

第 3 章

3

TRU 廃棄物処分

第3章 TRU廃棄処分 目次

企画部原子力推進担当 部長 横山 速一
狛江研究所原子力システム部 上席研究員 塚本 政樹
狛江研究所原子力システム部 主任研究員 藤田 智成
狛江研究所原子力システム部 主任研究員 杉山 大輔

3 - 1	TRU廃棄物処分の特徴	43
3 - 2	人工バリア(セメント)の特性評価	44
3 - 3	セメント系材料と処分環境との相互作用	47

横山 速一（8ページに掲載）

塚本 政樹（18ページに掲載）



藤田 智成（1991年入所）
界面化学の観点から、高レベル廃棄物・TRU廃棄物の人工バリア構成材に対する放射性核種の収着挙動等について実験的な検討を進めると共に、バリア性能評価解析を実施している。また、コロイドの及ぼす影響評価にも従事している。



杉山 大輔（1994年入所）
放射性廃棄物処分における人工バリアの化学的性能評価研究に従事。1998年4月より1年6ヶ月間英国AEAテクノロジー社に滞在、アクチニド元素を用いた試験を実施。セメント水和物の化学的変質、核種固定化現象を主に実験的手法により評価している。

3-1 TRU 廃棄物処分の特徴

再処理施設およびMOX加工施設から発生する超ウラン元素(TRU)核種を含む低レベルの放射性廃棄物(以下、本報告ではTRU廃棄物と称す)は、放射性核種濃度が比較的高いものから低いものまで広範囲に分布している。多くはセメント固化体であるが、アスファルト固化体も含まれており、また硝酸や有機物、金属等を含む多種多様な廃棄物である。さらに、半減期の比較的に長いTRU核種とともに安全評価上重要な I^{129} と C^{14} 及び Cl^{36} を含んでいることが特徴的である。

TRU廃棄物処分施設はTRU廃棄物のこのような特徴を考慮して設計されなければならない。核燃料サイクル開発機構と電気事業連合会を中核とした共同作業チームにより「TRU廃棄物処分概念検討書⁽¹⁾」が刊行され、わが国におけるTRU廃棄物処分概念が示された。本検討書によると、TRU廃棄物はその特徴を踏まえ、4グループに分けて処分することが提案されている。処分坑道は、幌型が提案されており、廃棄物の種類によってペントナイトがあるものと、ないものとに分けられる。TRU廃棄物の発熱は比較的小さいことから重ねて処分することができる。このため処分孔道自体は大きくなるが、TRU廃棄物の総量が高レベルガラス固化体総量より多いにも拘わらず、処分施設全体の大きさは約1/50程度になる。

わが国においては、高レベル廃棄物処分および低レベル廃棄物処分に関する技術開発は、当所や核燃料サイクル開発機構を中心として精力的に進められてきたが、TRU廃棄物処分に関する研究は遅れ気味であった。TRU廃棄物処分全体を把握した報告書としては、上記「TRU廃棄物処分概念検討書」がわが国における最初のものである。当所は、電気事業との共同作業を通じて本検討書作成にも直接携わったが、さらに、本検討書の基盤となる技術的知見の整備等を目的として、以下のとおり技術開発を継続実施中である。

放射性廃棄物処分に関する技術は、大きく立地技術、

処分施設設計/建設/閉鎖技術、そして安全評価技術に分けることができる。前2者については、多くの部分で先行している高レベル廃棄物処分技術開発や低レベル廃棄物処分技術開発で得られたものを改良活用できるものと思われる。TRU廃棄物処分と高レベル廃棄物処分を安全評価の観点から比較すると、大きな違いは人工バリアの構成、特にセメントを使用している点である。低レベル廃棄物処分においてもセメントが使用されているが、この場合はTRU廃棄物処分ほど、長期の安全性確保が要求されない。したがって、TRU廃棄物処分に特徴的な安全評価技術課題としては、セメントの長期的特性に起因するものが主となる。

