



放射性廃棄物地層処分における長期の地下水動態評価に係る地下水年代測定技術の最近の進展

(Recent Progress in Groundwater Dating Techniques for Assessing Long-Term Groundwater Dynamics in Geological Disposal of Radioactive Waste)

電力中央研究所

(Central Research Institute of Electric Power Industry)

中田 弘太郎*

長谷川 琢磨

Kotaro Nakata

Takuma Hasegawa

 電力中央研究所

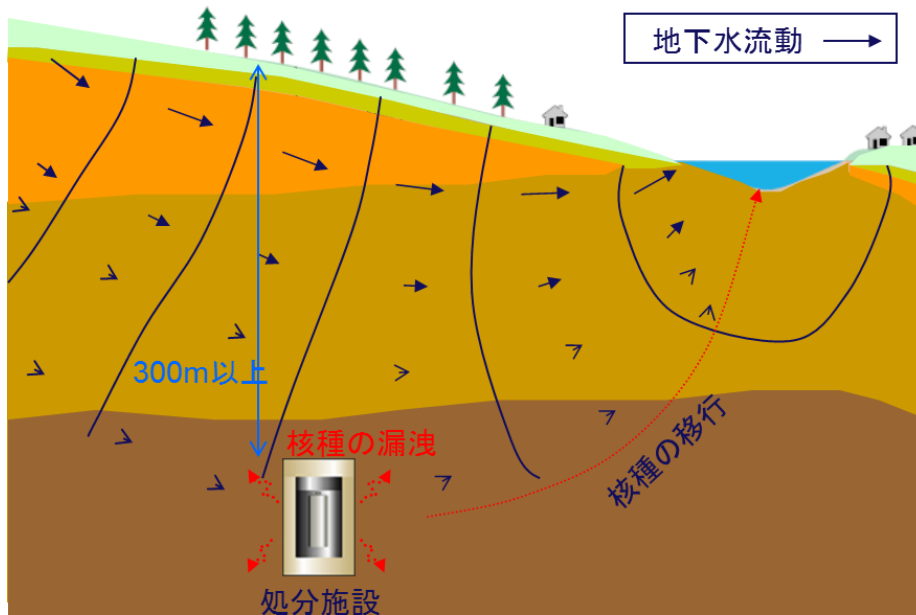
本日発表の内容:Contents

- ◆ 研究の背景 : Background of our research
- ◆ 地下水年代とその測定原理 : Groundwater dating and the principals
- ◆ 適用事例 : Recent case study
- ✓ ^{81}Kr による年代測定 : Groundwater dating with ^{81}Kr
- ◆ まとめ : Summary

◆ 研究の背景 : Background of our research

背景: Background of the research

◎ 地層処分概念: Concept of Geological Disposal



- 人間の生活圏から遠ざける
Keep them away from human beings
- 多重バリアシステム: 人工+天然バリア
Multi barrier systems



