

本資料は 年 月 日付けで登録区分、
変更する。 2001. 6. 20

[技術情報室]

TRU廃棄物処分システムの 予備的性能評価 (I)

—人工バリアからの核種の放出率による検討—

1994年7月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

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大字村松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

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)
2001

ては複製、転載、
下さい。また今

TRU廃棄物処分システムの予備的性能評価 (I)

—人工バリアからの核種の放出率による検討—

2001. 6. 20

表示

報告者 三原 守弘* , 吉川 英樹*

油井 三和*

要 旨

平成3年7月に原子力委員会は、「TRU核種を含む放射性廃棄物の処理処分について」を公表し、その中でTRU廃棄物の処分を1990年代後半までに見通しが得られるよう検討を行う必要があることを述べている。

以上の状況を踏まえ、本報告書では、TRU廃棄物の特性を考慮し、暫定的に設定した処分システムにて予備的な性能評価試算を行い、今後の研究課題の抽出及びそれらの優先順位付けを行った。

主な結果は、以下のとおりである。

- (1) C-14やI-129等の地下水に対して可溶性かつ非吸着性の核種が人工バリアからの放出率を支配する重要な核種となるため、これらの核種の遅延機構の研究を行う必要がある。
- (2) 硝酸塩及び有機物の存在により核種の溶解度が上がることが示唆された。よって硝酸塩及び有機物の存在下における信頼性の高い熱力学データの取得、拡散係数及び分配係数の取得を行う必要がある。
- (3) 可溶性核種の人工バリアからの放出率については、固化体中のインベントリに依存するためインベントリを把握する必要がある。

また、本試算ではデータ不足等により考慮しなかったが重要と考えられる研究としては人工バリア材の長期安定性、ガスの発生・移行、微生物影響調査研究等が挙げられる。

今後、これらの研究を進めながら処分システムの構築を行う必要がある。

* 東海事業所 環境技術開発部 地層処分開発室

目 次

1. はじめに	1
2. TRU廃棄物処分システムの考え方	2
3. 地下水シナリオに対する人工バリアシステムの予備的性能評価	3
3.1 解析のモデル体系	3
3.2 評価対象廃棄物の選定	3
3.3 解析対象とした人工バリアシステムの仕様	4
3.4 解析を行うケース	4
3.5 人工バリアの挙動解析－人工バリア中の地下水の化学的特性の設定	5
3.5.1 解析の考え方	5
3.5.2 解析結果	8
3.6 人工バリア中の核種移行解析	10
3.6.1 解析モデル	10
3.6.2 概念モデル	10
3.6.3 数学的定式化	11
3.6.4 解析の前提	12
3.6.5 解析のためのデータ	13
3.6.6 解析結果	15
3.7. まとめ	16
4. 今後の研究課題	17
参考文献	18
Appendix	45

1. はじめに

使用済み燃料の再処理とウラン、プルトニウム混合酸化物燃料の加工の過程で発生する放射性廃棄物は、 $\beta \cdot \gamma$ 核種の他に α 核種である半減期の長いTRU核種も含んでおり、この放射性廃棄物から高レベル放射性廃棄物を除いたものを「TRU核種を含む放射性廃棄物」という。平成3年7月に原子力委員会の放射性廃棄物対策専門部会は「TRU核種を含む放射性廃棄物の処理処分について」¹⁾（以下「専門部会報告書」という。）を策定した。そのなかでTRU核種を含む廃棄物を①浅地中処分の可能性がある低レベル放射性廃棄物と②人工バリア等が高度化された処分や地層処分等の浅地中処分以外の処分方法が適切である放射性廃棄物（以下この廃棄物を「TRU廃棄物」という。）とに区分し処分することを述べている。また、TRU廃棄物については、1990年代後半までに処分の見通しが得られるように検討していく必要があること、処分技術の研究開発は、動力炉・核燃料開発事業団（以下「事業団」という。）が日本原子力研究所の協力を得て進めること等を述べている。

このような状況から本報告書では、TRU核種を含む放射性廃棄物の処分研究（主としてTRU廃棄物の処分研究）を事業団が進めるにあたり、事業団内で研究が先行している高レベル放射性廃棄物の処分研究の成果を用いて暫定的に設定した人工バリアシステムに対して予備的な性能評価を行った。さらに、その結果を基に今後進めるべき研究課題の抽出及びその優先順位づけを行った。なお、人工バリアシステムの性能評価手法については、動燃事業団が平成3年度にまとめた「高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書」²⁾（以下「H3レポート」という。）に準じた。

2. TRU廃棄物の処分システムの考え方

専門部会報告書では、以下の2通りのTRU廃棄物の処分システムが記されている。

①人工バリア等が高度化された処分

②地層処分等の浅地中処分以外の処分

諸外国ではほとんどの国々で①の処分よりむしろ②の地層処分を処分方針としている。諸外国における、我が国のTRU廃棄物に相当する廃棄物の処分方策の調査³⁾より、処分システムの構成要素をまとめた結果を表2-1に示す。この結果よりほとんどの国々でTRU廃棄物を地下深部の大空洞やトンネル等にまとめて処分するという方策がとられていることが分かる。また、廃棄物を設置するため充填材としてセメント系材料（以下「コンクリート」という。）の使用が検討されている。また、廃棄物の発生量が多いこと、発熱性の廃棄物が少ないことから、我が国におけるTRU廃棄物の処分システムについても、地下深部の大空洞にまとめて処分すること及びコンクリートを使用すること等が考えられる。さらに、人工バリアシステムの核種閉じ込め性能をより高めるために、核種の遅延効果、止水性が期待できる緩衝材を使用する必要がある。

以上を考慮したTRU廃棄物の処分システムの概念を図2-1に示した。

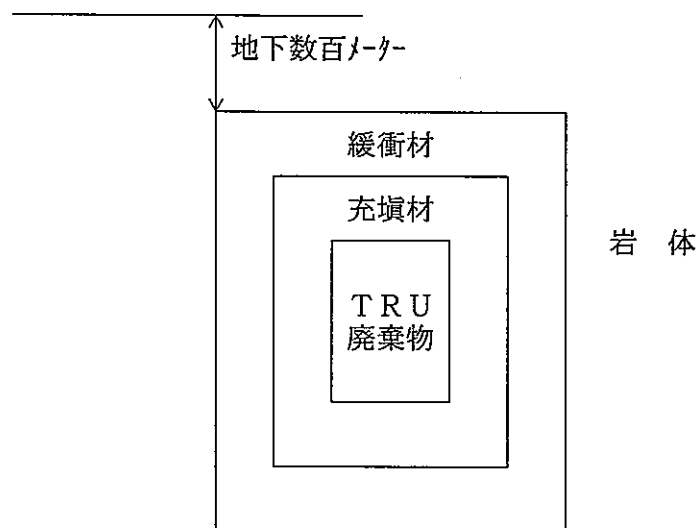


図2-1 TRU廃棄物の処分システムの概念

なお、それぞれの人工バリア材に期待される機能をまとめると以下ようになる。

緩衝材；核種吸着遅延性、自己シール性、止水性、化学的緩衝性、応力緩衝性

充填材；廃棄物間の充填、化学的緩衝性（特にコンクリート）

本報告書では、この処分システムの概念に基づき地下水シナリオに対して人工バリアシステムの予備的な性能評価を行うものとする。

3. 地下水シナリオに対する人工バリアシステムの予備的性能評価

2.では、処分システム概念を示した。本章では、H3レポートで用いられた手法に基づき予備的に地下水シナリオに対する人工バリアシステムの性能を把握した。

3.1 解析のモデル体系

H3レポートで用いた解析のモデル体系を図3-1に示す。このモデル体系・データベースを基本に、TRU廃棄物処分における固有の現象を考慮したモデル体系を図3-2に示す。TRU廃棄物処分における固有な人工バリア中の現象として、人工バリア中のガスの移行、微生物の活動及びTRU廃棄物の溶解（特に廃棄物に含まれる硝酸塩や有機物）等が考えられる。今後、この図を見直しつつ図に示される挙動を全て考慮し処分システムの性能評価を行う必要があるが、本評価では特に人工バリア中の地球化学的な特性に着目し、人工バリアからの核種の放出率を解析することにより、処分システムの予備的な性能評価を行うこととした。地球化学モデルに与える挙動としては、図3-2に示されるように、放射影響、腐食の影響及びTRU廃棄物溶解の影響（硝酸塩や劣化有機物等）が考えられ、放射影響については、本評価では予備的なものであるため考慮しないものとした。さらに、腐食の影響については、腐食生成物が地球化学モデルに与える影響のみを考慮した。

3.2 評価対象廃棄物の選定

専門部会報告書によれば、 α 核種の放射能濃度によって分類した場合、1GBq/t以上のTRU核種を含む廃棄物をTRU廃棄物と定義している。しかし、再処理工場から発生するTRU核種を含む廃棄物の含有核種や濃度は、廃棄物の発生時期やプロセスによりばらつきがあり、しかも現時点では、そのインベントリの測定評価手法について確立されていない。したがって、「TRU核種を含む廃棄物」をすべて「TRU廃棄物」とみなして検討を行うこととした。専門部会報告書に従って廃棄物を分類し、固型化材の種類、廃棄物の均質性、主な含有核種および発生量についてまとめた結果を表3-1に示した。

高レベル放射性廃棄物（ガラス固化体）とは異なるTRU廃棄物の主な特徴は、それ自体に有機物を含有するものが存在することである。現時点で固化方法が確立されていないものについてセメントによる固化を想定すれば、有機系（アスファルト、プラスチック）と無機系（セメント）の廃棄物に大別できる。そこで、有機系廃棄物として、現時点で最も多く発生しており、硝酸塩を多量に含有するなどの理由からプロセス濃縮廃

液固化体（以下「アスファルト固化体」という。）を代表として解析を行うこととした。また、無機系廃棄物としては、TRU廃棄物の中で最も放射能濃度が高いと考えられるハル・エンドピース固化体（以下「セメント固化体」という。）について解析を行った。

3.3 解析対象とした人工バリアシステムの仕様

2.では、諸外国でのTRU廃棄物の処分方策の調査³⁾から、数百mの大規模な地下空洞にまとめて処分されることを処分概念として設定した。ここでは、予備的な性能評価試算を行うため具体的な人工バリアシステム例の仕様を設定した。人工バリアシステムの仕様は、今後、処分技術の検討および性能評価試算を行い最終的な仕様を決定すべきではあるが、本解析では、人工バリアシステムの使用を暫定的に直径、高さともに20mの円筒型と仮定した（スイスでは、我が国のTRU廃棄物に相当する廃棄物の処分施設は、直径10m高さ50mの円筒型で地下1200m(結晶質岩)を考えている³⁾。固化体（ドラム缶）は、諸外国の例を参考³⁾にモノリスと呼ばれるコンテナ（ここではコンクリート製、2.2×2.2mの立方体）に封入され、その間をセメント系の材料により充填されるものとした。そしてベントナイトにより周りを囲まれたコンクリート製の構造物に設置されるものとした。その概念を図3-3に示した。モノリスには、セメント固化体（350ℓのドラム缶）については、発熱性を考慮して8本、アスファルト固化体（200ℓのドラム缶）が18本封入されるものとした。ベントナイト、コンクリートの仕様を表3-2に示す。ベントナイトの仕様については、H3レポートの値を、またコンクリートの仕様については、S. R. Alcornら⁴⁾の値を用いた。

3.4 解析を行うケース

解析では、TRU廃棄物処分に特有な現象について着目することとした。すなわち、長半減期で地下水に対して可溶性の核種であるI-129（半減期 1.6×10^7 年）やC-14（半減期 5.7×10^3 年）を含有していること及びコンクリートの地下水への影響を考慮することとした。地下水に対して難溶性の核種については、初期において水酸化物系の溶解度制限固相であるが長期的には酸化物系の溶解度制限固相となるため、両溶解度制限固相で解析を行うこととした（(1)基本ケース）。さらに、アスファルト固化体については、含有する硝酸塩及び有機物の影響により核種の溶解度、分配係数（吸着性能）、拡散係数等が変化して処分システムに影響を及ぼすことが考えられるが、有機物および硝酸塩の存在により分配係数や拡散係数についてのデータが体系的に取得されておらず、そのメカニズムについてもほとんど明らかではない。よって、硝酸塩の熱力学データ及

び一部の有機物（アスファルトの劣化生成物を想定した有機物）の熱力学データを用いて核種の溶解度に与える影響について解析し、その溶解度が核種移行に与える影響を評価するケースを設定することとした（(2)硝酸塩影響ケース、(3)有機物影響ケース）。解析のケースをまとめたものを表3-3 に示す。

3.5 人工バリアの挙動解析－人工バリア中の地下水の化学的特性の設定－

人工バリアの性能を把握するための核種移行解析を行うにあたっては、人工バリア中の核種の拡散、吸着、沈殿・溶解といった現象を評価する必要がある。そのため人工バリア中の地下水の化学的特性を把握しなければならぬ。地下水の化学的特性は、人工バリア材（ベントナイト、コンクリート、金属（ドラム缶等））との化学的相互作用により変化する（地球化学モデル）と同時に廃棄物固有の化学的特性（硝酸塩、有機物の溶解や劣化）により変化する（TRU廃棄物溶解モデル）ことが考えられる。

そのため、人工バリアに浸入した地下水の化学的特性の変化をモデル化し、H3レポートで設定した4種類のモデル地下水のうち降水系高pH型地下水に対して、人工バリア内各部における間隙水の化学組成やpH、酸化還元電位の予察的な評価を行った。なお、解析には、地球化学コード「PHREBQE」⁵⁾を用いることとした。

