

ハル・エンドピース廃棄物に含まれる有機物の放射性物質の溶解度及び収着に及ぼす影響について  
( 研究報告 )

2004年7月

核燃料サイクル開発機構  
東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転記する場合は、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)  
2004

ハル・エンドピース廃棄物に含まれる有機物の放射性物質の溶解度及び収着  
に及ぼす影響について  
(研究報告)

本田 明\*, 三原 守弘\*

要旨

T R U廃棄物には再処理プロセスから発生するハル・エンドピースが含まれる。このハル・エンドピースは地層処分が相応しいとされている。サイクル機構の東海再処理工場では、このハル・エンドピース廃棄物にウエス等の有機系の廃棄物が混入していることが知られている。有機物は、セメント系材料によってもたらされるアルカリ性の環境において一部が分解し、有機分子を液相に放出することが考えられる。これらの可溶性有機系分解生成物は、潜在的に放射性核種と錯体を形成する可能性があり、錯体形成により放射性核種の化学形態、溶解度及び収着挙動に影響を及ぼす可能性がある。

そこで、処分時におけるハル・エンドピース廃棄物への混入有機物の影響について含まれる有機物の全量がセルロースと仮定し、核種との相互作用が大きいイソサッカリン酸(ISA)を生成するという保守的な仮定に基づき放射性物質の溶解度及び収着に及ぼす影響の評価を行なった。本書はその評価方法と結果について示すものである。

評価の結果、処分施設中の最大ISA濃度は  $1.3 \times 10^{-6} \text{ mol dm}^{-3}$  であり、ISAの影響が見られないと考えられているISAの濃度 ( $1.0 \times 10^{-6} \text{ mol dm}^{-3}$ ) より、わずかに大きかった。しかし、非常に保守的な仮定のもとで粗い評価を行っていることから、最大ISA濃度  $1.3 \times 10^{-6} \text{ mol dm}^{-3}$  は、実際には核種の溶解度および収着挙動に影響を与えないレベルと考えられる。また、ISA濃度をパラメータとした核種移行解析結果より、ISA濃度が  $10^{-5} \text{ mol dm}^{-3}$  であったとしても10<sup>8</sup>年までの計算において、最大線量は有機物の影響を考慮していない基本ケースのそれより上回ることはなかった。施設外への放出がまったくない状態で有機物全量がISAとなり、施設の空隙水に溶解したとしても、その濃度は  $1.5 \times 10^{-5} \text{ mol dm}^{-3}$  であり、有機物の最大線量に及ぼす影響は小さいと考えられる。

Impact of organic materials in hull-end piece wastes on solubility and sorption of  
radioactive nuclides  
(Research Document)

Akira Honda\* and Mihara Morihiro\*

**Abstract**

Hull and end piece wastes are classified as TRU wastes. These wastes are thought to be adequate to the geological disposal. The hull end-piece wastes generated from Tokai Reprocessing Plant of JNC contain organic materials such as cotton waste. The organic materials can decompose in the repository due to the alkaline condition brought by cementitious material. The soluble organic species can be produced through the alkaline decomposition of the organic wastes. The soluble organic species potentially complex radioactive metal ions. The complexation can affect the solubility and sorption of radioactive nuclides.

In this study, all organic materials contained in hull and end piece wastes were assumed to be cellulose which was also assumed to decompose to iso-saccharinic acid (ISA). ISA can significantly affect the solubility and sorption of radioactive nuclides. Under the assumptions, the effects of organic materials contained in hull and end piece wastes on the solubility and sorption of radioactive nuclides were estimated in a conservative manner.

If the release of ISA from the repository was taken into account, the maximum concentration of ISA in the repository was estimated as  $1.3 \times 10^{-6}$  mol dm<sup>-3</sup> which almost corresponded to be negligible concentration of ISA ( $\sim 1.0 \times 10^{-6}$  mol dm<sup>-3</sup>) in terms of impacts on the solubility and sorption of radioactive nuclides. The maximum doses in performance assessment were unchanged over the range of 0 to  $10^{-5}$  mol dm<sup>-3</sup> in the ISA concentration for  $10^8$  years. The maximum concentration of ISA in the pore water of repository without release was estimated as  $1.5 \times 10^{-5}$  mol dm<sup>-3</sup> which resulted in the negligible change of the maximum doses.

---

\* Materials Research Group, Waste Isolation Research Division, Waste Management and Fuel Cycle Research Center, Tokai Works, Japan Nuclear Cycle Development Institute

目次

1 . はじめに-----	1
2 . 現状の知見の整理-----	1
1 ) ハル・エンドピース廃棄物に含まれる有機物-----	1
2 ) セルロースの分解-----	1
3 ) セルロースの分解により生成した ISA のセメント中における挙動-----	3
4 ) ISA の放射性核種への影響-----	3
3 . 解析・評価-----	4
1 ) 評価のために導入した仮定-----	5
2 ) 有機物量の見積もり-----	5
3 ) 処分施設の設定-----	5
4 ) セメント空隙水中の ISA 濃度の評価-----	6
4 . 結論-----	8
参考文献-----	9
付録 ISA の影響を考慮したハル廃棄体処分における線量評価について-----	付 1(1)

図目次

図 - 1 ISA 濃度の Pu(IV)の溶解度の依存性-----	4
図 - 2 ハル・エンドピースの廃棄体パッケージ-----	6
図 - 3 グループ 2 処分施設空隙水中における ISA 濃度の経時変化-----	8

