資料３－１

地下環境とその働き

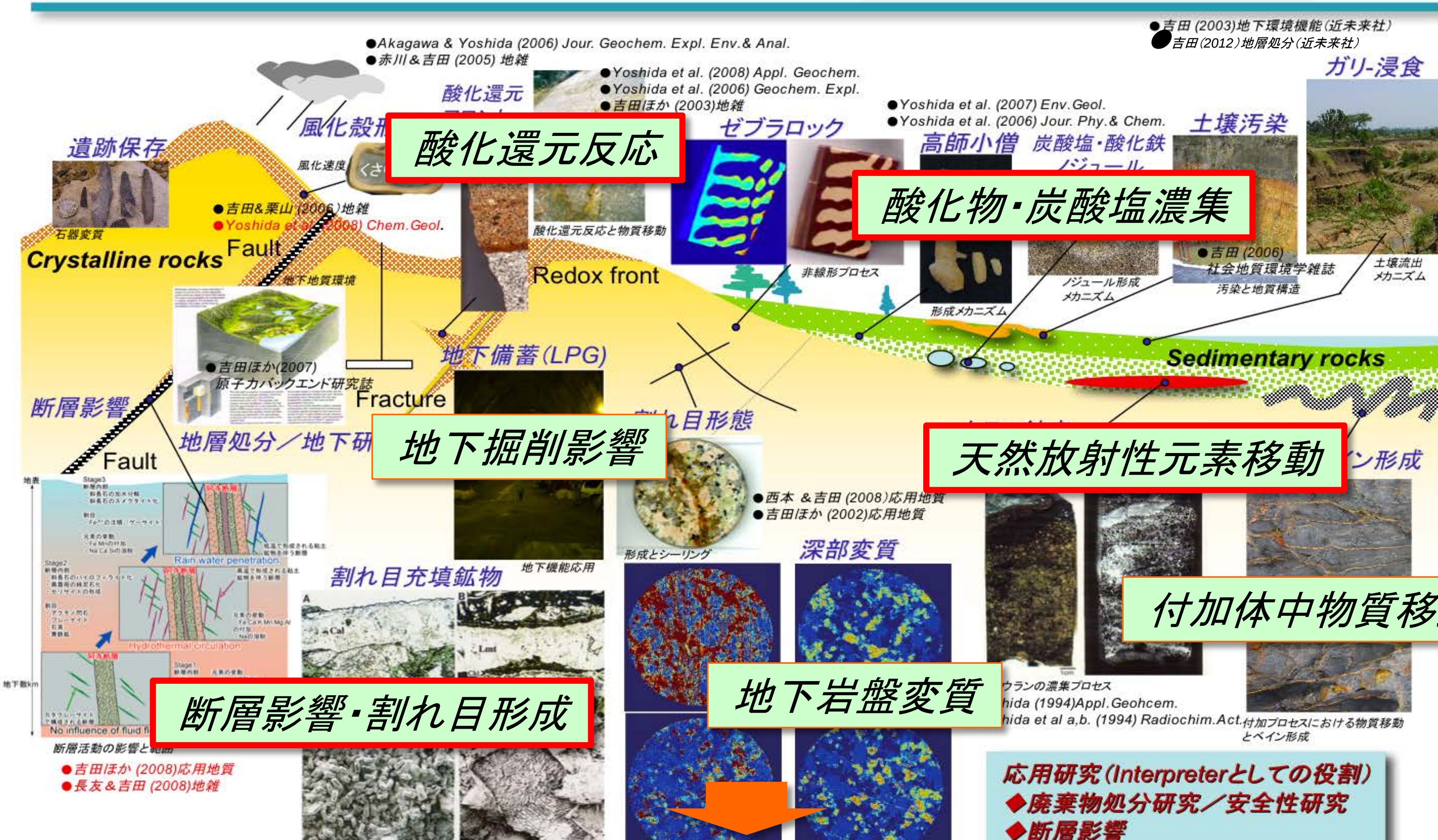
－バリア機能に関する理解（現状と課題）－

◆**自然に学ぶ地下環境中での物質移動現象**（ナチュラルアナログ）
◆地下環境のバリア機能（岩石マトリクス・割れ目・断層）
◆地下環境の緩衝機能と処分深度
◆バリア機能に関する今後の技術的課題

名古屋大学博物館資料基盤研究系
dora@num.nagoya-u.ac.jp
吉田英一

自然界での地下環境中の物質移動現象 自然に学ぶ物質移動プロセス

文献[1]



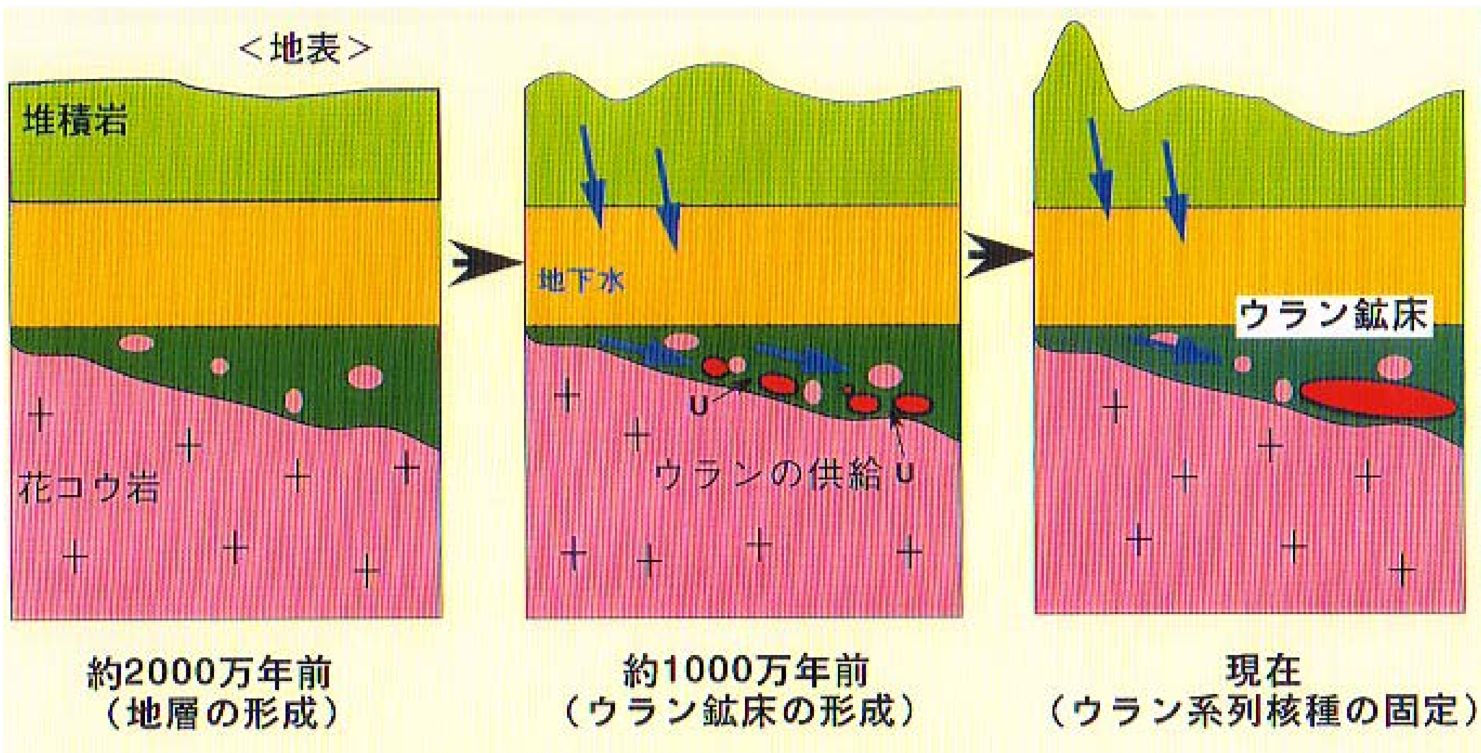
日本の地下環境に合致した地下利用方法の確認と構築

地下環境と地下環境中の水みち（岩石マトリクス・割れ目・断層）

1）岩石マトリクス（堆積岩）と物質移動（事例：ウラン鉱床）

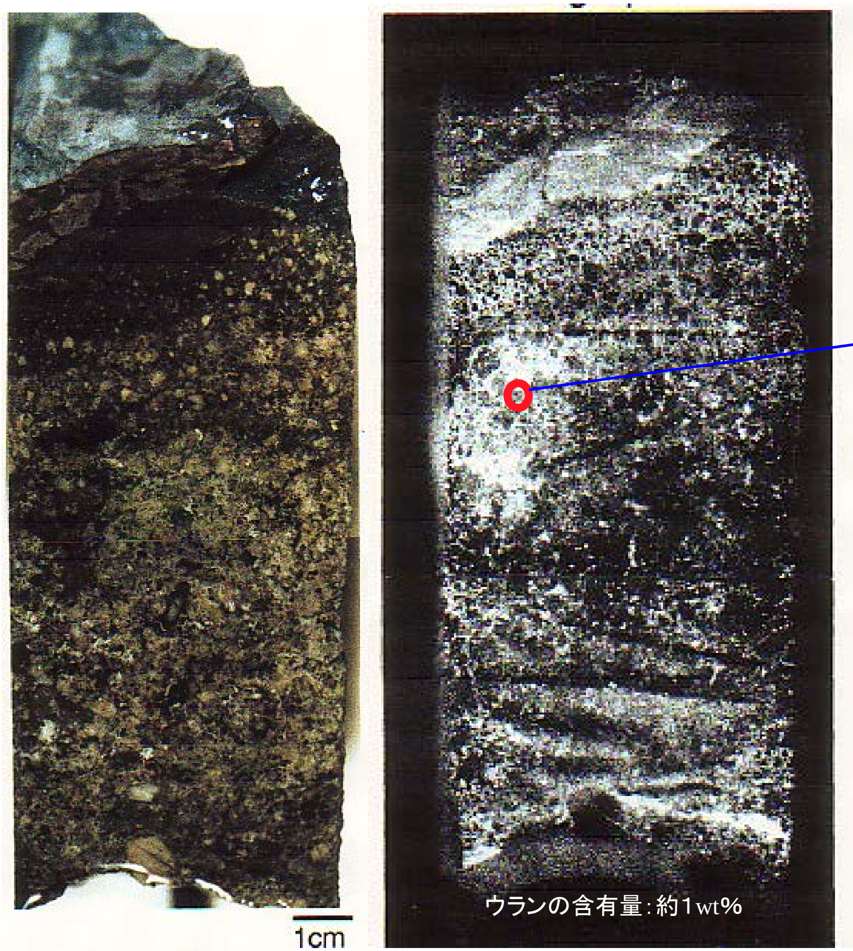
地層や岩石のどういった部分にウラン（天然の放射性核種）が移動し、濃集しているのかを、鉱物学的、地球化学的に調査研究を行ない、地下環境が持つ放射性元素の吸着や保持能力を把握する目的で実施

天然の事例
東濃ウラン鉱床：今から約2000万年前に形成された、現在の日本で唯一のウラン鉱床（岐阜県土岐市～瑞浪市に分布）を用いて研究（ナチュラルアナログ研究）

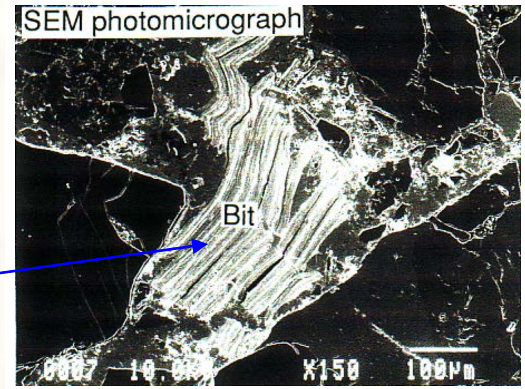


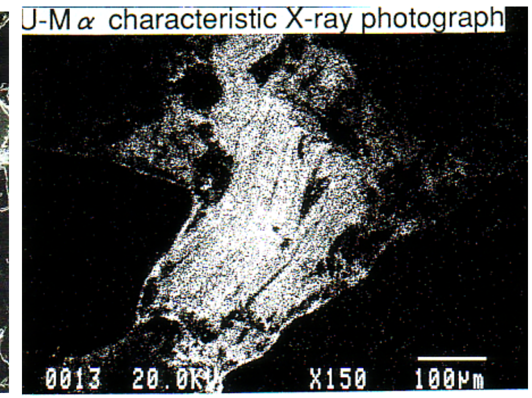
岩石マトリクス（堆積岩）のウランの移動・濃集ヶ所 文献[2][3]

