

日本原子力学会 2016 秋の大会 バックエンド部会企画セッション

「ガラス固化体の実力は？—地層処分におけるガラス固化体性能評価の現状—」参加報告

亀井玄人*1

はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分は、地層の持つ物質保持機能を活用しつつ、さらに安全性を確実にするために人工バリアを設けて受動的な安全系を構築しようとするものである。この人工バリアはガラス固化体とこれを包むオーバーパック、これと地層の間を埋める緩衝材から成る。ガラス固化体自体も重要な人工バリアの構成要素であるが、わが国では地層処分研究開発第2次取りまとめ以降、処分後のガラス固化体挙動についての研究は十分ではなかった。他方、海外においては研究が進められ、知見の蓄積も進んでいる。わが国では近く、科学的有望地の選定や処分事業者によるセーフティケースの提示などが想定される。このような状況を背景とし、バックエンド部会として、とくに第2次取りまとめ以降の国内外の知見を整理しつつ、人工バリアとしてのガラス固化体の「実力」について理解を共有すべきとの趣旨で、企画セッションが開催された。

セッション概要

開催日時は平成28年9月9日(金)13:00-14:30、開催場所は福岡県久留米市の久留米シティプラザ(F会場)である。座長は筆者が務めた。セッションでは5名の登壇者より以下の報告があり、次いでディスカッションが行われたので、それぞれ要点を記す(敬称略)。

(1) 性能評価の観点から；大江 俊昭(東海大学)

第2次取りまとめでは、ガラス固化体は処分後約7万年で全量が溶解するとしていたが、メカニズムが解明されていない部分は安全側の仮定のもと評価せざるを得ないなどの理由で寿命を過小評価していた。そこでガラス固化体へのどの程度の核種保持能力が期待できるかとの観点で、まず、温度、表面積とガラス寿命の関係を検討した。

ガラス固化体の温度は時間とともに低下し、約3000年後には地温(設定45°C)とほぼ等しくなる。この値を考慮すれば、温度一定(60°C)として評価した第2次取りまとめよりも溶解寿命は約3倍増大する。

溶解に伴いガラス固化体表面積は減少し、溶解速度も低下する。第2次取りまとめでは、製造時の割れを考慮して表面積は初期値の10倍としているが、そのまま表面積一定としているので溶解速度が過大評価されていた。そこで、

Report on the planned session by the NUCE in 2016 AESJ Fall Meeting, "How is the ability of the waste form glass? -Current status of the performance assessment of the waste form glass in the geological disposal system.-" by Gento KAMEI (kamei.gento@jaea.go.jp)

*1 日本原子力研究開発機構 バックエンド研究開発部門
Sector of Decommissioning and Radioactive Waste Management
〒319-1194 茨城県那珂郡東海村大字村松4-33

割れの幾何学的長さと同じ長さの平板に置き換えたモデルや、小球に分割したモデルを使って表面積の減少を考慮すると、溶解寿命は40万年を超える可能性もある。

(2) 世界の研究の現状；稲垣 八穂広(九州大学)

ガラス固化体からの核種の溶出は地層処分における核種移行のソースタームであり、仮に他の人工バリアの機能が喪失した場合、ガラス固化体からの核種溶出が核種移行を支配する。従って、ガラス固化体の数万年以上にわたる物理化学的挙動の理解は、地層処分の長期性能の信頼性向上にとって現実的かつ有効な手段と言える。この理由から関係諸外国ではガラス固化体の性能評価研究が継続して実施されてきた。2010年代に入り、フランスでは地層処分の候補地が選定され、ガラス固化体性能評価研究がより活発になっている。また、米国ではヤッカマウンテンにおける直接処分の方針の見直しに伴い、再処理および高レベル廃液のガラス固化を含む基盤研究が再開され、ガラス固化体の性能評価研究も活発になっている。現在、国際協力研究(参加国はフランス、米国、ベルギー、英国および日本)で取り組まれている課題は、ガラスの原子配列構造、表面変質層構造の理解(基礎科学的研究)、ガラス長期溶解メカニズムの理解(基礎科学的研究、工学的研究)、処分環境で起こりうる各種プロセスとのカップリング(基礎科学的研究、工学的研究、性能評価研究)等である。これらの研究成果の一貫性、整合性、合理性の検証が評価の信頼性の観点から重要である。

(3) 基礎科学の観点から；大窪 貴洋(千葉大学)

室内試験で生成されたガラス表面変質層について、二次イオン質量分析(SIMS)により生成プロセスが観察された。表面変質層には、BやNaの溶出したゲル相とB濃度に勾配のある拡散層の2層が認識され、深さ方向の元素分布に加えて、変質層の化学構造が分光法による解析が行われた。また固体NMR法により、表面変質層には溶液中に浸出したSiの再結合により架橋が進展することが報告された。

ガラス固化体のより正確な長期溶解挙動予測のため、溶解の素反応を明らかにし、化学反応や物質移動をガラス溶解モデルに組み込む必要が指摘された。表面変質層は、未変質ガラスから放出される放射性核種のバッファや、ガラス溶解の保護層として働くと考えられるが、これらを表現する物質移行モデルの構築が望まれる。また、処分環境ではガラス固化体は水と接触することから、変質層と水の界面で起こる素反応を解明することで、新しい溶解モデルの進展も考えられる。

以上のような課題が整理されつつ、分析技術や分子動力

学等をベースとするシミュレーション技法の向上により、変質層の化学構造やその中での核種挙動が明らかになりつつあることが紹介された。

(4) 計算科学の観点から；千葉 保（日揮株式会社）

ガラス溶解の研究分野においては、Si-O-Si や Si-O-Al の結合を水、 H_3O^+ 、 OH^- が切断する際の活性化エネルギーの計算などへの第一原理計算（ab initio calculation）の適用事例がある。