表目次

表 - 1 セルロースの分解速度式のパラメータ-----	3
表 - 2 セメントに対する ISA の収着パラメータ-----	3
表 - 3 アクチニド元素及び Tc の溶解度上昇係数 (SEF) -----	4
表 - 4 水和セメントペースト量で規格化したセルロース量および空隙量-----	7

## 1. はじめに

TRU廃棄物には再処理プロセスから発生するハル・エンドピースが含まれる。このハル・エンドピースは地層処分が相応しいとされている[1]。サイクル機構の東海再処理工場では、このハル・エンドピース廃棄物にウエス等の有機系の廃棄物が混入していることが知られている[2]。この有機系廃棄物は、分別処理され除去される計画であるが、完全な除去を保証することは困難である。そこで分別過程における除去率を評価し、それに基づき有機物の残存量を見積もっている[2]。

有機物は、セメント系材料によってもたらされるアルカリ性の環境において一部が分解し、有機分子を液相に放出する。これらの可溶性有機系分解生成物は、潜在的に放射性核種と錯体を形成する可能性があり、錯体形成により放射性核種の化学形態、溶解度及び収着挙動に影響を及ぼす可能性がある。

そこで、処分時におけるハル・エンドピース廃棄物への混入有機物の影響について、混入量の見積もりに基づいて、含まれる有機物の全量がセルロースであって、核種との相互作用が大きいイソサッカリン酸(ISA)を生成するという保守的な仮定に基づき放射性物質の溶解度及び収着並びに被ばく線量に及ぼす影響を評価した。本書は、その評価の方法と結果について示すものである。

## 2. 現状の知見の整理

### 1)ハル・エンドピース廃棄物に含まれる有機物

ハル・エンドピース廃棄物に含まれる有機物の含有率は、分別により 0.1wt%以下にできると考えられており[2]、分別後に残存する有機物全体の約 40%がウエスと見積もられている。ウエスの原料が主に木綿であると考ええると、残存有機物のかなりの割合がセルロースである可能性がある。

### 2)セルロースの分解

セルロースは、植物細胞壁の主成分をなす多糖であって、植物繊維起源の有機物(木綿、紙、木材等)に一般的に含まれる。このセルロースはアルカリ性の環境において主にpeeling off反応(セルロース繊維の還元性末端からグルコースモノマーが引き剥がされる反応)とグリコシド結合の塩基触媒作用による切断の二つの過程により分解されるが、室温程度ではpeeling off反応が主たる分解プロセスであり、その結果としてイソサッカリン酸( $\text{CH}_2\text{OHCHOHCH}_2\text{COHCH}_2\text{OHCOOH}$ ; 以下ISAという)が生じる[3]。このISAは他の有機系廃棄物の分解生成物と比較して、核種の化学形態や収着に対してはるかに大きな影響を及ぼすとされる[4]。

セルロースは、その 10%がpeeling off反応により  $10^5$ 年以内に分解され、その後  $10^5$ - $10^6$ 年の間はアルカリ加水分解が支配的になると言われている[3]。セルロース分子鎖は分子間及び分子内水素結合により繊維状に配列され、セルロースの微小繊維を形成している。この繊維には結晶部分と非晶質部分があり、アルカリ分解は非晶質部分で起こる。セルロース分子のpeeling off反応過

程は、二つの競合過程に支配される。ひとつは、セルロース分子が、グルコースモノマー単位で除かれていく過程であり、もうひとつは停止過程である。停止過程には、還元性末端が安定なメタサッカリン酸基に形態化する化学過程と還元性末端が結晶部分に到達する物理過程がある。

セルロースの分解割合の時間変化は式(1)により表される[3]。

$$F_{CD} = (k_1/k_t) (G_r)_0 (1 - e^{-k_t \cdot t}) \quad (1)$$

ここで、 $F_{CD}$ :分解時間 $t$ 後のセルロース分解分率、 $k_1$ :peeling off反応の一次反応速度定数、 $k_t$ :全停止反応の一次反応速度定数、 $(G_r)_0$ :セルロース中の還元性末端のモル分率である。無限時間経過後の $F_{CD}$ がセルロースの最大分解分率 $F_{CD,MAX}$ であるから(1)式より、セルロースの最大分解分率 $F_{CD,MAX}$ は式(2)のようである。

$$F_{CD,MAX} = (k_1/k_t) (G_r)_0 \quad (2)$$

ここで、 $(G_r)_0$ は還元性末端の数をセルロース鎖内のグルコースユニット数で除した数であるから、 $n$ 個のグルコースユニットを含むセルロース分子(重合度 $DP = n$ )ひとつに還元性末端がひとつあるため、 $(G_r)_0$ :セルロース中の還元性末端のモル分率は、(3)式のようである。

$$(G_r)_0 = 1/(DP) \quad (3)$$

したがって、セルロースの重合度 $DP$ 、 $k_1$ :peeling off反応の一次反応速度定数、 $k_t$ :全停止反応の一次反応速度定数が分かれば、セルロースの最大分解分率 $F_{CD,MAX}$ を算定することができる。ただし長期的には後述するようにグリコシド結合の塩基触媒作用を加味してセルロースの分解率を評価することが必要である。

