for a UK GDF*. British Geological Survey, 198pp. (CR/12/127).

STOTLER, R.L., FRAPE, S.K., RUSKEEMIEMI, T., AHONEN, L., PAANANEN, M., HOBBS, M. Y., LAMBIE, K. E. AND ZHANG, M.. 2009a. Hydrogeochemistry of Groundwaters at and Below the Base of the Permafrost at Lupin: Report of Phase III. *NWMO, TR-2009-10*.

STOTLER, R.L., FRAPE, S.K., RUSKEEMIEMI, T., AHONEN, L., ONSTOTT, T.C. AND HOBBS, M.Y. 2009b. Hydrogeochemistry of groundwaters in and below the base of thick permafrost at Lupin, Nunavut, Canada, *Journal of Hydrology*, 373, 80-95 [doi:10.1016/j.jhydrol.2009.04.013].

STOTLER, R.L., FRAPE, S.K., AHONEN, L., CLARK, I., GREENE, S., HOBBS, M., JOHNSON, E., LEMIEUX, J.M., PELTIER, R. PRATT, L. RUSKEEMIEMI, T., SUDICKY, E. AND TARASOV, L. 2010. Origin and stability of a permafrost methane hydrate occurrence in the Canadian Shield. *Earth and Planetary Science Letters*, 296, 384-394, [doi:10.1016/j.epsl.2010.05.024].

STOTLER, R.L., FRAPE, S.K., FREIFELD, B.M., HOLDEN, B., ONSTOTT, T.C., RUSKEENIEMI T. AND CHAN, E. 2011. Hydrogeology, chemical and microbial activity measurement through deep permafrost, *Ground Water*, **49**, 348-364 [doi:10.1111/j.1745-6584.2010.00724.x].

WILLIAMS, J. 1970. Ground water in the permafrost regions of Alaska. *Geological Survey Professional Paper*, **696**.

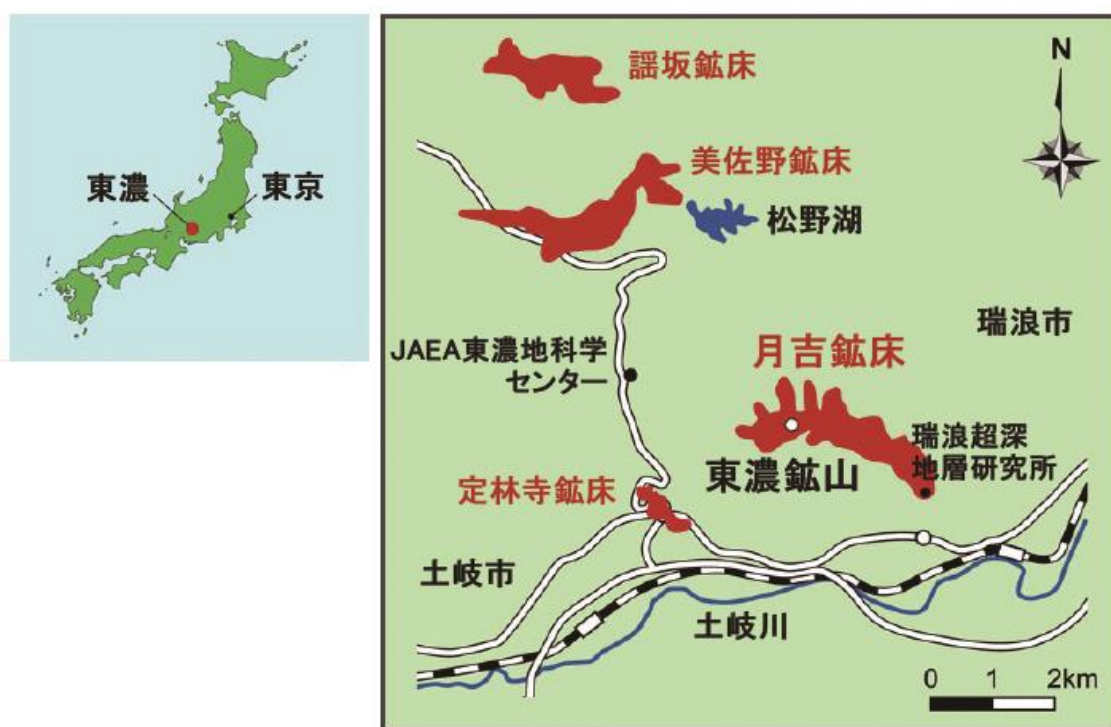
事例 21：東濃：母岩の安定性のナチュラルアナログ

概要

なぜ母岩の安定性か？

放射性廃棄物の地層処分施設における母岩の主な役割は、地層処分施設の人工バリアシステムの寿命と性能の存続を可能にするような最適な環境を提供することである。地圏による3つの最も重要な安全特性は、力学的保護、適切な地球化学的条件（すなわち、ほぼ中性のpH値および低酸素レベル）および非常に遅い地下水の流れである。

地質の安定性は、深地層処分において不可欠であり、地殻変動が活発な地域において特に重要である（例えば、母岩が多くの地震の影響を受けている）。従って、地層処分手業において、地層処分施設の長期的な安全性に対する隆起／侵食、断層活動等の地質現象の影響の可能性を評価し、地質の安定性に影響する主要な要素（条件、プロセス等）を特定することが重要である。



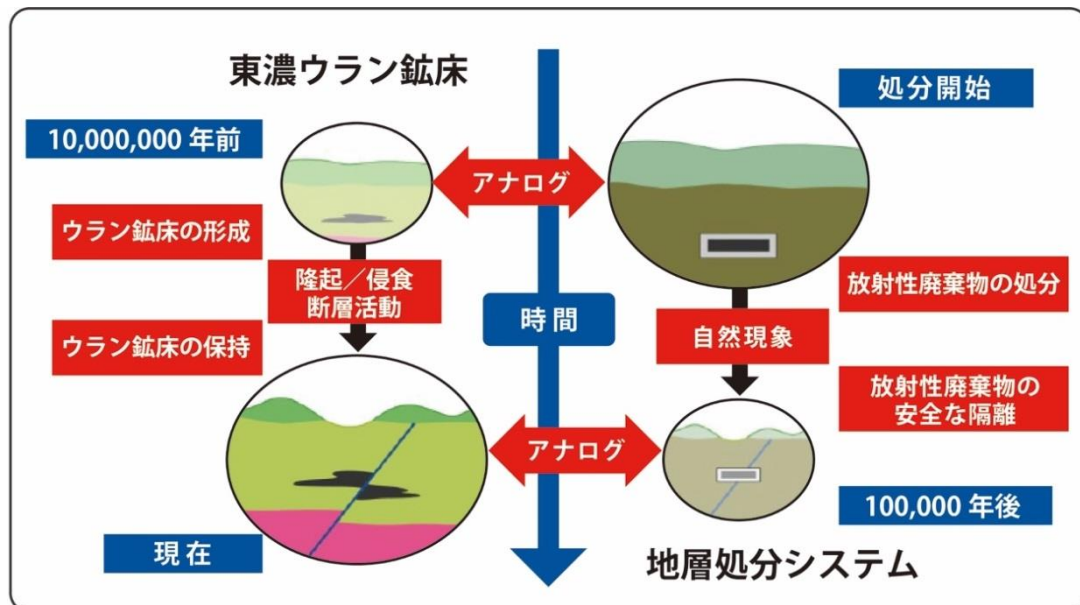
日本の中部地域にある東濃ウラン鉱床の分布図（日本原子力研究開発機構（JAEA））

母岩の安全性と東濃

非常に古いシガーレイクのウラン鉱床は、地層処分施設によって数百万年の間、廃棄物の隔離が可能であることの根拠として、使われてきた。しかしながら、英国の地質構造と同様に、シガーレイクは安定したプレート内環境にあり、サイトでは主要な亀裂でさえも数億年前のものである。地殻変動が活発な環境における母岩の安定性という点で、より適した事例が「環太平洋火山帯」の一部である日本で見られ、長期間の擾乱や変動にかかわらず存続してきた複数のウラン鉱床が国の中

央部にある。鉱床は瑞浪という小さな町（日本原子力研究開発機構（JAEA）の瑞浪超深地層研究所の所在地）の近くに位置し、これまで調査はされてきたが、採掘は行われていない。特に月吉鉱床では、過去にJAEAの東濃地科学センターによる調査が実施されたが、すでに終了している。

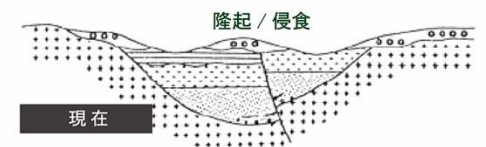
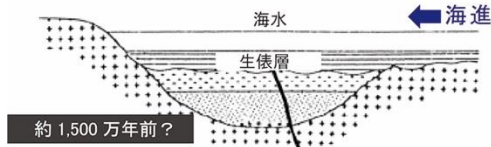
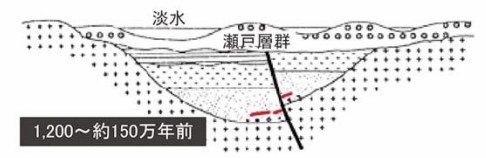
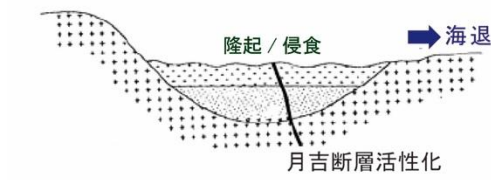
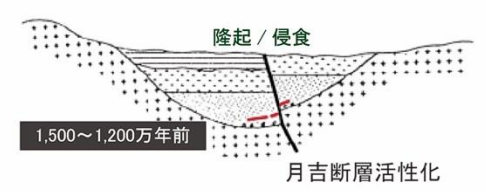
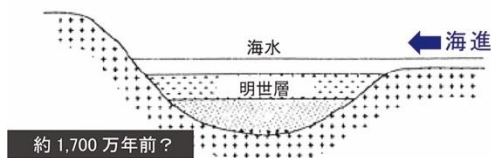
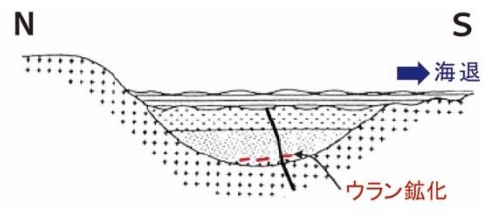
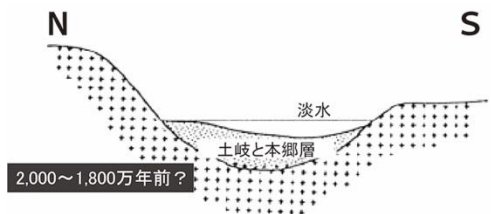
この地域は過去約2,000万年にわたり地質変動の影響を受けているが、ウランがサイトでどのように保持されたのかを理解するため、JAEAはこの約1,000万年前に形成されたウラン鉱床の詳細な調査を実施してきた。



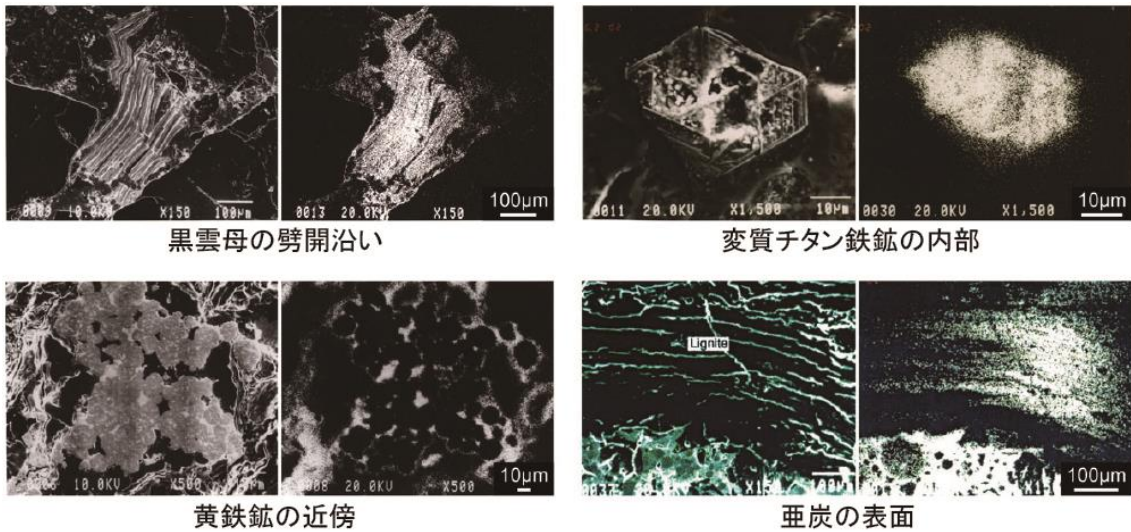
東濃ウラン鉱床と地層処分施設の比較



東濃鉱山の地上施設と地下坑道



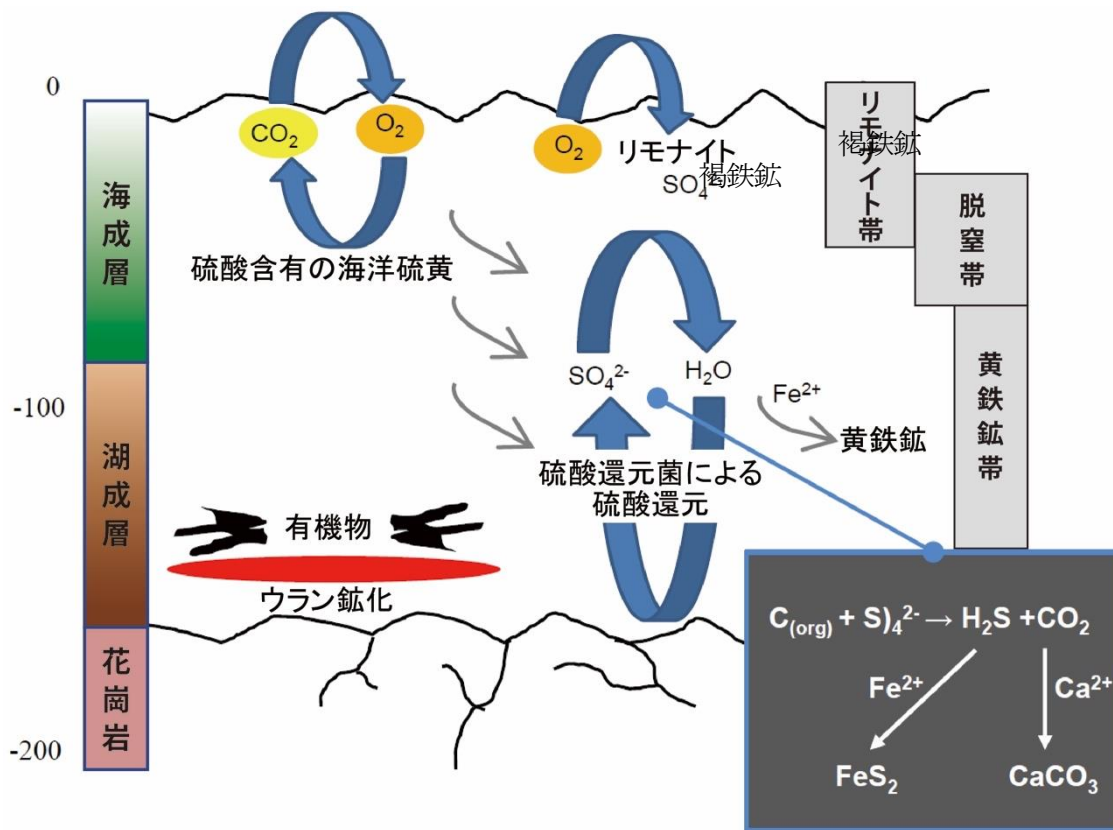
東濃ウラン鉱床の周辺地域は、過去2,000万年の間、多くの擾乱を受けてきた (JAEA)



月吉鉱床の母岩における多くの鉱物中／上のウラン遅延を示す様々な電子顕微鏡画像。2枚組の画像の左側は鉱物を示し、右側の明領域（白い部分）はウラン分布を示す（JAEA）

この地域は何度も海の下になり、断層が形成されており、広域の造山運動によって隆起が起きて、そして、最終的に深い侵食によって今日の起伏の激しい景観が形成された。それにもかかわらず、東濃ウラン鉱床（および近傍の複数の鉱床）は1,500万年の間、影響を受けないまま残っていたことから、仮に完全に安定しているとは言えない地域であっても、深地層処分が実現可能であることが期待できる。

鉱床の詳細調査から、ウランが母岩中の様々な鉱物の表面、間隙および亀裂に閉じ込められていたことがわかる。この閉じ込め機能の重要な点は、岩石と地下水中には酸素がわずかにあるか、あるいは全くない状態であり、これによって還元条件が保たれ、ウランの移行が制限されていることである。こうしたウラン鉱物の多くは、世界各地の地層処分施設の候補母岩中に見られ、このことは、人工バリアシステムから溶出する可能性のあるウラン（および他の放射性核種）の移行を最小限に抑える、地層処分施設の周辺の岩盤特性に対する信頼性を向上させる。



鉱床内の低酸素レベルに関与する様々な地球化学的プロセス (JAEAの図を参考に作成)

不確実性と限界

- 東濃研究は、地層処分施設が、周囲の母岩において数百万年間続くことが予想される化学的還元環境に建設されるという条件において、深地層処分施設の有益なアナログとなる。
- 岩盤と地下水中の酸素レベルが低いことは、ウランの閉じ込めにおいて重要であるが、酸素レベルの低さがサイトに存在する有機物である亜炭が原因である可能性がある。そして、亜炭の存在はほとんどの地層処分施設の母岩で期待できないものである。
- 東濃のアナログ研究は、全ての天然ウラン鉱床の研究に見られる一般的限界の影響を受ける。すなわち、初期の鉱物集合体は、使用済燃料棒に存在する固相組成を忠実に再現したものではない。
- サイトの変遷が十分理解されている一方で、この地域全体の履歴は非常に複雑なため、多くの詳細な境界条件は不明である。例えば、鉱床におけるウランのもともとの形態はどのようなであったか？ そして、それは現在の廃棄物にどのくらい類似していたのか？

適用性 - 得られた知見

- 東濃には、広域的、局所的な擾乱が繰り返されたことによる、非常に複雑な履歴があるにもかかわらず、月吉および近傍の鉱床は数百万年経った今でも存在し続ける。このことは、安定性の低い母岩であっても、地層処分施設の長期にわたる存続と性能の確保が可能であることを示している。

- ・ 本サイトでは、いくつかの特定のウランの閉じ込めプロセスが確認されているが、これらで全ての観察結果の説明はできないことがわかっている。しかしながら、このデータは、「標準的な」室内試験で解明された現象の裏付けとなることから、これを地層処分施設のセーフティケースで利用することの信頼性を向上させる。

参考文献

ALEXANDER, R., GIERE, R., HIDAHA, H AND H. DORA YOSHIDA (EDS). Thematic edition on the Tono Analogue Project. *Geochemistry: Exploration, Environment, Analysis* **6**.

JAPAN NUCLEAR CYCLE DEVELOPMENT INSTITUTE. 2000. H12 Project to Establish Technical Basis for HLW Disposal in Japan - Supporting Report 1, Geological Environment in Japan. *JAEA Technical Report, JNC TN1410 2000-002*, JAEA, Tokai, Japan.

MIZUNO, T. AND IWATSUKI, T. 2005. Study on long-term stability of geochemical environments at deep underground. *Proceedings of the 15th Symposium on Geo-environments and Geo-Technics, December 2005, Japan*, pp 51–54. Chiba, Japan: Japanese Society of Geo-Pollution Science, Medical Geology and Urban Geology (in Japanese with English abstract).

SASAO, E., OTA, K., IWATSUKI, T., NIIZATO, T., ARTHUR, R.C., STENHOUSE, M.J., ZHOU, W., METCALFE, R., TAKASE, H. AND MACKENZIE, A.B. 2006. An overview of a natural analogue study of the Tono uranium deposit, central Japan. *Geochemistry: Exploration, Environment, Analysis* **6**, 5–12.

3.2 母岩としての岩塩の長期性能

事例 22：岩塩中の地層処分施設のナチュラルアナログ

概要

なぜ廃棄物を岩塩に定置するのか？

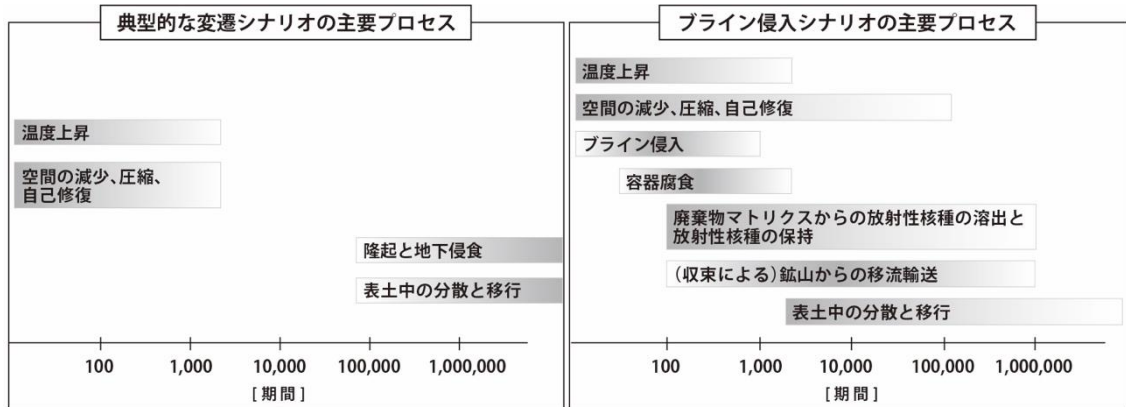
放射性廃棄物の地層処分のために岩塩（ハライト）を母岩とするシステムについて、大規模な調査が数多く実施されており、その例としてモルスレーベンとゴアレーベン（ドイツ）、そして廃棄物隔離パイロットプラント（WIPP）（米国）が挙げられる。岩塩中の地層処分施設概念においては、地層のバリアが最も重要である。これは、地層処分施設の「一般的な」変遷では、非常に長い期間（数百～数千万年間）、母岩内において放射性廃棄物の完全な閉じ込めが期待できるからである。その理由は、岩塩は時間とともに塑性的な挙動を示すことによって、廃棄物と人工バリアシステムを、ゆっくりと閉塞していくという特性による。その結果、全ての隙間が閉じることによって、地層処分施設は効果的に密閉される。したがって、（岩塩ダイアピル、あるいは層状蒸発岩の）岩塩母岩が安定しており、地質学的な時間の枠組みの中で、高い信頼性を維持することを示すナチュラルアナログの情報は、セーフティケースにおいて極めて重要である。



岩塩内にあるドイツ、モルスレーベン地層処分施設に定置された低レベル放射性廃棄物 (www.kernenergie.de)

考えられる唯一の重要なシナリオは、ブライン（高濃度の塩水）の侵入である。地層処分施設閉鎖後まもなく、廃棄物からの熱によって岩塩温度は上昇するため、地層処分施設内の空隙が減少（岩塩の自然内部崩壊による）し、ブラインの侵入（岩塩体の外側からの、あるいは岩塩中のブライン気泡の移行による）がこのシステムにおける支配的なプロセスである。このシナリオでは、流体（地下水）の背圧によって空間の減少が長く続く。定置エリアへのブラインの侵入によって起こると想定される容器の腐食は重要である。というのは、廃棄物からの放射性核種の移行は容器崩壊後に始まると想定されるからである。定置孔や横坑がブラインで完全に満たされた後、ブラインで充填さ

れた空間がさらに圧縮され、ブラインが排出することによって、放射性核種の移動が生じる。岩塩母岩からの溶出後、放射性核種の移行と拡散が起こる。通常、地層処分施設の閉鎖直後、岩塩からのブラインの流出率が一番高いと見なされる時期に、放射性核種の溶出が最も大きく生じると予測される。



岩塩中の地層処分施設の典型的な変遷とブライン侵入シナリオの主要プロセス。横棒の濃淡は、各時期におけるプロセスの重要性の違いを示す。灰色＝重要性（高），白＝重要性（低）

岩塩母岩のナチュラルアナログ

一連のナチュラルアナログ研究が、岩塩中の地層処分施設のセーフティケースの裏付けとなることが確認されており、その中で、ここ最近、最も多く研究が実施されているのは、放射性核種の移行に対するバリアとしての岩塩母岩の役割についてである。

サブシステム	アナログの対象	ナチュラルアナログ
ニアフィールドにおける放射性核種遅延	ガラスマトリクス変質中の二次相における元素の遅延	玄武岩ガラスと変質相における元素の分布
	沈殿する岩塩鉱物への収着による放射性核種遅延	岩塩鉱床形成中の自然元素の共沈
岩塩母岩のバリア機能	空間の埋め戻しによる長期的な岩塩特性への影響	岩塩中のブライン溶液移行領域
	流体とガスに対する岩塩の長期安定性	岩塩中の流体／ブライン含有物
	長期的な埋め戻し材の収束と圧縮	古い、開放された、および埋め戻された横坑の変質
	岩塩ドームの地殻変動による／力学的な長期的挙動	岩塩中の裂隙（れっか）および節理の自己修復
ファーフィールドにおける放射性核種遅延	上部堆積物中の放射性核種の移行	放射性核種と岩塩ドームの表土堆積物との相互作用

この研究の多くは、いわゆる「人為影響アナログ」、つまり、廃鉱採掘等の影響による（「天然」ではない）アナログとして行われてきた。これらによって、岩塩挙動が現行モデルから予測されるのと同様に、空間の減少（例：85年間で2桁を超える岩盤の透水性の低下）が明らかになり、岩塩層

における「一般的な」地層処分施設の変遷シナリオに対する信頼性が向上した。



ドイツに広く存在する岩塩ダイアピルからのブラインとガスの含有物は、その化学的性質の解明のために分析されてきた。写真は、時間の経過による空間減少率の調査に用いられる20年間圧縮された（ドイツ、リーデル鉱山の）岩塩のコア（Brasser et al., 2000）

「本当の」ナチュラルアナログは、世界各地の岩塩鉱床に存在する天然のブライン含有物の研究などである。これによって、岩塩鉱床の周縁部近くのブラインが局所的な地下水と反応している一方で、鉱床の中心部にあるブラインは非常に古く、約2億5,000万年前、初期の鉱床と同時期に形成されたことが明らかになり、岩塩中の地下水の挙動はわずかであるか、あるいは全くなかったことが実証されている。これは、岩塩体の外からの地下水とのわずかな相互作用を示す、岩塩結晶内のガス気泡の研究によって確認された。

不確実性と限界

- ・ 現在は、人為改変アナログの研究に焦点が当てられていることから、地層処分施設の閉鎖直後の岩塩母岩の物理的挙動については、よく理解されているが、長期的な見通しではない。
- ・ 人為影響アナログの境界条件が明確に定義されている一方で、さらに古いシステムの境界条件はあまり明確になっていないことから、ナチュラルアナログを論拠とすることが困難となっている。

適用性 - 得られた知見

- ・ 広範囲の岩塩鉱床におけるブラインポケット（含有物）のナチュラルアナログ研究から、母岩の安定性が高いことが示唆される。ドイツの事例から、2億5,000万年に至る間、度重なる氷河期の到来にもかかわらず、わずかな擾乱しか生じなかったことが示されている。
- ・ このことは、岩塩鉱床の外部環境とのわずかな相互作用を示唆する、岩塩結晶中のガス気泡の研究によって確認された。

参考文献

BEIN, A., HOVORKA, S., ET AL. 1991. Fluid inclusions in bedded Permian halite, Palo Duro basin, Texas: Evidence for modification of seawater in evaporite brine-pools and subsequent early diagenesis. *Journal of Sedimentary Petrology* 61(1): 1-14.

