



Japan Atomic Energy Agency

放射性廃棄物の中深度処分安全評価に係る研究 -人工バリアに使用されるベントナイト系材料の性能評価-

環境安全研究ディビジョン

廃棄物安全研究グループ

笹川 剛

令和元年度安全研究センター報告会

令和元年11月26日

富士ソフト アキバプラザ

※本内容の一部は、原子力安全・保安院、原子力規制庁からの受託研究である「平成18年度放射性廃棄物処分の長期的評価手法の調査」、「平成20年度放射性廃棄物処分の長期的評価手法の調査」及び「平成31年度廃棄物埋設における核種移行に係る性能評価に関する研究」における検討内容である。

内容

- 放射性廃棄物の中深度処分について
- モンモロロナイトの溶解挙動評価
- 現在検討されている中深度処分に関する規制
- 今後の研究について

放射性廃棄物の中深度処分について

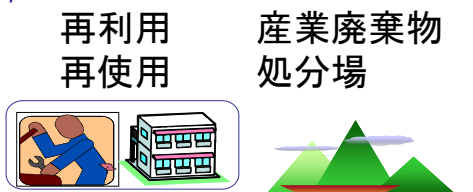
放射性廃棄物の処分概念

放射性物質を起因とするリスクから公衆と生活環境を防護するため、
廃棄物の放射能濃度等に応じた埋設の方法により最終的な処分を行う

放射性物質として扱う
必要のないもの

低レベル放射性廃棄物

高レベル
放射性廃棄物



放射能濃度
の極めて低い
もの

放射能濃度
の比較的低い
もの

放射能濃度
の比較的高い
もの

放射能濃度
の極めて高い
もの

クリアランスレベル
以下のもの

トレンチ
処分

ピット
処分

浅地中処分

中深度処分

70m

300m

第二種廃棄物埋設

第一種廃棄物埋設

TRU廃棄物

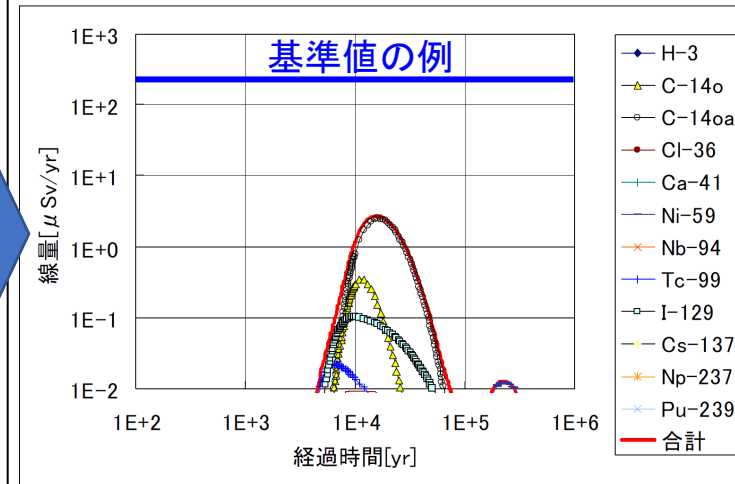
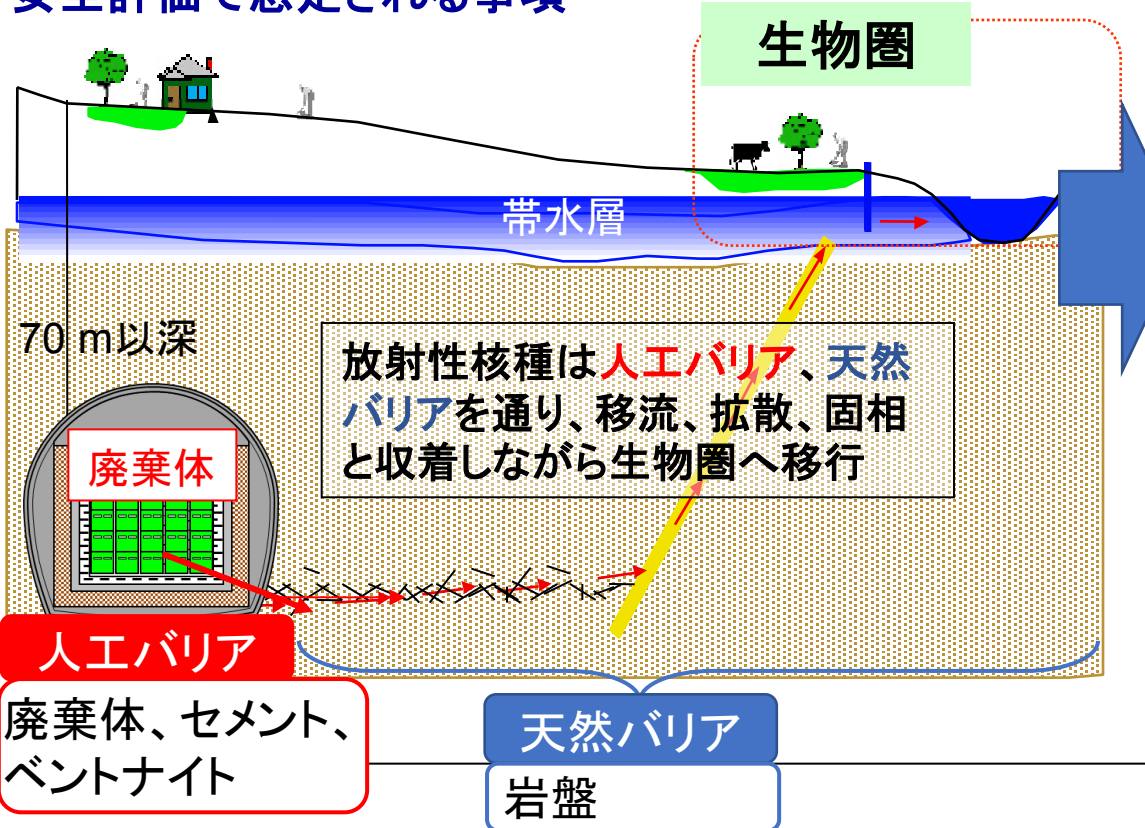
ガラス固化体