以上より、以下を主要課題として取り上げることとした。

- ・セメント水和物の超長期的変質過程の把握とセメント水和物への放射性核種収着機構の解明

セメント水和物が地下水と長期間接触する間に、一部成分が溶解/再沈澱し、セメントの組成が変化する。放射性核種の溶解度はセメントを溶解した地下水組成に依存し、セメント水和物への放射性核種収着性能はセメントの組成によって変化する。

- ・セメントの影響を考慮した安全評価手法の開発(コロイドによる核種移行を含む)

セメントから発生するコロイドは核種移行に影響を及ぼす可能性がある。

- ・セメントからの高pH地下水による影響把握

諸外国においては、高レベル廃棄物とTRU廃棄物の一部を同一のサイトに処分する計画がある。この際、TRU廃棄物処分に使用する大量のセメントが高レベル廃棄物処分に影響を及ぼす可能性が議論される。この影響はTRU廃棄物処分施設の周辺岩盤の核種遅延効果にも関係するため検討の必要がある。

これらの研究実施においては、TRU廃棄物に含まれる有機物、硝酸塩の影響を考慮して進める。

3-2 人工バリア(セメント)の特性評価

放射性廃棄物処分においてセメント材料には人工バリアとして核種閉じ込め能力が期待される。長半減期核種閉じ込めの安全確保のためには、収着性能に代表される化学バリア性能が特に重要となる。ところが、安全評価期間において、セメント水和物は化学的に変質し、これが化学バリア性能に変化をもたらす可能性がある。よって長期的なバリア性能の評価には、セメント水和物の化学的変質と核種収着挙動の関係を把握する必要がある。

また大量にセメントを使用する TRU 廃棄物処分ではセメントを起源とするコロイド生成の可能性が認識されており、その核種移行挙動への影響評価も必要である。

3-2-1 セメント水和物の長期変質⁽²⁾

放射性廃棄物処分で利用が想定されるセメント材料として、普通ポルトランドセメント(OPC)、高炉スラグセメント等がある。また最近、水和セメントの溶解による高pH、高Ca環境に起因した処分場周辺の岩盤や緩衝材(ベントナイト)の溶解、変質を抑制する観点から低アルカリ型セメントが注目され、研究が進められている。

地下処分場環境において、セメント水和物は地下水との接触による構成成分の溶解、イオン成分との反応による鉱物生成、熱的条件による構成鉱物の変成等により化学的に変質する。これは化学バリア性能の変化につながる可能性があり、セメント水和物の化学的変質挙動の把握は、長期的なバリア性能の評価において重要である。

そこで、溶解反応に注目し、三種のセメント硬化体(OPC、高炉スラグセメント、低アルカリ型セメントの一つであるポゾラン材料高含有セメント(以下HFSC⁽³⁾)の微粉碎試料を用いて蒸留水への溶解実験を行った。その結果、OPC水和物では、図3-2-1に示すように水和反応の進行とポルトランドイト($\text{Ca}(\text{OH})_2$)の溶解による構成鉱物の組成変化が見られた。一方、高炉スラグセメントおよびHFSCの水和物では構成鉱物の溶解

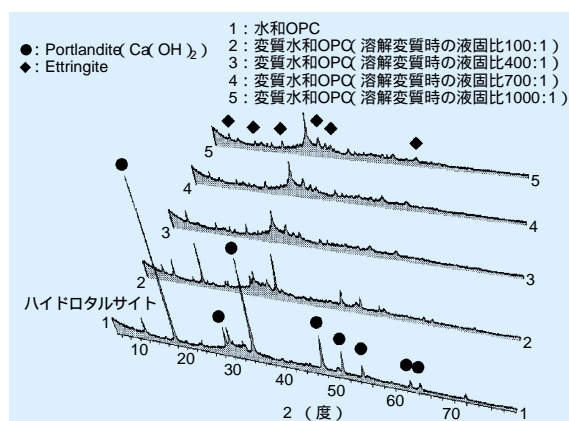


図3-2-1 溶解変質によるOPC水和物の変化(粉末X線回折パターン)

