

# 金属廃棄物中の放射化物（炭素14）の 挙動等に関する国内外の情報調査

金子 昌章、朝野 英一、金子 悟、田辺 博三

平成 16 年 7 月

本報告書は、(財)原子力環境整備促進・資金管理センターが実施した「金属廃棄物中の放射化物(炭素14)の挙動等に関する国内外の情報調査」の研究成果をまとめたものである。

# 金属廃棄物中の放射化物（炭素 14）の挙動等に関する 国内外の情報調査

## 要約

本技術報告書は、(財)原子力環境整備促進・資金管理センター(原環センター)の自主研究で実施した「金属廃棄物中の放射化物(炭素 14)の挙動等に関する国内外の情報調査」の国内の研究動向を調査した結果と、平成 15 年 10 月に原環センターと Nagra が共催で開催した炭素 14 (C-14) 関連のワークショップの成果をまとめたものである。

### 背景と目的

原子炉施設や再処理施設の運転等に伴い、多種多様な放射性廃棄物が発生する。平成 12 年 9 月に原子力安全委員会が取りまとめた「低レベル放射性固体廃棄物の陸地処分の安全規制に関する基準値について(第 3 次中間報告)」や平成 12 年 3 月に核燃料サイクル開発機構及び電気事業連合会が取りまとめた「TRU 廃棄物処分概念検討書」によれば、放射性核種の被ばく線量の試算において、炭素 14 (C-14) は、地下水移行シナリオによる被ばく線量への寄与の大きい核種の一つとして評価されている。これは、C-14 の半減期が長い(約 5700 年)ことや、処分場を構成する人工バリア材や母岩への C-14 の収着性が小さいことが一因としてあげられる。C-14 の多くは、原子炉内の燃料や金属材料等に含まれる窒素 14 (N-14) が燃料近傍で中性子照射を受けて生成する。C-14 の濃度が高い放射性廃棄物には、原子炉施設から発生するチャンネルボックスや炉内構造物や、再処理施設の使用済燃料のせん断・溶解に伴って発生するハル・エンドピースなどがある。

C-14 の収着性能(分配係数)は、C-14 の化学形態に大きく依存し、一般的に無機形態の炭素では収着性が大きく、有機形態の炭素では収着性が小さいとされており、その化学形態は地下水の物理化学的条件により変化することが知られている。このため、現状の安全評価では、保守的な設定を用いて評価されている。

安全評価をより現実的に行い、更なる信頼性の向上と合理化を目指すためには、C-14 の移行挙動(浸出率、化学形態、収着性等)の現象把握及び信頼性の高い実測データを取得整備することが望まれる。

このため、本調査では、国内で実施されてきた放射化金属から浸出する C-14 に関連す

る研究について、研究状況を調査、整理した。また、この国内の知見を基に諸外国と C-14 についての情報交換を行うために、国際ワークショップを原環センターと Nagra との共催で開催した。諸外国の関係機関と意見交換を行い、C-14 に関する知見の収集と問題意識を把握することができた。

以下に概要を示す。

## 国内の研究動向

国内の C-14 に関する研究を調査し、その成果を以下の様に整理した。

- ・ 放射化金属から浸出する C-14 の化学種には、無機及び有機のものが含まれることが確認できた。
- ・ 電力及び原環センターでの研究の成果から、金属から放出する C-14 の有機化合物の種類がほぼ同定、定量できることが確認できた。
- ・ 還元雰囲気下での金属の腐食速度（C-14 の浸出速度）として、低い腐食速度が得られていることが確認できた。
- ・ 有機 C-14 の分配係数として、数 ml/g 程度の値が取得されている。また、放射化金属から放出される C-14 の分配係数として、10ml/g 程度の値が取得されていることが確認できた。
- ・ 有機 C-14 の発生だけでなく、放射線による無機化及び触媒による無機化等の効果も見込める可能性があることが確認できた。

## 処分場環境における C-14 の放出および移行に関するワークショップ

原環センターと Nagra の共催により、様々な廃棄物（使用済み燃料、燃料被覆材、燃料集合体構造材、中性子によって放射化された炉心材料および樹脂）に含まれる C-14 の化学形態に関し検討すること、さらには処分場環境における C-14 の放出、収着および移行評価に関する問題を検討することを目的として「処分場環境における C-14 の放出および移行に関するワークショップ」が、2003 年 10 月 27～28 日、スイスにて開催された。

このワークショップで報告された研究内容は広範な領域にわたり、その中には様々なタイプの廃棄物における C-14 のインベントリの計算および測定、放出された C-14 の化学形態測定、様々な化学形態で放出された C-14 の収着、処分場の安全評価における液相および気相中の C-14 の移行挙動のモデル化などが含まれている。

要点を以下にまとめる。

- 様々な廃棄物におけるC-14の濃度の問題に関する議論においては、各種廃棄物におけるC-14のインベントリおよび化学形態を直接的に測定する必要性に加えて、中性子放射化物におけるC-14の生成量の評価における種々の核反応生成経路の十分な検討が必要であると論じられた。
- 還元雰囲気下での金属の腐食に伴うC-14の放出に関する様々な研究報告では、還元雰囲気下での腐食速度が極めて低いことが明らかにされた。安全評価モデルにおいてこうした低い腐食速度を考慮すると、C-14インベントリの大部分は金属から放出する前に崩壊してしまうことが期待できる。したがって、安全評価において過度に保守的な放出速度を用いる代わりに、この腐食速度をより詳細に求めることが重要である。
- 様々な放射化金属廃棄物から放出されるC-14の化学的な形態の問題に関して最近得られた最も重要な成果の一つは、放射化金属の腐食に伴って放出されるC-14の化学種が、無機C-14に比べて有機C-14の比率が高いとされる研究結果が得られたことである。この有機C-14はカルボン酸、アルコールおよびアルデヒドなどの小さな分子の有機化合物が優勢であることも同時に明らかにされたので、それに伴って、これらの分子が最終的にどのような化学的な形態をたどるかという問題に関して様々な議論が交わされた。処分場の安全評価モデルの入力情報として、これら化学種のC-14の収着をいかに取り扱うべきか、あるいは、これらの分子は、最終的に微生物によりCO<sub>2</sub>に酸化されるのか、CH<sub>4</sub>に還元されるのかという問題が、重要な論点であった。
- C-14の収着特性に関しては、小さな分子の有機化合物は収着性を考慮することにより、C-14の移行期間中においてかなりの崩壊を見込める可能性がある。C-14の化学形については、CO<sub>2</sub>に酸化されたC-14はアルカリ環境下で方解石（カルサイト）として沈殿することにより効果的に遅延されると考えられる。しかし、メタンへと還元されたC-14ははるかに速く移行する可能性もある。ただし、その場合でも、地表環境下では微生物によるCO<sub>2</sub>への酸化が起こることを考慮する必要がある。安全評価において、C-14の移行をより現実に近い形で取り扱うためには、モデルの開発や実証データの取得に向けて更なる努力が必要である。

