

長半減期低発熱放射性廃棄物(TRU 廃棄物)の地層処分研究開発について 報告概要

1. 表題

長半減期低発熱放射性廃棄物処分研究の方針と計画

2. 審議事項

標記課題の研究に対するニーズを踏まえた研究テーマの選択および取り組みのアプローチ、成果の反映の見通しについて審議いただきたい。

3. 外部情勢・研究のニーズ

TRU-2 の公開を踏まえ、原子力委員長半減期低発熱放射性廃棄物処分技術検討会において、「合理化」としての“高レベル廃棄物との併置処分”に係る検討が進められ、その報告書においてその技術的成立性があるものと判断されました。

現在、その原子力委員会での結論を踏まえ、総合資源エネルギー調査会電気事業分科会原子力部会放射性廃棄物小委員会において長半減期低発熱放射性廃棄物の処分事業形態等について制度化に関する審議が行われています。

JAEA としては、制度化対応に向けての多方面の検討事項に応えられるように技術的エビデンスを整備し協力していくことが求められています。

4. 対象研究項目とアプローチ

(1) 多様な地質環境に適用できる長半減期低発熱放射性廃棄物処分の安全性検証のための研究と、(2) 長半減期低発熱放射性廃棄物と HLW との併置処分を念頭において、相互影響に関する信頼性の高い研究がとくに重要。TRU-2 では併置処分の技術的可能性の例が示された段階であるが、今後は実際の地質環境における現象の理解等にもとづいた合理化を指向します。このため、HLW の処分研究と一層の連携体制を組んで以下のテーマに取り組みます。

(1)多様な地質環境に適用可能な処分の安全性の検証

・セメント(高pH溶液)の緩衝材への影響

岩盤の透水性が高い場合に緩衝材のバリア機能が長期に確保できること、とくに I-129 に関して拡散場が確保できることがきわめて重要。本件は HLW と共通なテーマ。

・天然バリアの知見拡充と評価モデルへの反映

評価上有効性の大きい天然バリア機能評価の精緻化研究。本研究は HLW と共通。

・地質環境の多様性に対応できる基本データの拡充

地質環境の多様性（塩水環境、堆積岩環境）に対応でき、かつ長半減期低発熱放射性廃棄物に特徴的な高 pH、有機物等の影響に関わる地球化学、核種移行評価、生物圏評価に関する基本データの拡充。なお、データベース化は HLW と連携し、常に更新されます。

(2)併置処分における廃棄物相互の影響

TRU-2 では、HLW と TRU 廃棄物の相互の影響がないように配置することで、併置処分が可能という考え方をとっています。当面この考え方を踏襲しつつ以下の課題が挙げられます。なお、今後の知見の蓄積等により、相互影響と処分の成立性の関係がより定量的に明らかになっていくものと考えられます。今後このような視点は、より合理性のある処分場配置にとって重要なこととなります。

・硝酸塩の影響

HLW 処分への酸化環境の波及の可能性について検討が必要です。仮に HLW 処分場が酸化的環境になった場合には、セレン、アクチニド等の溶解度上昇により、HLW に由来する線量が増大するものと考えられます。このような観点から、地下深部環境での硝酸イオンの挙動を高い信頼性を持って把握することが重要（現在の評価では NO_3^- と仮定）。一方、硝酸系環境での核種移行データの蓄積も重要です。

・硝酸塩に関する代替技術

民間再処理が硝酸塩分解を選択した場合は、硝酸塩含有廃棄物処分は JAEA 固有の課題となる可能性もあります。LWTF の濃縮廃液と JNC から発生した既存のアスファルト固化体につき、脱硝技術を有しておくことは重要です。

5 . 成果の反映の見通し

上記成果については、原子力委員会の長半減期低発熱放射性廃棄物処分技術検討会報告書の主旨も踏まえつつ、予定されている精密調査地区選定期を一応の目安として、平成 22 年ころを目処に関係機関と協力して取りまとめ報告書として出版すべきと考えます。そのなかには処分の一層の合理化に向けた検討の進捗も含めることとします。それは、長半減期低発熱放射性廃棄物と HLW とを包含する地層処分相当廃棄物に対するより適切な処分方法、その段階におけるセーフティケースを提示するものと考えます。

このまとめ方についての留意点、ご意見などを伺い、今後の計画実施に反映するものいたします。

以上

地層処分研究開発検討委員会 (7月25日)

長半減期低発熱放射性廃棄物 処分研究の方針と計画

平成18年7月

日本原子力研究開発機構
地層処分研究開発部門
地層処分基盤研究開発ユニット
TRU廃棄物処分研究グループ
亀井玄人、本田明、三原守弘

第2次TRUレポート段階までの整理

経緯

廃棄物発生者(*旧核燃料サイクル開発機構/電気事業者)による技術検討

平成12年3月

「TRU廃棄物処分概念検討書」
(略称: **第1次TRUレポート**)



国(原子力委員会)による確認

平成12年3月

「超ウラン核種を含む放射性廃棄物処理処分の**基本的考え方**について」

- ・処分の実現性、安全性確保が可能であることを確認
- ・今後の課題は「**詳細化**」「**合理化**」と認識

廃棄物発生者による
課題検討実施

詳細化

合理化

→
**HLWの知
見反映**

- ・廃棄体データ：整備充実
- ・施設設計：詳細化等
- ・性能評価：試験データの取得、
特有事象の把握とモデル構築
など

- ・高レベル放射性廃棄物
との併置処分
- ・海外からの返還方法

(地層処分が想定される長半減期低発
熱放射性廃棄物)

原子力政策大綱(平成17年10月)

高レベル放射性廃棄物と併置処分することが
できれば経済性
が向上することが見込まれる。

平成17年9月(公表)

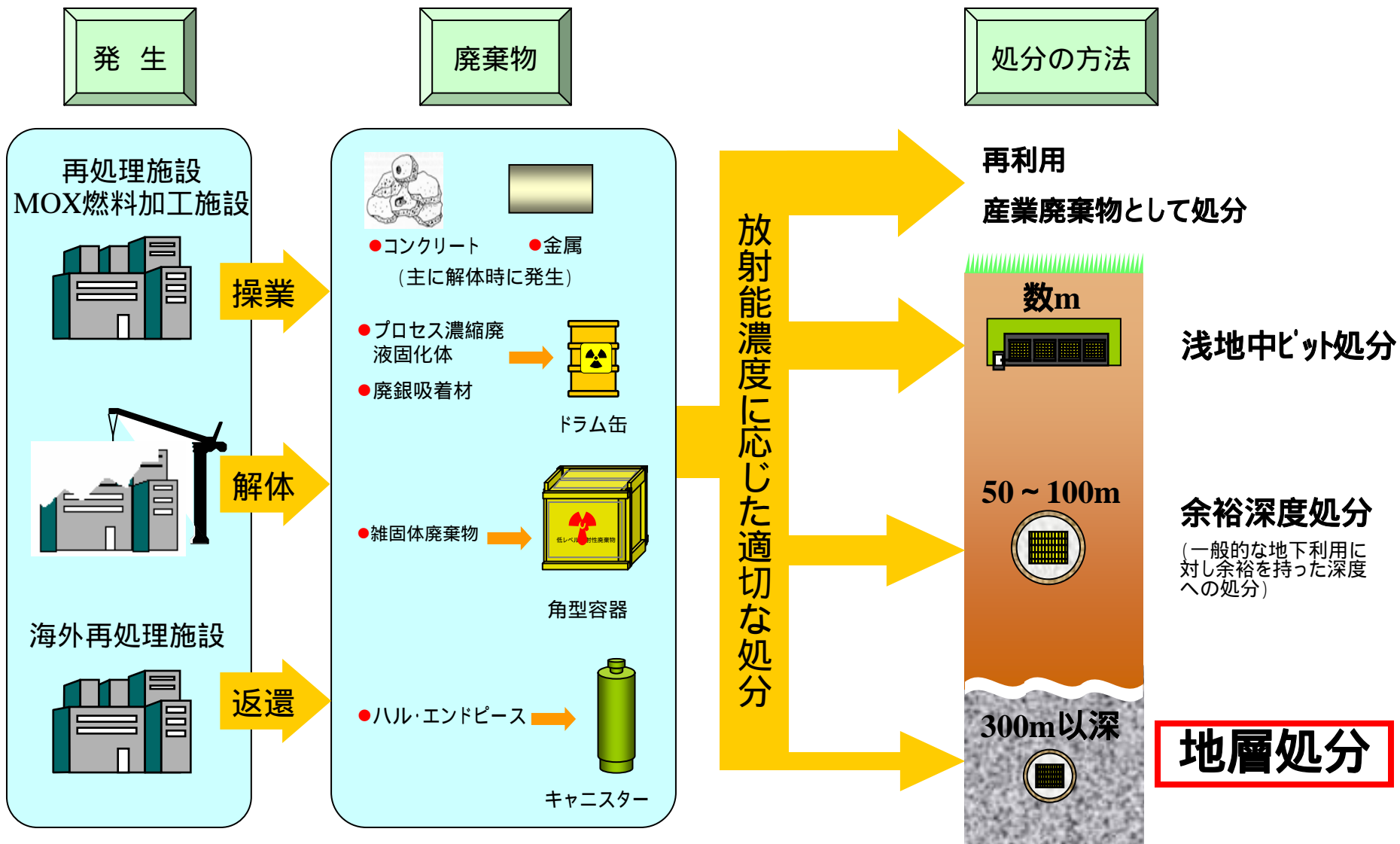
旧核燃料サイクル開発機構/電気事業者 TRU廃棄物処分技術検討書
(略称: **第2次TRUレポート**)

**詳細化,合理化を反映した処分の技術的成立性があり、
安全性が確保可能**

原子力委員会(平成17年11月
~平成18年4月)

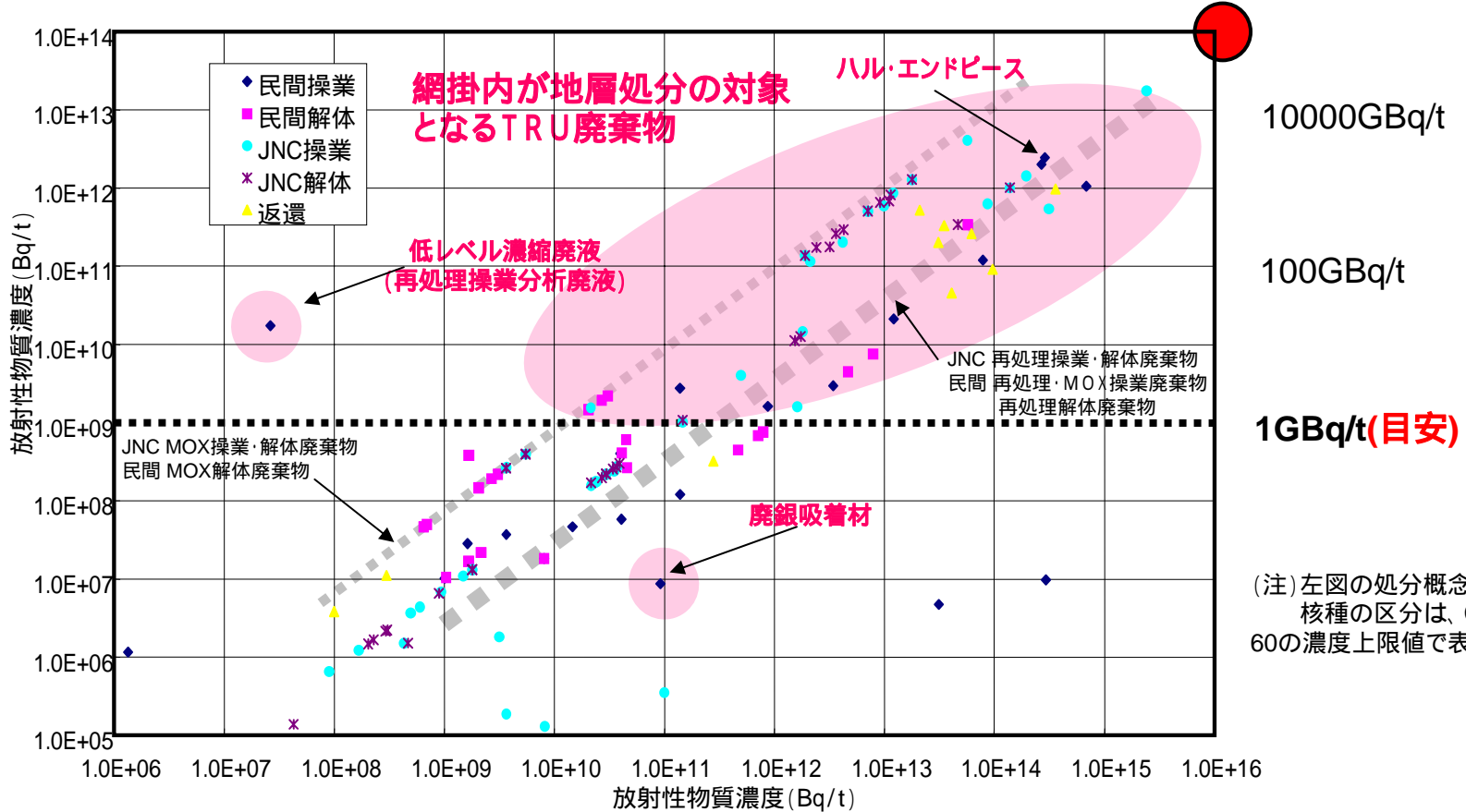
- ・高レベル放射性廃棄物との併置処分、
- ・海外からの返還廃棄物の返還方法の変更
の技術的成立性が了承された。

