

放射性廃棄物処分場周辺における カルシウムシリケート水和物生成による 核種閉じ込め効果

平成29年5月12日
日本保全学会 東北・北海道支部
第9回総会 若手による発表

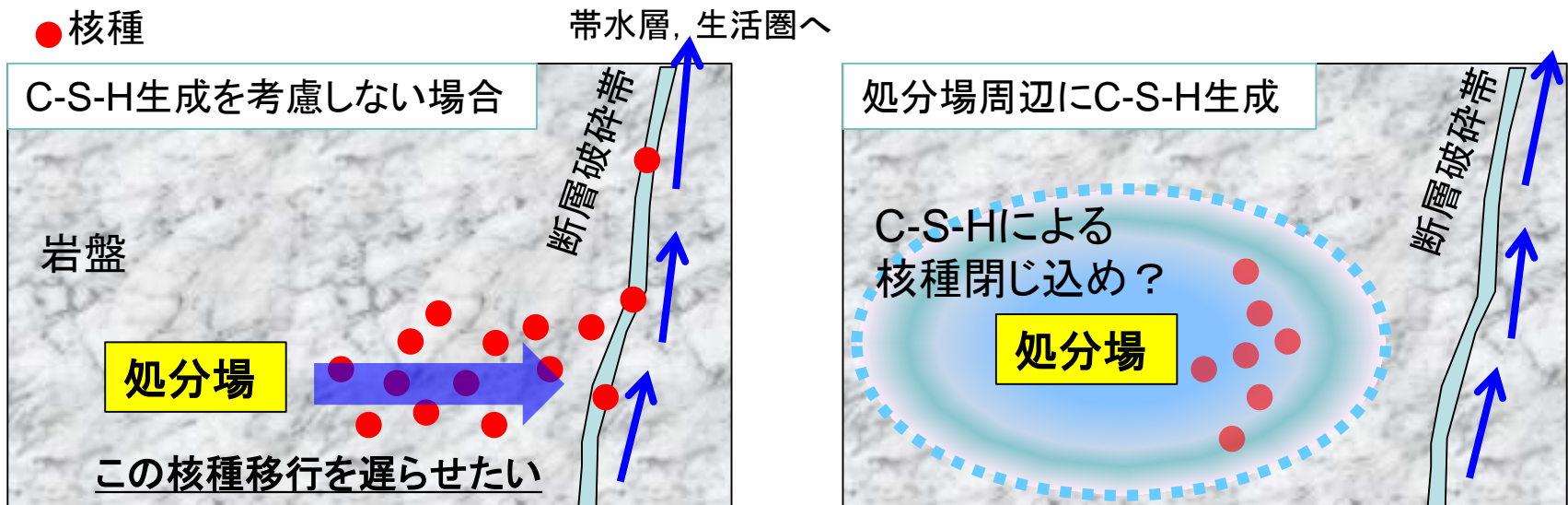
東北大学大学院工学研究科
量子エネルギー工学専攻
原子力地質工学分野

千田 太詩

発表概要

- 放射性廃棄物処分場周辺における高pH環境.
- カルシウムシリケート水和物(C-S-H)について.
- C-S-Hに期待する核種閉じ込め効果.
- C-S-Hへの核種収着, 流路閉塞研究例.