ウラン鉱床を用いた研究結果



ウラン濃集部分:オートラジオグラフ
（白い部分がウランの濃集ヶ所）





<u>調査･分析結果</u>

観察及び分析結果から、鉄を多く含む鉱物（黒雲母や黄鉄鉱など）に濃集し、ウランが濃集した後の移動は認められない

（地下坑道を掘ってもウランの溶出は確認されていない →約40年間の東濃ウラン鉱山での地下水のモニタリング結果から）

岩石マトリクス（堆積岩）のウランの濃集能力（実験結果より）

文献[4]

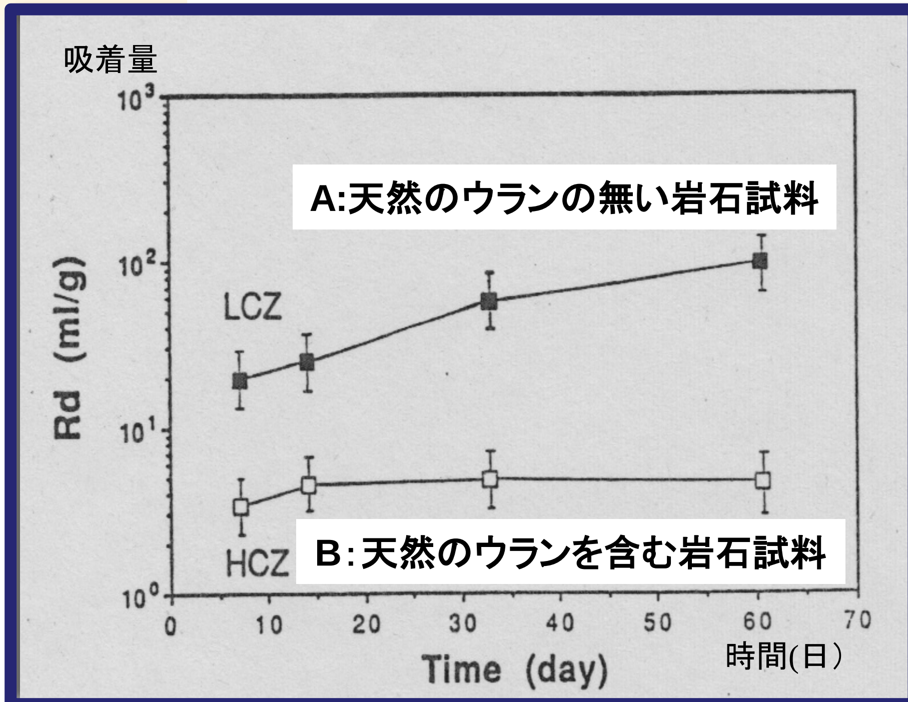
ウラン鉱床の岩石を用いた実験結果

同じ堆積岩の地層で、同じ鉱物組成であるにも係わらず、なぜ天然ウランの濃集の仕方が異なるのか？

<u>試験試料（天然の岩石を用いる）</u>

1）AとBは同じ地層の岩石試料
2）AとBを構成する鉱物は同じ
3）Aは天然ウランをほとんど含まない
4）Bは天然ウランの約1wt%含む

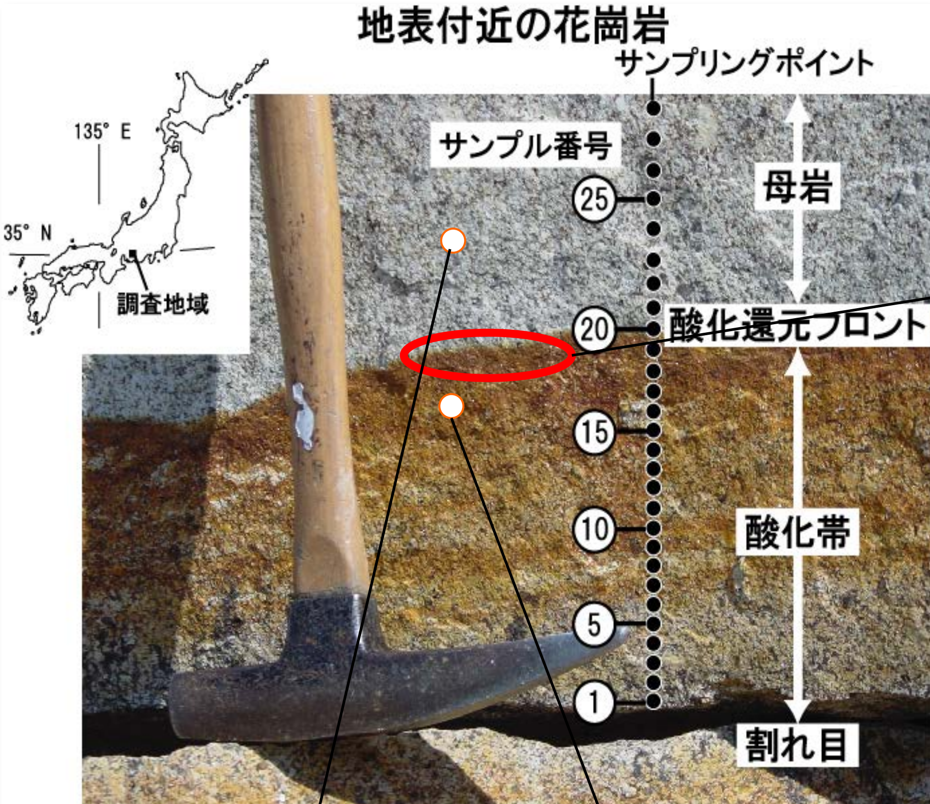
*天然のウランと区別するため**U-233**をトレーサーとして、還元状態で吸着試験を実施*

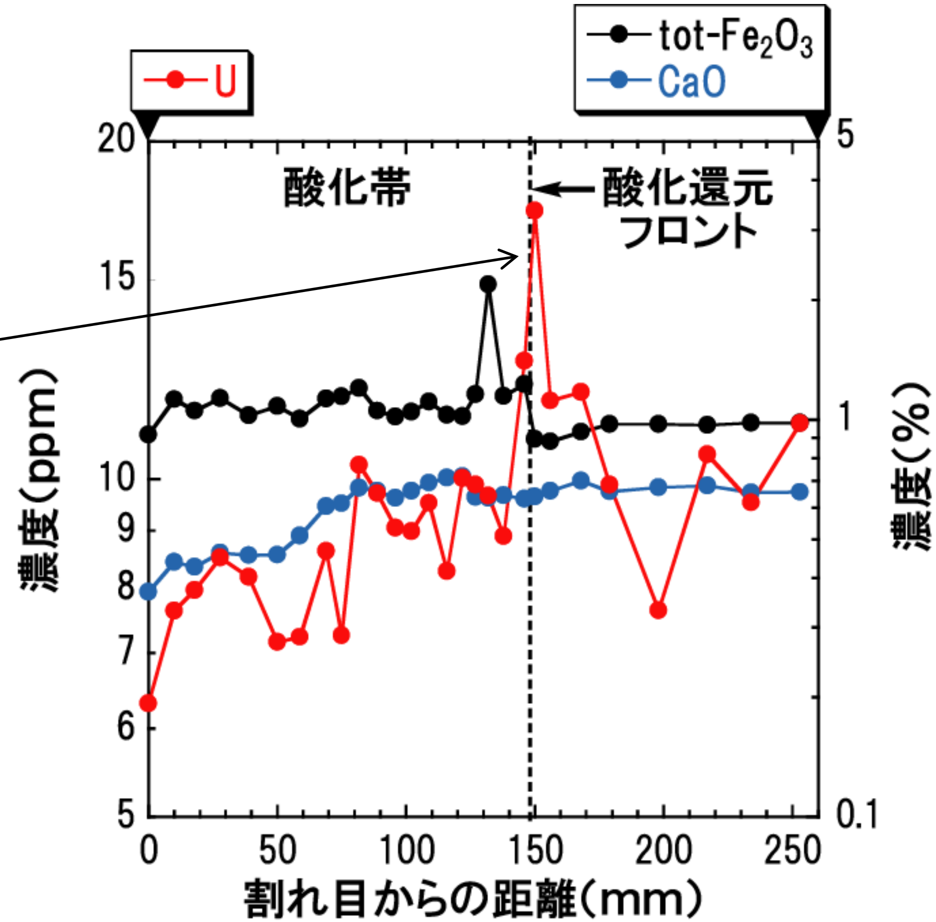


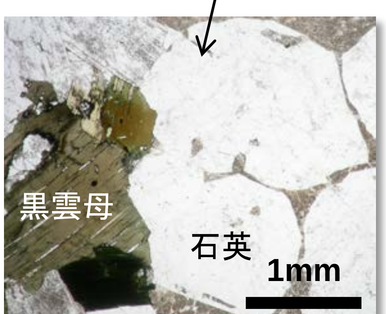
ウランを濃集する堆積岩に特別な違いはない
（ウランが濃集するかどうかは、ウランが透過したか否かの水みちの構造的問題）

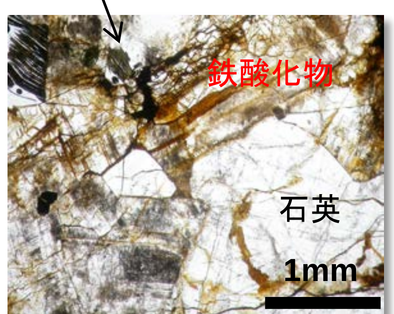
岩石マトリクス（結晶質岩）と物質移動（事例：マトリクス拡散）

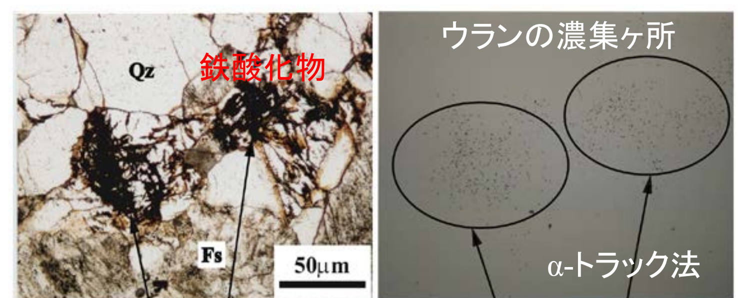
岩石マトリクス（結晶質岩）中の元素移動と濃集（ウラン） 文献[5][6]







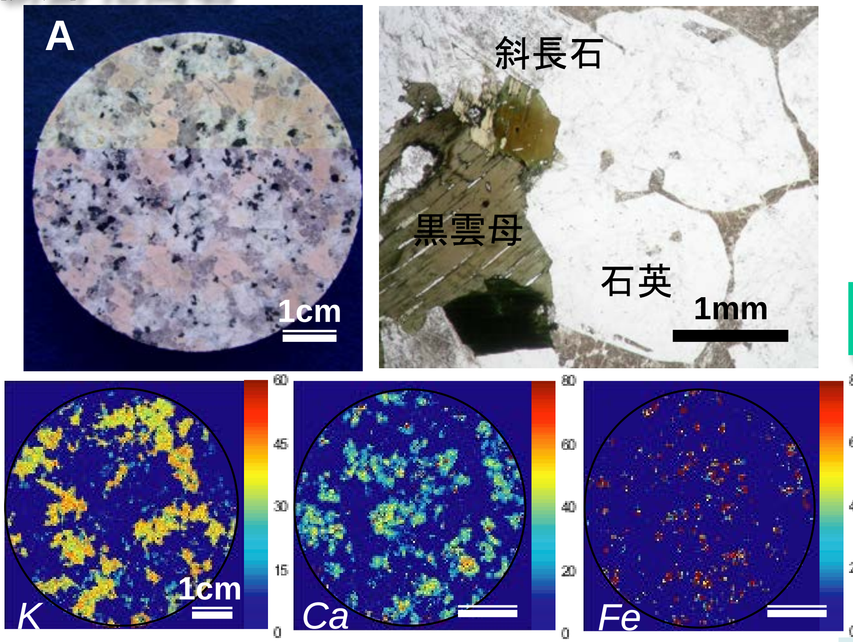




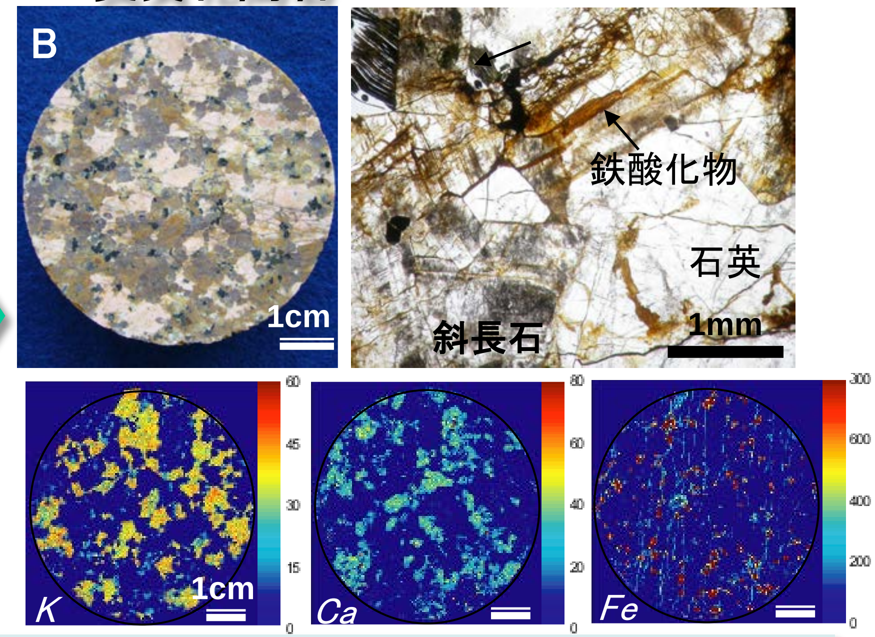
岩石マトリクス（結晶質岩）の"素材"としての性質

文献[7][8]

