

地層処分研究開発検討委員会

資料第5-3号

TRU廃棄物の 地層処分研究開発について

平成22年3月9日

地層処分研究開発部門 TRU廃棄物処分研究グループ



発表内容

- **全体基本計画：当面の重点課題とJAEAの役割**
- **中期計画を踏まえたTRU廃棄物地層処分研究
開発の主な成果**

前回委員会での総括的コメント

全体のセーフティーケース中の性能評価なので、各要素の評価とその不確実性が全体の實力にどのように効いてくるかを常に念頭に置くべきである

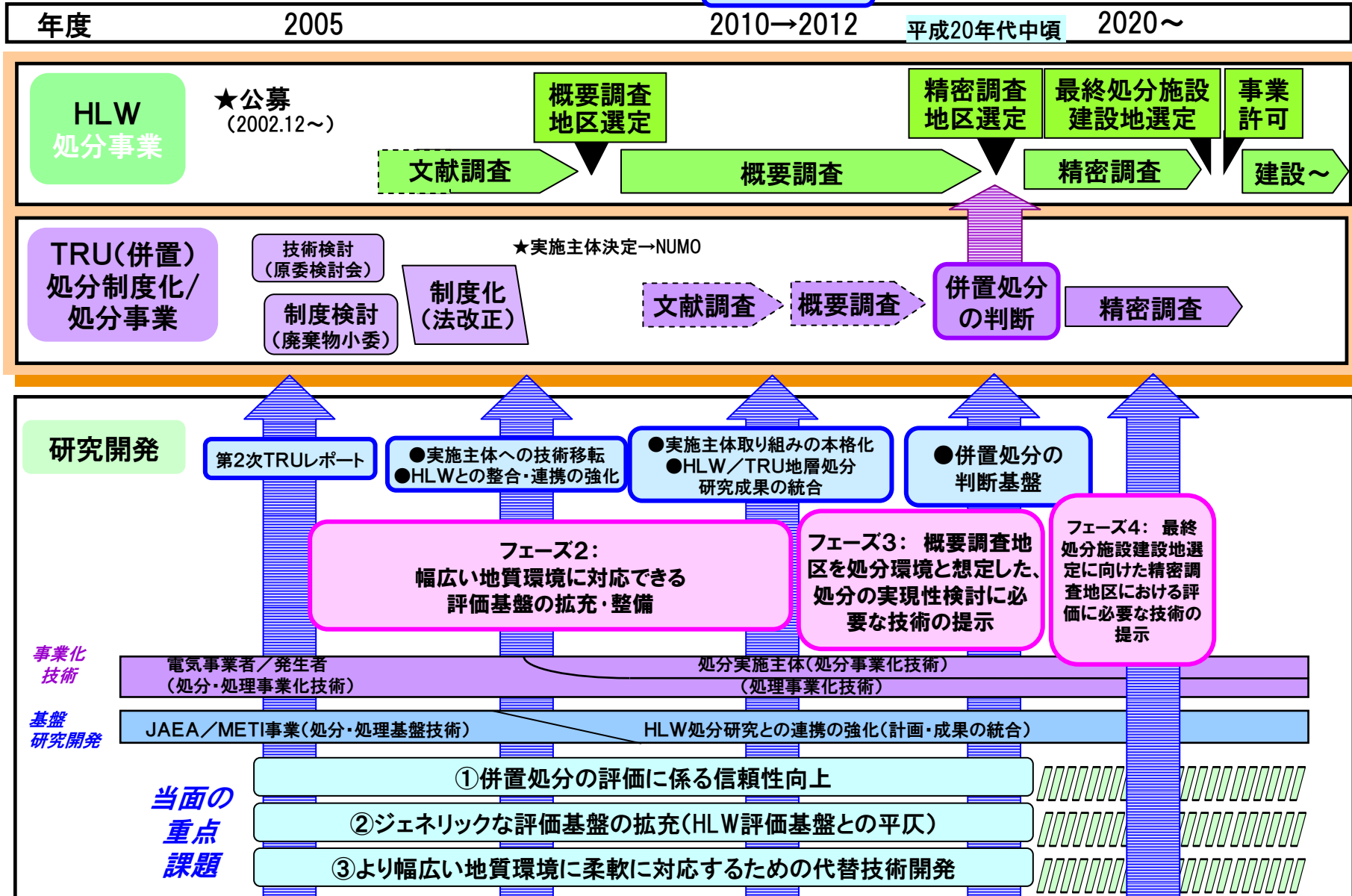
JAEAの成果をどう使ってもらいたいのかという観点で説明してほしい(それぞれの仕事が全体に対してどのように寄与したのかという評価にもなるため)

処分事業や規制を支える知識基盤として

- いつ (when)
 - 処分場概念検討段階(～文献調査)
 - 地上からの調査段階(概要調査, 精密調査前半)
 - 予備的安全評価(精密調査地区選定)
- どのように (how)
- 何のために (for what)

TRU廃棄物の地層処分基盤研究開発に関する段階的進め方 (経済産業省資源エネルギー庁・JAEA,2009に加筆)

2年延びる



当面の重点課題とJAEAの実施内容 (経済産業省資源エネルギー庁・JAEA,2008に加筆)

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(JAEA)

- 性能評価技術の体系化・高度化(処分場スケールでの相互作用評価の考慮など)
(電気事業者→処分事業者)

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(JAEA)

☆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(JAEA)

3. より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(ANRE)

- 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(ANRE)

☆硝酸塩影響の不確実性低減のための硝酸塩分離・分解技術(JAEA)

発生関連

発生

処理

検認

処分関連

設計

性能評価

操業等工学技術

日本原燃(JNFL)

