

ラジウム (Ra)挙動調査及び ラジウム (Ra)、ウラン (U)、溶解性鉄 (S-Fe)、ヒ素 (As)の移行解析

(2018.3.22 第19回鉍山跡措置技術委員会 資料)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
バックエンド研究開発部門
人形峠環境技術センター



目次

1. 露天採掘場跡地の地下水水質の現状
2. ラジウム (Ra) の挙動調査
3. ラジウム (Ra), ウラン (U), 溶解性鉄 (S-Fe),
ヒ素 (As) の挙動と移行解析
4. まとめ

1. 露天採掘場跡地の地下水水質の現状

露天採掘場跡地の概要

○経緯

- S32～35 坑道掘削によるウラン採鉱
- S52～62 露天採掘によるウラン採鉱
→ 採掘深度は場所により異なる
- S54～63 露天採掘した鉱石からのヒープリーチングによるウラン回収
→ 鉱石55,650tから39.5tU回収
中和処理ののち捨石埋設、覆土、植栽

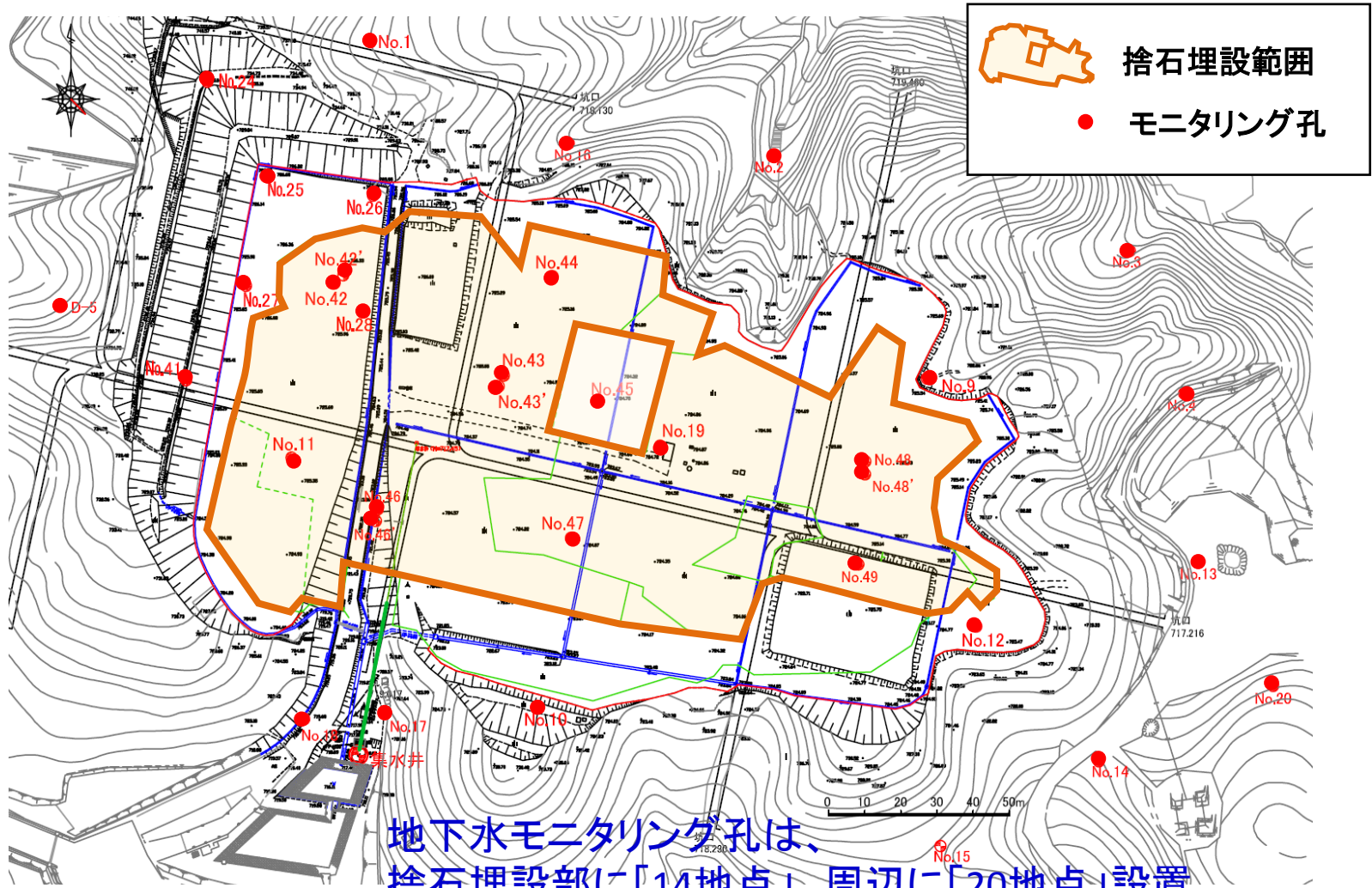
○現状

- 規模 約29,600m²(E-W 約200m, N-S 約150m)
- 旧坑道 排水用暗渠を設置し埋め戻している
- たい積物 下位から捨石、表土(露天採掘前の地山である主に堆積岩)、客土(センター外から搬入したマサ土)
- 坑水 暗渠により跡地南部の集水井へ流下、のち鉱さいたい積場へ流送
水量:約2万m³/年
水質:鉄濃度(19.7μg/cm³)が法令値(10μg/cm³)及びセンターの定める排出基準値(1μg/cm³)を超過
⇒ 将来における坑水処理の負荷低減化のため、水量低減化・水質改善が必要

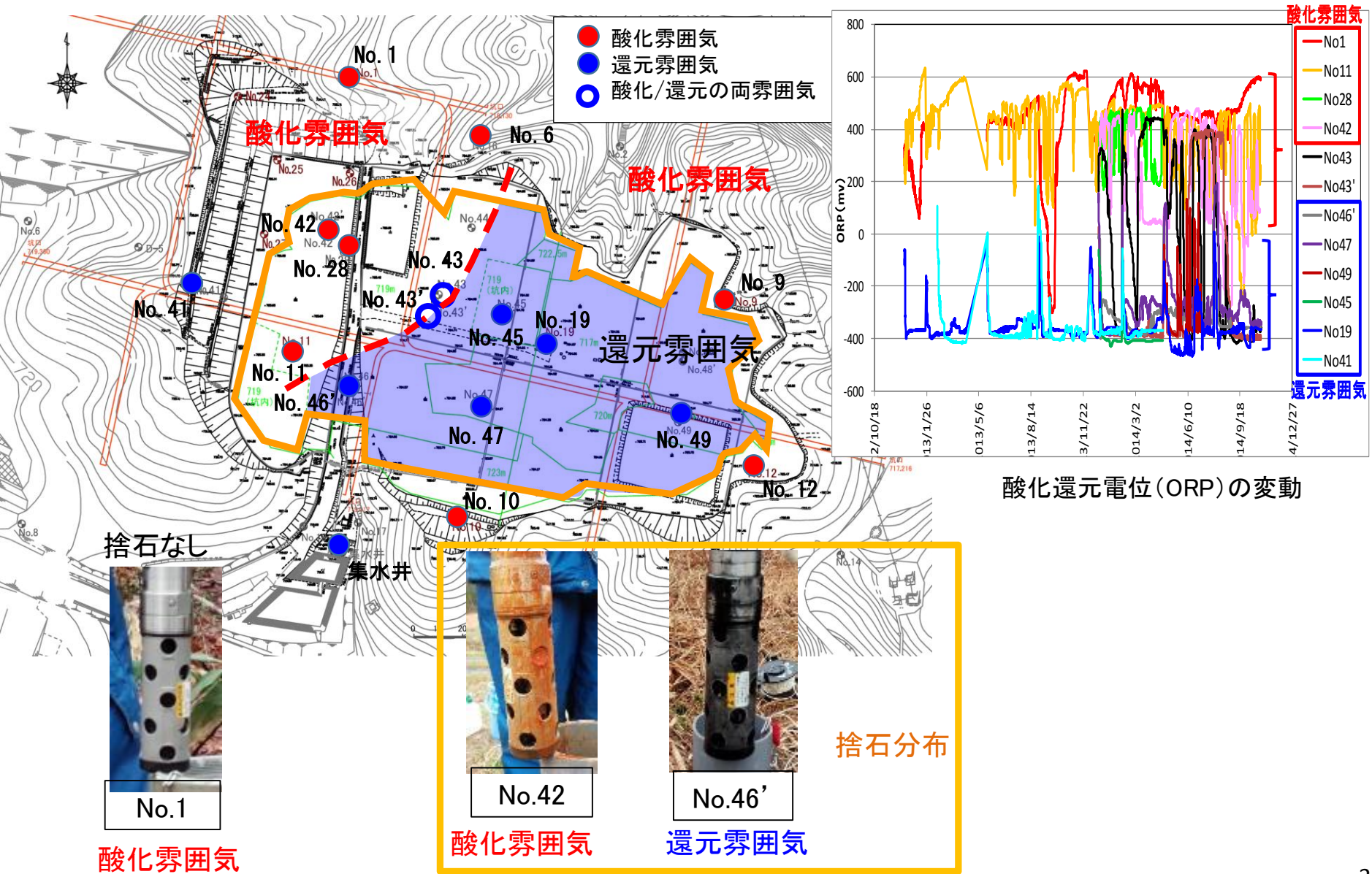


露天採掘場跡地

1. 露天採掘場跡地の地下水水質の現状 モニタリング孔の位置

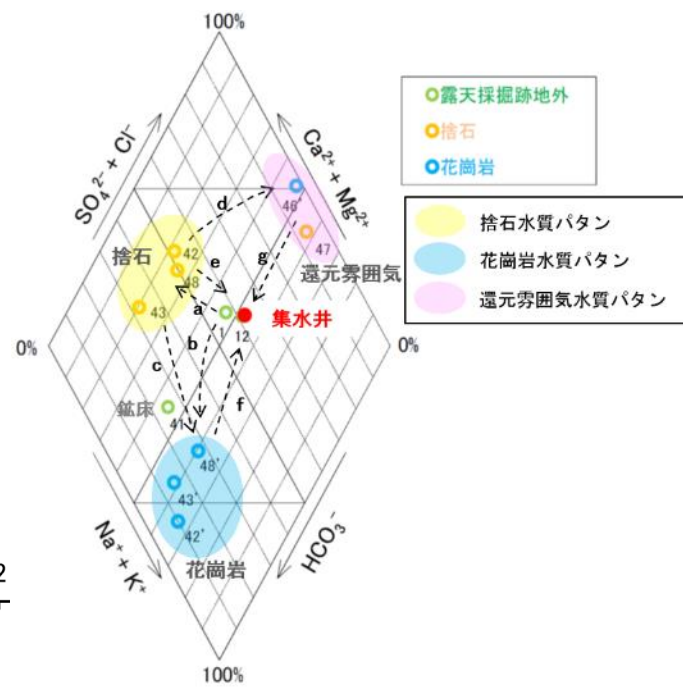
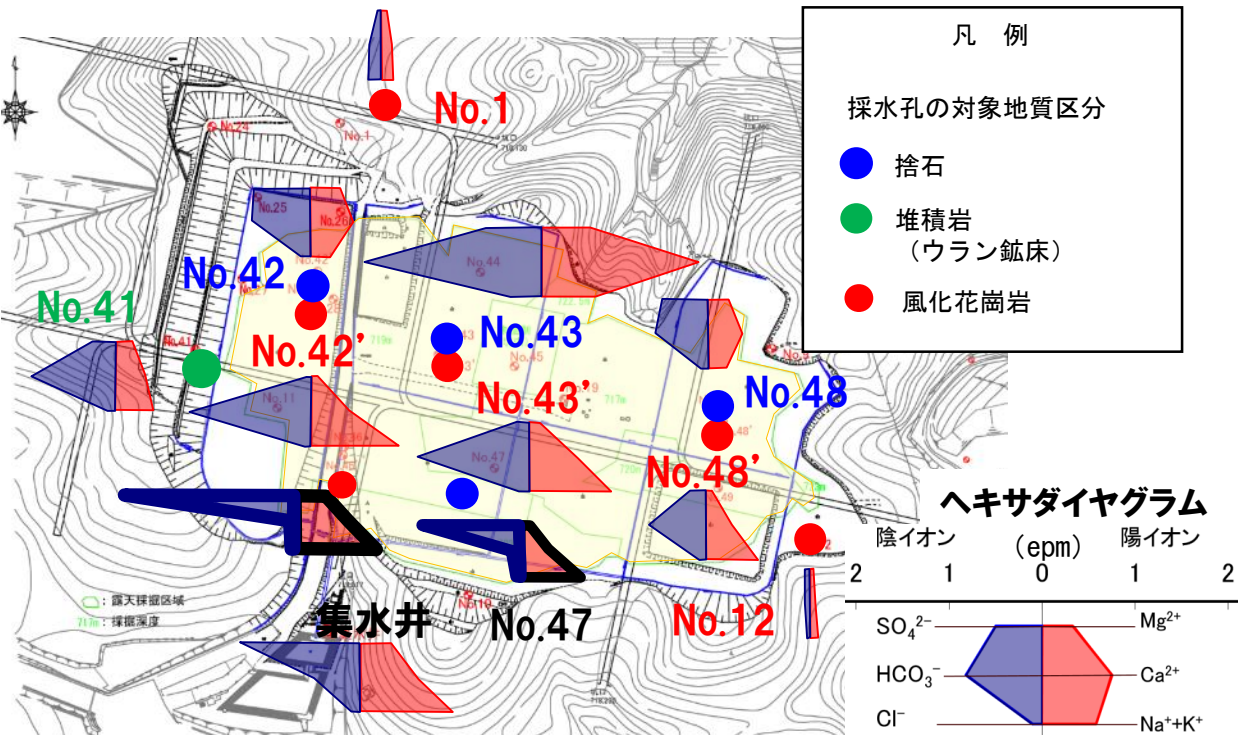


