

平成14年度 低レベル放射性廃棄物処分研究成果報告会報告書

(会議報告)

東海事業所 環境保全・研究開発センター
処分研究部 処分材料研究グループ

要 旨

平成15年3月24日(月)に東海事業所地層処分基盤研究施設にて、平成14年度低レベル放射性廃棄物処分研究成果報告会を開催した。

発表テーマは、ニアフィールド水理場への影響研究、硝酸塩、有機物の分解挙動研究、核種移行データの整備などのTRU廃棄物処分研究とウラン/R I・研究所等廃棄物の処分研究である。本報告会では、総数73名の機構内従業員の参加をいただき、率直な意見交換を行った。

本資料は、報告会で配布した配布資料集、質疑応答内容などをとりまとめたものである。

Meeting for Study on Low-Level Radioactive Waste Disposal in FY2002
(Meeting Document)

Tokai Works, Waste Management and Fuel Cycle Research Center,
Waste Isolation Research Division, Materials Research Group

Abstract

The FY2002 Meeting for Study on Low-Level Radioactive Waste Disposal was held at Geological Isolation Basic Research Facility in Tokai Works on the 24th of March in 2003.

The subjects on disposal for waste containing transuranic (TRU) nuclides (i.e. evolution of long-term hydraulic condition in near-field, effect of nitrate, organic materials for TRU waste disposal system), Uranium Waste and Radioactive Waste from Medical, Industrial and Research Facilities were reported. The 73 staffs in Japan Nuclear Cycle Development Institute joined the meeting and frankly discussed.

This report contains distributed papers, questions and answers, etc.

目 次

平成14年度低レベル放射性廃棄物処分研究成果報告会プログラム	1
1. はじめに	2
2. 概要紹介	3
3. 高アルカリ環境等によるニアフィールド水理場の長期的変遷に関する研究	12
3.1 研究の重要性	13
3.2 セメント系材料の変質と水理パラメータに関する研究	18
3.3 ベントナイト／岩盤の変質と水理パラメータに関する研究	33
3.4 ニアフィールド水理場の変遷評価システム構築について	45
4. 硝酸塩及びホウ酸塩を含む廃棄物の処分に係る研究	64
4.1 バリア材に対する硝酸塩の影響評価	65
4.2 セメント系材料に対するホウ酸塩の影響	81
5. ウラン／RI・研究所等廃棄物の処分研究	89
6. 質疑応答	104
7. おわりに	107

平成 14 年度低レベル放射性廃棄物処分研究成果報告会プログラム

日 時 : 平成 15 年 3 月 24 日 (月) 13:15 - 17:00

場 所 : ENTRY 4 階大会議室

主 催 : 処分研究部

司 会 : 馬場主席

13:15 あいさつ (石川部長)

13:20 概要紹介 (宮本)

- ・ MAG の研究概要
- ・ TRU 次期レポート作成について 等

(発表 17 分、質疑 3 分)

13:40 高アルカリ環境等によるニアフィールド水理場の長期的変遷に関する研究 (100 分)

- ・ 研究の重要性 (大井)
(発表 5 分、質疑 2 分)
- ・ セメント系材料の変質と水理パラメータに関する研究 (三原)
(発表 25 分、質疑 5 分)
- ・ ベントナイト／岩盤の変質と水理パラメータに関する研究 (伊藤)
(発表 25 分、質疑 5 分)
- ・ ニアフィールド水理場の変遷評価システム構築について (大井)
(発表 25 分、質疑 8 分)

15:20 休憩

15:30 硝酸塩及びホウ酸塩を含む廃棄物の処分に係る研究 (60 分)

- ・ バリア材に対する硝酸塩の影響評価 (本田)
(発表 30 分、質疑 10 分)
- ・ セメント系材料に対するホウ酸塩の影響 (大澤)
(発表 15 分、質疑 5 分)

16:30 ウラン／RI・研究所等廃棄物の処分研究 (川越)

(発表 20 分、質疑 5 分)

16:55 まとめ (山本次長)

以上

1. はじめに

(開会挨拶)

年度末のお忙しいところご参加くださりまして、ありがとうございます。
低レベル廃棄物の研究成果報告会ということで、低レベルということでひとくくりにな
っておりますが、中身としましてはいわゆるTRU廃棄物、それからウラン廃棄物及び
RI・研究所等廃棄物についての研究成果報告をさせていただきます。

これらにつきましては、高レベル廃棄物に比べまして制度化、たとえば法的な整備で
すとか、資金的な整備のようなものが遅れているわけですが、一方でサイクル機
構が、わが国で発生します低レベル廃棄物、特にTRU廃棄物でいいますと半分程度発
生しておりまして、我々が発生させる廃棄物、いわゆる自社廃棄物という観点では非常
に重要なテーマでもあります。

さらに、制度化に向けての作業も、一つはRI・研究所等廃棄物については、RANDEC
をさらに平成15年度から強化していくということが決まっておりますし、一方、い
わゆるTRU廃棄物につきましても平成16年度を目処に、とりまとめを行い、その成果
を踏まえて法的な整備なり、技術的な整備なりを行なえるように考えております。

そういった意味ではここ2,3年は非常に重要な時期で、そのひとつの成果として、今
日は14年度の研究成果を報告させていただきたいと思っております。

当然、15年、16年とこれからいくつかのテーマを発展的にやっていくわけですが、
14年度の成果の中で、いろいろな意見を伺い、それを踏まえて、計画にも反映し
ていきたいと思っておりますので、今日はぜひ忌憚のない意見、また日ごろからのいろ
んな疑問点があれば確認していただいて、よろしくお願ひしたいと思っております。

2. 概要紹介

処分研究部 処分材料研究 Gr.

グループリーダー 宮本 陽一

平成14年度低レベル放射性廃棄物処分 研究成果報告会

研究概要の紹介

東海事業所 エントリー4F大会議室

平成15年3月24日

環境保全・研究開発センター

処分研究部

宮本 陽一

1

－概要紹介項目－

- TRU廃棄物及びウラン廃棄物の研究の進め方
- TRU廃棄物処分次期レポートの作成
- 平成14年度の研究成果概要

2

－TRU廃棄物処分研究の進め方－

平成12年3月、電気事業者と共に
「TRU廃棄物処分概念検討書」作成



概念検討書で抽出された技術的課題を解決し事業化の
推進を円滑に進めるため、平成16年度末に次期レポート
を電気事業者と共同で作成することを目指し、電気事業者
との役割分担に従い研究鋭意推進中



管理プログラムに示す自社廃棄物の処分実現に
向けた研究と一体であり、成果は直接的に寄与

3

電気事業者との役割分担

サイクル機構

- 安全評価
- 基盤的研究(主として地層処分)
- 機構特有な自社廃棄物の処分方策構築

電気事業者

- 事業化に向けた施設設計
- 費用積算
- 処分技術(主として浅地中及び余裕深度処分)

4

研究の優先・重点課題

- TRU廃棄物の処分概念成立の根幹に係る、セメントによる高pH環境の影響と硝酸塩の影響
- 平成15年度より、予算削減のため、TRU廃棄物に特有な課題の内、上記2つの課題以外の、金属腐食、ガス発生、有機物、微生物影響に係る課題は休止

5

研究の活用

- 再処理施設で発生する硝酸塩の影響評価、処分適用性の評価については、電気事業者との約束で平成15年度末にほぼ判定できる成果を得ることが目標



サイクル機構におけるアスファルト固化体の処分やLWTFの濃縮廃液の廃棄体化技術選定にとり重要な情報

- TRU廃棄物は多種多様であり、個々の廃棄物の廃棄体化方策は検討中のものが多い



今後、合理的な廃棄物管理システムの構築、処分実現に向け、処理側と情報連絡を密にし、廃棄体化方策等の決定に、処分研究で得られた成果・知見を反映させて行くことが重要

6

－ウラン廃棄物処分研究の進め方－

主要3者{サイクル機構、JNFL、新金属協会(加工事業者)}を中心に構成されるウラン検討会で定めた基本方針に沿い、役割分担された課題を中心に研究開発を実施

- ウラン検討会の基本方針：
経済合理性を持ったウラン廃棄物管理システム(クリアランス&処分)の早期確立
- サイクル機構への役割分担：
制度的管理の考え方、基準線量の見直し、ウラン鉱山廃棄物の措置 等
- 東海での実施内容：
余裕深度処分の安全評価 等

7

TRU廃棄物処分次期レポート

(1)方針・前提

(2)実施体制

8

一方針・前提一

- ① 「TRU次期レポート」は、国の制度化の動向等を踏まえて平成16年度末を目処に完成させる。



国の制度化審議の技術的拠り所となることが目標

- ② 対象とする処分形態：簡易埋設から地層処分まですべて

9

地層処分

基本的には概念検討書を踏まえたものとし、これに最新の知見を取り入れて、結晶質岩と堆積岩について合理的な処分施設概念とその安全性の提案を目指す

浅地中処分及び余裕深度処分

- 必要な情報は、電共研(合理化設計研究)で得られた発電所廃棄物の処分施設概念成果を引用・利用
- 地質環境条件及び生物圏についても、基本的には発電所廃棄物の評価条件を用いる

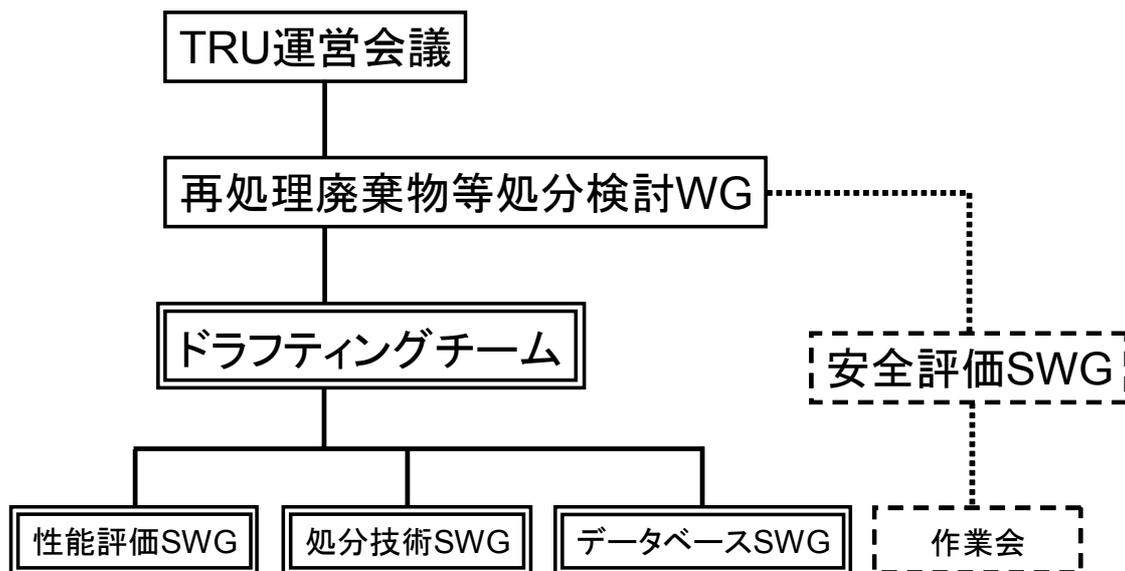
10

次期レポートの特徴

- TRU廃棄物に特有な課題で、処分概念の成立性の根幹に係る個別課題(セメントによる高アルカリ環境の影響及び硝酸塩の影響等)について、最新の研究成果を基に記述
- 処分形態に関して、処分の安全性を損なうことのない合理的な処分方策の提案を目指す
- 成果物は公開を前提として作成し、サイクル機構と電気事業者等の共有物とする

11

実施体制



12

平成14年度の研究成果(項目)

1. TRU廃棄物の処分研究

- (1) 核種移行に係る個別現象モデル／データ整備
- (2) 処分システムの長期安定性評価
- (3) システム性能評価
- (4) 処分材料の高度化
 - ① ヨウ素高度保持材料の開発
 - ② 低アルカリ性コンクリートの開発

13

2. ウラン廃棄物の合理的な処分概念の検討

- (1) ウラン廃棄物の発生事業者によるウラン廃棄物検討会に参加し、ウラン廃棄物の特徴を考慮したクリアランスレベル及び合理的な処分概念の検討を継続
- (2) ウラン廃棄物を余裕深度処分する際の成立条件を明らかにするため、放出係数、地下水流速、河川水希釈液量、天然バリア分配係数等の変動パラメータが超長期にわたり変動することを考慮した、被ばく線量への影響について評価

14

3. その他の検討結果

- (1) RI・研究所等廃棄物の余裕深度処分システムの検討
- (2) 国の低レベル廃棄物処分に係る基準策定への協力

15

本日の報告内容

高アルカリ環境等によるニアフィールド水理場の長期的変遷に関する研究

- 研究の重要性について(大井)
- セメント系材料の変質と水理パラメータに関する研究(三原)
- ベントナイト／岩盤の変質と水理パラメータに関する研究(伊藤)
- ニアフィールド水理場の変遷評価システム構築について(大井)

硝酸塩及びホウ酸塩を含む廃棄物の処分に係る研究

- バリア材に対する硝酸塩の影響評価(本田)
- セメント系材料に対するホウ酸塩の影響(大澤)

ウラン／RI・研究所等廃棄物の処分研究(川越)

16

3. 高アルカリ環境等によるニアフィールド 水理場の長期的変遷に関する研究

3.1 研究の重要性

処分研究部 処分材料研究 Gr.

大井 貴夫

平成14年度低レベル放射性廃棄物処分研究成果報告会
高アルカリ環境等によるニアフィールド水理場の
の長期的変遷に関する研究

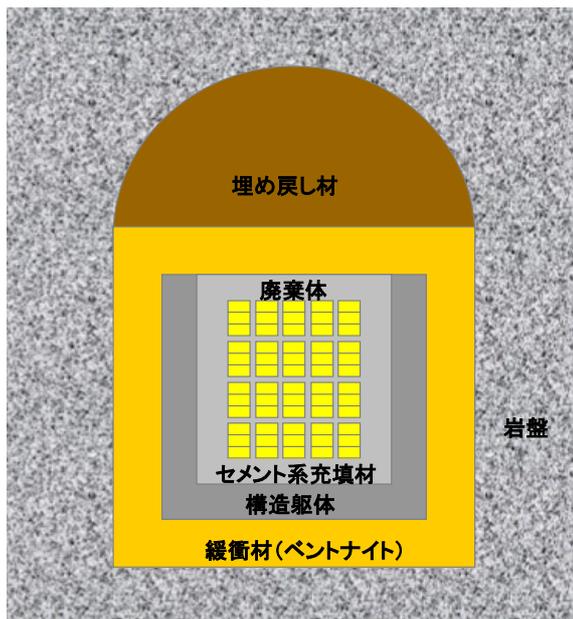
研究の重要性について

東海事業所 エントリー4F大会議室 平成15年3月24日

環境保全・研究開発センター
処分研究部
処分材料研究グループ
大井 貴夫

1

研究の背景



TRU廃棄物処分概念の特徴

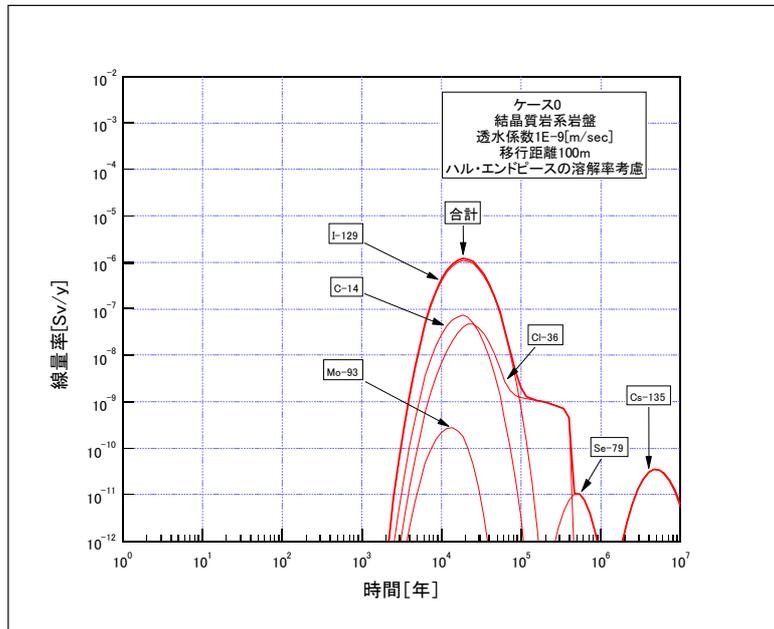
TRU廃棄物処分概念検討書
(2000年3月)により提示



- ・廃棄物が多種多量
- ・大空洞への廃棄物の集積配置
- ・セメント系材料の多量使用
- ・廃棄体特性に応じたグルーピング
- ・バリア材料に対して非収着性のヨウ素129及び炭素14を含有
- ・セメント浸出液や硝酸塩等のバリア性能への影響懸念物質の存在

2

TRU廃棄物処分概念検討書における評価例



解析条件

- ・セメント/ベントナイトの変質を想定し、核種移行パラメータは最も保守的に設定
- ・セメントの透水係数は、変質を想定し、細粒砂並の値 (10^{-5}m/s) で一定 (健全なコンクリートの透水係数: $10^{-13} \sim 10^{-11} \text{m/s}$)
- ・ベントナイトの透水係数は高アルカリ環境を想定 ($3 \times 10^{-11} \text{m/s}$) で一定 (Na型ベントナイト: $5 \times 10^{-13} \text{m/s}$)

3

安全評価の信頼性の向上に向けた研究課題

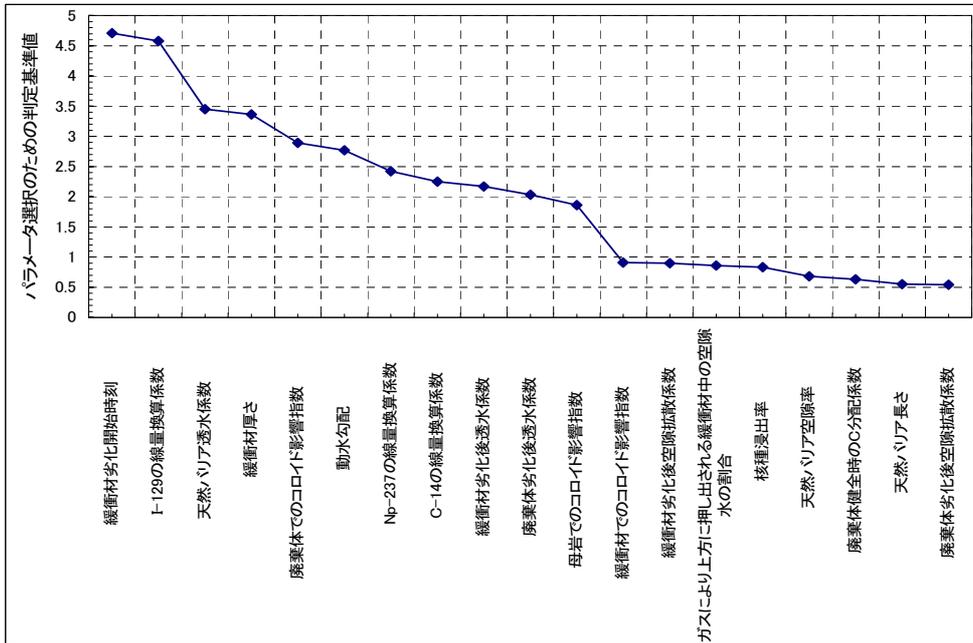
- ・セメント系材料の変質及びそれに伴う高アルカリ環境下でのベントナイト、岩盤の変質によるバリア性能への影響把握
- ・硝酸塩等によるバリア性能への影響把握

重要研究課題の抽出

- ・ヨウ素129、炭素14、ネプツニウム237を対象とし、環境条件の変動やバリア材の変質、及びそれらに伴う核種移行パラメータ等の変動を考慮した網羅的な感度解析の実施
- ・影響度の大きいパラメータを重要パラメータとして抽出

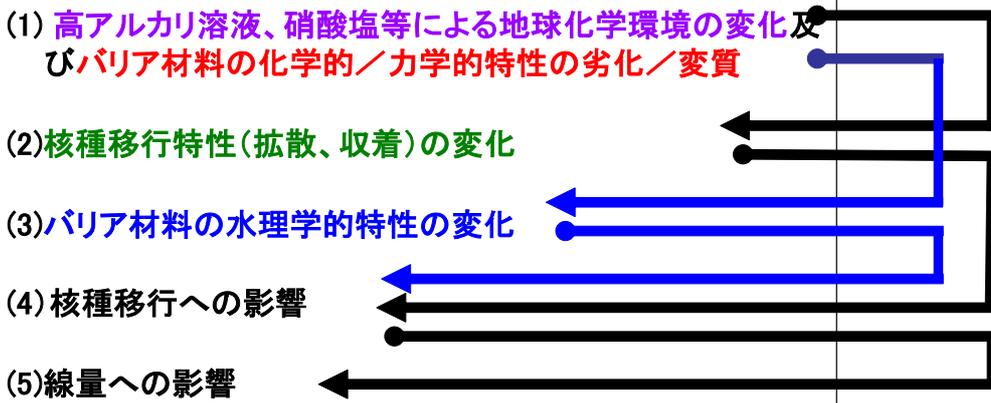
4

TRU廃棄物処分における重要パラメータの抽出例



5

重要パラメータに係わるFEPの相互作用(インフルエンシ)



TRU廃棄物の処分に係わる重要研究課題

- (1) バリア材料の変遷に伴う核種移行特性の変化に関する研究
- (2) バリア材料の変遷に伴う水理学的特性の変化に関する研究
「ニアフィールド水理場の変遷評価システム構築」

6

3.2 セメント系材料の変質と 水理パラメータに関する研究

処分研究部 処分材料研究 Gr.

三原 守弘

平成14年度低レベル放射性廃棄物処分研究成果報告会
高アルカリ環境等によるニアフィールド水理場の
長期的変遷に関する研究

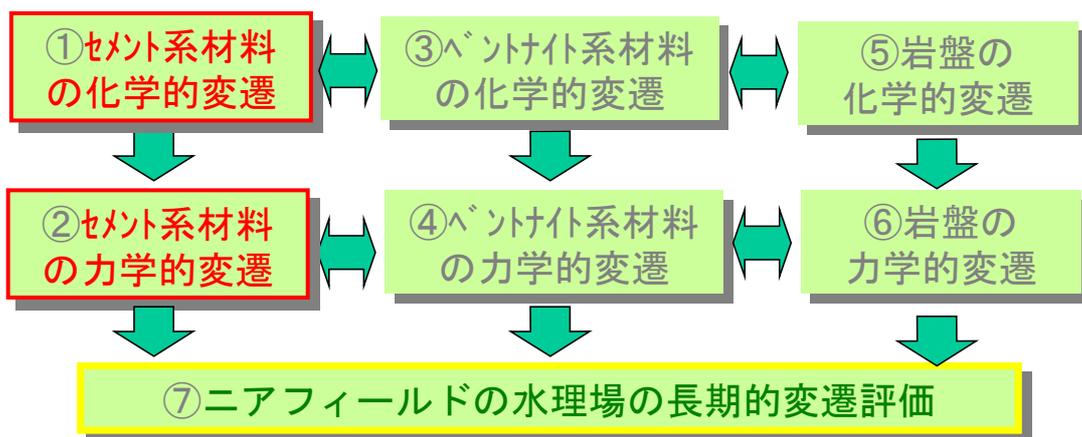
セメント系材料の変質と水理パラメータ に関する研究

東海事業所 エントリー4F大会議室 平成15年3月24日

環境保全・研究開発センター
処分研究部 処分材料研究グループ
三原 守弘

1

研究の位置づけ



2

処分環境で考えられるセメント系材料の主な変遷挙動

- ・セメント水和物の地下水中への溶出
(セメントのカルシウムなどの溶出)
- ・地下水成分とのセメント水和物との反応
(炭酸イオン、塩化物イオン、硫酸イオン、マグネシウムイオンなど)
- ・廃棄体成分とセメント水和物との反応
(硝酸ナトリウム、ホウ酸塩など)



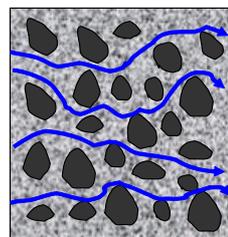
- ・本研究では、セメント水和物の地下水への溶出に着目し、溶出にともなう水理パラメータの取得を実施。
- ・廃棄体成分とセメント水和物との反応については、別研究で実施。

3

対象材料

通常、セメント系材料は、コンクリートやモルタルとして使用されるが、主に変質はセメントペーストの部分で生じる。また、地下水や放射性核種は、セメントペースト中を移動する。

→セメントペーストに着目した実験を行なう。通常一般に広く使用されている普通ポルトランドセメントを用いる。



コンクリート中の水の流れ



モデル化したコンクリート

この部分の変質挙動及びそれに伴う水理特性の変化を実験的に調査

4

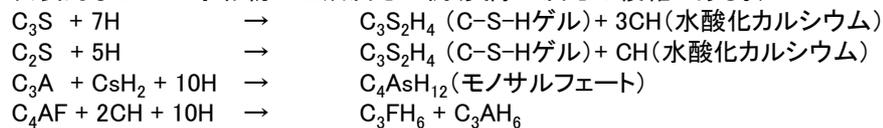
セメントの鉱物組成とその反応

化合物名	組成式	略称*	普通ポルトランドセメント**
・ エーライト	$3\text{CaO}\cdot\text{SiO}_2$	C_3S	55
・ ビーライト	$2\text{CaO}\cdot\text{SiO}_2$	C_2S	20
・ アルミネート相	$3\text{CaO}\cdot\text{Al}_2\text{O}_3$	C_3A	12
・ フェライト相	$4\text{CaO}\cdot\text{Al}_2\text{O}_3\cdot\text{Fe}_2\text{O}_3$	C_4AF	9

*: $\text{CaO} = \text{C}$, $\text{SiO}_2 = \text{S}$, $\text{Al}_2\text{O}_3 = \text{A}$, $\text{Fe}_2\text{O}_3 = \text{F}$, $\text{SO}_3 = \text{s}$, $\text{H}_2\text{O} = \text{H}$

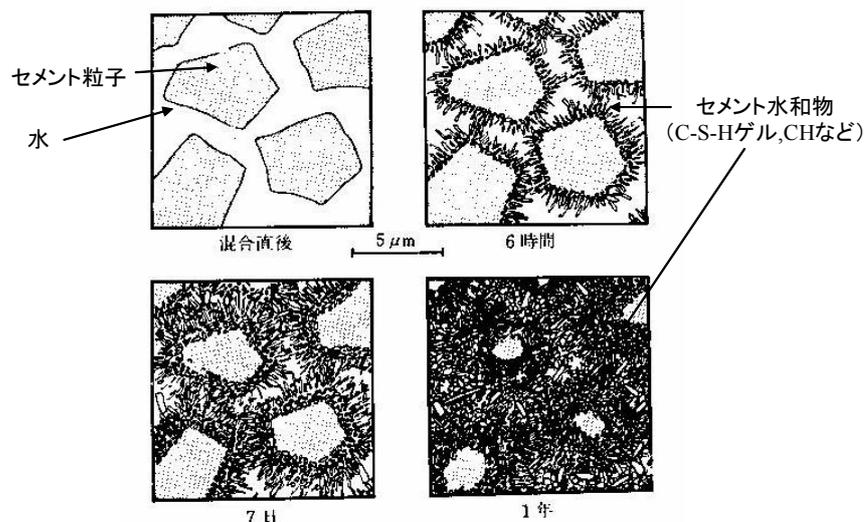
** : 化合物組成 (wt%) 100wt% に足りないのは、アルカリ金属、石膏 (CsH_2) などの成分が存在するため (大門 編訳, 1989)。

代表的なセメント水和物の生成反応の例 (実際の反応は複雑である。)



5

セメントの鉱物組成とその反応

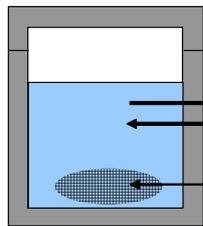


セメントの水和の概念図 (大門 編訳, 1989)

