

JNC TJ8400 2004-021

核種移行に関する基盤データ構築手法の検討
および個別モデルの高度化に関する研究(II)

－成果概要書－

(核燃料サイクル開発機構 業務委託報告書)

2005年2月

三菱マテリアル株式会社

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松 4 番地 49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課
電話：029-282-1122（代表）
ファックス：029-282-7980
電子メール：jserv@jnc.go.jp

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184, Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2005

核種移行に関する基盤データ構築手法の検討および個別モデルの高度化に関する研究(II)

－成果概要書－

(核燃料サイクル開発機構 業務委託報告書)

辻本 恵一*、三浦 房恵*、諸岡 幸一*、上田 真三*

要 旨

現象理解に基づいた信頼性が高く性能評価と密接に関連したデータベースの整備方策を検討すると共に、地層処分システムの安全評価における核種移行の個別モデルとしてコロイド影響に関する実験、及び評価コードの改良及び開発を行った。

核種移行データベースに関しては、データベースの信頼性向上を図るための基礎データ構築手法を検討した。

コロイドに関する評価コードの改良及び開発では、昨年度改良したコロイドの影響を考慮した核種移行計算コード(COLFRAC-mrl)を基にして、コードのユーザーインターフェイスの開発を行った。また、COLFRAC-mrlによるコロイドの影響を考慮した核種移行解析に基づく被曝線量評価を行い、コロイド-核種の吸着反応を、平衡論及び速度論的に扱った場合の線量への影響を検討した。

コロイドに関する実験では、安全評価上の重要パラメータである核種-コロイドの分配係数に関する標準的測定手法の検討とデータ取得を行った。

本報告書は、三菱マテリアル株式会社が核燃料サイクル開発機構との委託研究契約により実施した研究成果に関するものである。

機構担当部課室：東海事業所環境保全・研究開発センター処分研究部
処分バリア性能研究グループ

* 三菱マテリアル株式会社

Studies on Data Base Management for Nuclide Migration and Improvement of
Individual Models (II) (Summary)

(Document Prepared by Other Organization, Based on the Trust Contract)

Keiichi Tsujimoto*, Fusae Miura*, Kouichi Morooka*, and Shinzo Ueta*

Abstract

Reliable database management methods, which is based on understanding of phenomena, and closely related with performance assessment, were studied as well as researches for individual model improvement like column experiment, and analysis code development for colloids.

For nuclide migration database, the basic data development method was examined in order to improve the credibility of the data stored in the database.

For the analysis and code development for colloid transport, the user interface of the colloid transport analysis code, COLFRAC-mrl code, which was developed in the last year, was developed. The dose analyses based on the nuclide transport analysis with considering colloids are executed by using COLFRAC-mrl code. The effects of chemical equilibrium and kinetics model for nuclide sorption on colloids are evaluated in the analysis.

The standard measurement method was examined and data was obtained by the experiments for distribution coefficient between nuclide and colloids, which is the important parameter for safety performance assessment of high-level radioactive waste.

This Work was performed by Mitsubishi Materials Corporation under contract with Japan Nuclear Cycle Development Institute.

JNC Liaison : Barrier Performance Group, Waste Isolation Research Division, Waste Management and Fuel Cycle Research Center, Tokai Works.

* Mitsubishi Materials Corporation

目次

| | |
|--|----|
| 1. はじめに | 1 |
| 2. 実施項目 | 1 |
| 3. 熱力学データベースの利用環境整備 | 2 |
| 4. 核種の溶解度設定における固溶体モデルの適用性に関するデータ整備 | 2 |
| 5. JNC-SDB を用いた収着係数の信頼度付与のための手法改良 | 2 |
| 6. COLFRAC-mr1 のユーザーインターフェイスの開発 | 4 |
| 6.1 COLFRAC-mr1 の計算方法 | 4 |
| 6.2 フラックス境界条件取り入れ | 4 |
| 6.3 核種の崩壊（1核種のみ） | 5 |
| 6.4 入出力修正 | 5 |
| 7. COLFRAC-mr1 によるコロイドの影響を考慮した核種移行解析に基づく被曝線量評価 | 5 |
| 7.1 解析ケース | 6 |
| 7.2 解析条件 | 6 |
| 7.2.1 モデル | 8 |
| 7.2.2 解析の条件 | 8 |
| 7.2.3 半減期 | 9 |
| 7.2.4 線量換算係数 | 9 |
| 7.2.5 現実的速度定数 | 9 |
| 7.2.6 パラメータの設定 | 10 |
| 7.3 評価結果 | 14 |
| 7.3.1 現実的設定に関する評価結果 | 15 |
| 7.3.2 パラメータ変更ケースに関する評価結果 | 25 |
| 7.3.3 Cs-135 核種の濃度依存性に関する解析 | 36 |
| 7.3.4 Am-243 核種に関する α β 変更ケースの解析 | 38 |
| 7.4 まとめ | 46 |
| 8. 核種のコロイドの分配係数に関する標準的手法の検討とデータ取得 | 47 |
| 8.1 背景及び目的 | 47 |
| 8.2 方法 | 47 |

| | |
|-----------------------------|----|
| 8.2.1 試験条件 | 47 |
| 8.2.2 試験手順 | 50 |
| 8.3 試験結果 | 52 |
| 8.4 分配係数に及ぼすコロイド影響の検討 | 59 |
| 8.4.1 降水系地下水試料 | 59 |
| 8.4.2 海水系地下水試料 | 62 |
| 8.5 まとめ | 64 |
| 9. おわりに | 65 |
| 10. 参考文献 | 66 |

目 次

| | | |
|----------|--|----|
| 図 7.2-1 | フラックス及び線量の計算の方法 | 8 |
| 図 7.3-1 | 母岩からの Np-237 核種放出率 (現実的な設定ケース) | 16 |
| 図 7.3-2 | 断層からの Np-237 核種放出率 (現実的な設定ケース) | 16 |
| 図 7.3-3 | ガラス固化体 4 万本についての Np-237 核種線量 (現実的な設定ケース) | 17 |
| 図 7.3-4 | 母岩からの U-236 核種放出率 (現実的な設定ケース) | 17 |
| 図 7.3-5 | 断層からの U-236 核種放出率 (現実的な設定ケース) | 18 |
| 図 7.3-6 | ガラス固化体 4 万本についての U-236 核種線量 (現実的な設定ケース) | 18 |
| 図 7.3-7 | 母岩からの Cs-135 核種放出率 (現実的な設定ケース) | 19 |
| 図 7.3-8 | 断層からの Cs-135 核種放出率 (現実的な設定ケース) | 19 |
| 図 7.3-9 | ガラス固化体 4 万本についての Cs-135 核種線量 (現実的な設定ケース) | 20 |
| 図 7.3-10 | Cs-135 核種の線量値 (現実的な設定ケース) | 20 |
| 図 7.3-11 | 母岩からの Am-243 核種放出率 (現実的な設定ケース) | 21 |
| 図 7.3-12 | 断層からの Am-243 核種放出率 (現実的な設定ケース) | 22 |
| 図 7.3-13 | ガラス固化体 4 万本についての Am-243 核種線量 (現実的な設定ケース) | 22 |
| 図 7.3-14 | 母岩からの Pu-240 核種放出率 (現実的な設定ケース) | 23 |
| 図 7.3-15 | 断層からの Pu-240 核種放出率 (現実的な設定ケース) | 23 |
| 図 7.3-16 | ガラス固化体 4 万本についての Pu-240 核種線量 (現実的な設定ケース) | 24 |
| 図 7.3-17 | 母岩からの Np-237 核種放出率 (パラメータ変更ケース) | 26 |
| 図 7.3-18 | 断層からの Np-237 核種放出率 (パラメータ変更ケース) | 26 |
| 図 7.3-19 | ガラス固化体 4 万本についての Np-237 核種線量 (パラメータ変更ケース) | 27 |
| 図 7.3-20 | 母岩からの U-236 核種放出率 (パラメータ変更ケース) | 28 |
| 図 7.3-21 | 断層からの U-236 核種放出率 (パラメータ変更ケース) | 28 |
| 図 7.3-22 | ガラス固化体 4 万本についての U-236 核種線量 (パラメータ変更ケース) | 29 |

| | | |
|----------|--|----|
| 図 7.3-23 | 母岩からの Am-243 核種放出率 (パラメータ変更ケース) | 30 |
| 図 7.3-24 | 断層からの Am-243 核種放出率 (パラメータ変更ケース) | 30 |
| 図 7.3-25 | ガラス固化体 4 万本についての Am-243 核種線量 (パラメータ変更ケース) | 31 |
| 図 7.3-26 | 母岩からの Pu-240 核種放出率 (パラメータ変更ケース) | 32 |
| 図 7.3-27 | 断層からの Pu-240 核種放出率 (パラメータ変更ケース) | 32 |
| 図 7.3-28 | ガラス固化体 4 万本についての Pu-240 核種線量 (パラメータ変更ケース) | 33 |
| 図 7.3-29 | 母岩からの Cs-135 核種放出率 (パラメータ変更ケース) | 34 |
| 図 7.3-30 | 断層からの Cs-135 核種放出率 (パラメータ変更ケース) | 34 |
| 図 7.3-31 | ガラス固化体 4 万本についての Cs-135 核種線量 (パラメータ変更ケース) | 35 |
| 図 7.3-32 | 母岩からの Cs-135 核種放出率 (流速 46.4m/y) | 37 |
| 図 7.3-33 | 母岩からの Cs-135 核種放出率 (流速 19.6m/y) | 37 |
| 図 7.3-34 | 母岩からの Cs-135 核種放出率 (流速 8.25m/y) | 38 |
| 図 7.3-35 | 人工バリアからの Am-243 核種フラックス (FRONT による解析結果) | 40 |
| 図 7.3-36 | 母岩からの Am-243 核種放出率 ($\alpha/\beta=1.76\times 10^5\text{m}^3/\text{kg}$) | 41 |
| 図 7.3-37 | 断層からの Am-243 核種線量 ($\alpha/\beta=1.76\times 10^5\text{m}^3/\text{kg}$) | 42 |
| 図 7.3-38 | 母岩からの Am-243 核種放出率 ($\alpha/\beta=1.76\times 10^4\text{m}^3/\text{kg}$) | 42 |
| 図 7.3-39 | 断層からの Am-243 核種線量 ($\alpha/\beta=1.76\times 10^4\text{m}^3/\text{kg}$) | 43 |
| 図 7.3-40 | α/β 変更ケース ($\alpha/\beta=1.76\times 10^5\text{m}^3/\text{kg}$) の断層からの核種線量のピーク値 の逆方向速度定数 β に対するプロット (コロイド濃度 0.1ppm) | 46 |
| 図 7.3-41 | α/β 変更ケース ($\alpha/\beta=1.76\times 10^4\text{m}^3/\text{kg}$) の断層からの核種線量のピーク値 の逆方向速度定数 β に対するプロット (コロイド濃度 0.1ppm) | 46 |
| 図 8.2-1 | バッチ法による分配係数の測定フロー | 50 |
| 図 8.3-1 | 収着試験後の固相に対する XRD 分析結果 | 57 |
| 図 8.3-2 | 収着試験後の固相の粒度分布測定結果 | 58 |
| 図 8.4-1 | 降水系地下水の Kd | 59 |
| 図 8.4-2 | 降水系地下水の Kd' と Kd の比較 | 60 |
| 図 8.4-3 | 海水系地下水の Kd | 62 |
| 図 8.4-4 | 海水系地下水の Kd' と Kd の比較 | 63 |

目 次

| | | |
|---------|---|----|
| 表 7.2-1 | 天然バリア条件 | 7 |
| 表 7.2-2 | 各核種の半減期 | 9 |
| 表 7.2-3 | 各核種の線量換算係数（河川水平野モデル） | 9 |
| 表 7.2-4 | 核種のコロイドへの分配係数 | 10 |
| 表 7.2-5 | 各解析ケースのパラメータ（現実的設定） | 11 |
| 表 7.2-6 | 各解析ケースのパラメータ（パラメータ変更ケース） | 13 |
| 表 7.2-7 | 各解析ケースのパラメータ（Am-243 核種の α β 変更ケース） | 13 |
| 表 7.2-8 | 各解析ケースのパラメータ（Cs-135 核種の濃度依存性ケース） | 14 |
| 表 7.3-1 | 現実的なパラメータ設定ケースのまとめ | 25 |
| 表 7.3-2 | パラメータ変更ケースのまとめ（コロイド濃度 1ppm） | 36 |
| 表 7.3-3 | Am-243 核種の α β 変更ケースの各解析のピーク値とピークの時間 | 45 |
| 表 8.2-1 | 収着試験の条件 | 48 |
| 表 8.2-2 | 試験条件マトリクス | 49 |
| 表 8.3-1 | 収着試験前の地下水組成分析結果 | 53 |
| 表 8.3-2 | 収着試験開始時および終了時の pH、Eh | 54 |
| 表 8.3-3 | 収着試験終了時のトレーサ濃度測定結果および Cs の泥岩に対する分配係数 | 55 |
| 表 8.3-4 | 収着試験後の液相分析結果 | 56 |
| 表 8.4-1 | 核種－コロイド間の分配係数（Kd ^o ） | 61 |

1. はじめに

サイクル機構は、高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性を示す「第2次取りまとめ」を1999年11月に国に提出した。「第2次取りまとめ」にあたり、サイクル機構は、地層処分システムの安全評価で必要となる核種移行データベース（放射性元素の熱力学データベース：放射性元素の溶解度や化学種を推定するもの、核種のベントナイトおよび岩石に対する収着データベース：放射性元素のベントナイトおよび岩石への収着の度合いを示すもの）を開発・整備した。これら放射性元素の溶解度、化学種や収着の度合いを推定する上で基盤となるデータは、第2次取りまとめでの課題を踏まえ、より現象理解に基づいた信頼性の高いデータベースとして整備してゆく必要がある。また、天然環境において放射性元素がコロイドに収着して移行する可能性があり、地層処分システムの安全評価における核種移行の個別モデルを高度化する上では、放射性元素の化学種や収着の度合いを踏まえた現象理解に基づくコロイド影響も考慮した評価が必要である。

そこで、本件では、国内外における最新の専門家による研究内容の調査を通じて、基盤データ構築手法を検討する。また、収着データベース（JNC-SDB）を用いて、収着係数の信頼度を付与するための手法を改良する。さらに、コロイドに対する核種収着の可逆・不可逆性評価、コロイドの影響を考慮したモデル（コード）に基づく核種移行モデルの高度化を図るためのデータ・コードの整備を行う。最後に、コロイドの影響を考慮したモデル（コード）に基づいて、コロイドの影響を考慮した核種移行解析に基づく被曝線量評価を行う。これらにより、より現象理解に基づいた信頼性の高い核種移行評価を可能にし、地層処分システムの安全評価手法の高度化に資する。

2. 実施項目

- ① 熱力学データベースの利用環境整備
- ② 核種の溶解度設定における固溶体モデルの適用性に関するデータ整備
- ③ JNC-SDBを用いた収着係数の信頼度付与のための手法改良
- ④ COLFRAC-mrlのユーザーインターフェイスの開発
- ⑤ COLFRAC-mrlによるコロイドの影響を考慮した核種移行解析に基づく被曝線量評価
- ⑥ 核種－コロイドの分配係数に関する標準的測定手法の検討とデータ取得

3. 熱力学データベースの利用環境整備

サイクル機構殿では、「第 2 次取りまとめ」にあたり放射性元素の熱力学データベースを開発したが、データは 25°C の条件でのみ適用可能であり、温度依存に関わるデータ（エンタルピー）は、ほとんど整備されていない。しかしながら、想定される処分環境は、25°C よりも高い温度条件であるため、現実的な溶解度設定にあたっては、エンタルピーデータを整備する必要がある。本項では、国際的にデータベース開発が進められている OECD/NEA-TDB プロジェクト等を中心に、最新のデータベースを調査し、エンタルピーデータの整備状況を検討した。また、OECD/NEA で整備されているデータベースを地球化学コード PHREEQE のフォーマットに変換するプログラムの開発状況について調査し、適切なプログラムが存在する場合、プログラムの導入を検討した。

4. 核種の溶解度設定における固溶体モデルの適用性に関するデータ整備

地層処分の性能評価において放射性核種の溶解度は重要な入力パラメータである。放射性核種の溶解度は、多くの場合、単純な組成を有する固相の溶解度により設定されている。しかしながら核種の種類によっては、複雑な組成を有する固溶体を形成するため、単純な組成を有する固相の場合に比べて溶解度が低くなると考えられる。そこで現実的な核種の溶解度設定にあたっては、固溶体モデルの適用性を検討する必要がある。

本項では、評価に関連する様々な種類の固溶体を検討した。様々な種類の固溶体モデルの作成方法を分析して、要求されるデータとの関連を検討した。コフィン石及び Fe-Se-S 系を対象に、放射性核種を含んだ固溶体を形成する可能性、利用可能な鉱物学的及び熱力学的データ、及びデータベースのデータのデータ欠落部を補間する方法、を分析、検討した。

5. JNC-SDB を用いた収着係数の信頼度付与のための手法改良

JNC-SDB に取り込まれている核種のベントナイトおよび岩石に対する収着データは 20,000 件以上に及ぶ。この様な膨大なデータベースには、様々な実験条件・手法で得られたデータが含まれており、全てのデータを同一の条件や信頼度で評価することはできない。そのため、個々のデータに対し、データの信頼度を付与し、信頼度に応じた評価を行う必要がある。

昨年度は、収着データの信頼度として、どの様な実験条件等を考慮すれば良いか、各パ

ラメータの信頼度レベルをどう考慮すれば良いか等を検討し、個々の収着データに対し信頼度を付与するための予備的なクライテリアを設定した。また、実際に JNC-SDB に取り込まれているデータの一部を用い、クライテリアの適用性も検討し、データの信頼度付与を与える上での課題を抽出した。

今年度は、信頼度の判定に当たり、専門家の判断の必要性を低減して、再現性を改善するようにガイドラインを見直した。ガイドラインを確定した後、JNC-SDB から選定されたデータ（Np/ベントナイト、及び Pu/ベントナイトの収着データ）を用いた適用性試験の結果を比較して、ガイドラインを文書化した。さらに JNC-SDB から選定されたデータの最終的な分類結果を整理した。

6. COLFRAC-mrl のユーザーインターフェイスの開発

昨年度改良したコロイドの影響を考慮した核種移行計算コード COLFRAC-mrl は、亀裂および多孔質媒体の両媒体中での核種移行を解くことが可能であるが、その利用にあたっては、計算機に関する高い専門知識が要求されるため、簡易に利用することが困難である。そこで、COLFRAC-mrl の汎用性を高めて、利用を簡易にするためのユーザーインターフェイスの開発を行う。

以下の項目について、ユーザーインターフェイスの開発を行った。

- ① フラックス境界条件取り入れ
- ② 核種の崩壊（1核種のみ）
- ③ 入出力修正

6.1 COLFRAC-mrl の計算方法

COLFRAC は、二次元の亀裂の入った多孔質媒体中でのコロイドによって促進される溶質の移行を解析する事を目的として、オハイオ州立大学 Dr.Ibaraki らによって開発された数値解析コードである (Ibaraki and Sudicky, 1995a, b)。この数値解析コードは、多孔質媒体の間隙の大きさがコロイドよりも小さく、そのためコロイドの移行は亀裂の中のみで起こるということを前提としており、多孔質媒体中でのコロイドの移行は考慮されていなかった。

COLFRAC-mrl は COLFRAC を基にして Dr.Ibaraki により開発された、亀裂中並びに多孔質媒体中での両方においてコロイドの移行を取り扱えるように改良された数値解析コードである。そのため、コロイドによって促進される溶質の移行現象を亀裂中だけでなく多孔質媒体中においても取り扱うことが可能となっている。

6.2 フラックス境界条件取り入れ

溶質の移行に関する支配方程式を数値計算により解く際、昨年度開発した COLFRAC-mrl の核種移行計算では、亀裂上流の境界条件として第1種境界条件のみ取り入れることが可能である。

一方、本年度研究の被曝線量解析の目的は、コロイドが JNC 第2次取りまとめの性能評価体系に与える影響を評価することである。第2次取りまとめでは、人工バリアから放出される核種はフラックスとして与えられている。天然バリアの亀裂内の核種移行計算で

は核種フラックスが第2種境界条件として、与えられ解析が実施されている。

そこで、COLFRAC-mrl の核種移行計算の亀裂上流の境界条件として、第2種境界条件を取り入れることが可能なように、プログラムの修正を行った。

6.3 核種の崩壊（1核種のみ）

昨年度開発した COLFRAC-mrl では、核種移行に放射性崩壊を考慮することができない。

そこで、COLFRAC-mrl を、核種移行で放射性崩壊を取り入れることが可能なように、プログラムの修正を行った。同時にプログラム検証も実施した。

なお、1核種の放射性崩壊を考慮することは可能となったが、複数の核種から構成される崩壊連鎖を考慮することはできない事は、昨年度と同じである。

6.4 入出力修正

昨年度開発された COLFRAC-mrl では、プログラムへの入力ユーザが1個のファイルに全ての入力変数を書き込み、それをプログラムが読み込んで解析を行うように、入力変数の読み込みが処理されていた。

この形式では、必要な入力変数がインプットされていない場合、及び不必要な入力変数をファイルに書き込んだ場合には、ファイルに書かれているデータをすべて確認して、入力エラーを起こす問題点を探して修正することが必要であった。

そこで COLFRAC-mrl の入力変数の読み込みを、GUI を用いてウィンドウの画面の空欄に1個ずつ入力データを書き込んでいく形式に変更した。

この形式では、必要な入力変数に抜けがある場合には、入力ウィンドウを見るだけで入力に抜けがある変数を見つけることが可能である。さらに不必要な入力変数を書き込む心配もない。このように GUI を用いたユーザ・インターフェースを開発することにより、コードの入力変数の書き込み作業が効率化し、又コードの運用が昨年度と比べて非常に簡単、かつ低コストで可能となった。

7. COLFRAC-mrl によるコロイドの影響を考慮した核種移行解析に基づく被曝線量評価

コロイドの影響を考慮した核種移行評価に関しては、「第2次取りまとめ」では、サイクル機構は核種-コロイド-岩盤間の収着反応を平衡論により扱う簡易な解析を実施した。

「第2次取りまとめ」以降は、評価結果に関する信頼性向上を目的として、核種-コロイド-岩盤間の収着反応について速度論（不可逆的収着反応も含めて）も扱い得るようモデルの高度化を実施してきた。今後、サイクル機構では核種移行に及ぼすコロイドの影響を体系的に取りまとめるにあたり、収着反応を速度論により扱い核種移行評価を行い、「第2次取りまとめ」での結果と比較するとともに、コロイド影響の度合いを定量的に言及することが必須であると考えられる。ここでは、核種移行に及ぼすコロイド影響評価に関する体系的取りまとめに資することを目的として、COLFRAC-mrlにより核種-コロイド-岩盤間の3相間の収着反応速度等をパラメータに核種移行率に関する感度解析を行い、その結果に基づき被曝線量評価を実施した。

7.1 解析ケース

コロイドが JNC 第2次取りまとめの性能評価体系に与える影響を評価するため、天然バリアモデルについて、コロイドを取り入れないモデル（コロイド無しケース）、及び、コロイドを取り入れたモデルの両方を考慮に入れて解析を実施した。

また、コロイドを取り入れたモデルに関しては、コロイドへの収着量に関する速度定数をパラメータとして、感度解析を行った。具体的には、コロイドへの収着量に関する順方向速度定数 α 、逆方向速度定数 β に関して、以下のように設定した場合の評価結果を比較した。

- ① コロイド無しケース
- ② 平衡状態にあると考えられるほど速度定数 α 、 β の値を大きく設定（平衡ケース）
- ③ コロイド収着実験結果からヘンリー型吸着等温線を仮定したときに現実的と考えられる速度定数 α 、 β の値を導出して設定（現実的設定ケース）
- ④ 速度定数 β を小さく設定（ β 小ケース）（ α は②と同じ）
- ⑤ 速度定数 α 、 β を共に小さく設定（ α β 小ケース）（ α と β の比は②と同じ）
- ⑥ 速度定数 α 、 β を共に変更（Am-243核種の α β 変更ケース）（ α と β の比は固定）
- ⑦ コロイド濃度を1ppm、5ppm、10ppmに設定（Cs-135核種の濃度依存性ケース）

7.2 解析条件

第2次取りまとめ中、コロイドの影響を考慮したケースで取り扱われている天然バリア条件を基本として、解析条件を設定した。人工バリアからの核種移行率に関しては、一律

に第2次取りまとめコロイドケースの結果を用いた。解析は、母岩と断層についてのみ実施した。母岩及び断層の核種移行解析に用いた具体的な天然バリア条件を表 7.2-1 に示す。

表 7.2-1 天然バリア条件

| | 名称 | 設定値 |
|-----------|---------------------------|---|
| 地質環境条件 | 岩種 | 花崗岩（酸性結晶質岩） |
| | 地下水 | 降水系地下水 |
| | 動水勾配[-] | 0.01 |
| 境界条件 | 入力とした核種移行率 | 第2次取りまとめコロイドケースの人工バリアからの核種フラックス（コロイド濃度 1ppm、核種のコロイドへの分配係数 1000m ³ /kg 相当のコロイド影響を想定） |
| 亀裂パラメータ | 移行距離[m] | 100（母岩）、800（断層） |
| | 透水量係数[m ² /s] | 10 ⁻⁷ （流速：50m/y）～10 ⁻¹³ （流速：0.05m/y）（母岩） 10 ⁻⁷ （流速：50m/y）（断層） |
| | 開口幅[m] | 経験則 $2b = 2\sqrt{T}$ |
| 核種移行パラメータ | 分散長[m] | 縦方向分散長 10（=1/10×移行距離）（母岩） 縦方向分散長 80（=1/10×移行距離）（断層） |
| | マトリクス拡散寄与面積率[%] | 50 |
| | マトリクス拡散深さ[m] | 0.1 |
| | 有効間隙率[%] | 2 |
| | 乾燥密度[Mg/m ³] | 2.64 |
| | 実効拡散係数[m ² /s] | 3×10 ⁻¹² |
| | 分配係数[m ³ /kg] | 1(Np,U,Pu), 5(Am), 0.05(Cs) |

7.2.1 モデル

本報告書で利用した計算モデルは、人工バリアからの核種の放出フラックスを入力として、母岩、断層中の核種移行を計算して、断層から放出されるフラックスを線量に変換したものを、最終的な出力としている。計算モデルの概略を図 7.2-1 に示す。母岩に関しては、第 2 次とりまとめと同様、透水量係数 $10^{-13} \sim 10^{-7} \text{m}^2/\text{s}$ の対数正規分布（対数平均-9.99、標準偏差 1.07）の 48 分割区間の各中央値についてフラックスの計算を行い、各分割区間の確率を掛けて足し合わせたものを母岩からのフラックスとした。断層に関しては、第 2 次とりまとめと同様、母岩からのフラックスを用いて透水量係数 $10^{-7} \text{m}^2/\text{s}$ （流速 50m/y ）の場合の断層中の移行を解析し、断層出口におけるフラックスを算出した。