地層処分

中深度処分システムの安全評価

処分システムの安全性は**安全評価計算**(シミュレーション)によって確認

安全評価で想定される事項



線量評価の例

(加藤ら, “余裕深度処分の技術的な信頼性構築に向けた検討状況について,” 原子力バックエンド研究, vol.13 No.1, 2006)

- ・人工バリアと天然バリアによって、廃棄物の離隔・閉じ込め
- ・廃棄物中の核種は、長期の間には漏洩し、地下水により生物圏へ移行
- ・安全評価(核種移行)計算を行い、生物圏における被ばく線量が基準値以下であることを確認

各構成要素に求められている機能

バリア	人工バリア			天然バリア
構成要素	廃棄体	低拡散層	低透水性層	—
	鋼製容器	セメント系材料	ベントナイト系材料	堆積層、岩
機能	溶出抑制	低拡散性 移行遅延	低透水性 移行遅延	移行遅延
指標	溶出率	拡散性 収着性	透水性 収着性	収着性

安全評価では、

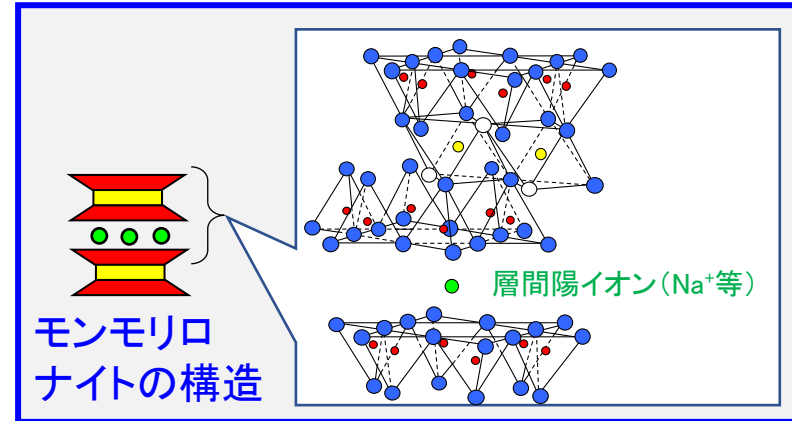
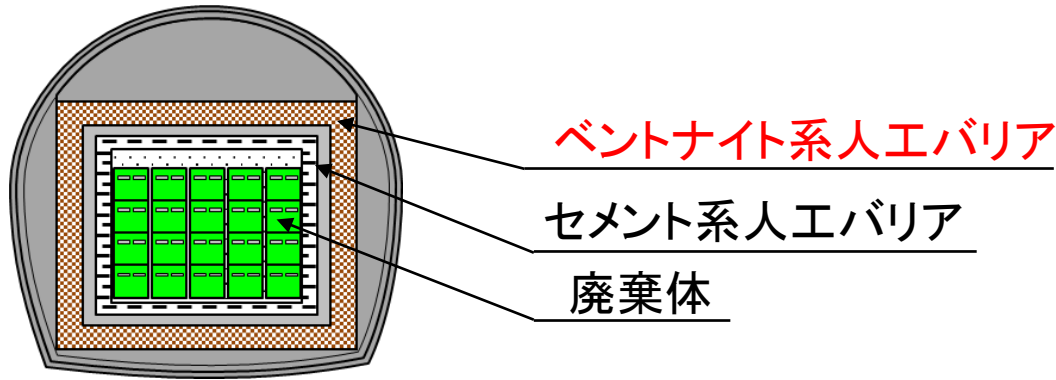
- ・求められている機能が**正常に発揮**されている場合
- ・求められている機能が**劣化・損失**した場合

における、核種移行への影響を把握する必要がある

- 各構成要素の機能に対する研究は個別に実施している
- 本研究では、ベントナイト系人工バリアの低透水性に着目！

ベントナイト系人工バリアの概要

- 人工バリアに圧縮ベントナイトを使用
 - ベントナイトとは、モンモリロナイト(粘土鉱物), 石英, 斜長石等の混合物
 - 低透水性**、高収着性により**核種移行を抑制**