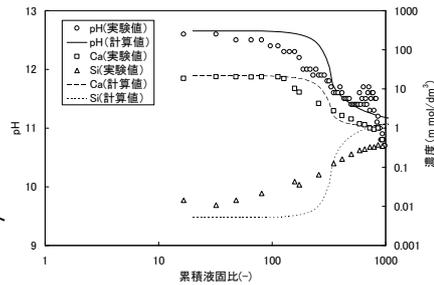
6

既往の研究

- 既往の研究では粉砕したセメントペーストを対象に試験を実施。
- セメント系材料の変質にともなう透水係数の評価ができない。初期からセメント系材料の透水係数は砂と同程度 (10^{-5} m/s) の値として評価。



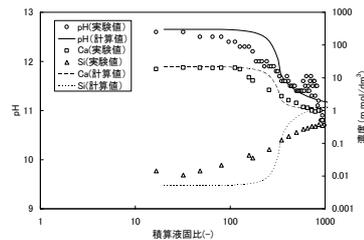
浸出試験の概念



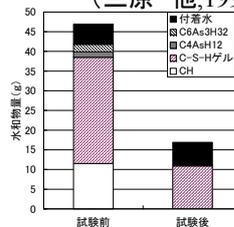
粉砕セメントペーストの浸出液組成の変化 (三原 他,1997)

セメントペーストの溶出挙動

- 積算液固比が100を超えると浸出液のpHは低下。
- これは、セメント水和物の一つのCHが溶出・消失するため。
- 積算液固比が100を超えるとC-S-Hゲルが溶出する。
- CHが消失するまでの期間は数万年、C-S-Hゲルが消失する期間は数十万年と評価されている(サイクル機構・電気事業連合,2000),



粉砕セメントペーストの浸出液組成の変化 (三原 他,1997)

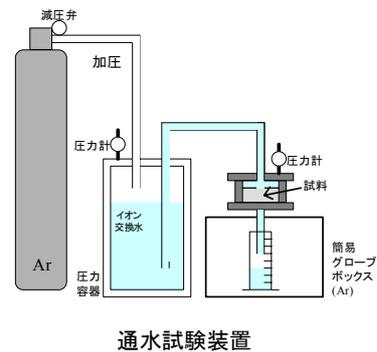


浸出試験前後のセメントペーストの水和物量の変化(三原 他,1997)

方針

- ・透水係数を取得するためブロック形状のセメントペーストを用いる必要がある。
- ・通常のセメントペーストだと透水性が低く室内試験でのセメントの変質挙動を観察できない可能性がある。
- ・変質にともなう透水係数を評価するには、固相重量に対してその100倍以上の水を通水する必要がある。

- ・試験法として通水法を採用する。
- ・溶出に着目しているため、通水液としてイオン交換水を使用する。
- ・水・セメント比(W/C)を大きく設定し、間隙率の大きく、透水係数の大きなセメントペーストを作製して試験を実施する。
- ・試料の作製には、ブリージング(セメントと水との分離)が生じないように注意を払う。



9

予備試験

水・セメント比(W/C)の大きなセメントペースト(0.85及び1.05)を作製(φ40mm×40mm)し、以下の透水係数を確認。

W/C=0.85	10 ⁻¹⁰ m/sオーダー
W/C=1.05	10 ⁻⁹ m/sオーダー

通水圧を高く設定すると通水圧による水道の形成などの懸念されるため、できるだけ低くかつ、実験室レベルの期間での結果が得られるように以下の通水圧を予備試験により設定した。(結果的には、初期のセメントペーストの圧縮強度の1/10以下)。

W/C=0.85	0.39MPa
W/C=1.05	0.12MPa

10

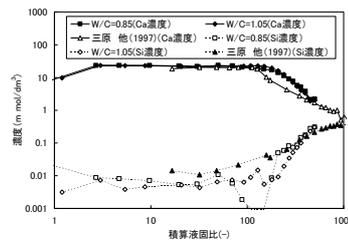
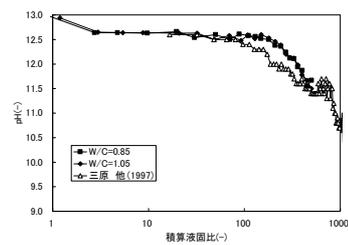
評価項目

- 変質挙動の評価
 - 試料通水液の組成変化
 - pH, Na, K, Ca, Si, Al, S濃度の測定
 - 固相の変化(積算液固比 90, 180,360,500)
 - 元素分布(EPMA分析)
 - 水和物の同定(X-RDなど)
 - 間隙率(水銀圧入法)
- 物性の把握
 - 水理特性
 - 透水係数
 - 力学特性(累積液固比 90, 180,360,500)
 - 一軸圧縮強度、弾性係数など

11

試料通水液の組成変化

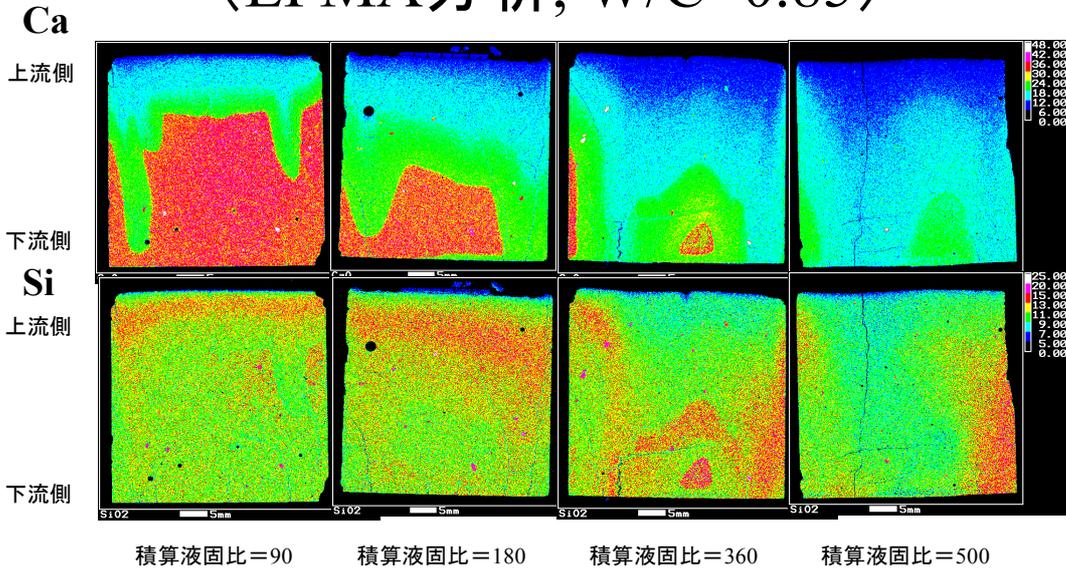
- W/C=0.85,1.05ともに積算液固比の増加にともなうpH及び元素濃度変化は、同様の傾向である。
- 粉碎セメントペーストを用いたバッチ試験(三原 他、1997)の結果と概ね調和的である。化学平衡論を用いたモデル化が可能である。
- 積算液固比で、試料通水液組成の変化を整理することが可能である。



通水液のpH及び元素濃度変化

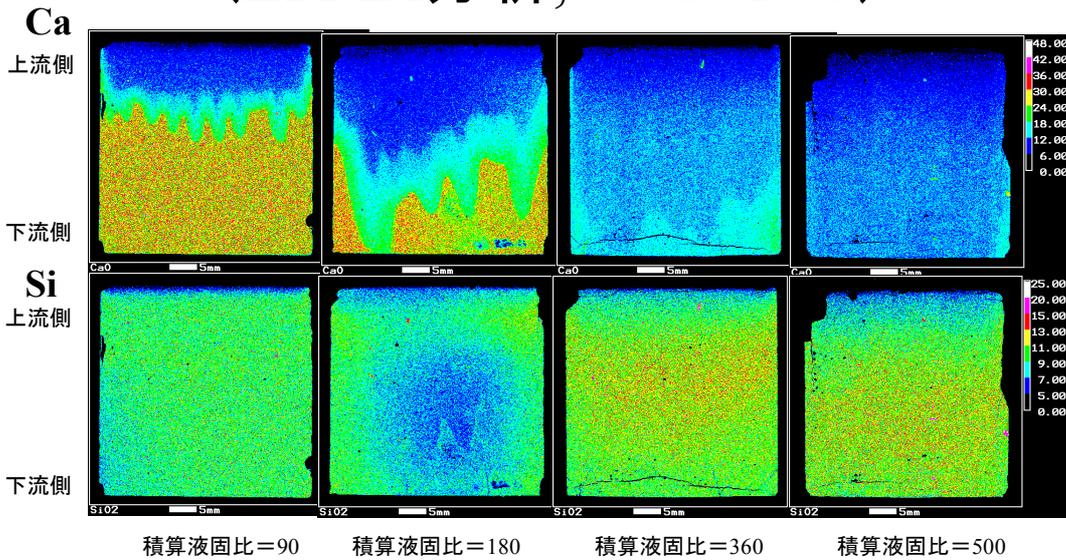
12

試料固相の変化 (EPMA分析, W/C=0.85)



13

試料固相の変化 (EPMA分析, W/C=1.05)



14

EPMA分析結果

- 上流側からのCaの溶出が確認された。その溶出フロントが進展していくことが確認された。
- W/C=0.85の方が、不均質なCaの溶質挙動を示していた。
- W/C=1.05の方が、Caの溶出が早くなる傾向であった。
- 両試料とも積算液固比500でほぼ均一にCaが溶出していた。

15

試料の固相分析(CHの同定結果)

- 上流側からのCH(水酸化カルシウム)の溶出を確認。
- W/C=1.05の方は、積算液固比360で試料のCHが同定されなくなった。
- 積算液固比500では、両試料中のCHが溶出しており、通水液のpH変化と対応している

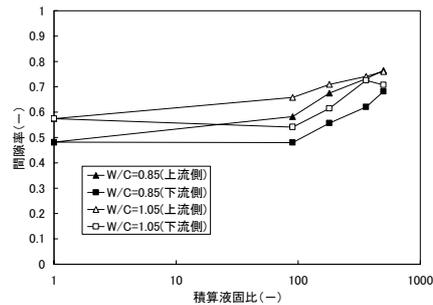
X線回折分析におけるCH(水酸化カルシウム)の同定結果

W/C	位置	積算液固比				
		0	90	180	360	500
0.85	上流側	○	○	△	×	×
	下流側	○	○	○	○	×
1.05	上流側	○	○	×	×	×
	下流側	○	○	○	×	×

16

水銀圧入法による間隙率評価

- EPMAの分析結果より、上流側と下流側でCaの分布が見られたため、上流側及び下流側の間隙率を測定した。
- 初期試料の間隙率は、W/C=1.05がW/C=0.85より0.1程度大きい。
- 積算液固比が大きくなるにともない、間隙率が増加する。
- 積算液固比500になると両試料の間隙率はほぼ同程度となる。

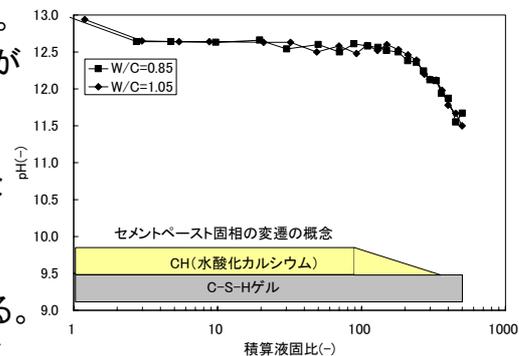


試料の間隙率の変化
(積算液固比1のデータは、試験前の試料のデータ)

17

セメントペーストの変質の概念

- セメントペーストのCaの溶出は、上流側より生じ、CHが消失していく。
 - CHの消失の結果として、間隙率が増加する。
 - 積算液固比500になると、セメントペースト中のCHはほとんど無くなる。
 - バッチ試験との比較により、化学平衡によるモデル化が可能である。
- 今後は、化学平衡論を用いたモデル化を実施し、変質モデルの開発を行なう。

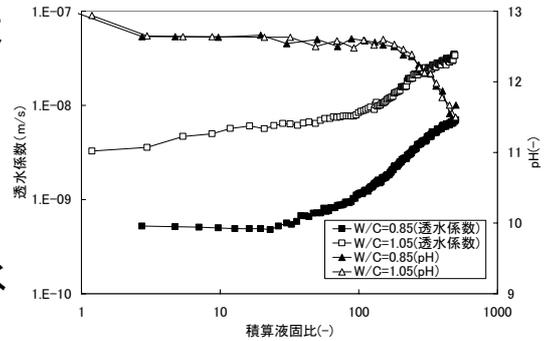


イオン交換水通水によるセメントペーストの変質の概念

18

透水係数の変化

- W/C=1.05の透水係数は、W/C=0.85の値より1桁程度大きい。
- 積算液固比が大きくなるにともない、透水係数は大きくなる。
- 積算液固比500で初期の透水係数より一桁程度増加する。

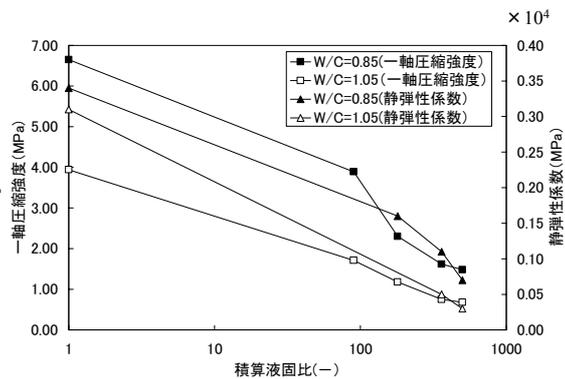


透水係数の変化 (pHの変化も示す)

19

力学特性 (一軸圧縮強度及び静弾性係数) の変化

- W/C=0.85の初期の一軸圧縮強度は6.7MPa、W/C=1.05は3.9MPaであった。
- 積算液固比が大きくなるにともない、一軸圧縮強度は低下する。静弾性係数についても同様である。
- 積算液固比500の圧縮強度は、0.5~1.5MPaとなった。



圧縮強度及び静弾性係数の変化
(積算液固比1のデータは、試験前の試料のデータ)

20

透水係数及び力学特性と間隙率との関係

- セメントペーストのような多孔質な媒体の透水係数や力学特性は、一般にその間隙率(ε)の影響を受ける。
- 例えば、多孔質媒体透水係数(K)や一軸圧縮強度(σ)には以下のような関係が示されている。

Kozeny-Carmanの式

$$K = K_f \frac{\varepsilon^3}{(1-\varepsilon)^2}$$

K_f : 媒体の間隙構造や表面積によって定まる媒体固有の定数(m/s)

Knudsenの式

$$\sigma = \sigma_0 \exp(-b\varepsilon)$$

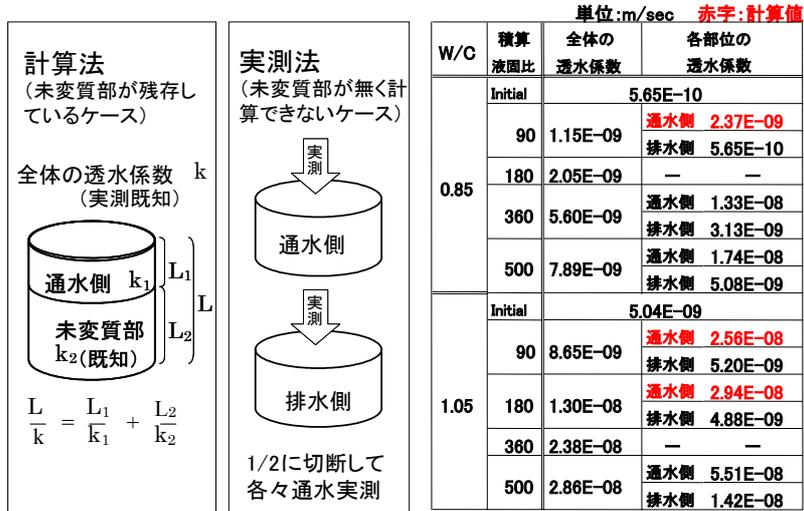
σ_0 : 媒体の間隙率が0の時の一軸圧縮強度(MPa)
b: 実験によって定まる定数(-)

- これらの式を用いて実験結果をフィッティングする。

21

透水係数と間隙率との整理

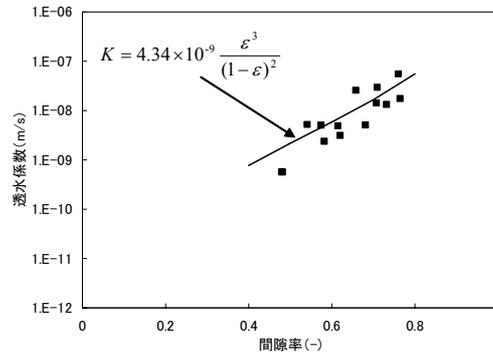
- 試料に未変質部がある場合は計算により、また、未変質部がない場合は試料を分割して実測して透水係数を評価した。



22

透水係数と間隙率との関係

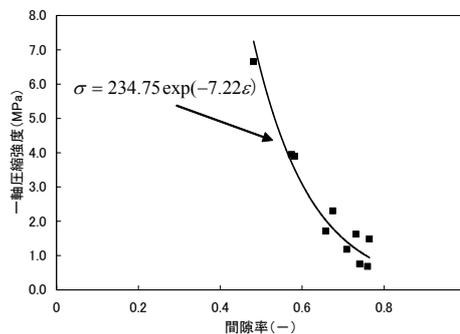
- 透水係数と間隙率とは高い相関関係が見られた。
- Kozeny-Carmanの式により間隙率と透水係数との関係式を得ることができた。
- 但し、得られた関係式は、間隙率0.4~0.8の高い範囲であり、幅広い範囲の間隙率での適用性を検討する必要がある。



23

一軸圧縮強度と間隙率との関係

- 試料の上流側の間隙率の大きい値が一軸圧縮強度に影響しているものとしてプロットした。
- 一軸圧縮強度と間隙率とは高い相関関係が見られた。
- Knudsenの式により間隙率と圧縮強度の関係式を得ることができた。
- この関係式は、間隙率0.4~0.8の範囲であり、今後、幅広い範囲での間隙率での本関係式の適用性を検討する必要がある。



一軸圧縮強度と間隙率との関係
(間隙率は、上流側の値でプロット)

24

本研究のまとめ

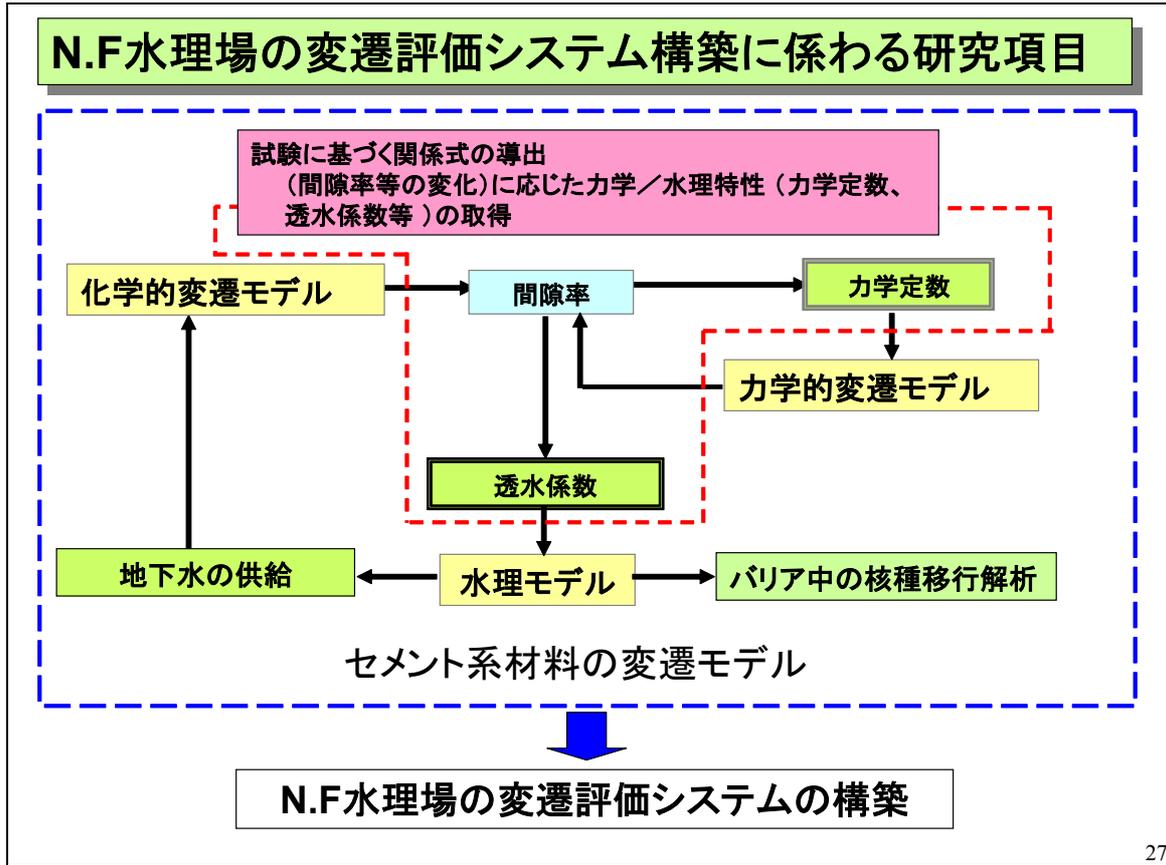
- ブロック形状のセメントペースト試料のイオン交換水を用いた通水試験により、その変質挙動を通水液組成と固相の変化により評価することができた。
- これらの挙動は、既往のバッチ法での試験結果と調和的であり、化学平衡モデルで変質をモデル化できる可能性が得られた。
- 変質させたセメントペーストの透水係数、一軸圧縮強度及び静弾性係数を取得した。
- 透水係数と一軸圧縮強度については、試料の間隙率との関係を示し、既存の関係式にてフィッティングが可能であった。

25

今後の予定

- 本研究で得られた情報を基にブロック形状のセメントペースト試料の変質挙動を化学平衡モデルにてモデル化を行なう。
- セメントペーストの特性と間隙率との関係を明確にする。
- 水和物の溶解にともなう間隙率の変化を求め、セメント系材料の長期的な特性変化を予測するモデル開発に反映させる。

26



3.3 ベントナイト／岩盤の変質と 水理パラメータに関する研究

処分研究部 処分材料研究 Gr.

伊藤 弘之

平成14年度低レベル放射性廃棄物処分研究成果報告会

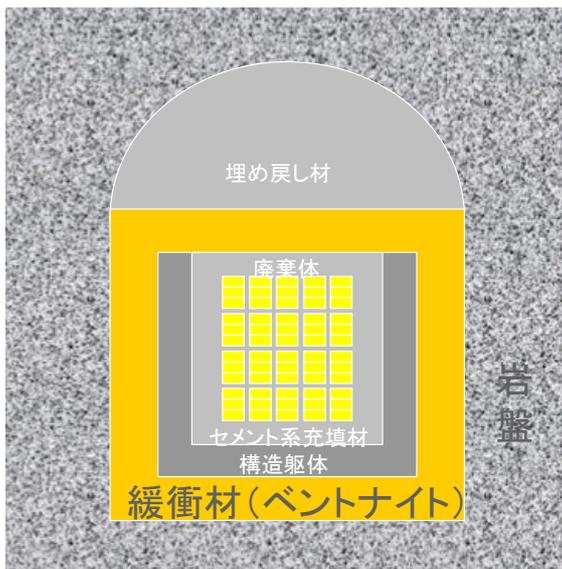
ベントナイト／岩盤の変質と 水理パラメータに関する研究

東海事業所 エントリー4F大会議室 平成15年3月24日

環境保全・研究開発センター
処分研究部
処分材料研究グループ
伊藤 弘之

1

研究の背景



○セメント系材料の多量使用

→セメント系材料の変質に伴う
高アルカリ環境下(pH>12)でのバ
リア性能への影響把握

○廃棄体に含まれる多種多様な成分

→硝酸塩等によるバリア性能への
影響把握



バリア材料の変質に伴う
ニアフィールド水理場の変遷評価

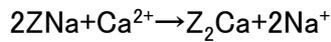
現状におけるTRU廃棄物処分概念

2

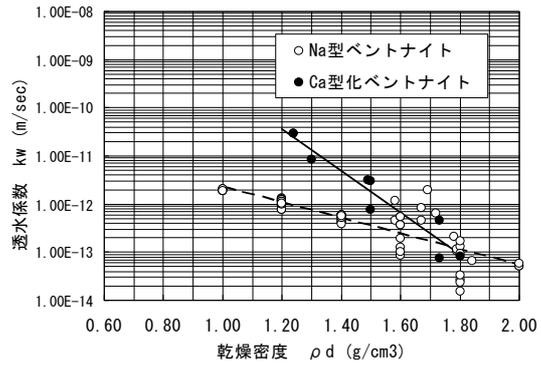
セメント浸出液(Ca²⁺)による影響

- ベントナイト鉱物(モンモリロナイト)の陽イオン交換

イオン交換反応はカルシウム選択性が高い。Ca²⁺イオンを含むセメント浸出液では、右向きの反応となる。



カルシウム型化したベントナイトは透水性が上昇する。



ベントナイトの透水係数：乾燥密度1.5g/cm³以下では、Ca型がNa型に比べ大きい

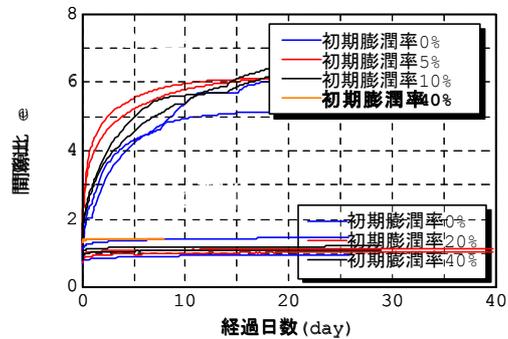
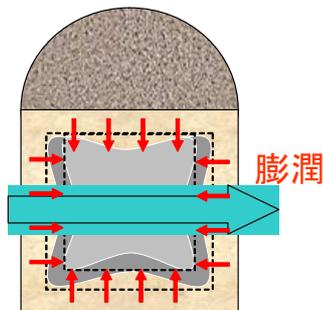
3

セメント浸出液(Ca²⁺)による影響

- ベントナイト鉱物(モンモリロナイト)の陽イオン交換

セメント系材料の強度低下や容積減少に対し、ベントナイトの自己シール性(膨潤性)が期待されている。

カルシウム型化したベントナイトは膨潤性能が低下する。



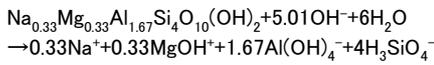
膨潤中の間隙比変化：Na型に比べてCa型ベントナイトの膨潤量は小さい

4

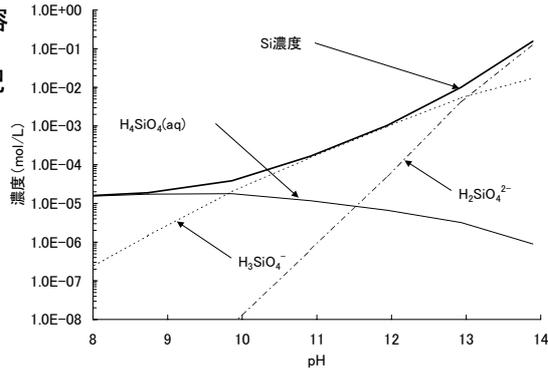
セメント浸出液(高アルカリ)による影響

- Na型モンモリロナイト($\text{Na}_{0.33}\text{Mg}_{0.33}\text{Al}_{1.67}\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2$)の溶解度(Si濃度)のpH依存性

pH10を超えるとモンモリロナイトの溶解度上昇。アルカリ性では、Siの溶存化学種として H_3SiO_4^- 、 $\text{H}_2\text{SiO}_4^{2-}$ が支配的となる(Alは $\text{Al}(\text{OH})_4^-$ が支配的)。