BRASSER, T., DROSTE, J., MÜLLER-LYDA, I., NELES, J., SAILER, M., SCHMIDT G., AND STEINHOFF M. 2008. Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle in Deutschland. Final report from GRS and the Öko-Institut under contracts 02E9783 and 02E9793 from the Bundesministeriums für Wirtschaft und Technologie (BMWi), Berlin. PTKA-WTE, Forschungszentrum Karlsruhe, Karlsruhe, Germany, (in German).

HERRMANN, A.G. AND RÜHE, S. 1995. Lösungseinschlüsse in Zechsteinevaporiten – Neue Perspektiven in der anwendungsorientierten. Grundlagenforschung. - *Kali und Steinsalz*, **11**, 345-354, (in German).

KRONE, J., MÜLLER-HOEPPE, N., BREWITZ, W., MÖNIG, J. WALLNER, M. AND WEBER, J.R. 2008. Developing an advanced safety concept for a HLW repository in salt rock. Appendix in *NEA (2008) Safety Cases for Deep Geological Disposal of Radioactive Waste: Where Do We Stand? Symposium Proceedings, Paris, France, 23-25 January 2007*. NEA Report No. 6319, NEA, Paris, France.

ROEDDER, E. AND H. E. BELKIN 1980. *Thermal gradient migration of fluid inclusions in single crystals of salt from the waste isolation pilot plant site (WIPP). Scientific basis for nuclear waste management*. C. J. M. Northrup. N.Y., Plenum Publishing Corporation. 2: 453 - 464.

ROTHFUCHS, T., WIECZOREK, K., OLIVELLA S. AND GENS, A. 2003. Lessons Learned in Salt. *European Commission CLUSTER Conference on the Impact of EDZ on the Performance of Radioactive Waste Geological Repositories. 3-5 November 2003, Luxembourg*. European Commission Report EUR 21028 EN, CEC, Luxembourg.

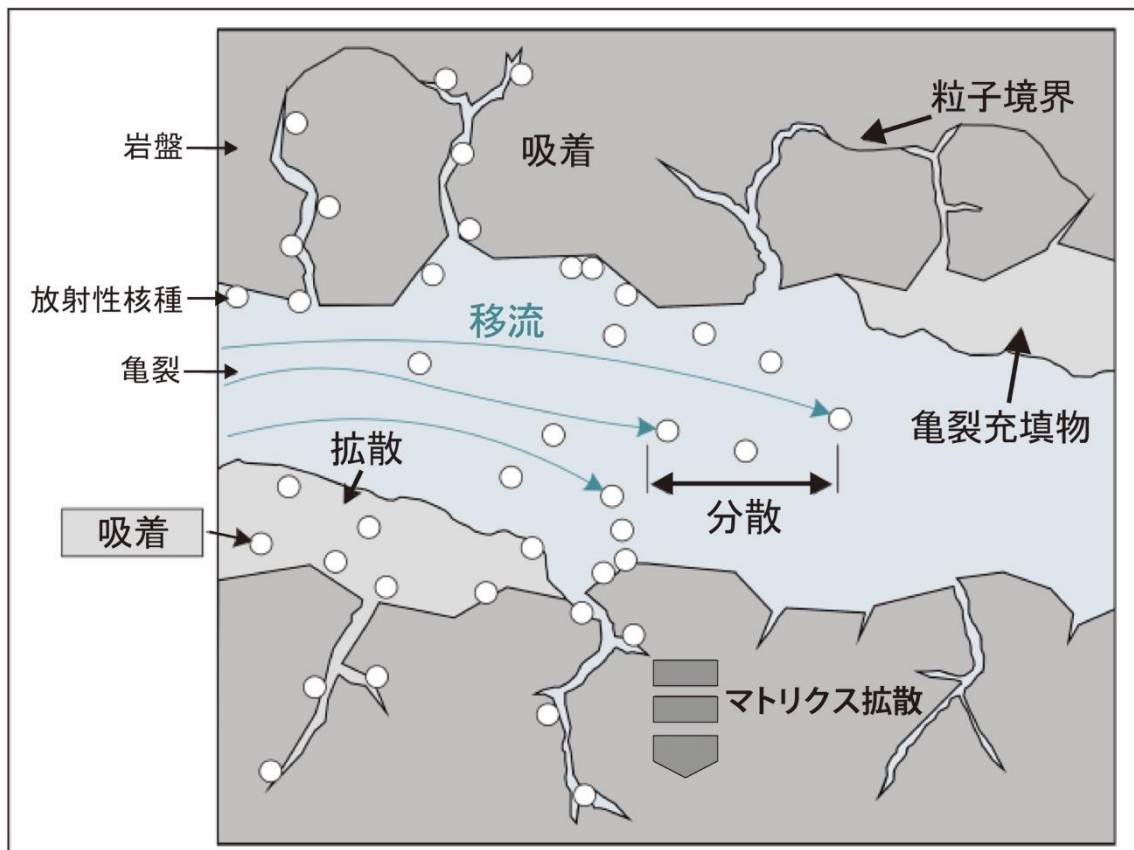
3.3 長期隔離の概念

事例 23 : マトリクス拡散 : 母岩の長期隔離特性

概要

マトリクス拡散の性質

放射性廃棄物が長期的にどのようなようになるのかについて検討する場合、放射性核種の一部は、最終的には廃棄物から地層処分施設の周囲の母岩に移行すると想定する。その後、二つの現象によって、放射性核種は岩盤中に保持される。つまり、岩盤中の鉱物に収着するか、岩盤マトリクス（基岩部）に拡散するかである。「マトリクス拡散」とは、岩盤の亀裂中を地下水とともに流れる放射性核種が、周囲の岩盤マトリクスへ浸透（拡散）するプロセスを指す。この岩盤への拡散は、間隙あるいは微小亀裂の連結によって起こる。



亀裂中の放射性核種の移行特性の仕組みを表す概念図（拡散、分散および収着）

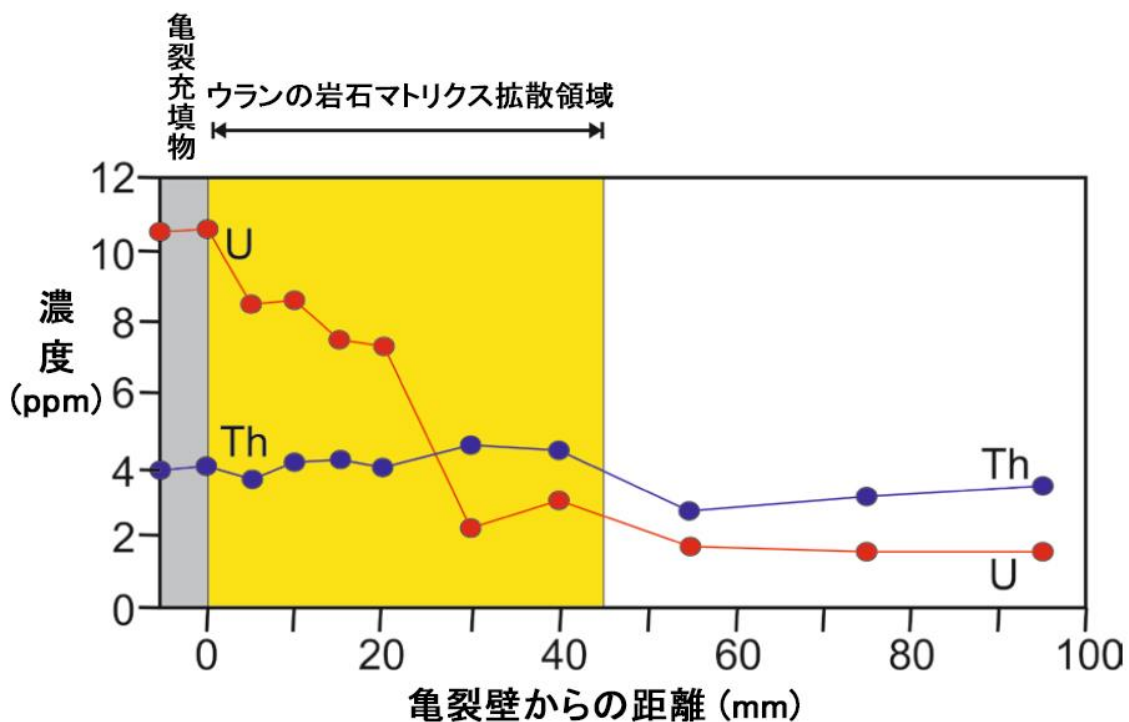
マトリクス拡散の重要性とは、地下水に溶解した放射性核種と接触する岩の表面領域を、亀裂表面から巨大な岩盤（母岩部分）全体にまで、著しく拡大させることができる可能性があることである。この拡散プロセスによる岩盤全体の放射性核種「収着」の規模は、多くの場合、マトリクス部の様々な特性を測定することが難しいことから、過小評価されている。マトリクス中の放射性核種の遅延が過小評価されることによって、母岩から地表への放射性核種の輸送が大幅な過剰予測となる可能性がある。これは、特にヨウ素129等の非収着性放射性核種で顕著である。その場合、これら

の核種は、地下水と同じ速度で輸送されることになる。

マトリクス拡散理論の基礎は、60年以上前にほぼ確立されていたが、マトリクス拡散概念は、地層処分施設のセーフティケースに適用される前に、試験的な検証を必要とした。拡散プロセスの室内試験は、長い時間を必要とし、完了するまでに数年かかるため事例が限られている。また、岩石コアの掘削と室内試験の実施施設への輸送などによって、岩盤マトリクスに大幅な変化（間隙や新たな亀裂経路の増加）が生じることから、室内試験によるデータは、地層処分施設の母岩における自然条件とは異なる。そのため、ナチュラルアナログが有益となる。掘削コアは、（地下水の流れる）亀裂から岩盤マトリクスまで採取され、岩石コアの化学的性質と構成が調査できる。

マトリクス拡散のナチュラルアナログ研究

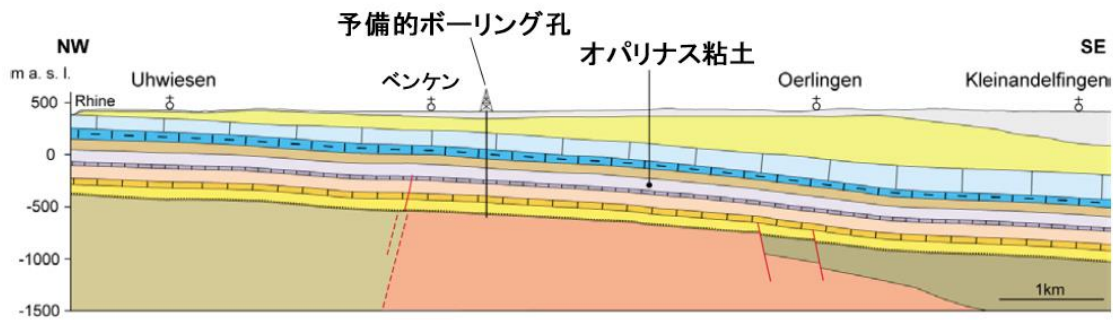
マトリクス拡散の評価について、標準的なナチュラルアナログのアプローチは、岩盤中の天然トレーサー（追跡子）（例：ウラン，トリウム等）を調査することである。母岩の平均的な化学組成は、全体的に概ね等しいと想定され、その偏差は、過去の岩石と水の相互作用の有無を明らかにするために用いられる（この作用によって、例えば平均値を超えるウランが追加されたか、取り除かれた可能性を知ることができる）。



日本の本州に位置する釜石鉄鉱山にある釜石花崗岩の透水性亀裂からの距離の関数として、花崗閃緑岩中のウラン (U) とトリウム (Th) の濃度変化を示した地球化学的分布 (太田他 (1998) に基づく)

通常、母岩中の既知の透水性亀裂からの距離による分布に従って、様々な指示元素の分布を調べる。例えば日本原子力研究開発機構 (JAEA) は、上の図にあるように日本の釜石鉄鉱山の釜石花崗閃緑岩にある同機構の原位置試験サイトでマトリクス拡散の研究を実施した。理想的な状態では、マトリクス拡散は亀裂から遠くなるとなだらかな濃度分布となるとされるが、岩盤のばらつきはこ

の分布を複雑化する。上記グラフでは、比較的移行しにくいトリウムが、グラフ上でわずかな変化を示す一方で、地下水中で輸送されやすいウランは、左側の亀裂から岩盤マトリクスに入り、少なくとも深さ30 cm内部まで進む徴候を示している。この地球化学的分布に対する解釈としては、亀裂から岩盤へ移行した結果、ウランの同位体であるウラン234がマトリクスに加えられたことを示しており、ウラン ($^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$) とトリウム ($^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$) の同位体比率によっても裏付けされる。だがその一方で、トリウムは影響を受けないままである。



スイス北部のベンケンボーリング孔の断面図

さらに最近では、数百メートル規模の岩層全体の拡散プロセスを調べることにより、個々の亀裂を横断したメートル規模のコアの調査が新たに加わった。この調査では、スイス北部のオパリナス粘土層（上記の図のグレー部分）に深いボーリング孔が掘られている。オパリナス粘土は、1億6,000～1億7,600万年前に深海で堆積しており、透水性が非常に低いため、そのマトリクス間隙中に初期の海水の大部分が保持されている。

上層および下層の岩層は、透水性が高く、海水は急速にそれらの岩盤マトリクス部から流出し、淡水系地下水によって置換された。オパリナス粘土と隣接する岩石間の化学的な勾配によって、マトリクス中の塩化物は、オパリナス粘土から上層と下層の岩層に向かって移行し始めた。このアナログデータに基づいたモデル構築によって、拡散輸送は約50万年前に始まったことが示唆されており、この地域の他の地質的痕跡と合致する。さらに重要なことは、マトリクス拡散が、過去に確認された数十センチメートルではなく、数百メートルの距離まで起こっていることが示された。スウェーデンとスイスの深部結晶質岩、および日本の珪質泥岩における最近の研究から、同様のマトリクスの存在が示されており、これが一般的に起こる現象であることが示唆される。

不確実性と限界

- ・ ナチュラルアナログ研究は、地層処分施設の深度の母岩の実際の条件をよく再現しており、室内試験に関わる擾乱の影響を受けないが、多くの境界条件に関する情報の不足によって、完全に明確な成果を常に得ることはできない可能性がある。
- ・ 今日までの研究の多くは、ジェネリックなサイトで行われており、地層処分施設のサイトスペシフィックなデータによって、確実性が高まる可能性がある。
- ・ マトリクス拡散プロセスの厳密な研究は、深部の岩石層においてはわずかしか実施されてい

ない。

適用性 - 得られた知見

- ・ マトリクス拡散は、亀裂性結晶質岩（例：釜石）、透水性が非常に低い堆積物（例：オパリン粘土）、そして世界各地にある多くのサイトにおいて、放射性核種を遅延するプロセスであることが証明されている。
- ・ 初期の地層処分施設のセーフティケースは、マトリクス拡散を全く想定していないか、あるいは非常に限定的な規模（岩石中に1~10 cm）であると想定していた。しかし、最近のナチュラルアナログ研究によって、最高数百メートルの距離まで拡散が可能であることがわかっている。
- ・ このことは、今後のセーフティケースにおいては、現実的なマトリクス拡散深度を考慮すべきであることを示唆しており、特にヨウ素 129、炭素 14 等の非吸着性放射性核種の遅延機能を評価する際に重要である。
- ・ ナチュラルアナログデータの中からマトリクス拡散パラメータとして、性能評価（例：スイスの Kristallin-1、日本の第2次とりまとめ）で定量的に使用された。おそらく、その理由の一つは、そのデータの非常に単純かつ直接的な特性だからである。

参考文献

- GARRELS, R.M., DREYER, R.M. AND HOWLAND, A.L. 1949. Diffusion of ions through intergranular spaces in water saturated rocks. *Bulletin of the Geological Society of America*, **60**, 1809–1924.
- KUNIMARU, T., OTA, K., YAMAMOTO, H. AND ALEXANDER, W.R. 2010. Hydrochemistry of the groundwaters from JAEA's Horonobe URL: Data Freeze I - preliminary evaluation of boreholes HDB9, 10 and 11. *JAEA Report*, **2008-007**, JAEA, Tokai, Japan.
- MAZUREK, M., GAUTSCHI, A., MARSCHALL, P., ALEXANDER, W.R., VIGNERON, G., LEBON, P. AND DELAY, J. 2006. Transferability of features and processes from underground rock laboratories and natural analogues - use for supporting the Swiss and French Safety Cases in argillaceous formations. *Proceedings AMIGO II workshop, NEA, Paris, 2005*. NEA/OECD, Paris, France.
- MILLER, W.M., ALEXANDER, W.R., CHAPMAN, N.A., MCKINLEY, I.G. AND SMELLIE, J.A.T.. 2000. *Geological Disposal of Radioactive Wastes and Natural Analogues*. Waste Management Series, Vol. 2, Pergamon, Amsterdam, The Netherlands.
- NERETNIEKS, I. 1980. Diffusion in the rock matrix: an important factor in radionuclide migration? *Journal of Geophysical Research*, **85**, 4379-4397.
- OTA, K. AMANO, K. AND ANDO, T. 1998. Brief overview of in situ contaminant retardation in fractured crystalline rock at Kamaishi in situ test site. *Proceedings of International Workshop for the Kamaishi in situ Experiments, Japan, August 24-25, 1998, Tokai-mura, Ibaraki-ken, Japan*: Japan Nuclear Cycle Development Institute, 67-76.

WABER, H.N.AND SMELLIE, J.A.T. 2008. Characterisation of pore water in crystalline rocks. *Applied Geochemistry*, **23**, 1834-1861.

4. 自然システムにおける放射性核種移行

4.1 自然システムにおける遅延

事例 24 : ポソス・デ・カルダス : ブラジルのモロ・デ・フェロ およびオサム・ウツミ鉱山 – 序論 概要

地層処分施設の多重バリアシステムは、放射性廃棄物を長期的に閉じ込めることができるように設計される。仮に、バリア構成材の機能が低下しても、多重バリアシステムによって、ニアフィールドとファーフィールドにおける、非常にゆっくりとした放射性核種の移行により地表環境に悪影響を与えないように設計される。しかしながら、化学元素は、その化学形態（化学種）や他の元素／化合物との相互作用によって、環境中で異なる反応をする。例えば、ある元素が移行しやすくなる一方で、他の元素は移行しにくくなる。



ブラジル、オサム・ウツミ鉱山の概観

元素の溶解度と化学種

- ・ 地層処分施設のニアフィールドおよびファーフィールドにおける放射性核種の移行と遅延は、溶解度と化学種等の様々な要因の影響を受ける。ニアフィールドに関しては、複数の地球化学モデルとコードによって、地下水の要素分析（および関連するデータベース）を行い、重要な元素の溶解度と化学種を予測し、地層処分施設のセーフティケースを評価するために用いる核種を予測することができる。このような予測は、ファーフィールドにおいても可能である。

- ・ 地層処分環境の化学的性質の変化は、例えば、酸化還元フロント（酸化還元フロントの項目参照）の進行によって生じることから、ある元素と放射性核種が移行しやすくなる一方で、他の元素は移行しにくくなる。化学的性質のこうした変化は複雑であり、地層処分施設のセーフティケースの性能評価の際に、地球化学モデルコードを用いた理解が必要となる。
- ・ 地球化学モデルで使用される地球化学データベースは、想定される用途にそれらが適していることを実証し、確証されなければならない。ナチュラルアナログは、試験を実施する際や、様々な地球化学モデルの予測結果を確証するため非常に有益である。例えば、地下水中の主要成分といったもののモデル予測と、関連するナチュラルアナログで観察されるデータが一致することによって、データベースが地層処分施設に適用できる可能性があることがわかる。
- ・ 地層処分施設の安全性は、環境中への放射性核種の流出に関する規制目標を満たすことを証明するセーフティケースによって示される。よって、放射性核種の移行と遅延の理解と評価は、セーフティケースにおける重要な部分である。

オサム・ウツミ鉱山とモロ・デ・フェロ

- ・ オサム・ウツミ鉱山とモロ・デ・フェロの研究は、ポソス・デ・カルダスのナチュラルアナログプロジェクト（1986～1990年）の一部である。両サイトは、様々な量のウラン、トリウムおよび希土類元素を含む、アルカリ性の火成岩によって構成される中生代のカルデラにある。
- ・ 特性が明確な両サイトの地下水組成は、ブラインドテストにおいて、放射性廃棄物処分に関連する複数の微量元素（ウラン、トリウム、鉛、ストロンチウム、ニッケル）の溶解性と化学種を計測するために、複数の機関の研究に使用された。その研究結果は比較が可能であり、測定された地球化学データとほぼ一致している。トリウムの溶解度は予想よりも低かった。しかしながら、こうした元素の水中での化学種の予測に関しては一致しなかった。

不確実性と相違

- ・ 両サイトの特性によって、研究されたプロセスに関する境界条件の設定が困難であった。よって、研究結果が地層処分環境とどの程度関連性があるかについては、不確実性が残る。
- ・ 実際の地層処分環境と比較した際、両サイトの母岩の鉱物構成、化学的性質および物理的特性には相違があることが予想される。
- ・ 地球化学モデルの比較実施から、コードによる予測はあまり成功しなかったことがわかる。

適合性 - 得られた知見

- ・ 母岩は、結晶質起源だが、一部の領域は熱水変質によって粘土鉱物に変わった。よって、サイトからベントナイト緩衝材や粘土系母岩環境における放射性核種移行と関連性のあるデータが得られる。
- ・ 地球化学モデルは、セーフティケースの評価に用いられ、そしてオサム・ウツミ鉱山における研究では、これらを厳密に試験することができたため、熱力学データベースが向上した。例えば、トリウムの溶解度が予測よりも低かった。
- ・ 本研究で得られた情報の多くは、半定量的あるいは定性的であり、シナリオや手法の開発に

において有益である。特に酸化還元フロントの変遷と放射性核種の移行におけるその役割の研究において有益である。

- 本研究で取り扱う時間スケールは地質学的スケールであり，約 200 万年以上前にまで及ぶため，セーフティケースで扱う期間に対応している。

参考文献

BRUNO, B., CROSS, J.E., EIKENBERG, J., MCKINLEY, I. G., READ, D., SANDINO, A. AND SELLIN, P. 1990. Testing of geochemical models in the Poços de Caldas analogue study. *SKB Technical Report TR90-20*, SKB, Stockholm, Sweden; *Nagra Technical Report, NTB90-29*, Nagra, Wettingen, Switzerland; *UK DoE Technical Report WR 90-051*.

BRUNO, J., DURO, L. AND MIREIA, G. 2002. The applicability and limitations of thermodynamic geochemical models to simulate trace element behaviour in natural waters. Lessons learned from natural analogue studies. *Chemical Geology 190* (2002) 371–393.

CHAPMAN, N.A., MCKINLEY, I.G., SHEA, M. AND SMELLIE, J. A. T. (Editors) 1992. The Poços de Caldas project: Natural analogues of processes in a radioactive waste repository. *Journal of Geochemical Exploration (Special Edition)*. **45** (1-3).

CHAPMAN, N.A., MCKINLEY, I.G., SHEA, M. AND SMELLIE, J. A. T. (Editors) 1992. The Poços de Caldas project: Natural analogues of processes in a radioactive waste repository. *Journal of Geochemical Exploration (Special Edition)*. Volume **46** (1).