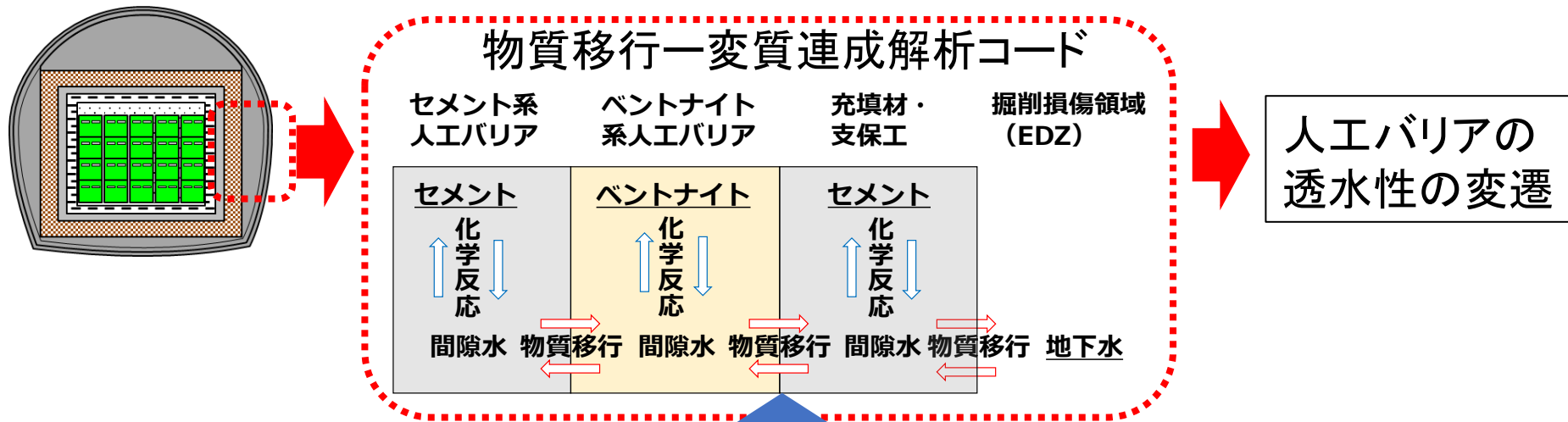
- ベントナイトの低透水性はモンモリロナイトの層状構造に由来



層間に水が入ることで膨潤、水を層間に捕まえることで低透水性を発揮

ベントナイト系人工バリアの変質評価

- セメントから溶出する高アルカリ成分によりベントナイト系人工バリアが変質し、その低透水性等が長期的に劣化することが懸念
- 変質に伴う、透水性の変遷を評価する必要がある



透水係数評価式、熱力学データ、溶解速度式、拡散係数

ベントナイトの特性(実験により取得)

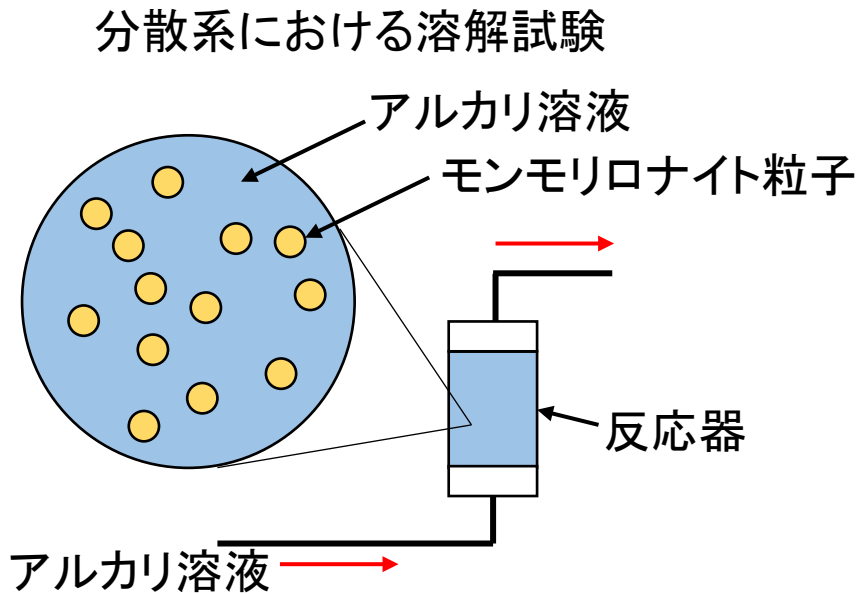
- 透水性(透水係数評価式)
- 化学的安定性(熱力学データ、溶解速度式)
- 拡散性(拡散係数)

