

原環センター トピックス

RADIOACTIVE WASTE MANAGEMENT FUNDING AND RESEARCH CENTER TOPICS

2002.6.NO.61

目次

人工バリアの長期性能評価
センターのうごき

人工バリアの長期性能評価

はじめに

放射性廃棄物処分とは、廃棄物の中に含まれる放射性物質が人に悪影響を与えないレベルに減衰するまで、放射性廃棄物を人と接することのないように隔離しておくことであり、その方策としては、含まれる放射性核種の種類と濃度に応じて浅地中や深い地層中に埋設することが考えられている。

しかし、これら地層中には降雨の浸透等を起源とする地下水が存在しているため、放射性核種が人間環境に運ばれるのを抑制する人工的な障壁、すなわち人工バリアが設けられる。

本稿は、低レベル放射性廃棄物のうち放射化金属など $\beta\gamma$ 核種濃度が比較的高い廃棄物（以下高 $\beta\gamma$ 廃棄物）を対象に、その人工バリアの長期性能評価に関する現状と課題について、当センターが携わってきた研究を中心に記述するものである。

1. 人工バリアの構成と期待する性能

日本原燃株式会社は1992年12月より、六ヶ所低レベル放射性廃棄物埋設センターにおいて、原

子力発電所から発生する低レベル放射性廃棄物の処分事業を開始している。

この施設の人工バリアとしては、ベントナイト系材料とセメント系材料が使用されている(図-1)。廃棄物を収納したドラム缶を鉄筋コンクリート製のピットに定置し、ピット内をモルタルで充填し、さらにピットをベントナイト混合土で覆う構造である。また、諸外国の低レベル放射性廃棄物の処分施設においても、その多くがベントナイト混合土等の難透水性材料、セメント系材料を使用し、あるいは使用が考えられている。

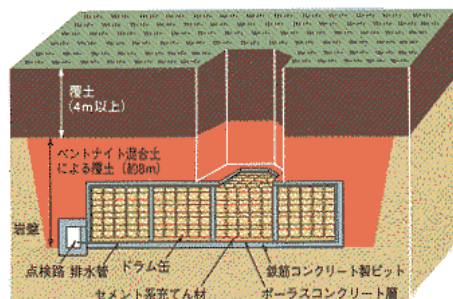


図-1 低レベル放射性廃棄物処分施設（六ヶ所）

六ヶ所埋設センターの安全性評価では、人工バリア材の長期変質に関する知見がまだ十分ではなかったため、ベントナイト系材料は、透水抑制は期待するものの、変質を考慮して大きな透水係数値が使われており、またセメント系材料については、核種の吸着は考えるが、透水抑制は砂程度にしか期待されていない。これに対して、高βγ廃棄物の処分事業が本格化するにあたり、現実的評価という考え方が示されてきている。

現実的評価とは、まだ言葉の定義そのものも一般的に認知されたものではないが、大まかには「人工バリアの劣化について現状の技術等で定量化できる範囲を設定する。その範囲の中で、人工バリアの劣化を定量的に予測し、これを性能評価に利用する」と考えるものである。これによれば、従来の保守的評価に比べ、採用した技術が有する人工バリアとしての性能を適切に表現し、被曝線量として評価することができ、また施設の合理化につなげることができる。

2. 現実的評価における人工バリアの長期性能

人工バリア構成の一例として、「周囲の岩盤より十分に透水係数が小さいベントナイト系材料を施設の外周に敷設して、処分空洞への地下水の流入を防止する。これにより、内部からの核種の移行を拡散支配とする。その内部には拡散抑制機能を持ったセメント系材料を充填して、核種の漏出移行をより小さくする。」というものがある。現実的評価は、従来の人工バリアの保守的な性能評価に対して、科学・技術を基礎としてバリア材が本来持っていると思われる機能を性能評価に取込もうとするものである。

