

原環センター トピックス

RADIOACTIVE WASTE MANAGEMENT FUNDING AND RESEARCH CENTER TOPICS

2015.6.NO.114

目 次

センターの活動状況	①
TRU廃棄物地層処分における固化体の機能ーヨウ素129・炭素14の放出挙動を例にー	③

センターの活動状況

I 運営状況

第16回理事会開催

平成27年6月8日開催の第16回理事会において、平成26年度事業報告、平成26年度決算報告、平成27年度再処理等資金管理業務に関する事業計画及び収支予算の変更等について付議し、それぞれ原案のとおり承認されました。

第12回評議員会（定時）開催

平成27年6月26日開催の第12回評議員会（定時）において、平成26年度事業報告及び決算について報告するとともに、平成27年度再処理等資金管理業務に関する事業計画及び収支予算の変更、任期満了に伴う理事の選任等について付議し、それぞれ原案のとおり承認されました。今回の選任により、次の方が交代され、その他の方は再任されました。

（敬称略）

区 分	退 任 者	新 任 者	新任者所属・役職
理事（常勤）	浦上 学	田中 俊彦	関西電力株式会社 原子力事業本部 原子力技術部門 プラント・保全技術グループ チーフマネジャー
理事（非常勤）	野村 茂雄	大谷 吉邦	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 理事

評議員会後、理事長、専務理事及び常務理事の選定について提案を行い、理事全員の同意の意思表示及び監事全員の異議がない旨の意思表示を得ましたので、6月26日付けをもって高橋彰理事が理事長、古賀洋一理事が専務理事、田中俊彦理事が常務理事に選定されました。

Ⅱ 成果等普及活動の実施状況

平成27年度 第1回原環センターセミナーの開催

最終処分安全評価の入門知識を習得したい技術者・研究者を対象とした、第1回原環センターセミナー「放射性廃棄物最終処分の安全評価の基礎Ⅰ」を以下のとおり開催しました。このセミナーでは、処分の安全評価の全体像を段階的に学ぶ第一歩として。内容をごく基礎的なものに限定して、講義を行いました。講義後の総合討論では、講義への質疑応答を通じて、理解を深めていただきました。

開催日時：平成27年5月27日(水) 10:30～17:45

開催場所：京都大学 東京オフィス 第2、3会議室

講師：公益財団法人原子力安全研究協会

技術顧問 朽山 修 氏

プログラム：

講義1 放射性廃棄物の発生と放射線の健康影響

講義2 放射性廃棄物処分の安全確保の構造

講義3 放射性廃棄物処分の安全評価とセーフティケース

総合討論



平成27年度 第1回原環センター講演会の開催

平成27年度第1回原環センター講演会「研究施設等廃棄物の処分の概要について」を以下のとおり開催しました。我が国の研究開発機関等から発生する研究施設等廃棄物の埋設事業の概要とともに、浅地中トレンチ埋設施設の性能評価や廃棄体確認技術等に係る検討状況についてお話いただきました。

開催日時：平成27年6月19日（金）15:00～17:00

会場：公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター 第1,2会議室

演題：研究施設等廃棄物の処分の概要について

講演者：国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

バックエンド研究開発部門

廃棄物対策・埋設事業統括部

技術主席 坂本 義昭 氏



TRU廃棄物地層処分における固化体の機能 — ヨウ素129・炭素14の放出挙動を例に —

処分材料調査研究プロジェクト 桜木 智史

TRU廃棄物と呼ばれる放射性廃棄物があり、その一部は地層処分される計画である。廃棄物に含まれる放射性物質のうち、とくに、ヨウ素129と炭素14が安全評価において重要とされている。ここでは、上記核種を含む廃棄物（固化体）の安全機能、具体的には核種の放出特性について、現在の考え方や研究開発の状況について紹介する。

【TRU廃棄物の処理・処分と安全評価】

TRU廃棄物とは、核燃料の再処理プロセス等にもなって発生する放射性廃棄物のうち、高レベル放射性廃棄物（ガラス固化体）以外のものをいう。我が国における核燃料の再処理は、使用済燃料を受け入れた後、燃料集合体の切断（せん断）、ウラン燃料の溶解、ウラン・プルトニウムの抽出といった湿式の化学処理を行うことで、ウラン燃料やMOX燃料という製品をつくるのが基本的なプロセスになっている。したがって、再処理の各工程から多種多様な廃棄物が発生することとなる。これらの廃棄物はグループ分けを行い、処理・処分を進めて行く方針である。

