

原環センター トピックス

RADIOACTIVE WASTE MANAGEMENT CENTER TOPICS

1995.3.NO.32

目 次

| | |
|--|---|
| 放射性廃棄物処分の課題についての国際的取組み - CEC - 活動の概要とナチュラルアナログ研究 | ① |
| センターのうごき | ⑧ |

放射性廃棄物処分の課題についての国際的取組み - CEC -

—— 活動の概要とナチュラルアナログ研究 ——

1. 活動の概要

放射性廃棄物処理処分の研究開発計画は加盟国の専門家からなる諮問委員会において審議され、欧州共同体委員会(CEC)の承認を経たのち実施される。研究にはCECの研究機関であるイタリアのイスプラ研究所及びドイツのカールスルーエ超ウラン元素研究所において直接実施される場合と費用を分担して色々な研究施設で実施される場合がある。CECの研究計画は原則として5ケ年計画であり、1990-1994年の計画が終了し、今年には新しい5ケ年計画に入ることになる。地層処分に係わる研究開発には特に重点がおかれており、その内容は次のように大別される。

- ①地下研究施設を使ったフィールド試験、
- ②安全評価プロジェクト、
- ③地層中での放射性核種の移行に関する研究

地下研究施設としてはドイツのアッセ、ベルギーのモル及び英国のセラフィールドが使われている。

これまでに実施された安全評価プロジェクトでよく知られているものにPAGISプロジェクトが

ある。このプロジェクトは花崗岩層、粘土層、岩塩層及び海洋底下処分の4つの高レベル放射性廃棄物の処分の概念に沿って安全評価を行ったプロジェクトである。既に最終報告書が出てくる。この報告書は地層処分についての開発の現状を把握し、各オプションの安全確保の概念をみるのにより資料である。現在は粘土層処分を対象とした安全評価プロジェクトINTERCLAY及び地層処分の安全評価のパラメータについての感度解析プロジェクトEVERESTが進められている。

地層中での放射性核種移行については、広範な研究分野を包含するMIRAGE計画と処分場に発生するガスの影響に焦点を絞ったPEGASUS計画があげられる。最も活動的なのはMIRAGE計画といえよう。この計画は1982年に開始され長く続いている。

MIRAGE計画には次の4つのグループがある。

- ①コロイドと有機物質による核種移行 (COCO)
- ②地球化学モデルによる核種濃度評価 (CHEM-VAL)
- ③各種地質媒体での核種移行実験

④ ナチュラルアナログ研究

この中でナチュラルアナログ研究は歴史も古く多くの成果を出している。安全評価を行う場合、安全側のシナリオと安全側のデータを使って評価を行うのが普通である。そうすると地層処分のように評価期間が長い場合は確定的なことがいえないので、厳しいシナリオを使い、厳しいデータで評価することになり、どんどん実際の現象とかけ離れてしまう。ついには実際の現象がどのようなか、見失ってしまうことになりかねない。**ナチュラルアナログ研究は、研究材料や研究環境が存在した状態について確たる裏づけがないことから定量性を重視する安全評価に直接役立てることは難しい。しかし、実際に近い姿を定性的に描くことができる。また何が支配的であるかを知り、**

何を重点的に明らかにすべきかを示す手段でもある。

CECでのナチュラルアナログ研究プロジェクトには米国、カナダなどCEC以外の多くの国の研究者が参加し活発な研究が行われている。その成果はほぼ定期的で開催されるシンポジウムで報告されている。最近、W.MillerらがCECの成果を中心にナチュラルアナログ研究の現状を総括的にまとめた本(“Natural analogue studies in the geological disposal of radioactive waste” ELSEVIER (1994))を出版している。地層処分の概念とナチュラルアナログ研究との関係を理解するにはよい資料であるので、次にその内容の主な点を簡単に紹介する。