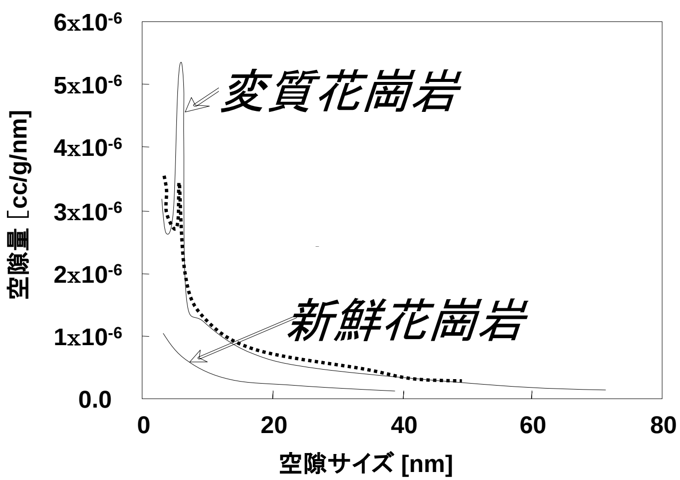
新鮮花崗岩



変質花崗岩



- ◆ 微小割れ目の形成･発達
- ◆ 鉱物の溶解あるいは二次鉱物の沈殿(K, Ca, Fe)



	比重 (g cm^{-3})	空隙率 (%)	比表面積 (m^2 g^{-1})	平均空隙孔サイズ (nm)
新鮮花崗岩	2.58	0.7	0.064	10.9
変質花崗岩	2.55	1.8	1.3	12.7

各種物性値(比重、空隙率、比表面積、平均空隙孔サイズ)

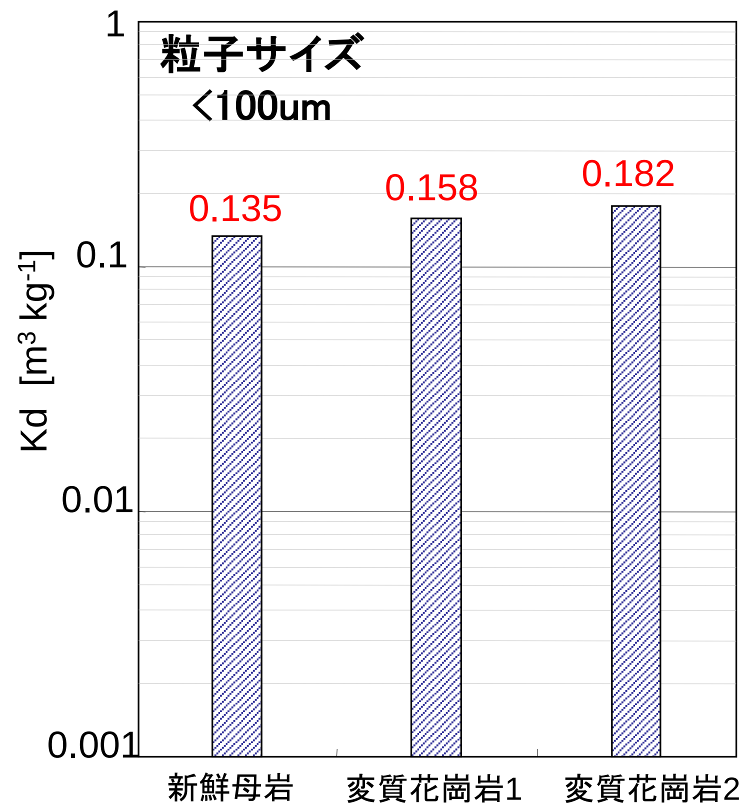
岩石マトリクス（結晶質岩）の吸着性能（実験結果） 文献[9]

新鮮花崗岩

変質花崗岩

吸着試験に用いた溶液の成分・試験条件	[mol L^{-1}]
Cs	1.0×10^{-5}
$NaHCO_3$	3.6×10^{-3}
$CaSO_4 + 5H_2O$	1.1×10^{-4}
KCl	6.2×10^{-5}
$MgSO_4$	5×10^{-5}
試験溶液 pH	8.5
試験の固体／液体比	10 cm^3 g^{-1}
試験に用いた容器	30 mL of Poly(propyrene) bottle
吸着試験期間（日）	109 days with shaking
試験温度（K）	298 K

バッチ式（岩石を粉砕したパウダー状の試料を用いた）吸着試験の諸条件



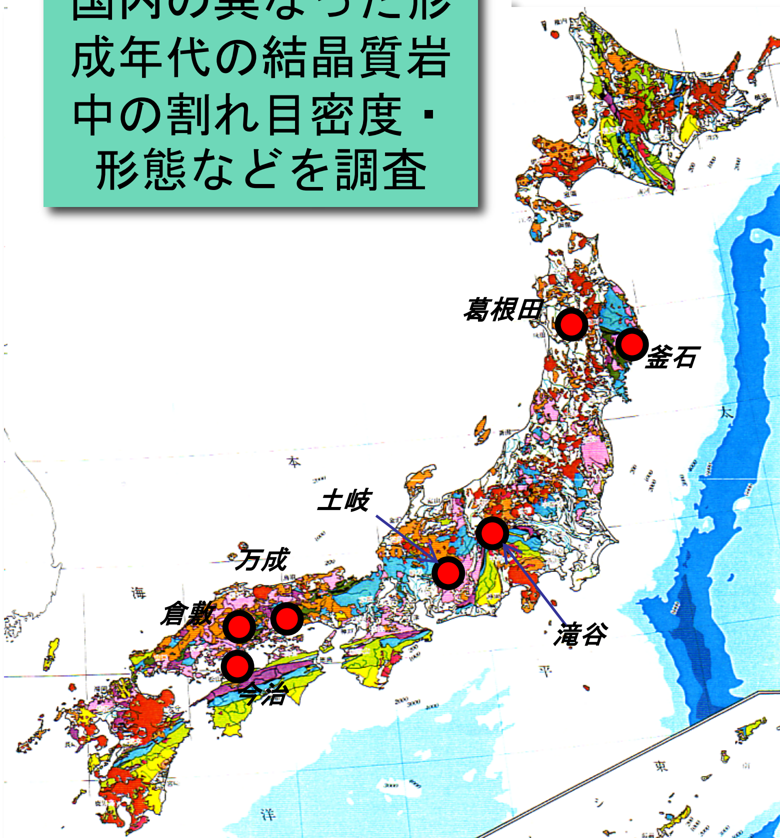
セシウム（Cs）を用いた吸着試験結果

新鮮母岩と変質岩石の吸着能に大きな相違は見られない（若干、変質マトリクスの方が高い）

2）日本の花崗岩中の割れ目について（産状と特徴）

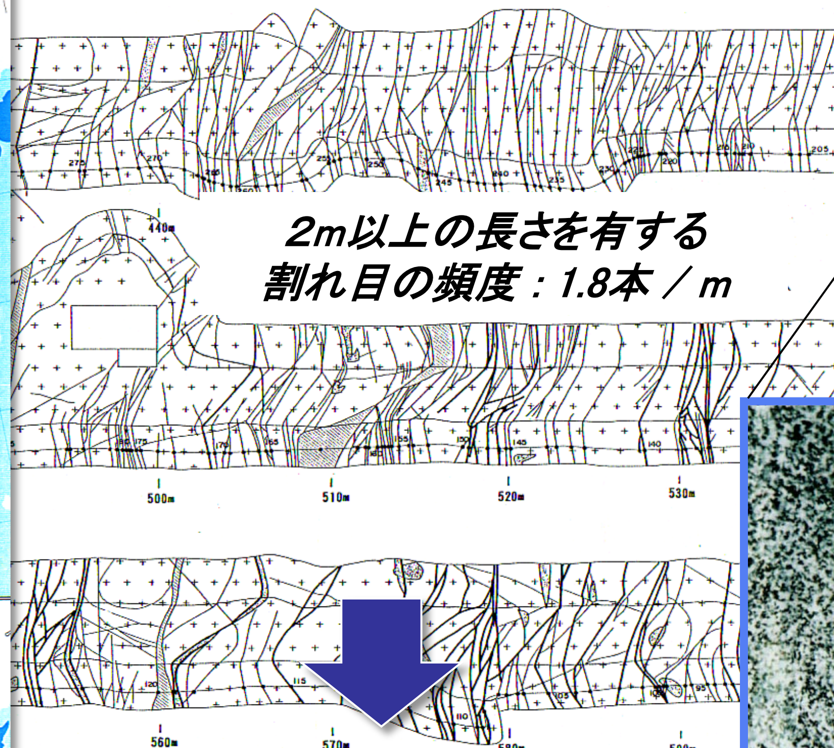
文献[10][11]

国内の異なった形成年代の結晶質岩中の割れ目密度・形態などを調査



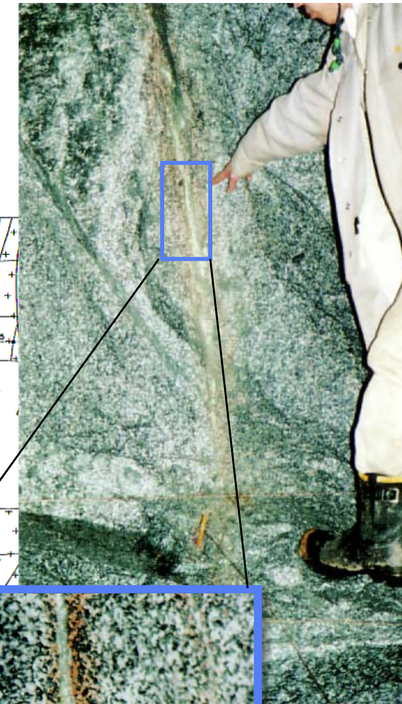
どの岩体においても平均約２本/mの割れ目頻度を有する

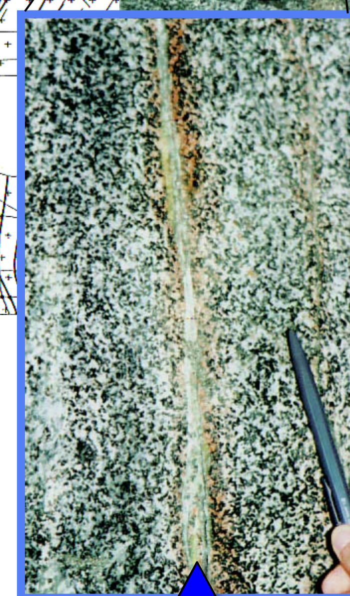
地下深部花崗岩中の割れ目の産状
（釜石栗橋花崗岩；－700mレベル）



2m以上の長さを有する割れ目の頻度：1.8本／m

割れ目はどのように形成されるのか？



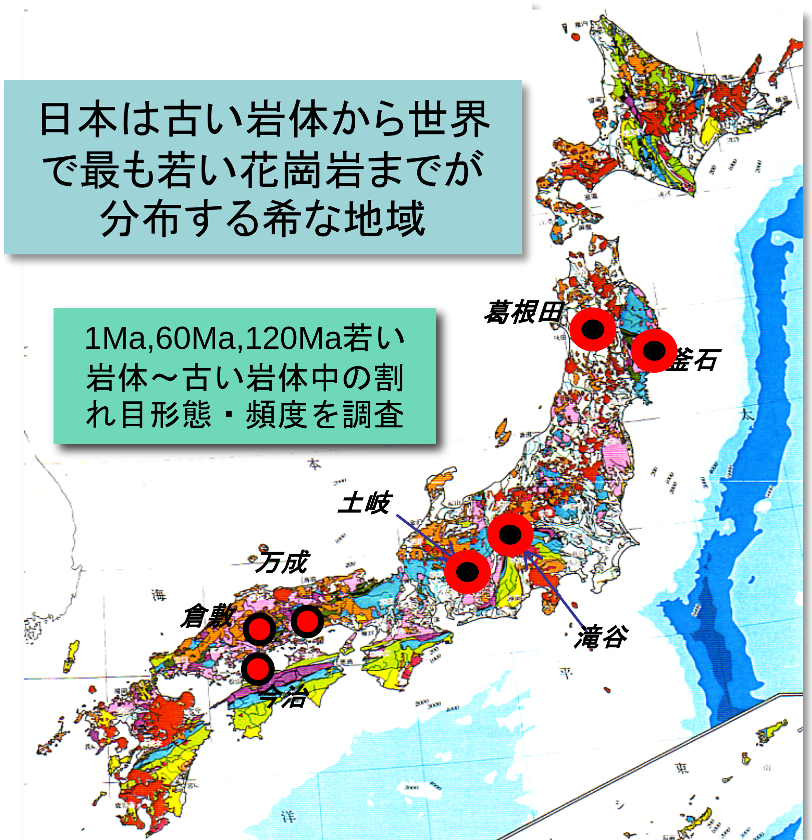


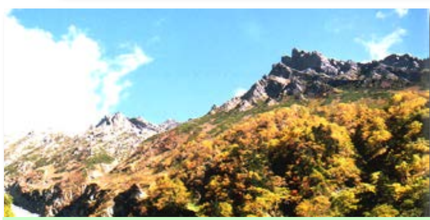
異なった時代の花崗岩に学ぶ割れ目形成史

文献[11][12]

