

地層処分性能評価のガラス溶解評価に
おけるガラス固化体中の亀裂発生に伴う
表面積増加の影響
(研究報告)

2005 年 3 月

核燃料サイクル開発機構
東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松 4 番地 49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

電話：029-282-1122(代表)
ファックス：029-282-7980
電子メール：jserv@jnc.go.jp

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184, Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2005

地層処分性能評価のガラス溶解評価における
ガラス固化体中の亀裂発生に伴う表面積増加の影響

(研究報告)

蛸名貴憲* , 牧野仁史**

要旨

高レベル放射性廃棄物を地層処分した後のガラス固化体の溶解においては、ガラスの冷却過程で生じる亀裂により溶解に寄与する表面積が増加し、ガラスの溶解が促進される可能性がある。これまでの安全評価の例では、亀裂により表面積が 10 倍程度増加するとし、さらに溶解量は表面積に比例して大きくなるとしている。しかし、亀裂があった場合でも実質的な溶解量の増加はそれほど大きくないとの試験結果も報告されている。

そこで本研究では、亀裂の発生による表面積増加のガラス溶解に対する影響度を簡単なモデルを用いて定量的に検討した。また、本モデルの実規模模擬ガラス固化体を用いた浸出試験系への適用性の検討を行った。

その結果、亀裂の発生がガラス固化体の溶解に与える影響度は、固化体中に存在する亀裂面の表面積の大小そのものではなく、ガラスの主成分である Si の亀裂内での拡散に関係する亀裂開口幅と、固化体外側からの溶解に関係する面積に依存して変化する事が示唆された。また、実規模模擬ガラス固化体を用いた浸出試験で実測された亀裂開口幅などを参考に、本モデルを実際の試験系へ適用した結果、亀裂発生によるガラスの浸出量の増加は、解析結果および試験結果ともに 2 倍以下に収まっており、ほぼ整合している事を確認した。

* (株)NESI

** 核燃料サイクル開発機構 東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部
システム解析グループ

Study on influence of increase in surface area by cracking
on glass dissolution for HLW performance assessment

(Research Document)

Takanori Ebina * , Hitoshi Makino **

Abstract

Cracking of the glass that occurred during cooling in the vitrification process would cause increase in surface area of vitrified wastes and potential impact of the cracking on glass dissolution have been discussed. In the current performance assessments of HLW, increase in glass dissolution has been assumed to proportionate to increase in the surface area. On the other hand, leaching experiments on a full-scale simulated glass block with numerous cracks have shown that only a fraction of the crack surface contributed to glass dissolution.

In this study, we developed a simple model and carried out sensitivity analysis for influence of increase in surface area on glass dissolution.

Results show that increase in surface area in a fractured glass block does not impact on glass dissolution proportionately. Instead of surface area, ratio of the outside surface area and aperture of fractures that could control diffusion behavior through fracture have impact on glass dissolution. Under the condition of leaching experiments on a full-scale simulated glass block with numerous cracks, a few times increase in glass dissolution was estimated by the developed model, and that was consistent with the experimental results.

* NESI

** Waste Isolation Research Division , Tokai Works , Japan Nuclear Cycle
Development Institute

目次

1 . はじめに	1
2 . 概念モデル	1
3 . 数学モデル	4
4 . 解析に用いた基本データ	6
5 . 基本ケースの解析結果と考察	7
6 . 感度解析	10
6 . 1 感度解析に用いたデータ	10
6 . 2 感度解析の結果	12
6 . 3 感度解析を通じての考察	15
7 . 実規模模擬ガラス固化体を用いた浸出試験結果への適用性の検討	16
7 . 1 浸出試験に用いられた実規模模擬ガラス固化体の概要	16
7 . 2 実規模模擬ガラス固化体のモデル化	17
7 . 3 浸出試験へのモデルの適用結果	22
8 . おわりに	24
参考文献	25
付録 F1 比および F2 比が一致しない解析ケースについての考察	
1 . 原因となるパラメータの特定	付(1)
2 . 瞬時混合領域の体積の影響についての考察	付(4)

図目次

図 1	概念モデル化の流れ.....	3
図 2	数学モデルでの Si の移行経路	4
図 3	基本ケースにおける Si 溶解速度の時間変化グラフ： 亀裂面（各亀裂メッシュごと）およびガラスブロック表面.....	7
図 4	基本ケースにおける Si 濃度の時間変化グラフ： 亀裂内（各亀裂メッシュごと）および瞬時混合領域内.....	7
図 5	基本ケースにおける F1 比と F2 比の時間変化グラフ	9
図 6	感度解析における F3 比の比較（0.3 年時点）	12
図 7	亀裂深さ(L)の変動に対する F3 比の感度グラフ	13
図 8	仮想的なガラス幅(a)および亀裂開口幅(b)に対する F3 比の感度グラフ(亀裂深さ(L)を 0.2m に固定)	14
図 9	実規模模擬ガラス固化体と断面図.....	16
図 10	実規模模擬ガラス固化体の断面図とモデル化の適用イメージ	18
図 11	亀裂開口幅(b)の違いによる各亀裂メッシュでの濃度分布.....	20
付図 1	各亀裂メッシュ内の Si 濃度の時間変化グラフ（Case31）	付(2)
付図 2	各亀裂メッシュからの Si 溶解速度および F1 比と F2 比の時間変化グラフ（Case31）	付(2)
付図 3	各亀裂メッシュ内の Si 濃度の時間変化グラフ（Case19）	付(2)
付図 4	各亀裂メッシュからの Si 溶解速度および F1 比と F2 比の時間変化グラフ（Case19）	付(2)
付図 5	時間別の各亀裂メッシュ内の濃度プロファイル（Case31）	付(3)
付図 6	時間別の各亀裂メッシュ内の濃度プロファイル（Case19）	付(3)
付図 7	瞬時混合領域の体積を 10 倍にした場合の 各亀裂メッシュ内の Si 濃度の時間変化グラフ（Case31*）	付(5)
付図 8	瞬時混合領域の体積を 10 倍にした場合の各亀裂メッシュからの Si 溶解速度および F1 比と F2 比の時間変化グラフ（Case31*）	付(5)
付図 9	瞬時混合領域の体積を 1/10 にした場合の 各亀裂メッシュ内の Si 濃度の時間変化グラフ（Case19*）	付(5)
付図 10	瞬時混合領域の体積を 1/10 にした場合の各亀裂メッシュからの Si 溶解速度および F1 比と F2 比の時間変化グラフ（Case19*）	付(5)

表目次

表 1	解析に用いた基本データ.....	6
表 2	感度解析に用いたデータ.....	10
表 3	全感度解析ケースと用いたデータの一覧.....	11
表 4	実規模模擬ガラス固化体で実測された切断面あたりの亀裂総長さ	17
表 5	浸出試験で実測された表面皮膜の厚さ.....	22
表 6	モデルによる予測と浸出試験での亀裂発生の影響度の比較	23

1. はじめに

高レベル放射性廃棄物を地層処分した後のガラス固化体の溶解においては、ガラスの冷却過程で生じる亀裂により溶解に寄与する表面積が増加し、ガラスの溶解が促進される可能性がある。

これまでのわが国での安全評価（地層処分研究開発第2次取りまとめ[1]（以下「第2次取りまとめ」という））や諸外国での安全評価（たとえば、Nagra[3]）においては、ガラスの溶解に対する亀裂発生の影響度を取り込むために、保守的にガラス固化体の幾何学的表面積の10倍程度を溶解に寄与する表面積とし、その面積に比例して溶解量が増加するとしている。一方、亀裂が存在する場合でも実質的な溶解量の増加はそれほど大きくないと試験結果も報告されており[2]、これは亀裂により面積が増加してもガラスの溶解がその面積の増加に比例して大きくなるわけではないことを示している。

そこで本研究では、ガラスの溶解に対する亀裂発生の影響度およびそれを決定する要因を解析的に検討するとともに、第2次取りまとめで用いたガラスの溶解に関わるパラメータなどの設定の保守性を確認する。

ここで、亀裂を伴うガラス固化体からの核種の浸出を詳細にモデル化しようとする、厳密な亀裂の発生状況、あるいは変質層の影響や超長期でのガラス固化体とその亀裂の形状の予測など多くの知見が必要であるが、このようなモデル化は複雑となり、またこれらに関するモデルや物性値などの情報が十分にそろっていないことが問題となる。このため、本研究においてはこのような詳細なモデル化を行わず、主要なプロセスのみを取り込んだ簡単なモデルを用いることにした。

本研究では、まず上記のようなモデルの構築を行い（第3章～第5章）、そのモデルを用いた感度解析を実施することにより亀裂発生の影響度を多面的かつ定量的に検討し、亀裂の発生がガラス溶解に与える影響度を決定する要因を見出すこととした（第6章）。また本モデルの妥当性を確認するために、実際の試験系への適用を試みた（第7章）。

2. 概念モデル

ここでは亀裂からのガラスの溶解が、亀裂を考慮しない場合の何倍程度になるかを求めるためのモデルを作成する。

第2次取りまとめでは、ガラス固化体中の核種はその存在比に応じてガラスの溶解（ガラスの主成分であるSiの溶解と置き換えることができる）と調和溶解するとしている。この場合、ガラス（Si）の溶解量が求められれば、その値と核種の存在比を掛け合わせることで、核種の溶解量を計算することができる。このため、本研究では、ガラス固化体の主成分であるSiの溶解に着目したモデル化を行うことにした。

図1に実規模模擬ガラス固化体の浸出試験[2]で用いられたガラス固化体の断面図を示す。ガラス固化体側面や上下面の亀裂もこれと同様なものと考え、点線部分のよう

に亀裂で囲まれたガラスブロックが多数存在していると考えた。この場合、個々のガラスブロックの表面がガラス固化体表面の一部を成している。そして、すべてのガラスブロックを評価対象とすることにより、亀裂を含むガラス固化体全体からの Si の溶解を評価することになる。

本研究では、まずひとつのガラスブロックについてのモデルを作成し、感度解析を実施することにより、亀裂発生の影響度とそれを決定する要因を検討することにした。

その後、ガラス固化体全体の評価とするための方法を検討する（第7章）。

まず、Si の溶解と移行の概念モデルとしては、ひとつのガラスブロックとその周辺の亀裂に着目し、次元平行平板モデルを基本として Si の挙動を近似的に表現することにした。

図1に示すように、ガラスブロック表面から溶解した Si と亀裂面から溶解した Si は、以下の3つの経路でガラス固化体の外側（系外）へ運ばれる。本モデルでは、それぞれの経路により系外へ運ばれた Si の量を比較することにより、亀裂発生の影響度を検討する。

- (1)ガラスブロック表面から系外へ溶解する経路（図1 の赤矢印）
- (2)亀裂面から亀裂内に溶解する経路（図1 の青矢印）
- (3)拡散*によって亀裂内を移行し、亀裂開口部から系外へ運ばれる経路（図1 の黄色矢印）

ここで、亀裂内での拡散に寄与する亀裂開口部の面積（図1 の水色部分）と、Si の系外への溶解に寄与するガラスブロック表面の面積（図1 の緑色部分）をどのように図1 のような次元平行平板モデルに取り込んでいくかが重要になる。本モデルでは、これら2つの面積がガラスブロックの周辺の長さ（以下、ガラスブロック周辺長という）を共有していることに着目したモデル化を行った。