度が低いため組成に大きな変化はなかった。また、いずれの試料についても、浸漬時間の増加に伴い、水との接触による水和反応の進行や溶解に伴う構成鉱物の変化が原因と推察される比表面積の増大を観察した。

上記の溶解変質実験における固相分析に基づき、水和・溶解モデルを作成した。本モデルは、非晶質水和物であるCSH gelの溶解に加え、変質実験で同定された結晶質水和物の溶解をも考慮できることが特徴である。その結果、OPCおよびHFSCの水和物について、固相中の主要な鉱物の組成分布、さらに図3-2-2に示すように液相のpH、Ca濃度を、ほぼ再現することができ、本モデルの妥当性が示された。同時に、本モデルの評価精度を高めるためには、アルミネート系鉱物の溶解データを整備する必要があることも示された。

今後は、連続的な通水によるセメント水和物の溶解

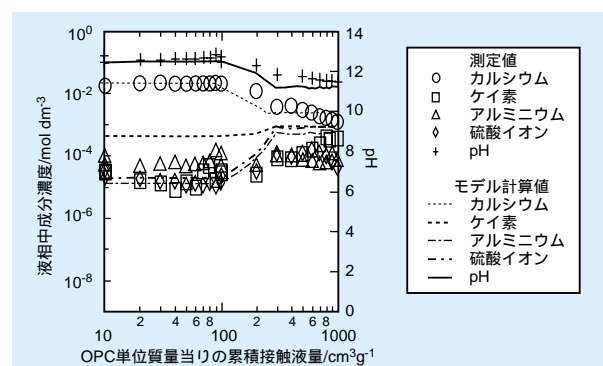


図3-2-2 溶解モデルによる液相組成計算結果(OPC水和物)

変質実験を行い、上記で得た溶解化学反応の知見と組み合わせることで、実処分場におけるセメント水和物の溶解に伴う物質移動現象を検討する。

3-2-2 セメント水和物への核種収着現象⁽⁴⁾⁽⁵⁾

セメントの化学バリア性能は、その高pH緩衝性による放射性核種の溶解度低下やセメント水和物への核種収着現象などで放射性核種の移行が遅延されることによりもたらされる。よって、核種収着の分配比は、処分の安全評価において重要なパラメータである。

セメント水和物への核種収着データについてはいくらか報告例があるものの、長半減期のアクチニド元素についてのデータは少ない。また低アルカリ性セメントについては、核種収着データはほとんど見当たらない。

そこで、OPCおよびHFSCの水和物に対するトリウム、ネプツニウムの収着による分配比を、微粉碎試料を用いたバッチ法により取得し、 $10^3 \text{ cm}^3 \text{ g}^{-1}$ 以上と大きな値を得た(図3-2-3)。この結果は、アクチニド元素に関してこれらのセメント材料の化学バリア性能を十分に期待できることを示すものである。

また、セメント水和物の化学的変質と核種収着挙動の関係を把握することを目的に、蒸留水への溶解により変質させたセメント水和物の微粉碎試料へのトリウム、ネプツニウムの収着実験を行った。OPC水和物、HFSC水和物の双方について、溶解変質によって分配比が増大した(図3-2-3)。主な原因として、図3-2-4に示す