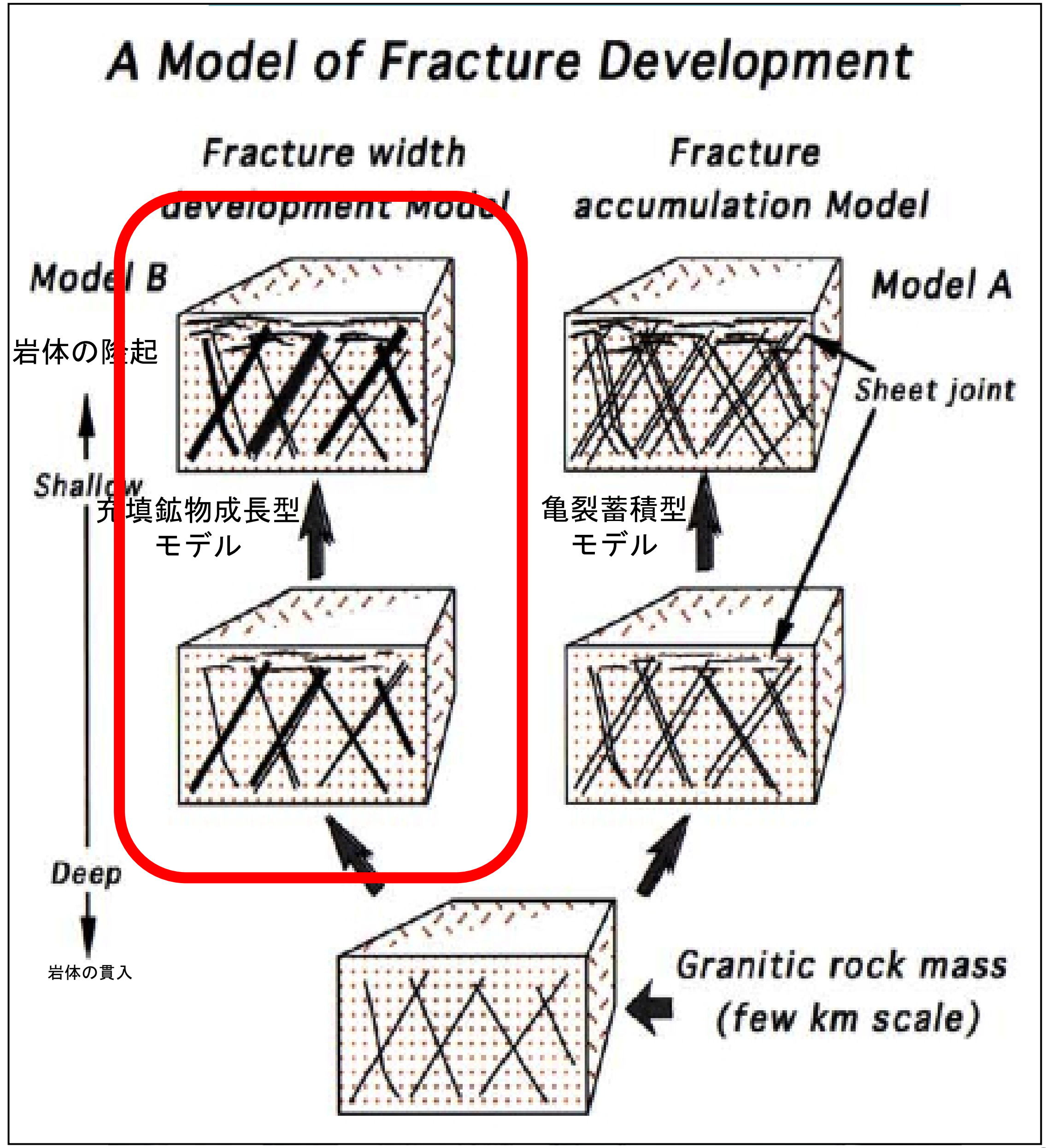
日本は古い岩体から世界で最も若い花崗岩までが分布する希な地域

1Ma,60Ma,120Ma若い岩体～古い岩体中の割れ目形態・頻度を調査



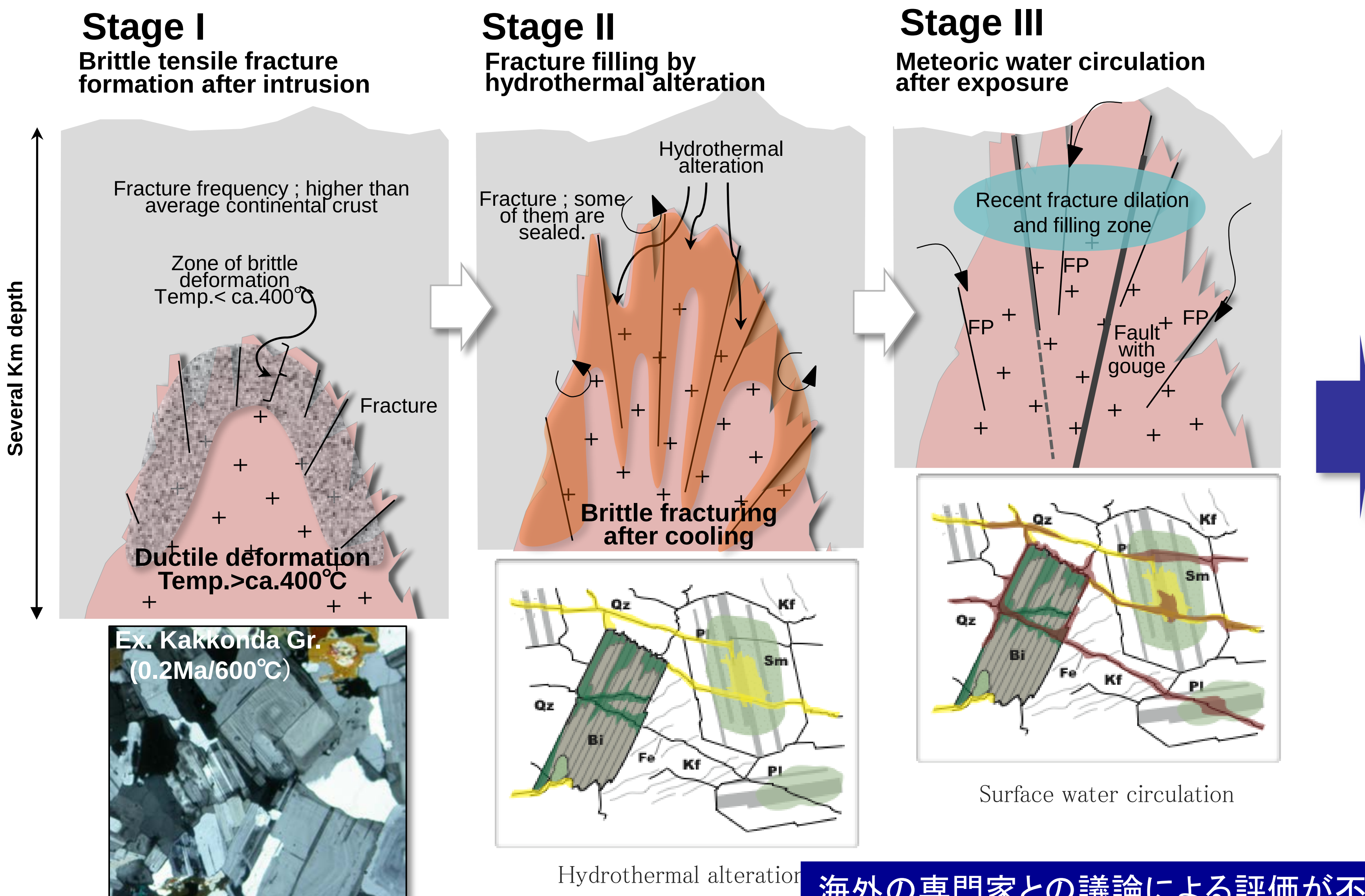


滝谷花崗岩（100万年）



A model of fracture system development

文献[13]



将来的な断層・割れ目の活動性の予測へ

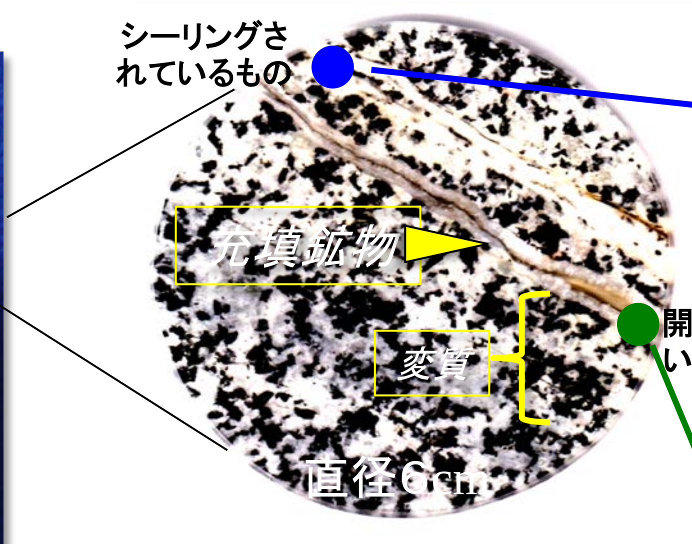
海外の専門家との議論による評価が不可欠

（韓国やフィンランド処分サイトの地質学専門家との意見交換）

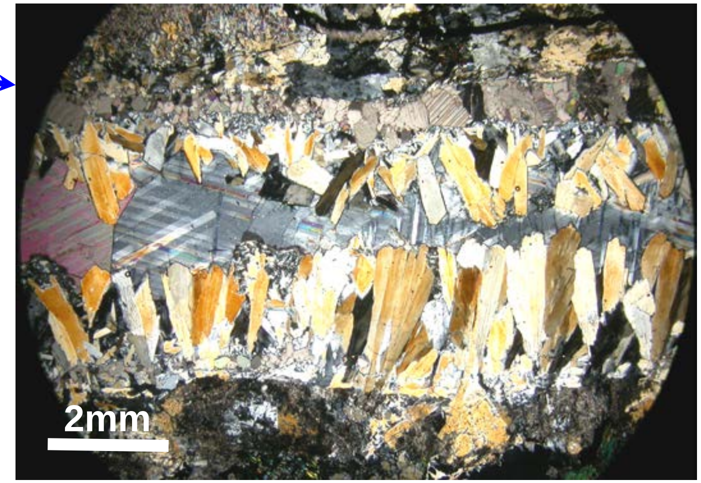
割れ目（充填鉱物）とバリア機能

文献[14]

