資料番号: 11 - 13



結晶質岩を対象とした放射性核種の 移行・遅延モデルの構築と妥当性評価

- Nagra/JNC 原位置試験研究の概要 -

太田久仁雄 W. R. Alexander 東濃地科学センター *スイス放射性廃棄物処分協同組合(Nagra)

Development and testing of radionuclide transport models for fractured crystalline rock:

An overview of the Nagra/JNC Radionuclide Retardation Programme

Kunio OTA W. Russell ALEXANDER

Tono Geoscience Center

*National Co-operative for the Disposal of Radioactive Waste (Nagra)

Nagra とサイクル機構では,これまで10年以上にわたり,スイスアルプス中央部に位置するグリムゼル原位置試験場において,結晶質岩中の透水性割れ目を対象にした放射性核種の移行・遅延モデルの妥当性を評価するための原位置試験研究を実施してきた。この試験研究においては,様々な原位置試験に加え室内調査・試験やナチュラルアナログ研究なども実施し,結晶質岩中の透水性割れ目における放射性核種の移行・遅延を規制するプロセスや場の構造などを把握するとともに,それらのモデル化を行った。また,原位置試験手法やモデル化手法などの開発も実施し,それらの手法の有効性を確認した。最終的に,開発した放射性核種の移行・遅延モデルの妥当性が確認でき,そのモデルが地層処分システムの性能評価に反映できることの信頼性を示すことができた。

The joint Nagra/JNC Radionuclide Retardation Programme has now been ongoing for more than 10 years with the main aim of direct testing of radionuclide transport models for fractured crystalline rocks in as realistic a manner as possible. A large programme of field, laboratory and natural analogue studies has been carried out at the Grimsel Test Site in the central Swiss Alps. The understanding and modelling of both the processes and the structures influencing radionuclide transport in fractured crystalline rocks have matured as has the experimental technology, which has contributed to develop confidence in the applicability of the underlying research models in a repository performance assessment. In this report, the successes and set-backs of this programme are discussed as is the general approach to the thorough testing of the process models and of model assumptions.

キーワード

結晶質岩,放射性核種の移行・遅延,核種移行モデル,モデルの妥当性評価,Nagra/JNC原位置試験研究, グリムゼル原位置試験場

Fractured crystalline rock, Radionuclide transport/retardation, Radionuclide transport model, Model testing, Nagra/JNC Radionuclide Retardation Programme, Grimsel Test Site





1.はじめに

サイクル機構並びにスイス放射性廃棄物処分協 同組合(Nagra)では, 亀裂性岩盤(例えば, 結晶 質岩)中における放射性核種の移行・遅延を評価 するためのモデル及びモデル化の手法を開発し, サイクル機構が一昨年に取りまとめた「わが国に おける高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信 頼性 - 地層処分研究開発第2次取りまとめ - 」に おける地層処分システムの性能評価や、スイス中 央部に位置するヴェレンベルクサイトにおいて Nagra が建設を検討・計画している,中・低レベ ル放射性廃棄物の処分場の性能評価2などに適用し てきた。地層処分システムの性能評価において放 射性核種の移行・遅延を評価するためのこれらの モデル(以下,性能評価モデル)は,現実の地質 環境を単純化したものである。実際に,地質環境 は極めて複雑であり,その地質環境の特性を完全 に評価することは不可能である。したがって,モ デル化に当たっては, 亀裂性岩盤中において考慮 すべき放射性核種の移行・遅延プロセスとそのプ ロセスが生じる場の構造を抽出し単純化すること が必要である「図1に結晶質岩中における放射性 核種の移行・遅延の概念(Dual porosity Concept) に基づくモデル化の例を示す] このような性能評 価モデルを用いて行う地層処分システムの性能評 価においては,モデル化における単純化がその評 価結果に有為な影響を与えないことについて確認 する必要がある。あるいは,モデル化における条 件や仮定などが妥当であるならば, モデル化にお ける単純化により,保守的な評価結果(例えば, 処分場から放出される放射性核種の量を大きく見 積もった場合でも,その量が許容レベル以下であ ること)が導かれることを明らかにすることが必 要である。さらに,地層処分システムの性能評価 において用いられたパラメータが, 現実的あるい は保守的に設定されているかどうかについても確 認することが不可欠である。

しかしながら,性能評価モデルに基づく評価結果の妥当性(例えば,現実性や保守性など)を直接的に確認することは不可能である。これは,地層処分システムの性能評価が考慮すべき空間的・時間的スケールが極めて大きいためである。したがって,対象とする空間的・時間的スケールが地層処分システムの性能評価に比べて小さくとも,地質環境特性に関する調査・研究などに基づくモデル(以下,基礎モデル)とそのモデル化における条件や仮定などの妥当性を確認することにより,基礎モデルが地層処分システムの性能評価に反映

