

【大阪ニュークリアサイエンス協会賞 受賞論文概要】

放射性トレーサーを用いた

無機元素の環境中挙動研究

— 高レベル放射性廃棄物の地層処分の技術開発に関する基礎的研究 —

京都大学 原子炉実験所 藤川 陽子

近年、科学技術およびそれらを応用した産業の地球・人間環境への影響が世界的に問題となるに伴い、環境保全に配慮した包括的な科学技術体系の開発が急務となってきた。人類社会に大きな恩恵をもたらしてきた放射線の利用技術もその例外ではなく、殊に、我が国において電力の安定供給に寄与してきた原子力発電について、その環境影響が広く一般社会において問われる時代となっている。

本研究は、環境保全に配慮した放射線利用技術体系の開発に係り、特に原子力発電に伴い発生する高レベル放射性廃棄物の地層処分技術の確立を目指したものである。長半減期（数千・数十万年以上）の放射線各種を多く含む高レベル放射性廃棄物は、その地層処分の安全性評価においては、10年以上の長期にわたり放射能の深地層-人間生態圏中での挙動を予測・評価する必要がある。このため、室内・野外実験データの収集、およびこれらのデータに基づく安全性予測手法の開発が必須である。受賞研究では、プルトニウム、ウラン、セシウム、セレン等、その移行挙動が地層処分の安全性評価の鍵を握る長半減期放射性核種について、種々の放射性物質をトレーサーとして用い、(1) 室内実験による岩石中の拡散・収着・移行挙動の解明、(2) 数学モデル開発と移行予測シミュレーションの実施、(3) 野外におけるプルトニウム等の核種移行調査、等の広範囲な基礎的研究を行ってきた。わが国における地層処分技術開発がその緒についた現在、受賞研究は、原子力システム開発完成のための最後の技術的課題について、実験的・理論的基礎を提供するものである。

受賞研究の特色は、環境保全に配慮した放射線利用技術体系の開発のため、放射能による（放射能を利用した）放射能の環境安全研究を行ってきた点にある。すなわち、室内実験で放射性同位元素をトレーサーとして利用し、また野外調査において核実験に由来する人工放射能や天然の放射能を指標として、放射性同位体の環境中移行を解析し、放射線・原子力エネルギー利用の健全な必須条件である高レベル放射性廃棄物の地層処分の基礎研究を実施した。研究内容は、以下の3項目にまとめられる。

1. 核種移行に係る室内実験

地下 500~800mでの高レベル放射性廃棄物の地層処分技術を確立するためには、地下水中の放射性核種と岩石の相互作用（収着）を支配する要因を解明することが先決である。本研究は、地下水中のセシウム・コバルト・セレン等の各種の放射性核種が岩石に収着するメカニズムについて、放射性トレーサーを用いて多数の室内実験を行ない、これを解明した。その結果、岩石への核種のみかけの収着速度と岩石内微小孔隙への拡散係数との間には、ある相関関係が成立することを実験的・理論的に証明した。さらに、(1) 岩石への核種の収着機構には、時間とともに変化する aging 効果が存在すること、(2) セレンは岩石との相互作用によりその地下水中存在形態が時間的に変化的なことで、(3) 地下水中の主要アニオンが、セシウム等のカチオン形の放射性核種の岩石への収着を大きく左右すること、等を明らかにした。

2. 核種移行モデルの開発

およびその解法の検討

岩石亀裂系における収着性の放射性核種移行モデルの開発は、地層処分安全性評価と将来予測を実施する上で、必要不可欠である。本研究では、岩石割れ目系において、核種の移流・分散・岩石内微小孔隙への拡散・岩石への収着のモデルを構成した。さらに、モデルに数学的解法を適用して、花崗岩の割れ目系における核種移行の実験データを解析し、モデルの有効性を証明した。また、室内実験で得た知見を反映させ、より簡略化した核種移行モデルを開発して、仮想的な放射性廃棄物地層処分場の安全性評価に適用した。その結果、地層バリアの性能が、従来言われてきた核種の収着係数のみならず、微小孔隙内拡散係数にも大きく依存する、との結果を得た。

