

## 地層処分人工バリアの設定値に関する考察 (1) ガラス固化体の溶解寿命

大江俊昭\*1 若杉圭一郎\*2

地層処分におけるガラス固化体の溶解寿命を再評価した。我が国での地層処分の技術的可能性を論じた報告では、時間と共に処分温度が低下することや表面積が減少することなどを無視しているため、ガラス固化体の溶解寿命は約7万年と過小評価されている。しかし、これらの変化は物理的に確実に起こるものであるため、これらを見逃さずに再評価を試みた。表面積の変化を考慮するために亀裂を有するガラス固化体を3つのモデル、すなわち、単一平板、単一粒径の小球群、べき乗粒径分布を持つ小球群、で表現した。すべてのモデルの全体積は円柱状のガラス固化体と同じで、製造時の割れを考慮して全表面積は円柱状のその10倍とした。寿命評価の結果、初期量の50%が溶解するまでの時間は、3つのモデルとも7万年を超え、溶解寿命は17~70万年となった。これから、従来の評価ではガラス固化体が核種を保持する能力が過小評価されていることが判った。

**Keywords:** ガラス固化体, 溶解寿命, 地層処分

The report estimates the life-time of the waste glass dissolution in the geologic disposal environment. The overall safety report on the geologic disposal in Japan showed very short life-time of approximately 70,000 years under pessimistic assumptions ignoring the temperature decrease due to radioactive decay and dissolution rate reduction due to surface shrinkage. These factors are physically established phenomena and may not be excluded. The dissolution models including these factors of temperature and surface area decreases are discussed and used for re-evaluation. Three fracture models are presented for evaluating the surface area decreases; a single plate, monotonic spheres, spheres having power-law size distribution. All models have the same initial volume as the waste glass block for mass conservation and the total surface areas are 10 times higher than the initial pristine block because of the fracture development during production. The results indicate the retention time of 50% of initial mass exceed 70,000 years even by different fracture models and the dissolution life-times are expected for 170,000~700,000 years depending on models. These results imply more strong isolation capability of the waste glass than that estimated in the overall safety report.

**Keywords:** Waste Glass, Dissolution life time, Geologic disposal

### 1 はじめに

技術的観点から我が国において地層処分が実現可能か否かを論じた報告書（以下第2次取りまとめ）[1]において、高レベル放射性ガラス固化体（以下固化体）の地下水への溶解寿命は簡単な式から算出されている。この報告では、①固化体は製造時において表面積が10倍となる割れが生じ、②処分開始後1,000年目にオーバーパックが破損して温度が60℃の環境で溶解反応が継続し、③およそ7万年後に全量が溶解する、としている。本来、固化体には、高レベル廃液を固化することで環境への放射性核種の移動を抑制する機能が期待されているが、7万年の溶解寿命では<sup>135</sup>Cs（半減期230万年）や<sup>237</sup>Np（同214万年）などの長半減期核種を隔離することはおぼつかない。また、固化体の寿命をパラメータに核種移行挙動の感度解析を行った結果でも、<sup>79</sup>Se（解析時の半減期は6.5万年に設定）の例からわかるように、寿命が7千年でも7万年でも人工バリアからの核種放出速度に差はなく[1]、寿命が半減期よりもかなり長く限り核種移行挙動に影響はない。そのため、固化体の核種保持性能を向上させるための研究開発も、一部[2,3]を除けば、ここ数十年は殆ど進捗しなかったといっても過言ではない。一方、近年、フランスや米国などを中心とした国際研究ネットワークが活動を始め、固化体の核種保持性能に対する理解が大きく進んでおり、ガラス固化体

の隔離性能を再認識する機運が高まっている[4]。

第2次取りまとめは15年前の技術レベルでの評価であったこと、メカニズムが十分把握されていないために安全側の仮定に立った評価をせざるを得なかったこと、などの理由から寿命を過小評価していることは否めない。そこで、前述の①~③の考え方を再整理し、ガラス固化体にどの程度の核種保持能があるかを再吟味した。