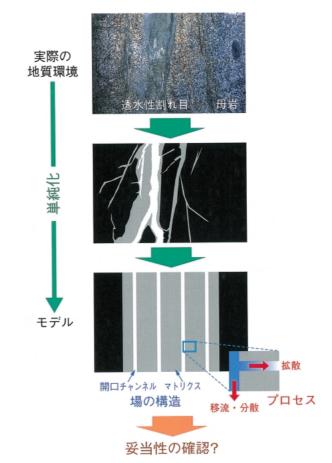


図 1 結晶質岩中の放射性核種の移行・遅延の概念(Dual -porosity Concept) に基づくモデル化

できることの信頼性を示すことが重要である。地下研究施設は処分場に比べて小さな空間的スケールを対象としているが,実在する地質環境を対象としており,その観点から,基礎モデルとそのモデル化における条件や仮定などの妥当性を確認するための場として活用できる。具体的には,基礎モデルとそのモデル化における条件や仮定などの妥当性を確認するために,以下に示す課題に取り組むことが重要であると考えられる。

基礎モデルとその条件や仮定などを用いた現象と場の予測と,実際に地質環境中で確認される現象と場との比較を通して,予測の精度を確認し,基礎モデルとその条件や仮定などの妥当性を評価すること。

対象とするプロセスとそのプロセスが生じる 場の構造が基礎モデルに適切に考慮されている ことを示すこと。

考慮すべきプロセスに関するデータを取得し, その理解度を深めること。

データの取得技術が妥当であることを示すこ と。 室内調査・試験により取得したデータが実際の地質環境条件にも適用できることを示すこと。Nagraとサイクル機構では,グリムゼル原位置試験場(スイス;図2)において,上記の課題に取り組むとともに,最終的に対象とする空間的・時間的スケールにおける放射性核種の移行・遅延モデル(基礎モデル)の妥当性をできるだけ現実的かつ直接的に評価することを目的とした原位置試験研究を国際共同研究として実施してきた³〕。本報告では,Nagra/JNC原位置試験研究において実施してきた調査・試験・研究の内容並びに成果の概要を紹介する。併せて,新たに取得された知見や原位置試験研究の重要性などについても述べる。



図2 グリムゼル原位置試験場の位置

2. Nagra/JNC 原位置試験研究の概要

グリムゼル原位置試験場はスイスアルプス中央部の標高約1,730m,地表からの深度約450mの基盤結晶質岩地塊(花崗岩類や片麻岩などからなる大規模な岩体)中に位置する(図2)。この原位置試験場における様々な調査・試験・研究は,近接する地下揚水式発電所へのアクセストンネルから分岐して掘削された直径約3.5m,総延長約1kmの研究用トンネルを利用して1983年より実施されている。これまでに,延べ30以上のプロジェクトにおいて,地層処分システムの性能評価や処分予定地の地下施設におけるサイト特性調査などにかかわる調査・研究及び技術開発,並びに深部地質環境に関する科学的な研究が実施されてきている。

Nagra とサイクル機構では,放射性核種の移行・遅延モデル(基礎モデル)の妥当性の現実的かつ直接的な評価を目的として,グリムゼル原位置試験場に分布する結晶質岩(グリムゼル花崗閃緑岩)中の単一透水性割れ目を対象に,様々な原位置試験や調査などに加え,それらを補完する室内

調査・試験,モデル解析並びにナチュラルアナログ研究も包含した総合的な原位置試験研究(Nagra /JNC Radionuclide Retardation Programme)を実施してきた³)。この原位置試験研究においては,1985~1996年(ただし,1985~1987年はNagraが単独実施)には様々な放射性核種を用いた原位置トレーサー試験(Migration Experiment;以下,MIプ⁵⁾⁵を実施し,更に1994~1998年には放射性核種の移行・遅延を直接的に評価するための原位置試験研究(Radionuclide Retardation Project;以下,RRP プ⁵⁾⁻⁹を実施した。

このような国内において実施困難な放射性核種を用いた原位置試験研究は,その成果がサイクル機構における地層処分研究開発及び地層科学研究の成果を補完するものとして重要な意義を有している。また,Nagra/JNC原位置試験研究の実施により,国内における同様の研究事例(例えば,釜石原位置試験研究¹⁰⁾における成果や適用した手法などについて,相互の比較・検討を通して,その妥当性や有効性などを確認することができる。

3.原位置試験研究の手法

放射性核種の移行・遅延モデル(基礎モデル)の妥当性の現実的かつ直接的な評価を目的としたNagra/JNC原位置試験研究では,2.に述べたように,MI及びRRPを段階的に実施してきた。いずれの原位置試験においても,対象とした地質環境のスケールは1~15m程度であり,これは一般的な室内試験のスケール(0.05~0.5m)よりも大きいが,地層処分システムの性能評価において考慮すべき空間的スケール(数百~数千 m)と比較して2~3オーダーも小さいものである。以下に,MI及びRRPの概要について述べる。