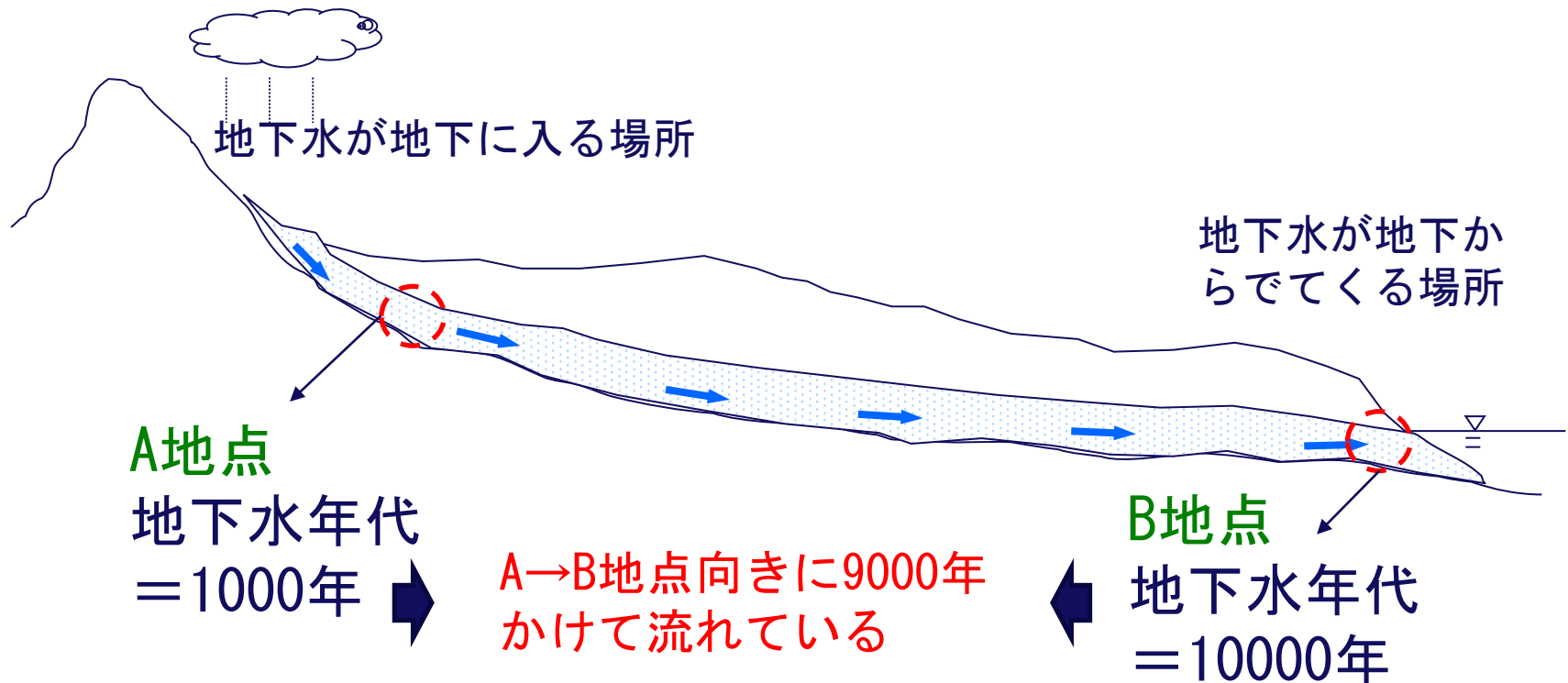
人間の生活圏にでてこない、出てきたときには無害化(減衰)している

◎ 人間が影響を受ける可能性: Possible Scenarios

- 地層の隆起で処分場が地表付近に
- 多重バリアシステム: 人工+天然バリア
- 核種が地下水に溶出、地下水の流れとともに人間の生活圏へ: Groundwater Scenario

地下水年代とは？ What is groundwater age ?

地下水の年齢：地下水が地下に入ってから時間→「**地下水年代**」
 Groundwater age: the residence time of GW since recharge



地下水年代の分布：広域・長期間での地下水の流れる方向・速度を推定できる重要な情報になる

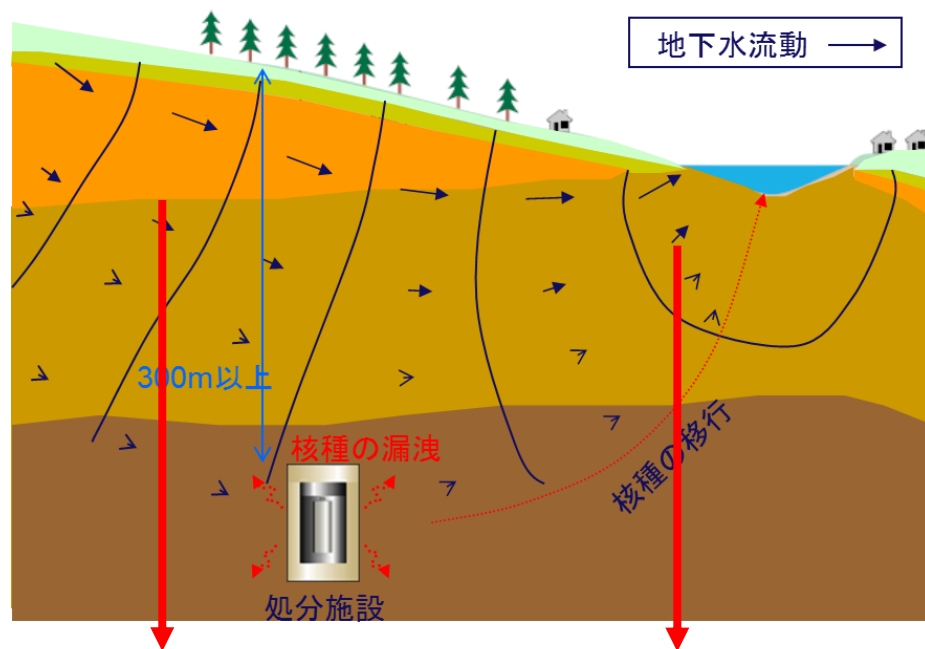
Groundwater age can provide useful information about direction and flow rate of regional GW during long period

