第 7 章　TRU 廃棄物処理処分の代替技術に関する検討

7.1　代替技術に関する基本的考え方

処分施設及び人工バリアの基本概念に対して行った性能評価結果から，TRU 廃棄物の地層処分における長期的な放射線学的影響において重要な核種は，可溶性かつ低収着性の長寿命核種の I-129 及び C-14 であることが明らかになった。このとき，地下水移行シナリオに基づく性能評価結果において感度の高い重要なパラメータは，地質環境における透水性（透水量係数等）と上記核種に対する収着分配係数であることも明らかになった。これら重要なパラメータについては，今後なお一層，信頼性の向上を図るための研究開発や具体的な地質環境条件に対しての信頼性の高いデータ取得を進めることが求められる一方，現時点で TRU 廃棄物処分の制度化はもとより処分サイトや具体的な地質環境が特定されていないことを考慮すると，TRU 廃棄物の事業化に向けた技術基盤の整備の観点からは，より幅広い地質環境においても安全性が見通すことのできる人工バリアの高度化技術について検討しておくことが有効であると考えられる。この技術はさらに処分場が有する安全性の裕度の向上につながるものと考えられる。

また，TRU 廃棄物処分システムにおいて特有の現象については，最新の知見に基づき幅広くそれらの影響について評価検討を行っているものの，ベントナイトのアルカリ変質やアスファルト／硝酸塩の長期変遷等については依然不確実性を有する課題として国際的に議論や検討が進められているところであり（たとえば，原子力発電環境整備機構，2004），今後とも継続的に研究開発を進めることによりモデルの検証，確証を図るなど信頼性の向上を図る一方，影響の緩和あるいは抜本的に解決するための人工バリアや設計についての代替方策，さらには処理技術にまで遡った技術の最適化について検討することが適当である。

本章では，以上に挙げた①幅広い地質環境及び安全性の裕度向上，並びに②評価の不確実性，の 2 点への対応を図るため，基本概念及びその評価を補完し，処分の成立性及び信頼性を高めるための方策として，人工バリアの代替技術や代替設計概念について検討した。

検討した代替技術は以下のとおり。

① 幅広い地質環境に対応し，同時に安全性の裕度向上へ対応するもの
- 人工バリアの代替技術
  - I-129 固定化技術
  - C-14 長期閉じ込め技術

② 評価の不確実性へ対応するもの
- ベントナイトのアルカリ変質
  - 低アルカリ性セメントの使用
- アスファルト／硝酸塩の長期変遷
  - 硝酸塩分解処理技術

なお，検討した人工バリアの代替技術は，それぞれ現時点で基本概念に採用できない理由として，技術が基礎的な開発段階であること，長期的な信頼性に対して課題が残されていること，並

びにコスト増加の可能性などが指摘される。したがって,これらの課題に対する研究開発を進め,適切な時期に基本概念との比較評価を行うなど，段階的アプローチのもとでチェック・アンド・レビューを進めることが求められる。

7.1.1　人工バリアの代替技術

前述のように，処分施設及び人工バリアの基本概念に対して行った性能評価結果から，長期の放射線学的影響に関する重要核種は I-129 及び C-14 であることが明らかとなっている。これらの核種は可溶性かつ低収着性であることから，性能評価への影響を低減するためには廃棄体からの核種放出を抑制することが有効である。

I-129 の半減期は 1,570 万年であり，これをその期間にわたって周辺環境から隔離すること，すなわち I-129 の閉じ込めは，対象となる時間が長大となることから，その実現は非常に困難なものと考えられる。このことから，I-129 に対しては放出を前提とするものの，その放出期間をあらかじめ設定された範囲の中に収めるようにするコントロールリリースの考え方を導入して廃棄体の形態を検討することとした。

一方，C-14 の半減期は 5,730 年である。たとえば，C-14 からの影響を 1/1,000 程度にまで低減できる期間は，半減期の約 10 倍，6 万年という長さになる。この時間軸に対しては，たとえば適切な材料選定とその評価手法の構築により閉じ込め性の確保に対して見通しが立てられる，すなわち C-14 については廃棄体容器による閉じ込めが可能であろうと考えた。

以上より，TRU 廃棄物地層処分の人工バリアに関する代替技術は大別して以下の 2 つである。

- ヨウ素固定化技術：I-129 のコントロールリリースを可能にする固化体
- C-14 の長期閉じ込め技術：C-14 の 6 万年間の閉じ込めを目指す廃棄体容器

7.1.1.1　ヨウ素固定化技術

民間再処理工場の操業に伴い発生する廃銀吸着材に含有する I-129 の地層処分に関して，ヨウ素固定化技術の開発並びに各固定化技術により製作されるヨウ素固化体の性能を評価することにより処分の安全性を向上し，わが国の幅広い地質環境条件に柔軟に対応していく上で有効となる固化体性能の向上を目指している。

本技術開発では，ヨウ素固定化技術，前処理技術の高度化を行い，固化体物性の取得等により長期性能評価モデルの高度化と共に，連続処理プロセスなどのプロセス検討を行い，これらの結果から，TRU 廃棄物処理処分における安全性及び処理，処分に係る経済性の観点から技術評価を行うこととしている。(さらに,実廃銀吸着材の性状調査等を行い,基礎試験で得られた結果から,実廃銀吸着材を用いた固定化技術確認試験に対する適用性検討を行う上での計画策定をする。)

ヨウ素固化体については I-129 の完全閉じ込めを目指すのではなく，長期にわたる安定した放出であるコントロールリリースを前提とし，その放出メカニズムを精査することで長期予測モデルを構築するものとする。

7.1.1.2　C-14 の長期閉じ込め技術

C-14 の影響低減を念頭に，廃棄体容器，容器内充填材，それらに付帯する材料などについて検討し，地層処分システムの性能の高度化及び仕様の合理化に効果的な廃棄体パッケージの開発を

目指しており，ハル・エンドピース圧縮体キャニスタを対象に，コンクリート容器廃棄体として高強度高緻密コンクリートを用いて長期閉じ込めを目的とした処分容器，金属容器廃棄体としてチタン合金－炭素鋼複合容器を用いて長期閉じ込めを目的とした廃棄体を検討している。また，人工バリア材及び天然バリアへの収着を見込めない有機形の C-14 の，自己β線励起光触媒を用いた無機化についても検討している。

廃棄体容器による閉じ込め期間としては，C-14 からの影響を 1/1,000 程度に低減できる期間として，C-14 の半減期（5,730 年）の約 10 倍にあたる 6 万年間を目標とした。

コンクリート容器廃棄体は，高強度高緻密のコンクリートでハル・エンドピース圧縮体キャニスタの周囲を固めた一体型の処分容器とし，低透水性，高強度のコンクリート性能に期待して，C-14 を 6 万年間閉じ込めようとするものである。金属容器廃棄体は，高耐食性のチタン合金を耐食層として炭素鋼の周囲に巻いた複合型の処分容器内にハル・エンドピース圧縮体キャニスタを収納し，チタンの耐食性に期待して C-14 を 6 万年間閉じ込めようとするものである。

これらの廃棄体はそれぞれ高強度高緻密コンクリート，あるいはチタン合金の長期健全性の確保が C-14 の長期閉じ込めの要となることから，高強度高緻密コンクリートについてはひび割れ，透水性，化学劣化などの諸現象を確認し，初期の製作性確認と長期の材料の安定性の予測手法を構築することが重要である。またチタン合金－炭素鋼複合容器廃棄体についてはチタンの耐食性として特に地下の還元性雰囲気における腐食挙動とそれによる材料劣化に対して健全性を予測する手法の構築が重要な課題となる。