3.5.1 解析の考え方

人工バリア中の地下水の化学的特性をモデル化するにあたっては、人工バリア材のみが影響する場合と、さらにアスファルト固化体については固化体の影響を考慮する場合について考えることができる。以下に(1)人工バリア材のみの影響を考慮した場合及び(2)固化体の影響も考慮した場合のそれぞれの解析の考え方について概説する。

(1)人工バリア材のみの影響を考慮した場合

人工バリア中における地下水組成の化学的変化は、まず①ベントナイト中の随伴鉱物の溶解やモンモリロナイトのイオン交換によりpH、酸化還元電位及びイオン濃度が増加し、次いで②コンクリート中の主な水和生成物であるカルシウムケイ酸塩水和物（以下C-S-H ゲルと略す；筆者らの研究⁶⁾によればセメントの水和生成物の約60wt.% を占める）の溶解によりpHやイオン濃度が増加し、さらに③金属容器の腐食生成物との反応により酸化還元電位が増加するものとしてモデル化を行った。以上の変化を図3-4 に示す。

①ベントナイト－地下水相互作用のモデル

まずベントナイト－地下水相互作用のモデル化においては、コンクリートから

のCa²⁺の溶出・拡散によりベントナイト中のNa-モンモロリロナイトはCa-モンモロリロナイトに変化することが推定されるが(ベントナイトのCa型化は試算によれば数千年以内に終了するとの報告⁷⁾がある。)、Ca型ベントナイトの基本特性が充分得られていないことから、ここでは、H3レポートで採用しているNa-ベントナイトに関するWannerのモデル⁸⁾を用いることとした。

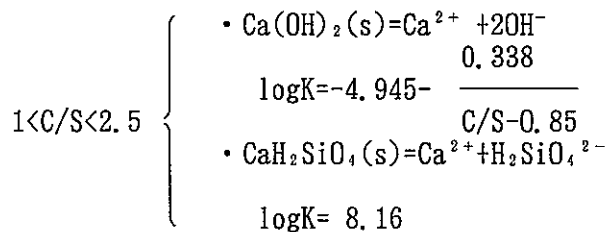
②コンクリート-地下水相互作用のモデル

コンクリート-地下水相互作用のモデル化については、Bernerら⁹⁾の提案しているC-S-Hゲルの溶解モデルを用いることとした。C-S-Hゲルは、一般に組成はxCaO・SiO₂・yH₂Oとして表わされ、xの値、すなわちCaO/SiO₂モル比(通常C/Sで表わす)の変化に対応する以下の溶解モデルが用いられている。

- (a)領域Ⅰ: C/S<1, 平衡固相=SiO₂, CaH₂SiO₄, 全Ca濃度は、2mMol/ℓ以下
全Si濃度は、5mMol/ℓ以上
- (b)領域Ⅱ: 1<C/S<2.5, 平衡固相=SiO₂, CaH₂SiO₄, 全Ca濃度は、2 ~ 21mMol/ℓ
全Si濃度は、0.01~0.1mMol/ℓ
- (c)領域Ⅲ: 2.5<C/S, 平衡固相=SiO₂, CaH₂SiO₄, 全Ca濃度は、21mMol/ℓ以上
全Si濃度は、0.1 mMol/ℓ以下

普通ポルトランドセメントを使用したコンクリートのC-S-HゲルのC/Sは、通常1.4<C/S<1.8であり、一般にC/Sが小さい程pHの上昇は小さい。ここでは保守性を考慮してC/S=1.4を用いることとした。

C-S-Hゲルの溶解平衡モデルに使用する熱力学データについては、以下に示すC/S依存平衡定数を用いることとした。



③金属-地下水相互作用のモデル

コンクリートによって化学的に緩衝された間隙水は固化体を収納する金属製容器(ドラム缶)と接触し安定な腐食生成物(Fe₃O₄)と化学平衡に達するものと仮定した。

(2)アスファルト固化体の影響を考慮した場合

上記の人工バリア材との化学的相互作用以外に廃棄物固有の化学的特性が考えられる。ここでは、アスファルト固化体に含有する①硝酸塩と②有機物の影響につい

での解析手法についてのべる。

①硝酸塩の影響

硝酸塩としてアスファルト中には固化体重量で約50%含まれていると推定される¹⁰⁾。ここでは、アスファルト固化体中の硝酸塩が充填材の空隙にすべて溶解しているものと仮定した。しかし、その濃度は地球化学コードで扱える濃度を遙かに越えているため、地球化学コードで扱える最大濃度(0.5mol/l)を仮定して解析を行うこととした。なお、影響をうける間隙水は上述のコンクリート緩衝液とした。

②有機物の影響

アスファルト固化体の母材であるアスファルトは高沸点炭化水素の混合物であり、天然にも存在する物質である。地下水環境におけるアスファルトの劣化機構は定かではないが微生物(嫌気性、好気性)の作用や高温により分解する。有機物の劣化生成物は核種の溶解度や収着に影響を与えることが確認されており¹¹⁾アスファルトの劣化生成物も同様に核種との錯形成により溶解度や収着に影響を与える可能性がある。ここでは、特に溶解度を与える影響を解析するための有機配位子の選定について述べ、溶解度の評価結果は3.6.5で述べることとする。

・有機配位子の選定

地下水の溶存成分としての有機物の種類は多岐にわたり、分子量も数十万にもおよび多種多様な有機物が存在するが分析を行うことは困難である。最も簡単な分析値として溶存有機炭素(DOC)があり、地下水のDOCは雨水の数百倍、河川の数十倍もの値を示している。核種移行挙動に関わる有機物の影響を研究するにあたり個々の有機物を対象とすることは不可能であり、したがって反応に寄与しそうな配位子をもつ有機物を絞りこむ必要がある。最も簡単な分類としては、核種移行に寄与しそうな反応基、すなわち有機配位子を中心とした分類を行うこと、続いて骨格構造が鎖状であるか環状もしくは枝分かれ構造であるか、また分子量の大小により分類することである。ここでは、データが取得されている有機配位子に着目してその解離定数の整理を行った。解離定数を地球化学コードのデータベースHATCHES¹²⁾より選定した。

代表的な有機配位子としてカルボキシル基がある。カルボキシル基は $\text{RCOOH} = \text{H}^+ + \text{RCOO}^-$ と解離しイオン交換や錯形成に大きな影響を持つと考えられる。

そこで、カルボキシル基を1個もしくは複数個持つ高分子有機物が分解した化合物として次のものを選定することとした。なお()内の数字はカルボキシル基の数を示す。炭水化物の単糖類に関係して低分子の分解化合物として糖類 (Saccharic acid) (2)、グルタル酸(Glutaric acid) (2)、シュウ酸(Oxalic acid) (2)、クエン酸(Citric acid) (3)、グリセリン酸(Glyceric Acid) (1)、グルコン酸(Gluconic acid) (1)、グリコール酸(Glycollic Acid) (1)を、人工の錯形成剤で解離定数が広く求められているものとしてエチレンジアミン四酢酸 (EDTA) (4) を、またイミノ基(有機化合物の分子内に含まれる-NH-または=NH)を持つものとしてイミノ二酢酸 (2) のデータ整理を行った。さらに、分子量の大きい溶存有機物であるフミン酸、フルボ酸についても解離定数を整理した。これらをまとめてAppendixとして示す。

3.5.2 解析結果

人工バリア中の地下水の化学組成、pH及び酸化還元電位の解析結果を表3-4に示す。以下に、(1)人工バリア材のみの影響を考慮した場合及び(2)アスファルト固化体の影響も考慮した場合のそれぞれの解析結果についてまとめる。

(1)人工バリア材のみの影響を考慮した場合

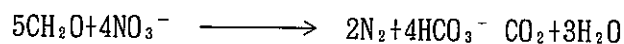
解析結果から地下水はコンクリートの緩衝作用によりpH約13に上昇する。Ca²⁺は、ベントナイト中のNa⁺とのイオン交換により一旦は下がるが、コンクリート領域中のCa(OH)₂ (s)の溶解により再び上昇し、これによりNa⁺やK⁺濃度も上昇する。炭酸濃度やSi濃度はpHの変化に応じて変化している。なお腐食生成物の反応による影響はほとんどみられなかった。

(2)アスファルト固化体の影響を考慮した場合

①硝酸塩の影響

pHは、コンクリートの緩衝効果によりほとんど変化しないが、 $pe(pe=F/2.3RT \cdot Eh, F: \text{ファデー定数}, R: \text{ガス定数}, T: \text{絶対温度}, Eh: \text{標準水素電極に対する電位差})$ は硝酸塩の影響を受け酸化性となった。また、Na⁺はNaNO₃の溶解した分だけ上昇し、これにともないベントナイトのイオン交換によりCa²⁺、Mg²⁺、K⁺が上昇した。

溶存酸素の存在しない天然地下水中では硝酸は硝酸還元菌により以下のように溶存窒素にまでなることが考えられる¹³⁾。



また、嫌氣的分解により硝酸は、亜硝酸- ヒドロキシルアミン- アンモニアという変化をたどる¹⁴⁾。温泉地域等の深井戸については、嫌氣的条件でNO₃タイプがNH₄タイプになるという報告¹⁵⁾もある。したがってこれらの知見を基に硝酸塩還元菌が存在すると仮定して、今後アスファルト中の有機物によりNO₃⁻還元を解析・評価する必要がある。

②有機物影響

今回の解析では、核種の溶解度に影響を与えそうな反応基に着目して有機物の選定を行ったため、地下水の化学的特性にはほとんど影響を及ぼさなかった。

なお、評価に用いた有機物はPu、U、Am、Th、Npに共通して存在する植物腐植系の有機物配位子(グルコン酸、シュウ酸、糖酸)を選定した。また、選定した有機物は通常地下水中に存在する有機物濃度100ppmとした。

3.6 人工バリア中の核種移行解析

本解析では、人工バリアからの核種の移行率を評価することにより、人工バリアの核種の溶出・移動の制限に関する性能を予備的に把握する。このため廃棄物からの核種の放出、人工バリア中の拡散、吸脱着、溶解・沈殿反応といった現象を考慮して解析モデルを作成し、これを用いて評価を行った。

3.6.1 解析モデル

人工バリア中の核種の移行をモデル化するに際して、地下水シナリオ上、次のような想定を行った。

- (1)廃棄物を埋設後、すぐに再冠水し廃棄物と地下水が接触する。
- (2)廃棄物と地下水の接触により、核種は地下水中に瞬時に溶解する。
- (3)廃棄物から溶出した核種は人工バリア中へ入り、その空隙内を人工バリア材に含まれる鉱物への吸脱着、放射性崩壊、溶解・沈殿等の過程を経ながら拡散移行して、周辺岩体へ到達する。

以下に、上記仮定を踏まえたモデル化の前提条件とモデルについて概説する。

3.6.2 概念モデル

(1)溶出開始時の廃棄物中の核種のインベントリ

埋設後、すぐに再冠水すると仮定したため、埋設時の核種インベントリを廃棄物からの核種の溶出開始時の初期インベントリとした。

(2)廃棄物からの核種の溶出

廃棄物からの核種は瞬時に地下水に溶解するものとし、廃棄物のバリア機能を期待しない。しかし、アクチニド等の元素は、溶解度が小さいため廃棄物表面で速やかに溶解度限界に達するものとした。可溶性の元素については、廃棄物中の空隙中にすべて溶解しているものと仮定し、インベントリを空隙体積で除した値を廃棄物表面での濃度とした。

(3)人工バリア中での核種の移行

廃棄物の外周部には透水係数の小さなベントナイト(ナトリウム型ベントナイトでは、嵩密度 1.8 g/cm^3 で透水係数約 10^{-13} m/s が報告されている¹⁰⁾)があるため、人工バリア中の地下水流はきわめて小さく、移流・分散の影響は、無視できるものと考えられる。したがって、人工バリア中の核種移行過程としては拡散のみを考えることとした。人工バリアへの核種の吸脱着については、線形吸着を仮定し瞬時に平衡が

成り立つものとし、核種の移行過程において崩壊連鎖により沈殿が生ずることを考慮した。

3.6.3 数学的定式化

3.6.2 で述べた概念モデルに基づき、円筒座標系の人工バリア中の核種の移行挙動を次のように定式化した。沈殿現象に関しては、Hopkirk ら¹⁷⁾ の考え方を参考にした(図3-4 参照)。

$$R_i \frac{\partial C_i}{\partial t} + \frac{\partial C_{p_i}}{\partial t} = D_{p_i} \left[\frac{\partial^2 C_i}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial C_i}{\partial r} \right] - \lambda_i R_i C_i + \lambda_{i-1} R_{i-1} C_{i-1} - \lambda_i C_{p_i} + \lambda_{i-1} C_{p_{i-1}}$$

ここで、

C_i	: 核種 <i>i</i> 液相中の濃度 (沈殿物の濃度は含まない)	[g/m ³]
C_{i-1}	: 核種 <i>i</i> の娘核種の液相中の濃度	[g/m ³]
C_{p_i}	: 核種 <i>i</i> の沈殿物の濃度	[g/m ³]
$C_{p_{i-1}}$: 核種 <i>i</i> の娘核種の沈殿物の濃度	[g/m ³]
D_{p_i}	: 核種 <i>i</i> の空隙水中の拡散係数	[g/m ³]
λ_i	: 核種 <i>i</i> 崩壊係数	[1/y]
λ_{i-1}	: 核種 <i>i</i> の娘核種の崩壊係数	[1/y]
R_i	: 核種 <i>i</i> の遅延係数	[-]
R_{i-1}	: 核種 <i>i</i> の娘核種の遅延係数	[-]
t	: 溶出開始後の経過時間	[y]
r	: 廃棄物中心からの距離	[m]

遅延係数 R_i は次のように記述される。

$$R_i = 1 + \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon} \rho Kd_i$$

