

## 地層処分の工学技術および性能評価研究

杉浦佑樹\*1

本講演では、地層処分の研究開発分野のうち工学技術および性能評価に関する研究開発の概要を解説した。また、性能評価における核種移行のモデル化を取り上げて最新の研究を紹介した。

**Keywords:** 地層処分, 工学技術, 性能評価, 核種移行モデル, 収着モデリング

### 1 地層処分の工学技術

#### 1.1 工学技術の概要

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を示した地層処分研究開発第2次取りまとめ(以下、第2次取りまとめ)<sup>[1]</sup>では、幅広い地質環境を考慮した現実的な工学技術による合理的な(過度に保守的でない)人工バリアと処分施設の設計を提示することを目標とした。

ここでは特に人工バリアについて述べる。人工バリアはガラス固化体とそれを格納するオーバーパック、さらにオーバーパックと岩盤の間を埋める緩衝材から構成される。オーバーパックにはガラス固化体に地下水を所定の期間接触させないことが要求される。具体的には、地下水に対する耐食性、機械的荷重に対する耐圧性、ガラス固化体からの放射線が水の放射線分解を起こすことを防ぐための放射線遮蔽性、ガラス固化体からの発熱に対する耐熱性等が挙げられる。一方、緩衝材にはオーバーパックの保護と、オーバーパックが破損してガラス固化体から放射性核種が溶出した後にその移行を抑制することが要求される。具体的には、オーバーパックの保護のための応力緩衝性および力学的安定性が挙げられる。また、放射性核種の移行を抑制するために地下水の移動を抑制する低透水性、コロイドの移行を抑制するコロイドフィルトレーション機能、放射性核種の収着性、地下水環境の変動を緩和する化学的緩衝性が挙げられる。これらの要件を満たすように設計を行うためのデータは室内試験から原位置試験まで様々なスケールで取得される。

人工バリアのうち緩衝材についてその厚さの設定方法を述べる。Fig.1に緩衝材の厚さとオーバーパックの耐圧厚さの関係を示す。緩衝材が厚くなるとオーバーパックに必要な耐圧厚さは薄くなる。緩衝材の厚さが硬岩系岩盤では30 cm, 軟岩系岩盤では40 cm程度を境にオーバーパックに必要な耐圧厚さの変化は緩やかとなり、緩衝材の厚さが70 cm以上になるとその変化量はわずかとなることわかる。すなわち、緩衝材を厚くすると応力緩衝性は向上するものの、70 cm以上にしても性能は大きく向上しない。この結果を基にして緩衝材の設計を行い、先に挙げた要件を満たすことが確認されたことから、緩衝材の厚さは70 cmと決定された。なお、オーバーパックの厚さは耐圧上必要と

なる厚さと放射線遮蔽性に必要な厚さを考慮することで設計上必要な厚さを150 mmとし、さらに40 mmの腐食代を加えて190 mmと決定されている。

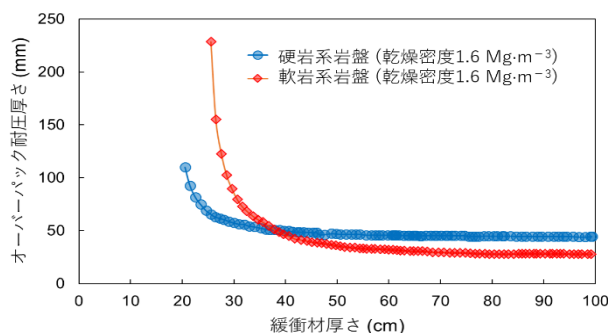


Fig.1 Relationship between the thickness of the buffer material and the pressure-resistant thickness of the overpack

#### 1.2 原位置での人工バリア性能確認試験

将来の処分施設を建設するためには調査・予測・検証による技術の確立が必要である。加えて、第2次取りまとめ<sup>[1]</sup>で示した人工バリアが実際に施工可能であること、および1.1で述べた人工バリアが施工後に要求される性能を発揮することを検証する必要がある。地下研究施設はこれらを目的の一つとしており、日本原子力研究開発機構は北海道幌延町に幌延深地層研究センターを有している。幌延深地層研究センターは比較的軟らかい泥岩を母岩とし、塩水系の地下水環境である。

