

TRU廃棄物処分技術検討書

—第2次TRU廃棄物処分研究開発取りまとめ—

根拠資料集

分冊2 地層処分の安全性の検討

2005年9月

電気事業連合会
核燃料サイクル開発機構

本資料についての問い合わせは下記にお願いします。

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4

日本原子力研究開発機構

研究技術情報部 研究技術情報課

電話 029(282)5100 (代表)

〒100-8118 東京都千代田区大手町1-9-4 経団連会館ビル

電気事業連合会

原子力部

電話 03(3279)2187 (代表)

TRU廃棄物処分技術検討書の根拠資料集

本資料集は、TRU廃棄物処分技術検討書（第2次TRUレポート）の記載内容について、その透明性、追跡性確保の観点から、根拠となった情報を取りまとめたものである。内訳は評価に用いたデータ及びその設定根拠、解析方法、評価コードの解説、評価上考慮したFEP (Feature, Event, Process) とその解説である。なお、便宜を図るため、第2次TRUレポートの章、項目との対比表を付した。

※No.の最初の数字は、第2次TRUレポートでの関連する章番号、最後の数字は通し番号となっております。

※タイトルのあとの()内の数字は、第2次TRUレポートでの関連する項目番号を表しています。

- | No. | タイトル |
|------|--|
| 4-1 | TRU廃棄物地層処分のFEP辞書の概要(4.3.1)
FEP辞書 |
| 4-2 | 科学反応物質移行連成解析コードの内容と検証(4.4.2.2及び4.4.2.3) |
| 4-3 | セメント系材料の変質の現象理解(4.4.2.2(1)) |
| 4-4 | 緩衝材を設置しない処分施設における変質挙動の解析結果(4.4.2.2(2)) |
| 4-5 | セメント系材料-緩衝材複合系の処分施設における変質解析及び不確実性評価(4.4.2.2及び4.4.2.3) |
| 4-6 | 周辺岩盤のアルカリ変質解析モデルと解析結果(4.4.3.3) |
| 4-7 | 亀裂ネットワークモデル(FracMan)と均質多孔質媒体モデルの解析結果の比較(4.4.4.2及び4.4.4.3) |
| 4-8 | 廃棄体グループ2処分施設の間隙水中におけるISA濃度の評価(4.4.6.2(1)) |
| 4-9 | 放射線場の影響(4.4.8) |
| 4-10 | 硝酸イオン及び硝酸イオン由来のアンモニアと放射性核種との錯体形成に関する評価(4.4.9.4) |
| 4-11 | 1次元平行平板モデル重ね合わせによる核種移行解析と3次元亀裂ネットワークモデルによる核種移行解析の比較(4.5.2.4) |
| 4-12 | TRU廃棄物処分における生物圏評価モデル(4.5.2.6) |
| 4-13 | レファレンスケースの核種移行及び線量評価結果(4.5.2.8) |
| 4-14 | 代替ケースに用いた解析モデル及び設定パラメータ根拠(4.5.3.1及び4.5.3.2) |
| 4-15 | 包括的感度解析におけるパラメータ範囲の設定根拠(4.5.4.2) |
| 4-16 | 包括的感度解析における解析結果(4.5.4.3) |
| 4-17 | 変動シナリオの解析結果詳細(4.5.5) |

4-1 TRU 廃棄物地層処分の FEP 辞書の概要 (4.3.1)

1. はじめに

第2次 TRU レポートでは、安全評価に必要な科学的或いは技術的な基礎情報を整理・統合し、これに基づいて処分場の長期的な挙動を分類、記述し、安全評価上重要な処分環境条件を抽出するという手順によってシナリオ開発を行った(4.3 シナリオ開発)。ここで必要となる科学的・技術的基礎情報は、処分する廃棄物の特性、処分場の設計及び処分場周囲の環境条件を勘案しつつ、システムの性能やそれに関連すると考えられるすべての特質、事象、プロセス (Features, Events and Processes. 以下、「FEPs」という)に関する情報であり、多重バリアの場 (Positions) と関連する現象の分類 (Functions) を、それぞれ横軸、縦軸としたマトリクス空間内に配置することで、包括的に抽出、リスト化された。

本資料は、TRU 廃棄物の地層処分に特有の個別現象を勘案して抽出されたこの包括的 FEP リストに示されたそれぞれの FEP に対し、その定義・内容と、想定する影響事象を明確に示すとともに、TRU 廃棄物処分に関する現状の知見を理解するための知識基盤を与えるためにまとめたものである。

2. FEP 辞書の概要

2.1 包括的 FEP リスト

H12 レポート (核燃料サイクル開発機構, 1999) や、OECD/NEA の International FEPs Database (OECD/NEA, 2000) を参考に、TRU 廃棄物の地層処分に特有の個別現象を勘案して、TRU 地層処分における包括的 FEPs として抽出されたリストを表1に示す。同表では、H12 レポートの表記方法にならぬ、同定された包括的 FEPs を、多重バリアの場 (Positions) を横軸、関連する現象の分類 (Functions) を縦軸とした P/F-WBS (Work Breakdown Structure) 空間内に配置している。取上げられている場及び現象の分類は、それぞれ次のとおりである。

【場の分類】

- ・ 廃棄体
- ・ 充填材
- ・ 構造躯体
- ・ 緩衝材
- ・ プラグ／グラウト／支保／埋め戻し材
- ・ 母岩

【現象の分類】

- ・ 熱的現象・特性
- ・ 水理学的現象・特性
- ・ 力学的現象・特性
- ・ 化学的現象・特性
- ・ 放射線学的現象・特性

- ・核種移行現象・特性
- ・システム擾乱となりうる現象（初期欠陥／天然現象／人間活動）

H12 レポートと比較した場合、ほぼ共有化できる緩衝材より外側は同じ構成となっている一方で、廃棄体及びその周辺では TRU 廃棄物の地層処分における人工バリア構成を勘案しながら、独立に設定している。

一方、現象分類の構成は H12 レポートと共通であり、①環境条件に係る現象を記述する T(Thermal), H(Hydrological), M(Mechanical), C(Chemical), R(Radiological)の現象分類ダイアグラムと②核種移行現象、及び③システム擾乱からなる。このうち、①環境条件及び②核種移行現象に分類される細目（FEP）については、TRU 地層処分に特有の現象（例えば、セメント系材料による影響、ガス形態による核種移行など）を包含している。

2.2 FEP 辞書の記述内容

包括的 FEP リストに示された各々の FEP 内容の明確化を具体化するにあたっては、既往研究 (SKB, 1999 ; 核燃料サイクル開発機構, 2002) を参考にし、表 2 に示した構成を本 FEP 辞書の基本とした。各 FEP の記載内容については表 2 にガイドライン的に例示したが、当該 FEP の特徴や理解のしやすさを妨げないよう、多くの自由度を許容した記載とした。

この FEP 辞書の構成において重要な点として、「4.2 経時変化予測」及び「4.4 不確実性」に関しても、現状わかる範囲で整理した点が挙げられる。

従来 of FEP 検討では、関連する事象を可能な限り漏れなく掘り上げることに力点が置かれていたが、それがどのように時間推移するかは FEP 辞書そのものからは読み取ることが困難であった。FEP を時系列的に理解し配列することはシナリオ作成の要点であり、FEP 辞書の段階で当該 FEP の重要性の経時変化に関する情報が得られることは、シナリオ作成の観点から重要である。

また、超長期にわたる安全評価では、厳密な意味で不確実性を排除することは不可能であり、この不確実性に対してどのように対処するかが重要である。その意味では、FEP 辞書の段階で、内在する不確実性の質を認識しておくことは、シナリオ開発、ひいては安全評価の信頼性に大きく関係することになると思われる。

「WQ-01 : 廃棄体の製作・施工不良」のような初期欠陥に関する FEP は、確かに処分場の閉鎖後の安全性能に影響を及ぼし得るが、処分システムの物理・化学的な挙動に関連した他の FEP とは異なり、処分事業を行う実施主体の品質管理方策に関わるものである。したがって、他の FEP と同じ記載項目・内容とすることはそぐわず、初期欠陥に関する FEP については、表 3 に示した構成とすることとした。

2.3 FEP 辞書

以上、表-1 で抽出された包括的 FEP リストに基づき、初期欠陥に関連した FEP を除くものについては表-2 の構成で、初期欠陥に関する FEP については表-3 の構成で作成した FEP 辞書を、別添の資料に示す。なお、この FEP 辞書は、電気事業者等と核燃料サイクル開発機構らによって構成された安全対策 SWG において、電力共通研究「TRU 廃棄物処分の安全対策に関する研究」の成果の一部をもとに、第 2 次 TRU レポートの根拠資料として整備したものである。

3. まとめ

本 FEP 辞書は、TRU 廃棄物処分に関する現状の知見を集約し、処分に関する知識基盤 (knowledge base) として構築することを意図して作成された。そのため、図、表、数式等、より多様な視覚情報を利用し、辞書という言葉の意味する文章による表現を越え、より大きな自由度を付加することで、TRU 廃棄物処分に関する現状の知見を分かりやすく示した。

本 FEP 辞書が、第 2 次 TRU レポートの執筆者らが実施したプロセス開発のためのみならず、広く関係者の理解を得る上で有効に利用されることを期待する。

表-1 TRU 地層処分における包括的 FEP リスト

	廃棄体	充填材	構造躯体	緩衝材	アラウラウト/支保/理戻材 (付帯設備)	母岩
熱的現象・特性	WT-01 廃棄体の熱物性	MT-01 充填材の熱物性	ST-01 構造躯体の熱物性	BT-01 緩衝材の熱物性	XT-01 付帯設備の熱物性	RT-01 母岩の熱物性
	WT-02 廃棄体の温度	MT-02 充填材の温度	ST-02 構造躯体の温度	BT-02 緩衝材の温度	XT-02 付帯設備の温度	RT-02 母岩の温度
	WT-03 廃棄体の熱膨張	MT-03 充填材の熱膨張	ST-03 構造躯体の熱膨張	BT-03 緩衝材の熱膨張	XT-03 付帯設備の熱膨張	RT-03 母岩の熱膨張
	WT-04 前熟熱の発生	MT-04 充填材からの γ 線吸収熱の発生	ST-04 廃棄体からの γ 線吸収熱の発生	BT-04 水和熱の発生	XT-04 水和熱の発生	
水理学的現象・特性	WH-01 廃棄体の水理特性	MH-01 充填材の水理特性	SH-01 構造躯体の水理特性	BH-01 緩衝材の水理特性	XH-01 付帯設備の水理特性	RH-01 母岩の水理特性
	WH-02 廃棄体の飽和	MH-02 充填材の飽和	SH-02 構造躯体の飽和	BH-02 緩衝材の飽和	XH-02 付帯設備の飽和	RH-02 母岩の飽和
	WH-03 廃棄体での地下水流動	MH-03 充填材での地下水流動	SH-03 構造躯体での地下水流動	BH-03 緩衝材での地下水流動	XH-03 付帯設備での地下水流動	RH-03 母岩での地下水流動
力学的現象・特性	WM-01 廃棄体の力学特性	MM-01 充填材の力学特性	SM-01 構造躯体の力学特性	BM-01 緩衝材の力学特性	XM-01 付帯設備の力学特性	RM-01 母岩の力学特性
	WM-02 廃棄体の応力	MM-02 充填材の応力・変形	SM-02 構造躯体の応力・変形	BM-02 緩衝材の応力・変形	XM-02 付帯設備の応力・変形	RM-02 母岩の応力
	WM-03 アスファルト固化体の膨潤					
	WM-04 アスファルト固化体の変形					
	WM-05 アスファルト固化体の流出					
	WM-06 廃棄体での亀裂発生	MM-04 充填材での亀裂発生	SM-04 構造躯体での亀裂発生	BM-05 構造躯体での亀裂発生	XM-05 付帯設備での亀裂発生	RM-03 母岩のクリープ
	WM-07 廃棄体の移動・沈下		SM-05 構造躯体の移動・沈下			
	WM-08 金風筒棄物の腐食膨張		SM-06 鉄筋の腐食膨張			
	WM-09 外部容器の破損					
	WM-10 外部容器の腐食膨張					
	化学的現象・特性	WC-01 廃棄体の化学特性	MC-01 充填材の化学特性	SC-01 構造躯体の化学特性	BC-01 緩衝材の化学特性	XC-01 付帯設備の化学特性
WC-02 廃棄体での溶質移動		MC-02 充填材での溶質移動	SC-02 構造躯体での溶質移動	BC-02 緩衝材と地下水の反応	XC-02 付帯設備と地下水の反応	RC-02 母岩での溶質移動
WC-03 廃棄体の化学的変質 (腐食を除く)		MC-03 充填材と地下水の反応	SC-03 構造躯体と地下水の反応	BC-03 緩衝材と地下水の反応	XC-03 付帯設備と地下水の反応	RC-03 母岩と地下水の反応
WC-04 廃棄体の化学的変質		MC-04 充填材の化学的変質	SC-04 構造躯体の化学的変質	BC-04 緩衝材の化学的変質	XC-04 付帯設備の化学的変質	RC-04 母岩の化学的変質
WC-05 廃棄体の腐食						
WC-06 廃棄体での有機物影響		MC-05 充填材での有機物影響	SC-05 構造躯体での有機物影響	BC-05 緩衝材での有機物影響	XC-05 付帯設備での有機物影響	RC-05 母岩での有機物影響
WC-07 廃棄体での微生物影響		MC-06 充填材での微生物影響	SC-06 構造躯体での微生物影響	BC-06 緩衝材での微生物影響	XC-06 付帯設備での微生物影響	RC-06 母岩での微生物影響
WC-08 廃棄体でのコロイド影響		MC-07 充填材でのコロイド影響	SC-07 構造躯体でのコロイド影響	BC-07 緩衝材でのコロイド影響	XC-07 付帯設備でのコロイド影響	RC-07 母岩でのコロイド影響
WC-09 廃棄体での硝酸塩影響		MC-08 充填材での硝酸塩影響	SC-08 構造躯体での硝酸塩影響	BC-08 緩衝材での硝酸塩影響	XC-08 付帯設備での硝酸塩影響	RC-08 母岩での硝酸塩影響
WC-10 廃棄体での硫酸塩影響		MC-09 充填材での硫酸塩影響	SC-09 構造躯体での硫酸塩影響	BC-09 緩衝材での硫酸塩影響	XC-09 付帯設備での硫酸塩影響	RC-09 母岩での硫酸塩影響
WC-11 廃棄体での CO_2 の発生と影響		MC-10 充填材での CO_2 の発生と影響	SC-10 構造躯体での CO_2 の発生と影響	BC-10 緩衝材での CO_2 の発生と影響	XC-10 付帯設備での CO_2 の発生と影響	RC-10 母岩での CO_2 の発生と影響
WC-12 廃棄体での塩の蓄積		MC-11 充填材での塩の蓄積	SC-11 構造躯体での塩の蓄積	BC-11 緩衝材での塩の蓄積	XC-11 付帯設備での塩の蓄積	
放射線学的現象・特性	WR-01 廃棄体での核種の崩壊・生成	MR-01 充填材での核種の崩壊・生成	SR-01 構造躯体での核種の崩壊・生成	BR-01 緩衝材での核種の崩壊・生成	XR-01 付帯設備での核種の崩壊・生成	RR-01 母岩での核種の崩壊・生成
	WR-02 廃棄体間隙水での放射線分解	MR-02 充填材間隙水での放射線分解	SR-02 構造躯体間隙水での放射線分解	BR-02 緩衝材間隙水での放射線分解	XR-02 付帯設備間隙水での放射線分解	RR-02 母岩間隙水での放射線分解
	WR-03 廃棄体の放射線損傷	MR-03 充填材の放射線損傷	SR-03 構造躯体の放射線損傷	BR-03 緩衝材の放射線損傷	XR-03 付帯設備の放射線損傷	RR-03 母岩の放射線損傷
核種移行現象・特性	WN-01 廃棄体の物質移動特性	MN-01 充填材の物質移動特性	SN-01 構造躯体の物質移動特性	BN-01 緩衝材の物質移動特性	XN-01 付帯設備の物質移動特性	RN-01 母岩の物質移動特性
	WN-02 多孔質媒体からの核種放出	MN-02 充填材からの核種放出	SN-02 構造躯体からの核種放出	BN-02 緩衝材からの核種放出	XN-02 付帯設備からの核種放出	RN-02 母岩からの核種放出
	WN-03 不飽和水/WVからの核種放出	MN-03 充填材からの核種放出	SN-03 構造躯体からの核種放出	BN-03 緩衝材からの核種放出	XN-03 付帯設備からの核種放出	RN-03 母岩からの核種放出
	WN-04 外部容器がある場合の核種放出					
	WN-05 核種の吸着	MN-04 核種の吸着	SN-04 核種の吸着	BN-04 核種の吸着	XN-04 核種の吸着	RN-04 核種の吸着
	WN-06 核種の沈殿・溶解	MN-05 核種の沈殿・溶解	SN-05 核種の沈殿・溶解	BN-05 核種の沈殿・溶解	XN-05 核種の沈殿・溶解	RN-05 核種の沈殿・溶解
	WN-07 コロイド形態による核種移行	MN-06 コロイド形態による核種移行	SN-06 コロイド形態による核種移行	BN-06 コロイド形態による核種移行	XN-06 コロイド形態による核種移行	RN-06 コロイド形態による核種移行
	WN-08 ガス形態による核種移行	MN-07 ガス形態による核種移行	SN-07 ガス形態による核種移行	BN-07 ガス形態による核種移行	XN-07 ガス形態による核種移行	RN-07 ガス形態による核種移行
	WN-09 硝酸塩による核種存在形態の変化	MN-08 硝酸塩による核種存在形態の変化	SN-08 硝酸塩による核種存在形態の変化	BN-08 硝酸塩による核種存在形態の変化	XN-08 硝酸塩による核種存在形態の変化	RN-08 硝酸塩による核種存在形態の変化
システム擾乱と成る現象	WG-01 廃棄体の製作・施工不良	MG-01 充填材の製作・施工不良	SG-01 構造躯体の製作・施工不良	BG-01 緩衝材の製作・施工不良	XG-01 付帯設備の製作・施工不良	RG-01 ホール・ポリング不良/変質
			NP-01 地震・断層活動 NP-02 火山・火成活動 NP-03 隆起・侵食 NP-04 気候・海水準変動 NP-05 隕石の落下			
			HA-01 ホール・ポリング(採査・探鉱、地下空間利用、土木工事) HA-02 地表環境(人間活動) HA-03 掘削・探鉱、その他地下行為(人間侵入) HA-04 井戸の掘削・排水 HA-05 水の管理(貯水、ダム)			

表-2 FEP 辞書の基本構成

記載項目	記載内容
1. 名称	該当 FEP の名称 (+ID 番号)
2. 概要	該当 FEP が何に影響するのか、また該当 FEP の安全性に対する重要度に対する簡単な記述
3. 安全性への影響機構と影響度合	該当 FEP が安全性に及ぼす影響のメカニズムとその影響度合について記述。該当 FEP が Event/Process の場合 (Feature を除く)、該当 Event/Process の発生メカニズム、誘因についても記述
4. 理解の現状	
4.1 モデル/試験研究	該当 FEP について実施されてきたモデル研究、試験研究の記述
4.2 経時変化予測	該当 FEP がどのような時間スケールで変化しうるかについて記述
4.3 ナチュラルアナログ	該当 FEP について、その理解を助けるためのナチュラルアナログについて記述
4.4 不確実性	該当 FEP に付随する概念的な不確実性 (プロセス、メカニズムの理解不足に起因)、データに関する不確実性について記述*1

*1：該当 FEP について特記すべき不確実性はないと判断される場合には、その旨を記述

表-3 初期欠陥に係わる FEP 辞書の構成

記載項目	記載内容
1. 名称	該当 FEP の名称 (+ID 番号)
2. 概要	該当 FEP が何に影響するのか、また該当 FEP の安全性に対する重要度に対する簡単な記述
3. 製作・施工不良の発生とその影響	
3.1 製作・施工不良の発生可能性	製作・施工不良が発生するとした場合、どのような経緯によってそのような製作・施工不良が生じうるのかを記述
3.2 製作・施工不良発生の影響	製作・施工不良が発生するとした場合の直接的な影響について記述
3.3 処分への影響	3.2 で記述した直接的な影響事象が、処分に対して波及的にどのような影響を及ぼし得るかを簡単に記述
3.4 製作・施工不良に関する対策	製作・施工に対して講じられている対策を記述し、基本的に製作・施工不良は発生しないことを記述
4. 理解の現状	製作・施工に関する研究の事例、知見を記述

参考文献

- OECD/NEA (2000): Features, Events and Processes (FEPs) for Geological Disposal of Radioactive Waste - An International Database -.
- SKB(1999) : Processes in the repository evaluation : Background report to SR97, TR-99-07.
- 核燃料サイクル開発機構(1999) : 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, 地層処分研究開発第2次取りまとめ, JNC TN1400 99-020, 021, 022, 023.
- 核燃料サイクル開発機構 (2002) : 地層処分の性能評価におけるシナリオ開発の高度化(I), JNC TJ8400 2002-014.

4-2 化学反応物質移行連成解析コードの内容と検証 (4.4.2.2, 4.4.2.3)

1. はじめに

第2次 TRU レポート 4.4.2「人工バリア材の変質の影響」では、セメント系材料とベントナイト緩衝材からなる人工バリア内の化学的条件及び物質移動特性の時間的・空間的变化に対し、セメント系材料と緩衝材の相互作用に関する主要な部分についての現状の科学的な知見や証拠を組み合わせることによって蓋然性のある予想の範囲を提示した。その中では、高アルカリ性セメント反応水との反応による緩衝材構成鉱物の変遷過程に伴う不確実性を勘案した解析ケースを設定し、主に化学反応物質移行連成コード RAIDEN3 (Watson and Benbow, 2004) により解析を実施した。また、力学的な影響の解析や緩衝材を設置しない処分施設における変質挙動の解析には、化学反応物質移行連成コード PHREEQC-TRANS を使用した。なお、第2次 TRU レポートに記述した解析ケースとの対応の詳細は根拠資料 4-5 に記述した。このように、2つの計算コードはその機能に応じて適切に使い分けるとともに、両コードの計算結果を比較した。これらの解析結果は、第2次 TRU レポートにおける人工バリア内の化学的条件及び物質移動特性の時間的・空間的变化の評価に反映させた。

ここでは、第2次 TRU レポート人工バリア材の変質に関する化学反応物質移行連成解析に用いた上記2つの計算コード(PHREEQC-TRANS, RAIDEN 3)について、その計算方法や機能を記述するとともに、

- ・ 物質移行計算
- ・ 化学反応計算

について、解析解、実験結果あるいは地球化学計算コード PHREEQC の数値解析結果との比較によってそれぞれ検証を行うこととする。

さらに、これらの機能の検証結果を踏まえた上で、

- ・ 化学反応物質移行連成計算

に関する機能の検証を、両コードの計算結果の比較によって実施する。具体的には、PHREEQC-TRANS 及び RAIDEN 3 を用いて、両コードの計算条件(解析体系、材料仕様、鉱物の組み合わせ及び解析パラメータ)を同様の設定とした計算を実施し、両者の結果が整合的であることにより解析の妥当性を間接的に検証することとする。

2. PHREEQC-TRANS の機能

2.1. 概要

「PHREEQC-TRANS」は、基盤地球化学反応解析と物質移行解析を連成させ、さらに、地球化学反応の進展に伴う物質移行パラメータ(間隙率、透水係数、拡散係数など)の変化も同時に反映しながら、長期の変質挙動を解析することを可能としたプログラムである。

PHREEQC-TRANS で中心となる地球化学反応解析には、広く使用され検証されている PHREEQC Ver. 2.8 (Parkhurst and Appelo, 1999) を用いている。地球化学反応には、液相

の分種，固液平衡，収着反応，酸化還元反応，反応速度を含む固相の溶解反応を考慮することができる。また，PHREEQC-TRANS は，2次元浸透流下における移流拡散による物質移行を解析することができる。地球化学反応の進展と物質移行パラメータの関係は，複数の経験式で表現し，媒体ごとに適切な経験式とパラメータを選ぶことが可能である。

2.2. PHREEQC-TRANS の処理の流れ

PHREEQC-TRANS の処理の流れを図-2.1 に示す。PHREEQC-TRANS は，まず矩形のセルの集合として定義された解析領域について，入力データからセルごとの元素濃度，鉱物濃度，間隙率，透水係数，拡散係数などの情報を読み込む。次に，浸透流解析を行って地下水流動場を算出する。続いて，地下水流動場の情報を用いて移流分散による物質移行解析を行い，セルごとの新たな元素濃度を求める。そして，地球化学反応解析を行って，新たな元素濃度，鉱物濃度を算出し，その結果を出力する。

PHREEQC-TRANS において，物質移行解析と地球化学反応解析は内側のループを，浸透流解析は外側のループを構成している。それぞれのループは，入力データで設定した解析時間間隔で，最大解析時刻まで繰り返される。毎回の浸透流解析に先立って，鉱物データから変質後の新たな間隙率，モンモリロナイトゲル密度などを算出し，経験式に基づいて透水係数，拡散係数といった物質移行パラメータを更新する。そして，更新されたパラメータを用いて，浸透流解析と物質移行解析を行うことにより，地球化学反応と物質移行の連成現象をシミュレートする。

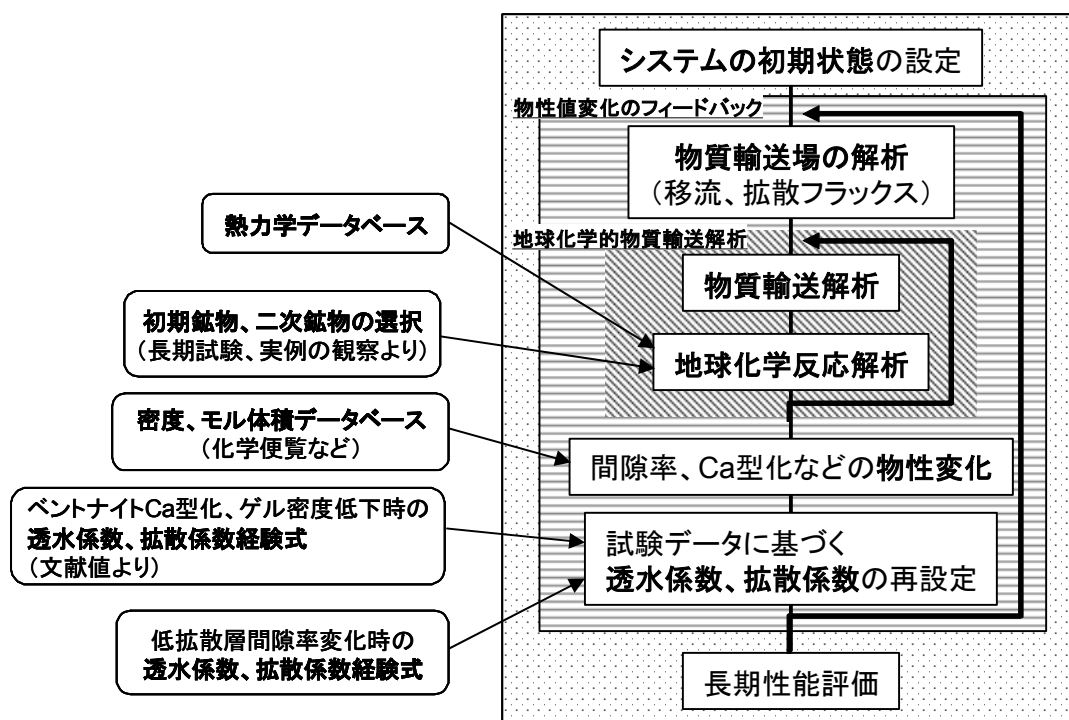


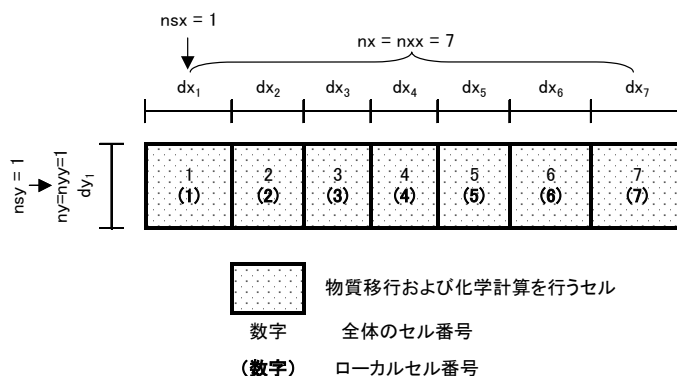
図-2.1 PHREEQC-TRANS の処理の流れ

2.3. 解析領域の構成

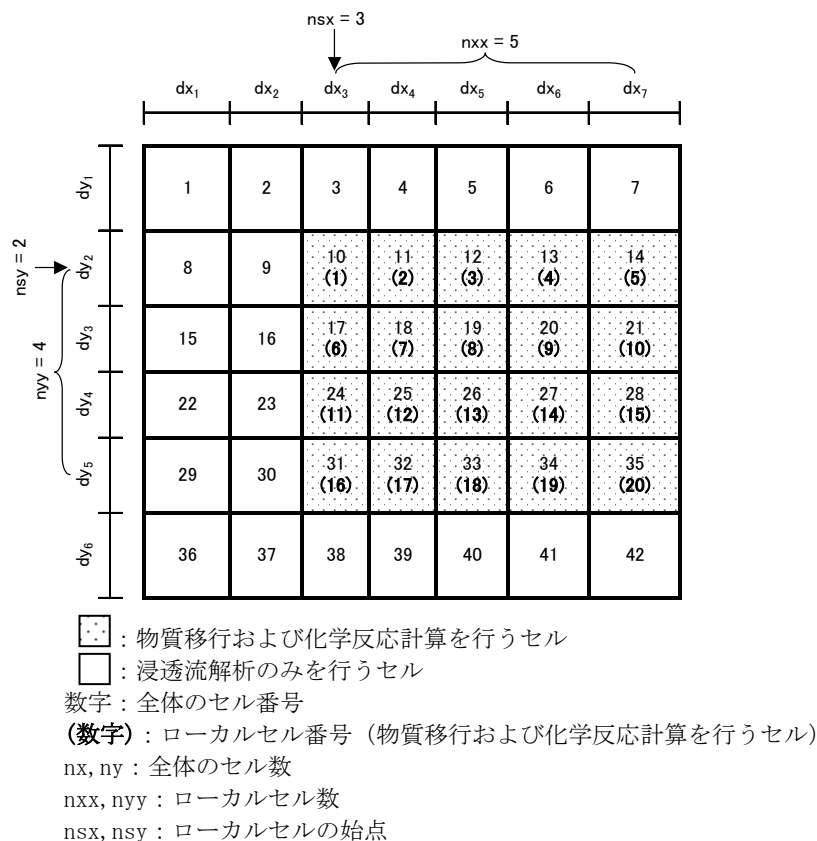
図-2.2 に、PHREEQC-TRANS で取り扱える 1 次元, 2 次元の空間セルの概念を示す。セルの形状は長方形のみをサポートし, 長さは x 方向, y 方向ともに非均等にすることができる。また, PHREEQC-TRANS は数値解法に有限体積法を用いており, 全水頭, 化学種の濃度などの変数は, セルの重心で定義され, その値はセルの平均値である。

また, 地下水流動解析においては, 境界条件の影響を適切に評価するために, 着目する領域の数倍の領域をモデル化することが行われる。例えば, 地層中の人工バリアを想定する場合, 周囲の地層の大部分は地球化学反応には寄与せず, 人工バリア内とその周囲で反応が起きるものと考えられる。このような条件下で, 全体の体系で地球化学反応の解析を行うと, ほとんど反応しない外周の地層中の解析に計算時間の大部分を消費する。

そこで, 本コードはモデル全体を地球化学反応解析を行う領域と, 浸透流解析のみを行う領域に分けることが可能になっている。これにより, 浸透流解析と地球化学反応による変質の解析, 及びそれを反映した物質移行解析を効率よく行うことが可能である。図-2.2(b)はその一例であり, 全体のセル数は X 方向に 7, Y 方向に 6 で, その中の 5×4 のセルで物質移行計算および地球化学反応計算を行う場合を示している。



(a) 1次元の空間セル



(b) 2次元の空間セル

図 2-2 PHREEQC-TRANS における解析領域の構成

2.4. 地球化学反応解析

PHREEQC-TRANS は、地球化学反応解析のモジュールとして PHREEQC Ver. 2.8 を用いている。PHREEQC-TRANS では、以下の相を扱うことができる。

- 液相 (イオン, 分子)
- 固相 (鉱物, 固溶体)
- 収着相 (イオン交換, 表面錯体)
- 反応速度で溶解する固相

収着相は鉱物に付随する相であるため、鉱物の溶解・沈殿反応を考慮する場合は、それに応じて収着相の量も変化させることが必要である。これを実現するため、PHREEQC-TRANS は、固相とそれに付随する収着相の濃度の比例関係を定義する機能を有している。

比例関係を定義可能な相は、以下のとおりである。

- 固相 : 鉱物 (PHREEQC の ” equilibrium_phases ” で定義される相)
- 固溶体 (PHREEQC の ” Solid_solution ” で定義される相)
- 反応速度で溶解する固相 (PHREEQC の ” Kinetics ” で定義される相)

- ・ 収着相：イオン交換基 (PHREEQC の” Exchange” で定義される相)
表面錯体 (PHREEQC の” Surface” で定義される相))

2.5. 浸透流解析

PHREEQC-TRANS は、2次元定常拡散方程式に基づく浸透流（ポテンシャル流れ）の解析機能を有している。ただし、地球化学反応に起因する水のソース項は考慮していない。また、セルの透水係数は等方一様としている。PHREEQC-TRANS で用いる浸透流の基本方程式を式(1)に示す。

$$\frac{\partial}{\partial x} \left(K_w \frac{\partial \psi}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(K_w \frac{\partial \psi}{\partial y} \right) = 0 \quad (1)$$

ここに、 ψ は水の水理ポテンシャル（全水頭）、 x, y は空間座標、 K_w は透水係数である。PHREEQC-TRANS は、初期条件として全水頭をセルごとに設定可能である。また、境界条件として、水頭固定（Dirichlet 条件）又はフラックス固定（Neumann 条件）を設定可能である。

2.6. 物質移行解析

PHREEQC-TRANS は、2次元非定常移流拡散方程式に基づく物質移行の解析機能を有している。セル間を移動するのは液相のみとし、固相、収着相、反応速度で溶解する固相は、移動しないものと考えている。なお、地球化学反応に起因する液相のソース項は、物質移行解析においては考慮されておらず、地球化学反応解析のステップにおける液相種の濃度の変化が、そのまま反映される。また、セルの拡散係数は等方一様としている。PHREEQC-TRANS で用いている物質移行の基本方程式を式(2)及び式(3)に示す。

$$\begin{aligned} \frac{\partial C_i}{\partial t} &= \frac{\partial J_{ix}}{\partial x} + \frac{\partial J_{iy}}{\partial y} \\ &= -\frac{\partial}{\partial x} \left(D_e \frac{\partial C_i}{\partial x} \right) - \frac{\partial}{\partial y} \left(D_e \frac{\partial C_i}{\partial y} \right) + \left(u_x \frac{\partial C_i}{\partial x} + u_y \frac{\partial C_i}{\partial y} \right) \end{aligned} \quad (2)$$

$$J_{ix} = u_x C_i - D_e \frac{\partial C_i}{\partial x} \quad (3)$$

ここに、

C_i	:	液相種 i の濃度
t	:	時刻
D_e	:	実効拡散係数
u_x, u_y	:	x, y 方向の水フラックス
J_{ix}, J_{iy}	:	液相種 i の x 方向, y 方向の物質フラックス

PHREEQC-TRANS は、初期条件として液相種 i の濃度をセルごとに設定可能である。また、境界条件として、濃度固定 (Dirichlet 条件)、濃度勾配固定 (Neumann 条件) 又はフラックス固定 (Cauchy 条件) を設定可能である。

2.7. 変質に伴う物質移行パラメータの変動 (経験式)

変質に伴う透水係数, 拡散係数の変化には, 次のような経験式を用いることが可能である。

<透水係数>

・ベントナイト系材料

$$K(e_{mont}, C_i, ESP) = f(e_{mont}, C_i) K_0(e_{mont}, ESP) \quad (4)$$

K : ベントナイト混合土の透水係数 (m/s)

K_0 : 溶液の電荷密度=0 のときのベントナイト混合土の透水係数 (m/s)

$f(e_{mont}, C_i)$: 溶液の電荷密度 C_i と, モンモリロナイト間隙比 e_{mont} の関数である補正係数

C_i : 溶液の電荷密度 (eq/L)

e_{mont} : モンモリロナイト間隙比 $e_{mont} = \frac{\varepsilon}{V_{mont}}$

V_{mont} : モンモリロナイト体積

ε : 間隙率

ESP : Na 型割合 (-), ただしクニゲル V1 の補正なしで定義したもの
具体的には $f(e_{mont}, C_i)$ は以下の式となる。

$$f(e_{mont}, C_i) = 10^{1.30 \cdot C_i} \cdot e_{sme}^{3.48 \cdot C_i}$$

ただし, f , C_i の値には次の上限値がある。

$$f_{\max} = 10^{1.63 \cdot e_{mont} - 0.24}$$

$$f_{\max} = 10^{1.63 \cdot e_{sme} - 0.24}$$

K_0 は次の式となる。

$$K_0(e_{mont}, ESP) = \begin{cases} (0.91 - 1.57 \cdot ESP + 2.00 \cdot ESP^2) \times 10^{-13} \times e_{mont}^{7.44 - 5.69 \cdot ESP} & \dots e_{mont} \leq 7.0 \\ K_0(e_{mont} = 7, ESP) \times \left(\frac{e_{mont}}{7.0}\right)^{11.4} & \dots e_{mont} \geq 7.0 \end{cases}$$

ただし, K_0 には次の上限値, 下限値がある。

$$K_0(e_{mont}, ESP = 1) \leq K_0(e_{mont}, ESP) \leq 1.0 \times 10^{-5}$$

・セメント系材料

$$K_w = 4.34 \times 10^{-9} \times \varepsilon^3 \times (1 - \varepsilon)^{-2} \quad (5)$$

$$(0.4 \leq \varepsilon \leq 0.8)$$

< 拡散係数 (実効拡散係数) >

・ベントナイト混合土

$$D_e(\varepsilon, n) = 4.0 \times 10^{-9} \times \varepsilon^n \quad (6)$$

$$\text{ただし, } n = 2.22 \cdot f_s^{0.13} + 1$$

ここで, f_s : モンモリロナイト含有率(-)

・セメント系材料

$$De = 4.0 \times 10^{-9} \times \varepsilon^{3.05} \quad (7)$$

3. PHREEQC-TRANS の検証

3.1. 概要

PHREEQC-TRANS の検証は、(1)地球化学反応、(2)物質移動、(3)物質移動・地球化学反応のカップリング、(4)実験結果との比較に分けて行った。

(1)の地球化学反応については、固液平衡、吸着平衡、及び反応速度の影響を受ける鉱物溶解反応の3つを取り上げ、PHREEQC-TRANS が取り扱える最小規模の1次元メッシュを構成して計算を行い、その結果をPHREEQCによるものと比較した。

(2)の物質移動については、地球化学反応を伴わない1次元の拡散現象と移流拡散現象について計算を行い、その結果を解析解と比較した。

(3)の物質移動・地球化学反応のカップリングについては、モルタルとベントナイトが接触した状態の1次元モデルを構成し、これについてPHREEQC-TRANS と、PHREEQCを用いて計算し、その結果を比較した。なお、PHREEQCでは扱うことのできない、不均一な空間メッシュ幅、各メッシュの空隙率と、地球化学反応による透水係数、拡散係数の変化を考慮したモデルも構成し、計算を行った。

(4)の実験結果との比較ではセメント系材料を用いた通水試験結果との比較を行った。ここでは試験の計測結果の中で、流出する液相の元素濃度の変化、通水試験後の固相の元素濃度分布について、物質移行・地球化学連成計算結果との比較を行った。

なお、検証に用いた熱力学データベースは次のとおりである。化学計算に必要な熱力学的データのうち、セメント鉱物以外の鉱物の溶解度積は、H12 レポート(核燃料サイクル開発機構, 1999)で地球化学環境の検討に用いられたデータベース(以下、「JNC-spron データ

ベース」(Yui et al., (1999))という。)中のものを用いた。セメント鉱物の熱力学的データは、M. Atkins の CEMENT II データベースに挙げられている値(Atkins et al., 1992)を、C-S-H の熱力学的データについては、A. Atkinson の固溶体モデルの値(Atkinson et al., 1991)を用いた。

3.2. 地球化学反応の検証

3.2.1. 固液平衡

PHREEQC-TRANS と PHREEQC Ver. 2.8 を用いて、ブーム粘土を例に固液平衡の解析を行った。平衡前の初期空隙水組成と鉱物組成をそれぞれ表-3.1, 表-3.2 に示す。初期空隙水の pH は 9.9 であり、これとブーム粘土との反応では、モンモリロナイトとパイライトの溶解が起こると予想される。

表-3.1 初期空隙水組成 (空隙水のみの平衡後)

pH	9.915
温度(°C)	25.0
元素	濃度 (mol/dm ³)
Na	4.774E-02
K	3.100E-06
Ca	1.200E-05
Mg	2.400E-11
C	3.114E-02
S	3.300E-06
Cl	1.220E-03
Al	2.000E-05
Si	4.500E-04

表-3.2 鉱物組成

鉱物名	濃度 (mol/dm ³ -Solution)
Quartz	2.059E+01
初期 鉱物	
Calcite	1.584E+00
Pyrite	1.634E-01
Na-Mont	4.147E-01
Kaolinite	5.990E+00
変質 鉱物	
C-S-H(1.8)	0
C-S-H(1.5)	0
C-S-H(1.4)	0
C-S-H(1.3)	0
C-S-H(1.2)	0
C-S-H(1.1)	0
C-S-H(1.0)	0
C-S-H(0.9)	0
C-S-H(0.833)	0
Brucite	0
Analcime	0

液相濃度と鉱物濃度の計算結果をそれぞれ表-3.3, 表-3.4 に示す。PHREEQC-TRANS と PHREEQC の計算結果とは正確に一致した。

表-3.3 鉱物との平衡後の間隙水濃度

	初期値	PHREEQC	PHREEQC-TRANS
pH	9.915	8.727	8.727
Temp.	25.0	25.0	25.0
元素	濃度 (mol/dm ³ -Solution)		
Na	4.774E-02	3.382E-02	3.382E-02
K	3.100E-06	3.100E-06	3.100E-06
Ca	1.200E-05	1.781E-05	1.781E-05
Mg	2.400E-11	3.540E-08	3.540E-08
C	3.114E-02	3.115E-02	3.115E-02
S	3.300E-06	3.397E-06	3.397E-06
Cl	1.220E-03	1.220E-03	1.220E-03
Al	2.000E-05	6.824E-07	6.824E-07
Si	4.500E-04	1.133E-04	1.133E-04

表-3.4 平衡後の鉱物濃度

鉱物名	濃度 (mol/dm ³ -Solution)		
	初期値	PHREEQC	PHREEQC-TRANS
Quartz	2.059E+01	2.058E+01	2.058E+01
Calcite	1.584E+00	1.854E+00	1.854E+00
Pyrite	1.634E-01	1.634E-01	1.634E-01
Na-Mont	4.147E-01	4.147E-01	4.147E-01
Kaolinite	5.990E+00	5.983E+00	5.983E+00
C-S-H(1.8)	0	0	0
C-S-H(1.5)	0	0	0
C-S-H(1.4)	0	0	0
C-S-H(1.3)	0	0	0
C-S-H(1.2)	0	0	0
C-S-H(1.1)	0	0	0
C-S-H(1.0)	0	0	0
C-S-H(0.9)	0	0	0
C-S-H(0.833)	0	0	0
Brucite	0	0	0
Analcime	0	1.392E-02	1.392E-02

3.2.2. 収着平衡

イオン交換基への Na^+ と Ca^{2+} の収着を想定した解析を行った。イオン交換基の濃度は $5.0 \times 10^{-3} \text{ mol-eq (L-solution)}^{-1}$ とし、 Na^+ と Ca^{2+} の合計の濃度が $0.01 \text{ mol-eq L}^{-1}$ の条件下で、 Ca / Na 濃度比を変化させた。

図-3.1 に、初期の Ca / Na 当量比と、平衡後の収着イオンの当量濃度比の関係を示す。PHREEQC-TRANS と PHREEQC による計算結果とは正確に一致した。

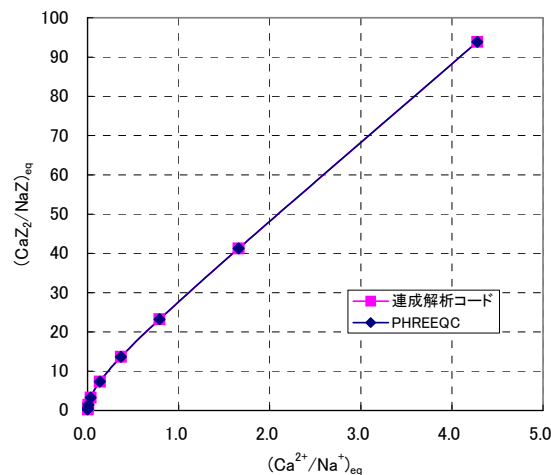


図-3.1 平衡後の Ca/Na 当量比と収着イオン当量濃度比との関係

3.2.3. 反応速度

ベントナイトの主成分であるモンモリロナイトの溶解反応について、反応速度を考慮した解析を行った。反応速度式には、Huertas et al. (2001) による式(8)を用いた。また、速度論的パラメータには表-3.5 の値を用いた。同表には、質量比 70%ベントナイト混合土の間隙水 1 dm^3 に対する存在量 C_0 と、式量 M 、比表面積 σ を示した。

$$R = k [a_{\text{H}^+}]^n \left(1 - \frac{Q}{K}\right) A_0 \left(\frac{m}{m_0}\right)^b \quad (8)$$

ここに、

- R : 単位溶液体積あたりの鉱物の溶解速度 [$\text{mol}/\text{dm}^3 \text{ s}^{-1}$]
- K : 反応速度定数 [$\text{mol m}^{-2} \text{ s}^{-1}$]
- a_{H^+} : H^+ の活量 $\text{pH} = -\log_{10}[a_{\text{H}^+}]$
- Q : 溶解反応のイオン活量積 (IAP: Ion Activity Products)
- K : 溶解反応の平衡定数
- A_0 : 単位溶液体積あたりの、溶解物質の初期表面積 [$\text{m}^2 \text{ dm}^{-33-1}$]
 なお、 $A_0 = C_0 M \sigma$ であり、

- C_0 : 単位溶液体積あたりの、溶解物質の初期存在量 [mol/dm³]
 M : 式量 (1 モルあたりの質量) [g mol⁻¹]
 σ : 比表面積 [m² g⁻¹]
 m : 考慮する時点の溶解物質の量 [mol, g, mol/dm³ dm³ など]
 m_0 : 初期の溶解物質の量 [mol, g, mol/dm³ dm³ など]
 b : 形状係数 (物質の溶解が 3 次元等方的である場合, $b = 2/3$)

表-3.5 モンモリロナイトの溶解速度パラメータ

$\log_{10}[k]$	n	C_0 [mol dm ⁻³]	M [g mol ⁻¹]	σ [m ² g ⁻¹]	A_0 [m ² dm ⁻³]	k, n の出典
-17.55 *1	-0.34	0.610	2206	30.0	40366	Huertas et al., (2001)

*1: データベースの Na 型モンモリロナイトの式量が文献 (Huertas et al., 2001) の 3 倍であるため、文献値の k を 1/3 倍した値を用いた

PHREEQC では、この溶解速度式を Basic 風のマクロにより記述し、PHREEQC の熱力学データベース、又は入力データファイルの中に、RATES のキーワードと共に配置する。PHREEQC-TRANS の場合は、同一のマクロを熱力学データベースに入れるか、OTHERS のブロックに記述することによって扱うことができる。

図-3.2 に、モンモリロナイトの溶解によって放出された Al, Si 濃度の変化を示す。PHREEQC と PHREEQC-TRANS による計算結果は正確に一致した。

本解析条件は、液固比が小さい圧密ベントナイト中の反応を想定しているため、液相の濃度が上昇しやすく、早期に飽和濃度に達している。

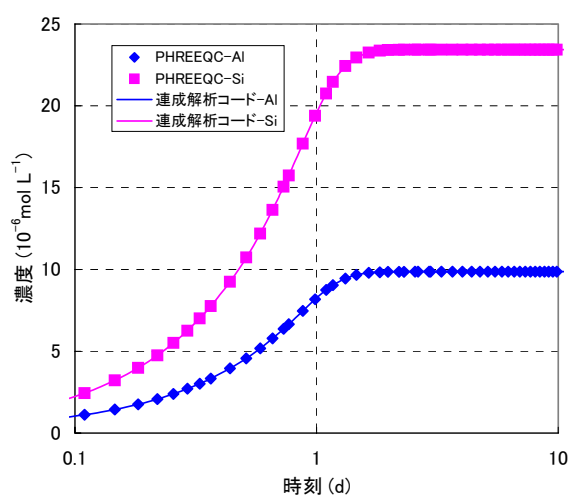


図-3.2 モンモリロナイト溶解時の Al と Si の濃度変化

3.3. 物質移行

物質移行の検証は，地球化学反応が起こらない条件下での 1 次元の拡散現象及び移流・拡散現象について，PHREEQC-TRANS による計算結果を，解析解と比較することにより行った。

3.3.1. 拡散現象

1 次元モデルの一端に固定濃度境界を設定し，拡散現象による物質移行を解析した。モデルと濃度境界条件を図-3.3 に示す。なお，フラックスは 0 とした。

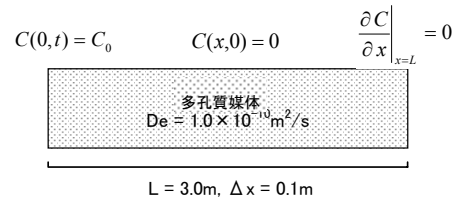


図-3.3 拡散現象の検証モデル

右側境界の濃度が低い状態であれば，上記の現象は，半無限媒体における初期条件 $C(x,0) = 0$ ，境界条件 $C(0,t) = C_0$ かつ $C(\infty,t) = 0$ の下での一方拡散とほぼ同等とみなせる。この解析解を式(9)に示す。

$$\frac{C(x,t)}{C_0} = \text{erfc} \frac{x}{2\sqrt{Dt}} \quad (9)$$

ここに，

$C(x,t)$:	位置 x ，時刻 t における濃度
C_0	:	$x = 0$ における固定濃度
erfc	:	相補誤差関数
D	:	拡散係数

図-3.4 に，比濃度分布の変化と解析解との比較を示す。PHREEQC-TRANS による計算結果と解析解は非常に良く一致した。

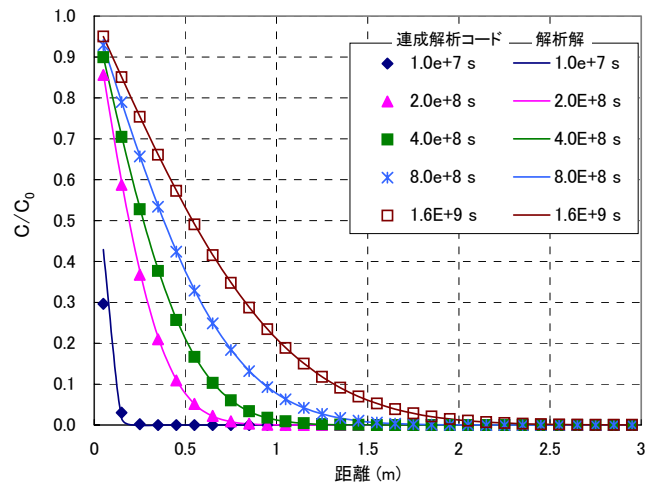


図-3.4 1次元拡散における比濃度分布の変化

3.3.2. 移流拡散現象

1次元モデルの一部にステップパルス状の初期濃度を与え、一定の流速を与えたときの移流拡散現象を解析した。モデルと濃度境界条件を図-3.5に示す。流速 q_f は、 $5 \times 10^{-9} \text{ m s}^{-1}$ とした。

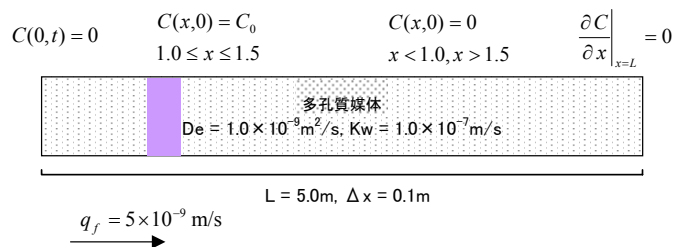


図-3.5 移流拡散現象の検証モデル

この解析条件は、境界条件の影響を受ける下流端を除けば、無限媒体における以下の初期条件、境界条件の下での移流拡散現象と同等とみなせる。

$$\text{初期条件} \quad C(x,0) = 0 \quad (x < -h, x > h)$$

$$C(x,0) = C_0 \quad (-h \leq x \leq h)$$

$$\text{境界条件} \quad C(\pm \infty, t) = 0$$

この解析解を式(10)に示す。

$$\frac{C(x,t)}{C_0} = \frac{1}{2} \left[\operatorname{erf} \frac{h-x+vt}{2\sqrt{Dt}} + \operatorname{erf} \frac{h+x-vt}{2\sqrt{Dt}} \right] \quad (10)$$

ここに、

$C(x, t)$: 位置 x , 時刻 t における濃度
 C_0 : $-h \leq x \leq h$ の区間の初期濃度
 erf : 誤差関数
 h : 初期濃度を与えた幅の $1/2$
 D : 拡散係数
 V : 間隙流速

図-3.6 に、比濃度分布の変化と解析解との比較を示す。PHREEQC-TRANS による計算結果と解析解は非常に良く一致した。

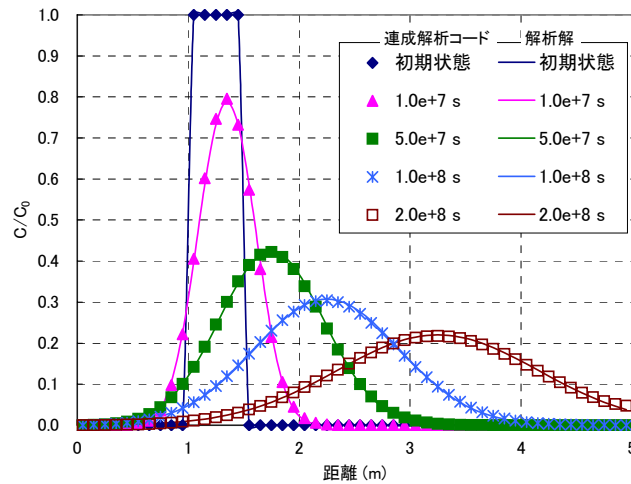


図-3.6 1次元移流拡散における比濃度分布の変化

3.3.3. 物質移行と変質の連成現象

PHREEQC と PHREEQC-TRANS を用いて、物質移行と変質の連成現象の解析を行った。具体的には、普通ポルトランドセメント (OPC) モルタルと粘土 (ブーム粘土) を接触させたときに、空隙水の液相種が相互に拡散することによって起こる変質を想定した解析を行った。

(1) モデルと初期条件及び境界条件

モデルと濃度境界条件を図-3.7 に示す。本解析ケースでは拡散のみを考慮し、フラックスは0とした。

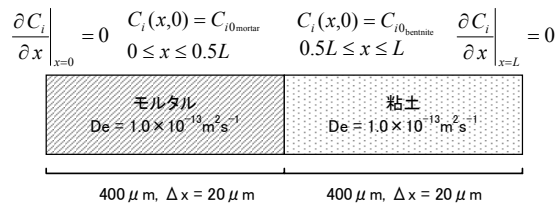


図-3.7 物質移行と変質の連成現象の検証用モデル

初期条件として、モルタル側には $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 、 $\text{C-S-H}(1.8)$ 、 C_3AH_6 、 Aft の濃度を与え、これが変質した後の鉱物として、 C-S-H 、 CASH などのセメント鉱物を考慮した。粘土側には、モンモリロナイト、カルサイト、及び石英の濃度を与え、変質後の鉱物としてアナルサイム、 C-S-H 、 CASH などの鉱物を考慮した。図-3.8 に初期条件とした濃度分布を示す。

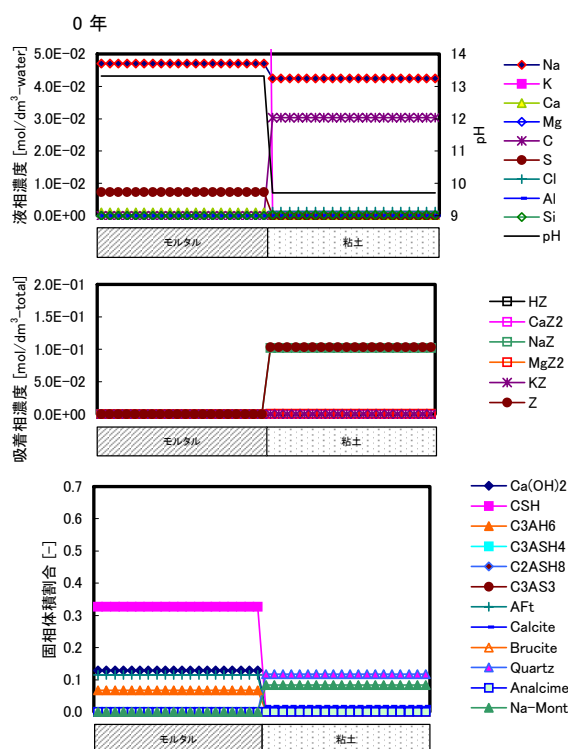


図-3.8 化学種の濃度分布の初期条件

(2) 物質移行パラメータが変化しない場合

PHREEQC は、1次元の物質移行と変質の連成解析が可能であるが、セル幅、空隙率、拡散係数、及び透水係数が全領域で同一である必要がある。また、鉱物の溶解・沈殿によって、空隙率、透水係数、及び拡散係数が変化することはない。これに対し、PHREEQC-TRANS では、セル幅、空隙率、拡散係数、透水係数を自由に設定できるほか、変質状態と、拡散係数及び透水係数との関係式を自由に設定できる

ここでは PHREEQC と PHREEQC-TRANS の計算結果を比較可能にするため、セル幅、空隙率、及び拡散係数が全領域で同一かつ一定である場合の解析を行った。

0.5年、1年後の pH、液相、吸着相、及び固相の濃度分布を図-3.9 と図-3.10 に示す。モルタル側では $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 、 C_3AH_6 の溶解と C-S-H の溶解・沈殿が起こり、粘土側ではモンモリロナイト及び石英の溶解と、 C-S-H 及びアナルサイムの沈殿が起こった。時間の経過と共に、

物質境界から両側へ変質領域が広がる様子が認められる。PHREEQC と PHREEQC-TRANS の解析結果はよい一致を示した。

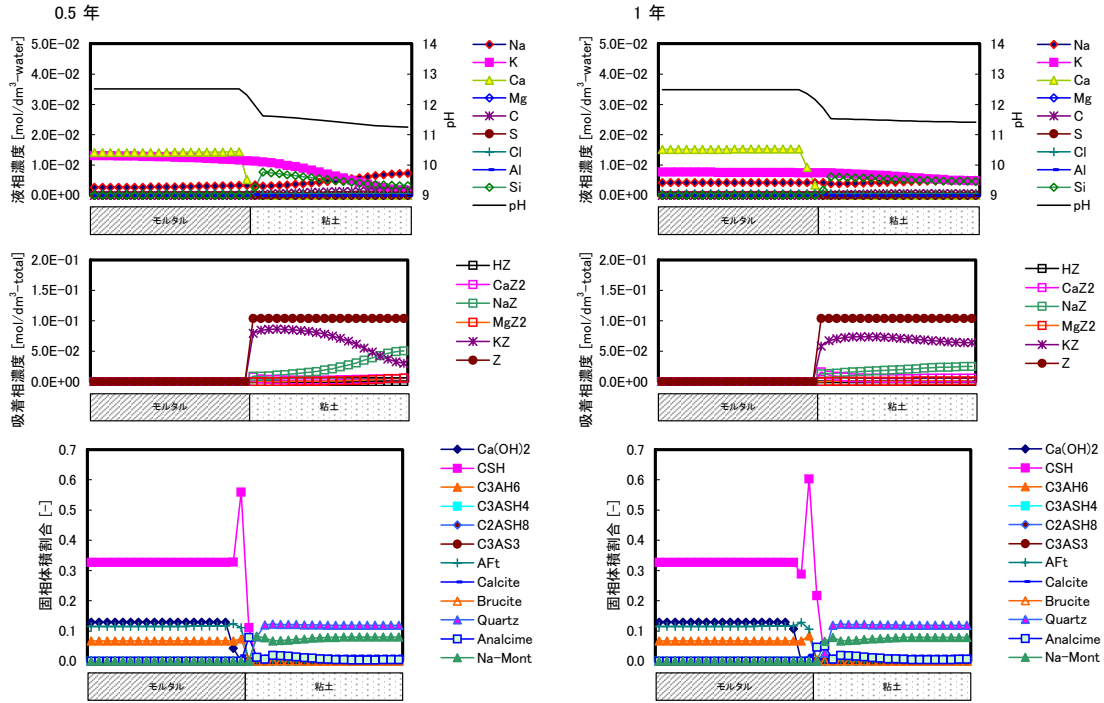


図-3.9 PHREEQC による計算結果（物質移行パラメータ一定）

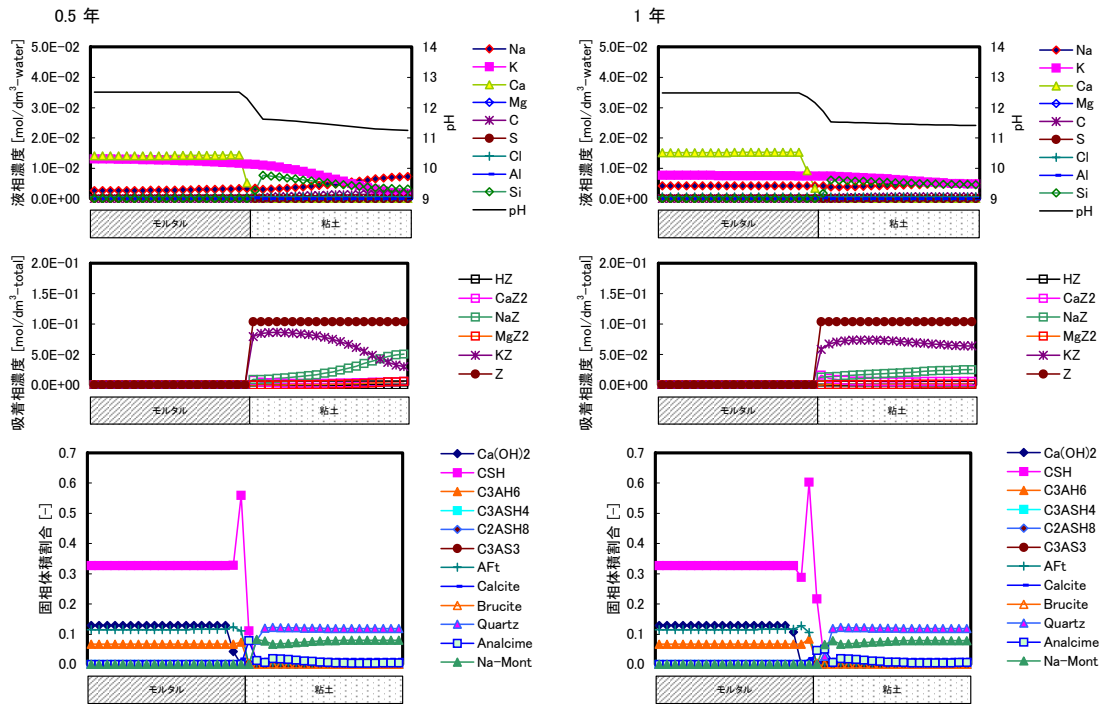


図-3.10 PHREEQC-TRANS による計算結果（物質移行パラメータ一定）

(3) 物質移行パラメータが変化する場合

物質移行パラメータが変化する場合の計算結果については、6. において RAIDEN 3 との比較検証を実施する。

3.4 実験結果との比較検討

上記のように 3.2 において地球化学反応計算の検証, 3.3 において物質移行計算, また物質移行と化学反応の連成解析についての検証を行った。そこで本項では PHREEQC-TRANS を用いて実験での計測結果のトレース解析を行い, 物質移行と化学反応の連成現象についての適用性の検証を行った。

ここではセメントペースト硬化体に模擬海水を通水した試験結果 (武井ほか, 2004) についてトレース解析を実施し, 実験結果との比較を行った。なお, この検討においては化学反応に参与する鉱物及び溶存化学種の熱力学データには熱力学データベース JNC-TDB. TRU (Arhtur et al., 2005) を用いた。

(1) モデルと初期条件及び境界条件

通水試験では厚さ 4cm の供試体に所定の通水圧力を作用させて試験を行っている。そのため、解析モデルにおいてもセメントペーストの領域を 4cm (16 メッシュ、メッシュ幅 0.25cm) とし、上流側を地下水濃度、水頭圧固定境界、下流側を自由流出境界とした。図-3.11 に解析体系の概念図を示す。また、対象とする通水液は人工海水である。表-3.6 に模擬地下水組成を示す。

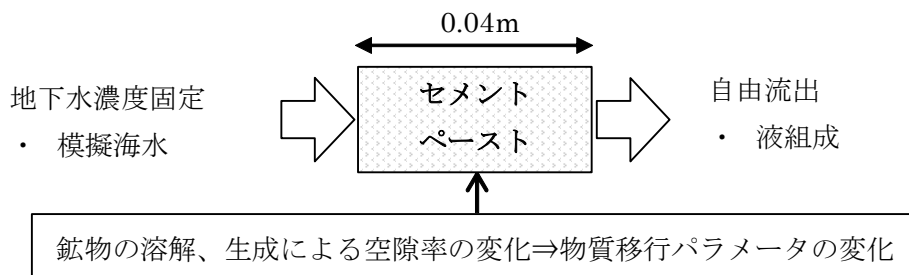


図-3.11 解析体系図

表-3.6 地下水組成

組成 (mol/dm ³)	人工海水
Na	4.6E-01
K	1.3E-02
Ca	9.3E-03
Mg	5.2E-02
Cl	5.4E-01
C	2.4E-03
S	2.6E-02
Al	0.0E-00
Si	0.0E-00

セメントペーストの設定としては、供試体作成時のデータから供試体に含まれるセメント量を算出し、水和水を除いた量を単位体積あたりのセメント重量として鉱物組成を決定した。変質に伴って生成する二次鉱物には、徐々に進行するCaの溶脱に伴って変化する固相としてCa/Si比の低いC-S-Hゲルに加え、CASH系の鉱物も考慮した。また人工海水の特徴としてMg濃度が高いことが挙げられるため、Mg含有鉱物としてはブルーサイトを基本とし、それに加えてハイドロタルサイト、セピオライトを設定した。表-3.7～3.9に供試体の初期設定を、表-3.10に設定した鉱物を示す。

表-3.7 供試体初期状態

W/C	供試体形状	乾燥重量	乾燥密度
105 wt%	φ40×t40mm	52.7g	1.029Mg/m ³

表-3.8 セメントの化学組成 (wt%)

	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	SO ₃	Na ₂ O	K ₂ O
普通ポルトランドセメント	21.3	5.31	2.57	64.8	1.95	1.94	0.24	0.56

表-3.9 セメントペーストのモデル固相

	mol/m ³	mol/dm ³ -water
C ₃ AH ₆	361.9	0.664
C ₃ FH ₆	132.4	0.243
Ettringite	66.42	0.122
KOH	97.8	0.179
NaOH	63.7	0.117
C-S-H	5247.61	9.629
Ca(OH) ²	2374.1	4.356
間隙率(-)	0.545	

表-3.10 考慮した鉱物

初期鉱物	生成鉱物	
エトリンガイト	C_3ASH_4	フリーデル氏塩
ハイドロガーネット	ゲーレンナイトハイドレート	カルセドニ
C-S-H ゲル	グロッシュラー	ブルーサイト
ポルトランダイト	カオリナイト	ハイドロタルサイト
Na_2O	パイロフィライト	セピオライト
K_2O	カルサイト	

(2) 解析結果

積算液固比に対する液組成の変化を図-3.12 に示す。また、各元素の分布と EPMA による分析結果を図-3.13、図-3.14 に示す。

結果から、変質が進んだ後の Si, Al など試験結果と差が出たものもあるが概ね良好な一致を見た。特に、Na, K 濃度が高く pH が高い条件における Ca 濃度など、初期間隙水組成の再現性に関しては非常に良い一致を見た。固相の濃度分布に関しても Cl 等、分析結果を再現できないものもあるが、主に上流側で進む $Ca(OH)_2$, C-S-H ゲル, エトリンガイトの溶脱、対して下流側で進む C-S-H ゲルの沈殿といった鉱物の変質挙動、また変質フロントの位置等、概ね良い一致を見た。

PHREEQC-TRANS を用いた通水試験のトレース解析では物質移行と化学反応の連成現象としての液相の変遷、固相の変質について試験結果を良好に再現できた。これらの検証により、長期的な変質挙動について PHREEQC-TRANS による評価を用いることができると考えられる。

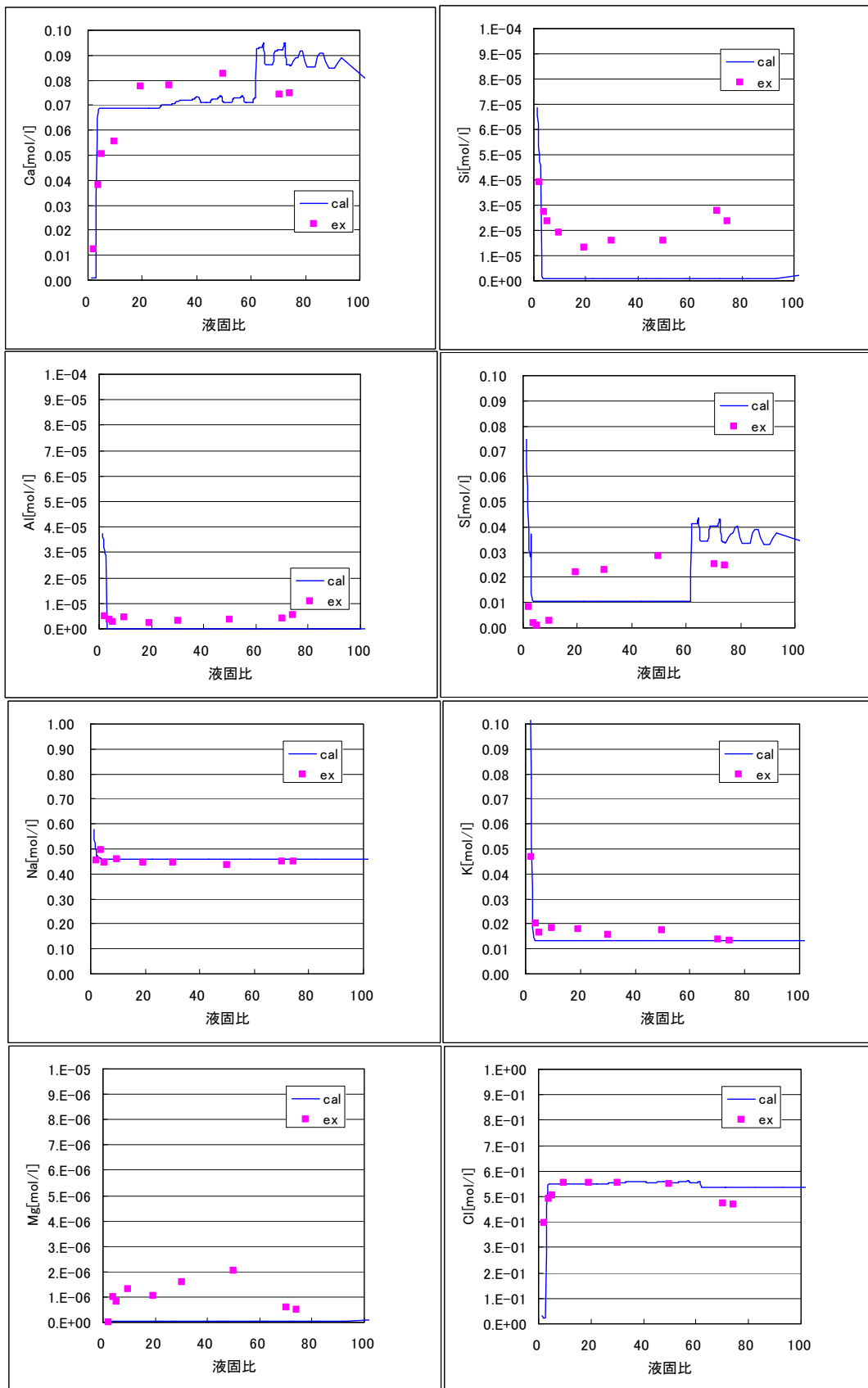


図-3.12 液組成の変化

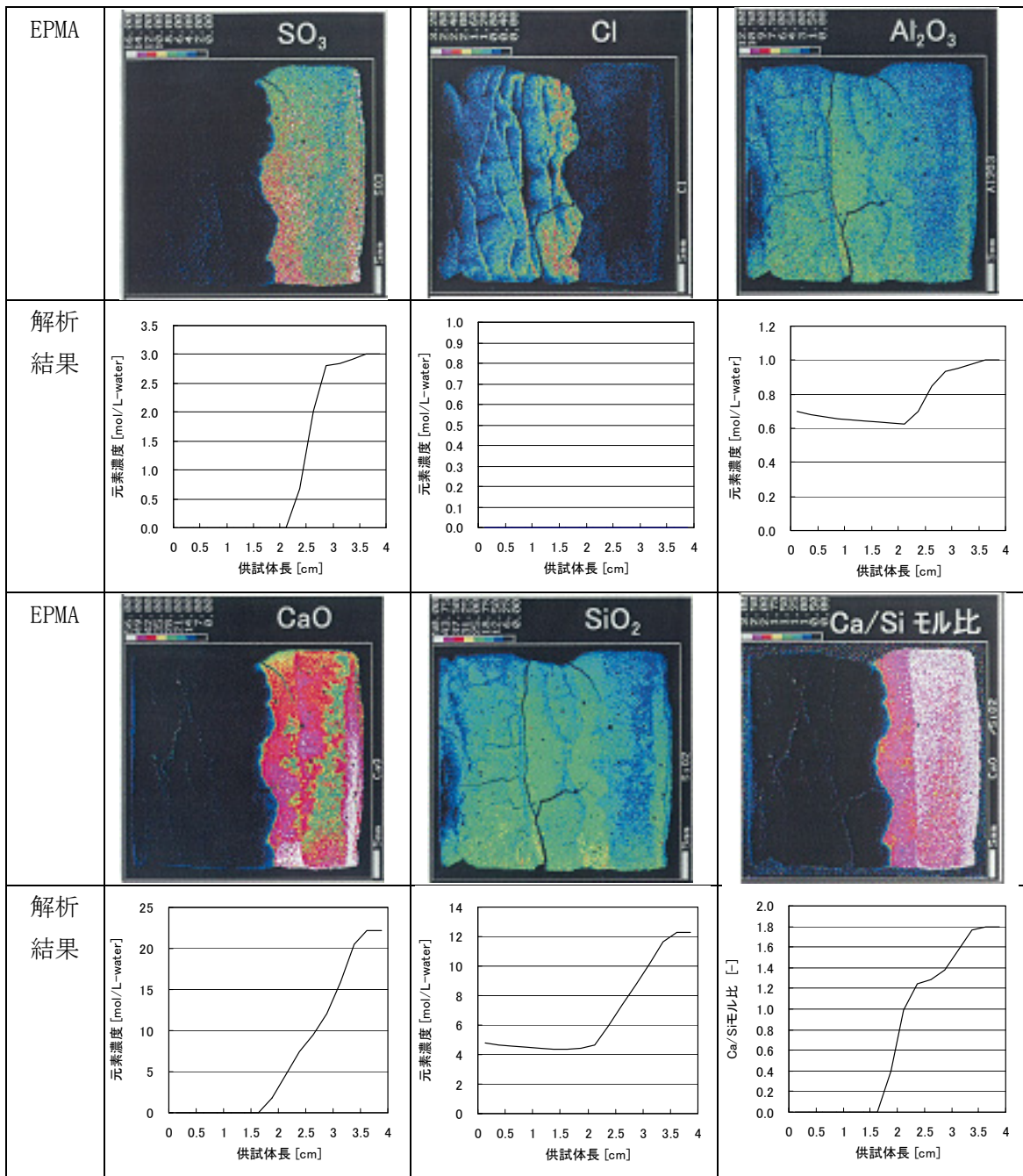


図-3.13 鉱物相の分布(1)

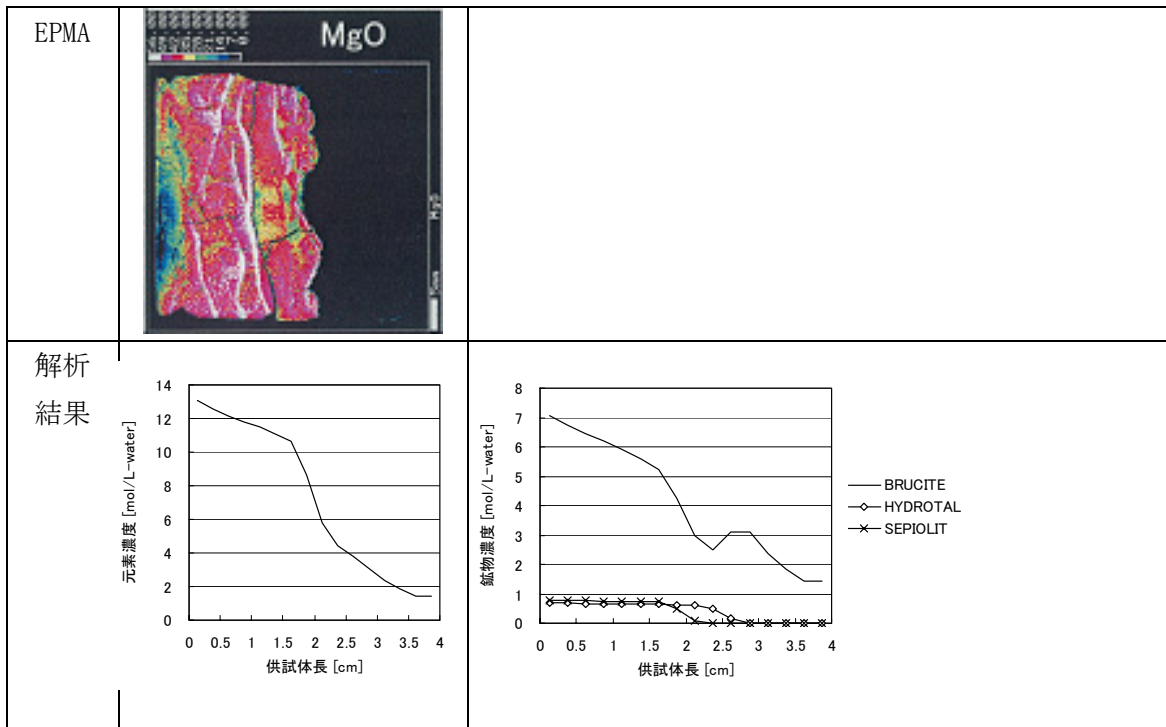


図-3.14 鉱物相の分布(2)

4. RAIDEN 3 の概要

Raiden 3 は、1次元あるいは2次元の多孔質媒体中の移流・分散もしくは拡散による溶質の移動に加えて、これらと同時に生じる

- ・ 液相化学種の分種化
- ・ 酸化還元反応
- ・ 鉱物の溶解と沈殿
- ・ イオン交換

といった化学反応を解析するものである。また、これらの化学反応を、物質移動と比較して十分に早く瞬時局所平衡を達成するような「速い」反応と、物質移動と比較しても遅いために非平衡状態が出現する可能性があるような「遅い反応」に区分し、それぞれを平衡論及び速度論的な方法でモデルに取り込むことが可能である。

Raiden 3 は、上記の問題の数学的表現に相当する微分代数方程式系（後述）を数値的に解くためのソルバーを中心とした本体、テキストベースのインターフェイス、そして熱力学データベースという3つの主要な要素から構成されるものである。また、化学反応速度については、遷移状態理論のような一般的な関数形についてのライブラリに加えてユーザーが新たな速度式を入力することも可能である。なお、後述するセメントの溶解モデルのように、固溶体としての表現もユーザーの指定によって行うことが可能である。

Raiden 3 は、これまでに、後述するようなセメント-緩衝材系での化学的変質の問題に加えて、

- ・ 二酸化炭素地下貯留における地下水-岩石反応
- ・ ウラン鉱床の形成過程に関連する種々の地下水-岩石反応

等の多成分の反応・移動現象に適用されている。

4.1. 多成分反応移動問題の数学的定式化

液相及び固相の化学反応と液相化学種の移動からなる多成分反応移動問題は、一般的には、線形の拡散あるいは移流・分散項と非線形の反応項を含む半線形偏微分方程式として定式化されるが、特に物質移動と比較して十分に速くいわゆる局所瞬時平衡を仮定できるような化学反応については、線形の拡散あるいは移流・分散方程式と非線形代数方程式（質量作用式）とに分離することができる。このような状況においては、各タイムステップにおいてまず線形の物質移動のみを計算することによって、数値解析上の各メッシュ内の基

本化学種の総量を算出し、次に、各メッシュ内で化学反応に着目して平衡計算を行うという 2 ステップ法 (operator-splitting 法) を用いることができる。また、局所瞬時平衡が成立しないような遅い反応についての速度論的なモデルに対してもこのようなアルゴリズムが適用されている例(例えば PHREEQC コード)がある。しかし、2 ステップ法において一定の精度を確保するためには、各タイムステップにおける化学反応による濃度変化が小さいことが必要であり、大きな濃度変化を伴うような問題ではタイムステップの大きさを限定することが必要となる場合が多い。

RAIDEN 3 (Watson and Benbow, 2004) は、

- ・ 遅い反応に関与する溶質の移動についての半線形偏微分方程式
- ・ 速い反応のみに関与する溶質の移動についての線形偏微分方程式と質量作用式の組
- ・ 鉱物の反応に対応する各位置での常微分方程式

を連立することによって得られる連立方程式系を同時に数値的に計算する「直接法」に基づくものである。以下に、RAIDEN 3 で取り扱う多成分反応移動問題の数学的定式化についてまとめる。

まず、多成分系の方程式群をコンパクトに記述するために、次のようなベクトル表記を導入する。

$$u(x, t) = \{u_i(x, t)\}_{i \in I_A} \quad (1)$$

ただし、 I_A は解析対象とするすべての液相中の基本化学種のセットを示し、 $u_i(x, t)$ は、位置 x 、時刻 t における i 番目の液相中基本化学種の濃度 (mol/dm^3) を表す。したがって、ベクトル $u(x, t) = \{u_i(x, t)\}_{i \in I_A}$ は、当該位置及び時刻におけるすべての液相基本化学種の状態を記述することとなる。また、同様に、基本化学種の複合形として表現される complex (本来の化学的用語とは異なるが、便宜的に、以下、「錯体」と呼ぶ) についても、

$$c(x, t) = \{c_i(x, t)\}_{i \in I_C} \quad (2)$$

が定義される。ただし、 I_C は解析対象とするすべての「錯体」のセットとし、また、 i 番目の「錯体」中の j 番目の基本化学種のストイキオメトリーを α_{ij} と表す。さらに、鉱物 (解

析対象とするすべての鉱物のセットを I_M とする) の濃度 (mol/m³) について,

$$m(x, t) = \{m_i(x, t)\}_{i \in I_M} \quad (3)$$

とし, また,

$$z(x, t) = \{z_i(x, t)\}_{i \in I_Z} \quad (4)$$

によって交換性陽イオンの占有割合 (%) を表す。なお, 鉱物 i 中の基本化学種 j のストイキオメトリーを β_{ij} , 同じく陽イオン交換に関しても鉱物 i 中の基本化学種 j のストイキオメトリーを γ_{ij} とする。

以上のベクトル表記を用いて, 反応, 移流, そして拡散あるいは分散に関する方程式系の全体は次のように定式化される。

$$\frac{\partial}{\partial t}(u_i \theta) = T(i, I_A, u_i, v) - \sum_{j \in I_C} \alpha_{ji} S_j - \sum_{k \in I_M} \frac{\beta_{ki}}{F_M \theta} R_k - \sum_{l \in I_Z} \frac{\gamma_{li}}{F_Z} W_l, \quad i \in I_A \quad (5)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(c_i \theta) = T(i, I_C, c_i, v) + S_i, \quad i \in I_C \quad (6)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(m_i) = R_i, \quad i \in I_M \quad (7)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(z_i) = W_i, \quad i \in I_Z \quad (8)$$

ただし, $R_i(x, t, u(x, t), m(x, t))$ (mol/m³/s) 及び $S_j(x, t, u(x, t), c(x, t))$ (mol/dm³・s) は, それぞれ鉱物 i 及び「錯体」 j の反応に対応する反応項であり, 陽イオン交換に対応する反応項を $W_i(x, t, u(x, t), z(x, t))$ (%/s) とする。また, 物質移動に関する微分演算子を形式的に $T(i, I_P, p_i(x, t), v(x, t))$ と書く。ただし $i \in I_P$ であり, $P = A$ の場合には $p_i = u_i$ であり, また, $P = C$ の場合には $p_i = c_i$ である。

なお, F_M 及び F_Z は, 鉱物と陽イオン交換の占有率における単位が基本化学種の濃度の単位と異なることを補正するための定数である。

次に, 媒体空隙率の変化が, 圧縮や膨張といった力学的な現象によらず化学反応に伴う

鉱物学的な変化のみによるものであるとすると、次式が得られる。

$$\frac{\partial}{\partial t}(\theta) = - \sum_{j \in I_M} V_j R_j \quad (9)$$

ここで V_j は鉱物 j のモル体積である。

既に述べたように、液相中の「錯体」の反応は瞬時平衡を達成するものと仮定されており、このため、(5)及び(6)式中の S_j は有限ではなくなる可能性がある。そこで、上記の方程式系を数学的に解くことの可能なものとするために、ベクトル表記である各コンポーネントについて重み付けをした後に加減することにより、すべての S_j を相殺する。この結果、(5)～(8)式は次の様な方程式に書き換えられる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(u_i \theta) + \sum_{j \in I_C} \alpha_{ji} \frac{\partial}{\partial t}(c_j \theta) + \sum_{k \in I_M} \frac{\beta_{ki}}{F_M \theta} \frac{\partial}{\partial t}(m_k) + \sum_{l \in I_Z} \frac{\gamma_{li}}{F_Z} \frac{\partial}{\partial t}(z_l) \\ = T(i, I_A, u_i, v) + \sum_{k \in I_C} \alpha_{ki} T(k, I_C, c_k, v), \quad i \in I_A \end{aligned} \quad (10)$$

また、「錯体」は常に瞬時平衡を達成するために、代数方程式である質量作用式

$$\prod_{i \in I_A} \frac{[u_i]^{\alpha_{ji}}}{K_j} = 1, \quad j \in I_C \quad (11)$$

に置き換えられる。ここで、 K_j は錯体 j の反応に関する平衡定数であり、 $[u_i]$ は、基本化学種 i の活量である。

最後に、空隙水の移動に関する支配方程式は次のとおりである。

$$S_s \frac{\partial}{\partial t}(h) + \frac{\partial}{\partial t}(\theta) = \frac{\partial}{\partial x} \left(K(x, t, m(x, t), z(x, t)) \frac{\partial}{\partial x}(h) \right) \quad (12)$$

ただし、 $h = h(x, t)$ は水頭、 K は透水係数、 S_s は次式で定義される比貯留係数であり、 K は一般に鉱物組成及びイオン交換の程度に依存する。

$$S_S = \rho_W g \left(\kappa_M (1 - \theta) + \kappa_W \theta + \sum_{i \in I_M} \kappa_i V_i m_i \right) \quad (13)$$

ρ_W : 水の密度, κ_M , κ_W 及び κ_i , $i \in I_M$ はそれぞれ各固相の圧縮係数
 g : 重力加速度, θ : 空隙率

液相反応

既に述べたように、液相中の反応は瞬時平衡を達成するものと仮定し、したがって質量作用式

$$\prod_{i \in I_A} \frac{[u_i]^{\alpha_{ji}}}{K_j} = 1, \quad j \in I_C \quad (14)$$

によって反応が記述される。

遅い鉱物反応

遅い鉱物反応は、一般的に以下の形式の方程式によって表現される。

$$\frac{\partial}{\partial t} (m_i) = R_i, \quad i \in I_M \quad (15)$$

また、 R_i は一般に

- 基本化学種濃度 (pH を含む)
- 鉱物濃度
- 反応に寄与する表面積
- 温度

の関数である。

速い鉱物反応

一般に、ある鉱物 j の溶解・沈殿反応が物質移動に比して十分に速く、したがって瞬時平衡を達成すると仮定すべき場合には、上の微分方程式の代わりに

$$\frac{Q_j}{K_j} = 1 \quad (16)$$

$$Q_j = \prod_{i \in I_A} [u_i]^{\beta_{ji}}$$

を解くことが必要となる。(16) 式は、平衡多様体と呼ばれ、当該鉱物が存在する間は、常に基本化学種の濃度が解空間の中で対応する部分領域（多様体）上にあることを要求するものである。しかしながら、数値解析上は、(16) 式を厳密に満足することは不可能であり、代わりに平衡エンベロープ条件と呼ぶ次式を用いる。

$$\left| \frac{Q_j}{K_j} - 1 \right| < \varepsilon_j \quad (17)$$

エンベロープの大きさを表す ε_j の値としては、通常、 10^{-3} 程度を用いる。この場合、鉱物が存在し続ける限り、当該反応は常に 99.9% から 100.1% の飽和状態にあることが確保されることとなる。なお、初期条件としては、鉱物反応が非平衡状態から出発する場合も考えられる。このような場合には、系の状態が平衡エンベロープに到達するまで、

$$R_j = k_j \left(\frac{Q_j}{K_j} - 1 \right) \quad (18)$$

という形式的な反応速度を定義し、 k_j をすべての遅い反応よりも十分に大きな値とすることによって速やかに平衡を回復させる。また、この操作は、基本的にはイオン交換反応を瞬時平衡として取り扱う場合にも同様であるが、上式の代わりに

$$Q_j = \prod_{i \in I_Z} z_i^{\gamma_{ji}} \prod_{k \in I_A} [u_i]^{\gamma_{jk}} \quad (19)$$

を用いる必要がある。

時間 t に関する s の微分を \dot{s} と表現することとすると、全体として次のような形式となる。

$$g(u, c, m, z, \theta, h, \dot{u}, \dot{c}, \dot{m}, \dot{z}, \dot{\theta}, \dot{h}) = f(u, c, m, z, \theta, h) \quad (20)$$

なお、 g は線形の微分演算子であり、 f は非線形の微分演算子である。

この式は、更に、すべての未知数を

$$\mathbf{u} = \mathbf{u} \cup \mathbf{c} \cup \mathbf{m} \cup \mathbf{z} \cup \boldsymbol{\theta} \cup \mathbf{h} \quad (21)$$

として統合すると、簡単に、

$$g(\mathbf{u}, \dot{\mathbf{u}}) = f(\mathbf{u}) \quad (22)$$

と書かれる。最後に、空間差分を行って微分演算子を差分演算子に置き換えることにより、

$$\mathbf{G}(\mathbf{U})\dot{\mathbf{U}} = \mathbf{F}(\mathbf{U}) \quad (23)$$

が得られる。ここで、 $\mathbf{U}(x_i, t)$ は、 i 番目の節点における未知数のベクトルであり、 \mathbf{G} 及び \mathbf{F} は差分後の演算子に対応している。

4.2. 数値解法

前項に述べた連立方程式を数値的に解くために、空間的な離散化を行い物質移動に関する演算子を差分化することにより、偏微分方程式が各メッシュにおける常微分方程式に分解されることとなる。こうして、前項の連立方程式系は、代数方程式と常微分方程式からなる微分代数方程式系 (Differential and Algebraic Equations; DAE) に変換されることとなる。

DAE の数値解の特徴は、係数行列の有する複数の固有値が極端に異なるようないわゆる「硬い」問題において大きな誤差が生じる場合が多いことである。硬い方程式系は、物理的には、時間スケールの極端に異なるプロセスが同時に進行する状況に対応するものであり、多成分反応移動問題における異種の化学反応や物質移動といった複数のプロセスもその典型例の一つである。

硬い DAE に対する数値解法については 1970 年代から研究が行われており、陰解法の次数とタイムステップの大きさを適宜最適化しながら進む Backward Difference Formula (BDF) と呼ばれる手法が開発されている (Ascher and Petzold, 1998)。RAIDEN 3 は、この BDF を用いて多成分反応移動問題に対応する DAE を数値的に解くものである。以下に、RAIDEN 3 における DAE の数値解法の概要について述べる。

4.2.1. 微分代数方程式とそのインデックス

微分代数方程式系 (Differential and Algebraic Equations; DAE) の一般系は次式により与えられる。

$$\begin{aligned}\dot{\mathbf{x}} &= \mathbf{f}(t, \mathbf{x}, \mathbf{z}) \\ 0 &= \mathbf{g}(t, \mathbf{x}, \mathbf{z})\end{aligned}\tag{24}$$

ここで、 $\mathbf{x}(t), \mathbf{z}(t)$ はそれぞれ未知数ベクトルであり、 \mathbf{f}, \mathbf{g} はベクトル値関数である。

(24)の第一式は、 \mathbf{x} に関する常微分方程式であるが、本来の方程式が位置と時間に関する偏微分方程式である場合 (例えば、多成分系の反応・移流・拡散モデル) でも、空間的離散化を行うことにより各節点についての常微分方程式に書き直すことが可能である。また、第二式に対して微分を繰り返すことにより、これを \mathbf{z} に関する微分方程式に書き換えることができ、すなわち、(24)は連立常微分方程式系に還元される。この際に必要となる微分操作の回数を微分代数方程式系のインデックスという。特に、連立常微分方程式系は、インデックス0の微分代数方程式系である。インデックス2以上の微分代数方程式系においては、高次微分に伴う「隠れた」制約条件が発生する。

$$\begin{aligned}\text{例) } y_1 &= q(t) \\ y_2 &= y_1'\end{aligned}$$

は、第一式を微分することによって $y_2 = y_1' = q'(t)$ となり、さらに微分を繰り返すことにより、 $y_2' = y_1'' = q''(t)$ となる。ここで、初期条件としては、明らかに $y_1(0) = q(0)$ が成立しなければならない。さらに、「隠れた」制約条件として、 $y_2(0) = q'(0)$ も必要となる。

4.2.2. BDF 法

微分代数方程式に含まれる複数の微分方程式が、時間スケールの大きく異なるプロセスに関連している場合、係数行列は特異行列に近いものとなる (固有値の大きさが極端に異なる)。このような問題は、特に「硬い」(stiff)問題と呼ばれている。

硬い微分代数方程式系を解くための標準的な手法は、線形マルチステップ法の一つである BDF (Backward Difference Formulae)法である。一般に、 k 次の線形マルチステップ法では、

$$\dot{\mathbf{y}} = \mathbf{f}(t, \mathbf{y})\tag{25}$$

の $t = t_n$ における解 \mathbf{y}_n を得るために,

$$\sum_{j=0}^k \alpha_j \mathbf{y}_{n-j} = h \sum_{j=0}^k \beta_j \mathbf{f}_{n-j} \quad (26)$$

を解く。但し, α_j, β_j は手法によって異なる定数であり, 例えば, 最も単純な陰解法である後退オイラー法では,

$$\mathbf{y}_n - \mathbf{y}_{n-1} = h \mathbf{f}(t_n, \mathbf{y}_n) \quad (27)$$

である。これに対して, BDF 法では,

$$\sum_{j=0}^k \alpha_j \mathbf{y}_{n-j} = h \beta_0 \mathbf{f}(t_n, \mathbf{y}_n) \quad (28)$$

を解くこととなる。6 次までの BDF 法に用いられる係数列を表 4-1 に示す。表から明らか
なとおり, 一次の BDF 法は前出の後退オイラー法に他ならず, 換言すれば, BDF 法は後退
オイラー法の一般化である。

表 4-1 6 次までの BDF 法に用いる係数列

k	β_0	α_0	α_1	α_2	α_3	α_4	α_5	α_6
1	1	1	-1					
2	2/3	1	-4/3	1/3				
3	6/11	1	-18/11	9/11	-2/11			
4	12/25	1	-48/25	36/25	-16/25	3/25		
5	60/137	1	-300/137	300/137	-200/137	75/137	-12/137	
6	60/147	1	-360/147	450/147	-400/147	225/147	-72/147	10/147

4.2.3. 改良ニュートンラフソン反復

BDF 法において式(28)を解くためには, 改良ニュートンラフソン反復が用いられる。つまり,

$$\mathbf{y}_n - h \beta_0 \mathbf{f}(t_n, \mathbf{y}_n) = - \sum_{j=1}^k \alpha_j \mathbf{y}_{n-j} \quad (29)$$

において, 右辺は既知であり, ν 回目の近似結果に基づき次回値を次式により推定することにより解を収束させる。

$$\mathbf{y}_n^{v+1} = \mathbf{y}_n^v - \left[I - h\beta_0 \frac{\partial \mathbf{f}}{\partial \mathbf{y}} \right]^{-1} \sum_{j=0}^k \alpha_j \mathbf{y}_{n-j} \quad (30)$$

但し、 $\frac{\partial \mathbf{f}}{\partial \mathbf{y}}$ はヤコビアン行列であり、 \mathbf{y}_n^v に基づいて算出される。

上記の操作において最も計算労力を要するのはヤコビアン行列の導出及び LU 分解（係数行列を L 行列（左下三角行列）と U 行列（右上三角行列）に分けて計算する方法）であり、これを低減するために、以下のいずれかに該当する場合にのみヤコビアン行列の再計算を行うようにしたものが改良ニュートンラフソン反復である。

- 近似列が収束しない場合
- タイムステップが大きく変更されるか、あるいは BDF の次数が代わったとき
- 所定のステップ数を経過した場合

近似列は、次の条件を満たした場合に収束したと判断される。

$$\frac{\rho}{1-\rho} |\mathbf{y}_n^{v+1} - \mathbf{y}_n^v| < NTOL$$

但し、NTOL は所定の許容誤差であり、 ρ は次式で与えられる収束速度の指標である。

$$\rho = \left(\frac{|\mathbf{y}_n^{v+1} - \mathbf{y}_n^v|}{|\mathbf{y}_n^1 - \mathbf{y}_n^0|} \right)^{\frac{1}{v}}$$

4.2.4. BDF の次数及びタイムステップの調整

BDF 法は、通常、可変次数、可変タイムステップのアルゴリズムと組み合わせられることによって計算効率が向上される。このためには、まず、 n 回目のタイムステップにおける次数が k である場合に、 $k+1$ 次の推定値を近似的に予測し、これら二つの差を局所誤差 ε とする。そして、 $\varepsilon < ETOL$ （許容誤差）であればこの計算結果は許容される。そして、次のタイムステップにおける BDF 法が $k \pm i$ 、 $i = 1, 2, \dots$ 次であるとする、それぞれの次数において次のタイムステップの大きさは前回値の $\left(\frac{\gamma ETOL}{\varepsilon} \right)^{\frac{1}{k \pm i + 1}}$ 倍に設定される（ $\gamma < 1$ は所定

の定数)。また、次数は、 $k \pm i$, $i = 1, 2, \dots$ のうちタイムステップが最大となるようなものが選ばれる。

5. RAIDEN 3 の検証

RAIDEN 3 の検証として、物質移動のみの問題、液相化学種の反応と物質移動からなる問題、セメント成分を含む閉鎖系の化学反応問題、及びセメントとベントナイトを含む系における多成分反応移動問題について解析を行い、それぞれ、解析解や実験結果あるいは他の数値解析結果との比較を行った。

5.1. 拡散問題

以下の図に示すような長さ 1 m の一次元均質多孔質媒体を考えた。空隙率は 0.1, 実効拡散係数は $6.38 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{y}$ ($2 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$) とした。

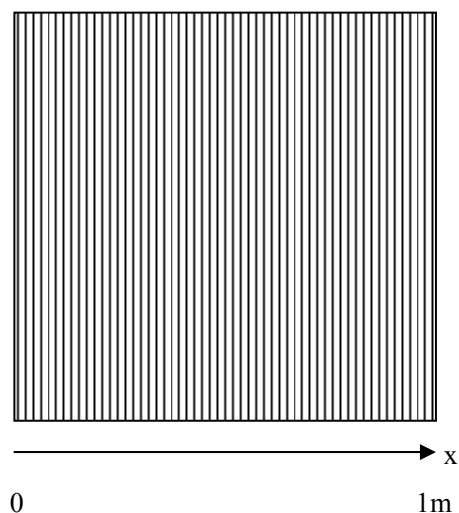


図 5-1 解析体系

5.1.1. パルス入力

パルス応答について解析解と比較するため、中央部を長さ 5mm, その両隣を 7.5mm, 残りを 1cm の 101 セルに分割した体系で解析を行った。初期条件として、中央部に $1 \text{ mol}/\text{dm}^3$ の濃度を与え、他は解析上無視できる $1 \times 10^{-20} \text{ mol}/\text{dm}^3$ を与えた。解析は、両側反射境界（ゼロフラックス）及び両側ゼロ濃度固定境界の 2 種類の境界条件について行った。以下に、時刻 $t = 0$, 位置 $x = x_0$ で強度 m_0 の単一パルスが生じた無限均質媒体に関する一次元拡散問題の解析解を示す。

$$C(x,t) = m_0 \frac{1}{2\sqrt{\pi Dt}} \exp\left\{-\left(\frac{x-x_0}{2\sqrt{Dt}}\right)^2\right\} \quad (31)$$

ここで、 $C(x,t)$ は、時刻 t 、位置 x における濃度、 D は拡散係数である。

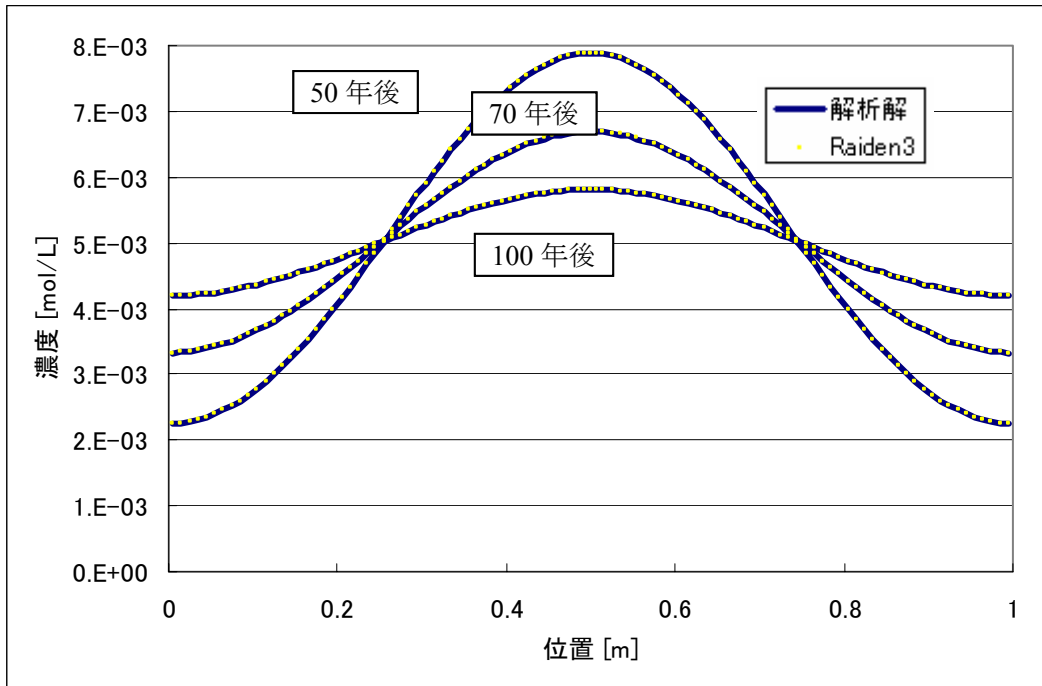
長さ 1 m の体系で両側を反射境界とした場合の解析解は、1 m 間隔に無限遠まで並んだ同じ強度のパルス列の応答で表すことができるため、以下の級数が得られる。

$$C(x,t) = m_0 \frac{1}{2\sqrt{\pi Dt}} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \exp\left\{-\left(\frac{x-x_{n0}}{2\sqrt{Dt}}\right)^2\right\}, \quad x_{n0} = 0.5 + n, \quad 0 \leq x \leq 1.0 \quad (32)$$

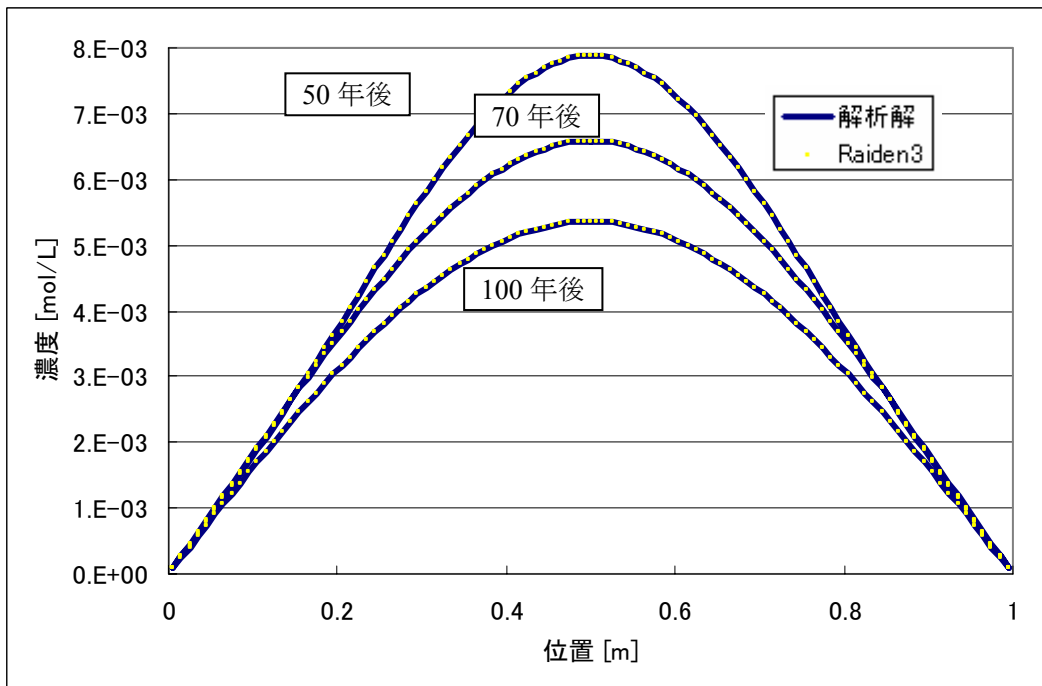
他方、長さ 1 m の体系で、両側ゼロ濃度固定境界の場合の解析解は、絶対値の等しい強度のパルスが、正負交互に 1 m 間隔で無限遠まで並んだパルス列の応答で表されるため、以下の級数が得られる。

$$C(x,t) = m_0 \frac{1}{2\sqrt{\pi Dt}} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \left[(-1)^n \cdot \exp\left\{-\left(\frac{x-x_{n0}}{2\sqrt{Dt}}\right)^2\right\} \right], \quad x_{n0} = 0.5 + n, \quad 0 \leq x \leq 1.0 \quad (33)$$

図 5-2 にパルス入力に関する解析解との比較を示す。RAIDEN3 の結果は、解析解とよく一致していることがわかる。



(a) 両側反射境界



(b) 両側ゼロ濃度境界

図 5-2 パルス入力に関する解析解と RAIDEN3 の結果の比較

5.1.2. 濃度固定境界

図 5-1 に示す体系を 100 等分割し、左側境界を濃度 1.0mol/dm^3 の濃度固定境界、右側境界を反射境界あるいはゼロ濃度境界とした RAIDEN3 の解析結果を媒体に関する一次元拡散問題に関する解析解と比較した。

以下に、時刻 $t=0$ 、位置 $x < 0$ で濃度 $C(x,0) = C_0$ 、位置 $x > 0$ で濃度 $C(x,0) = 0$ のステップ状の濃度分布が生じた媒体に関する一次元拡散問題の解析解を示す。これは、強度 C_0 のパルスを $x < 0$ で重ね合わせたものに等しいため、次式で表される。

$$C(x,t) = \int_{-\infty}^0 C_0 \frac{1}{2\sqrt{\pi Dt}} \exp\left\{-\left(\frac{x-x_0}{2\sqrt{Dt}}\right)^2\right\} dx_0 \quad (34)$$

ここで、 $C(x,t)$ は、時刻 t 、位置 x における濃度、 D は拡散係数である。さらに、 $z = \frac{x_0 - x}{\sqrt{2Dt}}$ と変数変換すると、

$$C(x,t) = C_0 \int_{-\infty}^{\frac{x}{\sqrt{2Dt}}} \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{z^2}{2}\right) dz \quad (35)$$

を得る。

上式の積分項は標準正規分布関数 $N(0,1)$ の $z = \frac{-x}{\sqrt{2Dt}}$ に等しい。ここで、位置 $x=0$ は、時間に寄らず、常に $C(0,t) = \frac{C_0}{2}$ となる。したがって、位置 $x=0$ における濃度固定境界は、 $t=0$ における固定濃度の 2 倍のステップ状濃度分布で表現できる。

長さ 1 m の体系で、 $x=1.0\text{m}$ における反射境界は、反射境界で対称となるように、2 m 間隔に正負が反転するステップ関数、ただし、 $x < 0$ では非ゼロの部分が $-\infty$ 方向に、 $x > 0$ では非ゼロの部分が ∞ 方向にあるもので表されることから、次の級数解が得られる。

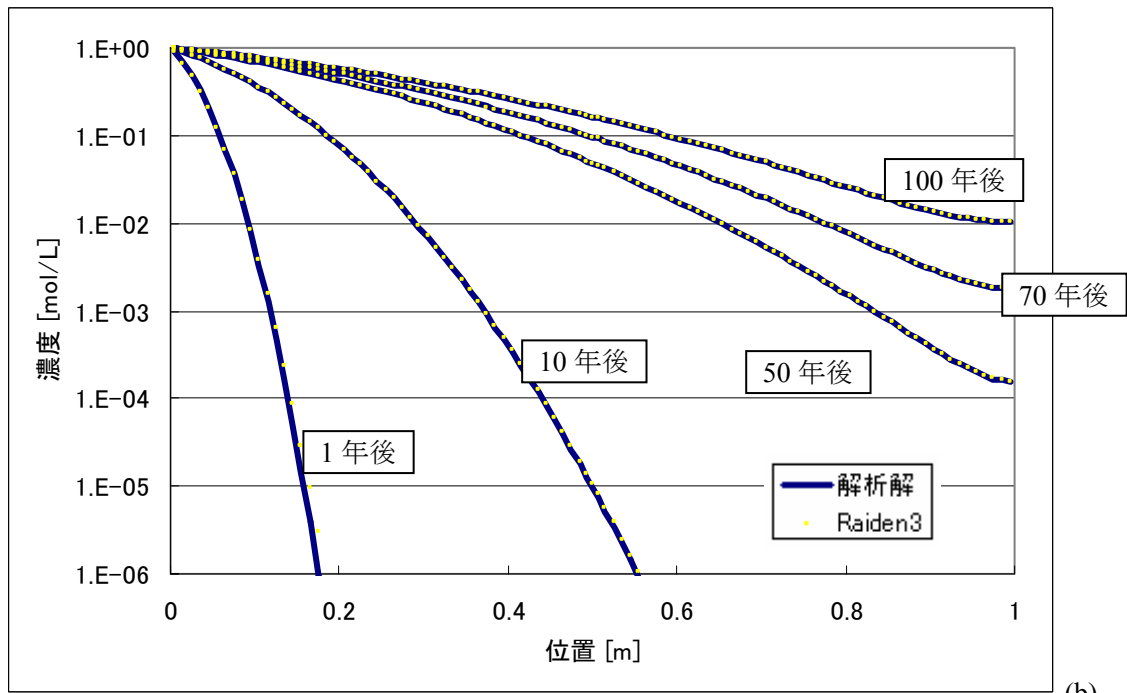
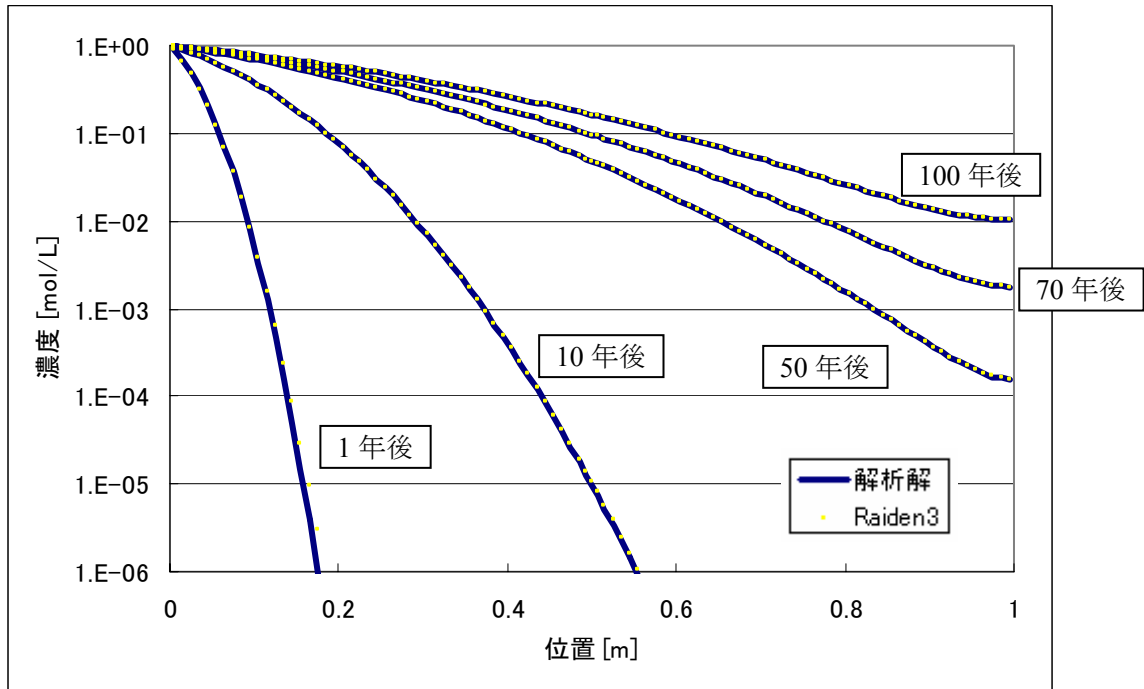
$$C(x,t) = \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n 2 \left(\int_{-\infty}^{\frac{2n+x}{\sqrt{2Dt}}} \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{z^2}{2}\right) dz + \int_{-\infty}^{\frac{2n+2-x}{\sqrt{2Dt}}} \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{z^2}{2}\right) dz \right) \quad (36)$$

長さ 1 m の体系で、 $x=1.0\text{m}$ におけるゼロ濃度境界は、ゼロ濃度境界で反転対称となるよ

うに，2 m 間隔のステップ関数，ただし， $x < 0$ では正の部分が $-\infty$ 方向に， $x > 0$ では負の部分が ∞ 方向にあるもので表されることから，次の級数解が得られる。

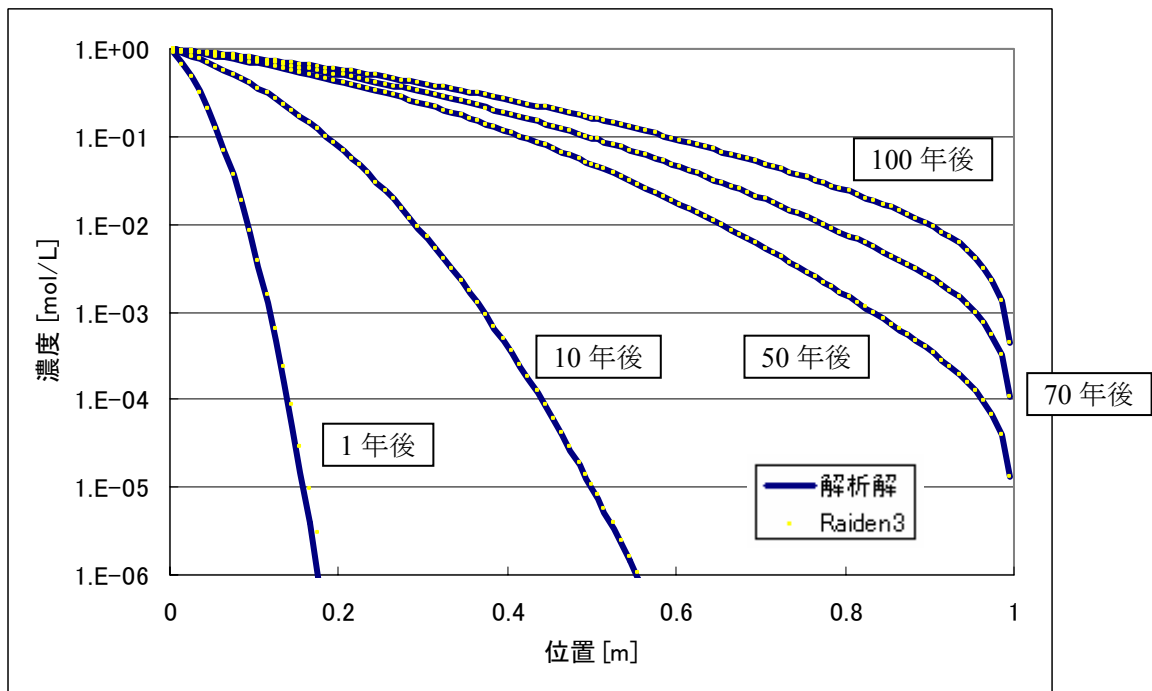
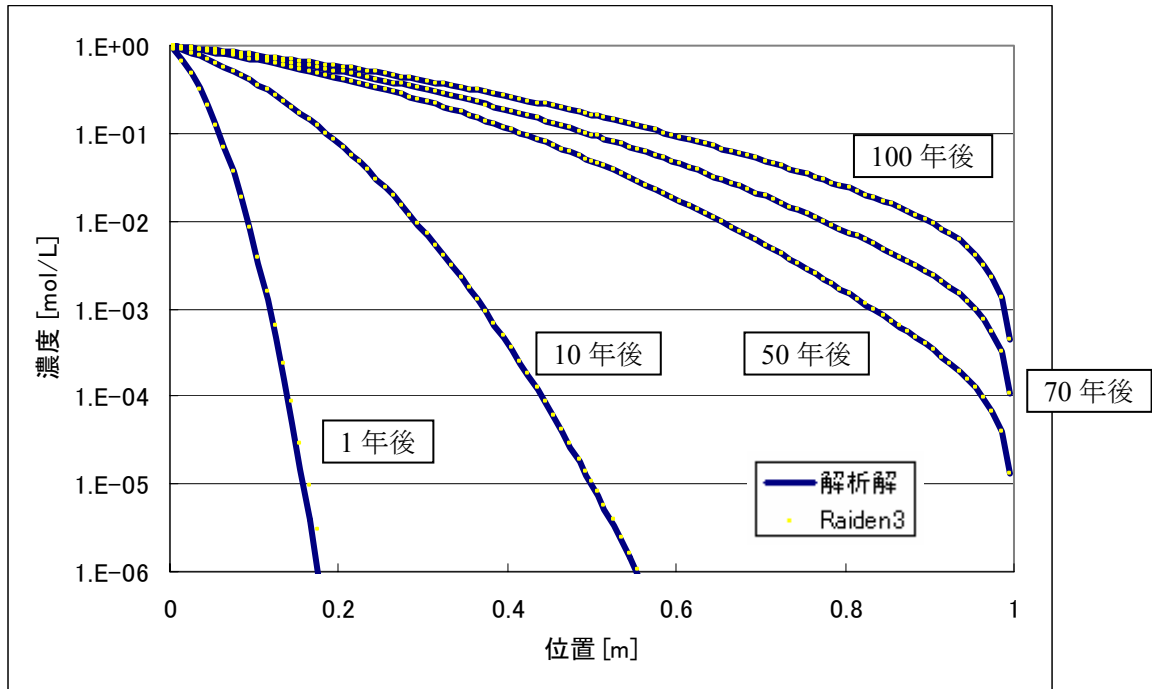
$$C(x,t) = \sum_{n=0}^{\infty} 2 \left(\int_{-\infty}^{\frac{2n+x}{\sqrt{2Dt}}} \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{z^2}{2}\right) dz - \int_{-\infty}^{\frac{2n+2-x}{\sqrt{2Dt}}} \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{z^2}{2}\right) dz \right) \quad (37)$$

図 5-3 に境界条件を考慮したステップ関数に関する解析解との比較を示す。RAIDEN3 の結果は，いずれの条件においても解析解とよく一致していることがわかる。



右側反射境界

(b)

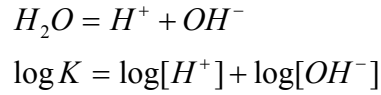


(b) 右側ゼロ濃度境界

図 5-3 濃度固定境界に関する解析解と RAIDEN3 の結果の比較

5.2. 液相反応を伴う拡散

図 5-1 と同様の体系で，以下の水の解離・結合反応のみを考慮した解析を行った。



また，初期 $t=0$ において，中央 $x=0.5m$ より左側の pH を 6，右側の pH を 7 とし，両側の境界は反射境界とした。

上記の化学反応がある場合の水素イオン及び水酸基イオンの拡散方程式は，以下のよう
に表すことができる。

$$\frac{dC_{H^+}}{dt} = D \frac{d^2 C_{H^+}}{dx^2} - R$$
$$\frac{dC_{OH^-}}{dt} = D \frac{d^2 C_{OH^-}}{dx^2} - R \quad (38)$$