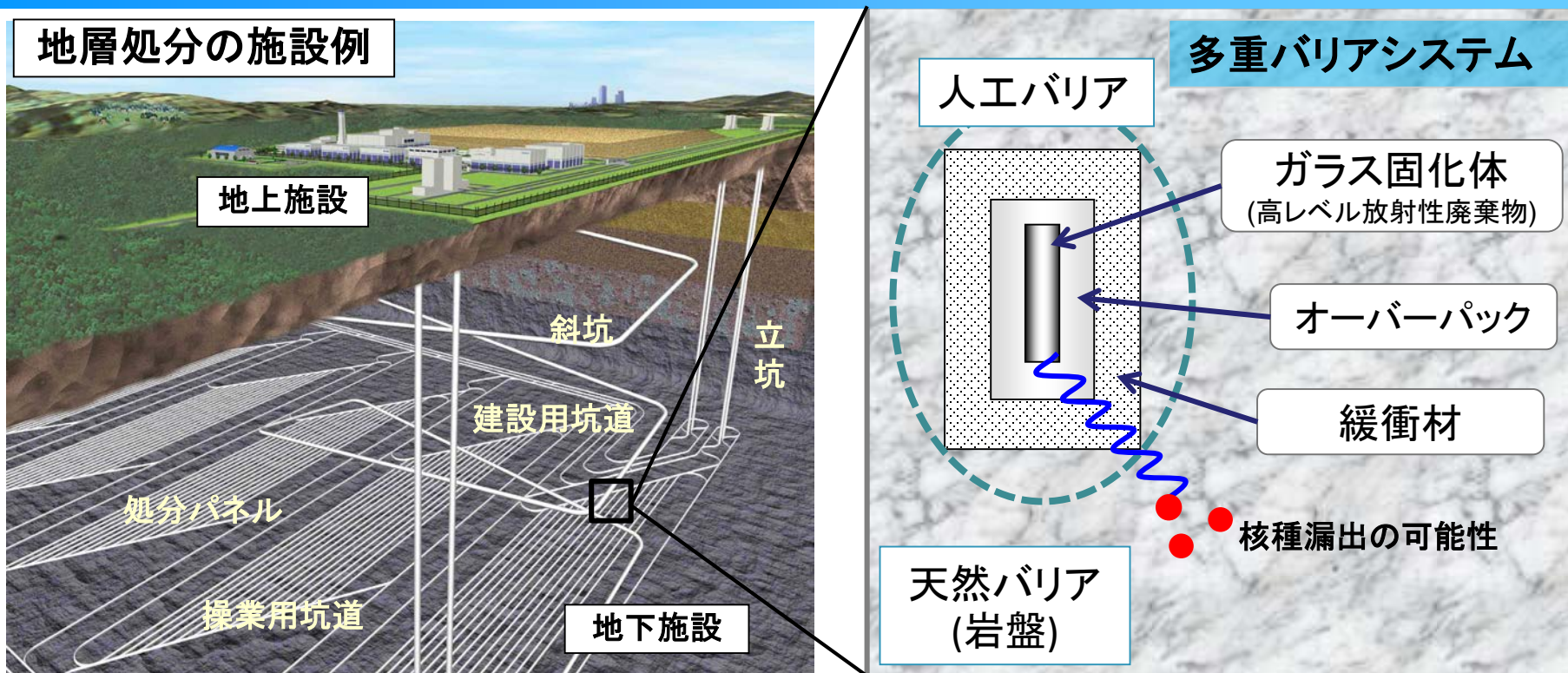
廃棄体から核種が流出しても, それが自然に閉じられるバリア概念.
C-S-Hによる核種閉じ込め機能発現のメカニズム解明を目指す.



I-129: 半減期1570万年
Cs-135: 半減期230万年

〈処分場からの核種移行イメージ〉

1. 放射性廃棄物処分：地層処分の場合



<仕様の一例> (JNC, 1999)

地上施設

- 敷地面積: 1,000,000 m²

ガラス固化体
約4万本想定

地下施設

- 深度: 1000 m, 大きさ(平面): 約3 km × 約2 km
- 立坑: 6本; 斜坑: 1本
- 坑道延長(立坑, 斜坑除く): 約250 km
- 総掘削量(立坑, 斜坑除く): 約630万m³
- 立坑+斜坑の延長距離: 約20 km
- 立坑+斜坑の掘削量: 約60万m³