(電気事業者→)処分事業者

発生・処理事業者技術開発

処分事業者技術開発

(1) ①

廃棄体データベース拡充

(1) ③

廃棄体の品質管理・検認手法

(5) ⑤

アスファルト分解技術

(5) ④

硝酸塩分解技術

(5) ①

放射性ヨウ素固定化

日本原子力研究開発機構 (JAEA)

(2) ①

人工バリア材料物性

(2) ②

ニアフィールド構造解析

(3) ①

核種移行データ取得・整備

(3) ④

硝酸塩/有機物影響

(3) ⑥

システム性能評価

(4) ①

併置処分相互影響評価

(4) ②

併置処分概念の合理化・最適化

(2) ④

建設・操業・閉鎖等の工学技術

(3)③ アルカリ環境下ベントナイト・岩反応


(3)② セメント変質

(3)⑤ ガス発生影響

(5)② 放射性炭素の閉じ込め

- セオリティカル(現象理解)
- ジェネリック
- 新技術/高度化

資源エネルギー庁 (ANRE)



中期計画を踏まえたTRU廃棄物 地層処分研究開発の主な成果

セメント系材料の長期挙動評価(1)

中期計画

地下水組成およびセメント系材料の多様性を考慮した化学-物質移動モデルの構築とそれに伴うデータベース整備

平成21年度までの主な成果(1)

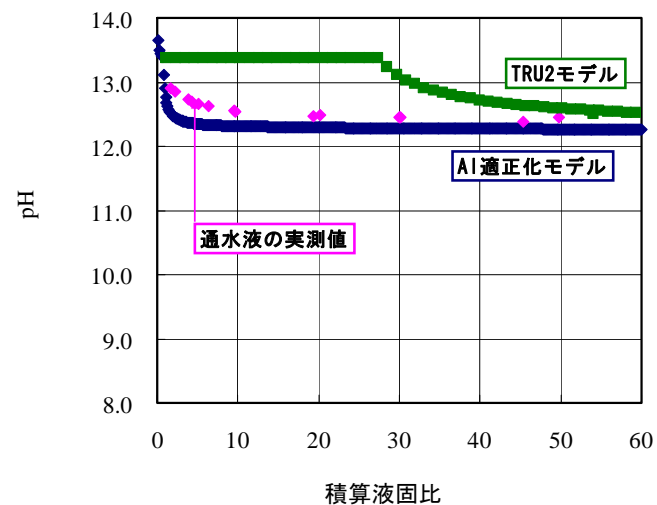
海水系地下水による普通ポルトランドセメント(OPC)水和物の化学的変質に関する検討

○OPCペーストと海水系地下水の反応におけるフリーデル氏塩生成によるpH上昇現象を適切にモデル化するため、C-S-H中のAl固容量を求め、フリーデル氏塩の生成に寄与するカルシウムアルミネート相含有割合を適正化した初期水和物モデルを構築した。これにより、OPCペースト/海水系地下水反応によるpHの変遷を再現できるようになった。

○人工海水とOPC水和物の化学反応に関する知見の拡充の一環として、モデルの精度向上を図るために、非晶質ケイ酸マグネシウム化合物(M-S-Hゲル)の溶解データを取得した。

初期水和物モデル

初期水和物	Al配分 適正化モデル	TRU2モデル	二次水和物
	水和物量 (mol/kg)		
C-S-Hゲル (Ca/Si mol比 = 1.8)	6.461	6.461	<ul style="list-style-type: none"> ・初期設定水和物 ・C-S-Hゲル (Ca/Si mol比 = 0.1-1.7) ・エトリンガイト ・フリーデル氏塩 ・カルサイト ・ハイドロタルサイト ・セピオライト ・ゲーレンナイト・ハイドレート
ポルトランドライト	3.555	2.929	
ブルーサイト	0.491	0.491	
モノサルフェート	0.25	0.245	
Al型ハイドロガーネット	0.068	0.282	
Fe型ハイドロガーネット	0.163	0.2	



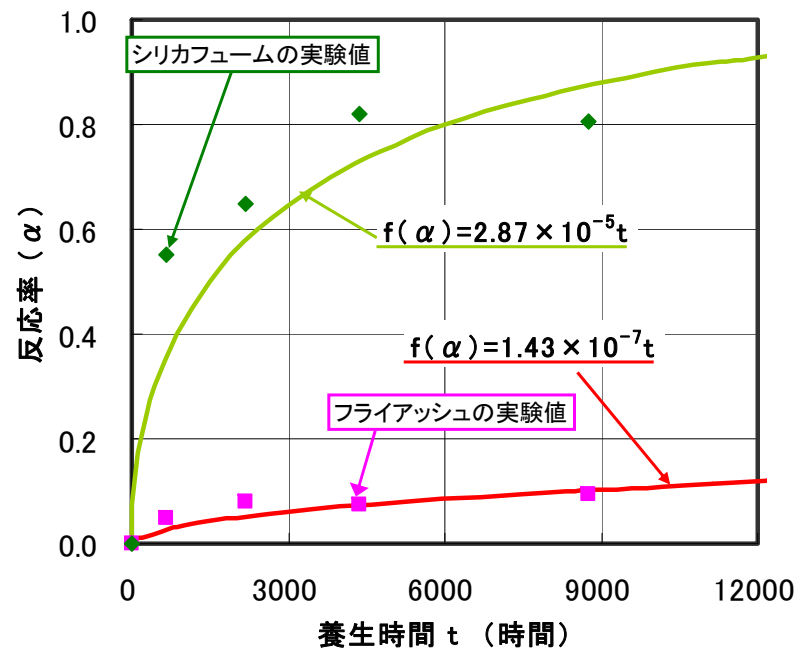
人工海水を用いたOPC硬化体通水試験の通水液のpH経時変化

セメント系材料の長期挙動評価(2)

