

# 令和4年度開始廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金 (固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発)

(分冊⑥)

## 4.処理・処分

### 4.2 処分概念の提示及び安全評価手法の開発

#### 4.2.2 安全評価手法開発の試行

##### 4.2.2.2 重要シナリオ・モデル・パラメータ検討

2025年5月

日本原子力研究開発機構

本成果報告は7分冊で構成し、本資料は分冊⑥である。

分冊	タイトル
①	1.全体概要
②	2.性状把握
③	3.保管・管理
④	4.処理・処分 4.1 処理技術
⑤	4.処理・処分 4.2 処分概念の提示及び安全評価手法の開発 4.2.1 処分概念提示に必要な情報・知識の調査 4.2.2 安全評価手法開発の試行 4.2.2.1 ストーリーボードのプロトタイプ検討
⑥	4.2.2.2 重要シナリオ・モデル・パラメータ検討
⑦	4.2.2.3 1F事故廃棄物の特徴を考慮した品質管理下安全評価検討

## 4. 処理・処分

### 4.2 処分概念の提示及び安全評価手法の開発

#### 4.2.2 安全評価手法開発の試行

##### 4.2.2.2 重要シナリオ・モデル・パラメータ検討

(1) 廃棄物共存物質の影響	4
(2) 天然バリアの特性の影響	43
(3) 生活圏付近の核種移行	70

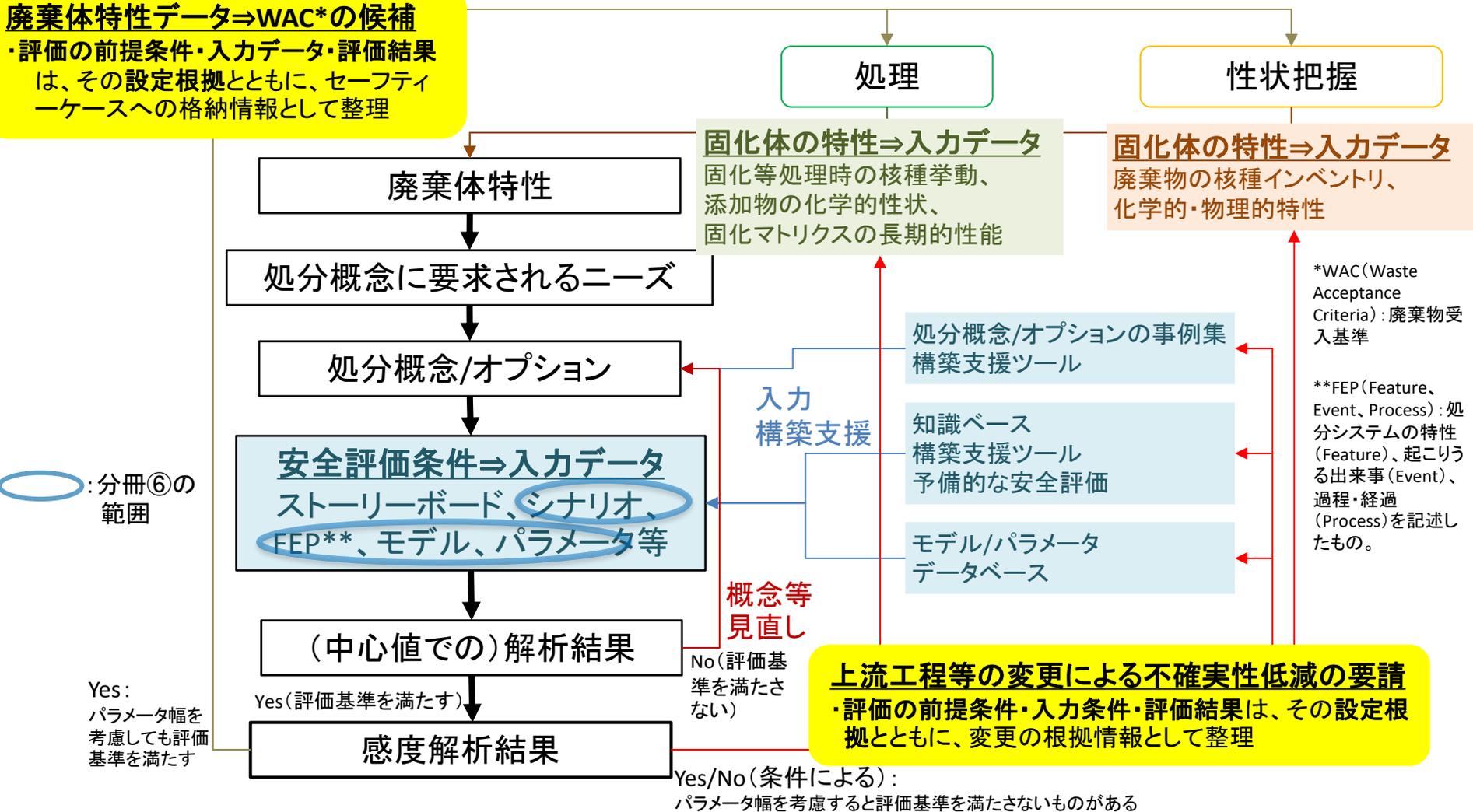
## 4.2 処分概念の提示及び安全評価手法の開発

### 廃棄物ストリーム合理化に向けた処分安全評価を中心とする情報の流れと本項目の範囲

- 廃棄物ストリームの合理化における情報の流れを処分概念構築とそれに対応した安全評価解析を実施することを中心に据えて整理
- 固化処理技術や性状把握等の基礎研究に基づいた入力データを用いて、構築した処分概念オプション案の成立性を種々のツールを用いて評価し、検討結果に応じて基礎研究の実施内容にフィードバックをかけることを表現

#### 廃棄体特性データ⇒WAC\*の候補

・評価の前提条件・入力データ・評価結果は、その設定根拠とともに、セーフティケースへの格納情報として整理



○:分冊⑥の範囲

Yes:  
パラメータ幅を考慮しても評価基準を満たす

No(評価基準を満たさない)

Yes/No(条件による):  
パラメータ幅を考慮すると評価基準を満たさないものがある

\*WAC(Waste Acceptance Criteria): 廃棄物受入基準  
\*\*FEP(Feature, Event, Process): 処分システムの特性(Feature)、起こりうる出来事(Event)、過程・経過(Process)を記述したものを。

## 4.2.2 安全評価手法開発の試行

### 4.2.2.2 重要シナリオ・モデル・パラメータ検討

- **重要事象進展ストーリーボードのプロトタイプを検討する。**
  - 重要なFEP・シナリオについて、現象論モデルやパラメータなどの評価手法、影響の解析手法等を検討・整理する。
    - ✓ 廃棄物共存物質の影響
    - ✓ 天然バリア特性の影響
    - ✓ 生活圏付近の核種移行

## (1) 廃棄物共存物質の影響

# (1) 廃棄物共存物質の影響

## 人工バリア評価の課題

- 人工バリアについては、廃棄物の多様性と不確実性に対応するために、核種吸着性、核種浸出性、低透水性、水理特性などをコントロールできる多様なバリアオプションを備え、評価に必要なパラメータ値を設定しておく必要がある。
- 特に、廃棄体マトリクスおよびバリア材の双方で有望なセメント系およびアルカリ活性材料（以下、AAM (Alkali Activated Material) という。）については、長期的な劣化挙動や、処分場環境の変化（地下水組成、1F事故廃棄物共存物質濃度等）を考慮した核種移行パラメータの設定が必要である。
- また、有機物やホウ酸など廃棄体に含まれる可能性がある物質（廃棄体含有物質）は、吸着媒体への吸着性を低減させる可能性があるため、その影響を定量的に考慮できるパラメータの設定手法が求められる。
- さらに、これらの影響因子が複数変化することで、シナリオや安全評価結果に複合的な影響が出る可能性を評価しておく必要がある。

## 人工バリアモデル・パラメータ

・長期的な変化や廃棄体含有物質影響を複合的に考慮した影響メカニズムに基づく核種移行モデル構築・パラメータ設定

各種バリアの透水・吸着特性

吸着場の化学特性

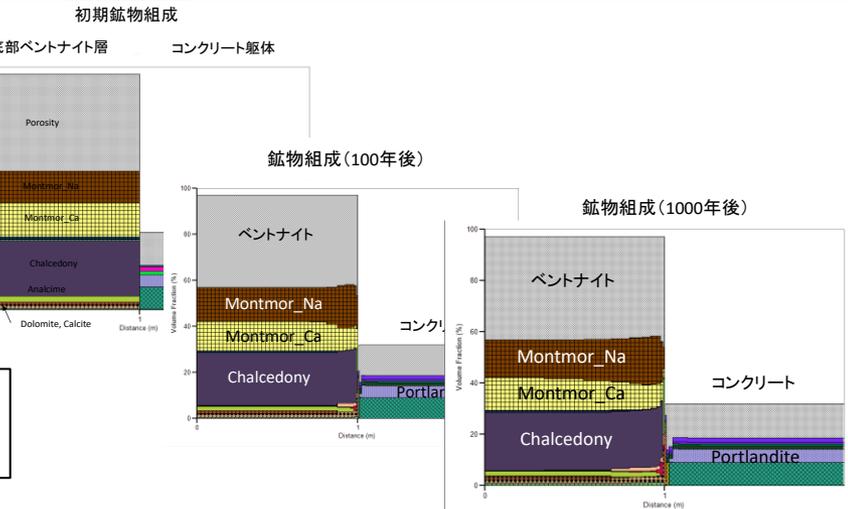
セメント廃棄体の特性と長期的な変遷

AAM系廃棄体の特性と長期的な変遷

セメントの影響特性と長期的な変遷

浸出 吸着

浸出 吸着



底部ベントナイト層及びコンクリート中の鉱物組成変化

廃棄体含有物質の影響特性

# (1) 廃棄物共存物質の影響 AAMに関する核種移行データの取得

- 収着試験に用いたAAMの配合条件と収着試験の条件を示す。

使用したAAM: 試料名 M、MB20、MB40

収着試験においては、AAMを150 μm以下に粉碎  
試験はトレーサーを用いた (Cs-137、Sr-85、Eu-152)  
pH: 10.5-12.5程度 (NaCl溶液を添加のみでAAMとの平衡による結果)  
トレーサー:  $1 \times 10^{-8}$  mol/L、液相: 0.05M NaCl溶液、固液比: 1000

試験  
室温、大気下で試験実施

サンプリング  
遠心分離1000 rpmで3分  
0.45 μmフィルタでろ過

## 試験に用いた試料の配合条件

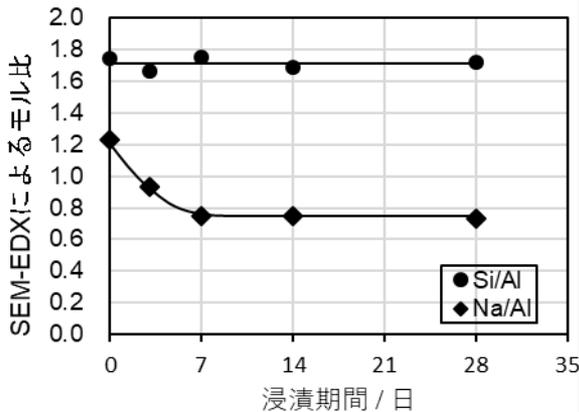
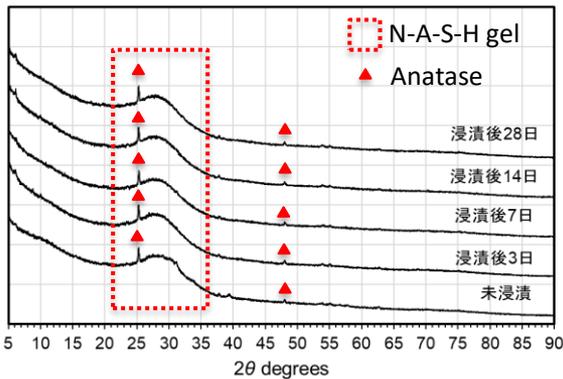
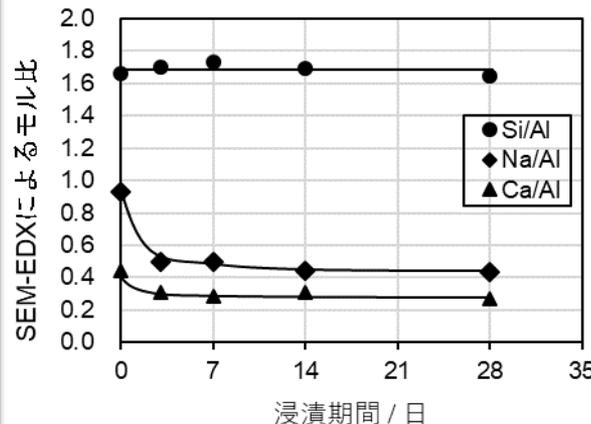
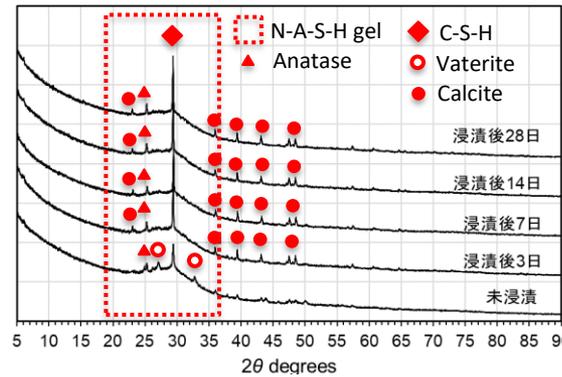
試料名	配合条件※					
	高炉スラッグ(B)割合	メタカオリン(M)割合	水/粉体比	Na濃度	組成	
	B wt%	M wt%	H <sub>2</sub> O wt%	Na/H <sub>2</sub> O mol/mol	Si/Al mol/mol	Na/Al mol/mol
M	0	100	150	0.16	1.80	1.51
MB20	20	80	110	0.11	1.80	0.90
MB40	40	60	100	0.13	1.80	1.13

※「平成28年度補正予算廃炉・汚染水対策事業費補助金固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発」、及び「平成29年度補正予算廃炉・汚染水対策事業費補助金固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発（先行的処理手法及び分析手法に関する研究開発）」（処理に係る検討）平成30年度実施分成果報告 令和元年7月 技術研究組合国際廃炉研究開発機構 p30

# (1) 廃棄物共存物質の影響

## AAMに関する核種移行データの取得

- AAMの材質における浸漬試験(0.05 M NaCl水溶液、固液比100)前後の変化を調査した。2022年度に得られたXRDの結果について文献調査により結晶相及び非晶質相を帰属し、浸漬の影響を調査した。液相分析により固相からの元素の脱離量を調査した。また、固相分析による浸漬期間に対する化学組成の推移も調査した。

**M**

**MB40**


### ■ AAM Mについて

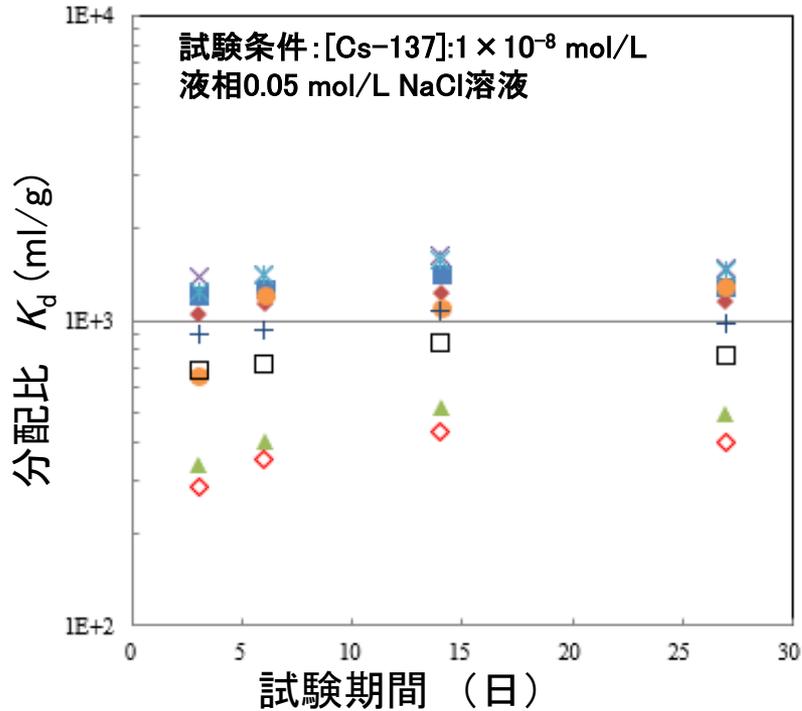
- XRD測定: N-A-S-H ( $\text{Na}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2-\text{H}_2\text{O}$ ) gel  
Anatase ( $\text{TiO}_2$ )  
浸漬前後でチャートに変化なし
- SEM-EDX: 主要元素はNa, Si, Al
- 液相分析: 固相中重量に対する脱離率(28日)  
Al: 0.3 mass%, Si: 4.1 mass%, Na: 28.5 mass%
- 固相組成の推移(脱離しにくいAlを基準として)  
Si/Alモル比: 28日間ではほぼ一定  
Na/Alモル比: 減少、その7日以降一定

### ■ AAM MB40について

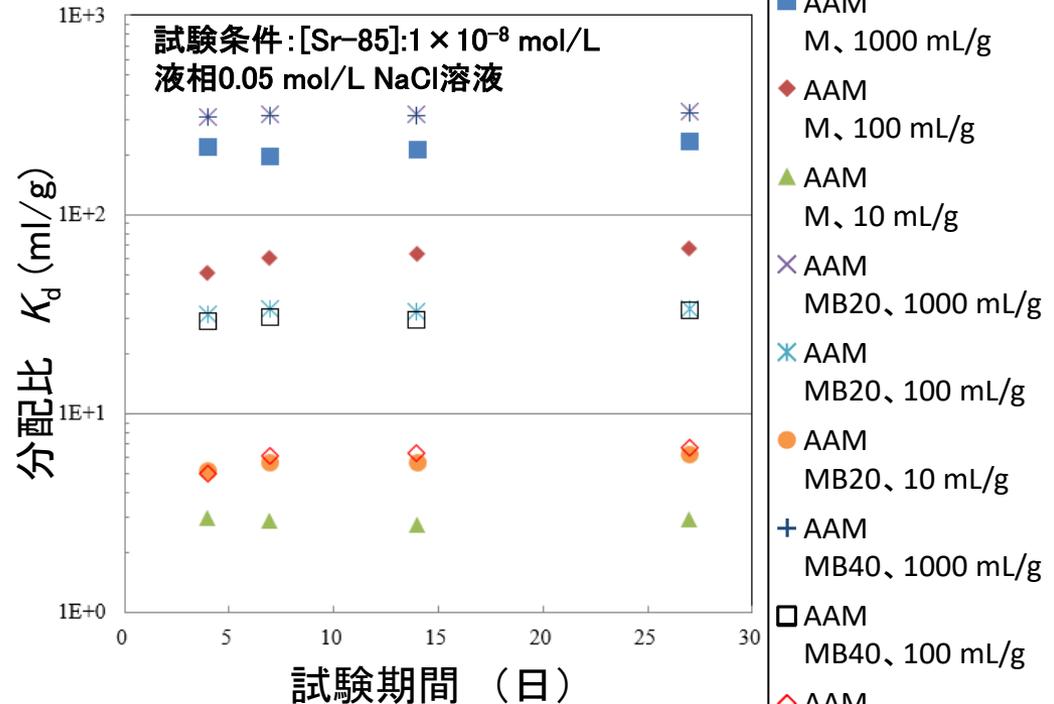
- XRD測定: N-A-S-H gel、Anatase ( $\text{TiO}_2$ )、  
C-S-H ( $\text{CaO}-\text{SiO}_2-\text{H}_2\text{O}$ )、  
Vaterite ( $\text{CaCO}_3$ )、Calcite ( $\text{CaCO}_3$ )  
浸漬によりVateriteがCalciteに相転移
- SEM-EDX: 主要元素はNa, Si, Al, Ca
- 液相分析: 固相中重量に対する脱離率(28日)  
Al: 0.7 mass%, Si: 1.5 mass%, Na: 28.8 mass%,  
Ca: 0.26 mass%
- 固相組成の推移(脱離しにくいAlを基準として)  
Si/Alモル比: ほぼ一定、  
Na/Alモル比: 減少、約14日以降一定  
Ca/Alモル比: 減少、約3日以降一定  
(液相分析と矛盾、Caは沈殿として脱離か)

# (1) 廃棄物共存物質の影響 AAMに関する核種移行データの取得

■ AAMに対するCs、Sr、Ni、Eu、Se、Iの分配比を取得した。以下にCsとSrの結果を示す。



固液比の異なるAAMに対する  
Cs分配比の時間依存性



固液比の異なるAAMに対する  
Sr分配比の時間依存性

- AAM  
M、1000 mL/g
- ◆ AAM  
M、100 mL/g
- ▲ AAM  
M、10 mL/g
- ✕ AAM  
MB20、1000 mL/g
- ✧ AAM  
MB20、100 mL/g
- AAM  
MB20、10 mL/g
- + AAM  
MB40、1000 mL/g
- AAM  
MB40、100 mL/g
- ◇ AAM  
MB40、10 mL/g

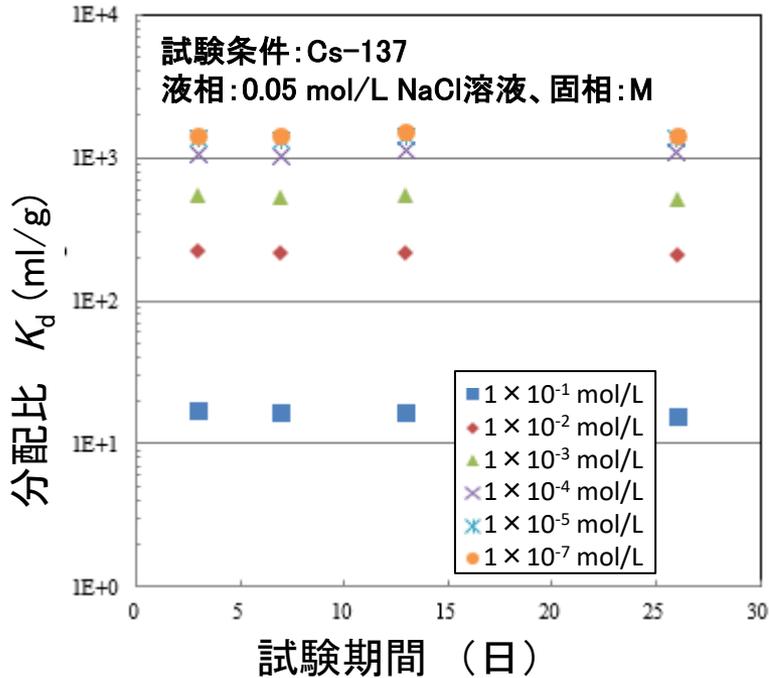
Cs : 高炉スラグ含有量や固液比の影響は小さい。

Sr : 固液比の違いによって分配比に差が認められた。高炉スラグ含有量の影響はなかった。

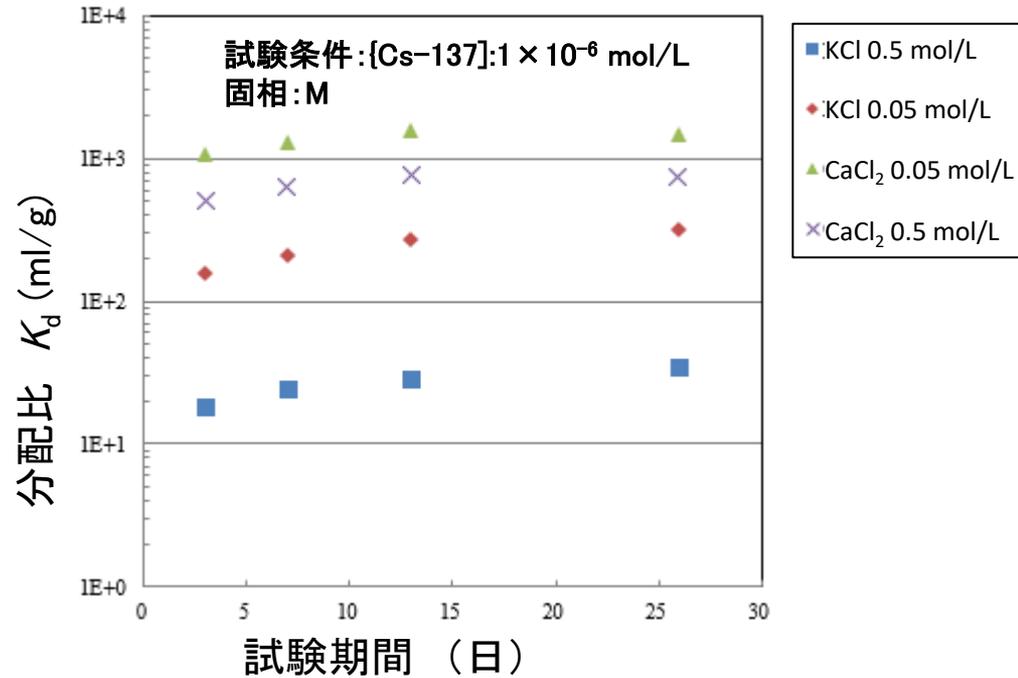
# (1) 廃棄物共存物質の影響

## AAMに関する核種移行データの取得

■ AAMに対するCsの分配比については、初期濃度依存性及び、液相のイオンの違いを確認した。



Csの初期濃度を変えた条件下におけるAAMに対するCs分配比の時間依存性



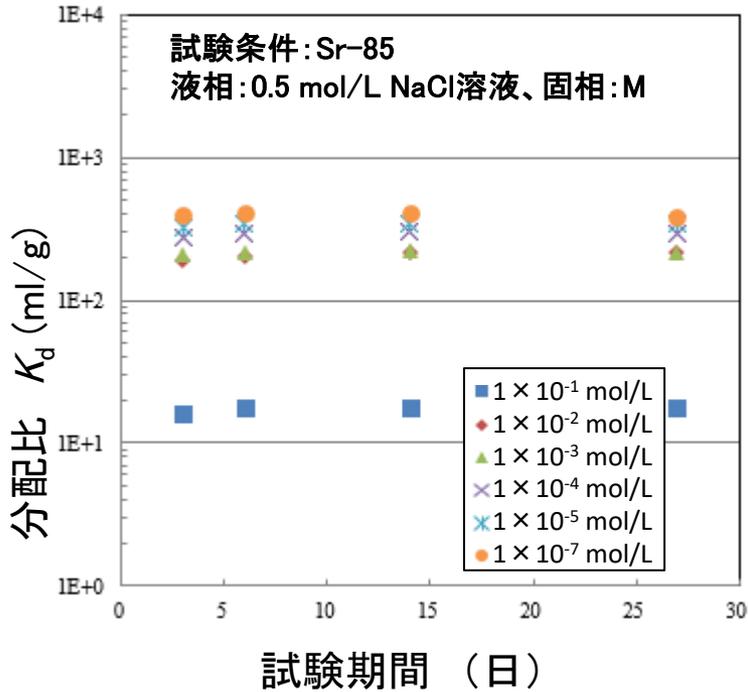
試験溶液中のイオン濃度を変えた条件下におけるAAMに対するCs分配比の時間依存性

初期濃度の違いで分配比が異なっていたので、吸着サイトが複数ある可能性が示唆された。AAMに対しては、CsはKと競合する可能性が示唆された。Caについても濃度が高い場合は影響があることが確認された。

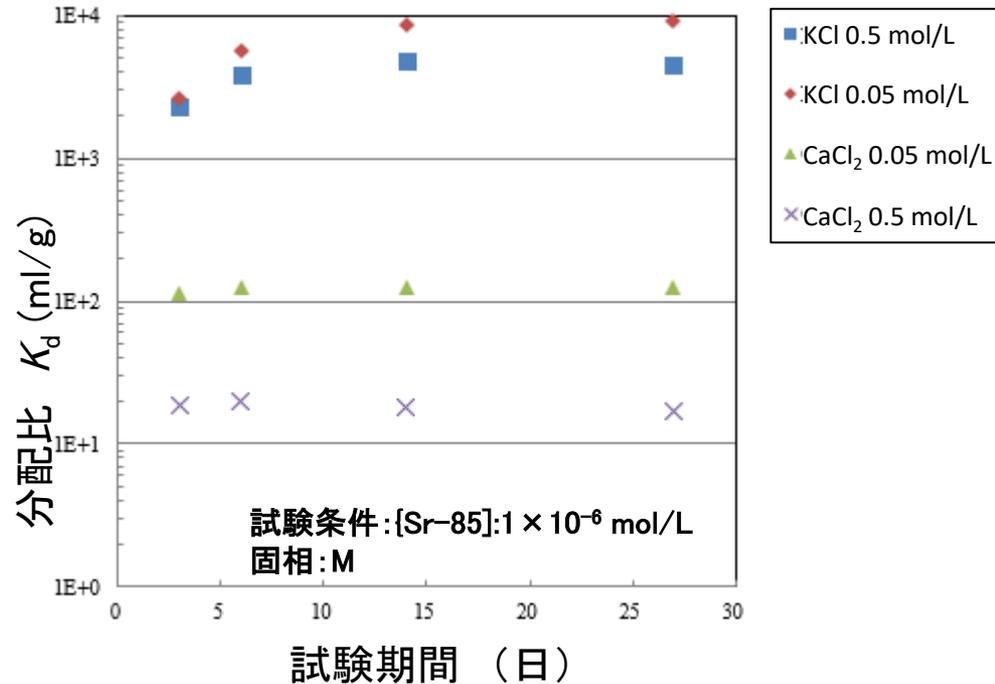
# (1) 廃棄物共存物質の影響

## AAMに関する核種移行データの取得

■ AAMに対するSrの分配比についても、初期濃度依存性及び、液相のイオンの違いを確認した。



Srの初期濃度を変えた条件下における  
AAMに対するSr分配比の時間依存性



試験溶液中のイオン濃度を変えた条件下における  
AAMに対するSr分配比の時間依存性

Srの場合も初期濃度の違いで分配比が異なっており、吸着サイトが複数ある可能性が示唆された。

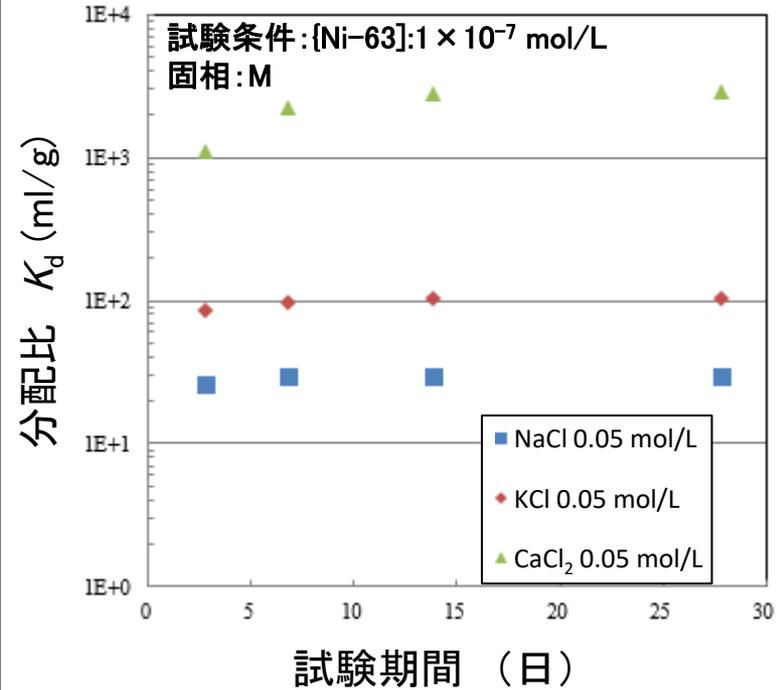
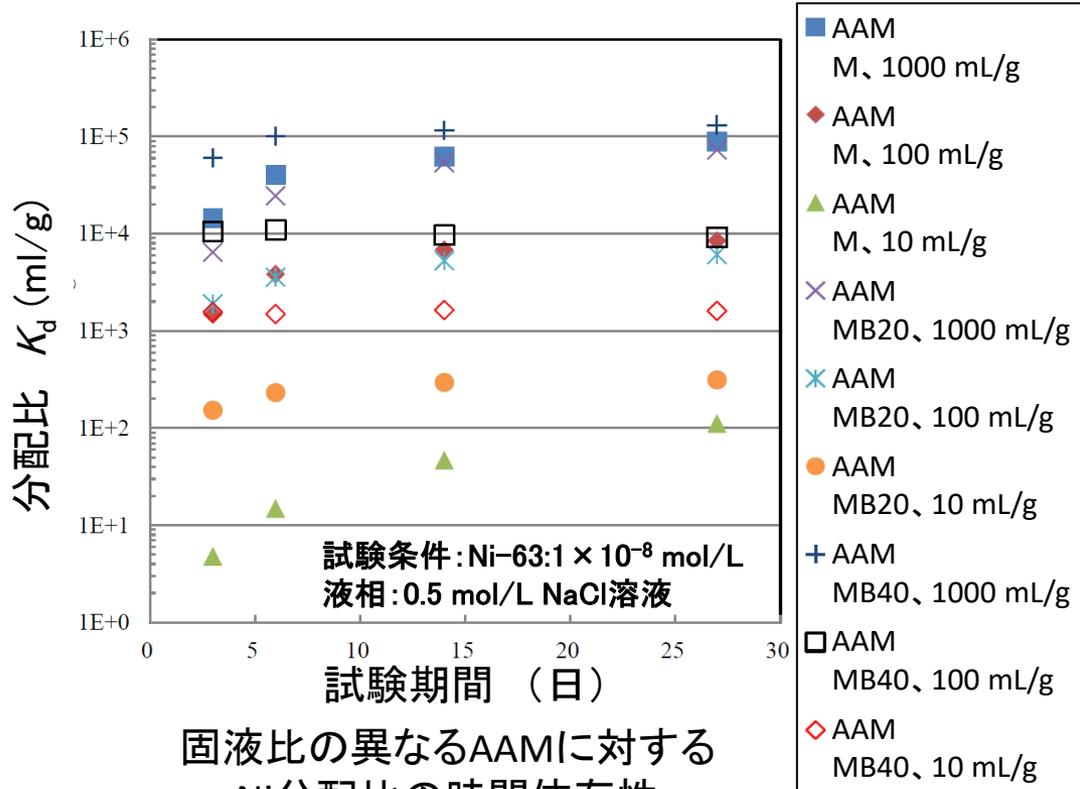
SrはCaと競合し分配比が下がった。一方Kについては分配比がNaと比較し大きくなった。

KとNaが溶液中に存在する場合の固相の変化も考えられる。

# (1) 廃棄物共存物質の影響

## AAMに関する核種移行データの取得

■ AAMに対するNiの分配比については、固液比と液相のイオンの違いを確認した。



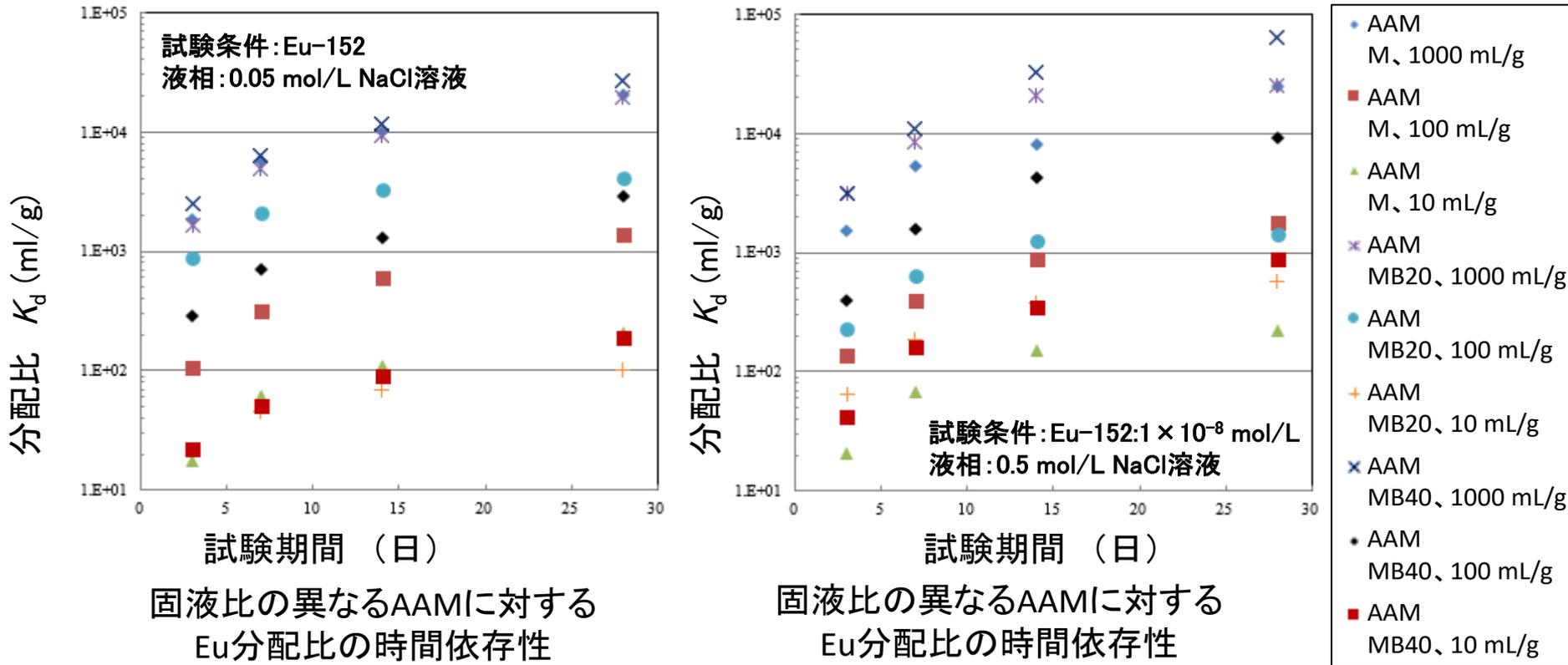
Ni: 高炉スラグ含有量や固液比の違いによって収着速度や分配比に差が認められた。

MB40 > MB20 > M

Niの場合は、Caとの競合は確認されず、NaやKとの競合があるような挙動が得られた。2価の陽イオンであるNiが加水分解等しているか、固相に変化がある可能性が考えられる。

# (1) 廃棄物共存物質の影響 AAMに関する核種移行データの取得

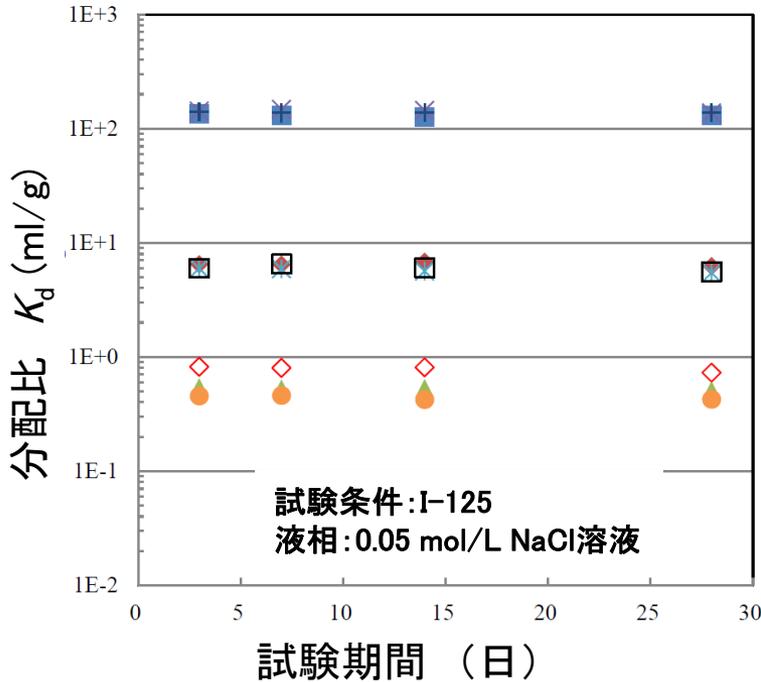
■ AAMに対するEuの分配比については、固液比の違いとイオン強度の違いを確認した。



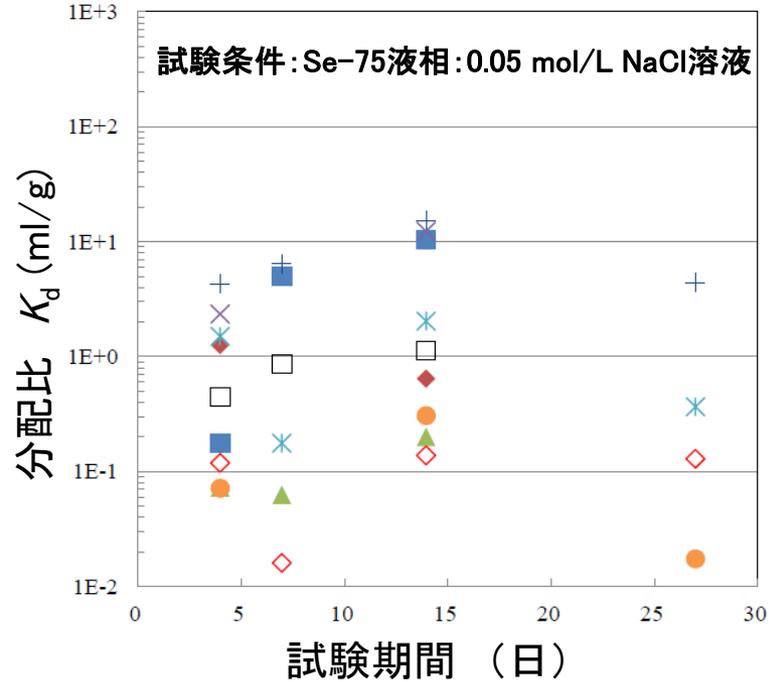
Euに関しては30日程度の試験期間ではまだ平衡に到達していないようなデータが得られている。イオン強度の依存性は小さいことが確認された。  
固液比の違いによる結果からは吸着サイトの違いは確認されなかった。

# (1) 廃棄物共存物質の影響 AAMに関する核種移行データの取得

■ AAMに対する陰イオンの収着を確認するため、IとSeを用いた試験を行い、固相の違いを確認した。



固液比の異なるAAMに対する  
I分配比の時間依存性



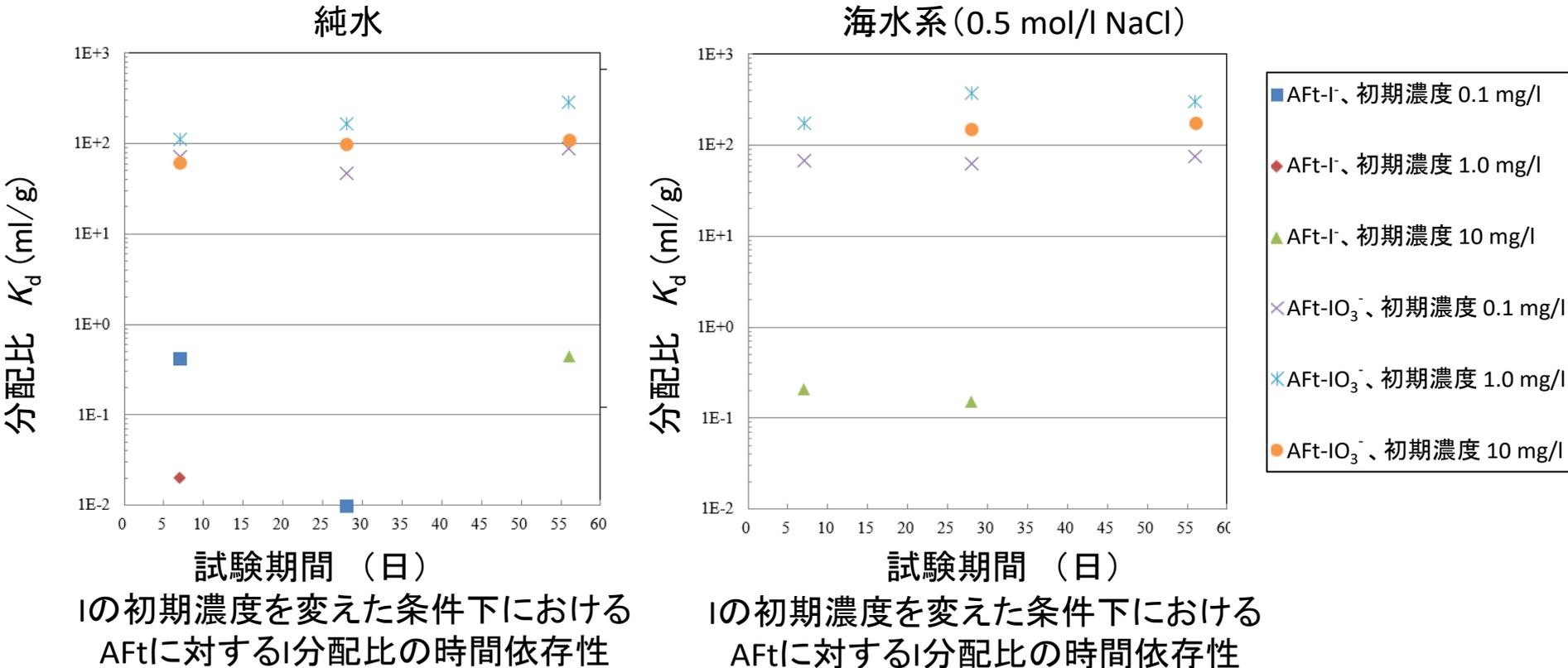
固液比の異なるAAMに対する  
Se分配比の時間依存性

- AAM  
M、1000 mL/g
- ◆ AAM  
M、100 mL/g
- ▲ AAM  
M、10 mL/g
- × AAM  
MB20、1000 mL/g
- ✱ AAM  
MB20、100 mL/g
- AAM  
MB20、10 mL/g
- + AAM  
MB40、1000 mL/g
- AAM  
MB40、100 mL/g
- ◇ AAM  
MB40、10 mL/g

I: 固液比の違いによって分配比に差が認められた。高炉スラグ含有量の影響は認められない。  
Se: 時間でデータがばらついているので、液性や化学種が変化している可能性が考えられる。

# (1) 廃棄物共存物質の影響 セメント系鋇物に対する核種移行データの取得

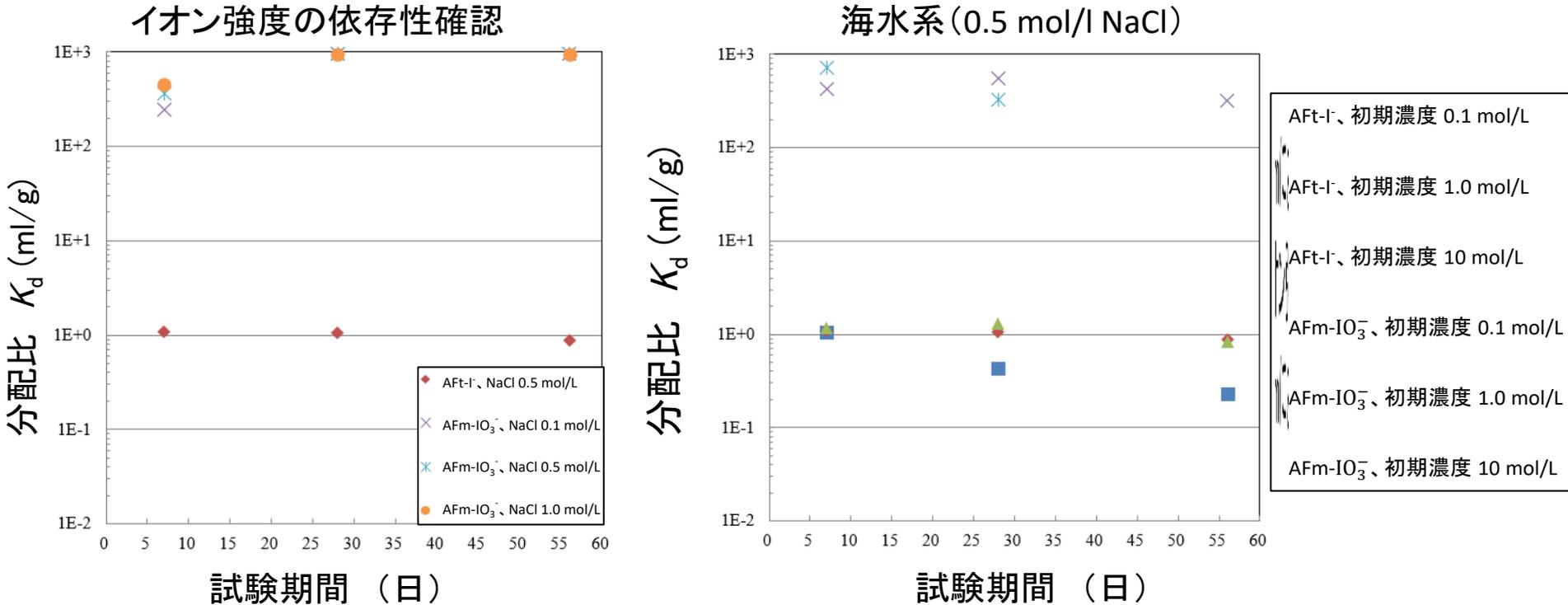
■ セメント系鋇物エトリンナイト(以下、AFtという。)に対するIの分配比を取得した。



AFtにおいては、Iと比較してIO<sub>3</sub><sup>-</sup>の分配比が大きい結果が得られた。  
イオン強度や初期濃度の影響は確認されなかった。吸着サイトは均一であると考えられる。