## 今後の課題等

本調査より整理できた C-14 に関する研究の主要な課題を以下に示す。

- ・ 廃棄物中の C-14 濃度に対し、知見が不足している。(インベントリ評価必要)
- ・ 還元性環境における C-14 の挙動に関する情報は重要であり、C-14 の気相、液相への移行評価が必要である。
- ・ 金属から放出される C-14 の無機 / 有機の化学的な形態については、実験条件により変化するため、機構的解釈が必要である。
- ・ 現実的な C-14 の放出速度を評価するためには、処分環境下より近い条件下での長期的な金属の腐食速度のデータ取得及び評価することが必要である。
- ・ 微生物に関する公開データが少ない。

余裕深度処分あるいは T R U 廃棄物処分のより一層の信頼性の向上と合理化を図るためには、今後上記課題を解決し、放射化金属から浸出する C-14 の現実的な挙動を評価することが必要であると考えられる。

## 目次

### 要約

はじめに	1
第1章 国内の研究動向	2
1.1 電力	2
1.2 国（経済産業省）	2
1.3 原環センター	2
1.4 核燃料サイクル機構（JNC）	3
1.5 国内調査のまとめ	3
第2章 処分場環境における C-14 の放出および移行に関するワークショップ	
2.1 開催主旨	5
2.2 会議の議事概要	8
2.3 討議された主な問題のまとめ	20
第3章 今後の課題等	22
参考文献	24
謝辞	25

## 表目次

表 1.5-1 国内の金属廃棄物中の放射化物(C-14)の挙動等に関連する研究概要	4
---	---

## はじめに

原子炉施設や再処理施設の運転等に伴い、多種多様な放射性廃棄物が発生する。平成 12 年 9 月に原子力安全委員会が取りまとめた「低レベル放射性固体廃棄物の陸地処分の安全規制に関する基準値について(第 3 次中間報告)」や平成 12 年 3 月に核燃料サイクル開発機構及び電気事業連合会が取りまとめた「TRU 廃棄物処分概念検討書」によれば、放射性核種の被ばく線量の試算において、炭素 14 (C-14) は、地下水移行シナリオによる被ばく線量への寄与の大きい核種の一つとして評価されている。これは、C-14 の半減期が長い(約 5700 年)ことや、処分場を構成する人工バリア材や母岩への C-14 の収着性が小さいことが一因としてあげられる。C-14 の多くは、原子炉内の燃料や金属材料等に含まれる窒素 14 (N-14) が燃料近傍で中性子照射を受けて生じる。この C-14 の濃度が高い放射性廃棄物には、原子炉施設から発生するチャンネルボックスや炉内構造物などがあり、また、再処理施設においては、使用済燃料のせん断・溶解に伴って発生するハル・エンドピースの廃棄物がある。

C-14 の収着性能(分配係数)は、C-14 の化学形態に大きく依存し、一般的に無機形態の炭素では収着性が大きく、有機形態の炭素では収着性が小さいとされており、その化学形態は地下水の物理化学的条件により変化することが知られている。このため、現状の安全評価では、保守的な設定を用いて評価されている。

安全評価をより現実的に行い、更なる信頼性の向上と合理化を目指すためには、C-14 の移行挙動(浸出率、化学形態、収着性等)の現象把握及び信頼性の高い実測データを取得整備することが望まれる。

このため、本調査では、国内で実施されてきた放射化金属から浸出する C-14 に関連する研究について、研究状況の調査を実施し、その知見を整理した。

また、この国内の知見を基に諸外国との情報交換のためのワークショップを原環センターと Nagra とで共催し、諸外国の関係機関と意見交換を行い、C-14 に関する知見の収集と共有、諸外国の問題意識を把握した。

さらに、これらの知見を基に、今後の課題を抽出し整理した。



## 第1章 国内の研究動向

### 1.1 電力

電力でのC-14の研究としては、TRU廃棄物処分のハル廃棄物中のC-14に関する研究が最初であった。この研究は平成8年度から平成9年度にかけて、電共研「ハル廃棄物中の放射性核種の化学形態及び移行挙動に関する研究」の件名で実施された。この研究では照射済PWR燃料の被覆管を用い、C-14の浸出挙動と浸出したC-14の分配係数を取得している。また、浸出したC-14の化学的な性状としては有機物であることが確認された<sup>1)2)</sup>。

余裕深度処分の放射化金属に係わる研究として、平成11年度から平成12年度にかけて、電共研「第3次埋設における放射化物等の核種移行挙動に関する研究」の件名で実施された。この研究では、電気化学法を用いアルカリ・還元雰囲気下での金属（SUS、ジルカロイ、インコンネル、炭素鋼）の腐食速度が測定され、低い腐食速度が取得された。また、実放射化金属を用い浸出するC-14挙動についても取得された<sup>2),3)</sup>。

前記研究に続き、平成13年度から平成14年度にかけて電共研「放射化金属等廃棄体の基本性能に関する研究」の件名で実施された。この研究では、実放射化金属から浸出するC-14の化学形態を分析し、有機物、無機物ともに確認された。有機物の化学形態として、アルデヒド類、カルボン酸、アルコール類が検出された<sup>4)</sup>。

また、有機C-14の無機化（放射線分解、加水分解）に関する検討と、様々な鉱物に対する有機C-14の分配係数データが取得された<sup>5),6),7)</sup>。

### 1.2 国（経済産業省）

国（経済産業省）におけるC-14に係わる研究としては、経済産業省の委託研究「放射性廃棄物処理システム開発調査等報告書—廃棄体の開発調査」の中で「光触媒による廃棄体パッケージ内の放射性有機炭素の無機化に関する研究」の件名で平成14年度実施された。この研究は、光触媒を用いた有機C-14の無機化について検討された。C-14のβ線での光触媒の無機化が確認された<sup>8),9)</sup>。

### 1.3 原環センター

原環センターでは、先に記述した電共研「ハル廃棄物中の放射性核種の化学形態及び移行挙動に関する研究」の成果を受け、金属から浸出するC-14の形態について独自に研究

を進めた。「放射性廃棄物処分における安全評価上重要な核種に関する究」の件名で平成11年度から平成13年度まで実施した。

還元雰囲気下での炭素鋼、ジルコニウムから放出する炭素の形態を測定し、化学形態としてアルデヒド類、カルボン酸、アルコール類等の低級炭化物を検出することができた<sup>4),10)</sup>。また、これら低級炭化物のアルカリ・還元雰囲気下での安定性についても検討し、アルカリ加水分解による無機化の可能性を示唆した<sup>6)</sup>。

#### 1.4 核燃料サイクル機構（JNC）

核燃料サイクル機構においては、金属腐食に伴い発生するガスの定量並びに金属腐食に伴う核種の浸出率に関する研究として実施された。

この研究では、アンプル試験を用い水素ガス発生量から金属の腐食速度を測定した。また、加速試験等を実施して、浸出した炭素の化学形態を同定した。また有機炭素のバリア材に対する収着分配係数の評価も実施している。