長半減期低発熱放射性廃棄物の処分の方法



長半減期低発熱放射性廃棄物の放射性物質濃度

高レベル放射性廃棄物



	単位	高レベル放射性廃棄物	地層処分対象のTRU廃棄物
放射性物質濃度	Bq/t	:約1.0E+16, :約1.0E+14 ^{*1}	:1.7E+14, :4.0E+11 ^{*3}
総放射性物質質量	Bq	:約2.0E+20, :約2.0E+18 ^{*2}	:1.7E+19, :3.9E+16
発熱量	W/本	2,300 ^{*1}	61 (JNFLハル・エンドピース)

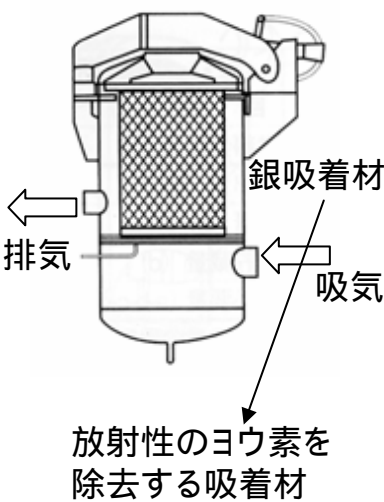
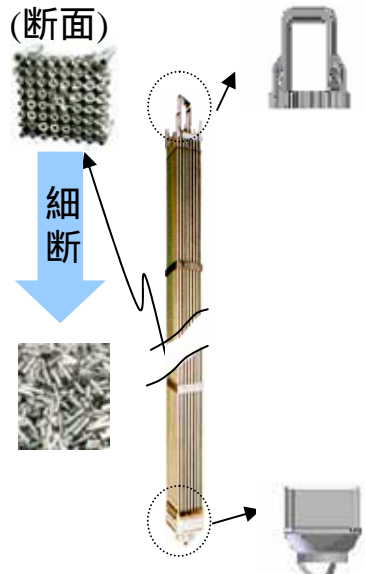
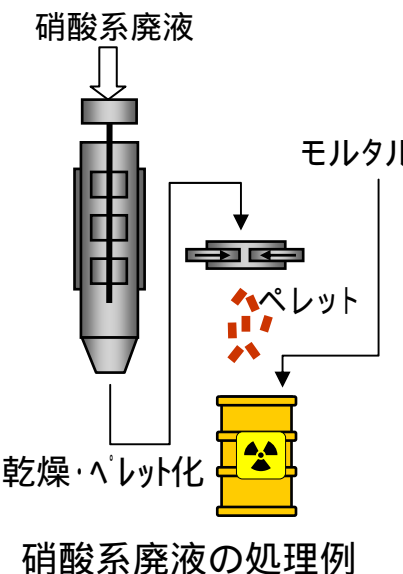





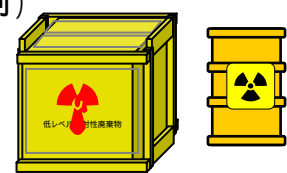
* 1 : (財)原子力環境整備促進・資金管理センター 放射性廃棄物ハンドブック(平成17年度版)より

* 2 : 放射性物質濃度から、ガラス固化体重量:約500kg/本、発生量:40,000本として算出

* 3 : 総放射生物質量を地層処分対象廃棄体の総重量:約98,000tonで除して算出

第2次TRUレポートより

地層処分対象のグループ分け

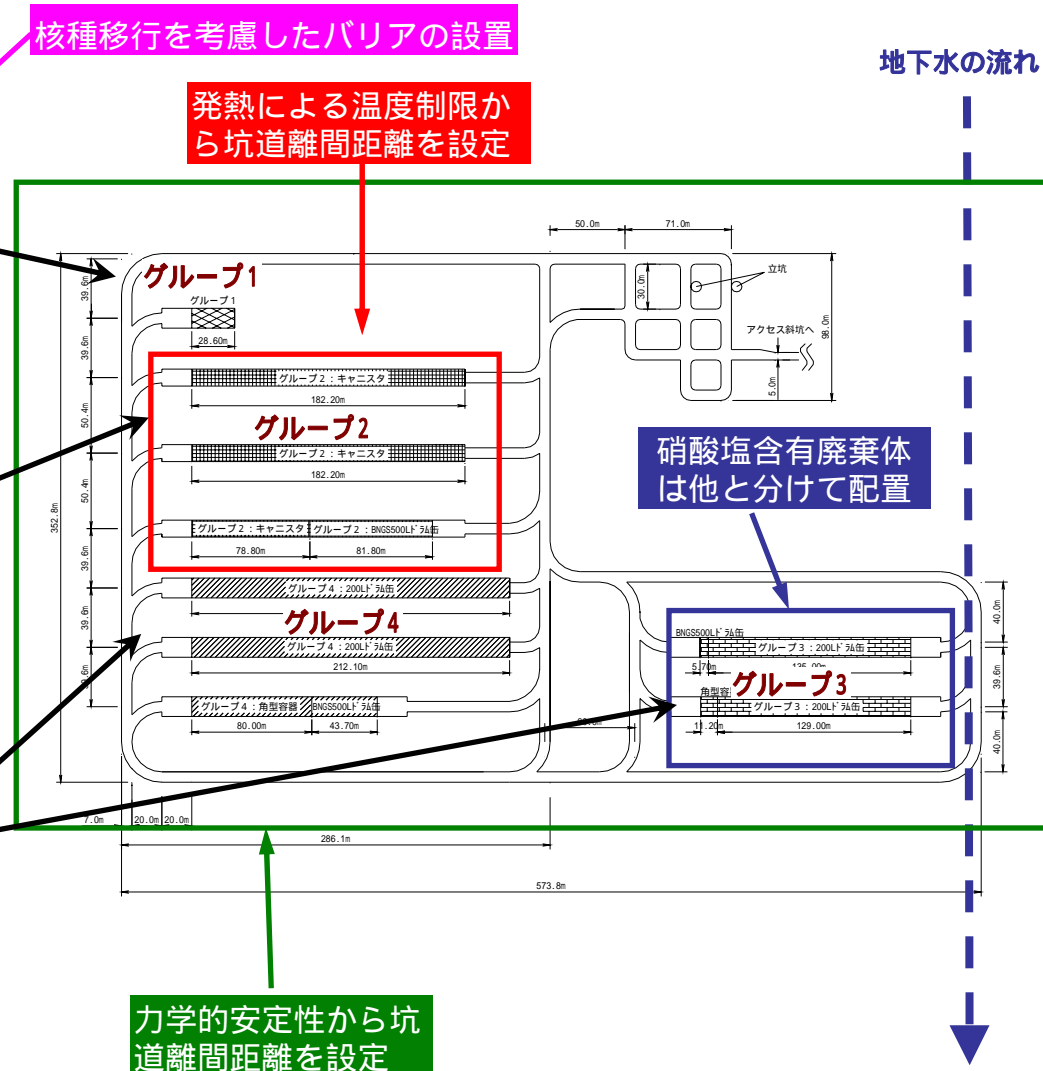
	グループ1	グループ2	グループ3	グループ4
概要	<p>廃銀吸着材</p>  <p>放射性のヨウ素を除去する吸着材</p>	<p>ハル エンドピース</p> <p>(断面)</p>  <p>細断</p>	<p>濃縮廃液等</p> <p>硝酸系廃液</p>  <p>乾燥・ペレット化</p> <p>モルタル</p> <p>ペレット</p> <p>硝酸系廃液の処理例</p>	<p>難燃性廃棄物</p>  <p>ゴム手袋</p> <p>不燃性廃棄物</p>  <p>工具 金属配管</p>
廃棄体イメージ	<p>(例)</p> 	<p>(例)</p> 	<p>(例)</p> 	<p>(例)</p> 
特徴	<ul style="list-style-type: none"> ・I-129を含む 	<ul style="list-style-type: none"> ・発熱量が比較的大 ・C-14を含む 	<ul style="list-style-type: none"> ・硝酸塩を含む 	-

処分施設設計の例

【各坑道断面レイアウトの例】

グループ	内容 (発生量)	特性	バリア	円形処分坑道の例 (単位：m)
1	廃銀吸着材のセメント固化体 (300m ³)	半減期が長く地下水と共に移行しやすい核種(I-129)を含む	止水性能の高いバリア(緩衝材)を設置する	
2	ハル・エンドピース圧縮収納体 (6,700m ³)	発熱がある半減期が長く地下水と共に移行しやすい核種(C-14)を含む	止水性能の高いバリア(緩衝材)を設置する	
3	アスファルト固化体等の濃縮廃液固化体 (6,200m ³)	硝酸塩を含む	止水性能の高いバリア(緩衝材)は設置しない	
4	焼却灰、不燃物セメント固化体等 (13,400m ³)	-	止水性能の高いバリア(緩衝材)は設置しない	

