

# 核種移行データベースの開発研究(Ⅱ)

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究報告書)

## 要約版

1998年2月

三菱マテリアル株式会社

この資料は、動燃事業団の開発業務を進めるため、限られた関係者だけに配布するものです。従って、その取扱には十分注意を払って下さい。なお、この資料の供覧、複製、転載、引用等には事業団の承認が必要です。また今回の配布目的以外のことには使用しないよう注意して下さい。

This document is not intended for publication. No public reference nor disclosure to the third party should be made without prior written consent of Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

本資料についての問合せは下記に願います。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団

技術管理部 技術情報室

核種移行データベースの開発研究(Ⅱ)

上田 真三\*

要旨

動力炉・核燃料開発事業団では、2000年3月までに性能評価レポートを作成する予定である。本研究は、レポート作成にあたって必要とされる核種移行データベース及び評価用モデルを整備することを目的として平成8年度に引き続き実施したものである。主な実施内容を以下に示す。

1. 重要元素の核種移行データベースの整備

21 元素に対し、 $\text{OH}^-$ 、 $\text{CO}_3^{2-}$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{F}^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{PO}_4^{3-}$ を対象とした溶液中の化学種及び固相のデータ整備及びその国際的専門家のレビューを行った。また、岩石などへの17元素の収着データ及び7元素の拡散データ整備を行った。ベントナイトに関しては Pu の収着及び拡散データベースの整備を行った。

2. データベース整備に係わるデータ取得

ベントナイト、花崗閃緑岩、凝灰岩を対象に Th の収着試験を実施した。またベントナイトを対象に Ra、Np、Tc、U、ケイ砂混合ベントナイトを対象に Cs、Se、Ni の拡散試験を実施した。

3. ベントナイトの間隙水水質推定モデルの検討

イオン交換モデルにおける吸着化学種の活量補正について評価を行った。また空隙水組成に及ぼす不純物の影響に検討し、空隙水 pH に対して方解石、石膏、硫化鉄の存在が影響することを明らかにした。

4. コロイドの核種移行に与える影響の評価

Hwang らのモデルを確証するためのデータ取得試験を実施するとともに、コロイドの存在が核種移行に与える影響の評価を行った。

---

本報告書は、三菱マテリアル株式会社が動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究成果報告書である。

契約番号:090D0169

事業団担当課室及び担当者:東海事業所環境技術開発部地層処分開発室 柴田雅博

\*三菱マテリアル(株)那珂エネルギー研究所

Development of Database System for Performance Assessment(II)

Shinzo Ueta\*

Abstract

PNC is planning to submit a Performance Assessment Report by March 2000. This research was carried out succeeding the research last year in order to prepare the database for nuclide migration analysis and its modeling. The main results are as follows.

1. Nuclide migration database preparation for important nuclides

Thermodynamic database of 21 elements was developed, focusing on the formation of complexes and/or compounds with the hydrate, carbonate, chloride, fluoride, sulfate, and phosphate. The database was reviewed by international researchers. Rock sorption database of 17 elements and diffusion database of 7 elements were prepared. Bentonite sorption and diffusion databases of Pu were prepared.

2. Data acquisition for database

Sorption experiments for Th and diffusion experiments for Cs, Se, Ni, Ra, Tc, Np, and U were carried out.

3. Modeling study for prediction of bentonite porewater chemistry

Different approaches commonly used for ion exchange modeling are evaluated. And sensitivity analyses for the effect of impurities in compacted bentonite were performed.

4. Estimation of colloid influence on nuclide migration

Colloid migration behavior was calculated by using Hwang's model.

---

Work performed by Mitsubishi Materials Corporation under with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

Contract No. : 090D0169

PNC Liaison : Mr. Masahiro Shibata , Geological Isolation Development Section.

\*Naka Energy Research Center, Mitsubishi Materials Corporation

## 目次

1. 研究目的	1
2. 実施項目	1
3. 実施内容	1
3.1 重要元素の核種移行データベースの整備	1
3.1.1 熱力学データベースの整備	1
3.1.2 ベントナイトおよび岩石への収着／拡散データベースの整備	4
3.2 データベース整備に係わるデータ取得	6
3.2.1 目的	6
3.2.2 試験項目	6
3.2.3 試験内容	
(1) ベントナイトおよび地質媒体に対する Th の収着試験	6
(2) ベントナイト中での核種の拡散試験	15
(3) ケイ砂混合ベントナイト中での核種の拡散試験	23
3.3 ベントナイトの間隙水水質推定モデルの検討	25
3.4 コロイドの核種移行に与える影響の評価	27
3.4.1 目的	27
3.4.2 実施項目	27
3.4.3 実施内容	27
(1) コロイド－溶質－岩石間の 3 相間の相互作用を考慮した解析モデルの確証	27
(2) 処分条件でのコロイドの影響の予測評価	36
(3) 崩壊連鎖を伴うコロイド共存下での核種移行	40
4. まとめ	46

## 図目次

図 3.2.3-1 Th 吸着試験フロー	8
図 3.2.3-2 吸着試験バッチ液相の濃度変化から算出した Th の分配係数	13
図 3.2.3-3 吸着試験バッチ固相の Th 濃度から算出された Th の分配係数	14
図 3.2.3-4 ストック溶液の作製および拡散試験フロー	17
図 3.2.3-5(1) Ra-226 の見かけの拡散係数の乾燥密度依存性	21
図 3.2.3-5(2) Np-237 の見かけの拡散係数の乾燥密度依存性	21
図 3.2.3-5(3) Tc-99 の見かけの拡散係数の乾燥密度依存性	22
図 3.2.3-5(4) U の見かけの拡散係数の乾燥密度依存性	22
図 3.4.3-1 コロイドが存在しない場合の核種移行解析結果の比較	30
図 3.4.3-2 吸着試験のフロー図	32
図 3.4.3-3 Hwangらのモデルによる COLLOID 試験の予測	35
図 3.4.3-4 Am-243 の崩壊系列に対する移行(コロイドへの吸着がない場合)	44
図 3.4.3-5 Am-243 の崩壊系列に対する移行(コロイドへの吸着がある場合)	44
図 3.4.3-6 Th-230 の崩壊系列に対する移行(コロイドへの吸着がない場合)	45
図 3.4.3-7 Th-230 の崩壊系列に対する移行(コロイドへの吸着がある場合)	45

## 表目次

表 3.2.3-1 Th の収着試験マトリクス	7
表 3.2.3-2 Th の収着試験条件	7
表 3.2.3-3 各固相に対する Th の分配係数の算出	12
表 3.2.3-4 ベントナイト中での核種の見かけの拡散係数測定条件	15
表 3.2.3-5 見かけの拡散係数測定試験マトリクス	16
表 3.2.3-6 Ra, Tc, Np および U の見かけの拡散係数測定結果	19
表 3.2.3-7 ケイ砂混合ベントナイト中の核種の拡散試験条件	23
表 3.2.3-8 ケイ砂混合ベントナイト中の見かけの拡散係数	24
表 3.4.3-1 吸着試験の結果	33
表 3.4.3-2 主要 11 元素の移行解析に必要な各パラメータの設定値	37
表 3.4.3-3 評価対象 11 核種の $Kd_2$ および $Kd_3$ の設定値	37
表 3.4.3-4 コロイドの影響の有無による核種の移行速度の比較	38
表 3.4.3-5 核種の半減期と(3.4.3-4 式)に乗じる値の関係	39
表 3.4.3-6 Am-243 系列核種の移行評価入力データ	43
表 3.4.3-7 Th-230 系列核種の移行評価入力データ	43

## 1. 研究目的

高レベル放射性廃棄物地層処分研究の第2次とりまとめに向けて、核種移行解析の基礎データとして、より信頼性の高い、充実した核種移行に関するデータベースが求められている。本研究は、第2次とりまとめで必要となるこれらのデータベースを整備することを目的とする。

本研究は、平成7年度より開始され、これまでに核種移行データベースとして、性能評価上重要となる主要な元素に対し、熱力学データベース、ベントナイトおよび岩石への核種の収着／拡散現象に関する総合的データベースの開発および整備を行ってきた。本年度は、これまでのデータベースに関する調査検討を継続するとともに、本年度末までに予定されているデータベースの凍結に向け、総合的な取りまとめを行った。また、データベース開発の一環として、信頼性の高いデータが不足しているデータの取得、データの信頼性評価のための収着のモデル化、緩衝材間空隙水組成のモデル化の検討、およびコロイドの影響を考慮した岩体中の核種移行の評価を実施した。

## 2. 実施項目

- (1) 重要元素の核種移行データベースの整備
- (2) データベース整備に係わるデータ取得
- (3) ベントナイトの間隙水化学とそのモデル化に関する検討
- (4) コロイドの核種移行に与える影響評価

## 3. 実施内容

### 3.1 重要元素の核種移行データベースの整備

重要元素に対する熱力学データベース並びにベントナイト及び岩石に対する収着／拡散データベースの整備を実施した。

#### 3.1.1 熱力学データベースの整備

##### (1) 目的

地層処分の性能評価において重要な22種の元素のうち、溶解度の評価が重要である21種の元素（Ni, Se, Zr, Nb, Tc, Pd, Sn, Sb, Sm, Pb, Bi, Po, Ra, Ac, Th, Pa, U, Am, Cm）に対し、



水酸化物、炭酸・重炭酸塩、塩化物、フッ化物、硝酸塩、リン酸塩等の溶液中の化学種および固相を考慮して、熱力学データベースの整備を行うことを目的とした。

## (2) 整備手法

データベースの整備にあたっては、国際的な専門家数名からなる委員会を設置し、委員会では、元素毎に担当を決め、担当元素の熱力学データの調査および評価を行った。なお、一部の重要元素については、担当を動燃事業団殿とし、専門家委員会によるレビューを行った。対象元素のうち、アクチニド元素に関しては、昨年度の3価に対するデータベース整備に引き続き、本年度は4価を中心に整備を行った。データベース整備においては、データベースの地球化学計算コードでの利用を念頭に置いた上で、活量補正の取扱いについても検討を行うこととし、さらに、溶解度計算で用いるべき計算コードの検討と提案を行った。

最終的に、各委員の最先端の知見に基づいた、核種移行解析の基礎データとして、専門家が集合する国際会議を2回実施し、より信頼性の高い、熱力学データベースを完成させた。

## (3) 実施内容

動燃事業団殿によって選定された地層処分の性能評価において重要な元素は次の通りである。

- ・第一優先度核種：Pu, U, Np, Th, Am, Ra, Sn, Zr, Ni, Pd, Tc, Se, Pa, Cm, Cs
- ・第二優先度核種：Sm, Ac, Po, Pb, Nb, Bi, Sb

また、それぞれの核種について、次の化学種が評価対象である。

- ・水酸化物、炭酸塩、塩化物、フッ化物、硫酸塩、リン酸塩

これらについてデータベースを整備し、かつ以下に示す国内外の専門家によってレビューを継続的に受けた。

Dr. H. Wanner (HSK, Switzerland), Dr. D. Rai (Battelle PNL, U. S. A.),

Prof. G. Choppin (Florida State Univ., U. S. A.), Dr. M. Ochs (BMG, Switzerland),

Prof. Tochiyama (Tohoku Univ, Japan), Prof. Moriyama (Kyoto Univ., Japan),

Dr. Nakayama, Dr. Yamaguchi (JAERI, Japan)

今年度までに行った本調査における成果の概要は次の通りである。

まず Sn, Sb, Pb, Bi, Nb 及び Pd については、既存の編集されたデータベースよりも実験値の報告データに主眼をおいてデータセットの開発を行った。データ量の多寡については核種ごとに差があり、異なるイオン強度のデータが使用可能な場合には SIT 法 (Specific ion interaction theory) を用いてイオン強度 0 の平衡定数に外挿した。

3 価のアクチニド元素については、まず Am は十分な文献値があり、これを元にして米国バテル研究所で開発した Pitzer モデルをベースに評価した。また、Pu, Cm, Sm についてはアナログが適用できるとしてデータ設定を行った。

4 価のアクチニド元素については、Th は Pitzer モデルをベースに評価モデルを開発した。このモデルは種々のリガンドとの反応及び  $\text{ThO}_2$  固相の形成に関するデータを含んでいる。また他のアクチニドについても同様のモデルを適用したが、NEA データベースにおける U の加水分解、U と Np の  $\text{SO}_4^{2-}$  錯体形成、全元素の酸化物固相形成についてはそれぞれ元素ごとに扱った。

5 価及び 6 価のアクチニド元素については、それぞれ  $\text{AnO}_2^+$ 、 $\text{AnO}_2^{2+}$  の反応を取り扱い、Pitzer モデルの適用性にも考慮しつつ、イオン強度 0、25°C の平衡定数を整理した。

以上の結果はそれぞれデータベースとして整理して報告した。

### 3.1.2 ベントナイトおよび岩石への吸着／拡散データベースの整備

#### (1) 文献調査によるデータの抽出と評価

##### (a) 目的

性能評価において重要な元素を対象に、ベントナイトおよび岩石への吸着／拡散データに関する文献調査を行い、処分環境での核種の吸着／拡散の評価に有効となるデータを抽出し、固相の性質、溶液条件等の実験条件と共に、分配係数( $K_d$ )、拡散係数(見かけの拡散係数  $D_a$  あるいは実効拡散係数  $D_e$ )等のデータをデータベースとして取りまとめた。

また、データが必要とされている元素で、データが存在しないものについては、化学的アナログを考慮して、評価に用いるべきデータの提案を行った。

##### (b) 実施概要

本年度は、5種の岩石(花崗岩、凝灰岩、玄武岩、泥岩、砂岩)および関連する鉱物を対象に、17種類の元素(Zr, Nb, Pb, Sb, Sm, Pb, Bi, Po, Ra, Ac, Th, Pa, U, Np, Pu, Am, Cm)の吸着データ、および7種の元素(Ra, Th, U, Np, Pu, Am, Cm)の拡散データについて、データベースの整備を行った。また、ベントナイトに関しては、動燃事業団殿の協力のもと、Puの吸着および拡散のデータベース整備を実施した。

##### (c) 実施内容

核種移行評価に関して、充填材(緩衝材)及び周辺岩盤は効果的なバリアであるとともに、評価の確実性の高いバリアでもあり、処分性能評価の観点から重要性の高い調査対象である。ベントナイトについては吸着／拡散現象に関する総合的データベースシステムを既に提示している。このシステムではベントナイトと地下水特性の関連性、重要元素の熱力学データ、及び分配係数や基礎データを基にした見かけの拡散係数を計算するために必要な吸着と拡散のモデルを定義した。また既に Ra, Sr、及び Pb の分配係数値の計算、及び Cs の見かけの拡散については報告している。しかしデータ不足のためにこのアプローチは限定された状況でのみ使用可能である。現時点では多くの元素について適用できる吸着モデルはなく、またベントナイトに比べて岩石の表面化学特性は良く知られていないという制約がある。このため、周辺岩盤中の核種移行は、重要核種によってなされた吸着と拡散の比較検討成果を基に評価していかざるを得ない。