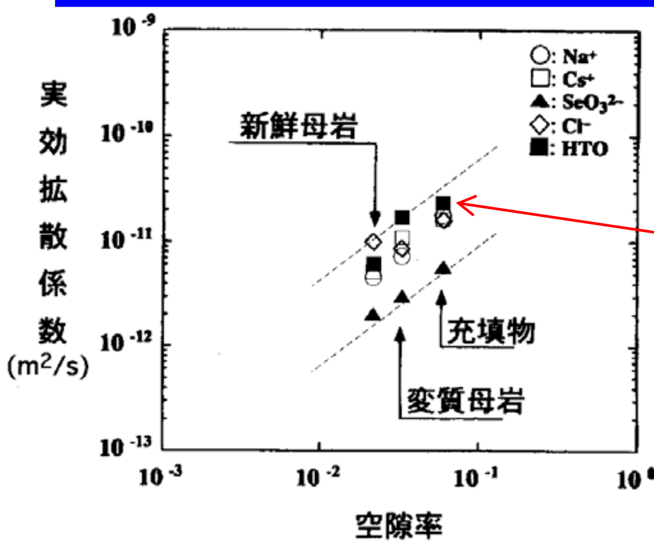
割れ目（地下700mより）



シーリングされ、水みちとして機能しない割れ目



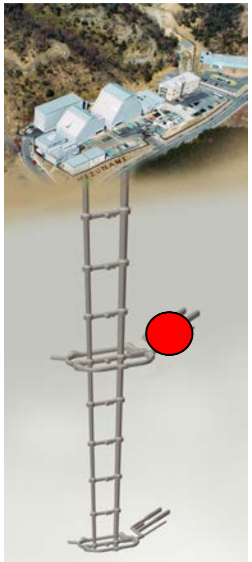
拡散係数の大きさ：充填鉱物＞変質マトリクス＞新鮮マトリクス



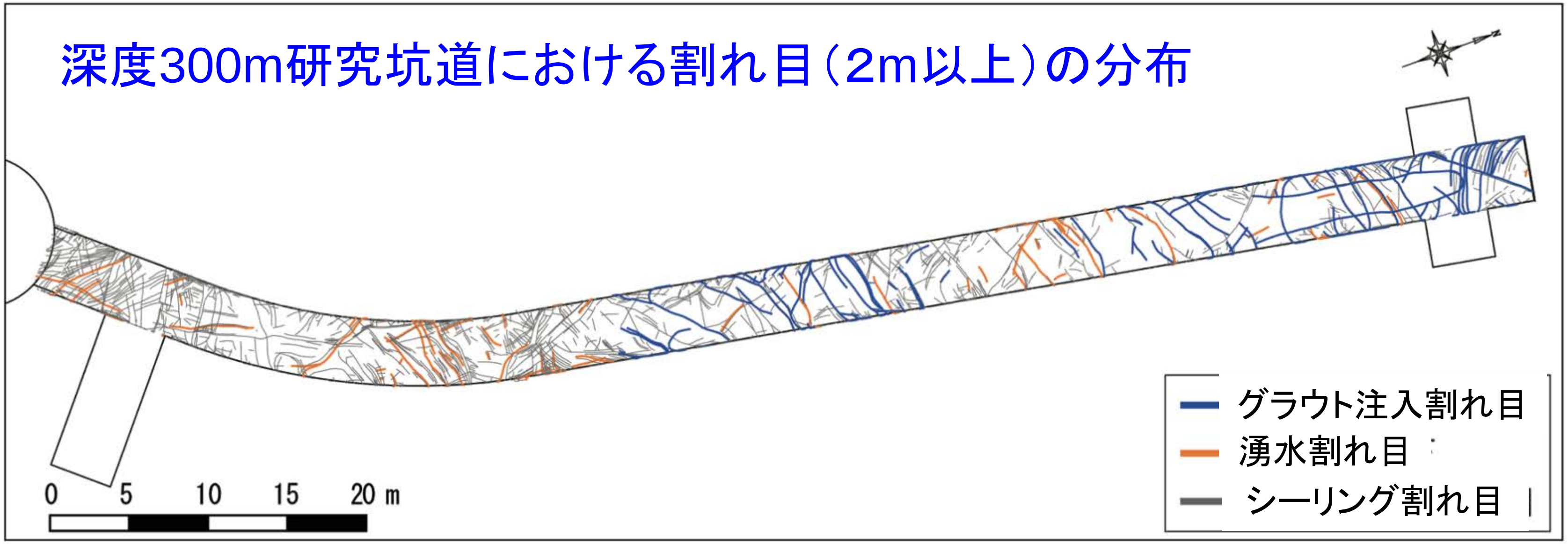
現在も水みちとして機能している割れ目

シーリングされている割れ目の割合（花崗岩）

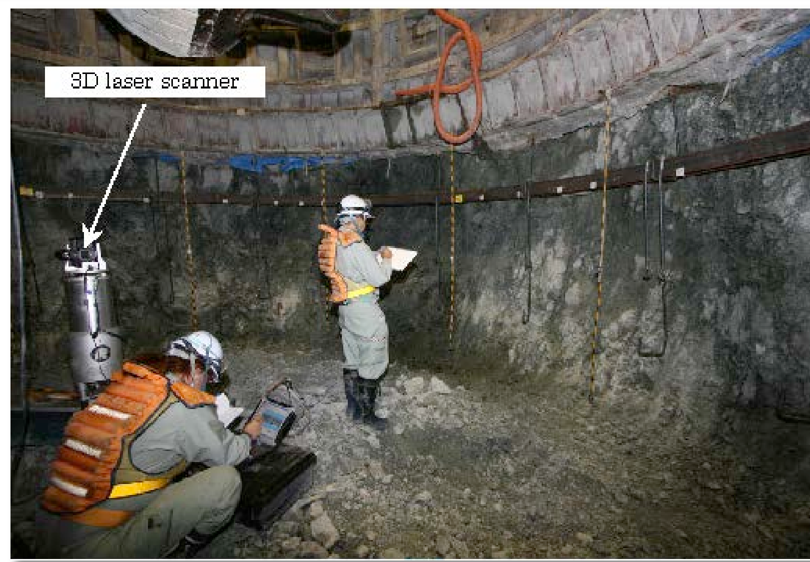
文献[15]



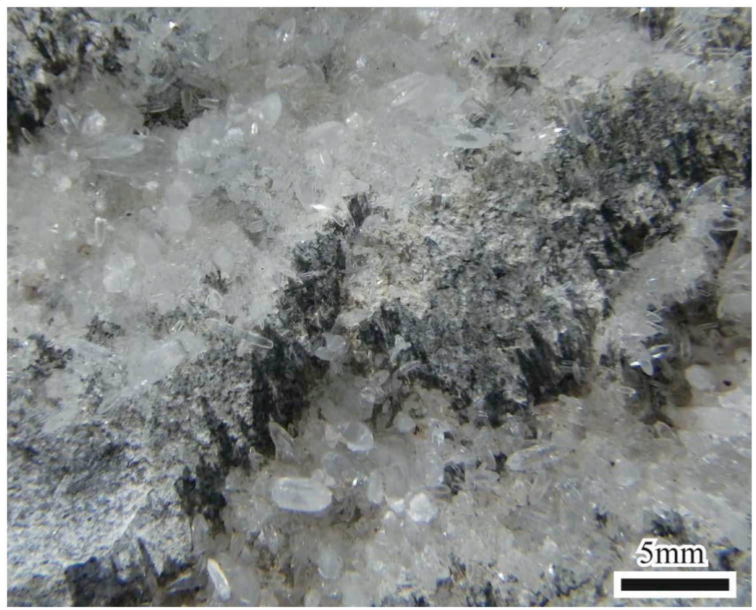
瑞浪地下研究所



- 深度300m研究坑道において2m以上の長さの割れ目は300本（2.2本/m）
- シーリング割れ目は、228本（全体の76%）



堆積岩の割れ目は？



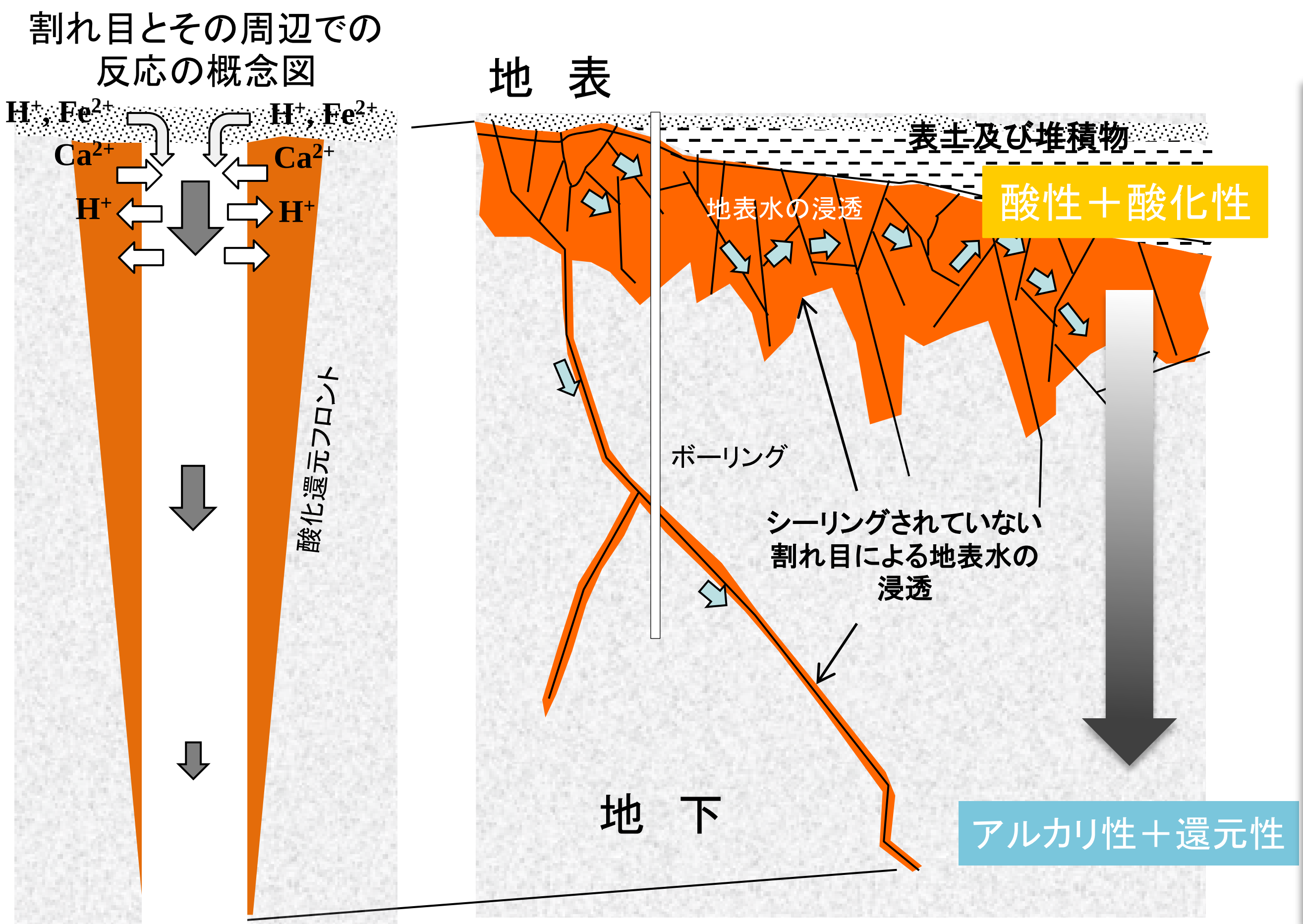
炭酸塩鉱物を用いた水みちの判定が可能

付加体中の割れ目（水みち）は全体の約10％程度
（さらに調査によるデータを蓄積）

地下環境の緩衝作用と処分深度（地表からの影響深度） 文献[16]

花崗岩

約200mまで



堆積岩

約100mまで

100～200メートル程度までで緩衝される
（酸化地下水の直接的浸透＜pH緩衝による鉄水酸化物の形成）

地表が土壌や堆積物（岩）で覆われる場合にはさらに早く緩衝される

堆積岩と花崗岩の緩衝深度の違いは、岩石を構成する鉱物素材の組み合わせによる

文献[16]

Applied Geochemistry 35 (2013) 75–87

Contents lists available at SciVerse ScienceDirect

Applied Geochemistry

journal homepage: www.elsevier.com/locate/apgeochem

Redox front penetration in the fractured Toki Granite, central Japan: An analogue for redox reactions and redox buffering in fractured crystalline host rocks for repositories of long-lived radioactive waste

Koshi Yamamoto[a], Hidekazu Yoshida[a,*], Fuminori Akagawa[a], Shoji Nishimoto[b], Richard Metcalfe[c]

[a] Nagoya University, Graduate School of Environmental Studies, D2-2(510) Furocho, Chikusa, Nagoya, Aichi 464-8601, Japan
[b] Nagoya City Science Museum, 2-17-1 Sakae,Naka-ku,Nagoya460-0008,Japan
[c] Quintessa Limited, The Hub, 14 Station Road, Henley-on-Thames, Oxfordshire RG9 1AY, UK

A R T I C L E I N F O

Article history:
Received 7 May 2012
Accepted 19 March 2013
Available online 6 April 2013
Editorial handling by Adrian Bath

A B S T R A C T

Redox buffering is one important factor to be considered when assessing the barrier function of potential host rocks for a deep geological repository for long-lived radioactive waste. If such a repository is to be sited in fractured crystalline host rock it must be demonstrated that waste will be emplaced deeper than the maximum depth to which oxidizing waters can penetrate from the earth's surface via fractures, during the assessment timeframe (typically 1 Ma). An analogue for penetration of such oxidizing water occurs in the Cretaceous Toki Granite of central Japan. Here, a deep redox front is developed along water-conducting fractures at a depth of 210 m below the ground surface. Detailed petrographical studies and geochemical analyses were carried out on drill core specimens of this redox front. The aim was to determine the buffering processes and behavior of major and minor elements, including rare earth elements (REEs), during redox front development. The results are compared with analytical data from an oxidized zone found along shallow fractures (up to 20 m from the surface) in the same granitic rock, in order to understand differences in elemental migration according to the depth below the ground surface of redox-front formation. Geochemical analyses by XRF and ICP-MS of the oxidized zone at 210 m depth reveal clear changes in Fe(III)/Fe(II) ratios and Ca depletion across the front, while Fe concentrations vary little. In contrast, the redox front identified along shallow fractures shows strong enrichments of Fe, Mn and trace elements in the oxidized zone compared with the fresh rock matrix. The difference can be ascribed to the changing Eh and pH of groundwater as it flows downwards in the granite, due to reactions with rock forming minerals, in particular feldspar dissolution. These observations give important insights into the processes that control the rates of redox front penetration in fractured crystalline rock. The findings of the study can be used to help build confidence among stakeholders that radioactive waste would be emplaced in such rocks at greater depth than that to which oxidizing water is likely to penetrate in future.