MILLER, W.M., ALEXANDER, W.R., CHAPMAN, N.A., MCKINLEY, I.G. AND SMELLIE, J.A.T.. 2000. *Geological Disposal of Radioactive Wastes and Natural Analogues*. Waste Management Series, Vol. 2, Pergamon, Amsterdam, The Netherlands.

NORDSTROM, D.K., PUIGDOMENECH, I. AND MCNUTT, R. H. 1990. Geochemical modelling of water-rock interactions at the Osamu Utsumi mine and Morro do Ferro analogue study sites. *SKB Technical Report, TR90-23*, SKB, Stockholm, Sweden; *Nagra Technical Report, NTB90-32*, Nagra, Wettingen, Switzerland; *UK DoE Technical Report WR 90-054*.

NAGRA 1993 *Poços de Caldas: Nature's Experiments*. Nagra Bulletin **1/93**.

SMELLIE, J. *Analogue evidence from uranium orebodies*, Report to Nuclear Decommissioning Authority Radioactive Waste Management Directorate, 2009.

事例 25 : ポソス・デ・カルダス : ブラジルのモロ・デ・フェロー 放射性核種移行

概要

地層処分施設の多重バリアシステムは、放射性廃棄物を長期的に閉じ込めができるように設計される。仮に、バリア構成材の機能が低下しても、多重バリアシステムによって、ニアフィールドとファーフィールドにおける放射性核種の岩石への非常に遅い移行によって、地表環境に悪影響を与えないように設計される。

地層処分施設における放射性核種移行

- ・ 長期間にわたって、地層処分施設の人工バリアは劣化し続け、最終的に廃棄物は地下水に接触し、変質が始まる。放射性核種の一部は、非常に動きの遅い地下水に溶解するが、地層処分施設からの移行は、岩石や人工バリアからの腐食生成物との相互作用によって遅くなる。地下水中では、放射性核種の希釈も生じる。
- ・ 地層処分施設の安全性は、環境中への放射性核種の流出に関する規制目標を満たすことを証明するセーフティケースによって示される。よって、放射性核種の移行と遅延の理解と評価は、セーフティケースにおいて重要な部分である。

モロ・デ・フェロー

- ・ モロ・デ・フェロー（鉄の丘陵）の研究は、ポソス・デ・カルダスのナチュラルアナログプロジェクト（1986～1990年）の一部である。モロ・デ・フェローは、様々な量のウラン、トリウムおよび希土類元素を含む、アルカリ性の火山岩と深成岩によって構成される中生代のカルデラにある。このサイトは、長い間地球上で最も放射能が高い場所の一つとされてきた。
- ・ モロ・デ・フェローは、周囲の台地より 140 m 高い場所にある丸みのある丘であり、オサム・ウツミ鉱山から約 5 km 北にある。原岩は、カーボナタイト（主に炭酸塩鉱物からなる火成岩）であったとされるが、少なくとも深さ 100 m まで強い風化を受けている。現在のこの丘は、個々に独自の層を形成する、カオリナイト、イライト、ギブサイト、鉄およびマンガンオキシ水酸化物で構成されている。
- ・ 多くの磁鉄鉱脈（厚さ数メートル）、そしてトリウムと希土類元素の鉱化作用が、丘の南側に沿って広がっている。この場所の一部では、二酸化トリウム濃度が最高約 3 wt % であり、総希土類元素濃度で最高 20 wt % となっている。モロ・デ・フェローでは、ウランの鉱化は確認されていない。鉱化作用の大部分は、地下水面上に生じており、熱帯風化の影響を受ける。
- ・ 二つの目標が、モロ・デ・フェローの研究の焦点となった。一つは、岩石-水相互作用や微量元素の溶解度／化学種の評価のために使用される地球化学コードとデータベースを試験することであり、そして、もう一つは放射性核種のコロイド移行と、放射性核種移行のプロセスにおけるその重要性の調査である。



ブラジル、モロ・デ・フェロの概要

不確実性と限界

モロ・デ・フェロは、粘土系地層処分環境で想定されるものとは、異なる特徴を持つサイトにある。ここは、深地層処分施設の周囲の母岩中で予想される還元環境とは対照的に、様々な鉱物組成と酸化性地下水のある地表近傍環境となっている。

適用性 - 得られた知見

- ・ モロ・デ・フェロにおける深部まで達した風化によって、粘土系地層処分施設（およびベントナイト緩衝材）と詳細な比較が可能となる。このサイトからはベントナイト緩衝材や粘土質の母岩における放射性核種の移行に関するデータが得られる。
- ・ モロ・デ・フェロは、地層処分施設の最悪のシナリオと考えられる。地表近傍の鉱化、熱帯風化作用（酸化）、そして、ほとんどの粘土系処分概念とは異なる鉱物組成（イライト）がその理由である。しかしながら、鉱化が依然として残っていることから、トリウムと希土類元素を移行しにくくするという粘土岩質の固有の特性を示している。
- ・ トリウム、希土類元素およびコロイドの溶出源がわかっていることによって、こうした元素のニアフィールドやファーフィールドにおける移行と遅延を、既知の地下水流動経路に沿って評価することができる。粘土系母岩によってコロイド材料がろ過されることもまた確認されている。
- ・ トリウムと希土類元素の主要な溶出源は、地下水面上の不飽和領域にあるため、本アナログは不飽和領域における処分概念とも関連がある。
- ・ 本研究からの情報の多くは、半定量的あるいは定性的であり、シナリオの開発において、特にコロイドの作用を評価する際に有用である。
- ・ 本研究で取り扱う時間スケールは地質学的であり、約 200 万年以上前にまで及ぶため、セーフティケースの評価期間に対応している。

参考文献

- BRUNO, J., DURO, L. AND MIREIA, G. 2002. The applicability and limitations of thermodynamic geochemical models to simulate trace element behaviour in natural waters. Lessons learned from natural analogue studies. *Chemical Geology* 190 (2002) 371–393.
- CHAPMAN, N.A., MCKINLEY, I.G., SHEA, M., SMELLIE, J. A. T. (EDITORS) 1992. The Poços de Caldas project: Natural analogues of processes in a radioactive waste repository. *Journal of Geochemical Exploration (Special Edition)*. **Volume 45** (1-3).
- CHAPMAN, N.A., MCKINLEY, I.G., SHEA, M., SMELLIE, J. A. T. (EDITORS) 1992. The Poços de Caldas project: Natural analogues of processes in a radioactive waste repository. *Journal of Geochemical Exploration (Special Edition)*. **Volume 46** (1).
- MILLER, W.M., ALEXANDER, W.R., CHAPMAN, N.A., MCKINLEY, I.G. AND SMELLIE, J.A.T.. 2000. *Geological Disposal of Radioactive Wastes and Natural Analogues*. Waste Management Series, Vol. 2, Pergamon, Amsterdam, The Netherlands.
- NAGRA 1993 Poços de Caldas: Nature's Experiments. *Nagra Bulletin* **1/93**.
- SMELLIE, J. *Analogue evidence from uranium orebodies*, Report to Nuclear Decommissioning Authority Radioactive Waste Management Directorate, 2009.

事例 26 : ポソス・デ・カルダス : ブラジルのオサム・ウツミ鉱山 – 放射性核種移行

概要

地層処分施設の多重バリアシステムは、放射性廃棄物を長期的に閉じ込めることができるように設計される。仮に、バリアを構成材の機能が低下しても、多重バリアシステムによって、ニアフィールドとファーフィールドにおける放射性核種の非常に遅い移行によって、地表環境に悪影響を与えないように設計される。

地層処分施設における放射性核種移行

- ・ 長期間にわたって、地層処分施設の人工バリアは劣化し続け、最終的に廃棄物は地下水に接触し、劣化が始まる。放射性核種の一部は、非常に動きの遅い地下水に溶解するが、地層処分施設からの移行は、岩石や人工バリアからの腐食生成物との相互作用によって遅くなる。地下水中では放射性核種の希釈も生じる。
- ・ 地層処分施設の安全性は、環境中への放射性核種の放出に関する規制目標を満たすことを証明するセーフティケースによって示される。よって、放射性核種の移行と遅延の理解と評価は、セーフティケースにおいて重要な部分である。

オサム・ウツミ鉱山

- ・ オサム・ウツミ鉱山の研究は、ポソス・デ・カルダスのナチュラルアナログプロジェクト (1986～1990年) の一部である。この鉱山は、様々な量のウラン、トリウムおよび希土類元素を含む、アルカリ性の火山岩と深成岩によって構成される中生代のカルデラにある。岩石鉱物の一部は、熱水変質作用中に粘土鉱物に変質した。ここでは商業目的でウランが採掘されてきた。
- ・ 激しい風化によって最上部の岩石が変質し、初生ウランと他の微量元素が浸出した結果、明瞭な酸化還元フロントに沿って、ウランの二次的な沈殿が生じた。
- ・ 酸化性の地表水の岩盤への浸透によって形成された酸化還元フロントの深度は、亀裂によって支配され、鉱山において容易に観察することができる (酸化されていない岩石は青灰色で、酸化された岩石は岩石中の鉄の酸化によって赤茶色を呈する)。二次的なウランは、センチメートル規模の瀝青 {れきせい} ウラン鉱のノジュールとして、多くの場合、二次的に形成された鉄とともに、酸化還元フロントのすぐ先にある未酸化の岩石内においてははっきりと確認できる。酸化還元フロントの後方にある初生ウランは全て、水酸化鉄に伴うものである。
- ・ 三つの研究目標が、本鉱山における研究の焦点となった。第一に岩石-水相互作用や微量元素の溶解度や化学種の評価のために使用される地球化学コードとデータベースの適用性を確認することである。第二に酸化還元フロントの地球化学的、生物学的変遷モデルの適用性の確認である。これは特に、酸化還元感受性の天然放射性核種の長期間にわたる大規模な移行挙動について行われる。そして、第三に熱水活動中の希土類元素とウラン-トリウム系列放射性核種の移行のモデルの構築である。



ブラジル, オサム・ウツミ鉱山の概観

不確実性と相違

- ・ サイトと鉱山の特性のため、研究されたプロセスに関する境界条件を設定することが困難であった。よって、研究結果が地層処分環境にどの程度直接的に関連するかについては、不確実性が残る。
- ・ 他の粘土系母岩と比較した際、オサム・ウツミ鉱山における母岩の鉱物組成および化学的、物理的特性は異なることが予想される。
- ・ 酸化還元フロントの形成と移行のモデル化が不可能であり、使用された連成コードが不適であった。また、微生物を媒介とした反応が影響していることがわかっているにもかかわらず、地球化学システムが複雑であることから、放射性核種の遅延プロセスについては明確に理解されていない。

適用性 - 得られた知見

- ・ 母岩は、当初は結晶質起源だが、一部の領域は熱水変質によって粘土鉱物に変わった。よって、サイトからベントナイト緩衝材や粘土系母岩環境における放射性核種移行と関連性のあるデータが得られる。
- ・ 本研究は、ニアフィールドやファーフィールドの境界飽和領域（酸化還元フロントの形成、移動および遅延ポテンシャル、高い温度勾配）、およびファーフィールド（高温下の放射性核種の移行と輸送）に適用可能である。
- ・ 地球化学モデルは、セーフティケースの評価に用いられ、オサム・ウツミ鉱山における研究では、これらを厳密に適用性の確認をすることができたため、熱力学データベースが改善された。例えば、トリウム溶解度が予測よりも低かった。
- ・ 本研究からの情報の多くは、半定量的あるいは定性的であり、シナリオや手法の開発におい

て有益である。このことは、特に酸化還元フロントの変遷とその放射性核種移行における役割の研究において言える。

- 本研究で取り扱う時間スケールは地質学的であり、約 200 万年以上前にまで及ぶため、セーフティケースで扱う期間に対応している。

参考文献

BRUNO, J., DURO, L. AND MIREIA, G. 2002. The applicability and limitations of thermodynamic geochemical models to simulate trace element behaviour in natural waters. Lessons learned from natural analogue studies. *Chemical Geology*, **190**, 371-393.

CHAPMAN, N.A., MCKINLEY, I.G., SHEA, M., AND SMELLIE, J. A. T. (Editors) 1992. The Poços de Caldas project: Natural analogues of processes in a radioactive waste repository. *Journal of Geochemical Exploration (Special Edition)*. **45** (1-3).

CHAPMAN, N.A., MCKINLEY, I.G., SHEA, M., AND SMELLIE, J. A. T. (Editors) 1992. The Poços de Caldas project: Natural analogues of processes in a radioactive waste repository. *Journal of Geochemical Exploration (Special Edition)*. **46** (1).

MILLER, W.M., ALEXANDER, W.R., CHAPMAN, N.A., MCKINLEY, I.G. AND SMELLIE, J.A.T.. 2000. *Geological Disposal of Radioactive Wastes and Natural Analogues*. Waste Management Series, Vol. 2, Pergamon, Amsterdam, The Netherlands.

NAGRA 1993 Poços de Caldas: Nature's Experiments. *Nagra Bulletin* **1/93**.

SMELLIE, J. *Analogue evidence from uranium orebodies*, Report to Nuclear Decommissioning Authority Radioactive Waste Management Directorate, 2009.

事例 27 : ポソス・デ・カルダス : ブラジルのオサム・ウツミ鉱山 – 酸化還元フロント

概要

地下には酸素がわずかしか存在しないため、岩石と地下水は、通常は還元条件にある。還元条件によって、放射性核種の動きは非常に遅くなり、放射性廃棄物の地層処分施設から移行しなくなる。しかしながら、地層処分施設の掘削と操業の際に空気と酸化状態の地下水が進入すると、それに触れた岩石は酸化し、放射性核種の移行性を変化させる酸化還元フロントが形成される。

酸化還元フロント

- ・ 酸化還元フロントは、異なる酸化環境下にある二つの岩石および地下水システムの境界に形成される。全ての地層処分施設のニアフィールド、ファーフィールドにおいて、酸化還元フロントの進行は、通常避けることができない。
- ・ 掘削された地層処分施設が、短時間でも（例えば、モニタリングあるいは回収可能性に関する理由で）開放されたままになっていたとすれば、空気中の継続的な酸素供給によって、酸化還元フロントは坑壁から岩盤中に移行する。地層処分施設の閉鎖後、酸素は地下水に溶解し、酸化還元プロセスで使用される。最終的に、ニアフィールドは還元状態になる。
- ・ 酸化還元フロントは、下方へ浸透する酸素を含む地表地下水が、深層の還元地下水と接触するファーフィールドで生じる可能性がある。
- ・ 高レベル放射性廃棄物と使用済燃料の処分場では、酸化還元フロントは、酸化イオンが発生する廃棄物由来の水の放射線分解（分裂）によって生じる。
- ・ 鋼鉄やベントナイト等の地層処分施設の人工バリアは、酸化還元緩衝材として機能するため、酸化イオンを消費することで還元条件を維持する。
- ・ 多くの放射性核種の化学的性質は、酸化還元環境に大きく影響されるため、その移行量は酸化還元フロントの前後で変化する。概して、酸化条件によって、放射性核種の移行性は高まる。
- ・ 地層処分施設の安全性は、環境中への放射性核種の流出に関する規制目標を満たすことを証明するセーフティケースによって示される。よって、放射性核種の移行と遅延の理解と評価は、セーフティケースにおける重要な部分である。そのため、酸化還元プロセスのモデル化を可能にする地球化学コードの開発が重要な研究課題となる。

オサム・ウツミ鉱山

- ・ オサム・ウツミ鉱山の研究は、ポソス・デ・カルダスのナチュラルアナログプロジェクト（1986～1990年）の一部である。この鉱山は、様々な量のウラン、トリウムおよび希土類元素を含む、アルカリ性の火山岩と深成岩によって構成される中生代のカルデラにある。
- ・ 激しい風化によって最上部の岩石が変質し、初生ウランと他の微量元素が浸出した結果、明瞭な酸化還元フロントに沿って、ウランの二次的な沈殿が生じた。
- ・ 酸化性の地表水の岩盤への浸透によって形成された、酸化還元フロントの深度は、亀裂によって支配され、鉱山内において容易に観察することができる（酸化されていない岩石は青灰色で、酸化された岩石は岩石中の鉄の酸化によって赤茶色を呈する）。溶解した元素はその

後、酸化還元フロントを超えて拡散する。

- ・ 過去 30 万年以内に生じた酸化還元フロントの還元領域には、ウランの沈殿と濃集の明確な痕跡（瀝青ウラン鉱の 1 cm のノジュールで、多くの場合、二次的に形成された鉄を伴う）がある。
- ・ 酸化帯の酸化還元フロントに残留した全ての初生ウランは、鉄のオキシ水酸化物に伴うものである。
- ・ 酸化還元フロントの全体的な化学的性質は、非常に複雑であり、鉄、硫黄およびウランの関与する多くの反応の微生物触媒と関係している。
- ・ 酸化還元フロントは、100 万年に 1~20 m の速さで動き、それはサイトにおける侵食速度とほぼ同じである。
- ・



オサム・ウツミ鉱山。酸化表面水の岩石への浸透によって形成された酸化還元フロントを示す。（酸化されていない岩石は青灰色（右側），酸化された岩石は岩石中の鉄の酸化によって赤茶色を呈する（左側））

鉱山における酸化還元フロントに広がる化学反応を解明するため、様々な地球化学モデルによる手法とコードが、開発され、適用性の確認が行われた。これらによって、主要な化学反応（例えば、瀝青ウラン鉱の酸化還元反応）は、再現可能であることがわかった。しかしながら、適用性の確認が行われたいずれのコードによっても、酸化還元フロントで観察された鉱物組成と、その移行速度のモデル化はなし得なかった。

不確実性と相違

- ・ 鉱山における酸化還元フロントの進展は、地層処分施設のニアフィールドで生じる可能性があるものとは異なる。なぜなら、鉱山の酸化還元フロントは地球の大気システムおよび地表

近傍の地下水流動と関係しており、それらによって牽引されるが、地層処分施設における酸化還元フロントは異なるからである。

- 酸化還元フロントの形成と移行のモデル化が不可能であり、使用された連成コードが不適であった。長期の安全性能評価でそうしたコードを使用するためには、コードと熱力学データベースのさらなる開発が求められる。また、地球化学システムが複雑であることから、放射性核種の遅延プロセスについては、明確に理解されていない。
- 酸化還元フロント前後における化学的性質と反応において微生物が主要な役割を果たす。しかしながら、地層処分施設におけるこうした重要性は、栄養とエネルギー源がどの程度存在するかによって依存しており、これは地層処分施設的设计概念によって異なる。

適用性 - 得られた知見

- 本研究から、酸化還元フロントの位置は透水性亀裂に支配されており、酸化還元フロントにおける元素の動きは、その大部分が拡散によって支配されることがわかる。これは、廃棄物パッケージに付随する遮蔽レベルによって異なるが、高レベル放射性廃棄物、使用済燃料および放射能が高い中レベル放射性廃棄物の処分場のニアフィールドにおいて、放射線分解によって生じる酸化還元フロントにおいて重要である。
- 本研究は、ニアフィールド、ファーフールド境界の飽和領域（酸化還元フロントの形成、移動および遅延）とも関連がある。
- 地球化学モデルは、セーフティケースの評価に用いられ、そしてオサム・ウツミ鉱山における研究では、これらを厳密に試験することができたため、熱力学データベースが向上した。本研究が開始されてから、さらなる発展が見られた。
- 本研究からの情報の多くは、半定量的あるいは定性的であり、シナリオや手法の開発において有益である。このことは、特に酸化還元フロントの変遷とその放射性核種の可動化における役割の研究において言える。
- 本研究で取り扱う時間スケールは、約 100 万年以上にまで及ぶため、セーフティケースの評価期間に対応している。

参考文献

BRUNO, J., DURO, L. AND MIREIA, G. 2002. The applicability and limitations of thermodynamic geochemical models to simulate trace element behaviour in natural waters. Lessons learned from natural analogue studies. *Chemical Geology* **190**, 371–393.

CHAPMAN, N.A., MCKINLEY, I.G., SHEA, M. AND SMELLIE, J. A. T. (EDITORS) 1992. The Poços de Caldas project: Natural analogues of processes in a radioactive waste repository. *Journal of Geochemical Exploration (Special Edition)*. **Volume 45** (1-3).

CHAPMAN, N.A., MCKINLEY, I.G., SHEA, M. AND SMELLIE, J. A. T. (EDITORS) 1992. The Poços de Caldas project: Natural analogues of processes in a radioactive waste repository. *Journal of Geochemical Exploration (Special Edition)*. **Volume 46** (1).

CROSS, J.E., HAWORTH, A., LICHTNER, P.C., MACKENZIE, A.B., MORENO, L., NERETNIEKS, I., NORDSTROM, D.K., READ, D., ROMERO, L., SCOTT, R.D., SHARLAND, S. AND TWEED, C. 1990. Testing models of redox front migration and geochemistry at the Osamu Utsumi mine and Morro do Ferro analogue study sites, Poços de Caldas, Brazil. *SKB Technical Report, TR90-21*, SKB, Stockholm, Sweden; *Nagra Technical Report, NTB90-30*, Nagra, Wettingen, Switzerland; *UK DoE Technical Report, WR 90-052*.

MILLER, W.M., ALEXANDER, W.R., CHAPMAN, N.A., MCKINLEY, I.G. AND SMELLIE, J.A.T.. 2000. *Geological Disposal of Radioactive Wastes and Natural Analogues*. Waste Management Series, Vol. 2, Pergamon, Amsterdam, The Netherlands.

NAGRA 1993 Poços de Caldas: Nature's Experiments. *Nagra Bulletin 1/93*.

SMELLIE, J. *Analogue evidence from uranium orebodies*, Report to Nuclear Decommissioning Authority Radioactive Waste Management Directorate, 2009.

WABER, N., SCHORSCHER, H.D., MACKENZIE, A.B., PETERS, T. 1990. Mineralogy, petrology and geochemistry of the Poços de Caldas analogue study sites, Minas Gerais, Brazil. *SKB Technical Report, TR90-11*, SKB, Stockholm, Sweden; *Nagra Technical Report, NTB90-20*, Nagra, Wettingen, Switzerland; *UK DoE Technical Report WR 90-042*.