モンモリロナイト1molの溶解に対して OH^- が5.01mol必要(pH12~12.5付近)。



地球化学平衡計算 (PHREEQE)による試算結果
JNC-TDB使用、モンモリロナイトのデータはEQ3/6のデータを使用

5

研究の目標と課題

研究目標

ニアフィールド水理場の変遷評価システムの構築に向けて、高アルカリ環境(セメント浸出液)による緩衝材・岩盤の変質を評価し、変質後のバリア性能を把握する。



研究課題

- ベントナイトの化学的変遷挙動の評価
- ベントナイトの水理特性、膨潤性に及ぼす影響評価
- 岩盤の化学的変遷挙動の評価
- 岩盤の水理特性に及ぼす影響評価

6

ベントナイトに関する研究

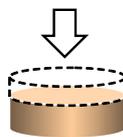
- 陽イオン交換反応
 - ・ カルシウム型化のモデル・データは整備されている
 - Ca型化率に応じた水理特性、膨潤性の取得(①)

- 鉱物の溶解・沈殿反応
 - ・ 速度論に基づく反応モデルが提案されている
 - ・ 生成する鉱物組成は温度・液性に依存し不確実
 - 浸漬変質による生成鉱物の同定と透水特性の変遷推定(②)

7

試験① Ca型化率に応じた特性値の取得

圧縮成形 $\rho_d = 1.6 \text{ g/cm}^3$, 飽和



スペーサー除去, 膨潤



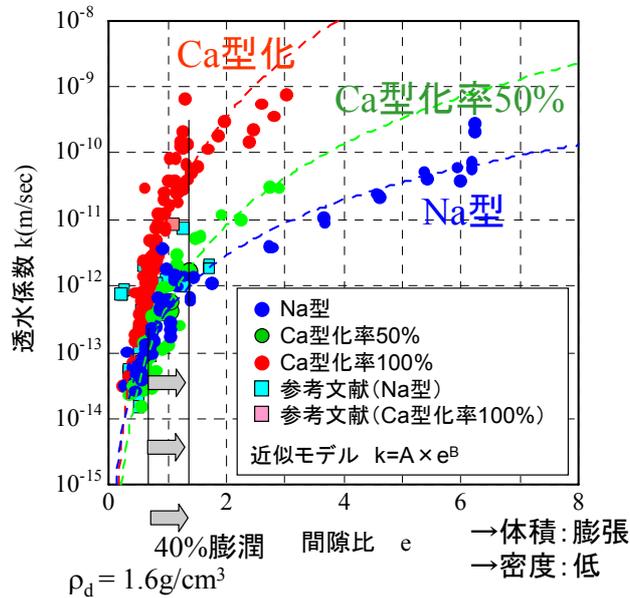
試験

- ベントナイト
 - 圧縮成形した後、膨潤させた供試体
 - 1)クミネ工業製 クニゲルV1 (Na型)
 - 2)50%Ca型化させたクニゲルV1 (Ca型化50%)
 - 3)Ca型化させたクニゲルV1 (Ca型化100%)

- 試験項目
 - 1)透水試験
透水係数 k
 - 2)膨潤試験
膨潤圧, 膨潤量
 - 3)三軸圧縮試験 ~強度・変形(せん断)特性
 p' - q 曲線 (M), σ - ε , v' , C' , ϕ'
 - 4)圧密試験 ~変形(圧密)特性
 e - $\log P'$ 曲線 (λ , κ , p'), k

8

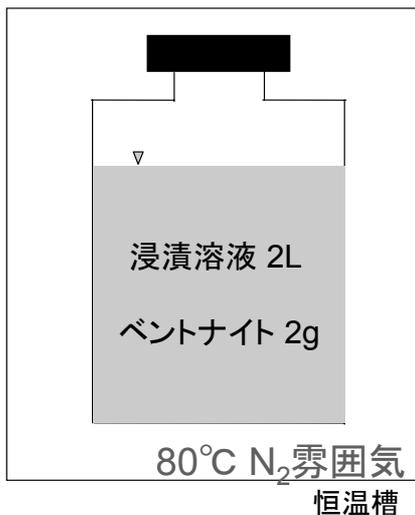
試験結果(透水試験)



ベントナイトの透水係数と間隙比(密度)の関係: Ca型化の進行、膨潤の進行(間隙比の増大)により透水係数は上昇する。

9

試験② 高アルカリ溶液の浸漬によって溶解・沈殿する鉱物の同定



- ベントナイト
クニミネ工業製 クニピアF 粉末
- 浸漬溶液
 - 1) 脱気したイオン交換水(DW)
 - 2) 人工セメント間隙水(AW)
[Ca(OH)₂, NaOH, KOH] pH13.2
- 分析項目
X線回折, 熱分析, SEM観察,
メレンブルー吸着量, 液相成分分析
(浸漬期間:0日, 30日, 90日)

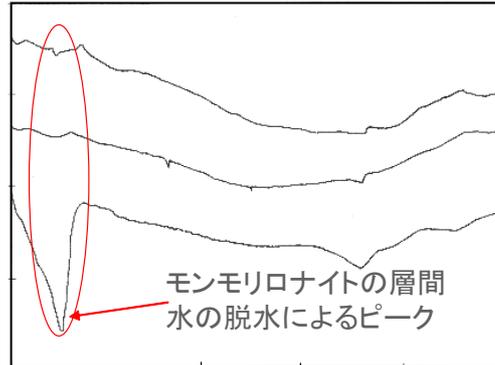
10

試験結果

- DWでは、浸漬90日まで変質は認められない
- AWでは、浸漬30日までにモンモリロナイトの溶解、11Åトバモライト(カルシウムケイ酸塩水和物:CSH)の生成が確認される

	0	DW 30	DW 90	AW 30	AW 90
Mont. 4.5Å	1270	1070	1180	400	280
12Å	6930	7830	7530		
Tob.	-	-	-	1580	2130
Quartz	930	1460	1320	-	-
CaCO ₃	-	-	-	960	840

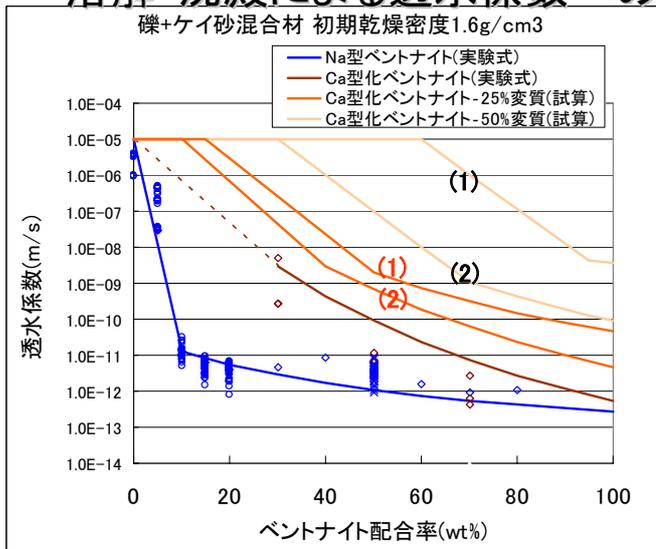
X線回折分析結果



示差熱分析結果

11

溶解・沈殿による透水係数への影響



ベントナイト変質部の設定

変質前



(1)溶出して空隙となる



(2)砂粒子として沈殿する



初期乾燥密度1.6g/cm³ベントナイトの透水係数の変遷
:ケイ砂混合ベントナイトの実験式に基づき試算

12

まとめ(ベントナイト)

- 陽イオン交換反応(カルシウム型化)させたベントナイトの透水係数、力学特性値を取得し、既存のデータを補完した
- ベントナイト粉末を高アルカリ溶液(pH13.2, 80°C)に浸漬させると、モンモリロナイトの消失、二次鉱物(CSH)の生成が起きる
- 陽イオン交換反応、鉱物の溶解・沈殿反応による透水係数の変遷を評価した
- 化学モデルによる解析的検証、透水特性の実験的検証が課題となる

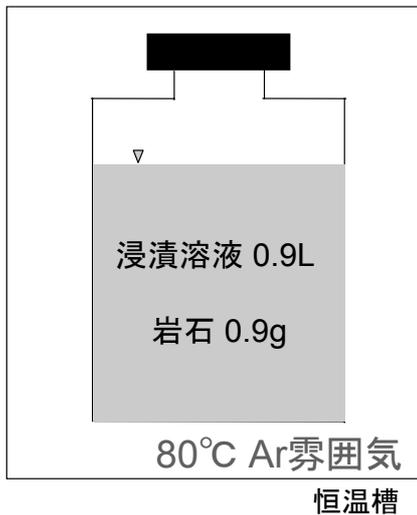
13

岩盤に関する研究

- 岩石鉱物の溶解・沈殿反応
 - 速度論に基づく反応モデルが検討されている
 - 生成する鉱物組成は温度・液性に依存し不確実
 - 溶解速度・沈殿速度は不明な点が多い
 - 水理特性の変遷に関する知見は希少
 - 浸漬変質による生成鉱物の同定(③)
 - 通水変質による生成鉱物の同定、および透水特性の変遷把握(④)

14

試験③ 高アルカリ溶液の浸漬によって溶解・沈殿する鉱物の同定

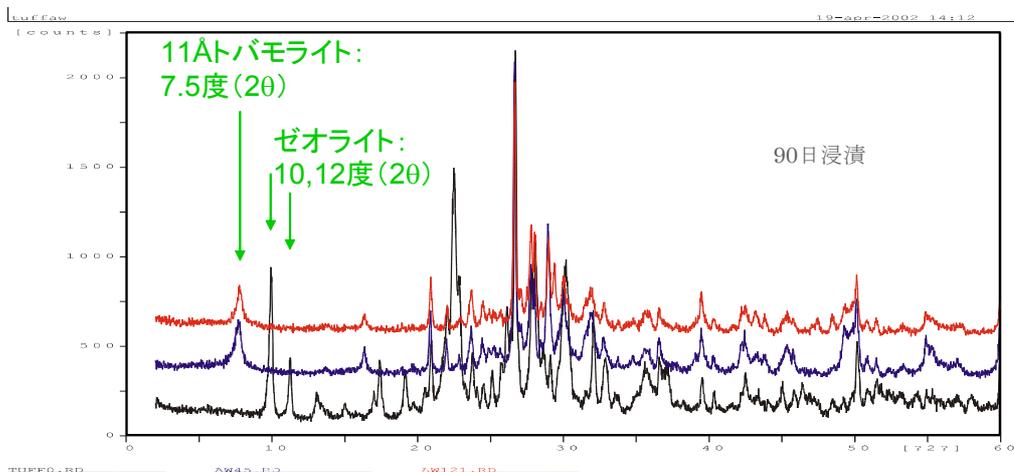


- 岩石
凝灰岩 粉碎粒径125-250mm
- 浸漬溶液
1) 脱気したイオン交換水 (DW)
2) 人工セメント間隙水 (AW)
[Ca(OH)₂, NaOH, KOH] pH13.2
- 分析項目
X線回折, 熱分析, SEM観察, BET比表面積, 液相成分分析
(浸漬期間:0日, 30日, 90日)

15

試験結果

- DWでは、浸漬90日まで変質は確認されない
- AWでは、浸漬30日までにゼオライトの溶解、11Åトバモライト (CSH/CASH) の生成、長石・石英表面の変質が確認された

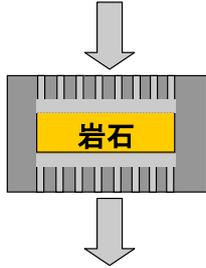


AWに浸漬した岩石粒のX線回折分析

16

試験④ 高アルカリ溶液の通水によって溶解・沈殿する鉱物の同定と透水特性の変遷把握

Heガスによる加圧注水
 DW (20°C) → DW (80°C)
 DW (20°C) → AW (80°C)

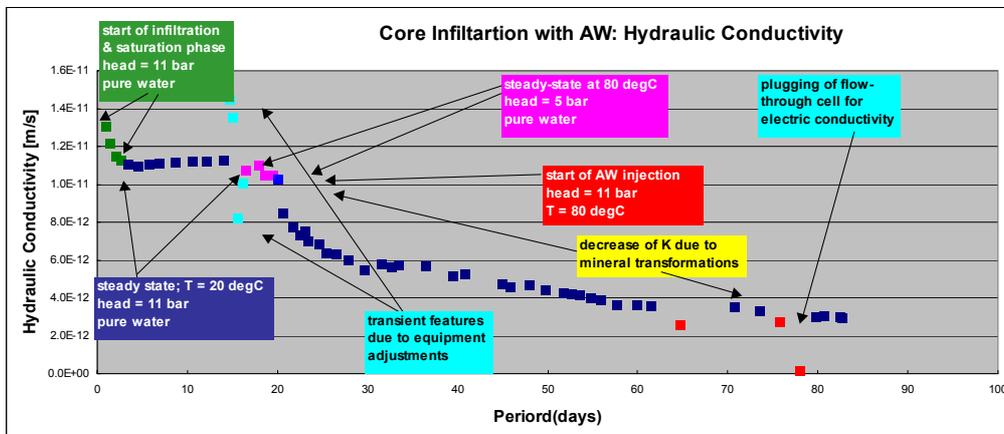


- 岩石
凝灰岩 コアφ=50mm, H=30mm
- 通水液
 - 1) 脱気したイオン交換水 (DW)
 - 2) 人工セメント間隙水 (AW)
[Ca(OH)₂, NaOH, KOH] pH13.2
- 分析項目
 通水中: 液相成分分析, 透水係数
 通水後: 細孔径分布, X線回折,
 SEM観察, EPMA観察, 熱分析

17

試験結果

- DW通水では60日後においても変質は確認されない
- AW通水では透水係数は徐々に低下し、90日後に通水が止まった。SEM観察でCSHの生成が確認された。



透水係数の経時変化

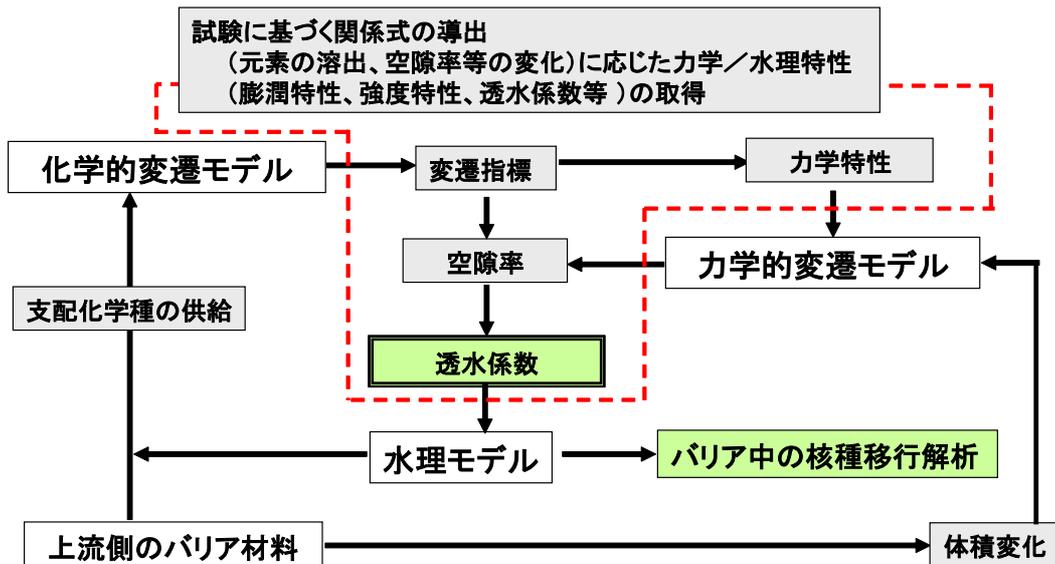
18

まとめ(岩盤)

- 岩石粒を高アルカリ溶液(pH13.2, 80°C)に浸漬させると、ゼオライトの消失、二次鉱物(CSH/CASH)の生成が起きる。
- 岩石コアに高アルカリ溶液(pH13.2, 80°C)を通水させると、透水係数は低下する。生成する二次鉱物(CSH)の充填との因果関係が推定される。
- 化学モデルによる解析的検証が課題となる

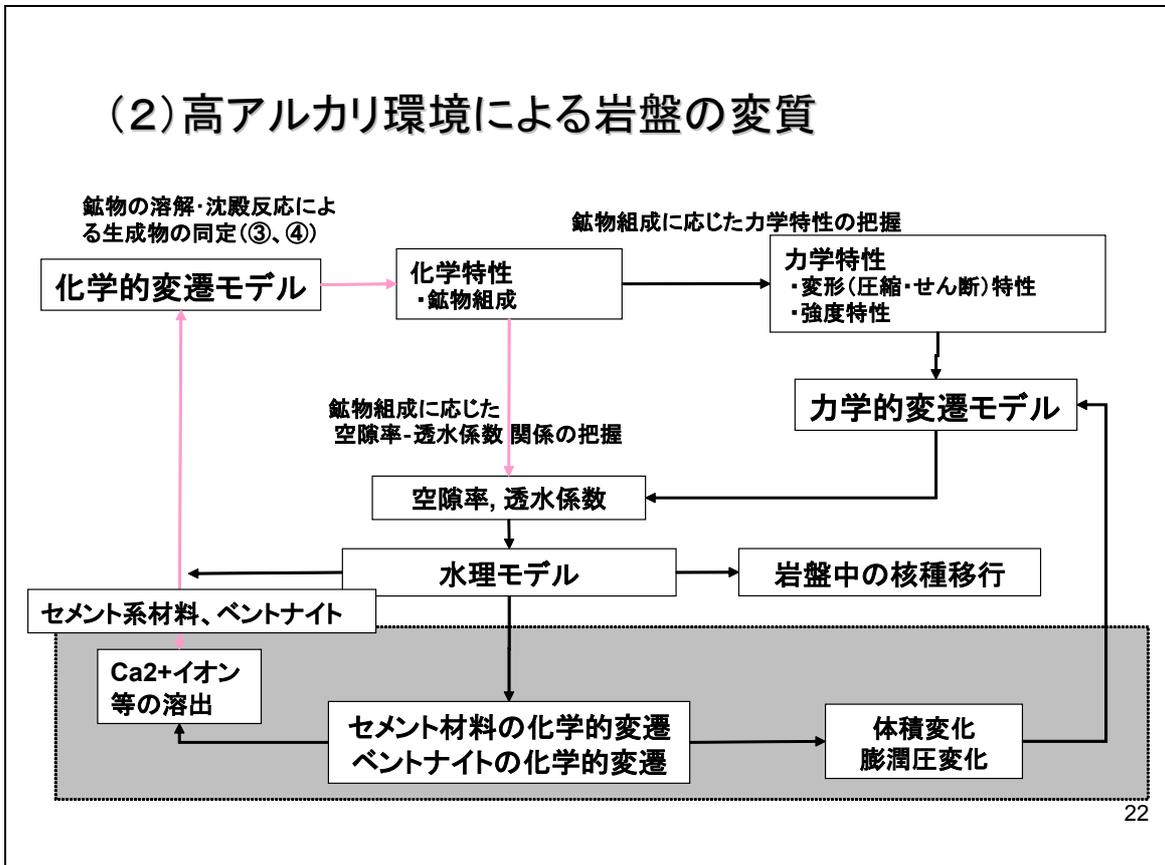
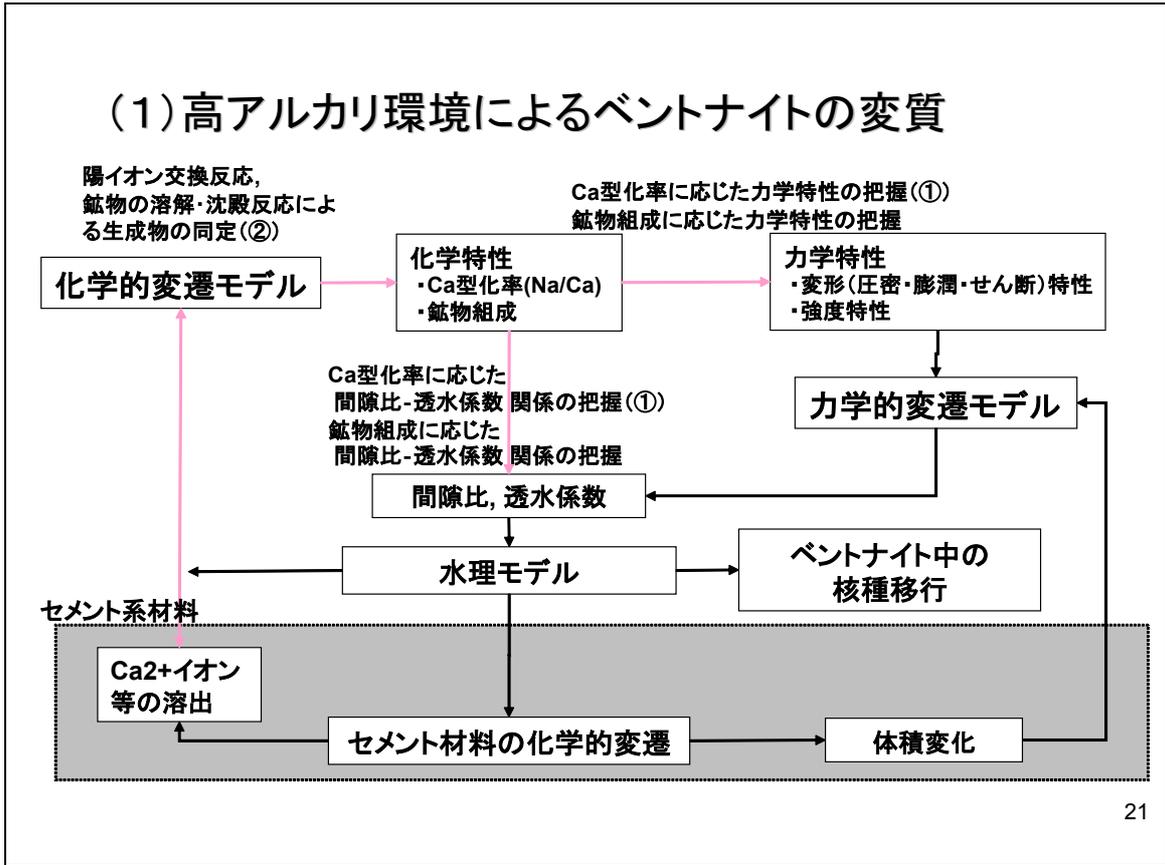
19

システム構築へのアプローチ



N.F水理場の変遷評価システム構築に係わる研究項目

20



3.4 ニアフィールド水理場の変遷評価 システム構築について

処分研究部 処分材料研究 Gr.

大井 貴夫

平成14年度低レベル放射性廃棄物処分研究成果報告会

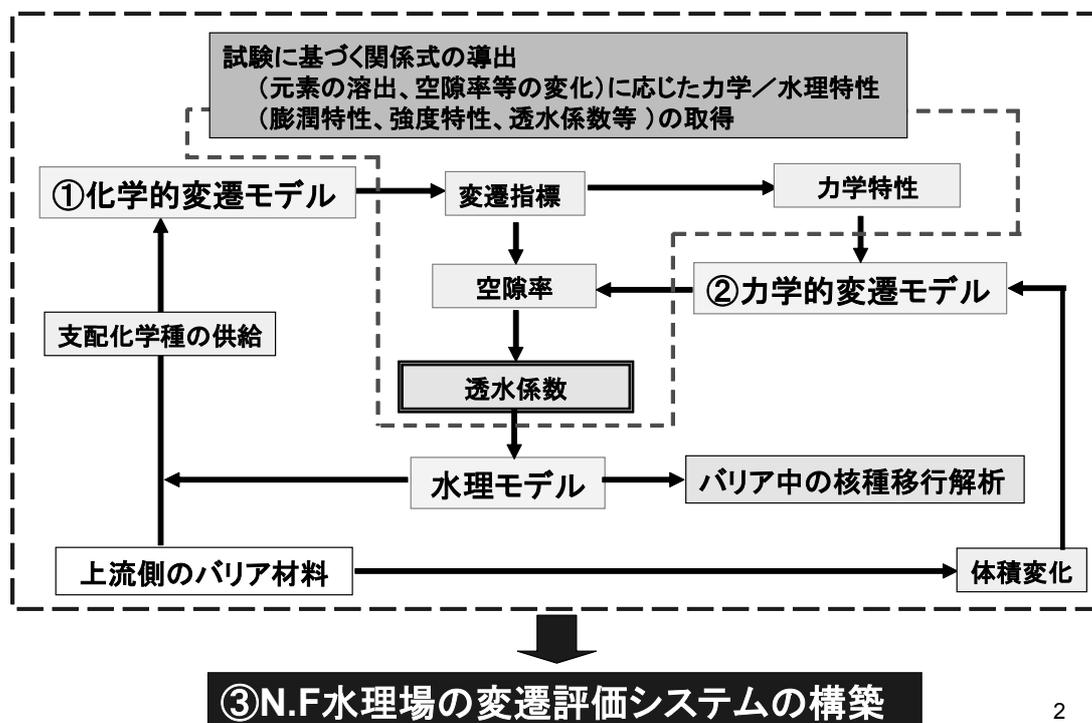
ニアフィールド水理場の変遷評価システム構築について

東海事業所 エントリー4F大会議室 平成15年3月24日

環境保全・研究開発センター
処分研究部
処分材料研究グループ
大井 貴夫

1

N.F水理場の変遷評価システム構築に係わる研究項目



2

研究項目(1/3)

(1)化学的変遷モデルの構築

[目的]

セメント系材料の変質に伴い予想されるベントナイト／岩盤の変質、及びその結果生じるニアフィールドの地下水流動の変遷を評価する。

[評価項目]

- ・セメント溶解に伴う液相イオン種の濃度変化
- ・ベントナイト／岩盤中の液相イオン種の移動
- ・イオン交換／モンモリロナイトの溶解／ケイ酸塩鉱物の溶解と沈殿
- ・岩盤の初期鉱物の溶解／二次鉱物の溶解と沈殿
- ・セメント／ベントナイト／岩盤変質に伴うセメントの空隙、透水性、拡散性の変化
← 関係式／経験式(実験結果)の利用

[研究項目]

- ①セメント／ベントナイト／岩盤の化学的変遷モデル(化学反応＋物質移動)の構築及び水理パラメータとのカップリング
- ②評価項目の導出
- ③実験結果に基づく化学的変遷モデルの妥当性の検討

3

研究項目(2/3)

(2)力学的変遷モデルの構築

[目的]

セメント系材料及びベントナイト／岩盤の変質の結果生じるバリア材料の構造力学的状態の変化、及びその結果生じるニアフィールドの地下水流動の変遷を評価する。

[評価項目]

- ・応力(ベントナイトの膨潤圧)による変形
- ・セメント系材料の劣化に伴う剛性低下による変形
- ・セメント系材料の劣化に伴う強度と剛性低下による変形
- ・ベントナイトの物性変化に伴う膨潤挙動
- ・変質岩盤の長期力学挙動
- ・セメント／ベントナイト／岩盤の変形に伴う透水性の変化
← 関係式／経験式(実験結果)の利用

[研究項目]

- ①セメント／ベントナイト／岩盤の劣化にともなう変形挙動のモデル化
(力学的変遷モデルの構築)
- ②評価項目の導出
- ③実験結果に基づく、バリア材料の劣化にともなう変形挙動モデルの妥当性の検討

4

研究項目(3/3)

(3) N.F水理場の変遷評価システムの構築

[目的]

材料の化学的変遷と力学的変遷を関係づける関係式を用いて、(化学的変遷モデル+水理モデル)と力学的変遷モデルを連成し、N.F水理場の時間、空間的変遷を効率的に求めるシステムを構築する

[評価項目]

- ・バリア材料の変質／変形挙動の時間空間変化
- ・各バリア材及びニアフィールドの地下水流動の時間、空間変化

[研究項目]

- ①連成手法の開発
- ②詳細度／精度の向上

5

H14年度の研究成果(1/3)