#### 1.5 国内調査のまとめ

先項で記述した国内の金属廃棄物中の放射化物（C-14）の挙動等に関連する研究概要を表1.5-1にまとめる。

これらの研究の成果を総合的に整理すると以下の様にまとめることができる。

- ・ 放射化金属から浸出する C-14 の形態には、無機及び有機のものが含まれることが確認できた。
- ・ 電力及び原環センターでの研究の成果から、金属から放出する C-14 の有機化合物の種類がほぼ同定、定量できることが確認できた。また、その機構については、ある程度説明できる段階であることが確認できた。
- ・ 還元雰囲気下での金属の腐食速度（C-14 の浸出速度）として、低い腐食速度が得られていることが確認できた。
- ・ 有機 C-14 の分配係数として、数 ml/g 程度の値が取得されている。また、放射化金属から放出される C-14 の分配係数として、10ml/g 程度の値が取得されていることが確認できた。
- ・ 有機 C-14 の発生だけでなく、放射線による無機化及び触媒による無機化等の効果も見込める可能性があることが確認できた。

表 1.5-1 国内の金属廃棄物中の放射化物（C-14）の挙動等に関連する研究概要

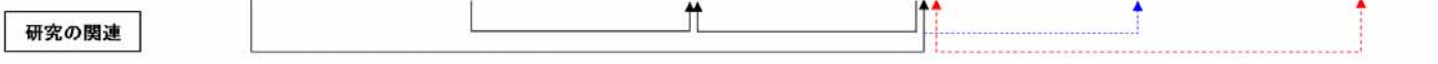
委託元		電共研			原研センター自主研	経済産業省	核燃料サイクル機構
実施機関		原研センター／三菱重工	原研センター／三菱重工、東芝	原研センター／三菱重工、東芝、日立	原研センター／東芝	原研センター／神戸製鋼	
研究項目	研究件名	①「ハル廃棄物中の放射性核種の化学形態及び移行挙動に関する研究」	②「第3次埋設における放射化物などの核種移行挙動に関する研究」	③「放射化金属等廃棄体の基本性能に関する研究」	④「放射性廃棄物処分における安全評価上重要な核種に関する研究」	⑤「光触媒による廃棄体パッケージ内の放射性有機炭素の無機化に関する研究」	⑥「金属廃棄に伴い浸出する金属系のTRU廃棄物からの核種の浸出率に関する研究」
	対象金属廃棄物	ハル	炉内構造物などの高βγ廃棄物	炉内構造物などの高βγ廃棄物	ハル	×	放射化金属
C-14の放出率と放出化学形態の検討	核種材料	-	ステンレス鋼、ジルカロイ、インコネル、炭素鋼、Ag合金	高炭素鉄鋼(マルテンサイト)、炭化鉄(バーライト)	炭素鋼の切り粉、ジルコニウム粉末、他	×	ジルカロイ、ステンレス、炭素鋼、(白鉄)
	実サンプル	PWRハル(燃焼度:47.9GWd/t)	ステンレス鋼(上部格子板)	ステンレス鋼(上部格子板)	使用せず	×	×
	C-14のインベントリ	○	○	○	×	×	△
	C-14の金属中の形態	×	×	○	△	×	×
	腐食速度	○	○	×	×	×	△
有機C-14の無機化の検討	C-14化学形態	×	×	○	○	×	○
	放射線場	×	×	○	×	×	×
	化学環境	×	○	○	○	×	×
	触媒	×	×	×	×	○	×
有機C-14の分配係数		○	○	○	○	×	○

注) ○: 研究対象、×: 研究対象外、△: 主の研究対象ではないが、既往研究から想定

(注1) 有機無機比率は測定した。  
 (注2) 放射線の高い環境での埋設施設環境下(還元雰囲気、高pH)での有機無機比率経時変化を測定。  
 (注3) 左項で電力共研での継続して腐食速度を測定。

4

委託元		電共研			原研センター自主研	経済産業省	核燃料サイクル機構
実施機関		原研センター／三菱重工	原研センター／三菱重工、東芝	原研センター／三菱重工、東芝、日立	原研センター／東芝	原研センター／神戸製鋼	
研究項目	研究件名	①「ハル廃棄物中の放射性核種の化学形態及び移行挙動に関する研究」	②「第3次埋設における放射化物などの核種移行挙動に関する研究」	③「放射化金属等廃棄体の基本性能に関する研究」	④「放射性廃棄物処分における安全評価上重要な核種に関する研究」	⑤「光触媒による廃棄体パッケージ内の放射性有機炭素の無機化に関する研究」	⑥「金属廃棄に伴い浸出する金属系のTRU廃棄物からの核種の浸出率に関する研究」
	対象材料	ハル	ステンレス鋼、インコネル	ステンレス鋼	炭素鋼の切り粉、ジルコニウム粉末、他	-	腐食速度はジルカロイ、ステンレス、炭素鋼で、溶出有機物の同定は炭素鋼、白鉄で実施
C-14の放出率と放出化学形態の検討	腐食速度	母材:11(Bq/5.5ヶ月) 酸化した鋼:120(Bq/5.5ヶ月)	ステンレス鋼:0.005 ~ 0.048 μm/年 インコネル:0.02 μm/年	-	-	-	炭素鋼は長期的には0.1 μm/年以下、ジルカロイ、ステンレスはそれ以下
	C-14の金属中の形態	-	インコネル:固溶体	炭化状態及び固溶状態	炭化物状態と推定	-	-
	C-14化学形態	有機C-14を検出	-	酢酸、辛酸、ホルムアルデヒド、メタノール、エタノール	酢酸、辛酸、ホルムアルデヒド、メタノール、エタノール	-	酢酸、辛酸、ホルムアルデヒド、メタン、エタン等低炭化水素
有機C-14の無機化の検討	放射線場	-	-	放射線による有機C-14の分解効率の有機C-14濃度依存性 ・分解効率の有機C-14形態依存性 ・分解効率への実地下水成分影響 ・有機C-14分解モデルの構築 ・分解モデルを用いた有機C-14の無機化割合評価 ・放射線により有機C-14の廃棄体外部への移行は約1/10に低減する可能性あり	-	-	-
	化学環境下	-	高pH量、還元雰囲気、高pH下での無機化傾向を確認	アルカリ還元雰囲気下では約20%の有機C-14が分解される	pHが高い方が無機化率が大きいことを確認、アルカリ加水分解と推定	-	-
	触媒	-	-	-	-	-	C-14除去率は、メタノール80%<ホルムアルデヒド85%<辛酸80%。 光触媒により約90%のC-14を除去。
有機C-14の分配係数		セメント測定値 (ml/g) 1.9~8.8	OPC、1/9 7.5(OPC)、12(1/9)	OPC、セメント系物、天然系物、人工系物 5.5(OPC)	OPC 4~10程度	-	OPC 0~1



## 第2章 処分場環境におけるC-14の放出および移行に関するワークショップ

### 2.1 開催主旨

「処分場環境におけるC-14の放出および移行に関するワークショップ」は、2003年10月27～28日に、原環センターとNagraの共催により、スイスのヴェッティンゲンのNagra事務所において開催された。