事例 28 : エル・ベロカルプロジェクト : 放射性廃棄物の処分場からのウランの可動化と移行のアナログ

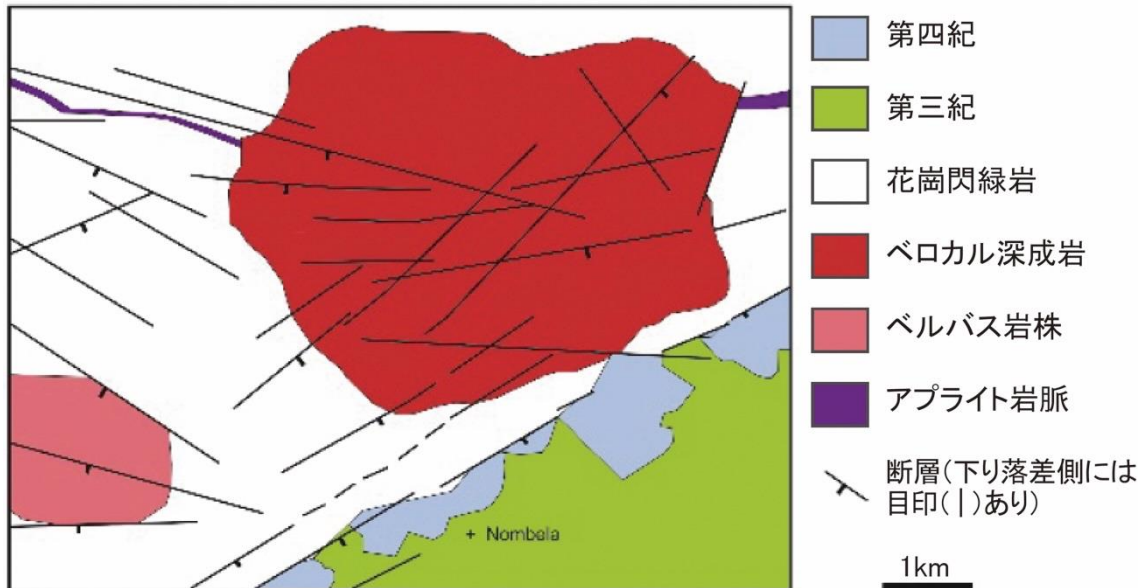
概要

エル・ベロカルプロジェクトでは、使用済燃料の変遷のアナログとしてウラン鉱脈を研究した。これは、FP2欧州原子力共同体 (Euratom) (欧州委員会 (EC)) 出資のプロジェクトで、ENRESA (スペイン) , CIEMAT (スペイン) およびNirex (英国) が共同出資し、スペイン、イタリア、フランスおよび英国から関係者が集まった。本プロジェクトは、1991～1995年まで実施され、エル・ベロカルの花崗岩に生じたウラン鉱化に関連した天然放射性核種移行について、様々な観点から調査を行った統合化されたプロジェクトである。

本プロジェクトの主な目的は、地層処分施設のセーフティケースに関連するプロセスに焦点を合わせて、亀裂性花崗岩の環境において、天然に存在する放射性核種の移行挙動と分布を支配している過去と現在のプロセスの理解を進めることであった。

ウラン鉱化

エル・ベロカル鉱山は、マドリードの約90 km南西にあり、2億8,900万年前の花崗岩の貫入岩から成る。エル・ベロカルエリアの中で、ここは、第三紀の堆積物との間に断層が生じている。



エル・ベロカルの地質地図

エル・ベロカル

- この場所の花崗岩には、ウランに富む石英の鉱脈が複数あり、そのうち、少なくとも二つは、経済的価値があると考えられ、1960年代後半に廃鉱となるまで長年にわたって採鉱されてきた。

- ・ 最大2メートル幅の大きな鉱脈の一つが研究対象となった。この鉱脈では、約100mの距離にわたって掘られた一連の横坑によって採鉱されていた。立ち入り可能な横坑の一つは、長さ約70mあり、これを本プロジェクトの研究で利用した。
- ・ 初生ウラン鉱物は、閃ウラン鉱（瀝青 {れきせい} ウラン鉱）だが、ウランの二次鉱物がよく見られ、硫化鉱物が副次的に存在する。



エル・ベロカルにおけるボーリング孔掘削と閃ウラン鉱の鉱脈鉱化

プロジェクト期間中、このサイトを評価するために、地上と地下の両方から最大深度609m、合計総延長2,100mを超える19本のボーリング孔がフルコアで採掘された。こうしたボーリング孔の注目点は以下の事項である。

- ・ 花崗岩と鉱化の特性把握

- ・ 亀裂と不連続面の特性把握
- ・ 地下水の化学的性質と流動の特性把握
- ・ 深度に伴う物理化学的性質の変化の調査
- ・ トレーサー試験の実施

不確実性と限界

- ・ エル・ベロカル鉱山の不安定な特性から、研究対象のプロセスにおける境界条件の設定は困難であった。特に地表近傍の酸化環境は、閉鎖後の放射性廃棄物の地層処分施設で予想される還元環境とは異なる。よって、研究結果が、地層処分環境にどの程度直接的に適用可能かについて不確実性が残る。
- ・ 実際の地層処分環境と比較した際に、母岩の鉱物組成および化学的、物理的特性は異なることが予想される。
- ・ 地球化学モデルの比較実施から、モデルコードによる予測については限定的な成果しか得られていないことがわかる。

適用性 - 得られた知見

- ・ エル・ベロカルの研究から、花崗岩性母岩における放射性廃棄物の地層処分施設のセーフティケースに適用可能な情報が得られた。サイトで生じた低温熱水作用と続いて起こる化学的風化作用は、高レベル放射性廃棄物 (HLW) の地層処分施設で予想される地球化学プロセスの一部に類似していると考えられる。
- ・ 硫化物を含むウラン・石英の鉱脈における鉱化は、伸展する脆性破壊に関連して花崗岩を起源とする鉱物を含む低温熱水循環流体によって生じた。地殻変動の後には、さらなるウラン鉱化が低温 (35~100°C) で生じている。
- ・ 副次的鉱物と粘土鉱物は、花崗岩変質作用中のウラン・石英鉱化によって溶出した重元素の保持において、重要な役割を果たす。また、鉱化においてウランは4価ウランとして、リン酸塩鉱物中へ沈殿するか、方解石によって保持される。
- ・ エル・ベロカルにおける初生ウラン源である、通常の閃ウラン鉱についての二酸化ウランの溶解流量の計算値と、使用済燃料の溶解モデルによる予測値との比較において、二酸化ウランの基本的な挙動は一致している。
- ・ エル・ベロカルの地下水中のウラン濃度は、 $4 \times 10^9 \sim 8 \times 10^6$ M にまで及ぶ。なお、浅層の有酸素水中では炭酸塩複合体が優位を占めるが、これらは深層の還元地下水領域で優位を占める4価ウランの水酸化物によって、深層の高pH水中でトリカーボネート種に変質する。
- ・ 地下水のコロイドのサンプル採取から、個体数は、108~1,012 粒子/ℓで、地下水としては比較的少ないことがわかった。コロイドによる岩石-水システムに存在する放射性核種の収着は、ごく一部に限られるようである。

参考文献

ENRESA; 1996; *El Berrocal Project – Characterization and validation of natural radionuclide migration processes under real conditions on the fissured granitic environment – Topical Reports; Volume I – Geological Studies* (596p); Volume II – *Hydrogeochemistry* (557p); Volume III - *Laboratory migration test and in situ tracer test* (224p); Volume IV – *Hydrogeological Modelling and Code Development* (680p); Enresa, Madrid.

RIVAS, P., HERNÁN, P., BRUNO, J., CARRERA, J., GÓMEZ, P., GUIMERÀ, J., MARÍN, C., AND PÉREZ DEL VILLAR, L.; 1997; *El Berrocal Project – Characterization and validation of natural radionuclide migration processes under real conditions on the fissured granitic environment – Final Report*; **EUR 17478**; European Commission Luxembourg Office for Official Publications of the European Communities; ISBN 92-827-9673-6; 522p.

RIVAS, P., HERNÁN, P., ASTUDILLO, J., BRUNO, J., CARRERA, J., DE LA CRUZ, B., GUIMERÀ, J., GÓMEZ, P., IVANOVICH, M., MARÍN, C., MILLER, W., AND PÉREZ DEL VILLAR, L.; 1998; *El Berrocal Project - Summary Report*; **EUR 17830**; European Commission Luxembourg Office for Official Publications of the European Communities; ISBN 92-828-2147-1; 70p.

SMELLIE, J. *Analogue evidence from uranium orebodies*, Report to Nuclear Decommissioning Authority Radioactive Waste Management Directorate, 2009.

事例 29 : スコットランドのニードルズ・アイ : ウランの可動化と移行

概要

地層処分施設の多重バリアシステムは、放射性廃棄物の長期的な閉じ込めが可能となるように設計される。もし、バリア構成材の機能が低下したとしても、多重バリアシステムの設計では、代わりにニアフィールドおよびファーフィールドにおける岩石中への放射性核種の非常にゆっくりとした移動により地球環境に悪影響を与えない。ニードルズ・アイの研究では、小規模なウラン鉱脈から有機物が豊富な堆積物への、ウランの可動化、輸送および遅延に影響するプロセスの一部について、調査が実施された。

地層処分施設における放射性核種移行

長期間にわたって、地層処分施設の人工バリアは劣化し続け、最終的に廃棄物は地下水に接触し、変質が始まる。放射性核種の一部は、非常に動きの遅い地下水に溶解するが、地層処分施設からの移行は、岩石や人工バリアからの腐食生成物との相互作用によって遅くなる。地下水中では、放射性核種の希釈も生じる。よって、放射性核種の移行性は、放射性廃棄物の地層処分施設のセーフティケース評価において、考慮すべき重要な事項となる。

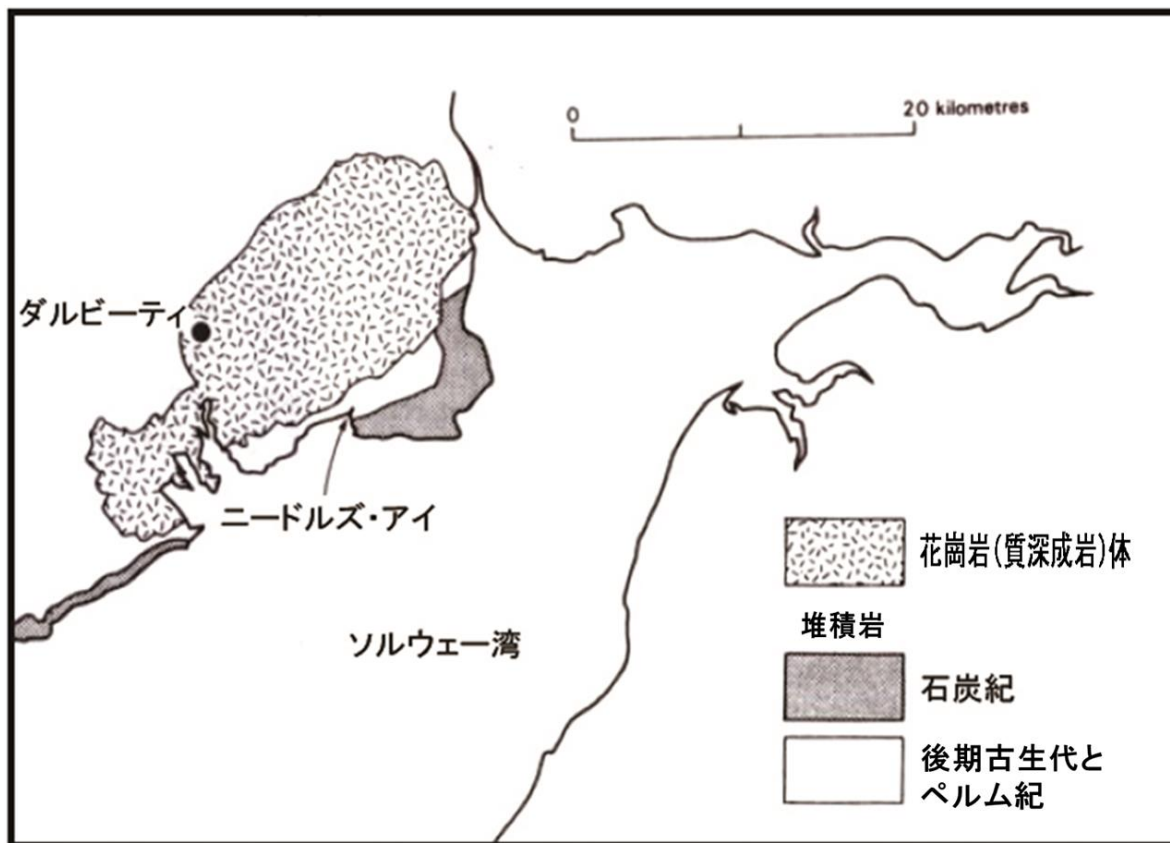
ニードルズ・アイのナチュラルアナログ



ニードルズ・アイ近傍、シルル紀の変成堆積岩から成る平らな地形の上にそびえるのは、クリフェルの花崗閃緑岩によって形成された、ヘザーで覆われた高く曲線的な丘である (©A.E Milodowski, 2015)

地質学的設定

ニードルズ・アイのナチュラルアナログサイトは、スコットランド南西部、ダルビーティ近傍のサウスウィックにあるソルウェー湾北岸に位置する。この名称の由来は、崖の海岸侵食によって形成されたニードルズ・アイとして知られる天然の岩石のアーチである。現在の地形は、主要な南西—北東方向の断層によって支配され、シルル紀の変成堆積岩に石炭の石灰岩が近接して並列に配置されている。また、古代の後氷河期の海食崖も特徴的である。崖の下には波食棚や隆起海岸があり、海岸には後氷河期の河口堆積物と、現在の嫌気性で、有機物に富む泥炭湿原と塩性湿地の現世堆積物が積み重なっている。これらは、塩耐性植生に覆われた海成シルト質堆積物から成る氾濫原まで、約10 mほど広がっている。



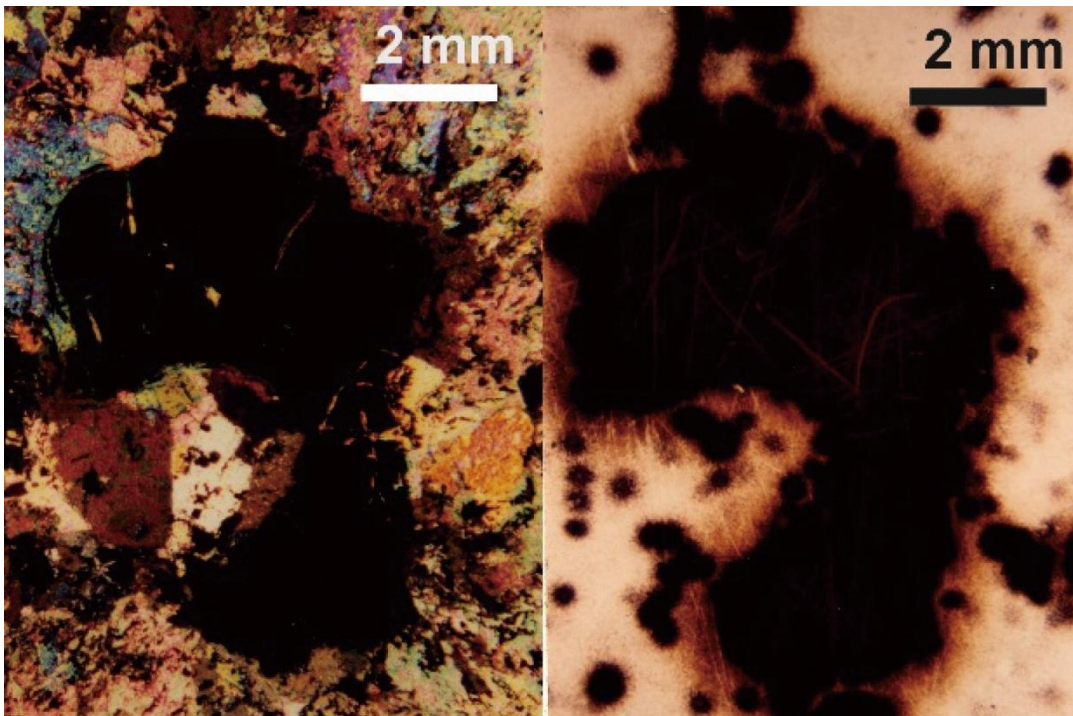
地質図とニードルズ・アイのナチュラルアナログサイトの位置 (© British Geological Survey)

鉍化

この地域には、主に鉄苦灰岩と方解石から成り、他に赤鉄鉍、黄銅鉍、黄鉄鉍、ダイジェナイト、方鉛鉍、コバルト・ニッケル・ヒ化物、硫化物の複雑な集合体を含む方解石、そして希少なセレン鉛鉍、ビスマス（蒼鉛）鉍物を含んだ金属に富む鉍脈がある。閃ウラン鉍（二酸化ウラン、変種ピッチブレンド（瀝青ウラン鉍））、二次ウラノフェン（Ca-U）そして不安定性炭化水素（ビチューメン）は、鉍脈内に被覆物として、または鉄苦灰岩に閉じ込められた形で生じる。鉍脈は、カレドニアクリフェル花崗閃緑岩の南端にある接触変成帯中の、ホルンフェルス化したシルル紀の変成堆積岩層にある。鉍脈は、花崗岩体から放射線状に広がり、一番大きい鉍脈は海岸線まで広がっている。鉍脈の一つにある瀝青ウラン鉍は、1億8,500万年±2,000万年前のものと年代測定される（Miller and Taylor, 1966）。



瀝青ウラン鉱と硫化物鉱化を含む方解石-苦灰岩の鉱脈の角礫岩は、ニードルズ・アイの崖に浸透する地下水によって、浸出している (©British Geological Survey)



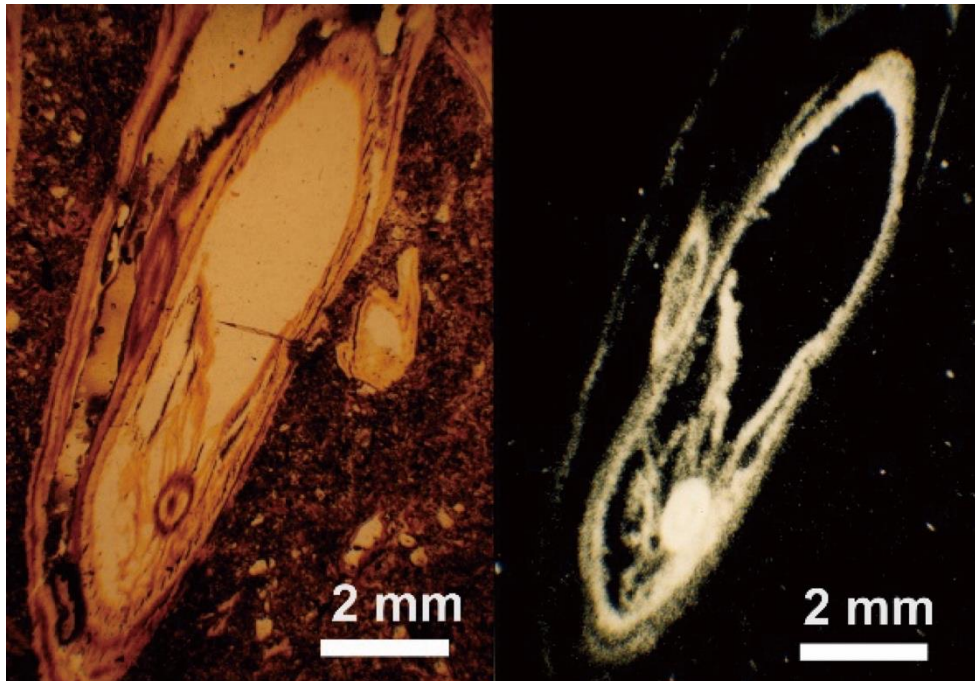
左：苦灰岩と方解石基質中の不透明な閃ウラン鉱（瀝青ウラン鉱）を示す薄片の透過光顕微鏡写真。
右：ウラン分布からの激しい放射線を示すフィッション・トラック画像 (©British Geological Survey)



ニードルズ・アイ, 崖の下にある古代の崖線



崖の鉱脈鉱化から浸出したウランは、崖の下にある有機物が豊富な泥炭湿原と塩性湿地とに濃集している
(©A.E Milodowski, 2015)



左：植物の根の構造を示す，泥炭の薄片の透過光顕微鏡写真。

右：根の木質化組織中に濃集したウランを示す，同じ部分の放射線写真（©British Geological Survey）

不確実性と限界

- ・ 本研究は，温暖な海洋性気候下におけるウランとトリウムの放射性核種の移行プロセスに関する地表近傍と地表環境の範囲に限定される。酸化還元条件は，亀裂性花崗閃緑岩崖では酸化条件であり，沼沢地の堆積物層の一部では還元条件である。ニードルズ・アイの地表近傍システムによって，本アナログは地層処分施設のニアフィールド環境に適したものとはならない。
- ・ 本研究からの知見は，セーフティケースに直接適用することはできない。なぜなら，物質の化学的性質と鉱物学的，物理的特性の観点から，ニードルズ・アイと地層処分環境には大きな相違があるからである。しかしながら，この知見は生物圏における吸着と挙動について説明するために，使用できる。

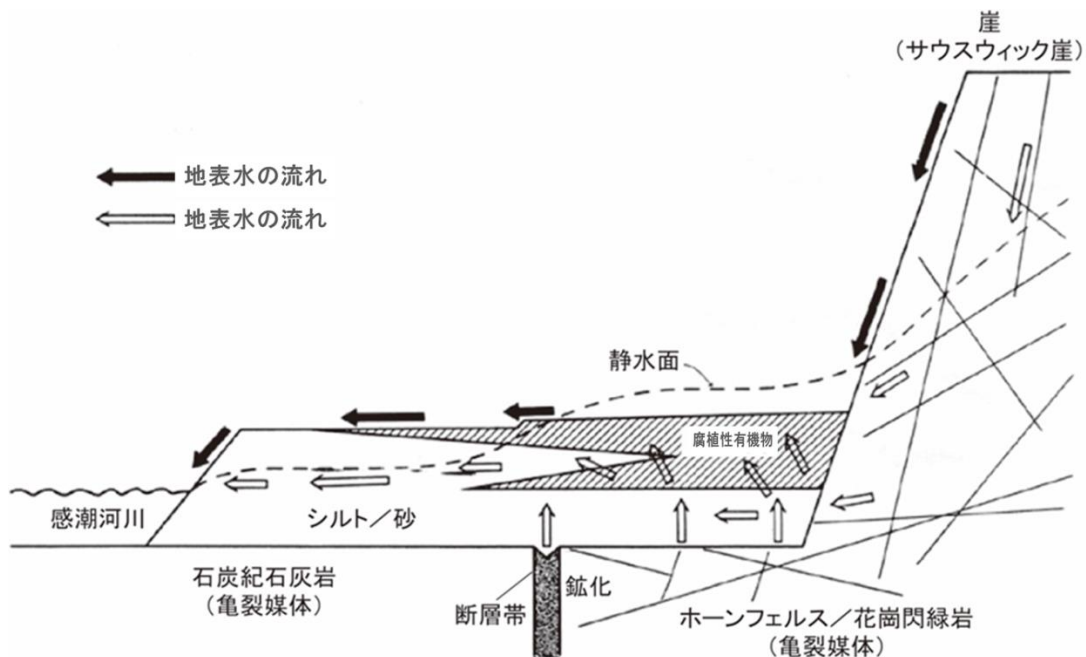
適用性 - 得られた知見

崖にある亀裂性のシルル紀の変成堆積物に浸透した，天水起源の地下水によって鉱脈からウランが移行した。本研究によって，瀝青ウラン鉱は以下の二つのプロセスによって，溶解したことがわかった。

- ・ 最初のプロセスは，おそらく還元水による長期間にわたるゆっくりとした浸出を伴う。これによって，結果的にウラン 238 と比べて優先的に起こるウラン 234 の溶解が生じた。
- ・ 2 番目のプロセスによって，最初のプロセスと同時期の酸化水による急速な溶解が生じる。
- ・ ウランと比較して，トリウムの溶解と移行はわずかである。

移行ウランの一部は、安定した酸化（6価ウラン）ウラン鉱物として、鉱脈の近くに再堆積した。しかしながら、物質収支計算法によって、ウランの約80～90%が浅層地下水によって輸送され、崖の下にある泥炭湿原中の嫌気性土壌に再堆積したことがわかる。そこでは、土壌中の有機性の（腐植性）物質と、鉄のオキシ水酸化鉄物上への収着によって、ウランが固定されている。

- ・ 河口と泥炭湿原の堆積物中のウラン濃集の一部は、堆積物の底部にある母岩から流出する地下水から生じている。また、別のウラン濃集が湿原を流れる地表水によって泥炭の表面にも生じている。
- ・ 植物もまた大量のウランを吸着する。
- ・ ウランは、風化鉱脈鉱化中の瀝青質の炭化水素の変質に伴うバクテリアによっても濃集する。本サイトには容易に近づくことができ、様々な堆積物の定量的な透水係数データによって、その特性が明確になっている。シルト質で有機物が豊富な堆積物上へのウラン収着について、いくつかのデータが取得されている。
- ・ 本サイトは、浅層地下水システムにおける、ウランとその崩壊系列核種の地表近傍移行のプロセスと、有機物が豊富な土壌および堆積物におけるウラン固定の理解に適している。ニードルズ・アイは、泥炭に関する地圏と生物圏のインターフェースシステムの好事例である。
- ・ 本アナログは、地球化学的な化学種モデルおよび化学的輸送の研究コードの試験にとって有益であることがわかった。そして、生物圏研究にも適している。
- ・ 本アナログの時間スケールは、前回の氷河期の終期から現在まで、すなわち過去約12,000年間を含む。
- ・ 本アナログは、地層処分環境において固体の腐植性有機物が、ウラン移行の遅延に作用した可能性があることを示している。



Copyright BGS (NERC) 1990

ニードルズ・アイのナチュラルアナログサイトの概念横断面図

参考文献

- BASHAM, I.R., MILODOWSKI, A.E., HYSLOP, E.K. AND PEARCE, J.M. 1989. The location of uranium in source rocks and sites of secondary deposition at the Needle's Eye natural analogue site, Dumfries and Galloway. *British Geological Survey Technical Report*, **WE/89/56**; also as *HMIP REPORT*, **DOE/HMIP/RW/89.091**.
- CRAWFORD, M.B. AND HOOKER, P.J. 1994. The geochemical behaviour of uranium in groundwaters from the Merse sediments at the Needle's Eye natural analogue site, southwest Scotland. *British Geological Survey Technical Report*, **WE/92/33**; also as *HMIP REPORT*, **DOE/HMIP/RR/94/008**.
- FALCK, W.E. AND HOOKER, P.J. 1992. Uranium solubility and solubility controls in selected Needle's Eye groundwaters. *British Geological Survey Technical Report*, **WE/90/30**.
- HIGGO, J.J.W., FALCK, W.E. AND HOOKER, P.J. 1989. Sorption studies of uranium in sediment-groundwater systems from the natural analogue sites of Needle's Eye and Broubster. *British Geological Survey Technical Report*, **WE/89/40**.
- HOOKER, P.J. 1991. The geology hydrogeology and geochemistry of the Needle's Eye natural analogue site. *t, Commission of the European Communities Nuclear Science and Technology Report*, **EUR 13434**, CEC, Luxembourg.
- LEDOUX, E., JAMET, PH., HOOKER, P.J. AND ESCALIER DES ORRES, P. 1991. Hydrogeochemical modelling of the Needle's Eye, natural analogue (Scotland). In *Source, Transport and Deposition of Metals*, PAGEL, M. AND LEROY, J.L. (EDITORS). *Proceedings of the 25th Anniversary Meeting of the Society for Geology Applied to Mineral Deposits, Nancy, 30 August-3 September 1991*. Balkema, Rotterdam, pp. 65-68.
- MILLER, J.M. AND TAYLOR, K. 1966. Uranium mineralisation near Dalbeattie, Kirkcubrightshire. *Bulletin of the Geological Survey of Great Britain*, **25**, 1-18.
- MILODOWSKI, A.E., WEST, J.M., PEARCE, J.M., HYSLOP, E.K., BASHAM, I.R. AND HOOKER, P.J. 1990. Uranium mineralized micro-organisms associated with uraniferous hydrocarbons in southwest Scotland. *Nature*, **347**, 465-467.
- MACKENZIE, A.B., WHITTON, A.M., SHIMMIELD, T.M., JEMIELITA, R.A., SCOTT, R.D. AND HOOKER, P.J. 1991. Natural decay series radionuclide studies at the Needle's Eye natural analogue site, II, 1989-91. *DOE Report* **DOE/HMIP/RR/91/044**; also *British Geological Survey Technical Report*, **WE/91/37**.
- MACKENZIE, A.B., SCOTT, R.D., HOUSTON, C.M. AND HOOKER, P.J. 1991. Natural decay series radionuclide studies at the Needle's Eye natural analogue site. *Commission of the European Communities Nuclear Science and Technology Report*, **EUR 13126**, CEC, Luxembourg.
- ROBERTS, P.D., BALL, T.K., HOOKER, P.J. AND MILODOWSKI, A.E. 1989. A uranium geochemical study at the natural analogue site of Needle's Eye, SW Scotland. In: *The Scientific Basis for Nuclear Waste Management*, Proceedings of the XII International Material Research Symposium, 10-13 Oct. 1988, Berlin. Materials Research Society Symposium Proceedings. **Vol.127**, 933-940.
- SCOTT, R.D. MACKENZIE, A.B., BEN-SHABAN, Y.A., HOOKER, P.J. AND HOUSTON, C.M. 1991. Uranium transport and retardation at the Needle's Eye natural analogue site, south west Scotland. In *Chemistry and Migration Behaviour of*

Actinides and Fission Products in the Geosphere. Proceedings of the 'Migration '89' International Conference, Monterey, CA, USA, Nov. 6-10 1989. *Radiochimica Acta*, **52/53**, 357-365.