# (1) 廃棄物共存物質の影響 セメント系鉱物に対する核種移行データの取得

■ AFtとモノサルフェート(以下、AFmという。)に対するIの分配比を取得した。



イオン濃度を変えた条件下における  
AFtとAFmに対するI分配比の時間依存性

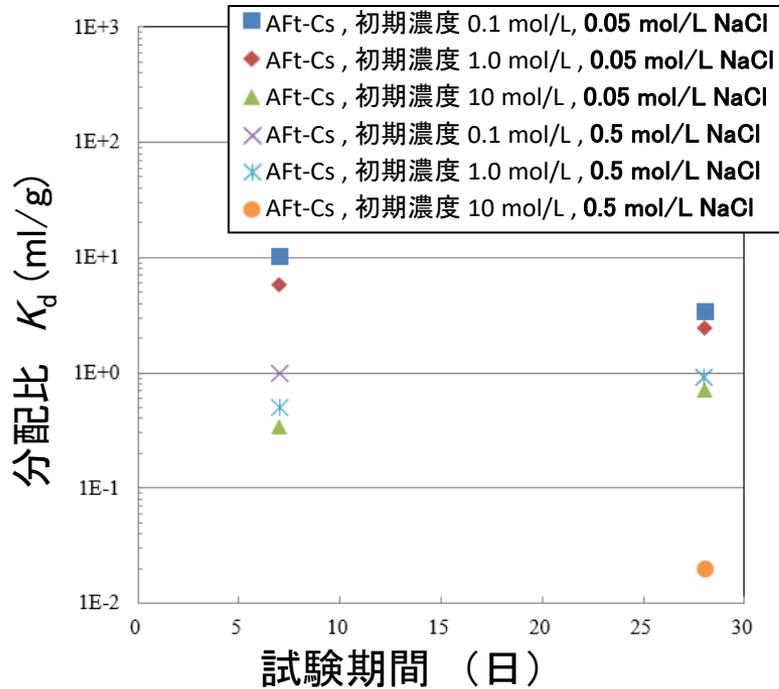
固液比の異なるAFtとAFmに対する  
I分配比の時間依存性

AFmにおいても、Iと比較してIO<sub>3</sub><sup>-</sup>の分配比が大きい結果が得られてた。  
イオン強度や初期濃度の依存性は確認されなかった。  
AFmにおいても、AFt同様吸着サイトは均一であると考えられる。

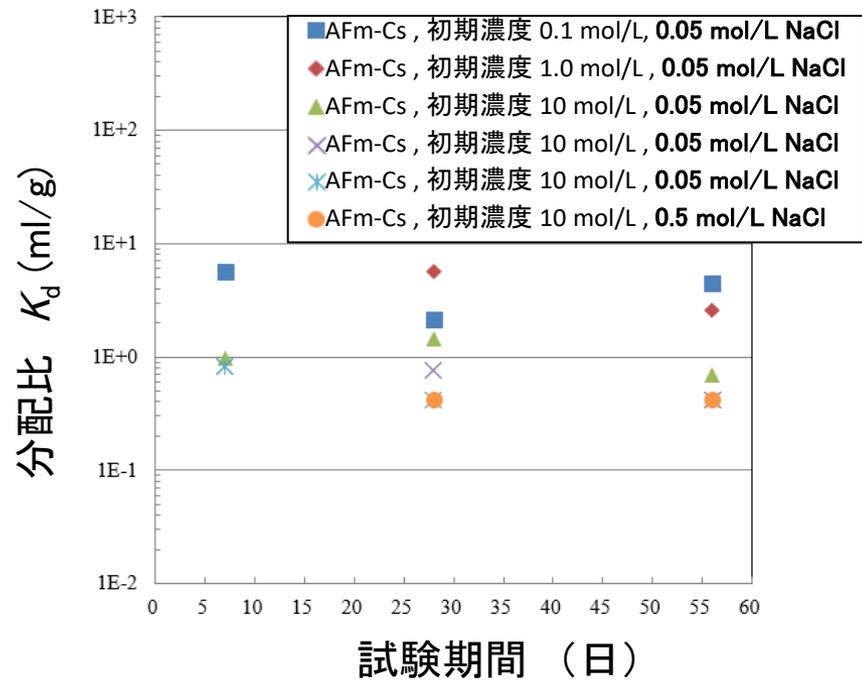
# (1) 廃棄物共存物質の影響

## セメント系鉱物に対する核種移行データの取得

- セメント系鉱物AFtやAFmに対するCsの分配比を取得した。



AFtに対するCs分配比の時間依存性

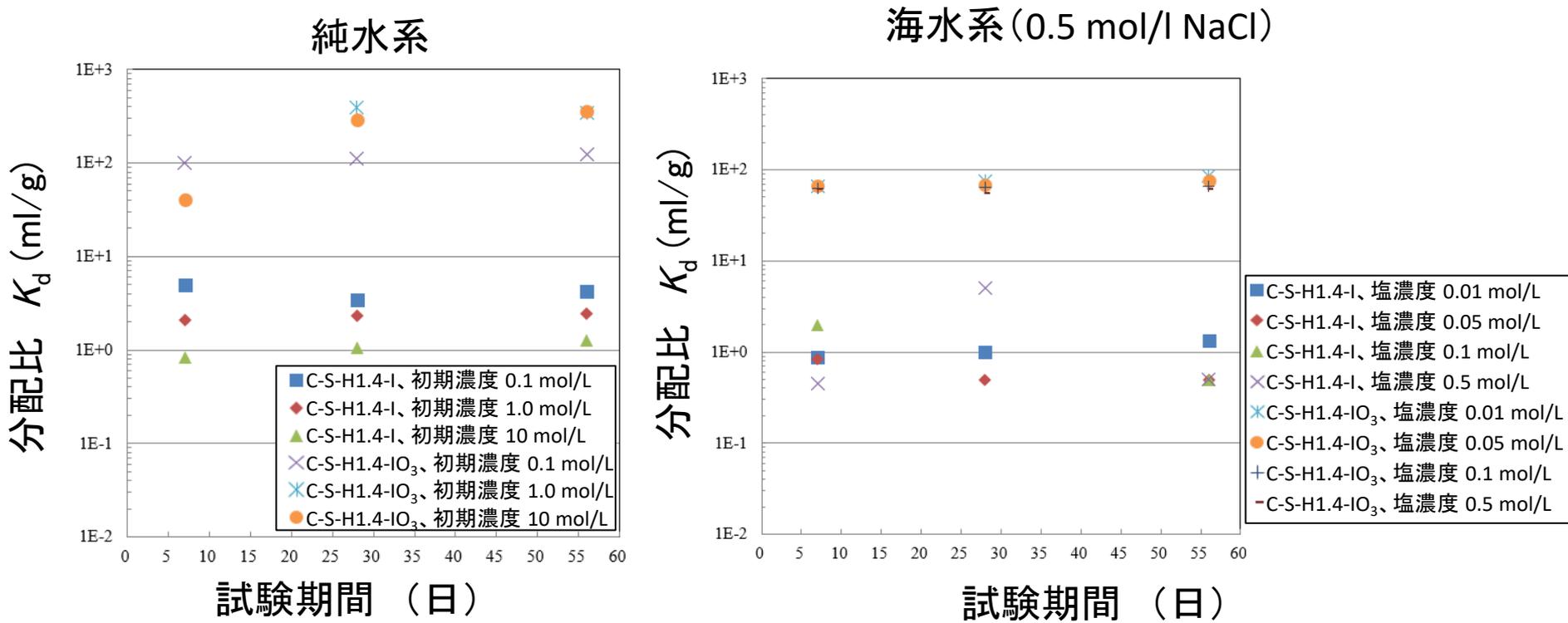


AFmに対するCs分配比の時間依存性

AFtやAFmに対してCsの分配比は大きくないことが確認された。  
 ヨウ素酸イオンより低いことから陽イオンのサイトが多いことが推測される。

# (1) 廃棄物共存物質の影響 セメント系鉱物に対する核種移行データの取得

■ セメント系鉱物C-S-H 1.4に対するIの分配比を取得した。



C-S-H1.4(ケイ酸カルシウム水和物 Ca/Si = 1.4)に対するヨウ素の分配比の時間依存性

C-S-H1.4に対しても、Iと比較してIO<sub>3</sub><sup>-</sup>の分配比が大きい結果が得られた。  
 イオン強度や初期濃度の影響は確認されなかったが、陰イオンはある程度収着することが確認された。

# (1) 廃棄物共存物質の影響

## セメントシステムにおける収着低減効果

### ■ イソサッカリン酸(以下、ISA(Iso Saccharinic Acid)という。)共存下でのUの収着低減効果

セメントシステムにおける収着低減効果は、主に無機および有機リガンドなど、様々な擾乱物質の存在によって引き起こされる可能性がある。セメントシステムでは、このような物質の最大濃度に一定の制限があることを指摘しておくことが重要である。その制限は収着低減係数(以下、SRF(Sorption Reduction Factor)という。)と不擾乱状態の $K_d$ 値で表される。その値について、実験的データに基づいて推定されたOchs et al.,(2017)\*で推奨された値を本ページと次ページに示す。

ISA共存下におけるセメントに対するUのSRFと推定 $K_d$ 値  
セメントの条件(状態I→IIIでセメントの劣化を表示)での推定値

ウラン (VI)			
システム	$K_d$ (m <sup>3</sup> /kg)	SRF	
	最良推定値 (Ochs et al.,(2017)より)	計算値 (TDB: Thermo Chimie V12a)	実験データから の推定値 (Ochs et al.,(2017))
<b>不擾乱系</b>			
状態 I	2	–	–
状態 II	20	–	–
状態 IIIa	20	–	–
状態 IIIb	20	–	–
<b>ISA</b>			
ISA 濃度 ~0.021 M; 塩分濃度 0.06 M			
状態 I	0.04 (0.2)	50	10
状態 II	0.4 (2)	50	10
状態 IIIa	0.06 (2)	350	10
状態 IIIb	0.06 (2)	350	10
<b>ISAと塩分の複合効果</b>			
ISA濃度 ~0.021 M; 塩分濃度 0.6 M			
状態 I	0.03 (0.2)	70	10
状態 II	0.3 (2)	70	10
状態 IIIa	0.02 (2)	1000	10
状態 IIIb	0.02 (2)	1000	10
ISA濃度 ~0.021 M; 塩分濃度 5.9 M			
状態 I	0.5 (0.2)	4	10
状態 II	5 (2)	4	10
状態 IIIa	5 (2)	4	10
状態 IIIb	5 (2)	4	10

\*Ochs M., Vriens B., Soltermann D., Revised Technical Report (FY16), Technical report, Radionuclide retention in cement systems JAEA SDB for Cement Systems., Report for JAEA, Ar cadis Switzerland, 24 May 2017.

# (1) 廃棄物共存物質の影響

## セメントシステムにおける収着低減効果

### ■ 海水やホウ酸共存下でのUの収着低減効果

塩分やホウ酸塩共存下におけるセメントに対するUのSRFと推定 $K_d$ 値  
セメントの条件(状態I→IIIでセメントの劣化を表示)での推定値

ウラン (VI) システム	$K_d$ (m <sup>3</sup> /kg) 最良推定値 Ochs et al.,(2017) <sup>※</sup> より	計算値 (TDB: Thermo Chimie V12a)	SRF 実験データを用いた 推定値 (Ochs et al.,(2017))
<b>塩分濃度</b>			
濃度 ≤ 0.6 M			
状態 I	2 (2)	1 (効果無し)	1 (効果無し)
状態 II	20 (20)	1 (効果無し)	1 (効果無し)
状態 IIIa	20 (20)	1 (効果無し)	1 (効果無し)
状態 IIIb	20 (20)	1 (効果無し)	1 (効果無し)
濃度 ~5.9 M			
状態 I	2 (0.2)	1 (効果無し)	10
状態 II	20 (2)	1 (効果無し)	10
状態 IIIa	20 (2)	1 (効果無し)	10
状態 IIIb	20 (2)	1 (効果無し)	10
<b>ホウ酸塩</b>			
濃度 ~0.04 M			
状態 I	0.2		
状態 II	2		
状態 IIIa	2		
状態 IIIb	2		
濃度 ~0.4 M			
状態 I	0.02		
状態 II	0.2		
状態 IIIa	0.2		
状態 IIIb	0.2		

## (1) 廃棄物共存物質の影響

### 影響物質が核種移行に及ぼす影響に関する調査

- 2022年度はパラメータ設定充実のため、普通ポルトランドセメント(OPC)の情報を整理した。このような場の変遷により発生する共存物質等に関する情報と場の変遷による分配係数のパラメータの変化について調査・整理を行った。1F事故廃棄物に関する処分環境に焦点をあて、各国の放射性廃棄物処分を対象とした安全評価において、 $K_d$ を変化させた安全評価を実施しているものを選定し、その中の核種移行解析において  $K_d$  の変化をどのように取り扱っているのかを調査・整理する。対象とする処分概念は、低・中レベルの放射性廃棄物処分を対象とした処分概念をメインとするが、高レベル放射性廃棄物を想定した処分概念においても参考となる事例があれば、調査の対象とした。

上記の調査の結果、 $K_d$ を時間変化させた安全評価事例は下記の3件である。よって、これらの3つの事例を対象として、安全評価における $K_d$ 設定の詳細について調査した。調査結果については次項以降に記す。

NUMO包括的技術報告書：わが国における安全な地層処分の実現－適切なサイトの選定に向けたセーフティケースの構築－※(NUMO、2021、以下NUMO-SCという。)：我が国におけるTRU地層処分場に対する評価事例

SR-PSU(SKB、2015)※※：スウェーデンのLILW処分場(SFR)に対する評価事例

gDSSC(RWM、2016)※※※：英国のILW/LLW処分施設に対する評価事例

※原子力発電環境整備機構(NUMO)、包括的技術報告書：わが国における安全な地層処分の実現－適切なサイトの選定に向けたセーフティケースの構築－、2021年2月

※※SKB, Safety analysis for SFR: Long-term safety -Main report for the safety assessment SR-PSU, SKB Technical Report TR-14-01, 2015.

※※※RWM, Geological Disposal Generic Environmental Safety Case - Main Report. NDA Report DSSC/203/01, 2016.

# (1) 廃棄物共存物質の影響

## 影響物質が核種移行に及ぼす影響に関する調査

### ■ NUMO-SC (NUMO, 2021) ※ 我が国における地層処分場に対する評価事例

NUMO-SC※の安全評価シナリオにおいて、TRU等廃棄物グループ3(以下、TRU Gr.3廃棄物という。)の処分区画近傍の岩盤については岩盤の間隙水中のpHと硝酸塩濃度の時間変遷を考慮するものとし、下記のように既存のデータベースを用いて $K_d$ (低減なし)と収着低減係数(SRF)が設定されている。

○ $K_d$ (低減なし): NUMO-SC※の対象核種各々に対して、pHは地下水の設定(pH=8)で硝酸塩影響はない設定で、花崗岩を対象としたデータベースをもとに時間的に一定な値として設定された。

○SRF: 硝酸塩影響があるとされている6種類の元素(Ni, Pd, Cs, Sr, Ra, Pb)に対して、低減係数を設定するpHは地下水(pH=8)の設定で、硝酸塩濃度は閉鎖後1000年で1 mol/Lから0.1 mol/Lになるとした上で、データベースから閉鎖後1000年より前と後の値をそれぞれ参照した。また、Coについても、化学的に類似しているNiの設定を参照して低減係数が設定された。

### 地質環境の安全機能「放射性物質の収着」を規定する状態変数への影響の可能性

安全機能を規定する状態変数	統合 FEP	最も確からしい状態	シナリオ上の取扱い区分
地下水水質	水化学	<ul style="list-style-type: none"> <li>坑道の吹付けコンクリートや廃棄体パッケージ充填材などのセメント系材料に起因する高pH間隙水の影響領域は坑道近傍に限定されるため、ほとんどの領域において母岩の収着特性は維持される(NUMO-SC※付属書6-8)。</li> <li>TRU Gr.3廃棄物は硝酸塩を含むので、硝酸塩プルームが母岩領域まで広がり、核種の母岩への収着は影響を受ける。硝酸塩プルームの広がりや濃度には時間変遷があり、母岩周辺の硝酸塩濃度は時間的に減少していく(NUMO-SC※付属書 6-8)。</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>基本シナリオにおいて、TRU Gr.3廃棄物に対しては、硝酸塩濃度の時間変遷を考慮した母岩の収着特性を設定する。</li> </ul>

※原子力発電環境整備機構(NUMO), 包括的技術報告書: わが国における安全な地層処分の実現ー適切なサイトの選定に向けたセーフティケースの構築ー, 2021年2月

# (1) 廃棄物共存物質の影響

## 影響物質が核種移行に及ぼす影響に関する調査

### NUMO-SC (NUMO, 2021) ※ 我が国における地層処分場に対する評価事例 $K_d$ 変化の概要

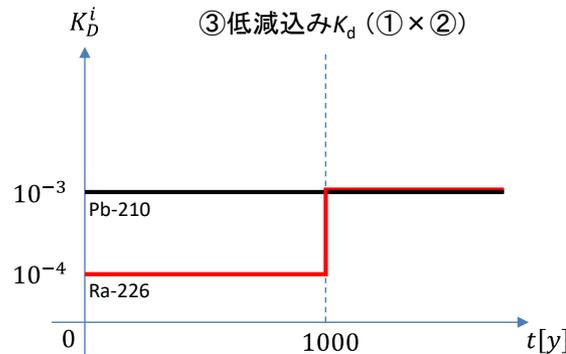
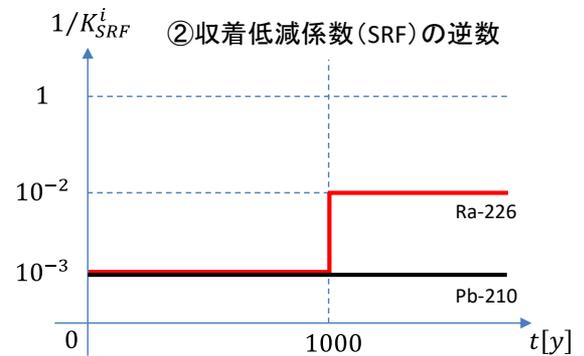
岩盤への  $K_d$  の経時変化例として、Pb-210とRa-226の概形を下図に示す。①は低減なし  $K_d$ 、②は収着低減係数の逆数、③は①、②の積の概形である。

①は核種依存で、時間変化はしない。Pb-210の方がRa-226の10倍の値である。

②の低減係数も核種依存で、硝酸イオンが広がっていることで処分場閉鎖直後から1より大きい値になっている。Pb-210とRa-226では同じ値である。岩盤の硝酸イオンの平均濃度の時間変化はNUMO-SC※において反応輸送解析により計算されており、1000年を境にして濃度のオーダーが1桁下がる。それによって、核種によっては閉鎖後から1000年前後

で収着低減効果が低くなり、収着低減係数が1/10倍に変化するように設定している。この例ではPb-210は変わらないが、Ra-226は硝酸イオン濃度の変化に敏感で、低減係数が1/10倍となっている。

③の低減込みの値は、1000年まではPb-210の方がRa-226より10倍大きい、1000年後は同じ値となっている。



① 低減なし  $K_d$

- 岩盤中に硝酸イオンが存在しない場合の値で不変

② 収着低減係数の逆数

- 処分場閉鎖後、TRU Gr.3廃棄物は定置領域近傍における岩盤中の硝酸イオン濃度は、減少していく
- 閉鎖後1000年までと比較して、1000年以降の硝酸塩濃度が1/10程度になることを反映し、閉鎖後1000年でSRFの値を切り替える

③ 低減込み  $K_d$

- 切り替わり時期は②と同様

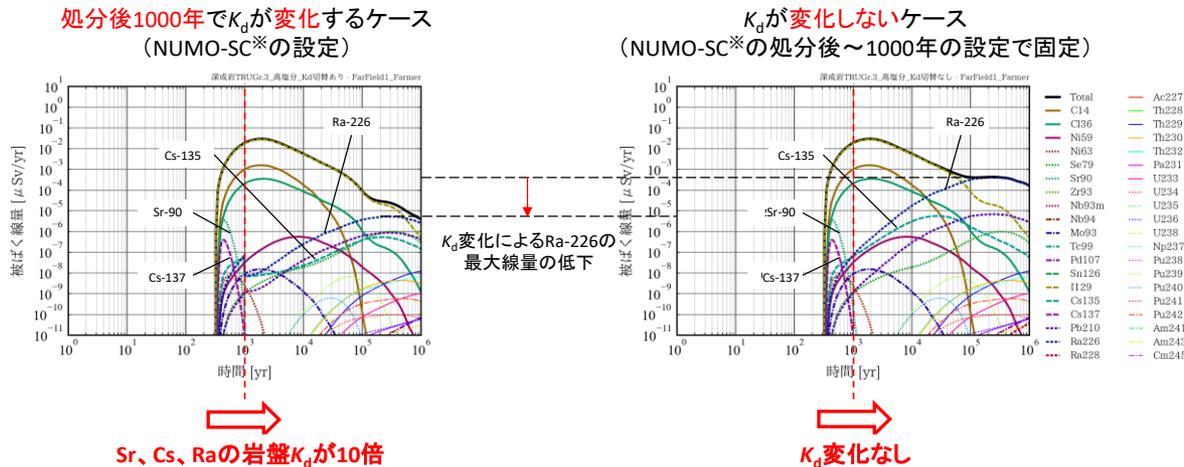
# (1) 廃棄物共存物質の影響

## 影響物質が核種移行に及ぼす影響に関する調査

### NUMO-SC (NUMO, 2021) ※ 我が国における地層処分場に対する評価事例 被ばく線量評価

NUMO-SC※では、岩盤 $K_d$ の変化による被ばく線量評価結果への影響について定量的な分析はされていない。本検討では、NUMO-SC※の核種移行解析モデルおよび生活圏評価モデルに基づいて、TRU Gr.3廃棄物を起点とした核種の地下水移行に起因する被ばく線量を、岩盤 $K_d$ を1000年で切り替える設定 (NUMO-SC※の設定) と切替えない設定 (本検討の設定) で各々算出し、両者の結果を比較することで、岩盤 $K_d$ 変化による線量評価への影響を分析した。

下左のグラフは、 $K_d$ が1000年で切り替わるNUMO-SC※の設定のもとでの被ばく線量経時変、右のグラフは $K_d$ を切替えない場合の被ばく線量経時変化を示す。 $K_d$ が切替わる設定では、閉鎖後1000年でSr、Cs、Raの $K_d$ が10倍になり、線量が不連続的に減少する。1000年頃の線量は変わらないが、その時期はI-129やC-14等の非収着性核種の影響が強いためである。一方で10万年以降では崩壊連鎖により増加したRa-226等の影響が強くなる。Ra-226の場合は $K_d$ が1000年で増大することで、変化を考慮しない場合と比較して、線量が2桁低くなる。つまりこの事例は、 $K_d$ 変化を考慮するかどうかで処分後長期の線量が大きく変わる可能性を示したものである。



※原子力発電環境整備機構 (NUMO), 包括的技術報告書: わが国における安全な地層処分の実現—適切なサイトの選定に向けたセーフティケースの構築—, 2021年2月

# (1) 廃棄物共存物質の影響

## 影響物質が核種移行に及ぼす影響に関する調査

### ■ SR-PSU (SKB, 2015)<sup>\*</sup> スウェーデンのLILW処分場(SFR)に対する評価事例

SR-PSUの安全評価では、セメント系人工バリアへの収着特性を規定する間隙水組成(状態変数)への影響因子が処分ボールドごとに整理されている。本検討で調査対象としたBTFボールド<sup>\*</sup>については、人工バリアのプロセスレポート(SK B, 2014)<sup>\*\*</sup>に整理されており、間隙水組成への影響因子として地下水との接触によるセメント分解によって生じる鉍物影響や、廃棄物やセメント系材料由来の有機配位子の影響等の概要および詳細が上記のプロセスレポートにまとめられている。

影響因子の分析結果をもとに、安全評価のメインレポート<sup>\*\*</sup>では、基本シナリオとして、各処分ボールドについてセメント間隙水中のpH変化、および廃棄物やセメント系材料由来の錯化剤濃度の変化を考慮して $K_d$ が設定されている(上記メインレポートの7.4.3 Repositoryを参照)。2021年度報告書<sup>\*\*</sup>にも記載されているように、pH変化は処分ボールドによって異なり、最大で4つの段階に分けられる。

以上をもとに、SR-PSUの安全評価では、下記のように $K_d$ (低減なし)と収着低減係数(SRF)が設定された(SK B, 2014<sup>\*\*</sup>)を参照)。

- $K_d$ (低減なし): 処分ボールドごとにセメントの状態変遷に合わせて経時変化する設定とした。各セメントの状態に対する設定値は、データベースを参照した。

- SRF: 錯化剤濃度の経時変化(入力データ)に応じて経時変化する設定とした。

\*BTFボールド: 脱水したイオン交換樹脂等、低/中レベル廃棄物を処分するための2つの水平空洞(1BTFボールド、2BTFボールド)

<sup>\*</sup>SKB, Safety analysis for SFR: Long-term safety -Main report for the safety assessment SR-PSU, SKB Technical Report TR-14-01, 2015.

<sup>\*\*</sup>SKB, Engineered Barrier Process Report for the Safety Assessment SR-PSU, SKB Technical Report TR-14-04, 2014.

<sup>\*\*</sup>QJサイエンス, 事故廃棄物の処分概念の提示に必要な情報・知識の調査及び重要シナリオの整理と情報管理手法の検討(中間報告書), 2022.

<sup>\*\*</sup>SKB, Data report for the safety assessment SR-PSU, SKB Technical Report TR-14-10, 2014.

# (1) 廃棄物共存物質の影響

## 影響物質が核種移行に及ぼす影響に関する調査

### ■ SR-PSU (SKB, 2015)※ スウェーデンのLILW処分場(SFR)に対する評価事例 $K_d$ 変化の概要

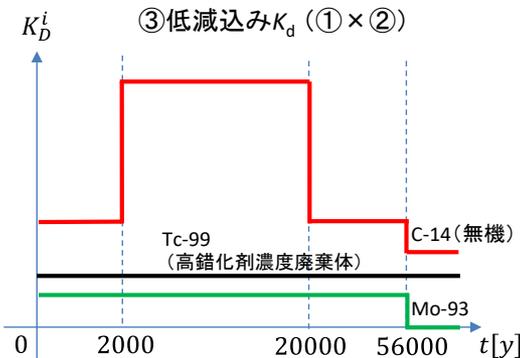
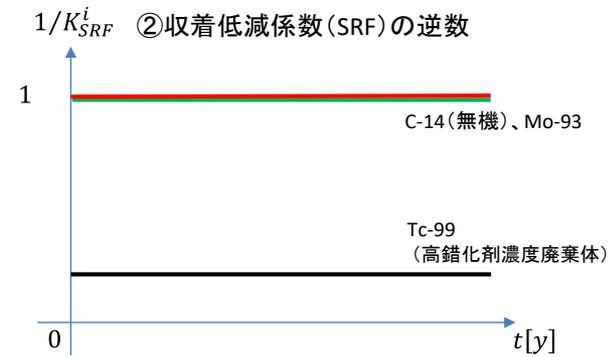
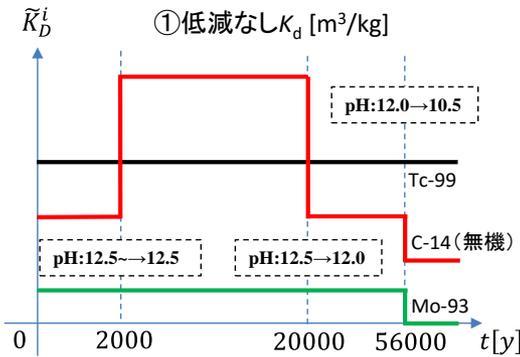
セメント系バリア材への $K_d$ の経時変化例として、C-14(無機)、Mo-93、Tc-99の3つの核種について概形を下図に示す。

①の低減なし $K_d$ は、セメント間隙水中のpH変化に伴って最大3度切替わる。C-14(無機)は3度、Mo-93は1度、Tc-99は切替わらない。

②の収着低減係数は、廃棄体パッケージ内の有機錯化剤濃度が核種ごとに設定した閾値を超える場合のみ1より大きく(従ってその逆数は1より小さく)、それ以外は1で低減なしの設定である。

2BTFボルトでは、有機錯化剤濃度は一定のため、閉鎖直後の濃度で低減されるか、されないかが決まる。この例では、Tc-99については錯化剤濃度が高い場合は1より小さいが、C-14(無機)、Mo-93については錯化剤濃度の値によらず低減されないという設定である。

③の低減込みの $K_d$ については、切り替わる時期は①と同じである。



#### ①低減なし $K_d$

- セメント間隙水中のpH変化に伴い、処分所閉鎖後2000年頃(4000AD)、2万年頃(22000AD)、5.6万年頃(58000AD)に切り替わる

#### ②収着低減係数の逆数

- 廃棄体パッケージ内の有機錯化剤(EDTA、NTA等)濃度は一定であると仮定
- 錯化剤濃度が核種ごとに設定した閾値(無影響限界濃度)を超える場合、 $1/SRF$ が1より小さくなる

#### ③低減込み $K_d$

- 切り替わり時期は①と同様

# (1) 廃棄物共存物質の影響

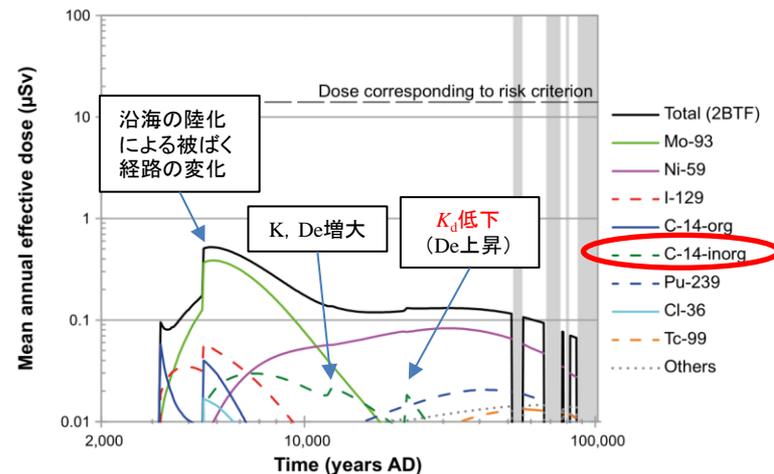
## 影響物質が核種移行に及ぼす影響に関する調査

### ■ SR-PSU (SKB, 2015)※ スウェーデンのLILW処分場(SFR)に対する評価事例 被ばく線量評価

$K_d$ 変化による安全評価結果への影響を分析するため、地下水移行シナリオにおける2BTFボルト由来の核種による被ばく線量評価結果を参照した。下図の横軸の時間は西暦表示で、縦軸が被ばく線量である。線量変化は複雑でいろいろな要因が絡み合っているが、主なものを図にコメントした。

まず閉鎖後1000年(西暦3000年頃)から施設の沿海の陸化が始まることで人間が居住し、漁業等を中心とした生活により被ばく事象が発生する。500年では陸化が進み、泥炭地農業が始まり、更に線量が増えるというシナリオになっている。12000年ではセメント系人工バリアの劣化が進行して透水性が上昇することで、また線量が増える。そして22000年において、C-14(無機)に着目すると、 $K_d$ が減少(5→2に減少)することを反映して線量が不連続的に増大するのが確認できる。

このように、SR-PSUの被ばく線量は不連続的に変化し、その変化には様々な要因が関わっているが、 $K_d$ 変化も変化の要因の1つであると考えられる。



SKB (2015)に一部加筆

## (1) 廃棄物共存物質の影響

### 影響物質が核種移行に及ぼす影響に関する調査

#### ■ gDSSC (RWM, 2016)※ 英国のILW/LLW処分施設に対する評価事例

RWMの安全評価のステータスレポート(RWM, 2016)※※では、セメント系バリア(埋戻し材)の収着特性への影響分析がされている。pH等の化学的特性については、一般的に想定されるセメントの状態変遷(4段階変化)の各段階に対して明らかになっていない(将来的な課題としている)。 $K_d$ を設定する上ではこのような化学的特性について不確実性を考慮した検討が必要となる。収着特性への影響が大きな因子としては、セルロース分解生成物(以下、CDPという。)による収着低減が挙げられている。

以上をもとに、ILW/LLW処分施設の安全評価では、下記のように $K_d$ (低減なし)と収着低減係数(SRF)が設定された((RWM, 2016)※※※を参照)。

- $K_d$ (低減なし): セメントの状態変遷等による様々な化学的状态を考慮して確率変数として設定する。
- SRF: CDP重量濃度(時間変化する変数)の関数として連続的に変化させる。

※RWM, Geological Disposal Generic Environmental Safety Case - Main Report. NDA Report DSSC/203/01, 2016.

※※RWM, Geological Disposal: Behaviour of Radionuclides and Non-radiological Species in Groundwater Status Report. NDA Report DSSC/456/01, 2016.

※※※RWM, Geological Disposal. Disposal System Safety Case Data Report. NDA Report DSSC/422/01, 2016.

# (1) 廃棄物共存物質の影響

## 影響物質が核種移行に及ぼす影響に関する調査

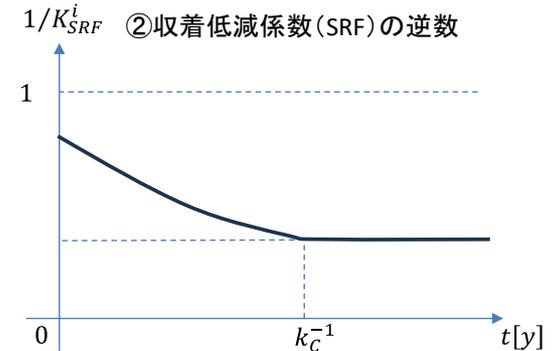
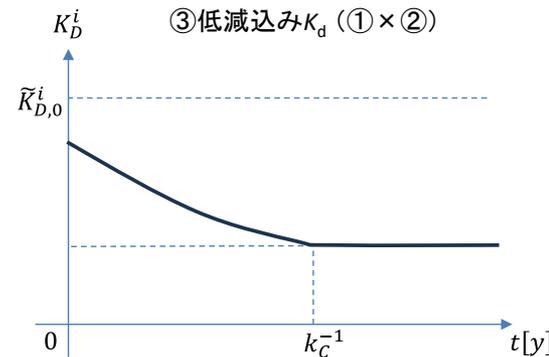
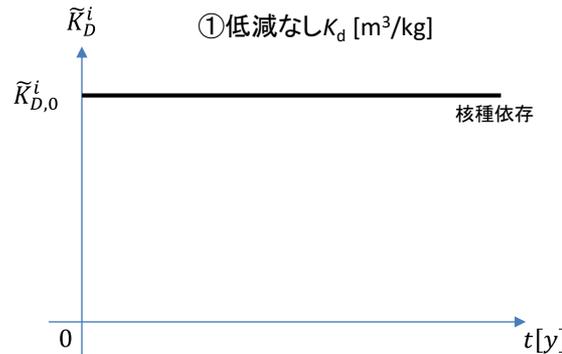
### ■ gDSSC (RWM, 2016) ※ 英国のILW/LLW処分施設に対する評価事例 $K_d$ 変化の概要

セメント系埋戻し材への  $K_d$  の経時変化例として、C-14(無機)、Mo-93、Tc-99の3つの核種について概形を下図に示す。

①の低減なし  $K_d$  は、CDPが存在しない場合の値で一定で、値は核種依存である。

②の低減係数は、低減係数は処分場閉鎖後から1より大きい値で、徐々に増大していく(したがって、低減係数の逆数は1より小さい値から徐々に減少していく)。閉鎖後初期から低減されるのは、廃棄体中の一部のセルロースは瞬時に劣化してCDPになり、周りの埋戻し材と混合すると想定されているためである。残りのセルロースは一定速度で劣化することでCDPが増大していき、周りの埋戻し材と混合していくことで、低減係数を増大(その逆数を減少)させていく。安全評価では、埋戻し材中のCDP重量分率を計算し、特定の重量分率に対する低減係数の実験データを用いて、各時点の低減係数を補間的に算出する。

③の低減込みの  $K_d$  については、低減係数の変化にしたがって連続的に減少する。



- ①低減なし  $K_d$ 
  - 埋戻し材中にCDPが存在しない場合の値で不変
- ②収着低減係数
  - 処分場閉鎖後、廃棄体パッケージ内のセルロースの一部(重量分率  $f$ )からCDPが瞬時生成、残りのセルロースからは一定速度 ( $k_c$  [1/y]) でCDPが生成し、埋戻し材と混合
  - 埋戻し材におけるCDP重量分率と特定のCDP重量分率に対するSRFの実験データを用いて、各時点のSRFを補間的に算出
- ③低減込み  $K_d$ 
  - ②の変化にしたがって連続的に減少

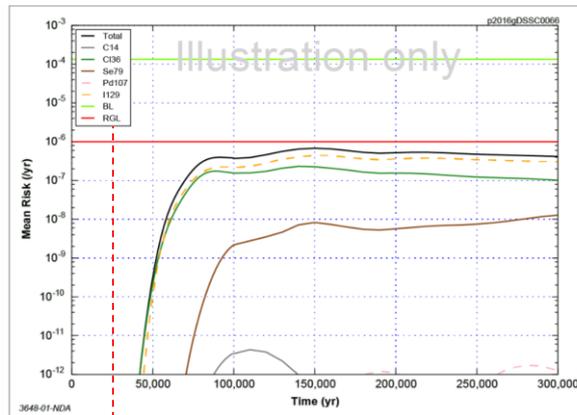
# (1) 廃棄物共存物質の影響

## 影響物質が核種移行に及ぼす影響に関する調査

### ■ gDSSC (RWM, 2016) ※ 英国のILW/LLW処分施設に対する評価事例 被ばく線量評価

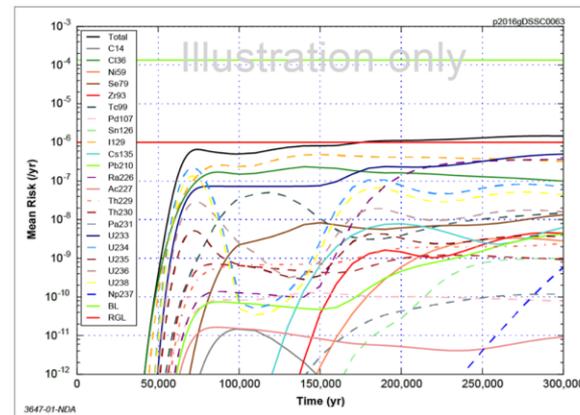
$K_d$ 変化による安全評価結果への影響を分析するため、井戸経由の地下水移行シナリオの評価結果を参照した。下図の左側のグラフは、低減込みの $K_d$ を設定した場合の、放射線リスク値(被ばくをもたらす事象の生起確率と被ばく線量の積)の統計平均値の経時変化であるが、埋戻し材 $K_d$ が減少していく期間(リアライゼーションごとに異なり、最長で処分後2.5万年)では非常に低い値になっているため、 $K_d$ 変化の影響が非自明である。 $K_d$ の影響があるのか確認するため、安全評価では右側のグラフのように $K_d=0$ の計算も実施されているが、こちらも $K_d$ が減少する期間には影響がない。よって、本事例では、 $K_d$ 変化が放射線リスク値の評価には影響しない。

$K_d$ : 低減効果込みの設定 (基本ケース)



埋戻し材 $K_d$ 減少期間の上限

$K_d=0$  (比較用感度解析ケース)



# (1) 廃棄物共存物質の影響

## 影響物質が核種移行に及ぼす影響に関する調査

### $K_d$ を時間変化させた安全評価事例の要約

我が国および諸外国の放射性廃棄物処分を対象とした安全評価において、 $K_d$ を変化させた安全評価を実施しているものを3つ選定し、その中での核種移行解析において  $K_d$  の変化をどのように取り扱っているのかを評価事例ごとに調査した。各評価事例の  $K_d$  設定に関連する概要をまとめた結果は下の表のようになる。評価事例によって、 $K_d$  の不確実性の取扱い方(核種移行解析の方法論)や、低減なしの  $K_d$  および収着低減係数の変化の仕方は異なる。

#### $K_d$ が変化する各安全評価事例における $K_d$ 設定の概要

安全評価事例	核種移行解析の主要な方法論	$K_d$ が変化するパラ領域	核種移行リアライゼーションごとの $K_d$ 変化の概要	
			①低減なしの $K_d$	②収着低減係数(SRF)
NUMO-SC (NUMO, 2021)	決定論	TRUGr.3 廃棄物処分区画近傍の岩盤	時間変化なし	・指定時間でステップ的に変化
SR-PSU (SKB, 2015)	確率論 ( $K_d$ を含む種々のパラメータを確率変数として取り扱う)	充填材、コンクリート等(セメント系)	処分区画ごとの指定時間でステップ的に変化	・廃棄体内の有機物錯化剤濃度に応じた指定時刻(核種依存)でステップ的に変化
gDSSC (RWM, 2016)		埋戻し材(セメント系)	時間変化なし	・埋戻し材内の有機物錯化剤の重量分率に応じて連続的に変化

#### NUMO-SC\*

TRU Gr.3 廃棄物の処分区画近傍の岩盤を対象  
 $K_d$  変化は、収着低減係数  $K_{SFR}^i(t)$  の変化として表される。  
 セメント溶脱に起因した岩盤中の pH 変化のみ考慮

#### SR-PSU\*\*

中低レベル放射性廃棄物処分場  
 セメント溶脱起因の pH 変化や有機物影響による  $K_d$  変化  
 $K_{SFR}^i(t)$  が有機物濃度の時間変化により変化する。

#### gDSSC\*\*\*

中低レベル放射性廃棄物処分場  
 セメント溶脱に起因した岩盤中の pH 変化  
 想定されるセメント状態の変遷過程を決定論的に記述できないとして、安全評価上では時間変化させず、確率変数として取り扱われている。

\*原子力発電環境整備機構(NUMO), 包括的技術報告書: わが国における安全な地層処分の実現 - 適切なサイトの選定に向けたセーフティケースの構築 -, 2021年2月

\*\*SKB, Safety analysis for SFR: Long-term safety - Main report for the safety assessment SR-PSU, SKB Technical Report TR-14-01, 2015.

\*\*\*RWM, Geological Disposal Generic Environmental Safety Case - Main Report. NDA Report DSSC/203/01, 2016.

## (1) 廃棄物共存物質の影響

### セメント系材料の化学変遷を考慮した核種移行影響評価手法とパラメータ設定の検討

Keith-Roach and Shahkarami (2021)<sup>※</sup>が推奨するWACを次項の表に記載する。この評価では、SFRの予想される地球化学的条件を考慮し、閉鎖後～1,000年までの期間に汽水性の地下水がSFRに浸透する(イオン強度は0.05～0.19 M)ことを指摘している。この後に支配的になると予想される淡水のイオン強度は～0.009Mであるが、ポルトランダイトの溶解により、pH13で0.1M、pH12.5で0.06Mのイオン強度になる(ポルトランダイトの溶解)。また、Keith-Roach and Shahkarami (2021)<sup>※</sup>は、錯化剤を含む廃棄物成分の溶解がイオン強度をさらに増加させると指摘している。硬化セメントペースト(以下、HCP (Hydrated cement pastes)という。)中のCa(OH)<sub>2</sub>(ポルトランダイト)のモル数の1%を錯化剤の一般的な制限値として推奨すると述べており、以下のような錯化剤によるセメント劣化の可能性を言及している。

硬質錯化剤(すなわち、アミンや他の軟質錯化剤ではない)  
少なくとも1:1のCa-マロン酸錯体(log K = 2.4)が安定している。

硬質錯化剤はCa<sup>2+</sup>と錯体を形成し一部は溶解度の低いCa<sup>2+</sup>塩を形成する(Keith-Roach and Shahkaramani, (2021)<sup>※</sup>、Keith-Roach et al., (2021)<sup>※※</sup>)。

Ca<sup>2+</sup> 錯化剤塩の錯形成と沈殿は、溶存Ca<sup>2+</sup>濃度とセメントの主成分である固相ポルトランダイトの平衡に影響を与える。その結果ポルトランダイトが溶解し、セメントが劣化する可能性がある。

有機縮合ポリマーのアルカリ加水分解に伴う反応では水酸化物が消費される。そのため、理論的にはCa<sup>2+</sup>の錯形成とポリマーの分解反応の両方がセメントの完全性に影響を及ぼす可能性があることを示唆している。

<sup>※</sup>Keith-Roach, M. and Shahkarami, P., Organic materials with the potential for complexation in SFR, the final repository for short-lived radioactive waste. Investigation of new acceptance criteria. SKB Report R-21-03. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company, Sweden, 2021.

<sup>※※</sup>Keith-Roach, M., Lindgren, M. and Källström K., Assessment of complexing agent concentrations for the post-closure safety assessment in PSAR SFR. SKB Report R-20-04. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company, Stockholm, Sweden, 2021.

# (1) 廃棄物共存物質の影響

## セメント系材料の化学変遷を考慮した核種移行影響評価手法とパラメータ設定の検討

### Keith-Roach and Shahkarami (2021) ※による推奨濃度限界のまとめ (1/2)

Type of material/ substance	Name	Origin	Handling in report	Calculation performed?
Cellulose		Waste material	Limit of $10^{-4}$ M ISA. Cellulose degradation (80 % ISA yield) after 5000 years (99 % degraded) and sorption accounted for	Yes
Complexing agents	DTPA	May be used at nuclear facilities	Forbidden	No
	Gluconate and other $\alpha$ -hydroxycarboxylates with multiple OH groups	Used at nuclear facilities	$10^{-5}$ M limit once sorption has been accounted for	Yes
	EDTA and other hexadentate aminocarboxylates	Used at nuclear facilities	$10^{-4}$ M limit	Yes
	Iminodisuccinate and other pentadentate aminocarboxylates	Used at nuclear facilities	$10^{-3}$ M limit	Yes
	NTA, MGDA and other tetradentate aminocarboxylates	Used at nuclear facilities	$10^{-3}$ M limit	Yes
	Capryliminodipropionate (CIDP) and other tridentate aminodicarboxylates	Used at nuclear facilities	$10^{-2}$ M limit	Yes
	Capryloamphodipropionate (CADP) and other tridentate carboxylate diamines	Used at nuclear facilities	$10^{-4}$ M limit	Yes
	Glutamate and other bidentate amino acids	Used at nuclear facilities	$10^{-2}$ M limit	Yes
	Other complexing agents	Used at nuclear facilities	1 % of the moles of $\text{Ca}(\text{OH})_2$ in HCP	Yes
Superplasticisers	PMS	May be used in waste stabilisation	Based on PNS in Hedström (2019a)	No
	PNS	Used in waste stabilisation	See Hedström (2019a)	No
	PCE	Used in waste stabilisation	Below or within the range suggested by the manufacturer	No

# (1) 廃棄物共存物質の影響

## セメント系材料の化学変遷を考慮した核種移行影響評価手法とパラメータ設定の検討

### Keith-Roach and Shahkarami (2021) ※による推奨濃度限界のまとめ (2/2)

Type of material/ substance	Name	Origin	Handling in report	Calculation performed?
Superplasticisers	Polyvinylmaleinic acid	Used in waste stabilisation	Below or within the range suggested by the manufacturer	No
Plasticisers	Phthalate esters	PVC and rubber	No limit	No
Plastics and rubber	PET polyester	Waste	No limit	No
	Aliphatic polyesters	Waste	No limit	No
	Polyamides	Waste	Diamine limit $10^{-1}$ M. Assume that 1 kg degrades to 4.4 moles diamine	Yes
	Addition polymers	Waste	No limit	No
Filter aids (PAN)		Waste	No limit now due to lack of information. A limit may be applied in the future	No
Anti-corrosion paint	Containing TETA in the mixed fatty acid ingredient	Waste packages	Forbidden	No
	Containing TETA as a curing agent	Waste packages	$10^{-5}$ M*	Yes, but not within this report
	Containing TDP	Outside of waste packages	$10^{-3}$ M	No, no change from Hedström (2020)
TBP		None	Needs to be evaluated for risk for NAPL	No
Bitumen		Waste conditioning	No limit	No
Lignin		Waste	No limit	No

\* This concentration reflects dissolution of all TETA in the curing agent. In reality, < 1 % of the TETA in this fraction is expected to be released. Therefore, the maximum dissolved concentration expected with this limit would be <  $10^{-7}$  M.

# (1) 廃棄物共存物質の影響

## セメント系材料の化学変遷を考慮した核種移行影響評価手法とパラメータ設定の検討

### 放射性核種濃度限度値の概要と限度値に影響を及ぼす放射性核種 (Keith-Roach and Shahkarami (2021)※)

Type of material/substance	Complexing agent	Concentration limit [M]	Limit based on
Cellulose	ISA	$10^{-4}$	Th(IV)
Complexing agents used at nuclear facilities	Gluconate and other $\alpha$ -hydroxycarboxylates with multiple OH groups	$10^{-5}$	Th(IV)
	EDTA and other hexadentate aminocarboxylates	$10^{-4}$	Ni(II)
	Iminodisuccinate and other pentadentate aminocarboxylates	$10^{-4}$	Ni(II)
	NTA, MGDA and other tetradentate aminocarboxylates	$10^{-3}$	Ni(II)
	Capryliminodipropionate (CIDP) and other tridentate aminocarboxylates	$10^{-2}$	Ni(II)
Plastics and rubber	Polyamides	$10^{-1}$	Ni(II)
Anti-corrosion paint	TETA (in the curing agent)	$10^{-5}$ *	Ni(II)
	TDP	$10^{-3}$	Ni(II)

\* This concentration reflects dissolution of all TETA in the curing agent. In reality, < 1 % of the TETA in this fraction is expected to be released. Therefore, the maximum dissolved concentration expected with this limit would be <  $10^{-7}$  M.

## (1) 廃棄物共存物質の影響

### セメント系材料の化学変遷を考慮した核種移行影響評価手法とパラメータ設定の検討

#### セメント系材料の化学変遷を考慮した場合のセルロース等の挙動について

- ・ISAや他の有機化合物CDPは、アルカリ性条件下でセルロースがアルカリ加水分解で生成すると想定。
- ・ISAは酸素がない状態では安定であるが、好氣的条件下や脱窒条件下では容易に分解され、グリコール酸、ギ酸、乳酸が主な分解産物となる。
- ・pHが十分に低ければ、好氣的条件下や脱窒条件下において、微生物プロセスによってISAは分解される。
- ・SFR施設においては、処分可能な物質量の制限を計算するために、HCP中のCa(OH)<sub>2</sub>（ポルトランドait）のモル数の1%という一般的な錯化剤の制限値を推奨している。

#### SFRにおける有機錯体の推奨濃度限界の概要

Type of material/substance	Complexing agent	Concentration limit [M]	Limit based on
Cellulose	ISA	10 <sup>-4</sup>	Th(IV)
Complexing agents used at nuclear facilities	Gluconate and other α-hydroxycarboxylates with multiple OH groups	10 <sup>-5</sup>	Th(IV)
	EDTA and other hexadentate aminocarboxylates	10 <sup>-4</sup>	Ni(II)
	Iminodisuccinate and other pentadentate aminocarboxylates	10 <sup>-4</sup>	Ni(II)
	NTA, MGDA and other tetradentate aminocarboxylates	10 <sup>-3</sup>	Ni(II)
	Capryliminodipropionate (CIDP) and other tridentate aminocarboxylates	10 <sup>-2</sup>	Ni(II)
Plastics and rubber	Polyamides	10 <sup>-1</sup>	Ni(II)
Anti-corrosion paint	TETA (in the curing agent)	10 <sup>-5</sup> *	Ni(II)
	TDP	10 <sup>-3</sup>	Ni(II)

\* This concentration reflects dissolution of all TETA in the curing agent. In reality, < 1 % of the TETA in this fraction is expected to be released. Therefore, the maximum dissolved concentration expected with this limit would be < 10<sup>-7</sup> M.

