

平成23年10月30日 九州大学 伊都キャンパス

地層処分の安全評価に関する取り組みの現状と課題

日本原子力研究開発機構 柴田 雅博

本日の説明内容



- ▶ 地層処分システムの安全性の提示方法 (Safety Case と Safety Assessment)
- > 安全評価の方法論
- ▶ 個別現象の理解とプロセスモデルの開発
 - ー ガラスの溶解と核種浸出
- ▶ 基盤となるデータの整備, 品質保証
 - 一溶解度評価のための熱力学データベース
 - 緩衝材・岩石への核種の収着・拡散
- ▶ 地質環境調査や処分場の設計と連携した評価体系の開発
- > まとめ

はじめに



地層処分システムの安全性をどのように示していくのか?

セーフティーケース(Safety Case)

A safety case is the synthesis of evidence, analyses and arguments that quantify and substantiate a claim that the repository will be safe after closure and beyond the time when active control of the facility can be relied on.

セーフティケースは、閉鎖された後の制度的な管理の維持が保証できないような時間枠においても、処分場が<u>安全</u>であり続けるとする<u>主張</u>を定量化し立証するための<u>証拠、解析さらには論拠の統合体</u>である。

Post-Closure Safety Case for Geological Repositories: Nature and Purpose (NEA, 2004)

...... The safety case includes the out put of safety assessments, together with additional information, including supporting evidence and reasoning on the robustness and reliability of the facility, its design, the design logic, and the quality of safety assessments and underlying assumptions.

IAEA Safety Requirements for Geological Disposal of Radioactive Waste, WS-R-4 (2008)

セーフティーケースの構成要素





安全評価を支える情報や解析ツールの集合体。

評価基盤(Assessment basis)(抜粋)

- 処分システム全体の記述(地質環境, 処分場). システムの安全の評価に関する科学技術的な データや理解、評価方法、モデル、コンピュータ コード. データベースを含む。
- ・安全評価の品質と信頼性は、評価基盤の品質と 信頼性に依存する。品質と信頼性を支持するた めの証拠や議論を含む。
- システム構成要素の記述においては、安全機能、 想定される進展と性能に関する記述, 設計上の 制限事項などが含まれるべき。
- 科学技術的情報には、定量的な不確実性とその。 時間変化に関する情報が含まれるべき。
- 評価手法、モデル、データ等は、明瞭かつ論理 的に提示されなければならない。
- •信頼性に関する議論には、除外するFEPの基準 に関する議論. 不確実性の取り扱いの為に実施 した感度解析結果の利用などが含まれるべき。

(NEA. "Safety Case Brochure", 2004)

安全評価とは



安全評価(Safety Assessent)

Safety assessment is the process of systematically analyzing the hazards associated with the facility and the ability of the site and the design of the facility to provide for the safety functions and to meet technical requirements. Safety assessment includes quantification of the overall level of performance, analysis of the associated uncertainties, and comparison with the relevant design requirements and safety standards.

IAEA Safety Requirements for Geological Disposal of Radioactive Waste, WS-R-4 (2008)

地層処分による安全確保



- 安定な地質環境に適切に工学的対策 を施すことにより、長期にわたり地質環 境が本来有する隔離性と地下水への 多重の対策(多重バリアシステム)によ る安全確保
- 地層処分システムは処分後長期において放射性物質を閉じ込め、人間環境への影響は遠い将来において極めてわずかしか見込まれないと考えられる
- > 閉じ込め(濃縮・保持)と希釈・分散の バランス
 - 人工バリアから天然バリアへの放射 性物質の移行がないことを示すこと はできない



これまで経験したことのない長期の時間スケールに伴う不確実性を考慮した対策と評価が必要



地層処分システムに期待する安全機能と影響要因





地質環境に期待される条件と機能

●長期的な安定性

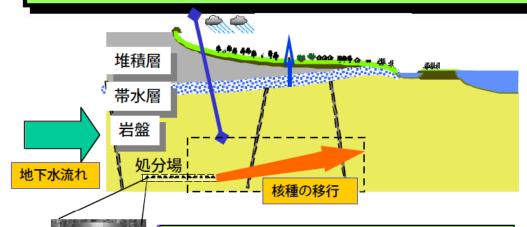
- 火山活動がない
- 活断層が存在しない
- 著しい隆起・侵食が生じない
- 気候変動によって著しい影響を 受けない
- 資源が存在しない

●人工バリアの設置環境

- 好ましい地下水化学(還元性など)
- 小さな地下水流束
- 力学的安定性
- 処分施設がバリア性能を損なわない
- 人間環境からの物理的障壁の存在

●岩盤に期待する安全機能

- 放射性核種の移行抑制(小さな地下水流束による移流あるいは拡散、および岩盤基質部へのマトリクス拡散、収着)
- 放射性核種の希釈・分散(複雑な間除構造により、地下水中の放射性核種はいろいろな方向に分散・希釈)
- 岩盤中を移行する間に放射性核種は崩壊により減衰



●オーバーパックに期待する安全機能

ガラス固化体の発熱や放射能が高い期間、地下水とガラス固化体の接触を阻止

●ガラス固化体**に期待する安全機能**

- 放射性核種を均一かつ安定に固定化
- 高い化学的耐久性により地下水への放射性核種の溶出を抑制

●緩衝材に期待する安全機能

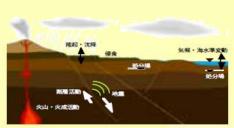
- 低透水性 (周囲からの地下水の浸透やその中での流れを制限)
- 膨潤性と可塑性
- 化学的緩衝性(緩衝材、オーバーパックおよびその腐食生成物と地下水との反応による還元性の維持
- 間隙水中での低い溶解度(溶解度制限)
- 小さな物質移動速度(拡散)
- 放射性核種の移行遅延(収着)
- コロイド、微生物および有機物のろ過(緩衝材微細な間隙構造が高分子の物質の移行を抑制)
- 緩衝材中を移行する間に放射性核種は崩壊により減衰

●安全機能に影響を与える可能性のある要因

- 微生物活動,有機物
- コロイド生成/移行
- ガス発生/移行
- 放射線分解
- 放射線損傷
- 緩衝材の物理的/化学的変遷(緩衝材の変質や亀裂への侵入、 オーバーパックの沈下や腐食膨帯)
- 処分施設の構成要素の物理的/化学的変遷(変質,変形)
- ・ 岩盤の物理的/化学的変遷 (変質,変形)

●隔離機能やシステムの安全機能に擾乱を与える可能性のある要因

天然現象

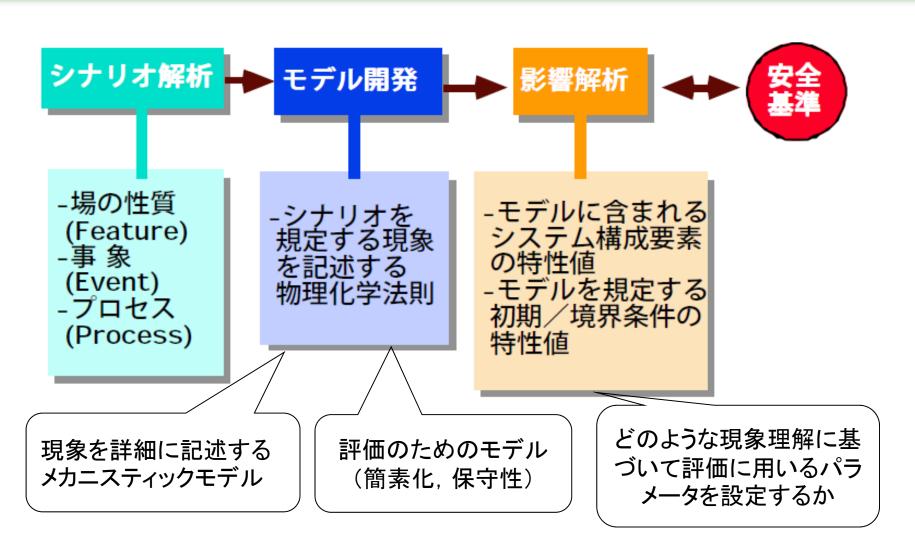


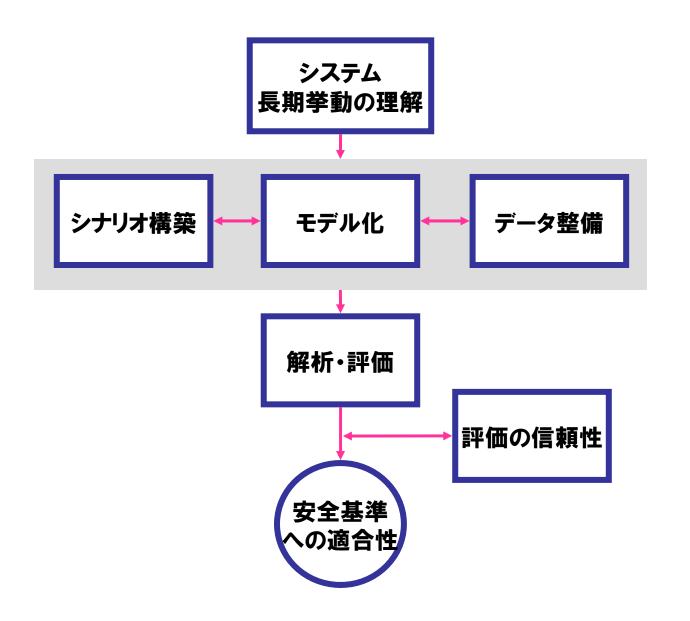
【分冊1 図 1.1-1】

- 将来の人間活動
- 工学的対策に関する初期欠陥
- 隕石の落下
- 臨界

安全評価の一般的方法論







実物大の人工バリア





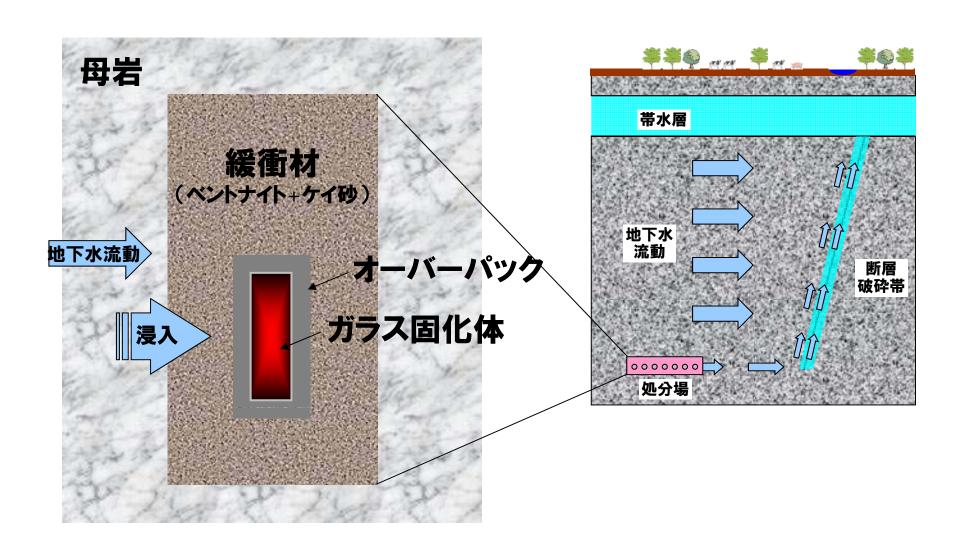
原子力機構 地層処分基盤件施設(東海)