SMELLIE, J. *Analogue evidence from uranium orebodies*, Report to Nuclear Decommissioning Authority Radioactive Waste Management Directorate, 2009.

事例 30 : スコットランドのブロブスタ : ウランの可動化と移行

概要

地層処分施設の多重バリアシステムは、放射性廃棄物の長期的な閉じ込めが可能となるように設計される。もし、バリア構成材の機能が低下したとしても、ニアフィールドとファーフィールドにおける多重バリアシステムによる、放射性核種の岩石への非常に遅い移行によって地表環境に悪影響を与えないように設計される。ブロブスタでの研究では、小さいウラン鉱脈から有機物に富む泥炭湿原の堆積物へのウランの可動化、輸送、遅延に影響するプロセスの一部について調査が実施された。

地層処分施設における放射性核種移行

- ・ 長期間にわたって、地層処分施設の人工バリアは劣化し続け、最終的に廃棄物は地下水に接触し、変質が始まる。放射性核種の一部は、非常に動きの遅い地下水に溶解するが、地層処分施設からの移行は、岩石や人工バリアからの腐食生成物との相互作用によって遅くなる。地下水中では、放射性核種の希釈も生じる。
- ・ 地層処分施設の安全性は、環境中への放射性核種の流出に関する規制目標を満たすことを証明するセーフティケースによって示される。よって、放射性核種の移行と遅延の理解と評価は、セーフティケースにおいて重要な部分である。

ブロブスタのナチュラルアナログ

地質学的設定

ブロブスタのナチュラルアナログサイトは、スコットランド、ケイスネス北部のドーンレイ原子力開発施設から約6 km南東に位置している。ブロブスタの詳細な地質学、水理地質学および地球化学の情報は、Ball・Milodowski (1989) とMilodowski他 (1989) に記述されている。本サイトは、中部の古い赤色砂岩の下部ケイスネス板石層群（ライブスター亜層群）に属するゆるやかな北傾斜にある母岩の上に堆積する氷河性漂礫粘土の薄層に生じた沼沢、泥炭湿原の広がる低地と、褐色土壌の高台から成る小起伏のある地勢となっている。こうした地層は、約4億年前のデボン紀の主に湖成環境（まれに河川の流入あり）に堆積した非海成泥岩、シルト岩、砂岩および石灰岩の周期的層序によって構成される（Mykura, 1993）。

鉱化

1960代後半に英国地質調査所（BGS）によって実施された放射分析および地球化学的調査によって、本サイトの西側にある高台の地表近傍の母岩にある溶出源から、東側にある漂礫粘土を覆う泥炭湿原へのウラン、亜鉛、鉛およびモリブデンの地下水の流れに沿った可動化、輸送および分散が明らかになった。こうした金属は、厚さ 0.4 m のビチューメン質の石灰岩層を貫通した北東方向の鉱化した断層に由来する。断層によって分けられた鉱脈鉱化は、主に方解石と苦灰石、そして小規模な黄鉄鉱、黄銅鉱、閃亜鉛鉱、方鉛鉱、重晶石、およびウランケイ酸塩の包有物のある粘着質のウランを含むビチューメン質の炭化水素の小球体で構成されている。

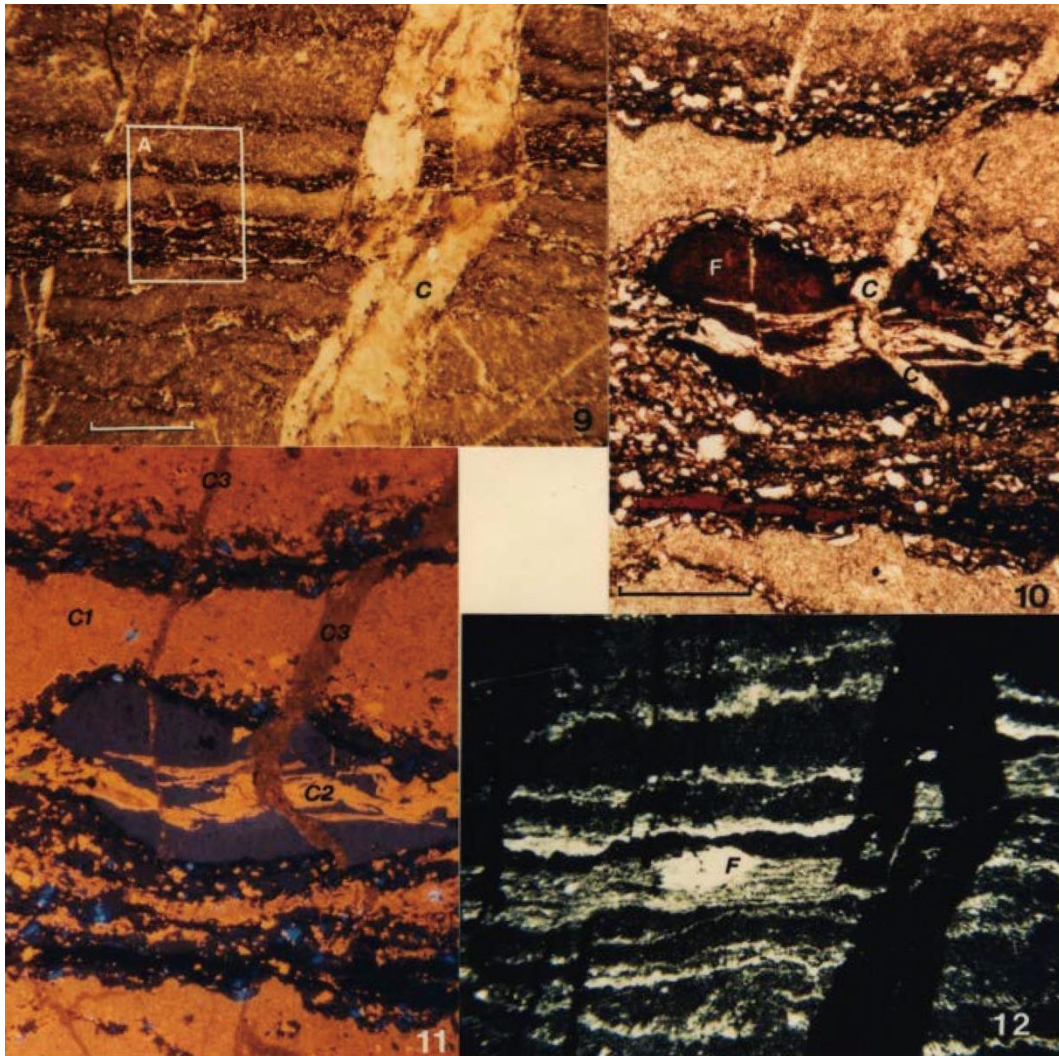


ブロブスタのナチュラルアナログサイトの位置 (Milodowski et al., 1989. ©British Geological Surveyより)



クビエナボックス（ブリキ製容器）を使用した、ブロブスタのナチュラルアナログサイトにおける擾乱を受けていない土壌と堆積物のサンプル採取 (Milodowski et al., 1989. ©British Geological Surveyより)

浅層の酸化性地下水は亀裂、鉍化断層に浸透し、ウランと他の金属を浸出させる。これらは、その後有機物が豊富な下流側の泥炭湿原の堆積物中に濃集・再堆積している。ビチューメン質の石灰岩は、100 ppmを上回るほど非常に多くのウランを含み、また大規模なウランの溶出源となっていると考えられる。石灰岩中のウランは、自生ブランネル石のようなU-Si-Ti酸化物相に分散した碎屑性の自生リン灰石、モナズ石、リン酸イットリウム鉍に存在し、これらはしばしば黄鉄鉍に伴って生じ、そして有機物が豊富な薄相と、代替ビチューメン質の炭化水素小球にも存在する。リン酸塩性の魚類化石の断片中においても、続成変質作用の結果、ウラン濃度が非常に高くなっている。



有機物が豊富な薄層と魚類化石の断片中のウラン分布を示す、石灰岩の薄片の顕微鏡写真と対応するフィッシュン・トラック画像 (Milodowski et al., 1989. ©British Geological Surveyより)

不確実性と限界

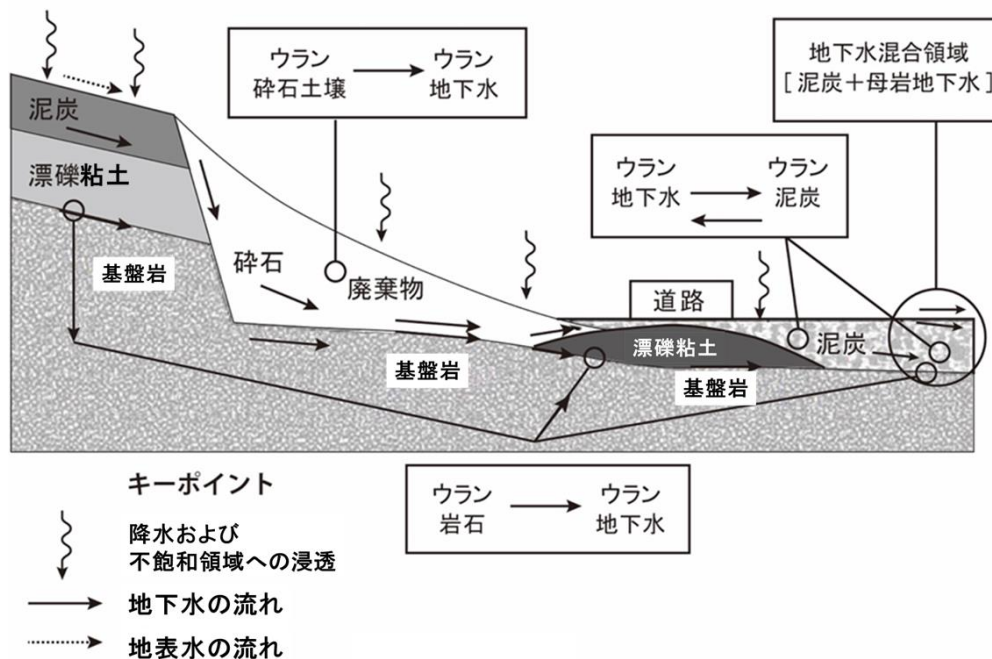
- ・ 本研究は、温暖な海洋性気候における、ウラン核種の移行プロセスに対して地表近傍および地表の環境に限定されたものである。プロブスタにおける地表近傍システムは、比較的酸化条件であり、閉鎖後の地層処分施設のニアフィールド環境で見られる還元条件ではない。
- ・ 本研究からの知見は、セーフティケースに直接には適用できない。なぜなら、物質の化学的

性質、鉱物学的、物理的特性の観点から、ブロボスタと地層処分環境には大きな相違があるためである。しかしながら、生物圏における吸着と挙動の説明に用いることができる。

- ・ 過去の流動速度と地下水組成は、特に断層帯から流出する地下水に関して、不確実性がある。
- ・ 本サイトは、1970年代の土地利用の変化によって、化学的に擾乱を受けている。サイト西部における放牧のための土地改良のため石灰をまいた結果、pH の変化と、ウランや他の元素の再移動を生じさせた。よって、本アナログ調査期間（1986～1991年）にサンプル採取された堆積物と水の地球化学的性質は、泥炭に濃集したウラン異常が発生した際の低 pH 値ではない可能性がある。

適用性 - 得られた知見

デボン紀の石灰岩中のウランを含む断層鉱化に浸透した、天水起源の地下水の流れに沿って、ウランは断層から隣接する泥炭湿原に移行した。



ブロボスタのナチュラルアナログサイトにおける地下水の動きとウランの可動化、輸送および濃集の概念図 (Ball and Milodowski, 1989 ©British Geological Surveyより)

本研究によって、ウランの可動化と再堆積は、以下のプロセスと関連していることが示された。

- ・ 風化作用と地下水浸出によって、ウランとその他の金属は断層鉱化や石灰岩性母岩から移行した。
- ・ 地下水による輸送と分散によって、ウランは、100 m を超える距離を移行した。そして、地下水の流れに沿って、嫌気性で有機物が豊富な泥炭湿原の堆積物に再度濃集したため、湿原の一部ではウラン濃度が最高 0.1 wt % にまで達している。
- ・ ウランの大部分は、可溶性 6 価ウランのフルボ酸複合体として輸送された。

- ・ ウランは、腐植物質上のカルボン酸官能基群との相互作用によって、泥炭中に固定されている。
- ・ 二次分散パターンは、本サイトの局所的排水パターンに忠実に従っており、ウラン濃集異常は北東方向に流れる地表排水路に沿っている。
- ・ ラジウムもまた、断層と風化石灰岩上に広がる褐色土中のマンガン水酸化物層準 (“wad”) に、集中的に濃集していることが観察された。
- ・ 放射性炭素年代測定によって、泥炭の底部は4,000年以上前のものあることがわかった。
- ・ 本サイトには容易に近づくことができ、様々な堆積物タイプの定量的な透水係数データによって、その特性が明確になっている。
- ・ 本サイトは、浅層地下水システムにおけるウラン（およびその崩壊系列核種）の地表近傍移行プロセスと、有機物が豊富な土壌と堆積物におけるウランの吸着と固定の理解に適している。プロブスタは、泥炭に関する地圏と生物圏のインターフェースシステムの好事例である。
- ・ 本研究では、フルボ酸コロイドが、サイトにおけるウランの水溶性輸送において、主要な役割を果たすことを示された。
- ・ 本アナログは、ウランの化学種モデルと化学的輸送の研究コードの試験にとって、有益であることがわかった。
- ・ 本アナログの時間スケールは、過去約5,000年間の完新世を含む。
- ・ 本アナログは、地層処分環境において固体の腐植性有機物が、ウラン移行の遅延に作用する可能性があることを実証する。

参考文献

- BALL, T.K. AND MILODOWSKI, A.E. 1989. The geological, geochemical, topographical and hydrogeological characteristics of the Broubster natural analogue site, Caithness. *British Geological Survey, Technical Report, WE/89/37.*
- BOWIE, S.H.U., OSTLE, D. AND GALLAGHER, M.J. 1970. Uranium reconnaissance in northern Scotland. *Transactions of the Institution of Mining and Metallurgy, B79*, 180-182.
- GALLAGHER, M.J., MICHIE U.MCL., SMITH R.T. AND HAYNES L. 1971. New evidence of uranium and other mineralisation in Scotland. *Transactions of the Institution of Mining and Metallurgy, 80*, 150-173.
- HIGGO, J.J.W., FALCK, W.E. AND HOOKER, P.J. 1989. Sorption studies of uranium in sediment-groundwater systems from the natural analogue sites of Needle's Eye and Broubster. *British Geological Survey, Technical Report, WE/89/40.*
- LONGWORTH G., IVANOVICH M. AND WILKINS, M.A. 1989. Uranium series disequilibrium studies at the Broubster analogue site. *AEA Technology Report, AERE R 13609.*
- MILODOWSKI, A.E., BASHAM, I.R., HYSLOP, E.K. AND PEARCE, J.M. 1989. The uranium source-term mineralogy and geochemistry at the Broubster natural analogue site, Caithness. *British Geological Survey, Technical Report, WE/89/50.*
- MYKURA, W. 1983. Old Red Sandstone. In: *Geology of Scotland. 2nd edition.* GY Craig (Editor) Chapter 8, 205-251. Scottish Academic Press, Edinburgh.

READ, D. AND HOOKER, P.J. 1992. Using data from natural environments to improve models of uranium speciation in groundwaters. *Journal of Geochemical Exploration*, **46**, 63-81.

READ, D., BENNETT, D.G., HOOKER, P.J., IVANOVICH, M., LONGWORTH, G., MILODOWSKI, A.E. AND NOY, D.J. 1993. The migration of uranium into peat-rich soils at Broubster, Caithness, Scotland, *U.K. Journal of Contaminant Hydrology*, **13**, 291-308.

SMELLIE, J. *Analogue evidence from uranium orebodies*, Report to Nuclear Decommissioning Authority Radioactive Waste Management Directorate, 2009.

SMITH, B., STUART, M.E., VICKERS, B.P. AND PEACHEY, D. 1990. The characterisation of organics from the natural analogue site at Broubster, Caithness, Scotland. *British Geological Survey Technical Report*, **WE/89/33**.

事例 31 : サウステラス鉱山 : ウランの可動化と移行

概要

地層処分施設の多重バリアシステムは、放射性廃棄物の長期的な閉じ込めが可能となるように設計される。もし、バリア構成材の機能が低下したとしても、ニアフィールドとファーフィールドにおける多重バリアシステムによる、放射性核種の岩石への非常に遅い移行によって地表環境に悪影響を与えないように設計される。本研究は、ウランを含む鉱山廃棄物からのウランの可動化と、粘土が豊富な周囲の土壌と沖積堆積物におけるその固定についての、地球化学的支配要因について調査するために実施された。

地層処分施設における放射性核種移行

- ・ 長期間にわたって、地層処分施設の人工バリアは劣化し続け、最終的に放射性廃棄物は地下水に接触し、変質が始まる。放射性核種の一部は、非常に動きの遅い地下水に溶解するが、地層処分施設からの移行は、岩石や人工バリアからの腐食生成物との相互作用によって遅くなる。地下水中では、放射性核種の希釈も生じる。
- ・ 地層処分施設の安全性は、環境中への放射性核種の流出に関する規制目標を満たすことを証明するセーフティケースによって示される。よって、放射性核種の移行と遅延の理解と評価は、セーフティケースにおいて重要な部分である。

サウステラスのアナログ

地質学的設定

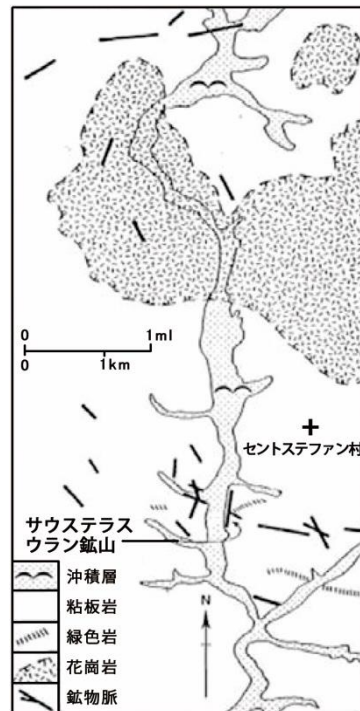
廃坑のサウステラス鉱山は、英国、コーンウォールにあるセントステファン村の近くにある。この鉱山は以前、ユニオン鉱山として知られており、1873年にウランが発見されるまでは、当初黄土（鉄鉱石）の採鉱が行われていた。ウラン鉱脈は最長幅1.2 mであり、セントオーステル花崗岩の南に生じる複数の類似鉱脈の一つである。この鉱山は当地域で一番大きく、1929年に閉鎖されるまで一番重要なウランの産出地であった。ウランは、主にガラス製造の用途で生産され（すなわち、緑色のガラスの生産）、1910年までに鉱山廃棄物からの286トンを含め、総量736トンのウラン鉱石が生産された（Dines, 1956）。大量のウランを含んだ鉱山廃棄物は、当初、サイトを覆っていた、粘土が豊富な沖積堆積物と土壌からなる地表に直接廃棄されていた。こうした廃棄物の一部は、その後再加工され、擾乱を受けた。これはウラン鉱石をさらに採取するためでもあり、また地元の農民によって、現地の道路の砂利としても使用された。

鉱化

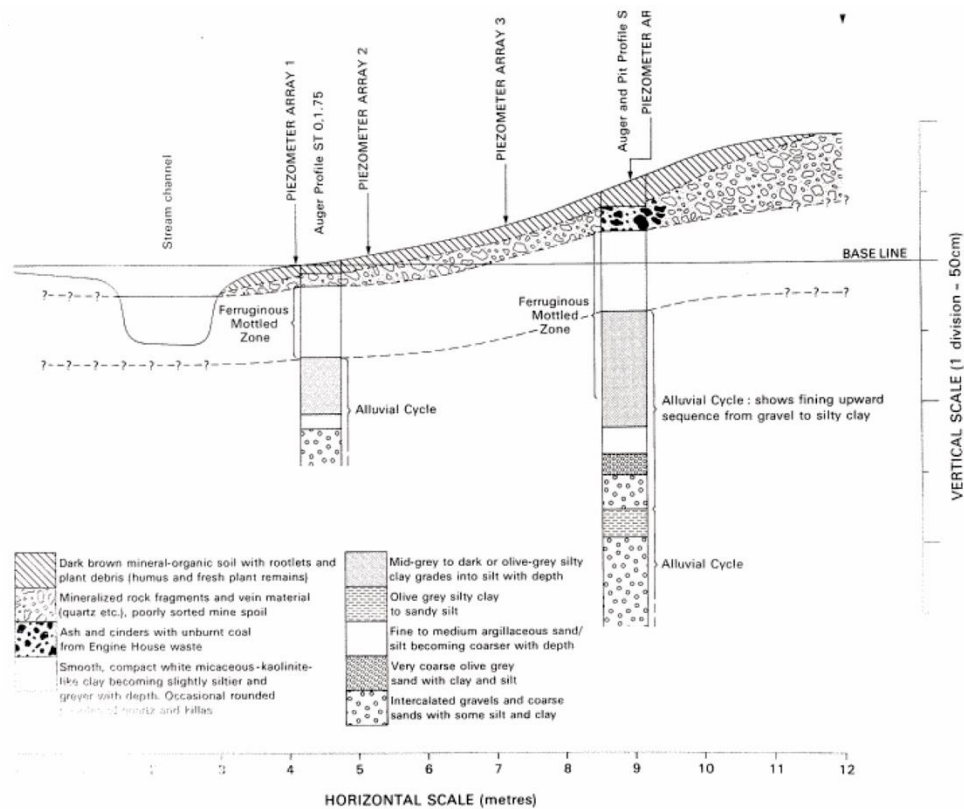
採鉱された初生ウラン相は瀝青ウラン鉱だが、ジップ石、リン銅ウラン石、リン灰ウラン石等の二次鉱物も見られた。主要な鉱脈にはもう近づくことができないが、こうした鉱物の全ては、現在地表に投棄された掘削廃棄物中に未だに存在している。

ウランの移行

英国地質調査所（BGS）は、鉍山掘削土の山からのウラン系列放射性核種の移行の研究を実施した。これが、1986～1990年に実施された、サウステラスのアナログ研究の焦点であった。廃棄物への雨水の浸透によって、廃棄物の山の鉍石からウランが浸出した。そして、その浸出液は、下層と隣接する沖積堆積物まで浸透した。地表近傍の地下水が、移動しやすいウランを粘土に富む堆積物を通して、付近のファル川の小支川まで到達している。



サウステラスの地質図（Dines, 1956. ©British Geological Surveyより）



沖積堆積物層序の詳細を示す、サウステラスのナチュラルアナログサイトの断面図 (Hooker et al., 1989. © British Geological Surveyより)

不確実性と限界

- ・ 本サイトは擾乱を大きく受けており、ウランとトリウムの移行と分布に影響を与えてきた（物理的、化学的、微生物学的な）関連プロセスを区別することが困難なことは問題である。
- ・ 本研究は、ウランと一部のウラン系列核種に限定される。他の微量元素は廃棄物の山にある鉱物（例：コバルト、ニッケル、銅、ヒ素）の中に生じるが、詳細な分析が行われていないため、沖積堆積物における汚染物質移行の地球化学モデルのデータベースとして、一般的な値を提供するのに十分ではない。
- ・ 本研究は、ウランとトリウム核種の移行プロセスに関する地表近傍/地表環境に限定される。鉱山廃棄物は不飽和状態にあるが、地下水面は地表近傍にあり下にある沖積堆積物中にある。ウラン収着は、鉱物表面の有機被覆物の存在と、pH および Eh の小さな変化に大きく依存する可能性がある。そして、原位置の酸化還元条件の測定には、不確実性がある。酸化還元条件は、鉱山廃棄物中では酸化条件を示す傾向があるため、これは閉鎖後の地層処分施設のニアフィールド環境のウランを研究するのに適したアナログにはならない。しかしながら、嫌気条件であると思われる下層にある沖積堆積物へのウランの拡散は、より関連性が高い可能性がある。
- ・ 鉱山廃棄物と地層処分環境には、物質の化学的性質、鉱物学的、物理学的特性の観点から大きな相違がある。

適用性 - 得られた知見

- ・ 鉱山廃棄物中の瀝青ウラン鉱と二次的なウラン鉱物は、下層にある沖積堆積物中のウランとトリウムは、下層にある粘土が豊富な沖積堆積物に輸送させられる。
- ・ 地下水の溶解度モデルによって、鉱山廃棄物の下にある沖積堆積物中の地下水が、瀝青ウラン鉱と二次ウラン鉱物に対して、不飽和状態にあったことがわかる。このことから収着がウランの遅延と固着において、主要な機能であったことが示唆される。
- ・ 収着によって、ウラン系列元素が移行地下水中に付加されることが、最小限に抑えられた。しかし、鉱山廃棄物由来のウランとバックグラウンドのウランを区別するのは困難であった。この堆積層内の深さ約 1.2 m 地点において、地下水中のウラン濃度は、廃棄物の山の近くでは 214 ppb であったのに対し、移行流の一番近くでは、はるかに低い値である 0.77 ppb まで下がった。堆積物について、トリウム 230/ウラン 234 の放射能比は 1 未満であり、溶液からのウランの追加が原因となる (Hooker et al., 1989)。Read 他 (1991) は、水溶性ウラン種 (主にウラニルリン酸塩) と堆積鉱物の相互作用を明らかにするため、表面錯体理論を用いてウランの溶解挙動をモデル化した。これらによって、単純な K_d アプローチよりも、ウランの収着プロセスのより本質的な表現ができた。
- ・ 本サイトは、浅層地下水システムにおける、ウランとトリウムの地表近傍の移行プロセスと、地表近傍の粘土が豊富な土壌と堆積物への固定の理解に適している。よって、類似の堆積環境 (例: ドリッグ) を伴う地表近傍の低レベル放射性廃棄物 (LLW) の処分場には最適であろう。
- ・ 本アナログは、ウランとトリウムの地球化学的な化学種のモデル化および輸送の研究コードの確証という意味で、有益であることがわかった。これは、特に CHEMTARD コードを使用した場合について言える (Read et al., 1991)。
- ・ 本アナログの時間スケールは 0~100 年間と短く、鉱山廃棄物から浸出した浅層の沖積堆積物へ移行するウランに関しては、約 80 年間である。

参考文献

DINES, H.G. 1956. The metalliferous mining region of South-West England. *Memoirs of the Geological Survey of Great Britain*, **2**, 541-543.