Peeling off 反応とは別に、グリコシド結合の塩基触媒作用による切断による分解過程がある。この過程により新たな還元性末端が生成されるため、Peeling off 過程と切り離して考えることはできない[3]。この過程の速度は(4)式のようである。

$$\ln(Y) = -k_{obs} x_n t \quad (4)$$

ここで、 $Y$ :未反応のセルロースの割合、 $t$ :時間(h)、 $k_{obs}$ :反応速度定数( $h^{-1}$ )および $x_n$ :peeling offされたグルコースユニット数の平均値である。

式(2)及び式(4)を組み合わせることで式(5)が得られる[3]。

$$Frc = [1 - (k_1/k_t) (G_r)_0 (1 - e^{-k_t \cdot t})] e^{-k_{obs} x_n t} \quad (5)$$

Van Loonら[3]は既往の研究成果に基づき式(5)のパラメータを決定し、セルロースの分解割合の時間依存性を算定した。放射性廃棄物に含まれるセルロース(紙および木綿)の平均重合度 $DP_{AVE}$

は、既往の研究[5,6]から 1000 であるとした。また[OH<sup>-</sup>]が 0.3mol dm<sup>-3</sup>(セメントのRegion Iの pH(= 13.5)に相当)の 25 におけるk<sub>obs</sub> x<sub>n</sub>を 5.25 x 10<sup>-11</sup>h<sup>-1</sup>と算定した。Peeling off反応速度に関する定数k<sub>1</sub>およびk<sub>t</sub>は、[OH<sup>-</sup>]:0.3 mol dm<sup>-3</sup>, 25 で、それぞれ 3.65 x 10<sup>-2</sup> h<sup>-1</sup>および 6.91 x 10<sup>-4</sup> h<sup>-1</sup>と算定された。これらのパラメータを表 1 に示す。

表 - 1 セルロースの分解速度式のパラメータ ([OH<sup>-</sup>]:0.3 mol dm<sup>-3</sup>, 25 )

放射性廃棄物に含まれるセルロースの平均重合度DP <sub>AVE</sub>	1000
k <sub>obs</sub> x <sub>n</sub>	5.25 x 10 <sup>-11</sup> h <sup>-1</sup>
k <sub>1</sub>	3.65 x 10 <sup>-2</sup> h <sup>-1</sup>
k <sub>t</sub>	6.91 x 10 <sup>-4</sup> h <sup>-1</sup>

\*SI 単位系ではないが原典にしたがう。

### 3) セルロースの分解により生成した ISA の水和普通ポルトランドセメント中における挙動

ISA はカルシウムと塩を生成する[7]。この塩の解離平衡は式(6)のように表される。



化学反応式(6)の平衡定数log K<sub>ca,ISA</sub>は、イオン強度I=0 で、-6.22 ± 0.03 とされている[8]。これに基づきpH13.3 のセメント空隙水中のCa(ISA)<sub>2</sub>のセメント空隙水中 ( Ca(OH)<sub>2</sub>共存の条 ) における溶解度は 0.05-0.1 mol dm<sup>-3</sup>と算定された[8]。したがってセメント中ではISAの濃度は、まず Ca(ISA)<sub>2</sub>の溶解度支配を受けるため、0.05-0.1 mol dm<sup>-3</sup>程度以下になる。

また、ISA は普通ポルトランドセメントペースト(OPC ペースト)硬化体表面に強く吸着されるとされており、吸着挙動は二つのサイトへの吸着を仮定した Langmuir 型の吸着等温線で示される(式(7)参照)[9]。

$$q = q_1 K_1 (\text{ISA})_{\text{eq}} / (1 + K_1 (\text{ISA})_{\text{eq}}) + q_2 K_2 (\text{ISA})_{\text{eq}} / (1 + K_2 (\text{ISA})_{\text{eq}}) \quad (7)$$

ここで、q:OPCペースト硬化体に吸着されるISAの量(mol Kg<sup>-1</sup>)、q<sub>1</sub>およびq<sub>2</sub>:それぞれのサイトの吸着容量(mol Kg<sup>-1</sup>)、K<sub>1</sub>およびK<sub>2</sub>:それぞれのサイトの吸着係数(l mol<sup>-1</sup>)、(ISA)<sub>eq</sub>:ISAの平衡濃度(mol l<sup>-1</sup>)である。表 2 にOPCペースト硬化体に対するISAの吸着パラメータ[9]を示す。

表 - 2 セメントに対する ISA の吸着パラメータ[9]

サイト	に対するISAの吸着容量q <sub>1</sub> (mol Kg <sup>-1</sup> )	0.1 ± 0.01
サイト	に対するISAの吸着容量q <sub>2</sub> (mol Kg <sup>-1</sup> )	0.17 ± 0.02
サイト	に対するISAの吸着係数K <sub>1</sub> (l mol <sup>-1</sup> )	1730 ± 385
サイト	に対するISAの吸着係数K <sub>2</sub> (l mol <sup>-1</sup> )	12 ± 4

\*SI 単位系ではないが原典にしたがう。

### 4) ISA の放射性核種への影響

Bradbury et al.[4]は、Greenfield et al.[10]の実験的研究結果に基づき、保守的な仮定のもとで核種の溶解度及び吸着挙動に及ぼすISAの影響を評価した。評価の基となったISA濃度のPu(IV)の溶解度依存性を図 - 1 に示す。この図より、ISA濃度が 10<sup>-6</sup>mol dm<sup>-3</sup>以下であれば、Pu(IV)の



