

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 12 日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2023

課題番号：21K14569

研究課題名（和文）マイクロX線CTとLA-ICP-MSによる結晶質岩中の核種拡散係数の上限値評価

研究課題名（英文）Evaluation of Diffusion Coefficients of Radionuclides in Crystalline Rocks using Micro X-ray CT and LA-ICP-MS

研究代表者

深津 勇太（Fukatsu, Yuta）

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・核燃料・バックエンド研究開発部門 核燃料サイクル工学研究所  
環境技術開発センター・研究職

研究者番号：80822048

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,500,000円

研究成果の概要（和文）：結晶質岩中における放射性核種の移動度を表す拡散係数の上限値を評価するため、マイクロX線CT測定およびレーザーアブレーション誘導結合プラズマ質量分析により、黒雲母の分布や構造と花崗閃緑岩等の結晶質岩中を移行するセシウムの拡散係数の関係性を調べた。その結果、一部パーミキュライト化した黒雲母を含む結晶質岩において、地下水中のカリウム濃度により、その黒雲母の層間構造が変化し、セシウムの拡散係数が最大一桁程度、変化することが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

日本の地下に広く分布する結晶質岩における放射性核種の移行挙動を理解することは、地層処分の安全評価上、極めて重要な課題である。核種の移動度は「拡散係数」により評価されるが、多様な組成や不均質な鉱物分布を持つ結晶質岩中の拡散係数を予測することは困難であった。本研究では、結晶質岩中の黒雲母に着目し、その構造や分布がセシウムの拡散係数に及ぼす影響を評価した。本成果は、結晶質岩中の拡散係数の上限値を評価するために重要な知見であり、核種の長期移行挙動の正確な予測評価に貢献すると期待される。

研究成果の概要（英文）：Biotite structure and the diffusion coefficients which indicate the diffusion rate of radionuclides in crystalline rocks such as granodiorite, were investigated by using micro X-ray CT and laser-ablation ICP-MS, in order to predicting the upper limit of the diffusion coefficients. It was found that the interlayer distance of partially vermiculitized biotite in rock samples depended on the potassium concentration in groundwater, causing diffusion coefficients of cesium changed up to approximately one order of magnitude.

研究分野：放射性廃棄物処分の安全評価

キーワード：地層処分 結晶質岩 放射性核種 拡散 黒雲母 LA-ICP-MS マイクロX線CT

## 様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

高レベル放射性廃棄物の地層処分で想定される岩盤の一つである結晶質岩において、セシウムなどの放射性核種は、収着サイトの豊富な雲母中に濃縮される。しかしながら、地層環境の長期変遷により、核種が脱離し、雲母中から結晶質岩全体に拡散することによる、高濃度の核種漏えいが懸念される。地層処分の安全性評価のため、雲母が結晶質岩全体の核種拡散にどの程度影響を与えるかを評価することは重要である。

これまでに、結晶質岩中の核種の移動度を表す「拡散係数」を評価し、結晶質岩の黒雲母含有率とセシウム等の陽イオン核種の拡散係数に相関があることを示してきた。この結果は、黒雲母の間隙率がその他の鉱物より高いこと、また、黒雲母表面の負電荷により生じる静電作用のため、間隙水中に陽イオンとして存在する核種の濃度が増加すること、が反映していると考えられた。これらのことから、結晶質岩黒雲母中の陽イオン核種の拡散係数は比較的高く、黒雲母の分布や構造などの条件により、結晶質岩全体の拡散係数を大幅に上昇させることが予想される。そこで本研究では、結晶質岩中における黒雲母の構造に着目し、核種の移動度が最大となる拡散係数上限値の評価に資する知見の取得を行った。

### 2. 研究の目的

本研究では、黒雲母と結晶質岩中の核種の拡散係数の関係性を明らかにするため、マイクロ X 線 CT およびレーザーアブレーション誘導結合プラズマ質量分析 (LA-ICP-MS) を用いて、結晶質岩中を移行するトレーサー (セシウム) の拡散挙動と黒雲母の空間分布や構造を評価した。

### 3. 研究の方法

#### (1) 岩石試料およびキャラクタリゼーション

岩石試料には、スイスのグリムゼル原位置試験場から採取した花崗閃緑岩 (以下、グリムゼル花崗閃緑岩という) 標準岩石として購入した片麻状花崗閃緑岩 (愛知県東幡豆産。以下、片麻状花崗閃緑岩という) 花崗閃緑岩 (山梨県塩山産。以下、花崗閃緑岩という) を用いた。いずれの岩石についても、主な構成鉱物は斜長石、カリ長石、黒雲母、石英であり、間隙率は 1-2% 程度である。

これらの岩石試料を対象に、電子プローブマイクロアナライザー (EPMA) および X 線 CT 測定を実施し、試料に含まれる鉱物分布を評価した。また、模擬地下水との反応による鉱物の構造変化を評価するため、模擬地下水に接触させた岩石試料を対象に、X 線回折 (XRD) 分析を実施した。