HOOKE, P.J., IVANOVICH, M., MILODOWSKI, A.E., BALL, T.K., DAWES, A. AND READ, D. 1989. Uranium migration at the South Terras mine, Cornwall. *British Geological Survey Technical Report*, **WE/89/13** and *UK DOE Report*. **DOE/RW/89.068**.

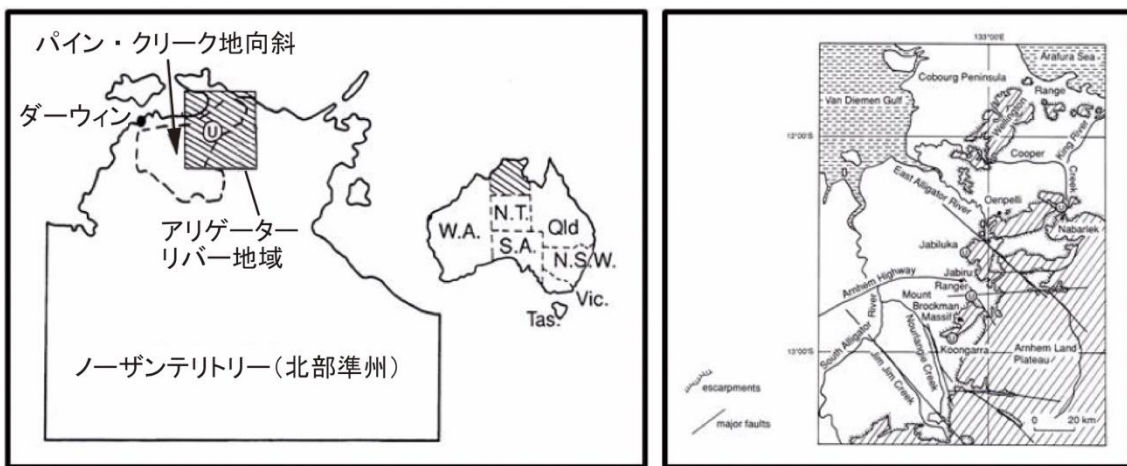
READ, D., HOOKE, P.J., IVANOVICH, M. AND MILODOWSKI, A.E. 1991. A natural analogue study of an abandoned uranium mine in Cornwall, England. *Radiochimica Acta*, **52/53**, 349-356.

SMELLIE, J. *Analogue evidence from uranium orebodies*, Report to Nuclear Decommissioning Authority Radioactive Waste Management Directorate, 2009.

事例 32 : オーストラリアのアリゲーターリバー : ウランの可動化と移行

概要

クングラウラン鉱床は、オーストラリアのノーザンテリトリー（北部準州）に位置するアリゲーターリバー地域にある4つの大規模なウラン鉱床の一つである。このウラン鉱床は、1970年代初期に空中物理探査によって発見された。そして、16億年前の鉱床の特徴を調査するため、40本を超えるボーリング孔が掘られた。オーストラリア政府によって課された制約のため、この鉱床で探鉱が行われたことは一度もなく、その後、同地域は2013年に保護状態となった。その結果、比較的、擾乱を受けていない。本サイトでは、ウランの可動化と遅延を支配する要因の理解向上のために研究が実施された。

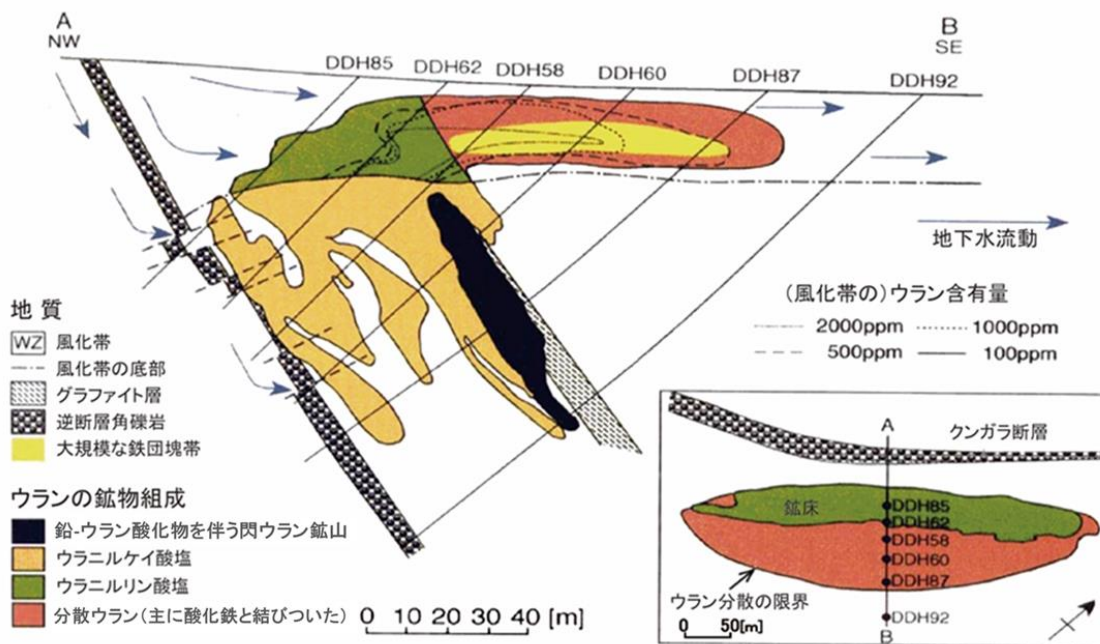


クングラウラン鉱床は、オーストラリア北部のアリゲーターリバー地域に広がっている

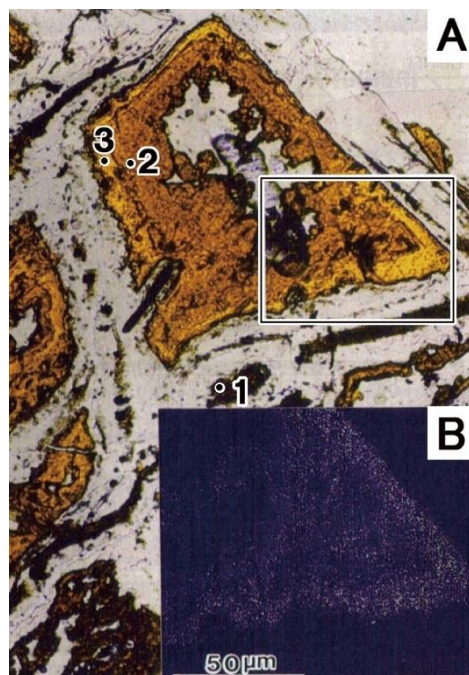
アナログ

本サイトは、1981年から放射性廃棄物の地層処分のアナログとして調査されてきた。この調査は、地質学、地形学、鉱物学、水理学、地球化学および気候の詳細な研究で構成される。母岩中の放射性核種の挙動に関しては、様々な鉱物相におけるウランの特性の把握、移動と遅延プロセスの特定、地球化学モデルおよび放射性核種の輸送モデルの適用に主な重点が置かれた。

主要な鉱床は地下約100 mの深さにあり、そして地表から25～30 mまで、過去100～600万年の間、地表近くで風化を受けてきた。一年の大半、鉱床の浅層部は地下水面より上にあるが、雨季にこの地域は激しい洪水に見舞われる。その結果、風化によって鉱床から放出されたウランの可動化と輸送が生じるため、南東方向に約100 m広がった分散ウランの下流プルームが形成された。



岩石タイプ、ウラン分布、大規模な鉄ノジュールおよび堆積物サンプル中のウランの量を示すクンガラ鉱床の横断面図 (Duerden et al., 1992)



鉄ノジュール：クンガラ鉱床の相に閉じ込められたウランの一部 (佐藤他 (1997))

A : 1 — 非晶質酸化鉄, 2 — 非晶質酸化鉄と針鉄鉱 (結晶性酸化鉄) の混合物, 3 — 針鉄鉱。薄灰色の物質は粘土。カオリナイト。ウラン含有量は針鉄鉱が一番多く, 粘土が一番少ない
 B : Aにある四角部分の走査型電子顕微鏡分析による, ウラン分布を示す (白い点)

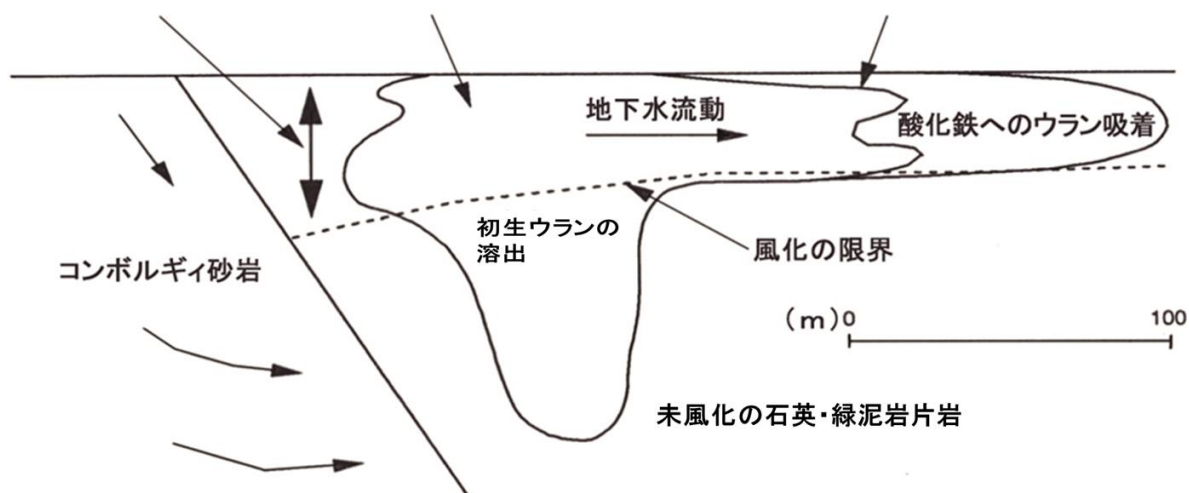
不確実性と限界

- ウランが一次鉱床から溶出し、地表近くの分散プリュームにトラップされた原因について理解するために、膨大な労力が投じられた。しかしながら、本サイトおよびこうした現象と、深地層処分施設設計との関連性はわずかである。

- ・ ウランは、地表付近の地下水によって鉱床から溶出した。地下水は地層処分施設深度で見られるもの（高溶存酸素、炭酸塩、有機物）とは異なり、地下水による流動速度は、深部よりもはるかに大きい。
- ・ さらに、下流方向への分散プリューム中のウランの固着は、深地層処分施設における現象とは共通点がほとんどない。ウランの多くは、深地層処分環境ではめったにないであろう、さびのような酸化鉄に収着されている。
- ・ 本サイトの地表近傍の特徴は、浅層の低レベル放射性廃棄物（LLW）の地層処分施設と類似しており、分散プリュームにおける遅延プロセスは、そうした浅層の地層処分施設の周囲で生じるものと類似していることが、後に提案された。しかしながら、この提案の詳細調査までには至っていない。なぜなら、一次鉱床におけるウラン鉱物は、地表近傍には処分されないであろう使用済燃料内に見られる物質により類似しているからである。
- ・ さらに、本サイトにおける（さびのような鉄の相を生成する）激しい熱帯風化によって、ウラン収着現象は、英国の地層処分施設サイトとほとんど関連性がないことになる。

適用性 - 得られた知見

- ・ 本サイトは地層処分施設の母岩よりも（物理的、化学的に）はるかに活発な環境にあるが、ウランが 100～600 万年間で、約 100 m しか移行しなかったという事実は、地層処分施設の母岩のバリア特性における信頼性を向上させる。
- ・ 本サイトと放射性廃棄物の地層処分施設の類似性は低いにもかかわらず、地表近傍環境でウランが移行しにくくなる作用に関する有益な学術的研究が、アリゲーターリバーのアナログプロジェクト内で実施された。
- ・ 廃棄物処分に少し関連があるのは、放射性核種輸送コードの総合試験であり、以下を含む様々な複雑性を有する 13 種類の輸送モデルを使った試験が実施された。
 - 1次元モデルと2次元モデル
 - 遅延プロセス：収着、沈殿、相転移およびアルファ反跳効果。これらの検討したプロセスは、（放射性核種遅延に K_d 概念を用いた）移流分散モデルから、地下水の地球化学モデルと連成させた一次元輸送モデルにまで及ぶ。
- ・ 地下水流動経路の時間経過による変化と、過去の水理地質学的条件等についての不確実性等を有するサイトの複雑性のため、モデルの構築は、当初の予想より難しいことが判明した。それにもかかわらず、様々なモデルによってシステムの異なる側面、特にサイト全体の現在のウラン分布についての説明が可能となった。



クンガラウラン鉱床の概念的輸送モデル (Duerden et al., 1992)

参考文献

- DUERDEN, P. LEVER, D.A., SVERJENSKY, D.A. AND TOWNLEY, L.R. 1992. *Alligator Rivers Analogue Project: Final Report, Volume 1 Summary of findings*. OECD/NEA, Paris, France. The project is reported in its entirety in volumes 2-16 of the same OECD/NEA series.
- LOWSON, R.T AND MCINTYRE, M.G. 2013. (234)U/(238)U signatures associated with uranium ore bodies: part 1 Ranger 3. *Journal of Environmental Radioactivity*, **118**, 150-156.
- LOWSON, R.T. 2013. 234U/(238)U signatures associated with uranium ore bodies: part 3 Koongarra. *Journal of Environmental Radioactivity*, **118**, 163-168.
- SATO, T., MURAKAMI, T., YANASE, N., ISOBE, H., PAYNE, T.E. AND AIREY, P.L. 1997 Iron nodules scavenging uranium from groundwater. *Environmental Science and Technology*, **31**, 2854-285.
- SMELLIE, J. *Analogue evidence from uranium orebodies*, Report to Nuclear Decommissioning Authority Radioactive Waste Management Directorate, 2009.
- URANIUM INFORMATION CENTRE 2001. *Geology of Uranium Deposits, Nuclear Issues Briefing Paper # 34, November 2001*, Uranium Information Centre, Melbourne, Australia (www.uic.com.au/nip34.htm).

事例 33 : スコットランドのローモンド湖 : ハロゲン移行の研究

概要

地層処分施設の多重バリアシステムは、放射性廃棄物の長期的な閉じ込めが可能となるように設計される。もし、人工バリアシステムが機能しなくなったとしても、母岩における放射性核種の遅延現象によって地表環境に悪影響を与えないように設計され、システムの安全性は保たれる。



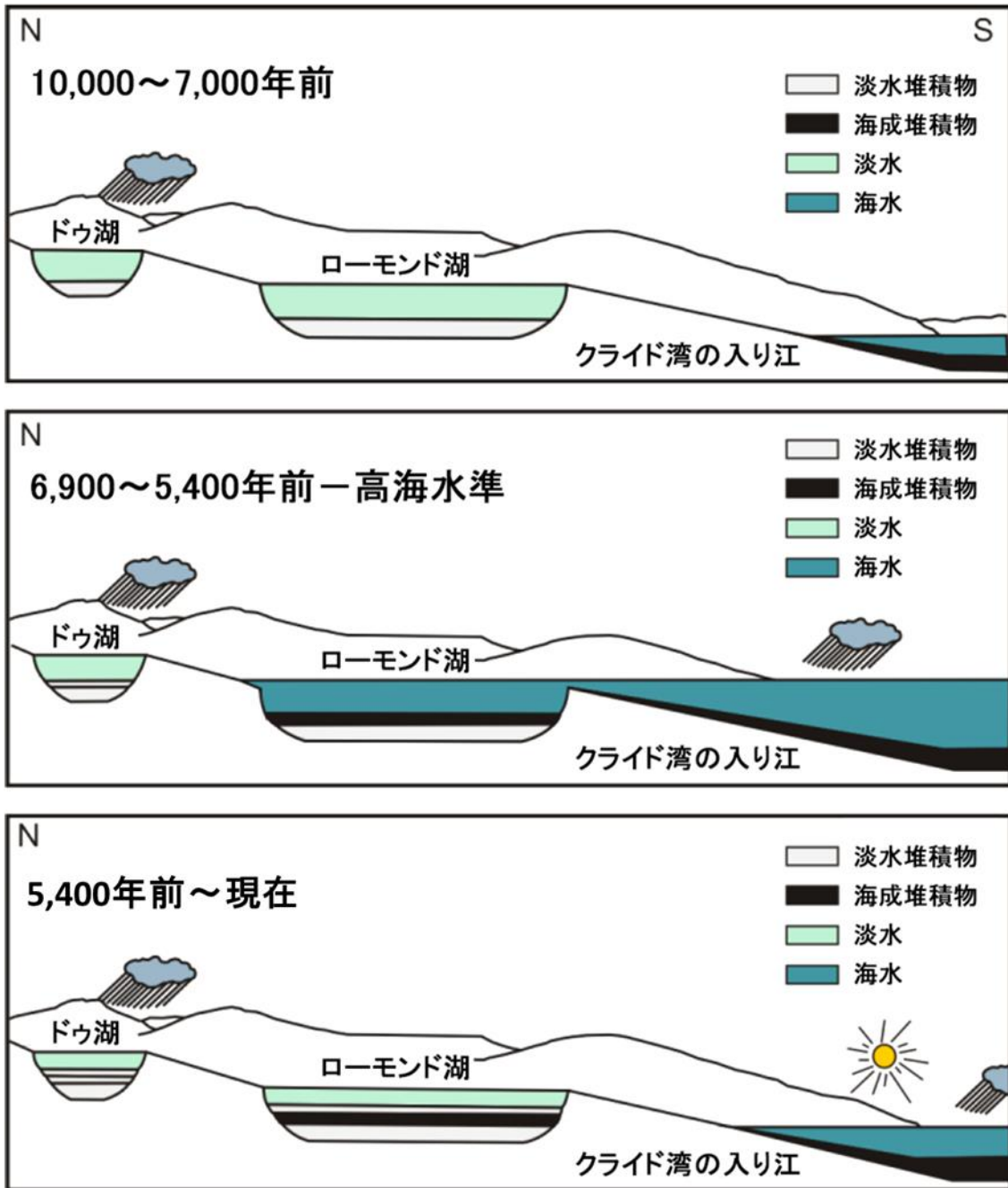
長期間にわたって、地層処分施設の人工バリアは劣化し続け、最終的に廃棄物は地下水に接触し、劣化が始まる。放射性核種の一部は、非常に動きの遅い地下水に溶解するが、地層処分施設からの輸送は、岩石や人工バリアからの劣化生成物との相互作用によって遅くなる。地下水中には、放射性核種の希釈も生じる。よって、放射性核種の移行と遅延の理解と評価は、地層処分施設のセーフティケースにおける重要な部分である。使用済燃料と低中レベル放射性廃棄物中に、核分裂生成物や放射性物質として存在する陰イオン放射性核種の塩素36とヨウ素129は、懸念事項となる可能性がある。なぜなら、これらは比較的長い半減期（例：塩素36に関しては、302,000年間）と高い移行性を持ち、地層処分施設閉鎖後の比較的早い段階で、放出される可能性がある（Grambow, 2008）。

ローモンド湖のナチュラルアナログ

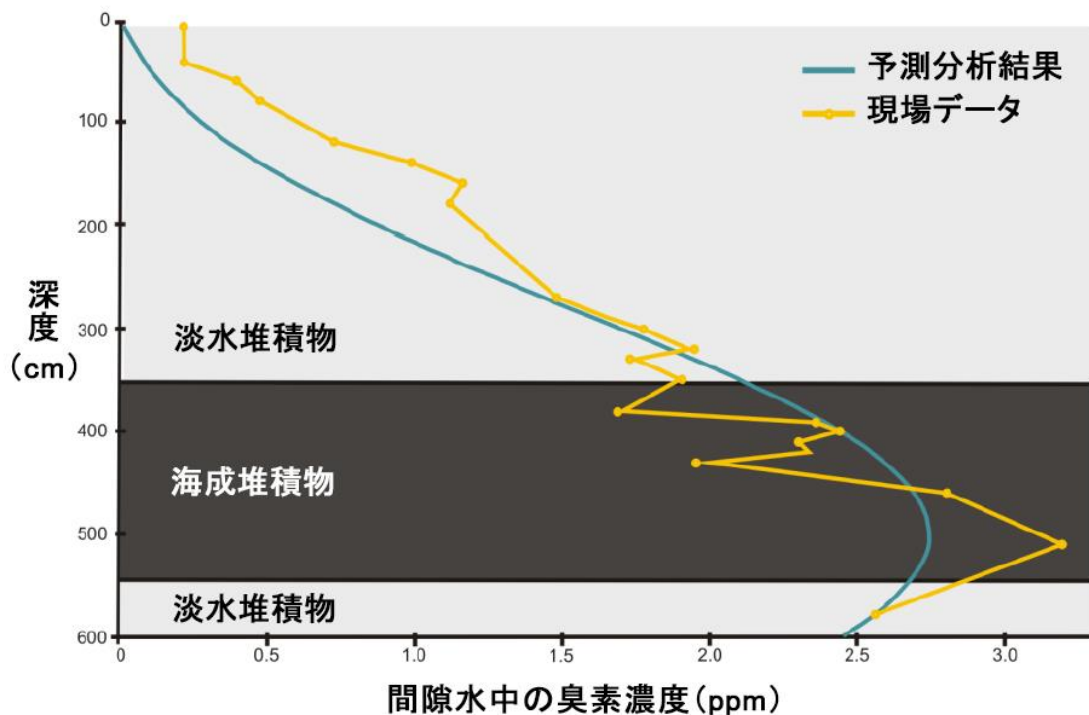
ローモンド湖はスコットランドの南ハイランド地方にあり、現在は淡水で陸地に囲まれている。しかしながら、湖は、6,900~5,400年前に起こったクライド湾からのフランドリアン海進中に、海水の侵入を受けている。この事象は、湖成堆積物の中に厚さ1メートルほどの海成堆積物として明確な記録が残されている。その後、この堆積層は、淡水堆積物で覆われ地球化学的变化を受けた。

- 全ての堆積物に、粘土が豊富に含まれる（複数の層準で最高 80 %）。海成堆積物には、海水中と同じように、高濃度の塩化物、臭化物およびヨウ素（ハロゲン）が確認される。しかしながら、こうしたハロゲンは、拡散による移動の履歴を記録しながら、隣接の淡水堆積物と間隙水に移行してきた。
- 海成層中のヨウ素、臭素、ウランおよびラジウム 226 の固定は、有機炭素によるもので、間隙水中の臭素、ヨウ素の濃度も、海成堆積物から離れるに従い低下する。
- 本研究によって、何千年もの間、湖成堆積物に臭素とヨウ素が実質上溜まり続けてきたことが示された。その間、こうした元素は間隙水へゆっくりと溶出していたのみであり、堆積物表面と上部の湖水への移動も遅い拡散速度であった。

- 計測された臭素の濃度分布は、初期濃度を 60 ppm（可逆性収着かつ移流輸送なし）とし、拡散係数を $10^{11} \text{ m}^2/\text{s}$ として、単純な拡散計算によって得られた拡散分布と極めて類似している。試験によって、いくつかの放射性核種の収着が非可逆的であったことが明らかになった。



ローモンド湖の変遷の概念モデル (McKinley, 1989を元に作成)



実際に測定されたローモンド湖の堆積物中の臭素プロファイルと、モデルによる拡散分布との比較

不確実性と限界

- ・ 現時点ではローモンド湖からの知見は、粘土が豊富な環境あるいはベントナイト緩衝材に関する極めて限定的な情報でしかない。
- ・ 本研究からの知見は、性能評価輸送コードに直接適用することはできない。なぜなら、物質の化学的性質、鉱物学、物理的特性の観点から、ローモンド湖の堆積物と地層処分環境とは大きな相違があるためである。

適用性 - 得られた知見

- ・ 本アナログは、塩素 36 やヨウ素 129 等の放射性核種の飽和した低透水性粘土バリアを通じた拡散移行が遅いことを示す例証になる。
- ・ 本アナログによって、臭素の拡散係数を示すことで拡散がこうした環境における元素の移行において主な原因となる可能性があることがわかった。
- ・ 放射性核種移行のモデルの多くは、放射性核種の収着を瞬間的、そして可逆的と想定している。しかし本アナログは、この予想が不正確である可能性があることと、どのような粘土環境においても放射性核種移行の基本的なプロセスについて、さらに調査が必要な可能性があることを示唆している。
- ・ 本研究は、拡散支配型の粘土系地層処分環境や、ベントナイト緩衝材中の輸送への適用において有益である。アナログの観察と数値モデル予測との比較から、モデルによって拡散分布に関する主要な特徴を再現することが可能であることがわかる。よって、モデルが、溶出、輸送および遅延といった主要なプロセスを正確に示すことができるという信頼性が向上する。

参考文献

- GRAMBOW, B. 2008. Mobile fission and activation products in nuclear waste disposal. *Journal of Contaminant Hydrology*, **102**, 180-186.
- HOOKE, P.J., MACKENZIE, A.B., SCOTT, R.D., RIDGWAY, I.G., MCKINLEY, I.G. AND WEST, J.M. 1985. A study of long term (103-104 y) elemental migration in saturated clays and sediments (Part III). *British Geological Survey Technical Report*, **FLPU 85-9**; *CEC Radioactive Waste Management Series*, **EUR 10788/2**, CEC, Luxembourg.
- MACKENZIE, A.B., SCOTT, R.D., MCKINLEY, I.G. AND WEST, J.M. 1983. A study of long term (103-104 y) elemental migration in saturated clays and sediments. *British Geological Survey Technical Report*, **FLPU 83-6**.
- MACKENZIE, A.B., SCOTT, R.D., RIDGWAY, I.G., MCKINLEY, I.G. AND WEST, J.M. 1984. A study of long term (103-104 y) elemental migration in saturated clays and sediments (Part II). *British Geological Survey Technical Report*, **FLPU 84-11**. *CEC Radioactive Waste Management Series*, **EUR 10788/1**, CEC, Luxembourg.
- MACKENZIE, A.B., SHIMMIELD, T.M., SCOTT, R.D. AND HOUSTON, C. M. 1989. Development of an analytical method for the analysis of I and Br concentrations in lacustrine sediment interstitial water. *British Geological Survey Technical Report*, **WE/89/65**.
- MCKINLEY, I.G. 1989. Applying natural analogues in predictive performance assessment. *Nagra Internal Report*, Nagra, Wettingen, Switzerland.
- MACKENZIE, A.B., SHIMMIELD, T.M., SCOTT, R.D., DAVIDSON, C. M. AND HOOKE, P. J. 1990. Chloride, bromide and iodide distributions in Loch Lomond sediment interstitial water. *British Geological Survey Technical Report*, **WE/90/2**.
- FALCK, W.E. and HOOKE, P. J. 1990. Quantitative interpretation of Cl, Br and I porewater concentration profiles in lake sediments of Loch Lomond, Scotland. *British Geological Survey Technical Report*, **WE/90/3**.