ここで、

ε	: 人工バリアの空隙率	[-]
ρ	: 人工バリアの真密度	[kg/m ³]
Kd_i	: 核種 <i>i</i> の分配係数	[m ³ /kg]

沈殿物の生成及びその再溶解は次のように記述される。

$$\frac{\partial C_{p_i}}{\partial t} = U(C_{p_i}) k_i (C_i - C_i^*)$$

ここで、 k_i : 核種*i* に対する沈殿、再溶解の反応速度 [1/y]

C_i^* : 核種*i* の溶解度 ($C_{0_i}^* \times P_i(t)$) [g/m³]

$C_{0_i}^*$: 核種*i* に対する元素の溶解度 [g/m³]

$P_i(t)$: 核種*i* の同位体存在比 [-]

$$U(C_{p_i}) = \begin{cases} 1 & (C_{p_i} > 0 \text{ または } C_i > C_i^*) \\ 0 & (C_{p_i} = 0 \text{ かつ } C_i \leq C_i^*) \end{cases}$$

初期条件及び境界条件は以下のように与えた。

①初期条件 (t=0)

$$C_i = 0 \quad ; \quad r_b \leq r \leq r_r$$

$$C_{p_i} = 0 \quad ; \quad r_b \leq r \leq r_r$$

ここで、 r_b : 廃棄物中心からベントナイト内側までの距離 [m]

r_r : 廃棄物中心から岩体までの距離 [m]

②境界条件

(a)内側境界条件 (廃棄物/ベントナイト)

$$C_i^*(r, t) = C_{0_i}^* \times P_i(t), \quad \text{at } r=r_b$$

(b)外側境界条件 (ベントナイト/岩体)

$$C_i = 0 \quad \text{at } r=r_r$$

解析には、上式を有限差分法により解く「RELEASE」¹⁸⁾ コードを用いて人工バリアからの核種の放出率を求めた。なお、沈殿、再溶解の反応速度 k [1/y] については、そのデータがないため時間メッシュ Δt の間に全反応が起こると仮定して、離散化の際に $1/\Delta t$ と等しく置き取り扱うこととした。

3.6.4 解析の前提

(1)評価対象核種の選定

処分システムの性能を評価する上で重要となる核種は、実際には、解析を実施した後明らかになる。しかし、性能評価は研究開発の進展に伴い、反復的に行われるので、それを開始するにあたっては少なくとも最低限考慮すべきと考えられる核種

を選定しておき、今後その妥当性を性能評価の反復過程の中で検討していくこととした。評価対象核種の選定に当たっては、以下の点を考慮した。

- ①溶出開始時の核種のインベントリ
- ②放射線学影響上の重要性
- ③半減期

上記②については、潜在的毒性指数という考え方をを用いた。これは、廃棄物中に含まれる核種の放射能を、原子炉等規制法の定める当該核種に対する排水中濃度限度¹⁹⁾で除することによって求められるものであり、この値を廃棄物中に含まれる核種ごとの放射線学影響上の重要性の指標とした。

上記①～③を考慮し、諸外国における評価対象核種も参考にして、以下に示す核種を本解析における評価対象核種とした。

C-14, Tc-99, I-129, Cs-135

Pu -240 -U-236

Am -241 -Np-237-U -233

U -234 -Th-230-Ra-226

Pu -239 -U -235-Pa-231

(2)核種のインベントリ

モノリス1個あたりアスファルト固化体は18本、セメント固化体は発熱性を考慮して8本封入されるものとする(図3-3参照)。処分施設1基あたりにモノリスを396個収納できるので、アスファルト固化体を7128本、セメント固化体を3168本処分できる。それぞれの固化体1本あたりのインベントリ^{20) 21)}から処分施設1基あたりのインベントリの計算結果を表3-5に示す。

3.6.5 解析のためのデータ

(1)放射性核種の溶解度

3.5の結果を踏まえて計算した各元素の水酸化物系及び酸化物系溶解度制限固相での溶解度を表3-6に示す。用いた地球化学コード及び有機物を除く熱力学データ

ベースはH3レポートと同じものである。地下水がコンクリートで緩衝されpHが高くなることで、Puの溶解度は地下水に比べて5桁程度低くなっていることが分かる。このコンクリート緩衝液がさらに硝酸塩により影響を受けると、地下水が酸化性になるため、PuとUの溶解度は、コンクリート緩衝液に比べ3～5桁高くなる。一方、コンクリート緩衝液が有機物により影響を受けると、両元素の溶解度は、コンクリート緩衝液に比べ1～5桁程度高くなる。地下水は前述したようにコンクリートにより緩衝され高pHを維持するので、TRU元素は水酸化物（長期的には酸化物）により溶解度が支配される。しかし、硝酸塩や有機物を含むTRU廃棄物の場合では、TRU核種の溶解度を支配する固相が水酸化物であったとしても、酸化性雰囲気になったり有機錯体を形成することにより溶解度が大きくなり、コンクリートによる高pHの緩衝効果は期待できないことが考えられる。このことから、地下水に対する硝酸塩の影響やTRU元素に対する有機物の影響について実験的にデータを取得する必要がある。

(2)人工バリアの分配係数および拡散係数

①分配係数の定義

固化体から人工バリア空隙水中に溶出した放射性核種の移行解析を行うためには、次式で定義される核種*i*の人工バリアに対する分配係数 Kd_i [m^3/kg]を求める必要がある。

$$Kd_i = \frac{S_i}{C_i}$$

ここで、 C_i : 溶液中の核種*i*の平衡濃度 [kg/m^3]

S_i : 人工バリアに収着した核種*i*の濃度 [kg/kg]

②拡散係数の定義

多孔質媒体中の定常拡散における核種*i*の実効拡散係数 De_i は以下のように定義されている。

$$De_i = \varepsilon Dp_i = \varepsilon \frac{\delta}{\tau^2} D_i^* = FFD_i^*$$

ここで、 Dp_i : 核種*i*の空隙水中の拡散係数 ($= \varepsilon \frac{\delta}{\tau^2} D_i^*$)

D_i^* : 核種*i*の自由水中の拡散係数

- ε : 空隙率
- δ : 収れん度
- τ : 屈曲度
- FF : 圧縮ベントナイトの形状因子
(フォーメーションファクター)

FFは、拡散経路による遅延で、イオン排除の効果や、分子ふるいの効果を含む因子である。また一般に核種*i*は、人工バリアに吸着されるため、非定常な拡散を扱うみかけの拡散係数 Da_i は以下のように定義されている。

遅延係数 R_i は次のように記述される。

$$Da_i = \frac{Dp_i}{R_i} = \frac{De_i}{\varepsilon + \rho d Kd_i}$$

- ここで、
- R_i : 遅延係数 ($=1 + \frac{\rho d}{\varepsilon} Kd_i$) [-]
 - ρd : 人工バリアの嵩密度 [kg/m³]
 - Kd_i : 核種*i* の分配係数 [m³/kg]

③分配係数及び実効拡散係数の設定

ベントナイトの分配係数および実効拡散係数を表3-7 に示す。ベントナイトについては、H3レポートの値を用いた。

3.6.6 解析結果

人工バリアからの核種の放出率を求め年間 $1 \times 10^8 \text{ m}^3$ の水量で希釈された場合の核種の水中濃度を、排水中濃度限度¹⁹⁾ で除して規格化した値(以下「規格化濃度指数」という。)で評価することとした。地下水量の設定にあたっては、深井戸及び河川の場合年間水量を参考とした²⁰⁾。

(1)基本ケース(C-C-0, C-C-H, A-C-0, A-C-H)

セメント固化体及びアスファルト固化体の基本ケースにおける解析結果を図3-5～8 に示す。

可溶性核種(C-14, I-129等)については、固化体の核種閉じ込め機能を期待せず、アクチニドと比較してベントナイトに対する分配係数も小さいため、比較的初期に

において規格化濃度指数が大きくなっていることが分かる。セメント固化体とアスファルト固化体での解析結果の比較から、これら可溶性核種の固化体中へのインベントリが大きければ、最大規格化濃度指数が大きくなっていることが分かる。

また、難溶性核種（主にアクチニド元素）の酸化物系溶解度制限固相については、規格化濃度指数が定常に達しているが、水酸化物系溶解度制限固相では、定常に達していないことが分かる。このことは、水酸化物系溶解度制限固相では、元素の溶解度が高くなるため、規格化濃度指数が定常に達するまでにインベントリの枯渇が生ずることが考えられる。セメント固化体とアスファルト固化体との比較から規格化濃度指数が定常に達している場合には、固化体のインベントリに依存していないことが分かる。

(2)硝酸塩影響ケース(A-N-O, A-N-H)

アスファルト固化体についての硝酸塩影響ケースの解析結果を図3-9～10に示す。可溶性核種については、基本ケースと同じ結果である。このケースでは、化学的雰囲気酸が酸化雰囲気酸となるため、元素の溶解度が高くなるためほとんどの核種において規格化濃度指数が定常に達していないことが分かる。

(3)有機物影響ケース(A-O-O, A-O-H)

アスファルト固化体について、有機物影響ケースの解析結果を図3-11～12に示す。このケースでは、PuとUの溶解度のみが変化するため4n系列の解析結果を示す。このケースにおいても硝酸塩影響ケースと同様に、元素の溶解度が大きくなるため、規格化濃度指数が定常に達していないことが分かる。

以上の解析結果から基本ケースにおける重要核種は、表3-8に示すようにまとめられる。なお、深井戸及び河川の場合年間水量は、 $10^4 \sim 10^8 \text{ m}^3$ と考えられるため、保守的に年間水量が 10^4 m^3 の場合も考慮し、最大規格化濃度指数が 10^{-1} 以上の核種を重要核種とした。

3.7 まとめ

本章では、H3レポートの成果を反映し予備的に人工バリアシステムの性能を把握した。結果をまとめると以下のとおりである。

(1)地下水に対して可溶性の元素（よう素や炭素）の最大規格化濃度指数はそのインベントリに依存する。また、アクチニド元素の酸化物系溶解度制限固相では、溶解度

が小さいためほとんどの核種の移行率が定常に達し、インベントリに依存しないことが分かった。しかし、水酸化物系溶解度制限固相では、溶解度が高くなるためインベントリに依存する。

(2)硝酸塩、有機物の影響によりPuやUの溶解度は、3～5桁大きくなることが分かった。しかし、TRU廃棄物のそれらインベントリは小さいため、核種の移行は定常に達しないことが分かった。

以上これらの結果を、各解析のケースごとにまとめたものを表3-9に示す。

4. 今後の研究課題

最後に3.での結果を基に、本解析で得られた今後の研究課題及び今回考慮しなかったが重要と考えられる研究課題を優先順位の高いものから以下に記す。

(1)本解析で考慮して得られた今後の研究課題

- ①C-14やI-129等の地下水に対して可溶性かつ非吸着性の核種が人工バリアからの放出率を支配する重要な核種となるため、これらの核種の移行機構の研究
- ②硝酸塩及び有機物の存在により核種の溶解度が上がることが示唆された。よって硝酸塩及び有機物の存在下における信頼性の高い熱力学データの取得、拡散係数及び分配係数の取得
- ③可溶性核種の人工バリアからの放出率については、固化体中のインベントリに依存するためインベントリの把握

(2)本解析で考慮しなかったが重要と考えられる研究課題

- ①人工バリア材（ベントナイト、コンクリート）の長期の安定性
 - ②ガスの発生、バリアシステム中の移行
 - ③微生物活動の影響
 - ④処分システムの施工性
- 等が考えられる。

今後、これらの研究を進めながら、より信頼性の高い性能評価を実施し、TRU廃棄物処分システムの構築を行う必要がある。

参考文献

- 1)原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会：TRU核種を含む放射性廃棄物の処理・処分について，1991.
- 2)動力炉・核燃料開発事業団：高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書－平成3年度－，PNC TN 1410 92-081，1992.
- 3)伊藤 勝他：TRU核種を含む放射性廃棄物の処理処分の海外動向，PNC PN1420 91-012，1991.
- 4)Alcorn, S. R., Christian-Frear, T. L. and Wallance, M. G. : Degradation Modelling for the Concrete Solo in TVO's VLJ Repository, YJI-91-09, 1991.
- 5)Parkhurst, Y. D. L., Thorstenson, D. C., and Plummer, L. N. : PHREEQE-A Computer Program for Geochemical Calculations, U. S. Geological Survey, Water-Resources Investigations 80-96, 1980.
- 6)三原守弘他：土中埋設コンクリートの長期変質における水質依存性，日本コンクリート工学協会，自然環境とコンクリート性能に関するシンポジウム，1993.
- 7)三菱マテリアル株式会社：TRU廃棄物の特性を考慮した人工バリアシステムの検討(Ⅱ)，PNC ZJ1211 93-001，1993.
- 8)Wanner, H. : Modelling Interaction of Deep Groundwaters with Bentonite and Radionuclide Speciation, EIR-Bericht Nr. 589, 1986.
- 9)Berner, U. R. : Modelling the Incongruent Dissolution of Hydrated Cement Minerals, Radiochemica Acta 44/45, pp. 387-393, 1988.
- 10)伊藤 勝他：アスファルトタスクフォース報告書，PNC ZN1440 91-005，1990.
- 11)Greenfield, B. F. et al. : The Effects of the Degradation of Organic Materials in the Near Field of a Radioactive Waste Repository, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 257, pp. 299-306, 1992.
- 12)Cross, J. E., and Ewart., F. T. : HATCHES-A Thermodynamic Database Management System-. Nirex Report NSS/R212, Harwell Laboratory, UK, Nirex Ltd., 1990.
- 13)鶴巻道三：地下水の水質，地下水ハンドブック編集委員会，pp. 131-145, 1979.
- 14)杉崎隆一：地下水の起源と由来- その化学的考察-, 用水と排水, Vol. 5, No. 11 , 1963.

