

J A E R I - M

88-021

地層処分における放射性核種の閉じ込め
に関する基礎研究

1988年2月

中村 治人

日本原 子 力 研 究 所
Japan Atomic Energy Research Institute

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokaimura,
Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1988

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 (株)高野高速印刷

地層処分における放射性核種の閉じ込めに関する基礎研究

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

中村 治人

(1988年1月25日受理)

高レベル放射性廃棄物の地層処分の長期安全性は人工バリア及び天然バリアの多重バリアによって確保される。約1,000年後の放射能の放射能の閉じ込めは地下深部の地下水の動かない地層に頼る。そこで放射性核種の閉じ込めについての原研の研究内容、特に、放射性核種の鉱物化現象の研究について述べる。

その主な項目は、ガラス固化体浸出後の表面変質層での沈着、岩石中の放射性核種の移行、地下碎帯周辺岩盤への拡散・沈着及び海洋堆積物中の環状物質への沈着である。

本稿はウェスト・フォーラム'87での著者の講演内容をまとめたものである。

東海研究所：〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方字白根2-4

Basic Studies on Confinement of Radionuclides by
Geological Disposal

Haruto NAKAMURA

Department of Environmental Safety Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received January 25, 1988)

The long-term safety of geological disposal of high-level radioactive waste shall be based on the multi-barrier concept. The confinement of radionuclide will depend on the geological formation of water non-moving zone in deep underground. Researches on confinement of nuclides in the geological formation, especially on mineralization, in JAERI are described.

Main items are; depositon in altered surface layer of vitrified waste form after leaching, nuclides migration in rock, diffusion and deposition into rock matrix around fracture zone and deposition on reducing materials in sediment of seabed.

Keywords: Geological Disposal, High-level Waste, Deffusion, Deposition
Radioactive Waste

This report is summary of the presentation at Waste Foram '87.

目 次

1. まえがき.....	1
2. 閉じ込めの可能性と移行モデル.....	1
3. ガラス固化体からの放射性核種の浸出と岩石中での拡散	2
4. 亀裂周辺岩盤への拡散と沈着.....	3
5. 酸化還元反応を伴う沈着.....	3
6. 地下実験施設を使った核種移行実験.....	4
7. まとめ.....	4

Contents

1. Introduction	1
2. Possibility of confinement and migration model	1
3. Leaching of nuclides from vitrified waste and diffusion into rock matrix	2
4. Diffusion and Deposition into rock matrix around fracture	3
5. Deposition with oxidation-reduction reaction	3
6. Migration test in underground research laboratory	4
7. Conclusion.....	4

1. まえがき

高レベル放射性廃棄物の地層処分には非常に長い期間にわたる無管理、無監視状態での安全確保が求められる。廃棄物中の放射性核種の放射能量は時間の経過とともに減少するので、地層処分システムを構成する各バリアに求められる性能も時間の経過とともに変わることになる。従って、長い期間全体を同じに考えるのではなく、いくつかの期間に分けて考えられている。その分け方には色々な意見があるが、表1に示す分け方でほぼコンセンサスが得られているように思われる。

地層処分システムにおけるバリアの構成は、図1に示すようであり、約1,000年間は人工バリアで閉じ込め、その後の約10,000年間については、容器の信頼性が失われるので、ガラス固化体と天然バリアに頼ることになる。実質上難透水層の範囲内から放射性物質が漏洩しないようにする。その後は多少の地殻変動があったり、地表からの侵食があっても廃棄物による環境への影響がないよう充分な厚さの地層の下に処分する。

ここでは、容器の信頼性が失われた後の約10,000年間の放射性物質の閉じ込めについての原研の研究の概要を述べる。

2. 閉じ込めの可能性と移行モデル

原研では安全性評価のデータの収集整理を行っている。地下水の組成は、金属材料の腐食や核種移行への影響が大きいことから、深地層の地下水の組成に関するデータの収集に重点を置いている。図2は地下水中に含まれる塩分濃度のデータの例であり^{1) 2)}、深さとの関係で整理したものである。地表近くでは地殻が緩み、水頭圧勾配が大きいことから、水が動きやすい。深くなるに従い岩の自重で岩盤が締まり、地形に起因する水頭圧勾配がほとんどなくなるため水が動かなくなる。そのため昔の水が地表水と混ざり合うことなく、長い間閉じ込められた状態にある。図2の例は海水が閉じ込められている地域の例である。我が国には岩塩鉱床は存在しないが、海水が非常に長い期間にわたって閉じ込められている地域はまれではない。このような場所の水の存在量は極めて少なく、岩盤に湿気を与えている程度であり、トンネルを掘削した場合は換気で簡単に乾燥してしまう程度である。

地層による物質の閉じ込めにとって重要なのは地層全体の深さではなく、閉じ込めに必要な難透水層の厚さ、即ち、図2に示すグラフで濃度勾配のある層の厚さである。この厚さは地質や地形による。図に示す例のように、軟岩である堆積岩よりも割れ目の発達しやすい花こう岩のような硬岩の方が水が動きやすく、濃度勾配が緩やかとなり、閉じ込めに厚い層が必要である。地層による閉じ込め機能の研究は、この水の動きにくい隔離層内の物質の動きを明らかにすることである。

地層処分における放射性核種の移行機構については、多くの報告がなされているが、原研では図3に示す機構に着目して研究を進めている。ガラス固化体から浸出した放射性核種は緩衝材（粘土）中に含まれる水を媒体として拡散する。次に、岩石の結晶粒界の水の中を拡散し広がっていく。岩盤には亀裂が入っている。その部分は非常にわずかな隙間ではあるが水が動き易い部分である。そのわずかな水の動きに乗って放射性核種は動く。岩石そのもの及び亀裂に詰まった鉱物に放射性核種は吸着

1. まえがき

高レベル放射性廃棄物の地層処分には非常に長い期間にわたる無管理、無監視状態での安全確保が求められる。廃棄物中の放射性核種の放射能量は時間の経過とともに減少するので、地層処分システムを構成する各バリアに求められる性能も時間の経過とともに変わることになる。従って、長い期間全体を同じに考えるのではなく、いくつかの期間に分けて考えられている。その分け方には色々な意見があるが、表1に示す分け方でほぼコンセンサスが得られているように思われる。

地層処分システムにおけるバリアの構成は、図1に示すようであり、約1,000年間は人工バリアで閉じ込め、その後の約10,000年間については、容器の信頼性が失われるので、ガラス固化体と天然バリアに頼ることになる。実質上難透水層の範囲内から放射性物質が漏洩しないようにする。その後は多少の地殻変動があったり、地表からの侵食があっても廃棄物による環境への影響がないよう充分な厚さの地層の下に処分する。