放射性廃棄物処分の実施が不可欠。

- 多重バリアシステムによる放射性核種の閉じ込めを狙う。
→人工バリアの耐久性には不確実性もある。
- 処分施設はセメント系材料を多量に使用する構造物。
→岩盤や地下水など周辺環境に影響。
- 例えば青函トンネルでは、100 m³の空間(坑道)に40 m³のコンクリートを使用。

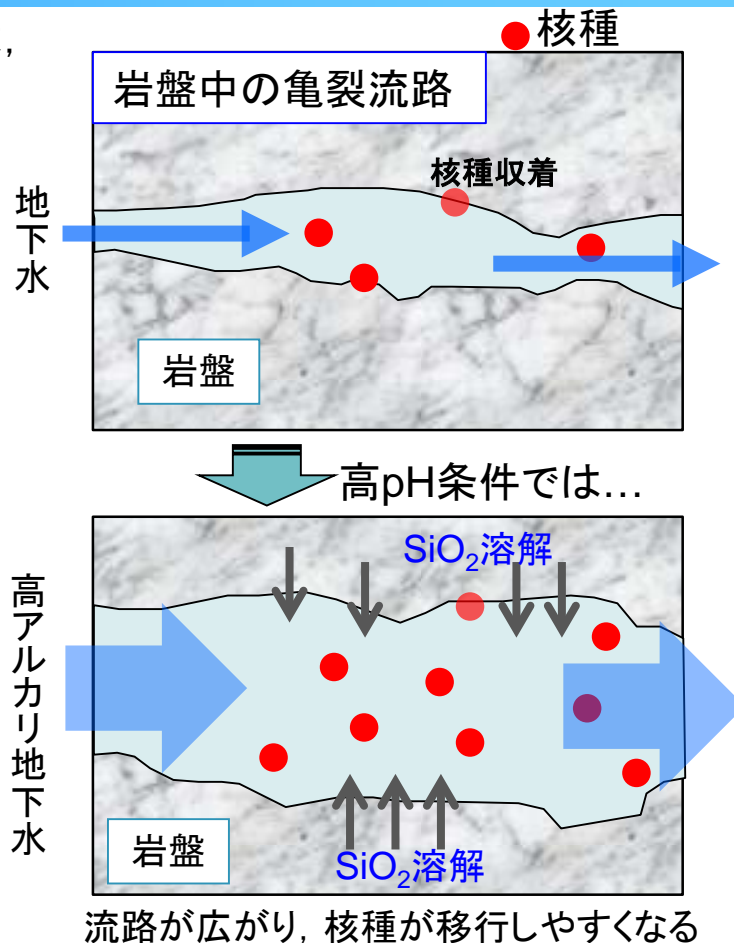
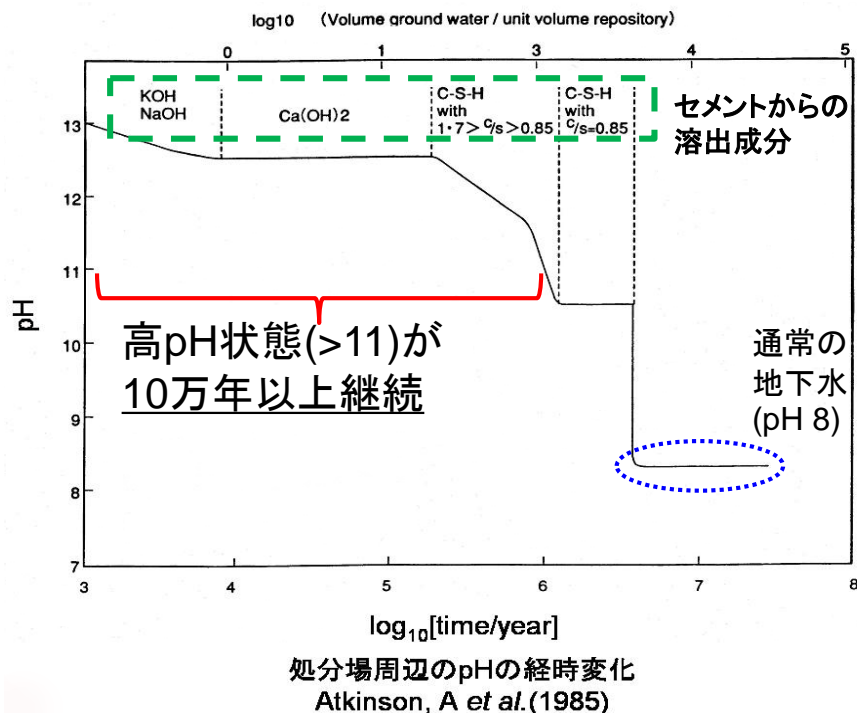
2. セメント系材料に起因する処分環境の変化