- 15) 海野忠市他：温泉水中のアンモニア性窒素，亜硝酸性窒素，硝酸性窒素，リン酸イオン，過マンガンカリウム消費（有機物）について，静岡県衛生環境センター報告，No. 28, pp. 97-103, 1985.
- 16) 鈴木英明，柴田雅博，山形順二，広瀬郁郎，寺門一馬：緩衝材の特性試験（I），PNC TN8410 92-057, 1992.
- 17) Hopkirk, R. J., Gilby, D. J., and Wagner, W. H. : Modelling of Solute Transport in the Near Field of a High Level Waste Repository, Nagra NTB 85-26, 1986.
- 18) 大井貴夫，宮原 要，梅木博之：ニアフィールド核種移行コード(RELEASE), PNC TN 8410 92-060, 1992.
- 19) 科学技術庁：放射線を放出する同位元素の数量を定める件，科学技術庁告示別表第15号, 1988.
- 20) 三菱金属株式会社：アスファルト固化体の浅地中濃度処分の濃度上限地の調査研究，PNC SJ4211 89-002, 1989.
- 21) 東洋エンジニアリング株式会社：TRU廃棄物処分に関する調査研究，PNC ZJ427 7 90-001, 1990.
- 22) 社団法人日本水道協会：昭和59年度水道統計第67号, 1984.

表3-1 TRU核種を含む廃棄物の分類

	廃物の分類* ¹	固型化材	廃棄物の均質性	主な含有核種	発生量* ⁴	
					ドラム缶本数	割合 %
①	プロセス濃縮廃液	アスファルト	均質	Pu, FP, AP* ³	140,000* ⁵	40
②	ハル・エンドピース	セメント* ²	不明		43,000	12
③	廃溶媒	プラスチック	均質	Pu	34,000	10
④	スラッジ	セメント* ²	不明	Pu, FP, AP	12,000	3
⑤	再処理雑固化体				92,000	26
⑥	MOX 雑固化体			Pu	31,000	9

*1: 原子力安全委員会1992. 7. 30「TRU 核種を含む廃棄物の処理処分について」の分類に準じた。

*2: 圧縮による減容、金属鑄塊等のように固化体をそのまま廃棄体とみなす可能性があるものについても現時点ではセメントによる固型材を想定した。

*3: FP; 核分裂生成物, AP; 放射化生成物

*4: 2010年までに発生する予想される量

*5: プロセス濃縮廃液は、濃度に応じて低レベルと極低レベルに分けられるが今回はそれら合計とした。

表3-2 バリア材の仕様

	コンクリート	ベントナイト
種類	普通ポルトランドセメント	Na型- ベントナイト
真密度 (kg/m ³)	2600	2700
間隙率 (-)	0.3	0.33
高密度 (kg/m ³)	1820	1800
厚さ (m)	0.5	1.0

表3-3 解析のケース

ケース	固化体	固化体の影響	溶解度制限固相	略号
(1)基本ケース	セメント固化体	コンクリートの影響のみ	酸化物系	C-C-O
			水酸化物系	C-C-H
	アスファルト固化体	コンクリートの影響のみ	酸化物系	A-C-O
			水酸化物系	A-C-H
(2)硝酸塩影響ケース	アスファルト固化体	コンクリートと硝酸塩の影響(溶解度のみ)	酸化物系	A-N-O
			水酸化物系	A-N-H
(3)有機物影響ケース	アスファルト固化体	コンクリートと有機物の影響(溶解度のみ)	酸化物系	A-O-O
			水酸化物系	A-O-H

注) X-Y-Z

- (X; 固化体(C; セメント固化体, A; アスファルト固化体)
 Y; 固化体の影響(C; コンクリート, N; コンクリートと硝酸塩, O; コンクリートと有機物)
 Z; 溶解度制限固相(O; 酸化物系, H; 水酸化物系)

表3-4 地下水の化学的特性

	降水系 高pH型 地下水	コンクリートの 影響	コンクリートと 硝酸塩の 影響	コンクリートと 有機物と の影響
pH	8.74	13.36	13.11	13.35
pe	-4.8	-10.6	5.4	-10.6
Ca ²⁺	3.8×10^{-5}	9.0×10^{-4}	1.9×10^{-3}	9.0×10^{-4}
Mg ²⁺	—	9.4×10^{-3}	1.6×10^{-2}	9.6×10^{-3}
Na ⁺	7.2×10^{-3}	3.6×10^{-1}	7.7×10^{-1}	3.7×10^{-1}
K ⁺	1.9×10^{-8}	1.1×10^{-3}	2.4×10^{-2}	1.2×10^{-3}
Fe(Total)	6.3×10^{-5}	7.4×10^{-10}	6.2×10^{-5}	7.3×10^{-10}
C (Total)	6.9×10^{-3}	2.5×10^{-2}	1.9×10^{-4}	2.5×10^{-2}
S (Total)	1.3×10^{-4}	1.2×10^{-4}	1.2×10^{-4}	1.2×10^{-4}
Si(Total)	1.8×10^{-4}	5.5×10^{-4}	1.9×10^{-4}	5.4×10^{-4}

濃度の単位 ; mol/ℓ

表3-5 処分施設1 基あたりのインベントリ(g)

		セメント固化体 (ハルエンピース)	アスファルト 固化体 (プロセス濃縮廃液)
F. P.	C-14	2.088×10^{-3}	8.644×10^{-3}
	Tc-99	8.326×10^{-3}	6.273×10^{-1}
	I-129	1.740×10^{-3}	7.201×10^{-4}
	Cs-135	3.289×10^{-3}	2.472×10^{-1}
4N	Pu-240	2.193×10^{-4}	7.457×10^{-2}
	U-236	5.318×10^{-4}	2.439×10^{-3}
4N+1	Am-241	3.891×10^{-3}	9.107×10^{-2}
	Np-237	4.235×10^{-3}	3.225×10^{-1}
	U-233	1.802×10^{-2}	0
4N+2	U-234	5.461×10^{-2}	1.729×10^{-2}
	Th-230	0	0
	Ra-226	8.238×10^{-7}	0
4N+3	Pu-239	5.744×10^{-4}	1.986×10^{-0}
	U-235	1.804×10^{-5}	9.226×10^{-3}
	Pa-231	2.485×10^{-3}	0

表3-6 各元素の溶解度

		降水系 高pH型 地下水	コンクリートの 影響	コンクリートと 硝酸塩の 影響	コンクリートと 有機物と の影響
F. P.	C				
	Tc	8.2×10^{-24} 3.3×10^{-8}	7.1×10^{-24} 3.3×10^{-8}	可溶性	——
	I				
	Cs				
アクチニド	Pu	1.5×10^{-11} 2.4×10^{-5}	3.9×10^{-17} 1.1×10^{-9}	1.5×10^{-11} 4.4×10^{-4}	5.4×10^{-10} 4.7×10^{-4}
	U	4.2×10^{-10} 4.2×10^{-5}	3.4×10^{-10} 3.4×10^{-5}	3.3×10^{-2}	6.9×10^{-8} 4.8×10^{-4}
	Am	2.8×10^{-9}	9.4×10^{-12}	8.6×10^{-12}	——
	Np	2.1×10^{-12} 5.5×10^{-9}	2.0×10^{-12} 5.1×10^{-9}	1.5×10^{-7} 2.5×10^{-3}	——
	Th	2.7×10^{-10} 5.4×10^{-8}	2.2×10^{-10} 4.9×10^{-4}	1.9×10^{-10} 4.5×10^{-4}	——
	Ra	6.7×10^{-7}	1.8×10^{-4}	2.5×10^{-4}	——
	Pa	3.2×10^{-7}	2.8×10^{-7}	2.5×10^{-7}	——

注) 上段は、酸化物系溶解度制限固相
下段は、水酸化物系溶解度制限固相

表3-7 ベントナイトに対する各元素の拡散係数及び分配係数

		分配係数 (m^3/kg)	実効拡散係数 (m^2/s)
F.P.	C	0 *	3×10^{-10}
	Tc	0.001	
	I	0 *	
	Cs	0.01	
アクチノイド	Pu	10	
	U	0.1	
	Am		
	Np		
	Th		
	Ra		
	Pa	0.01 *	

* Timo Vieno et al. (1992)

表3-8 基本ケースにおける重要核種

解析 ケ ー ス		重 要 核 種
セメント固化体	酸化物系溶解度制限固相	C-14, I-129, Ra-226, Pa-231, Cs-135, Th-230, U-233, U-234
	水酸化物系溶解度制限固相	C-14, I-129, Ra-226, Pa-231, Cs-135, Th-230, U-233, U-234, U-236, Np-237, U-235, Tc-99
アスファルト固化体	酸化物系溶解度制限固相	I-129, Ra-226, Pa-231, Th-230, U-234, C-14
	水酸化物系溶解度制限固相	I-129, Ra-226, Pa-231, Th-230, U-234, C-14, Tc-99, U-236, Np-237

表3-9 各解析でケースで得られた結果のまとめ

ケース	固化体	得られた結果
(1)基本ケース	セメント固化体	<ul style="list-style-type: none"> 溶解度制限固相が酸化物系の場合では、溶解度が非常に小さいため、核種の人工バリアからの放出率が定常に達し、放出率は溶解度に依存することが分かった。 溶解度制限固相が水酸化物系の場合では、溶解度が酸化物系と比較して非常に大きいため、核種の人工バリアからの放出率が定常に達せず、インベントリに依存することが分かった。
	アスファルト固化体	
(2)硝酸塩影響ケース	アスファルト固化体	<ul style="list-style-type: none"> 硝酸塩及び有機物の影響により溶解度制限固相が酸化物系であっても溶解度が高くなるため、核種の人工バリアからの放出率が定常に達せず、放出率はインベントリに依存することが分かった。
(3)有機物影響ケース		

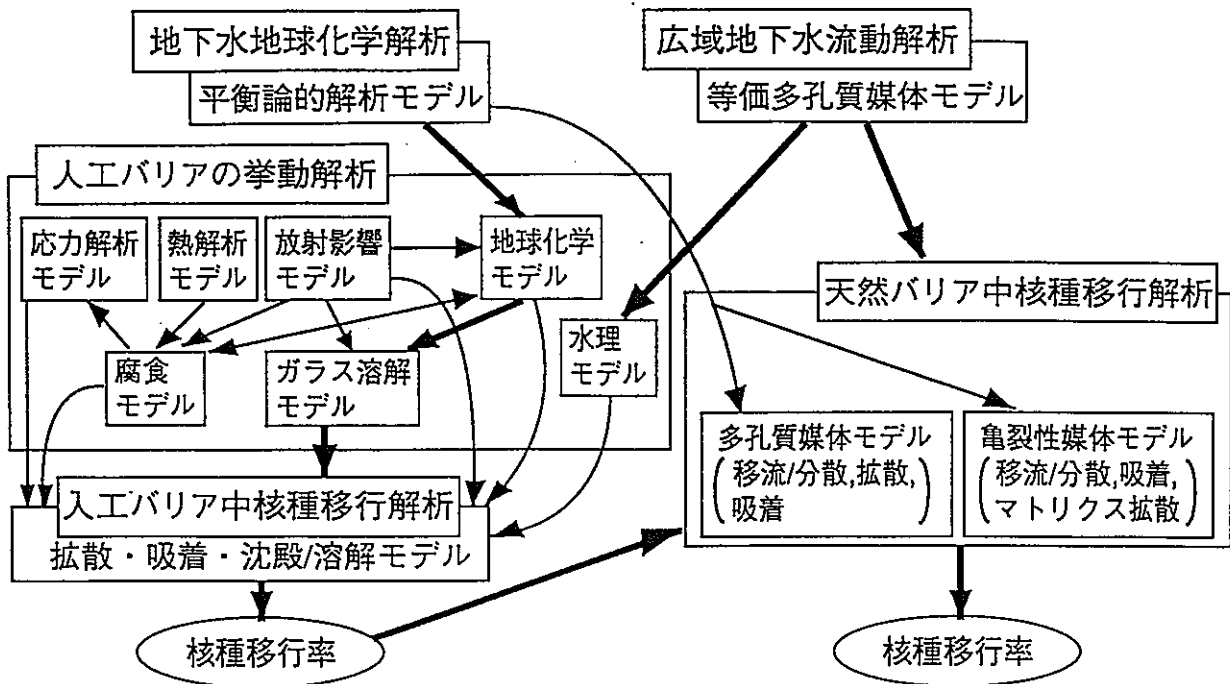


図3-1 地下水シナリオに対する解析モデルの体系 (高レベル放射性廃棄物)