3. 野外実験におけるプルトニウム等の

核種移行のナチュラルアナログ研究

廃棄物の地中処分に由来するプルトニウム・ウラン・セシウム・セレン等の放射性核種が、生態圏に拡散した場合の挙動を検討することは、核燃料サイクルの安全性評価を確立する上で重要である。これらの核種の10万年以上にわたる長期的な挙動を明らかにする手法として、地球の歴史の中で動的平衡状態を確立している微量元素の放射性および安定同位体の挙動を解明するナチュラルアナログ的手法が考えられる。本研究では、大気中核実験のフォールアウトおよび天然放射性核種をトレーサーとし、放射性物質と土壤生態圏の相互作用を解明するための研究を行ってきた。そのため、誘導結合プラズマ質量分析法(ICP-MS)、アルファ線スペクトロメトリー法等を、環境試料中の長寿命放射能の極低レベル分析に適用して、土壤有機物・微生物の影響に重点をおいて、土壤生態圏における放射能の挙動を解明した。その内容は、(1) 長崎の原爆由来のプルトニウム(Pu)の10%以上は、土壤中では有機物と強固に結合しており、

その有機物との結合量が1~2%であったウラン等と比べ、Puの有機物との反応性は著しく高い(図1)、(2) Puの一部(1%程度)は、土壌-地下水系において比較的容易に移動する有機物群(フルボ酸)と結合しており、このような化学形のPuを環境影響評価の上で重視する必要がある、(3) 硫酸還元菌等の微生物は、深層地下環境でPu等のアクチニド系列元素を収着してその移動を抑制する働きがあり、100種以上の微生物が抑止している、等である。これらの発見はこれまでの学会の通説を覆すざん新なものである。

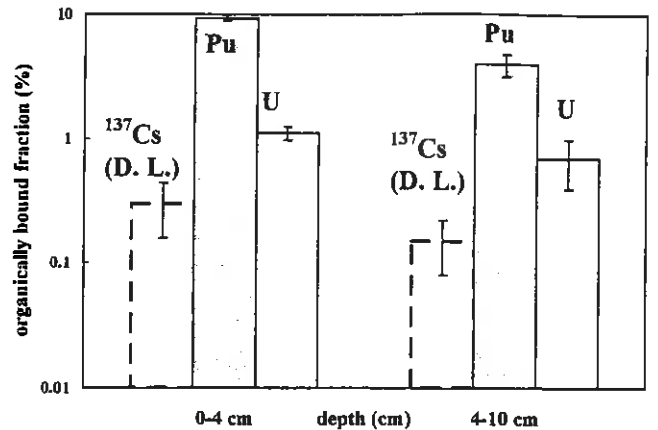


図1 (a) 長崎・西山の表層土(0~4cm, 4~10cm 深さ) 中で土壤フミン酸と強く結合している放射性セシウム、プルトニウム、ウランの% (図中、D.L.は検出限界を示す)。

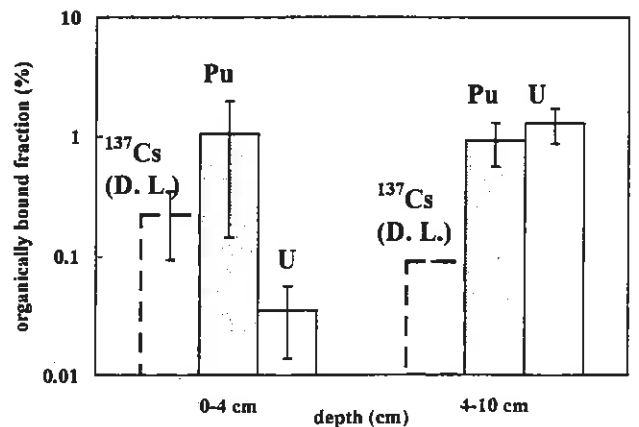


図1 (b) 長崎・西山の表層土(0~4cm, 4~10cm 深さ) 中で土壤フルボ酸と強く結合している放射性セシウム、プルトニウム、ウランの% (図中、D.L.は検出限界を示す)。