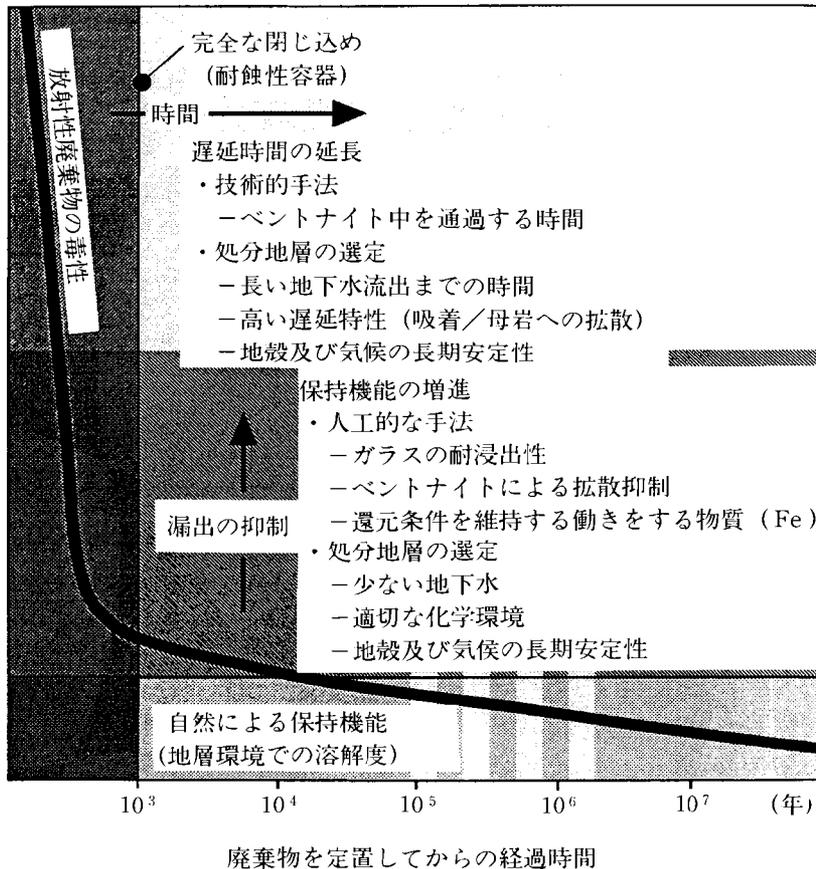


図1 物理的閉じ込めは10³~10⁴年でその後のニアフィールドでの放射性核種の保持の継続は化学的メカニズムに頼る。物理的に閉じ込められている期間に廃棄物中の放射能の合計は短い半減期の放射性核種の減衰により大幅に減少する。

2. ナチュラルアナログ研究

(1)地層処分概念

スイスの高及び低中レベル廃棄物、スウェーデンの使用済燃料及び低中レベル廃棄物及び英国の低中レベル廃棄物の地層処分の概念についてナチュラルアナログ研究の観点から重大な点が簡単に記述されている。いずれの国でも安全評価書がまとめられている。ナチュラルアナログ研究の位置づけ及びその成果はそれら報告書との関係を念頭において整理されている。

地層処分された廃棄物から放射性核種が生態圏に漏出するのを防止あるいは抑制するバリアシステムの機能時間と放射能毒性レベルとの関係が図1のように簡単に示されている。また、放射性核種がニアフィールドからファーフールドを経由

して生態圏に至る過程が図2のよう示されている。容器の閉じ込め性が確保されている間に短半減期の放射性核種が減衰し放射性廃棄物の全体の放射能は何桁も下がる。孔が開いても残った金属容器の残骸は周囲の地下水を還元性に保ち、金属酸化物は放射性核種を吸着する。

近年、この他に図3に示す処分場で発生するガスの影響や微生物の影響がよく話題となる。廃棄物が腐食して発生するガスは地下水の動きを変える。地表に出れば爆発の原因になる危険性もある。

栄養源を含む低中レベル廃棄物の処分安全性を考えるにあたっては微生物の影響を考慮する必要がある。微生物は地下水の酸性度や酸化還元電位等の液性を変え、容器の腐食を早める原因となる可能性がある。また、微生物自身が放射性核種を取り込んだり、微生物活動で生じる有機物質がコ