ここでは、容器の信頼性が失われた後の約10,000年間の放射性物質の閉じ込めについての原研の研究の概要を述べる。

2. 閉じ込めの可能性と移行モデル

原研では安全性評価のデータの収集整理を行っている。地下水の組成は、金属材料の腐食や核種移行への影響が大きいことから、深地層の地下水の組成に関するデータの収集に重点を置いている。図2は地下水中に含まれる塩分濃度のデータの例であり、^{1) 2)}深さとの関係で整理したものである。地表近くでは地殻が緩み、水頭圧勾配が大きいことから、水が動きやすい。深くなるに従い岩の自重で岩盤が締まり、地形に起因する水頭圧勾配がほとんどなくなるため水が動かなくなる。そのため昔の水が地表水と混ざり合うことなく、長い間閉じ込められた状態にある。図2の例は海水が閉じ込められている地域の例である。我が国には岩塩鉱床は存在しないが、海水が非常に長い期間にわたって閉じ込められている地域はまれではない。このような場所の水の存在量は極めて少なく、岩盤に湿気を与えており程度であり、トンネルを掘削した場合は換気で簡単に乾燥してしまう程度である。

地層による物質の閉じ込めにとって重要なのは地層全体の深さではなく、閉じ込めに必要な難透水層の厚さ、即ち、図2に示すグラフで濃度勾配のある層の厚さである。この厚さは地質や地形による。図に示す例のように、軟岩である堆積岩よりも割れ目の発達しやすい花こう岩のような硬岩の方が水が動きやすく、濃度勾配が緩やかとなり、閉じ込めに厚い層が必要である。地層による閉じ込め機能の研究は、この水の動きにくい隔離層での物質の動きを明らかにすることである。

地層処分における放射性核種の移行機構については、多くの報告がなされているが、原研では図3に示す機構に着目して研究を進めている。ガラス固化体から浸出した放射性核種は緩衝材（粘土）中に含まれる水を媒体として拡散する。次に、岩石の結晶粒界の水の中を拡散し広がっていく。岩盤には亀裂が入っている。その部分は非常にわずかな隙間ではあるが水が動き易い部分である。そのわずかな水の動きに乗って放射性核種は動く。岩石そのもの及び亀裂に詰まった鉱物に放射性核種は吸着

され、また、亀裂から岩盤中の間隙水に拡散する。間隙水が一種の貯蔵タンクの役割をし、水の動きより放射性核種の動きは遅れる。このメカニズムは動く状態にある放射性核種について言えることである。地層には物質を固定し動きを止める機能がある。そのメカニズムとしては、沈着、鉱物の結晶化による岩石との一体化等のメカニズムが考えられる。これら鉱物化の現象は岩盤中のみでなく、ガラス固化体の変質層及び地層の透水層内でもおきる。鉱物化現象は放射性核種を天然資源の鉱床のように半永久的に閉じ込める機能であるので安全性評価上重要なメカニズムである。原研では拡散係数及び分配係数の測定、地下水の移動解析等、放射性核種の動き及びその遅れ（移行遅延機構）の研究を行うと共に、鉱物化現象に代表される放射性核種を地層中に止め置く機構（移行阻止機構）の研究を行っている。

3. ガラス固化体からの放射性核種の浸出と岩石中での拡散

模擬ガラス固化体を100°Cの蒸留水に200日さらした後のガラス固化体の表面には写真1に示す³⁾変質層が生じた。この層を構成する物質を明らかにするため、透過型分析電子顕微鏡で元素分析を行った。その結果を図4に模式的に示す。変質層に殆ど残らない元素、一部残る元素、殆ど変質層に残る元素の3つの元素群に分類できる。

第1群はNaに代表される元素群で、海水の主成分を形成している元素群とほぼ同じである。Csも変質層には残らず、この群に属する。しかし、Csはアルカリ金属元素でも特有の元素で、粘土に良く吸着され緩衝材や亀裂に存在する粘土鉱物により移行が阻止される。

第2群はBa、Si等の元素である。これらの元素はゆっくりとした反応速度で難溶性鉱物に変わり、その期間に変わった分だけ変質層に残ると考えられる。事実変質層に粘土鉱物が形成されていることを確認した。

第3群はFe、RE(希土類元素)等中性溶液中で沈殿しやすい元素群である。

変質層に残る第2第3群の元素は地球の表層土壤に含まれている元素群とほぼ同じである。ガラス固化体を地殻に見立てるに岩石が風化して表土ができるように、ガラス固化体は水の作用で、変質層を形成し土壤を形成するのとほぼ同じ元素が残留する。これは岩石の主成分がケイ素であり、ガラス固化体の主成分もケイ素であることを考えると納得のいく現象である。

割れ目のない岩盤部での放射性核種の挙動を調べるために、図5に示す実験をWASTEFで実施した。花こう岩の試料に孔を開け、Pu-238を多量に含むガラス固化体を入れ、4ヶ月間水に漬けた後、試料孔からそれぞれ異なった距離にある孔の水を採り放射能を測定した。⁴⁾数組の実験結果を図5に示す。大部分のPuはガラスから浸出しても岩石の表面に付着して試料孔内に留まる。しかし、一部(約1/100)のPuは非吸着性核種(酸化状態での^{95m}Tu)と同じように拡散する。拡散しやすいPuの存在状態についての研究は今後の課題である。この種の課題、即ち、放射性核種の溶存状態に関する研究は世界の化学者が関心をもっている重要な研究テーマである。

され、また、亀裂から岩盤中の間隙水に拡散する。間隙水が一種の貯蔵タンクの役割をし、水の動きより放射性核種の動きは遅れる。このメカニズムは動く状態にある放射性核種について言えることである。地層には物質を固定し動きを止める機能がある。そのメカニズムとしては、沈着、鉱物の結晶化による岩石との一体化等のメカニズムが考えられる。これら鉱物化の現象は岩盤中のみでなく、ガラス固化体の変質層及び地層の透水層内でもおきる。鉱物化現象は放射性核種を天然資源の鉱床のように半永久的に閉じ込める機能であるので安全性評価上重要なメカニズムである。原研では拡散係数及び分配係数の測定、地下水の移動解析等、放射性核種の動き及びその遅れ（移行遅延機構）の研究を行うと共に、鉱物化現象に代表される放射性核種を地層中に止め置く機構（移行阻止機構）の研究を行っている。

3. ガラス固化体からの放射性核種の浸出と岩石中の拡散

模擬ガラス固化体を100°Cの蒸留水に200日さらした後のガラス固化体の表面には写真1に示す³⁾変質層が生じた。この層を構成する物質を明らかにするため、透過型分析電子顕微鏡で元素分析を行った。その結果を図4に模式的に示す。変質層に殆ど残らない元素、一部残る元素、殆ど変質層に残る元素の3つの元素群に分類できる。