特にモンモリロナイトの溶解速度が重要

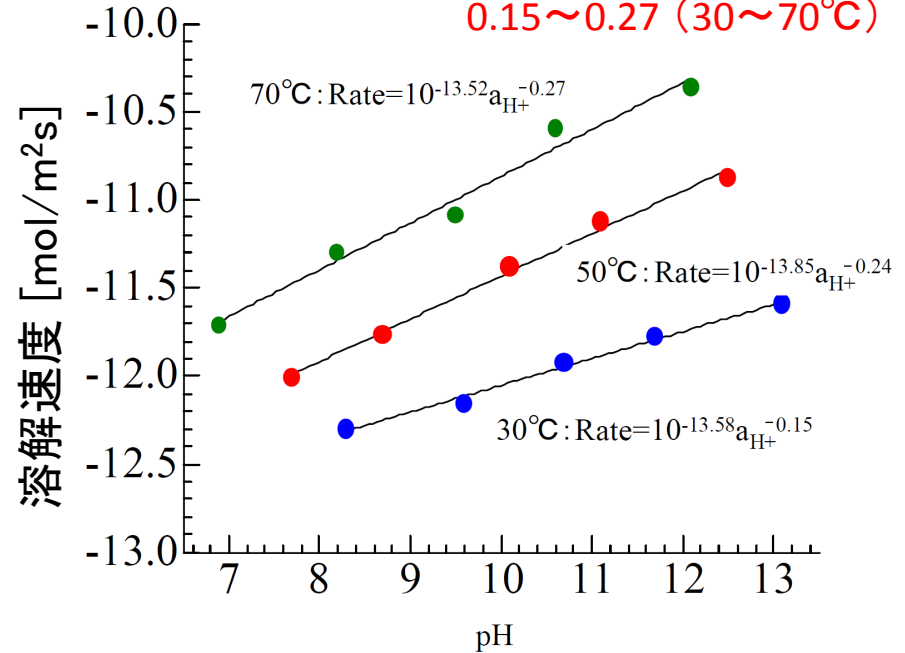
モンモリロナイトの溶解挙動評価

モンモリロナイト溶解に係る既往研究

既往研究は、粉体試料を溶液中で分散させた実験系における溶解挙動評価が多い
 溶解速度のOH⁻ 活量依存性
 0.15~0.27 (30~70°C)



温度、pH、飽和度等について
 その影響が評価されてきた



粉体試料(モンモリロナイト)の溶解速度
 (log rate vs pH)

Sato, T. et al.,: Proc. Int. Work-shop on Bentonite-Cement Interaction in Repository Environ.,14-16 April 2004, Tokyo, NUMO-TR-04-05, A3-38~41 (2004).

しかしながら、処分場では圧縮成形されたベントナイトを使用
 →粉体を用いた変質試験結果から導出したモンモリロナイト溶解速度は、
 実環境での溶解速度とは異なる可能性

ベントナイト圧縮体の溶解試験

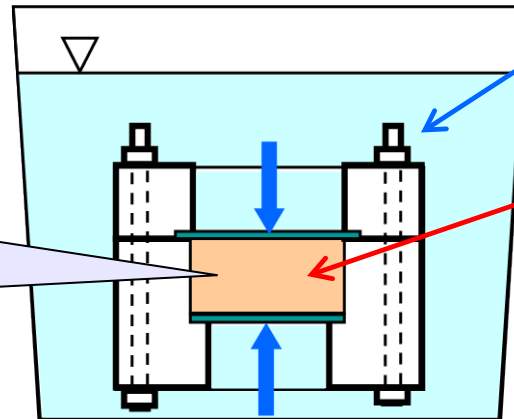
【目的】ベントナイト圧縮体中のモンモリロナイト溶解速度式の整備と溶解挙動把握

- ベントナイト圧縮体をNaOH溶液に浸漬させる溶解試験を実施
- モンモリロナイト残存量の経時変化から、その溶解速度(R_A)とOH-活量(a_{OH^-})の関係を定式化

$$R_A = 3500 \cdot (a_{OH^-})^{1.4} \cdot e^{-51000/RT}$$

(R : 気体定数($J \text{ mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$), T : 温度(K))

- ベントナイト圧縮体の組成割合
- **モンモリロナイト** (35%)
 - 砂(石英) (30%)
 - 斜長石など、**共存鉱物** (35%)



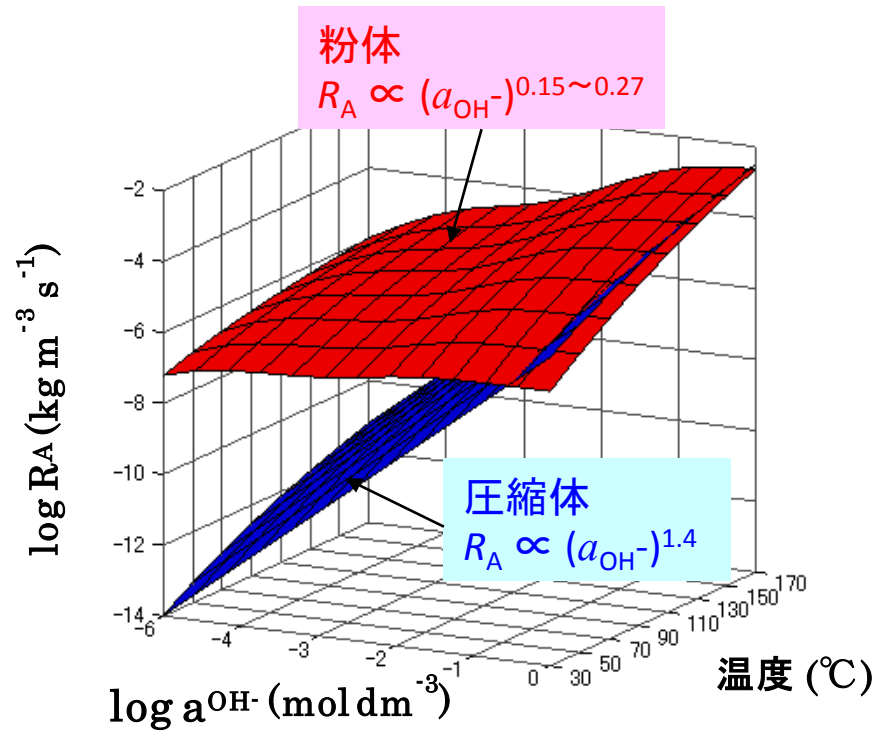
浸漬溶液:
OH-濃度 $0.1-1.0 \text{ mol dm}^{-3}$