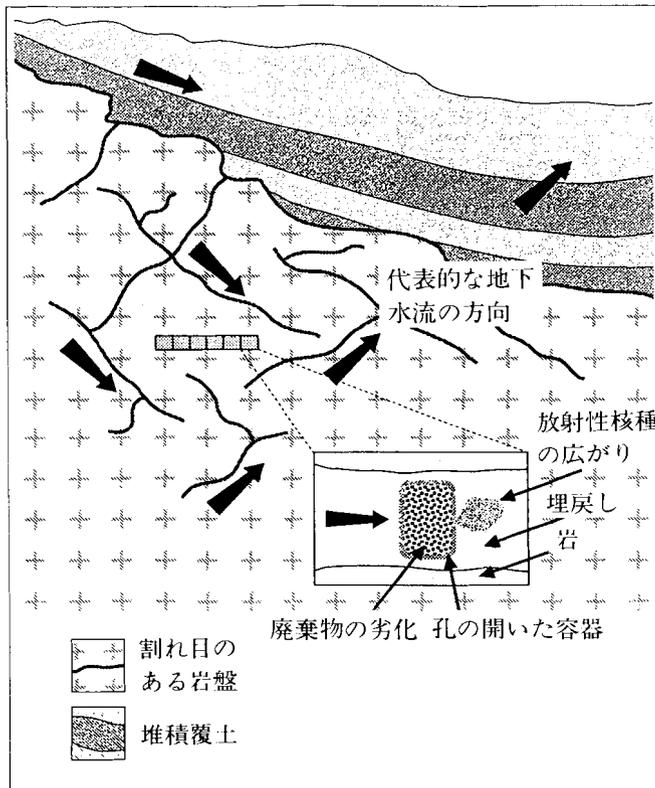


図2 長い間にニアフィールドの構造物は劣化し、ついには廃棄物は地下水にさらされ腐食が始まる。 α 放射線による水の放射線分解による局所的な酸化性環境下で廃棄物は溶解する。岩、ベントナイト、廃棄物及び容器の劣化生成物への吸着や酸化還元フロントでの沈殿で放射性核種の移行が遅れる。

ロイドや可溶性有機化合物を形成して核種が移行しやすくなる可能性がある。また、炭酸ガス、メタンガスなどガスを発生させる。

ガスの発生原因については英国でドラム缶やオーバーパックに使われる鉄の腐食による水素ガスが他の原因によるガスの50倍となると評価している。その水素ガスのニアフィールドでの物理的・化学的挙動も地層処分で考慮すべき評価項目である。

ナチュラルアナログ研究はこのような地層処分の概念と長期の核種移行過程を念頭に進められている。ガスの影響や微生物の影響については石油工学等での研究成果がある。地層処分のナチュラルアナログ研究固有の成果はほとんど出ていない。

(2) 化学的近似

廃棄物に含まれる放射性核種のなかには天然に存在しない元素がある。ナチュラルアナログ研究では化学的性質の類似する元素の挙動で近似することになる。しかし、類似していた元素同志も原子価が変われば性質が著しく変わってしまう。どのような元素の挙動で近似するかはケースバイケースで考える必要がある。例えば、Npについて

はNp(V)はPa、Np(IV)はTh、酸化還元の変化を伴う現象の研究ではUで近似するのがよいと考えられている。TcはRe、AmはEu、Pu(IV)はTh、Pu(VI)はUである程度近似される。

(3) 環境の近似

研究対象により色々な自然環境が使われる。最も多く使われているのはウラン鉱床である。使用済燃料の腐食溶解現象、酸化還元フロントや割れ目での放射性核種の挙動、コロイド形成等の核種移行助長現象、吸着現象や岩盤への拡散現象、半減期の違う核種を使った時間依存現象等多くの項目の研究が行われている。

緩衝材中での核種移行現象やベントナイトの変質など緩衝材の性質の研究には粘土が専ら使われている。

低中レベル放射性廃棄物の処分には百万トン規模の大量のセメント材料が使われpH10以上の高pHの処分環境が10年程度は継続すると評価されている。このような環境条件を近似するところとしては、高pHの鉱泉が使われている。溶解度や化学種に関する研究、周辺の岩盤と高pHの水と