このような状況の下で、収着及び拡散データベースの整備を実施した。まず文献調査では対象元素に関する多数の分配係数及び見かけの拡散係数データを取りまとめ、図及びデータ表とすることにより2件のExcelファイルを作成し提出した。これらのファイルは、ユーザー用の取扱説明、更新日等を明記したデータベースに関する情報、各元素のデータベース、参考文献などをそれぞれシートとして含んでいる。

## (2) 収着現象のモデル化とモデルの適応性の検討

### (a) 目的

データの信頼性能評価および現象理解に基づいた、処分環境条件での分配係数の設定を行う為に、メカニズムを考慮した収着のモデル化とそのモデルの適用性の検討を行った。

### (b) 実施概要

本年度は十分な実験値が報告されている Ni について、スメクタイトのイオン交換と表面錯体を取り扱うモデルを考慮した。

### (c) 実施内容

ベントナイトー地下水系における Ni の収着挙動を、イオン交換と表面錯体反応で評価した。また必要に応じて Ni 固相の形成を考慮した。溶液組成とベントナイト表面のスペシエイションについては 97 年度に報告したベントナイトのモデルを基に、液固比の関数として計算した。ここでベントナイトの主要な構成粘土鉱物であるモンモリロナイトと Ni のイオン交換定数には文献値を用いた。また Ni の表面錯体定数は既存の実験値と整合するように再評価して使用した。以上により、構築したモデルは幅広い条件で取得された分配係数実験値に対応できるものとなった。

### 3.2 データベース整備に係わるデータ取得

#### 3.2.1 目的

データベース整備において、性能評価あるいは現象解明の観点から不足しており取得することが必要と判断されるベントナイト／岩石への核種の分配係数並びにベントナイト中の核種の拡散係数を取得する為の試験を実施することを目的とする。

#### 3.2.2 試験項目

本年度は、ベントナイト、花崗閃緑岩、凝灰岩を対象に、Th の収着試験を実施する。また、ベントナイト密度、間隙水条件等をパラメータとして、Ra, Np, Tc, U のベントナイト中での拡散試験を実施する。さらに、緩衝材材料の違いによる核種の収着・拡散を評価する為、ケイ砂混合ベントナイト中での Cs 等の拡散試験を実施した。

以下に試験項目を示す。

- ①ベントナイト及び地質媒体に対する Th の収着試験
- ②ベントナイト中での核種の拡散試験
- ③ケイ砂混合ベントナイト中での核種の拡散試験

#### 3.2.3 試験内容

##### (1)ベントナイト及び地質媒体に対する Th の収着試験

液性をパラメータに、ベントナイト及び地質媒体に対する Th の収着試験を実施した。

##### (a) 試験条件

表 3.2.3-1 に Th の収着試験の試験マトリクスを、表 3.2.3-2 に収着試験の条件を示した。

##### (b) 試験手順

本研究では、まず固相試料と液相試料接触時の平衡水液組成分析を実施し、その各平衡水中でのトリウムの溶解度測定を実施した。収着試験時の液相のトリウム濃度は各平衡液に対して測定された溶解度以下で実施することとした。試験フローを図 3.2.3-1 に示した。

表 3. 2. 3-1 Th の収着試験マトリクス (○の部分を実施)

	試験液性		
	蒸留水との 平衡水	人工海水 との平衡水	炭酸添加 平衡水
ベントナイト	○	○	○
花崗閃緑岩	○	○	——
凝灰岩	○	○	——

表 3. 2. 3-2 Th の収着試験条件

項目	内容
試験方法 液固比	バッチ式収着試験 ベントナイト：100ml/1g (クニゲルV 1) 花崗閃緑岩：50ml/1g [群馬県沢入産(動燃殿より支給)] 凝灰岩：50ml/1g [岐阜県東濃産(動燃殿より支給)]
試験液性	3種類：①蒸留水との平衡水 ②人工海水との平衡水 (ASME 規格人工海水) ③炭酸添加平衡水(NaHCO <sub>3</sub> :0.1mol/l)
固液分離	2種類：メンブランフィルタ (0.45 μm) ：限外濾過(MWCO10000)
試験雰囲気	大気雰囲気
試験温度	室温 (25℃)
分析方法	ICP-MS 分析(Th-232)

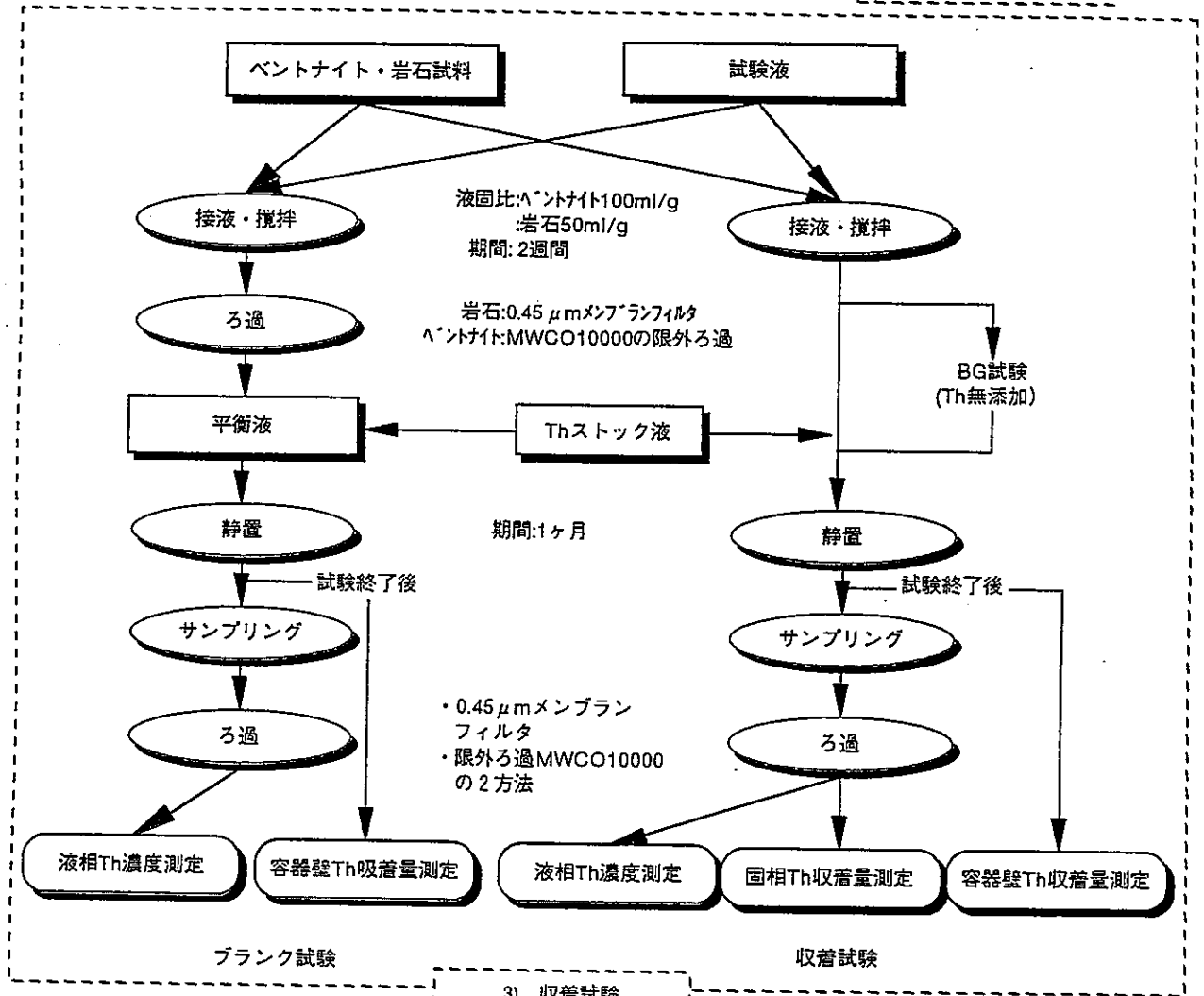
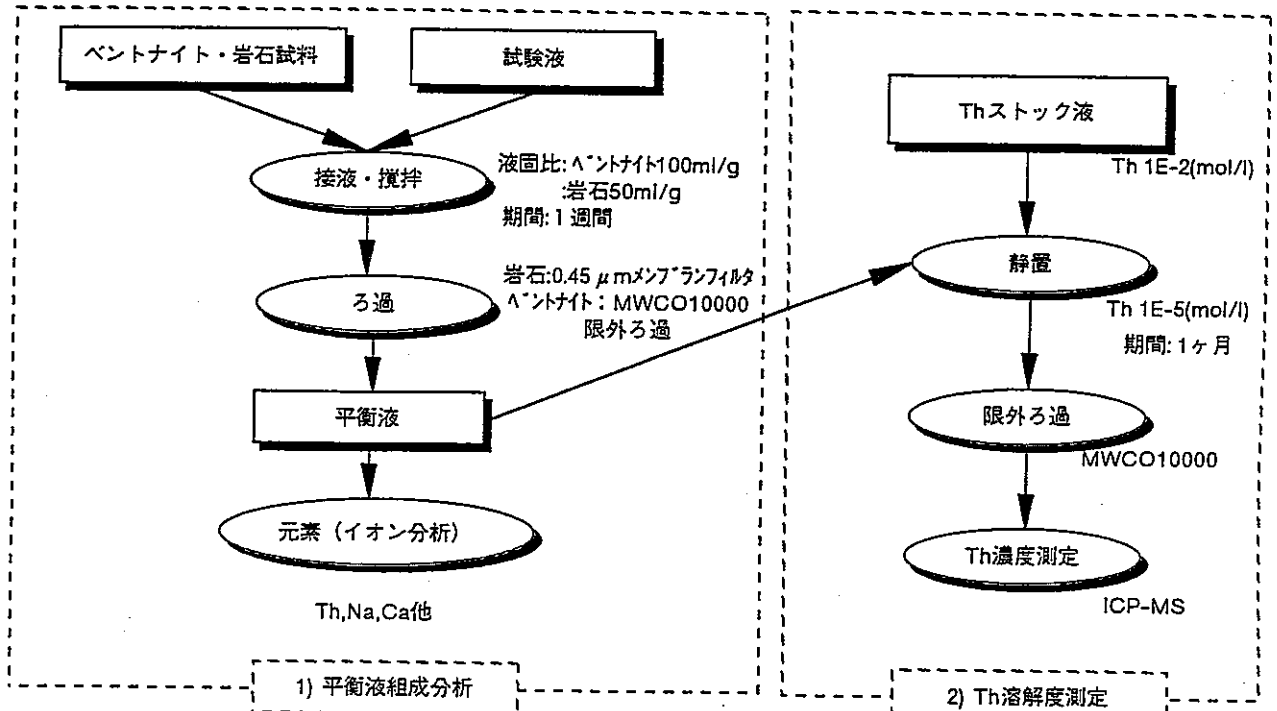


図3.2.3-1 Th収着試験フロー

(c) 解析方法

本研究では、収着試験バッチとブランク試験との液相トレーサ濃度差を固相収着量として決定される一般的な分配係数測定手法を基本として実施したものの、この方法ではブランク試験液相中のトレーサ濃度が検出限界以下となった場合に分配係数の決定が困難である。そのため、本研究では、収着試験バッチの固相に収着したトレーサを酸で浸漬させることにより浸出させ分析することにより固相の収着量および分配係数を決定する方法も用いた。

1) ブランク試験液相トレーサ濃度との差からの分配係数の決定

① 容器壁への収着をブランク試験により補正

$$Kd = \frac{C_o - (C_t - C_{BG})}{C_t - C_{BG}} \times \frac{L}{S} \quad 3.2.3-1a \text{ 式}$$

ここで、  $Kd$ : 分配係数 (ml/g)

$C_o$ : ブランク試験平衡後の液相 Th の濃度 (mol/l)

$C_t$ : 収着試験平衡後の液相 Th 濃度 (mol/l)

$C_{BG}$ : Th を添加しない固相のみを投入した試験 (B. G. 試験) における平衡後の液相 Th 濃度 (mol/l)

$L$ : バッチ中液量 (ml)

$S$ : バッチ中固相量 (g)

② 容器壁への収着を収着試験バッチの容器壁収着量分析値により補正

①と同様に初期 Th 濃度  $C_{init}$  および容器壁洗浄液中 Th 濃度  $C_v$  を用いて下式が成立する。

$$Kd = \frac{\{C_{init} - (C_t - C_{BG})\}L - C_v V_v}{C_t - C_{BG}} \times \frac{1}{S} \quad 3.2.3-1b \text{ 式}$$

ここで、  $C_{init}$ : 各バッチの初期液相中 Th 濃度 (mol/l)

$C_v$ : 容器壁収着 Th を酸で浸出させたときの浸出液中 Th 濃度 (mol/l)

$V_v$ : 容器壁収着 Th を酸で浸出させたときの浸出酸液量 (=5ml)



## 2) 酸浸出により直接固相への収着量を求めたときの分配係数

酸浸出により脱離した Th は、平衡液液性の収着試験時にはマトリクス中もしくは特性収着により分配平衡反応に寄与しない Th を含む場合があるため、ここでは酸浸出により脱離した Th が、平衡液液性での分配平衡反応に寄与しない Th であった場合と、すべて寄与する Th であった場合の 2 種類の場合を考慮して分配係数の解析を行った。

### ① 酸浸出により脱離した Th が分配平衡反応に寄与しない Th を含む場合

$$Kd = \left( \frac{C_{i-s}}{M_{i-s}} - \frac{C_{BG-s}}{M_{BG-s}} \right) \cdot V_s \cdot \frac{1}{C_t} \quad 3.2.3-2a \text{ 式}$$

ここで、

$C_{i-s}$  : 収着試験バッチの脱離試験における酸浸出液中の Th 濃度 (mol/l)

$C_{BG-s}$  : BG 試験バッチの脱離試験における酸浸出液中の Th 濃度 (mol/l)

$M_{i-s}$  : 収着試験バッチの脱離試験時の乾燥固相量 (g)