幌延深地層研究センターでは深度350 mの調査坑道において実規模の人工バリアを設置してその性能を確認する試験を行っている。オーバーパック中にはヒーターを設置し、ガラス固化体からの崩壊熱を模擬している。また、注水を行うことで地下水により冠水した環境を模擬している。これにより、①第2次取りまとめで示した処分概念が構築できることの実証、②人工バリアや埋め戻し材の設計手法の適用性確認および③熱-水-応力-化学連成挙動の検証データの取得が可能となる。

### 2 性能評価

#### 2.1 長期安全性の確認

地層処分は数万年以上に及ぶ非常に長期の時間スケールを考慮することから、一般的な人工構造物のように試作品による実験を積み重ねて安全性を直接評価することはでき

Brief introduction of repository design and engineering technology, and safety assessment on the geological disposal of radioactive waste by Yuki SUGIURA (sugiura.yuki@jaea.go.jp)

\*1 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構

Japan Atomic Energy Agency (JAEA)

〒319-1194 茨城県那珂郡東海村村松 4-33

本稿は、日本原子力学会バックエンド部会 2020年度バックエンド週末基礎講座における講演内容に加筆したものである。

ない。そのため、地層処分システムの性能やそれに関連する特質・事象・プロセス(Features, Events and Processes; FEP)を基にシナリオを構築し、それを定量的に表現するモデルを開発して解析・評価を行うことにより安全評価を行う。

ここではFEPに基づいて構築された基本シナリオ(レファレンスケース)について述べる。地層処分直後のガラス固化体は放射性核種の崩壊により熱を放出するが、短寿命核種の崩壊により熱および放射能は処分後1000年程度までの間に急激に減少する。一方、緩衝材は地下水と接触して数十年で飽和状態となる。また、オーバーパックは施工時に残留した酸素を消費して腐食し始め、酸素を消費しつくした後は水を還元して腐食する。オーバーパックは少なくとも1000年は閉じ込め機能を有すると想定されている。腐食によってオーバーパックが破損して閉じ込め機能を喪失すると、地下水がガラス固化体と接触し、ガラスの溶解および変質に伴って放射性核種が地下水へゆっくりと溶出する。地下水へ溶け込んだ放射性核種は緩衝材中で吸着されながら拡散により移行する。その後、放射性核種は母岩へ到達すると、地下水の流れが支配的な亀裂や粒子間隙中を移行する。このとき、放射性核種は母岩中の鉱物に吸着されながら移行する。放射性核種を含んだ地下水は断層に到達した後、地表の生物圏へ移行する。

安全評価では保守的な仮定、すなわち、より危険なケースを想定している。例えば、処分後1000年でオーバーパックはすべて破損して地下水への放射性核種の溶出が始まり、放射性核種を含んだ地下水は最短距離ですべて断層に移行すると想定している。計算コードを用いたシミュレーション解析の結果、被ばく線量は処分から約80万年後に最大となり、その値は約0.005  $\mu\text{Sv}/\text{年}$ であると評価された(Fig.2)<sup>[2]</sup>。この値はわが国における自然放射線による年間被ばく線量の10万分の1程度である。