1. 露天採掘場跡地内の地下水水質の特徴 酸化・還元雰囲気



1. 露天採掘場跡地内の地下水水質の特徴

■主要成分 (ヘキサダイアグラム、キーダイアグラム)

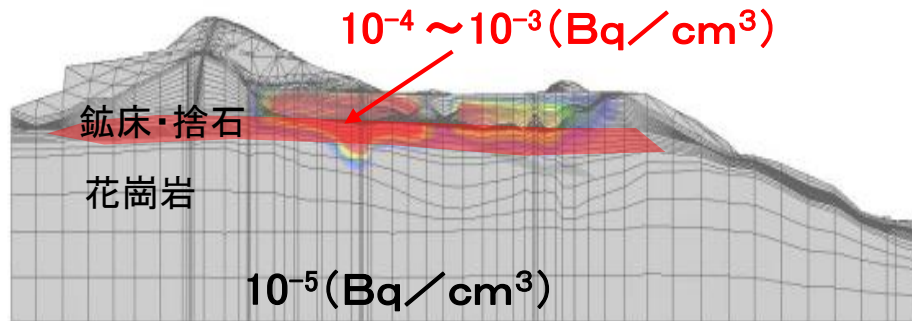


地点 (H28. 10. 3採水)			場外上流		露天採掘場内						場外下流	集水井*	
			花崗岩	鉱床	捨石			花崗岩			花崗岩		
			No. 1	No. 41	No. 42	No. 43	No. 48	No. 42'	No. 43'	No. 48'	No. 12		
主成分	陽イオン	Mg ²⁺	epm	0.07	0.25	0.47	0.70	0.32	0.10	0.16	0.10	0.04	0.43
		Ca ²⁺	epm	0.16	0.45	0.67	2.31	0.52	0.59	0.70	0.40	0.07	0.80
		Na ⁺	epm	0.16	0.52	0.25	0.44	0.23	1.27	1.14	0.70	0.09	1.22
		K ⁺	epm	0.03	0.05	0.07	0.33	0.06	0.06	0.08	0.07	0.02	0.05
	陰イオン	SO ₄ ²⁻	epm	0.04	0.33	0.83	0.82	0.69	0.08	0.19	0.23	0.08	1.67
		HCO ₃ ⁻	epm	0.18	1.28	0.88	2.61	0.78	1.80	1.68	0.85	0.08	0.64
		CL ⁻	epm	0.20	0.10	0.11	0.45	0.09	0.12	0.11	0.09	0.04	0.12
重金属	S-Fe	mg/L	0.09	14.71	9.99	2.33	0.92	0.31	0.08	0.09	0.11	16.0	
放射性	Ra	Bq/cm	1.9E-04	1.3E-04	7.6E-04	2.3E-03	6.9E-05	3.8E-05	6.8E-05	2.0E-05	1.4E-04	1.6E-03	

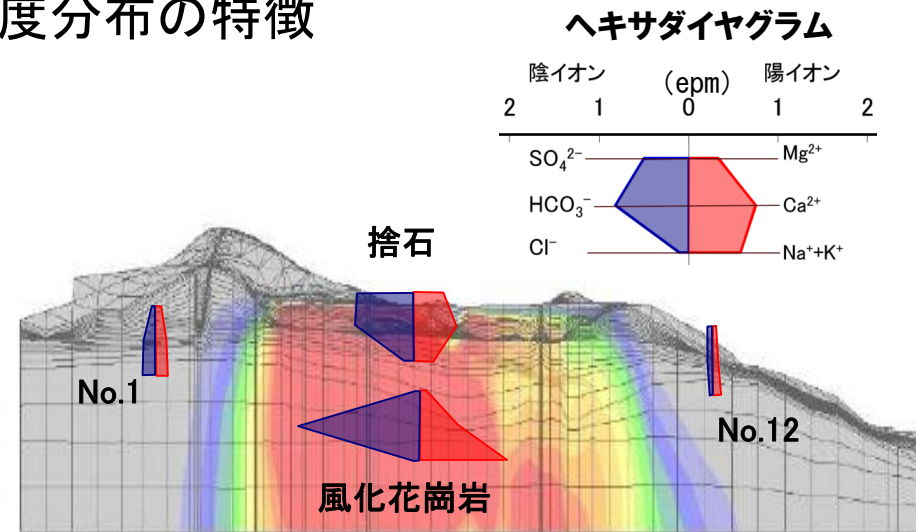
集水井*はH25. 12. 20 採水結果

1. 露天採掘場跡地内の地下水水質の特徴

■ラジウム (Ra) 濃度分布の特徴



Ra濃度分布のイメージ図



主成分濃度分布のイメージ図

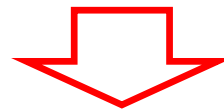
(Raが遅延しない場合の濃度分布図)

●Ra濃度分布

- ・ 露天採掘場跡地場外と捨石部の地下水で $10^{-4} \sim 10^{-3}$ (Bq/cm³) オーダーの濃度を示した。
 - ・ 捨石分布範囲の深部花崗岩の地下水は、 10^{-5} (Bq/cm³) オーダーの低い値を示した。

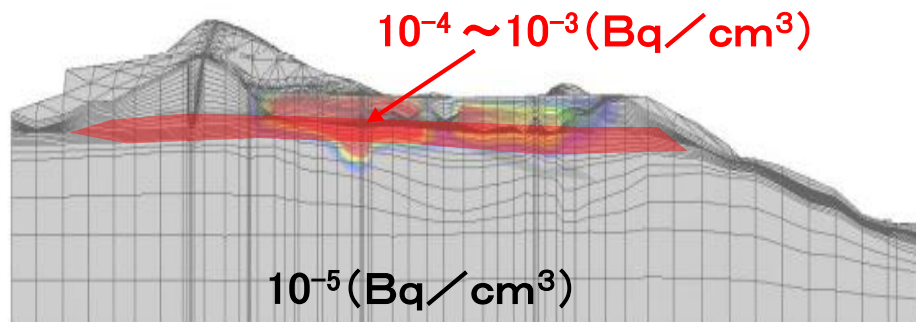
●主成分濃度分布

- ・ 主成分の濃度は捨石分布範囲の地下水が高く、露天採掘場跡地場外の地下水の濃度は低かった。



深部花崗岩に希釈効果があれば、主成分も約1/10に希釈されるはずだが、そうではないことから、Raが堆積岩と花崗岩の不整合部付近でトラップされていると推察される。

2. ラジウム (Ra) の挙動調査



地下水中のラジウム (Ra) 濃度分布

露天採掘場跡地内外に分布する花崗岩中のラジウム濃度は、約1/10～約1/100濃度が低い

- ・露天採掘場跡地内に分布する鉱物にラジウム (Ra) が選択的に吸着していることが推測される
- ・鉱物への吸着メカニズム、吸着量、そして将来における吸着層の吸着性能や脱離の可能性については不明である

～ Raの挙動メカニズムを解明することの目的 ～

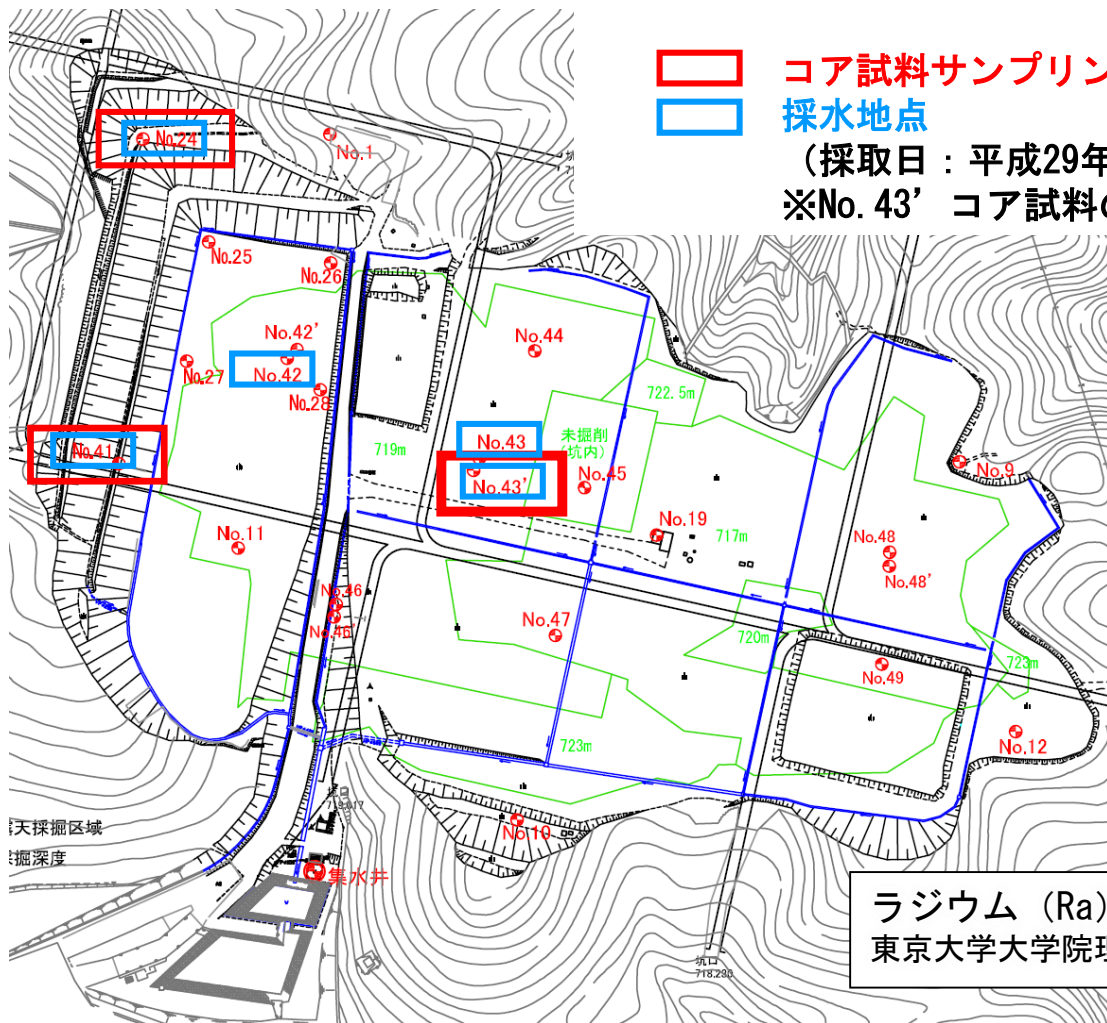
1. 露天採掘場跡地内の地下水中のRa物質移行解析
2. 露天採掘場跡地坑水の発生源対策
3. センター全域を含む広域のRa挙動の基本原理を解明する

2. ラジウム (Ra) の挙動調査 試料サンプリング

コア試料サンプリング地点
 採水地点

(採取日：平成29年12月12日)

※No. 43' コア試料のみ7月4日採取



地点	ボーリング コア	モニタリング孔	
		採水	採水部 (地質)
上流域 天然ウラン 鉱床分布	No. 24	●	オールスクリーン (堆積岩-花崗岩)
	No. 41	●	ウラン鉱床部
捨石埋設	No. 42	-	捨石部
	No. 43	-	捨石部
	No. 43'	●	風化花崗岩

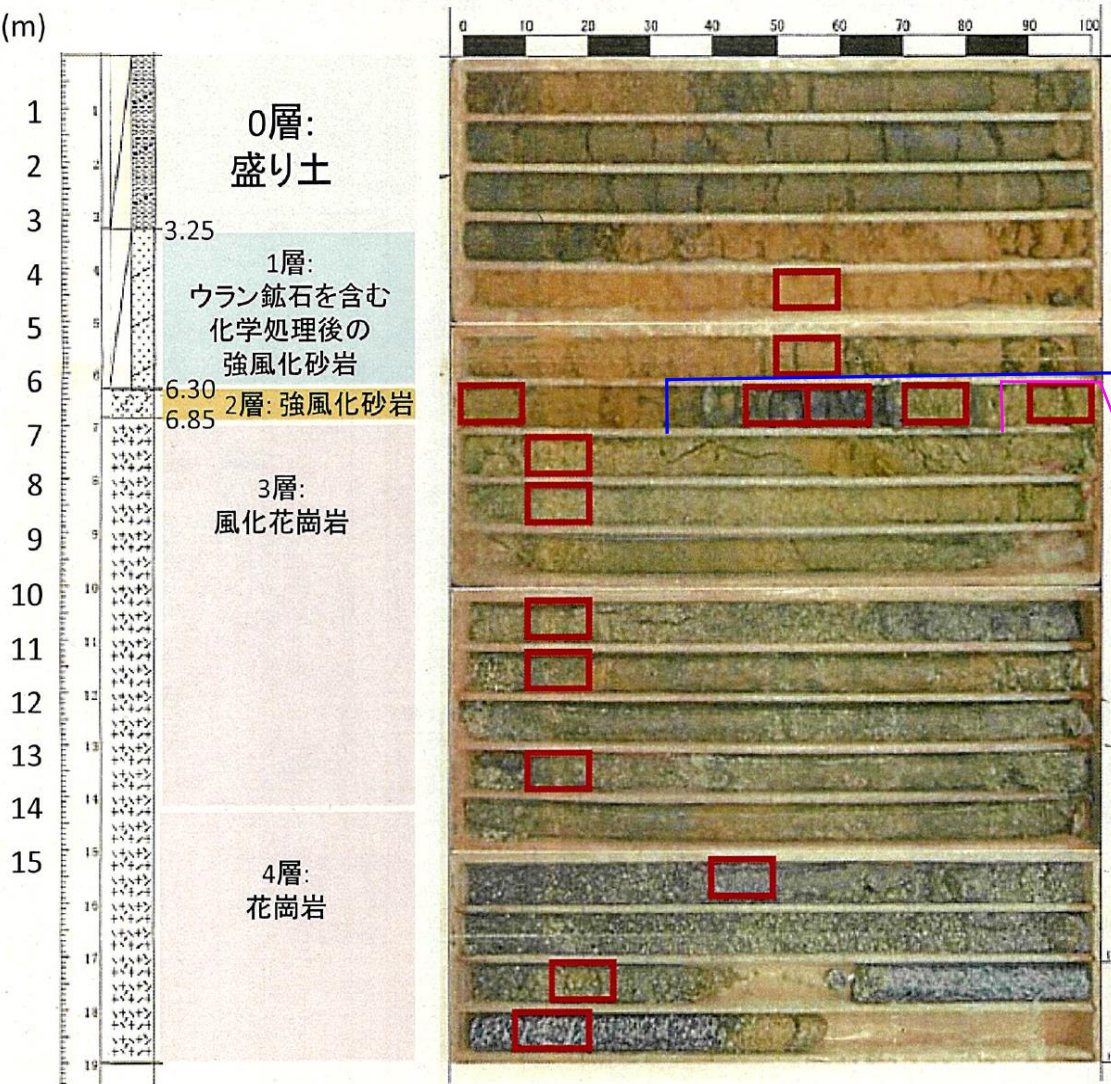
ラジウム (Ra) の挙動に関する研究 (委託研究)
 東京大学大学院理学系研究科 高橋嘉夫、栗原雄一、山口瑛子