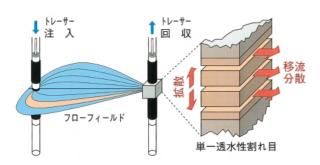
3 .1 原位置トレーサー試験 (MI)

グリムゼル原位置試験場の研究用トンネルを横切る単一透水性割れ目を対象に,構造地質学的,鉱物学的,水理学的並びに地球化学的特性,及び放射性核種の収着特性について集中的かつ詳細に調査・評価を実施し,結晶質岩中における放射性核種の移行・遅延の概念(Dual porosity Concept)に基づき,実際に想定される現象(地下水流動に伴う放射性核種の移流・分散及び濃度勾配による放射性核種の拡散)とその現象が生じる場(移流・分散が生じる開口チャンネル及び拡散の場となるマトリクス)を単純化することにより放射性核種の移行・遅延モデル(基礎モデル)を構築した(図1)。このモデルを用いて異なる条件下におけ

る原位置トレーサー試験の結果(例えば,破過曲線)を事前に予測した。

上記の予測解析の後,異なる化学的特性を有する放射性並びに非放射性トレーサーを用いた原位置トレーサー試験を実施した。この原位置トレーサー試験は,単一透水性割れ目に直交するように掘削した複数の試錐孔から孔間距離の異なる2本の試錐孔を選定し,この2孔間のフローフィールドにおいて,一方の試錐孔からトレーサーを注入し,他方の試錐孔において破過するトレーサーを回収する手法で行った(図3)。トレーサーは化学的に反応性の低いものから高いものへと段階的に使用した。具体的には,最初に非収着性のウラニン(蛍光染料),³He,³H,8²Br及び¹²3lを使用し,次に弱収着性の²²²4Na,86Rb及び⁵Sr,最終的に比較的強い収着性を示す¹³7Csを用いた⁴⟩5⟩л¹)。

構築した放射性核種の移行・遅延モデル(基礎モデル)の妥当性評価は,異なる条件下における破過曲線などの予測解析の結果と実際の試験結果との比較により行った「2)」、この手法の長所は,解析結果の精度に影響を与えるパラメータを容易に同定することができ,更にその影響の程度を感度良く把握できることである。期待される試験結果が予測解析を行う前から明らかになっているような場合には,その予測解析は意識的に操作され,その結果は期待される試験結果に収束する傾向がある「4」。したがって,構築した放射性核種の移行・遅延モデル(基礎モデル)及びその基になる概念の妥当性の厳密な評価は,上記のような手法を適



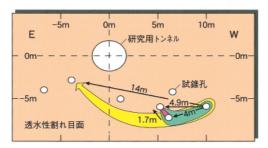


図 3 放射性核種の移行メカニズム及び原位置トレーサー 試験の概念

用することによってはじめて可能になると考えられ,その結果,放射性核種の移行・遅延モデル(基礎モデル)を用いた予測解析の結果の信頼性を示すことができると考えられる。一方,構築した放射性核種の移行・遅延モデル(基礎モデル)の問題点については,異なる放射性核種の移行・遅延モデルを用いて行った予測解析の結果との比較により抽出できると考えられる。しかしながら,この手法によって,モデルが根本的に包含するエラーや考慮すべきプロセスの欠如などの有無を確認することは不可能である。

3 .2 放射性核種の移行・遅延評価プロジェクト (RRP)

RRP は地層処分システムにおいて想定される放射性核種の移行・遅延を現実的に把握し、MI において実施してきた放射性核種の移行・遅延モデル(基礎モデル)の妥当性評価を更に進展させることを目的として実施した。RRP は大きく二つのサブプロジェクトから構成される。一つは原位置試験研究の対象とした単一透水性割れ目を開削し、放射性核種の移行・遅延を直接的に評価する原位置試験研究(Excavation Sub project;以下、EP)であり、もう一方は、結晶質岩中の透水性割れ目とその近傍における放射性核種の移行・遅延(特に、マトリクス拡散)を規制する連結空隙の構造特性を評価する原位置試験研究(Connected Porosity Sub project;以下、CP)である³ンタシ。

(1) 透水性割れ目の開削サブプロジェクト (EP) EP では MI において対象としたフローフィール ド(孔間1.7m)において,強収着性の放射性核種 (152Eu , 234 235U , 237Np , 99Tc , 60Co , 113Sn 及び75Se) 及び非放射性 Mo を注入15)した後,上記のフロー フィールドを含む単一透水性割れ目を開削し,放 射性核種の移行・遅延を直接的に評価した(図4)。 上記のような強収着性の放射性核種及び Mo は,鉱 物などとの化学的な反応(例えば,収着)を起こ しながら透水性割れ目中を極めてゆっくりと移行 するため, 1.7mの短い距離であっても完全に破過 するためには,極めて長い時間(数年~数十年) を要すると考えられる。 したがって, MI のように 数時間から数ヵ月で完全に破過する原位置試験と は異なり,一方の試錐孔から注入した放射性核種 の破過を他方の試錐孔において長期的に観察する ことは困難である。

