

発電所廃止措置に伴い発生する低レベル放射性廃棄物処分に係る安全確保

佐々木 規行^{*} 大間 知行^{*} 宮内 善浩^{*} 田村 明男^{*} 小澤 孝^{**} 小林 康利^{**}

放射性廃棄物埋設施設の安全設計に係る基礎技術は、様々なバリア材料の特性（透水性、吸着性等）を対象とした長期安定性試験や、物質移動や化学環境変化の推定等に用いる解析計算コードの開発、さらにはその妥当性を確認するために用いられるナチュラルアナログデータ等の取得によって支えられている。これら基礎技術は廃棄物の種類等によって有効性の度合いが多少異なるものと考えられるが、廃棄物の発生施設等に応じて広範囲な種類を相称する「低レベル放射性廃棄物」の埋設分野については、原則的にこれら既往の技術が応用可能であるとしている。そこで、本誌では原子炉の解体に伴い発生するであろう廃棄物を主体として、処分施設の安全設計に応用できる可能性がある基礎技術を定性的ながらも確認した。

例えば、解体廃棄物には放射化物質があり、金属母材であれば極めて遅い腐食速度を用いた評価が可能であること、また、バリア材としてはベントナイト系材料、セメント系材料を始めとし長期安定性を論ずるに必要な基礎データが現存すること等がある。

keywords: 放射性廃棄物埋設施設, 解体廃棄物, 放射化金属, 腐食速度

The basis technique to affect the safety design of radioactive waste disposal facility is supported by the long-term stability examination for the characterization (the water permeability, absorption and so on) of the various barrier material, development of analysis code to use for the estimation of the material movement and the chemical environment change, and the acquisition of the natural analog data which is used to confirm its validity. It is thought that the effectivity of this basis technique depends on the kind of the waste, but in the field of LLW, it is possible to apply the technique. In this report, it confirmed the basis technique, which is possible to apply to the safety design of the disposal facilities about decommissioning waste from nuclear power plant. For example, activated metal is possible to evaluate using corrosion speed. And the basic data exists to argue about the long-term stability of cement and bentonite as engineered barrier.

keyword: Radioactive waste disposal facility, decommissioning waste, activated metal, corrosion rate

1 主旨

放射性廃棄物の埋設処分技術は長期の安全確保を命題としており、廃棄物の製作から処分場の設計・運用に至る様々な局面において、多くの最新の知見が導入されている。現在、操業される日本原子力研究所の東海 LLW 処分試験場や、弊社の六ヶ所 LLW 処分場においても例外ではなく、処分対象とする試験炉の解体廃棄物や、商業用原子炉の運転廃棄物等に係る処分が粛々と進められているところである。

一方、低レベル放射性廃棄物にはその他にも様々な種類があり (Fig.1)、それらの処分にあたっては、各々の廃棄物の特徴にあわせて、今後仔細な検討が進められるものと考えられる。なお、処分場形態については、国内外において多数例があるが、いずれの形態にあっても安全処分技術の根幹となる要素技術については共通しているものと考えられる。

近年の日本原子力発電 (株) による東海炉廃止措置計画においても、多くの商業用原子炉の解体に伴い今後発生す

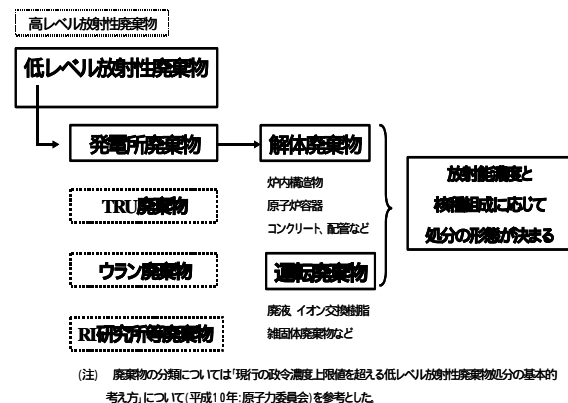


Fig.1 Kinds of radioactive waste

るであろう放射性廃棄物の処理・処分に係るニーズの 1 例ととらえ、安全設計という観点から共通しうる基本的な技術要素に着目し、既に蓄積されている様々な技術から応用できる可能性のあるものを整理した。