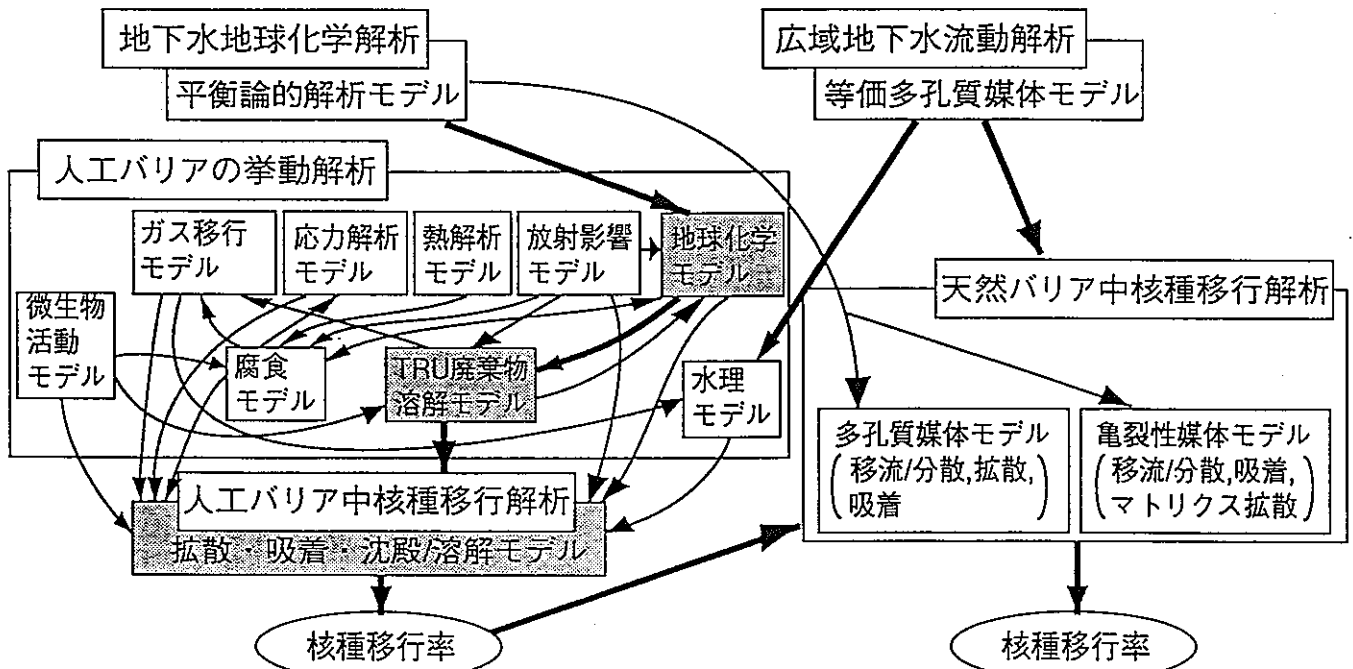


図3-2 地下水シナリオに対する解析モデルの体系 (TRU廃棄物)

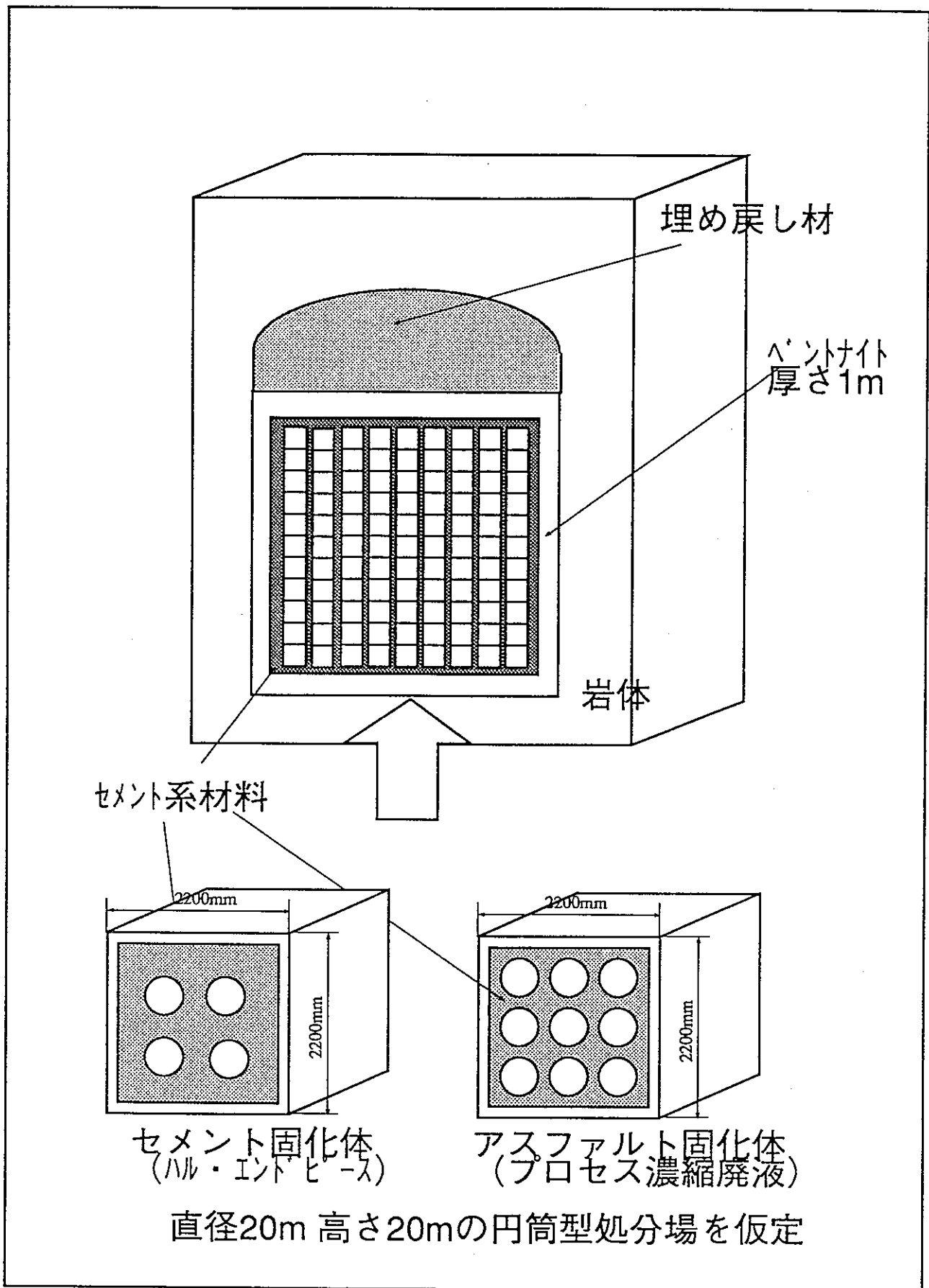


図3-3 解析対象とした処分システムの概念

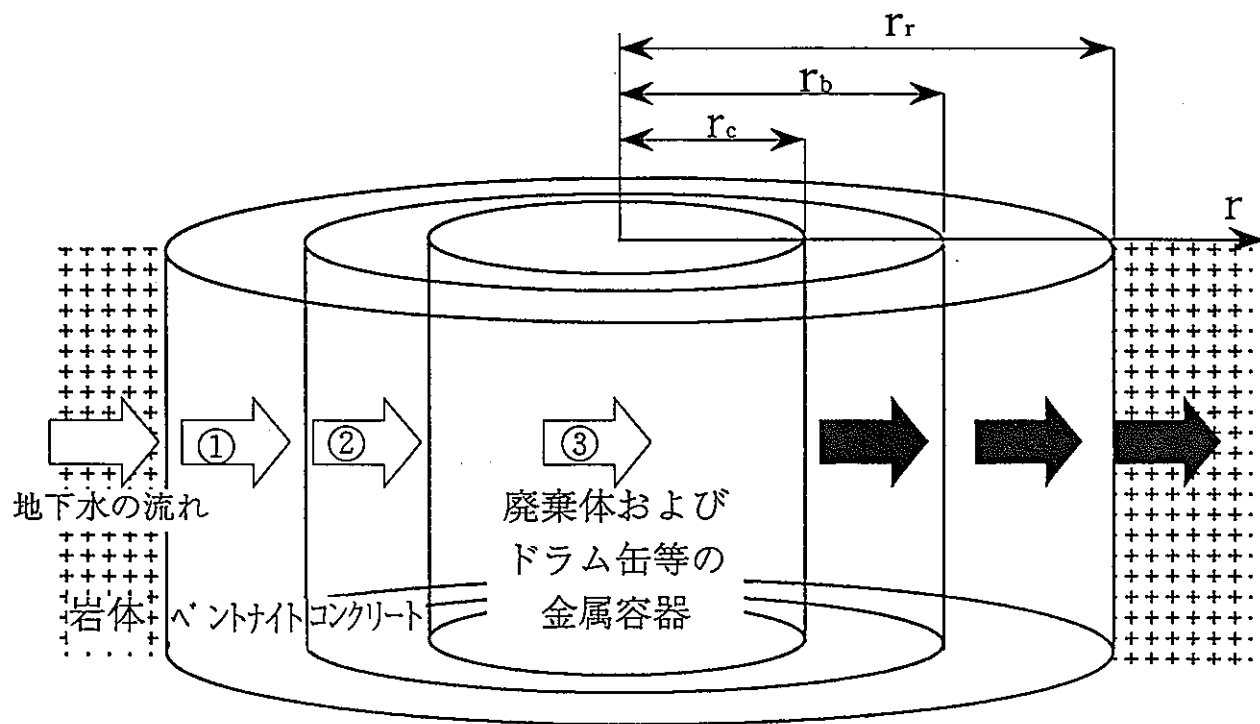


図3-4 地下水の化学的特性の変遷

規格化濃度指数 (希釈水量 $10^8\text{m}^3/\text{y}$)

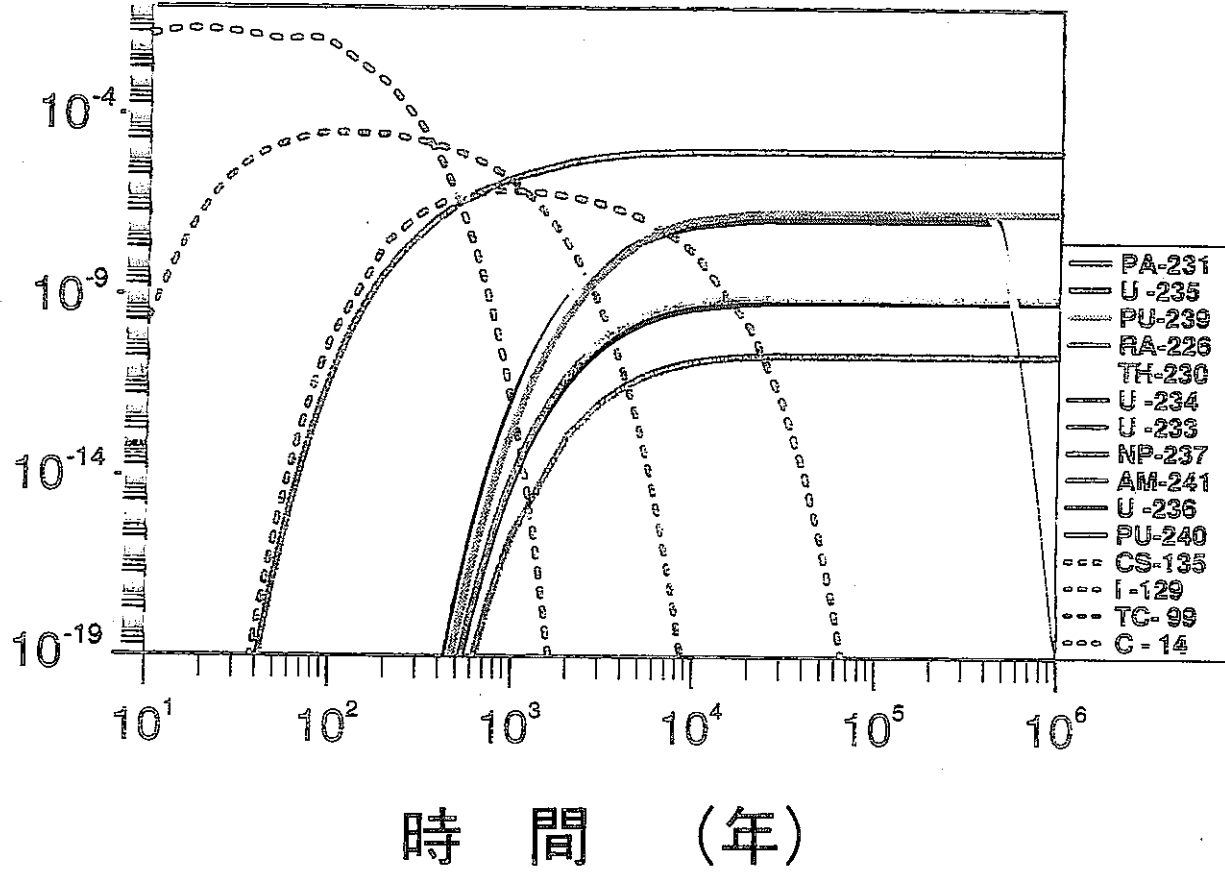


図3-5 人工バリアからの核種の放出率 (C-C-O)

規格化濃度指数 (希釈水量 $10^8\text{m}^3/\text{y}$)