このワークショップの目的は、様々な廃棄物（使用済み燃料、燃料被覆材、燃料集合体構造材、中性子によって放射化された炉心材料および樹脂）に含まれるC-14の化学状態に関し検討すること、さらには処分場環境におけるC-14の放出、収着および移行評価に関する問題を検討することであった。また、C-14関連の研究について諸外国と現状の知見を共有し、課題点について再認識することであった。

このワークショップのプログラムを次項に記載する。

## 処分場環境におけるC-14の放出および移行に関するワークショップのプログラム

### — 日程 —

10月27日、月曜日

08:15 Hotel du Parcにてピックアップ

08:45 参加者の歓迎および紹介 L. Johnson、Nagra

#### セッションI 性能評価におけるC-14の取り扱い

09:00 放射性廃棄物処分の性能評価におけるC-14の効果 T. Tochiyama、東北大学

09:30 オパリナス粘土セーフティケースにおけるC-14の挙動 L. Johnson、Nagra

10:00 モールスレーベン最終処分場の長期安全評価におけるC-14の放出および移行の取り扱い U. Noseck、GRS  
M. Niemeyer、Colenco

10:30 休憩

#### セッションII 廃棄物におけるC-14の化学的な形態

11:00 放射化金属から放出されたC-14の化学的な形態に関する研究 M. Sasoh、株式会社東芝

11:30 使用済みイオン交換樹脂におけるC-14の測定方法 K. Stenström、Lund大学

12:00 昼食

13:30 使用済み燃料におけるNおよびC-14の含有量 P. Marimbeau、CEA

14:00 スウェーデンの原子炉から取り出した黒鉛反射材における有機および無機C-14の測定 Å. Magnusson、Lund大学

14:30 廃棄物パッケージにおける有機C-14の光触媒による分解の研究 S. Kaneko、RWMC

15:00 休憩

#### セッションIII ニアフィールドにおけるC-14の挙動および化学状態

15:30 照射条件下におけるC-14の化学形態に関する基礎研究 K. Noshita、株式会社日立製作所

16:00 処分場環境における炭素の相互作用 B. Kienzler、FZK-INE

16:30 有機C-14の埋設環境下での無機化（アルカリ加水分解） M. Sasoh、株式会社東芝

17:00 討議

17:30 解散

19:30 ワークショップ夕食 –レストラン Pavillon

10月28日、火曜日

08:00 Hotel du Parcにてピックアップ

セッションIV C-14の移行

08:30	コンクリート緩衝環境における石灰石によるC-14の炭酸塩への取り込み	I. Pointeau、CEA
09:00	放射化金属から放出されるC-14の分配係数に関する研究	M. Sasoh、株式会社東芝
09:30	C-14の生成源の評価およびブーム粘土中のC-14標識化重炭酸塩の移行挙動	J. Fernandez Lopez、Belgonucleaire、 H. VanHumbeeck、NIRAS
10:00	休憩	
10:30	還元雰囲気アルカリ条件下での放射化金属中のC-14の移行	N. Kogawa、NDC
11:00	微生物が活動するLLWサイトにおけるC-14の分配と移行のモデル化	J. Small、BNFL
11:30	放射性廃棄物処分場におけるC-14含有ガスのソース・タームの開発を目的とした新しいガス生成モデルの適用	S. Vines、NIREX
12:00	討議	
12:30	閉会	

## 2.2 会議の議事概要

- ・ 日 時：平成 15 年 10 月 27, 28 日
- ・ 場 所：Nagra 事務所 (Wettingen, Switzerland)

### —全体概要—

原環センターとNagraの共催でC-14に係るワークショップがスイスのNagraの会議室で開催された。このワークショップの目的は、様々な廃棄物から浸出するC-14の化学形態、挙動、移行等に不明な点が多いことから、各国、関連する研究を持ち寄り、意見交換することにより、お互いの知見、課題の共有化を図ることを目的とした。

今回のワークショップには、フランス、イギリス、ドイツ、ベルギー、スウェーデン、スイス、日本の7カ国の諸機関から17件の発表があり、そのうち7件は日本からの発表であった。参加者は約35名程度であった。

以下に研究発表の概要及び質疑応答をまとめる。

1 日目 10月27日 (月) 8:30~17:30

### Welcome and introduction of participants L.H.Johnson (Nagra)

今回発表する内容は、質疑応答を含めて、Nagraで報告書にまとめることとなっている。同報告書については公開することとし、参加者全員に配布するとともに外部への配布も可能とするという提案が事務局からなされ、その了解を出席者全員から得た。

### Session I Treatment of C-14 in performance assessment

#### (1) Impact of C-14 on the Safety Assessment of Radioactive Waste Disposal

(8:45~9:26)

O. Tochiyama (Tohoku University)

#### ○概要

- ・ 日本の放射性廃棄物処分の概念及び同処分におけるC-14の安全評価上の取扱いに関する説明

- ・浸出率、分配係数、母岩の透水係数等の種々の条件を考慮した線量評価を実施
- ・透水係数が  $1 \times 10^{-7} \text{m/s}$  以上では被ばく線量が  $10 \mu\text{Sv/y}$  を若干超えるケースがあるが、これは、性能評価上の諸計算条件に関する知見が必ずしも十分でないことから保守的な条件を設定していることによる。知見を充実させることにより修正可能
- ・日本の幅広い地質環境条件に適用できるように更なるデータ採取および現実的評価が必要

○質疑応答

Q：基本データにおいて何故そのように低い分配係数が設定されているのか。

A：浸出する化学形態が不明のため、保守的に低いKdを設定している。

Q：酸化被膜付きのジルカロイからのC-14の浸出率が高いことについて。

A：実際に廃棄物を用いた浸出実験から得られた値である。

Q：C-14のインベントリはどのようにして見積ったのか。

A：ハル中の不純物の窒素含有量に基づき、ORIGENを用いて計算した。

**(2) C-14 Behavior in the Opalinus Clay Safety Case (9:26~10:02)**

**B. Scwyn, L. H. Johnson (Nagra)**

○概要

- ・オパリナスクレイにおけるHLW、SF及びILWから浸出するC-14の化学形態、浸出率、についての内容
- ・下記条件で被ばく評価を実施
  - －使用済み燃料の酸化物（窒素濃度は25ppm）から浸出するC-14は無機形態にて浸出し、米国、カナダの浸出データによればその10%以上は瞬時溶出とされ、ジルカロイ（窒素濃度は80ppm）から浸出するC-14は腐食により有機形態にて浸出し、その20%は瞬時、残りは腐食に伴いゆっくり浸出
  - －HLW（ガラス固化体）中のC-14の濃度は使用済み燃料より1000倍低い
  - －ILWからのC-14の半分は有機形態であり、数万年後にピーク
  - －有機C-14と無機C-14の比率は1：1で設定しており、有機C-14については形態不明によりオパリナスクレイ及びOPC中においてKdは0で評価
- ・使用済み燃料およびILWにおける線量への寄与は、Cl-36、Se-79、有機C-14が主であり、総線量は規制値（ $0.1 \text{mSv/y}$ ）の数百分の一
- ・浸出C-14は腐食による水素発生に伴い有機形態（例：メタン）として発生