強収着性の放射性核種及び非放射性 Mo の注入後, フローフィールド並びに収着した放射性核種を化 学的・物理的な擾乱を与えないようにエポキシ系

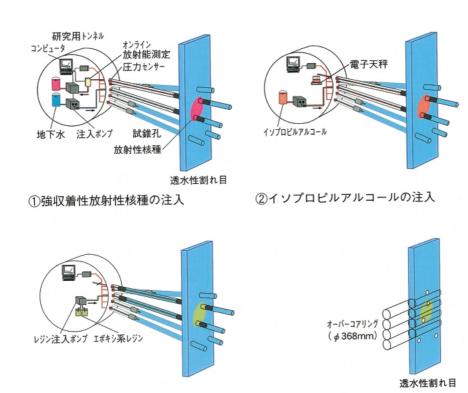


図4 単一透水性割れ目における放射性核種の移行・遅延評価のための原位置試験

レジンにより固定した。この際, エポキシ系レジ ンには紫外線により黄色に発光する蛍光染料を添 加し,後述する室内調査において,その移行経路 が容易に同定・観察できるようにした。エポキシ 系レジンの固化後,直径368mmの三重管オーバー コアリングにより,フローフィールドを含む単一 透水性割れ目の開削 約1tの岩石試料のサンプリ ングゾを行い、採取した岩石試料を室内において 詳細な調査・分析に供した。 具体的には , 岩石学 的調査とコンピュータ解析とを組合せた手法によ り,単一透水性割れ目中における放射性核種の移 行経路 (チャンネル)の構造を三次元的に明らか にしたほか, そのチャンネル沿いの放射性核種の 収着(遅延)サイトを表面分析や放射化学分析な どを組合せて同定した。最終的に、これらの結果 を予測解析の結果と比較した。

③エポキシ系レジンによる固定

(2) 連結空隙の特性評価サブプロジェクト(CP) CP では結晶質岩中の透水性割れ目近傍における 天然ウラン系列核種のマトリクス拡散に関する研究(ナチュラルアナログ研究)と併行して,マトリクス拡散を規制する連結空隙の構造特性の調査・研究を実施した。MI 及び RRP における原位置試験の時間的スケールでは,注入した放射性核種が単一透水性割れ目から結晶質岩マトリクス中に十分に拡散することは期待できないが,地層処分

システムの性能評価において考慮すべき長期的な時間的スケールでは,マトリクス拡散は放射性核種の移行・遅延を規制する重要なプロセスである。

④オーバーコアリングによる開削

原位置試験は MI 及び RRP を実施した研究用ト ンネルとは別の研究用トンネルにおいて, MI 及び RRP で対象とした単一透水性割れ目を対象に実施 した。その単一透水性割れ目に直交するようにグ リムゼル花崗閃緑岩中に複数の試錐孔を掘削し, アクリル系レジンをわずかに加圧した条件下でグ リムゼル花崗閃緑岩マトリクス中に注入した。一 般に花崗岩などのマトリクスの空隙率は低く,空 隙サイズも小さいことから,上記の原位置試験に おいては特別に開発した低粘性・低表面張力のア クリル系レジンを使用した。また,このアクリル 系レジンにも紫外線により黄~橙色に発光する蛍 光染料を添加し,後述する室内調査において,ア クリル系レジンにより染色された連結空隙を紫外 線落射型顕微鏡下で容易に同定・観察できるよう にした。アクリル系レジンの固化後,グリムゼル 花崗閃緑岩マトリクスの試料を直径200mm のオー バーコアリングにより採取した160。採取した岩石試 料(アクリル系レジンにより染色された試料)に ついては,微視的調査手法を用いて,単一透水性 割れ目からグリムゼル花崗閃緑岩マトリクス中に 連結する空隙の広がり、その幾何学的形状やサイ

ズなどを把握した。また,上記の岩石試料を用いてグリムゼル花崗閃緑岩マトリクスの空隙率の測定を行った。一方,同一地点において,アクリル系レジンにより染色されていないグリムゼル花崗閃緑岩マトリクス試料を通常のコアリングにより採取し,従来の室内調査・試験手法を用いて連結空隙の幾何学的形状やサイズ,空隙率などを把握した。最終的に,これらの異なる手法によって得られた調査・試験結果を比較・検討し,従来の室内調査・試験の結果が実際の地質環境条件に適用できるかどうかについて検討した。。

4 原位置試験研究の結果及び考察

4 .1 原位置トレーサー試験 (MI)