#### (2) 拡散試験および LA-ICP-MS 分析

拡散試験では、ディスク状 (直径 20 mm、厚さ 5 mm) に加工した岩石試料を用いた。拡散試験装置の概略を図 1 に示す。岩石試料を模擬地下水溶液に含水させた後、上流側リザーバにトレーサーを含む模擬地下水溶液、下流側リザーバにトレーサーを含まない模擬地下水溶液を添加し、拡散試験を開始した。トレーサーには、安定同位体のセシウム-133 を用いた。拡散試験期間中は、上流側および下流側リザーバの溶液を定期的に採取し、誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS) により採取した溶液中のトレーサー濃度を定量した。

拡散試験終了後、岩石試料断面を対象に LA-ICP-MS 分析を行った。LA-ICP-MS 分析では、試料断面をレーザー照射することにより、鉱物元素の分布およびセシウム分布を取得した。

#### (3) 拡散試験結果の解析

拡散試験結果の解析には、以下に示す Fick の拡散方程式を用いた。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{D_e}{\varepsilon + \rho \cdot K_d} \frac{\partial^2 C}{\partial x^2}$$

ここで、 $C$ : トレーサー濃度、 $t$ : 経過時間、 $\varepsilon$ : 空隙率、 $D_e$ : 拡散係数、 $\rho$ : 岩石密度、 $K_d$ : 分配係数、 $x$ : 拡散源からの距離である。上式を有限差分法により数値解析し、上流側および下流側のトレーサー濃度変化をフィッティングすることにより、セシウムの拡散係数を評価した。

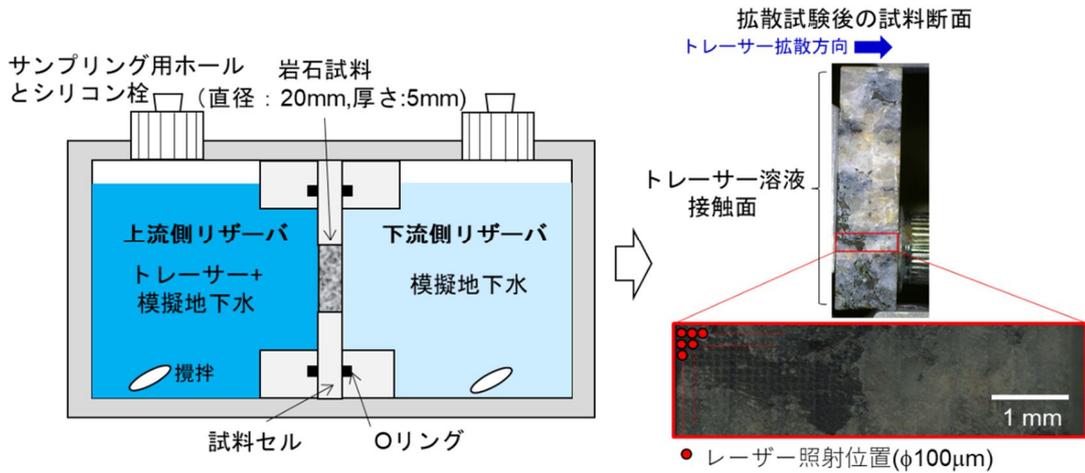


図1 拡散試験装置の概略と LA-ICP-MS 分析の例。

#### 4. 研究成果

##### (1) 岩石試料キャラクタリゼーションの結果

X線CT測定の結果、黒雲母（一部、緑泥石または角閃石を含む）の含有率は、片麻状花崗閃緑岩（15-30%程度）> グリムゼル花崗閃緑岩（8-13%程度）> 花崗閃緑岩（5-7%程度）であった。グリムゼル花崗閃緑岩については、黒雲母が特定の方向に配向している葉理構造が確認された。CT画像のフーリエ変換処理を行い、拡散方向に対する葉理構造の方向を評価した。また、XRD測定の結果から、片麻状花崗閃緑岩およびグリムゼル花崗閃緑岩については、模擬地下水中のカリウム濃度が低い場合、黒雲母の一部がパーミキュライト化した構造（Vermiculitized biotite）で存在することがわかった。また、模擬地下水中のカリウム濃度の増加に伴い、Vermiculitized biotiteの層間が閉塞し、黒雲母に近い層間構造に変化することがわかった。一方、花崗閃緑岩のX線回折パターンでは、Vermiculitized biotiteのピークは観測されなかった。