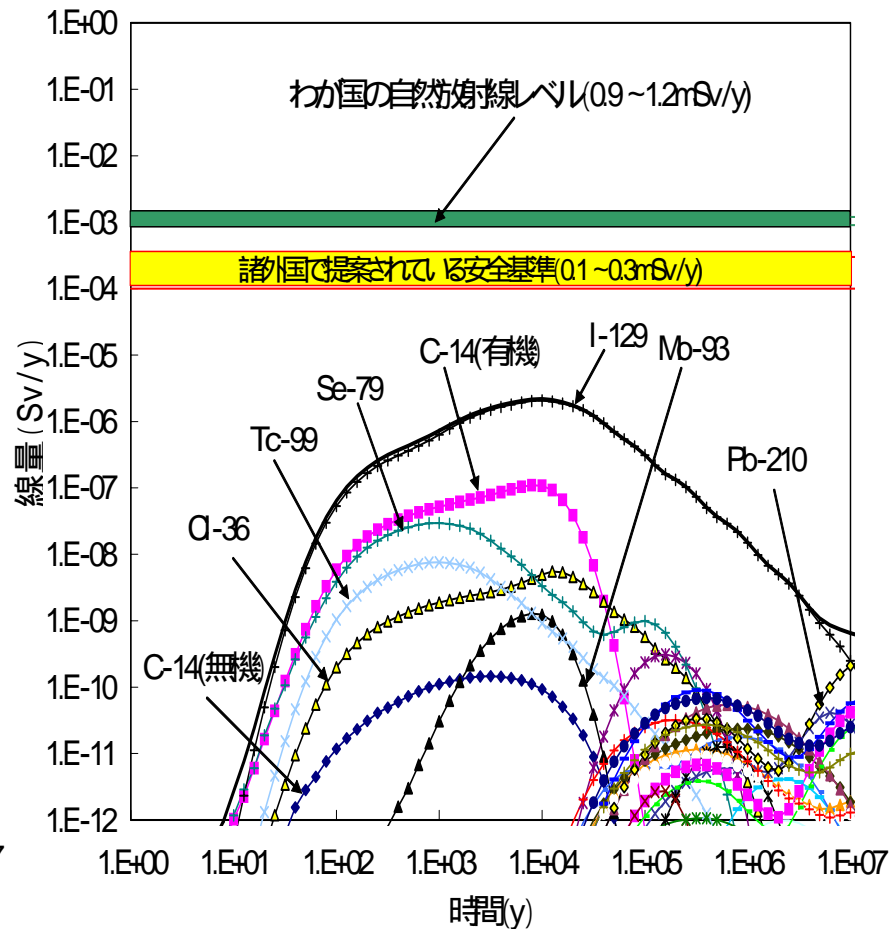
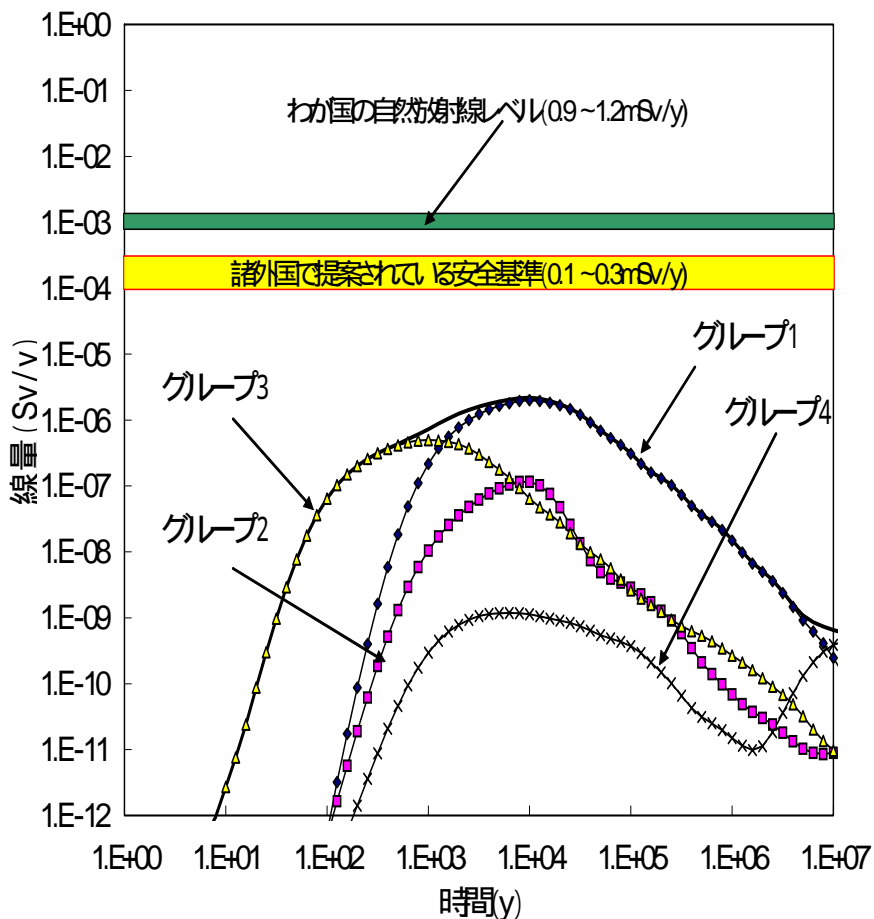
【処分場平面レイアウトの例】



わが国の地質環境として一般的と考えられる条件での解析結果

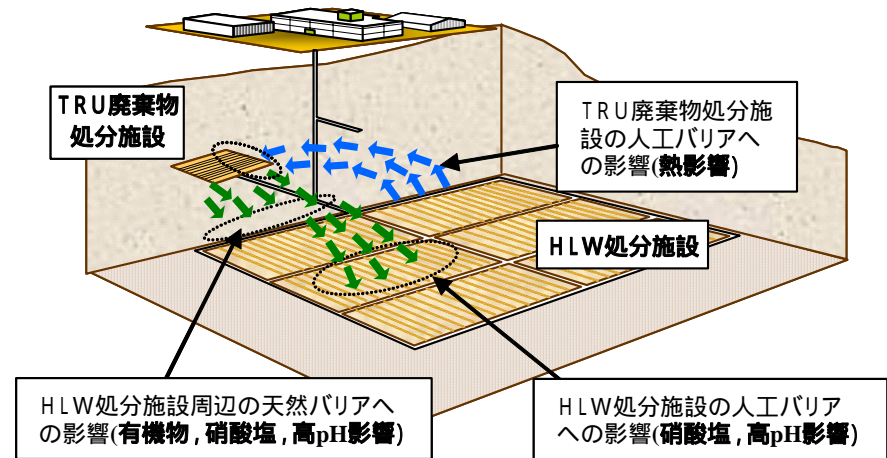
諸外国で提案されている安全基準(0.1 ~ 0.3mSv/y)を十分下回る。ちなみに、最大線量は約10,000年で、約0.002mSv/y

主要核種は、グループ1のI-129、次はグループ2の有機形態のC-14



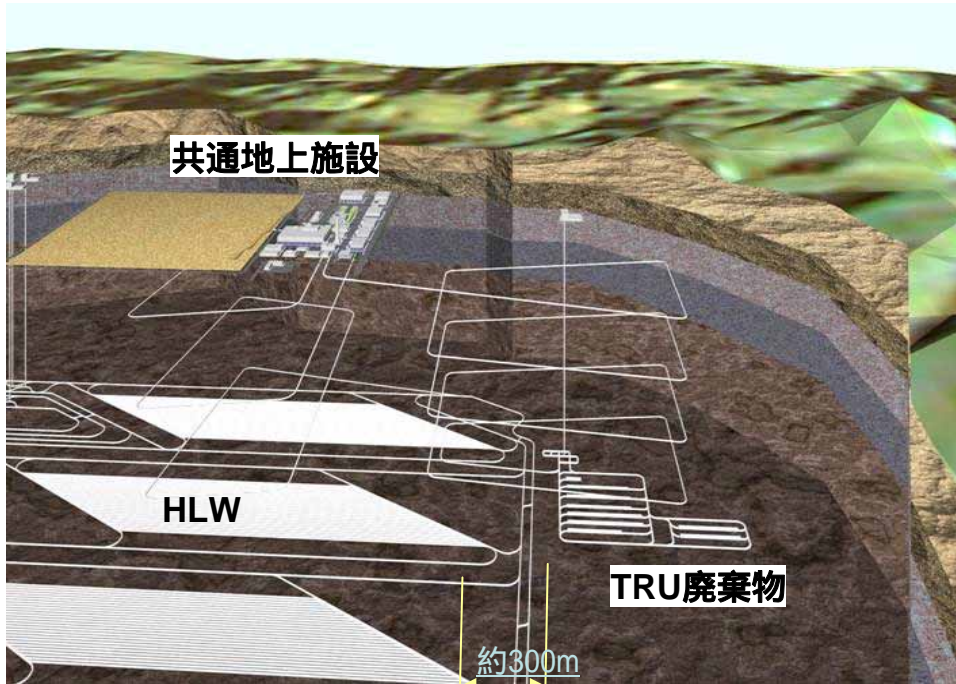
併置処分の基本的考え方

- 廃棄物処分場間の相互影響について検討
- 各々の影響が小さくなるように処分施設のレイアウトを検討
 - 各々の廃棄物の処分が影響を及ぼす因子として以下の影響を評価
 - 熱
 - 有機物
 - 硝酸塩
 - 高pH溶液



* 長半減期低発熱放射性廃棄物をTRU廃棄物と表記

併置処分の概念例と相互影響評価結果



* 長半減期低発熱放射性廃棄物をTRU廃棄物と表記

相互影響因子	影響	離間距離の目安
熱 (高レベル放射性廃棄物 TRU廃棄物)	セメントの吸着性低下	約50m
有機物 (TRU廃棄物 高レベル放射性廃棄物)	溶解度上昇 吸着分配係数低下	約20m
硝酸塩 (TRU廃棄物 高レベル放射性廃棄物)	吸着分配係数低下 金属腐食	約300m
高pH (TRU廃棄物 高レベル放射性廃棄物)	ベントナイト変質 金属腐食 ガラスの溶解	約30m

施設間の離間距離として数100mを確保することにより、相互影響をほぼ回避することができるという見通し。ただし、今回の相互影響に関する解析は保守的な仮定も多く、かつ、亀裂性母岩に対する不確実性もあることから、今後は具体的な地質環境条件においてより詳細な解析を実施する必要がある。

今後の方針と計画

原子力政策大綱

国は、事業者による地層処分が想定されるTRU廃棄物と高レベル放射性廃棄物を併置処分する場合の相互影響等の評価結果を踏まえ、その妥当性を検討し、その判断を踏まえて、実施主体のあり方や国の関与等も含めてその実施に必要な措置について検討を行うべきである。

原子力委員会

長半減期低発熱放射性廃棄物処分技術検討会

1. 議論のポイント

事業者による評価結果の妥当性評価

相互影響因子の絞込み方法及び現時点において評価すべき因子の妥当性
評価モデル、解析条件、使用パラメータ及び解析結果の妥当性
処分レイアウト等の妥当性

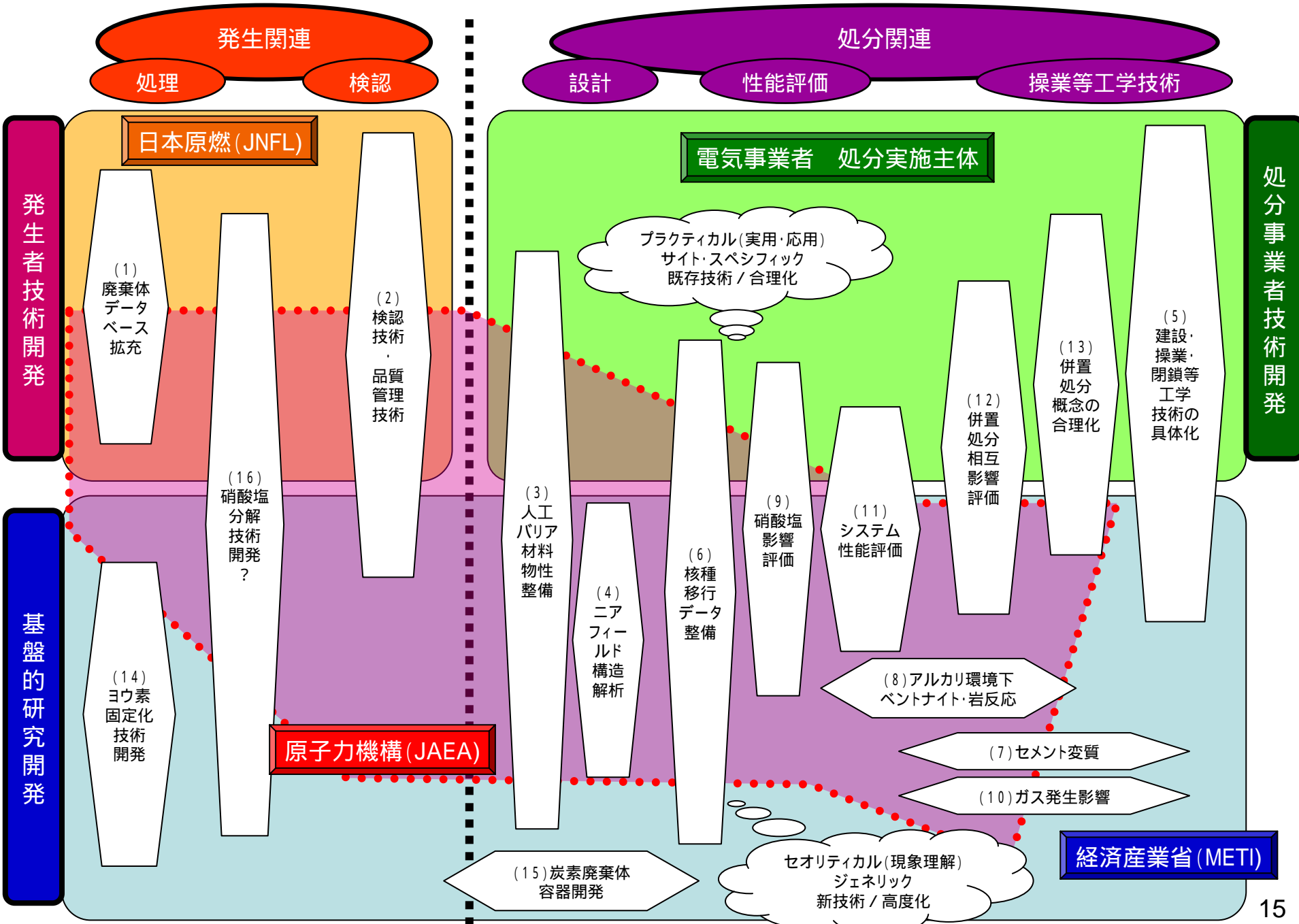
2. 結論

…両処分施設に関する相互影響をそれぞれ回避することを前提とし、離間距離を確保することにより、併置処分が技術的に成立することを確認した。

今後は処分サイト選定プロセスの進展に合わせて、より詳細な解析を行うとともに、併置処分システム概念の最適化に関する検討が必要である。なお、今後は相互影響は完全に回避するのではなく、その許容範囲等についても検討し、合理化に関する検討も必要である。