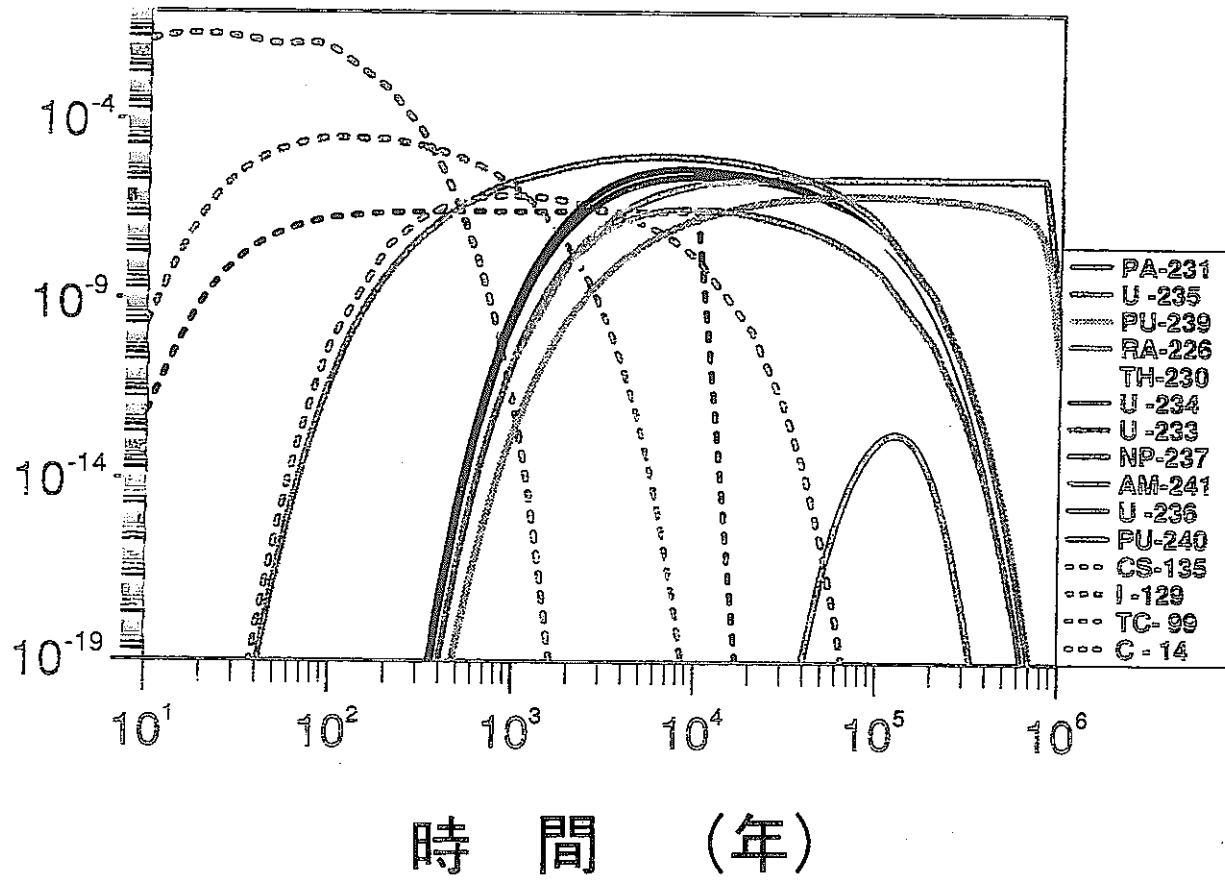


図3-6 人工バリアからの核種の放出率 (C-C-H)

規格化濃度指数 (希釈水量 $10^8\text{m}^3/\text{y}$)

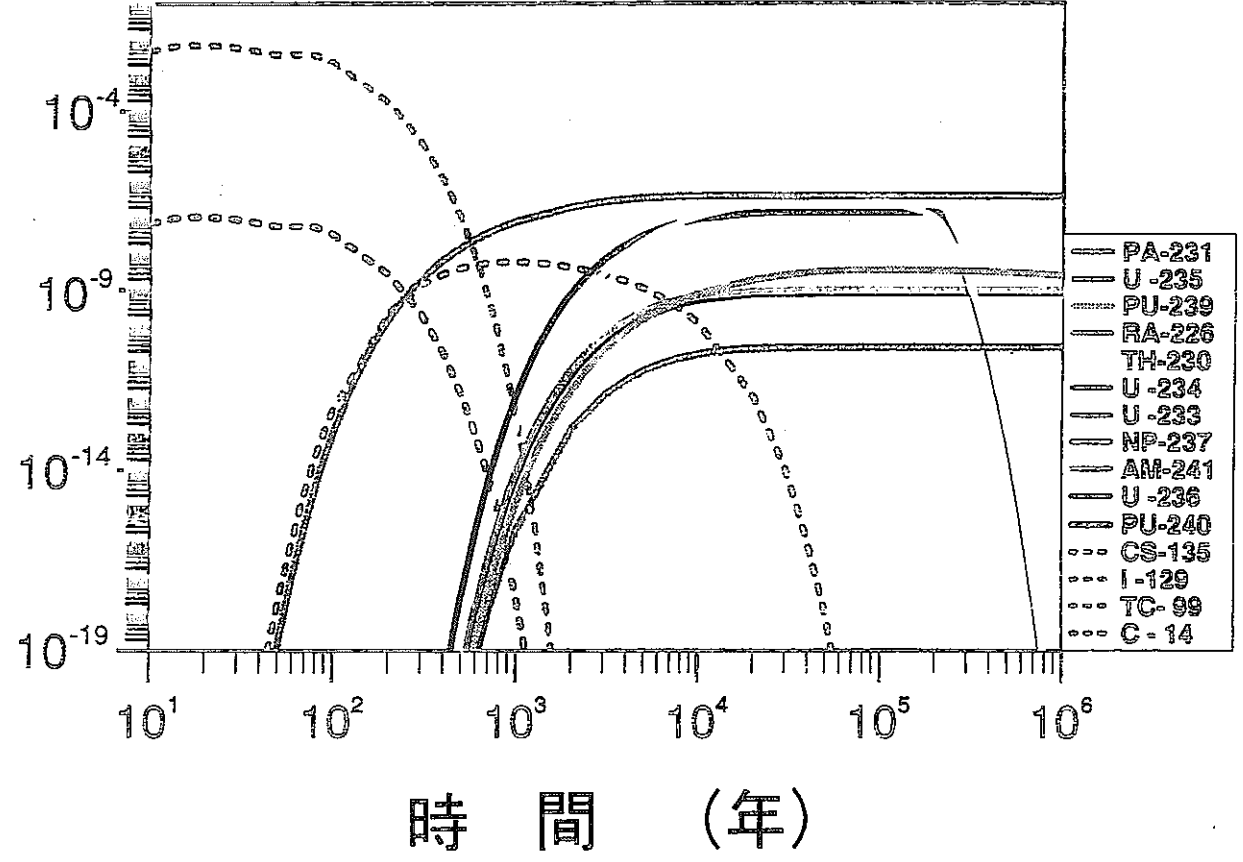


図3-7 人工バリアからの核種の放出率 (A-C-O)

規格化濃度指数 (希釈水量 $10^8\text{m}^3/\text{y}$)

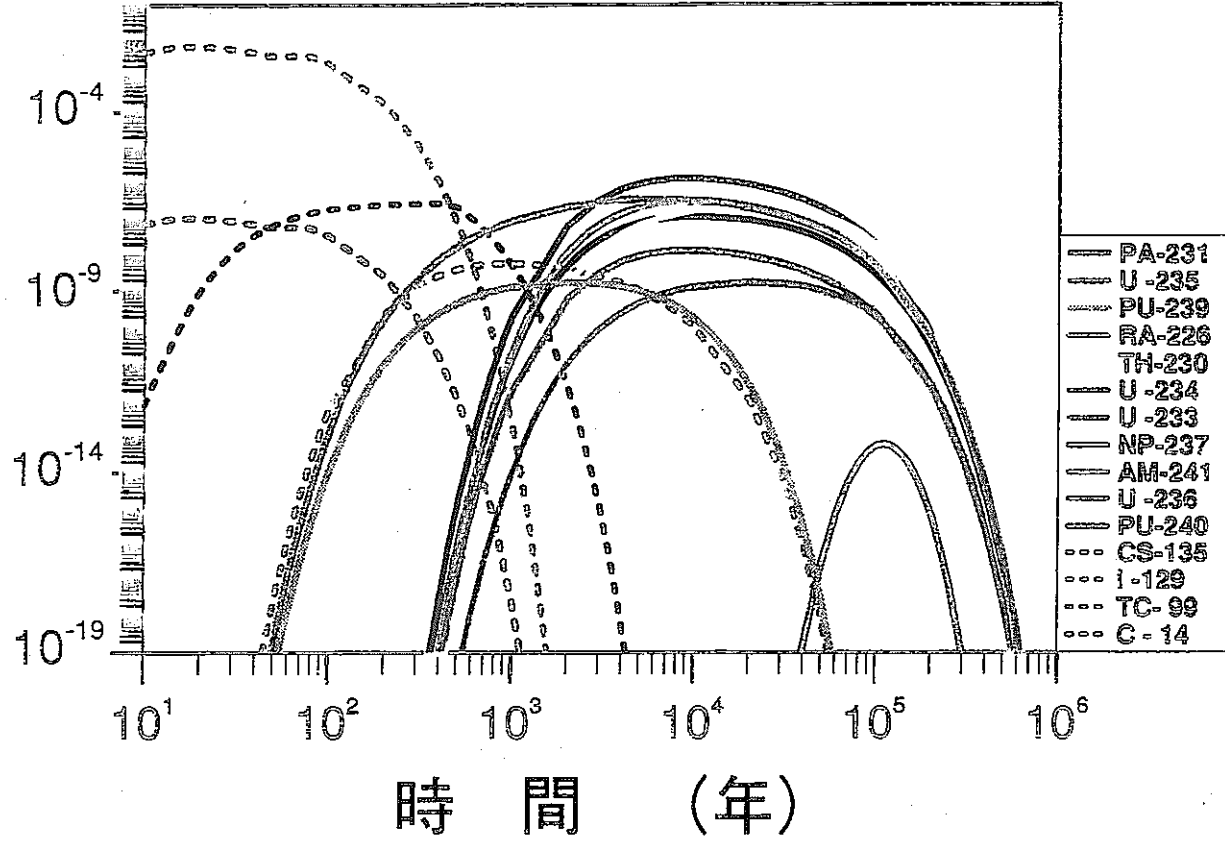


図3-8 人工バリアからの核種の放出率 (A-C-H)

規格化濃度指数 (希釈水量 $10^8\text{m}^3/\text{y}$)

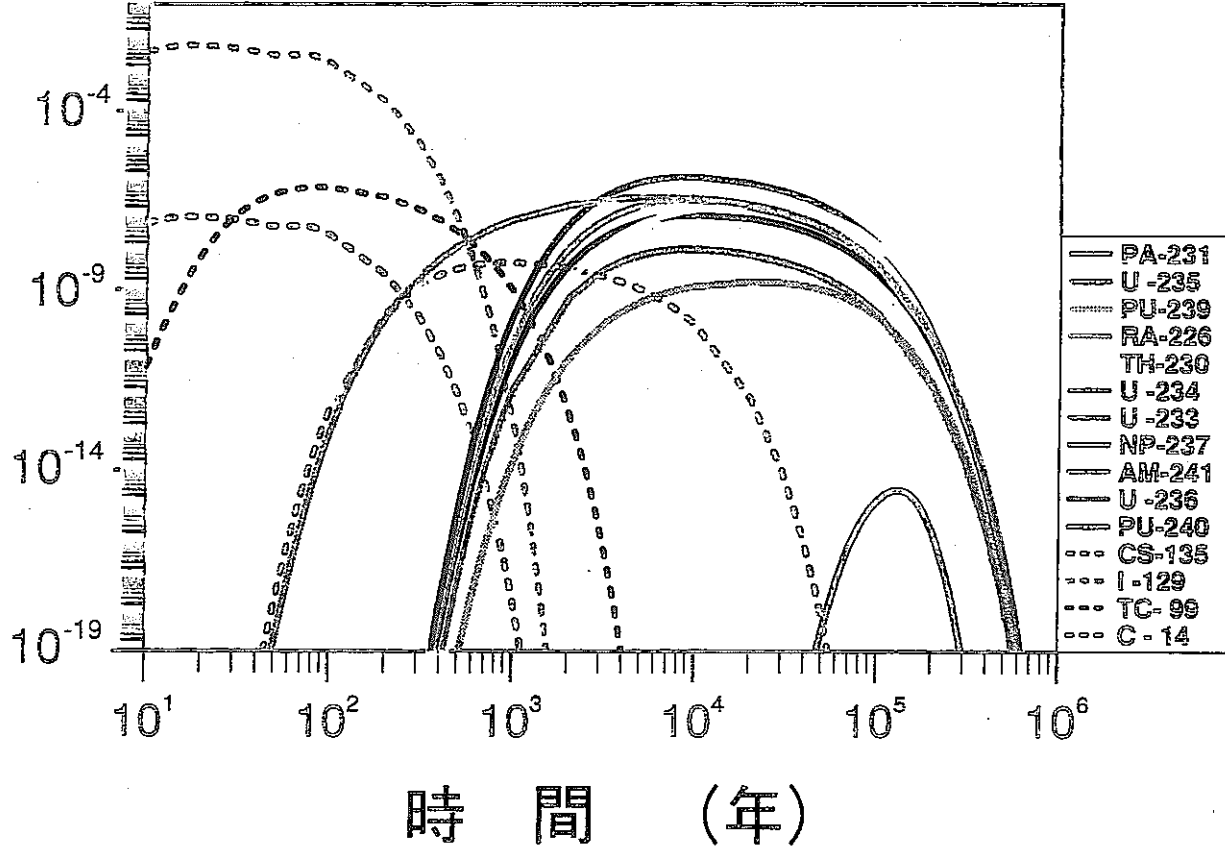


図3-9 人工バリアからの核種の放出率 (A-N-O)

規格化濃度指数 (希釈水量 $10^8 \text{m}^3/\text{y}$)