##### (2) LA-ICP-MS 分析の結果

LA-ICP-MS測定の結果の一例として、片麻状花崗閃緑岩のセシウム分布を図2に示す。図2より、トレーサー溶液との接触面近傍における黒雲母上では、模擬地下水中のカリウム濃度により、セシウム分布が顕著に影響されることがわかった。すなわち、模擬地下水中のカリウム濃度が低い場合はセシウム濃度が高く、カリウム濃度の増加に伴い、その高濃度分布が見られなくなった。この結果は、カリウム濃度の増加により Vermiculitized biotite の層間が閉塞し、セシウムの収着サイトが減少したことを示唆する。また、その他の黒雲母領域について、黒雲母を構成する主要元素のカリウムや鉄の分布に偏りがあり、均質な黒雲母の組成ではないことから、一部の構造が変化していることが示唆された。しかし、その構造変化とセシウム分布の相関については、分析面が限られていたため、十分な評価には至っていない。

##### (3) 拡散係数の評価

拡散試験結果のフィッティングにより得られた、片麻状花崗閃緑岩およびグリムゼル花崗閃緑岩のセシウムの拡散係数を図3に示す。これらの岩石試料のセシウム拡散係数は、模擬地下水中のカリウム濃度により、最大一桁程度変化することがわかった。この結果から、地下水中のカリウム濃度に依存して変化する黒雲母中の Vermiculitized biotite の層間構造が、結晶質岩中のセシウム拡散係数を決定する重要な要素であることが示唆された。また、グリムゼル花崗閃緑岩については、葉理構造が拡散方向に対して水平の場合、垂直方向よりセシウム拡散係数は2倍程度高くなった。これは、黒雲母の層構造の方向も拡散係数に影響する因子であることを示唆している。

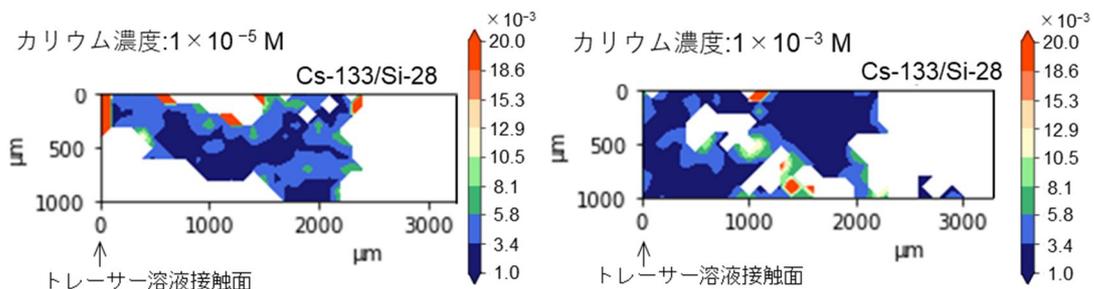


図2 片麻状花崗岩の黒雲母上のセシウム（セシウム-133/Si-28）分布。

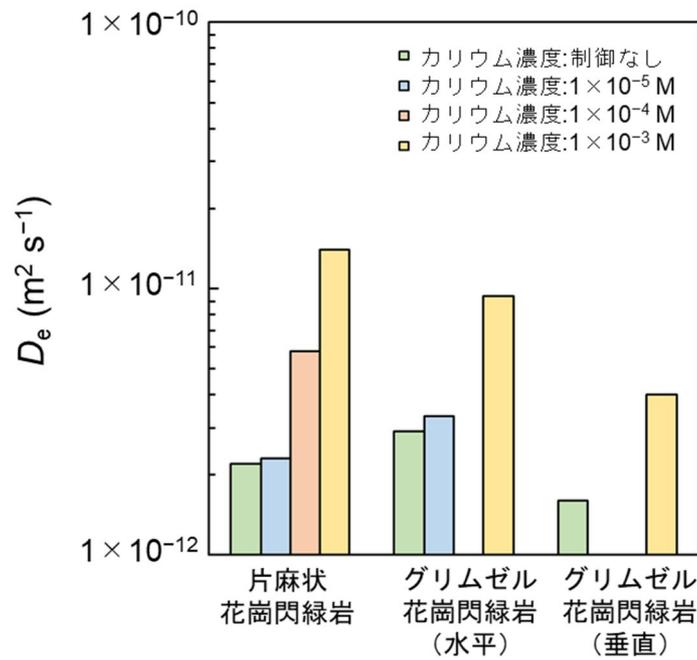


図3 片麻状花崗閃緑岩およびグリムゼル花崗閃緑岩のセシウム拡散係数：  
 グリムゼル花崗閃緑岩（水平）は葉理構造が拡散方向に対して水平の場合の拡散係数、グリム  
 ゼル花崗閃緑岩（垂直）は葉理構造が拡散方向に対して垂直の場合の拡散係数を示す。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Yuta Fukatsu, Qinhong Hu, Yukio Tachi
2. 発表標題 EFFECTS OF BIOTITE ON DIFFUSION AND SORPTION OF CATIONS IN CRYSTALLINE ROCKS BY THROUGH-DIFFUSION AND LASER-ABLATION ICP-MS EXPERIMENTS
3. 学会等名 18th International Conference on the Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere (Migration2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
米国	テキサス大学アーリントン校		