従来、セメント系材料に起因した天然バリアの化学的変質は、核種の閉じ込めに対してマイナスの影響と捉えられている。

＜核種閉じ込め性能を損なう要因＞

セメント成分(Na, K, Ca)の溶出による地下水の高pH化

- ・処分場周辺数百m, および10万年以上に亘り高pH化。
- ・高pH地下水による岩石(ケイ酸塩鉱物, SiO_2)の溶解
→流路が広がり, 核種が移行しやすくなる可能性。



＜本研究の着眼点＞

セメント影響は核種閉じ込め性能を損なうのみか？

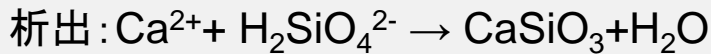
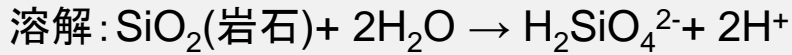
→溶出成分を考慮した周辺環境の変化に着目。

Ca²⁺の溶出やSiO₂溶解に伴う副次的な生成物

3. カルシウムシリケート水和物

カルシウムシリケート水和物 Calcium-Silicate-Hydrate (C-S-H)

- セメント系材料の主成分.
- CaOとSiO₂, H₂Oからなる. 比率は様々.
- 高pH条件下において生成, 安定化.
- 処分場周辺では, **セメント由来のCa²⁺**と, 岩石より溶出する**ケイ酸(H₄SiO₄)**から生成.



C-S-H

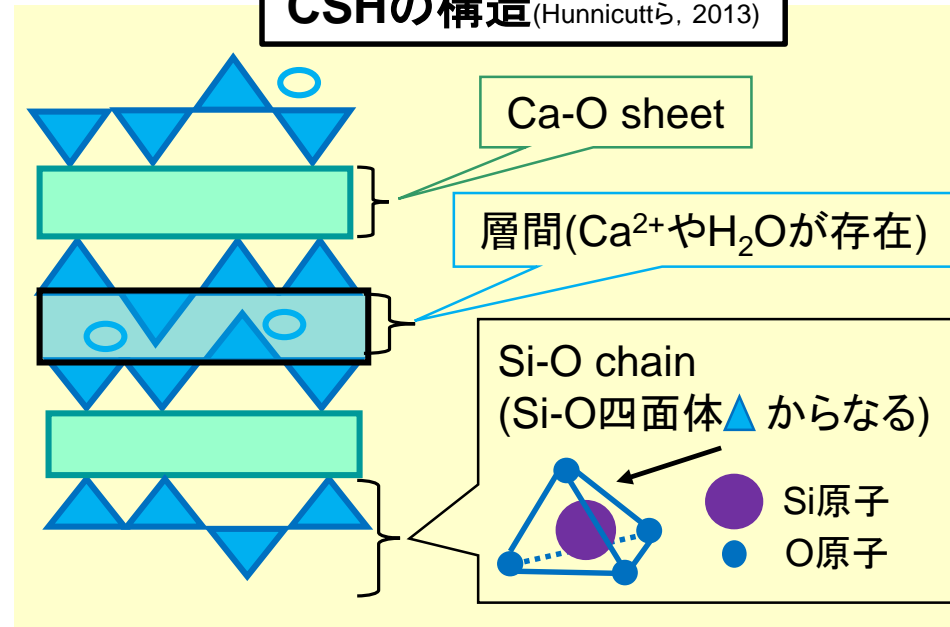
<C-S-H生成の例>

(CaとSiの比は0.4~1.6で変化)