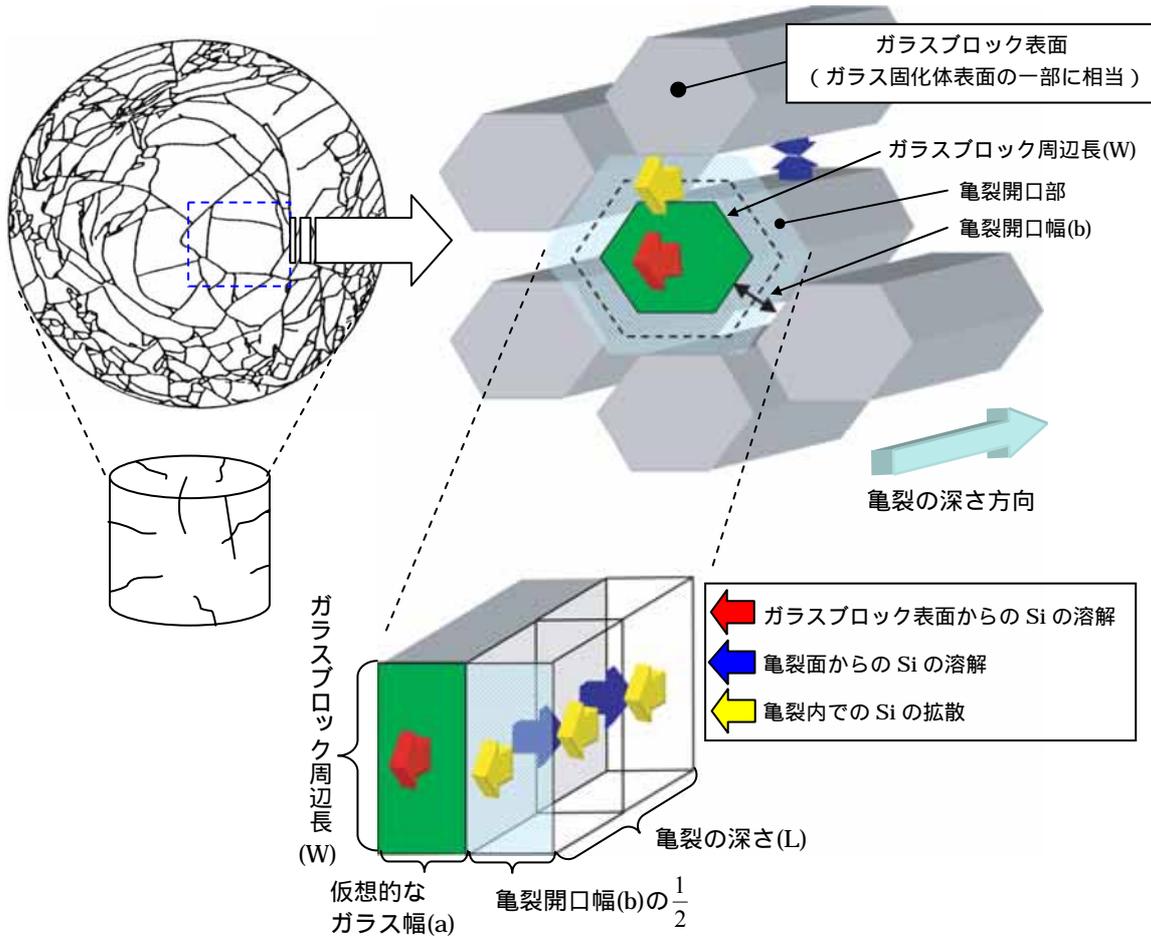
まず、亀裂開口部の面積については、図1 の水色部分のようにガラスブロック周辺長(W)と亀裂開口幅(b)の半分の積を次元平行平板モデルに与えることにより、図1 の拡散に寄与する亀裂開口部の面積（図1 の水色部分）の半分を表現する。

* 第2次取りまとめ同様、ガラス固化体周辺の緩衝材は飽和状態になり、低透水性であるため、緩衝材中およびガラス固化体中の亀裂内での移流・拡散は無視できるものとする。また、ガラス固化体中の亀裂への緩衝材やオーバーパック腐食生成物などの浸入は無いものとした。

一方、ガラスブロック表面の面積については、図1の緑色部分のように、ガラスブロック周辺長(W)との積が図1のガラスブロック表面の面積(図1の緑色部分)と同じとなるような幅(以下、「仮想的なガラス幅」*)という(a)を設定することによりモデルに取り込んだ。

実規模模擬ガラス固化体の断面図

ガラスブロックとその周辺の亀裂におけるSiの溶解と移行のイメージ



本研究で用いる概念モデル

図1 概念モデル化の流れ

* ガラス固化体の表面積が一定でも、割れの程度が変化することで、個々のガラスブロックの表面積およびガラスブロック周辺長(W)は変化する。例えば、亀裂の程度が大きくなり、ガラスブロック(立方体を仮定)の数が4倍になると、ガラスブロックの表面積は4分の1に、ガラスブロック周辺長(W)は半分になる。このような場合、仮想的なガラス幅(a)は半分になる。このように、仮想的なガラス幅(a)は割れの程度により変わりえる。

なお，概念モデルにおいては以下のことを仮定している。

- ・ ガラス固化体の溶解に伴う表面積の低下，およびガラス固化体の溶解に伴う亀裂を含む形状などの変化は考慮しない。
- ・ 亀裂開口部の面積が亀裂の深さ方向に一定である。

3. 数学モデル

2章の概念モデルを数学モデルとして表現する。数学モデルでは計算精度を上げるため，図2に示すように亀裂空間を複数のメッシュに分割している。このモデルでは亀裂面から亀裂メッシュへ溶解した S_i は，拡散により亀裂メッシュ間を移行し，外側の亀裂開口部（図2の左側）から瞬時混合領域へ拡散移行する。この瞬時混合領域を外側境界とし，ガラスブロック表面から溶解した S_i および亀裂開口部から移行してきた S_i は瞬時混合領域に流入し，仮想流量により瞬時混合領域から系外へ運ばれるものとした。また内側境界条件（図2の右側）としてはノイマン境界を仮定した。

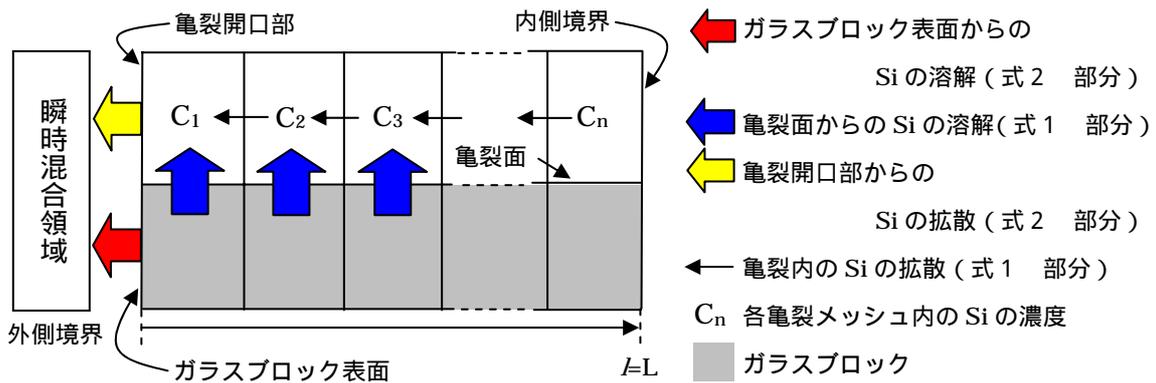


図2 数学モデルでの S_i の移行経路

数学モデルを式1および式2に示す。なお，計算結果として

- ・ 亀裂面からの S_i の溶解速度 (式1の 部分)
- ・ 亀裂開口部から瞬時混合領域への S_i の拡散移行率 (式2の 部分)
- ・ ガラスブロック表面からの S_i の溶解速度 (式2の 部分)

を出力させる。

亀裂面からの Si の溶解と亀裂内での Si の拡散移行

$$\left(\frac{bW}{2} \frac{L}{N}\right) \frac{\partial C_n}{\partial t} = \underbrace{\left(\frac{LW}{N}\right) \left(K^+ \left(1 - \frac{C_n}{c^*} \right) + Kr \right)}_{\text{亀裂面からの Si 溶解}} - \underbrace{\varepsilon \left(\frac{bW}{2}\right) D \left(\frac{\partial C_n}{\partial l} \Big|_{n+1 \rightarrow n} - \frac{\partial C_n}{\partial l} \Big|_{n \rightarrow n-1} \right)}_{\text{亀裂内での Si 拡散}} \quad \text{式 1}$$

ガラスブロック表面から瞬時混合領域への Si の溶解と亀裂開口部から瞬時混合領域への Si の拡散および瞬時混合領域から系外への移行

$$V_m \frac{\partial C_m}{\partial t} = \underbrace{(aW) \left(K^+ \left(1 - \frac{C_m}{c^*} \right) + Kr \right)}_{\text{ガラスブロック表面から瞬時混合領域への Si 溶解}} - \underbrace{\varepsilon \left(\frac{bW}{2}\right) D \left(\frac{\partial C_n}{\partial l} \Big|_{n=1 \rightarrow m} \right)}_{\text{亀裂開口部から瞬時混合領域への Si 拡散}} - QC_m \quad \text{式 2}$$

W : ガラスブロック周辺長(m)	C* : Si 飽和濃度(moles/m ³)
L : 亀裂深さ(m)	N : 亀裂メッシュ数(-)
l : 亀裂深さ方向の距離(m)	D : Si の自由水中の拡散係数(m ² /y)
a : 仮想的なガラス幅(m)	b : 亀裂開口幅(m)
Q : 瞬時混合領域通過流量(m ³ /y)	ε : 空隙率(-)
V _m : 瞬時混合領域の体積(m ³)	C _n : 亀裂内の n 番目のメッシュの Si 濃度(moles/m ³)
K ⁺ : Si の初期溶解速度(moles/m ² /y)	C _m : 瞬時混合領域での Si 濃度(moles/m ³)
K _r : Si の残存溶解速度(moles/m ² /y)	

式 1 および 2 を陽解法で差分化し、C 言語にてプログラムを作成した。また感度解析を行うため、入力データの作成、解析の実行および結果の抽出を行う感度解析プログラムを作成した。

4. 解析に用いた基本データ

表 1 に解析に用いた基本データを示す。

表 1 解析に用いた基本データ

変数名	記号	単位	基本データ
仮想的なガラス幅	a	m	0.005
亀裂開口幅	b	m	0.001
亀裂深さ	L	m	0.1
瞬時混合領域通過流量	Q	m ³ /y	0.1
ガラスブロック周辺長	W	m	0.1
瞬時混合領域の体積	V _m	m ³	1.00E-04
Siの初期溶解速度	K ⁺	moles/m ² /y	1.37
Siの残存溶解速度	K _r	moles/m ² /y	0.0
Siの自由水中の拡散係数	D	m ² /y	6.31E-02
Siの飽和濃度	C [*]	moles/m ³	3.5
空隙率		-	1.0
亀裂メッシュ数	N		50
時間メッシュ	dt	y	5.00E-06
ガラスブロック表面積と亀裂表面積の面積比		-	1:20

ここで、亀裂開口幅については実規模模擬ガラス固化体で実測された亀裂開口幅の最大値(0.0005mm)を参考に、保守的に2倍した値を基本データとして設定した。また、仮想的なガラス幅については参考となる値が無かったため、実規模模擬ガラス固化体の断面で実測された亀裂開口幅と割れの程度から、仮想的なガラス幅は亀裂開口幅より大きくなると考え、表1の値を設定した。

以下、表1の値を用いた解析を基本ケースと呼ぶ。

5. 基本ケースの解析結果と考察

表1のデータを用いた基本ケースの解析結果について、亀裂面(各亀裂メッシュごと)からのSiの溶解速度およびガラスブロック表面から瞬時混合領域へのSiの溶解速度の時間変化を図3に示す。また、亀裂内(各亀裂メッシュごと)および瞬時混合領域内のSi濃度の時間変化を図4に示す。