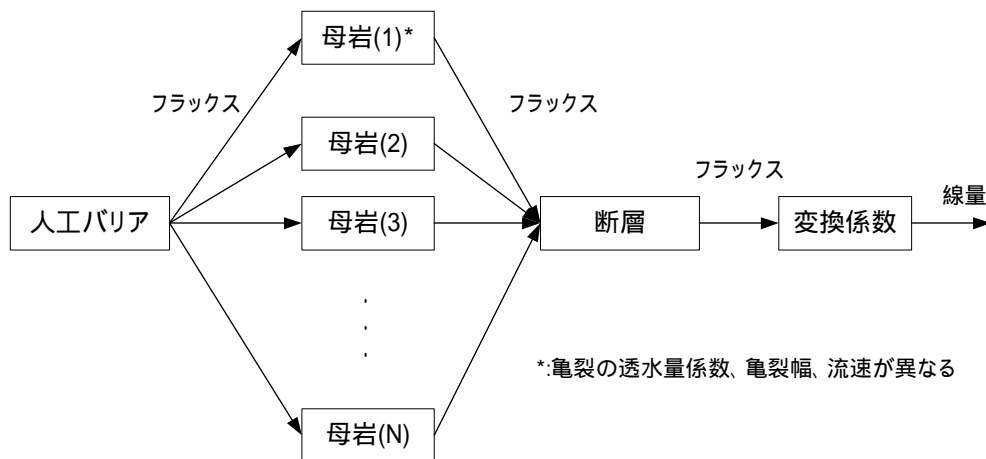


図 7.2-1 フラックス及び線量の計算の方法

7.2.2 解析の条件

本解析における前提条件を以下に示す。

- (ア) 崩壊連鎖（例えば $\text{Pu-240} \rightarrow \text{U-236}$ 、 $\text{Cm-245} \rightarrow \text{Pu-241} \rightarrow \text{Am-241} \rightarrow \text{Np-237}$ ）は考慮していない。
- (イ) コロイドフィルトレーションは考慮していない。
- (ウ) 入力フラックスとしては、各核種のコロイドケースについての人工バリアからの放出率を用いた。
- (エ) 各核種の半減期は考慮している。

7.2.3 半減期

解析に利用した各核種の半減期を下表に示す。

表 7.2-2 各核種の半減期

| 核種 | 半減期 (年) |
|--------|--------------------|
| Np-237 | 2.14×10^6 |
| Am-243 | 7380 |
| Pu-240 | 6540 |
| U-236 | 2.34×10^7 |
| Cs-135 | 2.30×10^6 |

7.2.4 線量換算係数

断層からの核種放出率に関しては、第二次取りまとめ中に記載の河川水平野モデルを用いて算出された線量への換算係数を用い、ガラス固化体が4万本あることを考慮して線量に換算した。各評価核種に関する換算係数を下表に示す。

表 7.2-3 各核種の線量換算係数 (河川水平野モデル)

| 核種 | 線量換算係数 (mSv/Bq) |
|--------|---------------------|
| Np-237 | 1×10^{-11} |
| Am-243 | 2×10^{-11} |
| Pu-240 | 1×10^{-11} |
| U-236 | 1×10^{-12} |
| Cs-135 | 1×10^{-13} |

7.2.5 現実的速度定数

Np、Am、Pu に関しては、地下水コロイドへの収着試験結果より、U に関しては、ベントナイトコロイドへの収着試験結果より、現実的速度定数を導出した。(NAGRA, 2003)

Cs に関しては、花崗閃緑岩への分配係数に関する実験で現実的速度定数が得られている(黒澤他、2004)ので、そのデータを利用した。

以上よりまとめた、各評価核種のコロイドへの分配係数を以下の表に示す。

表 7.2-4 核種のコロイドへの分配係数

| 核種 | 分配係数(m ³ /kg) |
|----|--------------------------|
| Np | 5.0 |
| Am | 1.76×10 ⁵ |
| Pu | 3.9×10 ⁵ |
| U | 1.508 |
| Cs | 150 |

7.2.6 パラメータの設定

上記の文献等を参考に、コロイド影響を考慮した各解析ケースに関するパラメータを表 7.2-5 のとおり設定した。

コロイド濃度を 0 に設定した場合 (コロイド無しケース)、コロイド濃度を 1ppm とし、平衡と考えられるほど速度定数 (α 、 β) を大きく設定した場合 (平衡ケース)、及び速度定数 (α 、 β) をコロイドの核種への収着実験から得られた値に設定した場合 (現実的設定ケース) の 3 種にパラメータを設定した。以降、コロイドへの核種の収着の順方向速度定数を α 、逆方向速度定数を β とする。

表 7.2-5 各解析ケースのパラメータ（現実的設定）

| 解析条件、核種 | | コロイド濃度[ppm] | 順方向速度定数 α [1/y] | 逆方向速度定数 β [kg/m ³ /y] | α / β [m ³ /kg] |
|-----------|----|-------------|---------------------------|---|--|
| コロイド無しケース | Np | 0 | 0 | 1 | 0 |
| | U | 0 | 0 | 1 | 0 |
| | Am | 0 | 0 | 1 | 0 |
| | Pu | 0 | 0 | 1 | 0 |
| | Cs | 0 | 0 | 1 | 0 |
| 平衡ケース | Np | 1 | 5×10^{10} | 1×10^{10} | 5 |
| | U | 1 | 1.51×10^{10} | 1×10^{10} | 1.51 |
| | Am | 1 | 1.76×10^{15} | 1×10^{10} | 176000 |
| | Pu | 1 | 3.9×10^{15} | 1×10^{10} | 390000 |
| | Cs | 1 | 1.5×10^{12} | 1×10^{10} | 150 |
| 現実的設定ケース | Np | 1 | 43800 | 8760 | 5 |
| | U | 1 | 38.1 | 25.3 | 1.51 |
| | Am | 1 | 4380 | 2.49×10^{-2} | 176000 |
| | Pu | 1 | 438 | 1.12×10^{-3} | 390000 |
| | Cs | 1 | 182500 | 1220 | 150 |
| | Cs | 5 | 182500 | 1220 | 150 |
| | Cs | 10 | 182500 | 1220 | 150 |

また、パラメータ変更ケースとして、速度定数 α 、 β に関して以下のような設定を行った場合の検討を行った。

① β 小ケース

逆方向速度定数 β の値を現実的な値よりも小さく設定し、感度解析的に逆方向速度定数 β を現実的設定値よりも小さい範囲で変化させて物質移行計算を行った（ β 小ケース）。全評価核種について、逆方向速度定数 β が現実的設定値よりも一桁小さい場合の評価を行った。これはコロイドから核種の脱離速度が十分の一となる場合に相当する。逆方向速度定数 β を一桁小さく設定しても変化が認められない場合に

は、さらに β の値を小さく設定した場合の検討を行った。 β 小ケースでコロイド影響が認められた核種 Cs-135 に関して、感度解析的にコロイド濃度が 0.1ppm の場合の解析を実施した。海外で実施された地下深部の結晶質岩（花崗岩）中での測定結果について、天然コロイドの濃度は 0.1ppm 以下との報告がある（核燃料サイクル開発機構、1999）ので、コロイド濃度が 0.1ppm を設定した。

② α β 小ケース

α 、及び β の比を変えずに α 、及び β の値を共に小さく設定した場合の評価も行った（ α β 小ケース）。これは、分配係数に相当する α/β の値を一定に保ったまま、速度定数だけを小さく設定した場合の解析である。また、このパラメータ設定は、収着が遅いプロセス又、は核種とコロイドの間の相互作用が弱いプロセスに相当する。

③ Am-243 核種の α β 変更ケース

核種のコロイドに対する分配係数が大きく、コロイド影響が大きく認められた核種 Am-243 に関して、速度定数を平衡状態と考えられるほど大きな値から、 α と β の比を変えずに（ $\alpha/\beta=1.76\times 10^5$ m³/kg に固定した。これは Kd の現実的設定値である）段階的により小さな値に変化させて解析を行った。また、 α/β 値を現実的設定値よりも一桁小さく設定した場合（ $\alpha/\beta=1.76\times 10^4$ m³/kg に固定）について、同様の解析を行った。

COLFRAC-mrl を使った解析では、Am-243 核種のように核種のコロイドに対する分配係数 Kd が大きい核種の場合には、解が不安定になる傾向が認められたため、コロイド濃度を 0.1ppm と小さく設定して解析を行った。

④ Cs-135 核種の濃度依存性ケース

Cs-135 核種について、コロイド濃度を 1ppm、5ppm、10ppm に設定した場合の解析を実施した。

第 2 次取りまとめでは、地下深部のコロイド濃度として、1ppm を設定している（核燃料サイクル開発機構、1999）。また、東濃鉾山における堆積岩層での地下水の測定結果によると、コロイド濃度は約 1~5ppm と報告されている（核燃料サイクル開発機構、1999）。以上を考慮して、コロイド濃度を 1,5,及び 10ppm に設定した。

パラメータ変更ケースに関する設定値を表 7.2-6 に、Am-243 核種の α β 変更ケースに関する設定値を表 7.2-7 に、Cs-135 核種の濃度依存性ケースに関する設定値を表 7.2-8 に示す。

表 7.2-6 各解析ケースのパラメータ (パラメータ変更ケース)

| 解析条件、核種 | | コロイド濃度 [ppm] | 順方向速度定数 α [1/y] | 逆方向速度定数 β [kg/m ³ /y] | α / β [m ³ /kg] |
|-----------------------|----|--------------|------------------------|--|---------------------------------------|
| β 小ケース | Np | 1 | 43800 | 8.76 | 5000 |
| | Np | 1 | 43800 | 876 | 50 |
| | U | 1 | 38.1 | 2.53 | 15.1 |
| | U | 1 | 38.1 | 5.06 | 7.53 |
| | Am | 1 | 4380 | 2.49×10^{-3} | 1760000 |
| | Am | 1 | 4380 | 1.245×10^{-3} | 3520000 |
| | Pu | 1 | 438 | 1.12×10^{-4} | 3900000 |
| | Pu | 1 | 438 | 5.6×10^{-5} | 7820000 |
| | Cs | 1 | 182500 | 122 | 1500 |
| | Cs | 1 | 182500 | 61 | 3000 |
| | Cs | 0.1 | 182500 | 122 | 1500 |
| α β 小ケース | Np | 1 | 43.8 | 8.76 | 5 |
| | U | 1 | 3.81 | 2.53 | 1.51 |
| | Am | 1 | 438 | 2.49×10^{-3} | 176000 |
| | Pu | 1 | 43.8 | 1.12×10^{-4} | 390000 |
| | Cs | 1 | 18250 | 122 | 150 |

表 7.2-7 各解析ケースのパラメータ (Am-243 核種の α β 変更ケース)

| 解析条件、核種 | | コロイド濃度 [ppm] | 順方向速度定数 α [1/y] | 逆方向速度定数 β [kg/m ³ /y] | α / β [m ³ /kg] | $1 + \chi$ Kd |
|--|----|--------------|------------------------|--|---------------------------------------|---------------|
| α β 変更ケース ($\alpha / \beta = 1.76$) | Am | 0.1 | 438 | 2.49×10^{-3} | 176000 | 18.6 |
| | Am | 0.1 | 4380 | 2.49×10^{-2} | 176000 | 18.6 |
| | Am | 0.1 | 21900 | 1.245×10^{-1} | 176000 | 18.6 |

| | | | | | | |
|--|----|-----|-----------------------|-----------------------|--------|------|
| ×10 ⁵) | Am | 0.1 | 43800 | 2.49×10 ⁻¹ | 176000 | 18.6 |
| | Am | 0.1 | 438000 | 2.49 | 176000 | 18.6 |
| | Am | 0.1 | 4380000 | 24.9 | 176000 | 18.6 |
| | Am | 0.1 | 43800000 | 249 | 176000 | 18.6 |
| | Am | 0.1 | 1.76×10 ¹⁵ | 1.0×10 ¹⁰ | 176000 | 18.6 |
| α / β 変更 ケース (α / β =1.76 ×10 ⁴) | Am | 0.1 | 43.8 | 0.00249 | 17600 | 2.76 |
| | Am | 0.1 | 438 | 0.0249 | 17600 | 2.76 |
| | Am | 0.1 | 2190 | 0.1245 | 17600 | 2.76 |
| | Am | 0.1 | 4380 | 0.249 | 17600 | 2.76 |
| | Am | 0.1 | 43800 | 2.49 | 17600 | 2.76 |
| | Am | 0.1 | 438000 | 24.9 | 17600 | 2.76 |
| | Am | 0.1 | 4380000 | 249 | 17600 | 2.76 |
| | Am | 0.1 | 1.76×10 ¹⁴ | 1×10 ¹⁰ | 17600 | 2.76 |

注) 1+χ Kd はみかけの掘削影響領域通過流量 (7.3.4 項を参照)

表 7.2-8 各解析ケースのパラメータ (Cs-135 核種の濃度依存性ケース)

| 解析条件、核種 | | コロイド濃 度 [ppm] | 順方向速度定数 α [1/y] | 逆方向速度定数 β [kg/m ³ /y] | α / β [m ³ /kg] |
|--------------|----|------------------|--------------------|-------------------------------------|-------------------------------|
| 濃度依存 性ケース | Cs | 1 | 182500 | 1220 | 150 |
| | Cs | 5 | 182500 | 1220 | 150 |
| | Cs | 10 | 182500 | 1220 | 150 |

7.3 評価結果

以上のデータに基づいて、コロイドの影響を評価した物質移行解析を実施した。解析結果は、現実的なパラメータ設定に関する評価、及びパラメータ変更ケースに関する評価の二種類に分けて説明する。

7.3.1 現実的設定に関する評価結果

(1)解析の方法

現実的設定に関する評価では、コロイドが無い場合（コロイド無しケース）、及び、コロイドが存在する場合の解析を行った。また、コロイドに対する核種の収着量に関する速度定数 α 、 β に関しては、平衡と考えられるほど大きく設定した場合、及び、実験結果から現実的と考えられる速度定数 α 、 β 値を設定した場合の両方について解析を行った。

母岩、及び断層中の核種移行を COLFRAC-mrl を用いて解析した。人工バリアからの核種移行率に関しては、コロイド濃度 1ppm、核種のコロイドへの分配係数 1000m³/kg の場合のコロイド影響を想定して第 2 次取りまとめ中のコロイドケースの結果を入力として用いた。

各核種に関して、「第 2 次取りまとめ」と同様の解析ケースとして、ガラス固化体 1 本あたりの母岩からの核種放出率、断層からの核種放出率を Np-237、U-236、Am-243、Pu-240、Cs-135 について解析した。また、生物圏モデルとして河川水シナリオを想定した場合の線量換算係数を用いて、断層からの核種放出率を線量に換算した。ガラス固化体 4 万本についての線量を求めるために、断層からの核種放出率の線量換算値を 4 万倍して、ガラス固化体 4 万本についての線量とした。

(2)Np-237、U-236 の考察

核種のコロイドへの分配係数が 5m³/kg である核種 Np-237、及び 1.51m³/kg である核種 U-236 については、コロイド無しケースと、コロイド濃度 1ppm の平衡ケース、及び現実的速度定数ケースの解析結果はグラフ上で重なっている（図 7.3-1～図 7.3-6）。したがって、コロイド影響は無いことが示された。

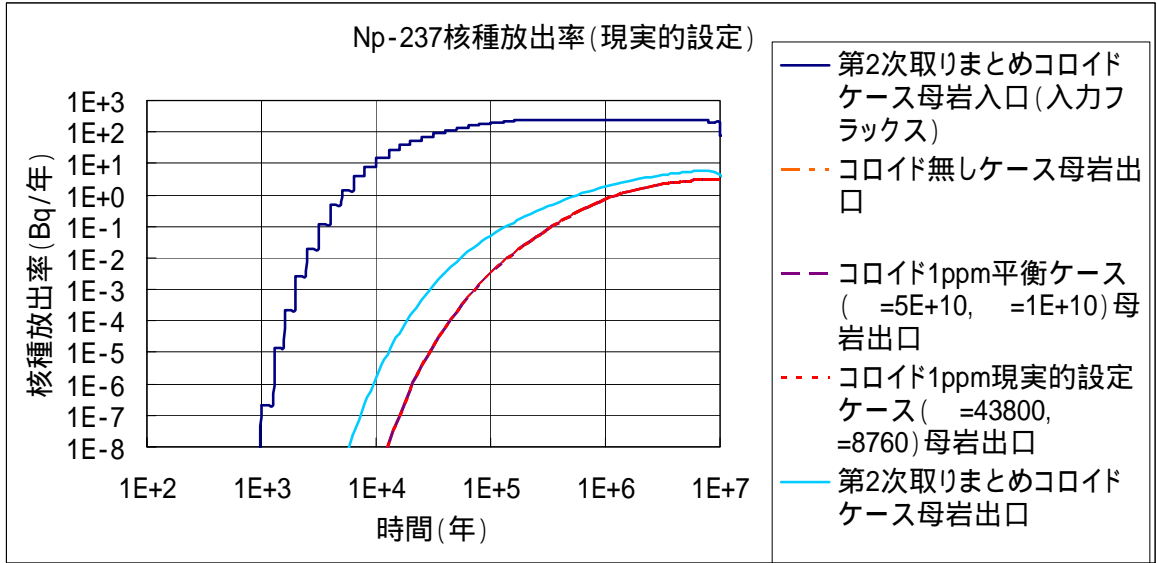


図 7.3-1 母岩からの Np-237 核種放出率 (現実的な設定ケース)

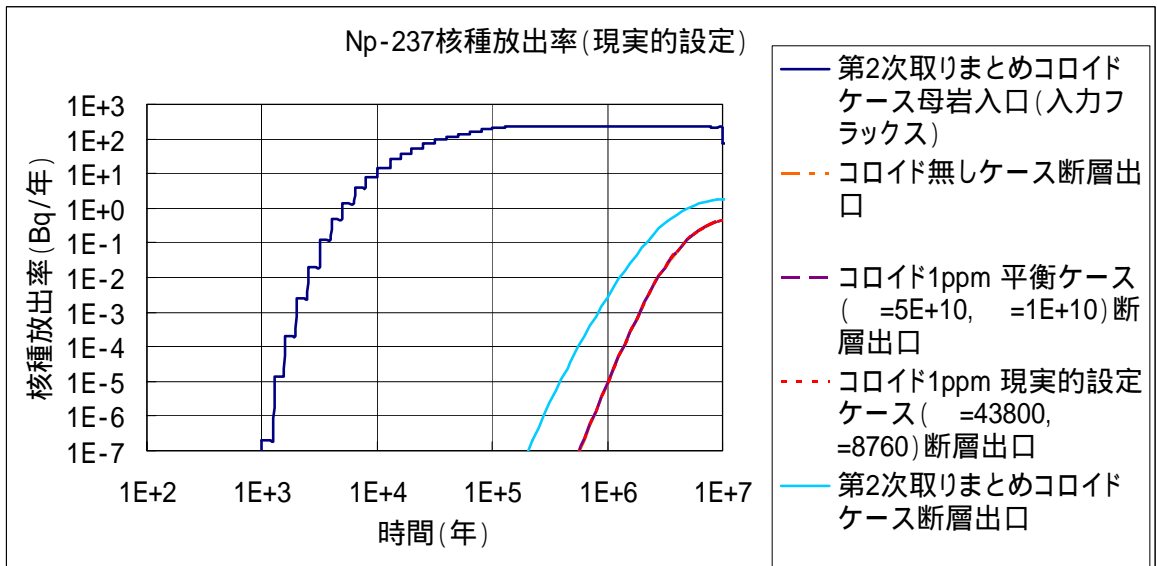


図 7.3-2 断層からの Np-237 核種放出率 (現実的な設定ケース)

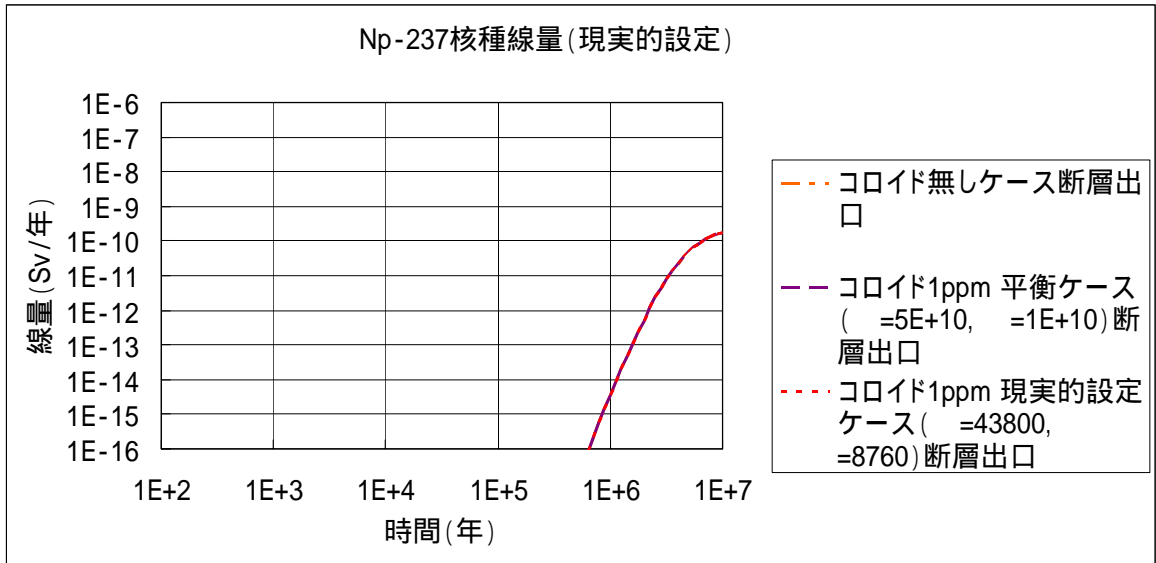


図 7.3-3 ガラス固化体 4 万本についての Np-237 核種線量 (現実的な設定ケース)

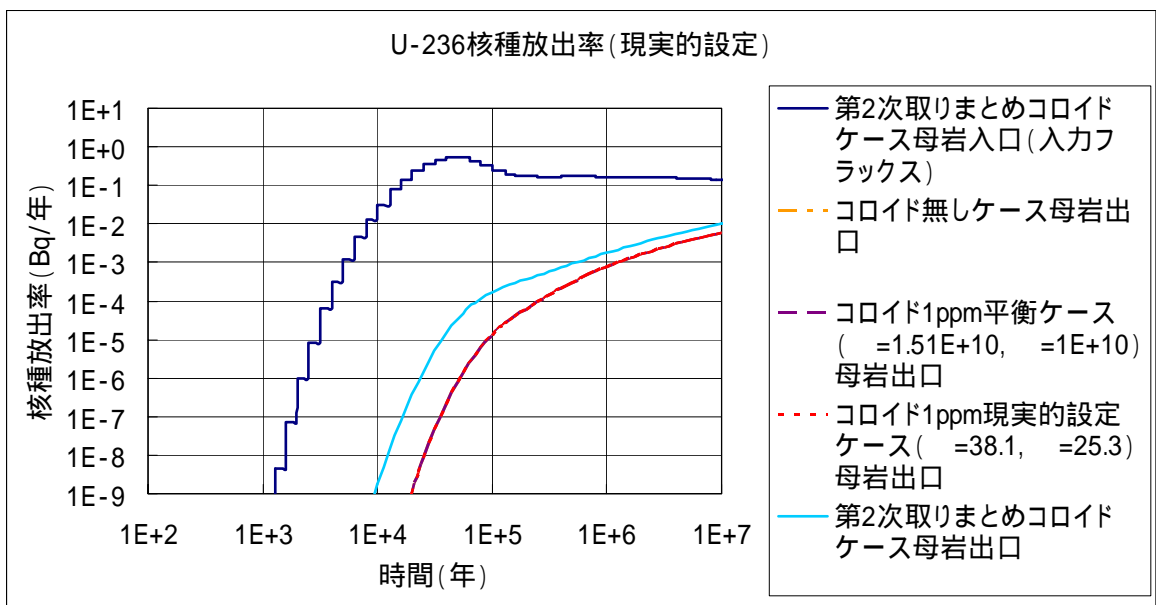


図 7.3-4 母岩からの U-236 核種放出率 (現実的な設定ケース)

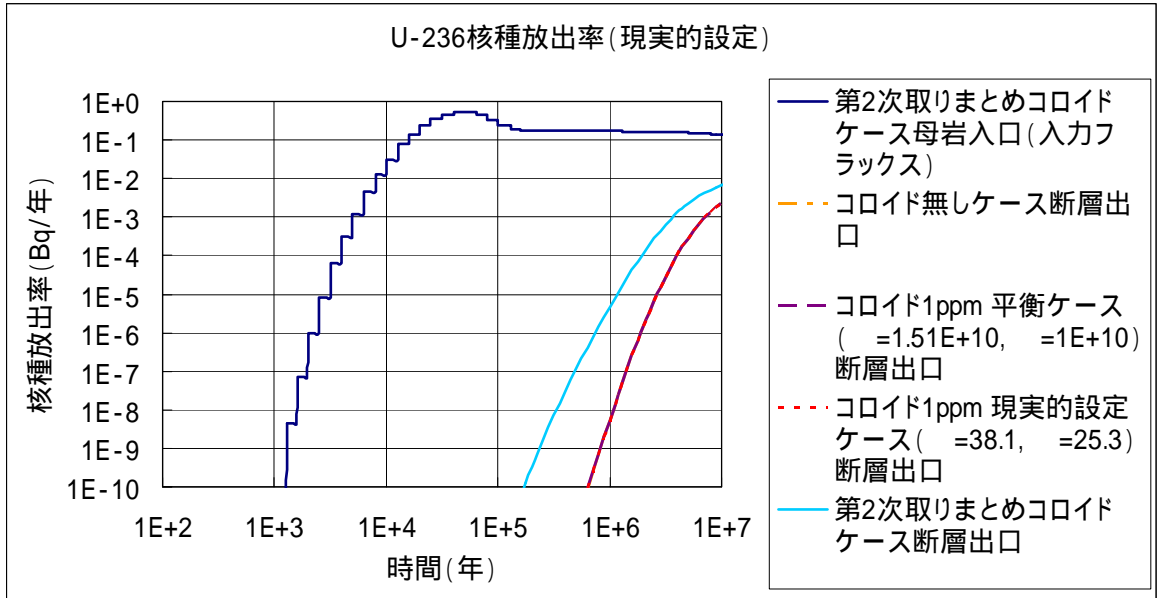


図 7.3-5 断層からの U-236 核種放出率 (現実的な設定ケース)