地下水年代の廃棄物処分への利用

Use of groundwater age for HLW disposal

◎ PAの醸成: Forming of public acceptance

◎ モデル評価への適用: Application for model calibration



直感的に地下水が動きにくいことを理解
We can “feel” groundwater is old

長期・広域の地下水流動を理解
The regional flow of groundwater during the long period can be assumed from age of groundwater

Point A
: 10,000 Year



Point B
: 50,000 Year

Point A to B

◆ 地下水年代とその測定原理 : Groundwater dating and the principals

地下水年代をどのように評価するか？

How to evaluate the groundwater age?

地下水の年代の推定方法

- ◆ 地下で増えるものを利用：ヘリウムガスなど

Use of something increase in subsurface

- ◆ 地下で減るものを利用：天然の放射性核種

Use of something decreases in subsurface

- ◆ 過去の気候変動なども利用できることも

Other methods: Use of paleo-climate etc.

地下中で増えていくものを利用

Use of something increase in subsurface

代表例: ヘリウムガス (Representative example Helium)

ヘリウムガスとは？

- ・特性(characteristics): **他の物質と反応しない**(chemically inert)
- ・発生(origin in subsurface): **岩石に含まれるウラン/トリウムの反応から発生**(generated from reactions of U and Th)

➡ **古い地下水ほどHe濃度が高くなる**、年代が古いほど分析が容易

The concentration of He increase with increase of groundwater age



地下水のヘリウム濃度、岩石からのヘリウムの発生速度がわかれば、地下水年代を推定できる

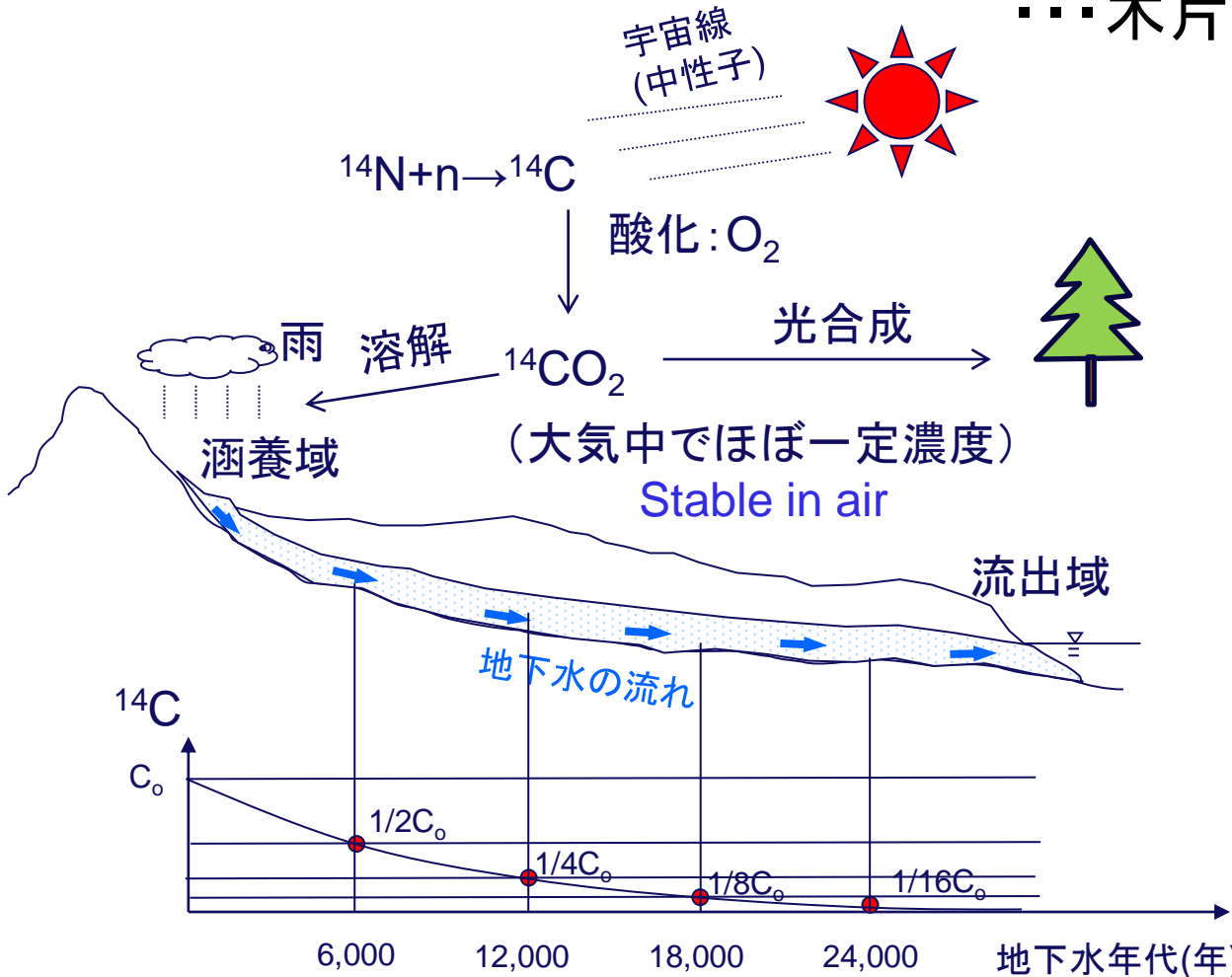
Groundwater age can be estimated from concentration of He in GW and U and Th concentrations in rocks