ここで，拡散係数は，化学種によらず，時間及び空間について変化しないとした。また， R は，溶液中の瞬時平衡反応による水の生成速度である。両式を引いて R を消去すると，次式を得る。

$$\frac{d(C_{H^+} - C_{OH^-})}{dt} = D \frac{d^2(C_{H^+} - C_{OH^-})}{dx^2} \quad (39)$$

これは， $C = C_{H^+} - C_{OH^-}$ についての線形の拡散方程式であり，初期にステップ状の濃度分布を持つ体系の解析解は，5.1.2 で示したとおりである。そこで， C についての線形の拡散問題についての解析解を用い，さらに，質量作用式を適用することにより水素イオン及び水酸基イオンそれぞれの濃度分布を算出することができる。

図 5-4 に解析解と質量作用式とを連立して求めた解と RAIDEN3 の計算結果の比較を示す。ここでも，両者はよく一致していることがわかる。

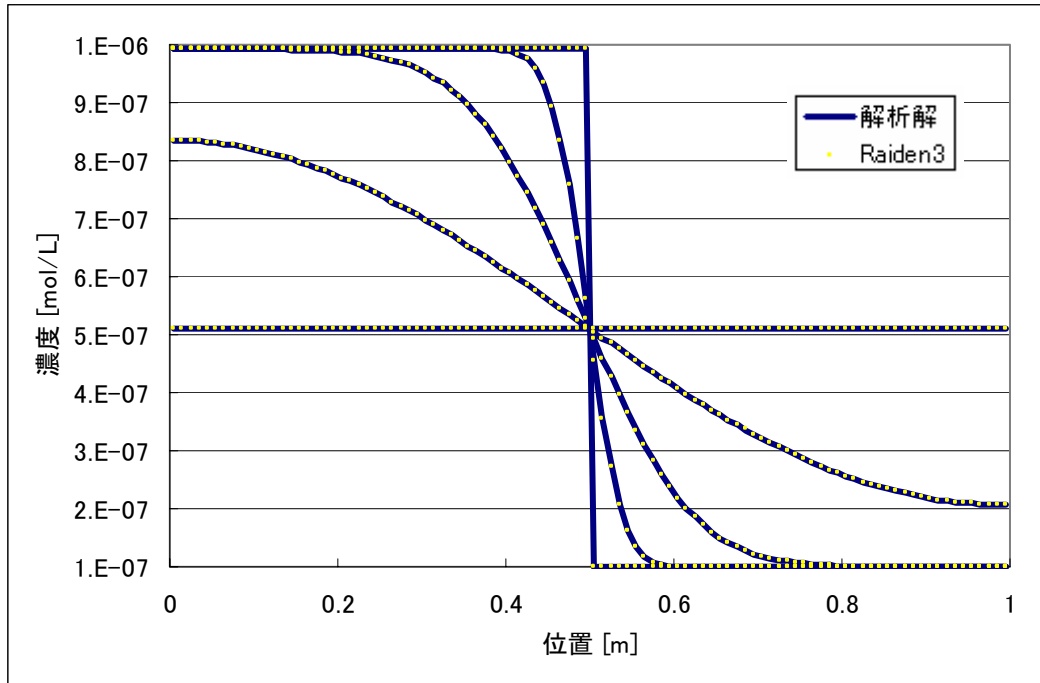


図 5-4 境界条件を考慮したステップ関数の応答に関する解析解(n=0,1,2)と RAIDEN3 の結果の H^+ の濃度分布についての比較

5.3. セメントに含まれる固相の閉鎖系での溶解平衡

既往の研究においては、セメントに含まれる水和物を合成した試料を用いた溶解実験が行われており（前田ほか, 2005）、ここでは、その結果と RAIDEN 3 及び PHREEQC による解析結果との比較を行うとともに、セメントを構成する固相についての溶解平衡についての検証の事例として以下にその概要を取りまとめる。

セメントに含まれる主要な固相のうちカルシウムシリケート水和物（以下、C-S-H）は溶解に伴い、Ca/Si モル比（以下 C/S 比）が変化することから、溶解試験は行わずに、合成した時の液相を分析することにより平衡溶解液相が求められている。また、カルシウムアルミネート系水和物の溶解現象については、浸漬水と水和物の重量比（以下、液固比）を変えて溶解試験を実施し、pH の変化を観察して安定した時点での液相分析結果に基づき化学平衡時の液相組成が決定されている。

5.3.1. C-S-H についての検証結果

C-S-H は固相の C/S 比に応じて平衡液相濃度や pH が変化することから、C/S 比に応じた Ca, Si 濃度と pH の関係式や C-S-H の熱力学データを算出するモデルが提案されている。ここでは、Atkinson et al., (1991), Berner (1988) 及び杉山ら (2001) によるモデルをそれぞれ用

いてカルシウムシリケート水和物の平衡組成を計算し、分析結果との比較が行われている。それぞれのモデルにおける溶解反応の定式化は表 5-1 ～表 5-3 にまとめるとおりである。

表 5-1 C-S-H 溶解モデル (Atkinson et.al., 1991)

C-S-H	Reaction	LogK
C-S-H(1.8)	$\text{CaO}(\text{SiO}_2)0.556:1.047\text{H}_2\text{O} + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + 0.556\text{H}_4\text{SiO}_4 + 0.935\text{H}_2\text{O}$	17.887
C-S-H(1.5)	$\text{CaO}(\text{SiO}_2)0.667:1.056\text{H}_2\text{O} + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + 0.667\text{H}_4\text{SiO}_4 + 0.722\text{H}_2\text{O}$	16.928
C-S-H(1.3)	$\text{CaO}(\text{SiO}_2)0.769:1.059\text{H}_2\text{O} + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + 0.769\text{H}_4\text{SiO}_4 + 0.521\text{H}_2\text{O}$	16.133
C-S-H(1.1)	$\text{CaO}(\text{SiO}_2)0.909:1.076\text{H}_2\text{O} + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + 0.909\text{H}_4\text{SiO}_4 + 0.258\text{H}_2\text{O}$	15.191
C-S-H(1.0)	$\text{CaO}(\text{SiO}_2)1.0833\text{H}_2\text{O} + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + \text{H}_4\text{SiO}_4 + 0.0833\text{H}_2\text{O}$	14.67
C-S-H(0.9)	$\text{CaO}(\text{SiO}_2)1.111:1.092\text{H}_2\text{O} + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + 1.111\text{H}_4\text{SiO}_4 - 0.130\text{H}_2\text{O}$	14.139
C-S-H(0.833)	$\text{CaO}(\text{SiO}_2)1.2:1.10\text{H}_2\text{O} + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + 1.200\text{H}_4\text{SiO}_4 - 0.300\text{H}_2\text{O}$	13.826
C-S-H(0.6)	$\text{CaO}(\text{SiO}_2)1.665:1.10\text{H}_2\text{O} + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + 1.665\text{H}_4\text{SiO}_4 - 1.23\text{H}_2\text{O}$	12.302
C-S-H(0.4)	$\text{CaO}(\text{SiO}_2)2.50:1.10\text{H}_2\text{O} + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + 2.50\text{H}_4\text{SiO}_4 - 2.90\text{H}_2\text{O}$	9.925

表 5-2 C-S-H 溶解モデル (Berner, 1988)

Ca / Si	Reaction	LogK
0	$\text{SiO}_2 = \text{H}_4\text{SiO}_4 - 2\text{H}_2\text{O}$	-2.7
$0 < \text{Ca}/\text{Si} \leq 1$	$\text{SiO}_2 = \text{H}_4\text{SiO}_4 - 2\text{H}_2\text{O}$	$-2.04 + \frac{0.792}{C/S - 1.2}$
	$\text{CaH}_2\text{SiO}_4 = \text{Ca}^{2+} + \text{H}_2\text{SiO}_4^{2-}$	$-8.16 - \frac{1 - C/S}{C/S} \left(0.78 + \frac{0.792}{C/S - 1.2} \right)$
$1 < \text{Ca}/\text{Si} \leq 2.5$	$\text{Ca}(\text{OH})_2 = \text{Ca}^{2+} + 2\text{OH}^-$	$-4.945 - \frac{0.338}{C/S - 0.85}$
	$\text{CaH}_2\text{SiO}_4 = \text{Ca}^{2+} + \text{H}_2\text{SiO}_4^{2-}$	-8.16
$\text{Ca}/\text{Si} \geq 2.5$	$\text{Ca}(\text{OH})_2 = \text{Ca}^{2+} + 2\text{OH}^-$	-5.15
	$\text{CaH}_2\text{SiO}_4 = \text{Ca}^{2+} + \text{H}_2\text{SiO}_4^{2-}$	-8.16

表 5-3 C-S-H 溶解モデル (杉山ほか, 2001)

Ca / Si	Reaction	LogK
$0 < \text{Ca}/\text{Si} \leq 0.461$	$\text{SiO}_2 = \text{H}_4\text{SiO}_4 - 2\text{H}_2\text{O}$	$\log \left[K_s \cdot 0 \left\{ \frac{1}{(\text{Ca}/\text{Si}) + 1} \right\} \right]$
	$\text{Ca}(\text{OH})_2 + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + 2\text{H}_2\text{O}$	$\frac{(\text{Ca}/\text{Si})}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \log K_{s0} - \frac{(\text{Ca}/\text{Si})}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \log \left(\frac{\text{Ca}/\text{Si}}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \right) + \left[\frac{(\text{Ca}/\text{Si})}{[1 + (\text{Ca}/\text{Si})]^2} \right] \left[37.019 + 36.724 \left(\frac{\text{Ca}/\text{Si} - 1}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \right) + 164.17 \left(\frac{\text{Ca}/\text{Si} - 1}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \right)^2 \right]$
$0 < \text{Ca}/\text{Si} \leq 0.833$	$\text{SiO}_2 = \text{H}_4\text{SiO}_4 - 2\text{H}_2\text{O}$	$\frac{1}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \log K_{s0} - \frac{1}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \log \left(\frac{1}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \right) + \left[\frac{(\text{Ca}/\text{Si})}{[1 + (\text{Ca}/\text{Si})]^2} \right] \left[-18.623 + 57.754 \left(\frac{1 - (\text{Ca}/\text{Si})}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \right) - 58.241 \left(\frac{1 - (\text{Ca}/\text{Si})}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \right)^2 \right]$
	$\text{Ca}(\text{OH})_2 + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + 2\text{H}_2\text{O}$	$\frac{(\text{Ca}/\text{Si})}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \log K_{s0} - \frac{(\text{Ca}/\text{Si})}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \log \left(\frac{\text{Ca}/\text{Si}}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \right) + \left[\frac{(\text{Ca}/\text{Si})}{[1 + (\text{Ca}/\text{Si})]^2} \right] \left[37.019 + 36.724 \left(\frac{\text{Ca}/\text{Si} - 1}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \right) + 164.17 \left(\frac{\text{Ca}/\text{Si} - 1}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \right)^2 \right]$
$0 < \text{Ca}/\text{Si} \leq 1.755$	$\text{SiO}_2 = \text{H}_4\text{SiO}_4 - 2\text{H}_2\text{O}$	$\frac{1}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \log K_{s0} - \frac{1}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \log \left(\frac{1}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \right) + \left[\frac{(\text{Ca}/\text{Si})}{[1 + (\text{Ca}/\text{Si})]^2} \right] \left[-18.666 + 49.712 \left(\frac{1 - (\text{Ca}/\text{Si})}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \right) + 25.033 \left(\frac{1 - (\text{Ca}/\text{Si})}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \right)^2 \right]$
	$\text{Ca}(\text{OH})_2 + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + 2\text{H}_2\text{O}$	$\frac{(\text{Ca}/\text{Si})}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \log K_{s0} - \frac{(\text{Ca}/\text{Si})}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \log \left(\frac{\text{Ca}/\text{Si}}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \right) + \left[\frac{(\text{Ca}/\text{Si})}{[1 + (\text{Ca}/\text{Si})]^2} \right] \left[36.937 + 7.830 \left(\frac{\text{Ca}/\text{Si} - 1}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \right) + 50.792 \left(\frac{\text{Ca}/\text{Si} - 1}{1 + (\text{Ca}/\text{Si})} \right)^2 \right]$
$1.755 < \text{Ca}/\text{Si}$	$\text{SiO}_2 = \text{H}_4\text{SiO}_4 - 2\text{H}_2\text{O}$	-7.853
	$\text{Ca}(\text{OH})_2 + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + 2\text{H}_2\text{O}$	22.81

$\log K_{s0} = -2.710$ (HATCHES)

$\log K_{s0} = 22.81$ (HATCHES)

RAIDEN 3 と PHREEQC を用いて上記の 3 種類の溶解モデルに従い算出した液相組成を各 C/S 比の C-S-H 試料を合成した際の分析結果ならびに既往の研究における実験結果とともにプロットしたものが図 5-5～図 5-7 である。RAIDEN 3 と PHREEQC の対応する計算結果の間の相違は顕著ではなく、むしろ溶解モデルの選択によって結果が変動していることがわかる。また、これらのいずれの解析結果も実験において見られた傾向を良く再現しており、試料調整方法や実験条件の相違に起因する実験結果のばらつきと比較して、解析結果の間の差異は顕著なものではないと考えられる。

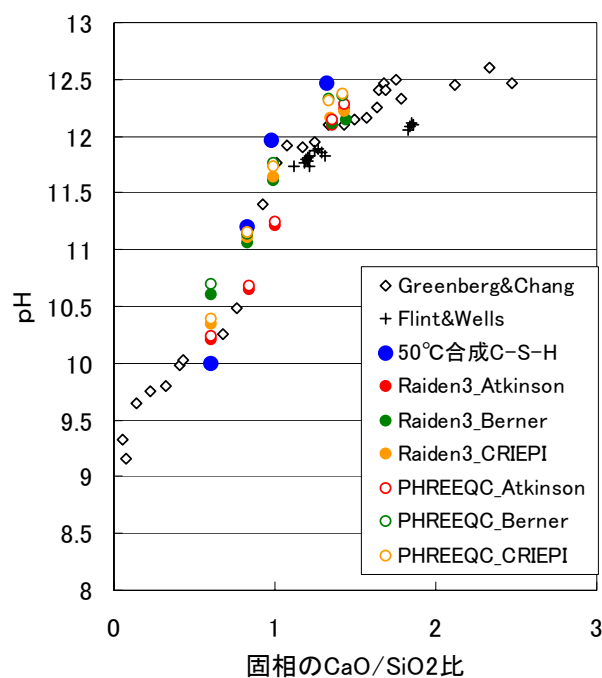


図 5-5 C-S-H の C/S 比と pH の関係 (前田ほか, 2005)

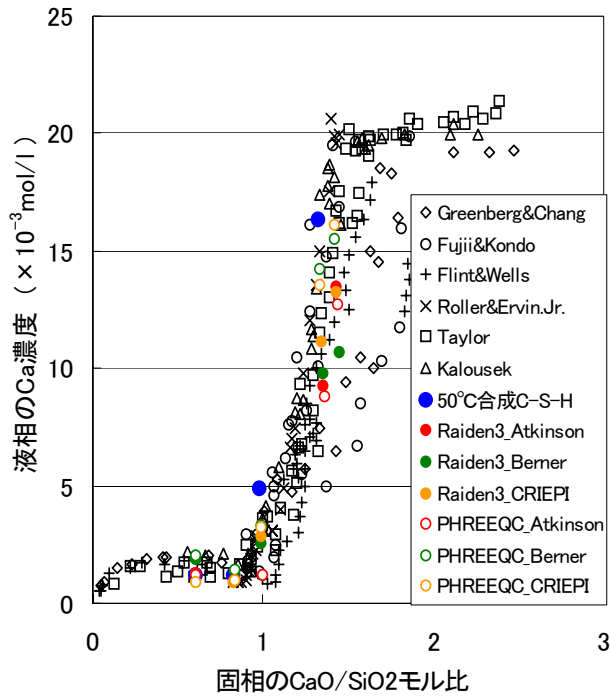


図 5-6 C-S-H の C/S 比と液相 Ca 濃度の関係 (前田ほか, 2005)

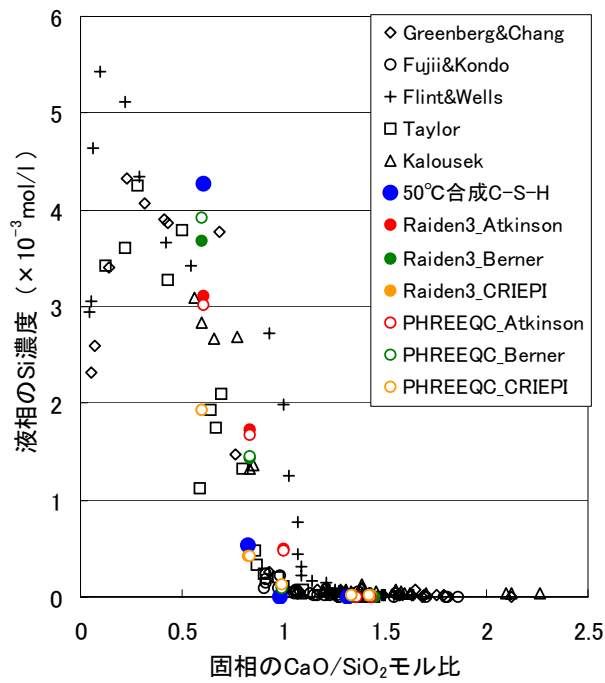


図 5-7 C-S-H の C/S 比と液相 Si 濃度の関係 (前田ほか, 2005)

5.3.2. カルシウムアルミネート系水和物についての検証結果

同様に、種々のカルシウムアルミネート系水和物についての RAIDEN 3 と PHREEQC による計算結果を溶解試験結果と比較した結果を表 5-4 及び表 5-5 にまとめる。モノサルフェート水和物及びハイドロガーネットのいずれの場合にも解析結果は pH を若干過小評価する傾向があるものの、実験結果に見られる傾向を整合的に再現しているといえることができる。また、ここでも、RAIDEN 3 と PHREEQC という計算コード間の差異に比して使用する熱力学データベース間の差異の方が大きいことがわかる。

表 5-4 溶解試験についての検証結果（モノサルフェート水和物）（前田ほか, 2005）

				Liquid to solid ratio	Crystal phases in the solid samples after leaching	Composition of leached water			
						pH	Ca (mol/l)	Al (mol/l)	S (mol/l)
Experiment				10	AFm-S	11.93	4.73×10^{-3}	2.61×10^{-3}	3.49×10^{-5}
				100	AFm-S, AFt	11.99	5.52×10^{-3}	3.72×10^{-3}	8.09×10^{-6}
				1000	AFt	11.69	2.98×10^{-3}	1.82×10^{-3}	9.14×10^{-5}
Atkins et al., (1992)				—	—	12.27	5.05×10^{-3}	2.70×10^{-3}	2.00×10^{-5}
Calculation	G. code	DataBase	LogK						
	PHREEQC	JNC-TDB	AFm-S:73.8331 ^{*4}	100	—	11.70	6.06×10^{-3}	3.03×10^{-3}	1.51×10^{-3}
			AFm-S:73.8331 ^{*4} AFt:58.2419 ^{*1}	100	—	11.98	8.96×10^{-3}	5.97×10^{-3}	1.00×10^{-5}
			AFm-S:-29.25 ^{*5}	100	—	11.50	3.91×10^{-3}	1.96×10^{-3}	9.80×10^{-4}
		HATCHES	AFm-S:-29.25 ^{*5} AFt:-43.94 ^{*2}	100	—	11.72	4.67×10^{-3}	3.09×10^{-3}	3.00×10^{-5}
			AFm-S:-31.94 ^{*5}	100	—	11.30	2.28×10^{-3}	1.14×10^{-3}	5.70×10^{-4}
			AFm-S:-31.49 ^{*5} AFt:-44.74 ^{*2}	100	—	11.36	2.21×10^{-3}	1.29×10^{-3}	2.70×10^{-4}
	RAIDEN3	JNC-TDB	AFm-S:73.8331 ^{*4}	100	—	11.59	5.23×10^{-3}	2.61×10^{-3}	1.30×10^{-3}
			AFm-S:73.8331 ^{*4} AFt:58.2419 ^{*1}	100	—	11.85	7.56×10^{-3}	5.04×10^{-3}	1.00×10^{-5}
			AFm-S:71.0104 ^{*4}	100	—	11.32	2.60×10^{-3}	1.30×10^{-3}	6.50×10^{-4}
		HATCHES	AFm-S:71.0104 ^{*4} AFt:56.3204 ^{*3}	100	—	11.48	2.89×10^{-3}	1.90×10^{-3}	4.00×10^{-5}
			AFm-S:68.7704 ^{*4}	100	—	11.11	1.52×10^{-3}	7.60×10^{-4}	3.80×10^{-4}
			AFm-S:68.7704 ^{*4} AFt:55.5204 ^{*3}	100	—	11.12	1.51×10^{-3}	7.80×10^{-4}	3.40×10^{-4}

^{*3} JNC-TDBに準じLogKを再計算した。 $\text{Ca}_6\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3(\text{OH})_{12} \cdot 26\text{H}_2\text{O} + 12\text{H}^+ = 6\text{Ca}^{2+} + 2\text{Al}^{3+} + 3\text{SO}_4^{2-} + 38\text{H}_2\text{O}$

^{*4} $(\text{CaO})_3\text{Al}_2\text{O}_3(\text{CaSO}_4) \cdot 12\text{H}_2\text{O} + 12\text{H}^+ = 4\text{Ca}^{2+} + 2\text{Al}^{3+} + \text{SO}_4^{2-} + 18\text{H}_2\text{O}$

^{*5} $(\text{CaO})_3\text{Al}_2\text{O}_3(\text{CaSO}_4) \cdot 12\text{H}_2\text{O} = 4\text{Ca}^{2+} + 2\text{Al}(\text{OH})_4^- + \text{SO}_4^{2-} + 4\text{OH}^- + 6\text{H}_2\text{O}$

表 5-5 溶解試験についての検証結果（ハイドロガーネット）（前田他, 2005）

				Liquid to solid ratio	Crystal phases in the solid samples after leaching	Composition of leached water					
						pH	Ca (mol/l)	Al (mol/l)			
Experiment				10	H.G.	12.14	7.90×10^{-3}	4.83×10^{-3}			
				100	H.G.	12.12	8.10×10^{-3}	5.39×10^{-3}			
				1000	H.G.	12.03	6.54×10^{-3}	4.32×10^{-3}			
Atkins et al., (1992)				—	—	12.41	6.14×10^{-3}	4.57×10^{-3}			
Calculation	G. code	DataBase	LogK	100	—						
	PHREEQC	JNC-TDB	81.5826 ^{*7}						11.97	8.83×10^{-3}	5.89×10^{-3}
		CEMENT II	77.979 ^{*7}						11.55	3.06×10^{-3}	2.04×10^{-3}
		HATCHES	79.38 ^{*7}						11.72	4.59×10^{-3}	3.06×10^{-3}
	RAIDEN3	JNC-TDB	81.5826 ^{*7}						11.84	7.45×10^{-3}	4.97×10^{-3}
		CEMENT II	77.979 ^{*7}						11.44	2.56×10^{-3}	1.71×10^{-3}
		HATCHES	79.38 ^{*7}						11.60	3.85×10^{-3}	2.56×10^{-3}

^{*7} $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{O}_6 \cdot 6\text{H}_2\text{O} + 12\text{H}^+ = 3\text{Ca}^{+2} + 2\text{Al}^{+3} + 12\text{H}_2\text{O}$

6. PHREEQC-TRANS と RAIDEN 3 の比較検証

前章までに、PHREEQC-TRANS 及び RAIDEN 3 の二つの計算コードについて、物質移行計算及び化学反応計算機能に関する検証結果をそれぞれ記述した。ここでは、これらの検証結果を踏まえた上で、PHREEQC-TRANS 及び RAIDEN 3 の両コードに対して、解析モデルの体系、セメント系材料及び緩衝材の仕様、初期鉱物及び二次鉱物の組み合わせ並びに解析パラメータを同様の設定とした化学反応物質移行連成解析を実施し、両コードによる計算結果を比較することとする。

6.1. 計算条件

6.1.1. 解析モデルの体系

(1) TRU 廃棄物処分坑道

解析対象とした TRU 廃棄物処分坑道の鉛直断面を図 6-1 に示す。

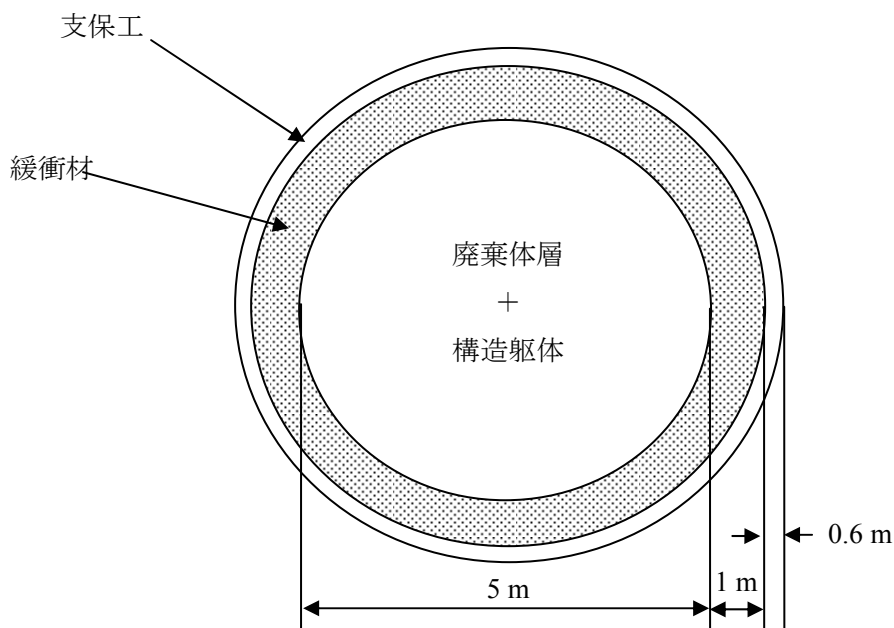


図 6-1 解析対象とした処分坑道の鉛直断面

(i) 差分メッシュ

図 6-1 に示した処分坑道を RAIDEN 3 において 1 次元解析モデルで表現する際の差分メッシュを図 6-2 に示す。なお、比較対象とする PHREEQC-TRANS における差分メッシュは、異なる。

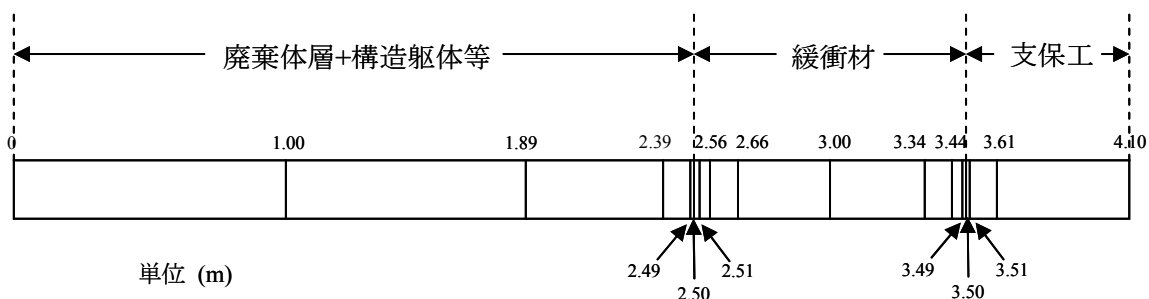


図 6-2 1 次元解析モデルにおける差分メッシュの配置

(2) 各材料の仕様

(i) ベントナイト

解析で想定したベントナイトの仕様を表 6-1 まとめる。

表 6-1 ベントナイト仕様

パラメータ	設定値	
モンモリロナイト密度	2.7	Mg/m ³
ケイ砂密度	2.64	Mg/m ³
モンモリロナイト配合率	70%	SRHP は 80%
スメクタイト比	0.48	
B/W 比	2776.6277	g/ dm ³
間隙率	0.403367	

鉱物名	分子式	クニゲル V1 (%)	分子量	設定値	ケイ砂
スメクタイト	—	46~49		48.0%	
石英	SiO ₂	0.5~0.7	60.0843	0.6%	
玉髄	SiO ₂	37~38	60.0843	38.0%	100%
斜長石	NaAlSi ₃ O ₈	2.7~5.5	262.2222	4.7%	
方解石	CaCO ₃	2.1~2.6	100.0892	2.4%	
苦灰石	MgCO ₃	2.0~2.8	84.3142	2.4%	
方沸石	NaAlSi ₂ O ₆ H ₂ O	3.0~3.5	238.1683	3.3%	
黄鉄鉱	FeS ₂	0.5~0.7	119.979	0.6%	

(ii) モルタル及びコンクリート

解析で想定したコンクリート及びモルタルの仕様を表 6-2 にまとめる。

表 6-2 コンクリート及びモルタルの仕様

		コンクリート (mol/m ³)	モルタル (mol/m ³)
C ₃ AH ₆		134	215
C ₃ FH ₆		49	79
MH		147	237
C ₆ As ₃ H ₃₂		25	40
C ₄ AsH ₁₂		0	0
KOH		36	58
NaOH		23	37
C-S-H ゲル		1938	3121
CH		879	1415
Cl		1	1
杉山モデルで の固相	CSH-CH	2817	4536
	CSH-S	1078	1735
C/S モル比 (-)		2.61	2.61
間隙率 (-)		0.13	0.19
真密度 (Mg/m ³)		2.63	2.58

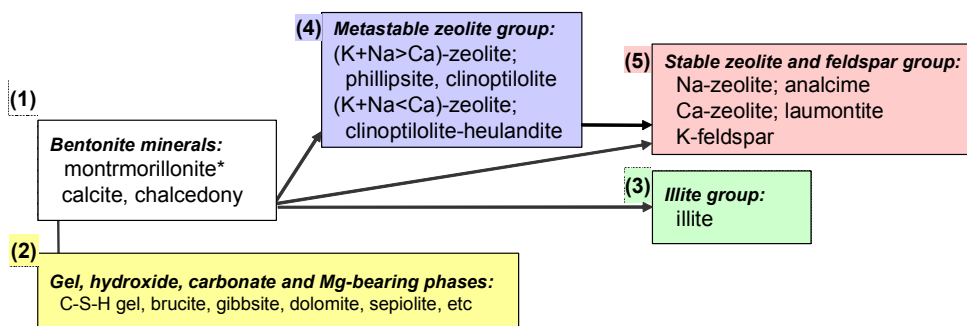
(3) 考慮する鉱物

(i) 緩衝材成分

緩衝材中に初期に存在する鉱物については、表 6-1 に示すもののうち、モンモリロナイト、石英、玉髄、及び方解石を考慮する。なお、モンモリロナイトについては、Na 型、Ca 型、Mg 型及び K 型を考慮するが、これらの間のイオン交換は想定せず、それぞれの成分が独立して溶解するものと仮定する。

(ii) 二次鉱物

二次鉱物としては、図 6-3 に示す鉱物変遷シナリオのうち、第 2 次 TRU レポートの 4.4.2 において主として検討対象としたケース 7 に相当するものを考慮する。



simulation case	scenario	primary mineral and potential secondary mineral
1	illitization	(1) (2) (3)
2	metastable zeolite formation	(1) (2) (4)
3	stable solid phase formation	(1) (2) (5)
4	illite/metastable zeolite formation	(1) (2) (3) (4)
5	illite/stable phases formation	(1) (2) (3) (5)
6	metastable zeolite/stable phases formation	(1) (2) (4) (5)
7	thermodynamically equilibrium system	(1) (2) (3) (4) (5)
8	cement crystallization	(1) (2) (3) (5)

* It is assumed that the montmorillonite dissolution is controlled by kinetics

** Tobermorite, jennite and afwillite are assumed as potential products instead of C-S-H gel

図 6-3 複数の鉱物変遷シナリオ (小田ほか, 2005)

(4) 解析パラメータ

(i) 熱力学データ

解析に用いた熱力学データは、JNC-TDB. TRU である。なお、CSH ゲルに対する固溶体モデルは杉山モデルを用いた。

(ii) モンモリロナイト溶解速度

解析で想定した佐藤- Cama モデルは以下のとおりである (モンモリロナイトの比表面積

は式によらず $7[\text{m}^2/\text{g}]$ とした)。なお、他の鉱物の溶解及び沈殿についてはいずれも瞬時平衡にあるものと仮定した。

$$Rate = \left(4.74 \cdot 10^{-6} \cdot e^{-3957/RT} \cdot \frac{177 \cdot e^{2037/RT} \cdot a_{OH}}{1 + 177 \cdot e^{2037/RT} \cdot a_{OH}} + 1.70 \cdot e^{-6967/RT} \cdot \frac{0.0297 \cdot e^{2353/RT} \cdot a_{OH}}{1 + 0.0297 \cdot e^{2353/RT} \cdot a_{OH}} \right) \cdot A_{min} \cdot \{1 - \exp(-610^{10} \cdot (2 \cdot \Delta Gr/RT)^6)\} \quad (40)$$

Rate: モンモリロナイト溶解速度 [mol/s]

A_{min}: 鉱物の反応表面積 [m²]

T: 絶対温度 [K]

R: 気体定数 [kJ/K/mol]

(iii) 物質移動に関するパラメータ

変質中のコンクリート及びベントナイトでは空隙率の変化により物質移動特性が変化するものと考えられる。そこで、感度解析ケースのうち空隙閉塞ありとしたものについては表 6-3 に示す変質材料を用いた拡散試験結果から経験的に算出された近似式を仮定することとした。また、各メッシュにおける各時刻での空隙率は、初生鉱物及び二次鉱物それぞれの濃度 (mol) とモル体積とから算出することとし、ここでは、表 6-4 に示すデータを用いた。

表 6-3 コンクリート及びベントナイト中の物質移動特性の変質程度依存性 (60°C)

実効拡散係数 (m ² /s)	コンクリート	$4.0 \times 10^{-9} \times \varepsilon^{3.05}$, ε : 空隙率
	ベントナイト	$4.0 \times 10^{-9} \times \varepsilon^n$, $n = 2.22fs^{0.13} + 1$, fs: スメクタイト含有率
透水係数 <i>K</i> (m/s)	コンクリート	$4.34 \times 10^{-9} \times \varepsilon^3 \times (1 - \varepsilon)^{-2}$
	ベントナイト	(41)式

$$K = K_0 10^{1.30C_i} e^{3.48C_i} \quad (41)$$

ただし、

$$K_0 = \begin{cases} (0.91 - 1.57 \cdot ESP + 2.00 \cdot ESP^2) \times 10^{-13} \times e_{sme}^{7.44 - 5.69 \cdot ESP} \cdots e_{sme} \leq 7.0 \\ K_0|_{e_{sme}=7.0} \cdot \left(\frac{e_{sme}}{7.0}\right)^{11.4} \cdots e_{sme} > 7.0 \end{cases}$$

*K*₀: 当量イオン濃度が 0~0.01 eq/dm³ の溶液を用いて得られる透水係数

C_i: 溶液の当量イオン濃度 (eq/dm³)

ESP : 交換性ナトリウム率

e_{sme} : 有効スメクタイト間隙比

なお, (41)式は以下の条件の下で成立する。

$$C_i \leq C_{it} = 10^{1.49 \cdot ESP - 1.0},$$

$$K_0|_{ESP=1} \leq K_0 \leq 1.0 \cdot 10^{-5},$$

$$\frac{K}{K_0} \leq 10^{1.63 \cdot e_{sme} - 0.24}$$

C_{it} : 臨界当量イオン濃度(eq/ dm³)

表 6-4 二次鉱物のモル体積等(1/2)

鉱物 (組成式)	式量	モル体積	出典(比重の出典)
	g/mol	cm ³ /mol	
<u>ベントナイト初期鉱物</u>			
モンモリロナイト Na _{0.33} Mg _{0.33} Al _{1.67} Si ₄ O ₁₀ (OH) ₂	367.0	134.3	(鈴木ほか, 1992)
Ca _{0.165} Mg _{0.33} Al _{1.67} Si ₄ O ₁₀ (OH) ₂	366.0	133.3	
K _{0.33} Mg _{0.33} Al _{1.67} Si ₄ O ₁₀ (OH) ₂	372.3	137.4	
Mg _{0.165} Mg _{0.33} Al _{1.67} Si ₄ O ₁₀ (OH) ₂	363.4	131.2	
カルセドニ SiO ₂	60.1	22.7	(地学団体研究会, 1996)
カルサイト CaCO ₃	100.1	36.9	(地学団体研究会, 1996)
<u>セメント初期鉱物</u>			
Ca ₃ Al ₂ (OH) ₁₂ (C ₃ AH ₆)	378.3	150.1	Glasser et al., 1998
Mg(OH) ₂	58.3	24.6	(地学団体研究会, 1996)
杉山モデルにおける Ca(OH) ₂	74.1	33.1	
杉山モデルにおける SiO ₂	60.1	22.7	
エトリンサイト Ca ₆ Al ₂ (SO ₄) ₃ (OH) ₁₂ ·26H ₂ O	1255.1	(100)	仮定
<u>二次鉱物</u>			
フィリップサイト (K _{2.8} Na _{3.2} Ca _{0.8})Al _{7.6} Si _{24.4} O ₆₄ ·24H ₂ O *1	320.2	145.6	(地学団体研究会, 1996)
フィリップサイト (K _{1.2} Na _{1.4} Ca _{2.4})Al _{7.4} Si _{24.6} O ₆₄ ·24H ₂ O *1	315.3	143.3	(地学団体研究会, 1996)
クリノタイロライト (K _{2.3} Na _{1.7} Ca _{1.4})Al _{6.8} Si _{29.2} O ₇₂ ·26H ₂ O *2	468.21	212.8	(地学団体研究会, 1996)
クリノタイロライト (K _{0.8} Na _{0.4} Ca _{2.8})Al _{6.8} Si _{29.2} O ₇₂ ·26H ₂ O *2	462.8	210.4	(地学団体研究会, 1996)
ヒューランダイト (K _{0.4} NaCa _{3.3})Al ₈ Si ₂₈ O ₇₂ ·26H ₂ O *2	465.6	211.6	(地学団体研究会, 1996)
ローモンタイト CaAl ₂ Si ₄ O ₁₂ ·4H ₂ O	470.4	204.5	(地学団体研究会, 1996)
アナルサイム NaAlSi ₂ O ₆ ·H ₂ O	220.2	97.1	(地学団体研究会, 1996)

表 6-4 次鉱物のモル体積等 (2/2)

鉱物 (組成式)	式量 g/mol	モル体積 cm ³ /mol	出典(比重の出典)
カリ長石 $KAlSi_3O_8$	278.3	108.9	(地学団体研究会, 1996)
イライト $K_{0.6}Mg_{0.25}Al_{2.3}Si_{3.5}O_{10}(OH)_2$	384.0	138.9	(地学団体研究会, 1996)
セピオライト $Mg_4Si_6O_{15}(OH)_2 \cdot 6H_2O$	647.8	285.6	(地学団体研究会, 1996)
C_3ASH_4 $Ca_3Al_2SiO_8 \cdot 4H_2O$	402.4	(100)	仮定
C_4ASH_{13}	560.5	(100)	仮定
C_4ASH_{19}	668.6	(100)	仮定
ゲーレンナイト水和物 $Ca_2Al_2SiO_7 \cdot 8H_2O$	418.3	(100)	仮定
ハイドロタルサイト $Mg_4Al_2O_7 \cdot 10H_2O$	433.3	(100)	仮定
フリーデル氏塩 $Ca_4Al_2Cl_2O_6 \cdot 10H_2O$	561.4	244.1	
モノサルフェート $Ca_4Al_2(SO_4)(OH)_{12} \cdot 6H_2O$	622.5	177	Glasser et al., 1998
ジェンニ石 $Ca_9Si_6O_{18}H_2(OH)_8 \cdot 6H_2O$	1063.4		(地学団体研究会, 1996)
アフウィリ石 $Ca_3Si_2O_4(OH)_6 (C_3S_2H_3)$	342.4	130.2	(地学団体研究会, 1996)
トバモライト (11Å) $Ca_5Si_6O_{16}(OH)_2 \cdot 4.5H_2O (C_5S_6H_{5.5})$	740.0	303.3	(地学団体研究会, 1996)
ギブサイト	78.0	31.96	(地学団体研究会, 1996)
ドロマイト	184.4	64.4	(地学団体研究会, 1996)
ジェンニ石 $Ca_9Si_6O_{18}H_2(OH)_8 \cdot 6H_2O$	1063.4		(地学団体研究会, 1996)

*1 式量, モル体積は分子式の 1/8 で表した。

*2 式量, モル体積は分子式の 1/6 で表した。

6.2. 計算結果

1,000 年後及び 10,000 年後における RAIDEN 3 及び PHREEQC-TRANS による計算結果を図 6-4～図 6-7 に比較する。pH の分布については、コンクリート系材料と緩衝材の間の相違や時間的な挙動について、傾向としても絶対値としてもほぼ整合的であると考えられる。両コード間の差異は前節で述べた閉鎖系でのセメント成分についての溶解平衡を仮定した場合と同程度のものであり、物質移動やモンモリロナイトの速度論モデルを取り入れたことによりその差異が顕著に拡大する傾向は見られない。

Na 型及び Ca 型モンモリロナイトの残留量分布についての両解析コードの解析結果も、ほぼ整合的と考えられる。また、廃棄体部及び支保のコンクリートとベントナイトの境界においては、いずれのコードによる解析でも、

- ・ カリ長石 (K-feldspar)
- ・ アナルサイム(Analcime)
- ・ ヒューランダイト(Heulandite)
- ・ カルサイト(Calcite)

が顕著に生成しており、このため図 6-7 に示すように境界近傍のコンクリート側において実効拡散係数が有意に低下しており、ここでの物質移動の制約がベントナイト変質に対する抑制機構として働いていることが示唆されている。

以上のように、RAIDEN 3 と PHREEQC-TRANS は、コンクリートと緩衝材からなる複雑な体系において、

- ・ セメント成分の溶解に関する固溶体モデル
- ・ 液相化学種の反応
- ・ モンモリロナイトの速度論的溶解
- ・ その他の鉱物の溶解及び沈殿に関する化学平衡
- ・ 液相化学種の物質移動

という複合的なプロセスを考慮した高度な問題においてもほぼ整合的な結果を導出するものであることが示された。また、両解析コード間による計算結果の数値的な差異は小さく、第 2 次 TRU レポートで導出された結論はいずれの解析コードによっても支持されるものと考えられる。

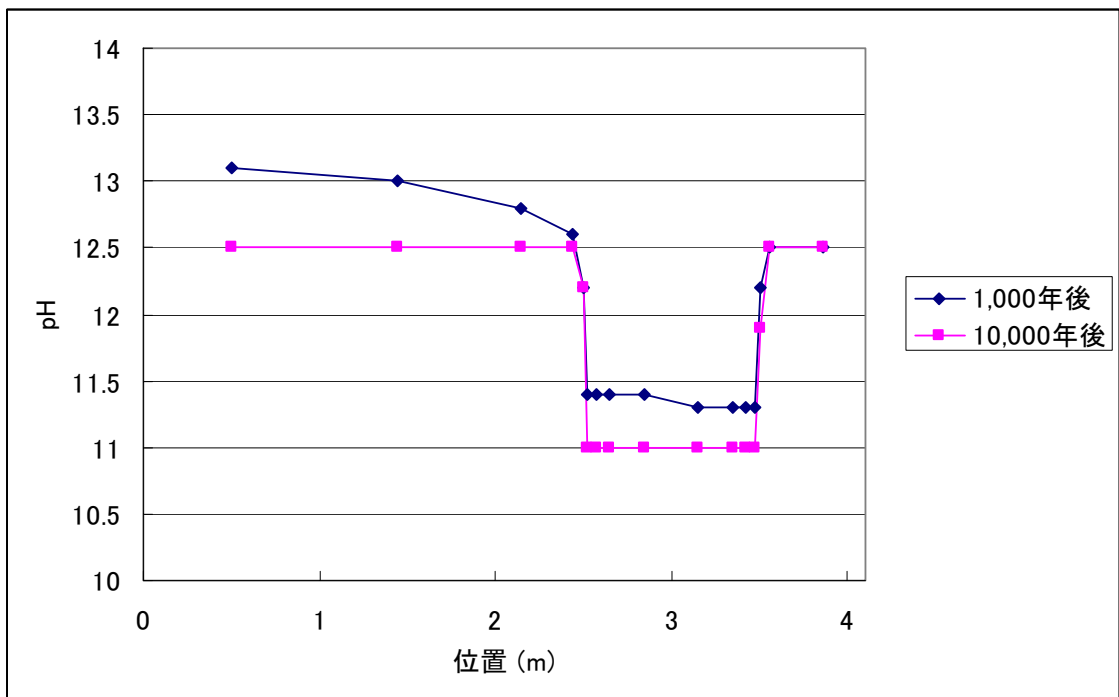
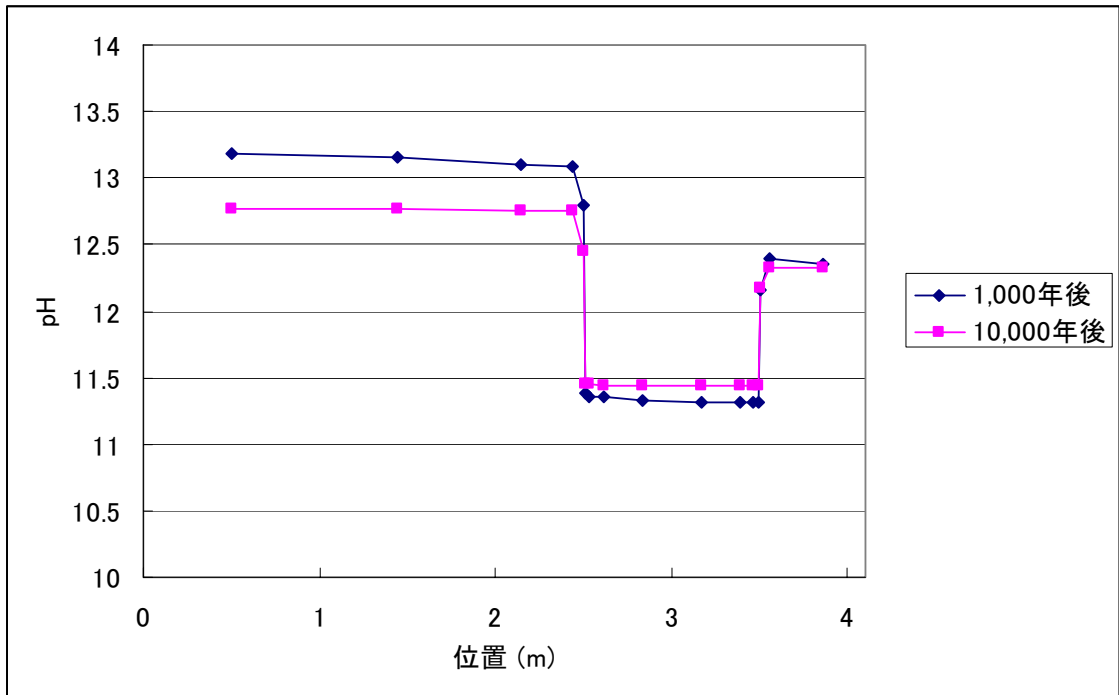


図 6-4 pH についての計算結果の比較 (上 : RAIDEN 3, 下 : PHREEQC-TRANS)

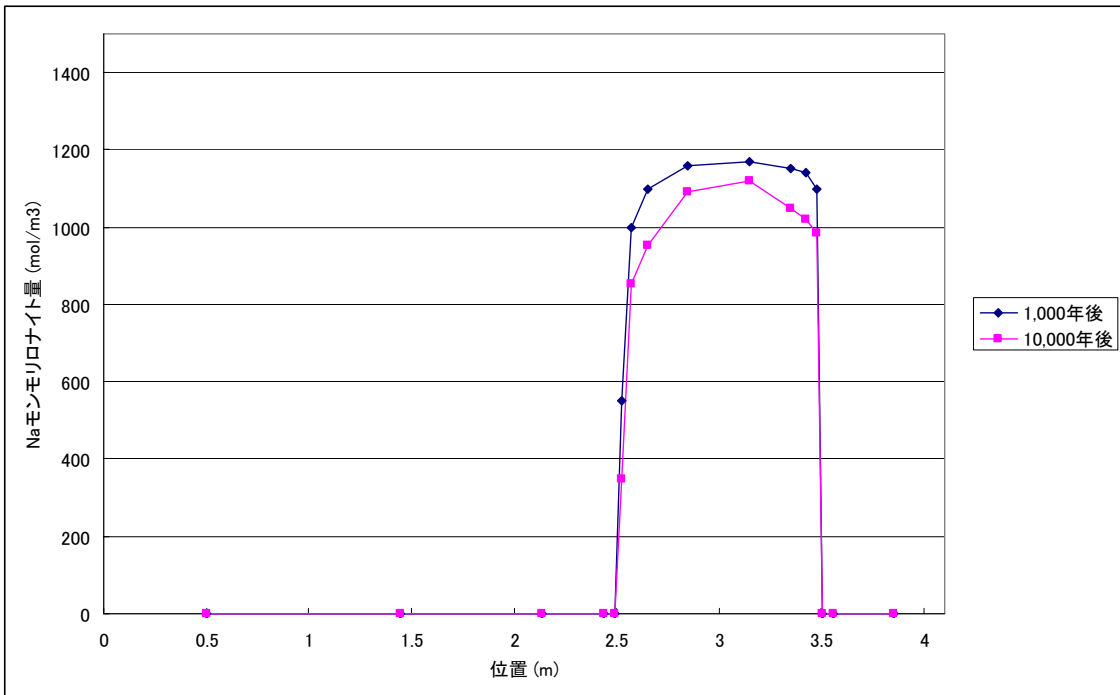
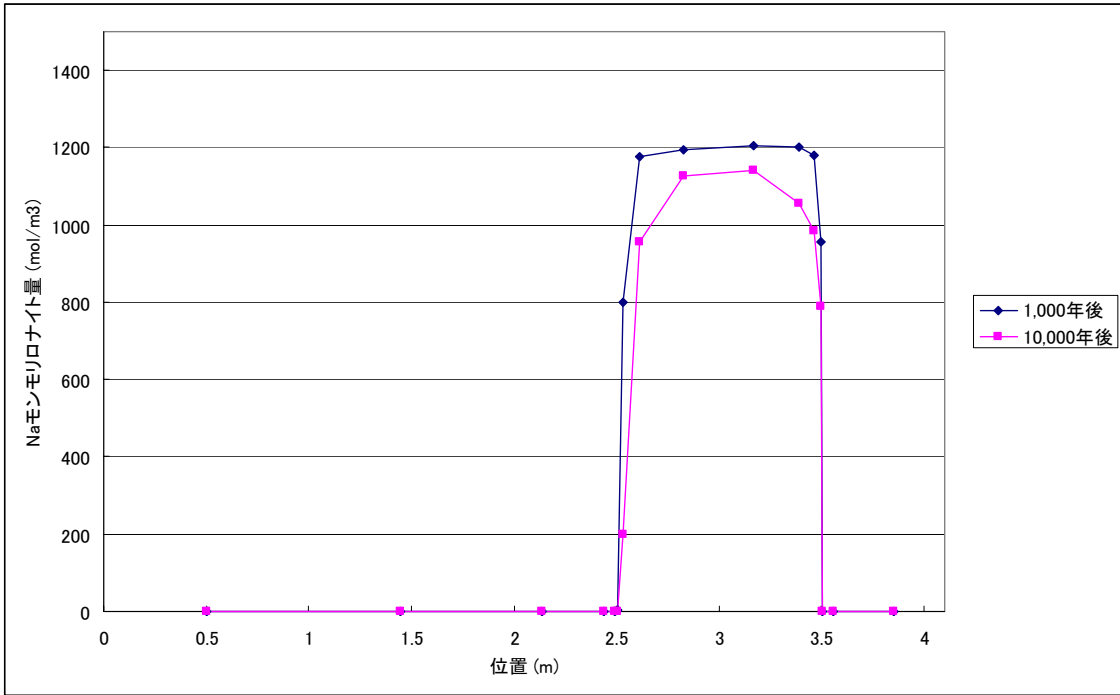


図 6-5 Na モンモリロナイトについての計算結果の比較 (上 : RAIDEN 3, 下 : PHREEQC-TRANS)

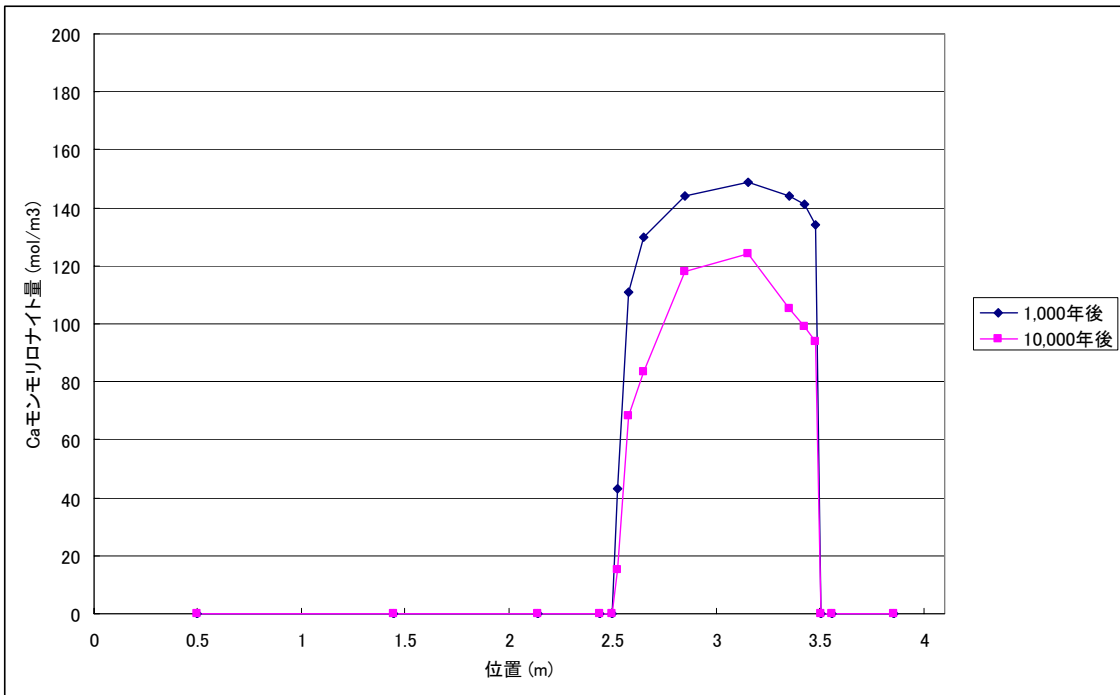
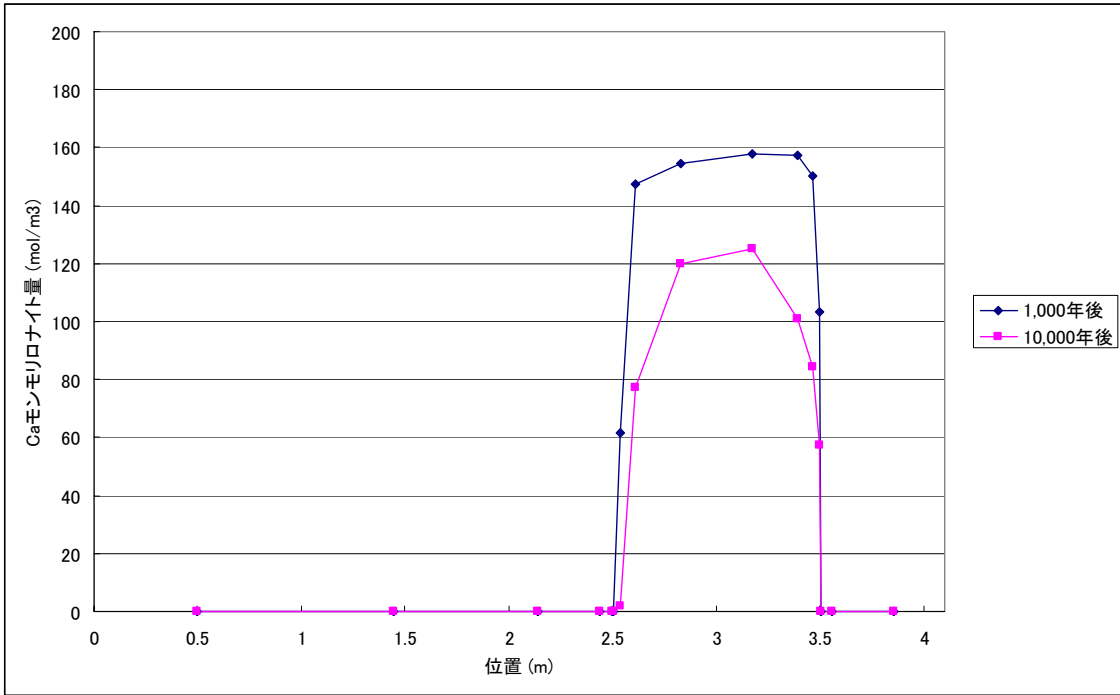


図 6-6 Ca モンモリロナイトについての計算結果の比較 (上 : RAIDEN 3, 下 : PHREEQC-TRANS)

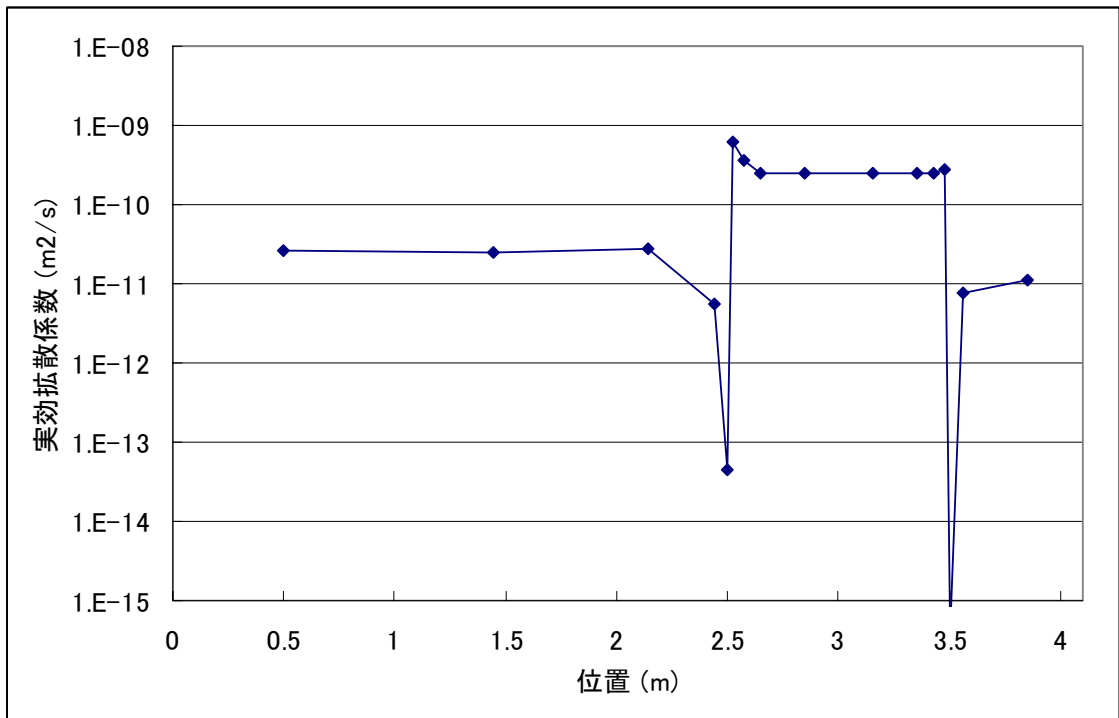
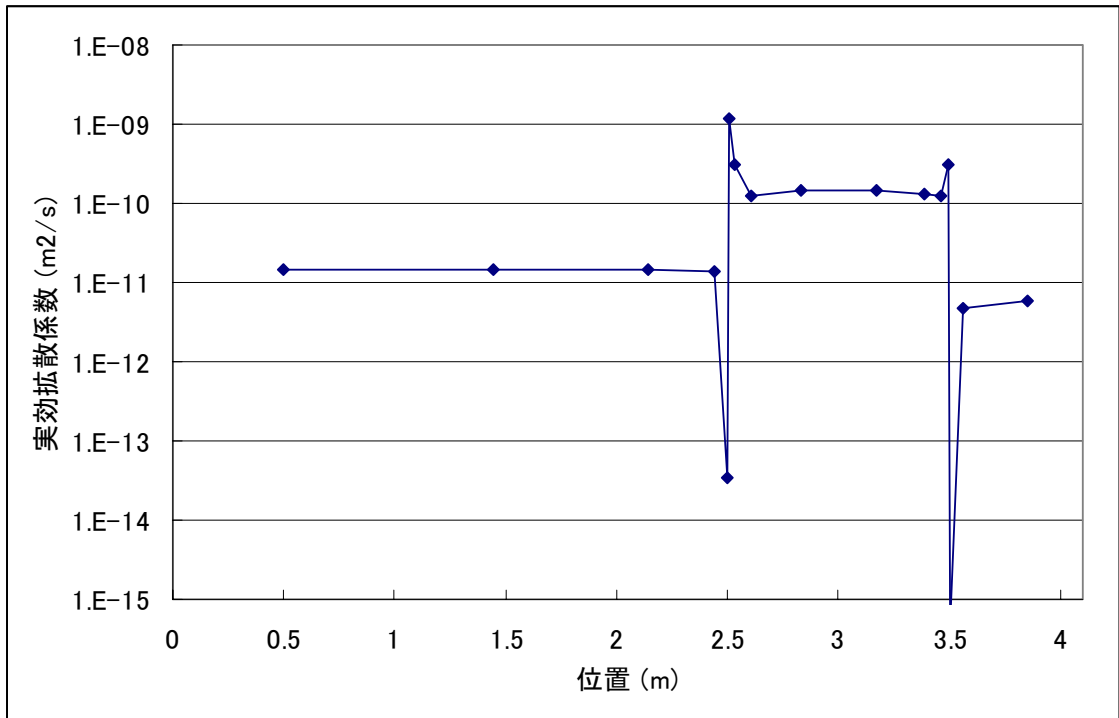


図 6-7 10,000 年後の実効拡散係数の比較 (上 : RAIDEN 3, 下 : PHREEQC-TRANS)

7. 結論

第2次 TRU レポートにおいて人工バリア材の変質影響の検討に用いた2つの化学反応物質移行連成解析コード(PHREEQC-TRANS, RAIDEN3)について、それぞれ、解析解や実験結果、PHREEQC の数値解析結果の比較によって、化学反応計算、物質移行計算及び化学反計算の機能をそれぞれ検証した。また、両コードがコンクリートと緩衝材からなる複雑な体系において複合的なプロセスを考慮した問題においてもほぼ整合的な結果を導出することが示された。

第2次 TRU レポートの4.4.2「人工バリア材の変質の影響」では、主に RAIDEN3 を用いて物質移動・化学反応解析を実施し、その解析結果を人工バリア内の化学的条件及び物質移動特性の時間的・空間的变化の評価に反映させている。

参考文献

- Arthur, R.C., Sasamoto, H., Oda, C., Honda, A., Shibata, M., Yoshida, Y. and Yui, M. (2005): Development of thermodynamic database for hyperalkaline, argillaceous systems, JNC TN8400 2005-010.
- Ascher U.M. and Petzold, L.R., (1998) : *Computer Methods for Ordinary Differential Equations and Differential-Algebraic Equations*, Society for Industrial and Applied Mathematics.
- Atkins, M., Glasser, F., and Kindness, A., Bennett, D., Dawes, A., Read, D., (1992): A Thermodynamic Model for Blended Cements, DOE-HMIP-RR-92-005.) : *Cement hydrate phases: Solubility at 25 °C*, Cement and Concrete Research, 22, 241-246.
- Atkinson, A., Hearne, J.A., Knights, C.F. (1991) : *Aqueous Chemistry and Thermodynamic Modelling of CaO-SiO₂-H₂O Gels at 80 °C*, DoE/HMIP/RR/91/045.
- Berner, U.R, (1988) : *Modelling the incongruent dissolution of hydrated cement minerals*, Radiochem. Acta, 44/45, 387-393.
- Huertas, F.J., Caballero, E., de Cisneros, C.J., Huertas, F. and Linares, J. (2001): Kinetics of montmorillonite dissolution in granitic solutions, Applied Geochemistry 16 397-407
- 核燃料サイクル開発機構, (1999) : 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 —地層処分研究開発第2次取りまとめ— 分冊3 地層処分システムの安全評価, JNC TN1400 99-023.
- 前田義徳, 池田綾子, 芳賀和子, 佐々木則行, 大間知行, (2005 in press) : 水和物の溶解と化学平衡計算条件の検討, 太平洋セメント研究報告 149 号.
- Parkhurst, D.L. and Appelo, C.A.J. (1999) : User's guide to PHREEQC (version 2)--A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations, U.S. Geological Survey Water-Resources Investigations Report 99-4259.
- 杉山大輔, 藤田智成, 中西潔 (2001) : TRU 廃棄物処分環境におけるセメント系材料の化学的変質評価 (その1) —カルシウムシリケート水和物の熱力学的溶解沈殿モデルの提案—, 電力中央研究所報告, T1007.
- 武井明彦, 藤田英樹, 原澤修一 (2004) : セメント系材料の水理・力学特性の変遷に関する研究(III), JNC TJ8400 2004-024.
- Watson, C., Benbow, S., (2004) : *RAIDEN 3 v0.9.5 User Guide*, Quintessa Report QRS-9018-1.
- Yui, M., Neyama, A., Arthur, R.C., Sasamoto, H., Shibata, M., (1999): Development of Thermodynamic Database for Geochemical Calculations, JNC TN8400 99-079.

4-3 セメント系材料の変質の現象理解(4.4.2.2(1))

1 はじめに

セメント系材料は、処分坑道の支保工、構造躯体、充填材等に、また、廃棄体容器内の充填材としても使用される可能性がある。さらに、その用途及び必要とされる特性によって、種々のセメント系材料が選択される。セメント系材料は地下水及び廃棄体から浸出する各成分との反応により変質し、化学的及び機械的特性が変化することが知られている。これら変質は、各部材のバリア性能の変化の原因となる。そのため、セメント系材料の変質を理解し、性能評価における取り扱いを検討しておくことが肝要である。

第2次 TRU レポートでは4.4.2.2(1)において、セメント系材料の変質及びその影響について評価した。ここでは、評価において使用したパラメータの設定等の根拠となる、セメント系材料の変質に関するこれまでの研究成果等について、土木建築の分野で広く用いられている普通ポルトランドセメント（以下、「OPC」という）を中心にとりまとめる。

2 概要

本検討におけるセメント系材料は、モルタル、コンクリート、セメントペースト等のセメントを硬化材料とした硬化体の総称である。

セメント系材料の変質は、空隙率や鉱物相の変化に伴う透水性、拡散係数及び分配係数などの核種の移行遅延機能の変化に加え、骨材として使用される砂利、砕石、砂などとのアルカリ骨材反応や、補強材として用いられる鉄筋の腐食などに起因するひび割れの発生による核種の閉じ込め性及び力学特性の変化の原因となるため、その評価が必要である。これらのうち、アルカリ骨材反応に関しては、短期的には反応性骨材の使用を避けることで影響を抑制できるものの、長期間にわたる骨材の変質については知見が少ない。

上述のように、セメント系材料は、地下水成分や廃棄体成分、緩衝材として用いられるベントナイト及び大気との相互作用、熱による変成など様々な要因で変質すると考えられている。TRU 廃棄物の処分環境条件を考慮すれば、地層処分条件であるため、上記の要因のうち、空気との接触は検討する必要性は低いと考えられる。したがってここでは、処分環境においてセメント系材料の変質の原因となると考えられる、地下水との反応、廃棄体成分との反応並びにセメント水和物の結晶化とその影響について述べる。

また、セメント系材料から溶脱するアルカリ成分の影響により、処分場近傍の間隙水の組成が変化し、これが他のバリア材の変質の原因ともなるため、セメント系材料の変質については、その影響を評価しておくことも必要である。

既往の研究では、セメント系材料の変質は、広く土木建築材料として用いられている OPC を主な対象として検討されている。本検討においても OPC を中心に評価することとするが、処分場の設計、施工、発熱、及び変質とその影響等への対策として使用が検討されている、混合セメント（フライアッシュセメント、スラグセメント）や低アルカリ性セメント等についても現状の知見をまとめる。

3 セメント系材料の変質

3.1 セメント系材料と地下水との反応

3.1.1 セメント系材料の水和

処分場閉鎖から以降、安全評価を実施する評価期間はセメント系材料の水和に対して十分長いことから、セメント系材料の長期的な変質に関わる解析的評価は水和が十分に進んだ状態を想定した条件で実施されている。セメントクリンカー鉱物の水和の進行に関しては多くの知見があり、評価対象となる長期間ではその全てが水和すると考えられる。

混合セメントの場合は、混和材の水和反応を考慮する必要がある。混合材としては、高炉スラグ、フライアッシュ、シリカ粉末等が用いられる。

混和材として用いられる高炉スラグは、溶鉱炉で銑鉄を作るさいに生成する副産物であり、JISでは急冷砕したスラグを使用するよう規定されている。急冷砕したスラグは水と反応させても水硬性を示さないが、アルカリ刺激剤として少量の消石灰や硫酸塩等が存在すると顕著な水硬性(潜在水硬性)を示し、ポルトランドセメントと同じような水和物(ケイ酸カルシウム)を生成する。

フライアッシュは、微粉炭燃焼による火力発電に伴い副産される石炭灰で、燃焼ガスに伴ってボイラー外に排気され集塵機によって回収された微粉分である。フライアッシュはそれ自体に水硬性はないが、これに含まれる可溶性のケイ酸等がセメントの水和のさいに生成される水酸化カルシウムと常温で反応し、ケイ酸カルシウム等を生成する。

フライアッシュのポゾラン反応(アルカリ、カルシウム等の作用により水和する反応)については未解明な点も残されているが、この反応と密接な関係を有しているのはフライアッシュのガラス相であり、その表面積が大きいほど、また、歪が大きいほどポゾラン反応性は高くなることが明らかになっている。また、ガラス相に含まれるCa量が増すと反応性が高くなる。フライアッシュの常温における水和反応の進行は遅く、現在確認されているフライアッシュセメントを使用したコンクリートの分析事例においては、フライアッシュが全て反応した例は確認されていない。

長期材令のフライアッシュセメントの分析例としては、打設後34年経過したコンクリートのフライアッシュの分析結果の報告があり(佐藤ほか, 1999; 小早川ほか, 2004), フライアッシュの反応率は50~65%以上と報告されている。コンクリートに含まれるCa(OH)₂量は0.8%以下と少なく、C-S-HゲルのCa/Si比は1.2から1.6とOPCのそれと比較して低いことが確認されており、フライアッシュの水和によりCaを消費しC-S-Hゲルも低Ca/Si比になったと考えられている。

フライアッシュセメント硬化体は、ポゾラン反応の結果組織が緻密になるため、反応成分の拡散速度が非常に遅くなるので、水和反応も非常に遅くなると考えられている。人工バリア長期性能確認試験(原子力環境整備促進・資金管理センター, 2005)等で実施したフライアッシュセメント硬化体の溶解変質試験では、セメント硬化体を粉末試料としたことにより溶脱試験中も水和反応が進行し、ガラス相のほとんどが水和していることが確認された。このことからフライアッシュのガラス相は長期的には全て水和すると考えられる。上記変質試験においては、フライアッシュが副産物であるために品質変動の大きいことを考慮して、セメントの水和反応に影響の大きいガラス相の特性の異なる2種類を選定し、セメントの水和鉱物組成に影響を与えるフライアッシュの混合率は、JISで規定されるフライアッシュセメントの上限である30%とその半量の15%として生成する水和鉱物の評価を実施している。フライアッシュセメントの出発試料は、人工バリアの評価期間が非常に長期にわたることを考慮してセメント系材料の水和反応を可能な範囲で促進

し、十分水和反応が進んだ状態の試料を作製し、養生後のセメント硬化体を分析した結果、未反応のセメント鉱物としてフェライト相がわずかに確認され、水和物として Ettringite (エトリンガイト : AFt), Monosulfate (モノサルフェート : AFm), Katoite, Portlandite (ポルトランドイト), C-S-H ゲルが確認されている。Portlandite の生成量は、フライアッシュの混合率が高くなるにしたがって少なくなることが確認されており、フライアッシュセメントの主要な初期水和鉱物として従来 OPC の変質解析で考慮されていない特殊な鉱物は確認されていない。

シリカフュームは、アーク式電気炉によって金属シリコンやフェロシリコン合金等を精錬するさいの排ガス中に含まれる副産物で、大部分が非晶質の SiO_2 である。シリカフュームは、比表面積が非常に大きく活性な SiO_2 からなり、高いポゾラン反応性（水酸化カルシウムと常温で徐々に反応しケイ酸カルシウム等を生成する）を示す。ポゾラン反応の結果 C-S-H ゲルの Ca/SiO_2 比は低くなりセメント水和組織は緻密になる。

尚、高炉セメントやフライアッシュセメントにおいても、その水和生成物はこれまで主に研究が進められてきた OPC と同等の鉱物で構成されており、そのモデルを適用可能と考えることができる。これらセメント系材料の変質に関しては次項にて述べる。

3.1.2 セメント系材料の溶脱

一般的な土木・建築構造物において、セメント系材料の溶脱現象が変質現象として認識されることは稀であるが、処分環境を想定した長期にわたる変質を考慮した場合には溶脱反応は重要な変質要因の一つと考えられる。セメント水和物の溶脱現象に関しては比較的多くの研究が実施されており、ポルトランドセメントの場合には、主要な構成鉱物である C-S-H ($\text{Ca}(\text{OH})_2$) と C-S-H ゲルの総称) の溶解反応が変質現象を支配する。

セメント系材料の溶解変質を促進する手法として溶解試験方法は種々あるが、浸漬法 (Zamorani et al., 1986 ; 杉山ほか, 1997) 通水法 (芳賀ほか, 2002) 及び電気的手法 (斉藤ほか, 1993) の3種類に分類することができる。各試験方法の特徴を以下に示す。

① 浸漬法

浸漬法は、ブロック状の固体試料または粉体状の固体試料をイオン交換水や模擬地下水等に浸漬し、セメント水和物の溶解による変質過程を評価する。粉体状試料の浸漬法には、液固比を変えてセメント成分の溶出状態を変化させる方法（以下、「浸漬法」という）と比較的小さな液固比の浸漬液を交換することにより溶出状態を変化させる方法（以下「液交換法」という）がある。

ブロック状試料の変質試験においては、試料表面からセメント成分が溶出し変質範囲が内部に進展する経過を確認することができる。実現現象に近い変質現象を確認することが可能であるが、変質の進行は非常に遅く、セメント硬化体中のセメント成分が主に濃度勾配を駆動力として変質が進行するため、変質現象の加速が困難である。

粉体状試料の浸漬法のうち液固比をパラメータとする方法は、浸漬する溶液とセメント硬化体の重量比（以下、「液固比」という）を大きくすることにより、溶解変質現象を加速することができる。液固比をパラメータとして試験を実施することにより、セメント系材料の溶解変質にともなう水和物の変遷過程を確認することが可能である。また、長期間にわたり浸漬試験を実施することによってセメント固相と平衡となった液相のセメント成分濃度を評価

することができる。大きな液固比の試験においては、液相中のセメント成分濃度は溶解変質が進行した状態での平衡状態であるため、Ca等の溶出は小さな液固比の液交換試験を実施した場合とは異なる可能性があることに注意が必要となる。

粉体状試料浸漬法のうち液交換を実施する方法は、粉体試料の浸漬法試験を大きな液固比で実施し、平衡状態となった液相を新たな液相と交換することでセメント系材料の溶解変質過程を模擬することができる。

ポルトランドセメントの溶解変質過程においては、ポルトランドセメントのCa/SiO₂モル比（以下C/S比）が比較的大きいため、セメントの水和初期鉱物は水酸化カルシウムとC/S比の大きなC-S-Hゲルが存在しており、溶出初期には水酸化カルシウムが液相カルシウムの制限固相となっている。したがって、ポルトランドセメントの溶解変質においては、初期においては水酸化カルシウムと平衡の高いCa濃度から始まり、水酸化カルシウムの溶出後はC-S-Hゲルが制限固相となり徐々にCa濃度が低下する過程をとる。

液交換法では、比較的小さな液固比で平衡状態となった液相を交換することでポルトランドセメントの溶解変質過程をトレースすることができる。しかしながら、C-S-Hゲルの溶解過程においては、溶解の進行にともなってC-S-HゲルのC/S比が変化することから平衡に到達するまでに時間を要し、かつ平衡到達の判断が困難であることから、特に溶解変質が進行した状況において溶解平衡到達前に液交換を実施するために溶解変質過程を再現できない可能性がある。また、大きな液固比の評価には長い試験期間が必要となる。

② 通水法

通水法は、ブロック状の固体試料または粉体状の固体試料をカラムに充填し、イオン交換水や模擬地下水等を通水することでセメント水和物の溶解による変質過程を評価する。

通水法では、固相試験体の通水面に常にフレッシュな液相が作用するため、接液面近傍のセメント固相の溶解変質が進行する。セメント系材料の溶解変質現象が移流による物質移動が主な変質要因となる変質過程を再現することができる。通水法による溶解変質試験においては、固相試験体内部の透水経路を選択的に透水するため、透水経路近傍の溶解変質が選択的に進行し、固相内部の溶解変質は不均質に進展する場合がある。また、拡散によるセメント成分の溶出が支配的な変質過程では、未変質の固相内部からセメント成分が拡散することにより液相近傍での固相の溶解を抑える方向に作用することから、評価対象となるセメント系材料において支配的な物質移動現象を考慮して試験方法を選定することが重要である。また、緻密なブロック状試料（水セメント比の小さい）では、透水係数が非常に小さく、変質試料の作製に時間を必要とする（実用的な時間で変質試料を作製できない）場合がある。

③ 電気的手法

電気的手法では、ブロック状の固体試料を拡散セル等に設置し、試験体の両端から通電することによって電氣的にセメント固化体中の溶存イオンを移動させることで変質現象を促進する。

電氣的にセメント固化体中の溶存イオンを移動させることから、浸漬法及び通水法に比べ短い期間で緻密な硬化体の溶解変質試料を作製することができる。

しかしながら、処分環境下で想定される溶解現象及び物質移動現象とも異なる現象による変質を促進しており、セメント成分の溶出による比較的大きなブロック状試料を作製するこ

とが可能であるが、セメント成分の溶解変質過程を詳細に検討することは困難であり、変質促進の程度を評価する指標が無い。

(1) ポルトランドセメント水和物の溶脱

ポルトランドセメントには、OPCのほか、中庸熱ポルトランドセメント（以下「MPC」という）、低熱ポルトランドセメント（以下「LPC」という）などがあり、用途ごとの要求特性に応じて選択される。しかし、その水和物は互いに共通であり、その組成もほぼ同等であることから、ポルトランドセメントの変質については、MPC 及び LPC の変質についても OPC と同等として扱うことができる。

ポルトランドセメントの変質過程を明らかにし、モデル化することを目的として、各研究者によって種々の手法で溶解試験が実施されている。ポルトランドセメント水和物を用いた研究に関して、液固比（試料の酸化物重量に対する接触水量の比）と液相の Ca 濃度の関係を整理した結果、各研究者の結果は比較的良く一致しており、試験手法が異なっても液固比で評価できることが分かった。一致していた結果は固相と接触している液相が平衡状態にある条件で実施された研究であり、ブロック状試料の浸漬試験のように固相全体と液相が平衡状態とならない条件では液固比で整理することはできない。

固相の C/S 比と液相 Ca 濃度の関係を整理したところ、C-S-H が主要成分である OPC の場合には、液相の pH や Ca, Si の濃度は、固相の C/S 比に依存しており、既往研究における C-S-H の溶解度データと一致した。ポルトランドセメント水和物の溶解反応は 3 つのフェーズに分けて考えることができる」と報告されている。

Region I Na, K 成分が溶解し、平衡となる液相の pH が 12.5 (Ca(OH)_2 の平衡 pH) より高くなる領域

Region II Ca(OH)_2 が溶解し、平衡となる液相の pH が 12.5 程度となる領域

Region III Ca(OH)_2 溶脱後、C-S-H ゲルが液相組成を干渉し、C/S 比により液相組成が変化する領域

また、ブロック状の OPC 硬化体の浸漬試験に関していくつかの報告がある (Faucon, et al., 1996 ; 芳賀ほか, 2003, 他)。一定期間、イオン交換水に浸漬した試料の断面を分析した結果、試料の表層と内部で組成が異なっており、試料内部は初期試料と同じ組成の健全部であるのに対して表層部分は Ca 濃度が低下しており変質部であると判断され、その境界を変質フロントとした。表層の変質部は Ca(OH)_2 が消失していることから、変質フロントを Ca(OH)_2 溶解フロントとしている研究もある (Buil et al., 1992 ; 芳賀ほか, 2003)。変質フロントは浸漬時間が長くなるにしたがって試料内部に進行し、浸漬初期は変質フロントの深さと浸漬時間の平方根は直線関係となることから、溶解成分の移動は表層と内部の濃度勾配による単純な拡散現象によるものと考えられた。しかし、長期的には溶解に伴う空隙構造変化や二次鉱物生成、固相からの溶解速度等の複雑な要因の影響を受けることから、溶解成分の移動を濃度勾配による単純な拡散現象として精度良く評価することは困難であり、その評価は課題となっている。このような変質フロントの存在と進行は、水に接した状態で長期間経過した実構造物においても確認されており (Lagerbrad,

2001)解析モデルもいくつか提案されている (Buil et al., 1992; 横関ほか, 2003; 須藤ほか, 2003)。

上述のように OPC の変質は、主に拡散現象による溶脱として表現できることから、性能評価において実施する地球化学・物質移行連成解析に於いても同様に、濃度差を駆動力とした拡散による物質移行と、各位置での固液の平衡によって解析を行うこととした。

(2) 混合セメント水和物の溶脱

a. フライアッシュセメント水和物の溶脱

フライアッシュを OPC に添加した FAC 水和物に関して、粉末試料を用いた浸漬法で溶解試験が実施されている (原子力環境整備促進・資金管理センター, 2005)。

この試験においては、セメントの水和反応に影響の大きいガラス相の特性の異なる 2 種類を選定し、セメントの水和鉱物組成に影響を与えるフライアッシュの混合率 15%及び 30%として FAC 水和物の溶脱評価を実施している。フライアッシュセメントの出発試料は、人工バリアの評価期間が非常に長期にわたることを考慮して十分水和反応が進んだ状態の試料を作製し、イオン交換水に液固比をパラメータとした浸漬試験を実施している。

液相の pH は、液固比が大きくなるにしたがって低下している。液固比の増加に伴う pH の低下はフライアッシュ含有率が高くなると大きくなるが、フライアッシュの種類の影響は小さいと報告されている。液相分析の結果、FAC では OPC に比べて同一液固比の Ca 濃度が低下しており、Ca の濃度はフライアッシュ混入率が高くなるほど低くなっていた。

固相分析の結果、FAC の主要な水和物相は C-S-H であり、OPC や LPC と同様の水和鉱物で構成されていることが確認されている。また、固相の C/S 比は、フライアッシュの添加量の増加にしたがって低下していることが確認されており、固相の C/S 比と液相の Ca 及び Si 濃度の関係は、C-S-H の溶解度データと一致した。FAC 水和物の主要な溶解成分は C-S-H であり、水和物の溶解反応はポルトランドセメント (OPC や LPC 等) と同様であると判断された。FAC は OPC と比較して Si 量が多く Ca 量が少ないため、生成する $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 量は少なく、C-S-H ゲルが多く生成する。溶解度の比較的大きな $\text{Ca}(\text{OH})_2$ の生成量が少ないことから、単位重量あたりの Ca の溶脱量は小さくなり、同一液固比における溶解量は少なく、溶解変質しにくい材料であると考えられている。

また、ブロック状の FAC 硬化体の浸漬試験も実施されている (柴田ほか, 2004)。一定期間、イオン交換水に浸漬した FAC 硬化体の断面を分析した結果、試料の表層は Ca 濃度が低下した変質部であり、試料内部は初期試料と同じ組成の健全部であることから、OPC 硬化体の既往研究成果と同様に変質フロントの存在が確認された。FAC 硬化体においても表層の変質部は $\text{Ca}(\text{OH})_2$ が消失したと考えられる組成であった。変質フロントは浸漬時間が長くなるにしたがって試料内部に進行したが、その進行速度は同一空隙量の OPC 硬化体や LPC 硬化体に比較して極めて遅かった。試験に用いられた FAC 硬化体の空隙径分布は OPC 硬化体や LPC 硬化体に比較して微細な径の空隙量が多く、 $0.05 \mu\text{m}$ 以上の空隙はほとんど存在しなかった。イオンの拡散は $0.05 \mu\text{m}$ 以上の空隙量と相関が高いとする研究もあり (Uchikawa, 1991)、FAC 硬化体は大きな径の空隙量が少ないために変質フロントの進行速度が OPC 硬化体や LPC 硬化体に比較して著しく低下したと推測されている。

FAC の主要な水和物相が、OPC や LPC と同様の水和鉱物で構成されていること、及び固相の C/S 比と液相の Ca 及び Si 濃度の関係が、C-S-H の溶解度データと一致したことから、フライアッシュセメントの変質は OPC と同様に取り扱えるものと考えられる。

b. 高炉セメント水和物の溶脱

高炉セメントは、ポルトランドセメントに高炉スラグ (BFS) を加えたセメントの総称であり、JIS では、BFS の添加量に応じて A 種、B 種、C 種が規定されている。処分にあたっては、これらに加え、OPC と BFS を重量比 1:9 で混合した混合セメント（以下、混合セメント (OPC/BFS=1/9) という）も、廃棄体の内部充填材等に用いる可能性がある。高炉セメントに含まれる水和物は、BFS 中のアルミ成分等の水和により、OPC のそれとは異なっている可能性が考えられた。ここでは、混合セメント (OPC/BFS=1/9) を例に、高炉セメント水和物の溶脱に関する知見をまとめ、OPC の溶脱挙動との差異についてまとめる。

混合セメント (OPC/BFS=1/9) を密閉養生 3 ヶ月後の試料及び純水による水入れ替え試験により溶解劣化させたセメントの X 線回折図を表-1 に示す(金子ほか, 2004)。水入れ替え前後により、鉱物相の種類の変化はみられなかった。水入れ替え前後に確認された鉱物相は、以下の通りである。なお、C は Ca, S は SiO₂, A は Al₂O₃, M は MgO, H は H₂O の略号である。

- ・養生後… CSH, AFt, CaCO₃, Hydrotalcite,
未水和物 (gehlenite ; C₂AS, Akermanite ; C₂MS₂)
- ・劣化後… CSH, AFt, CaCO₃, Hydrotalcite,
未水和物 (gehlenite ; C₂AS, Akermanite ; C₂MS₂)

表-1 1/9 セメントの養生試料と水入れ替え劣化試料の X 線回折による水和物同定結果

試料名	鉱物の定量結果 (単位: Wt%)												
	Ca(OH) ₂	CaCO ₃	シリカゲル	AFt SO ₄ 型	AFm		ハイドロタルサイト	未水和 スラグ	付着水	C-S-Hゲル	Na分	NO ₃ 分	C-S-Hゲルの Ca/Si比
					SO ₄ 型	NO ₃ 型							
出発試料	1.4	0.9	0.5	4.1	0.2	—	2.9	47.8	4.8	37.4	—	0.0	1.5
硝酸ナトリウム濃度: 7mol/L水入れ替え5回	0.0	3.9	0.1	0.7	—	3.5	1.6	36.3	6.0	36.2	4.07	7.7	0.83
硝酸ナトリウム濃度: 7mol/L水入れ替え10回	0.0	8.3	0.2	0.2	—	0.2	1.7	41.4	3.7	34.9	3.81	5.6	0.69
模擬地下水水入れ替え10回	0.0	11.9	0.2	1.1	0.1	—	1.1	49.1	3.3	33.2	—	0.0	0.69

試験では完全に水和が終了した状態における水和物が確認できないため、Atkins らが提案する最終水和物理論予測 (Atkins et al., 1992) による初期組成 (図 2) をもとに、処分場内が地下水で飽和した時点での水和物組成を推定する。このモデルにおいては、OPC, 1/9 セメントの最終水和物は、以下のとおりであると想定している。なお、C は Ca, S は SiO₂, A は Al₂O₃, H は H₂O の略号である。

- ・OPC … Portlandite (CaH)₂, CSH(1.7), C₃AH₆, AFt
- ・1/9 セメント… CSH(1.2-1.5), C₃AS_{0.76}H_{4.48}, C₃ASH₄, Hydrotalcite, AFt

図 2 より、1/9 セメントは、CSH の Ca/Si 比、及びアルミネート系水和物の組成が大きく異なることが示唆される。また、これら水和物の熱力学データを用いて予測した 1/9 セメントの地下水との反応における経時変化予測における間隙水の pH 経時変化の一例を図 3 に示す。

このように高炉スラグを混合したセメントでも、硬化時の水和物及び地下水への溶脱後の鉱物、及びそれらの熱力学データを用いて変質をモデル化することが可能と考えられる。

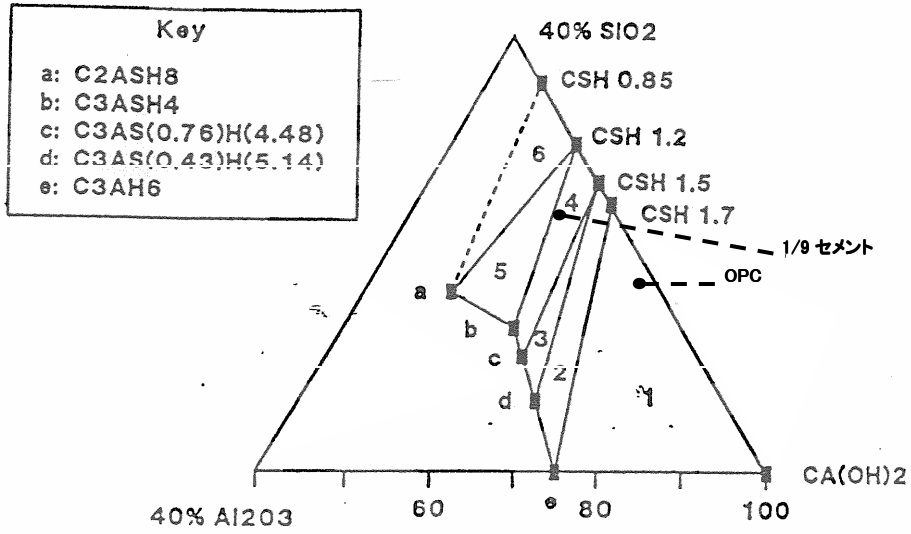


図-2 $\text{Ca}(\text{OH})_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 系の状態図と OPC 及び 1/9 セメントの組成

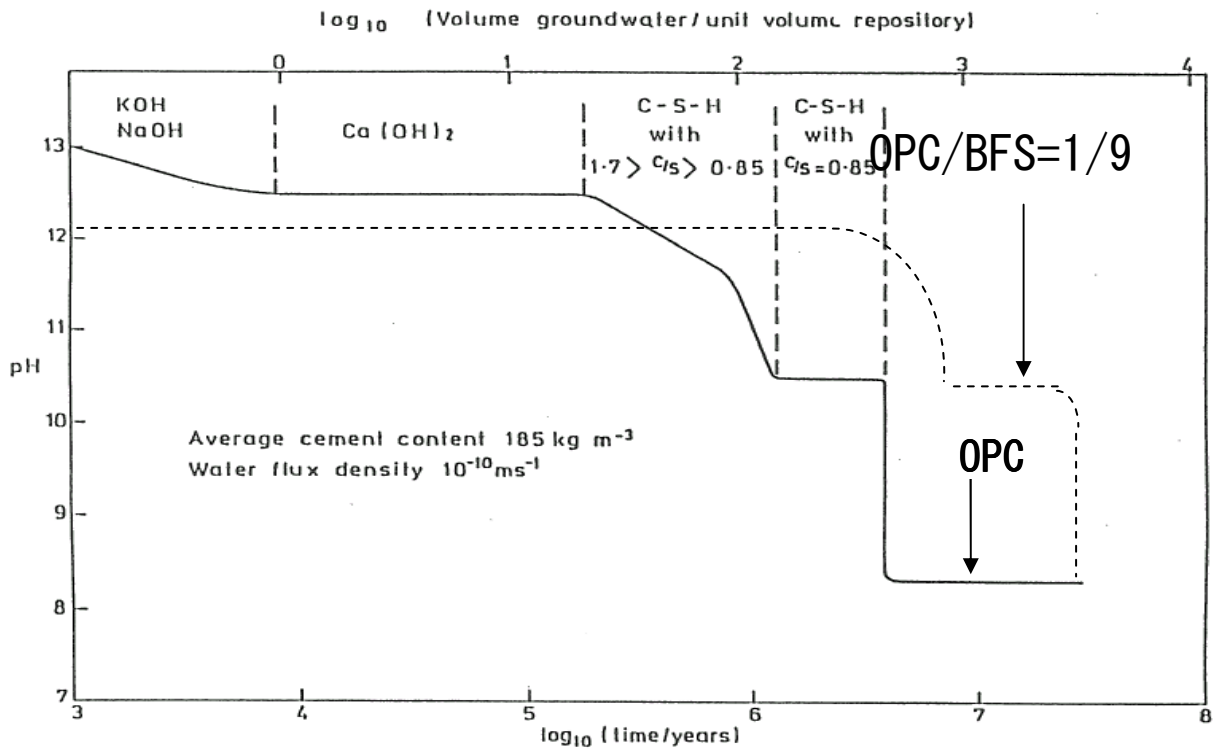


図-3 地下水との接触によるセメント系材料の pH 変化

c. 低アルカリ性セメント水和物の溶脱

現在検討が進められている低アルカリ性セメントには、ポルトランドセメントに対してポゾラン材料を多量に添加するタイプのセメント系材料と、鉱物組成を調整して低アルカリ性化するセメント系材料とがある。ここでは、それらのうち、前者に属する Highly Fly-ash contained Silicafume Cement (以下、「HFSC」という) と、後者に属する Law Alkalinity Cement (以下、「LAC」という) についてそれぞれ記述することとする。

(a) ポゾラン材料を多量に添加した低アルカリ性セメント

低アルカリ性セメントの一つであるフライアッシュを多量に混合したシリカフェームセメントは、シリカフェームやフライアッシュのポゾラン反応により水酸化カルシウムが消費され、より難溶性の Ca/Si モル比の小さなカルシウムケイ酸塩水和物が生成されるため、その浸出液の pH は低下する。粉砕した HFSC ペーストの蒸留水や模擬降水系地下水への溶脱試験が実施されており、化学平衡モデルを用いたモデル化が試みられている (Owada et al., 1999)。模擬降水系地下水を用いた溶脱実験及び化学平衡モデルを用いた計算による浸出液の pH 変化を図 4 に示す。

HFSC ペーストの初期の浸出液の pH は、10.6 程度であるが、交換浸出液の量が大きくなるにともない 11 程度の pH が維持される。その後、pH は地下水の pH に近づいていく。Owada らは、この溶脱挙動を HFSC の固相を C-S-H ゲル、エントリンガイト及び石英を仮定することによりモデル化し、初期の浸出液の pH の挙動を AF t の溶解と消失によるものと説明している。これにより、HFSC の溶脱挙動は、既存の地球化学平衡モデル及びセメント水和物の熱力学データにより概ねモデル化可能と考えられる。

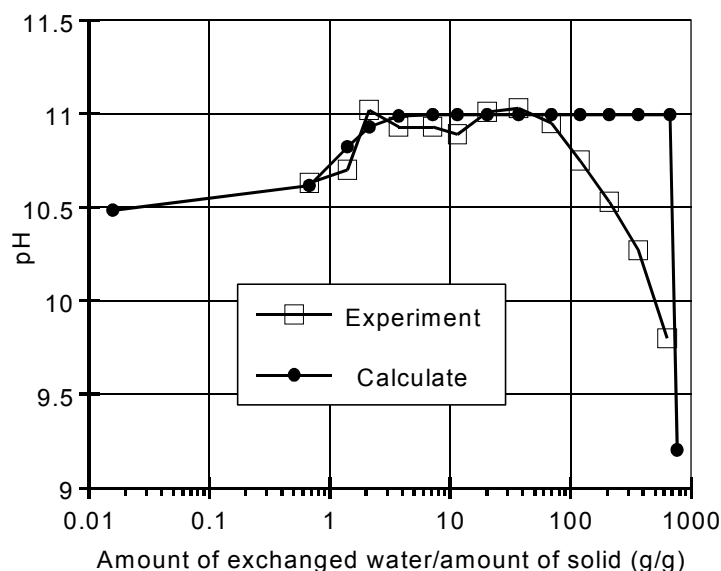


図-4 HFSC ペーストの浸出液の pH 変化 (実験値及び計算値)

(b) 鉱物組成を調整した低アルカリ性セメント

鉱物組成を調整した低アルカリ性セメントの例としては、アーウィンビーライトフェライト系クリンカーにセッコウを添加したもの（田熊ほか, 1996 ; 坂本ほか, 1996）が検討されている。このセメントは LAC（Low Alkalinity Cement）と呼ばれ、クリンカーの組成とセッコウの添加量とを変えることで、硬化体中の鉱物の種類及び組成を制御して、浸出液の液性、硬化時及び硬化体の特性を変化させ、図 5 に示すように浸出液の pH を 10.3 程度（藤田ほか, 1998）としたものである。LAC にはその組成により、LAC-C, LAC-S などのバリエーションがある。OPC における主な硬化成分は C-S-H であるが、LAC のそれは AF t である。その機械的特性は OPC とほぼ同等であることが報告されている（藤田ほか, 2005）。

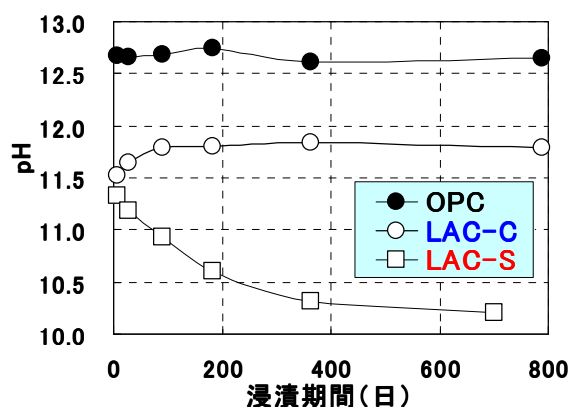


図-5 LAC の浸出液の pH の変化

LAC-S 水和物の長期的な化学的特性を評価するために溶解試験を実施した。溶解試験手法としては浸漬水を定期的に交換する溶解法と水和物と浸漬水の比を変化させる浸漬法を選定し、固相と液相の変化を評価した。水和物相変化の解析のために LAC-S 水和物の粉末試料を用いたが、固相からの溶解成分の溶出や空隙構造変化を評価するために平板状試料を用いた浸漬試験も実施した。LAC-S は水和速度が遅く、通常の水和条件では低溶解度の水和物となるまでに長い時間を要することから、ボールミルハイドレーション、高温養生といった促進養生を行った。固相分析結果から LAC-S の水和物相は AF t と C-S-H ゲルであり、溶解試験で確認できた主な溶解成分は AF t であることがわかった。しかし、AF t と C-S-H ゲルの相互作用については不明確な部分も多く、液相組成の支配要因を明確にすることができなかった。水和物相の詳細な解析、AF t の熱力データ精度の向上等も含め、今後の課題として残されている。平板試料の浸漬試験の結果、表層から溶解成分である Ca, Al, S イオンが溶出し、その移動は拡散によるものであり、拡散速度は OPC 硬化体浸漬試験時の $\text{Ca}(\text{OH})_2$ の溶解に伴う Ca の拡散に比較して小さかった。また、溶解により空隙が増加していたが、増加量は小さかった。以上の結果をもとに、LAC-S 水和物は比較的長い期間、低 pH を保ち、物理的な性能も保たれる事が予想できた。

3.1.3 セメント系材料と地下水成分との反応

(1) 地下水成分に関する調査結果

地下水に溶存する様々な成分はセメントを構成する成分と反応し、セメント水和物を変質させることから、水和物の溶解現象に影響を及ぼすものと考えられる。

H12 レポートに示された溶存化学種のうち、セメント水和物の変質に関する影響について調査し、研究が報告されている Mg, C, S, N, Cl について以下に示す。

・Mg の影響

Mg はセメント硬化体中の Ca と置換して $Mg(OH)_2$ となり、変質を促進すると報告されている (Hoglund, 1987)。一方、少量の場合は $Mg(OH)_2$ の溶解度が小さいことから他の化学種による変質を遅延することもあるとの報告もみられた (魚本ほか, 1984)。

・C (CO_3^{2-} , HCO_3^-) の影響

炭酸塩は中性化(炭酸化)の原因となる化学種である。地下水中に含まれる HCO_3^- や CO_3^{2-} とポルトランダイトや C-S-H ゲルが反応し、空気中と同様にカルサイトが生成し、空隙を閉塞して組織を緻密化するとの報告が多数みられる一方で、C-S-H ゲルの結合を切断するとの報告もあり、硬化体の変質を促進する可能性も考えられる。研究例として、 $CaCO_3$ の生成により、高 pH 維持期間が減少したとの報告 (Atkinson et al., 1988)、透水係数が低下したとの報告 (柴田ほか, 2000) がある。

・S (SO_4^{2-}) の影響

硫酸塩はセメント硬化体に与える変質作用がもっとも大きく、アルミネート系成分との反応により生成する AF t は、膨張して硬化体にひび割れを生じて強度を低下させることが知られているほか、ポルトランダイトとも反応して二水石膏を生成することが知られている。初期には AF t の生成は空隙を充填する効果があるが、空隙が充填されるとひび割れが生じ始め、空隙量を増加させるとの報告もみられる。研究例として、ひび割れの目詰まりがみられたとの報告 (大西ほか, 1998) がある。

近年、硫酸塩劣化が起こる条件下で炭酸イオンが供給された場合に、AF t と類似した構造のソーマサイトが生成し、セメント系材料が劣化する事象が報告されている。ソーマサイトは、セメント系材料中での硫酸塩濃度が高く、炭酸イオンが継続的に供給され、かつ、環境温度が低いという条件が全て満足されたときに生成するとされている。

・N (NO_3^-) の影響

NO_3^- がセメント硬化体中の AFm 相の SO_4^{2-} と置換するとの報告や変質が促進されるとの報告 (武井ほか, 2002 ; 武井ほか, 2003) がある。

・Cl の影響

Cl は鉄筋コンクリートの鉄筋腐食を促進させる原因となり、研究例は多数報告されている。セメント硬化体の変質に与える影響としては、AFm 相と反応してフリーデル氏塩を生成することが知られているほか、水和物中の $Ca(OH)_2$ が $MgCl_2$ と反応し、溶解度の大きな $CaCl_2$ を生成し、変質を促進するとの報告も見られた。

原子力環境整備促進・資金管理センター(2005)において実施した試験では、OPC 及びフライアッシュのガラス相の特性の異なる 2 種類、フライアッシュの混合率をそれぞれ 15%及び 30%とした FAC4 種類の水和物について降水系地下水 (FRHP) に対する溶脱評価を実施している。OPC 及び FAC

の出発試料は、人工バリアの評価期間が非常に長期にわたることを考慮して十分水和反応が進んだ状態の試料を作製し、降水系地下水に液固比をパラメータとした浸漬試験を実施している。

降水系地下水に浸漬した液相の pH は、OPC 及び FAC とともに液固比が大きくなるにしたがって低下した。液固比の増加に伴う pH の低下は、OPC に比べ FAC が大きく、フライアッシュ含有率が高くなると大きくなるが、フライアッシュの種類の影響は小さいことが確認されている。降水系地下水に浸漬した OPC の液相組成は、液固比 1000 倍まで Ca 濃度が高く、イオン交換水と比較すると全ての同一液固比で Ca 濃度は低くなっている。K 及び Na は、液固比が小さいほど濃度が高く液固比の増加に伴って濃度が低下している。Si、Al 及び SO_3 は、液固比 200 倍までは低濃度であるが、液固比 1000 倍以上で濃度が上昇しており、特に液固比 2000 倍の Si 濃度が高くなっている。PFA では、OPC に比べてイオン交換水及び降水系地下水で同一液固比の Ca 濃度が低下しており、Ca の濃度はフライアッシュ混入率が高くなるほど低くなった。K 及び Na は、液固比が小さいほど濃度が高く液固比の増加に伴って濃度が低下している。Si、Al 及び SO_3 は、ブランク試料に比べてイオン交換水及び降水系地下水で同一液固比では濃度が高くなる傾向が確認されている。

XRD 測定の結果、降水系地下水に浸漬した試料では、OPC 及び FAC とともに液固比 200 倍以上の水準でカルサイト（炭酸カルシウム）の生成が確認されている。C-S-H ゲルの存在は、全ての水準で確認されている。

(2) 海水との反応

人工海水に OPC 及び FAC の粉体試料を浸漬し、セメント系材料の溶脱現象に対する海水成分の影響試験が実施されている（原子力環境整備促進・資金管理センター、2005）。

OPC 及びフライアッシュのガラス相の特性の異なる 2 種類、フライアッシュの混合率をそれぞれ 15%及び 30%とした FAC4 種類の水和物について人工海水に対する溶脱評価を実施している。OPC 及び FAC の出発試料は、人工バリアの評価期間が非常に長期にわたることを考慮して十分水和反応が進んだ状態の試料を作製し、液固比をパラメータとした浸漬試験を実施している。

液相の pH は、全てのセメント供試体及び浸漬液で、液固比が大きくなるにしたがって低下した。液固比の増加に伴う pH 低下の程度は、イオン交換水が最も小さく、降水系地下水、人工海水の順に大きくなった。特に、人工海水への浸漬試験では、液固比 100 倍から pH の低下が観察され、液固比 200 倍以上では著しく pH が低下した。

人工海水に浸漬した液相の pH は、イオン交換水及び降水系地下水に浸漬した試料に比べ同一セメント及び液固比における低下が著しいことが確認されている。液固比の増大に伴う pH の低下は、OPC 及び PFA とともに液固比が大きくなるにしたがって低下した。液固比の増大に伴う pH の低下は、OPC に比べ FAC が大きく、フライアッシュ含有率が高くなると大きくなるが、フライアッシュの種類の影響は小さいことが確認されている。人工海水に浸漬した液固比 200 倍では、セメントの種類の影響が大きく OPC に比べ PFA は pH が 1 程度低い値となっている。液固比 2000 倍ではセメントの種類による pH の変化は小さくなった。

人工海水に浸漬した OPC の液相組成は、イオン交換水及び降水系地下水と比較して全ての液固比で Ca 濃度が高く、液固比 200 倍までの Ca 濃度は Ca 水酸化カルシウム飽和濃度の 2 倍以上の濃度となっている。K 及び Na は、概ね人工海水成分濃度と同一濃度であった。Si 及び Al は、全ての液固比で低い濃度であった。 SO_3 は液固比 10 倍では、低い濃度となっているが、液固比 100 倍

以上までは概ね人工海水成分濃度と同一濃度であった。Mg は、液固比 200 倍までは低濃度であるが、液固比 1000 倍以上で濃度が著しく上昇した。人工海水に浸漬した PFA の液相組成は、Mg 濃度が OPC に比べ高くなっているが、他の成分はほぼブランク試料と同様の濃度となっていた。

XRD 測定の結果、OPC の人工海水への浸漬試験では、液固比 100 倍以上の水準で水酸化カルシウムが消失し、液固比 100 倍及び 200 倍で初期試料には存在しないブルサイト及び石膏が確認され、液固比 1000 倍以上では消失している。液固比 200 倍以上の水準でカルサイトが確認され、アラゴナイトが、人工海水浸漬試験の液固比 1000 倍以上の水準で存在を確認されている。PFA の人工海水への浸漬試験では、水酸化カルシウムが浸漬試験後の全ての水準で消失しており、カトアイトは人工海水の液固比 2000 倍の水準で明確なピークを確認できなくなっている。C-S-H ゲルの存在は、全ての水準で確認されている。

セメント系材料に及ぼす海水系地下水の影響を評価することを目的として OPC ペースト硬化体バルク供試体への通水試験が実施されている（武井ほか，2004）。その結果、人工海水を通水させた場合には通水速度が非常に小さくなり現実的に試験継続が困難となった。

海水系地下水を通水させた系 (SW 系) 及びイオン交換水を通水させた系 (DW 系) の EPMA の結果より、SW 系では試料上部で Ca が大きく溶脱していることが判明した。DW 系でも上部の Ca 濃度は減少しているものの SW 系ほど溶脱していない。さらに、SW 系の変質部の範囲は DW 系よりも大きく、健全部との境界は非常に明瞭であった。化学組成分析では出発試料で約 50% あった Ca が、DW 系上部で約 40% まで減少したのに対し、SW 系上部では 3% 以下とほとんどが溶脱していた。XRD 結果より、SW 系上部では水酸化カルシウムのみならず C-S-H ゲルも消失していた。SW 系上部では人工海水から供給された MgO が高い濃度で存在しており、Ca の分布と補完する関係となっていたことから Ca と Mg の置換反応が起こったものと推察される。XRD では SW 系上部では水酸化マグネシウム（ブルーサイト）ハイドロタルサイト及び微量の炭酸カルシウムのみが認められた。熱分析ではわずかなフリーデル氏塩も確認された。SiO₂ は SW 系においてもほとんど溶出していなかったが、その存在形態を特定することはできなかった。SO₃ は、SW 系下部のみで高濃度に存在し、XRD では AF t が明瞭に確認された。硫酸塩は海水から供給されたものと考えられるが、上部では Ca が非常に少ないために AF t は生成できなかったものと判断される。C1 は SW 系上部で多く存在していた。

圧縮強度及びヤング係数の測定結果を表-1 に示す。なお、SW 系で力学特性測定に供したのは積算液固比が 90 に満たない 2 供試体（積算液固比が 72.3 と 63.7）であり、DW 系と直接比較することは厳密にはできない。出発 SW 系と DW 系は同程度の圧縮強度であり、ともに出発試料の約半分まで低下していた。ただし、SW 系では積算液固比が小さく 90 に到達していない供試体での測定値であるから、同じ液固比で比較すると SW 系で高い強度を示す可能性もあるものと考えられる。DW 系では、出発試料のヤング係数の約半分まで低下していた。SW 系はデータが 1 点しかなく信頼性がやや低くなったが、DW 系よりも大きく、さらに出発試料をやや上回る結果となった。

表-1 圧縮強度及びヤング係数測定結果

通水液	液固比	通水前乾燥重量(g)	含水重量(g)	圧縮強度		ヤング係数	
				(N/mm ²)	平均	(×10 ⁴ N/mm ²)	平均
出発試料		—	82.5	3.68	3.75	0.30	0.35
		—	84.1	3.84		0.38	
		—	82.8	3.74		0.37	
SW系	72.3	53.0	80.5	1.90	1.80	0.40	0.40
	63.7	53.3	82.0	1.70		—	
DW系	89.3	52.8	78.7	1.94	1.87	0.20	0.17
	88.3	52.8	78.9	1.82		0.15	
	90.2	53.0	79.1	1.84		0.14	

—：測定不能であったもの

セメントペースト硬化体への人工海水による通水試験では、供試体上部においてCaが著しく減少しC-S-H中のCaまでも溶脱する現象が確認された。液相分析結果からも、水酸化カルシウム飽和溶液を大きく超える50~60mmol/dm³の高いCa濃度であったことから、Caの溶脱が促進されたことが確認された。

Caが溶脱した領域では、人工海水から供給された多量のMgOの存在が確認され、Mg含有相としてハイドロタルサイトとブルーサイト（水酸化マグネシウム）が確認された。SiO₂はほぼ溶脱せずに固相中に残っており、その存在形態は確認できなかったものの、MgO-SiO₂-H₂O系の鉱物を形成している可能性もある。これらMg含有相は、平衡な液相のpHが低いことが予想される。

人工海水による通水試験では、イオン交換水でのブランク試験に比べ透水係数が1~2桁以上小さくなり、中にはほとんど通水しない供試体もあった。EPMAによる元素分布の結果、試料上部には特にMgOが高濃度に縞状に偏析している部分が認められ、MgO含有相の析出が透水係数を大きく低下させた原因であるものと推測された。実際の処分施設での地下環境を考えた場合も、海水系地下水ではセメント系材料の透水係数が大幅に低下する可能性がある。

人工海水により劣化した供試体の圧縮強度はブランクよりもやや低い値であった。しかしながら、Caが大きく溶脱していることを踏まえると強度低下は大きくなく、MgO含有相が圧縮強度に寄与することで、従来のCa溶出率-圧縮強度の関係には載らない可能性が示唆された。ただし、C-S-HがMgO-SiO₂-H₂O系鉱物へ変化すると強度が低下するという既往報告があった。

供試体上部ではMgO含有相の他に、少量ではあるがフリーデル氏塩の生成も認められた。フリーデル氏塩については膨張との関係も既往されている。

供試体下部では、人工海水からの硫酸イオン供給によるものと考えられるAFtの生成が確認された。AFtは従来より膨張破壊を引き起こす生成物として知られる。海水からのAFt生成においては膨張を伴わないケースもあるという既往報告があったものの、海水への長期浸漬試験でコンクリート供試体が膨張するという実験報告もあり、海水により膨張破壊が起こる可能性は否定で

きない。

海水系地下水とセメント系材料との反応では、これまで多くの試験が行われてきたイオン交換水及び降水系地下水による変質試験で得られている結果とは異なる挙動が確認された。そのため、海水系地下水との反応で生じる生成物の同定、及びそれら鉱物の熱力学データ及び核種移行データの整備が必要であると考えられる。

(3) 硝酸塩との反応

セメント系材料に及ぼす硝酸塩の影響を評価することを目的として OPC ペースト硬化体バルク供試体への通水試験が実施されている（武井ほか，2002；武井ほか，2003）。

通水試験に供した供試体は研究用 OPC を用いて作製したペースト硬化体とし、水セメント比 105%、 $\phi 40 \times h40\text{mm}$ の円柱状とし、通水試験ではカラム内に固定した供試体に加圧した通水液を透過させた。通水は、供試体上部から下部の方向へ行い、供試体内を通過した液相はグローブボックス内のポリプロピレン製ボトルに集め、定期的に採取した。

通水液として 1 mol/dm^3 の硝酸ナトリウム水溶液を使用した。積算の液固比が 90 に達した時点で通水液をイオン交換水に切り替えた。これは溶解度の高い硝酸塩の瞬時溶解を模擬的に再現したことによる。なお、ここでいう液固比とは、供試体の絶乾重量に対する通過した液相の重量比であり、通水試験進行度合いを示し、劣化程度の指標とした。通水量は 4 水準とし、最長の積算液固比 500 の他、積算液固比 90、180 及び 360 の時点でも、通水を終了し固相の評価を実施した。ブランク試験としてイオン交換水のみを通水した試験を実施した。

固相試料断面の EPMA による Ca、S 及び Na の元素濃度分布をブランク試験の結果とともに図-6~8 に示す。

EPMA の結果より、Ca は積算液固比 90 において、試料上端から 1/2 程度まで Ca が溶脱し、ブランクに比べ Ca 溶脱が進行していることが判明した。積算液固比 360、500 では硝酸ナトリウム溶液通水及びブランクの両ケースともに、一部不均質な劣化のために健全部が取り残された部位があるものの、健全部はほぼ消滅した。XRD による評価の結果、積算液固比 180 以降ではブランクも含め、供試体上部で水酸化カルシウムは消失していた。C-S-H は全ての試料、部位で確認された。Si 及び Al は、ブランクと大きな差異は無かった。Si は供試体上端部のみで濃度の低下が認められた。

硝酸塩を通水した供試体では、 SO_3 の濃度はブランクよりもかなり低くなっていた。XRD 結果から、ブランクで検出された AFt 及び AFm 水和物は、硝酸ナトリウム溶液通水ではどの液固比においても検出されなかった。これら硫酸塩を含むアルミネート相に替わり、液固比 90 では硝酸塩型の AFm($3\text{Ca} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{Ca}(\text{NO}_3)_2 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$) が検出された。このことより、 SO_4^{2-} と NO_3^- の置換が起こったものと考えられる。なお、イオン交換水に切り替えた積算液固比 180 以降の試料では硝酸塩型の AFm 相は検出されなかった。ブランクでは、健全部と劣化部の境界付近に SO_3 の濃集が認められた。Na は、硝酸ナトリウムを通水した供試体の液固比 90 のみ、劣化部に非常に高濃度に存在していた。液固比 90 の供試体は、間隙水中に高濃度に溶存する硝酸ナトリウムが試料調製の乾燥工程で析出するのを防止するために、通水後にイオン交換水を液固比 2~3 程度通水するフラッシングを行っており、溶液からの析出によるものではないと判断される。したがって、アルカリシリカゲル等の Na を含む固相が生成している可能性もある。イオン交換水に切り替えた以降の 3

水準及びブランクの全水準ではNaが残存している部位は認められなかった。

NaNO₃を通水した試験体の透水係数は、透水初期には $2.5 \times 10^{-9} \sim 3.0 \times 10^{-9}$ m/sec程度の値を示し、液固比90の $6.0 \times 10^{-9} \sim 7.5 \times 10^{-9}$ m/secまで徐々に増加した。液固比90で通水液をNaNO₃からイオン交換水に換えた直後から液固比120まで透水係数は急激に増大し、それ以降では増加率が緩慢となった。液固比360での透水係数は $3.0 \times 10^{-8} \sim 3.7 \times 10^{-8}$ m/sec、液固比500では $3.8 \times 10^{-8} \sim 4.6 \times 10^{-8}$ m/secとなった。NaNO₃を通水した試料は、ブランク試料と比較して積算液固比90までは透水係数が小さく、積算液固比90の時点で通水液をイオン交換水に替えた直後から透水係数は増大し、ブランク試料よりもわずかに大きくなった。NaNO₃を通水した試料は、積算液固比120以降ではブランクと同様の傾きで増加し、液固比500までの透水係数はイオン交換水を同量通水した試料とほぼ同程度の透水係数となった。

NaNO₃を通水した試験体の空隙率は、試料上部は初期から積算液固比180までは大きく増加し、積算液固比180以降では若干増加し、ブランクよりもわずかに大きな値を示したが、積算液固比に対する空隙率の変化は同様な傾向を示すことが確認されている。空隙率の増加は水酸化カルシウムの溶脱に相関しているものと考えられる。

NaNO₃を通水した供試体の圧縮強度は、初期試料から積算液固比90まで大きく低下し、それ以降の低下率は小さくなった。また、積算液固比90では、NaNO₃を通水したケースの圧縮強度はブランクよりも低くなっているが、積算液固比180以上では両者の差異はほとんど見られない。ここで得られた圧縮強度は、基本的に変質の著しい供試体上部の強度であると考えられ、空隙率と同様に水酸化カルシウムの溶脱が大きく影響しているものと考えられる。ヤング係数は、積算液固比の増加にともない減少しているが、その減少率は、積算液固比360以降は小さくなっている。また、通水液の違いでは、積算液固比90の時点ではNaNO₃を通水したケースの方がブランクよりも低くなっているが、積算液固比180以上では両者の差異はほとんど見られなかった。

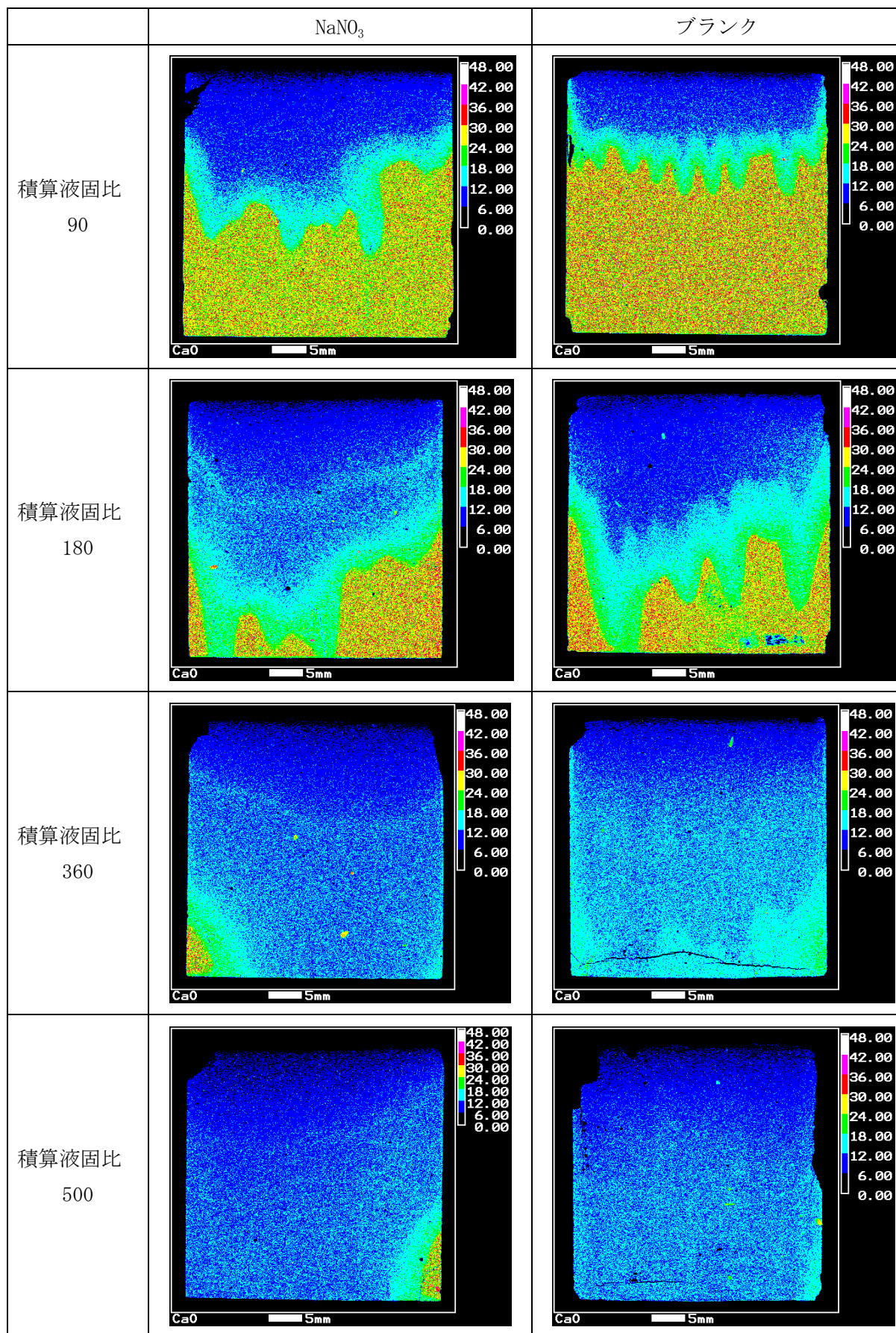


図-6 Ca 濃度分布測定結果 (Ca 換算)

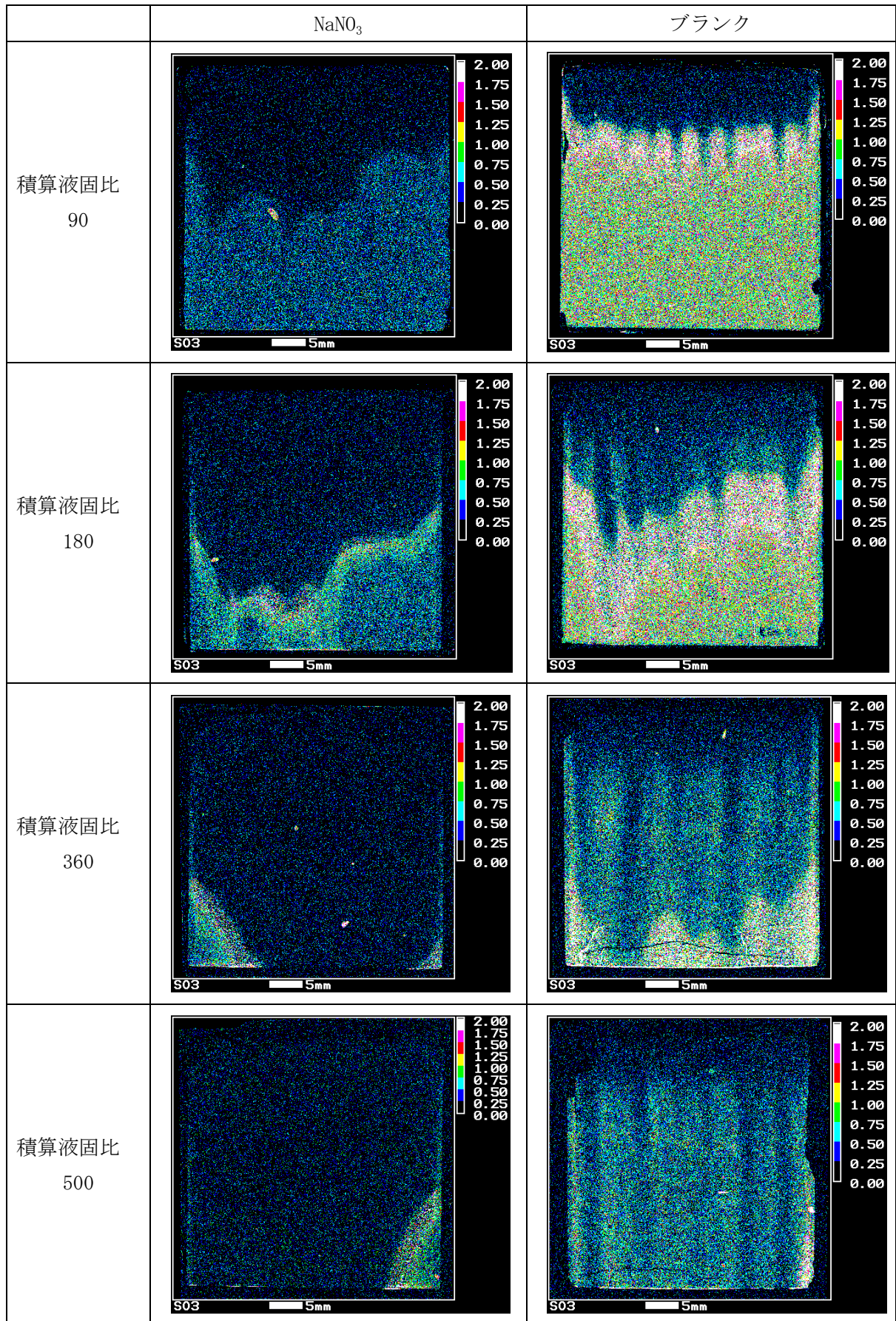


図-7 S 濃度分布測定結果 (SO₃ 換算)

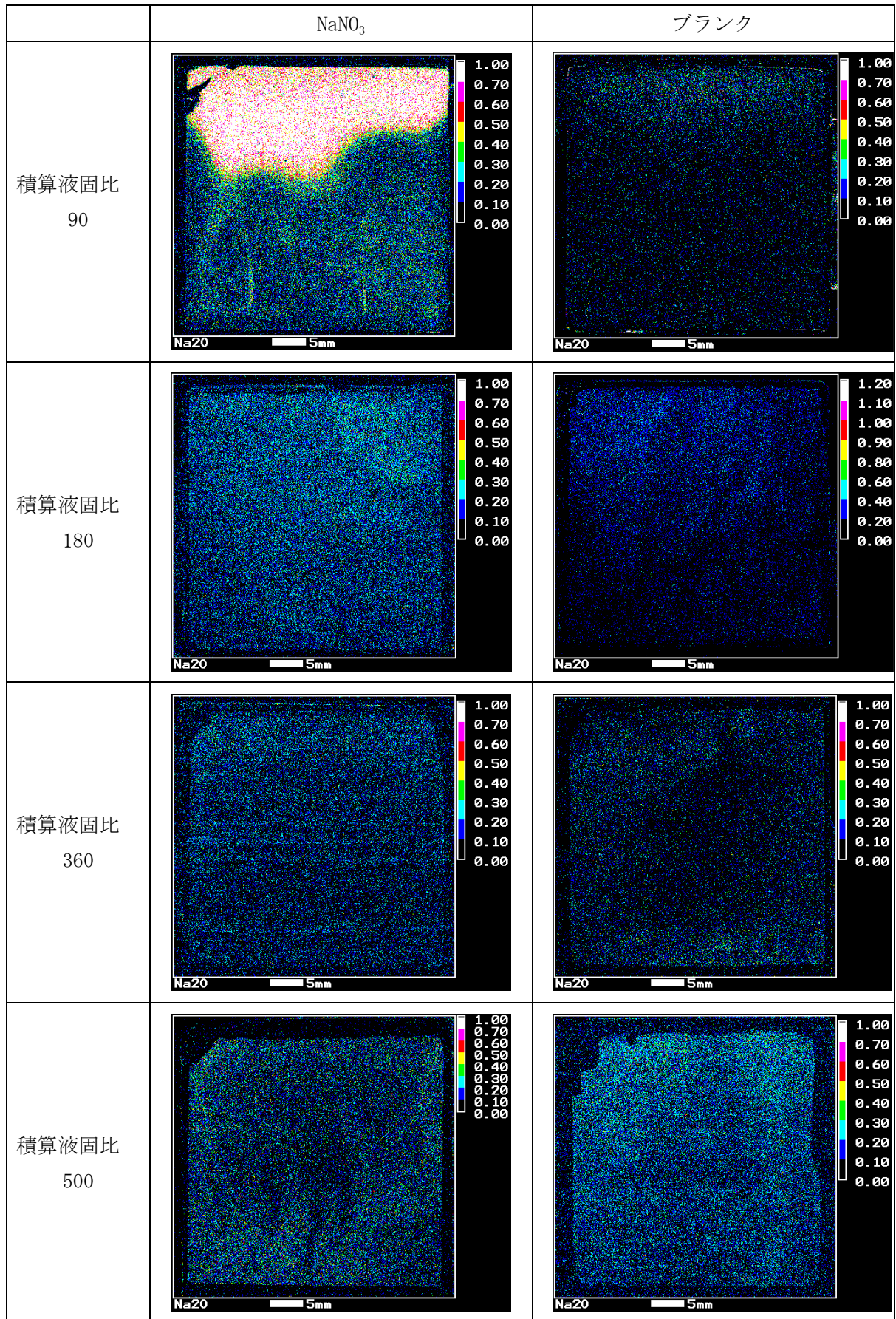


図-8 Na 濃度分布測定結果 (Na₂O 換算)

ブランク試料では、初回に採取した試料を透過した液相（流出液）の pH は約 13 と高い値を示し、それ以降の積算液固比 150 までは、水酸化カルシウム飽和溶液よりやや低い pH 約 12.5 で推移した。積算液固比 120~150 程度から徐々に pH は低下し、積算液固比 500 では、約 pH11.5 まで低下した。NaNO₃ 溶液を通水した試料の流出液では、積算液固比 240 まではブランクと比較して約 0.1 程度低い値となっている。

NaNO₃ 溶液を通水した試料の流出液の Ca 濃度は、透水初期に急激に増大し、NaNO₃ 溶液を通水した積算液固比 90 までは約 30~32mmol/dm³ で推移した。一方、ブランクでは初回のみ低く、積算液固比 150 まで約 22mmol/dm³ と Ca(OH)₂ の飽和濃度に近い値で推移した。NaNO₃ 溶液を通水している期間の Ca 濃度は、水に対する Ca(OH)₂ の飽和濃度より高い Ca 濃度であることが確認された。NaNO₃ 溶液を通水したケースでは、通水液をイオン交換水に換えた直後に約 22mmol/L まで低下し、その後は積算液固比の増加とともに徐々に低下した。ブランクでは、積算液固比 150 以降から積算液固比の増加とともに徐々に低下した。NaNO₃ 溶液を通水した試料では、ブランクより小さな積算液固比で Ca 濃度が低下し始めている。NaNO₃ 溶液を通水したケースでは、ブランクの 1.5 倍程度高い Ca 濃度で Ca(OH)₂ が溶解したために、ブランクよりも早い時期に Ca(OH)₂ が消失したと考えられる。

NaNO₃ 溶液を通水した流出液の Si 濃度は、積算液固比 180 以降に徐々に増大し、ブランクでは積算液固比 240 以降に増加している。試験終了時の積算液固比 500 では NaNO₃ 溶液を通水した方がブランクより高い濃度となった。

NaNO₃ 溶液を通水した試料の流出液の SO₄²⁻ 濃度は、通水初期はブランクに比べ非常に高い濃度であった。これは固相の評価結果からも明らかとなったとおり、SO₄²⁻ が NO₃⁻ に置換され放出されたためであると考えられる。

NaNO₃ 溶液を通水した試料の流出液の NO₃⁻ 濃度は、初回採取の液のみ 0.8mol/dm³ と通水液より低い濃度となったが、その後は積算液固比 90 までは通水液と同じ 1mol/dm³ に近い濃度で推移した。これは、通水初期においてアルミネート相などの SO₄²⁻ と NO₃⁻ が置換したことにより NO₃⁻ が一部固相に固定された影響であると考えられる。イオン交換水に切り替えた後は急激に低下し、それ以降は定量下限以下まで低下した。

硝酸塩によるセメント系材料の変質では、イオン強度が高い環境で、Ca の飽和濃度が高まることから、溶脱が促進される場合があるが、促進の大きさは約 10~20%であり、また、変質に伴って生成する二次鉱物も、イオン交換水及び降水系地下水による変質と同様であることから、従来のモデルにおける解析が可能と考えられる。

4. 結論

セメント系材料の変質過程は、これまで OPC を中心に多くの研究者により研究されており、モデル化も行われている。また、地下水成分や廃棄体成分との反応に関しても研究が進められ、一部はモデル化も行われている。これら、既往の研究成果に基づいて、TRU 廃棄物処分環境におけるセメント系材料の変質に関する予測は、基本的なケースに関しては十分に可能と考えられるが、例えば海水系地下水との反応を伴う場合や、混合セメントの変質モデル等、詳細検討が必要なものも存在する。

参考文献

- Atkins, M. et al. (1992): Cement Concrete Research, Vol22.
- Atkinson, A. and Guppy, M. (1988): Evolution of ph in a radwaste repository leaching of modified cements and reactions with groundwater, AERE R12961.
- Buil, M., Revertegat, E. and Oliver, J. (1992): A model of the attack of pure water or undersaturated lime solution on cement , ASTM STP1123 pp227-241.
- Faucon, P., LeBescop, P., Adenot, F., Bonville, P., Jacquinet, J. F., Pineau, F. And Felix, B. (1996) : Leaching of cement : Study of the surface layer, Cement and Concrete Research, Vol. 26, No. 11, pp1707-1715.
- 藤田英樹, 野口聡, 廣永道彦(1998):アーウィン系低アルカリセメントの開発—ph 挙動に及ぼすシリカフューム添加の影響—, 日本原子力学会「1998 秋の年会」, pp. 823.
- 藤田英樹, 廣長道彦, 小松進一, 稲継成文(2005):アーウィン系低アルカリ性セメントを用いたコンクリート及びモルタルの物理的特性, 日本原子力学会「2005 春の年会」, p655.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター(2005):平成 16 年度 地層処分技術調査等 TRU 廃棄物関連処分技術調査 人工バリア長期性能確証試験.
- 芳賀和子, 豊原尚実, 須藤俊吉, 金子昌章, 小林康利, 小澤 孝 (2002) :セメント硬化体の溶解に伴う変質(I), 日本原子力学会和文論文誌, Vol. 1, No. 1, pp20-29.
- 芳賀和子, 須藤俊吉, 広永道彦, 田中 知, 長崎晋也, エーライト硬化体からの Ca の溶脱現象に関する研究, 土木学会論文集, No. 746/V-61, 141-149 (2003).
- Hoglund, L. O. (1987): Degradation of concrete in a LLW/ILW repository, Nagra Technical Report 86-15.
- 金子昌章, 加藤博康, 三倉通孝, 立山伸治, 村瀬拓也, 塚本政樹, 稲継成文 (2004) : TRU 廃棄物処分における硝酸塩の影響(2) —セメント系材料の変質への影響—, 原子力学会「2004 秋の年会」, pp. 676.
- 小早川真, 大森啓至, 佐藤道生, 土田茂 (2004) : ダムコンクリートにおけるフライアッシュのポゾラン反応率の考察, コンクリート工学論文集, Vol. 15, No. 1, pp45-56.
- Lagerblad, B. (2001): Leaching performance of concrete based on studies of samples from old concrete, SKB Report.
- 大西利満, 町田篤彦, 辻幸和, 平田征弥 (1998): 低濃度硫酸塩による地中コンクリートの変質特性, 土木学会第 25 回関東支部技術検討発表会, V-10.
- Owada, H., Mihara, M., Mine, T., Neyama, A., Iriya, K. and Arimoto, T. (1999): The geochemical modelling study on leaching behavior of HFSC for cementitious radioactive waste disposal, Proc., ICEM' 99.
- 斎藤裕司, 中根淳, 藤原愛 (1993) : 電気的手法による劣化促進試験法におけるセメント水和物の溶解と変質に及ぼす電位勾配の影響, コンクリート工学論文集, Vol. 4, No. 2, pp69-78.
- 坂本浩幸, 芳賀和子, 柴田真仁, 藤田英樹, 小林久美子(1996):人工バリア材用セメントの ph 調整, 日本原子力学会誌, 38, 4, 51.
- 佐藤道生, 小早川真, 小津博 (1999) : 材令 34 年を経た中庸熱フライアッシュダムコンクリートの硬化体組織と物性, コンクリート工学年次論文報告集, Vol. 21, No. 2, pp877-882.