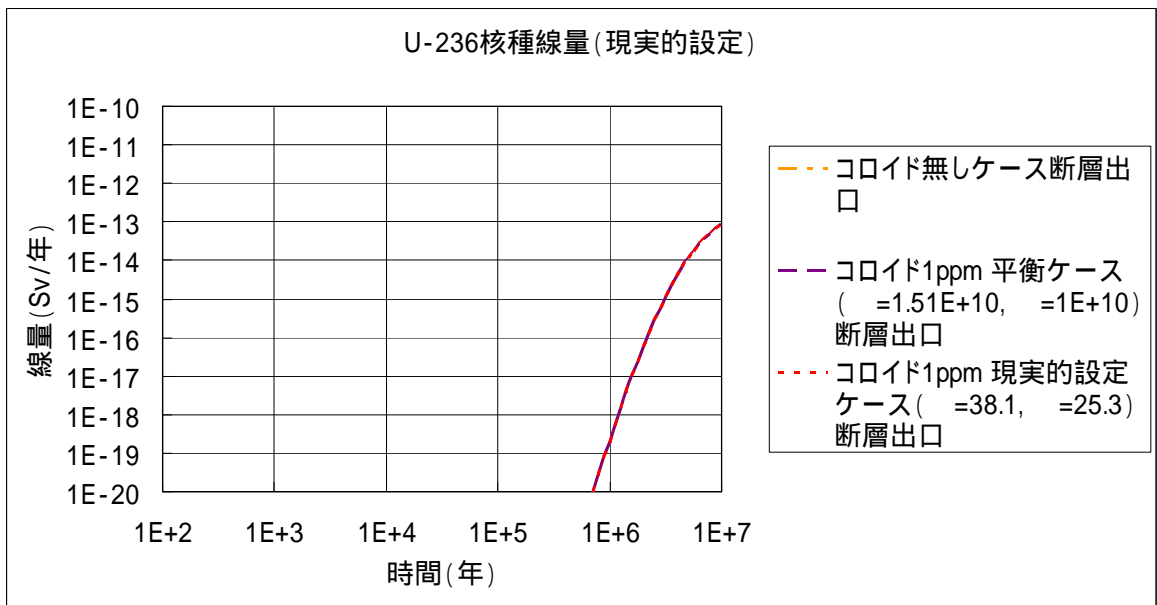


図 7.3-6 ガラス固化体 4 万本についての U-236 核種線量 (現実的な設定ケース)

(3)Cs-135 の考察

核種のコロイドへの分配係数が $150 \text{ m}^3/\text{kg}$ である核種 Cs-135 では、コロイド濃度が 1ppm の場合には、コロイド無しケース、平衡ケース、及び現実的設定ケースの核種放出率及び線量の解析結果がグラフ上で重なっており、コロイド影響は認められなかった。

コロイド濃度が 5ppm の現実的設定ケースの結果は、コロイド濃度が 1ppm の現実的設定ケースに比べて、コロイド影響による線量の増加が認められた。(図 7.3-7～図

7.3-9) 線量値は約 $8 \times 10^{-9} \text{Sv/y}$ であった。コロイド濃度が 10ppm の現実的設定ケースの結果は、コロイド濃度が 5ppm の現実的設定ケースの結果よりもさらに線量が増加して線量値は約 $1 \times 10^{-8} \text{Sv/y}$ であった。線量値とコロイド濃度をプロットして、図 7.3-10 に示した。

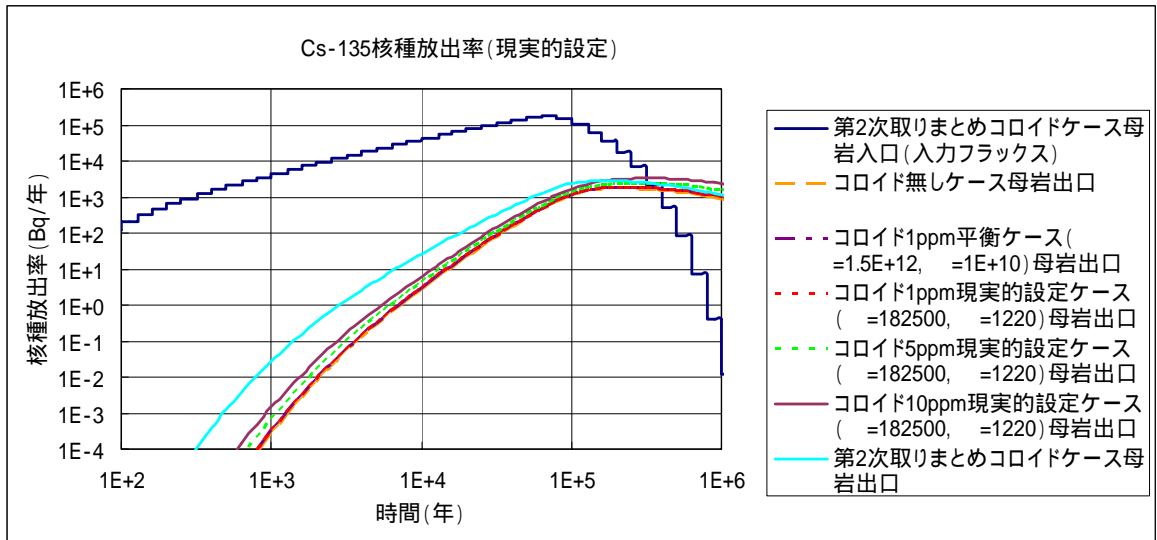


図 7.3-7 母岩からの Cs-135 核種放出率 (現実的な設定ケース)

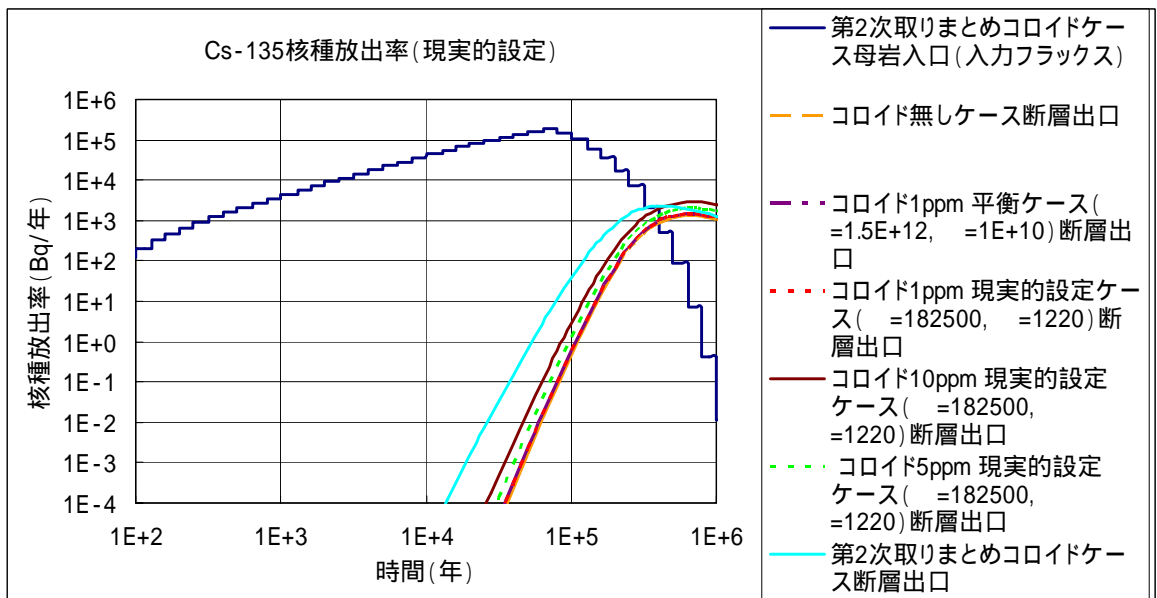


図 7.3-8 断層からの Cs-135 核種放出率 (現実的な設定ケース)

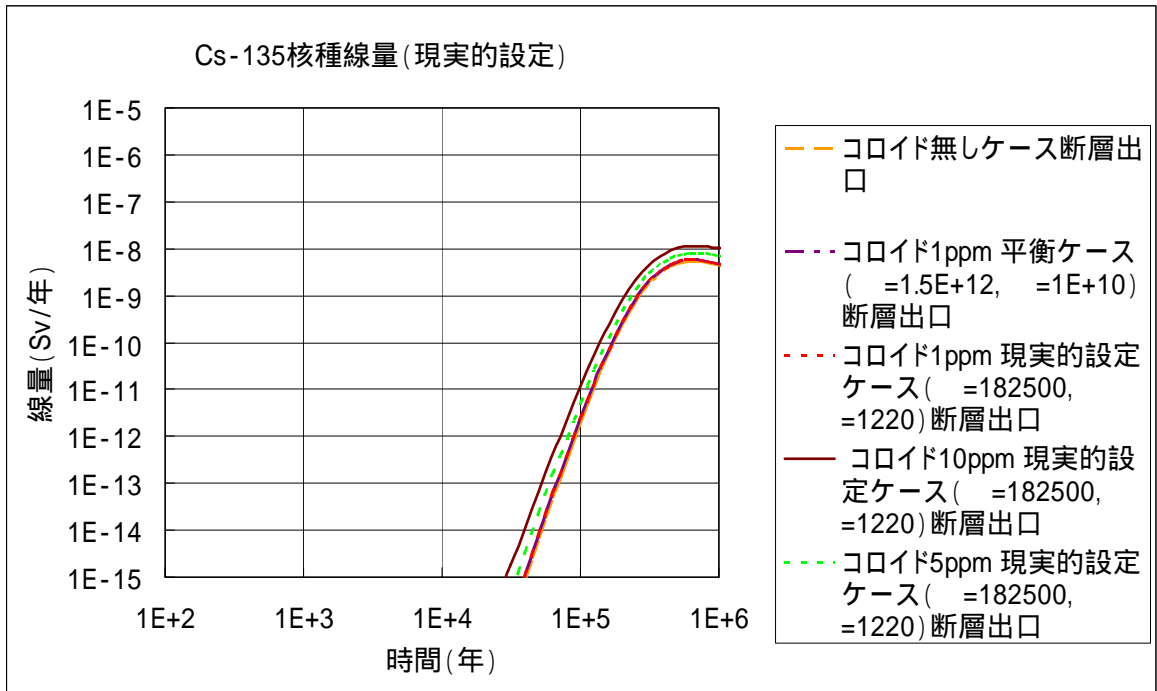


図 7.3-9 ガラス固化体 4 万本についての Cs-135 核種線量 (現実的な設定ケース)

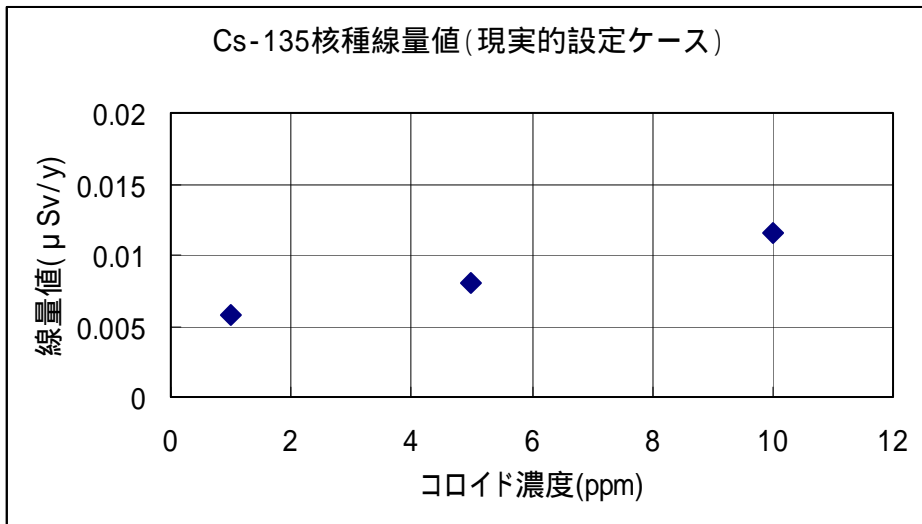


図 7.3-10 Cs-135 核種の線量値 (現実的設定ケース)

(4)Am-243 及び Pu-240 の考察

核種のコロイドへの分配係数が $1.76 \times 10^5 \text{ m}^3/\text{kg}$ である核種 Am-243、及び $3.9 \times 10^5 \text{ m}^3/\text{kg}$ である核種 Pu-240 に関しては、コロイド濃度が 1ppm の場合、平衡ケース、及び現実的設定ケース共にコロイド無しケースよりも移行が促進され、ピーク値が高く、

顕著なコロイド影響が認められた（図 7.3-11 及び図 7.3-14）。

コロイド無しケースの母岩出口におけるピーク時間は、Am-243 核種の場合に 1.1×10^5 年（図 7.3-11）、Pu-240 核種の場合に 8.9×10^4 年（図 7.3-14）であり、平衡ケースでは、Am-243 核種の場合に 7.1×10^4 年（図 7.3-11）、Pu-240 核種の場合に 6.3×10^4 年であった（図 7.3-14）。平衡ケースでは、コロイド無しケースに比べて移行が促進され、かつ半減期が 7380 年（Am-243 核種）あるいは 6540 年（Pu-240 核種）と短いため、母岩出口における放出率の最大値がコロイド無しケースよりも大きくなったものと考えられる。

現実的な速度定数を設定した場合にも、コロイド無しケースに比べて、核種移行の促進が認められた。現実的な速度定数ケースの母岩出口におけるピーク時間は、Am-243 核種では 6.3×10^4 年（図 7.3-11）、Pu-240 核種では 6.3×10^4 年であった（図 7.3-14）。コロイド無しケースに比べて移行が促進され、かつ半減期が短いため、母岩出口における放出率の最大値はコロイド無しケースと比べて大きくなり、顕著なコロイド影響が認められた。亀裂性媒体において、コロイドに対する収着が遅いプロセスである場合には、流動性のコロイドが溶質の移行を著しく促進しうることの評価の重要性に関して、(Ibaraki 他, 1995) の文献で指摘されている。

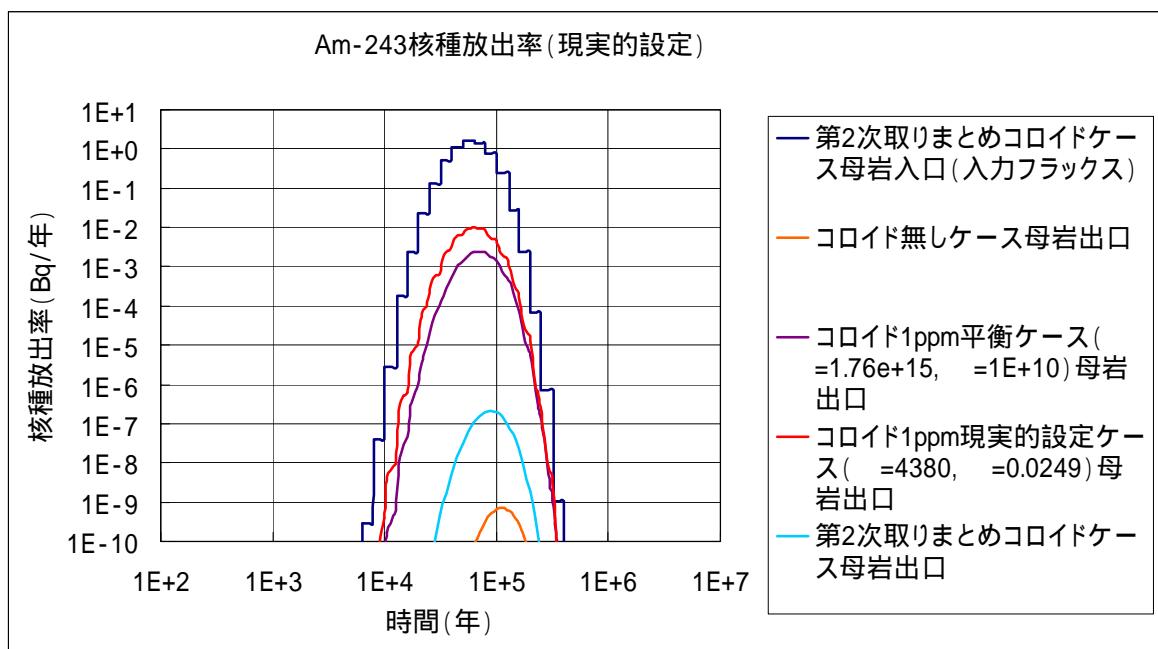


図 7.3-11 母岩からの Am-243 核種放出率（現実的な設定ケース）

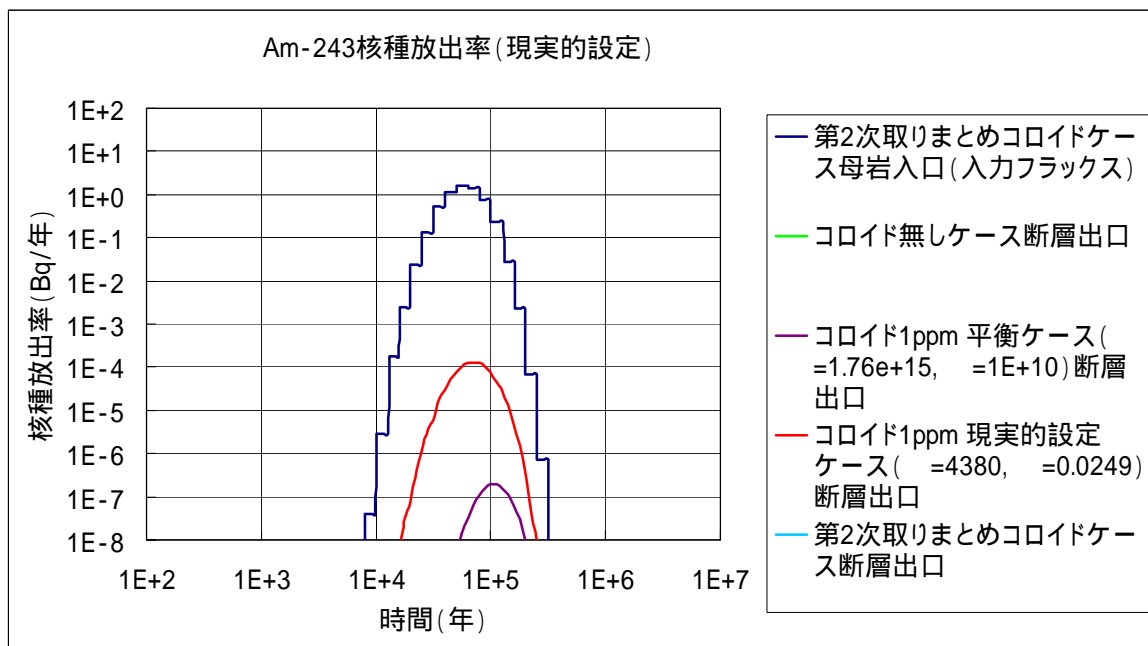


図 7.3-12 断層からの Am-243 核種放出率 (現実的な設定ケース)

(注: コロイド無しケースの断層出口における線量のピーク値は 1×10^{-25} Sv/y 以下であり、平衡ケース、現実的設定ケースのいずれに比べても著しく低い)

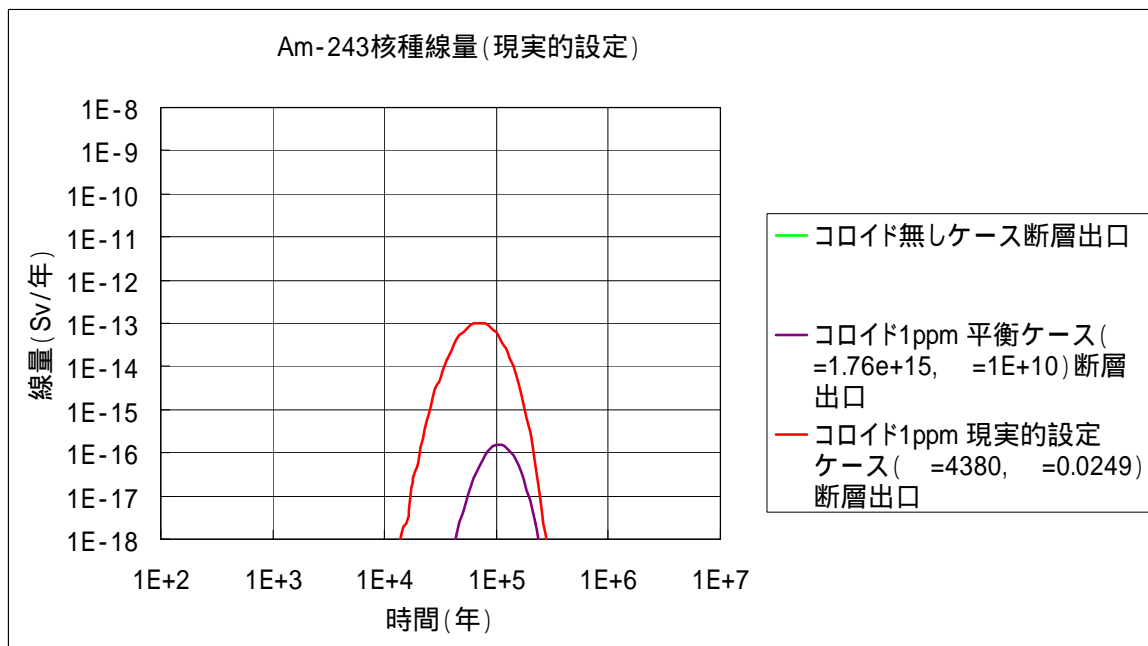


図 7.3-13 ガラス固化体 4 万本についての Am-243 核種線量 (現実的な設定ケース)

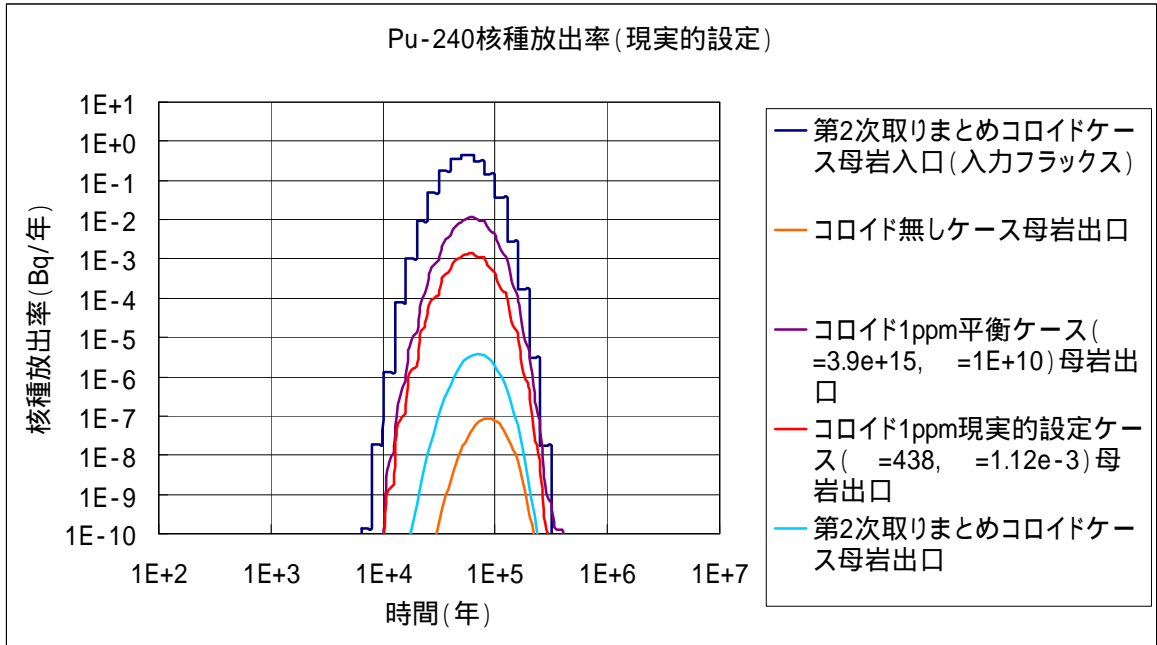


図 7.3-14 母岩からの Pu-240 核種放出率 (現実的な設定ケース)

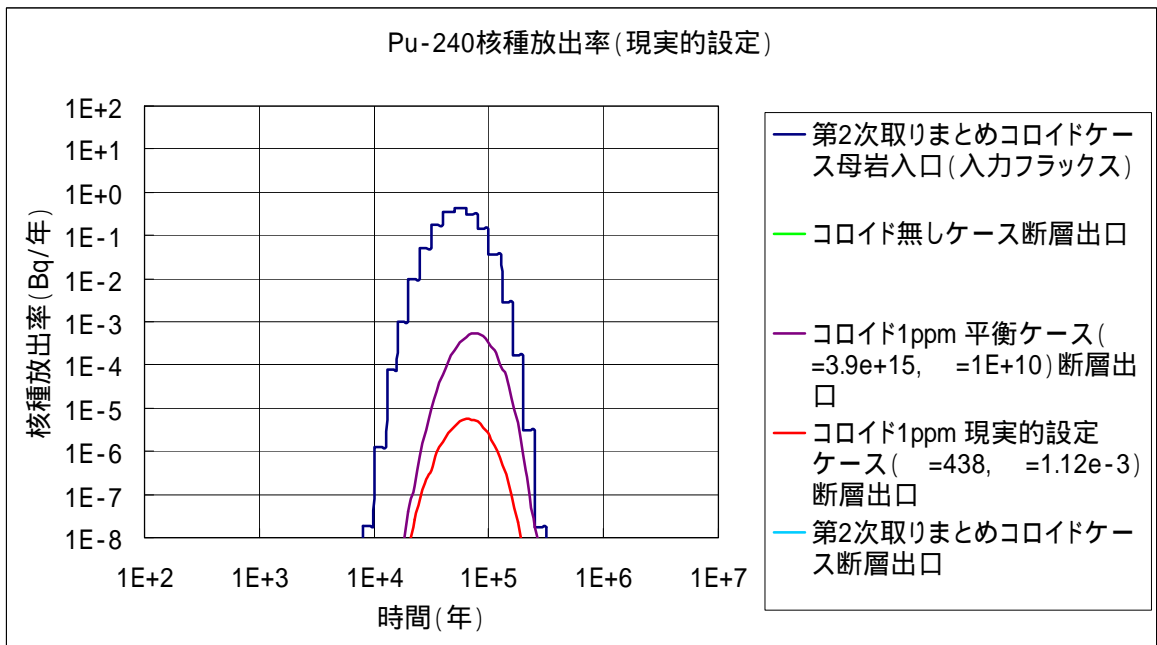


図 7.3-15 断層からの Pu-240 核種放出率 (現実的な設定ケース)