MI において予測解析の結果と実際の試験結果と の比較を行った結果,両者は異なる試験条件下に おいても,かなりよく一致した(図5)。言い換え れば,結晶質岩中における放射性核種の移行・遅 延の概念 (Dual porosity Concept) に基づいて実 際に想定される現象とその現象が生じる場を単純 化した放射性核種の移行・遅延モデル(基礎モデ ル)を用い,室内・調査試験データを主要な入力 パラメータとして行った予測解析により, 孔間距 離の異なるフローフィールドにおいて種類の異な るトレーサーを用いて実施した原位置トレーサー 試験の結果を,多くの場合,適切に表現できるこ とが確認された50,130。例えば, 孔間1.7mのフロー フィールド図3)の場合,ウラニン,²²⁴Na及び⁸⁵Sr の破過曲線は十分に予測解析できたが, 137Cs の破 過曲線のピークを予測することはできなかった。 この不一致は,これまでに実施された室内調査・ 試験により, Cs の収着特性の経時変化に起因する ことが明らかになっている「7)。

また, MI において得られた他の新たな知見とし

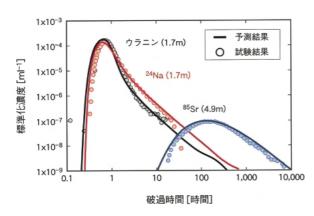


図5 原位置トレーサー試験における予測結果と試験結果 との比較(一例)

て,放射性核種の移行・遅延モデル(基礎モデル) の妥当性評価において導出された地下水流動に寄 与する空隙率,分散長,拡散係数などの主要パラ メータは,試験対象の単一透水性割れ目の詳細な 地質学的,水理学的及び地球化学的な特性調査の 結果を矛盾なく説明でき50,130,この結果からも,構 築した放射性核種の移行・遅延モデル(基礎モデ ル)の妥当性が確認できた。さらに,放射性核種 の収着係数について,放射性核種の移行・遅延モ デル(基礎モデル)の妥当性評価において導出さ れた値と室内調査・試験によって測定された値は 良く一致することが確認された(表1)。特に,透 水性割れ目中の断層粘土と短時間にイオン交換反 応を起こすような放射性核種については,試験対 象とする単一透水性割れ目の地質学的特性を代表 するように岩石試料を選定し調製することにより、 得られた室内調査・試験の結果を実際の地質環境 条件に外挿することが可能となる。

表1 様々な手法を用いて測定した収着係数の比較 Na 及び Sr の例)

収着係数の測定手法	収着係数 [× 10 ⁻³ m³kg ⁻¹]	
	Na	Sr
室内試験		
・水 - 岩石反応試験	0 .13	7.6
・バッチ式収着試験	0 45 - 1 3	13 - 41
・溶液浸透試験	0 .1 - 0 3	未測定
原位置試験		
・トレーサー試験(MI)	0 .13	21

以上述べてきた結果をまとめると, MI において 構築した放射性核種の移行・遅延モデル(基礎モデル)の妥当性が評価できたことにより,以下の内容について,その信頼性を確認することができたと考えられる5),18)。

対象とする空間的・時間的スケールにおいて, 考慮すべきプロセスとそのプロセスが生じる場 の構造が十分に理解され,適切にモデル化に反 映されたこと。

考慮すべきプロセスに見落としがないこと。 条件の違いを適切に考慮することにより,室 内調査・試験データ(特に,収着係数)を原位 置試験に適用できること。

しかしながら、これらの成果を、より大きな空間的・時間的スケールを対象とする地層処分システムの性能評価に適用することは不可能である。これは、MIでは地層処分システムの性能評価が対象とする空間的・時間的スケールにおいて考慮す

べきプロセスに関する情報が取得できていないためである。

4 .2 放射性核種の移行・遅延評価プロジェクト (RRP)

(1) 透水性割れ目の開削サブプロジェクト(EP) MI で適用した結晶質岩中における放射性核種の移行・遅延の概念(Dual porosity Concept)に基づきモデル化する手法を EP に適用した結果,強収着性の放射性核種 「SZ Eu , 234 235 U , 237 Np , 99 Tc , 60 Co , 113 Sn及び Se)と非放射性の Mo についても,試験対象の単一透水性割れ目中における分布を保守的に予測することができた 3) 8)。ただし,MI で用いた解析コードは,酸化還元反応や収着特性の経時変化などの複雑な化学的プロセスを考慮できないため,この予測解析には適用せずに,NagraがKristallin I 性能評価報告書 「に用いた室内調査・試験データ(特に,収着係数)に基づき概略的に予測解析を行った。