平成21年度までの主な成果(2)

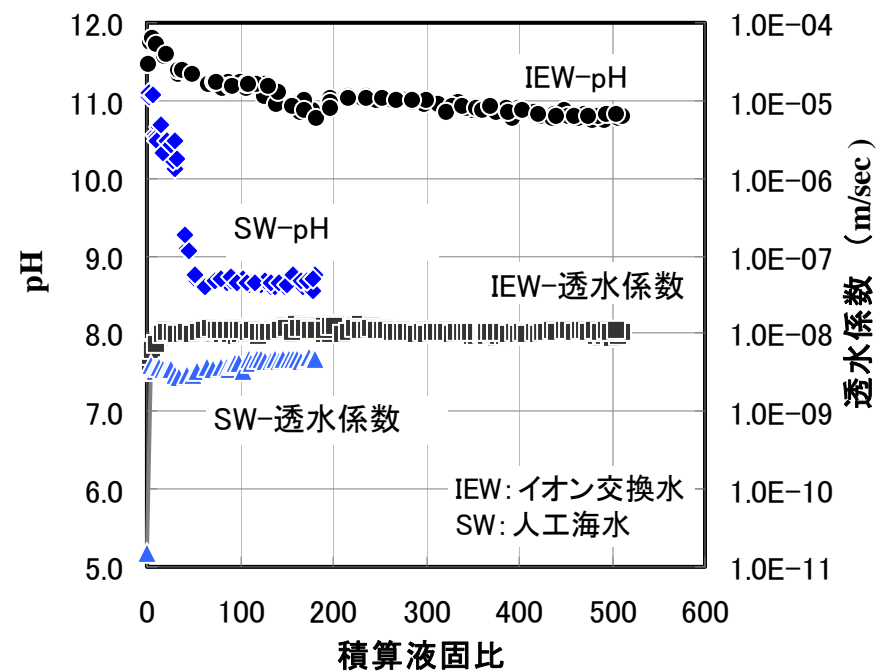
(2) 降水および海水系地下水による低アルカリ性セメント(HFSC)水和物の化学的変質に関する検討

- 長期にわたると考えられるHFSCの水和モデルを構築するため、HFSCに配合されているポゾラン材料(フライアッシュおよびシリカフェーム)について、Janderの式を適用して反応速度式を求めた。
- セメント系材料の化学反応-物質輸送モデル構築の一環として、イオン交換水および人工海水によるバッチ式浸漬試験および長期の通水試験を行い、降水系および海水系地下水による化学的変質挙動と変質に伴う物質移動特性変化に関するデータを取得した。また、OPC硬化体との変質挙動の相違を確認した。



養生時間と各ポゾラン材の反応率との関係

* $f(\alpha) = [1 - (1 - \alpha)^{1/3}]^2$



HFSC硬化体のイオン交換水および人工海水通水試験結果

セメント系材料の長期挙動評価(2)

平成21年度までの主な成果(2)

(2) 降水および海水系地下水による低アルカリ性セメント(HFSC)水和物の化学的変質に関する検討

- 緩衝材や岩盤へのアルカリ性セメント浸出液の影響を評価するには、**水酸化物イオンソースタームとなるセメント系材料の**、地下水との反応による間隙水組成の変化及びこの反応に伴う物質輸送特性変化を評価するモデルが必要となる。
- セメント水和物は核種の収着バリアとして機能し、その性能は水和物組成に依存するため、これを評価することも重要である。



これらの評価に資するため、**セメント系材料の化学反応-物質輸送モデルを開発**

HFSCについては、フライアッシュの水和が緩慢に進行するため、**水和と変質が同時に**進行すると考えられる。このため、地下水とHFSCの反応による間隙水組成の変化及びこの反応に伴う物質輸送特性変化を評価するには、**ポゾラン材料の水和反応速度式を組み込んだ変質評価モデル**を開発する必要がある。