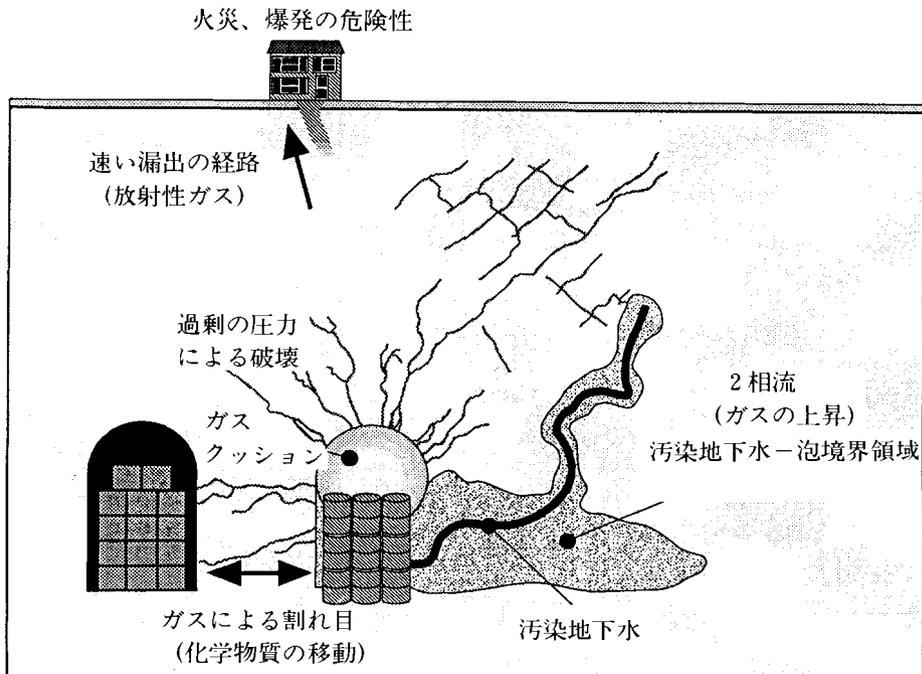


図3 低中レベル廃棄物処分でのガスの発生とその影響
もし、ガスの通りみちが地上に達した場合には、爆発を起こす危険性がある。

の相互作用の調査、微生物やコロイドの調査などが高pHの地下水環境で調べられている。

廃棄物の発熱による温度上昇によって起きる現象については熱水反応を起こしているところが使われる。

考古学上の遺物は人工バリアの耐久性について直接的なデータが得られる利点がある。しかし、その物質が存在した環境条件が処分条件と類似した条件であったかどうかを考えるとナチュラルアナログ研究の調査結果をどの範囲で適用してよいか慎重に考える必要がある。存在環境の継続期間についてはあいまいな場合が多いし、人工物が造られた時期もせいぜい数千年前であり、廃棄物処分対象としている期間の長さからみると不十分である場合が多い。

(4) 処分材料の性能

ガラス

① ガラス質の安定性

ガラス質は失透して結晶化するため長く安定には存在しないといわれているが、アポロが月で採取した天然のガラスは 3.7×10^9 年前にできたものであり、北アメリカで採取した天然ガラスの半数以上は 2×10^6 年以上、 4×10^7 年前のものもあったとの調査結果がある。そのほか、 1.1×10^9 年前のものも発見されており、条件によってはガラス質も非常に長い間安定に存在することがわかっている。

② 水による溶解速度と変質生成物

天然ガラスと 0°C の水解水、海底火山の天然ガラスと約 4°C の海水、火山灰中のガラス質と常温の雨水、玄武岩質ガラスと温泉水などいろいろな種類の天然ガラスを使い温度もいろいろと異なる水と長い間接触した場合の溶解量や表面の変質の様子が調べられている。海水による浸出についての調査の例では、溶解速度は $3 \sim 20 \mu\text{m}/1000\text{y}$ 程度であり、海底堆積物で埋まっている場合は約 $0.1 \mu\text{m}/1000\text{y}$ との値が報告されている。変質生成物は層状構造を形成しており、ガラス質から可溶性成分が抜けた薄い層、非結晶性の二次生成物層、及びその上に粘土鉱物などの結晶性の鉱物の層の大略3層が存在する。この厚さは $0 \sim 1000 \mu\text{m}$ である。これが代表的な変質層であり、廃棄物を固めているホウケイ酸ガラスの実験室試験で認められる変質層の構成とほとんど同じである。