### 2 方法

#### 2.1 ガラス固化体の割れ

第2次取りまとめで採用した「表面積が幾何学的表面積の10倍となる」という仮定は、製造時の冷却における熱歪によるものとして4~5倍程度を見込み、そこから決められた数値である。一方、実際に製造された実規模模擬ガラス固化体の断面を観察した結果から、発生した亀裂の表面積はガラスを鑄込んだ面の表面積に比べると160倍程度に増加するものの、亀裂からのガラス成分の浸出量は全体の32%程度にしかならず、溶解に寄与する表面積は幾何学的なそれに比べて小さいことが確かめられている[5]。また、亀裂を含むガラスの溶解試験から、幾何学的な表面積で予想した場合に比べてガラス成分の浸出量が約5±1倍になることから、亀裂によって溶解に寄与する表面積が増大するのは5倍程度としている例[6]がある。さらに、1800年間海底に埋没していたローマ時代のガラスブロックの分析から、亀裂の表面積は幾何学的表面積の約86倍もあるが、溶解に寄与した表面積は僅か12倍程度であったという報告[7]もある。これらのことから、10倍という設定にはある程度の根拠があるものと思われる。そのため、ここでも表面積の増大を初期幾何学的表面積の10倍とした。

Studies of the setting of engineered barrier configuration utilized in geologic disposal (I) Dissolution life-time of vitrified waste glass by Toshiaki OHE (ohe@keyaki.cc.u-tokai.ac.jp), Keiichiro WAKASUGI.

\*1 東海大学

Tokai University

〒259-1292 神奈川県平塚市北金目4-1-4

\*2 日本原子力研究開発機構 幌延深地層研究センター

Japan Atomic Energy Agency Horonobe Underground Research Center

〒098-3224 北海道天塩郡幌延町字北進432番地2

(Received 28 November 2016; accepted 3 March 2017)

## 2.2 温度環境

第2次取りまとめでは、固化体の温度環境を60℃一定としている。そのため、ガラス固化体の溶解速度定数はある値に固定される。しかし、同報告には、固化体の温度が時間と共に変化し、廃棄体定置の1万年後にはほぼ地温に等しくなっている結果も示されている。ガラス固化体の溶解寿命は7万年であるから、大部分は地温(45℃に設定)と同じ環境にある事になる。高々15℃の違いであるが、後述のデータを用いて試算すると溶解速度定数は約1/3になり、第2次取りまとめと同様の計算を行うと溶解寿命は約17万年となる。

## 2.3 寿命評価式

第2次取りまとめでは、固化体の溶解寿命を次式から算定している。非常に単純な式であり、溶解量が時間  $t$  に比例する線形溶解モデルである。再吟味する余地は少ないように見えるが、ひとつ見直すべき点がある。それは、式中の  $R_{res}$  が反応速度定数 [ $\text{kg m}^{-2} \text{y}^{-1}$ ] であるということである。溶解によって表面積は減少し、単位面積当たりの溶解速度が変わらなくても、単位時間当たりの溶解量 [ $\text{kg y}^{-1}$ ] は徐々に減少するはずである。例えば、鈹物溶解反応では、球形粒子を仮定して表面積の変化を考慮して溶解速度を評価する場合[8]が多い。また、上述のように、環境温度が低下すると反応速度定数そのものも小さくなって、徐々に溶解量は減ることになる。つまり、表面積と温度の変化を取り込んで溶解寿命を計算するのが本来の姿である。

$$T_{life} = \frac{W_0}{S_0 \cdot F \cdot R_{res}} \quad (1)$$

- $T_{life}$  : ガラス固化体の溶解寿命 [y]
- $W_0$  : ガラス固化体の初期重量 [kg]
- $S_0$  : ガラス固化体の幾何学的表面積 [ $\text{m}^2$ ]
- $F$  : 割れによる表面積の増加割合
- $R_{res}$  : 残存溶解速度定数 [ $\text{kg m}^{-2} \text{y}^{-1}$ ]

### 2.3.1 単一平板モデル

前述の亀裂を有する固化体の報告[5]では、円柱状の固化体を半径方向に切断し、切断面の亀裂の長さをトレースして、その全長を一辺とする四角形(高さは供試体の高さと同等とする)の表面積の2倍が亀裂の全面積に等しいとしている。ここで、2倍する意味は1本の亀裂が発生すると同時に裏と表の2つの面が形成されるからである。この考えを援用して固化体の表面積が初期のその10倍となった場合、表面積が等価な四角柱は次のように表現できる。

$$2(H_0 \cdot L_0 + L_0 \cdot D_0 + H_0 \cdot D_0) = 10 \cdot S_0 \quad (2)$$

- $H_0$  : ガラス固化体の初期高さ [m]
- $L_0$  : 亀裂のトレース長さ [m]
- $D_0$  : 亀裂を模擬した単一平板の厚み [m]

また、亀裂の有無に拘らず、総体積は不変であるから、

$$H_0 \cdot L_0 \cdot D_0 = V_0 \quad (3)$$

- $V_0$  : ガラス固化体の初期体積 [ $\text{m}^3$ ]