地下水年代の評価方法：減っていくもの

Use of something increase in subsurface

例：天然の放射性核種 (^{14}C ・ ^{81}Kr など)

…木片の年代測定等で有名



大気中の放射性核種
→宇宙線による生成と崩壊がバランス

^{14}C stable in air

地下中の放射性核種 → 生成がなく、「半減期」に従ってなくなる

^{14}C decreases according to half-life in subsurface

濃度と半減期から年代を推定できる (age can be estimated from concentration and half-life)

地下水年代の評価方法: そのほか

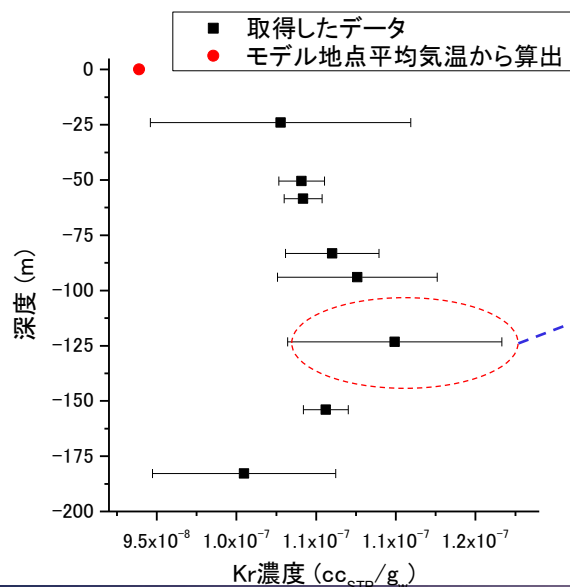
Other methods

例: 昔の気候変動を利用 Use of Paleo climate

- ・気温が低い: 水にガスが**溶けやすい**
 - ・気温が高い: 水にガスが**溶けにくい**
- 冷蔵庫のコーラ
vs 室温のコーラ



ガスの濃度が高い箇所は、気温が低いときに地下に入った水である可能性
High concentration of gases may be caused by low temperature



(例)ある地点でのクリプトン濃度の深度方向分布(左図)

深度125m付近の地下水は気温が低いときに地下に入った



氷期がもっとも盛んだった**18000年程度前**の地下水であると推察できる

適用事例: Recent case studies

✓⁸¹Krによる年代測定: Groundwater dating with ⁸¹Kr

^{81}Kr の特徴

Characteristics of ^{81}Kr

◎ ^{81}Kr の特徴(その1)