	Group 1	Group 2	Group 3	Group 4
概要				
廃棄体イメージ				
特徴	・I-129を含む	・発熱量が比較的大 ・C-14を含む	・硝酸塩を含む	—

図-1 TRU廃棄物の区分（総合資源エネルギー調査会，2006a を一部修正）

図-1にTRU廃棄物の区分を示す。燃料溶解時に放射性ヨウ素（核分裂生成物）を気相中に追い出す工程がある。このオフガス中のヨウ素を吸着処理したもの（銀系の吸着剤であることから廃銀吸着材と呼ばれる）をグループ1としている。また、燃料をせん断・溶解する工程において、燃料の金属残さであるハル・エンドピースと呼ばれる廃棄物が発生する。このハル・エンドピースは比較的大きな発熱があり、放射化生成物である炭素14を多く含む特徴があることからグループ2に区分されている。さらに、廃液系

の廃棄物をグループ3、その他の雑多な廃棄物をグループ4としている。なお、諸外国においてグループ2のハル・エンドピースと同様の廃棄物は発生するが、グループ1に該当するようなヨウ素を主体とする廃棄物は発生しないため、我が国独自の処理・処分方針が求められている。

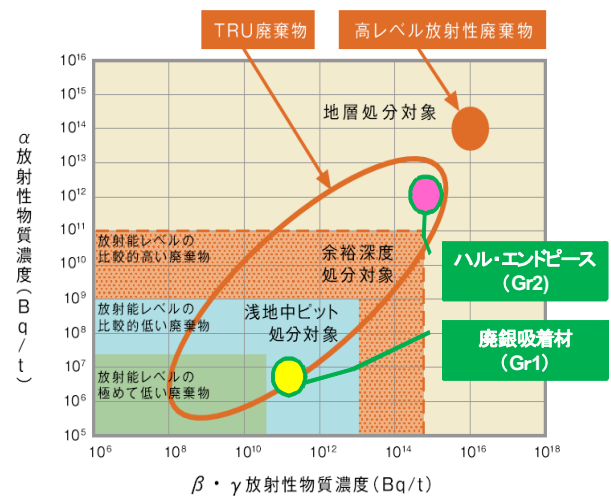


図-2 放射能レベルと廃棄物の区分の概念図
（資源エネルギー庁HPより引用（一部加工））

図-2に廃棄物に含まれるアルファおよびベータ・ガンマ放射性物質の濃度レベルに対する廃棄物の処分区分の概要を示す。浅地中とは文字通り地表面での処分であり既に国内でも実績がある。余裕深度処分とは100メートル程度の比較的深い地中が想定されており、地層処分は地下300メートル以深と決められている。放射能レベルが高くなるにつれて、浅地中処分から余裕深度、地層処分と区分され、高レベル放射性廃棄物は最も放射能レベルが高く地層処分することになる。一方、TRU廃棄物には様々な濃度レベルの廃棄物が存在する。基本的には廃棄物の濃度レベルにあわせて処分区分がされることから、グループ2のハル・エンドピースは地層処分対象となる。しかしながら、グループ1の廃銀吸着材は、放射能レベルは低いものの、後述するように、安全評価上きわめて注意を要する放射性ヨウ素（¹²⁹I）を含むことから、地層処分に区分されている。

TRU廃棄物の地層処分に関する安全性は、電気事業者および当時の核燃料サイクル開発機構から、平成12年にTRU廃棄物処分概念検討書が、引き続き平成17年にTRU廃棄物処分技術検討書（第2次TRUレポート）として検討・報告されている。図-3にTRU廃