EP で採取した岩石試料の詳細な調査・分析の結 果,試験対象の単一透水性割れ目中には放射性核 種の移行・遅延の場となる複雑なチャンネルが認 められ、上記の放射性核種はそれらのチャンネル の中に存在する断層粘土に選択的に収着し分布し ていることが明らかになった(図6)。更に注目す べきこととして, フローフィールド並びに収着し た放射性核種を固定させるために注入したエポキ シ系レジンが認められないチャンネルには,放射 性核種が移行・遅延した形跡は確認されなかった。 この結果は,試験対象の単一透水性割れ目中のす べてのチャンネルが放射性核種の移行・遅延に寄 与するとは限らないことを示している(図7)。一 方, 行き止まりのチャンネル, 近接する二つのチャ ンネルを連結するチャンネル,並びに交差あるい は分岐しているチャンネルは, いずれも放射性核 種の収着サイトとなっており、このようなチャン ネル構造が放射性核種の移行・遅延を規制する一 要因となっていることが確認された3)8)。また,同

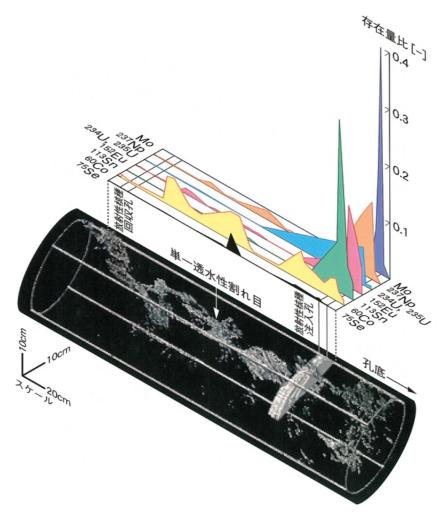
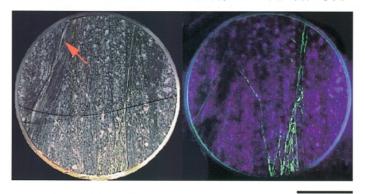


図 6 単一透水性割れ目中のチャンネル及び強収着性放射性核種の分布



岩石コア断面写真

紫外線による蛍光発光写真



10cm

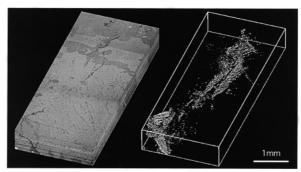
図7 グリムゼル花崗閃緑岩の単一透水性割れ目中のチャンネル構造

様の結果はサイクル機構が釜石鉱山の結晶質岩、栗橋花崗閃緑岩)中で実施した原位置試験研究(釜石原位置試験研究)においても得られている^{(1),20})。

これらの結果は,亀裂性岩盤中における放射性核種の移行・遅延の評価において,透水性割れ目の構造及び断層粘土を対象とした調査・研究の必要性を示唆している。特に,岩石試料のサンプリングにおいては物理的・化学的擾乱を極力低減させる手法を適用することが不可欠である。この観点から,EPにおいて,その適用性を確認した大口径の三重管オーバーコアリングによる岩石試料のサンプリングは極めて有効な手法であると言える。(2) 連結空隙の特性評価サブプロジェクト(CP)

CPではグリムゼル花崗閃緑岩マトリクス中に連結空隙のネットワークが分布することが確認され,それらの連結空隙が有する幾何学的形状(例えば,収斂あるいは屈曲した構造)が明らかになった(図8)、特に,屈曲した連結空隙は放射性核種の拡散を強く規制していることが確認された³)。一方,同様の透水性割れ目を対象に天然ウラン系列核種の分布特性などを詳細に調査した結果,グリムゼル花崗閃緑岩中の透水性割れ目近傍において,実際に天然ウラン系列核種のマトリクス拡散が生じ

ていることが明らかになった²¹。 したがって , 上記 の連結空隙のネットワークは , 明らかに放射性核 種のマトリクス拡散の場として寄与していること が確認された。



試験試料の三次元化画像

連結空隙の三次元可視化画像

図8 グリムゼル花崗閃緑岩マトリクス中の連結空隙の幾 何学的形状(一例)

このような連結空隙ネットワークの分布は,原位置においてアクリル系レジンにより染色された岩石試料のみならず,通常のコアリングにより原位置から採取し,室内においてアクリル系レジンにより染色された岩石試料においても認められた

が、その構造特性やサイズなどには明らかに相違 が認められた。空隙率測定を例にとると,原位置 においてアクリル系レジンにより染色された試料 を用いて測定したグリムゼル花崗閃緑岩マトリク スの空隙率は,わずかに0 27vol%であるのに対し, 通常のコアリングにより原位置から採取し,室内 において水中飽和法,水銀圧入法及びアクリル系 レジン染色と化学分析を組合せた手法により測定 したグリムゼル花崗閃緑岩マトリクスの空隙率は 0.61~0.74vol%である(表2 y)))。また,空隙の サイズについて比較すると,前者の岩石試料中に は5µm より大きな空隙がほとんど認められないの に対し,後者の試料中では10µm あるいはそれより 大きな空隙が卓越する。したがって,室内調査・ 試験に供した岩石試料中の空隙の半分以上は,岩 石試料の採取及び調製に伴う応力解放,本来存在 する空隙の伸張や新たな空隙の形成などにより生 じたものと考えられる。同様の結果は,釜石原位 置試験研究における栗橋花崗閃緑岩を対象とした 空隙構造調査10)20),及びカナダのラックデュボネ花 崗岩を対象とした原位置及び室内における透水係 数の測定結果の比較20においても得られている。