1. Introduction

When siting a deep geological repository for long-lived radioactive wastes within fractured crystalline rock, it must be established that oxidizing surface waters will not in future penetrate to repository depth along fractures and compromise the natural and/or engineered barriers to radionuclide migration. Such water penetration would tend to promote the degradation of metal engineered barriers and favor the solubility of certain radionuclides, notably U, Pu, Tc and Np (e.g. Wanner, 2007). On the other hand, oxidizing water could cause mineralogical redox fronts to form within the wallrocks of fractures (e.g. Hofman, 1999; Miller et al., 2000; Fig. 1). These fronts are typically characterized by Fe-oxyhydroxides that could sorb many radionuclides, thereby retarding radionuclide migration (e.g. Grisak and Pickens, 1980; Neretnieks, 1980; Alexander et al., 1990). Furthermore, consumption of O_2 by the redox reactions that form the mineralogical redox fronts would cause conditions to become reducing once more. Thus, the occurrence of oxidized fracture wallrocks, even at repository depth, does not necessarily imply that a crystalline rock is an unsuitable repository host rock, provided it can be shown that: (1) oxidation of reduced Fe-bearing minerals was ancient; (2) present groundwater conditions are reducing; and (3) there is no potential for oxidizing waters to penetrate along the fractures over the future timescale for which repository performance is assessed (typically ca. 1 Ma).

In principle the present understanding of redox processes in granitic rocks can support evaluations of whether these criteria are met at any potential repository site. However, this understanding is based on studies of redox fronts in fractured rocks at

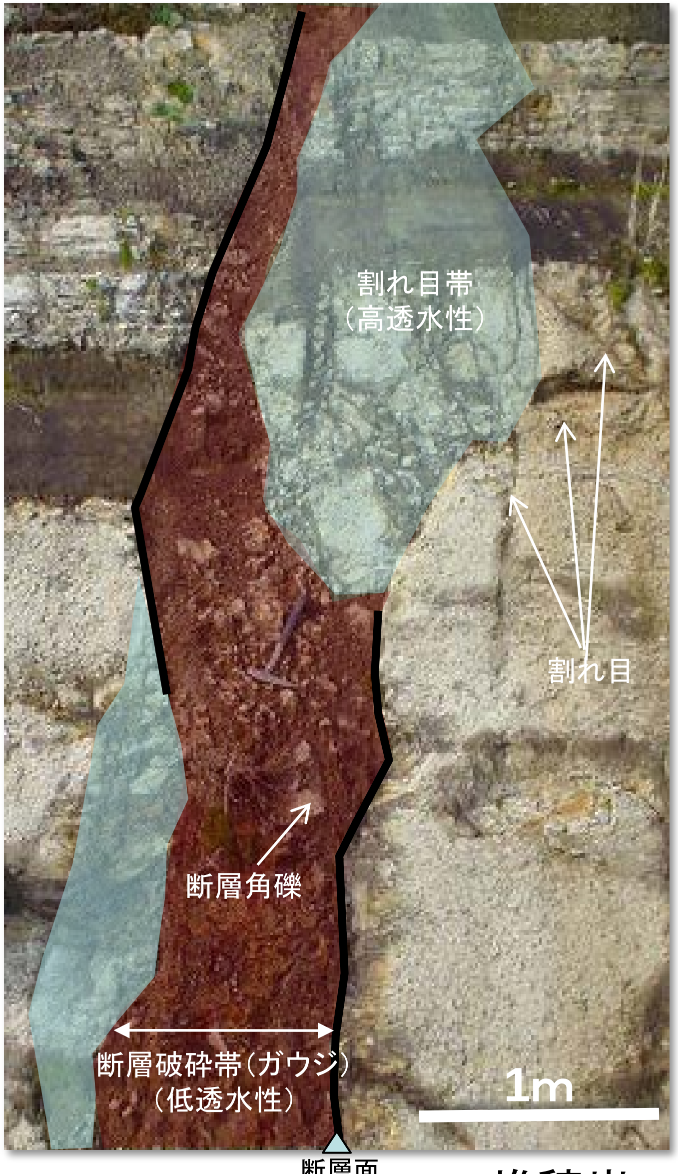
* Corresponding author. Tel.: +81 52 789 5763.
E-mail address: dora@num.nagoya-u.ac.jp (H. Yoshida).

0883-2927/$ - see front matter © 2013 Elsevier Ltd. All rights reserved.
http://dx.doi.org/10.1016/j.apgeochem.2013.03.013

地下環境の緩衝作用と処分深度（暫定保管でも考慮すべき）

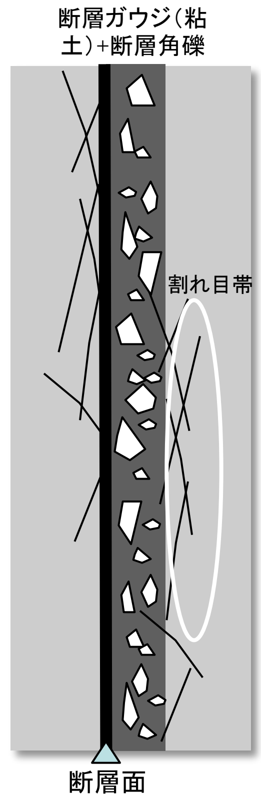
3）断層…構造と水みちの特徴

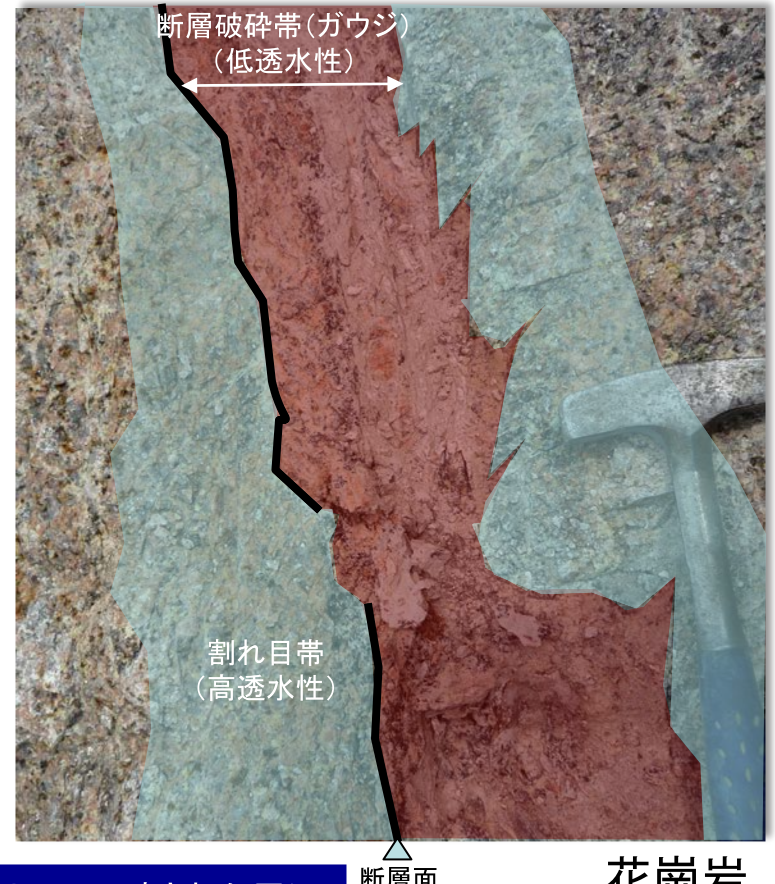
文献[17][18]



堆積岩

断層構造の概念図



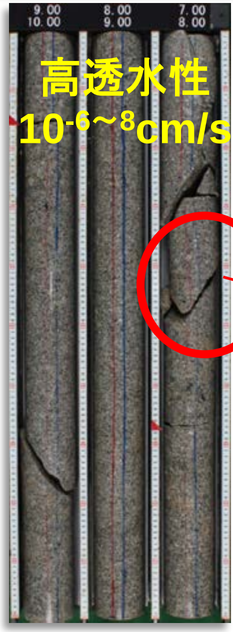


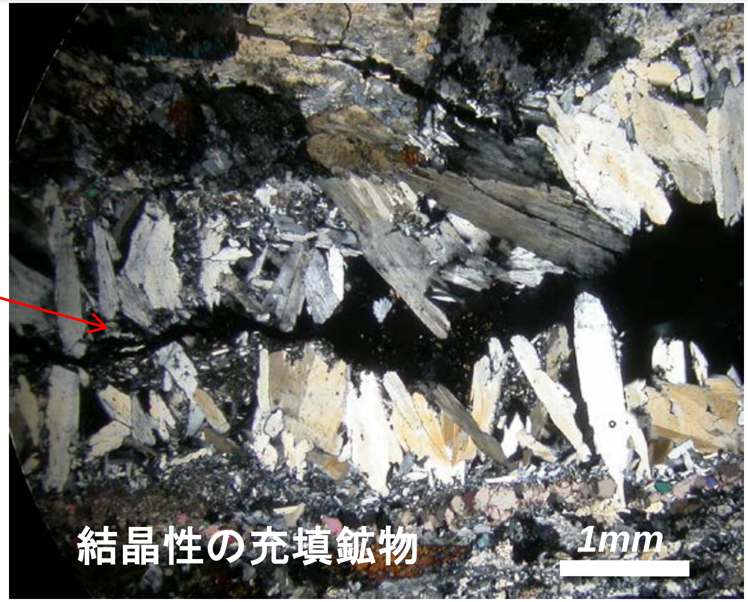
花崗岩

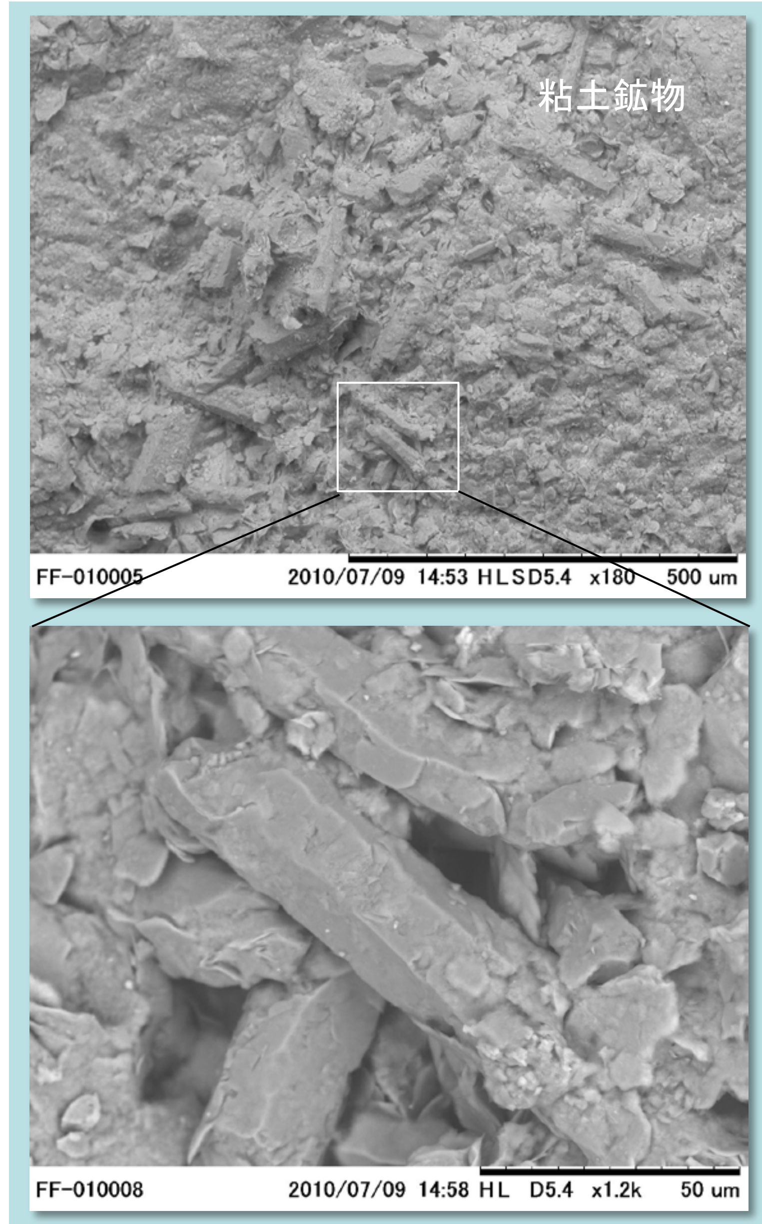
断層破砕帯は、断層運動によって圧砕された周辺岩盤の角礫と‘粘土状’のガウジで充填される