原子力環境整備・資金管理センター 地層処分実規模試験施設(幌延) http://www.rwmc.or.jp/institution/project/

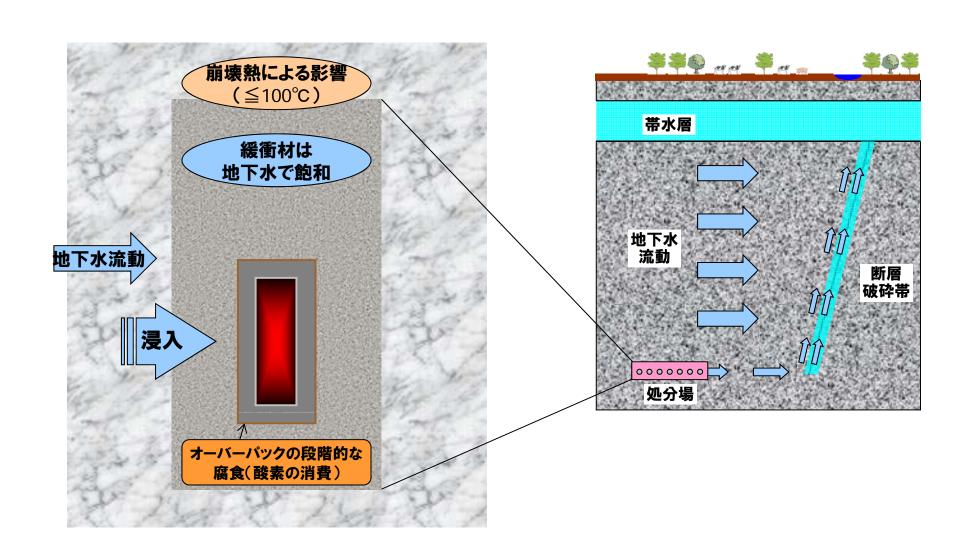
地層処分システムがどのように機能するか (システム長期挙動の理解) 処分後 O年





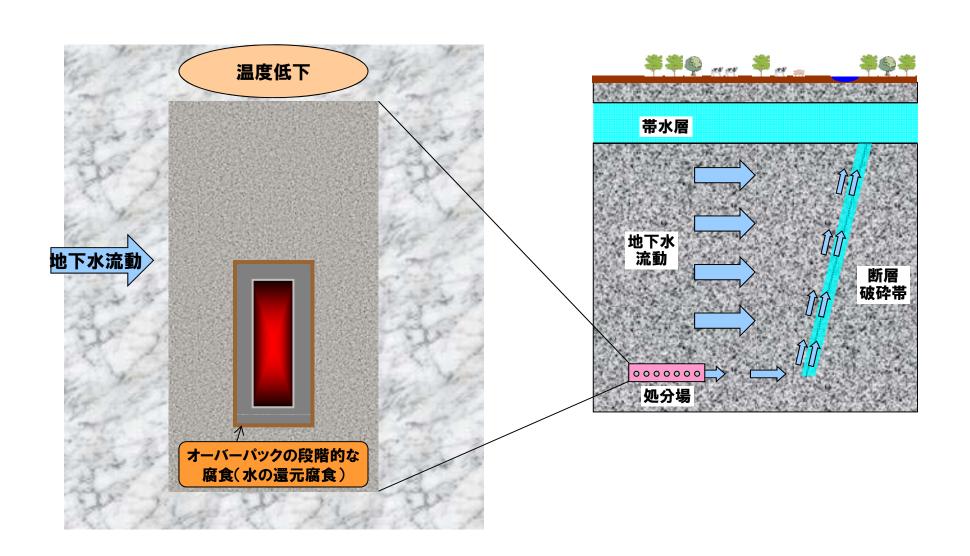
地層処分システムがどのように機能するか (システム長期挙動の理解) 処分後 数十年





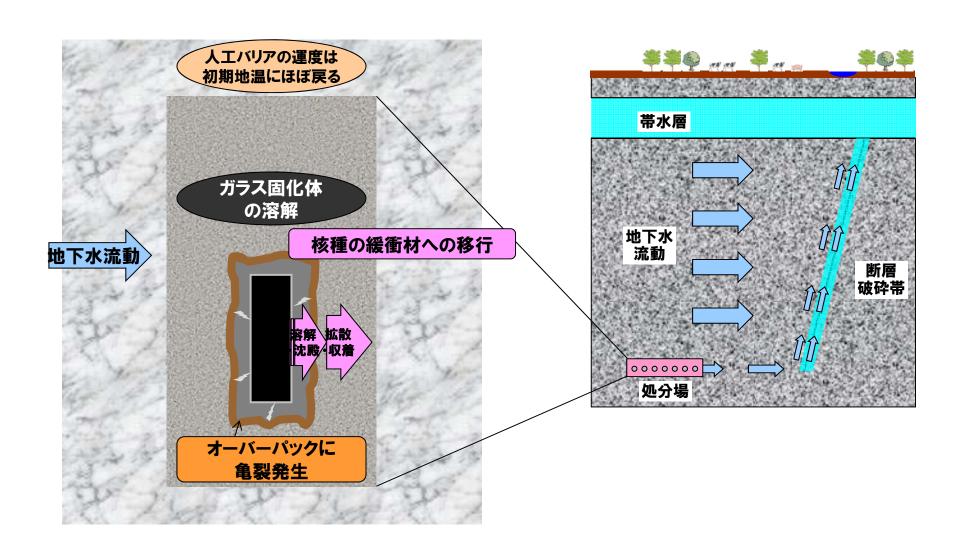
地層処分システムがどのように機能するか (システム長期挙動の理解) 処分後 数百年





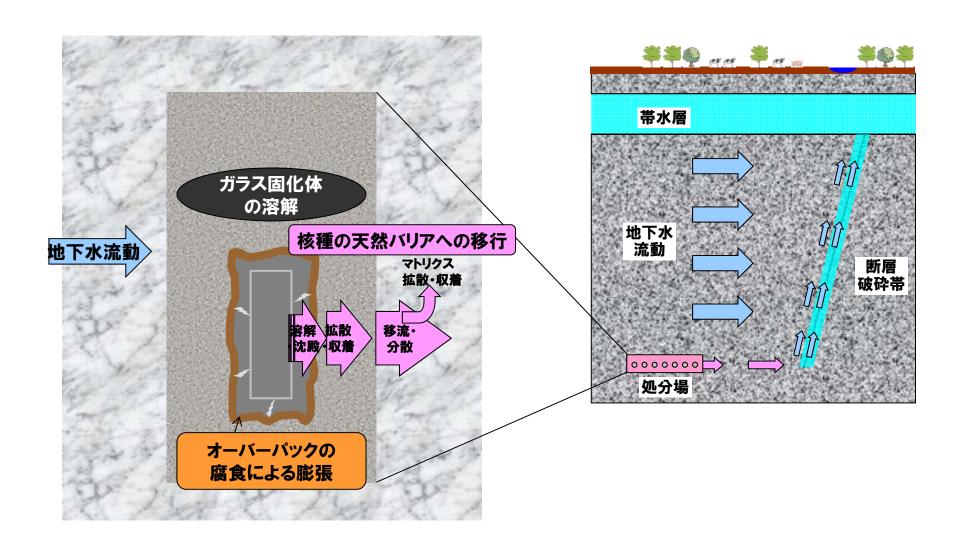
地層処分システムがどのように機能するか (システム長期挙動の理解) 処分後 数千年