溶解度へのISAの影響はないことがわかる。

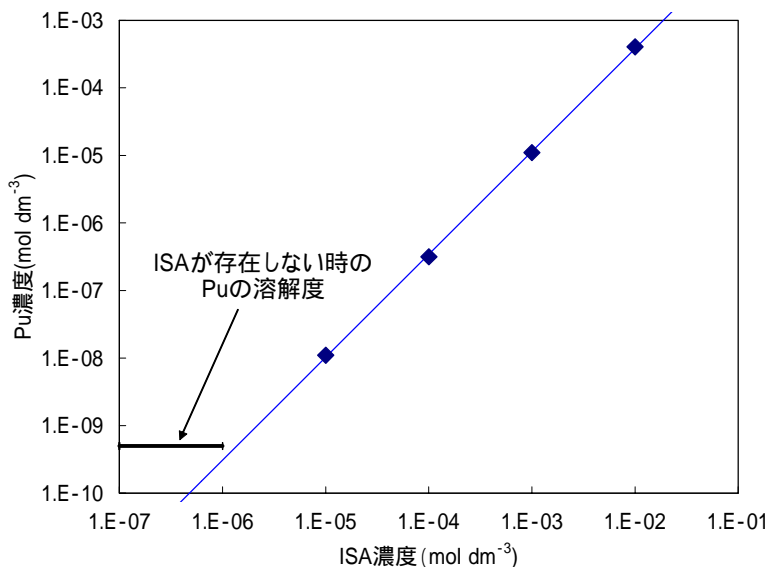


図 - 1 ISA 濃度の Pu(IV)の溶解度の依存性  
( : Greenfield et al.の実測値)

この結果等を基に Bradbury et al.は保守的な仮定の基,ISA の濃度に応じて表 - 3 に示すアクチノイド元素及び Tc の溶解度上昇係数 (SEF : Solubility Enhancement Factor) を提案した。この結果を基に収着係数低下係数 (SRF : Sorption Reducing Factor) を SEF の逆数として提案した。

表 - 3 アクチノイド元素及び Tc の溶解度上昇係数 (SEF)

ISA 濃度 (mol dm <sup>-3</sup> )	Pu(IV)	Am(III)	Th(IV)	U(VI)	Np(IV)	Tc(IV)
10 <sup>-6</sup>	1	1	1	1	1	1
10 <sup>-5</sup>	20	20	20	1	1	1
10 <sup>-4</sup>	500	500	2	2	2	1
10 <sup>-3</sup>	20000	20000	20000	100	100	10
10 <sup>-2</sup>	1000000	1000000	1000000	5000	5000	500

上述したようにISA濃度が 10<sup>-6</sup>mol dm<sup>-3</sup>以下であれば,核種の溶解度や収着分配係数に影響を及ぼさない。

### 3 . 解析・評価

評価においては,以下の仮定に基づきグループ 2 廃棄物の処分坑道の廃棄体部分 (コンクリー

トパッケージからハルキャスタの体積を除去した部分)の間隙水中に存在する ISA の濃度を評価し、前述の ISA 濃度と放射性物質の溶解度及び収着係数の関係[3]と比較・対照することにより、ハル・エンドピース廃棄物中に混入する有機物の影響を評価した。

また TRU 廃棄物処分における線量支配核種は、そもそも可溶性で ISA の影響しない I-129 や C-14 であるため、ISA の影響により多少アクチノイドの溶解度上昇や収着係数の低下があっても、最大被ばく線量は影響を受けない可能性がある。このため処分施設内の ISA 濃度が上昇した場合の影響についても評価した。その評価の方法と結果については付録に示した。

### 1)評価のために導入した仮定

このような評価を行う上で以下の仮定を導入した。

ハル・エンドピース廃棄物には 0.1wt%の有機物が含まれる。

ハル・エンドピースに含まれる廃棄物は、保守的にすべてセルロースであり、ISA は(分解したセルロース重量(g))(ISA の分子量;180.16)モルだけ生成するとした。その重合度 DP は 1000 と仮定した。セルロースは表 1 のパラメータを用いた分解反応速度式(5)に従い分解する。