下式は拡散等の移行による核種濃度の時間的变化を示す核種移行方程式とよばれるものである。

$$\varepsilon Rf_i \frac{\partial C_i(t)}{\partial t} = De \frac{\partial^2 C_i(t)}{\partial x^2} - u \frac{\partial C_i(t)}{\partial x} + \varepsilon Rf_i (\lambda_{i-1} C_{i-1}(t) - \lambda_i C_i(t)) \quad (1)$$

- ε : 媒体の空隙率
- Rf_i : i 番目の核種の遅延係数
- C_i : i 番目の核種の濃度
- t : 時間
- De : 実効拡散係数
- x : 位置
- u : ダルシー流速
- λ_i : i 番目の核種の崩壊定数

性能評価として得られる被曝線量は、この核種濃

度の時間変化によって決まるため、時間変化に影響する右辺の各係数である実効拡散係数、あるいはダルシー流速とこれに関わる透水係数や動水勾配等の特性値に左右される。したがって、これら特性値を長期のバリア材の変質に対してどのように表現するかが現実的評価のポイントになっている。

3. ベントナイト系材料

(1) ベントナイト系材料の変質と特性の変化

ベントナイトは粘土鉱物群ス멕タイトと随伴鉱物（カルセドニ、アナルサイム等）からなる。この粘土鉱物の中でも特に多く含まれているのがモンモリロナイトである。

モンモリロナイトは酸素原子が珪素原子を取り囲んだ4面体構造になっており、構造単位はこれらが層状に連なったものがアルミニウム原子を介してもう1層とつながる3層構造になっている。

構造単位は負に帯電しているため、置換性陽イオンと呼ばれる K や Na 等を取込むことによって構造単位が互いに結びつき、結晶構造ができあがる。しかし、置換性陽イオンによる結合力は強くないため、外から水が層間に浸入して結晶が構造単位に分解して膨張するという特性をもっている。ベントナイトの中でも置換性陽イオンが Na である Na 型ベントナイトは膨潤性に富むため、人工バリアには Na 型ベントナイトに砂を混合したベントナイト混合土の使用が想定される。

長期において、ベントナイト混合土は同じ人工バリアで、かつセメント系材料である鉄筋コンクリート製ピットや充填モルタル層から溶出する Ca イオンによって、モンモリロナイトの交換性陽イオンの Na が Ca に置換され、膨潤性が低下する。また、セメントの空隙に含まれる水の pH は 12.5 ~ 13.0 と高アルカリ性を示すため、ベントナイトの主要な粘土鉱物であるモンモリロナイトが溶解する。その一方で、溶解したモンモリロナイトはセメント系材料に含まれる物質と反応して別の鉱物を生成すると考えられている。

これら変質によって、ベントナイト混合土の膨潤性や空隙率が変化し、バリア性能である透水や拡散抑制の特性値が変化する。また、これら特性値が変化することによって Ca 置換や鉱物溶解等の変質が促進されたりするため、変質と特性が互いに影響しあって変化するのが特徴である。

このため、従来の性能評価の解析においては、保守的な特性値を与えて一方向的に解析を行っ

ていたが、現実的評価のために、時間に伴う変質、変質に伴う特性値の変化、特性値の変化に伴う地下水流動の変化を時間ステップで追う解析方法が整備されてきている¹⁾(図-2)。

(2) ベントナイトのCa型化と止水性

既往の研究²⁾において、ベントナイトがCa型化することによって止水性が低下することが示されており、低下する程度は乾燥密度や有効ベントナイト密度が小さいほど大きく、ある密度を超えるとCa型化しても低下はほとんど無いと考えられている(図-3)。

このため、Ca型化に対する対処としては、いわゆる高配合ベントナイト混合土を使用することが想定されており、多くの実験データが取得されているが、合理化の観点からは低配合のベントナイト混合土を用いるという選択肢が必要である。

図-4は、低配合ベントナイト混合土の透水劣化促進の試験結果である。試験はセルに充填したベントナイト混合土にCa溶液を透水し、流出液に含まれるNa量と流出量を求め、Ca型化に伴って透水係数がどのように変化していくかを、約7年間にわたって調べたものである。