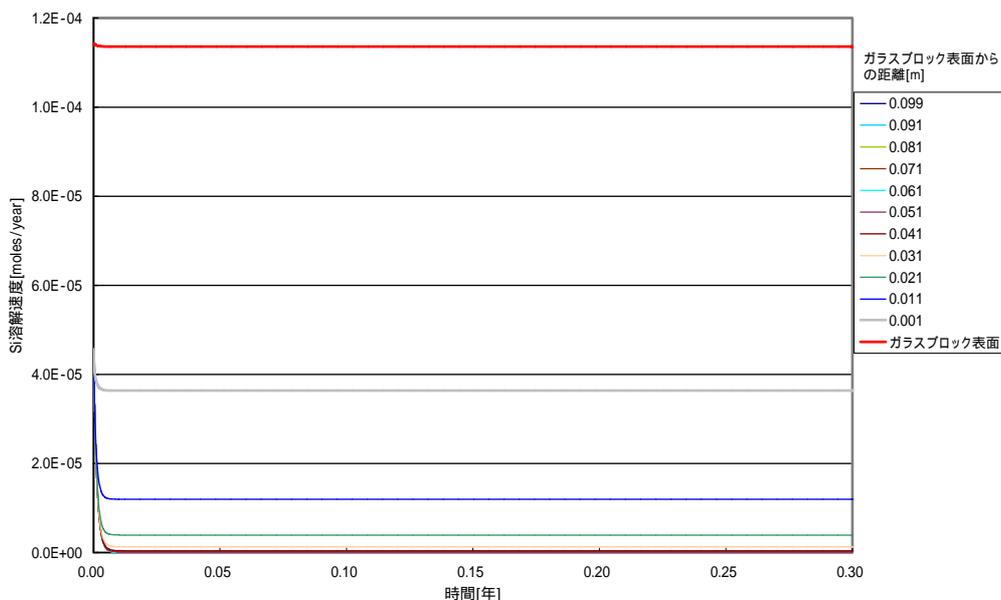


図3 基本ケースにおける Si 溶解速度の時間変化グラフ：

亀裂面(各亀裂メッシュごと)およびガラスブロック表面

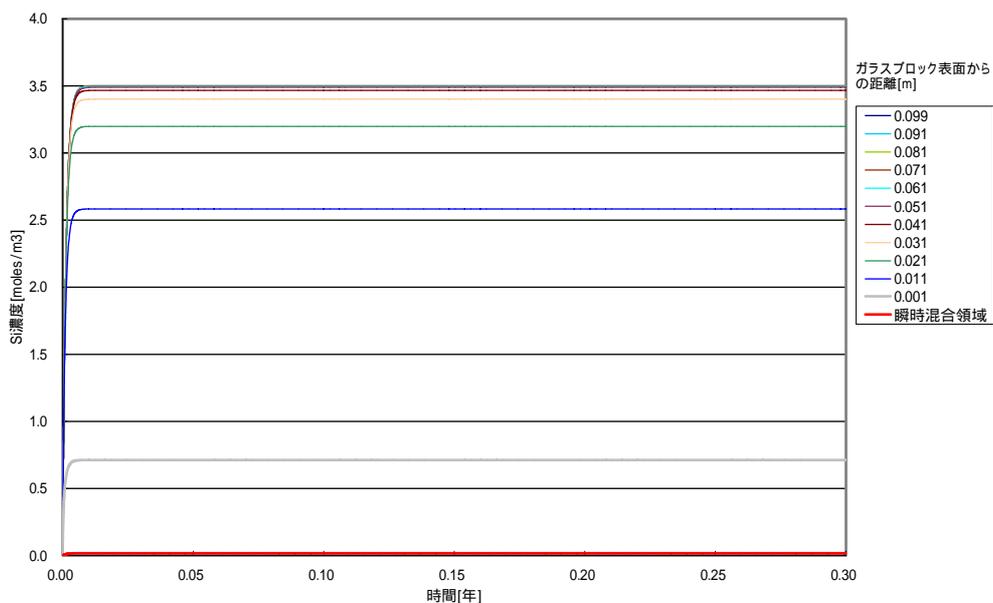


図4 基本ケースにおける Si 濃度の時間変化グラフ：

亀裂内(各亀裂メッシュごと)および瞬時混合領域内

図4において、瞬時混合領域に近い位置ほど Si 濃度が低くなっていることについては、以下のように考えることができる。すなわち、瞬時混合領域では流量により Si が系外に放出(図2)されるため、濃度が低く抑えられる。このため、瞬時混合領域に近い亀裂メッシュほど濃度が低くなるという濃度勾配が生じる。

一方、図3のように瞬時混合領域に近いほど溶解速度が速くなっていることについては、式1の 部分の Si 溶解項より Si 濃度が低いほど溶解速度が速くなるためである。

以上のこと、および図3と図4において溶解速度および Si 濃度とも早期に定常に達していることから、拡散と溶解のバランスがとれていると考えることができる。言い換えれば、各亀裂メッシュでは拡散によって移行した量が亀裂面からの溶解によって補充される、つまり亀裂面からの溶解が拡散に律速される状態で定常になっていると考えることができる。

一方、ガラスブロック表面からの Si 溶解速度は、瞬時混合領域の Si 濃度が流量による運び出しにより低い濃度で定常となるため、亀裂面のどのメッシュからの Si の溶解速度に比べても大きくなっている。

ここで、ガラスブロック表面からの Si の溶解に対して、亀裂面からの Si の溶解および亀裂内での Si の拡散がどの程度の大きさを持つかを把握するための尺度として、以下の値を定義した。

- 1) ガラスブロック表面から系外(モデル上は瞬時混合領域)への溶解に対して、亀裂面からの溶解を考慮したときのガラスブロック全体の溶解速度が何倍程度になるかを表す比率

$$F1比 = \frac{\text{亀裂全表面からのSiの溶解速度} + \text{ガラスブロック表面から瞬時混合領域へのSiの溶解速度}}{\text{ガラスブロック表面から瞬時混合領域へのSiの溶解速度}} \dots\dots\dots \text{式 3}$$

- 2) ガラスブロック表面から系外への溶解に対して、亀裂開口部からの拡散を考慮したときにガラスブロック全体から系外に運ばれる量が何倍程度になるかを表す比率

$$F2比 = \frac{\text{亀裂開口部から瞬時混合領域へのSiの拡散移行率} + \text{ガラスブロック表面から瞬時混合領域へのSiの溶解速度}}{\text{ガラスブロック表面から瞬時混合領域へのSiの溶解速度}} \dots\dots\dots \text{式 4}$$

図 5 に基本ケースでの F1 比と F2 比の時間変化グラフを示す。

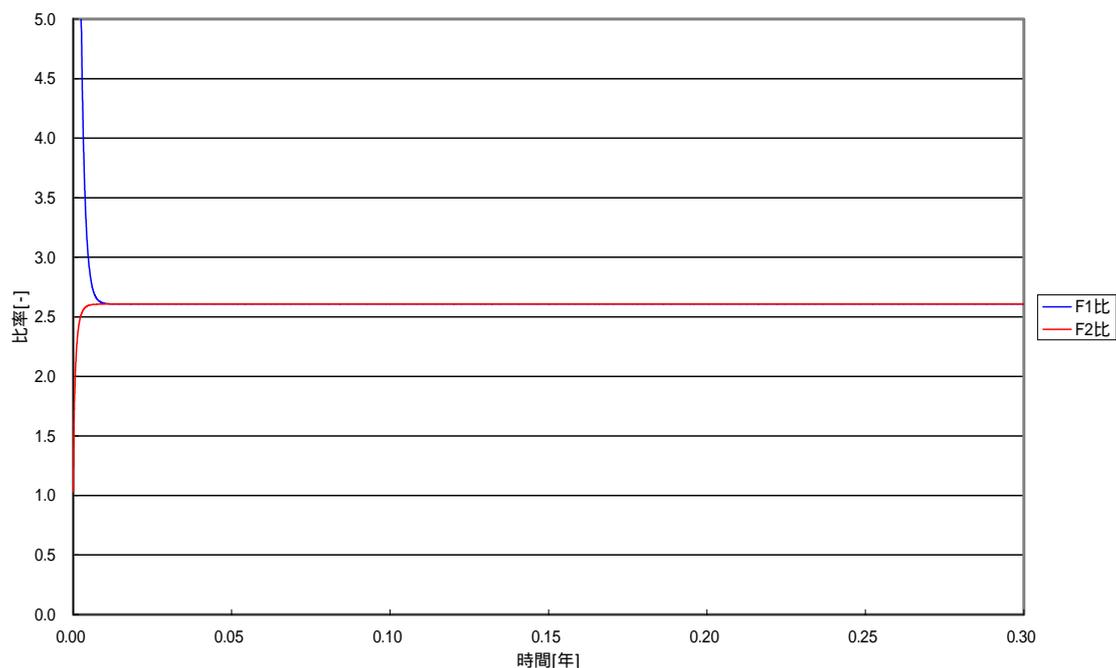


図 5 基本ケースにおける F1 比と F2 比の時間変化グラフ

F1 比と F2 比は早い時期に同じ一定値になっている（亀裂面を含むガラスブロック全体からの Si の溶解速度と、ガラスブロック全体から瞬時混合領域に運ばれる量が同じ）。これは前出のように亀裂面からの Si の溶解速度が、亀裂内での Si の拡散に律速されるためである。ここで、基本ケースにおいては亀裂面の面積（ $L \times W$ ）がガラスブロック表面の面積（ $a \times W$ ）の 10 倍となっているが、F1 比、F2 比ともに 2.6 倍程度に抑えられており、これは亀裂の発生によりガラスの溶解に寄与する面積が増加したとしても、亀裂面を含むガラスブロック全体からの Si の溶解速度および瞬時混合領域へ運ばれる量がそれに比例して増加するわけでは無いことを定量的に示している。

このことから、亀裂発生の影響度を定める重要な要因は亀裂面の面積（ $L \times W$ ）そのものではなく、亀裂開口部の面積と、ガラスブロック表面の面積ではないかと推定し、これを確認するために感度解析を実施することにした。

6. 感度解析

5章で推定した亀裂発生の影響度を定める重要な要因を確認するため、ガラスブロックや亀裂の形状を表すパラメータ(仮想的なガラス幅(a) , 亀裂開口幅(b) , 亀裂深さ(L) , 瞬時混合領域通過流量(Q) , Si の残存溶解速度(K_r))を対象とした感度解析を実施した。

6.1 感度解析に用いたデータ

表2に感度解析に用いたデータを示す。

表2 感度解析に用いたデータ

変数名	記号	単位	基本データ	変動データ	
仮想的なガラス幅	a	m	0.005	0.0005	0.05
亀裂開口幅	b	m	0.001	0.0005	0.01
亀裂深さ	L	m	0.1	0.05	0.2
亀裂メッシュの分割数	N	-	50	100	25
瞬時混合領域通過流量	Q	m ³ /y	0.1	0.0	
Siの残存溶解速度	K_r	moles/m ² /y	0.0	0.00274	

感度解析においては、上記基本データと変動データをそれぞれ組み合わせた全108ケースの解析を実施した。表3に全感度解析ケースと用いたデータの一覧を示す。

なお、解析上の精度を保つために、亀裂深さ(L)が変動しても亀裂メッシュの厚さが一定(0.002m)となるように、亀裂深さにあわせて空間メッシュの分割数を変化させている。

*式1と式2では、ガラスブロック周辺長(W)は単独ではなく、常にガラスブロック表面積($a \times W$)、亀裂面の面積($L \times W$)、亀裂開口幅($b \times W$)という形で考慮され、式3と式4に式1および式2の該当する項を代入するとWは式から消去される。このため、ガラスブロック周辺長(W)を変化させてもF1およびF2比は変化しない。以上のことから、ガラスブロック周辺長(W)を感度解析の対象から除外した。ただし、2章に示したように、仮想的なガラス幅(a)はガラスブロック表面積とガラスブロック周辺長(W)と連動したパラメータであることから、仮想的なガラス幅(a)を変化させることには、ガラスブロック周辺長(W)の変化が間接的に含まれる。