2 環境における基本的な放射性物質の移行現象

原子力施設から発生する運転中の放射性廃棄物は、施設内での様々な処理を経て、厳密な安全管理のもとで環境へ放出される。これらは最終的に「気体状」「液体状」「固体状」の様態となるが、このうち地中への埋設処分に供する放射性廃棄物は、固型化処理等を踏まえた「固体状」のものであり、相対的には安定な形態のものに限られている。この点においては解体廃棄物についても同様である。

埋設処分されるこれら固体状の放射性廃棄物には、様々

Safety insurance of disposal of low level radioactive waste generated from decommissioned nuclear power plant, by Noriyuki Sasaki (noriyuki.sasaki@jnfl.co.jp), Tomoyuki Ohma, Yoshihiro Miyauchi, Akio Tamura, Takashi Kozawa, Yasutoshi Kobayashi
本稿は、日本原子力学会「2000 年秋の大会」における総合講演内容に加筆したものである。

* 日本原燃株式会社 環境整備部 施設設計グループ Design & Safety Assessment Gr, Low Level Waste Management Dept, Japan Nuclear Fuel Limited 〒100-0011 東京都千代田区内幸町 2-2-2 富国生命ビル内

** 日本原燃株式会社 環境整備部 サイクル廃棄物グループ Design & Safety assessment Gr, Low Level Radioactive Waste Management Dept, Japan Nuclear Fuel Limited 〒100-0011 東京都千代田区内幸町 2-2-2 富国生命ビル内

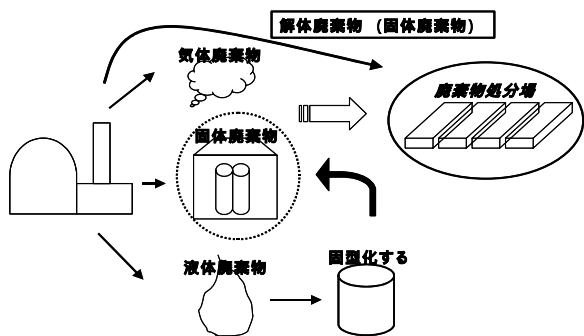


Fig.2 Radioactive waste generated from nuclear power plant

な放射性物質が含まれるため、後に安全解析を行なうにはその挙動を知ることが重要なステップとなる。通常は、「シナリオ解析」として具体的な立地・設計情報などをともに検討されるが、ここでは、有効な処分技術要素を導くために、仮定の処分場イメージを描き、そのなかで想定し得る埋設環境中の移行現象をピックアップすることとした (Fig.2)。

2.1 地下水を介する移行

埋設直後は放射性廃棄物が安定な固体状で存在するため、それらに含まれる放射性物質の多くはほぼ固定された安全な状態にあると考えられる。しかし、時間が経過すると、地下水との接触を“きっかけ”とし放射性物質に相変化が生じることによって環境への移行が始まる。このときに生ずる相変化を伴う現象や核種の放出メカニズムは、廃棄物（あるいは廃棄体）中の放射性物質の存在形態によって異なる。

また、廃棄物から一旦溶出した放射性物質は、埋設施設を構成する様々なバリア材を通過して、最終的に減衰または希釈されて生活環境に至る。

これら核種の地下水を介した典型的な移行の様態について以下に整理する。

(1) 廃棄物表面に付着している放射性物質の移行

廃棄物表面に付着する放射性物質は、配管等に薄く蓄積した「クラッド」と呼ばれる被膜によって固定されているケースが多い。「クラッド」はニッケルフェライトなどで構成されると言われており、水との接触によりこれらが徐々に不安定となるに応じて放射性物質の移行の“きっかけ”となると考えられる。

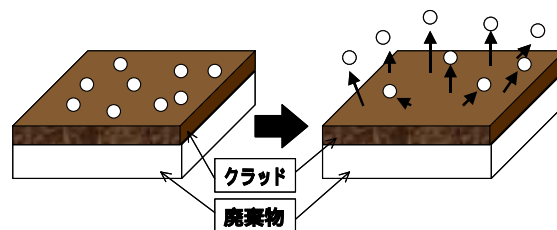
なお、廃棄物が直にセメント系材料等で固型化されている場合は、固型化時に一部の放射性物質が既に移行していると予想されるが影響は小さいと思われる (Fig.3)。