・放射性希ガス: 化学的反応性低い

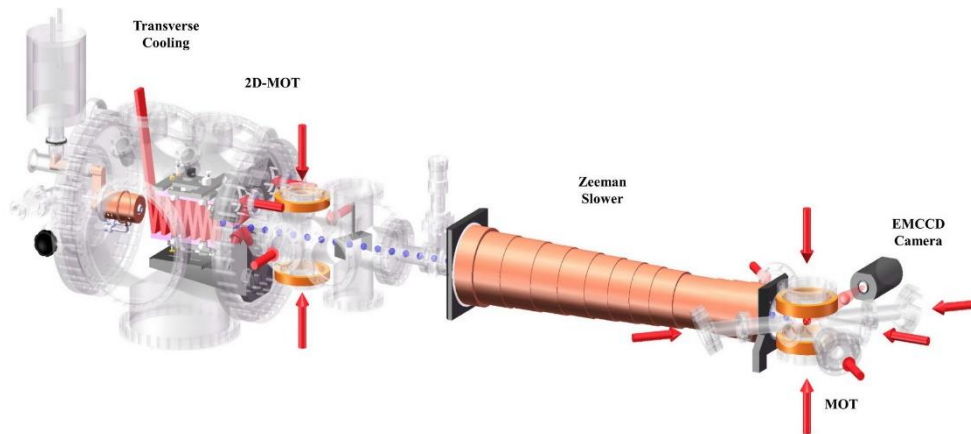
Radioactive noble gas: it is not involved in geochemical reactions

・半減期: 22.9万年→10~100万年程度の地下水年代評価可能

Half-life 2.29×10^5 years: it can be used for dating for 1×10^5 to 1×10^6 years

・近年分析手法の開発により、現実的なサンプル量で分析が可能となった

Development of measurement method allows us to measure ^{81}Kr with relatively small amount of sample



引用: UTSCホームページ

Atom Trap Trace Analysis (ATTA)

アメリカ・中国・オーストラリアの研究機関で分析可能

It can be conducted in US, China and Australia

^{81}Kr の有用性 Usefulness of ^{81}Kr

◎ ^{81}Kr の特徴(その2)

- ・地表では発生源があるが、地下では発生源が(ほとんど)ない
Production of ^{81}Kr is almost negligible in subsurface



地表の水・若い地下水浸入の指標となる

^{81}Kr can act as an indicator of intrusion of surface/young water

^{36}Cl の場合:

わずかに地下で発生源あり



(海水由来の地下水)
地下でのCl濃度高い

^{36}Cl の数は多い

^{81}Kr の場合

地下での発生源無視できる



^{81}Kr の地下での発生は無視できる程度

^{81}Kr の利用(日本での課題) Use of ^{81}Kr (Issues in Japan)

- ◆ 日本では地下水におけるメタン濃度が高いケースがある
Concentration of methane is sometimes high in Japan
- ◆ メタンによりKrの濃度が薄まっている→大量のガスが必要
Concentration of Kr is diluted by methane
- ◆ メタンにより分析機関への送付が難しくなる
High concentration of methane makes the transportation difficult



