



2013年度バックエンド週末基礎講座

地層処分の安全性を評価するための取り組みと 核種移行研究の例

2013年10月27日

独立行政法人日本原子力研究開発機構
地層処分研究開発部門 核種移行研究グループ

北村 暁



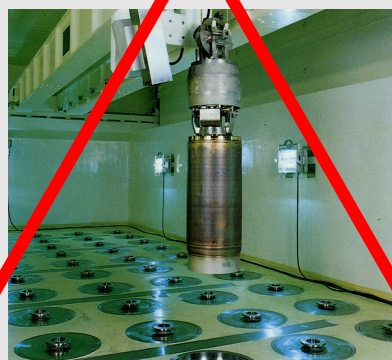
内容

1. 地層処分における安全確保の考え方
2. 地層処分の長期安全性の確認
3. 核種移行研究の例
 - 熱力学データベースの整備
 - 炭酸共存下におけるネプツニウム(IV)の溶解度測定
 - 黄鉄鉱に対するセレン(IV,VI)の還元性収着
 - 幌延深地層研究所におけるデータ取得
4. まとめ



高レベル放射性廃棄物の処分方法の検討

制度的管理



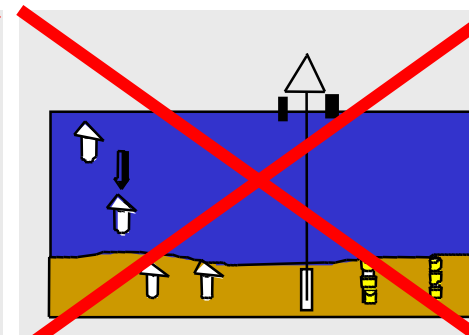
長期管理貯蔵

- ・現状施設で対応可能
- ・無期限には困難
- ・いずれ処分が必要

永久隔離 (処分)



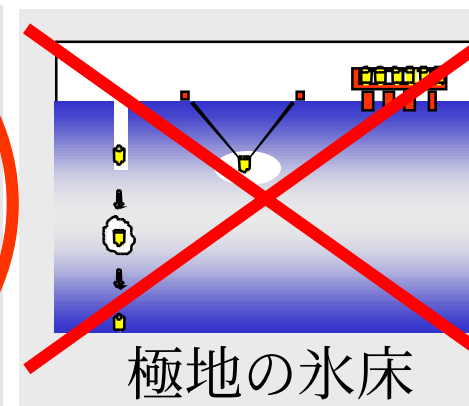
宇宙空間



海洋底下



地層中



極地の氷床

・地層中以外は国際条約で禁止

- ・地層中に埋めるのが技術的・社会的に最も現実的



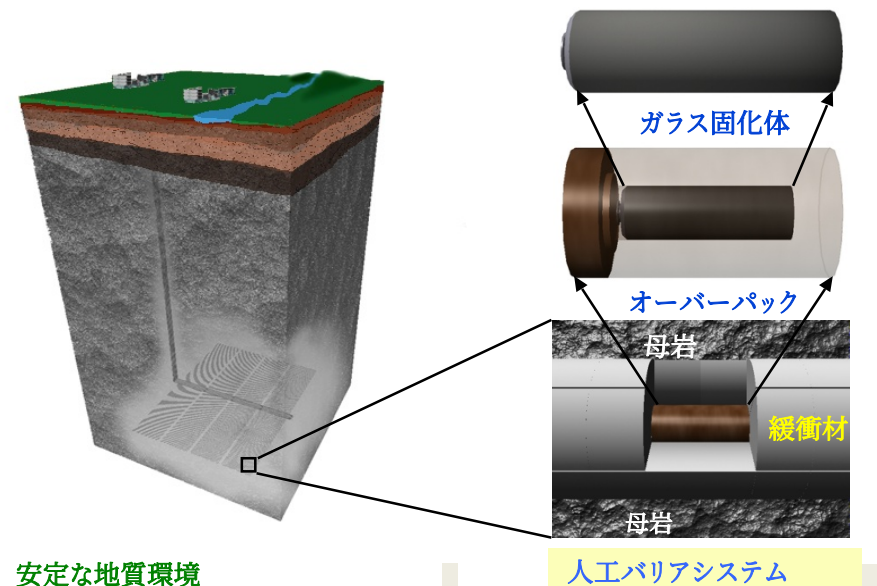
隔離・閉じ込めを重視したシステム

- 安定な地質環境に適切に工学的対策を施すことにより、地質環境が本来有する隔離性と多重の対策(天然の地層+人工バリア)による閉じ込めにより安全性を確保
- 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るため、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な見込まれないと考えられる



一定期間、頑健な容器で放射性物質を閉じ込めておくものの、未来永劫地層処分システムから放射性物質の漏洩がないことを示すことはできない

➤ 評価上の想定として、いつかは廃棄物中の放射性物質が漏れ出すことを仮定(原子炉の評価との相違)



隔離

閉じ込め



実物大の模擬人工バリア



日本原子力研究開発機構
地層処分基盤研究施設 (東海)
http://www.jaea.go.jp/04/tisou/shisetsu/entry_01.html



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/>



地層処分の安全性とは？

処分場閉鎖前の安全性 (操業安全性) : 処分場の建設, 操業, 閉鎖～事業廃止までの数十年～約百年程度の期間

- 放射線安全の確保 (通常の原子力施設での経験を活用)
- 一般労働安全の確保 (通常の土木工事での経験を活用)

処分場閉鎖後の長期安全性 : 廃棄物を定置してから閉鎖後以降数万年以上の長期にわたる期間

- 適切なサイト選定
- 天然の岩盤を含む処分場システムによる工学的対策
- 長期間の安全性の評価

人類がかつて経験したことのない巨大システムと評価期間
➤ 地層処分に特有なものとして考慮する必要がある！



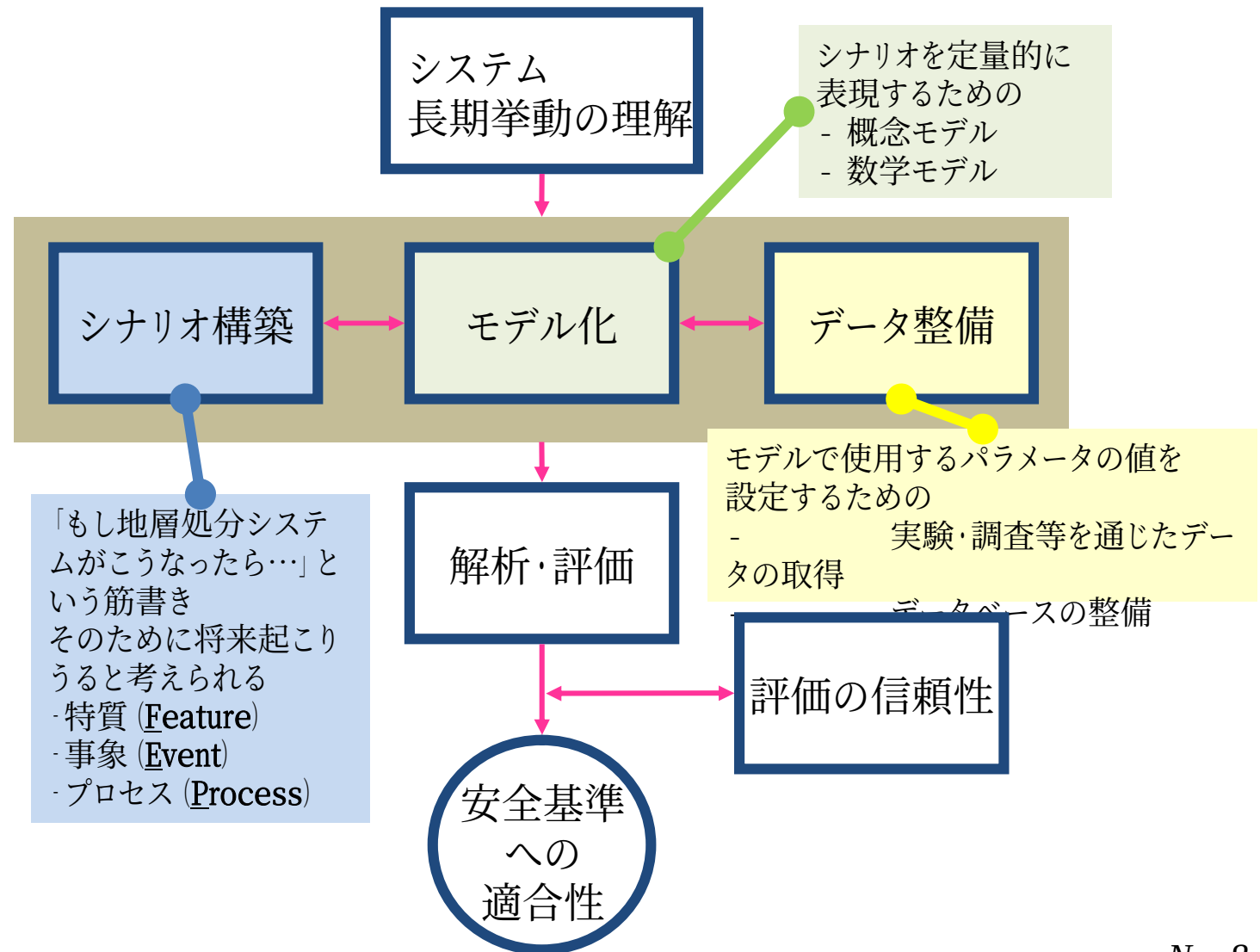
内容

1. 地層処分における安全確保の考え方
2. 地層処分の長期安全性の確認
3. 核種移行研究の例
 - 熱力学データベースの整備
 - 炭酸共存下におけるネプツニウム(IV)の溶解度測定
 - 黄鉄鉱に対するセレン(IV,VI)の還元性収着
 - 幌延深地層研究所におけるデータ取得
4. まとめ