なお C-14 の長期閉じ込め技術の他に光触媒による C-14 の無機化技術の研究も実施している。これは，酸化触媒である TiO_2 を，自己β線触媒として用い，有機形 C-14 を無機形態に変化させるものである。現状無機化の原理確認が成されているが，自己β線による無機化メカニズムの解明とモデル化及び触媒の長期健全性の評価が重要な課題であると考えられる。

7.1.2　評価の不確実性への対応のための代替技術

7.1.2.1　低アルカリ性セメント

緩衝材の変質は，概ね pH11 以下の条件において抑制されることが実験により確認されている（久保ほか，1998）ことから，セメント系材料からの浸出液の pH を低く抑えることにより，処分施設の性能の変遷を抑制することができると考えられている。そこで，セメント系材料からのアルカリ成分の浸出を起源とする処分場性能への影響低減を目的として，セメントの原料の組成を調整して低アルカリ性化させるセメントと，ポルトランドセメントにポゾラン材料を多量に添加して低アルカリ性化させるセメントについて，各機関で研究が進められている。

セメントの原料の組成を調整して低アルカリ性化させるセメントに関しては，セメント硬化過程で $Ca(OH)_2$ が完全に消費できるアーウィン系水和物を主体とするセメントクリンカー設計を行う低アルカリ性セメント LAC-S の開発が進められている（広永ほか，2000）。

また，ポルトランドセメントにポゾラン材料を多量に添加して低アルカリ性化させるセメントについては，普通ポルトランドセメント（Ordinary Portland Cement，以下「OPC」という）にシリカフュームやフライアッシュ等のポゾラン材料を多量に添加し，$Ca(OH)_2$ 等の可溶性のアルカリ性塩の水和硬化時の生成を低減させた低アルカリ性セメント（Highly Fly-ash contained Silicafume Cement，以下，「HFSC」という）が開発されている（大和田ほか，2000）ほか，同現

象を利用した低アルカリ性セメントとしては，この他に，シリカフラワーと呼ばれるシリカ粉末を添加した低アルカリ性セメント（Low Heat High Performance Concrete，以下，LHHPC という）も，開発されている（Gray and Shenton，1998）。

一方，OPC は，比較的安価で工学的な利用実績が極めて多く，そのアルカリ性によりアクチニド元素等の溶解度を低下させ，鉄筋の腐食を抑制させるなど，処分環境において有利な効果も有している。また，主要元素に対する収着分配係数も数多く取得されてきており，現時点において実現可能性を見通すことのできる有望な人工バリア材料及び埋め戻し材料であることについて疑いはない。また，フライアッシュセメント，高炉セメント等の混合セメントに関しても，工学的な利用実績が極めて多く，OPC と比較して化学的耐久性が高いなど有用な特徴も有しており，その変質過程や収着分配係数に関する検討も行われていることから，有望な人工バリア材料であると考えられる。低アルカリ性セメントの開発にあたっては，アルカリ度の低下の効果はもとより，利点を失うことによる影響の評価，強度，施工性，長期的な挙動の理解とモデル化，収着データの取得・蓄積，並びに経済性の向上が課題である。

7.1.2.2　硝酸塩分解技術

PUREX 再処理においては，多量の硝酸や TBP 等を用いることから，$NaNO_3$，$NaNO_2$，Na_2CO_3，Na_2HPO_4 等の可溶性または難溶性の塩が含まれた低レベル濃縮廃液が多量に発生する。地層処分対象廃棄物のうち，グループ 3 に区分される本廃棄物は，基本概念において，他グループの坑道に直接硝酸イオン等の影響を及ぼさないことのみならず，影響が及ぶ天然バリアの範囲もグループ 3 廃棄物のみに限定できるよう，グループ 3 の坑道を処分場の最下流に他グループ坑道から距離を離して配置するか，もしくは流向に対して水平方向に離す概念を提示している。また，4.4.11 に記述のとおり，地下深部における硝酸塩の挙動については，近年，活発に研究が進めているところであるが，信頼性向上に向けて，今後ともモデルの検証及び確認が求められている。

一方，JNC 東海再処理工場では，当初は海洋投棄を想定してアスファルト固化法を低レベル濃縮廃液の処理方法として採用し，1982 年から 1997 年までの間に 200L ドラム缶として約 3 万本の固化体を作製している。硝酸塩，亜硝酸塩と有機物の一種であるアスファルトの混合体であるアスファルト固化体の化学的な安全性については，1988 年 5 月の消防法の一部改正に伴い危険物の範囲の明確化が図られたことを受けて，1989 年から 1991 年にかけて，危険物判定試験(I)ー(IV)が行われており，塩濃度，難燃剤添加量及び不溶化処理の有無等をパラメータとして評価が行われており，特に硝酸塩や亜硝酸塩濃度が高く難燃剤が無添加の場合には，第一類危険物の第三種酸化性固体に区分される可能性が確認されている（落合ほか，1997a～d）。

以上のように，深部地質環境における NO_3^- 等の挙動やアスファルト固化体が潜在的に持つ化学的活性に対しては，現時点において不確実性や懸念が存在することを認識しておくことが重要である。硝酸塩の含有に伴うこれら不確実性等については，処分システムでの評価の信頼性を向上させるための室内試験や原位置における検証や確認を進めることが求められる一方，抜本的な解決方策として廃棄体自体をリ・コンディショニングし，分離された硝酸塩の分解やアスファルト成分の燃焼処理を図るなどの代替技術について，工学的実現性，二次廃棄物発生量や性状及び経済性の観点から検討することも適切であると考えられる。また，このような代替技術は，今後発

生する低レベル濃縮廃液に対する処理方法としての適用についても考慮することが重要と考えられる。

7.2 ヨウ素固定化技術

廃銀吸着材により吸着，回収される I-129 の処理処分について開発されている技術は，その I-129 の放出機構により大きくは以下の 3 種類に分類することができる。

・浸出モデル（粒間拡散，調和溶解）
・分配平衡モデル
・溶解度平衡モデル

ここで，浸出モデルにより評価される放出機構とは，I-129 を固定化した固化体内の粒間に物理的に閉じ込め,粒間への地下水の浸入により I-129 は拡散により固化体外へ放出される。また，固化体表面からマトリクスが溶解し，I-129 が地下水中に放出されるものである。また，分配平衡モデルにおいては,固化体成分の水和物へのヨウ素の収着性により保持,放出するものである。溶解度平衡モデルは,I-129 を難溶性の鉱物の成分として合成し,鉱物中に保持するものである。これらの特徴を持つ以下の 8 技術は，幅広い地質環境についても対応可能な特長をそれぞれ持っており，I-129 固定化技術として有望と考えられる。

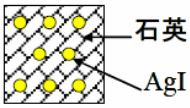
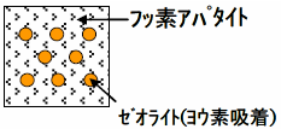
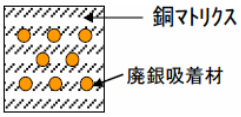
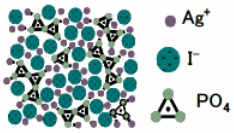
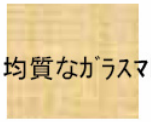
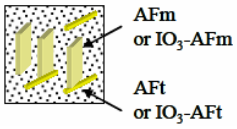
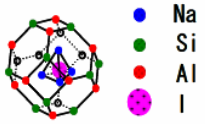
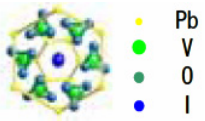
8 つの固化体中でのヨウ素の固定化方法と想定する性能評価モデルを表 7.2-1 に示す。