試料: ベントナイト圧縮体
直径20 mm × 厚さ10 mm

温度: $50 \sim 170^\circ\text{C}$

ベントナイト圧縮体の溶解試験

【粉体と圧縮ベントナイトの溶解速度の比較】

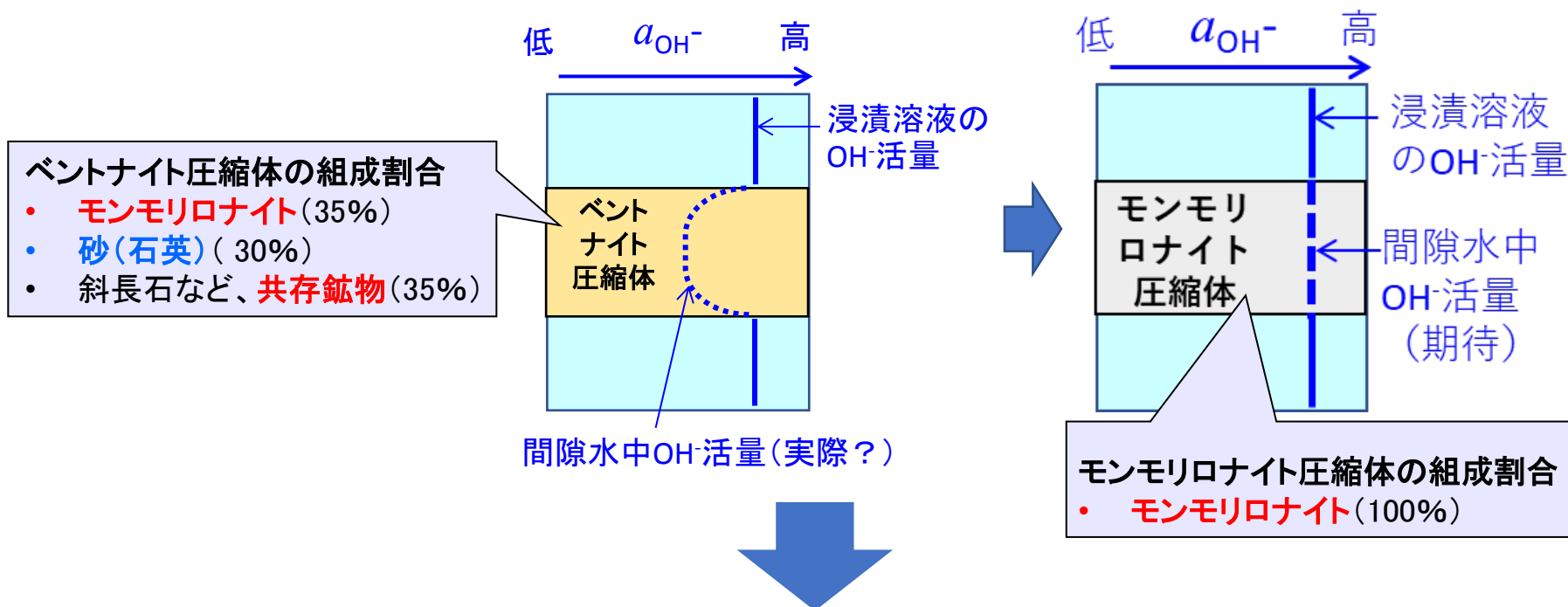


粉体■とベントナイト圧縮体■の変質試験から得られたモンモリロイト溶解速度の比較

- モンモリロナイト溶解速度
粉体モンモリロナイト > ベントナイト圧縮体
 - OH⁻活量濃度依存性も異なる
粉体: 0.15~0.27乗、圧縮体: 1.4乗
 - これら原因として、両試験の違いに注目
 - ・共存鉱物の有無
 - ・静電的影響の有無
 - ・比表面積の違い
 - ・飽和度
- } 圧縮体内部のOH⁻濃度は外部溶液と異なっている可能性
- 等