よって、

$$2 \left( H_0 \cdot L_0 + \frac{V_0}{H_0} + \frac{V_0}{L_0} \right) = 10 \cdot S_0 \quad (4)$$

式(4)に  $H_0$ ,  $V_0$ ,  $S_0$  の値を代入すれば、亀裂のトレース長さ  $L_0$  は容易に求められ、 $D_0$  も式(3)から得られる。

次に、各辺長がおのおの  $H$ ,  $L$ ,  $D$  の固化体が溶解に伴い、ある時間  $\Delta t$  に変化する体積  $\Delta V$  を考える。その際、各辺が均等に  $\Delta x$  のみ減少するものとする。体積変化は、

$$\begin{aligned} \Delta V &= H \cdot L \cdot D - (H - \Delta x) \cdot (L - \Delta x) \cdot (D - \Delta x) \\ &= \Delta x^3 - (H + L + D) \cdot \Delta x^2 + (HL + LD + DH) \cdot \Delta x \\ &\approx (HL + LD + DH) \cdot \Delta x \end{aligned} \quad (5)$$

また、表面積  $S$  は、

$$S = 2(HL + HD + LD) \quad (6)$$

式(5)と(6)から体積変化は、

$$\Delta V = \frac{S}{2} \cdot \Delta x \quad (7)$$

この体積変化は、表面積を  $S$ 、固化体の密度を  $\rho_g$  としたとき、次の様にも表わされるから、

$$\Delta V = \frac{S}{\rho_g} \cdot R_{res} \cdot \Delta t \quad (8)$$

式(7)と式(8)から、

$$\frac{R_{res}}{\rho_g} \cdot \Delta t = \frac{1}{2} \Delta x \quad (9)$$

- $H$  : ある時刻における単一平板の高さ [m]
- $D$  : ある時刻における単一平板の厚さ [m]
- $L$  : ある時刻における単一平板の長さ [m]
- $S$  : ある時刻における単一平板の表面積 [ $\text{m}^2$ ]
- $\Delta x$  : 微小距離 [m]
- $\Delta t$  : 微小時間 [s]
- $\rho_g$  : ガラス固化体の密度 [ $\text{kg m}^{-3}$ ]

これより、

$$\frac{dx}{dt} = 2 \frac{R_{res}}{\rho_g} \quad (10)$$

時間変数を  $\tau$  とおいて積分すると、

$$x = \frac{2}{\rho_g} \cdot \int_0^t R_{res}(\tau) d\tau \quad (11)$$

よって、 $R_{res}$  が一定の場合には、時間  $t$  までの溶解量は、

$$\begin{aligned} Q(t) &= (V_0 - V) \cdot \rho_g \\ &= \left[ V_0 - \left( H_0 - \frac{2R_{res}}{\rho_g} \cdot t \right) \left( L_0 - \frac{2R_{res}}{\rho_g} \cdot t \right) \left( D_0 - \frac{2R_{res}}{\rho_g} \cdot t \right) \right] \rho_g \\ &= \left[ \frac{F \cdot S_0}{2} \left( \frac{2R_{res}}{\rho_g} \cdot t \right) - (H_0 + L_0 + D_0) \left( \frac{2R_{res}}{\rho_g} \cdot t \right)^2 + \left( \frac{2R_{res}}{\rho_g} \cdot t \right)^3 \right] \rho_g \end{aligned} \quad (12)$$

- $Q$  : 時間  $t$  における溶解量 [kg]
- $x$  : 時間  $t$  における減損厚さ [m]
- $V$  : 時間  $t$  における体積 [ $\text{m}^3$ ]

また、時間  $t$  までの溶解率  $\Phi$  は以下のように表わされる。

$$\Phi = \frac{Q}{W_0} = \frac{1}{V_0} \left[ \frac{F \cdot S_0}{2} \cdot \eta - (H_0 + L_0 + D_0) \cdot \eta^2 + \eta^3 \right] \quad (13)$$

$$\eta \equiv \frac{2R_{res} \cdot t}{\rho_g}$$

### 2.3.2 小球分割モデル

上記の単一平板モデルは亀裂によって破損した固化体のイメージとはほど遠い。そこで、亀裂により生成した破片を小球に置き換えたモデルを考えた。ただし、破片の粒径分布が不明なので、小球の半径はすべて同じとした。