状況（2006年7月現在）

- **原子力委員会**
 - 高レベル放射性廃棄物との併置処分等の技術的成立性を定例会（平成18年4月18日）にて了承
- **資源エネルギー庁**
 - 長半減期低発熱放射性廃棄物処分の制度化への準備
 - 研究開発の効率的な推進のための役割分担の検討（地層処分基盤研究調整会議、全体マップの作成）
- **原子力安全・保安院**
 - 規制に向けた準備



当面の重点課題

(地層処分研究開発調整会議での検討)

1. 併置処分の評価に係る信頼性向上

- 硝酸塩等の影響に係る現象理解とデータ・評価モデルの信頼性向上
- 性能評価技術の体系化・高度化(処分場スケールでの相互影響評価考慮など)

2. ジェネリックな評価基盤の拡充 (HLW評価基盤との平仄)

- 塩水環境下でのデータやモデルの整備など, 多様な地質環境を対象とした評価基盤の拡充
- 高アルカリ環境での人工バリア等の長期健全性に関するデータ拡充と評価モデルの信頼性向上

3. 幅広い地質環境に柔軟に対応するための代替技術開発

- ヨウ素固定化・浸出抑制技術の実現性の提示
- C-14の放出・移行評価の信頼性向上と閉じ込め容器の開発
- 硝酸塩影響の不確実性低減のための硝酸塩分解技術

重点安全研究計画

高 廃棄物、TRU廃棄物、ウラン廃棄物の処理処分

低レベル放射性廃棄物の処分に関する研究

- ・TRU廃棄物及びウラン廃棄物の処分について、評価シナリオの設定、固体化・人工バリア・天然バリアの機能評価等を含めた安全評価手法を開発・整備する。また、処分方法ごとの濃度上限値設定に必要な解析を行う。(以下、略)

放射性廃棄物処分の長期的評価手法の調査

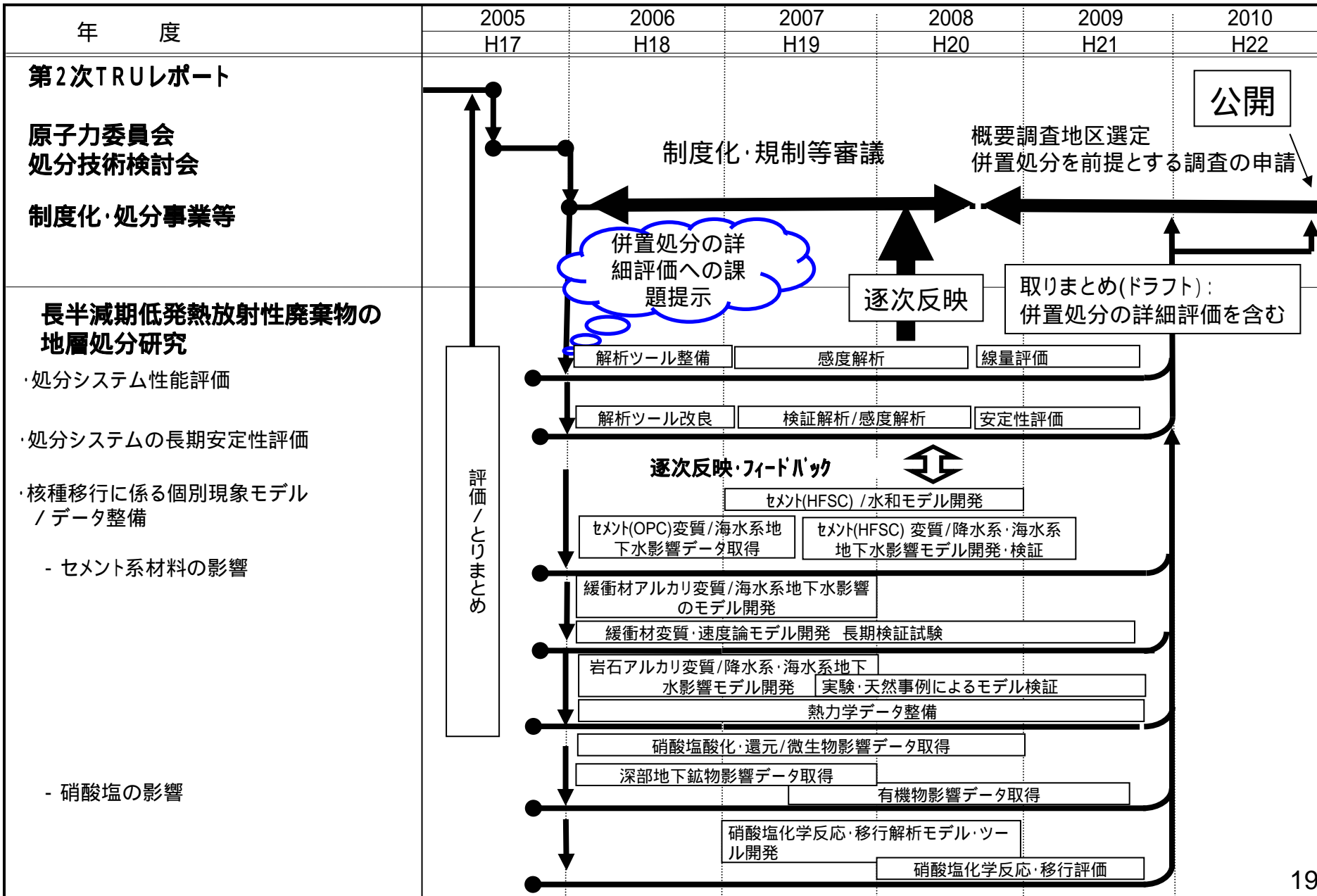
- ・高レベル放射性廃棄物及びTRU廃棄物等を対象に、長寿命核種を含む放射性廃棄物の地層処分等に関して、**長期的安全評価手法を開発し、処分にともなう環境影響の不確かさを定量的に明らかにし、地層処分等の安全性の確認及び安全基準等の策定に資する。**

以上を踏まえて・・・


JAEAの今後の取り組み

1. **多様な地質環境**に適用できる**長半減期低発熱放射性廃棄物処分の安全性検証のための研究**；セメントや、**アルカリ性環境**での**緩衝材**、**岩盤**の長期挙動、**海水系地下水環境**でのデータ拡充など
2. **併置処分**における**処分場間の相互影響に関する信頼性向上のための研究**；**硝酸影響**に関するさらなる現象解明など（地下深部環境を考慮したデータ取得・確証）
3. **安全評価技術の高度化**
4. **不確実性低減のための研究**；**硝酸分解技術**など（代替技術）

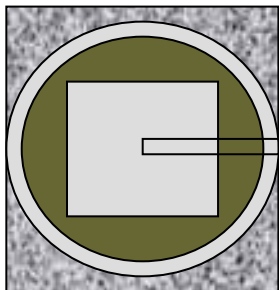
長半減期低発熱放射性廃棄物処分事業スケジュールにおけるJAEAの処分研究開発



バリアシステム（セメント-緩衝材-岩盤） の長期挙動に関する研究計画



第2次TRUレポートにおける人工バリアの長期挙動評価



処分坑道断面



1次元体系での化学反応-物質輸送解析 (化学反応に伴う物質輸送パラメータ変化を考慮)

仮定及び評価上の取扱

- 希薄溶液理論が適用できる。
- 地下水は降水系 (FRHP)
- セメント以外の廃棄体由来成分は無視
- スメクタイト及び2次鉱物の多くのTDBは計算値を使用
- セメンテーション臨界スメクタイト残存率を変質ベントナイトの膨潤力試験より70%と設定

セメント系材料の拡散係数・分配係数 間隙率の関数

緩衝材の拡散係数 スメクタイトゲル密度の関数

緩衝材の透水係数 スメクタイトゲル密度・当量イオン濃度・層間陽イオンのNa割合の関数

・スメクタイト溶解反応速度; Sato-Cama type equation

$$Rate = \left(4.74 \cdot 10^{-6} \cdot e^{-39.57/RT} \cdot \frac{177 \cdot e^{20.37/RT} \cdot a_{OH}}{1 + 177 \cdot e^{20.37/RT} \cdot a_{OH}} + 1.70 \cdot e^{-69.67/RT} \cdot \frac{0.0297 \cdot e^{23.53/RT} \cdot a_{OH}}{1 + 0.0297 \cdot e^{23.53/RT} \cdot a_{OH}} \right) \cdot A_{min} \cdot \{1 - \exp(-610^{10} \cdot (2 \cdot \Delta Gr/RT)^6)\}$$

・他の溶解・沈殿反応;

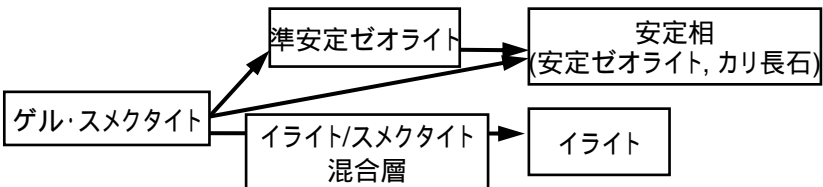
スメクタイト溶解反応以外は瞬時平衡(反応速度)の場合及び当該反応を反応モデルから除いた場合(反応速度0)の両方の評価を行うことで反応速度の不確実性をbound

変質に伴うスメクタイトゲル密度変化により力学的変位の物質輸送パラメータへの影響

力学的変位なしケース及びスメクタイトゲル密度均一化ケースの解析で不確実性をbound

スメクタイトのアルカリ変質シナリオ

アルカリ変質に伴う鉱物変遷の不確実性をbound

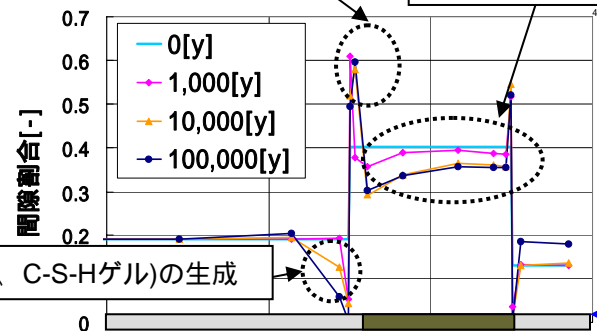


解析結果の1例

カルセドニとスメクタイトの溶解

ゼオライトの生成

大半のケースで遷移層間隙充填による物質輸送抑制により変質が抑制される。









遷移層(カルサイト、C-S-Hゲル)の生成

◆ 研究開発の目標，概要

- I. 研究目標: 多様なセメント-多様な化学物質(地下水及び廃棄体等処分施設由来)との反応による化学的変質現象の解明とモデルへの反映・高度化
 - 1) OPCの海水系地下水によるMg影響やFriedel氏塩生成時のpH上昇に関する詳細検討
 - 2) JAEAの低アルカリ性セメント(以下HFSC)の水和反応過程の詳細な検討
 - 3) セメント系材料(OPC, HFSC)と地下水, 廃棄体由来の化学物質(海水影響や硝酸, 硫酸, リン酸, 炭酸等)による化学的変質影響評価(Ex. OPC-海水系地下水の詳細検討, HFSCの化学的変質評価)
 - 4) 評価に必要なTDBや反応速度データの整備, 高イオン強度下, 固相影響下での活量補正法の反映, 実際の地質環境に即した化学的変質現象の検討によるモデルの検証・高度化の実施
 - 5) 地球化学-物質輸送モデルへの反映については緩衝材部分で記述

関係機関との分担により「ひび割れ影響」についてはJAEAでは実施しない。

◆研究項目及びスケジュール(案)