- 柴田真仁, 芳賀和子, 須藤俊吉, 廣永道彦, 高橋学, 田中知 (2000): セメント系材料の透水性能に及ぼす地下水成分の影響, 日本原子力学会「2000年秋の大会」, K30.
- 柴田真仁, 芳賀和子, 広永道彦, 熊野由美子, 庭瀬一仁, 小松進一(2004): フライアッシュ混合セメント硬化体の溶解現象(1)溶解に伴う硬化体の変化, (社)日本原子力学会「2004年秋の大会」, I59.
- 杉山大輔, (1997): 浸漬試験によるセメント材料の長期変成挙動に関する検討 - 試験条件, 試験方法の検討 -, 電力中央研究所我孫子研究所報告, No. U97019.
- 須藤俊吉, 芳賀和子, 広永道彦, 田中 知, 長崎晋也(2004): エーライト硬化体からの Ca の溶脱現象に関する研究 (II), 土木学会論文集 No. 753/V-62, pp13-22, 2004.
- 武井明彦, 藤田英樹, 原澤修一(2004): セメント系材料の水理・力学特性の変遷に関する研究(III), 核燃料サイクル開発機構業務委託報告書, JNC TJ8400 2004-024.
- 武井明彦, 大和田仁, 藤田英樹, 根岸久美(2002): セメント系材料に対する硝酸塩等の影響評価, 核燃料サイクル開発機構業務委託報告書, JNC TJ8400 2002-020.
- 武井明彦, 大和田仁, 藤田英樹, 根岸久美(2003): セメント系材料に対する硝酸塩等の影響評価 II, 核燃料サイクル開発機構業務委託報告書, JNC TJ8400 2003-041.
- 田熊 靖久, 藤田 英樹, 坂本 浩幸, 小林 久美子, 芳賀 和子, 宇智田 俊一郎(1996): アーウィン含有クリンカーセッコウスラグ系セメントの水和反応と ph 挙動, 日本セラミックス協会学術論文誌, 104, 11, 1040.
- 魚本健人ほか (1984): コンクリート構造物の耐久性, コンクリート工学, Vol. 22, No. 1, pp39-53.
- Uchikawa, H. (1991): Influence of water cement ratio on the ionic penetrability of blended cement paste, mortar, concrete, 2nd CANMET/ACI International conference on durability of concrete (Montreal), Vol. 1, 525-544.
- 横関康祐, 渡邊賢三, 林 大介, 坂田 昇, 大即信明: 水和反応と温度依存性を考慮したセメント系材料のイオン拡散係数予測モデル(2003): 土木学会論文集, No. 725/V-58, 131-142.
- Zamorani, E., Lanza, F., Serrini, G. and Blanchard, H. (1986): Water leachability of cement forms for medium-level waste immobilization, NUCLEAR AND CHEMICAL WASTE MANAGEMENT, Vol. 6, pp. 197-202.

4-4 緩衝材を設置しない処分施設における変質挙動の解析結果 (4.4.2.2(2))

1. はじめに

第2次 TRU レポートの4.4.2.2(2)において緩衝材を設置しない処分施設における変質挙動の解析検討を実施し、化学環境の維持期間の評価を行っている。ここでは、解析検討の詳細な解析モデルとともにその解析結果を示し、第2次 TRU レポートにまとめた結果の根拠を示す。

2. 緩衝材を設置しない施設における長期的なバリア性能の変化に対する想定

処分坑道では鉄筋コンクリートの使用が想定される構造躯体、鉄筋を含まない充填モルタル、また廃棄体パッケージを含む廃棄体定置領域があり、部位毎にセメントの使用量が異なる。また、含まれる廃棄体の種類によって化学環境が異なることとなる。しかし、ここではこれらの違いについては考慮せず、単純化することの不確実性を認識しつつ領域全体をモルタルの均一な材質としてモデル化した。

またセメント系材料の透水性に関しては、良好に施工されひび割れが生じていない箇所では透水係数が低く良好な止水性を有する。しかし、セメント系材料においては、鉄筋の腐食、打ち継ぎ目などへの応力の集中、地圧の作用などによってひび割れが生じ、物質移行特性が変化することが想定される。しかし、ひび割れの発生に関しては、その規模、時期の予測は困難である。よってここでは処分施設内の透水性に関して砂並みの透水係数を設定し、ひび割れありのケースとした。また、最大の化学環境維持期間を評価するために透水係数、拡散係数に経験式を適用し、長期的に低透水性が維持されるケースについてもひび割れなしのケースとして検討を行った。

2.1 解析モデル

2.1.1 解析対象施設

セメント系材料のみからなる処分施設ではベントナイト混合土からなる緩衝材が設置されず、人工バリアによる長期の低透水性が期待されていない。そのため、物質移行は移流が卓越することも考えられるため、処分坑道全体をモデル化して解析対象領域とした。ここでは廃棄体グループ3の処分概念(φ12m)の坑道断面を等価な面積の正方形に置き換え、長さ10mの1次元モデルとして解析領域とした。モデルの上流端、下流端において地下水濃度および水頭を固定して解析を行った。図-1にモデル化した解析領域図を示す。



図-1 解析体系

2.1.2 セメント水和鉱物の設定

処分施設内は支保，構造躯体，廃棄体などの部位ごとにモルタルが使用される部位とコンクリートが使用される部位があり，それぞれ異なる示方配合となると考えられるが，本検討においてはすべてのセメント系材料をモルタルとして取り扱うこととした。モデルモルタルの鉱物組成，および想定する鉱物を表-1～表-2に示す。また地下水組成は降水系地下水，海水系地下水の2種類を設定した。表-3に地下水組成を示す。

表-1 セメント鉱物組成 (mol/dm³-water)

	モデルモルタル
水セメント比(W/C%)	55
C ₃ AH ₆	1.132
C ₃ FH ₆	0.416
Mg(OH) ₂	1.247
C ₆ As ₃ H ₃₂	0.211
C-S-H ゲル	16.426
Ca(OH) ₂	7.447
NaOH	0.195
KOH	0.305
間隙率 (-)	0.19

表-2 バリア材において考慮する鉱物

バリア材	初期鉱物	二次鉱物	
モルタル	Ca(OH) ₂ (ポルトランドイト)	C ₃ ASH ₄	フリーデル氏塩
	C-S-H ゲル	C ₄ AH ₁₃	モノサルフェート
	C ₃ AH ₆ (ハイドロガーネット)	C ₄ AH ₁₉	カルサイト
	C ₆ As ₃ H ₃₂ (エトリンガイト)	C ₂ ASH ₈	アナルサイム
	MH(ブルーサイト)	C ₃ AS ₃	ローモンタイト
		カオリナイト	カルセドニ
		パイロフィライト	ハイドロタルサイト
		セピオライト	

表-3 解析に使用する地下水組成（核燃料サイクル開発機構，1999）

	降水系地下水 (レファレンスケース)	海水系地下水 ^{*1}
pH	8.5	8.0
Eh [mV]	-281	-303
単位：[mol l ⁻¹]		
Na (Total)	3.6×10^{-3}	6.2×10^{-1} ^{*5}
Ca (Total)	1.1×10^{-4}	3.3×10^{-4}
K (Total)	6.2×10^{-5}	1.1×10^{-2}
Mg (Total)	5.0×10^{-5}	2.5×10^{-4}
Fe (Total)	9.7×10^{-10}	3.9×10^{-8}
Al (Total)	3.4×10^{-7}	3.2×10^{-9}
C (Total)	3.5×10^{-3} ^{*2}	3.5×10^{-2} ^{*6}
S (Total)	1.1×10^{-4} ^{*3}	3.0×10^{-2} ^{*7}
B (Total)	2.9×10^{-4} ^{*4}	1.7×10^{-3} ^{*4}
P (Total)	2.9×10^{-6} ^{*4}	2.6×10^{-7} ^{*4}
F (Total)	5.4×10^{-5} ^{*4}	1.0×10^{-4} ^{*4}
Br (Total)	—	5.3×10^{-4} ^{*4}
I (Total)	—	2.0×10^{-4} ^{*4}
N (Total)	2.3×10^{-5} ^{*4}	5.2×10^{-3} ^{*4}
Cl (Total)	1.5×10^{-5} ^{*5}	5.9×10^{-1}
Si (Total)	3.4×10^{-4}	3.0×10^{-4}

*1 海水を起源として、鉱物との平衡反応、有機物による還元反応を考慮したモデル地下水 (Yui et al., 1999a)

*2 無機炭素 = 3.5×10^3 mol l⁻¹, CH₄(aq) = 1.5×10^{10} mol l⁻¹

*3 SO₄²⁻ = 1.1×10^4 mol l⁻¹, HS⁻ = 3.8×10^9 mol l⁻¹, H₂S(aq) = 1.2×10^{10} mol l⁻¹

*4 実測地下水の平均値より設定

*5 電荷バランスをとるために調整

*6 無機炭素 = 1.5×10^2 mol l⁻¹, CH₄(aq) = 2.0×10^2 mol l⁻¹

*7 SO₄²⁻ = 3.2×10^5 mol l⁻¹, HS⁻ = 2.8×10^2 mol l⁻¹, H₂S(aq) = 2.1×10^3 mol l⁻¹

2.1.3 物質移行特性

2.1.3.1 透水係数

廃棄体グループ 3, 4 の処分施設ではベントナイト混合土による緩衝材が設置されないため、周辺岩盤の透水性によっては処分施設中の物質移行は移流の影響を強く受けることになる。そのため、処分施設中の物質移行特性が処分施設の長期安定性に大きく影響すると考えられる。

廃棄体グループ 3, 4 の処分施設では、セメント系材料にひび割れが生じる可能性を考慮して、施設内部の止水機能は無いものと仮定することができる（ひび割れありケース）。このケースでは処分施設全体に砂並みの大きな透水係数を設定した。

対して、処分施設を構成するモルタルが初期の低透水性を維持し、また鉱物の変質による間隙率（ ϵ ）の変化に従って透水係数（ k_w ）が変化するケースも設定した（ひび割れなしケース）。ここではセメントペースト硬化体（ $0.5 \leq \epsilon \leq 0.8$ ）を用いた通水試験によって算出された間隙率と透水係数の関係式（三原ほか，2003）を低間隙率の領域（初期の間隙率 $\epsilon = 0.19$ ）まで拡張して用いることとした。

ひび割れありケース： $k_w = 4.0 \times 10^{-6}$ m/s

ひび割れなしケース： $k_w = 4.34 \times 10^{-9} \times \epsilon^3 \times (1 - \epsilon)^{-2}$ m/s

2.1.3.2 拡散係数

廃棄体グループ3,4の処分施設では緩衝材のような低透水性のバリア材を設置しないため人工バリアの機能によって処分施設内の物質移動が拡散支配になるとは考えにくい。しかし、周辺母岩の透水性によっては移流の影響が小さくなると考えられる。

ひび割れありケースでは処分施設内のモルタルが低拡散性を持たないものとした。対して、ひび割れなしケースではモルタルの低拡散性を考慮して設定した。ひび割れありケースでは実効拡散係数(De)を自由水中の拡散係数に間隙率を乗じた値を設定し、ひび割れなしケースでは実験で得られた値をフィッティングして求めた式(Mihara and Sasaki, 2005)を設定することとした。

$$\text{ひび割れなしケース} : De = 4.0 \times 10^{-9} \times \varepsilon \text{ m}^2/\text{s}$$

$$\text{ひび割れありケース} : De = 4.0 \times 10^{-9} \times \varepsilon^{3.05} \text{ m}^2/\text{s}$$

なお、各ケースにおける透水係数および拡散係数の間隙率に対するパラメータの変化は図-2のようになる。

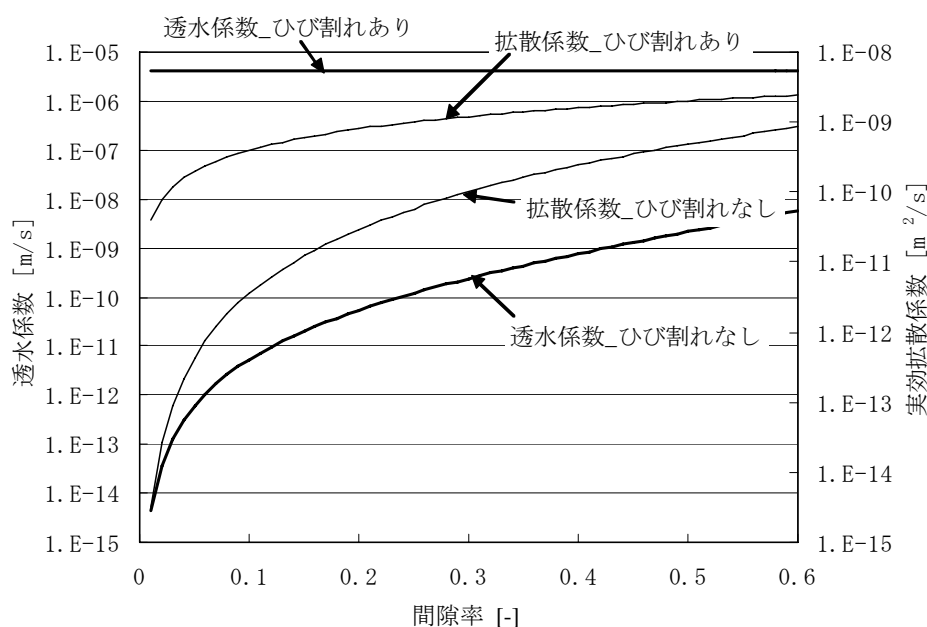


図-2 物質移行パラメータの間隙率依存性

2.1.3.3 水理条件

本検討では処分施設内の物質移行特性はひび割れの出現の有無によって異なる水理特性を設定している。ひび割れありケースでは、処分施設内の透水係数が大きいことから周辺岩盤からの集水を考慮して設定した。ここでは第2次 TRU レポート 4.4.4 で実施した水理解析の結果から施設内の流速を天然バリアの2倍と設定した。対して、ひび割れなしケースでは初期の間隙率では天然バリアよりも低透水性を有することとなるため、処分施設自体に動水勾配(0.01)が作用することとした。表-4に水理条件の設定をまとめた。

表-4 緩衝材を設置しない処分施設の変質解析における物質移行特性に関する設定

ケース名	ひび割れケース	ひび割れなしケース
施設(モルタル)領域の透水性	止水性を見込まず、砂程度の大きな透水係数 4×10^{-6} [m/s] を設定 (4.4.4.2(2)c 参照)	間隙率の関数として透水係数を設定した経験式による比較的良好的な止水性を設定
施設(モルタル)領域の実効拡散係数	自由水中の拡散係数に間隙率を乗じた値を設定	自由水中の拡散係数と間隙率の関数で表される低拡散性を設定
天然バリアの透水性の反映方法	周辺岩盤からの集水を考慮して施設内流速を天然バリアの2倍として設定	動水勾配 0.01 を設定

2.2 解析ケース

解析ケースの設定においては、地下水水質の違い及びセメント系材料の透水性の設定の違いを考慮した設定を行った。表-5 に解析ケースを示す。

表-5 解析ケース

解析ケース	地下水水質		透水性	
	降水系地下水	海水系地下水	ひび割れあり	ひび割れなし
Case-1	●		●	
Case-2		●	●	
Case-3	●			●
Case-4		●		●

2.3 解析結果

2.3.1 鉱物の変質

解析結果として液相濃度の分布と鉱物相の濃度分布を図-3～図-6 に示す。

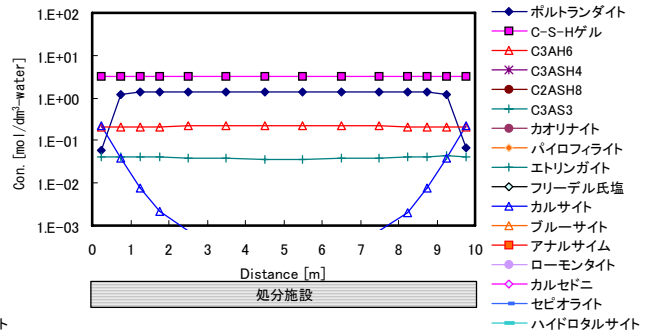
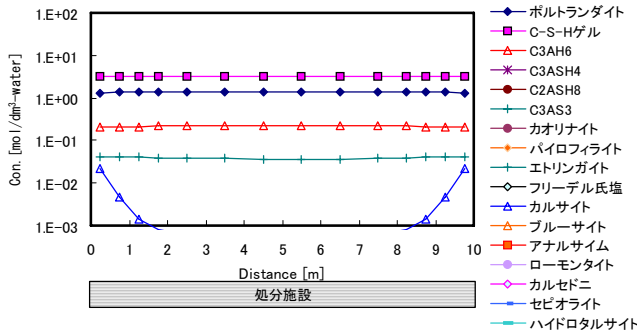
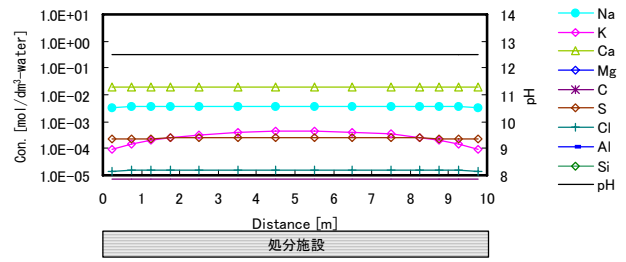
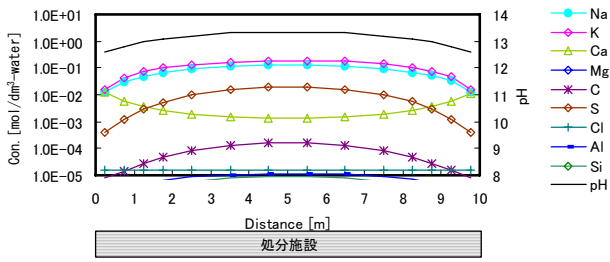
周辺岩盤の透水係数を 2.0×10^{-10} m/s、動水勾配 0.01 として水理条件を設定しているため地下水流速は小さく、処分施設内の透水性の違いによらず、物質移行は拡散が支配的となった。拡散係数の設定が異なるため、ひび割れなしのケースはひび割れありのケースと比較すると変質が進展していない。

鉱物の変質としては、降水系地下水のケースでは周辺地下水の影響を受けて両端から徐々に変質が進んでいる。ポルトランタイトの溶脱、ハイドロガーネットからゲーレナイトハイドレートなどへの変質、変質末期の鉱物として設定したアナルサイム、ローモンタイトなどの生成などが生じている。また、Mg を含有する鉱物としてセピオライトが境界付近にわずかに生成している。

海水系地下水のケースでは C1 濃度が高いため、全体にフリーデル氏塩が生成した。時間の経過に伴い、施設の両端から変質が進み、カルサイト、アナルサイム、カルセドニが生成している。最終的にアナルサイムは処分施設全体に生成し、C-S-H ゲル、フリーデル氏塩と置き換わった。Mg を含有する鉱物としてはセピオライトが境界から生成している。

降水系地下水：100年

1,000年



10,000年

100,000年

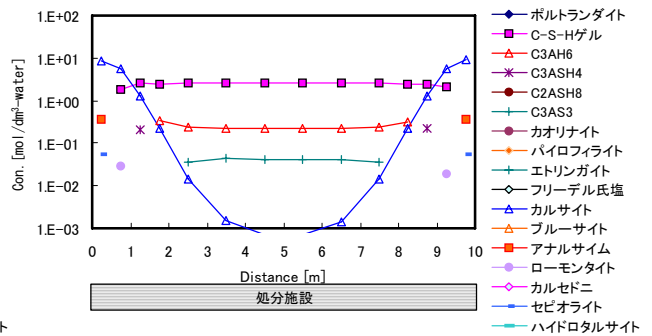
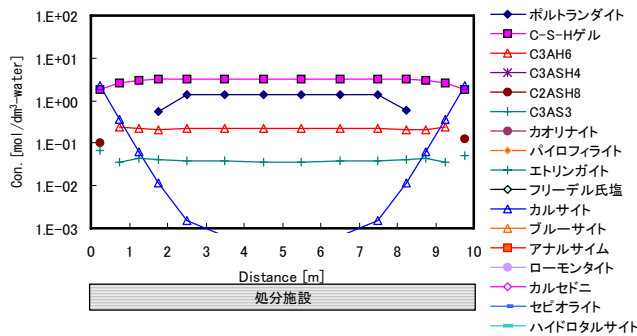
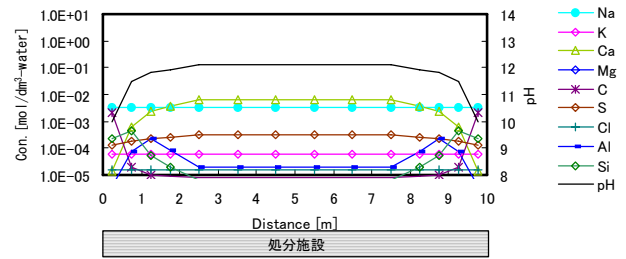
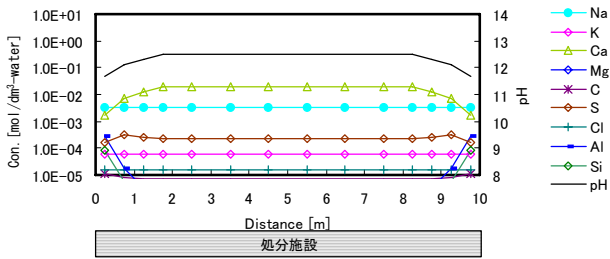
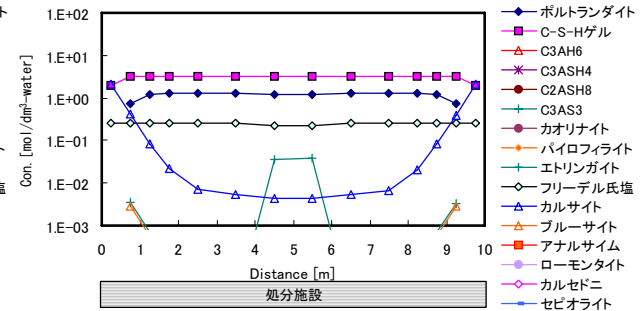
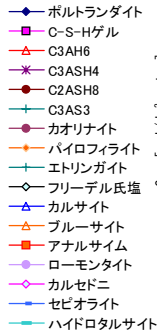
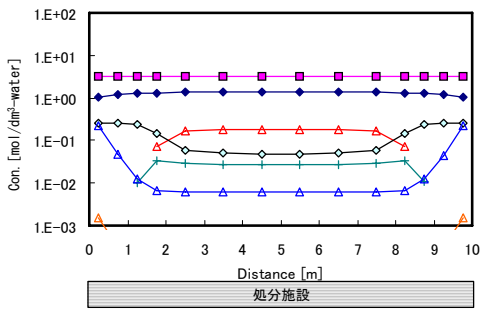
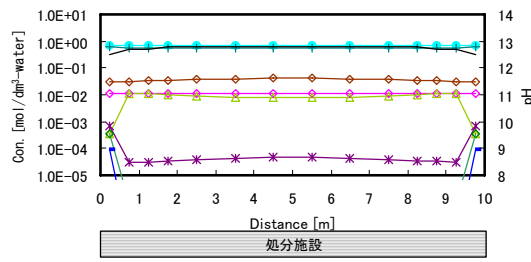
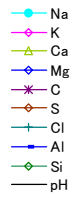
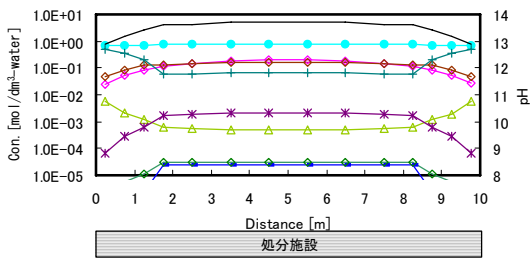


図-3 液相濃度, 鉱物濃度の空間分布 (Case-1 降水系地下水 ひび割れあり)

海水系地下水：100年

1,000年



10,000年

100,000年

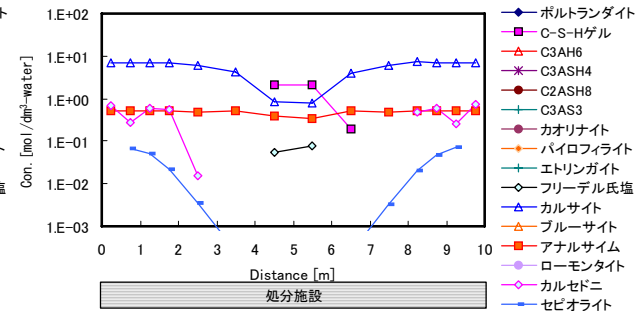
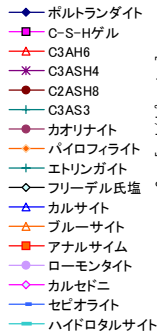
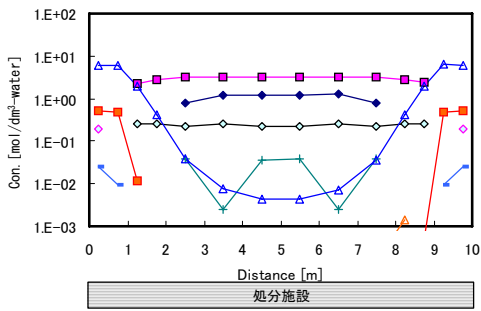
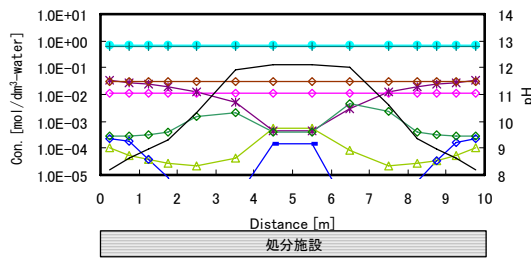
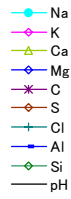
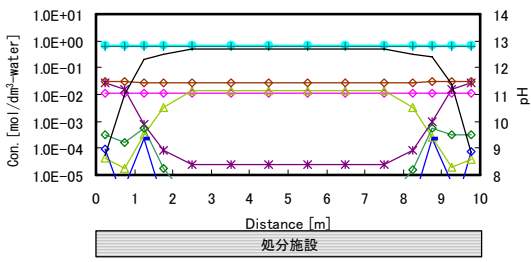
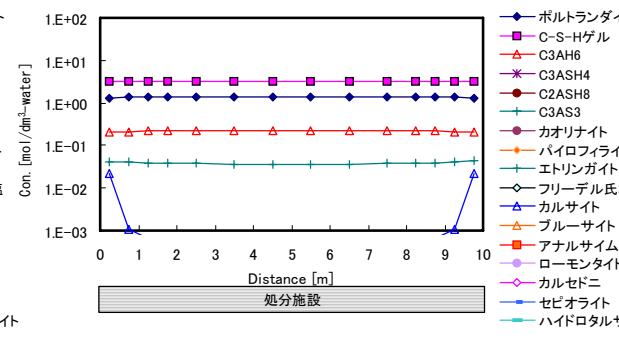
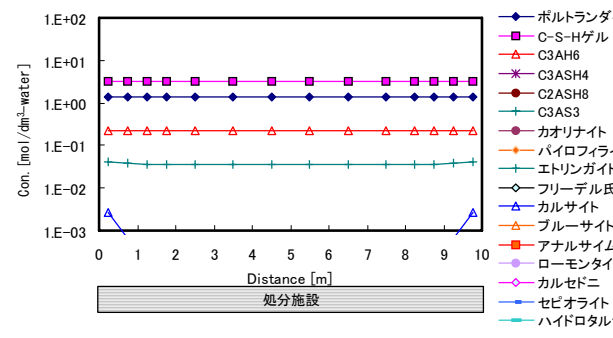
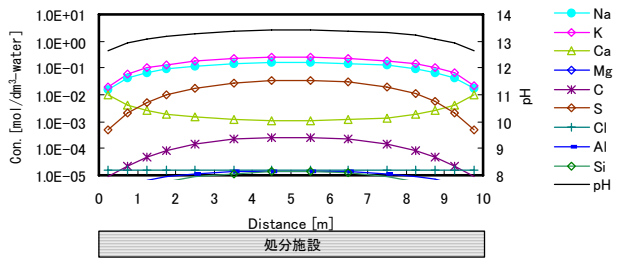
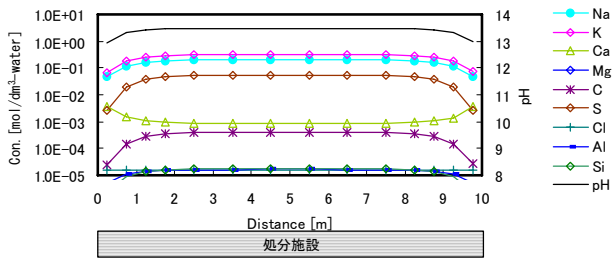


図-4 液相濃度， 鉱物濃度の空間分布 (Case-2 海水系地下水 ひび割れあり)

降水系地下水：100年

1,000年



10,000年

100,000年

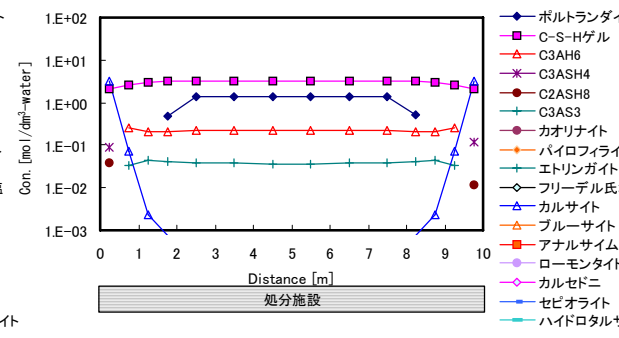
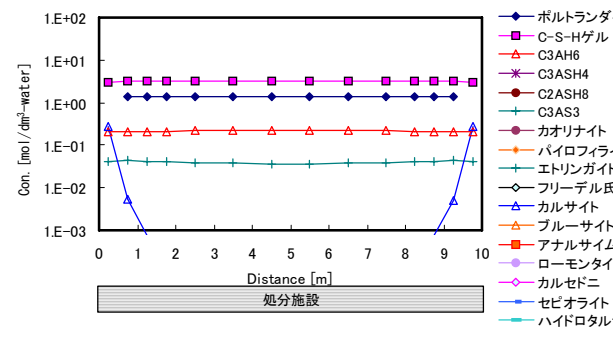
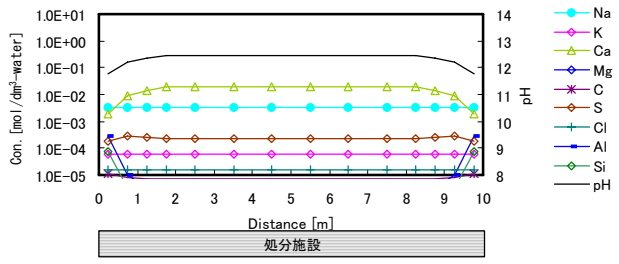
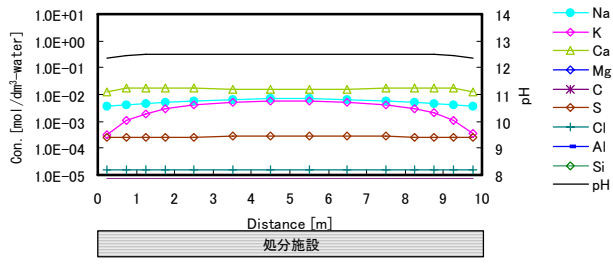
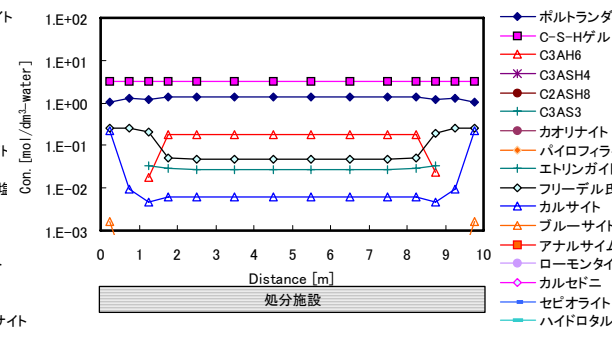
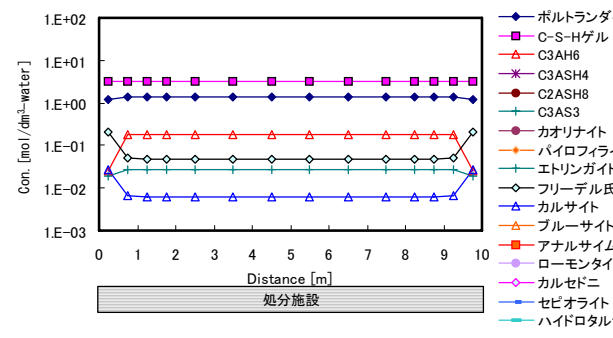
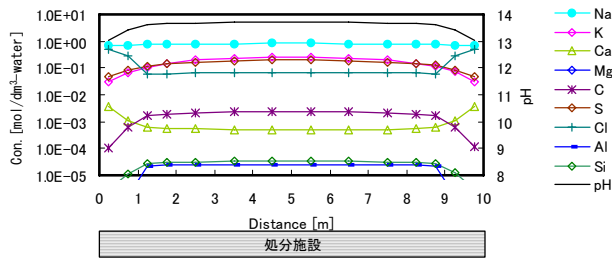
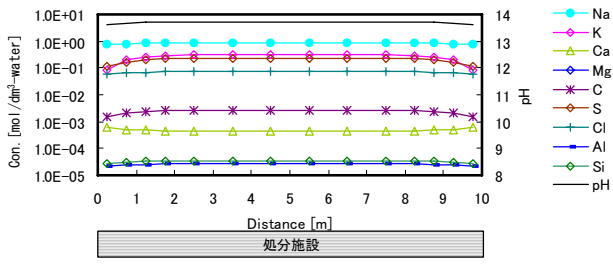


図-5 液相濃度，鉱物濃度の空間分布 (Case-3 降水系地下水 ひび割れなし)

海水系地下水：100年

1,000年



10,000年

100,000年

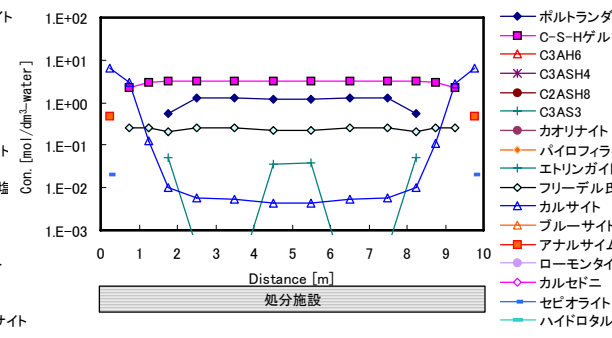
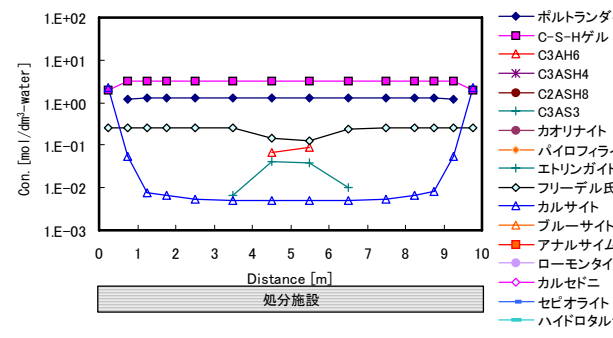
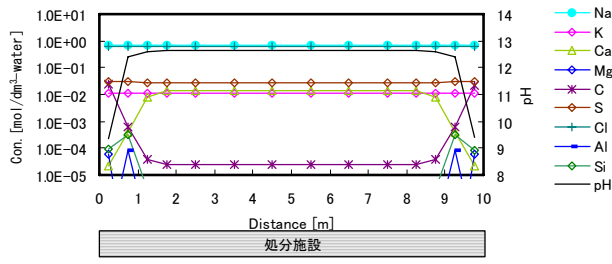
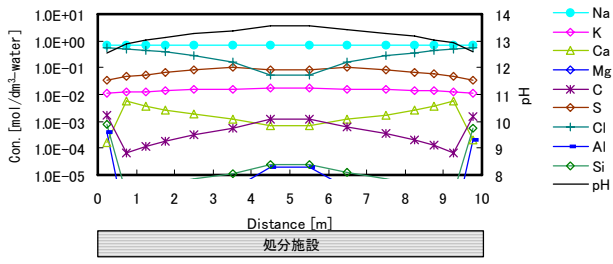


図-6 液相濃度，鉱物濃度の空間分布 (Case-4 海水系地下水 ひび割れなし)

2.3.2 化学環境の維持期間

処分施設の化学環境はセメント系材料との化学反応に強く影響される。間隙水の化学的条件は、セメントペースト構成鉱物の溶解過程の遷移に伴い Na, K に富む pH13 以上の RegionI から、ポルトランドイト平衡にある pH12.5 の RegionII, C-S-H ゲルの溶解反応に影響され、pH が徐々に低下する RegionIII へと時系列的に変化する。

ここでは化学環境の維持期間を評価するために pH の経時変化を示す。図-7 に解析結果の一例として Case-1 の結果での処分施設内の位置の違いによる比較を示す。経過時間の初期段階で Na, K が拡散によって周辺岩盤へ移行するため、図-7 に示すように処分施設全体で 700 年程度までに RegionII へ移行した。RegionII の継続期間は処分施設内の位置による違いが大きく、坑道の支保に相当する処分施設最外層ではポルトランドイトの溶解が進むため 1,000 年程度で RegionIII となった。ポルトランドイトが溶解する範囲は徐々に処分施設内へ拡大し、廃棄体定置領域中心部においても数万年後に RegionIII となった。このように施設領域の pH は時間とともに低下していき、かつ廃棄体定置領域中心部よりも処分施設最外層から pH の変化が進展する。この傾向は全てのケースで同様であった。

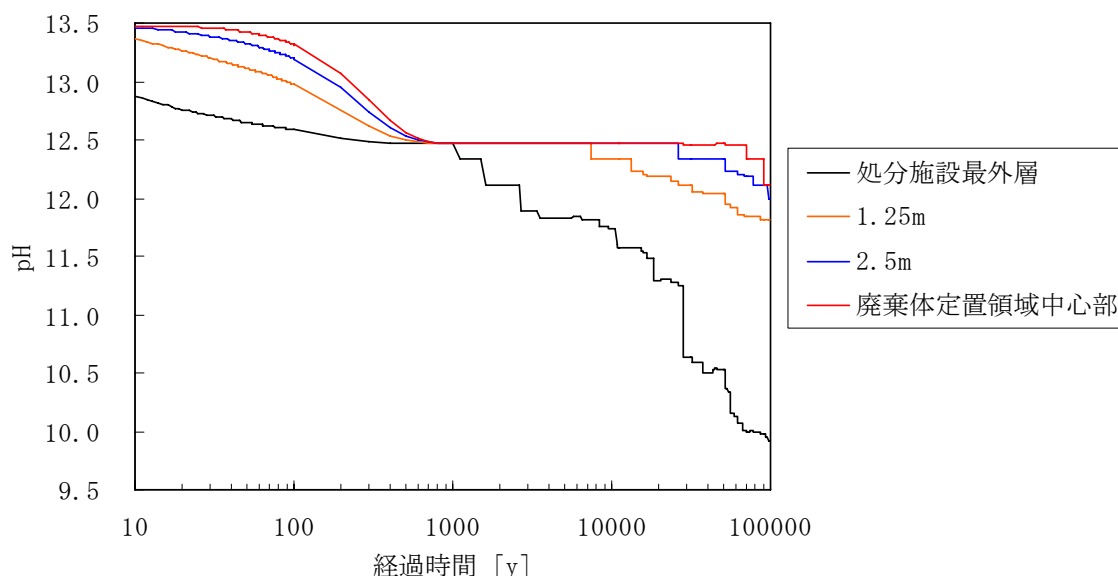


図-7 処分場上流側の各点における pH の経時変化 (Case-1)

以上のように、化学環境の維持期間を評価する上で pH の経時変化は評価する点の違いによってその期間は大きく異なることとなる。そのため、本検討においては廃棄体定置領域中心部における pH の変化と廃棄体定置領域の最外部 (図-7 における 1.25m の点 「廃棄体定置領域最外部」とする) における pH の変化をともに示し、化学環境維持期間設定に関する幅を示すこととした。

図-8 にひび割れありのケース (Case-1, 2), 図-9 にひび割れなしのケース (Case-3, 4) での処分施設内の pH の経時変化を示す。また、図-10, 図-11 にそれぞれポルトランドイトの存在量の経時変化を示す。

グラフに示すように物質移行に関する設定によって化学環境維持期間は大きく異なる結果となった。RegionII となるまでの期間はひび割れありとしたケースでは約 1,000 年、ひび割れなしとしたケースでは約 1~2 万年となった。また、地下水組成の影響については海水系地下水の方が降

水系地下水よりも早く pH が低下する傾向となり、ひび割れありのケースでは RegionII 維持期間は降水系地下水の場合の約半分となった。なお、海水系地下水のケースではフリーデル氏塩の生成による pH の上昇が見られた。また処分施設内の評価点の観点では、RegionI の維持期間は評価点の位置に係らず同じ結果となったが、RegionII の維持期間は評価点によって 10 倍程度の違いとなった。

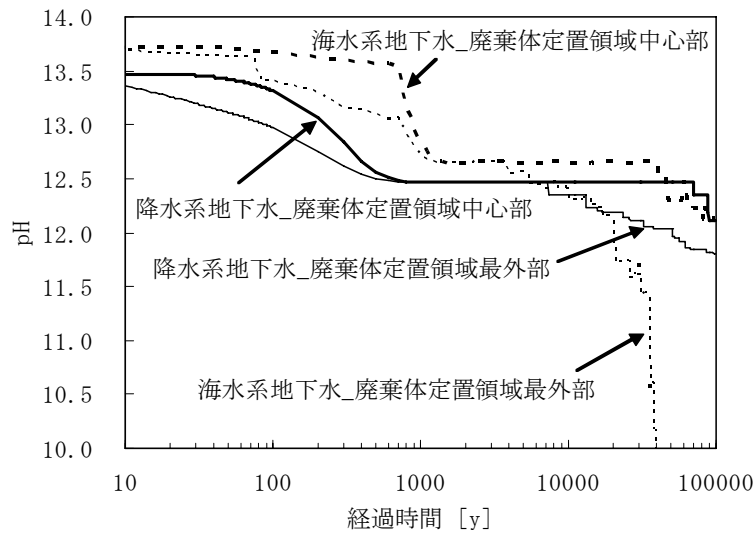


図-8 ひび割れありケースの pH の経時変化 (Case-1, Case-2)

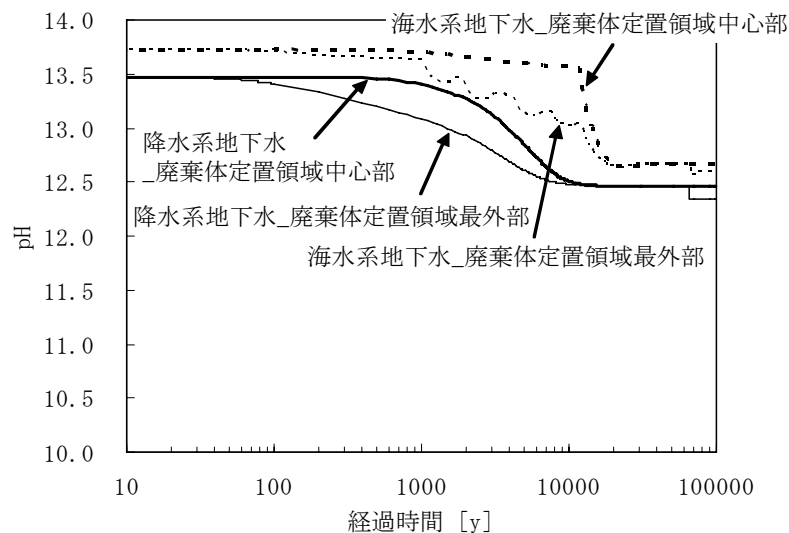


図-9 ひび割れなしケースの pH の経時変化 (Case-3, Case-4)

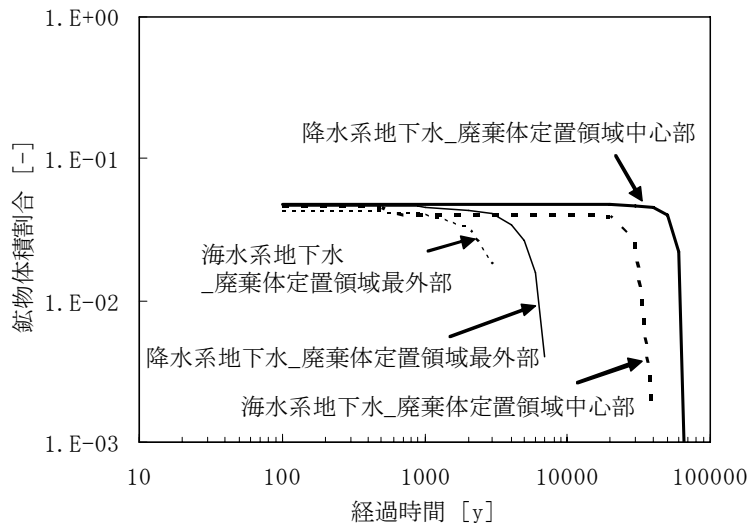


図-10 ひび割れありケースのポリトランダイト存在量の経時変化 (Case-1, Case-2)

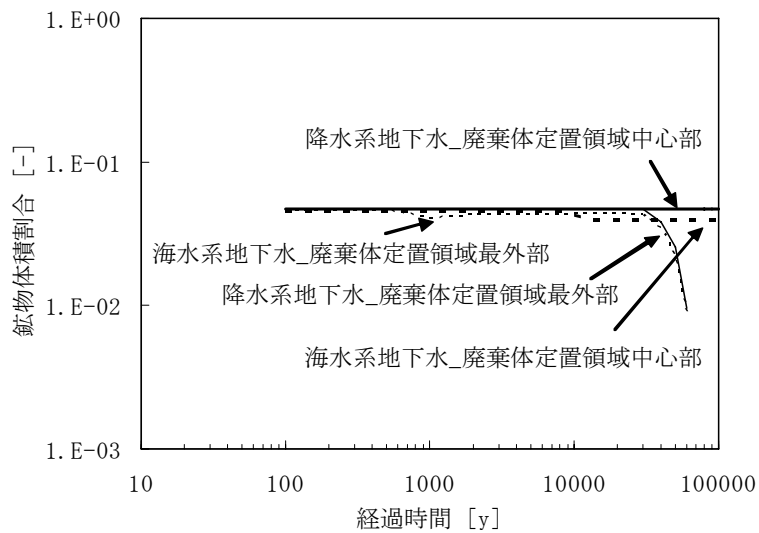


図-11 ひび割れなしケースのポリトランダイト存在量の経時変化 (Case-3, Case-4)

表-6 化学環境維持期間

地下水組成と透水係数の組み合わせ	RegionI 維持期間	RegionII 維持期間	
		施設外部	施設中央
降水系地下水ーひび割れあり	約 1×10^3 年	約 8×10^3 年	約 7×10^4 年
海水系地下水ーひび割れあり	約 1×10^3 年	約 4×10^3 年	約 4×10^4 年
降水系地下水ーひび割れなし	約 1×10^4 年	約 7×10^4 年	1×10^5 年以上
海水系地下水ーひび割れなし	約 2×10^4 年*1	約 7×10^4 年	1×10^5 年以上

*1：海水系地下水ではフリーデル氏塩の生成に伴う pH の上昇がある。

3. 結論

検討の結果、ひび割れの有無によらず物質移行は拡散によるものが支配的となり、鉱物の変質は処分施設の上流側、下流側の両方から変質する結果となった。化学環境の維持期間としては RegionII となるまでの期間は処分施設の場所によらず一定であるが、RegionII の維持期間は評価する地点による違いが大きく、またその地点におけるポルトランタイトの存在量と関連することが示された。計算結果に基づいて設定した各ケースの化学環境維持期間は表-6 のようになり、第 2 次 TRU レポートでは表-6 を示すことで化学環境維持期間の評価とした。

参考文献

- 核燃料サイクル開発機構 (1999c) : 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—地層処分研究開発第 2 次とりまとめ—総論レポート, JNC-TN1400-99-020.
- 三原守弘, 大澤勉, 大井貴夫, 藤田英樹, 根岸久美, 横関康裕, 渡邊賢三 (2003) : TRU 廃棄物処分における N. F. 水理場の変遷に関する研究(6) —セメント系材料の変遷と水理・力学特性の変化—, 日本原子力学会, 2003 年秋の大会予稿集 (第Ⅲ分冊), p. 580.
- Mihara, M. and Sasaki, R. (2005) : RAMDA; Radio-nuclides Migration Datasets (RAMDA) on cement, bentonite and rock for TRU waste repository in Japan, JNC TN8400 2005-027.

4-5 セメント系材料—緩衝材複合系の処分施設における変質解析及び不確実性評価 (4.4.2.2, 4.4.2.3)

1. はじめに

第2次 TRU レポートの 4.4.2.2 及び 4.4.2.3 では、緩衝材を設置する処分施設の長期的な環境を対象としたときの、セメント系材料とベントナイトの相互作用による人工バリア変質挙動解析を行った。解析では、変質挙動に関わる化学反応と物質移動について蓋然性が高いと判断された知見を中心に、不確実性として認識された知見を包括するように解析上のパラメータや取り扱いを決定し、その組み合わせから複数の解析条件を設定した。そして、複数の解析結果からセメント系材料とベントナイトの相互作用による人工バリア変質挙動の可能性範囲を端的に捉え、人工バリア変質の影響についての核種移行解析上の取り扱いを決定した。ここでは、人工バリア変質挙動解析のそれぞれの解析条件と解析結果を詳細に記す。

2. 解析コード

化学反応・物質移行連成解析コード RAIDEN3(根拠資料集 4-2 参照)を用いた。なお、スメクタイト密度再分配を行う解析については RAIDEN3 にその機能が付加されていないため、PHREEQC-TRANS(根拠資料集 4-2 参照)を用いることとした。また、一部解析について PHREEQC-TRANS を補完的にも用いることとした。

3. 解析条件

3.1 解析体系

解析体系を設定するために、第2次 TRU レポート 3 章における処分坑道断面の設定例に基づいて、緩衝材を設置する処分施設のうち、緩衝材と反応しうるセメント量の多い処分概念(第2次 TRU レポートの図 3.2.2.2-9 グループ 1)を参照し、その坑道鉛直断面を円形断面形状で近似して代表させた。この代表断面形状に基づき、性能評価上考慮する緩衝材厚さとして 1m を仮定し、緩衝材/セメント系材料界面の単位面積あたりのセメント系材料体積からセメント系材料の厚さを以下のように決定して 1 次元化の解析体系を構成した(図 3.1)。具体的なセメント系材料の解析体系上の厚さとしては、坑道の奥行き方向の長さを単位長さ 1m とし、セメント系材料の半径を坑道半径 6m から緩衝材厚さに相等する 1m を除いた 5m とし、その中に存在するセメント系材料体積をその外周面積で規格化して設定を行った(セメント系材料厚さ = $(\pi \times 5 \times 5) \times 1 [\text{m}^3] / (\pi \times 2 \times 5) \times 1 [\text{m}^2] = 2.5 [\text{m}]$)。なお、廃棄体層は主にモルタル、支保工及び構造躯体はコンクリートにより構成される。本解析では構造躯体部分を緩衝材変質に与る水酸化物イオン量が多いモルタルとして取り扱った。ここでは、これらモルタル及びコンクリートをセメント系材料とする。

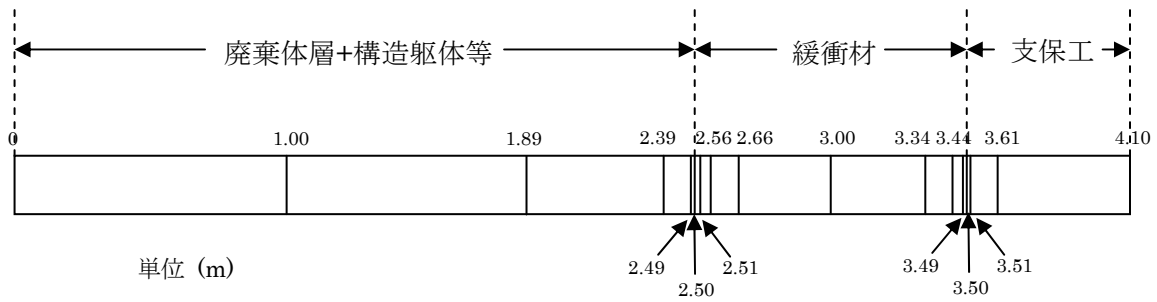


図 3.1 1次元解析モデル(差分メッシュの配置を合わせて示した)

3.2 化学反応モデル

- ・セメント系材料及びベントナイトの変質に関する化学反応としては、5項表3に示す初期鉱物の溶解・沈殿及び二次鉱物の沈殿と溶解、並びにモンモリロナイトのイオン交換を考えた。
- ・イオン交換反応の取り扱いにはH12レポートと同じイオン交換反応選択係数(5項表1)を用いた。
- ・モンモリロナイトの溶解速度を5項表1に従うものとした。
- ・モンモリロナイト以外の全ての鉱物の溶解・沈殿反応に瞬時平衡を仮定した。なお、RAIDEN3を用いた解析では全ての鉱物に溶解速度を与えることが計算上必要であったため、非常に大きな溶解速度 10^{-4} [mol/sec/m²]を与えて瞬時平衡を仮定した場合と同じ結果をもたらすように配慮した。
- ・モンモリロナイトの溶解に伴って生成する可能性のある二次鉱物は複数のシナリオに基づく複数の組み合わせが考えられ、それぞれの蓋然性の高低を判断することはできない。よって、ここでは第2次 TRU レポートの図 4.4.2.2-4 に示す鉱物変遷シナリオの各ケースを全て仮定した。
- ・地下水はFRHPであるとし、初期の緩衝材間隙水組成はこの地下水と緩衝材中の鉱物との平衡によって規定されるものとした。

なお、これらの化学反応に関与する鉱物及び溶存化学種の熱力学データとして、C-S-Hゲルの溶解・沈殿（ポルトランドライトの溶解・沈殿を含む）に対しては杉山らのモデル（第2次 TRU レポート表 4.4.2.2-2 参照）を主に用いることとし、それ以外の鉱物、溶存化学種の熱力学データについては、セメント水和物やセメント・ベントナイト相互作用で重要となる鉱物を中心に整備を行った熱力学データベース JNC-TDB. TRU (Arhtur et al., 2005)を用いた。

3.3 物質移行モデル

物質移行のメカニズムとしては拡散のみを考えることとし、セメント系材料、ベントナイトの変質に伴う人工バリアの実効拡散係数の変化を5項表1,2に示す経験式で表現することとした。緩衝材中の物質移行が移流支配もしくは拡散支配によるものかはペクレ数 Pe により判断し、本検討において多くの場合に人工バリア領域の物質移行は拡散支配となることから、拡散のみを考慮した1次元モデルを用いて評価することができることを確認した。なお、拡散場が維持されないほど変質が進行する場合の解析ケースについては5項表1に示した透水係数の経験式に従う移流を考慮した。

間隙割合の計算には力学的均衡の影響を含めず、化学反応によって増減した各鉱物の体積から

換算した。なお、多くの解析ケースにおいて間隙が充填され、充填部分での物質移動が抑制されることが考えられるため、代表的なケースに対して間隙の充填・開放に関する不確実性を考慮することとし、具体的には実効拡散係数を変化させない解析を行った。また、力学的均衡の影響については別途「密度再分配ケース」の解析を行った。

3.4 境界条件

物質移行に関する外側境界条件は、次の両ケースの解析を行うことによって、境界条件に関する不確実性が両ケースの結果の範囲に包含されるように設定した。

- ・FRHP 濃度で固定するケース
- ・ゼロフラックス境界を与えるケース

4. 解析ケース

解析ケースの詳細を Appendix1 に記す。Appendix1 中の化学モデル／ベントナイト／二次鉱物設定に示した記号は、第2次 TRU レポートの図 4.4.2.2-4 に示す鉱物変遷シナリオの各ケース番号に相当する（例えば、Appendix1 の b1 はシナリオのケース 1 に相当する）。また、Appendix1 に示した解析ケース No. XYZ-***は次の意味を指す。

X=ベントナイトの鉱物学的変遷シナリオのケース番号

Y=境界条件及び物質移動パラメータ

- 1: 濃度固定; 拡散係数, 透水係数に表 1, 2 に示した経験式を用いる
- 2: 反射境界; 拡散係数, 透水係数に表 1, 2 に示した経験式を用いる
- 3: 濃度固定; 拡散係数, 透水係数を一定とする

Z=スメクタイト溶解速度式

- 1: 表 1 に示した経験式(第2次レポート 4.4.2.2-10 式; Sato et al. (2004)の初期溶解速度と Cama et al. (2000)の飽和度依存性の式を組み合わせ)を用いる
- 2: 瞬時平衡を仮定

*** 追加条件

distribution: 緩衝材領域におけるモンモリロナイトの密度再分配を行う

kin1:カルセドニの溶解速度式を用いる

logK:モンモリロナイトの平衡定数として別の値 (Appendix 参照) を用いる

Si:ケイ砂を化学的に不活性なものとし、シリカの供給源であるカルセドニ初期含有量を減らす。

解析ケースは3項で示した化学モデル、境界条件、物質移動パラメータの与え方を組み合わせることにより決定し、これによって人工バリアの鉱物学的変遷の不確実性、人工バリア周辺の水理的条件の不確実性が与える変質挙動解析結果の変動幅を検討することとした。これら解析ケースでは物質移動パラメータが間隙充填によって変化することとしているが、さらに、間隙の充填・開放に関する不確実性が与える変質挙動解析結果への影響を検討するために、ケース 6, 7 に対して実効拡散係数が変化しないケースを設定した。

また、これら解析条件では力学的影響を考慮していない。緩衝材領域においてモンモリロナイ

ト存在量に偏りが生じた場合、モンモリロナイトは自己の膨潤性によって力学的な均衡を保とうとする可能性がある。このような現象を模擬するために、常にモンモリロナイトの緩衝材領域における濃度分布が均一となるような解析を行い、力学的な影響を擬似的に検討することとした。

さらに、解析に用いる速度式、熱力学データあるいは化学反応の仮定にまつわる不確実性の影響を検討するために、解析上重要と考えられるモンモリロナイトの溶解速度と熱力学データ、カセドニの溶解速度あるいはカルセドニ初期含有量を変更した解析条件を設定した。

なお、各ケースの想定事象及び詳細な条件については必要に応じて結果に併せて記す。

5. 解析に用いたパラメータ一覧

解析に用いた緩衝材、セメント系材料、初期及び二次鉱物のモル体積並びに地下水組成をそれぞれ表として示す。

表 5.1 緩衝材 (1/2)

緩衝材仕様(レファレンスケース)	ベントナイト (クニゲル V1 の組成: 本文表 4.4.2.2-7) 含有量: 70 [wt%] ケイ砂含有量: 30 [wt%] 乾燥密度: 1.6 [Mg m ⁻³] 間隙割合: 0.4 (真比重をベントナイト 2.7 [g/cm ³], ケイ砂 2.64 [g/cm ³] として換算)			
溶解・沈殿反応で考慮した初期の鉱物組成	モンモリロナイト	48 [wt%] × 70 [wt%]		
	カルセドニ	38 [wt%] × 70 [wt%]	(ベントナイト中のカルセドニ及びクオーツを含む)	
	カルセドニ	100 [wt%] × 30 [wt%]	(ケイ砂をカルセドニとして換算)	
	カルサイト	2.4 [wt%] × 70 [wt%]		
陽イオン交換容量	60.1 [meq (100 bentonite-g) ⁻¹]			
初期の交換性陽イオン組成	[meq (100 bentonite-g) ⁻¹] ZNa: 51.4 Z2Ca: 7.4 ZK: 0.6 Z2Mg: 0.7			
イオン交換反応選択係数 $\log K_{G\&T}^{*1}$	2ZNa-Z2Ca: 0.69	ZNa-ZK: 0.42	2ZNa-Z2Mg: 0.67	ZNa-ZH: 1.88
表面酸・塩基解離反応	モンモリロナイトが溶解する高アルカリ性条件では考慮しない。			
モンモリロナイト溶解速度式 [mol s ⁻¹]	$Rate = \left(4.74 \cdot 10^{-6} \cdot e^{-3957/RT} \cdot \frac{177 \cdot e^{2037/RT} \cdot a_{OH^-}}{1 + 177 \cdot e^{2037/RT} \cdot a_{OH^-}} + 1.70 \cdot e^{-6967/RT} \cdot \frac{0.0297 \cdot e^{2353/RT} \cdot a_{OH^-}}{1 + 0.0297 \cdot e^{2353/RT} \cdot a_{OH^-}} \right) \cdot A_{min} \cdot \{1 - \exp(-610^{10} \cdot (2 \cdot \Delta G_r / RT))\}$ <p>ここで、A_{min} は鉱物の反応表面積 [m²], R は気体定数 [kJ K⁻¹ mol⁻¹], T は絶対温度 [K], a_{OH^-} は水酸化物イオンの活量, $f(\Delta G_r)$ は反応のギブスの自由エネルギー変化の関数</p>			

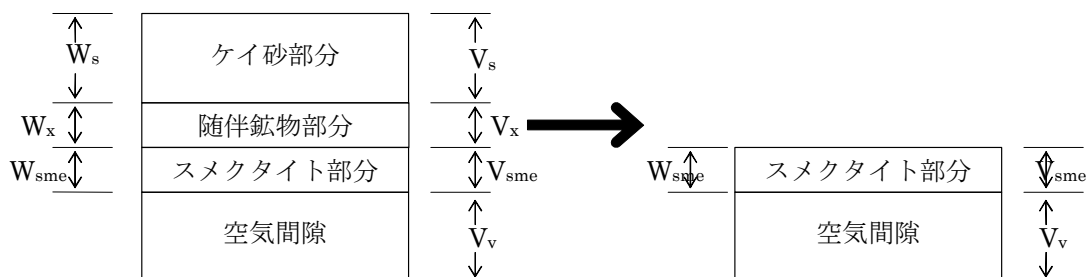
表 5.1 緩衝材 (2/2)

<p>緩衝材透水係数 [m s⁻¹] (25°C)</p>	<p>$K = 10^{1.30 \cdot C_i} \cdot e_{sme}^{3.48 C_i} K_0$ ただし、$C_i \leq 10^{1.49 \cdot ESP - 1.0}$、$K \leq 10^{1.63 \cdot e_{sme} - 0.24} K_0$かつ$K \leq 10^{-5}$</p> $K_0 = \begin{cases} (0.91 - 1.57 \cdot ESP + 2.00 \cdot ESP^2) \times 10^{-13} \times e_{sme}^{7.44 - 5.69 \cdot ESP} & \dots \dots \dots e_{sme} \leq 7.0 \\ (0.91 - 1.57 \cdot ESP + 2.00 \cdot ESP^2) \times 10^{-13} \times 7.0^{7.44 - 5.69 \cdot ESP} \left(\frac{e_{sme}}{7.0} \right)^{11.4} & \dots \dots \dots 7.0 < e_{sme} \end{cases}$ <p>ただし、$K_0 _{ESP=1} \leq K_0 \leq 10^{-5}$</p> <p>ここで、間隙水の当量イオン濃度 (C_{ieq}/dm³)、ベントナイトの交換性ナトリウム割合 (ESP[-])、モンモリロナイト間隙比 (e_{sme}[-])*²</p>
<p>緩衝材拡散係数 [m² s⁻¹] (25°C)</p>	<p>De=2.27×10⁻⁹×εⁿ、n=2.22fs^{0.13}+1 ここで、fs=モンモリロナイト含有割合 (ケゲルの場合初期 0.48)</p>

*¹ イオン交換選択係数の定義は Gaines & Thomas (1953) の定義に従う。

*2

本報告では、ケイ砂部分及び随伴鉱物部分を除いたスメクタイトと空気間隙で構成される乾燥密度をスメクタイト部分乾燥密度 ρ_{sme} 、スメクタイトと空気間隙で構成される間隙比を有効スメクタイト間隙比 e_{sme} と定義して、試験結果の整理を試みた。スメクタイト部分乾燥密度の概念を付図-2 に示す。図中の W は重量、 V は体積を示し、添え字の v 、 sme 、 x 、 s はそれぞれ空気間隙部分、スメクタイト部分、ベントナイトに含まれる随伴鉱物部分、ケイ砂部分の諸量を示す。



$$\text{乾燥密度 } \rho_d = \frac{W_{sme} + W_x + W_s}{V_v + V_{sme} + V_x + V_s}$$

$$\text{間隙比 } e = \frac{V_v}{V_{sme} + V_x + V_s}$$

(a) 通常の乾燥密度

$$\rho_{sme} = \frac{W_{sme}}{V_v + V_{sme}}$$

$$e_{sme} = \frac{V_v}{V_{sme}}$$

(b) スメクタイト部分乾燥密度

付図-2 有効ベントナイト乾燥密度の概念

スメクタイト部分乾燥密度 ρ_{sme} 及び有効スメクタイト間隙比 e_{sme} は、それぞれ通常の場合における乾燥密度 ρ_d 、間隙比 e と次式の関係性を有する。

$$\rho_{sme} = \frac{C_b C_{sme} \cdot \rho_d}{1 - C_b(1 - C_{sme}) \cdot \frac{\rho_d}{G_x} - (1 - C_b) \cdot \frac{\rho_d}{G_s}}$$

$$e_{sme} = \left(1 + \frac{1 - C_{sme}}{C_{sme}} \cdot \frac{G_{sme}}{G_x} + \frac{1 - C_b}{C_b C_{sme}} \cdot \frac{G_{sme}}{G_s}\right) \cdot e$$

ここに、 ρ_d : ケイ砂混合ベントナイトの乾燥密度 (g/cm^3)、 e : ケイ砂混合ベントナイトの間隙比、 C_b : ベントナイト混合率、 C_{sme} : ベントナイト中のスメクタイト含有率、 G_s : ケイ砂の土粒子密度 (g/cm^3)、 G_x : 随伴鉱物の土粒子密度 (g/cm^3)、 G_{sme} : スメクタイトの土粒子密度 (g/cm^3) である。

$$e_{sme} = \frac{G_{sme}}{\rho_{sme}} - 1$$

表 5.2 セメント系材料

セメント系材料仕様(レファレンスケース)	廃棄体・構造躯体層：モルタル (W/C=55%, 本文表 4.4.2.2-1), 間隙割合 0.19, 配合は以下のとおり																																								
	<table border="1"> <tr> <th>単位セメント量(kg/m³)</th> <th>単位水量(kg/m³)</th> <th>細骨材量(kg/m³)</th> </tr> <tr> <td>483</td> <td>266</td> <td>1449</td> </tr> </table>	単位セメント量(kg/m ³)	単位水量(kg/m ³)	細骨材量(kg/m ³)	483	266	1449																																		
	単位セメント量(kg/m ³)	単位水量(kg/m ³)	細骨材量(kg/m ³)																																						
483	266	1449																																							
支保工：コンクリート (W/C=55%, 本文表 4.4.2.2-1), 間隙割合 0.13, 配合は以下のとおり																																									
	<table border="1"> <tr> <th>単位セメント量(kg/m³)</th> <th>単位水量(kg/m³)</th> <th>細・粗骨材量(kg/m³)</th> </tr> <tr> <td>300</td> <td>165</td> <td>1877</td> </tr> </table>	単位セメント量(kg/m ³)	単位水量(kg/m ³)	細・粗骨材量(kg/m ³)	300	165	1877																																		
単位セメント量(kg/m ³)	単位水量(kg/m ³)	細・粗骨材量(kg/m ³)																																							
300	165	1877																																							
溶解・沈殿反応で考慮した初期の鉱物組成	<table border="1"> <thead> <tr> <th>固相/元素</th> <th>mol/m³ (コンクリート 1m³あたり)</th> <th>mol/m³ (モルタル 1m³あたり)</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>C₃AH₆</td> <td>134</td> <td>215</td> </tr> <tr> <td>MH</td> <td>147</td> <td>237</td> </tr> <tr> <td>C₆A₃H₃₂</td> <td>25</td> <td>40</td> </tr> <tr> <td>KOH</td> <td>36</td> <td>58</td> </tr> <tr> <td>NaOH</td> <td>23</td> <td>37</td> </tr> <tr> <td>Cl</td> <td>1</td> <td>1</td> </tr> <tr> <td>C-S-H ゲル (C/S=1.8)</td> <td>1938</td> <td>3121</td> </tr> <tr> <td>CH</td> <td>879</td> <td>1415</td> </tr> <tr> <td>杉山モデルでの固相</td> <td></td> <td></td> </tr> <tr> <td>CSH-CH</td> <td>2817</td> <td>4536</td> </tr> <tr> <td>CSH-S</td> <td>1078</td> <td>1735</td> </tr> <tr> <td>C/S モル比 (-)</td> <td>2.61</td> <td>2.61</td> </tr> </tbody> </table>		固相/元素	mol/m ³ (コンクリート 1m ³ あたり)	mol/m ³ (モルタル 1m ³ あたり)	C ₃ AH ₆	134	215	MH	147	237	C ₆ A ₃ H ₃₂	25	40	KOH	36	58	NaOH	23	37	Cl	1	1	C-S-H ゲル (C/S=1.8)	1938	3121	CH	879	1415	杉山モデルでの固相			CSH-CH	2817	4536	CSH-S	1078	1735	C/S モル比 (-)	2.61	2.61
固相/元素	mol/m ³ (コンクリート 1m ³ あたり)	mol/m ³ (モルタル 1m ³ あたり)																																							
C ₃ AH ₆	134	215																																							
MH	147	237																																							
C ₆ A ₃ H ₃₂	25	40																																							
KOH	36	58																																							
NaOH	23	37																																							
Cl	1	1																																							
C-S-H ゲル (C/S=1.8)	1938	3121																																							
CH	879	1415																																							
杉山モデルでの固相																																									
CSH-CH	2817	4536																																							
CSH-S	1078	1735																																							
C/S モル比 (-)	2.61	2.61																																							
透水係数 (25°C)	$4.34 \times 10^{-9} \times \varepsilon^3 \times (1 - \varepsilon)^{-2}$																																								
拡散係数 (25°C)	$2.27 \times 10^{-9} \times \varepsilon^{3.05}$																																								

表 5.3 鉱物のモル体積 (1/2)

鉱物 (組成式)	式量	モル体積	出展 (比重の出展)
	g/mol	cm ³ /mol	
<u>ベントナイト初期鉱物</u>			
モンモリロナイト			
Na _{0.33} Mg _{0.33} Al _{1.67} Si ₄ O ₁₀ (OH) ₂	367.0	135.9	(鈴木ほか, 1992)
Ca _{0.165} Mg _{0.33} Al _{1.67} Si ₄ O ₁₀ (OH) ₂	366.0	135.6	
K _{0.33} Mg _{0.33} Al _{1.67} Si ₄ O ₁₀ (OH) ₂	372.3	137.9	
Mg _{0.165} Mg _{0.33} Al _{1.67} Si ₄ O ₁₀ (OH) ₂	363.4	134.6	
カルセドニ SiO ₂	60.1	22.7	(地学団体研究会, 1996)
カルサイト CaCO ₃	100.1	36.9	(地学団体研究会, 1996)
<u>セメント初期鉱物</u>			
Ca ₃ Al ₂ (OH) ₁₂ (C ₃ AH ₆)	378.3	150.1	Glasser et al., 1998
Mg(OH) ₂	58.3	24.6	(地学団体研究会, 1996)
杉山モデルにおける Ca(OH) ₂	74.1	33.1	(地学団体研究会, 1996 : ポートルンダイト)
杉山モデルにおける SiO ₂	60.1	22.7	(地学団体研究会, 1996 : 石英)
エトリンガイト Ca ₆ Al ₂ (SO ₄) ₃ (OH) ₁₂ ·26H ₂ O	1255.1	(100)	仮定
<u>二次鉱物</u>			
フィリップサイト			
(K _{2.8} Na _{3.2} Ca _{0.8})Al _{7.6} Si _{24.4} O ₆₄ ·24H ₂ O *1	320.2	145.6	(地学団体研究会, 1996)
フィリップサイト			
(K _{1.2} Na _{1.4} Ca _{2.4})Al _{7.4} Si _{24.6} O ₆₄ ·24H ₂ O *1	315.3	143.3	(地学団体研究会, 1996)
クリノタイロライト			
(K _{2.3} Na _{1.7} Ca _{1.4})Al _{6.8} Si _{29.2} O ₇₂ ·26H ₂ O *2	468.21	212.8	(地学団体研究会, 1996)
クリノタイロライト			
(K _{0.8} Na _{0.4} Ca _{2.8})Al _{6.8} Si _{29.2} O ₇₂ ·26H ₂ O *2	462.8	210.4	(地学団体研究会, 1996)
ヒューランダイト			
(K _{0.4} NaCa _{3.3})Al ₈ Si ₂₈ O ₇₂ ·26H ₂ O *2	465.6	211.6	(地学団体研究会, 1996)
ローモンタイト CaAl ₂ Si ₄ O ₁₂ ·4H ₂ O	470.4	204.5	(地学団体研究会, 1996)
アナルサイム NaAlSi ₂ O ₆ ·H ₂ O	220.2	97.1	(地学団体研究会, 1996)
カリ長石 KAlSi ₃ O ₈	278.3	108.9	(地学団体研究会, 1996)
イライト K _{0.6} Mg _{0.25} Al _{2.3} Si _{3.5} O ₁₀ (OH) ₂	383.9	139.6	(地学団体研究会, 1996 : 雲母)
セピオライト Mg ₄ Si ₆ O ₁₅ (OH) ₂ ·6H ₂ O	647.8	285.6	(地学団体研究会, 1996)
C ₃ ASH ₄ Ca ₃ Al ₂ SiO ₈ ·4H ₂ O	402.4	(100)	仮定
C ₄ ASH ₁₃	560.5	(100)	仮定

表 5.3 鉱物のモル体積 (2/2)

C ₄ ASH ₁₉	668.6	(100)	仮定
ゲーレンナイト水和物 Ca ₂ Al ₂ SiO ₇ ·8H ₂ O	418.3	(100)	仮定
ハイドロタルサイト Mg ₄ Al ₂ O ₇ ·10H ₂ O	433.3	(100)	仮定
フリーデル氏塩 Ca ₄ Al ₂ Cl ₂ O ₆ ·10H ₂ O	561.4	297	Glasser et al., 1998
モノサルフェート Ca ₄ Al ₂ (SO ₄)(OH) ₁₂ ·6H ₂ O	622.5	177	Glasser et al., 1998
ジェンニ石 Ca ₉ Si ₆ O ₂₁ ·11H ₂ O	1063.4	460.3	(地学団体研究会, 1996)
アフウィリ石 Ca ₃ Si ₂ O ₄ (OH) ₆ (C ₃ S ₂ H ₃)	342.4	130.2	(地学団体研究会, 1996)
トバモライト (11Å) Ca ₅ Si ₆ O ₁₆ (OH) ₂ ·4.5H ₂ O (C ₅ S ₆ H _{5.5})	740.0	303.3	(地学団体研究会, 1996)
ギブサイト	78.0	31.96	(地学団体研究会, 1996)
ドロマイト	184.4	64.4	(地学団体研究会, 1996)

*1 式量, モル体積は分子式の 1/8 で表した。

*2 式量, モル体積は分子式の 1/6 で表した。

表 5.4 地下水組成 (表 4)

降水系高 pH 型地下水組成 (Yui et al., 1999) 単位 [mol/dm³]

pH	8.46
Pe	-4.76
Na	3.55E-03
Ca	1.09E-04
K	6.15E-05
Mg	5.00E-05
Fe	9.73E-10
Al	3.43E-07
C	3.54E-03
S	1.11E-04
B	2.93E-04
P	2.86E-06
F	5.40E-05
N	2.30E-05
Cl	1.46E-05
Si	3.39E-04

6. ベントナイトの鉱物学的変遷の不確実性の影響を含んだ解析結果

ベントナイトの鉱物学的変遷の不確実性の影響を中心に、10 万年までの計算結果を Appendix1 に示した解析ケース No. に沿って以下に示す。結果の表示においては、変質人工バリア中の pH、間隙割合及び鉱物組成を示す。なお、間隙充填・開放の不確実性に対して設けたケース 631, 731 については 6-10 項に記す。

6.1 ケース 111, 121 (イライト化ケース)

ケース 111, 121 (以下、合わせて「ケース 1」とする。)では、ベントナイトの鉱物学的変遷シナリオのイライトの生成を想定した。ここでは、ゼオライトやカリ長石は生成しないと仮定している。

緩衝材の主要構成鉱物であるモンモリロナイトやカルセドニは、アルカリ性領域において pH が高くなるにつれ溶解度が上がり、また、平衡から離れた系でのモンモリロナイトやカルセドニの溶解速度は高 pH では増大することが知られている。従って、セメント系材料間隙水から緩衝材領域へ水酸化物イオンが移行するによって緩衝材領域の pH が上昇すると、緩衝材の主要構成鉱物の溶解反応が進むと考えられる。しかしながら、ケース 1 のどのケースでも顕著なモンモリロナイトの溶解は生じず、10 万年まで低い透水性が保たれる結果となった。このことは、本計算条件では、

- ・セメント系材料に接する境界近傍でモンモリロナイトやカルセドニの溶解が顕著に進み、放出された溶存 Si の加水分解によって緩衝材領域の pH が緩衝される。
- ・モンモリロナイトやカルセドニの溶解によって放出された Si が移行し、境界近傍のセメント系材料側で Ca/Si 比の低い C-S-H ゲルが生成することによって境界近傍で pH が緩衝される。
- ・緩衝材領域で、潜在的な二次鉱物として設定した C-S-H ゲルやイライトなどの生成量が少なく、モンモリロナイトやカルセドニの溶解によって放出された溶存化学種の消費が少なかったため、溶存 Si 濃度の上昇などにより緩衝材間隙水の化学的条件が速やかにモンモリロナイトの平衡に近づく。

などが影響していると考えられる。

また、ケース 1 では、境界近傍で C-S-H ゲルが顕著に生成したため間隙が充填されており、特に支保工側での間隙充填が著しく物質移動が制限されていたため、廃棄体領域、緩衝材領域の化学的条件、鉱物分布の様子は境界条件の異なる両ケースで同様なものとなった。廃棄体領域では Region I~Region II (第 2 次 TRU レポート 4.4.1.2 参照) が 10 万年継続し、緩衝材領域では数百年から 10 万年の間 pH11 以上が継続するものと計算された。また、セメント領域から移行してきた K は、イライトとして取り込まれるのではなく、モンモリロナイトに交換性陽イオンとして取り込まれていた。このように、ケース 1 では鉱物沈殿による Na や K の消費がない上に間隙充填によりこれらアルカリ元素が人工バリア周辺へ逸脱せず、緩衝材領域の間隙水中の Na, K 濃度が高く保たれたため、モンモリロナイトのイオン型は Na や K が主であり顕著な Ca 型化は生じなかった。境界部で C-S-H ゲル、カルサイトなどの生成により Ca が消費され、間隙水中の Ca 濃度が低く保たれるためことも影響していたと考えられる。

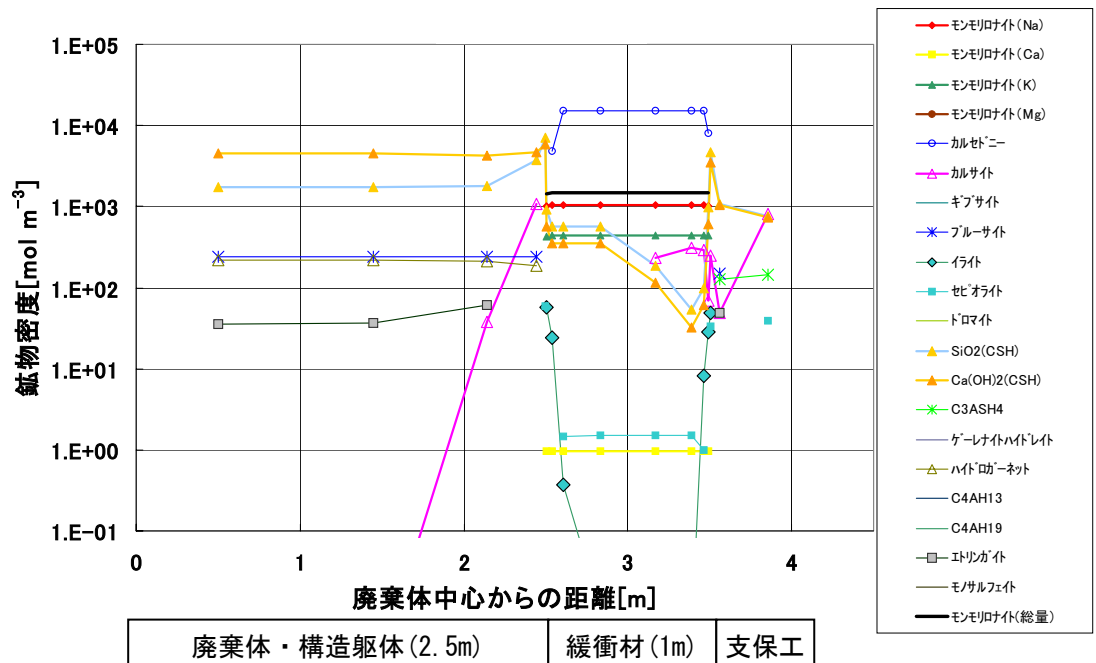
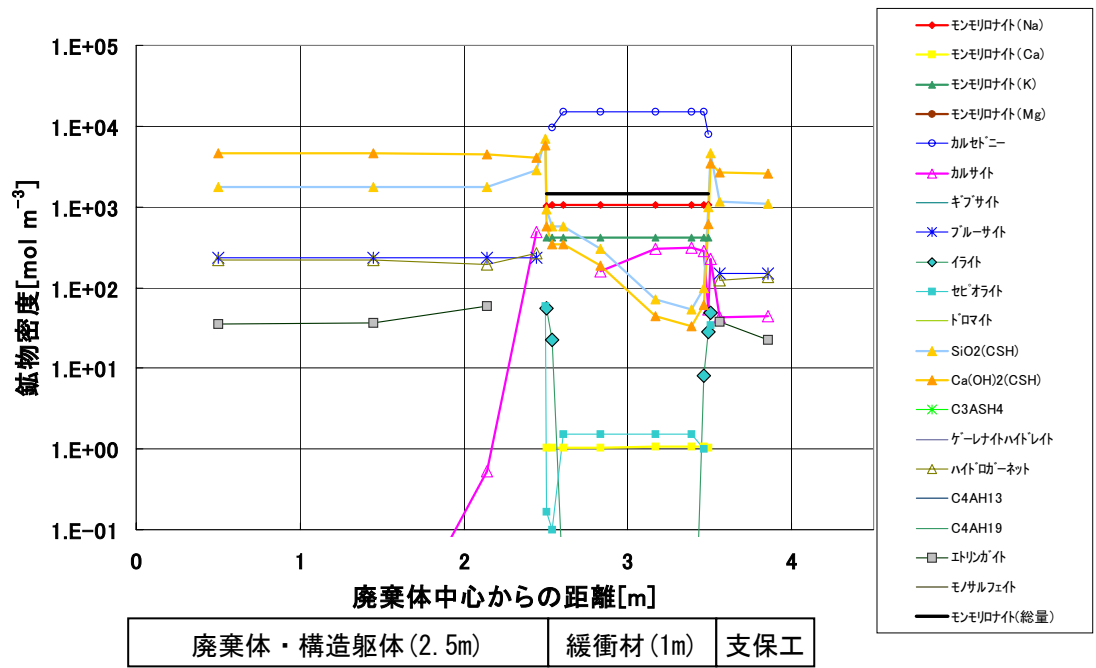


図 6.1-1 イライト化を仮定した場合の鉱物分布 (ケース 111)

上 : 1 万年後, 下 : 10 万年後 (図中の $\text{SiO}_2(\text{GSH})$ と $\text{Ca}(\text{OH})_2(\text{GSH})$ は杉山モデルで表した C-S-H ゲルの端成分を表す。なお, モンモリロナイト総量の初期値は $1,465 [\text{mol m}^{-3}]$)

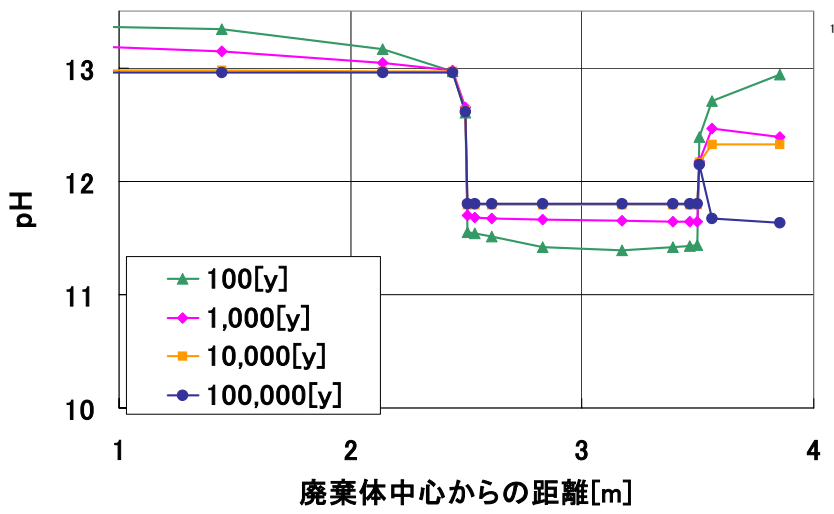


図 6.1-2 イライト化を仮定した場合の pH 分布の時間変化 (ケース 111)

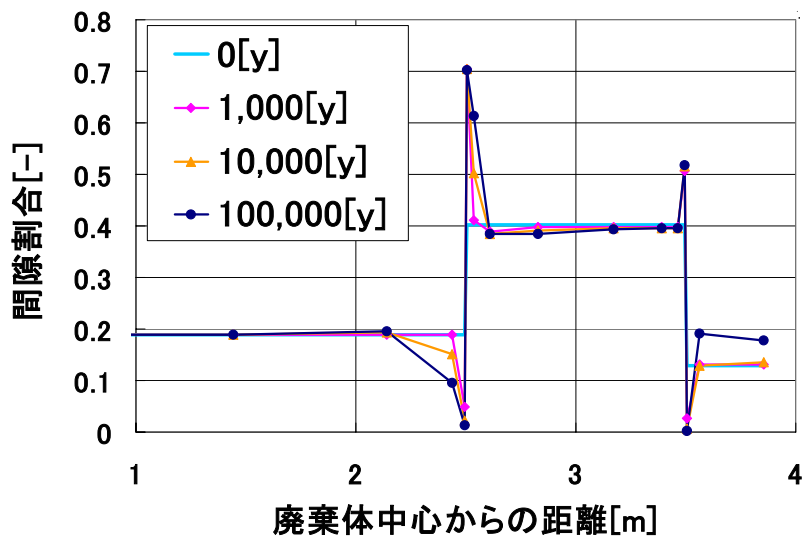


図 6.1-3 イライト化を仮定した場合の間隙割合の時間変化 (ケース 111)

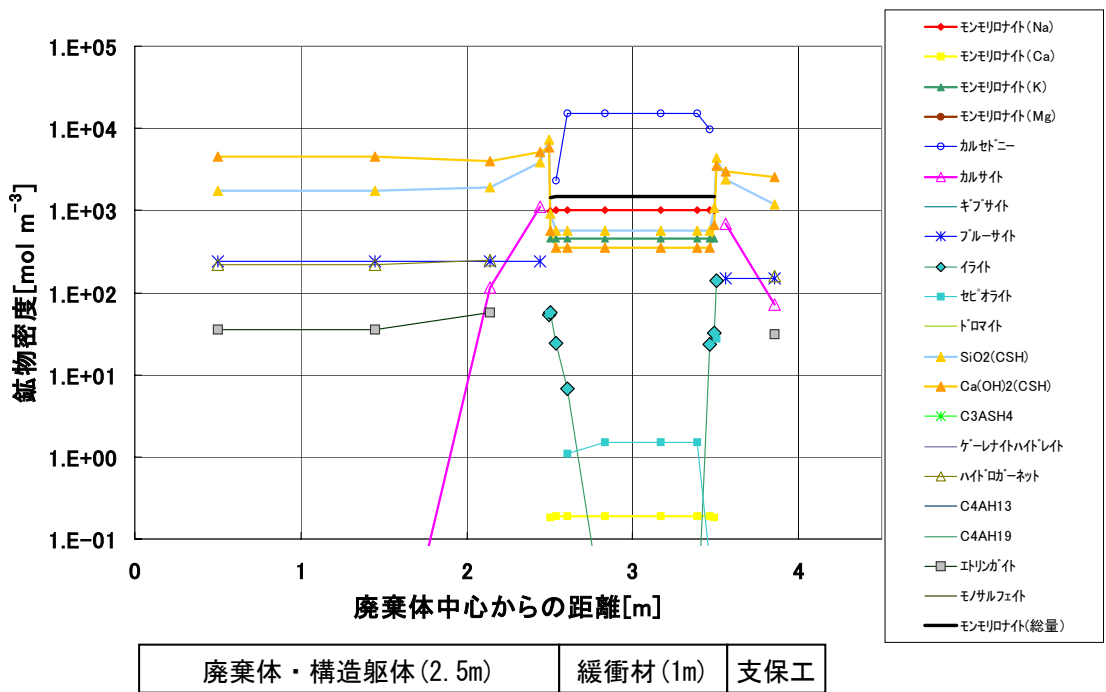
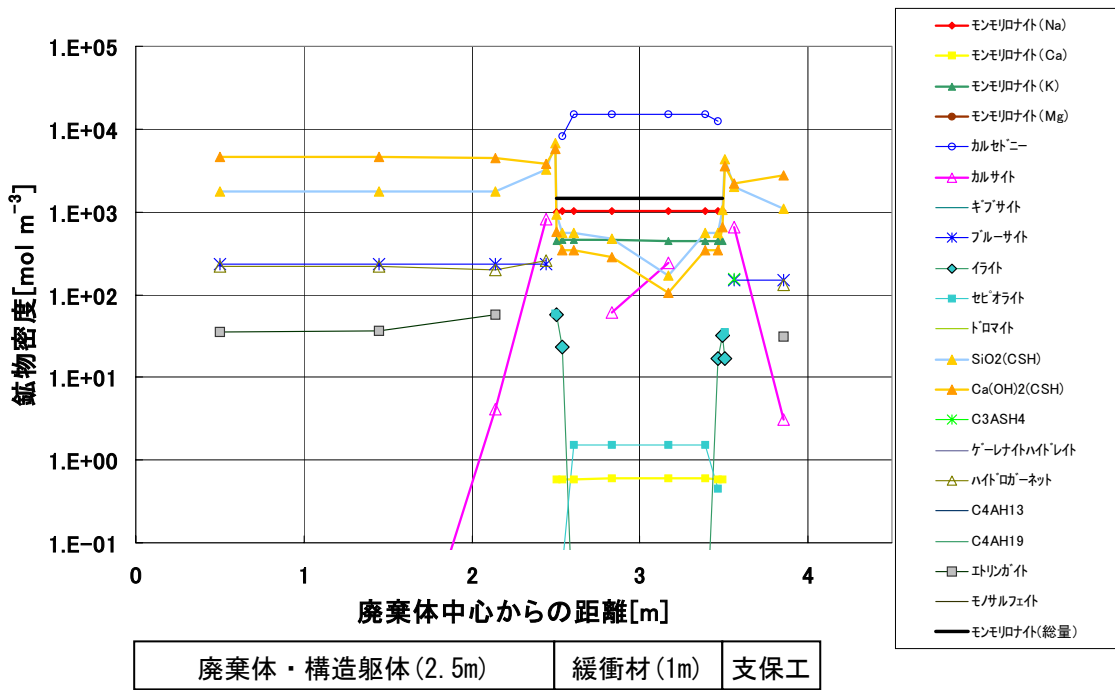


図 6.1-4 イライト化を仮定した場合の鉱物分布 (ケース 121)
上: 1 万年後, 下: 10 万年後

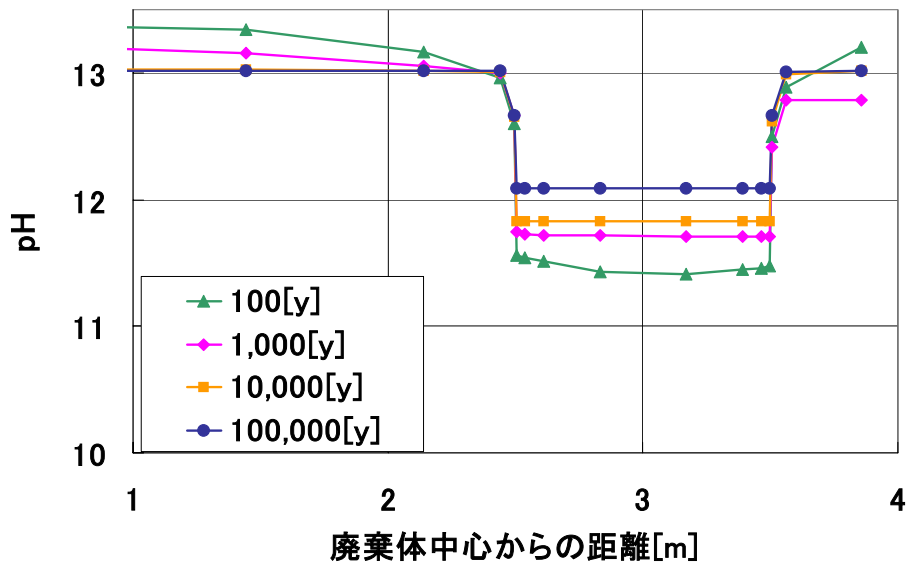


図 6.1-5 イライト化を仮定した場合の pH 分布の時間変化 (ケース 121)

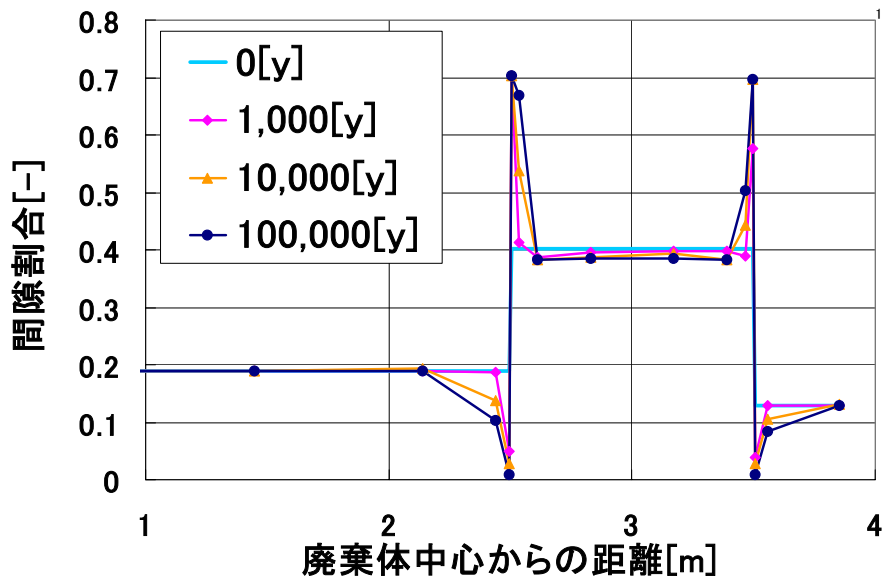


図 6.1-6 イライト化を仮定した場合の間隙割合の時間変化 (ケース 121)

6.2 ケース 211, 221 (準安定沸石生成ケース)

ケース 211, 221 では、ベントナイトの鉱物学的変遷シナリオの準安定沸石が生成する場合を想定した。ケース 411, 421 と同じ結果となったので、ここでは省略する。

6.3 ケース 311, 321 (安定相生成ケース)

ケース 311, 321 では、ベントナイトの鉱物学的変遷シナリオの安定相 (安定沸石とカリ長石) が生成する場合を想定した。ケース 511, 521 と同じ結果となったので、ここでは省略する。

6.4 ケース 411, 421 (イライト・準安定沸石生成ケース)

ケース 411, 421 (以下、「ケース 4」とする) では、ベントナイトの鉱物学的変遷シナリオの準安定沸石とイライトが生成する場合を想定した。結果、イライトは生成せず、ケース 211, 221 と同じ結果となった。ケース 411 が第 2 次 TRU レポートの図 4.4.2.3-1, 2 に相当する。

ここでは、安定なゼオライトやカリ長石の生成速度が極めて遅いため生成速度の大きい準安定ゼオライトが初期から生成し長期にわたって安定に存在する場合を想定している。ケース 4 でも C-S-H ゲルなどの生成により境界近傍で間隙充填が生じていた。また、緩衝材領域ではフィリップサイトやヒューランダイトが顕著に生じており、これらがモンモリロナイト溶解で生じた Na, Mg, Al 等の液相溶存化学種を消費することによってモンモリロナイトの溶解が促進され、10 万年間の全体的なモンモリロナイト溶解量はケース 1, 3 や後で述べるケース 5, 6, 7 の解析結果を上回るものとなっている。ただし、この場合においても緩衝材中央部の 50cm 程度の領域において 70%程度以上のモンモリロナイトが残留し、70cm 程度の領域において 60%程度以上のモンモリロナイトが残留しており、10 万年間程度は止水性が保持されるものと予想される。

化学的条件の変化については、ケース 4 では、廃棄体領域は Region I~RegionII が 10 万年継続し、緩衝材領域では数百年から 10 万年の間 pH11 以上が継続するものと計算された。

モンモリロナイトのイオン型の変化については、Ca を多く消費する準安定ゼオライトが緩衝材領域全体に生成するため、ケース 1 と同様に 10 万年後も Na 型が支配的となる結果となった。

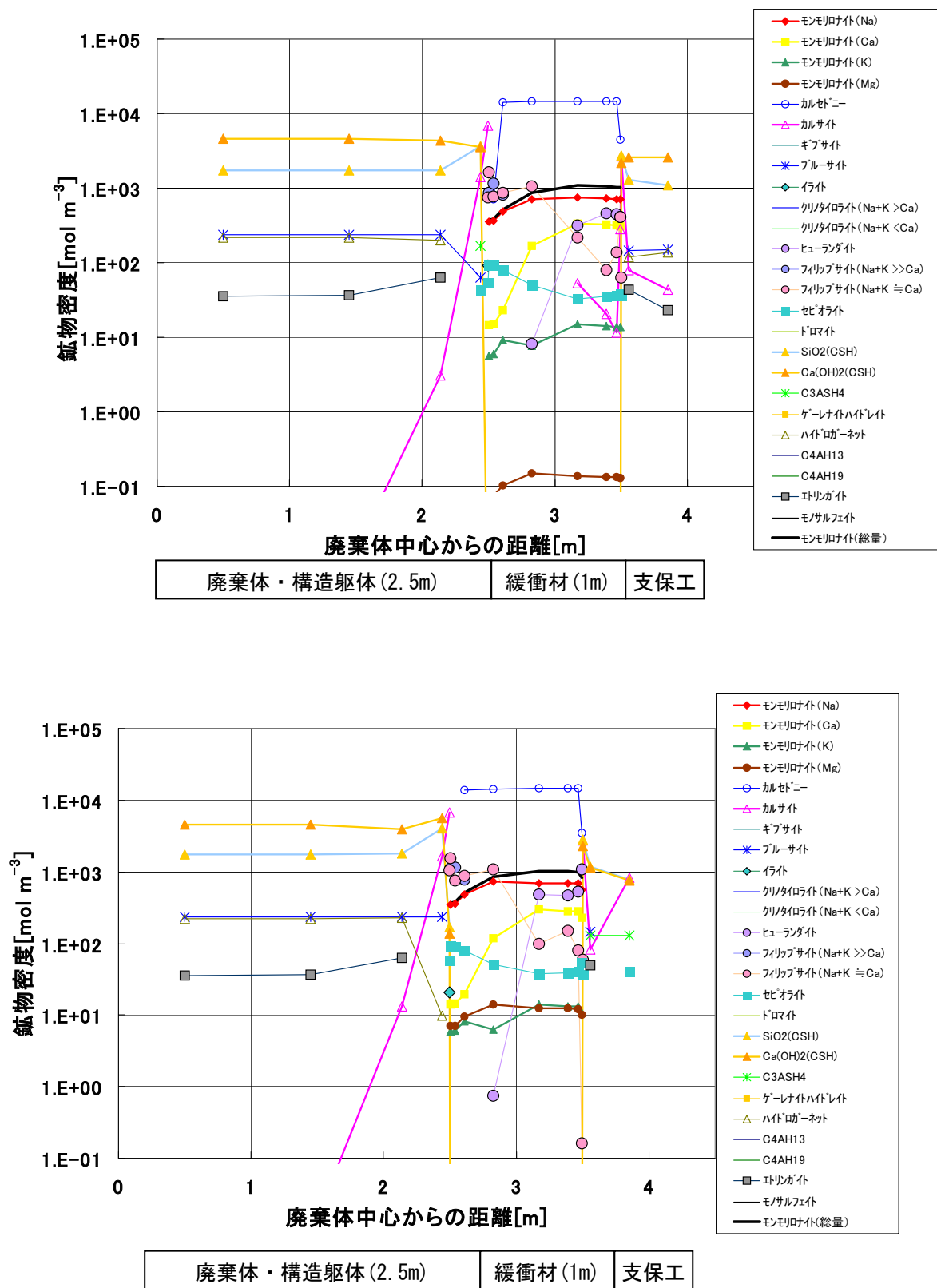


図 6.4-1 安定ゼオライト，カリ長石の生成を仮定しない場合の鉱物分布（ケース 411）
上：1 万年後，下：10 万年後

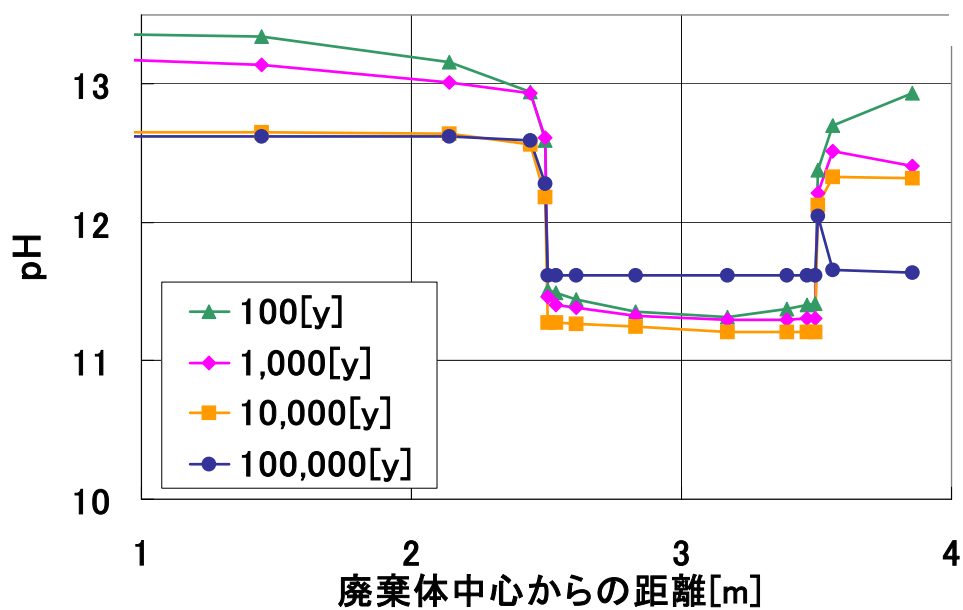


図 6.4-2 安定ゼオライト、カリ長石の生成を仮定しない場合の pH の時間変化 (ケース 411)

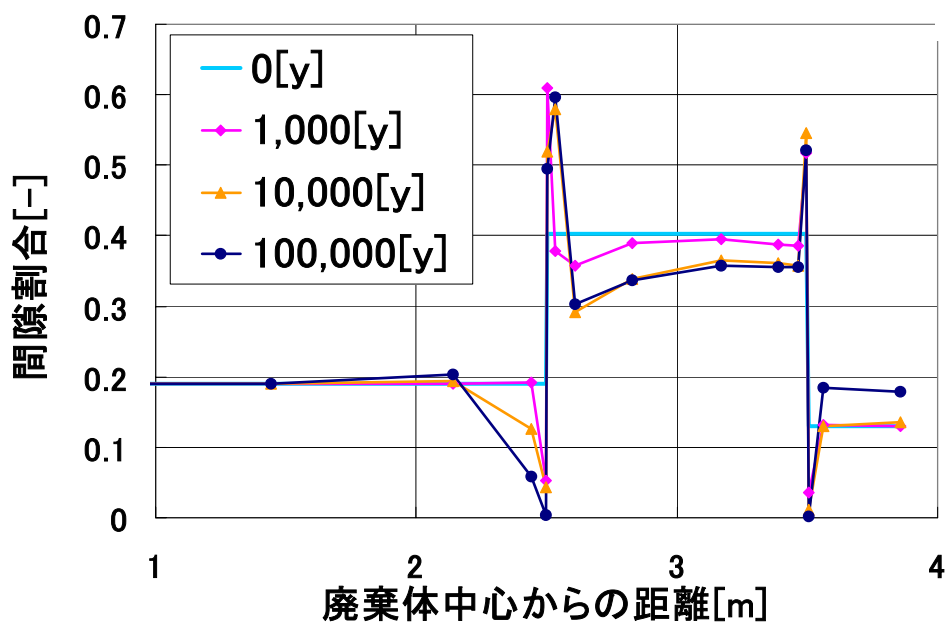


図 6.4-3 安定ゼオライト、カリ長石の生成を仮定しない場合の空隙割合の時間変化 (ケース 411)