第1群はNaに代表される元素群で、海水の主成分を形成している元素群と同じである。Csも変質層には残らず、この群に属する。しかし、Csはアルカリ金属元素でも特有の元素で、粘土に良く吸着され緩衝材や亀裂に存在する粘土鉱物により移行が阻止される。

第2群はBa、Si等の元素である。これらの元素はゆっくりとした反応速度で難溶性鉱物に変わり、その期間に変わった分だけ変質層に残ると考えられる。事実変質層に粘土鉱物が形成されていることを確認した。

第3群はFe、RE(希土類元素)等中性溶液中で沈殿しやすい元素群である。

変質層に残る第2第3群の元素は地球の表層土壤に含まれている元素群と同じである。ガラス固化体を地殻に見立てると岩石が風化して表土ができるように、ガラス固化体は水の作用で、変質層を形成し土壤を形成するのとほぼ同じ元素が残留する。これは岩石の主成分がケイ素であり、ガラス固化体の主成分もケイ素であることを考えると納得のいく現象である。

割れ目のない岩盤部での放射性核種の挙動を調べるために、図5に示す実験をWASTEFで実施した。花こう岩の試料に孔を開け、Pu-238を多量に含むガラス固化体を入れ、4ヶ月間水に漬けた後、⁴⁾試料孔からそれぞれ異なる距離にある孔の水を取り放射能を測定した。数組の実験結果を図5に示す。大部分のPuはガラスから浸出しても岩石の表面に付着して試料孔内に留まる。しかし、一部(約1/100)のPuは非吸着性核種(酸化状態での^{95m}Tu)と同じように拡散する。拡散しやすいPuの存在状態についての研究は今後の課題である。この種の課題、即ち、放射性核種の溶存状態に関する研究は世界の化学者が関心をもっている重要な研究テーマである。

4. 龜裂周辺岩盤への拡散と沈着

地下空洞内で花こう岩岩盤の亀裂の周辺が赤色に変色している場合（写真2）をよく見掛ける。これは鉄が沈着しているためと言われている。亀裂周辺に物質が浸透し固定される機構を明らかにするため、どこにでも見られるこの現象を探りあげ研究を進めた。岩石コア（写真3）から観察すると、花こう岩の構成鉱物のうち長石の部分が染まっていることがわかる。更に、透過型分析電子顕微鏡で赤色長石の部分を拡大してみると（写真4）約 $0.5\text{ }\mu\text{m}$ ⁵⁾の非常に小さな含鉱物が検出された。なお、種々の面から分析を行わなければ確定的なことは言えないが、酸化鉄の状態で結晶化しているものと考えられる。このように細かな部分で溶解度の低い結晶が生成すれば、Feは地下水に溶け出しにくくなる。即ち、このように固定された放射性核種は安全性評価をするさい、移動し得る成分とは別に考えてよい。

5. 酸化還元反応を伴う沈着

放射性核種の地層中での固定機構は放射性核種の化学的性質によって異なる。原研で研究対象としている主な固定機構（移行阻止反応）を表2に示す。Cs-137は粘土鉱物の結晶構造に組込まれ易いイオン半径を持ち粘土鉱物に取り込まれる。Sr-90も粘土鉱物等のケイ酸塩鉱物を形成し易い。Am-241, Pu-239等の元素は加水分解して沈澱し、結晶化して更に溶解度の低い鉱物になる。

ここで着目したいのは原子価が変わることにより沈澱し易い性質に変わる元素である。Np-237, Tc-99, U-238がこの仲間である。いずれも地層処分の安全性評価上重要な核種である。自然界でこの現象で重要なのはウラン鉱床の生成である。図6はオーストラリアのAlligator Riverのウラン鉱床の断面図である。堆積岩層の還元性地層でウランが還元されて鉱床が出来ている。ウラン鉱床の生成機構、鉱床からの娘核種の移行から地層処分の長期安全性評価のデータを得るために、今年度より正式にOECD/NEA主催のナチュラルアナグロに関する国際共同研究がこの鉱床を使って開始された。原研もこの計画に参加し、鉱物化現象に関する研究を行う計画である。合わせて鉱床周辺のウラン系列核種の同位体比を測定することになり、地層中の長期の核種移行に関する実証的データを得る予定である。

原研は深海底堆積物中への海洋底処分についても基礎研究を実施しており、国際共同実験に積極的に参加している。その実験の一つとして北大西洋の堆積についての採取実験及びペネトレータ貫入試験（ESOEP計画）に参加し、種々の放射性核種の吸着特性に関する研究を行った。Tc-95mの吸着実験から黒色物質を含む堆積物が強い吸着性を示すことを確かめた。写真5はその堆積物の顕微鏡写真である。この堆積物は炭酸塩を主成分とする堆積物であるので海洋生物死骸を多く含んでいる。黒色物質は珪藻の死骸の一部が変質したものであることが形状から推察された。主成分は黄鉄鉱であり有機物質も含まれていることが分析結果から確認された。地層中で、ある種のバクテリアにより黄鉄鉱化が進行する現象はよく知らされており、バクテリアの活動と密接な関係があると推定された。通常の黄鉄鉱へのTc-95mの吸着実験を行ったり、有機物を調べる等吸着機構を解明するための研

4. 龜裂周辺岩盤への拡散と沈着

地下空洞内で花こう岩岩盤の亀裂の周辺が赤色に変色している場合（写真2）をよく見掛ける。これは鉄が沈着しているためと言われている。亀裂周辺に物質が浸透し固定される機構を明らかにするため、どこにでも見られるこの現象を探りあげ研究を進めた。岩石コア（写真3）から観察すると、花こう岩の構成鉱物のうち長石の部分が染まっていることがわかる。更に、透過型分析電子顕微鏡で赤色長石の部分を拡大してみると（写真4）約 $0.5\text{ }\mu\text{m}$ ⁵⁾の非常に小さな含鉱物が検出された。なお、種々の面から分析を行わなければ確定的なことは言えないが、酸化鉄の状態で結晶化しているものと考えられる。このように細かな部分で溶解度の低い結晶が生成すれば、Feは地下水に溶け出しにくくなる。即ち、このように固定された放射性核種は安全性評価をするさい、移動し得る成分とは別に考えてよい。