表 7.2-1 各固化体のヨウ素固定化方法と性能評価モデル

固化技術	固化体中でのヨウ素固定化	性能評価モデル（想定）
岩石固化	SiO_2（石英）粒間に AgI を固定	石英粒間拡散モデル
AgI ガラス	ガラス（$3AgI-2AgI_2O-P_2O_5$）構成成分として固定	浸出モデル
BPI ガラス	ガラス（$6.5PbO-3B_2O_3-0.5ZnO$）マトリクス中に I を固定	浸出モデル
アパタイト固化体	フッ素アパタイト（$Ca_{10}(PO_4)_6F_2$）マトリクス中にヨウ素吸着ゼオライトを固定	浸出モデル
セメント固化体	エトリンガイトとモノサルフェートに IO_3^-を吸着	分配平衡モデル
難溶性鉱物化／合成ソーダライト	合成ソーダライト（$Na_8(AlSiO_4)_6I_2$）成分として I を固定	溶解度制限モデル
難溶性鉱物化／合成鉛アパタイト	合成アパタイト（$Pb_{10}(VO_4)_6I_2$）成分として I を固定	収着モデル（イオン交換）
銅マトリクス固化体	銅マトリクス中に廃銀吸着材を固定	浸出モデル

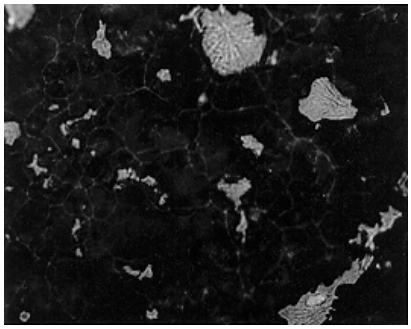
8 つの固化体の化学組成(原料と固化体)とヨウ素固定化構造の概略図を表 7.2-2 に示す。

表 7.2-2　固化体の化学組成とヨウ素固定化構造

固化技術		化学組成		ヨウ素固定化概略図	ヨウ素放出抑制能
		原料	固化体		
結晶質マトリクス	岩石固化体	廃銀吸着材 (=シリカゲル, AgI)	SiO_2(石英), AgI (I 含有率:14wt%)		拡散係数： 1.0×10^{-20}(m^2/s)
	アパタイト固化体	フッ素アパタイト ($Ca_{10}(PO_4)_6F_2$)： ゼオライト (I 吸着) =85：15(重量比)	フッ素アパタイト ($Ca_{10}(PO_4)_6F_2$)： ゼオライト(I 吸着) (I 含有率:2wt%)		取得中
	銅マトリクス固化体	Cu 粉末：廃銀吸着材 =50：50(vol%)	Cu 粉末：廃銀吸着材 (I 含有率:0.7wt%)		浸出率： 9.0×10^{8}(Bq/y)
ガラス	AgI ガラス	AgI：$Ag4P_2O_7$ =3：1(モル比)	$3AgI-2Ag_2O-P_2O_5$ ガラス (I 含有率:30wt%)		浸出率： 1.0×10^{-8}～10^{-7} (g/cm^2/d)
	BPI ガラス	・ガラスフリット：BPI =91：9(wt%) ・ガラスフリット PbO：B_2O_3：ZnO =65：30：5(mol%) ・BPI；$BiPbO_2I$	$6.5PbO-3B_2O_3-0.5ZnO$ ガラス, $BiPbO_2I$ (I 含有率: 2wt%)		取得中
セメント成分	セメント固化体	・アルミナセメント／ $CaSO_42H_2O$ =100/15.5 ・$NaIO_3$ 濃度 0.4mol/dm^3 ・$NaIO_3$ 溶液／セメント =0.56	AFm:10wt% AFt:46wt% $Al(OH)_3$:44wt% (I 含有率:1.85wt%)		分配係数： >100ml/g
合成鉱物	合成ソーダライト	$NaAlO_2$：SiO_2：NaI =3：3：1(モル比)	$Na_8(AlSiO_4)_6I_2$ (I 含有率:11wt%) (実測値)		取得中
	合成鉛アパタイト	PbO：V_2O_5：PbI_2 =9：3：1(モル比)	$Pb_{10}(VO_4)_6I_2$ (I 含有率 7.2wt%) (実測値)		取得中

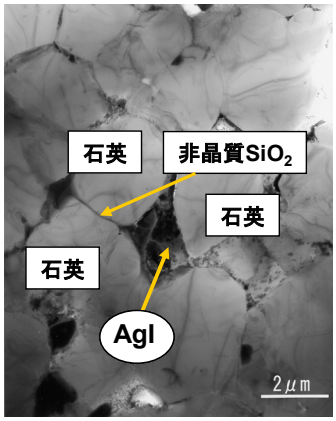
また，表 7.2-2 には 8 つの固定化技術のうちヨウ素放出抑制能の指標となる拡散，浸出，分配，あるいは溶解度のデータが取得されている岩石固化体，AgI ガラス固化体，銅マトリクス固化体及びセメント固化体については拡散係数，浸出率及び分配係数を併記した。4 つの固化体のうち，一例として岩石固化体性能について以下に記載する。

岩石固化体内部の写真を図 7.2-1(左：光学顕微鏡，右：TEM 観察写真)に示す。



固化体薄片試料の光学顕微鏡写真(×1,000)

備考） 黒褐色:SiO_2，白色:AgI

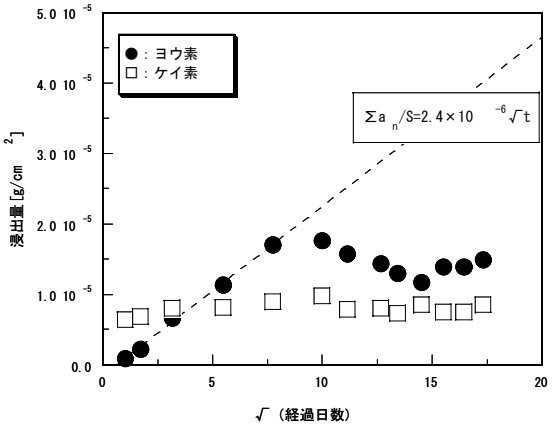


AgI近傍のTEM観察写真

図 7.2-1　岩石固化体内部の観察写真

図 7.2-1 の TEM 観察写真よりマトリクスの SiO_2 は直径数～10μm まで成長した石英結晶粒で構成されており，粒の周囲は幅 30～50nm の非晶質の SiO_2 で覆われていることが分かる。ヨウ素の化学形態は AgI 結晶であり，マトリクスの間隙に約 20nm の微結晶で凝集して閉じ込められている。岩石固化体の圧縮強度は 100MPa 以上と高いため，処分後に割れが発生しにくいと考えられ，また，透水性が低いことを確認している。

岩石固化体については，TRU 廃棄物処分場環境を想定した高 pH，還元条件下(模擬海水系セメント平衡水，O_2<1ppm，Na_2S（3×10^{-3}mol/dm^3），pH12.5，35℃）で浸漬試験(300 日)を実施し，I 及び Si の浸出量を評価している。図 7.2-2 に I 及び Si 浸出量の経時変化を示す。



$$\frac{\sum a_n}{A_0} = 2\frac{S}{V}\left(\frac{D_e \cdot t}{\pi}\right)^{\frac{1}{2}}$$

$\sum a_n$ = 溶液中への核種浸出積算量
A_0 = 廃棄体中の初期核種含有量
V = 廃棄体体積
S = 廃棄体表面積
D_e = 実効拡散係数

図7.2-2　長期浸漬試験でのヨウ素，ケイ素浸出量と√(浸漬期間：t)の関係

岩石固化体からの I の放出は，石英マトリクスの粒間を充填している非晶質 SiO_2 の溶解により形成された約50nmの粒間が考えられ，侵入した溶液中に存在する還元剤により AgI が溶解し，溶液中を拡散し固化体外へ放出されると考えられる。浸出 60 日までにおける岩石固化体からのヨウ素放出挙動を模式的に図 7.2-3 に示す。