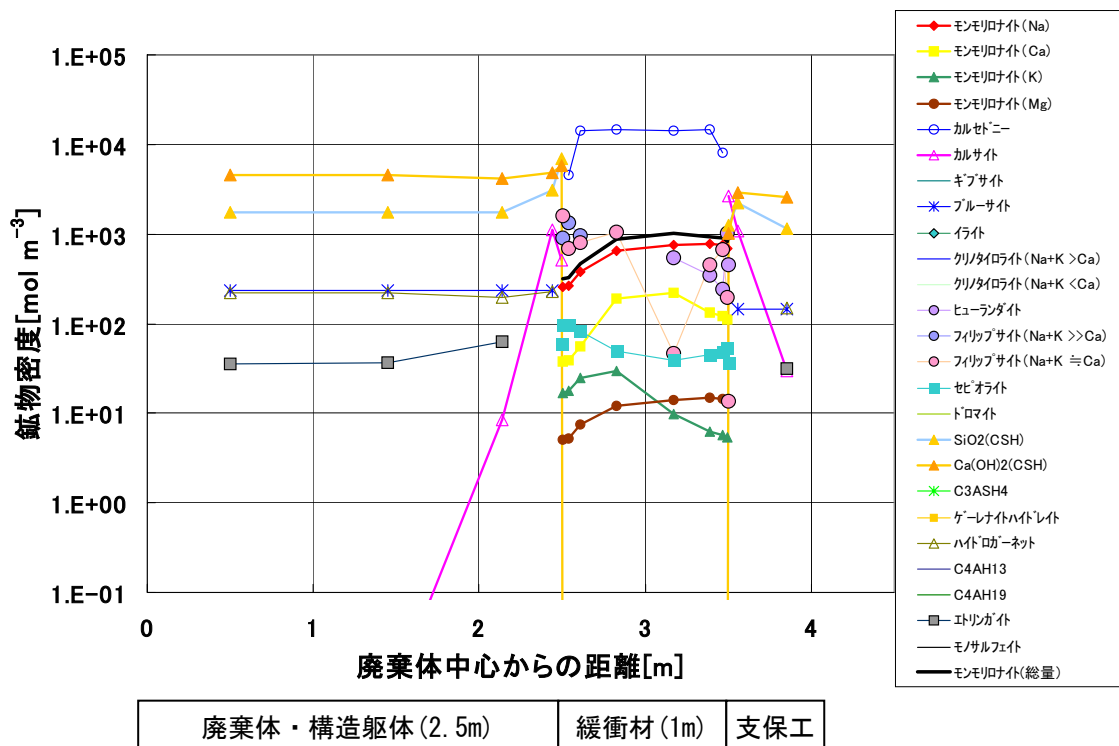
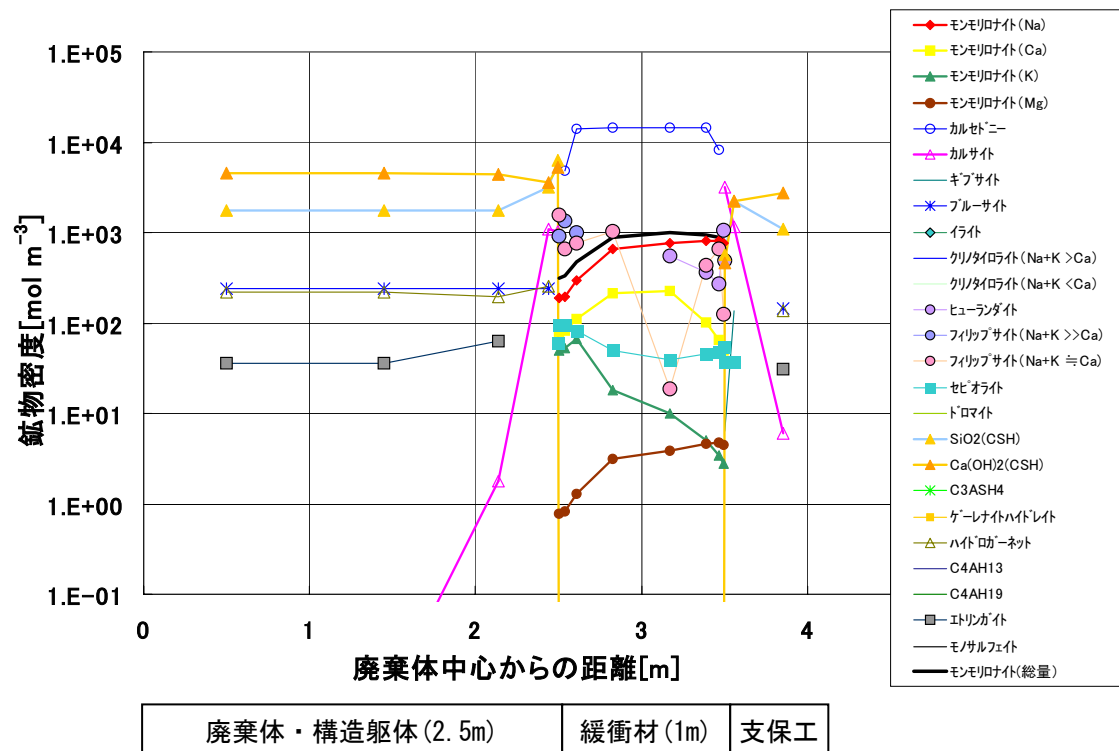


図 6.4-4 安定ゼオライト，カリ長石の生成を仮定しない場合の鉱物分布（ケース 421）
 上：1 万年後， 下：10 万年後

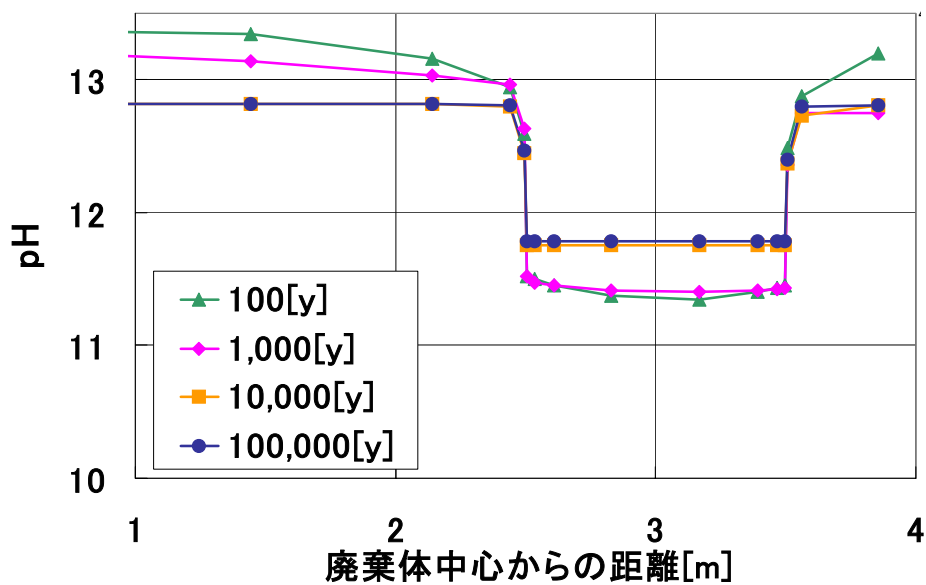


図 6.4-5 安定ゼオライト，カリ長石の生成を仮定しない場合の pH 分布の時間変化（ケース 421）

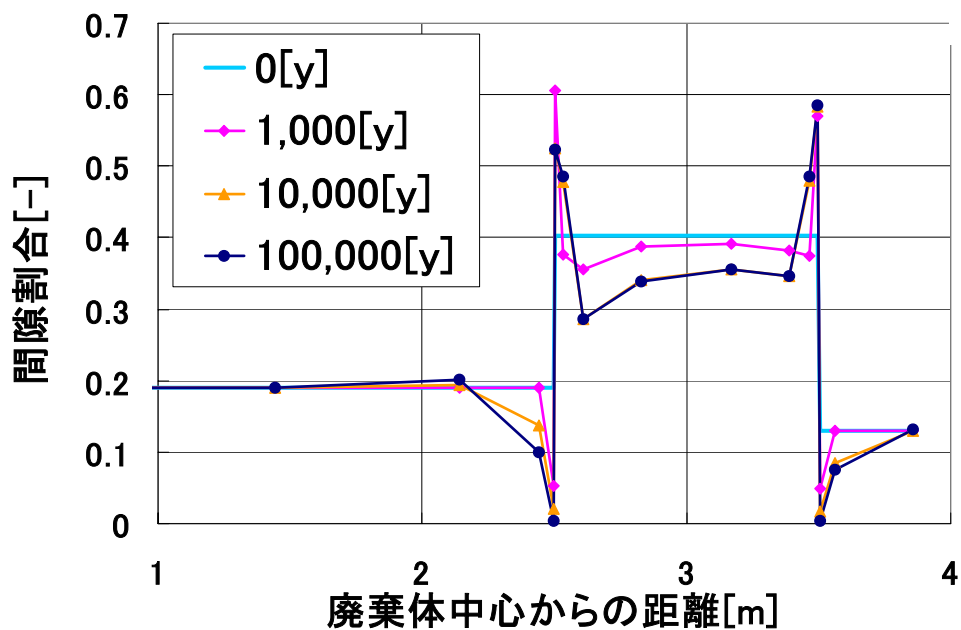


図 6.4-6 安定ゼオライト，カリ長石の生成を仮定しない場合の間隙割合の時間変化（ケース 421）

6.5 ケース 511, 521 (イライト・安定相生成ケース)

ケース 511, 521 では、ベントナイトの鉱物学的変遷シナリオの安定相 (安定沸石とカリ長石) 及びイライトが生成する場合を想定した。イライトは生成しなかったため、ケース 311, 321 と同じ結果となった。

ここでは、アルカリ度や pH が高いために鉱物変遷が速く安定相の生成が比較的速やかに生じ、準安定ゼオライトは共存しない、あるいは短期的にしか存在しないといった場合を想定している。短期的に準安定ゼオライトと安定相が共存する場合については、両者が共存し得ることを仮定した場合 (ケース 6, 7) と準安定ゼオライトが生成しないことを仮定した場合 (ケース 1, 3, 5) の二つの極端な解析ケースに包括されるものと考えた。準安定ゼオライトが生成しないことを仮定した本ケースでは、緩衝材領域でのセメント系材料との境界近傍にカリ長石が顕著に生成し、全体にアナルサイムが生成していた。本ケースにおける 10 万年間のモンモリロナイトの溶解については、準安定ゼオライトの生成を仮定した解析結果 (ケース 2, 4, 6, 7) と異なっており、ごく境界近傍でのみ顕著な溶解がみられるが、それ以外の大部分ではケース 2, 4, 6, 7 に比べむしろ軽微な溶解であり、10 万年間程度は止水性が保持されるものと予想される。

化学的条件の変化については、ケース 1 と同様に、廃棄体領域は Region I~RegionII が 10 万年継続し、緩衝材領域では数百年から 10 万年の間 pH11 以上が継続するものと計算された。

モンモリロナイトのイオン型の変化については、カリ長石の沈殿によって境界部で K が消費され、アナルサイムの生成によって Na が消費され、さらに Ca を多く消費する準安定ゼオライトが生成しないためケース 3, 5 及び後に述べるケース 6, 7 の解析結果よりも早い時期 (511, 521 で 1 万年程度) に Ca 型化する結果となった。このように、生成する二次鉱物の種類と量によって Ca や Na などの濃度が異なり、イオン型の変化も異なってくることが予想される。ただし、本検討から予想される範囲でモンモリロナイトが残留する場合には、Ca 型化がより早期に生じたとしても 10 万年間程度は止水性が保持されるものと予想される。

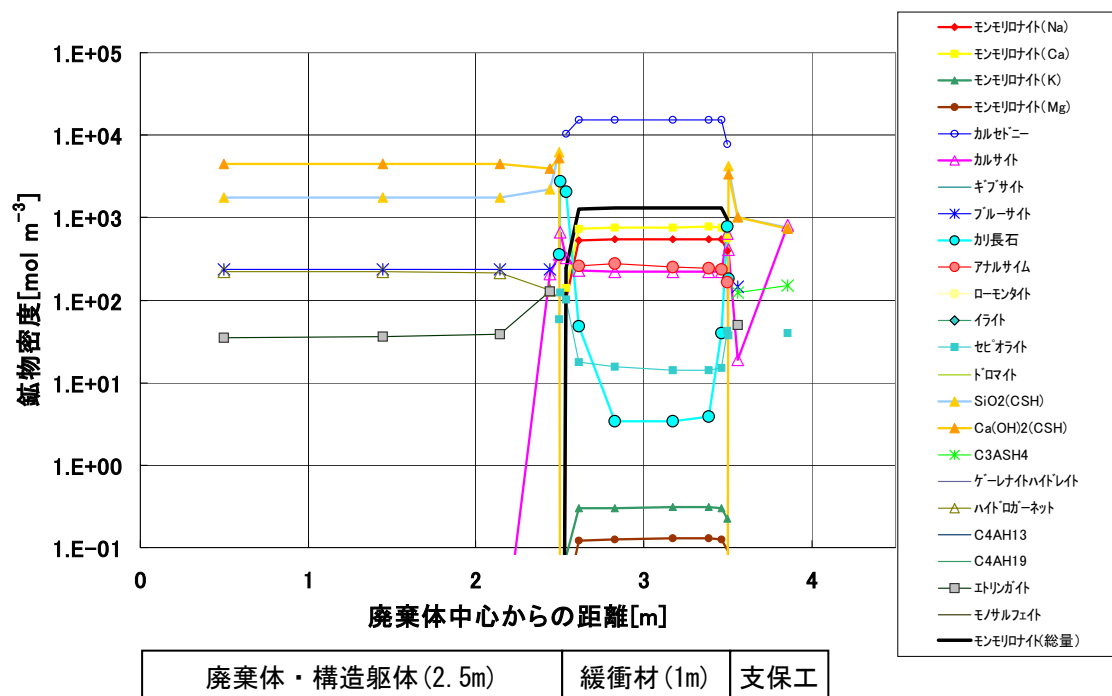
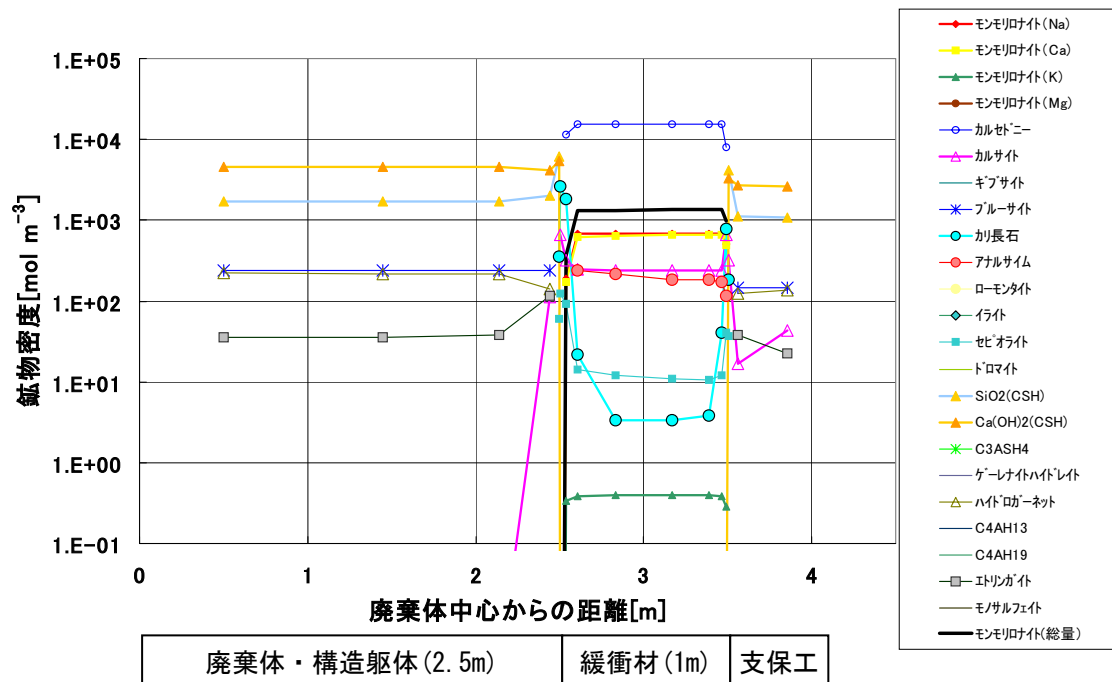


図 6.5-1 準安定ゼオライトの生成を仮定しない場合の鉱物分布 (ケース 511)

上 : 1 万年後, 下 : 10 万年後

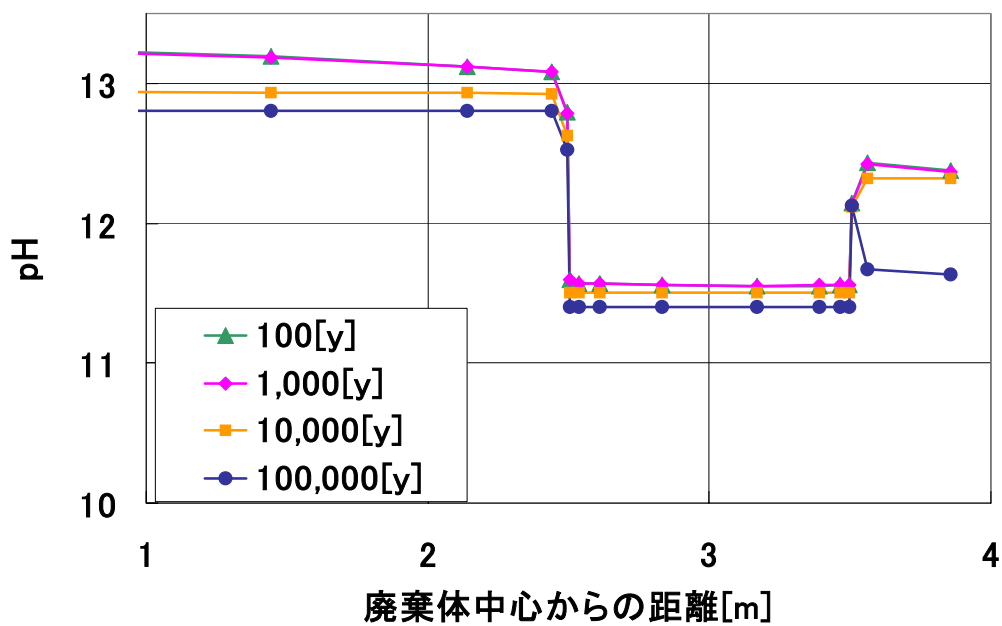


図 6.5-2 準安定ゼオライトの生成を仮定しない場合の pH 分布の時間変化 (ケース 511)

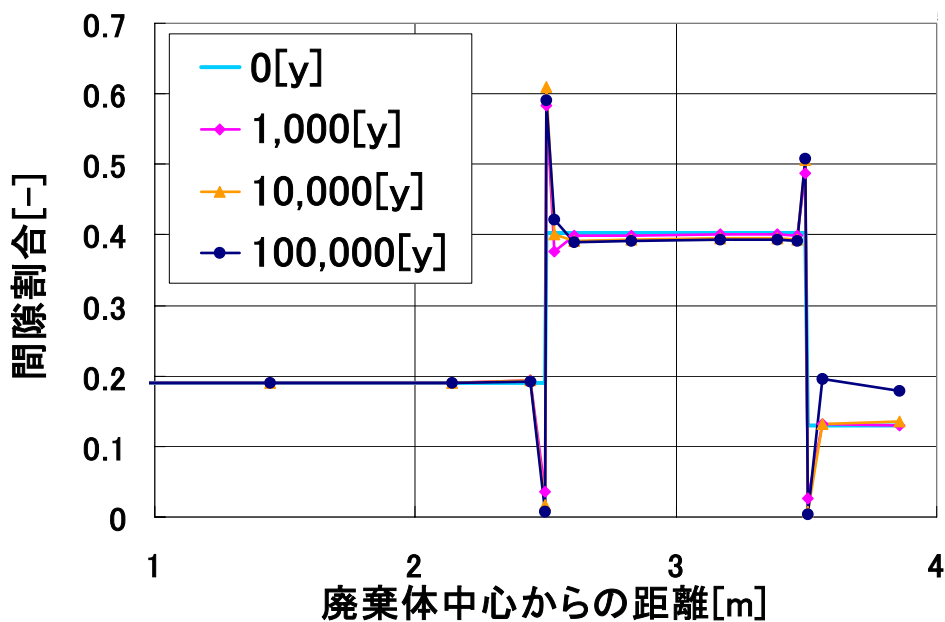


図 6.5-3 準安定ゼオライトの生成を仮定しない場合の間隙割合の時間変化 (ケース 511)

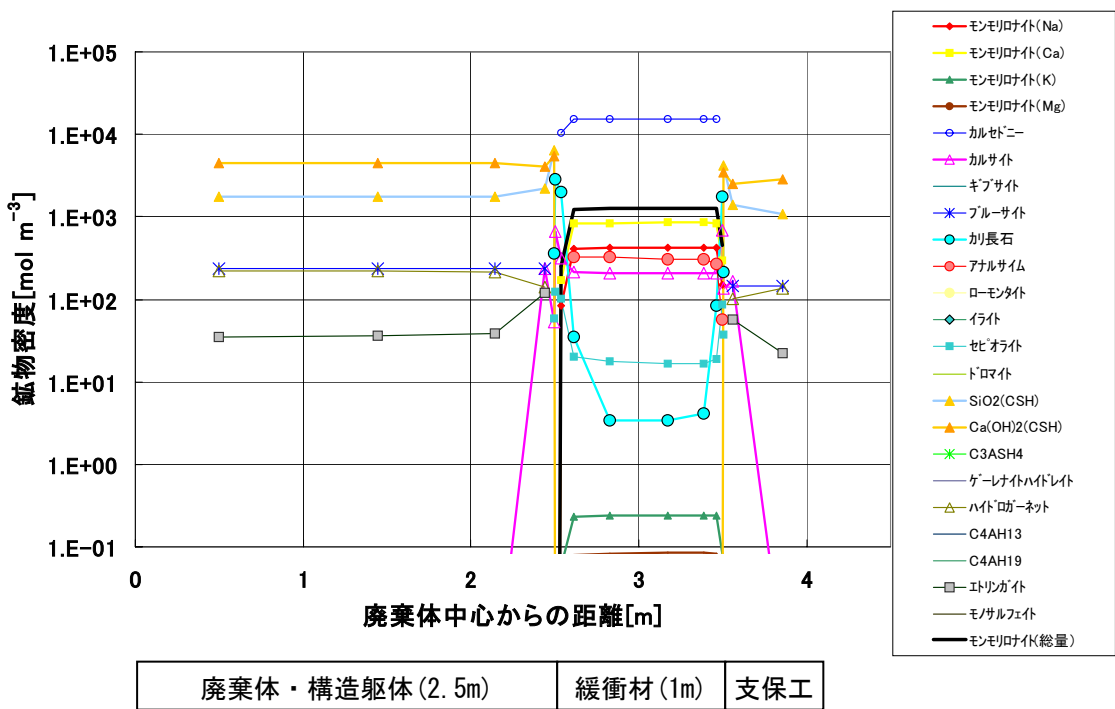
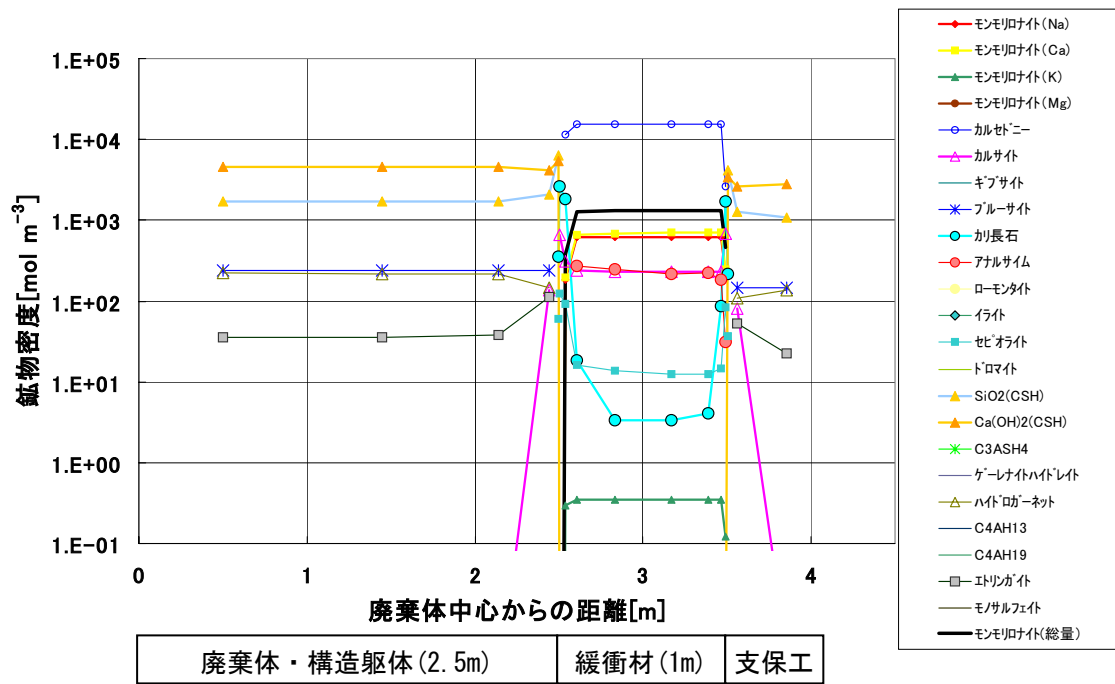


図 6.5-4 準安定ゼオライトの生成を仮定しない場合の鉱物分布 (ケース 521)

上 : 1 万年後, 下 : 10 万年後

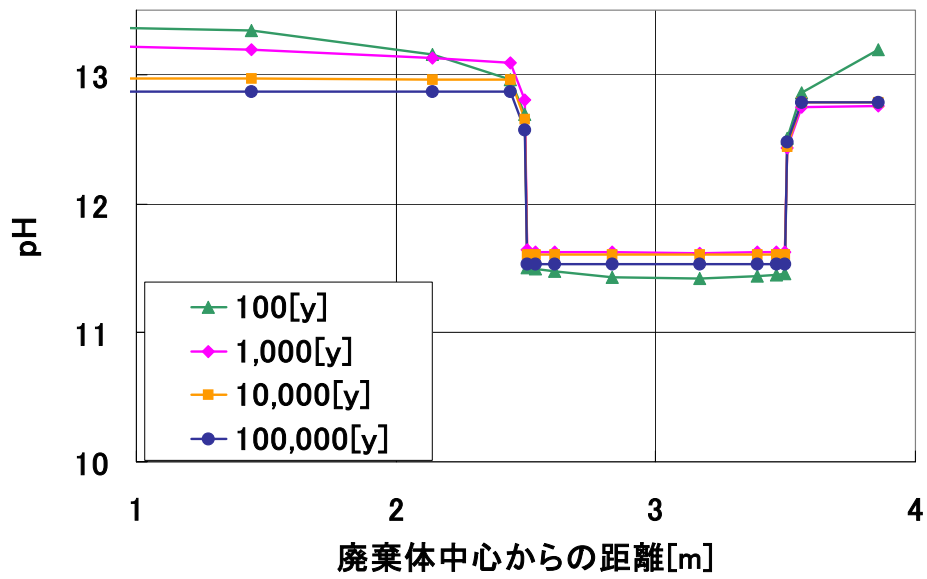


図 6.5-5 準安定ゼオライトの生成を仮定しない場合の pH 分布の時間変化 (ケース 521)

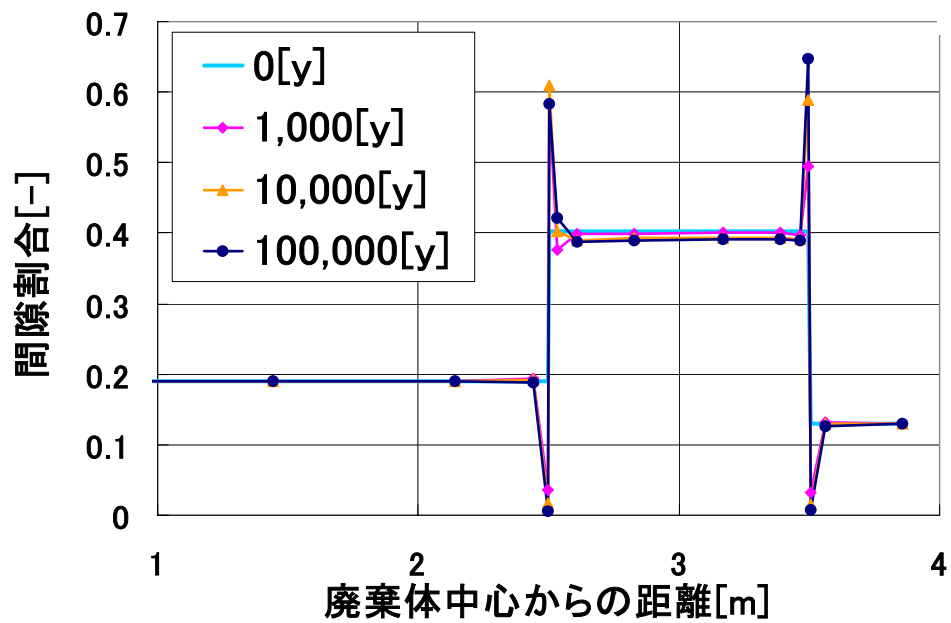


図 6.5-6 準安定ゼオライトの生成を仮定しない場合の間隙割合の時間変化 (ケース 521)

6.6 ケース 611, 621 (準安定沸石・安定相生成ケース)

ケース 611, 621 は、ベントナイトの鉱物学的変遷シナリオの準安定沸石と安定相(安定沸石とカリ長石)が共存する場合を想定した。ケース 611 が第 2 次 TRU レポートの図 4.4.2.2-6, 7, 8 に相当する。

このケースでは、モンモリロナイトの溶解で生じた Na, Mg, Al の液相溶存化学種が、準安定ゼオライトや安定相の生成に伴って消費されるため、ケース 1, 3, 5 に比べてモンモリロナイトの溶解が進行しているが、緩衝材中央部の 70cm 程度の領域において 80%程度以上のモンモリロナイトが残留しており、10 万年間程度は止水性が保持されるものと予想される。モンモリロナイトの溶解に伴い沈殿する二次鉱物としては、カリ長石とヒューランダイトが支配的であり、そのほかアナルサイトとセピオライトも生成している。ケース 611, 621 では 1 万年後までに、界面のセメント系材料側におけるカルサイト及び C-S-H ゲルの沈殿により間隙がほぼ充填されている。界面の緩衝材側では初期鉱物の溶解のために間隙割合の増大が生じていたが、界面のセメント系材料側の領域における間隙充填に伴ってセメント系材料と緩衝材間の物質移行は著しく制限され、この結果、廃棄体領域は Region I~II が 10 万年継続している。緩衝材領域では数百年から 10 万年間 pH11 以上が継続している。

モンモリロナイトのイオン型の変化は、緩衝材領域での二次鉱物沈殿に伴う溶液中の Ca の減少、界面近傍のセメント系材料間隙の充填による Ca, Na, K などの物質移行の制限などの影響を受け、数万年間 Na 型が支配的となっていた。

6.7 ケース 711, 721 (熱力学的平衡ケース)

ケース 711, 721 は、モンモリロナイトを除き局所的な平衡が常に成り立つ場合を想定した。ケース 611, 621 との違いは、イライトを潜在的な二次鉱物として仮定するかしないかのみである。ケース 711, 721 の結果ではイライトは生成していなかった。よって、本検討の上ではケース 6 とケース 7 は同じ結果となった。

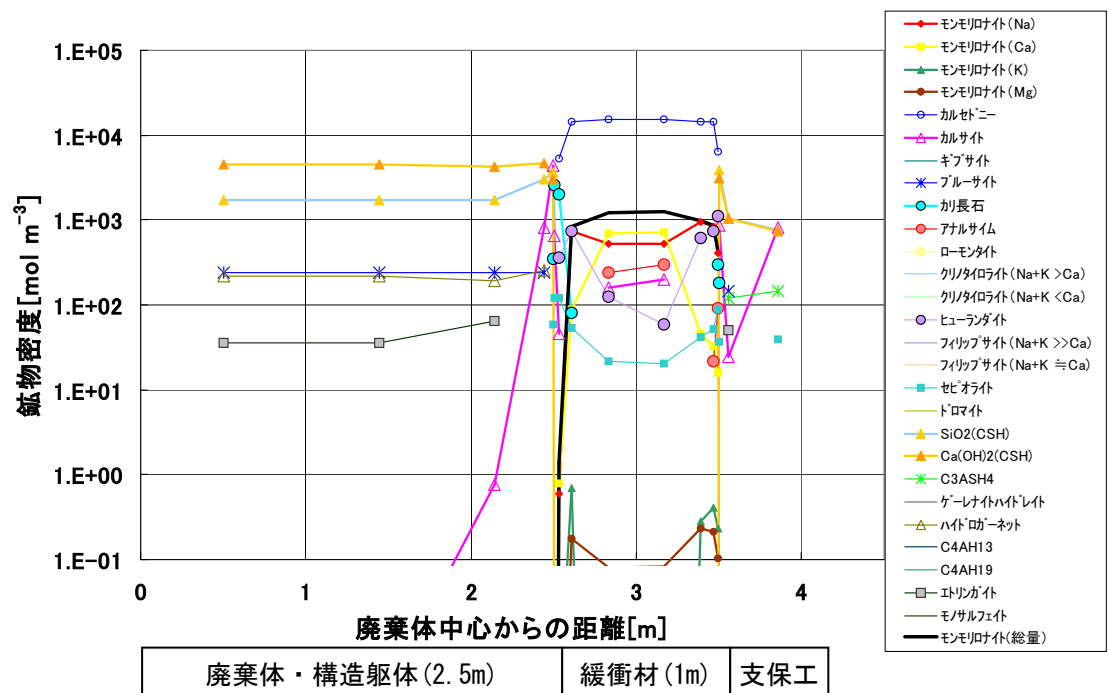
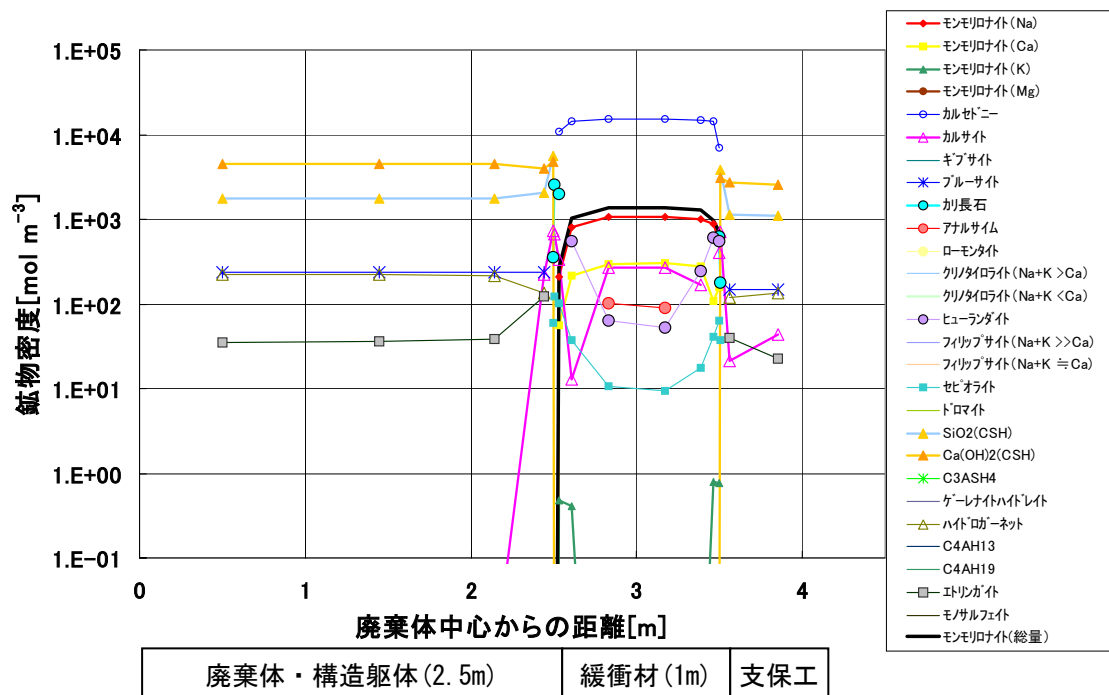


図 6.6-1 準安定ゼオライト, 安定相 (安定ゼオライト, カリ長石) が生成する場合の鉱物分布 (ケース 611)

上 : 1 万年後, 下 : 10 万年後

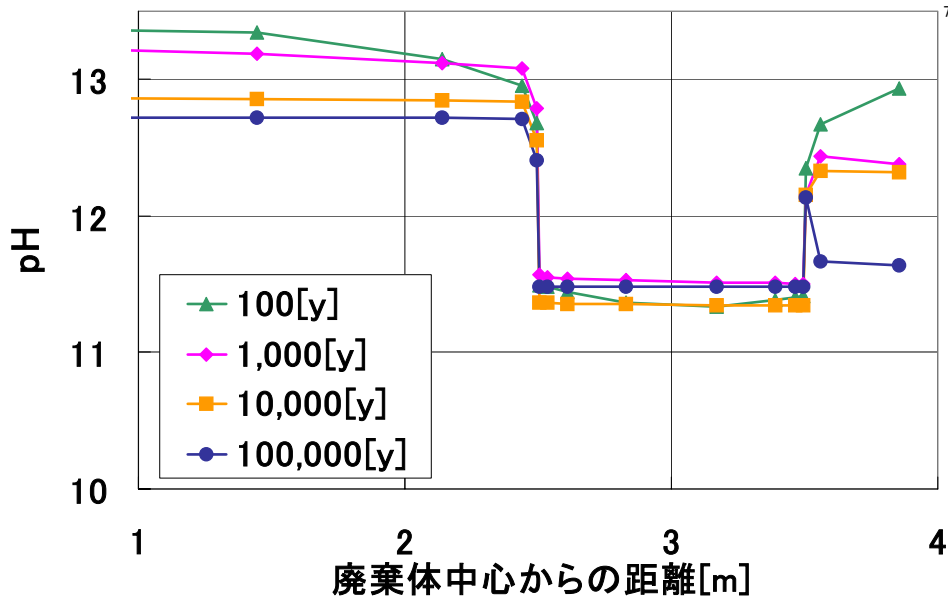


図 6.6-2 準安定ゼオライト, 安定相 (安定ゼオライト, カリ長石) が生成する場合の pH 分布の時間変化 (ケース 611)

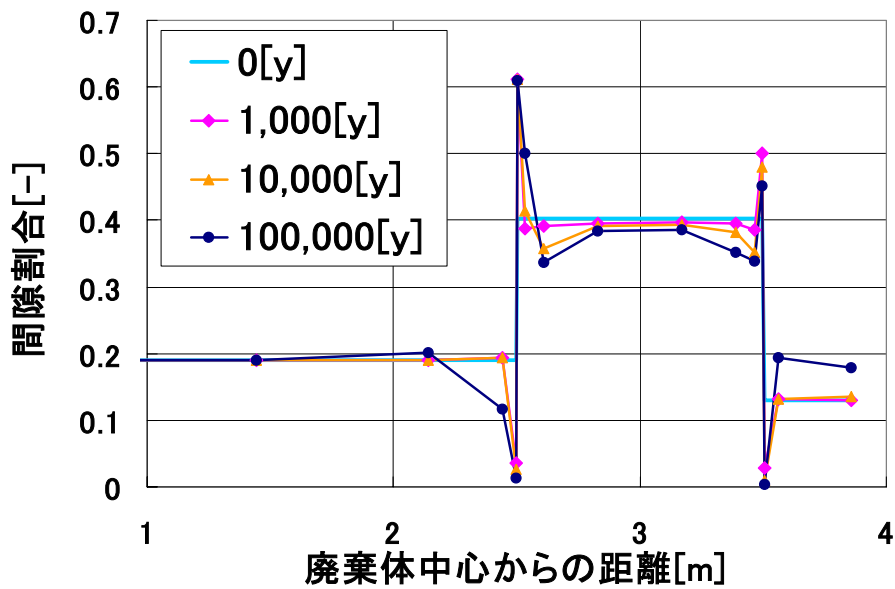


図 6.6-3 準安定ゼオライト, 安定相 (安定ゼオライト, カリ長石) が生成する場合の間隙割合分布の時間変化 (ケース 611)

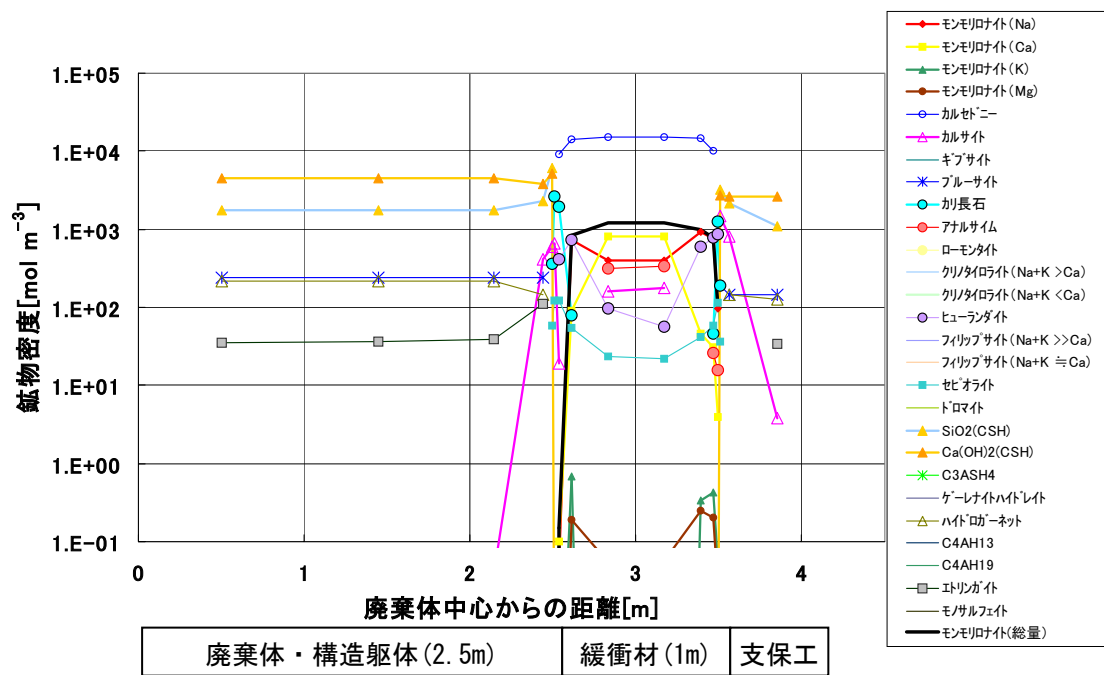
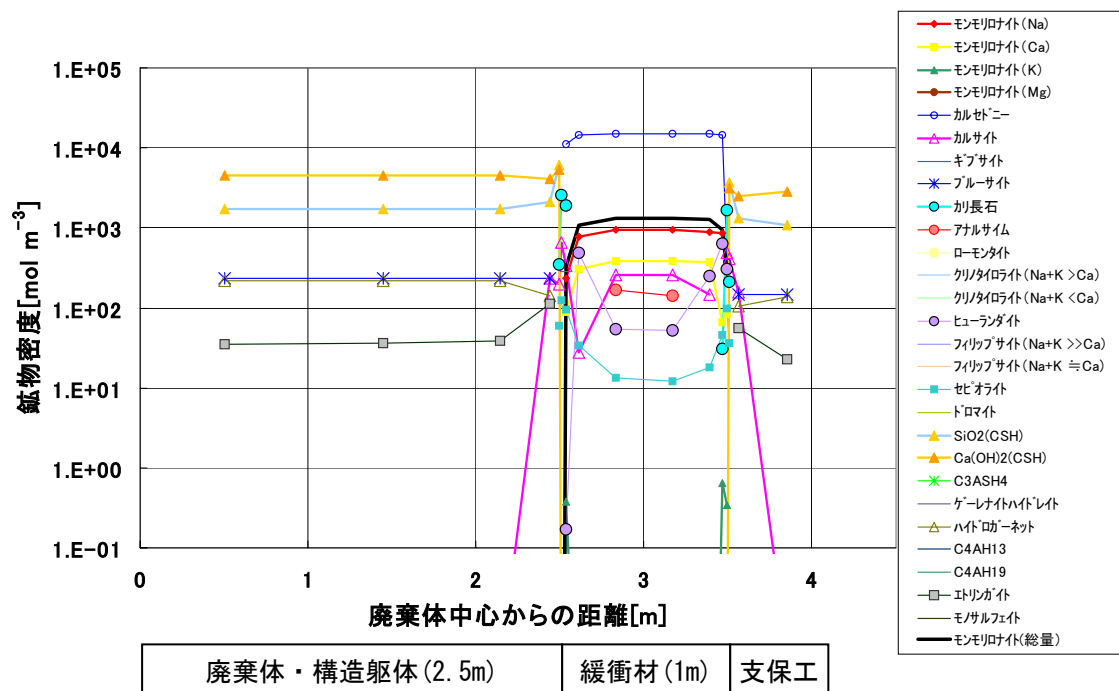


図 6.6-4 準安定ゼオライト, 安定相 (安定ゼオライト, カリ長石) が生成する場合の鉱物分布 (ケース 621)
上 : 1 万年後, 下 : 10 万年後

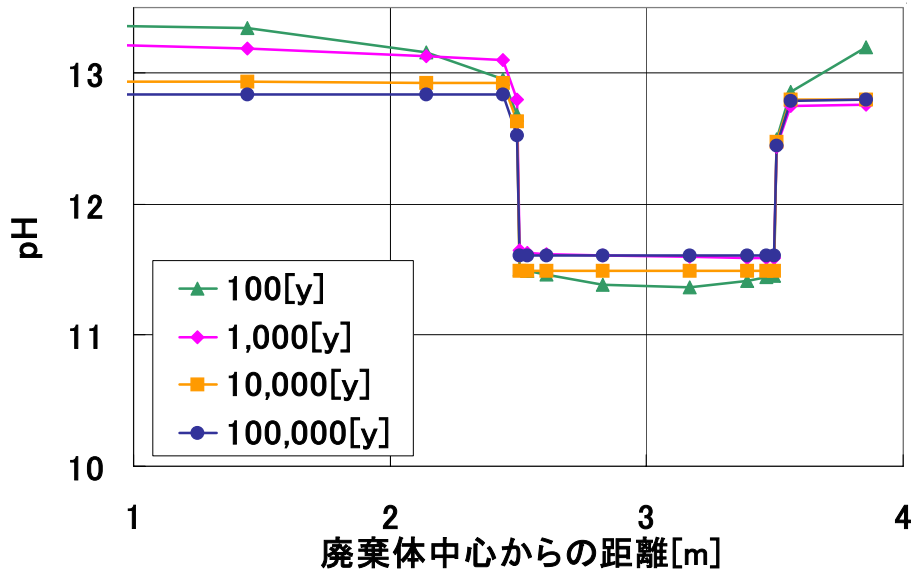


図 6.6-5 準安定ゼオライト, 安定相 (安定ゼオライト, カリ長石) が生成する場合の pH 分布の時間変化 (ケース 621)

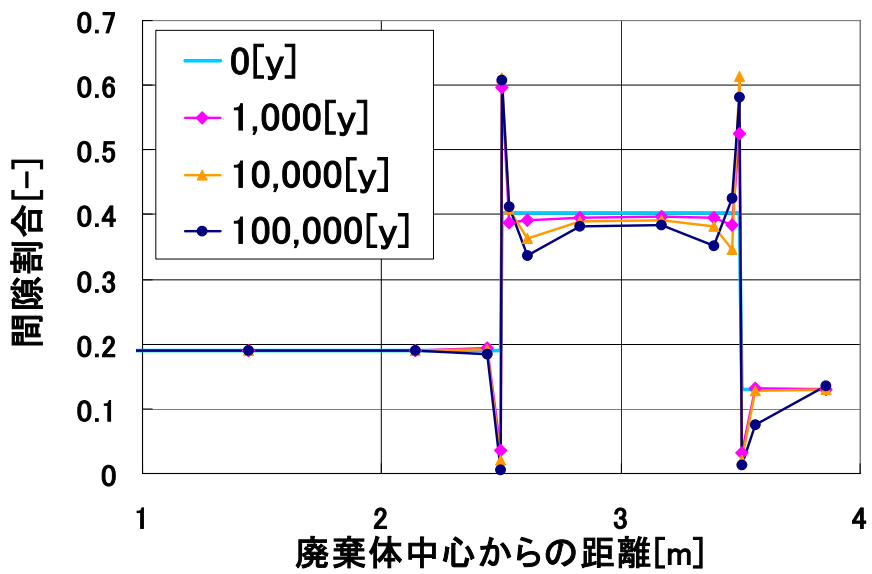


図 6.6-6 準安定ゼオライト, 安定相 (安定ゼオライト, カリ長石) が生成する場合の間隙割合の時間変化 (ケース 621)

6.8 ケース 811, 821 (結晶化ケース)

ケース 811, 821 は、セメント系材料の主要固相である C-S-H の結晶化を想定した。処分場では昇温による結晶化は避けられるものの、長期的には固相の熟成によってより安定な相が生じる可能性がある。C-S-Hゲルの結晶化によって、間隙水組成の変化や間隙の粗密が生じ、物質移動特性の変化とそれに伴う変質挙動への影響が生じることが考えられる。ここでは、変質挙動に及ぼす C-S-H の結晶化の影響を検討することとした。この場合には、ベントナイトの変質に伴う二次鉱物についても準安定沸石は考慮せず、安定相とイライトの生成を仮定した。よって、ケース 511, 521 の条件のうち、初期の鉱物組成はそのままで、二次鉱物として C-S-Hゲルの代わりに C-S-H 鉱物のトバモライト、アフィライト、ジェナイトを仮定した。なお、結晶化を考えないケースでは C-S-Hゲルの生成により間隙充填が生じていた。トバモライト、アフィライト、ジェナイトなど結晶相のモル体積は C-S-Hゲルより小さいことから、結晶化は間隙充填を抑制する方に影響する可能性がある。また、その結果として、間隙充填による物質移動の抑制を阻む可能性がある。このような影響を過度に把握することを目的とし、結晶化ケースでは、解析上間隙充填が生じにくくなるように境界部での最小メッシュサイズをセメント系で 5cm、ベントナイト系で 10cm と他のケースよりも広く設けた。また、ベントナイト系材料、セメント系材料ともに 5.1 及び 5.2 に示した物質移動パラメータの経験式を用いるが、自由水中の拡散係数(経験式の $2.27 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$)としてより大きい 60°C での値 $4.0 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ を仮定した。モンモリロナイトの溶解速度には他のケースと同じく 5 項表 1 に示す式に従うものとした。

また、本ケースの解析に対しては計算資源の都合上、RAIDEN3 ではなく PHREEQC-TRANS (根拠資料集 4-2) を用いた。PHREEQC-TRANS で用いた解析に用いた鉱物のモル体積を表 6.8-1 に示す。

なお、PHREEQC-TRANS では、C-S-Hゲルの固溶体モデルとして Atkinson モデル (Arkinson et al., 1987) を採用していること、モンモリロナイトの溶解速度式を与える場合にはモンモリロナイトのイオン交換反応を同時に扱えないという点で RAIDEN3 と異なる。この点については、根拠資料集 4-2 にて、ケース 711 (ただし、拡散係数の温度を 60°C 相当とした) を対象とした両コードの計算結果に顕著な違いが生じないことを確認し、RAIDEN3 と PHREEQC-TRANS を併用することで問題ないことを確認した。

計算結果を図 6.8-1~6.8-8 に示す。図 6.8-4, 6.8-8 には本ケースでの緩衝材領域の物質移動パラメータの時間変化を示した。

初期のセメント水和物組成として与えた C-S-Hゲルは、ジェナイトあるいはトバモライトに変化した。支保工の領域ではジェナイトからトバモライトへの変化が生じた。また、トバモライトは緩衝材領域のセメントとの境界付近でも生成した。緩衝材領域でのその他の二次鉱物としては、アナルサイム、ローモンタイト、カリ長石、セピオライトなどが生成した。

10 万年間のモンモリロナイトの溶解量は顕著なものではなく、結晶化を考慮しないケース 5 の解析結果と比べて顕著な差異は生じなかった。間隙割合の変化については、ケース 511 では 1 万年後には境界近傍のセメント系領域で $10^{-3} \sim 10^{-2}$ 、10 万年後に 10^{-3} と低下したのに対し、ケース 811 では 1 万年後で 10^{-2} 、10 万年後で $10^{-3} \sim 10^{-2}$ と、境界近傍での間隙充填がやや抑制されるものとなった。結晶性の C-S-H 鉱物を考慮することによって C-S-Hゲルのみを仮定していた場合よりも鉱物が占める体積が減ることと、境界近傍でのメッシュサイズが異なることの双方が解析上間隙充填を抑制したものと考えられる。本ケースのように結晶化を考慮し、かつ解析上のメッシュ

サイズが境界部で大きく、間隙充填が抑制された場合でも、緩衝材領域のモンモリロナイト残存量はケース5と顕著な差はなく、廃棄体領域の化学的条件（pH変化）はケース5と比べて早く進展するものの10万年後までRegion I~IIが維持され、また、等価透水係数、実行拡散係数の時間変化は小さく10万年後も良好な止水性が保持されるという結果となった。

表 6.8-1 鉱物のモル体積（表記以外は表3と同じ）

鉱物名	密度 (g/cm ³)	式量 (g/mol)	mol 体積 (l/mol)	出典
ホルランタイト	2.23	74.1	0.0332	荒井(1990)
C-S-H ゲル			*	
ハトコパーネット	2.52	378.3	0.1501	荒井(1990)
C ₃ ASH ₄	2.52	402.35	0.1597	C ₃ AH ₆ と同じとした
ゲルケイト水和物	1.94	418.3	0.2156	Taylor(1997)
カオリナイト	2.61	258.12	0.0989	地学団体研究会(1996)
パイロフィライト	2.61	234.11	0.0897	カオリナイトと同じとした
エトリンサイト	1.73	1255.1	0.7255	荒井(1990)
モノサルフェイト	1.95	622.542	0.3193	原環センター(2004)
カルサイト	2.71	100.1	0.0369	化学大辞典編集委員会(1963)
カルセドニ	2.62	60.1	0.0229	玉虫 他(1971)
イライト	2.73	383.90	0.1406	Na-モンモリロナイトと同じ密度とした
カリ長石	2.63	278.33	0.1058	密度を地学辞典記載のアルバイトと同じとした
ブルーサイト	2.39	58.3	0.0244	化学大辞典編集委員会(1963)
フリーデル氏塩	2.3	561.35	0.2441	Reardon(1992)
ギブサイト	2.4	78.004	0.0325	地学団体研究会(1996)
ドロマイト	3.02	184.60	0.0611	地学団体研究会(1996)
セピオライト	2.25	647.83	0.2879	地学団体研究会(1996)
ハトコルサイト	2.00	443.33	0.22167	地学団体研究会(1996)

*Ca/Si 比に対するモル体積の経験式：

$$\text{mol 体積 (C-S-H)} = 1.24\text{E-}2 \times (\text{Ca/Si})^2 - 4.76\text{E-}2 \times (\text{Ca/Si}) + 9.10\text{E-}2 \quad \text{とする。}$$

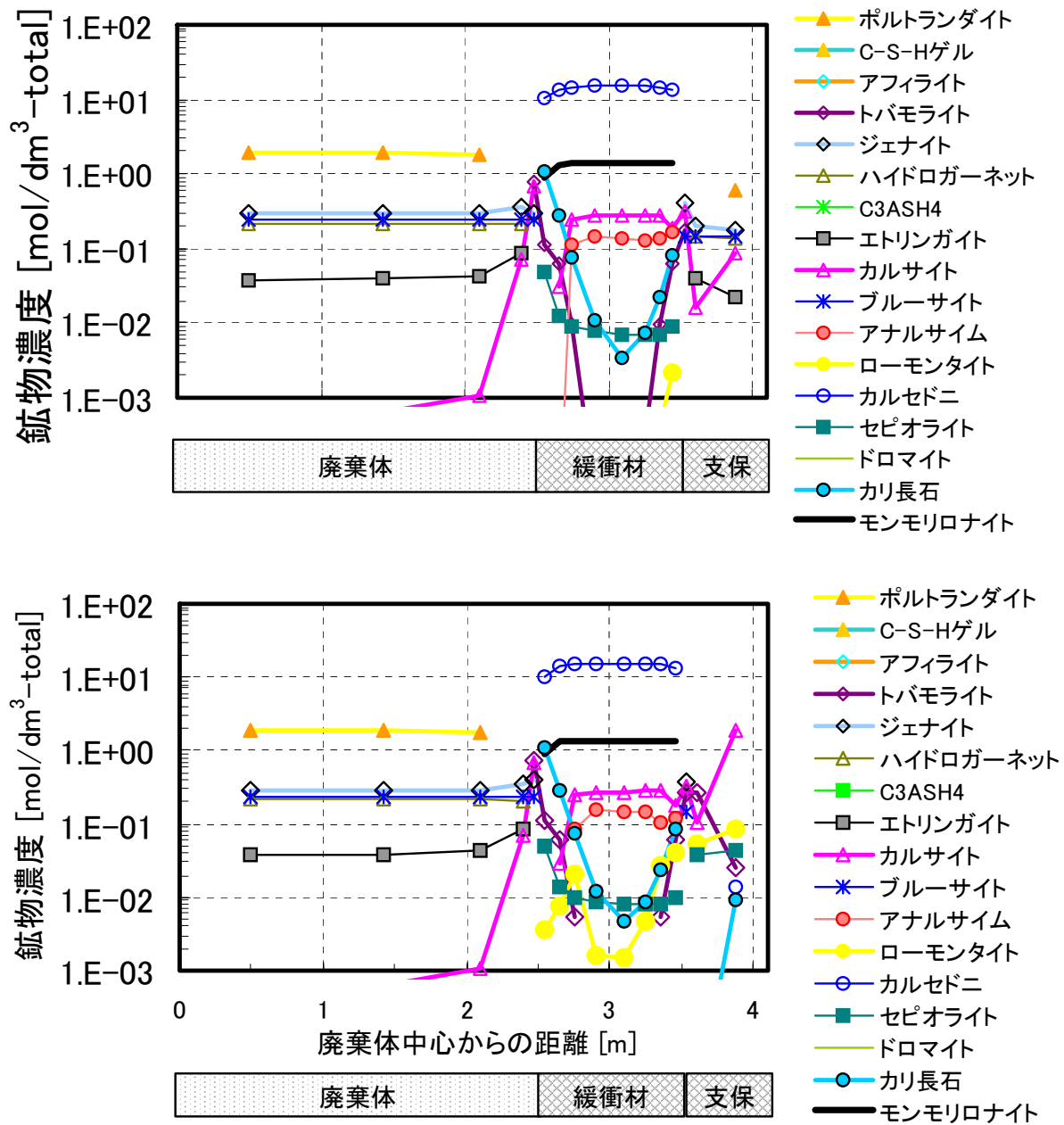


図 6.8-1 結晶化ケースの鉱物分布 (ケース 811)
 (モンモリロナイト総量の初期値: $1.47 \text{ mol/dm}^3\text{-total}$)
 上: 1 万年後, 下: 10 万年後

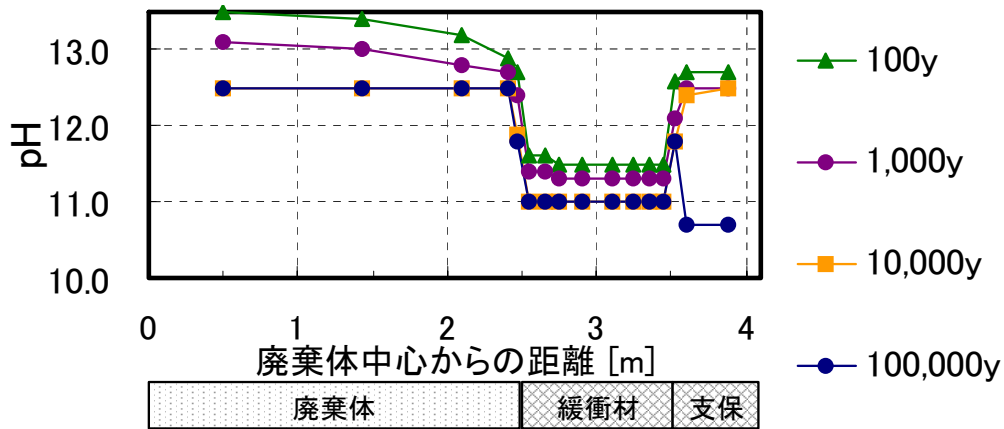


図 6.8-2 結晶化ケースの pH 分布の時間変化 (ケース 811)

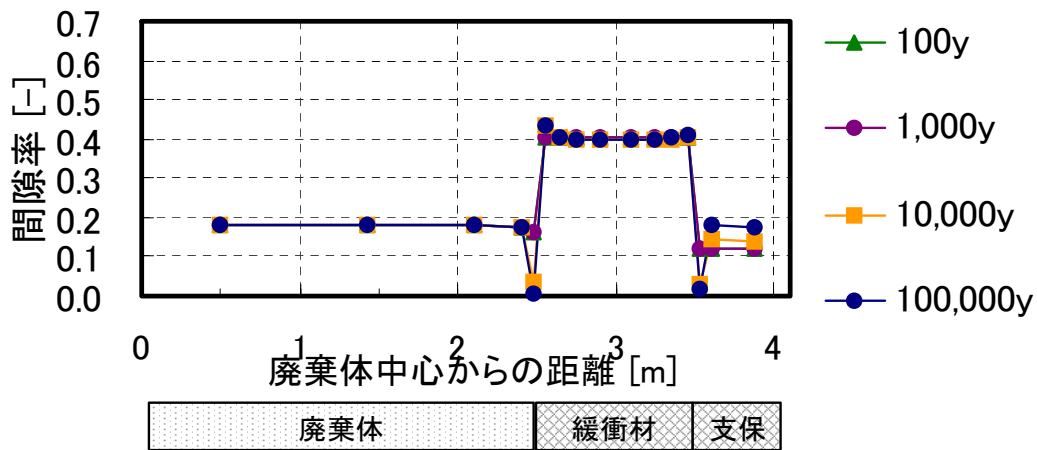


図 6.8-3 結晶化ケースの間隙割合の時間変化 (ケース 811)

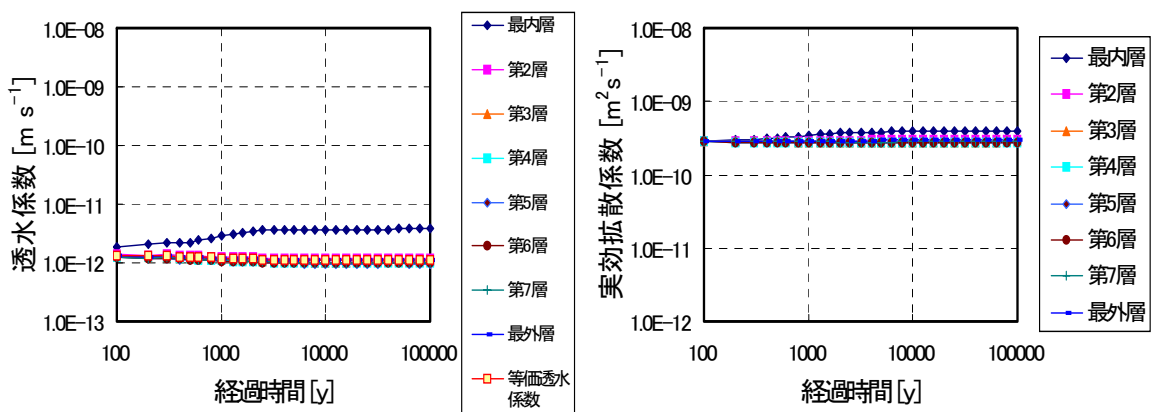


図 6.8-4 結晶化ケースの緩衝材領域での物質移動パラメータの時間変化 (ケース 811)

左：透水係数，右：実効拡散係数

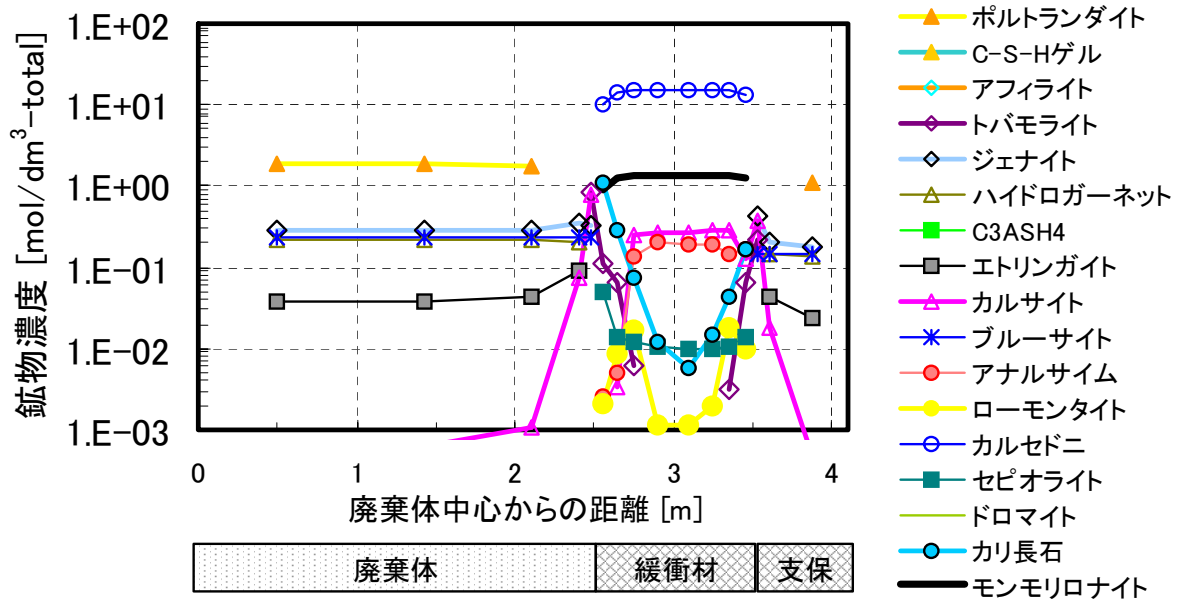
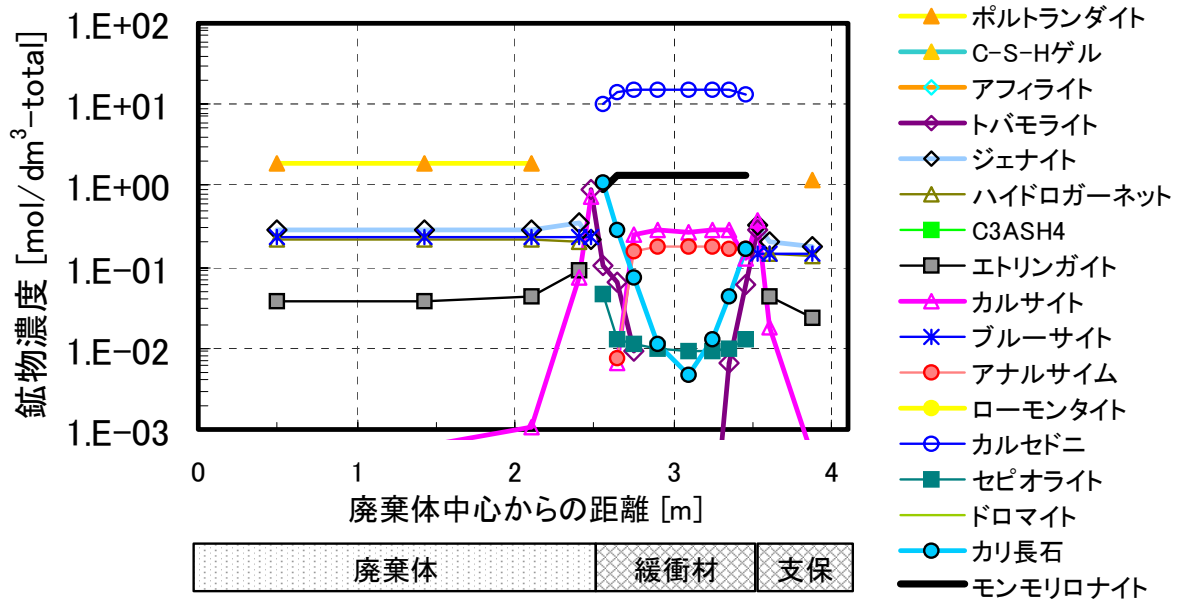


図 6.8-5 結晶化ケースの鉱物分布 (ケース 821)
上 : 1 万年後, 下 : 10 万年後

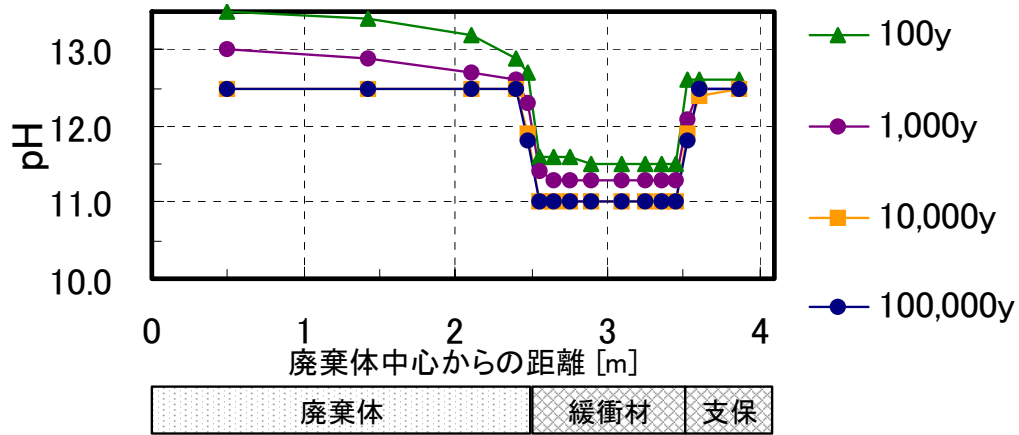


図 6.8-6 結晶化ケースの pH 分布の時間変化 (ケース 821)

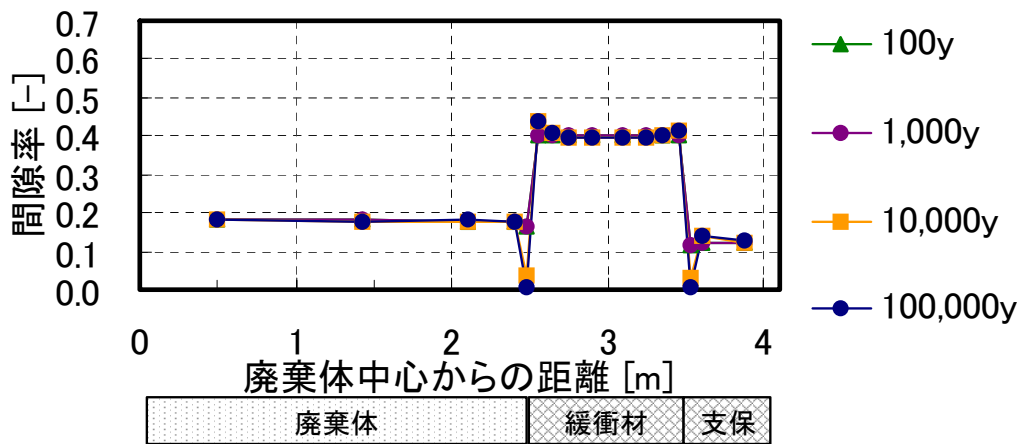


図 6.8-7 結晶化ケースの間隙割合の時間変化 (ケース 821)

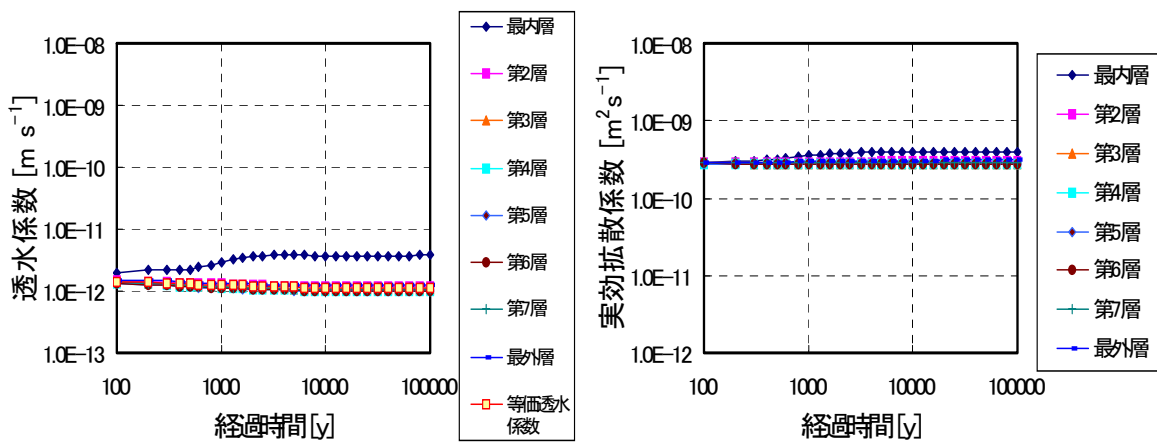


図 6.8-8 結晶化ケースの緩衝材領域での透水係数の時間変化 (ケース 821)

左：透水係数，右：実効拡散係数

6.9 鉱物学的変遷の不確実性のまとめ

間隙割合の変化を物質移動パラメータに反映した場合、ケース6では、外側境界条件（濃度固定境界、ゼロフラックス境界）によらず、緩衝材中の中央部分（100cmの緩衝材厚さのうちの約70cm程度）において、10万年経過後においても70%以上（ケース6では約80%）のモンモリロナイトが残留すると計算された。また、界面近傍の緩衝材領域のメッシュではカルセドニやモンモリロナイトの溶解により境界近傍では間隙割合の増大が見られるものの局所的であり緩衝材領域全体としての間隙割合は長期間にわたってほとんど変化しなかった。境界部分ではC-S-Hゲルなどの二次鉱物が顕著に沈殿することから、境界近傍のセメント系材料側での間隙は充填される方向にあった。つまり、中央部に残留するモンモリロナイトは、密実な周辺領域によって拘束された状態にあり一定の膨潤圧を保持するものと予想される。モンモリロナイトのイオン型の変化については、Caを消費する準安定沸石が生成するかしないか、Naを消費する安定沸石が生成するかしないかによって差異が生じるが、境界近傍で間隙が充填されるような場合には、いずれにせよ数万年まではNa型が優勢であると計算された。そして、イオン型の変化、モンモリロナイトの部分密度（緩衝材の単位かさ体積当たりのモンモリロナイト及び間隙の体積の和で当該モンモリロナイトの重量を除いた値）の低下を考慮した上でも、10万年後においても緩衝材の等価透水係数は 10^{-12} [m/s]と計算され、良好な止水性を示すと計算された。

化学的条件は、外側境界条件によらず、廃棄体領域はRegion I~RegionIIが10万年継続し、緩衝材領域では数百年から10万年の間pH11以上が継続するものと計算された。

これらの結論は、ケース1~7において当てはまる（ケース4でのみ、10万年経過後において70%以上モンモリロナイトが残存する領域は50cm程度、60%以上残存する領域は70cm程度であったが、等価透水係数は他のケースと同等であった）。以上のことから、10万年後においてもベントナイトの変質程度は軽微であり、緩衝材は中央部の低変質部分によって10万年後においても止水性を保持し、このため、人工バリア内部の核種移行は拡散によって支配される期間が継続するものと考えられる。廃棄体領域の化学的条件としてはRegion I~RegionIIが10万年継続し、緩衝材領域の化学的条件としては数百年から10万年の間pH11以上が継続するものと予想される。また、変質によって顕著な間隙充填が生じ、核種移行に対するバリア性能がむしろ向上する可能性も示唆している。

6.10 間隙充填の不確実性について

上記の解析でみられた二次鉱物による間隙充填は界面のセメント系材料側において生じており、ベントナイト側のごく限られた領域では初期鉱物の溶解が卓越することによって間隙割合が増大している部位が生じている。このことは、界面における拡散抵抗をもたらす変質層が力学的には安定していない可能性を示唆している。これに加えて、ガスの発生や通気及びひび割れ部分での流動を考えれば、間隙充填が間欠的なものとなることも考えられる。したがって、二次鉱物による間隙の充填は常に拡散による物質移行を制限するものではなく、変質層の部分的な破壊と修復を繰り返すことによって間欠的な溶質及び核種の移行が生じる可能性が想定される。そこで、二次鉱物の沈殿にもかかわらず間隙割合低下に伴う実効拡散係数の低下がないという状況を想定して人工バリアの変質解析を実施した（ケース631, 731）。ケース631が第2次TRUレポートの図4.4.2.3-3に相当する。

ケース 731 の結果ではイライトが生成しないため、ケース 631 と同じ結果となった。ケース 631 では、ケース 611, 621 で間隙充填により界面のセメント系材料側に閉じ込められていた水酸化物イオンが緩衝材中に移行しモンモリロナイトと反応することから、モンモリロナイトの溶解量は間隙充填を考慮した解析よりも増加していた。この場合であっても、10 万年後に緩衝材領域 70cm 程度においてモンモリロナイトが 70%程度が残留しており、Ca 型化及びモンモリロナイトの部分密度の減少を考慮しても透水係数の増加は無視できるものであった。したがって、このケースにおいても、緩衝材の止水性は 10 万年間程度保持されるものと予想される。

ただし、物質移動により NaOH, KOH が系の外部に移行することから、人工バリア中の pH の変化は、間隙充填を考慮した解析よりも早く進展し、廃棄体領域で Region I の継続期間は数千年程度、Region II の継続期間は数万年程度（10 万年後には廃棄体領域の最外部から数十 cm 程度の部分が Region III となった）、緩衝材領域では数万年まで pH11 以上を維持し、10 万年までには pH11 を下回るとの解析結果が得られた。モンモリロナイトのイオン型は、同じく間隙充填によりセメント系材料に閉じ込められていた Na, K が系の外部に移行し、その後は Ca が安定して供給されることから、間隙充填を考慮した解析よりも比較的広い範囲で Ca 型化が進んでいた。この結論は、ケース 431 を除いた全てのケースにおいて当てはまる。ケース 431 でのみ、10 万年後に緩衝材領域中央部においてモンモリロナイトが 60%程度にまで減少したが、このときの緩衝材領域の等価透水係数は 1.0^{-11} [m/s] であり、この場合でも止水性が保持され拡散場が維持されるものと予想される。

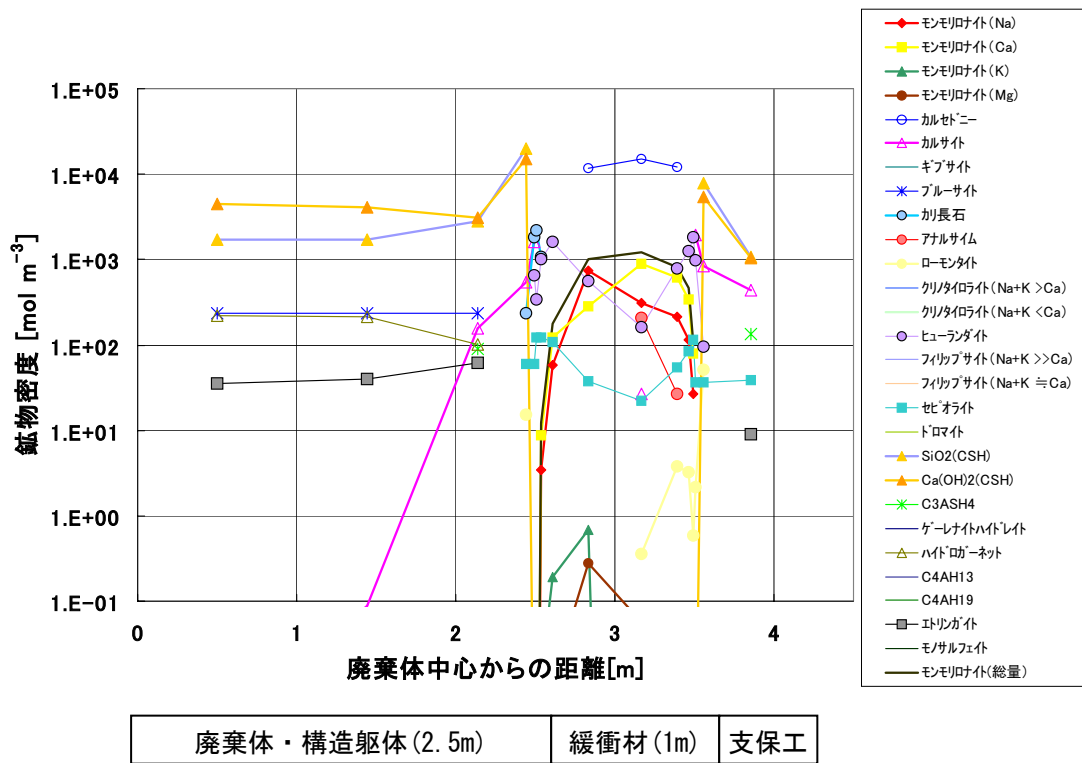
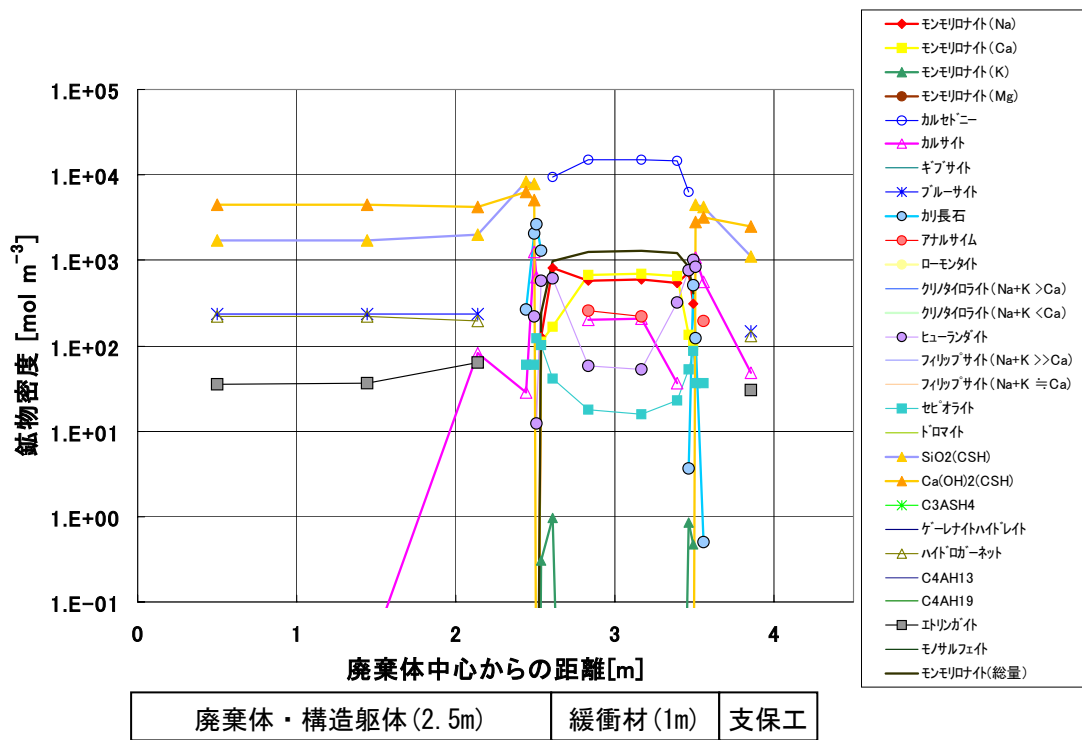


図 6.6-7 準安定ゼオライト, 安定相 (安定ゼオライト, カリ長石) が生成する場合の
 鉱物分布 (ケース 631 : De 一定)
 上 : 1 万年後, 下 : 10 万年後

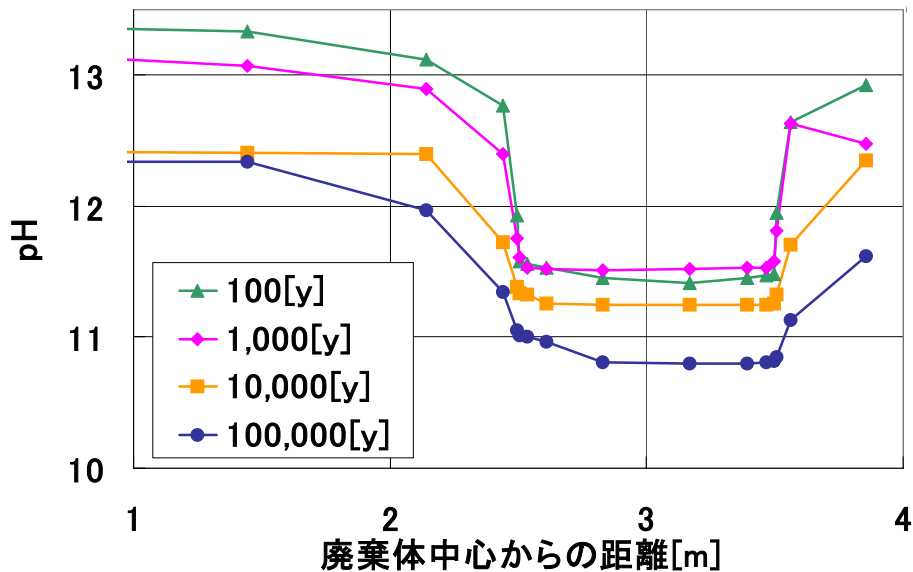


図 6.6-8 準安定ゼオライト, 安定相 (安定ゼオライト, カリ長石) が生成する場合の pH 分布の時間変化 (ケース 631 : De 一定)

7. その他の不確実性の影響を含んだ解析結果

力学的均衡の影響, 溶解速度, 平衡定数, Si 供給量に関する不確実性の影響について以下に結果を示す。なお, 一部解析に対してはRAIDEN3の計算機能の制約から計算が行えないため, 補完的にPHREEQC-TRANS (根拠資料集4-2) を用いた。

7.1 力学的均衡の影響の検討

3.3.2.2においては力学的な影響を検討しており, 岩盤のクリープは処分施設を圧縮すること, その変形量は比較的小さいことから, 緩衝材の間隙割合, モンモリロナイトの部分密度に及ぼす影響は無視しようとされている。一方, 奥津ら(2005)は, 緩衝材の一部の領域が変質して, モンモリロナイトの部分密度が低下すると共に膨潤性が低下した領域を設定し, 健全な緩衝材領域の膨潤によってモンモリロナイトの部分密度が再分配される挙動を考慮した力学計算を行った。その結果, モンモリロナイトの部分密度の再分配量は微小であり, モンモリロナイトの部分密度が全領域で均一にはならないことが示唆された。

これらの知見に加え, ここでは, 仮想的に緩衝材中のモンモリロナイトの部分密度が均一となることを仮定して, タイムステップごとに緩衝材領域のモンモリロナイトの部分密度を再分配させた1次元物質移行-化学反応連成計算を実施し, モンモリロナイトの膨潤による力学的均衡の影響を擬似的に検討することとした。

(1) 解析コード

本検討は, モンモリロナイトの部分密度を再分配させる機能を付帯させたPHREEQC-TRANSを用いて解析を実施した。

(2) 解析モデル

本検討における解析体系，解析条件は以下の点を除きPHREEQC-TRANSを用いた6.8の解析と同じとし，化学モデルにはケース411及び611を対象とした。(Appendix1, ケース411-distribution, ケース611-distribution)。

本ケースでは，各時間ステップごとに，化学反応計算を実施した後に緩衝材領域中(1m)の全空隙体積と全モンモリロナイト量から平均モンモリロナイトゲル密度を算出し，モデルの各メッシュ中(ここでは0.1m×10メッシュ)において平均モンモリロナイトゲル密度になるようモンモリロナイト量を再分配した。

ここで，モンモリロナイトの重量 (W_{mont})，モンモリロナイトが占める体積 (V_{mont}) 及び空気空隙 (V_v) とすると，モンモリロナイトゲル密度 (ρ_{mont}) は図7.1-1のようになる。

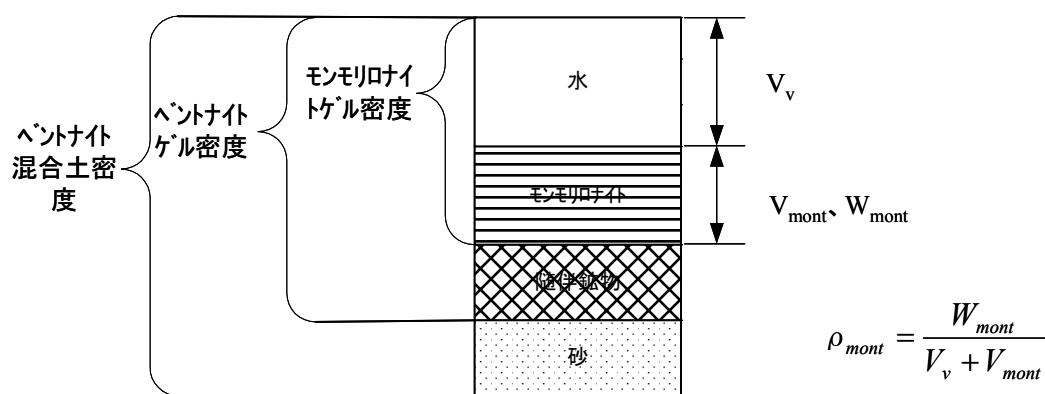


図 7.1-1 モンモリロナイトゲル密度概念図

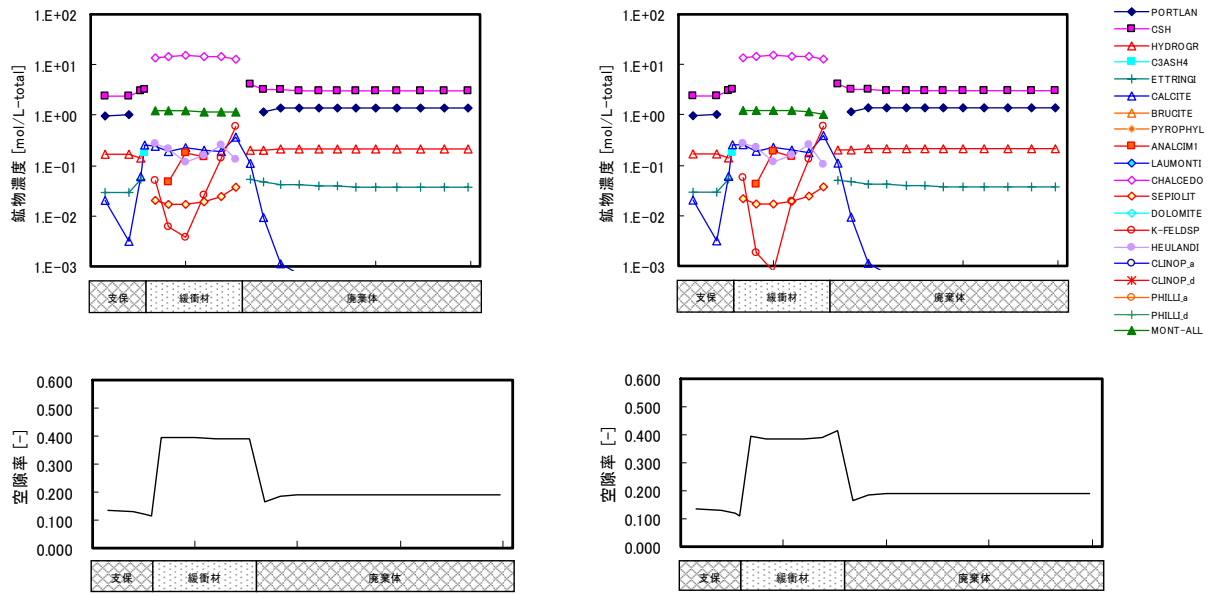
(3) 解析結果

上記の解析モデル及び条件において計算を実施した結果を，図7.1-2，7.1-3に示す。図では，セメントーベントナイト変質による鉱物量及び空隙割合分布，並びに緩衝材領域の各メッシュごとの透水係数及び等価透水係数の経時変化を示した。これらの結果は，比較のためにモンモリロナイトゲル密度を平均化しないケース(以下，「基本ケース」という)を併せて示した。また，5万年経過後における緩衝材のモンモリロナイトゲル密度及び等価透水係数を表7.1-5，7.1-6にまとめた。

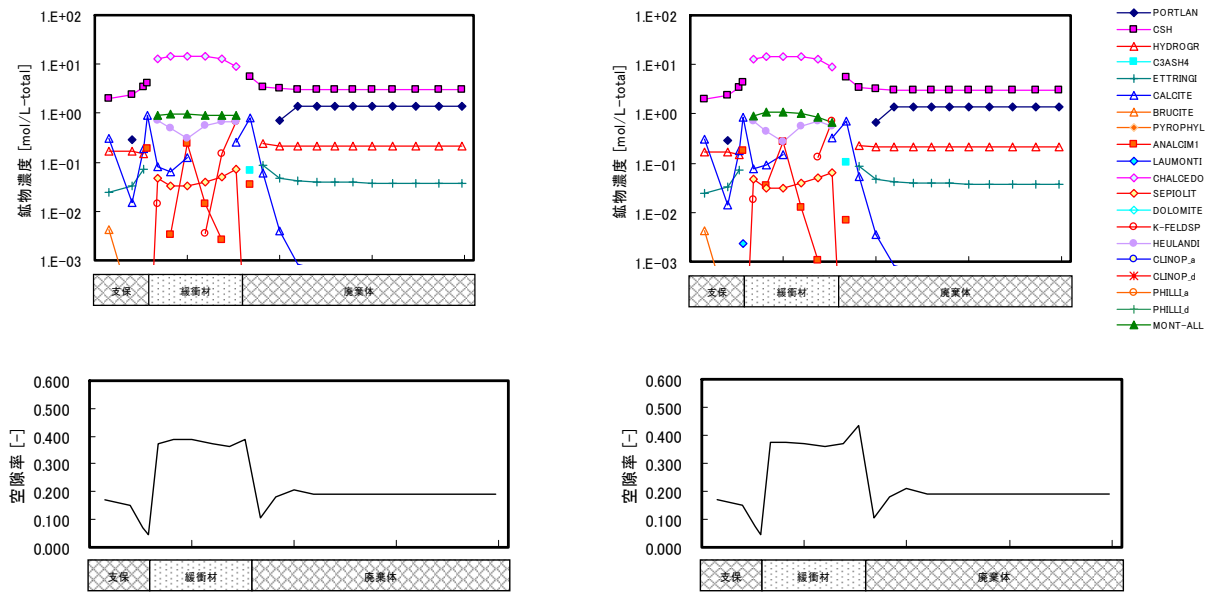
モンモリロナイトゲル密度を均一化しない基本ケース(ケース411, 611)では緩衝材の変質は緩衝材領域の両端からモンモリロナイト，カルセドニの溶解が進み，二次鉱物としてヒューランダイトをはじめとするゼオライトが生成した。モンモリロナイトの溶解はセメント系材料との界面付近において顕著であり廃棄体寄りの局所的に高い空隙割合の部分がみられたが，全体的には二次鉱物の体積増加により空隙割合は初期よりも低下していた。これに対して，モンモリロナイトゲル密度を緩衝材領域全体で均一化するケースでは，全体的にモンモリロナイトが溶解し，かつ境界付近で二次鉱物の生成が卓越するため，全体的な空隙割合は密度を均一化しないケースに比べて高くなっているものの初期の空隙割合よりも低く，また境界付近ではより低い空隙割合となった。

透水係数については、基本ケースではセメント系材料との界面付近においてモンモリロナイトが多量に溶解するが、緩衝材領域中央部分ではほとんどが残存しているため、透水係数も界面付近で増加する傾向があるものの、緩衝材全体では長期間にわたって低透水性が維持されていた。一方、密度を均一化するケースでは、緩衝材領域全体でモンモリロナイトの密度が徐々に低下するために透水係数の空間的な差は小さく、等価透水係数も徐々に増加したが、基本ケースと同様に良好な止水性を維持していた。

1,000 年後



10,000 年後

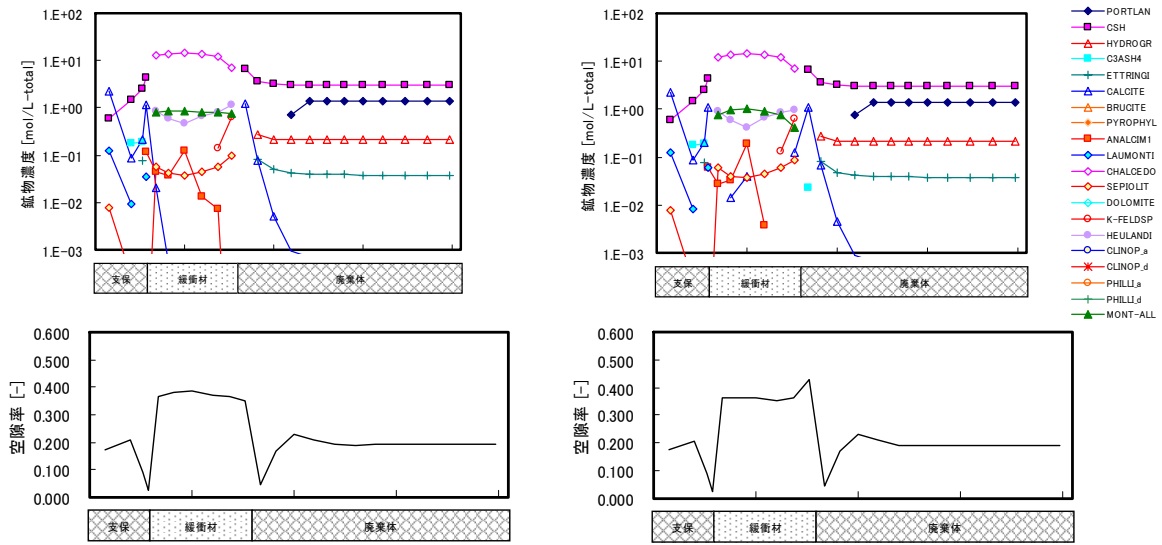


(a) 密度均一化ケース (ケース 611-distribution)

(b) 基本ケース (ケース 611)

図 7.1-2(1) 密度均一化による影響の比較
 (モンモリロナイト総量の初期値: 1.47 mol/l-total)
 (間隙割合の初期値: 0.4(緩衝材), 0.19(廃棄体), 0.13(支保工))

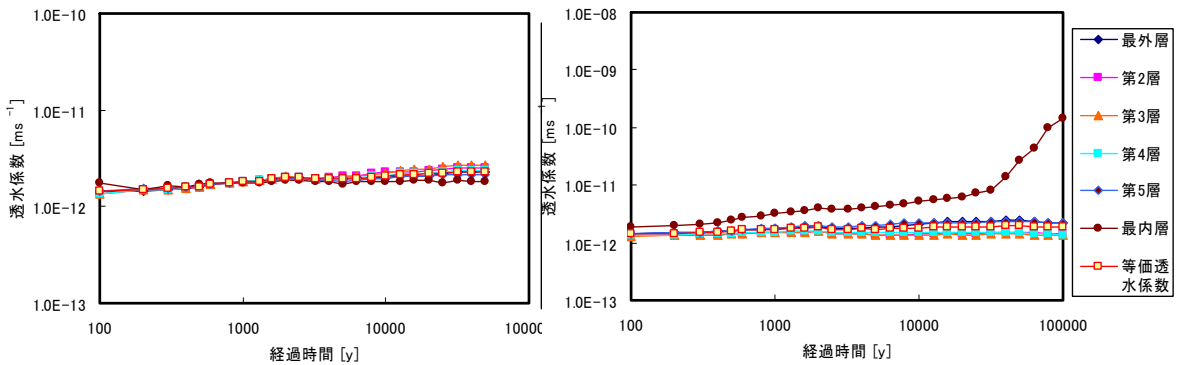
50,000 年後



(a) 密度均一化ケース (ケース 611-distribution)

(b) 基本ケース (ケース 611)

図 7.1-2 (2) 密度均一化による影響の比較



(a) 密度均一化ケース (ケース 611-distribution)

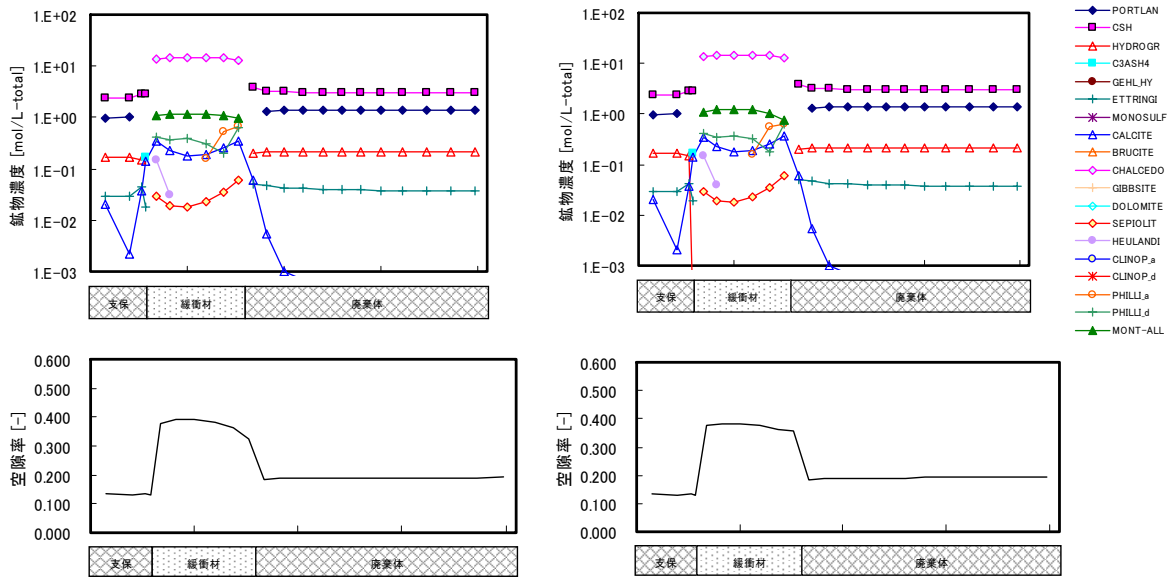
(b) 基本ケース (ケース 611)

図 7.1-2 (3) 緩衝材領域の透水係数の経時変化の比較

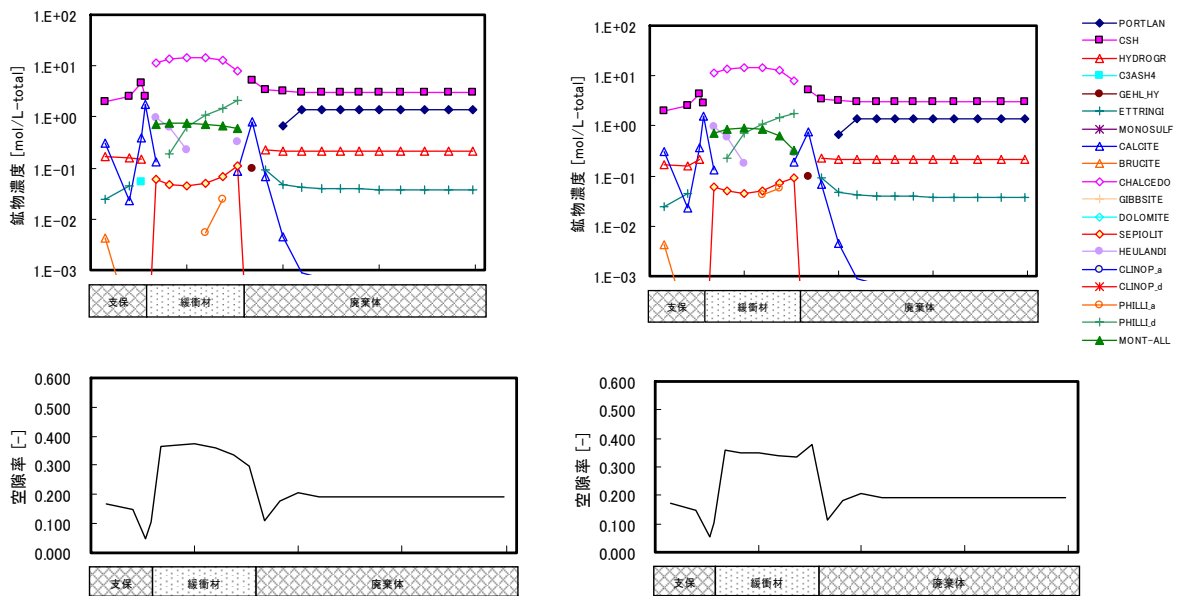
表 7.1-5 5 万年後のモンモリロナイトゲル密度と等価透水係数の比較

		基本ケース	密度均一化ケース (611-distribution)
モンモリロナイトゲル密度 [g/cm ³]	支保側境界	0.603	0.621
	第 2 層	0.731	
	第 3 層	0.748	
	第 4 層	0.715	
	第 5 層	0.593	
	廃棄体側境界	0.318	
	緩衝材平均	0.619	
等価透水係数 [m/s]		2.02E-12	2.27E-12

1,000 年後



10,000 年後

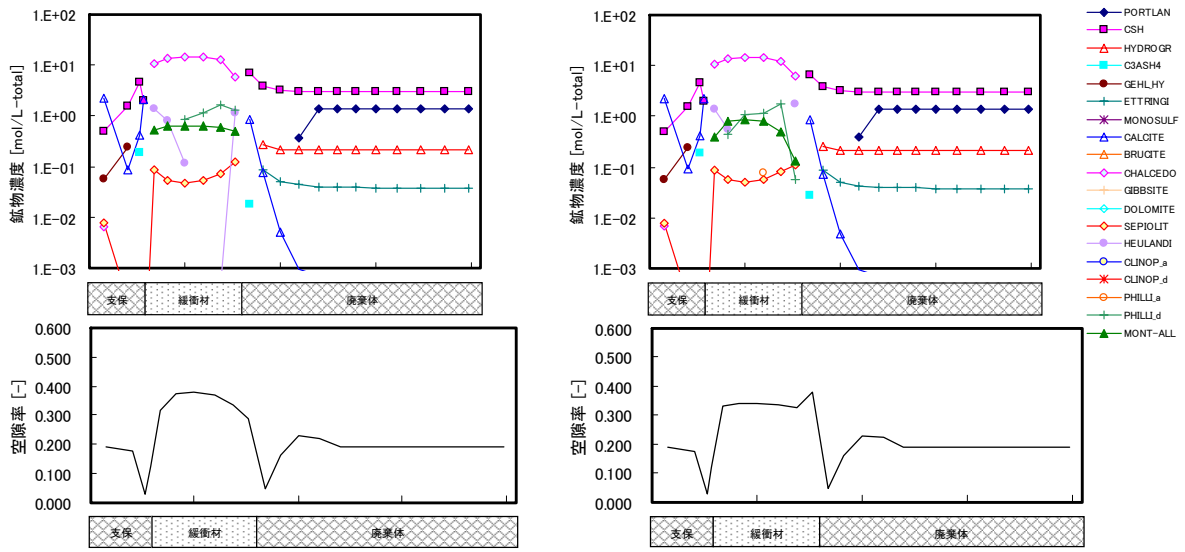


(a) 密度均一化ケース (ケース 411-distribution)

(b) 基本ケース (ケース 411)

図 7.1-3(1) 密度均一化による影響の比較

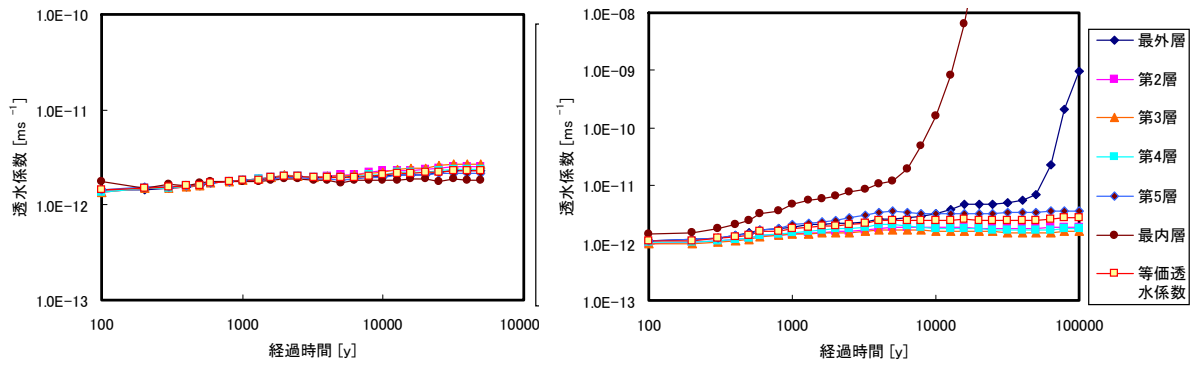
50,000 年後



(a) 密度均一化ケース (ケース 411-distribution)

(b) 基本ケース (ケース 411)

図 7.1-3(2) 密度均一化による影響の比較



(a) 密度均一化ケース (ケース 411-distribution)

(b) 基本ケース (ケース 411)

図 7.1-3(3) 緩衝材領域の透水係数の経時変化の比較

表 7.1-6 5 万年後のモンモリロナイトゲル密度と等価透水係数の比較

		基本ケース	密度均一化ケース (411-distribution)
モンモリロナイトゲル密度 [g/cm ³]	支保側境界	0.379	0.509
	第 2 層	0.644	
	第 3 層	0.690	
	第 4 層	0.661	
	第 5 層	0.474	
	廃棄体側境界	0.122	
	緩衝材平均	0.506	
等価透水係数 [m/s]		2.51E-12	3.26E-12

(4) まとめ

モンモリロナイトゲル密度が緩衝材領域中で均一化することを考慮した計算を実施した結果、基本ケースのようなセメント系材料との界面付近でのモンモリロナイトの局所的な溶解は見られず、緩衝材全体で徐々に溶解が進展する結果となった。また、間隙割合についても、モンモリロナイトゲル密度を均一化するケースでは、セメント系材料との界面付近における二次鉱物の生成に伴って間隙割合が低下しており、基本ケースと異なる傾向となった。

透水係数に関しては、基本ケースと比較すると、変質が進展して緩衝材の変質領域が拡大すると、再分配を考慮したケースの透水係数の方が有意に大きくなり得ることが示されたが、ケース 111～711 の中で最もモンモリロナイトの溶解が進むケース 411 を想定した場合でも、緩衝材全体の等価透水係数は 5 万年までの期間ほとんど差が見られなかった。基本ケースのケース 411 では 1 万年後から 10 万年にかけて変質の進展が緩慢であったことを加味すると、再分配を考慮した場合でも 10 万年後までに顕著な差異が生ずるとは考えにくい。

7.2 モンモリロナイト溶解速度の不確実性検討

高液固比の平衡から十分離れた系におけるモンモリロナイト溶解速度については、第 2 次 TRU レポートの 4.4.2 に記述したように近年の研究により信頼すべきデータが得られているものと考えられる。他方、平衡に接近した場合の溶解速度の減少については、pH8.8 での試験例が見られるのみである。ただし、この結果は、遷移状態理論に基づく溶解速度式を仮定すること、あるいは瞬時に平衡が達せられると仮定することは明らかに溶解速度を過大に評価することを示している。

ここでは、モンモリロナイトの溶解速度を考慮する基本ケースに対して、モンモリロナイトの溶解反応を瞬時平衡と仮定した計算を実施し、人工バリア変質に与える影響について検討を行った。

(1) 解析コード

本検討は、PHREEQC-TRANS を用いて解析を実施した。

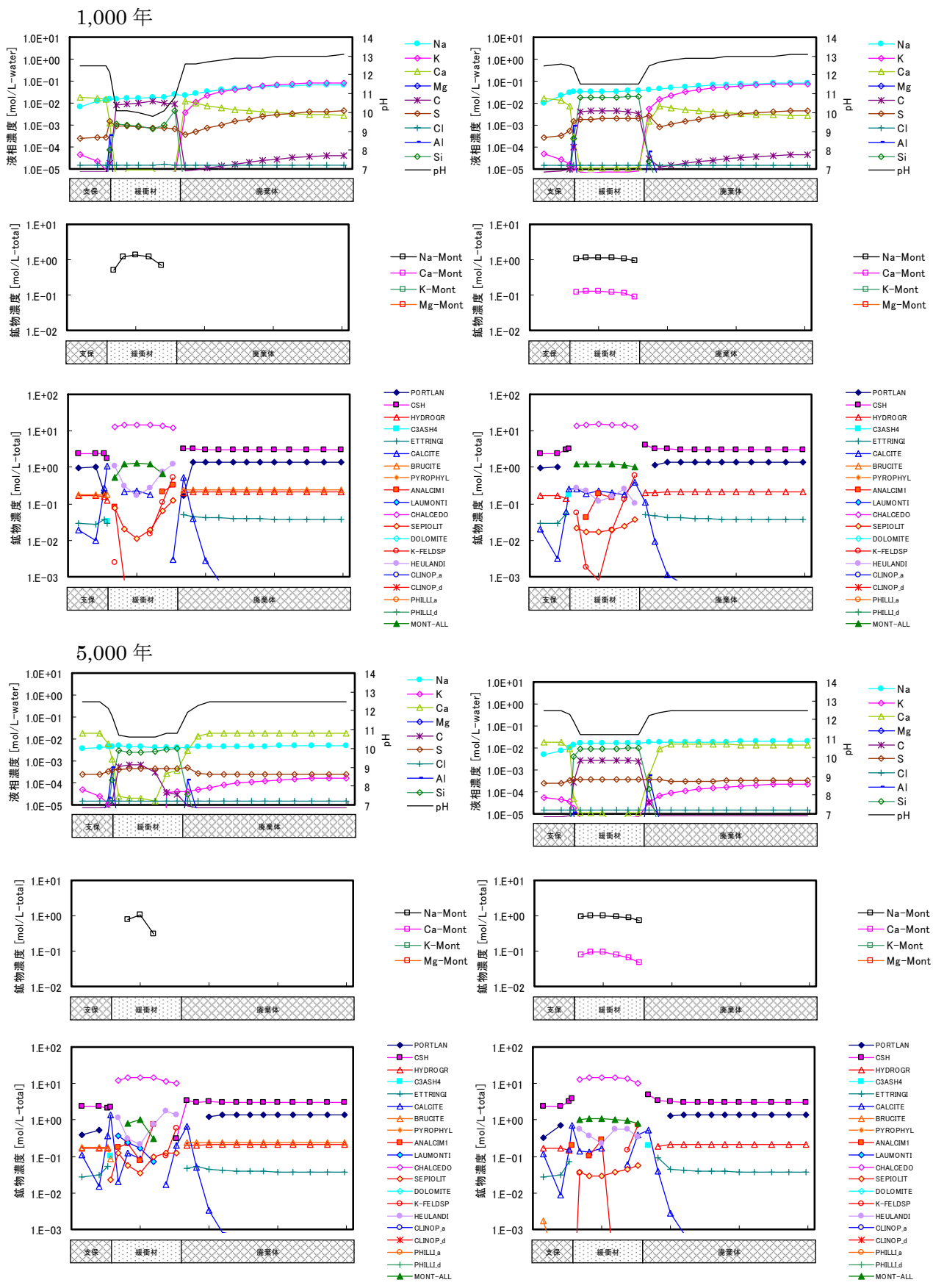
(2) 解析モデル

本検討における解析体系，解析条件は以下の点を除き PHREEQC-TRANS を用いた 6.8 の解析と同じとし，モンモリロナイトの溶解速度には速度無限大を与えることと等価な仮定として瞬時溶解平衡が成立することとした(Appendix 1, ケース 612)。モンモリロナイトの反応で化学平衡を仮定すると早期にモンモリロナイトが溶解することも想定されるが，緩衝材の性能低下時期までを評価として軸対象のモデルで検討を行った。

(3) 解析結果

上記の解析モデル及び条件において計算を実施した結果を，図 7.2-1 に示す。図では，セメント-ベントナイト変質による鈹物量及び間隙割合分布，並びに緩衝材領域の各メッシュごとの透水係数及び等価透水係数の経時変化を示した。これらの結果は，比較のためにモンモリロナイト溶解速度を佐藤-Cama 式としたケース(以下，「基本ケース」という)を併せて示した。

解析の結果，基本ケースでは1万年経過後におけるモンモリロナイトの溶解は廃棄体側境界付近だけであり，緩衝材の低透水性は維持されていたが，瞬時平衡を仮定するケースではセメントからの高 pH の溶液の影響を受けて両端からモンモリロナイトの溶解が進展し，5,000 年までに緩衝材領域の中央付近のみを残して完全に溶解する結果となった。緩衝材の等価透水係数もモンモリロナイトの溶解に伴って増加し，1 万年までに低透水性を失う結果となった。

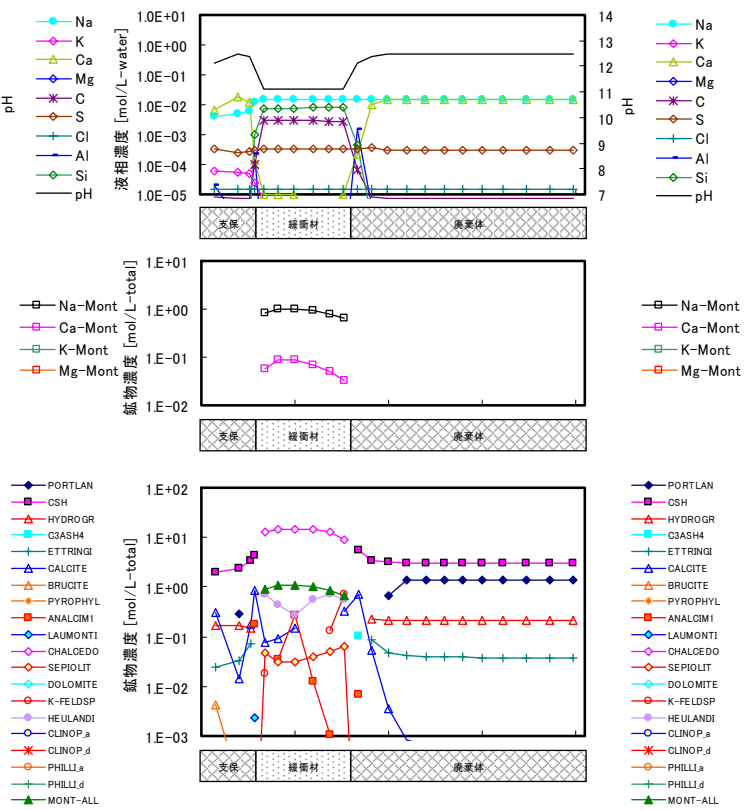
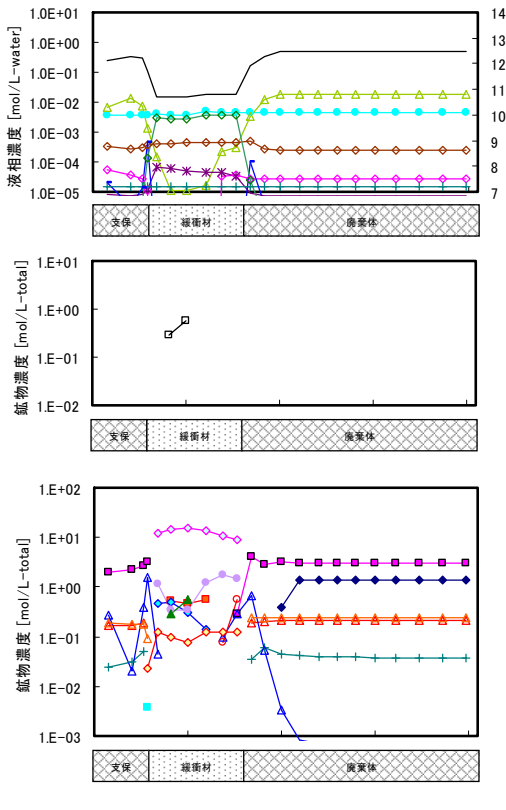


(a) 瞬時平衡ケース(ケース 612)

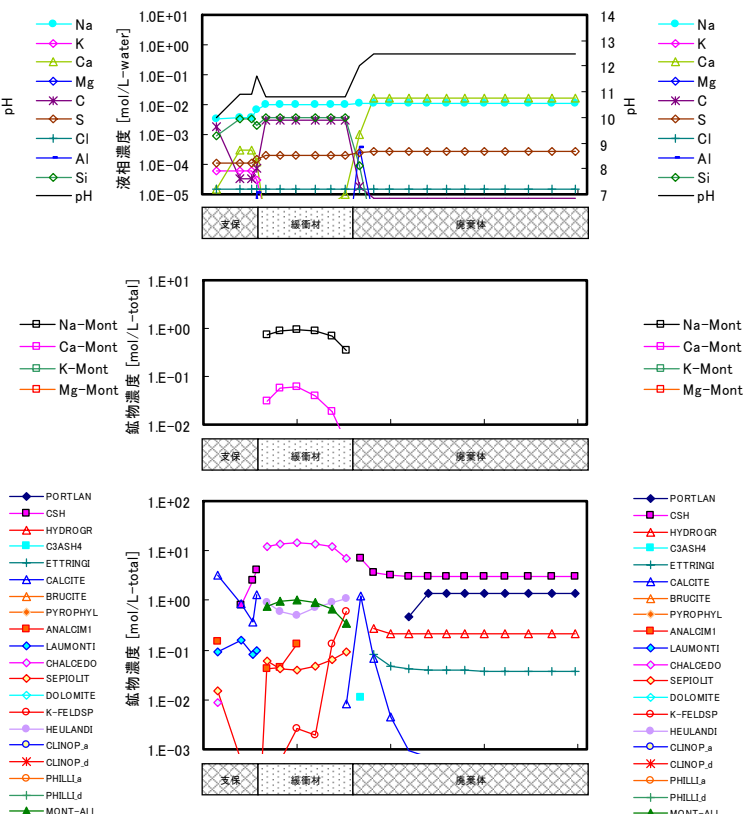
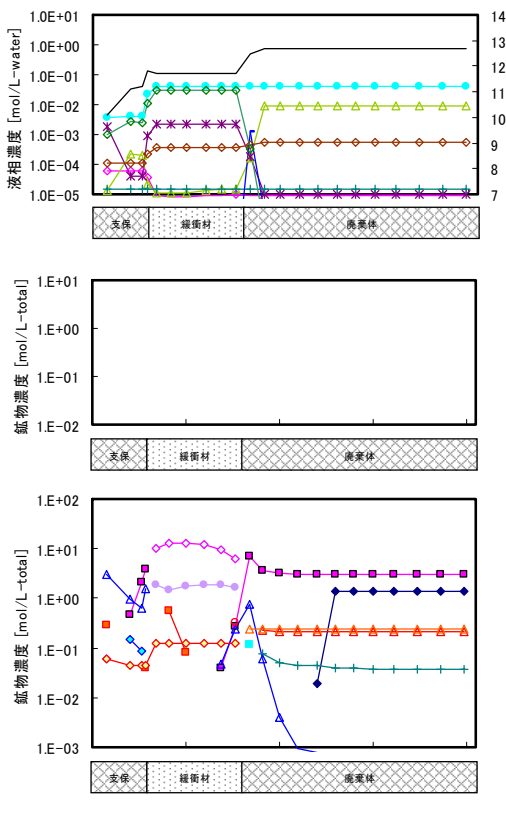
(b) 速度論ケース(ケース 611)