• No. 43' コア試料の分析結果
 • ラジウム (Ra) の挙動の考察

 について報告

2. ラジウム (Ra) の挙動調査 No.43' コア試料のサンプリング

深度(m)



サンプル名	深度詳細(m)
450	4.50 ~ 4.60
捨石 550	5.50 ~ 5.60
600	6.00 ~ 6.10
645	6.45 ~ 6.55
砂岩 655	6.55 ~ 6.65
670	6.70 ~ 6.80
690	6.90 ~ 7.00
風化 710	7.10 ~ 7.20
花崗岩 810	8.10 ~ 8.20
1010	10.10 ~ 10.20
1110	11.10 ~ 11.20
1310	13.10 ~ 13.20
1540	15.40 ~ 15.50
1715	17.15 ~ 17.25
1807	18.07 ~ 18.20

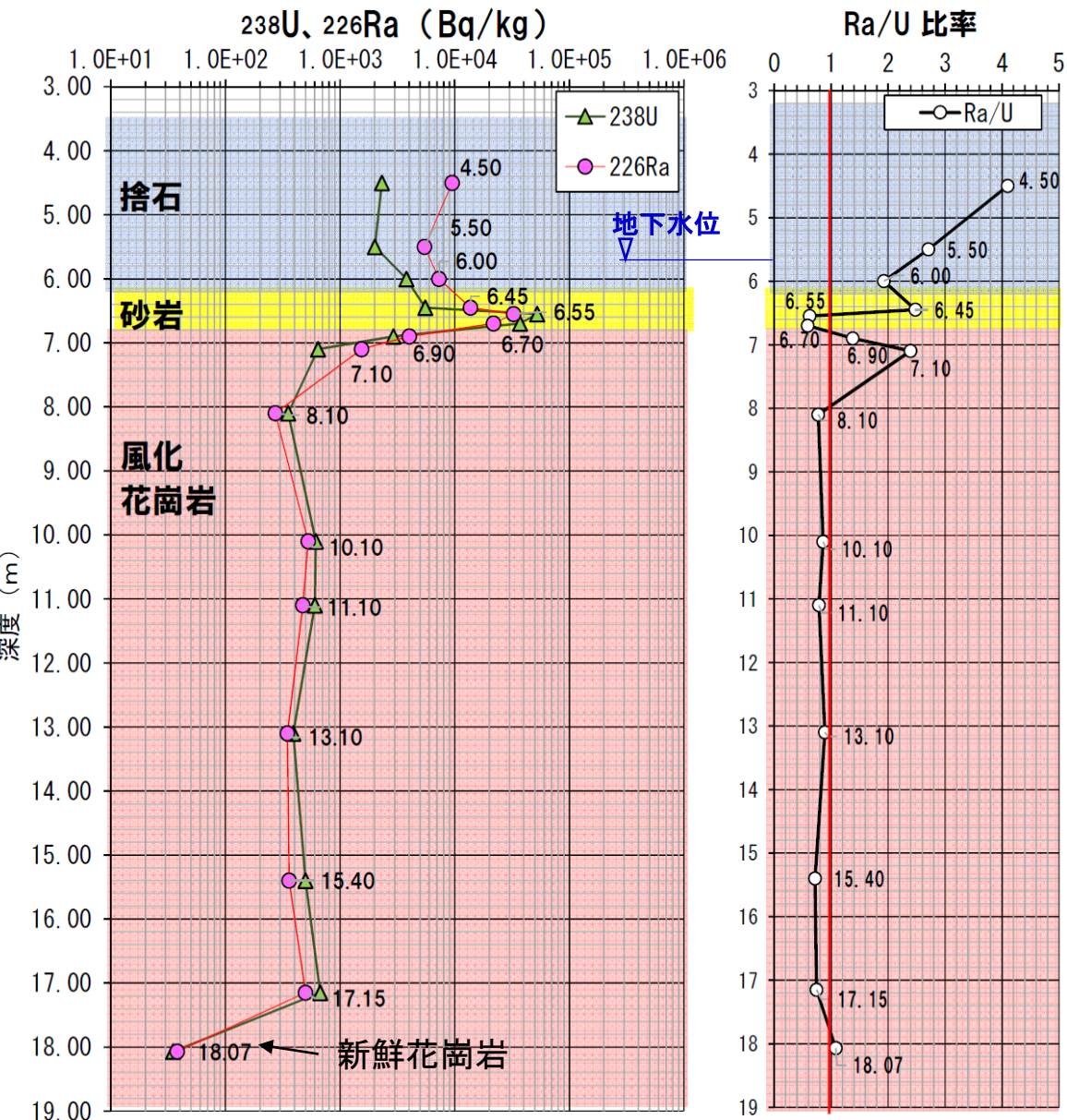


2. ラジウム (Ra) の挙動調査 分析項目と分析機器

項目	分析機器	機器所在
ラジウム (Ra) 、 ウラン (U) 分析	ゲルマニウム半導体検出器	東京大学アイソトープ 総合センター
主成分分析	蛍光X線分析装置 (XRF)	東京大学大学院理学系研究科 地球惑星科学専攻
主要鉱物組成	粉末X線回折装置 (XRD)	東京大学大学院理学系研究科 地球惑星科学専攻
微量元素組成	誘導結合プラズマ質量分析計 (ICP-MS)	東京大学大学院理学系研究科 地球惑星科学専攻 地球生命圏科学講座
鉄 (Fe) 、 マンガン (Mn) 、 ウラン (U) 鉱物の同定	放射光を用いたX線吸収微細構造 スペクトル分析 (XAFS)	高エネルギー加速器研究機構 (Photon Factory)

ラジウム (Ra) の挙動に関する研究 (委託研究) 東京大学大学院理学系研究科 高橋教授他

2. ラジウム (Ra) の挙動調査 No.43' コア試料分析結果

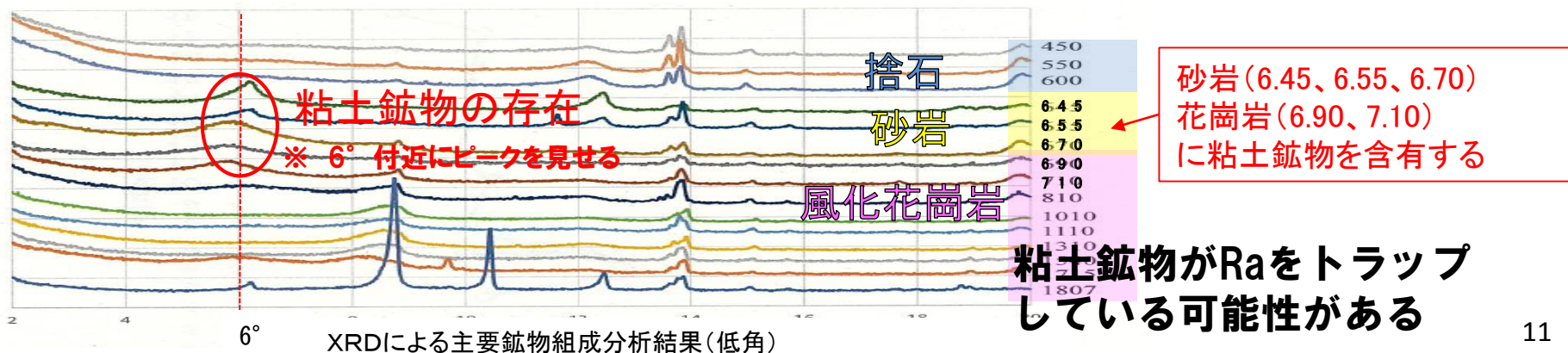


地質	U、Ra 含有量	Ra/U 比
捨石	U < Ra	全体 2~4 下部ほど低くなる
砂岩	最も高い値	6.45m 2.5 6.55m - 6.70m 0.6
風化花崗岩	砂岩と比較すると 層境界 約 1/10 風化部 約 1/100 新鮮部 約 1/1,000	6.90m 1.4 7.10m 2.4 8.10m ~ 17.15m 約 0.7~0.9 新鮮岩 約 1

※ $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 比は
一般鉱石では、「1」となっている

2. ラジウム(Ra)の挙動調査 考察

地質	結果		考察
	Ra、U含有量	Ra/U 比	
捨石	U < Ra	全体 2~4 下部ほど低くなる	1) 捨石は、U鉱石からUを抽出した残渣であるため U含有量が少なく、Ra/U比は 2以上を示す 2) Uより、Raの方が移動しやすい可能性がある
砂岩	全試料中最も高い値	6.45m 2.5 6.55m、6.70m 0.6	1) ウラン鉱床である 2) 6.45mに捨石層から移動したRaがトラップされている 3) Uより、Raの方が移動しやすい可能性がある
風化花崗岩	砂岩と比較すると 層境界 約 1/10 風化部 約 1/100 新鮮部 約 1/1,000	6.90m 1.4 7.10m 2.4 8.10m ~ 17.15m 約 0.7~0.9 新鮮部 約 1	1) 6.90m、7.10mに上位層から移動した U、Raがトラップされている 2) 6.90mは 7.10mより U を多くトラップするため 6.90mは 7.10mより Ra/U 比が低い 3) 風化花崗岩のU、Raは、 ・ 上位砂岩（ウラン鉱床）から移動した ・ ボーリング掘削時に上位層から混入した ・ ウラン鉱床形成時のものが推察される



2. ラジウム (Ra) の挙動調査 成果と今後の計画

今回成果

Ra吸着機構の推定

- ・ Raは捨石と砂岩の境界、砂岩と風化花崗岩の境界の粘土鉱物を含有する部分にトラップされる分析結果を得た

その他のコア試料、水質分析結果を総合してRa吸着機構の解明

Ra分配係数 (Kd) を求める試験 (吸着実験) の検討及び実施

Raの分配係数のpH及びイオン強度依存性から粘土鉱物へのRaの吸着特性を求める

Raの挙動メカニズムを考慮した物質移行解析の実施 (現状再現)

予測解析 (坑水発生源対策工の効果)

3. 挙動と移行解析

・対象項目： ラジウム(Ra)、ウラン(U)、溶解性鉄(S-Fe)、ヒ素(As)

・内容

- (1) 目的・方法
- (2) 解析モデルと解析コード
- (3) 対象物質の濃度分布
- (4) 初期濃度の問題
- (5) 試算結果
- (6) 解析モデルの見直し
- (7) 濃度発生源の見直し
- (8) 見直し結果
- (9) 坑水発生源対策の効果予測

3. 挙動と移行解析

(1) 目的・方法

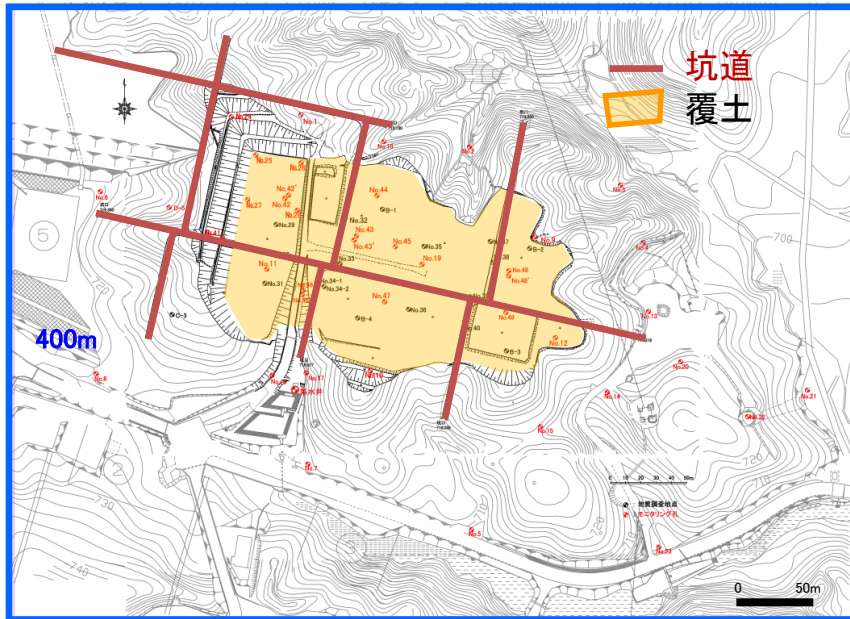
項目	内容	
目的	露天坑水濃度の現状再現（埋戻し後30年経過） 坑水発生源対策工法（覆土）の効果予測	
対象物質（水質）	ラジウム（ ^{226}Ra ）、ウラン（ ^{238}U ）、溶解性鉄（S-Fe）、ヒ素（As）	
解析計算	解析コード	DTRANSU-3D-EL （岡山大学 西垣 誠名誉教授、三菱マテリアル（株）、（株）ダイヤコンサルタント 三者共同開発）
	浸透流解析	定常解析
	物質移行解析	遅延を考慮しない（遅延係数 $R=1$ ）
濃度発生の設定	濃度発生源	捨石層
	発生方法	定常発生（常に同じ濃度で発生）
	露天採掘場跡地内のモニタリング孔内水の水質分析結果（H25年12月採水）から推定した濃度分布を、0～1相対濃度で捨石層節点に設定	