- ・化学形態の同定、および吸着についての把握が重要

○質疑応答

Q：オパリナスクレイ層における移行距離はどのくらいに設定しているのか。

A：実際にはオパリナスクレイ層の厚みは100m程度でその中間に処分場は位置するが、拡散移行距離は保守的に40mとして設定している。

Q：オパリナスクレイの均質性についてはどう考えているのか。

A：モンテリ試験場で得られている結果とベンケンのボーリング孔のデータでは若干の差が見られるが、拡散支配に影響を及ぼすほどのものではない。断層も存在するが、水理学的な特性は健岩部とほぼ同じである。

Q：ガスによる放出についてはあるのか。

A：ガス圧による押し出しにより速く放出される。

Q：有機C-14のKdが0に設定されているが、その根拠は何か。

A：化学形態に関する情報はないことからわからないので、Kdは0に設定した。

**(3) Treatment of C-14 Release and Transport in the Long-term Safety Assessment in the Final Repository in Morsleben (10:03~11:35)**

**M.Niemeyer (Colenco), U. Noseck (GRS)**

○概要－1（化学形態と移動性） M.Niemeyer (Colenco)

- ・廃棄物から浸出するC-14の化学形態と移動性に関する研究
- ・微生物分解は無酸素環境分解であり、酸化剤の存在、分子中の酸素に依存し、脂肪族に対して有効

○概要－2（溶解度と移行） U. Noseck (GRS)

- ・Morsleben処分場でのC-14移行の研究
- ・下記条件で放出される被ばく評価を実施
  - －廃棄物から浸出するC-14の形態は、炭酸（無機形態：セルロースとポリエチレンの分解より発生）、脂肪族（有機形態）及びメタン（アルミナ炭化物の加水分解により発生）
  - －リファレンスケースでは、有機物は微生物によって分解されメタンが75%、CO<sub>2</sub>が25%
  - －無機形態の遅延は、calcite等との反応により生じるが、メタンは遅延効果なし

ーメタンは水に溶存し移動する。濃度は一定で（地表近傍での）圧力低下による脱気は極めて小さい

- ・放出されるガス(CO<sub>2</sub>)による線量はメタンのそれより 2 オーダー低く以下の通り

吸入により  $9.0 \times 10^{-13} \text{Sv/y}$  食物摂取により  $1.1 \times 10^{-8} \text{Sv/y}$

○質疑応答

Q：各エリアにおけるインベントリはどのように分析したのか。

A：施設での分析による設定ではなく、廃棄側の申請値による設定としている。

Q：微生物活動についてはどのようにして求めたのか。

A：計算はしていないが、実際に存在する有機物に基づき単純な仮定をしたので、保守的な結果となっている。

*Coffee Break* (10:35～11:02)

**Session II Chemical form of C-14 in waste**

**(4) Study on Chemical Forms of C-14 Released from Activated Metals. (11:02～11:32)**

**M. Sasoh (Toshiba)**

○概要

- ・金属廃棄物から浸出するC-14の化学形態についての研究
- ・放射化金属およびコールド金属を浸漬し、浸出する炭素の化学形態を分析、発生メカニズムを評価
- ・放射化金属ではカルボン酸とアルコール、炭化物ではカルボン酸、金属（固溶炭素）ではアルコールが主に発生
- ・低分子有機炭素の生成としては炭化物の加水分解や金属腐食時の表面電位等に影響され還元した可能性を示唆

○質疑応答

Q：既往研究 (B.Deng 1997) では、液相部に有機物は検出されず、全ての有機物は気相部で検出されているが、この違いは何か。

A：放射性廃棄物を使った研究では気相部のガスは分析しなかったが、ハル電共研、

コールド試験（センター自主研）では実施している。その結果は、気相中でのガスへの移行量は少なかった。但し、評価データが少ないため、今後更なるデータの蓄積が必要である。

**(5) Methods for Measurement 14-C on Spent Ion Exchange Resins - A Review(11:32～12:00)**

**K. Stenström (Lund University)**

○概要

- ・使用済みイオン交換樹脂中のC-14の分析方法についてのこれまでの文献レビュー
- ・分析手段として酸による溶離と燃焼によるガス化を対象とし、回収率の向上、他の核種による汚染の低減等の観点から有効な分析手法
- ・双方の手法とも $^{14}\text{CO}_2$ 回収の後段に触媒加熱方式を組み合わせることでガス中のC-14を手法で回収率と有機/無機の弁別に有効

○質疑応答

- ・特になし

Lunch(12:00～13:50)

**(6) N and C-14 Contents Spent Fuel(13:50～14:25)**

**P. Marimbeau (CEA)**

○概要

- ・使用済み燃料中の核種（C-14）濃度の評価
- ・C-14は燃料中の不純物の放射化によって生成すると評価されており、ガス状若しくは揮発する可能性のあるグループとして位置づけ
- ・燃料中のC-14は酸素起源( $^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$ )が約60%、窒素起源( $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ )が約30%と評価されている。なおこの際の窒素含有量は8ppmと設定
- ・CESARコードを用いた評価結果と使用済み燃料分析を比較

○質疑応答

Q：計算に使用したCESAR CODEとORIGEN CODEとの違いについて。

A：比較は行っていない。今後行いたい。

Q：C-14の最大寄与がマイナー元素のO-17であることについて。

A：燃料中に多く含まれるO-16からO-17が生成する。

## **(7) Measurement of Organic and Inorganic C-14 in a Graphite Reflector from a Swedish Nuclear Reactor(14:25～14:53)**

**Å. Magnusson (Lund University)**

### ○概要

- ・研究炉(重水減速冷却材/天然U使用/最大出力 1 MWt)の解体時(1970年閉鎖)に発生する反射材用黒鉛(52トン)中の有機及び無機C-14の分析方法
- ・2 燃焼温度 (590°C：有機/890°C：無機) による有機/無機分別分析
- ・有機C-14の濃度：519Bq/g、無機C-14濃度：1033Bq/g であり、黒鉛中では無機炭素の濃度が多いことを確認
- ・分析上の問題 (燃焼不足、コンタミ) はないことを確認
- ・本手法による誤差は有機で19%、無機で11%(燃焼時の誤差は3～20%)

### ○質疑応答

Q：燃焼炉の汚染について。

A：汚染はなかった。

Q：有機C-14を回収する際の温度の選択理由について。

A：これまでの実績からであるが、もっとサンプル試験を実施し、次回のMeetingでプレゼンする。

## **(8) Study on Photocatalytic Decomposition of Organic C-14 in the Waste Package**

**(14:55～15:30)**

**S. Kaneko (RWMC)**

### ○概要

- ・廃棄体容器の充填材としてTiO<sub>2</sub>(光触媒)を用いた場合の有機C-14の分解に関する研究
- ・有機C-14中に光触媒を浸漬し、浸漬後の有機C-14量を分析
- ・試験の結果C-14の自己β線励起光触媒による有機物分解が確認され、最大試験時間(80日)での分解率は8(蟻酸)～67(ホルムアルデヒド)%となり、サンプル溶液からの有機炭素の除去率は90%(含む光触媒への吸着 (後に分解) )