初期表面積の 10 倍となるように分割した小球の数を  $n$  とすると、割れがあっても小球の全体積が不変なので、

$$10 \times S_0 = n \cdot 4\pi \cdot r_0^2 = 3 \frac{V_0}{r_0} \quad (14)$$

これより小球の半径  $r_0$  は次式で与えられる。

$$r_0 = \frac{3 \cdot V_0}{10 \cdot S_0} \quad (15)$$

1 個の小球に対して、微小時間  $\Delta t$  の溶解量  $\Delta Q$  は

$$\Delta Q = R_{res} \times (4\pi \cdot r^2) \times \Delta t \quad (16)$$

一方、小球の半径を  $r$  とすると、 $\Delta Q$  は半径減少  $\Delta r$  から  $\Delta Q = 4\pi \cdot r^2 \times \Delta r \times \rho_g$  とも表現できるから、

$$R_{res} \times 4\pi \cdot r^2 \times \Delta t = 4\pi r^2 \cdot \Delta r \cdot \rho_g \quad (17)$$

これより、

$$r = r_0 - \frac{1}{\rho_g} \int_0^t R_{res}(\tau) d\tau \quad (18)$$

ここで、 $R_{res}$  は温度の関数であり、温度も時間の関数で表わすと、時間  $t$  までの溶解量は、 $n$  個の小球を考えて次のように表わすことができる。

$$Q = 4\pi \cdot n \cdot \int_0^t R_{res}(\tau) \cdot r(\tau)^2 d\tau \quad (19)$$

残存溶解速度定数  $R_{res}$  が一定の場合には、無次元時間  $\xi$  を導入することで、球状の場合の溶解率  $\Phi$  が次のように簡単に表わされることが Ewest によって示されている[9]。

$$\Phi = \frac{Q}{W_0} = \frac{4\pi \cdot n \cdot R_{res} \int_0^t \left( r_0 - \frac{R_{res} \tau}{\rho_g} \right)^2 d\tau}{\rho_g \cdot n \cdot \frac{4}{3} \pi \cdot r_0^3} = 3 \times \left[ \xi - \xi^2 + \frac{\xi^3}{3} \right] \quad (20)$$

$$\xi \equiv \frac{R_{res} \cdot t}{\rho_g \cdot r_0}$$

## 3 結果と検討

### 3.1 固化体溶解モデルによる相違

$R_{res}$  を一定とし、表面積の変化のみを考慮して、単一平板モデルと小球分割モデルで溶解寿命の比較を行う。評価に用いたパラメータ値は Table 1 に掲げる通りであり、そのうち Initial Values は第 2 次取りまとめに記載されたものである。

Table 1 Parameters used for the model calculations

	Parameters	Symbols	Values	Units
Initial Values	Height	$H_0$	1.35	m
	Weight	$W_0$	400	kg
	Volume	$V_0$	0.15	m <sup>3</sup>
	Geometrical Surface Area	$S_0$	1.7	m <sup>2</sup>
	Density	$\rho_g$	2700	kg m <sup>-3</sup>
	Residual Rate Constant	$R_{res}$	$1.0 \times 10^{-6}$	kg m <sup>-2</sup> d <sup>-1</sup>
Single Plate	Fracture Trace Length	$L_0$	6.2	m
	Depth	$D_0$	0.018	m
Small Spheres	Number of Spheres	$n$	1965	—
	Radius	$r_0$	0.0263	m

Fig. 1 は、固化体の溶解率  $\Phi$  を 1 から引いた残存率の経時変化を示す。単一平板モデルでは 3 つの軸方向の減肉速度を同じとしているので、最も薄い平板厚み方向の減肉が速く、ガラス固化体の表面積が初期値とほとんど変わらない状態で溶けきってしまうため、表面積減少の効果が現れずに溶解寿命は第 2 次取りまとめの結果とほとんど変わらない。一方、小球分割モデルの場合は、表面積減少による溶解速度低下の効果が現れて、第 2 次取りまとめの約 3 倍である 20 万年程度の溶解寿命になることがわかる。

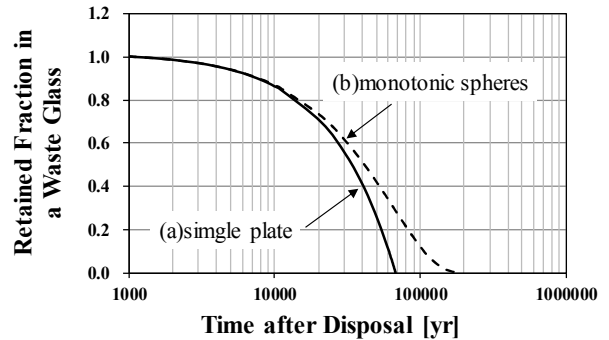


Fig. 1 Retained fraction in a waste glass assuming (a) single plate, (b) monotonic spheres