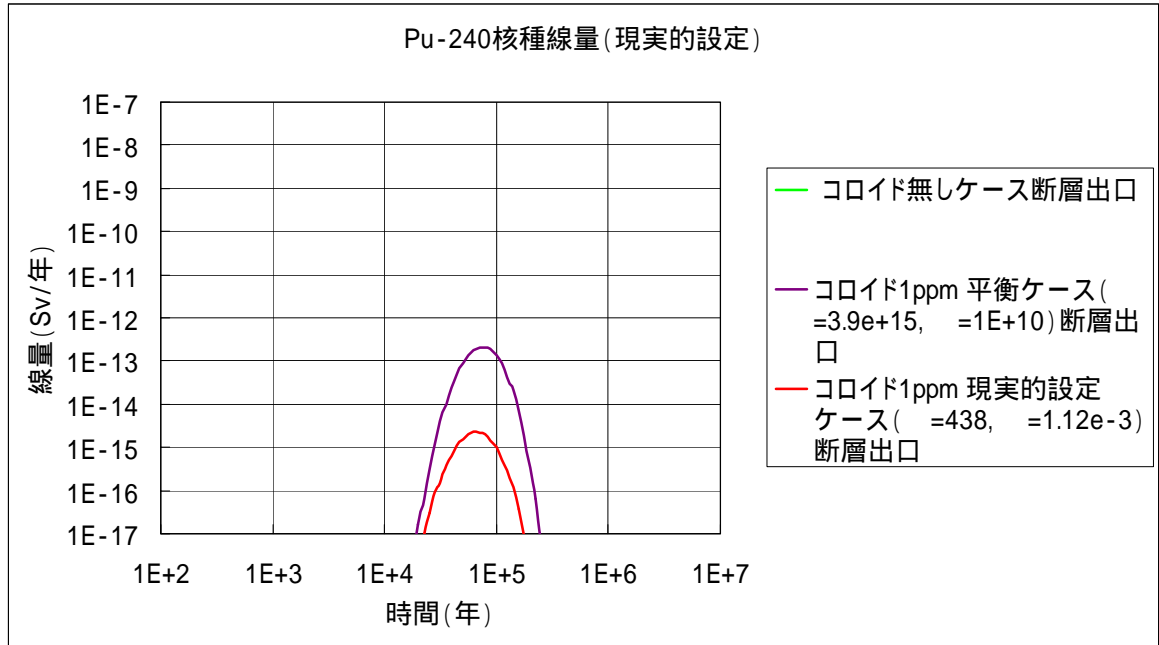


図 7.3-16 ガラス固化体 4 万本についての Pu-240 核種線量 (現実的な設定ケース)

(5)線量値

線量値は、Am-243 核種の現実的設定ケースでは $1 \times 10^{-13} \text{Sv/y}$ (図 7.3-13)、Pu-240 核種の現実的設定ケースでは $2 \times 10^{-15} \text{Sv/y}$ (図 7.3-16) である。

Cs-135 核種の断層からの線量値は、コロイド濃度が 1ppm の場合に $6 \times 10^{-9} \text{Sv/y}$ であり、同じコロイド濃度の Am-243 核種、Pu-240 核種に比べて何桁も高く、今回の評価核種 Np-237、U-236、Am-243、Pu-240、Cs-135 の中で、線量値が最も高いことが示された。Cs-135 核種について、コロイド濃度が 5ppm、10ppm と高くなると、線量値はさらに高くなり、 $8 \times 10^{-9} \text{Sv/y}$ 、 $1 \times 10^{-8} \text{Sv/y}$ と上昇することが示された (図 7.3-10)。

(6)まとめ

母岩及び断層からの核種放出率のピーク値の大小関係をまとめたものを、以下の表に示す。

表 7.3-1 現実的なパラメータ設定ケースのまとめ

| | 母岩からの核種放出率のピーク | 断層からの核種放出率のピーク |
|-----------------------|---------------------------------|---------------------------------|
| Np-237(1ppm) | 現実=平衡=コロイド無し | 現実=平衡=コロイド無し |
| U-236(1ppm) | 現実=平衡=コロイド無し | 現実=平衡=コロイド無し |
| Am-243(1ppm) | 現実>平衡>コロイド無し | 現実>平衡>コロイド無し |
| Pu-240(1ppm) | 平衡>現実>コロイド無し | 平衡>現実>コロイド無し |
| Cs-135(1ppm) | 現実=平衡=コロイド無し | 現実=平衡=コロイド無し |
| Cs-135 (1,5,10ppm) | 現実(10ppm)>現実(5ppm)>現実 (1ppm) | 現実(10ppm)>現実(5ppm)>現 実(1ppm) |

7.3.2 パラメータ変更ケースに関する評価結果

(1)解析内容

速度定数 β の値を現実的な値よりも小さく設定し、感度解析的に、速度定数 β の値を変化させて解析を行った。また、 α β 比を変えずに、 α 、 β の値を共に小さくした場合の評価も行った。

人工バリアからの核種フラックスとしては、第2次取りまとめコロイドケースの結果を入力として用い、母岩、断層中の核種移行を COLFRAC-mrl を用いて解析した。核種 Np-237、U-236、Am-243、Pu-240、及び Cs-135 について解析した。各核種のガラス固化体 1 本あたりの母岩からの核種放出率、及び断層からの核種放出率を解析した。さらに、断層からの核種放出率を生物圏モデルとして河川水シナリオを想定した場合の線量換算係数を用いてガラス固化体 4 万本についての線量に換算した。

(2)Np-237 核種についての評価結果

Np-237 核種について、パラメータ変更ケースの解析結果を以下に示す。

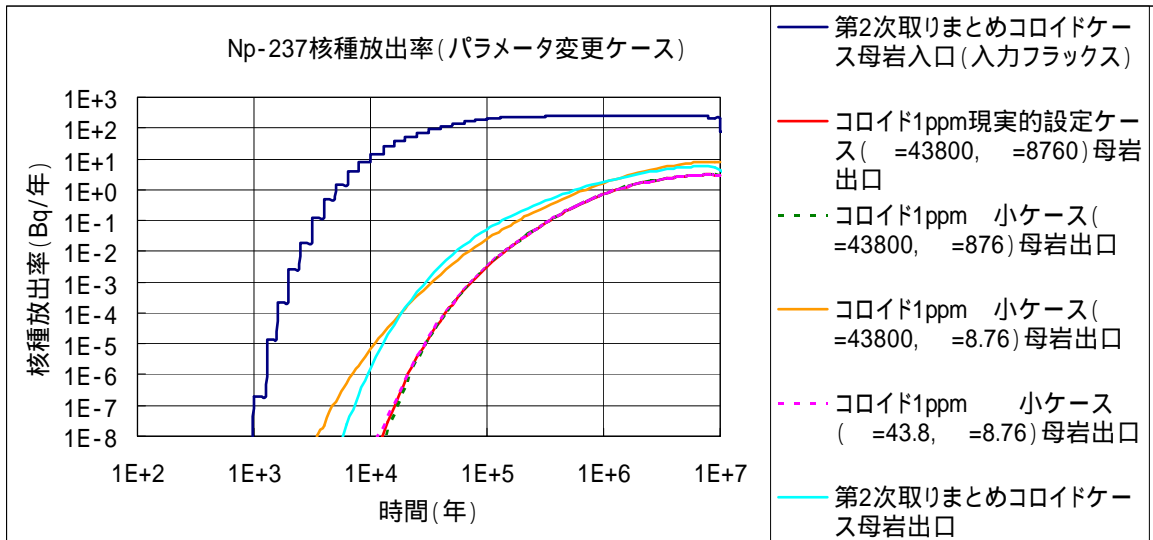


図 7.3-17 母岩からの Np-237 核種放出率 (パラメータ変更ケース)

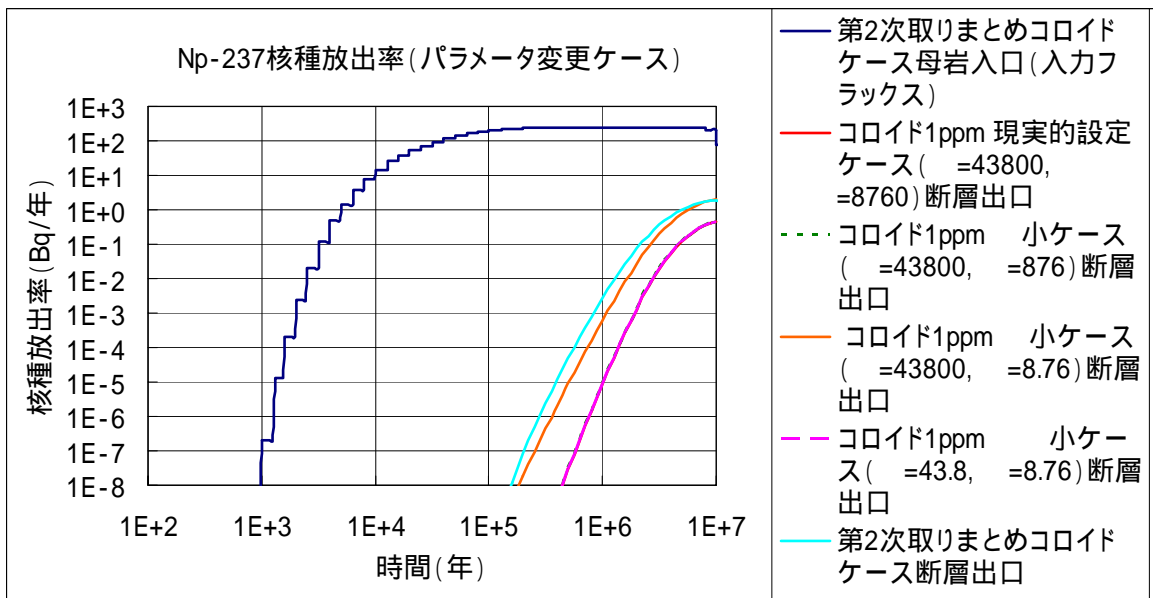


図 7.3-18 断層からの Np-237 核種放出率 (パラメータ変更ケース)

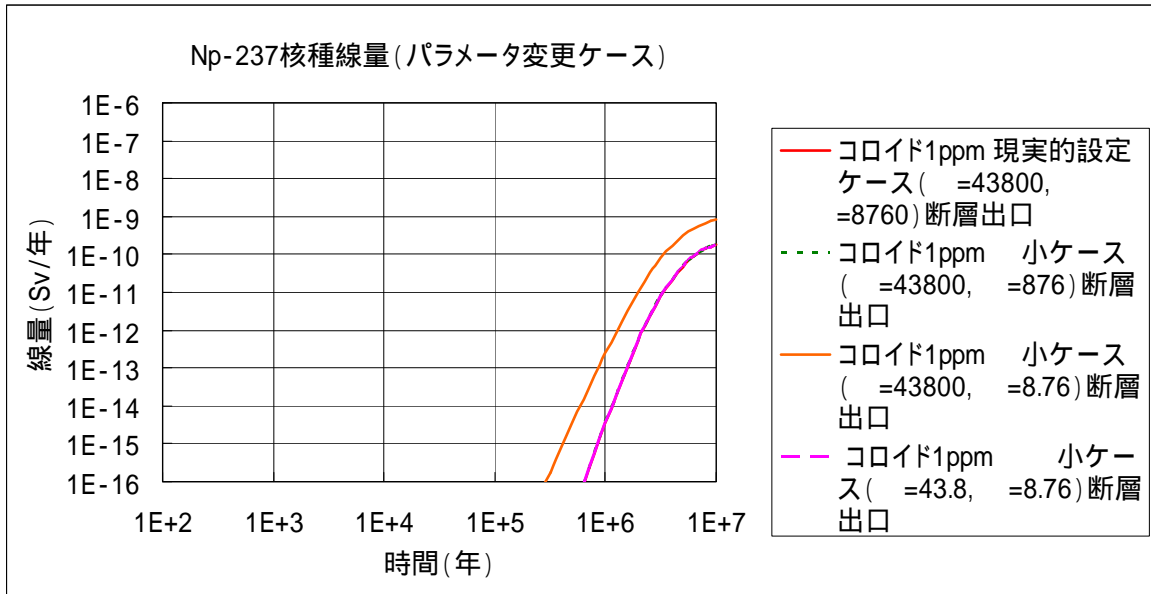


図 7.3-19 ガラス固化体 4 万本についての Np-237 核種線量 (パラメータ変更ケース)

Np-237 の場合、コロイドへの収着量に関する逆方向速度定数 β を現実的な値よりも十分の一程度に小さく設定した場合には変化は認められず、千分の一程度に小さく設定した場合に、核種移行の促進が認められた (β 小ケース)。

速度定数 α と β の値を、速度定数比 (α/β) を変えないように千分の一に設定した場合 (α/β 小ケース) には、現実的設定ケースの解析結果との違いは認められなかった。

(3)U-236 核種についての評価結果

U-236 核種について、パラメータ変更ケースの解析結果を以下に示す。

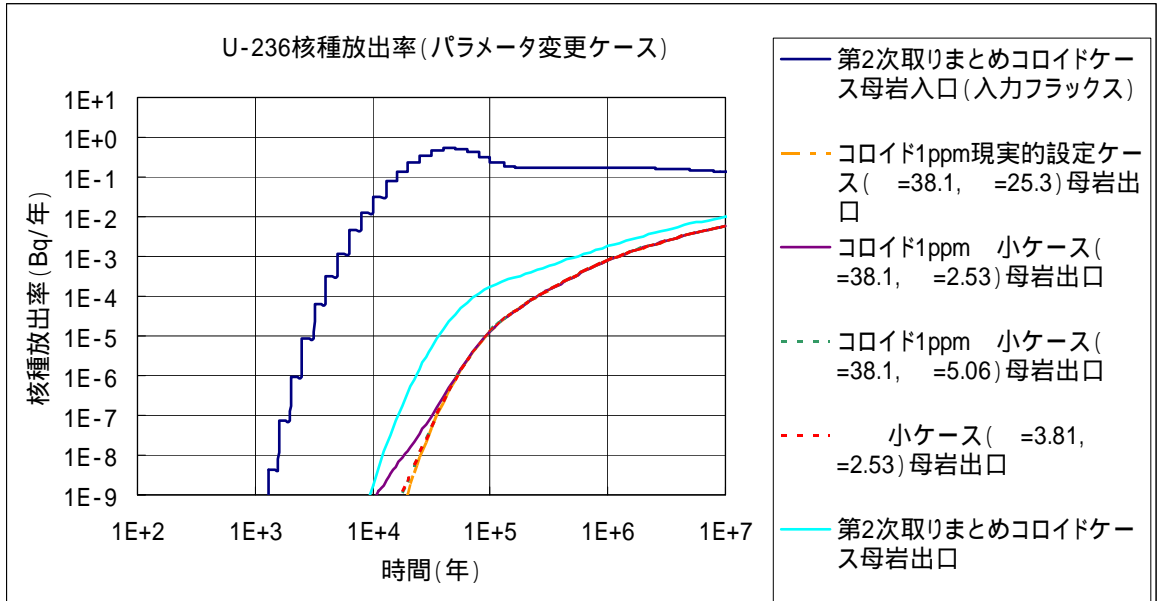


図 7.3-20 母岩からの U-236 核種放出率 (パラメータ変更ケース)

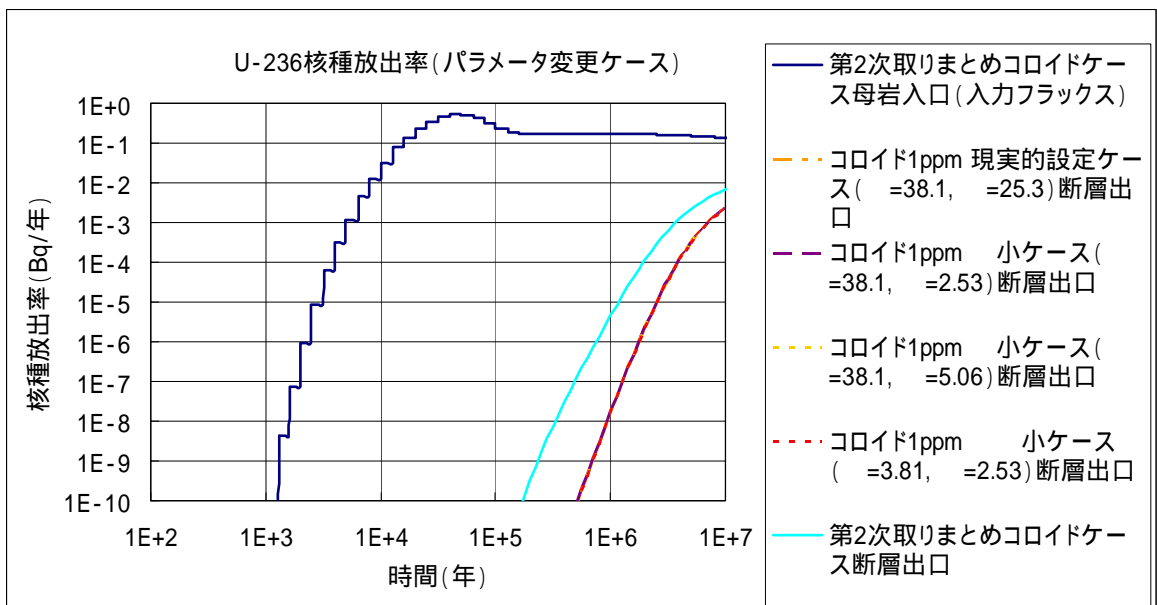


図 7.3-21 断層からの U-236 核種放出率 (パラメータ変更ケース)

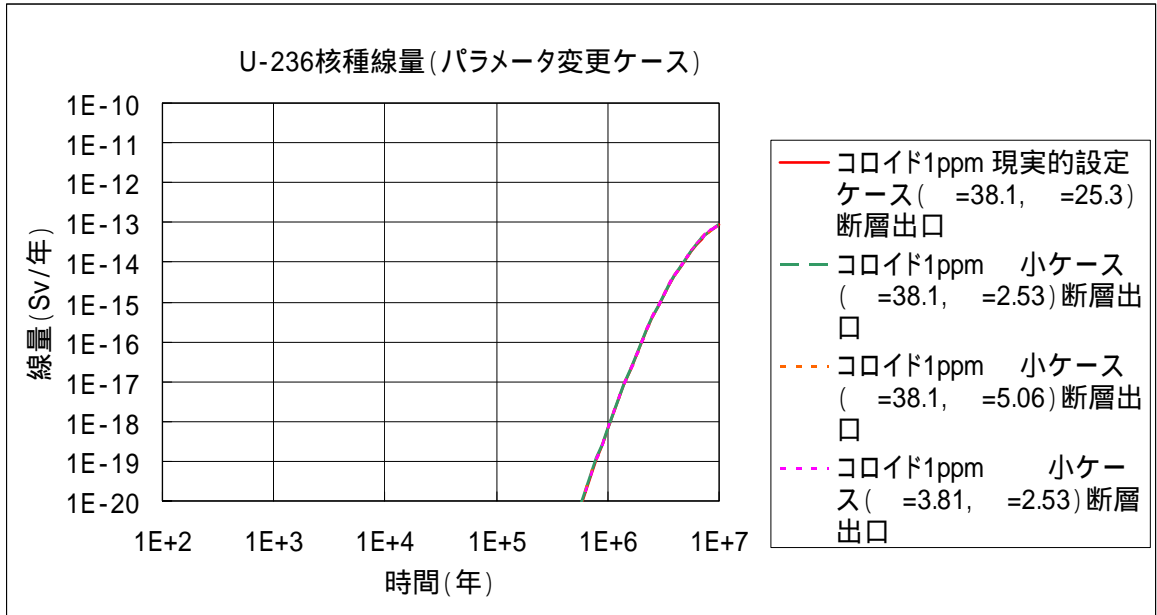


図 7.3-22 ガラス固化体 4 万本についての U-236 核種線量 (パラメータ変更ケース)

U-236 に関しては、逆方向速度定数 β を現実的な値よりも五分の一程度に小さく設定しても変化は認められず、十分の一程度に小さく設定した場合には、母岩からの核種放出率に関して、短期的に多少移行が促進される傾向が認められた (図 7.3-20)。しかし、長期的なふるまいは現実的な設定ケースと同じであった (β 小ケース)。

速度定数 α と β の値を、速度定数比 (α/β) を変えないように共に十分の一に設定した場合 ($\alpha \beta$ 小ケース) には、母岩及び断層出口の放出率、及び線量の評価結果は、現実的な速度定数を設定した場合の結果と大きな違いは認められなかった。(図 7.3-20～図 7.3-22)

(4)Am-243 核種に関する評価結果

Am-243 核種について、パラメータ変更ケースの解析結果を以下に示す。

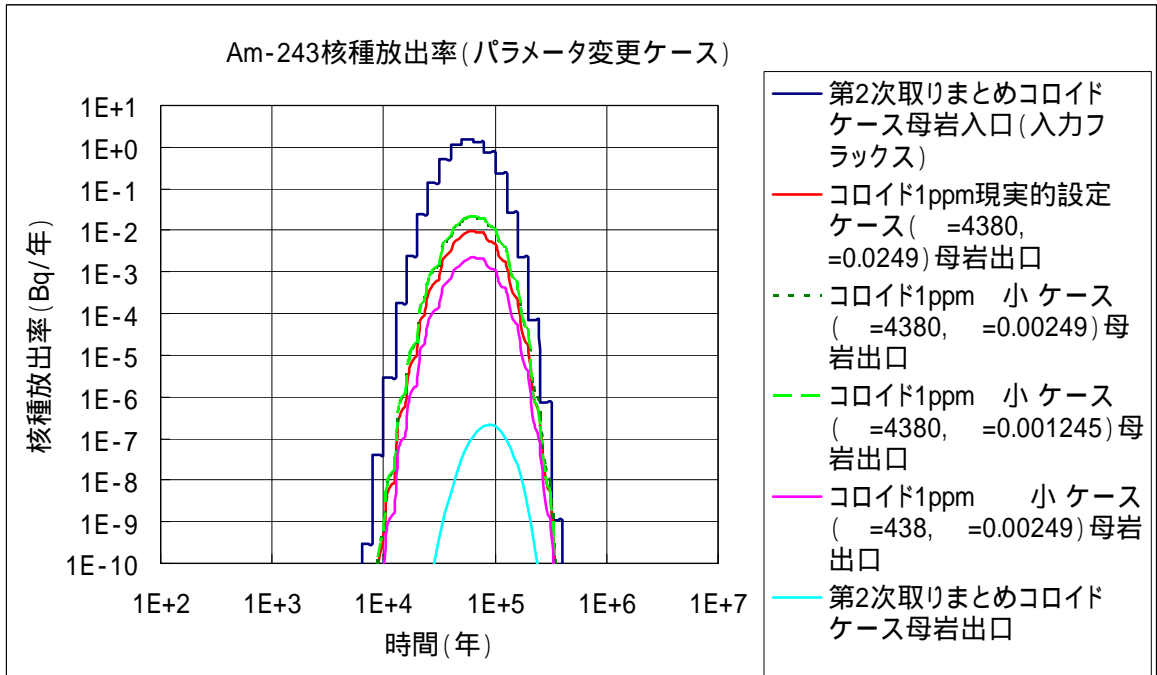


図 7.3-23 母岩からの Am-243 核種放出率 (パラメータ変更ケース)

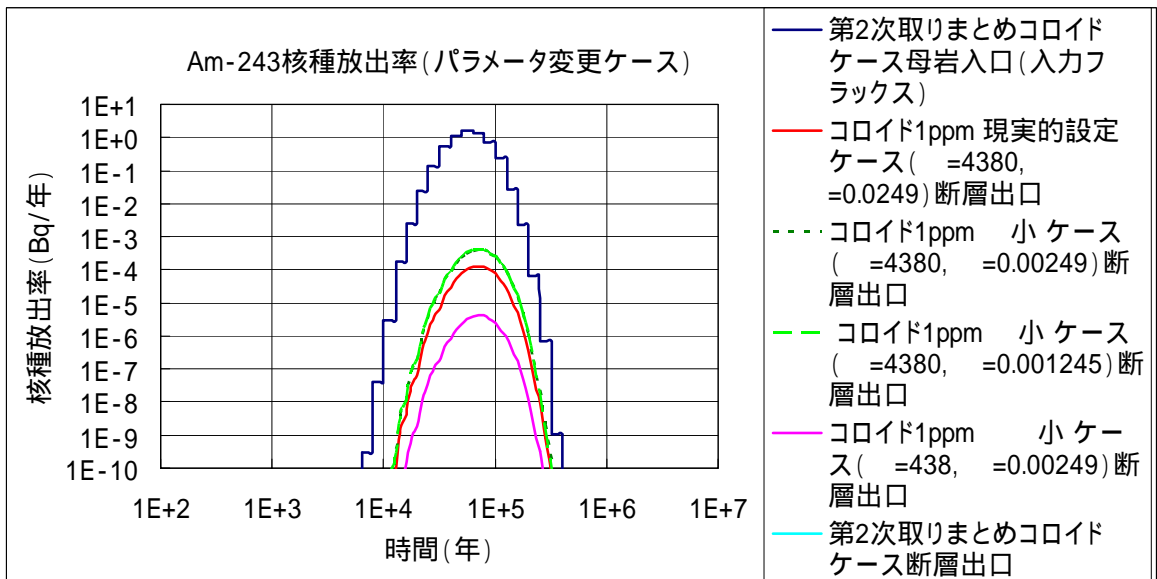


図 7.3-24 断層からの Am-243 核種放出率 (パラメータ変更ケース)

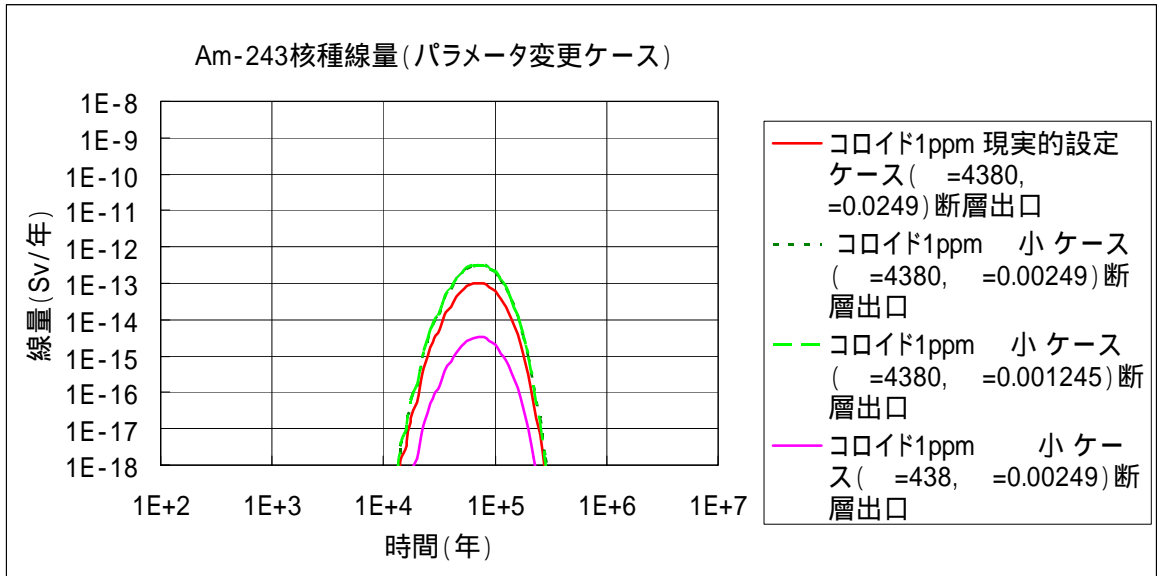


図 7.3-25 ガラス固化体 4 万本についての Am-243 核種線量 (パラメータ変更ケース)