## (1) 廃棄物共存物質の影響 有機物との錯生成定数の推定手法の開発

- 1F事故廃棄物に多様な有機物が含まれる可能性や、有機物が核種移行へ及ぼす影響が大きいことを考慮し、多様な有機物と核種との錯生成を、既存の膨大な実測データやモデルパラメータから推定評価する手法を調査した。ランタニド元素の錯生成定数を用いた先行研究を参考に、U(VI)の錯生成定数の有機配位子との錯生成の1:1 安定定数( $\log K_1$ )を、配位子の分子特性(記述子)から予測する機械学習フレームワークを開発することを目的とした。機械学習法としては、ランダムフォレスト(RF)、サポートベクターマシン(SVM)を利用した。

先行研究 (Chaube et al., 2020)<sup>\*</sup>において、ランタノイドカチオンの平衡定数( $\log K_1$ )を予測するための機械学習フレームワークを開発している。

この論文においては、国際純正・応用科学連合 (International Union of Pure and Applied Chemistry、以下、IUPACという。)データベースを用いて機械学習を実施。

15個のLnと698個の(リガンド)8種類の溶媒 (alcohol、dioxane、KCl、KNO<sub>3</sub>、NaCl、NaClO<sub>4</sub>、NaNO<sub>3</sub> and R<sub>4</sub>NX)

合計6583のデータを基に機械学習を行っている。

機械学習の流れは以下の通り

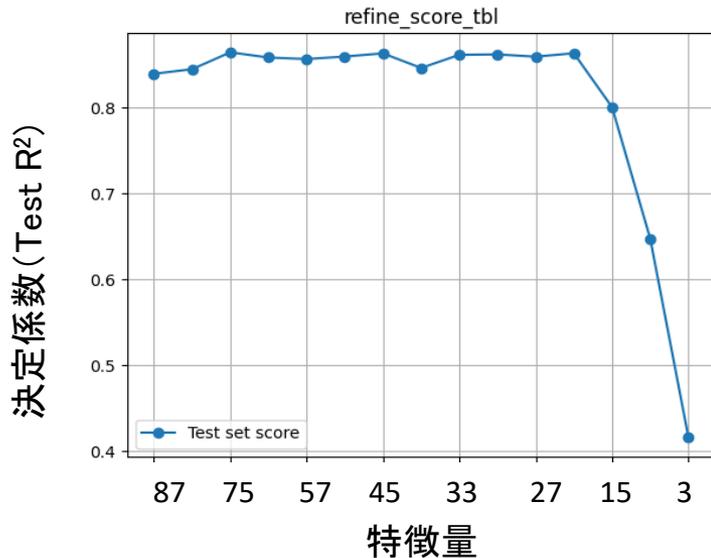
- (1) 6つのスケールング技術 (MinMax、Standardized、MaxAbs、Robust、NormalQuantile、UniformQuantile) のいずれか最適なものを用いて正規化
- (2) 訓練データとテストデータに80:20の割合で分割
- (3) 訓練データに対して、6つの学習モデル(カーネルトリックの違いを含めると10種類)ごとに10分割交差検証を用いたグリッドサーチを行い、最適なハイパーパラメータを抽出(その際、スコアリング指標には外れ値の影響が小さい平均絶対値誤差(以下、MAEという。)を用いた)
- (4) (3)で抽出したハイパーパラメータを用いてテストデータに対する予測を行い、決定係数( $R^2$ )を算出
- (5) MAEが最も低いものを予測精度が高い機械学習モデルとして採用

<sup>\*</sup>Chaube, S., Srinivasan, S.G., Rai, B., Applied machine learning for predicting the lanthanide-ligand binding affinities, Scientific Reports, 10, 1, p.14322 (2020).

# (1) 廃棄物共存物質の影響 有機物との錯生成定数の推定手法の開発

## 特徴量と決定係数の関連性について

- 2022年度は先行研究 (Chaube et al., 2020)\*を参考にU(VI)の錯生成定数(IUPAC)について機械学習を実施(左図)したが、得られたスコアと決定係数(Test R<sup>2</sup>)は低かったため、2023年度は決定係数の向上を目指し、特徴量とデータの追記と厳選を行った。



## 予測性能が保持された特徴量

特徴量の名称		
Chi0n(m) (分子記述子)	MaxPartialCharge(m)	SMR_VSA7(m)
Chi2v(m) (分子記述子)	MinAbsEStateIndex(m)	SlogP_VSA1(m)
Chi3n(m) (分子記述子)	MinAbsPartialCharge(m)	TPSA(m)
EState_VSA1(m) (表面積寄与)	NumHDonors(m)	VSA_EState3(m)
EState_VSA8(m)	PEOE_VSA1(m)	VSA_EState8(m)
FpDensityMorgan2(m)	PEOE_VSA11(m)	Density medium (kg/m3)
MaxAbsEStateIndex(m)	PEOE_VSA9(m)	Melting Point medium (K)

## 特徴量の絞り込みの結果

特徴量の重要度解析の結果から訓練データに影響の少ない特徴量を低い順に削り多層パーセプトロン(MLP)を用いた解析を行った。

スコアの上昇は見られなかったが、決定係数は高く(0.8-0.9程度)、重要度が低いパラメータを21個まで削った場合においても決定係数に変化がないことを確認すると同時に、決定係数に悪影響を与えるパラメータがないことを確認した。

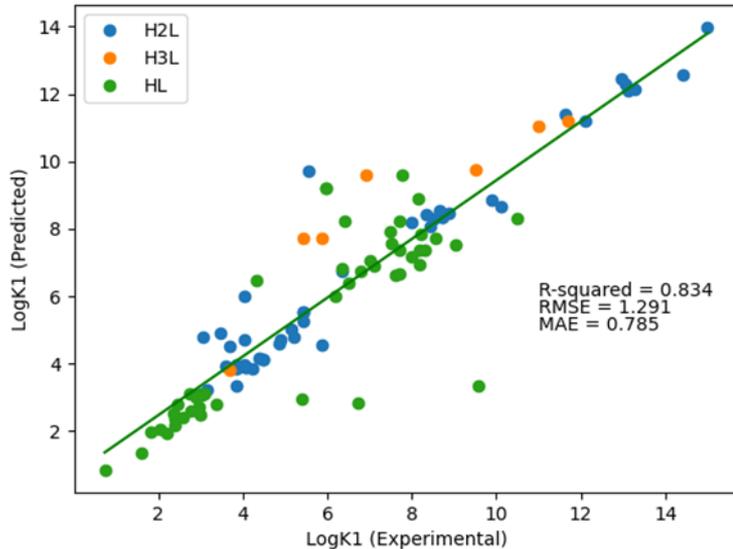
\*Chaube, S., Srinivasan, S.G., Rai, B., Applied machine learning for predicting the lanthanide-ligand binding affinities, Scientific Reports, 10, 1, p.14322 (2020).

# (1) 廃棄物共存物質の影響

## 有機物との錯生成定数の推定手法の開発

### NISTのデータベースを追加した場合の決定係数について

- 2023年度はU(VI)の錯生成定数はIUPACに加えて、アメリカ国立標準研究所 (National Institute of Standards and Technology、以下、NISTという。)のデータベース (Critically Selected Stability Constants of Metal Complexes: Version 8.0, NIST46) を用い、同様に $\log K_1$ データを収集した。



### SVM※の相関プロット

- 配位子の種類を限定し、501個のデータを対象
- データベースから下記項目に着目してデータを抽出
  - $\log K_1$
  - 配位子のタイプ (HL、H<sub>2</sub>L、H<sub>3</sub>L)
  - (価数の多い有機化合物は排除)
  - 実験方法 (Method)
  - 支持電解質メディア (Medium)
  - 温度 (Temperature)
  - 支持電解質濃度 (Conc)
  - 校正の有無 (Calibration)
  - 得られた決定係数 (Test R<sup>2</sup>=0.83)

NISTのデータを加え、配位子の種類を厳選した場合の結果を上図に示す。訓練データのスコアが高く、錯生成定数の予測が可能であることが示唆された。

パラメータも厳選しているが、計算効率を上げるためでスコアに悪影響は与えなかった。

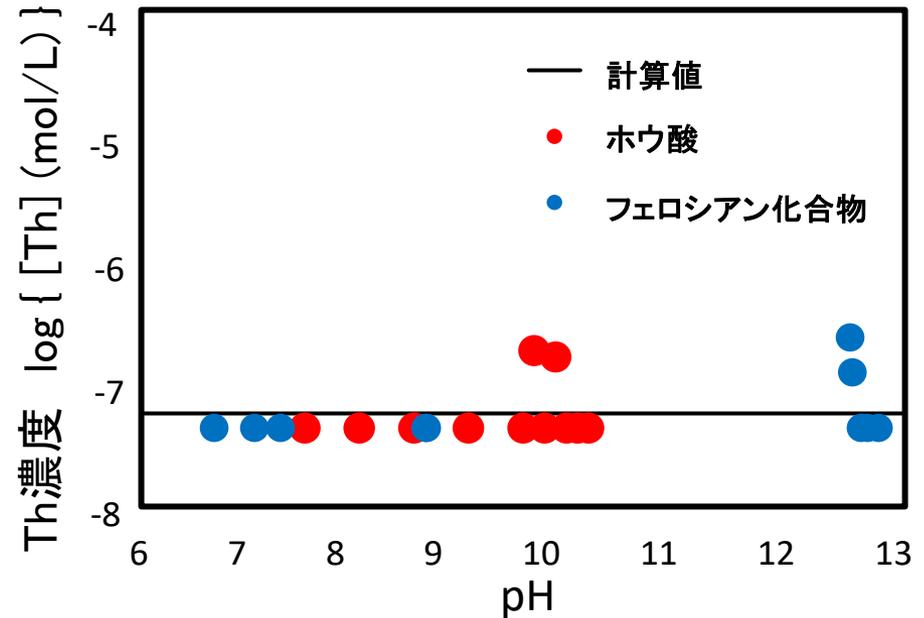
# (1) 廃棄物共存物質の影響

## ホウ酸、フェロシアン化合物とThの錯生成

ホウ酸、フェロシアン化合物存在下でのTh(IV)の溶解度試験を行った。  
溶解度の試験はバッチ試験を行った。

溶液のイオン強度は1M NaOHで調整し、  
 $B(OH)_3 : 1.0 \times 10^{-1}$ ,  $Na_4[Fe(CN)_6] : 1.0 \times 10^{-1}$   
を添加して溶解度を測定した。

サンプルは一定期間静置させた。  
平衡に到達しているかの確認はサンプル  
作成後から7日目と14日目と30日目に溶液  
を分取し、Thの濃度を測定し、一定になって  
いることを確認した。  
30日目の結果を右図に示す。



ホウ酸やフェロシアン化合物共存下  
でのTh(IV)の溶解度

高pH条件下では加水分解種( $Th(OH)_4$ )が主な溶存化学種と思われる。ホウ酸やフェロシアン化合物との錯生成に影響はない。  
コロイドの生成も顕著になっているとは考えられない。

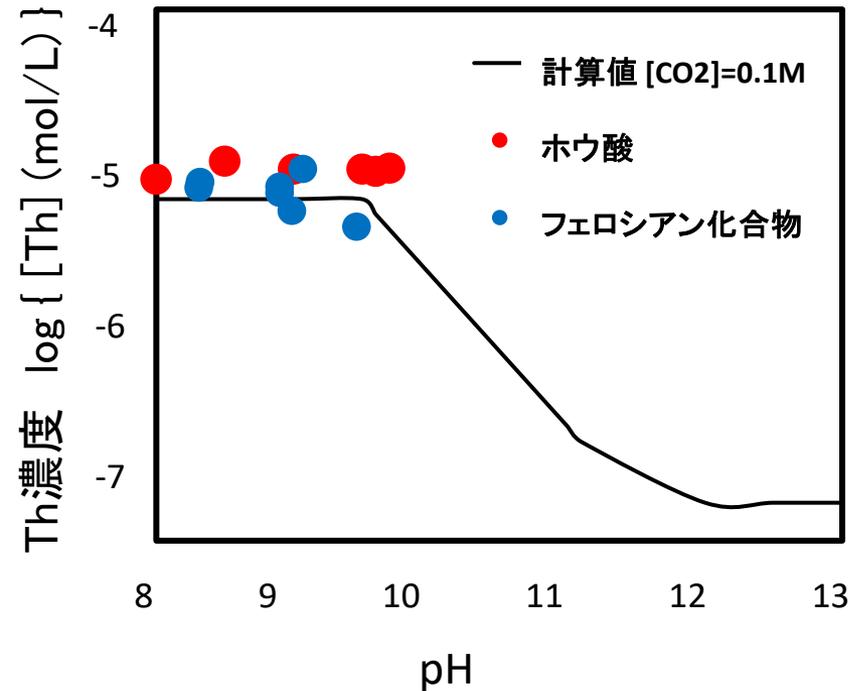
# (1) 廃棄物共存物質の影響

## 炭酸共存下でのホウ酸、フェロシアン化合物とThの錯生成

炭酸を含む系でホウ酸、フェロシアン化合物存在下でのTh(IV)の溶解度試験を行った。溶解度の試験はバッチ試験を行った。

溶液のイオン強度は1M NaOHで調整し、 $B(OH)_3 : 1.0 \times 10^{-1}$ ,  $Na_4[Fe(CN)_6] : 1.0 \times 10^{-1}$ を添加して溶解度を測定した。

サンプルは一定期間静置させた。平衡に到達しているかの確認はサンプル作成後から7日目と14日目と30日目に溶液を分取し、Thの濃度を測定し、一定になっていることを確認した。30日目の結果を右図に示す。



炭酸共存下でのTh(IV)の溶解度

高pH条件下では水和炭酸錯体( $Th(OH)_2CO_3$ )が強く、ホウ酸やフェロシアン化合物との錯生成に影響はない。

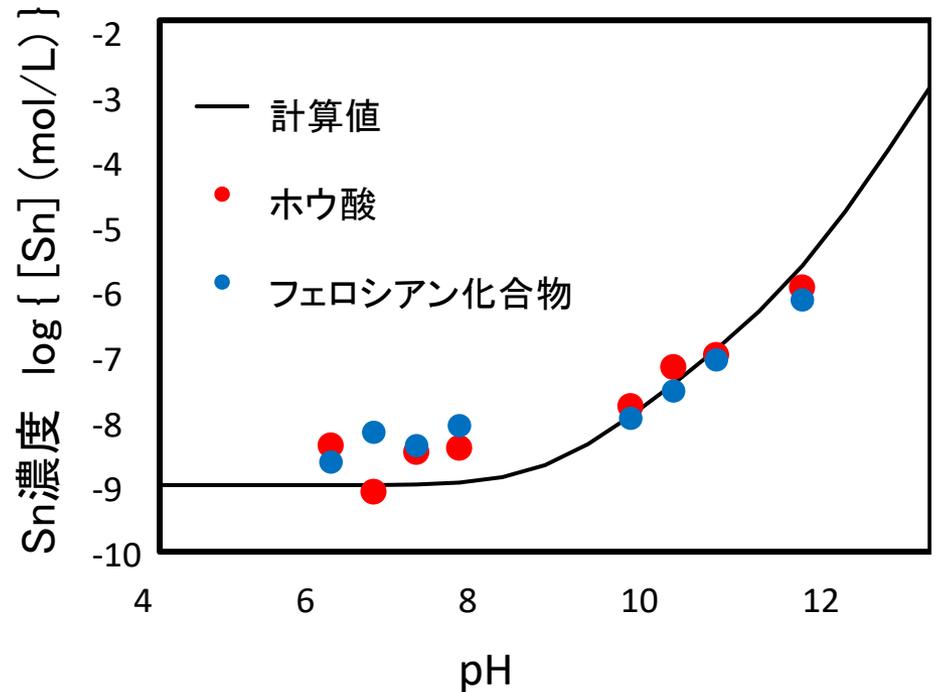
# (1) 廃棄物共存物質の影響

## ホウ酸、フェロシアン化合物とSnの錯生成

炭酸を含む系でホウ酸、フェロシアン化合物存在下でのSn(IV)の溶解度試験を行った。溶解度の試験はバッチ試験を行った。

溶液のイオン強度は1M NaOHで調整し、 $B(OH)_3 : 1.0 \times 10^{-1}$ ,  $Na_4[Fe(CN)_6] : 1.0 \times 10^{-1}$ を添加して溶解度を測定した。

サンプルは一定期間静置させた。平衡に到達しているかの確認はサンプル作成後から7日目と28日目と60日目に溶液を分取し、Snの濃度を測定し、一定になっていることを確認した。60日目の結果を右図に示す。



Sn(IV)の溶解度

高pH条件下では加水分解種( $Sn(OH)_4$ ,  $Sn(OH)_5$ )が主な溶存化学種と思われる。ホウ酸やフェロシアン化合物との錯生成に影響はない。

## (1) 廃棄物共存物質の影響

### ■ まとめ

- 報告の少ないAAMに対する核種の分配係数取得を目的とし、AAMに対するCs、Sr、Ni、Se、Iの収着試験を行った。Niの収着挙動には、高炉スラグ含有量の影響が認められた。SrとIの収着挙動には、固液比の影響が認められ、共存元素の影響の可能性が示唆された。今後も分配係数を継続的に取得するとともに収着メカニズムの解明に必要な鉱物の分析等を進める。
- セメントの主要鉱物に対する収着メカニズム解明を目的とし、セメント構成鉱物に対するCs、Iの収着試験を行った。Iの化学形態により分配係数が異なることが分かった。また、安全評価にセメントなどの影響物質に伴う場の変化や分配係数の変化を取り込んでいる事例を調査した。今後、時間変遷を考慮したパラメータ設定に用いるデータを取得する。
- 環境が多様に変化する中移行パラメータの不確実性を少なくするため、機械学習により未取得の錯生成定数や分配係数の推測や既報データの信頼性確認に資する手法開発を行った。IUPACとNISTにまとめられているU(VI)の錯生成定数の $\log K_1$ を用いて、MLPでアプローチを行い、解析に用いるパラメータの特性を把握した。厳選したNISTとIUPACのデータを用いると、錯生成定数の予測値と実験値が良好な相関を示し、利用可能性が確認された。今後は不確実性を少なくするための感度解析を行う。
- 報告の少ない高pH条件下でのSn(IV)およびTh(IV)に対する溶解度試験を実施した。加水分解種( $\text{Sn(OH)}_4$ 、 $\text{Sn(OH)}_5$ )や水和炭酸錯体( $\text{Th(OH)}_2\text{CO}_3$ )が強く、ホウ酸やフェロシアン化合物の影響は認められなかった。今後は炭酸影響下などより複雑な系における試験を行い、収着に影響のある因子を抑え収着低減係数の信頼性向上を図る。

## (2)天然バリアの特性の影響

## (2)天然バリアの特性の影響

### 幅広い地質環境について処分概念構築を行うための安全評価手法の改良

#### 背景及び目的

#### ■ 背景(「標準的」な浅地中処分及び中深度処分概念のサイト依存性)

- 我が国の幅広い地質環境を視野に収めてサイトジェネリックな処分概念を構築してきた地層処分事業とは異なり、浅地中処分(ピット処分等)及び中深度処分については、具体的なサイトの地質環境を前提としたサイトスペシフィックな処分概念を具体化し設計等の合理化が図られてきた。
- このため、我が国における浅地中処分及び中深度処分の標準的な概念及び安全評価手法等(学会標準)も上記サイトの地質環境が基本となっている。

#### ■ 目的(幅広い地質環境に応じた処分概念改良に関する課題の明確化)

- 1F事故廃棄物のうちピット処分あるいは中深度処分対象となるものについては、上記の「標準的な処分概念※、※※」を想定して検討が進められているところであるが(先行事業※※※等)、サイトの特定されていない1F事故廃棄物処分においては、特定サイトの地質環境を前提とした「標準的な処分概念」がそのまま適用可能であることは自明ではない。
- 学会標準の地質環境で想定する岩盤は軟岩であり、核種移行経路として割れ目の影響が顕在化しない比較的均質な連続体であるという特徴を有する。一方で、例えば、NUMO-SC※※※※で検討対象としている我が国の代表的な三岩種(深成岩、新第三紀堆積岩、先新第三紀堆積岩)は、いずれも割れ目系の発達した岩盤であり、そのような岩種の母岩が浅地中で対象となる可能性も否定できない。
- そこで、本検討では、我が国で広く存在すると考えられる割れ目系の発達した岩盤を想定し、連続体として表現することが適切な岩盤を前提とした「標準的な浅地中・中深度処分概念」を適用した場合の問題点を明らかにするとともに、割れ目系の発達した岩盤での「標準的な浅地中・中深度処分概念」の改良の方向性を示すことを目的として3次元水理・核種移行解析等の検討を行った。

※ 日本原子力学会, 日本原子力学会標準 浅地中処分の安全評価手法: 2016, AESJ-SC-F026:2016

※※ 日本原子力学会, 日本原子力学会標準 低レベル放射性廃棄物処分施設の安全評価の実施方法—中深度処分編: 2023, AESJ-SC-F012:2023

※※※ 国際廃炉研究開発機構(IRID), 平成30年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金(固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発)」2020年度最終報告, 令和3年10月, (2021).

※※※※ 原子力発電環境整備機構(NUMO), 包括的技術報告書: わが国における安全な地層処分の実現—適切なサイトの選定に向けたセーフティケースの構築—, 2021年2月

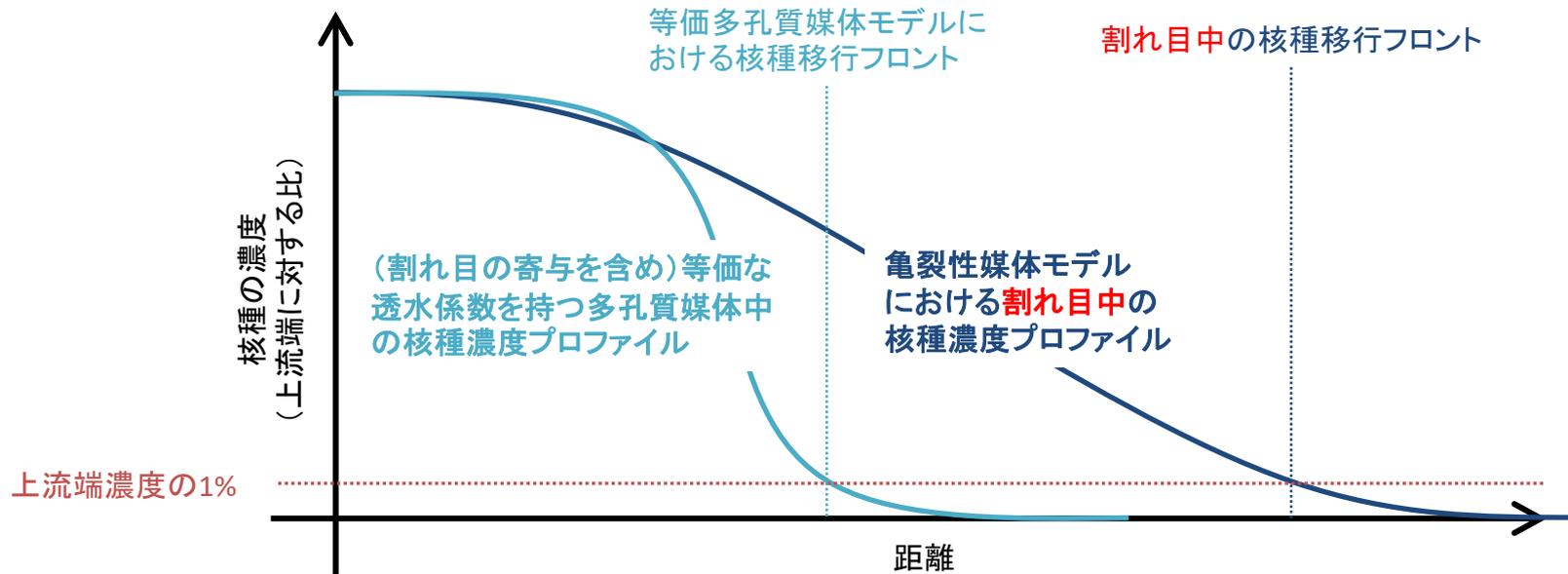
## (2)天然バリアの特性の影響

### 岩盤割れ目による核種移行への影響

#### 割れ目による核種移行促進への影響の検討

#### ■ 着目すべき状態変数＝割れ目による移行促進係数

- 亀裂性媒体における割れ目中の核種移行フロントの伝播速度と等価多孔質媒体(連続体)中の核種移行フロントの伝播速度の比(下図参照)を“割れ目による移行促進係数”として定義し、これを指標として割れ目による核種移行促進の程度を定量化する。
- 核種移行フロントの定義
  - ✓ 一般に移行中の核種濃度分布は分散のため下流側でなだらかに低下するプロファイルを持つため、移行フロントの定義には自由度がある。本検討では、上流端の濃度で規格化したすそ切り値について数%の範囲であれば結果に大きな影響がないことを確認した上で、仮に1%位置と定義することとした。



連続体及び亀裂性媒体における核種移行フロントの概念図

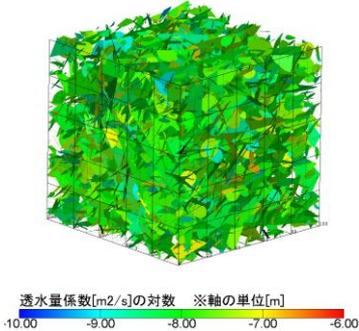
## (2)天然バリアの特性の影響

### 岩盤割れ目による核種移行への影響

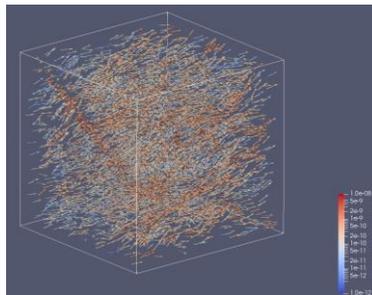
### 割れ目による核種移行促進への影響の検討

割れ目ネットワークの分布する現実的な不均質岩盤における“割れ目による移行促進”の程度を把握するため、NUMO-SC※でも使用されている3次元物質移動解析コードPartridgeを用いて、種々の割れ目透水量係数分布、マトリクス拡散係数を想定した感度解析を行った。

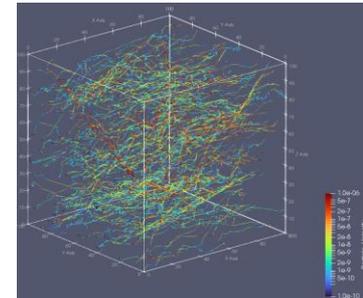
割れ目ネットワーク



地下水流動場



ランダムウォーク法による物質移動解析



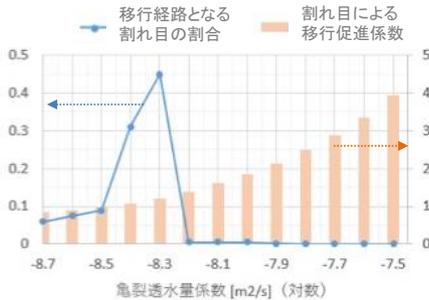
パラメータ  
割れ目透水量係数分布  
マトリクス透水係数

パラメータ  
マトリクス拡散係数

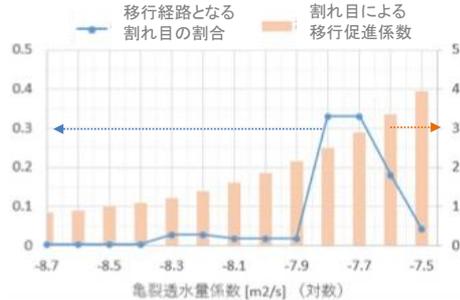
3次元物質移動解析に用いたモデル及び感度解析結果

NUMO-SC※における新第三紀堆積岩(レファレンス)の場合に核種移行経路となる割れ目の透水量係数は“割れ目による移行促進係数”が1程度であるのに対して、レファレンスの割れ目透水量係数分布の対数平均を1大きくしたケースでは、“割れ目の影響による移行促進係数”が1よりも顕著に大きく、連続体近似した場合の非保守性が問題になる可能性がある。

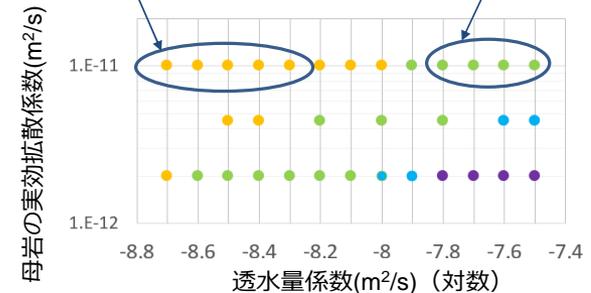
包括的技術報告書新第三紀堆積岩(レファレンス)の場合に核種移行経路となる割れ目の透水量係数分布



レファレンスよりも割れ目透水量係数対数平均値が一桁大きい場合の核種移行経路となる割れ目の透水量係数分布



包括的技術報告書新第三紀堆積岩(レファレンス)の場合に核種移行経路となる割れ目の透水量係数分布



レファレンスよりも割れ目透水量係数対数平均値が一桁大きい場合の核種移行経路となる割れ目の透水量係数分布

割れ目の影響による移行促進係数の検討

割れ目による移行促進係数 ● 2未満 ● 2~5 ● 5~10 ● 10以上

※原子力発電環境整備機構(NUMO), 包括的技術報告書: わが国における安全な地層処分の実現—適切なサイトの選定に向けたセーフティケースの構築—, 2021年2月

## (2)天然バリアの特性の影響

### 岩盤割れ目による核種移行への影響

### 割れ目による核種移行促進への影響の検討

- 解析パラメータ、解析条件の設定:解析は地質環境条件として学会標準で想定しているものと同様の軟岩であり割れ目系を考慮した地質環境モデルが構築されている事例であるNUMO-SC<sup>※</sup>の新第三紀堆積岩を参照し実施した。
- Partridgeの解析においては下左表に基づいて岩盤の物性パラメータを設定した。
- 解析モデルは100 m立方とし、水平方向に一様に、特定の境界面に垂直な方向に動水勾配 0.06とした。粒子発生範囲は動水勾配上流端面から幅2 mで断面積が100 m × 100 mの領域とし、透水係数が  $1e-6$  m/s、実効拡散係数が  $1.5e-12$  m<sup>2</sup>/s の多孔質媒体とした。
- 解析ケース:岩盤割れ目の影響が顕著でないケース、岩盤割れ目の影響が顕著となるケース

岩盤の物性パラメータ

項目	データ	備考
透水量係数分布	対数正規分布 対数平均 [m <sup>2</sup> /s] :-7.96 標準偏差: 0.43	NUMO-SC 付属書3-27 表5
割れ目の半径分布	べき乗分布 べき指数: 3.3 最小半径 [m] : 3.0 最大半径 [m] : 564.2	べき指数: NUMO-SC 表3.3-14 最小半径、最大半径: 計算負荷低減、亀裂本数低減のため、半径 3.0m 未満の亀裂を省略
三次元亀裂密度	0.353 [m <sup>2</sup> /m <sup>3</sup> ]	上記の通り最小亀裂半径を調整しているため、NUMO-SC 表3.3-14の記載値とは異なる
割れ目の方向分布 方位角(deg)、傾斜(deg)、フィッシャー係数、比率	フィッシャー分布 セット1: 323, 52, 9.8, 0.466 セット2: 203, 42, 52, 0.0709 セット3: 118, 11, 3.1, 0.4634	NUMO-SC 付属書3-27 表1, 表2
マトリクス部の透水係数	$3e-10$ [m/s]	NUMO-SC 付属書3-27(上部泥岩層) ※ Partridge 移行率計算の設定
マトリクス流れ	あり	NUMO-SC 付属書3-30
マトリクス拡散寄与率	100 %	
マトリクス拡散深さ	無制限	NUMO-SC 付属書6-8 p.146
マトリクス間隙率	0.245	NUMO-SC 表3.3-1
母岩実効拡散係数	$1e-11$ [m <sup>2</sup> /s]	NUMO-SCの付表 6-19
動水勾配	0.06	NUMO-SC 表6.4-1
境界条件	流動方向に 垂直な面: 圧力水頭固定境界 平行な面: 不透水境界	

解析条件

解析条件	
計算粒子数	1万粒子
計算期間	10万年
岩種	NUMO-SC <sup>※</sup> の新第三紀堆積岩
計算の構造格子サイズ	2 m
移行距離	100 m
対象核種	非吸着性トレーサー

## (2)天然バリアの特性の影響

### 岩盤割れ目による核種移行への影響

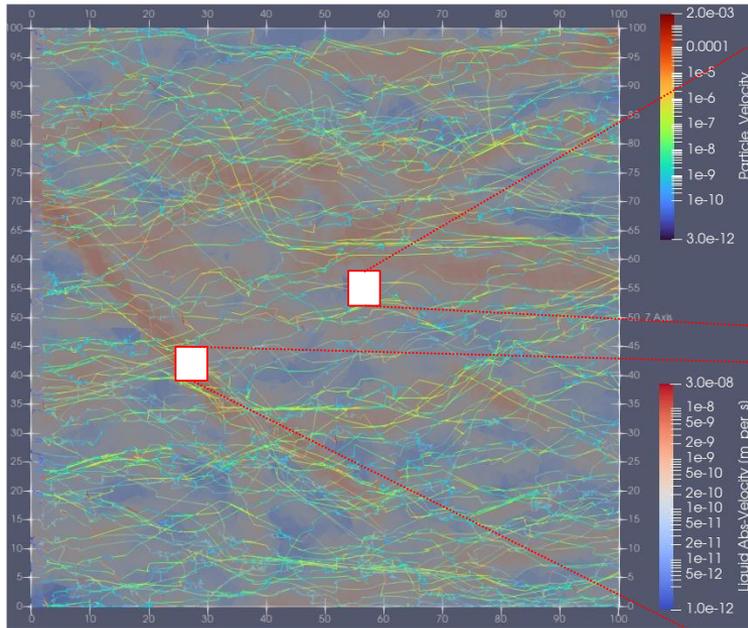
### 割れ目による核種移行促進への影響の検討

## 岩盤割れ目の影響が顕著でないケース

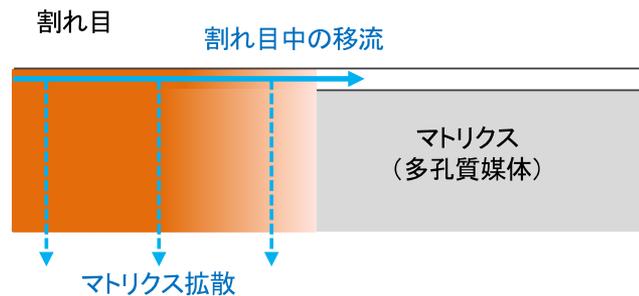
注目すべき状態変数: 割れ目による移行促進係数 1

各割れ目近傍での核種移行速度は割れ目透水量係数に応じて異なるが、いずれの場合も割れ目中の移流による移行フロントの速い伝播よりもマトリクス拡散によるマトリクス内濃度との均質化が優勢となり、連続体的な挙動を示す(割れ目内の核種濃度と近傍のマトリクス中濃度がほぼ同じ)。

割れ目を含む不均質岩盤中のダルシー流速分布  
と移流速度(粒子速度)の分布



割れ目近傍での物質移動挙動  
(割れ目中の移流による移行促進 < マトリクス拡散による均質化)



## (2)天然バリアの特性の影響

### 岩盤割れ目による核種移行への影響

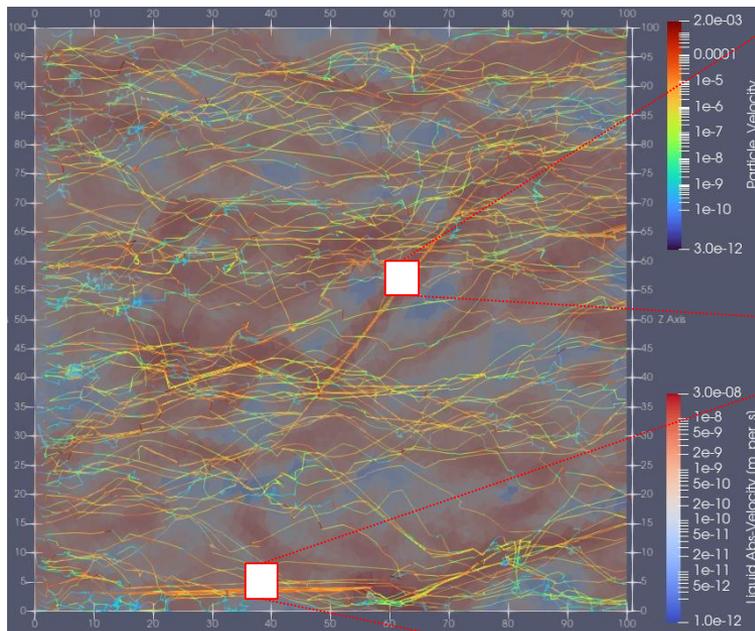
### 割れ目による核種移行促進への影響の検討

## 岩盤割れ目の影響が顕著となるケース

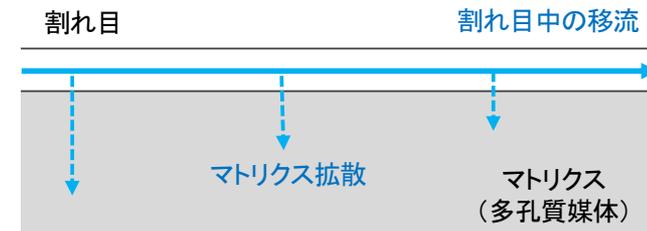
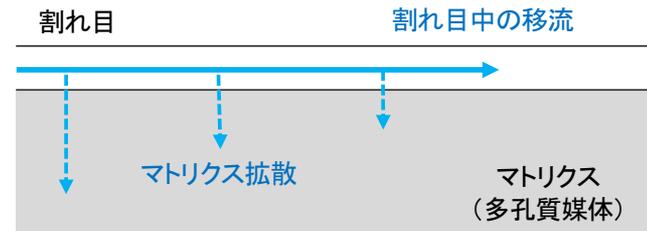
注目すべき状態変数: 割れ目による移行促進係数  $\gg 1$

割れ目中の移流による移行フロントの速い伝播の方がマトリクス拡散によるマトリクス内濃度との均質化よりも優勢となり、割れ目による移行促進効果が顕著となる(下流側の割れ目内の核種濃度が近傍のマトリクス中濃度よりも顕著に高い。即ち、割れ目に沿って短絡的な移行が生じている)。

割れ目を含む不均質岩盤中のダルシー流速分布  
と移流速度(粒子速度)の分布



割れ目近傍での物質移動挙動  
(割れ目中の移流による移行促進  $>$  マトリクス拡散による均質化)



ストーリーボード: 割れ目の影響が顕著となるシナリオ

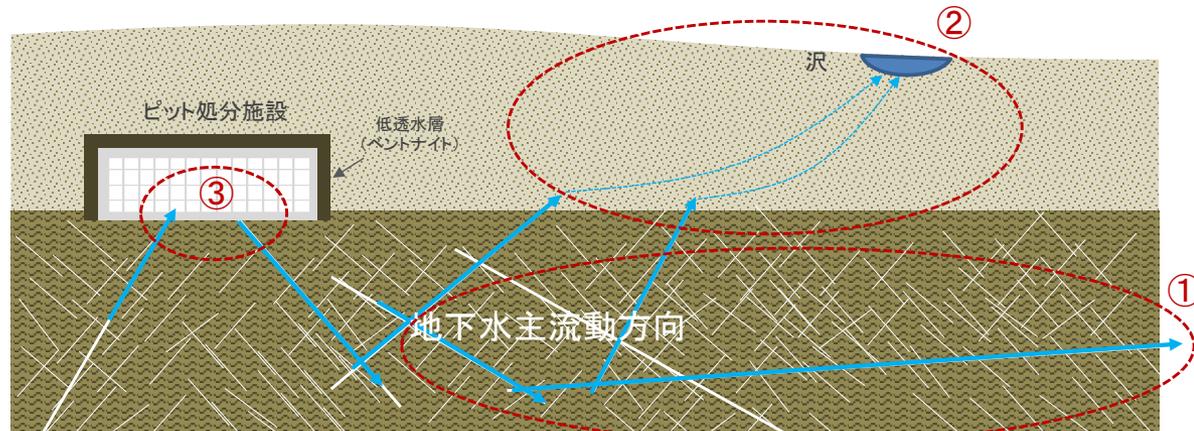
## (2)天然バリアの特性の影響

### 割れ目系岩盤の特徴に応じた処分概念の改良

#### 割れ目系岩盤におけるピット処分の改良に関する課題の抽出

##### 概要

- ピット処分施設下部に位置する岩盤に割れ目系が分布する体系でPartridgeの解析を行い、下図に示す割れ目影響のメカニズムに注目して標準的ピット処分概念の場合にどのような問題が生じ得るかを示す。
  - 上記の問題を解消するために、施設の概念をどのように変更する必要があるかを同じくPartridgeを用いたケーススタディを通じて検討した。
- ① 割れ目による核種移行の促進: 施設と交差する大規模で透水性の高い割れ目ネットワークを介して核種が速やかにGBI(大規模河川等)に到達する(核種移行時間の短縮)。同時に不均質場における移行を通じて分散効果が生ずる(核種移行時間の分散によるピーク移行率の鈍化)。
  - ② 割れ目による上方向分散: 割れ目ネットワークにより核種が主流同方向からずれて上方向に移行する効果(上方向分散)により透水性の第四紀層や土壌に速やかに至るとともに最寄りの小規模のGBI(沢等)に移行する(核種移行時間の短縮と希釈水量の減少)。
  - ③ 施設底部と交差する割れ目による施設通過流量の増大: 低透水層(ベントナイト層)が敷設されていない施設底部と交差する複数の高透水性割れ目を介して施設内部を通過する速い流れが形成される(施設からの核種移行率の増大)。

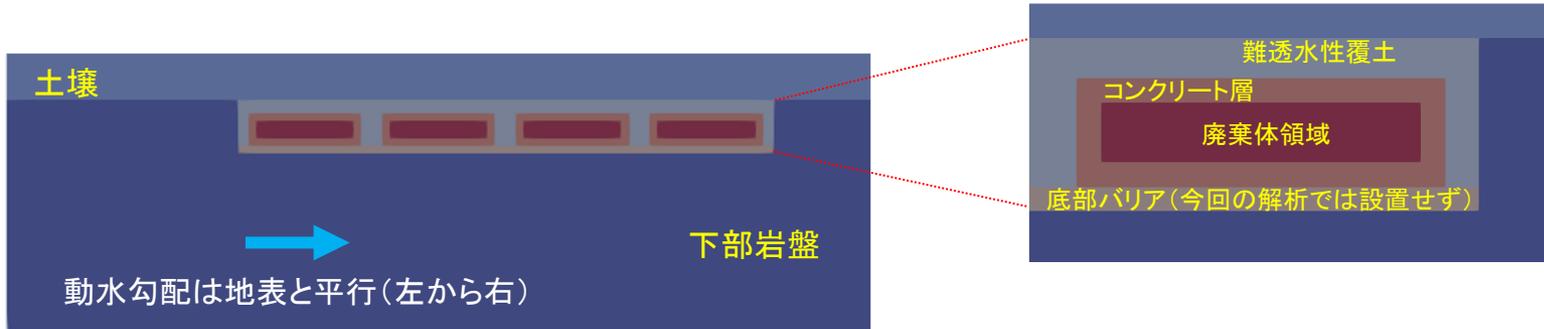


割れ目影響のメカニズム(ピット処分)

## (2)天然バリアの特性の影響

### 割れ目系岩盤の特徴に応じた処分概念の改良 3次元核種移行解析モデル

#### 解析体系及び入力データモデル(ピット処分)



	透水係数: $k(m/s)$	実効拡散係数: $De(m^2/s)$	間隙率: $\theta$
土壌	3E-6	9E-10	46%
下部岩盤	多孔質媒体モデル: 1E-7 亀裂性媒体モデル: スライド46	4.5E-12、1E-11	4%、24.5%
難透水性覆土	2E-9	3E-10	40%
コンクリート層 廃棄体領域	1E-5	1E-12	35%

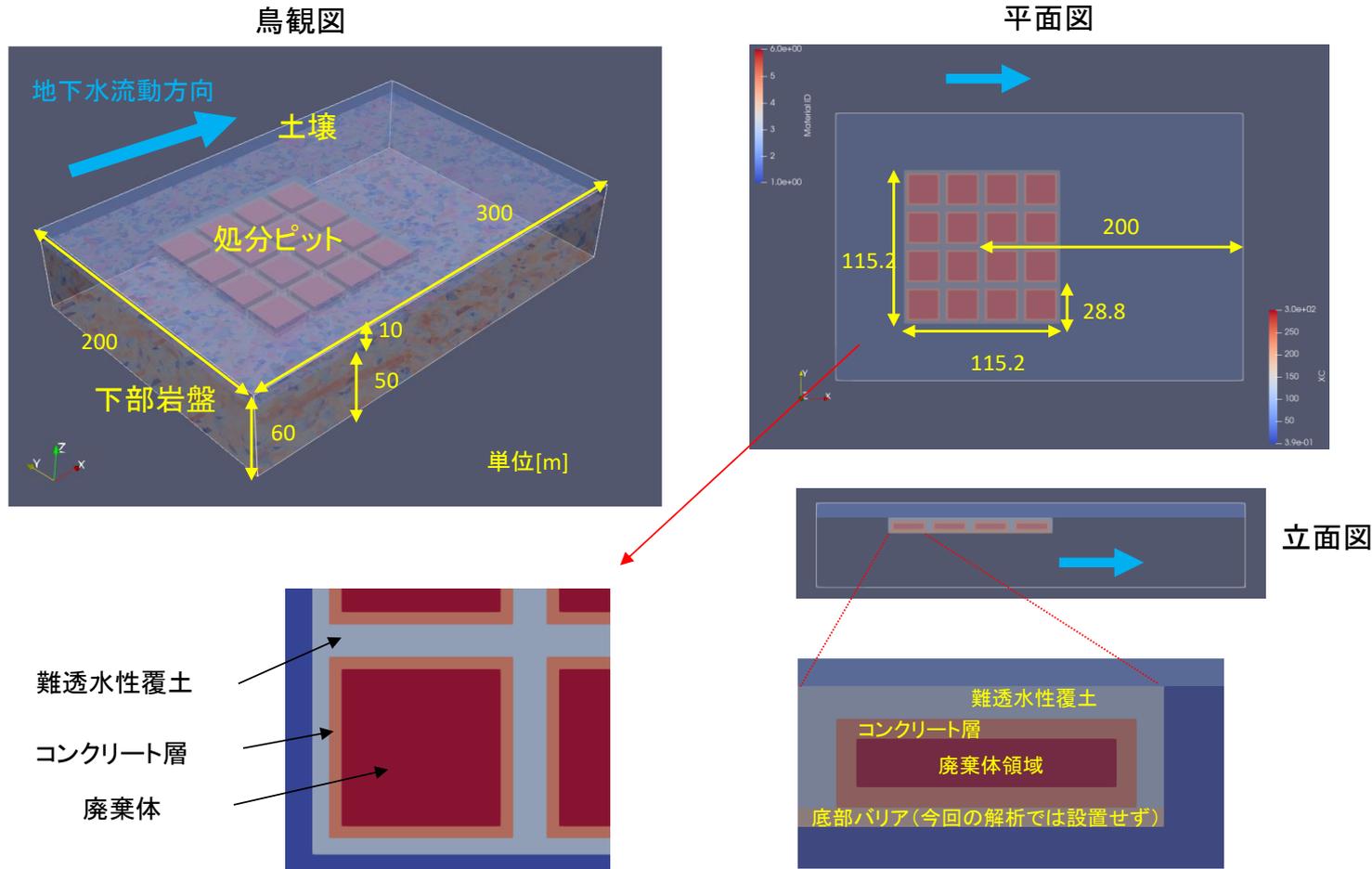
- ・ソースは廃棄体領域内一様(粒子の発生初期位置はランダムに指定)
- ・解析期間は10万年

## (2)天然バリアの特性の影響

### 割れ目系岩盤の特徴に応じた処分概念の改良

### 3次元核種移行解析モデル

#### 3次元核種移行解析モデル(ピット処分)



## (2)天然バリアの特性の影響

### 割れ目系岩盤の特徴に応じた処分概念の改良 3次元核種移行解析モデル

#### 3次元核種移行解析の条件設定

- 下部岩盤として軟岩及び硬岩の2種類を想定し、それぞれこれまでの補助事業における安全評価モデルと同様の連続体(均質多孔質媒体)と亀裂性媒体モデルを用いて解析を行い、結果を比較することとした。
- 亀裂性媒体については、NUMO SC※における深部の岩盤の亀裂統計データをベースとしつつ、深度が小さいことから除荷され割れ目の開口幅が増大することを想定し、岩盤の平均透水係数が浅地中での設定( $10^{-7}$  m/s程度)と同等となるように割れ目透水量係数の対数平均を調整した(上昇させた)。

ケース#	ケース名	岩種	下部岩盤の透水性設定	天然バリアの分散長	補足
#1	多孔質媒体モデル	全岩種	透水係数 $1E-7$ (m/s)	0 m	粒子追跡解析の際に、実効拡散係数、間隙率を他のケースの対応岩種と合わせる。
#2-1	亀裂性媒体モデル	硬岩 (深成岩)	対数平均:log(m/s) : -8.3 標準偏差 : 2		・NUMO-SC※では、対数平均-9、母岩平均透水係数 $2E-8$ (m/s)のため、透水性をlog(5倍)だけ増加。マトリクスは不透水とする。
#3-1	亀裂性媒体モデル	軟岩 (新第三紀堆積岩)	対数平均:log(m/s) : -6.55 標準偏差 : 0.43 マトリクス透水係数(m/s): $7.5E-9$		・NUMO-SCでは、対数平均-7.95、母岩平均透水係数 $4e-9$ (m/s)のため、透水性をlog(25倍)だけ増加。