地下水から抽出したガスからメタンを除去し、Kr濃度を高める
技術を開発させる必要がある

Development of removal method of methane from gas
samples is required

メタンの減量方法の検討 Removal method of methane

3つの手法の検討

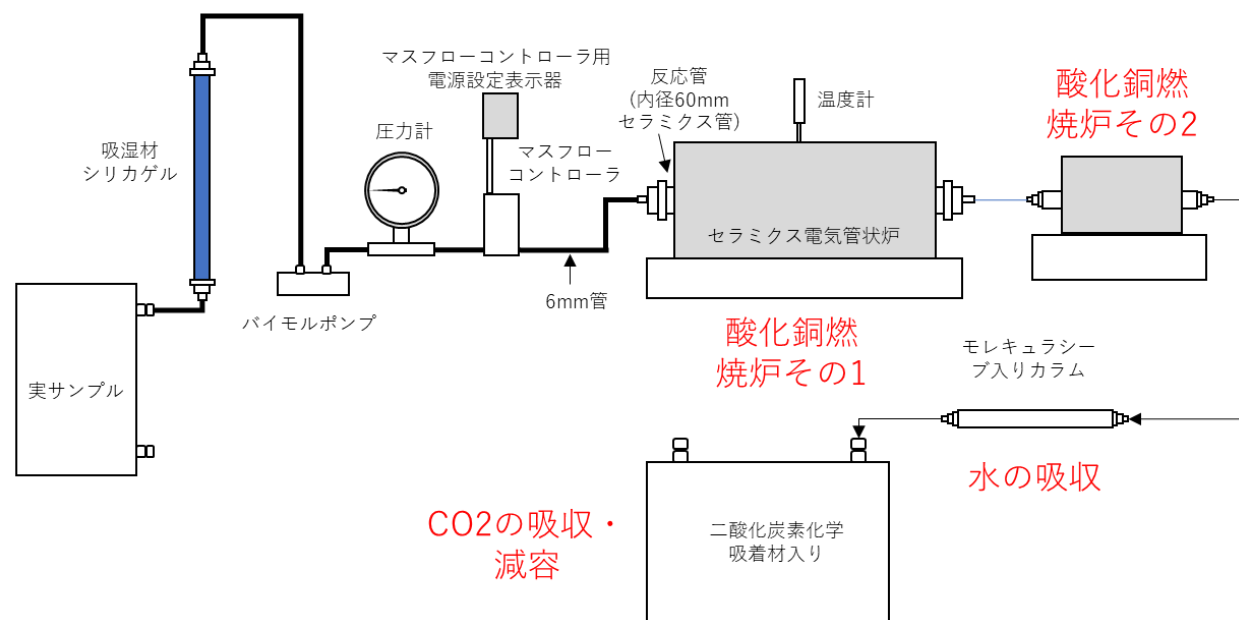
Development of removal method of methane is required

手法	利点(merit)	欠点(demerit)
メタンの酸化 Oxidation of methane	詳細はこのちほど (Mentioned later)	二酸化炭素・水を除去する必要 H ₂ O and CO ₂ have to be removed
チタンへの吸着 Sorptions of methane on titanium	多くの反応性のガスを除去できる Many kinds of gases can be removed	真空度が上がる分、コンタミしやすい。チタン表面状態の制御が難しい (High vacuum results in contamination. Controlling the surface conditions of Ti is difficult)
冷却トラップ Sorptions on cold trap	高温での加熱が不要 High temperature is not required	回収率低い Low recovery

メタンの減量方法の検討 Removal method of methane

メタンの酸化→トラップ法

Development of removal method of methane is required



- ❑ 酸化銅燃焼炉 (combustion furnace): メタンを二酸化炭素と水に酸化
- ❑ モレキュラーシーブ (molecular sieve): 水をトラップ
- ❑ 二酸化炭素吸収剤入りガスバッグ (gas bag with CO₂ absorber): 二酸化炭素をトラップ