表3 全感度解析ケースと用いたデータの一覧

ケースNo	a	b	L	亀裂メッシュ の分割数	Q	K _r	ケースNo	a	b	L	亀裂メッシュ の分割数	Q	K _r
1	0.0005	0.0005	0.05	25	0.1	0	55	0.005	0.001	0.1	50	0	0
2	0.0005	0.0005	0.05	25	0.1	0.00274	56	0.005	0.001	0.1	50	0	0.00274
3	0.0005	0.0005	0.05	25	0	0	57	0.005	0.001	0.2	100	0.1	0
4	0.0005	0.0005	0.05	25	0	0.00274	58	0.005	0.001	0.2	100	0.1	0.00274
5	0.0005	0.0005	0.1	50	0.1	0	59	0.005	0.001	0.2	100	0	0
6	0.0005	0.0005	0.1	50	0.1	0.00274	60	0.005	0.001	0.2	100	0	0.00274
7	0.0005	0.0005	0.1	50	0	0	61	0.005	0.01	0.05	25	0.1	0
8	0.0005	0.0005	0.1	50	0	0.00274	62	0.005	0.01	0.05	25	0.1	0.00274
9	0.0005	0.0005	0.2	100	0.1	0	63	0.005	0.01	0.05	25	0	0
10	0.0005	0.0005	0.2	100	0.1	0.00274	64	0.005	0.01	0.05	25	0	0.00274
11	0.0005	0.0005	0.2	100	0	0	65	0.005	0.01	0.1	50	0.1	0
12	0.0005	0.0005	0.2	100	0	0.00274	66	0.005	0.01	0.1	50	0.1	0.00274
13	0.0005	0.001	0.05	25	0.1	0	67	0.005	0.01	0.1	50	0	0
14	0.0005	0.001	0.05	25	0.1	0.00274	68	0.005	0.01	0.1	50	0	0.00274
15	0.0005	0.001	0.05	25	0	0	69	0.005	0.01	0.2	100	0.1	0
16	0.0005	0.001	0.05	25	0	0.00274	70	0.005	0.01	0.2	100	0.1	0.00274
17	0.0005	0.001	0.1	50	0.1	0	71	0.005	0.01	0.2	100	0	0
18	0.0005	0.001	0.1	50	0.1	0.00274	72	0.005	0.01	0.2	100	0	0.00274
19	0.0005	0.001	0.1	50	0	0	73	0.05	0.0005	0.05	25	0.1	0
20	0.0005	0.001	0.1	50	0	0.00274	74	0.05	0.0005	0.05	25	0.1	0.00274
21	0.0005	0.001	0.2	100	0.1	0	75	0.05	0.0005	0.05	25	0	0
22	0.0005	0.001	0.2	100	0.1	0.00274	76	0.05	0.0005	0.05	25	0	0.00274
23	0.0005	0.001	0.2	100	0	0	77	0.05	0.0005	0.1	50	0.1	0
24	0.0005	0.001	0.2	100	0	0.00274	78	0.05	0.0005	0.1	50	0.1	0.00274
25	0.0005	0.01	0.05	25	0.1	0	79	0.05	0.0005	0.1	50	0	0
26	0.0005	0.01	0.05	25	0.1	0.00274	80	0.05	0.0005	0.1	50	0	0.00274
27	0.0005	0.01	0.05	25	0	0	81	0.05	0.0005	0.2	100	0.1	0
28	0.0005	0.01	0.05	25	0	0.00274	82	0.05	0.0005	0.2	100	0.1	0.00274
29	0.0005	0.01	0.1	50	0.1	0	83	0.05	0.0005	0.2	100	0	0
30	0.0005	0.01	0.1	50	0.1	0.00274	84	0.05	0.0005	0.2	100	0	0.00274
31	0.0005	0.01	0.1	50	0	0	85	0.05	0.001	0.05	25	0.1	0
32	0.0005	0.01	0.1	50	0	0.00274	86	0.05	0.001	0.05	25	0.1	0.00274
33	0.0005	0.01	0.2	100	0.1	0	87	0.05	0.001	0.05	25	0	0
34	0.0005	0.01	0.2	100	0.1	0.00274	88	0.05	0.001	0.05	25	0	0.00274
35	0.0005	0.01	0.2	100	0	0	89	0.05	0.001	0.1	50	0.1	0
36	0.0005	0.01	0.2	100	0	0.00274	90	0.05	0.001	0.1	50	0.1	0.00274
37	0.005	0.0005	0.05	25	0.1	0	91	0.05	0.001	0.1	50	0	0
38	0.005	0.0005	0.05	25	0.1	0.00274	92	0.05	0.001	0.1	50	0	0.00274
39	0.005	0.0005	0.05	25	0	0	93	0.05	0.001	0.2	100	0.1	0
40	0.005	0.0005	0.05	25	0	0.00274	94	0.05	0.001	0.2	100	0.1	0.00274
41	0.005	0.0005	0.1	50	0.1	0	95	0.05	0.001	0.2	100	0	0
42	0.005	0.0005	0.1	50	0.1	0.00274	96	0.05	0.001	0.2	100	0	0.00274
43	0.005	0.0005	0.1	50	0	0	97	0.05	0.01	0.05	25	0.1	0
44	0.005	0.0005	0.1	50	0	0.00274	98	0.05	0.01	0.05	25	0.1	0.00274
45	0.005	0.0005	0.2	100	0.1	0	99	0.05	0.01	0.05	25	0	0
46	0.005	0.0005	0.2	100	0.1	0.00274	100	0.05	0.01	0.05	25	0	0.00274
47	0.005	0.0005	0.2	100	0	0	101	0.05	0.01	0.1	50	0.1	0
48	0.005	0.0005	0.2	100	0	0.00274	102	0.05	0.01	0.1	50	0.1	0.00274
49	0.005	0.001	0.05	25	0.1	0	103	0.05	0.01	0.1	50	0	0
50	0.005	0.001	0.05	25	0.1	0.00274	104	0.05	0.01	0.1	50	0	0.00274
51	0.005	0.001	0.05	25	0	0	105	0.05	0.01	0.2	100	0.1	0
52	0.005	0.001	0.05	25	0	0.00274	106	0.05	0.01	0.2	100	0.1	0.00274
53	0.005	0.001	0.1	50	0.1	0	107	0.05	0.01	0.2	100	0	0
54	0.005	0.001	0.1	50	0.1	0.00274	108	0.05	0.01	0.2	100	0	0.00274

基本ケース

6.2 感度解析の結果

図5より、F1比とF2比は数日で同じ一定値となることから、感度解析においては0.3年時点でのどちらか一方の値をみていけばよいと考えられる。そこで、F2比を選択したうえで、さらに亀裂発生の影響度をより分かりやすく表すため、F2比を改良した以下のF3比を定義して感度解析の結果を比較することにした。

- ・ガラスブロック表面から系外への溶解に対して、亀裂開口部からの拡散が何倍程度になるかを表す比率

$$F3比 = \frac{\text{亀裂開口部から瞬時混合領域へのSiの拡散移行率}}{\text{ガラスブロック表面から瞬時混合領域へのSiの溶解速度}} \dots\dots\dots \text{式5}$$

図6に各ケースにおける0.3年時点のF3比の比較グラフを示す。

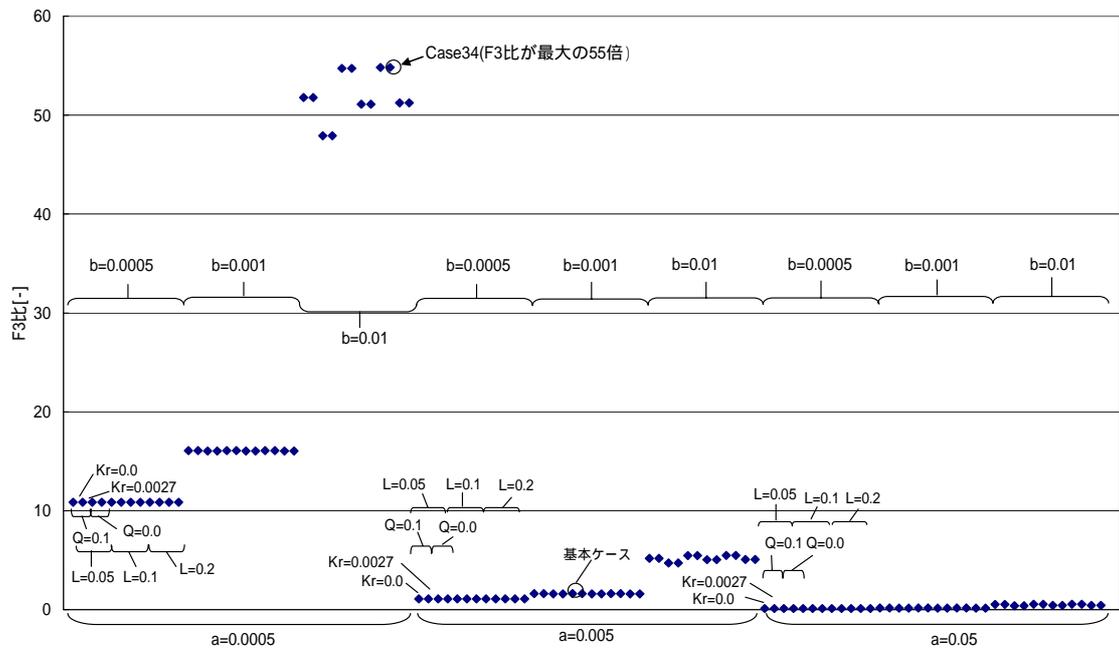


図6 感度解析におけるF3比の比較(0.3年時点)

図6では、残存溶解速度(Kr)、瞬時混合領域通過流量(Q)の違いによる結果の違いがほとんどみられない。このため、この2つのパラメータを除いた亀裂深さ(L)、仮想的なガラス幅(a)、亀裂開口幅(b)の3つのパラメータの影響について詳しく検討することとする。

まず、亀裂面の面積(亀裂深さ(L)×亀裂幅(W))と関係する変動パラメータである亀裂深さ(L)に対するF3比の感度グラフを図7に示す。

図7より、ほとんどの解析ケースで亀裂深さ(L)のみの違いによるF3比の差は出てお

らず、亀裂深さ(L)の変動すなわち亀裂面の面積(L×W)の変動の影響は小さいと言える。なお、亀裂深さ(L)の違いによって F3 比に差が出ているのは、F1 比および F2 比が一致しない一部のケースであるが、これはある特定の条件下でのみ起こる現象であるため、ここでは無視できるものと考えた(付録参照)。

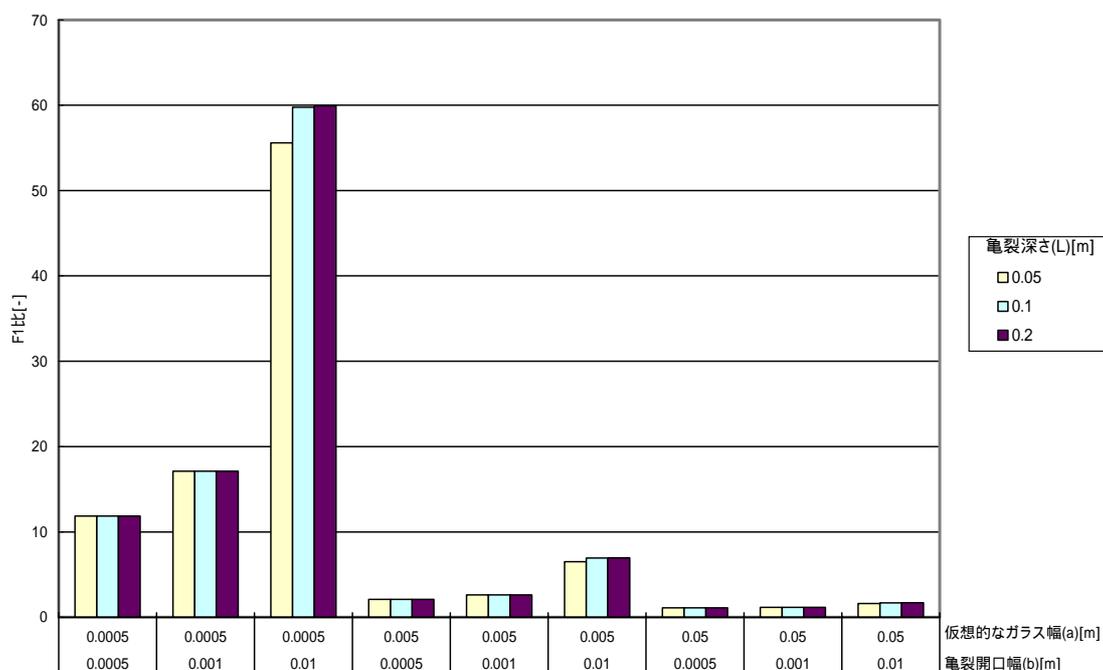


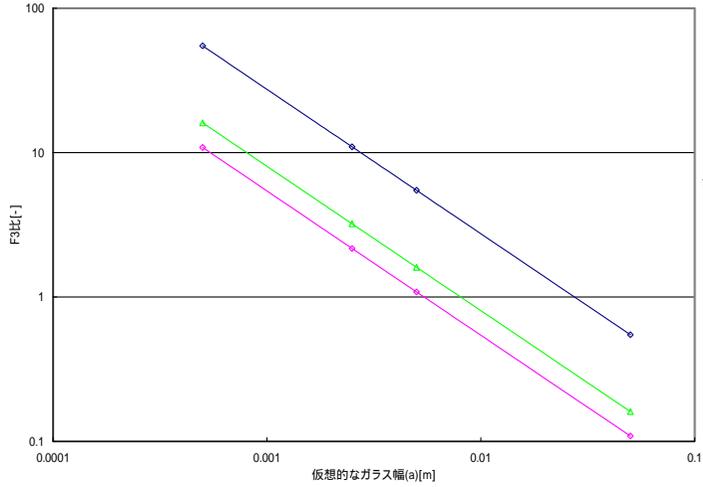
図7 亀裂深さ(L)の変動に対する F3 比の感度グラフ

以上のことから、亀裂発生の影響度を決める要因として、

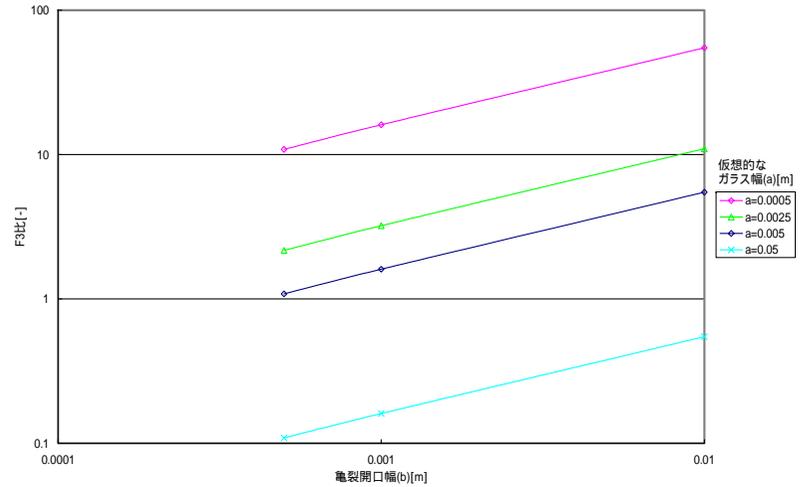
- ・ 仮想的なガラス幅(a)
- ・ 亀裂開口幅(b)