$M_{BG-s}$  : BG 試験バッチの脱離試験時の乾燥固相量 (g)

$V_s$  : 脱離試験における酸浸出量 (= 10ml)

### ② 酸浸出により脱離した Th が分配平衡反応に寄与する Th である場合

$$Kd = \left( \frac{C_{i-s}}{M_{i-s}} \right) \cdot V_s \cdot \frac{1}{C_t} \quad 3.2.3-2b \text{ 式}$$

ここで、

$C_{i-s}$  : 収着試験もしくは BG 試験バッチの脱離試験における酸浸出液中の Th 濃度 (mol/l)

$M_{i-s}$  : 収着試験もしくは BG 試験バッチの脱離試験時の乾燥固相量 (g)

(d) 試験結果および考察

平衡後液相濃度変化から算出した分配係数(容器壁への収着量の評価をブランク試験により解析した場合と、収着試験と同バッチの容器壁 Th 収着量分析値を用いて解析した場合の 2 ケース)を表 3.2.3-3 に示すとともに、グラフ化して図 3.2.3-2 に示した。

また、収着試験バッチの試験終了後固相の Th 濃度から算出した分配係数を表 3.2.3-3 に示すとともに図 3.2.3-3 に示した。

ブランク試験バッチと収着試験バッチの液相中平衡後 Th 濃度から分配係数を解析できたのは、凝灰岩-蒸留水系、凝灰岩-海水系ならびにベントナイト-炭酸添加水系の 3 条件のみであった。また、収着試験終了後の容器壁収着量を用いて解析した結果は、ほとんどのバッチにおいて分配係数を取得することができた(～以上というデータも含めて)。傾向として、容器壁への収着量を決定する際、ブランク試験結果を用いるよりも容器壁収着 Th を直接分析した方が高い分配係数が取得されている。また、初期液相 Th 濃度が検出下限に近いバッチ(上記 3 条件以外のバッチ)は高い分配係数を取得できず、低い分配係数が取得され、～以上という形でしか値を評価できなかった。ベントナイト-蒸留水系における収着試験 2 バッチ目については、10ml/g 程度の低い分配係数値が得られているものの、このデータは誤差の大きい検出下限に近い条件で取得されたデータであり信頼性は低い。実測されたデータ(～以上というデータは除いて)から判断すると、限外ろ過を行った方が、メンブランろ過を行った場合より分配係数は高いことが分かる。

固相中の Th 量からの分配係数データが取得できたのは、凝灰岩-蒸留水系とベントナイト-炭酸添加水系のみであり、他のデータはいずれも～以上というデータであるため、岩石間、平衡水液性に対する依存性を議論するのは困難である。

凝灰岩-蒸留水系ならびにベントナイト-炭酸添加水系のデータについては、平衡後の液相の濃度変化(ブランク試験との液相濃度差)から得られた分配係数と試験終了後の固相中の Th の酸浸出データから得られた両分配係数が存在する。

両者を比較してみると、試験終了後の固相中の Th の酸浸出データから決定した分配係数データの方が若干低い値を示しており、この傾向から収着試験バッチ固相の酸浸出 Th 濃度から決定した分配係数の方が方が保守性があることがわかる。

表3.2.3-3 各固相に対するThの分配係数の算出

固相	液相	バッチ種類	液固比 (ml/g)	初期濃度 目標値 (mol/l)	液相中の濃度変化からのKd算出				固相吸着量からのKdの算出	
					式3.2.3-1(1)による算出 <sup>a)</sup>		式3.2.3-1(2)による算出 <sup>b)</sup>		① (ml/g)	② (ml/g)
					メンブレン濾過 (ml/g)	限外濾過 (ml/g)	メンブレン濾過 (ml/g)	限外濾過 (ml/g)		
花崗閃緑岩	蒸留水	収着試験1	50	1E-09	解析不可	解析不可	6.1E+01	6.1E+01	> 4.9E+04	> 1.4E+04
		収着試験2	50	1E-09	解析不可	解析不可	6.1E+01	6.1E+01	> 3.9E+04	> 3.8E+03
		岩石浸出BG	50	0	---	---	---	---	> 3.5E+04	---
	海水	収着試験1	50	5E-09	解析不可	解析不可	5.3E+02	5.3E+02	> 3.7E+04	解析不可
		収着試験2	50	5E-09	解析不可	解析不可	5.3E+02	5.3E+02	> 3.7E+04	解析不可
		岩石浸出BG	50	0	---	---	---	---	> 3.8E+04	---
凝灰岩	蒸留水	収着試験1	50	1E-06	1.3E+03	3.6E+03	2.9E+03	4.6E+04	3.9E+02	2.7E+02
		収着試験2	50	1E-06	1.3E+03	3.6E+03	2.8E+03	4.6E+04	3.8E+02	2.7E+02
		岩石浸出BG	50	0	---	---	---	---	> 3.0E+02	---
	海水	収着試験1	50	4E-08	> 2.7E+02	> 1.8E+02	4.6E+03	4.6E+03	> 1.4E+04	> 1.8E+03
		収着試験2	50	4E-08	> 2.7E+02	> 1.8E+02	4.6E+03	4.6E+03	> 1.7E+04	> 4.6E+03
		岩石浸出BG	50	0	---	---	---	---	> 1.2E+04	---
ベントナイト	蒸留水	収着試験1	100	8E-10	解析不可	解析不可	#DIV/0!	7.7E+01	> 4.5E+03	> 2.3E+02
		収着試験2	100	8E-10	解析不可	解析不可	1.2E+01	7.9E+01	> 4.0E+03	解析不可
		岩石浸出BG	100	0	---	---	---	---	> 4.2E+03	---
	海水	収着試験1	100	4E-09	解析不可	解析不可	8.2E+02	8.2E+02	> 1.3E+03	> 1.2E+02
		収着試験2	100	4E-09	解析不可	解析不可	8.2E+02	8.2E+02	> 1.7E+03	> 5.6E+02
		岩石浸出BG	100	0	---	---	---	---	> 1.2E+03	---
炭酸添加水	収着試験1	100	1E-06	1.1E+04	1.2E+04	1.3E+04	1.4E+04	5.6E+03	5.6E+03	
	収着試験2	100	1E-06	1.1E+04	1.4E+04	1.3E+04	1.7E+04	6.7E+03	6.7E+03	
	岩石浸出BG	100	0	---	---	---	---	> 1.1E+03	---	

a) 容器壁への収着をブランク試験結果から補正した分配係数

b) 容器壁への収着を同バッチの容器壁収着量分析結果から補正した分配係数

① 予め試料中に含まれるバックグラウンドThのうち1M硝酸で浸出したThが、液相との平衡反応に寄与する吸着形態である場合

② 予め試料中に含まれるバックグラウンドThのうち1M硝酸で浸出したThが、液相との平衡反応に寄与しない吸着形態である場合

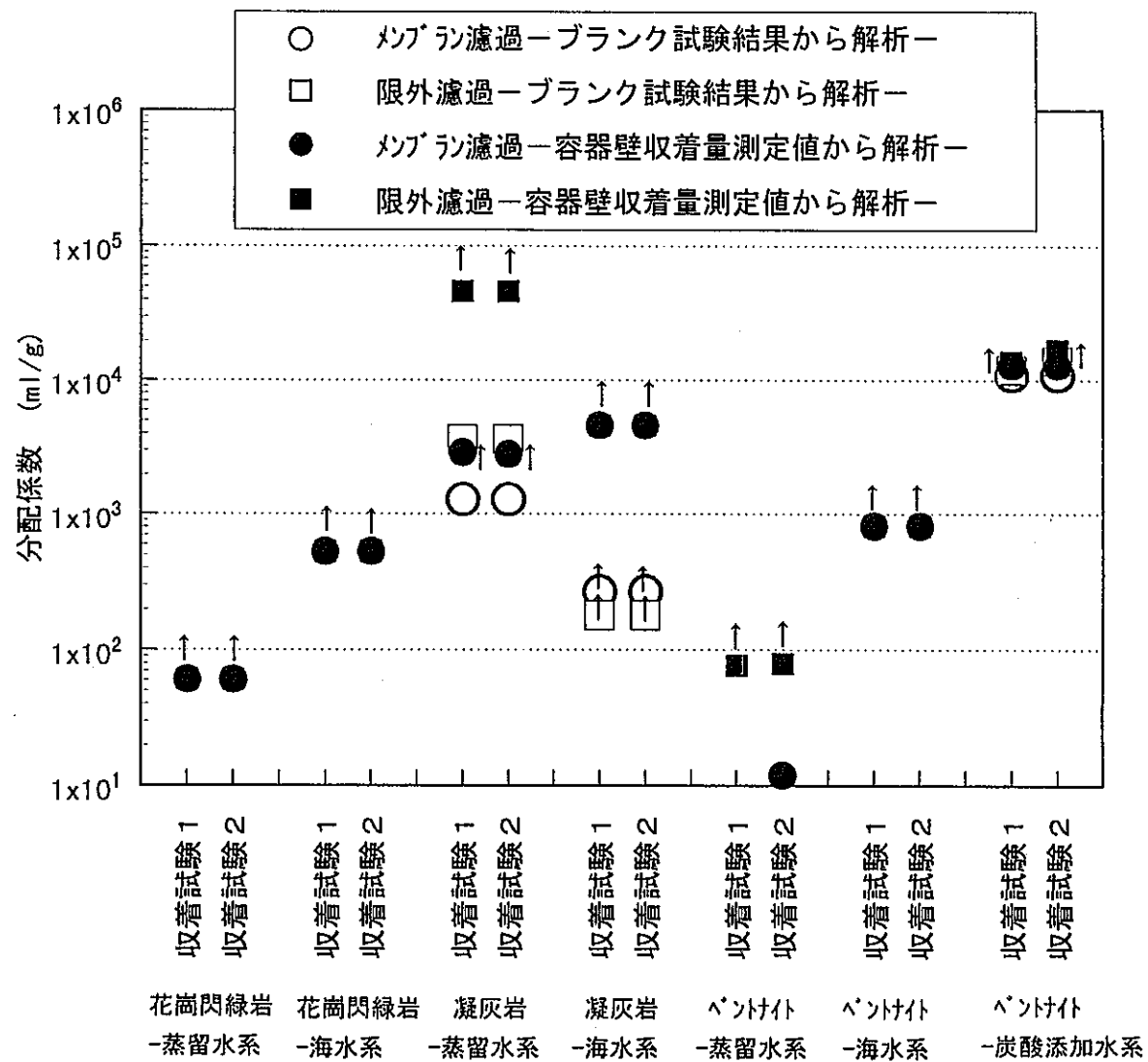


図3. 2. 3-2 収着試験バッチ液相の濃度変化から算出したThの分配係数

(↑は分配係数が~以上という意)

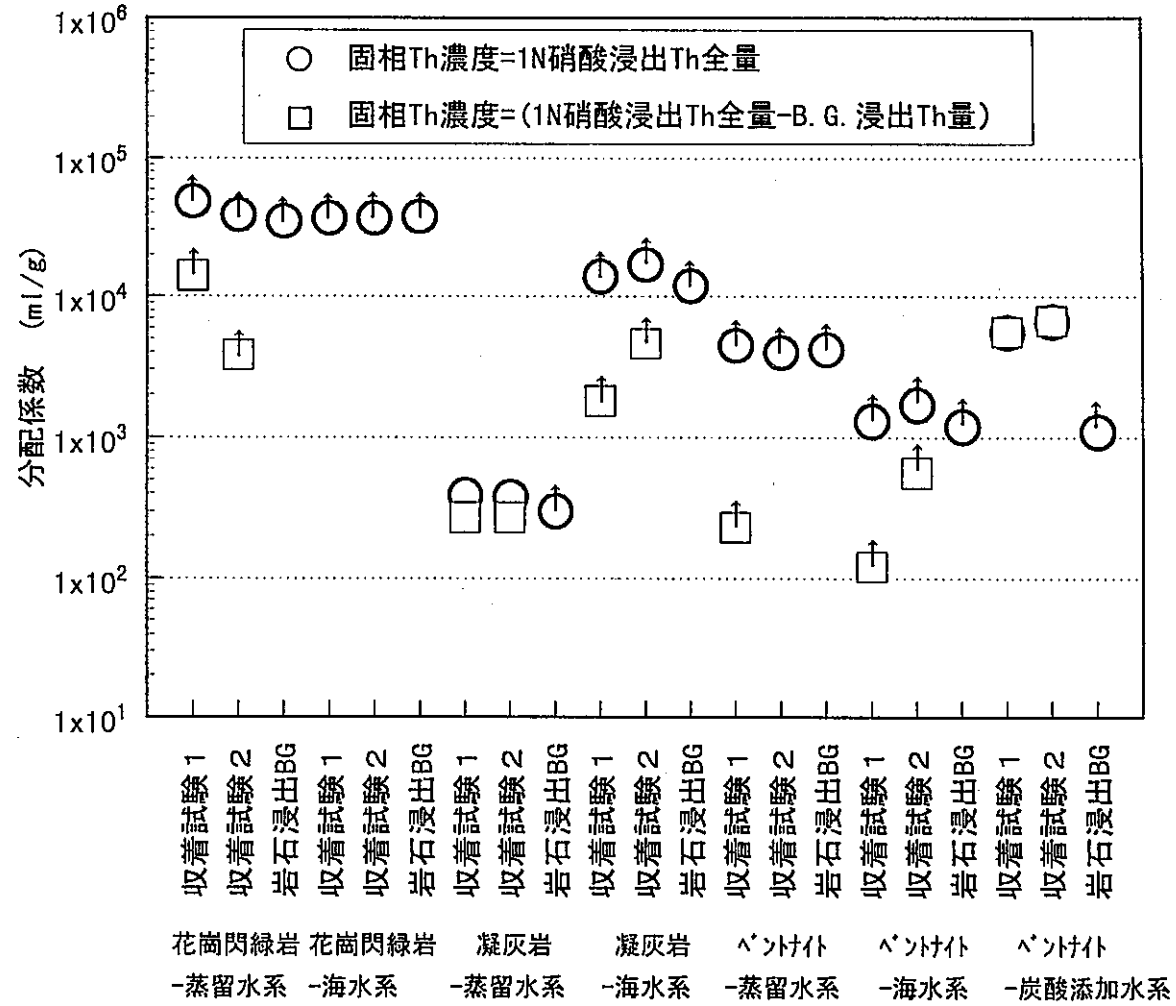


図3. 2. 3-3 収着試験バッチ固相のTh濃度から算出されたThの分配係数

(↑は収着試験平衡後の液相濃度が定量下限以下となった試験のデータで、分配係数が~以上という意)