棄物の地層処分における安全評価（被ばく線量の解析結果）を示す。ここでは、TRU廃棄物に含まれる核種毎の被ばく線量が示されている。処分開始直後から長期にわたって、グループ1に含まれるヨウ素129による被ばく線量が最も多い。ついで、放射化金属であるハル・エンドピースに含まれる炭素14であり、以下、セレン79やテクネチウム99、塩素36などがつく。これらの核種に共通するのは、半減期が長いことに加え、バリア材への収着等による移行遅延の効果が小さいことが挙げられる。地下水シナリオの安全評価では、基本的に核種がバリア材に吸着されることによる移行の抑制機能が期待されており、その間に核種が減衰すると想定されている。

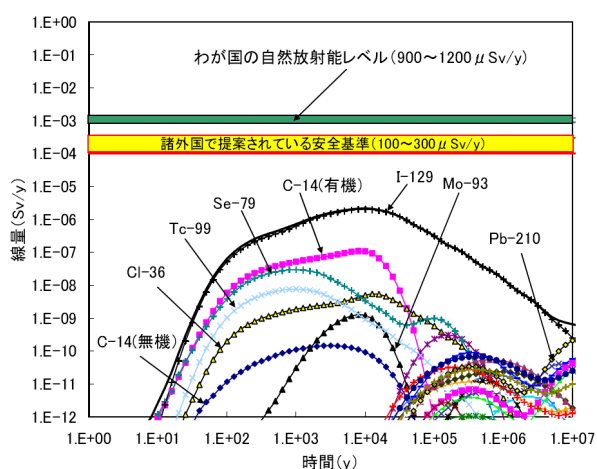


図-3 安全評価の結果（第2次TRUレポートのリファレンス条件）

表-1に第2次TRUレポートで想定されている移行パラメータについて、炭素およびヨウ素とその他の代表的な元素（核種）との比較を示す。まず、溶解度についてヨウ素・炭素は可溶性であり、沈殿効果はない。収着分配係数については、ヨウ素・炭素ともに陰イオン形態が想定されているため、他の元素（陽イオン）に比べて小さい。半減期については炭素14が5,730年と長く、ヨウ素129はさらに1,570万年と極めて長く減衰にはほとんど期待できない。

表-1 核種移行パラメータ（第2次TRUレポートより抜粋）

元素	溶解度 (mol/L)	セメントへの収着分配係数 (m ² /kg)	緩衝材への収着分配係数 (m ² /kg)	母岩への収着分配係数 (m ² /kg)
炭素(有機)	可溶性	0.00025	0	0.0001
ヨウ素	可溶性	0.00025	0	0.0001
ストロンチウム	5 × 10 ⁻³	0.00125	0.001	0.5
アメリカシウム	5 × 10 ⁻¹⁰ ※	0.25 ※	1	5
テクネチウム	1 × 10 ⁻⁶	2.5	1	1

※グループ毎に異なるため、グループ1の値を記載

したがって、このような長寿命かつ易動性の核種に対しては、廃棄体そのものが持つ浸出抑性によって安全性を高めることが効果的である。とくに、グループ1の廃棄体に対しては、第2次TRUレポートではヨウ素は処分後瞬時に溶解・放出されると想定されている。そのため、ヨウ素129による被ばく線量を低減させるための対策として、長期的に安定でありヨウ素閉じ込め性の高い固化体の開発が期待されている。現在、原環センターではアルミナ固化体、BPIガラス固化体、セメント固化体と呼んでいる3つの技術オプションについて開発中であり、それらの詳細を後述する。また、放射化金属やそれに含まれる炭素14の安全評価の信頼性向上を目的として、金属廃棄物の評価も行っている。以下、ヨウ素129および炭素14に対する研究開発について、固化体の特性の観点から報告する。

【代替技術としてのヨウ素（¹²⁹I）固化体の開発】

まず、TRU廃棄物グループ1の廃棄体について、第2次TRUレポートで想定されている処理・処分の概要を図-4に示す。再処理システムのオフガス系に設置されているヨウ素吸着材は、アルミナを基材とし、硝酸銀（AgNO₃）が表面に添着されている数ミリ径の球状のものである。硝酸銀との化学反応によってヨウ素は主にヨウ化銀（AgI）として捕集される（図中の黄色への変色に相当）。処分に適するよう固化するために、一般的なポルトランドセメントと混練固化することが考えられている。ヨウ化銀は一般の酸化性の環境において非常に安定な化合物であるため、廃銀吸着材の取り扱いや保管の観点からの安全性は高い。しかしながら、地下300メートル以深の処分環境は還元雰囲気であるため、ヨウ化銀は化学的に不安定になり、金属銀とヨウ化物イオンに分解すると想定されている。