養生時間と各ポゾラン材の反応率との関係

$$*f(\alpha) = [1 - (1 - \alpha)^{1/3}]^2$$

HFSC硬化体のイオン交換水および人工海水
通水試験結果

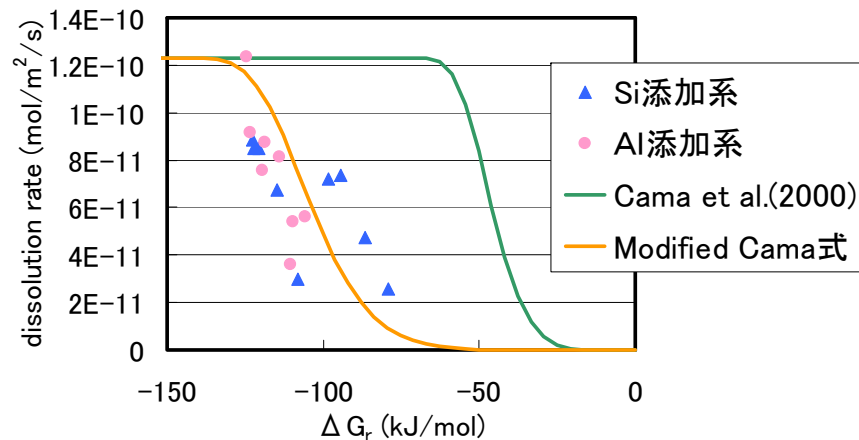
高アルカリ性条件における緩衝材の長期挙動評価

■ 中期計画

- ・海水環境などの多様な環境条件でのデータ整備, 評価手法の高度化
- ・鉱物の熱力学データや変質モデルなどのより適切な評価を行うための基盤整備

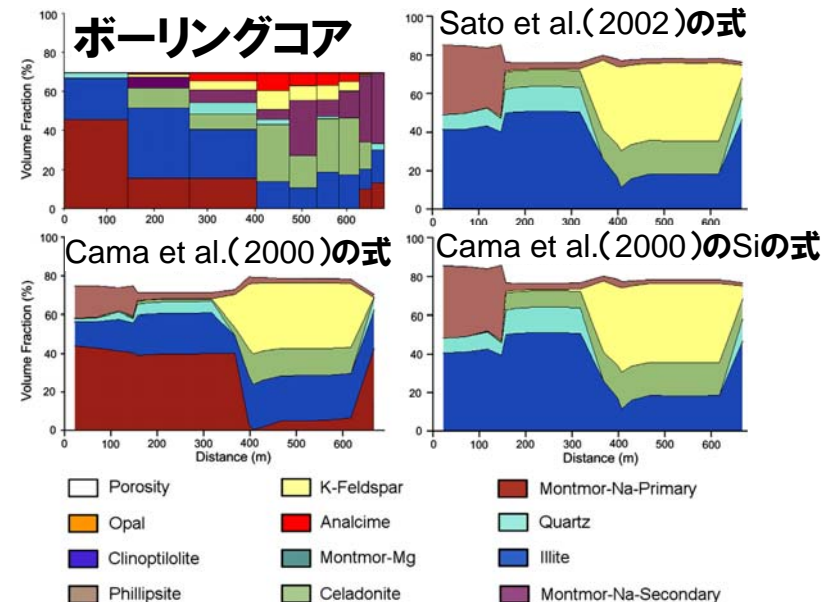
■ 平成21年度までの主な成果

- ベントナイト系材料(緩衝材、埋め戻し材)化学的変質;モンモリロナイトの溶解速度についての基盤的検討と溶解速度式の適用性確認。
 - スメクタイトの溶解速度の飽和度依存性は、高アルカリ性条件ではより高い ΔG_r 依存性を示すことが分かった(下図左)。
- 関連する鉱物や溶存化学種の熱力学データ取得、整備。
- 地球化学-物質移動連成システムに対する評価モデルのナチュラルアナログによる妥当性確認。
 - モンモリロナイトが流入し堆積した塩湖(約360万年間の堆積、pH7.5から10)の計算を行い、3種類の飽和依存性の式のうち、Cama et al.(2000)の式がもっともモンモリロナイトの残量に近いことを確認した(下図右)。



スメクタイトの溶解速度と ΔG_r の関係

Cama et al.(2000)(pH8.8)の式と本実験で求めた式(処分環境を考慮した高アルカリ性条件)



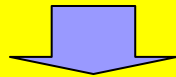
SearlesLake湖沼堆積物と再現解析

高アルカリ性条件における緩衝材の長期挙動評価

■ 中期計画

・海水環境などの多様な環境条件でのデータ整備, 評価手法の高度化

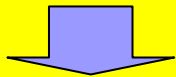
- 本評価の問題点は、不確実性の大きさ(TRU-2の評価では緩衝材機能維持期間は 10^3 年オーダーから 10^5 年以上)。
- 評価の不確実性の主たる原因はモンモリロナイトの溶解速度式の不確実性(式の形と溶解速度式飽和度依存性)。



- 評価の不確実性を低減させるため、既往のモンモリロナイトの溶解速度式(式の形)の長期への適用性をアルカリ塩湖のNA研究により確認

$$\text{Rate} = -8.1 \times 10^{-12} \times (1 - \exp(-6 \times 10^{-10} \times (\Delta G_r / RT)^6))$$

- 実験室でアルカリ性環境におけるモンモリロナイト溶解速度式の飽和依存性を評価→高アルカリ性ではさらに強い飽和度依存



上記知見を評価に反映し、評価の不確実性低減を目指す。

モンモリロナイトの溶解速度式との関係
Cama et al.(2000)(pH8.8)の式と本実験で求めた式(処分環境を考慮した高アルカリ性条件)

Opal, Analcime, Quartz, Clinoptilolite, Montmor-Mg, Illite, Phillipsite, Celadonite, Montmor-Na-Secondary

SearlesLake湖沼堆積物と再現解析 9'

天然バリアへの高アルカリ性溶液影響評価

■ 中期計画

- 実際の地下深部における亀裂中の高アルカリ性溶液に基づく変質挙動の評価解析手法の構築
- 化学反応-物質移行連成モデル構築と計算の実施
- 天然亀裂を用いた高アルカリ性溶液通水試験の実施

■ 平成21年度までの主な成果

- アルカリ性溶液と岩盤の接触による初生鉱物溶解と二次鉱物沈殿に伴う場の化学的条件及び物質移動特性の変化を評価するための地球化学-物質移動連成システムの構築。
 - 亀裂幅の空間分布を表現するバリオグラムにしたがい、不均一な透水性を持つ亀裂部分をモデル化し、高アルカリ性溶液通水に伴う物質輸送の変化を評価できるシステムを構築し、既往の試験に試行した。