表2 原位置試験試料及び室内調査・試験用試料を用 いた空隙率の測定結果の比較

空隙率の測定手法	マトリクスの空隙率 [%]
室内調査・試験用試料	
・水中飽和法	0 .72 ± 0 .13
・水銀圧入法	0 £1 ± 0 .01
・レジン染色 - 化学分析法	0 <i>7</i> 4 ± 0 <i>0</i> 1
原位置レジン染色試料	
・化学分析法	0.27 ± 0.02

物理的な擾乱を被った岩石試料を用いて室内調査・試験を実施した場合,例えば,拡散係数は大きく見積もられ,イオン排斥効果は低く見積もられることとなる。したがって,結晶質岩マトリクスの有する放射性核種の遅延能力は大きく見積もられることとなり,地層処分システムの性能評価においては非保守的な評価結果(例えば,処分場から放出される放射性核種の量を過小評価することにより,その量が許容レベル以下に収まること)を導くこととなる。今後,これまでに室内調査・試験により取得したマトリクス拡散にかかわるパラメータ(例えば,空隙率や拡散係数など)について,原位置試験やナチュラルアナログ研究などの結果に基づきその妥当性を評価する必要がある。

5. おわりに

サイクル機構と Nagra では,放射性核種の移行 ・遅延モデル(基礎モデル)とその条件や仮定な どの妥当性を評価するための原位置試験研究をグ リムゼル原位置試験場において展開し,様々な成 果を取得してきた。この原位置試験研究において 適用したモデル化の手法により, 化学的に複雑な プロセスを伴う放射性核種に対しても,考慮すべ きプロセスとそのプロセスが生じる場の構造を適 切にモデルに表現することができ、結晶質岩中に おける放射性核種の移行・遅延の概念 (Dual porosity Concept)と適用したモデル化の手法の信頼 性を確認することができた。また,結晶質岩中の 透水性割れ目におけるチャンネル構造,断層粘土 と放射性核種との化学的反応,並びにマトリクス 拡散は,空間的・時間的スケールが小さい場合に おいても、結晶質岩中における放射性核種の移行 ・遅延を規制する主要因となっていることが確認 された。さらに,条件の違いを適切に考慮するこ とにより,室内調査・試験データ(特に,収着係 数)を実際の地質環境条件にも適用できることが 明らかとなり、それらのデータは地層処分システ ムの性能評価においても用いることができる可能 性が示された。一方,上記のチャンネル構造が結 晶質岩中における放射性核種の移行・遅延の評価 に及ぼす影響の把握や,室内調査・試験により取 得したマトリクス拡散にかかわるパラメータの、 地層処分システムの性能評価における適用手法の 検討などの今後の課題も抽出された。

以上の成果と併せて、これまでの Nagra/JNC 原位置試験研究により、放射性核種の移行・遅延モデル(基礎モデル)の構築においては、透水性割れ目の地質学的、水理学的及び地球化学的な特性調査に基づき、対象となるプロセスとそのプロセスが生じる場の構造を単純化する手法が極めて有効であり、この観点から地下研究施設における原位置試験研究の重要性が示された。

性能評価モデルに基づく評価結果の現実性及び 保守性を直接的に確認することは、その考慮すべ き空間的・時間的スケールが極めて大きいために 不可能である。したがって、原位置試験研究など を通して、基礎モデルとその条件や仮定などが実 際の地質環境中で認められる現象や原位置試験の 結果などを適切に表現できることを確認すること により、基礎モデルが地層処分システムの性能評 価に反映できることの信頼性を示すことができる。

現在,グリムゼル原位置試験場においては,結 晶質岩中における放射性核種の移行・遅延に及ぼ すコロイドの影響を評価するための原位置試験研究を国際共同プロジェクトとして実施しており,サイクル機構もこのプロジェクトに参加している。今後,このプロジェクトを通して,結晶質岩を対象とした放射性核種の移行・遅延モデル(基礎モデル)の高度化を図っていく計画である。