図-4 廃銀吸着材（模擬試料）とセメント混練固化（リファレンス固化体）の概要

代替技術としての固化体に求められる機能としては、低浸出による核種（ヨウ素）の閉じ込め性の向

上が挙げられる。図-5に閉じ込め性による安全性向上の考え方を示す。例えばオーバーパックのような概念で容器による閉じ込め性を持たせたとして、超長半減期のヨウ素は減衰が期待できず、被ばく線量のピークの位置が時間的にシフトするだけであり、最大線量はほとんど変化しない。したがって、完全な閉じ込め性ではなく、ヨウ素浸出を長期的に抑性することにより、被ばく線量のピークを下げることで効果的であると考えられる。

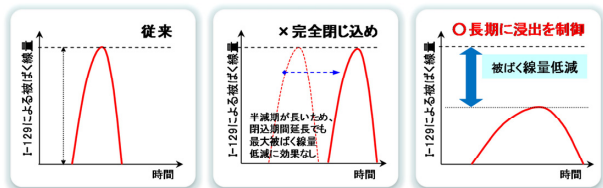


図-5 ヨウ素129を含む廃棄物の安全性向上の考え方

図-6に、ヨウ素129による最大被ばく線量とヨウ素抑性機能（固化体からのヨウ素放出期間）について示す。横軸はいわゆる固化体の寿命である。なお、高レベル放射性廃棄物であるガラス固化体の寿命は7万年と考えられている。固化体寿命（放出期間）が1万年程度では、最大被ばく線量はほとんど低下しないが、10万年程度で被ばく線量は大きく低下することがわかる。したがって、固化体の性能の考え方として、10万年の低浸出性（固化体寿命）を一つの開発の目標としている。以下、3つの技術について説明する。

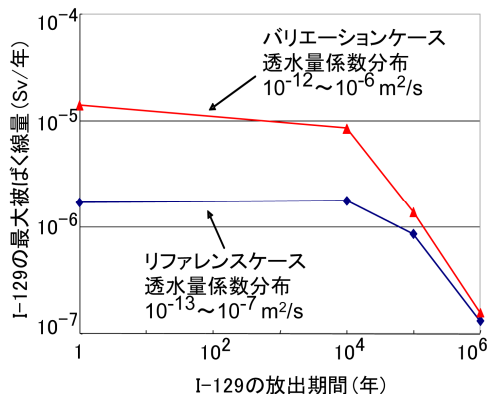


図-6 ヨウ素129による被ばく線量と固化体からのヨウ素放出期間との関係(第2次TRUレポートの安全評価に基づく計算結果)

アルミナ固化技術

アルミナ固化体とは、廃銀吸着材の基材であるアルミナそのものを廃棄物の材料（マトリクス）として用い、ヨウ素をAgIとしてアルミナマトリクス中に閉じ込める固化体である。図-7にアルミナ固化体の製作プロセスの概要を示す。廃銀吸着材を金属製の

カプセルに封入する。カプセル内は脱気した後、高温等圧プレス装置(HIP)により、約1200℃、175MPaにて加圧処理することで、緻密な固化体を得ることができる。この処理プロセスは非常に単純であるとともに、廃銀吸着材からヨウ素を離脱させる工程がなく、二次廃棄物の発生が最小限に抑えられるメリットを有する。一方、高温高压のHIP装置を必要とするので、原子力施設の安全の観点からの慎重な運用や安全対策が欠かせない。