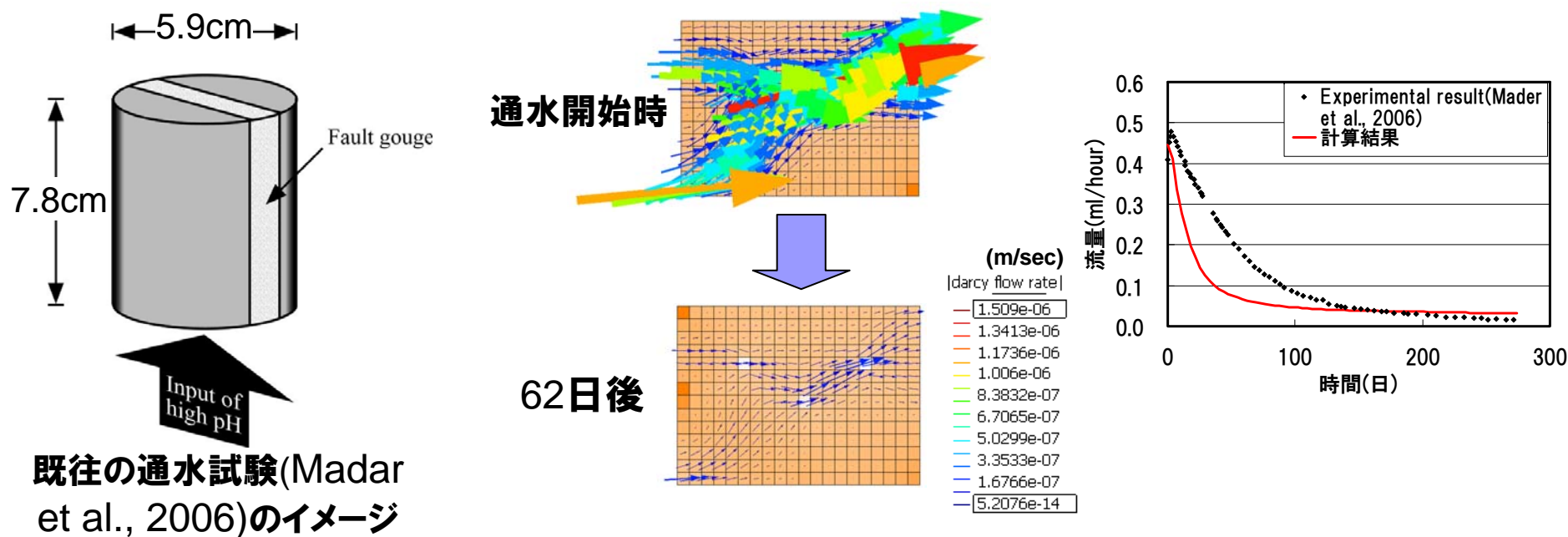
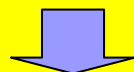


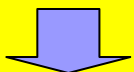
図 グリムゼル花崗岩の亀裂充填物への通水試験を計算した例

天然バリアへの高アルカリ性溶液影響評価

○セメント由来の高アルカリ性間隙水による亀裂性岩盤の化学的
条件(間隙水組成や鉱物組成)の変化及び物質輸送特性(透水性や
拡散性)の変化を評価(TRU-2では多孔質媒体近似)



まずは、花崗岩を対象に現象理解



○岩盤の溶解および二次鉱物沈殿並びにこれらに伴う物質輸送特
性の変化について実験

○化学反応/物質輸送解析ツールを作成して解析



○現象理解に基づき、処分場規模での高アルカリ性溶液と亀裂性
岩盤との反応と、それに伴う物質輸送特性変化の評価手法を構築

核種移行データ整備

■ 中期計画

海水系地下水や廃棄体成分の影響を受けた条件及びセメント系材料の核種移行データの取得・整備

■ 平成21年度までの主な成果

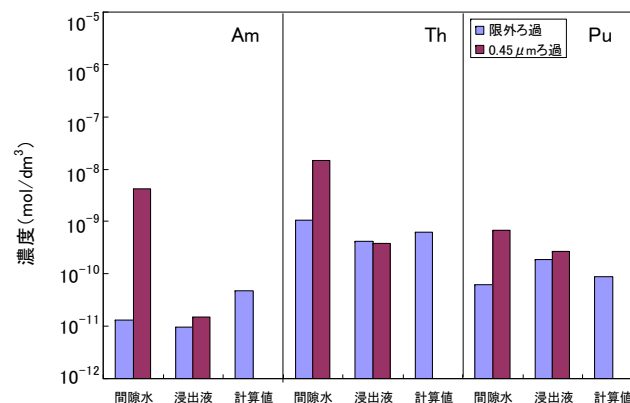
✓ 充填材や構造躯体の候補材料のセメント系材料の影響を受けた高アルカリ性溶液における核種の溶解度データの取得・整備

➢ 高性能減水剤(有機系の流動化剤:ポリカルボン酸を主体とする有機溶液)の核種の溶解度への影響を調べるため、高性能減水剤添加したセメント硬化体の間隙水を高圧抽出法により採取し、アクチノイド(Am, Th及びPu)の溶解度を過飽和側からの試験により取得。セメント浸出液での溶解度試験結果や熱力学データで計算された結果と比較(右上図)。

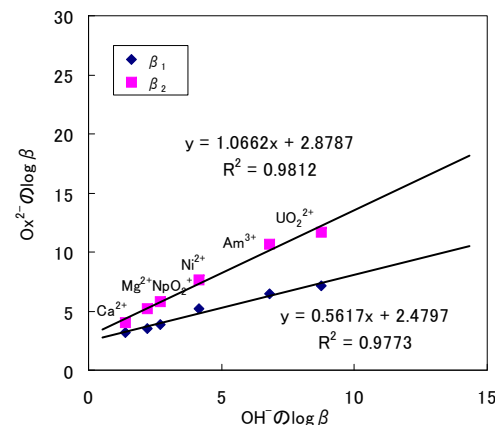
➢ 原子力機構の熱力学データベース整備の一環として、TRU廃棄物に関連する有機物の熱力学データの整備を実施。シュウ酸と水酸化物イオンとの金属イオンの錯生成定数対数値の直線関係から、他の金属とシュウ酸の錯生成定数を推定し整備(右下図)。

✓ セメント硬化体中の核種の拡散係数の取得・整備

➢ 平成18年度より取得してきたセメント硬化体の塩素を中心とした拡散係数について、拡散データベースに組み込めるように整備。



高圧抽出法により取得された間隙水及び浸出液での溶解度試験結果
(間隙水:高圧抽出法で採取された間隙水を用いた溶解度試験,
浸出液:セメント硬化体浸出液, 計算値:JNC-TDBを用いた計算値)