	H18	H19	H20	H21	H22	H23
<p>.1)</p> <p>OPCの海水系地下水によるMg影響やFriedel氏塩生成時のpH上昇に関する詳細検討</p>	<p>実験による詳細な検討</p> 					
<p>.2)</p> <p>HFSCの水和反応過程の詳細な検討</p>	<p>HFSC水和反応の詳細な検討</p> 					
<p>.3)</p> <p>セメント系材料（OPC，HFSC）と地下水，廃棄体由来の化学物質（海水影響や硝酸，硫酸，リン酸，炭酸等）による化学的変質影響評価（Ex. OPC-海水系地下水の詳細検討，HFSCでの化学的変質評価）</p>	<p>OPC-海水系地下水影響の検討</p> 	<p>HFSCの各種地下水，化学種の影響の検討（影響度による重み付けと評価順の検討による）</p>				
<p>.4)</p> <p>評価に必要なTDBや反応速度データの整備，高圧強度下，固相影響下での活量補正法の反映，実地質環境に即した化学的変質現象の検討によるモデルの検証・高度化の実施</p> <p>上記検討による知見の整理とモデルへの反映・高度化の実施</p>	<p>文献調査や試験研究によるTDBの整備（永続的に実施）</p> 					
			<p>化学的変質現象の知見の整理や反応速度データ，活量補正法の検討</p> 		<p>モデルの構築，検討</p> 	

◆ 研究開発の目標，概要

- I. 地下水組成の多様性を考慮した緩衝材の化学的変遷挙動
 - a) 地下水組成、廃棄体成分、人工バリア材料の多様性に対応したシナリオ・解析評価モデルの構築
 - ・地下水成分 (NaCl, Mg, K, 炭酸etc) 及び廃棄体成分の影響評価
 - ・人工バリアシステム (材料配合、形状など) の変更の影響検討。
 - b) 熱力学データ及び速度式の知見の拡充、データベースの整備 (HLWと要調整)
 - ・スメクタイト溶解に関する現象理解，熱力学データ及び溶解速度に関するデータ取得
 - ・二次鉱物の熱力学データ及び生成速度に関する知見拡充
 - ・上記2項及び他の最新知見の継続的なデータベースへの反映。

◆ 研究開発の目標, 概要

- II. シナリオ・解析評価モデルへの最新知見の反映、評価の信頼性向上
 - a) ベントナイト圧縮体の狭隘間隙における化学に係る知見の拡充
 - ・高イオン強度、固相表面の静電場及び表面吸着水の粘性・密度・誘電率の変化などによる活量及び物質輸送への影響(e.g. 改良P-BETセル導入検討)
 - b) 緩衝材・セメント系材料境界部分における遷移層に関する知見の拡充
 - ・鉱物組成、溶液組成、物質輸送速度などをパラメータとした解析・実験を通じて、遷移層の生成条件、物質輸送特性に関するデータ取得を実施
 - ・遷移層に係る解析評価上の取扱い及び安全評価上の取扱いを検討する(セメント研究と調整)。

◆ 研究開発の目標，概要

c) 解析評価モデルの多次元化

- ・変質進行に伴う不均質な物質輸送特性変化(セメント系材料の部分的ひび割れ，ガス圧による流路形成)の反映及び変質解析結果の力学解析への反映のため解析体系の2次元化を実施

d) 長期の実験事例、超長期の天然事例などの知見の拡充とシナリオ・解析評価モデルの確証

- ・長期試験、数十年規模の工学データ、超長期の鉱物変遷に係る天然事例を対象とし、シナリオ・解析評価モデルの確証・検証を実施。

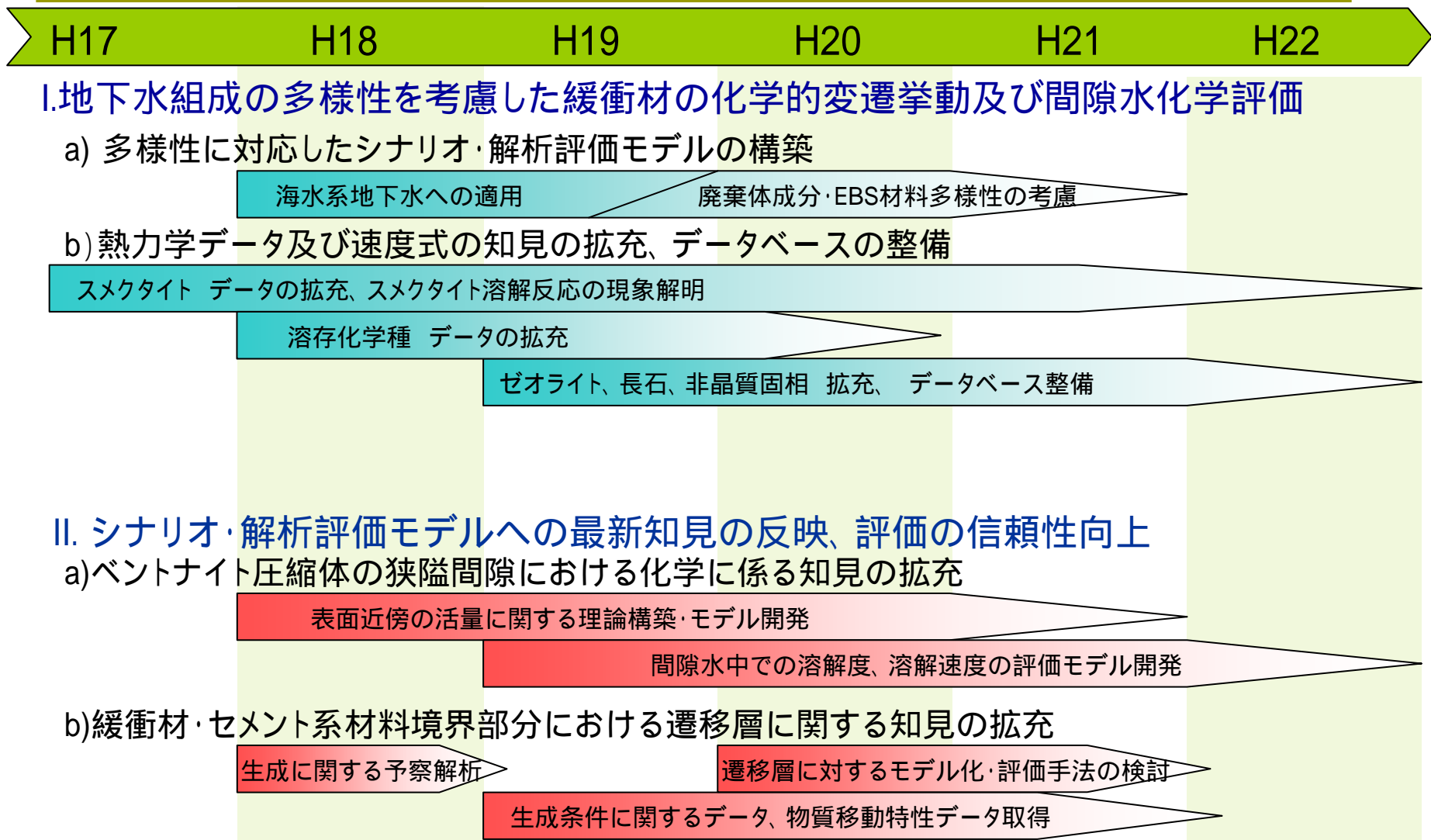
III. 地下水の多様性を考慮した力学評価及び力学変化に伴う物質移動特性変化の評価

- ・地下水の多様性に応じたスメクタイトのイオン型の変化(K型化，Mg型化)，間隙水の当量イオン濃度変化に応じた力学パラメータの取得
- ・上記を反映した力学挙動及び力学影響による物質移動特性変化の評価を実施

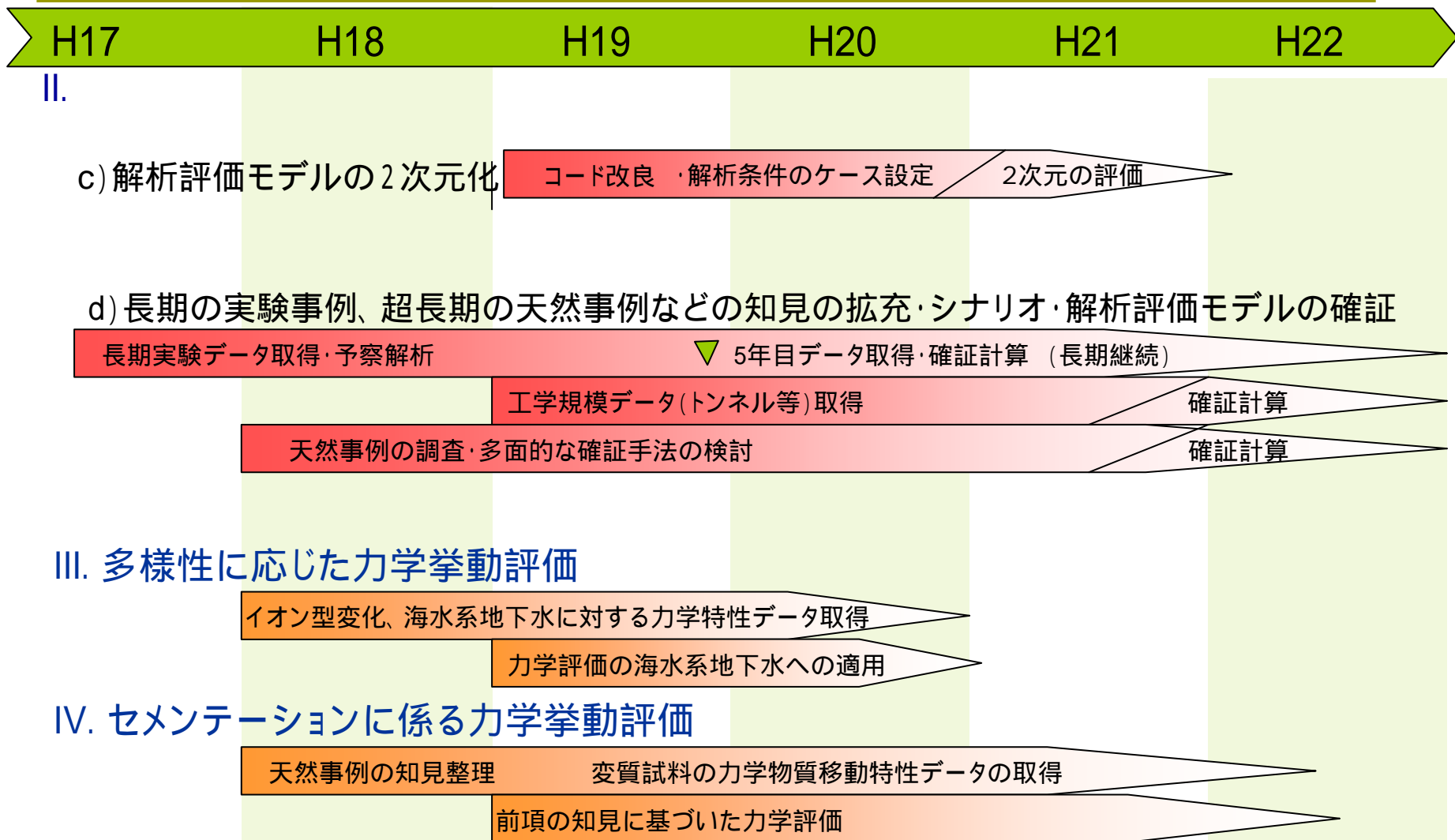
IV. 変質によりセメンテーションした場合の力学-物質移動特性評価

- ・変質度合いをパラメータとした変質後の力学特性及び物質移動特性を評価する。
- ・上記を踏まえセメンテーション現象の評価上の取扱について検討する。

◆研究項目及びスケジュール(案) [1/2]



◆研究項目及びスケジュール(案) [2/2]



◆ 研究開発の目標，概要

アルカリ変質の観点から，岩盤や地下水組成の類型化と変質過程の包括的シナリオの構築

- ・ 既存の研究事例の調査，二次鉱物の組み合わせの影響評価，試験のトレース解析などを通じて変質シナリオを検討
- ・ バッチ法による変質試験(模擬試料，岩石コア試料)により得られた知見を反映

アルカリ変質の岩盤の物質輸送特性への影響に関する知見の拡充及び岩盤の不均一性(特に，亀裂性媒体)を考慮したアルカリ性プルームの影響評価手法の提示

- ・ 溶解速度・沈殿モデルの高度化，(2次元化，大規模化)などを通じた亀裂性媒体としての評価手法の整備
- ・ 試験(模擬試料，岩石コア試料)
 - バッチ法に加えてカラム法の試験装置の製作・試験，岩石鉱物の溶解挙動の観察などを通じた知見の拡充
 - グリムゼル等の地下研究施設における試験研究

◆研究項目及びスケジュール(案)

H17

H18

H19

H20

H21

H22

既存の研究事例の調査

マカーリンサイトなど

アルカリ影響による生起事象の整理
岩種・地下水組成類型化
岩石の変質シナリオの構築

物質輸送のモデル化に関する知見の整理

亀裂性媒体としての評価手法の整備

二次鉱物の組み合わせ評価

試験のトレース解析・物質輸送特性の変遷評価

高度化(2次元化, 大規模化)