3. 挙動と移行解析

(2) 解析モデルと解析コード

モデル概要

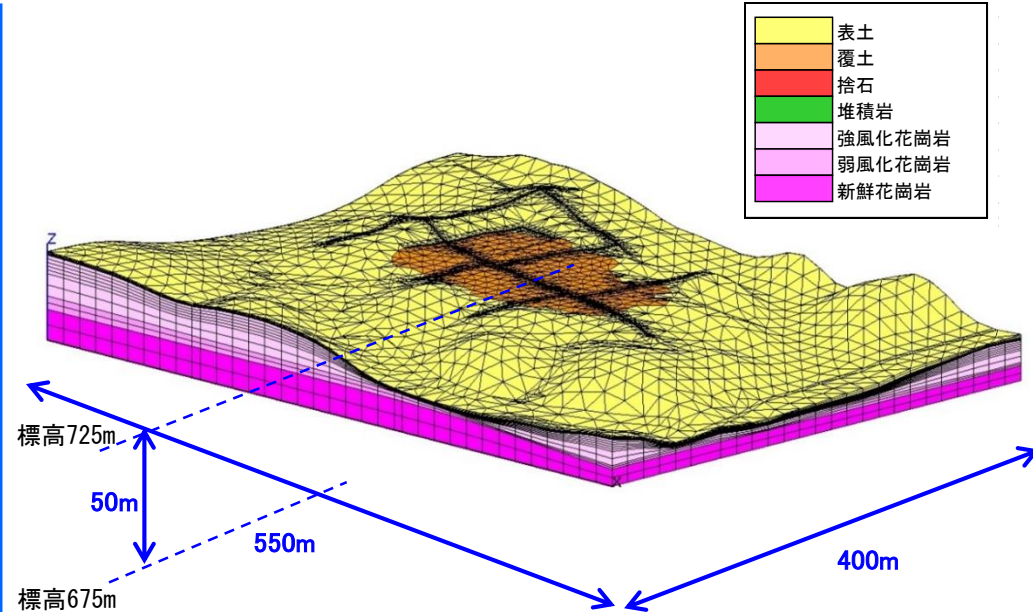
● 平面図



解析領域

550m

● 鳥瞰図



鳥瞰図の向き

- ・解析範囲: 550m × 400m, 深度50m
- ・要素数: 176,328
- ・節点数: 96,469

有限要素モデル
(平成27年度モデル)

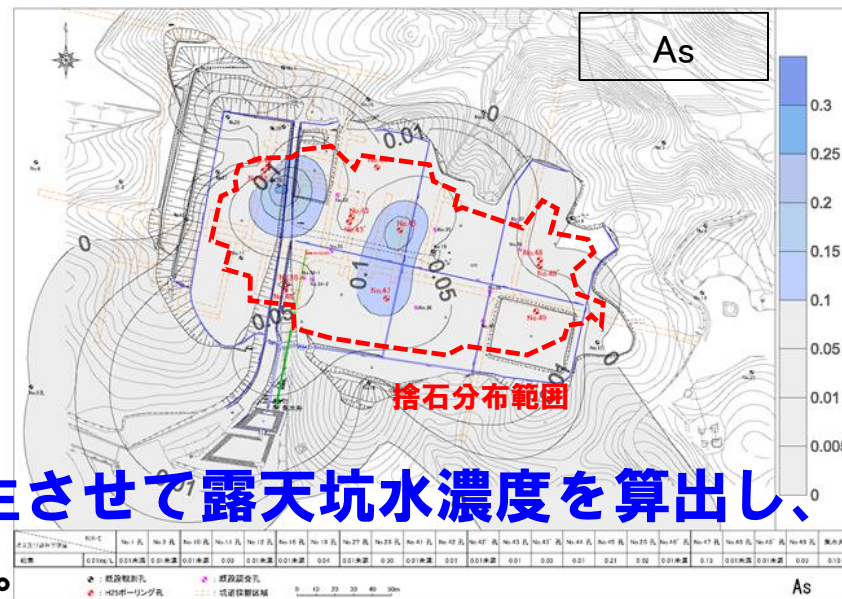
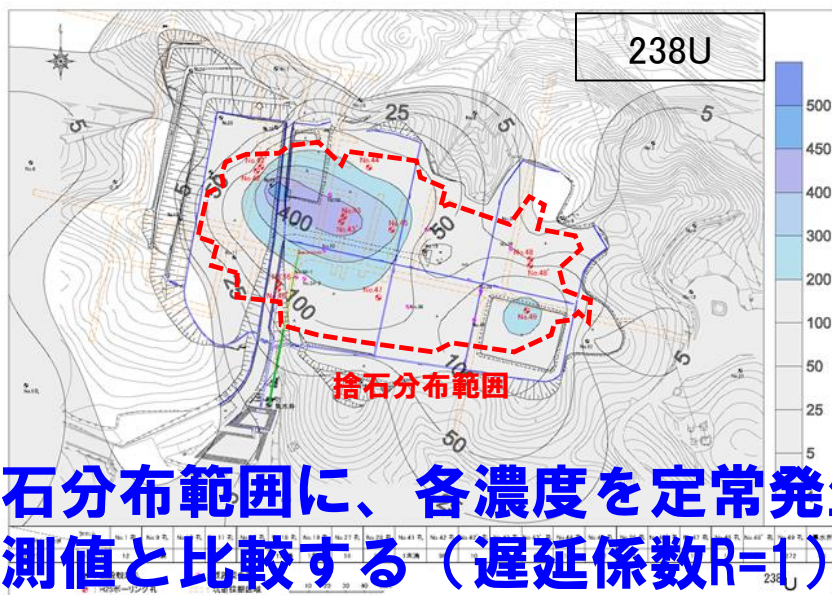
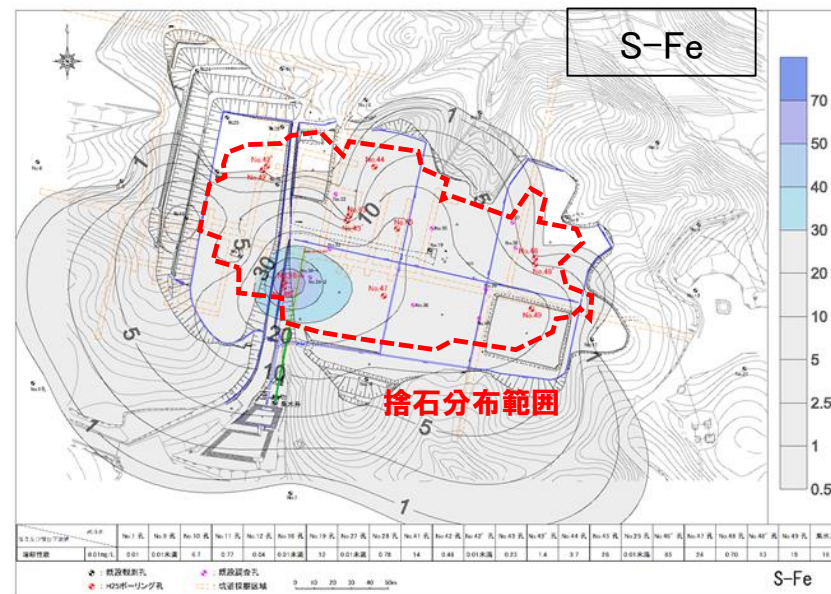
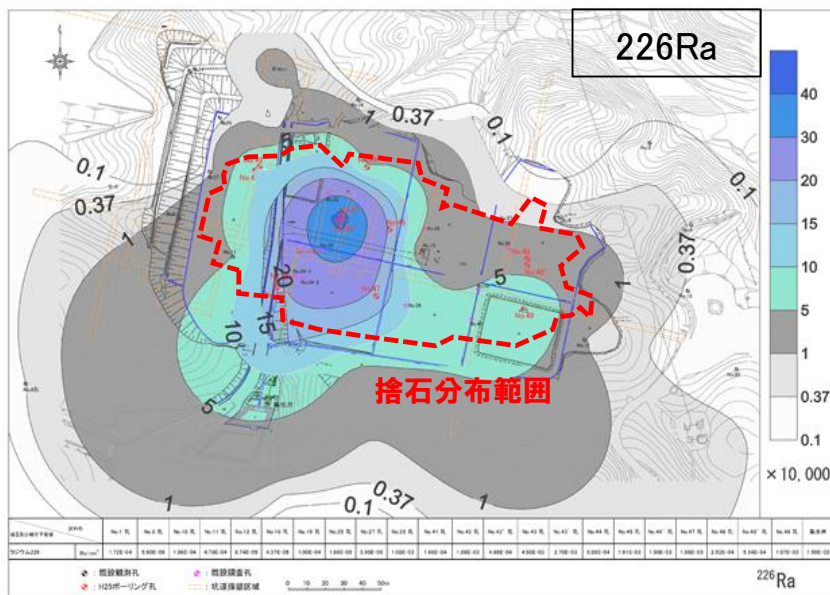
解析コード: DTRANSU-3D-EL

(岡山大学 西垣誠名誉教授、三菱マテリアル(株)、
(株)ダイヤコンサルタント 三者共同開発)

物質移行解析 : 遅延を考慮しない (R=1)

3. 挙動と移行解析

(3) 対象物質の濃度分布

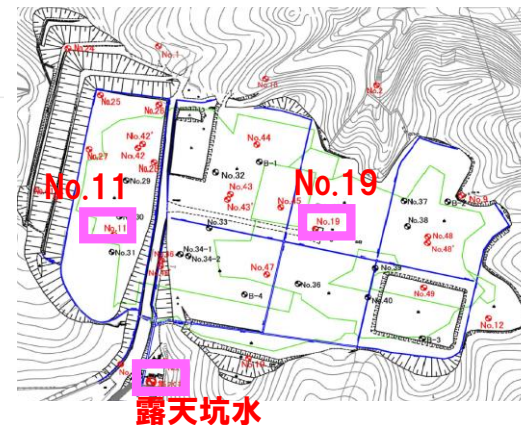


**捨石分布範囲に、各濃度を定常発生させて露天坑水濃度を算出し、
実測値と比較する（遅延係数R=1）**

3. 挙動と移行解析 (4)初期濃度の問題

ヒープリーチング終了

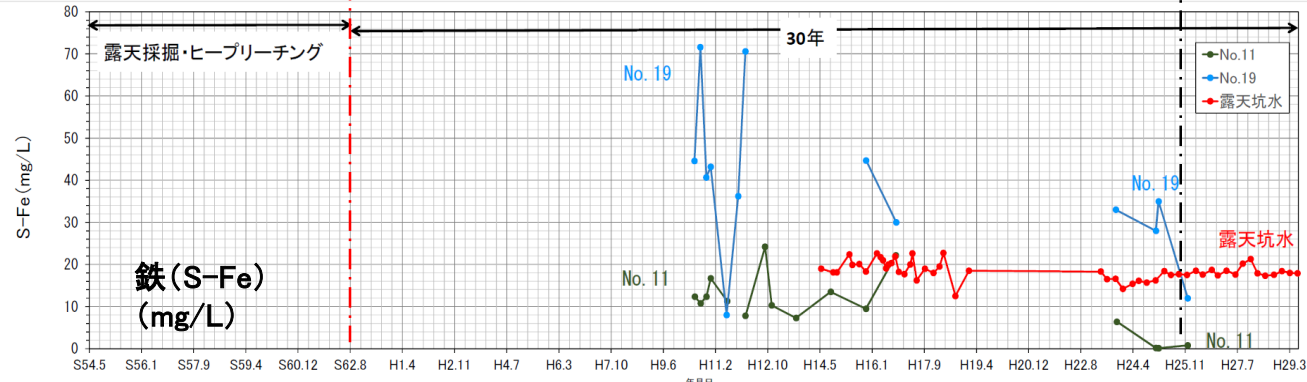
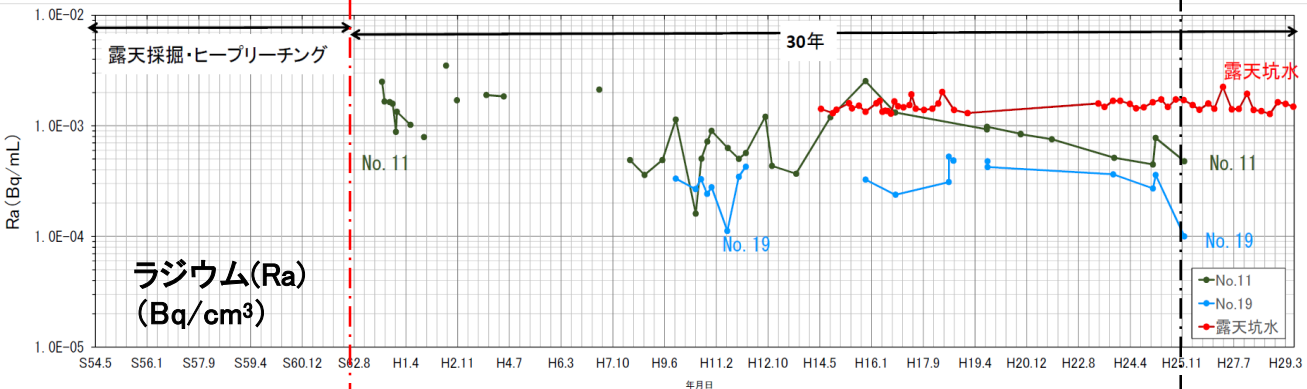
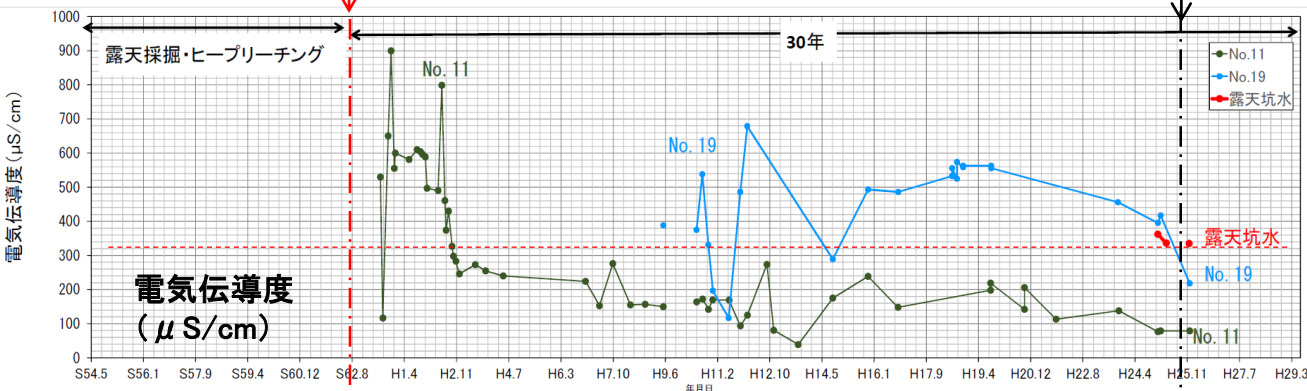
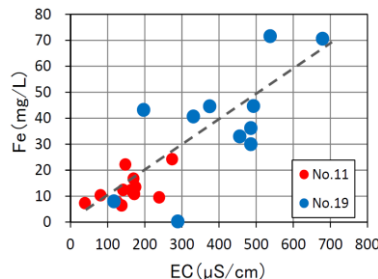
H25年