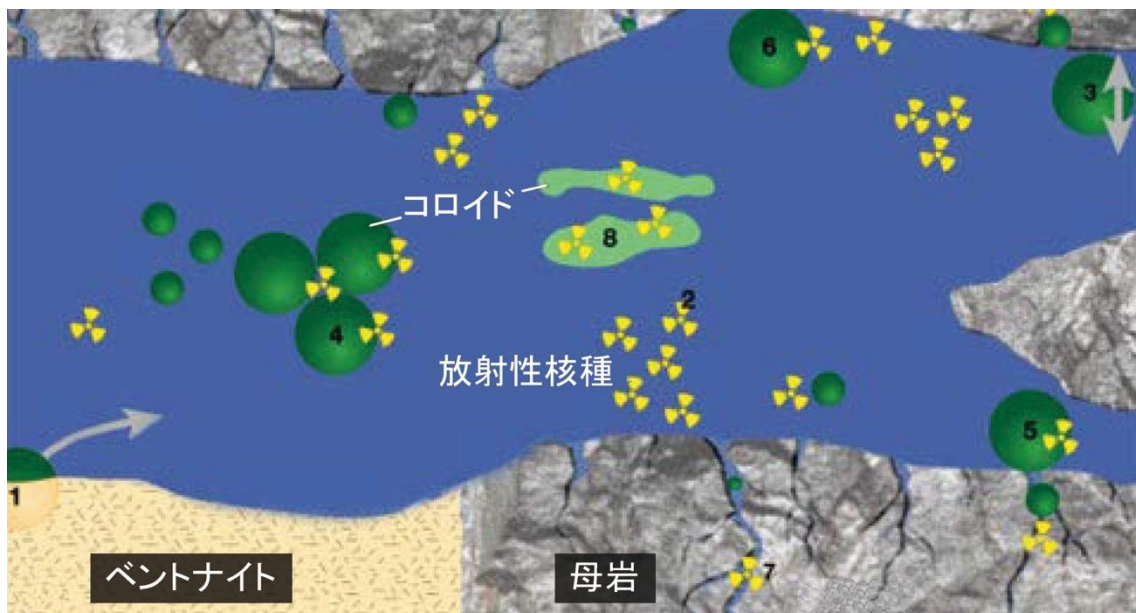
4.2 自然システムにおけるコロイド移行

事例 34 : ブラジルのモロ・デ・フェロおよびポソス・デ・カルダス – コロイド輸送

概要

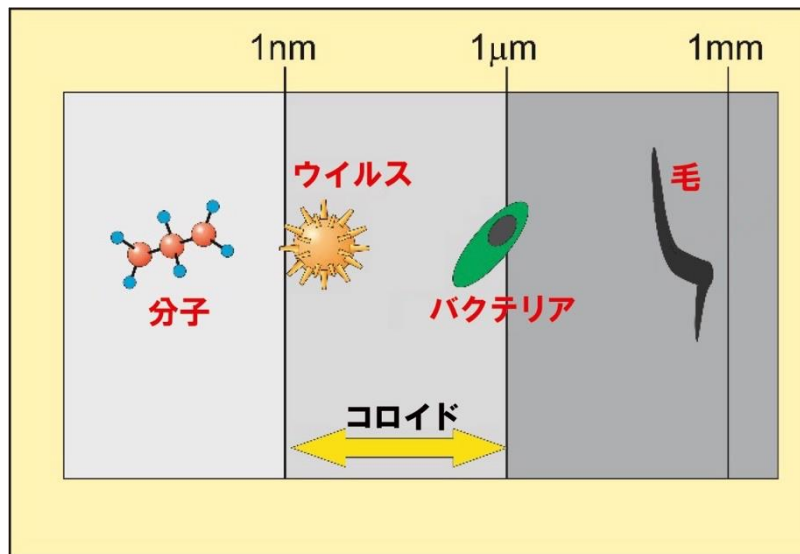
なぜコロイドは、研究対象となるのか？

地圏における放射性核種輸送のモデルは、一般的に、放射性核種は地下水中に溶解してのみ輸送するという仮定に基づいている。これは、単純化し過ぎている可能性がある。なぜなら、モデルはコロイド（あるいは微粒子）と結合した放射性核種が移流により輸送される影響の可能性を考慮していないからである。コロイドは、地下水中に懸濁している $1\ \mu\text{m}$ から $1\ \text{nm}$ の大きさ（あるいは、おおよそウイルスやバクテリアの大きさ）の物質で構成される。



コロイドの予測的生成機構（例えば、ベントナイトバリアと母岩の境界における）、そして続いて起こる母岩の亀裂中の放射性核種の輸送（図提供 Nagra）(1) 地層処分施設由来のコロイドの発生（この事例では、ベントナイトバリアより）、(2) 地下水における（廃棄物からの）溶解した放射性核種、(3) 岩石表面上への／岩石表面からの天然および地層処分施設由来のコロイドの収着と脱着、(4) 放射性核種の無機コロイド上への収着、(5) 母岩中の間隙と微小亀裂内のコロイドろ過、(6) コロイドサイズによる、人工バリアシステムと母岩中の小間隙への浸透の防止、(7) 母岩中の間隙への放射性核種の拡散、(8) 有機コロイドへの放射性核種の収着、あるいは有機コロイドへの放射性核種の取り込み

コロイドは、地下水中の放射性核種の移動に様々な場面（上記）で影響する。その一部（例：コロイドへの収着）によって、移動速度が上がる可能性がある一方で、他の作用（例：放射性核種の収着後のコロイドろ過）によって、地層処分施設の母岩中の全体的な移動率が下がる可能性がある。地表水と浅層地下水でこのような現象が生じることはわかっていたが、深層地下水において、コロイドの数、コロイドへの放射性核種の収着率、コロイド移動のプロセスを特定することが困難なため、深地層処分環境における放射性核種の移動へのコロイド影響の可能性を、定量的に規定するのは、非常に困難であることがわかっている。



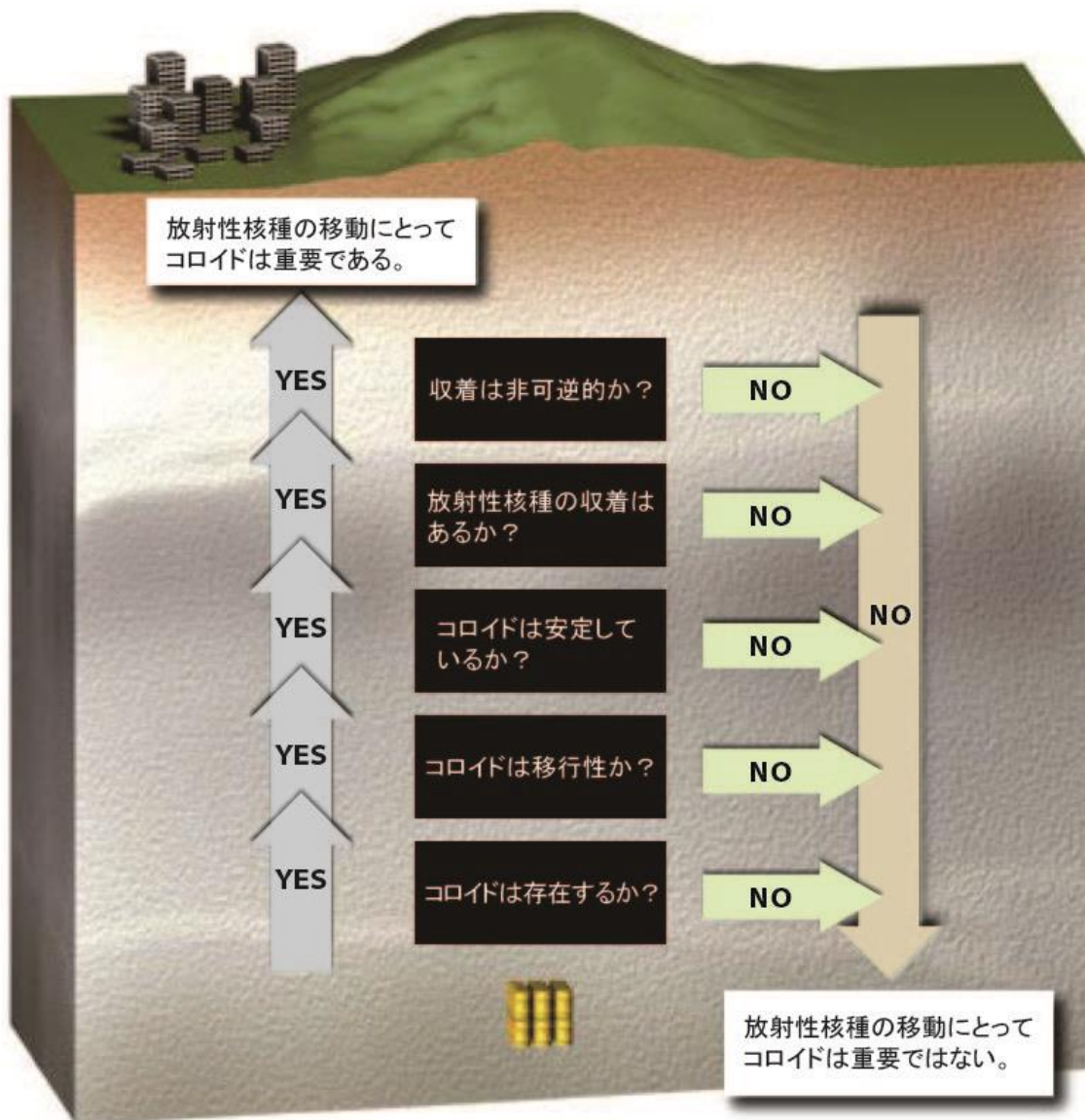
地下水中のコロイドと他の粒子状物質との大きさの比較

モロ・デ・フェロ ナチュラルアナログ研究



ブラジル, モロ・デ・フェロ (写真提供 Nagra)

この問題に対処するための試みとして、ポソス・デ・カルダスのナチュラルアナログプロジェクトでは、コロイドの研究が重点分野の一つとなった。特に、モロ・デ・フェロ（鉄の丘）にあるサイトが、広範囲な研究を実施するために選ばれた。しかしながら、研究開始に先立って、コロイドと結合した放射性核種の移動の重要性を定義するために、「コロイドの重要性の梯子（はしご）」として分類された。基本的には、コロイドが、重要な放射性核種の深地層処分施設から地表生物圏への移行に影響を及ぼすには、いくつかのバリアを突破しなければならないことを示している。「蛇と梯子」のボードゲームに類似したシステムにおいて、もし、一連の事象が梯子上のいずれかの段で中断すれば、コロイドと結合した放射性核種の移動は、梯子の下にある「重要ではないメカニズム」のコマまで進むことになる。



コロイドの重要性の考え方 (Chapman et al., 1993より)

モロ・デ・フェロでは、丘の頂上に地表近傍の鉱床（トリウムと希土類元素を大量に含む）があり、ここがコロイドと結合した放射性核種の「供給源」となっている。この地形によって、地下水流動の構造は容易に特定することができる、麓に向かう地点においてサンプルを取得することができた。丘の麓で地下水が流出して地表水となる地点に向かって鉱床から離れる方向に地下水は流動している。

測定の実施によって、高濃度のトリウムと他の安全性に影響を及ぼす元素を含むコロイドが、鉱床の近傍に存在するが、この地点から下った複数の場所におけるコロイド痕跡は、鉱床の影響を受けた溶出水よりも、局所的な岩石の影響を反映していることがわかった。さらに、低部ボーリング孔や丘の麓では、鉱床からのコロイドは発見されていない。上部ボーリング孔で採取された地下水で観察されているにもかかわらず、一番低い位置にあるボーリング孔では粘土コロイドは観察されていない。こうしたデータは、コロイドと結合した放射性核種が存在しているにもかかわらず、コ

ロイドは移動の「短縮経路」にはならないという定性的な証拠となる。



d. Morro do Ferro MF12 (BZ)

モロ・デ・フェロのコロイドの顕微鏡写真（倍率 x15,000） Meikeley et al. (1991)より

不確実性と限界

- ・ サイトの地表近傍の性質から、深地層処分施設への直接的な関連性を示すことは困難である。例えば、コロイドの多くは有機物で、深地層処分施設の地下水では想定されないものであり、サイトの地下水位は大幅な季節変動を示す。
- ・ ここでは、コロイドが放射性核種を輸送するとは考えられないが（それらの低い移行性あるいは不安定な性質のため）、放射性核種の移行性の低さに関わる現象の正確なデータは得られない。
- ・ 存在している放射性核種の化学種の測定が不足しているため、放射性核種とコロイドの遅延の現象理解が困難である。

適用性 - 得られた知見

- ・ モロ・デ・フェロは、全体流動システムに沿った鉱床の点源から地表への、コロイドと結合した希土類元素と放射性核種について、研究者が初めて知見を得ることのできた唯一のサイトである。
- ・ この地層処分施設に類似したシステムにおいて、本データは、コロイドと結合したトリウム等の安全性に関連する元素が存在するにもかかわらず、通常的地圏における遅延現象が起こ

らず、輸送の短縮経路として機能しないことの強力な証拠となる。

- 力学的理解は欠けているが、データは、かなり大きなコロイドの存在および／あるいは不規則または角張った形の大きなコロイドの塊の存在を示す。これらの二つの情報は、地下水システムではコロイド輸送がほとんど生じないことを示唆している。
- 本研究によって、このアプローチは基本的に妥当であり、より適性のあるナチュラルアナログサイトが必要であることがわかった。そしてそのようなサイトは英国に存在することも確認できた。

参考文献

CHAPMAN, N.A., MCKINLEY, I.G., SHEA, M.E. AND SMELLIE, J.A.T. (EDITORS). 1993. *The Poços de Caldas project: natural analogues of processes in a radioactive waste repository*. Elsevier, Amsterdam, NL.

MCCARTHY, J. AND DEGUELDRE, C. 1991. Sampling and characterisation of colloids and particles in groundwater for studying their role in contaminant transport. In: VAN LEEUWEN, H.P. AND BUFFLE, J. (EDITORS) *Environmental Particles*. IUPAC Environmental Analytical and Physical Chemistry, Series II.

MIEKELEY, N., DE JESUS, H.C., DA SILVEIRA, C.L.P. AND DEGUELDRE, C. 1991. Poços de Caldas Report No. 9: Chemical and physical characterisation of suspended particles and colloids in waters from the Osamu Utsumi mine and Morro do Ferro analogue study sites, Poços de Caldas, Brazil. *SKB Technical Report, TR 90-18*, SKB, Stockholm, Sweden.

SWANTON, S. BERRY, J.A. KELLY, M.J. AND ALEXANDER, W.R. 2010. Review of colloids in the geosphere and their treatment in performance assessment. *NDA Technical Report, 2010-XY*, NDA, Moor Row, UK.

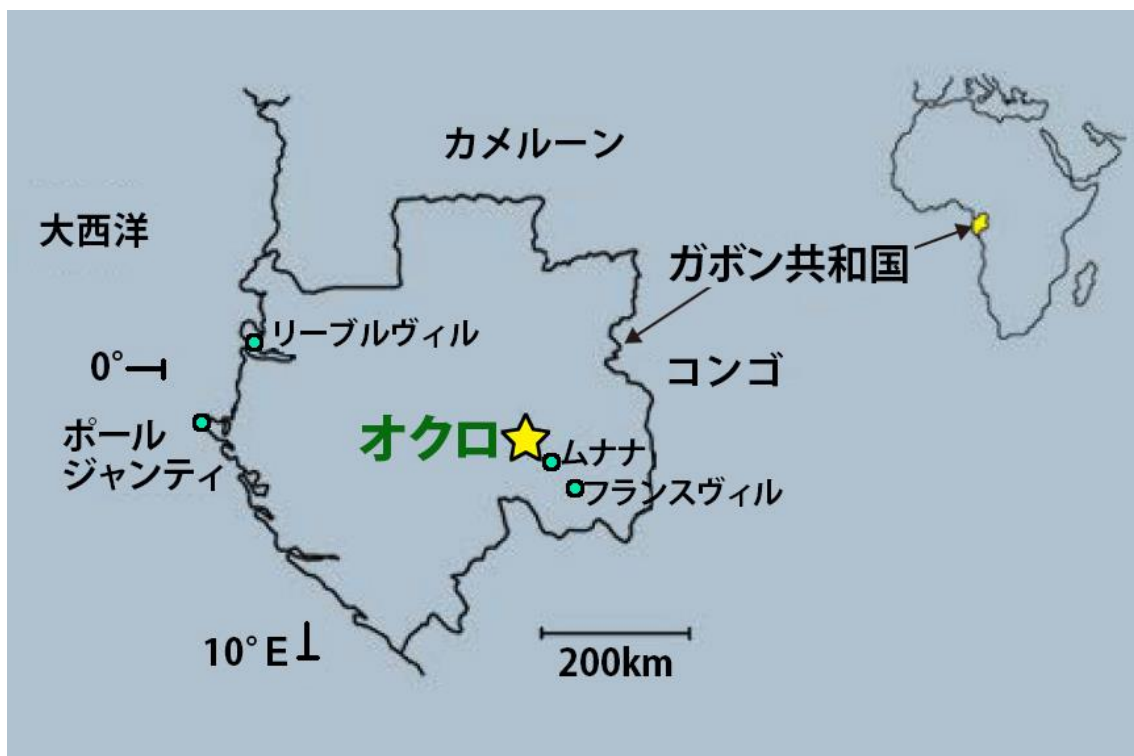
4.3 全体システム性能

事例 35 : オクロ – 地層処分施設の長期挙動のナチュラルアナログ

概要

オクロ : 特異なウラン鉱床

放射性廃棄物の地層処分施設の全体を再現する、自然システムは存在しないことは強調しておく必要がある。しかし、オクロでは、約20億年前に臨界（中性子の生成と消失が釣り合っている状態）に達した16ヶ所の天然原子炉の核分裂によって、このサイトは特異な研究の機会を提供している。ここでは、原子炉が自然に活動を終えた後に残る放射性廃棄物（元素）が、核分裂およびそれに続く、深地層処分施設の予想寿命よりはるかに長い地質学的時間スケールで、原子炉領域の近傍に残るのかどうかを評価することが可能である。



ガボン南東部に位置するオクロの天然原子炉

オクロの原子炉は1972年に発見された。フランスの研究所で、世界数ヶ所で得られたウラン鉱石のサンプルを定常的に分析する過程で、ウラン同位体比の異常値が検出されたことが原因である。その後、このサンプルはガボンのものであることが判明し、最終的に天然の核分裂原子炉の存在が確認された。

それぞれの原子炉において臨界状態は約15～100年間続き、核反応中の温度は、160～350°Cにまで及んだ。このことから、岩石中の放射性核種の閉じ込めに関わる反応は、地層処分施設内とその周囲で予想される反応とは異なる（予測温度が約100°Cの地層処分施設では、臨界は生じないと

予想される)。しかし、核分裂生成物は、原子力発電所で発生するものと類似している。

本サイトは複雑な地史を有する。原子炉が活動を停止した後に、このエリアは深さ数キロメートルまで沈降しており、発見された場所に限り、地表近傍（地表から深さ数十メートル）まで、再度隆起していた。数億年前に、いくつかの原子炉に大規模な亀裂が生じたことによって、母岩中のウラン鉱石の寿命と放射性核種の遅延の理解が、より複雑になった。



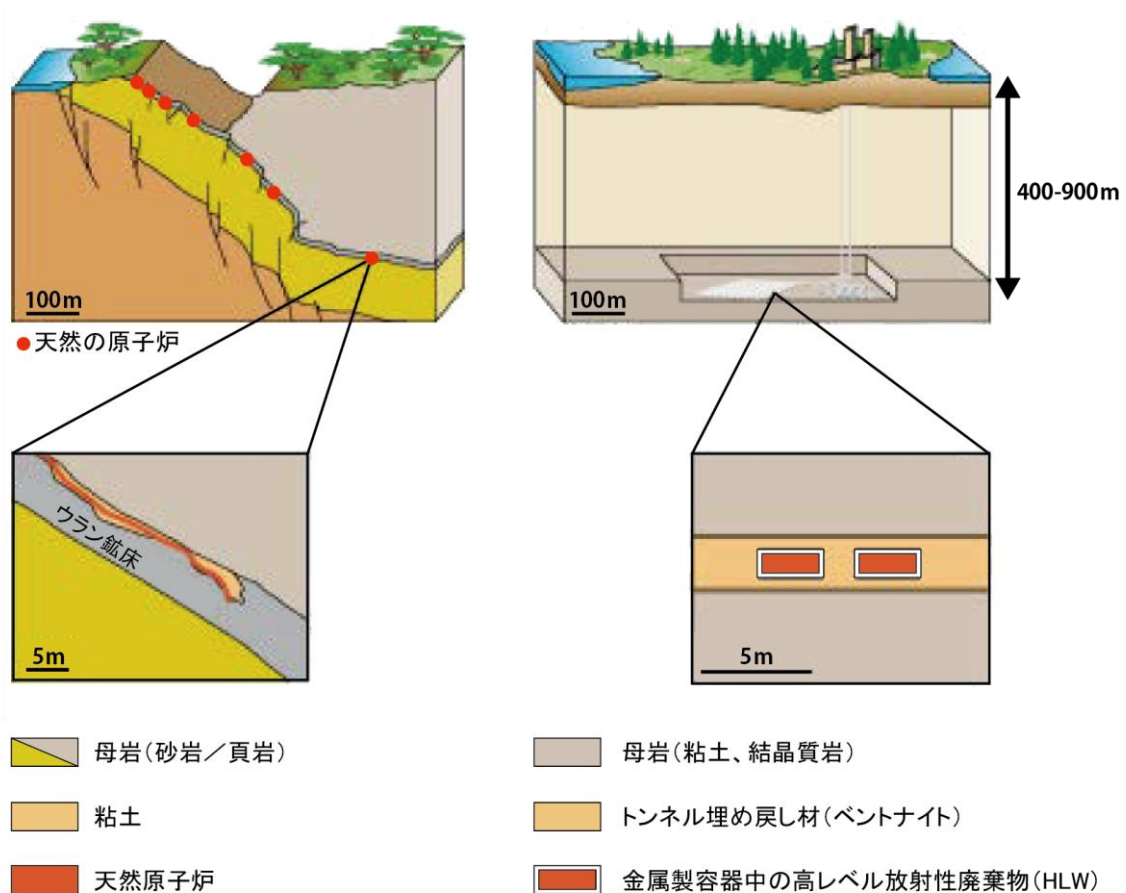
オクロの露天掘り鉱山の概観 (Francois Gauthier-Lafaye)