試験結果に示すとおり、Ca溶液の通水に伴いNa流出率が徐々に増加する、つまりCa型化が進んでいるとみることができるが、透水係数は必ずしも一様に増加するのではなく、Na流出率がある値に達してから大きくなっている。Ca型化が終了したと思われるNa流出率が100%に達すると、透水係数は初期の値に比べて約3桁程度大きくなっている。

これら試験結果を前掲の既往結果と比較すると、Ca型化による低配合ベントナイト混合土の透水係数は既往結果の延長線上にあるとみなし得る。また、既往結果はベントナイト混合土をバッチ式と呼ばれる方法でCa型化したものであるが、試験に長期間を要する通水試験結果とは互いに整合性があることも推察される。

また、通水試験に用いた低配合ベントナイト混合土を固相分析し、通水方向のイオン交換状況を調べた結果、Ca型化に必要なCaイオンが通水経路を移流で運ばれ、さらにこの移流経路から周辺に拡散で移行するというイオン交換機構が考えられ、解析的にこのような機構モデルを使って評価できている。

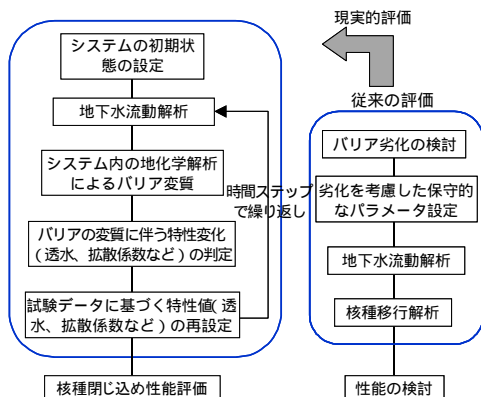


図-2 現実的評価のための性能評価方法

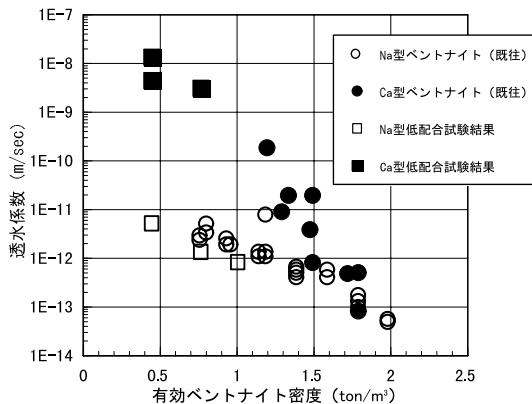


図-3 有効ベントナイト密度と透水係数

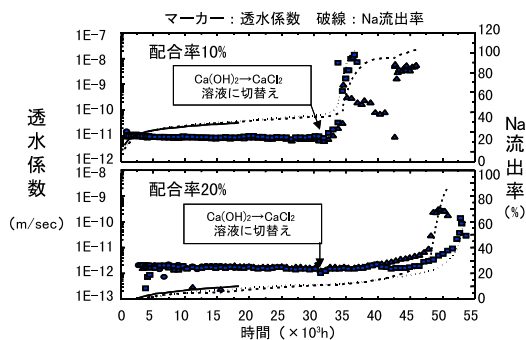


図-4 低配合ベントナイト混合土の劣化促進試験

(3) ベントナイトのCa型化以外の変質

ベントナイトの変質にはCa型化の他にコンクリート空隙水によるモンモリロナイトの溶解や、二次鉱物の生成がある。ここでは、地球化学的物質移行解析（地化学解析）を用いて、ベントナイト中の透水抑制に寄与するモンモリロナイトがどこまで溶解するかを、コンクリート空隙水のpHや二次鉱物生成の有無をパラメータに調べた。なお、地化学解析とは、物質の移行とそれに伴う地球化学反応を計算するもので、性能評価における重要な解析ツールである。