分子動力学では、第一原理計算より大きな系を対象とし、通常、多体間のポテンシャルを相互作用の駆動力として設定する。ガラスの分野への適用例としては、熔融から冷却までの遷移過程をシミュレートすることでガラスの構造を再現でき、ホウ素の異なる配位（3 配位 B と 4 配位 B）の存在比率など主要元素の基本構造に関する情報が得られる。

モンテカルロシミュレーションについては、ガラスの初期構造を格子状に構築し、水分子との接触による Si-O-Si や B-O-B などの結合の解離（および再結合）を統計論的な確率過程として捉え、ガラスの溶解と変質層の形成過程に適用した例がある。

オーバーパックの腐食膨張による応力の増大で生じるガラス固化体の割れの進展は、FDEM（Finite and Discrete Element Method）法によってシミュレートできる。割れによって生じたガラス表面積の増大がガラスに加わる応力の関数として示された。その結果、表面積の増大は、①初期の表面積の数倍程度であること、および、②初期の割れ（冷却時）を考慮した場合でも顕著に変化するとは限らないことが示された。

(5) 日本の研究の現状と課題；三ツ井 誠一郎（JAEA）

ガラス固化体からの Cs-135 などの可溶性放射性核種の放出率は、ガラスの長期溶解速度により制限される。ガラス固化体近傍の溶存ケイ酸濃度は、処分環境における溶解速度を支配する主要因の一つとされるが、ガラス固化体周辺に存在するオーバーパックとの相互作用による Fe ケイ酸塩鉱物の析出や海水起源の地下水中に存在する Mg イオンとの反応による Mg ケイ酸塩鉱物の析出など、複数のプロセスが溶存ケイ酸濃度に影響しうることが近年報告されている。これらのプロセスの影響が大きい場合、溶存ケイ酸濃度が長期的に低く維持され、ガラス溶解が高い速度で進行する可能性がある。一方、ガラス表面に形成される変質層が保護膜として作用する場合、ガラスの溶解・変質抑制が期待できる。しかしこれらの現象理解は未だ不十分であり、例えば、Fe ケイ酸塩鉱物の析出による影響の程度は、オーバーパックの腐食に伴う Fe イオンの供給速度や析出する Fe ケイ酸塩鉱物の Si/Fe 比に依存することから、実験データの取得が必要である。また、種々のケイ酸塩鉱物の析出条件で、変質層が保護膜として機能しうるのは不明である。より確かな「ガラス固化体の実力」を示すには、これらのプロセスに関する研究をさらに進める必要がある。

(6) ディスカッション；（司会）石黒 勝彦（NUMO）

はじめに司会者より議論のポイントが提示された。

- ・ ガラス固化体性能の地層処分全体に及ぼすインパクト
- ・ ガラス固化体性能評価に関する国際的コンセンサスの必要性
- ・ ガラス固化体性能評価の信頼性
- ・ ガラス固化体製造プロセスとの関係強化
 - 以下に質疑および議論の要点を記す。
- ・ 登壇者より「処分の概念は隔離型と管理型に分かれるが、地層処分は本質的に隔離型である。ガラス固化体には本来、すぐれた核種隔離の能力がある。‘漏れた後’の評価だけでなく、ガラス固化体の評価研究はもっとなされるべきである。」との意見があった。
- ・ 会場から「深層防護的な観点で、処分システムに及ぼすガラス固化体のインパクトをもっと示すべき」の意見。これに対し、登壇者より、「多重バリアの概念を背景とする評価は重要」との認識が示された。
- ・ 会場より「第2次取りまとめ当時、割れによる表面積増大を 10 倍にしていた根拠は」との質問。これに対し登壇者より「ひび割れのある実スケール大の模擬ガラス固化体の表面積を測定したところ幾何学的表面積の 20 倍以上となったが、このガラス固化体の浸出試験の結果から求めた見かけの表面積は 5 倍程度であったので、評価上の実効的な表面積を保守的に 10 倍と設定した。」との回答があった。
- ・ 登壇者より、信頼性向上とは何かについて問題提起。これに対し別の登壇者より、「現象理解に基づく、より現実的で複合系でのモデル化がひとつの方向性。たとえばフランスでは、水と変質層の反応や、ガラスとオーバーパックや緩衝材との相互作用について研究されている。」との意見が示された。
- ・ 会場より「メカニズムによる核種浸出の目標値設定ができるのでは。」との意見。登壇者より、「システム全体におけるアロケーション問題であるが、違う概念が出てくるとまた違う値となる可能性が出てくる。まずはガラス固化体としての確実な性能を示すことが重要。」との意見が出された。
- ・ 登壇者より「イエローフェーズの問題は解決されたと理解しているが、一般には未解決と受け止められている。JNFL には製造者として十分な対応が求められる問題ではないか。」との問題提起があった。

おわりに

冒頭に述べたように、「ガラス固化体の実力」についてのセッションは時宜を得た企画と言え、また、「実力」についての再認識が共有できたことは有益であったと考える。多重バリアシステムの構成要素としてのガラス固化体の性能が、現象についての科学的解明の進展に伴い、深く、より現実的に認識され、このことが評価モデルの改良・進化に反映されるよう強く期待する。このことは、受動的な安全系を構成する地層処分システムの安全性をさらに確実にすることに大きな貢献となるであろう。そしてまた、地層処分事業の目標である合意形成にとっても有効な寄与となるものと思われる。