### 3.2 発熱関数と温度

第 2 次取りまとめに記載の燃料燃焼条件を用いて、ORIGEN2 によって発熱量の経時変化を求めた。その結果を Fig. 2 に示す。この計算結果から、ガラス固化体の発熱量は処分開始から 3000 年程度までは時間とともに減衰し、その後はほぼ横ばいとなることが判る。図中にはこれを簡単に 2 つの近似関数に適合した結果も示した。

1,000 年を超える期間を対象にすると、ガラス固化体周囲

の温度分布は疑似的に定常状態に近づき、発熱量の変化に応じて絶対値は変化するものの、分布の形状は同じと考えても大局的には間違いがない。そこで、1,000 年後にガラス固化体の表面が 60°C となるように起点を定め、あとは、発熱量の経時変化に合わせて温度が低下すると仮定する。このようにして得た温度の経時変化は第 2 次取りまとめと殆ど同じである。これから、固化体の温度は初期の 3000 年程度までは地温より高いが、その後はほぼ地温と同じと見なすことができ、ガラス固化体の溶解の大部分は地温にごく近い温度で起こることが判る。

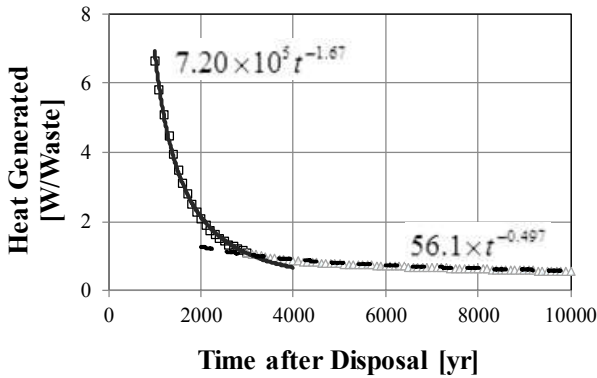


Fig. 2 Heat generation curve of a single waste glass

### 3.3 残存溶解速度定数

Grambow らによれば[10]、溶液が非晶質の二酸化ケイ素に対して未飽和状態か過飽和状態かによって、固化体の溶解反応のメカニズムが異なり、それに合わせて 2 種類の速度定数を使い分ける速度式である式(21)を提案している。前者を 1 次溶解反応速度定数、後者を残存溶解速度定数と呼び、前者は短期的な挙動に対応することから、本検討では後者の速度定数を使った。Ohe らによれば[11]、さまざまな組成を持つガラス固化体の実験データから残存溶解速度定数の活性化エネルギーを約 57kJ mol<sup>-1</sup> とし、Leturcq らは単一組成のガラス固化体について 60kJ mol<sup>-1</sup> という値を報告している[12]。ここでは、多数の組成のガラス固化体に対する値から求めた前者の値を用い、温度変化に伴う残存溶解速度定数の変化を見積もることとした。

$$\frac{dQ}{dt} = S \cdot \left[ K^+ \left( 1 - \frac{IAP}{K_s} \right) + R_{res} \right] \quad (21)$$

- $K^+$  : 1 次溶解反応速度定数 [kg m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>]
- $K_s$  : 非晶質の二酸化ケイ素の溶解度積
- $IAP$  : イオン活量積

### 3.4 溶解寿命

溶解に伴う表面積の減少と、核種の減衰に伴う温度低下の 2 つの効果を考慮して、単一粒径の小球分割モデルによって固化体の溶解寿命を評価した。結果を Fig. 3 に示す。また、図中には第 2 次取りまとめの式から求めた結果も破線で示した。この図から、小球分割モデルでは全量が溶解するまでに約 47 万年かかることがわかる。また、この結果は、地温における溶解速度定数の値を式(18)および式(19)

に代入して得た寿命とほぼ同じであり、実際には殆どの時間が地温と同じであるから、地温を用いて寿命計算しても大きな相違はない。

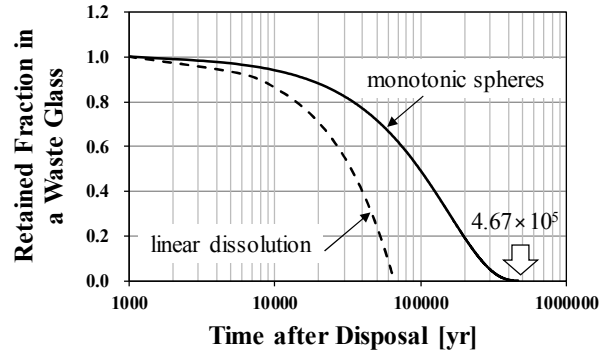


Fig. 3 Glass dissolution behavior speculated by the small sphere model

### 3.5 べき乗粒径分布モデル

小球分割モデルは小球の半径が一樣であるので、これも現実とはかけ離れているが、粒径分布に関する情報が欠落しているため、これ以上の定量的検討はできない。そこで、小球の半径に分布がある場合の影響を見るため、次のような試計算を行った。