5. 酸化還元反応を伴う沈着

放射性核種の地層中での固定機構は放射性核種の化学的性質によって異なる。原研で研究対象としている主な固定機構（移行阻止反応）を表2に示す。Cs-137は粘土鉱物の結晶構造に組込まれ易いイオン半径を持ち粘土鉱物に取り込まれる。Sr-90も粘土鉱物等のケイ酸塩鉱物を形成し易い。Am-241, Pu-239等の元素は加水分解して沈澱し、結晶化して更に溶解度の低い鉱物になる。

ここで着目したいのは原子価が変わることにより沈澱し易い性質に変わる元素である。Np-237, Tc-99, U-238がこの仲間である。いずれも地層処分の安全性評価上重要な核種である。自然界でこの現象で重要なのはウラン鉱床の生成である。図6はオーストラリアのAlligator Riverのウラン鉱床の断面図である。堆積岩層の還元性地層でウランが還元されて鉱床が出来ている。ウラン鉱床の生成機構、鉱床からの娘核種の移行から地層処分の長期安全性評価のデータを得るために、今年度より正式にOECD/NEA主催のナチュラルアナグロに関する国際共同研究がこの鉱床を使って開始された。原研もこの計画に参加し、鉱物化現象に関する研究を行う計画である。合わせて鉱床周辺のウラン系列核種の同位体比を測定することになり、地層中の長期の核種移行に関する実証的データを得る予定である。

原研は深海底堆積物中への海洋底処分についても基礎研究を実施しており、国際共同実験に積極的に参加している。その実験の一つとして北大西洋の堆積についての採取実験及びペネトレータ貫入試験（ESOEP計画）に参加し、種々の放射性核種の吸着特性に関する研究を行った。Tc-95mの吸着実験から黒色物質を含む堆積物が強い吸着性を示すことを確かめた。写真5はその堆積物の顕微鏡写真である。⁶⁾この堆積物は炭酸塩を主成分とする堆積物であるので海洋生物死骸を多く含んでいる。黒色物質は珪藻の死骸の一部が変質したものであることが形状から推察された。主成分は黄鉄鉱であり有機物質も含まれていることが分析結果から確認された。地層中で、ある種のバクテリアにより黄鉄鉱化が進行する現象はよく知らされており、バクテリアの活動と密接な関係があると推定された。通常の黄鉄鉱へのTc-95mの吸着実験を行ったり、有機物を調べる等吸着機構を解明するための研

究を進めている。現在までの結果では、有機物質がテクネチウムの吸着に預かっている可能性が大きい。地層中のバクテリアの活動は金属の腐食、局所的な環境変化をもたらす原因になる等の観点から多くの研究者の関心をひいている。バクテリアの活動は長期予測が難しいことから、安全性評価の不確定性を少なくするためにはその活動及び影響に関する研究が重要と考えている。

6. 地下実験施設を使った核種移行実験

地層中の放射性核種の固定機構や溶存状態は地下水の性質と密接な関係がある。深地層では酸素の供給がなく還元環境となっている場合が多く、地下水を採取して空気に接触すると酸化状態に変わってしまう。また、温度が変われば物質の溶解度が変わり、地下水中の溶存状態に変化をもたらす。これらの影響を避けるため、深地層に存在するままの状態の地下水を使って実験することが必要である。原研では、カナダのAECLと協定を結び、Whiteshell の地下実験施設を使って実験を行う準備を進めている。写真6は同実験施設の坑道であり、非常に安定な花こう岩岩盤の地下240mの深さに位置する。坑道内に図7に示す還元性ガスを充填したグローブボックスを設置し、その中に地下水を導き、水の殆ど動いていない場所での拡散挙動を調べる実験、及び、流れのある破碎帯部を対象としたカラム実験を予定している。なお、これら実験と並行して、WASTEFにおいて同種の実験を行うことにより、地下固有の事象による影響を明確にし、それぞれの実験をより効率的に進めることにしている。

7. ま　と　め

地層処分システムでの放射性核種の閉じ込めに関する今後の主要課題は表3に示すものであると考えている。即ち、各バリア内でそれぞれの核種がどれだけ動き得る状態にあるかを明確にするための放射性核種の固定機構の研究、動き得る状態にある核種の動く速さを予測するための、透水係数、拡散係数、吸着係数等の移行評価に用いるデータの精度を高めること、及び、天然物であり長期であることにより避け難い不確実性を補うための多重バリアシステムについて総合的な安全裕度を明確にすることの3点である。これらの課題の解決に向けて今後とも鋭意研究を進める予定である。

究を進めている。現在までの結果では、有機物質がテクネチウムの吸着に預かっている可能性が大きい。地層中のバクテリアの活動は金属の腐食、局所的な環境変化をもたらす原因になる等の観点から多くの研究者の関心をひいている。バクテリアの活動は長期予測が難しいことから、安全性評価の不確定性を少なくするためにはその活動及び影響に関する研究が重要と考えている。

6. 地下実験施設を使った核種移行実験

地層中の放射性核種の固定機構や溶存状態は地下水の性質と密接な関係がある。深地層では酸素の供給がなく還元環境となっている場合が多く、地下水を採取して空気に接触すると酸化状態に変わってしまう。また、温度が変われば物質の溶解度が変わり、地下水中の溶存状態に変化をもたらす。これらの影響を避けるため、深地層に存在するままの状態の地下水を使って実験することが必要である。原研では、カナダのAECLと協定を結び、Whiteshell の地下実験施設を使って実験を行う準備を進めている。写真6は同実験施設の坑道であり、非常に安定な花こう岩岩盤の地下240mの深さに位置する。坑道内に図7に示す還元性ガスを充填したグローブボックスを設置し、その中に地下水を導き、水の殆ど動いていない場所での拡散挙動を調べる実験、及び、流れのある破碎帯部を対象としたカラム実験を予定している。なお、これら実験と並行して、WASTEFにおいて同種の実験を行うことにより、地下固有の事象による影響を明確にし、それぞれの実験をより効率的に進めることにしている。

7. ま　　と　　め

地層処分システムでの放射性核種の閉じ込めに関する今後の主要課題は表3に示すものであると考えている。即ち、各バリア内でそれぞれの核種がどれだけ動き得る状態にあるかを明確にするための放射性核種の固定機構の研究、動き得る状態にある核種の動く速さを予測するための、透水係数、拡散係数、吸着係数等の移行評価に用いるデータの精度を高めること、及び、天然物であり長期であることにより避け難い不確実性を補うための多重バリアシステムについて総合的な安全裕度を明確にすることの3点である。これらの課題の解決に向けて今後とも鋭意研究を進める予定である。

究を進めている。現在までの結果では、有機物質がテクネチウムの吸着に預かっている可能性が大きい。地層中のバクテリアの活動は金属の腐食、局所的な環境変化をもたらす原因になる等の観点から多くの研究者の関心をひいている。バクテリアの活動は長期予測が難しいことから、安全性評価の不確定性を少なくするためにはその活動及び影響に関する研究が重要と考えている。