## (2)ベントナイト中での核種の拡散試験

放射性廃棄物処分における人工バリア候補材であるベントナイト中での核種の見かけの拡散係数測定を行った。核種は、安全評価上重要であり現状において拡散係数データの乏しい Ra、Np、Tc、U の 4 元素を対象とした。還元環境に原子価が敏感に影響する Np、Tc、U については地下処分施設周辺の還元環境下での地下水雰囲気を模擬して、雰囲気制御ボックスを用いて試験を還元条件で実施した。Ra は酸化還元電位に鋭敏でないことから、大気雰囲気で試験を行った。試験は、蒸留水及び海水系の 2 種類の試験液性でのデータを取得した。また、人工バリア施工時に考慮すべきパラメータとして、ベントナイトの密度を変化させてデータ取得を実施した。

### (a)試験条件

見かけの拡散係数測定条件を表 3.2.3-4 に、試験マトリクスを表 3.2.3-5 にそれぞれ示した。

### (b)試験手順

試験手順のフロー(ストック溶液作製部分は代表例としてウランのフローを示した。)を図 3.2.3-4 に示した。

表 3.2.3-4 ベントナイト中での核種の見かけの拡散係数測定条件

項目	内容
試験法	非定常拡散試験 In-diffusion 法
試料	ベントナイト(クニゲル V1)
乾燥密度	1.4 及び 1.8 g/cm <sup>3</sup>
カラム寸法	φ 20mm×20mm の円筒形カラム
温度	室温
試験雰囲気	大気雰囲気: Ra 還元雰囲気(Ar 雰囲気[O <sub>2</sub> <1ppm])+Na <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>4</sub> : Np, Tc, U
試験液性	蒸留水または模擬海水 (3%-NaCl)を Na <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>4</sub> 濃度 0.005mol/l に調製した溶液

表 3.2.3-5 見かけの拡散係数測定試験マトリクス

元素 (価数)	試験 雰囲気	セクショニング 間隔 (mm)	試験期間(日)			備考
			蒸留水系		海水系	
			密度(g/cm <sup>3</sup> )			
			1.4	1.8	1.8	
Ra(Ⅱ)	大気中	0.5	7.0	15.0	20.0	両側拡散試験
		0.5	7.0	15.0	20.0	
Np(Ⅳ)	還元条件	0.5	50.2	50.2	50.2	片側拡散試験
		0.2	76.2	76.2	76.2	
Tc(Ⅳ)	還元条件	0.5	82.8	83.0 *	83.0	片側拡散試験
		0.2	108.8	108.9 *	108.9	
U(Ⅳ)	還元条件	0.5	55.1	96.0 *	96.0	片側拡散試験
		0.2	123.1	123.1 *	123.1	

\*平成8年度実施済み

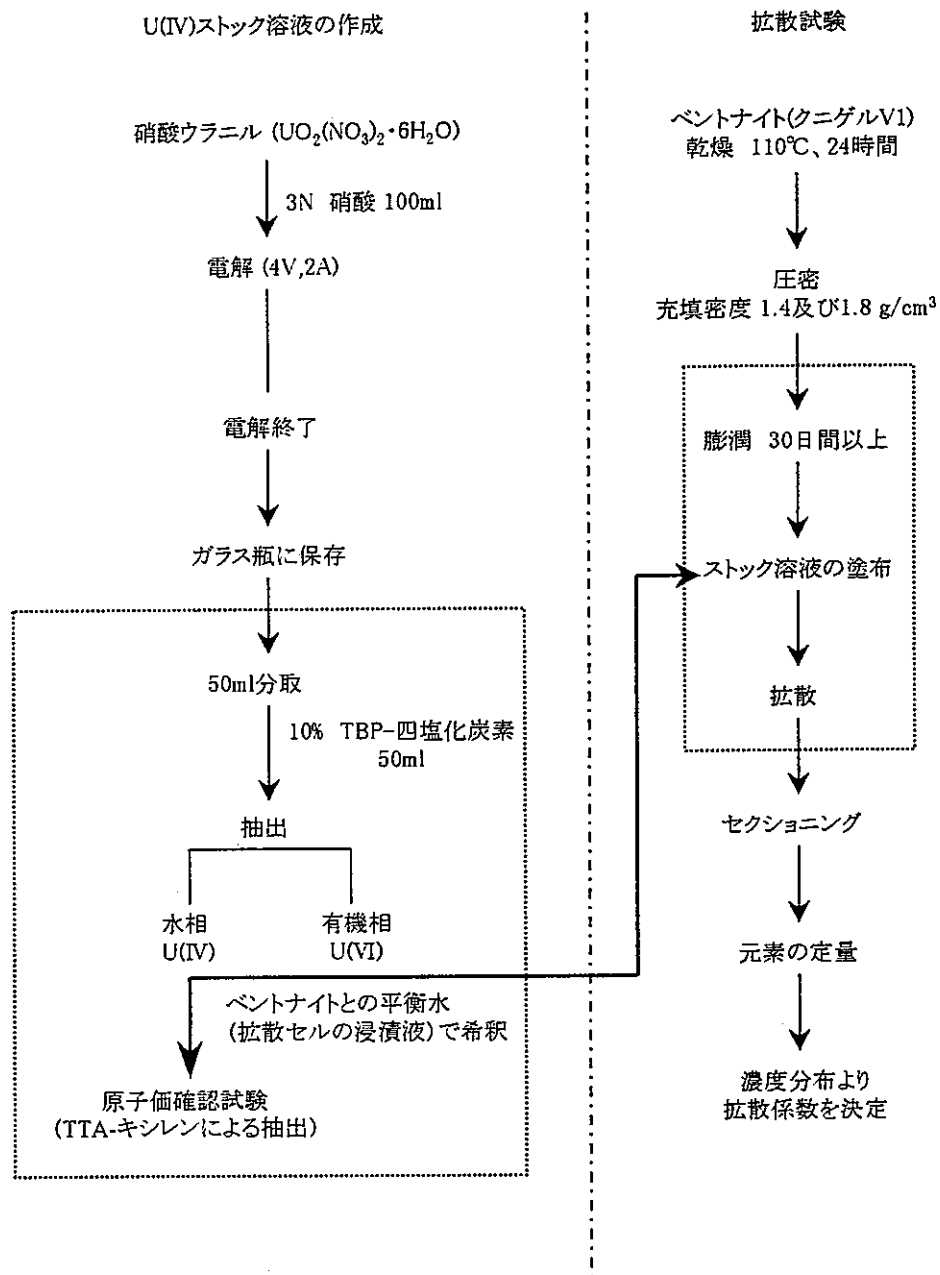


図3.2.3-4 ストック溶液の作製および拡散試験フロー (例:U(IV))

☐ は雰囲気制御ボックス内



(c)見かけの拡散係数の解析方法

試験終了時の濃度プロファイルから見かけの拡散係数を算出するための解析解を示した。

i. 薄膜拡散源に対する解析解

薄膜拡散源に対する初期条件および境界条件は、

初期条件として、 $|x| > 0 \quad t = 0 \quad C = 0$

境界条件として、 $|x| \rightarrow \infty \quad t \geq 0 \quad C = 0$ である。

これらの条件下での解は、次式の様になる。

①両側拡散の場合

$$C(x,t) = \frac{M}{2\sqrt{\pi Dt}} \exp\left(-\frac{x^2}{4Dt}\right) \quad \dots 3.2.3-3a \text{ 式}$$

$M$  : 拡散源の総量

$$M = \int_{-\infty}^{+\infty} C dx$$

②片側拡散の場合

$$C(x,t) = \frac{M}{\sqrt{\pi Dt}} \exp\left(-\frac{x^2}{4Dt}\right) \quad \dots 3.2.3-3b \text{ 式}$$

ii. 境界濃度一定(コンスタントソース)に対する解

境界濃度一定の場合、初期条件および境界条件は

初期条件として、 $C(t, X) = 0, \quad t = 0, \quad X > 0$

境界条件として、 $C(t, X) = C_0, \quad t > 0, \quad X = 0$

解析解は以下の式となる。

$$\frac{C(t, X)}{C_0} = \operatorname{erfc}\left(\frac{X}{2\sqrt{D_a \cdot t}}\right) \quad \dots 3.2.3-4 \text{ 式}$$

ここで、

$$\operatorname{erfc}(Z) = 1 - \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^Z \exp(-\eta^2) d\eta$$

本研究では、Raについては両側拡散の拡散試験体系で拡散試験を実施し、塗布したトレーサも沈殿を起こさず全量、薄膜拡散として拡散した濃度プロファイルが後述の試験結果から得られたため、式 3.2.3-3a の解析解でフィッティングを行い見かけの拡散係数を求めた。Tc、Np 及び U の試験については、トレーサを沈殿ごと塗布したためトレーサ源の空隙水中濃度は溶解度により濃度一定に保たれると考え、式 3.2.3-4 の解析解を用いてフィッティングを行い見かけの拡散係数を求めた。

#### (d)試験結果

Ra、Tc、Np 及びUに対して、解析の結果取得された見かけの拡散係数を表 3.2.3-11 に示した。

Tc、Np 及び U の見かけの拡散係数は、スライス片厚さに依存して変化しているものが多々見受けられ、傾向として細かくスライスしたときの方が解析で取得される拡散係数が小さくなる。これは拡散係数解析時のデータポイントの細かさが原因となっている。0.5mm のセクションニングの場合は、拡散プロファイルが取得される塗布面近傍でのデータ数が 0.2mm スライスの場合と比べ疎になっている。拡散係数解析時の表面近傍のデータの重みが異なるためフィッティング結果が影響したものと考えられる。

表 3.2.3-6 Ra,Tc,Np および U の見かけの拡散係数測定結果

元素 (価数)	試験 雰囲気	セクション 間隔 (mm)	見かけの拡散係数 (m <sup>2</sup> /s)		
			蒸留水系		海水系
			密度(g/cm <sup>3</sup> )		
			1.4	1.8	1.8
Ra(II)	大気中	0.5	9.0×10 <sup>-12</sup>	5.3×10 <sup>-12</sup>	1.7×10 <sup>-12</sup>
		0.5	8.5×10 <sup>-12</sup>	5.2×10 <sup>-12</sup>	2.0×10 <sup>-12</sup>
Np(IV)	還元条件	0.5	1.6×10 <sup>-14</sup>	4.9×10 <sup>-14</sup>	2.6×10 <sup>-14</sup>
		0.2	1.6×10 <sup>-14</sup>	3.2×10 <sup>-14</sup>	1.3×10 <sup>-15</sup>
Tc(IV)	還元条件	0.5	6.8×10 <sup>-14</sup>	1.0×10 <sup>-13</sup> *	3.5×10 <sup>-13</sup>
		0.2	8.1×10 <sup>-15</sup>	7.5×10 <sup>-14</sup> *	1.1×10 <sup>-14</sup>
U(IV)	還元条件	0.5	1.2×10 <sup>-13</sup>	1.2×10 <sup>-13</sup> *	1.8×10 <sup>-14</sup>
		0.2	6.8×10 <sup>-14</sup>	1.1×10 <sup>-14</sup> *	2.1×10 <sup>-14</sup>

\*平成8年度実施済み

このように、ほとんど拡散せず表面近傍に拡散プロファイルが限定されるときは、セクションングの幅をより細かくとることにより、より小さな見かけの拡散係数の取得が可能であることが分かる。しかし、セクションング片を細かくすることは、スライス片一枚当たりのトレーサ量も減少するため、溶解度低いU、Tcのような元素については分析下限の影響が問題となってくる。また、本試験における0.2mmの幅のセクションングは、膨潤した圧密ベントナイトをスライスする幅としては、作業的にほぼ限界に近い幅である。

以上のことから判断して、今回取得したデータは0.2mmのデータの方がより現実的な値に近いことが判断されるが、実際の圧密ベントナイト中での見かけの拡散係数は、さらにより小さい値である可能性もある。

図3.2.3-5にRa、Tc、NpおよびUの見かけの拡散係数の密度依存性及び液性依存性をそれぞれ示した。

Raの見かけの拡散係数は密度の増加とともに減少する傾向が見られた。また、同密度条件では海水系の方が見かけの拡散係数は小さくなる傾向にあった。

Tc、NpおよびUについてはより信頼性の高い0.2mmセクションング時の結果を参考に考察した。

Tcの見かけの拡散係数は密度の増加とともに増加する傾向が見られた。また、同密度条件では海水系の方が見かけの拡散係数は小さくなる傾向にあった。

Npの見かけの拡散係数は密度の増加とともに僅かに増加する傾向が見られた。また、同密度条件では海水系の方が見かけの拡散係数は小さくなる傾向にあった。

Uの見かけの拡散係数は密度の増加とともに減少する傾向が見られた。また、同密度条件では海水系も蒸留水系も見かけの拡散係数はほぼ同程度であった。

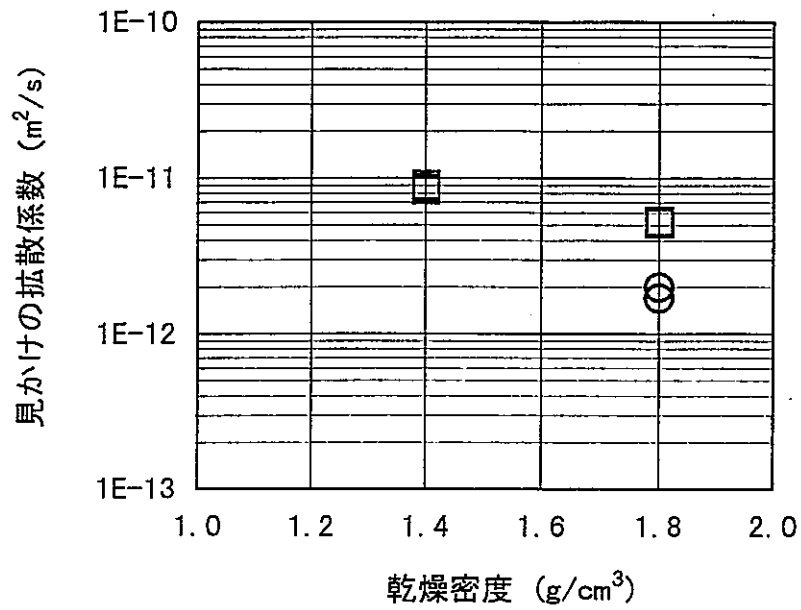


図3. 2. 3-5(1) Ra-226の見かけの拡散係数の乾燥密度依存性

□ : 蒸留水系、○ : 海水系 (スライス幅 1.0mm)