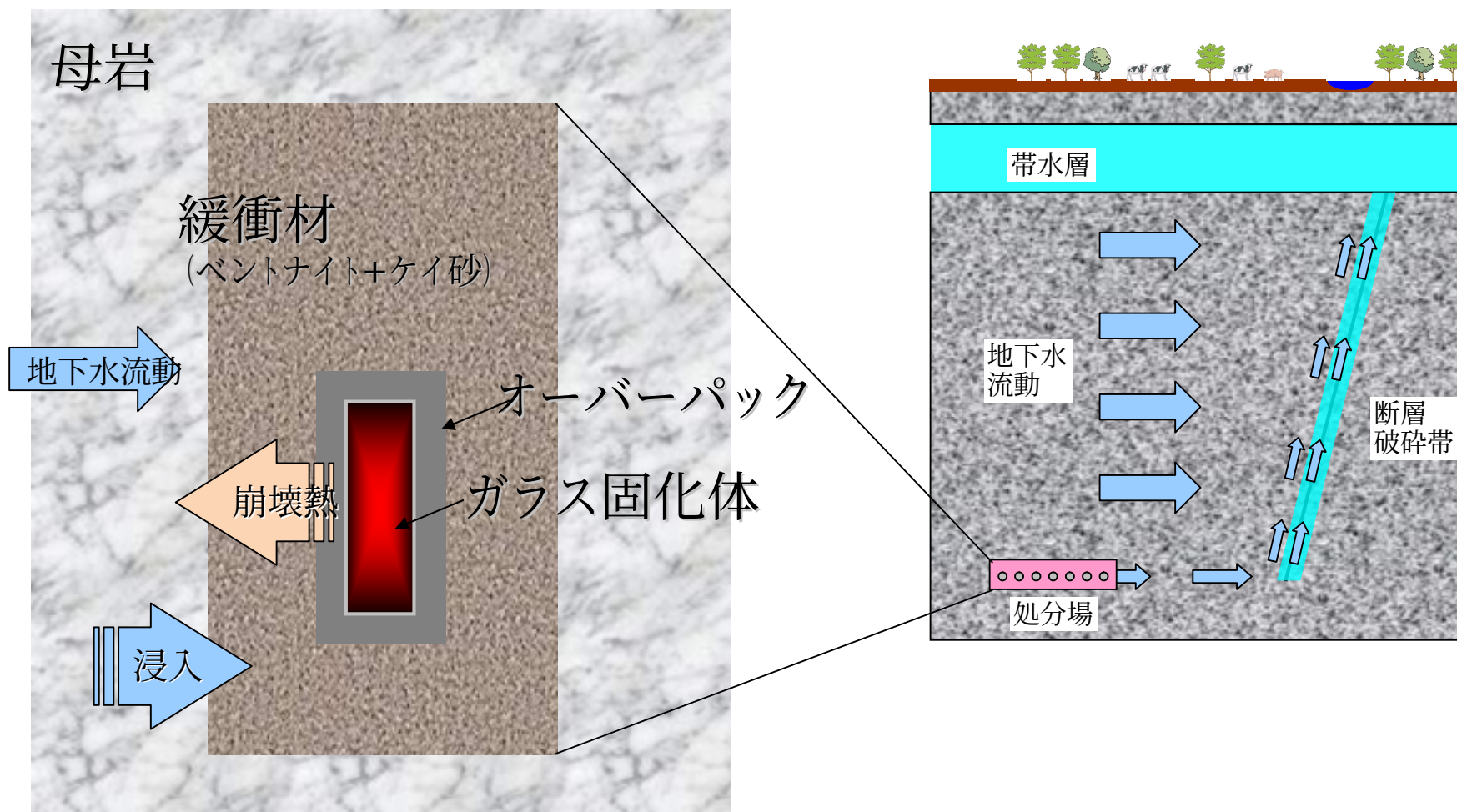
どのように安全性を確認するのか？

- 地層処分の特有の問題を考慮すれば、(一般的な人工構造物のように) 試作品による実験を積み重ね、その安全性を直接確認することは不可能
 - 将来の状態を想像し、それを定量的に表現するモデルを開発し、それらを用いて予測解析すること(安全評価)によって安全性を確認





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 0年

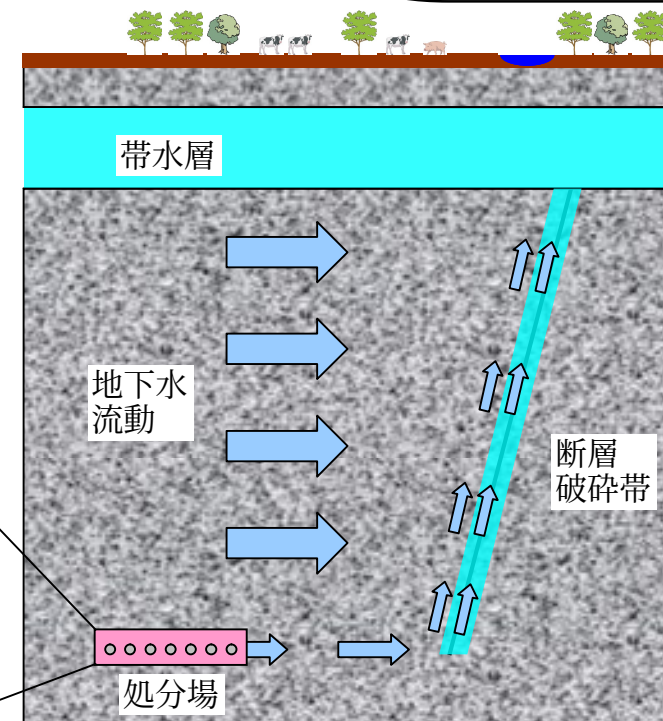
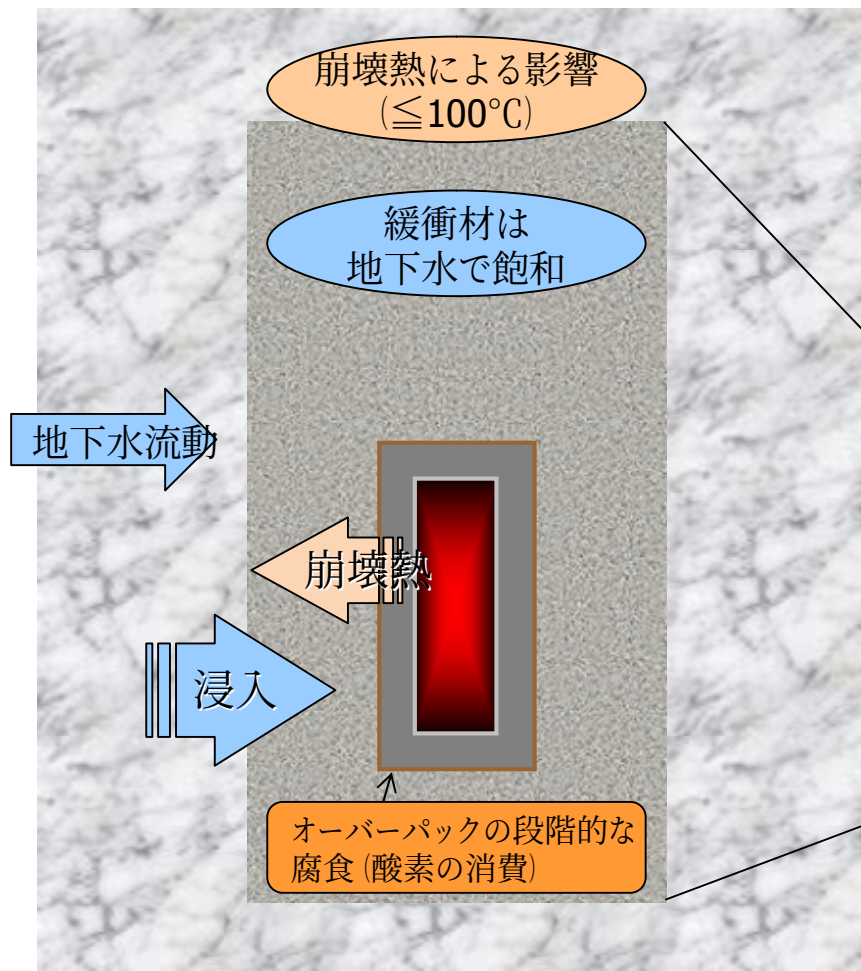




地層処分システムがどのように機能するか？ (システム長期挙動の理解)