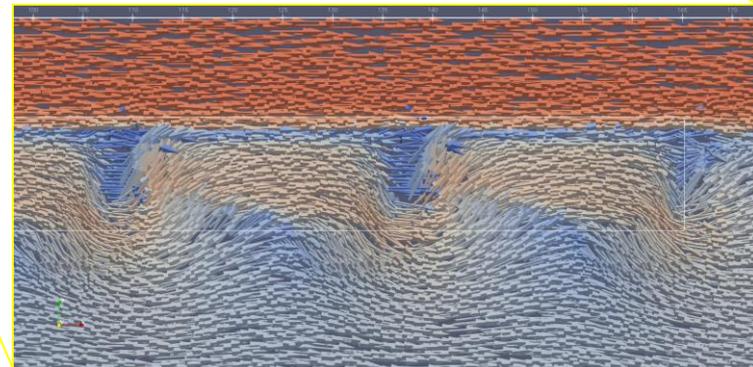
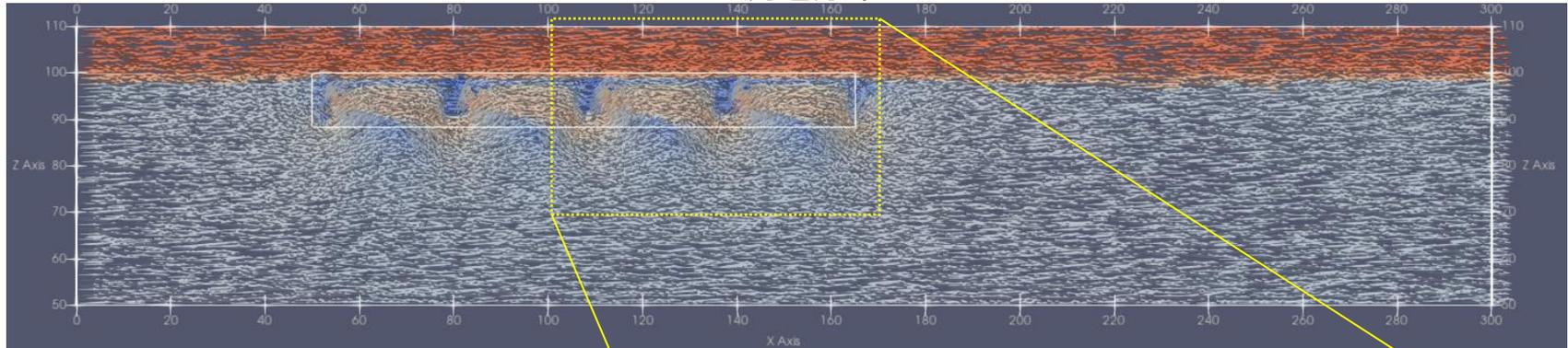
## (2)天然バリアの特性の影響

### 割れ目系岩盤の特徴に応じた処分概念の改良 3次元核種移行解析モデル

#### 水理解析結果の例1(多孔質媒体)

- 全体としての地下水流は地表面に平行だが、施設底部ではピットの各区画で下部岩盤から地下水が流入し隣の区画との境界(ベントナイト層で仕切られている)手前で岩盤に流出するという流れを周期的に繰り返す(下図の拡大部参照)。
- この挙動は従来のL2廃棄物ピット処分における地下水流動解析と同様。

ダルシー流速分布



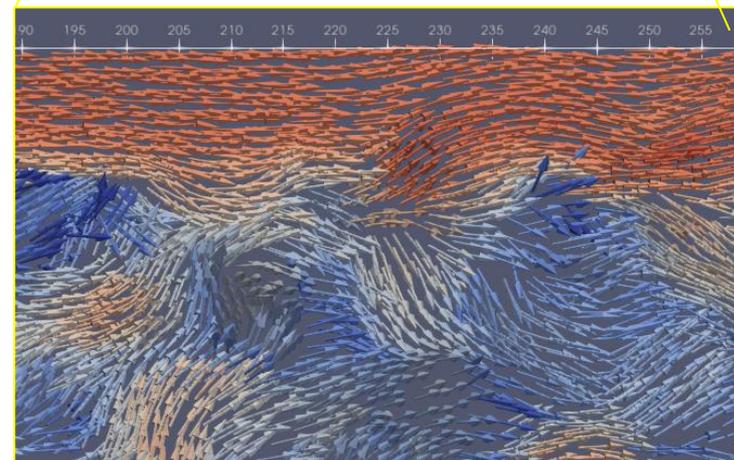
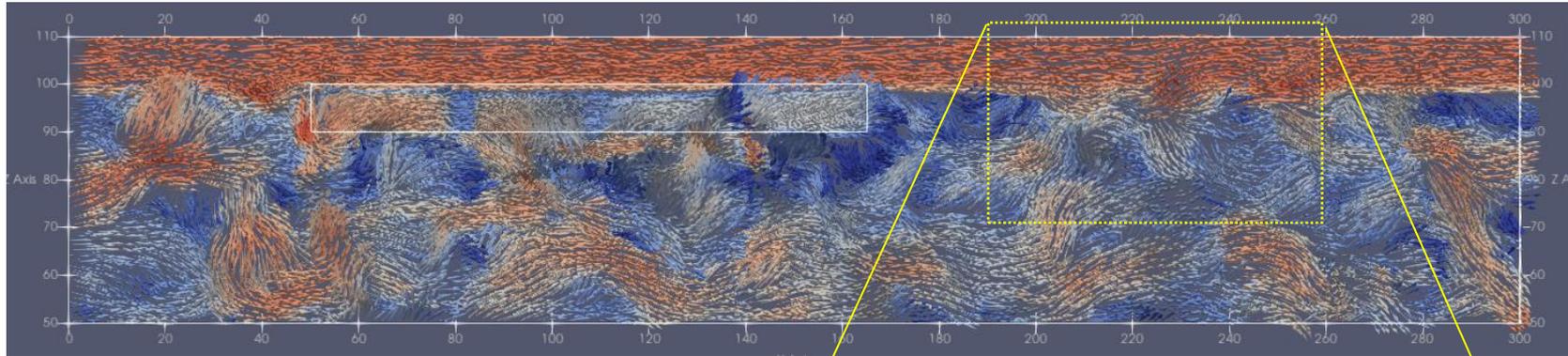
## (2)天然バリアの特性の影響

### 割れ目系岩盤の特徴に応じた処分概念の改良 3次元核種移行解析モデル

#### 水理解析結果の例2(亀裂性媒体)

- 下部岩盤内は、亀裂による透水性の不均質性により地下水流動の擾乱が生じ、鉛直上下方向の成分により、施設下流側で下部岩盤から上部の土壌へ移行する流れが形成されている。
- 施設底部では、多孔質媒体と同様に、ピットの各区画で下部岩盤から地下水が流入し、隣の区画との境界(ベントナイト層で仕切られている)手前で岩盤に流出するという流れを周期的に繰り返しているが、多孔質媒体に比べ複雑な流れとなっている。

ダルシー流速分布



## (2)天然バリアの特性の影響

### 割れ目系岩盤の特徴に応じた処分概念の改良 割れ目影響の把握

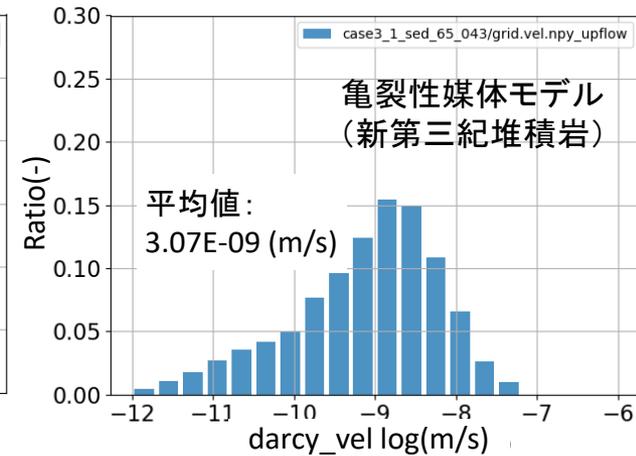
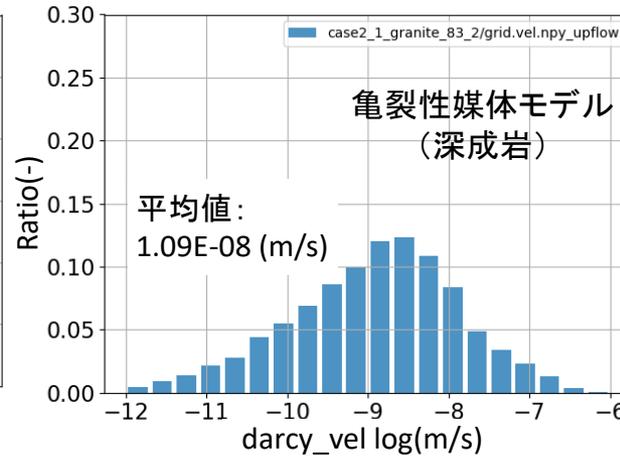
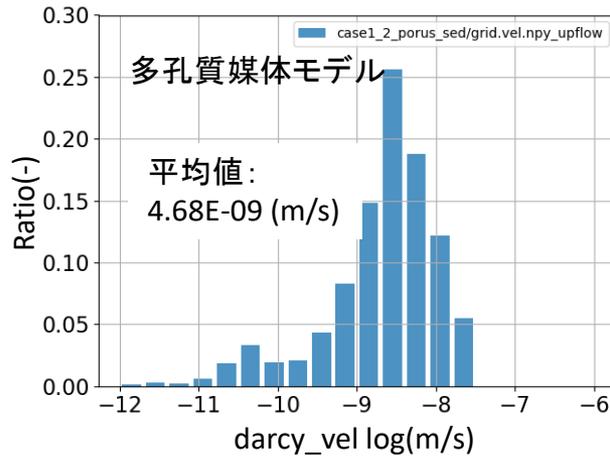
#### 割れ目影響の把握 ① 施設を通過する地下水流量の比較

##### ■ 総流量

- 亀裂性媒体モデルの場合は、ダルシー流速分布に大きなばらつきがあるが、平均値は多孔質媒体モデルと大きな差異はなく、施設を通過する総流量についても同様。
- 割れ目頻度が高い硬岩(深成岩)では総流量が多孔質媒体の2倍程度になっており、安全裕度によっては問題となる可能性もある。

##### ■ 不均質性の影響

- 施設に流入(流出)する地下水の総流量が同程度でも局所的に大きな流速が生ずる場合等に施設からの核種移行率に影響が生ずるか否かは核種移行解析結果で比較する必要がある。



施設底部から流入する地下水流速の分布

## (2)天然バリアの特性の影響

### 割れ目系岩盤の特徴に応じた処分概念の改良 割れ目影響の把握

核種移行解析結果(粒子軌跡:硬岩(深成岩類))

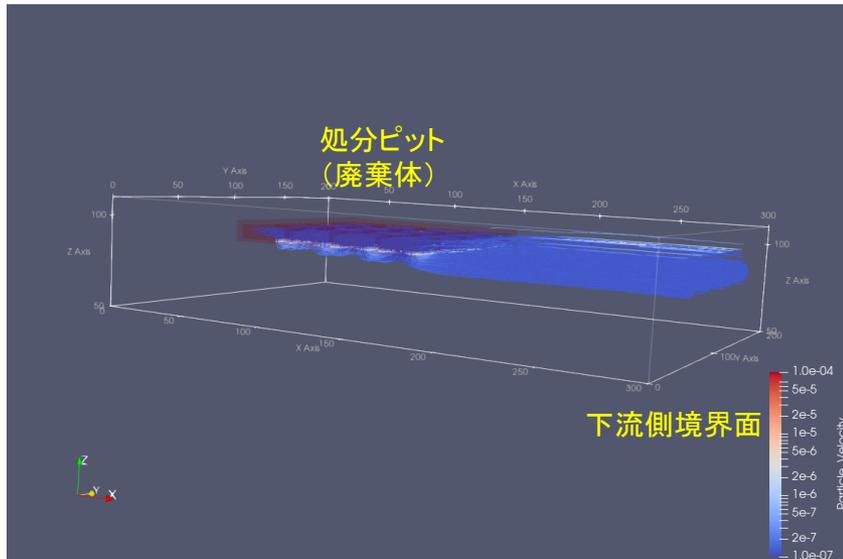
#### ■ 多孔質媒体モデル

- 施設底部から岩盤に移行した粒子は下流側の水平な流れに従って下部岩盤内を移行し、上部の土壤にはほとんど移行しない。
- 粒子移動速度も均質な透水係数場を反映してほぼ一様である。

#### ■ 亀裂性媒体モデル

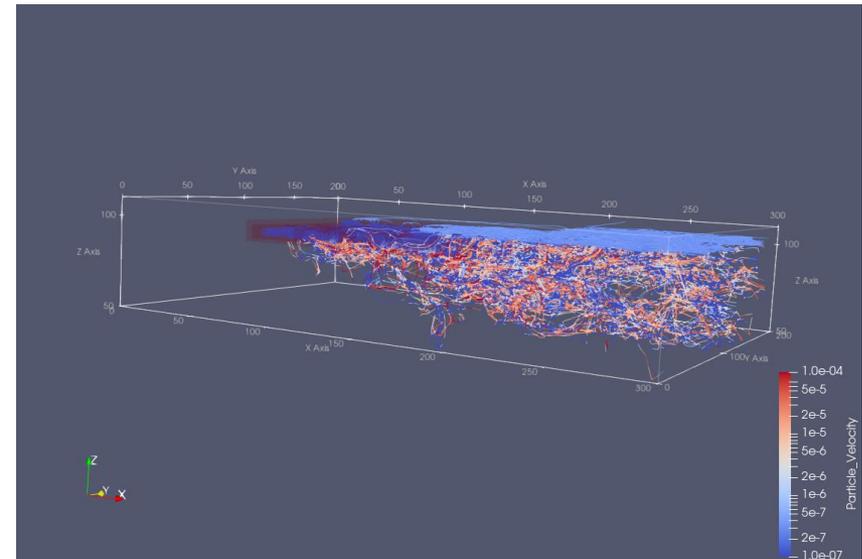
- 下部岩盤内の割れ目ネットワークを通過する粒子の一部は鉛直成分を持つ亀裂面に沿って上昇し上部の土壤に至るものがある。
- 割れ目透水量係数の不均質性を反映して粒子移動速度には顕著なばらつきがある。

ケース1: 多孔質媒体モデル



粒子移動速度(m/s)

ケース2-1: 亀裂性媒体



粒子移動速度(m/s)

## (2)天然バリアの特性の影響

### 割れ目系岩盤の特徴に応じた処分概念の改良 割れ目影響の把握

核種移行解析結果(粒子軌跡:軟岩(新第三紀堆積岩類))

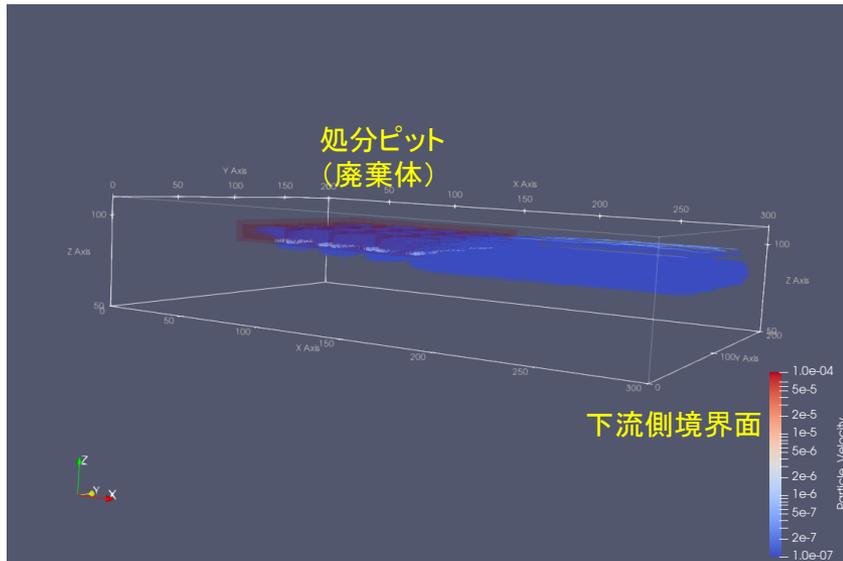
#### ■ 多孔質媒体モデル

- 施設底部から岩盤に移行した粒子は下流側の水平な流れに従って下部岩盤内を移行し、上部の土壤にはほとんど移行しない。
- 粒子移動速度も均質な透水係数場を反映してほぼ一様である。

#### ■ 亀裂性媒体モデル

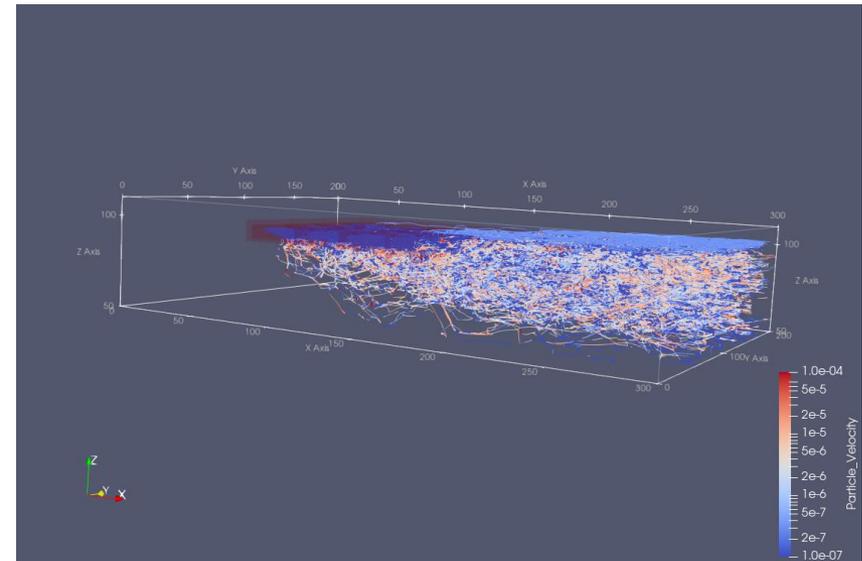
- 下部岩盤内の割れ目ネットワークを通過する粒子の一部は鉛直成分を持つ亀裂面に沿って上昇し上部の土壤に至るものがある。
- 粒子移動速度にはばらつきがあるが硬岩(深成岩)の場合よりも小さい。

ケース1': 多孔質媒体モデル



粒子移動速度(m/s)

ケース3-1: 亀裂性媒体



粒子移動速度(m/s)

## (2)天然バリアの特性の影響

### 割れ目系岩盤の特徴に応じた処分概念の改良 割れ目影響の把握

#### 割れ目影響の把握 ② 割れ目による上方向分散(小規模なGBIへの短絡経路)

##### ■ 多孔質媒体モデル

- 施設底部から下部岩盤に移行した核種のほぼ全て(>99.7%)が下流側岩盤中の水平な流れによって岩盤中を水平に移行しそのまま下流側境界に至る。
- 過去の補助事業における安全評価と同様、下部岩盤を集水域の一部として含む比較的大きな規模の河川等がGBIとなり、所定の移行距離及びGBIでの希釈効果が期待できる。

##### ■ 亀裂性媒体モデル

- 種々の方向の岩盤割れ目内で流れと垂直な成分の分散効果が生ずるため、施設底部から下部岩盤に移行した核種の一部(硬岩(深成岩)の場合約50%、軟岩(新第三紀堆積岩)の場合15%程度)は移行途中で上部の土壌に至る。施設下流側の近傍に沢等の小規模の河川がある場合には移行距離の短縮と希釈効果の減少の可能性がある。

各流出箇所への粒子移行割合

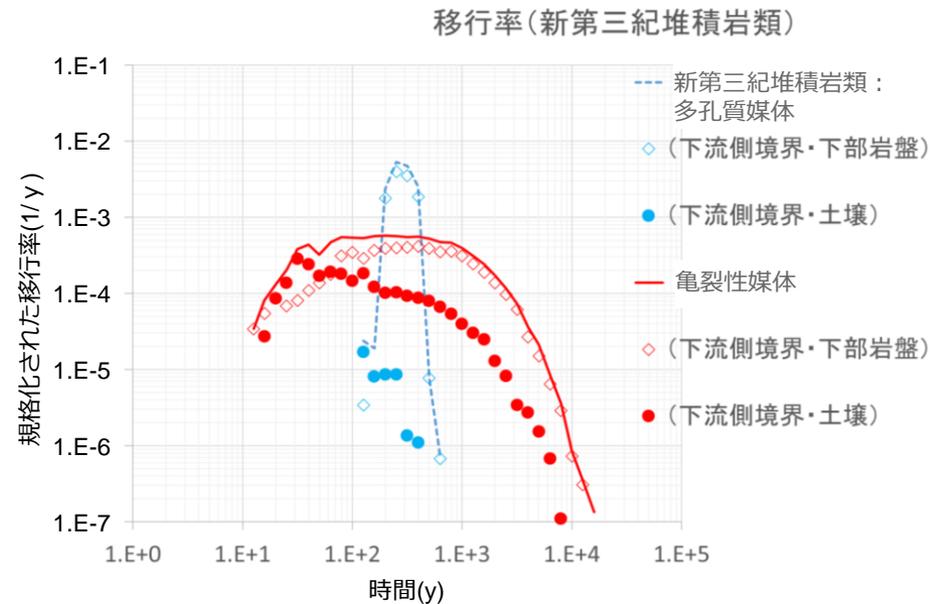
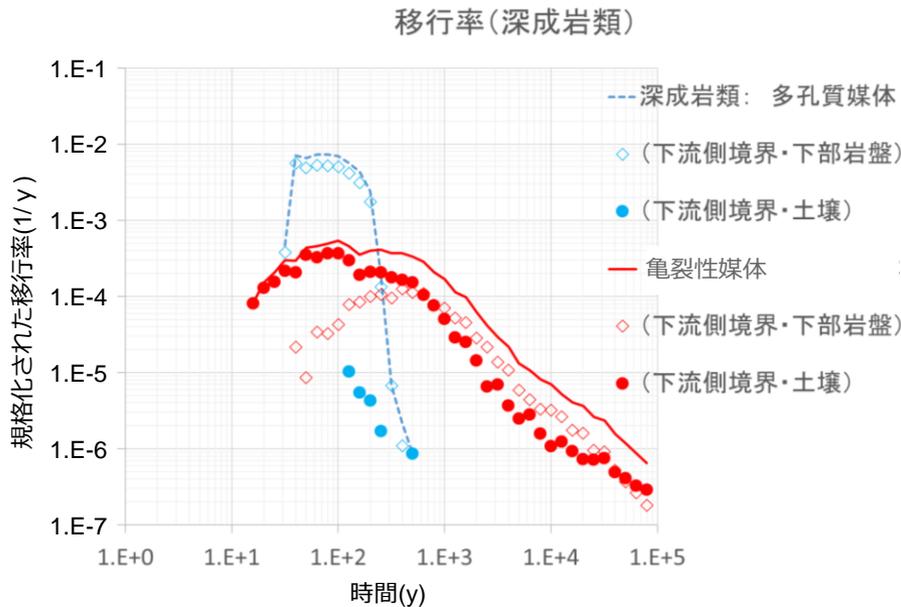
岩種	下部岩盤設定	流出箇所		
		下流側境界 (下部岩盤)	下流側境界 (土壌)	上部境界
硬岩 (深成岩)	多孔質	99.9%	0.1%	0.0%
	亀裂性	50.2%	48.7%	1.1%
軟岩 (新第三紀堆積岩)	多孔質	99.7%	0.3%	0.0%
	亀裂性	85.5%	14.5%	0.0%

## (2)天然バリアの特性の影響

### 割れ目系岩盤の特徴に応じた処分概念の改良 割れ目影響の把握

#### 割れ目影響の把握 ③-1 割れ目ネットワーク中の核種移行時間の分散によるピーク移行率の鈍化

- 硬岩(深成岩)及び軟岩(新第三紀堆積岩)いずれの場合も多孔質媒体モデル(下図の青点線)に比して亀裂性媒体モデル(赤実線)で算出された移行率最大値は1桁程度低く、不均質な割れ目ネットワーク中の移行中に生ずる時間的分散効果が顕著である。
- しかし、いずれの岩種でも多孔質媒体モデルの場合の移行率のピークは上方向分散に伴い上部土壤に至った核種(赤い円形のマーク)によるものであり、沢等の小規模の河川がGBIとなる場合には希釈効果の減少も同時に生ずるため、これら二つの効果を併せた場合に正味の被ばく線量の低減が期待できるか否かは地表水系に関するサイトの具体的な条件に依存するものと考えられる。

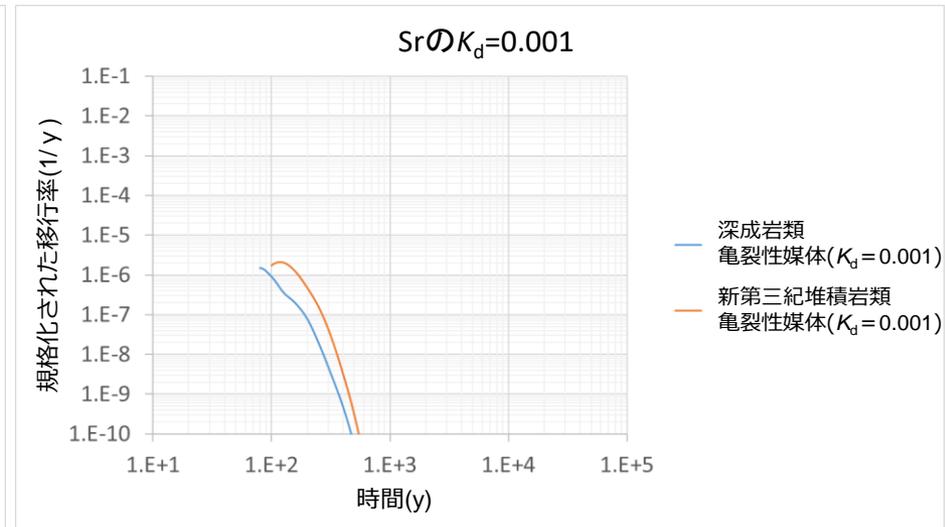
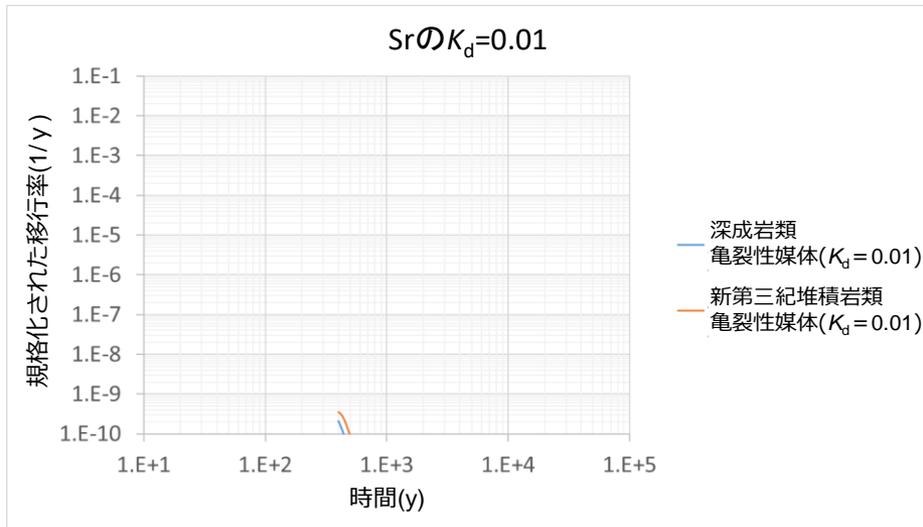


## (2)天然バリアの特性の影響

### 割れ目系岩盤の特徴に応じた処分概念の改良 割れ目影響の把握

#### 割れ目影響の把握 ③-2 割れ目ネットワーク中の速い移行経路の影響

- Sr-90の岩盤に対する $K_d$ 及び半減期を考慮して行った3次元核種移行解析の結果は、深成岩、新第三紀堆積岩いずれの場合も規格化された移行率が $10^{-10}/y$ 程度以下となり、過去の補助事業(レファレンス)で想定している $K_d(=0.01 \text{ m}^3/\text{kg})$ の場合には透水性の割れ目が速い移行経路となり顕著に高い移行率をもたらす可能性は低いと考えられる。
- レファレンスよりも一桁低い $K_d(=0.001 \text{ m}^3/\text{kg})$ を想定した場合には、100年程度以内で下流端に達する成分が生ずることとなり、諸外国の事例やNUMO SC※におけるTRU Gr.3廃棄物の硝酸塩影響のように岩種あるいは影響物質の共存を考慮した代替的なケースでは透水性割れ目によるSr-90の移行促進が懸念される。



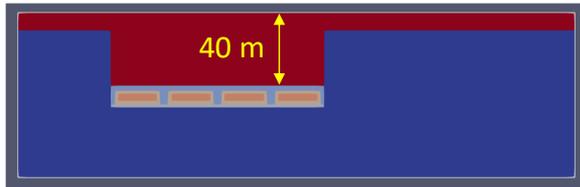
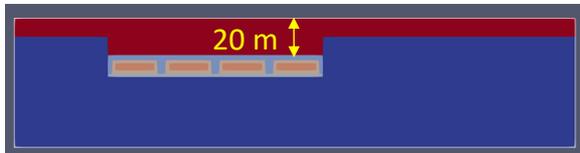
## (2)天然バリアの特性の影響

### 割れ目系岩盤の特徴に応じた処分概念の改良 割れ目系岩盤におけるピット処分概念の改良

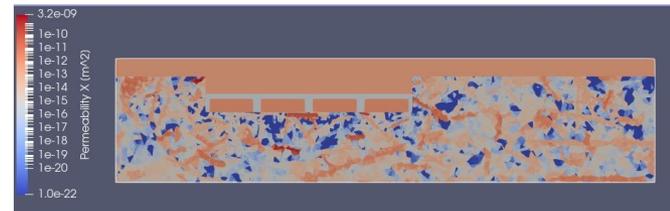
#### 割れ目系岩盤の特徴に応じた「標準的ピット処分概念」の改良(1/3)

- 既に述べたように、ピット施設下部の岩盤に割れ目系が発達している場合、様々な方向の割れ目の影響により地下水の主流動方向から外れるような核種の移行(流れに直交する分散効果)が顕著となり、施設下部から岩盤に移行した核種の一部は速やかに上昇して上部土壌に至る。
- ピット処分における天然バリア性能を担保するためには、核種移行経路が岩盤中にとどまることが必要であり(土壌中を移行する核種に関してはトレンチ処分程度の天然バリア性能しか期待できない)、このような割れ目系岩盤の場合には浅地中処分サイトをベースにした「標準的なピット処分の概念」を変更する必要がある。
- そこで、本検討では、特に上部土壌に至る核種の割合が高かった(およそ50%)深成岩の割れ目パターンを例として、上部土壌への移行割合の低減を目的としてピット処分施設の深度を増したモデルを構築して解析を実施した。

解析モデル



透水係数分布



## (2)天然バリアの特性の影響

### 割れ目系岩盤の特徴に応じた処分概念の改良 割れ目系岩盤におけるピット処分概念の改良

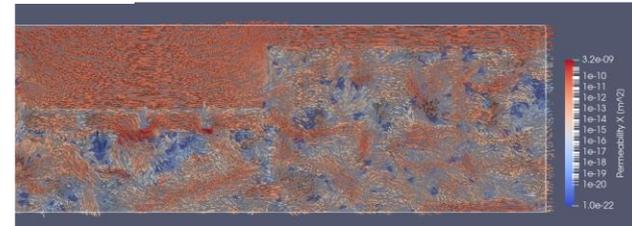
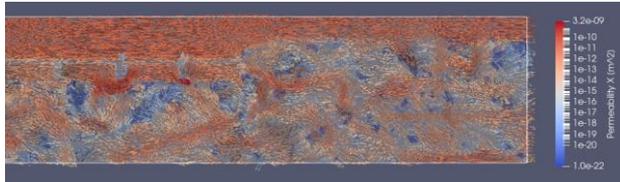
#### 割れ目系岩盤の特徴に応じた「標準的ピット処分概念」の改良(2/3)

- 下部岩盤を掘り込むことによりピット処分施設の深度をそれぞれ20 m及び40 mに増した場合の地下水流動解析を行い、施設下部から岩盤に移行した核種のその後の挙動を粒子追跡法により推定した。
- 物質移動解析結果(下図の下段。視認性の観点から少数の粒子の軌跡のみ表示)は、ピット処分施設深度を40 mとした場合、種々の方向の割れ目による流れに直交する分散効果を考慮しても、施設下部から岩盤に移行した核種のほとんどは岩盤中を通じて下流端に至ることを示している。

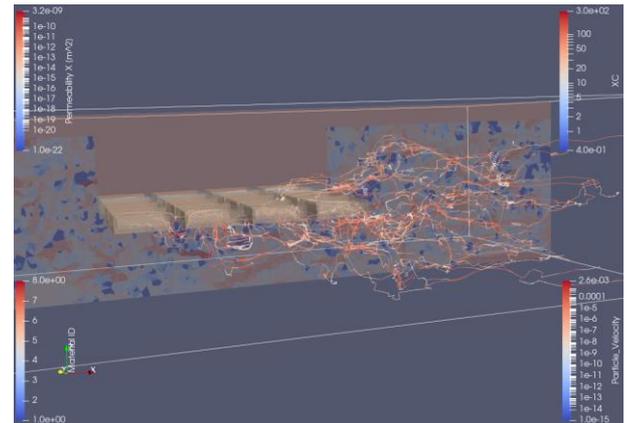
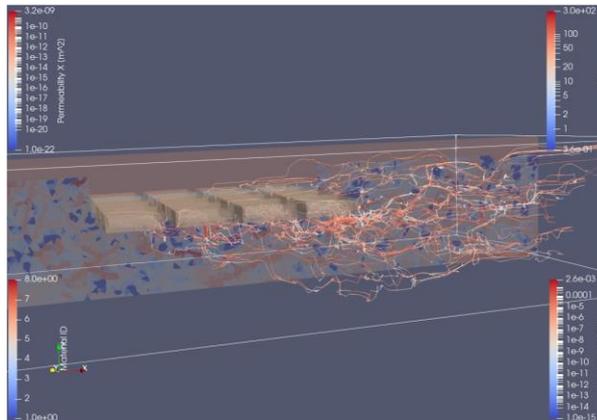
施設深度 -20 m

施設深度 -40 m

地下水流動場



物質移動挙動



## (2)天然バリアの特性の影響

### 割れ目系岩盤の特徴に応じた処分概念の改良 割れ目系岩盤におけるピット処分概念の改良

#### 割れ目系岩盤の特徴に応じた「標準的ピット処分概念」の改良(3/3)

- 各ケースとも、初期状態で施設内に10,000個の粒子をランダムに配置し、その後の移行挙動を追跡した結果、下表に示す通り、ピット処分施設深度が20 mの場合には約7%の粒子が移行途上で上部土壌に至るが、深度40 mの場合には移行途上で上部土壌に至る粒子の割合が1.7%にまで低減された。
- この解析事例は、割れ目の発達した岩盤を掘削してピット処分施設を設置する場合、割れ目ネットワークの統計的特徴によっては従来の「標準的ピット処分施設の概念」を変更する必要があること、そして、岩盤を掘り込んで施設の深度を増すことによって所定の天然バリア機能を担保し得ることを示すものと考えられる。
- ピット処分施設の深度をどの程度確保する必要があるかは、下部岩盤中の割れ目の特性や対象とする廃棄物のインベントリに応じた安全裕度等に依存するため、サイト条件等に応じて今後個別に検討する必要があるものと考えられる。

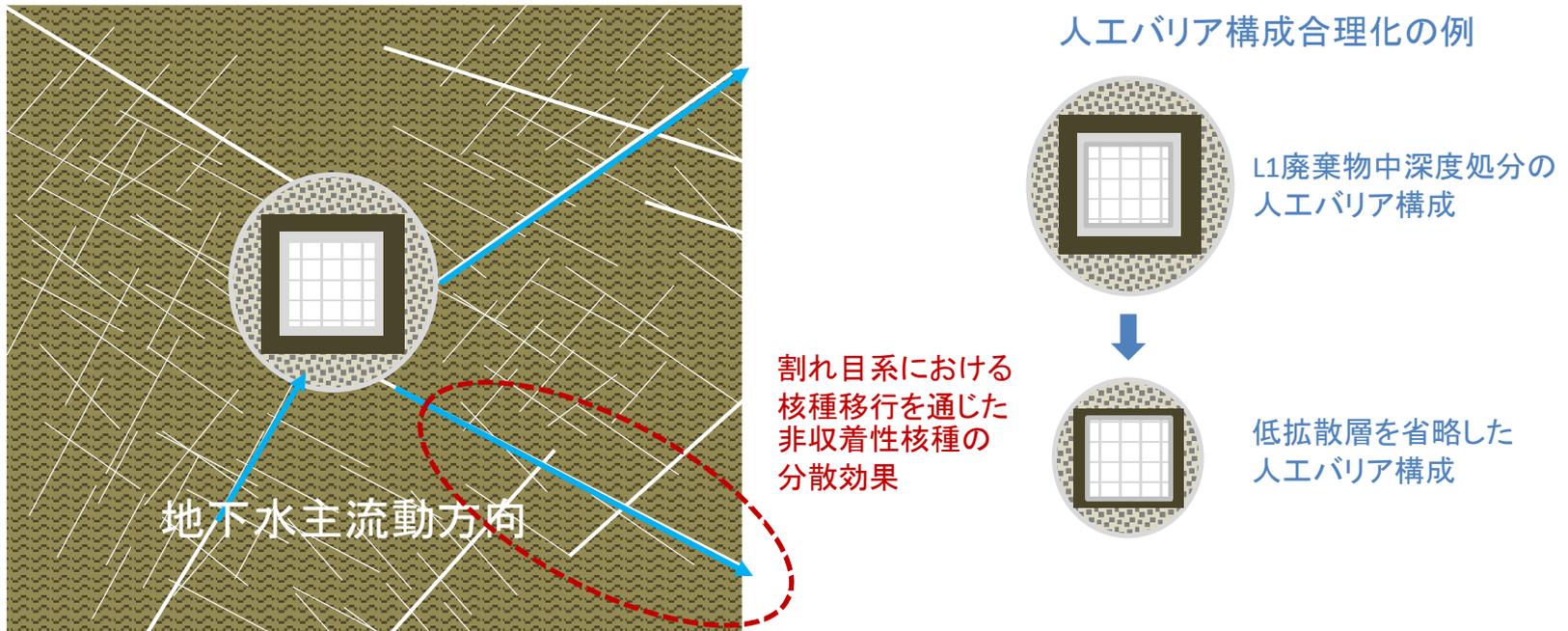
岩種	下部岩盤設定	施設深度	流出箇所		
			下流側境界 (下部岩盤)	下流側境界 (土壌)	上部境界
硬岩 (深成岩)	亀裂性	-20 m	93.1%	6.9%	0.0%
		-40 m	98.3%	1.7%	0.0%

## (2)天然バリアの特性の影響

### 割れ目系岩盤の特徴に応じた処分概念の改良 割れ目系岩盤における中深度処分の改良

#### 割れ目系岩盤における中深度処分の改良に関する課題の抽出

- 坑道周辺の岩盤中の割れ目等の不均質性によって生ずるC-14等の長寿命で非収着性核種の分散による影響低減効果をPartridgeの解析を通じて評価し、「中深度処分に関する標準的な安全評価」で用いられる均質連続体との比較を通じて割れ目系を考慮した現実的な評価を行うことのメリットの有無を把握する。
- また、上記の評価結果に基づき、このような岩盤で新たに期待できる天然バリアの安全機能やこれを前提とした低拡散層などの合理化の可能性を検討する。



## (2)天然バリアの特性の影響

### 割れ目系岩盤の特徴に応じた処分概念の改良 割れ目系岩盤における中深度処分の改良

#### 割れ目系岩盤における中深度処分の天然バリア機能に関するケーススタディ(1/2)

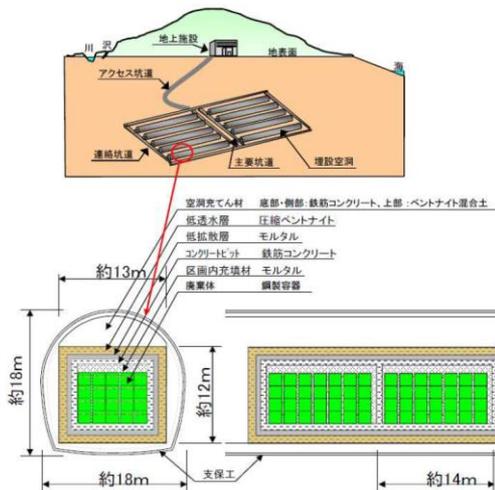
- 岩盤の水理及び割れ目特性の設定

中深度処分においては地層処分より深度が小さく岩盤透水性も比較的高い場合が多いと考えられることから、ここでは、いずれのケースでも岩盤の平均透水係数が $1E-7$  m/sとなるように割れ目透水量係数の対数平均値を上昇させて調整した(右表参照。深度が小さいため除荷により割れ目開口幅が増大していることを想定)。

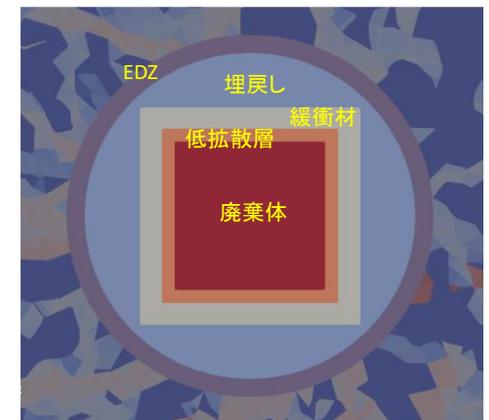
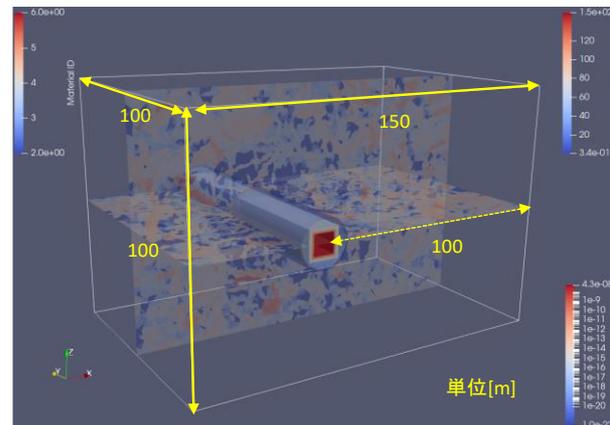
媒体	岩種	岩盤水理特性	備考
多孔質(連続体)	深成岩/新第三紀堆積岩	透水係数 $1E-7$ (m/s) (均質)	水理学的に等価な均質多孔質媒体
亀裂性	深成岩	亀裂透水係数 ( $m^2/s$ ) 対数平均: -8.3 標準偏差: 2	NUMO-SC*における割れ目統計データ(方向や長さの分布)を仮定し、割れ目透水量係数対数正規分布の対数平均を増大させて均質な多孔質媒体と同等の平均透水係数となるよう調整した。
亀裂性	深成岩/新第三紀堆積岩	亀裂透水係数 ( $m^2/s$ ) 対数平均: -6.55 標準偏差: 0.43 マトリクス透水係数: $7.5E-9$ (m/s)	

- 中深度処分施設の形状

NRA 技術ノート(NTEN-2022-0001)\*\*の設計例(左図)を参考に右図の3次元モデルを作成した。なお、低拡散層については設置する場合としない場合のそれぞれについてモデルを用意した。



(a)中深度処分の廃棄物施設設置のイメージ



#### 中深度処分施設の3次元モデル

\*原子力発電環境整備機構(NUMO), 包括的技術報告書: わが国における安全な地層処分の実現—適切なサイトの選定に向けたセーフティケースの構築—, 2021年2月

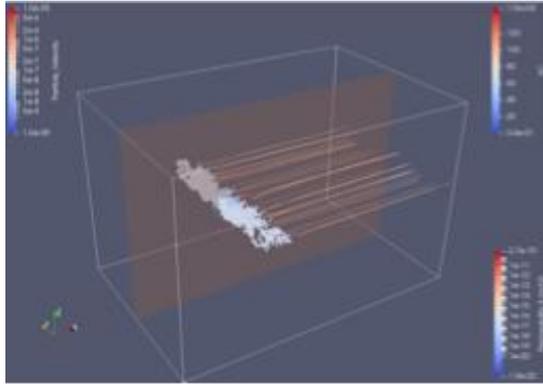
\*\*前田 敏克 大村 哲臣 青木 広臣 木嶋 達也 田中 知, 中深度処分の規制基準の背景及び根拠, NRA技術ノート, NTEN-2022-0001, 原子力規制庁長官官房技術基盤グループ, 2022

## (2)天然バリアの特性の影響

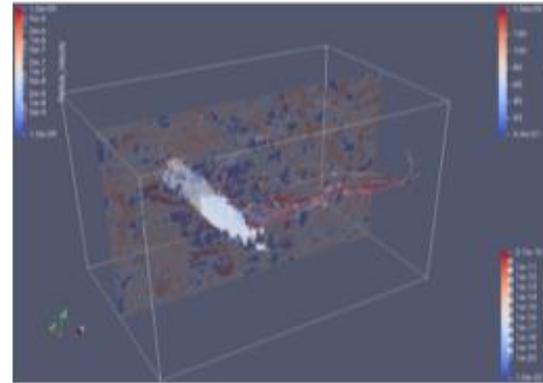
### 割れ目系岩盤の特徴に応じた処分概念の改良 割れ目系岩盤における中深度処分の改良

#### 割れ目系岩盤における中深度処分の天然バリア機能に関するケーススタディ(2/2)

- 作成した3次元施設モデルを用い、岩盤を均質な多孔質媒体で近似した場合と割れ目を陽に表現した場合(亀裂性媒体)のそれぞれについて、水理及び核種移行(粒子追跡)解析を行った(下図参照)。

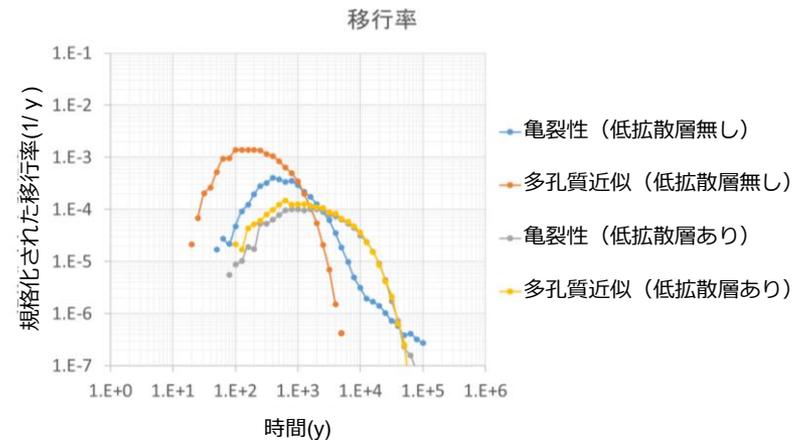


岩盤を均質多孔質媒体とした場合の粒子軌跡



岩盤を不均質な亀裂性媒体とした場合の粒子軌跡

- 深成岩の割れ目パターンを例とした物質移動解析結果(右図。初期の粒子数で規格化した下流端での移行率の時間変化)は低拡散層が無い場合、均質な多孔質媒体近似を行った従来の「標準的な評価手法」に比して不均質な割れ目による分散効果を考慮した場合には0.5桁程度ピーク値が低下することを示している。
- 低拡散層を設置した場合には、均質な多孔質媒体を仮定したモデルでも低拡散層なしの場合(均質多孔質媒体モデル)に比して最大移行率が1桁程度低下している。また、この場合には、亀裂性媒体モデルを用いて分散効果を陽に表現しても更なる低減効果は微小である。

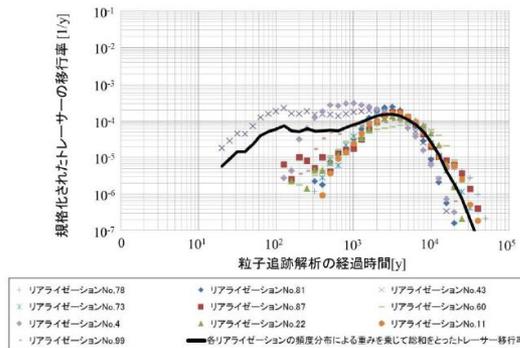


## (2)天然バリアの特性の影響

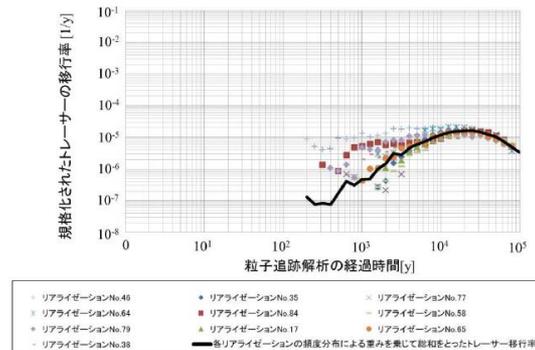
### 割れ目系岩盤の特徴に応じた処分概念の改良 割れ目系岩盤における中深度処分の改良

#### 割れ目系岩盤における中深度処分の天然バリア機能に関するケーススタディのまとめ

- 前頁に示した通り、本検討で想定した岩盤割れ目の特性(NUMO SC※における深成岩の割れ目パターン及び統計情報を参考にしつつ中深度処分であることを考慮して平均透水係数を増大させた例(割れ目透水量係数分布の対数平均を増大させて浅地中処分サイトと同等となるよう調整))の場合、坑道近傍の不均質な岩盤亀裂ネットワーク中の核種移行における分散効果に比して、低拡散層を設置した場合の坑道から外部への核種移行の抑制による拡散ピークの鈍化の効果がより大きいため、低拡散層を設置した場合には割れ目中の移行を陽に表現することによるピーク低減効果はその背後に隠れてしまい顕在化しない。
- しかしながら、このバランスは低拡散層の仕様及び岩盤特性によって逆転する場合もあり、例えば、NUMO SC※における他の岩種において低拡散層を設置しない状況で、ニアフィールド岩盤出口における核種移行率のピークは低拡散層を設置した場合と同等(新第三紀堆積岩の場合)あるいはそれよりおよそ1桁小さい(先新第三紀堆積岩の場合)ことから、このような場合には現実的な核種移行評価を実施することにより低拡散層を省略する処分概念の合理化が適切なものとなる可能性がある。
- このように、割れ目系岩盤の場合、岩盤中の割れ目の特性によっては、従来の「標準的な」中深度処分概念における人工バリアの一部を削減するなど、合理化できる可能性が考えられる。