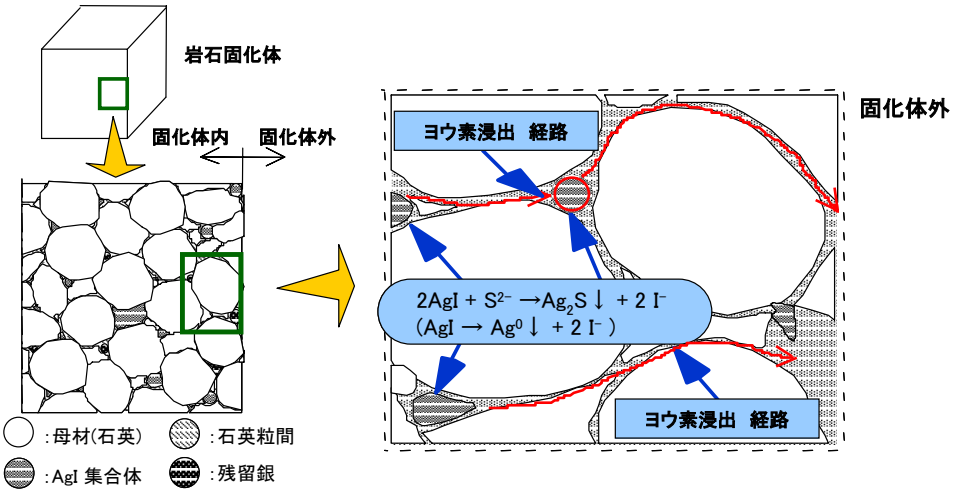


図7.2-3　岩石固化体からのヨウ素放出挙動模式図

図7.2-2によると,浸出60日程度までは直線性を示しており,拡散律速であることが分かる。しかし，その後は経時的に減少する傾向が認められた。

これらの結果より，岩石固化体は石英マトリクス粒間での拡散による放出抑制性能を有しており，さらに高圧縮強度，低透水性を有すること，石英マトリクスは還元環境においても低溶解性であること等の理由により，固化体のヨウ素保持性能は長期的に維持可能であると考えられる。

ヨウ素浸出量経時変化データと図 7.2-2 中の式によって算出される拡散係数は De=4.1×$10^{-20}$$m^2$/s と非常に小さく，ヨウ素の放出抑制能が高いことが確認している。

表 7.2-2 に示したヨウ素放出抑制に関するデータと実用的な固化体サイズの検討結果(岩石固化体：φ25.5×24(cm)，AgI ガラス：φ43×32.5(cm)，銅マトリクス固化体：φ82×173(cm))を用いて固化体からヨウ素が放出される期間を算出すると約 10 万年間,あるいはそれ以上の結果となる。4.5.4 項で実施した解析では，10 万年間の I-129 浸出期間を仮定(人工バリアの劣化に伴う I-129 放出の考慮なし)できれば，地質環境の水理条件に依存することなく，最大線量は 2μSv/y となり、レファレンスケースの線量結果と同等の値にまで低減可能であることが確認されている。

7.3　C-14 長期閉じ込め技術

これまで述べてきたように,TRU 廃棄物に含まれる放射性核種のうち,環境への影響の大きい,グループ 2 廃棄物に含まれる C-14 への対策として，C-14 からの影響が十分に減衰するまでの期間，廃棄体容器内に C-14 を含む核種を閉じ込めるための，長期閉じ込め用廃棄体容器の開発が試みられている。ここでは，原子力環境整備促進・資金管理センターが行っている，廃棄体開発調査において検討中の，C-14 長期閉じ込め技術についてその検討内容を紹介する。

廃棄体開発調査（原子力環境整備促進・資金管理センター，(2005)）において検討されている C-14 長期閉じ込め用廃棄体容器には，表 7.3-1 に示すように，高強度高緻密コンクリートを用いたコンクリート容器と，Ti-Pd 合金を用いた金属容器とがある。

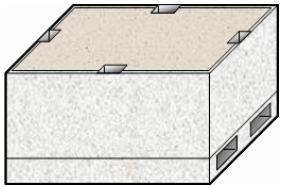
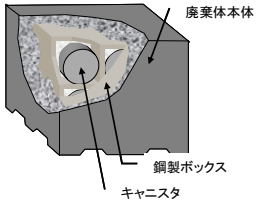
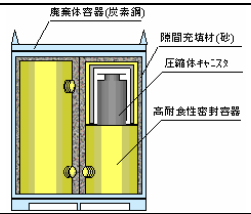
前者は，高強度高緻密コンクリートによって一体成形された容器により，その高い止水性によ

って，地下水の浸透を抑制するもの（図 7.3-1）である。硬化時温度応力解析により，制作時のひび割れ可能性を予測し，防止策を講じるとともに，硬化促進連続打設法により，一体成形容器を製作する。これまでに 60cm×60cm×60cm の小規模容器の製作に成功している。長期閉じ込め性は，高強度高緻密コンクリートへの水浸透挙動を，冷間静水圧プレス（Cold Isostatic Press，以下，「CIP」という）法で測定した透水係数（4×10^{-19}m/s）をもとに，Ca の溶脱及びエトリンガイト生成による剥離を考慮した水浸透・化学劣化連成解析により予測した。その結果，6 万年後の水浸透距離は約 14cm，化学劣化による減肉量は 4cm と，十分な耐久性を有していることが示された(図 7.3-2)。

後者は,Ti-Pd 合金の優れた不働態特性を利用し,6 万年間の閉じ込めを検討している(表 7.3-2)。処分場閉鎖後初期の酸化雰囲気下に関しては脱不働態化感受性，すきま腐食感受性について評価し，いずれも感受性のないことを確認している（図 7.3-3,図 7.3-4)。閉鎖後一定期間経過後の還元雰囲気下に関しては,水素吸収に起因する水素化物層の成長と応力腐食割れ(Stress Corrosion Cracking,以下,「SCC」という）の進展（図 7.3-5）とをモデル化し，処分場温度が 80℃に保たれるという仮定をおいた保守的設定においても，水素化物層の厚さは約 35μm，亀裂深さが約 17μm と，十分な耐久性を持つことが確認された。

なお，長期閉じ込め技術ではないが，C-14 の影響を低減する技術として，酸化触媒である TiO_2 を，自己β線触媒として用い，有機形 C-14 を無機形態に変化させる，光触媒技術についても検討されている。光触媒による有機形 C-14 の無機化に関しては，TiO_2 を標識メタノール，標識ホルムアルデヒド，標識ギ酸溶液に浸漬した際の，有機 C-14，無機 C-14 の濃度の変化から，光触媒への有機形 C-14 の収着と無機化とが確認されている。自己β線による無機化メカニズムの解明とモデル化及び触媒の長期健全性の評価が重要な課題であり，検討が必要と考えられる。