処分後 数十年

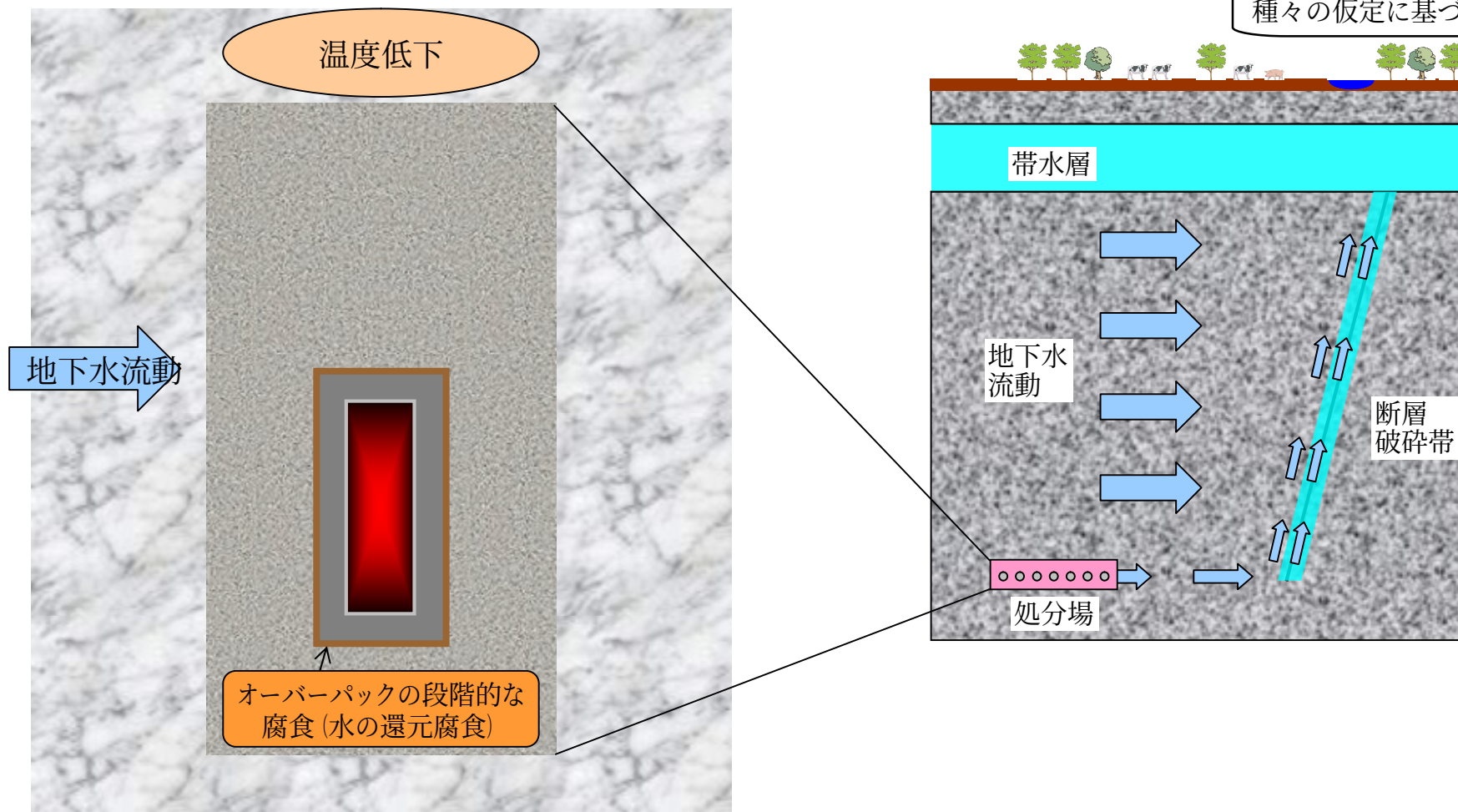
種々の仮定に基づく目安



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**

種々の仮定に基づく目安

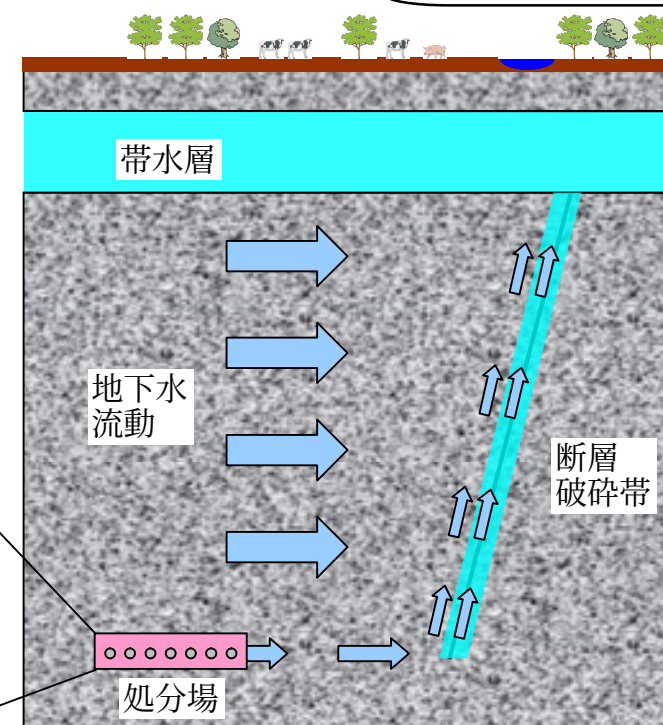
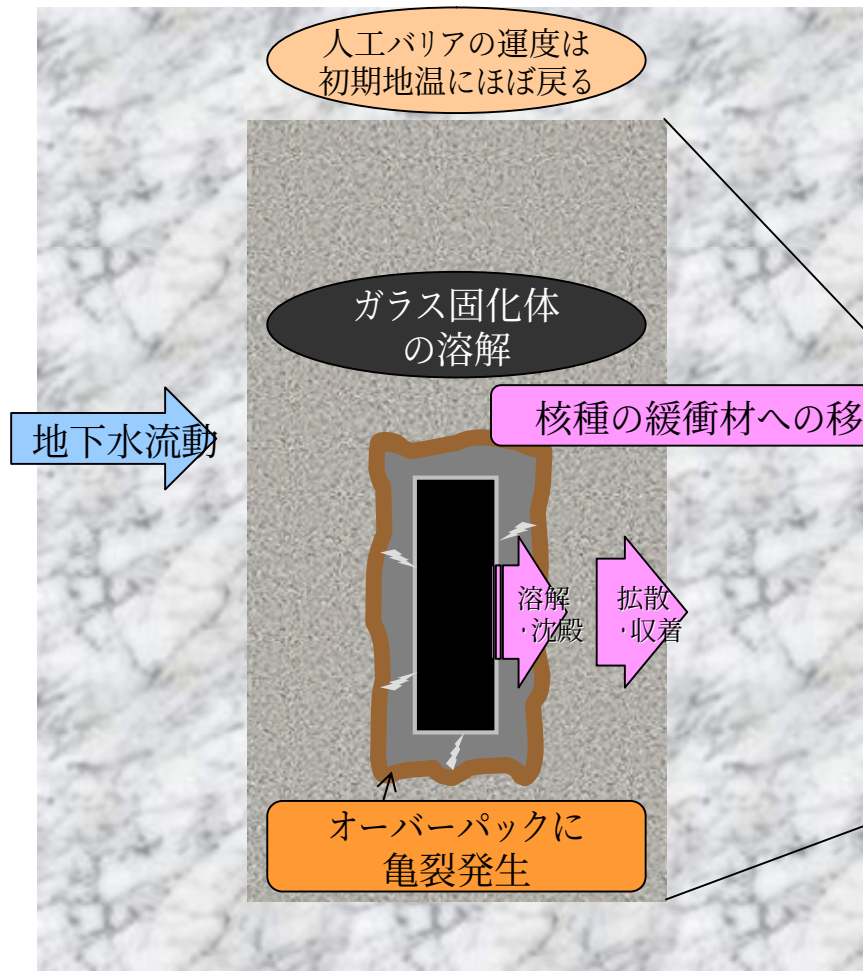




地層処分システムがどのように機能するか？ (システム長期挙動の理解)

処分後 数千年

種々の仮定に基づく目安

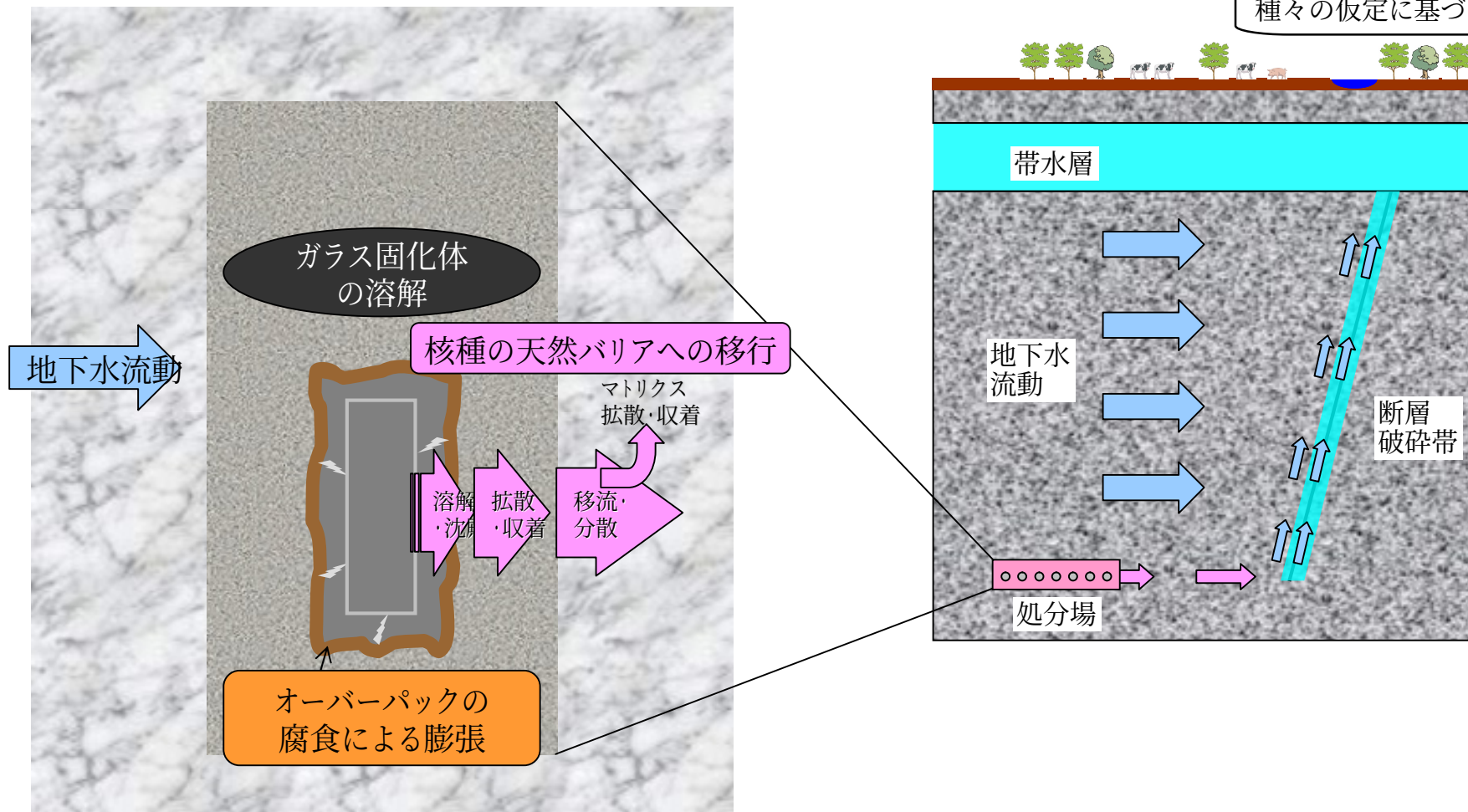




地層処分システムがどのように機能するか？ (システム長期挙動の理解)

処分後 数万年

種々の仮定に基づく目安

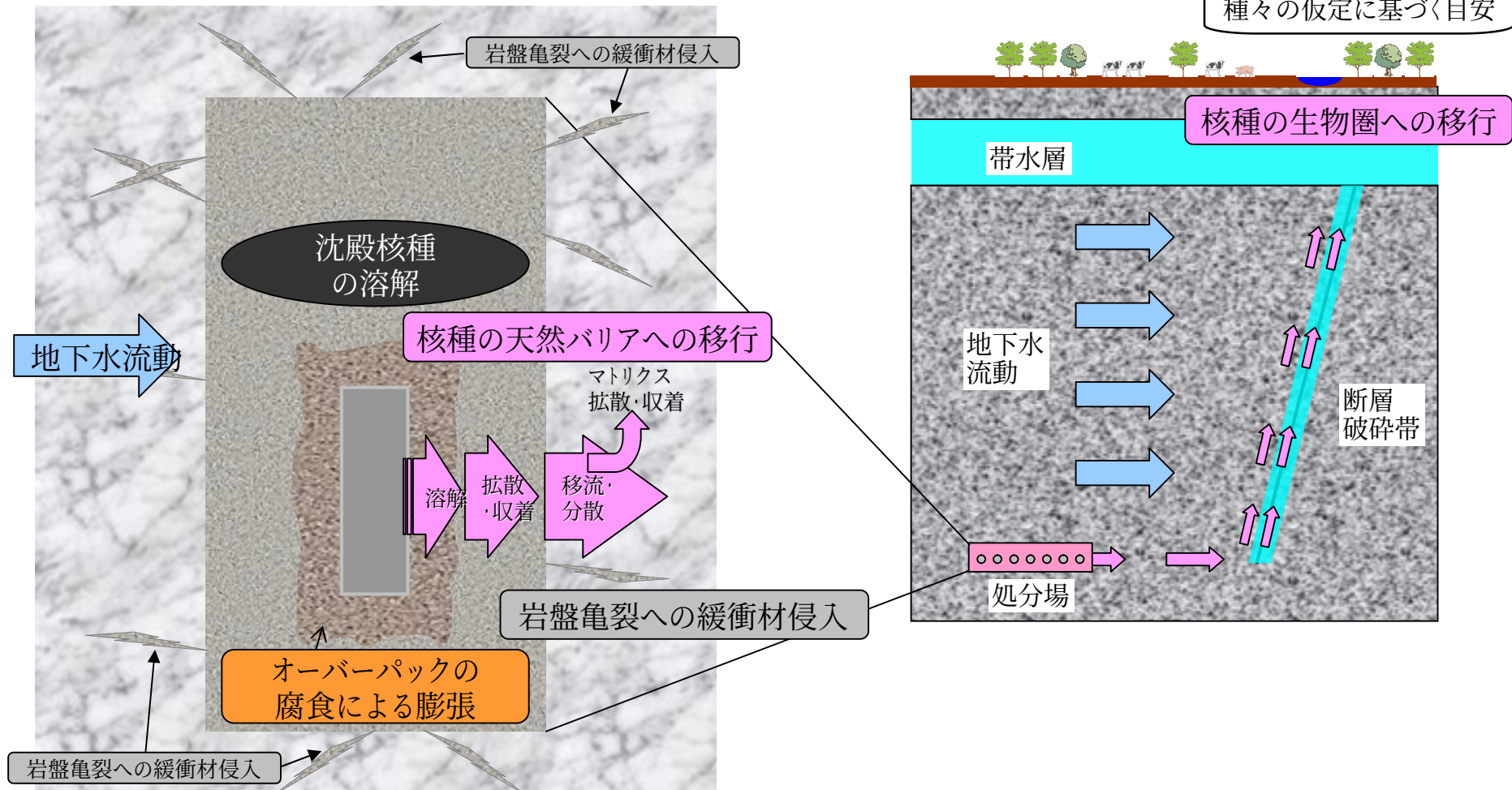




地層処分システムがどのように機能するか？ (システム長期挙動の理解)