新第三紀堆積岩



先新第三紀堆積岩

NUMO SC※におけるニアフィールドからの核種移行率解析結果※(いずれも縦置き・ブロック方式)

※原子力発電環境整備機構(NUMO)、包括的技術報告書:わが国における安全な地層処分の実現—適切なサイトの選定に向けたセーフティケースの構築—, 2021年2月、付属書6-14 ニアフィールドスケールにおける三次元地下水流動・粒子追跡解析, NUMO-SC20-SR6-14

## (2)天然バリアの特性の影響 まとめ

### ■ 幅広い地質環境について処分概念構築を行うための安全評価手法の改良

- 我が国における浅地中処分及び中深度処分の標準的な概念及び安全評価手法等も核種移行経路として割れ目の影響が顕著ではない学会標準モデルの地質環境が基本となっているため、我が国に広く分布する割れ目系の発達した岩盤を想定して3次元水理・核種移行解析を行い、従来の「標準的な浅地中・中深度処分概念」を適用した場合の問題点を明らかにした。
- また、これらの問題点を解消するための「標準的な浅地中・中深度処分概念」の改良に関する技術的オプションを考案し、3次元水理・核種移行解析等の検討を通じてその成立性を検討した。
- 岩盤割れ目の影響が顕著な場合は、施設の深度を従来の「標準的な」ピット処分よりも顕著に増すことが必要となり、むしろ浅地中処分と中深度処分の間間的な位置付けのものとなる可能性がある。このような間間的な深度において地表から掘削するピットと地下坑道を用いた中深度処分の概念、あるいは英国等で検討されている地表からアクセス可能なサイロ等の新たな概念のいずれがより合理的となるのかについて、経済性や構造安定性など様々な観点からの検討が必要と考えられる。

### (3)生活圏付近の核種移行

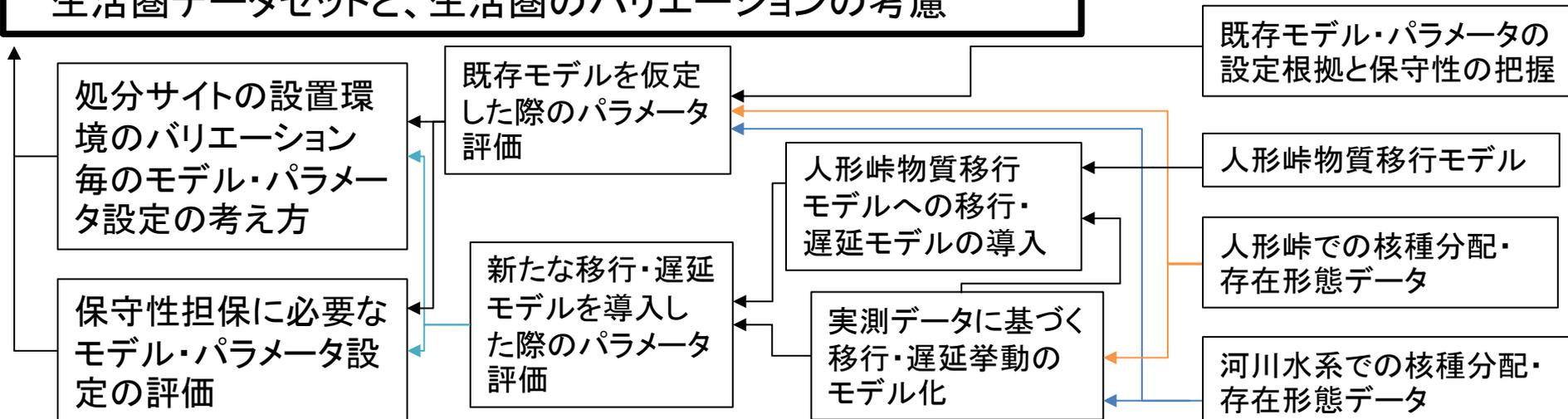
### (3)生活圏付近の核種移行

#### 生活圏評価の課題

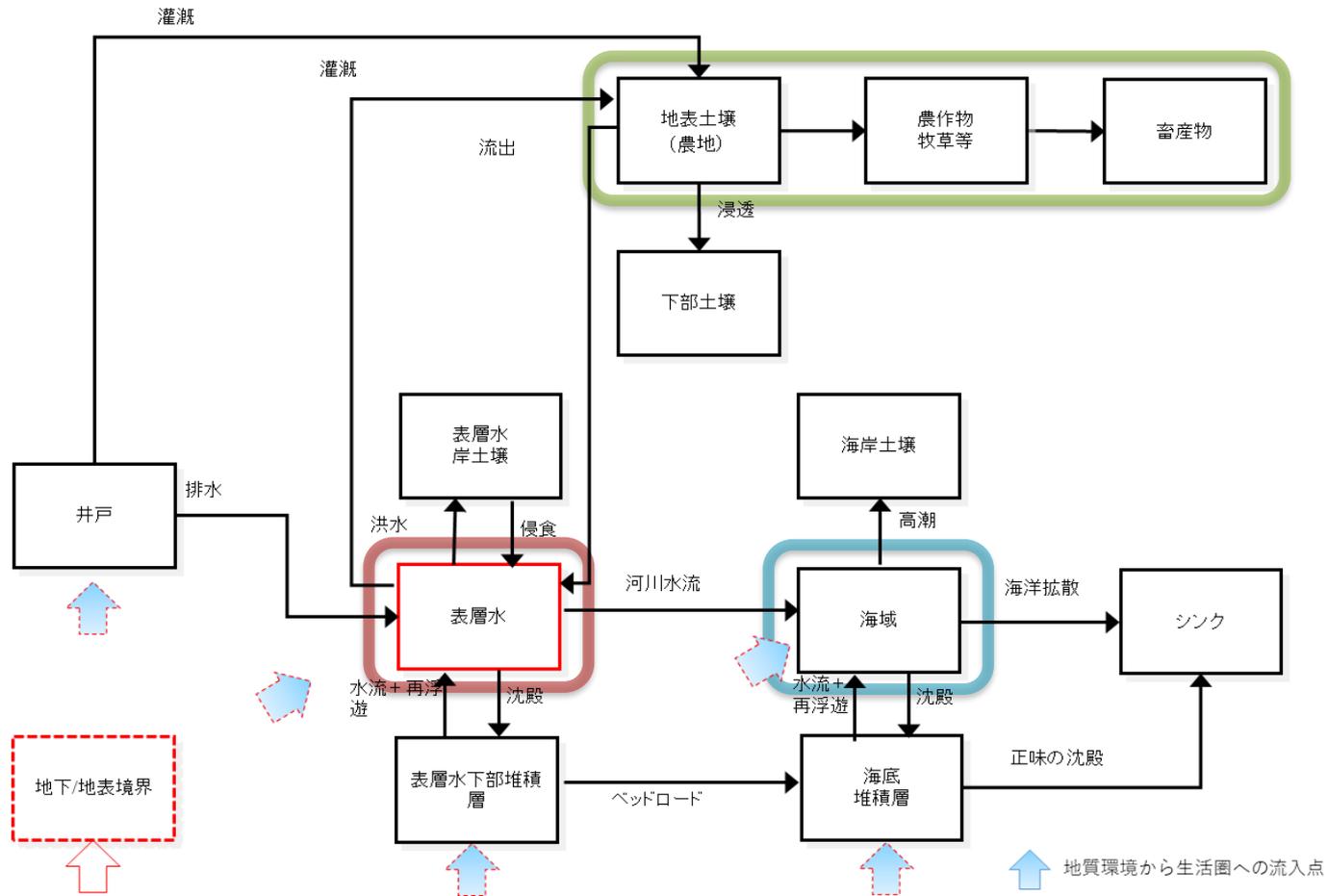
- 生活圏評価については、処分サイトの設置環境により想定するモデルやパラメータが大きく異なる。従来の評価では、**既存の処分サイトにおける安全評価に倣い、保守的なモデル・パラメータで評価**が行われてきた。
- 浅地中～中深度処分の安全評価では、生活圏に核種が到達するのは処分後数百年程度で、また、処分サイトが決定された場合、原位置(=小さい不確実性)で最も容易にデータを取得できるのは生活圏であることから、現在の生活様式を想定した生活圏の評価は比較的現実味を帯びるものと考えられる。
- これまでの生活圏評価では、GBIでの酸化還元状態変化による化学種変化、河川水系における吸着分配平衡、土壌から植物への移行係数などのシンプルな概念が、保守性も担保したモデルとして用いられてきた。しかし、実際の生活圏では、これらのモデルでは**単純に説明できない現象**もみられ、それらに誘起されるシナリオによっても**保守性が担保**され、あるいは、これらの**概念が適用可能**であることを確認する必要がある。

#### 生活圏モデル・パラメータ

・シナリオ・モデル・パラメータの保守性が定量的に評価された生活圏データセットと、生活圏のバリエーションの考慮



### (3)生活圏付近の核種移行

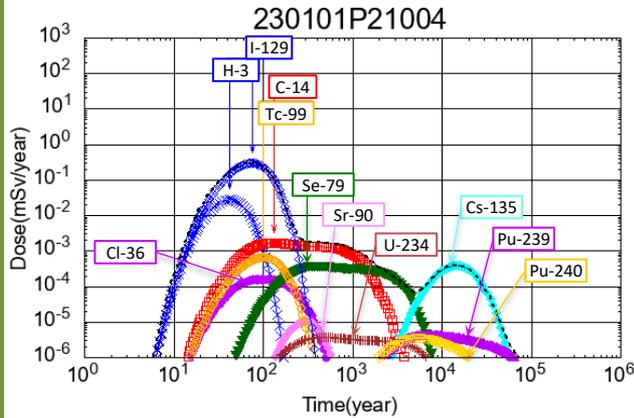


- 1F事故廃棄物の安全評価上重要な核種について、地下/地表境界(GBI)～生活圏における核種移行挙動を調べる。
- 影響を与える因子を明らかにし、モデル・パラメータ設定に当たり、考慮すべき不確実性を検討するとともに、既存設定の保守性を確認する。

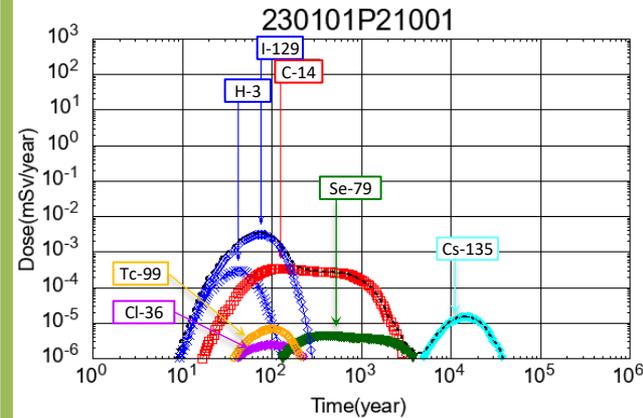
### (3)生活圏付近の核種移行

- KURION吸着材をピット処分した場合の生活圏における被ばく線量評価を試行した結果を以下に示す。
- 農業従事者における井戸水利用と河川水利用のケース、漁業従事者における淡水漁業と海水漁業のケースで評価した。

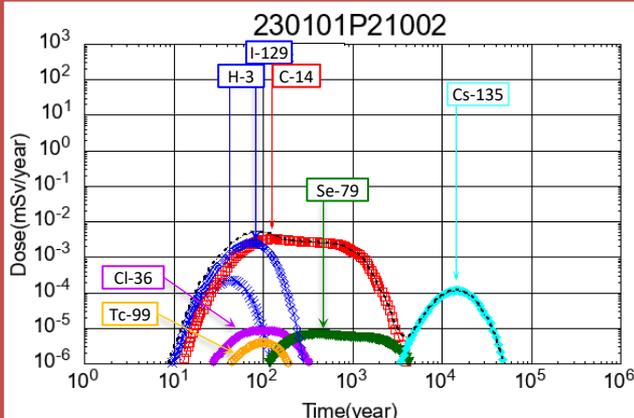
農業従事者  
井戸水利用



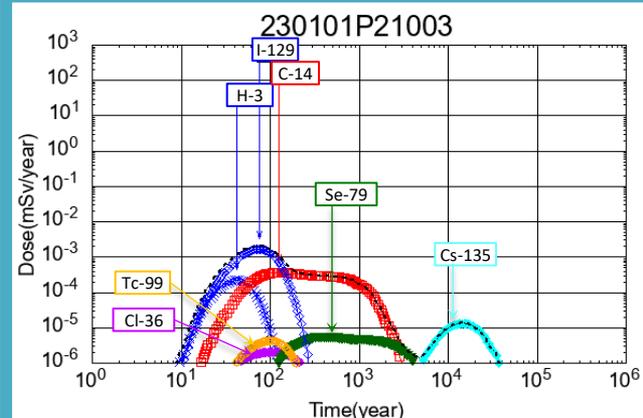
農業従事者  
河川水利用



淡水漁業  
従事者



海水漁業  
従事者



KURION吸着材のピット処分における被ばく線量評価の試行例

評価結果から以下の支配的な核種を抽出した。

- I-129、C-14、Cs-135、Tc-99、Cl-36、Se-79、U-234/238、Pu-239/240

### (3)生活圏付近の核種移行

#### 酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

調査サイト：人形峠環境技術センター（以下、人形峠センター）におけるサンプリング地点



- 浅地中にある2つの主要観測サイトからの核種の移行挙動を調べる。
- U、I、Asなどを対象とする。

### (3)生活圏付近の核種移行

酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

## 主要観測サイト1および2

調査地点: 人形峠センター 夜次露天採掘場跡地～鉱さい堆積場



### (3)生活圏付近の核種移行

酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

#### 主要観測サイト1

- 調査地点(夜次露天採掘場跡地)



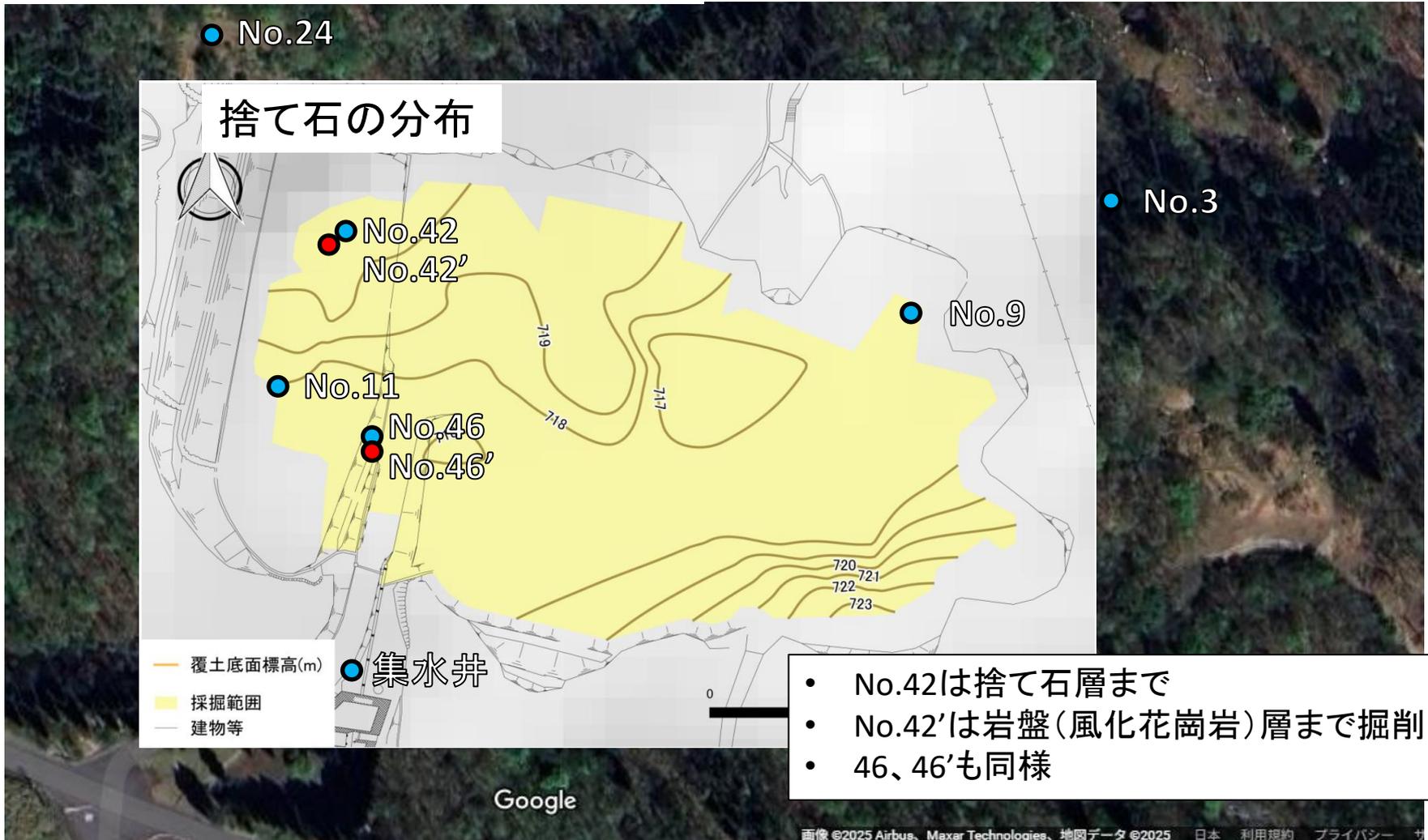
- No.42は捨て石層まで
- No.42'は岩盤(風化花崗岩)層まで掘削
- 46、46'も同様

### (3)生活圏付近の核種移行

酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

#### 主要観測サイト1

- 調査地点(夜次露天採掘場跡地)



- No.42は捨て石層まで
- No.42'は岩盤(風化花崗岩)層まで掘削
- 46、46'も同様

### (3)生活圏付近の核種移行

## 酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

### 主要観測サイト1および2

#### 採取試料

#### 水試料

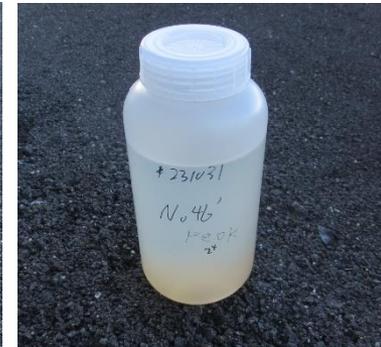


夜次露天採掘場跡地  
ボーリング孔採水



鉱さい堆積場  
表層水採水

- ✓ 採水時、pH、ORP、水温、アルカリ度、 $\text{Fe}^{2+}$ 、硫化水素を測定
- ✓ 採水試料は $0.45 \mu\text{m}$ ろ過した後、 $\text{HNO}_3$ を添加



地下水試料外観の一例  
(左:No42'、右:No46')

#### 堆積物試料



鉱さい堆積場



堆積物外観

次ページ以降に採取した試料の核種の濃度分布を示す。

### (3)生活圏付近の核種移行

#### 酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

### 主要観測サイト1

U濃度分布(夜次露天採掘場跡地)

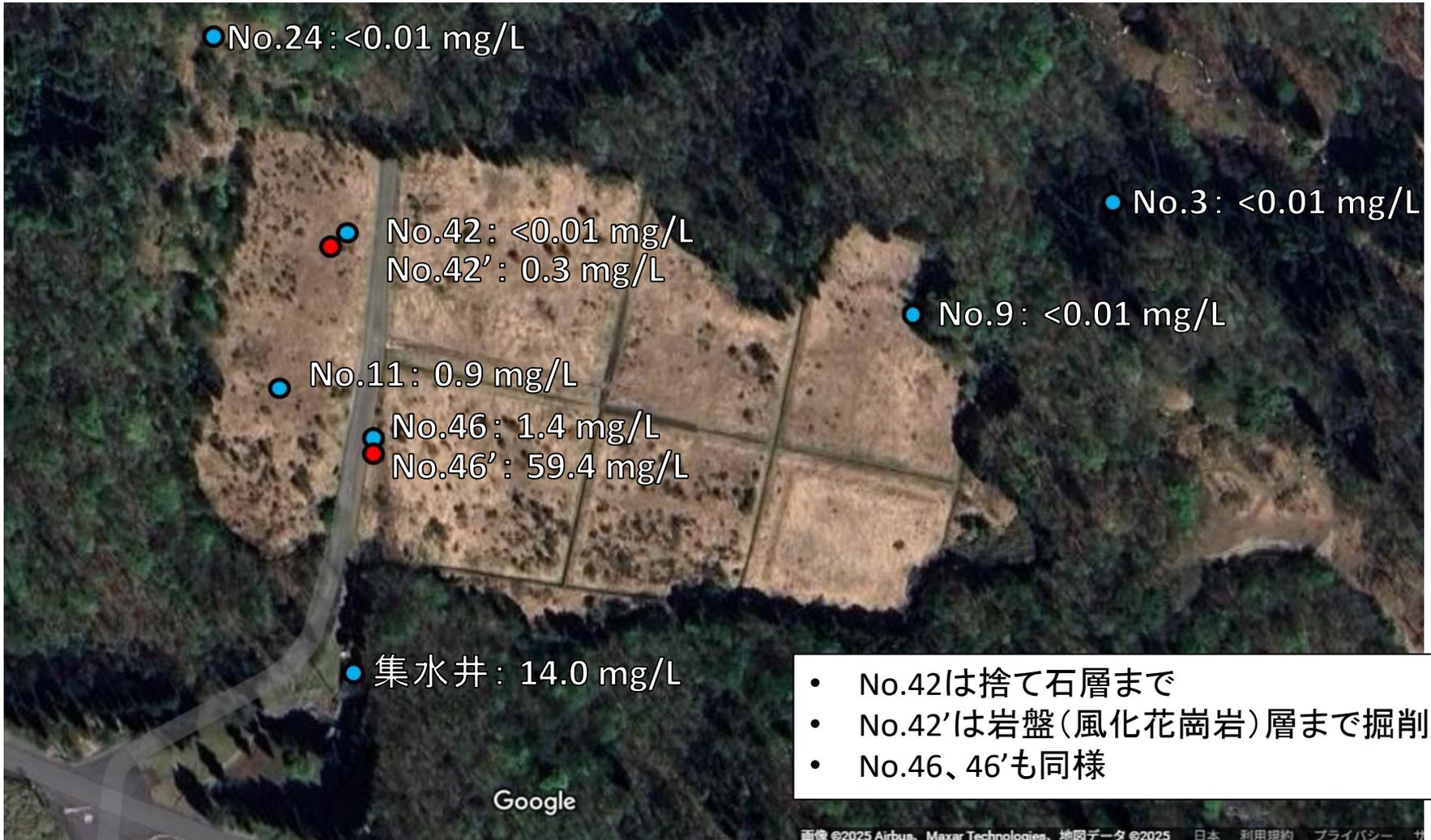


### (3)生活圏付近の核種移行

酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

#### 主要観測サイト1

Fe濃度分布(夜次露天採掘場跡地)

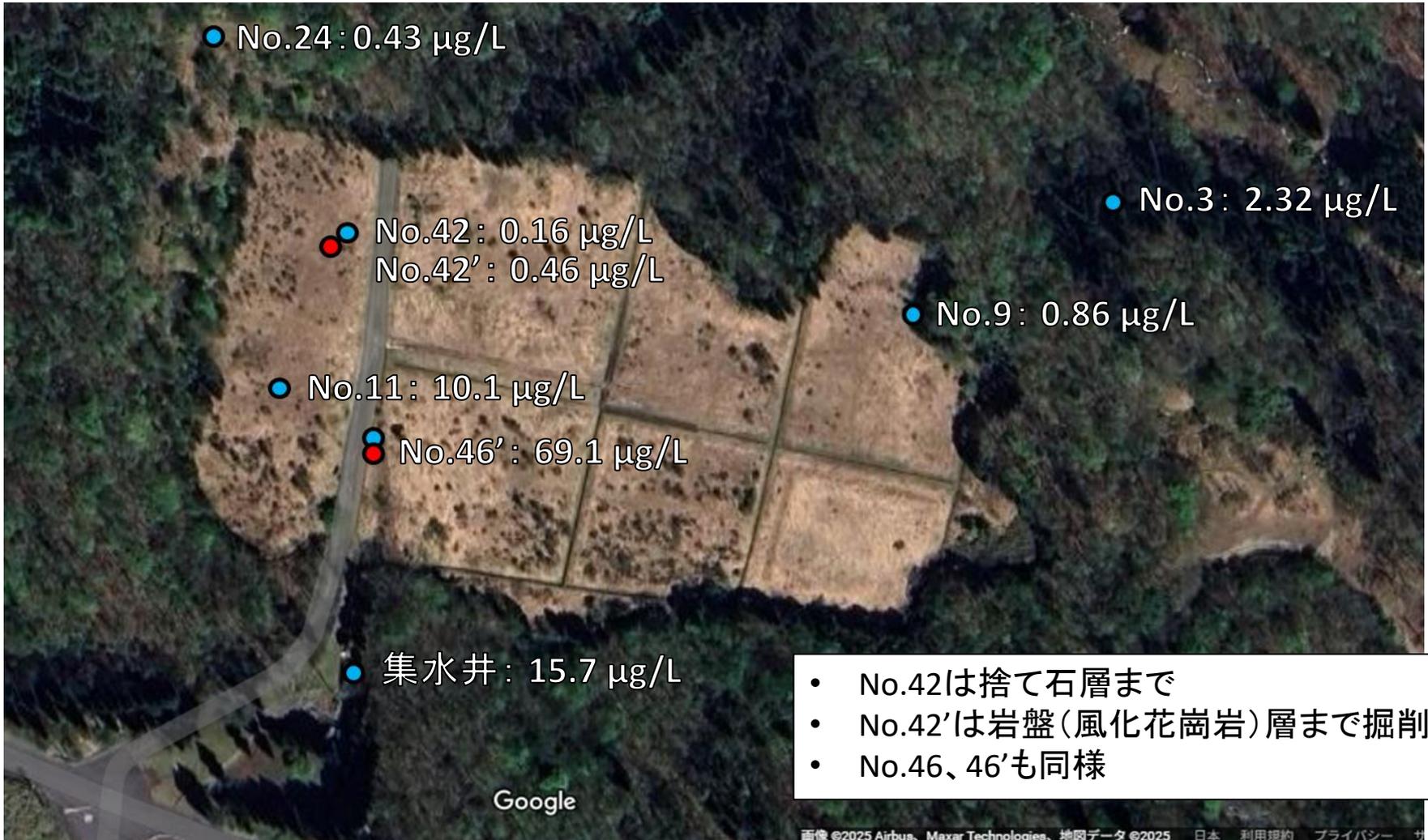


### (3)生活圏付近の核種移行

酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

#### 主要観測サイト1

濃度分布(夜次露天採掘場跡地)



### (3)生活圏付近の核種移行

#### 酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

### 主要観測サイト1

As濃度分布(夜次露天採掘場跡地)



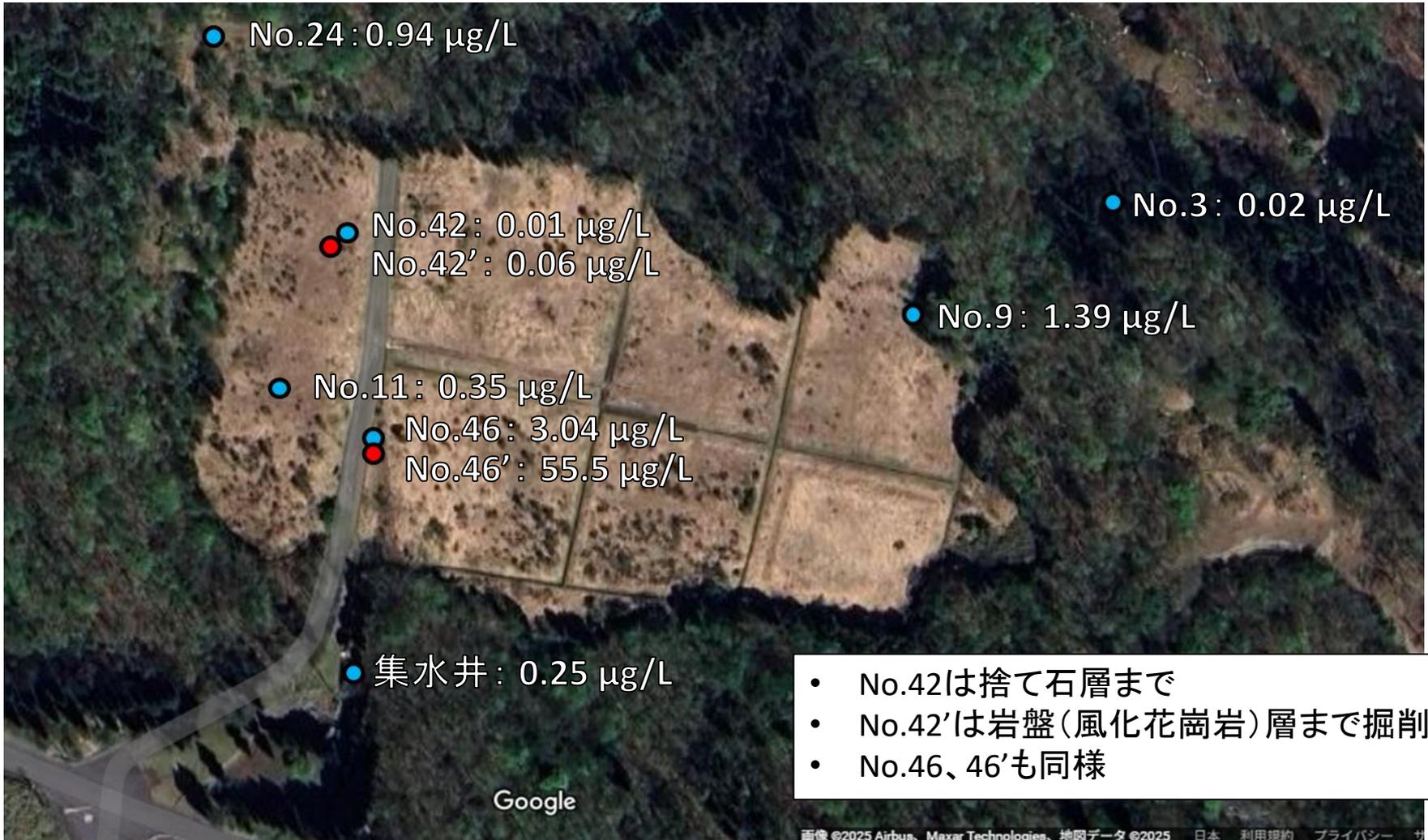
- No.42は捨て石層まで
- No.42'は岩盤(風化花崗岩)層まで掘削
- No.46、46'も同様

### (3)生活圏付近の核種移行

#### 酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

#### 主要観測サイト1

Ce濃度分布(夜次露天採掘場跡地)



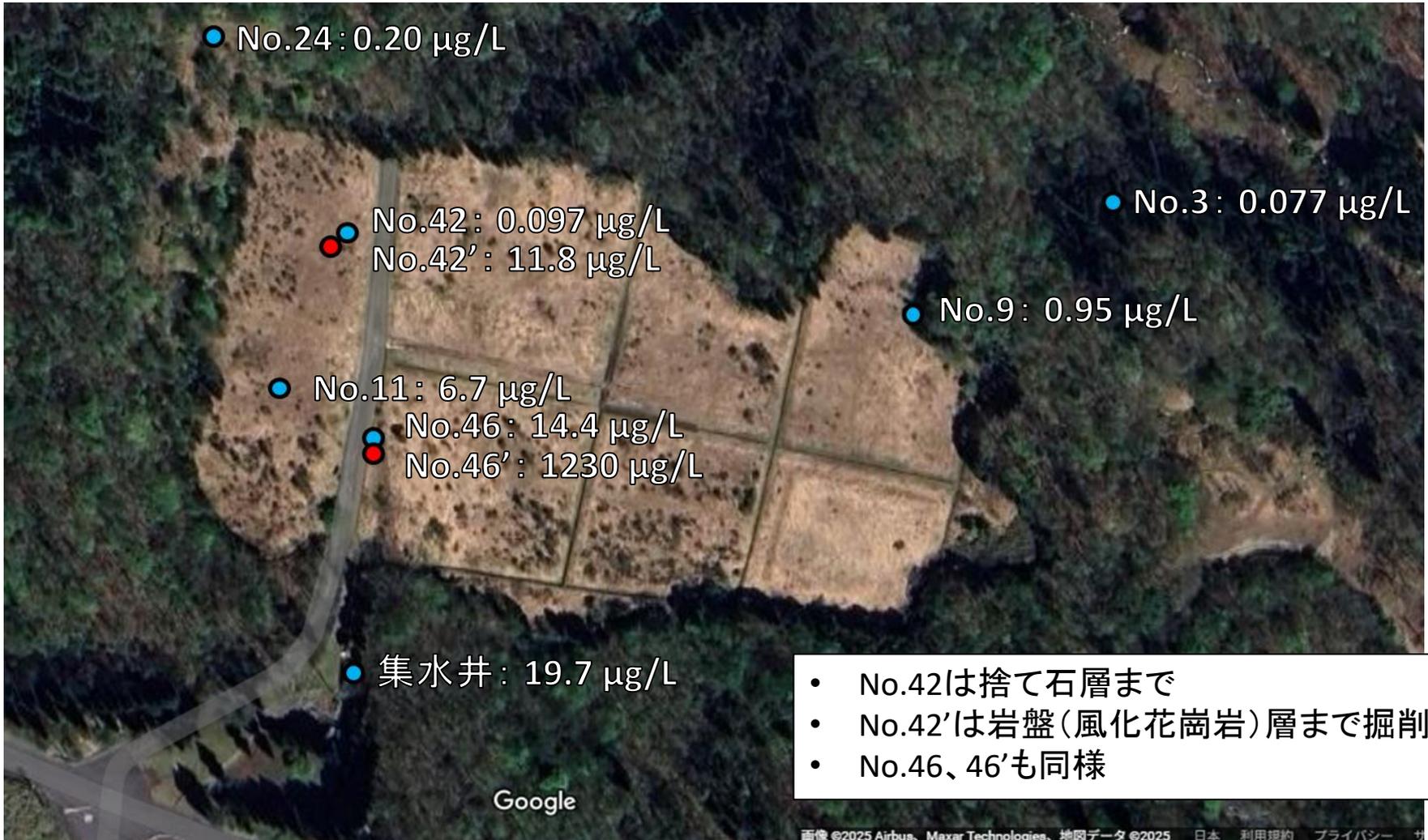
- No.42は捨て石層まで
- No.42'は岩盤(風化花崗岩)層まで掘削
- No.46、46'も同様

### (3)生活圏付近の核種移行

#### 酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

### 主要観測サイト1

Co濃度分布(夜次露天採掘場跡地)



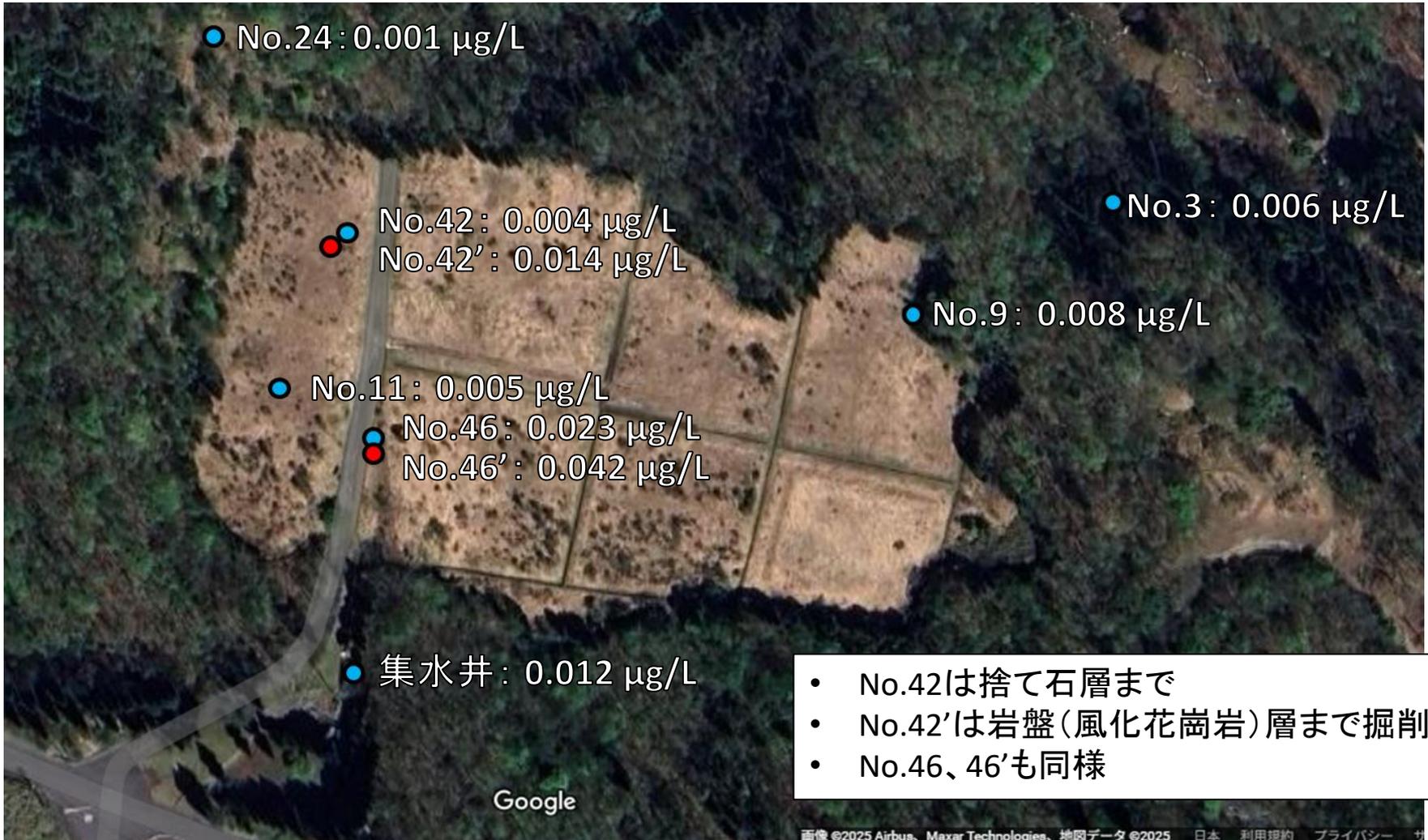
- No.42は捨て石層まで
- No.42'は岩盤(風化花崗岩)層まで掘削
- No.46、46'も同様

### (3)生活圏付近の核種移行

酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

#### 主要観測サイト1

Re濃度分布(夜次露天採掘場跡地)

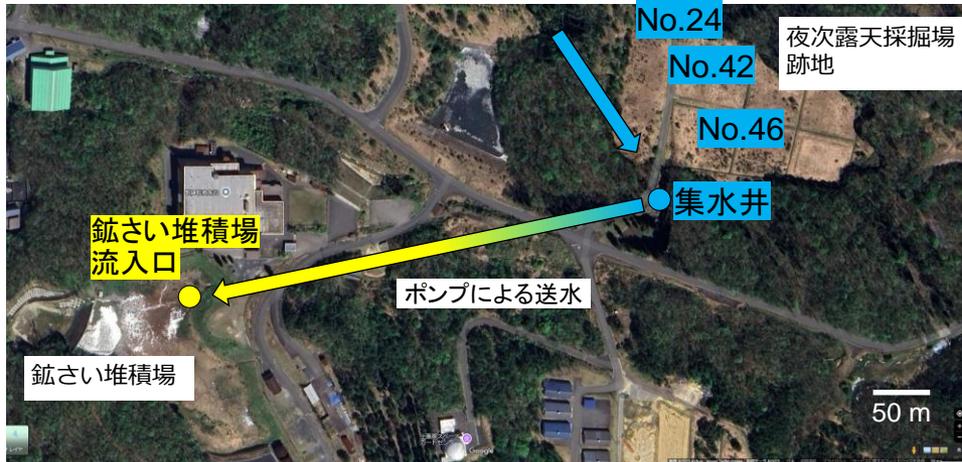


### (3)生活圏付近の核種移行

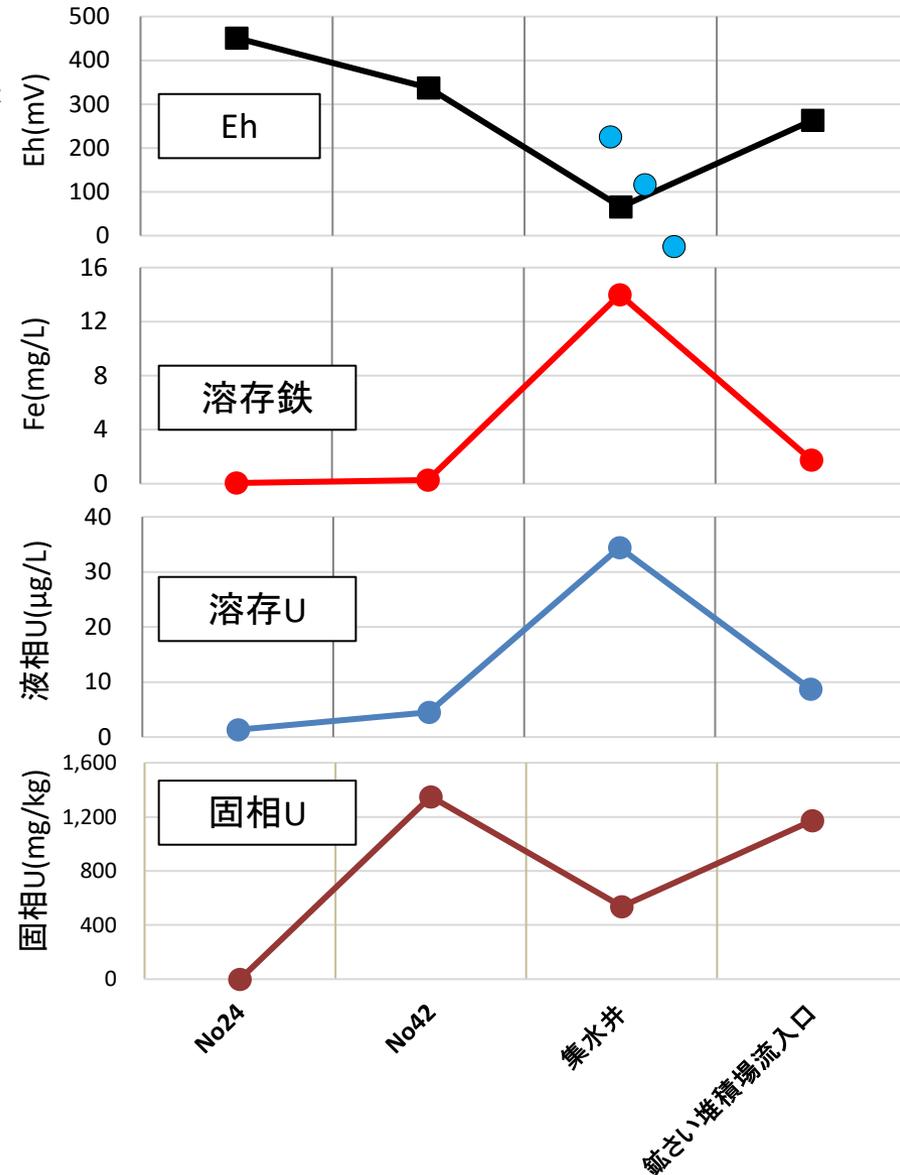
#### 酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

##### 主要観測サイト1および2

##### 夜次露天採掘場跡地～鉍さい堆積場におけるUの動態



- No.24から供給的された酸化的な地下水によってNo.42付近で大量の鉄酸化物が生成し、地下水中の鉄イオンが除去される。この過程で地下水中の溶存酸素が消費される。
- No.46を経て集水井に到達する地下水は鉄酸化物を再溶解し、収着していたUを放出している。
- 集水井では還元的な地下水の供給と空気との接触による酸化が同時に進行し、鉄沈殿の生成によってUは再び自ら除去される。
- 鉍さい堆積場では引き続き溶存鉄の沈殿によって水中のU濃度は減少し続ける。



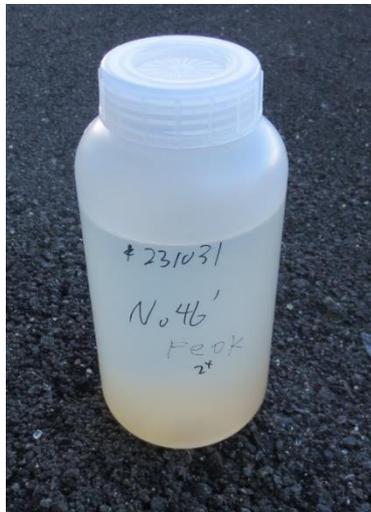
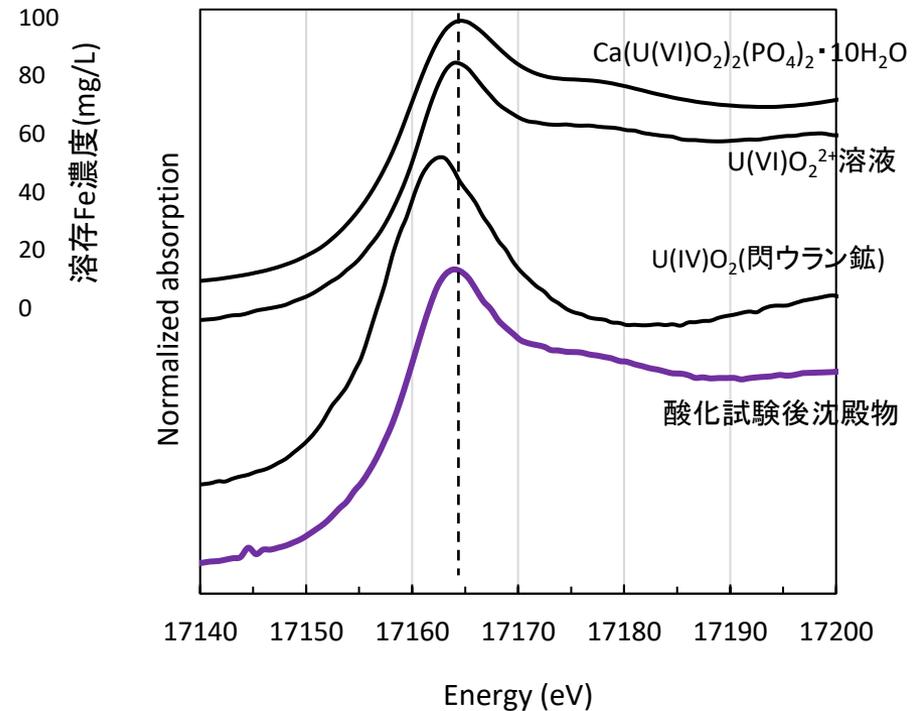
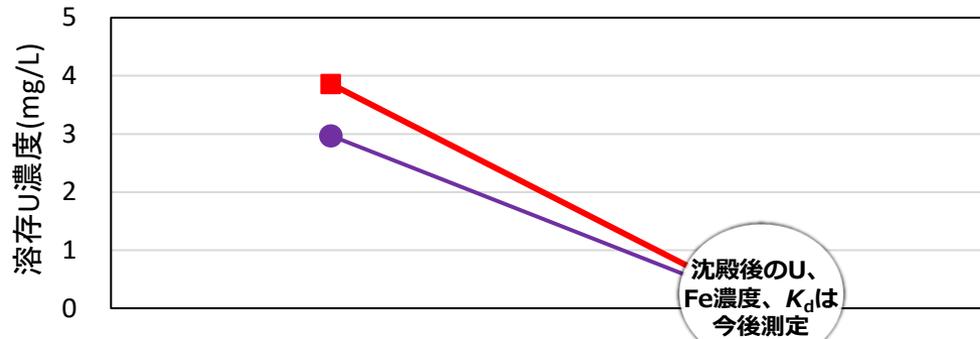
### (3)生活圏付近の核種移行

#### 酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

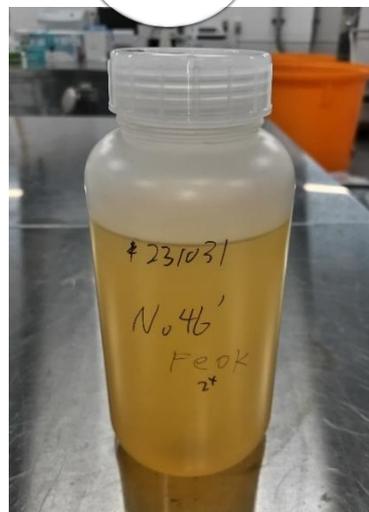
#### 主要観測サイト1

No.46'の地下水について

- No.46'地下水は高濃度のUとFeが溶存している。
- 採取直後は透明であるが、その後徐々に褐色の沈殿が生成。
- 還元的な地下水が地表に湧出した際の核種移行挙動を観察できる可能性がある。