■ No.11孔、No.19の電気伝導度、Ra濃度、S-Fe濃度の变化から、30年昔は現在より濃度が高かったと考えられる



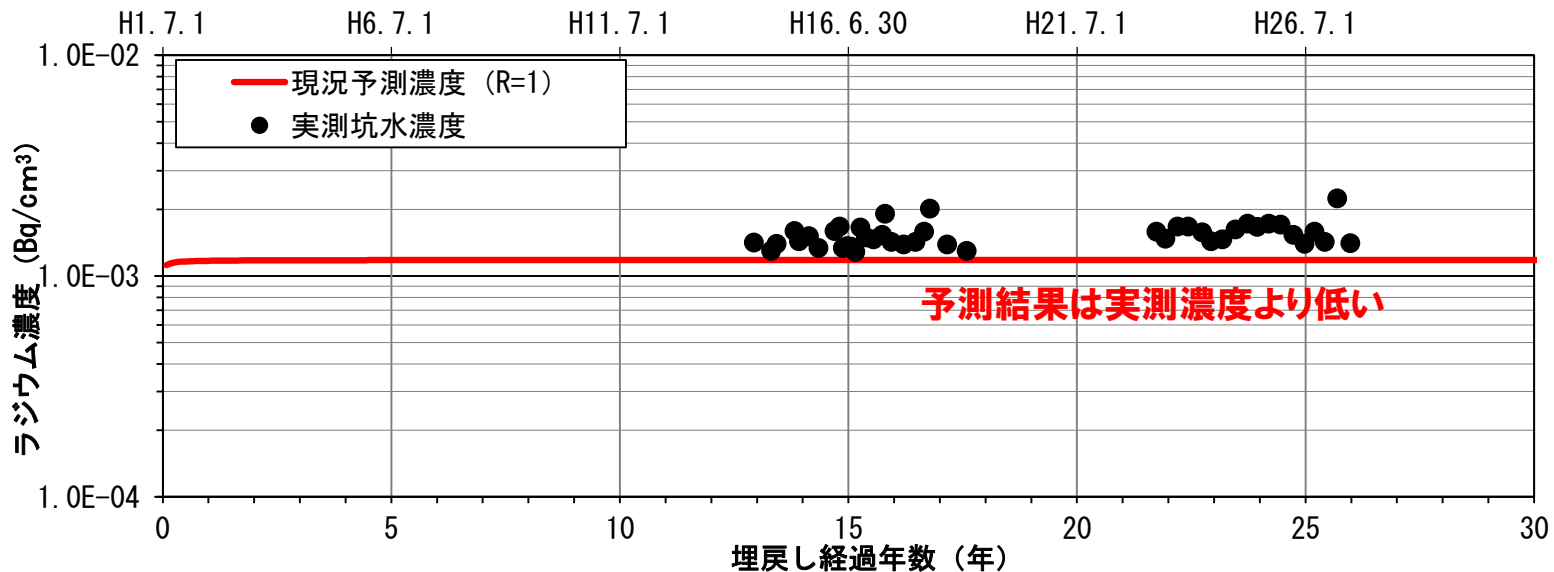
※ H25年水質を初期濃度とする
※ 濃度を定常発生させる
解析の意味を考える必要がある



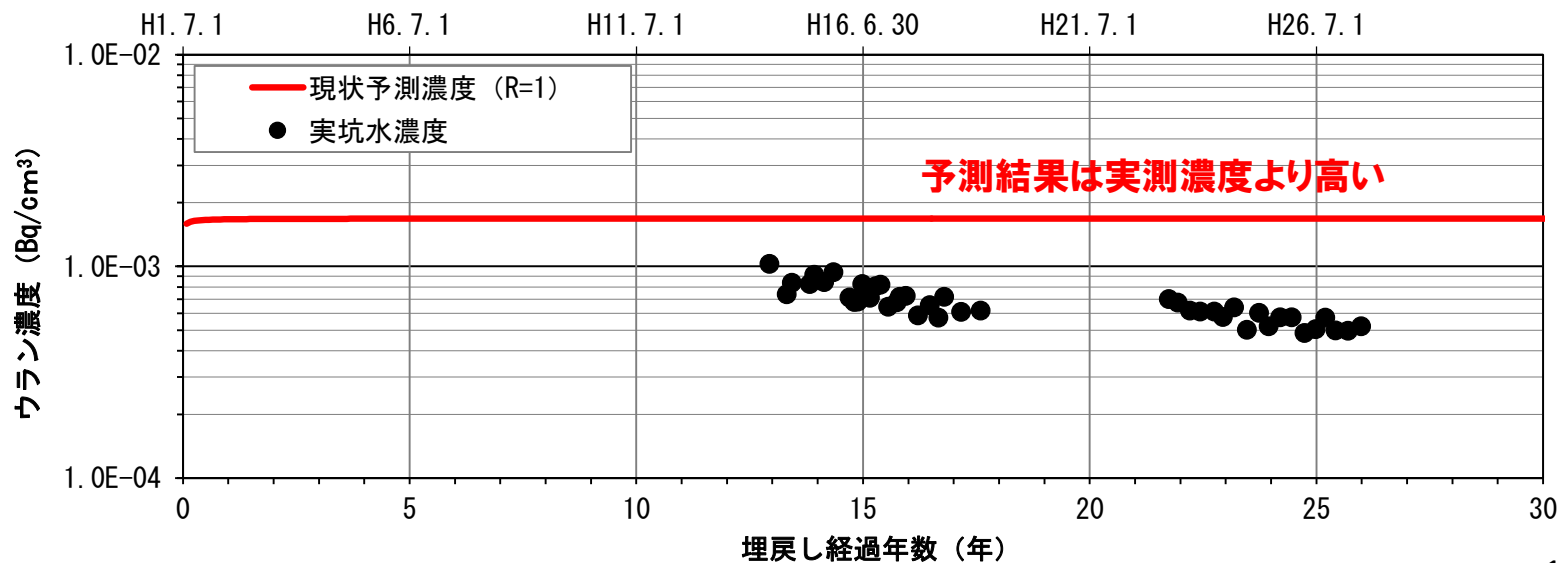
3. 挙動と移行解析

(5) 試算結果

ラジウム
(²²⁶Ra)



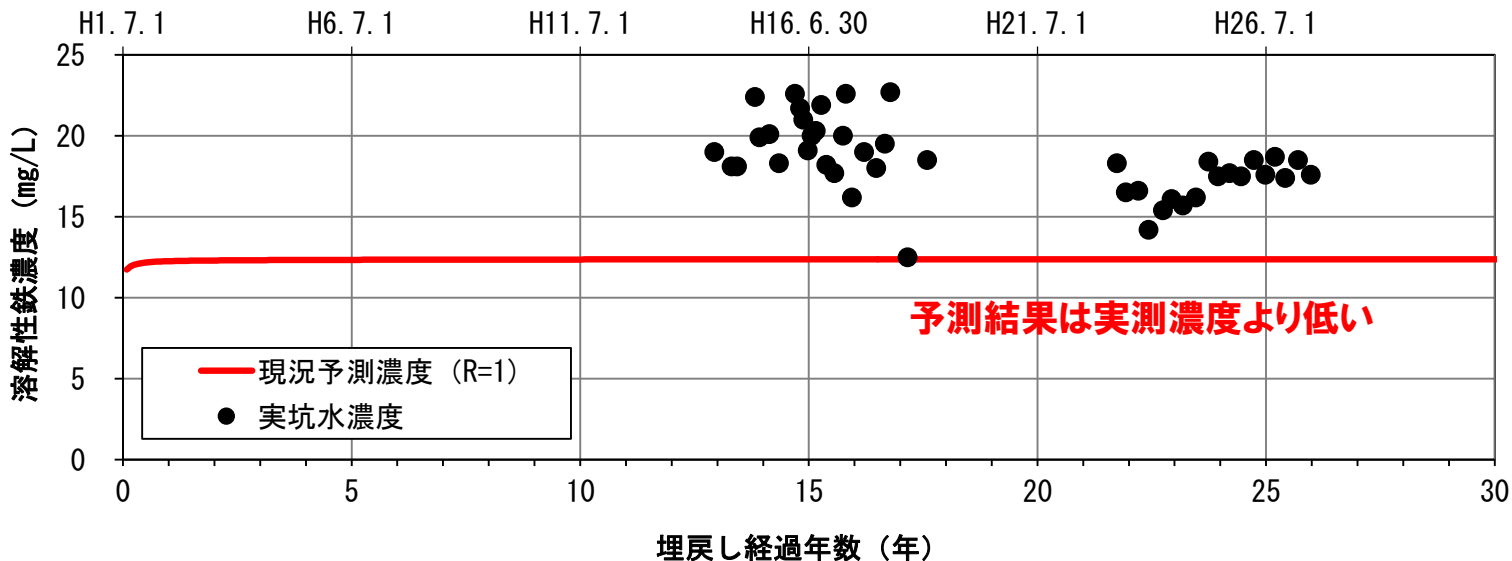
ウラン
(²³⁸U)



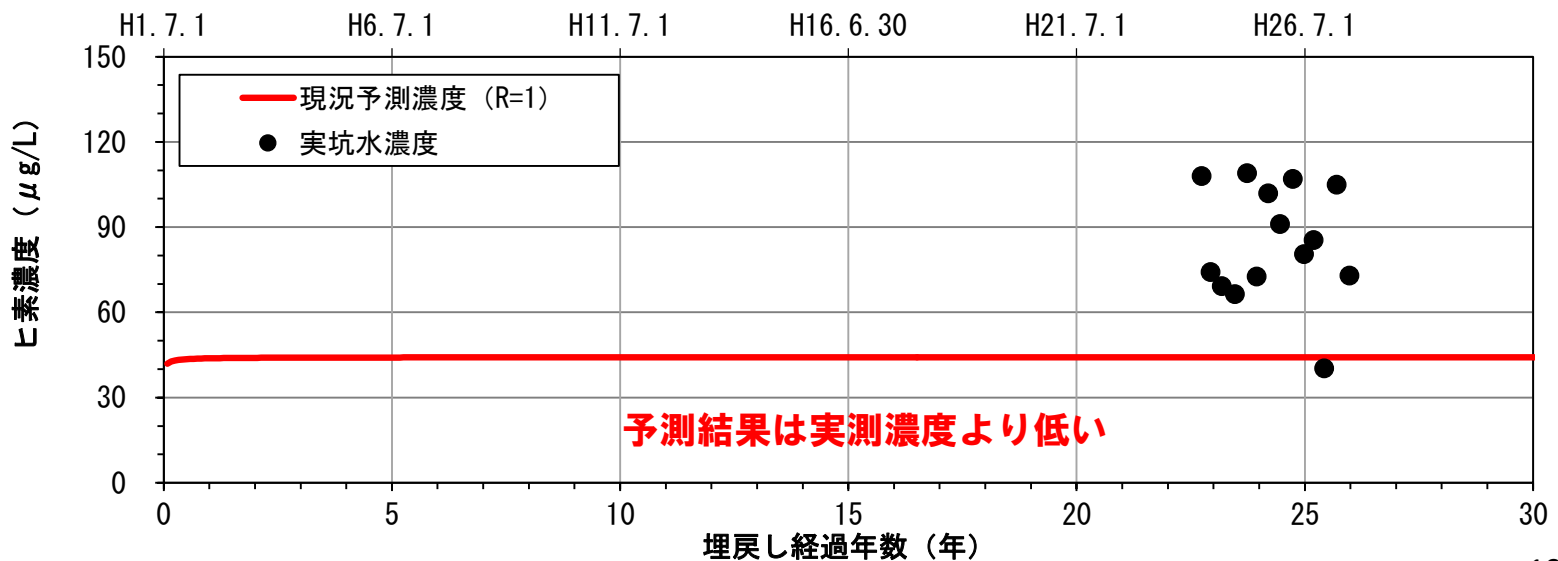
3. 挙動と移行解析

(5) 試算結果

溶解性鉄
(S-Fe)