図 7.2-1 (1) 液相, モンモリロナイト, 鉱物濃度分布

10,000 年



100,000 年



(a) 瞬時平衡ケース(ケース 612)

(b) 速度論ケース(ケース 611)

図 7.2-1(2) 液相, モンモリロナイト, 鉱物濃度分布の比較

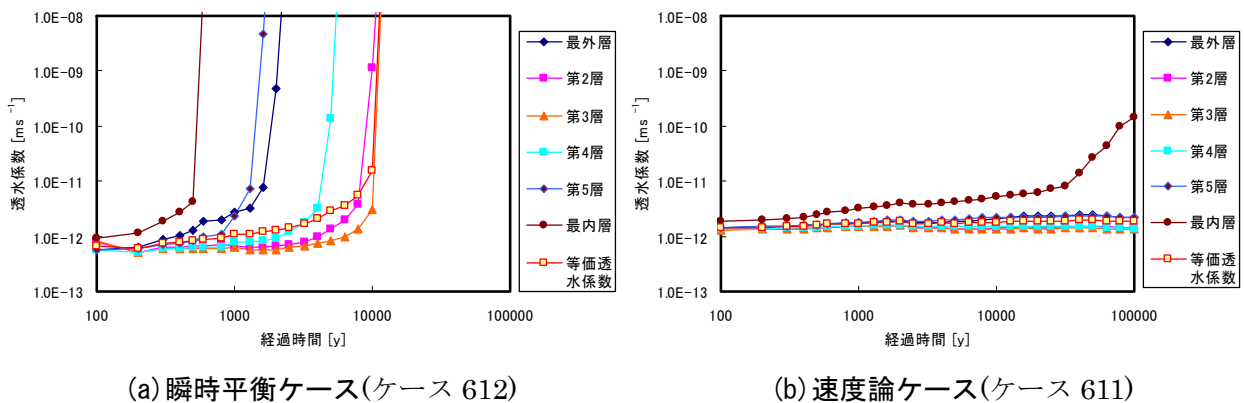


図 7.2-1 (3) 透水係数の経時変化の比較

(4) まとめ

モンモリロナイトの化学反応について溶解速度を佐藤-Cama の式としたケースでは 10 万年経過後においても緩衝材の変質は廃棄体側境界付近に限定される結果となったが、モンモリロナイトが瞬時溶解平衡と仮定したケースでは、Ca 濃度が高い際に生成するヒューランダイトが多量に生成に伴いモンモリロナイトの溶解が進展し、緩衝材は 1 万年までに低透水性を失う結果となった。

7.3 鉱物の溶解・沈殿速度の不確実性検討

間隙水中の溶存化学種の濃度は、固相の溶解反応による液相への物質供給と物質移行による流入及び流出並びに沈殿反応による液相からの物質消費のバランスにより決定される。しかしながら、鉱物の溶解・沈殿反応の速度に関する知見は現在不足しており、本解析において実測された反応速度を反映しているのはモンモリロナイトの溶解反応のみである。モンモリロナイト以外の初期鉱物や二次鉱物の溶解・沈殿については瞬時平衡を仮定した。

二次鉱物の溶解・沈殿反応の主な働きは、二次鉱物が沈殿することにより溶存化学種を消費し、その濃度を減じることであるから、二次鉱物の溶解・沈殿反応に瞬時平衡を仮定することは二次鉱物が平衡する条件まで無限大の速度で沈殿することと等価であり、多くの場合、現実的条件より溶存化学種濃度を低く評価することにつながる。速度論的な取り扱いをしているモンモリロナイトの溶解反応は、反応に寄与する溶存化学種のイオン積の関数として表現されることから、このイオン積が小さい(溶存化学種の濃度が小さい)ほど溶解速度は大きく算定されることになる。したがって本解析では現実的な沈殿速度を設定した場合と比較してモンモリロナイトの溶解速度を保守的に評価していると考えられる。

モンモリロナイトの溶解反応は液相へ物質を供給するプロセスであり、経験的な反応速度式を与えていることから液相への物質供給には現実的な値を用いていると考えることができる。また、モンモリロナイト以外の初期鉱物の溶解反応も液相へ物質供給という点で重要である。特に、ベントナイト中に約 38wt% も含まれるカルセドニは、その溶解反応によって放出される Si がモンモリロナイトの溶解反応や二次鉱物の沈殿反応に寄与する溶存 Si 濃度に直接影響する事から重要である。カルセドニの溶解反応に瞬時平衡を仮定することは二つの効果を解析上にもたらすと考

えられる。ひとつは、無限大の供給速度で溶存 Si 濃度を常にカルセドニの溶解度まで高めるため、モンモリロナイトの溶解反応に寄与する溶存化学種のイオン積を大きくし、モンモリロナイトの溶解を抑制する効果、もうひとつは、逆に、無限大の供給速度で二次的な珪酸塩鉱物の過飽和度を常に高めその沈殿を促進し得ることから、二次鉱物の沈殿を介してモンモリロナイトの溶解反応に寄与する溶存化学種のイオン積をむしろ小さくし、モンモリロナイトの溶解を促進するという逆の効果である。本解析では、評価上の時間スケールからするとカルセドニの溶解は速く瞬時平衡が成り立つと仮定していたが、上記のように、この仮定がモンモリロナイトの溶解挙動を保守的に評価する場合と、非保守的に評価する場合があると考えられる。ここでは、カルセドニの溶解反応が速度論的に制限される場合を仮定した解析を行い、両者を比較し、瞬時平衡を仮定した本解析結果が保守的な結果となっていたか、非保守的な結果となっていたかを確認することとした。

(1) 解析コード

本検討では、RAIDEN3 を用いた。

(2) カルセドニの溶解速度

カルセドニの溶解速度 (25°C) $[\text{mol}/\text{m}^2/\text{sec}] = 10^{-14.5} \times a(\text{H}^+)^{-0.52} (1 - \exp(\Delta G_r/RT))$
(Plettinck et al., 1994) とした。各記号は第 2 次 TRU レポート 4.4.2.2(3) に従った。なお、カルセドニの表面積には、反応の抑制という観点から過度に小さい比表面積 $0.02[\text{m}^2/\text{g}]$ (真密度を $2.64[\text{g}/\text{cm}^3]$, 1mm 四方の立体形を仮定した場合の比表面積) を与えた。

(3) そのほかの解析条件

Appendix 1 のケース 411, 421 及び 611, 621, 631 に対してカルセドニの溶解速度を考慮した計算を行った (Appendix 1, ケース-411kin1, 421kin1, 611kin1, 621kin1, 631kin1)。

(4) 解析結果

ケース 411kin1, 421kin1 及び 611kin1, 621kin1, 631kin1 の結果を図 7.3-1~図 7.3-14 に示す。全ケースとも、カルセドニの瞬時平衡を仮定した場合とで、鉱物分布、pH に顕著な差は生じなかった。なお、ケース 611kin1 の 1 万年後の結果を例に、カルセドニの鉱物分布及び間隙水中の溶存 Si 濃度に着目し、カルセドニの溶解速度を考慮した場合と瞬時平衡とした場合との比較を図 7.3-15, 7.3-16, 表 7.3-1, 7.3-2 に示す。このように、両者はほぼ一致していた。

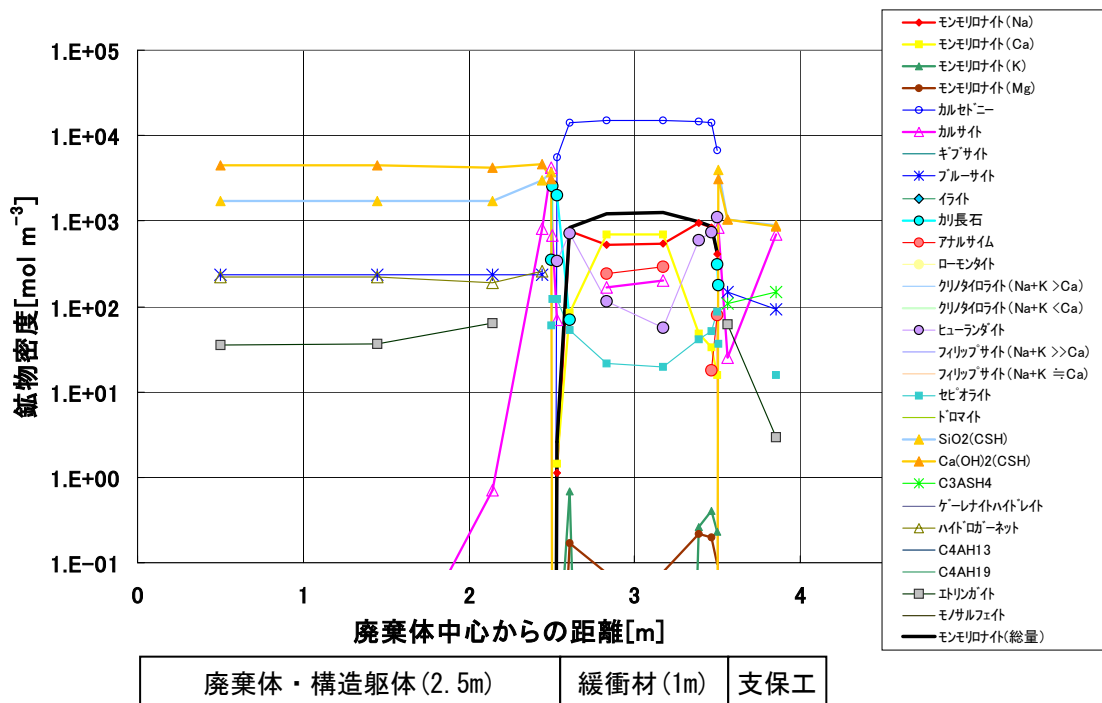
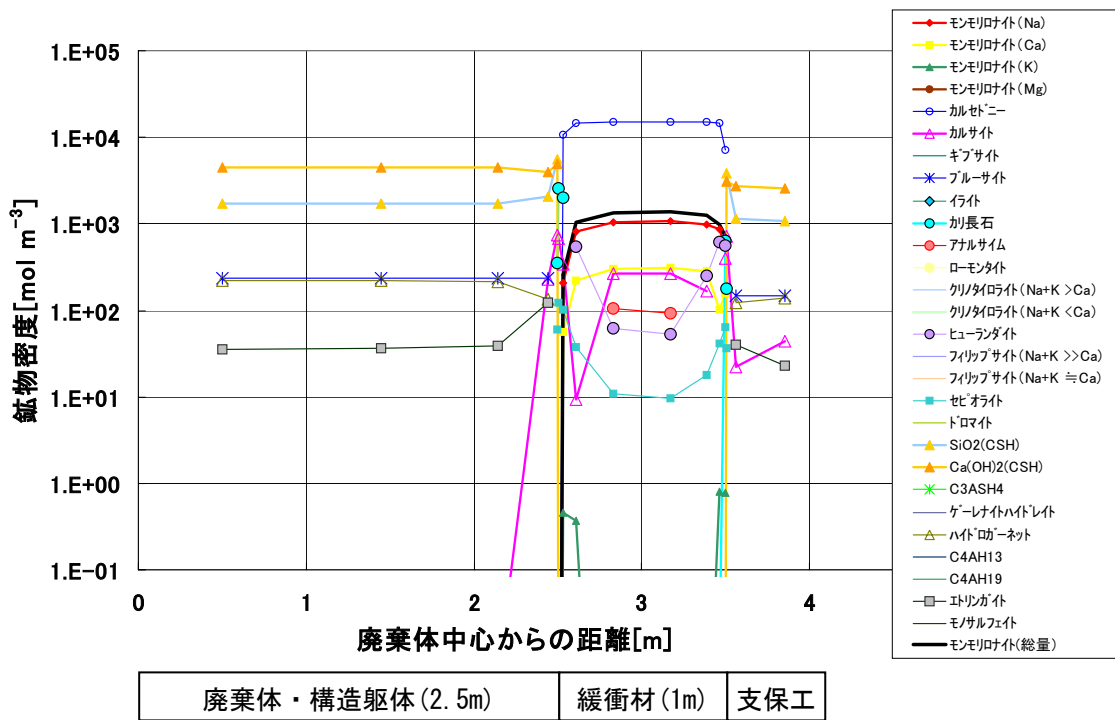


図 7.3-1 カルセドニの溶解速度式を与えた場合の鉱物分布 (ケース 611(711)-kin1)
上 : 1 万年後, 下 : 10 万年後

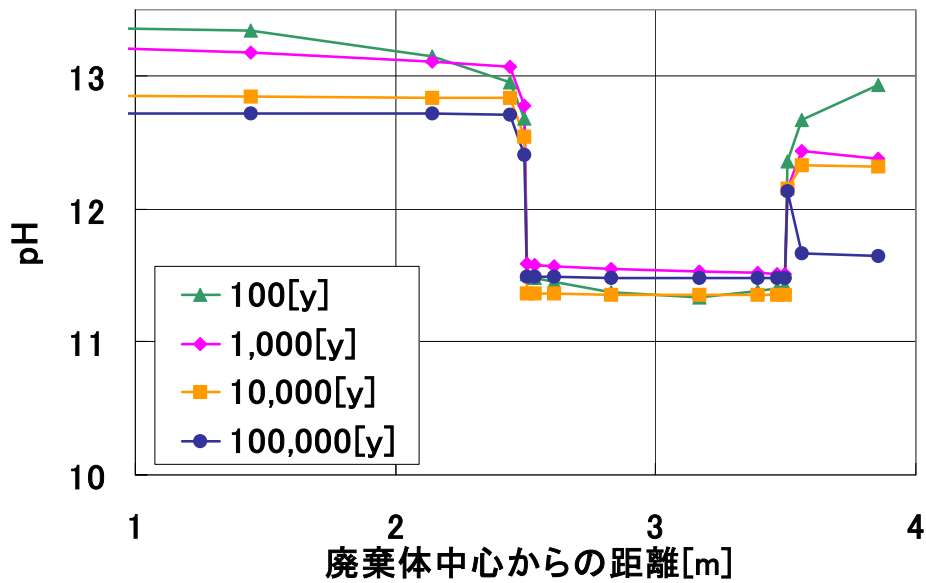


図 7.3-2 カルセドニの溶解速度式を与えた場合の pH 分布の時間変化 (ケース 611 (711)-kin1)

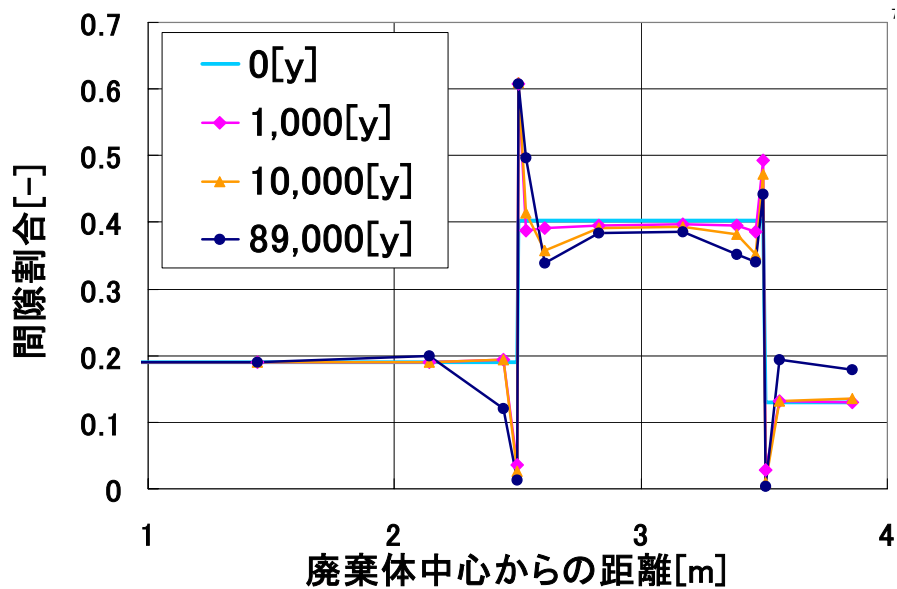
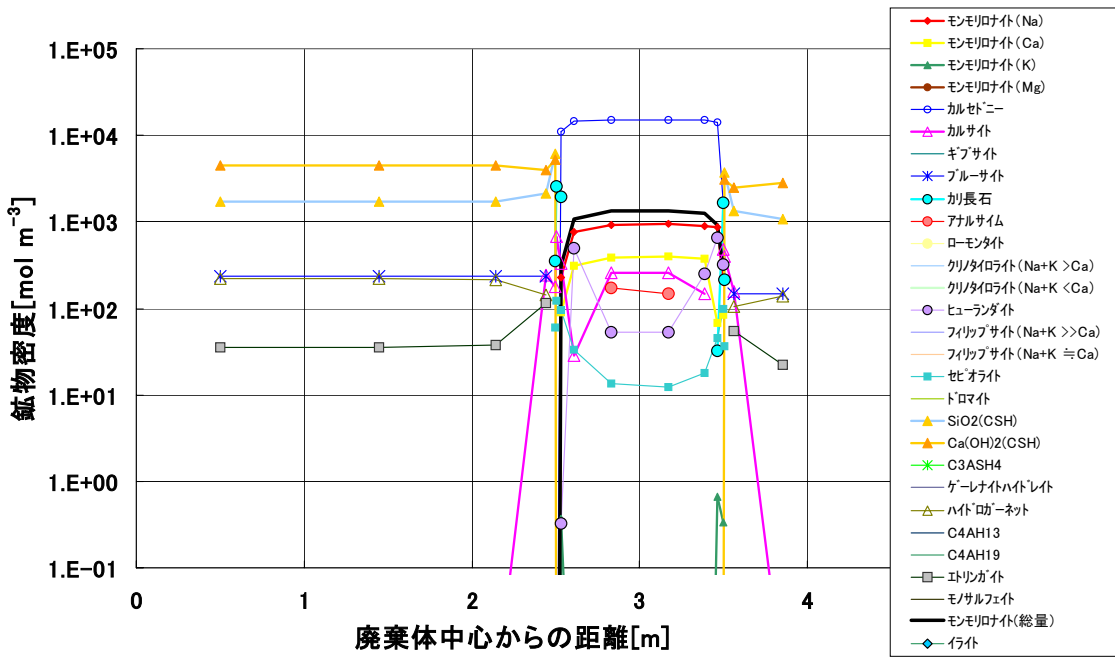
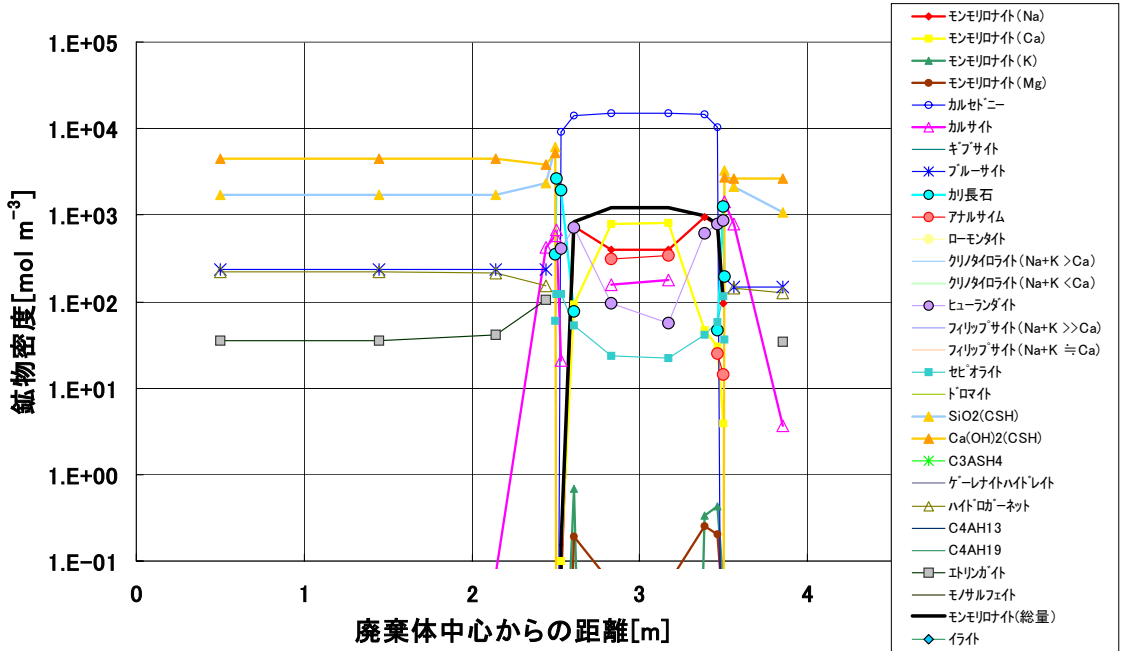


図 7.3-3 カルセドニの溶解速度式を与えた場合の間隙割合の時間変化 (ケース 611 (711)-kin1)



廃棄体・構造躯体 (2.5m) 緩衝材 (1m) 支保工



廃棄体・構造躯体 (2.5m) 緩衝材 (1m) 支保工

図 7.3-4 カルセドニの溶解速度式を与えた場合の鉱物分布 (ケース 621(721)-kin1)
上 : 1 万年後, 下 : 10 万年後

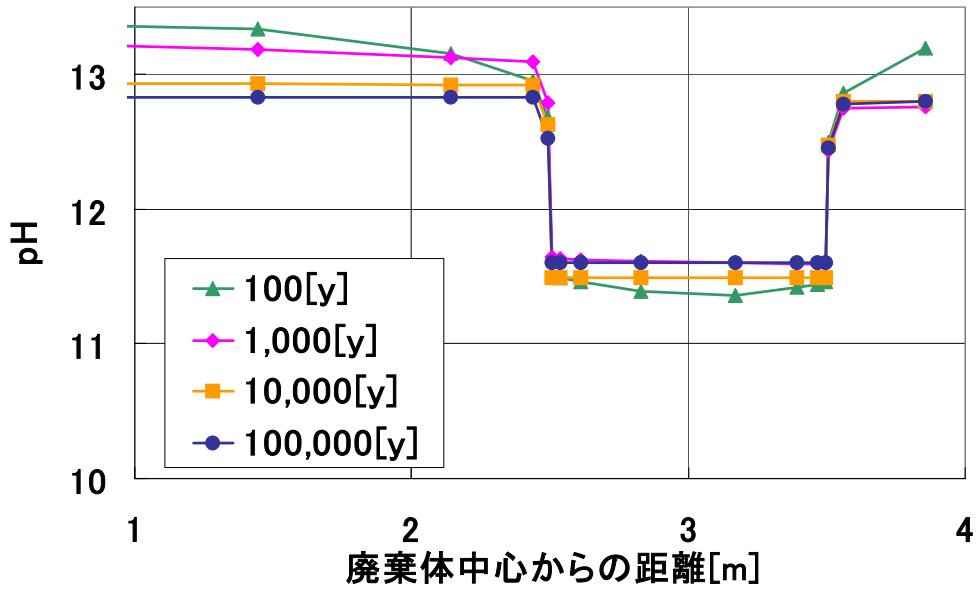


図 7.3-5 カルセドニの溶解速度式を与えた場合の pH 分布の時間変化 (ケース 621 (721)-kin1)

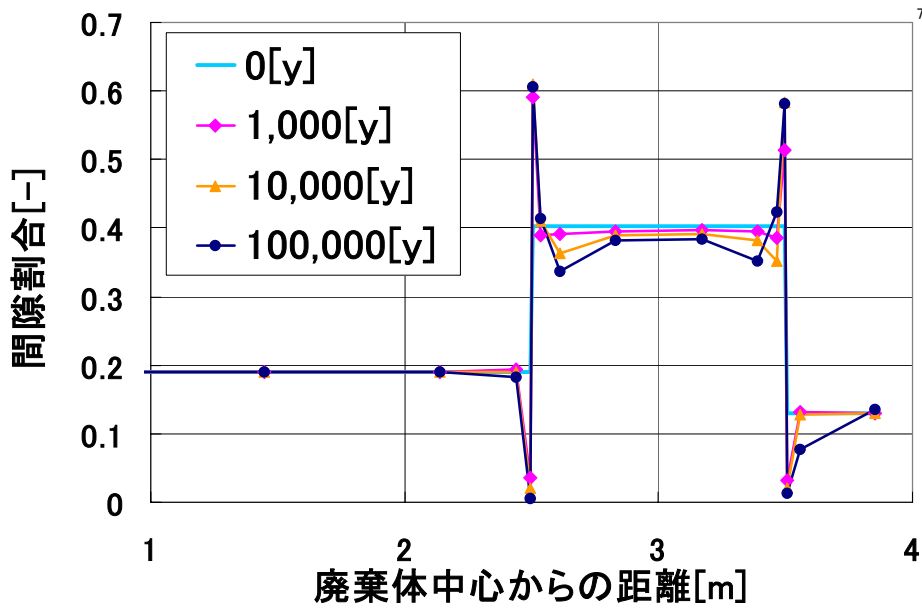


図 7.3-6 カルセドニの溶解速度式を与えた場合の間隙割合の時間変化 (ケース 621 (721)-kin1)

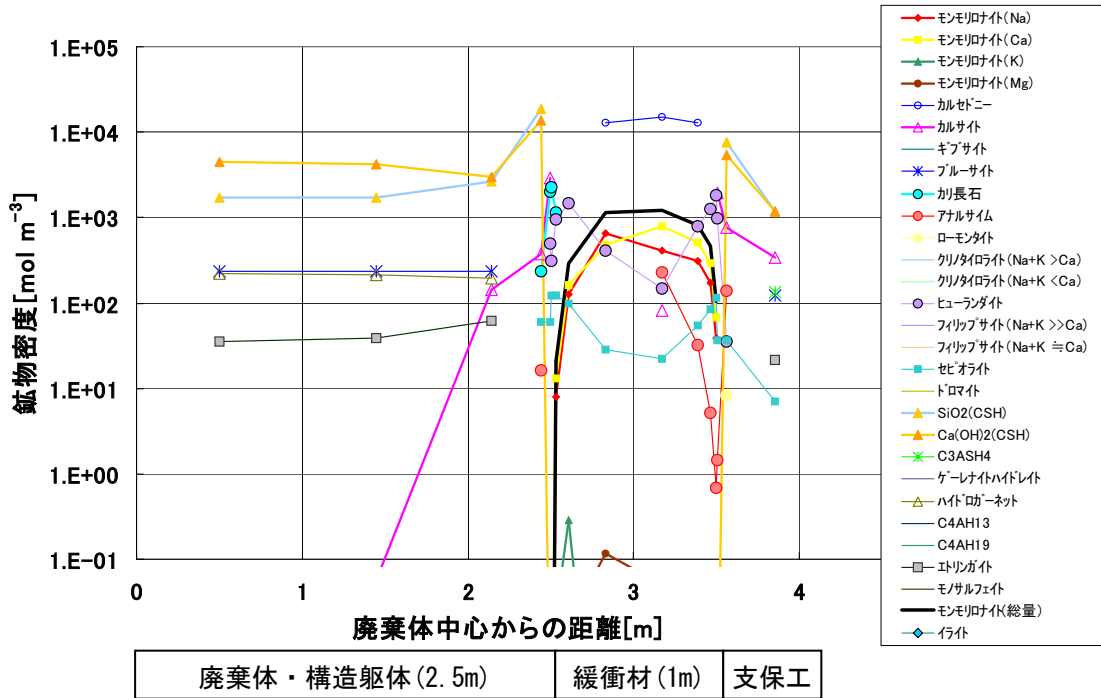
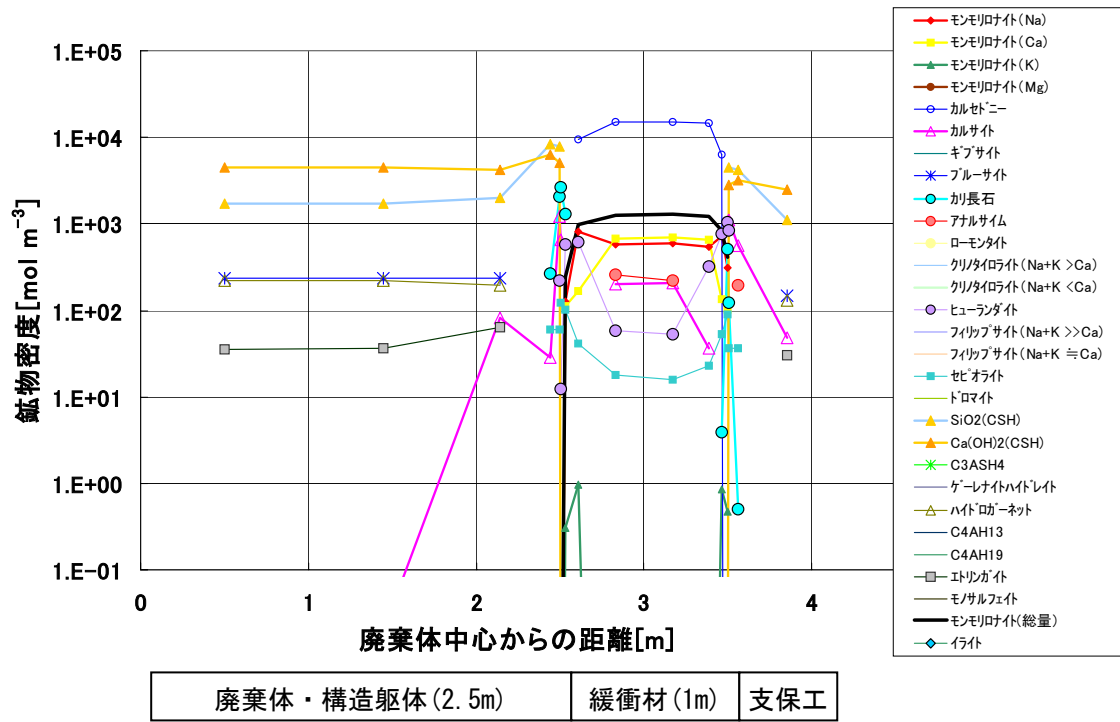


図 7.3-7 カルセドニの溶解速度式を与えた場合の鉱物分布 (ケース 631 (731)-kin1)
上 : 1 万年後, 下 : 7.5 万年後

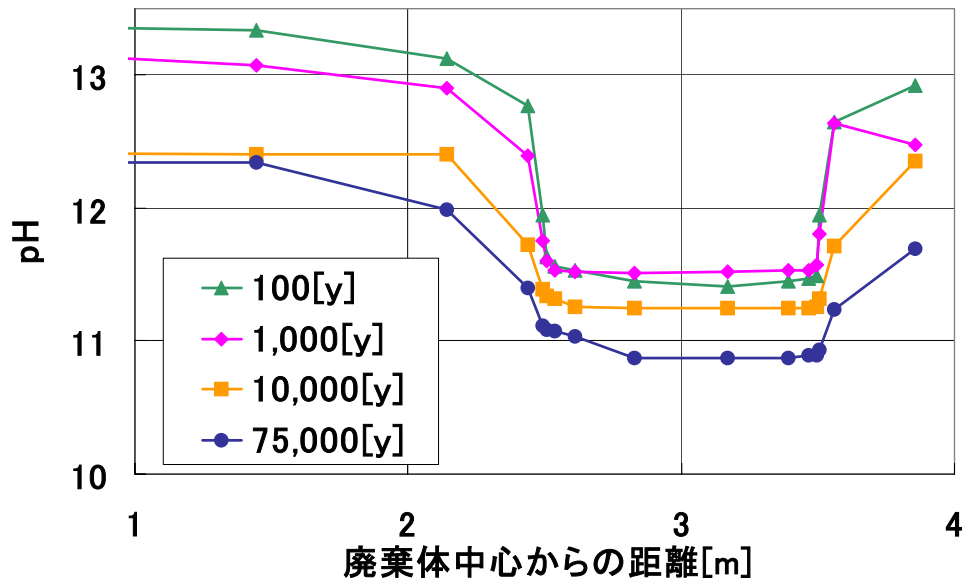
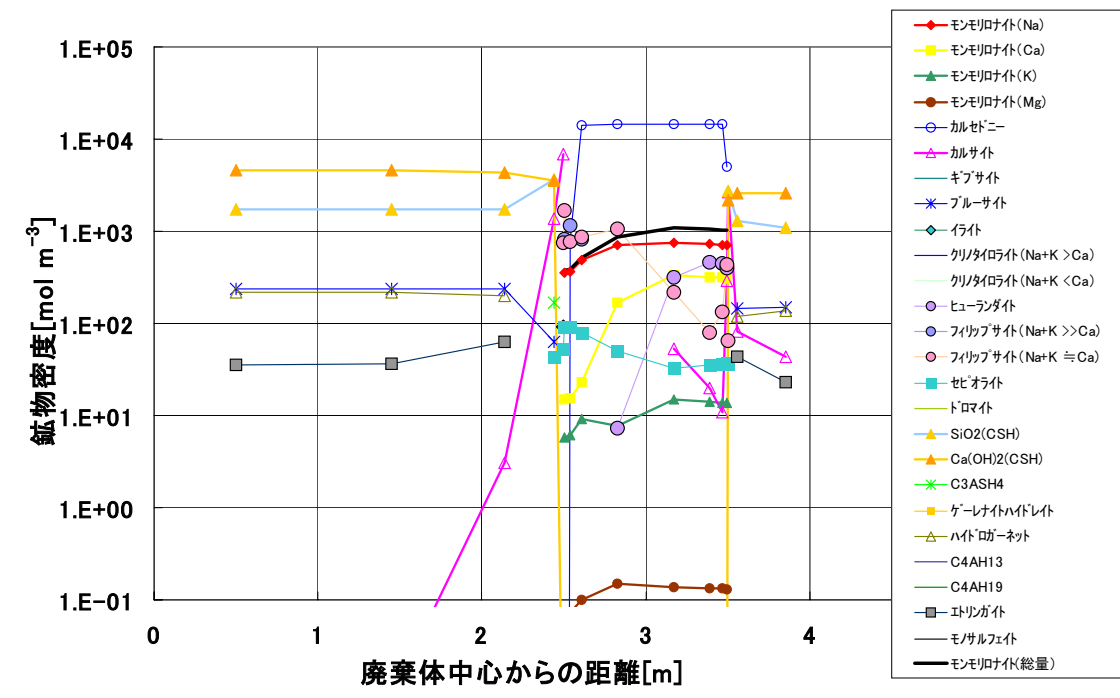
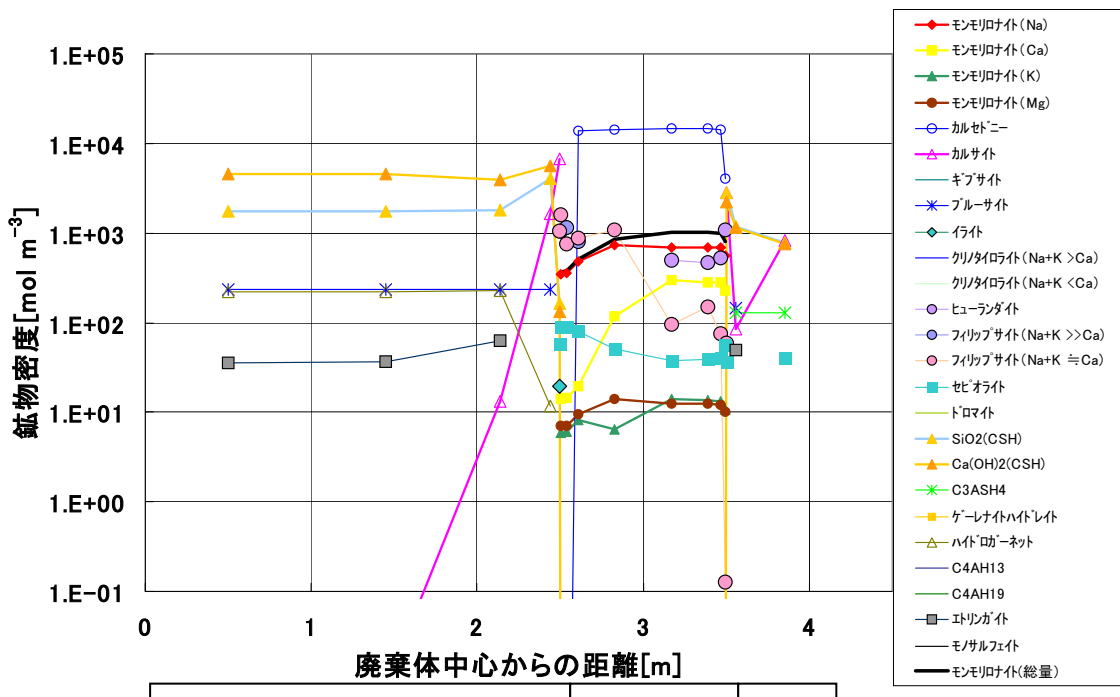


図 7.3-8 カルセドニの溶解速度式を与えた場合の pH 分布の時間変化 (ケース 631 (731)-kin1)



廃棄体・構造躯体 (2.5m) | 緩衝材 (1m) | 支保工



廃棄体・構造躯体 (2.5m) | 緩衝材 (1m) | 支保工

図 7.3-9 カルセドニの溶解速度式を与えた場合の鉱物分布 (ケース 411-kin1)
上 : 1 万年後, 下 : 10 万年後

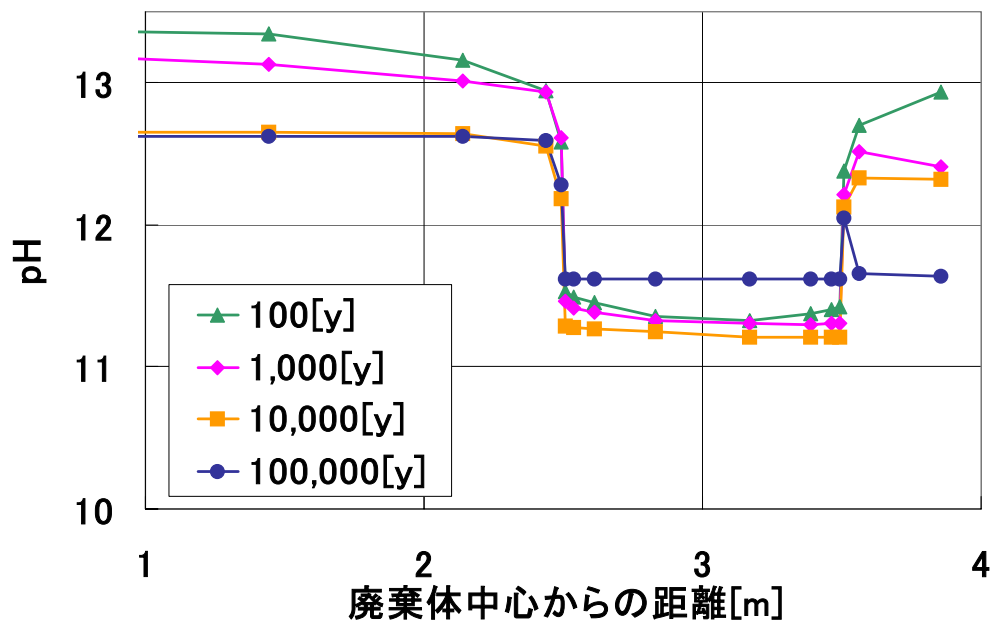


図 7.3-10 カルセドニの溶解速度式を与えた場合の pH 分布の時間変化 (ケース 411-kin1)

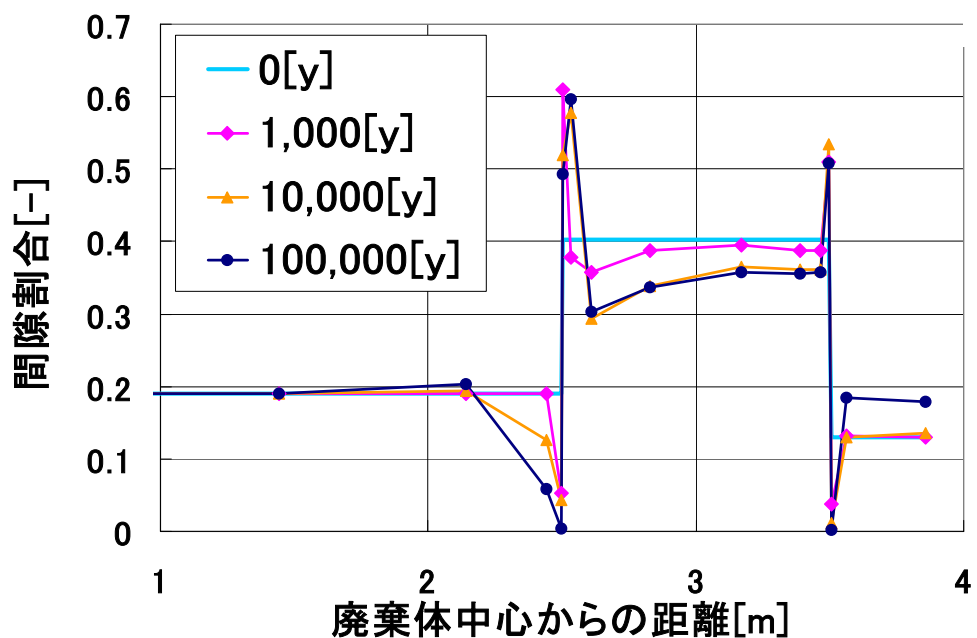


図 7.3-11 カルセドニの溶解速度式を与えた場合の間隙割合の時間変化 (ケース 411-kin1)

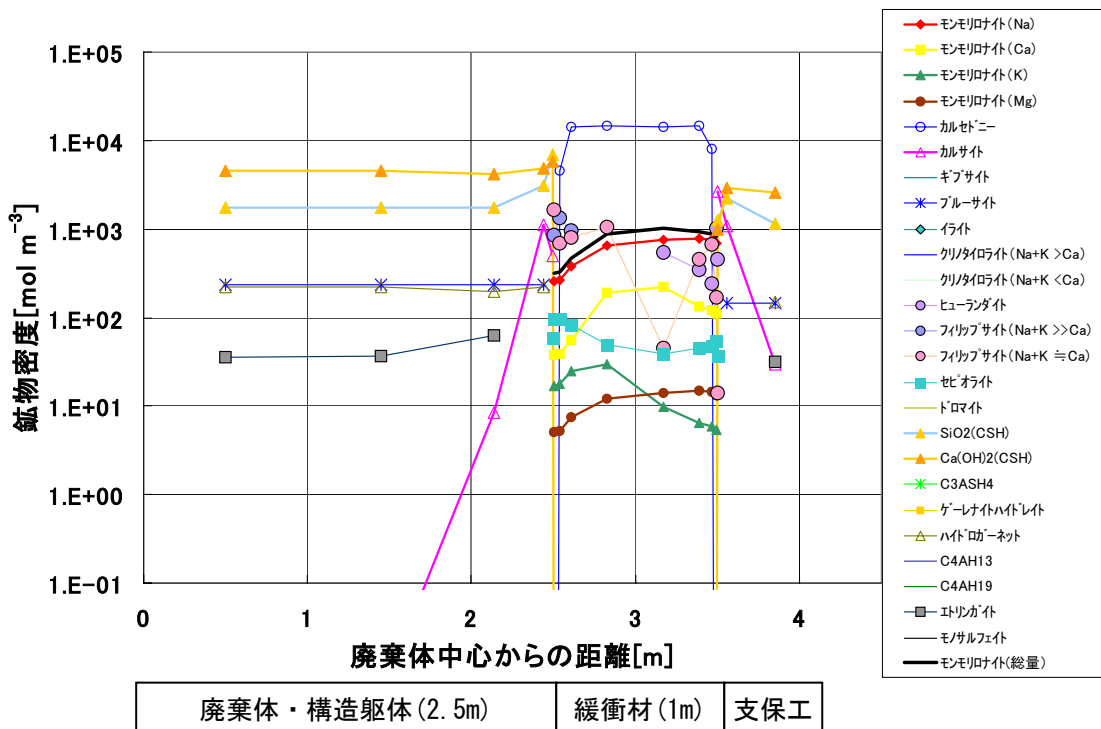
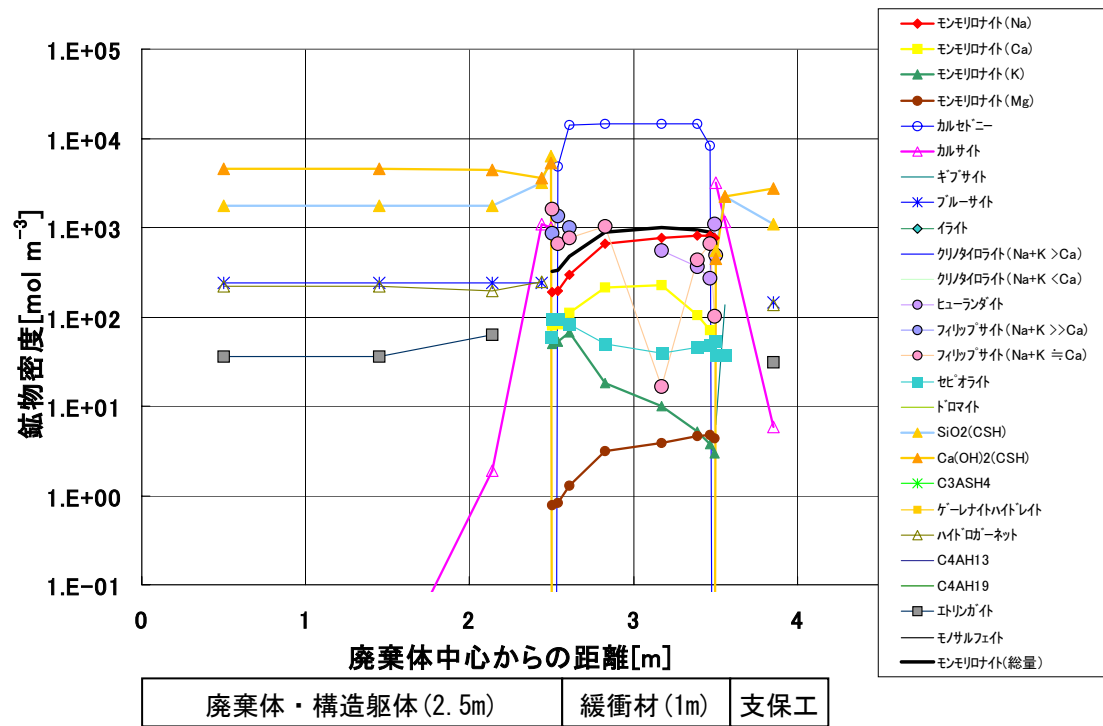


図 7.3-12 カルセドニの溶解速度式を与えた場合の鉱物分布 (ケース 421-kin1)
上 : 1 万年後, 下 : 10 万年後

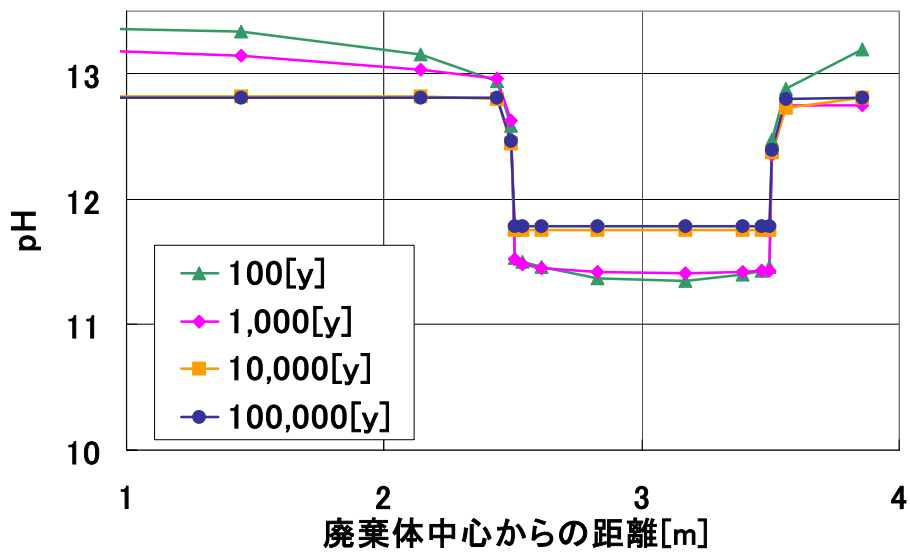


図 7.3-13 カルセドニの溶解速度式を与えた場合の pH 分布の時間変化 (ケース 421-kin1)

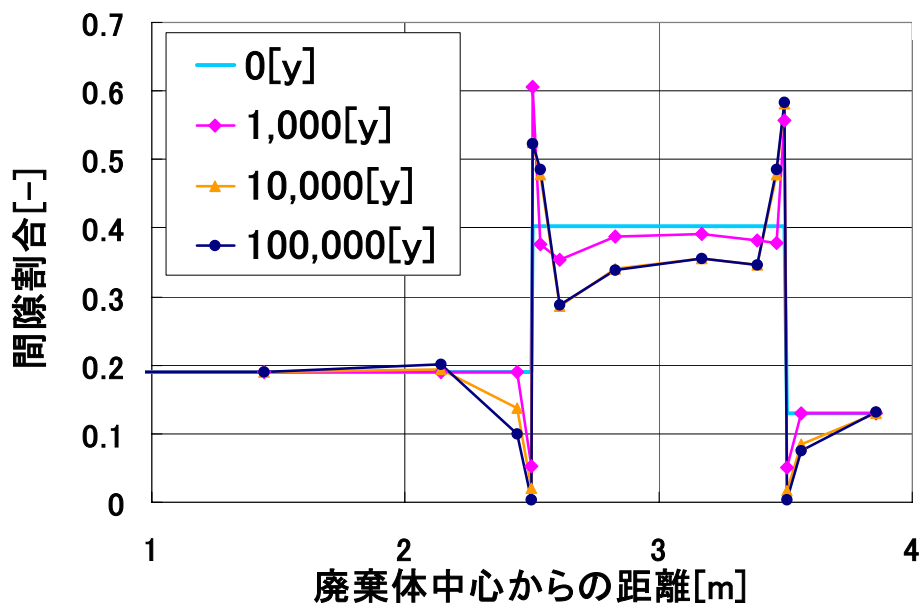


図 7.3-14 カルセドニの溶解速度式を与えた場合の間隙割合の時間変化 (ケース 421-kin1)

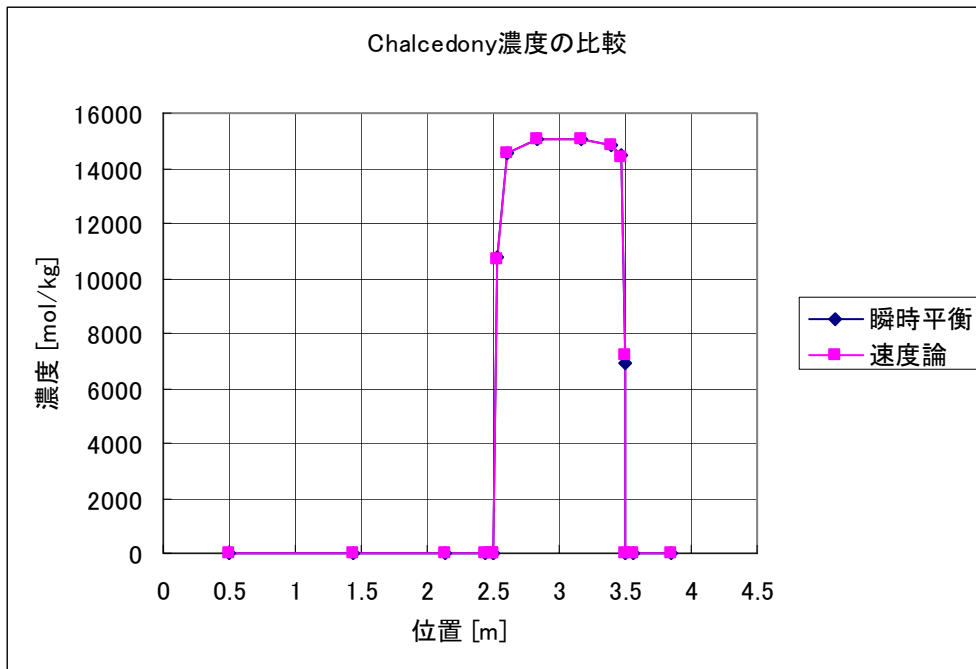


図 7.3-15 1 万年後におけるカルセドニの濃度分布の比較

表 7.3-1 1 万年後におけるカルセドニの濃度分布の比較 (単位 : mol/kg)

位置[m]	瞬時平衡	速度論
0.5	0	0
1.445	0	0
2.14	0	0
2.44	0	0
2.495	0	0
2.505	0	6.13E-07
2.535	10731.71	10665.45
2.61	14522.5	14510.15
2.83	15083.6	15087.34
3.17	15084.5	15086.21
3.39	14832.15	14831.95
3.465	14458.96	14384.38
3.495	6920.536	7229.744
3.505	0	0
3.56	0	0
3.855	0	0

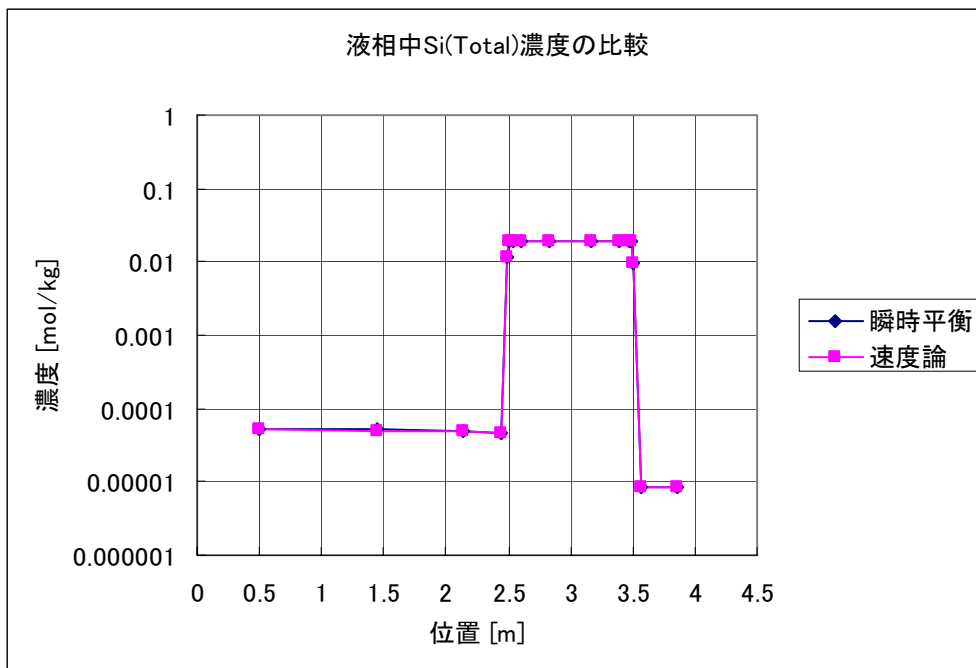


図 7.3-16 1 万年後における液相中 Si (Total) 濃度分布の比較

表 7.3-2 1 万年後における液相中 Si (Total) 濃度分布の比較 (単位 : mol/kg)

位置[m]	瞬時平衡	速度論
0.5	5.32E-05	5.21E-05
1.445	5.13E-05	5.02E-05
2.14	4.88E-05	4.78E-05
2.44	4.75E-05	4.66E-05
2.495	0.01168	0.011769
2.505	0.019271	0.019452
2.535	0.019276	0.019457
2.61	0.019165	0.019347
2.83	0.018955	0.019141
3.17	0.018737	0.018927
3.39	0.01865	0.018841
3.465	0.018639	0.018831
3.495	0.018638	0.01883
3.505	0.009325	0.009432
3.56	8.54E-06	8.54E-06
3.855	8.48E-06	8.48E-06

(5) まとめ

以上のように、カルセドニの溶解反応に瞬時平衡が成り立つと仮定した（無限大の溶解速度を与える）場合と、カルセドニの溶解反応が速度論的に制限されると仮定し、Plettinck et al. (1994) の速度式に従い、さらに過度に小さい比表面積を与えた場合とで解析結果に顕著な差は生じなかった。したがって、カルセドニの溶解速度にまつわる不確実性は本解析評価上影響しておらず、二次鉱物の沈殿速度を無限大として与えていることより、モンモリロナイトの溶解挙動という点で総じて保守的な評価であると考えられる。

7.4 熱力学データの不確実性検討

第2次 TRU レポート 4.4.2.2 の解析において用いたモンモリロナイトの溶解反応に関する平衡定数（JNC-TDB. TRU）の出展は EQ3/6 のデータベース（Wolery, 1992）であり、モデル計算により導出された数値である。しかし、平衡定数の導出方法には複数の方法がある。ここでは、平衡定数の不確実性による解析結果への影響を検討することとする。Appendix 2 に記したように、EQ3/6 のデータは Tardy and Duplay (1992) のモデル計算手法を踏襲してモンモリロナイトの生成の標準ギブス自由エネルギーを算出し、溶解反応の平衡定数を導出したものである。他方、Viellard (2000) のモデル計算手法を用いて算出した生成ギブス自由エネルギーは、Tardy and Duplay (1992) よりもモンモリロナイトの安定性をより不安定側に見積もる、言い換えれば高い溶解度を見積もるものである。このような手法から導出した平衡定数を用いた場合には、第2次 TRU レポート 4.4.2.2 の解析と比較して、不飽和状態が継続することによって速やかにモンモリロナイトの溶解が進行する可能性がある。ここでは、モンモリロナイトの熱力学データの不確実性が人工バリア変質解析結果に与える影響について検討を行った。

(1) 解析コード

本検討は、PHREEQC-TRANS を用いて解析を実施した。

(2) 解析条件

この検討では、モンモリロナイトの平衡定数を変更する以外は 7-1 における解析モデル及び解析体系と同じ設定とした（Appendix 1, ケース 611-logK, 以下「平衡定数変更ケース」とする）。なお、平衡定数変更ケースでは早期にモンモリロナイトが溶解することも想定されるが、緩衝材の性能低下時期までを評価対象として、解析体系は廃棄体層中央で反射境界とした軸対象のモデルで検討を行った。

(3) 平衡定数

平衡定数を算出する基となるギブスの生成自由エネルギーについて、Viellard (2000) の方法を用いて導いた（Appendix 2 参照）値を設定した。表 7.4-1 に第2次 TRU レポート 4.4.2.2 で用いた JNC-TDB. TRU の値（以下、「基本ケース」とする）と平衡定数変更ケースでのギブスエネルギーと平衡定数の比較を示す。表 7.4-1 に示すとおり、基本ケースと平衡定数変更ケースではギブスの生成自由エネルギーで 0.4% 程度の相違があるが、平衡定数で比較すると 2.5~3 程度の差となった。

表 7.4-1 熱力学データの比較

		$\Delta G_f(\text{cal/mo})$	平衡定数
Na モンモリロナイト	基本ケース	-1271210	2.505*
	平衡定数変更ケース	-1267360.42	5.305
K モンモリロナイト	基本ケース	-1273300	2.070*
	平衡定数変更ケース	-1269403.92	4.997
Ca モンモリロナイト	基本ケース	-1272340	2.563*
	平衡定数変更ケース	-1268441.44	5.352
Mg モンモリロナイト	基本ケース	-1268590	2.469*
	平衡定数変更ケース	-1265329.83	4.777

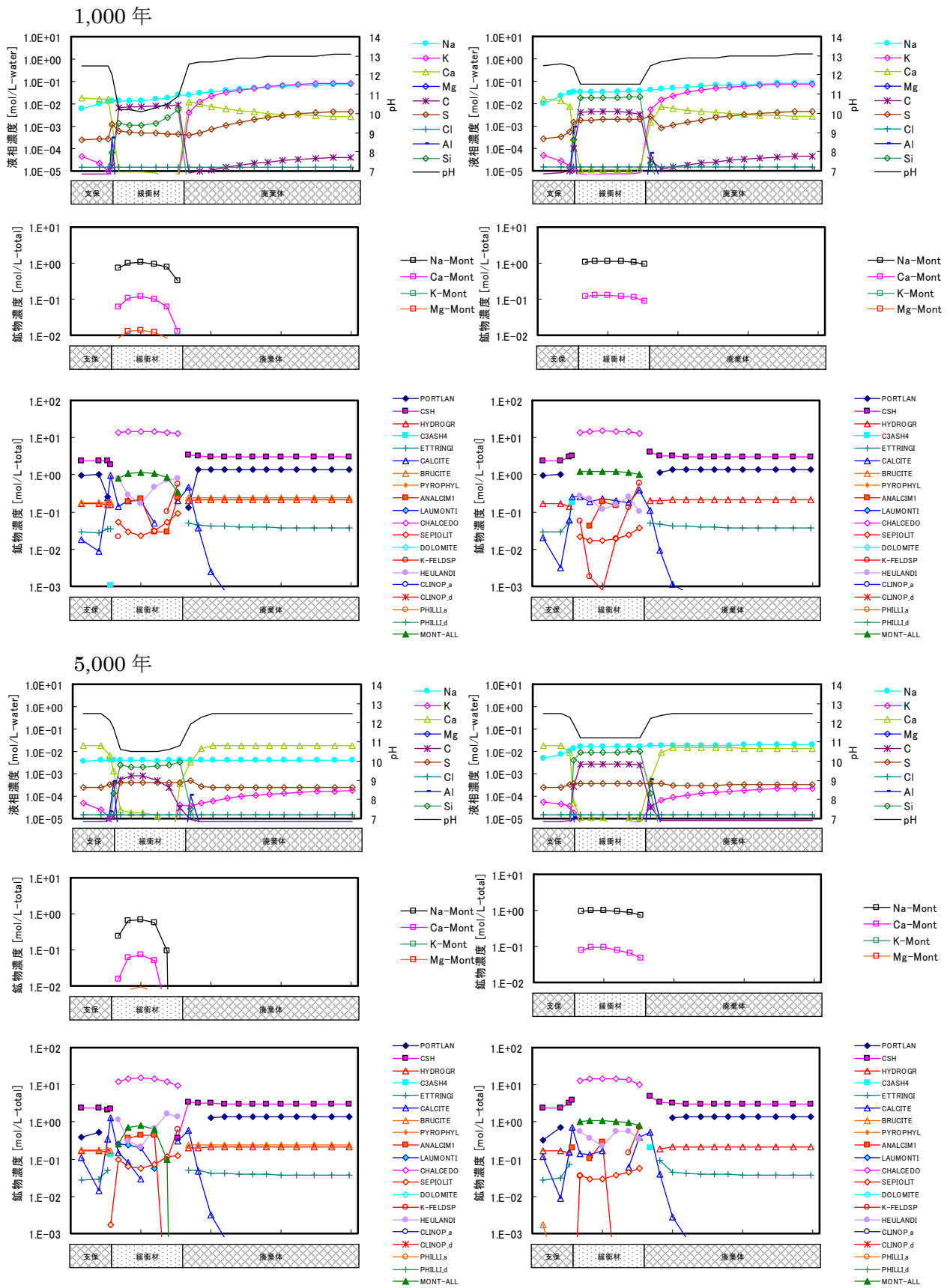
* JNC-TDB.TRU に記載された温度の関数である多項式より算出される値 (25°C)

(4) 解析結果

上記の解析モデル及び条件において計算を実施した結果を、図 7.4-1 に示す。図では、鉍物量及び間隙割合分布、並びに緩衝材領域の各メッシュごとの透水係数及び等価透水係数の経時変化を示した。これらの結果は、比較のために基本ケースを併せて示した。

図に示したとおり、平衡定数変更ケースでは、セメント系材料から移行する Ca の影響により緩衝材領域においてモンモリロナイトが溶解し多量のゼオライトが生成した。モンモリロナイトの熱力学データはギブスの生成自由エネルギー値では 0.4%程度の差であるが、モンモリロナイトの生成自由エネルギーと液相種の生成自由エネルギーとではポテンシャルが大きく異なり、平衡定数で比較すると大きな差が出ている。そのため、平衡定数変更ケースでは Ca 濃度が高くなるとゼオライトの生成によってモンモリロナイトの飽和度が低下し、モンモリロナイトの溶解が促進される結果となった。

モンモリロナイトの溶解に伴って緩衝材の等価透水係数も大きく変化し、1 万年程度で低透水性が失われる結果となった。

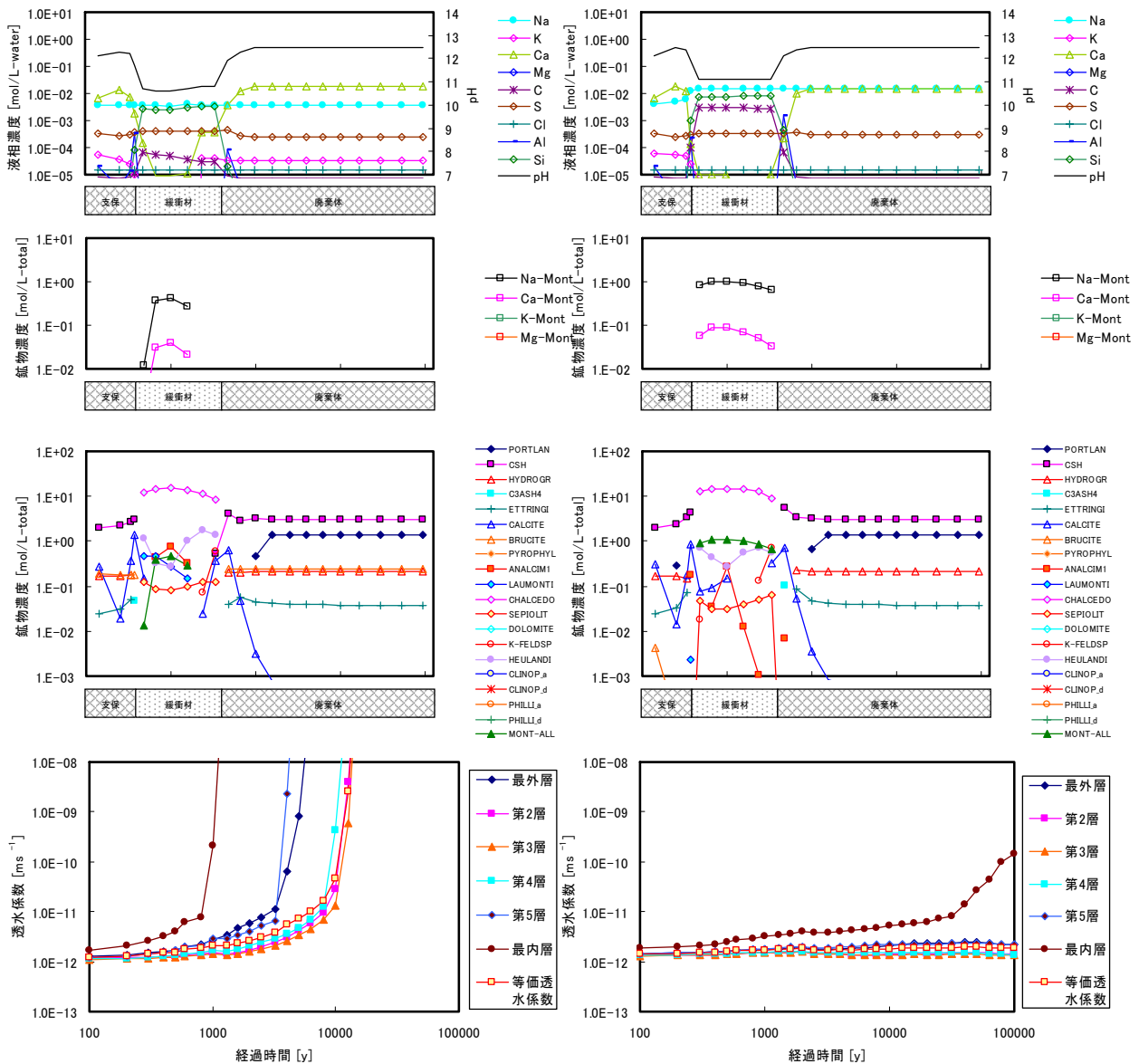


(a) 平衡定数変更ケース (ケース 611-logK)

(b) 基本ケース (ケース 611)

図 7-4-1 (1) 液相, モンモリロナイト, 鉱物濃度分布及び等価透水係数の比較

10,000 年



(a) 平衡定数変更ケース (ケース 611-logK)

(b) 基本ケース (ケース 611)

図 7.4-1 (2) 液相, モンモリロナイト, 鉱物濃度分布及び透水係数経時変化の比較

(5) まとめ

本検討の結果, Viellard(2000)の手法を用いて導出した平衡定数は, 本解析条件ではモンモリロナイトが大きく不飽和となる側への変更であり, モンモリロナイトの溶解への影響が大きく現れた。平衡定数変更ケースでは1万年程度でモンモリロナイトが消失し, 緩衝材は低透水性を失う結果となった。

ただし, このような代替的な平衡定数を用いた解析では, 海水中でのモンモリロナイトの長期的安定性を示すことができず (佐々木ほか, 2005), たとえば, 海水類似環境で 160°C から 100°C まで 200 万年かかって冷却した条件においてもベントナイトが安定に存在しつづけているという知見 (Kamei et al., 1992) と整合的ではない。

7.5 Si 供給量の不確実性検討

殆どの解析結果に見られるように、緩衝材中のカルセドニは大部分が 10 万年後も残されているが、セメント系材料との境界面に近い場所では枯渇している部分がみられた。これらの解析では、ベントナイトの随伴鉱物に加えて、緩衝材の仕様として 30%混合されるケイ砂中のシリカ成分も反応に寄与することを仮定し、ケイ砂分をカルセドニとして考慮している。しかしながらケイ砂中のシリカ成分の反応性には不確実性があり、必ずしもカルセドニと同様の溶解特性を示すとは限らない。7-3 で述べたように、カルセドニの溶解反応による Si の溶液中への供給は、モンモリロナイトの溶解挙動に直接影響を及ぼすと考えられる。7-3 では Si の供給速度の不確実性による影響を検討したが、ここでは、Si の供給源となるカルセドニの含有量の不確実性による影響を検討することとし、ケイ砂分を化学的に不活性とみなし（カルセドニ含有量に含めない）、固相としての体積のみを考慮した解析を行い Si 供給量に関する不確実性の影響を検討した。

(1) 解析コード

本検討は、PHREEQC-TRANS を用いて解析を実施した。

(2) 解析モデル

本検討ではケイ砂を科学的に不活性とみなし、緩衝材に含まれるカルセドニ含有量を変更して解析を実施した（Appendix 1, ケース 611-Si）。表 7.5-1 に初期濃度の比較を示す。これ以外の条件は 6.8 に示したものと同様の解析体系、解析条件とした。

表 7.5-1 ケイ砂の取り扱いの違いによるカルセドニの初期濃度

鉱物	ケイ砂をカルセドニとして想定 [mol/L-water]	カルセドニは随伴鉱物のみ [mol/L-water]
カルセドニ	37.366	17.560

(3) 解析結果

解析結果として 10 万年経過後の液相濃度、モンモリロナイト濃度、鉱物濃度の分布を図 7-5-1 に示す。緩衝材のケイ砂を地球化学反応において考慮するかどうかの違いは解析結果にはほとんど現れなかった。ただし、本ケースでは、廃棄体と接する境界付近でカルセドニが全て溶解しており、10 万年以降のより長期において解析結果に影響を及ぼす可能性はある。

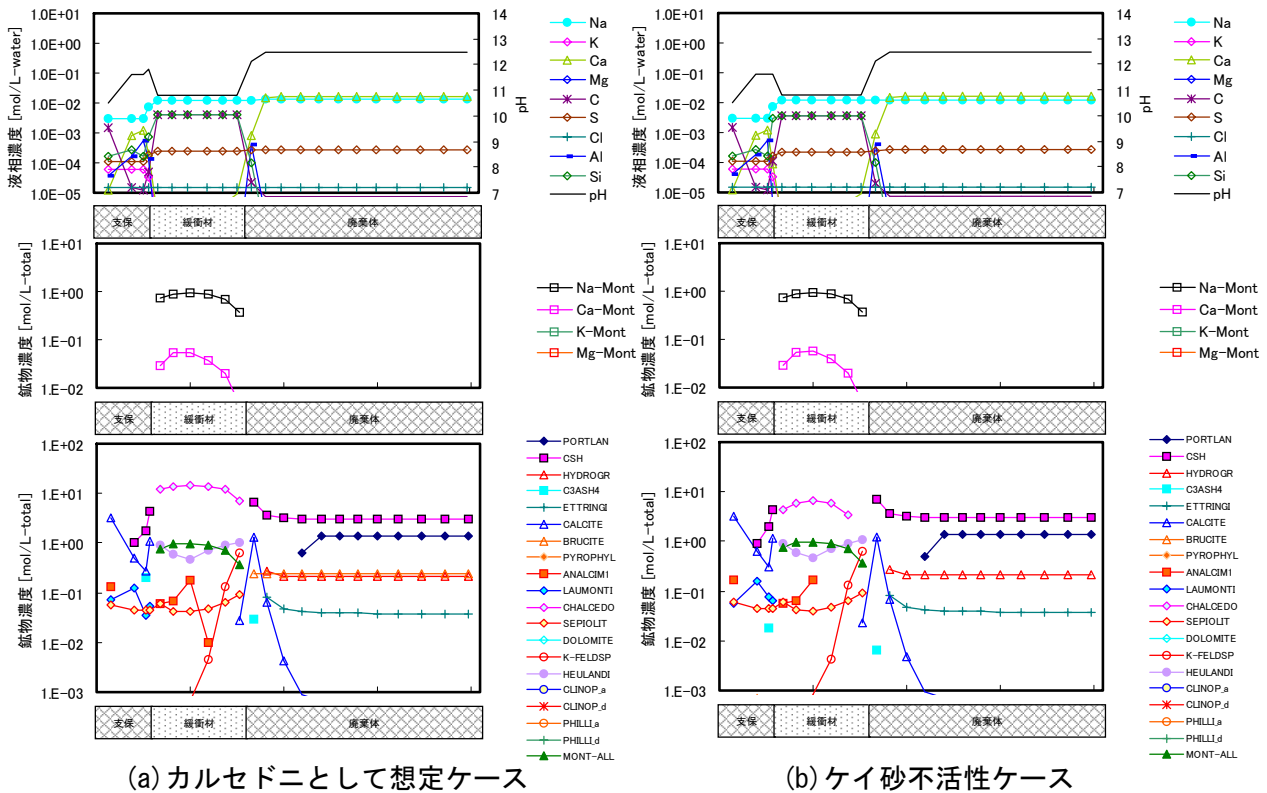


図 7.5-1 10 万年経過後の液相濃度、モンモリロナイト、鉱物濃度分布（ケース 611-Si）

(4) まとめ

解析結果から、緩衝材に含まれるケイ砂を地球化学反応において考慮するかどうかの違いは結果にほとんど現れないことが確認された。

8. まとめ

以上の検討結果に従い、緩衝材を設置する処分施設の長期的な環境を対象とし、現状の知見に基づく蓋然性のある予想とそこに含まれる不確実性の双方を考慮した上で、セメント系材料とベントナイトの相互作用による人工バリア変質の影響についての核種移行解析上の取り扱いを以下のように設定した。

- ①現状の知見に基づく蓋然性のある推定（現実的ケース）；緩衝材の中央部 70 cm 程度の領域において、十分な量のモンモリロナイトが残留するために、少なくとも 10 万年程度の間、緩衝材の止水性は保持される。また、セメント系材料と緩衝材の界面近傍における二次鉱物沈殿による間隙充填のため、廃棄体定置領域から緩衝材及び緩衝材から支保工を介した核種移行はそれぞれ顕著に抑制される。現実的な推定としては、人工バリアの変質は、核種の保持機能に対してむしろ好ましい効果を有するものと考えられる。なお、間隙の充填については、反応の不均質性や外的要因によるひび割れの発生等の影響があり得る点に留意する必要がある。

る。

- ②保守的ケース；二次鉱物による間隙充填を伴う変質層の力学的不安定性やガス及び亀裂を通じた流動のために界面の拡散抵抗は機能しないものと仮定する。これはセメント系材料及び緩衝材中の初期の実効拡散係数が将来も継続するという仮定を導入することにほかならない。この場合にも、十分な量のモンモリロナイトが残留するために、少なくとも10万年間程度は緩衝材の止水性が保持される。
- ③仮想的ケース；可能性は低いが否定できない状況として、モンモリロナイトの溶解平衡定数が現状の標準的なデータよりも顕著に大きく、不飽和状態が継続することによって速やかにモンモリロナイトの溶解が進行する場合、高アルカリ条件でのモンモリロナイトの溶解速度式が遷移状態理論モデルに従うため速やかにモンモリロナイトが溶解する場合あるいは二次鉱物の沈殿により固着されるセメンテーションによってモンモリロナイトは十分に残留しているもののそのバルクの特性が変化し(特に膨潤性の低下)止水性を失う場合が考えられる。これらの仮想的な状況では、数千年後には緩衝材の止水性能が失われるものとする。

9. 今後の課題に対する現状の認識

第2次 TRU レポートでは、現状の評価に含まれる不確実性を低減させ、信頼性を向上させるための今後の課題を具体的に示した。最後に掲げた課題「人工バリア間隙のような固相表面が近接した狭隘間隙における溶液化学に関する知見の拡充と評価への反映」に関しては、国際的にもオープンクエスションとされている課題である。これについて、特に圧縮系でのスメクタイトの溶解速度という観点からの現状の認識を以下にまとめた。

セメント系材料と接する緩衝材はその鉱物溶解・沈殿反応などの影響により広範な化学・水理的条件を呈すると考えられる。したがって、緩衝材領域でのスメクタイトの溶解速度を評価するには、ある程度広範な条件下で取得された溶解速度実測値を用いることや、広範な条件を仮定したモデル解析を適用することが考えられる。

前者に関しては、圧縮ベントナイト試料のアルカリ溶解実験(市毛ほか, 1998; (財)原子力環境整備促進・資金管理センター, 2002; Nakayama et al. 2004)が行われ、pH14でのスメクタイトの溶解速度が取得されている(Nakayama et al. 2004)。現在ではこのような圧縮系での溶解速度実測値は限られており、今後データの充足が必要である。

他方、モデル解析を行うためには、溶解反応を理解する必要がある。固相の溶解反応過程は、界面反応(固液界面での化学反応と吸着過程を含む)と反応に寄与する物質の輸送を含み、いずれの過程に律速されるかは系の状態に依存すると考えられる。緩衝材中での固相の溶解反応を想定するとき、化学的条件、水理条件、物質移行経路など系の状態が長期的に変化することが考えられるため、反応を律速する過程を一概に決定することは難しい。そこで、界面反応に関する速度、物質輸送を組み合わせた解析が有効な手段として考えられる。

圧縮ベントナイト中の物質輸送については、既存の知見により適切に予測することができると考えられる。スメクタイトの溶解を促進する水酸化物イオンについても、圧縮ベントナイト中の拡散係数とその温度依存性が得られている(Nakayama et al., 2004)。拡散については固相とイオ

ンとの静電的相互作用を考慮した理論的な化学モデル(Ochs et al., 2001)が構築されており、実験で得られた圧縮ベントナイト中の水酸化物イオンの拡散係数もこのモデルによって裏付けられている。これに対し、圧縮ベントナイト中でのスメクタイトの界面反応に関する直接的な実験データの取得、理論的あるいは経験的な速度モデルの開発は今後の重要課題である。現段階では、以下の理由により自由水中で取得された界面反応に関する速度式を適用した。

自由水中での珪酸塩鉱物、アルミノ珪酸塩鉱物の溶解について、①リガンド、水素イオンや水酸化物イオンなどの表面サイトへの吸着、②表面サイトの加水分解（固体内の金属と酸素の結合の切断）、金属イオンの放出という複数の反応過程が示唆され、酸性～アルカリ性のひろい範囲で②が律速段階であると考察されている（例えば、Burch et al., 1993; Cama et al., 2000; Oelkers, 2001; Cama et al., 2002; Metz et al., 2002; Sato et al., 2004）。これらによると、②の過程における反応速度は、正反応としては溶解の前駆体となる活性化された表面サイト密度、言い換えると表面サイトの吸着種による被覆率の影響を受ける。逆反応としては、脱水縮合する表面サイト密度と溶液中の金属イオン濃度の影響を受けると考えられる。実験的には、スメクタイト（pH3, 8.8～13）や同じフィロケイ酸塩鉱物であるカオリナイト（酸性）、イライト（pH1.4～12.4）の溶解速度は表面サイトの吸着種による被覆率の線形関数として表され、またスメクタイト（pH3, 8.8）の溶解速度は、溶液中の金属イオン濃度の影響、すなわち鉱物の飽和度の関数として表わされることが確認されている。

自由水中で求められたこれらの速度式を圧縮ベントナイト中に適用するには、圧縮ベントナイトの間隙水中での表面反応や飽和度を見積もることが必要となる。表面錯体モデルと圧縮ベントナイト中のpH測定実験結果から、圧縮ベントナイト中のスメクタイトの表面酸・解離反応（ここでは特別なリガンドを想定しない）は、自由水中のそれよりも弱くなる可能性が示唆されている（小田・柴田, 1999）。また、拡散係数測定実験結果から間接的に推定される圧縮ベントナイト中の吸着分配係数がバッチ実験など自由水中で取得された値に比べて低いことが示されている（HLW第2次とりまとめでは）ことから、圧縮ベントナイト中のスメクタイト表面反応は自由水中のそれよりも抑制される可能性がある。表面反応が抑制されるということは、表面サイトの吸着種による被覆率の減少につながり溶解反応を抑制する可能性がある。この場合、表面サイトの吸着種による被覆率の線形関数である速度式を用いることは、圧縮ベントナイト中の溶解速度を過大評価することとなる。

圧縮ベントナイト中でのスメクタイトの飽和度、あるいは溶解度を推定した研究は報告されていないが、拡散係数などから間接的に推定される圧縮ベントナイト中の固相の溶解度は、バッチ実験など自由水中で取得された値に比べて低いことが示されている（HLW第2次とりまとめでは）。近年、大江らの研究グループ（上坂ほか, 2004; 大江ほか, 2004; 原子力安全研究協会, 2005）によって、浸透圧法による圧縮ベントナイトの間隙水濃度の測定手法の開発や、粒子近傍での誘電率変化を考慮した圧縮ベントナイト中での活量係数や溶解度を解析するための化学モデルの提案がされ、やはり圧縮ベントナイト中の固相の溶解度は自由水中のそれよりも低くなることを支持している。このことから、圧縮ベントナイト中での固相の溶解挙動は自由水中に比べ飽和の影響を受けやすい可能性がある。飽和の影響を受けやすくなると、溶解反応が抑制される可能性がある。

すなわち、飽和度を自由水中での熱力学的計算と同様に見積もり、飽和度依存性を示す速度式を用いることは、圧縮ベントナイト中の溶解速度を過大評価することとなる。

圧縮ベントナイト中の溶液の熱力学的状態については明らかでないことが多く、自由水中で取得された界面反応に関する速度や水溶液と同様の熱力学的な考え方を適用することは議論のあるところである。しかしながら、自由水中で取得されたスメクタイトの界面反応に関する速度と物質輸送を組み合わせたモデル解析により、広範な条件下でのスメクタイトの溶解挙動を評価することは、上で述べた可能性を考慮すると性能評価の観点からは保守的であり、現状においては妥当であると考えられる。原子力環境整備促進・資金管理センターが行った圧縮ベントナイトのアルカリ変質実験結果（80℃）をシミュレーションした研究からも、自由水中で取得された反応速度を用いた解析がスメクタイトの溶解速度を過大評価する可能性が示されている。さらに、このような速度と物質輸送を組み合わせたモデルと大江らの提案する粒子近傍での活量係数や溶解度を解析するための化学モデルを組み合わせた化学反応・物質移行連成解析コードなどが将来開発されることによって、より正確な溶解速度評価へと進展するものと考えられる。

10. 結論

緩衝材を設置する処分施設の長期的な環境を対象としたときの、セメント系材料とベントナイトの相互作用による人工バリア変質挙動解析結果を示した。第2次 TRU レポート 4.4.2.2 及び 4.4.2.3 では、本件で示した複数の解析結果を基に、セメント系材料とベントナイトの相互作用による人工バリア変質挙動の可能性範囲を考察し、人工バリア変質の影響についての核種移行解析上の取り扱いを決定した。

参考文献

- Atkinson, A., Hearne, J. A. and Knights, C. F. (1987): Aqueous Chemistry and Thermodynamic modelling of CaO-SiO₂-H₂O gels, AERE R12543.
- Nakayama, S., Sakamoto, Y., Yamaguchi, T., Akai, M., Tanaka, T., Sato, T. And Iida, Y. (2004): Dissolution of montmorillonite in compacted Bentonite by highly alkaline aqueous solutions and diffusivity of hydroxide ions, Applied Clay Science, 27, 53-65.
- Reardon, R. J. (1992): "Problems and Approaches to the Prediction of the Chemical Composition in Cement/Water Systems", Waste Management, Vol. 12, pp. 221-239.
- Roberts, Rapp, Weber (1974): Encyclopedia of Minerals.
- Savage, D., Noy, D. and Mihara, M. (2002): Modelling the interaction of bentonite with hyperalkaline fluids, Applied Geochemistry, 17, pp. 207-223.
- Taylor, H. F. W. (1997): Cement Chemistry.
- 荒井康夫 (1990): セメントの材料化学, 改定 2 版, 大日本図書.
- 市毛悟, 伊藤勝, 三原守弘 (1998): 圧縮成型したベントナイトのアルカリ溶液における変質試験, 日本原子力学会「1998 年春の年会」要旨集, p. 611.
- 上坂貴洋, 大江俊昭, 河合克昭 (2004): 圧縮ベントナイトの間隙水化学特性に関する研究 (IV), 日本原子力学会「2004 年秋の大会」要旨集, p. 696.

- 大江俊昭, 鈴木康之, 上坂貴洋, 河合招昭 (2004): 圧縮ベントナイトの間隙水化学特性に関する研究 (V), 日本原子力学会「2004 年秋の大会」要旨集, p. 697.
- 奥津一夫, 森川誠司, 広中良和, 前田宗宏, 新保弘, 畔柳幹雄, 田部井和人, 佐原史浩, 村上武志, 青山裕司 (2005): ニアフィールド水理場の長期的変遷評価システム構築に関する研究 IV, JNC TJ8400 2005-012.
- 小田治恵, 柴田雅博 (1999): ベントナイト-水相互反作用の実験とモデル化, JNC TN8400 99-032.
- 化学大辞典編集委員会編 (1963): 化学大辞典, 共立出版.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター (2002): 平成 13 年度放射性廃棄物処分高度化システム確証試験報告書—放射能レベルの比較的高い低レベル放射性廃棄物を対象とした処分システムの検討調査—第 II 編第 5 章.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター (2004): 地層処分技術調査等 TRU 廃棄物関連処分技術調査 -人工バリア長期性能確証試験-平成 15 年度報告書
- 原子力安全研究協会 (2005): 核種移行評価の信頼性向上に関する調査及び技術的レビュー (平成 16 年度), JNC TJ 8420 2004-004.
- 地学団体研究会 (1996): 新版 地学事典, 平凡社.

Appendix 1 人工バリア変質解析ケース (1/2)

解析ケースNo.XYZ ²	111.121	211.221	311.321	411.421	511.521	611.621	631	711.721	731	811.821	
地質環境/地下水	FRHP	FRHP	FRHP	FRHP	FRHP	FRHP	FRHP	FRHP	FRHP	FRHP	
化学モデル	cem2-ben1	cem2-ben2	cem1-ben3	cem2-ben4	cem1-ben5	cem1-ben6	cem1-ben6	cem1-ben7	cem1-ben7	cem8-ben8	
ベントナイト	仕様レファレンス(降水系)	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
	モンモリロナイト溶解速度: 佐藤・Cama式(25℃)	○	○	○	○	○	○	○	○	○(60℃)	
	イオン交換反応:考慮する	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
	随伴鉱物 生成・溶解速度・瞬時平衡	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
	随伴鉱物 設定										
	calcite, chalcidony	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
	二次鉱物 生成・溶解速度・瞬時平衡	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
	二次鉱物 設定	Case-b1(イイ化)	Case-b2(準安定セオイト)	Case-b3(安定セオイト)	Case-b4(b1+b2)	Case-b5(b1+b3)	Case-b6(b2+b3)	Case-b6(b2+b3)	Case-b7(b1+b2+b3)	Case-b7(b1+b2+b3)	Case-b8(結晶化)
	phyllsilicate										
	illite	○			○	○		○	○	○	
	zeolite(metastable)										
	air (cannonite, reynoldsite, chabazite)		○		○		○	○	○	○	
	zeolite(stable)										
	analcite, laumontite			○		○	○	○	○	○	
	feldspar										
	K-feldspar			○		○	○	○	○	○	
	others										
	brucite, dolomite, sepiolite	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
	セメントモデルで考慮した鉱物	○	○	○	○	○	○	○	○	○(C-S-Hゲルを除く)	
										tobermorite, afwillite, jennite	
セメント	仕様:レファレンス(OPCモルタル)	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
	初期鉱物 生成・溶解速度・瞬時平衡	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
	初期鉱物 設定:レファレンス	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
	NaOH, KOH 収着モデル:考慮しない	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
	二次鉱物 生成・溶解速度・瞬時平衡	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
	二次鉱物 設定	Case-c2	Case-c2	Case-c1	Case-c2	Case-c1	Case-c1	Case-c1	Case-c1	Case-c1	Case-c8
	carbonate										
	calcite, dolomite	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
	CASH, CAH										
	C3ASH4, gehlenite	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
	hyd_C4AH13, C4AH19										
	CSH									tobermorite, afwillite, jennite	
	AFm										
	monosulfate	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
	Mg, Al										
	hydroralcite, sepiolite	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
	変遷末期										
	kaolinite, pyrophyllite, laumontite, analcite, chalcidony			○		○	○	○	○	○	
特性変化											
ベントナイト	透水係数:										
	ベントナイト経験式p*	○	○	○	○	○	○	Kw=一定	○	Kw=一定	○
	拡散係数:										
	ベントナイト経験式d*	○	○	○	○	○	○	De=一定	○	De=一定	○
セメント	透水係数:										
	セメント経験式p(間隙率下限値Y)	○	○	○	○	○	○	Kw=一定	○	Kw=一定	○
	拡散係数:										
	セメント経験式p(間隙率下限値Y)	○	○	○	○	○	○	De=一定	○	De=一定	○
備考		鉱物変遷シナリオケース1	2	3	4	5	6	7	8	9	
								間隙充填を無視			

*解析ケース No. XYZ, X=化学モデルケース番号、Y=境界条件(1, 4, 6:濃度固定, 2, 5, 7:反射境界)又は物質移動パラメータ(3:一定, 4, 5:劣化後, 6, 7:劣化後), Z=ス멕タイト溶解速度式(1:Sato-Cama, 2:平衡)

Appendix 1 人工バリア変質解析ケース(2/2)

解析ケースNo.XYZ*	611-distribution	411-distribution	612/712	412	711,621/721	411,421-Kin1	611/711-logK	611/711-Si
地質環境/地下水	FRHP	FRHP	FRHP	FRHP	FRHP	FRHP	FRHP	FRHP
	スメクタイト密度再分配ケース	スメクタイト密度再分配ケース	速度式不確実性検討	速度式不確実性検討	速度式不確実性検討	速度式不確実性検討	TDB不確実性検討	Si供給量不確実性検討
化学モデル	cem1-ben7	cem2-ben4	cem1-ben7-equilibrium	cem2-ben4-equilibrium	cem1-ben7-kin1	cem2-ben4-kin1	cem1-ben7	cem1-ben7
ヘントナイト	仕様:レファレンス(降水系)							ケイ砂を不活性
	モンモリロナイト溶解速度: 佐藤・Cama式(25°C)		平衡	平衡				
	イオン交換反応:考慮する							
	随伴鉱物 生成・溶解速度:瞬時平衡				速度式	速度式		
	随伴鉱物 設定 calcite, chalcedony							
	二次鉱物 生成・溶解速度:瞬時平衡							
	二次鉱物 設定 Case-b7 (b1+b2+b3)	Case-b4 (b1+b2)	Case-b7	Case-b4	Case-b7	Case-b4	Case-b7	Case-b7
	phyllosilicate							
	illite							
	zeolite(metastable)							
	air (amorphous, heulandite, tabularite)							
	zeolite(stable)							
	analcime, laumontite							
	feldspar							
	K-feldspar							
	others							
	brucite, dolomite, sepiolite							
	セメントモデルで考慮した鉱物							
セメント	仕様:レファレンス(OPCモルタル)							
	初期鉱物 生成・溶解速度:瞬時平衡							
	初期鉱物 設定:レファレンス							
	NaOH,KOH 収着モデル:考慮しない							
	二次鉱物 生成・溶解速度:瞬時平衡							
	二次鉱物 設定 Case-c1	Case-c2	Case-c1	Case-c2	Case-c1	Case-c2	Case-c1	Case-c1
	carbonate							
	calcite, dolomite							
	CASH, CAH							
	C ₃ AH ₄ , gehlenite hyd_C4AH13, C4AH19							
	CSH							
	AFm							
	monosulfate							
	Mg, Al							
	hydroralcite, sepiolite							
	変遷末期 kaolinite, pyrophyllite, laumontite, analcime, chalcedony							
特性変化								
ヘントナイト	透水係数:							
	ヘントナイト経験式p*							
	拡散係数:							
	ヘントナイト経験式d*							
セメント	透水係数:							
	セメント経験式p(間隙率下限値Y)							
	拡散係数:							
	セメント経験式p(間隙率下限値Y)							
備考	モンモリロナイト密度を再分配する	モンモリロナイト密度を再分配する	モンモリロナイトの瞬時平衡を仮定	モンモリロナイトの瞬時平衡を仮定	カルセドニの反応速度を考慮	カルセドニの反応速度を考慮	モンモリロナイトの平衡定数を変更	ケイ砂を化学的に不活性とし、体積のみ考慮

*解析ケース No. XYZ, X=化学モデルケース番号、Y=境界条件(1, 4, 6:濃度固定, 2, 5, 7:反射境界) 又は物質移動パラメータ(3:一定, 4, 5:劣化後, 6, 7:劣化後), Z=スメクタイト溶解速度式(1:Sato-Cama, 2:平衡)

Appendix 2: モンモロロナイトの熱力学データ不確実性について

1. はじめに

鉱物の成因論や水-岩石相互作用に関する研究において、相平衡的な議論や反応経路の議論を行うためには、鉱物の熱力学データは不可欠な情報であり、地球化学的な分野においては、以前より鉱物の熱力学データの整備が進められて来ている。

しかしながら、スメクタイトを含むフィロ珪酸塩に対する熱力学データは、1) 化学組成が一定せず理想構造式を持つ端成分鉱物が産出しない、2) 特にスメクタイト等は粒子が微細であり単離することが困難である、3) 実験中に鉱物に変化する（二次生成物が実験系を支配する可能性がある）、といった理由から、カロリメトリーや溶解度といった実験的アプローチでの熱力学データの整備が容易ではない。したがって、個々の鉱物に対する実験に依らず、化学組成や結晶構造等を考慮し、原理的に簡易な計算方法で、既往の実験値が体系的に説明可能であり、かつ、化学組成などを基に鉱物に対する熱力学データの推定が可能であるようなモデルの検討が行われてきている。

ここでは、スメクタイトの標準生成自由エネルギーについて、近年提唱されているいくつかのモデルの相互比較を行い、それらのモデルの違いによる推定値の差異を把握することで、スメクタイトの安定性評価に用いる値の不確実性について議論する。

2. フィロ珪酸塩の標準生成自由エネルギーの推定モデル

スメクタイトなどのフィロ珪酸塩に対する標準生成自由エネルギー (ΔG_f) を推定するいくつかのモデルが提唱されているが、現在、EQ3/6 (Wolery, 1992) 等の地球化学計算コードにおける標準付属熱力学データベースにも採用され、国際的に広く用いられている値は Wolery (1978) によるものであり、この値は Tardy and Garrels (1974) のモデルに基づくものである。TRU の第 2 次 TRU レポートに向け整備を行った熱力学データベース (JNC-TDB. TRU, Arthur et al., 2005) においても、Wolery (1978) の値が適用されている。

Tardy and Garrels (1974) のモデルは、スメクタイトなどのフィロ珪酸塩は、 Na_2O 、 K_2O 等の酸化物と $\text{Mg}(\text{OH})_2$ 、 $\text{Al}(\text{OH})_3$ 等の水酸化物の成分から成り立っていることから、フィロ珪酸塩の ΔG_f は、これらの成分の持つ ΔG_f の総和として考えることができるという仮定に基づいている。しかしながら、酸化物や水酸化物が単体として存在している場合と、フィロ珪酸塩の骨格中に存在して成分として考えている酸化物や酸化物とでは、 ΔG_f の値は異なるため、フィロ珪酸塩の成分である酸化物や水酸化物に対して適切な標準生成自由エネルギー ($\Delta G_{f\text{-sil}}$) を与えるというものである。

なお、Wolery (1978) によるスメクタイトの ΔG_f の導出においては、 $\Delta G_{f\text{-sil}}$ の値に Tardy and Garrels (1974) の値を若干修正した値を用いているものと推定され、Tardy and Garrels (1974) に従った計算では再現できず、Tardy and Garrels (1974) よりも若干大きな値となっている。

Tardy and Garrels (1974) による方法以外にも ΔG_f の推定モデルとして、Chen (1975)、Nriagu (1975)、Mattigod and Sposito (1978)、Chermak and Rimstidt (1989)、Viellard (2000) などが提案されている。

Chen (1975) は、求めるべき複雑なケイ酸塩鉱物を、単純な酸化物や低分子のケイ酸塩の組み合

わせで記述する式を何通りか考え、それらの式に序列をつけ、各式から得られる値を経験的な曲線にのせ、外挿することで ΔG_f を求めようというものである。

Nriagu(1975)は、ケイ酸塩鉱物の ΔG_f を水酸化物の組み合わせと、その際に化学両論的に過剰となる水の脱水を考えることで記述しようというモデルである。この方法は結晶構造の違いなどを適切に取り扱うことが困難であるものの、単純であり、そのわりには良好な近似である。

Mattigod and Sposito(1978)もNriagu(1975)と同様な考え方であるが、スメクタイトを対象とし、スメクタイトの持つチャージや層間陽イオンの電荷などの関数として、補正項を与えることで精度の向上を試みている。

Chermak and Rimstidt(1989)は、ケイ酸塩鉱物の ΔG_f を酸化物あるいは水酸化物の多面体の組み合わせで記述するものである。様々な鉱物の既往の実測データを基に、酸化物及び水酸化物多面体毎のごと標準生成自由エネルギー (g_i) を求め、その総和をもって、ケイ酸塩鉱物の ΔG_f とするもので、ゼオライト鉱物を含む比較的広い範囲のケイ酸塩鉱物に対し、比較的良い一致を示す。

Viellard(2000)は、フィロ珪酸塩の結晶構造内の金属イオンの存在位置(8面体, 4面体)や層間陽イオンを区別して取り扱い、陽イオンの電気陰性度に基づいて隣接金属イオン間での相互作用を考慮して補正をするモデルであり、理論的取り扱いとしては優れている。

これらの中で、Chen(1975)は、きわめて独自の方法であるが、その論理的根拠が十分ではないと判断し、ここでは取り扱わない。他の4つの方法について、比較のために、実験により得られている実測との対比を行なった(Table1)。その結果、個別に見ると数kJから最大50kJ認められる。ただし、これらの値も、誤差にすると最大1%程度である。推定モデル間の比較では、Nriagu(1975)が全体的に大きな値(絶対値が小さな負の値)を示し、誤差も大きいことから評価の対象からは外すこととする。誤差の絶対値の平均値で比較を行なうとTardy and Garrels(1974), Mattigod and Sposito(1978), Viellard(2000)が比較的小さな値を示している。

これらのことより、ベントナイトの主要構成鉱物であるスメクタイトの熱力学的安定性の検討において、Arthur et al., 2005により採用されている値のほかに、Mattigod and Sposito(1978), Viellard(2000)のモデルによる導出される値を対象として、不確実性の範囲を議論することとする。ここでは、これら3種類の推定法を用い、理想構造式を持つmontmorillonite及びbeidelliteのNa, K, Mg, Caの各イオン型について ΔG_f を導出し、さらに解離反応のlogKを導出した。logKの計算において必要となる構成イオン等の ΔG_f はSPRONにより選定されている値を用いた(詳細はArthur et al., (1999)参照)。

Table2に導出されたlogKを一覧する。 ΔG_f 相互の差異は十数kJ/molであり誤差としては最大でも0.3程度であるが、logKでは3程度(平衡定数Kにすると3桁程度)の差異となることに留意する必要がある。Arthur et al. (1999)との比較では、Viellard(2000)は、ほとんどすべての端成分に対して小さなlogKを示しており、特にmontmorilloniteでその差異が大きい。Mattigod and Sposito(1978)では、montmorilloniteに対してはArthur et al. (2005)とほぼ同等の値を示しているが、beidelliteでは、若干小さな値となっている。

logKは大きな値の方が、より不安定で溶解しやすいことを意味する。したがって、ここでは、スメクタイトの安定性評価の観点からの保守性も考慮し、Arthur et al. (2005)を用いた解析に加え、熱力学データ不確実性ケースとして、Viellard(2000)の推定法により導出された ΔG_f に基づ

く logK を用いた解析を行なうこととする。

参考文献

- Chen, Chao-Hsia(1975): A method of estimation of standard free energies of formation of silica minerals at 298.15° K. Amer. J. Scie, 275, pp801-817.
- Chermak, J. A. and Rimstidt, J. D. (1989): “Estimating the thermodynamic properties (ΔG_f^0 and ΔH_f^0) of silicate minerals at 298 K from the sum of polyhedral contributions”, Am. Min., 74, pp. 1023-1031.
- Nriagu, J. O (1975): Thermochemical approximations for clay minerals. Am. Mineralogist, 60, pp. 834-839.
- Tardy, Y. and Garrels, R. M. (1974): “A method of estimating the Gibbs energies of formation of layer silicates”, Geochim. Cosmochim. Acta, 38, pp. 1101-1116.
- Vieillard, P. (2000): “A new method for the prediction of Gibbs free energies of formation of hydrated clay minerals based on the electronegativity scale”, Clays and Clay Minerals, 48 (4), pp. 459-473.
- Wolery, T. J. (1978): “Some chemical aspects of hydrothermal processes at mid-oceanic ridges: A theoretical study. I) Basalt-sea water reaction and chemical cycling between the oceanic crust and oceans. II) Calculation of chemical equilibrium between aqueous solutions and minerals”, Unpubl. Ph.D. thesis, Northwestern University, Illinois.
- Wolery, T. J. (1992): “EQ3/6, a software package for geochemical modeling of aqueous systems: Package overview and installation guide (version 7.0)”, Lawrence Livermore National Laboratory Report UCRL-MA-110662 PT 1, Livermore, California.

4-6 周辺岩盤のアルカリ変質解析モデルと解析結果 (4.4.3.3)

1. はじめに

第2次 TRU レポートの 4.4.3 においては、処分施設周辺岩盤のアルカリ変質に対して、鉱物のアルカリ反応性として、アルカリ骨材反応に関する知見、試験的検討による知見をまとめ、それらを基に解析検討における母岩の鉱物変質モデルを構築し、解析検討を行っている。解析検討では地下水組成の違い、岩種の違い、また母岩の非晶質シリカの存在量の違いに着目し、その影響を検討した。

ここでは、第2次 TRU レポートにまとめた解析検討の詳細な解析モデルとともにその解析結果を示し、第2次 TRU レポートでまとめた結果の根拠を示す。

2. 処分施設周辺岩盤のアルカリ変質の影響解析

2.1 解析対象施設

本解析検討は、アルカリ成分の拡がりや緩衝材によって緩和されない廃棄体グループ 4 の施設（緩衝材を設けていない施設）を対象とし、 $\phi 12\text{m}$ の円形断面の処分施設を等価な断面積の正方形と置き換えて体系を 1 次元化した。本検討においては高 pH プルームがより拡がると考えられる処分施設下流側での岩盤の変質に着目し、処分施設の上流側に 30m、下流側に 200m の岩盤を解析領域としてモデル化した。上流端、下流端において地下水濃度及び水頭を固定して解析を行った。モデル化した解析領域図を図-1 に示す。

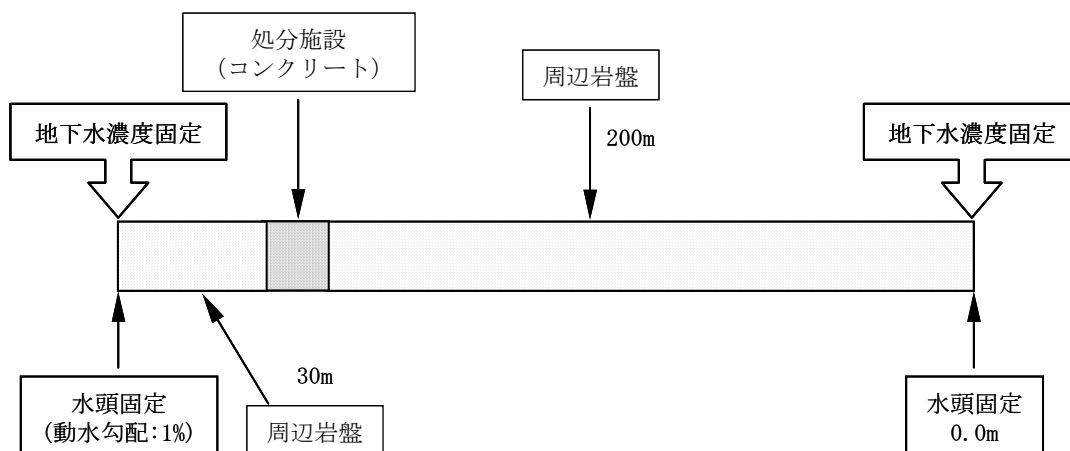


図-1 周辺岩盤のアルカリ変質解析の体系

2.2 母岩における鉱物組成の設定

処分施設周囲の母岩領域においては、処分施設から移行するアルカリ成分と母岩の構成鉱物との間の反応が生じ、構成鉱物の溶解及び二次鉱物の生成や間隙水組成の変化が生じる。ただし、母岩の構成鉱物はサイト条件により異なり、現状のサイトを特定しない評価においてはそれを明確に定めることはできない。そのため本検討においては、仮想的な岩盤を想定することとした。

岩盤を構成する鉱物のモデル化では鉱物のアルカリ反応性について既往の知見を基に設定することとした。コンクリート構造物中で生じるアルカリ骨材反応に関しては、骨材のアルカリに対

する反応性は岩石を構成する鉱物の種類や組成，ケイ酸塩の構造や結晶性に大きく影響されているようであり，結晶性の高い鉱物はアルカリに対して強い抵抗力を持つが，構造の規則性がくずれ，非晶質やガラス質となったシリカ，低結晶性のクリストバライト，反応性の高い粘土などはアルカリ抵抗性が低くなると推察される（荒井，1991）。

また，周辺岩盤のアルカリ変質に関する試験研究は，主としてシリカ，ケイ酸塩鉱物等について行われている（Savage et al., 1998a; 1998b）。岩を構成する種々の鉱物（石英，長石，雲母等）のアルカリ溶液への浸漬試験では，鉱物が侵食されシリカ分の溶出と，主として結晶性の低いC-S-H相からなる二次鉱物が析出した。

以上の知見から周辺岩盤と高 pH プルームの反応では，シリカ分の溶出，C-S-H相の析出が想定される。本検討においては岩盤の構成鉱物として TRU 廃棄物処分施設から溶出した間隙水中のアルカリ成分との反応が容易に想定されるシリカ鉱物を想定することとした。シリカ鉱物としては，その結晶性などによりクオーツ，クリストバライト，カルセドニ，非晶質シリカなどの複数の存在形態がある。これらの中より，降水系地下水の設定においても考慮されており，かつベントナイトの随伴鉱物として考えられているカルセドニを比較的結晶性の高い鉱物として想定した。

また，地下水の流路となる亀裂中などに存在する充填鉱物には非晶性のシリカ鉱物や粘土鉱物が考えられることから，非晶質シリカ及び粘土鉱物についてもアルカリ成分との反応を考慮することとした。シリカ鉱物の存在量としては，カルセドニは岩盤の構成鉱物として存在すると想定して 10wt%を設定した。また，非晶質シリカは亀裂充填鉱物を想定した場合，その存在量は微量であると想定されることから 0.1wt%と設定した。しかし，凝灰岩等では火山ガラス等の非晶質分が多く含まれる場合も考えられることから，反応性の高い鉱物の存在量が異なる場合の影響を比較することを考え，非晶質シリカの存在量を 0.01wt%から 10wt%まで変化させた検討についても実施した。粘土鉱物については，その存在量として 0.1wt%を想定し，評価上はモンモリロナイトのデータで代表させて検討を行った。なお，ここでアルカリ成分との反応を想定した以外の固相中の鉱物については反応性が非常に低いものと考え，化学反応に寄与しないものとして取り扱った。岩盤中で地球化学反応に寄与すると考慮した鉱物を表-1 に示す。

表-1 地球化学反応に寄与すると考慮する鉱物

	組成	反応量(wt%)
カルセドニ	SiO ₂	10
非晶質シリカ	SiO ₂	0.1 (0.01~10)
カルサイト	CaCO ₃	0.1
モンモリロナイト	Na _{0.33} Mg _{0.33} Al _{1.67} Si ₄ H ₂ O ₁₂	0.1

岩盤中の鉱物の溶解反応の取り扱いについては，結晶性の鉱物については，溶解速度が小さく岩盤中の地下水流速が大きい場合には鉱物と地下水との反応時間が短いため，反応が平衡に達せず，溶解速度が反応量を律速する場合も考えられる。このため，カルセドニについては溶解速

度を考慮することとした。他方、非晶質シリカについては反応性が高いことから瞬時平衡として取り扱うこととした。同様にモンモリロナイトの溶解モデルは瞬時平衡とした。

2.3 処分施設におけるセメント水和鉱物の設定

処分施設内は支保工、構造躯体、廃棄体などの部位ごとにモルタルが使用される部位とコンクリートが使用される部位があり、それぞれ異なる示方配合となると考えられるが、本検討においてはすべてのセメント系材料をモルタルとして取り扱うこととした。モデルモルタルの仕様としては第2次 TRU レポートの付録 3B に示されている第2次 TRU レポートでの各種評価において前提とする共通仕様に基づき設定した。モデルモルタルの示方配合、鉱物組成、化学組成をそれぞれ表-2～表-4 に示す。また、セメント系材料中の遊離アルカリ成分である Na, K はコンクリートが一定期間以上にわたって健全であることや C-S-H ゲルなどへの吸着が考えられることから、間隙水中への放出が抑制されると考えられるが、ここでは全量瞬時放出とし、速やかに移行するものとした。

表-2 セメントの化学組成 (wt%)

	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	SO ₃	Na ₂ O	K ₂ O
普通ポルトランドセメント	21.3	5.31	2.57	64.8	1.95	1.94	0.24	0.56

表-3 モデルモルタルの示方配合

水セメント比 W/C (%)	単位量 (kg/m ³)		
	水 (W)	OPC (C)	細骨材量
55	266	483	1,449

表-4 セメント鉱物組成 (mol/dm³-water)

	エトリン ガイト	C ₃ FH ₆	C ₃ AH ₆	C-S-H ゲ ル	ポルトラ ンダイト	ブルーサ イト	Na ₂ O	K ₂ O
モルタル	0.211	0.416	1.132	16.4	7.45	1.247	0.097	0.15

2.4 地下水組成

鉱物の化学反応において影響が大きいと考えられる地下水組成に関して、本検討では降水系地下水と海水系地下水（表-5 参照）の2種類を考慮した。

2.5 解析ケース

本検討ではアルカリ成分の処分場周囲への拡がりに関して、岩種として結晶質岩系岩盤及び堆積岩系岩盤の2ケース、更に地下水組成の違いによる影響を評価するため降水系地下水、海水系地下水の2ケースを想定して実施した。なお、それぞれの岩種の解析上の取り扱いとしては、両者とも多孔質媒体としてモデル化を行い、岩種の違いとしては間隙率の違いを考慮した。

また、反応性の高い鉱物の存在量が異なる場合の影響を評価するため、非晶質シリカの存在量に関して3ケース設定して実施した。

解析に使用したパラメータ、人工バリア及び岩盤の水理特性を表-6に、解析ケースを表-7に、各バリア材料において考慮した鉱物種を表-8に示す。

表-5 解析に使用する地下水組成（核燃料サイクル開発機構，1999）

	降水系地下水 (レファレンスケース)	海水系地下水 ^{*1}
pH	8.5	8.0
Eh [mV]	-281	-303
単位：[mol l ⁻¹]		
Na (Total)	3.6×10 ⁻³	6.2×10 ⁻¹ ^{*5}
Ca (Total)	1.1×10 ⁻⁴	3.3×10 ⁻⁴
K (Total)	6.2×10 ⁻⁵	1.1×10 ⁻²
Mg (Total)	5.0×10 ⁻⁵	2.5×10 ⁻⁴
Fe (Total)	9.7×10 ⁻¹⁰	3.9×10 ⁻⁸
Al (Total)	3.4×10 ⁻⁷	3.2×10 ⁻⁹
C (Total)	3.5×10 ⁻³ ^{*2}	3.5×10 ⁻² ^{*6}
S (Total)	1.1×10 ⁻⁴ ^{*3}	3.0×10 ⁻² ^{*7}
B (Total)	2.9×10 ⁻⁴ ^{*4}	1.7×10 ⁻³ ^{*4}
P (Total)	2.9×10 ⁻⁶ ^{*4}	2.6×10 ⁻⁷ ^{*4}
F (Total)	5.4×10 ⁻⁵ ^{*4}	1.0×10 ⁻⁴ ^{*4}
Br (Total)	—	5.3×10 ⁻⁴ ^{*4}
I (Total)	—	2.0×10 ⁻⁴ ^{*4}
N (Total)	2.3×10 ⁻⁵ ^{*4}	5.2×10 ⁻³ ^{*4}
Cl (Total)	1.5×10 ⁻⁵ ^{*5}	5.9×10 ⁻¹
Si (Total)	3.4×10 ⁻⁴	3.0×10 ⁻⁴

*1 海水を起源として、鉱物との平衡反応、有機物による還元反応を考慮したモデル地下水 (Yui et al., 1999a)

*2 無機炭素 = 3.5×10⁻³ mol l⁻¹, CH₄(aq) = 1.5×10⁻¹⁰ mol l⁻¹

*3 SO₄²⁻ = 1.1×10⁻⁴ mol l⁻¹, HS⁻ = 3.8×10⁻⁹ mol l⁻¹, H₂S(aq) = 1.2×10⁻¹⁰ mol l⁻¹

*4 実測地下水の平均値より設定

*5 電荷バランスをとるために調整

*6 無機炭素 = 1.5×10⁻² mol l⁻¹, CH₄(aq) = 2.0×10⁻² mol l⁻¹

*7 SO₄²⁻ = 3.2×10⁻⁵ mol l⁻¹, HS⁻ = 2.8×10⁻² mol l⁻¹, H₂S(aq) = 2.1×10⁻³ mol l⁻¹

表-6 アルカリ成分影響解析に使用するパラメータ及び物性値

パラメータ		単位	結晶質岩	堆積岩
透水係数	セメント系材料の透水係数	m/s	4×10 ⁻⁶	
拡散係数	セメント系材料での 実効拡散係数	m ² /s	8×10 ⁻¹⁰	
	母岩での実効拡散係数	m ² /s	8×10 ⁻¹¹	1.2×10 ⁻⁹
人工バリア 形状	対象処分施設	—	廃棄体グループ4	
天然バリア	透水係数	m/s	1×10 ⁻⁹	
	間隙率	—	0.02	0.30
	真密度	Mg/m ³	2.7	2.7
	動水勾配	m/m	0.01	

表-7 解析ケース

	岩種		地下水組成		非晶質シリカ存在量 [wt%]			
	結晶質岩	堆積岩	降水系地下水	海水系地下水	0.01	0.1	1	10
Case-1	●		●			●		
Case-2	●			●		●		
Case-3		●	●			●		
Case-4		●		●		●		
Case-5	●		●		●			
Case-6	●		●				●	
Case-7	●		●					●

表-8 各バリア材料において考慮した鉱物

バリア材	初期鉱物	二次鉱物	
セメント系材料	ポルトランドイト	C_3ASH_4	フリーデル氏塩
	C-S-H ゲル	C_2ASH_8	カルサイト
	C_3AH_6	C_3AS_3	カルセドニ
	エトリンガイト	カオリナイト	アナルサイム
	ブルーサイト	パイロフィライト	ローモンタイト
岩盤	カルセドニ	C-S-H ゲル	ブルーサイト
	非晶質シリカ	C_3ASH_4	アナルサイム
	カルサイト	C_2ASH_8	ローモンタイト
	モンモリロナイト	C_3AS_3	クリノタイロライト

2.6 解析結果

結晶質岩を想定し、非晶質シリカの存在量を 0.1wt%としたケース (Case-1, Case-2) について、10,000 年後における処分施設近傍の液相濃度分布、固相体積割合分布を図-2~図-5 に、pH の変遷を図-6, 図-7 に示した。また、すべてのケースのモデル全体での液相濃度分布、固相体積割合分布を図-8~図-14 に、天然バリアでの pH の変遷を図-15, 図-16 に、間隙率の変化を図-17, 図-18 に示す。

周辺岩盤中の鉱物のアルカリによる変質としては、セメント系材料中の遊離アルカリ成分である Na, K が移行する際に粘土鉱物の変質して二次鉱物としてクリノタイロライトが生成した。また、処分施設近傍の岩盤では、処分施設から移行する Ca と岩盤中のシリカ鉱物の溶解による Si によって C-S-H ゲルが生成した。C-S-H ゲルの Ca/Si 比は非晶質シリカの溶解が続く領域では、Ca/Si 比の低い C-S-H ゲル (Ca/Si=0.4) が生成し、非晶質シリカが消失した領域では徐々に Ca/Si 比が高くなり、カルセドニの溶解によって生成する C-S-H ゲル (Ca/Si=0.9) が沈殿した。

岩盤中の pH は図-2 に示すように遊離アルカリ成分である Na, K が移行する際には pH11 程度と

なるが、数万年以降に Na, K が散逸すると非晶質シリカの溶解によって生成する C-S-H ゲル (Ca/Si=0.4) の平衡によって決まる pH10.0 となった。非晶質シリカが消失した領域ではカルセドニの溶解によって生成する C-S-H ゲル (Ca/Si=0.9) の平衡で決まる pH10.8 となった。

鉱物のモル体積と密度から算出した間隙率の変化はセメント系材料/岩盤境界の極近傍のみで生じ、その変化の幅も大きなものではないことが示された。

地下水水質 (降水系地下水, 海水系地下水), 岩種 (結晶質岩, 堆積岩), 非晶質シリカ存在量 (0.01wt%~10wt%) をパラメータとして設定したケースの解析結果からは以下の結果が得られた。

海水系地下水のケースでは地下水中の Na 濃度が高いことから遊離アルカリ成分が散逸した後は、処分施設近傍では二次鉱物として生成したクリノタイロライトが溶解してアナルサイムが生成した。堆積岩のケースでは実流速の違いから拡散による移行が卓越し、上流側にも二次鉱物が生成した。非晶質シリカの存在量の違いによる影響は存在量が多いケース (1wt%, 10wt%) では非晶質シリカの存在量が多くなるにしたがって、非晶質シリカが消失する領域が狭くなり、存在量が少ないケース (0.01wt%) ではセメント系材料中の遊離アルカリ成分が移行する際に非晶質シリカが全て消失し、カルセドニの溶解によって Ca/Si 比の高い C-S-H ゲル (Ca/Si=0.9) が生成する結果となった。

3. 結論

検討の結果、母岩中ではセメント系材料中の遊離アルカリ成分である Na, K の移行によりクリノタイロライトが生成し、また、ポルトランドイトの溶解による Ca の移行により C-S-H ゲルが生成した。鉱物の変質により高 pH (pH11 以上) となる領域は数十 m 程度となり、間隙率の変化は処分施設の極近傍でのみ生じる結果となった。

解析ケース別の比較としては、処分施設からのアルカリ成分の移行による、シリカ鉱物、粘土鉱物の溶解、ゼオライト、C-S-H ゲルの生成、pH の上昇などの変化はそれらの影響が及ぶ領域、期間に違いはあるものの、定性的には類似した結果となった。そのため、第2次 TRU レポートでは処分施設近傍での鉱物変質結果に着目し、代表的なケース (Case-1) における処分場近傍での液相濃度分布、固相体積割合分布、また pH、間隙率の変化を示すことで、アルカリ影響による周辺岩盤の鉱物変質を纏めた。