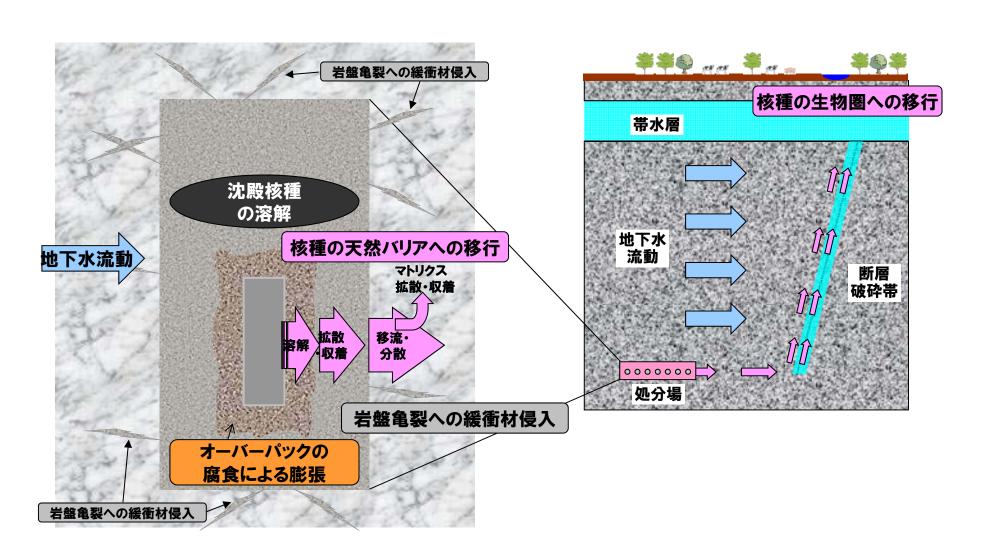


地層処分システムがどのように機能するか (システム長期挙動の理解) 処分後 数万年

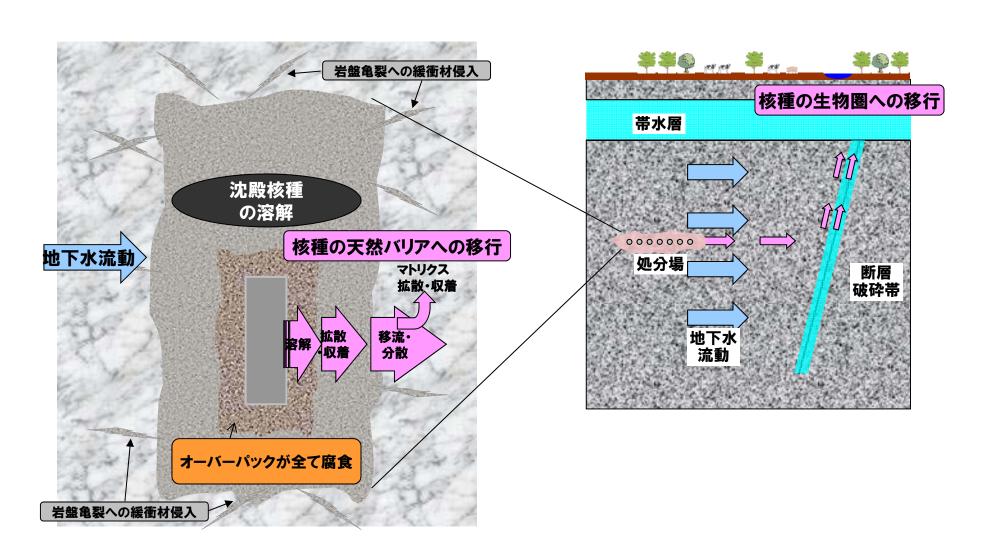




地層処分システムがどのように機能するか (システム長期挙動の理解) 処分後数十万年

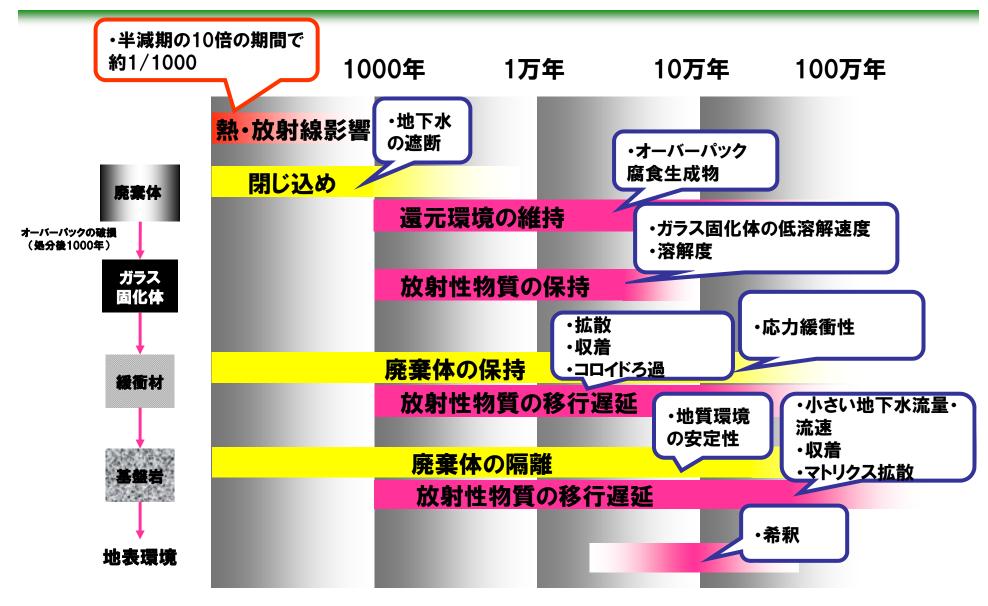


地層処分システムがどのように機能するか (システム長期挙動の理解) 処分後 数百万年



システムに期待する主な安全機能





人工バリア中核種移行評価 で扱う主なプロセスと仮定 (第2次取りまとめ)



廃棄体

ガラス 固化体

緩衝材

掘削影響 領域

オーバーパック の腐食・破損

→一律の破損時期 (処分後1000年) →破損後のバリア 機能喪失 >環元環境の維持

ガラス固化体の溶解

>長期溶解速度>変質層形成による溶解速度への影響は保守的に省略>初期熱衝撃割れによる表面積増加考慮>溶解による表面積の減少は省略

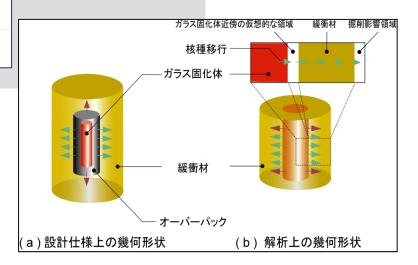
緩衝材中 核種移行

- 一次元拡散>可逆瞬時平衡モデルによる収着>分割溶解度
- >コロイドろ過 >オーバーパック力学 的保持
- ▶化学的緩衝性▶長期に安定

掘削影響領域 での扱い

>ミキシングセルで モデル化移行遅延無視>亀裂へのフラックス 均等分配





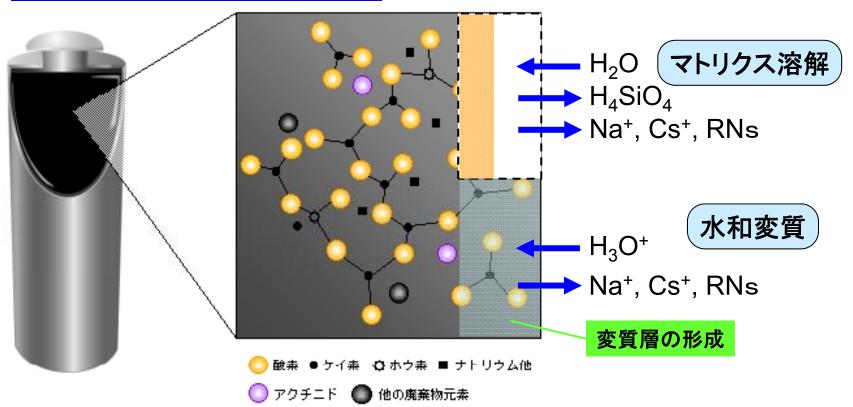


- ▶ 地層処分システムの安全性の提示方法 (Safety Case と Safety Assessment)
- > 安全評価の方法論
- ▶ 個別現象の理解とプロセスモデルの開発
 - ー ガラスの溶解と核種浸出
- ▶ 基盤となるデータの整備、品質保証
 - 一溶解度評価のための熱力学データベース
 - 一 緩衝材・岩石への核種の収着・拡散
- ▶ 地質環境調査や処分場の設計と連携した評価体系の開発
- > まとめ

ガラス固化体の溶解・核種の浸出



ガラスの溶解・変質イメージ



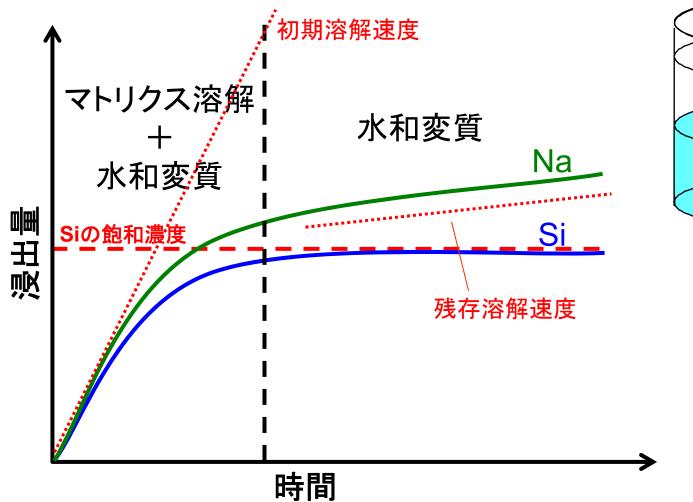
分子構造レベルでみたガラス網目構造中の廃棄物元素の存在状態

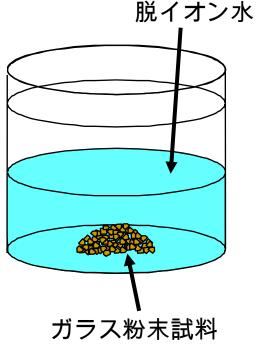
(原環センターHPの図に加筆)

マトリクス溶解:SiO₂ + 2H₂O ⇔ H₄SiO₄

水和変質:≡Si-O⁻Na⁺ + H₃O⁺ ⇔ ≡Si-O⁻H⁺ + Na⁺ + H₂O

閉鎖系におけるガラスの溶解・変質





マトリクス溶解:SiO₂ + 2H₂O ⇔ H₄SiO₄

水和変質: ≡Si-O-Na+ + H₃O+ ⇔ ≡Si-O-H+ + Na+ + H₂O

ガラス固化体の溶解速度式

Rate [g/m²/d] = $r_o \times [1-(Q/K)] + r_f$

 r_0 : 初期溶解速度

Q:溶存ケイ酸濃度, K:溶存ケイ酸の飽和濃度

 r_f : 溶存ケイ酸飽和後の残存溶解速度

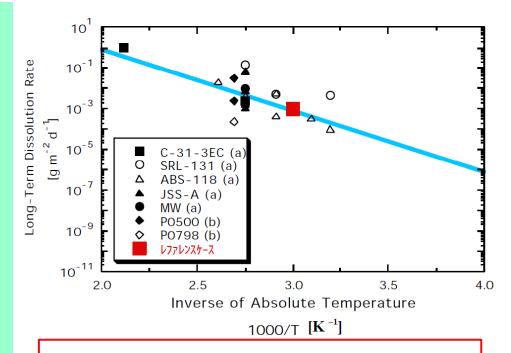
第2次取りまとめレファレンスケースにおけるガラス固化体長期溶解速度の設定

【考え方】

- ・ガラス周辺の溶存シリカ濃度は長期的には飽和する。
- ⇒長期のガラス浸出試験から得られる 溶解速度データに基づき設定
- ・変質層形成による溶解速度低減の影響は保守的に省略。
- ・温度依存性 を考慮(処分環境:60℃)
- ・調和溶解:ガラス中に存在する元素はすべて等しく間隙水中に放出される。
- ・割れによるガラス表面積増加:10倍