Am-243 核種に関しては、速度定数 β の値を一桁小さくすると、分配係数に相当する速度定数の比 (α/β) が大きくなるため、現実的設定ケースよりもピーク値が高くなり、コロイド影響がより顕著になる傾向が示された。 β の値を二十分の一に小さく設定した場合 ($\beta=0.001245$) の計算結果は、 β の値を十分の一に小さく設定した ($\beta=0.00249$) 結果と重なった (β 小ケース) (図 7.3-23、図 7.3-24、及び図 7.3-25)。

速度定数 α 、及び β の値を共に一桁小さくした場合には、現実的設定ケースよりもピーク値は低くなり、コロイド影響は小さくなった ($\alpha\beta$ 小ケース)。これは、 $\alpha\beta$ 小ケースでは速度定数 α 、及び β の値が小さく設定され、コロイドとの相互作用が小さくなるためと考えられる。

(5)Pu-240 核種に関する評価結果

Pu-240 核種について、パラメータ変更ケースの解析結果を以下に示す。

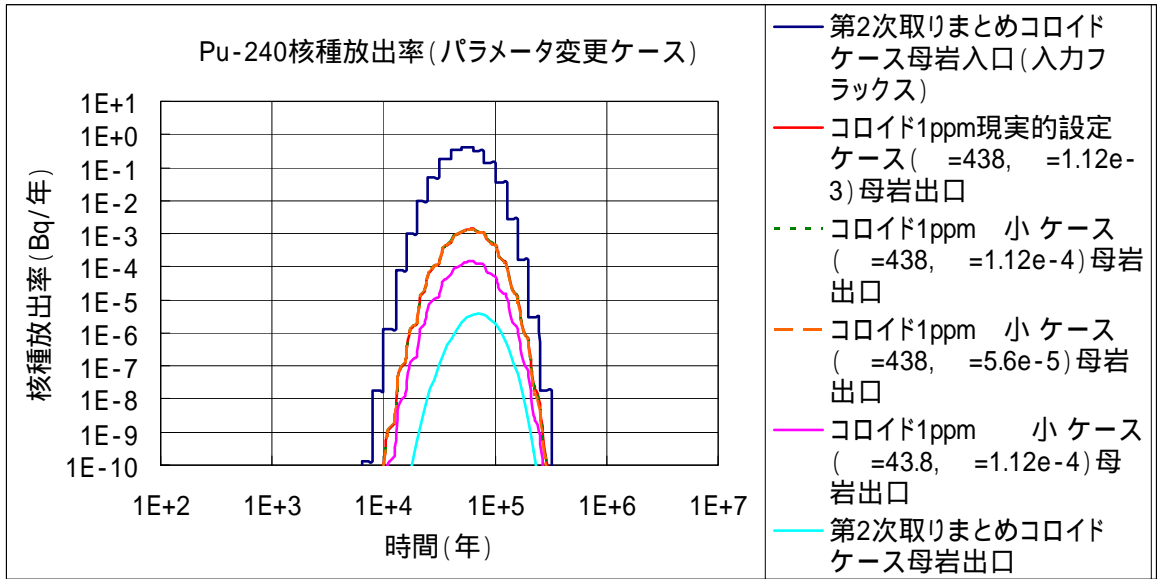


図 7.3-26 母岩からの Pu-240 核種放出率 (パラメータ変更ケース)

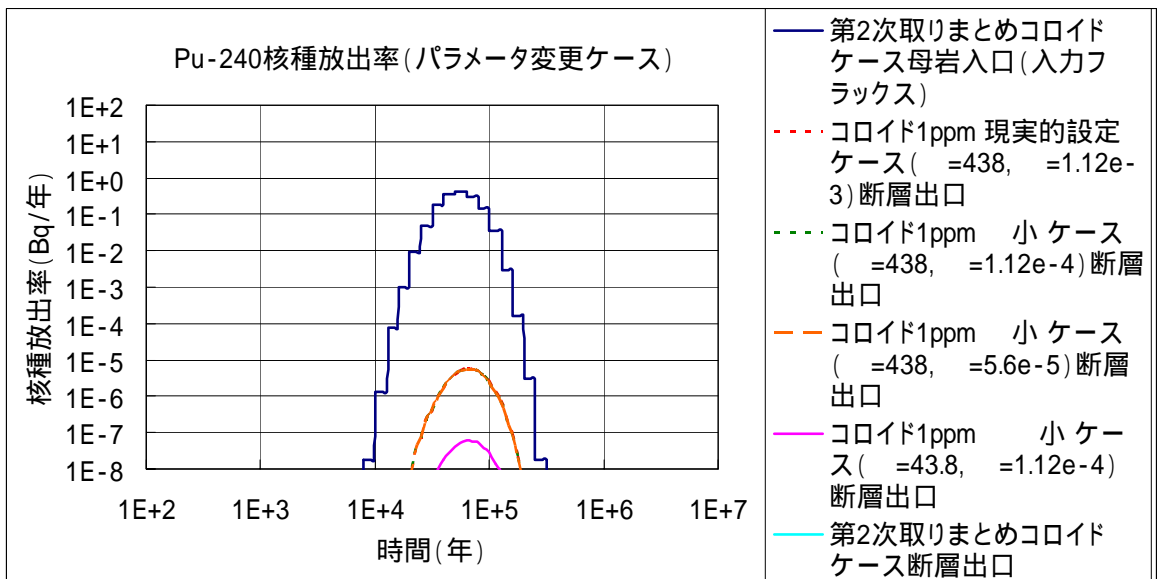


図 7.3-27 断層からの Pu-240 核種放出率 (パラメータ変更ケース)

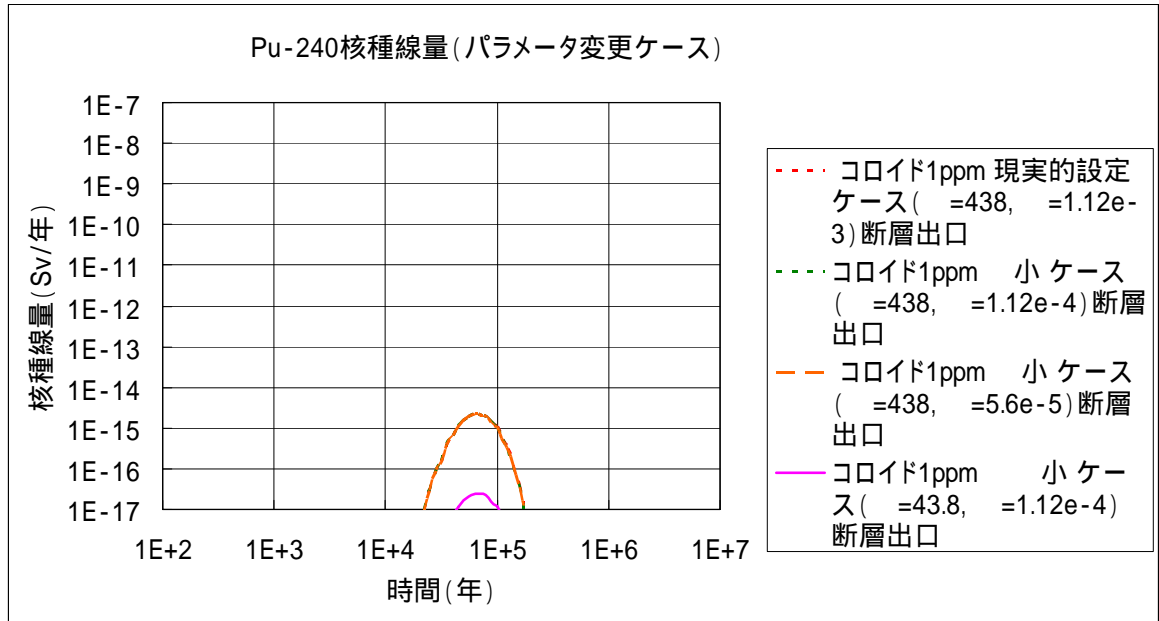


図 7.3-28 ガラス固化体 4 万本についての Pu-240 核種線量 (パラメータ変更ケース)

核種のコロイドに対する分配係数が大きく、コロイド影響が顕著であり、速度定数 β の絶対値が小さい核種 Pu-240 に関して、 β の値を一桁小さく設定、又は二十分の一に設定した場合には、現実的設定ケースと結果が変わらないことが示された (β 小ケース)。これは、速度定数 β が小さいため、速度定数 α によりコロイドへの核種の収着反応が支配されているためと考えられる。

また、速度定数 α 、及び β の値を共に一桁小さくした場合には、現実的設定ケースよりもピーク値は低くなり、コロイド影響は小さくなった ($\alpha \beta$ 小ケース)。これは、 $\alpha \beta$ 小ケースでは速度定数 α 、及び β の値が小さく設定され、コロイドとの相互作用が小さくなるためと考えられる。(図 7.3-26、図 7.3-27、及び図 7.3-28)

(6)Cs-135 核種に関する評価結果

Cs-135 核種について、パラメータ変更ケースの解析結果を以下に示す。

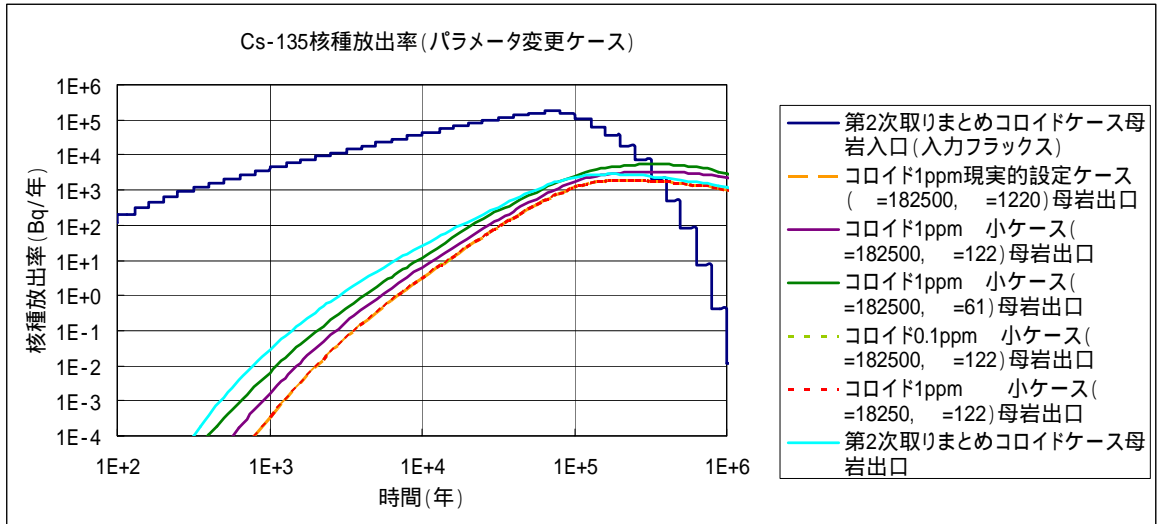


図 7.3-29 母岩からの Cs-135 核種放出率 (パラメータ変更ケース)

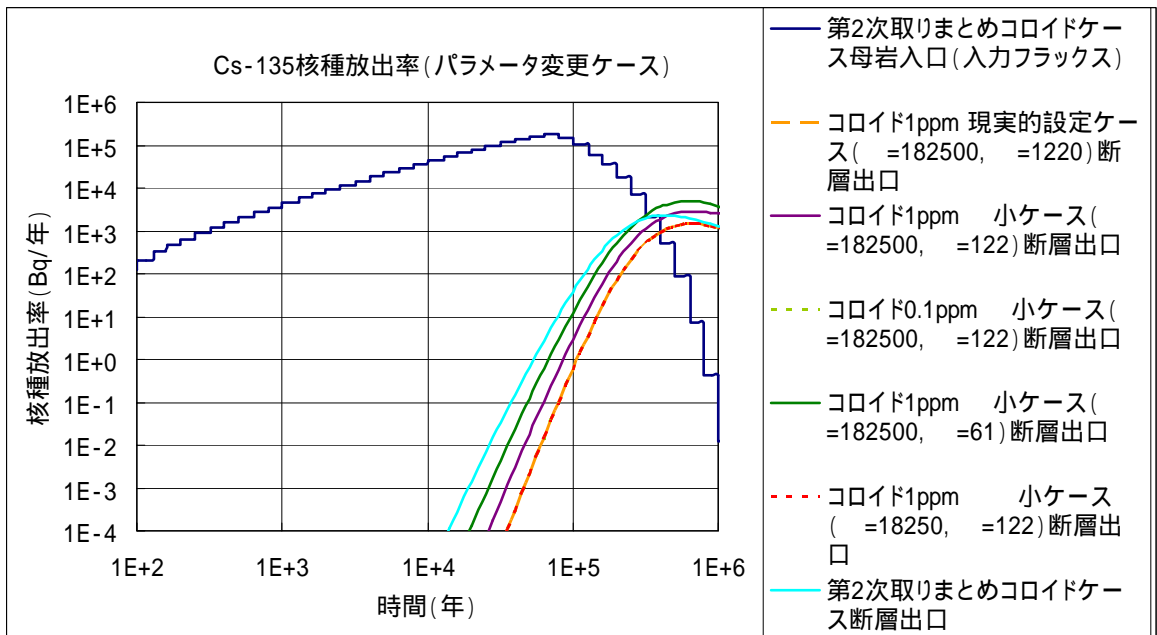


図 7.3-30 断層からの Cs-135 核種放出率 (パラメータ変更ケース)

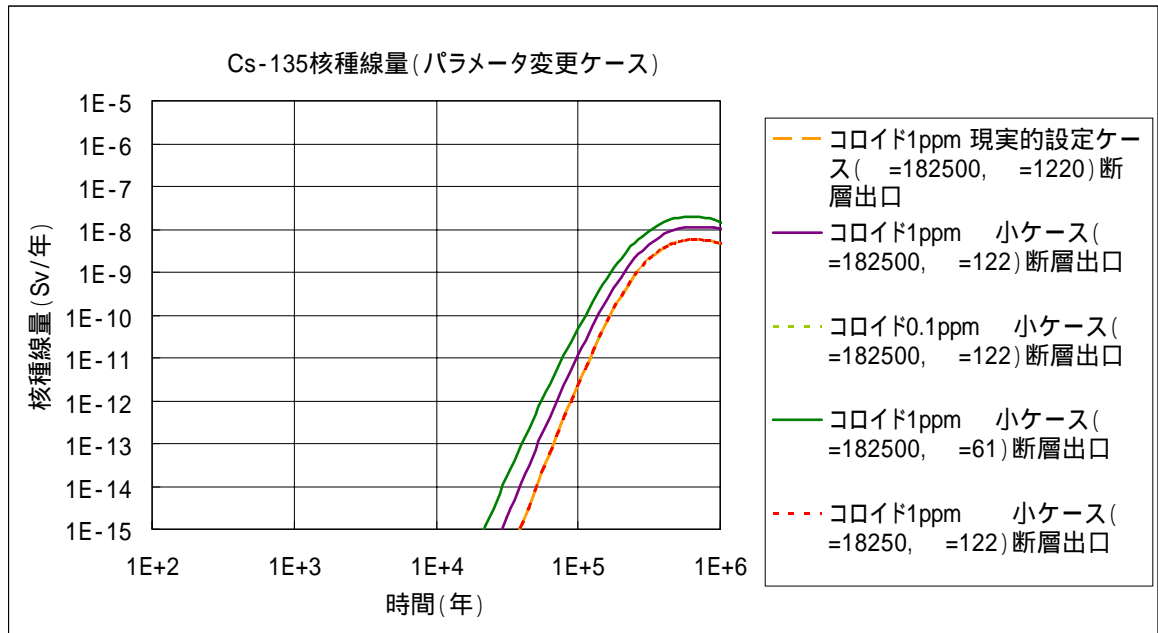


図 7.3-31 ガラス固化体 4 万本についての Cs-135 核種線量 (パラメータ変更ケース)

コロイド濃度 1ppm の場合に、 β を十分の一、又は二十分の一に設定すると、核種移行が促進する傾向が認められた (図 7.3-29～図 7.3-31) (β 小ケース)。

コロイド濃度 1ppm の β 小ケースで認められた核種移行の促進の原因としては、逆方向速度定数 β を一桁小さく設定したことにより、速度定数 α 、及び β の比が変わり、核種のコロイドに対する分配係数が現実的設定ケースよりも一桁大きい 1500kg/m^3 に設定された事が考えられる。 β 値を二十分の一に設定した場合には、核種のコロイドに対数分配係数がさらに大きく 3000kg/m^3 に設定されるため、コロイド影響が増加して核種移行の促進及び線量値の増大が認められた。

β を十分の一に設定 (β 小ケース) した場合でも、コロイド濃度を 0.1ppm に設定すると、放出率及び線量は現実的設定ケースと完全に重なり、核種移行の促進は認められなかった (図 7.3-29～図 7.3-31)。

Cs-135 核種に関して、速度定数 α 、及び β の値を、速度定数比 (α/β) を変えないように、共に十分の一に設定した場合、現実的設定ケースと結果に大きな違いは認められなかった (α/β 小ケース)。

Cs-135 核種に関する各流速についてのコロイド濃度依存性に関しては、7.3.3 で検討する。

以上より、パラメータ変更ケース（ β 小ケース、 $\alpha\beta$ 小ケース）の母岩及び断層からの核種放出率ピーク値の大小関係についてまとめたものを以下の表に示す。核種移行解析では、人工バリアからの核種フラックスは、全核種について第2次取りまとめコロイドケースの結果を用いた。

表 7.3-2 パラメータ変更ケースのまとめ（コロイド濃度 1ppm）

| | 母岩からの核種放出率のピーク | 断層からの核種放出率のピーク |
|--------|-------------------------------------|-------------------------------------|
| Np-237 | β 小(1/10)=現実= $\alpha\beta$ 小 | β 小(1/10)=現実= $\alpha\beta$ 小 |
| U-236 | β 小(1/10)=現実= $\alpha\beta$ 小 | β 小(1/10)=現実= $\alpha\beta$ 小 |
| Am-243 | β 小(1/10)>現実> $\alpha\beta$ 小 | β 小(1/10)>現実> $\alpha\beta$ 小 |
| Pu-240 | β 小(1/10)=現実> $\alpha\beta$ 小 | β 小(1/10)=現実> $\alpha\beta$ 小 |
| Cs-135 | β 小(1/10)>現実= $\alpha\beta$ 小 | β 小(1/10)>現実= $\alpha\beta$ 小 |

7.3.3 Cs-135 核種の濃度依存性に関する解析

母岩からの核種フラックスを、3種類の地下水流速について図 7.3-32～図 7.3-34 に示す。これらの図から、コロイド濃度が 10ppm の場合に最も核種移行が促進されており、コロイド濃度が 5ppm、1ppm と低下するに伴い核種移行の促進効果が弱くなる傾向が示されている。さらに、流速の低下と共に核種放出率のピーク時間が遅くなり、コロイド濃度の違いによる核種放出率のピーク高さの差がより大きくなる傾向が認められた。

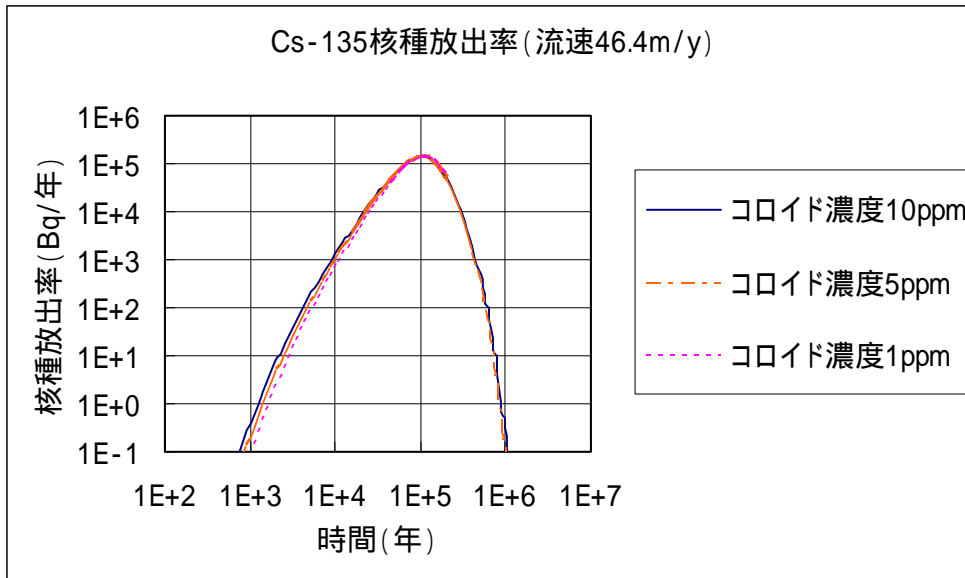


図 7.3-32 母岩からの Cs-135 核種放出率 (流速 46.4m/y)

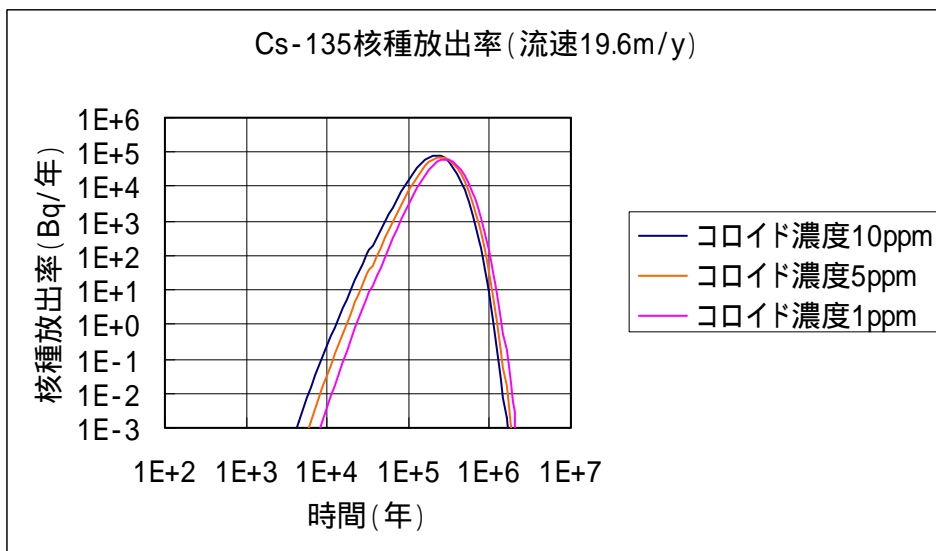


図 7.3-33 母岩からの Cs-135 核種放出率 (流速 19.6m/y)

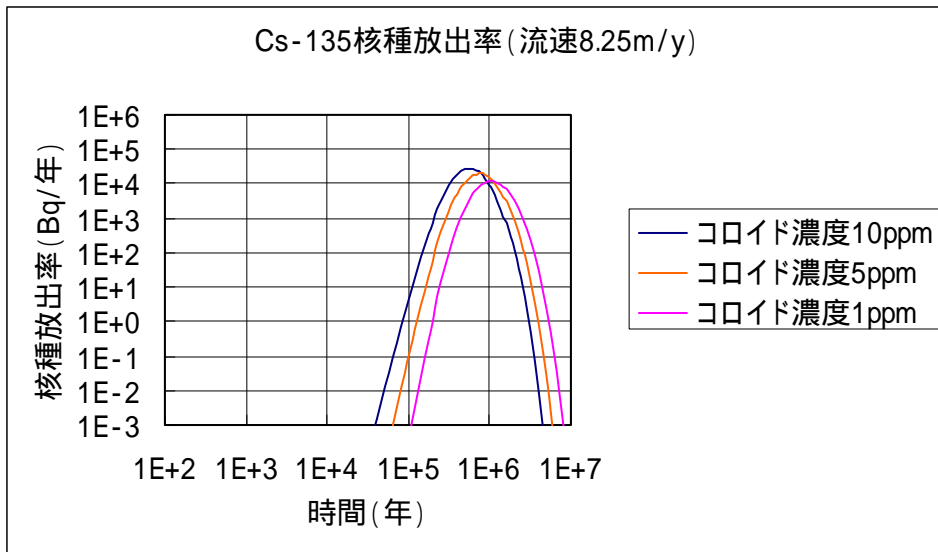


図 7.3-34 母岩からの Cs-135 核種放出率 (流速 8.25m/y)

7.3.4 Am-243 核種に関する α/β 変更ケースの解析

核種のコロイドに対する分配係数が大きく、コロイド影響が大きく認められた核種 Am-243 に関して、速度定数を平衡状態と考えられるほど大きな値から、速度定数比を変えずに ($\alpha/\beta=1.76 \times 10^5 \text{ m}^3/\text{kg}$ に固定) 段階的に値を減少させて解析を行った。また、速度定数比を現実的な値よりも一桁小さく設定した場合 ($\alpha/\beta=1.76 \times 10^4 \text{ m}^3/\text{kg}$ に固定) についても、同様の感度解析を行った。

(1)人工バリアからの核種フラックスの設定

前項までの解析では、人工バリアからの核種フラックスとして、第2次取りまとめのコロイドケースのデータ (コロイド濃度 χ が 1ppm、核種のコロイドに対する分配係数 K_d が $1000 \text{ m}^3/\text{kg}$ 程度のコロイド影響を想定) を利用して解析を行った。しかし、コロイド濃度、核種のコロイドに対する分配係数 K_d が第2次取りまとめの値と異なる場合には、コロイド濃度 χ 、及び核種のコロイドに対する分配係数 K_d を評価して線量を解析する必要がある。コロイド濃度を χ 、核種のコロイドに対する分配係数を K_d 、掘削影響領域通過流量を Q とすると、みかけの掘削影響領域通過流量 Q' は、次式に示すように Q に比べて $(1 + \chi K_d)$ 倍に変化する。(核燃料サイクル開発機構,1999)

$$Q' = (1 + \chi Kd)Q \quad \text{式(7.3.4-1)}$$

ここで、

Q' : みかけの掘削影響領域通過流量[m³/y]