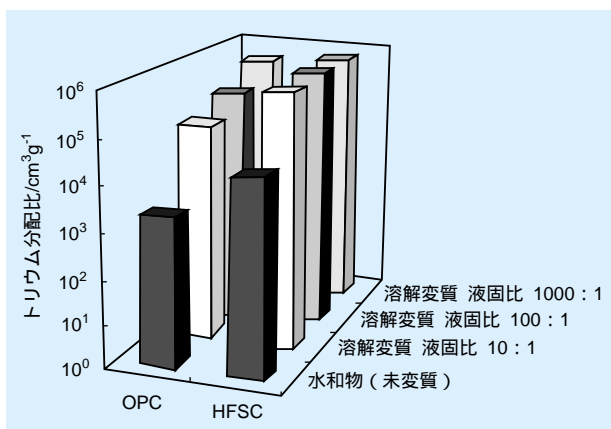


図3-2-3 セメント水和物および溶解変質セメントへのトリウム収着分配比

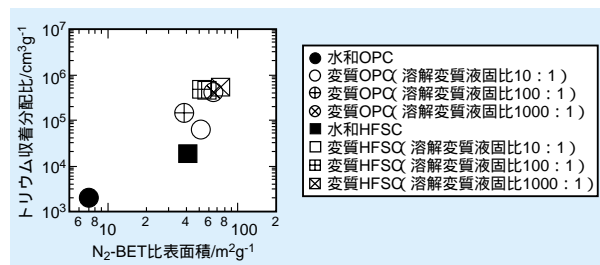


図3-2-4 トリウム収着分配比とセメント水和物および溶解変質セメントの N_2 -BET比表面積の関係

ように、変質による水和物の比表面積の増大が考えられた。これにより、溶解によりセメント水和物の変質しても、アクチニド元素に対する化学バリア性能は低下しない可能性が示された。

処分環境中の水熱変成による化学バリア性能変化について、70 までの温度で熱変成させたOPC、高炉スラグセメントに対する陽イオン形態のストロンチウムと陰イオン形態のセレンの収着実験により検討した⁽⁵⁾。熱変成によってセメント水和物を構成する鉱物の分解・生成や、結晶性の変化が起こること、またそれに伴って元素収着の分配比が変化することを観察した。この収着性能の変化は、収着する元素とセメント水和構成鉱物の組み合わせにより、向上する場合と低下する場合があります。長期的なバリア性能の評価においてセメント水和物固相の変化の考慮が重要であることが示された。

長期的なセメント水和物の化学バリア性能の評価には、対象とする実期間のデータ取得が不可能であることから、メカニズムを明らかにしたモデル評価法が不可欠である。そこでセメント水和物へのトリウムの収着挙動について、反応を水和物表面における吸着反応とみなした表面錯体モデルを用いて予備的に評価を行った⁽⁴⁾。パラメータ計算結果と収着実験結果を比較し、表面錯体モデルは適用可能と判断された。

これまでは、セメント水和物への核種の収着現象を表面吸着と仮定して検討を進めてきた。しかしながら、セメント水和物と核種の相互作用では、吸着に続いて構成水和鉱物中に取り込まれたり、鉱物の溶解・再沈殿時に共沈するなどの可能性がある。今後はセメント水和鉱物と核種の共沈実験を進め、上記の固定化に関わる各現象の把握、モデル化によって、信頼性の高い統合的な核種移行評価手法を開発する。

3-2-3 セメント施設から発生するコロイドの影響評価

地中における放射性核種の移行へのコロイドの関与の可能性は、広く認識されつつある。しかしその挙動や移行する媒体の複雑さから、信頼性の高い評価には至っていない。コロイドのもたらす影響は、放射性核種がコロイドに収着すること(擬似コロイドの形成)による、放射性核種の見かけの溶解度の上昇と、イオン状の放射性核種とは異なる移行挙動をとることにあると考えられる。

コロイドの発生源は地質鉱物や腐植物質など不偏的に存在すると考えられるが、処分に使用されるセメントもその一つとなる可能性がある。そこで、処分場に設置されるセメント施設から発生するコロイドの核種移行に及ぼす影響評価のため、セメントコロイドの発