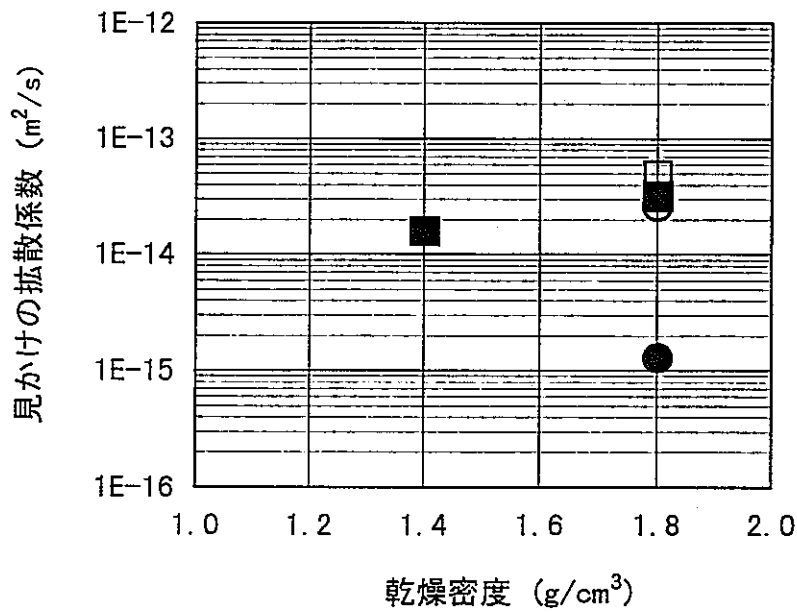


図3. 2. 3-5(2) Np-237の見かけの拡散係数の乾燥密度依存性

□ : 蒸留水系、○ : 海水系 (スライス幅 0.5mm)  
 ■ : 蒸留水系、● : 海水系 (スライス幅 0.2mm)

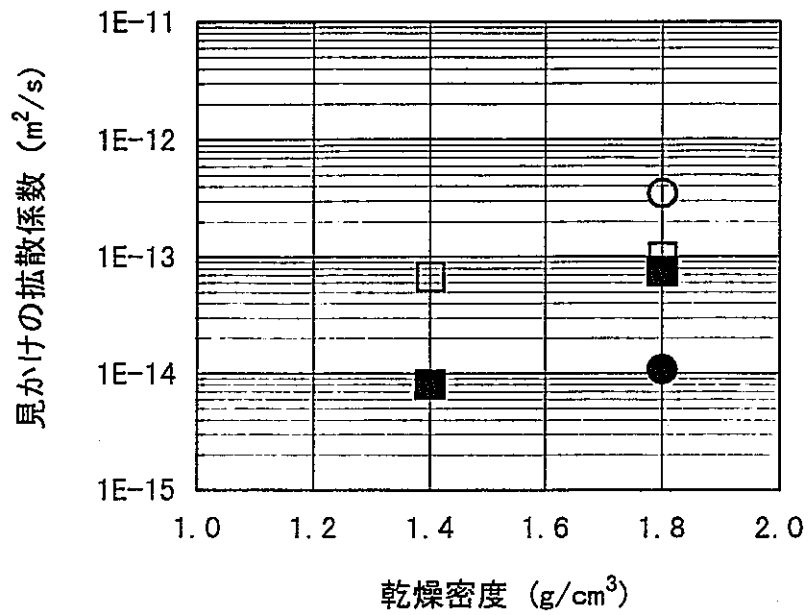


図3. 2. 3-5 (3) Tc-99の見かけの拡散係数の乾燥密度依存性

□ : 蒸留水系、○ : 海水系 (スライス幅 0.5mm)  
 ■ : 蒸留水系、● : 海水系 (スライス幅 0.2mm)

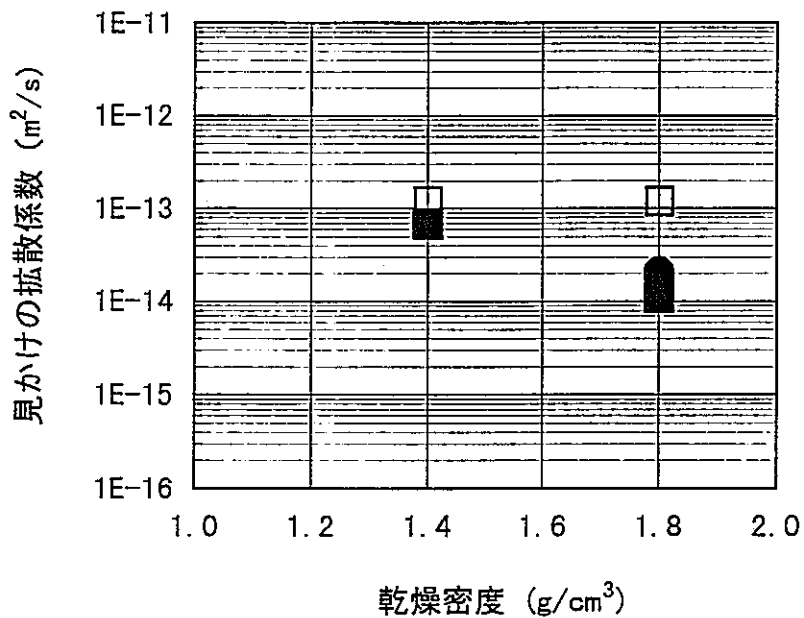


図3. 2. 3-5 (4) Uの見かけの拡散係数の乾燥密度依存性

□ : 蒸留水系、○ : 海水系 (スライス幅 0.5mm)  
 ■ : 蒸留水系、● : 海水系 (スライス幅 0.2mm)

### (3)ケイ砂混合ベントナイト中での核種の拡散試験

ケイ砂混合ベントナイト中での核種の見かけの拡散係数の測定を行った。拡散係数測定の対象は Cs, Ni, Se の3元素とした。

#### (a)試験条件

試験条件を表 3.2.3-7 に示す。

表 3.2.3-7 ケイ砂混合ベントナイト中の核種の拡散試験条件

項目	測定条件
試験法	非定常拡散試験(In-diffusion 法)
試料	ベントナイト:クニゲルV1 珪砂:3号及び5号珪砂を等重量混合
乾燥密度	1.8 g/cm <sup>3</sup>
ベントナイト配合率	30wt.%
温度	室温
試験トレーサ	Cs-137 / CsCl Ni-63 / NiCl <sub>2</sub> Se(cold) / Na <sub>2</sub> SeO <sub>3</sub>
雰囲気	大気雰囲気 :Cs-137, Ni-63 低酸素濃度雰囲気(気相 O <sub>2</sub> <0.1ppm) :Se
繰り返し数	2

#### (b)試験手順

試験手順は、(2)のベントナイト中での核種の拡散試験に準じた。

全元素とも、セクションング間隔は 1mm とした。

Se については酸化還元電位に敏感な元素であるため、溶液の酸化還元状態によって異なる原子価をとる。本試験では、Se(IV)にそろえるため、雰囲気制御(低酸素雰囲気)下で試験を行った。

#### (c)解析方法

前項(2)の(c)のベントナイト中での核種の拡散試験における解析方法に準じた。

Cs および Se については溶解度が高く塗布トレーサの全量が拡散すると考えられるので、薄膜拡散源からの拡散に対する解析解を用いた。

Ni については、試験終了後に取得された濃度プロファイルより、境界濃度一定からの

拡散が起きているものと判断し、境界濃度一定条件の解析解を用いた。

Csについては、両側拡散試験であるため、3.2.3-3a式を用いて解析した。

Seについては、片側拡散試験であるため、3.2.3-3b式を用いて解析した。

Niについては、境界濃度一定条件からの拡散であるため3.2.3-4式を用いて解析した。

(d)結果

解析の結果取得された各元素の見かけの拡散係数を表3.2.3-8に示した。

表 3.2.3-8 ケイ砂混合ベントナイト中の見かけの拡散係数

元素	雰囲気	見かけの拡散係数 (m <sup>2</sup> /s)
Cs	大気中	7.0×10 <sup>-12</sup>
		6.6×10 <sup>-12</sup>
Ni	大気中	1.9×10 <sup>-13</sup>
		1.3×10 <sup>-13</sup>
Se	低酸素雰囲気	1.1×10 <sup>-11</sup>
		1.2×10 <sup>-11</sup>

### 3.3 ベントナイトの間隙水水質推定モデルの検討

#### (1) 目的

核種の溶解度を支配するベントナイト間隙水水質は、性能評価上重要な要素であるが、現状では実験による直接測定が容易ではないために、第2次取りまとめにおいては、現象理解に基づいたモデルによる推定が必要である。本研究では、ベントナイトの間隙水水質の推定を行うことを目的とし、そのモデルの検討を行った。

#### (2) 実施概要

計算コードにおける、イオン交換反応の吸着種の活量の与え方について、いくつかの方法での比較計算を行い、その取り扱い方法の検討を行った。また、モデルを用いた計算において、間隙水水質に影響を与える因子とその感度を明らかにし、ベントナイト-水反応試験から得られる情報と比較検討したうえで、処分環境での間隙水水質推定における入力条件の検討を行い、間隙水の計算を行った。

#### (3) 実施内容

まず、イオン交換モデルにおける吸着化学種の活量補正について評価を行った。また種々のモデルで使用されているモル分率、当量分率、錯体モデルについて比較評価した。その結果、多くのモデルは適切な定数を使用した場合にはほぼ同様の結果を導出することが明らかとなった。なお、調査初期には各モデル間の相違がみられていたが、これは化合物モデルにおける定数値の間違いや、モデル間で適用するパラメータの換算ミスが原因であることが判明した。調査結果を基に、当量分率モデルとその定数が適用されるべきであると推奨した。錯体モデルは、多くの専門家には受け入れられがたい。モル分率モデルと当量分率モデルは熱力学的に適正で定数も一般に適正である。このうち当量分率モデルの方が MINEQL や HYDRAQL のような多くの化学種変化計算コードでの適用がより容易である。

また、不純物の影響については、溶解して空隙水組成に影響を与えると考えられる。しかしその定量は困難なため、ここでは感度解析計算を実施した。その結果次の点が判明した。まず、圧密したクニゲルV 1中の pH に関して、方解石、石膏、硫化鉄の存在は大きな影響を及ぼす。方解石の溶解平衡により pH は増加する。石膏の溶解も



しくは多量の NaCl の溶解は pH を低下させる。硫化鉄の酸化は pH を大きく下げる。しかし、圧密ベントナイト中の pH はシラノール基の酸塩基反応の平衡や炭酸塩によるバッファ効果により緩衝される。また CO<sub>2</sub> に関して閉鎖系を仮定した場合、方解石の溶解による CO<sub>2</sub> 分圧の増加が生じる。

ベントナイト空隙水組成に関しては、上記の各点を踏まえてモデル化を行い計算を実施し、種々の条件における空隙水素製を推定した。計算にあたっては、動燃事業団が提示している 5 種類の地下水組成を用いるとともに、併せて炭素鋼製のオーバパックを起源とするヘマタイトやゲーサイト等の腐食生成物の共存についても考慮した。

### 3.4 コロイドの核種移行に与える影響の評価

#### 3.4.1 目的

本研究は、高レベル放射性廃棄物の地層処分研究の第2次取りまとめに向けて、より信頼性の高い、ニアフィールド周辺岩盤中での核種移行評価を行うため、地下水中に共存するコロイドの影響について評価を行うことを目的とする。

#### 3.4.2 実施概要

岩盤中でコロイドが共存する場合の核種移行を評価する場合、コロイド-溶質-岩石間の3相間の相互作用を考慮する必要がある。本研究では、これら相互作用を取り扱う数学的モデルを用いて、コロイドが共存する場合の核種移行解析を行った。さらに、数値解法により崩壊連鎖の影響についても検討を行った。以下に実施した項目を示す。

- (1) コロイド-溶質-岩石間の3相間の相互作用を考慮した解析モデルの検証
- (2) 処分条件でのコロイド影響の予測評価
- (3) コロイド共存下での崩壊連鎖を伴う核種移行

#### 3.4.3 実施内容

##### (1) コロイド-溶質-岩石間の3相間の相互作用を考慮した解析モデルの検証

コロイドが核種移行に与える影響を評価するにあたり、本年度は、コロイド-溶質-岩石間の3相間の相互作用を取り扱う Hwang らのモデルを用いることとした。ここでは、Hwang らのモデルの検証を行うとともに、動燃事業団殿で実施する岩石中コロイド共存系での核種移行試験(COLLOID 試験)の結果を、Hwang らのモデルを用いて予測を行った。また、予測解析では、コロイド-溶質およびコロイド-岩石間の相互作用に関するデータが必要であることから、これらデータ取得のため必要な実験を実施した。

##### (i) Hwang らのモデルの検証

##### (a) Hwang らのモデルの解析解の検証

Hwang らは、コロイドに吸着されたイオンの移行式として次式を提案している。

$$\varepsilon_1 \xi_1 \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial t} - \varepsilon_1 \xi_1 D_1 \frac{\partial^2 C_1(x,t)}{\partial x^2} + \varepsilon_1 \xi_1 v_1 \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial x} + \varepsilon_1 S_1(x,t) + \varepsilon_1 S_2(x,t) + \varepsilon_1 \xi_1 \lambda C_1 = 0$$

(3.4.3-1 式)

また、文献の中で  $C_1$  について、以下のような解析解を導いている。

$$C_1 = \frac{2Kd_3 C_0}{\sqrt{\pi}} \int_{\frac{x}{2}\sqrt{R/Dt}}^{\infty} \exp\left(-\frac{\sqrt{v^2 + 4R\lambda D} - v}{2D} x\right) \times \operatorname{erfc}\left\{\frac{x^2 \varepsilon_p \sqrt{D_p R_p} Kd_3}{8D\varepsilon_1 \eta^2 b \sqrt{t - Rx^2/(4D\eta^2)}}\right\} \exp\left\{-\left(\eta - \frac{xv}{4D\eta}\right)^2\right\} d\eta$$

(3.4.3-2 式)

これに対して、本研究において(3.4.3-1 式)から導出した解析解は以下のものであり、

$$C_1 = \frac{2Kd_3 C_0}{\sqrt{\pi}} \int_{\frac{x}{2}\sqrt{R/Dt}}^{\infty} \exp\left(-\frac{R}{4D\eta^2} x^2\right) \times \operatorname{erfc}\left\{\frac{x^2 \varepsilon_p \sqrt{D_p R_p}}{8D\varepsilon_1 \eta^2 b \sqrt{t - Rx^2/(4D\eta^2)} Kd_3}\right\} \exp\left\{-\left(\eta - \frac{xv}{4D\eta}\right)^2\right\} d\eta$$