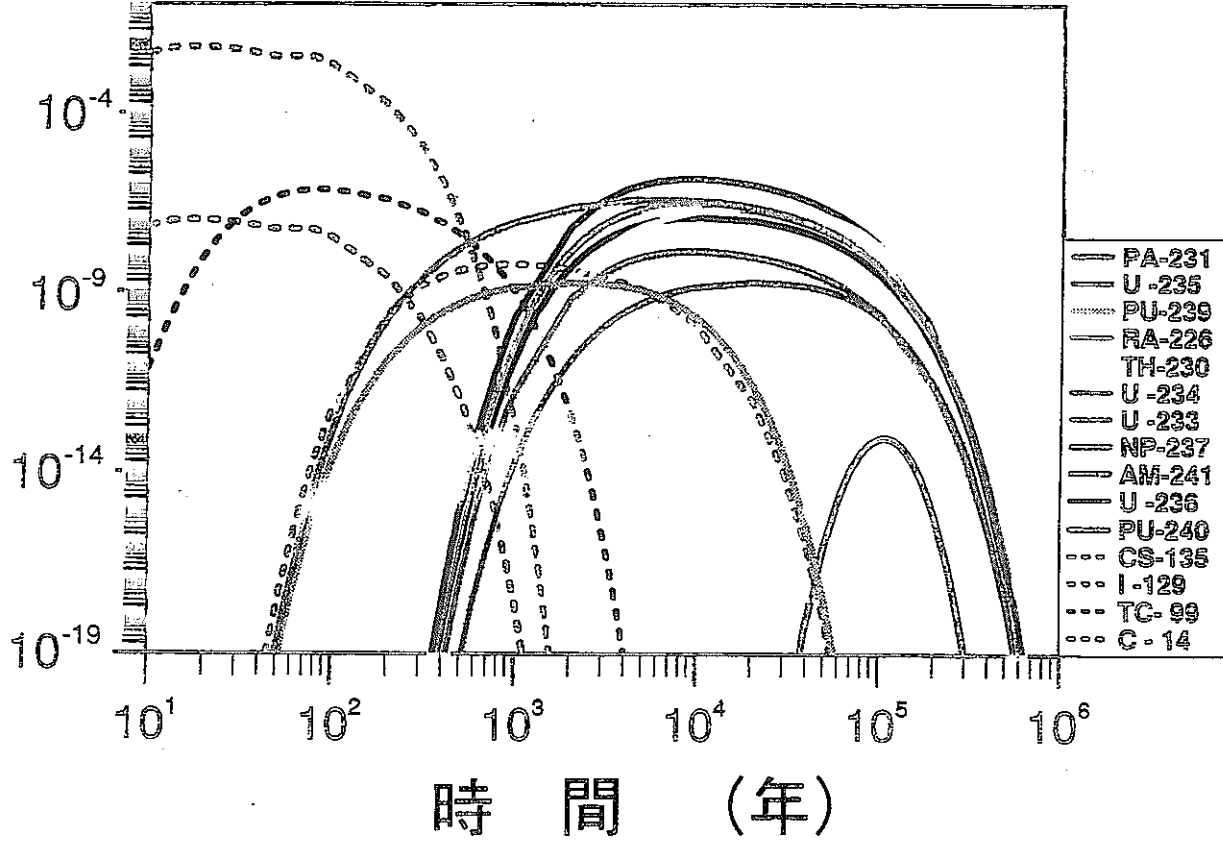


図3-10 人工バリアからの核種の放出率 (A-N-H)

規格化濃度指数 (希釈水量 $10^8\text{m}^3/\text{y}$)

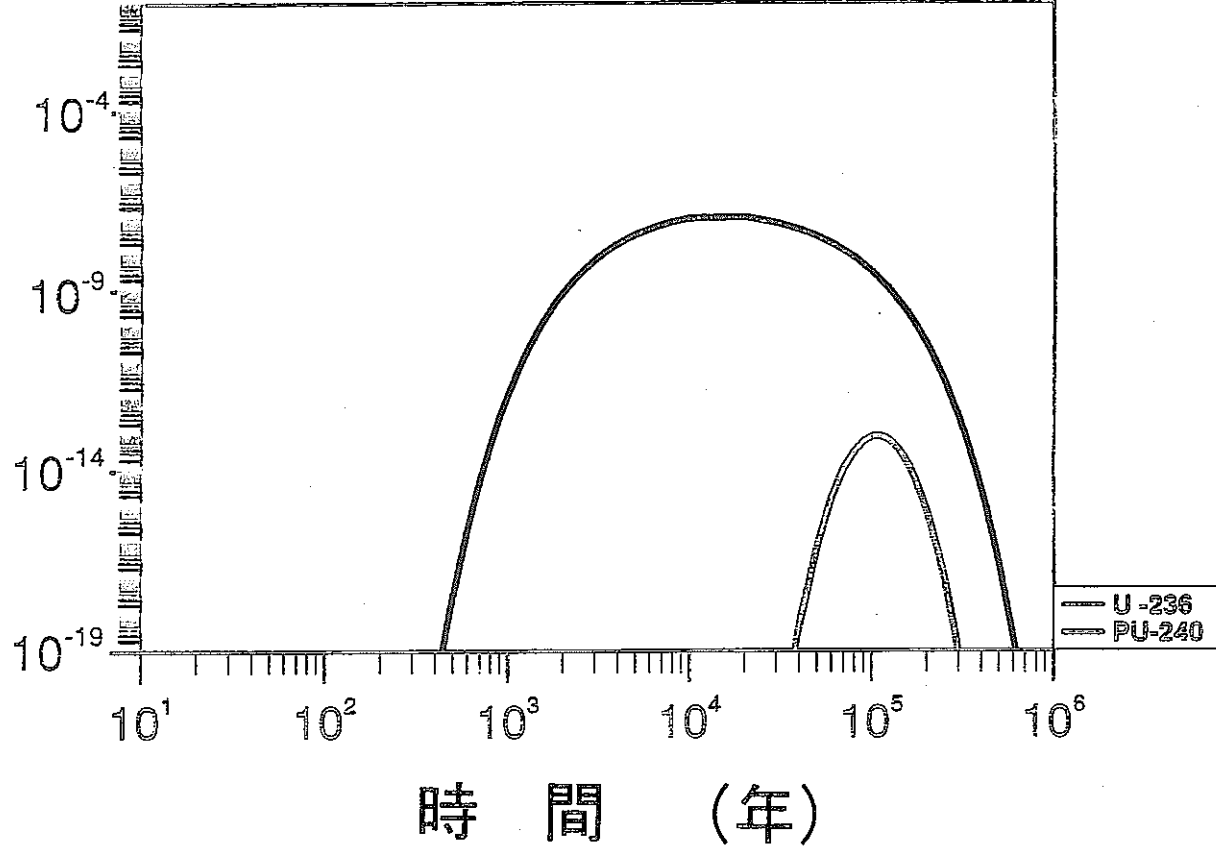


図3-11 人工バリアからの核種の放出率 (A-O-O)

規格化濃度指数 (希釈水量 $10^8\text{m}^3/\text{y}$)

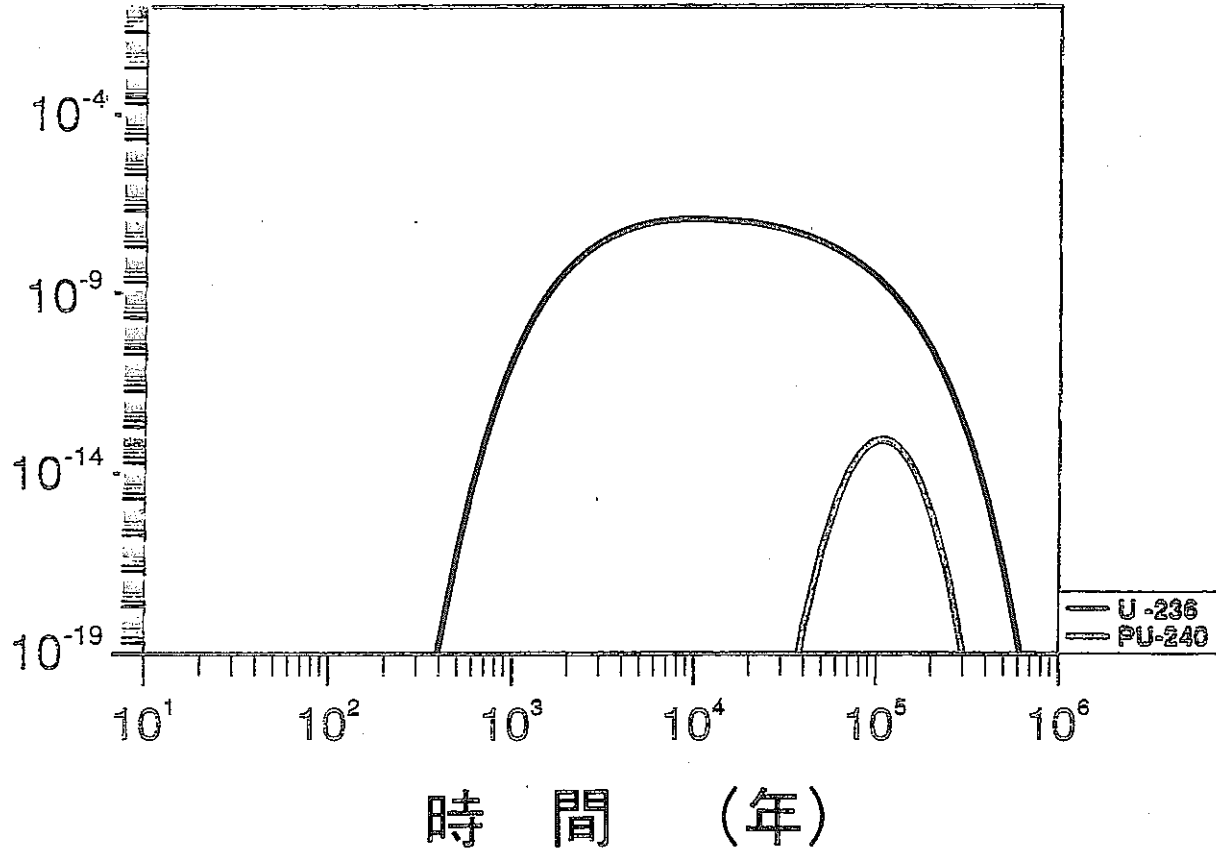


図3-12 人工バリアからの核種の放出率 (A-O-H)

Appendix

Table 1-1 Thermodynamic Database used in the Modelling with HATCHES Database No.

Aqueous species	Ligand			
	D-Saccharic acid	D-Gluconic acid	Glyceric acid	Glycollic acid
	L=Sacc ²⁻	L=Gluc ⁻	L=Glyc ⁻	L=Gly, Glyc ⁻
HL				
H ₂ L				
CaL				
Th(IV)L ₁	_____	+3 778	_____	_____
Th(IV)L ₂	_____	+2 779	_____	_____
Th(IV)L ₃	_____	+1 780	_____	_____
Th(IV)L ₄	_____	aq 781	_____	_____
Th(IV)H ₋₄ L	_____	-1 782	_____	_____
U(IV)L ₁	+2 639	+3 650 Th	_____	_____
U(IV)L ₂	aq 640	+2 651 Th	_____	_____
U(IV)L ₃	-2 641	+1 652 Th	_____	_____
U(IV)L ₄	_____	aq 653 Th	_____	_____
U(IV)H ₋₁ L	+1 642	+2 658	_____	_____
U(IV)H ₋₂ L	aq 643	+1 659	_____	_____
U(IV)H ₋₃ L	-1 644	aq 660	_____	_____
U(IV)H ₋₄ L	-2 645	-1 661	_____	_____
U(V)O ₂ L	-1 646	aq 654 Np	_____	_____
U(V)H ₋₁ L	-2 647	_____	_____	_____
U(VI)O ₂ L ₁	aq 648	+1 655	_____	_____
U(VI)O ₂ L ₂	_____	aq 656	_____	_____
U(VI)O ₂ L ₃	_____	-1 657	_____	_____
(U(VI)O ₂) ₂ L ₁	_____	_____	_____	_____
(U(VI)O ₂) ₂ L ₂	_____	_____	_____	_____
U(VI)H ₋₁ L	-1 649	aq 731	_____	_____
Np(IV)L ₁	_____	_____	_____	_____
Np(V)O ₂ L ₁	_____	_____	_____	_____
Np(V)O ₂ L ₂	_____	_____	_____	_____
Np(V)O ₂ H ₁ L	_____	_____	_____	_____

* 表内番号は HATCHESデータベースの index番号。

Table 1-2 Thermodynamic Database used in the Modelling with HATCHES Database No.

Aqueous species	Ligand			
	D-Saccharic acid	D-Gluconic acid	Glyceric acid	Glycolic acid
	L=Sacc ²⁻	L=Gluc ⁻	L=Glyc ⁻	L=Gly, Glyc ⁻
Pu(III)L ₁	+1 620	_____	_____	+2 588
Pu(III)L ₂	_____	_____	_____	+1 600
Pu(III)L ₃	_____	_____	_____	aq 601
Pu(III)H ₁ L ₁	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)L ₁	+2 613	+3 689	+3 703 *	+3 584
Pu(IV)L ₂	aq 614	+2 690	+2 704 *	+2 585
Pu(IV)L ₃	-2 615	+1 691	+1 705 *	+1 586
Pu(IV)L ₄	_____	aq 692	aq 706 *	aq 587
			* = Gluc	
Pu(IV)H ₋₁ L	+1 616	+2 693	+2 707	_____
Pu(IV)H ₋₂ L	aq 617	+1 694	+1 708	_____
Pu(IV)H ₋₃ L	-1 618	aq 695	_____	_____
Pu(IV)H ₋₄ L	-2 619	-1 696	_____	_____
Pu(IV)H ₋₁ L ₂	_____	_____	+1 709	_____
Pu(IV)H ₋₂ L ₂	_____	_____	aq 710	_____
Pu(IV)H ₋₃ L ₂	_____	_____	-1 711	_____
Pu(IV)H ₋₄ L ₂	_____	_____	-2 712	_____
Pu(V)O ₂ L ₁	-1 621	aq 697 Np	aq 713 Np	aq 583
Pu(V)O ₂ L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(V)O ₂ H ₋₁ L	-2 622	_____	_____	_____
Pu(VI)O ₂ L ₁	aq 623	+1 698 U	+1 714	+1 580
Pu(VI)O ₂ L ₂	_____	aq 699 U	aq 715	aq 581
Pu(VI)O ₂ L ₃	_____	-1 700 U	-1 716	-1 582
Pu(VI)O ₂ H ₁ L ₁	_____	_____	_____	_____
Pu(VI)O ₂ H ₋₁ L ₁	-1 624	_____	_____	_____
Am(III)L ₁	+1 632	+2 625	_____	+2 539
Am(III)L ₂	_____	+1 626	_____	_____
Am(III)L ₃	_____	aq 627	_____	_____
Am(III)H ₁ L ₁	_____	_____	_____	_____
Am(III)H ₁ L ₂	_____	_____	_____	_____
Am(III)H ₋₁ L	aq 633	+1 628	_____	_____
Am(III)H ₋₂ L	-1 634	aq 629	_____	_____
Cm(III)L ₁	_____	_____	_____	_____
Cm(III)L ₂	_____	_____	_____	_____

Table 2-1 Thermodynamic Database used in the Modelling with HATCHES Database No.