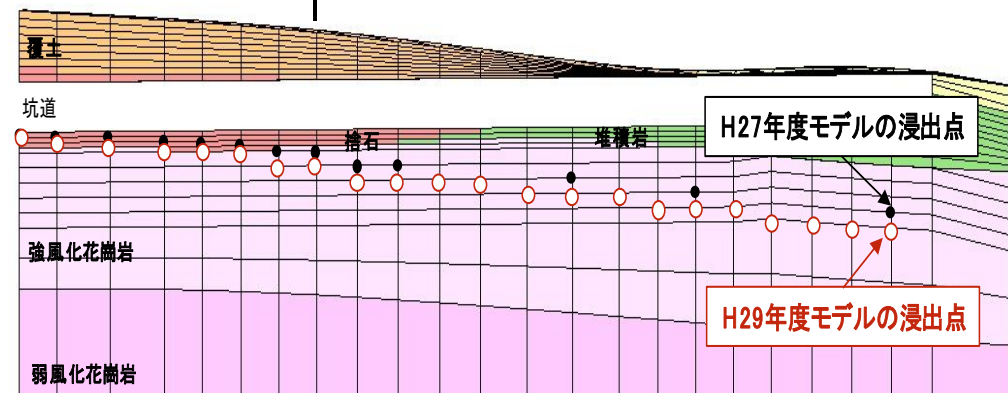
ヒ素
(As)



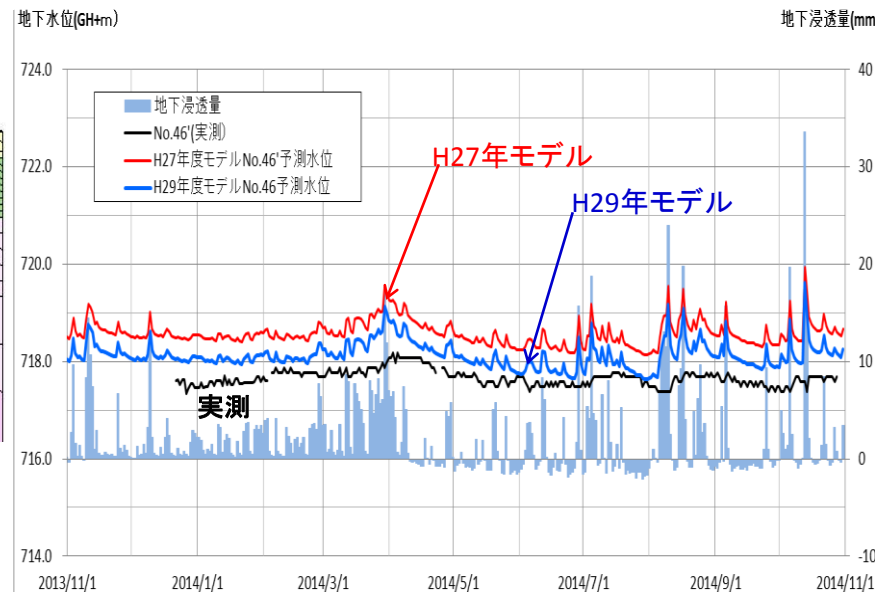
3. 挙動と移行解析

(6) 解析モデルの見直し

No.46'

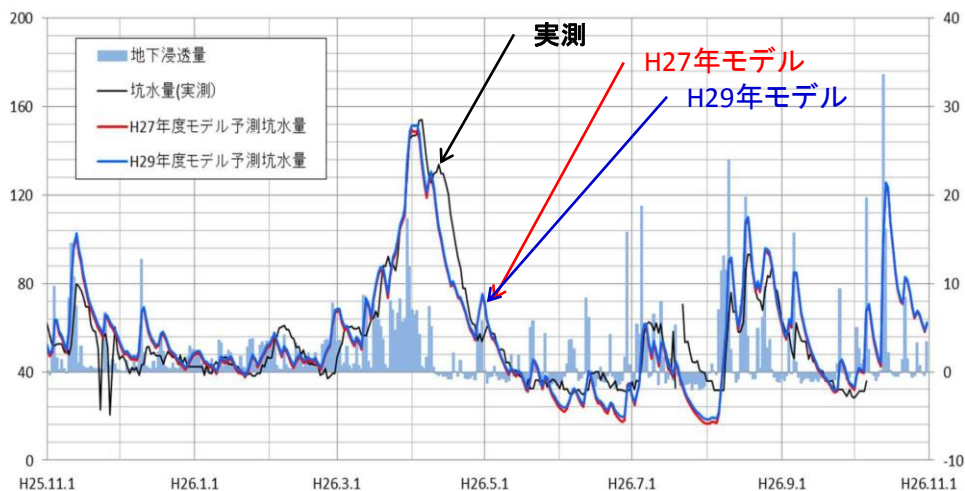


**集水井と暗渠管を結ぶ配管の深度修正
(→浸出点を0.5m深くした)**



No. 46' 水位の水位比較

流量(m3/day) 無降水日の蒸発考慮(タンクモデル②) 地下浸透量(mm)

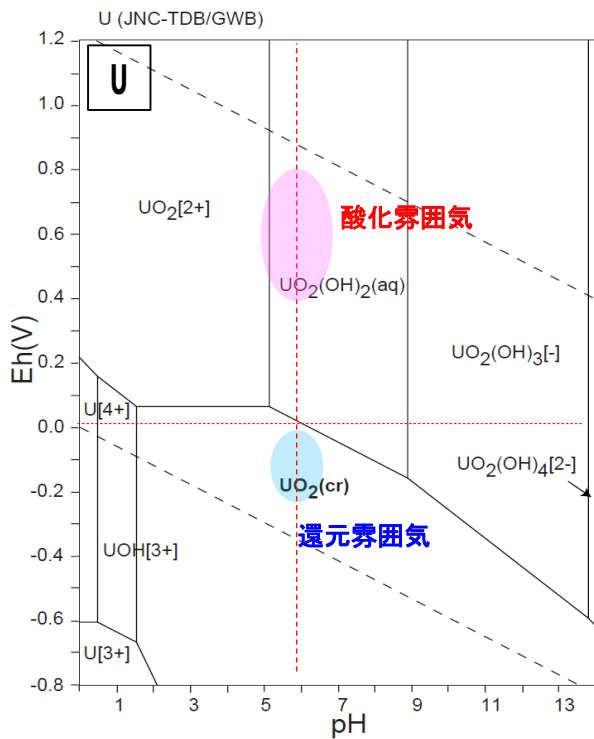


露天坑水量と予測水量の比較

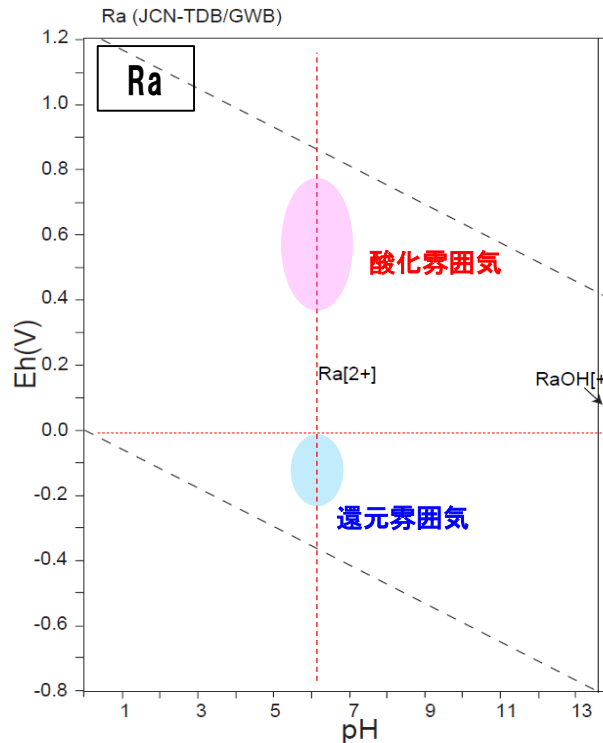
- 【成果】**
- No. 46' の予測水位と実測値との誤差は小さくなった
 - 坑水量（日予測）はH27年とH29年モデルで差は認められなかった
 - 年総量はH29年モデルの方が多く、実測値との誤差は1.9%であった。

3. 挙動と移行解析

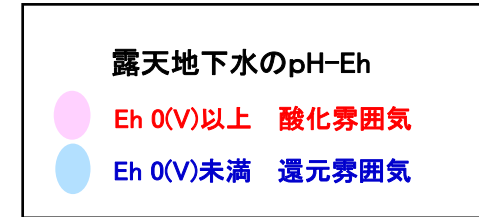
(7) 濃度発生源の見直し



ウラン (U) の pH-Eh



ラジウム (Ra) の pH-Eh

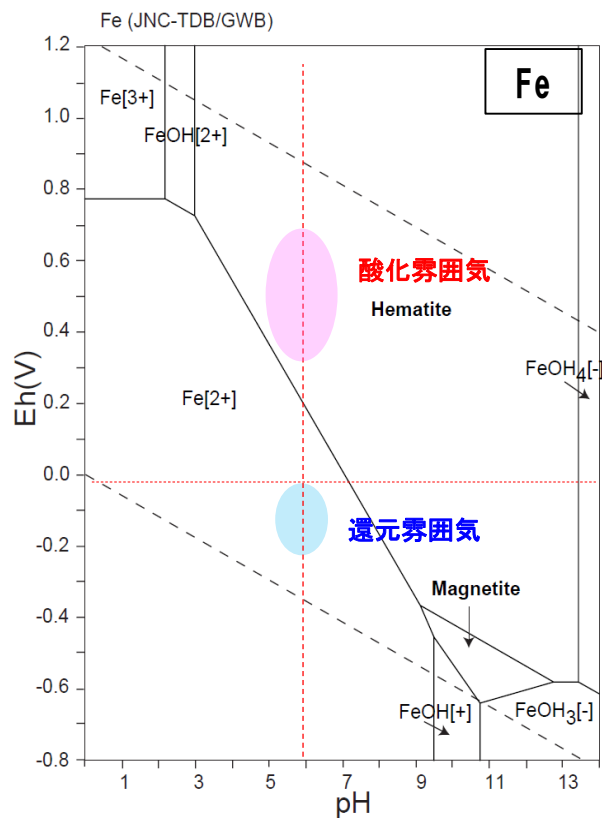


(引用：竹野直人(2005)：Eh-pH 図アトラス 熱力学データベースの比較, 地質調査総合研究資料集, No. 419)

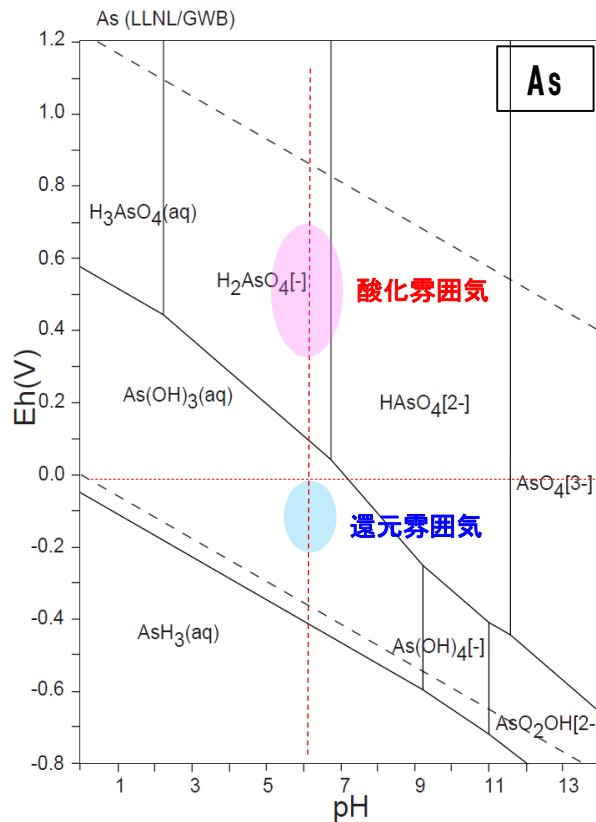
- ウランは、酸化雰囲気下では水溶液に溶解し、逆に還元雰囲気下では結晶 ($\text{UO}_2(\text{cr})$) として水溶液中から除かれる
- ラジウムは酸化/還元雰囲気に関係なく。2価の陽イオンとして存在する

3. 挙動と移行解析

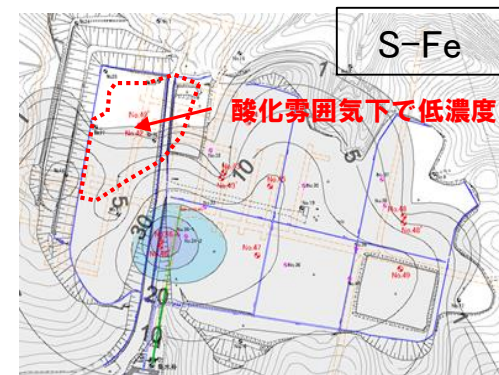
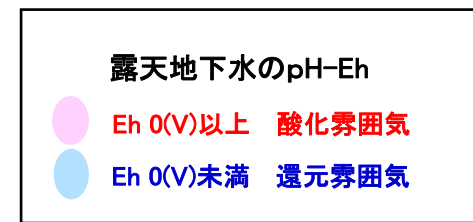
(7) 濃度発生源の見直し