解析は、処分施設を円筒状のコンクリートに見立て、その周辺を厚さ1mのベントナイト混合土（配合率40%）で覆った簡易モデルで行っている。また、生成される二次鉱物にはトベルモライトを想定した。

10万年後の解析結果（図-5）に示すとおり、コンクリート空隙水が低pH（pH11.3）ではベントナイト混合土中のモンモリロナイト濃度は初期濃度とほとんど変わらず、溶出しないことを表している。一方、高pH（pH12.5）では、二次鉱物の生成が無い場合で約20数cm、生成があるとした場合には約30数cm溶解する結果とな

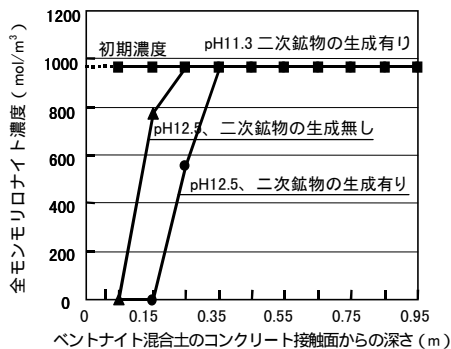


図-5 ベントナイト変質の影響解析結果

っている。これらのことから、地化学解析においては、コンクリート空隙水のpHの変化や二次鉱物の生成を考慮することが重要であると考えられる。ここで注目されるのは、簡易モデルによる解析ではあるものの、厚さ1mのベントナイト混合土は10万年を経ても、モンモリロナイトは厚さ60cm程度が溶解しないで残り、透水抑制が期待できることである。なお、残ったモンモリロナイトはCa型化により透水係数が増加するが、Ca型化の程度は地化学解析からも得られるので、その置換程度に応じて透水係数を前述の実験結果等から評価していくことが現実的の評価につながると考えられる。

上記の解析において、生成される二次鉱物にトベルモライトを取り上げた。しかし、現在までのベントナイトの通水や浸漬等の試験では、まだ生成される二次鉱物が同定されるには至っていないため、促進試験・分析方法を含め、その同定を行っていく必要があると考えられる。

4. セメント系材料

(1) セメント系材料の変質と特性

セメント系材料の長期変質には、セメント水和物であるポルトランドイト($\text{Ca}(\text{OH})_2$)やCSH（カルシウムシリケート水和物、 $x\text{CaO} \cdot y\text{SiO}_2 \cdot z\text{H}_2\text{O}$ ）が地下水によって溶出することがあげられる。この変質によりコンクリートや充填モルタル層の空隙が増加し、バリアとして期待される拡散係数や透水係数が増加する。

このような変質や特性の変化を人工バリアの性能評価に取込む方法として、実験的に空隙と拡散・透水係数の関係を把握し、これらの関係を地化学解析や地下水流動解析に組み入れ、核種移行解析を行うことが考えられる。図-6は、これらの解析によって得られた結果例である。横

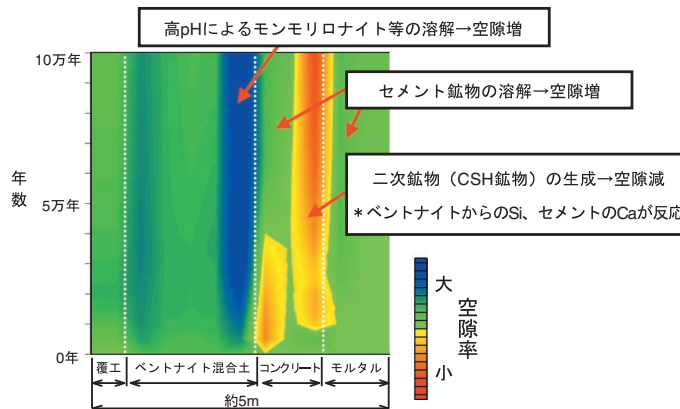


図-6 地化学解析による人工バリアの空隙変化

軸はベントナイト混合土等の人工バリアの構成、縦軸は約 10 万年の経過年数を示し、年数の経過に伴う空隙率の変化を色の濃淡で示している。コンクリートや充填モルタルのセメント系材料では、水和物が溶解して空隙が徐々に増えている。また、ベントナイト混合土においてもコンクリートの接触部分で空隙が増加しているが、これは高 pH であるコンクリートの空隙水によってモンモリロナイトが溶解していく現象を表している。一方、溶出した Ca とベントナイトから溶出した Si が反応して CSH 鉱物が生成され、空隙が閉塞される現象もみることが出来る。