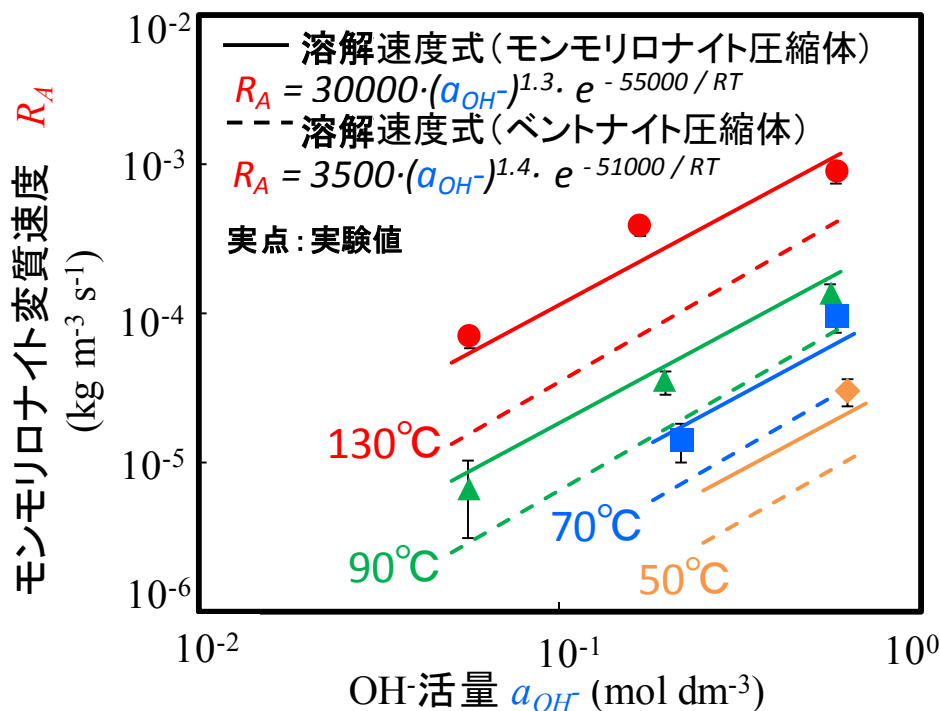
共存鉱物の影響を見るためのモンモリロナイト圧縮体の溶解試験

- ベントナイト圧縮体中のモンモリロナイト溶解速度式 (R_A) の導出では、浸漬溶液中と間隙水中の OH^- 活量は等しいと仮定
- 共存鉱物と反応し、**間隙水中の OH^- 活量が低下している可能性**
- R_A を過小評価 (非安全側) している可能性



ベントナイト圧縮体中のモンモリロナイト溶解挙動把握、適切な溶解速度式を作成のため、共存鉱物の影響を排除した系 (**モンモリロナイトのみで作成した圧縮体**を用いた溶解試験) を実施

モンモリロナイト圧縮体の溶解速度



モンモリロナイトの溶解速度 (R_A): モンモリロナイト圧縮体 > ベントナイト圧縮体



2倍程度速い

ベントナイト圧縮体内のOH-濃度は共存鉱物との反応によって低下 → R_A 過小評価

モンモリロナイト圧縮体に対する溶解速度式を用いることで、ベントナイト圧縮体内のモンモリロナイトの溶解を適切に評価可能になった

現在検討されている中深度処分に関する規制

中深度処分の審査の考え方の変更点

審査の考え方

原子力安全委員会	原子力規制委員会(検討中)
<ul style="list-style-type: none"> ➤ 線量基準を満たすこと 	<ul style="list-style-type: none"> ➤ 線量基準を満たすことに加え ➤ 設計プロセスが妥当であること <ul style="list-style-type: none"> • 漏出抑制機能等を有することを明確化 • BAT(Best Available Technique)に基づく複数の設計の選定 • 科学的に最も可能性が高い状態における線量がより小さい設計を決定



平成30年度第11回原子力規制委員会 資料4 修正版
(平成30年5月30日) より抜粋

- 線量基準に加え、設計プロセスの要求として、複数の設計の中から、核種の漏出量が少ない設計を選ぶ必要がある
 - 規制期間終了後における閉じ込めの対策、及びその妥当性を示す評価の重要性が高まった
- 人工バリアの核種移行抑制性能の評価では、ベントナイトの変質過程と透水性の関係を明らかにする必要がある

今後の研究について

今後の研究課題

【今後の課題】

人工バリアの核種移行抑制性能評価のため、
ベントナイトの変質過程と透水性の関係を明らかにする必要がある

【評価に何が必要か？】

ベントナイト系人工バリアにおけるモンモリロナイトの溶解、二次鉱物の沈殿、これらが起きた際のベントナイトの透水性の評価

【これらを明らかにするために何が必要か？】

圧縮体の高アルカリ溶解に関する検討

- ① 溶解速度式の未整備のパラメータ
- ② 圧縮体の溶解メカニズムの解明

二次鉱物の生成(沈殿)に関する検討

- ③ 二次鉱物の生成(沈殿)の取り扱いについて整備

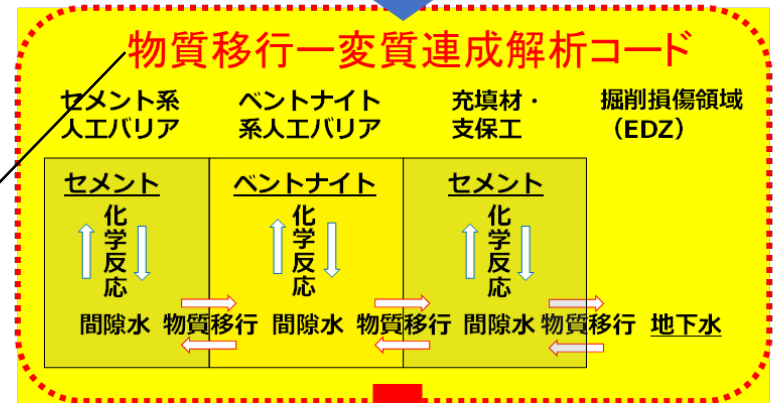
圧縮体の透水性に関する検討

- ④ 変質(溶解、二次鉱物生成)によって透水性がどのように変化するか

ベントナイトの特性(実験により取得)

- 透水性(透水係数評価式)
- 化学的安定性(熱力学データ、溶解速度式)
- 拡散性(拡散係数)