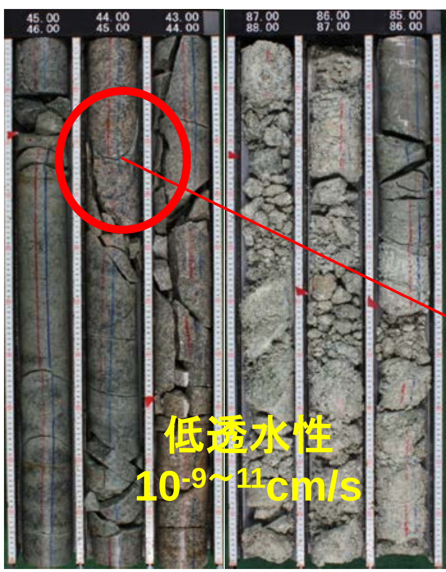
断層破砕帯周辺には割れ目帯が形成される

地下300ｍの断層の水理的性質と水みちの構造（地下研究所）文献[19]

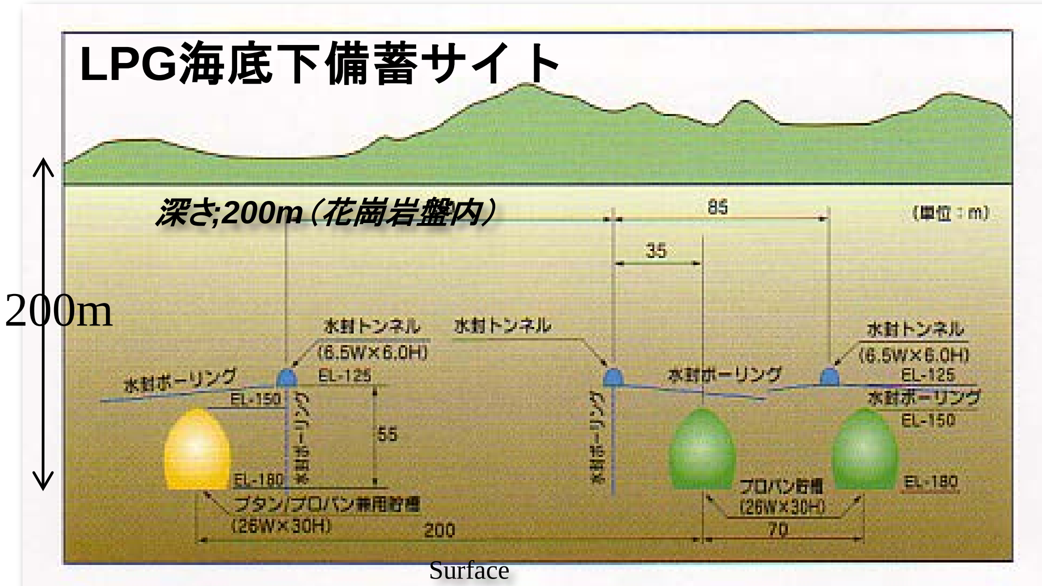


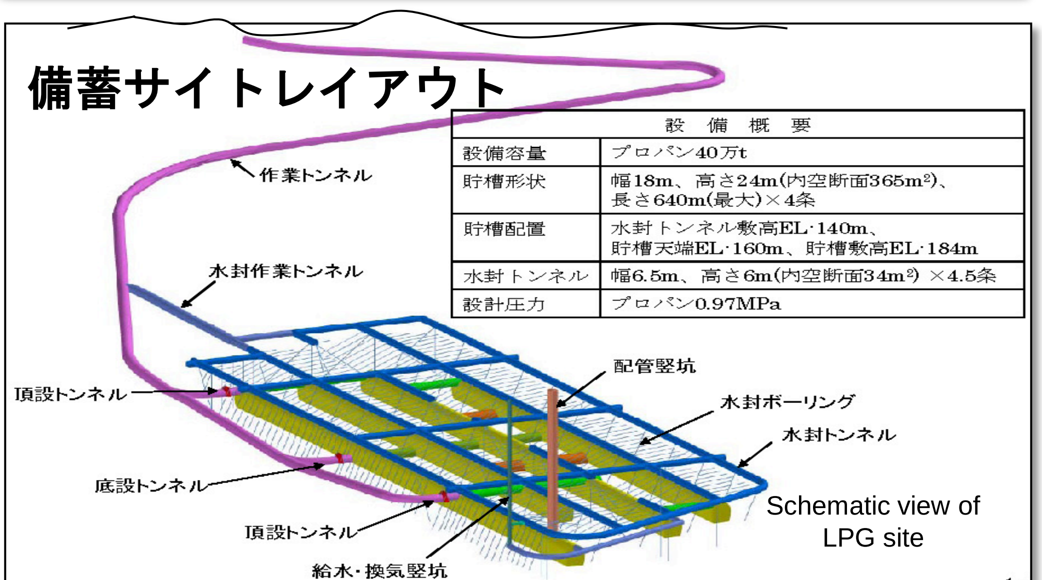






海底下200ｍの断層構造と水理的性質（LPGサイト）





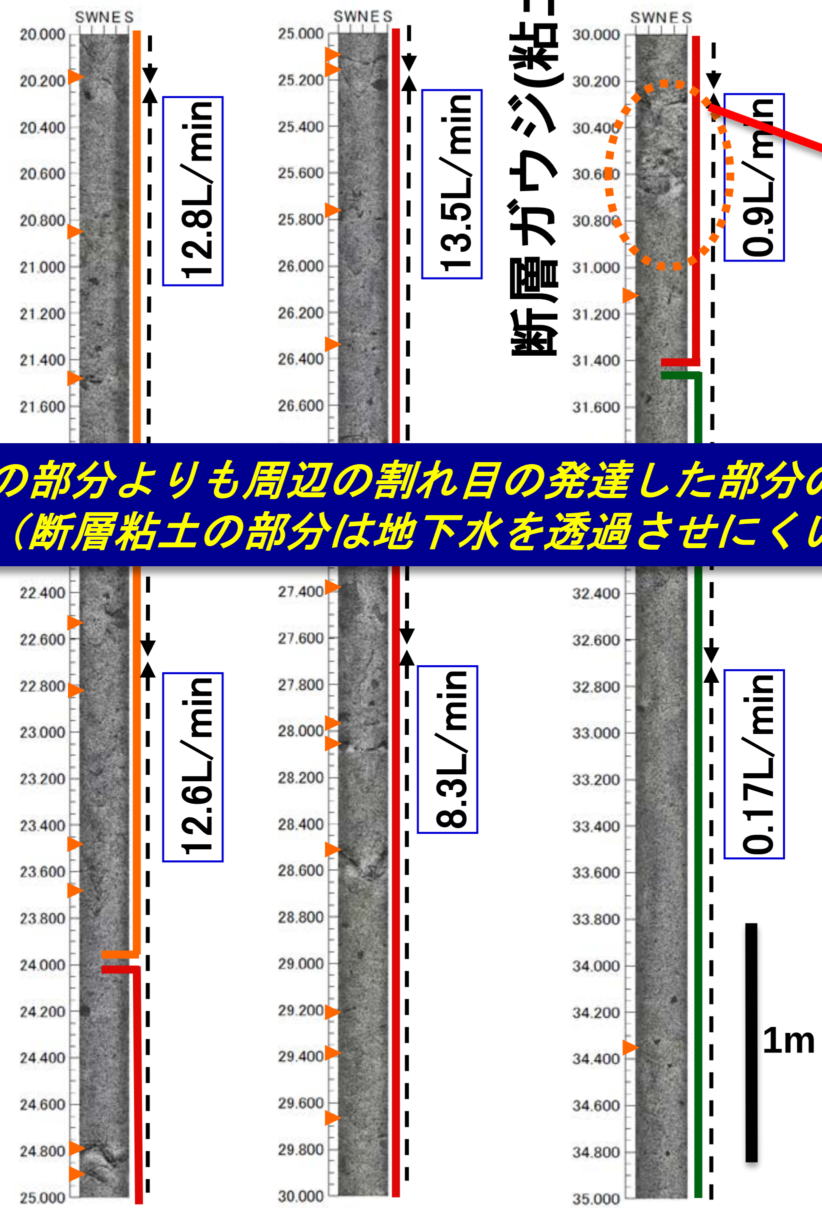
設　備　概　要	
設備容量	プロパン40万t
貯槽形状	幅18m、高さ24m(内空断面365m²)、長さ640m(最大)×4条
貯槽配置	水封トンネル敷高EL-140m、貯槽天端EL-160m、貯槽敷高EL-184m
水封トンネル	幅6.5m、高さ6m(内空断面34m²) ×4.5条
設計圧力	プロパン0.97MPa

断層の水みちの性状と透水性

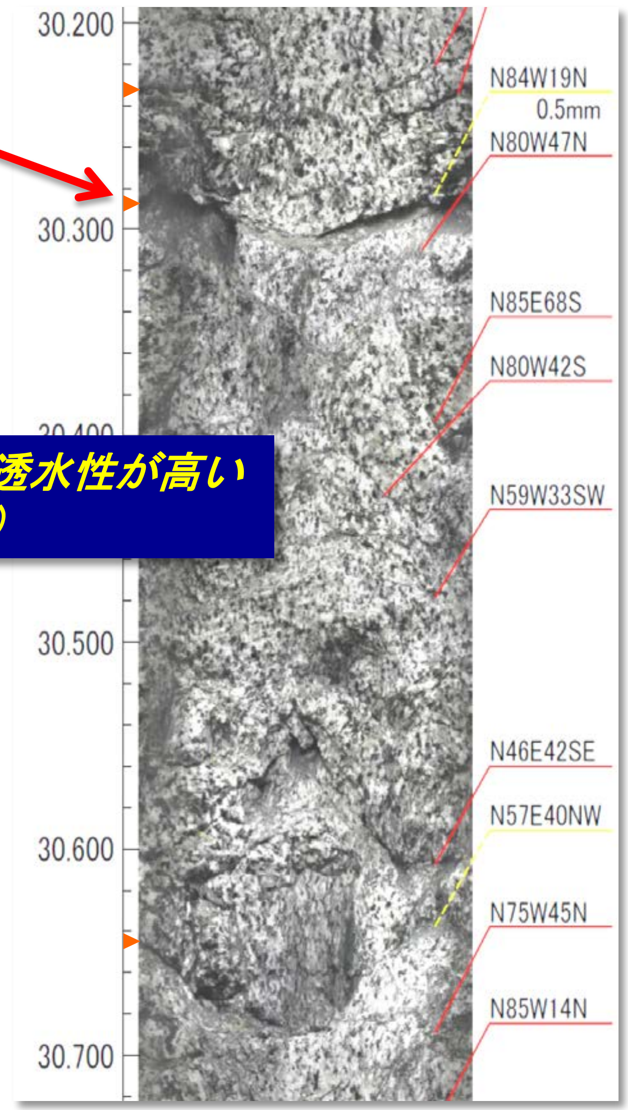
文献[20]