表 7.3-1　C-14 長期閉じ込め型パッケージの種類と特徴

廃棄体パッケージ / 仕様及び機能		リファレンス	C-14 長期閉じ込め型パッケージ	
		パッケージ B	C-14 長期閉じ込め型コンクリート容器	C-14 長期閉じ込め型金属容器
概念図				
目的・コンセプト		キャニスタ収納用パッケージ	**・高強度高緻密ｺﾝｸﾘｰﾄによる閉じ込め型容器** ・グループ 2 の C-14 を 6 万年間閉じ込め	**・チタン合金との複合による閉じ込め型容器** ・グループ 2 の C-14 を 6 万年間閉じ込め
基本仕様	寸法	1.50m×1.50m×1.10m	1.8m×1.8m×1.6m	1.038m×1.038m×1.726m
	材質	本体：炭素鋼 充填：セメントモルタル	高強度高緻密コンクリート	ハンドリング容器：炭素鋼 本体：チタン合金／炭素鋼複合，充填：珪砂
	重量	約 7ton	約 13ton	約 6.5ton
	収納本数	4 本(キャニスタ)	6 本(キャニスタ)	4 本(キャニスタ)
機能	**構造の健全性** ・収納効率	考慮	考慮	考慮
	・充填材	セメントモルタル	なし	内容物保持のみ
	・構造検討	段積みを考慮	段積み，落下を考慮	段積み，落下を考慮
	・耐圧性	未考慮	地圧・側圧を考慮	地圧・側圧を考慮
	・熱特性	80℃以下を担保	80℃以下を担保	80℃以下を担保
	閉じ込め性	未考慮	**6 万年(水浸透抑制による)**	**6 万年(腐食抑制による)**
	・化学劣化		溶脱と AFt 生成を考慮	腐食機構，水素脆化応力腐食割れを評価
	・核種拡散係数		×（閉じ込めコンセプトのため）	×（閉じ込めコンセプトのため）
	・水密性／水浸透挙動		考慮の上閉じ込め評価	腐食挙動及び SCC を評価
	・耐食性		化学劣化として評価	考慮の上閉じ込め評価
	製作性	従来の技術での製作が可能な設計	打継目，硬化時のひび割れを排除	既存の溶接技術で製作可能な材料・設計
	製作性の確認 ・スケールモデルでの実証	未確認	60cm×60cm×60cm モデルまでは確認。	
	定置／ハンドリング性	フォークリフト及びクレーンを想定	フォークリフトでのハンドリングを想定	フォークリフト及びクレーンを想定
	落下時の安全性	未検討	4.5m（ハンドリング時の最大高さ）からのコーナー落下を評価	5.5m（縦積み時）からの垂直落下を評価
	ガス対策(ガスベントなど)	未考慮	内部に十分な空間を有するため，部材強度で内圧を担保できる	
	放射線遮蔽性	期待しない	ハンドリング時，追加遮蔽が必要	表面：1 mSv/h，1m：50 μSv/h
	その他		**6 万年閉じ込めによる C-14 影響抑制**	

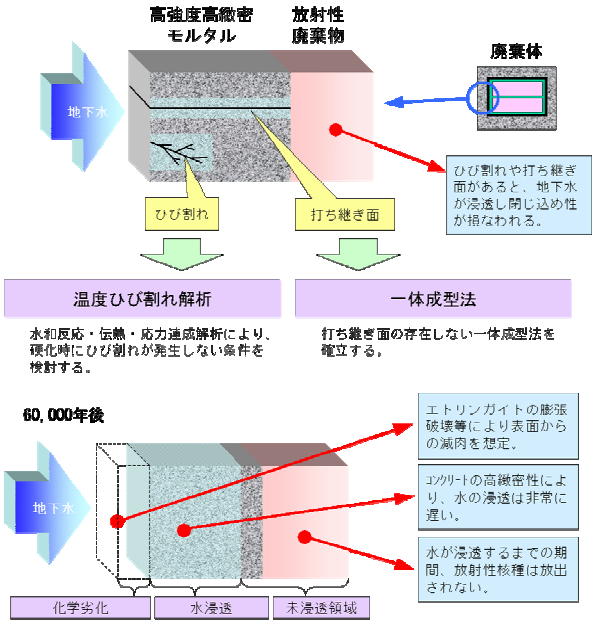


図 7.3-1　コンクリート容器の C-14 の閉じ込めの考え方

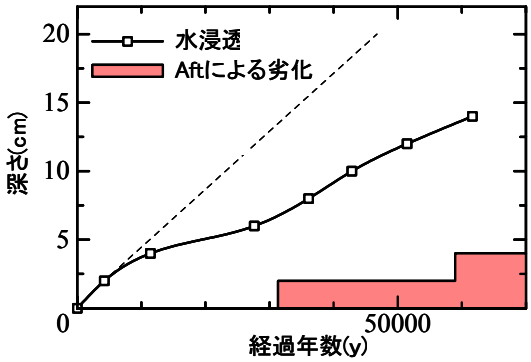


図 7.3-2　水浸透化学劣化連成解析結果

表 7.3-2　金属容器の C-14 の閉じ込めの考え方

腐食形態	要求性能	選定基準
脱不動態化	感受性無し	電位評価
すきま腐食	感受性無し	$E_{SP}<E_{R,CREV}$
水素吸収に起因するSCC	目標期間内は発生しない	発生・進展モデル

