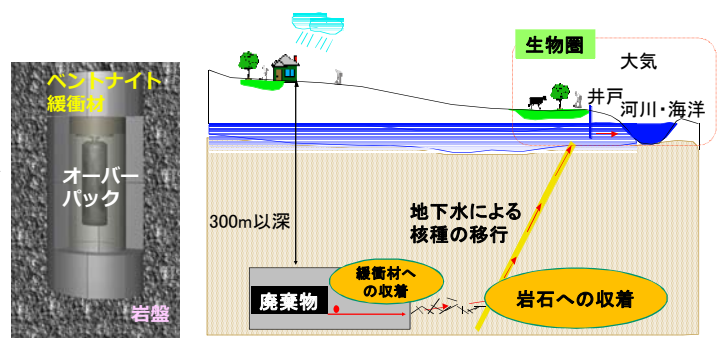


概要

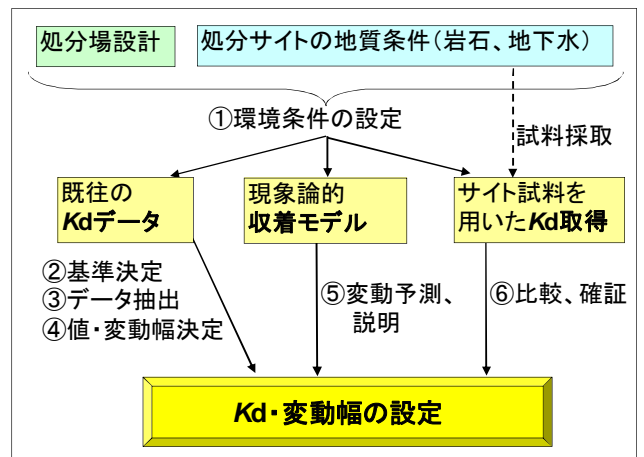
高レベル放射性廃棄物の地層処分は、使用済燃料を再処理した後に残る高レベル放射性廃液をガラス固化した後、オーバーパックという鉄の容器で密封し、その周辺をベントナイトという粘土鉱物を主成分とした緩衝材で覆い、300mより深い安定な岩盤中に埋設する方法です。高レベル放射性廃棄物の中には、長寿命の放射性核種が含まれているので、地層処分の安全性を評価する際には、長い期間のうちにはそれらが溶け出し、岩盤中を移行し、人間に被ばくを与える可能性を考慮します。放射性核種が岩盤中を地下水の流れによって移行する際には、緩衝材や岩石に吸着されることにより、その移行が遅延されることが期待されています。

地層処分の安全評価では、緩衝材や岩石中での放射性核種の吸着の程度を示す、**分配係数**というパラメータを定量的に示す必要があります。特に数千年以上の長期間を対象とした場合には、地質媒体や地下水組成の時間的・空間的な変遷を考慮して分配係数の変動を評価することが重要です。しかしながら、長期的な処分環境(岩石の鉱物組成・物理形状、地下水組成等)の変動に対し、全ての核種を対象として網羅的に分配係数データを取得・整備することは非常に困難です。そのため本研究では、これまで様々な環境条件で取得された既往の分配係数データに加え、現象論的吸着モデル計算および処分サイト試料を用いて取得された分配係数データを複合的に考慮することにより、安全評価に用いる分配係数値および変動幅を設定する考え方を整理しました。



分配係数の設定手順

- ① 処分場設計や処分サイトの地質条件を踏まえ、**環境条件**を設定。
- ② 分配係数(Kd)データの取得方法・品質確認の**基準**(例えば学会標準等)を決定。
- ③ 想定される環境条件の範囲で取得された既往のKdデータの中から、②の基準を満たす**データを抽出**し、その**分布**を把握。
- ④ Kdデータの分布に応じて、基本的なシナリオおよび環境変動に対応する**確からしい値と変動幅**を決定。
- ⑤ Kdの変動に対し、現象論(イオン交換、表面錯形成)的に説明可能なものについては、**現象論的説明**を付与。
- ⑥ サイト試料を用いて②の基準に従い取得したKdデータと③の分布を比較し、含まれていれば④で設定した確からしい値を**Kdとして設定**し、外れていれば原因を解明して**保守的な値**を設定。