ガラス固化体の核種保持性能:7万年 (全て溶解するまでの期間)



保守的・簡略的ではあるが、現実的・合理的ではない。

→ 実際の処分環境を想定し、現象理 解に基づいた、評価モデル構築が 必要

より現実的な評価モデルの構築に向けて

ガラス固化体の溶解速度式

$$Rate [g/m^2/d] = r_o \times 10^{\eta \bullet pH} \times exp(-E_a/RT) \times [1-(Q/K)] + r_f$$
 初期溶解速度 pH 依存性 温度依存性 化学親和力 残存溶解速度 $r_o: \partial H$ 溶解速度 (長期溶解速度)

【課題】

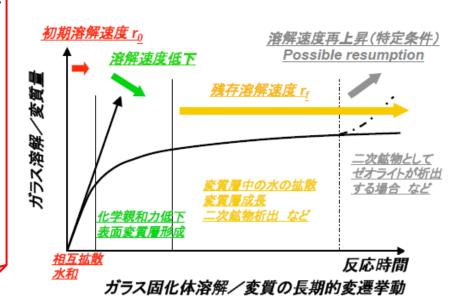
ガラス溶解/核種浸出メカニズムについて

- ・初期溶解速度の環境因子パラメータの精緻化
- ・残存溶解速度の現象理解、環境依存性評価
- ·溶解速度低下現象, 変質層の寄与に関する 現象理解

処分システムでの環境条件について

・ケイ酸濃度を支配するメカニズムの理解 (e.g. Siの腐食生成物, 緩衝材中での 吸着・拡散, 二次鉱物の生成)

・ガラスの反応表面積



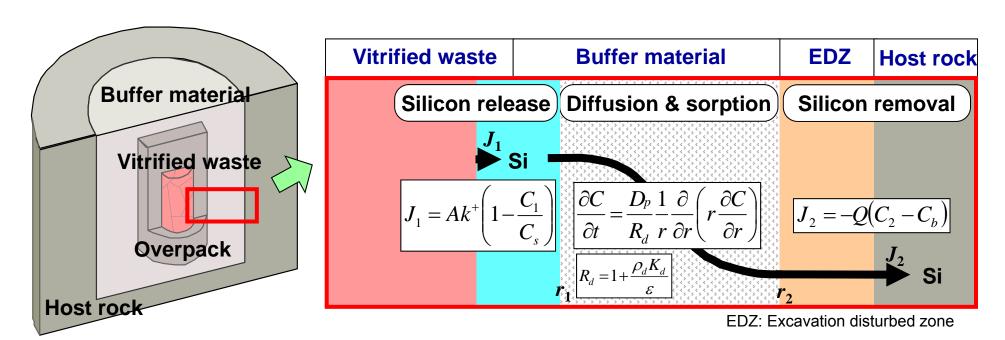
η:溶解のpH依存性係数

 E_a : 活性化エネルギー [kJ/mol]

 r_e : シリカ飽和後の残存溶解速度

Q: 溶存ケイ酸濃度,K: 溶存ケイ酸の飽和濃度

Siの拡散を考慮した新たな評価モデルの提案



●ガラス溶解

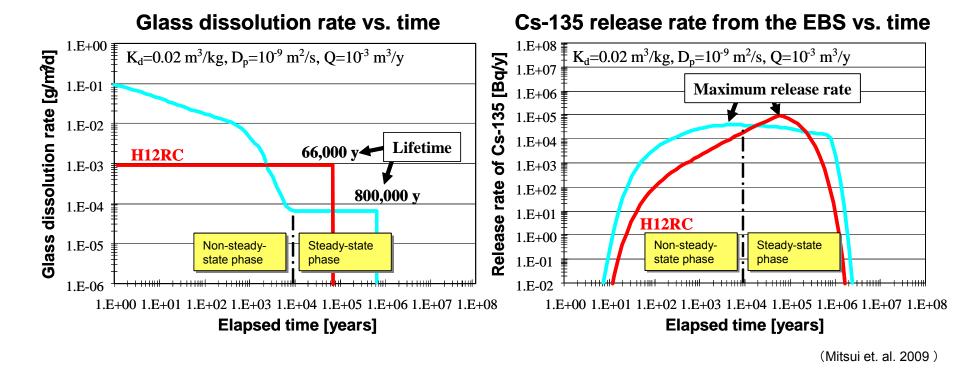
- ▶ 一次反応速度則
- ➤ 緩衝材中でのSiの収着,拡散による移行を考慮
- ➤ EDZ領域での地下水との瞬時混合と母岩への移行を考慮
- ▶ ガラスの水和変質相による溶解抑制, オーバーパックとの相互作用は未考慮
- ▶ ガラス表面積:幾何学的表面積の10倍(第2次取りまとめに同じ)

●核種の移行評価

▶ 第2次取りまとめに同じ

異なる評価モデルによる結果の比較

第2次取りまとめ(H12) モデル vs Si濃度考慮モデル



ガラス溶解メカニズムと処分環境での物質移行の理解に基づいて、

Siの濃度変化を考慮した新しい評価モデルを提案

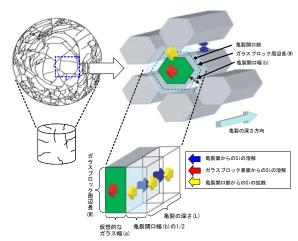
⇒ 背景となる現象理解と評価の考え方(評価に取り込んでいる現象と残る不確実性)の説明が重要

ガラス固化体表面積の取扱いの検討

第2次取りまとめでの取り扱い: 幾何学的表面積の10倍で一定 実規模模擬ガラス(冷却亀裂入り)の浸出試験結果を基に保守的に設定

ガラス溶解に対する亀裂の寄与を評価するモデルの開発

▶H12での取り扱いが妥当であることを確認 実規模の模擬ガラスの割れ(左)および亀裂内での Siの移行や飽和を考慮する溶解モデル(右)



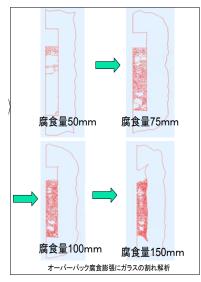
割れにより表面積が100倍以上に増加した場合の溶解量増加の実験結果と解析結果の比較

実験結果	約1.5倍
解析結果	約2倍

ガラス固化体の破壊・変形挙動を評価するモデルの開発

- ▶オーバーパックの変形挙動の3次元解析 手法の開発と解析結果の例示
- ▶ガラス固化体の破壊挙動の3次元解析 手法の開発と腐食量毎の破片サイズの分 布等の評価

ガラス固化体の破壊・変形 挙動の評価例



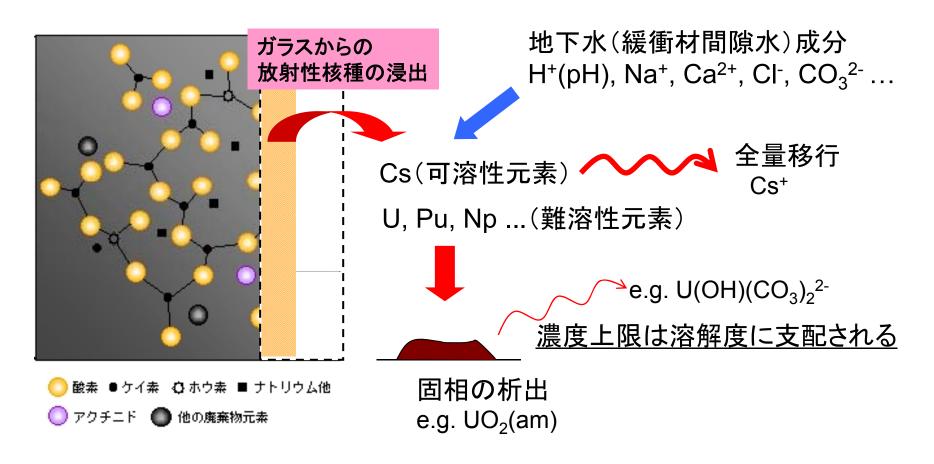


- ▶ 地層処分システムの安全性の提示方法 (Safety Case と Safety Assessment)
- > 安全評価の方法論
- ▶ 個別現象の理解とプロセスモデルの開発
 - ガラスの溶解と核種浸出
- ▶ 基盤となるデータの整備, 品質保証
 - 溶解度評価のための熱力学データベース
 - 緩衝材・岩石への核種の収着・拡散
- ▶ 地質環境調査や処分場の設計と連携した評価体系の開発
- > まとめ

溶解度評価のための熱力学データベース



溶解度による濃度支配



溶解度の設定方法

- ・元素の液中の濃度上限値は、溶液条件に大きく依存する。
- ⇒ 実測値のみに基づく設定は現実的ではない
- ⇒ 熱力学データに基づく計算による推定

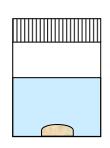


設定対象となる地下水, 緩衝材間隙 水の条件(pH, Eh, 化学組成) 溶解度制限固相に関する知見 ⇒溶解度制限固相の設定

地球化学計算コードによる計算(溶解度,溶存化学種)

計算値の評価, 保守性の検討 等

性能評価で利用する 溶解度の設定



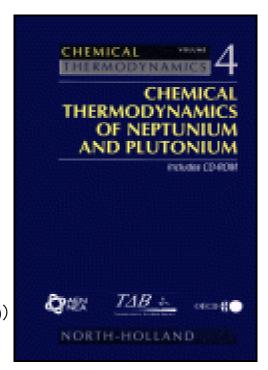
熱力学データベース(TDB)の整備

信頼性の高い熱力学データの重要は国際的な共通認識

- ⇒ OECD/NEA Thermochemical Database (TDB)

 Project (http://www.nea.fr/html/dbtdb/welcome.html)
 - ・個別元素毎に、国際的専門家からなる作業グループを設置
 - ・実験の報告論文をひとつひとつ丁寧にレビュー
 - ・品質保証基準を定め、科学的に正確な値の選定を実施