(3.4.3-3 式)

(3.4.3-2 式)において、erfc 括弧内の  $Kd_3$  が分子にあるのは誤りであると判断された。また、本来半減期  $\lambda$  を扱う項(上式下線部)についても対照すると一致しないが、本研究では半減期の影響評価は主な対象ではないことから、これについては Hwang らの文献中の記述に基づくこととした。

したがって、後述する COLLOID 試験の予測解析および処分条件でのコロイド影響の予測については、以下の解析解を計算するプログラムを作成して評価を行った。

[本研究で用いた解析解]

$$C_1 = \frac{2Kd_3 C_0}{\sqrt{\pi}} \int_{\frac{x}{2}\sqrt{R/Dt}}^{\infty} \exp\left(-\frac{\sqrt{v^2 + 4R\lambda D} - v}{2D} x\right) \\ \times \operatorname{erfc}\left\{\frac{x^2 \varepsilon_p \sqrt{D_p R_p}}{8D\varepsilon_1 \eta^2 b \sqrt{t - Rx^2/(4D\eta^2)} Kd_3}\right\} \exp\left\{-\left(\eta - \frac{xv}{4D\eta}\right)^2\right\} d\eta$$

(3.4.3-4 式)

$C_1(x,t)$ [-]; 疑似コロイド中の核種の濃度

$C_0(x,t)$ [-]; 亀裂入り口での核種の濃度

$x$ [m]; 移行距離

$t$ [y]; 時間

$v$ [m/y]; コロイドに吸着された核種の流速

$R$ [-]; コロイドに吸着した核種の遅延係数

$\lambda$  [1/y]; 崩壊定数

$D$  [m<sup>2</sup>/y]; コロイドに吸着された核種の分散係数

$\varepsilon_p$ [-]; 岩石の空隙率

$D_p$ [m<sup>2</sup>/y]; マトリクスへの核種の拡散係数

$R_p$ [-]; 岩石マトリクス中での核種の遅延係数

$\varepsilon_1$ [-]; 亀裂中を地下水の体積分率

$b$ [m]; 亀裂の 1/2 幅

$Kd_3$ [-]; コロイドへのイオンの吸着

#### (b) 計算プログラムの検証

上記(3.4.3-4 式)を計算するプログラムを作成し、その計算結果を、ヘンリー型吸着の一次元核種移行の一般解における計算結果と比較を行った。その結果を図 3.4.3-1 に示す。それから分かるように、(3.4.3-4 式)でコロイドの影響を無視してイオンの移行を計算した結果は、既往のイオンのみの移行を解く一般解での計算結果と良い一致を示した。このことから、本研究で作成した計算プログラムについては問題ないものと判断し、後述の種々の計算を行った。

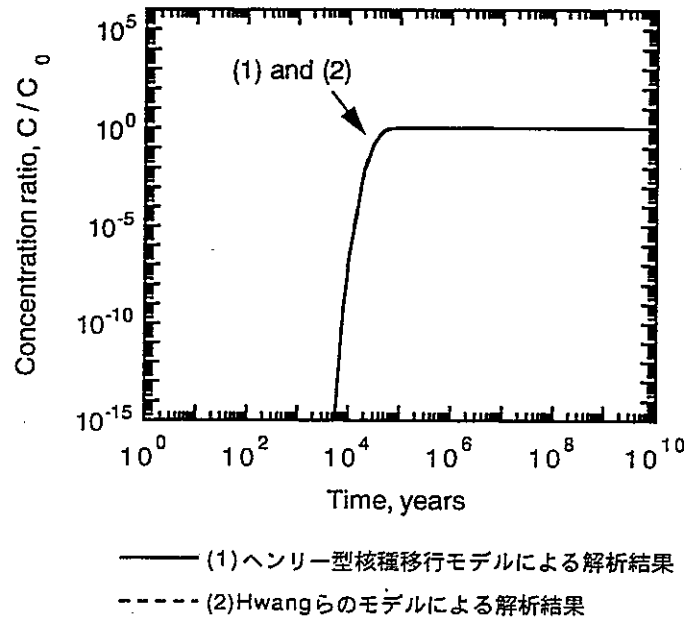


図3.4.3-1 コロイドが存在しない場合の核種移行解析結果の比較

(ii) Hwangらのモデル確認試験のためのデータ取得

ここでは Hwang らのモデルの確認に資するため、動燃事業団殿で実施する COLLOID 試験のうち、花崗岩亀裂中でのベントナイトコロイドと  $\text{Sr}^{2+}(\text{SrI}_2)$  の移行試験の結果について予測を行った。この際、予測解析に必要な各パラメータの値は試験条件に基づき設定したが、コロイド-岩石-イオンの3相間の吸着性に関するデータについては取得されていないことから、

- ・ベントナイトコロイド-花崗岩
- ・ $\text{Sr}^{2+}(\text{SrI}_2)$ -花崗岩
- ・ベントナイトコロイド- $\text{Sr}^{2+}(\text{SrI}_2)$

の吸着試験を実施して、求めた分配係数を予測計算に資した。

(a) 試験方法および結果

ベントナイトコロイド-花崗岩、 $\text{Sr}^{2+}(\text{SrI}_2)$ -花崗岩およびベントナイトコロイド- $\text{Sr}^{2+}(\text{SrI}_2)$  の分配係数を取得するため、バッチ式吸着試験を実施した。図 3.4.3-2 にはこの際の試験フローを示す。表 3.4.3-1 には、この際の試験の結果を示す。その結果をもとに、以下の式からそれぞれの分配係数  $K_a$  または  $K_d$  を算出した。

$$K_a = \frac{C_0 - C}{C} \frac{V}{S} \text{ または } K_d = \frac{C_0 - C}{C} \frac{V}{M}$$

(3.4.3-5 式)

ここで、 $C_0$ : ブランク試験バッチ中の物質  $i$  の濃度、 $C$ : 吸着試験バッチ中の物質  $i$  の濃度、 $V$ : 液量、 $S$ : 表面積および  $M$ : 固相重量である。算出した分配係数については、表 3.4.3-1 に併せて示した。

その結果、モンモリロナイトコロイドは、表面を平滑処理した花崗岩のブロックには吸着されず、 $K_a=0\text{m}^3/\text{m}^2$  であった。これに対して、粉碎した花崗岩( $38\sim 42\mu\text{m}$ )への分配係数は  $K_d=2.1\times 10^{-3}\text{m}^3/\text{kg}$  と算出された。

$\text{Sr}$  と花崗岩ブロックの分配係数は、 $K_a=6.2\times 10^{-2}\text{m}^3/\text{m}^2$  と算出された。また、 $\text{Sr}$  とモンモリロナイトコロイドの分配係数については、 $K_d=1.5\times 10^3\text{m}^3/\text{kg}$  と算出された。ただし、動燃事業団殿で実施する COLLOID 試験では、亀裂表面を平滑処理した花崗岩を扱うことから、

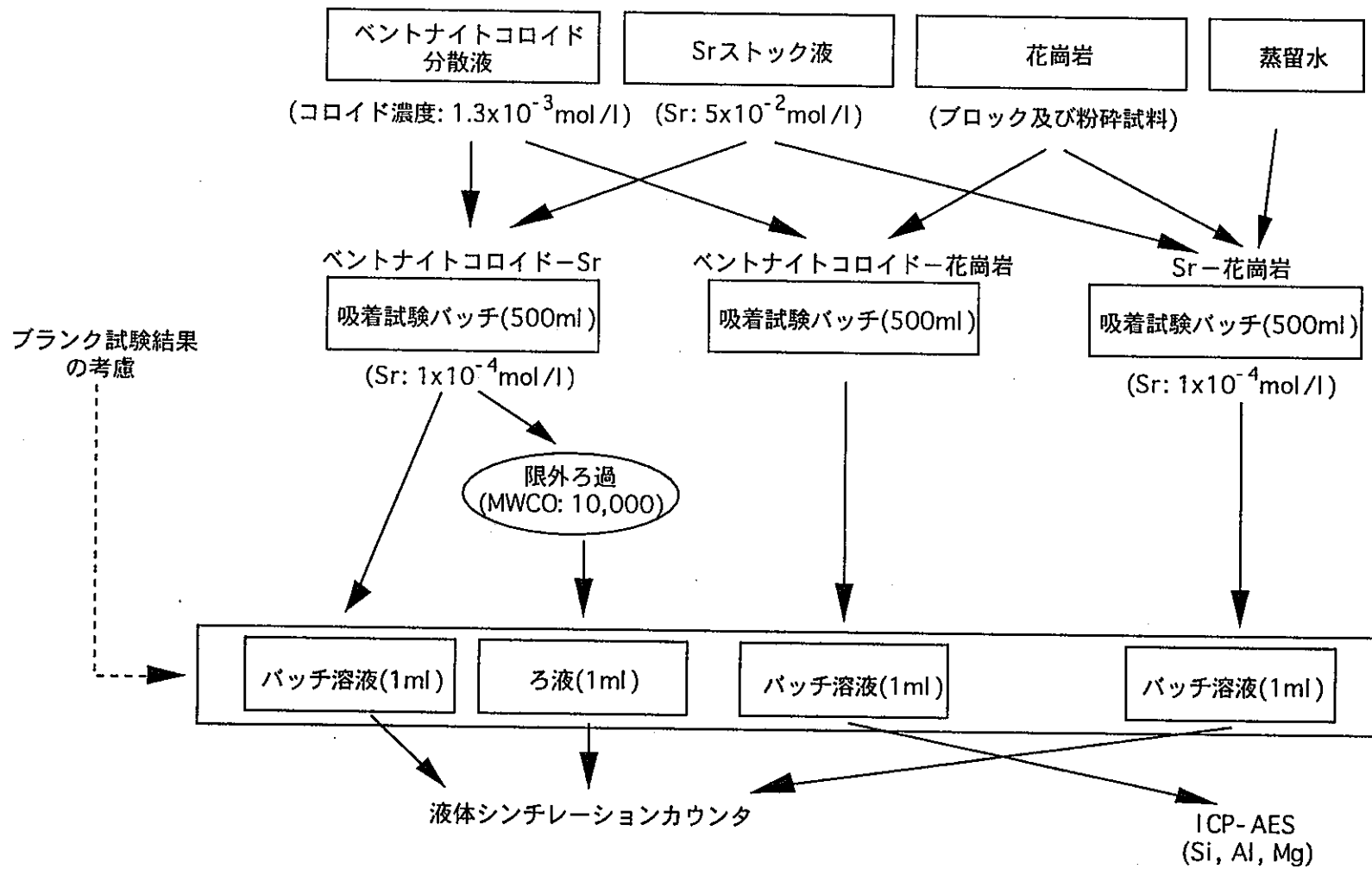


図3.4.3-2 吸着試験のフロー図

表3.4.3-1 吸着試験の結果

(吸着試験)

	モンモリロナイトのブロック花崗岩への吸着量		モンモリロナイトの 粉碎花崗岩への吸着量		Srのブロック 花崗岩への吸着量		Srのモンモリロ ナイトへの吸着量	
	液相中コロイド濃度 (mol/l)	分配係数 (m3/m2)	液相中コロイド濃度 (mol/l)	分配係数 (m3/kg)	液相中Sr濃度 (cpm/ml)	分配係数Ka (m3/m2)	液相中Sr濃度 (cpm/ml)	分配係数Kd (m3/kg)
1日目	1.30E-03	0.00E+00	1.20E-03	2.10E-03	10100	0	20	1.00E+03
3日目	1.30E-03	0.00E+00	1.20E-03	2.10E-03	6840	6.10E-02	11	1.80E+03
7日目	1.30E-03	0.00E+00	1.20E-03	2.10E-03	6292	7.50E-02	14	1.50E+03
14日目	1.30E-03	0.00E+00	1.20E-03	2.10E-03	6228	7.70E-02	14	1.50E+03

(ブランク試験)

	液相中コロイド濃度 (mol/l)	液相中Sr(トレーサ)濃度 (cpm/ml)	ブロック花崗岩からの溶出 Si, Al, Mg濃度	粉碎花崗岩から溶出 Si, Al, Mg濃度
1日目	1.30E-03	10065	検出下限値以下	検出下限値以下
3日目	1.30E-03	9955	〃	〃
7日目	1.30E-03	9854	〃	〃
14日目	1.30E-03	9870	〃	〃



COLLOID 試験の結果を予測するにあたっては、表面分配係数を与えるのが適当である。そこで、 $K_d=1.5 \times 10^3 \text{ m}^3/\text{kg}$  の値は、モンモリロナイト粒子の比表面積が約  $800 \times 10^3 \text{ m}^2/\text{kg}$  であることから、表面分配係数  $K_a=1.9 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2$  に換算して入力値とした。

(b) Hwang らのモデルによる COLLOID 試験結果の予測

図 3.4.3-3 には、(3.4.3-4 式)から予測された COLLOID 試験におけるコロイド共存下でのイオンの移行、およびコロイドが存在しない場合のイオンの移行を示す。それから分かるように、両者は約 83 時間(約 300,000sec)で COLLOID 試験で扱う岩石亀裂カラム(カラム長さ 30cm)を破過することが予測された。また、動燃事業団殿から提示された COLLOID 試験の条件では、両者の破過に時間的ずれがないことが予測された。

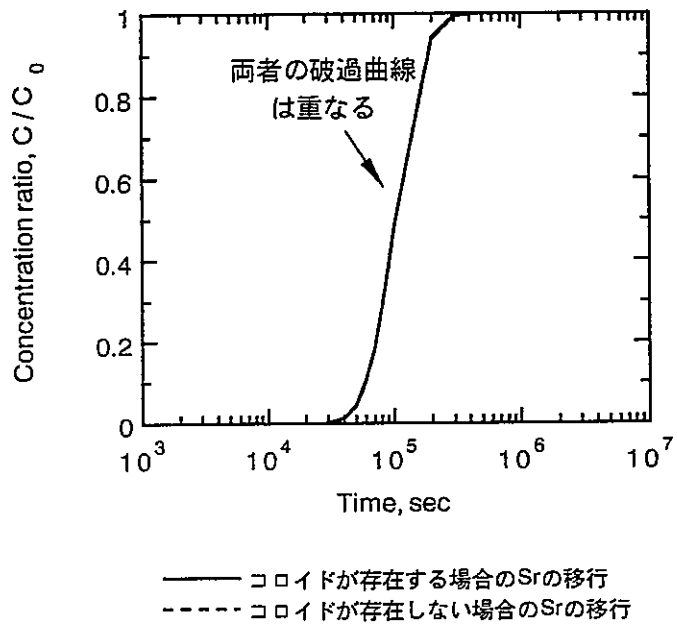


図3.4.3-3 HwangらのモデルによるCOLLOID試験の予測

(2) 処分条件でのコロイドの影響の予測評価

地層処分システムの性能評価を行う上で重要な核種については、以下のように、11 元素 18 核種が評価対象核種として選定されている。

Am-243 — Pu-239 — U-235

Am-241 — Np-237 — U-233

Pu-240 — U-236 — Th-232

U-238 — U-234 — Th-230

Cs-135, Sn-126, Pd-107, Tc-99, Zr-93, Se-79

ただし、本解析では Am、Pu、U および Th については、そのうちの代表核種として Am-243、Pu-239、U-235 および Th-230 を選定し、作成した(3.4.3-3 式)の計算プログラムを用いて、コロイドを共存する場合の核種移行について計算を行った。