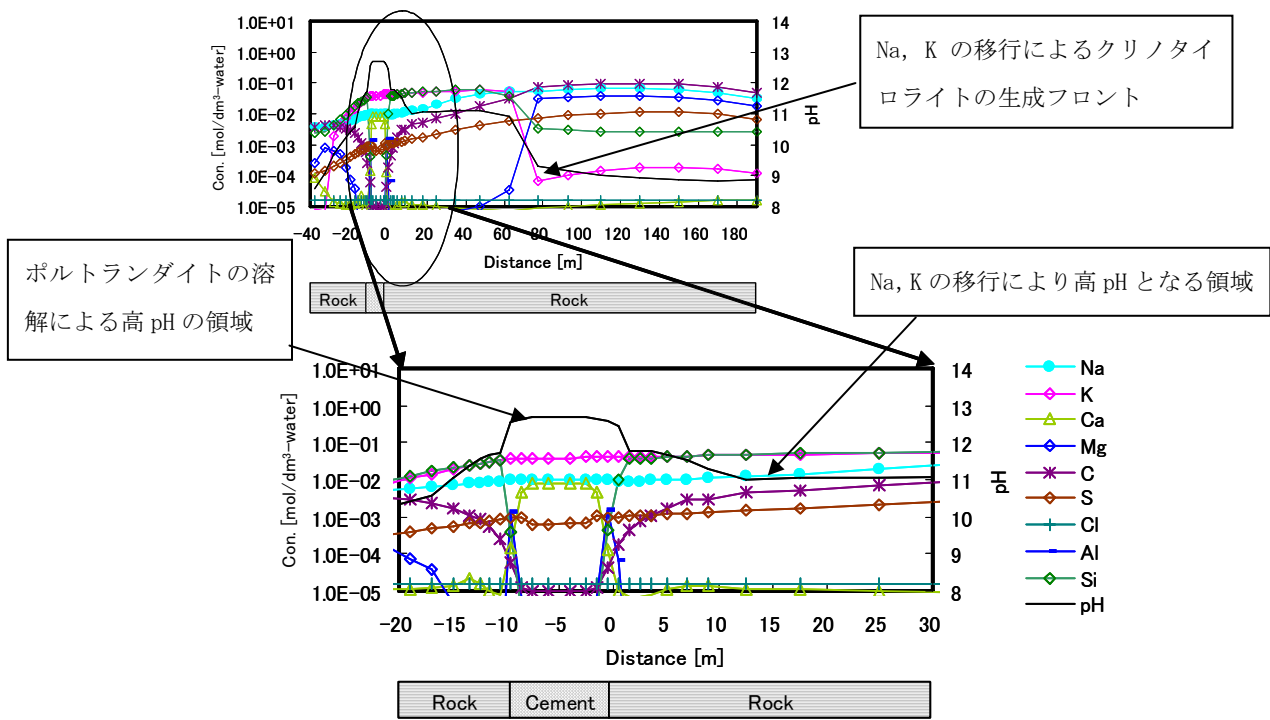
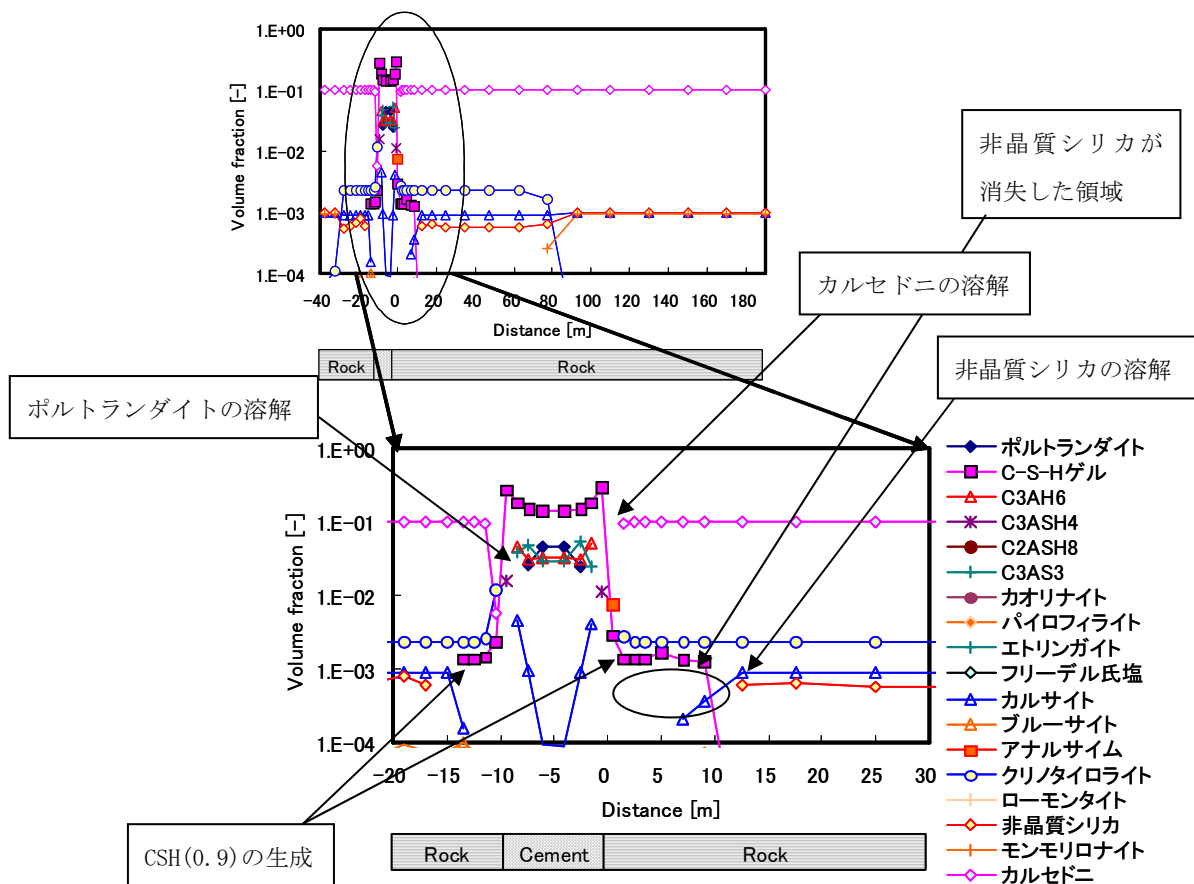


図-2 10,000年後の液相濃度分布（降水系地下水，結晶質岩）



注：C-S-Hゲルの表記はCSH(Ca/Si比)としている

図-3 10,000年後の固相体積割合分布（降水系地下水，結晶質岩）

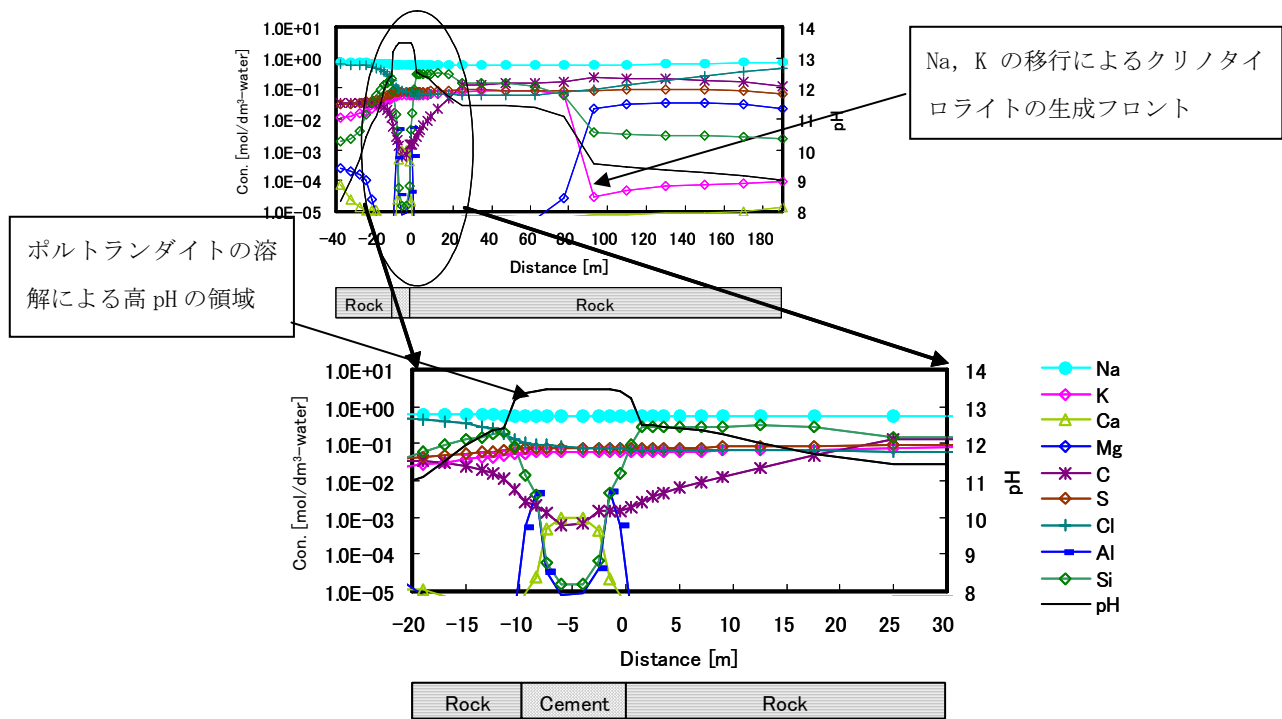
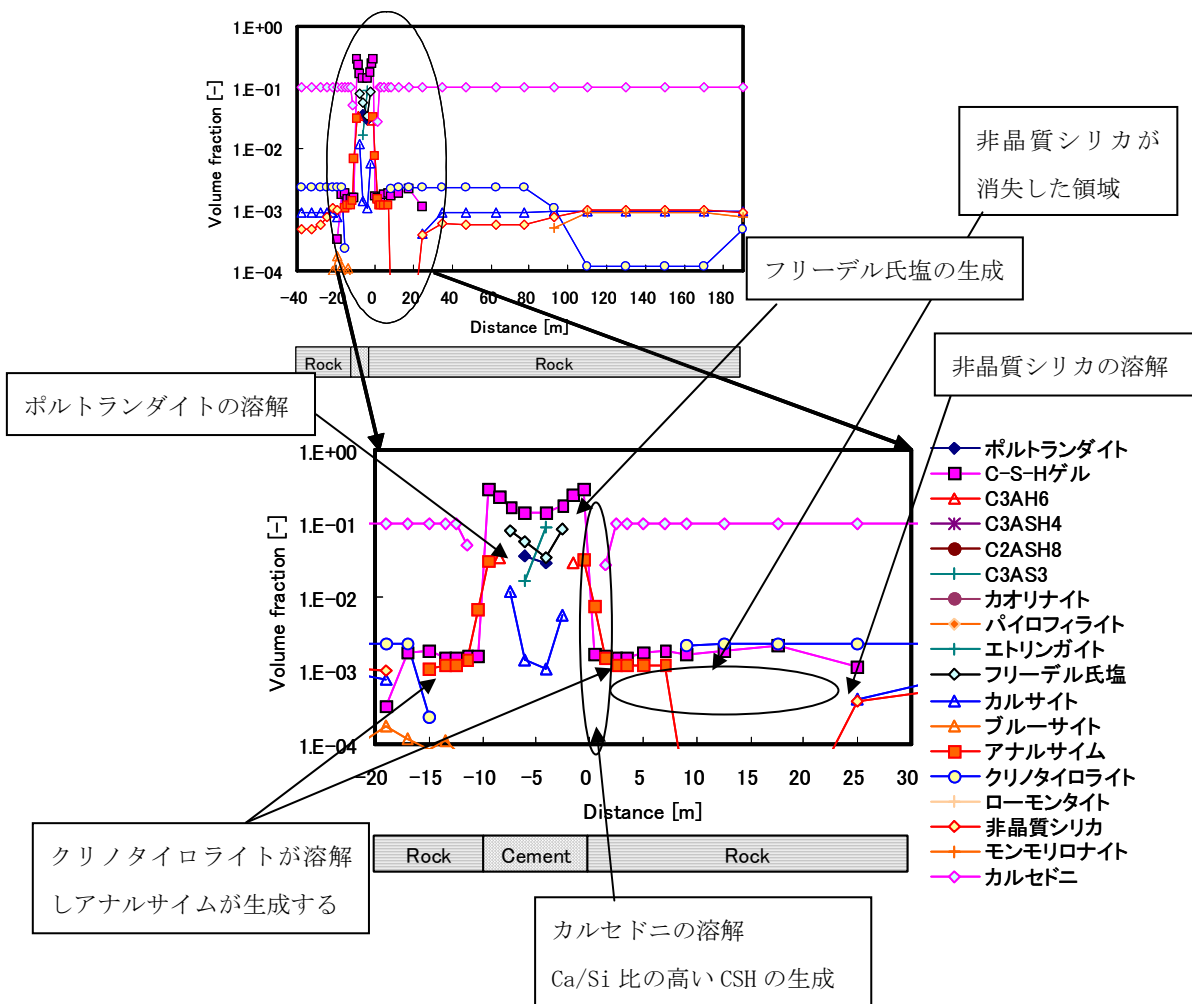


図-4 10,000年後の液相濃度分布（海水系地下水，結晶質岩）



注：C-S-Hゲルの表記はCSH(Ca/Si比)としている

図-5 10,000年後の固相体積割合分布（海水系地下水，結晶質岩）

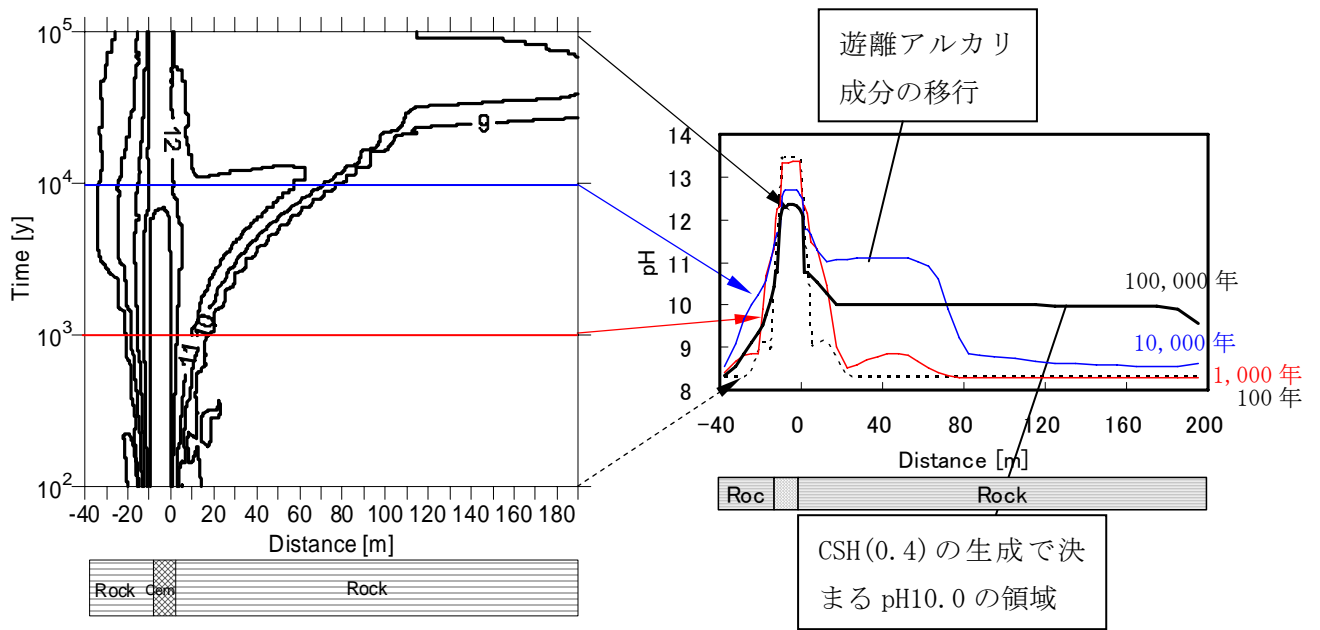


図-6 pHの変遷（降水系地下水，結晶質岩）

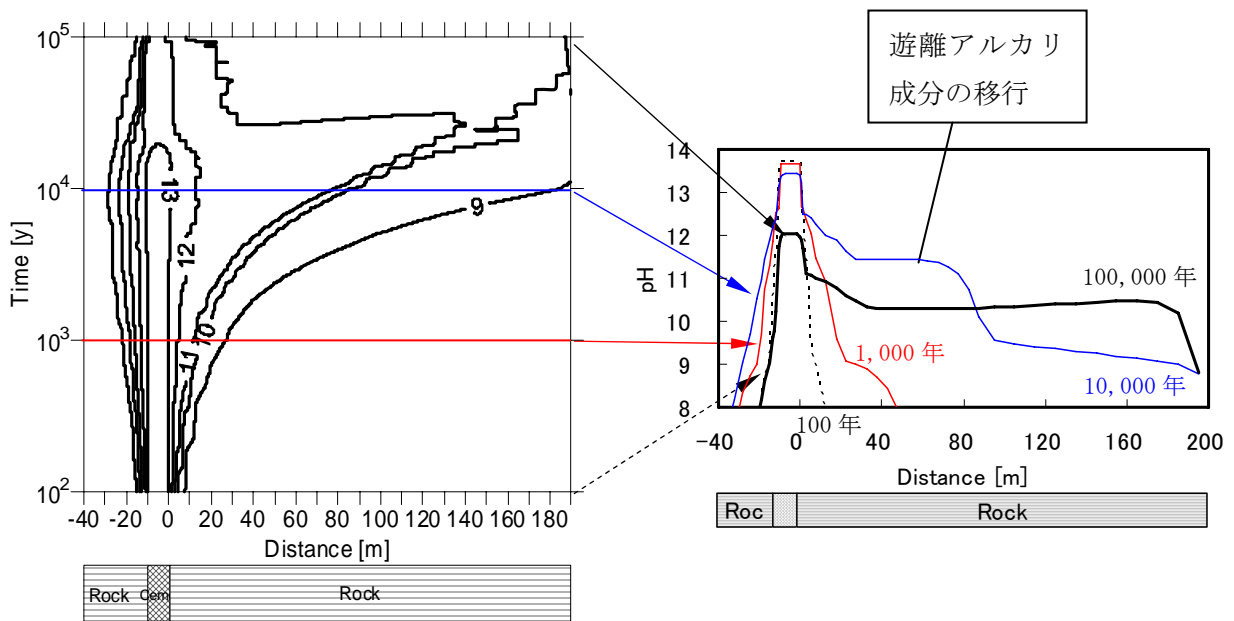
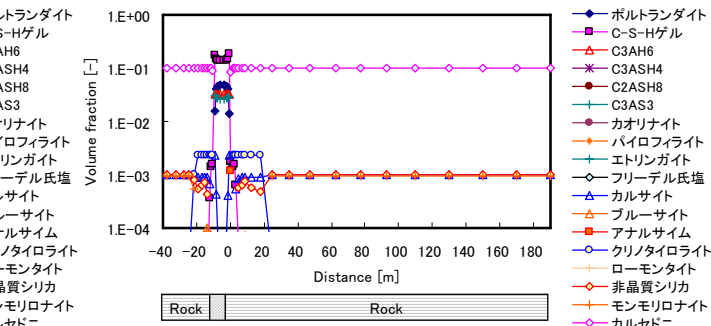
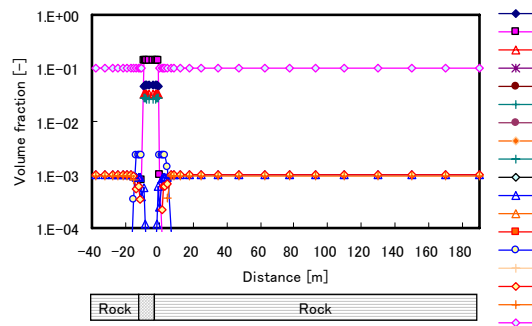
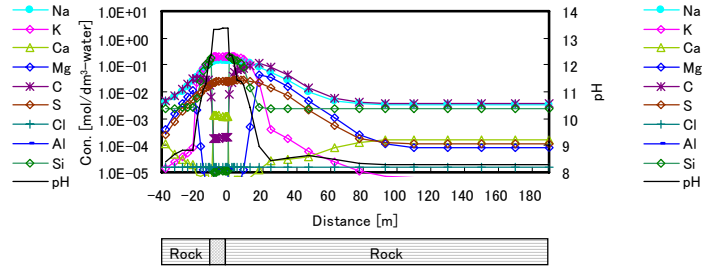
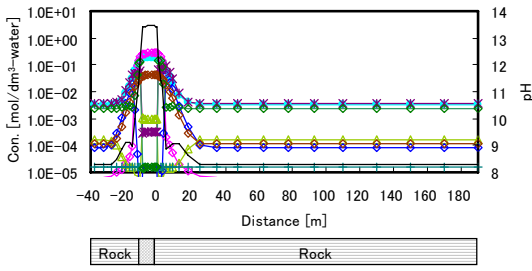


図-7 pHの変遷（海水系地下水，結晶質岩）

Case-1 (降水系地下水) : 100 年

: 1,000 年



: 10,000 年

: 100,000 年

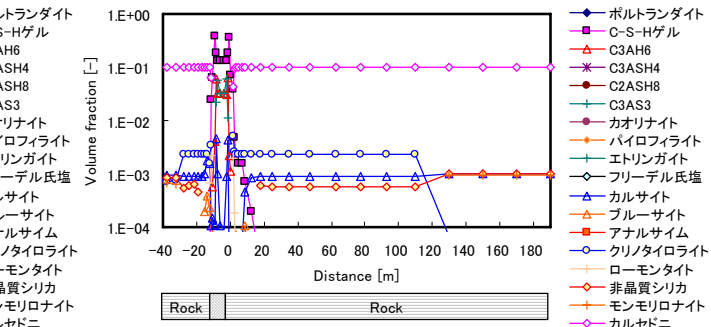
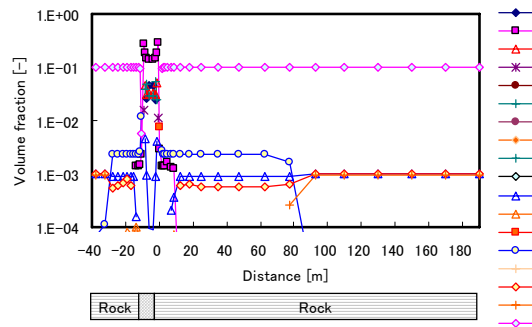
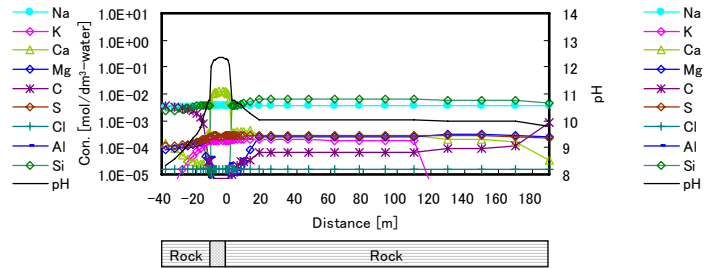
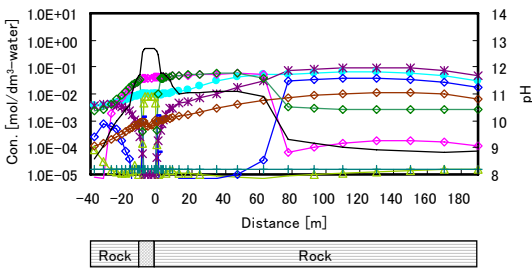
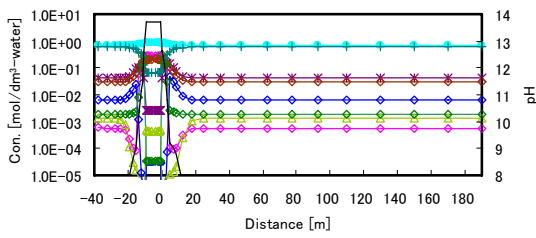
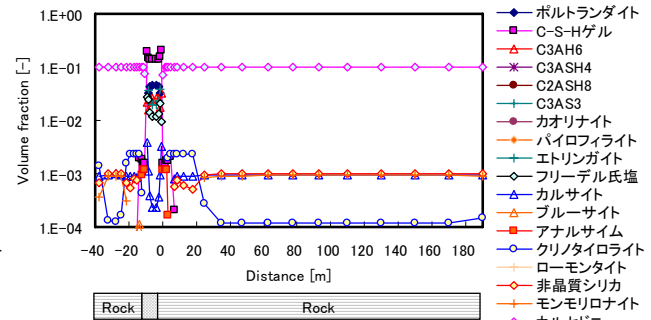
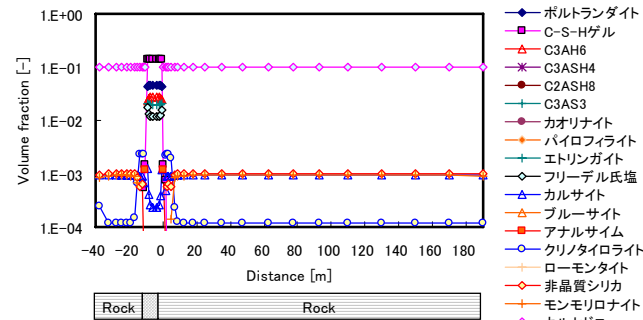
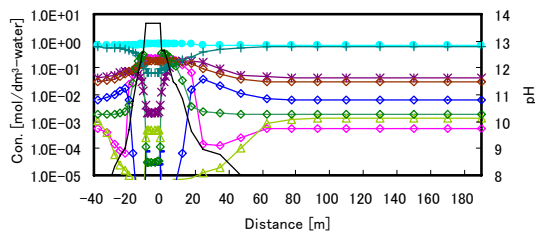


図-8 Case-1 (降水系地下水, 結晶質岩) 液相, 鉱物相の濃度分布

Case-2 (海水系地下水) : 100 年



: 1,000 年



: 10,000 年

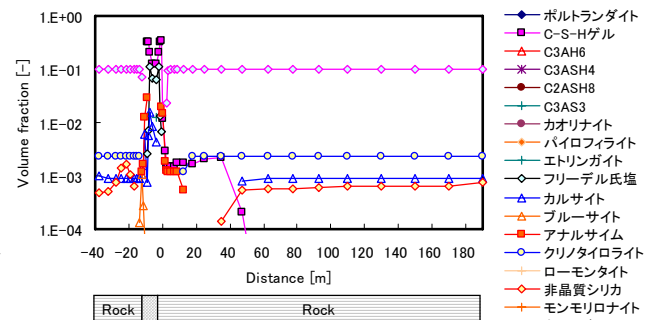
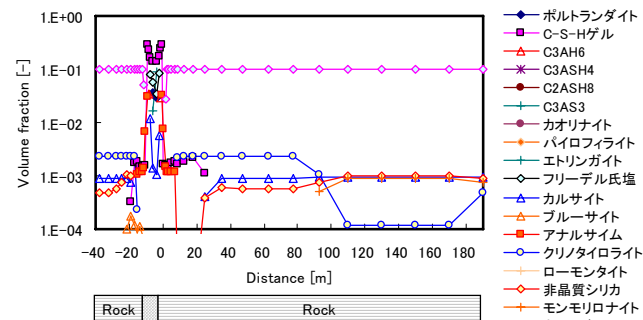
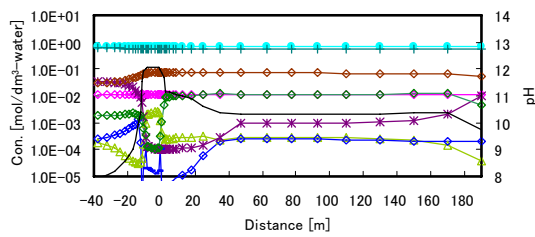
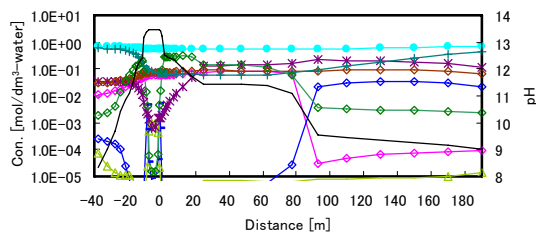
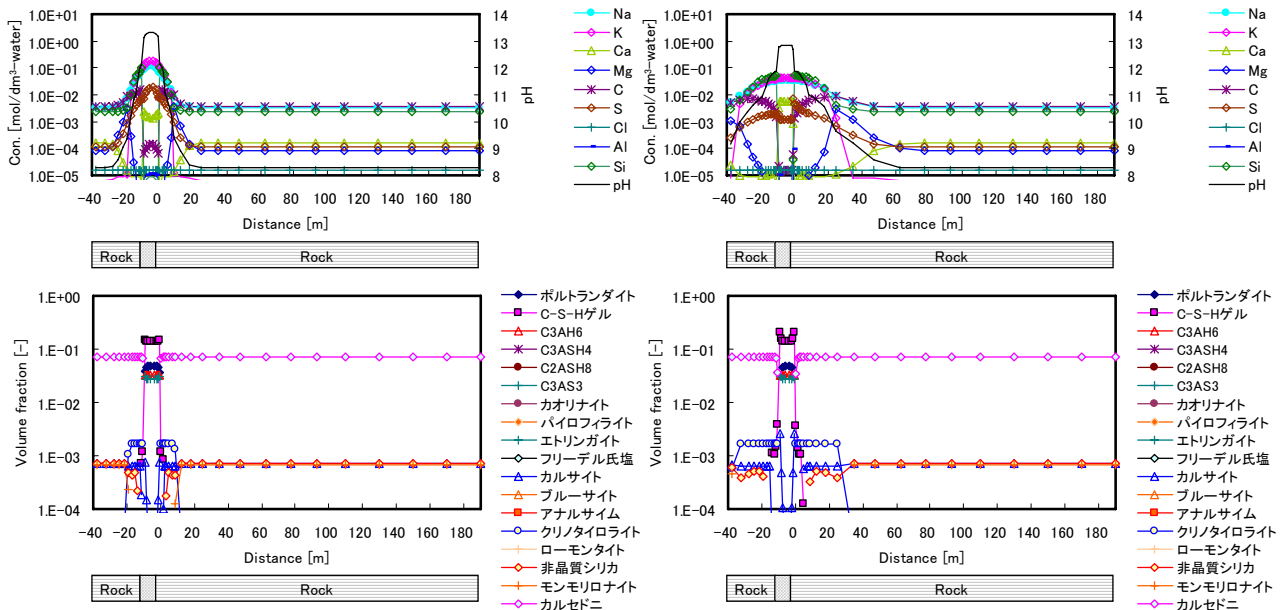


図-9 Case-2 (海水系地下水, 結晶質岩) 液相, 鉱物相の濃度分布

Case-3 (降水系地下水) : 100 年

: 1,000 年



: 10,000 年

: 100,000 年

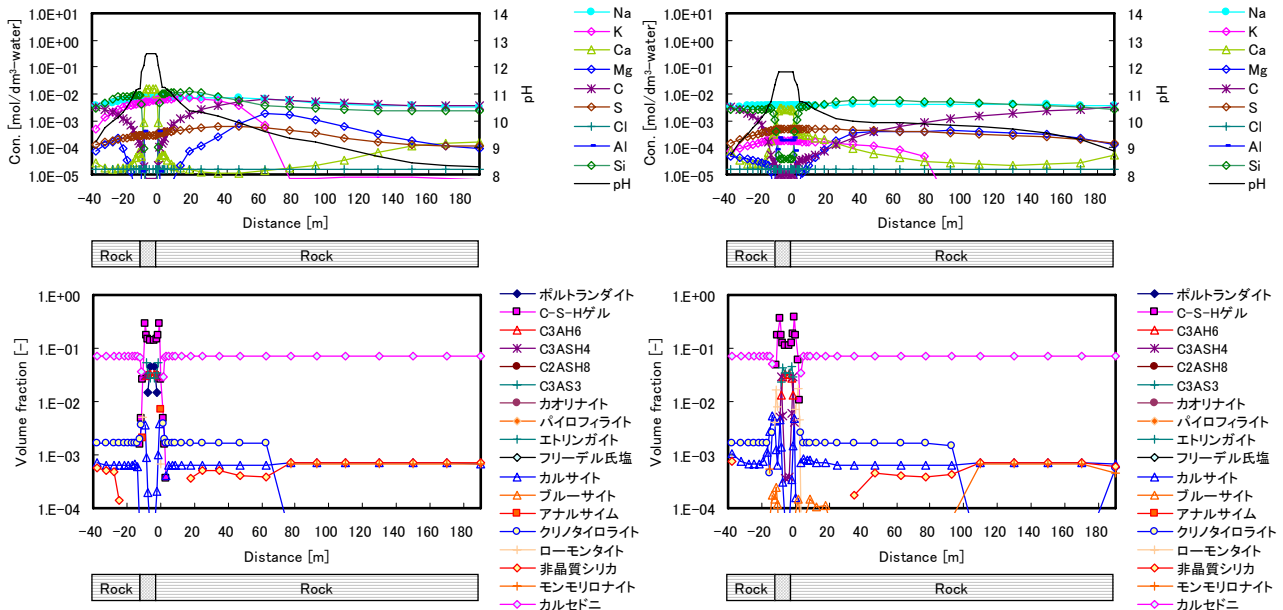
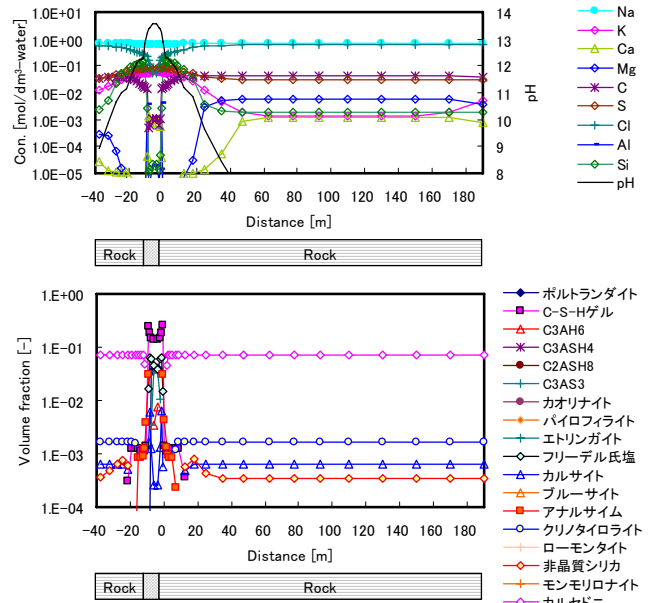
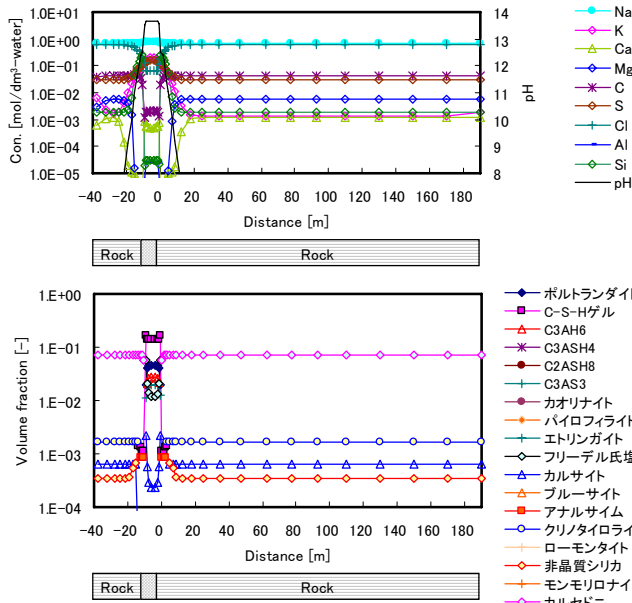


図-10 Case-3 (降水系地下水, 堆積岩) 液相, 鉱物相の濃度分布

Case-4 (海水系地下水) : 100 年

: 1,000 年



: 10,000 年

: 100,000 年

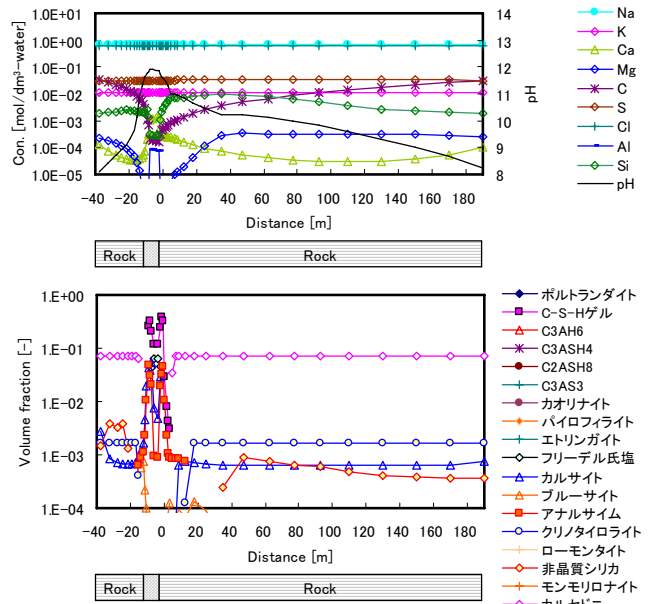
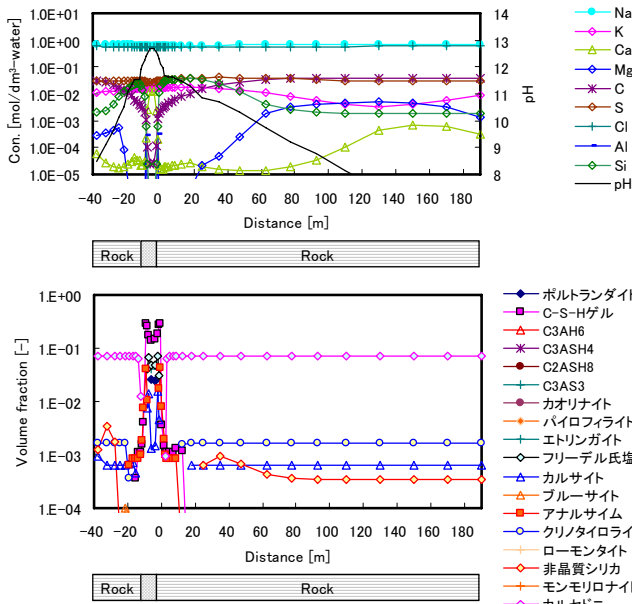
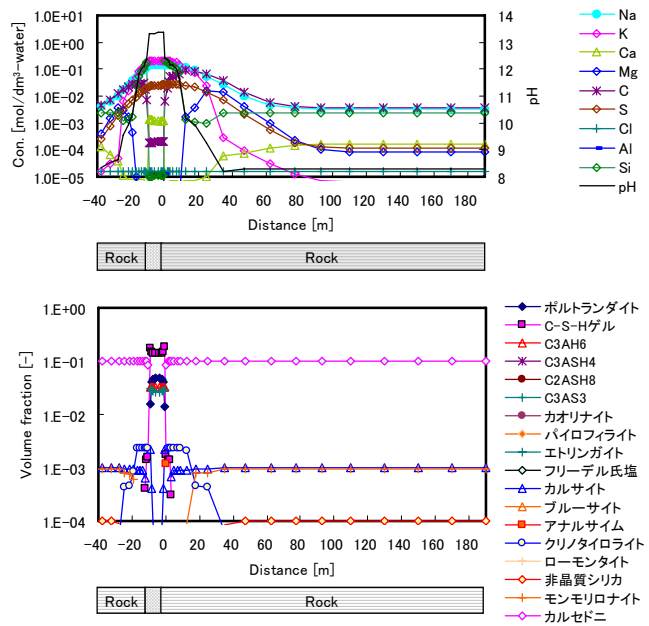
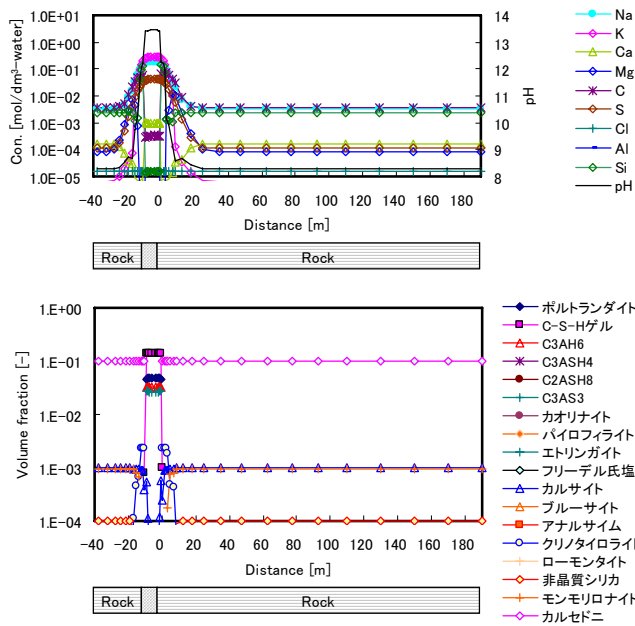


図-11 Case-4 (海水系地下水, 堆積岩) 液相, 鉱物相の濃度分布

Case-5 (非晶質シリカ 0.01wt%) : 100年

: 1,000年



: 10,000年

: 100,000年

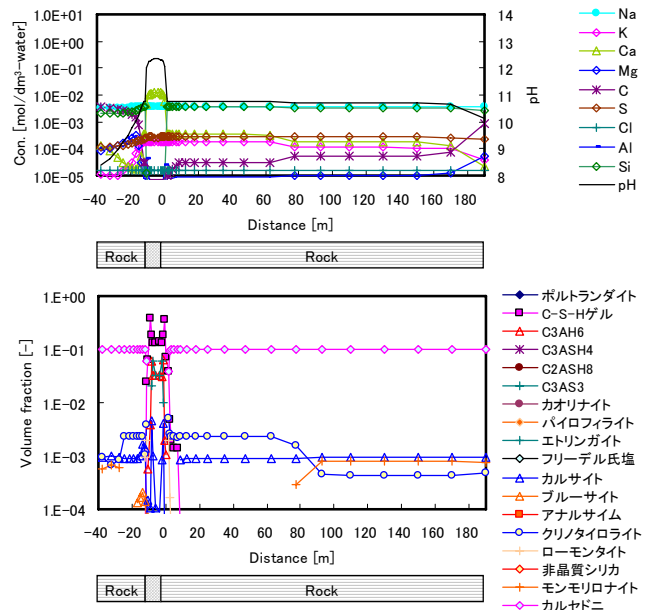
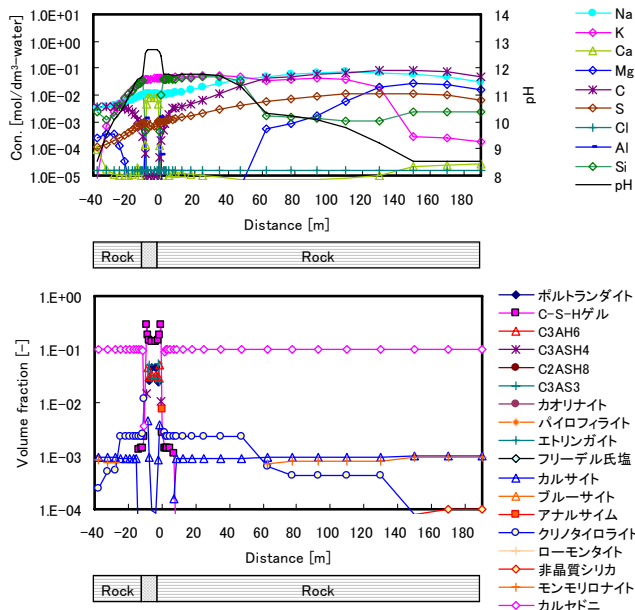
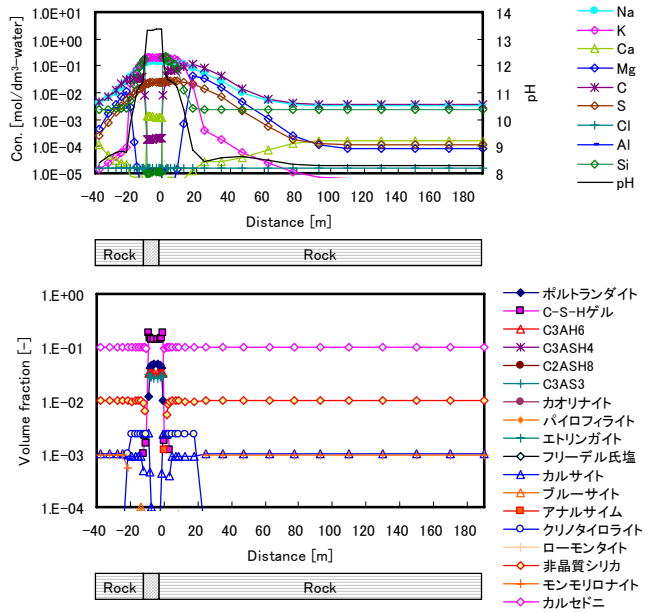
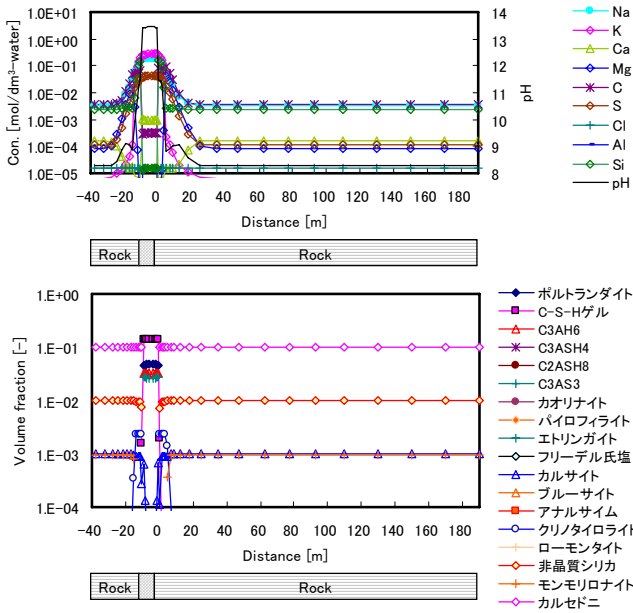


図-12 Case-5 (降水系地下水, 結晶質岩, 非晶質シリカ 0.01wt%)
液相, 鉱物相の濃度分布

Case-6 (非晶質シリカ 1wt%) : 100 年

: 1,000 年



: 10,000 年

: 100,000 年

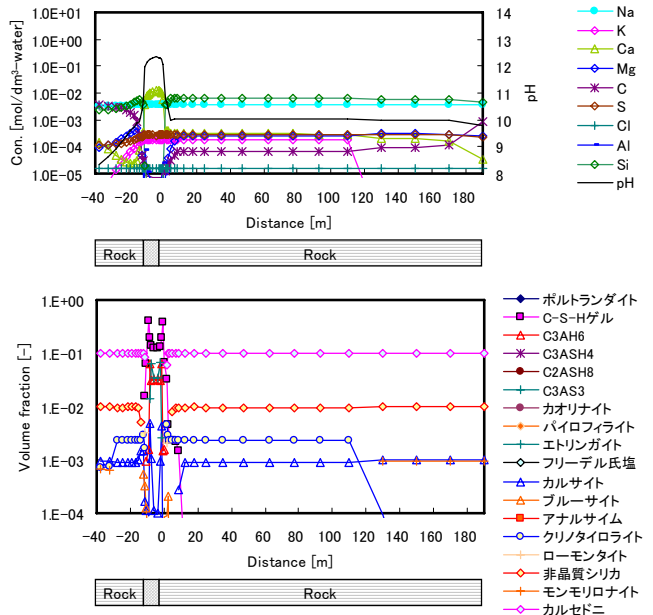
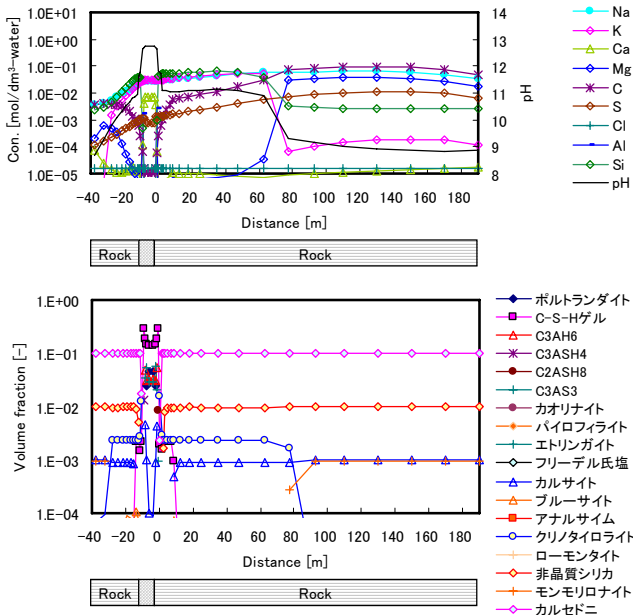
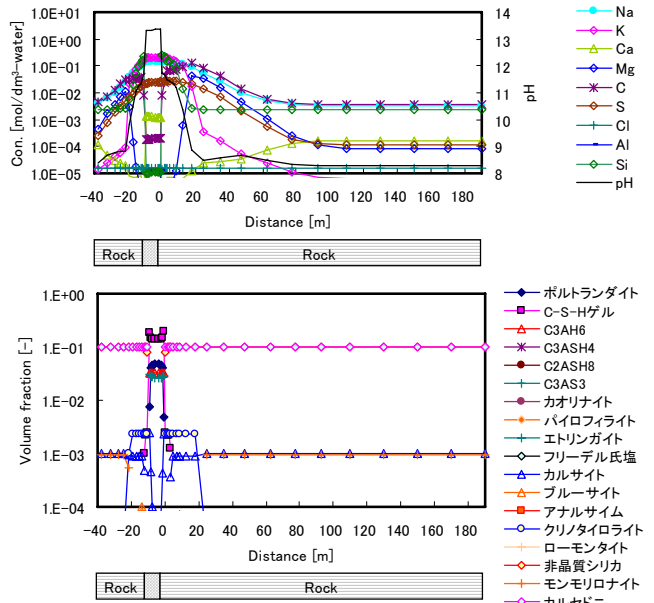
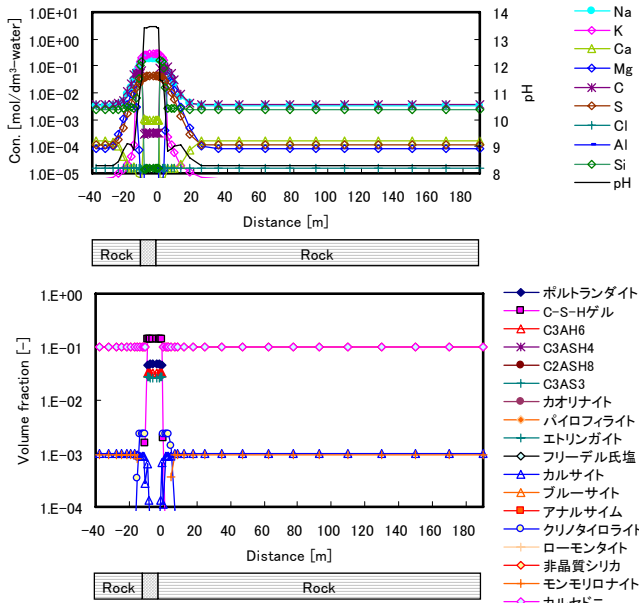


図-13 Case-6 (降水系地下水, 結晶質岩, 非晶質シリカ 1wt%)

液相, 鉱物相の濃度分布

Case-7 (非晶質シリカ 10wt%) : 100 年

: 1,000 年



: 10,000 年

: 100,000 年

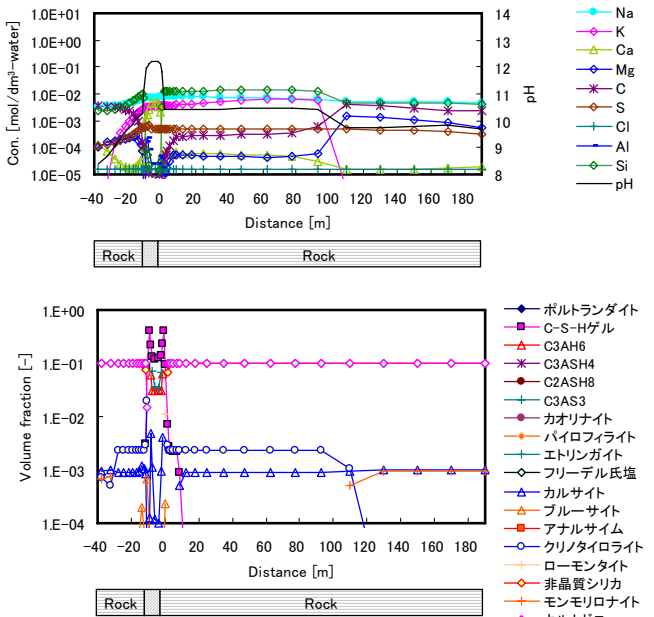
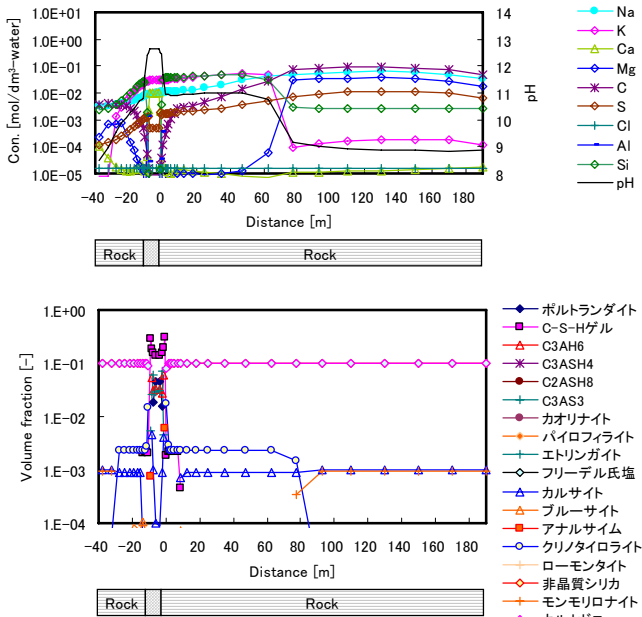
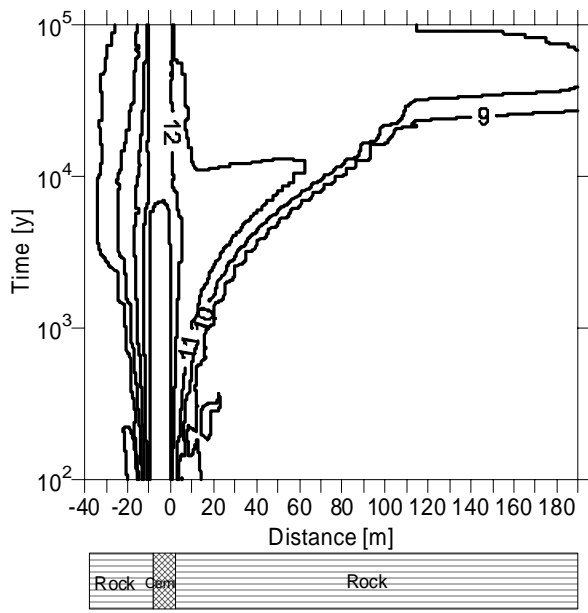
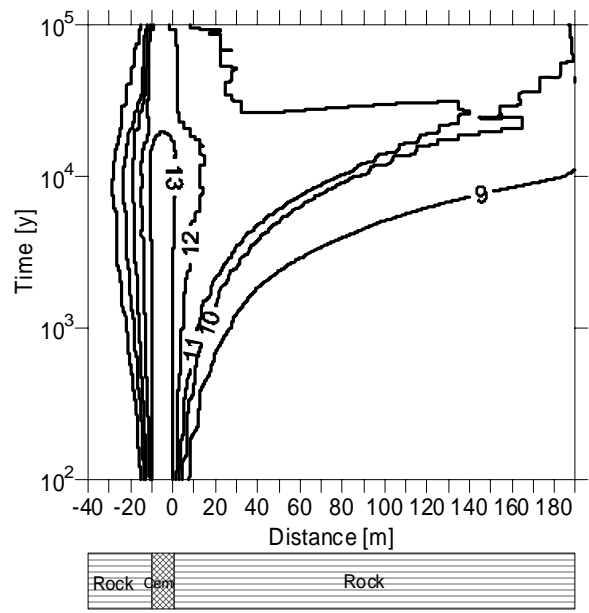


図-14 Case-7 (降水系地下水, 結晶質岩, 非晶質シリカ 10wt%)

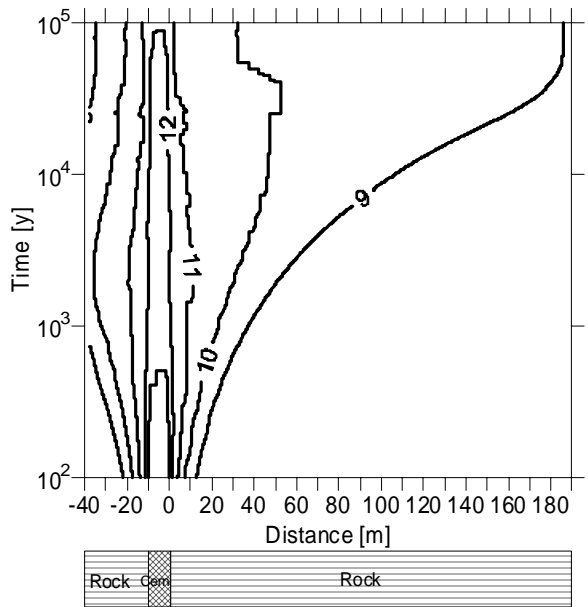
液相, 鉱物相の濃度分布



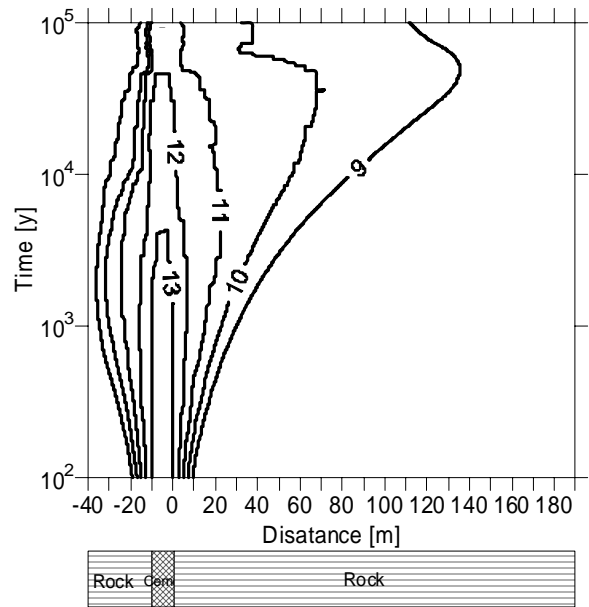
(Case-1 : 降水系地下水, 結晶質岩)



(Case-2 : 海水系地下水, 結晶質岩)

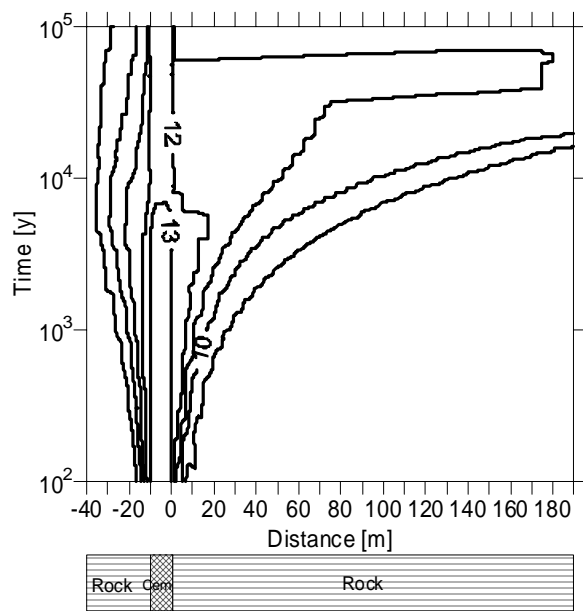


(Case-3 : 降水系地下水, 堆積岩)

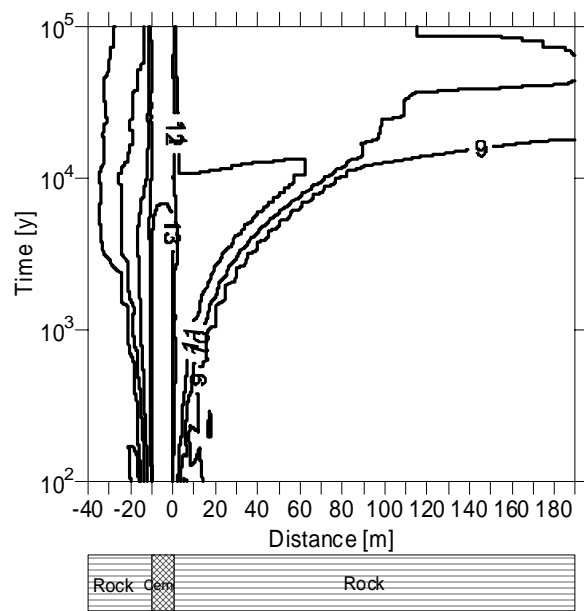


(Case-4 : 海水系地下水, 堆積岩)

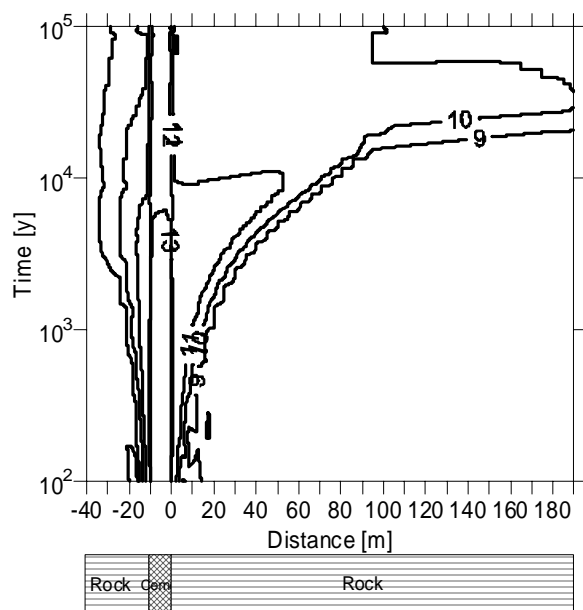
図-15 高 pH プルूमの時間的・空間的変遷 (Case-1~Case-4)



(Case-5 : 非晶質シリカ 0.01wt%)



(Case-6 : 非晶質シリカ 1.0wt%)



(Case-7 : 非晶質シリカ 10wt%)

図-16 高 pH プルーフの時間的・空間的変遷 (Case-5~Case-7)

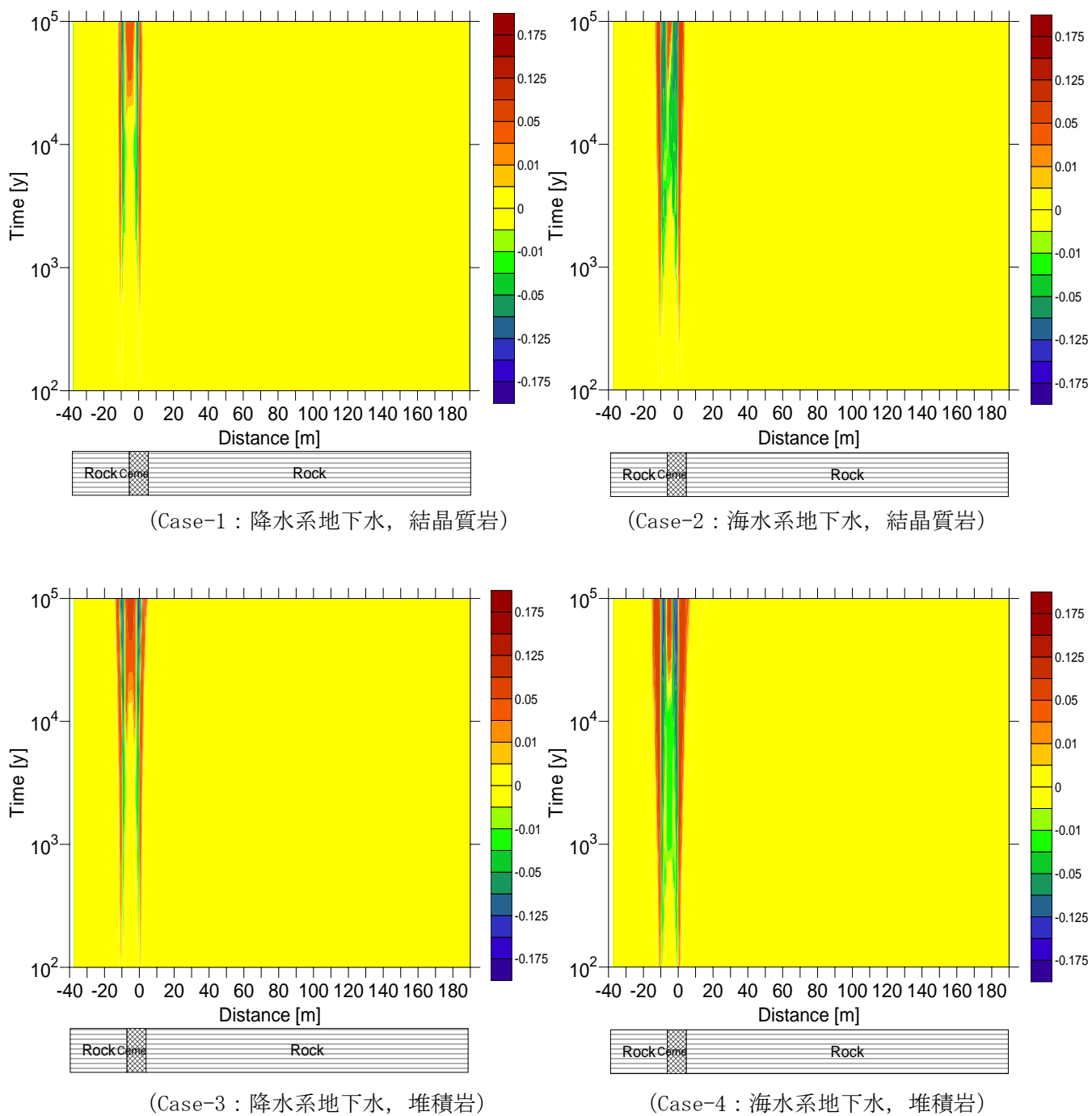


図-17 間隙率変化幅の時間的・空間的変遷 (Case-1~Case-4)

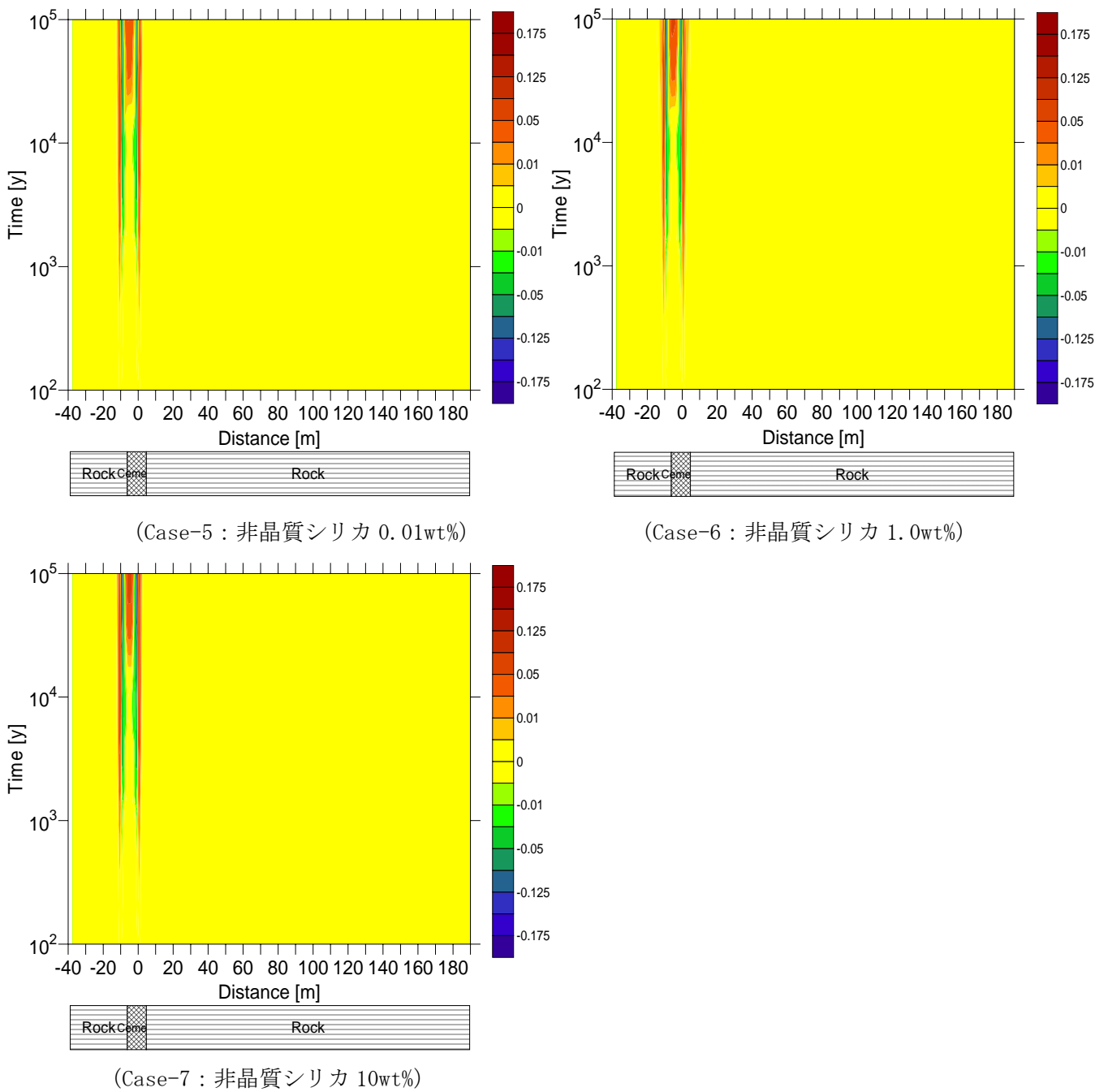


図-18 間隙率変化幅の時間的・空間的変遷 (Case-5~Case-7)

参考文献

- 荒井康夫 (1998), セメントの材料科学 (改定第二版), pp. 247, 第日本図書.
- 核燃料サイクル開発機構 (1999): 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
—地層処分研究開発第2次とりまとめ—総論レポート, JNC-TN1400-99-020.
- Savage, D., Hughes, C., Milodowski, A.E., Bateman, K., Pearce, J.M., Rae, E. and Rochelle, C.A. (1998a): The evolution of chemical mass transfer in the disturbed zone of a deep geological disposal facility for radioactive wastes. I; Reaction of silicates with calcium hydroxide fluids, Safety Studies Nirex Radioactive Waste Disposal, NSS/R244.
- Savage, D., Bateman, K., Hill, P., Milodowski, A., Pearce, J., Rae, E. and Rochelle, C.A. (1998b): The evolution of chemical mass transfer in the disturbed zone of a deep geological disposal facility for radioactive wastes. II; Reaction of silicates with Na-K-Ca hydroxide fluids, Safety Studies Nirex Radioactive Waste Disposal, NSS/R283.

4-7 亀裂ネットワークモデル (FracMan) と均質多孔質媒体モデル の解析結果の比較 (4.4.4.2 及び 4.4.4.3)

1. はじめに

第2次 TRU レポート 4.4.4 では、核種移行解析に適用するための人工バリア内部の地下水流動条件について検討を行っている。ここでは、4.4.4 において用いられた地下水流動条件の解析手法について、その妥当性を述べるものとする。

ニアフィールドの水理環境及び地下水の流動環境は、核種の移動はもとより、地下水化学環境の変遷や人工バリア変質に対して重要な条件のひとつである。レファレンスケースにおける母岩の水理性状は、亀裂を有する母岩が想定されていることから、ニアフィールドにおける水理条件においても亀裂ネットワークでの地下水流動条件が反映される必要がある。また、TRU 廃棄物地層処分においては、廃棄体グループごとに処分概念が想定されていることや、代替ケースや不確実性解析において、それぞれ水理条件を特定する必要がある。しかしながら、亀裂ネットワークを用いた水理解析は、解析のための条件設定や解析そのものが複雑であることから、亀裂ネットワークモデルを用いた解析結果をより簡易な多孔質媒体モデルによる解析によって近似する手法を取り入れ、複数の解析条件に対応する掘削影響領域での地下水流量を把握することとした。

また、地下水流動条件のバリエーションのひとつとして、施設的设计で想定されている地下水流向と坑道が直交する条件が満たされない場合の、地下水流向と坑道の配置が掘削影響領域流量に及ぼす影響を把握するために、3次元流動解析を実施し、レファレンスの条件での解析結果と比較を行った。

2. 掘削影響領域流量の設定方法の検討

(1) 亀裂ネットワークモデル FracMan と均質多孔質媒体モデルの解析結果の比較

処分場を通過する地下水の流量の推定を行うためには、処分場を構成する複数の材料の透水性やジオメトリー、地質環境に依存する水頭分布、流向の把握が重要となる。本検討では、代替ケースや不確実性解析において想定される複数の水理条件において、簡易に地下水流量を評価可能となるように、解析解を用い H12 レポートで実施された亀裂ネットワークモデルでの掘削影響領域の通過流量と解析解で得られた掘削影響領域内の流量との比較を行い、その適用性を検討した。ダルシー則に基づき以下の条件で簡易解析モデル (三木ほか, 2003) を作成した。

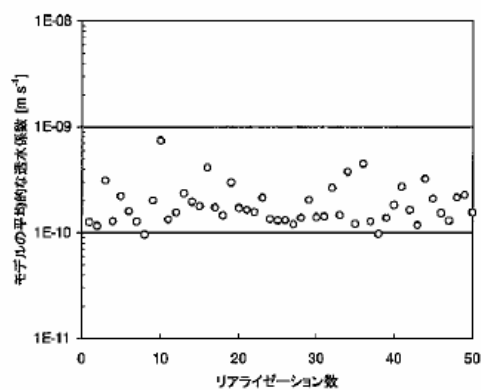
- 円筒型の2次元を想定する。
- 処分坑道長手方向に直交する地下水流向を仮定する。
- 各層は均質多孔質媒体を想定する。
- 透水性の異なる複数層を想定し、各層での地下水流速及び流量の解析が可能となるように整備した。

簡易解析モデルを用い、結晶質岩における亀裂ネットワークモデルでの3次元水理解析 (解析コードは FracMan, Dershowitz et al., 1998 を使用) 結果との比較を実施し、不均質性を伴う岩

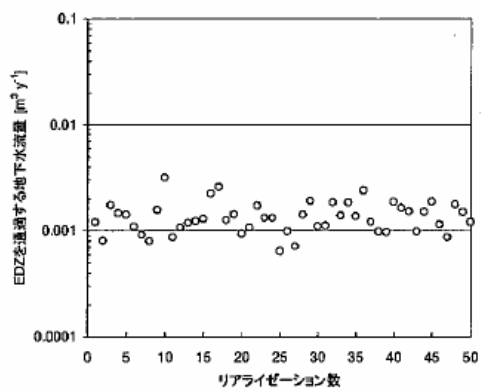
盤にける簡易モデルの適用性について検討を行うものとした。

a. 高レベル放射性廃棄物処分での設計条件における比較

H12 レポートでは、亀裂ネットワークモデルを用い、 $200 \times 200\text{m}$ のスケールで母岩の水理解析を実施している。その結果として、H12 レポートのレファレンスケースで代表される母岩の平均的な透水係数は、統計的に生成された 50 の水理場での解析結果（以下、50 リアライゼーションと表記する）の平均で $2 \times 10^{-10}\text{m/s}$ であり、掘削影響領域の流量は、 $0.001\text{m}^3/\text{y}$ としている（図-1 参照，澤田ほか 1999）。



各モデルの平均的な透水係数の分布



各リアライゼーションにおける EDZ を通過する地下水流量
廃棄体 1 本当たり (3.13m)

図-1 H12 レポートで用いられた掘削影響領域流量解析結果

本検討では、H12 レポートと同様な掘削影響領域のジオメトリーを想定し、多重円筒モデルを用いてこの結果と比較を行った。

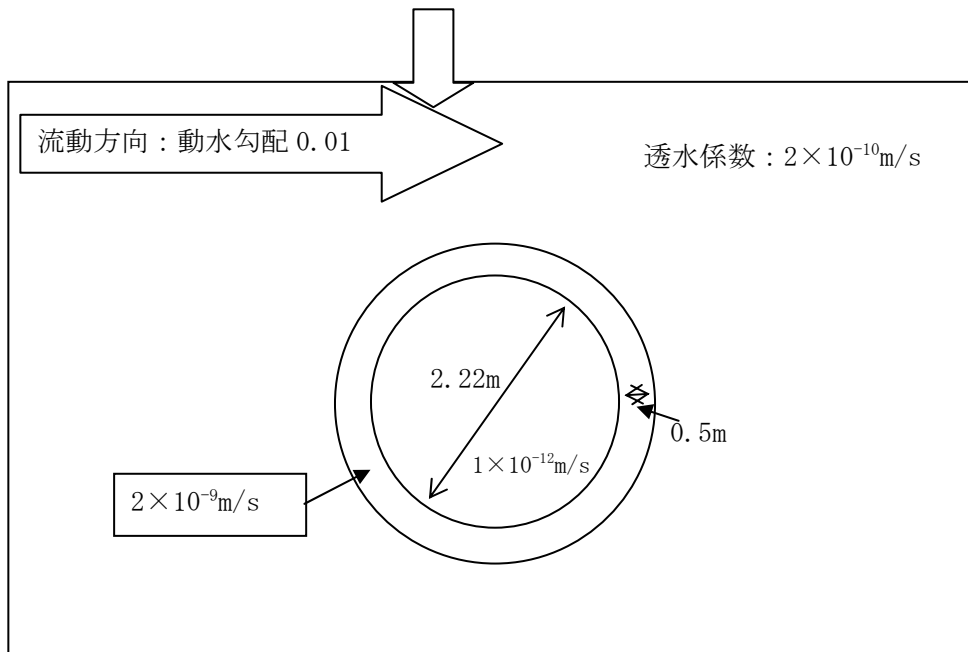
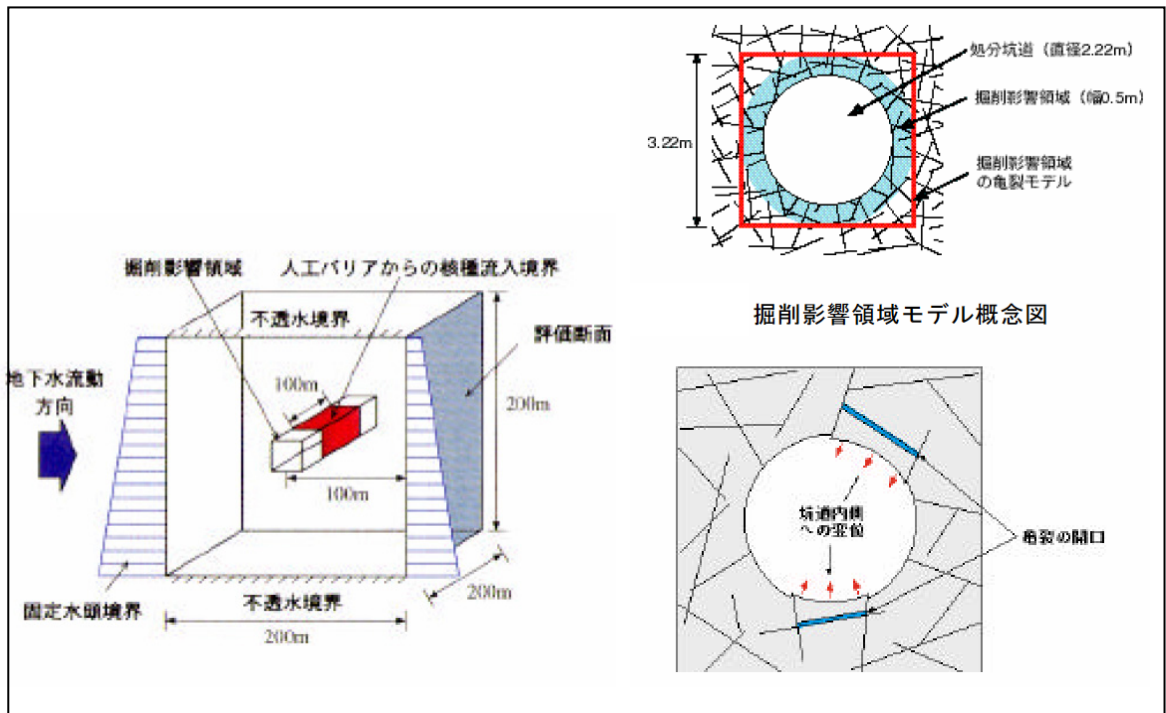


図-2 多重円筒モデルによる水理解析の模式図

図-2 に示した多重円筒モデルでの掘削影響領域の流量は、 $1 \times 10^{-3} \text{m}^3/\text{y}$ であった。この結果は、亀裂ネットワークモデルの結果とほぼ一致する。したがって、流向に直交する坑道配置においては、多重円筒モデルにおいても、おおよその掘削影響領域流量の把握が可能であるものと予想される。

b. TRU 廃棄物処分での設計条件における比較

図-3 に、第 2 次 TRU レポートにおいて想定されている処分概念図（坑道断面）を示す。解析では、3.1 と同様に母岩部分の透水係数を $2 \times 10^{-10} \text{m/s}$ とする。掘削影響領域の厚さは、坑道掘削後の岩盤固定に用いられるロックボルトの長さとした。また、掘削影響領域の透水係数の母岩透水係数に対する倍率は、ロックボルトの施工による透水性の上昇を定量化することが困難であることから、簡易モデルにより掘削影響領域の透水係数の倍率を変化させ解析を行い決定した。図-4 に示される結果から、掘削影響領域の透水係数が 100 倍以上の領域では掘削影響領域内部の流量は約 $2.2 \times 10^{-3} \text{m}^3/\text{y/m}$ と一定となる。

同体系での亀裂ネットワークモデルによる解析結果を図-5 に示す。本解析では、掘削影響領域の透水係数の母岩透水係数に対する倍率を簡易解析結果から 100 倍とした。亀裂ネットワークモデル（FracMan で解析）による 50 リアライゼーションの流量平均値は、 $2.2 \times 10^{-3} \text{m}^3/\text{y/m}$ であり、解析解の結果 $2.1 \times 10^{-3} \text{m}^3/\text{y/m}$ と良く一致する。

c. 結果と考察

高レベル放射性廃棄物の設計条件及び TRU 放射性廃棄物の設計条件において、亀裂ネットワークモデルによって算出される掘削影響領域の流量と、簡易解析モデルによる流量計算値との比較を実施し、以下の結論を得ることができた。

- ・ H12 レポートでのパラメータを使用した亀裂ネットワークモデルによる掘削影響領域流量の評価結果と簡易解析モデルによる流量評価結果は、概ね一致した。
- ・ 掘削影響領域の流量は、不均質岩盤を対象とする場合（亀裂ネットワーク）であっても、対象とする岩盤の透水量から求められたな透水係数を用いることにより、均質多孔質媒体を仮定した簡易評価手法により評価可能であると考えられる。

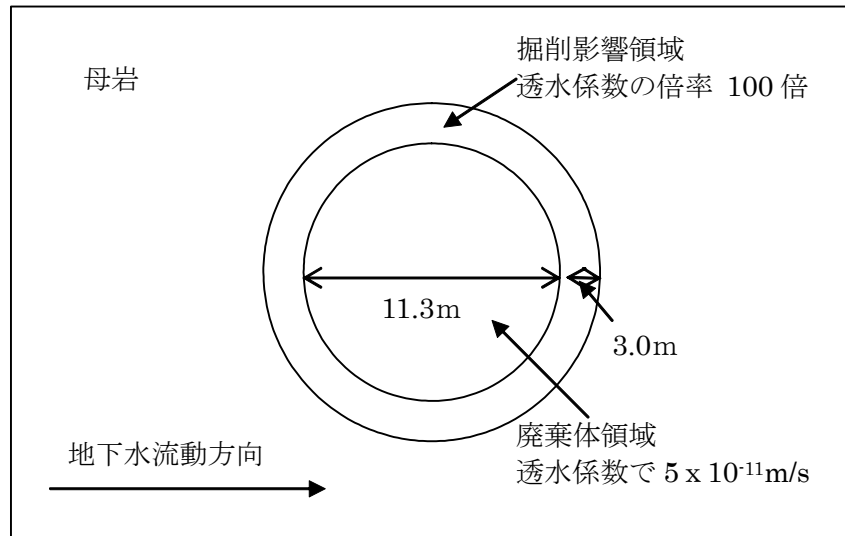
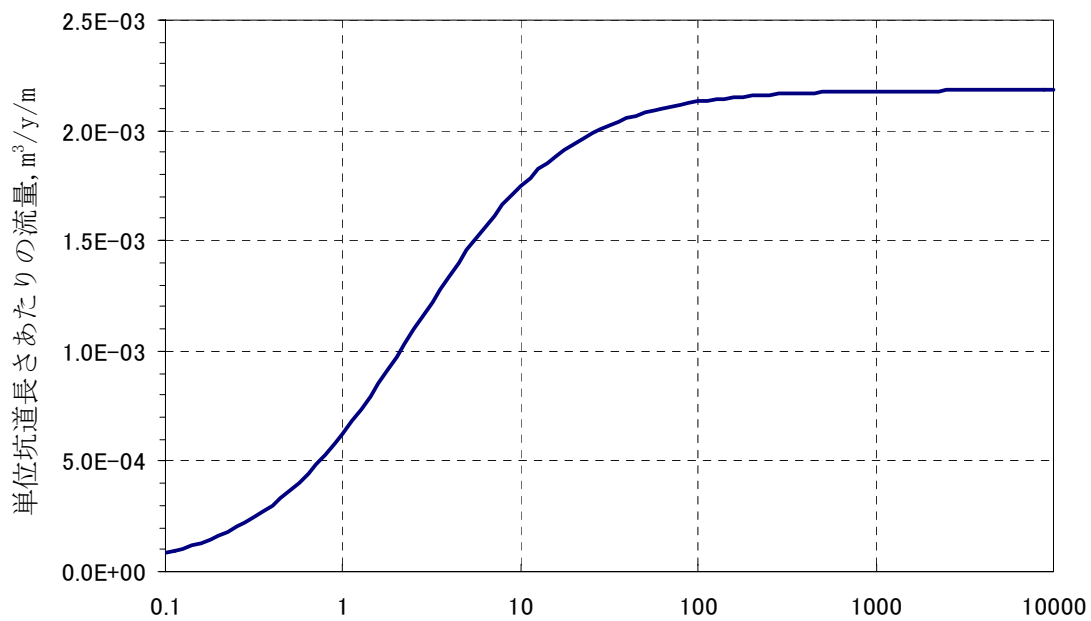


図-3 第2次 TRU レポートに用いられる坑道設計条件



掘削影響領域の透水係数の母岩透水係数に対する倍率, —

図-4 掘削影響領域流量の透水係数倍率に対する感度

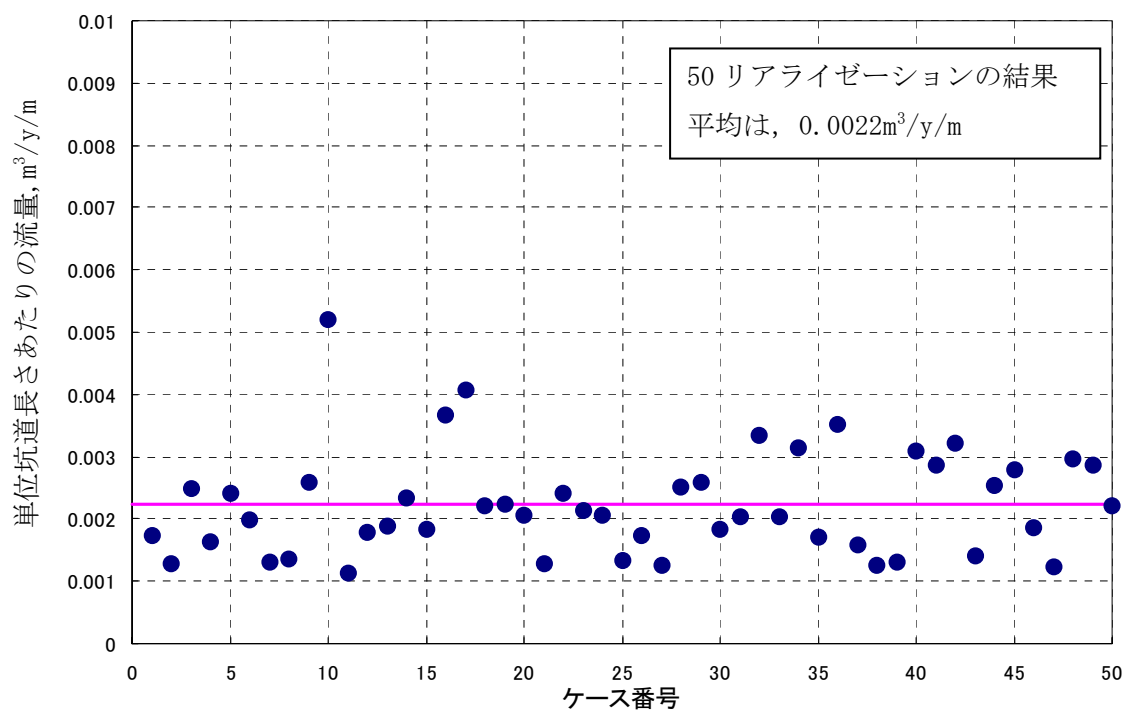


図-5 亀裂ネットワークモデルによる解析結果

(2) 坑道と流向が平行する場合の掘削影響領域の地下水流量の算定

TRU 廃棄物の処分概念では、処分坑道は、地下水流向に対して直交する方向に配置されるものと想定されている。しかしながら、地質環境の不均質性が流向に及ぼす影響や、処分場の設計における不確実性を仮想的に考え、地下水流向が坑道に平行するケースについて解析を実施した。

a. 多孔質媒体 3次元流動モデルによる解析

図-6に示す解析形状を想定し、汎用流動解析コードMODFLOW (Zheng et al., 2001)を用いて、以下のケースについて解析を実施した。解析は、坑道長さ、坑道端の緩み域の存在、掘削影響領域の透水係数の母岩透水係数に対する倍率、掘削影響領域の厚さ、廃棄体内部の透水量係数についてバリエーションを与えた。表-1に解析ケース設定をまとめる。

表-1 3次元流動解析ケース設定

ケース番号	内容
Case01	坑道長軸長さ：100m 廃棄体領域直径：12m（低透水性を想定：透水係数= 1×10^{-13} m/s） 掘削影響領域厚さ：3m（透水係数：母岩透水係数の100倍） 坑道端掘削影響領域厚さ：5m 母岩透水係数： 2×10^{-10} m/s，動水勾配：0.01
Case02	掘削影響領域の透水係数を母岩の10倍（ 2×10^{-9} m/s）とする
Case03	掘削影響領域の透水係数を母岩の1000倍（ 2×10^{-7} m/s）とする
Case04	坑道長軸長さ：50m
Case05	坑道端掘削影響領域厚さ：0m
Case06	坑道長軸長さ：50m 坑道端掘削影響領域厚さ：0m
Case07	掘削影響領域厚さ2m
Case08	掘削影響領域厚さ4m
Case09	廃棄体領域の透水係数：掘削影響領域と同じ

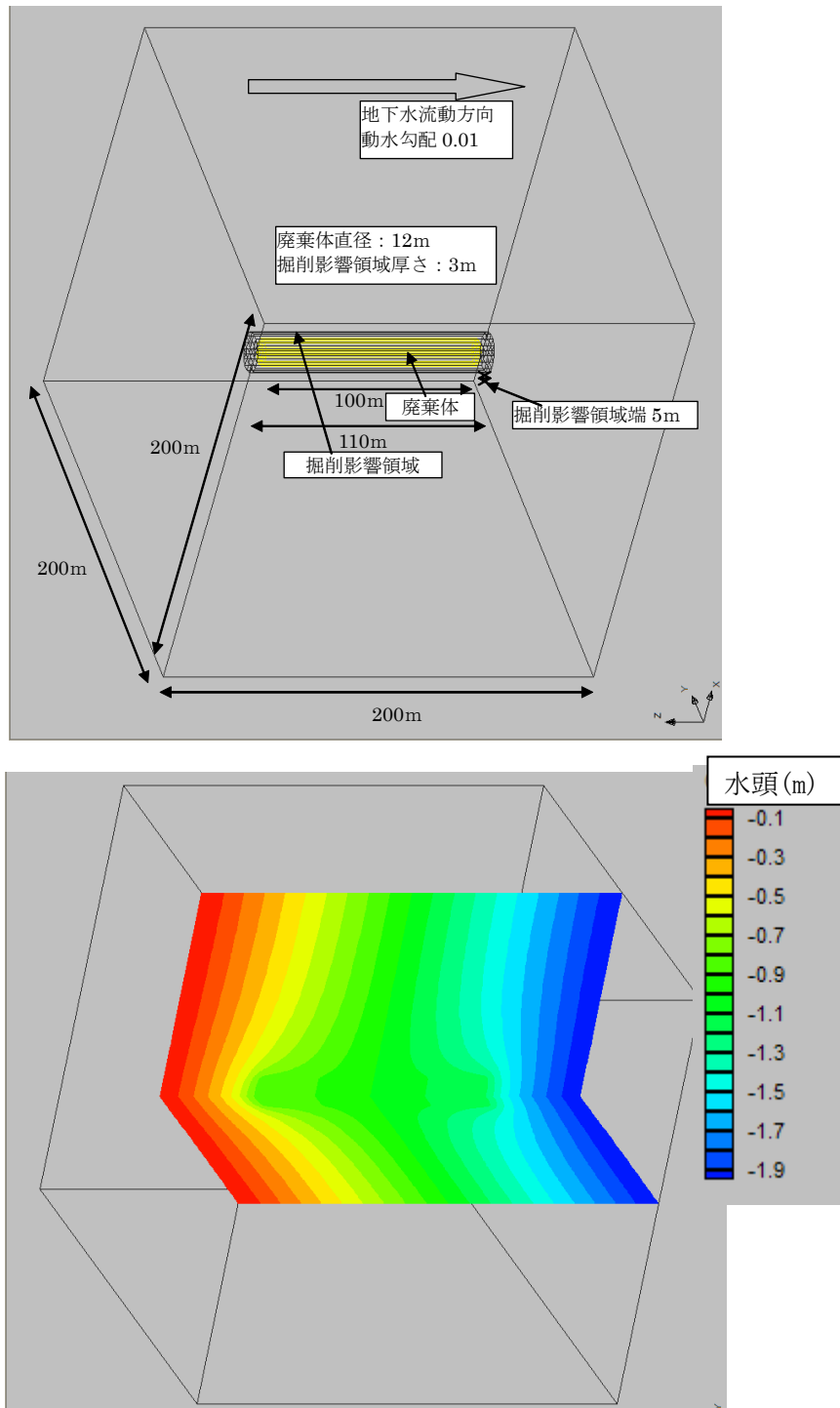
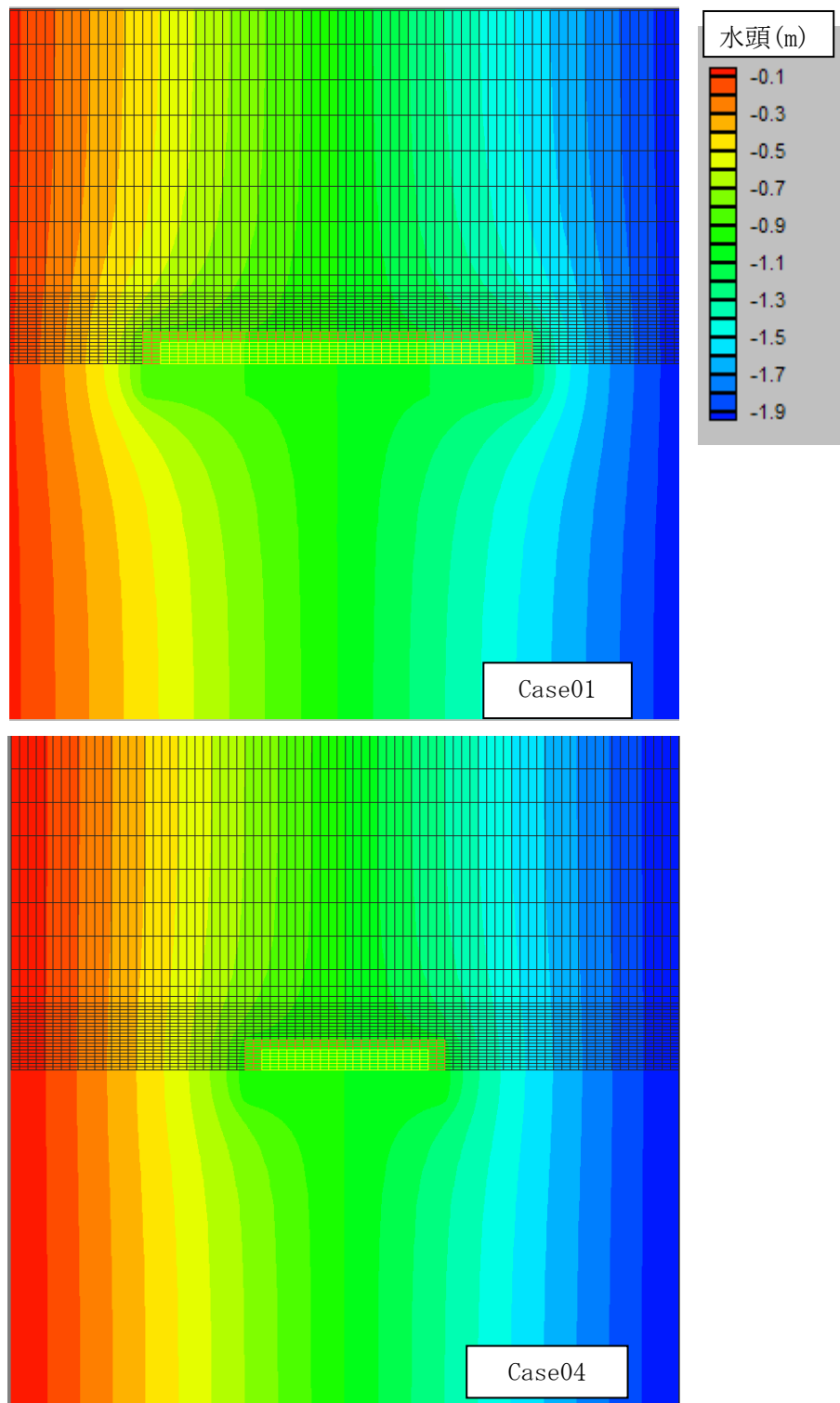


図-6 3次元水理解析形状及び Case01 圧力分布解析結果



(図は坑道中央部の断面)

図-7 水頭分布解析例, Case01 及び Case04

標準ケース (Case01) 設定値

坑道長軸長さ：100m

廃棄体領域直径：12m (低透水性 透水係数= 1×10^{-13} m/s)

掘削影響領域厚さ：3m (透水係数 母岩透水係数の 100 倍)

坑道端掘削影響領域厚さ：5m

母岩平均透水係数： 2×10^{-10} m/s, 動水勾配：0.01

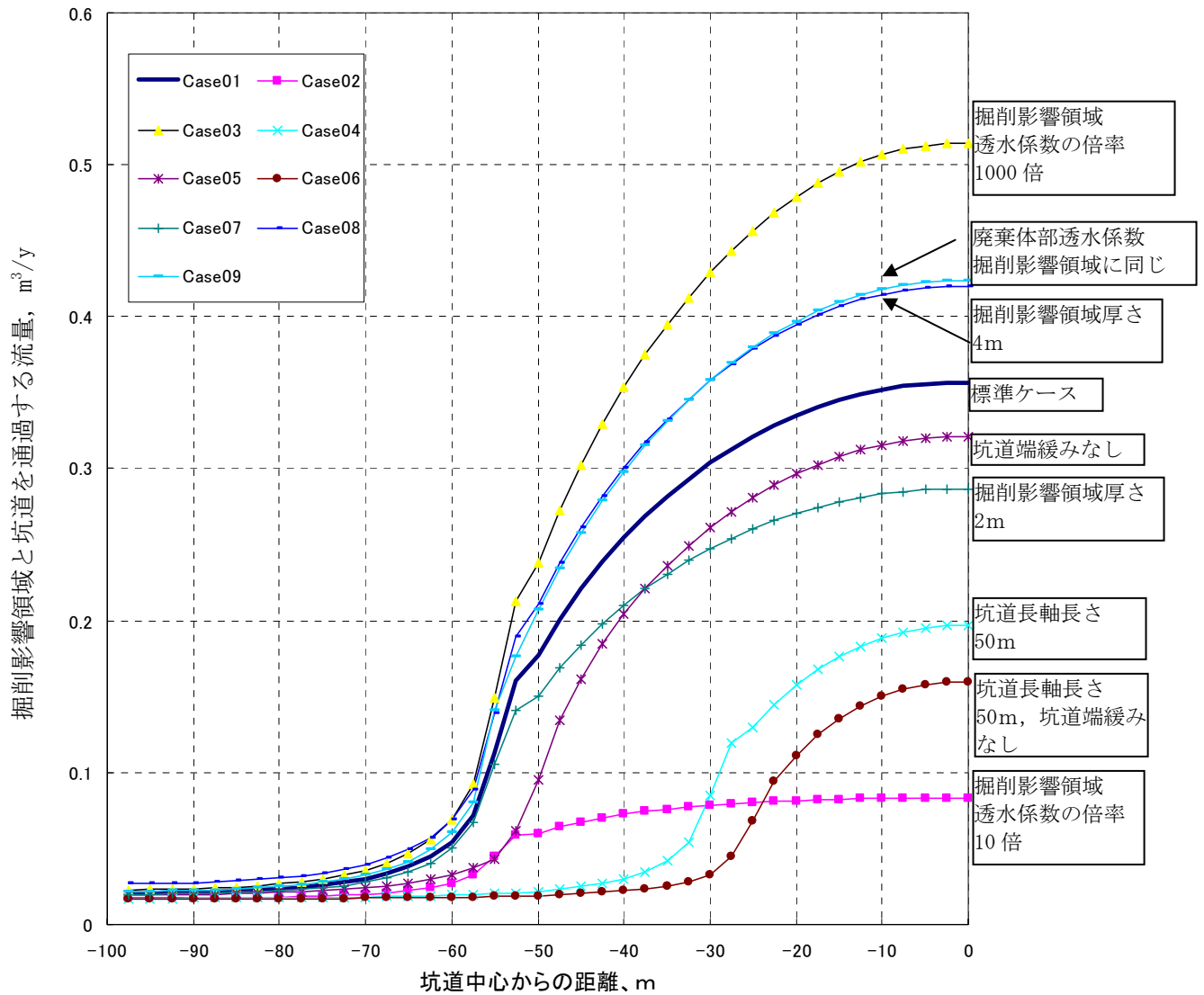


図-8 各ケースでの掘削影響領域内部流量解析結果

b. 解析結果

流向が坑道に直交する場合の掘削影響領域の流量は、約 $0.002\text{m}^3/\text{y}/\text{m}$ であるのに対して、流向が坑道に平行な場合には、数 100 倍程度の流速の増加（流速で比較した場合）が想定される。坑道の位置により大きく異なるものの、掘削影響領域の流量の増加は顕著であり、核種の人工バリアからの移行率に影響を及ぼすものと予想される。核種移行率への影響が最大となる条件である「人工バリア外側での境界条件をゼロ濃度境界」を上回ることではなく、核種移行解析では、ゼロ濃度境界条件に漸近する程度まで掘削影響領域を増加させるケースを追加し、流向に対する不確実性の上限とすることが望ましいものと考えられる。

3. 結論

- 掘削影響領域の流量の把握を目的とする場合には、均質多孔質媒体による近似が可能であった。そのため、レファレンスケース及び代替ケースや不確実性ケースにおける掘削影響領域流量の設定は、近似的に算出された値を用いるものとする。
- 掘削影響領域内の透水係数が母岩の等価透水係数に対して 100 倍以上となると、掘削影響領域の流量の増加がほぼ飽和することから、安全側の設定として、掘削影響領域の透水係数は、母岩の等価透水係数の 100 倍とする。
- 掘削影響領域流量の不確実性の核種移行率への影響を把握するため、仮想的にゼロ濃度境界に漸近する条件までを想定し核種移行解析を実施することが望ましいと考える。

参考文献

Dershowitz, W., Lee, G., Geier, J., Foxford, T., LaPointe, P. and Thomas, A. (1998) :FracMan interactive discrete feature data analysis, geometric modeling, and explorationsimulation, User documentation, Version 2.6, Golder Associates Inc., Seattle WA.

三木 崇史, 小山田 潔, 池田 孝夫 (2003) : 包括的性能評価ツールの体系化・高度化, 核燃料サイクル開発機構 業務委託報告書, JNC TJ 8400 2003-053.

澤田淳, 井尻裕二, 坂本和彦, 亘真吾 (1999) : 亀裂性岩盤を対象とした天然バリア中の核種移行解析(研究報告), JNC TN8400 99-093.

Zheng, C., Hill, M., Hsieh, P., (2001) : MODFLOW-2000, THE U. S. GEOLOGICAL SURVEY MODULAR GROUND-WATER MODEL-USER GUIDE TO THE LMT6 PACKAGE, THE LINKAGE WITH MT3DMS FOR MULTI-SPECIES MASS TRANSPORT MODELING, U. S. GEOLOGICAL SURVEY Open File Report 01-82.

4-8 廃棄体グループ2施設の間隙水中におけるISA濃度の評価(4.4.6.2(1))

1. はじめに

TRU 廃棄物には再処理プロセスから発生するハル・エンドピースが含まれる。サイクル機構の東海再処理工場では、このハル・エンドピース廃棄物にウエス等の有機系の廃棄物が混入していることが知られている(倉形ほか, 1996)。この有機系廃棄物は、分別処理され除去される計画であるが、完全な除去を保証することは困難である。そこで分別過程における除去率を評価し、それに基づき有機物の残存量を見積もっている(倉形ほか, 1996)。

有機物は、セメント系材料によってもたらされるアルカリ性の環境において一部が分解し、有機分子を液相に放出する。これらの可溶性有機系分解生成物は、潜在的に放射性核種と錯体を形成する可能性があり、錯体形成により放射性核種の化学形態、溶解度及び収着挙動に影響を及ぼす可能性がある。

そこで、第2次 TRU レポート 4.4.6.2(1)において、処分時におけるハル・エンドピース廃棄物への混入有機物の影響について、混入量の見積もりに基づいて、含まれる有機物の全量がセルロースであって、その全てが核種との相互作用が大きいイソサッカリン酸(ISA)に変換されるという保守的な仮定に基づき放射性物質の溶解度及び収着に及ぼす影響を評価した。本書では、その詳細について示す。

2. 現状の知見の整理

2.1 ハル・エンドピース廃棄物に含まれる有機物

ハル・エンドピース廃棄物に含まれる有機物の含有率は、分別により 0.1wt%以下にできると考えられており(倉形ほか, 1996)、分別後に残存する有機物全体の約 40%がウエスと見積もられている。ウエスの原料が主に木綿であると考え、残存有機物のかなりの割合がセルロースである可能性がある。

2.2 セルロースの分解

セルロースは、植物細胞壁の主成分をなす多糖であって、植物繊維起源の有機物(木綿、紙、木材等)に一般的に含まれる。このセルロースはアルカリ性の環境において主に peeling off 反応(セルロース繊維の還元性末端からグルコースモノマーが引き剥がされる反応)とグリコシド結合の塩基触媒作用による切断の二つの過程により分解されるが、室温程度では peeling off 反応が主たる分解プロセスであり、その結果としてイソサッカリン酸 ($\text{CH}_2\text{OHCHOHCH}_2\text{COHCH}_2\text{OHC}\text{OOH}$; 以下 ISA という) が生じる(Van Loon and Glaus, 1997)。この ISA は他の有機系廃棄物の分解生成物と比較して、核種の化学形態や収着に対してはるかに大きな影響を及ぼすとされる(Bradbury and Sarott, 1994)。

Van Loon and Glaus (1997) は分解反応速度パラメータを処分施設相当の条件に外挿し、処分施設に持ち込まれたセルロースの 10%が peeling off 反応により 10^5 年以内に分解され、その後の $10^5 \sim 10^6$ 年の間はアルカリ加水分解が支配的になると評価した。しかし、近年の実験的研究(Glaus

and Van Loon, 2004)から、146～185℃で測定されたセルロースのアルカリ加水分解反応の速度定数をアレニウスの式にしたがって室温に外挿することでは、60℃及び90℃でのセルロースの分解挙動が説明できないことが分かり、現時点では低温(＜90℃)でのセルロースの分解速度を評価することは困難である。

2.3 ISAのセメント系材料への収着挙動

Van Loon et al. (1997)は、粉碎、粒度調整を行ったセメントペースト硬化体に対するバッチ法による収着実験を行い、二つの異なるサイトに対するLangmuir型の吸着挙動を仮定することで実験結果が説明できることを示した。中澤ら(2005)が求めた、ISAのOPCペースト硬化体に対する収着分配係数をVan Loon et al. (1997)が求めた収着分配平衡後の液相中ISA濃度と収着分配平衡後の固相濃度の関係を示す図にプロットするとVan Loon et al. (1997)の結果と同様あるいはやや強い収着性を示す位置にプロットされ、Van Loon et al. (1997)の求めた関係をOPC水和物相にも保守的評価を行う上では適用できることが分かる(図1参照)。また中澤ら(2005)はISAのOPCペースト硬化体に対する収着分配係数の温度依存性を評価し、収着分配係数は温度に対して正の相関があることを示した。したがって、25℃で取得された収着分配係数を用いて、より高い温度条件におけるセメント系材料間隙水中のISA濃度を評価すれば、保守的に評価することになる。

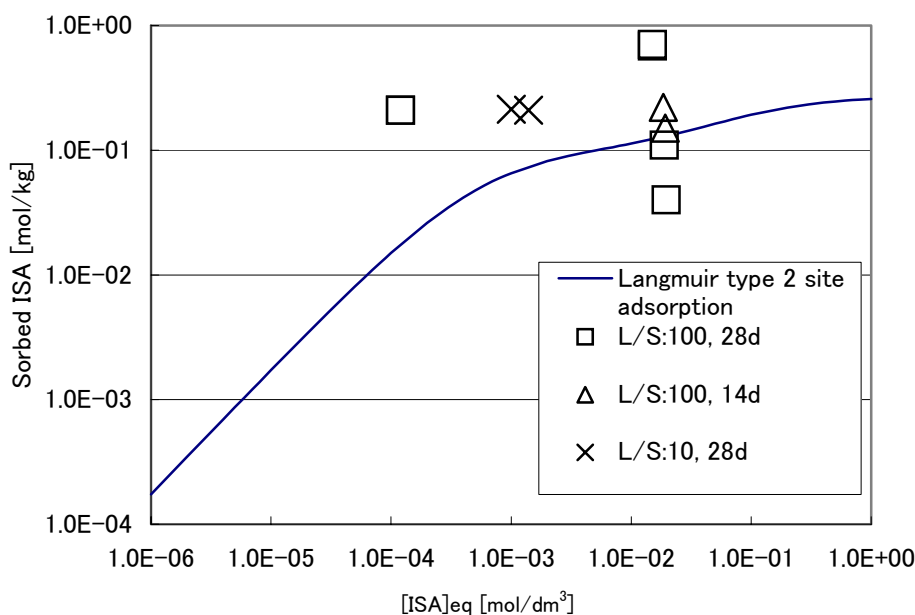


図1 OPCペースト硬化体単位重量あたりのISA収着量と収着平衡後の液相ISA濃度の関係

2.4 ISAの放射性核種挙動への影響

Bradbury and Sarott(1994)は、Greenfield et al. (1992)の実験的研究結果に基づき、保守的な仮定のもとで核種の溶解度及び収着挙動に及ぼすISAの影響を評価した。評価の基となったPu(IV)の溶解度のISA濃度依存性を図2に示す。この図より、ISA濃度が 10^{-6}mol/dm^3 以下であれば、Pu(IV)の溶解度へのISAの影響はないことがわかる。

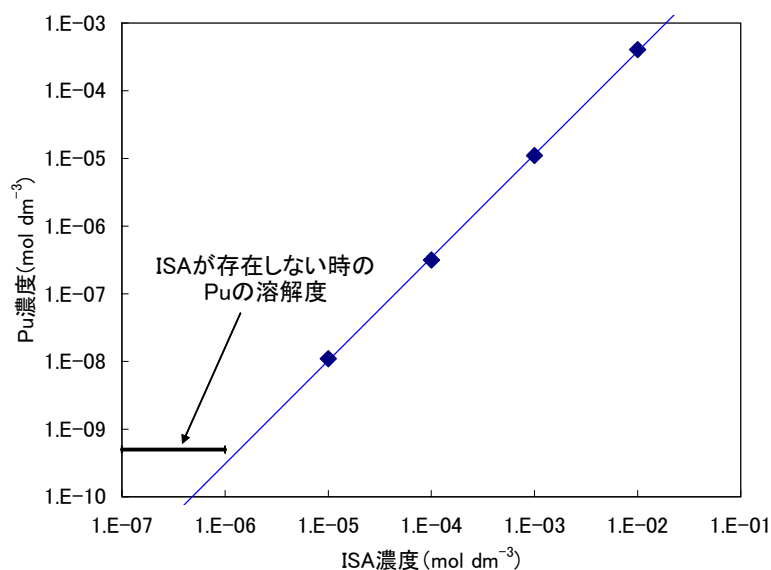


図2 ISA濃度のPu(IV)の溶解度の依存性
(◆: Greenfield et al. (1992)の実測値)

この結果等に基づき、Bradbury and Sarott (1994)は保守的な仮定のもとでISAの濃度に応じたアクチノイド元素及びTcの溶解度上昇係数(SEF: Solubility Enhancement Factor)を提案した(表1参照)。この結果から収着分配係数低減係数(SRF: Sorption Reduction Factor)の考え方を提案した。数学的にはSRFはSEFと等しい。ISAの存在しない条件での収着分配係数をISA濃度に応じたSRFで除すことにより、当該ISA濃度における当該核種の収着分配係数を算定することができる。

表1 アクチノイド元素及びTcの溶解度上昇係数(SEF)(Bradbury and Sarott, 1994)

ISA濃度 (mol/dm ³)	Pu(IV)	Am(III)	Th(IV)	U(VI)	Np(IV)	Tc(IV)
10^{-6}	1	1	1	1	1	1
10^{-5}	20	20	20	1	1	1
10^{-4}	500	500	500	2	2	1
10^{-3}	20,000	20,000	20,000	100	100	10
10^{-2}	1,000,000	1,000,000	1,000,000	5,000	5,000	500

また、Bradbury and Sarott (1994) は、主要な放射性元素について保守的に SRF を設定した (表 2 参照)。たとえば、表 2 中で $5 \times 10^{-3} \cdot \text{Pu}$ という表記は、各 ISA 濃度での Pu の SRF (表 2 参照) に 5×10^{-3} を乗じた値が当該元素の SRF であることを意味している。

表 2 セメントに対する主要核種 (元素) の収着分配係数低減係数 (SRF) (Bradbury and Sarott, 1994)

元素	酸化性条件	還元性条件
H (HTO)	1	1
C (CO_3^{2-})	1	1
Cl	1	1
Mn	$5 \times 10^{-4} \cdot \text{Pu}$	$5 \times 10^{-4} \cdot \text{Pu}$
Ni	$5 \times 10^{-4} \cdot \text{Pu}$	$5 \times 10^{-4} \cdot \text{Pu}$
Se	1	1
Sr	1	1
Zr	Pu	Pu
Nb	$5 \times 10^{-4} \cdot \text{Pu}$	$5 \times 10^{-4} \cdot \text{Pu}$
Mo	1	1
Tc	1	$5 \times 10^{-4} \cdot \text{Pu}$
Pd	$5 \times 10^{-4} \cdot \text{Pu}$	$5 \times 10^{-4} \cdot \text{Pu}$
Ag	1	1
Sn	$5 \times 10^{-4} \cdot \text{Pu}$	$5 \times 10^{-4} \cdot \text{Pu}$
I	1	1
Cs	1	1
Pb	$5 \times 10^{-4} \cdot \text{Pu}$	$5 \times 10^{-4} \cdot \text{Pu}$
Ra	1	1
Th	Pu	Pu
Pa	$5 \times 10^{-3} \cdot \text{Pu}$	$5 \times 10^{-3} \cdot \text{Pu}$
U	$5 \times 10^{-3} \cdot \text{Pu}$	$5 \times 10^{-3} \cdot \text{Pu}$
Np	$5 \times 10^{-3} \cdot \text{Pu}$	$5 \times 10^{-3} \cdot \text{Pu}$
Pu	表 1 参照	表 1 参照
Am	Pu	Pu
Cm	Pu	Pu

3. 解析・評価

評価においては、以下の仮定に基づきグループ 2 廃棄物の処分坑道の廃棄体部分 (コンクリートパッケージからキャニスタの体積を除去した部分) の間隙水中に存在する ISA の濃度を評価し、前述の ISA 濃度と放射性物質の溶解度及び収着係数の関係 (Bradbury and Sarott, 1994) と比較・対照することにより、ハル・エンドピース廃棄物中に混入する有機物の影響を評価した。

3.1 評価のために導入した仮定

このような評価を行う上で以下の仮定を導入した。

- ① サイクル機構のハル・エンドピース廃棄物には 0.5kg/本の有機物が含まれる。
- ② ハル・エンドピースに含まれる廃棄物は、保守的にすべてセルロースであり、ISA は (セルロース重量 (g) \times 1.1 (加水分解による分子量増加係数)) / (ISA の分子量 ; 180.16) モルだけ生成するとした。

③生成した ISA は、式(2)及び表 2 のパラメータにより規定される条件で、水和セメントペーストと瞬時収着平衡に達する。骨材への収着は考慮しない方が保守的であるため無視した。

3.2 有機物の見積もり

サイクル機構のハル・エンドピース廃棄物には、ウエス、紙、導線の被覆等の種々の有機系廃棄物が含まれている(倉形ほか, 1996)。この有機物は分別処理した後も、190L キャニスタ 1 本あたり 0.5kg 含まれると見積もられた。サイクル機構から発生するハル・エンドピースの総量は 190L キャニスタ換算で 1,050 本と見積もられた。したがってハル・エンドピース廃棄物に含まれる有機物量は 525kg である。これがすべてセルロースであり、上記仮定に基づけば、全量分解した場合の総 ISA 量は約 3,200mol である。

3.3 処分施設の設定

ハル・エンドピースの処分施設(グループ 2 の処分施設)のうち廃棄体パッケージの間隙部分に ISA が溶出すると仮定して検討を行う。ただし、キャニスタ内部及び構造躯体の空隙は保守的に無視した。また返還廃棄物分についても無視した。このため、民間再処理及び JNC 再処理廃棄物分の廃棄体パッケージ部分についてモデル化を行う。処分施設に搬入される民間再処理及び JNC 再処理廃棄物分のハル・エンドピース廃棄体の総量は 190L キャニスタ換算で 25,200 本と見積もられる。JNC 以外のハル・エンドピース廃棄物には有機物は含まれないと見なす。キャニスタの大きさは $\Phi 0.43 \times 1.335\text{m}$ の円筒系とした。このキャニスタ 4 本が、 $1.2 \times 1.2 \times 1.6\text{m}$ の直方体のコンクリート製パッケージに収納され、空隙はモルタルが充填される。パッケージの総数は 6,300 体(25,200 本/4 本)である。コンクリート部分及び充填モルタル部分の真密度は $2,500\text{kg}/\text{m}^3$ 、空隙割合は 0.15 と仮定した。また、コンクリート及びモルタルに占める水和セメントペーストの重量割合は 18wt%とした。キャニスタ 4 本分の体積を除いたパッケージ 1 体の体積は 1.53m^3 であり、パッケージ 1 体あたりの水和セメントペースト量及び空隙の体積は、それぞれ 585kg 及び 0.230m^3 である。したがってハル・エンドピースの処分施設におけるセメントペースト部分の総量及び空隙の総量は、それぞれ $3.69 \times 10^6\text{kg}$ 及び $1,449\text{m}^3$ である。

3.4 セメント空隙水中の ISA 濃度の評価

OPC ペースト硬化体への収着を評価するため本章の 2)3)の設定に基づき、グループ 2 処分施設において生成する ISA 量及び空隙を OPC ペースト硬化体の重量で規格化した。その結果を表 3 に示す。

表 3 水和セメントペースト量で規格化したセルロース量及び空隙量

規格化 ISA 量(mol/kg)	8.67×10^{-4}
規格化空隙量(dm^3/kg)	3.93×10^{-1}

上記の仮定にしたがい、有機物(セルロース)がすべて分解し、OPC ペースト硬化体に収着し

た場合の間隙水中の ISA 濃度を算定した。前述したように ISA のセメントペースト硬化体に対する収着挙動は 2 サイトに対する Langmuir 型の吸着によって説明され (Van Loon et al. 1997), 式 (1) 及び表 4 のパラメータにより評価することができる。式 (1) は $(ISA)_{eq}$ が十分小さい条件では (2) 式で近似できる。

$$q = q_1 K_1 (ISA)_{eq} / (1 + K_1 (ISA)_{eq}) + q_2 K_2 (ISA)_{eq} / (1 + K_2 (ISA)_{eq}) \quad (1)$$

$$q = q_1 K_1 (ISA)_{eq} + q_2 K_2 (ISA)_{eq} \quad (2)$$

表 4 水和セメントペーストに対する ISA の吸着平衡に関するパラメータ (Van Loon and Glaus, 1997)

サイト I に対する ISA の吸着容量 q_1 (mol/Kg)	0.1 ± 0.01
サイト II に対する ISA の吸着容量 q_2 (mol/Kg)	0.17 ± 0.02
サイト I に対する ISA の吸着係数 K_1 (1/mol)	1730 ± 385
サイト II に対する ISA の吸着係数 K_2 (1/mol)	12 ± 4

この近似による誤差は、表 4 のパラメータを使用した場合に $(ISA)_{eq} < 5.0 \times 10^{-4}$ mol/dm³ の条件で、10%以内である。式 (2) にしたがって ISA が OPC ペースト硬化体に収着すると仮定し、パッケージ空隙中の ISA の平衡濃度を計算した。その結果、間隙水中の ISA 濃度は 5.0×10^{-6} mol/dm³ と評価された。

4. 結論

核種の溶解度及び収着挙動に影響のない ISA 濃度 1.0×10^{-6} mol/dm³ (Bradbury and Sarott, 1994) に対して、グループ 2 処分施設中の最大 ISA 濃度は 5.0×10^{-6} mol/dm³ であり、この結果からは影響がないとはいえない。しかし 実際の処分施設ではセルロースの分解、分解生成物 (ISA) のセメント系材料への収着及び処分施設外への放出のバランスにより濃度が決定されるが、セメント系材料への収着は極めて速い反応であり、ISA の分解が瞬時に起こると仮定し、施設外への放出を無視した本評価はパッケージ間隙の ISA 濃度を過大に評価していると考えられる。ハル・エンドピースが発熱性の廃棄物であることや処分深度が 300m 以深であることを考慮すると、処分施設の温度は本評価の前提となった 25°C より高い可能性があるが、すでにセルロースの ISA への分解速度は無限大を仮定しており、前述のように ISA のセメントペースト水和物に対する収着分配係数は温度が高いほど大きくなるため、間隙水中の ISA 濃度は低下する。したがって温度の影響を考慮しても保守的な評価となっている。

参考文献

- Bradbury, M.H. and Sarott, F. A. (1994) : Sorption Databases for the Cementitious Near-Field of a L/ILW Repository for Performance Assessment, Nagra Technical Report NTB 93-08.
- Glaus, M. A. and Van Loon, L. R. (1994) : PSI Bericht Nr. 04-01.
- Greenfield, B.F., Moreton, A.D., Spindler, M.W. Williams, S.J. and Woodwark, D.R. (1992): The Effects of the Degradation of Organic Materials in the Near field of a Radioactive Waste Repository, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Scientific Basis for Nuclear Waste Management XV, Vol.257, pp.299-306.
- 倉形光一郎, 小島裕, 石川一富, 須藤光男(1996) : ハル缶廃棄物選別試験(2) -ハル等廃棄物有機物除去試験-, PNC ZN 8410 114296-012.
- 中澤俊之, 諸岡幸一, 室井正行(2005) : 私信.
- Van Loon, L.R. and Glaus, M.A. (1997) : Journal of Environmental Polymer Degradation, Vol. 5, No. 2, pp.97-109.
- Van Loon, L.R., Glaus, M. A., Stallone, S. and Laube, A. (1997): Sorption of Isosaccharinic Acid, a Cellulose Degradation Product, on Cement, Environmental Science and Technology, Vol. 31, No. 4, pp.1243-1245.