生を確認する浸出試験及び発生したコロイドの特性評価を行った⁶⁾。

浸出試験は、粉碎したセメント水和物を模擬地下水溶液に浸漬し、最長で8ヶ月の静置期間の後、溶液を採取した。溶液中に浸出したコロイドを観察基板上へ超遠心析出し、透過型電子顕微鏡(TEM)によって観察した。

図3-2-5に、ポゾラン材料高含有セメント⁷⁾(以下、HFSC)から発生したコロイドのTEM写真を、表3-2-1に発生したコロイドの数濃度、粒径分布、組成および形状を示した。Ca-Si-Alを主成分とした楕円形状のコロイドが、最大で 1×10^{12} 個/L観察された。コロイド数濃度は浸漬試験の固液比で変化し、固液比が高い場合は、コロイド数濃度は減少した。コロイド数濃度の値は、概ね中性近傍の地下水中的コロイドの測定例と同程度であった。

HFSCから発生したコロイドの特性は、溶液中のCa濃度に強く依存したものであることが、コロイド粒径分布やゼータ電位のCa濃度依存性を調べた特性評価試験から示された。Ca濃度が高い場合(約 10^{-3} M以上)には不安定化し、凝集、最終的には沈殿して溶液中から除去される。このため、処分場においてもCa濃度が高い期間はコロイドの影響は少ないものと予想される。またセメントから発生したコロイドの安定性はDLVO理論を用いた解析による推定とほぼ一致し、DLVO理論を用いた定量的なコロイドの安定性評価の可能性が示された。

今後は今回の検討結果を踏まえて、コロイドに対する放射性核種の収着性とその可逆性の研究を実施する。また、地質媒体中における移動性についても検討していく。

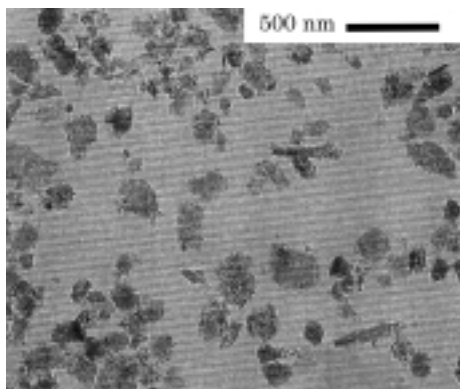


図3-2-5 発生したコロイドのTEM観察写真

表3-2-1 発生したコロイドの数濃度と特徴 (D: Dominant M: Minor)

浸漬試験時の 固液比	浸漬期間 8 ヶ月		
	コロイド数濃度/ $N \cdot L^{-1}$	粒子形状 および組成	粒径分布、 平均粒径/nm
1 : 5	6.3×10^{10}	D : クラスタ様 (集合体) 楕円形状のSi-Al-Ca M : 楕円形状のCa	比較的粗大で 広く分布 <u>200nm</u>
1 : 50	1.1×10^{12}	D : 楕円形状のSi-Ca-Al M : 棒状のSi-Al M : 板状のCa	10nm - 300nm <u>66nm</u>
1 : 100	1.1×10^{12}	D : 楕円形状のSi-Al-Ca M : 棒状のSi-Al M : 板状のCa	10nm - 300nm <u>68nm</u>

3 - 3 セメント系材料と処分環境との相互作用⁽⁸⁾

TRU 廃棄物の固化材や処分坑道の充填材として有望視されているセメント材料は、その成分の地下水への溶解により、地下水中カルシウム濃度が上昇したり、地下水 pH が高アルカリ性となる。そのような地下水がベントナイト緩衝材や周辺岩盤と相互作用を起し、これらの材料の性質が変化する可能性が知られている。従って、当該廃棄物処分施設設置に伴う周辺処分環境の健全性や処分システムへの安全性を評価するには、セメントによる化学的影響の把握が重要となる。