処分後 数十万年

種々の仮定に基づく目安

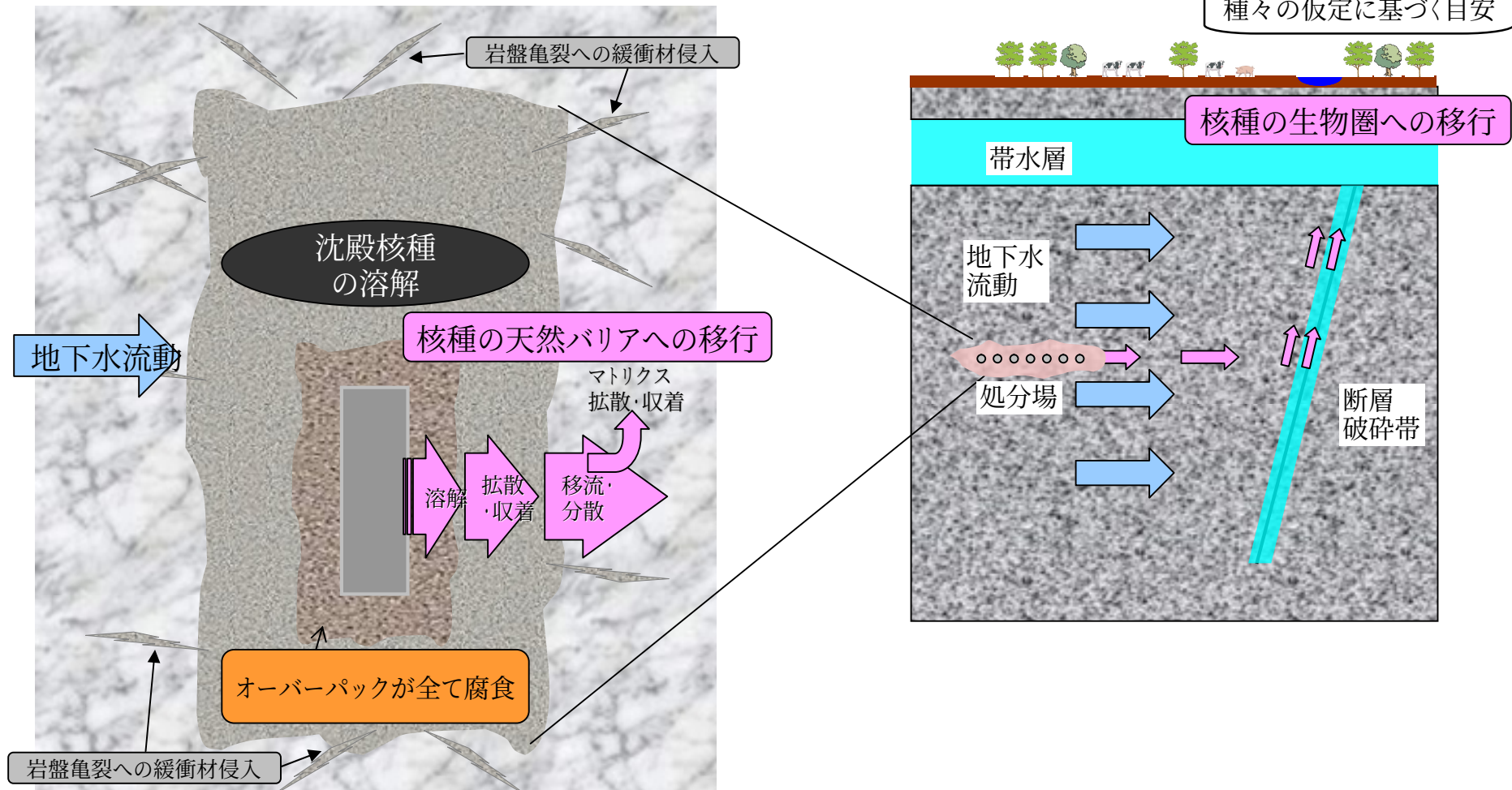




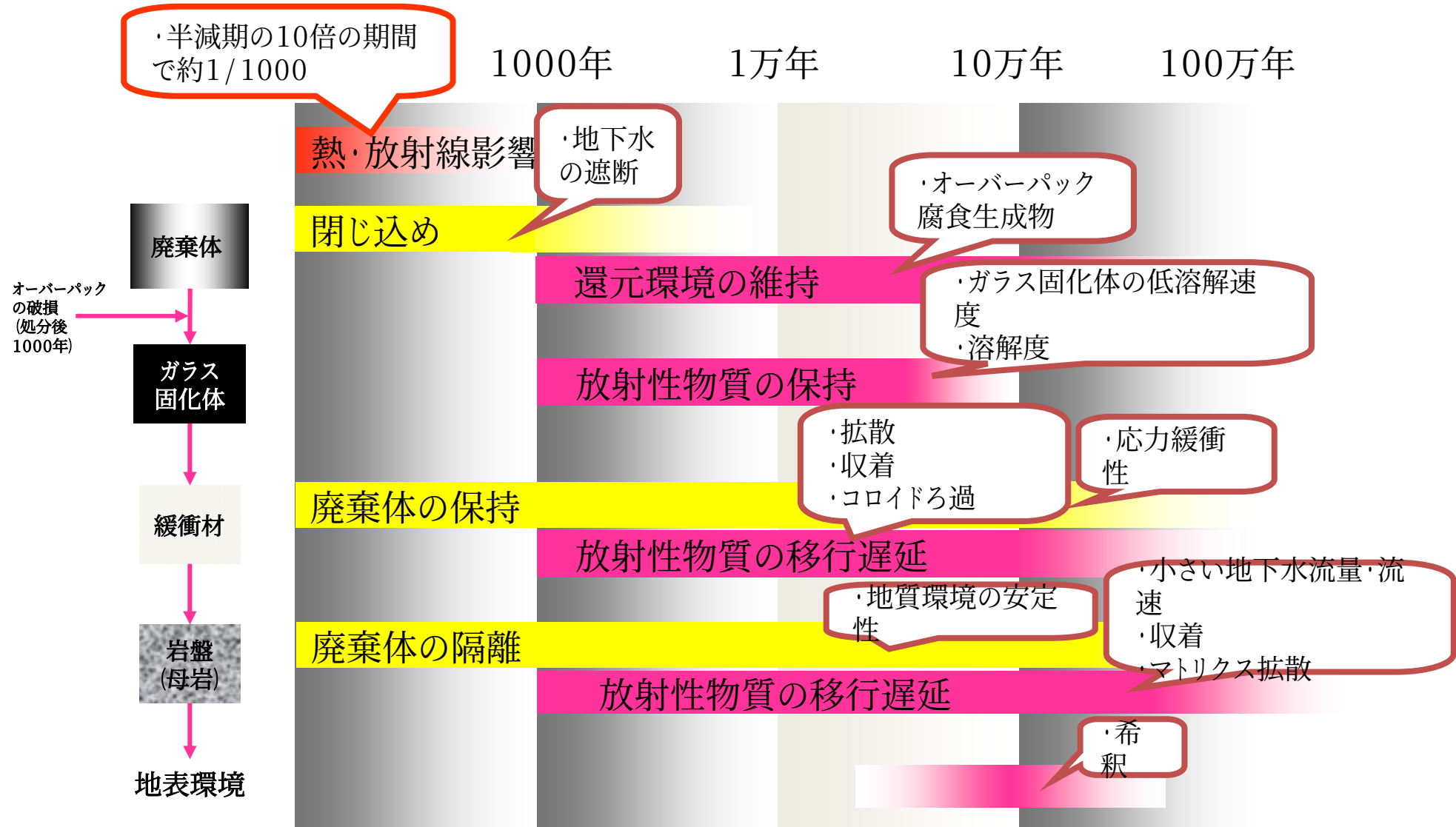
地層処分システムがどのように機能するか？ (システム長期挙動の理解)

処分後 数百万年

種々の仮定に基づく目安



システムに期待する主な安全機能





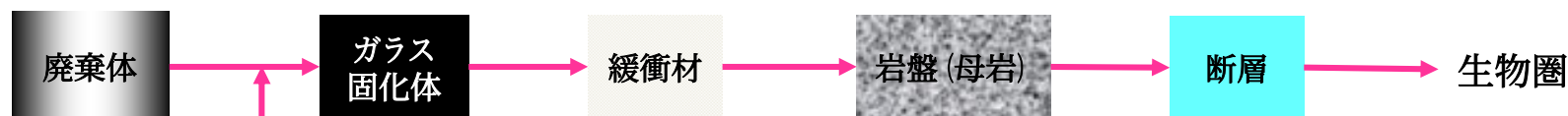
核種移行評価モデル

地層処分研究開発第2次取りまとめ (H12)での例

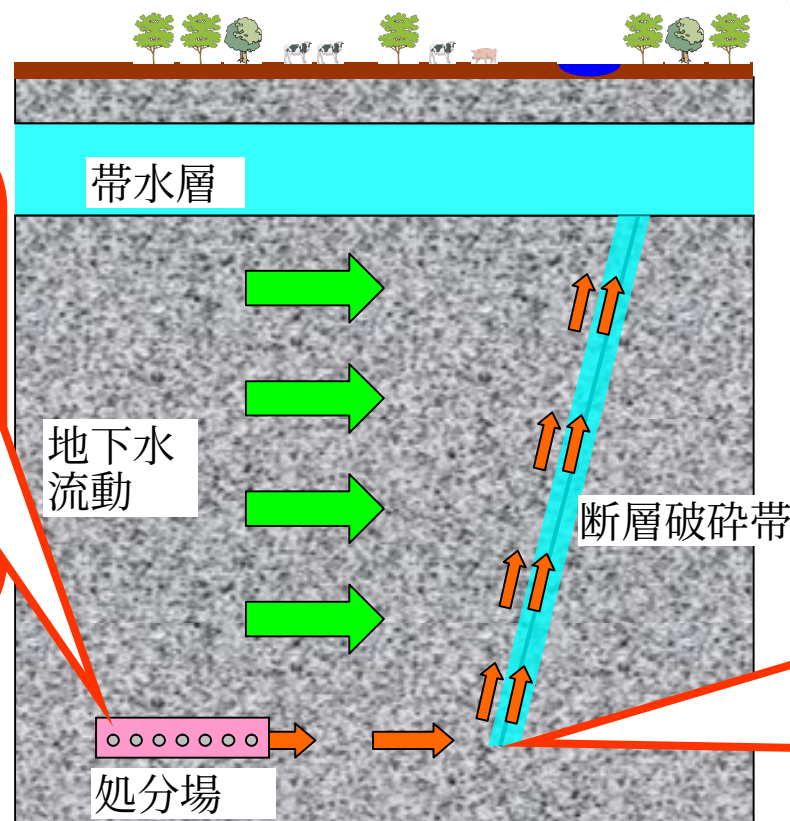
- ・廃棄体は処分後1000年で全て破損
- ・断層に最も近い廃棄体(1本)のみ評価