が残った。

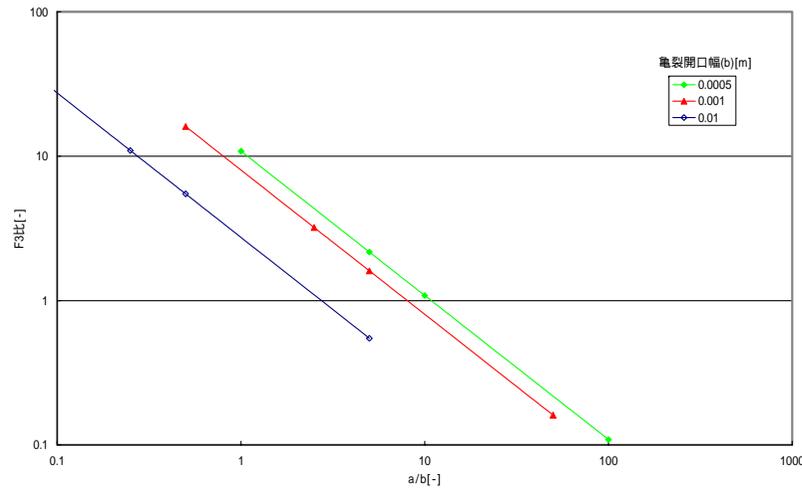
図7で F3 比が最大となる亀裂深さ(L)が 0.2m の場合を例として、仮想的なガラス幅(a)に対する F3 比の感度グラフを図8(a)に、亀裂開口幅(b)に対する F3 比の感度グラフを図8(b)に示す。また F3 比を仮想的なガラス幅(a)と亀裂開口幅(b)の比で整理し、亀裂開口幅の違いにより異なる直線でまとめたグラフを図8(c)に示す。



(a) 仮想的なガラス幅(a)に対する F3 比の感度グラフ



(b) 亀裂開口幅(b)に対する F3 比の感度グラフ



(c) 仮想的なガラス幅(a)と亀裂開口幅(b)の比に対する F3 比の感度グラフ

図8 仮想的なガラス幅(a)および亀裂開口幅(b)に対する F3 比の感度グラフ(亀裂深さ(L)を 0.2m に固定)

図 8 (a)では、仮想的なガラス幅(a)が増加すると F3 比は反比例して小さくなっている。これは仮想的なガラス幅(a)が増加すると、ガラスブロック表面から瞬時混合領域への溶解が増加するため、亀裂開口部からの拡散の影響が相対的に小さくなるためである。

一方、図 8 (b)から、亀裂開口幅(b)の増加に合わせて F3 比が増加している。また、その F3 比の値は、仮想的なガラス幅(a)が小さくなるほど大きくなっている。このことは、亀裂発生の影響度は亀裂の開口幅(b)に大きく依存することを示している。5章に示したように、亀裂面からの Si の溶解は亀裂内での Si の拡散に律速される。また、式 2 より、亀裂開口部からの Si の拡散速度の項は亀裂開口部の面積 ($W \times b$) を係数として含む。これらのことから、F3 比が亀裂開口幅(b)の増加に合わせて増加することが説明できる。

なお、F3 比を仮想的なガラス幅(a)と亀裂開口幅(b)の比 (a/b) をパラメータとして整理した図 8 (c)では、異なる亀裂開口幅についての直線が図 8 (a)に比べて近づいており、完全ではないにしても、亀裂発生の影響度を a/b という 1 つのパラメータで概観できる可能性を示していると考えられることができる。

以上のことから、亀裂発生の影響度に寄与する要因は、亀裂面の面積と関係する亀裂深さ(L)そのものではなく、

- ・ ガラスブロック表面の面積と関係する仮想的なガラス幅(a)
- ・ 亀裂開口部の面積と関係する亀裂開口幅(b)

であることが確認できた。なお、図 8 の傾きなどから、仮想的なガラス幅(a)に対する感度が亀裂開口幅(b)に比べて相対的に大きいことがわかる。

6.3 感度解析を通じた考察

感度解析の結果から、亀裂発生の影響度に寄与する要因は、仮想的なガラス幅(a)および亀裂開口幅(b)であることが確認された。

基本ケースにおけるこれらのパラメータの設定値をみると、亀裂開口幅(b)については、実規模模擬ガラス固化体の浸出試験から得られた最大値が 0.0005m 程度であるため、0.001m という設定は十分に保守的であると考えられる。

一方、仮想的なガラス幅(a)については参考となる値が無かったが、図 1 に示した浸出試験での断面図をみても、仮想的なガラス幅(a)は亀裂開口幅(b)よりも大きくなると考えられることから、亀裂開口幅(b)を 0.001m 程度と考えれば仮想的なガラス幅(a)は 0.005m ~ 0.05m に設定すれば保守的であると考えられる。この場合、F3 比は最大でも 1.6 倍程度と予測される。

実規模模擬ガラス固化体の浸出試験結果では、亀裂が発生することにより溶解に寄与し得る表面積が増加しても、ガラスの溶解量の実質的な増加は数倍程度に収まると推定されており、このことは上記の考察の結果とも整合している。

以上のことから、第 2 次取りまとめにおける「ガラス固化体の溶解に伴う表面積の低

下は考慮しない」との仮定，およびこれを踏まえた「ガラス固化体の溶解に伴う亀裂を含む形状などの変化は考慮しない」との想定のもとでは，第2次取りまとめにおける「亀裂発生の影響としてガラス固化体の幾何学的表面積の10倍程度を溶解に寄与する表面積とし，その面積に比例して溶解量が増加する」とした設定が保守的であることを確認した。

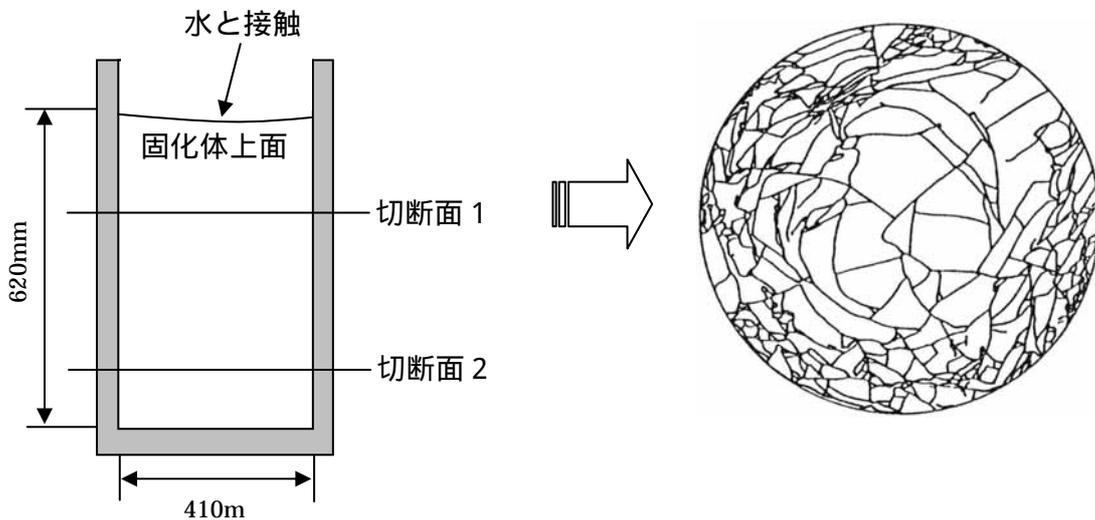
ただし，超長期経過後のガラス固化体の存在状態や亀裂の形状などが明らかではないことから，本モデルで想定されるよりも，割れにより溶解量が増加する割合が高くなる可能性を完全に否定することはできない。しかしその場合でも，超長期後には「ガラス固化体の溶解に伴う表面積の減少」という溶解を抑える効果も同様に期待されることを考え合わせると，第2次取りまとめのような取扱いをしておけば，少なくとも非保守側の設定となることはないと考えられる。

7. 実規模模擬ガラス固化体を用いた浸出試験結果への適用性の検討

これまでの，ガラスブロックのモデル化およびモデルを用いた感度解析を通じての亀裂発生の影響度を定める要因の検討をふまえ，ここでは実規模模擬ガラス固化体の浸出試験[2]で結果を対象に，ガラス固化体全体の評価への適用性を検討する。

7.1 浸出試験に用いられた実規模模擬ガラス固化体の概要

図9に浸出試験に用いられた実規模模擬ガラス固化体とその断面のトレース図を示す。



(a)試験に用いたガラス固化体の断面図 (b)切断面2で実測された亀裂のトレース図

図9 実規模模擬ガラス固化体と断面図

この試験では、図9(a)のようにガラス固化体の側面と底面がキャニスターに覆われており、ガラスとキャニスターの間には水の浸入が認められなかった。このため、ガラス固化体が水と接触していた領域は固化体の上面部分のみであり、Siはこの面からのみ溶解している。

試験終了後、図9(a)に示す2つの面で固化体を切断し、固化体の上部・下部表面および切断面において、図9(b)のような亀裂のトレース図を作成して切断面あたりの亀裂の総長さを実測した。実測された亀裂の総長さを表4に示す。

また、切断面において実測された亀裂開口幅の最大値は0.0005mであった。

表4 実規模模擬ガラス固化体で実測された切断面あたりの亀裂総長さ

固化体上面から切断面までの距離(mm)	亀裂総長さ(m)
0	20.70
314(切断面1)	16.78
482(切断面2)	14.45
620	12.80
平均	16.18

7.2 実規模模擬ガラス固化体のモデル化

前章までで用いたモデルにおいては、ひとつのガラスブロックを対象として亀裂発生の影響度をF3比として求めている。このため、実規模模擬ガラス固化体で実測されたすべてのガラスブロックに対して、このモデルを当てはめればガラス固化体全体でのF3比を求めることが可能であると考ええる。しかしながら、図9(b)に示したようにガラスブロックは多数存在するため、それぞれのガラスブロックについて、ガラスブロック周辺長(W)、ガラスブロック表面積(SA)および亀裂開口幅(b)を測定しモデル化を行うことは非常に困難である。

そこで、多数のガラスブロックのそれぞれに対して個別にF3比を求めるのではなく、多数のガラスブロックに分かれていることの影響を含むガラス固化体全体についてのF3比を、1つのガラスブロックについてのモデルに集約して表現することを検討した(図10)。