分配係数の設定の例

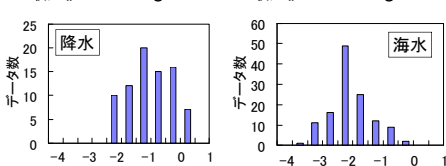
上記手順に従い、安全評価上の重要核種であるCsの分配係数および変動幅を設定(対象:花崗岩、降水系地下水および海水系地下水)。

既往のKdデータからの評価

- ・pH範囲を5~10(一般の地下水条件)と設定し、データを抽出。
- ・純水および塩濃度1M以上で取得されたデータを除外。
- ・Cs濃度が 1×10^{-9} M以下および0.001M以上のデータを除外。

降水系データ(<0.1M): 80件
対数平均値: 0.1 m³/kg
最頻値: 0.03~0.1 m³/kg
最小値: 0.004 m³/kg
最大値: 1.5 m³/kg

海水系データ(>0.1M): 125件
対数平均値: 0.009 m³/kg
最頻値: 0.003~0.01 m³/kg
最小値: 0.0003 m³/kg
最大値: 0.48 m³/kg



海水系データは降水系データに比べ約1桁低い値。

現象論的吸着モデルからの評価

- ・花崗岩において、Csを支配的に吸着する鉱物は黒雲母。
- ・黒雲母に対するKdおよび花崗岩中黒雲母含有率から、花崗岩に対するKdを算出。

$$Kd(\text{花崗岩}) = Kd(\text{黒雲母}) \times [\text{花崗岩中黒雲母含有率}]$$

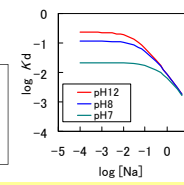
- ・黒雲母に対するCsのKdは、Sasaki*のモデルから算出。

$$Kd = \frac{n_s K_s}{[H^+] + K_1[H^+] + K_2[H^+] + K_3[Na^+]} + K_4 \frac{V}{W(Kd+V)} [Cs^+]$$

K_s: K_s: 表面水陰基の解離定数
K₁, K₂: 表面水陰基とCs⁺, Na⁺の反応定数
n_s: サイト数, W: 固相重量, V: 液相体積

・pH8以下ではKdは大きく変動するものの、pH8以上ではほとんど変化しない。また、pH8以上では、Na濃度が0.1M以下の領域でKdはほぼ一定値(0.1 m³/kg)をとり、0.5M程度の塩水環境では1桁低い値(0.01 m³/kg)。この結果は、既往のKdデータと整合。

*: Sasaki et al. (2007) J. Nucl. Sci. Technol. 44(4), 641-648.

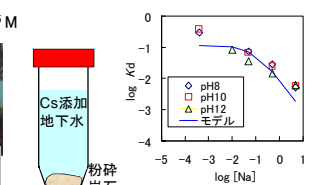


模擬サイト試料を用いたKd取得

- ・地下深部での還元環境ができるだけ維持されるように採取した岩石(花崗閃緑岩)および地下水試料を使用。
- ・パッチ式吸着実験を実施(固液比: 0.5g/5ml)。
- ・塩濃度: 天然地下水(4 × 10⁻⁴M)、0.05M、0.5M、5M(NaCl)
- ・pH: 8, 10, 12
- ・Cs濃度: 5 × 10⁻⁵ M



Ar発泡水を用いた清水撈りにより岩石・地下水試料を採取



- ・Kdに与えるpHの影響は見られない。
- ・得られたKdは、既往のKdデータの分布の範囲内。
- ・実験値はモデル計算値(黒雲母含有率10%、pH8)とほぼ整合。

(1) 降水系地下水環境

既往のKdデータの最頻値、モデル計算値、模擬サイト試料を用いた実測値はほぼ整合。
Kdを0.05 m³/kgと設定。変動幅として、既往データの最小値(0.004 m³/kg)および最大値(1.5 m³/kg)を設定。

(2) 海水系地下水環境

既往のKdデータの最頻値、モデル計算値、模擬サイト試料を用いた実測値はほぼ整合。
Kdを0.005 m³/kgと設定。変動幅として、既往データの最小値(0.0003 m³/kg)および最大値(0.48 m³/kg)を設定。