6. 地下実験施設を使った核種移行実験

地層中の放射性核種の固定機構や溶存状態は地下水の性質と密接な関係がある。深地層では酸素の供給がなく還元環境となっている場合が多く、地下水を採取して空気に接触すると酸化状態に変わってしまう。また、温度が変われば物質の溶解度が変わり、地下水中の溶存状態に変化をもたらす。これらの影響を避けるため、深地層に存在するままの状態の地下水を使って実験することが必要である。原研では、カナダのAECLと協定を結び、Whiteshell の地下実験施設を使って実験を行う準備を進めている。写真6は同実験施設の坑道であり、非常に安定な花こう岩岩盤の地下240mの深さに位置する。坑道内に図7に示す還元性ガスを充填したグローブボックスを設置し、その中に地下水を導き、水の殆ど動いていない場所での拡散挙動を調べる実験、及び、流れのある破碎帯部を対象としたカラム実験を予定している。なお、これら実験と並行して、WASTEFにおいて同種の実験を行うことにより、地下固有の事象による影響を明確にし、それぞれの実験をより効率的に進めることにしている。

7. ま　　と　　め

地層処分システムでの放射性核種の閉じ込めに関する今後の主要課題は表3に示すものであると考えている。即ち、各バリア内でそれぞれの核種がどれだけ動き得る状態にあるかを明確にするための放射性核種の固定機構の研究、動き得る状態にある核種の動く速さを予測するための、透水係数、拡散係数、吸着係数等の移行評価に用いるデータの精度を高めること、及び、天然物であり長期であることにより避け難い不確実性を補うための多重バリアシステムについて総合的な安全裕度を明確にすることの3点である。これらの課題の解決に向けて今後とも鋭意研究を進める予定である。

参 考 文 献

- 1) S.K. Frape, et al ; Geochim. Cosmochim. Acta 48, 1617~1627 (1984)
- 2) 新鉱開発本部; 炭鉱技術 昭和49年10月号1~6
- 3) T. Murakami,,et al ; Nucl. Technol. 67, 419~428 (1984)
- 4) K. Shimooka ; JAERI-M 86-131 102~103 (1986)
- 5) S. Nakashima and H. Nakamura ; Nat. Anal. Rad. Waste Disp. Symp. Proc. Vol 1 (1987)
- 6) S. Nakashima, et al ; OECD /NEA ESOPE Project Report in press (1987)

表1 長期間の安全性評価の考え方

1. 主な核分裂生成物(Sr-90, Cs-137)が減衰するまでの期間(約1,000年)
主に人工バリアの性能を評価する
2. 自然環境が大きく変化しないと考えられる期間(約10,000年)
主に超ウラン元素を対象として天然バリアの性能を評価する
3. 超長期(約10,000年以上)
環境に影響を及ぼすと考えられる事象の発生確率を定性的に評価する