この解析結果例で示したように、地化学解析等により溶出等による空隙の変化までが評価される段階に至っているが、当然のことながら溶出現象がどこまで正しくモデル化されているかが重要になる。

図-7 はセメント水和物の溶出に関する既往の研究結果³⁾を引用したものである。ある浄水場の水に 100 年間浸漬していたモルタルの増加空隙比と、室内の浸漬試験で得られた逆解析パラメータを用いた解析結果と比較したものであ

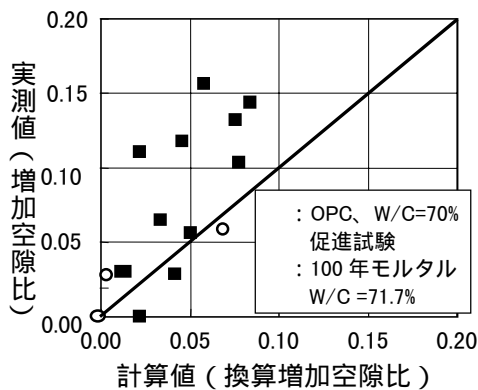


図-7 増加空隙比の実測/解析の比較

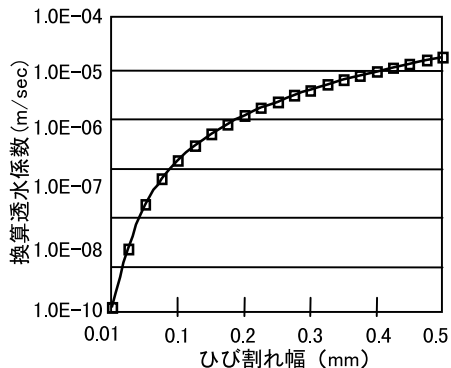
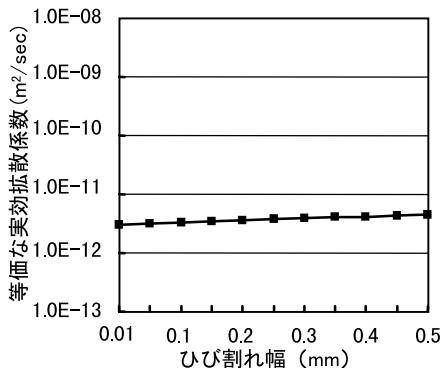


図-8 ひび割れ幅と拡散及び透水係数

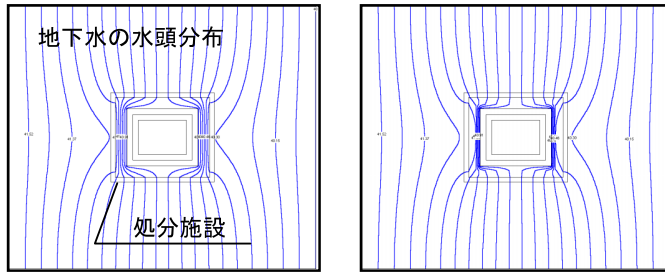
る。解析値は空隙の増加を低めに評価しており、その理由としては逆解析では溶出成分を Ca に限定したため、Na や K の溶出についても検討する必要があるとされているが、解析値と実測値には相関がみられることから、近いうちに精度よく評価されるものと思われる。