E_{SP}　：　自然腐食電位
$E_{SP}<E_{R,CREV}$　：　すきま腐食生起臨界電位

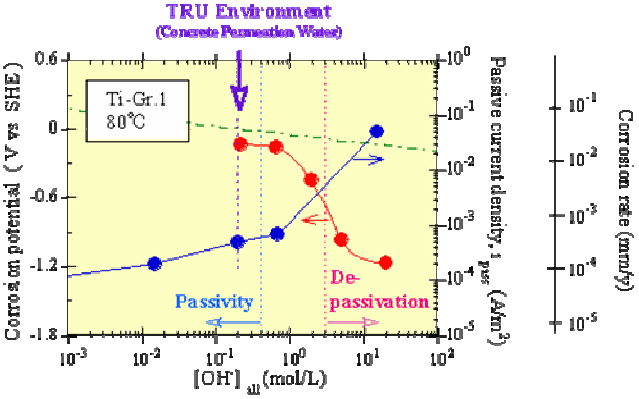


図 7.3-3　Ti-Gr.1 の 80℃における不働態-脱不働態遷移

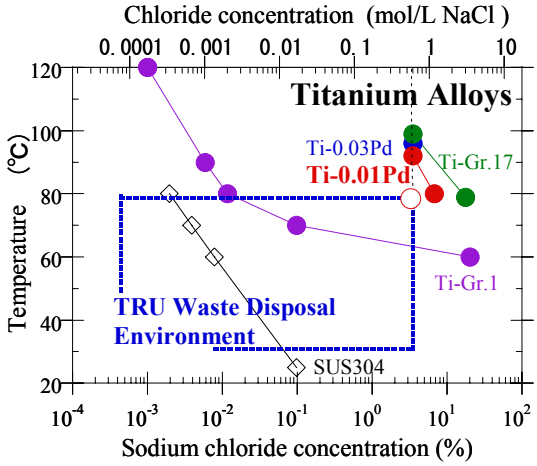


図 7.3-4　チタン合金の TRU 廃棄物処分環境でのすきま腐食感受性

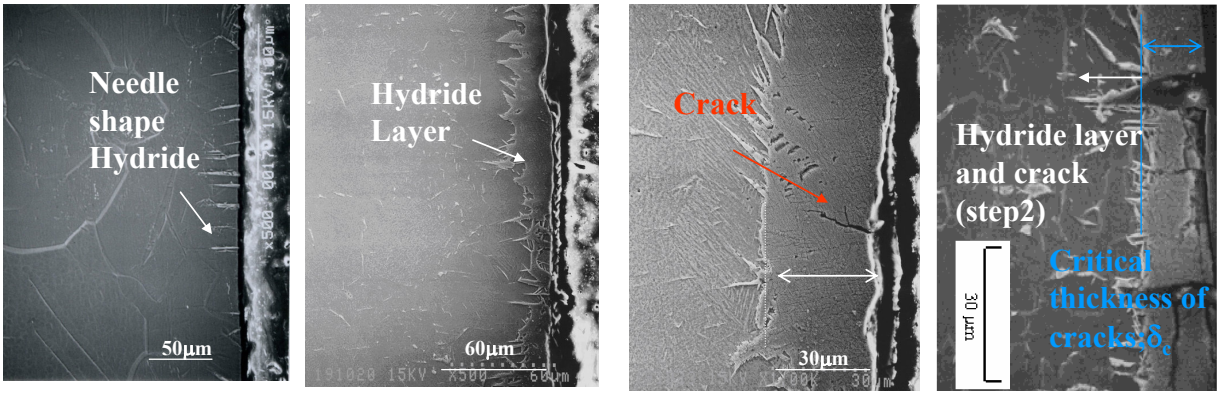


図 7.3-5　Ti 合金の SCC 進展評価試験の結果

7.4　低アルカリ性セメント

処分施設の性能は，4.4.2 で述べたように，各バリア材料の変質に伴う特性の変遷に伴って変化する。特に，セメント系材料の変質に伴って溶脱する Na,K,Ca などのアルカリ成分は，処分施設内及び周辺の地下水の pH を上昇させ，緩衝材の変質や処分場周辺の岩盤の変質の原因となる。緩衝材や岩盤の変質は，透水性や収着性の変化による処分場性能の変化の原因となる（青柳ほか，1998；Bateman et al.，1998)。緩衝材の変質は，概ね pH11 以下の条件において抑制されることが実験により確認されている（久保ほか，1998）ことから，セメント系材料からの浸出液の pH を低く抑えることにより，処分施設の性能の変遷を抑制することができると考えられている。そこで，セメント系材料からのアルカリ成分の浸出を起源とする処分場性能への影響低減を目的として，低アルカリ性セメントの開発が各機関で行われている。

わが国においては，セメントの原料の組成を調整して低アルカリ性化させるセメントと，ポルトランドセメントにポゾラン材料を多量に添加して低アルカリ性化させるセメントの 2 種類について，研究が進められている。ここでは，これら国内で開発されている低アルカリ性セメントについて述べる。

7.4.1　セメント原料の組成を調整した低アルカリ性セメント

このタイプの低アルカリ性セメントは，セメント原料を焼成して得る球状のクリンカーの成分及び焼成条件を調整し，クリンカーと添加材とを微粉砕して得られるセメントの鉱物組成を制御することによって，セメントの硬化時の水和物及びその組成を制御したものである。硬化したセメントから地下水へと溶脱する成分としては，上述のアルカリ金属，$Ca(OH)_2$，C-S-H の他に，モノサルフェート（AFm）やエトリンガイト（AFt），ハイドロガーネット（C_3AH_6）などが考えられる。これらの相から溶脱する成分も，セメントからの浸出液の液性に影響を及ぼすため，セメントの硬化時の水和物の組成を制御することにより，浸出液を低アルカリ性とすることが可能である。

このようなセメントとしては，アーウィンービーライトーフェライト系クリンカーにセッコウを添加したもの（田熊ほか，1996；坂本ほか，1996）が検討されている。

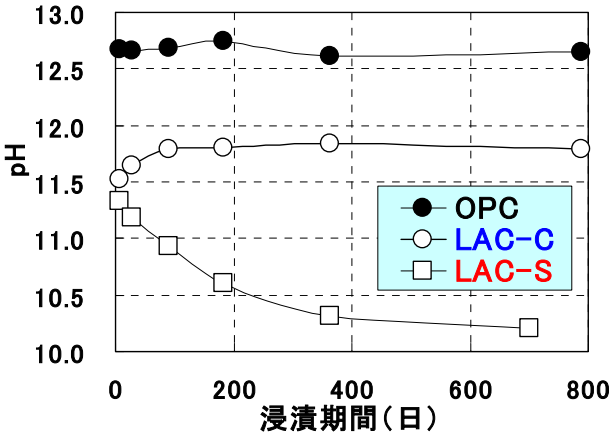


図 7.4-1　セメント原料の組成を調整した低アルカリ性セメントと，OPC との浸出液の pH の比較

このセメントはクリンカーの組成とセッコウの添加量とを変えることで，硬化体中の鉱物の

種類及び組成を制御して，浸出液の液性，硬化時及び硬化体の特性を変化させ，浸出液の pH を 10.3 程度（藤田ほか,1998）としたものであり，Low Alcalinity Cement の頭文字をとって LAC と呼ばれている。OPC における主な硬化成分は C-S-H であるが，このセメントのそれはエトリンガイトである。機械的特性に関してもデータが取得されており，強度については図 7.4.1-2 に示すように OPC とほぼ同等であることが報告されている（藤田ほか，2005)。

このように，浸出液の pH を低く抑えることができ，強度についても OPC と同等であるが，硬化時間が比較的短く，発熱量も大きいことや，実規模での実証が行われていないなど，今後の実用化に当たっては課題を残している。また，このタイプのセメントでは，硬化体中の鉱物の種類が OPC とは異なるため，地下水との反応などの長期にわたる変遷をモデル化する手法の検討も必要である。

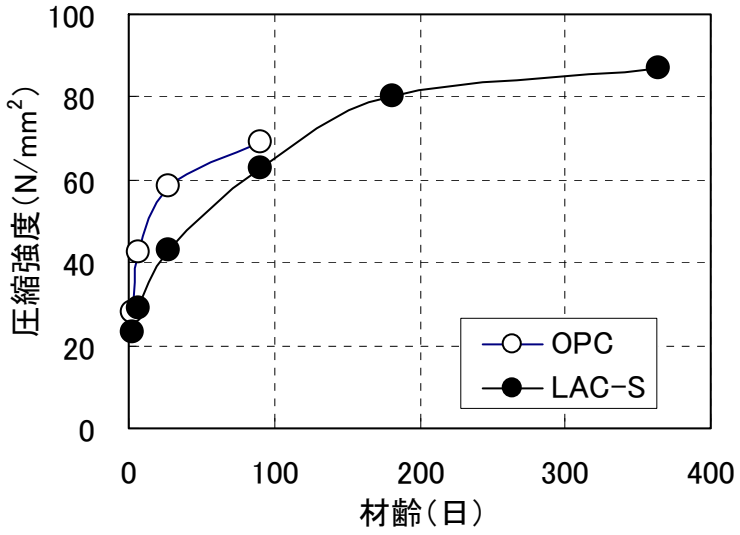


図 7.4-2　LAC と OPC との圧縮強度

7.4.2　ポゾラン材料を多量に添加した低アルカリ性セメント

硬化したセメントに含まれる $Ca(OH)_2$ は，水和硬化反応時に消費しきれなかった Ca 分に由来するものと考えられている（Berner，1992)。ポゾラン材料に含まれる SiO_2 分や Al_2O_3 分は，Ca 分とのポゾラン反応によって C-S-H やカルシウムアルミ酸水和物(C-A-H)を生成する（荒井,1991)。C-S-H や C-A-H の溶解度は $Ca(OH)_2$ と比較して低いため，浸出液の Ca イオン濃度も低く抑えることができる。この考えに基づいて，フライアッシュ及びシリカフュームを大量に添加した低アルカリ性セメントの開発が行われている(三原ほか,1997；大和田ほか,2000a)。

図 7.4-3 に HFSC セメントのうち，OPC にフライアッシュとシリカフュームを添加した OSF の浸出液の pH の変化を示す。OPC からの浸出液の pH は，$Ca(OH)_2$ の平衡時の pH＝12.5 を上回る値で推移するのに対して，OSF では，pH は 11 程度で推移する。また，浸出液中の Ca 濃度も，図 7.4-4 に示すように OPC では $Ca(OH)_2$ の平衡時の濃度である 20mmol 程度まで上昇するのに対し，OSF では数 mmol 程度で推移する（大和田ほか,2000a)。