試料採取直後



酸化試験後

- 生成した沈殿物中のUは6価として存在
- 沈殿物の物質同定は今後実施予定

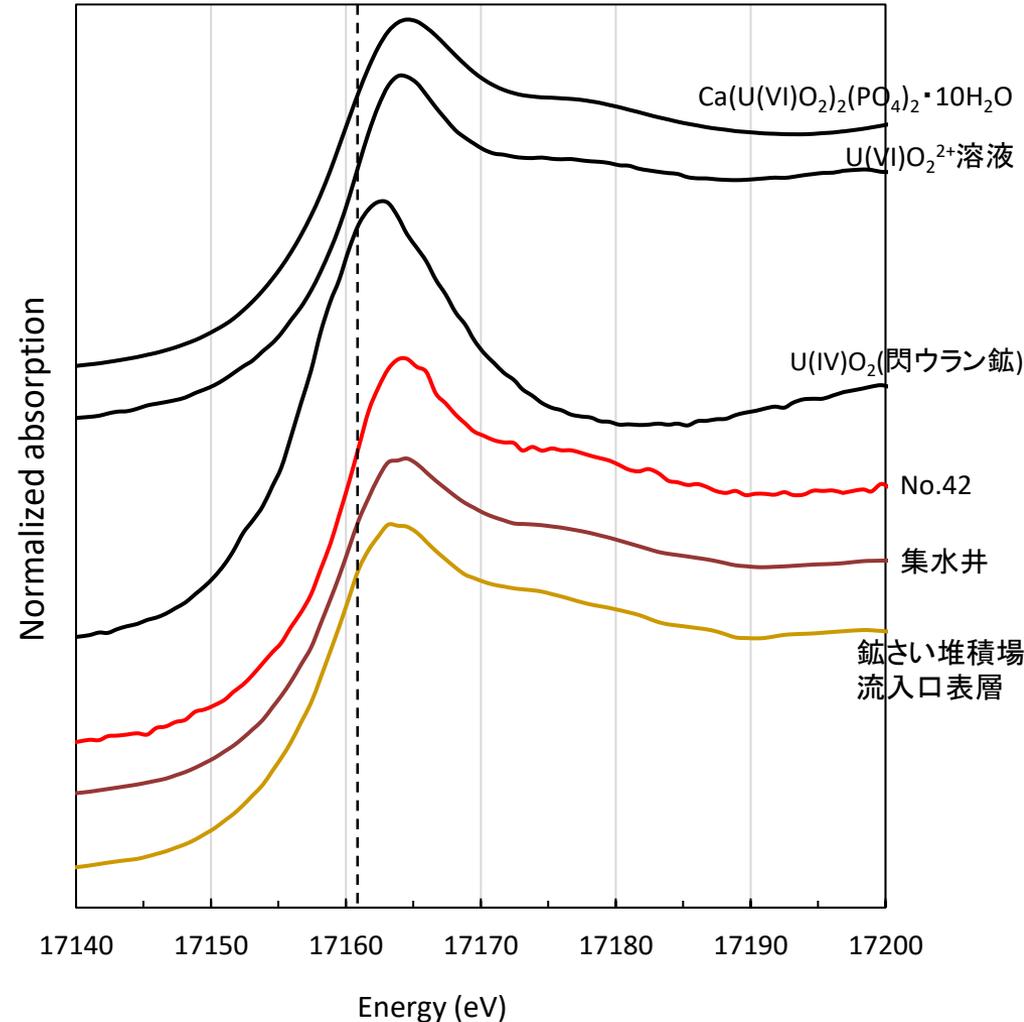
### (3)生活圏付近の核種移行

#### 酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

#### 主要観測サイト1

夜次露天採掘場跡地の赤色の沈殿、鉱さい堆積場の赤色の堆積物について

- 化学組成分析、結晶構造分析、化学状態分析、形状観察等の結果から沈殿物、堆積物はフェリハイドライトが主要な物質であると考えられる。
- 沈殿物中においてUはVI価として取り込まれ堆積していることを確認(右図)。
- 地下水と沈殿物のウランの分配係数は $1.5 \times 10^4 \sim 3.0 \times 10^5$ 。
- 溶存鉄を含む地下水の酸化過程において溶存U濃度が大きく減少することを示唆。



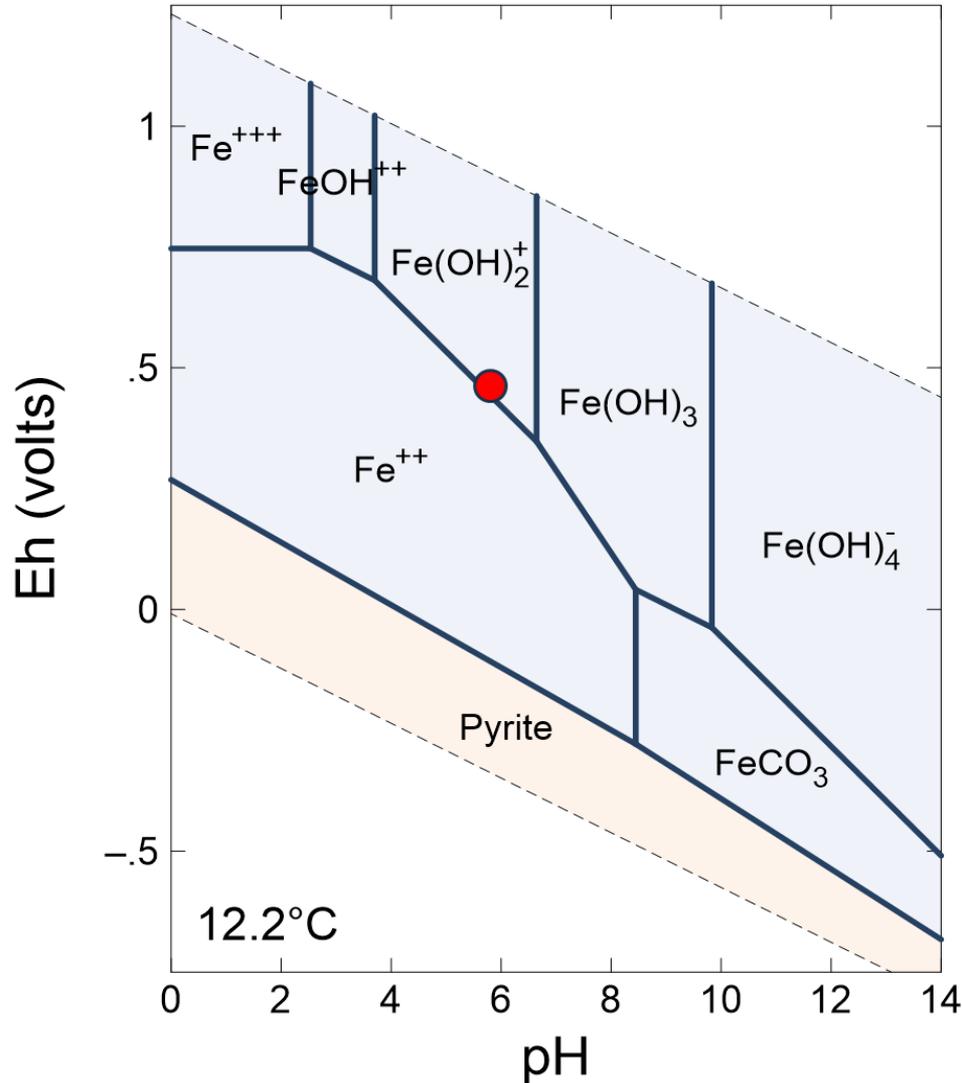
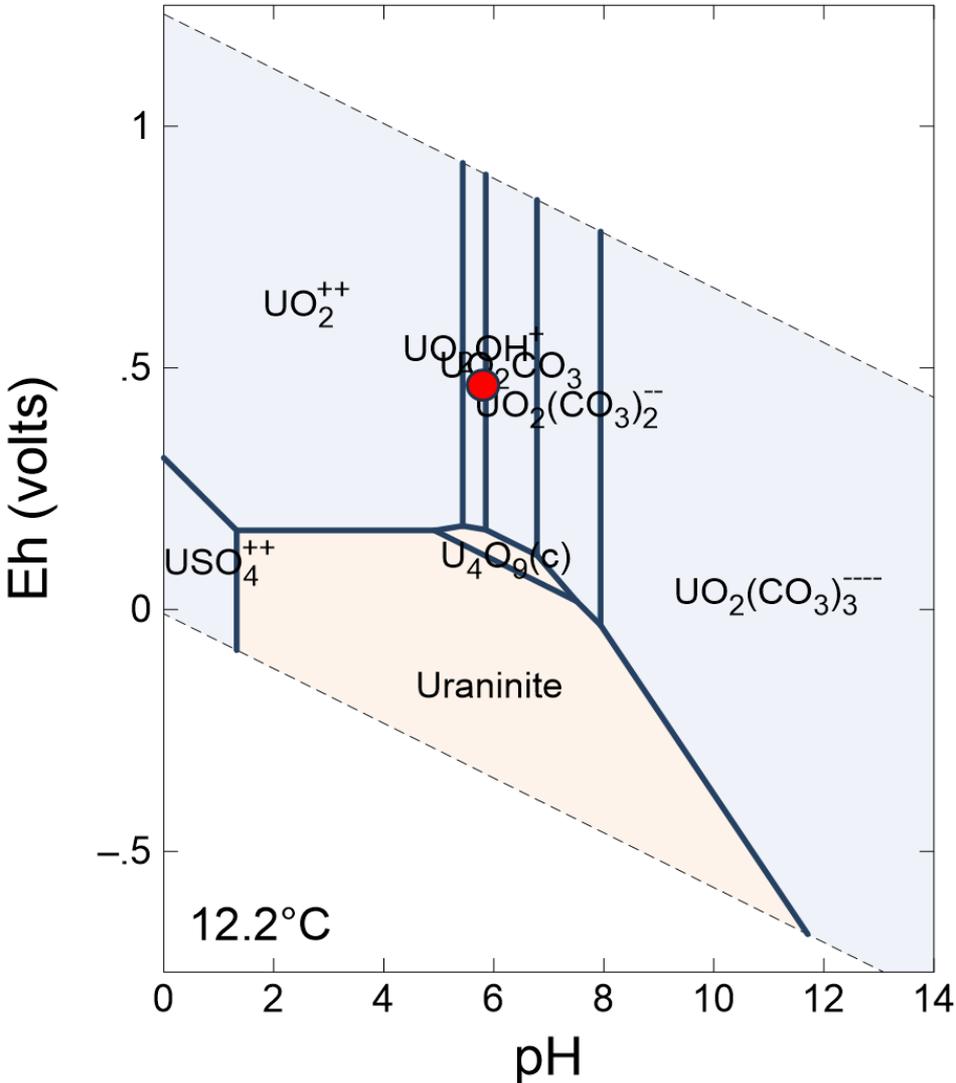
次ページ以降に各観測点における  
電位(Eh)-pH図を示す。

### (3)生活圏付近の核種移行

#### 酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

#### 主要観測サイト1

No.24 (●:観測値)

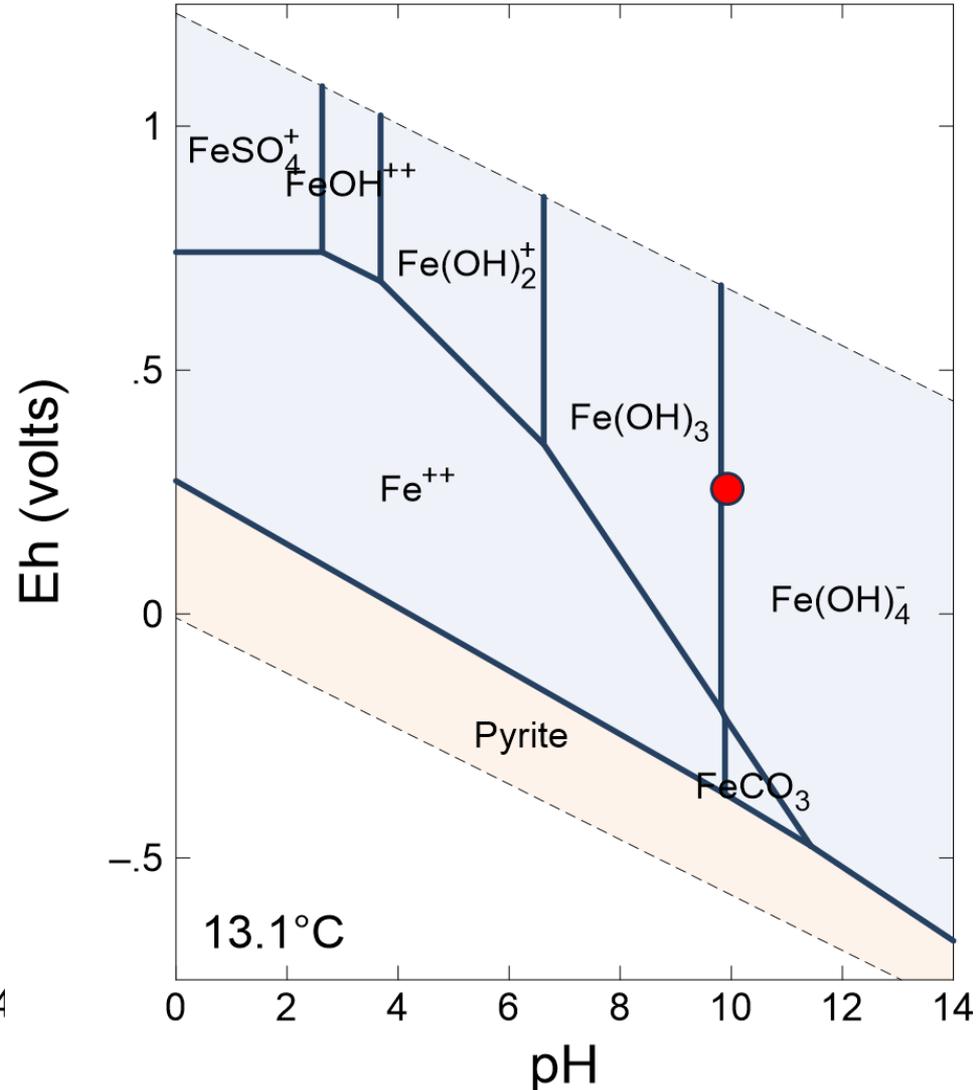
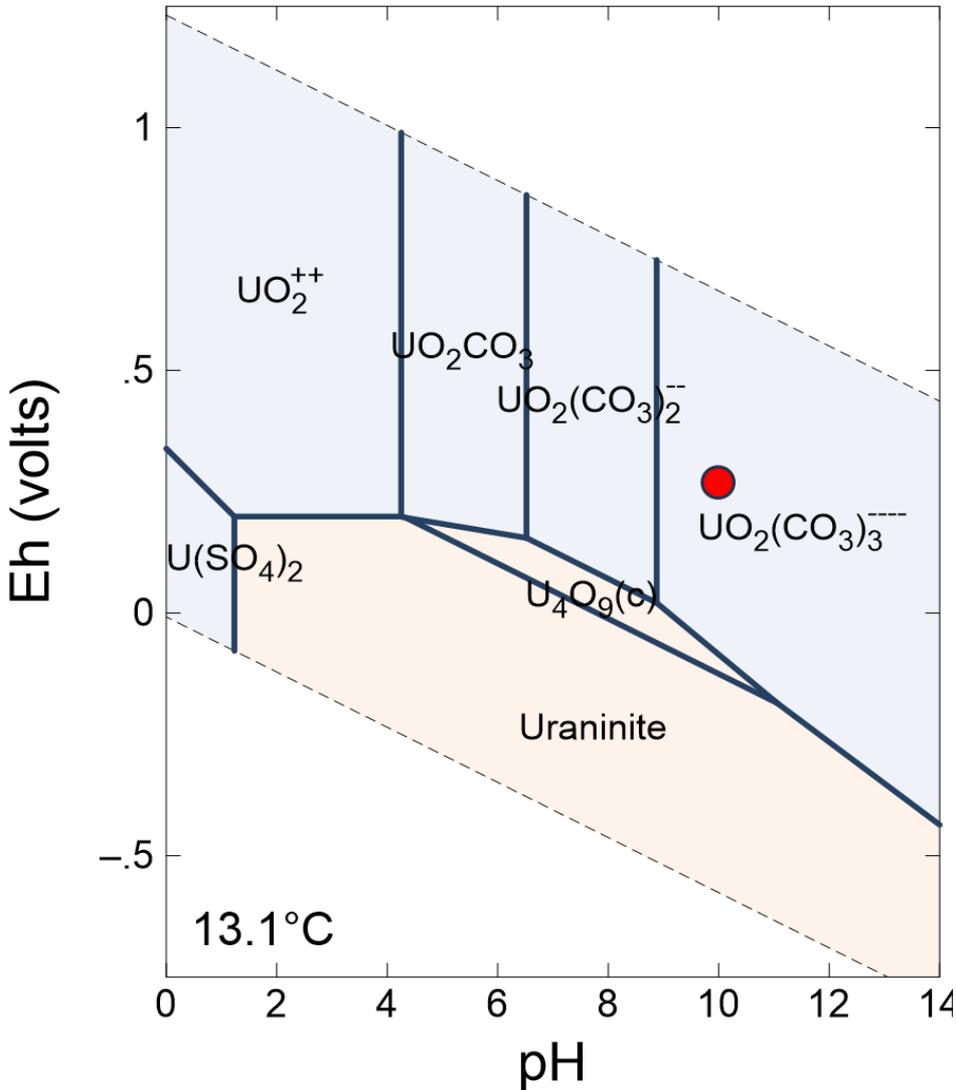


### (3)生活圏付近の核種移行

酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

#### 主要観測サイト1

No.42 (●:観測値)

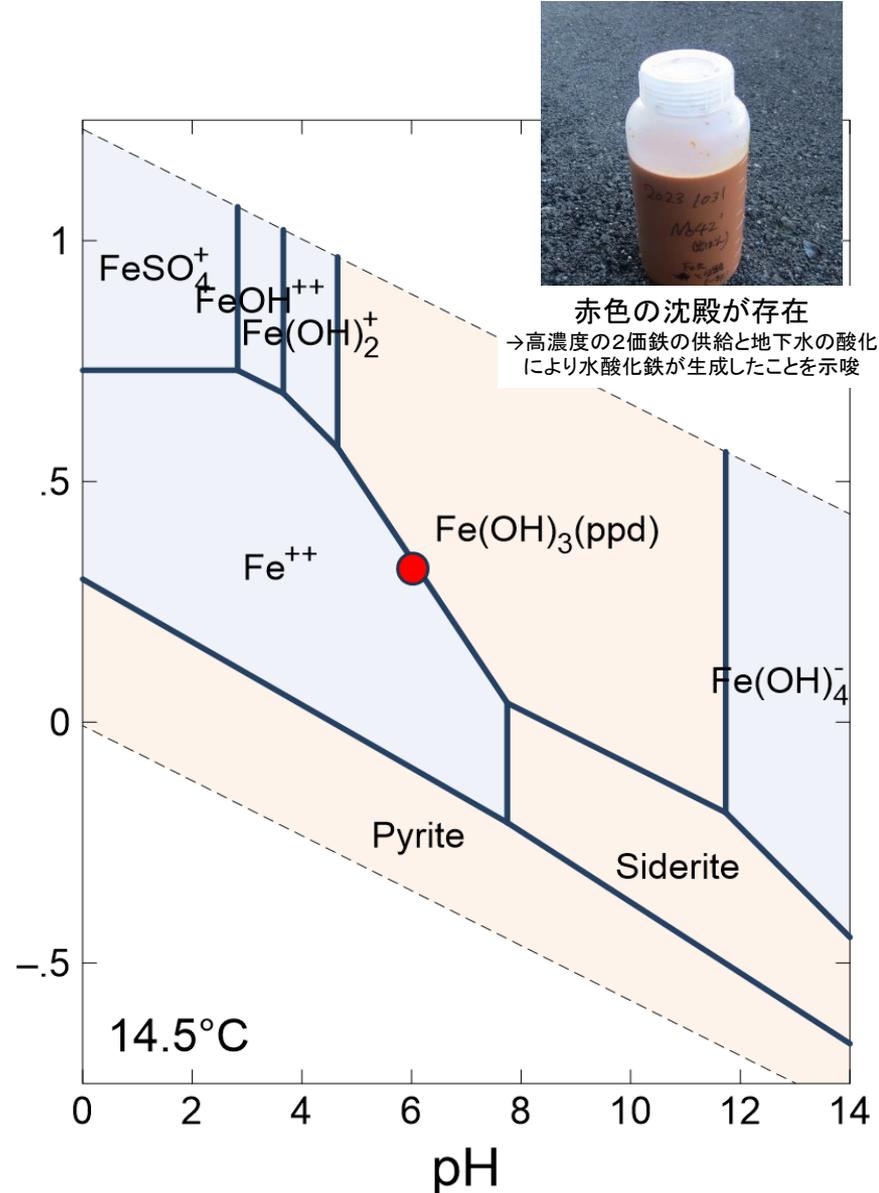
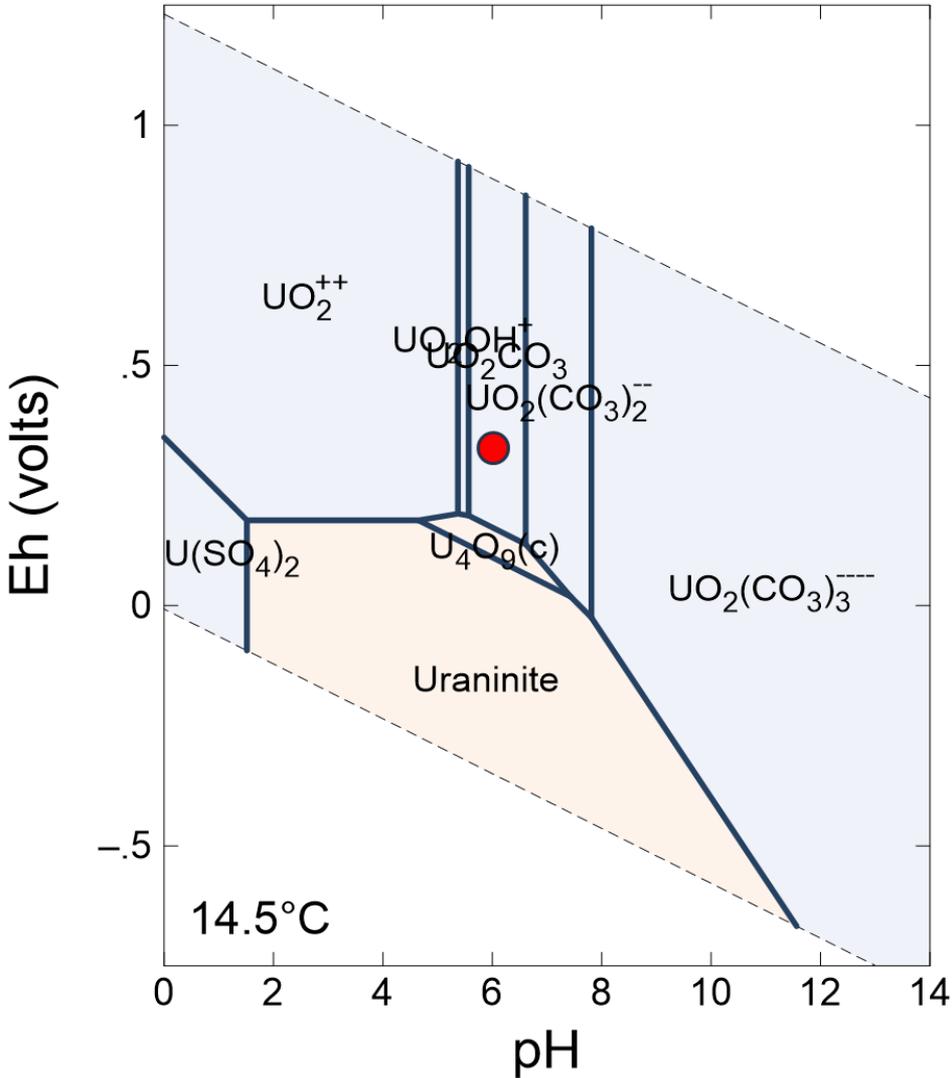


### (3)生活圏付近の核種移行

#### 酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

#### 主要観測サイト1

No.42' (●:観測値)

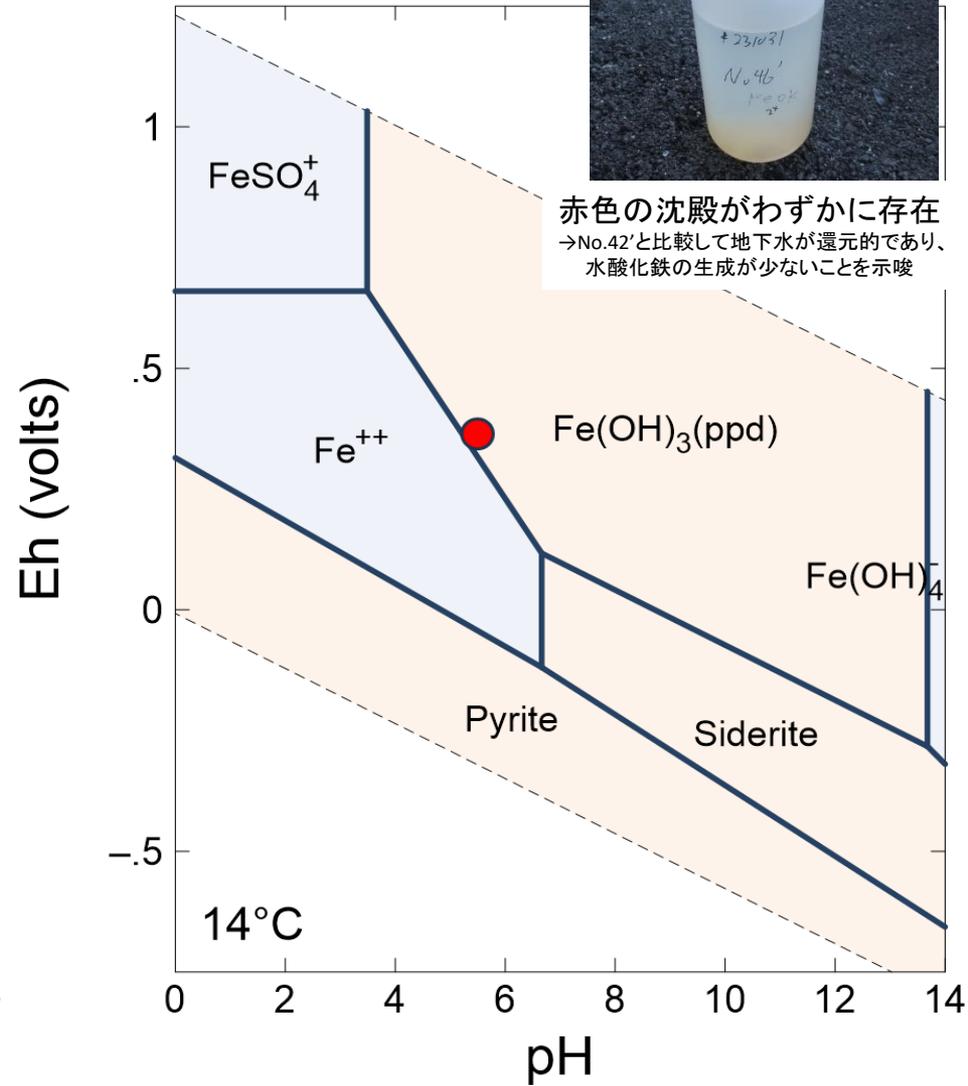
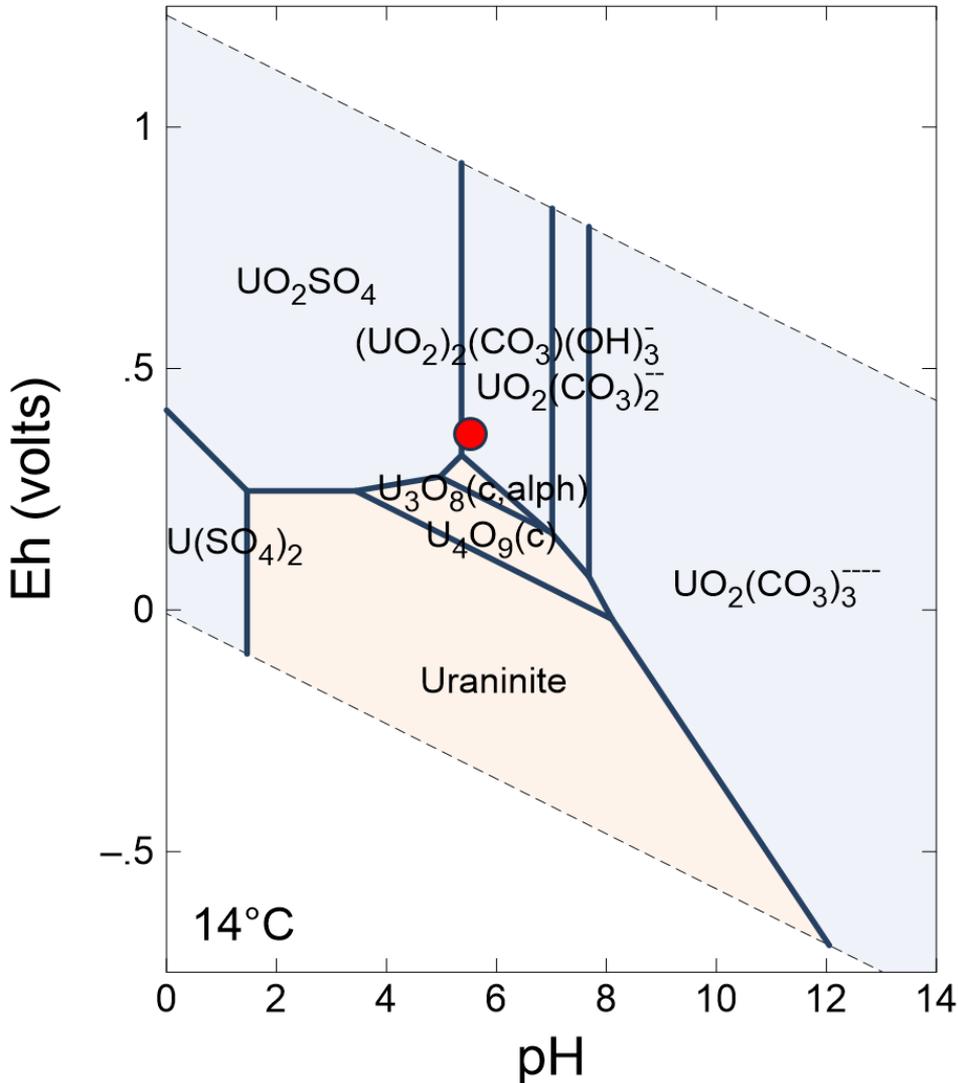


### (3)生活圏付近の核種移行

#### 酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

#### 主要観測サイト1

No.46' (●:観測値)

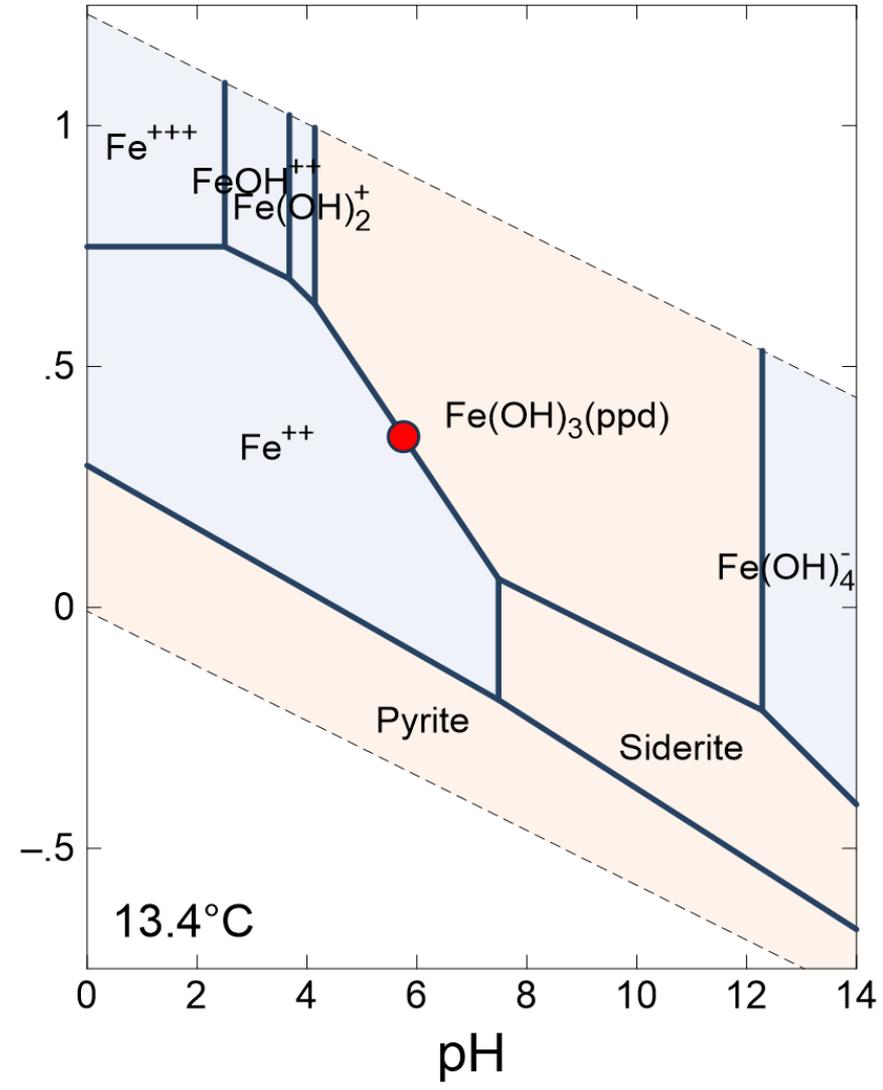
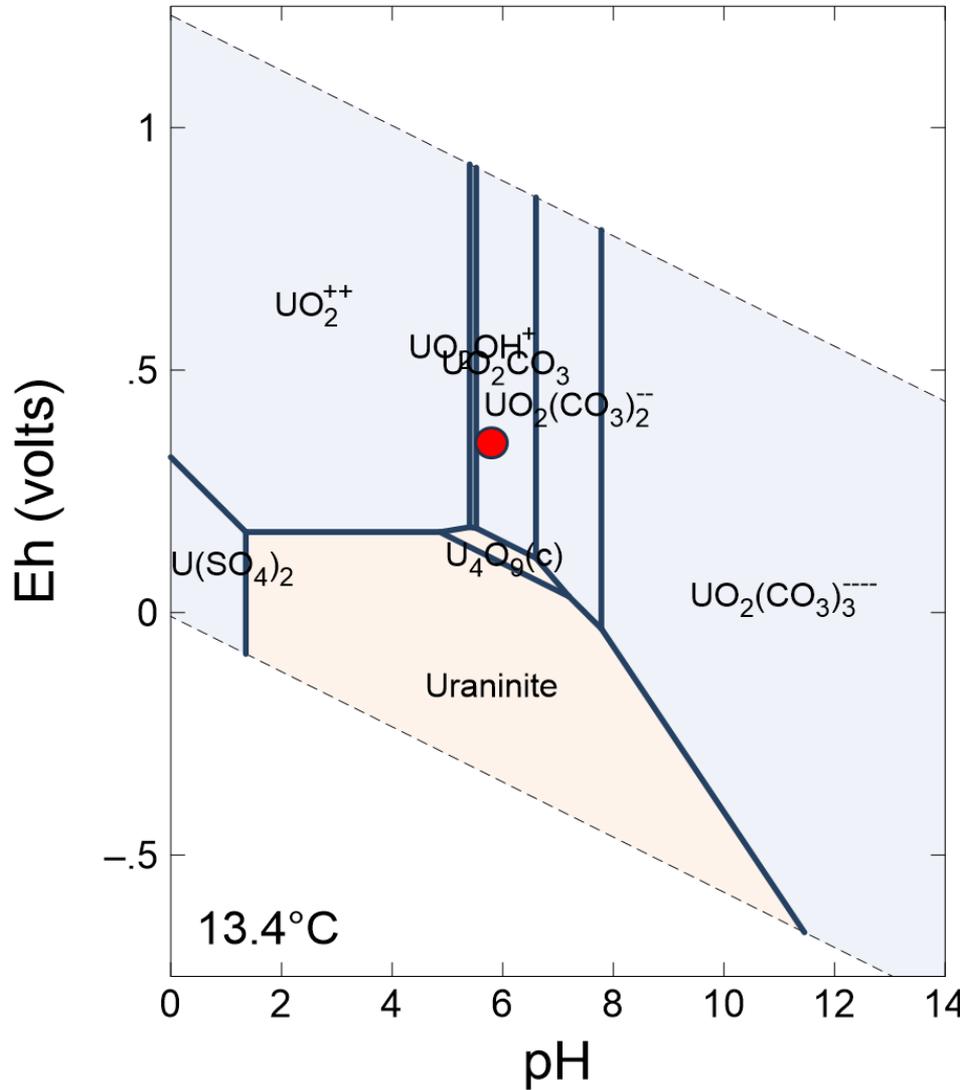


### (3)生活圏付近の核種移行

酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

#### 主要観測サイト1

No.11 (●:観測値)

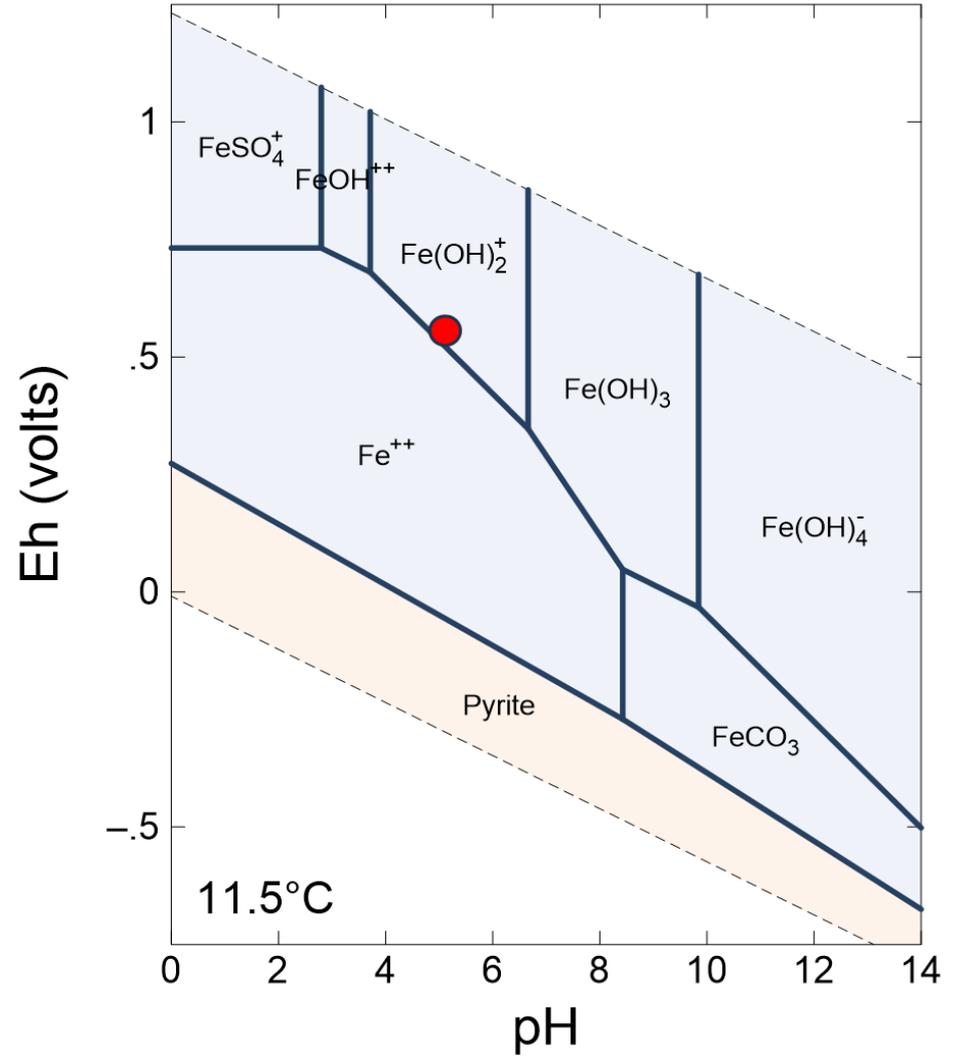
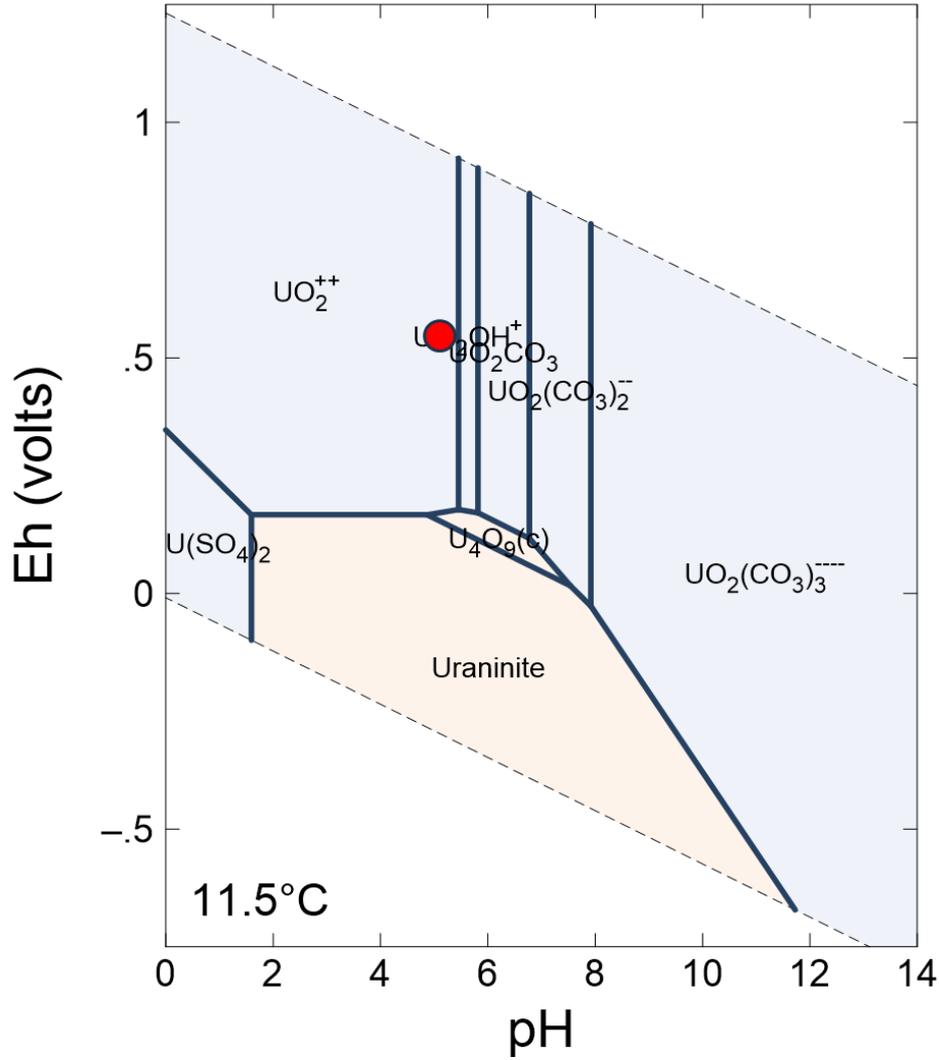


### (3)生活圏付近の核種移行

#### 酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

### 主要観測サイト1

No.9 (●:観測値)

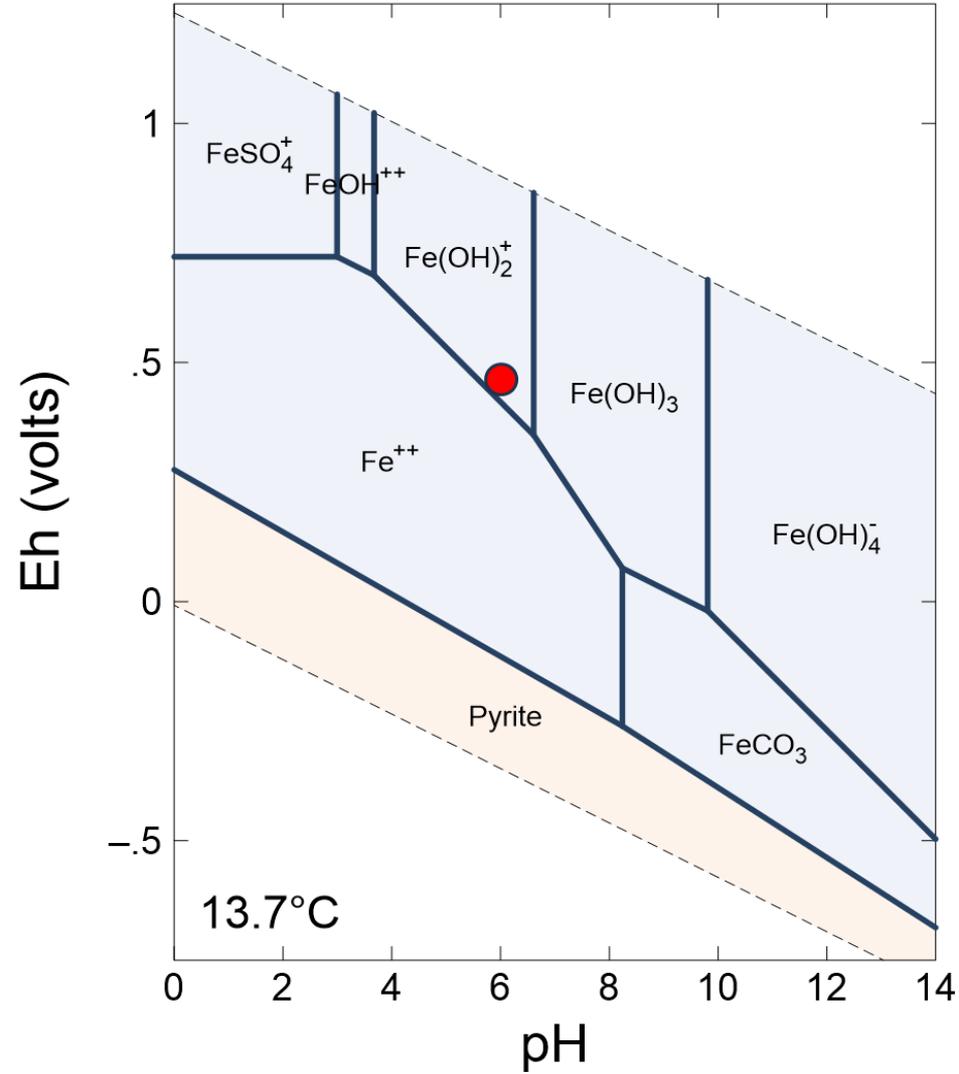
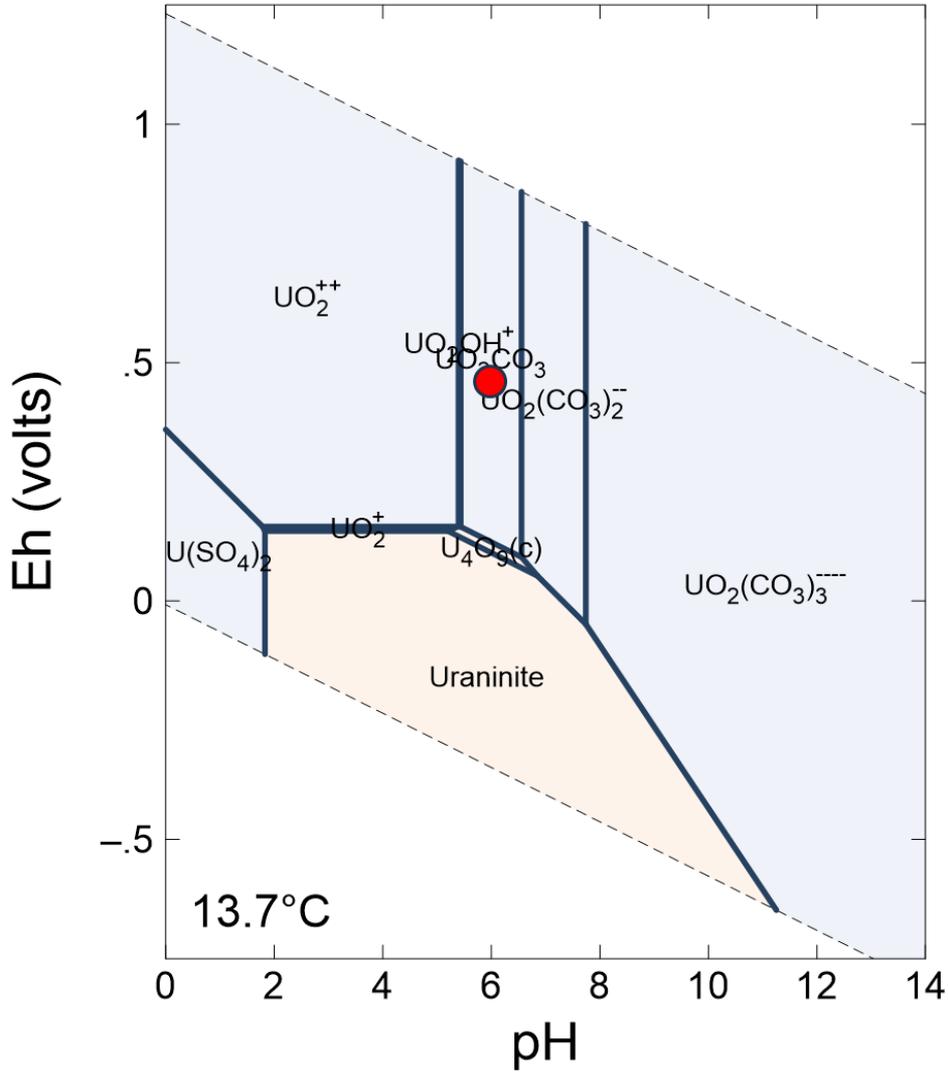


### (3)生活圏付近の核種移行

#### 酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

### 主要観測サイト1

No.3 (●:観測値)