溶解速度・沈殿モデルの高度化

試験計画の作成

アルカリ - 岩反応機構に関する試験(模擬試料, 岩石コア試料)

バッチ法による変質試験

カラム試験装置の製作及び試験

岩石鉱物の初期状態, 溶解挙動あるいは二次鉱物沈殿挙動の観察試験

地下研究施設における試験研究に向けた検討




スイスのグリムゼル施設を利用した原位置試験への参画

原位置における亀裂のモデル化手法

◆ 研究開発の目標, 概要

- I. 開発目標: 人工・天然バリアの化学-物質移動連成モデルのカップリングと人工バリアの化学-物質移動-力学連成モデルの構築**
 - 1) 人工バリア, 天然バリアにて検討されたそれぞれの化学-物質移動連成モデルのカップリングによる処分システムの連成評価モデルの構築
 - 2) 上記連成評価モデルへの人工バリア部の力学モデルのカップリングによる連成評価モデルの構築
 - 3) 原位置でのモデル確認試験の計画立案

◆研究項目及びスケジュール(案)

	H18		H19		H20		H21		H22		H23	
.1) 人工バリア, 天然バリアにて検討されたそれぞれの化学-物質移動連成モデルのカップリングによる処分システムの連成評価モデルの構築							人工・天然バリアの連成モデルのカップリング					
												
.2) 上記連成評価モデルへの人工バリア部の力学モデルのカップリングによる連成評価モデルの構築							上記連成モデルへの人工バリア部力学モデルのカップリング					
												
.3) 原位置でのモデル確認試験の計画立案							連成評価モデルの確認試験計画立案		確認試験の実施			
												

硝酸塩影響に関する研究計画

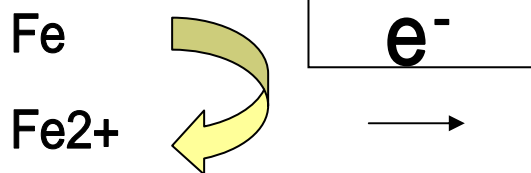


金属腐食に伴う硝酸イオンの化学的変遷モデル

モデル：アノード反応である金属の溶解反応と電荷授受においてバランスしながら硝酸イオン 亜硝酸イオン アンモニアなる逐次反応及び水の還元反応がカソード反応として起こる。

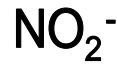
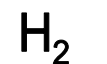
アノード反応

$$I = f(t) : \text{時間のべき乗(不動態)}$$



カソード反応

$$I = f(E)$$



$$I = f(E)$$

$$I = f(E)$$

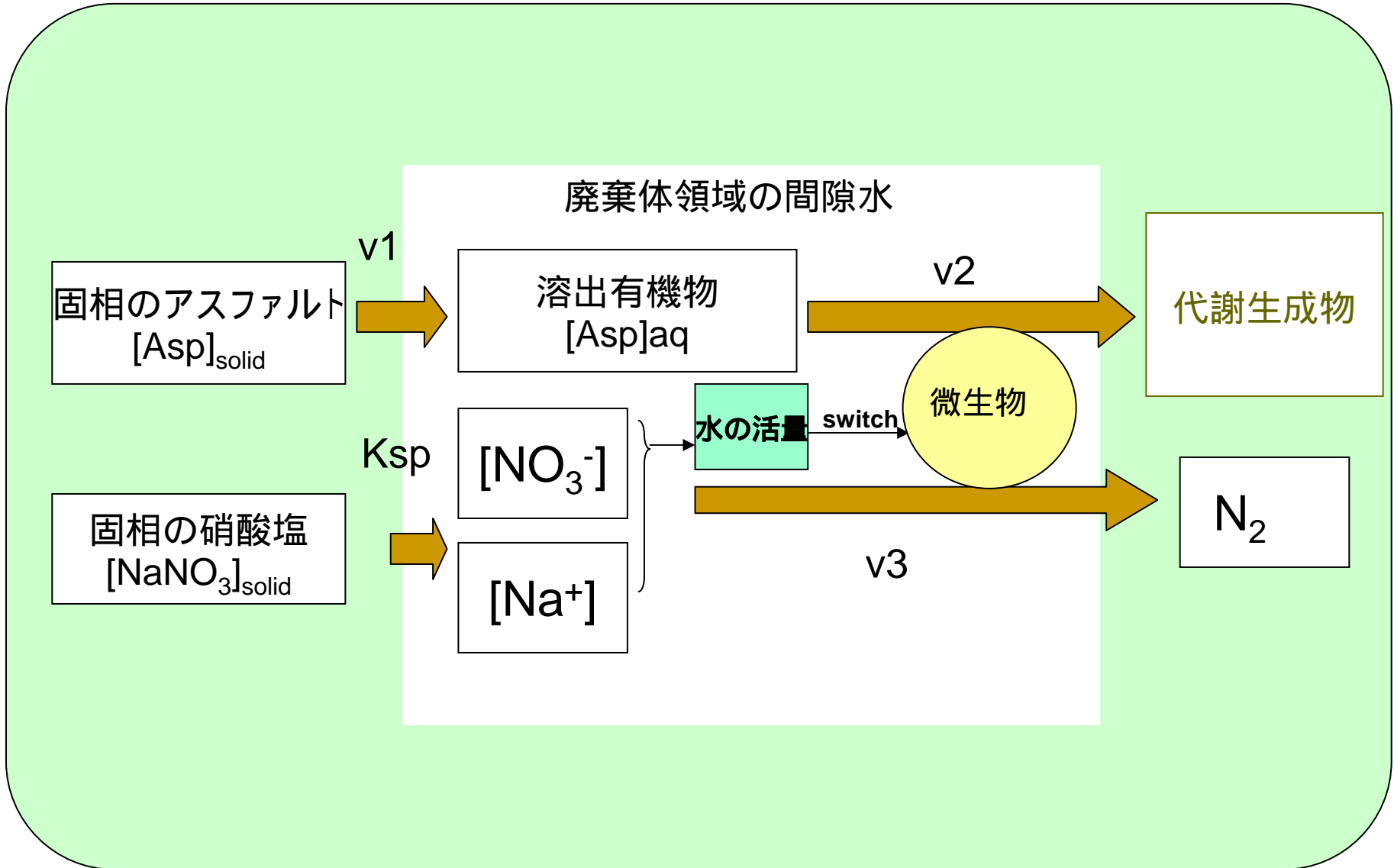
時刻 t における電荷バランス $I = I_a + I_c + I_d$

$f_a(t) = f_a(E) + f_c(E) + f_d(E)$: 電荷バランスの式を満足する電位Eを決定。

f_a 、 f_c 、 f_d に、決定された電位Eを代入し時刻 t における電気化学反応速度を決定

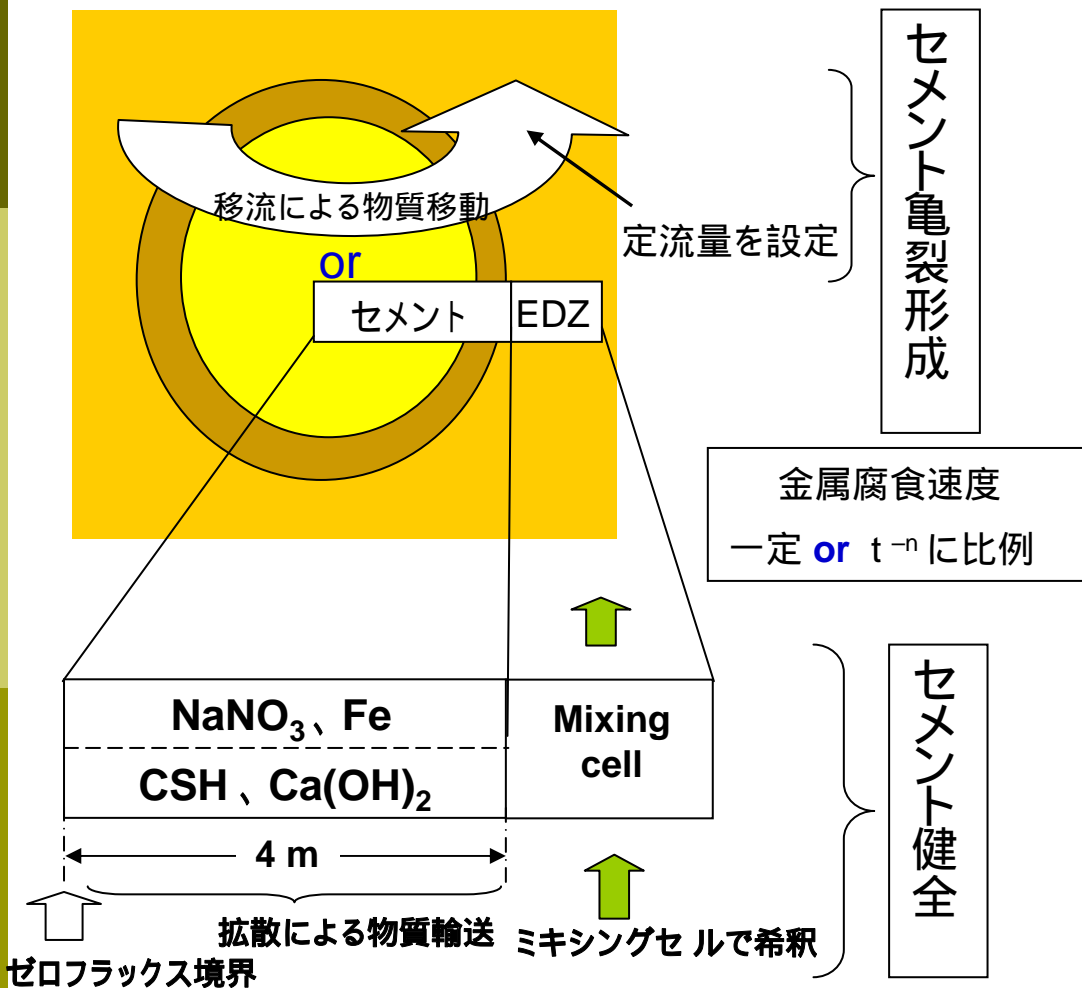
当該時間ステップにおける水素発生量並びに硝酸イオン、亜硝酸イオン及びアンモニアの濃度変化を算定

脱窒細菌による硝酸イオンの代謝に伴う窒素ガス発生モデル



物質輸送と組み合わせた硝酸イオンの化学的変遷解析

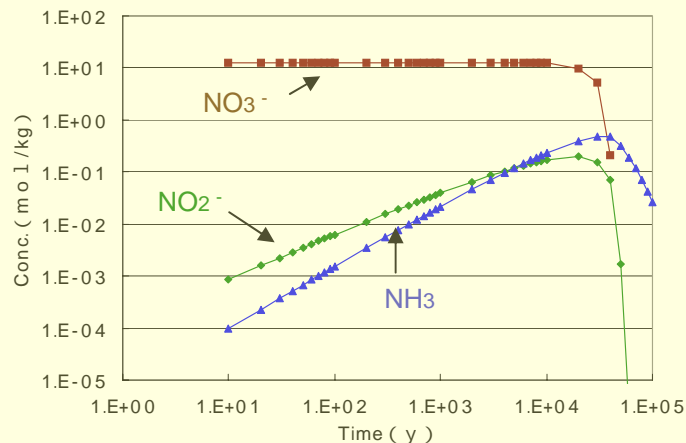
不動態にある金属の腐食反応のカソード反応の一部を硝酸イオンの還元が担うとしてモデル化



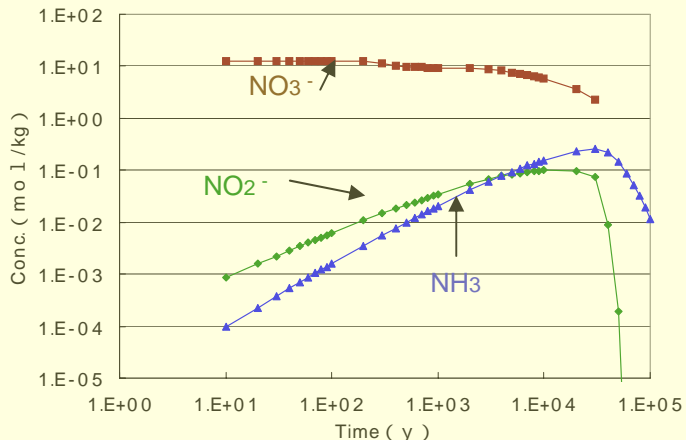
最大NH₃/NH₄⁺濃度0.8M

[水溶性化学種の変遷]