<水和後のC-S-Hの外観>

CSHの構造 (Hunnicuttrら, 2013)



処分場周辺にC-S-H生成

C-S-Hによる
核種閉じ込め?

処分場



<C-S-Hによる核種閉じ込めのイメージ>

4. C-S-Hに期待される核種閉じ込め効果

C-S-Hには核種閉じ込め効果として、**核種固定化**と**流路閉塞**の二点を期待。

＜核種閉じ込め効果発現の流れ＞

施設閉鎖～
千年

- セメント成分溶出による地下水の高pH化
- 岩盤(ケイ酸塩鉱物)の溶解, 流路拡大

～1万年

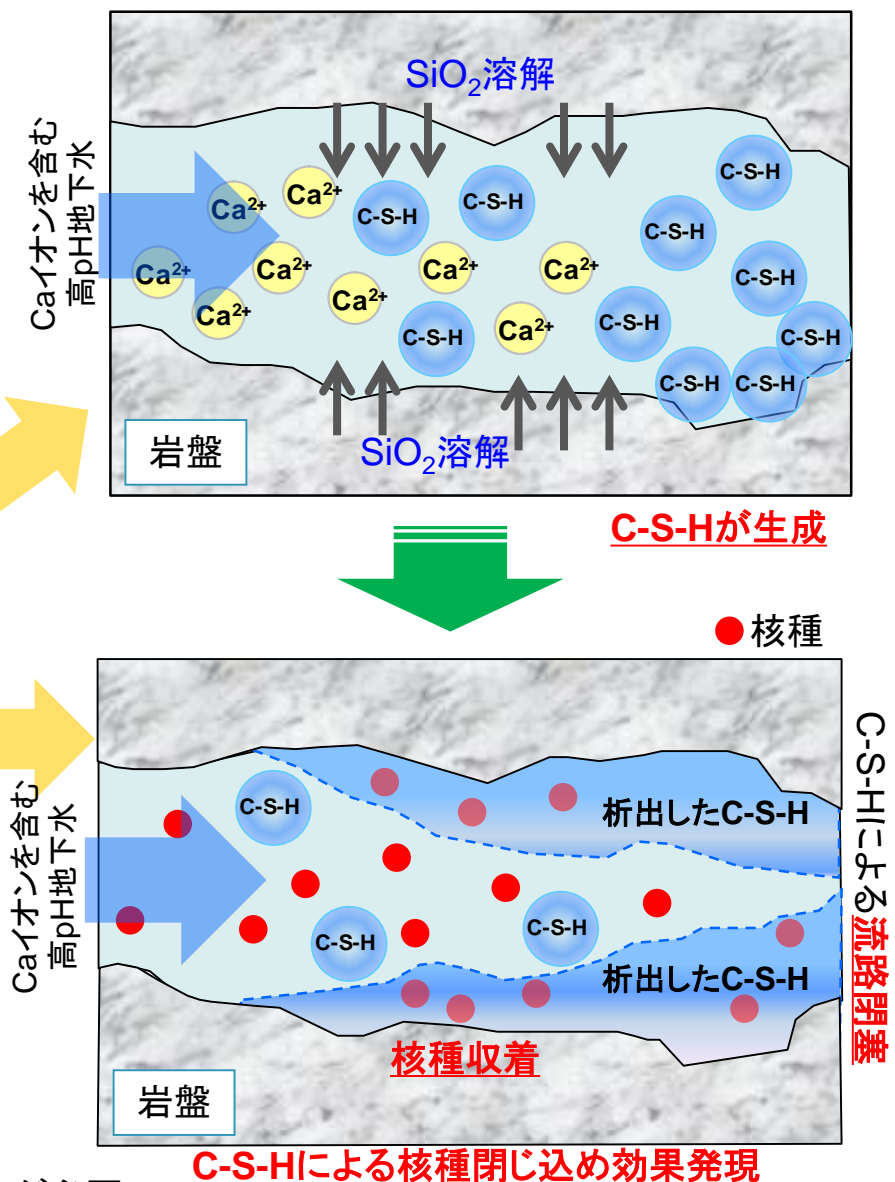
- セメントからの多量のCa溶出
- **C-S-H生成によるバリア性能発現**