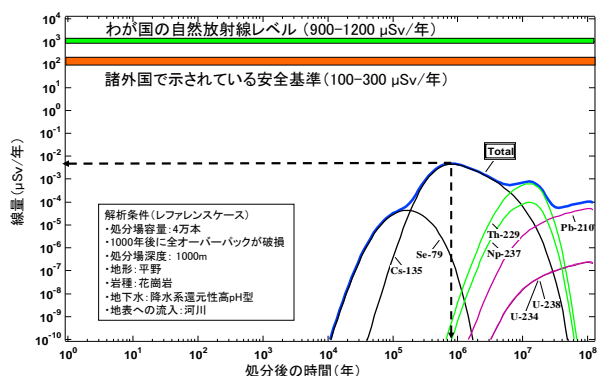


Fig.2 Predicted exposure dose after repository closure in a reference case

## 2.2 核種移行のモデル化

緩衝材や母岩中の放射性核種の移行は数学的に定式化することができ、計算コードにより解析を行うことが可能である。例えば、緩衝材中の核種移行は核種の緩衝材への吸着分配係数( $K_d$ )や実効拡散係数( $D_e$ )の関数として表される。 $K_d$ や $D_e$ の値は緩衝材や母岩の種類や元素、地下水条件によって変化するため、実験データを基に設定される。

ここでは $K_d$ の評価手法について述べる。 $K_d$ は固相に対する吸着を表す尺度であり、主にバッチ式吸着試験により得られる。バッチ式吸着試験とは、容器中に固相と液相を入れて対象となる元素を添加し、固相と液相への分配を調べる手法である。試験はpHやイオン強度、元素濃度等を変化させて $K_d$ の変化の傾向を調べることが多い。また、炭酸や有機物等の元素と錯体を形成する物質を加えて影響を調べることもある。一定の反応期間後、遠心分離やフィルターを用いた濾過により液相を回収して元素濃度を測定し、以下の式(1)により $K_d$  (L/g)を算出する：

$$K_d = \frac{C_{\text{solid}}}{C_{\text{eq}}} = \frac{C_{\text{init}} - C_{\text{eq}}}{C_{\text{eq}} \cdot R_{\text{SL}}} \quad (1)$$

ここで、 $C_{\text{solid}}$ は固相中の元素濃度(mol/g)、 $C_{\text{eq}}$ は平衡時の液相中の元素濃度(mol/L)、 $C_{\text{init}}$ は初期の液相中の元素濃度(mol/L)、 $R_{\text{SL}}$ は固液比(g/L)を表す。JAEAでは各国の研究機関から論文または報告書として報告されている $K_d$ について試験条件とともにクライテリアに基づいた信頼性情報を付与したものをデータベース化して公開しており(Fig.3)、定期的にデータを追加・更新している<sup>[3]</sup>。

前述のとおり、 $K_d$ は固相の種類と液相の条件により大きく変化するため、すべての条件で網羅的に取得することは難しい。そのため、吸着メカニズムに基づいたモデルを構築して $K_d$ を予測する試み(吸着モデリング)がなされている。例えば、緩衝材における吸着はモンモリロナイトという粘土鉱物により支配されることが知られている。モンモリロナイトは2:1型の層状ケイ酸塩の一種であり、層間でのイオン交換反応と層の端面での表面錯体反応により種々の元素を吸着する。イオン交換反応に関する研究の歴史は古く、ほとんど確立されたモデルがある一方で、表面錯体反応に関する研究は比較的新しいため、複数のモデルが提案されている。スイスのパウル・シェラー研究所のグループは、イオン交換反応と静電項無視モデルという表面錯体反応モデルを組み合わせることによってモンモリロナイトに対するII価の遷移元素およびIII, IV, V, VI価のランタニド・アクチニド元素の吸着反応を表現することが可能であることを示し<sup>[4]</sup>、その後、多くの研究者がこのモデルに基づいた論文を報告している。しかしながら、静電項無視モデルは実際の粘土鉱物の構造を反映したものではないとして近年新たなモデルも提唱されている<sup>[5]</sup>。また、マクロスコピックなバッチ式吸着試験に加えて、X線吸収分光法(X-ray Absorption Spectroscopy; XAS)やフーリエ変換赤外分光法(Fourier Transform Infrared Spectroscopy; FTIR)等のマイクロスコピックな分光分析を行って吸着メカニズムを調べる試験もしばしば行われており、吸着モデリングにおいて推定された表面化学種の妥当性を確認する有効な手段となっている。さらに、近年では第一原理計算を用いて吸着メカニズムを解明する試みもされており、吸着モデリングは今後ますます発展していくと考えられる分野である。