ガラスの溶解の速度と変質物の研究よりも、今後のナチュラルアナログ研究は二次鉱物への廃棄

物成分の取り込みについての研究に重点が移されるべきであるとされている。

③ 考古学上のガラス製遺物

BC 1,500年頃のエジプトのガラス製品の保存状態が調べられている。人工のガラスでも水に接触している場合の変質層の様子はよく似ているが、湿気のある空気に接触していた人工のガラスでは表面に天然のガラスでは認められない微細なひび割れがしばしば認められる。

使用済燃料

多くのウラン鉱床のウラン鉱石について浸出現象の調査研究が行われている。Oklo鉱床は一旦は臨界に達したものであり使用済燃料の溶解や核分裂生成物の移動の研究としてよく使われる。ただ過去に表層の水の侵入があり、酸化性の環境になったこともあるので、ナチュラルアナログ研究としての限界はあるが貴重な結果が得られている。ほとんどの核分裂生成物はウラン鉱石から移動していない。Ru、Te、など一部鉱石から抜けている核分裂生成物はあるが、周囲の粘土質に止まっている。

Cigar Lakeのウラン鉱床は UO_2 の鉱床の上を粘土層が覆っており、処分条件とよく似た条件が保たれていて使用済燃料の長期安定性についての研究に適している。この間隙水の調査によると、ウラン濃度を決めている化合物は U_3O_8 であり、酸化還元電位は $100 \sim 200\text{mV}$ であるとの結果が報告されている。

鉄及び鋼

天然の鉄金属が見出だされることはまれであるが、隕石、グリーンランドのDisko島及びドイツのBühlの天然の鉄についてのナチュラルアナログ研究の例がある。

考古学上の遺物としては、スコットランドのInchtuhil遺跡で約1,900年間約5mの深さに埋まっていた約百万本の釘があげられる。釘の長さは $6 \sim 40\text{cm}$ である。鉄の腐食は埋まっている場所が酸化性環境か還元性環境かで大きく異なる。

10^6 年間以上残っているBühlの天然の鉄は透水率の低い玄武岩に埋まっている。鉄から玄武岩の中への酸化還元フロントの移動は 10^6 年間で $1 \sim 2\text{cm}$ である。Johnsonらはこれまでの天然の鉄や考古学上の鉄製遺物の還元性環境での腐食の調査結果を整理して、 $0.1 \sim 10 \mu\text{m}/\text{y}$ という値を出している。

腐食速度についての研究はほぼし尽くされ、今

後は埋没している古いコンクリート構造物の調査が重要な課題であろう。それにより鉄の腐食で生じる水素ガスの影響を調べることができるであろうとされている。

銅

長い期間土に埋まっていた天然の銅及びスウェーデンKronan戦争の大砲などの調査が行われている。弱アルカリ性の土に埋まっていた場合、 $0.025\sim 1.27\mu\text{m}/\text{y}$ の腐食速度であり、2000年間で 0.45mm 以上腐食しているものはほとんどなく、全面腐食と孔食腐食との比は約3であったとの報告がある。

ベントナイト

イライト化して膨潤性等の性質が変わることが心配されているが、 100°C に保たれたとしてもイライト化するには 10^7 年以上かかることがわかっている。温度が上るとベントナイトが固まり割れが生じやすくなることもあるが、 100°C 以下では重要な変化は生じない。

コンクリート及びセメント

1,700年前のローマのコンクリートの調査等により、コンクリートの主要成分であるケイ酸カルシウム化合物は長期間安定に存在するとの結果が出ている。古いコンクリートの間隙水の研究はニアフィールドの放射性核種の濃度評価にとって大切であり今後の課題である。