～10万年

- C-S-H析出により流路閉塞
→地下水流れ, 物質移行を制限
- C-S-Hに核種が収着, 固定化.

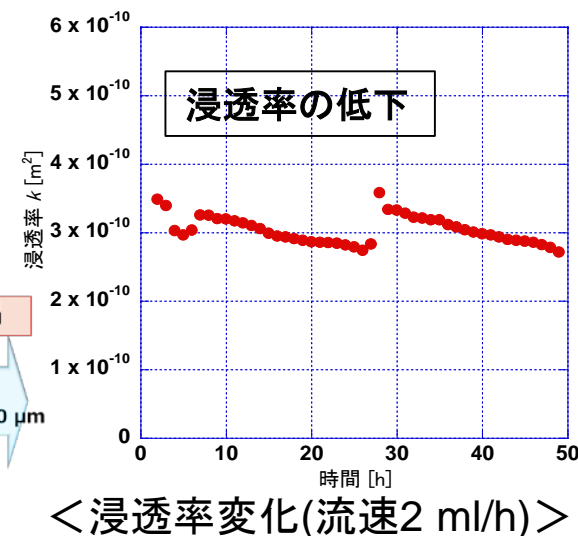
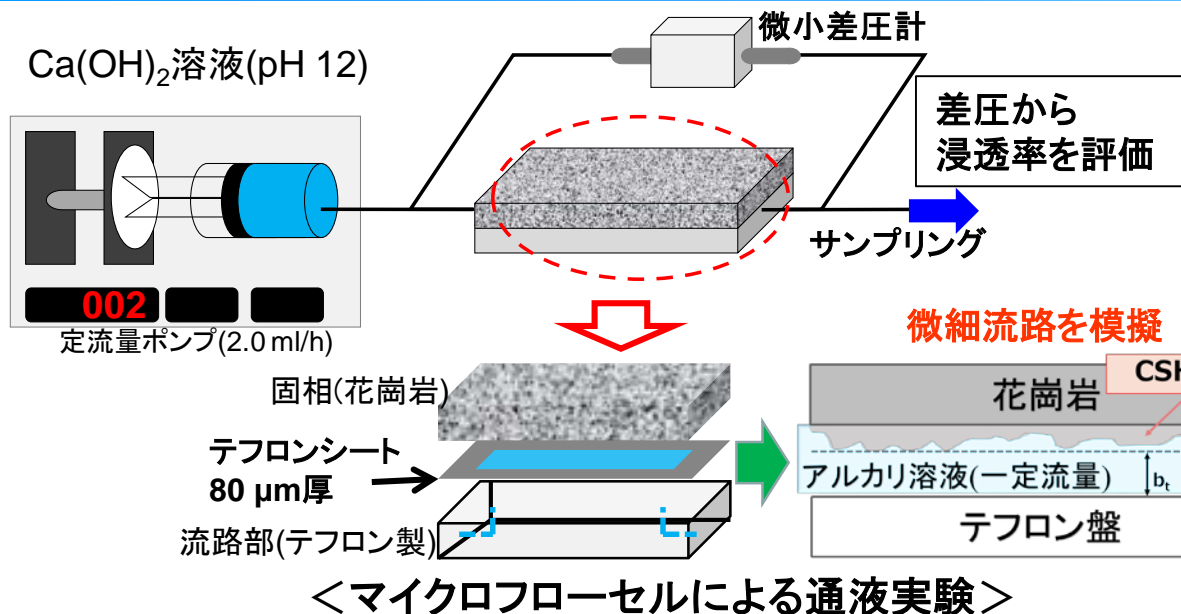
年数はあくまで目安. 実際は上記の現象が明確な区切り無く複合的に生じる.