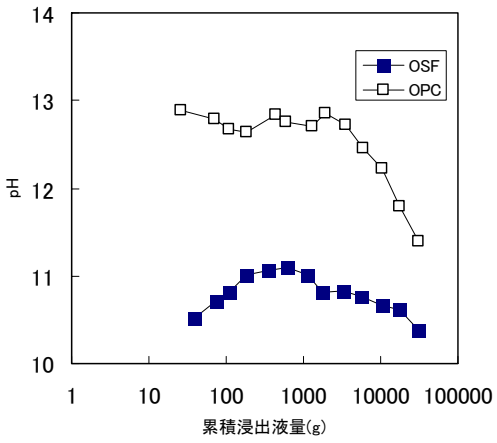


図 7.4-3　OPC と HFSC の浸出液の pH の変化

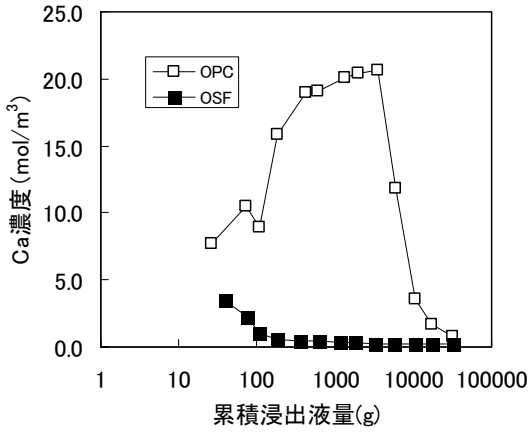


図 7.4-4　OPC と HFSC の浸出液の Ca 濃度の変化

表7.4-1　HFSCモルタルの凝結時間並びに圧縮強度

セメント	凝結時間(時－分)		圧縮強度(MPa)				
	始発	終結	材齢2日	材齢3日	材齢7日	材齢28日	材齢91日
HSF	28-20	32-10	5.7	8.2	12.3	26.4	39.8
OSF	26-50	31-40	5.1	8.5	16.7	37.7	50

また，HFSC について，セメント系材料に求められる流動性や機械的強度を，プレパックドコンクリートを作製して調べた結果，十分な充填性を有しており，かつ，部位によるバラツキも小さいことが分かっており，狭隘な部分への充填性についても十分な特性を持っていることが分かっている。さらに，凝結時間及び圧縮強度も表 7.4-1 に示すように実用に十分なものであることが示されている（大和田ほか,2000b)。

HFSC については，長期的な変質挙動に関する検討も進められている（Owada et al.，1999)。HFSC の硬化体に含まれる鉱物は，OPC の硬化体に含まれるそれらと異ならないため，Ca/Si 比と浸出液の pH との関係は既存の OPC の浸出過程のモデル化手法（たとえば，Atkinson，1987；Berner,1988）を応用できることが示されている。すなわち，ポゾラン材料を添加した低アルカリ性セメントについては,OPC において,アルカリ金属並びに$Ca(OH)_2$がすべて浸出した後,C-S-H が浸出液の性質を支配している Region III と同様に，C-S-H の Ca/Si 比による浸出液の pH，Ca イオン濃度の変化がパラメータとする取り扱いが可能であると考えられる。

7.5　硝酸塩分解技術

廃液中の硝酸塩を取り除く方法としては，図 7.5-1 に示すように，硝酸塩を他の物質に分解させる方法とその前処理等として廃液から硝酸塩を除去する方法とに大別され，一般産業界における廃液処理や放射性廃液処理として利用されているものもある。

分解処理としては，電気分解や酸化還元反応を用いる還元処理と硝酸塩を選択的に分解する微生物を用いる生物処理に区分され，除去方法としては，イオン電荷に対して選択性を持つ膜を用いる膜処理（透析）とイオン交換樹脂で硝酸イオンを吸着除去するイオン交換に区分される。

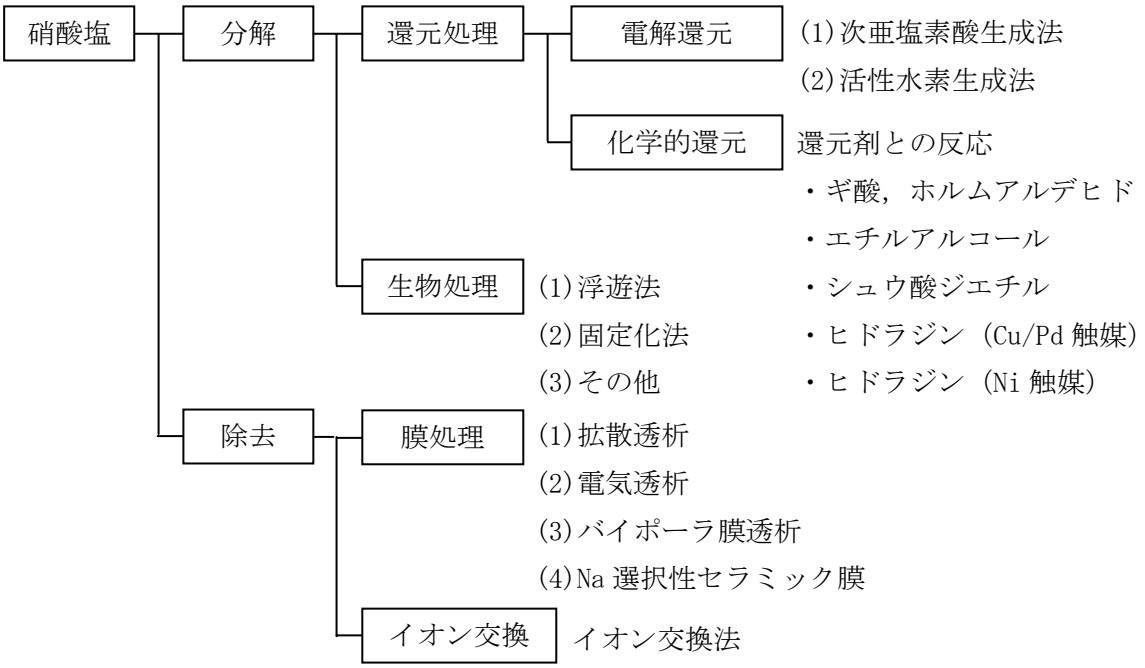


図 7.5-1　硝酸塩の分解・除去方法

化学的還元法を用いた分解処理のうち「ギ酸，ホルムアルデヒド」による還元反応を利用した方法は，ギ酸またはホルムアルデヒドの触媒反応により水溶液中の硝酸塩及び硝酸濃度を低減する方法で，Jean-Charles Broudic et al(2000)によって，放射性廃棄物の処理に用いられる硝酸溶液の脱硝方法として開発された手法である。本還元反応は，複雑であり，酸性度，温度等多くの要素に依存することが確認されている。反応の安定な継続のためには，$NaNO_3$の添加，溶液の沸騰点での保持及び試薬の流速の厳密な制御が必要であり，適切な条件を逸脱すると激しく反応するといった課題も指摘される。

ヒドラジンに加えてアミド硫酸を用いた硝酸塩の窒素化処理技術については，既に JNC 人形峠事業所において廃硝酸を一旦 $NaNO_3$ とした上で処理が行われている実績があり，廃液中の窒素濃度とウラン濃度を河川に放水できるレベルまで処理した実績がある。本適用例においては，硝酸塩廃液に含まれる放射性核種は U のみであり，再処理施設からの硝酸塩廃液に含まれる Pu や多量の FP の挙動については今後の課題であり，前段に核種除去プロセス等の追加などの検討が必要である。

いずれの分解処理方法においても，処理条件や工学的実現可能性などの課題に加えて，分解の際の副生成物や分解で残る陽イオン（特に Na）の取り扱い，放射性核種の挙動，処理により生じる二次廃棄物，さらに処理全体にかかる経済性を考慮する必要がある。