ビチューメン及びセルローズ

カルフォルニアやペルーでビチューメンに5000年以上閉じ込められていた骨や木材が発見され、物質を長期に保存するのによい材料であることはわかっている。

イタリアのDunarobbaでは約 1.5×10^6 年間粘土層に埋まっていた木材が発見されている。条件によっては非常に長く残り得る材料である。ビチューメンも、セルローズも低中レベルの放射性廃棄物の処分材料としてさらに高pH地下水環境での調査研究を今後進める必要がある。

(5)放射性核種の地中移行

溶解度と化学種

放射性廃棄物の処分は地下水の動きができるだけ少ない場所が選ばれるのが原則であり、ニアフィールドでもファーフィールドでも平衡状態での核種濃度の評価が重要であり、地球化学モデルが多用されており、その検証のためのナチュラルアナログ研究が精力的に行われている。Cigar Lake

やPoços de Caldasなどのウラン鉱床で研究されているが、低レベル放射性廃棄物の処分ではセメントやコンクリートが大量に使われ、ニアフィールドの地下水はアルカリ性の強い地下水になるので、そのナチュラルアナログ研究はOmanやMaqarinなどの高pH地下水の鉱泉で行われている。

地球化学モデルは、一般に地層鉱物と地下水の特性から考えられる化学平衡式を抽出し系統的に解く方式がとられる。この方式で求めた濃度とフィールド調査での値とはかなり違う場合が多い。そこで、高pH鉱泉のMaqarinサイトでの研究などでは、従来の方法に加えて、フィールドに存在する微量鉱物まで詳しく調査し、見つかった微量鉱物のうちどれが水中濃度を決めているかを探すという方法が取られた。地球化学モデルでの評価値は一般に計算値より実測値の方が濃度が薄いとの結果になるが、Maqarinサイトの研究例で CaUO_4 の値を使ったためウランについて逆に実測値の方が濃い結果になった。フィールドでは CaUO_4 の純粋のものは発見されなく、非結晶性の物質が発見され、この物質が水中のウラン濃度を決めているであろうとされている。

一般に化学平衡が成り立っているとして計算されるが、自然界での結晶化現象など非常に遅い反応があり、その速度がわかっていない場合が多い。また、固溶体や共沈現象は地球化学モデルには組み込み難い宿命を持っている。これらの点が実測値の方が低くなる主な原因である。

移行遅延現象

結晶岩の割れ目については、割れ目の内側を覆っている鉄の水酸化物、有機物及び粘土鉱物への吸着及びそれらの物質との沈殿作用が主であることが多くのナチュラルアナログ研究で明らかにされている。すなわち、安全評価では吸着は可逆的であるとして評価されるが、不可逆の沈殿成分が多い。また、鉄の水酸化物は特に重要であり、吸着による遅延作用のみでなく、吸着したコロイド粒子となって、放射性核種を逆に動きやすくする場合も観測されている。

堆積層中での物質の拡散についてのナチュラルアナログ研究で興味あるものとして、スコットランドのLoch Lomondでの研究がある。淡水の湖の底に厚さ2m程度の薄い海洋堆積物がある。この堆積物は6900~5400年前のものであることがわかっている。この堆積層から淡水の堆積物への臭

素の拡散分布が調査されている。その調査結果では拡散係数は $8 \times 10^{-11} \text{m}^2/\text{s}$ であった。堆積層での微量元素の移行調査で良く知られているものとしては、さきにも述べたOkloの天然原子炉に隣接する粘土層への核分裂生成物の移行状況の調査があげられる。

生態圏と地圏との境界領域の移行調査については、原爆実験による放射性核種の地中分布の調査があげられる。それによると100m深さの井戸でも9ヶ月後には ^{106}Ru が検出されており、5年間の連続モニタリングで岩石の割れ目を約300m移行したことが確認されたとの報告もある。これらの結果は生態圏での放射性物質の移行評価モデルを検証するにはよいデータである。