4-9 放射線場の影響 (4.4.8)

1. はじめに

本資料では、第2次 TRU レポート 4.4.8「放射線場の影響」を導くに至った検討の詳細を記述する。すなわち、2章では放射線場の解析の詳細について、3章では得られた放射線場の情報に基づく人工バリア材料の損傷に関する検討の詳細について、4章では人工バリア間隙水の放射線分解と処分システムの構成を考慮した場合の地球化学環境への影響評価詳細について、それぞれ記述する。

2. 遮へい効果を考慮した人工バリア内の放射線場の検討・解析

2.1 評価の考え方

ここでは、TRU廃棄物の地層処分における放射線場の検討において最も基本的な情報となる放射線場の状態について、遮へい計算コードを用いて定量的に評価する。ここで得られる情報のうち人工バリア各部材における集積線量は、「3. 人工バリア材の放射線損傷に関する検討・整理」における当該部材の放射線損傷の可能性・程度の判定に用いられる。また、間隙水の吸収線量は、「4. 人工バリア間隙水の放射線分解に関する検討・解析」においてG値との積から生成・残存する可能性のある酸化種の存在量の見積りに用いられる。

評価対象とする廃棄体は、廃棄体グループのうち最も放射能が高く発熱性でもある廃棄体グループ2（ハル・エンドピース）とする。ハル・エンドピースの廃棄体性状は発生する再処理施設によって多少異なることとなるが、ここでは、民間再処理施設から発生するハル・エンドピースは最も物量が多く、代表性が高いと考えられることから、その廃棄体性状に基づいて評価を行うこととする。

評価においては1次元輸送計算コードANISN (Engle, 1967)を用いる。人工バリア構成のうち緩衝材までの領域をモデル化し、各領域での照射線量とその経時変化を評価する。

2.2 評価条件

2.2.1 インベントリ

民間再処理施設から発生するハル・エンドピース中の放射性物質濃度は、第2次TRUレポートでの設定と同じであり、表2-1に示すような使用済燃料の燃焼条件の下でORIGEN2による計算により算出されている。

同表の条件から算出されるインベントリは、再処理施設から払い出される時点（炉取り出し後4年）でのデータである。本研究で対象とするような閉鎖後の長期安全性に関わる検討については、25年間の貯蔵期間を考慮したインベントリを用いることが、やはり第2次TRUレポートでの共通事項となっている。表2-2に貯蔵期間25年を考慮した場合の民間再処理施設からのハル・エンドピースのインベントリを示す。

図2-1～2-3に民間再処理施設からのハル・エンドピースとHLWガラスの放射能濃度を比較する。HLWガラスに関するデータはH12レポート（核燃料サイクル開発機構、1999a）からの引用であり、冷却期間50年を考慮している。これらの図から明らかなように、 α -emitterにしても β γ -emitterにしても放射能濃度の総計としては、HLWガラスの方が2オーダー程度高いことがわかる。

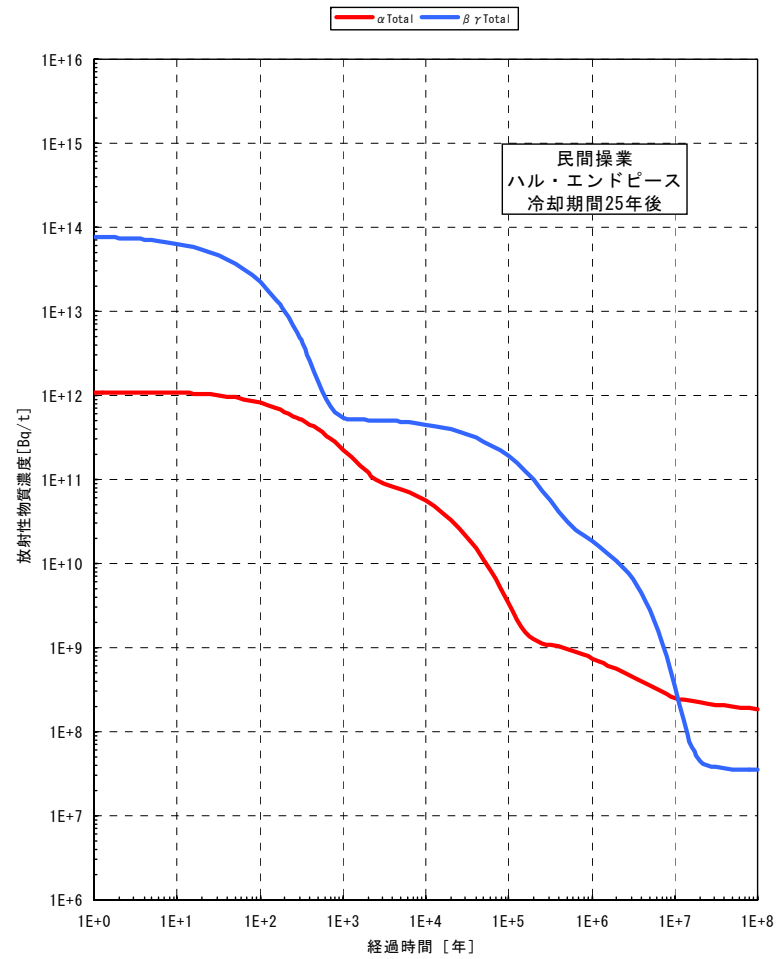
表 2-1 使用済燃料の燃焼条件

	民間再処理		JNC 再処理
原子炉型式	PWR	BWR※ ¹	PWR
初期濃縮度 (%)	4.5	4.0	4
燃焼度 (MWD/MTU)	45,000		28,000
比出力 (MW/MTU)	38	26	35
冷却期間	4 年		5 年
ハルへの燃料付着率 (%)	トリチウム : 70 Tc : 3 Ru/Rh : 5 その他の FP 0.3 アクチニド 0.2		0.2

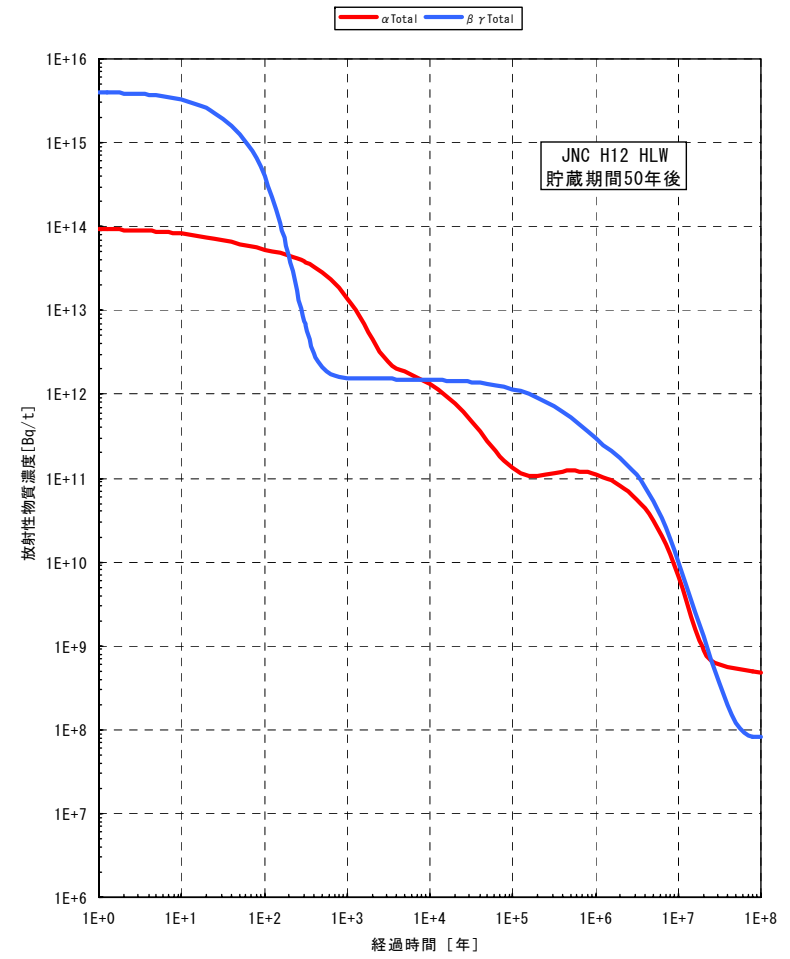
※1 : チャンネルボックス評価時のみ

表2-2 民間再処理施設から発生するハル・エンドピースの評価上のインベントリ

核種	半減期 [y]	基準年 [Bq]	25年後 [Bq]	核種	半減期 [y]	基準年 [Bq]	25年後 [Bq]
H-3	1.24E+01	3.15E+13	7.74E+12	Pb-210	2.23E+01	0.00E+00	4.00E+00
Be-10	1.60E+06	0.00E+00	0.00E+00	Po-210	3.79E-01	0.00E+00	4.00E+00
C-14	5.73E+03	2.14E+10	2.13E+10	Ra-226	1.60E+03	0.00E+00	2.13E+01
Cl-36	3.01E+05	4.05E+08	4.05E+08	Ra-228	6.70E+00	0.00E+00	3.37E-02
Ca-41	8.10E+04	5.16E+07	5.16E+07	Ac-227	2.18E+01	0.00E+00	4.02E+02
Fe-55	2.60E+00	1.16E+14	1.48E+11	Th-228	1.91E+00	0.00E+00	3.49E+06
Co-60	5.27E+00	5.84E+13	2.18E+12	Th-229	7.34E+03	1.25E+02	6.57E+02
Ni-59	8.00E+04	3.31E+11	3.31E+11	Th-230	7.70E+04	0.00E+00	5.05E+03
Ni-63	9.20E+01	5.03E+13	4.16E+13	Th-232	1.41E+10	0.00E+00	5.25E-02
Se-79	6.50E+04	9.66E+07	9.65E+07	Pa-231	3.28E+04	0.00E+00	1.29E+03
Rb-87	4.70E+10	0.00E+00	0.00E+00	Pa-233	7.39E-02	0.00E+00	5.69E+07
Sr-90	2.91E+01	1.56E+13	8.61E+12	U-232	7.20E+01	4.32E+06	3.39E+06
Zr-93	1.53E+06	1.32E+10	1.32E+10	U-233	1.59E+05	2.23E+05	2.29E+05
Nb-93m	1.36E+01	0.00E+00	1.32E+10	U-234	2.45E+05	7.10E+06	3.68E+07
Nb-94	2.03E+04	1.17E+11	1.17E+11	U-235	7.04E+08	2.45E+06	2.45E+06
Mo-93	3.50E+03	2.49E+09	2.48E+09	U-236	2.34E+07	4.25E+07	4.26E+07
Tc-98	4.20E+06	0.00E+00	0.00E+00	U-238	4.47E+09	3.53E+07	3.53E+07
Tc-99	2.13E+05	2.94E+10	2.94E+10	Np-236	1.15E+05	0.00E+00	0.00E+00
Rh-102	2.90E+00	0.00E+00	0.00E+00	Np-237	2.14E+06	5.42E+07	5.69E+07
Pd-107	6.50E+06	2.45E+07	2.45E+07	Pu-236	2.85E+00	0.00E+00	0.00E+00
Ag-108m	1.27E+02	1.01E+08	8.83E+07	Pu-238	8.77E+01	4.62E+11	3.79E+11
Cd-113m	1.46E+01	0.00E+00	0.00E+00	Pu-239	2.41E+04	4.05E+10	4.04E+10
Sn-121m	5.00E+01	5.25E+10	3.71E+10	Pu-240	6.54E+03	6.43E+10	6.47E+10
Sn-126	1.00E+05	1.71E+08	1.71E+08	Pu-241	1.44E+01	1.51E+13	4.54E+12
Sb-125	2.77E+00	5.72E+13	1.10E+11	Pu-242	3.87E+05	2.71E+08	2.71E+08
Te-125m	1.59E-01	1.40E+13	5.67E-35	Pu-244	8.26E+07	0.00E+00	0.00E+00
I-129	1.57E+07	7.08E+06	7.08E+06	Am-241	4.32E+02	1.26E+11	4.65E+11
Cs-134	2.06E+00	1.08E+13	2.42E+09	Am-242m	1.52E+02	1.13E+09	1.01E+09
Cs-135	2.30E+06	9.88E+07	9.88E+07	Am-243	7.38E+03	2.97E+09	2.96E+09
Cs-137	3.00E+01	2.18E+13	1.22E+13	Cm-242	4.47E-01	1.46E+10	8.39E+08
Ba-133	1.07E+01	0.00E+00	0.00E+00	Cm-243	2.85E+01	3.21E+09	1.75E+09
La-137	6.00E+04	0.00E+00	0.00E+00	Cm-244	1.81E+01	3.48E+11	1.34E+11
Ce-142	1.05E+11	0.00E+00	0.00E+00	Cm-245	8.50E+03	3.71E+07	3.70E+07
Pm-145	1.77E+01	0.00E+00	0.00E+00	Cm-246	4.73E+03	0.00E+00	0.00E+00
Pm-146	5.50E+00	0.00E+00	0.00E+00	Cm-248	3.39E+05	0.00E+00	0.00E+00
Pm-147	2.62E+00	0.00E+00	0.00E+00	Cf-249	3.51E+02	0.00E+00	0.00E+00
Sm-146	7.00E+07	0.00E+00	0.00E+00	Cf-250	1.31E+01	0.00E+00	0.00E+00
Sm-147	1.07E+11	0.00E+00	0.00E+00				
Sm-151	9.00E+01	7.06E+10	5.82E+10				
Eu-150	3.60E+01	0.00E+00	0.00E+00				
Eu-152	1.36E+01	0.00E+00	0.00E+00				
Eu-154	8.60E+00	1.90E+12	2.53E+11				
Eu-155	4.96E+00	9.58E+11	2.91E+10				
Tb-157	1.50E+02	0.00E+00	0.00E+00				
Ho-166m	1.20E+03	0.00E+00	0.00E+00				
Hf-182	9.00E+06	0.00E+00	0.00E+00				
Ta-182	3.15E-01	0.00E+00	0.00E+00				
Re-187	5.00E+10	0.00E+00	0.00E+00				
Pt-193	5.00E+02	0.00E+00	0.00E+00				

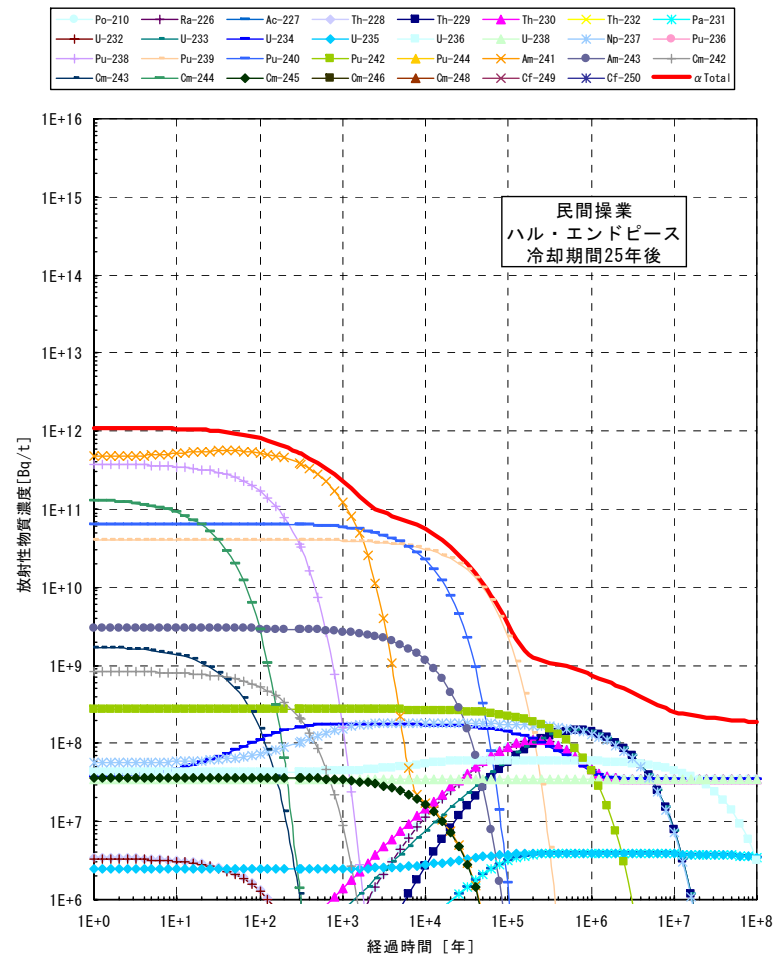


(a) 民間再処理ハル・エンドピース

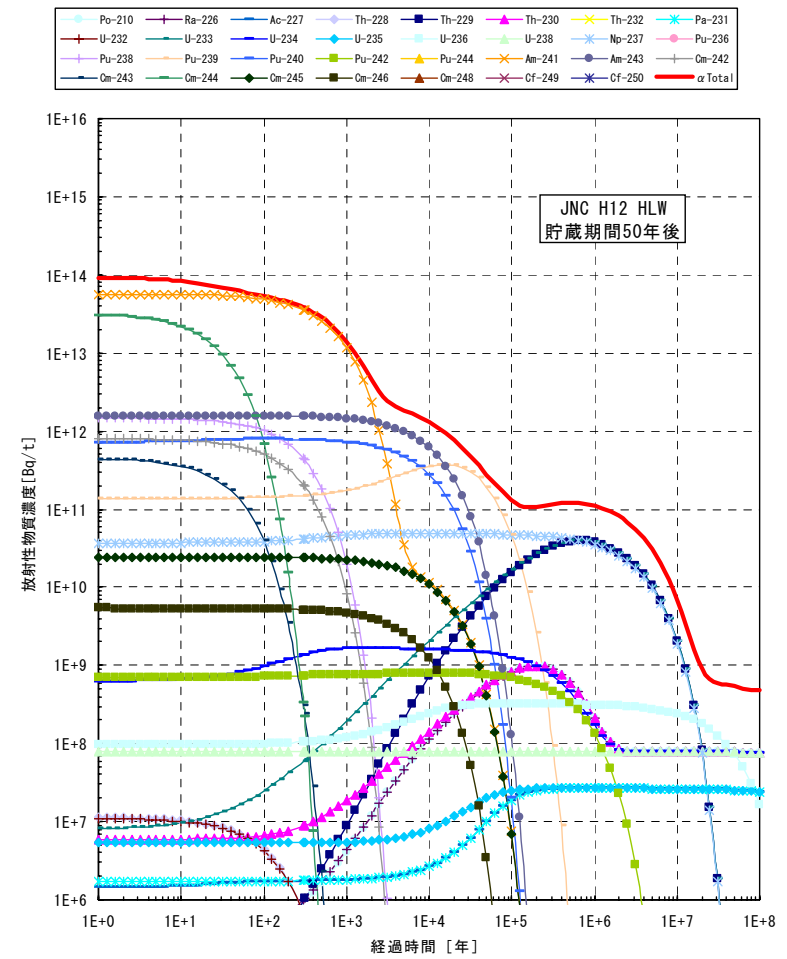


(b) HLWガラス

図2-1 TRUとHLWの放射能濃度の比較 (α -emitterと $\beta \gamma$ -emitter)

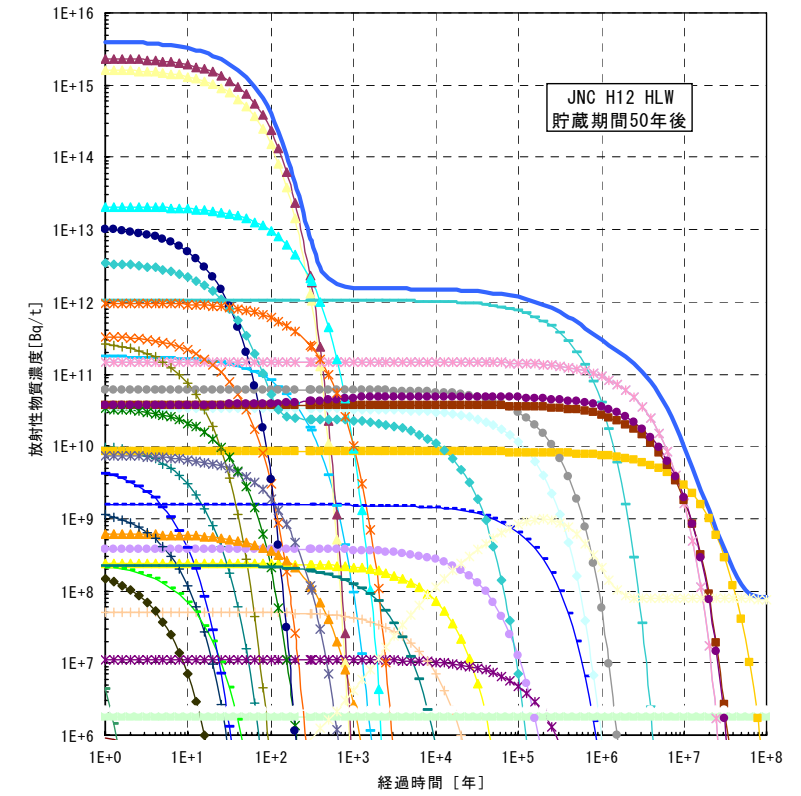
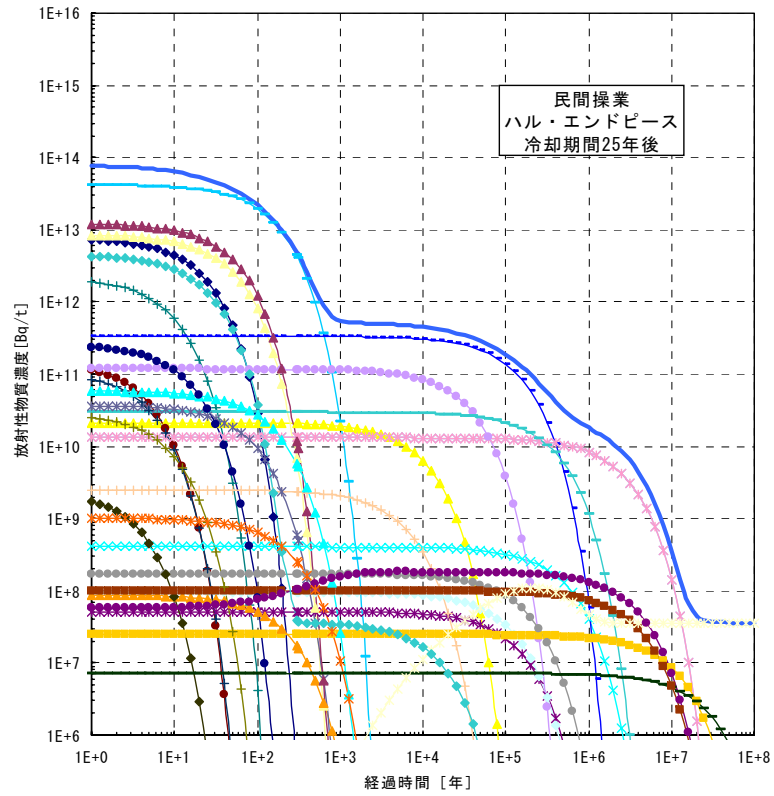
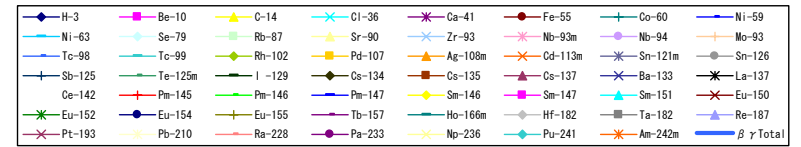
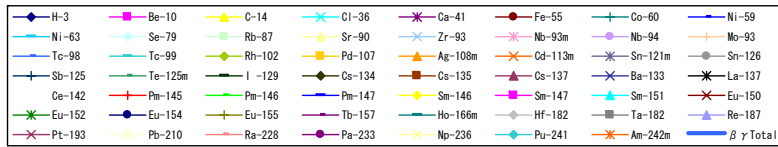


(a) 民間再処理ハル・エンドピース



(b) HLWガラス

図2-2 TRUとHLWの放射能濃度の比較 (α-emitter)



(a) 民間再処理ハル・エンドピース

(b) HLWガラス

図2-3 TRUとHLWの放射能濃度の比較 ($\beta \gamma$ -emitter)

2.2.2 最終廃棄体の材料と幾何形状

図2-4に、廃棄体としてのハル・エンドピースの基本単位となるキャニスタと、これを定置する場合の形態である廃棄体パッケージBを示す。

(1) キャニスタ

切断されたハル片は圧縮されてディスク状（扁平な円筒形状）の圧縮体とされる。キャニスタ1本に対して、この圧縮体が5～7体収納される。収納後もキャニスタ内部に残るすきまは充填されず、ボイドとして残る。

圧縮体は、Zry-4, SUS-302, SUS304L, Inconel-600, Inconel-718, Inconel-X750 から構成される。径は $\phi 387\text{mm}$ 、1体当りの高さは一定ではないが、キャニスタに5～7体収納された状態では高さの総和はH1, 124mmとなる。

キャニスタの主要構成材料はSUS-316Lである。およその形状寸法は、外径 $\phi 430\text{mm} \times \text{H1}, 335\text{mm}$ 、容器壁の実効的な厚さは5mmである。

(2) 廃棄体パッケージB

キャニスタ4本は、廃棄体パッケージBという箱型の容器に収納されて、搬送・定置される。キャニスタ収納後のすきまはセメントモルタルによって充填される。

廃棄体パッケージBの容器壁の材料は炭素鋼SS400である。形状寸法は、外径でW1, 200mm \times L1, 200mm \times H1, 600mm、容器壁の厚さは5mmである。



図 2-4 民間再処理ハル・エンドピースの最終廃棄体化
(上図：キャニスタ 下図：キャニスタを4体収納した廃棄体パッケージB)

2.2.3 人工バリアの材料と幾何形状

図2-5に、廃棄体グループ2の廃棄体パッケージBを定置する処分坑道断面の模式図を示す。同図は結晶質岩の場合であり、廃棄体パッケージBは4列×3段の多段積みとなるが、堆積岩の場合は5列×4段の多段積みとなる。

同図の処分坑道断面では、廃棄体を安定に定置するための鋼製構造躯体，安全性能上その止水機能等が見込まれている緩衝材，空洞の力学的安定性を補佐するためのコンクリート支保，及び円滑な操業のための底部コンクリートインバートの各部材が存在するが，遮へい計算上基本的に考慮すべきものは鋼製構造躯体と緩衝材である。

(1) 鋼製構造躯体

鋼製構造躯体は，炭素鋼 SS400 によって作製される。

図 2-6 及び図 2-7 に，側部／底部に用いられる鋼製構造躯体の幾何形状を示す。鋼製構造躯体は 5cm の厚さを有しているものの，同図に示すように縦方向あるいは縦横両方向にスリットの入った中空平板となっている。遮へい計算上の実効的な厚さは，最も薄い部分の 2cm となる。

(2) 緩衝材

緩衝材は，クニゲル V1 : 70% + 砂 30% の混合材料である。混合材料の粒子密度は $2.68\text{g}/\text{cm}^3$ ，空隙率は 0.4 であり，いずれも第 2 次 TRU レポートの共通設定である。

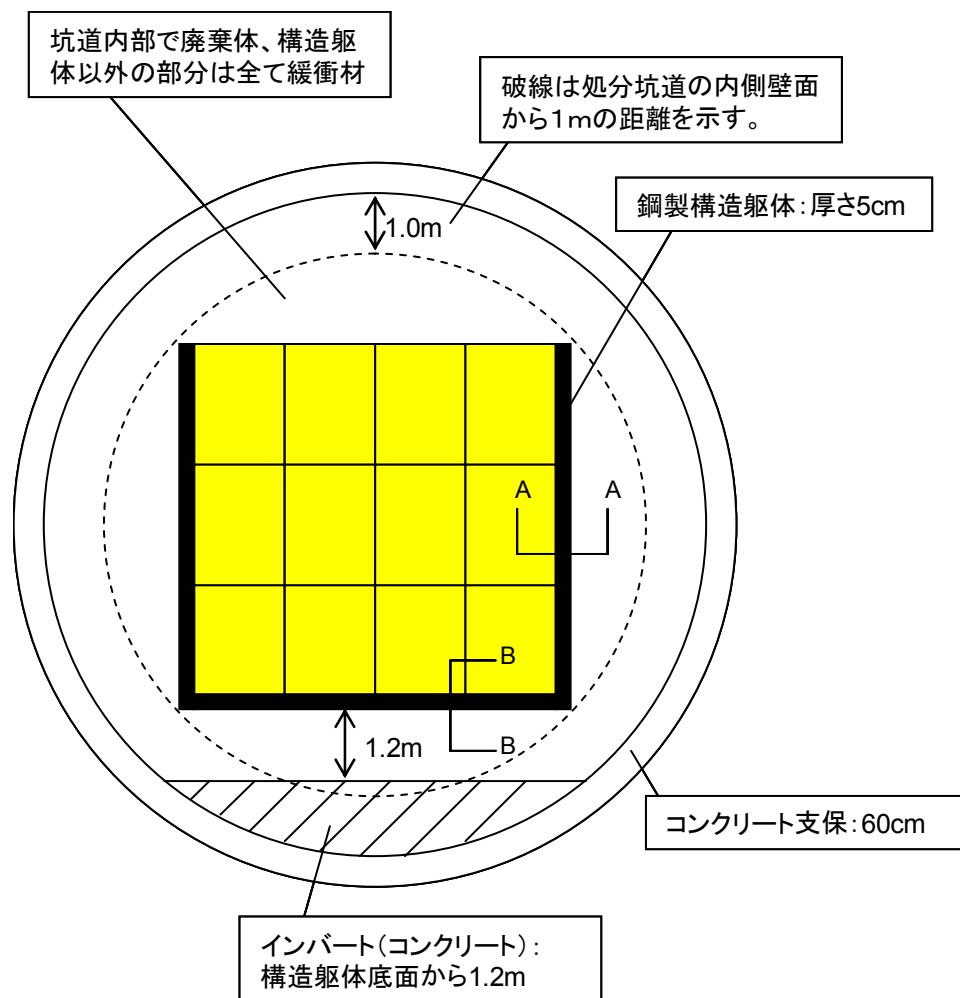
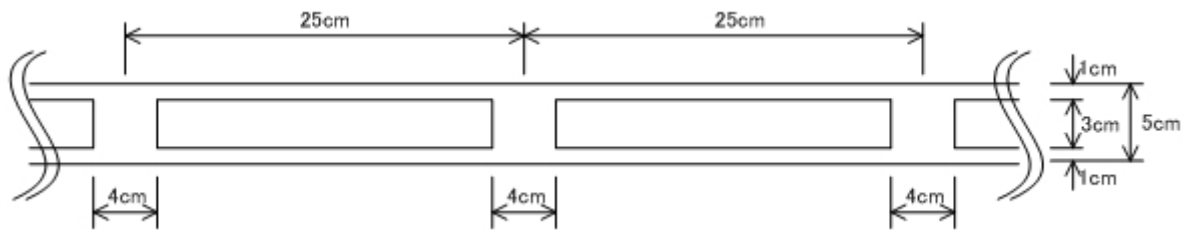
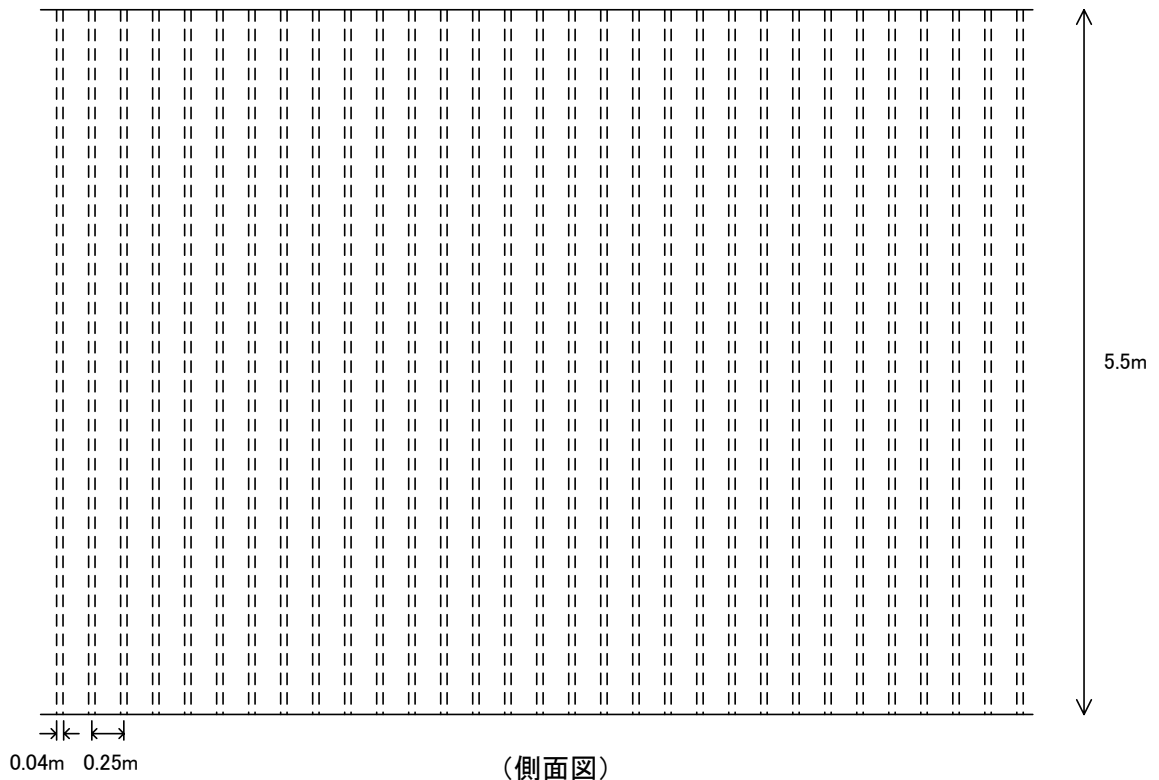


図 2-5 廃棄体グループ 2，廃棄体パッケージ B を収納する処分坑道断面

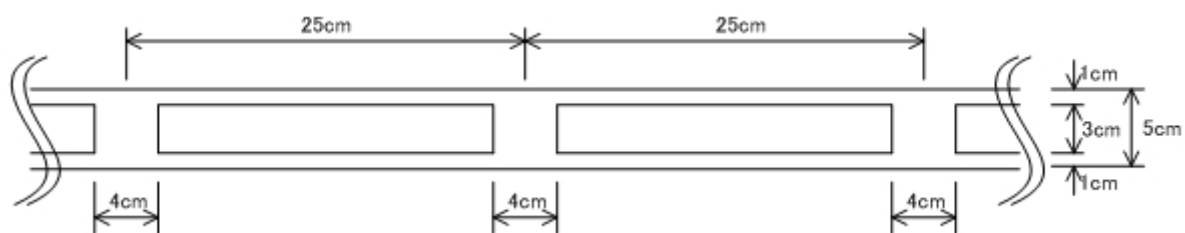


(A-A断面：中空平板)

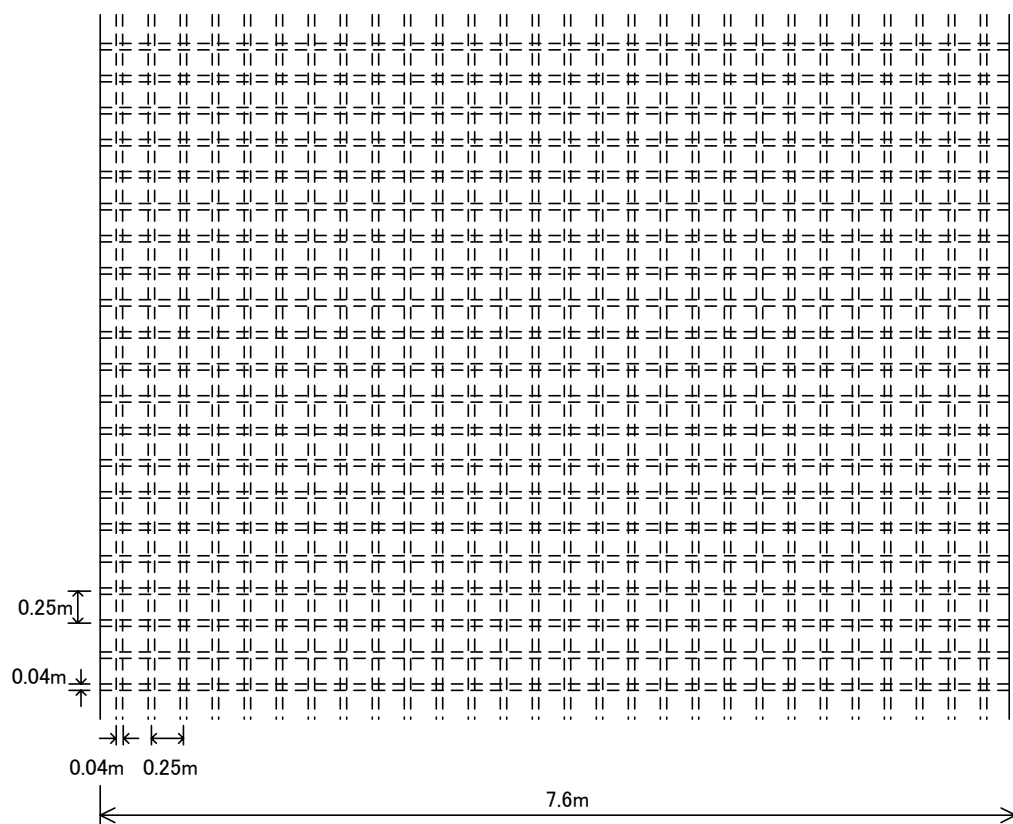


(側面図)

図 2-6 側部鋼製構造躯体の幾何形状



(B-B 断面：中空平板)



(側面図)

図 2-7 底部鋼製構造躯体の幾何形状

2.2.4 モデル体系

図2-8に、ANISN計算におけるモデル体系を示す。結晶質岩における廃棄体定置仕様（処分坑道鉛直断面）に基づき、廃棄体パッケージ4体と緩衝材層とをモデル化している。処分坑道断面において左端に定置される廃棄体パッケージBの左側壁面外側を始点として右方向に展開する直交1次元座標系とする。

鋼製構造躯体は、図2-5に模式的に示したように、側部及び底部には設けられるものの、上面部には設けられない。したがって、遮へい計算上は鋼製構造躯体の遮へい機能を見込まないことを基本的な評価条件とした。

以上より、モデル体系に組み込まれる領域及び材料は以下のようなになる。

【緩衝材】

- クニゲルV1+ケイ砂 : 1,000mm以上

【廃棄体パッケージB：幅1,200mm×4体】

評価上、廃棄体パッケージB領域の内訳はx方向へ、

- パッケージ容器壁（炭素鋼） : 5mm
- 充填モルタル（セメント） : 165mm
- キャニスタ : 430mm×2本
- 充填モルタル（セメント） : 165mm
- パッケージ容器壁（炭素鋼） : 5mm

【キャニスタ：外径430mm，廃棄体パッケージB内に2本，体系全体で8本】

評価上、キャニスタ領域の内訳はx方向へ、

- キャニスタ容器壁（SUS） : 5mm
- 圧縮体（Zircaloy/SUS/Inconel） : 420mm
- キャニスタ容器壁（SUS） : 5mm

また、圧縮体、充填モルタル及び緩衝材については、領域内に間隙を有するとして、間隙が空気で満たされている場合と水で満たされている場合を想定する。水飽和の場合の吸収線量と空気飽和の場合の吸収線量の差が、正味で水に吸収されたエネルギーであると考え、後述する第4章での水の放射線分解の評価に用いられる。

空気飽和の場合、及び水飽和の場合の各媒体の原子個数密度を表2-3に示す。

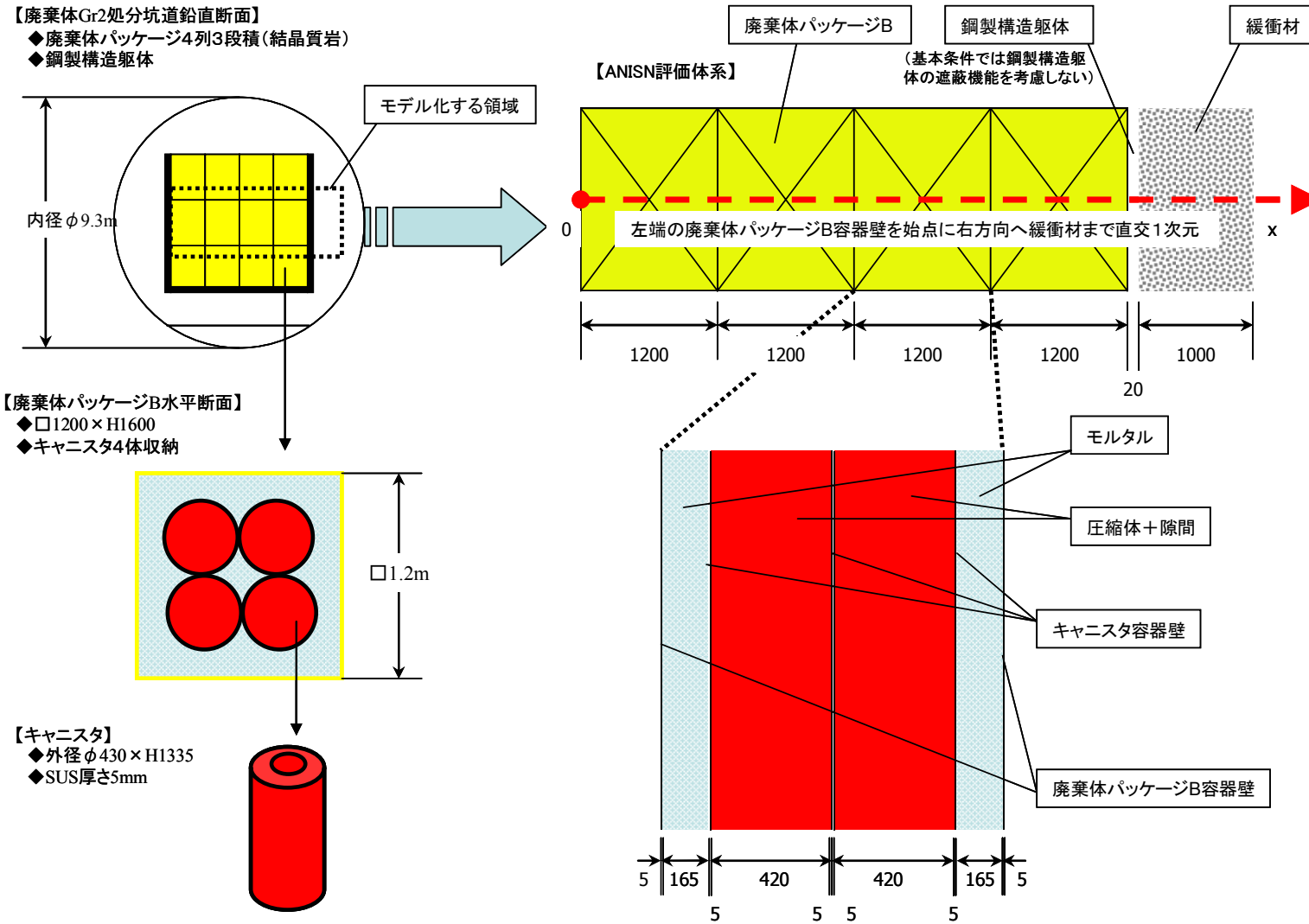


図 2-8 ANISN 計算におけるモデル体系

2.3 評価結果

2.3.1 γ 線及び中性子線のエネルギースペクトル

図2-9及び図2-10に、1年、10年、100年及び1,000年における γ 線及び中性子のエネルギースペクトルを示す。本評価では核データライブラリーとしてDLC23F（中性子22群及び γ 線18群によるエネルギーバンド分割）を用いている。

中性子線では、時間が経過しても線源強度のエネルギー分布に大きな変化はなく、また、線源強度の低下も顕著ではない。これに対し、 γ 線では時間の経過とともに線源強度のエネルギー分布が変化しており、また線源強度の低下も認められる。これは、中性子線の放出体は比較的半減期の長いアクチニドであるのに対し、 γ 線の放出体には比較的半減期の短いFP核種が含まれていることに起因している。

2.3.2 モデル体系内の吸収線量の空間分布

図2-11に、1年及び1,000年の時点におけるモデル体系内での空気カーマ率の空間分布を示す。ANISN計算では1次 γ 線、2次 γ 線及び中性子線を評価対象としているが、後述するようにこれらの放射線の中では1次 γ 線による寄与が最も顕著であり、同図に示した空気カーマ率も1次 γ 線に起因するものに対応している。

同図より、1,000年後の空気カーマ率は1年後と比較して、空間分布には大きな変化はなく、全体的に2オーダー程度低下する結果となっている。また、モデル体系では4体の廃棄体パッケージBを含んでいるが、個々の廃棄体パッケージB内部での空気カーマ率にはほとんど相違はなく、4体ともほぼ同様の空気カーマ率分布となっている。

2.3.3 キャニスタ内部の放射線場

キャニスタ内部は線源に相当する部分であり、最も強い放射線場が形成される領域である。ここでの放射線影響に関しては、 α 線、 γ 線及び中性子線を考慮する。

α 線は高いLETを有しており、その平均飛程が $40\mu\text{m}$ 程度と非常に短いため、その影響が発現するのはキャニスタ内に収納された圧縮体表面極近傍のきわめて局所的な領域に限定される。したがって、工学的スケールにおける放射線場の形成には寄与しないが、その消失エネルギーがすべて間隙水に吸収されて水の放射線分解に利用されたと仮定すると、潜在的に有意な影響をもたらす可能性がある。

民間再処理施設からのハル・エンドピースのインベントリデータから算出される α 濃度の経時変化と累積の α 放出量とを図2-12に示す。

ANISN計算から算出されたキャニスタ内部での1次 γ 線、2次 γ 線及び中性子線による空気カーマ率（空気飽和状態）を図2-13に示す。同図の結果は、図2-8における左から5体目のキャニスタ（左から3体目の廃棄体パッケージB内）のほぼ中央（ $x=2,785\text{mm}$ ）での計算値である。モデル体系内には8体のキャニスタが存在するが、図2-11に明らかなように、どのキャニスタにおいても空気カーマ率に差はなく、図2-13の結果が全てのキャニスタに共通すると考えてよい。

3種の放射線による空気カーマ率が計算されたが、2次 γ 線及び中性子線の影響は無視できるほ

ど小さいレベルであり、空気カーマ率は1次 γ 線によって決まっている。

2.3.4 セメントモルタルでの放射線場

廃棄体パッケージB内のセメントモルタルは線源に隣接する部分であり、165mmの厚さの中で放射線場には空間分布が生じ、一般に線源からの距離が長くなることによって放射線場は減衰する。ここでの放射線影響に関しては、 γ 線及び中性子線を考慮する。

ANISN計算から算出されたセメントモルタルでの1次 γ 線、2次 γ 線及び中性子線による空気カーマ率（空気飽和状態）を図2-14に示す。同図の結果は、図2-8における左から3体目の廃棄体パッケージBのキャニスタ隣接部（ $x=2,570\text{mm}$ ）での計算値であり、線源に近いことから、最も空気カーマ率の高くなるポイントである。モデル体系内には他にもセメントモルタル部が存在するが、図2-11に明らかのように、どの廃棄体パッケージBにおいても空気カーマ率分布に差はなく、図2-14の結果が（廃棄体パッケージB内の対応する位置における）全てのセメントモルタルに共通すると考えてよい。

3種の放射線による空気カーマ率が計算されたが、2次 γ 線及び中性子線の影響は無視できるほど小さいレベルであり、空気カーマ率は1次 γ 線によって決まっている。

2.3.5 緩衝材での放射線場

緩衝材層の評価上の厚さ1,000mmの中で放射線場には空間分布が生じ、一般に線源からの距離が長くなることによって放射線場は減衰する。ここでの放射線影響に関しては、 γ 線及び中性子線を考慮する。

ANISN計算から算出されたセメントモルタルでの1次 γ 線、2次 γ 線及び中性子線による空気カーマ率（空気飽和状態）を図2-15及び図2-16に示す。これらの結果は、緩衝材の内側境界（廃棄体寄り）と外側境界（周辺岩盤寄り）での計算値である。

3種の放射線による空気カーマ率が計算されたが、2次 γ 線及び中性子線の影響は無視できるほど小さいレベルであり、空気カーマ率は1次 γ 線によって決まっている。

2.3.6 HLWガラスの放射線場との比較

H12レポートでは、オーバーパックの仕様を決定するための設計作業の中でオーバーパック表面での吸収線量率が評価されている（核燃料サイクル開発機構，1999b）。図2-17にオーバーパック表面での γ 線及び中性子線による吸収線量率を、オーバーパック厚さの関数として示す。遮へい上の要求だけではなく、腐食や力学的要求も考慮しながら、最終的には炭素鋼オーバーパックの厚さは19cmとされている。

図2-17よりオーバーパック厚さを19cmとして γ 線及び中性子線の吸収線量率を逆算し、HLWとTRUとで吸収線量率の概算値を比較したものを表2-4に示す。ほぼ廃棄体表面に相当する位置でHLWとTRUの吸収線量率を比較した場合、2.2.1節に示したように、含有インベントリとしてはHLWの方が2オーダー程度高いものの、オーバーパックのような良好な遮へい物を有しないTRUのハル・エンドピースの方が、 γ 線の影響によって3オーダー程度高い吸収線量率となっている。

表2-4 廃棄体表面での吸収線量率の比較

	[Gy/y]	
	HLW	TRU
γ線	~3×10 ¹	~4×10 ⁴
中性子線	~4×10 ⁻¹	~5×10 ⁻¹

HLWの条件：50年貯蔵，オーバーパック厚さ19cm，オーバーパック表面での数値

TRUの条件：25年貯蔵，オーバーパックなし，緩衝材内側境界（廃棄体寄り）

図2-8に示したように、処分坑道断面において天井部が開放となっていることから鋼製構造躯体の効果を今回は見込んでいない。したがって、鋼製構造躯体の側部あるいは底部では鋼製構造躯体の実効的な厚さ20mmを期待できるため、TRUの吸収線量率は低下することとなるが、HLWの190mmのオーバーパックの遮へい機能に比較すれば20mmの鋼製構造躯体の効果は小さいものであり、結果として廃棄体表面での吸収線量率はやはりTRUのハル・エンドピースの方が高いことが予想される。

2.3.7 放射線場の解析のまとめ

表2-5に放射線場の解析結果のまとめを示す。

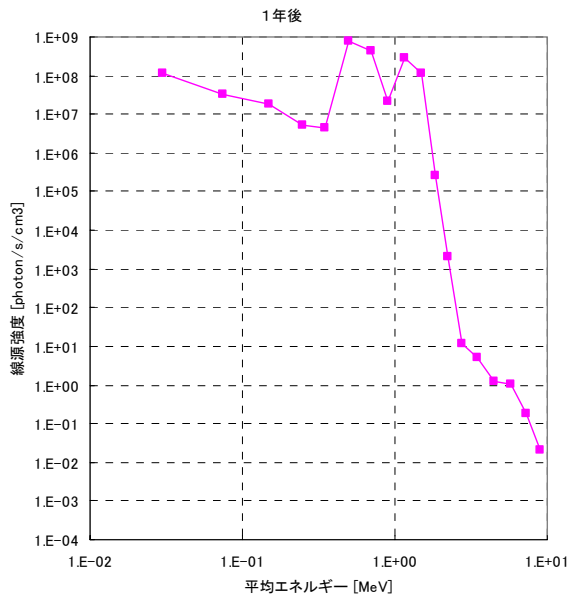
先述のとおり、飛程の短いα線については遮へい計算の対象とならないことから、α-emitterのインベントリの経時変化から累積のα線放出量を算出している。α線による影響を考慮する必要があるのは、線源であるキャニスタ内部に限定される。

γ線及び中性子線については、遮へい計算結果から液相での吸収線量と固相での吸収線量に分解した。それぞれの相へのエネルギー付与については、空気飽和の場合の計算結果と水飽和の場合の計算結果とを用いて、以下の考え方に基づいて算出した。

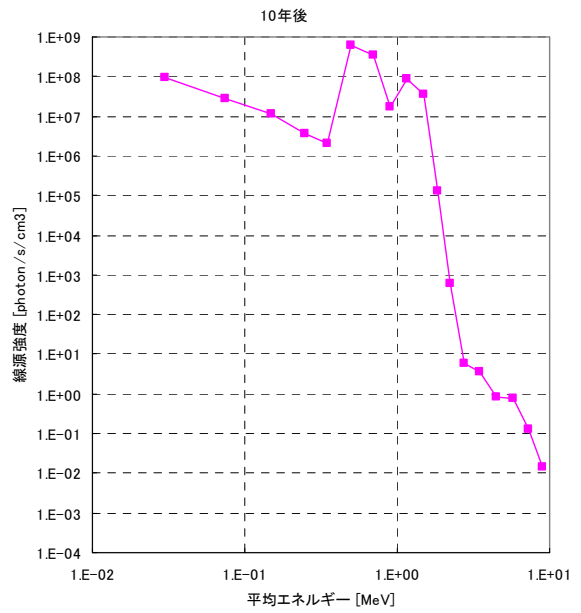
- ◆ 固相へのエネルギー付与：保守的に¹空気でのエネルギー吸収はないとして空気飽和の場合の計算結果を固相の吸収線量とみなす。
- ◆ 液相へのエネルギー付与：空気飽和の計算結果と水飽和の場合の計算結果の差を間隙水でのエネルギー吸収とみなし、液相の吸収線量とする。

表2-5に示した算出結果は、以降の照射損傷や水の放射線分解の検討における基礎情報となる。

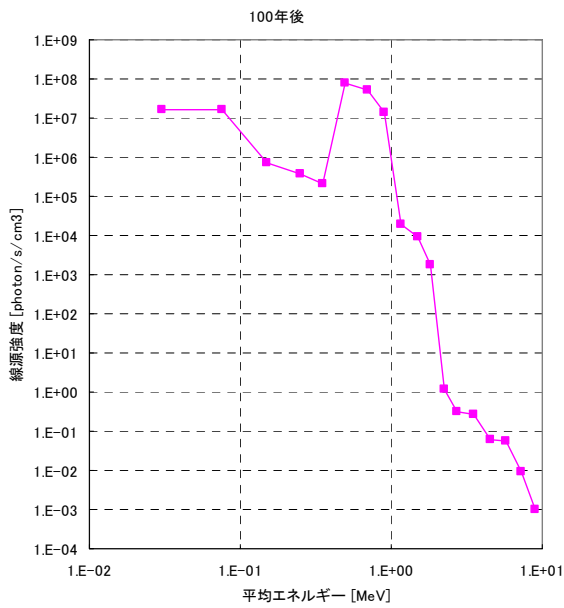
¹ 水飽和の計算結果を液相の吸収線量と固相の吸収線量の和とみなし、水飽和の計算結果から上記の方法にて算出した液相の吸収線量分を差し引いた差を固相の吸収線量とするアプローチもありうるが、その場合、固相の吸収線量は相対的に小さく評価される。



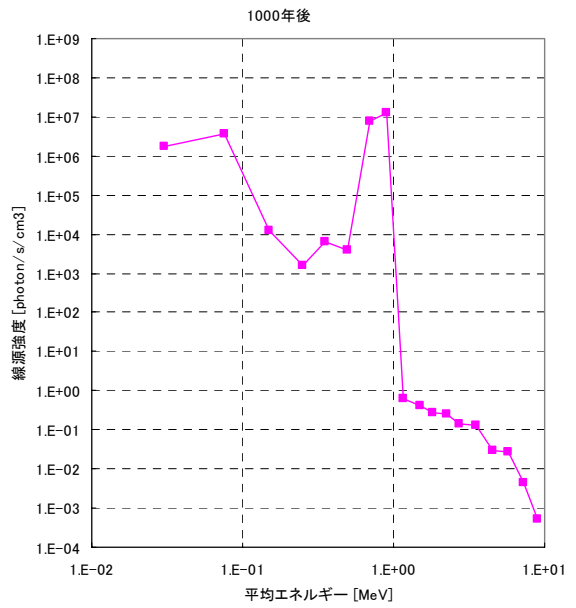
(a) 1年後



(b) 10年後

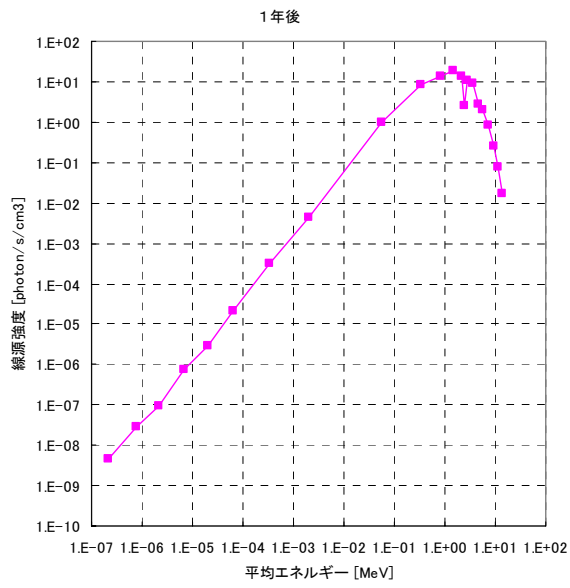


(c) 100年後

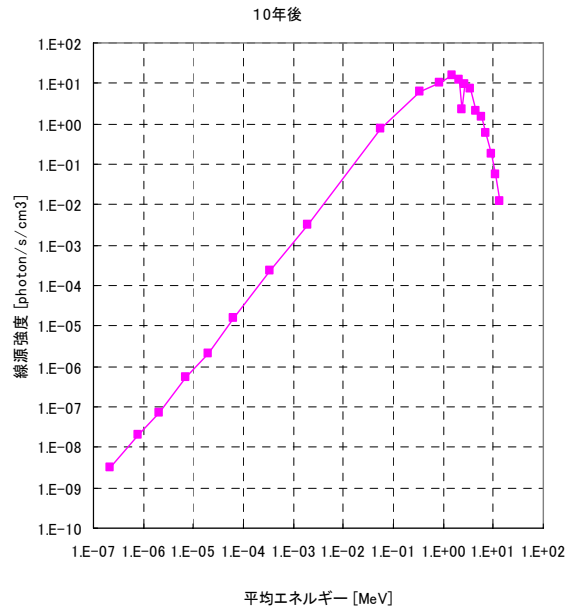


(d) 1,000年後

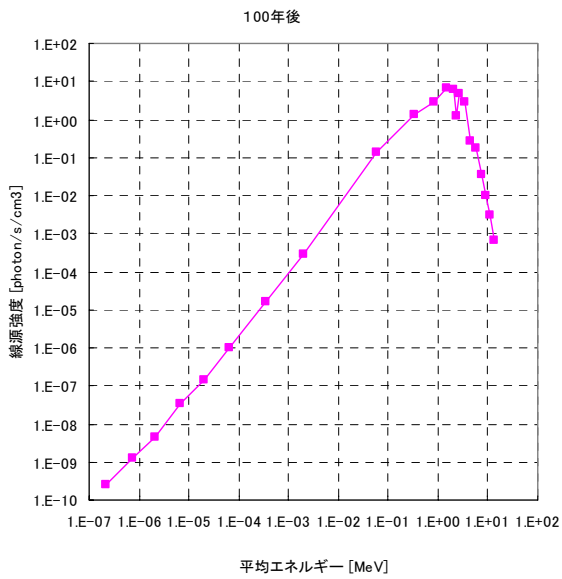
図2-9 γ 線源強度の経時変化



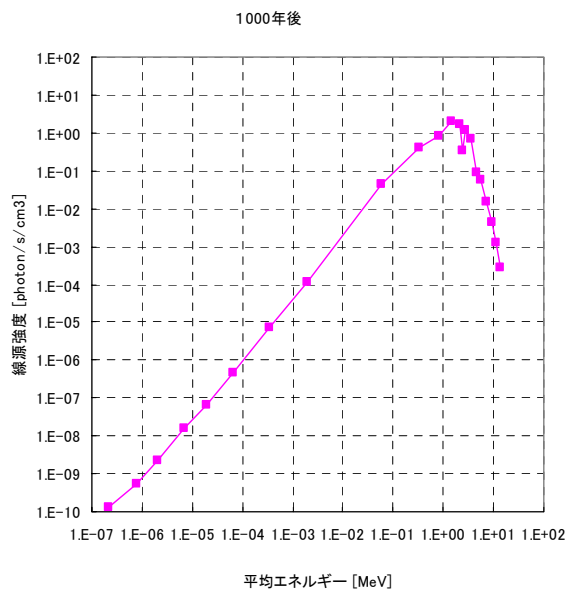
(a) 1年後



(b) 10年後



(c) 100年後



(d) 1,000年後

図2-10 中性子線源強度の経時変化

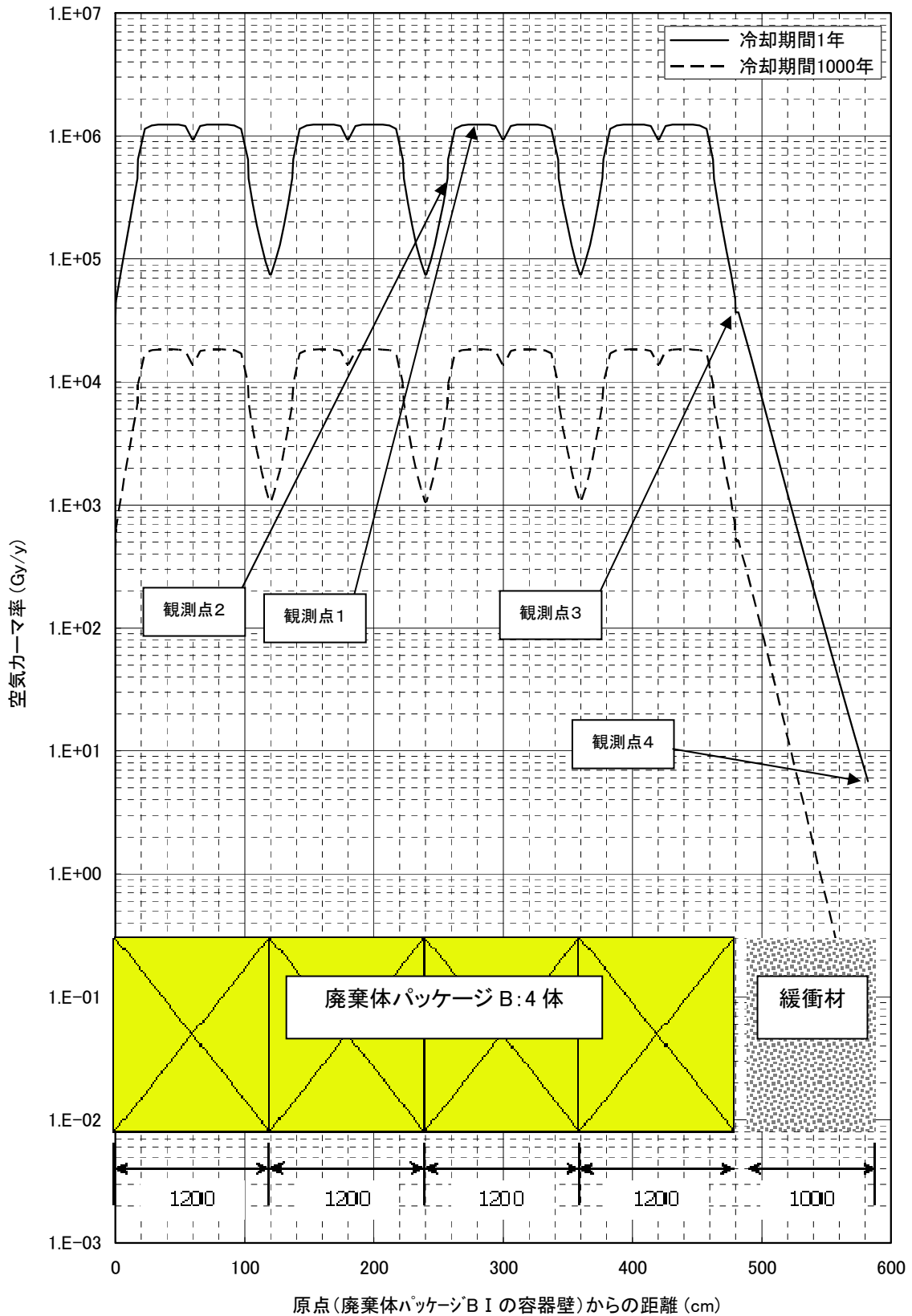


図2-11 モデル体系内での空気カーマ率分布

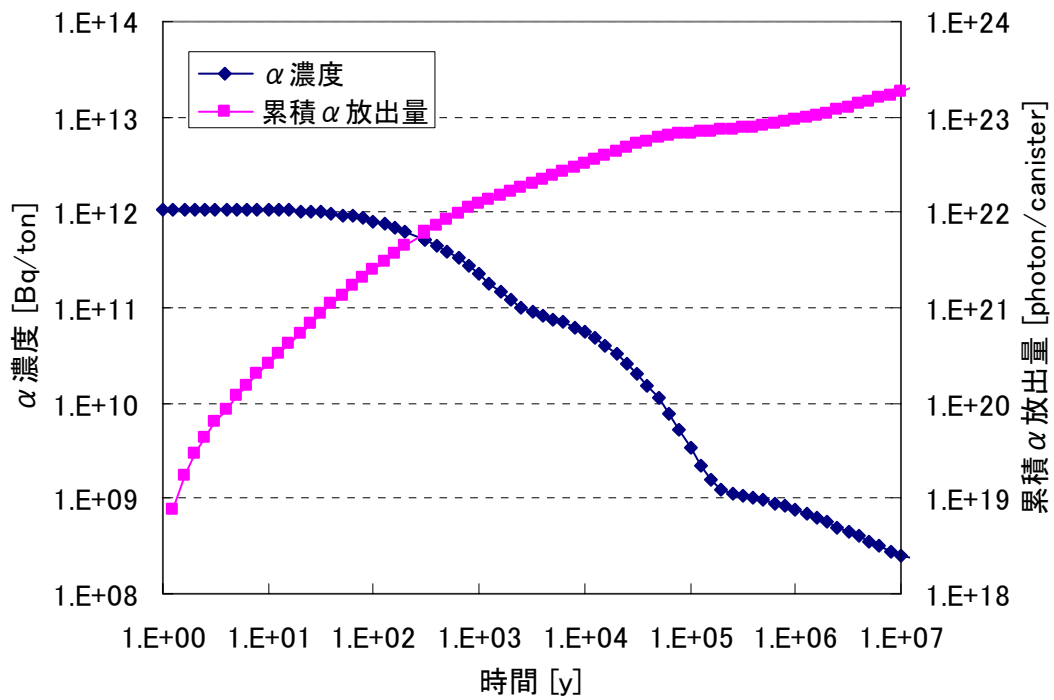


図2-12 α 濃度の経時変化と累積 α 放出量

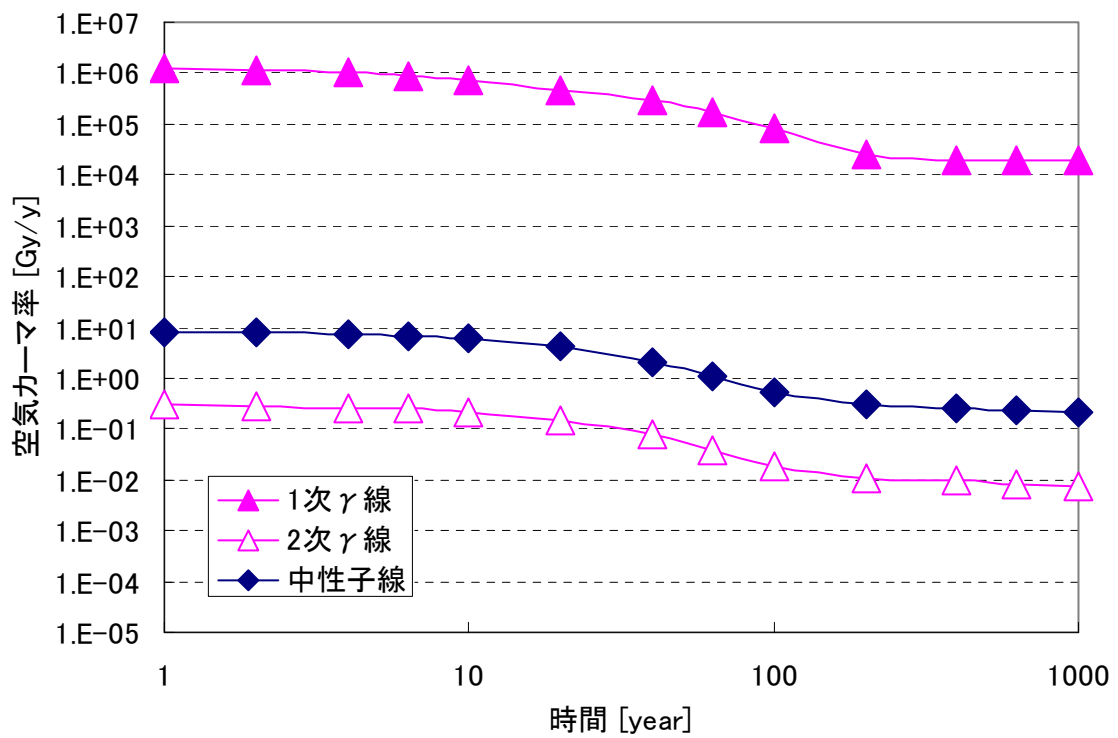


図2-13 キャニスタ内部での空気カーマ率の経時変化

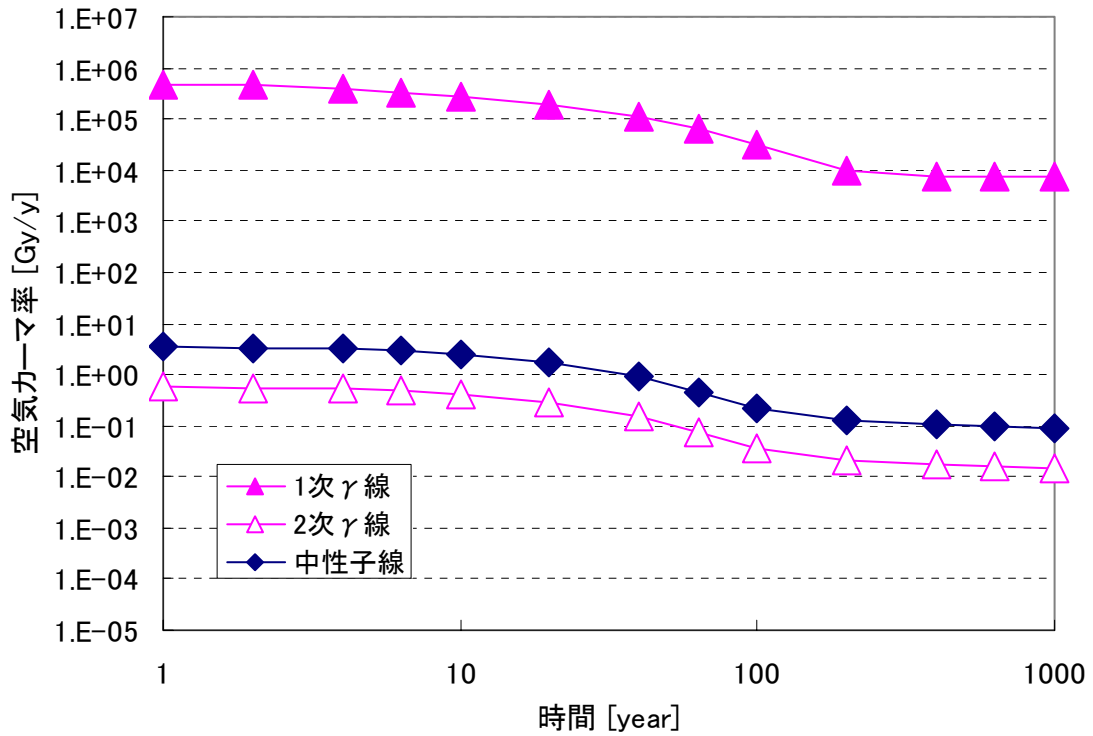


図2-14 セメントモルタル（キャニスタ寄りのポイント）での空気カーマ率の経時変化

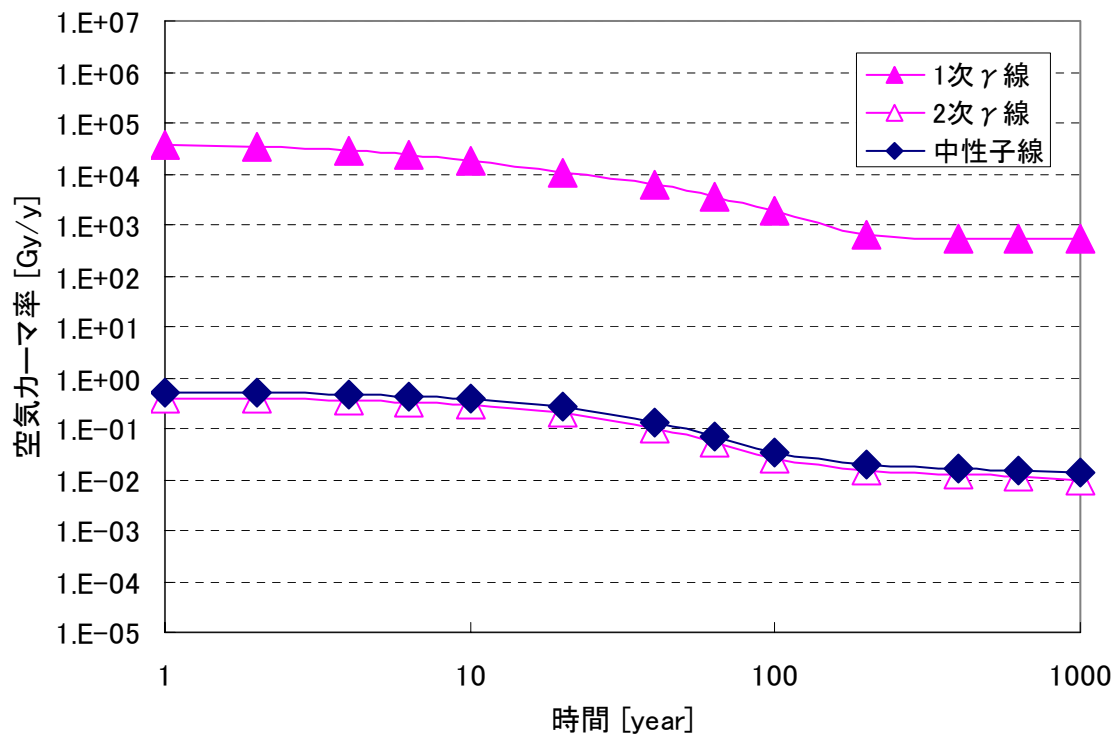


図2-15 緩衝材（内側境界：廃棄体寄り）での空気カーマ率の経時変化

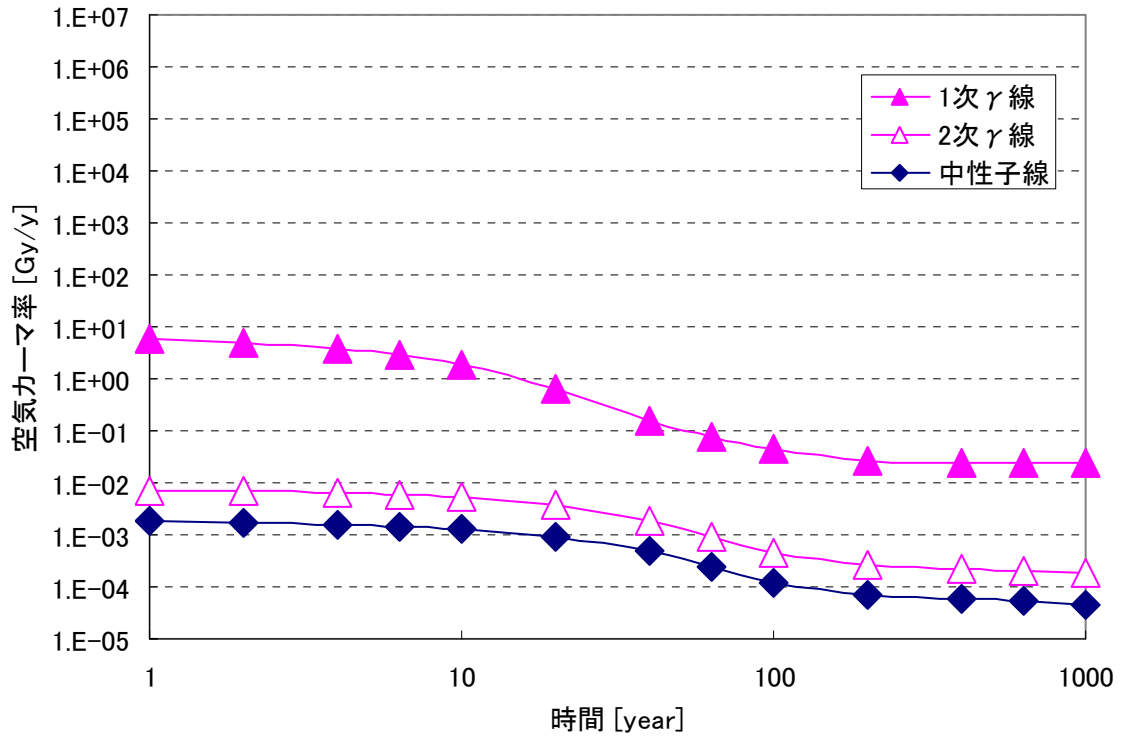


図2-16 緩衝材（外側境界：周辺岩盤寄り）での空気カーマ率の経時変化

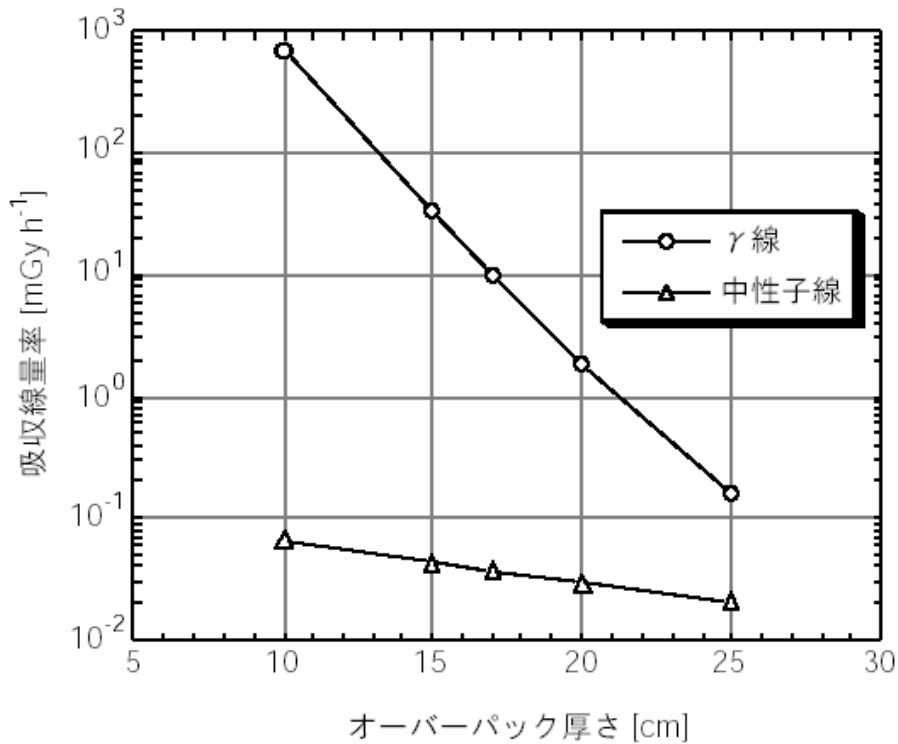


図2-17 HLW地層処分におけるオーバーパック表面での吸収線量率

表2-5 放射線場の検討のまとめ

領域と観測点 線種		【キャニスタ内部】 (キャニスタ中央部)			【セメントモルタル】 (キャニスタ隣接部)			【緩衝材】 (内側境界：廃棄体寄り)		
		1y [Gy/y]	1,000y [Gy/y]	1,000y累積 [Gy]	1y [Gy/y]	1,000y [Gy/y]	1,000y累積 [Gy]	1y [Gy/y]	1,000y [Gy/y]	1,000y累積 [Gy]
◆ α線		1,000y累積 1.2×10^{22} [photon/canister]			—			—		
◆ γ線	液相	9.6×10^4	1.5×10^3	4.0×10^6	4.0×10^4	6.1×10^2	1.7×10^6	9.3×10^3	1.3×10^2	3.5×10^5
	固相	1.2×10^6	1.8×10^4	5.3×10^7	4.9×10^5	7.3×10^3	2.1×10^7	3.7×10^4	5.1×10^2	1.3×10^6
◆ 中性子線	液相	6.2×10^0	2.5×10^{-2}	2.2×10^2	2.6×10^0	6.3×10^{-4}	1.0×10^2	4.4×10^{-1}	6.7×10^{-3}	1.6×10^1
	固相	8.1×10^0	2.0×10^{-1}	4.7×10^2	3.5×10^0	8.8×10^{-2}	2.0×10^2	5.2×10^{-1}	1.3×10^{-2}	3.0×10^1

固相へのエネルギー付与の考え方：保守的に空気でのエネルギー吸収はないとして空気飽和の場合の計算結果を利用。

液相へのエネルギー付与の考え方：空気飽和の計算結果と水飽和の計算結果の差を間隙水のエネルギー吸収分とみなす。

3. 人工バリア材の放射線損傷に関する検討・整理

3.1 セメント系材料

3.1.1 セメント系材料での吸収線量

民間再処理施設から発生するハル・エンドピースの処分坑道の概念設計では、セメント系材料は、廃棄体パッケージBに4体のキャニスタを収納した後の充填モルタルとして使用される。

第2章と同一の観測点、すなわち、図2-8における左から3体目の廃棄体パッケージBのキャニスタ隣接部 (x=2,570mm) におけるセメントモルタル (固相) の1,000年までの吸収線量率 [Gy/y] と吸収線量 [Gy] とを、図3-1に示す。同観測点は、線源に近いことから、セメントモルタルの領域で最も吸収線量の高くなるポイントである。

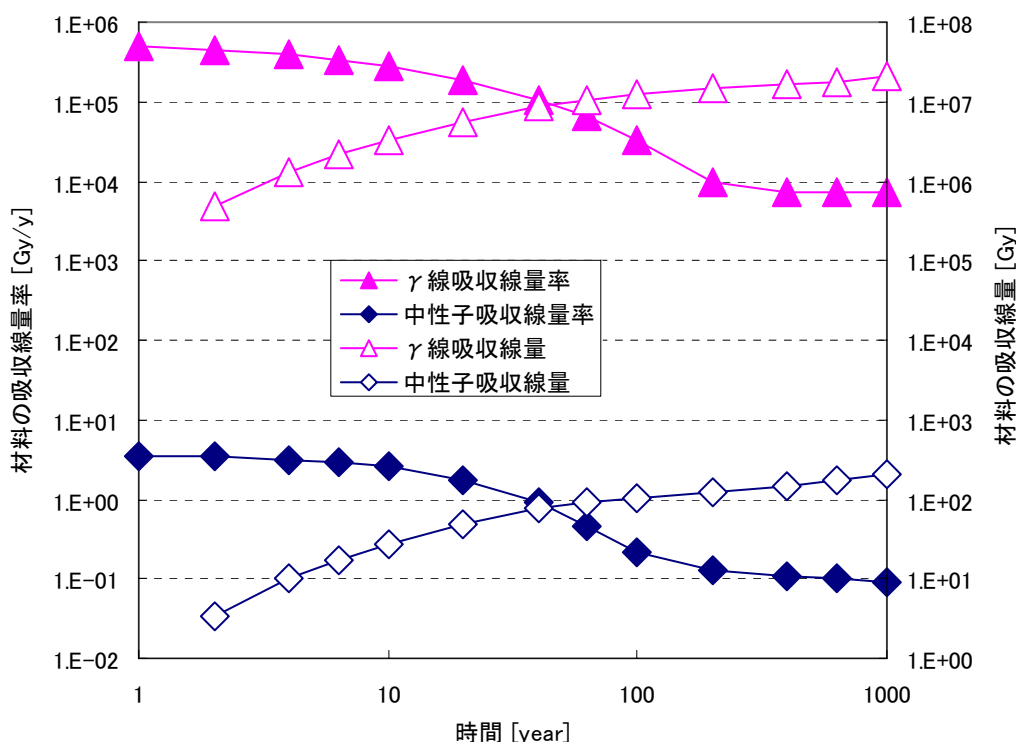


図3-1 セメントモルタル (キャニスタ隣接部) での吸収線量率と吸収線量

3.1.2 セメント系材料の放射線損傷に関する既往の知見

廃棄体の固化マトリクスあるいはグラウトとして利用されるセメント系材料への放射線影響については、9-12 [MGy] のγ線照射試験を行った結果について以下のように報告されている (Wilding, 1991)。

- 大半のサンプルでは顕著な変化は観察されなかった。
- いくつかのサンプルでは表面の変色が観察された。
- BFS/OPCグラウトの場合は、削剥、亀裂、破壊が確認された。

躯体コンクリートとして利用されるセメント系材料への放射線影響については、最大 1.9×10^{10}

[R] (約 1.7×10^8 [Gy]に相当²)の γ 線照射を行った場合の材料特性への影響が報告されている(山田ほか, 1984)。圧縮強度, 動弾性係数, 中性化及び細孔径分布への γ 線照射の影響に関する試験結果を図3-2~図3-5に示す。

圧縮強度への影響については, 常温条件下ではむしろ圧縮強度は増加するが, 加熱条件下では約10%の強度低下となった(図3-2)。加熱だけの試験でも加熱+ γ 線照射の試験でも同様の結果となっていることから, 圧縮強度の低下は放射線による損傷よりは, γ ヒートなど熱による影響の方が顕著であるとしている。

弾性係数は, 温度や乾燥による影響に対して鋭敏であるため, γ 線照射による影響以上に気中養生あるいは加熱による影響によって動弾性係数が低下している(図3-3)。

中性化深さの測定結果からは, γ 線照射の有無による中性化の進行程度への影響は認められないとしている(図3-4)。

気中養生及び γ 線照射を行った水セメント比55%のセメントペーストの細孔径分布を図3-5に示す。細孔径はほぼ同様な分布状態を示しており, また全細孔量における相違もほとんどないとしている。

² 空気中で, $1 [R] = 0.877 [\text{rad}] = 0.00877 [\text{Gy}]$

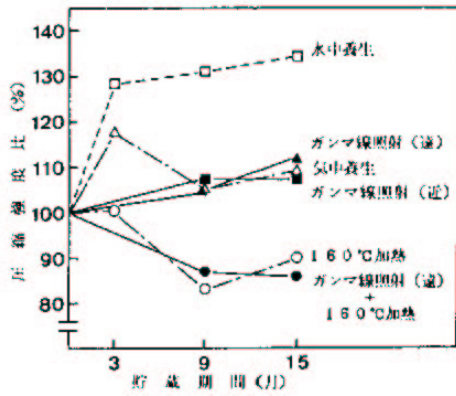


図3-2 圧縮強度へのγ線照射の影響

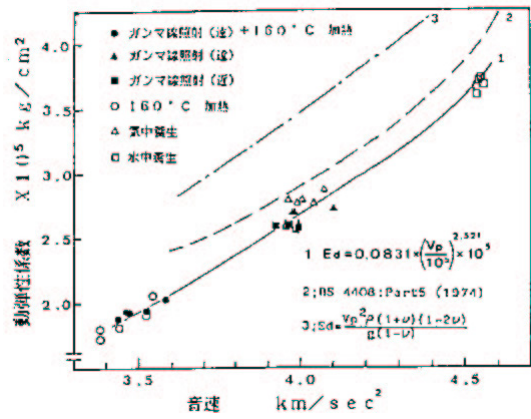


図3-3 動弾性係数へのγ線照射の影響

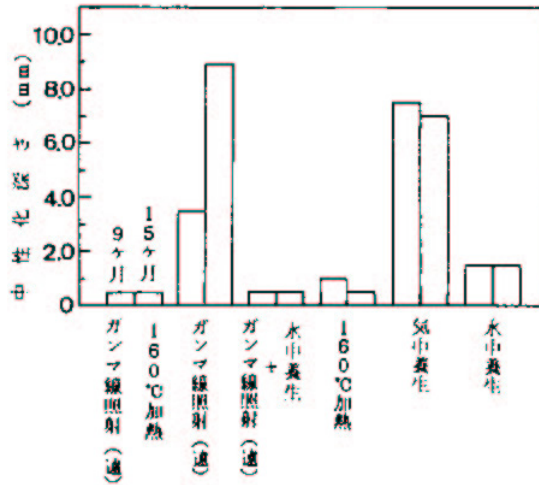
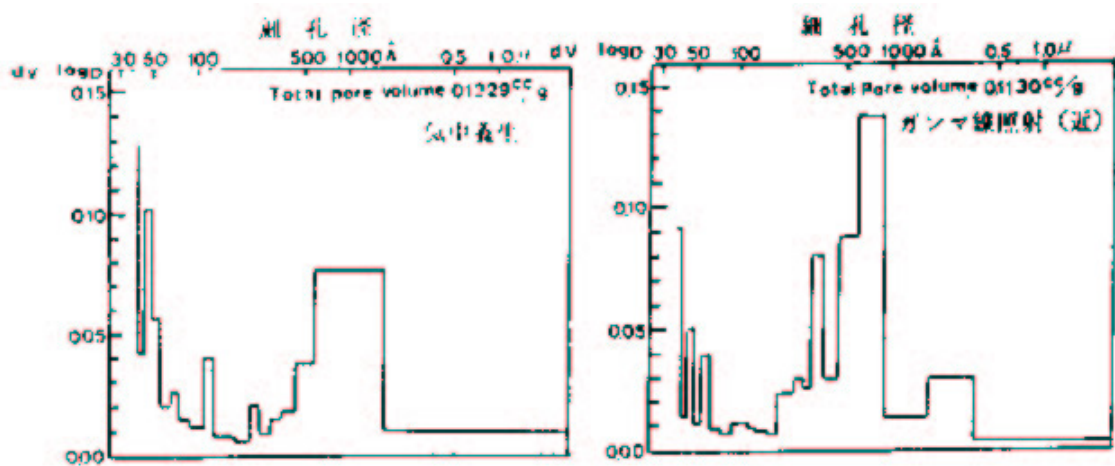


図3-4 中性化深さへのγ線照射の影響



(左図: γ線照射なし, 右図γ線照射あり)

図3-5 細孔径分布へのγ線照射の影響

3.1.3 議論

前項で紹介した既往研究における γ 線によるセメント系材料の吸収線量（照射線量）は、 $9\sim 12 \times 10^6$ [Gy]及び 1.7×10^8 [Gy]であった。一方、遮へい計算から算出されたセメントモルタルの1,000年までの吸収線量（固相）は、表2-5に示したように、保守的に見積もっても、 2.1×10^7 [Gy]であり、これら既往研究の吸収線量と比較して同程度かあるいはより小さな数値となっている。したがって、今回対象とした廃棄体パッケージB内のセメントモルタルにおける放射線損傷に関しても、既往の研究と同程度かあるいはより軽微な影響にとどまるものと考えられる。

TRU概念検討書では、充填材に関する要件・機能について以下のように整理している（共同作業チーム，2000）。

- ① 操業中：廃棄体の耐埋設荷重強度…………… ◎
- ② 操業中：放射性核種の漏出防止…………… ◎
- ③ 閉鎖後：地下水浸入量の抑制…………… ○
- ④ 閉鎖後：放射性核種の物理的な閉じ込め…………… ○
- ⑤ 閉鎖後：化学的緩衝性…………… ◎
- ⑥ 閉鎖後：放射性核種の人工バリア材への収着…………… ◎
- ⑦ 閉鎖後：処分坑道の力学的安定性…………… ◎
- ⑧ 閉鎖後：廃棄体発熱の放散…………… ◎

◎：性能評価において考慮する事項

○：潜在的に期待できる機能

既往研究からは、照射によるセメント系材料の力学的・物理的健全性への影響は無視できるほど小さいレベルであることが示されており、上記要件・機能のうち①，②，④，⑦を阻害することはないと考えられる。また、顕著な鉱物組成変化も生じていないと考えられることから、⑤（化学特性）及び⑧（熱物性）の阻害も考えにくい。空隙構造については、細孔径分布には大きな変化は認められなかったものの、BFS/OPCグラウトでは亀裂生成が確認されており、③（水理特性）についてはなお検討が必要であるかもしれない。しかしながら、放射線損傷による水理特性への影響は、たとえ生じたとしても、それがキャニスタに接した表面近傍に限定されるであろうことを考えれば、地下水との反応によって生じるセメント系材料の鉱物組成・空隙構造・水理特性変化に比較して無視できる程度であろうと考えられる。同様に、既往研究において表面の変色が観察されていることは、⑥（収着特性）への潜在的影響（収着表面特性の変化）を想起させるが、やはりこれも、キャニスタに接した表面近傍に限定されるであろうことを考えれば、セメントモルタル全体の収着性能を阻害するほどの影響とはならないことが予想される。

以上を約すれば、 γ 線によってセメントモルタルが長期にわたって照射され続けた場合、キャニスタに接した表面近傍では、亀裂生成や変色によって局所的な水理特性や収着特性に影響する可能性はあるが、セメント系材料の自律的変遷など他の要因による影響の方が支配的であり、放射線損傷がセメントモルタル全体の性能を損なうほどの影響となることはないと考えられる。

3.2 ベントナイト系材料

3.2.1 ベントナイト系材料での吸収線量

民間再処理施設から発生するハル・エンドピースの処分坑道の概念設計では、ベントナイト系材料は、廃棄体パッケージBを定置した鋼製構造躯体の周囲に設けられる緩衝材として使用される。緩衝材については、止水性、応力緩衝性などの要求から1 m以上の厚さが担保される。

第2章と同一の観測点、すなわち、図2-8における緩衝材の内側境界（廃棄体寄り）における緩衝材（固相）の1,000年までの吸収線量率 [Gy/y]と吸収線量 [Gy]とを、図3-2に示す。同観測点は、線源により近いことから、緩衝材領域で最も吸収線量の高くなるポイントである。

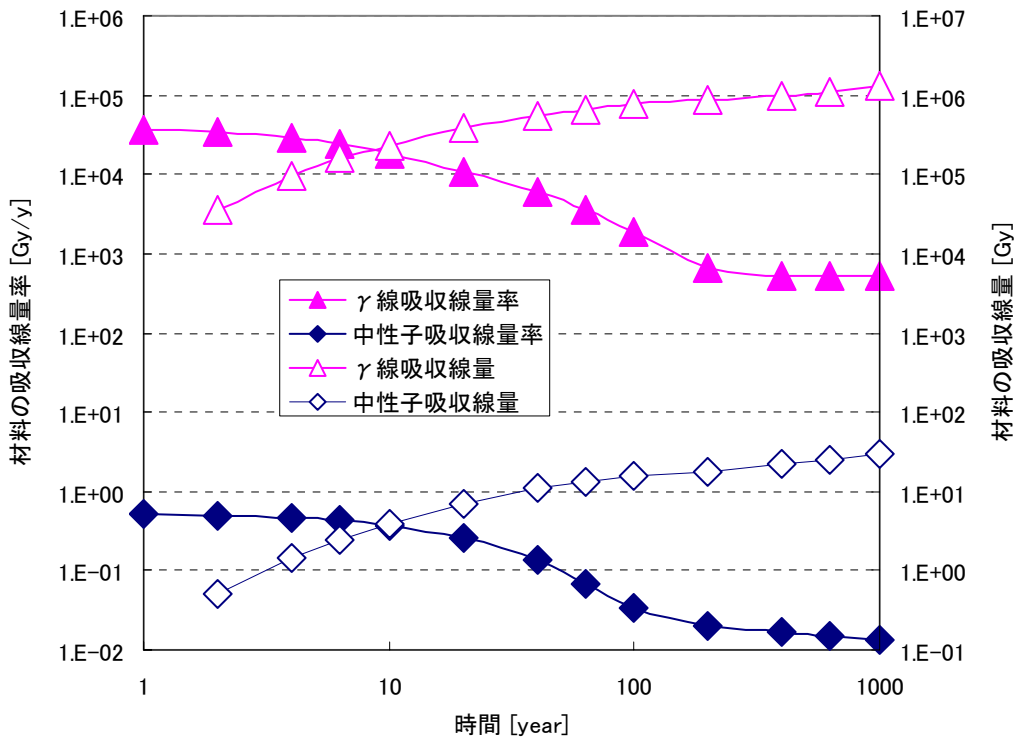


図3-6 緩衝材（内側境界）での吸収線量率と吸収線量

3.2.2 ベントナイト系材料の放射線損傷に関する既往の知見

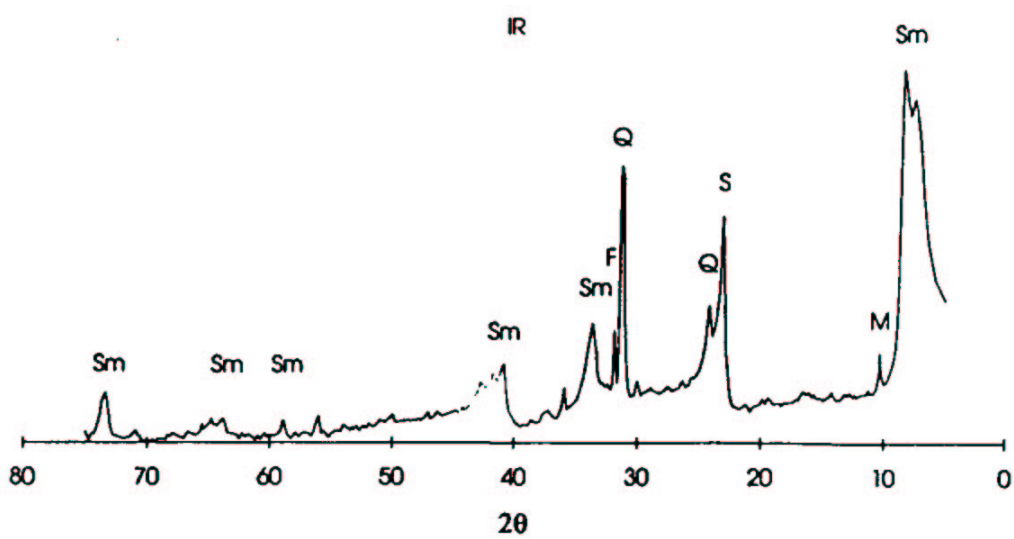
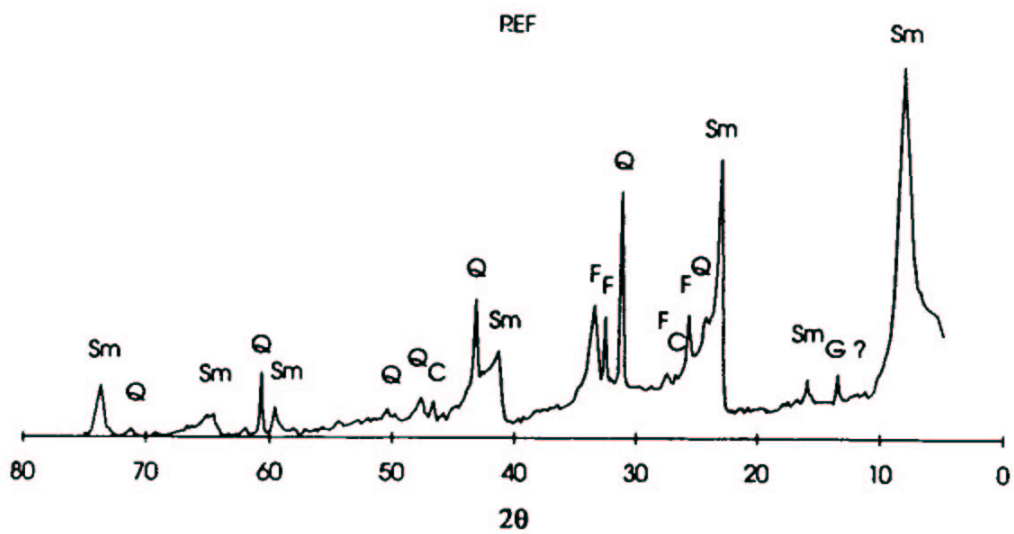
ベントナイト系材料のスメクタイト構造に対する放射線影響については、一般に、大きな構造変質を生じることはないとされている（たとえば Ewing, 1984）。Puschらは、加熱条件下（最大130°Cまで）でMX-80に対して⁶⁰Co線源によって 3.27×10^7 [Gy]までの照射試験を行った結果として、基本的にスメクタイト構造に大きな変化はないものの、長石の消失とごく微量のモンモリロナイトの10 Å鉱物（おそらく擬クロライト）への変質の可能性があることを報告している（Pusch et al., 1993）。図3-7に、照射前と照射後のX線回折結果を示す。

ベントナイト系材料の水理特性については、 9.5×10^7 [Gy]のγ線照射試験を行った結果、本質的な影響とはならないことが報告されている（Grauer, 1986）。

ベントナイト系材料の収着特性については、 ^{60}Co 線源によって最大 10^{10} [rad] (10^8 [Gy]に相当)までの γ 線照射を行った結果、モンモリロナイトのイオン交換容量は照射によってむしろ増大したことが報告されている (Spitsyn et al., 1982)。表3-1に、 γ 線照射による収着容量の変化を示す。同表では、他の線種 (加速器による加速電子)、他の粘土鉱物 (nontronite) による結果も示しているが、収着容量の増加傾向は同様である。

表3-1 粘土鉱物の収着容量への照射影響

Type of irradiation	Conditions of irradiation	Absorbed dose, rad	Sorption capacity, mg-eKV/100 g		
			montmoril-lonite	nontronite	
^{60}Co	-	-	35.00	20.02	
	air-dry	10^7	35.00	20.00	
	"	"	10^8	40.95	23.16
	"	"	10^9	43.22	29.57
	"	"	10^{10}	44.59	31.05
	in solution Sr^{2+}	10^7	35.00	20.02	
	"	"	10^8	36.40	21.38
	"	"	10^9	42.95	28.30
	e	air-dry	10^7	35.00	20.02
	"	"	10^8	39.05	21.47
"	in solution Sr^{2+}	10^7	35.00	20.02	
	"	10^8	36.00	21.30	



(上図：照射前 下図：照射後)

図3-7 γ 線照射前後のMX-80のX線回折結果

3.2.3 議論

前項で紹介した既往研究における γ 線によるベントナイト系材料の吸収線量（照射線量）は、 $10^7 \sim 10^8$ [Gy]程度であった。一方、遮へい計算から算出された緩衝材内側境界での1,000年までの吸収線量（固相）は、表2-5に示したように、保守的に見積もっても、 1.3×10^6 [Gy]であり、これら既往研究の吸収線量と比較してより小さな数値となっている。したがって、今回対象とした緩衝材における放射線損傷に関しても、既往の研究より軽微な影響にとどまるものと考えられる。

TRU概念検討書では、緩衝材に関する要件・機能について以下のように整理している（共同作業チーム，2000）。

- ① 閉鎖後：地下水浸入量の抑制…………… ●
- ② 閉鎖後：放射性核種の物理的な閉じ込め…………… ○
- ③ 閉鎖後：化学的緩衝性…………… ◎
- ④ 閉鎖後：放射性核種の人工バリア材への収着…………… ◎
- ⑤ 閉鎖後：発生空隙の充填…………… ●
- ⑥ 閉鎖後：外力に対する緩衝性…………… ◎
- ⑦ 閉鎖後：廃棄体／構造躯体の支持…………… ●
- ⑧ 閉鎖後：処分坑道の力学的安定性…………… ◎
- ⑨ 閉鎖後：廃棄体発熱の放散…………… ◎
- ⑩ 閉鎖後：ガス透過性／自己修復性…………… ◎
- ⑪ 閉鎖後：コロイドの濾過…………… ●

●：仕様の決定に関する要件（設計仕様）

◎：性能評価において考慮する事項

○：潜在的に期待できる機能

既往研究からは、照射によるベントナイト系材料の止水性及び収着容量への影響は無視できるほど小さいレベルであることが示されており、上記要件・機能のうち①（止水性）及び④（収着特性）を阻害することはないと考えられる。また、既往研究からはスメクタイト構造の大きな変化は生じないと考えられること、さらにそのような結論を導いた既往研究の照射条件に比較して、緩衝材層での吸収線量はオーダーで低く、照射による影響発現の可能性はさらに低いことを考え合わせると、①、④以外の要件・機能についても、それらを阻害することはないと考えられる。

以上を約すれば、 γ 線によって緩衝材が長期にわたって照射され続けたとしても、スメクタイト構造の本質的な変化が生じることはなく、放射線損傷が緩衝材の性能を損なうほどの影響となることはないと考えられる。

4. 人工バリア間隙水の放射線分解に関する検討・解析

4.1 評価の考え方

一般に水の放射線分解による分子性の分解生成物としては H_2 と H_2O_2 とが含まれるが、 H_2 がガスとして散逸したり、相対的に早い速度で液相中を移行したりした場合、残留した H_2O_2 によって人工バ

リア中に酸化性雰囲気形成される可能性が指摘されている（たとえば Grenthe et al., 1983）。本章では、第2章での放射線場の検討に基づきながら、このような水の放射線分解による酸化性雰囲気の形成の可能性について検討する。

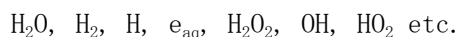
酸化種の生成による影響については、キャニスタ領域とモルタル及び緩衝材領域の2つの領域に区分して評価する。

廃棄体領域での酸化種の生成機構としては、第2章で計算されたγ線及び中性子線による間隙水へのエネルギー付与に加えて、α線によるエネルギー付与を考慮する必要がある。同領域での酸化種影響を緩和・抑制する機構として金属材料の腐食に注目し、酸化種/還元種の生成速度及び累積生成量の観点から検討する。

モルタル及び緩衝材領域での酸化種の生成機構は、第2章で計算された透過γ線及び中性子線による間隙水へのエネルギー付与となる。同領域での酸化種影響を緩和・抑制する機構として緩衝材に随伴鉱物として含有される黄鉄鉱（pyrite : FeS₂）の酸化反応に注目し、酸化種の生成・消滅と物質移行とをカップリングさせた解析を行う。

4.2 水の放射線分解に係るG値

水の放射線分解に関わる化学種は多様であるが、短寿命のラジカルや活性種を除けば、工学的な時間スケールにおいて液相中に残留しうる化学種としては以下が挙げられる。



これらのG値の測定・設定事例を表4-1に示す。G値とは、水の照射において、100eVのエネルギーが吸収されたときの当該化学種の生成あるいは消滅分子数として定義される。G値は、水分解生成物の種類、線種、溶液組成などによる影響を受ける。

同表の水分解生成物のG値については、マスバランス及び化学量論から、以下の式が成立する。

$$G_{\text{H}_2\text{O}} = 2 G_{\text{H}_2} + G_{\text{H}} + G_{e-\text{aq}} = 2 G_{\text{H}_2\text{O}_2} + G_{\text{OH}}^3 \quad (4.2-1 \text{ 式})$$

表 4-1 α線, γ線, 中性子線照射による水分解生成物のG値

単位 [number/100eV]

	$G_{e-\text{aq}}$	G_{H}	G_{H_2}	G_{OH}	$G_{\text{H}_2\text{O}_2}$	$G_{\text{H}_2\text{O}}$	Ref.
α線	0.06	0.21	1.3	0.24	0.985	2.65	Christensen & Bjergbakke (1983)
γ線	2.7	0.51	0.45	2.67	0.72	4.11	Bjergbakke et al. (1984)
	2.63	0.55	0.45	2.72	0.68	4.08	Draganic et al. (1969)
	2.64	0.57	0.45	2.82	0.645	4.11	Elliot et al. (1993)
	2.70	0.61	0.43	2.86	0.655	4.17	Burns & Moore (1976)
中性子線 ⁴	0.43	0.58	1.07	0.86	1.145	3.15	Geni et al. (1995)
	0.93	0.50	0.88	1.09	0.99	3.15	Burns & Moore (1976)
	0.15	0.41	0.85	0.37	0.95	2.27	Gordon et al. (1983)

³ $G_{\text{H}_2\text{O}_2}$ を無視した場合。

⁴ Sunaryo et al. (1994)からの引用

本検討では、これら複数の G 値の推奨値のうち、 H_2O_2 の生成について最も保守的な設定となる以下の数値を適用する。

- α 線による放射線分解 : $G_{\text{H}_2\text{O}_2} = 0.985$ [number/100eV]
- γ 線による放射線分解 : $G_{\text{H}_2\text{O}_2} = 0.72$ [number/100eV]
- 中性子線による放射線分解 : $G_{\text{H}_2\text{O}_2} = 1.145$ [number/100eV]

4.3 人工バリアの還元作用

4.3.1 金属材料による還元容量

ハル・エンドピースを定置する処分坑道中には、相当量の金属が含まれる。これらの金属が腐食などの作用によって溶解して金属イオンとなる際、自身は酸化されて溶液を還元性とする事となる。

このような金属によって提供される還元容量を表 4-2 に示す。ここで、金属元素としては Fe と Zr とを考慮し、それぞれ炭素鋼・ステンレス鋼およびジルカロイから（のみ）供給されるとしている。両元素の腐食時の形態としては、 Fe_3O_4 と $\text{Zr}(\text{OH})_4$ を想定し、還元作用における価数の化学量論を、それぞれ(-8/3)、(-4)とした。

また、還元容量は使用される金属部材に応じて算出されている。還元容量算出にあたり、考慮した部材は次のとおりである。



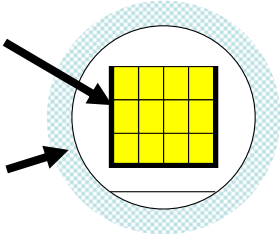
- 圧縮体（炭素鋼，ステンレス鋼，ジルカロイ）
- キャニスタ（ステンレス鋼）
- 廃棄体パッケージ B（炭素鋼）
- 鋼製構造躯体（炭素鋼）
- 支保・ロックボルト（炭素鋼）

表 4-2 に示すように、廃棄体パッケージ B，鋼製構造躯体，支保等を考慮しなくとも，廃棄体すなわち圧縮体とキャニスタによって約 1×10^9 [mol] に相当する還元容量を有していることがわかる。

この金属による還元容量は、後述する廃棄体での酸化種生成（ α 線を含む全ての放射線による内部照射）の影響の項において、酸化性雰囲気形成の可能性を判断するための指標のひとつとして利用される。

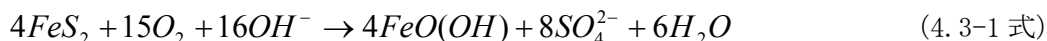
表 4-2 人工バリア中の金属による還元容量

[mol]

想定する領域		炭素鋼	SUS	ジルカロイ	合計
①：キャニスタ		1.0×10^7	3.7×10^8	5.7×10^8	9.5×10^8
②：①+廃棄体パッケージ B		1.7×10^8	同上		1.1×10^9
③：②+鋼製構造躯体		3.1×10^8	同上		1.3×10^9
④：③+支保・ロックボルト		3.1×10^8	同上		1.3×10^9

4.3.2 ベントナイト中の黄鉄鉱による還元作用

表 4-3 にベントナイトの鉱物組成を示す (伊藤ほか, 1993)。ベントナイト中には主成分となるモンモリロナイト以外にも複数種の随伴鉱物が含有されているが, このうち黄鉄鉱 (pyrite, FeS_2) は, 高 pH 条件下では次式のように溶存酸素を消費することが知られている (Manaka et al., 2000)。



溶存酸素に対するこのような黄鉄鉱の還元作用は, 水の放射線分解で生成する H_2O_2 のような酸化種に対しても, 同様の還元作用を有するものと考えられる。

この黄鉄鉱による還元作用は, 後述するモルタル+緩衝材での透過 γ 線による酸化種生成の影響の項において, 酸化種の物質移行を評価する際のその消滅機構のひとつとして考慮される。

表 4-3 ベントナイトの鉱物組成

鉱物名*1	組成式	式量	設定値*1
モンモリロナイト*2	$\text{Na}_{0.33}\text{Mg}_{0.33}\text{Al}_{1.67}\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2$	369.0	48.0wt%
	$\text{Ca}_{0.165}\text{Mg}_{0.33}\text{Al}_{1.67}\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2$	368.0	
	$\text{K}_{0.33}\text{Mg}_{0.33}\text{Al}_{1.67}\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2$	374.3	
	$\text{Mg}_{0.165}\text{Mg}_{0.33}\text{Al}_{1.67}\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2$	365.4	
クオーツ	SiO_2	60.1	0.6wt%
カルセドニ	SiO_2	60.1	38.0wt%
プラジオクレース	$(\text{Na}, \text{Ca})(\text{Al}, \text{Si})_4\text{O}_8$	262.2	4.7wt%
カルサイト	CaCO_3	100.1	2.4wt%
ドロマイト	$\text{MgCa}(\text{CO}_3)_2$	184.4	2.4wt%
アナルサイム	$\text{NaAlSi}_2\text{O}_6\text{H}_2\text{O}$	238.2	3.3wt%
パイライト	FeS_2	120.0	0.6wt%

*1: 伊藤ほか(1993)の分析値に基づき設定

*2: Na 型, Ca 型, K 型, Mg 型の比は初期の交換性陽イオン組成の比とする

4.4 放射線分解による人工バリアでの酸化性雰囲気形成の可能性の検討

4.4.1 廃棄体での酸化種生成の影響

(1) 酸化種生成機構

キャニスタ領域はソースタームとして放射性核種が保持されている領域であることから, 水の放射線分解による酸化種生成機構としては, 透過性の高い γ 線や中性子線による間隙水へのエネルギー付与に加えて, 通常は平均飛程が短いことから無視されることの多い α 線によるエネルギー付与 (内部照射) についても考慮する必要がある。これら各線種による間隙水へのエネルギー付与と 4.2 節で設定した G 値とから, キャニスタ部での各線種による酸化種 (H_2O_2) の累積生成当量⁵を算出した結果を図 4-1 に示す。

α 崩壊量については, キャニスタからの核種の漏洩がないとして, インベントリの経時変化から算出した。 α 線に起因する水の放射線分解による H_2O_2 の生成量の評価にあたっては, 初期状態

⁵ H_2O_2 の価数 2 を考慮。

(閉鎖直後)においてキャニスタが既に冠水していると仮定した。また、 α 線の平均エネルギーは5MeVとし(McKinley, 1985), 実際には固相側へのエネルギー付与も想定されるものの, 保守的に同エネルギーの全てが間隙水側に付与されるものとした。一方, γ 線及び中性子線による H_2O_2 の生成については, やはり初期状態(閉鎖直後)においてキャニスタが既に冠水しているものとし, 第2章で算出された液相側の線量がキャニスタ内の(水飽和した)間隙で吸収されたとして H_2O_2 の生成量を算出している。

同図からは, キャニスタ領域での H_2O_2 の生成については, α 線による寄与が最も大きいことが示唆されている。 α 線のエネルギー全量が間隙水側に付与されるとしている点で, α 線による寄与は高めに見積もられているが, それでも α 線による間隙水側へのエネルギー付与率はそれほど低くはならないと考えられることから⁶, γ 線による寄与が α 線による寄与を卓越することは考えにくい。また, 短半減期核種が主要な放出源となる γ 線に比較して, 比較的長半減期の核種が放出源となる α 線の場合, 時間の経過に伴う減衰効果は小さいことから, 長期的には, α 線による寄与が卓越する傾向はさらに助長される。

以上より, キャニスタでの酸化種生成機構としては α 線による水の放射線分解が主要な機構であると考え, 同領域での酸化種生成(生成率及び累積生成量)については, α 線に起因するものから算出する。

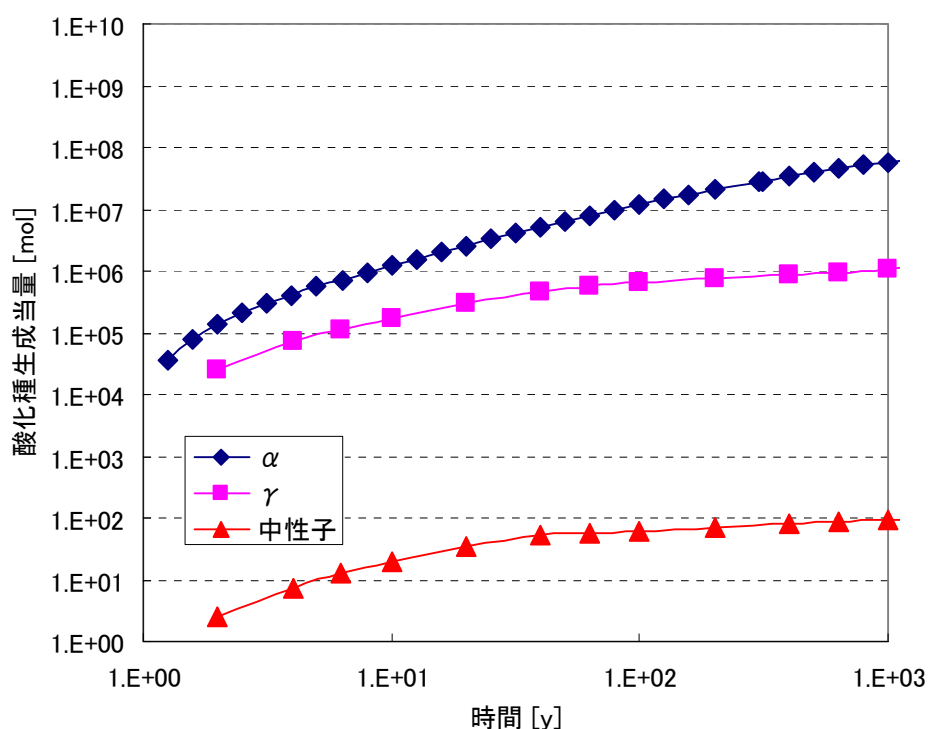


図 4-1 キャニスタ部での各線種による酸化種生成量

⁶ 放射性核種がマトリクス内に均一に保持されており, その間隙率も小さいガラス固化体の場合, α 線による水側へのエネルギー付与率を0.5%と見積もった例がある(McKinley, 1985)。これに対してハル・エンドピースの場合, α 核種は基本的に圧縮体の表面に付着しており, またキャニスタ内のポイド体積も大きいことから, このような小さなエネルギー付与率を期待することは困難であると考えられる。

(2) 酸化種生成速度と還元種供給速度

キャニスタ部に存在する金属廃棄物及びキャニスタの腐食は、周囲の酸化種を消費しながら進行することが考えられるため、これらの腐食速度を還元種の供給速度と考え、これを酸化種の生成速度と比較することによって、酸化性雰囲気形成の可能性について推測することができる。

放射線分解による酸化種の生成速度と腐食による還元種の供給速度とを図 4-2 に比較する。腐食する材料としては廃棄物の放射化金属と容器のキャニスタとを考慮し、腐食機構としては酸化性腐食と還元性腐食とをそれぞれ考慮した。還元種の供給速度に用いた各金属の腐食速度の設定を表 4-4 に示す。

図 4-2 では、腐食機構が酸化性腐食から還元性腐食に遷移することを考慮すれば、閉鎖後 1 万年程度までは還元種の供給速度が酸化種の生成速度を卓越していることが示されている。1 万年以降は酸化種の供給速度が還元種の供給速度を上回っているが、再冠水による腐食開始の遅れがあること、核種漏洩の開始によってキャニスタ内での α 放出量が相対的に減少すること等を勘案すれば、(還元種の供給速度) > (酸化種の生成速度) となる期間は、さらに長期化することが予想される。また、たとえば数万年経過後、酸化種の生成速度が還元種の供給速度を上回っていたとしても、その時点の酸化種の生成速度は初期のそれよりも 2 オーダー程度低くなっていることから、酸化種生成による影響はより緩和されている状況にあることが指摘できる。

表 4-4 金属の腐食速度

単位： μ m/y

	還元性腐食		酸化性腐食	
炭素鋼	0.1	三原ほか(2002), 西村ほか(2003)より	0.1	還元性腐食と同程度と仮定
ステンレス, インコネル	0.02		0.1	
ジルカロイ	0.02	上記試験結果と水素吸蔵を勘案して設定	0.1	共同作業チーム(2000)より