1984年開始, 現在までに11の元素(U, Am, Tc, Np, Pu, Ni, Se, Zr, Th, (Fe, Sn)) と有機物に関するデータを整備



課題:

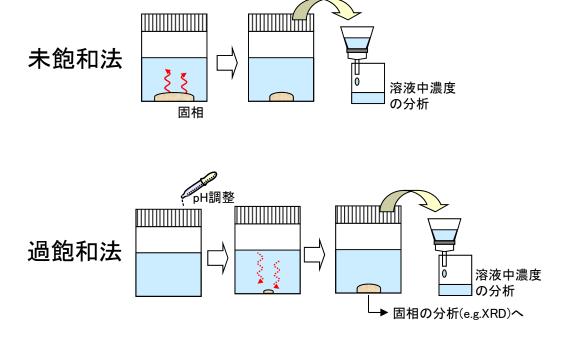
- ・必要となる元素が網羅されていない
- ・実験事実に基づく科学的正確性を重視しているため、存在が明らかな化学種に対しても 値が選ばれない場合がある(=網羅性の観点からは問題アリ) 等
- ⇒ 各国の研究機関が自国の性能評価用に独自にデータベースを整備

JAEA

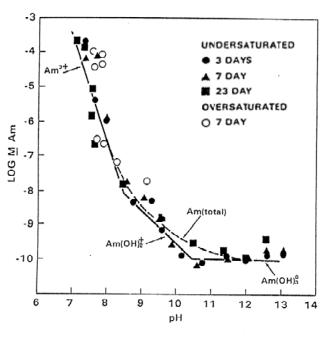
JNC-TDB (Yui et al. 1999) 第2次取りまとめに向けて整備

JAEA-TDB(2010) (Kitamura et al. 2010) 最新の研究成果の取り込み, 品質の向上

溶解度試験による熱力学データの取得



溶解度試験結果の例

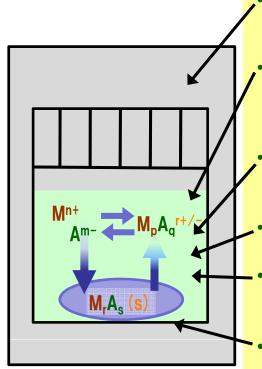


Rai et al. (1983)



$$\begin{array}{lll} Am(OH)_{3}(s) + 3H^{+} \leftrightarrows Am^{3+} + 3H_{2}O & K_{s10} \\ Am(OH)_{3}(s) + 2H^{+} \leftrightarrows AmOH^{2+} + 2H_{2}O & K_{s11} \\ Am(OH)_{3}(s) + H^{+} \leftrightarrows Am(OH)_{2}^{+} + H_{2}O & K_{s12} \\ Am(OH)_{3}(s) \leftrightarrows Am(OH)_{3}(aq) & K_{s13} \end{array}$$

溶解度試験において留意すべき点



実験条件

- 雰囲気
- 酸化還元に鋭敏な元素もしくは環境では不活性ガス(アルゴンがベスト, もしくは窒素)雰囲気が必要
- pHの設定および調整
- pH調整に適切な試薬の選定
- 特に高イオン強度水溶液中における水素イオン濃度指数(-log[H+]:pHではない) の測定方法の選定
- 酸化還元電位の調整
- 還元条件を維持するための適切な還元剤の選定(溶液条件に依存)
- 目的化学種と還元剤が相互作用しないことの確認
- ・イオン強度調整剤の選定
 - 目的化学種と相互作用しないことの確認(例えばCIO₄-系がよい)
 - 貯蔵溶液の調製および初期条件の設定
 - 適切な酸化還元状態の維持の必要性
 - 多核種生成の制御が必要の必要性. 等
- 接触時間の設定
- 過飽和および不飽和の両実験を行い平衡到達を確認

分析手法および化学種同定技術

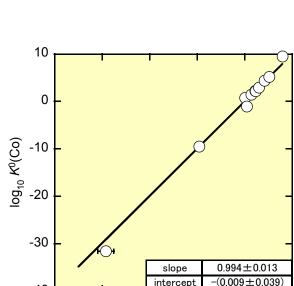
- •固液分離法
 - 適切なフィルター孔径の選定(たとえば分画分子量10⁴)
- ・目的元素の固液間の分配を調べる手法
 - ICP-MS. 放射能測定など
- ・酸化還元状態や化学構造を解明するための同定技術
 - 溶媒抽出. 各種分光測定など

JAEA熱力学データベース(TDB)の整備

- ・OECD/NEAのガイドラインに基づいた熱力学データ選定
 - ▶ 実験データのレビュー
 - ▶ 見かけの平衡定数の導出とイオン強度0への外挿(SIT法)
 - > 誤差評価
 - ▶ 温度補正等
- OECD/NEAによるNi, Se, Zr, Thの選定値, Tc, U, Np, Pu, Amの改訂版の選定値
 およびこれらの有機物錯体の選定値の採用

ただし、OECD/NEAの選定値だけでは不十分

- ▶対象元素が限定的
- ▶信頼性の不十分な熱力学データは不採用
- ・化学アナログの利用
 - > 類似性の確認
 - 電子配置
 - イオン化エネルギー
 - イオン半径
 - ルイスの酸・塩基特性等
 - ▶ JAEA-TDBにおける化学アナログの適用元素
 - Niを基準としたCo(右図)
 - Amを基準としたSm, Ac, Pu(III), Cm



ARM

 $T\Delta B \&$

TDB-1

GUIDELINES FOR THE REVIEW PROCEDURE AND DATA SELECTION

ニッケルとコバルトの間の平衡定数 (log₁₀ K⁰)の相関

 $\log_{10} K^0(Ni)$

-20

-10

-30

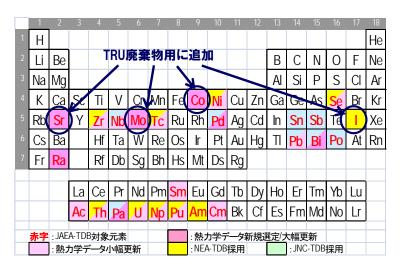
-40

モデルの利用は?

➤ 統一理論モデル、剛体球モデル、配位子反発モデル (JAEA-TDBでは未利用)

10

JAEA熱力学データベース(TDB)の整備



JAEA-TDB 対象元素





JAEA-TDB Webサイト画面

(http://migrationdb.jaea.go.jp)

Table 18 Selected equilibrium constants of aqueous species for JAEA-TDB ready to use for the geochemical calculation programs

Reaction	log ₁₀ K ^o	ref.	t.v.*
$UO_2^{2_1} + CO_3^{2_2} + F \Leftrightarrow UO_2CO_3F$	13.750 ± 0.090	- 11	
$UO_2^{2+} + CO_3^{2-} + 2F \Leftrightarrow UO_2CO_3F_2^{2-}$	15.570 ± 0.140	11	
$UO_2^{2_1} + CO_3^{3_2} + 3 F \Leftrightarrow UO_2CO_3F_3^{3_2}$	16.380 ± 0.110	- 11	
$UO_2^{2^3} + SO_4^{2^2} + CO_3^{2^2} + NO_3^{-2} + 20 H^3 + 16 e^2 \Leftrightarrow UO_2SCN^2 + 10 H_2O(1)$	158.372 ± 0.751	- 11	
$UO_2^{2^2}+2 SO_4^{2^2}+2 CO_3^{2^2}+2 NO_3^{2^2}+40 H^2+32 e^* \Leftrightarrow UO_2(SCN)_2(aq)+20 H_2O(1)$	315.184 ± 1.532	- 11	
$UO_2^{2+} + 3 SO_4^{2-} + 3 CO_3^{2-} + 3 NO_3^{-} + 60 H^{+} + 48 \varepsilon \Leftrightarrow UO_3(SCN)_3^{-} + 30 H_2O(1)$	473.016 ± 2.203	11	
$UO_2^{2+} + H_4SiO_4(aq) \Leftrightarrow UO_5SiO(OH)_3^+ + H^+$	-1.840 ± 0.100	- 11	
$UO_2^{2+} + PuO_2^{2+} + 6CO_3^{2+} \Leftrightarrow (UO_2)_2 PuO_2(CO_3)_6^{4-}$	53,480 ± 1.395	-11	
$UO_2^{2+} + NpO_2^{2+} + 6 CO_3^{2+} \Leftrightarrow (UO_2)_2 NpO_2(CO_3)_6^{6+}$	54,053 ± 3.336	- 11	
$Np^{4+} + g^{-} \Leftrightarrow Np^{3+}$	3.695 ± 0.169	- 11	
$Np^{4i} + 3 CO_3^{2i} + e^i \Leftrightarrow Np(CO_3)_3^{3i}$	20,279 ± 2,385	30,11	
$Np^{3+} + H_2O(1) \Leftrightarrow NpOH^{2+} + H^{3-}$	-6,800 ± 0,300	11	
$Np^{4r} + H_2O(1) \Leftrightarrow NpOH^{3r} + H^r$	-0.090 ± 0.300	30	
$Np^{4r} + 2 H_2O(1) \Leftrightarrow Np(OH)_2^{2r} + 2 H'$	0.870 ± 0.150	30	
$Np^{4r} + 3 H_2O(1) \Leftrightarrow Np(OH)_3^r + 3 H^s$	4.300 ± 0.300	30	
$Np^{4'} + 4 H_2O(1) \Leftrightarrow Np(OH)_d(aq) + 4 H'$	-9.600 ± 1.100	30	
$Np^{4i} + F \Leftrightarrow NpF^{3i}$	8.960 ± 0.140	11	
$Np^{4+} + 2 F' \Leftrightarrow NpF_2^{3+}$	15.700 ± 0.300	- 11	
$Np^{4+} + C\Gamma \Leftrightarrow NpCl^{1+}$	1.500 ± 0.300	11	
$Np^{4i} + \Gamma \Leftrightarrow Npl^{3i}$	1.500 ± 0.400	- 11	
$Np^{4+} + SO_4^{2+} \Leftrightarrow NpSO_4^{2+}$	6.850 ± 0.158	-11	
$Np^{4r} + 2 SO_4^{2r} \Leftrightarrow Np(SO_4)_r(aq)$	11,050 ± 0.269	- 11	
$Np^{4r} + NO_1^{-r} \Leftrightarrow NpNO_1^{3r}$	1.900 ± 0.150	- 11	
$Np^4 + 4 CO_1^2 \Leftrightarrow Np(CO_1)_4^4$	37.610 ± 0.686	30,11	
$Np^{4r} + 5 CO_3^{2r} \Leftrightarrow Np(CO_3)_6^{4r}$	36.540 ± 0.748	30,11	
$Np^{4s} + 2 CO_1^{2s} + 2 H_2O(1) \Leftrightarrow Np(CO_1)_2(OH)_2^{2s} + H^s$	16.387 ± 1.210	30	
$Np^{4i} + SO_4^{2i} + CO_1^{2i} + NO_1^{2i} + 20 H^i + 16 e^i \Leftrightarrow NpSCN^{3i} + 10 H_4O(1)$	159,972 ± 0,775	11	