モデルチェイン

オーバーパックによる
閉じ込め



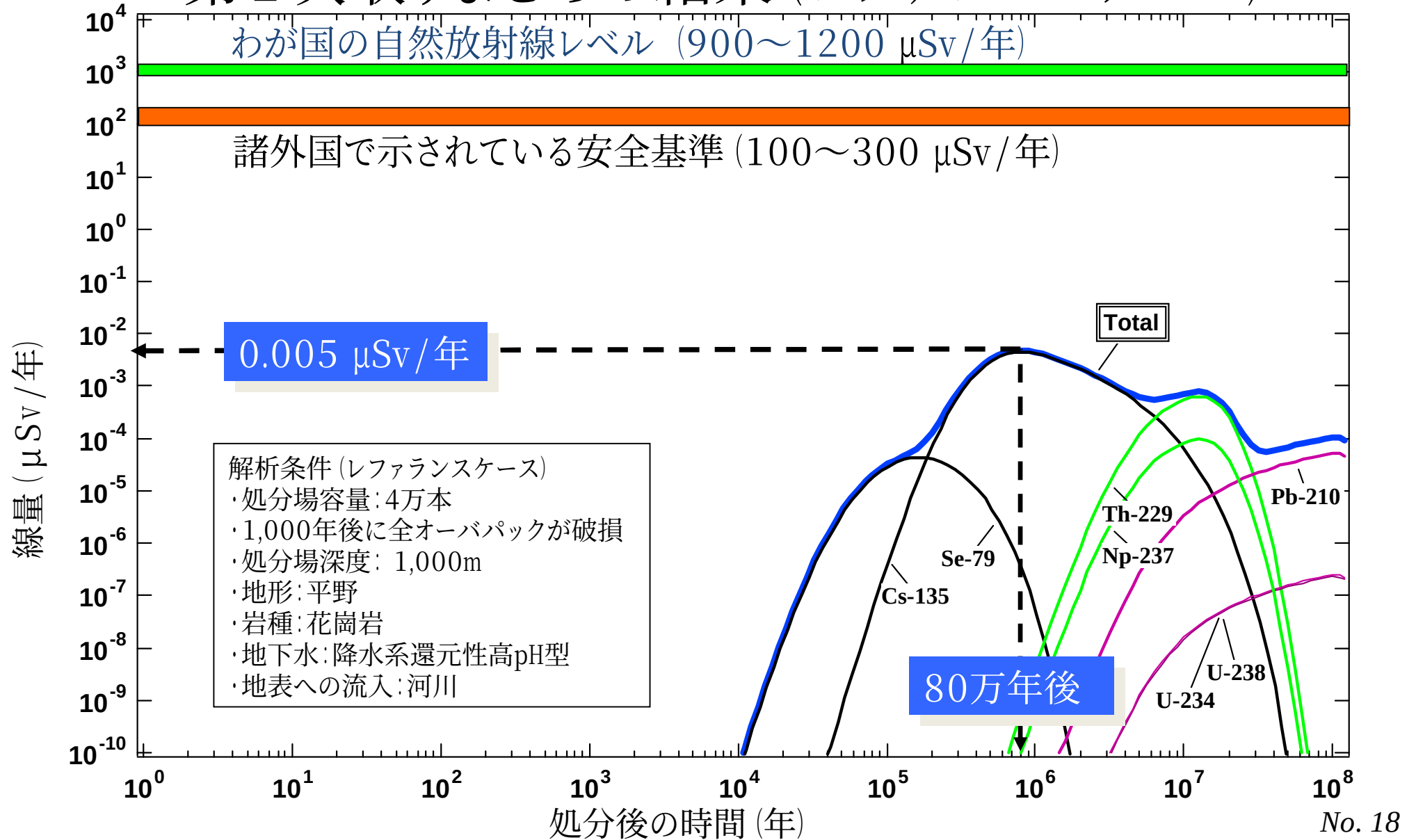
オーバーパックの破損
(処分後1000年)



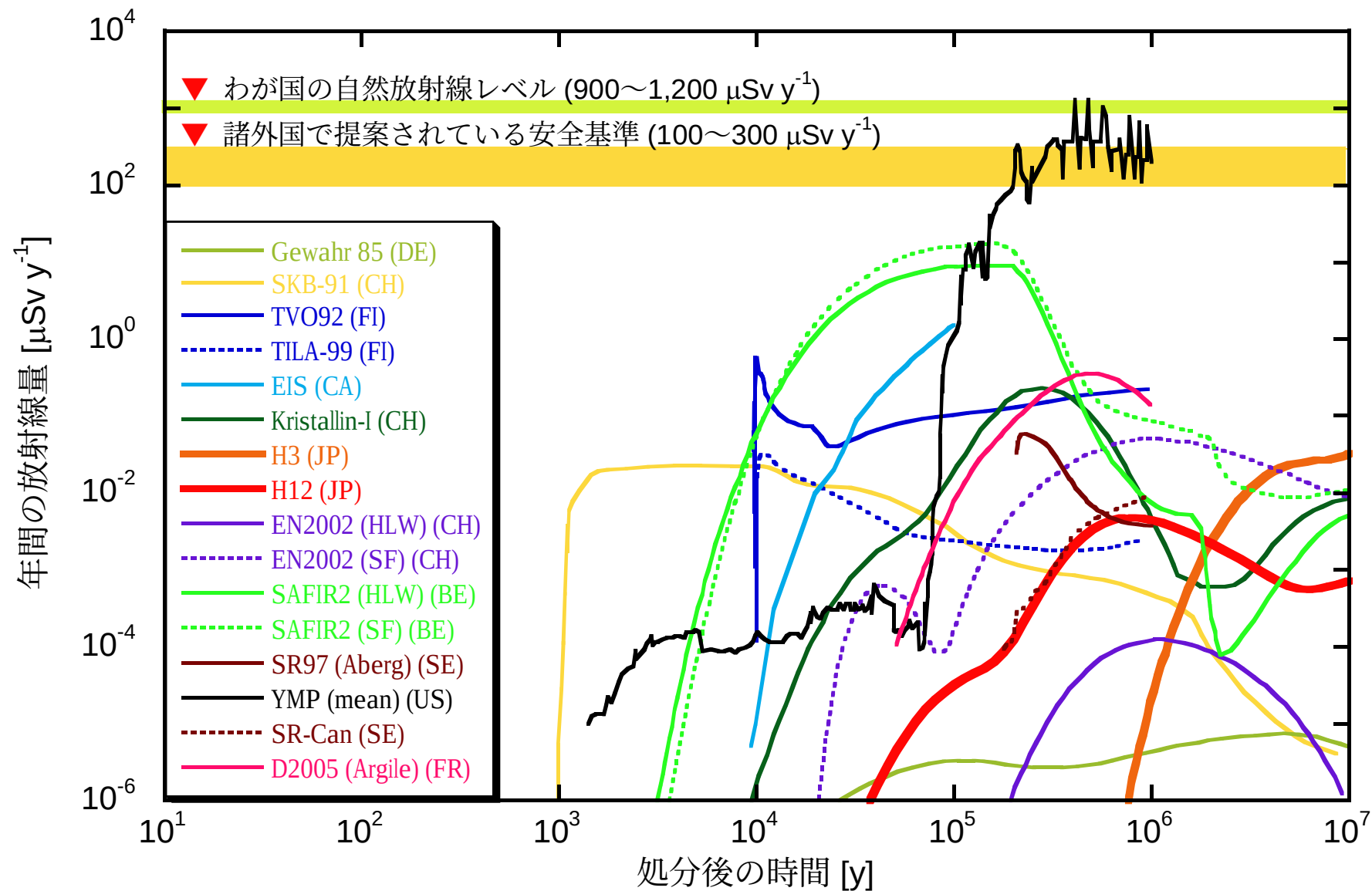
人工バリアから
放出された核種
は最短距離
(100m) を通って
全て断層に移行



第2次取りまとめの結果 (レファレンスケース)



諸外国およびわが国における安全評価結果





安全評価の信頼性は？

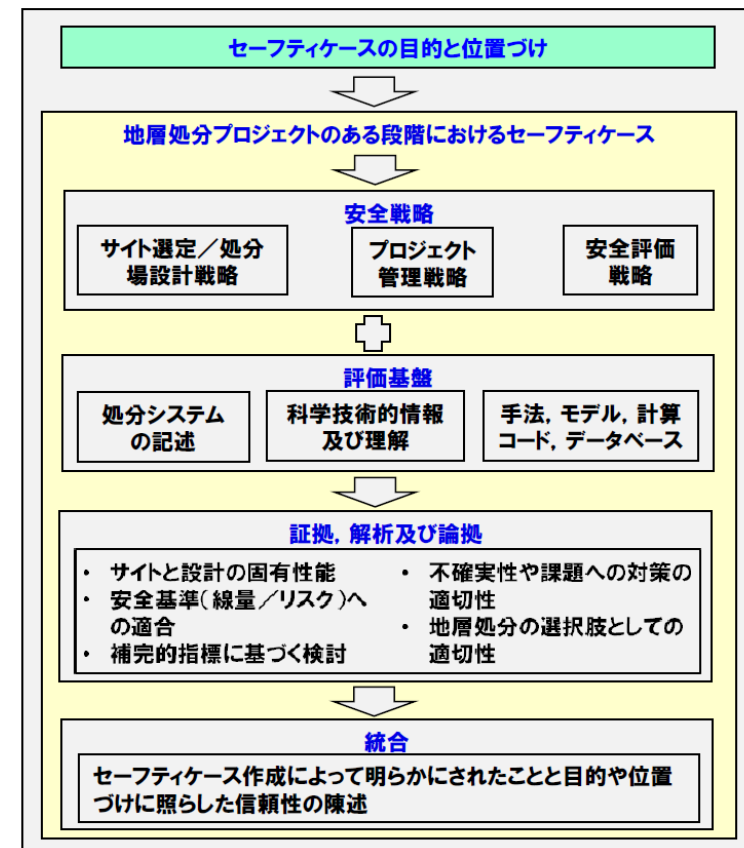
安全評価の結果だけで、遠い未来の安全性を判断できるのか

セーフティケースの概念

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、処分場が安全であり続けるとする主張を定量化し立証するための証拠、解析さらには論拠の統合体である。

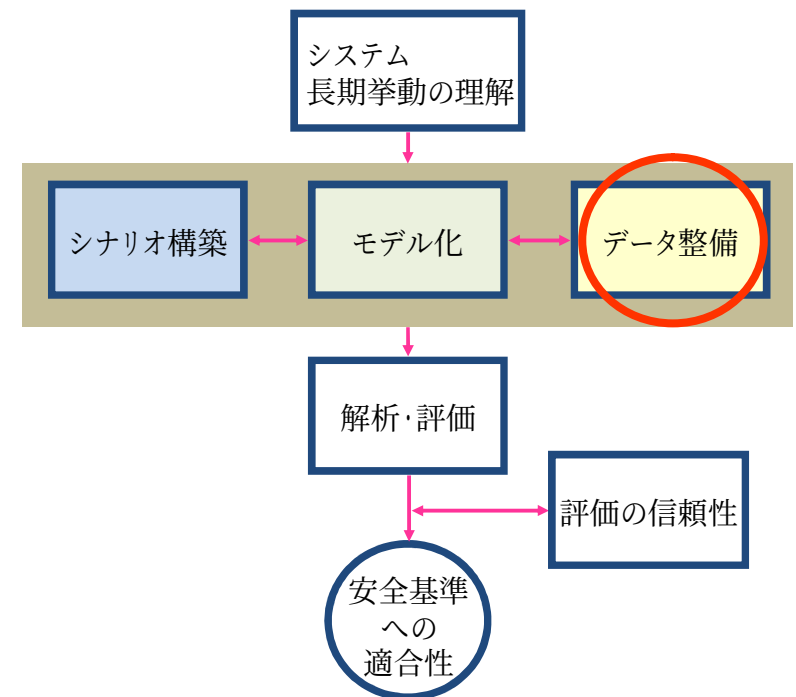
Post-Closure Safety Case for Geological Repositories: Nature and Purpose (NEA, 2004)