化学的変遷モデルの構築

(1)セメント系材料の変遷モデル

①杉山他のモデルの採用

:セメント固相をCa(OH)₂とSiO₂の固溶体として表現し、C/S比に応じて平衡定数を変化(4つに区分)させるCHSゲルの溶解沈殿モデル(Guggenheimの熱力学的混合モデルに基づく)

(2)ベントナイトの変遷モデル

①平衡論モデルの採用

:鉱物の化学平衡反応式と平衡定数の同定(EQ3/6:data1.com.R10)

②速度論モデルの採用

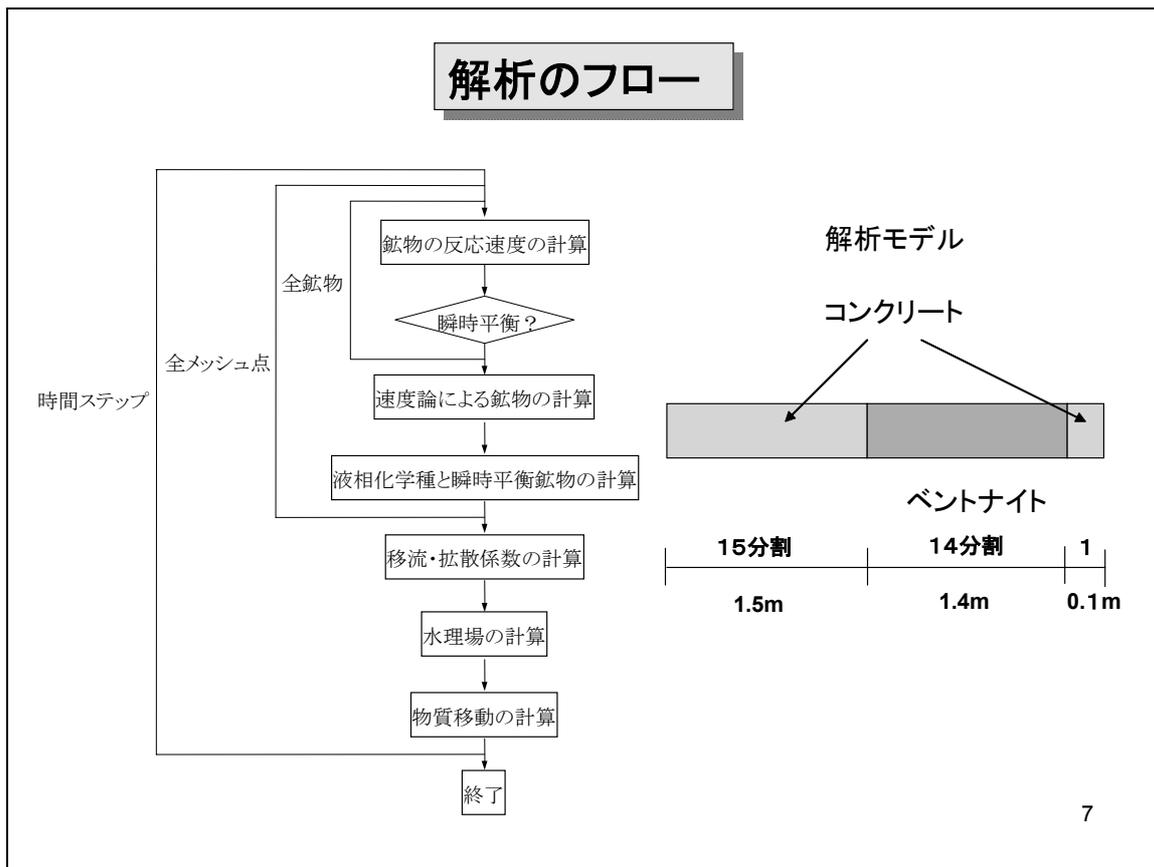
:Quartz、Calcite、Montmorilloniteの反応速度定数の設定(knauss and Wolery : 1998, Busemberg and Plummer : 1986, Cama ,Ganor, Ayora and Lasaga : 2000)

(3)水理パラメータの設定

①Kozeney-Carmanの式の採用

:化学反応モデルにより与えられる空隙率と透水係数の関係を示す理論式(セメント系材料)

6



鉱物およびパラメータ(セメント系材料)

速度論的評価

鉱物	速度反応式	速度定数 (Log k) mol/m ² /s	出典	モル体積 m ³ /mol	モル表面積 m ² /mol (100 μmの球状を仮定)
Calcite	$R = kA[H^+]^p[(Q/K)^m - 1]^n$ P=-0.65, m=1.0, n=0.9	-5.2	Busenberg and Plummer : 1986	36.934 x 10 ⁻⁶	2.17

8

鉱物およびパラメータ(セメント系材料)

平衡論的評価

鉱物	化学反応式	平衡定数 Log K(25°C)	初期濃度 (mol/m ³)	設定根拠
CSH-Ca(OH) ₂	Ca(OH) ₂ + 2H ⁺ = Ca ²⁺ + 2H ₂ O	杉山モデル	2600	Borjesson,1997 Karlsson,1999
CSH-SiO ₂	SiO ₂ = SiO _{2(aq)}	杉山モデル	922	
Katoite	Ca ₃ Al ₂ H ₁₂ O ₁₂ + 4H ⁺ = 3Ca ²⁺ + 2 Al(OH) ₄ ⁻ + 4H ₂ O	34.6637	3.3	
AFm	Ca ₄ Al ₂ SO ₁₀ ·12H ₂ O + 4H ⁺ = 4Ca ²⁺ + 2 Al(OH) ₄ ⁻ + SO ₄ ²⁻ + 10H ₂ O	26.0200	108.0	
Brucite	Mg(OH) ₂ + 2H ⁺ = Mg ²⁺ + 2H ₂ O	16.2980	227.0	
Calcite	CaCO ₃ + H ⁺ = Ca ²⁺ + HCO ₃ ⁻	1.8487	0(2次鉱物)	安定物質
Gibbsite	Al(OH) ₃ + H ₂ O = Al(OH) ₄ ⁻ + H ⁺	-14.384	0(2次鉱物)	安定物質

9

鉱物およびパラメータ(ベントナイト)

速度論的評価

鉱物	速度反応式	速度定数 (log)mol/m ² /s	出典	モル体積 m ³ /mol	モル表面積m ² /mol (100 μmの球状仮定)
Quartz	R=kA[H ⁺] ^p [(Q/K) ^m -1] ⁿ P=-0.5, m=n=1.0	-16.3	knauss and Wolery : 1998	22.688 x 10 ⁻⁶	1.36
Calcite	R=kA[H ⁺] ^p [(Q/K) ^m -1] ⁿ P=-0.65, m=1.0, n=0.9	-5.2	Busemberg and Plummer : 1986	36.934 x 10 ⁻⁶	2.17
Na- Montmorillonite	R=kA[H ⁺] ^{-0.34} [exp(-6.0x10 ⁻¹⁰ (log(Q/K) ⁶))-1]	-17.1	Cama ,Ganor, Ayora and Lasaga : 2000	134.271 x 10 ⁻⁶	11010
Ca- Montmorillonite	R=kA[H ⁺] ^{-0.34} [exp(-6.0x10 ⁻¹⁰ (log(Q/K) ⁶))-1]	-17.1	Cama ,Ganor, Ayora and Lasaga : 2000	134.271 x 10 ⁻⁶	11010

10

鉱物およびパラメータ(ベントナイト)

平衡論的評価

鉱物	化学反応式	平衡定数 Log K (25°C)	初期濃度 (mol/m ₃)	設定根拠
Quartz	$\text{SiO}_2 = \text{SiO}_{2(aq)}$	-3.9993	15427.0	主要鉱物
Calcite	$\text{CaCO}_3 + \text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + \text{HCO}_3^-$	1.8487	1354.0	主要鉱物
Na- Montmorillonite	$\text{Na}_{.33}\text{Mg}_{.33}\text{Al}_{1.67}\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2 + 2.68\text{H}_2\text{O} = 0.33\text{Na}^+ + 0.33\text{Mg}^{2+} + 1.67\text{Al}(\text{OH})_4^- + 4\text{SiO}_{2(aq)} + 0.68\text{H}^+$	-34.4894	1180.4	主要鉱物
Ca- Montmorillonite	$\text{Ca}_{.165}\text{Mg}_{.33}\text{Al}_{1.67}\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2 + 2.68\text{H}_2\text{O} = 0.165\text{Ca}^{2+} + 0.33\text{Mg}^{2+} + 1.67\text{Al}(\text{OH})_4^- + 4\text{SiO}_{2(aq)} + 0.68\text{H}^+$	-34.3786	309.6	主要鉱物
ion exchange	$2\text{ZNa} + \text{Ca}^{2+} = \text{Z}_2\text{Ca} + 2\text{Na}^+$	0.69	-	
Laumontite	$\text{CaAl}_2\text{Si}_4\text{O}_{12} \cdot 4\text{H}_2\text{O} = \text{Ca}^{2+} + 2\text{Al}(\text{OH})_4^- + 4\text{SiO}_{2(aq)}$	-30.6133	O(2次鉱物)	代表的ゼオライト Savage1996参照
Analcite	$\text{Na}_{.96}\text{Al}_{.96}\text{Si}_{2.04}\text{O}_6 \cdot \text{H}_2\text{O} + 0.92\text{H}_2\text{O} = 0.96\text{Na}^+ + 0.96\text{Al}(\text{OH})_4^- + 2.04\text{SiO}_{2(aq)}$	-15.1148	O(2次鉱物)	
Muscovite	$\text{KAl}_3\text{Si}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2 + 6\text{H}_2\text{O} = \text{K}^+ + 3\text{Al}(\text{OH})_4^- + 3\text{SiO}_{2(aq)} + 2\text{H}^+$	-52.8342	O(2次鉱物)	行々の近似鉱物
Tobermorlite(14)	$\text{Ca}_5\text{Si}_6\text{H}_{21}\text{O}_{27.5} + 10\text{H}^+ = 5\text{Ca}^{2+} + 6\text{SiO}_{2(aq)} + 15.5\text{H}_2\text{O}$	63.8445	O(2次鉱物)	代表的CSH鉱物

11

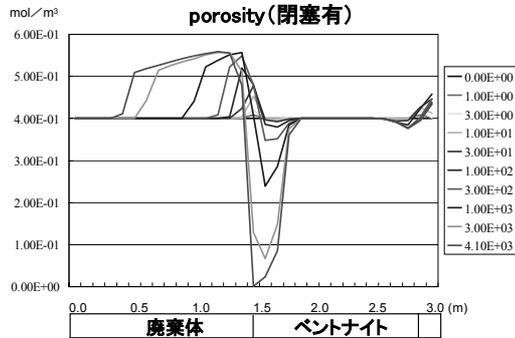
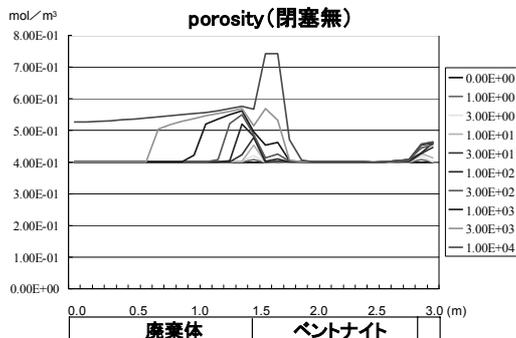
液相化学種の化学反応式と平衡定数(log)

EQ3/6: data1.com.R10

液相化学種	化学反応式	LOGK(25°C)
Al ³⁺	$\text{Al}^{3+} + 4\text{H}_2\text{O} = \text{Al}(\text{OH})_4^- + 4\text{H}^+$	22.1477
CO ₃ ²⁻	$\text{CO}_3^{2-} + \text{H}^+ = \text{HCO}_3^-$	10.3288
CaOH ⁺	$\text{CaOH}^+ + \text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + \text{H}_2\text{O}$	12.8500
NaHSiO _{3(aq)}	$\text{NaHSiO}_{3(aq)} + \text{H}^+ = \text{Na}^+ + \text{SiO}_{2(aq)} + \text{H}_2\text{O}$	8.3040
OH ⁻	$\text{H}^+ + \text{OH}^- = \text{H}_2\text{O}$	13.9951
HSiO ₃ ⁻	$\text{HSiO}_3^- + \text{H}^+ = \text{SiO}_{2(aq)} + \text{H}_2\text{O}$	9.9525
H ₂ SiO ₄ ²⁻	$\text{H}_2\text{SiO}_4^{2-} + 2\text{H}^+ = \text{SiO}_{2(aq)} + 2\text{H}_2\text{O}$	22.9116

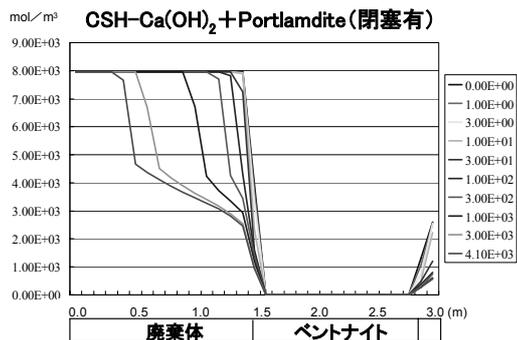
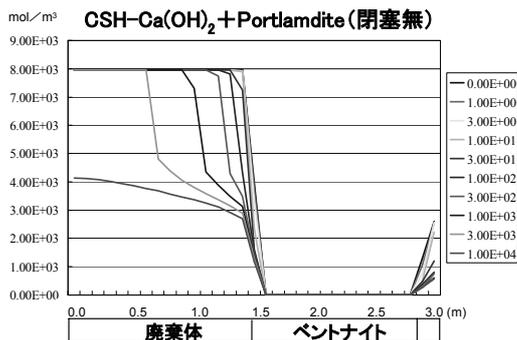
12

Tobermolite (モル体積: 5.0e-04m³/mol) による空隙閉塞の影響(1)



・二次鉱物の体積の考慮による空隙閉塞(止水性)

Tobermolite (モル体積: 5.0e-04m³/mol) による空隙閉塞の影響(2)



・二次鉱物により空隙が閉塞(止水性)する場合、物質移動が停止し、セメントの溶解が抑制される

・二次鉱物の同定と空隙閉塞の重要性を示唆

H14年度の研究成果(2/3)

力学的変遷モデルの構築

(1)セメント系材料の変遷モデルの開発

①ひずみ軟化挙動(強度と剛性低下)を考慮したセメント劣化挙動モデルの開発(Ca成分の溶出によるセメント系材料の剛性、強度の劣化及びそれに伴う体積収縮やせん断変形の発生を表現:非線形弾性モデルでモデル化)

(2)ベントナイトの変遷モデルの開発

①膨潤時の体積ひずみを(通常粘土の膨潤によるひずみ+浸透膨潤による体積ひずみ[ベントナイトの特性])として表現したベントナイトの膨潤モデルの開発

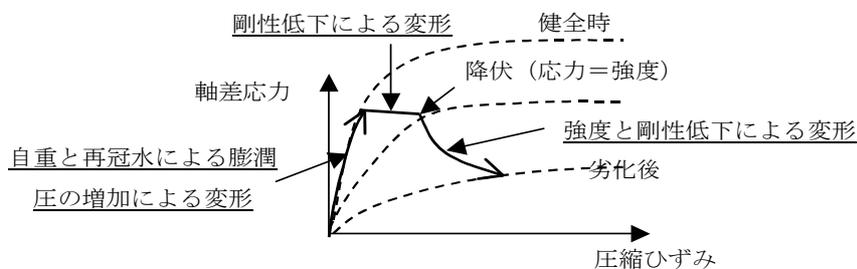
(3)水理パラメータの設定

①間隙比と透水係数に関する実験式の採用(セメント系材料)

②Ca型化率に応じた透水係数に関する実験式の採用(ベントナイト)

15

(1)セメント系材料の変遷モデルの開発



モデル化の要素

①自重と再冠水によるベントナイトの膨潤圧の増加による変形

$$\{F_0\} = \int_V [B]^T \{\sigma\} dV \quad \begin{matrix} [B] : \text{変位-ひずみマトリックス} \\ \{\sigma\} : \text{ベントナイトの膨潤圧} \end{matrix}$$

②剛性低下による変形(セメント系材料の強度>セメント系材料に作用する応力)

・剛性低下により発生するひずみ $\{\epsilon\} = [D_1^{-1}] - [D_0^{-1}]]\{\sigma\}$

$[D_0^{-1}]$: 初期剛性E0から算出される応力-ひずみマトリックスの逆行列

$[D_1^{-1}]$: 初期剛性E0から算出される応力-ひずみマトリックスの逆行列

(σ) : セメント系材料の応力

・発生したひずみによる外力 $\{F_c\} = \int_V [B]^T [D_1] \{\epsilon\} dV$

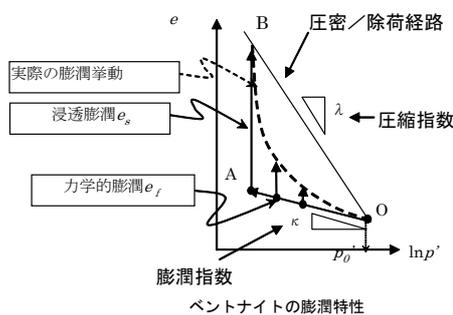
③強度と剛性低下による変形(セメント系材料の強度<セメント系材料に作用する応力)

・超過応力の解放とひずみの増大(ひずみ軟化)→応力再分配法によるひずみ軟化挙動の解析

$$\{F_e\} = \int_V [B]^T \{\Delta\sigma\} dV$$

16

(2)ベントナイトの変遷モデルの開発



$$0 < P' \leq P'_0$$

$$1 \leq OCR = \frac{P'_0}{P'}, \quad OCR = \frac{P'_0}{P'} = 1 \Rightarrow e_s$$

$$e_s = \exp\{\zeta(OCR - 1)\} - 1$$

P' : 平均有効応力
 P'_0 : 先行圧密加重
 OCR : 過圧密比
 e_s : 浸潤膨潤による間隙比
 ζ : 材料定数(膨潤パラメータ)

ベントナイトの膨潤挙動のモデル化の仮定①

ベントナイトの膨潤時の体積ひずみ: $\dot{\epsilon}^e_v$

$$\dot{\epsilon}^e_v = \dot{\epsilon}^e_{vs} + \dot{\epsilon}^e_{vf}$$

$\dot{\epsilon}^e_{vs}$: 浸透膨潤による体積ひずみ [ベントナイトの特性]
 $\dot{\epsilon}^e_{vf}$: 通常粘土の膨潤による体積ひずみ

17

ベントナイトの膨潤挙動のモデル化の仮定②

・ベントナイトの浸潤膨潤による間隙比の変化

$$e_s = \exp\{\zeta(OCR - 1)\} - 1$$

$$\dot{\epsilon}^e_{vs} = -\frac{\dot{e}_s}{1 + e_0}, \quad \tilde{K} = \frac{1 + e_0}{K} P'$$

\dot{e}_s : 間隙比の時間微分 \tilde{K} : 体積弾性係数
 e_0 : 先行時の間隙比 K : 膨潤指数

より、

$$\dot{\epsilon}^e_{vs} = \frac{\dot{P}' \zeta(OCR) \exp\{\zeta(OCR - 1)\}}{\tilde{K} K}$$

$$\dot{\epsilon}^e_{vf} = \frac{K}{1 + e_0} \frac{\dot{P}'}{P'} = \frac{\dot{P}'}{\tilde{K}}$$

$$\therefore \dot{\epsilon}^e_v = \frac{\dot{P}' \zeta(OCR) \exp\{\zeta(OCR - 1)\} + K}{\tilde{K} K}$$

・ベントナイトの浸潤挙動を考慮した弾性定数

$$\tilde{K}_s = \tilde{K} \frac{K}{\zeta(OCR) \exp\{\zeta(OCR - 1)\} + K}$$

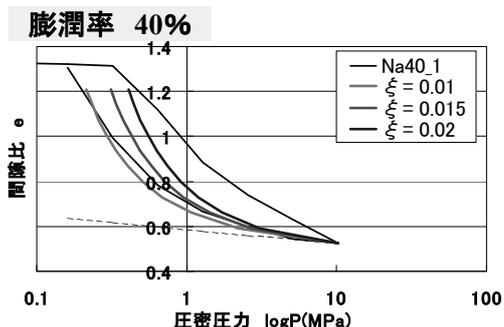
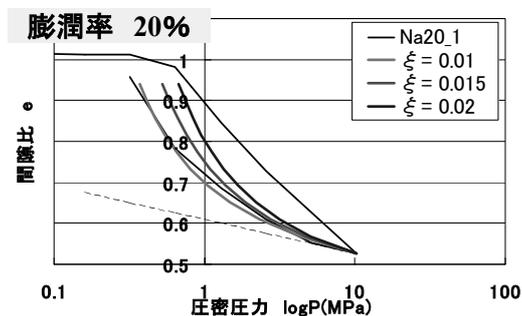
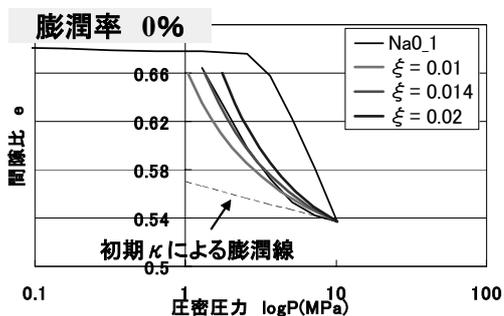
$$\tilde{G}_s = \frac{3(1 - 2\nu')}{2(1 + \nu')}$$

\tilde{K}_s : 体積弾性係数 \tilde{G}_s : せん断弾性係数
 \tilde{K} : 通常粘土の体積弾性係数 ν' : 有効ポアソン比

弾塑性応力～ひずみマトリックスの弾性成分の変更

18

ベントナイトの膨潤挙動モデル化の検証



Na型ベントナイトの浸透膨潤パラメータξはおよそ0.01~0.02の値をとる。

(3)水理パラメータの設定(1)

①間隙比と透水係数に関する実験式の採用(セメント系材料)

$k=1.34 \times 10^{-9} \times \theta^{5.95}$ [m/sec] (Denys Breysse:セメントペースト)

$$\theta = \theta_{ca} + \theta_m$$

θ_{ca} : Ca成分の溶出によって増加した空隙率(既存の実験結果から設定)

θ_m : 力学物性の変化に起因する変形(ひずみ)に基づく空隙率(力学的変遷モデル)

対象部位	水セメント比	初期空隙率	Ca溶出に応じた空隙率 θ_{ca} (%)
構造躯体及び支保工	50%	0.3	$30 + 0.34 \times (\text{Ca溶出率}(\%))$
(充填材+廃棄体)	65%	0.4	$40 + 0.34 \times (\text{Ca溶出率}(\%))$

(3)水理パラメータの設定(2)

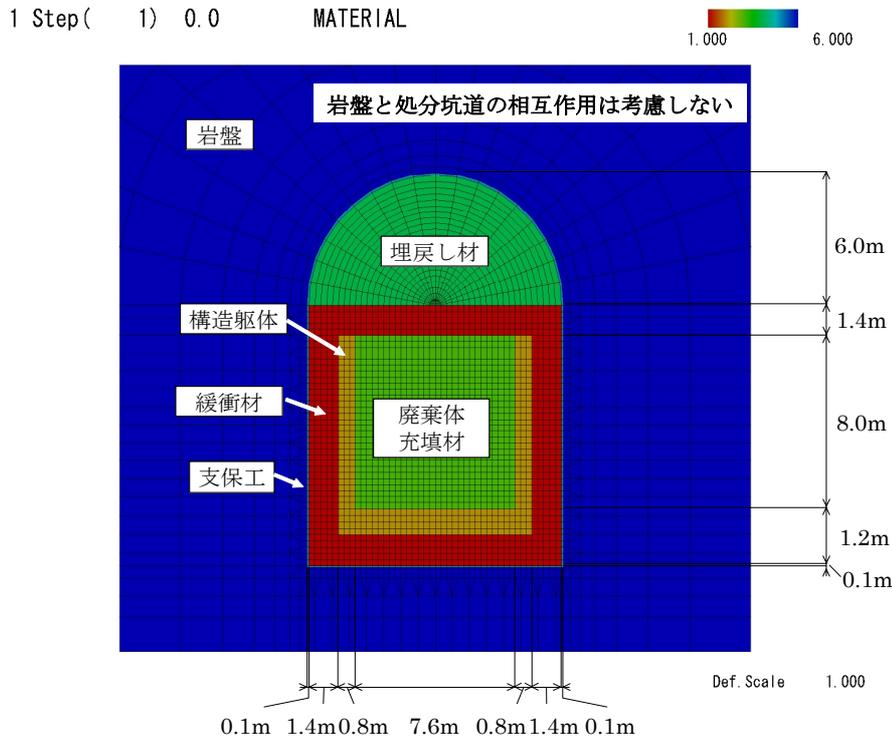
Ca型化率に応じた透水係数に関する実験式の採用(ベントナイト)

既存の間隙比と透水係数の関係式をCa化率に応じて線形補完

部位	透水係数(m/sec) [e:間隙比]
緩衝材	$1.21 \times 10^{-12} \times e^{1.04} + (\text{Ca型化率}/100) \times (1.48 \times 10^{-8} \times e^{13.84} - 1.21 \times 10^{-12} \times e^{1.04})$
埋戻材	$1.93 \times 10^{-12} \times e^{0.28} + (\text{Ca型化率}/100) \times (1.11 \times 10^{-6} \times e^{16.63} - 1.93 \times 10^{-12} \times e^{0.28})$

21

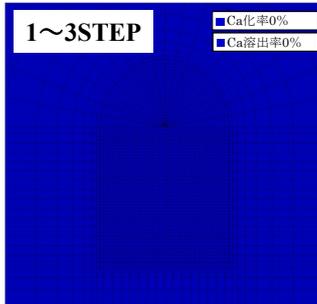
力学的変遷モデルの試解析結果(解析体系)



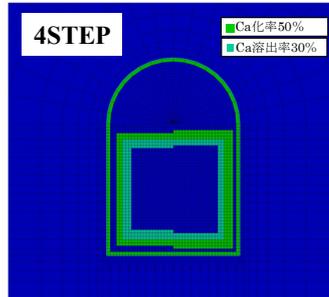
22

力学的変遷モデル単独の試解析結果

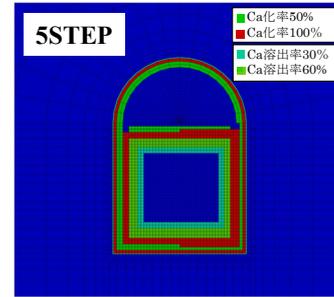
(解析タイムステップと与条件として与える化学的変遷指標の設定①)



- ・タイムステップ1~3までセメント系材料のCa溶出及びベントナイトのCa型化は起こらない



- ・セメント系材料のCa溶出率を施設左側半分の方を大きく設定(水の流れを左から右に設定)
- ・下流領域のベントナイトのCa化率を高め設定

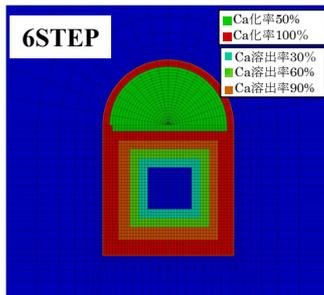


- ・上流側のセメント系材料において、Ca溶出率60%の領域を広く設定
- ・下流領域のベントナイトにおいてCa化率100%の領域を広く設定

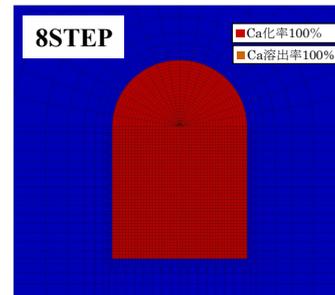
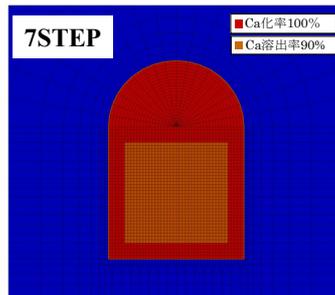
23