	Kd (m ³ /kg)	
	降水系	海水系
既往のKdデータ	対数平均値	0.1
	最頻値	0.03~0.1
	最小値	0.004
	最大値	1.5
吸着モデル計算値	0.05	0.008
地層試料を用いて取得したKdデータ	0.1~0.3	0.02~0.03
設定値	0.05	0.005
変動幅	0.004 ~1.5	0.0003 ~0.48

地層処分安全評価における分配係数の設定の考え方

日本原子力研究開発機構 安全研究センター廃棄物安全研究グループ

1. 緒言

地層処分の安全評価では、緩衝材や岩石中での放射性核種の収着の程度を示す、分配係数 (K_d) というパラメータを定量的に示す必要がある。特に数千年以上の長期間を対象とした場合には、地質媒体や地下水組成の時間的・空間的な変遷を考慮して K_d の変動を評価することが重要である。しかしながら、長期的な処分環境の変動に対し、全ての核種を対象として網羅的に K_d データを取得・整備することは非常に困難である。そのため本研究では、これまで様々な環境条件で取得された既往の K_d データに加え、現象論的収着モデル計算および処分サイト試料を用いて取得された K_d データを複合的に考慮することにより、安全評価に用いる K_d 値および変動幅を設定する考え方を整理した。

2. 分配係数の設定手順

- ①処分場設計や処分サイトの地質条件を踏まえ、環境条件を設定。
- ② K_d データの取得方法・品質確認の基準 (例えば学会標準等) を決定。
- ③想定される環境条件の範囲で取得された既往の K_d データの中から、②の基準を満たすデータを抽出し、その分布を把握。
- ④ K_d データの分布に応じて、基本的なシナリオおよび環境変動に対応する確からしい値と変動幅を決定。
- ⑤ K_d の変動に対し、現象論 (イオン交換、表面錯形成) 的に説明可能なものについては、現象論的説明を付与。
- ⑥サイト試料を用いて②の基準に従い取得した K_d データと③の分布を比較し、含まれていれば④で設定した確からしい値を K_d として設定し、外れていれば原因を解明して保守的な値を設定。

3. 具体的な分配係数設定の例

K_d 設定の例として、花崗岩に対する Cs の K_d を設定した。既往の K_d データのうち、pH 範囲が 5~10 (一般の地下水条件) のデータを抽出した。抽出したデータのうち、純水および塩濃度 1M 以上で取得されたデータ、Cs 濃度が 1×10^{-8} M 以下および 0.001M 以上のデータを除外した。データ全体の分布から塩濃度依存性が顕著であることを確認し、塩濃度 0.1M 未満で取得されたデータを降水系データ、0.1M 以上で取得されたデータを海水系データとし、対数平均値、最頻値、最小値および最大値を決定した。現象論的収着モデルによる検討では、花崗岩において Cs を支配的に収着する鉱物は黒雲母であることが分かっていることから、黒雲母に対する K_d および花崗岩の黒雲母含有率を用いて花崗岩に対する K_d を算出した。黒雲母への収着モデルは、Sasaki ら (2007)^{*1} のモデルを使用した。モデルによる計算結果は、既往の K_d データからの推定結果と一致することを確認した。また、模擬サイト試料として、地下の環境を極力損なわずに採取した地層試料を用い、原子力学会で定めた K_d 取得の標準的手法を用いて花崗閃緑岩に対する Cs の K_d を取得した。得られた K_d は既往の K_d データの分布の範囲内であり、モデル計算値とも良い整合を見せた。

以上から、花崗岩に対する Cs の K_d を設定した。降水系条件では、 K_d を $0.05 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$ 、変動幅を最小値 ($0.004 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$) および最大値 ($1.5 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$) と設定した。一方、海水系条件では、 K_d を $0.005 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$ 、変動幅を、最小値 ($0.0003 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$) および最大値 ($0.48 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$) と設定した。

*1 : Sasaki et al. (2007) J. Nucl. Sci. Technol., 44[4], 641-648

※本研究は原子力規制委員会原子力規制庁からの受託研究「平成 23 年度地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備」として実施した。