このようなC-S-Hによる核種閉じ込め効果がより有効に発現するような処分システムの提示を目指す. (材料, 構造等)



C-S-Hの生成や, 核種との相互作用に関する基礎的知見の拡充が必要

5. C-S-Hによる微細流路閉塞の検討例



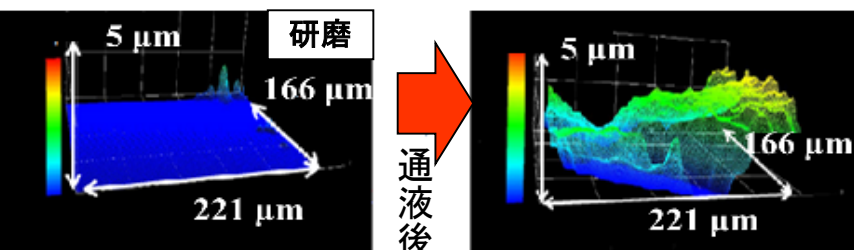
岩盤亀裂流路を模擬した実験系により、C-S-H生成や岩石の変質、流動場変化を実験的に検討。

- ・流路の浸透率が低下→C-S-Hによる流路狭隘化。
- ・しばしば浸透率が急上昇
→堆積したC-S-Hが押し流される。

■ C-S-Hによる流路閉塞が核種移行を遅延する可能性。

今後の課題

- ・不均一な鉱物溶解およびC-S-H析出の取り扱い。
- ・流路変化の定量的な評価。 など



<実験前後の花崗岩表面の凹凸変化>
(デジタルマイクロスコープ観察)

<引用文献>

Daiki Kurata, Taiji Chida, Yuichi Niibori, Hitoshi Mimura:
Estimation of Permeability Changes due to Contact with Highly Alkaline Ca-rich Solution by Micro Flow-Cell of Granite Chip,
Proceedings of WM2014, Paper No. 14094, 1-9, 2014.

6. C-S-Hと核種の相互作用に関する検討例

C-S-Hへの核種収着，固定化について種々の収着実験を基にそのメカニズムを解明する

Cs, Ba, Eu, I, Uについて収着挙動検討中.

- ✓ 高pHでも溶存するCs, Ba
Ca割合が低いC-S-Hにより多く収着.
- ✓ 高pHで沈殿するEu
沈殿のみならず，C-S-H内部へ取り込まれる.
- ✓ セメントや岩石に収着しない陰イオンI
 - ・表面が負電荷のセメントや岩石には非収着.
 - ・一度乾燥したC-S-Hにも収着しない.