(i) 半減期を考慮しない場合の解析

まず、本解析では、選定した 11 核種について、半減期を考慮しないで( $\lambda=0$ として)コロイド・核種移行解析を実施した。計算に必要なパラメータは、保守的かつ処分地層の環境を考慮して設定した。表 3.4.3-2 および表 3.4.3-3 には、設定したパラメータの値を示す。これらは動燃事業団殿がこれまでに取得した実験データや深地層データ、および本研究において取得した粉碎花崗岩に対するベントナイトコロイドの吸着データをもとに設定した。評価地点は  $L=100\text{m}$  とした。

解析の結果、コロイドが共存する場合、核種の移行は助長される傾向にあることが示された。表 3.4.3-4 には、コロイドを共存する場合の核種の移行速度と、コロイドの影響を考慮しないで計算した核種の移行速度を示す。それから分かるように、両者の比は、コロイドへのイオンの吸着性( $K_d$ )が大きい核種ほど大きく、とくにコロイド(ここでは、ベントナイトコロイド)が共存することで、2 倍以上顕著に移行が助長される核種としては Am-243、U-238 および Sn-126 が挙げられ、これらはいずれも  $K_d > 1\text{m}^3/\text{kg}$  であった。

表 3.4.3-2 主要 11 元素の移行解析に必要な各パラメータの設定値

パラメータ	設定値
①Kd <sub>1</sub> (岩盤へのコロイドの吸着)	Kd <sub>1</sub> =0.001m <sup>3</sup> /kg *)
②Kd <sub>2</sub> (岩盤へのイオンの吸着)	表 3.4.3-3 参照 *)
③Kd <sub>3</sub> (コロイドへのイオンの吸着)	表 3.4.3-3 参照 *)
④D <sub>1</sub> (コロイドの分散係数)	D <sub>1</sub> = De <sub>1</sub> + α <sub>1</sub> v <sub>1</sub> より算出 De <sub>1</sub> : コロイドの拡散係数(3.2x10 <sup>-3</sup> m <sup>2</sup> /yr) α <sub>1</sub> : コロイドの分散長(0.1xL)
⑤D <sub>2</sub> (核種の分散係数)	D <sub>2</sub> = De <sub>2</sub> + α <sub>2</sub> v <sub>2</sub> より算出 De <sub>2</sub> : イオンの拡散係数(5.7x10 <sup>-3</sup> m <sup>2</sup> /yr) α <sub>2</sub> : 核種の分散長(0.1xL)
⑥ε <sub>1</sub> (亀裂中の地下水の体積分率)	ε <sub>1</sub> =0.99 (飽和体を仮定)
⑦b (亀裂の 1/2 幅)	4×10 <sup>-2</sup> /2m (PNC 核種移行解析用データ参照)
⑧ε <sub>p</sub> (岩石の空隙率)	ε <sub>p</sub> =0.02 (釜石鉾山産花崗岩データ)
⑨D <sub>p</sub> (岩石マトリクスへの核種の拡散係数)	D <sub>p</sub> =1.6×10 <sup>-7</sup> m <sup>2</sup> /yr (PNC 核種移行解析用データ参照)
⑩R <sub>p</sub> (遅延係数)	R <sub>p</sub> =1+(1-ε <sub>p</sub> )ρKd <sub>2</sub> /ε <sub>p</sub> より算出
⑪v <sub>1</sub> (コロイドの流速)	v <sub>1</sub> =1.4v <sub>2</sub> (HDC 現象を考慮した際の最大値)
⑫v <sub>2</sub> (地下水流速)	v <sub>2</sub> =3.2×10 <sup>-2</sup> m/yr (PNC 核種移行解析用データ参照)
⑬ξ <sub>1</sub> (地下水中的コロイドの体積比)	ξ <sub>1</sub> =1.0×10 <sup>-4</sup> (PNC TN1100 96-010)

\*) Hwang らのモデルでは、各 Kd パラメータは[ - ]で与える必要があるため、計算を実施するにあたっては岩石およびコロイドの比重[kg/m<sup>3</sup>]を乗じた。

表 3.4.3-3 評価対象 11 核種の Kd<sub>2</sub> および Kd<sub>3</sub> の設定値

元素	Kd <sub>2</sub> [m <sup>3</sup> /kg]	Kd <sub>3</sub> [m <sup>3</sup> /kg]
Am-243	0.5	5
Pu-239	0.5	1
U-238	1	10
Np-237	0.5	1
Th-230	0.5	1
Cs-135	0.01	0.01
Sn-126	1	5
Pd-107	0.1	0.01
Tc-99	0.1	0.5
Zr-93	0.1	1
Se-79	0.01	0

表 3.4.3-4 コロイドの影響の有無による核種の移行速度の比較

	$v/R$ (m/yr)	$v_2/R_2$ (m/yr)	$(v/R)/(v_2/R_2)$	$Kd_1$ (m <sup>3</sup> /kg)	$Kd_2$ (m <sup>3</sup> /kg)	$Kd_3$ (m <sup>3</sup> /kg)
Am-243	5.8E-3	2.2E-3	2.6	0.001	0.5	5
Pu-239	3.0E-3	2.2E-3	1.4		0.5	1
U-238	5.0E-3	1.2E-3	4.2		1	10
Np-237	3.0E-3	2.2E-3	1.4		0.5	1
Th-230	3.0E-3	2.2E-3	1.4		0.5	1
Cs-135	2.5E-2	2.5E-2	1.0		0.01	0.01
Sn-126	3.1E-3	1.2E-3	2.6		1	5
Pd-107	8.8E-3	8.8E-3	1.0		0.1	0.01
Tc-99	1.0E-2	8.8E-3	1.1		0.1	0.5
Zr-79	1.1E-2	8.8E-3	1.3		0.1	1

(ii) 半減期を考慮した場合の解析

ここでは、選定した 11 核種について、半減期を考慮して核種移行解析を実施した。評価地点は  $L=100\text{m}$  である。表 3.4.3-5 には、コロイド・核種移行の解析解(3.4.3-4 式)において、半減期を考慮する項について計算した結果を示す。半減期の影響はとくにそれら値を乗じて評価される。ただし、解析解において半減期の影響を評価する項は、Hwang らの報告する解析解(3.4.3-2 式)と、本研究で導いた解析解(3.4.3-3 式)では一致していない。したがって、ここでの計算結果の取り扱い、あくまでも半減期の影響に関する定性的解釈にとどめ、その影響を定量的に評価するためにはさらに検討が必要であると考えられる。

表 3.4.3-5 核種の半減期と(3.4.3-4 式)に乘じる値の関係

	半減期(yr) $T_{1/2}$	$\exp\left(-\frac{\sqrt{v^2 + 4R\lambda D} - v}{2D}x\right)$
Am-243	$7.37 \times 10^3$	0.22
Pu-239	$2.41 \times 10^4$	0.40
U-238	$4.47 \times 10^9$	1.00
Np-237	$2.14 \times 10^6$	0.99
Th-230	$7.70 \times 10^4$	0.74
Cs-135	$3.00 \times 10^6$	1.00
Sn-126	$1.00 \times 10^5$	0.80
Pd-107	$6.50 \times 10^6$	1.00
Tc-99	$2.13 \times 10^5$	0.97
Zr-93	$1.53 \times 10^6$	1.00
Se-79	$6.50 \times 10^4$	0.96

(3) 崩壊連鎖を伴うコロイド共存下での核種移行

Hwang らの文献に記載されているコロイドを含む核種移行の解析解は、崩壊連鎖の上位核種(親核種)に伴う崩壊連鎖の下位核種(娘核種)の挙動は計算できない。また、このような複雑な系については、解析解を解くことは困難である。このため、差分法により数値計算を行うこととした。数値計算では解析解による計算結果と比べ誤差が伴うことから、厳密な解釈を行いたい場合には適さない。また、適用にあたっては計算結果の妥当性を十分吟味することが必要であり、ここでの計算結果の取り扱いについては、あくまでコロイドの移行に関する定性的解釈にとどまる。

(i) 数値解法

まず Hwang らのモデルを前提とし、以下に示した移流分散方程式をそれぞれ独自に解くこととした。ここで微分方程式の離散化にあたっては陽解法のうち補正後退差分式を適用した。

•pseudo-colloid transport

$$\varepsilon_1 \xi_1 \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial t} + \varepsilon_1 \xi_1 v_1 \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial x} + \varepsilon_1 S_1(x,t) + \varepsilon_1 S_2(x,t) - \varepsilon_1 \xi_1 D_1 \frac{\partial^2 C_1(x,t)}{\partial x^2} + \varepsilon_1 \xi_1 \lambda C_1 = 0$$

•solute transport

$$\varepsilon_1 \frac{\partial C_2(x,t)}{\partial t} + \varepsilon_1 v_2 \frac{\partial C_2(x,t)}{\partial x} - \varepsilon_1 S_2(x,t) + \varepsilon_1 S_3(x,t) - \varepsilon_1 D_2 \frac{\partial^2 C_2(x,t)}{\partial x^2} + \varepsilon_1 \lambda C_2 + \frac{q(x,t)}{b} = 0$$

(3.4.3-5 式)

次いで、コロイド、岩盤および液相の3相間での分配反応計算を行ったのち、マトリクス拡散およびマトリクス拡散後の岩盤と空隙での核種分配の効果を計算した。マトリクス拡散については次式により近似した。

$$F(t) = -D_p \frac{C_p - C_2}{f/2} \Delta x \Delta t$$

(3.4.3-6 式)

ここで、fは便宜上設定した岩盤内へのマトリクス拡散可能な深さである。また、 $C_p$ は岩盤内空隙中の核種濃度平均値である。こののち、マトリクス拡散により液相中核

種濃度が変化するため、同じ時間帯において再度分配反応を計算し、離散化された各メッシュにおいて崩壊計算を実施した。

## (ii) 計算結果

計算は、次の2種類の崩壊系列に対して、

①Am-243, Pu-239, U-235

②Th-230, Ra-226, Pb-210

核種のコロイドへの吸着がある場合およびコロイドへの吸着がない場合をそれぞれ計算した。表 3.4.3-6 および表 3.4.3-7 に計算条件を示す。

図 3.4.3-4 および図 3.4.3-5 には、Am-243 系列核種の移行に関して計算したコロイドへの核種の吸着がある場合および無い場合の結果を示す。コロイドの影響がない場合の放出核種濃度のピークは約 20 万年において見られるのに対し、コロイドの影響がある場合には数千年であり、コロイドの共存による核種移行の促進効果が見て取れる。また、各ケースとも娘核種の挙動は親核種の挙動に追従する形を取っている。亀裂中の水の移動速度は  $3.20 \times 10^{-2} \text{m/y}$  であるため、100m の移行時間は 3125 年である。コロイドの影響がない場合、設定値から算出される Am-243 の遅延係数は 151 であり、Am-243 の 100m 地点到達時間として約 50 万年が予想される。図 3.4.3-4 では約 20 万年の時点で Am-243 のピークが見られるのは、Am-243 の半減期が 7370 年であり評価期間に比べて小さいこと、および分散によるピーク濃度低下が起こることが影響していると考えられる。

また、コロイドの影響を考慮した図 3.4.3-5 の計算結果は、図 3.4.3-4 と比べ大きく異なっている。Am-243 のピーク到達時期はほとんど水の移行時間と変わらない。ここで計算条件から、空隙中の移動可能な核種、すなわちコロイド上に吸着している核種と液相に存在している核種の合計に対するコロイド上に吸着している核種量を算出した。 $K_d$  が  $5 \text{m}^3/\text{kg}$  という高い数値であったため、コロイド存在分率は 0.05 であるにも関わらず、99.86%の核種がコロイド上に存在する。この結果、Am-243 はほとんど空隙水と同様の移行挙動を示したものと考えられる。

図 3.4.3-6 および図 3.4.3-7 には、Th-230 系列核種の移行に関して計算したコロイドへの核種の吸着がある場合、および無い場合の結果を示す。コロイドの影響が無い場合、親核種である Th-230 よりも娘核種である Ra-226 や Pb-210 の移行



が速やかであるが、これは各分配係数の設定値に依存しており、特に Ra-226 の分配係数設定値がきわめて小さいことが影響している。これに対しコロイドの影響がある場合には親核種と娘核種の移行状況の相違は小さくなっている。これは Ra-226 のコロイドへの分配係数を小さく設定したため Ra-226 は岩盤との相互作用によって移行遅延し、コロイドに伴って速やかに移行する Th-230 との移行速度の相違が小さくなったためと考えられる。ここで、コロイドの存在により娘核種である Ra-226 や Pb-210 の濃度ピーク値は増加するもの、移行速度は変化していない。これは前述のように Ra-226 のコロイドへの分配係数がきわめて小さく、コロイドの影響がほとんどないためである。このように、崩壊連鎖を考慮した疑似コロイドの核種移行では、親だけでなく娘核種の個々のパラメータ設定がそれぞれ影響してくるため、単純な感度解析的計算により系統的に疑似コロイドの影響の傾向を把握するのは困難である。

このことから、崩壊連鎖を伴う疑似コロイドの移行について解く場合、以下のことが肝要であると考えられる。

- ① ある程度絞り込まれたパラメータ設定に対して絞り込んだ条件で計算を行い、影響を把握していくことが効率的である。
- ② 崩壊連鎖を考慮した核種およびコロイドの移行に関して解析解を得ることは困難と予想されることから、計算にあたっては数値解法を利用することが適切と考えられる。