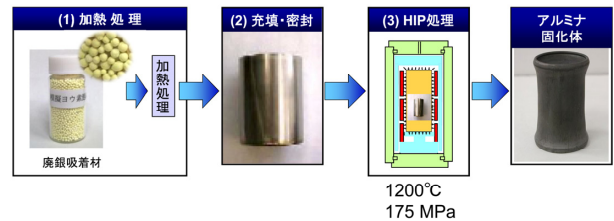


図-7 アルミナ固化体の処理方法の概要

図-8に作製した固化体の断面観察を示す。HIP処理によって、廃銀吸着材は基材であるアルミナの結晶化（コランダム）・成長によって緻密化し、数ミクロンのコランダム結晶粒間にAgIが物理的に閉じ込められている。したがって、固化体が地下水と接触しても、AgIは容易に溶解せず、コランダムマトリクスに保護されることになる。言い換えると、コランダムが溶解することでAgIは地下水と接触する。一般的な性質としてコランダムは頑健な物質である。試験の一例として、アルミナ固化体を繰り返し模擬地下水に接触させると、わずかながらヨウ素の液中への放出が測定される。その時、コランダムマトリクスの溶解・変質も観察されるが、固化体の表面から50ミクロン程度の範囲にとどまっている。別途、コランダムの溶解速度を用いて固化体の寿命を計算評価したところ、少なくとも10年以上の期間においてコランダムマトリクスは溶解せず残存する解析結果が得られている。

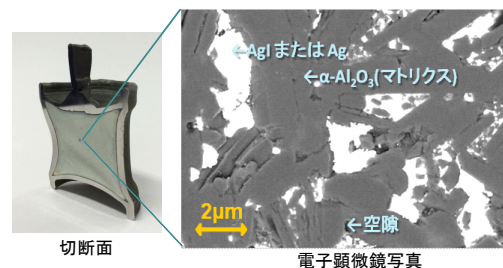


図-8 アルミナ固化体の試料断面観察

BPIガラス固化技術

BPIガラスとは、ホウ素と鉛を主成分とし、低温で熔融固化することで、ヨウ素の揮発を抑えることを

可能にしたガラス固化技術である。図-9に処理プロセスを示すように、廃銀吸着材からヨウ素を脱離させた後、ガラスフリットを加えて熔融させる。ヨウ素の含有率は重量割合で2%である。

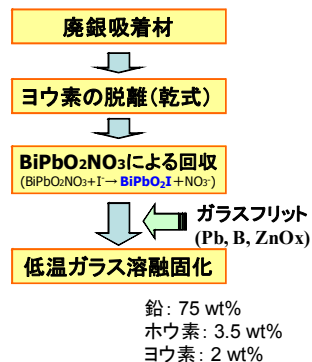


図-9 BPIガラスの固化処理方法の概要

固化技術の開発として、これまで数10 mlの実験室サイズから、スケールアップとして2.5 L（実際の固化体サイズの1/10）の固化ガラスを作製できることを示している。また、X線CTで非破壊観察を行い、2.5 Lの固化ガラスでも割れやボイド（気泡）がなく均質であることを確認している。さらに、分子・原子レベルでのガラスの化学構造についても最新の分析技術および解析手法を用いて検討している。

BPIガラスの浸漬試験の結果から、ヨウ素の放出はガラスマトリクスの溶解と調和的であることや表面変質層の性状について確認されている。図-10に表面変質層の観察結果を示す。変質層は鉛系の鉱物で構成されており、経時的に厚みが増すことが確認されている。BPIガラスの溶解速度は、高レベルのガラス固化体と遜色ないデータが得られている。

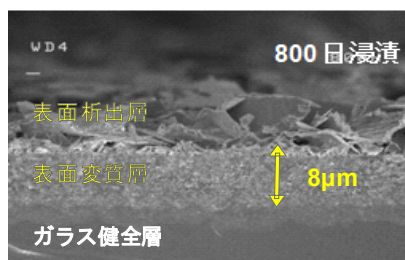


図-10 BPIガラス固化体の浸漬後の表面層の観察結果

また、BPIガラスの化学構造を用いて、分子・原子レベルでガラスが溶解する様子について、モンテカルロ法によってシミュレーションを試みている。図-11のシミュレーションの一例を示す。健全なガラスの前方には変質層があり、その先端から溶解が進んでいくことが再現されている。この変質層の厚さの経時変化を計算すると、10万年以上の固化体寿命を