岩盤中の拡散

ウランの崩壊系列核種を測定した例では10⁵年程度の間酸化性の地下水が流れた場所の岩盤でウランが減少している所の割れ目からの距離は30~40mmであったとの報告がある。また、海水に浸漬されていた岩盤が上昇して淡水に浸漬された岩盤を使った調査がある。割れ目に沿った間隙水の塩分濃度の分布を測定したところ拡散係数は $2 \times 10^{-11} \text{m}^2/\text{s}$ であったとの報告がある。岩盤中の拡散は酸化還元フロント移動との組み合わせの現象として研究されている例もある。岩盤の中に還元スポットが生ずる現象が見つかったが、花崗岩での還元スポットでの調査では還元性領域は約10⁶年の間に半径約10mmしか広がらないとの調査結果が出ている。

以上のような調査から一般に放射性廃棄物の処分の評価に関係する岩盤の拡散領域は100~200mm程度を考えればよからうとされている。

地下水の放射線分解

Okloの天然原子炉現象があった場所からMoが80%、Tcが35%、Ruが25%失われている。そして、まわりの酸化還元フロントで止まっている。これらの元素は酸化状態の高い化学形でなければ移動しないので、水の放射線分解で生じた酸素または酸化性物質で一旦は酸化されたであろうと考えられている。そして、放射線分解で生じた水素が粘土層に拡散して形成した還元領域で還元され沈殿したと考えられている。Cigar Lakeでの研

究でもウラン鉱石(UO_2)の表面に少量ではあるが酸化状態の高いウラン酸化物が存在することが確かめられている。

酸化還元フロント

結晶質岩については、Poços de Caldasのウラン鉱床の岩盤の風化側の茶色の領域と青灰色との境界を使って詳しく研究されている。境界は非常にシャープである。ウランは還元側で境界で濃度が増している。Mo、Ce等酸化還元で敏感な元素はウランと同じ挙動をとる。その他の酸化還元条件で化学形が変化しない微量元素も、鉄の水酸化物との共沈、固溶現象あるいは吸着現象で多かれ少なかれ酸化還元フロントに濃縮している。そして、10⁸年間以上移動しないで固定されている。堆積岩での研究が少ないが、海洋堆積物での研究は行われている。

コロイド

多くのウラン鉱床でのナチュラルアナログ研究でコロイドの研究が行われている。例えば、Poços de Caldasでは浅いところと深いところで調べ、浅いところでは、コロイドは主に粘土で0.8mg/l程度存在しており、深いところでは主に非結晶性の鉄の水酸化物で0.5mg/l程度存在している。また、コロイド中の $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 比からウランはコロイド中からは少なくなっていることがわかっている。高pHの鉱泉であるMaqarinでの調査でもコロイドの存在量は1mg/l程度と少なかった。

微生物

鉄の腐食に重要な硫酸還元細菌はMaqarinサイトでの調査で見つかった。したがってこの細菌は地下水が高アルカリ性でも生きられることがわかる。繁殖を防止するには栄養分の存在を断つことが大切である。

ガスの発生と移動

ナチュラルアナログ研究としての成果はほとんどない。しかし、湿地帯や海洋堆積物でのメタンの発生機構についての研究は歴史があり、詳しい研究がなされている。また、ガスの移動や溜まり方については石油や天然ガス産業の分野で調査研究がなされている。

(中村治人)

センターのうごき

平成6年度調査研究受託状況

平成6年12月1日以降平成7年2月28日までの間に次の受託契約が行われました。

| 委託者 | 調査研究課題 | 契約年月日 |
|-------|---|------------------------|
| 科学技術庁 | ・原子力バックエンド対策に関するパンフレットの作成 | 6. 12. 22 |
| 通商産業省 | ・低レベル放射性廃棄物処分可視画像化調査 | 7. 1. 7 |
| 電力各社等 | ・雑固体廃棄体の型式設定・評価に関する研究 ・雑固体廃棄体の確認対応技術研究 | 6. 12. 16 6. 12. 16 |

編集発行

財団法人 原子力環境整備センター
〒105 東京都港区虎ノ門2丁目8番10号 第15森ビル
TEL 03-3504-1081 (代表) FAX 03-3504-1297