表 3.4.3-6 Am-243 系列核種の移行評価入力データ

データ項目	Am-243	Pu-239	U-235
$v_1$ : コロイドの亀裂中移行速度(m/y)	4.48e-2	←*	←
$v_2$ : 溶質の亀裂中移行速度(m/y)	3.20e-2	←	←
$D_1$ : コロイドの亀裂中分散係数(m <sup>2</sup> /y)	4.48e-2	←	←
$D_2$ : 溶質の亀裂中分散係数(m <sup>2</sup> /y)	3.20e-2	←	←
$D_p$ : マトリクス拡散係数(実効拡散)(m <sup>2</sup> /y)	1.58e-4	←	←
$\xi_1$ : 亀裂中の移行可能なコロイド体積分率(-)	5.0e-2	←	←
$\xi_2$ : 亀裂中の移行不能なコロイド体積分率(-)	5.0e-5	←	←
$\varepsilon_1$ : 亀裂の空隙率(-)	0.9	←	←
$\varepsilon_p$ : 岩盤の空隙率(-)	0.02	←	←
$\rho_{colloid}$ : コロイドの真密度(kg/m <sup>3</sup> )	2.7e3	←	←
$\rho_{rock}$ : 亀裂中岩石部分および岩盤の真密度(kg/m <sup>3</sup> )	2.7e3	←	←
2b: 亀裂幅(m)	7.88e-2	←	←
f: マトリクス拡散深さ(計算上の架空パラメータ)(m)	1.0	←	←
$Kd_1$ : コロイドの岩盤への吸着率(-)	1.0e-3	←	←
$Kd_2$ : 溶質の亀裂内岩石への分配係数(m <sup>3</sup> /kg)	0.5	0.5	1.0
$Kd_3$ : 溶質のコロイドへの分配係数(m <sup>3</sup> /kg)	5.0	0.1	0.5
L: 核種移行距離(m)	100	←	←
$T_{1/2}$ : 放射性半減期(y)	7.37e3	2.41e4	7.04e8
距離0における親核種濃度1の期間	1000 年間	考慮せず	考慮せず

注)コロイドの影響を無視する場合は  $Kd_3=0$  とし、その他のパラメータは同じとする。

\* )←の欄は左欄と同じ値を使用する。

表 3.4.3-7 Th-230 系列核種の移行評価入力データ

データ項目	Th-230	Ra-226	Pb-210
$v_1$ : コロイドの亀裂中移行速度(m/y)	4.48e-2	←*	←
$v_2$ : 溶質の亀裂中移行速度(m/y)	3.20e-2	←	←
$D_1$ : コロイドの亀裂中分散係数(m <sup>2</sup> /y)	4.48e-2	←	←
$D_2$ : 溶質の亀裂中分散係数(m <sup>2</sup> /y)	3.20e-2	←	←
$D_p$ : マトリクス拡散係数(実効拡散)(m <sup>2</sup> /y)	1.58e-4	←	←
$\xi_1$ : 亀裂中の移行可能なコロイド体積分率(-)	5.0e-2	←	←
$\xi_2$ : 亀裂中の移行不能なコロイド体積分率(-)	5.0e-5	←	←
$\varepsilon_1$ : 亀裂の空隙率(-)	0.9	←	←
$\varepsilon_p$ : 岩盤の空隙率(-)	0.02	←	←
$\rho_{colloid}$ : コロイドの真密度(kg/m <sup>3</sup> )	2.7e3	←	←
$\rho_{rock}$ : 亀裂中岩石部分および岩盤の真密度(kg/m <sup>3</sup> )	2.7e3	←	←
2b: 亀裂幅(m)	7.88e-2	←	←
f: マトリクス拡散深さ(計算上の架空パラメータ)(m)	1.0	←	←
$Kd_1$ : コロイドの岩盤への吸着率(-)	1.0e-3	←	←
$Kd_2$ : 溶質の亀裂内岩石への分配係数(m <sup>3</sup> /kg)	1.0	0.01	0.01
$Kd_3$ : 溶質のコロイドへの分配係数(m <sup>3</sup> /kg)	0.1	0.00001	0.01
L: 核種移行距離(m)	100	←	←
$T_{1/2}$ : 放射性半減期(y)	7.54e4	1.60e3	22.3
距離0における親核種濃度1の期間	1000 年間	考慮せず	考慮せず

注)コロイドの影響を無視する場合は  $Kd_3=0$  とし、その他のパラメータは同じとする。

\* )←の欄は左欄と同じ値を使用する。

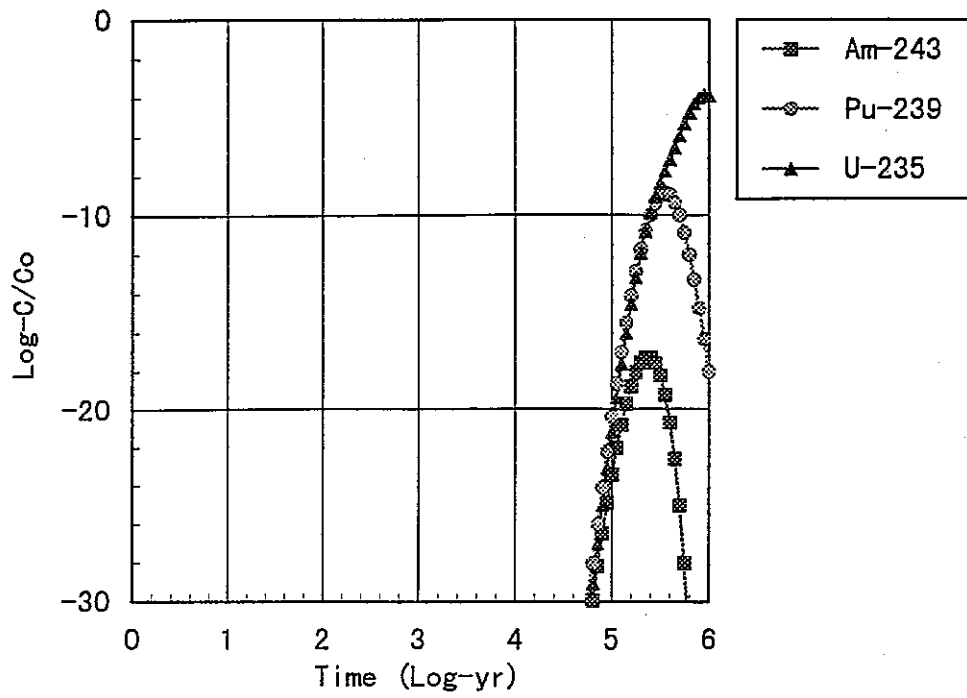


図3. 4. 3-4 Am-243の崩壊系列に対する移行(コロイドへの吸着がない場合)

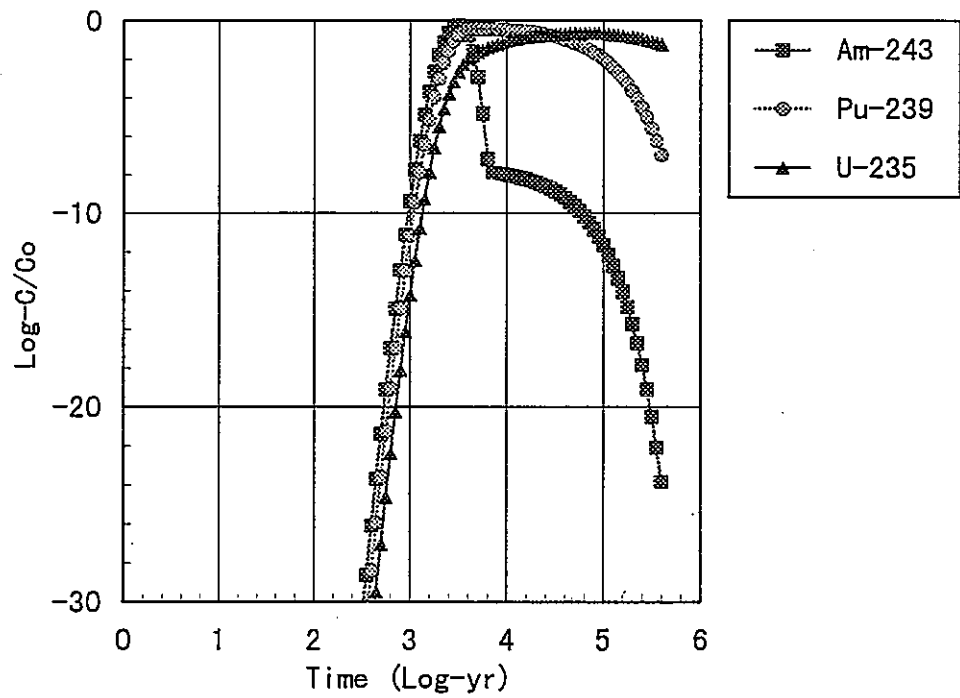


図3. 4. 3-5 Am-243の崩壊系列に対する移行(コロイドへの吸着がある場合)

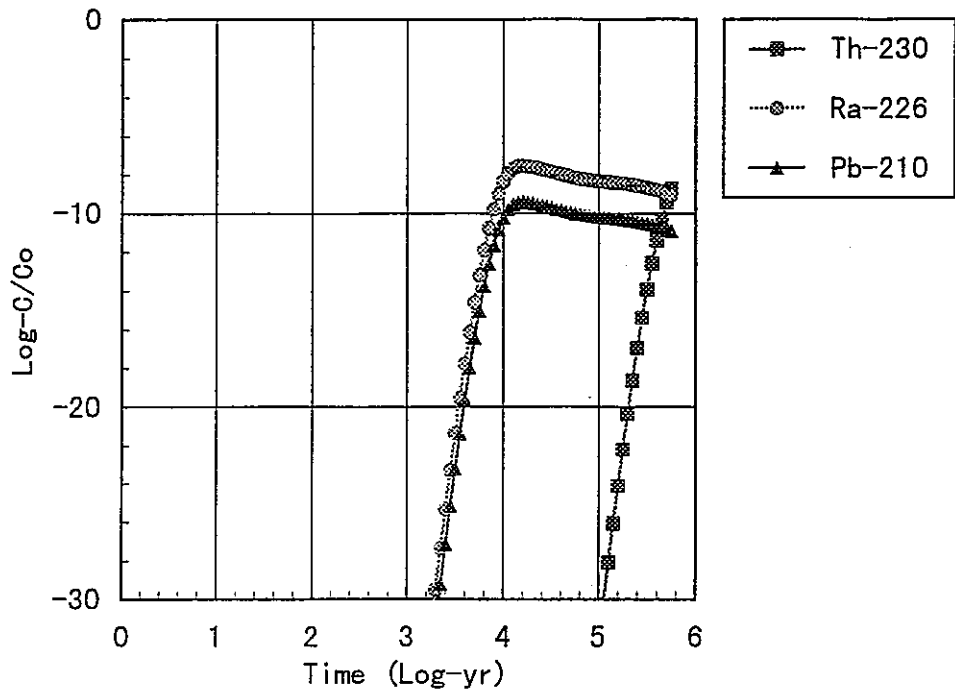


図3.4.3-6 Th-230の崩壊系列に対する移行(コロイドへの吸着がない場合)

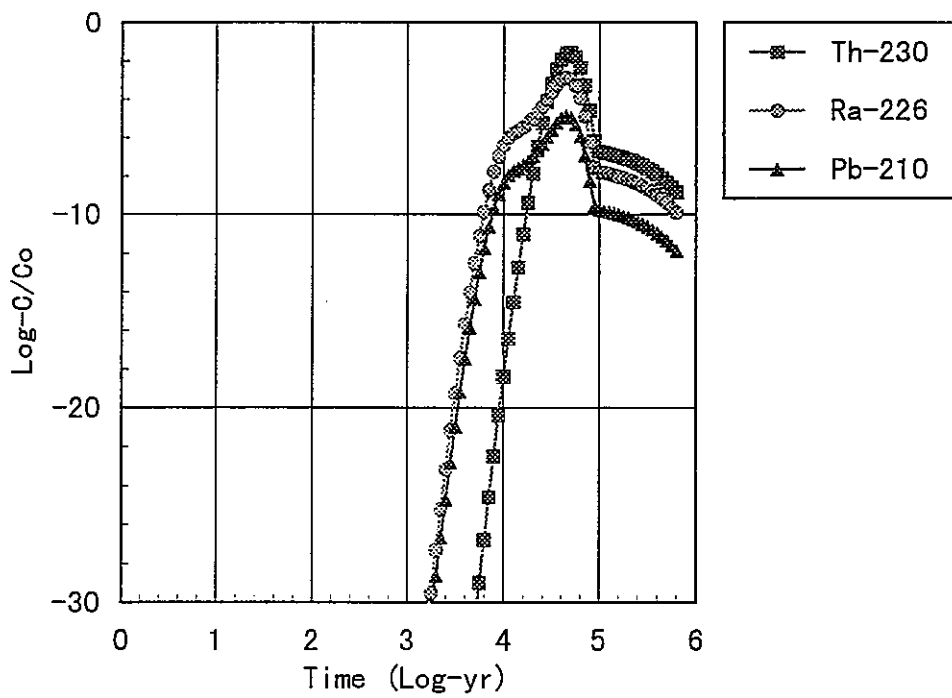


図3.4.3-7 Th-230の崩壊系列に対する移行(コロイドへの吸着がある場合)

#### 4. まとめ

本年度の成果を以下にまとめた。

##### 1. 重要元素の核種移行データベースの整備

21 元素に対し、 $\text{OH}^-$ 、 $\text{CO}_3^{2-}$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{F}^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{PO}_4^{3-}$ を対象とした溶液中の化学種及び固相のデータ整備及びその国際的専門家のレビューを行った。また、岩石などへの17元素の収着データ及び7元素の拡散データ整備を行った。ベントナイトに関しては Pu の収着及び拡散データベースの整備を行った。

##### 2. データベース整備に係わるデータ取得

ベントナイト、花崗閃緑岩、凝灰岩を対象に Th の収着試験を実施した。またベントナイトを対象に Ra、Np、Tc、U、ケイ砂混合ベントナイトを対象に Cs、Se、Ni の拡散試験を実施し、見かけの拡散係数を取得した。

##### 3. ベントナイトの間隙水水質推定モデルの検討

イオン交換モデルにおける吸着化学種の活量補正について評価を行った。また空隙水組成に及ぼす不純物の影響に検討し、空隙水 pH に対して方解石、石膏、硫化鉄の存在が影響することを明らかにした。

##### 4. コロイドの核種移行に与える影響の評価

Hwang らのモデルを確認するためのデータ取得試験を実施するとともに、コロイドの存在が核種移行に与える影響の評価を行った。