力学的変遷モデル単独の試解析結果

(解析タイムステップと与条件として与える化学的変遷指標の設定②)



- ・上流側のセメント系材料において、Ca溶出率90%の領域を広く設定
- ・下流領域のベントナイトにおいてCa化率100%の領域を広く設定

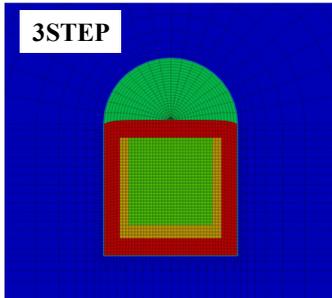


- ・Ca溶出率はセメント系材料全領域で100%
- ・Ca化率はベントナイト全領域で100%

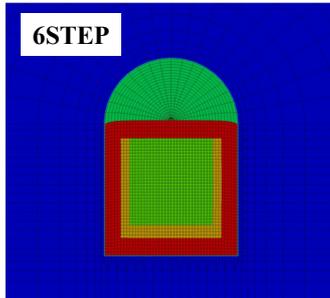
24

力学的変遷モデルの試解析結果(変形)

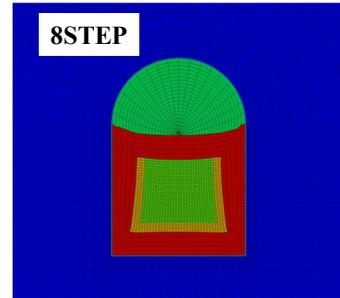
15(mm)



- ・ベントナイトの初期の膨潤圧による変形



- ・Ca溶出率の増加に応じたセメント系材料の体積収縮

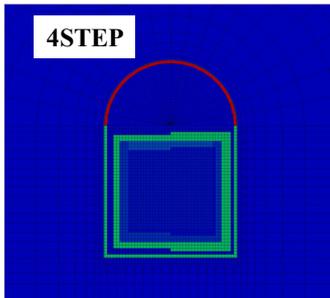


- ・セメント系材料の一軸圧縮強度がベントナイトによる軸差応力を下回り、せん断破壊が生じて大きく収縮
- ・緩衝材上側部及び底部での顕著な膨潤
- ・埋め戻し材の沈下

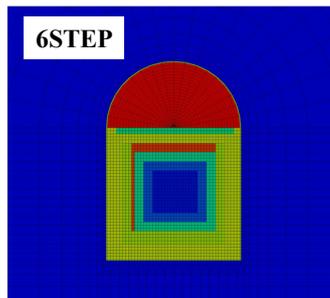
25

力学的変遷モデルの試解析結果(透水係数分布)

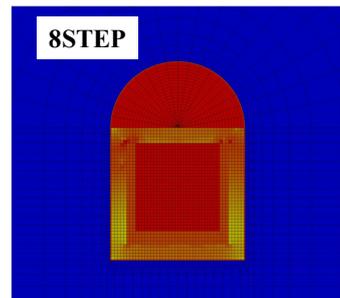
1.000E-13 1.000E-10 (m/sec)



- ・ベントナイトのCa化率に応じた透水係数の変化



- ・セメント系材料のCa溶出率およびベントナイトのCa化率に応じた透水係数の変化



- ・セメント系材料のCa溶出率およびベントナイトのCa化率並びにセメント系材料の変形によるベントナイトの膨潤(緩衝材上側部と底部で顕著)に応じた透水係数の増大

* メッシュは計算メッシュ

26

H14年度の研究成果(3/3)

(3) N.F水理場の変遷評価システムのプロトタイプ(1)

①連成システムにおける化学的変遷モデルの簡略化

- ・セメント系材料からのCaの溶出及びベントナイトのCa化のみに着目

$$C = \varepsilon[Ca^{2+}] - (1 - \varepsilon)S_{Ca} / 2$$

$$\varepsilon \frac{\partial C}{\partial t} = \nabla \cdot (D \nabla [H(C) \cdot C]) - v \cdot H(C) \cdot C$$

H(x) : ヘビサイド関数
 S_{Ca} : Ca化し得る吸着サイトの 残存数

- ・化学的変遷解析の条件

ベントナイト初期密度	1.8 [g/cm ³]
交換性陽イオン量	51.4 [meq/100g]
イオン交換の選択性定数K	0.69
セメント系材料中のCa量	4221 [mol/m ³]
Caの溶解度	9.21 [mol/m ³]
緩衝材中実効拡散係数	5.0 E-10 [m ² /s]
コンクリート中実効拡散係数	1.4 E-9 [m ² /s]

27

(3) N.F水理場の変遷評価システムのプロトタイプ(2)

②力学的変遷モデル

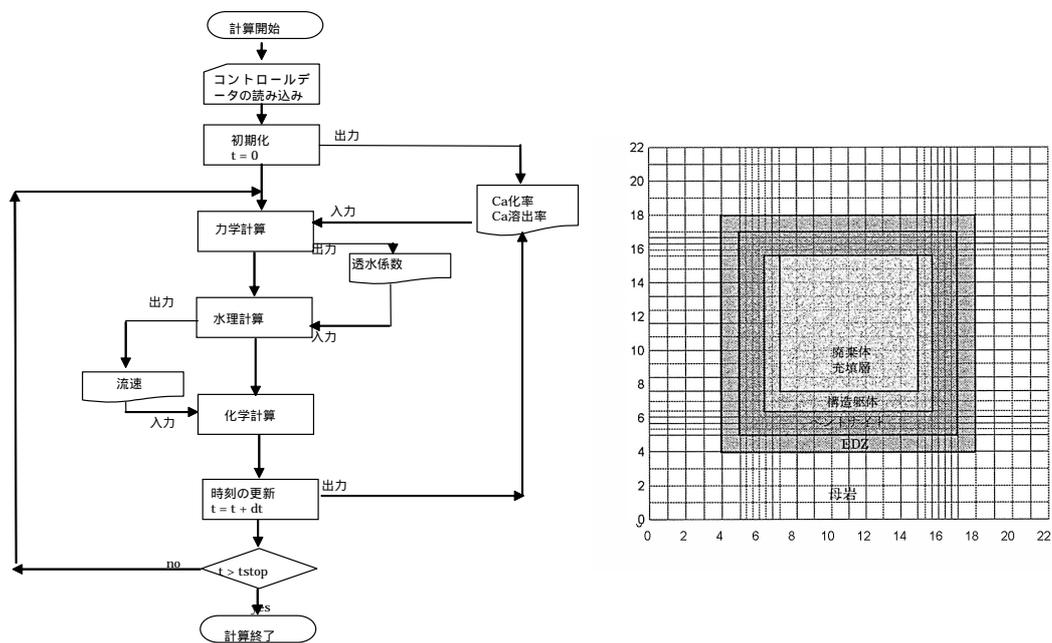
- ・ひずみ軟化挙動(強度と剛性低下)を考慮したセメント劣化挙動モデル
- ・浸透膨潤による体積ひずみを考慮したベントナイトの膨潤モデル

③水理モデル

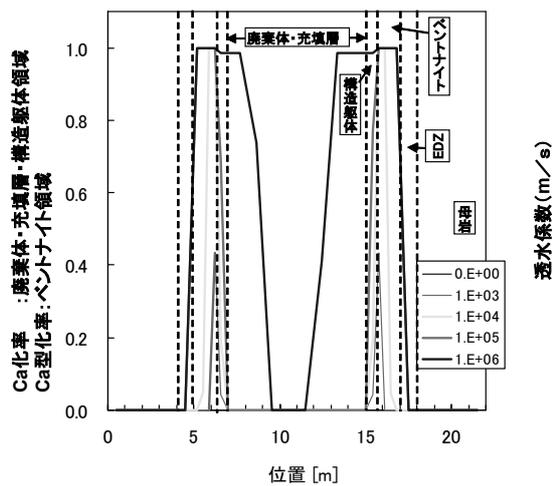
- ・ダルシー則に従う非圧縮性流体の飽和定常流解析モデル
- ・母岩及びEDZの透水係数は一定と仮定
- ・セメント系材料の透水係数の変化は考慮せず、一定(計算効率の確認、タイムメッシュの違いによる影響確認を目的とした試解析であるため)
- ・ベントナイトの透水係数はCa型化および体積ひずみを考慮して算出

28

(3) N.F水理場の変遷評価システムのプロトタイプの解析フロー及び解析体系



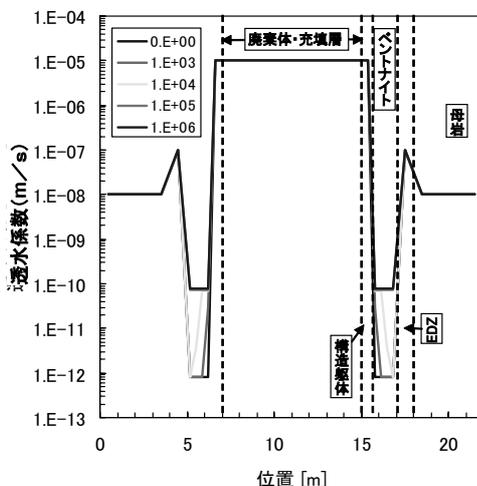
(3)N.F水理場の変遷評価システムのプロトタイプ (Caの溶出及びCa型化に特化)の試解析結果



施設中心を通る水平断面上の時刻0~100万年後のCa化率・Ca溶出率分布 (タイムステップ100年)

- ・ 廃棄体・充填層外縁部及び構造躯体領域において、100万年程でCa溶出率がほぼ100%に達する。
- ・ 10万年程で、ペントナイトのCa化がほぼ100%に達する。

**(3)N.F水理場の変遷評価システムのプロトタイプ
(Caの溶出及びCa型化に特化)の試解析結果(2)**



施設中心を通る水平断面上の時刻0~100万年後の透水係数分布
(タイムステップ100年)

・ベントナイトのCa化及び膨潤変形により、10万年でベントナイトのほぼ全領域の透水係数が2桁上昇する。

まとめ及び今後の課題(1/4)

(1)化学的変遷モデルの構築

研究開発項目	実施時期(年度)			
	2001	2002	2003	2004
①化学的変遷モデルの構築及び水理モデルとのカップリング	<ul style="list-style-type: none"> セメント系材料/ベントナイトの化学的変遷プロセスの把握 セメント系材料/ベントナイトの多成分反応移動モデル(化学反応+物質移動=化学的変遷モデル)のプロトタイプ構築 システム化に向けた化学的変遷モデルの簡略モデル構築 化学反応と透水係数の関係式の設定(Kozeny-Carmanの式) 	<ul style="list-style-type: none"> セメント系材料/ベントナイトの化学的変遷プロセスの再整理 セメント系材料/ベントナイトの多成分反応移動モデル(化学的変遷モデル)の高度化(GSH溶解沈殿モデル[杉山他]の組み込み等) Kozeny-Carmanの式を用いた、簡略化した化学的変遷モデルと水理パラメータの連成(セメント系材料) 		<ul style="list-style-type: none"> モデルの高度化
②評価項目の導出	<ul style="list-style-type: none"> セメント/ベントナイト近傍での元素の液相濃度、鉱物組成の試解析 	<ul style="list-style-type: none"> 二次鉱物の考慮の有無、二次鉱物による止水性による違い等によるセメント/ベントナイト近傍での元素の液相濃度、鉱物濃度への影響解析 		<ul style="list-style-type: none"> 詳細解析 影響度の高い化学反応等の同定
③化学的変遷モデルの妥当性の検討				<ul style="list-style-type: none"> 実験結果を用いたモデルの検証

まとめ及び今後の課題(2/4)

(2)力学的変遷モデルの構築

研究開発項目	実施時期(年度)			
	2001	2002	2003	2004
①力学的変遷モデルの構築	<ul style="list-style-type: none"> 応力再分配法による応力-ひずみ関係式を用いたセメント劣化挙動 [ひずみ軟化挙動 (強度と剛性低下)] モデルの基本設計 ベントナイトの膨潤特性を表現するための弾塑性モデルの調査、特性把握 材料の変形と透水係数の関係の検討 	<ul style="list-style-type: none"> ひずみ軟化挙動 (強度と剛性低下) を考慮したセメント劣化挙動モデルの開発 膨潤時の体積ひずみを (通常粘土の膨潤によるひずみ+浸透膨潤による体積ひずみ [ベントナイトの特性]) として表現したベントナイトの膨潤モデルの開発 間隙比と透水係数に関する実験式の採用 Ca型化率に応じた透水係数に関する実験式の採用 岩盤力学挙動モデルの調査、特性把握 		<ul style="list-style-type: none"> モデルの高度化
②評価項目の導出	-----	<ul style="list-style-type: none"> セメント劣化 (与条件下) に伴う変形挙動の試解析 ベントナイトの膨潤挙動に関する試解析 セメント劣化及びベントナイトのCa化を考慮した場合の人工バリアシステムの変形挙動及び透水係数分布の試解析 		<ul style="list-style-type: none"> 詳細解析
③力学的変遷モデルの妥当性の検討	-----	-----		<ul style="list-style-type: none"> 実験結果を用いたモデルの検証³³

まとめ及び今後の課題(3/4)

(3)試験に基づく関係式の導出(別報告)

研究開発項目	実施時期(年度)			
	2001	2002	2003	2004
①材料の変質試験及び物性評価試験に基づく評価項目の取	<ul style="list-style-type: none"> セメント系材料及びベントナイト・岩盤の通水、浸漬劣化試験による溶出元素濃度、固相元素、透水係数、空隙率、強度特性等の関係把握 100%Ca型化ベントナイトの膨潤特性、透水係数の取得 	<ul style="list-style-type: none"> セメント系材料及びベントナイト・岩盤の長期材料の通水、浸漬劣化試験による溶出元素濃度、固相元素、透水係数、空隙率、強度特性等の関係把握 50%Ca型化ベントナイトの膨潤特性、透水係数の取得 		<ul style="list-style-type: none"> モデル確認データの取得試験

まとめ及び今後の課題(4/4)

(4) N.F水理場の変遷評価システムの構築

研究開発項目	実施時期(年度)			
	2001	2002	2003	2004
①連成手法の開発	・連成アルゴリズムの検討	・化学的変遷モデル・水理モデル及び力学的変遷モデルの連成システムのプロトタイプ構築	・高度化 ・影響度の高い化学反応等の組み込み	
②詳細度／精度の向上	-----	-----	・詳細解析 ・水理場の変遷の把握	

4. 硝酸塩及びホウ酸塩を含む廃棄物の 処分に係る研究

4.1 バリア材に対する硝酸塩の影響評価

処分研究部 処分材料研究 Gr.

本田 明

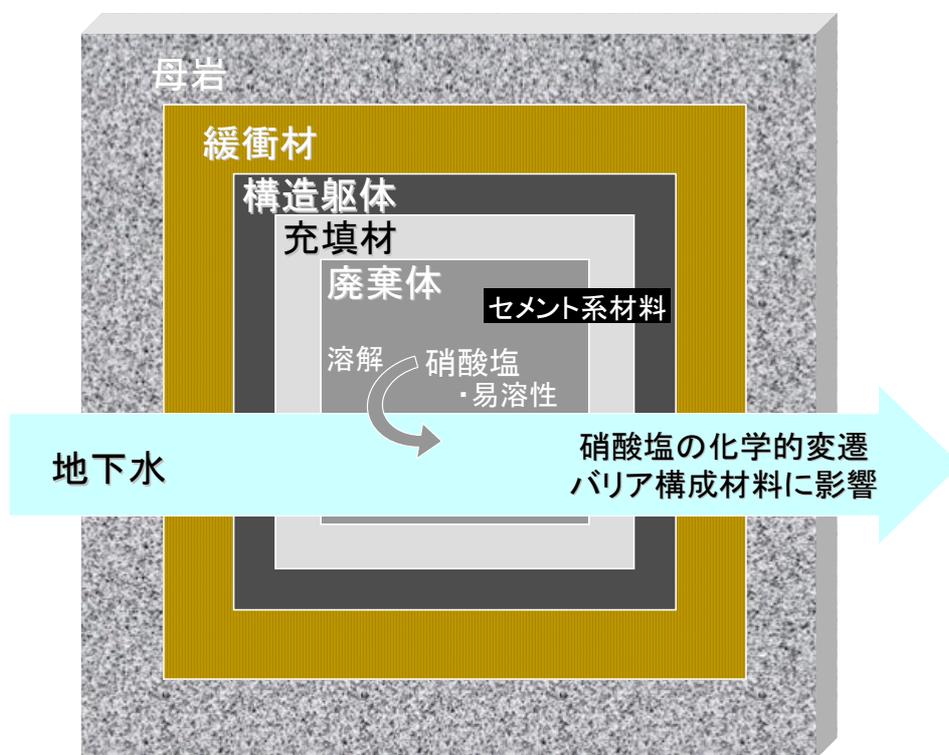
バリア材に対する硝酸塩の影響評価

平成14年度低レベル放射性廃棄物
処分研究成果報告会

平成15年3月24日 13:15－17:00
エントリー4F大会議室

環境保全・研究開発センター
処分研究部 処分材料研究Gr.
本田 明

1



TRU廃棄物処分場の概念図

2

[背景]

- 硝酸イオンは酸化性の化学種であり、金属等の還元性物質との化学的相互作用により、化学形態が変化する可能性がある。



硝酸イオンの化学的変遷挙動の把握が重要である。

- TRU廃棄物には硝酸塩を比較的多量に含むものが存在する。
- TRU廃棄物における支配核種はI-129やC-14等の沈殿しにくく、収着性の乏しい核種である。



バリア材に及ぼす硝酸塩の影響
(特に水理特性への影響)の把握が重要である

3

目的と報告内容

- 硝酸イオン化学的変遷挙動の把握



- 金属との化学的相互作用による硝酸イオンの変遷に関する研究

- バリア材に及ぼす硝酸塩の影響(特に水理特性への影響)の把握

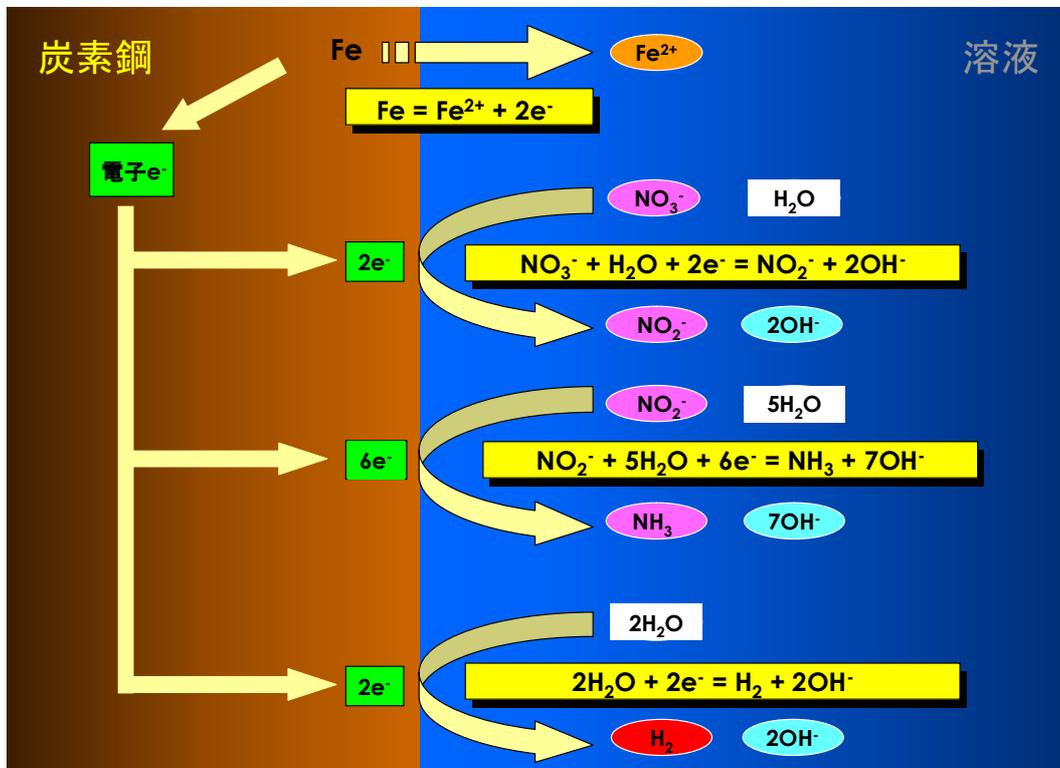
- セメント系材料の水理・力学特性に及ぼす、硝酸塩の影響に関する研究

- 緩衝材(圧縮ベントナイト)の水理・力学特性に及ぼす硝酸塩の影響に関する研究

4

金属との化学的相互作用による 硝酸塩の変遷に関する研究

5



炭素鋼による硝酸イオンの化学的変遷モデルの概念図

6

混成電位モデル

硝酸還元物質などの反応速度

$$-d[\text{NO}_3^-]/dt = f_1(E, \text{NO}_3^-) \quad \text{①}$$

$$d[\text{NO}_2^-]/dt = f_1(E, \text{NO}_3^-) - f_2(E, \text{NO}_2^-) \quad \text{②}$$

$$d[\text{NH}_3]/dt = f_2(E, \text{NO}_2^-) \quad \text{③}$$

$$d(\text{Total}_{\text{H}_2})/dt = f_3(E) \quad \text{④}$$

$$I_{\text{corr}} = f(t) \quad \text{⑤}$$

電氣的バランス

$$I_{\text{corr}} = a f_1 + b f_2 + c f_3 \quad \text{⑥}$$

7

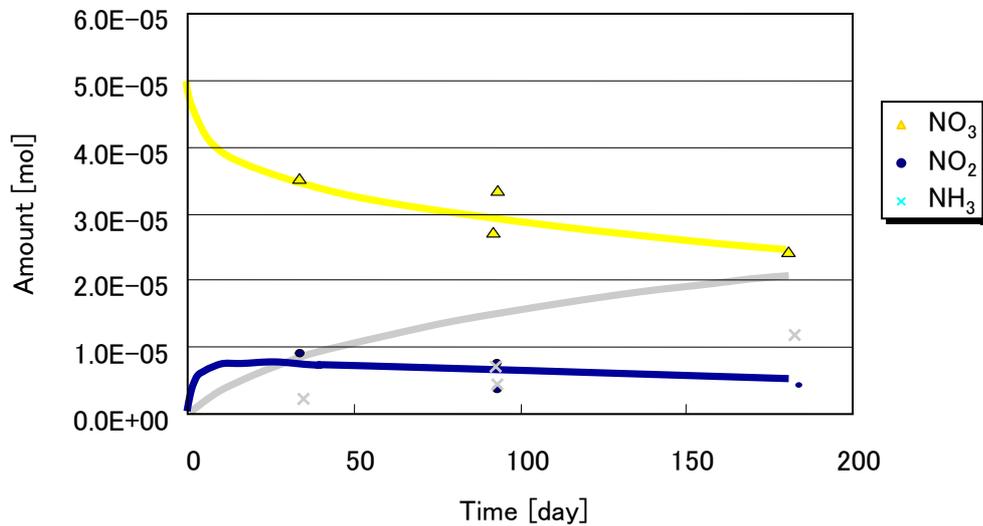
電気化学的硝酸塩変遷挙動より求めた化学変遷速度式

項目		フィッティングされた速度式 [A/cm ²]
アノード	鉄の溶解	$I = 5.52 \times 10^{-2} \cdot [\text{H}^+]^{0.207} \cdot t^{-0.631}$
カソード	水の分解	$I = 3.48 \times 10^{-10} \cdot \exp(-5030/T) \cdot \exp(-0.0307E)$
	硝酸イオンの還元	$I = 2.21 \times 10^{-13} \cdot \exp(3160/T) \cdot \exp(-0.0250E) \cdot [\text{H}^+]^{0.377} \cdot [\text{NO}_3^-]$
	亜硝酸イオンの還元	$I = 2.48 \times 10^{-9} \cdot \exp(1420/T) \cdot \exp(-0.0199E) \cdot [\text{H}^+]^{0.291} \cdot [\text{NO}_2^-]$

T: 温度[K], E: 電極電位[mV vs NHE], [H⁺]: 水素イオン濃度, [NO₃⁻]: 硝酸イオン濃度, [NO₂⁻]: 亜硝酸イオン濃度

8

炭素鋼の還元作用による硝酸塩の 化学的変遷挙動(実測値とモデル計算)



9

まとめ

- 電気化学的試験によりパラメータの測定を行い混成電位モデルに基づく硝酸塩変遷モデルによる解析を行ったところ硝酸塩希薄条件での実験結果と良い一致がみられた。
- 飽和に近い濃度では硝酸イオンから亜硝酸イオンへの変遷速度が解析で得られた変遷速度より小さくなっている。
- 高い濃度 (>1mol dm⁻³) での硝酸塩変遷の速度式を求めることが今後の課題である。

10

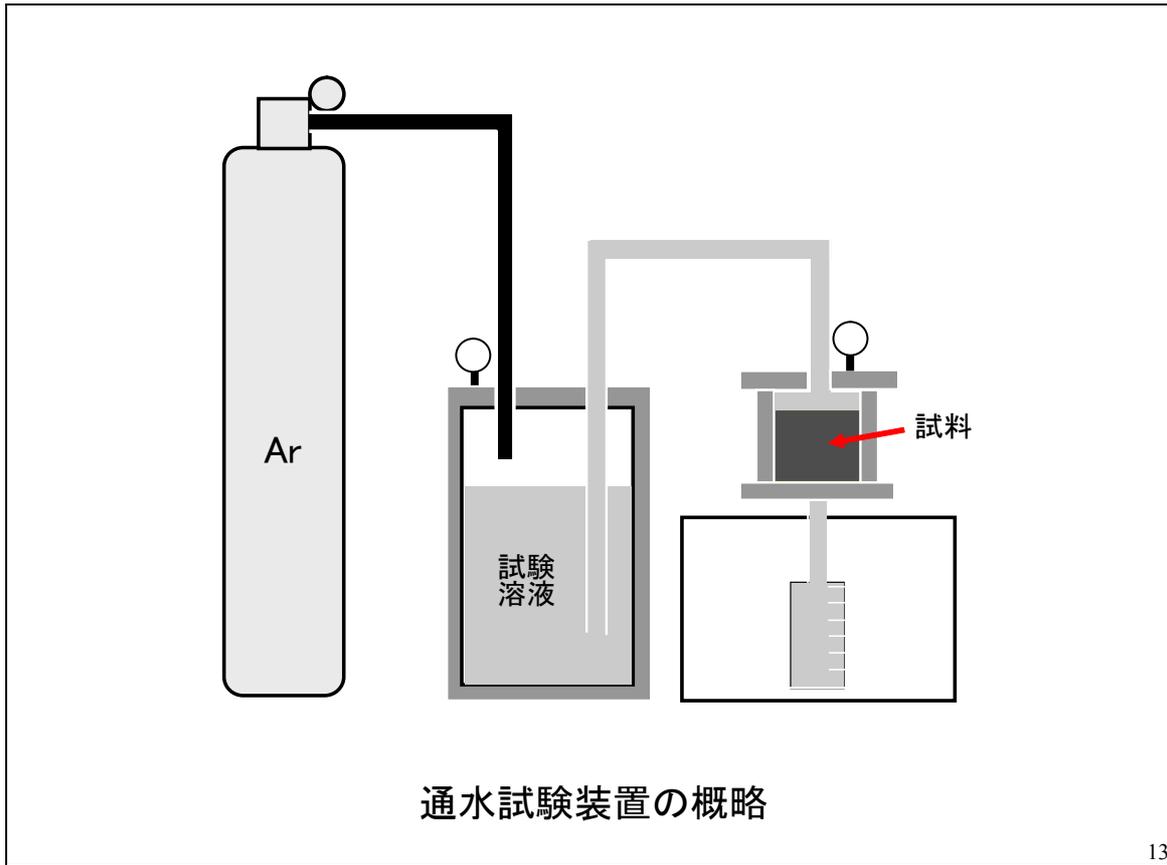
セメント系材料の水理・力学特性 に及ぼす硝酸塩の影響

11

実験方法

- ・通水法
- ・セメントペースト
 - 水／セメント重量比(W/C) : 105%
 - 練り混ぜ : 30°C-RH70%でブリーディングが収まるまで繰り返し
 - 養生 : 50°C-28日間
 - 試料形状 : φ40mm × H40mmの円柱
- ・通水液 積算液固比90まで : 1mol dm^{-3} NaNO_3
 - 積算液固比90以降: イオン交換水
 - (ブランク試験での通水液): イオン交換水のみ
- ・試験温度: 20°C, Arガス雰囲気
- ・分析項目 : [液相] pH, 主要化学成分
[固相] 透水係数, 圧縮強度, 空隙率
主要元素分布, 生成物定量, 結晶相同定 等