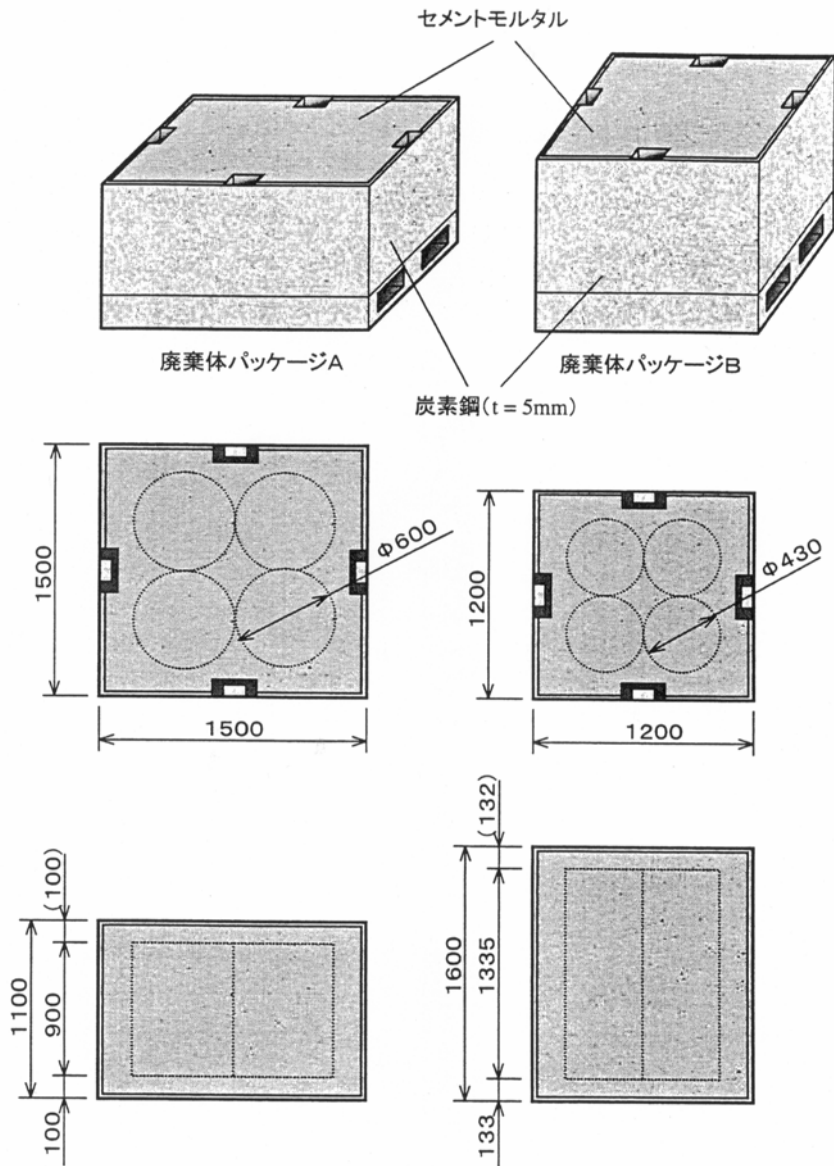
生成した ISA は、式(7)および表 2 のパラメータにより規定される条件で、水和セメントペーストと瞬時収着平衡に達する。骨材への収着は考慮しない方が保守的であるため無視した。

### 2)有機物の見積もり

ハル・エンドピース廃棄物には、ウエス、紙、導線の被覆等の種々の有機系廃棄物が含まれている。この有機物は分別処理した後も、当該廃棄物全体の 0.08wt%程度が残存すると見積もられている。サイクル機構から発生するハル・エンドピースの総量は 190L ハルキャニスタ換算で、2000 本と見積もった。ハルキャニスタ 1 本に充填される廃棄物量は 700kg と考えられている。ここにサイクル機構のハル・エンドピース廃棄物の 0.1wt%が有機系廃棄物であると仮定すると、190L ハルキャニスタ 1 本あたり 0.7kg の有機物が含まれる。これが 2000 本存在すると仮定するとハル・エンドピース廃棄物に含まれる有機物量は 1400 kg である。これがすべてセルロースであり、上記仮定に基づけば、全量分解した場合の総 ISA 量は約 7780 mol である。

### 3)処分施設の設定

ハル・エンドピースの処分施設(グループ 2 の処分施設)のうち廃棄体パッケージの空隙部分に ISA が溶出すると仮定して検討を行う。ただし、ハルキャニスタ内部及び構造躯体の空隙は保守的に無視した。このため、処分施設のうち廃棄体パッケージ部分のモデル化を行う。処分施設に搬入されるハル・エンドピース廃棄体の総量は 190L ハルキャニスタ換算で 20000 本と仮定する。JNC 以外のハル・エンドピース廃棄物には有機物は含まれないと見なす。ハルキャニスタの大きさは 0.43 x 1.335m の円筒系とした。このハルキャニスタ 4 本が、1.2 x 1.2 x 1.6m の直方体のコンクリート製パッケージに収納され、空隙はモルタルが充填される(図 2 参照)。パッケージの総数は 5000 体(20000 本/4 本)である。コンクリート部分および充填モルタル部分の真密度は 2500kg m<sup>-3</sup>、空隙割合は 0.15 と仮定した。またコンクリートおよびモルタルに占める水和セメントペーストの重量割合は 18wt%とした。ハルキャニスタ 4 本分の体積を除いたパッケージ 1 体の体積は 1.53m<sup>3</sup>であり、パッケージ 1 体あたりの空隙の体積は 0.230 m<sup>3</sup>である。したがってハル・エンドピースの処分施設におけるセメントペースト部分の総量及び空隙の総量は、それぞれ 2.93 x 10<sup>6</sup> kg 及び 1150 m<sup>3</sup>である。



単位：mm

図 2 ハル・エンドピースの廃棄体パッケージ

#### 4)セメント空隙水中の ISA 濃度の評価

OPC ペースト硬化体への収着を評価するため本章の 2)3)の設定に基づき、グループ 2 処分施設に持ち込まれるセルロスおよび空隙を OPC ペースト硬化体の重量で規格化した。その結果を表 4 に示す。

表 - 4 水和セメントペースト量で規格化したセルロース量および空隙量

規格化セルロース量(kg kg <sup>-1</sup> )	4.79 x 10 <sup>-4</sup> (ISA換算量 2.66 x 10 <sup>-3</sup> mol kg <sup>-1</sup> )
規格化空隙量(dm <sup>3</sup> kg <sup>-1</sup> )	3.94 x 10 <sup>-1</sup>