χ : コロイド濃度[kg/m³]

Kd : 核種のコロイドへの分配係数[m³/kg]

Q : 掘削影響領域通過流量[m³/s]

である。

Am-243 核種では、コロイド濃度が 1ppm の場合にはみかけの掘削影響領域通過流量が、掘削影響領域通過流量の 177 倍大きくなる。このような条件で核種を解析すると COLFRAC-mrl の数値計算結果が不安定になる傾向が認められたため、コロイド濃度を 0.1ppm と小さく設定して解析を行った。前項までの解析では、第 2 次取りまとめ中のコロイドケースのデータを利用しているため、みかけの掘削影響領域通過流量は、掘削影響領域通過流量の 2 倍程度であった。従って、コロイド濃度が 1ppm の場合でも COLFRAC-mrl の解析が不安定になることなく実施できたと考えられる。

(2)解析内容

Am-243 核種についてコロイド濃度が 0.1ppm の場合に、現実的な Kd 値 ($1.76 \times 10^5 \text{m}^3/\text{kg}$) を設定した場合の人工バリアからの核種放出率、及び現実的 Kd 値よりも Kd 値が一桁小さい場合 ($Kd=1.76 \times 10^4 \text{m}^3/\text{kg}$) の人工バリアからの核種放出率を、一次元核種移行解析コード FRONT (動力炉・核燃料開発事業団、1996) を用いて解析した (図 7.3-35)。

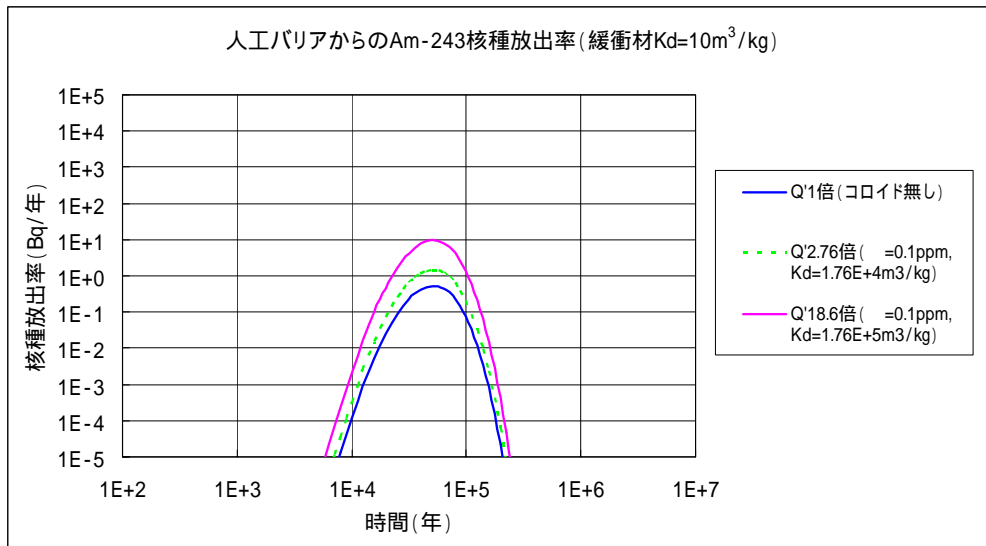


図 7.3-35 人工バリアからの Am-243 核種フラックス (FRONT による解析結果)

人工バリアからの Am-243 核種のフラックスとして図 7.3-35 の 18.6Q (みかけの掘削影響領域通過流量が、掘削影響領域通過流量の 18.6 倍) のデータを用いて、コロイド濃度 0.1ppm、及び $\alpha/\beta=1.76 \times 10^5 \text{m}^3/\text{kg}$ の場合の、 α/β 変更ケースの解析を行った。速度定数比 (α/β) を $1.76 \times 10^5 \text{m}^3/\text{kg}$ に固定して、 α 及び β の値を平衡状態と考えられるほど大きな値から段階的に減少させて解析を行った。

次に、人工バリアからの Am-243 核種のフラックスとして図 7.3-35 の 2.76Q の結果を用いてコロイド濃度 0.1ppm、及び $\alpha/\beta=1.76 \times 10^4 \text{m}^3/\text{kg}$ の α/β 変更ケースの解析を行った。速度定数比 (α/β) を $1.76 \times 10^4 \text{m}^3/\text{kg}$ に固定して、 α 及び β の値を平衡状態と考えられるほど大きな値から段階的に減少させて解析を行った。

(3)解析結果 (Am-243 の α/β 変更ケース)

人工バリアからの Am-243 核種のフラックスとして図 7.3-35 の 18.6Q のデータを用いて、コロイド濃度 0.1ppm、及び $\alpha/\beta=1.76 \times 10^5 \text{m}^3/\text{kg}$ に設定した場合の、母岩からの核種フラックスの解析結果を図 7.3-36 に、断層からの線量の解析結果を図 7.3-37 に示す。

次に、人工バリアからの Am-243 核種のフラックスとして図 7.3-35 の 2.76Q の結果を用いてコロイド濃度 0.1ppm、及び $\alpha/\beta=1.76 \times 10^4 \text{m}^3/\text{kg}$ に設定した場合の、母岩からの核種フラックスの解析結果を図 7.3-38 に、断層からの線量の解析結果を図 7.3-39

に示す。

速度定数 α 、及び β の値を大きく設定した場合 ($\alpha=43800000$, $\beta=249$) には、平衡ケース ($\alpha=1.76 \times 10^{15}$, $\beta=1.0 \times 10^{10}$) と放出率、及び線量値の結果共にカーブが重なる。速度定数比 (α/β) を固定したまま、速度定数 α 、及び β の値を減少させて、核種のコロイドへの収着速度を小さくすると核種移行が促進されて放出率、及び線量値のピーク値が上昇し、速度定数 α 、及び β の値を ($\alpha=21900$, $\beta=0.1245$) と設定した場合にピーク値が最大となる。さらに速度定数 α 、 β の値を共に減少させると、核種とコロイドとの相互作用が弱くなるため、逆に放出率及び線量値のピーク値が減少していく様子が認められた。(図 7.3-36、及び図 7.3-37)

コロイドに対する核種の分配係数が一桁小さいケース (コロイド濃度 0.1ppm、核種のコロイドに対する分配係数が $1.76 \times 10^4 \text{ m}^3/\text{kg}$) についても、同じ傾向が認められた。

速度定数 α 、及び β の値を大きく設定した場合 ($\alpha=43800000$, $\beta=249$) には平衡ケースと放出率及び線量値のグラフがほぼ重なるが、速度定数比 (α/β) を固定したまま、速度定数 α 及び β の値を共に減少させると放出率及び線量値のピーク値が上昇し、速度定数 α 、 β の値が ($\alpha=2190$, $\beta=0.1245$) でピーク値が最大となる。その後速度定数 α 、 β の値が小さくなると、逆にピーク値が減少した。(図 7.3-38、及び図 7.3-39)

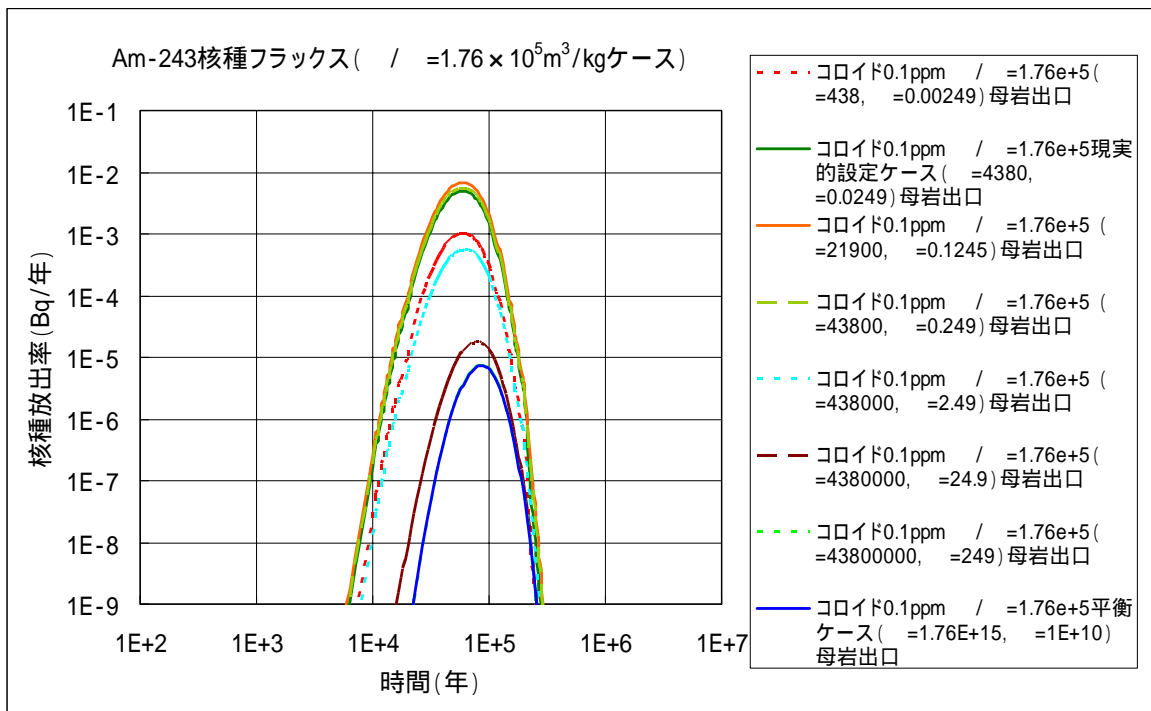


図 7.3-36 母岩からの Am-243 核種放出率 ($\alpha/\beta=1.76 \times 10^5 \text{ m}^3/\text{kg}$)

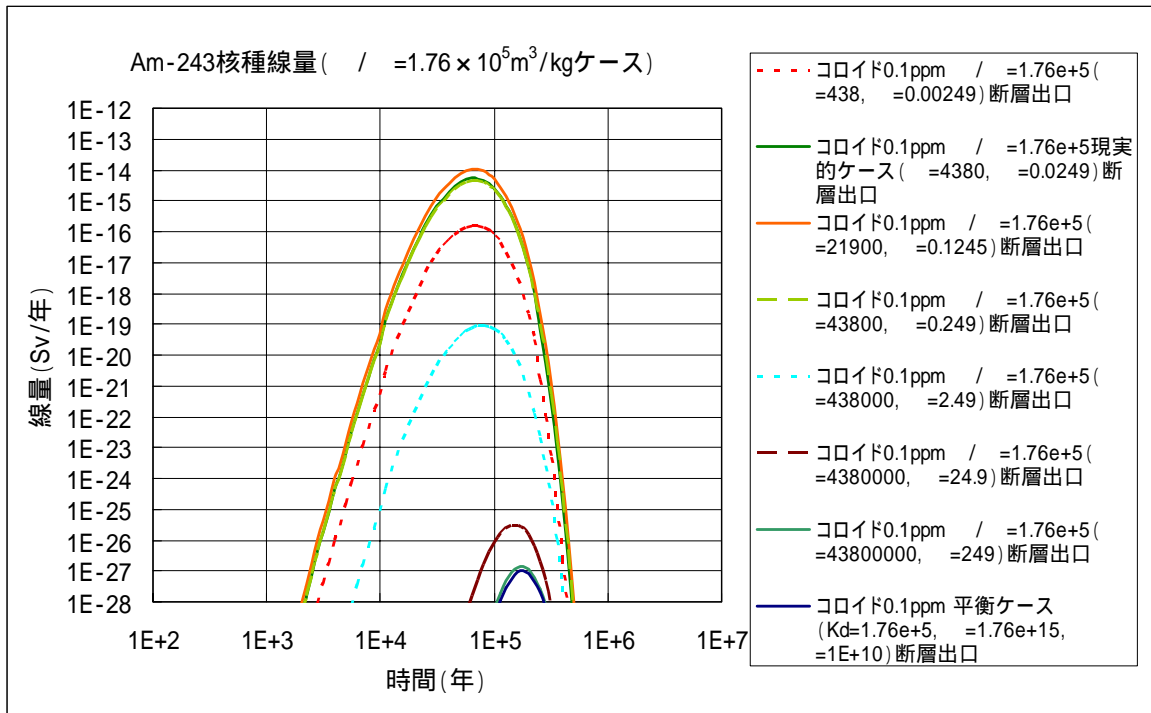


図 7.3-37 断層からの Am-243 核種線量 ($\alpha/\beta=1.76 \times 10^5 \text{m}^3/\text{kg}$)

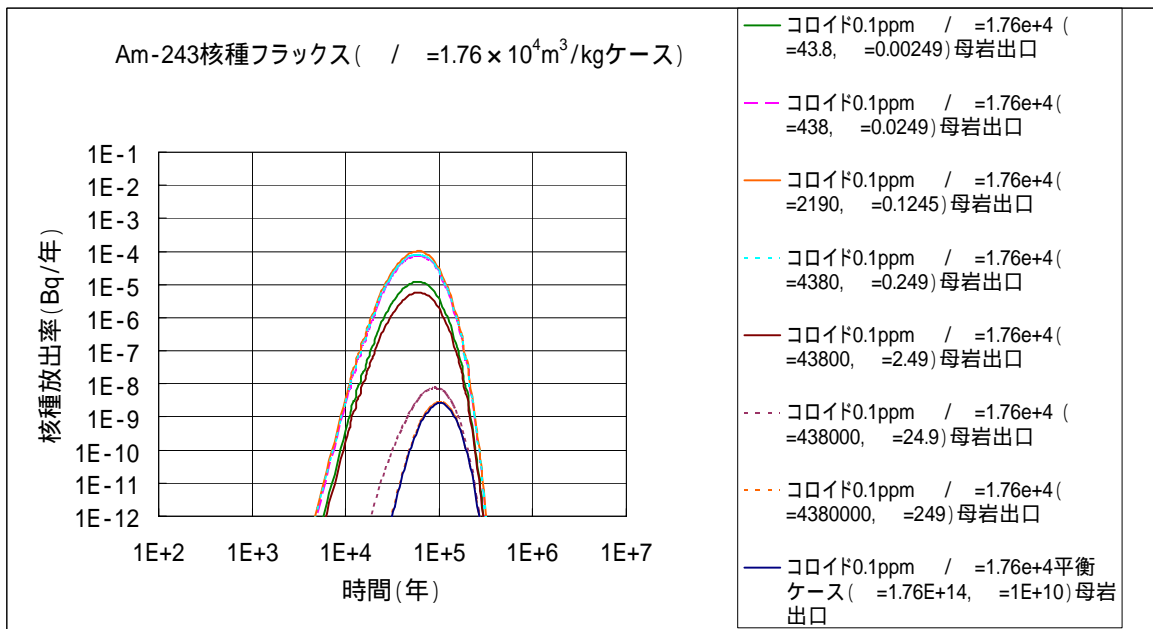


図 7.3-38 母岩からの Am-243 核種放出率 ($\alpha/\beta=1.76 \times 10^4 \text{m}^3/\text{kg}$)

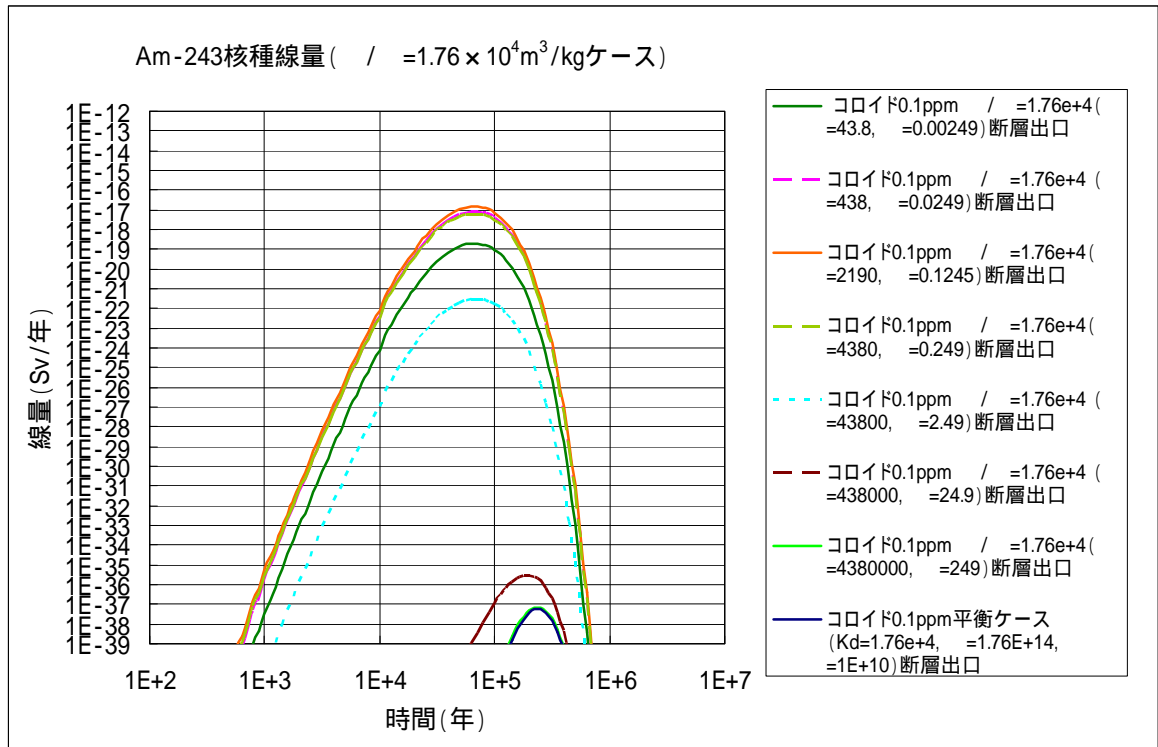


図 7.3-39 断層からの Am-243 核種線量 ($\alpha/\beta=1.76 \times 10^4 \text{m}^3/\text{kg}$)

(4)母岩からの核種放出率のピーク

母岩からの核種放出率（ガラス固化体 1 本あたり）、及び断層からの線量のピーク値の解析結果をまとめたものを、表 7.3-3 に示す。また、断層からの核種線量のピーク値について、速度定数比 (α/β) を 2 種類設定して、逆方向速度定数 β を変化させた結果をプロットしたものを図 7.3-40、及び図 7.3-41 に示す。

コロイド濃度 0.1ppm、核種のコロイドに対する分配係数が $1.76 \times 10^5 \text{m}^3/\text{kg}$ の場合の線量ピーク値の最大値は $1.0 \times 10^{-14} \text{Sv/y}$ であった。コロイドに対する核種の分配係数が一桁小さいケース（コロイド濃度 0.1ppm、核種のコロイドに対する分配係数が $1.76 \times 10^4 \text{m}^3/\text{kg}$ ）の線量のピーク値の最大値は $1.5 \times 10^{-17} \text{Sv/y}$ であり、核種とコロイド間の相互作用が小さいことを反映して、線量値は約 3 桁小さかった。人工バリア出口では、両ケースのピーク値の差は 7 倍程度であったが（図 7.3-35）、核種が母岩及び断層中を移行した結果、両ケースの差が大きくなったと考えられる。

速度定数 α 及び β を大きく設定した場合 ($\beta=249 \text{kg/m}^3/\text{年}$) には、断層からの線量の

ピーク値は平衡ケースの結果と一致する。速度定数の比 (α/β) を固定したまま、速度定数 α 及び β を減少させて核種のコロイドへの収着速度を減少させると、核種移行が促進されて線量値のピーク値が上昇して、速度定数 α 及び β が ($\alpha=21900$, $\beta=0.1245$) の場合に線量値のピーク値が最大となる。その後、さらに速度定数 α 及び β の値を減少させると逆に線量値のピーク値が減少していく様子が認められた。(図 7.3-40、及び図 7.3-41)

表 7.3-3 Am-243 核種の α β 変更ケースの各解析のピーク値とピークの時間

| 解析ケース | | 母岩からの核種放出率 | | 断層からの核種線量 | |
|--|--|----------------------|----------------------------|---|----------------------------|
| | | ピーク時間(y) | ピーク値(Bq/y) | ピーク時間(y) | ピーク値(Sv/y) |
| α / β = 1.76×10^5 | $\alpha = 438, \beta = 0.00249$ | 5.96×10^4 y | 9.92×10^{-4} Bq/y | 6.3×10^4 y ~ 7.1×10^4 y | 1.5×10^{-16} Sv/y |
| | $\alpha = 4380, \beta = 0.0249$ (現実的設定ケース) | 5.96×10^4 y | 4.88×10^{-3} Bq/y | 6.3×10^4 y ~ 7.1×10^4 y | 5.3×10^{-15} Sv/y |
| | $\alpha = 21900, \beta = 0.1245$ | 5.96×10^4 y | 6.78×10^{-3} Bq/y | 6.3×10^4 y ~ 7.1×10^4 y | 1.0×10^{-14} Sv/y |
| | $\alpha = 43800, \beta = 0.249$ | 5.96×10^4 y | 5.46×10^{-3} Bq/y | 6.3×10^4 y ~ 7.1×10^4 y | 4.4×10^{-15} Sv/y |
| | $\alpha = 438000, \beta = 2.49$ | 6.31×10^4 y | 5.47×10^{-4} Bq/y | 7.9×10^4 y | 9.2×10^{-20} Sv/y |
| | $\alpha = 4380000, \beta = 24.9$ | 7.94×10^4 y | 1.76×10^{-5} Bq/y | 1.4×10^5 y ~ 1.6×10^5 y | 3.0×10^{-26} Sv/y |
| | $\alpha = 43800000, \beta = 249$ | 8.41×10^4 y | 7.37×10^{-6} Bq/y | 1.8×10^5 y | 1.4×10^{-27} Sv/y |
| | $\alpha = 1.76 \times 10^{15}, \beta = 1.0 \times 10^{10}$ (平衡ケース) | 8.41×10^4 y | 7.37×10^{-6} Bq/y | 1.8×10^5 y | 1.0×10^{-27} Sv/y |
| α / β = 1.76×10^4 | $\alpha = 43.8, \beta = 0.00249$ | 5.96×10^4 y | 1.23×10^{-5} Bq/y | 6.3×10^4 y | 2.0×10^{-19} Sv/y |
| | $\alpha = 438, \beta = 0.0249$ | 5.96×10^4 y | 7.44×10^{-5} Bq/y | 6.3×10^4 y ~ 7.1×10^4 y | 8.1×10^{-18} Sv/y |
| | $\alpha = 2190, \beta = 0.1245$ | 5.96×10^4 y | 1.02×10^{-4} Bq/y | 6.3×10^4 y ~ 7.1×10^4 y | 1.5×10^{-17} Sv/y |
| | $\alpha = 4380, \beta = 0.249$ | 5.96×10^4 y | 8.10×10^{-5} Bq/y | 6.3×10^4 y ~ 7.1×10^4 y | 6.3×10^{-18} Sv/y |
| | $\alpha = 43800, \beta = 2.49$ | 6.31×10^4 y | 5.75×10^{-6} Bq/y | 7.1×10^4 y | 3.1×10^{-22} Sv/y |
| | $\alpha = 438000, \beta = 24.9$ | 8.91×10^4 y | 7.56×10^{-9} Bq/y | 2.0×10^5 y | 3.1×10^{-36} Sv/y |
| | $\alpha = 4380000, \beta = 249$ | 1.00×10^5 y | 2.78×10^{-9} Bq/y | 2.2×10^5 y | 7.2×10^{-38} Sv/y |
| | $\alpha = 1.76 \times 10^{14}, \beta = 1.0 \times 10^{10}$ (平衡ケース) | 1.00×10^5 y | 2.58×10^{-9} Bq/y | 2.2×10^5 y ~ 2.5×10^5 y | 5.5×10^{-38} Sv/y |

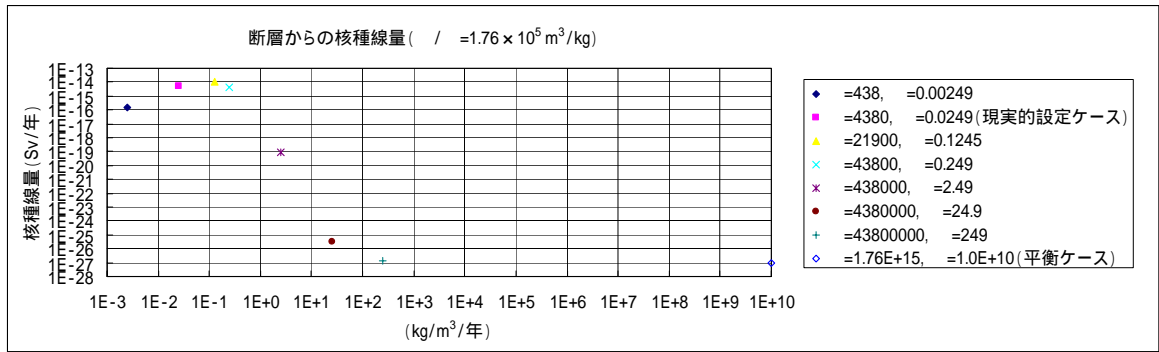


図 7.3-40 $\alpha/\beta=1.76 \times 10^5 \text{m}^3/\text{kg}$ の断層からの核種線量のピーク値の逆方向速度定数 β に対するプロット (コロイド濃度 0.1ppm)

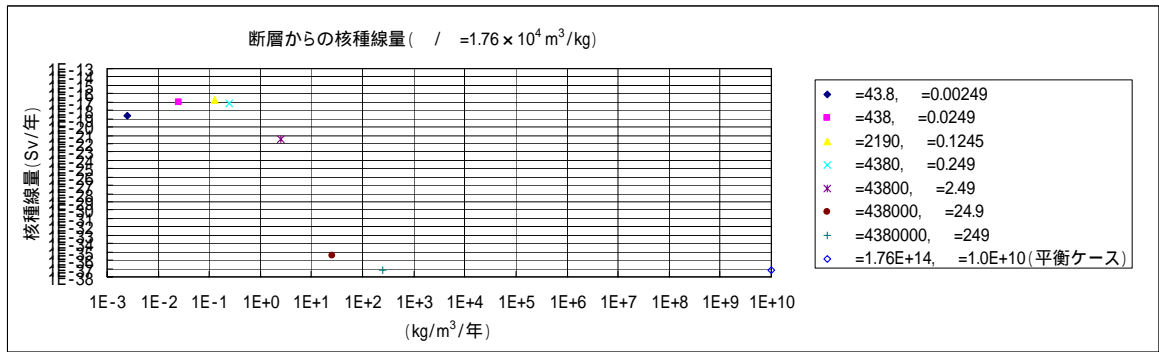


図 7.3-41 $\alpha/\beta=1.76 \times 10^4 \text{m}^3/\text{kg}$ の断層からの核種線量のピーク値の逆方向速度定数 β に対するプロット (コロイド濃度 0.1ppm)