ボーリング孔を用いた水理試験

▸透水性割れ目

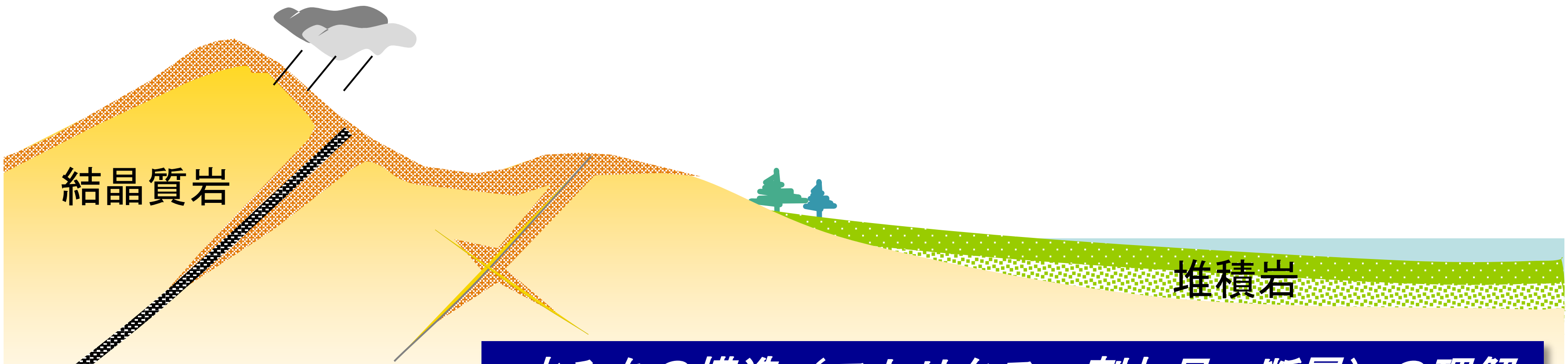


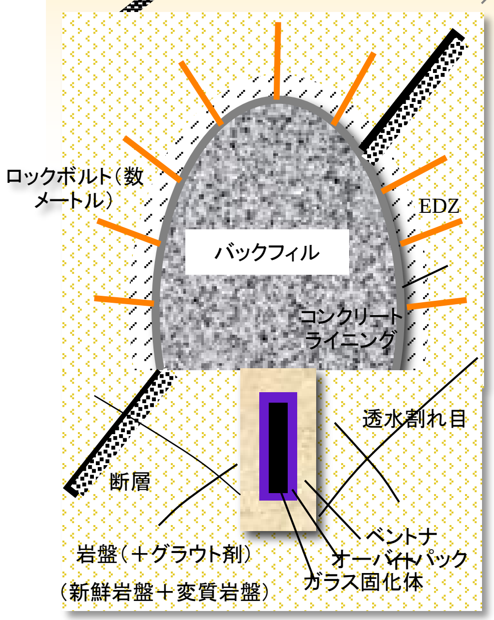
断層ガウジの部分よりも周辺の割れ目の発達した部分の透水性が高い
（断層粘土の部分は地下水を透過させにくい）



断層ガウジ中の充填物を伴う割れ目

まとめと課題（地下環境とバリア機能）





水みちの構造（マトリクス・割れ目・断層）の理解

水みち毎のバリア機能の確認（断層に関する情報の整備）

緩衝作用と処分深度（暫定保管の考え方との関係）

工学技術との連携によるバリア機能を高める技術の整備

↓

日本の地下環境に合致した技術の整備

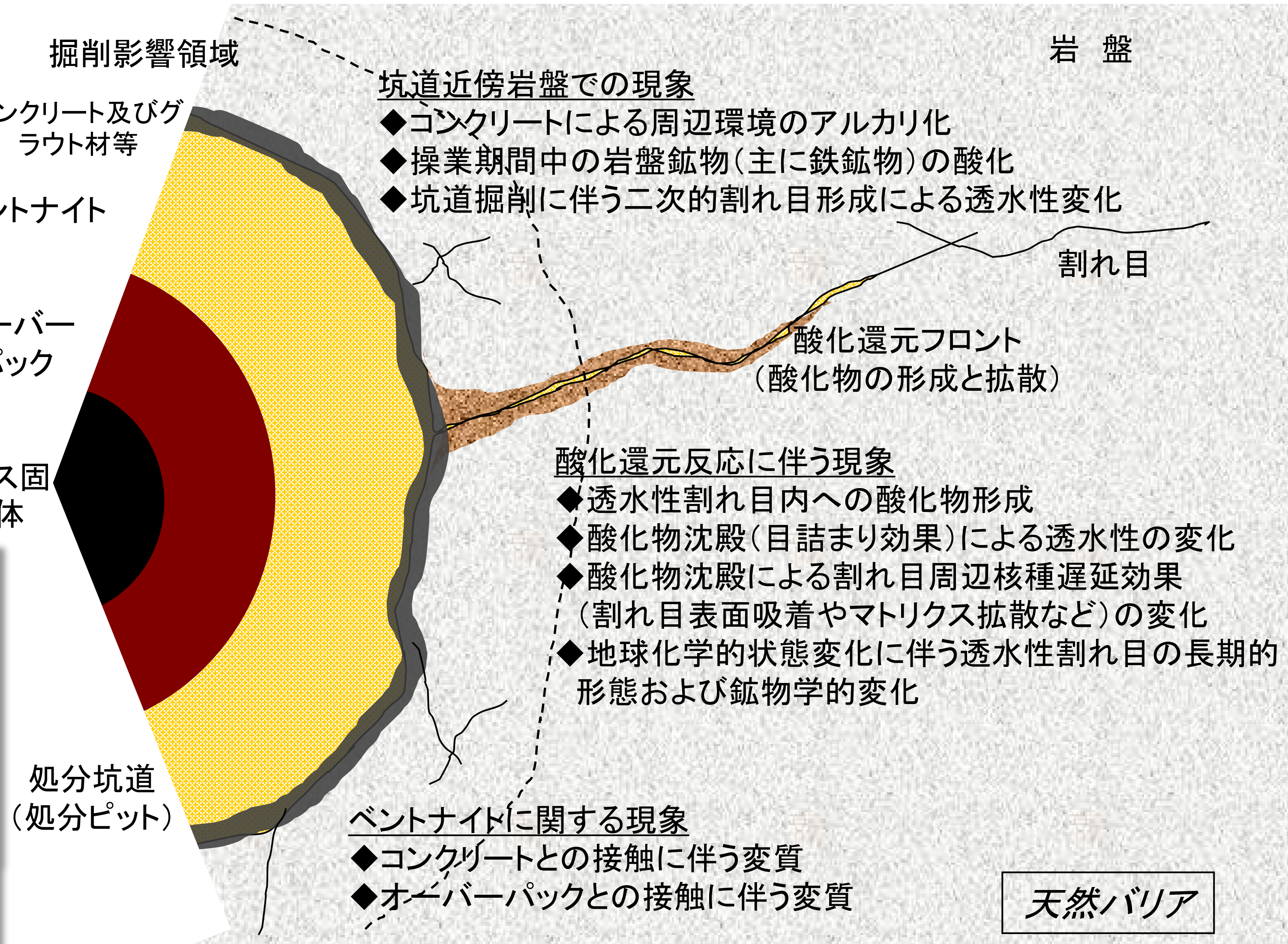
参考文献（今回の情報提供で用いた査読論文のみ）

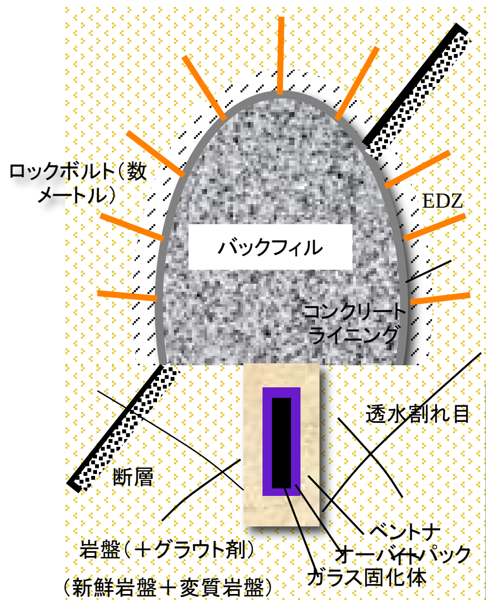
[1] 吉田英一 (2012) 地層処分-脱原発後に残される科学課題- 近未来社, pp.168.
[2] Yoshida,H. (1994) Relation between U-series nuclide migration and micro-structural properties of sedimentary rocks. Applied Geochemistry, 9, 479-490.
[3] Yoshida,H., Kodama,K., Ota,K. (1994) Role of microscopic flow-paths on nuclide migration in sedimentary rocks -A case study from the Tono uranium deposit, central Japan-. Radiochimica Acta, 66/67,505-511.
[4] Yoshida,H., Yui,M., Shibutani,T. (1994) Flow-path structure in relation to nuclide migration in sedimentary rocks -An approach with field investigations and experiments for uranium migration at Tono uranium deposit, central Japan-. Jour. Nucl. Sci. Tech., 31, 803-812.
[5] 赤川史典・吉田英一*・與語節生・山本鋼志(2004)花崗岩割れ目周辺の酸化還元反応と二次的物質移動現象—地質環境中汚染物質の移動と長期固定に関するアナログ研究—. 地質学雑誌，110, 671-685.
[6] Akagawa,F., Yoshida,H*., Yogo,Y., Yamamoto,K. (2006) Redox front formation in fractured crystalline rock: an analogue of matrix diffusion in oxidizing front along water conducting fracture. Geochemistry, Exploration, Environment and Analysis, 6, 49-56. (corresponding author)
[7] Yoshida,H., Metcalfe,R., Seida,Y., Takahashi,H., Kikuchi,T. (2009) Retardation capacity of altered granitic rock distributed along fractured and faulted zones in the orogenic belt of Japan. Engineering Geology, 106, 116-122.
[8] Nishimoto,S., Yoshida,H. (2010) Hydrothermal alteration of deep fractured granite: Effect of dissolution and precipitation. Lithos, 115, pp.153-162.
[9] Seida,Y., Kikuchi,T., Takahashi,H., Sato,H., Ueda,A., Yoshida,H. (2009) Sorption and retardation processes of Cs in granite under groundwater condition. Proceedings of Material Research Science, 1124-Q07-02.
[10] Yoshida,H., Aoki,K., Semba,T., Ota,K., Amano,K., Hama,K., Kawamura,M., Tsubota,K. (2000) Overview of the stability and barrier functions of the granitic geosphere at the Kamaishi mine; Relevance to radioactive waste disposal in Japan. Engineering Geology, 56, 151-162.
[11] Yoshida,H., Takeuchi,M., Metcalfe,R. (2005) Long-term stability of flow-path structure in crystalline rocks distributed in an orogenic belt, Japan. Engineering Geology, 78, 275-284.
[12] 吉田英一（2012）岩盤中の透水性亀裂とその長期的挙動−現状と今後の課題−, 地学雑誌, 121, 68-95.
[13] Yoshida,H., Metcalfe,R., Ishibashi,M., Minami,M. (2013) : Long-term stability of fracture systems and their behaviour as flow-paths in uplifting granitic rocks from the Japanese orogenic field, Geofluids, vol.13, 45-55.
[14] 吉田英一・佐藤治夫・仙波 毅 (2002) マトリクス拡散による物質移動の遅延効果の評価手法とその検討. 応用地質, 1, 22-33.
[15] 石橋 正祐紀・安藤 友美・笹尾 英嗣・湯口 貴史・西本 昌司・吉田 英一 (2013) 透水性割れ目とその地質学的特徴-土岐花崗岩を例として-, 応用地質（査読中）
[16] Yamamoto, K., Yoshida,H*., Akagawa,F., Nishimoto,S., Metcalfe,R. (2013) : Redox front penetration in the fractured Toki Granite, central Japan: An analogue for redox reactions and redox buffering in fractured crystalline host rocks for repositories of long-lived radioactive waste. Applied Geochemistry, 35, 75-87. (corresponding author)
[17] 吉田英一・大嶋章浩・吉村久美子・長友晃夫・西本昌司（2009）断層周辺に発達する割れ目形態とその特徴 -阿寺断層における‘ダメージゾーン’解析の試み-. 応用地質, 50, 16-28.
[18] 長友晃夫・吉田英一（2009）断層と割れ目系及びその充填鉱物を用いた阿寺断層の地質的履歴解析,地質学雑誌,115, 512-527.
[19] Yoshida,H., Nagatomo,A., Oshima,A., Metcalfe,R. (2013) Criteria for defining exclusion distances between high level radioactive wastes and transmissive faults in deep geological repositories: evidence from the Atera active fault in central Japan, Eng. Geol. (under review)
[20] Yoshida,H., Maejima,T., Nakajima,S., Nakamura,N., Yoshida,S. (2013) : Features of fractures forming flow paths in granitic rock at an LPG storage site in the orogenic field of Japan, Engineering Geology, 152, 77-86.

地下坑道周辺での状態変化の理解

文献[1][12]

将来の地下環境で遭遇する場合の対処技術の準備が必要





天然素材と人工素材との反応がバリア機能にどう影響するか
（天然バリアを補強する役割、仕組みの確認）