(2) セメント系材料とひび割れ

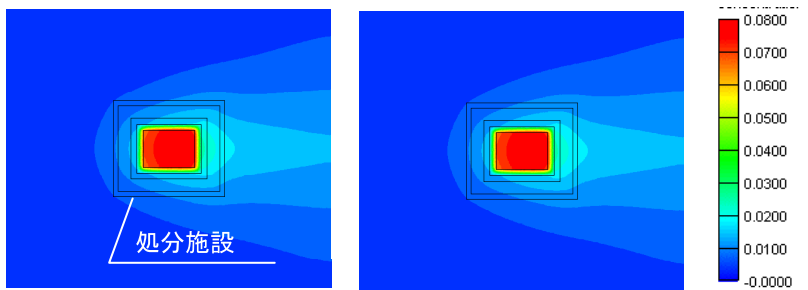
セメント系材料は周知のとおり圧縮に強く、引張りに弱いため、硬化発熱や外からの熱、荷重の変化、内部の鉄筋の腐食、あるいは乾燥や自己収縮等によるひび割れの発生を避けるのが難しいという特性を持っている。

このため、バリア性能である拡散や透水抑制に対するひび割れの影響について各種の検討がなされている。ひび割れを含むモルタルの実効拡散係数については、健全なモルタル部分の表面積にモルタルの実効拡散係数を乗じ、ひび割れ部はひび割れ表面積に自由水中の実効拡散係数を乗じ、これらを加算したものを全表面積で除すれば得られることを実験的に確認している。また、ひび割れからの水の透水量は、一般にはひび割れ幅のほぼ 3 乗に比例する⁴⁾とされており、実験的にもこれを確認している。

図-8 は、モルタルの表面積 1m²あたり 1 本の貫通ひび割れが発生したとして、ひび割れ幅と透水係数及び実効拡散係数の関係を上記の方法で求めたものである。ひび割れ幅が 0.1mm から 0.4mm に増加した場合、実効拡散係数は幾分増加するが、透水係数は桁数で大きくなり、ひび割れが拡散抑制に与える影響は透水抑制に比べ小さいといえる。また、ひび割れの無いコンクリートの透水係数は 10⁻¹³m/sec 程度であることを考えれば、ひび割れ幅の大きさだけでなく、ひび割れの存在が透水抑制に大きく影響する可能性がある。このため、充填モルタル層等のセメント系材料への水の浸入は周辺のベントナイト混合土によって抑制されるとしても、充填モ



透水性係数：小 透水性係数：大
図-9 ベントナイト混合土層の透水性係数の影響



拡散係数：小 拡散係数：大 核種濃度
図-10 モルタル充填層の拡散係数の影響

ルタル層等のセメント系材料にひび割れが集中して発生した場合には、セメント系材料による拡散抑制という核種移行の遅延機構が成立するかどうか、そのための検討としてひび割れ発生の可能性と幅の評価、更にはひび割れの抑制方法の検討が重要であると考えられる。

次に、ベントナイト混合土の透水抑制に与える透水性係数、充填モルタル層の拡散抑制に与える拡散係数の定性的影響について検討した結果の例を示す。

ベントナイト混合土では、セメント系材料と接触している領域の変質を想定し、その領域の透水性係数を大きくした場合の地下水流動を調べた(図-9)。透水性係数が変化しない場合と比較して、地下水の水頭分布が変質領域に集中し、この領域での動水勾配が大きくなって施設内に浸透する地下水量が相対的に増えることを示している。

充填モルタル層では、その拡散係数を一律に大きくした場合の核種濃度分布を調べた(図-10)。拡散係数を大きくした場合、核種濃度の分布範囲が広がっていくことが分かる。

5. ベントナイト系材料とセメント系材料の相互作用

ベントナイト系材料がセメント成分の溶出によってCa型化するのも相互作用の一つであるが、ここではベントナイトスラリーにモルタルを長期浸漬して得られた興味ある結果⁵⁾を示す。