メタンの減量方法の検討 Removal method of methane

【北海道幌延地域のガスへの適用例

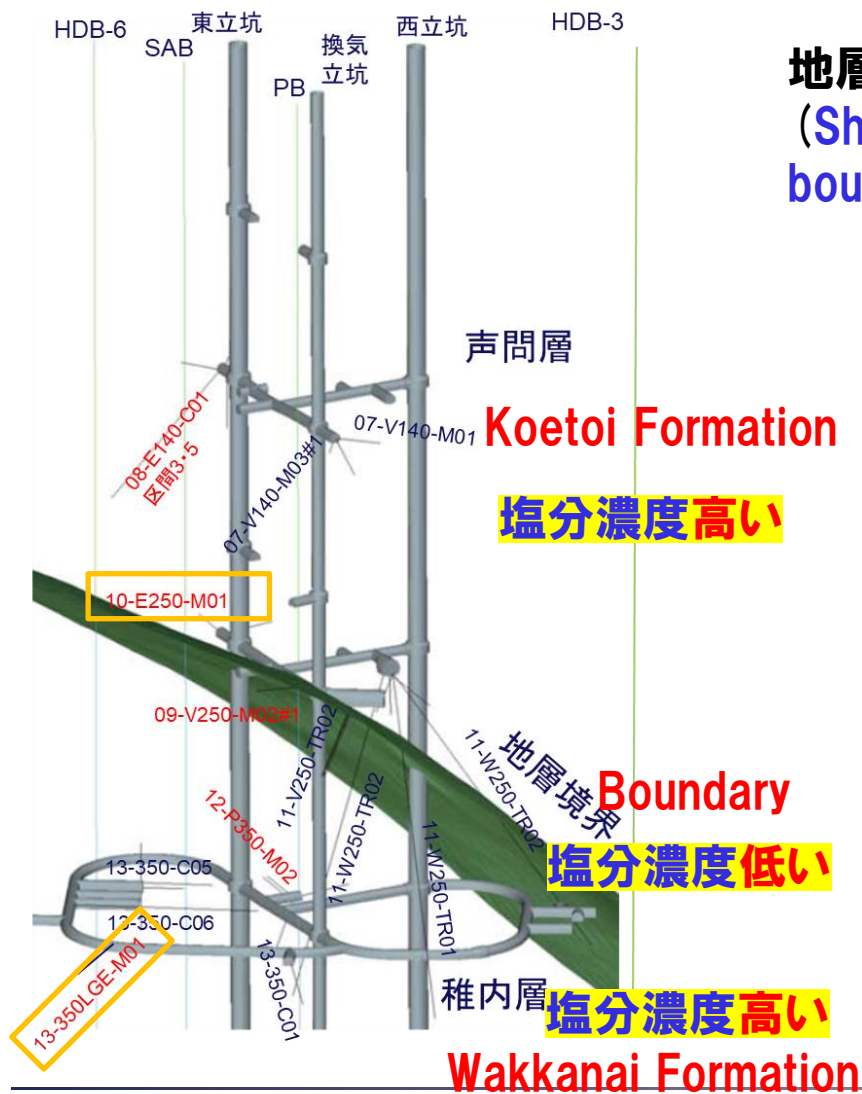
(Application to gases obtained in Horonobe, Hokkaido)

サンプル (Sample)		容量	ガス濃度(%) Concentration					Kr濃度 (ppm)
			H ₂	O ₂	N ₂	CH ₄	CO ₂	
13-350LGE-M01	Before treatment	40L	0.0	0.6	2.6	89.4	5.9	0.04
	After treatment	0.46L	0.0	51.0	48.6	0.1	0.4	3.06

➡ 92%

- 主要成分(Main component) : メタン(Methane) → 窒素(N₂)
 - サンプルの体積(Volume of sample) : 40L → 0.46L
 - Kr回収率が高い (high Kr recovery) → CO₂がキャリアの役割 (CO₂ acts as carrier gas)
- ➡ 輸送が容易
Be transported easily
- ➡ 貴重なサンプルの損失がない
(We do not lose important samples)

幌延地域への適用 Application to groundwater in Horonobe

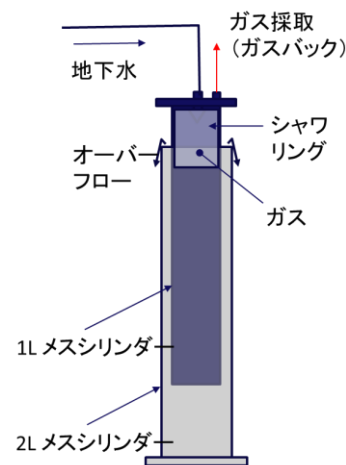


地層境界を浅層地下水が流れている可能性
(Shallow groundwater may flow through the boundary)