参考文献

- 1) サイクル機構: "わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性-地層処分研究開発第2次取りまとめ-", サイクル機構技術資料, JNC TN1410 99 020~024 (1999).
- 2) Nagra: Bericht zur Langzeitsicherheit des Endlagers SMA am Standort Wellenberg ", Nagra Technical Report, NTB 94 06 (1994)
- 3) K. Ota, W. R. Alexander, et al.: Building confidence in radionuclide transport models for fractured rock: the Nagra/ JNC Radionuclide Retardation Programme "Sci. Basis Nucl. Waste Manag. XXIV (2001, in press)
- 4) U. Frick, W. R. Alexander, et al.: The radionuclide migration experiment overview of investigations 1985 1990, Nagra Technical Report, NTB 91 04 (1992)
- 5) P. A. Smith, W. R. Alexander, et al.:" The Nagra JNC in situ study of safety relevant radionuclide retardation in fractured crystalline rock I: the radionuclide migration experiment overview of investigations 1990 1996, Nagra Technical Report, NTB 00 09 (2001, in press)
- 6) W. R. Alexander, B. Frieg, et al.: "The RRP project:investigating radionuclide retardation in the host rock. Nagra Bulletin No. 27, P. 43-55 (1996)
- 7) W. R. Alexander, K. Ota, et al(eds):" The Nagra JNC in situ study of safety relevant radionuclide retardation in fractured crystalline rock II: the RRP project methodology development, field and laboratory tests", Nagra Technical Report, NTB 00 06 (2001, in press)
- 8) A. Mori, B. Frieg, et al(eds)." The Nagra JNC in situ study of safety relevant radionuclide retardation in fractured crystalline rock III: the RRP project final report", Nagra Technical Report, NTB 00 07 (2001, in press)
- 9) A. Mori, M. Schild, et al.: The Nagra JNC in situ study of safety relevant radionuclide retardation in fractured crystalline rock IV: the in situ study of matrix porosity in the vicinity of a water conducting fracture, Nagra Technical Report, NTB 00 08 (2001, in press.)
- 10) サイクル機構: "釜石原位置試験総括報告書", サイクル機構技術資料, JNC TN7410 99 001 (1999).

- 11) W. R. Alexander, M. H. Bradbury, et al.: The current status of the radionuclide migration experiment at the Grimsel underground rock laboratory ", Sci. Basis Nucl. Waste Manag. XV, P. 721 728 (1992)
- 12) H. Umeki, K. Hatanaka, et al.: The Nagra/PNC Grimsel Test Site radionuclide migration experiment: rigorous field testing of transport models ", Sci. Basis Nucl. Waste Manag. XVIII, P. 427 434 (1995)
- 13) W. Heer, P. A. Smith: Modelling the radionuclide migration experiments at Grimsel. What have we learned? "Sci. Basis Nucl. Waste Manag. XXI, P. 663 670 (1998)
- 14) S. M. Pate, I. G. McKinley, et al.:" Use of natural analogue test cases to evaluate a new performance assessment TDB", 5 th CEC Natural Analogue Working Group Meeting and Alligator Rivers Analogue Project (ARAP) Final Workshop Proc. an International Workshop held in Toledo, Spain, 5 9 October1992, CEC Nucl. Sci. Technol. Series, EUR 15176 EN, P. 321 331 (1994)
- 15) J. Eikenberg, M. Ruethi, et al.: "The excavation project in the Grimsel Test site: in situ high resolution gamma and alpha spectrometry of ⁶⁰Co, ⁷⁵Se, ¹¹³Sn, ¹⁵²Eu, ²²⁵U and ²³⁷Np/²³³Pa", Sci. Basis Nucl. Waste Manag. XXI, P. 655 662 (1998)
- 16) B. Frieg, W. R. Alexander, et al.: In situ impregnation for investigating radionuclide retardation in fractured repository host rocks "Jour. Contam. Hydrol., 35, P. 115 130(1998)
- 17) M. H. Bradbury, B. Baeyens: Modelling the sorption of Cs: application to the Grimsel Migration Experiment ", PSI Annual Report 1992, Annex IV, P. 59 64 (1992)
- 18) P. A. Smith, W. R. Alexander, et al.: "Development and testing of radionuclide transport models for fractured rock: examples from the Nagra/JNC Radionuclide Migration Programme in the Grimsel Test Site, Switzerland", Jour. Contam. Hydrol, 47, P. 335 348 (2001)
- 19) Nagra:" Kristallin $\, I$:safety assessment report", Nagra Technical Report, NTB 93 22 (1994)
- 20) K. Ota, K. Amano, et al.: Brief overview of in situ contaminant retardation in fractured crystalline rock at the Kamaishi in situ test site ", Proc. an International Workshop for the Kamaishi In Situ Experiments, Kamaishi, Japan, 24 25 August1998, JNC Technical Report, JNC TN7400 99 007, P. 67 76 (1999)
- 21) W. R. Alexander, I. G. McKinley, et al.: Verification of matrix diffusion in granite by means of natural decay series disequilibria, Sci. Basis Nucl. Waste Manag. XIII, P. 567–576 (1990)
- 22) P. Vilks, J. J. Cramer, et al.: In situ diffusion in granite:phase I final report ", Ontario Power Generation Report, 06819 REP 01200 0087 R00 (1999)