○質疑応答

Q：各有機物のサンプル中のC-14の含有率はどの程度か。

A：データを再確認して返答する。 $(^{14}\text{C}/\text{C}=0.80\sim 0.91)$

C：還元環境では酸化反応が異なる可能性がある。そのため還元環境でも確認することが重要と考える。ガスとして放出された可能性もある。

Q：1000年後には $\gamma$ 線の線量は非常に低いと考えられる。そのような低線量環境において効果があるのか。

A：そのため、ここではC-14標識化合物を用いて、C-14の自己 $\beta$ 線による試験を実施している。

Coffee Break(15:30～15:45)

### Session III Behavior and chemical state of C-14 in the near field

#### (9) Fundamental Study of C-14 Chemical Form Under Irradiated Condition

(15:45～16:10)

K. Noshita (Hitachi)

○概要

- ・放射化廃棄物の $\gamma$ 放射線による有機C-14の分解についての研究
- ・有機C-14に $\gamma$ 線を照射し、照射後の有機C-14量を測定
- ・有機C-14は水の放射線分解により生成するOHラジカルによって間接的に分解することを示すとともに、分解効率は有機C-14の濃度に依存することを確認。また、本試験で実施した線量率の範囲では分解効率は線量率に依存しない
- ・放射線分解を考慮することにより、廃棄体中の有機C-14濃度が1桁程度低下する効果あり

○質疑応答

Q：何故、OHラジカルのみが反応に寄与しているのか。OHラジカルと同時に発生するHラジカルの寄与はないのか。

A：pHが高い領域では、OH<sup>-</sup>イオン濃度が高い。Hラジカルはこの多量に存在するOH<sup>-</sup>と反応するため、OHラジカルの反応に及ぼす影響は小さいと考えている。

Q：何故、分解効率は線量に対する依存が見られないのか。

A：分解効率そのものが線量で規格化された値であるため。

## (10) Interaction of Carbon in Repository Environments(16:10~16:35)

B. Kienzler (FZK-INE)

### ○概要

- ・処分環境におけるC-14の挙動評価
- ・黒鉛減速ヘリウム冷却高温ガス炉からのC-14は空気との接触によりCO<sub>2</sub>で放出する。
- ・中レベル廃棄物の処分を想定して調査されているAsse岩塩鉱山におけるケーススタディでは、有機C-14はCO<sub>2</sub>に分解すると推察
- ・岩塩中では溶存した炭酸イオンが固相中の炭酸塩と同位体交換により収着されるためセメント環境によりC-14の高い分配係数を期待
- ・CO<sub>2</sub>はマグネシウム存在下でマグネシウム水和炭酸塩として沈殿することから、CO<sub>2</sub>ガス形態のC-14の補足という観点からは、緩衝材をMgベースにすることの提案あり
- ・メタンの吸着は未確認

### ○質疑応答

C : コメントとして水素が大量に存在する環境ではC-14の形態変化が異なる結果になるかもしれないとの指摘あり。

## (11) Study on Chemical Behavior of Organic C-14 Under Alkaline Condition

(16:35~17:00)

M. Sasoh (Toshiba)

### ○概要

- ・アルカリ環境における有機C-14の挙動調査
- ・アルカリ環境下において実廃液の有機C-14と標識RIの有機C-14の濃度変化を分析し経時的に減少傾向を観察
- ・pHが高いほど、有機C-14の分解は早い傾向

### ○質疑応答

Q : 測定試料の中で、アルデヒド類の分解はもっと速いのではないかと。

A : 不活性雰囲気で行っているため、分解速度は大気雰囲気下で実施する場合よりも小さくなると考えられる。

Q : どのような分解反応を考えられるのか。

A : アルカリ加水分解と考える。

## Discussion(17:00~17:30)

- ・ 還元性環境におけるC-14の挙動に関する情報は重要である。
- ・ 生物圏モデルは適当か
- ・ C-14がガスか液相かによって評価は異なる。
- ・ C-14はCO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>、有機との評価が多く報告された。
- ・ 我々はもっとナチュラルアナログに学ぶことができるのではないか。
- ・ NAのプロセスは何か。
- ・ NAから沈殿物中のカルサイトを利用するとか、微生物、メタンの安定性等あるのではないか。
- ・ 使用済み燃料に含まれる窒素について、利用可能なデータが公開されていない。

2日目 10月28日(火) 8:30~12:30

## Session IV Transport of C-14

### (12) C-14 Carbonate Uptake by Limestone in Concrete Buffer Environments

(8:31~8:55)

I. Pointeau (CEA)

#### ○概要

- ・ 埋設環境（セメント接触水）におけるLimestoneへのC-14の吸着に関する研究
- ・ Limestoneを洗浄・分粒し、粒毎に炭酸（C-14）への浸漬試験および評価を実施
- ・ C-14は地下水炭酸とコンクリートCaとによるCaCO<sub>3</sub>と同位体交換するとして評価

#### ○質疑応答

Q：同位体交換に対する粒径等の影響について。

A：LimestoneへのC-14の吸着はLimestone粒径に依存する。

Q：フレッシュ及び劣化コンクリートにおけるKd値の差異について。

A：カチオンの影響である。

### (13) Investigation of Distribution Coefficients for C-14 from Activated Metal (8:56~9:30)

M. Sasoh (Toshiba)

#### ○概要

- ・各鉱物における有機C-14の分配係数の測定
- ・放射化金属からの浸漬液を用いてセメント系材料のKdを測定
- ・C-14で標識された酢酸を使用して種々の鉱物のKdを測定。高いKdを示す鉱物について他の有機物を用いてKdを測定
- ・Kdは、放射化金属の種類及びセメントの種類によらず、ほぼ同じ値
- ・幾つかの鉱物におけるC-14有機物のKdは高い

#### ○質疑応答

Q：ハロイサイトとは何か。

A：天然に産出する鉱物の一つで今回使用したものは化粧品用品として溶解処理し表面積が大きいものである。

Q：ベントナイト等のバリア材に対するKdの測定は実施しているのか。

A：実施していないが、今後の課題である。

Q：各有機物に対しKdを測定しているが、それを混合有機物（実浸出物）には適用できないのではないか。

A：本研究はバリア材の機能向上を目的として研究を実施。

Q：種々の有機物の混合物に対するKdを測定しているが、Kdは混合物の組成によって変化し、単一の化学種に対してのみ意味がある。性能評価への適用に関し、混合物に対するKdに合理性はあるのか。

A：Kdが小さいものを見極めるという点では保守的な設定を行う際には意味があると考えます。

C：得られたKd値を他の研究例と比較することが望ましい。

Q：実廃液におけるCo-60分離操作時に有機C-14を除去することにならないか。

A：除去しないでやっている。

Q：どのようにして酸素濃度を制御しているのか。また酸素濃度の測定は実施しているのか。

A：酸素濃度を調整したグローブボックスにて試験を実施しており、酸素濃度は0.1ppm以下に制御している。



**(14) C-14 Source Term Characterization and Migration Behavior of C-14 Labeled Bicarbonate in Boom Clay (9:30~10:00)**

**J.Fernandez Lopez (Belgonucleaire) H. Van Humbeeck (NIRAS)**

○概要－ 1 (C-14のソースターム評価)