(2) 廃棄物内に取り込まれている放射性物質の移行

放射化金属や溶融固化体、さらには液体廃棄物をセメント系材料等で均一に固型化したもの等については、放射性物質が廃棄物や固型化材料に取り込まれて安定化した状

(1) 汚染廃棄物

「クラッド」等とともに放射性物質が沈着しており、クラッドまたは放射性物質を含む化合物の溶解によって溶出していく



NiFe₃O₄を主成分としたクラッドは、微視的に見れば内層クラッドや比較的不安定な外層クラッドで構成される。また、核種は、析出・付着のほかイオン状のものが同位体交換や皮膜形成の反応に関与しつつ徐々に内層まで移行することもある。

Fig.3 Mechanism of nuclide release from radioactive waste (1)

態となっている。このような廃棄物からの核種の移行は、放射性物質を囲む母材の安定性と緻密さによって異なると考えられ、例えば、金属のようにほぼ完全に緻密なものであれば、母材である金属の溶解（腐食を含む）等によって放射性物質の移行が律速される。一方、セメント固化体のようにポーラスな媒体であれば、母材内に地下水が浸入し、セメント系材料の溶解に加え複雑な空隙内での移行プロセスを経ることとなり、核種の移行を支配する現象もその表面でのみ生じるものとは異なると予想される (Fig.4)。

(3) バリア材内での放射性物質の移行

バリア材内の小さな空隙で起こる放射性物質の移行は、無限希釈に近い自由水で起こる移行よりも一般的に緩慢であるが、一方では複雑なメカニズムを介すると言われている。これはシンプルな移流・分散現象に加えて、空隙を構成する固相と核種の吸着や静電的な相互干渉など様々な物理的・化学的作用が附随するためとの指摘がある。

ただし、このような複雑な相互作用の解明が一方においては核種の移行を遅延させる有効な処分安全技術の応用でもあるため、今後の研究・開発が望まれる分野の1つである。ここでは放射性物質の移行を支配する「ドライピン

(2) 緻密な構造の放射化廃棄物

廃棄物である金属等を構成する元素自身が放射化により核種となっているものは、母相の腐食・溶解により徐々に溶出していく

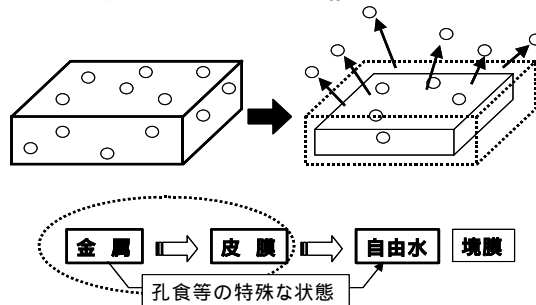


Fig.4 Mechanism of nuclide release from radioactive waste (2)

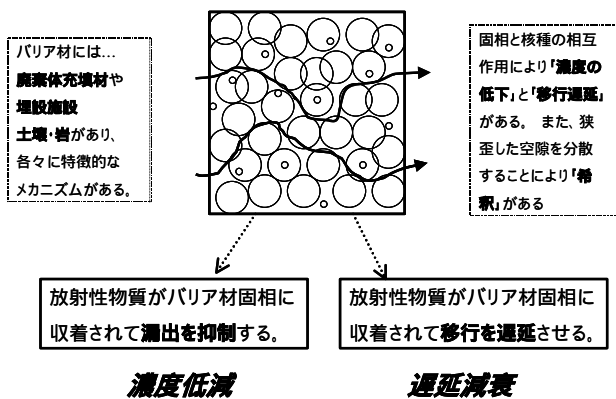


Fig.5 Migration mechanism in engineered barrier

「グフォース」でシンプルに分類することとし、地下水流に依存する「移流」と濃度拡散に依存する「分散」に大別して簡略整理する (Fig.5)。

「移流」は間隙内の流速をドライビングフォースとし、主に地下水流速や吸着度（分配係数など）によってのみ核種の移動速度を表現するものである。一方、「分散」は濃度勾配をドライビングフォースとする拡散項を含んでいるため、核種の移動速度は着目物質の濃度勾配や吸着度等によっても支配される状態を表現している。これらに影響する主な因子を総括すると、バリア材である固相の性状に由来するものと、流体である水の性状に由来するものに概ね分割される。このうち水の性状に影響する因子（例えば、「動水勾配」「温度」「粘性」等）については、サイト特性として配慮すべき項目となるため、ここでは極力バリア特性固有の因子に近いもののみを抽出する。