見込むことができる。

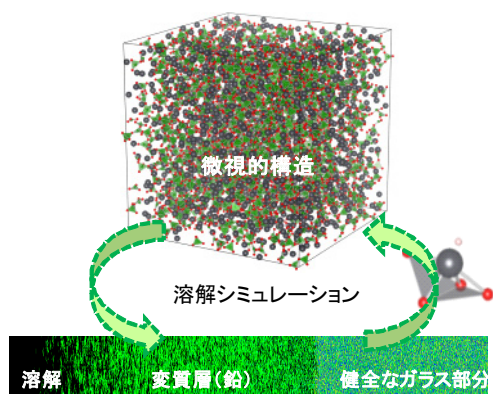


図-11 BPIガラスの化学構造と溶解シミュレーションの概要

セメント固化体

ヨウ素は一般的に鉱物への収着性が低い、セメント中に含まれるエトリンサイト等の水和鉱物に対しては、とくに、ヨウ素酸イオンの状態では比較的分配係数が高いことが知られている。図-12にエトリンサイトへのヨウ素取り込みの概念を示す。エトリンサイトのカラム構造中の陰イオン交換サイトに存在する硫酸イオンとの交換によってヨウ素酸イオンが取り込まれると考えられる。セメント固化体は、カルシウムアルミネートセメントに石膏を加えることで、一般のポルトランドセメントに比べてエトリンサイトの含有量を高めた固化体である。したがって、固化体が地下水と接触したのち、エトリンサイトなどの鉱物が溶解することでヨウ素が放出されるというモデルで評価することができる。

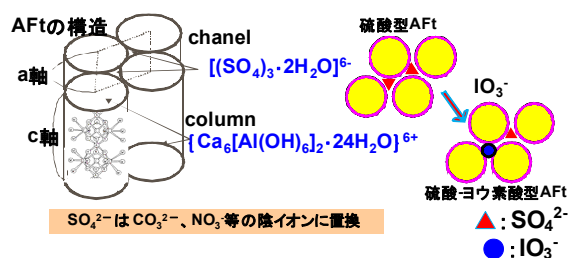


図-12 セメント固化体におけるヨウ素固定化の概念（AFtとはセメントを構成するエトリンサイトと呼ばれる水和鉱物）

図-13に液交換によるセメント固化体の溶解試験の結果を示す。溶解前においては、ヨウ素の80%程度はエトリンサイトに固定されており、一部がモノサルフェートやハイドロガーネットにも分配されている。液固比が300程度からエトリンサイトの溶解が進行し、ヨウ素は液相に分配されていくことがわかる。液固比が1400になると、すべてのヨウ素が放出

されている。この液固比を処分施設における地下水との接触時間に換算すると、10年以上にわたってセメント固化体中にエトリンサイトおよびヨウ素が残存するという見込みが得られている。

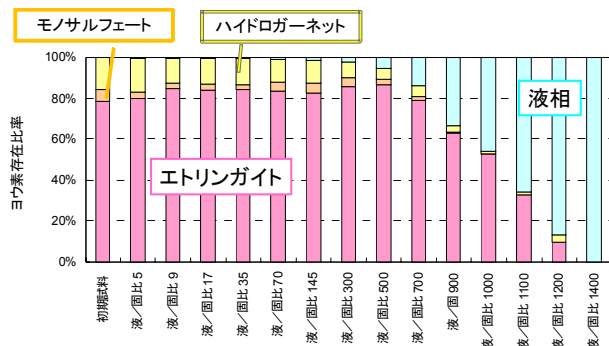


図-13 液交換試験によるセメント固化体の溶解および鉱物組成の変化

【放射化金属廃棄物（ハル・エンドピース）の評価】

使用済み燃料の再処理によって発生するハル・エンドピースは、燃料溶解後の燃料集合体の残さであり、ジルカロイやステンレス鋼などの放射化金属廃棄物である。図-14にハル・エンドピースの処理処分の概要を示す。炭素14などの放射化生成物は金属中の不純物から生成するため、金属材料中に均一に分布していると想定されることから、処分後、地下水による金属の腐食とともに放出されると考えられている。第2次TRUレポートでは、金属材料の種類を問わず、 $0.02 \mu\text{m/y}$ という腐食速度によって金属の寿命が評価されている。図-15に各金属材料中の炭素14含有量（放射能インベントリ）の評価結果と、第2次TRUレポートで評価されている寿命を示す。インベントリとしては燃料被覆管の材料であるジルカロイがもっとも高く、次にステンレス鋼である。ハル酸化膜とは燃料被覆管表面に付随している炉内環境で生成した腐食生成物（ジルコニア）である。ハル酸化膜中の炭素14はインベントリが小さいが、金属材料とは異なり瞬時放出と想定されている。