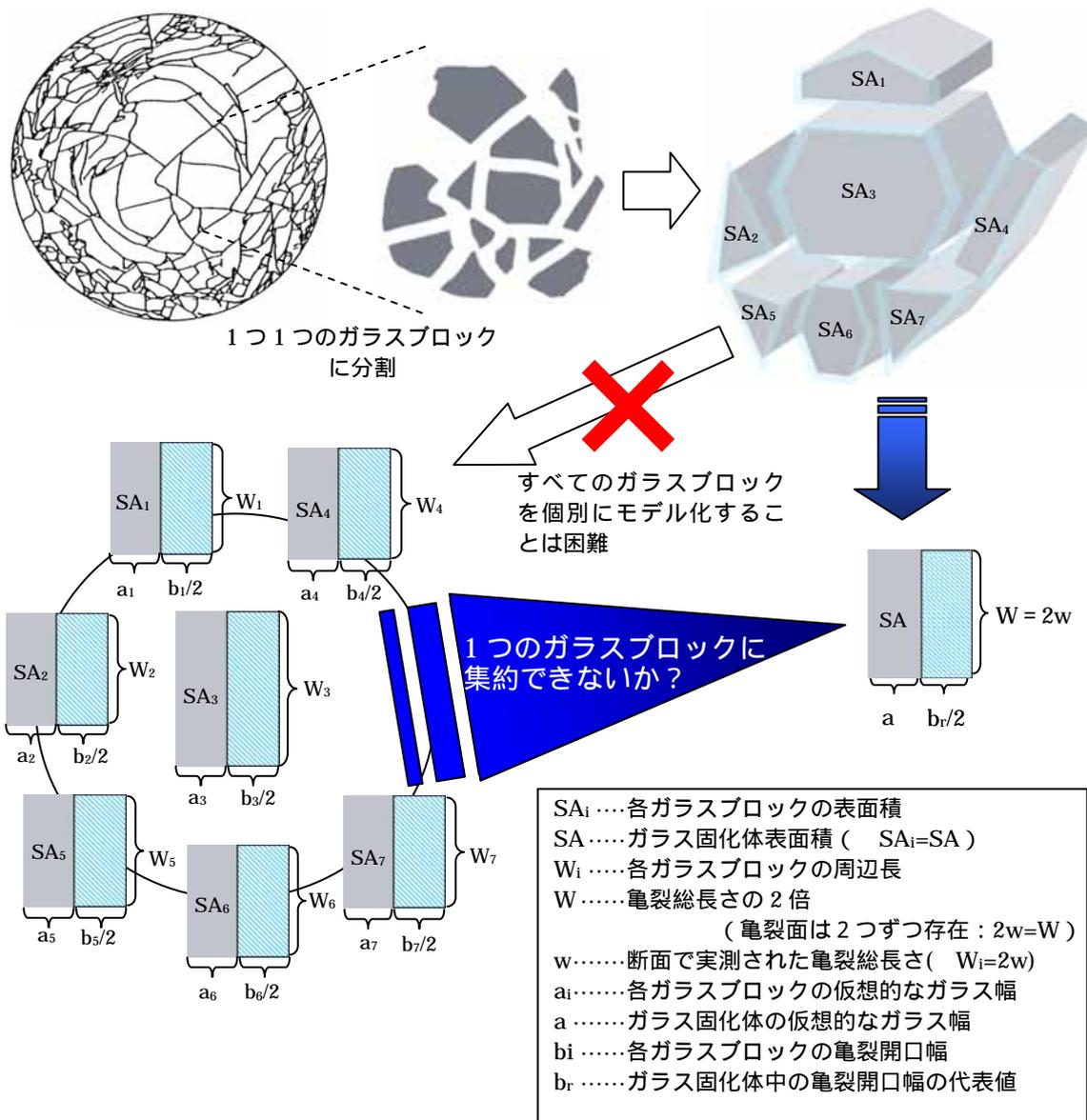


図 10 実規模模擬ガラス固化体の断面図とモデル化の適用イメージ

まず，すべてのガラスブロックを対象とした F3 比は，

- ・各ガラスブロックの亀裂開口部からの移行（式 2 の 部分）を，すべてのガラスブロックについて合計
- ・各ガラスブロック表面からの溶解（式 2 の 部分）をすべてのガラスブロックについて合計

の比となり，式 6 のように表される。

$$F3_{all} = \frac{\sum \varepsilon \left(\frac{b_i W_i}{2} \right) D \left(\frac{\partial C_{n_i}}{\partial l} \Big|_{n=1 \rightarrow m} \right)}{\sum a_i W_i \left(K^+ \left(1 - \frac{C_{m_i}}{C^*} \right) + K_r \right)} \dots\dots\dots \text{式 6}$$

瞬時混合領域の Si 濃度である C_{m_i} は，Si の飽和濃度 C^* に比べて十分に小さいものと考え*，また K_r は 6 章に示したように影響がないことから 0 とすると，式 6 は以下のようにになる。

$$F3_{all} = \frac{\sum \varepsilon \left(\frac{b_i W_i}{2} \right) D \left(\frac{\partial C_{n_i}}{\partial l} \Big|_{n=1 \rightarrow m} \right)}{\sum a_i W_i K^+} \dots\dots\dots \text{式 7}$$

式 7 の $\left(\frac{\partial C_{n_i}}{\partial l} \Big|_{n=1 \rightarrow m} \right)$ 項はガラスブロック表面から瞬時混合領域への濃度勾配を表している。前出のように， C_{m_i} が Si の飽和濃度 C^* に比べて十分に小さいことから，各ガラスブロックでの違いは瞬時混合領域に面している亀裂メッシュの濃度 C_{1i} に依存しており，亀裂開口幅(b)が亀裂メッシュの濃度に大きく影響することから，亀裂開口幅(b)の違いによる濃度勾配の感度をみることにした。

浸出試験において実測された亀裂開口幅の最大値が 0.0005m であることから，モデル上の亀裂開口幅(b)の最大値を 2 倍した場合，および半分にした場合の解析を行い，濃度分布を求めた。その結果を図 11 に示す。なお，図 11 では亀裂開口幅 (b) 以外の値は基本ケースと同じとした。

浸出試験は閉鎖系（モデル上では瞬時混合領域流量 0.0m³/y に相当）である。モデル上で閉鎖系を想定する場合（瞬時混合領域通過流量 0.0m³/y とする），瞬時混合領域の体積が小さすぎると亀裂面からの溶解が亀裂開口部から瞬時混合領域への拡散に律速されないという現象が起きる（付録参照）。しかし，浸出試験の系では，固化体上面の面積に比べて浸出槽の体積が十分に大きいので，瞬時混合領域の Si 濃度 C_{m_i} は高くないと考えられ，モデル上は開放系と同じように考えることができると仮定し， C_{m_i} が飽和濃度 C^ に比べて十分小さいものと考えた。

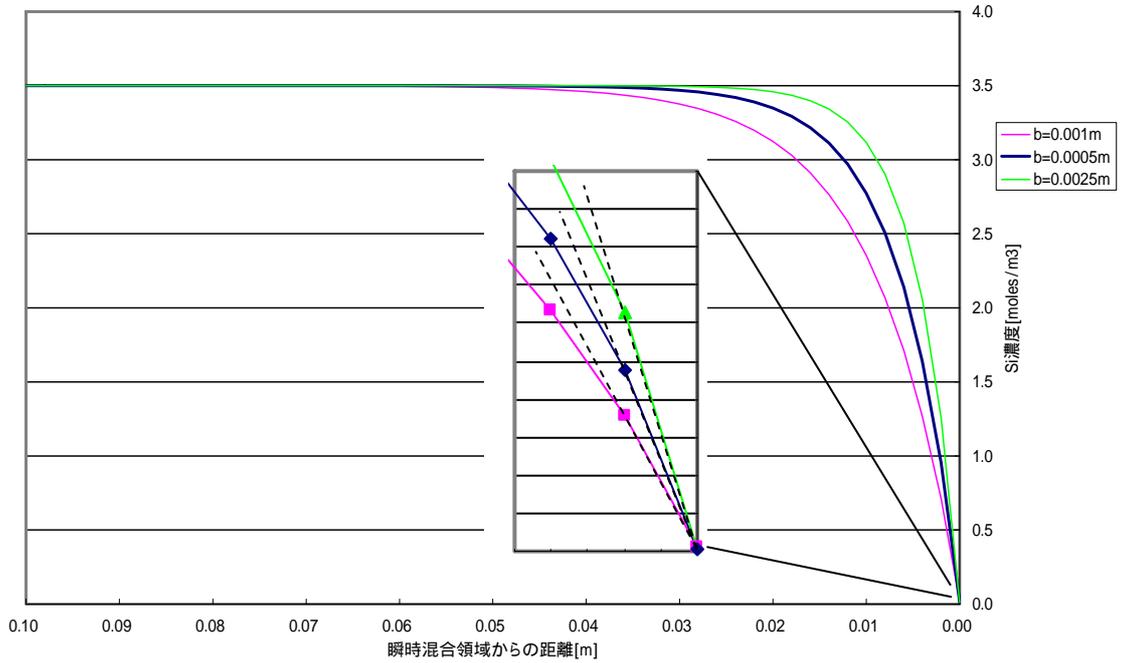


図 11 亀裂開口幅(b)の違いによる各亀裂メッシュでの濃度分布

図 11 から，ガラスブロック表面の亀裂メッシュと瞬間混合領域との濃度勾配は，亀裂開口幅(b)が変化してもさほど変わらず， $\left(\frac{\partial C_{n_i}}{\partial l}\right)_{n=1 \rightarrow m}$ 項は亀裂開口幅(b)が半分になった場合は 1.3 倍程度に，2 倍になった場合でも 0.7 倍程度であり，変動範囲は小さい。このため，亀裂開口幅 b_i に一律に代表値(b_r)を用いることとし，その値として実測された亀裂開口幅の最大値 0.0005m を設定するとともに，このときの濃度勾配を定数 α とし置き換えた(式 8)。

$$\varepsilon \left(\frac{b_i W_i}{2} \right) D \left(\frac{\partial C_{n_i}}{\partial l} \right)_{n=1 \rightarrow m} = \varepsilon \left(\frac{b_r W_i}{2} \right) D \alpha \dots \dots \dots \text{式 8}$$

式 8 を式 7 に代入すると，

$$F3_{all} \frac{\sum \varepsilon \left(\frac{b_r W_i}{2} \right) D \alpha}{\sum a_i W_i K^+} = \frac{\varepsilon D \alpha \frac{b_r}{2} \sum W_i}{K^+ \sum a_i W_i} \dots \dots \dots \text{式 9}$$

また、すべてのガラスブロックの周辺長を合計したもの（ W_i ）が切断面での亀裂総長さの平均を2倍にしたもの（亀裂長さ沿いに亀裂は2面ずつ存在するため）であることから、 $W_i=W=2w$ となり、これを式9に代入すると、

$$F3_{all} = \frac{\varepsilon D \alpha \frac{b_r}{2} 2w}{K^+ \sum a_i W_i} = \frac{\varepsilon D \alpha \frac{b_r}{2}}{K^+ \frac{\sum a_i W_i}{2w}} \dots\dots\dots \text{式 10}$$

さらに、 $a_i W_i = SA$ （固化体表面積）であり、ガラス固化体の仮想的なガラス幅(a)は仮想的なガラス幅の定義により、 $a = \frac{SA}{W} = \frac{SA}{2w}$ となることから、式10は式11のようになる。

$$F3_{all} = \frac{\varepsilon D \alpha \frac{b_r}{2}}{K^+ \frac{SA}{2w}} = \frac{\varepsilon D \alpha \frac{b_r}{2}}{K^+ a} \dots\dots\dots \text{式 11}$$

これにより、 $F3_{all}$ はガラス固化体の仮想的なガラス幅(a)と亀裂開口幅の代表値(b_r)の関数となる。

一方、1つのガラスブロックにおけるF3比は式12のようになる。

$$F3_i = \frac{\varepsilon \left(\frac{b_i W_i}{2} \right) D \left(\frac{\partial C n_i}{\partial l} \Big|_{n=1 \rightarrow m} \right)}{a_i W_i \left(K^+ \left(1 - \frac{C m_i}{C^*} \right) + K_r \right)} \dots\dots\dots \text{式 12}$$

$C m_i, K_r, b_i, \left(\frac{\partial C n_i}{\partial l} \Big|_{n=1 \rightarrow m} \right)$ を $F3_{all}$ のときと同様に考え、式12に代入すると、

$$F3_i = \frac{\varepsilon \left(\frac{b_r W_i}{2} \right) D \alpha}{a_i W_i K^+} = \frac{\varepsilon D \alpha \frac{b_r}{2}}{K^+ a_i} \dots\dots\dots \text{式 13}$$

となり、仮想的なガラス幅を1つのガラスブロックの値から、ガラス固化体の値に置き換えれば ($a_i = a$)、式 11 の $F3_{all}$ と式 13 の $F3_i$ は同一の式となる。

このことより、すべてのガラスブロックのそれぞれについてモデル化を行わなくても、

- ・ガラス固化体の仮想的なガラス幅 ($a=SA/2w$: ガラス固化体表面積 SA , 亀裂総長さ w)
- ・実測された亀裂開口幅の最大値 ($b_r=0.0005m$)

を用いることにより、実規模模擬ガラス固化体に対しても1つのガラスブロックについてのモデルを用いて $F3$ 比を計算できる。

7.3 浸出試験へのモデルの適用結果

まずモデルを用いた予測を行う。

ガラス固化体の仮想的なガラス幅 (a) は、実規模模擬ガラス固化体の断面積 $SA=0.132m^2$ と亀裂総長さの平均 (w) = 16.18m から、

仮想的なガラス幅 (a) = $SA \div (2 \times w) =$ 約 0.004m となる。

これと実規模模擬ガラス固化体で実測された亀裂開口幅の最大値である 0.0005m を図 8 にあてはめると、 $F3$ 比は約 1 となる。

一方浸出試験においては、固化体の上部表面と内在クラック表面に生成した皮膜がガラスの浸出に関与したものとして扱い、これらの体積からガラスの浸出量を求めている。表 5 に浸出試験で実測された皮膜の厚さを示す。