12

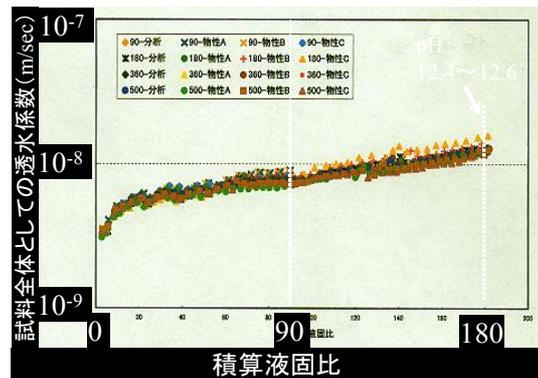
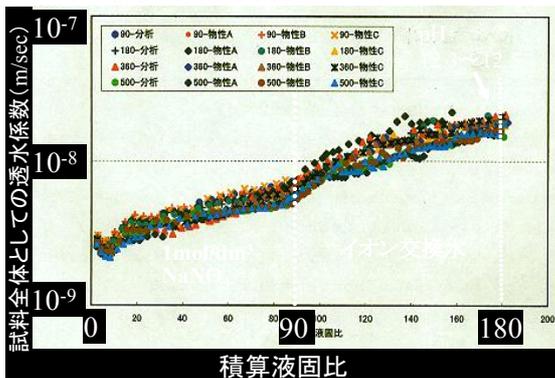


13

セメントペースト硬化体の透水係数の積算液固比依存性

通水液: 積算液固比90まで $1\text{mol dm}^{-3} \text{NaNO}_3$ 、以降イオン交換水

通水液: イオン交換水 (比較)



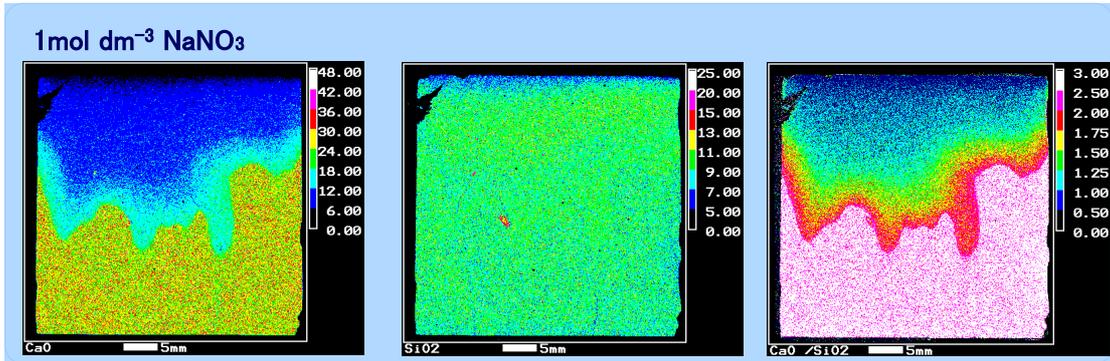
	積算液固比	圧縮強度 (N/mm ²)	空隙率 (%)
初期試料	0	3.94	57.4
$1\text{mol dm}^{-3} \text{NaNO}_3$ → イオン交換水	90	1.05	上部68.3 下部55.0
	180	1.16	上部74.1 下部71.1
イオン交換水 (比較)	90	1.71	上部65.4 下部54.1
	180	1.18	上部70.9 下部61.5

- ・試料全体の見掛けの透水係数は、硝酸ナトリウム水溶液の通水中はイオン交換水の場合より小、イオン交換水に切り替え直後に急増、以降やや大きい傾向。
- ・硝酸ナトリウム水溶液の場合は、イオン交換水より試料全体の見掛けの透水係数は小さいが、強度低。

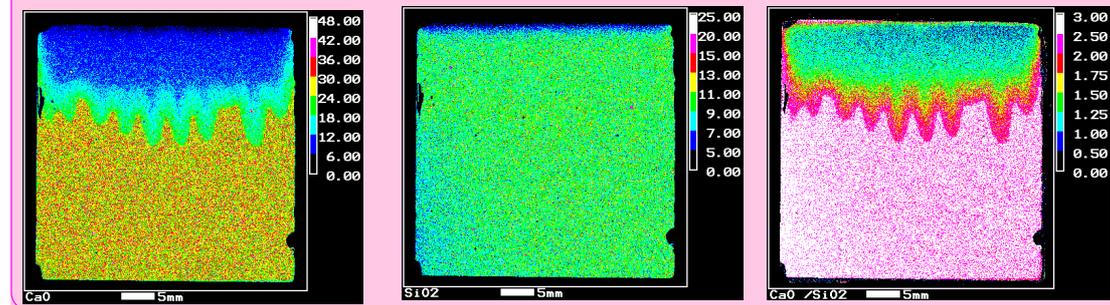
14

積算液固比90の元素分布

カラーバーの単位はwt% (CaO/SiO₂はモル比)



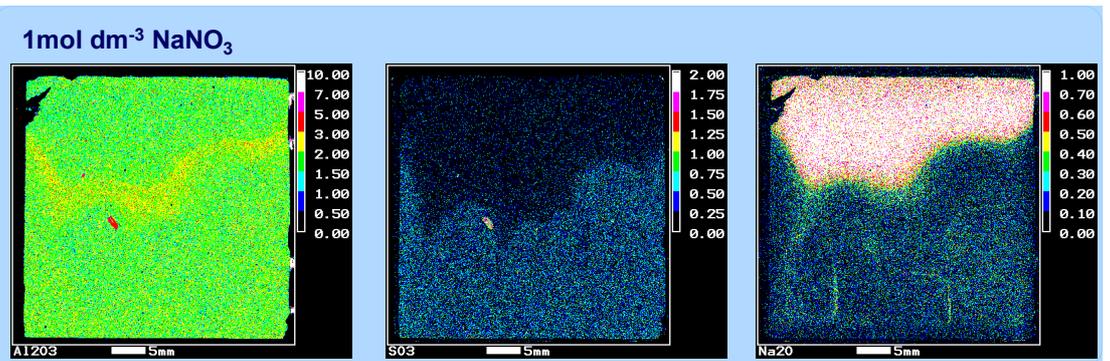
イオン交換水



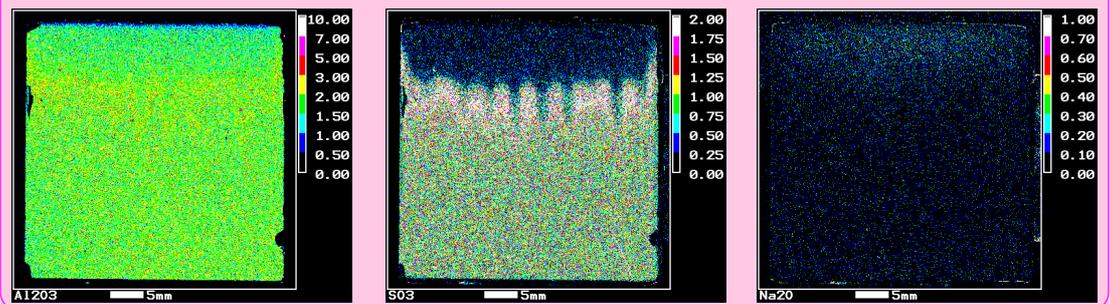
15

積算液固比90の元素分布

カラーバーの単位はwt%



イオン交換水

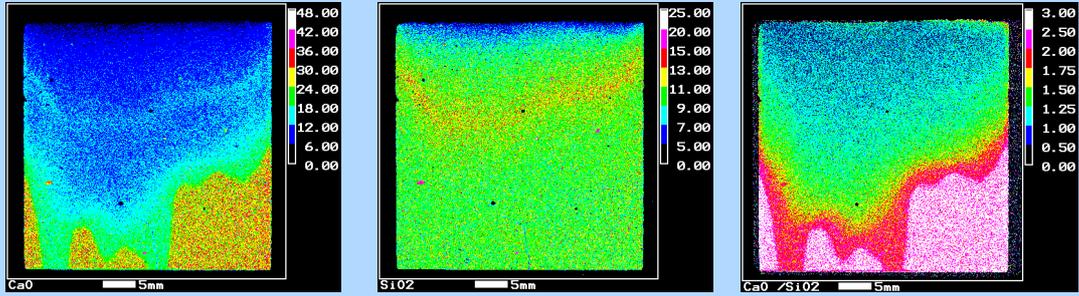


16

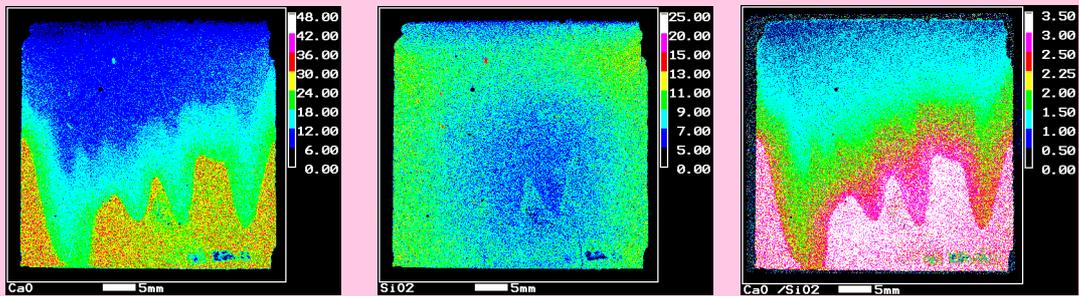
積算液固比180の元素分布

カラーバーの単位はwt% (CaO/SiO₂はモル比)

1mol dm⁻³ NaNO₃ → イオン交換水



イオン交換水

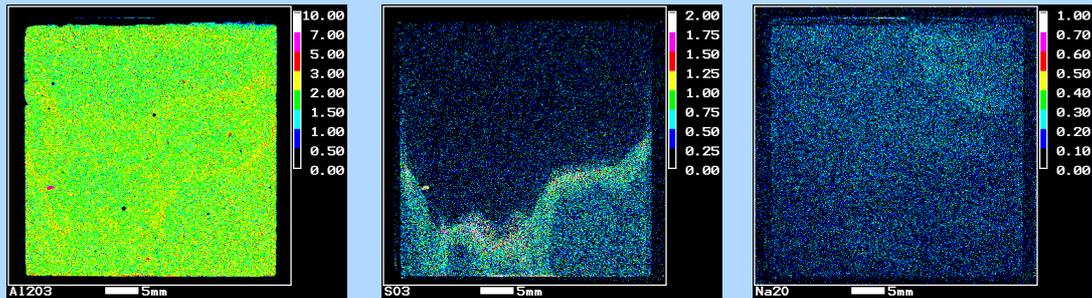


17

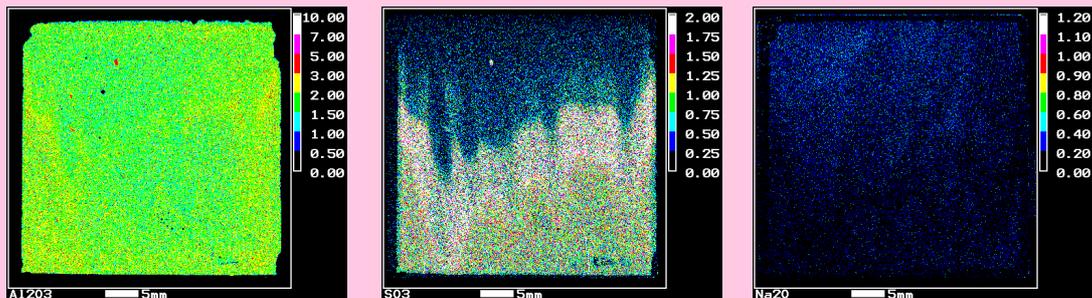
積算液固比180の元素分布

カラーバーの単位はwt%

1mol dm⁻³ NaNO₃ → イオン交換水



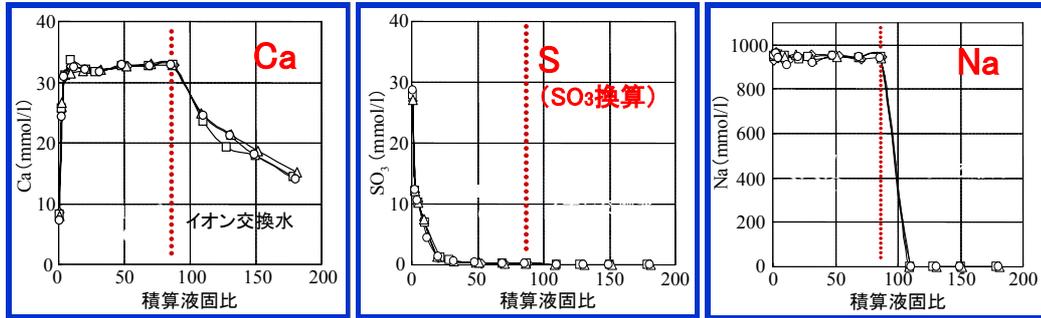
イオン交換水



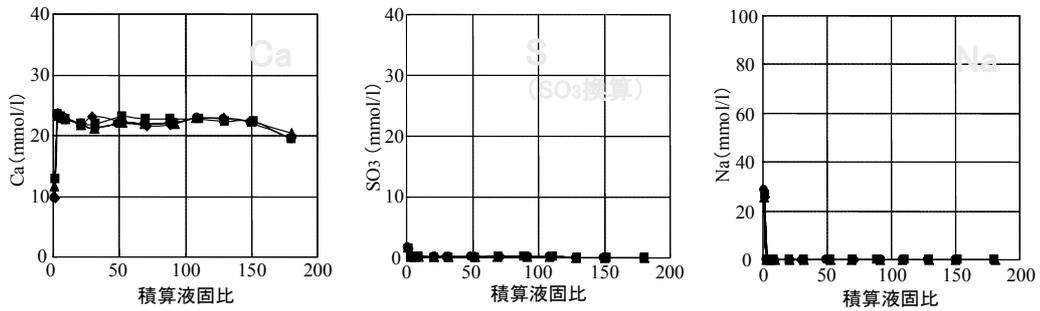
18

透過液の主要元素濃度

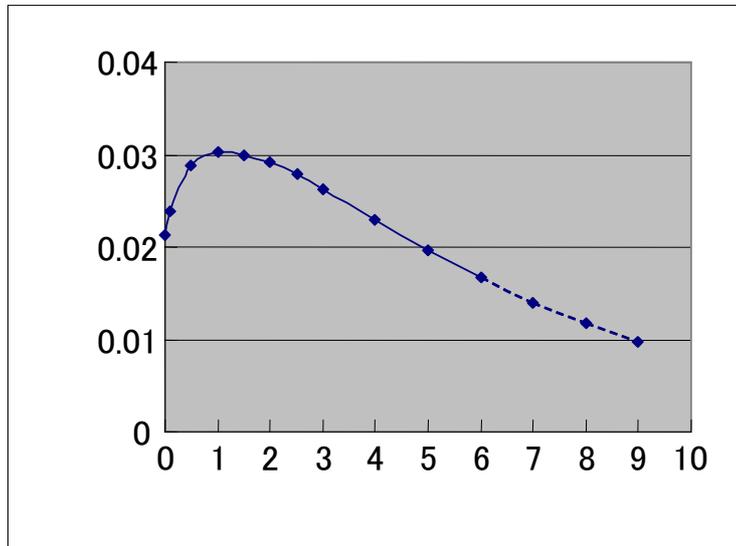
NaNO₃→イオン交換水



イオン交換水(比較)



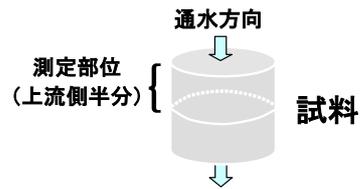
19



Ca(OH)₂と平衡する液相Ca濃度のNaNO₃濃度
依存性(Pitzer modelにより活量補正)

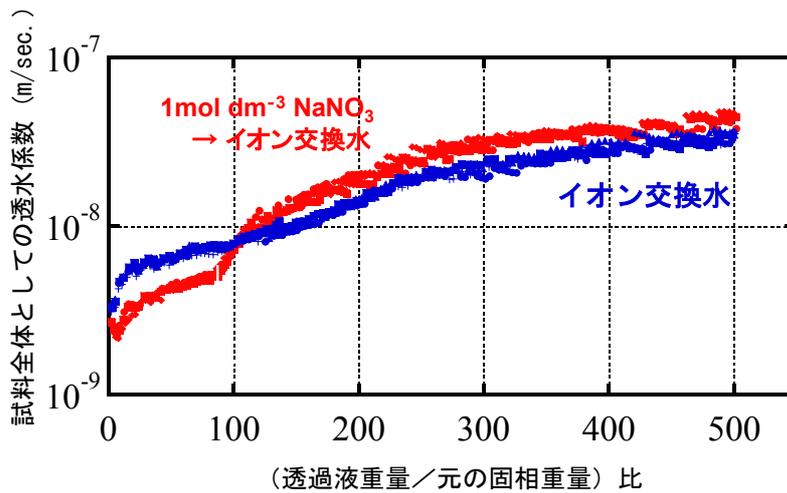
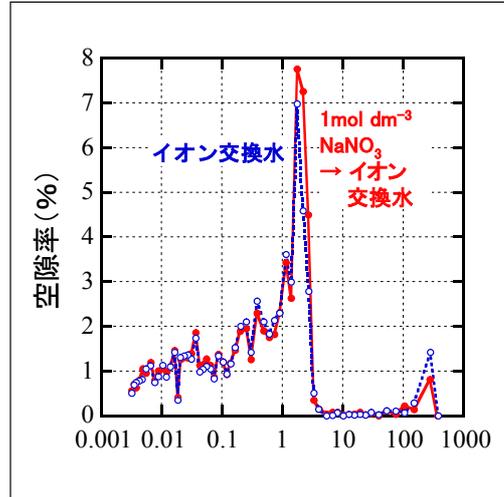
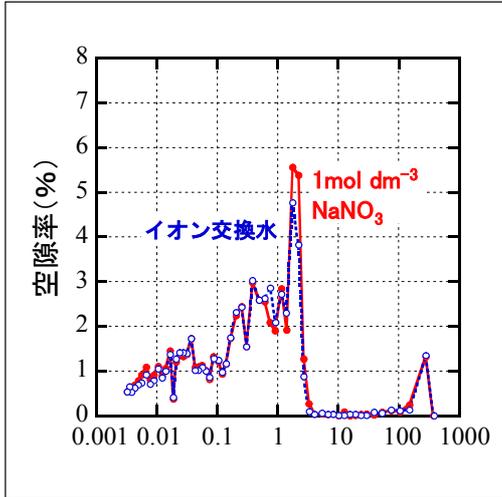
20

細孔径分布

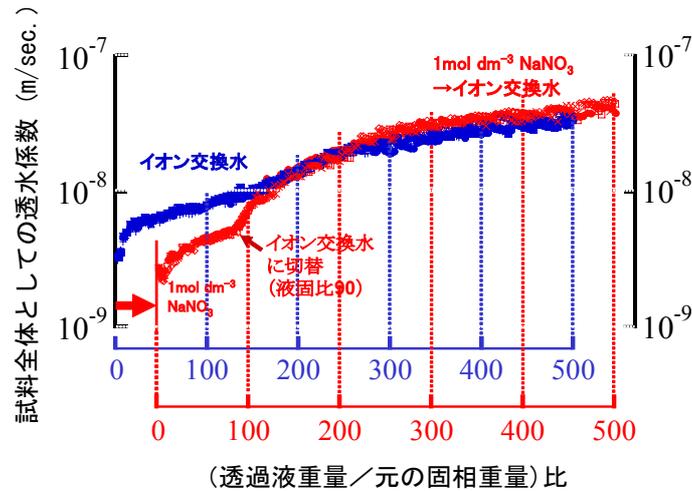


積算液固比=90

積算液固比=180



セメントペースト硬化体の透水係数の積算液固比依存性



NaNO₃通水試料の液固比90までのCa溶出量を、イオン交換水のみ通水した試料のCa溶出量と比較し、その増大分をイオン交換水のみ通水した場合のCa溶出量分に相当する液固比(約45)だけずらして透水係数をプロットした場合

23

まとめ

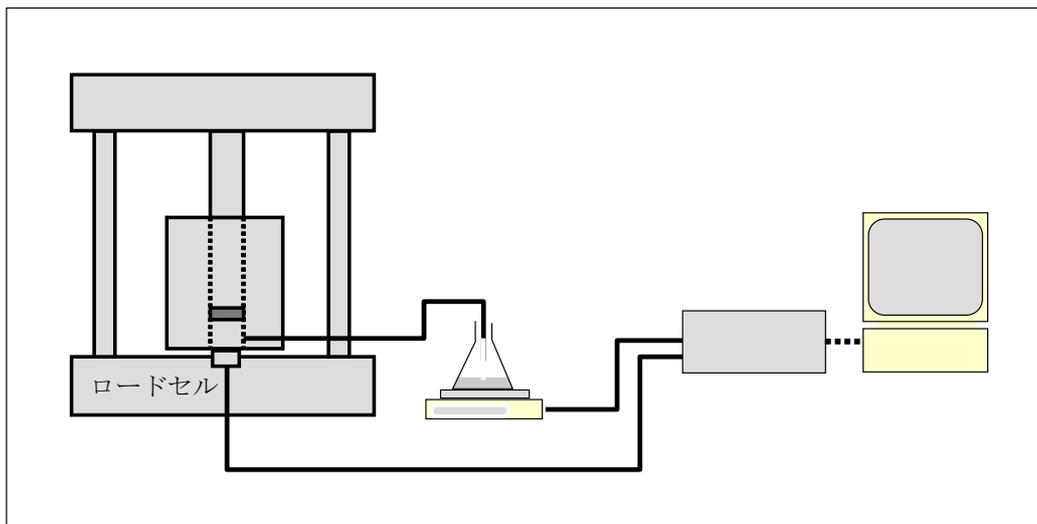
1M NaNO₃を積算液固比90まで通水したケースでは、ブランク(イオン交換水)と比較して

- (1) 試料全体としての透水係数は、NaNO₃水溶液の通水中はイオン交換水通水の場合より小、イオン交換水に切り替え直後に急増、ただし、通水液の切り替え直後を除けば、透水係数の上昇の傾向はブランク(イオン交換水のみを通水したケース)とほぼ同様
- (2) Ca、Sの溶出促進
- (3) Ca溶脱部にNaが濃集
- (4) 圧縮強度は低下

24

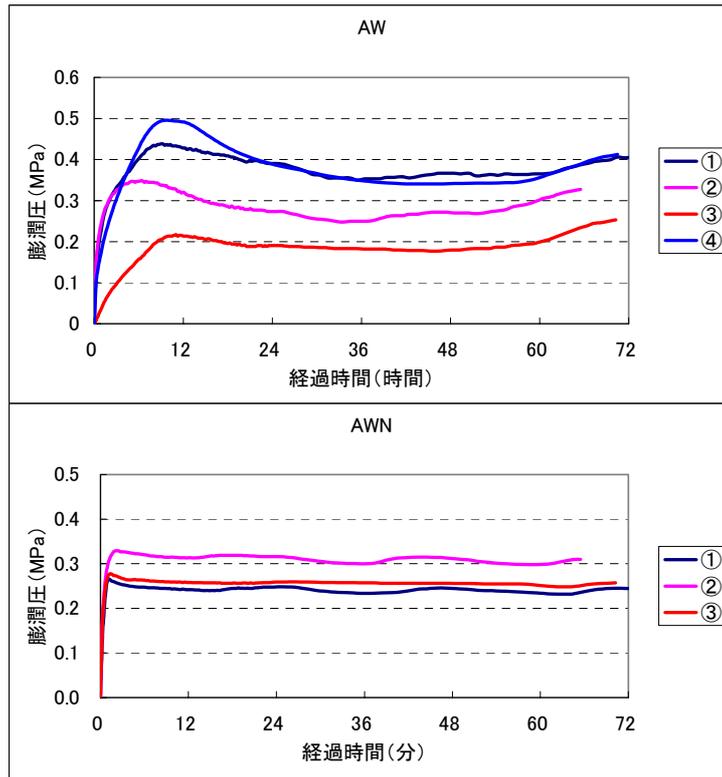
緩衝材(圧縮ベントナイト)の水理・ 力学特性に及ぼす硝酸塩の影響

25

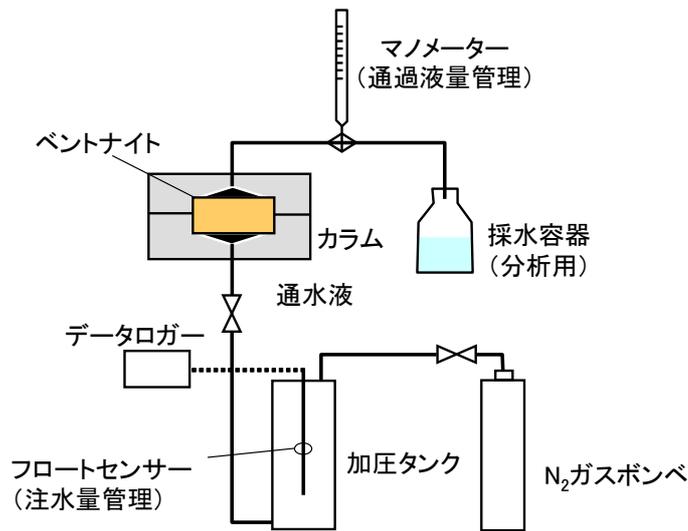


膨潤圧測定システム概要

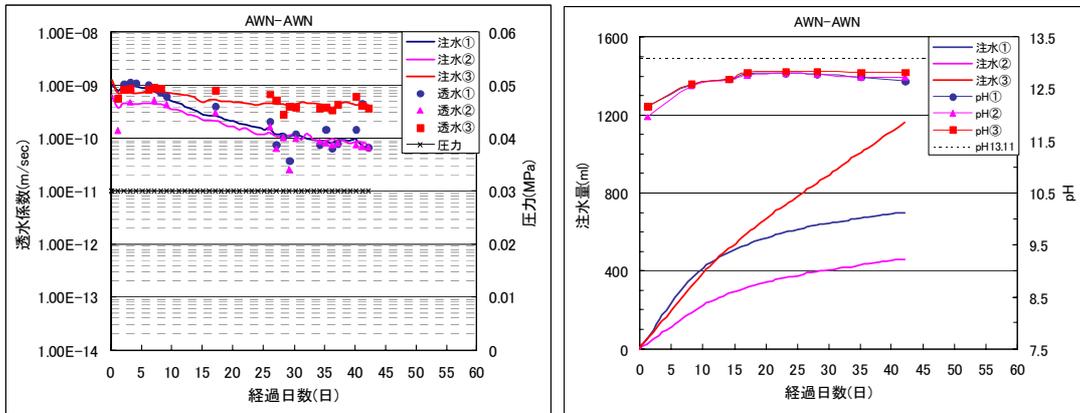
26



膨潤圧測定結果(溶液:AW、AWN)



透水試験のシステム概要



透水係数及び圧力の変化 積算通水量と通過液のpHの変化
 (置換処理:AWN、通水液:AWN) (置換処理:AWN、通水液:AWN)

まとめ

- AWN飽和時の圧縮ベントナイト(乾燥密度1.6g/cm³,ケイ砂30%含有)の膨潤圧は、約0.3MPaであり、通水圧力0.03MPaでの透水係数は10⁻⁹-10⁻¹⁰程度である。

4.2 セメント系材料に対するホウ酸塩の影響

処分研究部 処分材料研究 Gr.