- ・ 使用済み燃料中のC-14濃度の評価
- ・ 燃料について、N濃度をパラメータにC-14濃度を計算
- ・ 燃料中のC-14の90%は燃料ロッド中に存在
- ・ 測定値はロッドのASTM仕様 (<75ppm) から計算した値を上回ることはない (保守的評価)
- ・ C-14のほとんどはZryと燃料中に残留
- ・ Nの測定が重要

○概要－ 2 (Boom Clay中の炭酸評価)

- ・ 深地処分におけるBoom Clay中の炭酸評価
- ・ Boom Clayに対して拡散/注入試験

○質疑応答

Q : ウラン燃料に比べMOX燃料のC-14の方が少ないことについて。

A : 照射環境による差異が原因と考えられる。

*Coffee Break* (10:00~10:30)

**(15) Migration of C-14 in Activated Metal under Anaerobic Alkaline Condition**

**(10:30~11:05)**

**N. Kogawa (NDC)**

○概要

- ・ 放射化金属からのC-14浸出速度の測定
- ・ 浸出試験および腐食速度測定によりC-14の浸出速度を測定
- ・ 浸出試験結果と腐食速度測定結果による浸出速度は良い一致

○質疑応答

Q : スライド10~12のグラフ中の縦軸は浸出速度を表しているのか。

A : 浸出速度ではなく、浸出したC-14の積分値である。

Q : C-14の浸出について (C-14は腐食により全て放出されるという考えか?)

A : そう考える。

Q : 発生水素測定法による腐食速度との差異について (Zryは一致しているが、他は高い値)。

A : 本測定値が発生水素測定法の測定値より高いことは知っているが、どうして両者に差異が生じるかは検討したが不明であった。

## (16) Modeling the Partitioning and Transport of C-14 in Microbially Active LLW Site

(11:05~11:40)

J. Small (BNFL)

### ○概要

- ・ Drigg LLWサイトに対する安全評価
- ・ 施設評価をGRMコードにて評価。評価項目は以下の通り
  - －微生物反応、金属腐食、ガス反応、吸着、核種崩壊、地下水
- ・ 評価はサイトを63のセルに分割して実施
- ・ サイト内C-14の80%は、near-fieldにおける化学反応により移行不可

### ○質疑応答

Q : NagraレポートNTB02-05ではガス(CH<sub>4</sub>)で評価している。本コードのC-14の評価対象の化学形態は何か。

A : Driggは深地ではなく浅地処分であるので全C-14を考慮している。

Q : ガス放出機構について。

A : 評価している。

Q : 動的な解析パラメータはどのようにして求めたのか。

A : 実験から求めているが、Driggサイトのみで適用可能なサイト固有のデータである。

## (17) Application of a New Gas Generation Model to Develop the Source Term of C-14 Bearing Gases in Radioactive Waste Disposal (11:45~12:15)

S. Vines (NIREX)

### ○概要

- ・ 処分施設におけるガス発生の評価についての紹介
- ・ 英国における放射化材料中のC-14インベントリ

鉄：1670TBq（炭化水素？）、ジルカロイ：21TBq（有機物？）、Magnox：29TBq（アセチレン？）、グラファイト：1800TBq（CO<sub>2</sub>？）、有機物：670TBq（CO<sub>2</sub>orメタン）

- ・ガス発生評価コード(SMOGG、GAMMON)の紹介
- ・SMOGGコードによれば、メタンが多くなり、CO<sub>2</sub>は少なく評価

○質疑応答

Q：微生物によるガス発生について。

A：微生物の影響についてはトリッキーな問題で、今後もっと現実的なモデルが必要と考えている。

**Discussion(12:15～12:35)**

- ・炭素は最後にはおそらくCH<sub>4</sub>（移動性大）かCO<sub>2</sub>（移動性小）になるのではないかと考えられるが、どちらがどの程度になるかが重要である。
- ・C-14の移行期間と半減期の比較が必要である。
- ・C-14はトレーサーとして扱うことができない。処分環境の酸素濃度、pH、酸化還元条件により変化する。
- ・CH<sub>4</sub>の生成量を評価することが必要である。
- ・微生物の存在による影響は米国のデータだけでなく、BNFLも持っているが公開されていない。
- ・安全評価で使われているパラメータは過度に保守的であり、実験によりもっと現実的なデータの取得が重要である。
- ・使用済み燃料中のC-14濃度の知見が不足（不純物としてのN濃度に関するデータの充実）している。
- ・ナチュラルアナログから沈殿物中の炭酸カルシウムが参考となる。
- ・無機／有機の形態については実験条件により値が変化するので機構的解釈が必要。
- ・金属からの浸出速度を現実的に評価することができればC-14の影響は低減することができる可能性がある。
- ・C-14の放出機構については熱力学的に示す必要がある。

2.3 討議された主な問題のまとめ

本ワークショップで報告された研究内容は広範囲にわたるものであった。その主な内容は、様々な廃棄物におけるC-14のインベントリの計算および測定、放出されたC-14の化学形態測定、

様々な化学形態で放出されたC-14の収着、処分場の安全評価における液相および気相中のC-14の移行挙動のモデル化などであった。以下にワークショップで討議された重要点をまとめる。

- 様々な廃棄物におけるC-14の濃度に関する議論においては、各種廃棄物におけるC-14のインベントリおよび化学形態を直接的に測定する必要性に加えて、中性子放射化物におけるC-14の生成量の評価における種々の核反応生成経路の十分な検討が必要であると論じられた。
- 還元雰囲気下での金属の腐食に伴うC-14の放出に関する様々な研究報告では、還元雰囲気下での腐食速度が極めて低いことが明らかにされた。安全評価モデルにおいてこうした低い腐食速度を考慮すると、C-14インベントリの大部分は金属から放出する前に崩壊してしまうことが期待できる。したがって、安全評価において過度に保守的な放出速度を用いる代わりに、この腐食速度をより詳細に求めることが重要である。
- 様々な放射化金属廃棄物から放出されるC-14の化学的な形態の問題に関して最近得られた最も重要な成果の一つは、放射化金属の腐食に伴って放出されるC-14の化学種が、無機C-14に比べて有機C-14の比率が高いとされる研究結果が得られたことである。この有機C-14はカルボン酸、アルコールおよびアルデヒドなどの小さな分子の有機化合物が優勢であることも同時に明らかにされたので、それに伴って、これらの分子が最終的にどのような化学的な形態をたどるかという問題に関して様々な議論が交わされた。処分場の安全評価モデルの入力情報として、これら化学種のC-14の収着をいかに取り扱うべきか、あるいは、これらの分子は、最終的に微生物によりCO<sub>2</sub>に酸化されるのか、CH<sub>4</sub>に還元されるのかという問題が、重要な論点であった。