表 5 浸出試験で実測された表面皮膜の厚さ

	面積[m ²]	表面皮膜厚さ (平均)[μm]
上部表面	0.13	100
内在クラック表面	20.8	0.3

表 5 より、

上部表面の皮膜体積 $0.13m^2 \times 100 \mu m = 1.3E-5m^3$

亀裂表面の皮膜体積 $20.8m^2 \times 0.3 \mu m = 6.2E-6m^3$

これらを式5に当てはめ、ガラスブロック表面から系外への溶解に対して、亀裂開口部からの拡散*が何倍程度になるかを表す F3 比を求めると、

$$F3\text{比} = \frac{\text{亀裂表面の皮膜体積}}{\text{上部表面の皮膜体積}} = \frac{6.2E-6}{1.3E-5} \quad 0.5$$

となる。モデルによる予測と試験結果での F3 比を比較した表を表6に示す。表6では、合わせて F2 比（ガラスブロック表面から系外への溶解に対して、亀裂開口部からの拡散*を考慮したときにガラスブロック全体から系外に運ばれる量が何倍程度になるかを表す比率）を示す。

表6 モデルによる予測と浸出試験での亀裂発生の影響度の比較

	ガラスブロック表面から系外への溶解に対して、亀裂開口部からの拡散が何倍程度になるかを表すF3比[-]	ガラスブロック表面から系外への溶解に対して、亀裂開口部からの拡散*を考慮したときにガラスブロック全体から系外に運ばれる量が何倍程度になるかを表すF2比[-]
解析モデル	約1.0	約2.0
試験結果	約0.5	約1.5

これらの値は整合的な値となっている。ここで、モデルによる予測は試験結果より少し大きな値となっている。これはモデルにおいて実規模模擬ガラス固化体で実測された亀裂開口幅の最大値を用いているため、亀裂開口部からの拡散を多めに評価することになったためと考えられる。

以上のことから、ひとつのガラスブロックについてのモデルをガラス固化体全体の評価に適用する事が可能であり、実規模模擬ガラス固化体の浸出試験結果とも整合することが確認できた。

* 解析モデル、試験結果どちらにおいても、亀裂表面からの Si の溶解は亀裂開口部からの拡散に律速されるとともに、亀裂開口部から瞬時混合領域への Si の移行は拡散のみによって生じるものとして扱う。

8. おわりに

ガラス固化体の溶解に対する亀裂発生の影響について、関係し得る主要なプロセスを取り込んだモデルを構築するとともに、そのモデルを用いた感度解析を実施した。

感度解析の結果、亀裂面からの Si の溶解と亀裂内の Si の拡散が早期に平衡状態になることにより、亀裂の発生がガラスの溶解に与える影響度は亀裂面の面積そのものではなく、亀裂内での Si の拡散に関する亀裂開口幅と、固化体外側からの溶解に関する面積（本モデル上では仮想的なガラス幅に関係）に依存して変化することが示唆された。

また、ガラス固化体全体の評価をするための方法を検討した結果、ひとつのガラスブロックについてのモデルをガラス固化体全体の評価へ適用することが可能であり、実規模模擬ガラス固化体の浸出試験で実測された亀裂総長さや亀裂開口幅などを参考に、実際の試験系へ本モデルを適用し試験結果との比較を行った結果、亀裂の存在によるガラスの浸出量の増加に関するモデルでの予測は、試験結果と整合的であることを確認した。

以上のことから、試験結果とも整合する解析モデルを用いて、第2次取りまとめで用いたガラス溶解に関わるパラメータなどの設定が保守的であることを示す論拠を提示することができた。

なお、長期的な核種の浸出挙動は変質層での拡散などの影響を受けることが考えられる。本研究では変質層などのモデル化や物性値がそろわず、モデルに取り込んでいないが、今後の課題としては、こういったより詳しい核種浸出モデルの取り込みや緩衝材領域までを考慮したモデルの作成を行うことにより、ガラス固化体の溶解のみならず、亀裂発生による核種移行挙動への影響についてもより詳しく検討を行っていくことが考えられる。さらに、非常に難しいことではあるが、超長期でのガラス固化体や亀裂の形状などについて、なんらかの情報が得られれば、亀裂発生によるガラス溶解への影響をより現実的かつ詳細に検討することが可能となる。

参考文献

- 1 . 核燃料サイクル開発機構：“わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性 分冊 3 地層処分システムの安全評価”，JNC TN1400 99-023(1999)
- 2 . 園部一志，石黒勝彦：“実規模ガラス固化体の浸出試験”，PNC TN8410 90-068 (1990)
- 3 . Nagra：“Kristallin-I，Safety Assessment Report”，Nagra Technical Report，NTB 93-22 (1994)

付録 F1 比および F2 比が一致しない解析ケースについての考察

1. 原因となるパラメータの特定

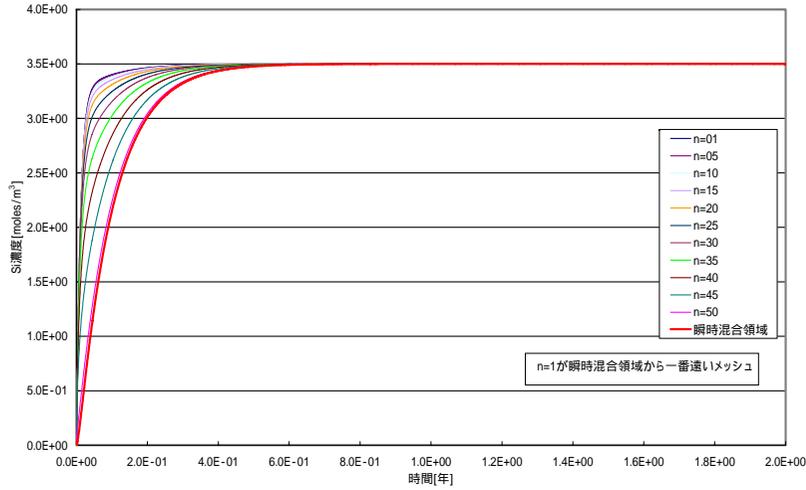
感度解析において、いくつかのケースでは 0.3 年以上たっても、本文の 5 章で定義した F1 比と F2 比が同じ値にならず、F1 比のほうが高くなった。これらの解析ケースでは、亀裂開口幅が 0.01m であり、瞬時混合領域通過流量が $0.0\text{m}^3/\text{y}$ であることが共通していた。

このようなケースの代表として、付図 1 に Case31 (亀裂開口幅 0.01m, 仮想的なガラス幅 0.0005m, 亀裂深さ 0.1m) での各亀裂メッシュ内の Si 濃度の時間変化グラフ, 付図 2 に各亀裂メッシュからの Si 溶解速度および F1 比と F2 比の時間変化グラフ, 付図 5 に時間別の各亀裂メッシュ内の濃度プロファイルを示す。また, 比較のために Case31 と亀裂開口幅のみ異なる Case19 (亀裂開口幅 0.001m: このケースでは F1 比と F2 比は一致する) での各亀裂メッシュ内の Si 濃度の時間変化グラフを付図 3 に, 各亀裂メッシュからの Si の溶解速度および F1 比と F2 比の時間変化グラフを付図 4 に, 時間別の各亀裂メッシュ内の濃度プロファイルを付図 6 に示す。

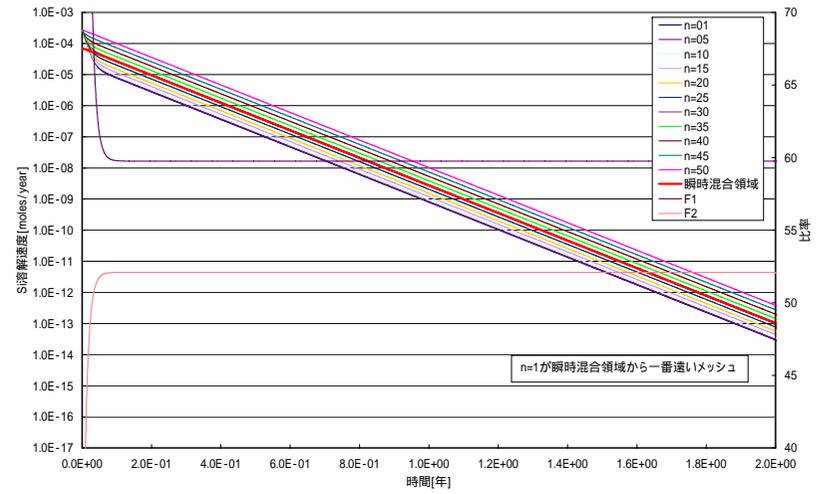
Case31 において F1 比と F2 比が同じにならない理由としては、以下のことが考えられる。

- ・ Case31 の条件では、まず亀裂開口幅が大きいため亀裂内での拡散に寄与する断面積が大きい。これにより、亀裂メッシュ間および瞬時混合領域への拡散は Case19 に比べて大きくなる。また、亀裂開口幅が大きい場合、各亀裂メッシュの体積も大きくなるため、亀裂面から亀裂内への溶解量が同じでも濃度の上昇は遅くなる。このため、Case31 では瞬時混合領域から離れた亀裂メッシュでの Si 濃度の時間変化は Case19 に比べてなだらかな上昇となっている。
- ・ 一方、瞬時混合領域およびこれに近い領域での Si 濃度は、亀裂深部からの拡散による供給により Case19 に比べ急激に上昇している。さらに、瞬時混合領域通過流量が $0.0\text{m}^3/\text{y}$ であるため、瞬時混合領域から系外への Si の運び出しがなく、瞬時混合領域の濃度は上昇しやすくなる。
- ・ この結果、付図 5 のように、他のケースに比べて亀裂内の濃度勾配が小さく、亀裂内全体が飽和濃度を下回る状態になる。このような状態では、基本ケースのように亀裂内の Si の溶解が拡散に律速されることはなく、むしろ Si の溶解は促進され Si の拡散は制約されることになる。

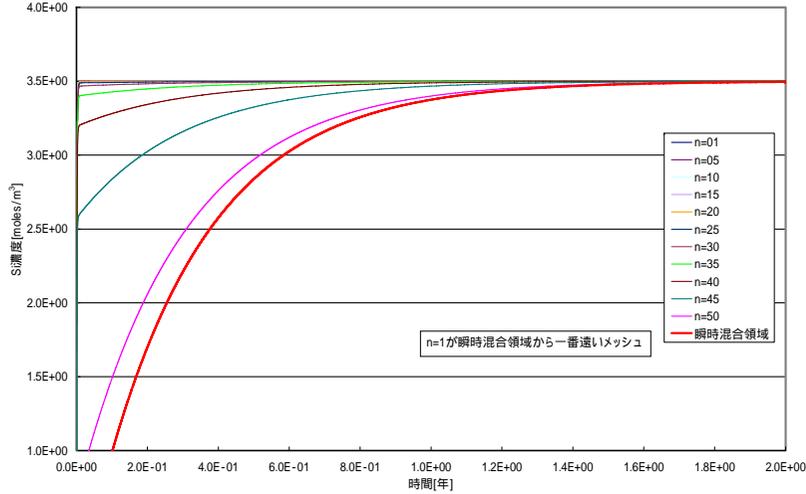
以上のことから、F1 比と F2 比は一致せず、亀裂内での Si の溶解に着目する F1 比が、亀裂開口部からの Si の拡散に着目する F2 比より大きくなったと考えられる。



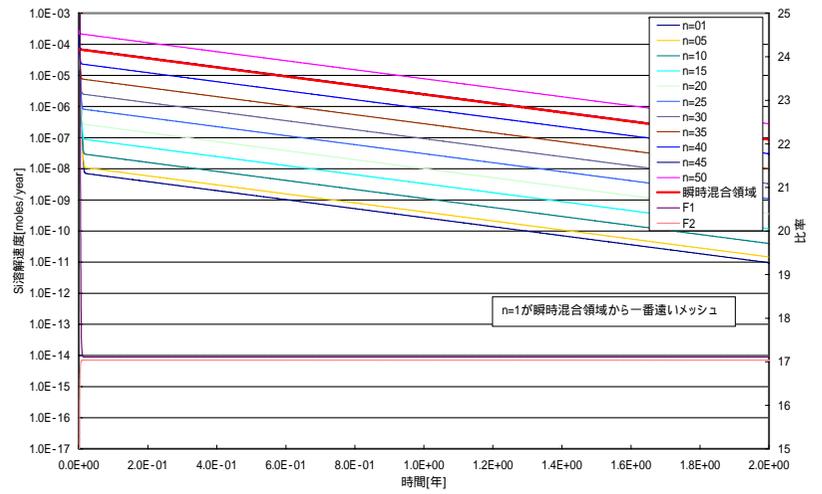
付図1 各亀裂メッシュ内のSi濃度の時間変化グラフ (Case31)