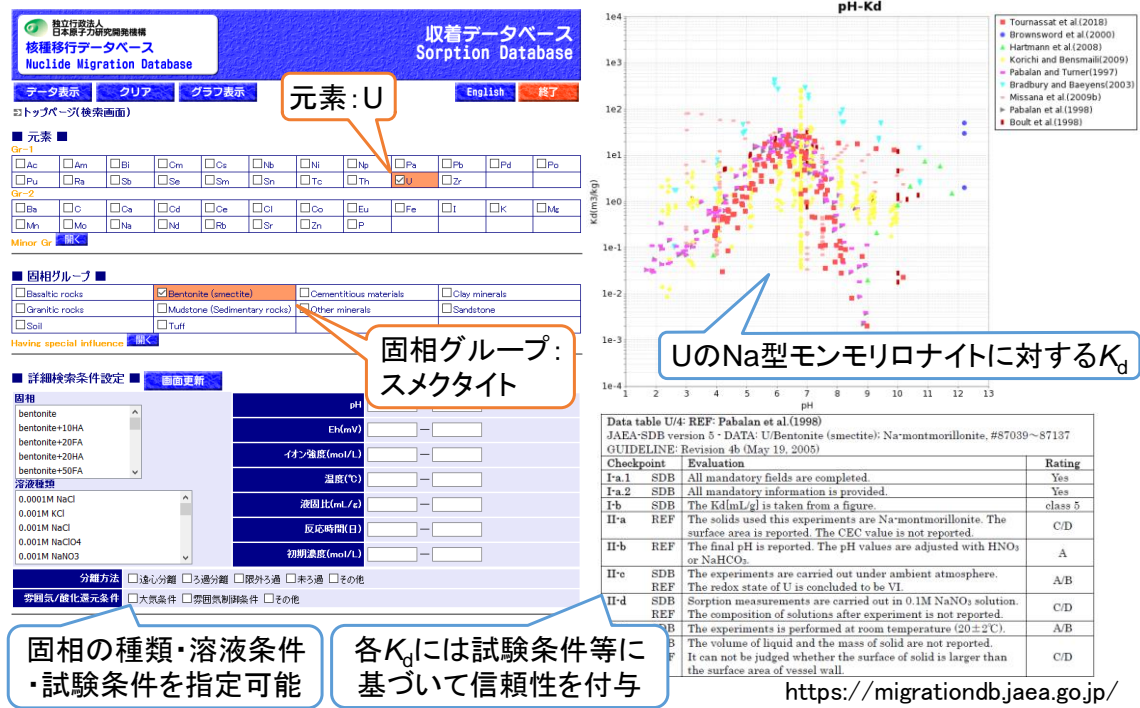


Fig.3 Overview of the JAEA-SDB

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次とりまとめ— 分冊2: 地層処分の工学技術. JNC TN1400 99-022 (1999).
- [2] 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次とりまとめ— 分冊3: 地層処分システムの安全評価. JNC TN1400 99-023 (1999).
- [3] Sugiura, Y., Suyama, T., Tachi, Y.: Development of JAEA sorption database (JAEA-SDB): Update of sorption/QA data in FY2019. JAEA-Data/Code 2019-022 (2020).
- [4] Bradbury, M., Baeyens, B.: Modelling the sorption of Mn(II), Co(II), Ni(II), Zn(II), Cd(II), Eu(III), Am(III), Sn(IV), Th(IV), Np(V) and U(VI) on montmorillonite: Linear free energy relationships and estimates of surface binding constants for some selected heavy metals and actinides. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **69** (4), pp. 875–892 (2005).
- [5] Tournassat, C., Grangeon, S., Leroy, P., Giffaut, E.: Modeling specific pH dependent sorption of divalent metals on montmorillonite surfaces. A review of pitfalls, recent achievements and current challenges. *American Journal of Science*, **313** (5), pp.395–451 (2013).