表2 主要核種の移行阻止反応

鉱物との反応	Cs-137、Sr-90
加水分解反応	Am-241、Pu-239
有機物質等による還元反応	Np-237、Tc-99 U-238

表3 今後の課題

1. 地層中の放射性核種の固定機構等の解明
2. 安全性評価に用いるデータの精度の向上
3. 安全裕度の明確化

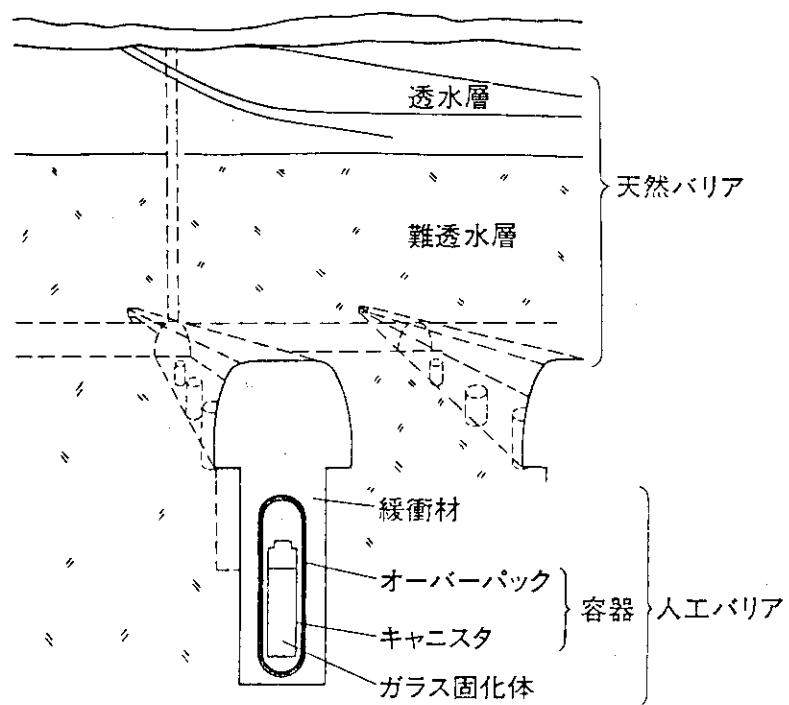


図1 地層処分の多重バリアの構成

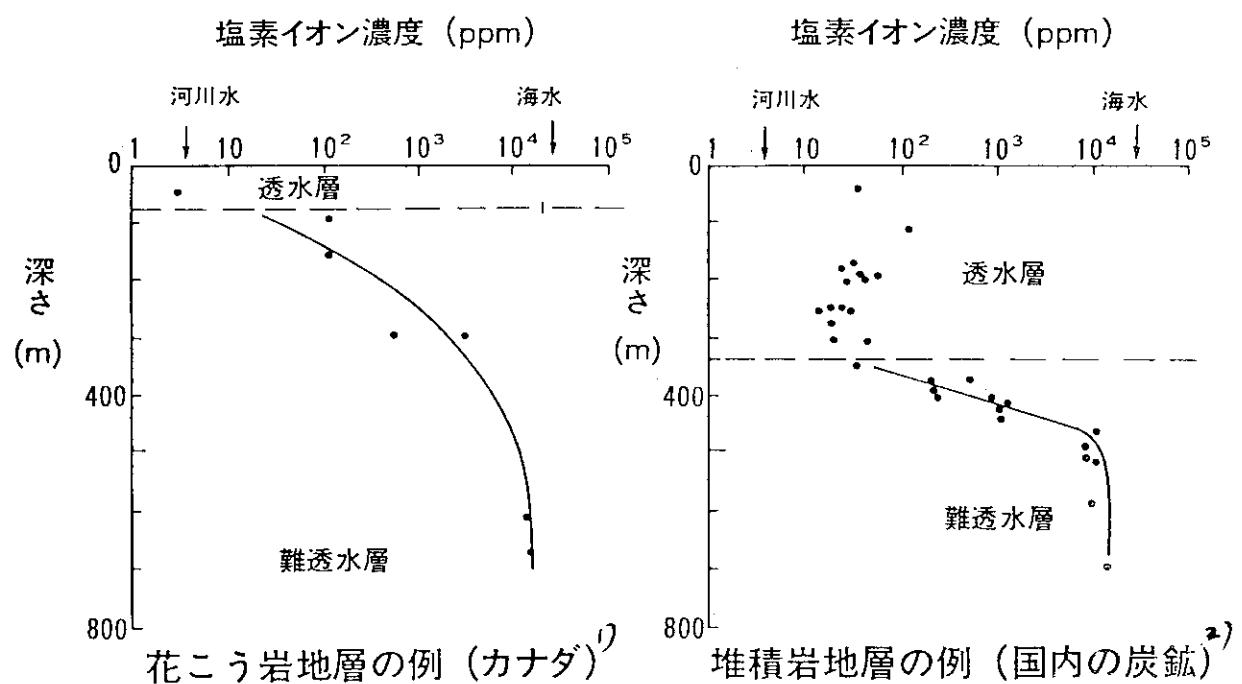


図2 地層による塩水の閉込め状況