- 250m(地層境界付近) で、ガスを採取*し、
- 350m(稚内層) ^{81}Kr を分析

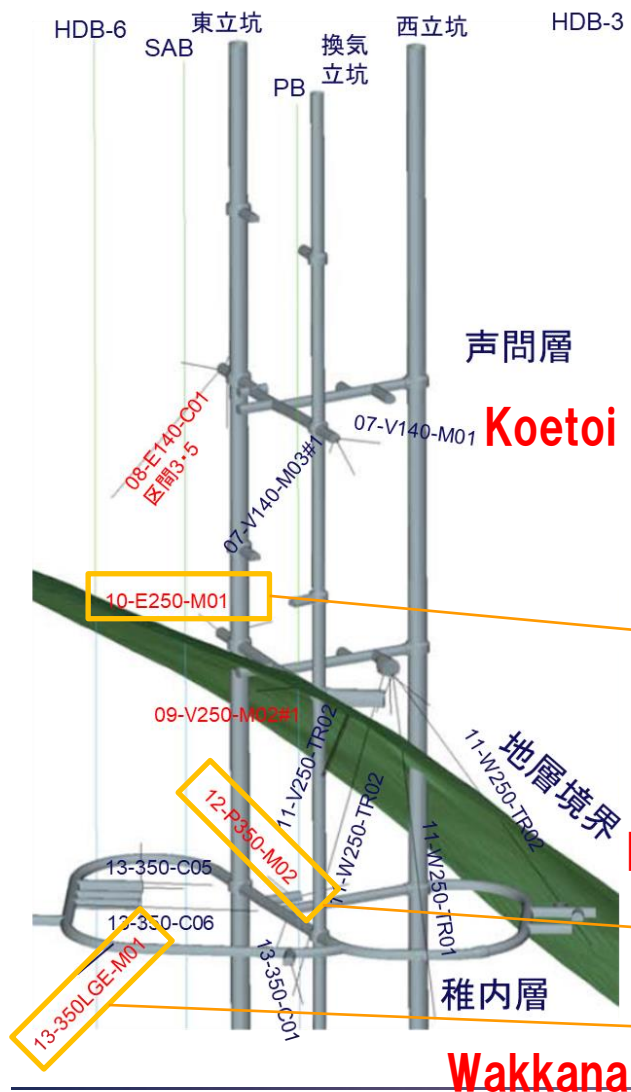
Gas was obtained and ^{81}Kr was measured after the treatment at the depth of 250 and 350m



ガス採取装置の概念図

Schematic view of “water displacement method” for obtaining the gases from groundwater

幌延地域への適用 Application to groundwater in Horonobe



^{81}Kr の分析結果

Results of ^{81}Kr measurements

250mにおける ^{81}Kr 濃度
81Kr at 250m

12.6 pMKr

350mより顕著に
大きい
Significantly
larger than that
at 300m

300mにおける ^{81}Kr 濃度
81Kr at 300m

0.2 pMKr

ゼロに近い
Close to 0

2.5 pMKr

メタン濃度が高くて古い
地下水では $^{81}\text{Kr}=0$ を確認

^{81}Kr まとめ Summary of ^{81}Kr

- ◆ ^{81}Kr の特性: その性質から、天水浸入の指標として有効
 Characteristics of ^{81}Kr : It can provide information about intrusion of surface/young groundwater
- ◆ 現時点での課題: メタンにより分析機関への安全・確実な輸送が阻害される可能性がある→メタンを低減し、Kr濃度を高める手法を開発
 Methane can be a big issue for safety transportation and measurement of ^{81}Kr → The method that can reduce the amount of methane has been developed
- ◆ 幌延地域の地下水への適用: 250mに比較的若い地下水が流れ込んだ可能性を示唆(Cl濃度等と合致: 更なる検討必要)
 Application to Horonobe groundwater : The results indicated young groundwater may flow into 250m (further investigation is required)



日本の地下水で ^{81}Kr を適用し、年代評価ができることを確認した
 It was confirmed that ^{81}Kr can be used as a tracer of groundwater age

まとめ Summary

- ◆ 地下水年代：長期・広域の地下水流動に関する情報・解析結果の妥当性検証に有効

Groundwater age can provide useful information about regional flow of groundwater during long period: it can be applied to calibration of flow model

- ◆ 地下水年代：地下中で増えていくもの、減っていくものに着目し、地下水の年を評価する手法

Groundwater age is estimated from something increase/decrease in subsurface

- ◆ 最新の事例 (^{81}Kr の利用) : ^{81}Kr は天水由来の地下水の浸入評価に有効。メタンを除去し ^{81}Kr を分析する手法を開発→幌延地域での有効性を示した

Recent case study (use of ^{81}Kr) : ^{81}Kr can indicate the inclusion of young groundwater into old one. The method for removing methane from gas samples has been developed → ^{81}Kr has been applied to groundwater in Hornobe area

謝辞

- ◆ここで発表した成果は経済産業省からの受託事業「高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業（JPJ007597）(岩盤中地下水流動評価技術高度化開発(令和3年度))」において得られたものである。
- ◆サンプル採取等において、JAEAの宮川和也氏に多大な貢献をいただいた。