小球の累積個数分布が直径  $\phi$  に関して次のようなべき乗分布を持つものとする。べき乗分布は破壊現象によって生ずる粒径分布を表現する際に用いられる[13]。

$$N = \alpha \cdot \phi^{-d} \quad (22)$$

- $N$  : 小球の個数
- $\alpha$  : 比例定数
- $d$  : べき乗指数

粒径ごとの個数  $n$  は

$$n = \alpha \cdot d \cdot \phi^{-d-1} \quad (23)$$

最小粒径と最大粒径の比を次のように置く。

$$f = \frac{\phi_{max}}{\phi_{min}} \quad (24)$$

表面積  $S$  と体積  $V_0$  は各々、

$$\begin{aligned} S &= 10 \cdot S_0 = \pi \int_{\phi_{min}}^{\phi_{max}} \alpha \cdot d \cdot \phi^{1-d} \cdot d\phi \\ &= \pi \cdot \alpha \cdot \frac{d}{d-2} \cdot \phi_{min}^{2-d} (1 - f^{2-d}) \end{aligned} \quad (25)$$

$$\begin{aligned} V_0 &= \frac{\pi}{6} \int_{\phi_{min}}^{\phi_{max}} \alpha \cdot d \cdot \phi^{2-d} \cdot d\phi \\ &= \frac{\pi}{6} \cdot \alpha \cdot \frac{d}{d-3} \cdot \phi_{min}^{3-d} (1 - f^{3-d}) \end{aligned} \quad (26)$$

よって、その比は、

$$\frac{10 \cdot S_0}{V_0} = \frac{6}{\phi_{\min}} \cdot \frac{d-3}{d-2} \cdot \frac{1-f^{2-d}}{1-f^{3-d}} \quad (27)$$

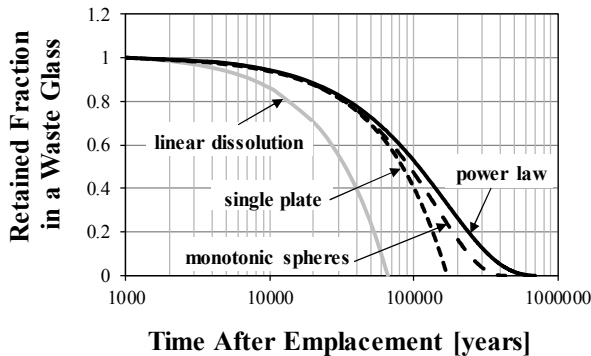
これより、最小直径 $\phi_{\min}$ と $f$ が与えられれば、固化体の体積 $V_0$ と表面積 $S_0$ に合致するようにべき乗指数 $d$ が決められる。また、分割に依らず体積が保存されることから、比例定数 $\alpha$ は式(26)により求めることができる。Table 2には今回用いたべき乗分布のパラメータ値を示すが、実物大の割れ試験の断面形状から $\phi_{\max}$ を10cmとして、最小直径 $\phi_{\min}$ と最大/最小直径比 $f$ の値を便宜的に与えた。

前述の検討から、固化体温度が地温と同じと仮定しても良いから、初期半径 $r_0$ の小球の溶解挙動は式(20)を用いて簡単に計算することができる。これを粒径分布の粒子個々に適用し、その和をとれば全体の溶解量を求めることができる。

**Table 2 Parameters in the power law model of the particle diameter distribution function**

	Symbols	Values
Power Index	$d$	0.882
Proportional Constant	$\alpha$	90.3
Minimum Diameter [m]	$\phi_{\min}$	0.001
Diameter ratio	$f$	100

温度変化と表面積の変化を考慮した結果をFig. 4に示す。実線はべき乗則の粒径分布を持つ場合の結果である。比較のために図中には単一粒径の小球分割モデルと単一平板モデルの結果、さらに第2次取りまとめの線形モデルの結果も示した。べき乗則分布はTable 2に示した分布を仮定したため、上限の粒径は10cmであり、単一粒径小球分割モデルの粒径2.56cmよりも大きなものがあるので、寿命は長く約70万年となっている。ただし、大略の傾向は単一粒径小球分割モデルと同じである。また、単一平板モデルの寿命は約17万年となった。