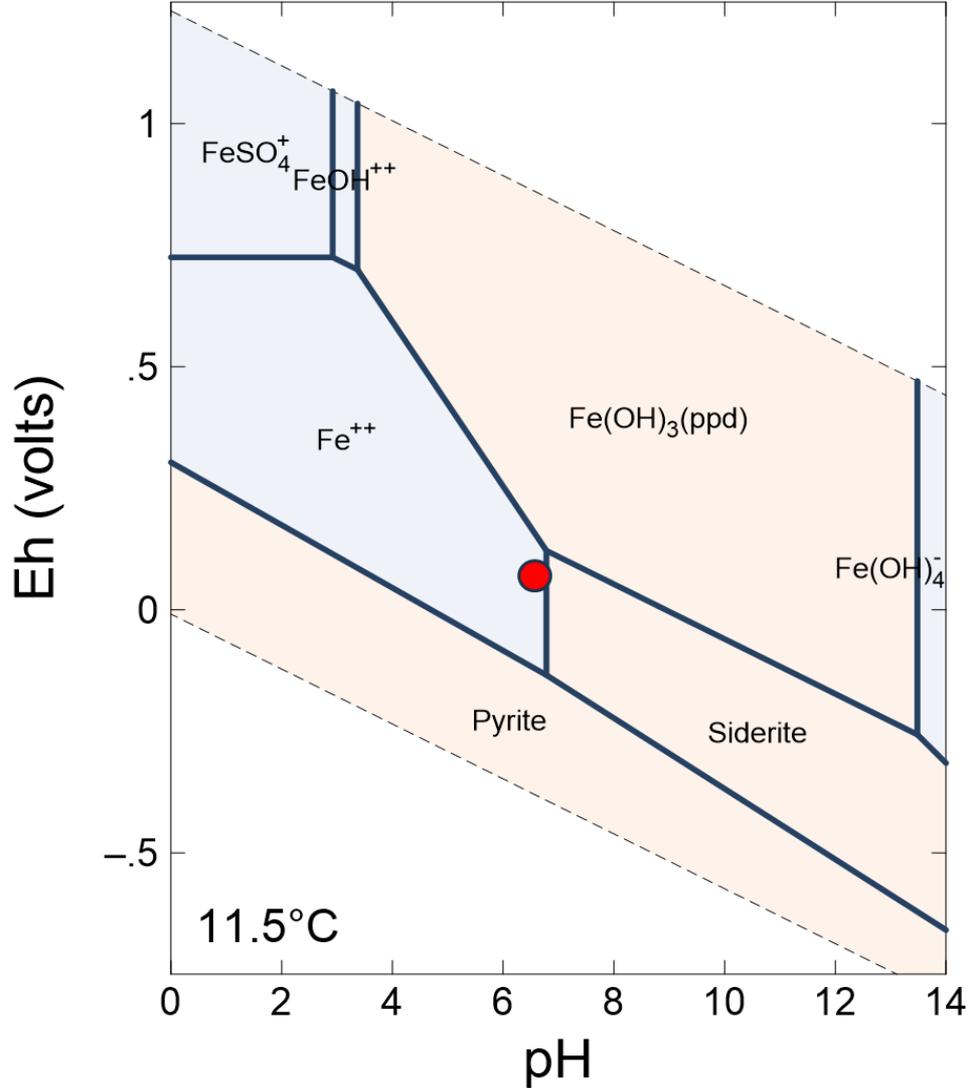
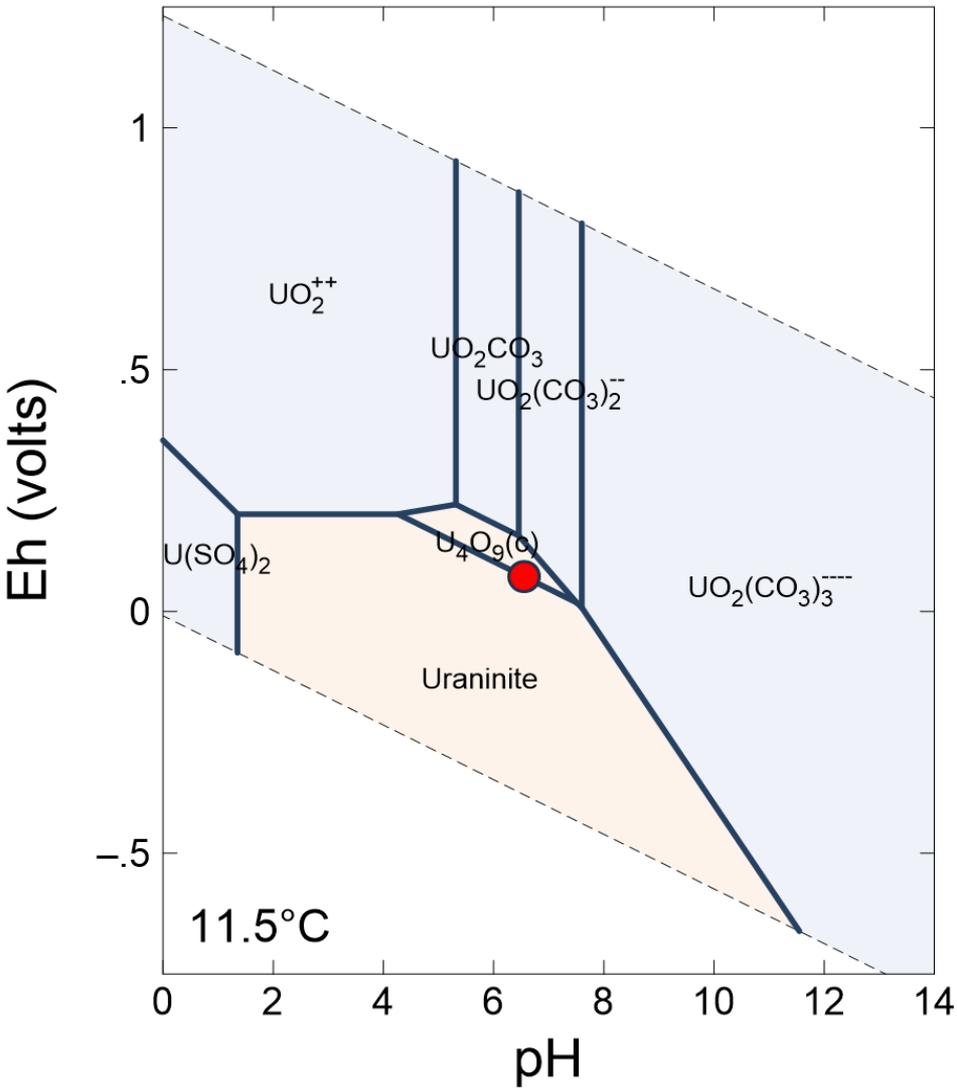


### (3)生活圏付近の核種移行

酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

#### 主要観測サイト1

集水井 (●: 観測値)

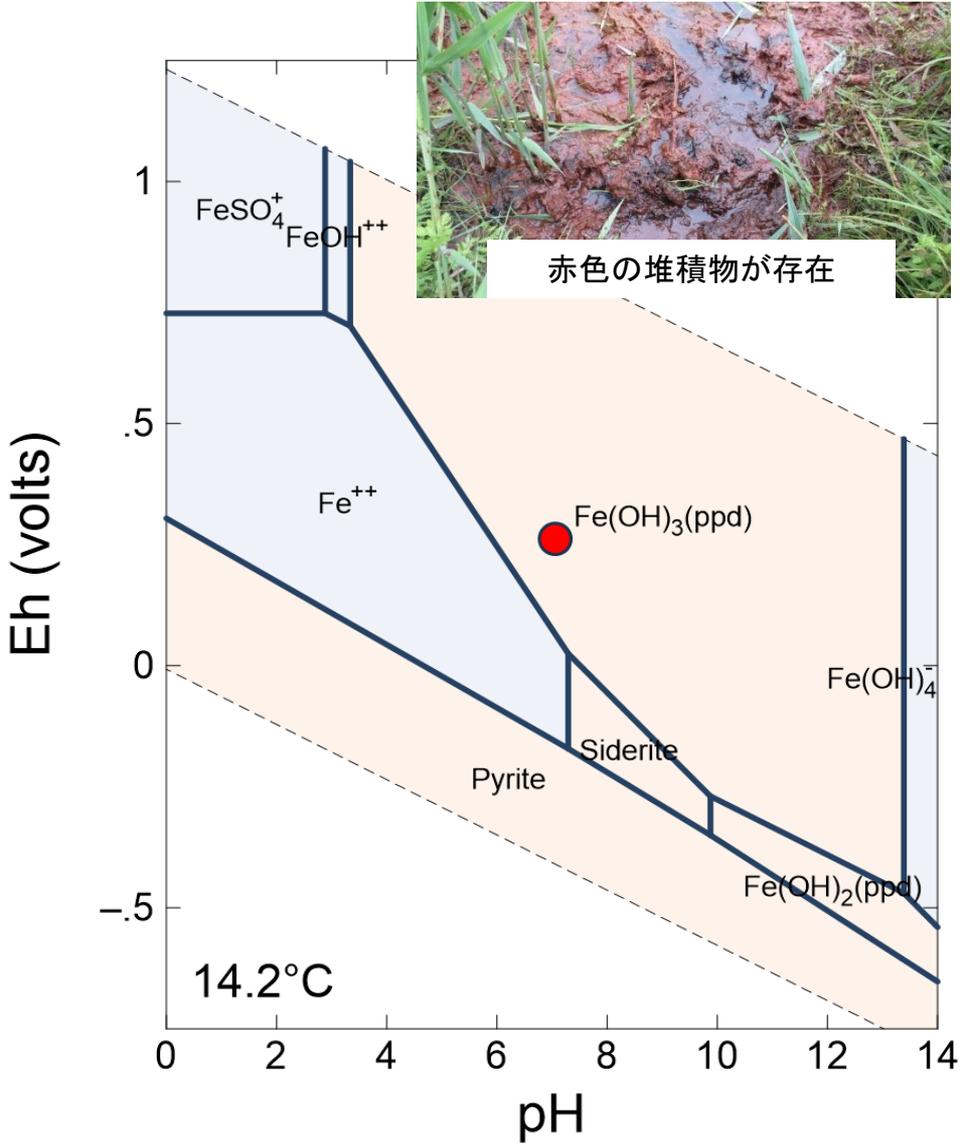
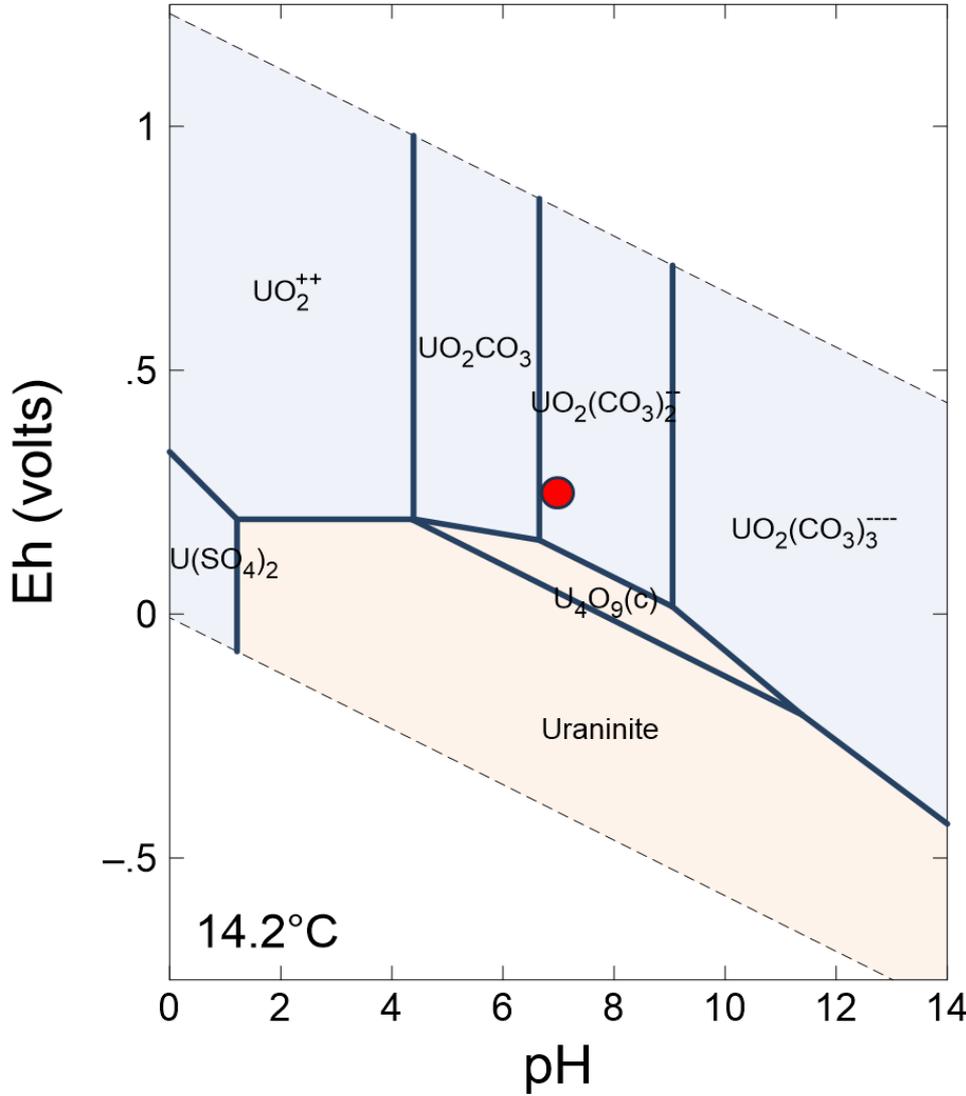


### (3)生活圏付近の核種移行

#### 酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

#### 主要観測サイト2

鉍さい堆積場流入口 (●: 観測値)

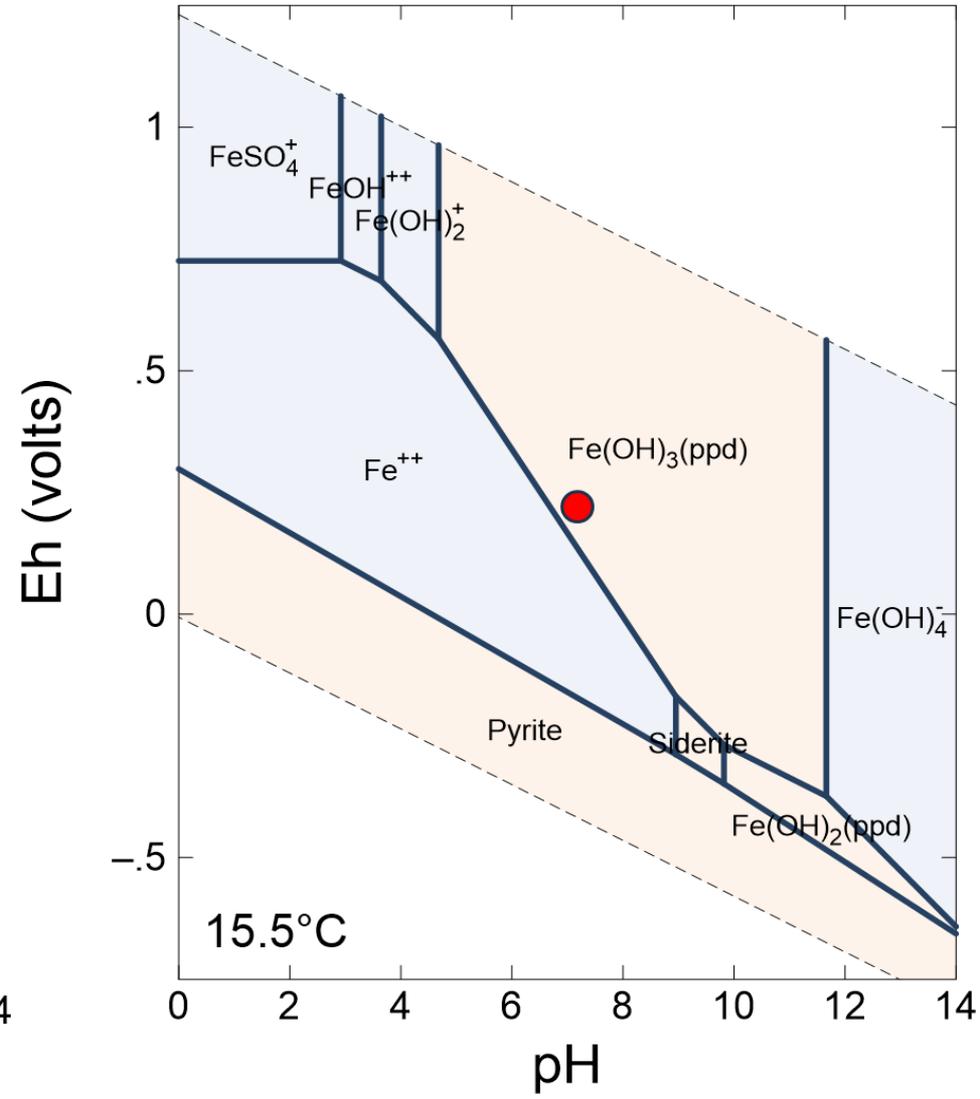
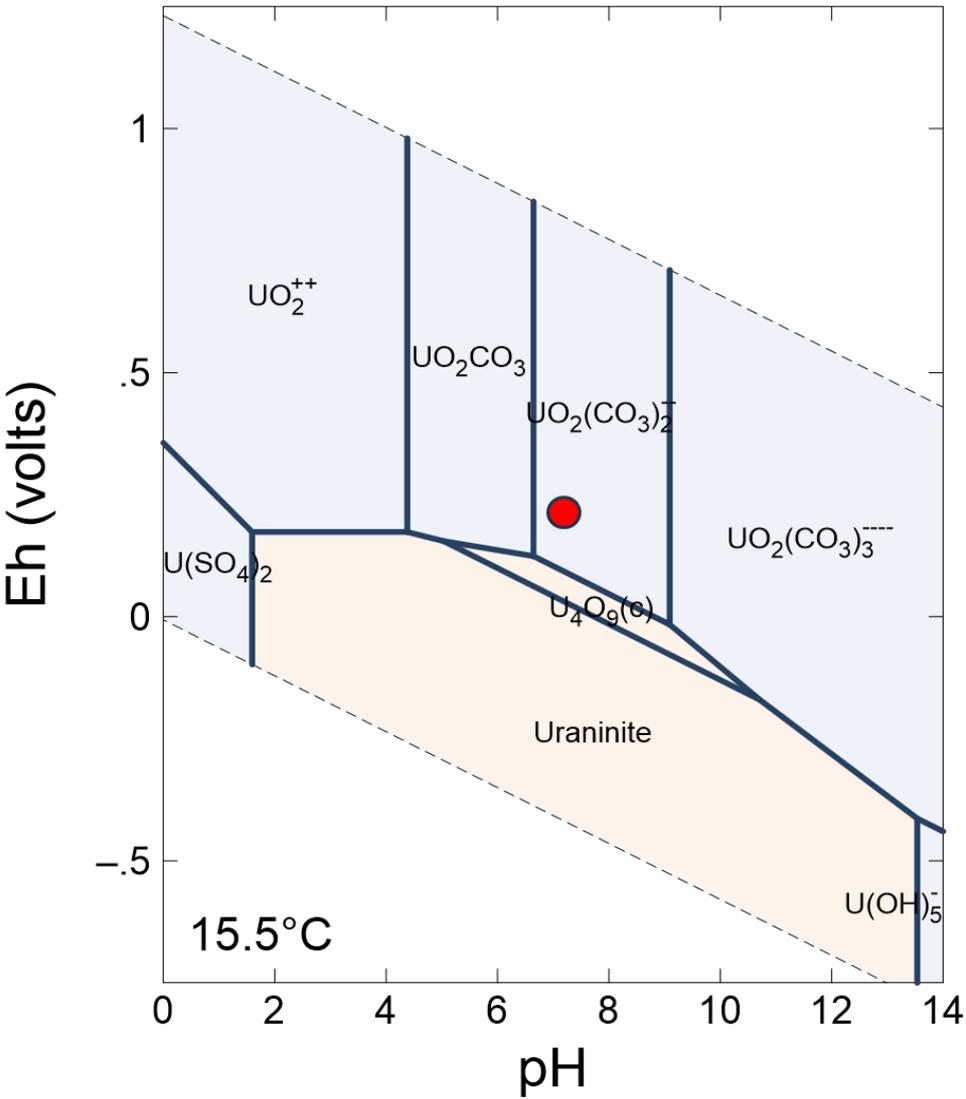


### (3)生活圏付近の核種移行

#### 酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

#### 主要観測サイト2

鉍さい堆積場池水 (●: 観測値)

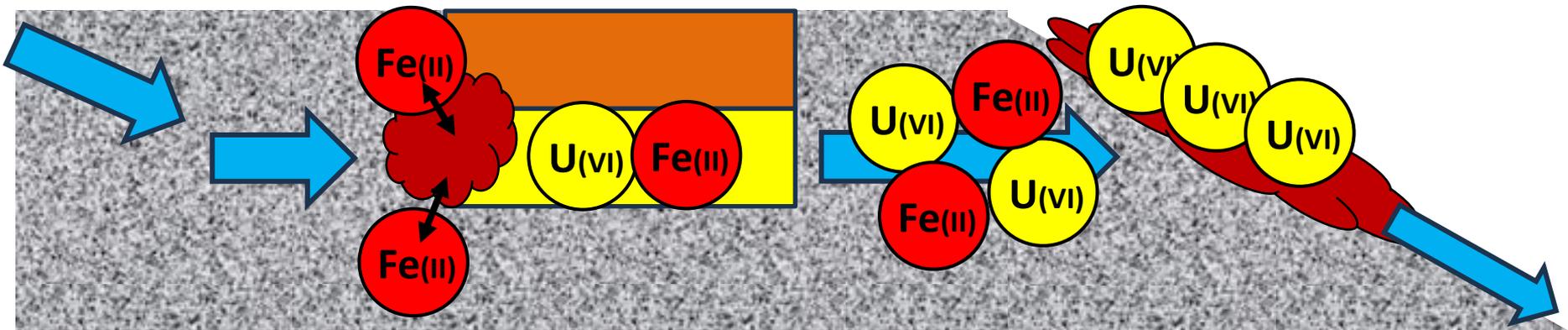


### (3)生活圏付近の核種移行

酸化・還元雰囲気の変化による核種の移行・遅延現象の理解

## 主要観測サイト1

### 夜次露天採掘場跡地におけるウランの移行挙動の推定



酸化的環境 還元的環境 酸化的環境

- 地下水の流入
- 溶存2価鉄 ( $\text{Fe}^{2+}$ ) による地下水の還元
- 水酸化鉄 (フェリハイドライト) の生成

- 捨て石からのウラン、鉄の溶出
- 表層環境に湧出後、水酸化鉄 (フェリハイドライト) の生成
- フェリハイドライトによる溶出ウランの除去、堆積

## 4.2.2.2 重要シナリオ・モデル・パラメータ検討

### 生活圏付近の核種移行

### 浅地中～GBIにおける核種移行への酸化還元反応の影響

#### 主要観測サイト2(鉱さい堆積場)

##### 1. 還元の影響

##### 1.1 坑水中の元素の化学状態評価：目的・概要

6箇所(右図)で坑水を定期定点採取する。元素濃度、元素の化学状態等の場所・季節による変化を調べ、坑水に溶存しているウラン等の化学状態等に及ぼす諸因子を明らかにする。このために必要な元素化学形態の分析手法の構築を行う。

###### 1) 元素・陰イオン濃度の季節変化

元素の化学状態評価における基礎データとしての元素・陰イオン濃度の季節変化を調べる。

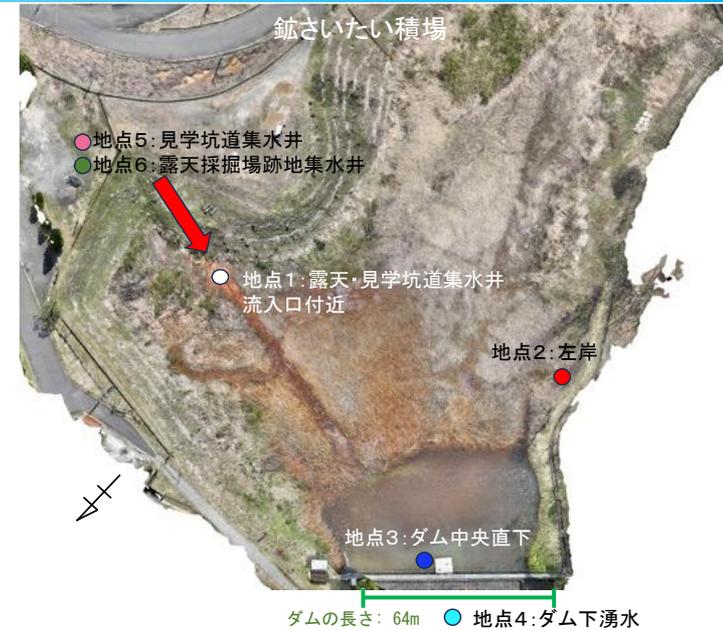
###### 2) 腐植物質の特定・分離回収・特性評価

地下水等によるアクチノイドの移行に有機物が関与することが指摘されている。代表的有機物である腐植物質を分離回収し特性を評価し、実環境中での元素移行に及ぼす影響を明らかにする。

###### 3) 坑水・腐植物質のSEC-UV-ICPMS法<sup>注1)</sup>による分析

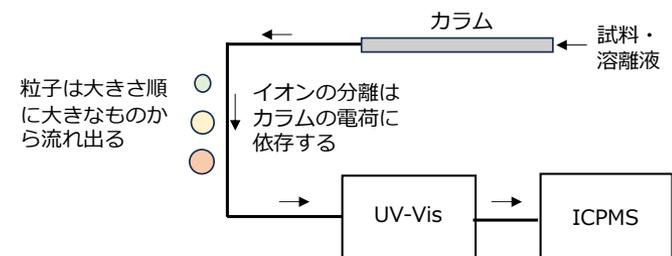
粒子状形態(疑似コロイド等)、中性分子、イオン等をカラムで分離し、UV吸収特性や元素定性分析を通じて、元素の化学状態の解明を目指す。

注1) SEC-UV-ICPMS法: サイズ排除カラムにより成分を分離し、カラムからの溶離液を紫外吸収光度計とICPMSにオンラインで順次流し、紫外吸収と元素の関係を調べる方法



#### 坑水の定期定点採取位置

ダム下湧水: 未確認だが鉱さい堆積場の水が浸透して地表に現れた水と考えられている



SEC-UV-ICPMS分析の概略

### (3)生活圏付近の核種移行

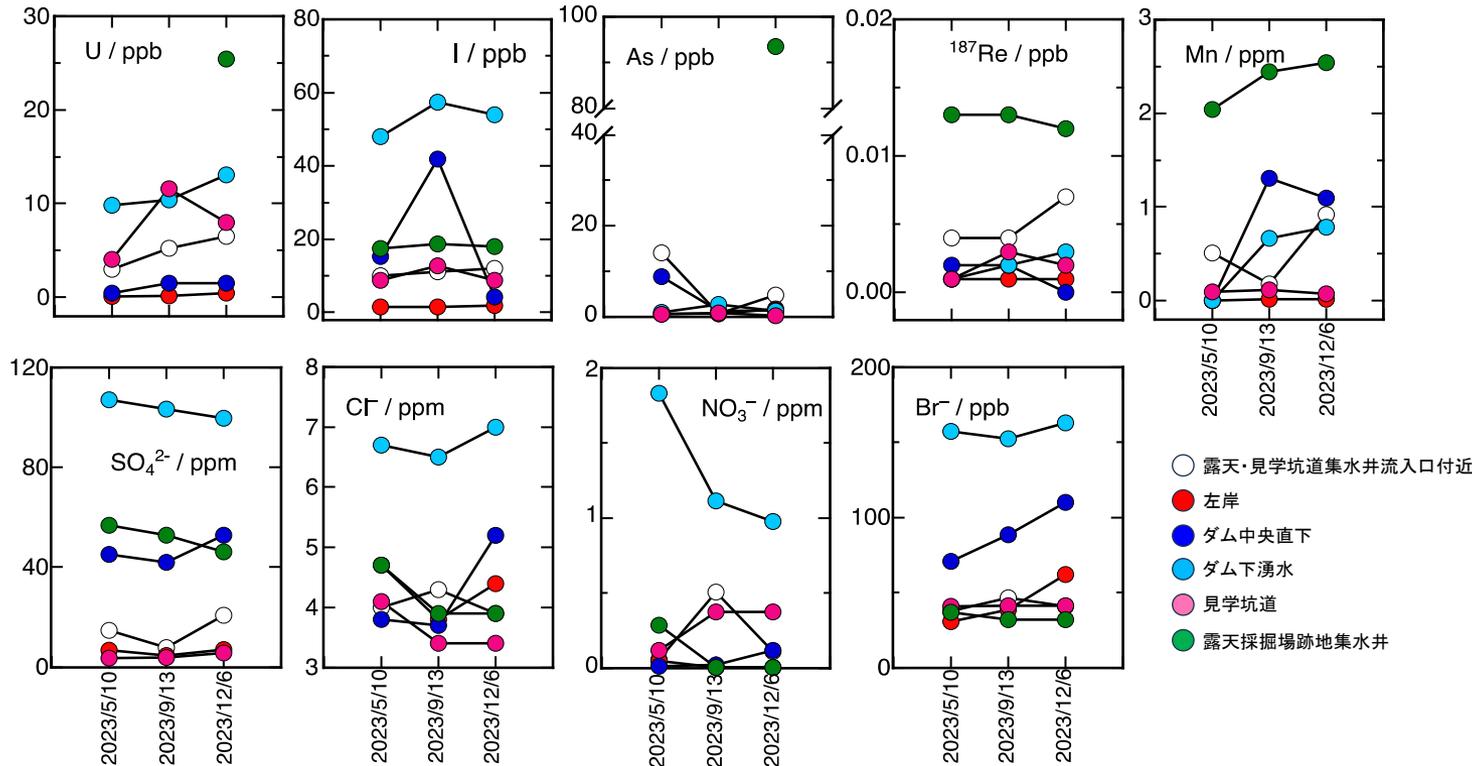
#### 浅地中～GBIにおける核種移行への酸化還元反応の影響

#### 主要観測サイト2(鉍さい堆積場)

##### 1.1 坑水中の元素の化学状態評価

##### 1) 元素・陰イオン濃度の季節変化

5、9、12月に定期定点採取した試料に対して実施



- ✓ 露天採掘場跡地で U, As, Re, Mn濃度が高い
- ✓ ダムの池水の元素濃度変動が比較的大きい
- ✓ 池水以外では概ね安定
- ✓ ダム下湧水ではRe以外の陰イオン濃度が高い

### (3)生活圏付近の核種移行

#### 浅地中～GBIにおける核種移行への酸化還元反応の影響

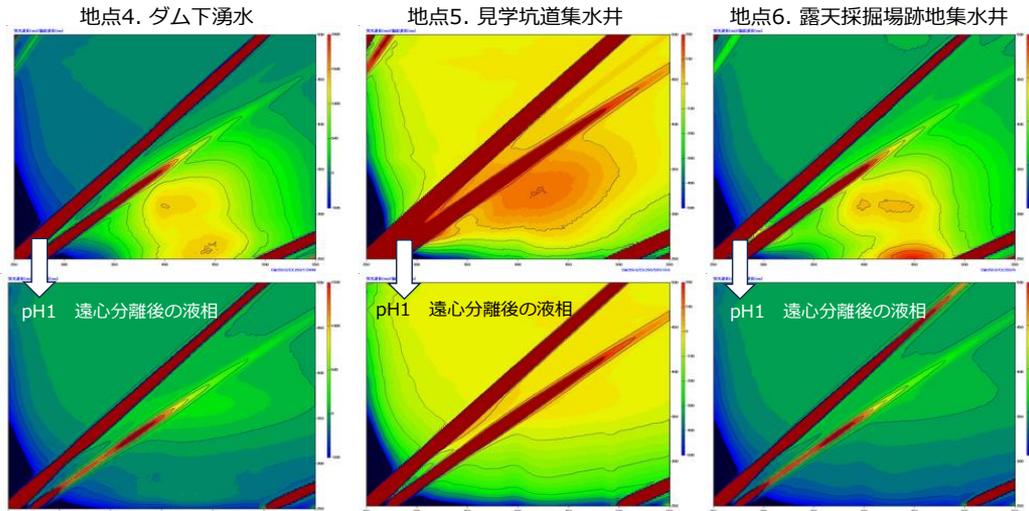
### 主要観測サイト2(鉍さい堆積場)

#### 1.1 坑水中の元素の化学状態評価

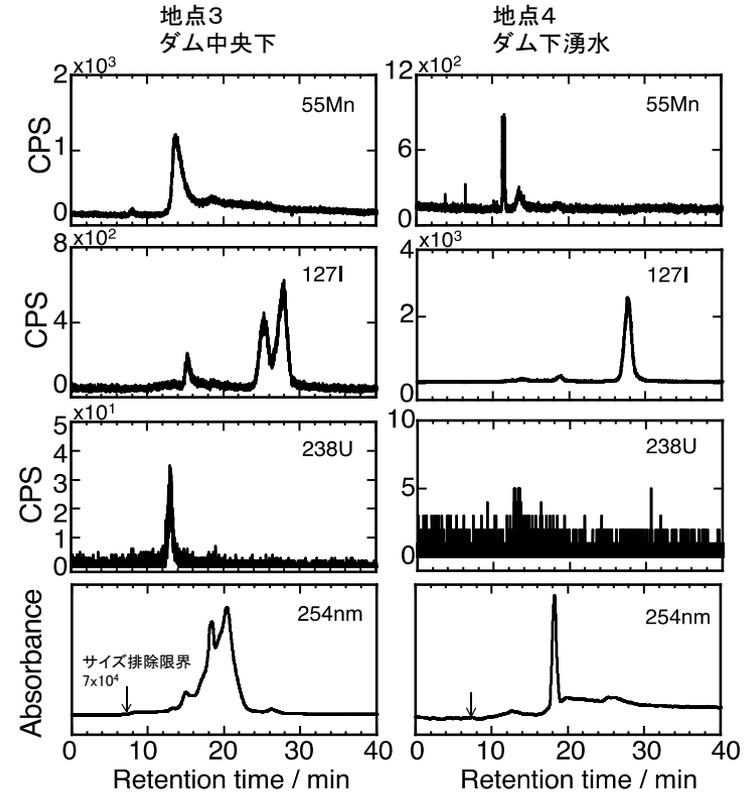
##### 2) 腐植物質の特定・分離回収・特性評価

- ✓ すべての坑水試料に蛍光性物質がある
- ✓ すべての蛍光性物質は分画分子量3,000の限外ろ過膜を透過

2023年9月採取の坑水試料をpH<2にし遠心分離で沈殿を回収  
液相分離後にpHを中性～弱アルカリにしフミン酸を回収



- ✓ すべての蛍光性物質はpH1で沈殿した(上図)
- 蛍光性物質はフミン酸



Superdex75カラム,  
10mM Tris-HCl pH7, 1mL/min  
サンプル投入量 200 $\mu$ L

回収したフミン酸をSEC-UV-ICPMS分析(上図)  
地点6(露天)を除くすべてのフミン酸にUとIが  
検出された

### (3)生活圏付近の核種移行

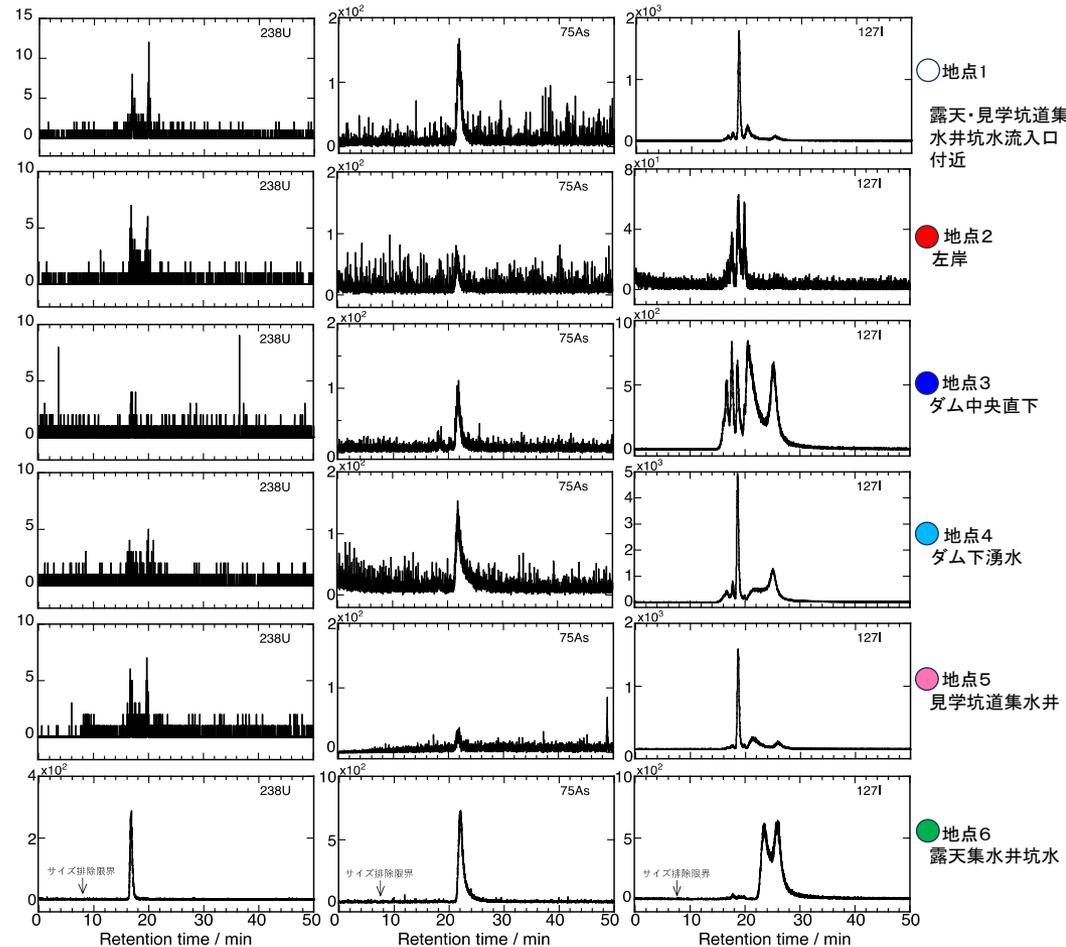
## 浅地中～GBIにおける核種移行への酸化還元反応の影響

### 主要観測サイト2(鉍さい堆積場)

#### 1.1 坑水中の元素の化学状態評価

##### 3) 坑水・腐植物質のSEC-UV-ICPMS法による分析

- ◆ 一般的なSEC-UV-ICPMS法と異なり、ろ過した坑水そのものを分析
- ◆ カラムに吸着した元素を脱離試薬で脱離させる
  - ・ 粒子状(コロイド等)に加えてイオン状元素も検出される
  - ・ 粒子はカラムを通過するが、イオンはカラムに吸着することがある
  - ・ 吸着した元素はEDTA等のキレート化剤等で脱離できる
- ◆ 採取場所・採取時期によるクロマトグラムを比較(右図は2023.9採取試料の結果のみ)
- ✓ Mg, Al, Si, S, Ca, Mn, Fe, As, Se\*, Cs, Ba, Re, Th\*, Uのクロマトグラムは場所、時期による変動小さい \*不検出
- ✓ Iのクロマトグラムには採取時期による変化はほぼないが、採取場所により変化した



2023.9.13採取試料のSEC-UV-ICPMS分析

Superdex200カラム、10mM NaCl pH7、1 mL/min  
ろ過した坑水500  $\mu$ L投入

### (3)生活圏付近の核種移行

## 浅地中～GBIにおける核種移行への酸化還元反応の影響

### 主要観測サイト2(鉍さい堆積場)

#### 1.1 坑水中の元素の化学状態評価

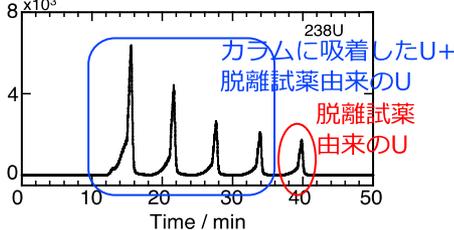
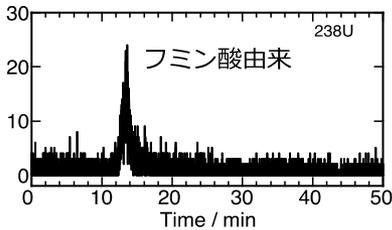
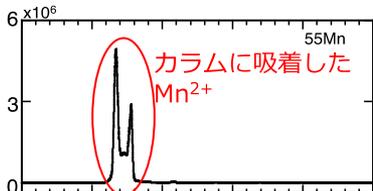
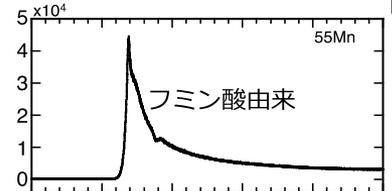
##### 3) 坑水・腐植物質のSEC-UV-ICPMS法による分析

###### ◆ 脱離による評価:カラムに吸着する元素

坑水500  $\mu$ Lを1回投入



5mMEDTA2Na+5mMクエン酸500  $\mu$ Lの5回投入による脱離



2023.12.6採取 露天採掘場跡地集水井  
Superdex75, 10mM Tris-HCl pH7

- ✓ イオン性を含む無機形態の元素がカラムに吸着し、キレート化剤等で脱離する

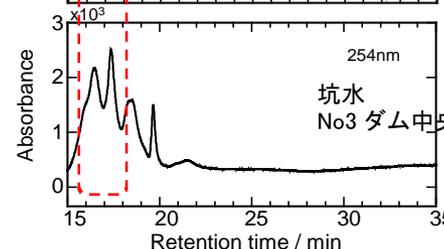
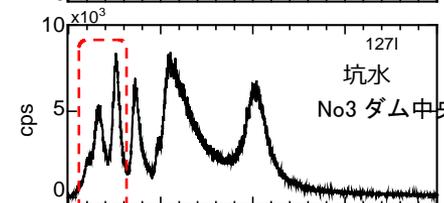
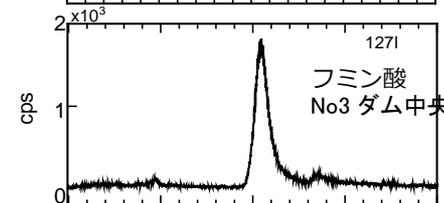
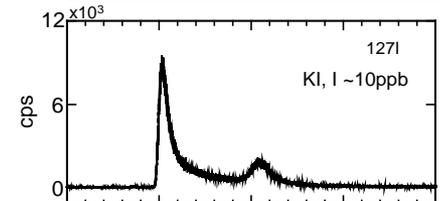
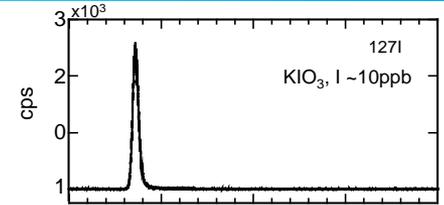
現時点では化学種の特定は不能

- ✓ ピーク面積により存在比が推定可能

上図の試料では、フミン酸由来のUは全体の約0.2%程度と推定される

###### ◆ ヨウ素の化学形態

- ✓ 坑水中のヨウ素には $\text{IO}_3^-$ 、フミン酸由来のものがある
- ✓  $\text{I}^-$ も存在する可能性あり
- ✓ 上記以外のヨウ素も存在する可能性あり -----部



2023.9.13採取地点3試料等の  
SEC-UV-ICPMS分析  
Superdex200カラム  
10mM NaCl pH7、1 mL/min

### (3)生活圏付近の核種移行

#### 浅地中～GBIにおける核種移行への酸化還元反応の影響

## 主要観測サイト2(鉍さい堆積場)

### 1.2 堆積物中の元素の化学状態評価

還元性またはそれに近い条件の坑水に含まれるU等の元素が地表の大気(酸化性)条件の鉍さい堆積場に流入されると、U等の元素は主に鉄酸化物に取り込まれると考えられる。鉄酸化物が堆積し続けると、地下では還元状態に変化していくと推定される。ここでは、このような酸化性条件から還元性条件に変化するそれぞれの環境で、堆積物によるU等の元素の固定及び堆積物からのそれらの溶出にかかる機構とそれらに影響する諸因子を明らかにすることを目的とし、以下の項目を実施する。

#### 1) 堆積物コア試料中のUの価数評価及びそれに影響する諸因子の検討

堆積物試料を採取し、EhとU等の価数、微生物分布等を調べる。このため、堆積物のコア(約10 m)を採取し調査する。採取場所は、新たな坑水がほとんど流れ込んでいない地点とする。

鉍さい堆積場は場所により堆積物の状態が大きく違っていると推定される。10 mコア試料と比較するため、新たな坑水が流入しつづけている地点の表層コアを採取し調査する。

#### 2) 堆積物中での元素保持相を明らかにするための溶出法検討

鉍さい堆積場の堆積物中のU濃度は低いため、U分布を機器分析で調べることによりUを固定している固相を特定することが困難である。

固相を選択的に溶解する方法によりUを固定している固相を特定するため、この方法を検討する。特に、鉍さい堆積場内に多く存在すると考えられる非晶質酸化鉄を選択的に溶解する方法を検討する。

(但し、2022・2023年度は堆積物を全量溶解し元素濃度を求めることができないため、酸化鉄に着目した分析方法の検討のみを行う)

### (3)生活圏付近の核種移行

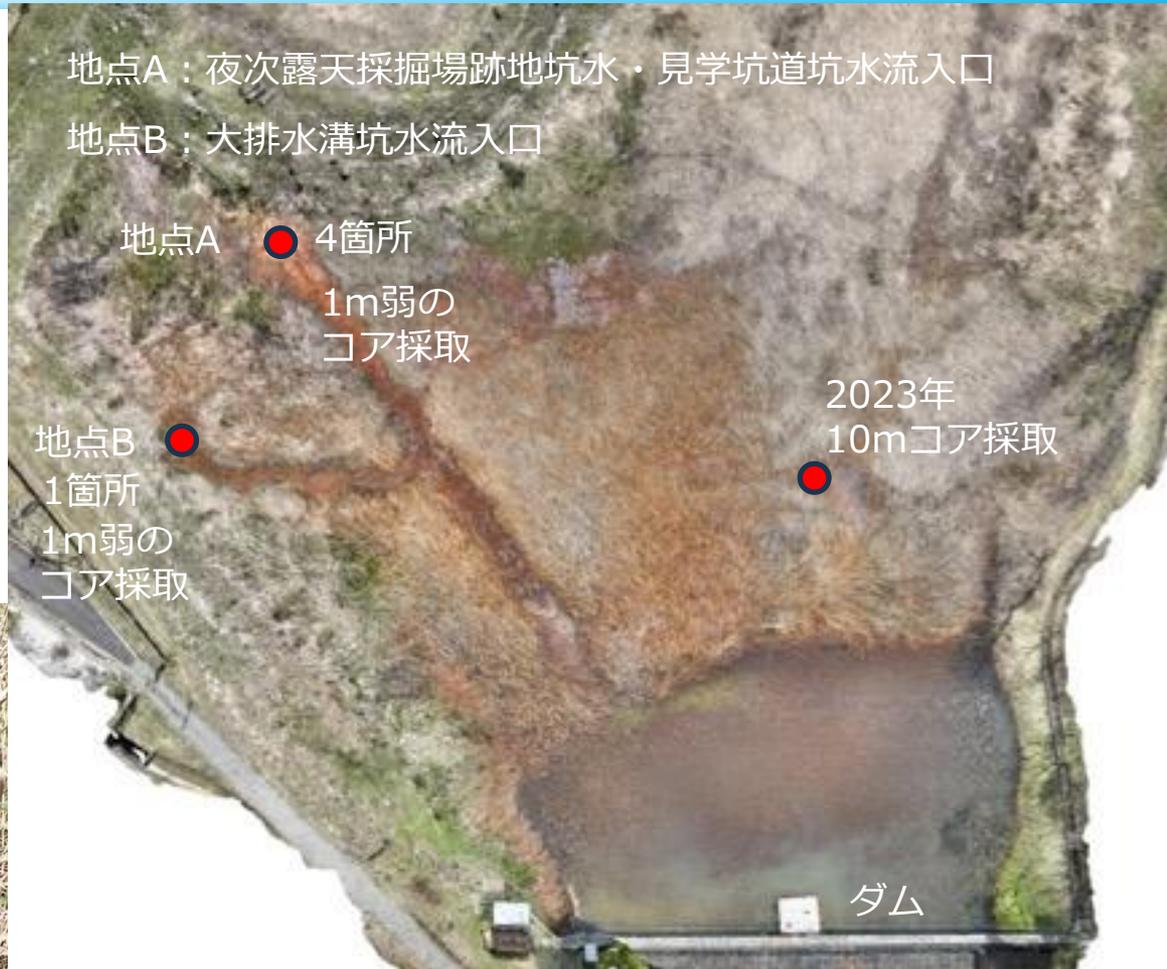
#### 浅地中～GBIにおける核種移行への酸化還元反応の影響

#### 主要観測サイト2(鉍さい堆積場)

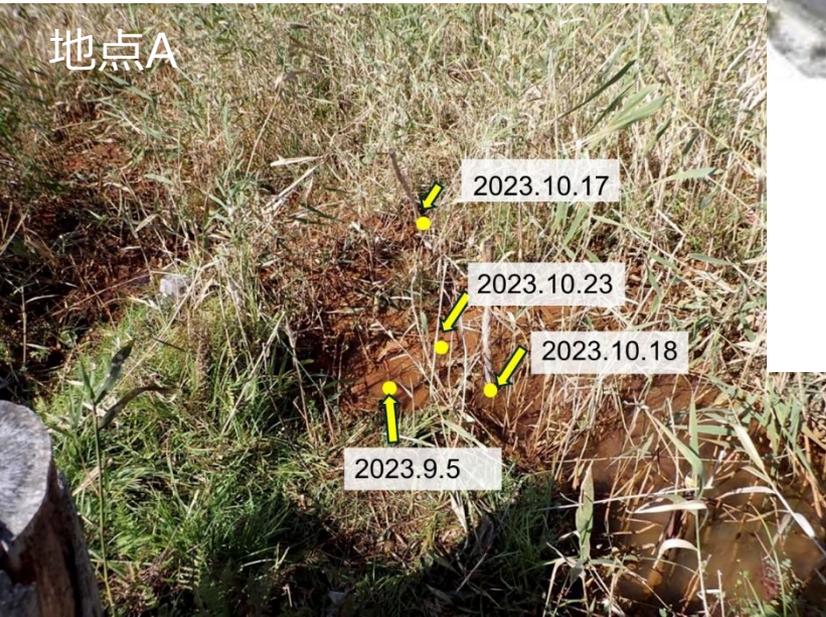
・堆積物中の元素の化学状態評価

#### コア試料採取位置

1. 新たな坑水がほとんど流入しないため、新たな表層堆積物がほとんど生じていないと推定される地点において、10 mコアを採取
2. 場所による違いを評価する予備検討として2箇所(地点A、B)の坑水流入口付近で採取



#### 地点A



鉍さい堆積場(標高716m)