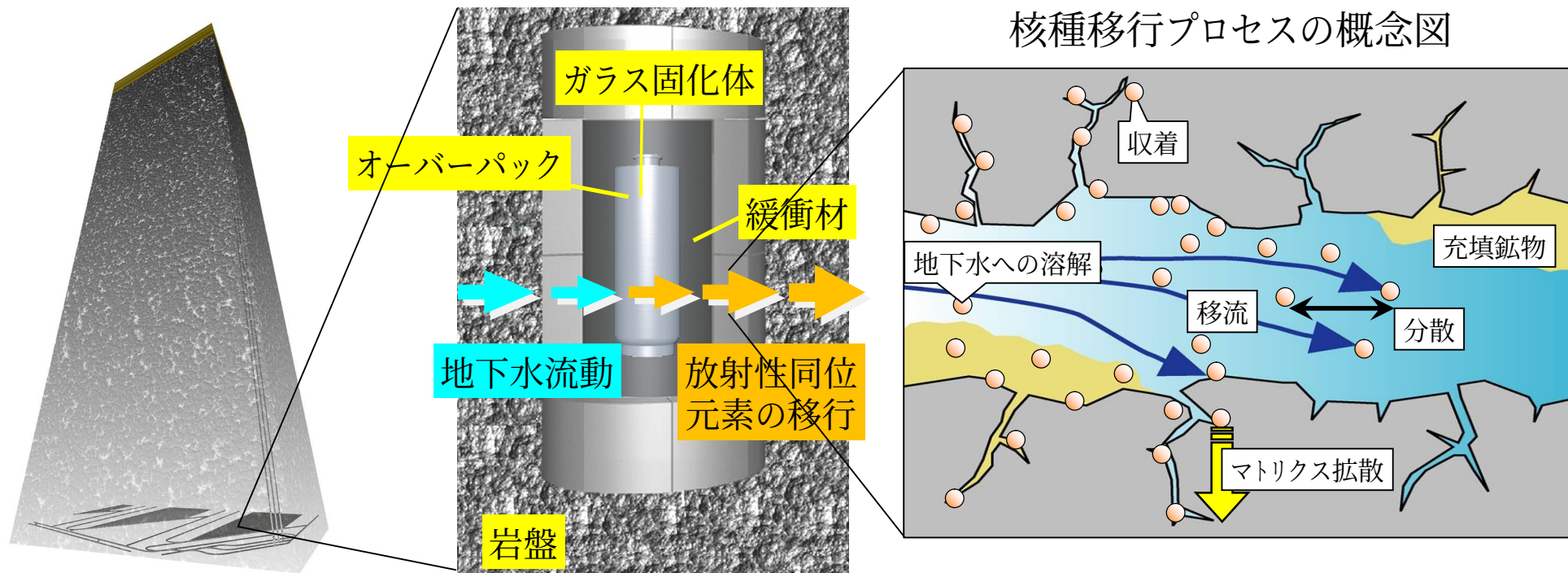


内容

1. 地層処分における安全確保の考え方
2. 地層処分の長期安全性の確認
3. 核種移行研究の例
 - 熱力学データベースの整備
 - 炭酸共存下におけるネプツニウム(IV)の溶解度測定
 - 黄鉄鉱に対するセレン(IV,VI)の還元性収着
 - 幌延深地層研究所におけるデータ取得
4. まとめ



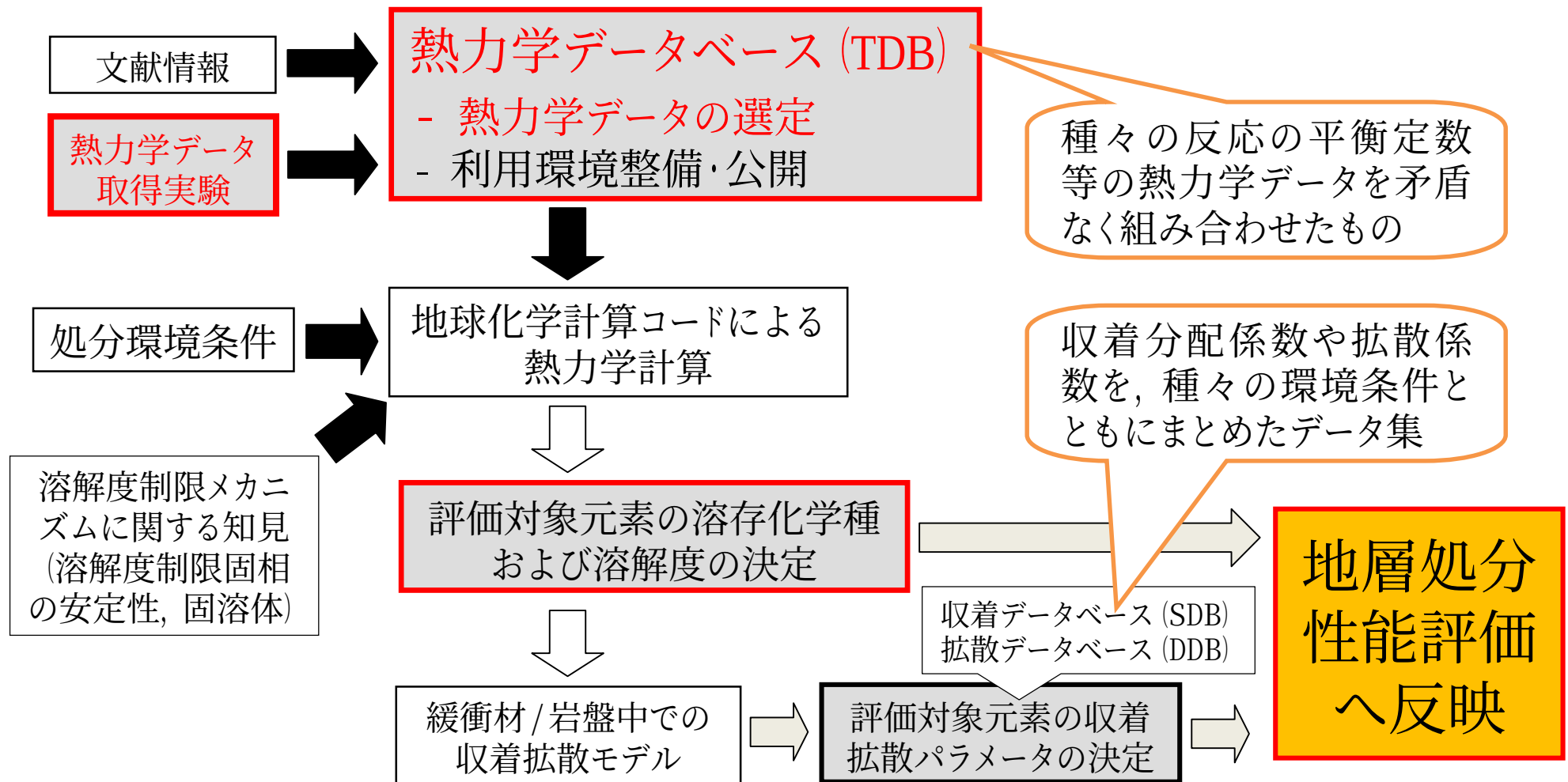
核種移行挙動について



- 放射性同位元素は地下水に溶出して移行 (地下水シナリオ)
- 移行挙動は元素ごとに異なるうえ、地下水条件によっても変動

種々の条件における移行挙動の評価が必要→データベース化

核種移行データベース (熱力学, 収着, 拡散) の整備



TDBは核種移行パラメータの根幹を成すもの



熱力学データベースの整備

- わが国の地層処分性能評価用の熱力学データベース (TDB)
 - 第1次取りまとめ用: 1992年公開
 - JNC-TDB (第2次取りまとめ用): 1999年公開
 - JAEA-TDB: 2010年公開, 2012年に更新, 2013年度末にも更新予定
- OECD/NEAによるTDB国際プロジェクト (原子力機構も参加)
 - Ni, Zr, Se, Tc, Sn, Th, U, Np, Pu, AmのTDBを整備 (Sn以外はJAEA-TDB採用済)
 - 網羅性より科学的信頼性を重視, 信頼性の低いデータは不採用
 - 対象元素や化学種が限定的で, 地層処分性能評価には不十分
- スイス, フランス等, 諸外国でも性能評価用TDBを整備
 - 諸外国でも溶解度評価のためにTDBを利用
 - 信頼性はさまざまであり, 安易な導入は禁物

最新情報の信頼性を確認しつつTDBを整備することが重要

JAEA-TDB整備 (JNC-TDB更新) の基本方針

- 整備対象元素
 - JNC-TDB対象21元素
 - TRU廃棄物対応でCo, Sr, Mo, Iを追加 (全25元素)
- 熱力学データ選定方針
 - 標準状態の平衡定数を選定
 - OECD/NEAガイドライン準拠
 - 選定値の誤差評価
 - 活量補正方法の統一 (SIT法: 塩水系対応)
 - 独自ガイドラインの制定 (暫定値の採用, 化学的類似性の利用, 等)
- OECD/NEAが整備した熱力学データ選定値の取り込み
 - 新規: Ni, Se, Zr, Tc, Sn, Th, Np, Puおよびアクチニド等の有機物錯体 (Snは今年度更新予定)
 - JNC-TDB選定値からの更新: U (1992→2003), Am (1995→2003)
- 新規文献調査 (全25元素), レビューおよびデータ選定
 - オリジナル文献の実験結果の妥当性を含め詳細な調査を実施
 - 新規文献が見つからなかった元素ではJNC-TDB選定値を採用

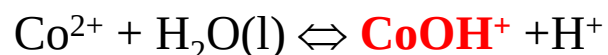
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18
1	H																	He
2	Li	Be											B	C	N	O	F	Ne
3	Na	Mg											Al	Si	P	S	Cl	Ar
4	K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr
5	Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe
6	Cs	Ba		Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn
7	Fr	Ra		Rf	Db	Sg	Bh	Hs	Mt	Ds	Rg							
	La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu			
	Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr			

赤字 : JAEA-TDB対象元素(HLW/TRU) : NEA整備済元素 : NEA整備中元素
 : PSI整備済(NEA未整備)元素 : JNC-TDB整備済(NEA/PSI未整備)元素



熱力学データベースの整備

熱力学データレビューの例



手法	塩濃度	温度 (°C)	$\log_{10} \beta$ 文献値	$\log_{10} \beta_m$ 採用値	文献
pot, sol	0.56 M NaClO ₄	25	-8.96±0.15	-9.0±0.3	19
pot	1 M NaClO ₄	15	-9.95±0.15	-9.93±0.15	17
pot	1 M NaClO ₄	25	-9.89±0.02	-9.87±0.02	17
pot	1 M NaClO ₄	35	-9.60±0.04	-9.58±0.04	17
pot	1 M NaClO ₄	40	-9.50±0.04	-9.48±0.04	17
pot	1 M NaClO ₄	28	-9.82±0.05	-9.80±0.05	18
pot	0.1 M KCl	30	-8.90	-8.88±0.02	66
pot	1 M KCl	25	-9.82±0.02	-9.81±0.02	20
pot	1 M KCl	100	-7.62±0.03	-7.6±0.1	20
pot	1 M KCl	150	-6.59±0.02	-6.6±0.1	20
pot	1 M KCl	200	-6.02±0.04	-6.0±0.1	20
pot	I = 0	25	12.2		67
pot	0.5 M Na₂SO₄	25	9.93±0.4		68