大澤 勉

平成14年度低レベル放射性廃棄物処分研究成果報告会

硝酸塩及びホウ酸塩を含む廃棄物の処分に係る研究
セメント系材料に対するホウ酸塩の影響

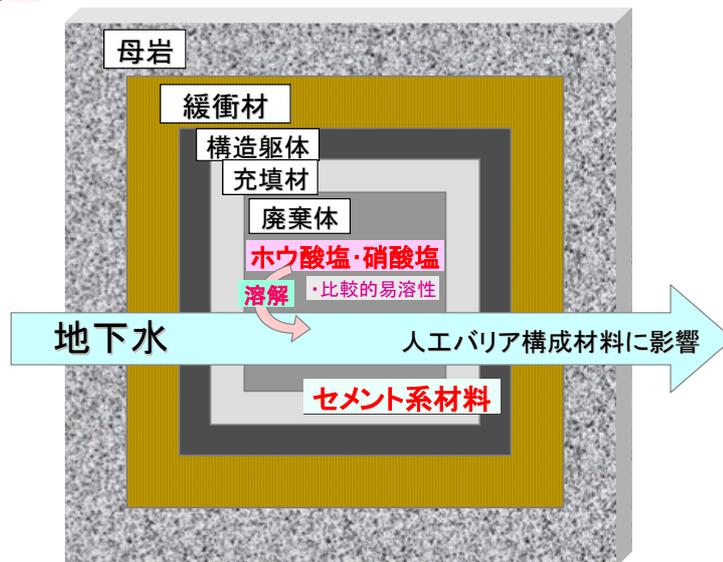
平成15年3月24日

東海事業所 エントリー4階大会議室

環境保全・研究開発センター
処分研究部 処分材料研究グループ
大澤 勉

1

研究の背景



TRU廃棄物処分場の概念図

廃棄体にはホウ酸塩や硝酸塩を含むものの存在が考えられ、
バリア材料に対するその影響を評価する必要がある。

2

本研究の目的

- ・再処理プロセス廃液のホウ酸塩蒸発固化体(ROBE固化体)が起源となった化学物質が、セメント系材料に及ぼす影響を評価。

方法

- ・ホウ酸塩の模擬蒸発固化体を溶解した液に、セメント硬化体を浸漬(バッチ試験)。

3

模擬蒸発固化体の化学組成(作製時からの推定)

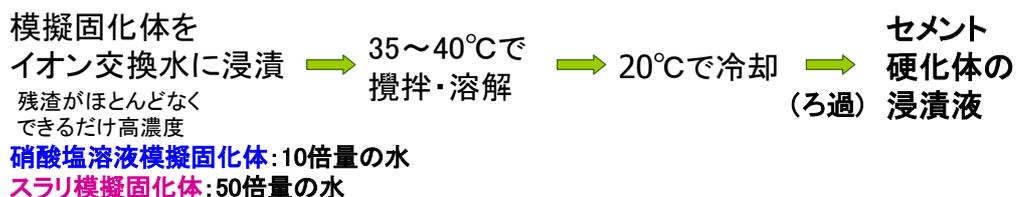
硝酸塩溶液模擬組成(低ROBE)

NaNO₃	Na ₂ SO ₄	AgNO ₃	Na₂B₄O₇	H ₂ O
56.1	0.89	0.013	23.4	19.6

スラリー模擬組成(高ROBE)

NaNO₃	NaNO ₂	Na ₂ SO ₄	NaHCO ₃	Na₂HPO₄	AgNO ₃	AgI	Fe(OH) ₃	Na₂B₄O₇	H ₂ O
33.2	1.01	0.6	3.9	15.0	0.009	0.14	2.31	22.8	21.0

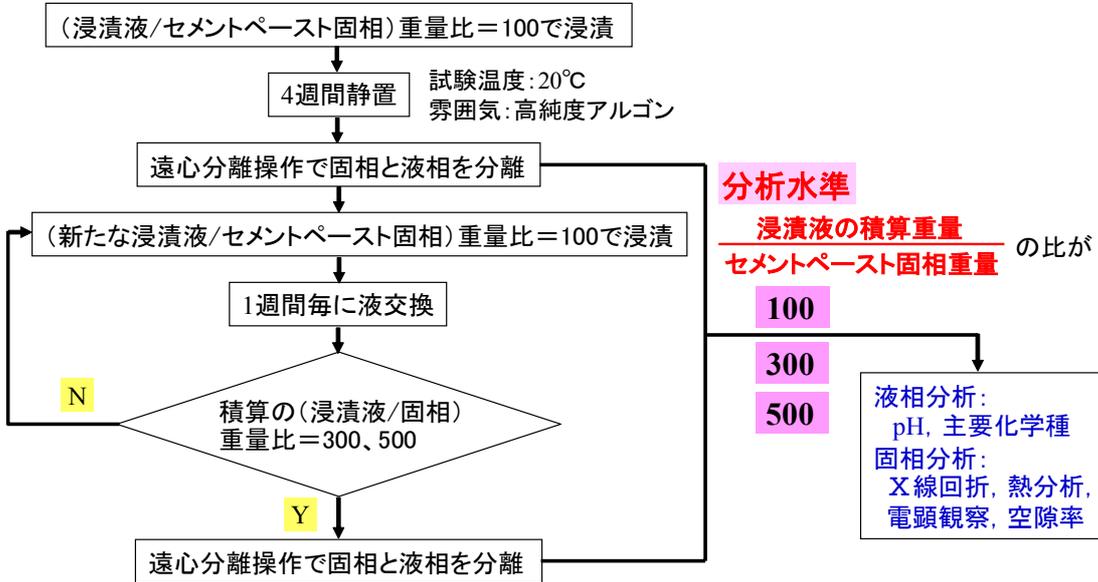
セメント硬化体を浸漬する液の調製方法



4

試験の手順

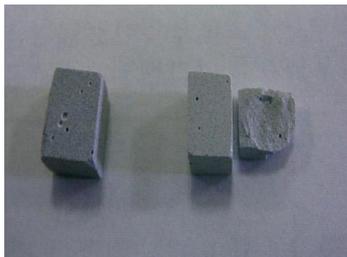
浸漬液：ホウ酸塩模擬固化体溶解液（比較：イオン交換水）
 浸漬固相：普通ポルトランドセメント（OPC）ペースト（水／セメント粉末重量比=50%）
 0.09-0.25mm粉末または約5mm角ブロック（電顕，空隙のみ）



5

浸漬後のセメント硬化体試料(ブロック)

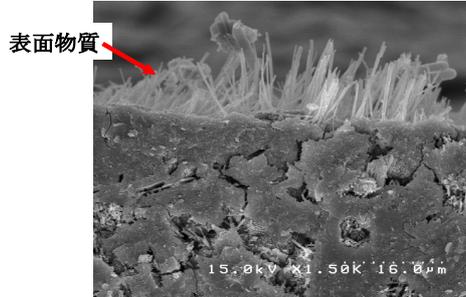
イオン交換水浸漬
 / 積算液固比500



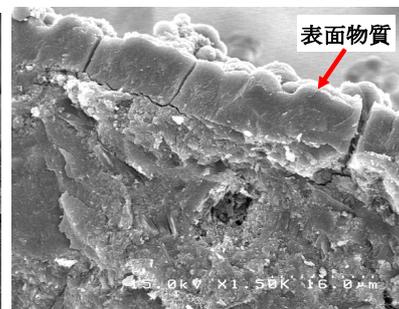
硝酸塩溶液模擬固化体
 (低ROBE) 溶液浸漬 / 積算液固比500



スラリー模擬固化体(高ROBE)
 溶液浸漬 / 積算液固比500



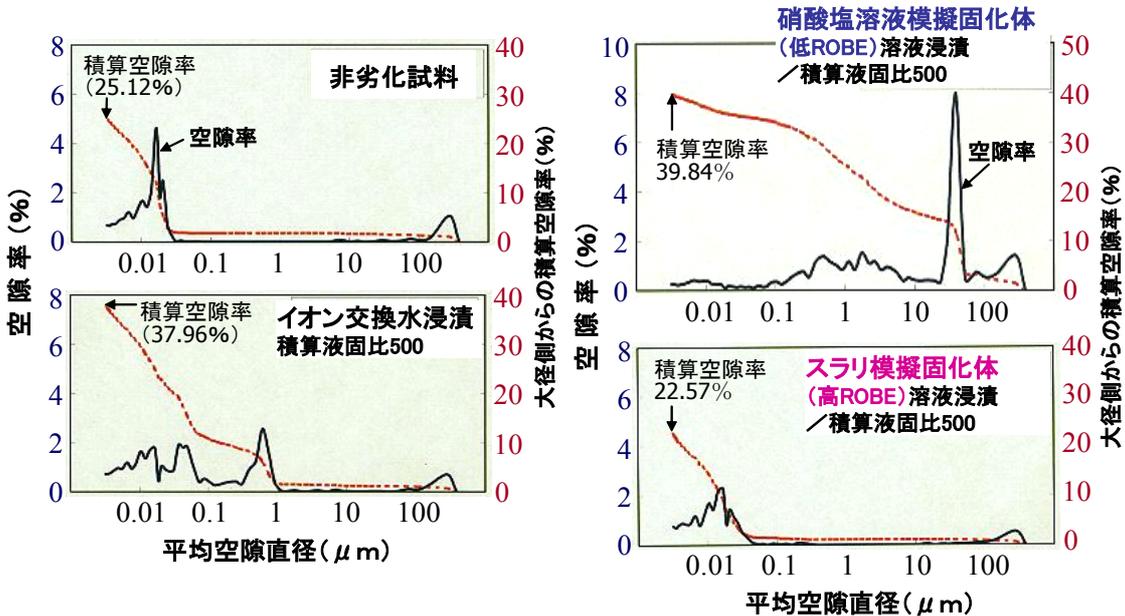
表面付近の破断面
 硝酸塩溶液模擬固化体
 (低ROBE) 溶液浸漬



表面付近の破断面
 スラリー模擬固化体
 (高ROBE) 溶液浸漬

6

空隙のサイズとその割合(セメント硬化体ブロック試料)



7

固相の化学組成(セメント硬化体粉末試料)

浸漬液	積算の液固比	化学組成 (wt%)						
		CaO	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	SO ₃	Na ₂ O	K ₂ O
初期試料		49.37	16.24	3.70	2.21	1.42	0.32	0.54
イオン交換水 (比較)	100	46.17	17.90	3.87	2.85	1.59	0.03	0.03
	300	42.43	22.40	4.56	3.53	1.79	0.08	0.10
	500	38.30	21.72	4.58	3.53	1.82	0.04	0.04
硝酸塩溶液模擬固化体 (低ROBE)	100	32.88	23.07	6.18	1.46	1.19	2.15	0.09
	300	20.10	32.11	10.37	8.90	0.15	3.10	0.07
	500	14.49	11.57	3.34	2.42	0.15	8.25	0.09
スラリー模擬固化体 (高ROBE)	100	38.05	20.60	2.73	3.21	1.73	0.64	0.04
	300	30.82	17.78	4.02	2.87	0.46	2.29	0.07
	500	26.23	16.27	4.20	2.51	0.10	4.18	0.04

可能な限りセメント硬化体部分を採取したが、析出物も若干含む。

8

XRDによる結晶相の同定結果(セメント硬化体粉末試料)

○:ピークが明瞭に確認できたもの, △: ピークが確認できたもの, ×:ピークが確認できなかったもの

浸漬液	積算液固比	C-S-H	Ca(OH) ₂	AFt	Ms	Mc
初期試料(浸漬なし)		○	○	○	×	○
イオン交換水(比較)	100	○	○	×	×	○
	300	○	×	×	×	○
	500	○	×	○	×	○
硝酸塩溶液模擬固化体(低ROBE)	100	○	×	×	×	△
	300	×	×	×	×	×
	500	—※	—※	—※	—※	—※
スラリ模擬固化体(高ROBE)	100	○	×	×	×	△
	300	○	×	×	×	×
	500	○	×	×	×	△

AFt: ettringite (3CaO·Al₂O₃·3CaSO₄·32H₂O) で代表される固溶体相

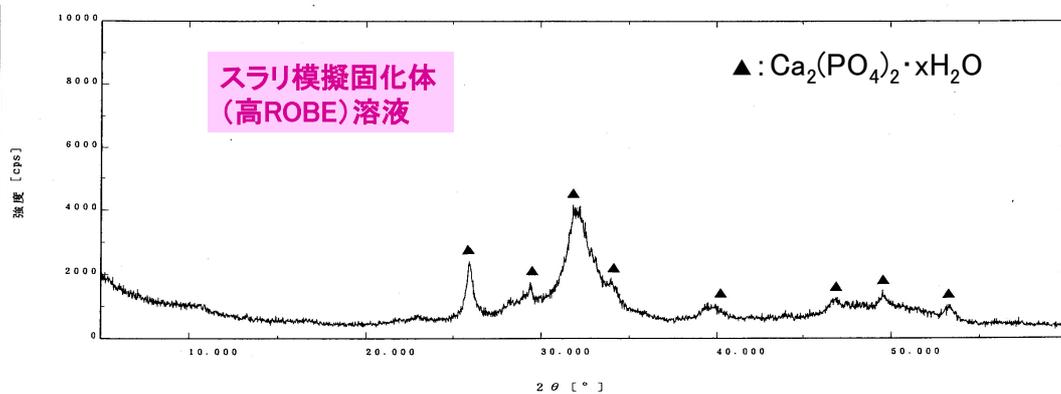
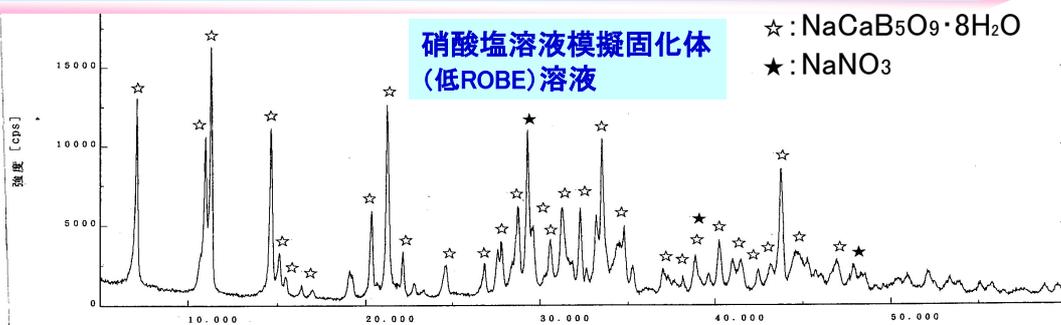
Ms: 3CaO·Al₂O₃·CaSO₄·12H₂O組成のAFm相

Mc: 3CaO·Al₂O₃·CaCO₃·12H₂O組成のAFm相

※: 硝酸塩溶液模擬-500は劣化が激しく、析出物とセメント水和物を分離できなかった。

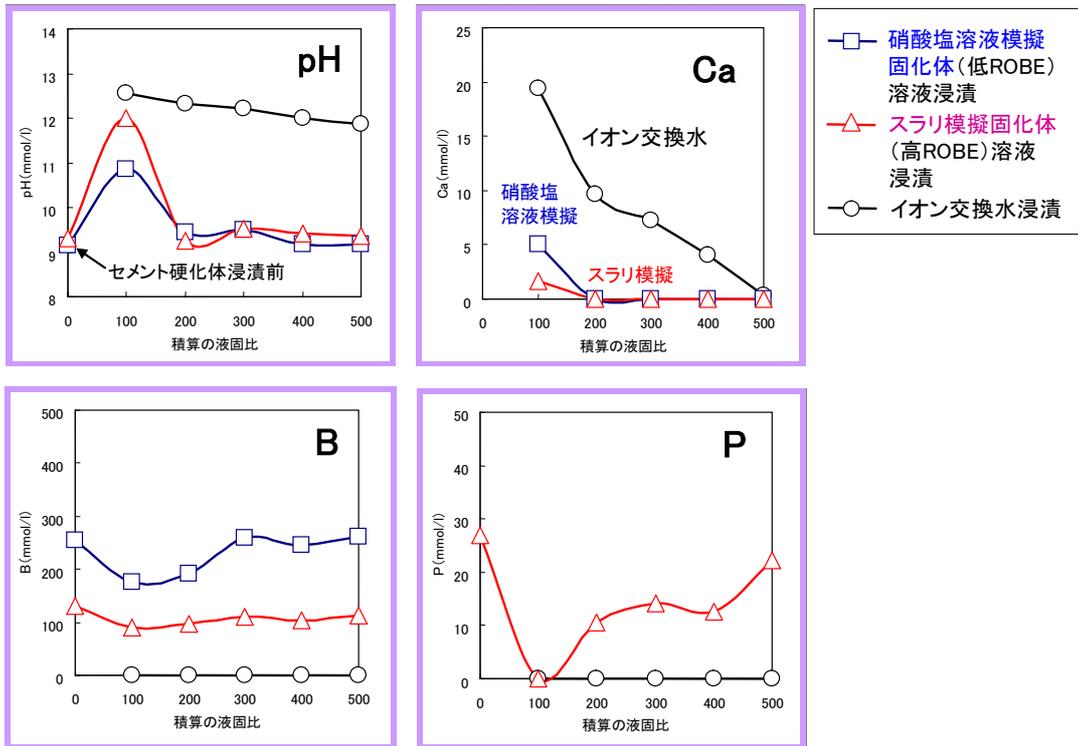
9

XRD同定結果(セメント硬化体粉末試料を浸漬した液の沈殿物)



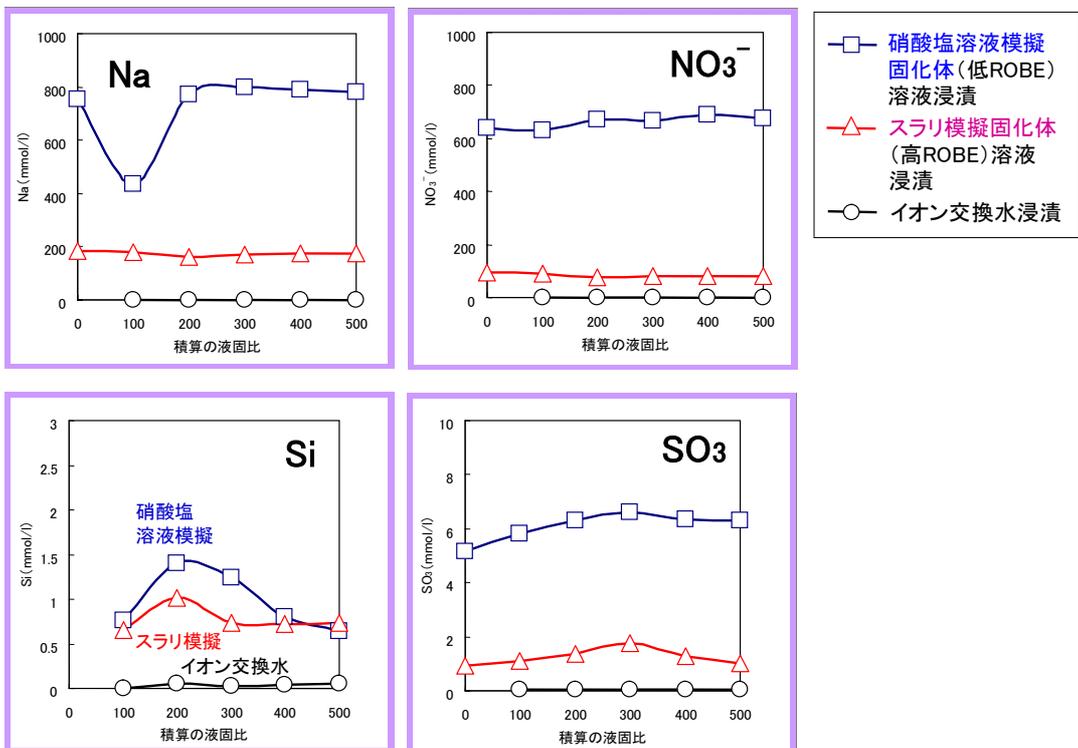
10

セメント硬化体浸漬溶液のpHおよび主要化学種濃度の変化(1)



11

セメント硬化体浸漬溶液のpHおよび主要化学種濃度の変化(2)



12

まとめ

セメント硬化体を、ホウ酸塩の模擬蒸発固化体の溶解液に浸漬した場合、いずれも劣化が認められた。

・硝酸塩溶液模擬組成の固化体(低ROBE)溶液への浸漬では、 $\text{NaCaB}_5\text{O}_9 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ の生成が確認された。このため、液相中のカルシウム濃度が低下し、セメント硬化体からのCaの溶出が非常に促進され、激しい劣化がもたらされたと考えられる。

・スラリー模擬組成の固化体(高ROBE)溶液への浸漬では、 $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$ の生成が確認された。しかし、セメント硬化体表面に皮膜状に形成されるようになったため、硬化体表面はむしろ緻密化し、劣化は抑制された。

13

問題点

- ①ホウ酸塩固化体の主成分であるホウ酸ナトリウム・硝酸ナトリウムは、処分施設の評価期間から見ると比較的短期間に溶解する。
- ②高濃度のホウ酸塩浸出液は、セメント系材料からのCaの溶脱を促進する。その結果、施設の止水性の低下や強度低下の原因となる可能性がある。
- ③一般に、ホウ素はセメント系材料の硬化を遅延させるため、固化体を溶解したままではセメント固化が難しい可能性がある。

考えられる対策

Caを十分量加えて、BやPを沈殿させた後に固化するなど。

14

5. ウラン/RI・研究所等廃棄物の処分研究

処分研究部 処分材料研究 Gr.

川越 浩

平成14年度低レベル放射性廃棄物処分研究成果報告会

ウラン/R1・研究所等廃棄物の処分研究

東海事業所 エントリー4F大会議室 平成15年3月24日

環境保全・研究開発センター
処分研究部
処分材料研究グループ
川越 浩

1

ウラン廃棄物の余裕深度処分におけるパラメータの影響特性

2

ウラン廃棄物の特徴

- 天然賦存性がある
- 子孫核種の生成および累積により放射性核種濃度は徐々に増加し、数十万年でピークになる
- ラドンが生成し、条件によっては有意な被ばく線量を与える
- 放射線以外の因子（例えば重金属としての性質）による影響が問題になる可能性がある

3

目的

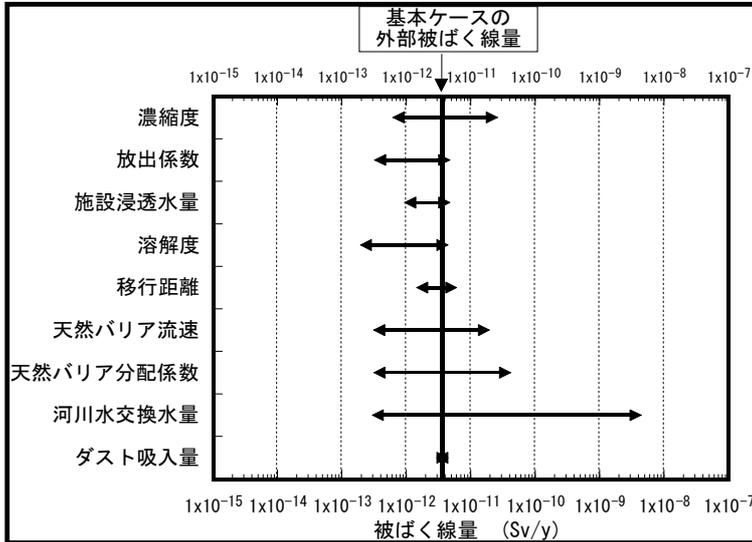
- 政令濃度上限値の検討で使われるパラメータは、国内の一般的な場所を想定して設定されている
- 実際のパラメータ値は分布を持つ上、地質環境、生活習慣、環境の変遷により時間的な変動を伴う



- 各パラメータの変動が被ばく線量へどの程度の影響を与えるのかを把握する
- 複数パラメータの変動が被ばく線量へどの程度の影響を与えるのかを把握する

4

パラメータ影響 (外部被ばく線量)

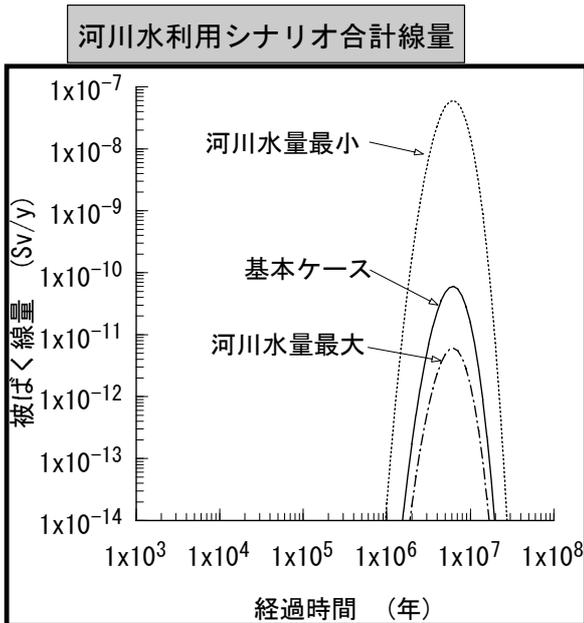


初期濃度; 1Bq/g

- 外部被ばく線量に最も影響を与えるパラメータは河川水量であった。
- 河川水量の変動により、外部被ばく線量は最小値から最大値までおよそ4桁の変動となった。

5

河川水流量の影響



初期濃度; 1Bq/g

- 河川水量を増大させると被ばく線量は減少し、河川水量を減少させると被ばく線量は増大する。
- 河川水量は生物圏のパラメータであり、移行時間は変化せず、ピーク到達時間は約600万年後であった。

6

成立条件の検討

- 放射性廃棄物を処分することによる被ばく線量は、さまざまなパラメータが関与している
- ウラン廃棄物について、「余裕深度処分」した場合に、さまざまなパラメータが被ばく線量に与える影響について、複数のパラメータを変動させ、検討を行う
- 考慮する生物圏シナリオは、地下水移行後の河川水利用シナリオとした
- まず最初に基本ケースとして、基本的なパラメータを用いた計算をする
- インベントリは、濃縮度4.5%の廃棄体について1,000Bq/g、4万本(200L)とする

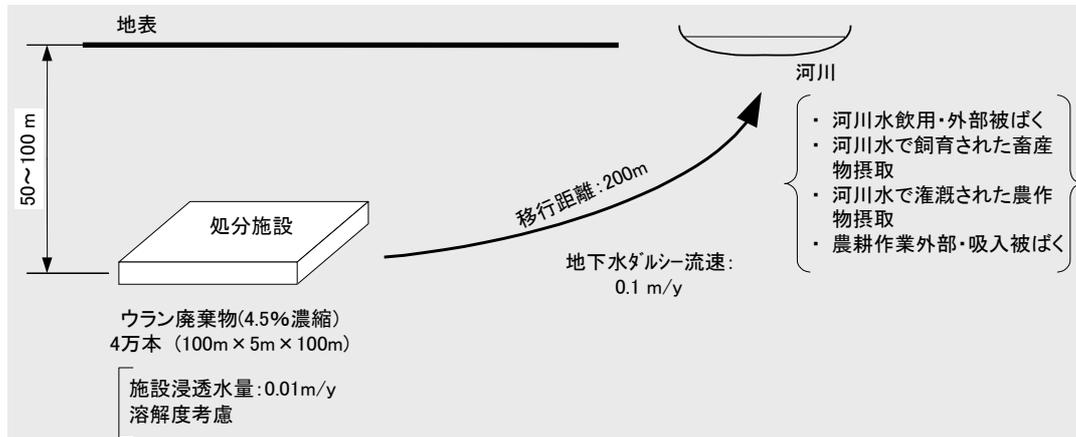
7

主要パラメータ

- ①ウラン濃度:1,000 Bq/g
- ②処分量:4万本-200LDM
- ③施設形状:100mW×100mL×5mM
- ④廃棄体定置割合:16%
- ⑤土壌真密度:2.7 g/cm³
- ⑥実効拡散係数:1E-10 m²/y
- ⑦河川水飲用量:0.61 m³/y
- ⑧土壌摂取量:10 g/y
- ⑨線量換算係数:ICRP Pub.68ベース