図-14 ハル・エンドピースの処理・処分の概要

基本的に地層処分の環境は還元的であるため、金属は非常に腐食されづらい環境である。このような環境では水が酸化剤として働き、水素の発生をともなう腐食がわずかながら発生する。原環センターで

は、炭素14の放出について、金属の特性に応じた腐食速度として精度高くデータを取得・評価することを試みている。図-16に金属腐食の一例として、ガス発生量から求めたステンレス鋼の腐食速度の長期データを示す。初期の腐食速度は約2年程度で経時的に低下していき、それ以後、6年以上にわたってほぼ一定の腐食速度である。第2次TRUレポートでは初期の腐食速度から評価しており、少し保守性も加味した腐食速度であるが、長期データと比較すると、およそ50倍の差があることがわかる。第2次TRUレポートに準じて評価すると、金属としては10年以上の固化体寿命があることになる。なお、ジルカロイについても同程度の腐食速度データが得られている。

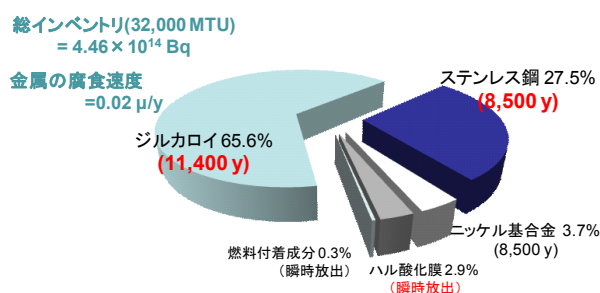


図-15 ハル・エンドピースに含まれるC-14のインベントリ評価結果（Sakuragi et al. 2013を一部加工。括弧内は金属廃棄物の寿命を示す。）

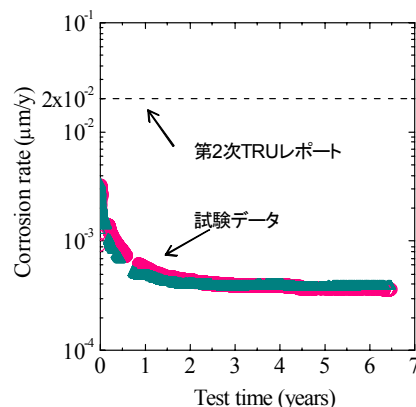


図-16 ステンレス鋼の腐食速度データ（Sakuragi et al. 2015を一部加工）

以上のように、実験室で得られるデータに基づくと、ヨウ素固化体でも同様であるが、金属固化体の寿命としてはかなり長いと予測できる。その一方で、地層処分の特性を考えると、10万年、100万年といった超長期の評価の説明性や信頼性が課題となる。そのため、腐食メカニズムの理解や長期評価のためのモデルの構築が必要となる。

例えば、ジルカロイについては、原子炉内での腐

食挙動の数十年来のデータが蓄積されている。これらは260℃から400℃の温度条件における知見であり腐食速度の温度依存性が顕著に示されている。したがって、地層処分 (TRU) の温度条件 (30℃から80℃程度) に対して、腐食の加速的な情報を示している可能性がある。図-17にHillnerがまとめた炉内温度での腐食挙動とモデルの概要を示す。ここでは腐食の速度論や腐食を制限・律速している物質移動モデルが論じられている。したがって、このような炉内での腐食メカニズム・モデルの処分環境への適用性について、原環センターでは、長期評価のためのアプローチの一つとして現在評価を進めている。