1つは、地下水流速を決定する固相（バリア材）の物性と言える「透水係数」（または有効間隙率）、1つは、拡散係数を決定する固相の物性と言える「形状係数」、さらに核種の固相への安定化を広く表現した「吸着係数」となる。

このように核種の移行を支配する固相の重要な特性としては、幾つかに絞りに絞ることができる。また、透水係数は「緻密さ」、形状係数は「空隙の連続性等」、吸着係数は「固相の表面積やその活性度」とイメージされる。

2.2 人間の活動に伴う移行

人間活動に伴う廃棄物へのアクセスは、主に地下掘削に伴う行為によって起こるものであり、その可能性を論ずるには行為の「動機」をもって整理することが有効である。

地下掘削の動機については、現状までの経験範囲をもとに分類できる。ここに示す動機には立地点の自然条件を注意深く調査することにより、そもそも回避可能なものが含まれているほか、地下掘削の深度がある程度限定されるものが含まれているため、立地点の選定や設置深度を考慮することによって、人間侵入の危険性をより小さくすることが可能であると考える。

3 LLW 廃棄物の安全処分技術

これまでに培った放射性廃棄物の安全処分技術を十分に活用するためには、埋設後の放射性物質の挙動を予測し、有効な対処策を選択することから始まる。廃棄物処理・処分の基本原則は無害化であり、この点では放射性廃棄物も例外ではない。放射性物質の最大の特徴は、一定の半減期にしがたい放射線学的な性質を喪失していく点にあるため、多くの放射性物質は生活圏に到達する時間を長くすることにより安全確保が可能となる。また、極めて半減期が長い放射性物質に対しては、その人体に対する毒性を十分に認識した上で例えば生活圏に達するまでに希釈されるよう配慮することにより安全確保が可能となる。

このような「減衰」及び「希釈」については、他の原子力施設で実施される放射性物質に対する安全確保と同様であるが、処分事業固有の安全確保上の特徴としては様々な長期の自然現象を考慮する点にある。

3.1 処分場の各バリアとその期待性能(各論)

放射性廃棄物の埋設処分場を構成するバリア材は、対象とする放射性物質または廃棄物自身の性状に応じて合理的に決められるであろうが、これらは大別すると「廃棄体バリア」「人工バリア」「天然バリア」に分けられる。以下に各バリアの具体例とその概括的な期待性能について整理する。

3.1.1 廃棄体バリア

ここで言う廃棄体バリアは、廃棄物自身から放射性物質が放出される際に相応の時間遅れがあるものを含め、容器の性能、固型化材料の安定性等を総括して述べることとする。

(1) 廃棄物自身に核種閉じ込め性能があるもの

放射性廃棄物には、廃棄物母材の表面に放射性物質が付着・沈着しているもの（「汚染廃棄物」と呼ぶ）と、母材自身が中性子の照射等に曝されて構成元素の一部を放射性物質としているものがある。後者を一般的に「放射化物」と呼び、これらから放射性物質が浸出するメカニズムは一般に廃棄物母材の分解速度に依存するとされている。特に緻密な金属製の放射化物では金属の腐食速度がそれに大きく関与する。

また、汚染廃棄物であっても、溶融処理のように廃棄物自身を高温下で溶解することによって、その表面に付着している放射性物質とともに安定固化する場合には、結果として内包される放射性物質が廃棄物母材の分解速度に依存した浸出機構となるものもある。