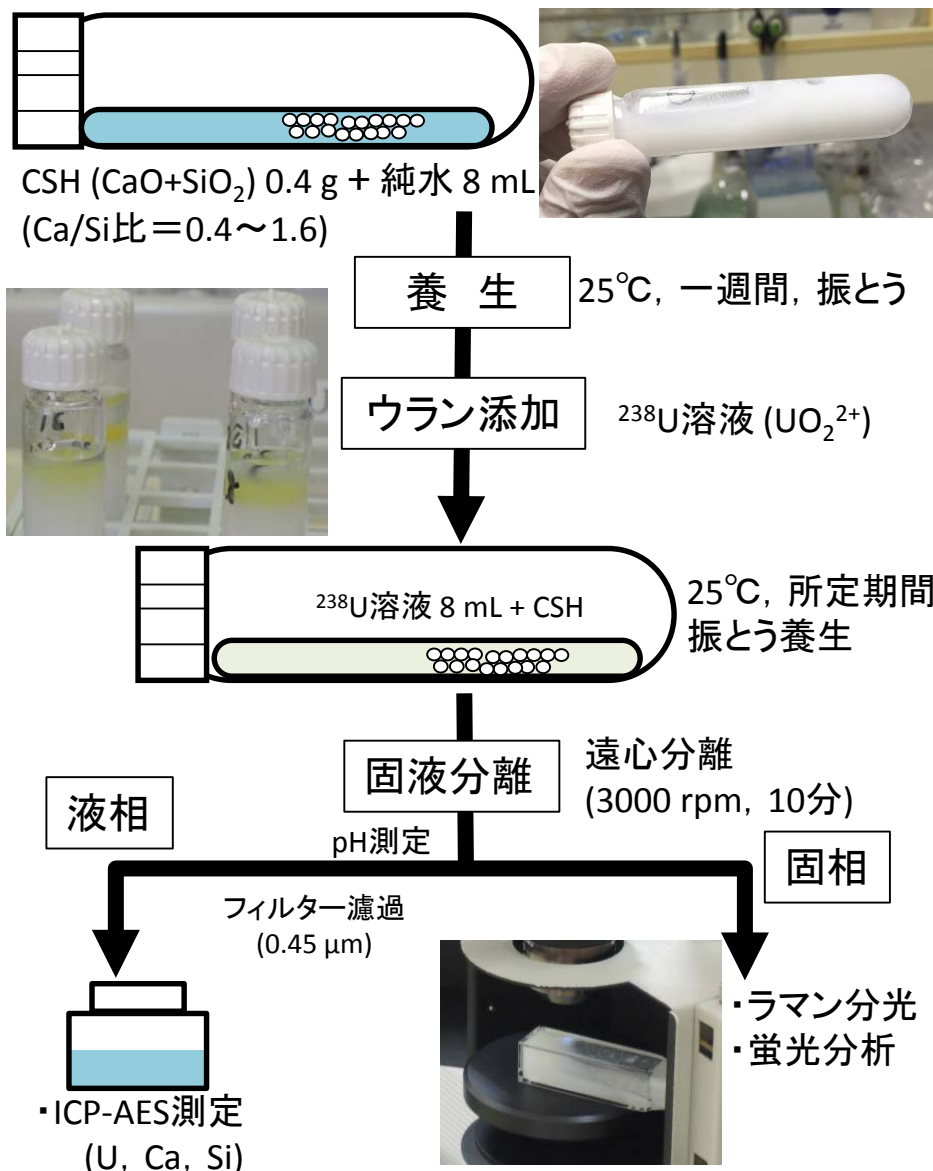
しかし...

乾燥していないC-S-Hには水和水とともに構造内へヨウ素Iが取り込まれる.

(I-129は線量評価上重要性が高い核種)

* UについてもC-S-Hとの相互作用検討に着手.

核種の取り込み，固定化について，固相側の分析も行いながら機構解明を目指す.
(ラマン分光，蛍光分析，X線回折，等々)



<C-S-Hへのウランの収着実験手順例>

- 放射性廃棄物の処分システムにおいてこれまで考慮されていなかった、処分場周辺で二次的に生成するC-S-Hの核種閉じ込め効果に関する研究を継続している。
- 実験的検討に加え、得られた知見を反映したC-S-H生成、および核種移行解析も併せて実施している。
- 現行の処分システムに、C-S-Hによる自己発現バリアの概念を付与することにより、核種閉じ込め効果の増強を狙うとともに、このバリア機能が有効に発現するような材料や構成の提案を目指す。