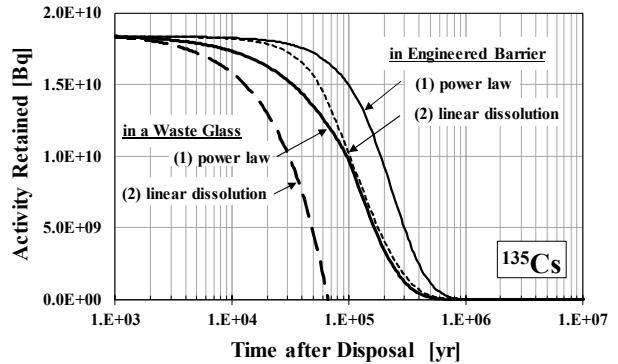
**Fig. 4 Glass dissolution behavior speculated by the power law model**

**3.6 人工バリアの核種保持性能**

人工バリアはそもそも核種を保持するために設けるものであるから、ガラス固化体の溶解寿命が延伸した場合、その保持性能にどのような変化があるかを核種移行解析によ

って評価した。表面積の評価にはべき乗分布モデルを適用し、核種移行解析には汎用計算コードのGoldSim[14]を用いた。解析に必要なデータはすべて第2次取りまとめに記載のものを引用した。

Fig. 5は人工バリア内に存在する $^{135}\text{Cs}$ の量[Bq]の経時変化を示したものであるが、第2次取りまとめで示された線形溶解モデルで計算したガラス固化体と緩衝材の両者に保持される量と、べき乗分布則を適用して求めたガラス固化体単体に保持される量とがほぼ同じとなった。また、10万年间でガラス固化体から漏えいする量は初期インベントリの半量であり、第2次取りまとめの条件で計算した半量を保持する時間3万年の約3倍であった。10万年という長さは、将来の我が国の地質環境の変化を現在の知見から想定できる時間[15]と考えられており、人工バリアを取り巻く地質環境がある程度推測できる時間範囲において、ガラス固化体だけで核種を保持する能力を期待できるようになると、人工バリアの設計に与える影響は少なからず大きいものと考えられる。



**Fig.5 Activity of  $^{135}\text{Cs}$  retained in barrier components by (1) power law model and (2) linear dissolution model**

**3.7 溶解挙動に影響を与える効果**

ガラス固化体の溶解寿命が、従来言われていた7万年から17~70万年に延伸すれば、 $^{79}\text{Se}$  (第2次取りまとめの後に半減期32.7万年という報告[16]が出ている)、 $^{99}\text{Tc}$  (21.3万年)、 $^{126}\text{Sn}$  (10万年) など重要核種の中でも比較的半減期の短いFP核種が減衰する時間が確保でき、ガラス固化体にも核種を保持する性能があると言えるであろう。そのためには、ここで検討した亀裂のモデル化や、残存溶解速度定数のデータの精度などが重要になると思われる。また、本検討では触れなかった核種保持機能として、①反応表面に形成される保護皮膜の効果[17]、②亀裂内部での実効的な接液面積の低下[3,7]、などを考えれば、さらに長寿化できる可能性がある。一方、2次鉱物の生成により溶液中のSiが消費されて、溶液状態が非晶質 $\text{SiO}_2$ に対して不飽和となって、残存溶解反応の状態から1次溶解反応の状態に引き戻されるresumption[18]や、オーバパックの腐食性生成物への溶出Siの収着によるresumptionと同様の効果[19]など、寿命を短縮する現象も報告されているので、これらについても検討を加えることで、プラス・マイナスの両者の面から核種保持能に対する研究を継続していくことが必要であろう。

#### 4 まとめ

我が国での地層処分実現可能を論じた報告書では、高レベル放射性ガラス固化体の地下水への溶解寿命は約7万年と評価されている。この評価の前提となる温度、固化体の溶解モデルなどを再吟味し、溶解寿命が延伸する可能性を検討した。その結果、以下のことが判った。

- ①ガラス固化体の溶解反応の大部分は地温に近い状態で進み、オーバーバック破損時の温度（処分開始後1,000年目で60℃）を継続的に仮定した場合よりも、寿命は約3倍長くなる。
- ②割れを有するガラス固化体を単一平板、分割小球（単一粒径あるいは粒径分布あり）などでモデル化し、溶解に伴う表面積の減少と温度の低下を考慮して再評価すると、これらを考慮しない場合よりも寿命は3~10倍長くなる可能性が示唆された。このような溶解寿命の延伸は、これまで長期の核種保持能を期待されていなかったガラス固化体に新たな役割を付与できる可能性があり、そのためには、研究開発を再度活性化し、割れの評価を含めた溶解モデルを精緻化することが不可欠である。