放射化金属には、発電所で用いられている代表材料にSUS金属がある。この核種放出メカニズムを例とすれば、仔細には金属の腐食、被膜の溶解・拡散、境膜での拡散な

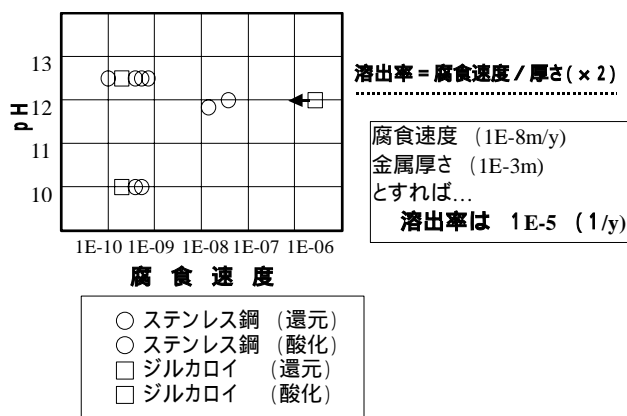


Fig.6 Corrosion rate of activated metal

ど様な現象が介在すると考えられるが、腐食しづらい環境においては「金属の腐食速度」を律速とするものと考えられる。

金属の腐食速度は、既往の文献等でも様々な方法で測定された報告がある。各々の測定方法には未だ一長一短があるものの、概ね SUS 材においては 0.1 ~ 0.01 μm/y (腐食環境条件に応じて振幅がある) とされている。これは厚さ 1 mm の SUS 材を想定したときには溶出率に換算して 10⁻⁴ ~ 10⁻⁵(1/y) に相当しており、放射性物質の閉じ込め性能という点では極めて優れた状態であることを示している (Fig.6)。

(2) 固型化材料

廃棄物は廃棄体(「容器に収納した状態」を指す)として処分する際に、事前に安定化処理として様々な固型化材料で充填あるいは均一固型化されるのが一般通念である。現在、LLW として実際に処分されているケースでは、固型化材として「セメント系材料」「アスファルト」「プラスチック」が用いられており、各々に相応の核種閉じ込め性能があるとされている。

「セメント系材料」は、通常、ポーラスな媒体であり、平衡に近い静的状態が期待できる条件にあれば放射性物質を固定化するに十分な機能を発揮する。この際の放射性物質の固定化に関するメカニズムについては、様々な現象が複合している可能性があり、先述した核種の収着のみな

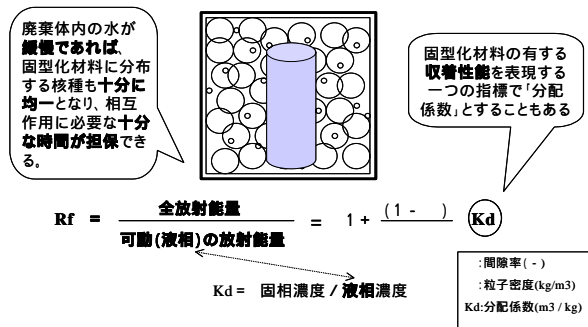


Fig.7 Barrier system of cement material

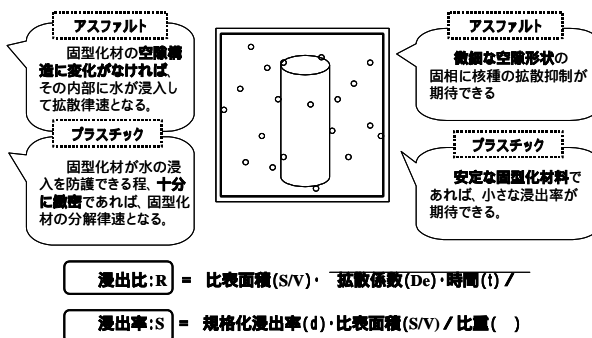


Fig.8 Barrier system of asphalt and plastic material

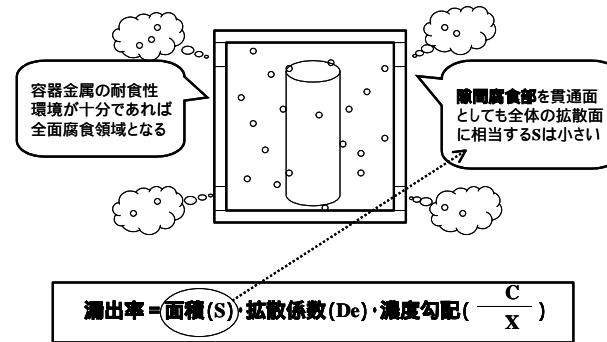


Fig.9 Barrier system of waste package

らず、高アルカリ環境が維持されることから、特に鉄族元素等の沈殿による安定化も期待することができる (Fig.7)。

なお、セメント系材料は、水との接触によって徐々に変質するため、特にその間隙における化学環境や固相の成分変化を追従することが重要となるが、この点においてもモデル化等の試みが国内外で進められており既に多くの成果が報告されている。