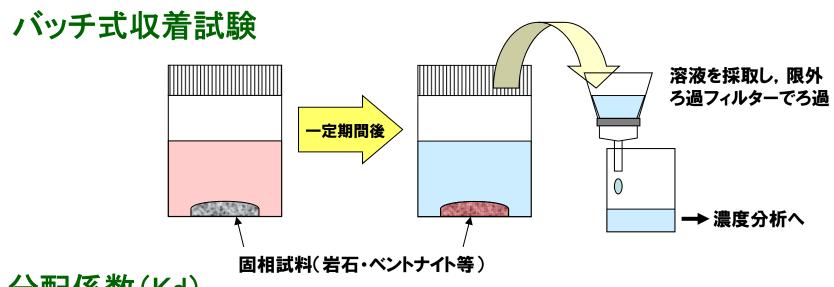
様々な地球化学計算コード で利用可能な電子ファイル として準備

- PHREEQC
- > EQ3/6
- Geochemist's Workbench

核種の地質媒体中の収着・拡散



一般的な収着試験と評価で用いるパラメータ



分配係数(Kd)

核種溶液中に固相試料を添加し、一定期間経過後、溶液を採取・ろ過

→ろ液中の核種濃度を測定,以下の式から,<u>分配係数Kd</u>を求める

$$Kd = \frac{\left(\text{固相中核種濃度}\right)}{\left[\text{溶液中核種濃度}\right]} = \frac{C_0 - C_1}{C_1} \frac{V}{S}$$

C₀:初期核種濃度

C1:一定期間後の核種濃度

S:固相添加量

V:溶液体積

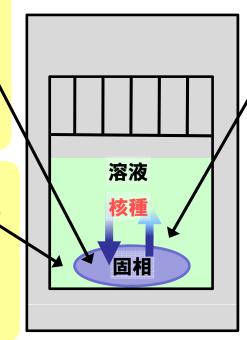
収着データ取得において留意すべき点

固相試料の特性/前処理

- ・試料の代表性
- · 純度/不純物
- · 鉱物組成
- 粒径. BET比表面積
- 有機物. 微生物等

環境条件の制御

- ・ 雰囲気制御(ガス, 還元剤等)
- pHの制御
- 電解質のタイプと濃度
- ・ 共存イオンと配位子の濃度
- ・ 温度の制御



収着実験の方法と条件

- 固液比
- 初期核種濃度(溶解度以下)
- ・収着率の範囲 (例:10-95%)
- ・固液分離の方法
- ・攪拌等の方法
- ・反応容器と壁面吸着
- 反応時間と平衡到達
- ・繰り返し数と誤差評価

Kd変化/収着機構理解のための試験

- > 主要なパラメータ変化 (pH, 配位子濃度)
- 核種濃度依存性(収着等温線)
- 脱離試験(可逆/非可逆)
- > 反応時間依存性
- 収着機構分析(表面化学種, 価数, 内圏/ 外圏等)

Kdの検証/確証のための試験

- ▶ 圧縮系/インタクト系での拡散試験
- **> カラム試験/移流試験**
- > 原位置試験
- **>** ナチュラルアナログ
 - → バッチ-インタクト、スケールアップ、 長期挙動など・・・

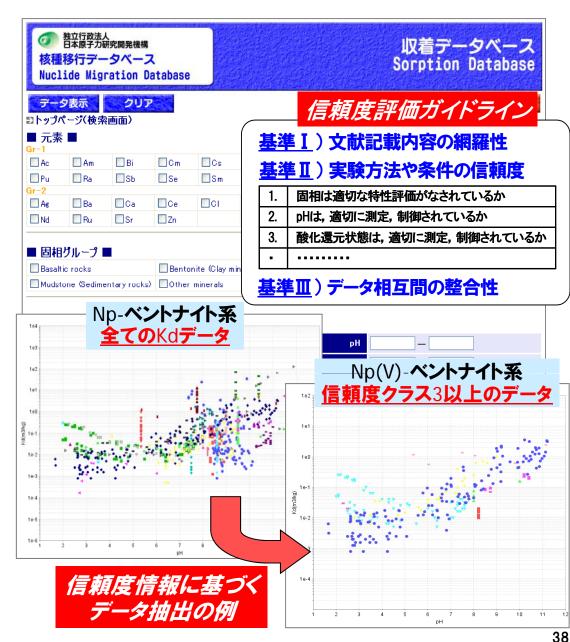
<u>収着データベース(JAEA-SDB)の整備</u> (データの信頼性確保)

- ▶様々な条件・手法で得られた 膨大なデータ群 (収着データベース;約28,000 件のKdデータ)
- ▶ 信頼度評価ガイドライン策定 と個別データ評価



信頼性の高いKdデータを 効率的に抽出可能

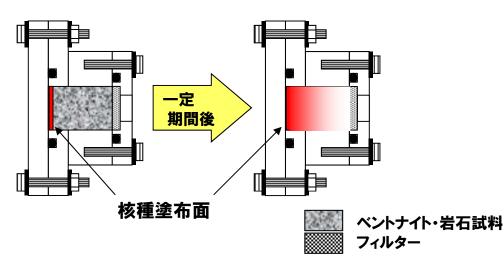


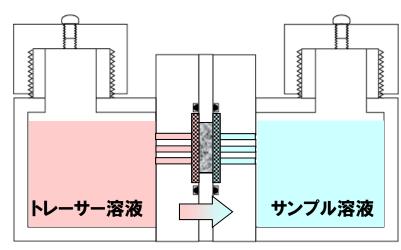


一般的な拡散試験と評価で用いるパラメータ

非定常拡散試験(In-diffusion法)

透過拡散試験(Through-diffusion法)





試料の片面に核種を塗布し, 一定期間 経過後, 試料をスライス

- →各スライス片中の核種濃度を測定し、 試料中の核種濃度分布を評価
- →<u>見かけの拡散係数Da</u>を求める (収着・遅延の効果を含む)

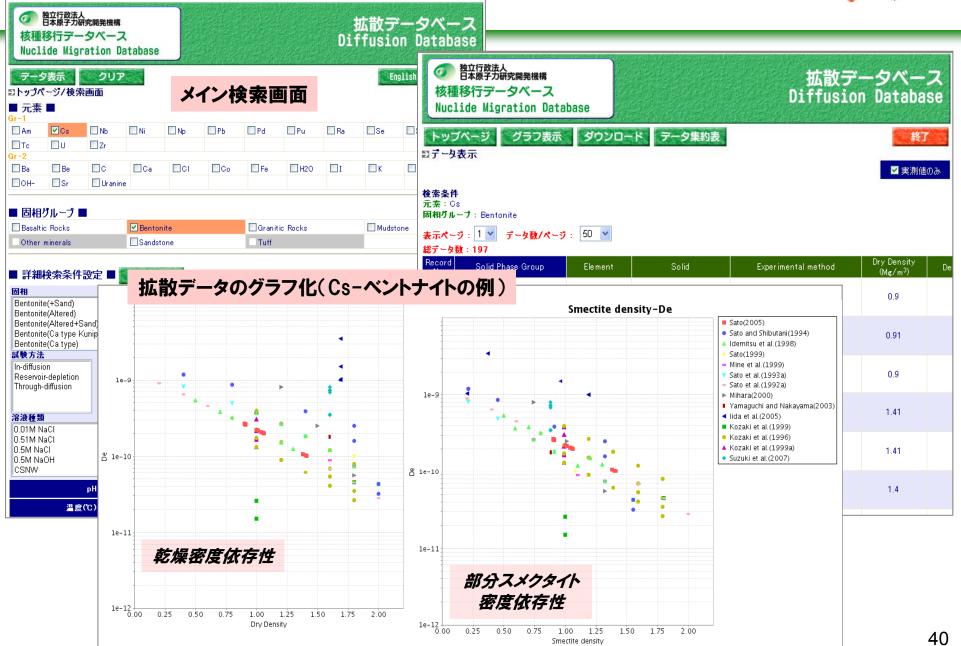
トレーサー溶液に核種を添加し、サンプル溶液中への核種の総拡散量を評価

→<u>実効拡散係数De</u>を求める (収着・遅延の効果を含まない)

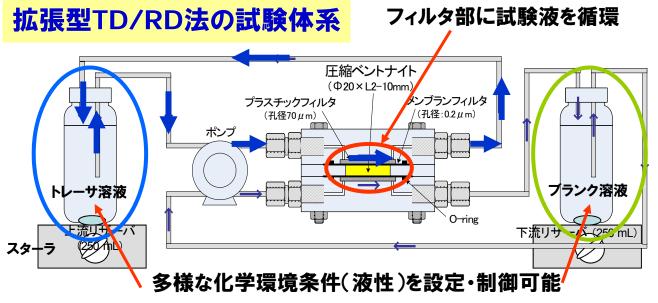
$$Da = \frac{De}{\varepsilon + \rho Kd}$$