7.4 まとめ

パラメータスタディ計算より、核種のコロイドに対する分配係数が大きい核種 Am-243、Pu-240 について、順方向速度定数 α と逆方向速度定数 β の設定値により、核種移行に対するコロイド影響は大きく変化することが示された。これから核種のコロイドに対する分配係数が大きい核種に関して、速度定数 α 、 β に関するデータ整備、及び検討の重要性が示された。しかし、その線量値は Cs-135 や Np-237 に比べて何桁も低く、線量への寄与は小さいと考えられる。

線量が最大である核種 Cs-135 に関しては、コロイド濃度が 1ppm の場合には順方向速度定数 α と逆方向速度定数 β を変化させても核種移行に対するコロイド影響は認められな

った。したがってコロイド濃度 1ppm では、核種移行へのコロイド寄与はないことが示された。

しかし、Cs-135 のコロイド濃度を 5ppm、10ppm と増加させた場合には、線量値が増加し、核種移行に対するコロイド影響が認められた。今後、母岩入り口におけるコロイド濃度が核種移行に与える影響の評価を行うことが望ましいと考えられる。

8. 核種のコロイドの分配係数に関する標準的手法の検討とデータ取得

8.1 背景及び目的

現在、日本原子力学会標準委員会（以後、「学会標準委員会」と称す）の深地層分配係数分科会では、深地中処分のバリア材を対象とした分配係数測定方法の標準的手法を検討している（例えば、油井他、2004）。同検討において、分配係数（Kd）へのコロイド影響に関する取扱についても検討が進められており、その検討に資する基礎データの取得が望まれる。本検討では、バッチ法収着試験において、固相処理方法、振とう方法、固液分離方法などがコロイド影響とどう関係するかを調べる。さらに、コロイド影響が認められた試料について、その影響を排除した Kd を求めるための式（油井、他(2004)、8.2.2 にて後述）を適用し、従来の式（同 8.2.2 にて後述）を用いて算出した Kd と比較検討を行う。

8.2 方法

8.2.1 試験条件

収着試験は Kd 測定の標準化法に準じた条件で実施した。収着試験の条件および試験条件に係るマトリクスをそれぞれ表 8.2-1 および表 8.2-2 に示す。

表 8.2-1 収着試験の条件

| 項目 | 内容 |
|---------------------------------------|---|
| 試験方法 ・ 容器 (容量) | バッチ法 ・ ポリプロピレン製容器 (50mL) |
| 対象元素 ・ 初期濃度 | Cs 1E-4 mol/L |
| 試験溶液 ・ pH | 幌延サイトの地下水 (2種類; 降水系、海水系) ・ pH: 降水系地下水 約 7、海水系地下水 約 8 |
| 固相 ・ 粒径 | 幌延サイトの泥岩 (2種類) ・ < 850 μ m |
| 液固比 (液固量) | 10 (50mL/5g) |
| 試験温度 試験雰囲気 試験期間 振とう 繰り返し数 | 室温 大気雰囲気 1週間 回転式機械振とう (10 r p m)、1回/1日程度の手による振とう 2回または1回 |
| 固液分離方法 | ①※ 0.8 μ m メンブラン; フィルタユニット法 ② 0.45 μ m メンブラン; フィルタユニット法 ③ 分画分子量 10,000 の限外ろ過; フィルタユニット法 |
| 分析項目 | pH および Eh; ガラス電極法 元素濃度; 誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) |

※: 標準化法では 0.8 μ m ろ過は実施しないが、0.45 μ m ろ過との比較のために実施

表 8.2-2 試験条件マトリクス

| 試料 No. | 液相 | 固相 | 固相洗浄回数 | 振とう方法 | 固液分離方法 |
|--------|--|--------|--------|-------|---|
| F-1 | 降水系地下水 HDB-9-45 (深度約 40 ~50m) | 泥岩 | 0 回 | 機械振とう | <ul style="list-style-type: none"> • 0.45 μm ろ過 • 0.8 μm ろ過 • 限外ろ過 |
| F-2 | | | 0 回 | 機械振とう | |
| F-3 | | | 0 回 | 手振とう | |
| F-4 | | | 1 回 | 機械振とう | |
| F-5 | | | 1 回 | 機械振とう | |
| F-6 | | | 1 回 | 手振とう | |
| F-7 | | | 2 回 | 機械振とう | |
| F-8 | | | 2 回 | 機械振とう | |
| F-9 | | | 2 回 | 手振とう | |
| F-10 | | ブランク | — | 機械振とう | |
| F-11 | | (固相なし) | — | 手振とう | |
| S-1 | 海水系地下水 HDB-6-400 (深度約 400m) | 泥岩 | 0 回 | 機械振とう | |
| S-2 | | | 0 回 | 機械振とう | |
| S-3 | | | 0 回 | 手振とう | |
| S-4 | | | 1 回 | 機械振とう | |
| S-5 | | | 1 回 | 機械振とう | |
| S-6 | | | 1 回 | 手振とう | |
| S-7 | | | 2 回 | 機械振とう | |
| S-8 | | | 2 回 | 機械振とう | |
| S-9 | | | 2 回 | 手振とう | |
| S-10 | | ブランク | — | 機械振とう | |
| S-11 | | (固相なし) | — | 手振とう | |

なお、本試験では、固相起源のコロイドの影響を調べるため、粉碎後の固相についてエタノール洗浄を実施した試料および洗浄を実施しない試料を用意した。エタノール洗浄は 1 回または 2 回実施した。また、浸漬期間中の振とう方法によるコロイド影響の相違をみるために振とう方法として、機械振とうおよび手による振とうの 2 通りの方法で実施した。

8.2.2 試験手順

収着試験は学会標準委員会が検討している深地中処分のバリア材を対象とした分配係数測定方法を基本とする。試験フローを下図に示す。

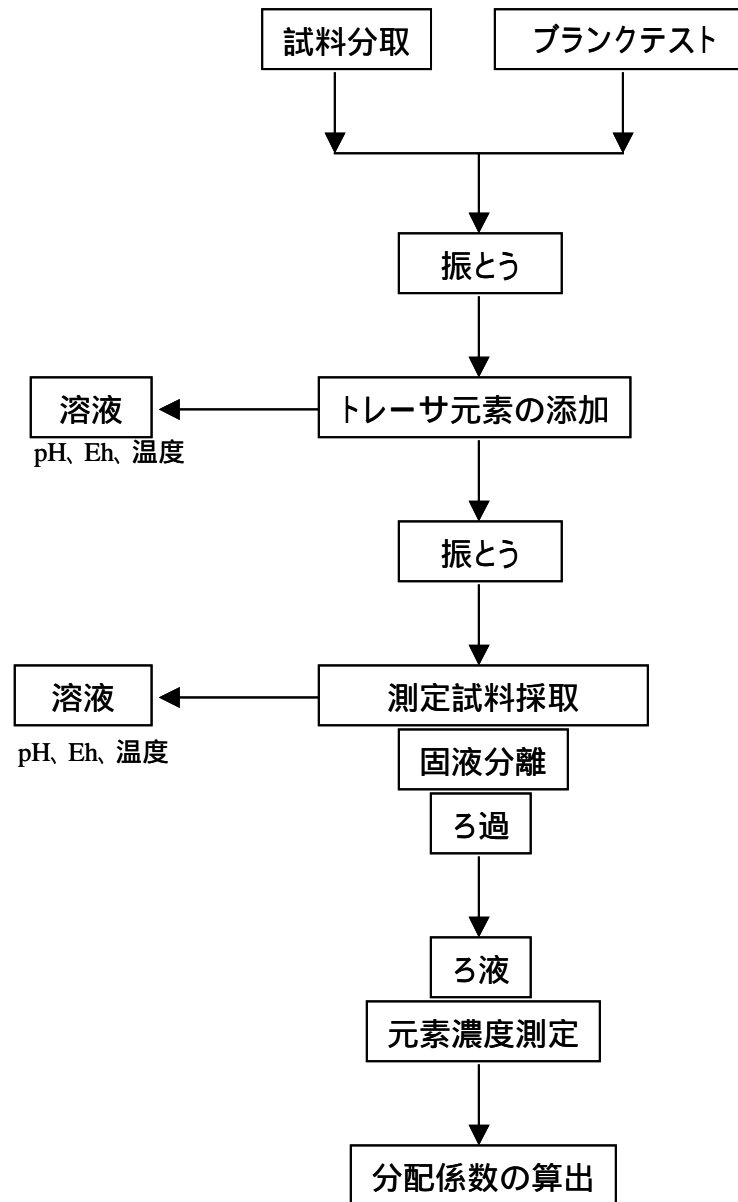


図 8.2-1 バッチ法による分配係数の測定フロー

分配係数は次式から算出した。

$$\text{分配係数 } Kd \quad (ml/g) = \frac{C_0 - C}{C} \times \frac{V}{M} \quad \text{式 (8.2.2-1)}$$

C_0 : 液相の初期濃度、 C : 平衡後の濃度、 V : 液相の体積(ml)、 M : 固相の質量(g)
 また、前述したように、コロイドの影響が見られる場合の Kd の算出式として提案されている以下の式（油井、他、2004）についても算出した。なお、本試験では C_1 として、 $0.45 \mu m$ ろ過の他に $0.8 \mu m$ ろ過後のデータも取得している。

$$\text{分配係数 } Kd' \quad (ml/g) = \frac{C_0 - C_1}{C_2} \times \frac{V}{M} \quad \text{式 (8.2.2-2)}$$

C_1 : 平衡後の濃度 ($0.45 \mu m$ ろ過後)、 C_2 : 平衡後の濃度 (分画分子量 10,000 限外ろ過後)

8.3 試験結果

収着試験前の地下水中の濃度分析の結果を表 8.3-1 に示す。

収着試験開始時および終了時の pH、Eh を表 8.3-2 に示す。また、収着試験終了時のトレーサ濃度測定結果を表 8.3-3 に示す。同表には、従来の式から算出した K_d とコロイド影響がある場合の K_d' の 2 通りの分配係数を算出した。

収着試験に及ぼすコロイドの影響度合いについては、8.4 節にて後述するが、表 8.3-3 から降水系地下水試料のうち、固相洗浄回数 2 回の試料が特にコロイド影響が認められた。そのため、コロイド量評価のための収着試験後の液相分析は同試料について実施し、さらに比較のために固相洗浄回数 0 回及び 1 回の降水系地下水試料についても分析を行った。その結果を表 8.3-4 に示す。なお、収着試験前の地下水の $0.45\mu\text{m}$ ろ過に際して、降水系地下水の HDB9-45 については、地下水中の浮遊物によるフィルタ目詰まりのため、ろ過前に遠心分離（18,000rpm、30 分）を実施している。この遠心分離により $0.05\mu\text{m}$ 以上の粒径のコロイド粒子は取り除かれたと計算される。

また、収着試験後の液相分析と同様に、降水系地下水試料の洗浄回数 0 回、1 回及び 2 回の試料について、XRD 分析及び粒度分布測定を実施した。それらの結果をそれぞれ、図 8.3-1 及び図 8.3-2 に示す。

表 8.3-1 収着試験前の地下水組成分析結果

| | Na | Mg | Al | Si | K | Ca | Mn | Fe | Sr | Cl | SO ₄ | NO ₃ | Br | B | TOC | TIC |
|--------------------------------|----------|----------|------------|----------|------------|----------|------------|------------|------------|----------|-----------------|-----------------|------------|------------|----------|----------|
| HDB9-45 ろ過なし | 9.13E-04 | 5.64E-05 | 2.48E-05 | 2.20E-04 | < 1.28E-04 | 1.16E-04 | < 4.55E-06 | 9.24E-05 | < 2.85E-06 | - | - | - | - | 5.55E-05 | 1.75E-04 | 6.74E-04 |
| HDB9-45 0.8 μmろ過 | 9.92E-04 | 7.08E-05 | 1.09E-04 | 1.03E-03 | 7.26E-05 | 1.07E-04 | 7.28E-06 | 1.11E-04 | < 1.14E-06 | 3.69E-04 | 9.34E-05 | < 4.84E-06 | < 6.26E-06 | < 9.25E-06 | 1.83E-04 | 6.41E-04 |
| HDB9-45 MWCO10,000 限外ろ過 | 1.02E-03 | 4.81E-05 | < 7.41E-06 | 7.62E-04 | 8.95E-05 | 9.86E-05 | 6.55E-06 | < 1.79E-06 | < 1.14E-06 | 3.79E-04 | 9.38E-05 | < 4.84E-06 | < 6.26E-06 | < 9.25E-06 | 2.83E-04 | 6.91E-04 |
| HDB6-400 ろ過なし | 1.98E-01 | 4.85E-03 | < 1.85E-05 | 8.12E-04 | 2.42E-03 | 3.97E-03 | < 4.55E-06 | 1.61E-05 | 2.60E-05 | - | - | - | - | 8.22E-03 | 1.29E-03 | 4.26E-02 |
| HDB6-400 0.8 μmろ過 | 5.09E-03 | 5.47E-03 | < 7.41E-06 | 8.83E-04 | 3.02E-03 | 1.51E-03 | < 1.82E-06 | < 1.79E-06 | 2.10E-05 | 2.04E-01 | < 1.04E-05 | 8.02E-05 | 5.53E-04 | 8.61E-03 | 1.39E-03 | 4.71E-02 |
| HDB6-400 MWCO10,000 限外ろ過 | 4.92E-03 | 5.35E-03 | < 7.41E-06 | 9.04E-04 | 3.27E-03 | 1.11E-03 | < 1.82E-06 | < 1.79E-06 | 1.95E-05 | 2.00E-01 | < 1.04E-05 | 8.53E-05 | 5.70E-04 | 8.79E-03 | 1.42E-03 | 3.65E-02 |

単位: mol/L

表 8.3-2 収着試験開始時および終了時の pH、Eh

| 試料No. | 地下水種類- 洗浄回数 | 振とう方法 | 試験開始前 (17) | | 試験終了後 (20) | |
|-------|----------------|-------|-------------|-----------------|-------------|-----------------|
| | | | pH | Eh(mV v.s. SHE) | pH | Eh(mV v.s. SHE) |
| F-1 | 降水系-0回 | 機械振とう | 7.12 | 402 | 5.61 | 244 |
| F-2 | 降水系-0回 | 機械振とう | - | - | 5.90 | 220 |
| F-3 | 降水系-0回 | 手振とう | - | - | 6.25 | 253 |
| F-4 | 降水系-1回 | 機械振とう | 7.65 | 384 | 6.32 | 219 |
| F-5 | 降水系-1回 | 機械振とう | - | - | 6.70 | 194 |
| F-6 | 降水系-1回 | 手振とう | - | - | 6.69 | 254 |
| F-7 | 降水系-2回 | 機械振とう | 7.65 | 393 | 6.34 | 190 |
| F-8 | 降水系-2回 | 機械振とう | - | - | 6.49 | 184 |
| F-9 | 降水系-2回 | 手振とう | - | - | 6.78 | 254 |
| F-10 | 降水系ブランク | 機械振とう | 6.87 | 411 | 7.01 | 286 |
| F-11 | 降水系ブランク | 手振とう | - | - | 7.02 | 294 |
| S-1 | 海水系-0回 | 機械振とう | 7.79 | 251 | 7.92 | 122 |
| S-2 | 海水系-0回 | 機械振とう | - | - | 7.84 | 121 |
| S-3 | 海水系-0回 | 手振とう | - | - | 7.97 | 121 |
| S-4 | 海水系-1回 | 機械振とう | 7.53 | 255 | 7.63 | 140 |
| S-5 | 海水系-1回 | 機械振とう | - | - | 7.63 | 129 |
| S-6 | 海水系-1回 | 手振とう | - | - | 7.82 | 126 |
| S-7 | 海水系-2回 | 機械振とう | 7.54 | 253 | 7.71 | 124 |
| S-8 | 海水系-2回 | 機械振とう | - | - | 7.68 | 122 |
| S-9 | 海水系-2回 | 手振とう | - | - | 7.82 | 122 |
| S-10 | 海水系ブランク | 機械振とう | 7.72 | 258 | 8.11 | 122 |
| S-11 | 海水系ブランク | 手振とう | - | - | 8.08 | 121 |

表 8.3-3 収着試験終了時のトレーサ濃度測定結果および Cs の泥岩に対する分配係数

| 試料No. | 地下水種類・洗浄回数 | 振とう方法 | 0.8μmメンブランろ過後 | | | | | | 0.45μmメンブランろ過後 | | | | | | 限外ろ過後 | | |
|-------|------------|-------|---------------|-----------|---------|------------|----------|---------|----------------|-----------|---------|------------|----------|---------|-----------|-----------|---------|
| | | | 定量値 (ppb) | Kd (ml/g) | Kd (平均) | Kd' (ml/g) | Kd' (平均) | 変化率 (%) | 定量値 (ppb) | Kd (ml/g) | Kd (平均) | Kd' (ml/g) | Kd' (平均) | 変化率 (%) | 定量値 (ppb) | Kd (ml/g) | Kd (平均) |
| F-1 | 降水系-0回 | 機械振とう | 119.4 | 912.5 | 915.4 | 921.8 | 931.9 | 1.8 | 116.2 | 937.5 | 935.9 | 922.0 | 932.1 | -0.4 | 118.2 | 921.9 | 932.0 |
| F-2 | 降水系-0回 | 機械振とう | 118.7 | 918.3 | | 941.9 | | | 116.6 | 934.2 | | 942.1 | | | 115.7 | 942.2 | |
| F-3 | 降水系-0回 | 手振とう | 121.4 | 938.2 | 938.2 | 947.1 | 947.1 | 1.0 | 118.2 | 964.0 | 964.0 | 947.4 | 947.4 | -1.7 | 120.3 | 947.2 | 947.2 |
| F-4 | 降水系-1回 | 機械振とう | 91.4 | 1195.0 | 1193.2 | 1154.5 | 1217.8 | 2.1 | 98.4 | 1109.3 | 1190.0 | 1153.7 | 1217.7 | 2.4 | 94.6 | 1154.1 | 1218.0 |
| F-5 | 降水系-1回 | 機械振とう | 91.7 | 1191.3 | | 1281.1 | | | 86.0 | 1270.6 | | 1281.7 | | | 85.3 | 1281.8 | |
| F-6 | 降水系-1回 | 手振とう | 110.4 | 1032.3 | 1032.3 | 1039.3 | 1039.3 | 0.7 | 112.7 | 1011.0 | 1011.0 | 1039.1 | 1039.1 | 2.8 | 109.7 | 1039.3 | 1039.3 |
| F-7 | 降水系-2回 | 機械振とう | 93.3 | 1169.9 | 1182.5 | 1317.2 | 1330.3 | 12.5 | 89.4 | 1222.1 | 1226.1 | 1317.7 | 1330.7 | 8.5 | 82.9 | 1318.5 | 1331.6 |
| F-8 | 降水系-2回 | 機械振とう | 91.4 | 1195.0 | | 1343.5 | | | 88.8 | 1230.1 | | 1343.8 | | | 81.3 | 1344.7 | |
| F-9 | 降水系-2回 | 手振とう | 125.8 | 904.9 | 904.9 | 1072.7 | 1072.7 | 18.5 | 109.9 | 1037.7 | 1037.7 | 1074.2 | 1074.2 | 3.5 | 106.1 | 1074.5 | 1074.5 |
| F-10 | 降水系ブランク | 機械振とう | | | | | | | | | | | | | 11013.9 | | |
| F-11 | 降水系ブランク | 手振とう | | | | | | | | | | | | | 11511.4 | | |
| S-1 | 海水系-0回 | 機械振とう | 1281.2 | 81.5 | 81.2 | 80.9 | 80.6 | -0.8 | 1252.5 | 83.6 | 85.8 | 81.2 | 81.1 | -5.4 | 1290.4 | 80.9 | 80.5 |
| S-2 | 海水系-0回 | 機械振とう | 1289.8 | 80.9 | | 80.3 | | | 1196.8 | 88.0 | | 81.0 | | | 1300.1 | 80.2 | |
| S-3 | 海水系-0回 | 手振とう | 1349.5 | 76.8 | 76.8 | 76.6 | 76.6 | -0.2 | 1308.7 | 79.5 | 79.5 | 76.9 | 76.9 | -3.2 | 1352.3 | 76.6 | 76.6 |
| S-4 | 海水系-1回 | 機械振とう | 1194.0 | 88.2 | 88.3 | 93.6 | 91.5 | 3.6 | 1095.3 | 97.0 | 93.9 | 94.5 | 92.1 | -2.0 | 1124.6 | 94.3 | 91.9 |
| S-5 | 海水系-1回 | 機械振とう | 1191.7 | 88.4 | | 89.4 | | | 1163.0 | 90.8 | | 89.6 | | | 1178.5 | 89.5 | |
| S-6 | 海水系-1回 | 手振とう | 1281.8 | 81.4 | 81.4 | 80.4 | 80.4 | -1.2 | 1246.2 | 84.0 | 84.0 | 80.6 | 80.6 | -4.0 | 1297.8 | 80.2 | 80.2 |
| S-7 | 海水系-2回 | 機械振とう | 1123.4 | 94.4 | 93.7 | 91.7 | 93.2 | -0.6 | 1096.4 | 96.9 | 97.1 | 91.9 | 93.5 | -3.7 | 1156.7 | 91.4 | 93.1 |
| S-8 | 海水系-2回 | 機械振とう | 1137.7 | 93.1 | | 94.7 | | | 1093.6 | 97.2 | | 95.1 | | | 1118.2 | 94.9 | |
| S-9 | 海水系-2回 | 手振とう | 1326.5 | 78.3 | 78.3 | 81.2 | 81.2 | 3.8 | 1246.8 | 83.9 | 83.9 | 81.9 | 81.9 | -2.5 | 1278.3 | 81.6 | 81.6 |
| S-10 | 海水系ブランク | 機械振とう | | | | | | | | | | | | | 11725.0 | | |
| S-11 | 海水系ブランク | 手振とう | | | | | | | | | | | | | 11710.4 | | |

表 8.3-4 収着試験後の液相分析結果

| 試料No. | 地下水種類 -洗浄回数 | 振とう方法 | 固液分離方法 | Al | Si | Fe | Na | K | Ca | Mg | TOC | TIC |
|-------|----------------|-------|----------|----------|----------|------------|----------|------------|----------|----------|----------|----------|
| | | | | mol/L | mol/L | mol/L | mol/L | mol/L | mol/L | mol/L | mol/L | mol/L |
| F-1 | 降水系-0回 | 機械振とう | 0.8 μmろ過 | 2.72E-05 | 1.17E-03 | 1.28E-04 | 3.02E-03 | 6.10E-04 | 2.33E-03 | 3.15E-03 | 1.82E-04 | 1.55E-04 |
| | | | 限外ろ過 | 3.15E-05 | 1.24E-03 | 1.41E-04 | 3.08E-03 | 6.13E-04 | 2.29E-03 | 3.16E-03 | 5.75E-04 | 0.00E+00 |
| F-2 | 降水系-0回 | 機械振とう | 0.8 μmろ過 | 2.37E-05 | 1.27E-03 | 2.18E-05 | 3.64E-03 | 1.24E-03 | 3.44E-03 | 5.97E-03 | 1.87E-04 | 2.23E-05 |
| | | | 限外ろ過 | 2.75E-05 | 1.24E-03 | 2.22E-05 | 3.65E-03 | 1.27E-03 | 3.47E-03 | 5.97E-03 | 6.89E-04 | 0.00E+00 |
| F-3 | 降水系-0回 | 手振とう | 0.8 μmろ過 | 1.18E-05 | 1.07E-03 | 4.01E-05 | 2.91E-03 | 5.16E-04 | 1.83E-03 | 2.44E-03 | 1.70E-04 | 1.70E-04 |
| | | | 限外ろ過 | 1.29E-05 | 1.09E-03 | 4.37E-05 | 2.95E-03 | 4.98E-04 | 1.77E-04 | 2.46E-03 | 5.20E-04 | 0.00E+00 |
| F-4 | 降水系-1回 | 機械振とう | 0.8 μmろ過 | 3.80E-06 | 7.74E-04 | < 1.79E-06 | 2.83E-03 | 4.06E-04 | 1.08E-03 | 1.54E-03 | 4.54E-04 | 4.08E-04 |
| | | | 限外ろ過 | 5.79E-06 | 8.55E-04 | 3.22E-06 | 2.85E-03 | 4.00E-04 | 1.12E-03 | 1.60E-03 | 6.37E-04 | 3.52E-05 |
| F-5 | 降水系-1回 | 機械振とう | 0.8 μmろ過 | 1.96E-06 | 7.43E-04 | < 1.79E-06 | 3.23E-03 | 4.05E-04 | 9.97E-04 | 1.48E-03 | 4.03E-04 | 1.63E-04 |
| | | | 限外ろ過 | 1.64E-06 | 7.44E-04 | < 1.79E-06 | 1.07E-04 | < 5.12E-05 | 1.00E-03 | 1.50E-03 | 1.15E-03 | 1.07E-04 |
| F-6 | 降水系-1回 | 手振とう | 0.8 μmろ過 | 2.16E-06 | 8.71E-04 | 3.94E-06 | 2.75E-03 | 2.85E-04 | 8.41E-04 | 1.20E-03 | 1.51E-04 | 7.03E-04 |
| | | | 限外ろ過 | 1.59E-06 | 8.25E-04 | 2.69E-06 | 2.86E-03 | 3.19E-04 | 9.21E-04 | 1.32E-03 | 6.29E-04 | 0.00E+00 |
| F-7 | 降水系-2回 | 機械振とう | 0.8 μmろ過 | 5.35E-06 | 8.06E-04 | < 1.79E-06 | 3.40E-03 | 6.89E-04 | 1.75E-03 | 2.77E-03 | 2.76E-04 | 9.09E-05 |
| | | | 限外ろ過 | 5.21E-06 | 8.09E-04 | < 1.79E-06 | 3.32E-03 | 6.86E-04 | 1.74E-03 | 2.78E-03 | 6.04E-04 | 7.10E-05 |
| F-8 | 降水系-2回 | 機械振とう | 0.8 μmろ過 | 4.17E-06 | 8.26E-04 | < 1.79E-06 | 2.84E-03 | 3.92E-04 | 1.32E-03 | 1.97E-03 | 2.99E-04 | 3.23E-04 |
| | | | 限外ろ過 | 4.55E-06 | 9.02E-04 | < 1.79E-06 | 2.88E-03 | 4.07E-04 | 1.33E-03 | 2.01E-03 | 4.00E-04 | 1.14E-05 |
| F-9 | 降水系-2回 | 手振とう | 0.8 μmろ過 | 1.62E-06 | 7.79E-04 | < 1.79E-06 | 2.82E-03 | 3.03E-04 | 8.48E-04 | 1.21E-03 | 2.99E-04 | 3.69E-04 |
| | | | 限外ろ過 | 1.81E-06 | 8.55E-04 | 3.22E-06 | 2.84E-03 | 3.43E-04 | 8.68E-04 | 1.22E-03 | 5.26E-04 | 4.65E-05 |