「アスファルト」及び「プラスチック」は、遮水機能に優れた媒体であり、地下水との接触を防護する意味では有効なバリア材である (Fig.8)。

(3) 容器

廃棄体容器については、国内では主に金属製を用いるケースが多い。容器を核種閉じ込め性能という観点で見た場合には、二つの機能が期待できる。一つは放射性物質の漏出開始を遅延させて放射性物質の減衰を期待する効果であり、他方は廃棄物の漏出面(拡散面)を低減させてフラックスを小さくする効果である (Fig.9)。

3.1.2 人工バリア

国内外における埋設処分施設には、既に稼動しているものや、将来計画しているものなど多くの実例が存在するが、これら埋設施設の多くは「セメント系材料」や「粘土 砂系材料」が用いられている。これら人工バリア材はいずれも放射性物質を固定するために核種の収着・低拡散性を期待したり、あるいは遮水によって放射性物質の移行を抑制する等の機能が期待されたものであり、地下水の流量コン

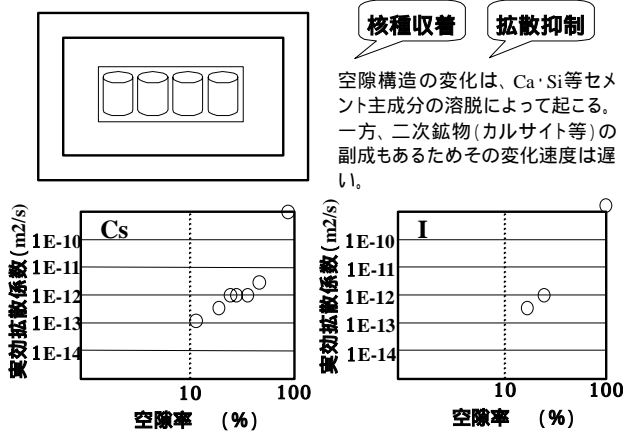


Fig.10 Barrier system of cement material

トロールという観点からアイディアされた「排水層(ハイドロリックケージ)」を含めると多様な性能が現存する。
(1)セメント系材料

埋設施設として用いられるセメント系材料は、一般的に廃棄物の固化材として用いられるものよりも物量が多いことから、核種の収着性能を同様に期待するにも相対的に線量当量を下げる十分な効果があるものと考えられる。また、セメント系材料の空隙構造は人為的に調整することができるため、より緻密な材料として配合設計するのも技術的に可能であり、収着性能のほかにも低拡散性あるいは低透水性を今後期待できると考えている (Fig.10)。

セメント系材料は、水和反応により生じる様々な鉱物等の複合材料であり、初期に形成される主なものとしては、水酸化カルシウム (Ca(OH)₂) や C-S-H ゲル、モノサルフェート: AFm (C₄ASH₁₂)、ハイドロガーネット (C₃AH₆) 等がある。また、水との接触により起こる様々な変成プロセスを経て、カルサイト (CaCO₃)、エトリンガイト (C₄A S₃H₃₂) 等が逐次副成すると言われている。これらは表面に収着能があるものや、生成する過程でイオン種を取り込むもの等があり、放射性物質を固定するための重要な役割を果たす。なお、放射性物質の溶解度を下げると言う観点では、高 pH 環境が長期間にわたって維持できるセメン

Table. 1 Chemical endurance of cement material

glasserモデル	atkinsonモデル	bernerモデル
多くの溶解度データを整理してCa,Si比が変動する領域を連続的に補正修正できるよう経験式を用いて工夫	Ca, Si比が連続的に変動する領域を約0.85で区分して、各々に代表組成を固定し溶解度を与える	Ca,Si比を3つの領域に区分して、各領域の代表組成を2種鉱物の存在割合の関数として推定。但し溶解度は経験式を用い glasserと同様に扱う
C ₃ H _{6-2x} Si ₂ O ₇ Ca(OH) ₂	[Ca/Si 0.833] 0.833CaO · SiO ₂ · 0.917H ₂ O + Ca(OH) ₂ [Ca/Si 0.833] 0.833CaO · SiO ₂ · 0.917H ₂ O + SiO ₂	CaH ₂ SiO ₄ + Ca(OH) ₂ CaH ₂ SiO ₄ + SiO ₂