上記の仮定にしたがい、有機物（セルロース）が分解し、OPCペースト硬化体に収着した場合の空隙水中のISA濃度を算定した。式(7)は十分 $(ISA)_{eq}$ が小さい条件では(8)式で近似できる。

$$q = q_1 K_1 (ISA)_{eq} + q_2 K_2 (ISA)_{eq} \quad (8)$$

この近似は、表2のパラメータを使用した場合に $(ISA)_{eq} < 5.0 \times 10^{-4} \text{ mol dm}^{-3}$ の条件で、誤差は10%以内である。式(8)にしたがいISAがOPCペースト硬化体に収着すると仮定し、パッケージ空隙中のISAの平衡濃度を計算した。また、物質輸送による処分場外へのISAの放出を考慮したケースも検討した。処分場外へのISAの放出については以下の方法で検討した。まずグループ2の処分施設の現時点における設計例[1]に基づき、廃棄体領域空隙中のISA濃度一定の条件で核種移行計算コードTIGER[11]により定常放出速度を算定した。ISAは陰イオンとして間隙水中に存在するため、ヨウ素（I-）と同じ実効拡散係数を用い、その他の解析条件はTRU廃棄物処分概念検討書の結晶質岩の処分概念と同じとした[1]。この計算を、ISA濃度を変えて繰り返し、廃棄体領域空隙中のISA濃度とグループ2処分施設からのISA定常放出速度との関係性を評価した。その結果、式(9)を得た。

$$R_{ISA} = 1.955 \times 10^3 \cdot (ISA)_{eq} \quad (9)$$

ここで、 $R_{ISA}$ :グループ2処分施設からのISA放出速度(mol/y),  $(ISA)_{eq}$ :廃棄体空隙中の平衡ISA濃度[mol dm<sup>-3</sup>]である。

(9)式にしたがい処分施設内のISAのインベントリを減じることで物質輸送の影響を反映した。式(6)、式(8)および式(9)は相互に関連するため、これらの式を満足する空隙水中のISA濃度を決定した。その結果を図1に示す。図1に示される全ての条件で $(ISA)_{eq} < 5.0 \times 10^{-4} \text{ mol dm}^{-3}$ なる条件は満たされるため、式(8)の吸着等温式の単純化による誤差は10%以内である。

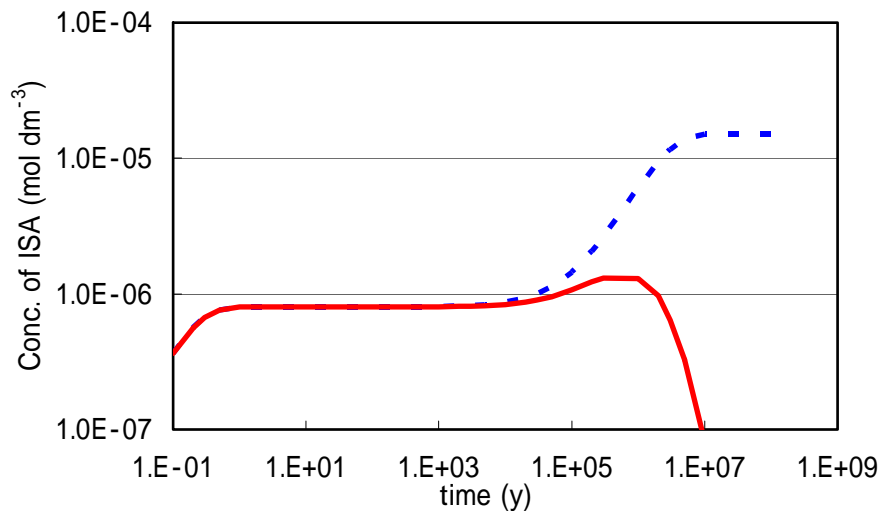


図-3 グループ2処分施設空隙水中における  
ISA濃度の経時変化  
(破線:施設外への放出なし、実線:施設外への放出あり)

図-3 に示すように放出の有無によらず約  $10^4$ 年までは,ISA濃度は  $8.0 \times 10^{-7} \text{ mol dm}^{-3}$ 以下に維持される。放出を考慮しないケースでは時間の経過とともにISA濃度が上昇し、 $10^7$ 年頃にセルコース全量が分解して反応が終了した。このときの終点の濃度は、全期間を通じて最大であり、約  $1.5 \times 10^{-5} \text{ mol dm}^{-3}$ 程度であった。これに対して放出を考慮したケースでは $10^4$ 年頃まで  $8.0 \times 10^{-7} \text{ mol dm}^{-3}$ の濃度を維持した後、わずかに上昇し  $10^6$ 年ごろ極大値( $1.3 \times 10^{-6} \text{ mol dm}^{-3}$ )を示した。その後、時間の経過とともに低下し、 $10^7$ 年頃枯渇した。

したがって、25 でpH13.5の条件で生成したISAの放出を考慮すると、核種の溶解度および収着挙動に影響のないISA濃度  $1.0 \times 10^{-6} \text{ mol dm}^{-3}$ [4]とほぼ同じレベルであり、このような場合には、顕著なISAの影響はないと考えられる。

また処分施設全領域において、ISAの濃度を  $10^{-5} \text{ mol dm}^{-3}$  -  $10^{-4} \text{ mol dm}^{-3}$ の範囲の一定値と仮定して、ISAの影響を見込んだ核種移行解析を実施した(付録参照)。この結果よりISA濃度が  $10^{-4} \text{ mol dm}^{-3}$ であったとしても  $10^8$ 年までの計算において、最大線量はISAの影響を考慮していない基本ケースとほとんど同じであった。したがってISAの放出を考慮しないとしても、ハル・エンドピース廃棄物による最大線量にISAは影響を及ぼさないと評価された。