透水係数評価式、熱力学データ、溶解速度式、拡散係数



ベントナイト系人工バリアの透水性の変遷

今後の研究①, ②

① 圧縮体の溶解速度式において未整備のパラメータの整備

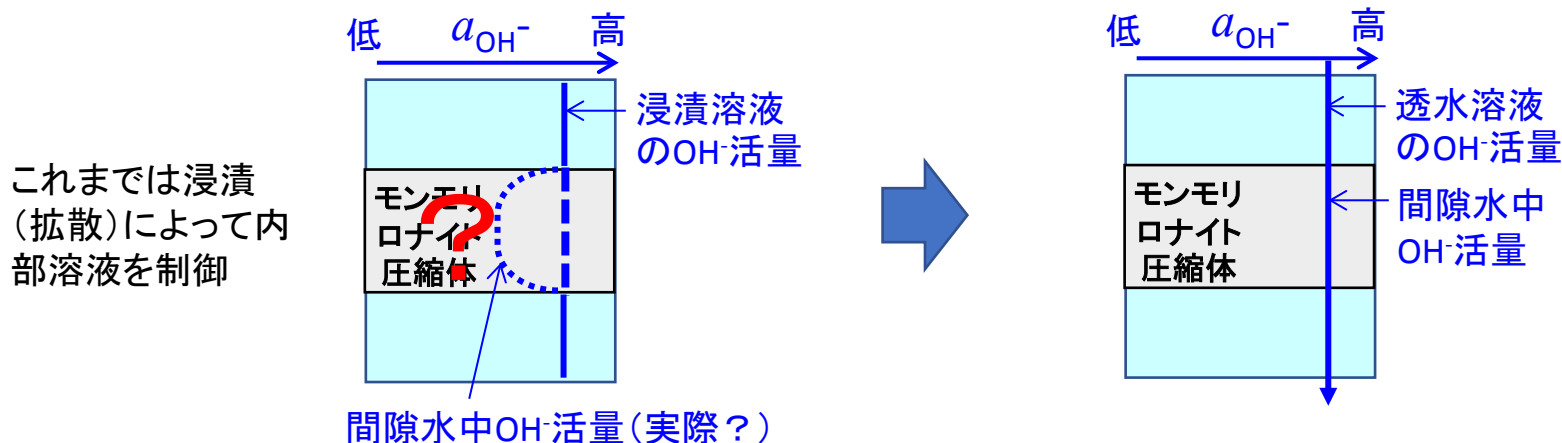
【課題】圧縮体中における反応表面積によって溶解速度が整備されていない
 →溶解反応に寄与すると考えられているモンモリロナイトの端部の比表面積について、溶解過程における変遷を実験的に評価する