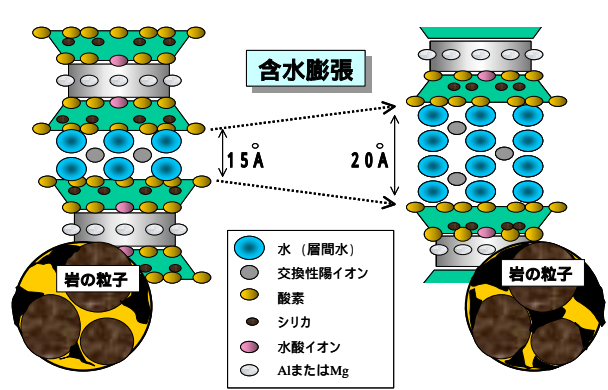


Fig.11 Effectivity of bentonite (1)

ト系材料の特徴に着目すべきである。

セメント系材料の間隙における化学環境は、諸成分の溶解によって支配されており、長期間の変遷を推定するためのモデル開発及びデータ取得が行われている。代表例を Table. 1 に示す。

(2)ベントナイト系材料

ベントナイト系材料は多重層からなる粘土鉱物を主成分としており、その層間に水分子を取り込み膨潤することによって高い止水性を発揮すると言われている。うち最も膨潤に優れる構造は、モンモリロナイトの例に見られるような金属層が粘土層に挟まれた 2:1 層と呼ばれるものであり、止水能力はその密度によってほぼ決定されると考える (Fig.11)。

ベントナイト系材料における品質保証の問題についても、機械による高密度な工場成型から現場施工までを念頭において論じられ、これまでに係る高度な技術開発や研究が始められている。また、変質についてもそのメカニズムや影響の程度等が試験・調査されており、物性の変化予測に係るデータも数多く報告されている。

ベントナイト系材料の変質とその期待性能に与える影響については、既往の文献によれば Fig.12 に示すように整理することができる。

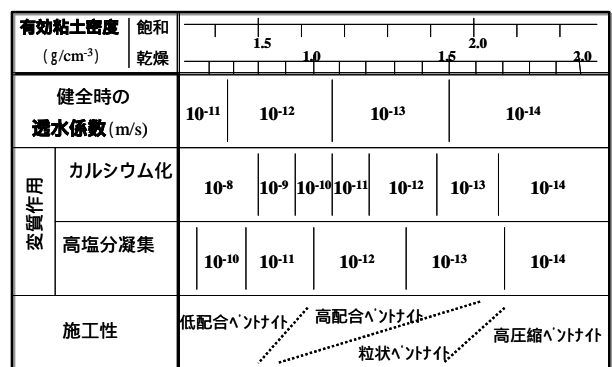


Fig.12 Effectivity of bentonite (2)

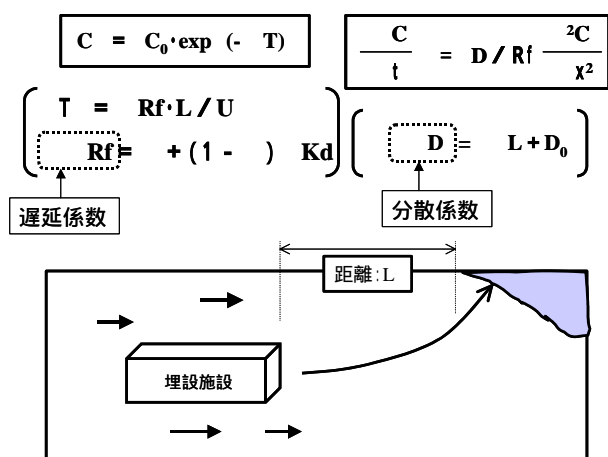


Fig.13 Effectivity of natural barrier

(3) 排水層の設置

排水層を設置することにより、防護したい領域（廃棄体が収納されている領域）に向かう水の流れを迂回させ、結果として埋設施設への浸透水量を低減させる効果が期待できる。このような地下水の浸透水量低減効果は、地下水の浸入面に働く動水勾配の低下により実現され、既往の土木技術分野においては既に「暗渠」として活用されている技術の応用でもある。また、排水層をより効果的なものにするには、施設あるいは廃棄体周辺の透水係数差を2桁以上としておけばほぼ恒常的に機能すると考えられる。