Aqueous species	Ligand			
	Imino-diacetic-acid	Citric acid	Oxalic acid	Glutaric acid
	L=IDA ²⁻	L=Cit ³⁻	L=OX ²⁻	L=Glut ²⁻
HL				
H ₂ L				
CaL				
Th(IV)L ₁	_____	_____	_____	_____
Th(IV)L ₂	_____	_____	_____	_____
Th(IV)L ₃	_____	_____	_____	_____
Th(IV)L ₄	_____	_____	_____	_____
Th(IV)H ₋₁ L	_____	_____	_____	_____
U(IV)L ₁	_____	_____	_____	_____
U(IV)L ₂	_____	_____	_____	_____
U(IV)L ₃	_____	_____	_____	_____
U(IV)L ₄	_____	_____	_____	_____
U(IV)H ₋₁ L	_____	_____	_____	_____
U(IV)H ₋₂ L	_____	_____	_____	_____
U(IV)H ₋₃ L	_____	_____	_____	_____
U(IV)H ₋₄ L	_____	_____	_____	_____
U(V)O ₂ L	_____	_____	_____	_____
U(V)H ₋₁ L	_____	_____	_____	_____
U(VI)O ₂ L ₁	aq 531	-1 188	aq 199	_____
U(VI)O ₂ L ₂	_____	_____	-2 200	_____
U(VI)O ₂ L ₃	_____	_____	_____	_____
(U(VI)O ₂) ₂ L ₁	_____	_____	_____	_____
(U(VI)O ₂) ₂ L ₂	_____	-2 189	_____	_____
U(VI)H ₋₁ L	_____	_____	_____	_____
Np(IV)L ₁	_____	_____	_____	_____
Np(V)O ₂ L ₁	-1 528	-2 234	-1 248	_____
Np(V)O ₂ L ₂	_____	_____	-3 249	_____
Np(V)O ₂ H ₁ L	aq 529	_____	aq 250	_____

Table 2-2 Thermodynamic Database used in the Modelling with HATCHES Database No.

Aqueous species	Ligand			
	Imino-diacetic acid	Citric acid	Oxalic acid	Glutaric acid
	L=IDA ²⁻	L=Cit ³⁻	L=OX ²⁻	L=Glut ²⁻
Pu(III)L ₁	_____	_____	_____	_____
Pu(III)L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(III)L ₃	_____	_____	_____	_____
Pu(III)H ₁ L ₁	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)L ₁	_____	+1 301	+2 334 Th	+2 606 Th
Pu(IV)L ₂	_____	-2 302	aq 335 Th	_____
Pu(IV)L ₃	_____	_____	-2 336 Th	_____
Pu(IV)L ₄	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₁ L	_____	_____	+3 337 Th	_____
Pu(IV)H ₋₂ L	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₃ L	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₄ L	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₁ L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₂ L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₃ L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₄ L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(V)O ₂ L ₁	-1 530	-2 286	_____	_____
Pu(V)O ₂ L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(V)O ₂ H ₋₁ L	_____	_____	_____	_____
Pu(VI)O ₂ L ₁	aq 532	-1 281	_____	_____
Pu(VI)O ₂ L ₂	_____	-4 280	-2 338	_____
Pu(VI)O ₂ L ₃	_____	_____	_____	_____
Pu(VI)O ₂ H ₁ L ₁	_____	_____	_____	_____
Pu(VI)O ₂ H ₋₁ L ₁	_____	_____	_____	_____
Am(III)L ₁	+1 527	aq 347	+1 353 ?	_____
Am(III)L ₂	_____	-3 348	-1 354	_____
Am(III)L ₃	_____	_____	-3 346	_____
Am(III)H ₁ L ₁	_____	+1 349	_____	_____
Am(III)H ₁ L ₂	_____	-2 350	_____	_____
Am(III)H ₋₁ L	_____	_____	_____	_____
Am(III)H ₋₂ L	_____	_____	_____	_____
Cm(III)L ₁	_____	aq 505	+1 503	_____
Cm(III)L ₂	_____	-3 506	-1 504	_____

Table 3-1 Thermodynamic Database used in the Modelling with HATCHES Database No.

Aqueous species	Ligand			
	Ethylene diamine tetra acetic acid	Ethylene diamine-N, N'-diacetic acid	EDDA + CH ₂ CO ₂ ⁻	EDTAで CH ₂ CO ₂ ⁻ 1個
	L=EDTA ⁴⁻	L=EDDA ²⁻	L=ED ₃ A ³⁻	L=EDMA ⁻
HL				
H ₂ L				
CaL				
Th(IV)L ₁	_____	_____	_____	_____
Th(IV)L ₂	_____	_____	_____	_____
Th(IV)L ₃	_____	_____	_____	_____
Th(IV)L ₄	_____	_____	_____	_____
Th(IV)H ₋₄ L	_____	_____	_____	_____
U(IV)L ₁	aq 182	_____	_____	_____
U(IV)L ₂	_____	_____	_____	_____
U(IV)L ₃	_____	_____	_____	_____
U(IV)L ₄	_____	_____	_____	_____
U(IV)H ₋₁ L	_____	_____	_____	_____
U(IV)H ₋₂ L	_____	_____	_____	_____
U(IV)H ₋₃ L	_____	_____	_____	_____
U(IV)H ₋₄ L	_____	_____	_____	_____
U(V)O ₂ L	_____	_____	_____	_____
U(V)H ₋₁ L	_____	_____	_____	_____
U(VI)O ₂ L ₁	_____	aq 549	_____	_____
U(VI)O ₂ L ₂	_____	_____	_____	_____
U(VI)O ₂ L ₃	_____	_____	_____	_____
(U(VI)O ₂) ₂ L ₁	aq 184	_____	_____	_____
(U(VI)O ₂) ₂ L ₂	-4 187	_____	_____	_____
* U(VI)H ₋₁ L	_____	_____	_____	_____
Np(IV)L ₁	aq 228	_____	_____	_____
Np(V)O ₂ L ₁	-3 235	_____	_____	_____
Np(V)O ₂ L ₂	_____	_____	_____	_____
Np(V)O ₂ H ₁ L	-2 236	_____	_____	_____

* 他に (U(VI)O₂)₂H₁L₁, 185, (U(VI)O₂)₂OH₁L₁, 186, (U(VI)O₂)₄OH₄L₂, 183 がある。

Table 3-2 Thermodynamic Database used in the Modelling with HATCHES Database No.

Aqueous species	Ligand			
	Ethylene diamine tetra acetic acid	Ethylene diamine-N, N'-diacetic acid	EDDA + CH ₂ CO ₂ ⁻	EDTAで CH ₂ CO ₂ ⁻ 1個
	L=EDTA ⁴⁻	L=EDDA ²⁻	L=ED ₃ A ³⁻	L=EDMA ⁻
Pu(III)L ₁	-1 316	_____	_____	_____
Pu(III)L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(III)L ₃	_____	_____	_____	_____
Pu(III)H ₁ L ₁	aq 317	_____	_____	_____
Pu(IV)L ₁	aq 303	+2 571	+1 570	+3 572
Pu(IV)L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)L ₃	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)L ₄	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₁ L	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₂ L	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₃ L	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₄ L	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₁ L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₂ L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₃ L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₄ L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(V)O ₂ L ₁	-3 287	-1 574	-2 573	aq 575
Pu(V)O ₂ L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(V)O ₂ H ₋₁ L ₁	_____	_____	_____	_____
Pu(VI)O ₂ L ₁	-2 282	aq 567	-1 568	+1 569
Pu(VI)O ₂ L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(VI)O ₂ L ₃	_____	_____	_____	_____
Pu(VI)O ₂ H ₁ L ₁	-1 288	_____	_____	_____
Pu(VI)O ₂ H ₋₁ L	_____	_____	_____	_____
Am(III)L ₁	-1 351	+1 564	aq 565	+2 566
Am(III)L ₂	-5 576	_____	_____	_____
Am(III)L ₃	_____	_____	_____	_____
Am(III)H ₁ L ₁	aq 352	_____	_____	_____
Am(III)H ₁ L ₂	_____	_____	_____	_____
Am(III)H ₋₁ L	_____	_____	_____	_____
Am(III)H ₋₂ L	_____	_____	_____	_____
Cm(III)L ₁	-1 507	_____	_____	_____
Cm(III)L ₂	_____	_____	_____	_____

Table 4-1 Thermodynamic Database used in the Modelling with HATCHES Database No.

Aqueous species	Ligand			
	Humic acid	Fulvic acid		
	L=HA ⁻	L=FA ⁻	L=	L=
HL				
H ₂ L				
CaL				
Th(IV)L ₁	+3 719	+3 728	_____	_____
Th(IV)L ₂	+2 720	+2 729	_____	_____
Th(IV)L ₃	_____	_____	_____	_____
Th(IV)L ₄	_____	_____	_____	_____
Th(IV)H ₋₁ L	_____	_____	_____	_____
U(IV)L ₁	+3 723	+3 725	_____	_____
U(IV)L ₂	+2 724	+2 726	_____	_____
U(IV)L ₃	_____	_____	_____	_____
U(IV)L ₄	_____	_____	_____	_____
U(IV)H ₋₁ L	_____	_____	_____	_____
U(IV)H ₋₂ L	_____	_____	_____	_____
U(IV)H ₋₃ L	_____	_____	_____	_____
U(IV)H ₋₄ L	_____	_____	_____	_____
U(V)O ₂ L	_____	_____	_____	_____
U(V)H ₋₁ L	_____	_____	_____	_____
U(VI)O ₂ L ₁	+1 175	_____	_____	_____
U(VI)O ₂ L ₂	aq 176	_____	_____	_____
U(VI)O ₂ L ₃	_____	_____	_____	_____
(U(VI)O ₂) ₂ L ₁	_____	_____	_____	_____
(U(VI)O ₂) ₂ L ₂	_____	_____	_____	_____
* U(VI)H ₋₁ L	_____	_____	_____	_____
Np(IV)L ₁	_____	_____	_____	_____
Np(V)O ₂ L ₁	_____	_____	_____	_____
Np(V)O ₂ L ₂	_____	_____	_____	_____
Np(V)O ₂ H ₁ L	_____	_____	_____	_____

Table 4-2 Thermodynamic Database used in the Modelling with HATCHES Database No.

Aqueous species	Ligand			
	Humic acid	Fulvic acid		
	L=HA ⁻	L=FA ⁻	L=	L=
Pu(III)L ₁	_____	_____	_____	_____
Pu(III)L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(III)L ₃	_____	_____	_____	_____
Pu(III)H ₁ L ₁	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)L ₁	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)L ₃	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)L ₄	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₁ L	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₂ L	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₃ L	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₄ L	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₁ L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₂ L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₃ L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(IV)H ₋₄ L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(V)O ₂ L ₁	_____	_____	_____	_____
Pu(V)O ₂ L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(V)O ₂ H ₋₁ L ₁	_____	_____	_____	_____
Pu(VI)O ₂ L ₁	_____	_____	_____	_____
Pu(VI)O ₂ L ₂	_____	_____	_____	_____
Pu(VI)O ₂ L ₃	_____	_____	_____	_____
Pu(VI)O ₂ H ₁ L ₁	_____	_____	_____	_____
Pu(VI)O ₂ H ₋₁ L	_____	_____	_____	_____
Am(III)L ₁	+2 345	_____	_____	_____
Am(III)L ₂	+1 346	_____	_____	_____
Am(III)L ₃	_____	_____	_____	_____
Am(III)H ₁ L ₁	_____	_____	_____	_____
Am(III)H ₁ L ₂	_____	_____	_____	_____
Am(III)H ₋₁ L	_____	_____	_____	_____
Am(III)H ₋₂ L	_____	_____	_____	_____
Cm(III)L ₁	_____	_____	_____	_____
Cm(III)L ₂	_____	_____	_____	_____

[有機物の構造式]

Iminodiacetic acid イミノ二酢酸



Glycolic acid グリコール酸

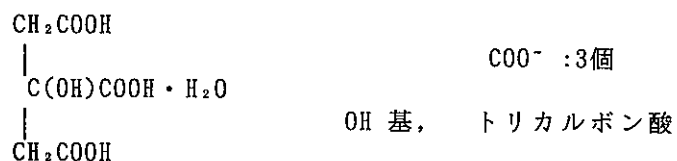


Gluconic acid グルコン酸
(モノカルボン酸)

Glyceric acid



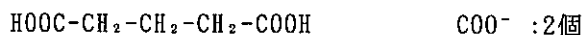
Citric acid クエン酸



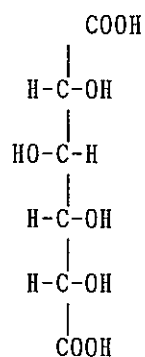
Oxalic acid シュウ酸



Glutaric acid グルタル酸



Saccharic acid = Glucaric acid 糖酸 = グルカル酸



Ethylenediaminetetra acetic acid, EDTA
エチレンジアミン四酢酸