C-14の収着特性に関しては、小さな分子の有機化合物は収着性を考慮することにより、C-14の移行期間中においてかなりの崩壊を見込める可能性がある。C-14の化学形については、CO<sub>2</sub>に酸化されたC-14はアルカリ環境下で方解石（カルサイト）として沈殿することにより効果的に遅延されると考えられる。しかし、メタンへと還元されたC-14ははるかに速く移行する可能性もある。ただし、その場合でも、地表環境下では微生物によるCO<sub>2</sub>への酸化が起こることを考慮する必要がある。安全評価において、C-14の移行をより現実に近い形で取り扱うために、モデルの開発や実証データの取得に向けて更なる努力が必要である。

### 第3章 今後の課題等

国内での調査および国際ワークショップにおける諸外国の研究機関との意見交換により、放射化金属から浸出する C-14 に関する研究について、情報を整理することができた。

国内では、放射化金属から浸出する C-14 が性能評価上、主要な核種となるとの認識の基、様々な研究が進められており、これらの研究の成果を総合的に整理すると以下の様にまとめることができた。

- ・放射化金属から浸出する C-14 の化学種には、無機及び有機のものが含まれることが確認できた。
- ・電力及び原環センターでの研究の成果から、金属から放出する C-14 の有機化合物の種類がほぼ同定、定量できることが確認できた。
- ・還元雰囲気下での金属の腐食速度（C-14 の浸出速度）として、低い腐食速度が得られていることが確認できた。
- ・有機 C-14 の分配係数として、数 ml/g 程度の値が取得されている。また、放射化金属から放出される C-14 の分配係数として、10ml/g 程度の値が取得されていることが確認できた。
- ・有機 C-14 の発生だけでなく、放射線による無機化及び触媒による無機化等の効果も見込める可能性があることが確認できた。

諸外国では、C-14 の問題については、認識し始めた段階であり、このため各機関ともその研究内容や重要性、評価には差があることを確認した。しかし、原環センターと Nagra との共催で実施した C-14 のワークショップにより、現実的な評価の重要性は各国共通の認識であることを確認することができた。

本調査より整理できた C-14 に関する研究の主要な課題を以下に示す。

- ・廃棄物中の C-14 濃度に対し、知見が不足している。（インベントリ評価必要）
- ・還元性環境における C-14 の挙動に関する情報は重要であり、C-14 の気相、液相への移行評価が必要である。
- ・金属から放出される C-14 の無機／有機の化学的な形態については、実験条件により変化するため、機構的解釈が必要である。

- ・現実的な C-14 の放出速度を評価するためには、処分環境下より近い条件下での長期的な金属の腐食速度のデータ取得及び評価することが必要である。
- ・微生物に関する公開データが少ない。

余裕深度処分あるいはTRU廃棄物処分のより一層の信頼性の向上と合理化を図るためには、今後上記課題を解決し、放射化金属から浸出する C-14 の現実的な挙動を評価することが必要であると考えられる。

## 参考文献

### 第1章

- 1) T.Yamaguchi, S.Tanuma, H.Tanabe, et al.,“A Study on Chemical Forms and Migration Behavior of Radio nuclides in Hull wastes,”Radioactive Waste Management and Environmental Remediation (ICEM 1999), Nagoya, Japan, (1999).
- 2)N.Kogawa, “Migration of C-14 in Activated Metal under Anaerobic Alkaline Condition,” Proceedings of a workshop on the release and transport of C-14 in repository environments, NAGRA NIB 04-03, p101-p107, (2004)
- 3) (財)原環センター, “放射化物等の核種移行挙動に関する検討委員会(アルカリ・還元雰囲気下の腐食速度評価試験等)”, 平成14年3月
- 4) M.Sasoh, “The Study for The Chemical Forms of C-14 Released from Activated Metal,” Proceedings of a workshop on the release and transport of C-14 in repository environments, NAGRA NIB 04-03, p21-p23, (2004)
- 5) K.Noshita, “Fundamental Study of C-14 Chemical Form under Irradiated Condition,” Proceedings of a workshop on the release and transport of C-14 in repository environments, NAGRA NIB 04-03, p67-p71, (2004)
- 6) S.Sasoh, “Study on Chemical Behavior of Organic C-14 under alkaline condition,” Proceedings of a workshop on the release and transport of C-14 in repository environments, NAGRA NIB 04-03, p81-p83, (2004)
- 7) S.Sasoh, “Investigations of Distribution Coefficients for C-14 from Activated Metal,” Proceedings of a workshop on the release and transport of C-14 in repository environments, NAGRA NIB 04-03, p85-p87, (2004)
- 8) (財)原環センター, “平成13年度 放射性廃棄物処理システム開発調査等 - 廃棄体の開発調査 - 第7章 金属材料容器型廃棄体(廃棄体(4))”, 平成14年3月
- 9) H.Asano, et al., “Study on Photocatalytic Decomposition of Organic C-14 in Waste Packages,” Proceedings of a workshop on the release and transport of C-14 in repository environments, NAGRA NIB 04-03, p61-p65, (2004)
- 10) S.Kaneko, H.Tanabe, M.sasoh, et al.,“A Study on the Chemical Forms and Migration Behavior of Carbon-14 Leached from the Simulated Hull Waste in the Underground condition,”Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol.757, p.621-p.626, (2003).

## 謝辞

本調査を進めるに当たり、朽山修 東北大学教授には「金属廃棄物中の放射化物（C-14）の溶出、挙動等に関する国際ワークショップ」の国内での事前調整時において、ご指導を頂きました。また、ワークショップにも実際に参加して頂き、諸外国との意見交換を行って頂きました。

「金属廃棄物中の放射化物（C-14）の溶出、挙動等に関する国際ワークショップ」の国内での事前調整において、電力共通研究の成果をまとめるに当たり、日本原燃（株） 佐々木規行氏には大変なご尽力をして頂きました。また、核燃料サイクル開発機構 本田明氏には、核燃料サイクル開発機構の成果についての情報と他の研究への貴重なコメントを頂きました。

NDC（株）の甲川憲隆氏、（株）東芝の三倉通孝氏、（株）日立の野下健司氏、（株）神戸製鋼の中西智明氏には、「金属廃棄物中の放射化物（C-14）の溶出、挙動等に関する国際ワークショップ」に参加して頂くと共に、報告書の取りまとめに向けた議論の中で実務担当者としての貴重なご意見を寄せて頂きました。

さらに、本技術報告書のとりまとめに当たっては、朽山修 東北大学教授に大変ご多忙な中、再度ご指導を頂きました。

未筆ながら、以上の関係者の皆様方に深く感謝の意を表します。



**【問合せ先】**

〒105-0001 東京都港区虎ノ門2丁目8番10号(第15森ビル4階)  
財団法人 原子力環境整備促進・資金管理センター(原環センター)  
電話 03-3504-1081 ファックス 03-3504-1297

Radioactive Waste Management Funding and Research Center(RWMC)  
No.15. Mori Bldg, 2-8-10, Toranomom, Minato-ku, Tokyo, 105-0001, Japan