廃棄体領域中心



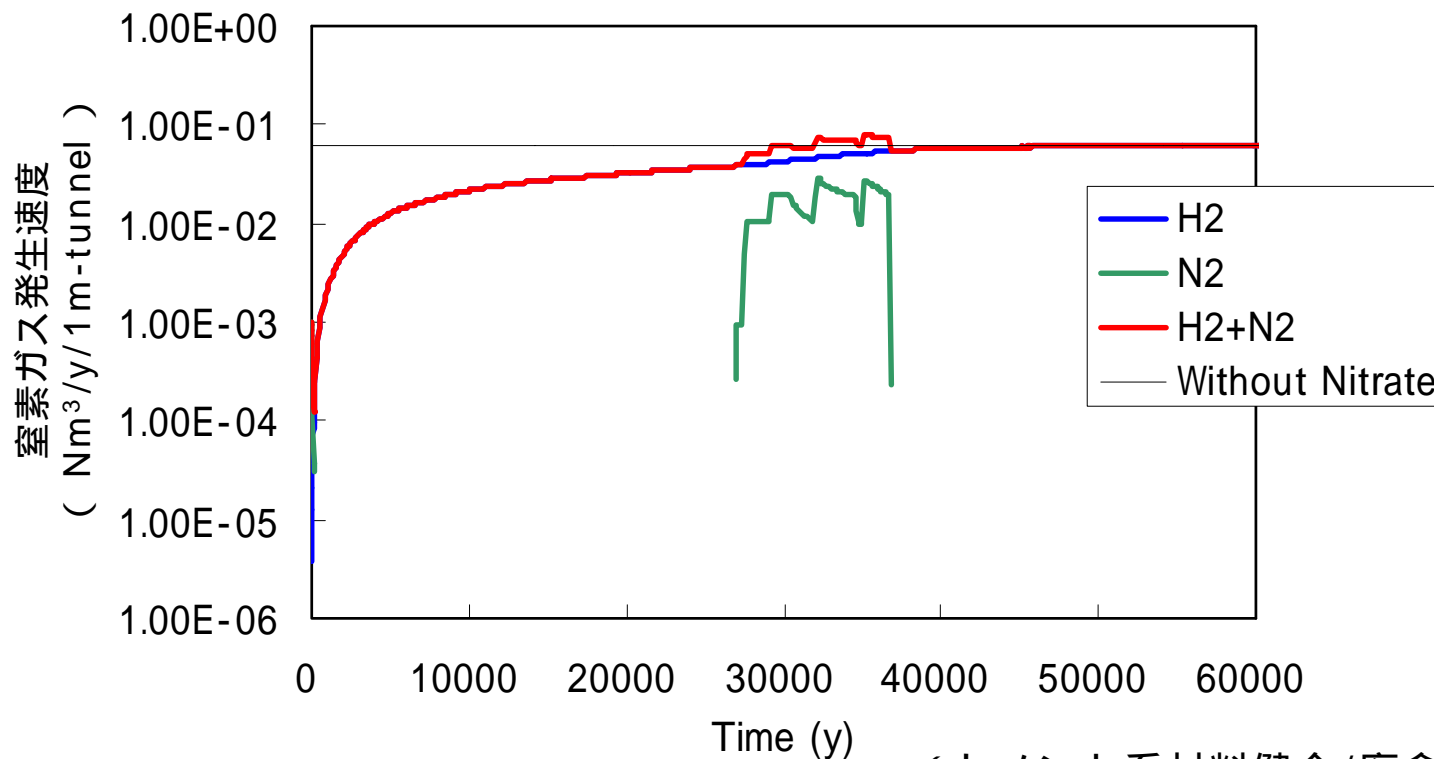
廃棄体外側境界



NO₃⁻, NO₂⁻ 及び NH₃ 濃度の時間変化
[セメント健全, 腐食速度一定(0.1 μm)]₃₈

第2次TRUレポートにおける硝酸イオン変遷の取扱(4/4)

金属腐食に伴う水素ガス発生及び微生物(脱窒菌)の活動による窒素ガス発生の変遷



(セメント系材料健全/腐食速度一定)

微生物(脱窒菌)のモデル

アスファルト分解生成物消費、硝酸分解: Monodの式

アスファルト分解速度: 一次反応速度式

これらを組み合わせて評価

水素ガスの発生を硝酸イオンが抑制する。しかし一定期間、脱窒菌が活動し、窒素ガスが発生する。

◆ 研究開発の目標，概要

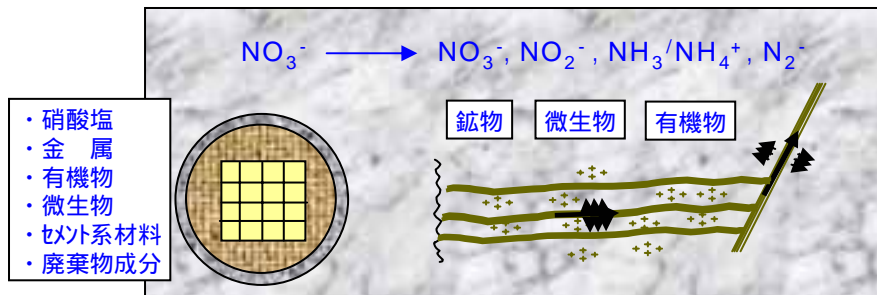
* 核種挙動への影響は本計画のスコ
ープには含まれない

硝酸塩変遷評価モデルの高度化並びに検証

- 1) 多様な共存化学種による硝酸塩変遷に係る知見，データの拡充
- 2) 鉱物による硝酸塩変遷に係る知見，データの拡充
- 3) 微生物活動による硝酸塩変遷に係る知見，データの拡充
- 4) 上記1)～3)の評価モデルへの反映による硝酸塩変遷評価モデルの高度化並びに検証の実施

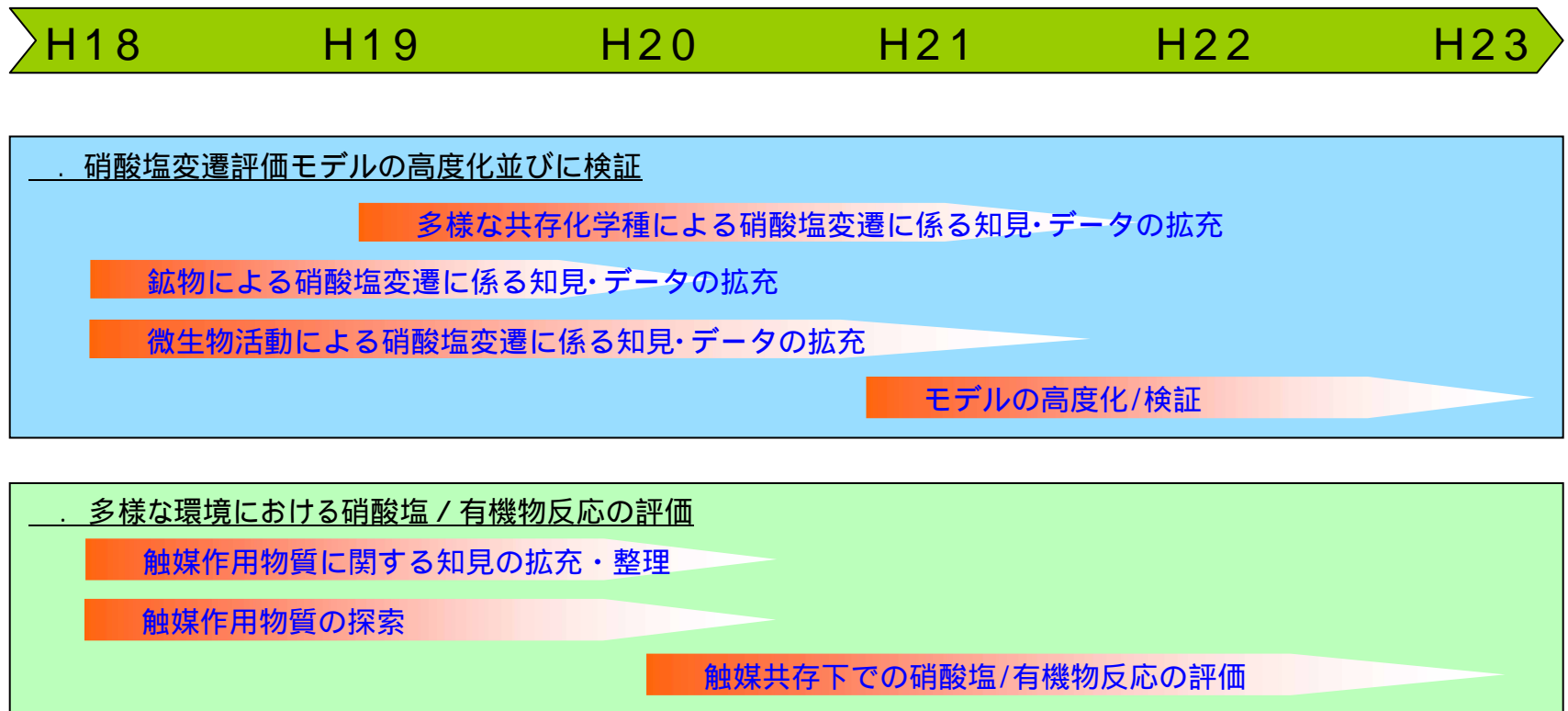
多様な環境における硝酸塩 / 有機物反応の評価

- 1) 硝酸塩/有機物反応に対する触媒的作用物質に関する知見の拡充・整理
- 2) 触媒的作用を及ぼす物質共存下における硝酸塩/有機物反応過程の評価の実施



高pH環境下の微生物活動による硝酸塩変遷の研究
- 好アルカリ性脱窒菌 ($\text{NO}_3^- \rightarrow \text{N}_2$) の取得 -

◆研究項目及びスケジュール（案）



核種移行データの整備及び性能評価の 今後の計画



核種移行データの設定の現状と今後の計画

□ 核種移行データの設定の現状

■ 溶解度の設定

- JNC-TDBを用いた化学平衡モデルにて計算して設定
- 高アルカリ領域について一部の溶解度データについてデータを取得し、TDBの適用確認済み

■ 収着分配係数の設定

- 化学アナログを考慮した代表的な核種に対して取得されたデータに基づき設定
- セメント系材料及び岩石についてはバッチ法のデータを圧縮成型ベントナイトについて見かけの拡散係数より得られた値を適用

□ 今後の計画

■ 溶解度

- 高アルカリ領域におけるJNC-TDBの適用性確認と整備
- 海水系地下水や廃棄体成分等(特に硝酸イオン)の影響を受けた条件での核種溶解度データの取得
- 可溶性有機物と核種との錯体生成定数の取得・整備(特にNEAで整備されたデータの取り込み(シュウ酸,クエン酸,EDTA,イソサッカリン酸)やセメント混和剤)

■ 収着分配係数

- 化学アナログで設定した核種に対する収着分配係数の取得
- 海水系地下水や廃棄体成分等(特に硝酸イオン)の影響を受けた条件での核種溶解度データの取得
- 可溶性有機物(セメント混和剤)を考慮した核種の収着分配係数の取得
- 取得されたデータをSDBとしての整備

アクチニド元素の溶解度の設定値と実測値との比較

- セメント系材料の長期的な変質を考慮してpH13.2, 12.5, 11.4及び8.5についてデータを設定。
- アクチニド元素としてIII価の代表としてAm, IV価の代表としてThについて、溶解度の取得を実施(0.45 μ 及び10,000限外ろ過, セメント硬化体浸出液, 凝灰岩浸出液を使用, 浸漬液は蒸留水を基本に使用)。
- 設定値は, 中性領域において保守側となっているが, 高アルカリ領域では概ね一致。Thの中性領域における結果の違いについて今後議論が必要。
- 今後は, Puなどの他のアクチニドについての高アルカリ領域におけるデータの比較及び熱力学データの見直しを行なう。