- レビュー視点1: $\text{pcH} = -\log[\text{H}^+]$ ($\neq \text{pH}$) の測定 (補正) の正確 (適切) さ
 - 多くの文献ではpHのみを報告
 - 測定 (補正) の信頼性が十分でないものは大きめの誤差を付与
- レビュー視点2: データ取得時のイオン強度調整の適切さ
- 文献67: 実験点数が不十分, イオン強度調整なし, $\text{pH} \rightarrow \text{pcH}$ への補正なしという理由で, 熱力学データ不採用
- 文献68: 硫酸錯体の影響の考慮なし, $\text{pH} \rightarrow \text{pcH}$ への補正なしという理由で, 熱力学データ不採用

- NaClO₄系, KCl系それぞれで $\log_{10} \beta^0_m$ を導出し, 両者の平均値を選定値として採用

炭酸共存下におけるネプツニウム(IV)の溶解度測定

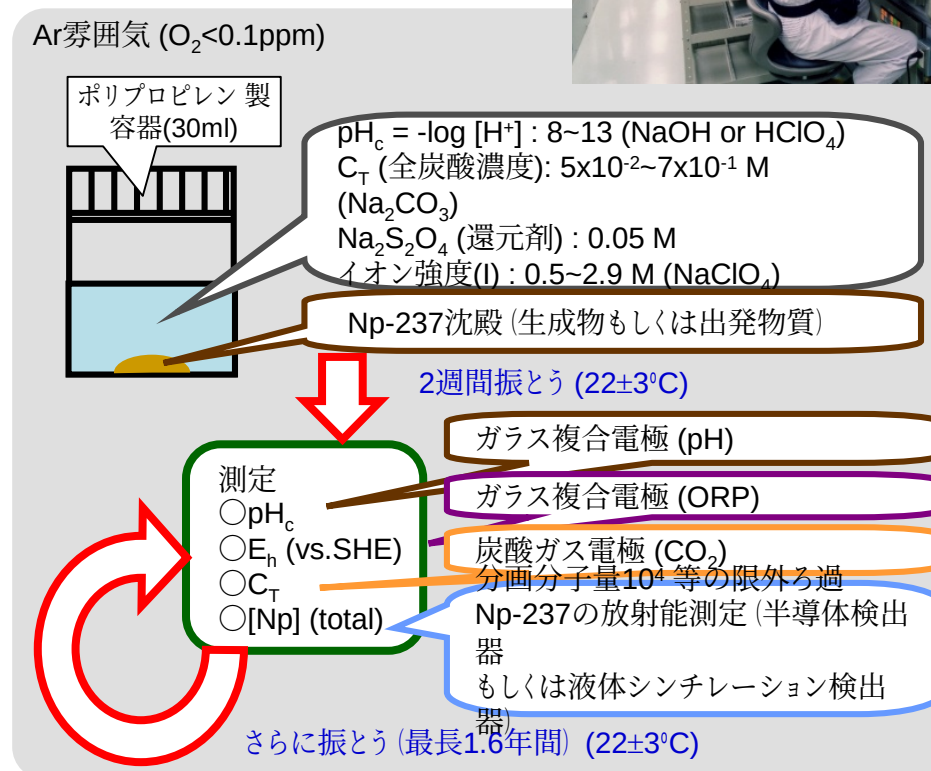
背景

- Np-237($T_{1/2}=2.14 \times 10^6 \text{y}$): 性能評価上の重要核種
- 大気環境では5価だが, 還元環境では4価できわめて難溶性
- Np(IV)は炭酸イオン等との錯生成で溶解度上昇のおそれ
- 該当の熱力学データは少なく, データの検証と拡充が必要



実施内容

- 炭酸共存下におけるNp(IV)の溶解度測定を実施
(過飽和 (os) および一部不飽和 (us) 実験)
- Np(IV)溶解度の pH_c および全炭酸濃度依存性の溶解度曲線を取得
- 支配的な溶存化学種の推定
- 支配溶存化学種の熱力学データ (平衡定数) の導出



炭酸共存下におけるネプツニウム(IV)の溶解度測定

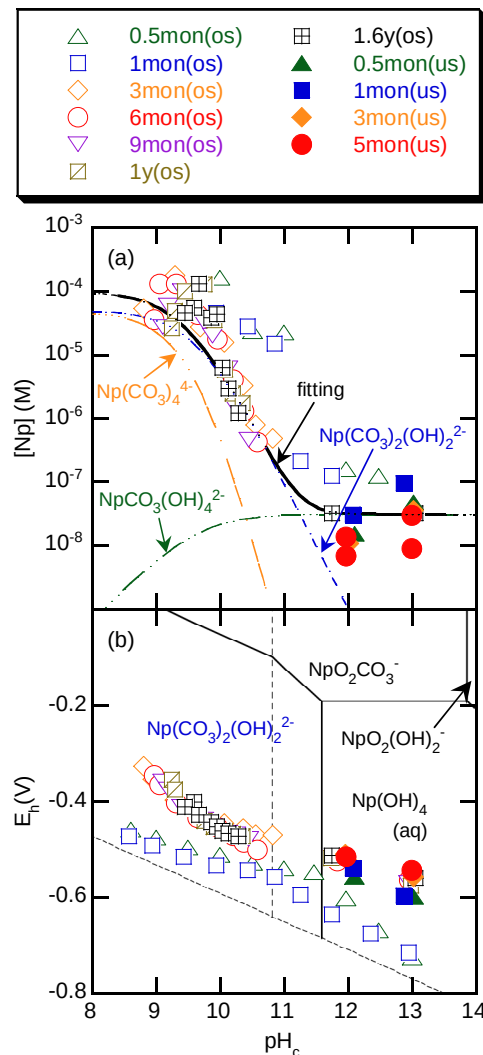


図 I=2MにおけるNp(IV)の(a)溶解度, (b)酸化還元電位 (E_h) の水素イオン濃度指数 (pH_c) 依存性

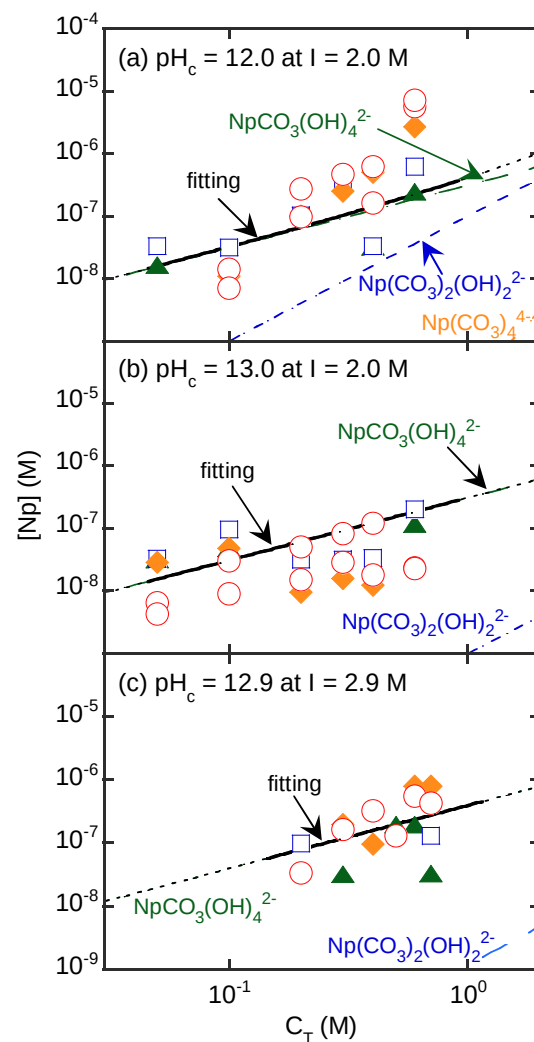


図 Np(IV)の全炭酸濃度 (C_T) 依存性

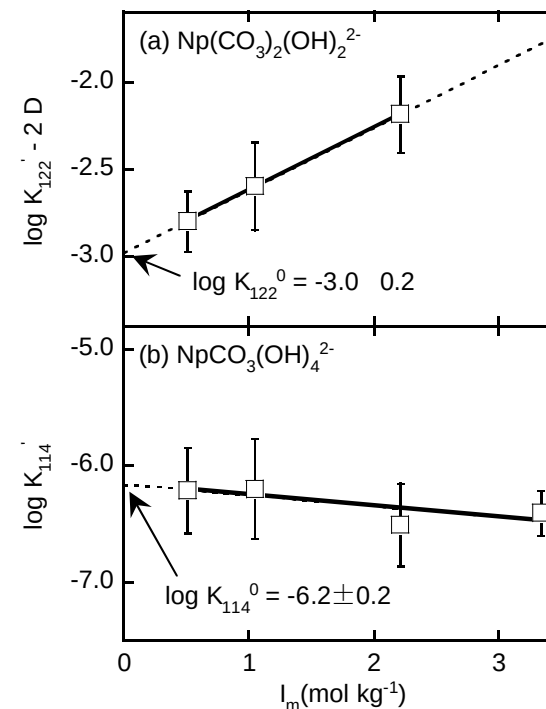


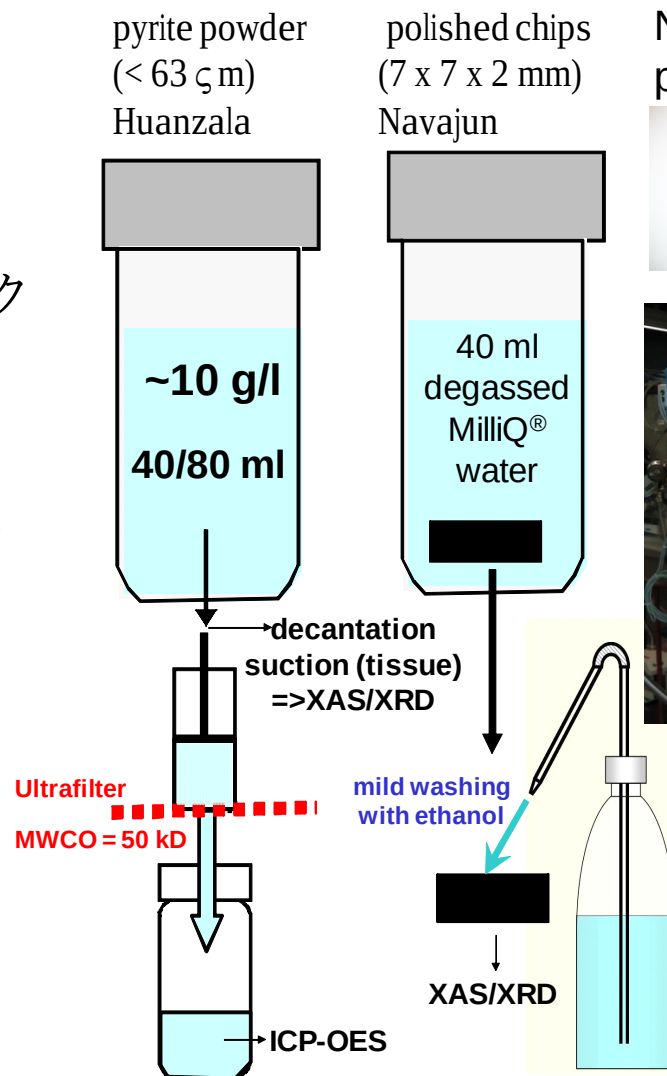
図 イオン強度0における平衡定数の導出

- 得られた溶解度の pH_c , C_T 依存性から各イオン強度における見かけの平衡定数を導出
- SIT法を用いて見かけの平衡定数からイオン強度ゼロの平衡定数を導出