このような状況を鑑み、固化体(廃棄体)、人工バリア材、岩盤の間の相互作用による処分システム性能への影響を明らかにする目的で、処分施設周辺環境で起こりうる地球化学反応を評価する手法として、人工バリア領域と天然バリア領域を合わせた広域の地層処分環境での地球化学反応と物質移動を解析するコード GESPER を開発した。

TRU 廃棄物処分環境で想定される種々の事象の中で、セメントとの相互作用に関わる代表的な地球化学反応に着目し、緩衝材および岩の変質反応を同コードで予備解析した結果、TRU 廃棄物処分システム要素として想定したベントナイト緩衝材とカルシウムイオンとのイオン交換反応の影響の程度、セメント系材料から発生する高アルカリ性地下水(高アルカリブルーム)の移動に対する緩衝材・岩盤中で起こる水素イオンの吸着・脱着反応や鉱物生成反応の影響、岩盤領域で核種(特に被ばくの観点から重要となるヨウ素 129 などの陰イオン性の核種)吸着性に富む鉱物(セメントモルタルに含まれる C-S-H)が生成する可能性、等の知見を得た。図 3-3-1 には TRU 廃棄物処分施設から流れ出た高アルカリブルームが岩盤中を移動する際に、岩盤表面への水素イオンの吸着・脱着反応が移行解析結果にどの程度影響するかの試算結果を示す。同図より、解析時に同反応を考慮した場合には、高アルカリブルームの移動が大きく遅延されており、評価の際に考慮すべき反応の適切な選

択が評価結果の妥当性を左右することを示すものである。

本手法の整備により、緩衝材あるいは岩石の変質の程度や地下水 pH の変化のシミュレーションが可能となり、概略解析からは、岩石の変質により処分システムの安全性への影響が大きい放射性核種の吸着性の向上が期待できる可能性が示唆された。これらの効果の実証により、処分システムの安全性の観点からのサイト選定に裕度が生まれるとともに、人工バリアへの負担軽減に繋がると考えられる。従って、本研究でのシミュレーション結果の妥当性を検証し、処分システムの性能評価より確かなものとするために、実験データによる現象の補足的確認と詳細な解析を実施中である。

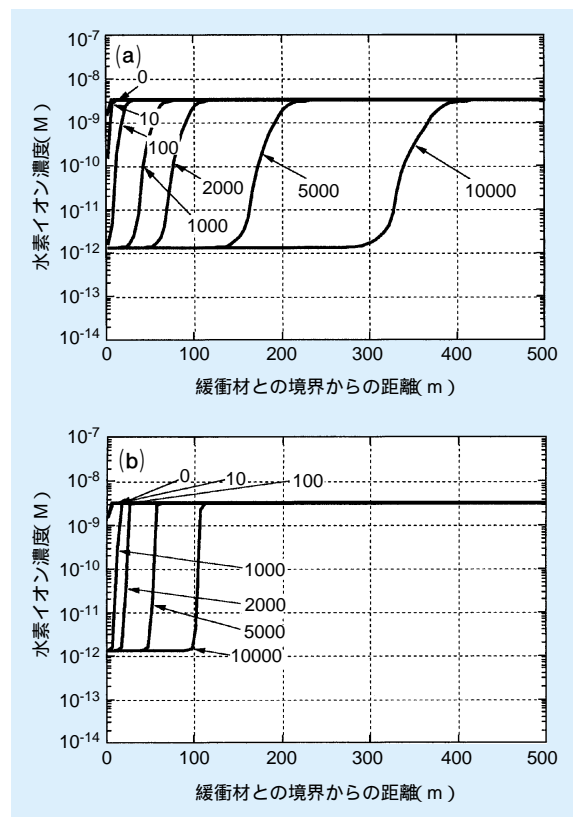


図 3-3-1 高アルカリブルームの移行挙動試験結果。
(a)岩盤等への水素イオンの吸着・脱着反応を考慮しない場合、(b)考慮した場合。図中数字は経過年数を表す。