#### 参考文献

- [1] 核燃料サイクル開発機構:わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ, 平成11年11月26日 (1999).
- [2] Maeda, T., Ohmori, H., Mitsui, M., Banba, T.: Corrosion Behavior of Simulated HLW Glass in the Presence of Magnesium Ion, *International Journal of Corrosion*, Article ID 796457, 6 pages, (2011).
- [3] Inagaki, Y., Kikunaga, T., Idemitsu, K., Arima, T.: Initial Dissolution Rate of the International Simple Glass as a Function of pH and Temperature Measured Using Microchannel Flow-Through Test Method, *Applied Glass Science*, **4**(4), 317-327, (2013).
- [4] Gin, S., Abdelouas, A., Criscenti, L., J., et al.: An International Initiative on Long-term Behavior of High-level Nuclear Waste Glass, *Materials Today*, **16**(6), 243-248, (2013).
- [5] 動力炉・核燃料開発事業団: 実規模ガラス固化体の浸出試験 (II), PNC TN8410 92-114, 1992年3月.
- [6] Minet, Y., Godon, N.: Leaching of Full-scale Fractured Glass Blocks, *Environmental Issues and Waste Management Technologies in the Ceramic and Nuclear Industries VIII: Proceedings of the symposium held at the 104th Annual Meeting of The American Ceramic Society*, April 28-May1, in Missouri, *Ceramic Transactions*, **143** (Ceramic Transactions Series), 275-282, (2002).
- [7] Verney-Carron, A., Gin, S., Libourel, G.: A Fractured Roman Glass Block Altered for 1800 years in Seawater: Analogy with Nuclear Waste Glass in a Deep Geological Repository, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **728** 5372-5385, (2008).
- [8] Rimstidt, J. D., Barnes, H. L.: The kinetics of Silica Water Reactions, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **44**, 1683-1699, (1980).
- [9] Ewest, E.: Calculations of Radioactive Release Due to Leaching of Vitrified High Level Waste, *Scientific Basis for Nuclear Waste Management*, **1**, 161-168, (1979).
- [10] Grambow, B., et al.: JSS Project, Phase IV Final Report, "Experimental and Modeling Studies of HLW glass dissolution in Repository Environments," Technical Report 87-01, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co., Stockholm, Sweden, (1987).
- [11] Ohe, T., et al.: Analysis of High-level Waste Glass Performance by Physical and Geochemical Simulation Code STRAG4, *Waste Management*, **11**(4), 191 (1991).
- [12] Leturcq, G., Berger, G., Advocat, T., Vernaz, E.: Initial and Long-term Dissolution Rates of Aluminosilicate Glasses Enriched with Ti, Zr and Nd, *Chemical Geology*, **160**, 39-62, (1999).
- [13] 早川美徳: 衝撃破壊の統計則, **66**(12), 845-852, *科学*, (1996).
- [14] Panik, M., Vladimir, N.: GOLDSIM Models of Long-term Radiation Impact of Conditionally Cleared Radioactive Material, *Progress in Nuclear Energy*, **67**, 88-97, (2013).
- [15] 原子力バックエンド対策専門部会: 高レベル放射性廃棄物の地層処分研究開発等の今後の進め方について, 原子力委員会, 平成9年4月15日 (1997).
- [16] Jörg, G., Bühnenmann, R., Hollas, S., Kivel, N., Kossert, K., Van Winckel, S., Lierse V. Gostomski, Ch.: Preparation of Radiochemically Pure <sup>79</sup>Se and Highly Precise Determination of Its Half-life, *Applied Radiation and Isotopes*, **68**, 2339-2351, (2010).
- [17] Rebiscoul, D., Frugier, P., Gin, G., Ayrat, A.: Protective Properties and Dissolution Ability of the Gel Formed During Nuclear Glass Alteration, *J. Nucl. Mat.*, **342**, 26-34, (2005).
- [18] Ribet, S., Gin, S.: Role of Neoformed Phases on the Mechanisms Controlling the Resumption of SON68 Glass Alteration in Alkaline Media, *J. Nucl. Mat.*, **324**, 152-164, (2004).
- [19] Philippini, V., Naveaub, A., Catalette, A., Leclercq, S.: Sorption of Silicon on Magnetite and Other Corrosion Products of Iron, *J. Nucl. Mat.*, **348**, 60-69, (2006).