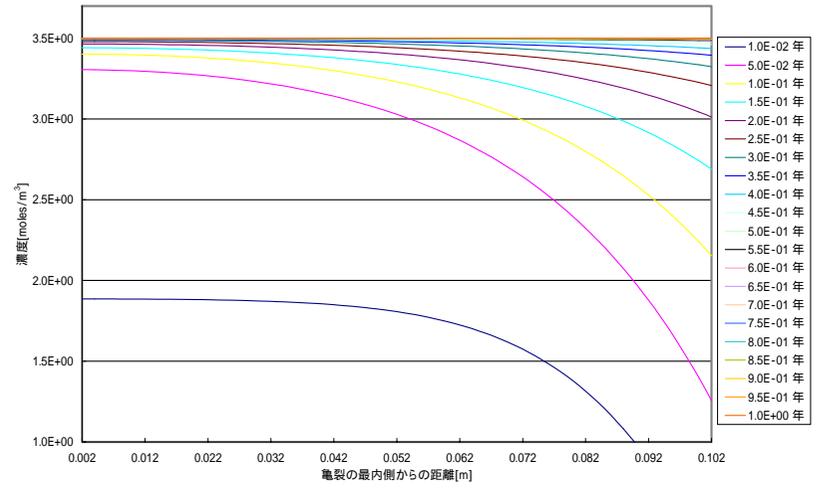
付図2 各亀裂メッシュからのSi溶解速度およびF1比とF2比の時間変化グラフ (Case31)



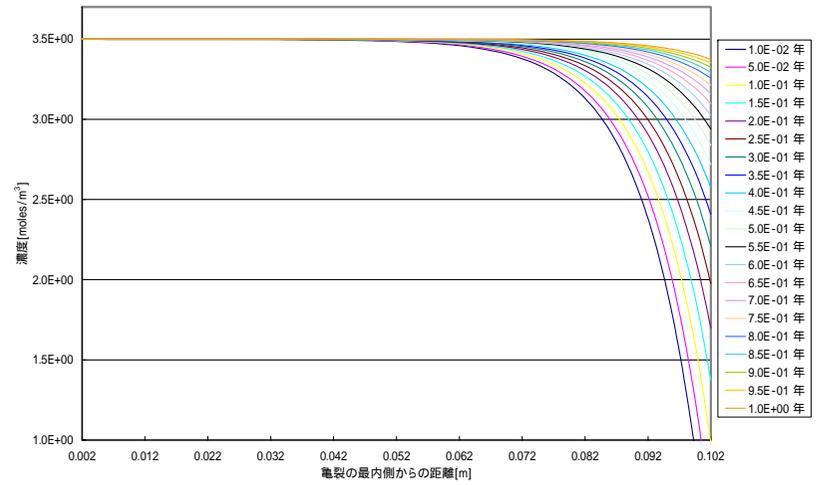
付図3 各亀裂メッシュ内のSi濃度の時間変化グラフ (Case19)



付図4 各亀裂メッシュからのSi溶解速度およびF1比とF2比の時間変化グラフ (Case19)



付図5 時間別の各亀裂メッシュ内の濃度プロファイル (Case31)



付図6 時間別の各亀裂メッシュ内の濃度プロファイル (Case19)

2. 瞬時混合領域の体積の影響についての考察

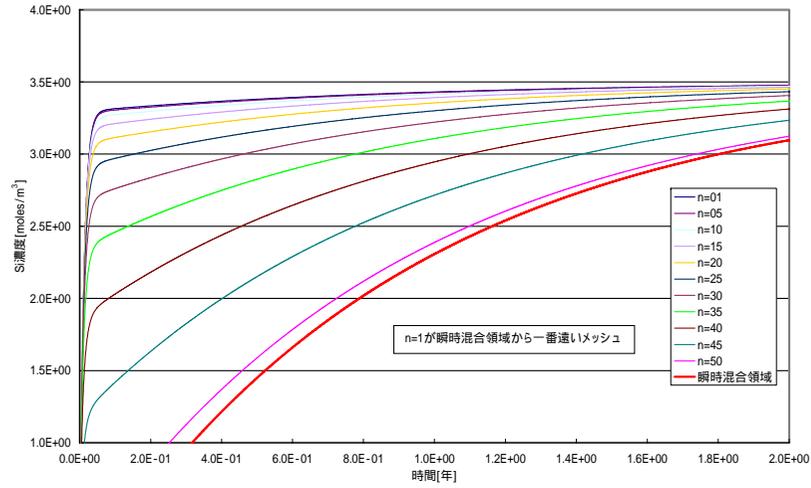
前節では、亀裂開口幅が大きく瞬時混合領域通過流量がない場合（系外への運び出しがない場合）に、F1 比と F2 比が一致しなくなる理由を検討した。なお、瞬時混合領域通過流量がある場合（系外への運び出しがある場合）は、亀裂開口幅が大きくても F1 比と F2 比は一致する（たとえば Case34）。ここで、亀裂開口幅が大きく、流量がない場合でも、瞬時混合領域の体積が大きい場合には瞬時混合領域の濃度が上昇するまでに時間がかかるため、前節の Case31 のような挙動ではなく、流量がある場合と同様に F1 比と F2 比が一致すると予測される。同様に亀裂開口幅が小さい場合でも瞬時混合領域の体積が小さく早期に飽和に近い状態になれば、F1 比と F2 比が一致しないと予測される。

そこで、Case31 において瞬時混合領域の体積を 10 倍に設定した解析（以下 Case31*）および Case19 において瞬時混合領域の体積を 1/10 に設定した解析（以下 Case19*）を行った。付図 7 に Case31*での各亀裂メッシュ内の Si 濃度の時間変化グラフを、付図 8 に各亀裂メッシュからの Si の溶解速度および F1 比と F2 比の時間変化グラフを示す。また Case19*での各亀裂メッシュ内の Si 濃度の時間変化グラフを付図 9 に、各亀裂メッシュからの Si 溶解速度および F1 比と F2 比の時間変化グラフを付図 10 に示す。

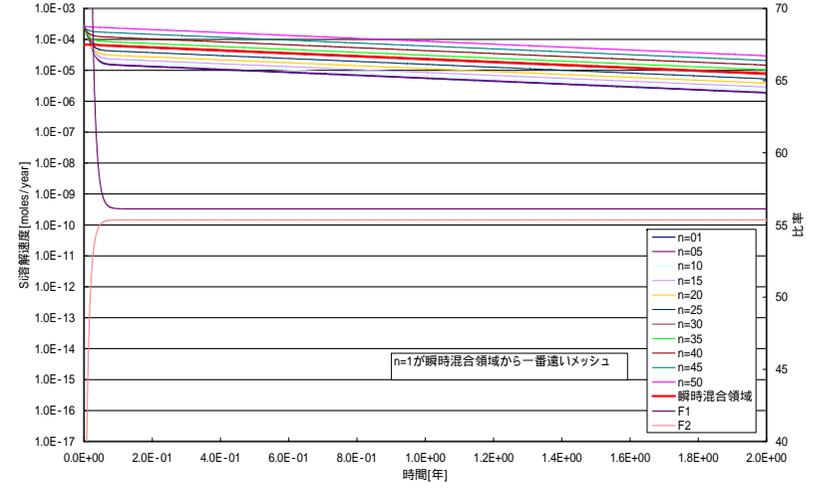
Case31*では瞬時混合領域の体積が元のケース（Case31）より大きいため、Case31 についての付図 1 や付図 2 に比べて、瞬時混合領域の濃度の上昇が遅くなり（付図 7）、F1 比および F2 比が近い値になっている（付図 8）。この解析ケースでは前節で示した Case19 の状態に近くなっていると考えられる。さらに、瞬時混合領域の体積をさらに 10 倍（Case31 の 100 倍）にすれば基本ケースの状態に近くなり、F1 比および F2 比が一致する。

一方、Case19*では瞬時混合領域の体積が元のケース（Case19）より小さいため、Case19 についての付図 3 や付図 4 に比べて瞬時混合領域の濃度が早期に上昇し（付図 9）、F1 比が F2 比よりも高くなっている（付図 10）。これは前節で考察した Case31 と同様な状態となったためと考えられる。

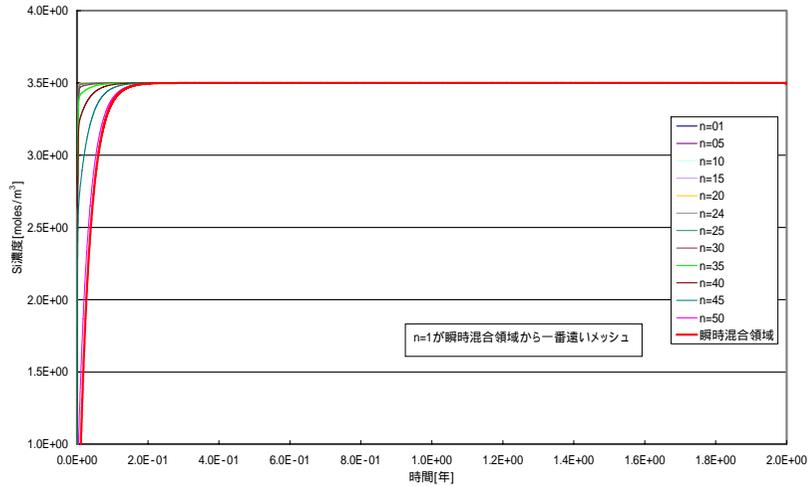
以上のことから、瞬時混合領域体積およびこの領域での流量の設定は本モデルを用いた評価結果に影響を及ぼす可能性のある因子であり、この影響を回避するため、また現実的なプロセスとして Si の緩衝材への移行が考えられることから、本モデルを用いるにあたっては、解析対象とする系の条件を踏まえて、必要に応じて適切な瞬時混合領域体積あるいは瞬時混合領域通過流量（Si の系外への運び出し）を考慮する必要がある。



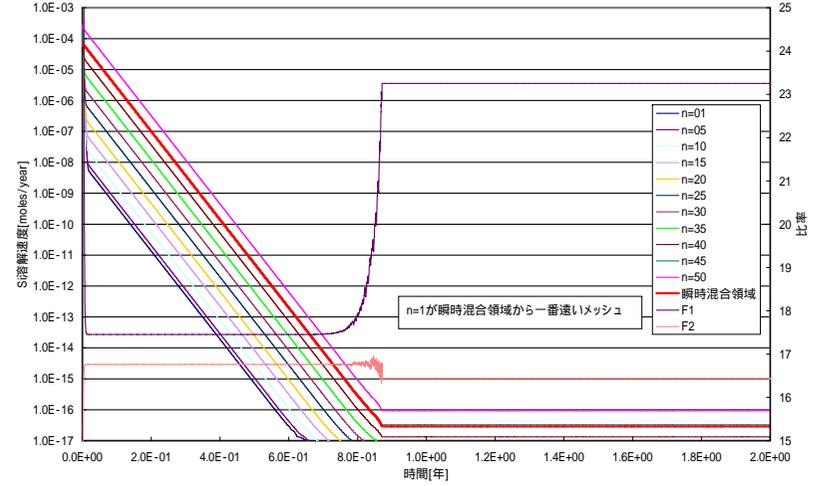
付図7 瞬時混合領域の体積を 10 倍にした場合の
各亀裂メッシュ内の Si 濃度の時間変化グラフ (Case31*)



付図8 瞬時混合領域の体積を 10 倍にした場合の各亀裂メッシュからの
Si 溶解速度および F1 比と F2 比の時間変化グラフ (Case31*)



付図9 瞬時混合領域の体積を 1/10 にした場合の
各亀裂メッシュ内の Si 濃度の時間変化グラフ (Case19*)



付図10 瞬時混合領域の体積を 1/10 にした場合の各亀裂メッシュからの
Si 溶解速度および F1 比と F2 比の時間変化グラフ (Case19*)