シュウ酸(Ox^{2-})と水酸化物イオンとの金属イオンの錯生成定数(β_1, β_2)との関係

核種移行データ整備

- 多種多様な有機化学種の混合物(e.g.,高性能減水剤由来有機成分)については、核種の溶解度を**実測**して評価
 - 単純なモデル有機物の熱力学データを整備することにより、廃棄物に含有される可能性ある有機物の影響の程度を把握
- ⇒両者のアプローチにより有機物の影響を評価

平成21年度実績

学会等発表:

- (1)増田賢太, 本田明, 藤田英樹, 根岸久美:普通ポルトランドセメントペースト硬化体の水理特性に及ぼす人工海水通水の影響, 日本原子力学会、日本原子力学会2009年秋の大会
- (2)山口耕平、本田明、稲垣学、油井三和、齊藤宏則: 天然亀裂への高pH溶液の通水実験結果に対するベンチマーク解析、日本原子力学会、日本原子力学会2009年秋の大会
- (3)三原守弘、亀井玄人、中澤俊之、山田憲和: 硝酸塩の影響を考慮した放射性元素の溶解度の評価:(3)硝酸イオンのNp、Tc及びSeの溶解度への影響、日本原子力学会2009年秋の大会
- (4)中澤俊之、山田憲和、三原守弘、亀井玄人:硝酸塩の影響を考慮した放射性元素の溶解度の評価:(4)アンモニアのPd及びNbの溶解度への影響、日本原子力学会2009年秋の大会
- (5)下田紗音子, 齊藤宏則, 高瀬敏郎, 山口耕平, 小田治恵, 本田明:岩石アルカリ変質における鉱物変遷シナリオ、原子力学会バックエンド夏期セミナー、7/29~31、旭川市

査読付投稿論文:

- (1)Ohno,S., Morikawa, S. and Mihara, M. :The Rock Creep Evaluation in the Analysis System for the Long-Term Behavior of TRU Waste Disposal System, The 12th International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management,ICEM2009,Oct.,2009.
- (2)Murakami,H., Kato, T. and Honda, A.: Bacillus entriensis sp. nov., an alkaliphilic nitrate-reducing bacterium isolated from soil. International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology .
- (3)David Savage; Steven J Benbow; Claire E Watson; Hiroyasu Takase; Kaori Ono; Chie Oda; Akira Honda, Natural Systems Evidence for the Alteration of Clay under Alkaline Conditions: an Example from Searles Lake, California, Special Issue of Applied Clay Science, vol.47, pp.72 – 81.
- (4)Satoh, H., Tsukamoto, K., Yamaguchi, K., Honda, A. and Kamei, G.: In-situ phase-shift interferometry of hornblende dissolution under alkaline condition, American Mineralogist.(in preparation)
- (5)Honda, A., Inagaki, M. and Yamaguchi, K.: Modelling geochemical and mass transport using PHREEQC-TRANS, pp.97-114, LCS – Phase 1 Modelling report, Gaus, I., Ruedi, J. and Blaser, P. (Ed)., NAGRA NAB.(in preparation)

公開技術資料:

- (1)亀井玄人ほか:TRU廃棄物の処理・処分技術に関する研究開発平成20年度報告, JAEA-Research 2009-046.
- (2)市毛悟ほか:ベントナイト長期安定性評価試験、-セメント系材料と海水系地下水との反応により形成されるアルカリ性間隙水の影響-, JAEA Technology 2009-065
- (3)三原守弘:JAEA-TDBにおける有機物関連の熱力学データの整備 JAEA Review 2009-060(印刷中)
- (4)三原守弘、佐藤信之ほか:TRU廃棄物処分施設の力学評価システム(MACBECE)の開発 JAEA Code/Data 2009-026(印刷中)

今年度成果及び今後の展開

平成21年度

核種移行データ、セメント系材料の変質挙動、高アルカリ性溶液の緩衝材や岩盤への影響等に係る基礎データの収集拡充及びセメント系材料の影響を考慮した処分システムの長期安定性評価等に係るモデル検討を進めた。

平成22年度以降

多様な条件に対応できるよう、評価基盤技術の拡充や高度化及び適用性確認を行う。



付 録

TRU-2からの進展(1/2)

(2) 設計・工学技術

①人工バリア材料物性:

セメント硬化体中の重要放射性元素(I, Cl及びCs)の拡散データの取得及び整備。
高イオン強度の溶液を用いたベントナイトの透水係数の取得及び整備。

②ニアフィールド構造解析:

軟岩のクリープ及び人工バリアの変質を考慮した処分施設の構造解析モデルの整備及び変形挙動解析。

(3) 性能評価

①核種移行データ取得・整備

a) ソースターム(核種溶解挙動)

セメント系材料(有機物を含む)や硝酸塩及びその化学的変遷物の存在する条件での重要放射性元素の溶解度データ取得及び化学平衡モデルによる評価。熱力学データベースへの反映。

c) 移行パラメータ(分配係数など)

セメント系材料(有機物を含む)や硝酸塩及びその化学的変遷物の存在する条件での重要核種のセメント材料や岩石への分配係数の取得及び収着機構の理解。収着分配係数データベースへの反映。

d) 微生物影響

硝酸塩影響の評価に包含。

TRU-2からの進展 (2/2)

②セメント変質

a) 化学的変遷:

普通ポルトランドセメント (OPC) 系材料と海水系地下水との化学的相互作用及び低アルカリ性セメント (HFSC) 系材料の水和進行や降水系地下水影響に係る知見拡充。

③アルカリ影響下ベントナイト・岩反応

a) ベントナイト系材料(緩衝材、埋め戻し材)化学的変質:

モンモリロナイトの溶解速度についての基盤的検討と溶解速度式の適用性確認。関連する鉱物や溶存化学種の熱力学データ取得、整備。地球化学-物質移動連成システムに対する評価モデルのナチュラルアナログによる妥当性確認。

b) 岩盤変質:

アルカリ性溶液と岩盤の接触による初生鉱物溶解と二次鉱物沈殿に伴う場の化学的条件及び物質移動特性の変化を評価するための地球化学-物質移動連成システムの構築。

④硝酸塩／有機物影響:

地層中の硝酸イオンの化学的変遷についてのモデル化とその存在下での核種移行データ取得により、硝酸塩影響評価システム検討。また、セメント混和材として含まれる有機物の核種移行への影響評価。公募事業として23年度まで実施。

⑥システム性能評価:

核種移行解析モデルの開発及び解析コードのHLWとの平仄合わせに関する検討。

☆各課題に付した番号は全体基本計画に準拠したもの。

TRU廃棄物とHLWとの処分評価基盤の平仄あわせ

		高レベル放射性廃棄物	TRU廃棄物
性能評価モデル	放射線	実験的に化学的環境・オーバーパックの腐食影響について評価。	HLWでの評価を参考に評価。
	熱	T-H-M-Cモデルにて温度を評価。	単純な熱伝導解析により評価。
	水理	亀裂ネットワークモデル(FracMan等)による評価。	
	構造力学	緩衝材の変形(関口・太田モデル,足立・岡モデル)、岩盤のクリープ(大久保モデル)を連成させたモデル(MuDIAN)により評価。緩衝材のせん断挙動については評価モデルを整備中(ABAQUS等を利用)	緩衝材の変形(関口・太田モデル)、岩盤のクリープ(大久保モデル)を連成させたモデル(MACBECE)により評価。
	ガス移行	緩衝材中のガス移行及び力学連成モデル(GAMBIT)で評価。	緩衝材及び岩盤については、HLWと共通。
	化学環境	T-H-M-Cモデルにて化学環境を評価。	H-Cモデル(PHREEQC-TRANS等)にて評価。
	核種移行	既存の解析モデル・ツール(MESHNOTE, Matrix, GoldSim等)を利用して評価。	処分施設内の核種移行については、パラメータの時間的変遷を考慮できるモデル(TIGERコード)にて評価。岩盤のモデルについては、HLWと共通。
	生物圏	HLW及びTRU廃棄物処分研究ともに評価手法は共通。評価パラメータについては、放射線医学研究所と協力しながらデータを整備。TRU廃棄物処分に評価対象核種(ヨウ素、炭素、塩素など)についてもデータ整備を実施。	
データベース		熱力学データベースについては、高アルカリ性領域やTRU廃棄物処分評価対象核種についてもデータを整備中。収着分配係数や拡散係数データベースについても共通。特にTRU廃棄物の研究においては、セメント系材料を中心にデータ取得・整備。	

高アルカリ性条件における緩衝材の長期挙動評価および天然バリアへの高アルカリ性溶液影響評価の補足

Sato et al. (2002) の式

$$\text{Rate} = 10^{-13.68} \times (a_{H^+})^{-0.25} \times (IAP/K_{eq} - 1)$$

Cama et al. (2000) の式

$$\text{Rate} = -8.1 \times 10^{-12} \times (1 - \exp(-6 \times 10^{-10} \times (\Delta G_r/RT)^6))$$

Cama et al. (2000) のSiの式

$$\text{Rate} = 10^{-17.5}/[\text{Si}]^{1.26}$$

Rate : montmorillonite dissolution rate

a_{H^+} : activity of H^+

IAP : ionic activity product

K_{eq} : equilibrium constant for the reaction

ΔG_r : $\Delta G_r = RT \times \ln(IAP/K_{eq})$

R : gas constant

T : temperature

[Si] : concentration of total Si

$$\Delta G_r = \Delta G^0 + RT \ln Q$$

ΔG^0 : standard Gibbs free energy change of the reaction

R : gas constant

T : temperature

Q : reaction quotient

K : equilibrium constant for the reaction

平衡で $\Delta G_r = 0$ 、 $Q = K$ となる。

セメント系材料の長期挙動評価-補足資料(1)-

各ポゾラン材料の反応速度式の算出手順

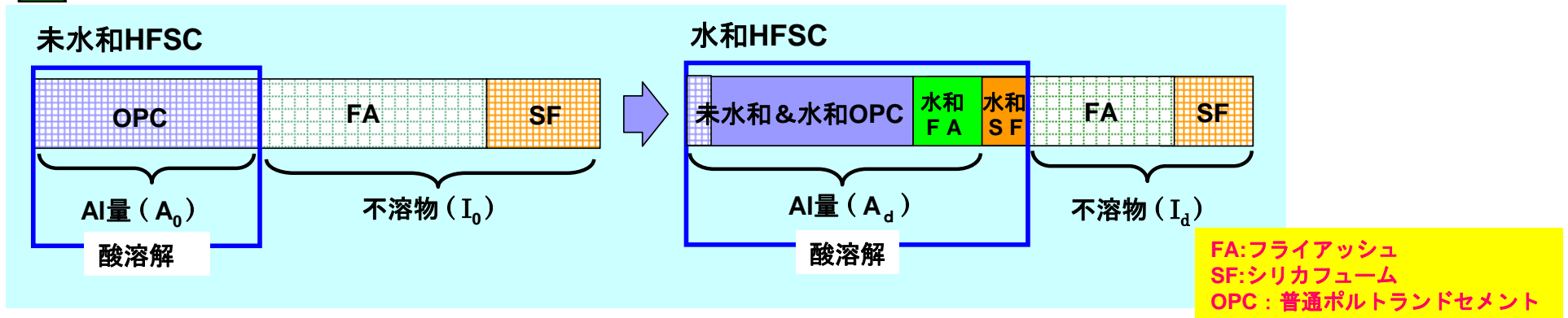
- ① 養生時間の異なるHFSC硬化体のフライアッシュ及びシリカフェームの反応率を求める。
- ② Janderの式に適用して、速度定数Kを求める。