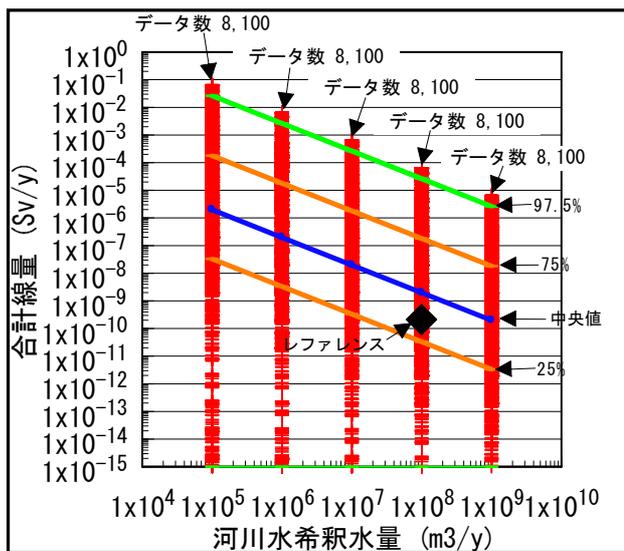
8

評価モデルの概念



9

河川水希釈水量の影響



- 河川水希釈水量の変動による線量への影響は、リニアに影響する。
- 他のパラメータがどんな値であっても、河川水希釈水量が 1×10^9 (m³/y)が確保できれば 10μ Sv/yを下回る。
- 75パーセントイルでは、河川水希釈水量が 1×10^7 (m³/y)以上であれば、 10μ Sv/yを下回る。

10

まとめ

- 河川水希釈水量が 1×10^9 (m^3/y)であれば、他のパラメータの変動を全て考慮しても、河川水利用シナリオの線量は $10 \mu Sv/y$ を下回ることがわかった。
- 相互に関連するパラメータを考慮した上で、考えられる条件を絞り込むことができる。
- ウランが崩壊し、子孫核種が生成していく過程で、地中を移行するパラメータは変化する。超長期の現象を推測する上で、時間と場所を考慮した解析評価をする必要がある。
- 超長期の評価をする上で、合理的な評価（カットオフなど）が認められるように関係機関と連携しながら努力する必要がある。

11

RI・研究所等廃棄物余裕深度処分施設の 概念設計

12

研究の目的

- RI・研究所等廃棄物処分施設候補地選定のための技術的支援
- 平成13年度より日本原子力研究所(原研)と共同研究にて実施
- 浅地中処分施設(簡易型, ピット型施設)の概念設計・評価は原研が担当
- 余裕深度処分型施設の概念設計・評価はサイクル機構が担当

13

角型容器及びラックに収納した場合の廃棄体数

発 生 機 関	1m3容器 (個)		4本ラック (個)		
	操業	解体	操業	解体	
核燃料サイクル開発機構	東海事業所	98	14	1	
	大洗工学センター	460	240	55	
	ふげん発電所	28	180		
	もんじゅ建設所	21	260		
日本原子力研究所	東海研究所	928	1,258	13	
	大洗研究所	116	780		
	むつ事業所		36		
大学関係	東京大学			1	
	京都大学			1	1
民間使用施設等	日本核燃料開発			81	81
	ニュークリア・デベロップメント			16	19
	日立エンジニアリング				3
	東芝				1
合 計		1,651	2,768	168	105
		操業+解体	4,419	操業+解体	273
		1m3容器+4本ラック (操業+解体)			4,692

14

廃棄体年度展開の設定根拠

設定項目	設定根拠
廃棄体の発生開始時期	サイクル機構以外の発生機関については、現在から10年後の平成22年に処理施設が設置され、処理が開始されると仮定した。
処分場の閉鎖時期	廃棄体の発生終了時期である平成70年度とした。
処分場の操業期間	本年度の廃棄物の集計結果では、施設の解体時期が明らかな発生機関が少なく、特に解体廃棄物については廃棄物の発生時期が明らかではないため、実現可能な処分場の操業期間を考えることとした。TRU廃棄物処分概念検討書では、25年間の操業期間を設定されているが、本研究では25年間をまとめて30年間の操業期間を設定する。TRU廃棄物処分概念検討書では200Lドラム缶で226,003本の廃棄物を対象としている。本研究の対象廃棄体数は、200Lドラム缶相当で23,146本であることから十分対応可能であると考えられる。
処分場の操業開始時期	上記の結果として平成40年度と設定した。

15

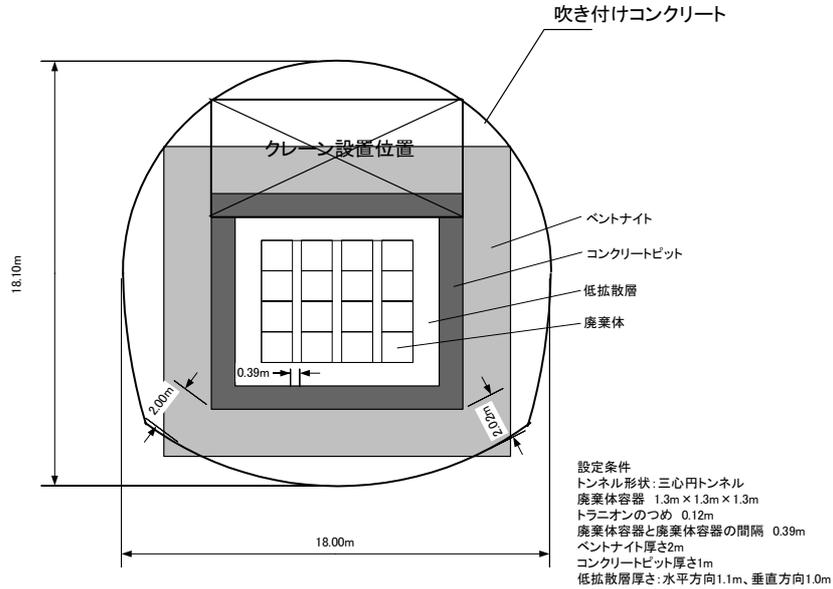
埋設施設寸法

○埋設設備の区画寸法、部材寸法は平成13年度と同様とする。

- 区画内寸法 : 幅8.57m×長さ6.4m×高さ7.2m
- 廃棄体収納量 : 4行×3列×4段＝
48廃棄体／1区画
- 埋設設備底版 : 厚さ1m
- 埋設設備側壁 : 厚さ1m
- 内部仕切設備 : 厚さ1m
- 覆い : 厚さ1m

16

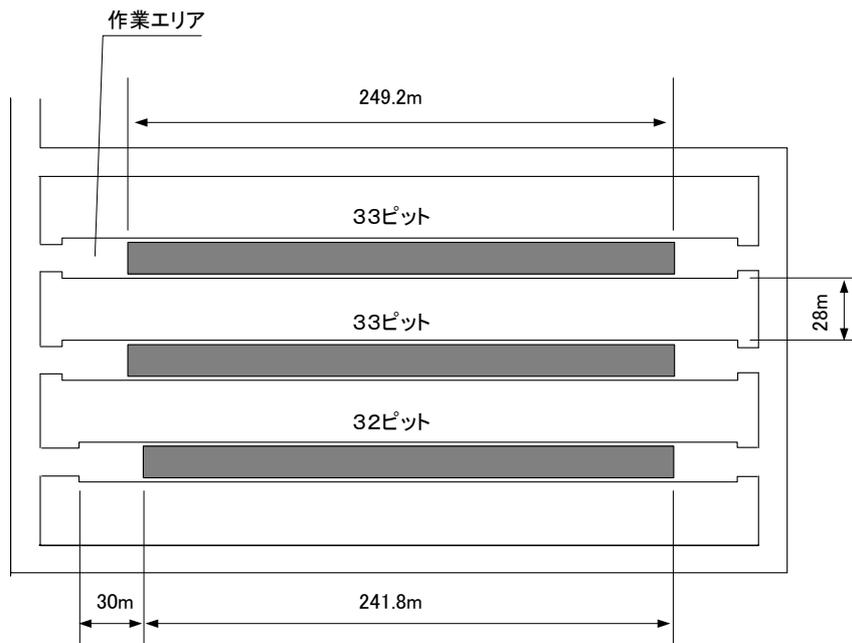
トンネル型埋設施設の垂直断面図



三心円トンネル、スパン18m、廃棄体4行×4段積み

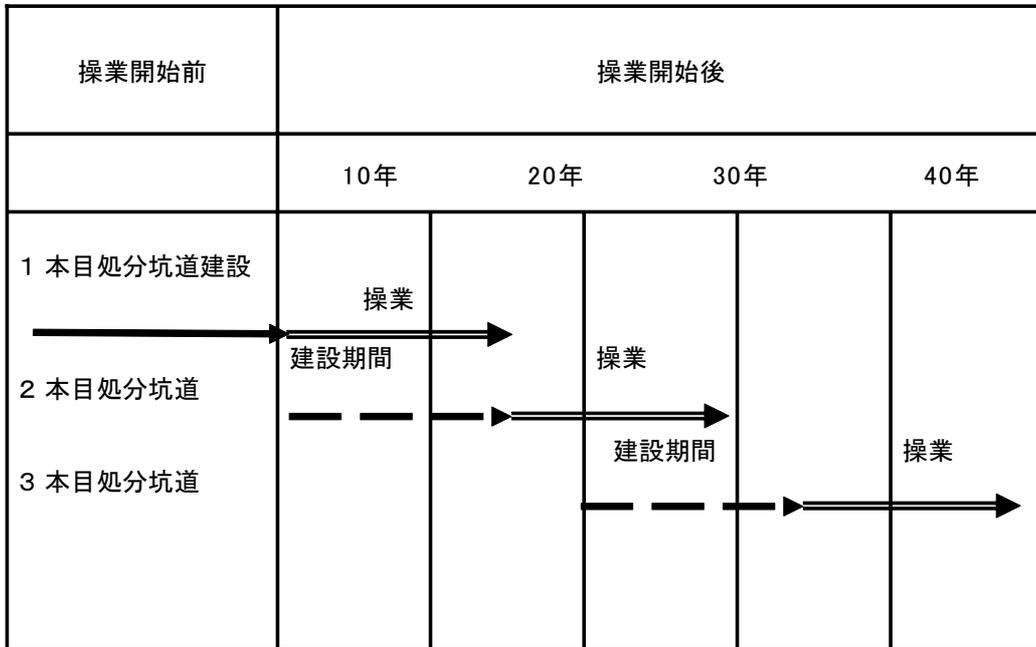
17

トンネル型埋設施設の配置平面図



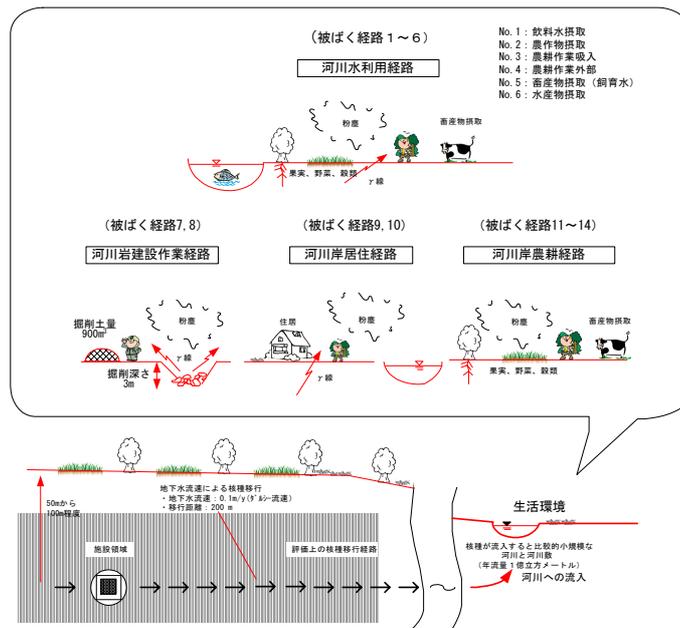
18

トンネル型施設の建設工程



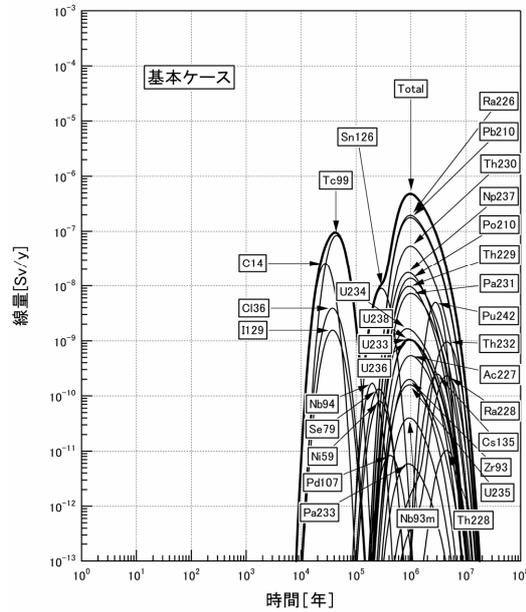
19

地下水移行シナリオにおける 核種移行モデル



20

核種移行解析の解析結果 (基本ケース)



21

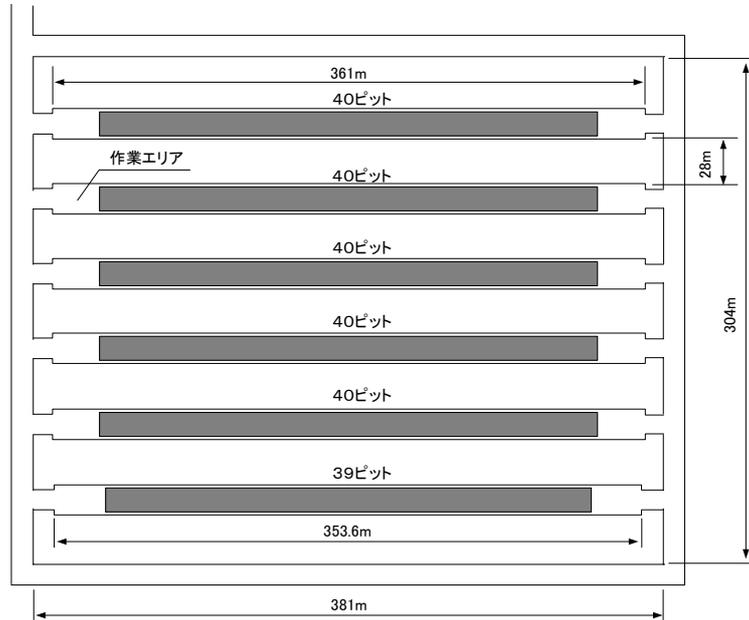
コスト算定結果(リファレンスケース)

項目				単位	数量	マクロ単価	工事費	
						(百万円)	(億円)	
建設費	処分施設	掘削工事	アクセス坑道	m3	54,722	0.036	20	
			作業坑道	m3	61,560	0.038	23	
			処分坑道	m3	257,932	0.019	49	
			RCピット工事		m3	32,112	0.103	33
			緩衝材充てん工事	ベントナイト	m3	71,545	0.139	99
			モルタル充填工事	充てん	m3	28,366	0.068	19
			埋戻工事	埋戻し	m3	209,252	0.028	59
			その他工事		式	1		94
			地下設備		式	1		48
		受入施設	受入建屋・施設		式	1		291
	小計						736	
操業費	維持補修			年	50	339	170	
	人件費			年人	1950	6.4	125	
	小計						294	
閉鎖費	解体撤去						34	
	総額						1,064	

約2,313万円/m³

22

オプションケースー1 配置平面図



23

コスト算定結果(オプションケース)

項目				単位	数量	マクロ単価 (百万円)	工事費 (億円)		
建設費	処分施設	掘削工事	アクセス坑道	m3	54,722	0.036	20		
			作業坑道	m3	86,283	0.038	33		
			処分坑道	m3	605,056	0.019	115		
				RCピット工事	m3	78,187	0.103	81	
				緩衝材充てん工事	ベントナイト	m3	173,345	0.139	241
				モルタル充填工事	充てん	m3	69,178	0.068	47
				埋戻工事	埋戻し	m3	360,292	0.028	101
				その他工事		式	1		94
				地下設備		式	1		48
			受入施設	受入建屋・施設		式	1		291
	小計						1,070		
操業費	維持補修			年	50	3.39	170		
	人件費			年人	1950	6.4	125		
	小計						294		
閉鎖費	解体撤去						34		
総額							1,398		

約1,319万円/m3

24

処分コストに占める固定費と変動費

項 目				リファレンス (億円)	オプション (億円)	固定／変動
建設費	処分施設	掘削工事	アクセス坑道	20	20	固定
			作業坑道	23	33	変動
			処分坑道	49	115	変動
		RCピット工事		33	81	変動
		緩衝材充てん工事	ベントナイト	99	241	変動
		モルタル充填工事	充てん	19	47	変動
		埋戻工事	埋戻し	59	101	変動
		その他工事		94	94	固定
		地下設備		48	48	固定
	受入施設	受入建屋・施設		291	291	固定
	小計		736	1,070		
操業費	維持補修		170	170	固定	
	人件費		125	125	固定	
	小計		294	294		
閉鎖費	解体撤去		34	34	固定	
総額				1,064	1,398	
固定費				781	781	
変動費				283	617	

25

まとめ

- コスト算定を行った結果、リファレンスケース(廃棄物量＝約4,600m³)では、約2,313万円／m³となった。
- オプションケース(廃棄物量＝約10,600m³)では、約1,319万円／m³となる。
- 施設形態、施設規模により、処分単価は大きく変動する。すなわち、コスト低減策を検討するためには、廃棄物の区分と廃棄物量を確定することが必要であるととも、重要な前提条件である。
- 平成15年度は、3年計画の最終年として、処分施設概念の最適化を図る予定である。

26

6. 質疑応答

2. 概要紹介【宮本 陽一】

Q：TRU次期レポートを「国の制度化審議の技術的拠り所となることが目標」とあるが、出来上がったあかつきには具体的に原子力安全委員会等にPRし、積極的に採用してもらおうようなことは考えているのか。

A：レポートをまとめる以上、原子力委員会、原子力安全委員会の検討に生かしていただきたいと思う。ただし、具体的にサイクル機構と電気事業者が、どのような内容の研究をいつまでにするということが国との間で決まっているわけではない。ただ、われわれが想定し、希望も含めたスケジュールには間に合うように目標を設定している。

Q：予算削減のためにいくつか重要な研究を休止するとの説明があったが、これはやらなくて良いのか。

A：それらも、概念検討書で高レベルの地層処分研究を土台としてTRU廃棄物処分研究をするうえで、TRU廃棄物特有で重要な課題として摘出した項目であるが、全ての項目に関して深く研究できればよいが、全体の予算シーリングもあるので、特にその中でも処分概念成立の根幹に係る、セメントによる高アルカリ環境の影響及び硝酸塩の影響を特に重点的に研究することとした。

その他の項目に関しては、サイクル機構としては残念ながら休止するが、その他の機関でやっているものもあり、また本年度までサイクル機構でやってきた成果も蓄積されているので、その成果を使用してレポートを作成することになる。

3. 高アルカリ環境等によるニアフィールド水理場の長期的変遷に関する研究

3.1 研究の重要性究【大井 貴夫】

— なし —

3.2 セメント系材料の変質と水理パラメータに関する研究【三原 守弘】

Q：通水試験の液固比 500 は、何年後の評価に相当するのか？

A：処分場の地下水条件などに依存するが、概念検討書の条件だと、数万年の評価に相当する。

C：多孔質な材料の弾性係数を評価するには、超音波による動弾性係数を求める方法が適している。

Q：処分場で用いるコンクリートは、より間隙率の小さなものである。その時の評価はどうなるのか？

A：本研究では、間隙率の異なる二種類のセメントペーストに対して試験を行っており、これらのpHの変化は、通水液の量と初期の試料の重量の比で整理するとうまくあう。このため、より間隙率の小さなコンクリートのpH変化についても通水液の量と初期の試料の重量の比でうまく整理できると考えている。

3.3 ベントナイト／岩盤の変質と水理パラメータに関する研究【伊藤 弘之】

Q：TRU 廃棄物処分場に緩衝材（ベントナイト）を設けてもCa型化などによって止水性・

膨潤性が低下するため、期待できる効果が小さく不経済ではないか。

A：高 pH 環境では岩盤中の亀裂が充填され止水性が向上する報告もあり、地層条件によっては止水性の観点からは必要ない可能性もある。海外では緩衝材を使用しない処分概念も検討されている。また、緩衝材の性能は全域で即時に低下するのではなく徐々に低下する。一方で要求性能も放射性核種の移行や放射能の減衰に応じて経時的に変化することから、止水性以外の機能も含め時間・空間的変遷を考慮し経済的な仕様を検討する必要がある。

Q：地下水流の下流側にあるベントナイトは、上流側より Ca 型化が速く進行し膨潤圧に差が生じないか。偏圧によって構造躯体（コンクリート）の性状に影響を与えないか。

A：下流側での Ca 型化速度は上流側より速い但其の差は小さく、また膨潤圧自体が劣化したコンクリートの強度に比べても低く、破壊に至るような可能性は低いと考えている。水理（物質移動）・化学・力学挙動の変遷を連成させた「ニアフィールド水理場変遷評価システム」を開発中であり、構造躯体の力学的性状の変化も考慮して評価する予定である。

3.4 ニアフィールド水理場の変遷評価システム構築について【大井 貴夫】

Q：ベントナイトの必要性の有無をいつ判断するのか

A：合理化の観点で、ベントナイトの必要性についての検討が、TRU の 2 次レポートの主要な課題となっている。今回報告した N.F.水理場の変遷評価システムの詳細度、信頼性を向上させ、ベントナイトの必要性に関して TRU の 2 次レポートに反映させたいと考えている。

Q：人工バリア中での核種の閉じこめ性と隆起浸食等における影響とのバランスについてはどのように考えているのか？

A：地下水シナリオにおいては人工バリアに対して高い核種の封じ込め性能を期待している。しかし、隆起浸食などのような接近シナリオの事象が起こった場合は、核種が多量に人工バリアに留まっている条件の方がインパクトが大きくなることが予想される。しかし、これらの事象の発生確率は異なるものと考えられる。そのため、処分の安全性能を検討する場合、2 つのシナリオの影響を同時に考えなければならぬかどうか検討する必要があると考える。この問題については、高レベルにおいても同様の問題であり、今後とも検討していかなければならないと考えている。

4. 硝酸塩及びホウ酸塩を含む廃棄物の処分に係る研究

4.1 バリア材に対する硝酸塩の影響評価【本田 明】

— なし —

4.2 セメント系材料に対するホウ酸塩の影響【大澤 勉】

Q：ホウ酸塩蒸発固化体は、どのくらいの時間で溶けるのか？

A：低 ROBE（硝酸塩溶液模擬組成固化体）は、今回の実験では、セメントと急速に反応して、1 週間くらいでも反応生成物が形成された。高 ROBE（スラリー模擬組成固化体）で

は、見かけ上セメント硬化体は変化せず、電子顕微鏡で表面に反応生成物が観察された。

Q：通常の廃棄物固化体を考えると、今回の結果はかなり不安定なものに見える。今後、固化体としてどうしようと考えているのか？

A：一義的には、ROBEをどうするかは発生側が判断すること。処分側では、ROBE起源の化学物質が処分場に入ってきた場合を考えて、その影響を検討している。廃棄物発生側にその情報をフィードバックするという位置づけで報告した。

Q：高ROBEの模擬固化体溶液にセメント硬化体を浸漬した方は、表面に緻密な反応層が観察された。これ自体の止水性や機械的特性については、今後さらに検討するのか？

A：高ROBE表面の緻密な層は、X線回折から結晶度の比較的低いアパタイトに近いものと考えられる。セメント硬化体表面の緻密な層に止水性があり、セメントの保護性能があるとわかったとしても、次にずっとそれが保障されるのかという問いに答えなければならない。これは、処分場の状況を複雑にする。セメント硬化体表面にできたのは、セメントより溶解度の低い物質であり、生成形態によっては、セメント硬化体の劣化を促進する場合もある。必要があれば突き詰めざるを得ないが、基本的にはできない方がよいと考える。これ以上高ROBE表面の緻密層の形成について検討する予定は、今のところない。

Q：結局、今回の結果はあまりよろしくないと考えられるのか？

A：リン酸カルシウムができた方がやや良いような結果だが、リン酸を入れれば良いということにはならない。なお、今回用いたようなホウ酸塩蒸発固化体は、中間固化体である。

5. ウラン/R1・研究所等廃棄物の処分研究【川越 浩】

Q：試算した処分費用は1m³あたりの単価として出ているが、これを単純に5で割る(0.2m³単位) ことにより、ドラム管の処分単価としてよいのか、それとも、ドラム缶にすると収納効率などが変わるので単純に5で割るだけではいけないのか？

A：そのとおり。余裕深度の場合、線量も高いのでドラム缶での処分は現実的ではなく、1m³容器への収納が現実的と考える。既にドラム缶に固化したもの或いは固化予定のものは、1m³容器に詰めなおすのも現実的ではないため、ドラム缶4本で1m³容器と同じ容積のパッケージに収納するものとする事とした。

7. おわりに

今日はお忙しい中集まってお話しいただきまして、半日長い間あいだ時間とっていただきありがとうございました。また処分研究部のみなさんも1年間の総括、取りまとめということでご苦労様でした。

TRU廃棄物、低レベルですが非常に面白いなと思っております、それはなぜかと申しますと多種多様であること、物理形態様々、化学形態様々、同伴するいろんな物質も、先ほどのホウ素ではありませんが様々、その他にもうひとつあります、あまりこれは問題になっておりませんが、これは処分研究ではどうにもならないことですが、ひとつの廃棄体の中の偏析もまたまちまちである。ガラス固化体とか溶融体ではあまりないのですが、雑固体が多いということで、そこの部分がすごく効いてきます。

これは、今処分研究部で作っているのはひとつの物差しというもので、これにより、埋めたときにどんな現象が起きるのか、もうひとつはその現象はどの程度というのを押さえているのですが、廃棄体の性状が多種多様であればあるほど、4番目の多種多様性の問題が出てきます。

安全審査やっければ皆さんわかると思いますが、濃度がある部分だけ平均値より10倍高ければ、最大値で包らる安全審査になる。ということは、場合によっては、単位地盤あたりでの濃度を薄くするためには、処分坑道が10倍必要になる、すなわち、コストが10倍必要になる、または地盤面積を一定とすると低レベルの浅地中処分ですむものが、偏析があるがゆえに地層処分になってしまう、これによってコストが数十倍とか、コスト的にこういう不確実な面が必ずある。

われわれの方でいろいろな研究を行うと同時に、これから、わが社の自社廃棄物を処分するためにはえ、もうひとつ測定、つまり平均値とその偏析がどれだけ平均値に影響をあたえるだろうかという測定技術の開発、これが大切。

再処理の方とか、MOXの方とかおられますが、それぞれ発生元の方である程度もう、測定によってこれらを決めてもらわなければ、処分ということは絶対できない。組織間でのリンクがこれからの処分の事業というも必要になる。

繰り返しになりますが、研究だけやっている時代から、今後は処分の事業主体と一体になって自社廃棄物の処分に取組みますと、意思表示を2月に報道陣の前でやりました。

新たに、行うべきことがどんどん入ってくる。これは大変であります、また、将来的に、面白い伸びる玉になっていくかなと思っております。

ただし、ご質問の中にあって、宮本GLのほうからお答えしましたとおり、予算的にはかなり2法人統合の波を受けまして、少し時間をかけてやらざるえない、しかし必ずやらなければならない、というふうに認識しております。ここ1、2年間は予算的には相当苦しいと思いますが、ゆっくり確実にやって行きたいこのように思います。

本日はどうもありがとうございました。