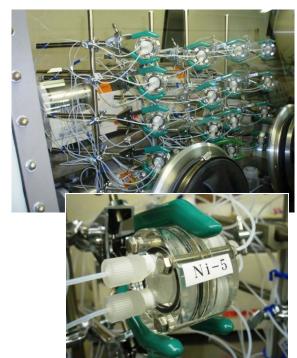
拡散データベース(JAEA-DDB)の開発



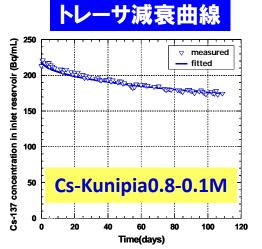


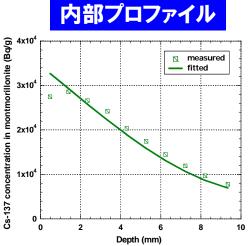
精度の高いデータ取得方法の開発

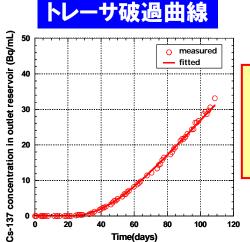




複数の濃度曲線(3or2)の取得と Zhangら解析解の同時フィッティング







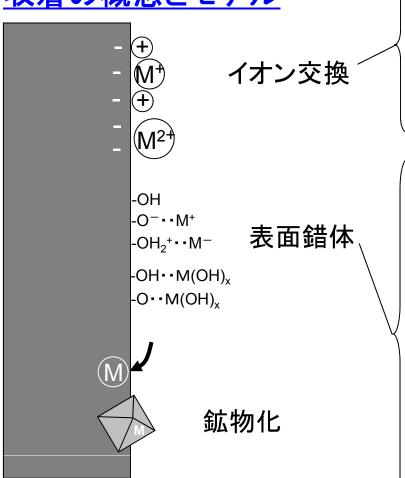
多様な環境条件/ 核種に対し信頼性 の高いDe/Kdを 効率的に取得可能

Tachi et al. (2009)

収着の現象理解とモデル化



収着の概念とモデル



 $n(Z-Na) + M^{n+} = Z_n-M + nNa^+$

Z:イオン交換サイト (初期は Na 吸着を仮定),

M:n+の陽イオン

イオン交換選択係数
$$K_{GT} = \frac{(Z_n M) \{Na^+\}^n}{(ZNa)^n \{M^{n+}\}}$$

():吸着化学種の当量分率, {}:溶液中の活量

吸着化学種の活量係数が1と見なせる時, K_{CT} = K (熱力学的平衡定数)

表面酸・塩基反応

$$S-OH + H^{+} = S-OH_{2}^{+}$$

$$S-OH = S-O^- + H^+$$

$$K_{+} = \frac{\left(S - OH_{2}^{+}\right)}{\left(S - OH\right)\left(H^{+}\right)} \exp\left(\frac{F\Psi}{RT}\right), \quad K_{-} = \frac{\left(S - O^{-}\right)\left(H^{+}\right)}{\left(S - OH\right)} \exp\left(-\frac{F\Psi}{RT}\right)$$

():表面化学種濃度, {}:溶液中の活量

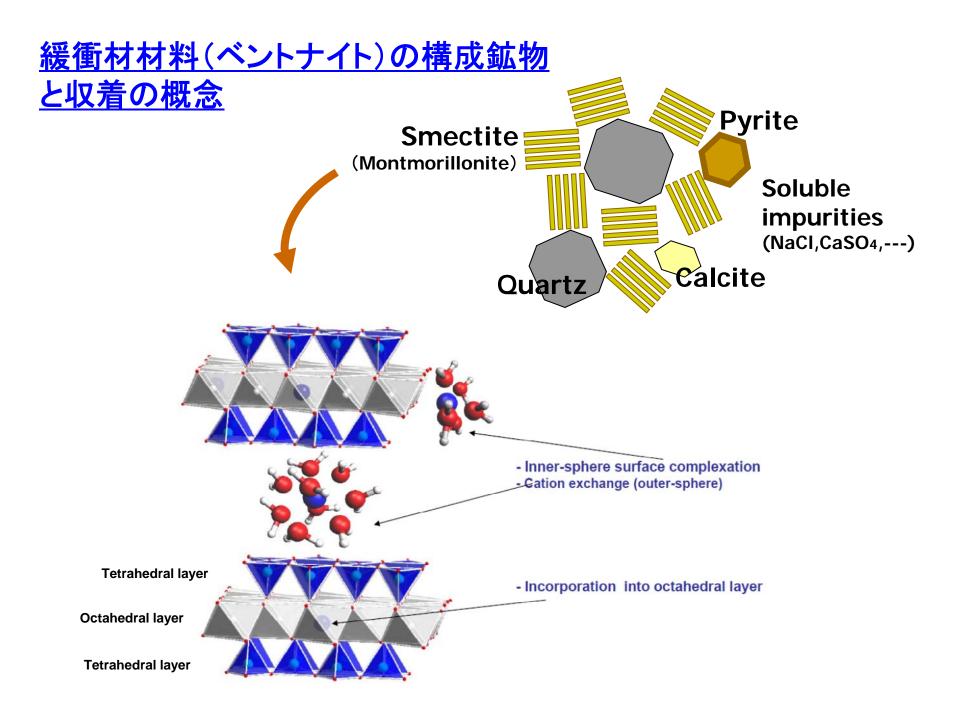
Ψ:表面電位(V), F:ファラデー定数(C/mol), R:気体定数(J/mol/K), T:温度(K)

吸着反応(錯体反応,配位子交換)

$$n(S-OH) + M^{n+} = (S-O)_n-M + nH^+$$

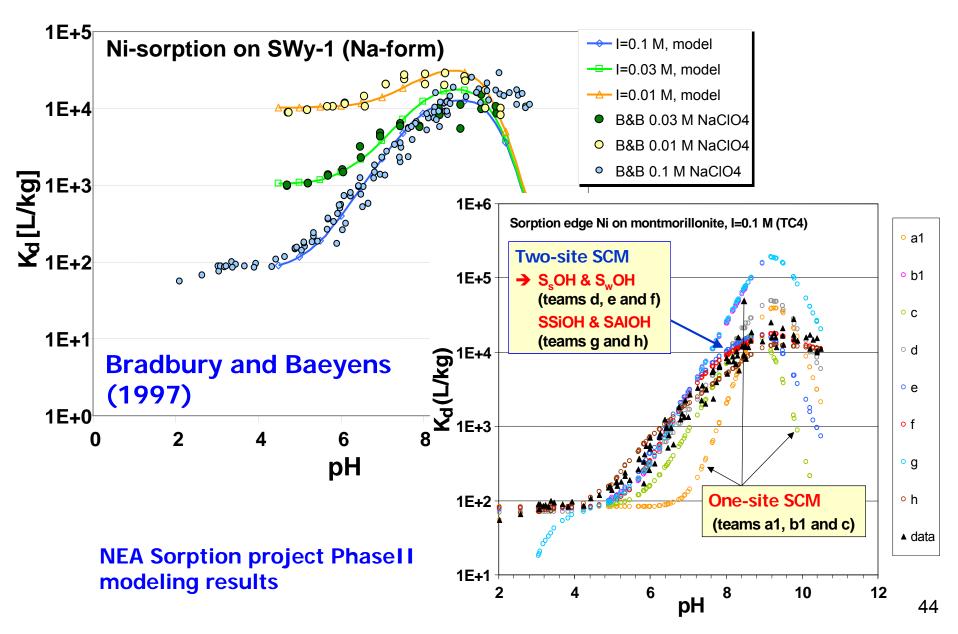
$$n(S-OH) + M(OH)_n = (S-O)_n-M + nH_2O$$

固体表面の"表面化学種"を溶液中の化学種と同様に、 溶液化学反応として取り扱えるとしたモデル

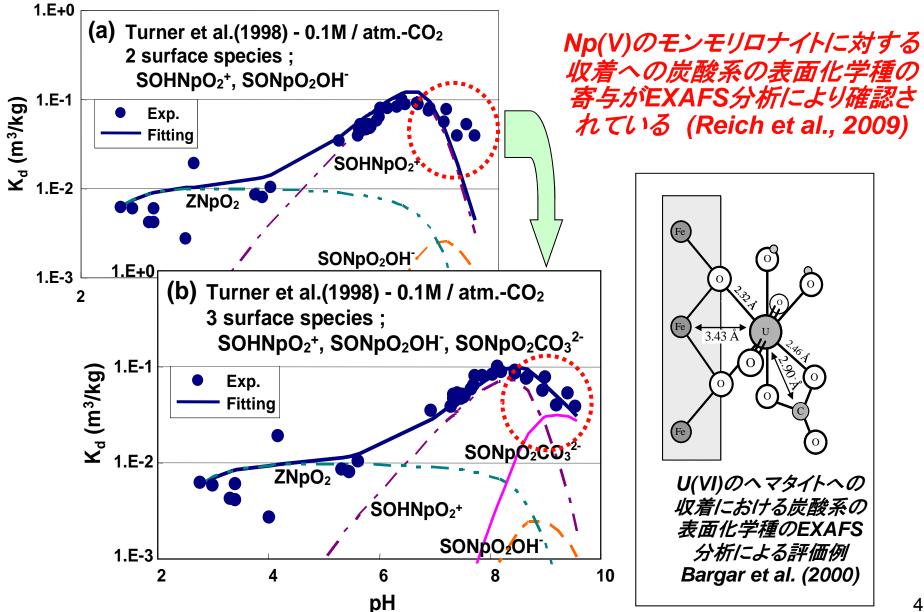


熱力学的収着モデル(TSM)の開発

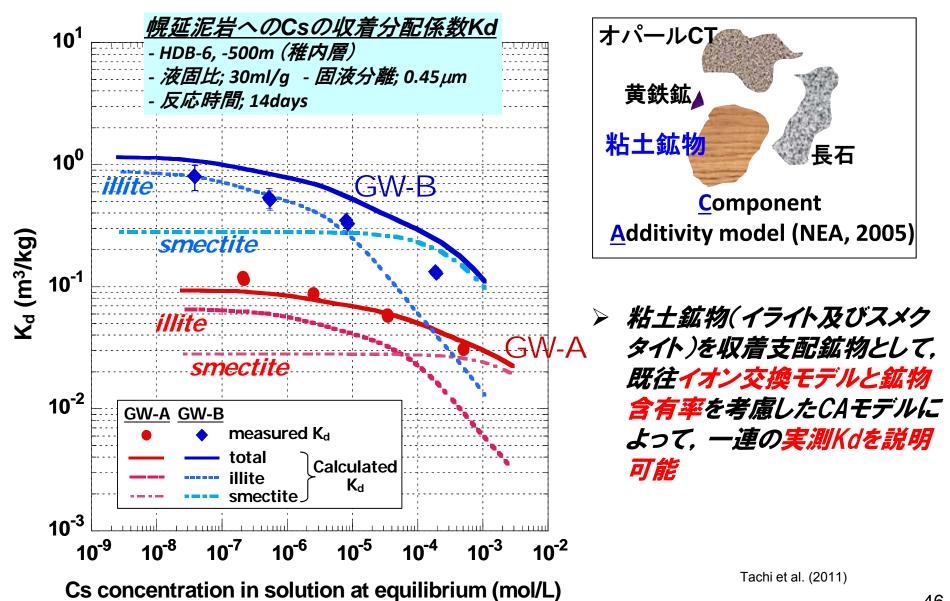
スメクタイトへのNi収着のモデル化(OECD/NEA Sorption project より)