#### 4.結論

2章4)に示したように核種の溶解度および収着挙動に影響のないISA濃度  $1.0 \times 10^{-6} \text{ mol dm}^{-3}$ [4]に対して、グループ2処分施設中の最大ISA濃度は  $1.3 \times 10^{-6} \text{ mol dm}^{-3}$ であり、わずかに大きかった。しかしBradburyら[4]も述べているように、非常に保守的な仮定のもとで粗い評価

を行っていることから、最大ISA濃度  $1.3 \times 10^{-6} \text{ mol dm}^{-3}$  は核種の溶解度および収着挙動に影響を与えないレベルと考えられる。また付録に示すようにISA濃度をパラメータとした核種移行解析結果より、ISA濃度が  $10^{-4} \text{ mol dm}^{-3}$  であったとしても10<sup>8</sup>年までの計算において、最大線量は有機物の影響を考慮していない基本ケースとほぼ同等であった。したがって施設外へのISAの放出がない場合でも、ISA濃度は  $1.5 \times 10^{-5} \text{ mol dm}^{-3}$  であり、最大線量に対する影響が認められないISA濃度  $10^{-4} \text{ mol dm}^{-3}$  を下回る濃度であった。

したがって、サイクル機構分のハル・エンドピースに含まれる有機物が、核種の溶解度や収着に影響を及ぼす可能性は低い。また、たとえ核種の溶解度や収着に影響を与えたとしても、被ばく線量の最大値に対して顕著な影響を示す可能性は低いと考えられる。

ただし、本評価では、ISAの収着固相であるセメントペースト硬化体部分の経時的变化や温度の影響を考慮していないため、このような評価に含めていない事象の影響等による不確実性があることを認識しておく必要がある。

## 参考文献

- [1] 核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会 共同作業チーム：“TRU 廃棄物処分概念検討書”，JNC TY1400-001, p.2-26(2000).
- [2] 倉形光一郎，他：“ハル缶廃棄物選別試験(2) -ハル等廃棄物有機物除去試験-”，PNC ZN 8410 2000-010,(1996).
- [3] L.R. Van Loon and M.A. Glaus : Journal of Environmental Polymer Degradation, Vol.5, No.2, pp.97-109(1997).
- [4] M.H. Bradbury and F.-A. Sarott : Sorption Databases for the Cementitious Near-Field of a L/ILW Repository for Performance Assessment, Nagra Technical Report NTB 93-08(1994).
- [5] N. Morohosi : Wood and Cellulosic Chemistry, D.N.-S. Hon and N. Shiraishi eds., Marcel Dekker, New York and Basel, pp.331-392(1991).
- [6] D.A.I. Goring and T.E. Timell:TAPPI45, 454-460(1962).
- [7] R.L. Whistler and J.N. BeMiller : -D-Isosaccharino-1,4-lactone : Action of lime water on Lactose, In Methods in Carbohydrate Chemistry (Eds. M.L. Wolfrom, J.N. Bemiller), Vol. : Reactions of Carbohydrates, 477(1963).
- [8] L.R. Van Loon and M. Glaus : The solubility Ca-Gluconate and Ca-Isosaccharinate, Internal Technical Report TM-44-95-06, Paul Scherrer Institute, Villigen, CH(1995).
- [9] L.R. Van Loon, M.A. Glaus, S. Stallone and Laube : Sorption of Isosaccharinic Acid, a Cellulose Degradation Product, on Cement, Environmental Science and Technology, Vol.31, No.4, pp.1243-1245(1997).
- [10] B. Greenfield, M. Spindler and D. Woodwark : Summary of the effects of organic degradation products on near-field radionuclide chemistry. -UK Nirex Ltd Report NSS/R298, Harwell, UK(Contractor approved1992, Commercial in Confidence)(1992).

**JNC TN8400 2004-011**

- [11] 三原 守弘 ,大井 貴夫 :“ パラメータの時間的变化を考慮した核種移行解析コード(TIGER)の開発 ” ,サイクル機構技報 JNC TN1340 2003-006, No.22, p.27(2004).

## ISAの影響を考慮したハル廃棄体処分における線量評価について

## 1. はじめに

ハル・エンドピース廃棄体中に有機物が存在することによる当該廃棄物処分の安全性への影響を把握する一環として、ISAの影響を考慮したハル廃棄体処分における線量評価を実施した。

## 2. 方法

ISAの濃度が処分施設全域(人工バリア及び天然バリア全域)において均一であると仮定した。ISAの濃度を  $10^{-5}$  mol dm<sup>-3</sup>、 $2.5 \times 10^{-5}$  mol dm<sup>-3</sup>及び  $10^{-4}$  mol dm<sup>-3</sup>と想定し、処分システムにおける核種移行解析を実施し、線量評価を行なった。核種移行に及ぼすISAの影響として、核種の溶解度の上昇及び各バリア材料に対する収着分配係数の低下を考慮するものとした。Bradbury and Sarottは、ISA濃度によってアクチニド元素の溶解度上昇係数 (Solubility Enhancement Factor: SEF) 及び収着分配係数低下係数(Sorption Reducing Factor: SRF)を提案しており[A1]、この考え方に準じるものとした。例えばISAの濃度が  $10^{-5}$  mol dm<sup>-3</sup>場合、Pu(IV)のSEF=20, SRF=0.05を設定する (SEF=20, SRF=0.05の場合、有機物の影響が無いケースに対して溶解度を20倍に、収着分配係数を0.05倍に設定する。本文表-3参照。)