鉄 (Fe) の pH-Eh



ヒ素 (As) の pH-Eh



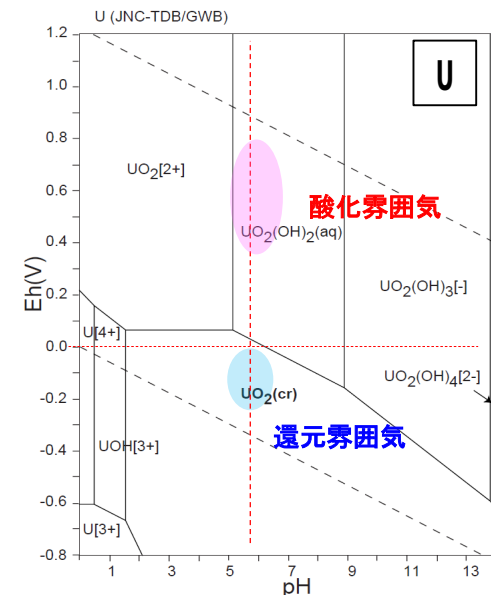
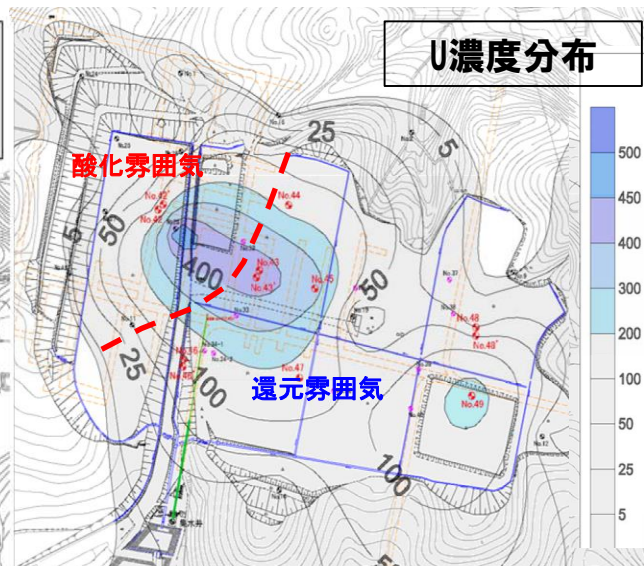
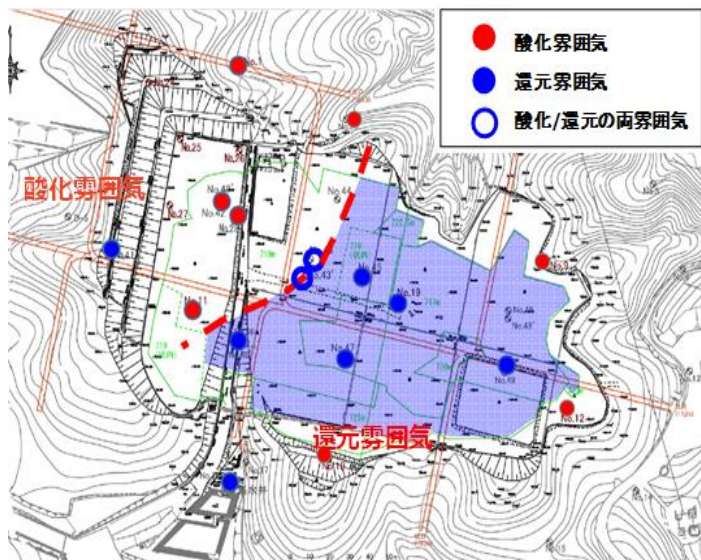
溶解性Feの濃度分布

(引用：竹野直人(2005)：Eh-pH 図アトラス 熱力学データベースの比較, 地質調査総合研究資料集, No. 419)

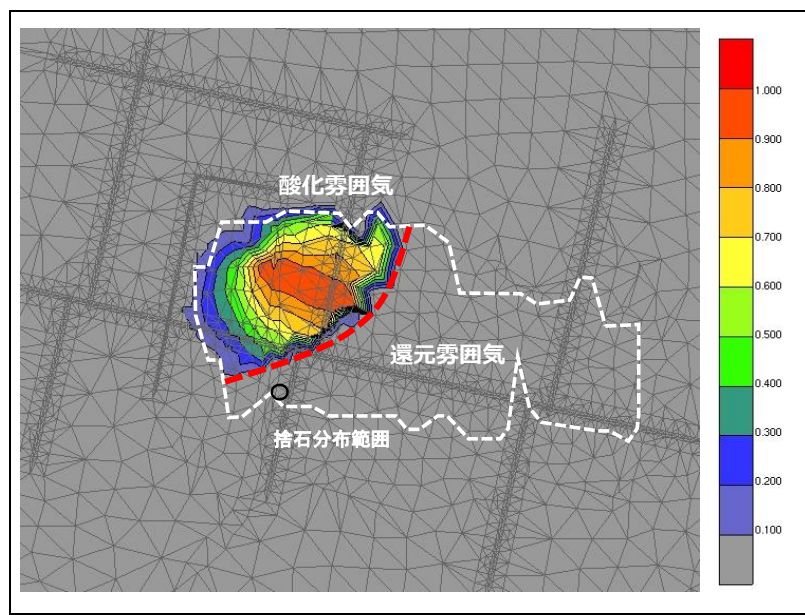
- 鉄は、還元雰囲気では2価の陽イオン、酸化雰囲気ではHematiteとして存在する
(酸化雰囲気部には溶解性鉄(Fe^{2+})として存在しないことと一致する)
- ヒ素は、酸化/還元雰囲気に関係なく水に溶解している

3. 挙動と移行解析

(7) 濃度発生源の見直し (U)



酸化・還元雰囲気区分とウラン濃度分布の対比図

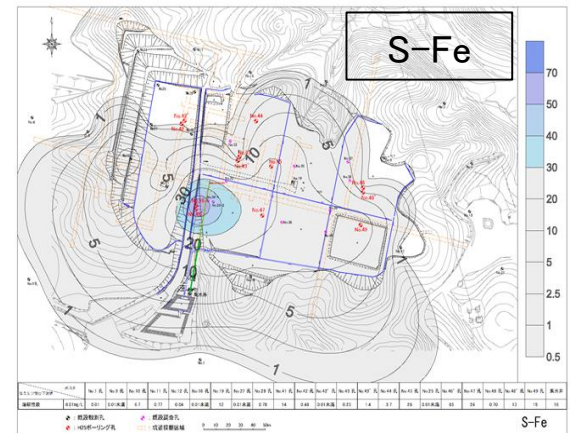
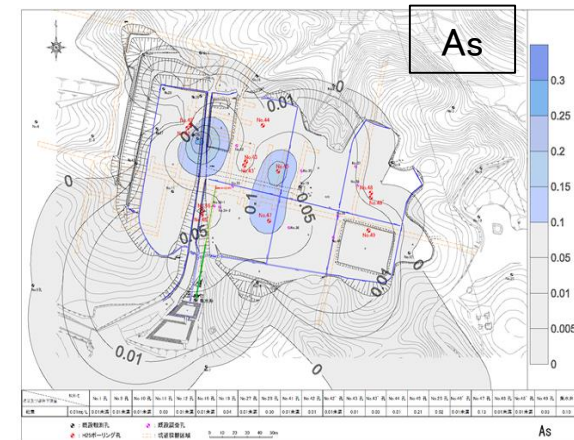
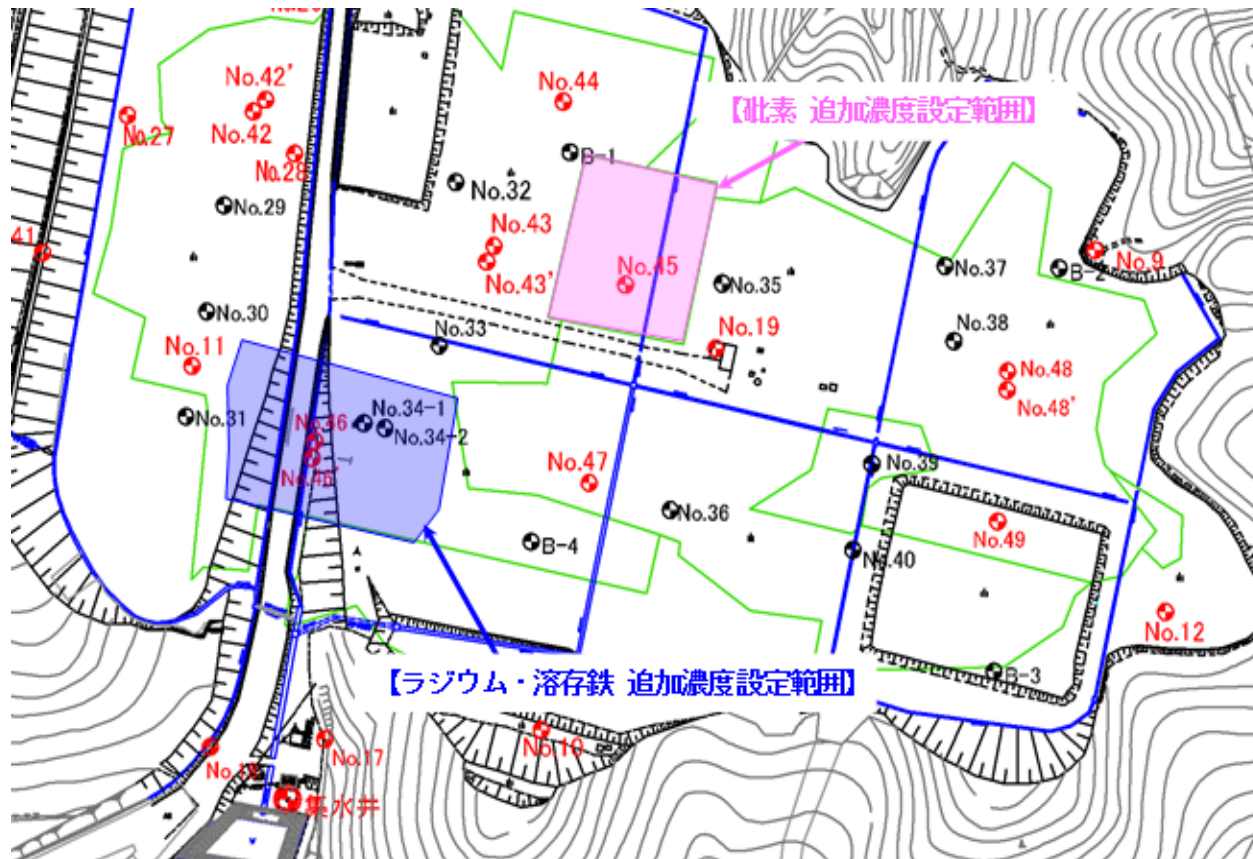


U は、pH-Eh図より還元雰囲気においては結晶体($UO_2(cr)$)として水溶液中から除かれることから、酸化雰囲気部のみを発生源とした

(還元雰囲気部の測定結果は、ろ紙(5C)を通過した小さな粒子であったと解釈した)

3. 挙動と移行解析

(7) 濃度発生源の見直し (Ra、Fe、As)

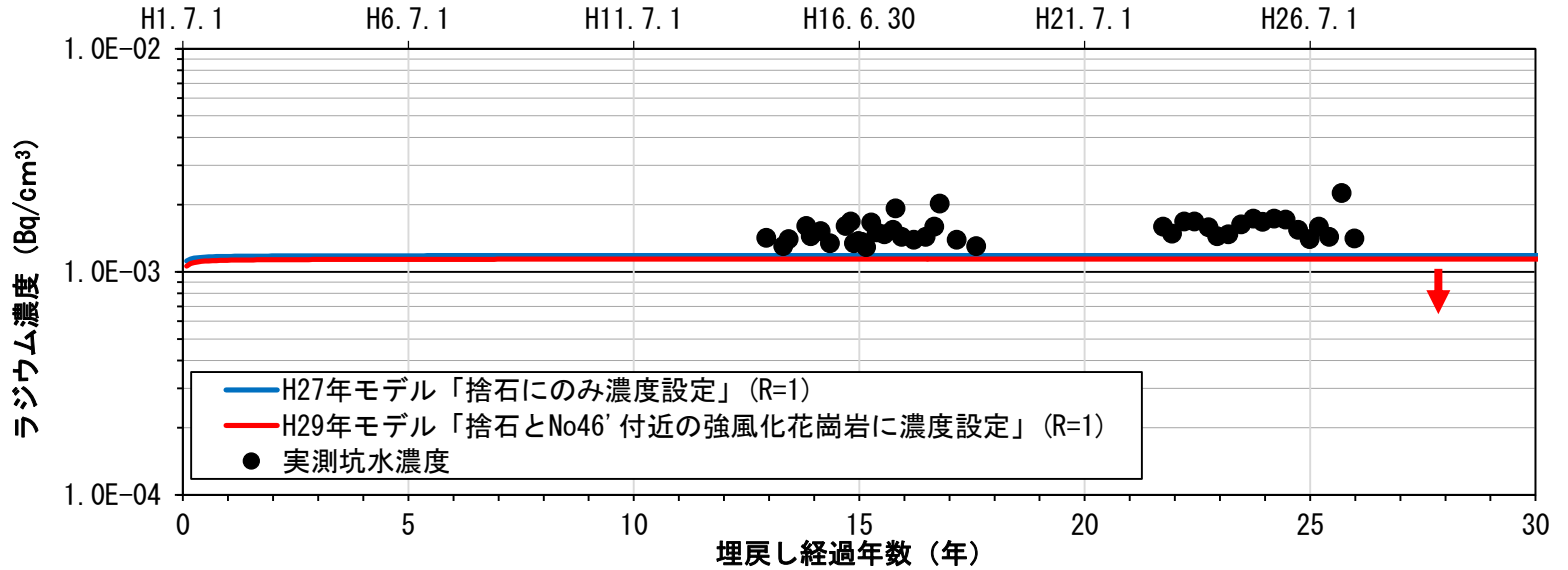


- Asは、捨石が分布しないNo.45に高濃度部を示すことから、未採掘エリアの堆積岩に濃度発生源を設定
- S-FeとRaは、No46' (風化花崗岩)に高濃度部を示すことから、暗渠管が敷設された風化花崗岩深度も濃度発生源を設定