アナログ

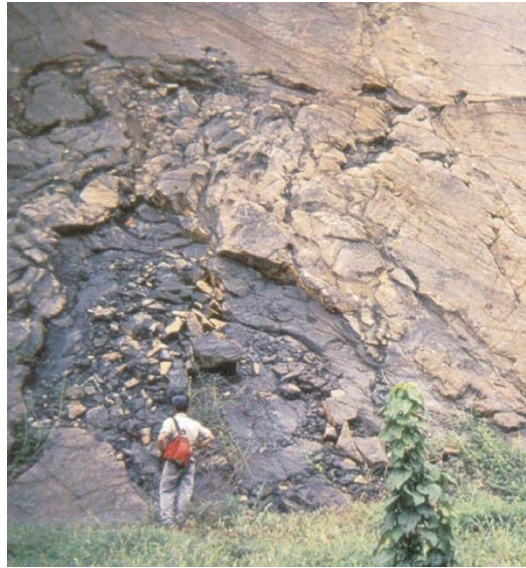
オクロは、地質学的時間を対象とした放射性廃棄物の地層処分施設の性能評価のために、理想的なナチュラルアナログであると考えられ、ここでは様々な放射性核種の移行速度予測を、厳密に調べることができる場所となり得る。放射性核種の移行は、明確に特定された供給源（すなわち、使用済燃料のアナロジーである原子炉領域）から、周囲の粘土（ベントナイト緩衝材のアナロジー）を通り、ファーフィールド環境まで追跡することができる。これは、亀裂性結晶質母岩（すなわち、下部の砂岩層）の亀裂性流動特性、あるいは粘土質母岩（すなわち、上部の粘土が豊富な堆積物）の多孔質流動特性を表す。しかしながら、地層処分システムの完全なアナログは、オクロあるいは世界各地のどこにも存在しない。例えば、オクロにおける供給源の化学的性質は、使用済燃料の溶出から生じたものと類似性を示すことが考えられるとしても、本システムの定量的分析は非常に難しい。なぜなら、この地域には非常に複雑な地球化学的履歴および熱水履歴があるためである。そして、原子炉の周辺環境が、臨界から20億年間、何度も変化してきたという事実から、データから重要な結論を引き出すことが困難であることがわかる。

原子炉領域周辺の粘土への放射性核種の吸着については、高温（臨界中）と低温（周囲の地下水

との相互作用) との分散パターンを区別することは困難である。一般的に、核分裂原子炉領域における放射性核種の輸送と廃棄物生成物の遅延ははっきりとしない。そのため、予想どおりに重アクチノイド元素は保持されたが、移行性の低さの原因が、ウラン鉱石への閉じ込めによるものか、あるいは母岩によるものなのかは不明である。移行性の高い放射性核種は、原子炉領域内で局所的に再分布されたか、あるいはモデル予測に概ね準じた相対量が、原子炉領域外へ完全に移行した。しかし、20億年間の地下水の化学的性質と温度は、定量的な解明を行うほどには明らかになっていない。



識者の一部は、オクロと、多重人工バリアシステム (EBS) による地層処分施設設計および母岩との類似性を指摘している (Nagra)



オクロの採掘場の壁にある天然原子炉のコアの痕跡 (Miller et al., 2000)

現状へ戻ることはできるのか？

セーフティケースの目的を念頭において、こうした特異なサイトに立ち戻り、再調査ができないか考えてみたくなる。しかし、16ヶ所の原子炉領域中、15ヶ所の採掘は終了しており、最後の1ヶ所は、(当分の間)コンクリートの石棺で覆われている。よって、オクロに戻ることにほとんど価値はない。



最後に残っているオクロの原子炉領域を覆うコンクリートの石棺 (John Smellie, Conterra)

不確実性と限界

- ・ サイトの変遷について、ある程度理解が進んでいる一方で、本エリアの非常に複雑な履歴によって、多くの詳細な境界条件が不明である。例えば、原子炉の臨界から 20 億年間にわたって、サイトの地下水がどう変化してきたか予測するのは不可能であり、サイトにおける放射性核種の保持について、定量的にはわずかなことしかわからない。
- ・ 研究の初期段階においては、「興味深い科学」に注力するあまりセーフティケースという課題はほとんど無視された。後期段階においては、セーフティケースにおける考慮に関して著しい改善が見られ、1996 年には、地球科学者（データ収集者）と性能評価の担当者（データ使用者）を代表したメンバーで構成されたオクロ安全評価統合グループが設立されるまでに致った。しかし、グループは部分的な成功を収めたに過ぎず、今日までオクロは、セーフティケースにおいてほぼ無視されてきた。
- ・ 使用済燃料と原子炉領域のウラン鉱石の直接的な比較は、不可能であった。なぜなら、二種類のウランには、重要な物理化学的相違があるためである。また、原子炉領域の初期の高温挙動、および後期の低温挙動についての知見も不十分である。
- ・ オクロのアナロジーは、多くの場合、科学が裏付けできる以上に受け取られている。例えば、1991 年には英国の原子力フォーラムが以下のように記述している。

「オクロの原子炉は、何百万年の間、キロワットパワーレベルで静かに動いてきた。原子炉は、一度も爆発しなかった。そこから出た放射線と廃棄物は、周囲の生命体を脅かさなかった・・・」

なぜなら、その当時、地球上に存在していた生命体は、初期の微小バクテリアのみであり、これは予想外のことでなく、地層処分施設のセーフティケースと関連性がない。また、オクロの原子炉は、ウラン235の濃度をはるかに高かった20億年前に限って活動することができたという事実にも注目すべきである。

オクロにおける核分裂物質の保持

1 H																	2 He						
3 Li	4 Be	<div style="display: flex; justify-content: space-around;"> <div style="border: 1px solid black; background-color: #90EE90; padding: 5px;">保持</div> <div style="border: 1px solid black; background-color: #ADD8E6; padding: 5px;">部分的保持</div> </div>																5 B	6 C	7 N	8 O	9 F	10 Ne
11 Na	12 Mg	<div style="display: flex; justify-content: space-around;"> <div style="border: 1px solid black; background-color: #FF6347; padding: 5px;">移行</div> <div style="border: 1px solid black; background-color: #ADD8E6; padding: 5px;">局所的再分配</div> </div>																13 Al	14 Si	15 P	16 S	17 Cl	18 Ar
19 K	20 Ca	21 Sc	22 Ti	23 V	24 Cr	25 Mn	26 Fe	27 Co	28 Ni	29 Cu	30 Zn	31 Ga	32 Ge	33 As	34 Se	35 Br	36 Kr						
37 Rb	38 Sr	39 Y	40 Zr	41 Nb	42 Mo	43 Tc	44 Ru	45 Rh	46 Pd	47 Ag	48 Cd	49 Sb	50 Sn	51 Sb	52 Te	53 I	54 Xe						
55 Cs	56 Ba	57-71 La-Lu	72 Hf	73 Ta	74 W	75 Re	76 Os	77 Ir	78 Pt	79 Au	80 Hg	81 Tl	82 Pb	83 Bi	84 Po	85 At	86 Rn						
87 Fr	88 Ra																						
		57 La	58 Ce	59 Pr	60 Nd	61 Pm	62 Sm	63 Eu	64 Gd	65 Tb	66 Dy	67 Ho	68 Er	69 Tm	70 Yb	71 Lu							
		89 Ac	90 Th	91 Pa	92 U	93 Np	94 Pu	95 Am	96 Cm	97 Bk	98 Cf	99 Es	100 Fm	101 Md	102 No	103 Lw							

多くの放射性核種は、原子炉内とその周辺に閉じ込められた。しかし、境界条件についての知見が不十分であったため、安全評価のための定量的なデータは生成できなかった（John Smellie, Conterra）

適用性 - 得られた知見

オクロには、広域および局所的な擾乱が繰り返されてきた非常に長い履歴があるにもかかわらず、約20億年経った後も16ヶ所の原子炉領域が、未だに存在している。このことは、多重バリアの人工バリアシステムと周囲の母岩によって、地層処分施設の長寿命と性能の持続が可能となることを明確に表している。

オクロは、人為的な原子燃料サイクルからの核分裂生成物は、自然過程によっても生じることを証明している。よって、非専門家の人々に対して、こうした同位体が「完全に新しい人為的な有害物」ではない点を伝える際には、有用となる可能性がある。

オクロの原子炉が、多くの人々の関心を集めたことは間違いない。よって、おそらく、廃棄物処分の安全性に関するメッセージの一部は伝わるものと思われる。しかし、多くの人々（予想するに、オクロをナチュラルアナログの事例として研究する科学者を含む）にとって、特異な自然現象に畏敬の念を抱いているというのが、実際のところである。よって、カーティン工科大学（オーストラリア）は、ウェブサイト以下のように記している。

「どうして、こうした天然の核分裂原子炉が重要なのか？ なぜなら、希少で魅力的な存在だからである。」

参考文献

- BRITISH NUCLEAR FORUM 1991. Mother earth's natural reactors. *Nuclear Forum*, September 1991 Issue, London, U.K.
- CURTIN UNIVERSITY OF TECHNOLOGY web site: <http://oklo.curtin.edu.au>.
- Gauthier-Lafaye, F. Holliger, P.H. and Blanc, P-L. 1996. Natural fission reactors in the Franceville Basin, Gabon: A review of the conditions and results of a critical event in a geological system. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **60**, 23, 4831-4852.
- Hickes, T.W. and T.D. Baldwin, 2014. The Likelihood of Criticality Synthesis Report. NDA RWM commissioned report RWMD/003/001.
- SMELLIE, J.A.T. 1995. The natural analogue at Oklo, Gabon. *Radwaste Magazine*, **2**, No. 2, 18-27.
- J. SMELLIE. *Analogue evidence for naturally occurring criticalities*, Report to United Kingdom Nirex Limited, 2005.
- SMELLIE, J. *Analogue evidence from uranium orebodies*, Report to Nuclear Decommissioning Authority Radioactive Waste Management Directorate, 2009.
- TROTIGNON, L., MICHAUD V., AND LOUVAT, D. 2000. Application of the Oklo natural analogue project to nuclear waste disposal model, testing and development, pp 401-407 In: LOUVAT, D., MICHAUD, V. AND VON MARAVIC, H. (EDITORS), *Proceedings of the 2nd. EC-CEA Oklo Phase II Workshop, May 20/21, 1999, Cadarache, France. EUR Report Series 19137 EN*, Luxemburg.

事例 36 : カナダのシガーレイク – 地層処分施設全体へのナチュラルアナログといえるか

概要

放射性廃棄物の地層処分施設全体についての、地質学的なアナロジーは、遠い将来までの地層処分施設全体の挙動と性能の理解にとって、非常に有益な知見を与える。

地層処分施設全体のアナログ

初期のアナログ研究においては、得られた知見をそのまま地層処分施設設計に適用しようとする動きが多く見られた。これは、オクロとポソス・デ・カルダスにおける初期の研究を始め、さらに最近ではマッカリンエリアで使われたアプローチにも言える。

概して、このアプローチはうまくいかなかった。なぜなら、アナログ研究のほとんどは特定のプロセスあるいはメカニズムに焦点を当てており、実際には、地層処分システムのただ一つの側面に着目することが多いからである。ポソス・デ・カルダスのような、規模の大きいプロジェクトでさえ、研究目的は複数あったが、特定の地層処分施設設計の全てに適用されると考えられるべきではない。

しかしながら、あるアナログ研究は、地層処分施設全体のアナロジーという点で他の多くの研究よりも近くにある。それがカナダのシガーレイクである。

シガーレイクのウラン鉱床

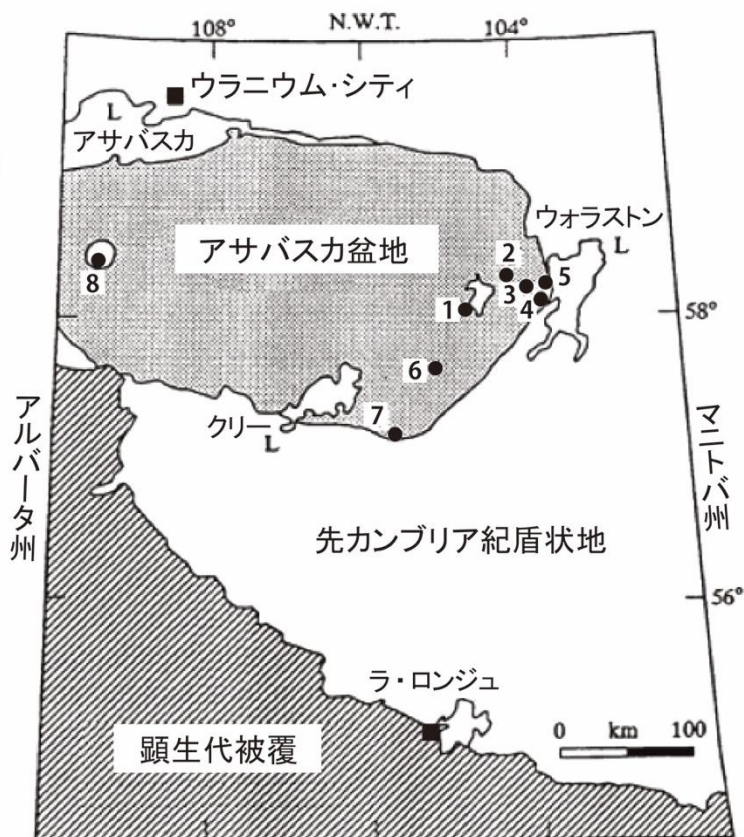
このウラン鉱床は、世界最大規模の鉱床の一つで、87,000トンのウランの埋蔵が明らかになっている。また、ウランを異常に豊富に含んでおり、その品位の平均値は21 %、最大値は60 %である。それどころか驚くべきことに、鉱床は地表下わずか約450 mにあり、そしてどちらかといえば透水性の高い砂岩中に存在しているが、地表で放射性物質の痕跡が見つかったことはない。



カナダ

ウラン鉱床

1. シガーレイク
2. ミッドウエスト
3. マクリーンレイク
4. ラビットレイク
5. コリンズ・ベイ
6. マッカーサーリバー
7. キイレイク
8. クラフレイク



シガーレイクは、カナダのアサバスカ盆地にある、複数の大規模なウラン鉱床の一つである (Cramer and Smellie, 1994)

シガーレイク鉱床は、アサバスカ砂岩の基底部に関係する他のウラン鉱床が存在することが知られていた地域において、地球物理学的な手法と体系的に実施されたボーリング掘削によって、その位置が特定された。ここでは、結晶質で変成した基盤岩を不整合に覆っているアサバスカ砂岩の基底部に、ウラン鉱化が存在する。この鉱床は、世界最大のウラン鉱床の一つであるが、地表には放射線の痕跡は見られない。



カナダ，シガーレイク。地表では世界最大規模のウラン鉱床の痕跡は見られない

シガーレイクにおけるナチュラルアナログ研究

ナチュラルアナログ研究は、80年代初期にカナダ原子力公社（AECL）によって開始された。その一方で、予備的な鉱石採掘も進められていた。本研究は、同社のCANDU炉（天然ウランを燃料とするカナダ型重水炉）の使用済燃料処分の研究と関連していた。なぜなら、本鉱床はこの特定の種類の廃棄物に適したアナログと見なされていたからである。初期の研究は、ウランの鉱物組成に重点をおいており、かなり定性的であった。この期間に、化学条件における変化（ウラン鉱床の周囲の酸化還元領域と、粘土含量（主にイライト）の高い周囲の変質領域の隔離機能）が特定された。これによって、本アナログが多くの使用済燃料の処分概念の人工バリアシステム（EBS）と母岩の代表的側面として、提示されることが可能となった。

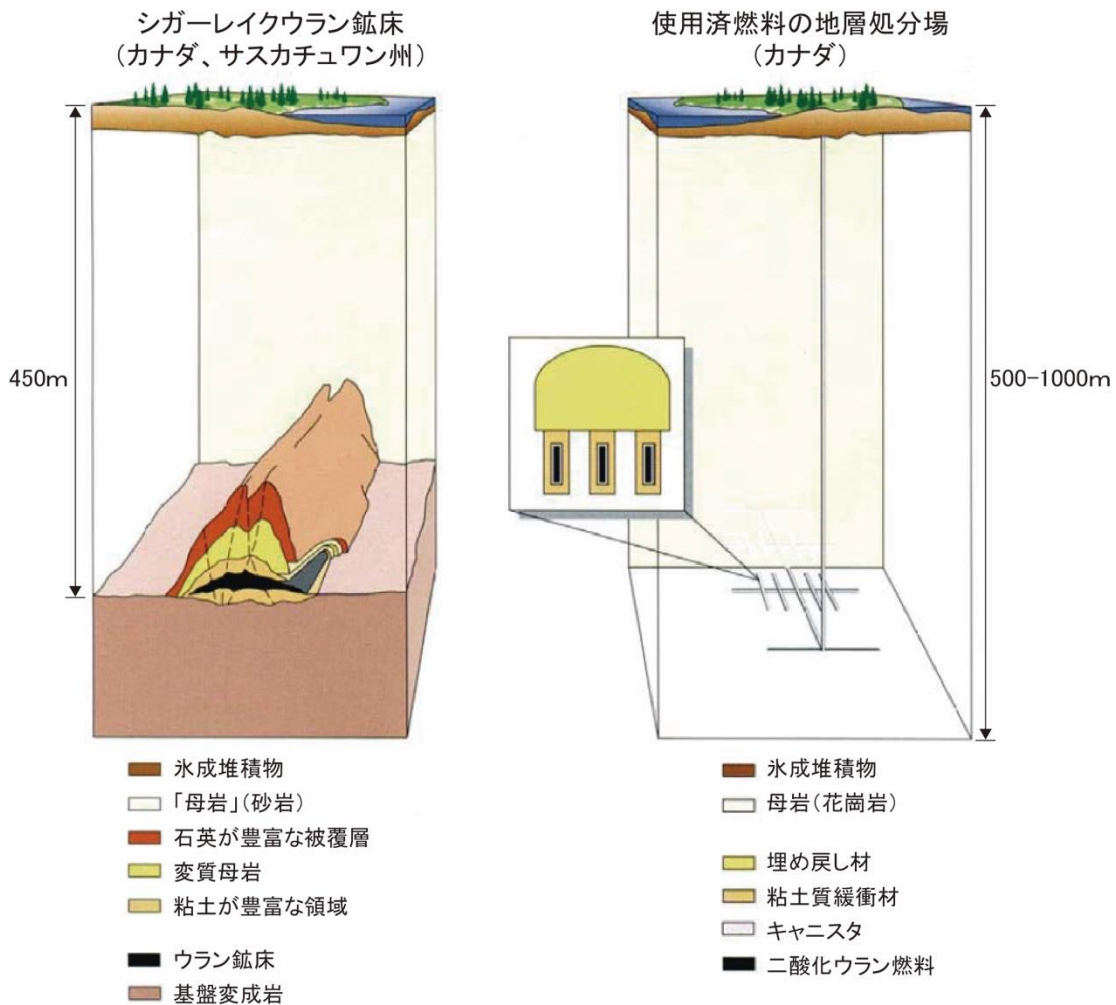
スウェーデン核燃料・廃棄物管理会社（SKB）との連携によって、80年代後期と90年代初期には研究がより定量的なものになり、ウラン鉱床から周囲の粘土バリアを通過するウランの可動化、移行および輸送に影響するプロセスの調査が実施された。

シガーレイクサイトやそれに関連するアナログ事例の多くは、広範囲にわたり文献に報告されている。地層処分の観点から見た、本サイトの主な特徴は以下のとおりである。

- ・ ウランが非常に豊富な鉱床（高濃度のウランと、ニッケル、コバルト、モリブデンおよび鉛等の安全性に関連する様々な元素を含む）の、非常に長い期間（約13億年）にわたる化学的安定性の定性的／一般的な証拠が存在する。
- ・ 砂岩層母岩の透水性が比較的高いにもかかわらず、現在の条件下において放射性核種の非常に効果的な閉じ込め機能が見られ、地表にはウランの放射線の目立った痕跡はない。
- ・ 臨界が起こっていたという証拠は見られない。しかし、水の大規模な放射線分解（放射線に

よる分子の分裂)が、ウランを大量に含む鉱床で見られる。これは、高レベル放射性廃棄物 (HLW) と使用済燃料 (SF) の地層処分施設で予想されるものと同様である。

- ・ ウラン鉱床の間隙水中の微生物、溶存有機物およびコロイドの存在にもかかわらず、鉱床の周囲の粘土が豊富な層には、ウランを変質から保護する機能が見られる。
- ・ 高レベル放射性廃棄物 (使用済燃料では、さらに関連性が高い) に関して、廃棄物の基質部としての二酸化ウランの効果、そして廃棄物溶出時に形成が見られる二次相に関する半定量的な確認ができる。



アナロジーの基礎：シガーレイク鉱床（左）と高レベル放射性廃棄物あるいは使用済燃料の地層処分施設の多重人工バリアシステム（右）との比較 (Miller et al., 2003より)

不確実性と限界

- ・ シガーレイク鉱床には非常に長い履歴 (13 億年) があることから、その大部分において境界条件の定義が困難となっている。このことは、すでに認知されており、考慮される一般的なナチュラルアナログ固有の限界である。よって、地層処分施設とのアナロジーは誇張されるべきではない。
- ・ 本アナロジーは、軽水炉 (LWR) あるいは高燃焼度の濃縮二酸化ウラン燃料よりも CANDU

炉（カナダ型重水炉）の燃料（比較的、燃焼度の低い天然ウラン）に適している。

- ・ 今後の研究については、採鉱がすでに開始されていることから、自然システムに対して大きな擾乱が生じるという制約を受ける（凍結による掘削／ウォータージェット式の削孔）。

適用性 - 得られた知見

- ・ 本アナログは、安定した母岩における処分の実現性について説得力のある議論をもたらす。この安定性によって、放射性廃棄物から毒性がほぼなくなるまでに要する期間をはるかに超えて、鉱床周辺の変質領域が、母岩の砂岩層の比較的高い地下水流動の影響から、ウランを遮蔽することが可能となる。
- ・ 本サイトはすでに擾乱を受けているが、豊富なウラン鉱床における、自然発生的な核分裂生成物（特にプルトニウム）の濃度の直接測定については、まだ可能性が残っている。本アナログは、こうした同位体は「完全に新しく、人為的な害」ではなく、実際にはすでに自然に存在している点を非専門家の人々に伝える際に有用であろう。

参考文献

CÔME, B. AND CHAPMAN, N.A. (EDITORS). 1986. Natural analogue working group, first meeting, Brussels, November 1985. *CEC Nuclear Science and Technology Report*, **EUR 10315**, CEC, Luxembourg.

CRAMERS, J.J. AND SMELLIE, J.A.T. 1994 (Editors) Final report of the AECL/SKB Cigar Lake Analog Study. *AECL Technical Report*, **AECL-10851**, Whiteshell, Canada and *SKB Technical Report*, **TR 94-04**, Stockholm, Sweden.

MILLER, W., HOOKER, P., SMELLIE, J., DALTON, J., DEGNAN, P., KNIGHT, L., NOSEK, U., AHONEN, L., LACIOK, A., TROTIGNON, L., WOUTERS, L., HERNAN, P. AND VELA, A. 2003. Network to review natural analogue studies and their applications to repository safety assessment and public communication (NAnet). *Synthesis Report*, NAnet Project, Funded by the European Community under the “Competitive and Sustainable Growth” Programme (1998-2002). Contract No. FIKW-CT-2002-20204.

SMELLIE, J.A.T. AND KARLSSON, F. 1996. A re-appraisal of some Cigar Lake issues of importance to PA. *SKB Technical Report*, **TR 96-08**, SKB, Stockholm, Sweden.

SMELLIE, J. *Analogue evidence from uranium orebodies*, Report to Nuclear Decommissioning Authority Radioactive Waste Management Directorate, 2009.

5. 用語集

<i>ADZ</i>	アルカリ影響領域
<i>BGS</i>	英国地質調査所
<i>CASH</i>	カルシウムアルミネートシリケート水和物
<i>CSH</i>	ケイ酸カルシウム水和物
<i>GDF</i>	地層処分施設
<i>EBS</i>	人工バリアシステム
<i>HLW</i>	高レベル放射性廃棄物
<i>ILW</i>	中レベル放射性廃棄物
<i>LLW</i>	低レベル放射性廃棄物
<i>L/ILW</i>	低中レベル放射性廃棄物
<i>RWM</i>	放射性廃棄物管理
<i>SF</i>	使用済燃料

6. 謝辞

本和訳版を作成するにあたり、名古屋大学博物館の吉田英一教授にはナチュラルアナログの専門家として和訳版の全体の監修をしていただきました。吉田教授には科学技術的な面のみならず報告書としての読みやすさといった面においても多くのご助言をいただき心より感謝いたします。

本和訳版を作成するきっかけを作ってくれたBedrock Geoscience社のRussell Alexander博士に感謝いたします。

和訳版を作成するにあたってはオリジナルの英語版を作成したRadioactive Waste Management (RWM)社のSimon Norris博士には相談に乗っていただきました。ここに記して感謝の意を表します。

英語のオリジナル版からの和訳版の作成は、全体統括を技術部の加来謙一が行い、和訳作業は仲村さやかが実施し、編集作業は広報部の西浦美樹および技術部の藤木美千代が担当しました。