Janderの式

$$f(\alpha) = \left[1 - (1 - \alpha)^{1/3} \right]^2 = kt$$

α : 各ポゾラン材の反応率
 k : 各ポゾラン材の速度定数
 t : HFSC硬化体の養生時間

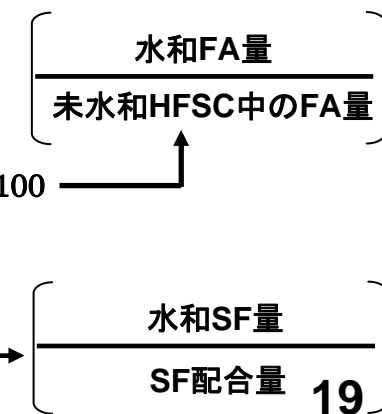
各ポゾラン材料の反応率の求め方



$$\text{ポゾラン反応率} = \frac{\text{不溶物}(I_0) - \text{不溶物}(I_d)}{\text{不溶物}(I_0)} \times 100$$

$$\text{フライアッシュ反応率 (FA反応率)} = \frac{\text{水和HFSCの酸溶解液中のAI量}(A_d) - \text{未水和HFSCの酸溶解液中のAI量}(A_0)}{\text{未水和HFSCのAI含有量} - \text{未水和HFSCの酸溶解液中のAI量}(A_0)} \times 100$$

$$\text{シリカフェーム反応率 (SF反応率)} = \frac{\text{ポゾラン反応率} \times \text{ポゾラン材配合量} - \text{FA反応率} \times \text{FA配合量}}{\text{SF配合量}} \times 100$$



セメント系材料の長期挙動評価-補足資料(2)-

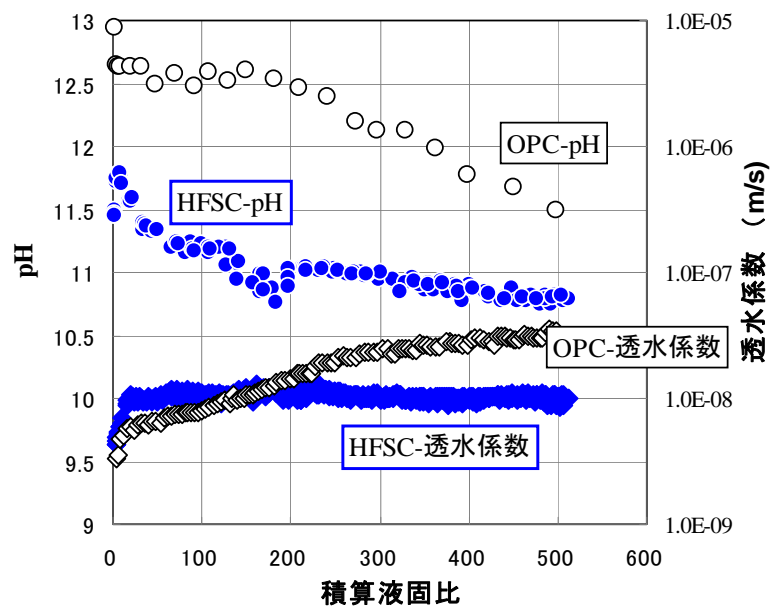


図. イオン交換水を通水したセメント硬化体のpHと透水係数の経時変化

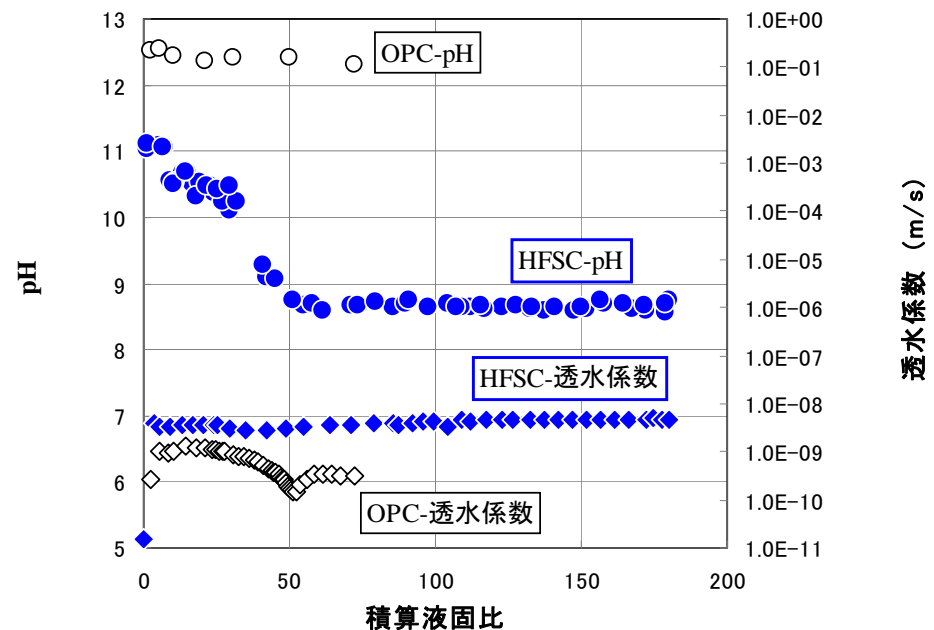


図. 人工海水を通水したセメント硬化体のpHと透水係数の経時変化