一方，既にアスファルト固化された廃棄物は約 3 万本を数えており，それらに含まれた硝酸塩を分解するためには，溶液として硝酸塩を分離する前処理が必要となる。この前処理を目的とした試験研究の例はないが，JNC では実固化体からの試料を用いた水への核種及び塩に対する浸出試験を行い，400 日間の浸出期間にて，25℃で約 8%に過ぎない塩の浸出が 40℃の条件では 70%に上昇することを確認しており（飛田ほか，1999），水溶液として浸出させる最適な条件の抽出につ

いて検討を進めることが求められる。

また，スイス ZWILAG(Zwischenlager Würenlingen AG(Central Interim Storage Facility Würenlingen))では，多種多様の混合放射性廃棄物を対象に，高温プラズマにより金属及びガラス質は溶融し，有機物は分解するといった，プラズマ焼却炉が設置されている(Hoffelner W, et al, 1996)。本法は硝酸塩成分のみならずアスファルト成分も同時にほとんどガス化及び無機化させることが期待できるが，アスファルト固化体を対象とした本技術の適用性の有無及び安定で安全な運転条件の抽出等，基礎的なレベルからの検討が必要である。

参考文献

Atkinson A., Heare J A., and Knights C F., (1987) : Aqueous chemistry and thermodynamic modelling of $CaO-SiO_2-H_2O$ gels, United Kingdom Atomic Energy Authority HARWELL Approved for publicaton, AERE R 12548.

青柳孝義, 前田宗宏, 三原守弘, 田中益弘 (1998) : 飽和水酸化カルシウム水溶液を用いたベントナイトの膨潤圧及び透水係数の評価, JNC TN8400 98-002.

荒井康夫 (1991) : セメントの材料科学, 改訂 2 版,大日本図書.

藤田英樹, 野口聡, 廣永道彦 (1998) : アーウィン系低アルカリセメントの開発－pH 挙動に及ぼすシリカフューム添加の影響－, 日本原子力学会「1998 秋の年会」, pp.823.

藤田英樹, 廣長道彦, 小松進一, 稲継成文 (2005) : アーウィン系低アルカリ性セメントを用いたコンクリートおよびモルタルの物理的特性, 日本原子力学会「2005 春の年会」, pp.655.

Gray M N. and Shenton B S. (1998) : Design and Development of Low-Heat, High-Performance, Reactive Power Concrete, The International Symposium on High-Performance and Reactive Power Concrete, Sherbrooke PQ, Canada.

原子力発電環境整備機構 (2004) : Proceedings of the International Workshop on Bentoninte-Cement Interaction in Repository Environments, NUMO-TR-04-05.

原子力環境整備促進・資金管理センター (2005) : 平成 16 年度　地層処分技術調査等　TRU 廃棄物関連処分技術調査　廃棄体開発調査報告書.

原子力環境整備促進・資金管理センター (2005) : 平成 16 年度　地層処分技術調査等　TRU 廃棄物関連処分技術調査　ヨウ素固定化技術調査報告書.

広永道彦, 田中良仁 (2000) : 低アルカリ性セメントの開発, 研究概要 1999 年度研究成果, 電力中央研究所.

Hoffelner W, Mueller T, Fuenfschilling M R, Jacobi A, Eschenbach R C, Lutz H R and Vuilleumier C (1996) : New incineration and melting facility for treatment of low level radioactive waste in Switzerland, Intn. Workshop on Therm Plasmas Hazard Waste Treatment, Verenna, 1996, pp.126-145.

本田明, 須黒寿康, 佐々木良一 (2005) : 放射性ヨウ素の銅マトリックス固化体からの放出挙動評価, JNC TN8400 2004-029.

石田秀人 (2003) : スイスにおける放射性廃棄物処理・処分の最新事情 - RANDEC 欧州原子力調査団に参加して (その 1) - , 電気 Vol.654, 2003.1, pp.44-47.

J.C.Broudic, P.Brossard and A.Ananiev et al. (2000) : Method for reducing nitrate and/or nitric acid concentration in an aqueous solution, PCT/WO 00/06503.

K. Bateman, P. Coombs, D. J. Noy, J. M. Pearce and P. D. Wetton (1998) : Numerical modeling and column experiments to simulate the alkaline disturbed zone around a cementitious radioactive waste repository, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 506, pp.605.

久保博, 黒木泰貴, 三原守弘 (1998) : ベントナイト系緩衝材のコンクリート間隙水による長期変質の基礎研究, 土と基礎, Vol46, No10, pp.31-34.

McKinley I G, Kawamura H, Neall F B and Ando K (2001) : Repository design optimization for

long-lived ILW, Material Research Society Symposium Proceedings Vol.663, pp.843-850.
三原守弘, 入矢桂史郎ほか (1997) : シリカフュームを混合したセメントペーストの浸出試験とモデル化, 放射性廃棄物研究, vol.3,No.2,71.
落合健一, 藤田秀人, 村山重雄, 武田啓二 (1997a) : アスファルト固化体の危険物判定試験, PNC TN8410 97-115.
落合健一, 藤田秀人, 村山重雄, 武田啓二 (1997b) : アスファルト固化体の危険物判定試験(Ⅱ) (1990 年 4 月), PNC TN8410 97-116.
落合健一, 藤田秀人, 村山重雄 (1997c) : アスファルト固化体の危険物判定試験(Ⅲ) (1990 年 7 月), PNC TN8410 97-117.
落合健一, 藤田秀人, 村山重雄 (1997d) : アスファルト固化体の危険物判定試験(Ⅳ) (1991 年 1 月), PNC TN8410 97-118.
大和田仁, 三原守弘, 入矢桂史郎, 松井淳 (2000) : 放射性廃棄物地層処分システムにおけるセメント系材料の検討 - 浸出液の pH を低くしたセメント系材料の施工性と機械的特性-, JNC TN8400 99-057.
大和田仁, 三原守弘, 入矢桂史郎, 松井淳 (2000) : フライアッシュ高含有シリカフュームセメントの実用性の検討″, サイクル機構技報, vol.6,pp.43.
Owada H., Mihara M., Tatsuya M., Neyama A., Iriya K. and Arimoto T. (1999): The geochemical modeling study on leaching behavior of HFSC for cementitious radioactive waste repository, Proceedings of ICEM'99, 1087.
Skagius K., Svemar Ch. (1989) : Performance and safety analysis of WP-cave concept. Technical Report TR 89-26, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management (SKB), Stockholm.
SKB (1999) : Deep repository for long-lived low- and intermediate-level waste. Preliminary safety assessment. Technical Report TR 99-28, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management (SKB), Stockholm.
坂本浩幸, 芳賀和子, 柴田真仁, 藤田英樹, 小林久美子:人工バリア材用セメントの pH 調整, 日本原子力学会誌, 38,4,51,(1996)
田熊靖久, 藤田英樹, 坂本浩幸, 小林久美子, 芳賀和子, 宇智田俊一郎 (1996) : アーウィン含有クリンカーーセッコウースラグ系セメントの水和反応と pH 挙動,日本セラミックス協会学術論文誌, 104,11,1040.
飛田祐夫, 古川登, 村山保美, 伊藤義之, 石井照明, 秋本文也 (1999) : アスファルト固化体の浸漬試験, JNC TN8430 99-007.
U.R.Berner (1992) : Evaluation of Pore Water Chemistry during Degradation of Cement in a Radioactive Waste Repository Environment, Waste Management, 12.
U.R.Berner (1988) : Modelling the Incongruent Dissolution of Hydrated Cement Minerals, Radiochimica Acta, 44/45,387