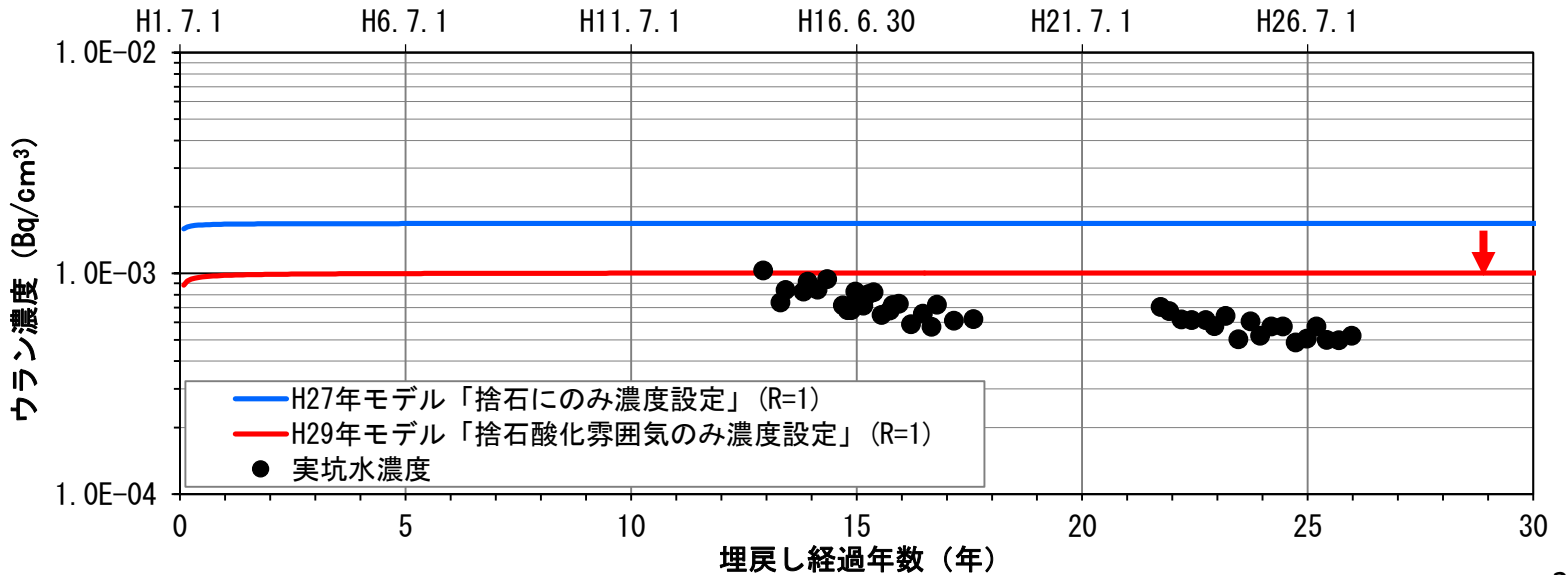
3. 挙動と移行解析

(8) 見直し結果

ラジウム
(²²⁶Ra)



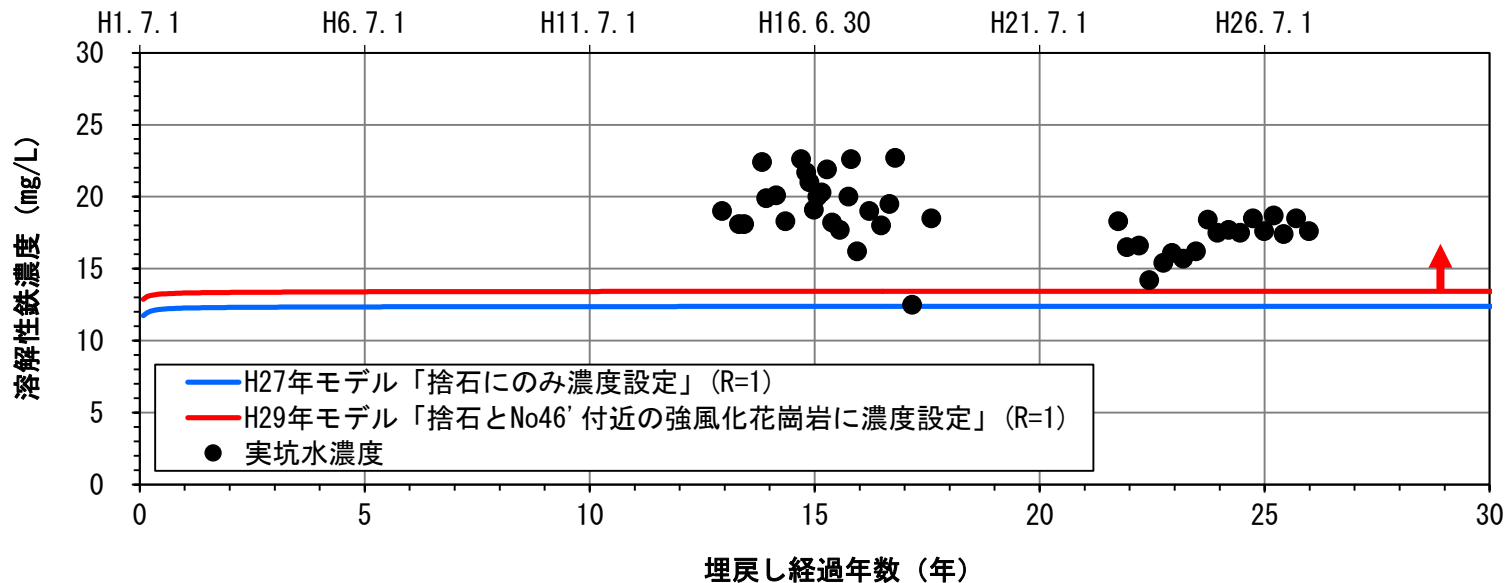
ウラン
(²³⁸U)



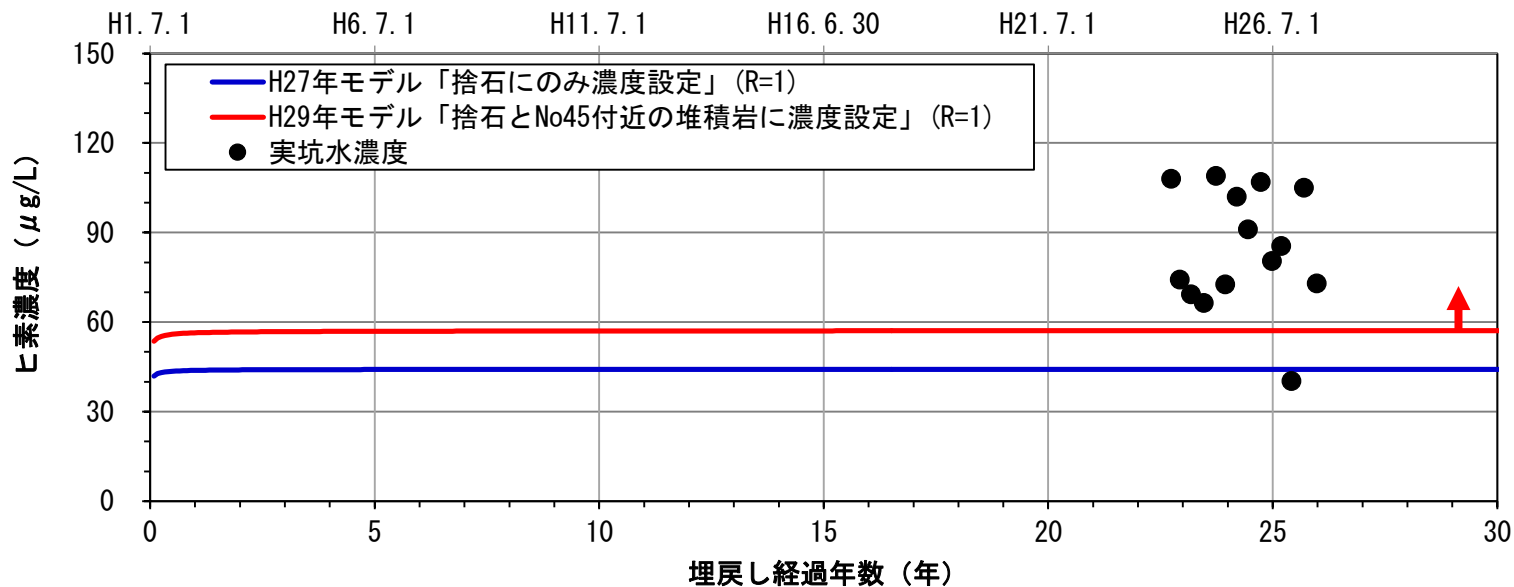
3. 挙動と移行解析

(8) 見直し結果

溶解性鉄
(S-Fe)



ヒ素
(As)



3. 挙動と移行解析

(9) 坑水発生源対策の効果予測

対策エシナリオ

対策図

Case1



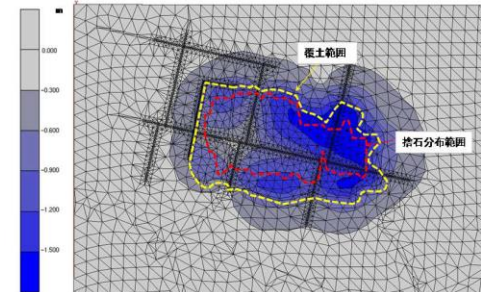
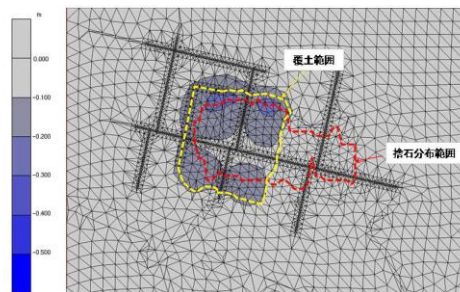
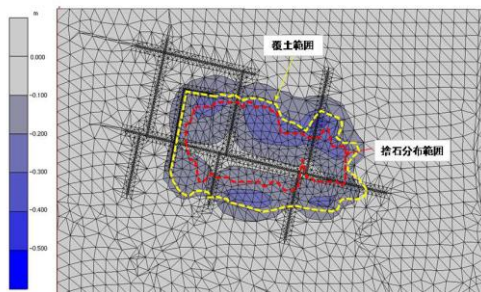
Case2



Case3



対策による水位低下



対策工
シナリオ

露天全体覆土対策
(浸透率=20%)

露天西側のみ覆土対策
(浸透率=20%)

露天全体覆土対策
(浸透率= 0%)

予測坑水量
(m³/日)

54.0 → 44.4

54.0 → 48.5

54.0 → 17.2

効果

約 82 %

約 90 %

約 32 %

3. 挙動と移行解析

(9) 坑水発生源対策の効果予測

物質 \ 対策		Case1	Case2	Case3
		全面覆土 (浸透率20%)	西側のみ覆土 (浸透率20%)	全面覆土 (浸透率 0%)
ウラン (U)	濃度	<u>103%</u>	96%	92%
	負荷量	84%	84%	36%
ラジウム (Ra)	濃度	98%	95%	75%
	負荷量	81%	85%	29%
溶解性鉄 (S-Fe)	濃度	<u>101%</u>	98%	<u>103%</u>
	負荷量	85%	89%	40%
ヒ素 (As)	濃度	68%	67%	44%
	負荷量	82%	86%	23%

4. まとめ

■ラジウムの挙動調査

- ・ No. 43' コア試料について実施した
- ・ Raは捨石と砂岩の境界、砂岩と風化花崗岩の境界の粘土鉱物に選択的にトラップされる分析結果を得た

■ラジウム、ウラン、溶解性鉄、ヒ素の挙動と移行解析

- ・ 初期濃度の設定に問題があるが、H25年露天採掘場内モニタリング地点の濃度分布を初期濃度として露天坑水濃度の再現解析（R=1）を実施した
- ・ 解析の結果、ラジウム、鉄、ヒ素濃度は露天坑水濃度の実測値より低く、ウラン濃度は実測より高い予想になった
- ・ 浸透流モデルや濃度発生源の見直しを行った結果、ラジウム濃度の再現が若干悪くなったが、以外の項目は実測値との誤差が小さくなり、おおよそ露天坑水の濃度を再現できた
- ・ 坑水発生源対策（覆土）の効果予測では、ウランと溶解性鉄の濃度が現状より高くなる場合があることが予測された。しかし、負荷量では浸透率20%の覆土で現在の約80～90%、浸透率0%の覆土で現在の約20%～40%へ低減する予測結果を得た

■今後の取組み

- ・ 露天採掘場跡地深部の花崗岩の水質モニタリング
- ・ Raの吸着機構の解明
- ・ Raの分配係数やRaの吸着特性を求める試験の実施
- ・ Ra挙動の基本原理を露天坑水の発生源対策や対策工法設計に反映
- ・ センター全域を含む広域のRaのバックグラウンドの評価や環境影響評価