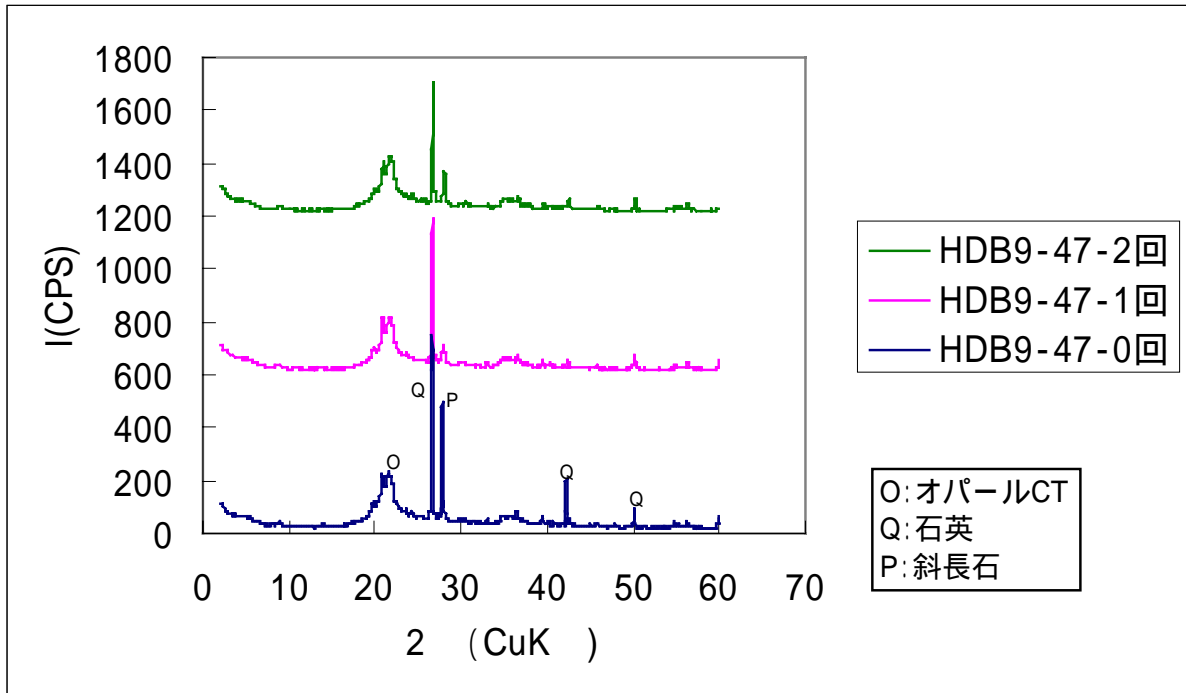
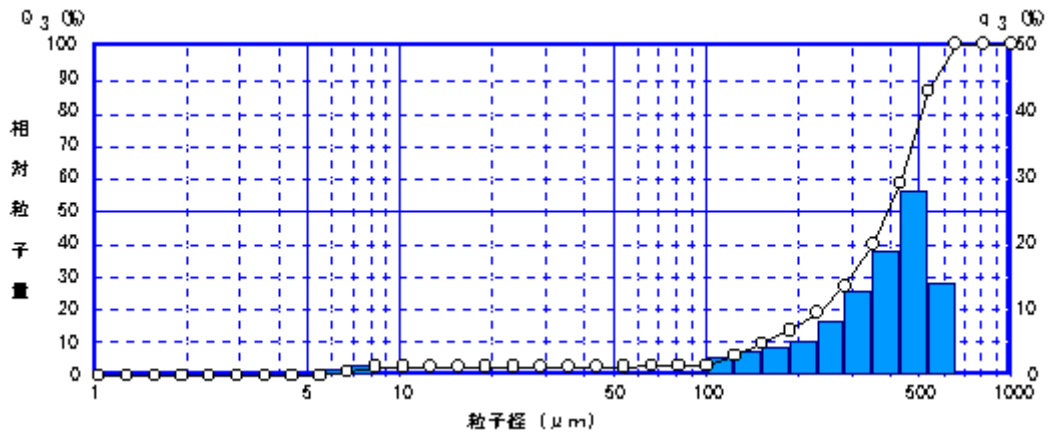
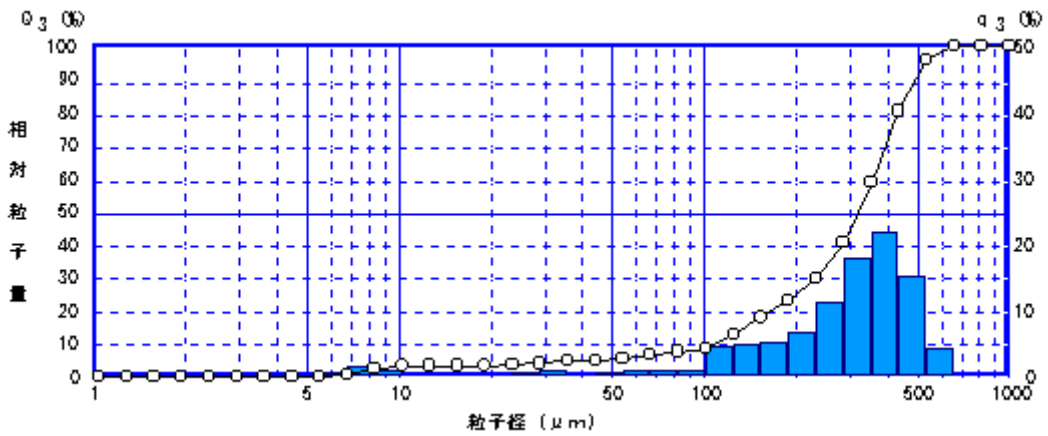


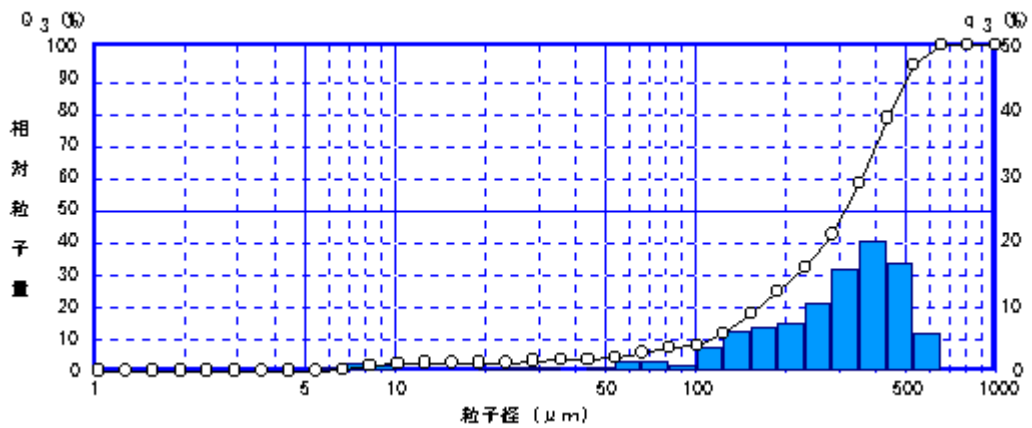
図 8.3-1 収着試験後の固相に対する XRD 分析結果



(a) 洗浄回数 0 回



(b) 洗浄回数 1 回



(c) 洗浄回数 2 回

図 8.3-2 収着試験後の固相の粒度分布測定結果

8.4 分配係数に及ぼすコロイド影響の検討

8.4.1 降水系地下水試料

従来の式 (8.2.2-1) から算出した K_d を下図に示す。

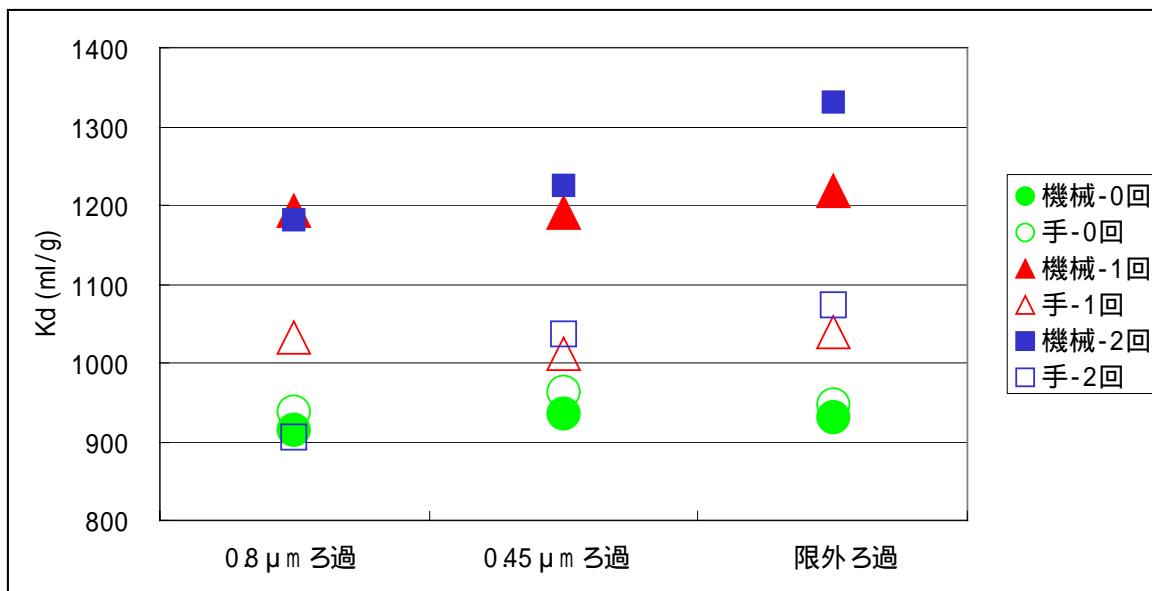


図 8.4-1 降水系地下水の K_d

上の図から、固相洗浄回数が 0 回の場合、機械振とう、手による振とう共に、ろ過方法による K_d の相違がほとんどなく、コロイド影響はほとんどないと考えられる。

洗浄回数 1 回の場合についても、ろ過方法による K_d の相違は大きなものではなく、コロイドの影響はほとんどないと考えられる。しかしながら、機械振とうのほうが手による振とうよりも高い K_d 値をとる傾向が認められる。

洗浄回数 2 回の場合、機械振とう、手による振とう共に、 K_d が $0.8 \mu\text{m}$ ろ過 $<$ $0.45 \mu\text{m}$ ろ過 $<$ 限外ろ過の順に増加しており、 K_d がコロイド影響を受けていると考えられる。また、手による振とうよりも機械振とうのほうが高い K_d をとっている。

次に、 $0.8 \mu\text{m}$ ろ過後及び $0.45 \mu\text{m}$ ろ過後のデータについて、コロイド影響を考慮した算出式から K_d' を導出し、上記の K_d とともに下図にプロットした。

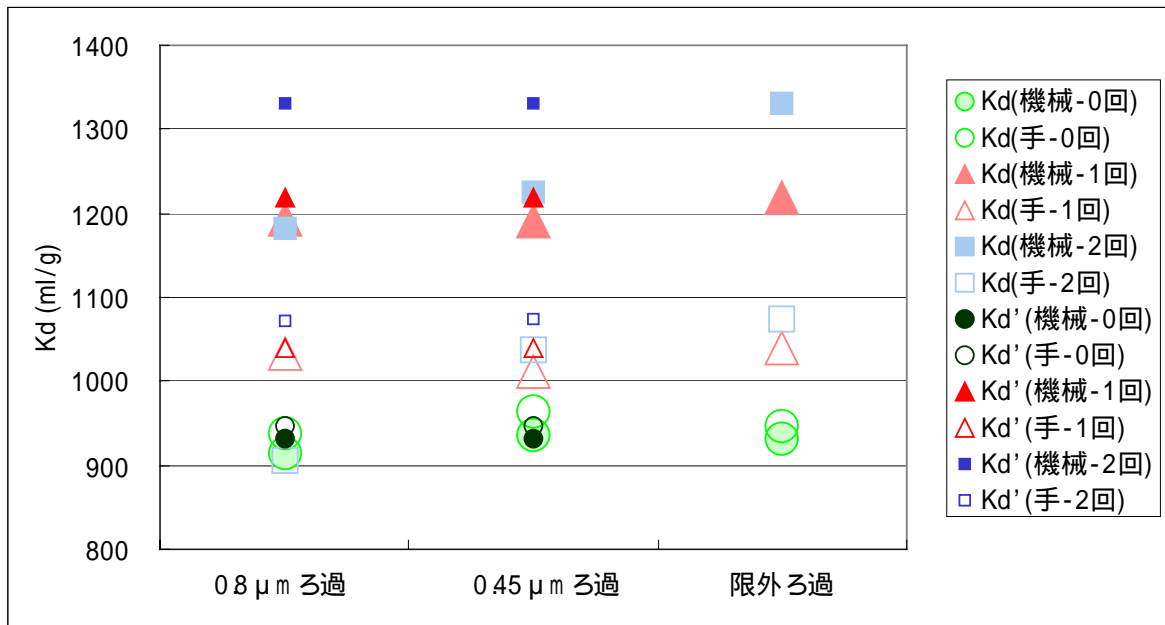


図 8.4-2 降水系地下水の K_d' と K_d の比較

上図から、図 8.4-1 においてコロイド影響があると考えられた 2 回洗浄した試料（機械振とうおよび手による振とう）については K_d と K_d' の相違が大きく、コロイド影響が少ないと考えられた固相洗浄回数 0 回または 1 回の試料については相違が小さいことがわかる。

また、コロイド影響の認められた 2 回洗浄試料に関して、 K_d' は $0.8 \mu\text{m}$ ろ過後と $0.45 \mu\text{m}$ ろ過後でほぼ同じ値を示した。従来式(8.2.2-1)ではコロイドに収着した C_s が有意に存在する場合、それを固相側と液相側のどちらとみなすかにより K_d が有意に変化を示すが、算出式(8.2.2-2)では、コロイドに収着した C_s を計算に入れていないため、すなわちコロイド影響を除外しているためと考えられる。

K_d' はコロイド影響を除外した岩盤-核種間の分配係数であるので、洗浄回数によらず同様な K_d' 値をとるはずであるが、図 8.4-2 においては、洗浄回数の増加とともに K_d' も増加している。収着試験後の固相についての XRD 分析の結果（図 8.3-1）および粒度分布測定の結果（図 8.3-2）から、固相洗浄により固相の鉱物組成および粒度分布に変化をもたらし、それが K_d' に反映された可能性が考えられる。

次に、洗浄回数 2 回の $0.8 \mu\text{m}$ ろ過後の液相試料について、表 8.3-4 の液相分析から

コロイドの種類を CaCO_3 と推測し、その仮定に基づいてコロイド量を計算した。さらに、核種－コロイド間の分配係数 (K_d'' とする) を以下の式(8.4.1-1)により算出した。それらの結果を表 8.4-1 に示す。

$$\text{分配係数 } K_d'' \quad (\text{ml/g}) = \frac{C_1 - C_2}{C_2} \times \frac{V}{M'} \quad \text{式 (8.4.1-1)}$$

C_1 : 平衡後の濃度 ($0.8 \mu\text{m}$ ろ過後)、 C_2 : 平衡後の濃度 (分画分子量 10,000 限外ろ過後)、 M' : コロイド量(g)、 V : 液相の体積 (mL)

表 8.4-1 核種－コロイド間の分配係数 (K_d'')

| 試料No. | 地下水種類 -洗浄回数 | 振とう方法 | 液相体積 (mL) | コロイド量 (CaCO_3) (g) | C_1 ($0.8 \mu\text{m}$ ろ過後) (ppm) | C_2 (限外ろ過後) (ppm) | K_d'' (mL/g) |
|-------|----------------|-------|--------------|-------------------------------------|--|---------------------------|-------------------|
| F-7 | 降水系-2回 | 機械振とう | 50 | 9.96E-05 | 1.19E-01 | 1.18E-01 | 5119 |
| F-8 | 降水系-2回 | 機械振とう | 50 | 1.56E-03 | 1.19E-01 | 1.16E-01 | 826 |
| F-9 | 降水系-2回 | 手振とう | 50 | 1.61E-03 | 1.21E-01 | 1.20E-01 | 296 |

算出された核種－コロイド間の分配係数 K_d'' を、既存の C_s －カルサイト間の分配係数 (例えば、降水系模擬地下水条件でおおよそ 8mL/g 程度[図からの読み取り]、加藤他、2001) と比較した場合には、有意に高い値となるが、カルサイトのように C_s が主として固相粒子表面に収着すると考えられる場合には、比表面積の違いにより説明することが可能である。

しかしながら、実際にはコロイドの種類は上記で仮定したカルサイト 1 種類とは限らず、コロイド粒径も一定範囲内で分布したものとなっていたと考えられる。したがって、収着試験後の液相中のコロイドについて、電子顕微鏡等を用いて種類、量、粒径等のデータを今後、取得することが望まれる。

8.4.2 海水系地下水試料

従来の式から算出した K_d を下図に示す。

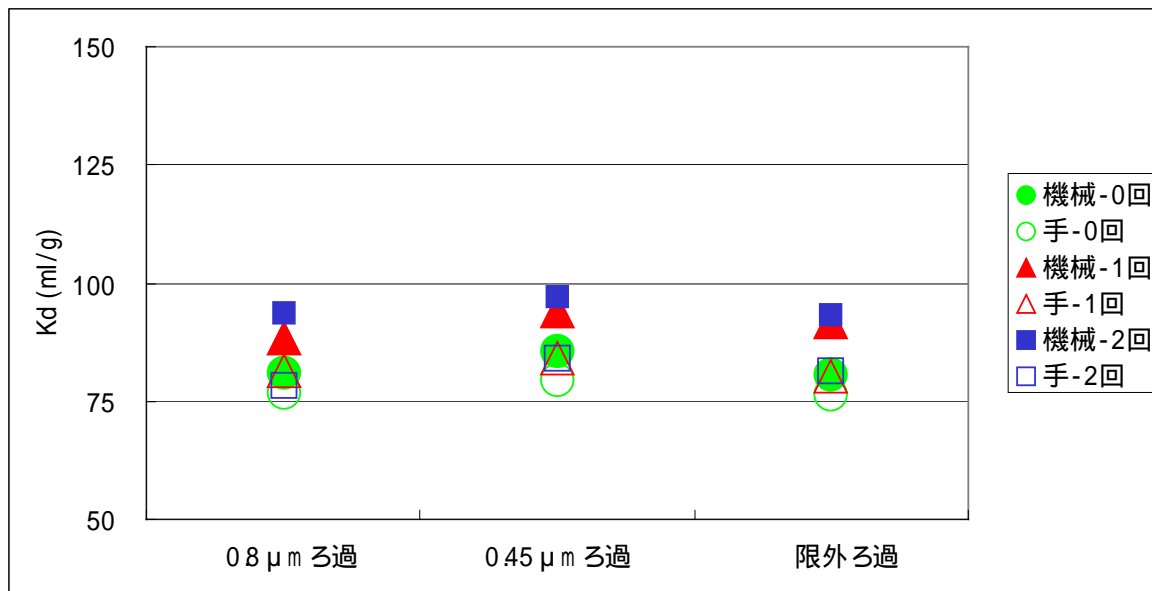


図 8.4-3 海水系地下水の K_d

上図から、いずれの試料についてもろ過方法の違いによる K_d の相違はほとんどなく、したがってコロイド影響についてもほとんどないと考えられる。

機械振とう試料に関して、降水系試料と同様に固相洗浄の回数が 0 回、1 回、2 回と増加するに従いわずかながら K_d の上昇が認められる。しかし、手による振とうの試料についてはそのような傾向はみられない。

次に、0.8 μm ろ過後及び 0.45 μm ろ過後のデータについて、コロイド影響を考慮した算出式から K_d' を導出し、上記の K_d とともに下図にプロットした。

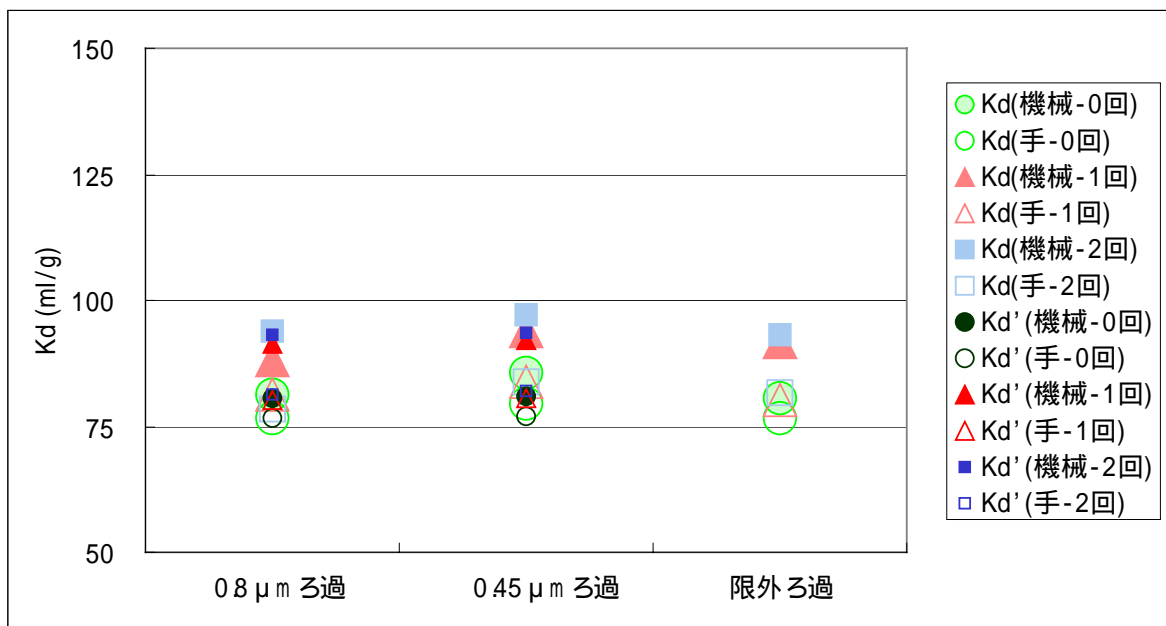


図 8.4-4 海水系地下水の K_d' と K_d の比較

上図から、 $0.8 \mu m$ ろ過後および $0.45 \mu m$ ろ過のいずれの試料についても、 K_d と K_d' の相違がほとんどなく、こちらの図からもコロイド影響はほとんどないことがわかる。海水系地下水のイオン強度（約 $0.2M$ ）は降水系地下水よりもかなり高く、そのためコロイドが安定に存在できないために上記のような試験結果となったと考えられる。

8.5 まとめ

バッチ法による分配係数取得試験におけるコロイド影響を調べるためのデータ取得試験を実施した。降水系地下水を用いた試験については、事前に遠心分離を実施したため、地下水中にもともと含まれていた $0.05\ \mu\text{m}$ 以上の粒径のコロイドは除去されたと考えられる。したがって、試験においてみられたコロイド影響は、主として固相起源のコロイドによるものと考えられる。本試験の結果、以下のことがわかった。

- ・ **Kd** 測定の標準化法では扱われていないが、固相の粉碎の際に生じる微粒子を取り除く目的で一般的に実施される場合がある固相洗浄に関して、洗浄条件によっては固相からのコロイドを発生させ、それが **Kd** に影響を与える場合があることがわかった。したがって、岩種によっては固相の洗浄処理は実施しないほうがよい。
- ・ 分配係数の算出式(8.2.2-2)及び算出式(8.4.1-1)から、それぞれ岩盤-核種間及びコロイド-核種間の **Kd** を求められる可能性が示された。しかしながら、それらの **Kd** 値の妥当性を直接示すデータは現状では得られていない。今後、岩盤-コロイド-核種の3元系及びコロイド-核種の2元系で試験を実施し、液相中のコロイドについて種類、量、粒径等のデータを取得することが望まれる。

9. おわりに

現象理解に基づいた信頼性が高く性能評価と密接に関連したデータベースの整備方策を検討すると共に、地層処分システムの安全評価における核種移行の個別モデルとしてコロイド影響に関する実験及び評価コードの開発、及び解析を行った。

その結果、データベース基盤データ構築手法を検討した。また、収着データベース（JNC-SDB）を用いて、収着係数の信頼度を付与するための手法を改良した。

さらに、コロイドに対する核種収着の可逆・不可逆性評価、コロイドの影響を考慮したモデル（コード）に基づく核種移行モデルの高度化を図るためのデータ・コードの整備を行った。さらに、コロイドの影響を考慮したモデル（コード）に基づいて、コロイドの影響を考慮した核種移行解析に基づく被曝線量評価を行った。

今後はこれらの情報を十分に活用し、より現象に忠実なデータの取得、整備、及び現象理解を進めていく。

10. 参考文献

(6章参考文献)

Ibaraki, M. and E. A. Sudicky: “Colloid-facilitated contaminant transport in discretely fractured porous media 1. Numerical formulation and sensitivity analysis”, Water Resour. Res., Vol.31, No.12, pp.2945–2960 (1995a)

Ibaraki, M. and E. A. Sudicky: “Colloid-facilitated contaminant transport in discretely fractured porous media 2. Fracture network examples”, Water Resour. Res., Vol.31, No.12, pp.2961–2969 (1995b)

(7章参考文献)

NAGRA:“Supporting laboratory experiments with radionuclides and bentonite colloids”, NTB 03-02 (2003)

黒澤進、茨城希、上田真三、油井三和、吉川英樹、亀裂性岩盤中の核種移行に及ぼすコロイドへの核種収着速度の影響、日本原子力学会和文論文誌、Vol.3, No.3, 2004

Ibaraki, M. and E. A. Sudicky: “Colloid-facilitated contaminant transport in discretely fractured porous media 1. Numerical formulation and sensitivity analysis”, Water Resour. Res., Vol.31, No.12, pp.2945–2960 (1995a)

動力炉・核燃料開発事業団：“ハル等廃棄物処分システムの性能評価”、PNC ZJ1211 96-004、(1996)

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－地層処分研究開発第2次取りまとめ－分冊3” JNC TN1400 99-023 (1999)

(8章参考文献)

加藤和之, 他: “天然バリアにおける核種収着メカニズムに関するシステムの検討(Ⅰ)”
日本原子力学会「2001年秋の大会」, (2001)

油井三和, 他: “分配係数の標準的な方法の提案” 日本原子力学会「2004年春の年会」,
(2004)