② 圧縮体の溶解メカニズムの解明

【課題】圧縮体と粉体とで異なる溶解挙動について未解明

→まずは、圧縮体内部のOH⁻活量が外部溶液と等しいと扱ってきたが、これが適当であるかを検証
 →通水することで外部と内部のOH⁻活量を一定に維持する



今後の研究③, ④

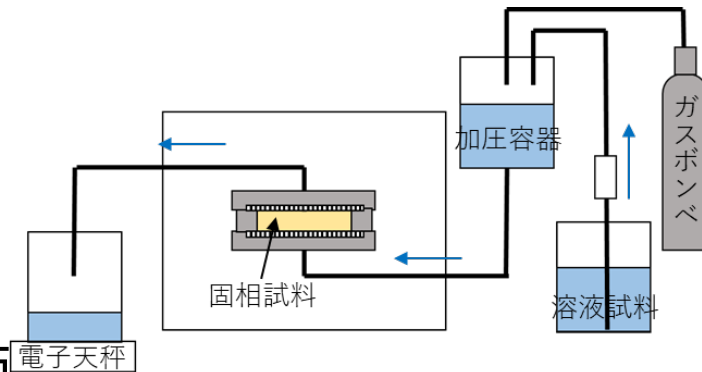
③ 二次鉱物の生成(沈殿)の取り扱いについて整備

- 【課題】生成する二次鉱物の選定、生成挙動の取り扱い、透水性との関係の整備が不十分
 →最新知見をふまえ、二次鉱物生成(沈殿)と透水性との関係について整理する

④ 圧縮体の変質過程における透水性の評価

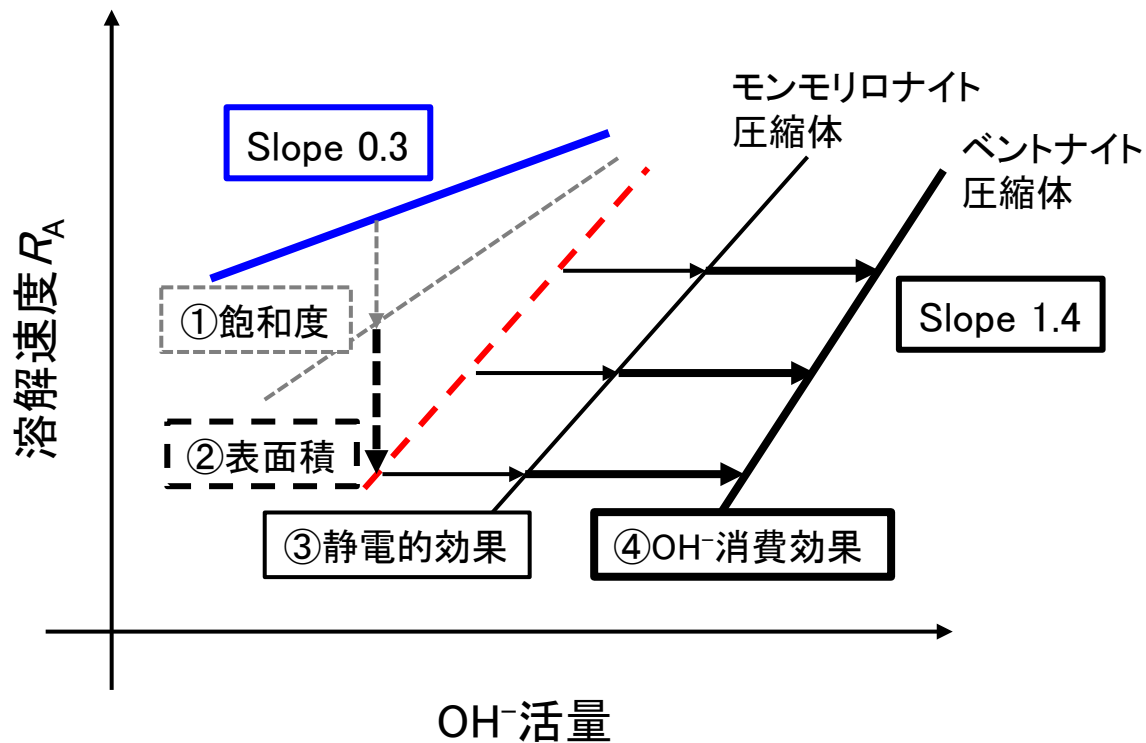
- 【課題】圧縮体の変質過程における透水性の変遷評価の知見が不十分

- ①～③で得られた知見も統合し、活用する
 →透水試験装置による圧縮体溶解試験による試験結果と物質移行—変質連成解析コードによる評価を合わせて行うことで、評価の高度化を図る



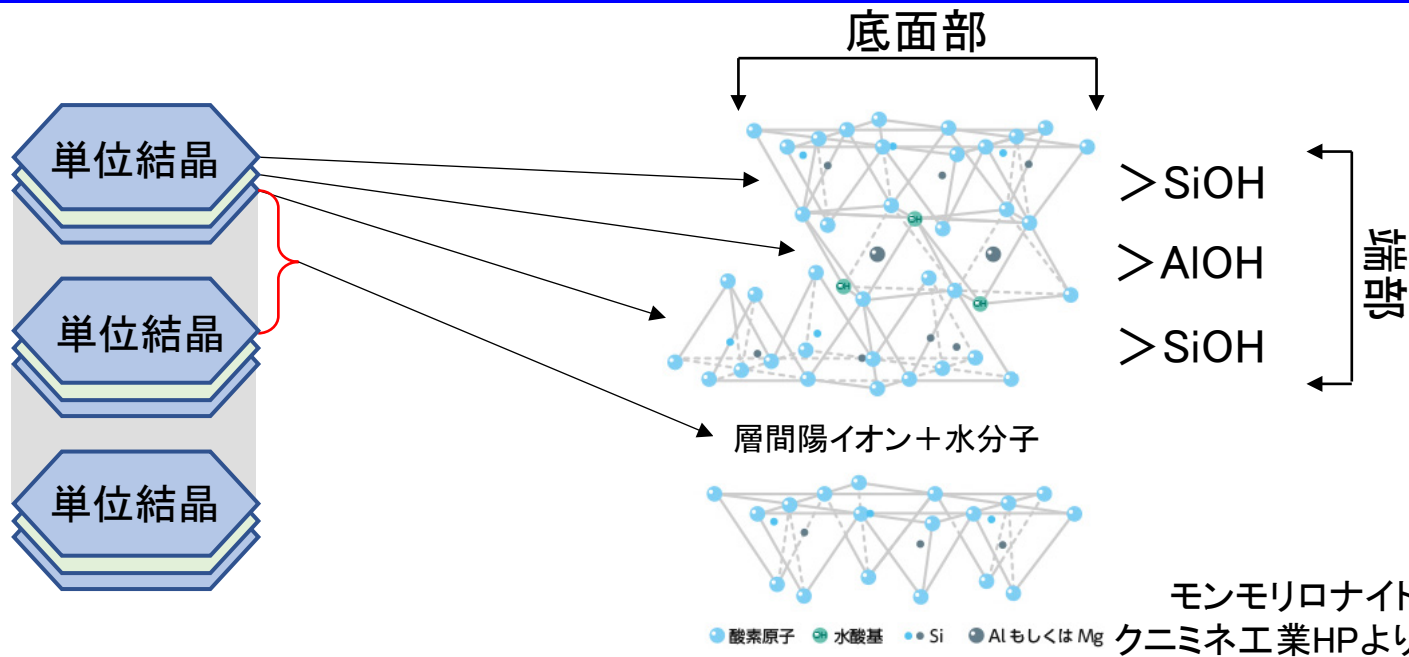
- 設計プロセスの妥当性確認に寄与するため、ベントナイトの変質現象の理解を通して、ベントナイト系人工バリアの変質評価に対応できる技術基盤を確立する

ご清聴いただきありがとうございました



砂ベントナイト混合圧縮体の溶解速度の OH^- 活量依存性が1.4乗となった理由(仮説)

モンモリロナイトの溶解反応



➤ アルカリ環境下において、結晶の端部から溶解が進む