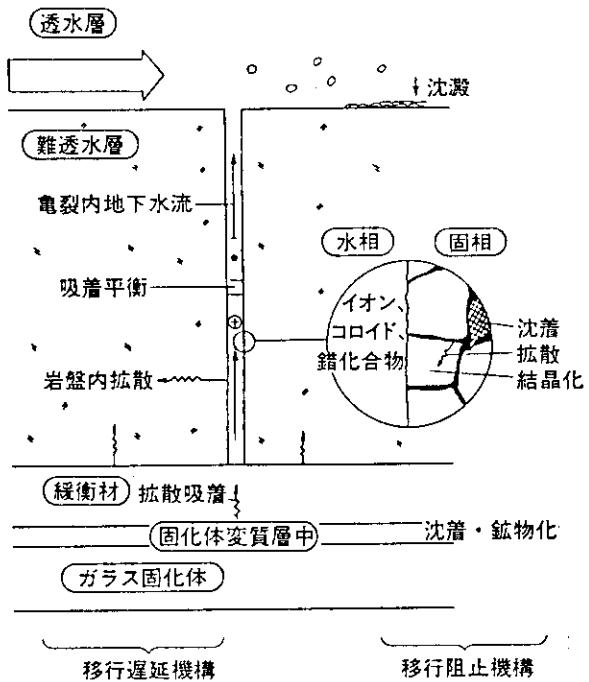


図3 放射性核種の移行機構

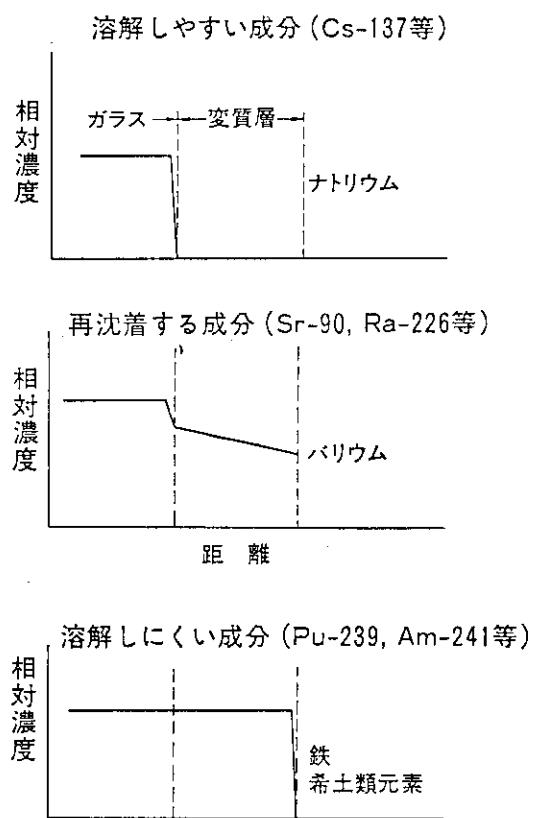


図4 ガラス固化体変質層からの浸出挙動

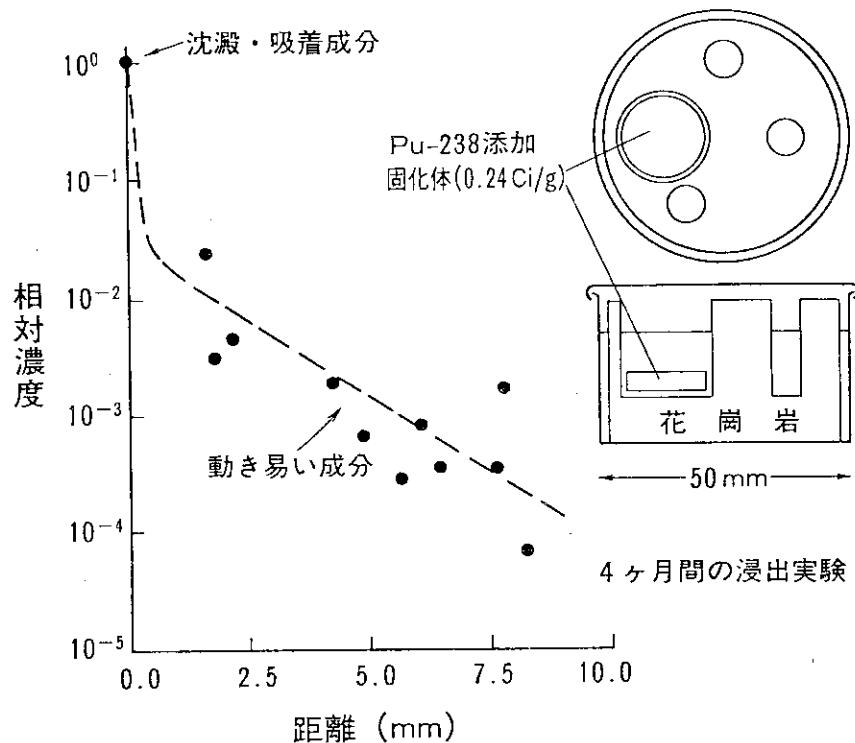


図5 ガラス固化体から浸出したPuの岩石中での拡散

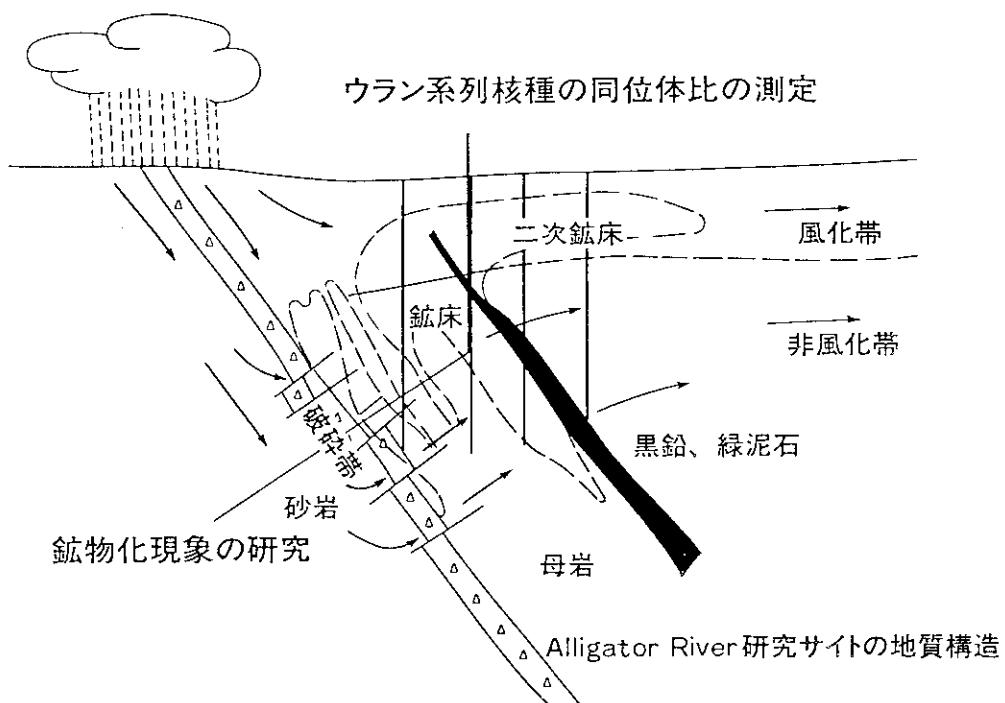


図6 ウラン鉱床における核種移行の研究

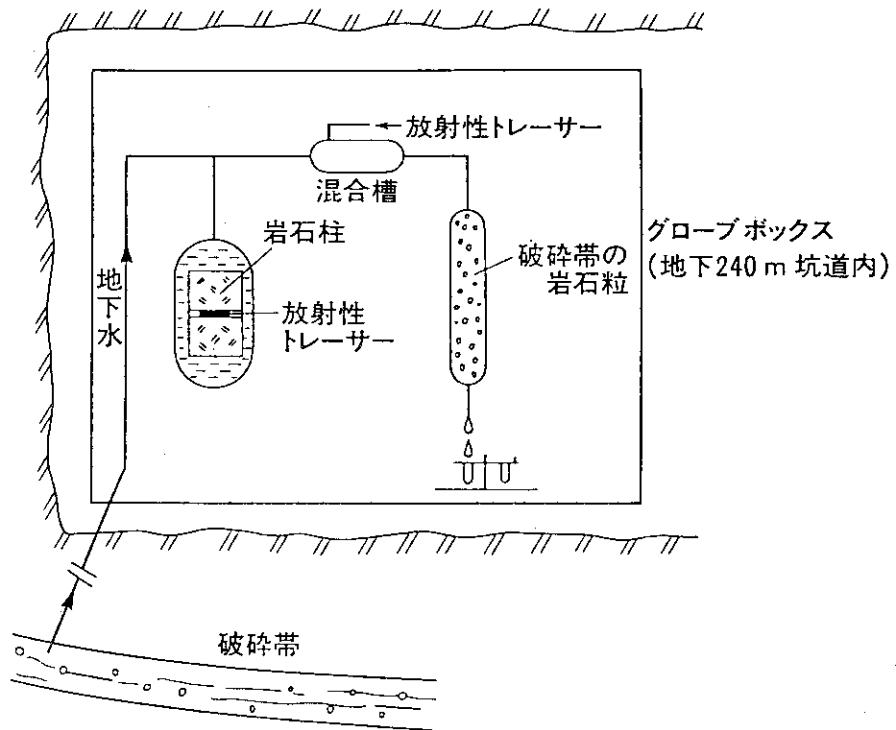