黄鉄鉱に対するセレン(IV,VI)の還元性収着

収着実験

- 手法: バッチ法
- 雰囲気: N_2 ($O_2 < 3$ ppm)
- 黄鉄鉱:
 - 研磨スペイン産ブロック
 - ペルー産チップを粉砕, 粒径を $<63 \mu m$ or $63-250 \mu m$ に調整
- 初期Se酸化状態: 4 or 6価
- 初期Se濃度: 10^{-3} or $10^{-2} M$
- 液相pH: 約8に調整
- 共存物質: なし, $NaHCO_3$ or $NaHS$
- 試験温度: $80^\circ C$
- 試験期間: 1週間, 2か月 (, 3.5か月)
- Se等濃度分析: ICP-OES



Navajun
pyrite (Spain)



Huanzala
pyrite (Peru)

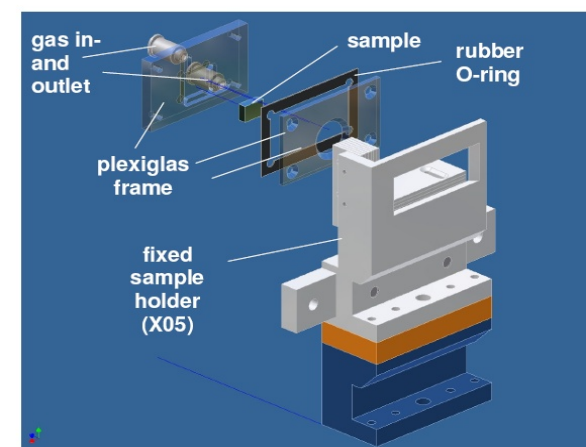




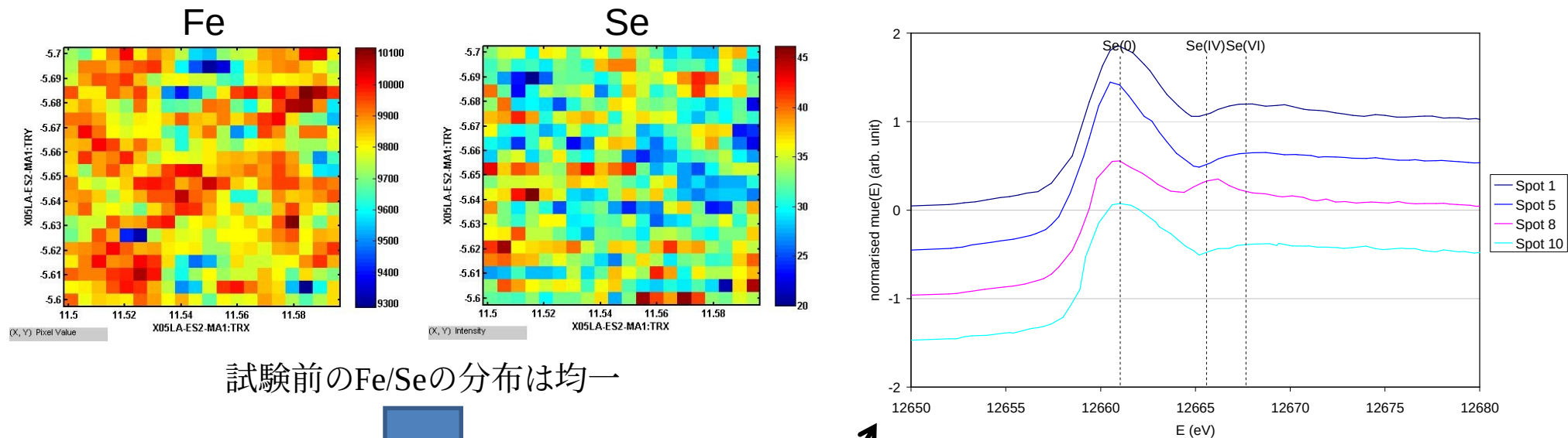
黄鉄鉱に対するセレン(IV,VI)の還元性収着

(マイクロ) XRF/XAS測定

- ・ 場所: スイス放射光施設 (SLS),
マイクロXASビームライン (X05LA)
- ・ ビーム径: マクロXAS…約2 mm,
マイクロXAS …約1 μm
- ・ 測定エネルギー: SeのK吸収端
(12.658 keV) 近傍
- ・ 測定試料
 - ・ マイクロXAS: スペイン産黄鉄鉱
ブロック (5試料) (蛍光測定)
 - ・ マクロXAS: ペルー産黄鉄鉱粉
(3試料) (蛍光測定)
 - ・ 標準試料: Na_2SeO_4 , Na_2SeO_3 , SeO_2 ,
 $\text{Se}(\text{gray})$, ZnSe , FeSe (透過&蛍光測定)
- ・ 雰囲気: 不活性ガス (He or N_2) フロー



黄鉄鉱に対するセレン(IV,VI)の還元性収着



- 80°Cにおいて最長3.5か月にわたる黄鉄鉱-Se(IV,VI)反応試験を実施
- $[Se] + [S] = [Se]_{init}$
 - Seの収着分だけSが溶出した可能性
 - SeとSが長期間の試験で交換した可能性を示唆
- Se(IV,VI)は黄鉄鉱表面に不均一に分布
 - Se(IV)の大半は0価に還元, NaHS共存下で収着量が増大
 - Se(VI)も大半は0価に還元, NaHSの影響小

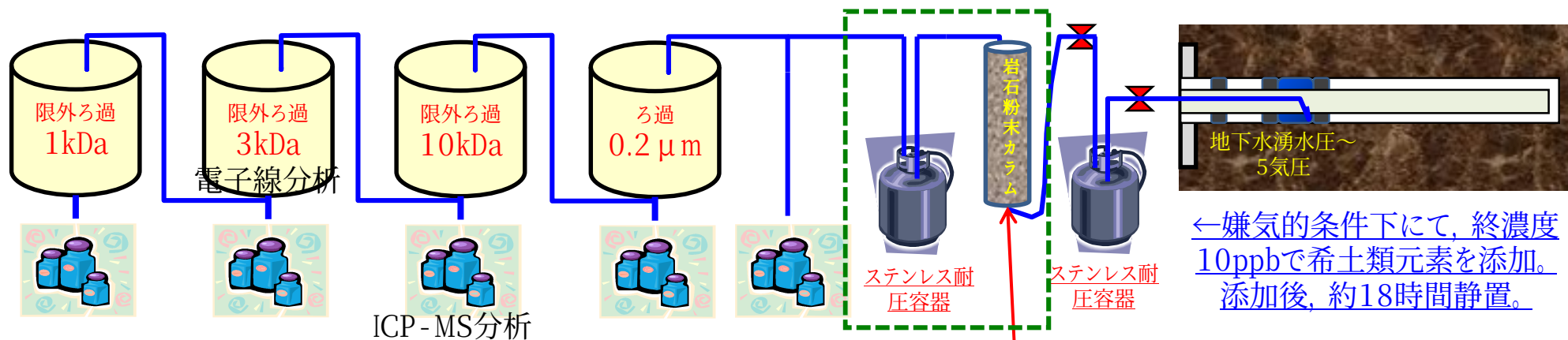
試験後はSeがスポット状にFe表面をカバー

幌延深地層研究所における核種移行試験の例

- 地下水中の無機・有機コロイド-岩石-希土類元素相互作用試験

実施内容

地下水, 希土類元素-地下水, 岩石-希土類元素-地下水を**原位置の地球化学条件下**でろ過および限外濾過し, コロイドを各分画サイズ毎に分画, 濾液とフィルター上の懸濁物を観察・分析してそれぞれの相互作用について評価した。



カラム：HPLC用耐圧カラム（カラム両端のフィルター径：10 μm）

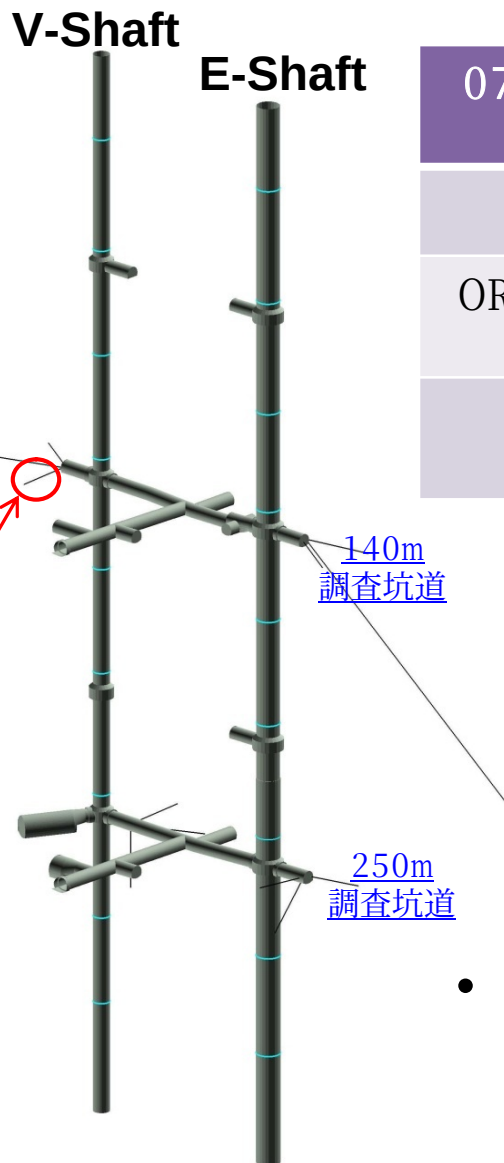
岩石：声問層（深度140mにて採取）

岩石粉碎粒子サイズ：2 mm

幌延深地層研究所における核種移行試験の例

- 試料採取場所および
原位置のpH, Eh値

地下施設内でのコロイド・有機物・
微生物特性調査試験



07-V140-M03	2009	2010	2011	2012
pH	6.9	7.2	7.4	7.6
ORP vs SHE (mV)	-228		-222	-249
Salinity (g/L)	6.5	6.5	6.2	6.4

- 壁面近傍ではpHの上昇が確認されている。
 - ORPは立坑近傍でも変化しておらず、岩盤中では還元状態が維持されている。
 - 水質の変化は認められない。
- 原位置試験と室内試験の差異を理解し、より現実的な核種移行挙動評価ができることが重要。



まとめ

- 地層処分の安全評価では、システムの長期挙動の理解を基本に、シナリオ構築、モデル化およびデータ整備を組み合わせたうえで解析・評価を実施。
- すべての環境条件に対応できるような実測データの取得は事実上不可能。実測データの取得とモデル化・データベースをうまく組み合わせて、種々の環境条件に応じた核種移行パラメータの設定を行うのが現実的。
- 原位置試験と室内試験の差異を理解し、より現実的な核種移行挙動評価ができることが重要。



グローバルな人材育成に向けた提言

- 英語で損をするのはもったいない。
(日本の技術レベルは世界トップクラス)
- 積極的に海外へ行くべき。
 - 英語での情報発信は必須！
 - 英語に触れる機会を習慣化
 - 全ては経験値！
- 地層処分は人類最大級のチャレンジングな問題。国境を越えた協働が必要。そのためには文化の違いを超えて多様な人と議論すること。国際貢献は我々に与えられた義務！



ご静聴ありがとうございました。

(連絡先：kitamura.akira@jaea.go.jp)