評価対象とする処分概念として、TRU廃棄物処分概念検討書の線量評価において保守的な結果を与えている結晶質岩における処分概念を想定した[A2]。核種移行解析コードとしてTIGERコードを用いた[A3]。TRU廃棄物処分概念検討書における基本ケース (Case0) では、ガスの影響も考慮した解析になっているが、その影響は認められなかった。解析を単純にするためにガスの影響を除きCase0と同様なパラメータ設定[A2]で解析を行なった。ISAの影響を考慮したケース (ISA:  $10^{-5}$  mol dm<sup>-3</sup>、 $2.5 \times 10^{-5}$  mol dm<sup>-3</sup>及び  $10^{-4}$  mol dm<sup>-3</sup>)及び比較のため有機物の影響を考慮していないケース (Base) についても解析を行なった。

## 3. 解析結果

ISAの影響を考慮していないケース (Base) 及び上述したような設定で有機物の影響を考慮したケースの評価結果を図-A1にまとめる。

有機物の影響を想定し、核種の溶解度の上昇及び各バリア材料に対する収着分配係数の低下を考慮することにより、線量への影響が見られた。ISA濃度  $10^{-5}$  mol dm<sup>-3</sup>の場合、基本ケースに比べ、10<sup>4</sup>年の線量のピーク以外に10<sup>6</sup>年でも線量のピークが見られた。しかしながら10<sup>6</sup>年のピークは10<sup>4</sup>年のピークより低い値であり、線量の最大値自体はほとんど変化しない。ISA濃度が  $2.5 \times 10^{-5}$  mol/Lの場合は、3つのピークが見られるが、基本ケースと比較して10<sup>4</sup>年のピーク高さは変わらず、他のピークの高さは10<sup>4</sup>年のピークと比較して低い。したがって線量の最大値は基本ケースと同じであった。ISA濃度が  $10^{-4}$  mol/Lの場合は、ISA濃度がもっと低い場合と比較してピーク自体の区別があいまいになり、全体にひとつのピークになりつつあるように見える。しかしながら、基本ケースと比較して線量の最大値は、ほとんど変化しない。



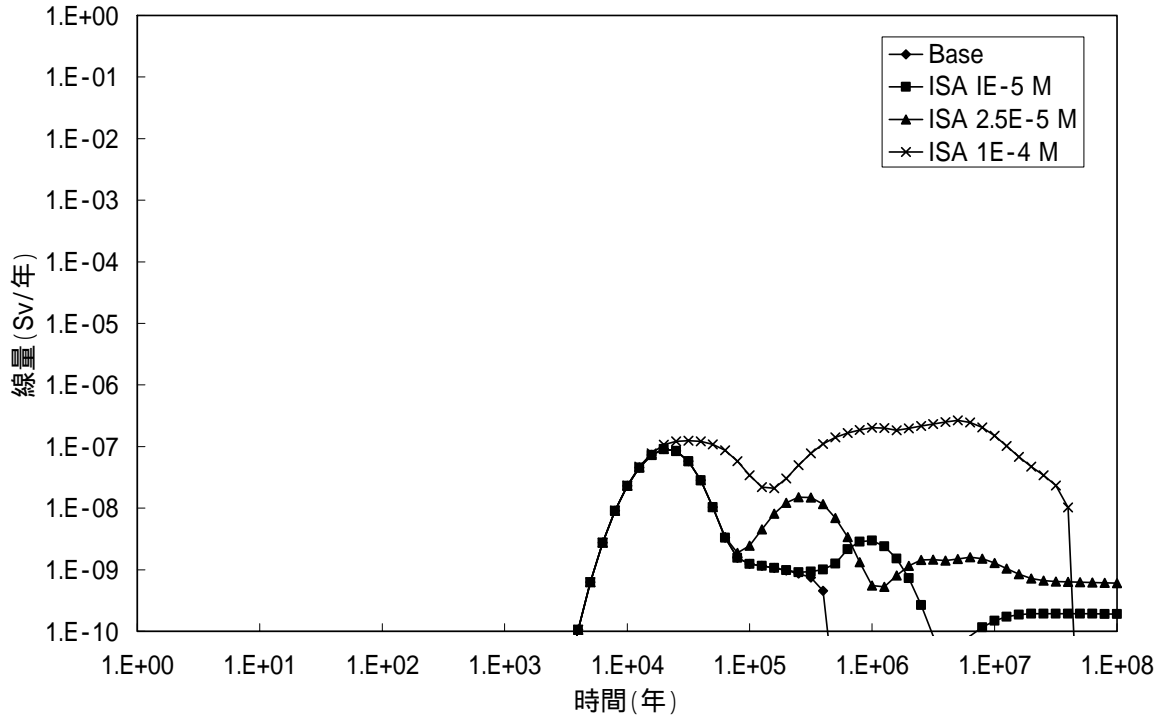


図 A1 各ケースの比較

[A1] M.H. Bradbury and F.-A. Sarott : Sorption Databases for the Cementitious Near-Field of a L/ILW Repository for Performance Assessment, Nagra Technical Report NTB 93-08(1994).

[A2] 核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会 共同作業チーム：“TRU 廃棄物処分概念検討書”，JNC TY1400-001, p.2-26(2000).

[A3] [11] 三原 守弘，大井 貴夫：“パラメータの時間的变化を考慮した核種移行解析コード(TIGER)の開発”，サイクル機構技報 JNC TN1340 2003-006, No.22, p.27(2004).