ただし、核種移行を総じて抑制できるか否かについては、埋設施設周囲の地下水流速を人工的に速めることによる様々な影響を加味して十分に検討する余地がある。

3.1.3 処分場周辺の天然バリア

人工バリアから漏出した放射性物質は、最終的に土壌や岩等の天然バリアを介して生活環境に達するが、その間に期待される天然バリアの機能としては「遅延・減衰」、「希釈」があり、いずれの効果をもってしても放射性物質の濃度を低減させることができる。

「遅延・減衰」効果は、放射性物質が想定される生活圏までに達する時間（トラベリングタイム）を極力現実的に評価できればより有効であり、立地点の地下水流動調査や解析を用いて、「代表的な地下水流速」を与えるために必要な検討を行なうことになる。また、物理的な距離を確保することも有効な手段であり、地下水の流動とは別に深さ方向に対してより距離をとる等の具体策が考えられる（Fig.13）。

一方、「希釈」効果については、地下で分散する放射性物質の広がりに着目して濃度の低減に期待するものがあるが、一般に処分場から距離がある程、放射性物質を含まない水による介在を受けて濃度がより小さくなる。また、地表面に到達後は、地下水とは異なる流系からの地表面

Table 2 Expected properties for the barrier

バリア材の種類	期待性能	
廃棄体バリア	放射化金属等	溶出率, 浸出率
	固型体材料	収着係数
	容器	Non Release Timeの確保, 拡散面の低減
埋設施設	セメント系材料	収着係数, 拡散係数, (止水性)
	ベントナイト系材料	止水性, 拡散係数
	排水層	止水性
天然バリア	土壌や岩等	透水性, 収着係数

(run off 等) による希釈を受けるので更にその濃度は低減する。

3.2 安全維持に係わる各バリア機能の役割(総論)

放射性物質の毒性を喪失させるために果たす各バリア材の機能(役割)は、基本的には「減衰」若しくは「希釈」であるが、「希釈」については、放射性物質が生活環境に至るまでにそれを含まない多量の媒体(例えば水)で薄めるものと、放射性物質の移動速度を小さくして見かけ上の希釈量を増やすものがあり、例えば半減期が極めて長い核種についても徐々に漏出するような「放出率」制限が可能な設計とすれば、安全維持の観点で有効なバリアとなる。このような観点から、先述した各バリア材の期待性能について整理すると次表の通りとなる。

4 LLW 廃棄物の放射線学的な特徴とバリア構成

原子炉の解体に伴い発生する廃棄物には様々な種類があり、放射能濃度の観点から見ると大半が既に稼働中の六ヶ所 LLW 処分施設に処分可能なものに属すると予想される。ただし、極一部には放射化金属やコンクリート片を始めとした放射化物等があり、これらは放射能濃度が現行の政令に定める濃度限度を超えられている。

また、このような放射性廃棄物には、従前の汚染廃棄物とは異なる放射性物質が卓越して存在している可能性もあり、これらを安全に処分するとした際には、放射能濃度が高いもの、放射化固有の核種に対する対策という2つの点からアプローチを行なうことになる。

このような特に濃度の高い放射性廃棄物に対する対策については、放射化物である特徴に配慮し、合理的に人工バリア及び天然バリアの設計を行なうことにより対処することになる。

また、特有の核種に対する個別対策としては、その環境における挙動を支配する化学的性状に着目して固定化を強化する方法がある。例えば、Cl-36 については、セメント系材料を構成する一部の鉱物に対してフリーデル氏塩の生成が観測されており、このような特徴を活かした材料開発等は有効な対策の1つとなり得る。

5 結 言

低レベル放射性廃棄物に含まれる核種は、放射線学的特性から整理すると短半減期核種の存在割合が相対的に多いという共通した特徴があるため、その処分にあたっては先ず放射性物質を所定の期間、閉じ込めることにより毒性を低減することが肝要となる。

また、解体廃棄物の場合は放射化金属等が大半を占めるため、廃棄物自身の安定性に優れているものと言える。かつ人工・天然バリアの設計・選定にあたっては、必要な要素技術の研究・開発が様々な分野において進められている現状にあり、今後、このような廃棄物の処分計画が具体化した折には、スムーズな検討が可能な背景にあると考える。