図7 カナダにおける岩石中核種移行実験

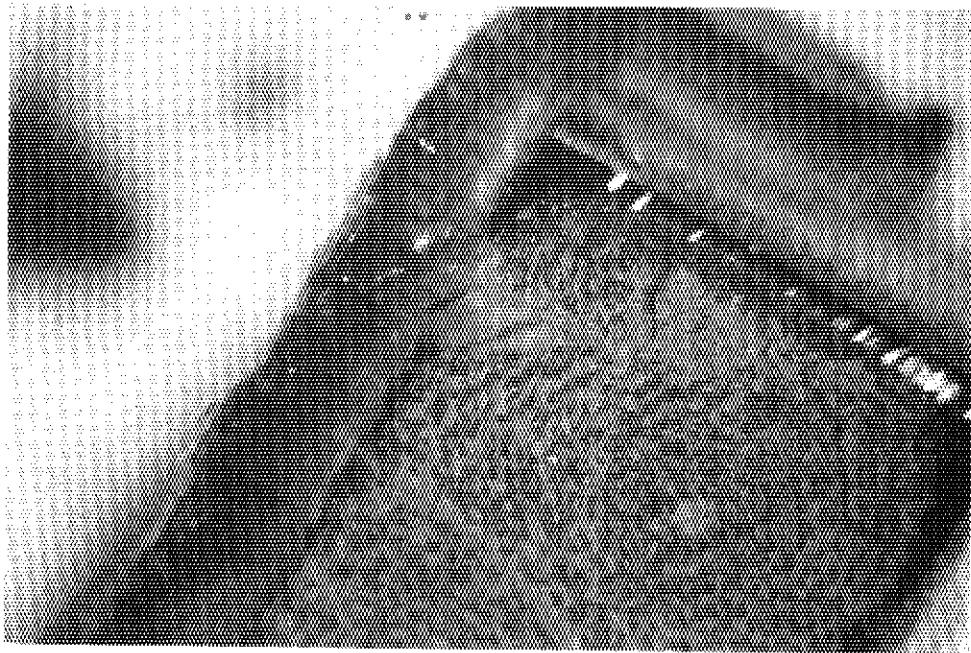


写真 1 ガラス固化体浸出後の変質層



写真 2 花崗岩亀裂周辺の変色状況

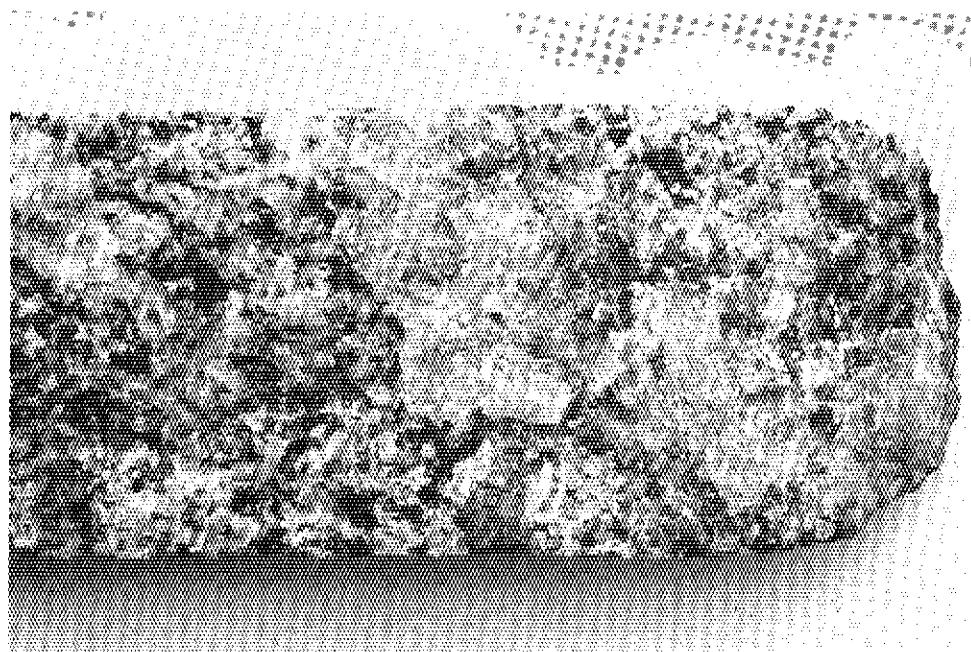


写真3 変色部のコア試料



写真4 岩石中の沈着結晶化の例

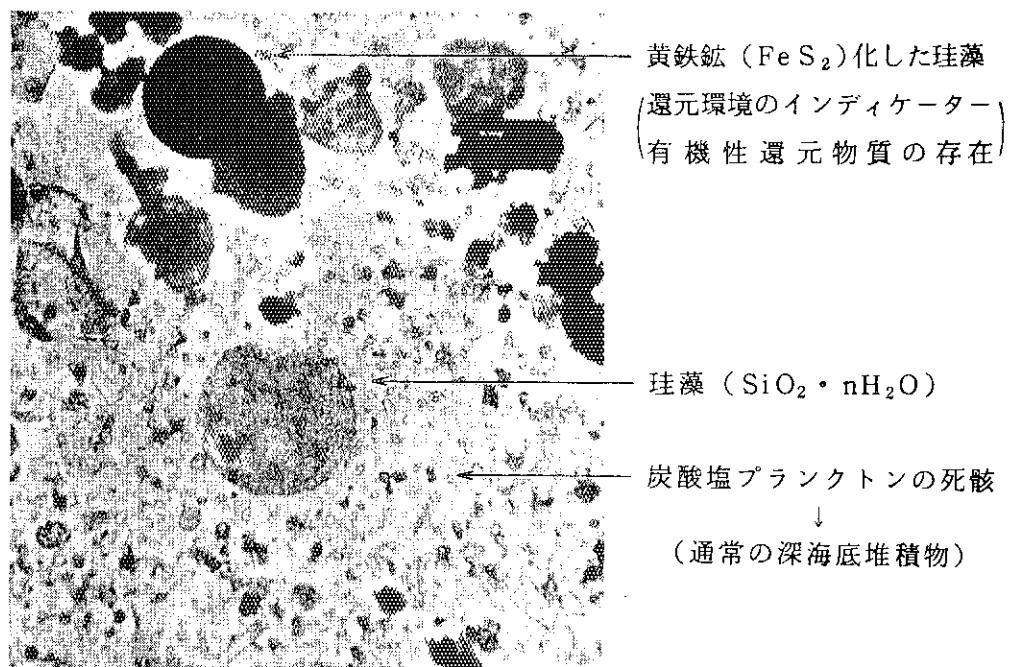


写真5 海洋底堆積物の還元性有機物質

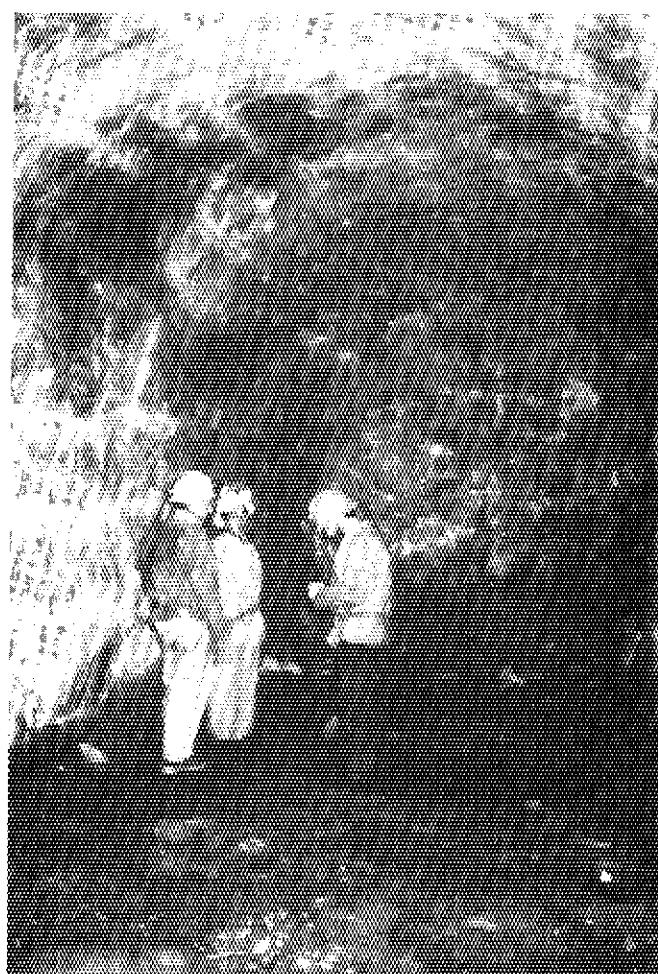


写真6 カナダの地下試験空洞