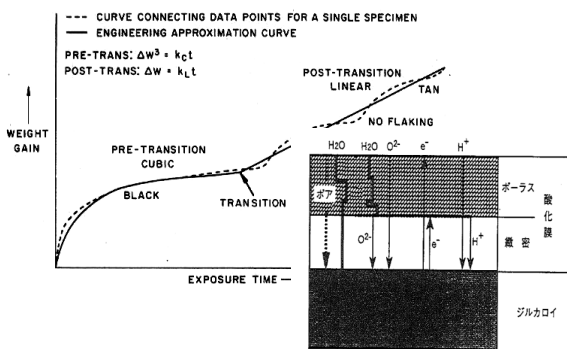


図 8.2.47 ジルカロイの水側腐食における物質移動⁽⁸⁾

図-17 原子炉内 (260~400℃) のジルカロイの腐食挙動 (左) (Hillner 1977) と腐食モデル (右) (原子力安全研究協会2008)

最後に、ヨウ素129の対策とは異なり、炭素14の課題は国際的にも重要性が認知されている。現在、欧州の共同研究のひとつとしてCAST (CARbon 14 Source Term) プロジェクトが2013年から2018年までの予定で進んでいる。このプロジェクトには30以上の機関が参画しており (図-18)、金属や黒鉛など炭素14を含む廃棄物の安全な処分にに向けた研究開発を推進している。原環センターもCASTプロジェクトに参画しており、成果の共有や評価の共通的な認識、さらには人材育成にも期待して、炭素14の課題に取り組んでいる。

【まとめ】

本報告では、ヨウ素129や炭素14というTRU廃棄物の地層処分において安全評価上の重要な核種に着目し、各廃棄物 (固化体) の物理化学的に特性に応じた評価を行っている現状を紹介した。どの固化体についても、実験データに基づけば核種の浸出速度は非常に遅く、処分の安全性を脅かすものとは考えづらいが、求められる超長期的な評価の説明性や信頼

性の確保については、メカニズムの理解やモデル化などの課題が残っている。一方、処分の安全性は固化体のみで担保されるものではなく、最終的には処分システム全体として、多重バリアシステムや深層防護性の観点から考える必要がある。現段階ではこのような固化体とシステム全体のバリア機能の関連について十分に議論されていないが、安全評価における新たな知見や処分事業の進展にあわせて検討すべき課題である。最後に、TRU廃棄物の安全な処理・処分を着実に実施していくためには、被ばく線量の低減目標の達成は当然ながら、安全性の向上を事業が続く限り継続的に図っていく必要がある。原環センターとしては関係機関や専門家の協力を得ながら、ヨウ素129や炭素14の課題に対して今後も検討を進めていく予定である。

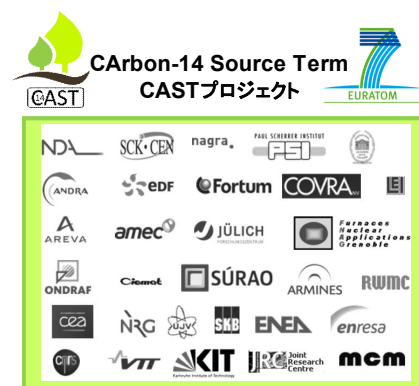


図-18 CASTプロジェクトの参加機関

参考文献

電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構、“TRU廃棄物処分概念検討書技術検討書-第1次TRU廃棄物処分研究開発取りまとめ-” (2000).

電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構、“TRU廃棄物処分技術検討書-第2次TRU廃棄物処分研究開発取りまとめ-” (2005).

T. Sakuragi et al., Proc. ICEM2013, September 8-13, 2013, Brussels, Belgium (2013).

T. Sakuragi et al., Progress in Nuclear Energy Special issue for Scientific Basis of Nuclear Fuel Cycle II 2014 (to be published).

E. Hillner, Corrosion of Zirconium-Base Alloys-An Overview, Zirconium in the Nuclear Industry, 3rd Int. Symp., ASTM STP 633, 211-235 (1977).

原子力安全研究協会：軽水炉燃料のふるまい(2008).

編集発行

公益財団法人 原子力環境整備促進・資金管理センター

〒104-0052 東京都中央区月島1丁目15番7号 (パシフィックマークス月島8階)

TEL 03-3534-4511 (代表) FAX 03-3534-4567

ホームページ <http://www.rwmc.or.jp/>