### (3)生活圏付近の核種移行

#### 浅地中～GBIにおける核種移行への酸化還元反応の影響

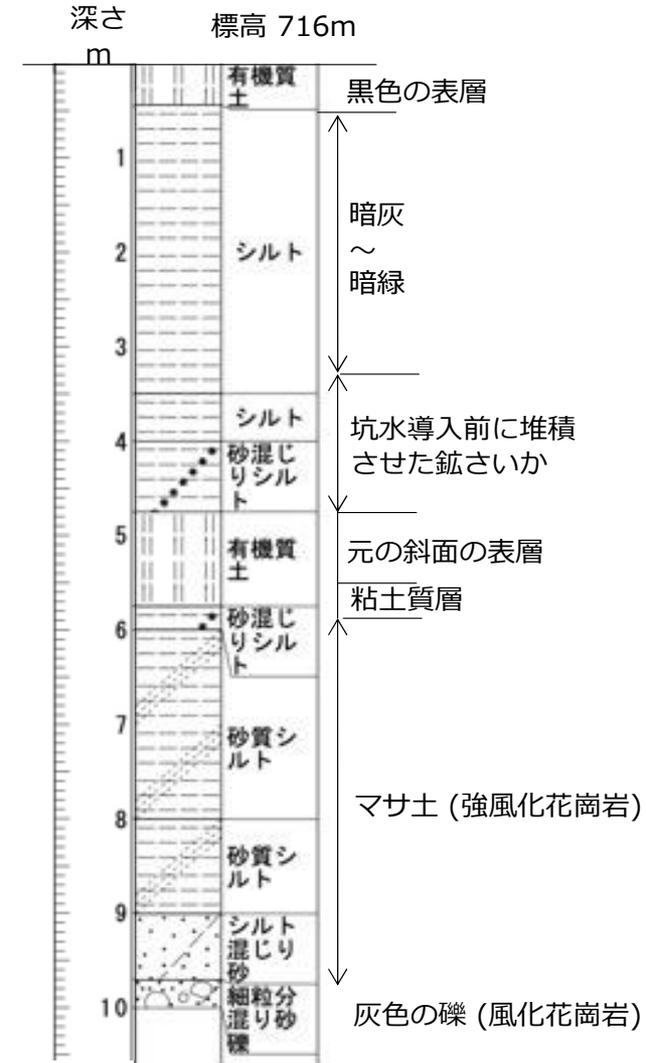
### 主要観測サイト2(鉍さい堆積場)

・堆積物中の元素の化学状態評価

#### 10 mコア試料



10 mの堆積物コア試料



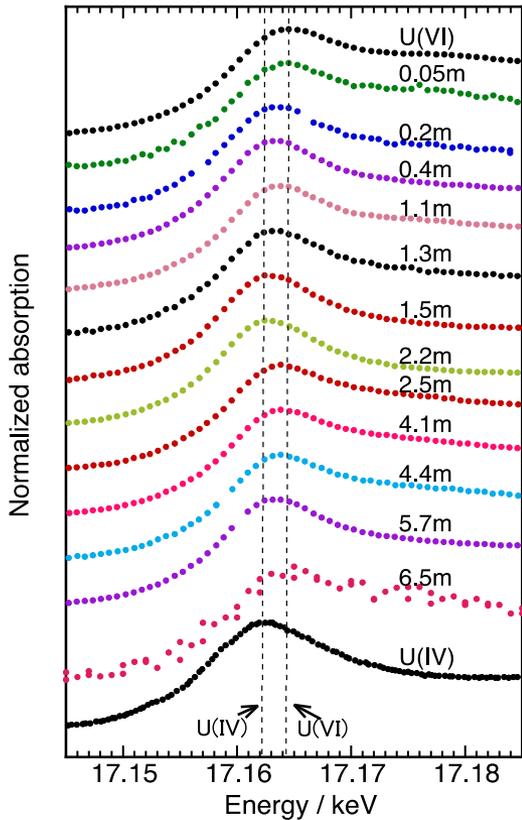
### (3)生活圏付近の核種移行

#### 浅地中～GBIにおける核種移行への酸化還元反応の影響

#### 主要観測サイト2(鉍さい堆積場)

・堆積物中の元素の化学状態評価

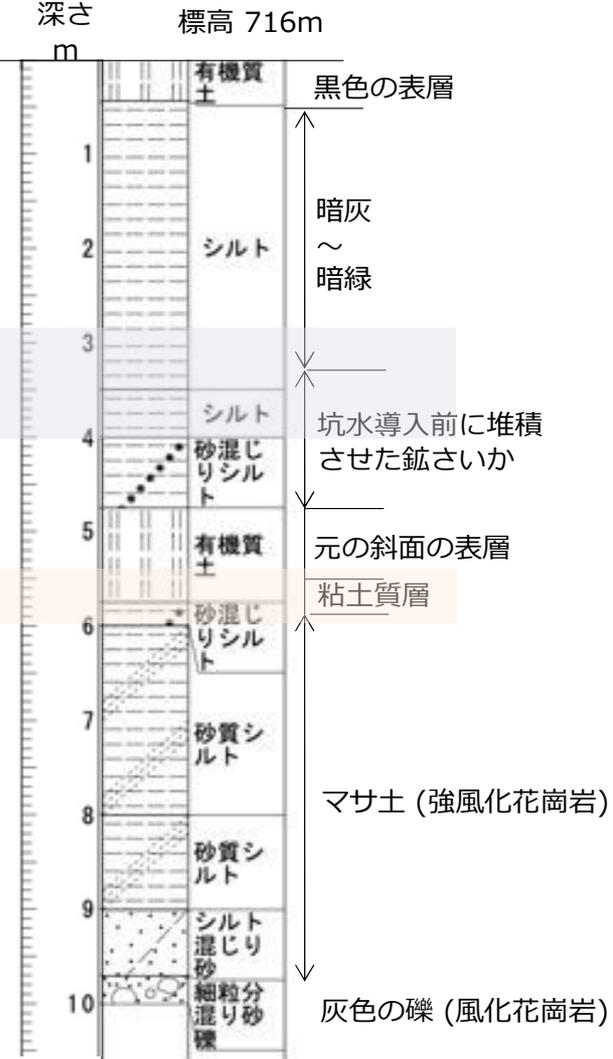
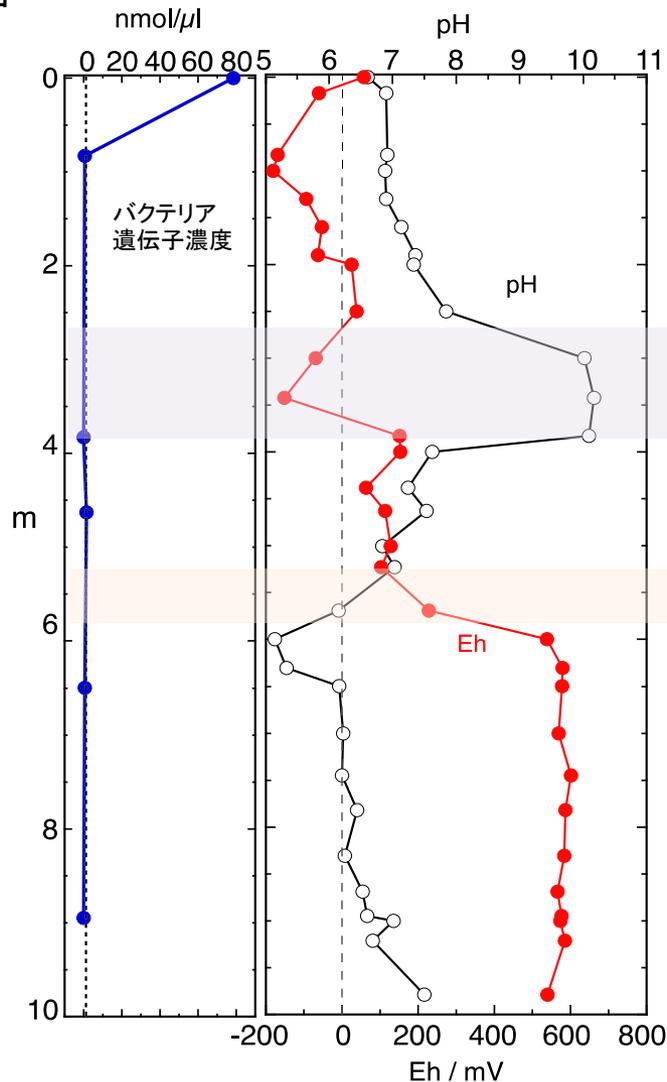
#### 10 mコア試料



深さ別堆積物のXANES\*スペクトル

6 m以浅ではIV値とVI値のUが存在

\*XANES: X-ray absorption near edge spectroscopyの略。X線吸収元素の電子状態(主に価数)を調べる。



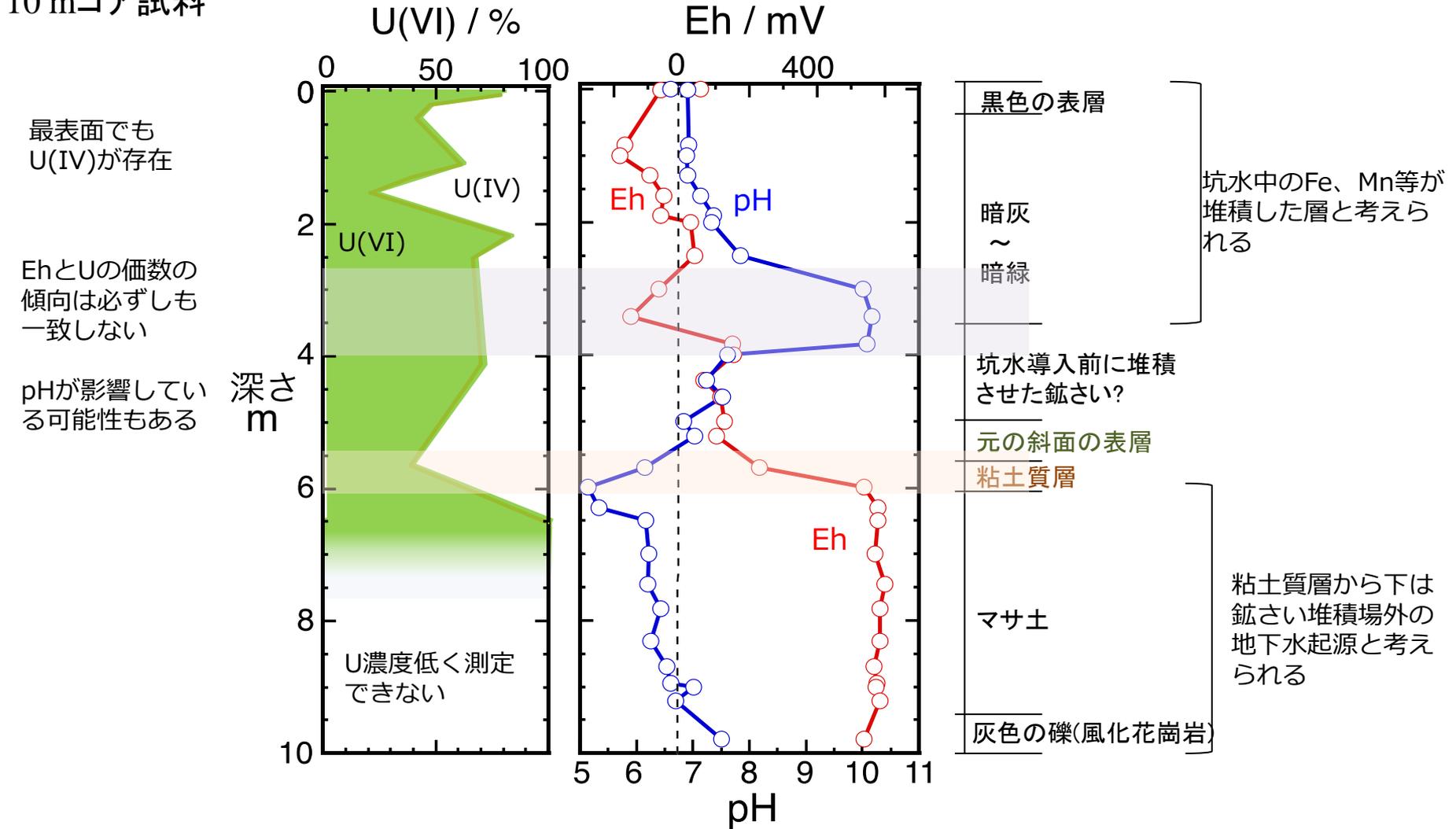
### (3)生活圏付近の核種移行

#### 浅地中～GBIにおける核種移行への酸化還元反応の影響

#### 主要観測サイト2(鉍さい堆積場)

・堆積物中の元素の化学状態評価

10 mコア試料



### (3)生活圏付近の核種移行

#### 浅地中～GBIにおける核種移行への酸化還元反応の影響

#### 主要観測サイト2(鉱さい堆積場)

- ・堆積物中の元素の化学状態評価
- 坑水流入口付近の表層コア試料

#### 地点A

2023. 9. 5



2023.10.17



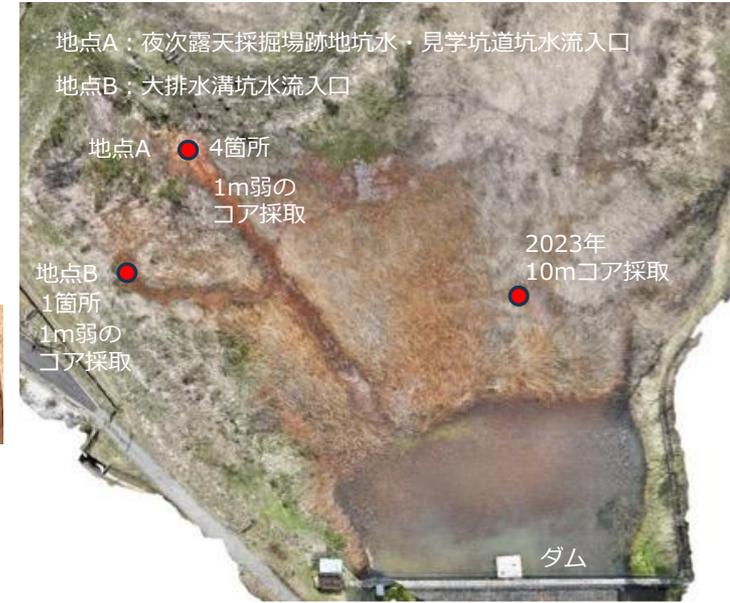
2023.10.18



2023.10.23



#### 地点B



地点AとBには微細な酸化鉄の最表層が存在するが、10 mコアにはない

地点Aで酸化鉄の最表層の下に現れる黒色の層は地点Bでは深く、1 m深さまで現れない

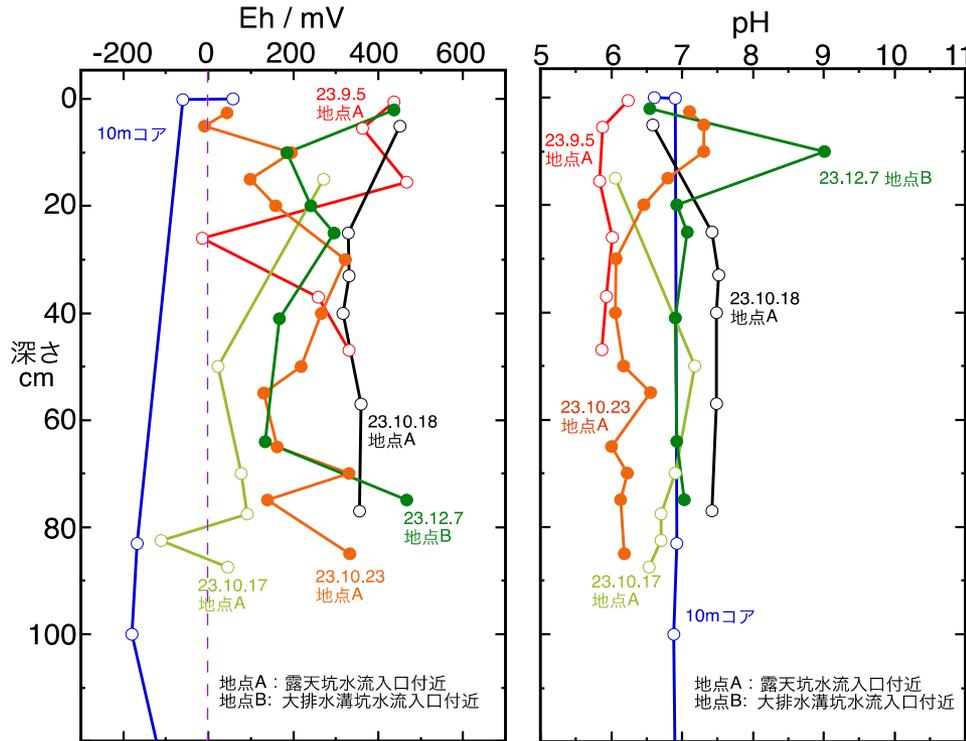
### (3)生活圏付近の核種移行

#### 浅地中～GBIにおける核種移行への酸化還元反応の影響

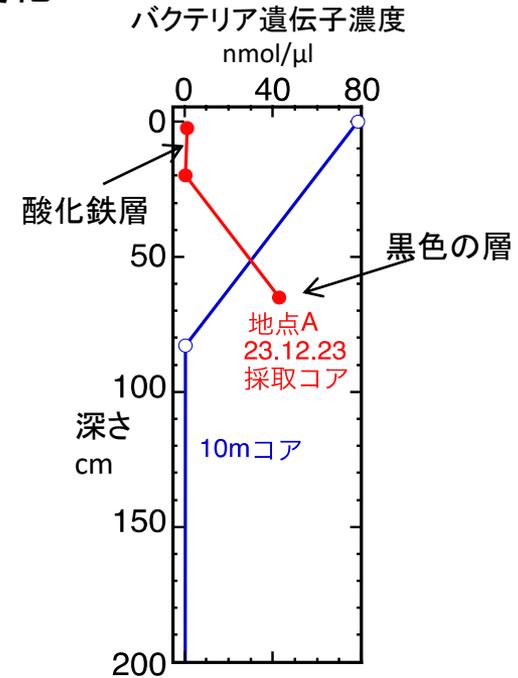
#### 主要観測サイト2(鉍さい堆積場)

・堆積物中の元素の化学状態評価

#### ◆ 堆積物pH・Eh・バクテリア遺伝子濃度の場所・深さによる変化



地点AとBのEhは場所・深さで違いが大きい



地点Aの最表面(酸化鉄層)の微生物濃度は非常に低い。黒色の層では一般的土壌程度。  
10 mコアでは最表面で高いが1 m以深は非常に低い

### (3)生活圏付近の核種移行

#### 浅地中～GBIにおける核種移行への酸化還元反応の影響

#### 主要観測サイト2(鉍さい堆積場)

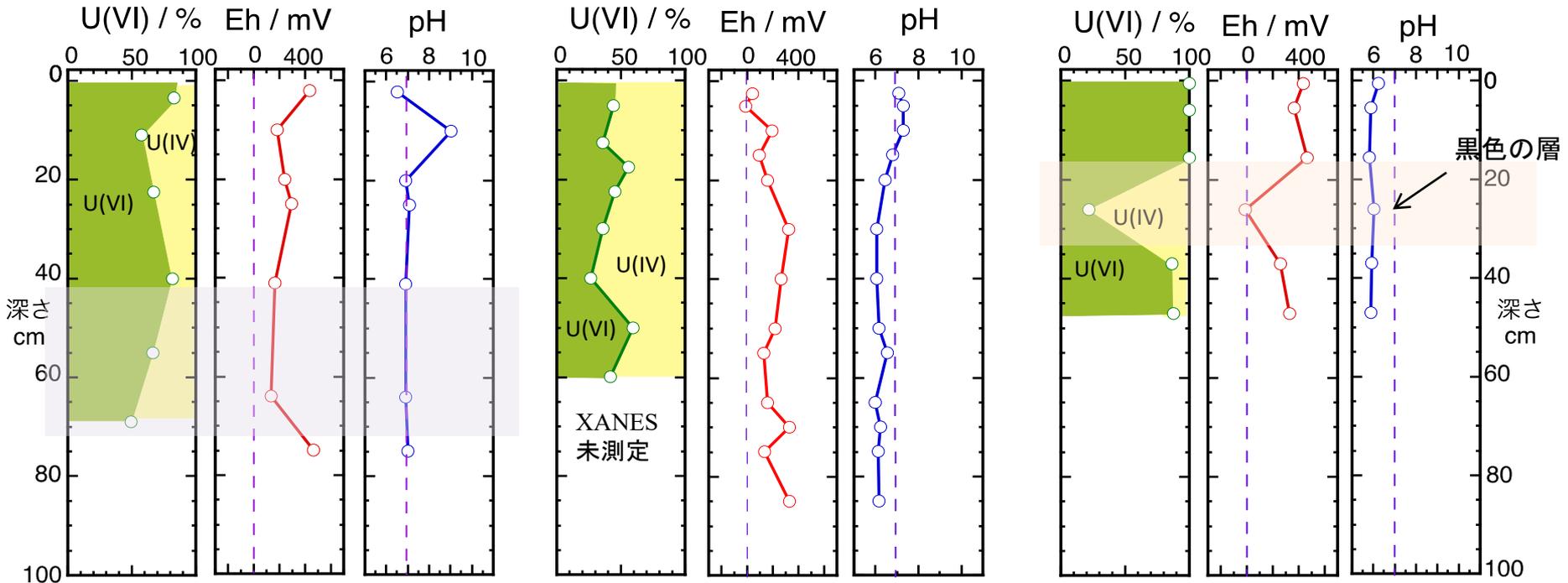
・堆積物中の元素の化学状態評価

◆ 堆積物のEhとUの価数 : 坑水流入口付近の表層コアを比較

23.12.7 地点Bコア

23.10.23 地点Aコア

23.9.5 地点Aコア



✓ 10 mコアではEhとpHがUの価数と関係することが示唆されたが、坑水が流入し続けている地点の表層ではEhとpHのみでは説明できない挙動がある。

### (3)生活圏付近の核種移行

#### 浅地中～GBIにおける核種移行への酸化還元反応の影響

土壌から植物への核種移行の傾向を調べるため、次の(1)～(3)について調査を実施した。

(1) 人形峠センター内を基本として河川調査地周辺で、調査地間で比較可能となるような共通性の高い植物を探索する。

(2) 植物内での核種の動きやすさの傾向を調べる。

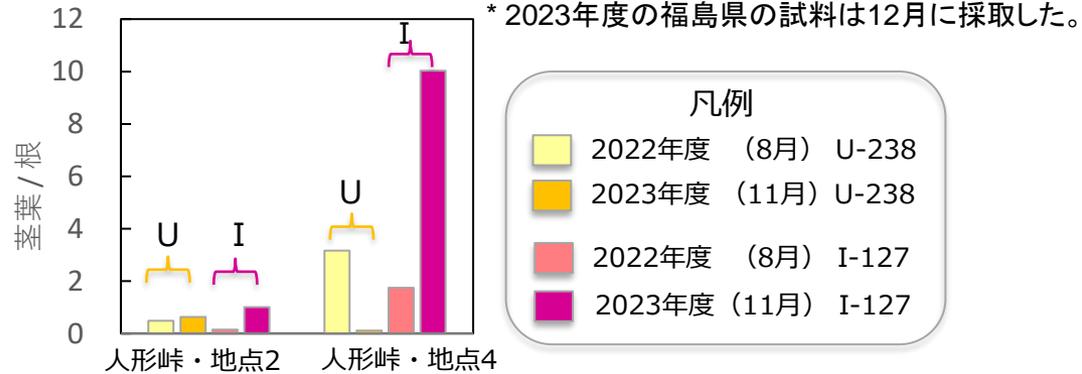
**[調査時期]** 1回目: 2022年8月、2回目: 2023年11月-12月

カヤツリグサ科植物の根に対する茎葉のCs濃度割合

採取地点 (核種)	2022年度	2023年度
	茎葉/根 (8月)	茎葉/根 (11月)
人形峠・地点 2 (Cs-133)	> 93	0.82
人形峠・地点 4 (Cs-133)	7.1	0.17
* 福島県・太田川 (Cs-133)	—	0.51
* 福島県・太田川 (Cs-137) $\gamma$ 線	0.19	0.50

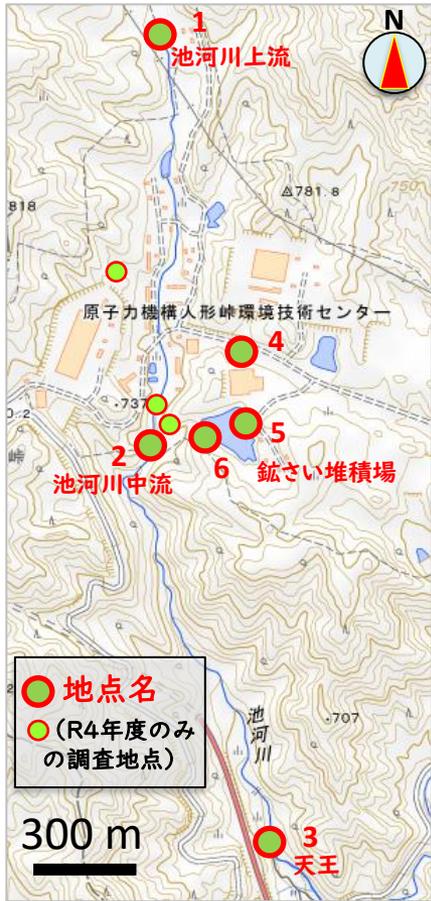


高かった根植物



カヤツリグサ科植物の根に対する茎葉の核種濃度割合

- 比較評価用植物としてカヤツリグサ科を設定した。
- 重要核種(U、I、Cs)について、根に対する茎葉の割合が地点と採取時期によって異なったため、これらが移行係数に関与する可能性が示唆された。



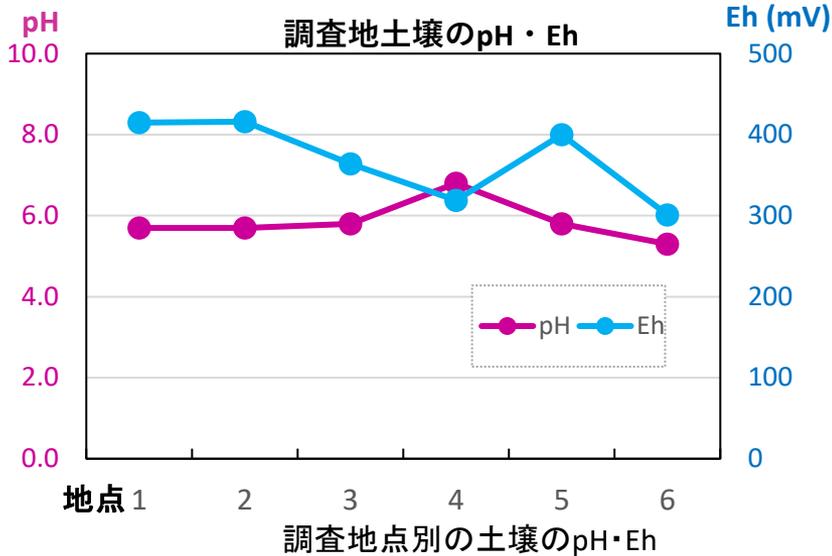
試料採取地点 (JAEA人形峠センター事業所敷地内)

出典: 国土地理院地図 (電子国土Web)

採取地点

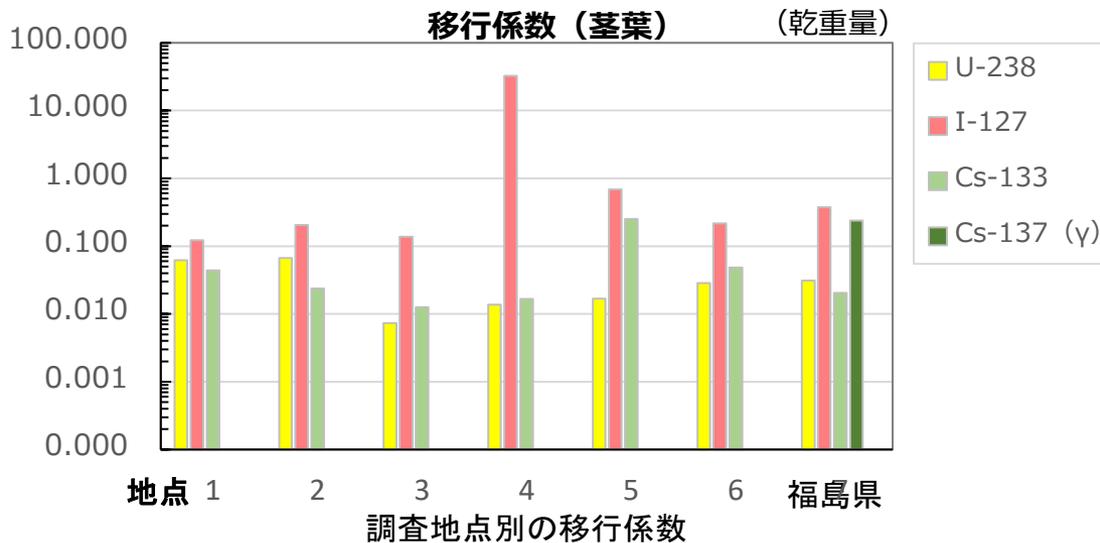
### (3)生活圏付近の核種移行

#### 浅地中～GBIにおける核種移行への酸化還元反応の影響



(3) 土壌－植物間の核種の動きやすさの傾向を調べる。

- 重要核種(U、I、Cs)について移行係数を求めたところ、IIにおいて地点による顕著な差(2桁程度)が見られた。
- 生育地点の土壌特性のほか、土壌中のpH・Eh・共存元素に起因して、核種の化学種が異なることによると考えられた。

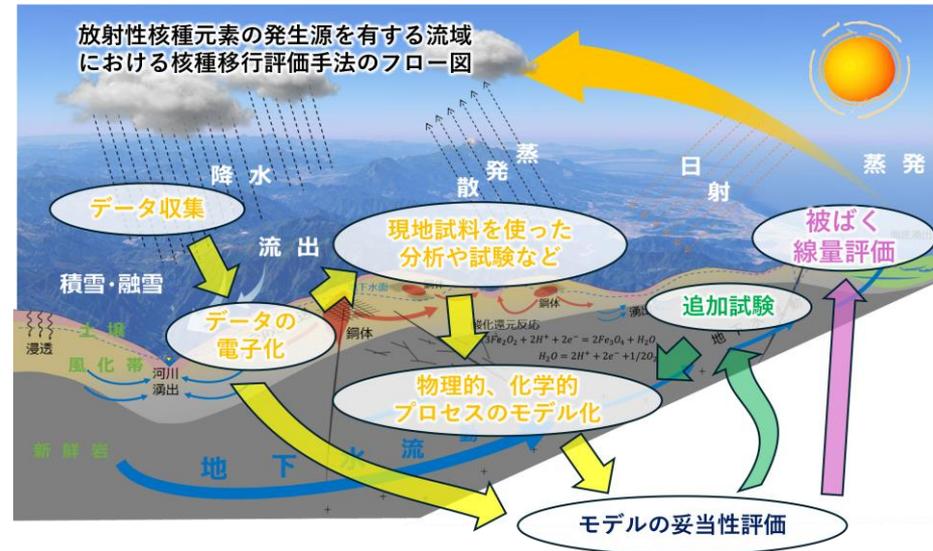


### (3)生活圏付近の核種移行

## 人形峠周辺における地表水・地下水流動、物質移行モデル開発

### 実環境で取得したデータによるモデル開発

人形峠センターでは、センター内及び周辺の地下水流及び地下水の元素濃度等に関するデータを長期かつ広範囲に取得しており、それらをデータベース化している。本モデル開発では、これらのデータ及び本補助事業で取得する元素移行挙動の知見を活用し、生活圏や地表付近での核種の移行挙動に大きな影響を与える因子と、その影響の仕方を、放射性核種模擬元素の発生源である鈷さいたい積場等の場所から下流側へ向けての物理的・化学的な状態の変遷と移行挙動をモデル化するとともにモデルの検証を実施する。最終的には表層から比較的浅い地中での元素移行モデルを一般化することにより、1F事故の安全評価にかかるGBI近傍の生活圏における元素移行モデル構築に寄与することを目的としている。



2022年度と2023年度は、河川、地下水を経路とした核種移行及び被ばく線量評価を実施可能な解析モデルの基礎となる地下水流動解析モデルを作成した。具体的には、人形峠センターおよびその周辺下流域を対象とした3次元モデルを構築し、現況再現解析および不確実性解析によりモデルの妥当性について検討した。

### (3)生活圏付近の核種移行

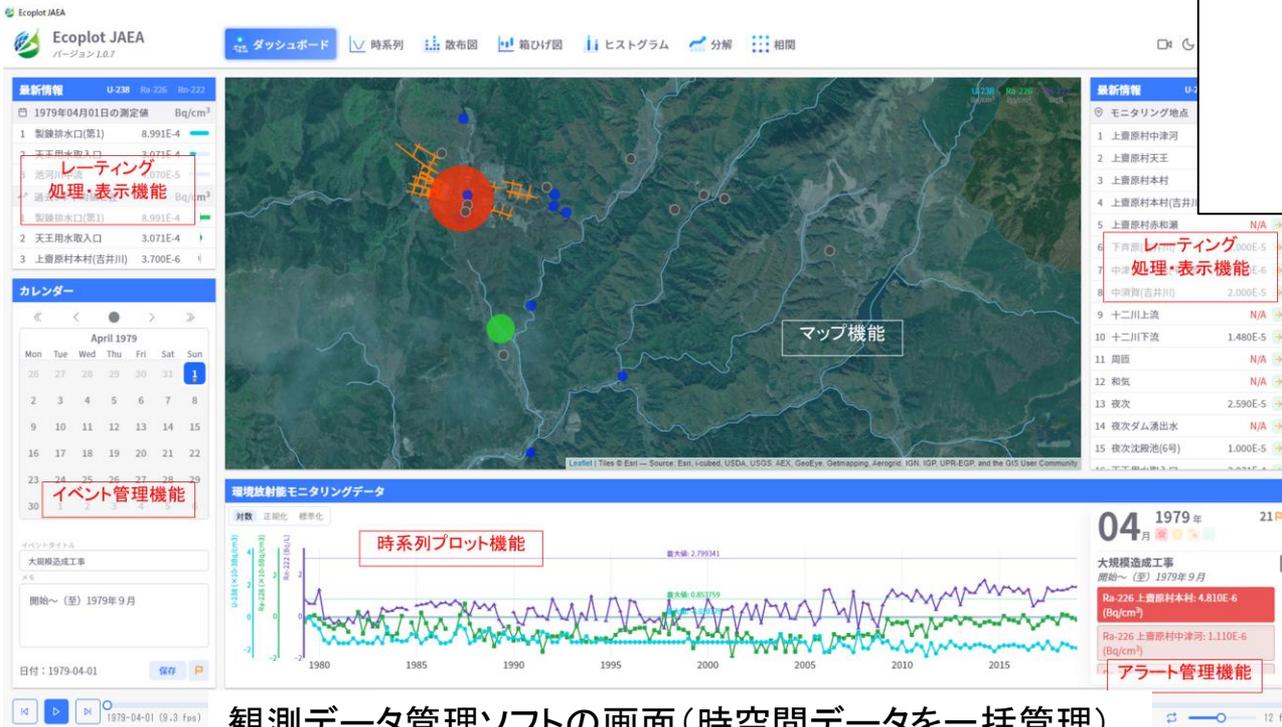
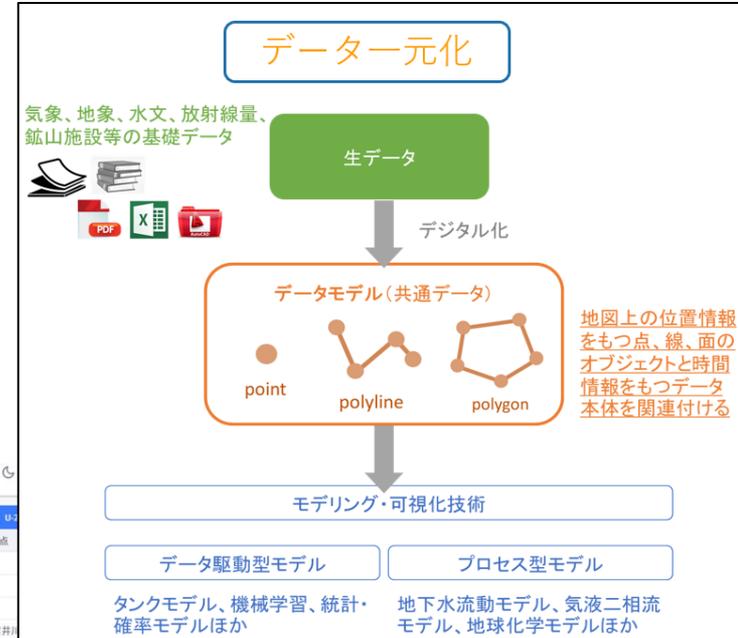
## 人形峠周辺における地表水・地下水流動、物質移行モデル開発

### 実環境で取得したデータによるモデル開発

#### ・人形峠におけるデータの一元化

2023年度

人形峠において実施されていた各種調査および観測データを時間・空間的に管理するシステムを構築した。構築したシステムでは調査および観測地点をプロットしており、地点を選択することにより時間変化に伴う調査・観測結果を表示することを可能とした。また、システムにはR言語を組み込んでいるため、任意の地点・時間ごとの統計解析を可能とした。



### (3)生活圏付近の核種移行

## 人形峠周辺における地表水・地下水流動、物質移行モデル開発

#### ・人形峠におけるデータの一元化

2023年度 2022年度に一元化したデータを基に気象、土地利用、水域、蒸発散、水利用、地質・水理構造をモデル化した。



### (3)生活圏付近の核種移行

## 人形峠周辺における地表水・地下水流動、物質移行モデル開発

#### ・環境動態評価手法における最新技術の入手・整理

国際スタンダードな最新技術について文献を収集した後に整理した。不確実性の定量化が可能な環境動態評価ツールとしてPEST、Dakota、GoldSimについて機能や特徴をまとめた。

環境動態評価を実施するためには以下の手順が必要であることを確認した。

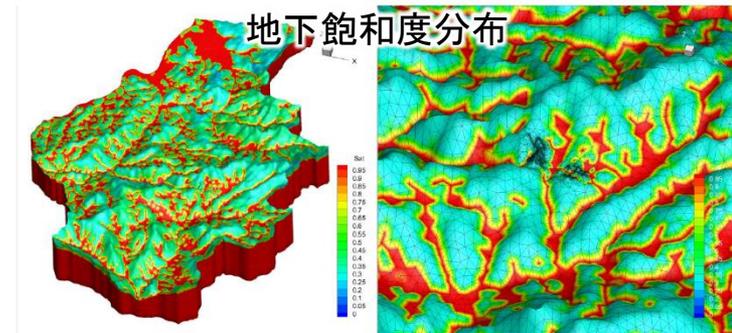
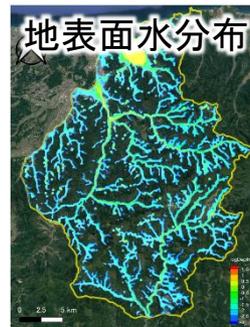
**【地下水流動解析】 ⇒ 【核種移行解析】 ⇒ 【安全評価】**

	PEST/PEST++	Dakota	GoldSim
開発	U.S. Geological Survey (USGS)	National Technology and Engineering Solutions of Sandia	GoldSim Technology Group
分類	オープンソース	オープンソース	商用ライセンス販売
概要	入出力ファイルの任意の箇所の書き換え、読込みにより逆解析や感度解析を自動化する汎用ツール	計算モデルの裕度や不確実性の定量化、リスク分析、モデルキャリブレーションを自動化する	複雑系に内在する不確実性とリスクを定量化するモンテカルロシミュレーションツール
機能	<ul style="list-style-type: none"> <li>パラメータ推定</li> <li>グローバル感度解析</li> <li>不確実性解析</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>最適化、不確実性の定量化</li> <li>パラメータ推定</li> <li>感度解析</li> <li>サロゲート化</li> </ul>	Reliability Moduleにより動的システムの確率表現をモデル化（リスク評価モデル、信頼性評価モデル等）
URL	1), 2)	3)	4)

- 1) <https://github.com/usgs/pestpp>    3) <https://dakota.sandia.gov/>  
 2) <https://pesthhomepage.org/>    4) <https://www.goldsim.com/>

#### ・構築した3次元モデルによる地下水流動解析結果

構築した3次元モデルに同定前の推定パラメータを設定した後、地下水流動解析を実施した。解析結果から構築モデルの妥当性を確認した。



### (3)生活圏付近の核種移行

#### 河川環境における分配係数の不現実要因の解明

##### ■ 目的

生活圏において、核種の固-液間相互作用は、核種の移行遅延や生体移行を支配する因子であり、その評価には分配平衡モデルが用いられている。しかし、生活圏における固相や反応様式の多様化、相互作用の複合化等により、分配平衡モデルは、全ての核種や固-液間に対して成立しない場合もある。本調査では、より現実的な生活圏における核種移行モデル(相互作用のバリエーションを考慮したモデル)の構築に向けて、1F事故廃棄物の安全評価で考慮する核種を念頭に、実際の河川における核種分配平衡の成立性を明らかにする。

##### ■ 実施内容

生活圏における重要な核種移行媒体となる河川を対象に(図1)、河川水および河川堆積物を採取し、そこに含まれる安定元素やアナログ元素の濃度データを取得する。得られた濃度データから固液間分配比(原位置 $K_d$ )を算出し、その変動パターンの解析から分配平衡の成立性を評価する(図2)。また、河川水および河川堆積物の特性と分配比変動との関係について検討する。

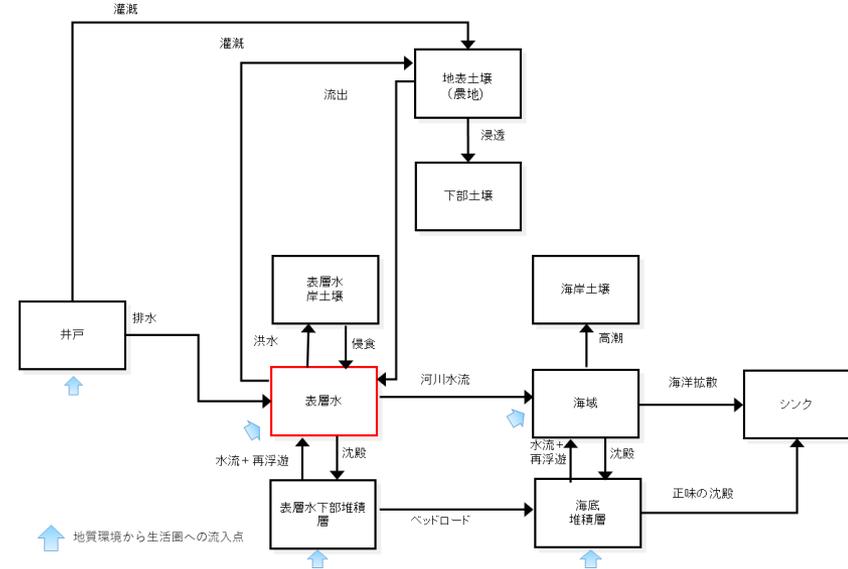


図1 安全評価の生活圏モデルにおける河川の位置付け

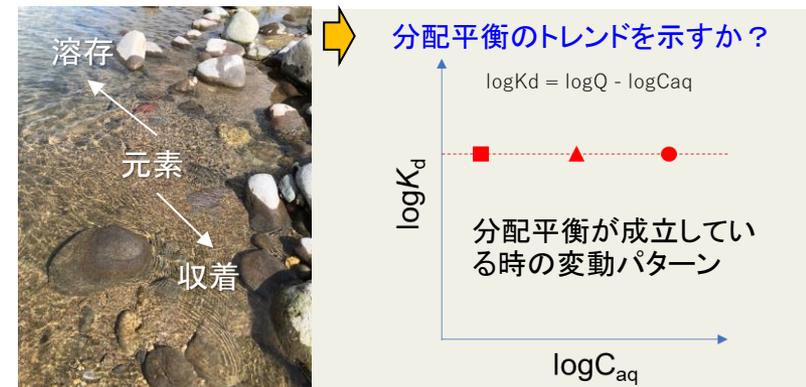
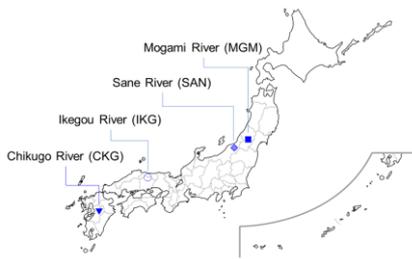


図2 元素の固液間分配比と溶存濃度との関係評価

### (3)生活圏付近の核種移行 河川環境における分配係数の不現実要因の解明

#### ■ 実施結果

河川における $K_d$ モデルの妥当性を確認するため、国内4河川の異なる地点や時期に採取した河床堆積物と河川水との間の微量安定元素の原位置 $K_d$ (堆積物中の収着元素濃度(酸抽出画分)/河川水中の溶存元素濃度)を評価し、その値と溶存元素濃度との関係(変動パターン)評価から(下図)、原位置 $K_d$ が平衡分配比とは異なる可能性を指摘した。



River	Sampling date	Sampling site	Abbreviation	Temp. °C	pH	Eh mV	EC $\mu$ S/cm
Mogami	Nov. 2019	Lower	MGM1_19	10.2	6.4	414	n.a.
	Nov. 2019	Middle	MGM2_19	9.4	5.0	604	n.a.
	Oct. 2022	Lower	MGM1_22	12.8	7.0	383	102
Chikugo	Oct. 2022	Middle	MGM2_22	11.3	5.0	398	188
	Oct. 2022	Upper	MGM3_22	9.8	5.2	547	209
	Nov. 2019	-	CKG3_19	15.9	7.9	453	n.a.
Sane	Aug. 2022	-	CKG3_22	22.6	7.9	500	180
	Jun. 2022	Lower	SAN1_22	14.3	7.8	493	39
Ikegou	Jun. 2022	Upper	SAN2_22	16.6	7.7	501	26
	Jul. 2022	Middle	IKG1_22	19.1	7.4	417	38
Chikugo	Jun. 2023	Middle	IKG1_23	14.2	7.5	397	39
	Jun. 2023	Upper	IKG3_23	12.5	7.5	391	32
	Jun. 2023	Lower	IKG10_23	14.0	7.5	474	37

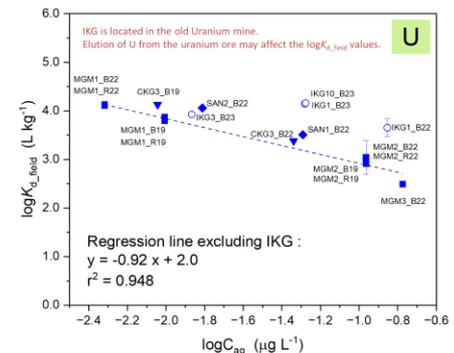
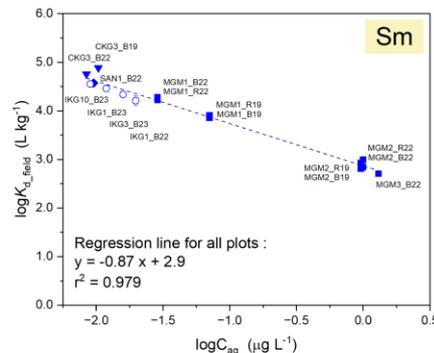
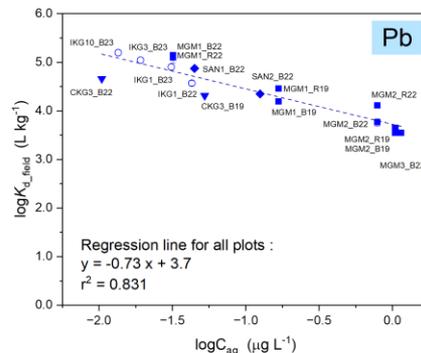
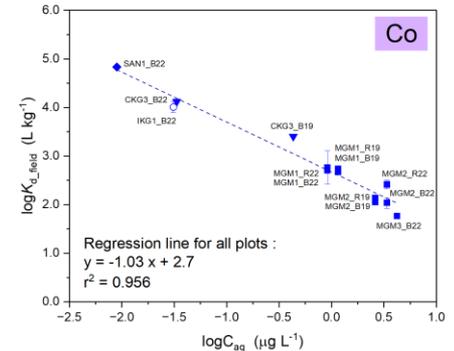
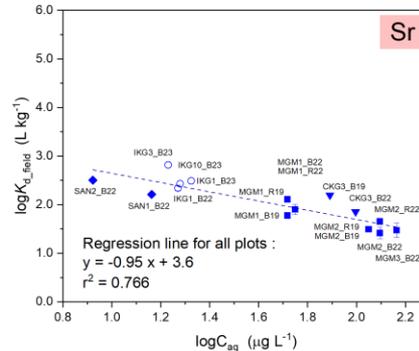
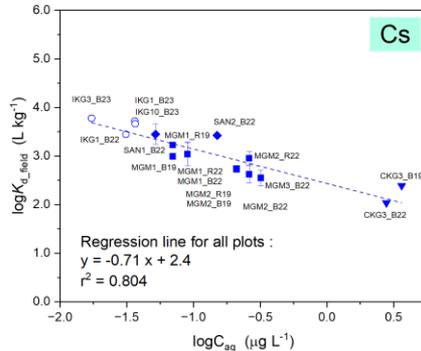


図 原位置 $K_d$ 値の河川水中の溶存元素濃度依存性

⇒ 変動は吸着飽和あるいは非平衡におけるパターンを示したことから、分配平衡モデル( $K_d$ モデル)が成立していない可能性を示唆。

### (3)生活圏付近の核種移行 まとめ

- 地下水中を移行する核種の移行に、酸化還元反応による共沈・再溶解現象が影響していることを明らかにし、より現実的な安全評価モデル・パラメータの設定に向けた知見が得られた。今後は地下水採取地点数を増やし、Uの移行挙動の詳細を明らかにする計画である。
- SEC-UV-ICPMS法によって、実際の水環境を移行しているU・I等の元素の化学状態とその遷移を追跡できる見通しを得た。今後、元素の化学種の特特定を旨すとともに、水環境の化学条件と化学種との関係を調べる。
- 堆積物中におけるUの化学状態を調べるため、コア試料を採取した。堆積物の最表面から数m下部の元の地表面までUの一部はIV価として存在していたが、坑水中のUはVI価と推定されるので、Uは鉱さい堆積場内で還元されたと考えられる。今後、酸化環境から還元環境に変化する地下環境下でのU等の挙動解明や挙動に影響するパラメーターを酸化還元電位、pH、Fe化学種濃度等との関係を調べることにより明らかにする。
- 植物内での核種の動きやすさや移行係数(特にI)は、地点によって差が認められた。地点土壌の性質や水中の核種化学が要因である可能性が考えられた。
- 気象、土地利用、水域、蒸発散、水利用の時間的変遷をモデル化した。
- 多種多様なデータを組み込んだ3次元モデルを構築したことにより、環境動態評価に必要な地下水流動、核種移行、安全評価解析を実施するベースモデルが完成した。今後はモデルの精度を向上させるとともに元素移行モデルを一般化することにより、生活圏核種移行評価の精度向上に寄与することを目指す。
- 実河川環境における河川水一河床土間における核種相互作用は、分配平衡モデル( $K_d$ モデル)によって記述できない可能性を確認した。