試験は、ひび割れを入れたモルタルをベントナイトスラリーに7年間浸漬し、ベントナイトとモルタルの境界の変質を観察したものである。

図-11は、モルタルのひび割れ(ひび割れ幅約0.3mm)部分の拡大写真と、同じ箇所でのCa元素を調べたEPMA画像である。EPMA画像より、モルタルのひび割れに沿ってCa成分が溶出しているが、モルタル表面ではCa成分が残留しているのが観察された。ただし、ひび割れ幅が小さい場合には、ひび割れに沿ってのCa溶出はみられていない。モルタル表面に残留したCa成分はX線回折よりカルサイト(CaCO₃)であると特定されている。このカルサイトは、モルタルに含まれるCaとベントナイトや水に含まれる炭酸基(CO₃)によって生成されたものと考えられる。これら観察結果は、セメント系材料の成分溶出を評価する場合には大きなひび割れ部分に着目すべきことを示唆している。一方では、モルタル表面に生成され

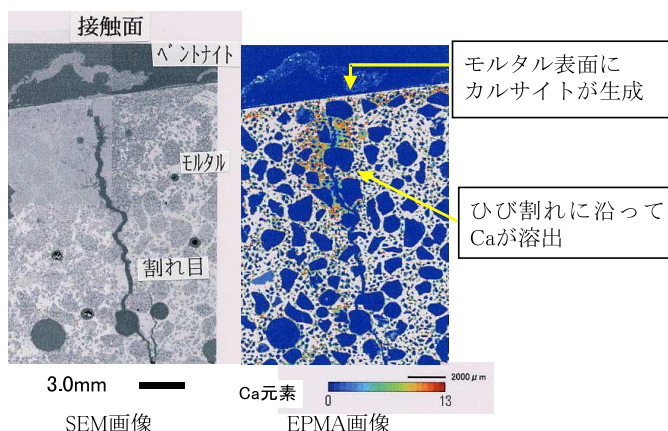


図-11 長期浸漬試験でのモルタル表面観察

るカルサイトの膜が Ca の溶出を防ぎ、ベントナイトの Ca 型化を抑制する可能性、更にはひび割れを閉塞する可能性も示唆していると考えられる。このような長期浸漬の観察結果は、現実的な変質情報を提供するものとして貴重である。

6. 課題とまとめ

人工バリアに係わる技術の現状としては、バリア材の基本的な変質挙動が把握されてきており、解析技術の向上と併せて精緻な性能評価が可能になってきているといえる。

今後の課題は、より現実的な評価に向けてのものである。具体的には、ベントナイト系材料では、性能評価における技術的基盤の確かさを確認するための熱力学データの充実や二次鉱物の同定がある。また、合理性の観点からのベントナイト使用量の低減が挙げられる。セメント系材料については、既の実験データが収集されつつある成分溶出と拡散・透水係数の関係⁶⁾、この他に溶出の防止策、ひび割れ評価が挙げられる。なお、これまでの人工バリアの性能評価に係わるデータが主に室内試験によるものであることを考えると、実施工においてもその性能を担保するための品質管理方法や、実規模によるバリア性能の実証も今後の重要な課題になってくると思われる。しかし、これら課題の解決には、解決することによる社会的・経済的便益と解決するための技術的困難さを勘案して行う必要があり、課題によっては従来のような保守的な評価を行うのも解決策の一つと考える。

あとがき

本報告は昨年度の当センター研究発表会で徳山が口頭発表した内容を整理、割愛して記述したものであることを付記し、資料提供等のご協力を頂いた関係者に感謝致します。

参考文献

- 1) 山田憲和ほか、複合バリア施設の長期性能評価：(1/3)手法、日本原子力学会、2002年春の大会
- 2) 三原守弘、ナトリウム型ベントナイトのカルシウム型化に伴う透水係数及び核種の実効拡散係数の変化、サイクル開発機構技報 No.6、2000
- 3) 渡邊賢三ほか、セメント系材料の溶出現象解析のための実験的検討、2000年コンクリート工学年次大会
- 4) 狩野裕之ほか、コンクリートひび割れ内の透水性に関する一考察、土木学会第55回年次学術講演会
- 5) 当センター、平成12年度セメント系材料の長期性能評価技術に関する調査・検討報告書
- 6) 安田和弘ほか、複合バリア施設の長期性能評価：(3/3)セメント、日本原子力学会、2002年春の大会