熱力学的収着モデル(TSM)の開発 [化学的確からしさ]



熱力学的収着モデルの適用性確認 [幌延の堆積岩]





- ▶ 地層処分システムの安全性の提示方法 (Safety Case と Safety Assessment)
- > 安全評価の方法論
- ▶ 個別現象の理解とプロセスモデルの開発
 - ー ガラスの溶解と核種浸出
- ▶ 基盤となるデータの整備、品質保証
 - 一溶解度評価のための熱力学データベース
 - 一 緩衝材・岩石への核種の収着・拡散
- ▶ 地質環境調査や処分場の設計と連携した評価体系の開発
- > まとめ

地質環境調査や処分場の設計と連携した 評価体系の開発 背景



第2次取りまとめ

- ・サイトジェネリックな性能評価
- ・処分システムの成立性を示すための評価



我が国の一般的な地質環境標準的な処分場デザイン 簡略化した評価体系

- ・サイトスペシフィックな性能評価
- ・具体的な処分事業を対象とした評価

地質環境調査

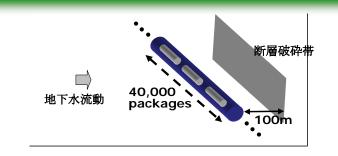
調査すべき項目・精度等 ニーズの提示

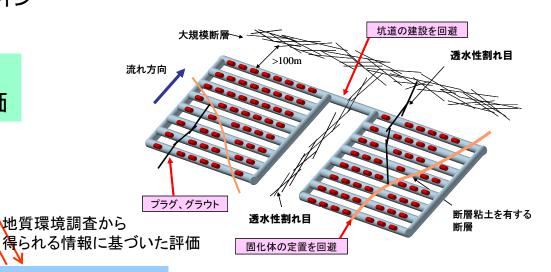
地質環境調査から得られる情報に基づいた設計・施工

処分システムの 設計・施工

設計・施工を反映した評価

ニーズ, 避けるべき条件の提示





サイトの地質環境や処分場の設計によって規定される処分システムの特徴を反映し、性能評価上の差異を表現できるリアリスティックな評価技術が必要 e.g. サイト間の違い、地質環境の不均質性、縦置きvs横置き

ニアフィールド核種移行解析の試行



<u>手順</u>

地質環境調査に基づく情報の整理

- ・透水割れ目分布の統計情報
- •岩石基質部分の透水特性



不均質性を呈する母岩領域の設定



処分孔周辺環境の設定(3種類)



3次元地下水流動解析

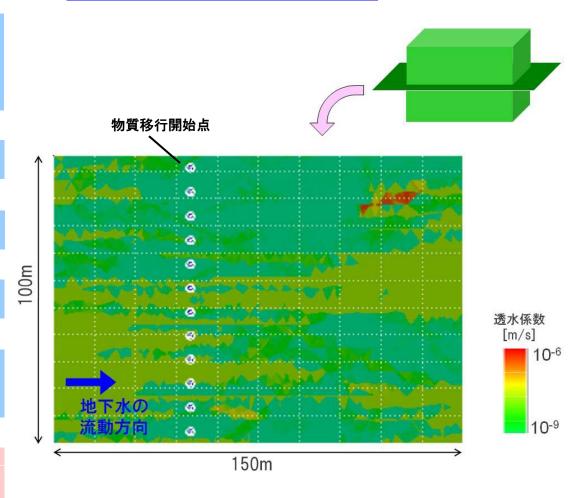


3次元核種移行解析 (パーティクルトラッキング法)



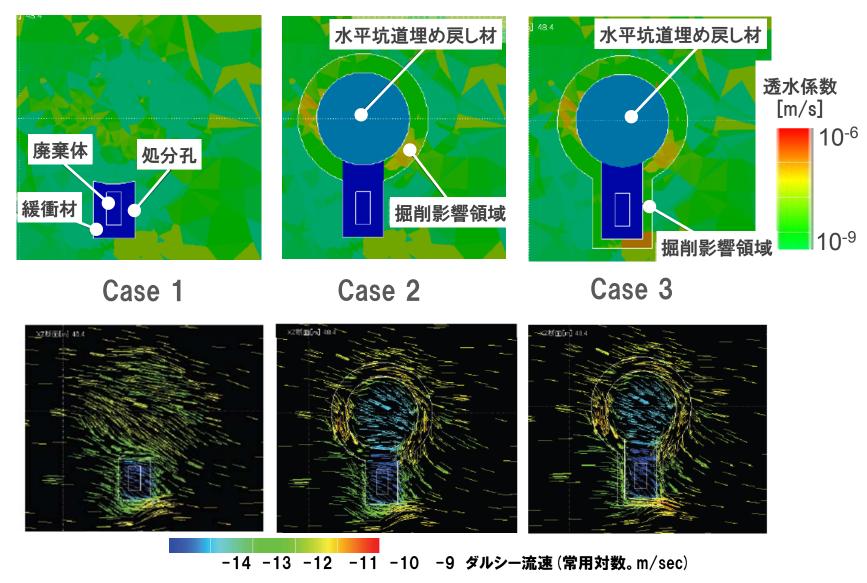
調査, 設計と性能評価(核種移行) の反復的な検討の試行

推定した透水係数分布

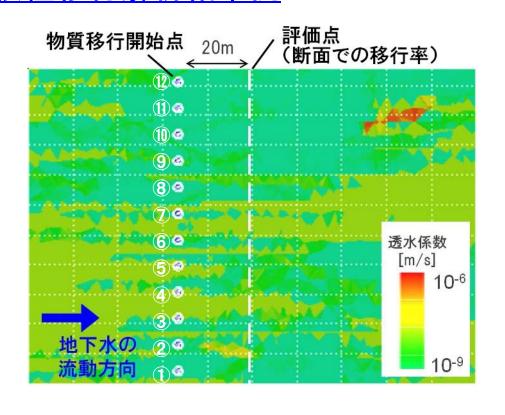


先進的地層処分概念·性能評価技術高度化開発報告書 (JAEA, 2011)

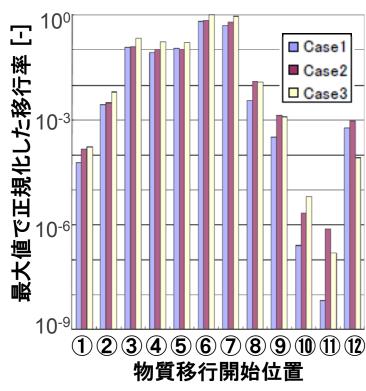
物質移行開始位置の鉛直断面(上)と地下水流動(下)



核種移行解析結果例



物質移行開始点の配置と 移行率の関係



- 廃棄体の位置(場の透水性)による顕著な差
- 掘削・施工方法による差異は小 ただし、母岩の性能が良い場合(e.g.①)には、差異あり
- ⇒ 調査や設計に反映すべき事項
 - ・岩盤中の高透水性構造の調査が重要
 - ・廃棄体の配置による核種移行率の低減の可能性
 - ・高透水性部分への工学的対策の検討 など

まとめ



安全評価はセーフティーケースの重要な要素であり、 評価の基盤として.以下の観点が重要

- > 評価の対象となる現象の科学的な基礎的理解
- > 現象理解に基づく性能評価モデル構築の考え方の提示
- > 与えられる環境条件の適切な考慮
- > データおよびモデルの不確実性の検討と提示
- ▶ サイト環境条件や処分システム設計の差異を評価に反映できる リアリスティックな評価技術の整備

参考文献



- > 蛯名 貴憲, 牧野 仁史: "地層処分性能評価のガラス溶解評価におけるガラス固化体中の亀裂発生に伴う表面積増加の影響", JNC-TN8400-2005-006.
- ➤ IAEA: Geological Disposal of Radioactive Waste, IAEA Safety Requirements, No. WS-R-4 (2006).
- Kitamura, A., Fujiwara, K., Doi, R., Yoshida, Y., Mihara, M., Terashima, M., Yui, M.: "JAEA thermodynamic database for performance assessment of geological disposal of high-level radioactive and TRU wastes". JAEA-Data/Code 2009-024
- ▶ 核燃料サイクル開発機構:"わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性 一地層処分研究開発第2次取りまとめー", JNC TN1400 99-020(総論レポート), JNC TN1400 99-023(分冊3)(1999).
- Mitsui, S., Makino, H., Inagaki, M and Ebina, T: "Impact of Silicon Migration through Buffer Material on the Lifetime of Vitrified Waste", Scientific Basis for Nuclear Waste Management (Mat. Res. Soc. Symp. Proceedings vol. 1193), pp.397-404 (2009).
- > 日本原子力研究開発機構, 平成22 年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 先進的地層処分概念・ 性能評価技術高度化開発報告書 平成23 年3 月(2011)
- > OECD/NEA: Post-Closure Safety Case for Geological Repositories: Nature and Purpose (2004)
- Tachi et al. (2009): Diffusion of Cesium and Iodine in Compacted Sodium Montmorillonite Under Different Saline Conditions. Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXXIII, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol.1193, pp.545-552.
- ➤ Tachi et al. (2011): Diffusion and sorption of Cs⁺, I⁻ and HTO in samples of the argillaceous Wakkanai Formation from the Horonobe URL, Japan: Clay-based modeling approach. Geochimica et Cosmochimica Acta 75, 6742-6759.

関連ウエッブサイト

- ▶ 日本原子力研究開発機構 地層処分研究部門 http://www.jaea.go.jp/04/tisou/toppage/top.html
- ▶ 同 核種移行データベース http://migrationdb.jaea.go.jp/
- ▶ 原子力環境整備・資金管理センター http://www.rwmc.or.jp/disposal/
- ▶ 原子力発電環境整備機構 http://www.numo.or.jp/