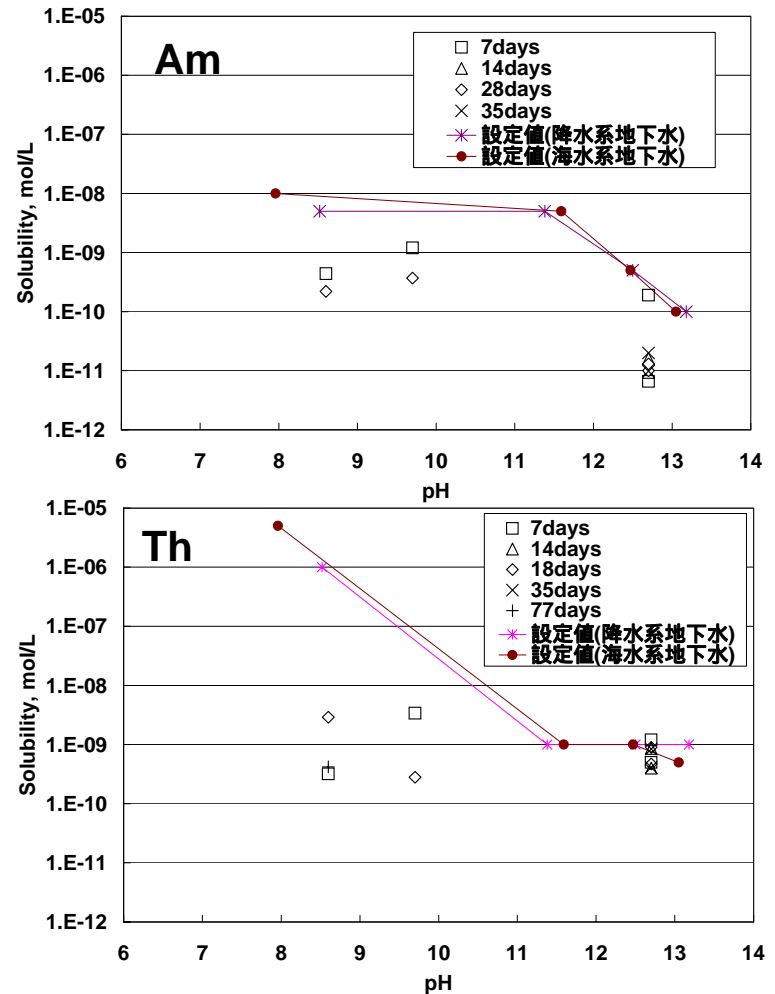


図 第2次TRUレポートにおけるAm及びThの溶解度の設定値と溶解度の実測値(10,000限外ろ過)の比較例

遷移金属元素の溶解度の設定値と実測値との比較

- 遷移金属元素としてNi及びNbの溶解度の取得を実施。
- 設定値は, 対象pH領域において保守側となっている。特にNbについては設定値と実測値との傾向が異なる。
- 設定値については, 溶解度制限固相として水酸化物を仮定している。特に, Nbについてはセメント浸出液条件においてCaを含む固相の存在が確認されている(Ochs et al., 2004)。
- 現状の設定値は保守的ではあるが, 評価の信頼性向上にむけてカルシウムを含む固相などの熱力学データの調査を行い, 熱力学データベースの整備を行なう。

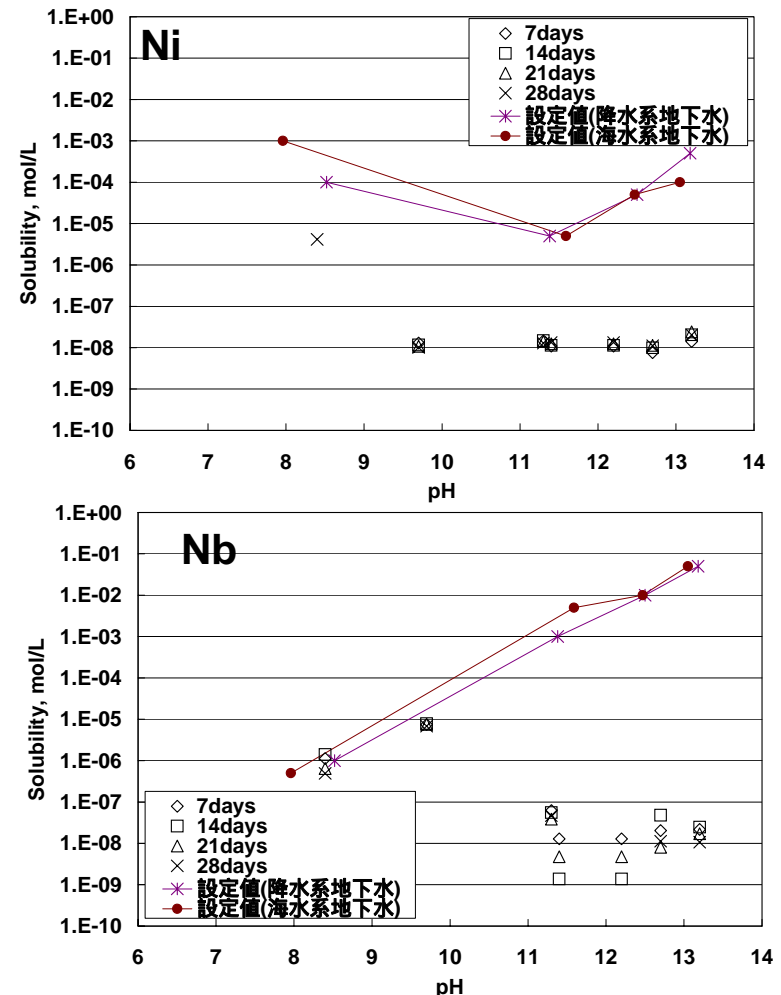


図 第2次TRULレポートにおけるNi及びNbの溶解度の設定値と溶解度の実測値(10,000限外ろ過)の比較例 45

収着分配係数設定における化学アナログの考え方

- 収着分配係数については右表に示す化学アナログの分類に従い値を設定。
- 例えば、ランタノイド+アクチノイドについては、III価のAm及びIV価のThの実測値を基にセメント系材料に対する収着分配係数を設定。
- Pu等に対するデータの取得と化学アナログの設定の妥当性の検討が必要。

核種(元素)の化学アナログの分類結果

グループ	元素		主たる化学的特性
	遷元	酸化性	
		C(有機)	
ハロゲン		Cl, I	典型的な陰イオン
陰イオン		C(無機), Se, Mo	
		Tc	
陽イオン		Cs	典型的な陽イオン
		Ca, Sr, Ra	
遷移金属元素	II	Co, Ni, Pb, Pd	水酸化物溶存化学種が支配
	IV	Sn, Zr	
		Tc	
V	Nb	水酸化物溶存化学種が支配	
ランタノイド + アクチノイド	III	Sm, Ac, Am, Cm	
	IV	Th	
		Pu, U, Np, Pa	
	V	-	Np, Pa
VI	-	Pu, U	

硝酸塩の影響を考慮した核種移行データの取得

□ 硝酸イオンとの錯体形成

- JNC-TDBを用いた評価においては, Np(V)と NO_3^- の錯体 ($\text{NpO}_2\text{NO}_3(\text{aq})$) が NO_3^- 濃度 0.15mol/kg 以上で支配的。
最新のNEAのデータベースでは, Np(V)- NO_3^- の熱力学データは選定されていない。今後議論が必要。

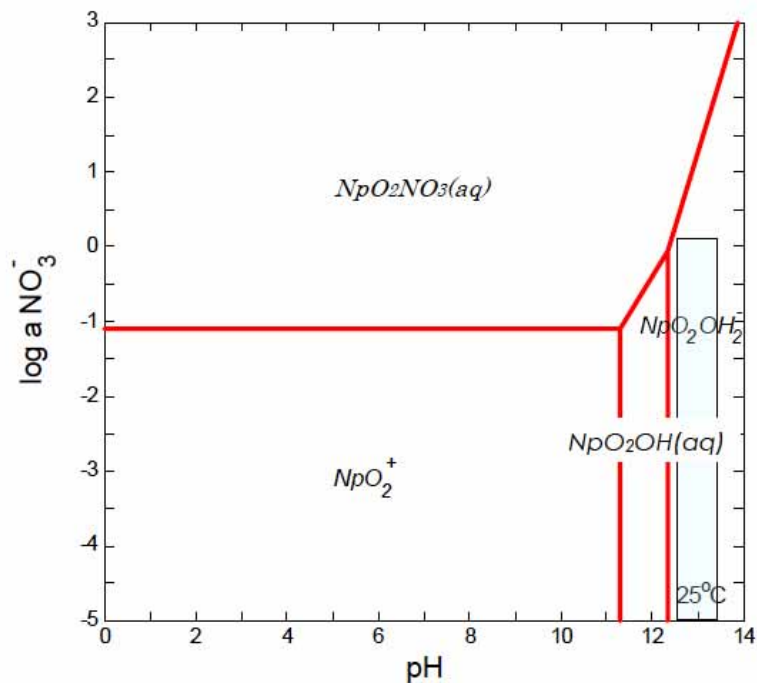
□ アンモニウムイオンとの錯体形成

- Am及びTh等のアクチニド元素については, 影響は小さい。
NiやPb等の遷移金属元素について, 溶解度及び収着分配係数を取得 (Niについては, 一部溶解度を取得)。

□ 硝酸イオンの核種の原子価への影響

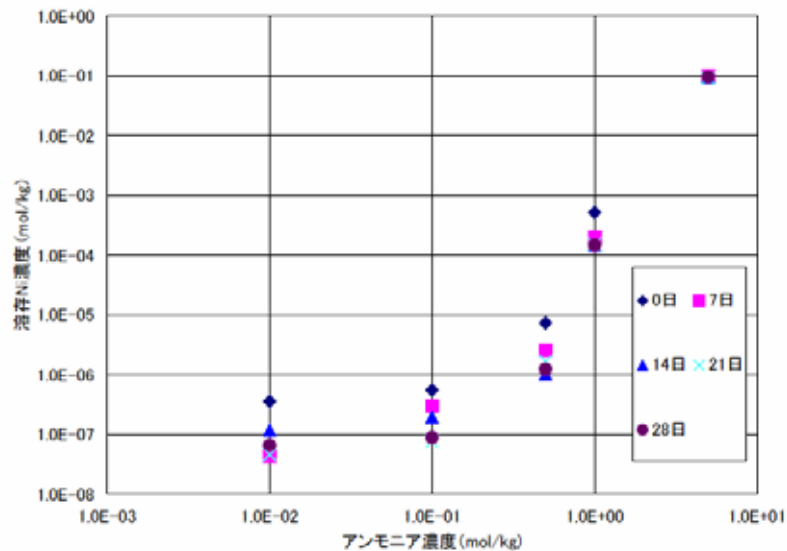
- 高レベル放射性廃棄物処分の線量評価において重要なSe, Tc及びNpに対して影響を調査。
硝酸イオン共存による溶解度等の変化。

硝酸塩影響の検討結果例 (第2次TRUレポート根拠資料集 分冊2より)



: Gr-3 廃棄物の地層処分施設内の条件

Np(V)の支配化学種の NO_3^- の活量とpHの依存性 (JNC-TDB)



ニッケルの溶解度のアンモニア濃度依存性 (実験値, pH12.5程度)

性能評価の現状と今後の計画

□ 性能評価手法の現状

- シナリオ開発については、包括的FEP及びFEP辞書を作成し、評価シナリオを設定。変動シナリオ及び接近シナリオについてはHLW処分研究の評価手法に準じて実施。
- 不確実性評価については、包括的感度解析を用いてパラメータの幅や天然バリア中の核種移行モデルの不確実性について評価を実施。
- 総合的な性能評価技術については、TRU廃棄物処分特有の事象に着目した個別現象の解析を行い、モデルチェーンを作成し解析を実施。

□ 今後の計画

- FEPと解析ケースとの関連の明確化及び処分施設閉鎖直後におけるシナリオの詳細評価。
- 核種移行パラメータ間の相関を考慮した不確実性評価の実施。
- 人工バリアの長期挙動等の個別事象解析結果を踏まえた総合的な性能評価の実施。生物圏の評価については、C-14の生物圏循環モデルの適用性を検討。

性能評価体系のフロー

- シナリオの検討においては、HLW処分の研究と同様にマトリクス形式等を用いてFEPの相関関係を明確にする。さらにFEPと解析ケースとの関連が容易に追従できるように整理を行なう。
- 包括的感度解析では、核種移行パラメータの幅を各々独立に設定して評価を行ってきたが、FEPの相関関係を基にパラメータの設定の見直しを実施する。
- 詳細化された個別事象の検討・解析結果を反映して総合的な性能評価を実施する。



図 第2次TRUレポートにおける性能評価のフロー

研究項目及びスケジュール(案)