(徳山清治*、河田陽介)

* 現住所：鹿島建設株式会社 技術研究所、
〒182-0036 調布市飛田給 2-19-1、
TEL 0424-89-8354

センターのうごき

第 10 回評議員会開催

平成 14 年 3 月 11 日（月）開催の第 10 回評議員会において、「平成 14 年度一般会計に関する事業計画及び収支予算」、「平成 14 年度資金管理業務に関する事業計画及び収支予算」及び任期満了に伴う「役員を選任」について付議し、提案のとおり承認されました。

この役員の変更により、次の方々が交替されました。

区 分	退 任 者 (14.3.31 付)	新 任 者 (14.4.1 付)	所 属 、 役 職
理事（非常勤）	村上 健一	岡崎 俊雄	日本原子力研究所 副理事長
同	太田 宏次	川口 文夫	中部電力(株) 取締役社長
同	杉山 弘	中垣 喜彦	電源開発(株) 取締役社長
同	石川 博志	藤 洋作	関西電力(株) 取締役社長
同	山本 寛	堀井 秀之	東京大学大学院工学系研究科 教授
同	八島 俊章	幕田 圭一	東北電力(株) 取締役社長

第 55 回通常理事会開催

平成 14 年 3 月 15 日（金）開催の第 55 回通常理事会において、「平成 14 年度一般会計に関する事業計画及び収支予算」、「平成 14 年度資金管理業務に関する事業計画及び収支予算」、「理事長、専務理事及び常務理事の選任」及び任期満了に伴う「評議員の選出」について付議し、提案のとおり承認されました。

理事長には板倉治成氏が、専務理事には廣瀬定康氏が、常務理事には井上毅氏が、それぞれ再任され、評議員については次の方々が交替されました。

区 分	退 任 者 (14.3.31 付)	新 任 者 (14.4.1 付)	所 属 、 役 職
評議員	-	田中 知	東京大学大学院工学系研究科 教授
同	住田 健二	成合 英樹	(社)日本原子力学会 副会長

平成 14 年度資金管理業務に関する事業計画書及び収支予算書の認可

「特定放射性廃棄物の最終処分に関する法律」第 77 条第 1 項の規定に基づき、経済産業大臣に認可の申請（14.3.15 付）をし、平成 14 年 3 月 26 日付をもって認可を受けました。

モニタリングミニワークショップの開催

平成 14 年 2 月 18 日(月)、虎ノ門パストラルにおいて、「モニタリング機器技術高度化調査」研究の一環として、モニタリングミニワークショップを開催し、SNL(アメリカ)、NWTRB(アメリカ)、IAEA 及び日本の大学・研究機関等から多数の参加がありました。

ワークショップではモニタリングに関する各国の研究状況報告の紹介とともに、本研究成果報告、現状技術レベル、新規技術開発状況等について貴重な議論が行われました。

地球化学バリア日露ワークショップの開催

原環センターでは、国際科学技術センター（ISTC）を通じてロシアの研究機関と協力して「地球化学バリア」の開発を実施しています。地球化学バリアとは、地球化学的な反応によって地層処分場からアクチノイド核種の地下水移行を抑制する効果を指し、このバリアの有効性や抑制条件を実験により確認しています。平成 14 年 3 月 5 日、6 日にロシアの研究機関と日本の大学・研究機関でワークショップを開催しました。ワークショップでは、ガラス固化体に含まれるウランや岩石の持つ地球化学的な効果の研究等の成果報告を行うとともに、今後の試験の進め方について貴重な議論が行われました。

編集発行

財団法人 原子力環境整備促進・資金管理センター

〒105-0001 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

ホームページ <http://www.rwmc.or.jp/>