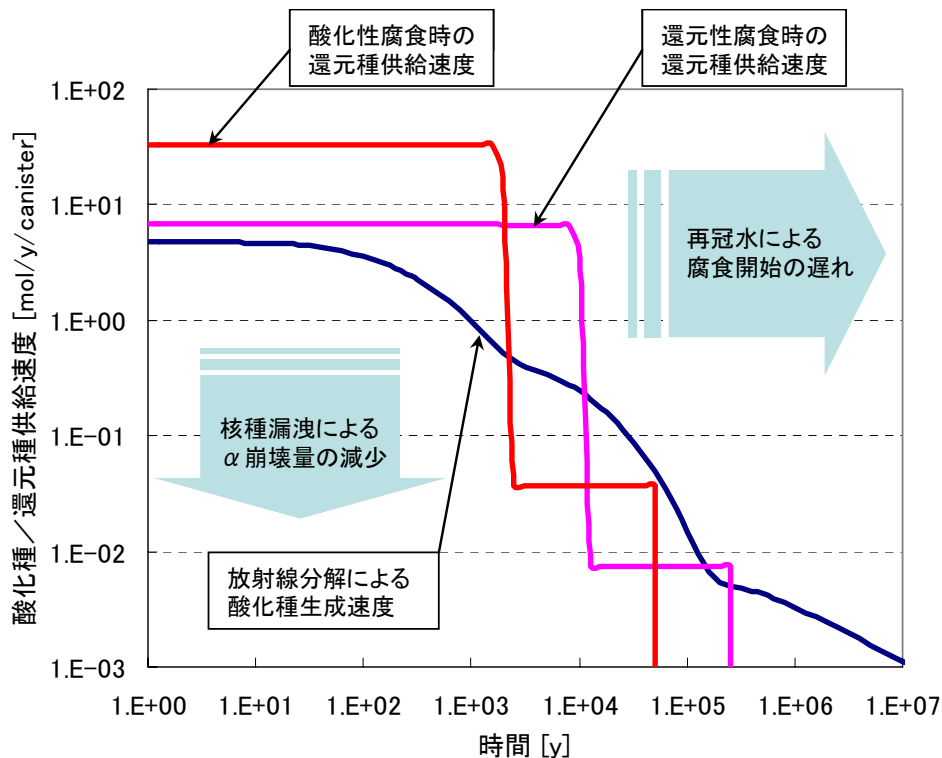


図 4-2 キャニスタ部での酸化種の生成速度と還元種の供給速度

(3) 酸化種生成量と還元容量

水の放射線分解が生じるのは再冠水以降であり，それまでの放射線場の影響は酸化種の生成には寄与しない。上記では，保守的に，閉鎖直後で既にキャニスタが冠水している状態を想定しているが，実際にキャニスタが冠水するまでにはかなりの時間が必要であり，それまでは水の放射線分解に伴う酸化種の生成は発生しない。

このようなキャニスタが冠水するまでの時間遅れ（10年，100年及び1,000年）を考慮して， α 線による H_2O_2 の生成当量を算出した結果を図4-3に示す。超長期間経過後の酸化種の累積生成量には大きな差はないものの，冠水後しばらくの期間は，酸化種の生成量が抑制されていることがわかる。また，ここではキャニスタ内に核種がいつまでも残留した状態を想定しているけれども，実際には，（ α 核種の移行は緩慢とはいえそれでも）キャニスタ開口後の核種漏洩によって α -emission量が減少して酸化種の生成量は減少することとなる。

同図には，4.3.1項に整理した廃棄体中の金属（ハル圧縮体+キャニスタ容器）による還元容量（ 9.5×10^8 [mol]）を併せて示している。酸化種の累積生成量が，廃棄体中の金属による還元容量を超えるには， 10^7 年以上の超長期にわたる α -emissionの蓄積が必要であることがわかる。

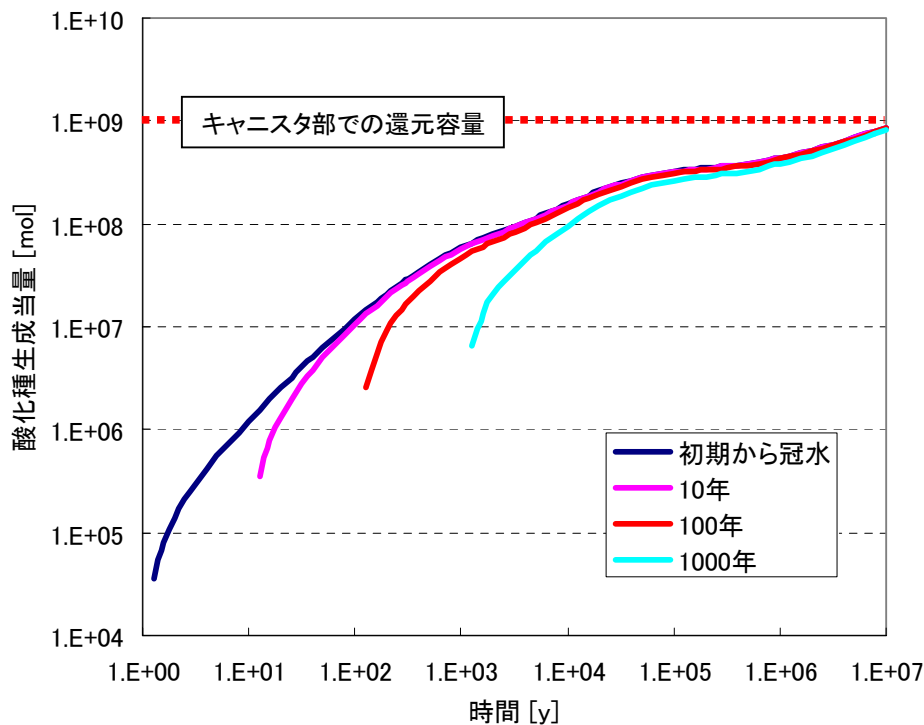


図 4-3 キャニスタが冠水するまでの時間遅れと酸化種生成量

4.4.2 モルタル及び緩衝材での酸化種生成の影響

(1) 酸化種生成機構

モルタル及び緩衝材間隙水において、水の放射線分解による酸化種生成の要因としては、①廃棄体からの透過 γ 線、②廃棄体からの透過中性子線、及び③廃棄体からモルタル/緩衝材に移行してきた放射性核種による内部照射を想定することができる。

このうち③廃棄体からモルタル/緩衝材に移行してきた放射性核種による内部照射については、放射性核種の漏洩量は基本的にわずかであり、特に内部照射の観点から影響の大きい α -emitter (アクチニド) の移行は強く遅延されることから、酸化種生成の要因から除外可能であると考えられる。また、第2章に示したように、モルタルあるいは緩衝材における空気カーマ率について、 γ 線 (1次 γ 線) による寄与が中性子線による寄与よりもはるかに大きいことから、上記②廃棄体からの透過中性子線による酸化種生成量は、 γ 線による酸化種生成量に比較して十分低いことが予想される。

したがって以降では、モルタル及び緩衝材での水の放射線分解による酸化種生成は、廃棄体からの透過 γ 線に起因するとして検討を進めることとする。

(2) 酸化種の生成と消滅を考慮した物質移行解析

a. モデル化

モルタル及び緩衝材での酸化種濃度の空間分布及びその経時変化を解析によって評価することを試みる。これらの領域における酸化種の挙動に関して以下の現象を考慮することとする。

【モルタル】

- ◆透過 γ 線による生成
- ◆拡散による移行

【緩衝材】

- ◆透過 γ 線による生成
- ◆pyrite との反応による消滅
- ◆拡散による移行

それぞれの領域におけるこれらの現象について、以下のような数学的定式化を行う。

(モルタル : $0 \leq x < L_m$)

$$\frac{\partial C(x,t)}{\partial t} = D_m \frac{\partial^2 C(x,t)}{\partial x^2} + R_m(t) \cdot \exp(-\lambda_m x) \quad (4.4-1 \text{ 式})$$

(緩衝材 : $L_m < x \leq L_m + L_b$)

$$\frac{\partial C(x,t)}{\partial t} = D_m \frac{\partial^2 C(x,t)}{\partial x^2} + R_m(t) \cdot \exp(-\lambda_m x) - \frac{15}{4} k' \frac{SA}{V} C(x,t) \quad (4.4-2 \text{ 式})$$

$$R_i(t) = \frac{\varepsilon_i G E_i(t)}{100 A v} \quad (i = m, b) \quad (4.4-3 \text{ 式})$$

(境界条件)⁷

$$C(0,t) = C(L_m, t) = C(L_m + L_b, t) = 0 \quad (4.4-4 \text{ 式})$$

(初期条件)

$$C(x,0) = 0 \quad (4.4-5 \text{ 式})$$

- $C(x,t)$: 酸化種濃度 [mol/m³]
- D_i : 媒体 i での実効拡散係数 [m²/s]
- λ_i : 媒体 i での線吸収係数 [1/m]
- k' : pyrite による酸化種消失の速度定数 [m/s]
- SA : pyrite の表面積 [m²]
- V : 間隙水体積 [m³]
- ε_i : 媒体 i の間隙率 [m²/s]
- G : 酸化種生成の G 値 [分子/100eV]
- $E_i(t)$: 媒体 i での間隙水の吸収線量率 [eV/(m³ s)]
- $A v$: アボガドロ数 [分子/mol]

上記の支配方程式に基づき、モルタル+緩衝材の領域を図 4-4 のようにモデル化した。キャニスタとモルタルの境界を始点 (x=0) とした直交 1 次元座標系において、モルタル 165mm 及び緩衝材 1,000mm をそれぞれ 3 分割, 10 分割したセルを設け、有限差分法によって解析した。モルタルと緩衝材の境界に設けられる鋼製構造躯体は、今回の評価においては移行媒体としてはモデル化していない。

⁷ キャニスタ表面、及びモルタルと緩衝材の境界に位置する鋼製構造躯体では、金属腐食のため常に酸化種が消費されるとした。また、緩衝材外側の掘削影響領域では、溶質は多量の地下水で希釈されると考え、ゼロ濃度境界とした。

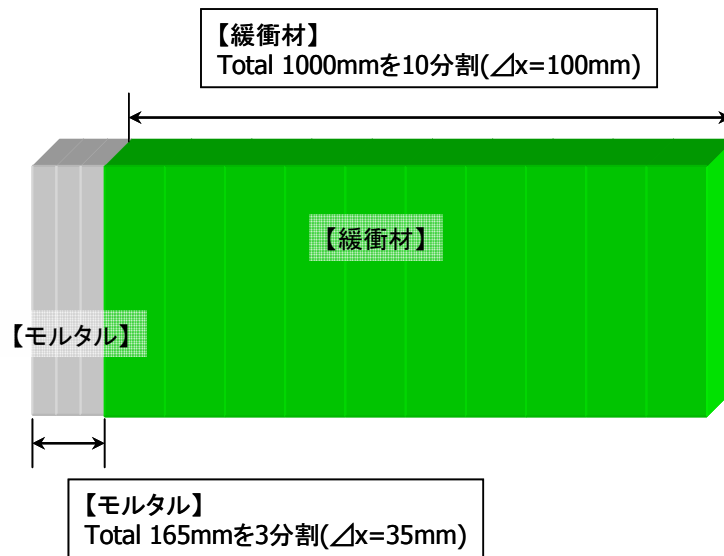


図 4-4 モルタル+緩衝材での酸化種挙動解析のモデル体系

b. 条件設定

解析におけるデータ設定を表 4-5 に示す。

このうち吸収線量率 $E_i(t)$ 及び線吸収係数 λ_i については第 2 章での遮へい計算結果に基づいている。吸収線量率 $E_i(t)$ については、遮へい計算結果における液相へのエネルギー付与分が相当するとした。代表的な時刻における、モルタル+緩衝材領域での単位体積あたりの吸収線量率を図 4-5 に示す。また、線吸収係数 λ_i については、同図における距離に対する減衰曲線からフィッティングによって設定した。

表 4-5 モルタル及び緩衝材での酸化種挙動解析におけるデータ設定

パラメータ	記号	モルタル	緩衝材	備考
酸化種の実効拡散係数 [m ² /s]	D_i	7.6×10^{-10}	3.0×10^{-10}	間隙率及び自由水中の拡散係数 4×10^{-10} [m ² /s] より
酸化種の G 値 [分子/100eV]	G	0.72		Bjergbakke et al., (1984)
吸収線量率 [eV]	$E_i(t)$	遮へい計算結果		10 ³ 年までの評価結果
間隙率 [volume/volume]	ε_i	0.19	0.40	設定値
アボガドロ数 [分子/mol]	A_v	6.023×10^{23}		—
酸化種消失速度定数 [m/s]	k'	—	1.46×10^{-9}	Manaka et al., (2000)
pyrite の表面積 [m ²]	SA	—	pyrite 比表面積 0.03[m ² /g], 含有率 0.6w/o より, 解析メッシュに応じて設定	
間隙水体積 [m ³]	V	—		
線吸収係数 [1/m]	λ_i	13.9	8.78	遮へい計算結果より
厚さ [m]	L_i	0.165	1	人工バリア設計

(添字 i=m, b : m はモルタルを, b は緩衝材を表す。)

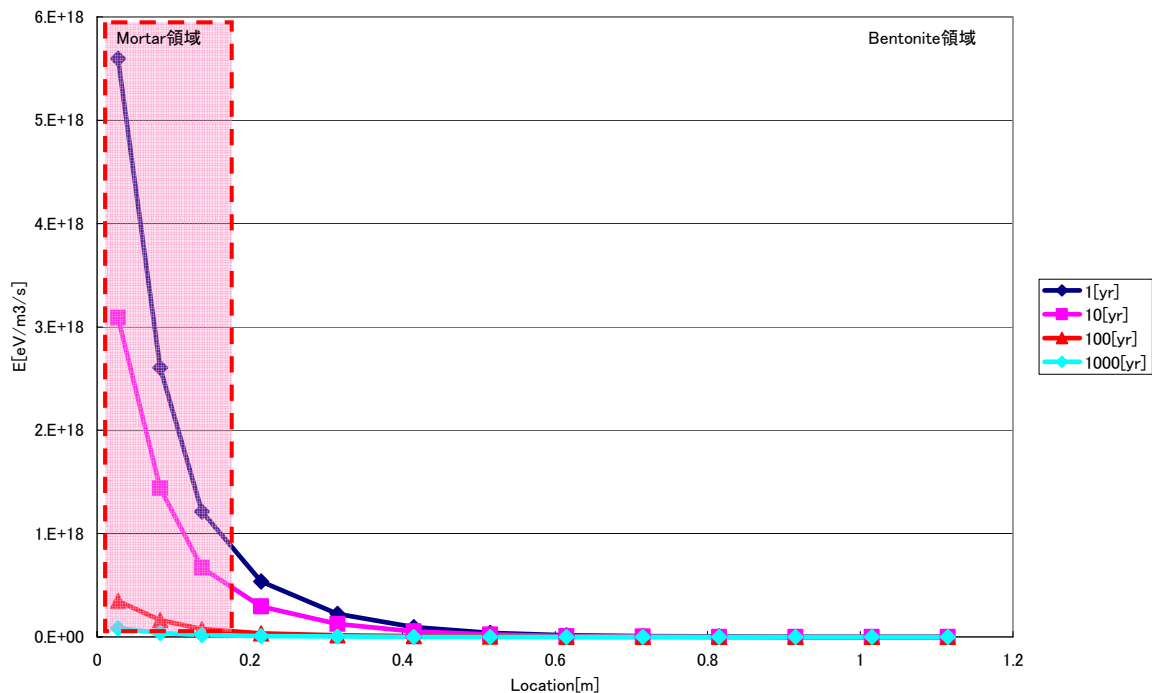


図 4-5 モルタル及び緩衝材での透過 γ 線による単位体積あたりの吸収線量率

c. 解析結果

1年、10年、100年及び1,000年における酸化種濃度の空間分布の解析結果を図4-6に示す。また、同じように酸化種濃度の時空間分布を図4-7により連続的に示す。

緩衝材間隙水中では、pyriteとの酸化還元反応によって消費されることから、酸化種はモルタル間隙水に比較して相対的に低い濃度に保たれていることが理解できる。また、モルタルの間隙水中でも、閉鎖後初期には有意な量の酸化種が残存するけれども、閉鎖後約100年以降は $0.1\text{mg}/\text{dm}^3$ 未満の酸化種濃度となった。

図4-8に、緩衝材領域の代表的な位置（モルタル近傍、ほぼ中央、母岩近傍）におけるpyriteの残存率を示す。同図より、モルタル近傍では、1,000年間で約20%のpyriteが消費されているもののまだ十分な量が残存しており、緩衝材領域においてpyriteが過剰に消費されていないことが確認されている。

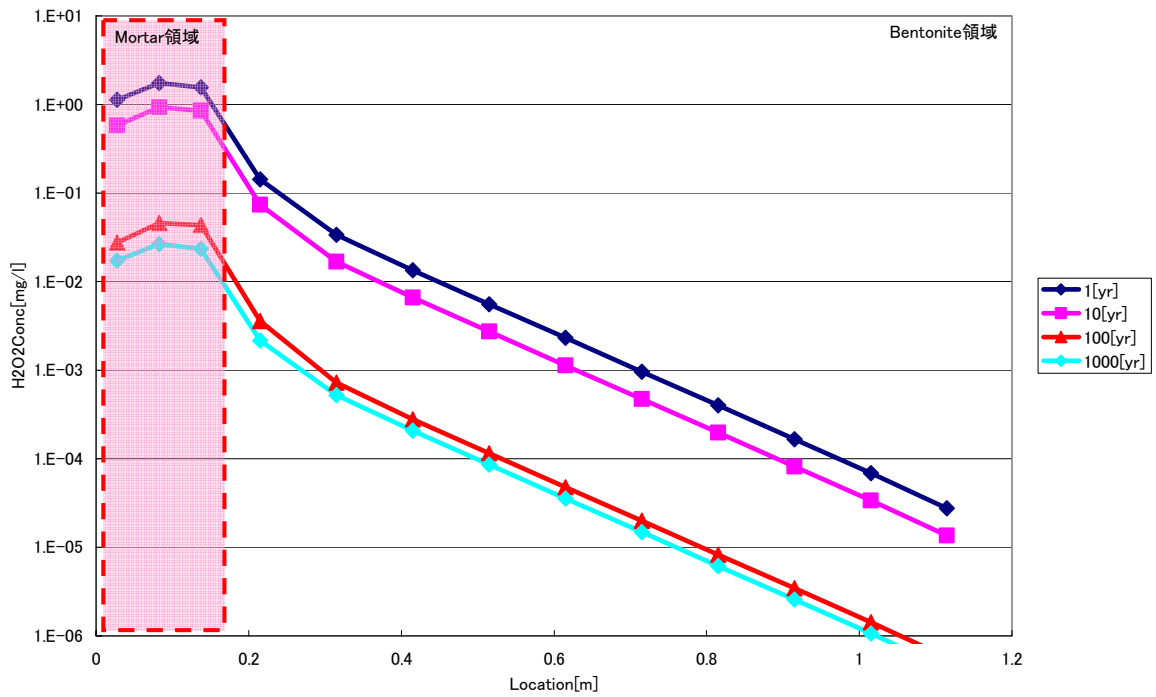


図 4-6 モルタル及び緩衝材での酸化種空間分布の経時変化

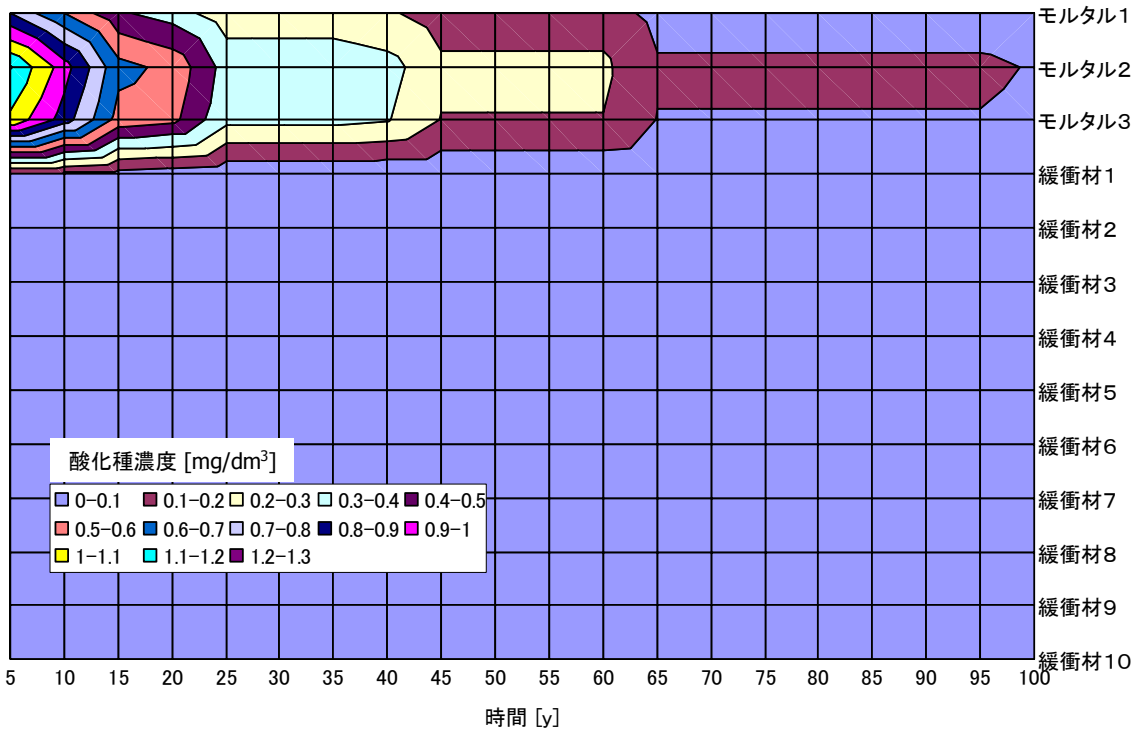


図 4-7 モルタル及び緩衝材での透過γ線による生成酸化種濃度の時空間分布

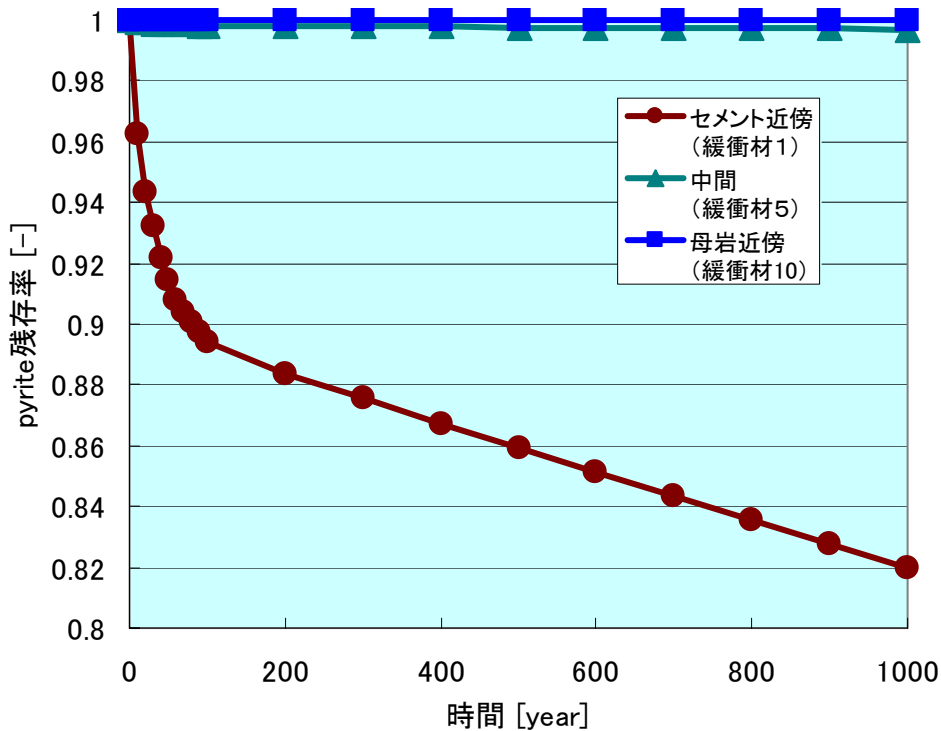


図 4-8 酸化種消費に利用される pyrite の残存率

5. 結論

遮へい計算結果から、ハル・エンドピースを収納した廃棄体パッケージ B の表面線量率は、HLW のオーバーパックの表面線量率よりも数オーダー高くなることがわかった。このことは、廃棄体パッケージ B の定置やその処分坑道の閉鎖作業等の安全性を確保するための方策を検討する必要があることを示唆している。

既往の試験研究から得られている知見から判断すれば、上記のような表面線量率でも、セメント系材料あるいはベントナイト系材料の性能を完全に阻害してしまうような照射損傷が生じることはないと考えられる。

放射線分解による酸化性雰囲気形成の可能性については、廃棄体部とモルタル及び緩衝材に分けて検討した。廃棄体部においては、保守的に見積もったとしても、数万年間は酸化種の生成速度よりも金属腐食による還元種の供給速度の方が大きいこと、また、酸化種の累積生成量に対して、これを消費するだけの十分な還元容量があることから、酸化性雰囲気が形成される可能性は小さいものと考えられる。既往の試験研究においても、 γ 線照射条件下で共存する H_2 が酸化種による酸化を抑制することを報告しており (King et al., 1999), 上記判断を支持している。また、モルタル及び緩衝材においては、透過 γ 線によって生成した酸化種の時空間分布を、物質移行と生成・消失を考慮した解析によって評価した結果、緩衝材では pyrite との酸化還元反応によって酸化種が十分に消費されること、モルタルでは、閉鎖後約 100 年以降は、低い酸化種濃度に保たれることがわかった。実際には、再冠水するまでに 500 年程度の期間を要することを考慮すれば (安藤ほか, 2005), モルタル及び緩衝材において酸化性領域が形成される可能性は低いものと考えられる。

参考文献

- 安藤賢一, 納田勝, 山本幹彦, 三原守弘 (2005) : TRU 廃棄物処分におけるガス発生・移行解析, JNC TN8400 2005-026.
- Bjergbakke, E., Sehested, K., Rasmussen, O. L. and Christensen, H. (1984) : Input Files for Computer Simulation of Water Radiolysis, M-2430, Danish Atomic Energy Commission.
- Burns, W.G. & Moore, P. (1976) : Radiat. Effects, 30, pp.233-242.
- Christensen, H. & Bjergbakke, E. (1983) : Radiolysis of Groundwater from HLW Stored in Copper Canisters, Studvik Energiteknik AB, 82-02, pp.1-33.
- Draganic, I.G. et al. (1969) : J. Phys. Chem., 73, 2564.
- Elliot, A.J. et al. (1993) : J. Chem. Soc., Faraday Trans., 89, 1193.
- Engle, W.W. (1967) : A User Manual for ANISN - A One-dimensional Discrete Ordinate Transport Code with Anisotropic Scattering, K-1963.
- Ewing, R.C. (1984) : Summary - Smectite Alteration -, Proceedings of Workshop Convened at the Shoreham Hotel Washington D.C. Dec.8-9, SKB KBS Technical Report 84-11.
- Grauer, R. (1986) : Bentonite as a Backfill Material in the High Level Waste Repository. Chemical Aspects. Nagra Technical Report NTB 86-12E.
- Grenthe, I., and Puigdomenech, I. and Bruno, J. (1983) : The possible effects of alpha and beta radiolysis on the matrix dissolution of spent nuclear fuel. KBS TR 83-02.
- 伊藤雅和, 岡本真由美, 柴田正博, 佐々木康雄, 壇原徹, 鈴木啓三, 渡辺隆 (1993) : ベントナイトの鉱物分析, PNC TN8430 93-003.
- 核燃料サイクル開発機構 (1999a) : 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-地層処分研究開発第2次とりまとめ- (分冊3: 地層処分システムの安全評価), JNC TN1400-99-023.
- 核燃料サイクル開発機構 (1999b) : 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-地層処分研究開発第2次とりまとめ- (分冊2: 地層処分の工学技術), JNC TN1400-99-022.
- 共同作業チーム 核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会 (2000) : TRU 廃棄物処分概念検討書, JNC TY1400 2000-001, TRU TR-2000-01.
- Manaka, M., Kawasaki, M. and Honda, A. (2000) : Measurements of the Effective Diffusion Coefficient of Dissolved Oxygen and Oxidation Rate of Pyrite by Dissolved Oxygen in Compacted Sodium Bentonite. Nuclear Technology Vol.130.
- McKinley, I.G. (1985) : The Geochemistry of the Near-Field. Nagra Technical Report 84-48.
- 三原守弘, 西村務, 和田隆太郎, 本田明 (2002) : 低酸素かつアルカリ条件における炭素鋼, ステンレス鋼及びジルカロイからのガス発生率及び腐食速度の評価, サイクル機構技報, No. 15, JNC TN1340 2002-001, pp.91-101.
- 西村務, 和田隆太郎, 藤原和雄 (2003) : 地層処分場における金属腐食に伴う水素ガス発生量評価, 神戸製鋼技報, Vol. 53, No. 3.

- Pusch, R., Karnland O., Lajudie A. and Decarreau A. (1993) : MX 80 clay exposed to high temperatures and gamma radiation. SKB technical report 93-03.
- Spitsyn, V. I., Balukova, B. D. and Savushkina, M. K. (1982) : Influence of Irradiation with Gamma-Quanta and Beam of Accelerated Electrons on the Sorption Parameters of Clay Minerals of the Montmorillonite Group. Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol. 6, pp. 703-707.
- Sunaryo, G. L., Katsumura, Y., Shirai, I., Hiroishi, D. & Ishigure, K. (1994) : Radiolysis of Water at Elevated Temperature II - Irradiation with γ -rays and Fast Neutrons up to 250°C, Radiat. Phys. Chem. 44, pp. 273-280.
- Wilding, C. R., Berghman, K., Donato, A. and Glasser, F. P. (1991) : Effects of Radiolysis, Radiation Damage and Waste/Matrix Interaction, European Community Conference on Radioactive Waste Management and Disposal (3rd), Luxembourg.
- 山田浩司, 村瀬欣伸, 横田紀男 (1984) : γ 照射がコンクリートの諸物性に及ぼす影響に関する研究. セメント技術年報 38.

4-10 硝酸イオン及び硝酸イオン由来のアンモニアと 放射性核種との錯体形成に関する評価 (4.4.9.4)

1. はじめに

TRU 廃棄物に含まれる多くの放射性核種は金属元素である。TRU 廃棄物を処分する上で非金属元素である重要な放射性核種(I-129, C-14 及び Cl-36)も存在するが、これらは可溶性であり、むしろ可溶性であることがこれらの放射性核種を処分する際の重要核種たらしめている。一方、金属元素の多くは陽イオンとして水溶液に溶出し、その多くは TRU 廃棄物の処分施設で想定されるセメント系材料由来のアルカリ性条件にあつては水酸化物等として沈殿して低い溶解度を示す。この場合の主要な溶存化学種は水和イオンや加水分解種である。これらの金属陽イオンの形態をとる核種は、通常、低い溶解度及びセメント系材料等への収着により移行が遅延され、前述の可溶性核種と比較して、核種量は多くとも相対的な被ばくへの寄与は小さい。しかし、金属陽イオンである放射性核種は、不足している電子対を水及び水酸化物イオン以外の溶存塩基性体(配位子)から受け入れ可溶性錯体を形成する場合がある。この場合には、錯体形成反応が平衡するまで放射性核種のみかけの溶解度は上昇する。また、可溶性錯体の固相への収着性がない場合には、見かけ上収着分配係数は低下することとなる。このようにして放射性核種の可溶性錯体が多量に形成されると溶解度上昇及び収着分配係数の低下が生じ、核種移行が加速されることとなる。したがって、想定される pH 及び配位子濃度の条件において錯体が支配化学種になるか否かを評価することによって、錯体形成による溶解度上昇及び収着分配係数低下を評価することができる。そこで、第2次 TRU レポート 4.4.9.4(2)において、 NO_3^- 及び NO_2^- の還元生成物である NH_3 を対象の配位子として、処分施設内外の環境条件における各核種の支配溶存化学種の評価を行い、硝酸錯体及びアンミン錯体形成による溶解度上昇及び収着分配係数低下の影響について検討した。本書は、これら検討の詳細を示すものである。

2. 金属イオンと配位子の組み合わせ

前述のように、ここで対象とする配位子は NO_3^- 及び NH_3 である。Lewis 酸(電子対の受容体)である金属イオンと Lewis 塩基(電子対の供与体)である配位子の分類に関して“Hard and Soft Acids and Bases (HSAB)”という考え方がある。ここでいう硬い酸(Hard Acids)とは体積が小さく高い電荷を持っており、硬い塩基(Hard Bases)とは分極しにくく電気陰性度が大きい。逆に軟らかい酸(Soft Acids)は体積が大きく、低い正電荷をもっており、軟らかい塩基(Soft Bases)は分極しやすく、電気陰性度が小さい。硬い酸は硬い塩基と親和性があり、軟らかい酸は軟らかい塩基と親和性がある(大瀧ほか, 1977)。 NO_3^- は硬い Lewis 塩基であり、硬い Lewis 酸と錯体を形成しやすい傾向にある。放射性核種の相対的重要度を評価するために、溶解度制限及び固相への収着を考慮せずに実施した予察的核種移行解析において、グループ 3 処分施設で比較的重要とされた核種は、可溶性の核種を除けばアクチニドのみである(加藤ほか, 2003)。そこで NO_3^- についてはアクチニドへの影響を評価することとする。一方、 NH_3 と放射性核種との錯体形成については Ochs et al. (2003)の熱力学的検討がなされている。この検討によると軟らかい Lewis 塩基である NH_3 は、軟らかい Lewis 酸である金属イオンあるいは無機イオン反応性区分の B タイプ(Stumm and Morgan, 1996)の金属イオンと錯体を形成する可能性が高いとされ、これらの金属と NH_3 との錯体形成に対

する熱力学データの収集及び錯体形成傾向の概略的な評価が行われた。したがって NH_3 については既往の調査・検討(Ochs et al., 2003)に基づき軟らかい Lewis 酸である金属イオンあるいは無機イオン反応性区分の B タイプの金属イオンに対する検討を行う。

3. 硝酸塩を含有する TRU 廃棄物（グループ 3）の地層処分施設及びその周辺の化学的環境条件

硝酸塩が処分施設間隙水に全量溶解したとすると、 NO_3^- の濃度は 7.8mol/dm^3 と見積もられる。この濃度は、廃棄物中に含まれる硝酸塩の主たる化学形態である NaNO_3 の溶解度（ 25°C で約 7.7mol/dm^3 程度）とほぼ同等である。したがって処分施設間隙水中の NO_3^- 濃度は $0\sim 7.8\text{mol/dm}^3$ の範囲と考えることができる。一方、処分施設内の $\text{NH}_3/\text{NH}_4^+$ 濃度については、最大 0.8mol/dm^3 と評価されており、処分施設間隙水中の $\text{NH}_3/\text{NH}_4^+$ 濃度は $0\sim 0.8\text{mol/dm}^3$ の範囲と考えることができる。

廃棄物グループ 3 に分類される廃棄物は発熱量が小さいため、処分施設での温度は周辺の地温と同等と見なす。処分施設の設置される深度 $300\sim 1,000\text{m}$ での地温は $24\sim 45^\circ\text{C}$ （地表温度 15°C 、地温勾配 $3^\circ\text{C}/100\text{m}$ ）程度と考えられる。

FRHP (Yui et al., 1999a) は pH 8.46 の弱アルカリ性の地下水であるが、処分施設は廃棄物パッケージ、充填材、支保等にセメント系材料が大量に使用されると考えられるため処分施設の間隙水は、セメント系材料との化学反応によりアルカリ性を呈すると考えられる。このセメント系材料として普通ポルトランドセメント（以下、「OPC」という。）が使用されると仮定すると、処分初期には、セメント中の可溶性のアルカリ成分によって、間隙水の pH は 13.5 程度となる (Region I (Bradbury and Sarott, 1994))。この可溶性アルカリ成分が処分施設から放出された後は、ポルトランドイト ($\text{Ca}(\text{OH})_2$) の溶解平衡により pH は 12.5 程度となる (Region II (Bradbury and Sarott, 1994))。 NaNO_3 が全量、処分施設の間隙水に溶解できるのに対して、ポルトランドイトは処分施設の間隙水に対して飽和するまで溶解したとしても過剰に存在するため、 NO_3^- が処分施設内に存在する期間はポルトランドイトも存在すると考えられる。このため、セメント系材料中のポルトランドイトがすべて溶解し枯渇した後の Region III (Bradbury and Sarott, 1994) については考慮する必要はない。したがって本検討にあたり想定すべき施設内間隙水の pH は 12.5~13.5 程度と見なすことができる。

地下水中には $\text{HCO}_3^-/\text{CO}_3^{2-}$ が含まれる。FRHP 中の $\text{HCO}_3^-/\text{CO}_3^{2-}$ 濃度は約 $3.5\times 10^{-3}\text{mol/dm}^3$ 程度であり、海水系地下水 (SRHP (Yui et al., 1999a)) はもっと高い ($\text{HCO}_3^-/\text{CO}_3^{2-}$: 約 $1.2\times 10^{-2}\text{mol/dm}^3$)。地下水がセメント系材料を多用した処分施設内に流入した場合には、 $\text{HCO}_3^-/\text{CO}_3^{2-}$ はセメント系材料に含まれる Ca 分と反応し、溶解度の低い CaCO_3 として沈殿する。FRHP の場合、OPC 水和物と平衡すると $\text{HCO}_3^-/\text{CO}_3^{2-}$ 濃度は、約 3×10^{-4} (Region I) ~ $7\times 10^{-6}\text{mol/dm}^3$ (Region II) となる (佐々木ほか, 2005)。

4. 硝酸イオン及び硝酸イオン由来のアンモニアと放射性核種との錯体形成に関する検討

4.1 硝酸イオンとアクチニドとの錯体形成に関する評価

前述のように NO_3^- とアクチニドとの錯体形成について評価する。 NO_3^- による酸化性条件まで検討に含めると An(III), An(IV), An(V) 及び An(VI) と NO_3^- との錯体形成について評価する必要がある。

評価の方法としては、An(III), An(IV), An(V) 及び An(VI) のそれぞれの酸化状態を示す代表的元素について熱力学データベース (JNC-TDB (Yui et al., 1999b) 及び NEA update (Guillaumont et

al., 2003))に基づき, NO_3^- 濃度及び pH の関係において支配溶存化学種を評価した。この評価では, 想定する環境条件 (想定される NO_3^- 濃度及び pH 条件) において想定した核種の支配溶存化学種が硝酸錯体とならなければ, 当該環境条件で当該核種は, 硝酸錯体形成による顕著な溶解度上昇及び収着分配係数の低下を起さないと考えることができる。なお, 化学平衡計算による評価は熱力学データの充実している 25°C で行う。

1) An(III)に関する評価

ここでは Am(III)について, 支配溶存化学種の NO_3^- 濃度及び pH 依存性を図 1 に示す。処分施設内の環境では, 図 1 中に示すように支配化学種は加水分解種であって硝酸錯体ではない。したがって, 処分施設内の環境では, 硝酸錯体形成による An(III)の溶解度及び収着分配係数への影響は小さいと考えられる。一方, 処分施設外では, 地下水により希釈されるため NO_3^- 濃度は処分施設内より低く, $\text{HCO}_3^-/\text{CO}_3^{2-}$ の濃度はセメント系材料との反応による濃度低下がないため, 処分施設内より高い。そこで希釈の効果を見せず, NO_3^- 濃度を 7.7 mol/dm^3 と仮定して, FRHP が Am の固相 ($\text{AmOHCO}_3(\text{cr})$) と平衡したときの Am の化学種分配を評価すると, Am 硝酸錯体である AmNO_3^{2+} は, 支配溶存化学種とはならず, その濃度は $4.2 \times 10^{-12} \text{ mol/kg}$ となり Am の溶解度より 2桁以上低い値となる。したがって処分施設外においても硝酸錯体形成による An(III)の溶解度及び収着分配係数への影響は小さいと考えられる。

2) An(IV)に関する評価

ここでは U(IV), Np(IV)及び Pu(IV)について, 支配溶存化学種の NO_3^- 濃度及び pH 依存性を, それぞれ図 2, 3 及び 4 に示した。いずれの場合も, 処分施設内の環境条件における支配化学種は, 加水分解種であって硝酸錯体ではない。したがって, 処分施設内の環境では, 硝酸錯体形成による An(IV)の溶解度及び収着分配係数への影響は小さいと考えられる。処分施設外については 1)と同様に, FRHP と U(IV), Np(IV)及び Pu(IV)の固相 ($\text{UO}_2(\text{am})$, $\text{NpO}_2(\text{am})$ 及び $\text{PuO}_2(\text{am})$)が平衡した場合について評価すると, いずれも硝酸錯体は支配溶存化学種とはならず, それぞれの核種の硝酸錯体濃度 ($\text{U}(\text{NO}_3)_2^{2+}$, NpNO_3^{3+} 及び PuNO_3^{3+})の濃度は, それぞれ $1.3 \times 10^{-27} \text{ mol/kg}$, $1.4 \times 10^{-33} \text{ mol/kg}$ 及び $6.7 \times 10^{-36} \text{ mol/kg}$ であり, いずれも非常に低い濃度であった。したがって, 処分施設外においても硝酸錯体形成による An(IV)の溶解度及び収着分配係数への影響は小さいと考えられる。

3) An(V)に関する評価

ここでは NO_3^- による酸化性条件も考慮し An(V)についても検討の対象とする。Np(V)について, 支配溶存化学種の NO_3^- 濃度及び pH 依存性を図 5 に示す。処分施設内の環境条件 (pH 13.5~12.5, $\text{NaNO}_3 < 7.8 \text{ mol/dm}^3$) では, 硝酸錯体が支配化学種となる可能性は小さい。したがって, 処分施設内の環境では, 硝酸錯体形成による An(V)の溶解度及び収着分配係数への顕著な影響はないと考えられる。処分施設外については NO_3^- の活量の対数が -1 以上になると, 広い pH 範囲で硝酸錯体が支配化学種となった。詳細に検討するため NO_3^- 濃度を変えて, FRHP と Np(V)の固相 ($\text{NaNpO}_2\text{CO}_3(\text{cr})$)が平衡した場合の, Np(V)の支配溶存化学種を評価した。その結果, NO_3^- の濃度が 0.15 mol/kg 以上では, 硝酸錯体である $\text{NpO}_2\text{NO}_3(\text{aq})$ が支配化学種となった。したがって処分施設外においては硝酸錯体形成による An(V)の溶解度及び収着分配係数への影響が生じる可能性

が示唆された。ただし NO_3^- の濃度が 0.15mol/kg 以下になれば、硝酸錯体は支配化学種とはならない。また、本検討で支配化学種になる可能性が示された $\text{NpO}_2\text{NO}_3(\text{aq})$ は NEA update では選定されておらず、この化学種選定の是非については議論の余地がある。

4) An(VI)に関する評価

ここでは NO_3^- による酸化性条件も考慮し An(VI) についても検討の対象とする。U(VI) について、支配溶存化学種の NO_3^- 濃度及び pH 依存性を図 6 に示す。処分施設内の環境条件における支配化学種は、加水分解種であって硝酸錯体ではない。したがって、処分施設内の環境では、硝酸錯体形成による An(VI) の溶解度及び収着分配係数への影響は小さいと考えられる。処分施設外については 1) と同様に、FRHP と U(VI) の固相 ($\text{UO}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) が平衡した場合について評価すると、U(VI) の支配溶存化学種は硝酸錯体とはならず、硝酸錯体である UO_2NO_3^+ の濃度は $2.0 \times 10^{-10}\text{mol/kg}$ となり溶解度より数桁低い値となった。したがって処分施設外においても硝酸錯体形成による An(VI) の溶解度及び収着分配係数への影響は小さいと考えられる。

4.2 アンモニアと放射性核種との錯体形成の評価

TRU 廃棄物の地層処分において評価対象となっている核種に対応する元素のうち、反応性区分 B タイプあるいは A タイプ及び B タイプの中間に属する元素(大瀧ほか, 1977)は Co, Ni, Mo, Tc, Pd, Sn, Pb 及び Po である。したがって、これらの元素に含まれる放射性同位体はアンミン錯体形成の影響を受ける可能性がある。

Ochs et al. (2003) は、Pb, Sn, Bi, Nb 及び Sb と NH_3 との相互作用について広範な調査及び評価を実施したが有用な結果は得られず、これらの元素に対して推奨できる熱力学データは得られなかった。しかし入手したデータを用い、 $\text{NH}_3\text{-H}_2\text{O-Metal}$ 系で、概略的な安定度定数の比較評価を行った。溶存 NH_3 は pH が 9.3 以上で支配化学種となるため、常にかかなりの濃度の水酸化物イオンと競合することになる。Ochs et al. によれば、水及びアンモニウムイオンの pK の相違は 4.76 であるから、与えられた金属イオンのアンミン錯体は、水酸化物イオンとの反応に関する $\log \beta_{1,1}$ が、 NH_3 との反応の値より、4.76 を上回らない場合のみ安定に存在することができるとし、Pb と Bi についてはアンミン錯体形成が大きな影響を与えるとは考え難いとしている(表 1 参照)。一方、Nb(V), Sb(V) 及び Sn(IV) については、Pb 及び Bi と比較して HSAB の性質からアンミン錯体形成が大きな影響を及ぼす可能性はさらに小さいと推定した。Sn(II) については、第一次の近似として Pb と類似の性質を示すと考えてよいと推定している。

また、Ochs et al. (2003) は、Ni, Co 及び Pd は NH_3 と錯体形成の可能性があるので、Ni を例に変質していないセメント系材料空隙水中の溶存 Ni 濃度を、 $\text{NiO}(\text{cr})$ との平衡を仮定し、 NH_3 濃度を変化させて計算した。その結果、 NH_3 が 1mol/dm^3 程度までは溶存 Ni 濃度に顕著な影響はないが、 NH_3 が 5mol/dm^3 程度になると 3 桁程度、溶存 Ni 濃度が上昇し、 NH_3 の濃度が高い条件では Ni, Pd, Pb 等に影響が大きく現れる可能性が示唆された。また、宮本ら(2005)は実験的検討を実施し、過飽和法により pH 12~13 程度の条件における溶存 Ni 濃度の NH_3 濃度依存性を評価した(図 7)。その結果、 NH_3 濃度が 0.1mol/dm^3 程度までは、ほとんど影響はないが 0.5mol/dm^3 程度になると一桁程度濃度が上昇し、 NH_3 濃度が 1mol/dm^3 では 3 桁以上の溶存 Ni 濃度の上昇が認められた。前述の

Ochs et al. の検討より、一桁程度低い NH_3 濃度から溶存 Ni 濃度の上昇が認められた。

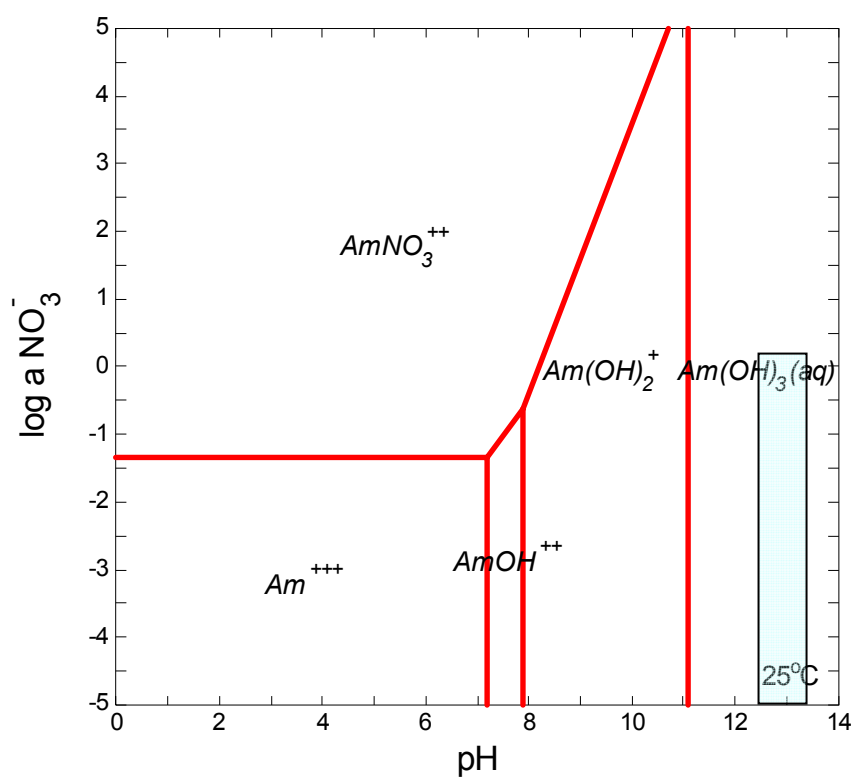
以上から、軟らかい Lewis 酸である元素に対しては、前述の NH_3 濃度の評価値からみて影響を否定することはできない。また以上の情報から定量的にアンミン錯体形成の影響を評価することは困難である。しかし、影響の生じる可能性のある評価対象核種（元素）（Co, Ni, Nb, Mo, Tc, Pd, Sn, Pb 及び Po）について核種移行解析上の保守的な条件設定（例えば非吸着性で可溶性として扱う等）を行うことは可能である。

5. 結論

TRU 廃棄物の地層処分における NO_3^- 及び NO_3^- 由来の NH_3 と放射性核種との錯体形成に関する評価を、硝酸塩を含む廃棄体グループ 3 の処分施設を対象として実施した。 NO_3^- の影響については、相対的重要度の高いアクチニドについて酸化性の条件も含め、影響を検討した。その結果、Np(V) を除いて硝酸錯体形成による顕著な溶解度上昇及び吸着分配係数の低下はないと評価された。Np(V) については、処分施設外では硝酸錯体形成による溶解度上昇及び吸着分配係数の低下の可能性が示唆された。 NO_3^- の還元生成物である NH_3 と放射性核種との錯体形成の影響を評価した。その結果、核種によってはアンミン錯体形成の影響を受ける可能性が示唆されたが、種々のデータが不足しており、影響の定量的評価は困難であった。

参考文献

- Bradbury, M.H. and Sarott, F.-A. (1994) : " Sorption databases for the Cementitious Near-Field of a L/ILW Repository for Performance Assessment, Nagra technical Report 93-06.
- Guillaumont, R., Fanghanel, T., Fuger, J., Grenthe, I., Neck, V., Palmer, D.A. and Rand, M.H. (2003) : Update on the Chemical Thermodynamics of Uranium, Neptunium, Plutonium, Americium and Technetium, OECD/NEA, Elsevier.
- 加藤大生, 三原守弘, 本田明, 大井貴夫(2002) : TRU 廃棄物処分におけるセメント系材料に対する収着データベースの整理, サイクル機構技報, No. 14, p. 174.
- 宮本真哉, 佐藤光吉, 三原守弘(2005) : ニッケルの溶解度に及ぼす塩化アンモニウム濃度の影響, JNC TN8400 2005-028.
- Ochs, M., Lothenbach, B., Christl, Iso., Yui, M., Shibata, M. and Jintoku., T. (2003) : Thermodynamic database for NH_3 -species of radioactive elements, JNC TN8400 2003-012.
- 大瀧仁志, 田中元治, 舟橋重信(1977) : 溶液反応の化学, 学会出版センター, p. 104.
- 佐々木良一, 小田治恵, 本田明(2005) : 緩衝材の鉱物学的長期変遷に対する二次鉱物の種類, 反応速度の影響評価, JNC TN8400 2005-024.
- Stumm, W. and Morgan, J.J. (1996) : " Aquatic chemistry" , 3rd ed., A Wiley-Interscience Series Publications, JOHN WILEY & SONS, INC., p. 285.
- Yui, M., Sasamoto, H. and Arthur, R.C. (1999a) : Groundwater evolution modeling for the 2nd progress performance assessment (PA) report, JNC TN8400 99-030.
- Yui, M., Azuma, J. and Shibata, M. (1999b) : JNC Thermodynamic Database for Performance Assessment of High-level Radioactive Waste Disposal System, JNC TN8400 99-070.




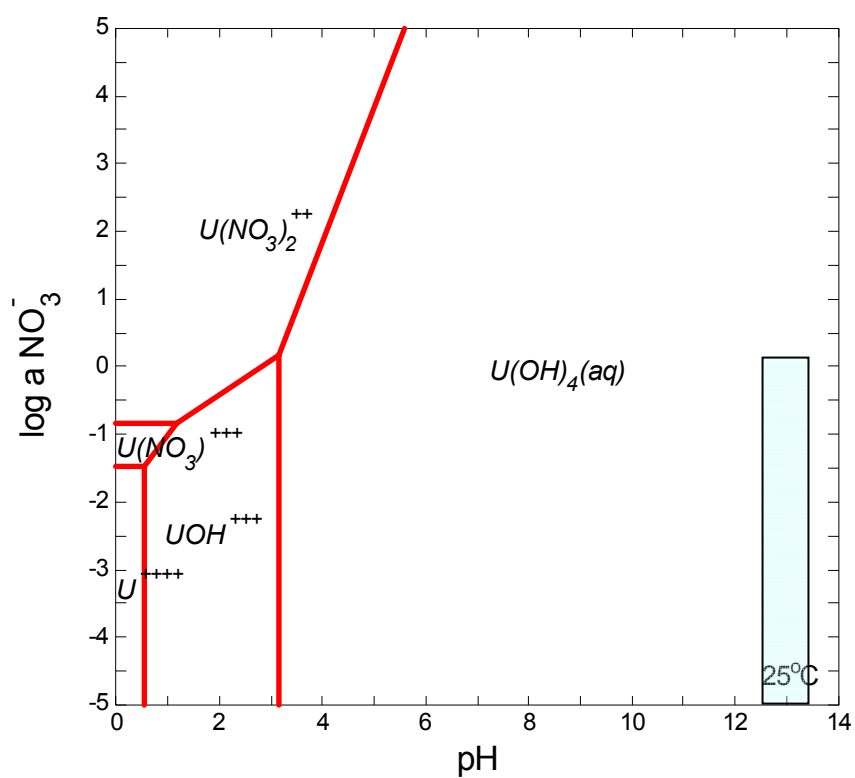
 : Gr-3 廃棄物の地層処分施設内の条件

図1 Am(III) 支配溶存化学種の NO_3^- 濃度及び pH 依存性 (NEA update)




 : Gr-3 廃棄物の地層処分施設内の条件

図2 U(IV) 支配溶存化学種の NO_3^- 濃度及び pH 依存性 (NEA update)

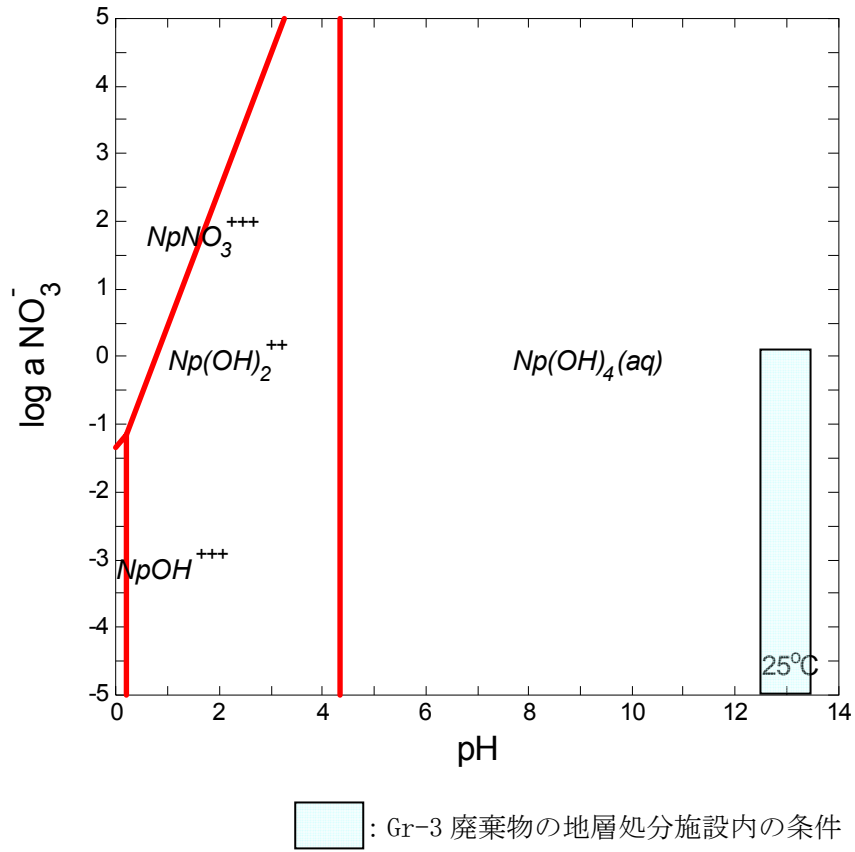


図 3 Np(IV) 支配溶存化学種の NO_3^- 濃度及び pH 依存性 (NEA update)

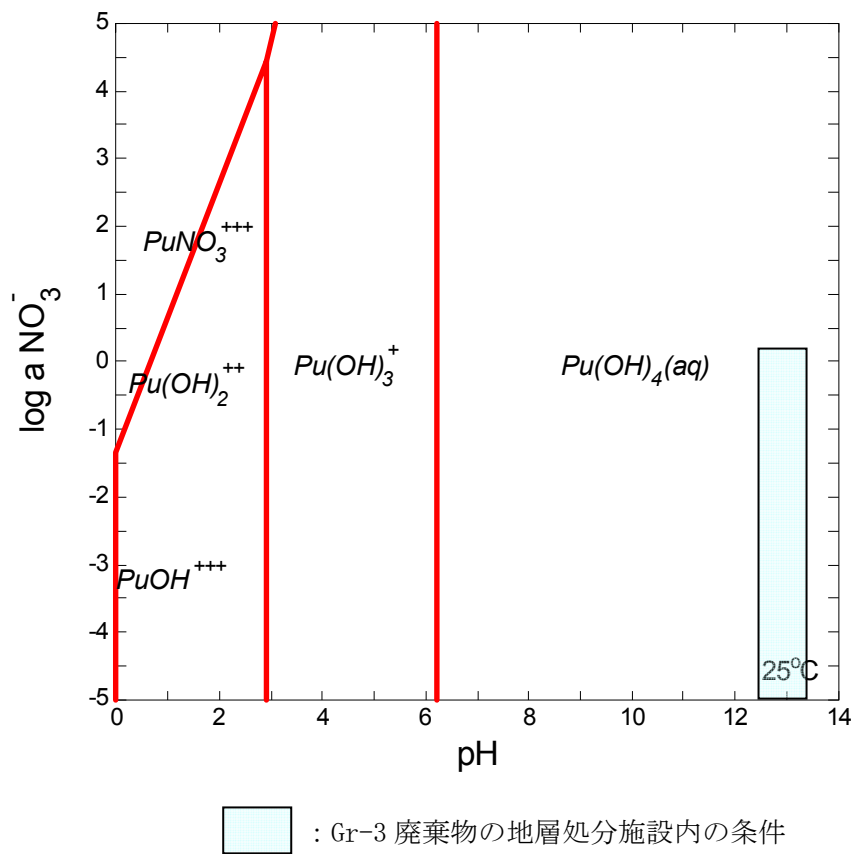


図 4 Pu(IV) 支配溶存化学種の NO_3^- 濃度及び pH 依存性 (NEA update)

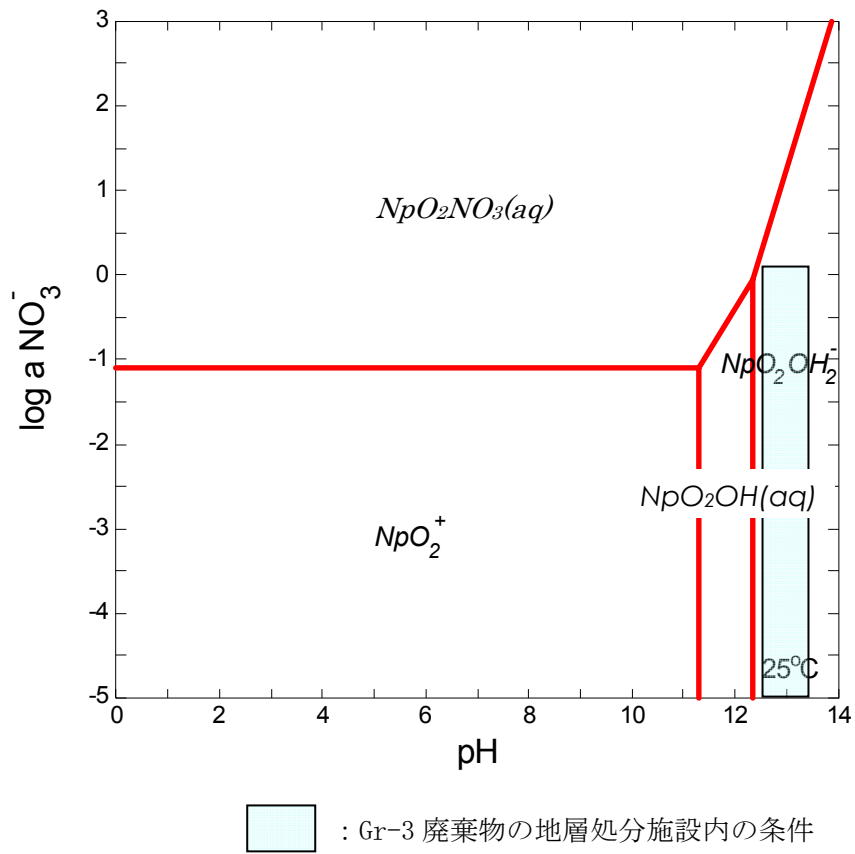


図5 Np(V) 支配溶存化学種の NO_3^- 濃度及び pH 依存性 (JNC TDB)

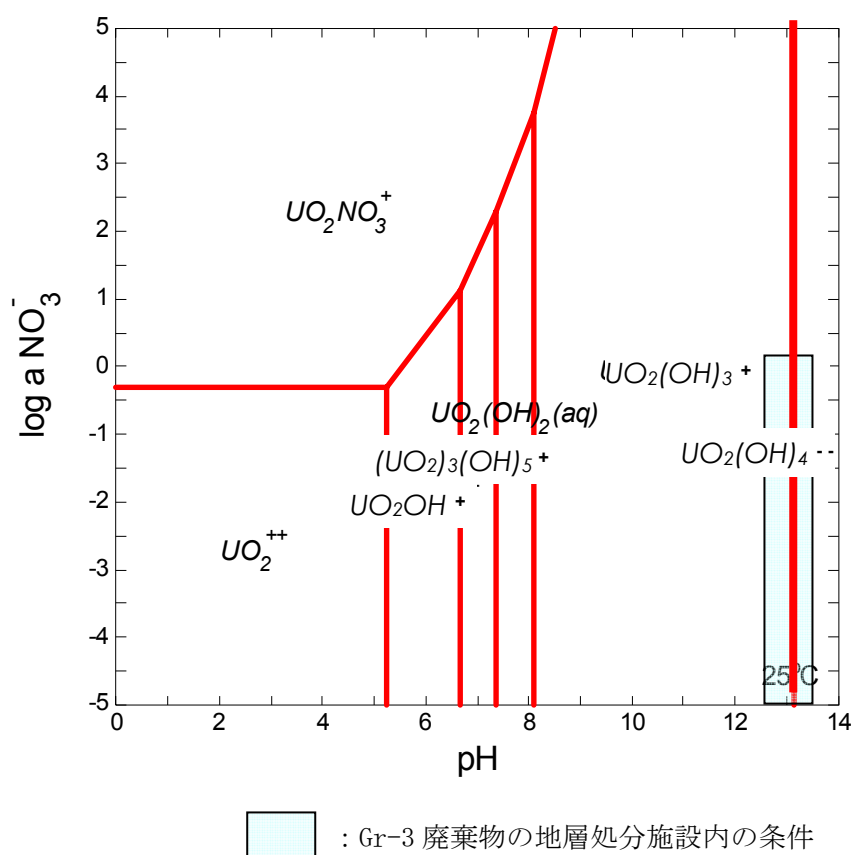


図 6 U(VI) 支配溶存化学種の NO_3^- 濃度及び pH 依存性 (NEA Update)

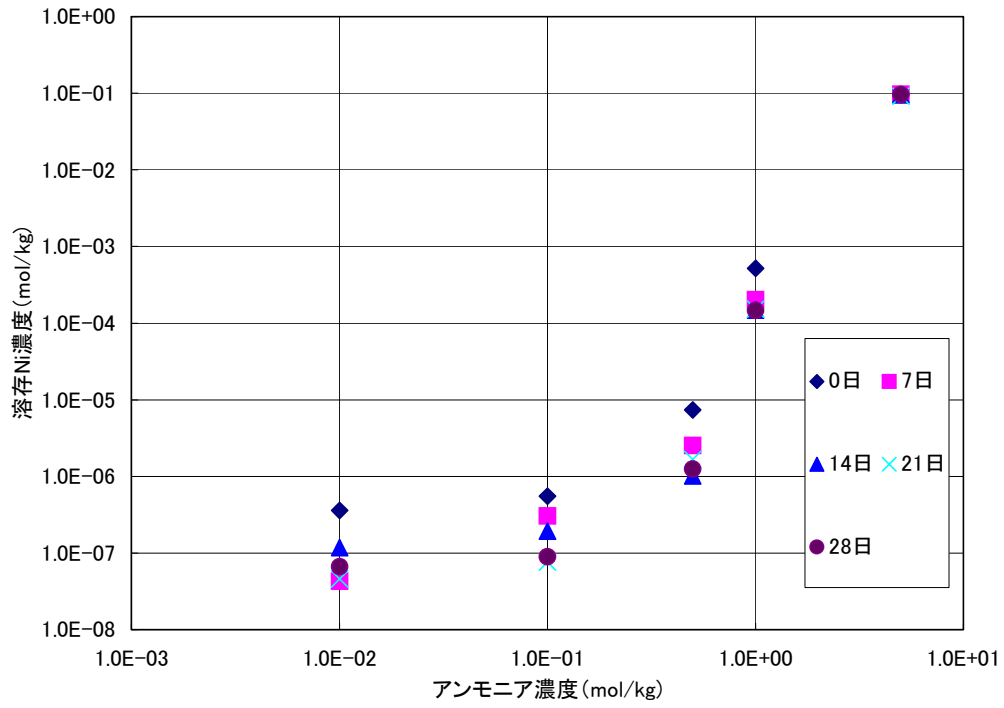


図 7 溶存 Ni 濃度の NH₃ 濃度依存性 (宮本ほか, 2005)

表 1 Pb, Sn 及び Bi に関する NH₃ 及び OH⁻ を配位子とする場合の $\beta_{1,1}$ の比較 (Ochs et al., 2003)

	NH ₃	OH ^{-a}	$\beta_{\text{OH}^-} - \beta_{\text{NH}_3}$
a) Data predicted by Brown and Wanner (1987)			
Pb	4.01	6.29	2.28
Sn(II)	7.25	10.33	2.98
Sn(IV)	11.81	15.91	4.1
b) Data for NH ₃ from Mulla et al. (1985), all other data from Yui et al. (1999b)			
Pb	1.6	6.49	4.89
Bi	5.0	13.08	8.08

a この場合は、水の代わりに OH⁻ を配位子として用いた。水の pK:14 を用いて定数を算定した。

Brown, P.L. and Wanner, H. (1987) : Predicted formation constants using the unified theory of metal ion complexation, OECD Nuclear Energy Agency, Paris, p.102.

Mulla, F., Marsicano, F., Nakani, B.S and Hancock, R.D. (1985) : Stability of ammonia complexes that are unstable to hydrolysis in water, Inorg. Chem., Vol. 24, p.3076-3080.

Yui, M., Azuma, J. and Shibata, M. (1999b) : JNC Thermodynamic Database for Performance Assessment of High-level Radioactive Waste Disposal System, JNC TN8400 99-070.

4-11 1次元平行平板モデル重ね合わせによる核種移行解析と 3次元亀裂ネットワークモデルによる核種移行解析の比較(4.5.2.4)

1. はじめに

第2次 TRU レポートの核種移行解析(4.5.2.4)において1次元平行平板モデルの重ね合わせによる評価を行った。1次元平行平板モデルの重ね合わせの3次元亀裂ネットワークモデルへの適用性については、既にH12 レポートにおいて示されている。しかしながら、この適用性については、比較的、地質媒体に対して収着する Cs-137、Se-79 及び Th-229 に対して示されている。TRU 廃棄物処分においては、高レベル放射性廃棄物処分の評価対象外で地質媒体に対して非常に収着性の小さい核種が存在するが、これらの核種に対する1次元平行平板モデルの重ね合わせの適用性は検討されていない。

本報においては、TRU 廃棄物の地層処分において線量評価上重要で地質媒体に対する収着性が小さい C-14 及び I-129 に対して、1次元平行平板モデルの重ね合わせにより、3次元亀裂ネットワークモデルへの適用性について検討を行なった。

2. 解析条件

TRU 廃棄物処分において特有な核種として、C-14 及び I-129 を選定した。主要なパラメータ表-1にまとめる。解析の条件として、レファレンスケースと同等の条件を設定した。廃棄体グループ2における C-14 と I-129 の人工バリアからの移行率を母岩の入力として使用した。図-1 に母岩への入力を示す。1次元平行平板モデルの解析については、透水量係数の分布を12分割し、得られる透水量係数値を用いて、13本の亀裂を想定し TIGER コード(三原・大井,2004)にて解析を行った。3次元亀裂ネットワークモデルの解析においては、H12 レポートと同様の条件及び解析コード(澤田ほか,1999)を用いて解析を行った。

表-1 比較計算に用いた核種と主要解析パラメータ

核種名	半減期(年)	母岩の収着分配係数 (m^3/kg)	マトリクス部の 実効拡散係数 (m^2/s)
C-14	5,730	0	3×10^{-12}
I-129	1.57×10^7	0.0001	

3. 1次元平行平板モデルと3次元亀裂ネットワークモデルとの比較

3次元亀裂ネットワークモデルの解析は、H12 レポートと同様に母岩の亀裂特性をそのまま統計量として用いて作成した50個の実施した平均値である。図-2に両モデルによる解析結果を示す。1次元平行平板モデルによる解析結果の移行率は、3次元亀裂ネットワークモデルの解析結果よりも早期に立ち上がっているものの、最大移行率の出現位置および最大値は、概ね一致しており、TRU 廃棄物処分において特有な核種(C-14, I-129)についても1次元平行平板モデルが適用できるものと考えられる。

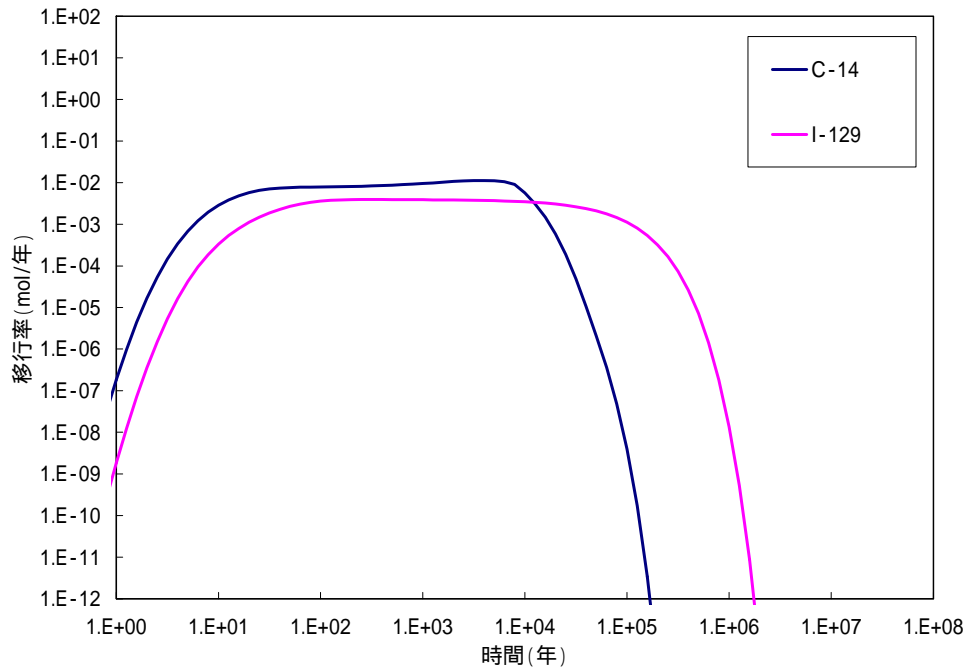


図1 母岩への核種の移行率

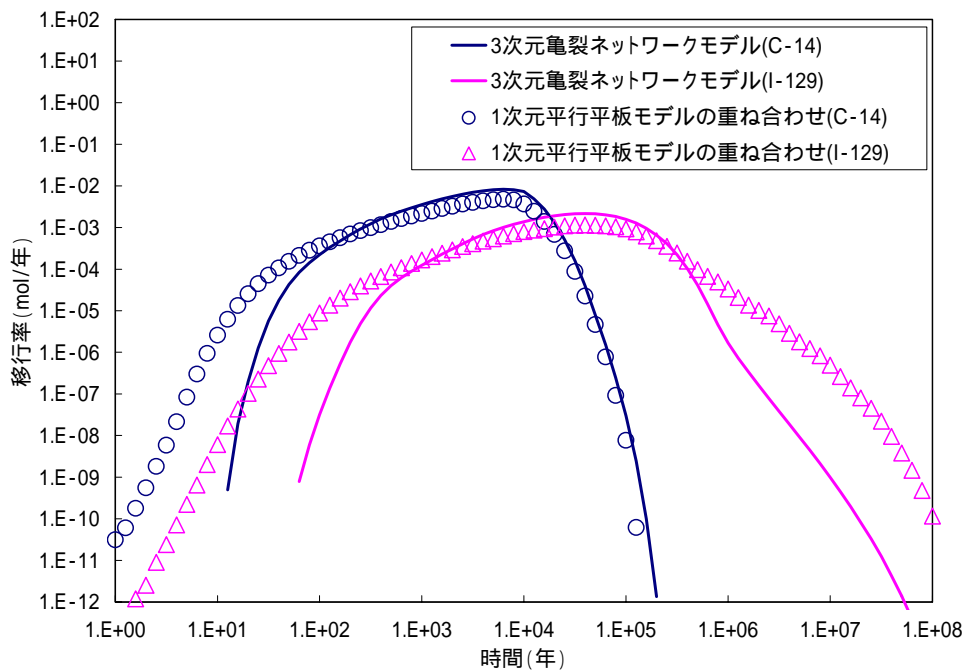


図-2 1次元平行平板モデルと3次元亀裂ネットワークモデルとの比較結果

4. 結論

本報の比較評価により TRU 廃棄物処分の線量評価において重要な C-14 及び I-129 に対しても 1次元平行平板モデルにて 3次元亀裂ネットワークモデルの解析を適用することが可能であることが確認された。

参考文献

- 三原守弘，大井貴夫（2004）：パラメータの時間的变化を考慮した核種移行解析コード（TIGER）の開発，サイクル機構技報，No.22，pp.27-38.
- 澤田淳，井尻裕二，坂本和彦，巨真吾（1999）：亀裂性岩盤を対象にした天然バリア中の核種移行解析（研究報告），JNC TN8400 99-093.

資料 4-12 TRU 廃棄物処分における生物圏評価モデル (4.5.2.6)

1. はじめに

第2次 TRU レポートでは、地下水シナリオ基本ケースのレファレンスケース(4.5.2)と代替ケース(4.5.3)、さらに、変動シナリオの評価ケース(4.5.5)において、地層処分に起因する放射性核種の移行率を生物圏で人間が受ける放射線量に換算する係数である「線量への換算係数」を、核種流入域および気候状態ごとに提示した。本資料では、これらの線量への換算係数を算出するために整備した生物圏モデルの設定に関わる数学モデル及びデータセットについて記載する。

2. 検討において留意した事項

表 1 に、第 2 次 TRU レポートで対象とした生物圏モデルを示す。また、整備した生物圏モデルの概念を図 1～図 7 に示す。それぞれの概念に対する数学モデルおよびデータセットに関しては、高レベル放射性廃棄物地層処分の生物圏評価に関する資料（核燃料サイクル開発機構，1999；加藤ほか，2001）を参照した。また、この生物圏モデルの整備においては、TRU 廃棄物の特性や、最新の情報・知見を反映し、以下の変更を行った。

- ・TRU 廃棄物処分に特有な核種(C-14, Cl-36, Ni-59, Co-60, Ni-63, Sr-90, Mo-93, I-129, Cs-137, Cm-244)を追加した。
- ・ICRP1977年勧告に準拠した法令(科学技術庁, 1988)に基づいて設定した「内部被ばくおよび外部被ばくに対する線量換算係数」を ICRP1990年勧告に準拠した現行法令(科学技術庁, 2000)に基づいて設定した「内部被ばくおよび外部被ばくに対する実効線量係数」に変更した(具体的な設定方法に関しては、鈴木ほか(2005)を参照のこと)。
- ・気候変動を考慮した生物圏モデルに関しては、加藤ほか(2001)で検討された深井戸を核種流入域としたモデルにおける検討に基づいて、河川水および沿岸海域堆積層を核種流入域としたモデルを構築した。

これらの整備に関わる情報を付録に記す。

3. 結論

それぞれの生物圏モデル及びデータセットに関わる情報を整備することにより、線量への換算係数の算出根拠を示した。

表-1 本検討で対象とした生物圏モデル

モデルの名称	核種流入域	気候状態	被ばくグループ	概念モデル
河川水 / 平野モデル	河川水	温暖	農作業従事者グループ	図 1
		冷帯		図 2
		ツンドラ		図 3
深井戸モデル	深井戸	温暖	農作業従事者グループ	図 4
沿岸海域堆積層 / 平野モデル	沿岸海域堆積層	温暖	海洋漁業従事者グループ	図 5
		冷帯		図 6
		ツンドラ		図 7

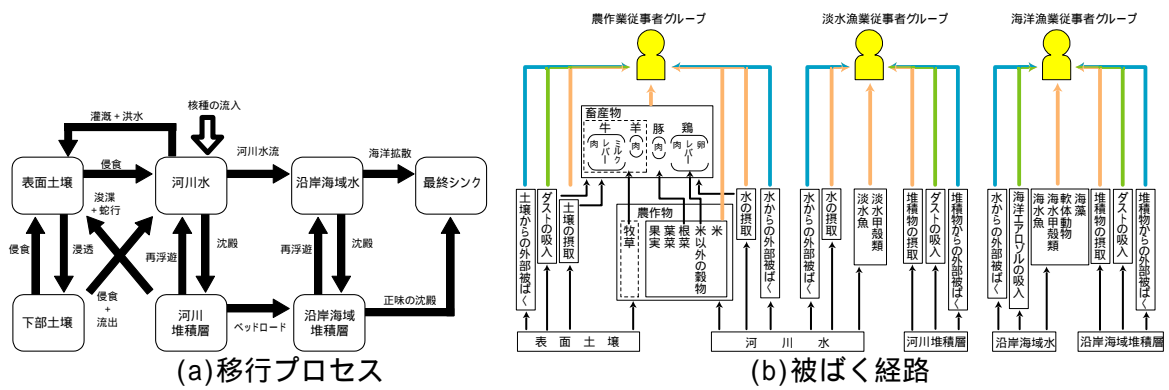


図-1 河川水を核種流入域とした生物圏モデル（河川水モデル：温暖気候）

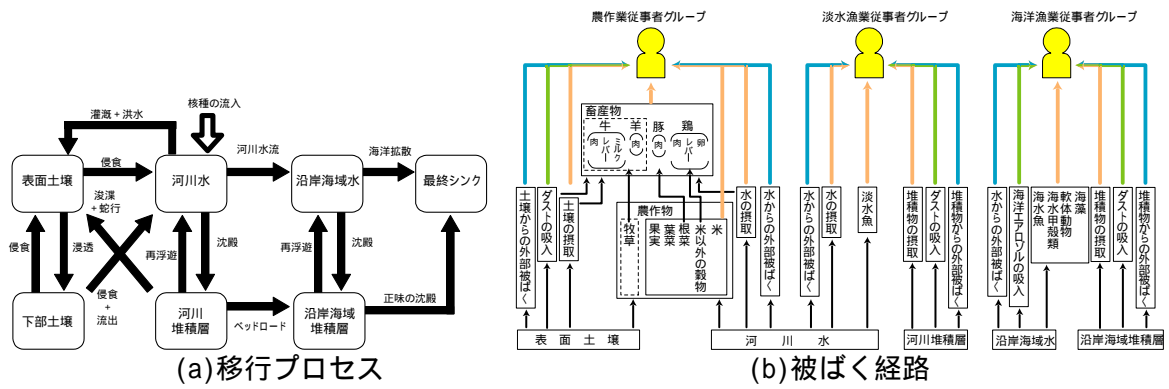


図-2 河川水を核種流入域とした生物圏モデル（河川水モデル：冷帯気候）

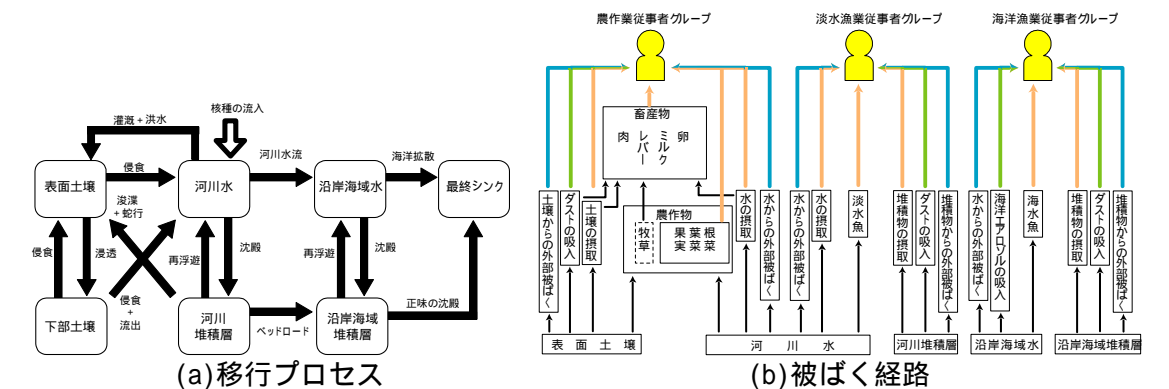


図-3 河川水を核種流入域とした生物圏モデル（河川水モデル：ツンドラ気候）

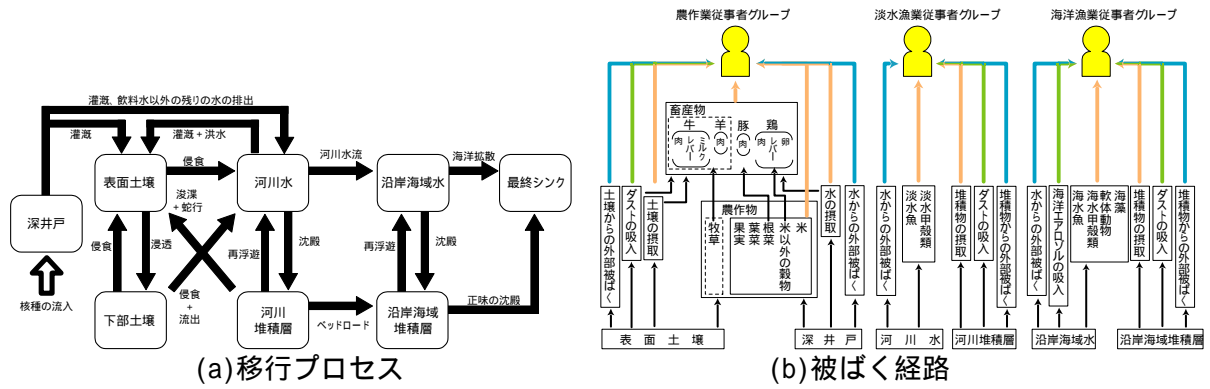


図-4 深井戸を核種流入域とした生物圏モデル（深井戸モデル：温暖気候）

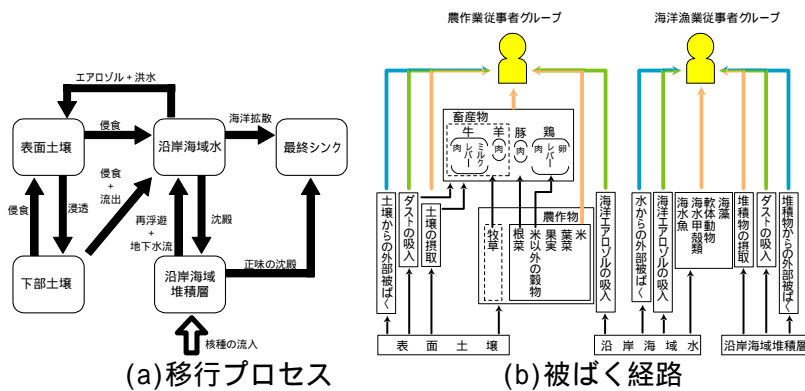


図-5 沿岸海域堆積層を核種流入域とした生物圏モデル（沿岸海域堆積層モデル：温暖気候）

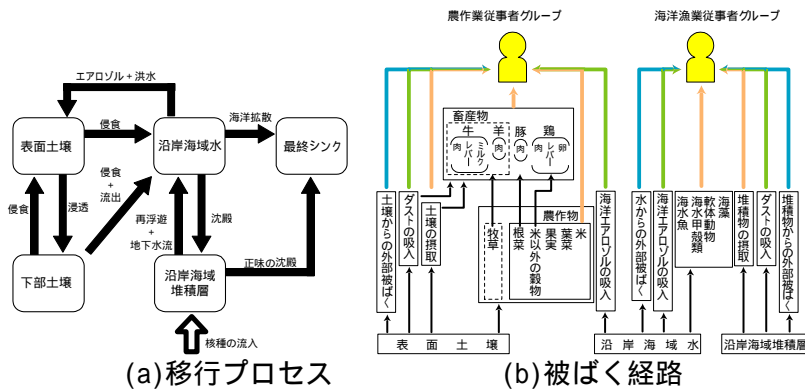


図-6 沿岸海域堆積層を核種流入域とした生物圏モデル（沿岸海域堆積層モデル：冷帯気候）

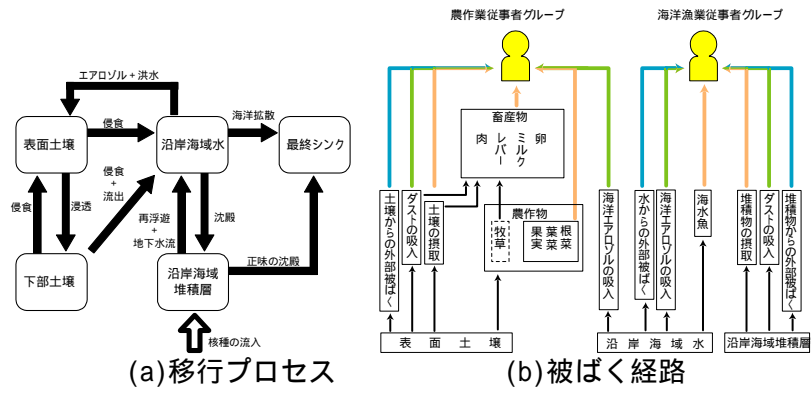


図-7 沿岸海域堆積層を核種流入域とした生物圏モデル(沿岸海域堆積層モデル: ツンドラ気候)

参考文献

- 科学技術庁（1988）：試験研究の用に供する原子炉等の設置，運転等に関する規制等の規定に基づく線量当量限度等を定める件，科学技術庁告示第20号．
- 科学技術庁（2000）：“ICRP1990年勧告の取り入れ等による放射線障害防止法関連法令の改正（平成12年10月23日公布）”．
- 核燃料サイクル開発機構（1999）：“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-地層処分研究開発第2次取りまとめ-分冊3地層処分システムの安全評価”，JNC TN1400 99-023．
- 加藤智子，石原義尚，鈴木祐二，内藤守正，石黒勝彦，池田孝夫，Little, R.（2001）：“気候変動による影響を取り入れた地層処分安全評価の生物圏モデルの検討”，JNC TN8400 2001-003．
- 鈴木祐二，牧野仁史，加藤智子（2005）：“線量換算係数の改訂に伴う地層処分生物圏評価の再検討”，JNC TN8400 2005-004．

付録 A 河川水モデル・深井戸モデル・沿岸海域堆積層モデルにおける核種移行・被ばくに関わる数学モデル（全気候共通）

1. コンパートメント間の核種移行に関わる数学モデル

1.1 液相による核種移行プロセス

- 1.1.1 灌漑
- 1.1.2 灌漑以外の給水
- 1.1.3 浸透 / 流出
- 1.1.4 洪水
- 1.1.5 河川水流および海洋拡散
- 1.1.6 地下水流
- 1.1.7 海洋エアロゾルの移行

1.2 固相による核種移行プロセス

- 1.2.1 侵食
- 1.2.2 浚渫 / 蛇行
- 1.2.3 河川堆積層からの再浮遊
- 1.2.4 沿岸海域堆積層からの再浮遊
- 1.2.5 正味の沈殿
- 1.2.6 沈殿
- 1.2.7 ベッドロード

2 被ばくに関わる数学モデル

2.1 経口摂取による内部被ばく

- 2.1.1 河川水の飲用による内部被ばく
- 2.1.2 農作物摂取（根菜，葉菜，穀物，米，果物）による内部被ばく
- 2.1.3 畜産物（牛肉，羊肉，豚肉，鶏肉，牛レバー，鶏レバー，ミルク，卵）摂取による内部被ばく
- 2.1.4 土壌（堆積物）の摂取による内部被ばく
- 2.1.5 水産物（河川甲殻類 / 魚類，海洋甲殻類 / 魚類 / 軟体動物 / 海藻）の摂取による内部被ばく

2.2 吸入摂取による内部被ばく

- 2.2.1 ダストの吸入による内部被ばく
- 2.2.2 エアロゾルの吸入による内部被ばく

2.3 外部被ばく

- 2.3.1 土壌（堆積物）からの外部被ばく
- 2.3.2 水からの外部被ばく

付録 B 河川水モデル・深井戸モデル・沿岸海域堆積層モデルにおけるデータセット

付表 B-1 コンパートメントに関するデータ

- 付表 B-1-1 コンパートメントの諸量に関するデータ（温暖気候）
- 付表 B-1-2 コンパートメントの諸量に関するデータ（冷帯気候）
- 付表 B-1-3 コンパートメントの諸量に関するデータ（ツンドラ気候）

付表 B-2 コンパートメント間の移行プロセスに関するデータ

- 付表 B-2-1 コンパートメント間の移行プロセスに関するデータ（温暖気候）
- 付表 B-2-2 コンパートメント間の移行プロセスに関するデータ（冷帯気候）
- 付表 B-2-3 コンパートメント間の移行プロセスに関するデータ（ツンドラ気候）

付表 B-3 実効線量係数

付表 B-4 食物などの摂取量

- 付表 B-4-1 食物などの摂取量（温暖気候および冷帯気候）
- 付表 B-4-2 食物などの摂取量（ツンドラ気候）

付表 B-5 生物圏における土壌などの分配係数（全気候共通）

付表 B-6 土壌から農作物への核種の移行係数

- 付表 B-6-1 土壌から農作物への核種の移行係数（温暖気候）
- 付表 B-6-2 土壌から農作物への核種の移行係数（冷帯気候およびツンドラ気候）

付表 B-7 飼料から畜産物への核種の濃縮係数

- 付表 B-7-1 飼料から畜産物への核種の濃縮係数（温暖気候および冷帯気候）
- 付表 B-7-2 飼料から畜産物への核種の濃縮係数（ツンドラ気候）

付表 B-8 淡水産物への核種の濃縮係数（全気候共通）

付表 B-9 海産物への核種の濃縮係数（全気候共通）

付表 B-10 人間の呼吸率，滞在時間など

- 付表 B-10-1 人間の呼吸率，滞在時間など（温暖気候）
- 付表 B-10-2 人間の呼吸率，滞在時間など（冷帯気候）
- 付表 B-10-3 人間の呼吸率，滞在時間など（ツンドラ気候）

付表 B-11 家畜に関するデータ

- 付表 B-11-1 家畜に関するデータ（温帯気候）
- 付表 B-11-2 家畜に関するデータ（冷帯気候）
- 付表 B-11-3 家畜に関するデータ（ツンドラ気候）

付表 B-12 農作物の栽培に関するデータ

- 付表 B-12-1 農作物の栽培に関するデータ（温暖気候）
- 付表 B-12-2 農作物の栽培に関するデータ（冷帯気候）
- 付表 B-12-3 農作物の栽培に関するデータ（ツンドラ気候）

付表 B-13 ウェザリング率（全気候共通）

付表 B-14 転流割合（全気候共通）

付表 B-15 農作物表面汚染の調理時ロス割合（全気候共通）

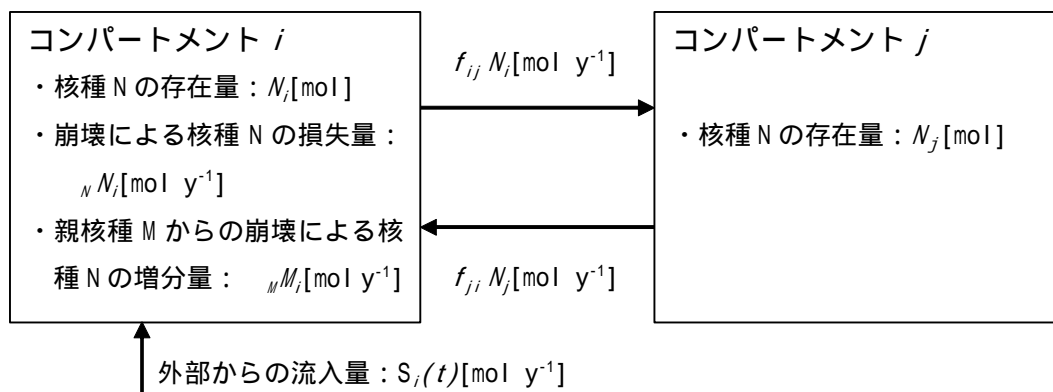
付表 B-16 エアロゾルにおける濃縮係数（全気候共通）

付表 B-17 核種の半減期と崩壊定数

付録 A 河川水モデル・深井戸モデル・沿岸海域堆積層モデルにおける核種移行・被ばくに関わる数学モデル（全気候共通）

1. コンパートメント間の移行プロセスに関わる数学モデル

各コンパートメント間の移行プロセスの数学モデルでは，付図 A-1 に示した物質収支を考慮する。



付図 A-1 コンパートメント間の物質収支

コンパートメント i に存在する核種 N の存在量 [mol] の時間変化は，次式で表される。

$$\frac{dN_i}{dt} = \left(\sum_{j \neq i} f_{ji} N_j + \lambda_M M_i + S_i(t) \right) - \left(\sum_{j \neq i} f_{ij} N_i + \lambda_N N_i \right) \quad (A-1)$$

- N_i : コンパートメント i における核種 N の量 [mol]
- N_j : コンパートメント j における核種 N の量 [mol]
- M_i : コンパートメント i における核種 M の量 (M は N の親核種) [mol]
- $S_i(t)$: コンパートメント i への核種 N の外部からの流入量 [mol y^{-1}]
- λ_M : 核種 M の崩壊定数 [y^{-1}]
- λ_N : 核種 N の崩壊定数 [y^{-1}]
- f_{ji} : 核種 N のコンパートメント j ($\neq i$) からコンパートメント i への移行係数 [y^{-1}]
- f_{ij} : 核種 N のコンパートメント i からコンパートメント j ($\neq i$) への移行係数 [y^{-1}]

それぞれのコンパートメントに設定した(A-1)式を連立方程式として解くことにより，各コンパートメント中の核種濃度が得られる。

(A-1)式で用いられるコンパートメント間の移行係数については，一般式 (A-2) 式により記述することができる。

$$f_{ij} = \frac{F_{ij} + Kd_i M_{ij}}{V_i^{(liq)} + Kd_i m_i^{(sol)}} \quad (A-2)$$

- F_{ij} : コンパートメント i から j への液相のフラックス [$m^3 y^{-1}$]
- Kd_i : コンパートメント i における固相と液相の分配係数

	$[m^3 \text{ kg}^{-1}]$
M_{ij}	: コンパートメント j から i への固相のフラックス
	$[kg \text{ y}^{-1}]$
$V_i^{(liq)}$: コンパートメント i 中の液相の体積 $[m^3]$
$m_i^{(sol)}$: コンパートメント i 中の固相の重量 $[kg]$

各コンパートメント間の移行プロセスについては、液相および固相による移行プロセスそれぞれについて(A-2)式に基づいて数式化を行った。以下に、個々の移行プロセスに関する評価式を示す。また、移行プロセスの後にモデルおよびコンパートメント間の核種の移行方向を示す。なお、モデル名が書かれていない場合は、河川水モデル、深井戸モデル、沿岸海域堆積層モデルに共通な移行プロセスである。

1.1 液相による核種移行プロセス

1.1.1 灌漑（河川水モデル：河川水 表面土壌，深井戸モデル：深井戸 表面土壌）

$$\frac{Q_{irr}}{V_{rw}} \quad (A-3)$$

Q_{irr}	: 灌漑水量 $[m^3 \text{ y}^{-1}]$
V_{rw}	: 灌漑用水を取水する水コンパートメントの体積 $[m^3]$

1.1.2 灌漑以外の給水（深井戸モデル：深井戸 河川水）

$$\frac{Q_{nirr}}{V_{dw}} \quad (A-4)$$

Q_{nirr}	: 灌漑以外の用途に用いられる深井戸コンパートメントからの年間取水量（深井戸から河川への年間流量） $[m^3 \text{ y}^{-1}]$
V_{dw}	: 深井戸コンパートメントの体積 $[m^3]$

1.1.3 浸透／流出（表面土壌 下部土壌，河川水モデル・深井戸モデル：下部土壌 河川水）

$$\frac{d_d}{Rd_{sed} \theta_{sedw} d_{sed}} \quad (A-5)$$

d_d	: 年間浸透／流出量 $[m \text{ y}^{-1}]$
Rd_{sed}	: 浸透／流出が起こるコンパートメントの遅延係数 [-]
θ_{sedw}	: 浸透／流出が起こるコンパートメントの体積含水率 [-]
d_{sed}	: 浸透／流出が起こるコンパートメントの深さ $[m]$

ただし、 Rd_{sed} は次式で求められる。

$$Rd_{sed} = 1 + \frac{(1 - \varepsilon_{sed}) \rho_{gsed}}{\theta_{sedw}} Kd_{sed} \quad (A-6)$$

ε_{sed}	: 堆積層あるいは土壌コンパートメントの間隙率 [-]
ρ_{gsed}	: 堆積層あるいは土壌コンパートメントの真密度 $[kg \text{ m}^{-3}]$
θ_{sedw}	: 堆積層あるいは土壌コンパートメントの体積含水率 [-]
Kd_{sed}	: 土壌などの分配係数 $[m^3 \text{ kg}^{-1}]$

- 1.1.4 洪水（河川水モデル・深井戸モデル：河川水 表面土壌，沿岸海域堆積層モデル：沿岸海域水 表面土壌）

$$\frac{Q_{fw}}{V_{rw}} \quad (A-7)$$

Q_{fw} : 年間洪水量 [$\text{m}^3 \text{y}^{-1}$]
 V_{rw} : 河川水コンパートメントの体積 [m^3]

- 1.1.5 河川水流（河川水モデル・深井戸モデル：河川水 沿岸海域水）および海洋拡散（沿岸海域水 最終シンク）

$$\frac{Q_w}{V_w} \quad (A-8)$$

Q_w : 河川水流量あるいは海における希釈水量 [$\text{m}^3 \text{y}^{-1}$]
 V_w : 水コンパートメントの体積 [m^3]

- 1.1.6 地下水流（沿岸海域堆積層モデル：沿岸海域堆積層 沿岸海域水）

$$\frac{Q_{wflow}}{V_{msed} \theta_{msed} R_{msed}} \quad (A-9)$$

Q_{wflow} : 地下水流量 [$\text{m}^3 \text{y}^{-1}$]
 V_{msed} : 沿岸海域堆積層コンパートメントの体積 [m^3]
 θ_{msed} : 沿岸海域堆積層コンパートメントの間隙率 [-]
 R_{msed} : 沿岸海域堆積層コンパートメントの遅延係数 [-]

- 1.1.7 海洋エアロゾルの移行（沿岸海域堆積層モデル：沿岸海域水 表面土壌）

$$\frac{T_{ss} Q_{aero}}{V_{lm}} \quad (A-10)$$

T_{ss} : エアロゾルにおける濃縮係数 [-]
 Q_{aero} : 海洋エアロゾルの陸地への年間移行量 [$\text{m}^3 \text{y}^{-1}$]
 V_{lm} : 沿岸海域水コンパートメントの体積 [m^3]

- 1.2 固相による核種移行プロセス

- 1.2.1 侵食（河川水モデル・深井戸モデル：表面土壌 河川水，下部土壌 表面土壌，河川水モデル・深井戸モデル：下部土壌 河川水）

$$\frac{E_{sed}}{d_{sed}} \quad (A-11)$$

E_{sed} : 侵食速度 [$\text{m} \text{y}^{-1}$]
 d_{sed} : 堆積層または土壌コンパートメントの深さ [m]

- 1.2.2 浚渫／蛇行（河川水モデル・深井戸モデル：河川堆積物 表面土壌）

$$\frac{V_{dm}}{V_{rs}} \quad (A-12)$$

V_{dm} : 浚渫 / 蛇行により堆積する堆積物量 [$\text{m}^3 \text{y}^{-1}$]
 V_{rs} : 河川堆積物コンパートメントの体積 [m^3]

1.2.3 河川堆積層からの再浮遊 (河川水モデル・深井戸モデル: 河川堆積層 河川水)

$$\frac{r_{rsed}}{d_{rsed}} \quad (A-13)$$

r_{rsed} : 河川堆積層からの再浮遊量 [$\text{m} \text{y}^{-1}$]
 d_{rsed} : 河川堆積物コンパートメントの深さ [m]

1.2.4 沿岸海域堆積層からの再浮遊 (沿岸海域堆積層 沿岸海域水)

$$\frac{(Rd_{msed} - 1)B_{sed}}{Rd_{msed}d_{msed}^2} \quad (A-14)$$

Rd_{msed} : 沿岸海域堆積層コンパートメントの遅延係数 [-]
 B_{sed} : 沿岸海域での生物擾乱による拡散係数 [$\text{m}^2 \text{y}^{-1}$]
 d_{msed} : 沿岸海域堆積層コンパートメントの深さ [m]

ただし, Rd_{msed} 項は, 次式で表される。

$$Rd_{msed} = 1 + \frac{(1 - \varepsilon_{msed})\rho_{gmsed}}{\theta_{msedw}} Kd_{msed} \quad (A-15)$$

ε_{msed} : 沿岸海域堆積層コンパートメントの間隙率 [-]
 ρ_{gmsed} : 沿岸海域堆積層コンパートメントの真密度 [$\text{kg} \text{m}^{-3}$]
 θ_{msedw} : 沿岸海域堆積層コンパートメントの体積含水率 [-]
 Kd_{msed} : 沿岸海域堆積物の分配係数 [$\text{m}^3 \text{kg}^{-1}$]

1.2.5 正味の沈殿 (沿岸海域堆積層 最終シンク)

$$\frac{(Rd_{msed} - 1) S_{nf}}{Rd_{msed} d_{msed}} \quad (A-16)$$

Rd_{msed} : 沿岸海域堆積層コンパートメントの遅延係数 [-]
(上記(A-15)式参照)
 S_{nf} : 年間の正味の沈殿量 [$\text{m} \text{y}^{-1}$]
 d_{msed} : 沿岸海域堆積層コンパートメントの深さ [m]

1.2.6 沈殿 (河川水モデル・深井戸モデル: 河川水 河川堆積層, 沿岸海域水 沿岸海域堆積層)

$$\frac{Kd_{dsed} S_g (1 - \theta_{sedw}) \rho_{gsed} A_w}{(1 + Kd_{sed} \alpha_w) V_w} \quad (A-17)$$

Kd_{sed}	: 水コンパートメント中の浮遊堆積物の分配係数 [m ³ kg ⁻¹]
S_g	: 河川あるいは沿岸海域における浮遊堆積物の年間沈殿量 [m y ⁻¹]
θ_{sedw}	: 堆積層コンパートメントの体積含水率 [-]
ρ_{gsed}	: 堆積層コンパートメントの真密度 [kg m ⁻³]
A_w	: 水コンパートメントの面積 [m ²]
V_w	: 水コンパートメント中の浮遊堆積物量 [kg m ⁻³]
V_w	: 水コンパートメントの体積 [m ³]

1.2.7 ベッドロード (河川水モデル・深井戸モデル: 河川堆積層 沿岸海域堆積層)

$$\frac{Kd_{rsed} B_i}{(\theta_{rsedw} + Kd_{rsed} (1 - \varepsilon_{rsed}) \rho_{grsed}) V_{rsed}} \quad (A-18)$$

Kd_{rsed}	: 河川堆積物の分配係数 [m ³ kg ⁻¹]
B_i	: ベッドロード量 [kg y ⁻¹]
θ_{rsedw}	: 河川堆積層コンパートメントの体積含水率 [-]
ε_{rsed}	: 河川堆積層コンパートメントの間隙率 [-]
ρ_{grsed}	: 河川堆積層コンパートメントの真密度 [kg m ⁻³]
V_{rsed}	: 河川堆積層コンパートメントの体積 [m ³]

2. 被ばくに関わる数学モデル

各被ばくグループが受ける被ばく経路には、大きく分類して経口摂取による内部被ばく, 吸入摂取による内部被ばく, 外部被ばくの3つの被ばくモードがある。それぞれの被ばくモードによる年間の個人線量は、それぞれのコンパートメントに存在する核種濃度をもとに次式より算出する。

2.1 経口摂取による内部被ばく

2.1.1 河川水の飲用による内部被ばく D_{rw} [mSv y⁻¹]

$$D_{rw} = ING_{fw} D_{ing} C_{rw} \quad (A-19)$$

ING_{fw}	: 飲料水の摂取量 [m ³ y ⁻¹]
D_{ing}	: 経口摂取に対する実効線量係数 [mSv Bq ⁻¹]
C_{rw}	: 河川水コンパートメント中の核種濃度 [Bq m ⁻³]

2.1.2 農作物摂取 (根菜, 葉菜, 穀物, 米, 果物) による内部被ばく D_{crop} [mSv y⁻¹]

$$D_{crop} = ING_{crop} D_{ing} C_{crop} \quad (A-20)$$

ING_{crop}	: 農作物の摂取量 [kg y ⁻¹]
D_{ing}	: 経口摂取に対する実効線量係数 [mSv Bq ⁻¹]
C_{crop}	: 農作物中の核種濃度 [Bq kg ⁻¹ (fresh weight of crop)]

C_{crop} は次式により与えられる。

$$C_{crop} = \frac{(CF_{crop} + (1 - F_{crop})S_{crop})C_{ss}}{(1 - \varepsilon_{ss})\rho_{gss}} + \mu_{crop}(D_{irrcrop}C_{rw})\left(\frac{(1 - F_{crop}) + F_{trans}}{Y_{crop}W_{crop}}\right) \quad (A-21)$$

- CF_{crop} : 土壌から農作物への核種の移行係数 [Bq kg⁻¹ (fresh weight of crop)/Bq kg⁻¹ (dry weight of soil)]
 F_{crop} : 農作物表面汚染の調理時ロス割合 [-]
 S_{crop} : 農作物への土壌の付着量 [kg (dry weight soil)/kg (fresh weight of crop)]
 C_{ss} : 表面土壌コンパートメント中の核種濃度 [Bq m⁻³]
 ε_{ss} : 表面土壌コンパートメントの間隙率 [-]
 ρ_{gss} : 表面土壌コンパートメントの真密度 [kg m⁻³]
 μ_{crop} : 農作物による灌漑水の阻止率 [-]
 $D_{irrcrop}$: 農作物に利用される単位面積あたりの灌漑水量 [m y⁻¹]
 C_{rw} : 灌漑水中の核種濃度 [Bq m⁻³]
 F_{trans} : 転流割合 [-]
 Y_{crop} : 農作物の栽培密度 (収穫量) [kg m⁻²]
 W_{crop} : ウェザリング率 [y⁻¹]

2.1.3 畜産物 (牛肉, 羊肉, 豚肉, 鶏肉, 牛レバー, 鶏レバー, ミルク, 卵) 摂取による内部被ばく D_{prod} [mSv y⁻¹]

$$D_{prod} = ING_{prod} D_{ing} C_{prod} \quad (A-22)$$

- ING_{prod} : 畜産物の摂取量 [kg y⁻¹]
 D_{ing} : 経口摂取に対する実効線量係数 [mSv Bq⁻¹]
 C_{prod} : 畜産物中の核種濃度 [Bq kg⁻¹]

C_{prod} は次式により算出される。

$$C_{prod} = CF_{prod} \left(C_{fodd} ING_{fodd} + C_{rw} ING_{fwa} + \frac{C_{ss} ING_{ssa}}{(1 - \varepsilon_{ss}) \rho_{gss} + \theta_{ssw} \rho_w} + BR_a O_{an} C_{airss} \right) \quad (A-23)$$

- CF_{prod} : 飼料から畜産物への核種の移行係数 [d kg⁻¹ (fresh weight of product)]
 C_{fodd} : 飼料中の核種濃度 [Bq kg⁻¹ (fresh weight of fodder)]
 ING_{fodd} : 家畜の飼料摂取量 [kg (fresh weight) d⁻¹]
 C_{rw} : 飲料水中の核種濃度 [Bq m⁻³]
 ING_{fwa} : 家畜の水摂取量 [m³ d⁻¹]
 C_{ss} : 表面土壌コンパートメント中の核種濃度 [Bq m⁻³]
 ING_{ssa} : 家畜による土壌摂取量 [kg (wet weight of soil) d⁻¹]
 ε_{ss} : 表面土壌コンパートメントの間隙率 [-]
 ρ_{gss} : 表面土壌コンパートメントの真密度 [kg m⁻³]
 θ_{ssw} : 表面土壌コンパートメントの体積含水率 [-]
 ρ_w : 水の密度 [kg m⁻³]
 BR_a : 家畜の呼吸率 [m³ h⁻¹]
 O_{an} : 家畜の放牧時間 [h d⁻¹]
 C_{airss} : 表面土壌コンパートメント上部の大気中の核種濃度 [Bq m⁻³]

C_{airss} は次式により与えられる。

$$C_{airss} = \frac{C_{ss}}{(1 - \varepsilon_{ss}) \rho_{gss}} \frac{(Rd_{ss} - 1)}{Rd_{ss}} dust_{ss} \quad (A-24)$$

- C_{ss} : 表面土壌コンパートメント中の核種濃度 [Bq m⁻³]
 ε_{ss} : 表面土壌コンパートメントの間隙率 [-]
 ρ_{gss} : 表面土壌コンパートメントの真密度 [kg m⁻³]
 Rd_{ss} : 表面土壌コンパートメントの遅延係数 [-]
 $dust_{ss}$: 表面土壌コンパートメント上部の大気中のダストレベル [kg m⁻³]

摂取する飼料は、家畜によって異なる。ここでは、牛と羊が牧草を、豚は根菜を、鶏は穀物を摂取すると仮定した。したがって、豚および鶏の C_{fodd} は(A-21)式を用いて、調理時口入の項を除いて算出される。牛と羊の場合には、 C_{fodd} は次式により算出される。

$$C_{fodd} = \frac{(CF_{past} + S_{past}) C_{ss}}{(1 - \varepsilon_{ss}) \rho_{gss}} + \frac{\mu_{past} D_{irrpast} C_{rw}}{Y_{past} W_{past} + N ING_{past}} \quad (A-25)$$

- CF_{past} : 土壌から飼料（牧草）への核種の移行係数 [Bq kg⁻¹ (fresh weight of pasture)/Bq kg⁻¹ (dry weight of soil)]
 S_{past} : 牧草への土壌の付着量 [kg (dry weight soil)/kg (fresh weight of pasture)]
 C_{ss} : 表面土壌コンパートメントの核種濃度 [Bq m⁻³]
 ε_{ss} : 表面土壌コンパートメントの間隙率 [-]
 ρ_{gss} : 表面土壌コンパートメントの真密度 [kg m⁻³]
 μ_{past} : 牧草による灌漑水の阻止率 [-]
 $D_{irrpast}$: 牧草に使用される単位面積あたりの灌漑水量 [m y⁻¹]
 C_{rw} : 灌漑水中の核種濃度 [Bq m⁻³]
 Y_{past} : 牧草の栽培密度 [kg m⁻²]
 W_{past} : ウェザリング率 [y⁻¹]
 N : 家畜の飼育密度 [m⁻²]
 ING_{past} : 家畜による飼料摂取量 [kg (fresh weight of pasture) d⁻¹]

2.1.4 土壌（堆積物）の摂取による内部被ばく D_{sed} [mSv y⁻¹]

$$D_{sed} = ING_{sed} D_{ing} \frac{C_{sed}}{(1 - \varepsilon_{sed}) \rho_{gsed} + \theta_{sedw} \rho_w} \quad (A-26)$$

- ING_{sed} : 土壌（堆積物）の年間摂取量 [kg y⁻¹]
 D_{ing} : 経口摂取に対する実効線量係数 [mSv Bq⁻¹]
 C_{sed} : 土壌（堆積層）コンパートメント中の核種濃度 [Bq m⁻³]
 ε_{sed} : 土壌（堆積層）コンパートメント中の間隙率 [-]
 ρ_{gsed} : 土壌（堆積層）コンパートメント中の真密度 [kg m⁻³]
 θ_{sedw} : 土壌（堆積層）コンパートメントの体積含水率 [-]
 ρ_w : 水の密度 [kg m⁻³]

2.1.5 水産物（淡水甲殻類／魚類，海水甲殻類／魚類／軟体動物／海藻）の摂取による内部被ばく D_{aqfood} [mSv y⁻¹]

$$D_{aqfood} = ING_{aqfood} D_{ing} FF_w C_w CF_{aqfood} 10^{-3} \quad (A-27)$$

ING_{aqfood} : 水産物の摂取量 [kg y⁻¹]
 D_{ing} : 経口摂取に対する実効線量係数 [mSv Bq⁻¹]
 FF_w : ろ過水中の放射能の存在割合 [-]
 C_w : 水コンパートメント中の核種濃度 [Bq m⁻³]
 CF_{aqfood} : 水産物への核種の濃縮係数 [kg⁻¹]

ただし， FF_w は次式により算出される。

$$FF_w = \frac{1}{1 + Kd_w \alpha_w} \quad (A-28)$$

Kd_w : 水コンパートメント中の浮遊堆積物の分配係数 [m³ kg⁻¹]
 α_w : 水コンパートメント中の浮遊堆積物量 [kg m⁻³]

2.2 吸入摂取による内部被ばく

2.2.1 ダストの吸入による内部被ばく D_{dust} [mSv y⁻¹]

$$D_{dust} = D_{inh} BR_{sed} O_{sed} C_{air} \quad (A-29)$$

D_{inh} : 吸入摂取に対する実効線量係数 [mSv Bq⁻¹]
 BR_{sed} : 表面土壌（堆積層）での人間の呼吸率 [m³ h⁻¹]
 O_{sed} : 表面土壌（堆積層）上における人間の滞在時間 [h y⁻¹]
 C_{air} : 表面土壌（堆積層）コンパートメント上部の大气中の核種濃度 [Bq m⁻³]

C_{air} は次式により与えられる。

$$C_{air} = \frac{C_{sed}}{(1 - \varepsilon_{sed}) \rho_{gsed}} \frac{(Rd_{sed} - 1)}{Rd_{sed}} dust_{sed} \quad (A-30)$$

C_{sed} : 土壌（堆積層）コンパートメント中の核種濃度 [Bq m⁻³]
 ε_{sed} : 土壌（堆積層）コンパートメントの間隙率 [-]
 ρ_{gsed} : 土壌（堆積層）コンパートメントの真密度 [kg m⁻³]
 Rd_{sed} : 土壌（堆積層）コンパートメントの遅延係数 [-]
 $dust_{sed}$: 土壌（堆積層）コンパートメント上部の大气中のダストレベル [kg m⁻³]

2.2.2 エアロゾルの吸入による内部被ばく D_{aero} [mSv y⁻¹]

$$D_{aero} = D_{inh} BR_{aero} Air_{aero} O_{aero} C_w T_{aero} \quad (A-31)$$

D_{inh} : 吸入摂取に対する実効線量係数 [mSv Bq⁻¹]
 BR_{aero} : エアロゾルの影響を受ける地域での人間の呼吸率 [m³ h⁻¹]

Air_{aero}	: エアロゾルの影響を受ける地域での大気中のエアロゾルレベル [$m^3 m^{-3}$]
O_{aero}	: エアロゾルの影響を受ける地域での人間の滞在時間 [$h y^{-1}$]
C_w	: 水中の核種濃度 [$Bq m^{-3}$]
T_{aero}	: エアロゾルにおける濃縮係数 [-]

2.3 外部被ばく

2.3.1 土壌（堆積物）からの外部被ばく D_{exsed} [$mSv y^{-1}$]

$$D_{exsed} = O_{sed} D_{exts} C_{sed} \quad (A-32)$$

O_{sed}	: 土壌（堆積層）コンパートメントにおける滞在時間 [$h y^{-1}$]
D_{exts}	: 堆積物からの外部被ばくに対する実効線量係数 [$(mSv h^{-1}) / (Bq m^{-3})$]
C_{sed}	: 土壌（堆積層）コンパートメント中の核種濃度 [$Bq m^{-3}$]

2.3.2 水からの外部被ばく D_{exwat} [$mSv y^{-1}$]

$$D_{exwat} = O_w D_{extw} C_w \quad (A-33)$$

O_w	: 水中での人間の滞在時間 [$h y^{-1}$]
D_{extw}	: 水からの外部被ばくに対する実効線量係数 [$(mSv h^{-1}) (Bq m^{-3})^{-1}$]
C_w	: 水中の核種濃度 [$Bq m^{-3}$]

付録 B 河川水モデル・深井戸モデル・沿岸海域堆積層モデルにおけるデータセット

1. コンパートメントに関するデータ

付表 B-1-1 コンパートメントの諸量に関するデータ（温暖気候）

パラメータ	単位	深井戸		表面土壌		下部土壌	
		設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献
深さ	m	-	-([*] 1)	3×10^{-1}	[1],[2],[3]	2	-([*] 4)
面積	m ²	-	-([*] 1)	2×10^4	[5]([*] 2)	2×10^4	-([*] 5)
体積	m ³	2×10^6	[14]	6×10^3	-([*] 3)	4×10^4	-([*] 3)
間隙率	-	1	-([*] 12)	4×10^{-1}	[1],[2],[4]	4×10^{-1}	[2]
体積含水率	-	1	-([*] 7)	3×10^{-1}	[4]	3.5×10^{-1}	[4]
浮遊堆積物量	kg m ⁻³	0	-([*] 12)	-	-([*] 1)	-	-([*] 1)
水の密度	kg m ⁻³	1×10^3	[11]	1.0×10^3	[11]	1×10^3	[11]
コンパートメントの密度	kg m ⁻³	-	-([*] 1)	2.65×10^3	[12]([*] 9)	2.65×10^3	[12]([*] 9)
パラメータ	単位	河川水		河川堆積層		沿岸海域水	
		設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献
深さ	m	5×10^{-1}	[6]	1×10^{-1}	[6]	5	[10]
面積	m ²	1×10^4	[1]	1×10^4	[1]([*] 6)	2×10^6	-([*] 10)
体積	m ³	5×10^3	-([*] 3)	1×10^3	-([*] 3)	1×10^7	-([*] 11)
間隙率	-	9.9998×10^{-1}	-([*] 8)	5×10^{-1}	-	9.999996×10^{-1}	-([*] 8)
体積含水率	-	9.9998×10^{-1}	-([*] 7)	5×10^{-1}	-([*] 7)	9.999996×10^{-1}	-([*] 7)
浮遊堆積物量	kg m ⁻³	5×10^{-2}	[7],[8]	-	-([*] 1)	1×10^{-3}	[9]
水の密度	kg m ⁻³	1×10^3	[11]	1×10^3	[11]	1×10^3	[11]
コンパートメントの密度	kg m ⁻³	2.65×10^3	[12]([*] 9)	2.65×10^3	[12]([*] 9)	2.65×10^3	[12]([*] 9)
パラメータ	単位	沿岸海域堆積層					
		設定値	文献				
深さ	m	5×10^{-1}	[1]				
面積	m ²	2×10^6	-([*] 6)				
体積	m ³	1×10^6	-([*] 3)				
間隙率	-	5×10^{-1}	-				
体積含水率	-	5×10^{-1}	-([*] 7)				
浮遊堆積物量	kg m ⁻³	-	-([*] 1)				
水の密度	kg m ⁻³	1×10^3	[11]				
コンパートメントの密度	kg m ⁻³	2.65×10^3	[12]([*] 9)				

【設定根拠】

- *1 本コンパートメントでは設定の必要なし。
- *2 文献[5]で引用されている日本の農耕地の大きさに関するデータに基づいて設定した。
- *3 体積 = 深さ × 面積。
- *4 表面土壌と地下水面の間の領域を示す。本検討では深さを 2 m と設定した。
- *5 表面土壌コンパートメントの値と同じと仮定した。
- *6 堆積層コンパートメントは水コンパートメントと同じ面積を有すると仮定した。ただし、堆積層は周期的に露出するものとする。
- *7 コンパートメントは完全に飽和していると仮定した。
- *8 浮遊物堆積物量とコンパートメントの密度から算出した。
- *9 文献[12]に示されている石英の真密度として設定した。
- *10 面積 = 体積 ÷ 深さ。
- *11 海岸線を 10 km、沖合までの距離を 200 m として算出した。
- *12 本検討では、深井戸水中に浮遊物はないと仮定した。

【参考文献】

- [1] Klos, R. A., Smith, K. R. and Smith, G. M. (1989): Calculations of the Radiological Impact of Unit Releases of Radionuclides to the Biosphere from Solid Waste Disposal Facilities, National Radiological Protection Board, NRPB-M150, Chilton, UK.
- [2] OECD/NEA (1993): PSAC01N Level 1B Intercomparison, NEA Probabilistic System Assessment Group, Nuclear Energy Agency of Organisation for Economic Cooperation and Development, Paris.
- [3] Charles, D. and Smith, G. M. (1991): Project-90 Conversion of Releases from the Geosphere to Estimates of Individual Doses to Man, SKI Technical Report 91:14.
- [4] BIOMOV5 (1990): Scenario B6: Transport of Radionuclides to Root-Zone Soil from Contaminated Groundwater, BIOMOV5 Technical Report 9, Swedish Radiation Protection Institute, Stockholm.
- [5] Witherick, M. E. and Carr, M. (1993): The Changing Face of Japan: A Geographical Perspective, Hodder and Stoughton, UK.
- [6] Smith, G. M., Watkins, B. M., Little, R. H., Jones, H. M. and Mortimer, A. A. (1996): Biosphere Modelling and Dose Assessment for Yucca Mountain, EPRI Report TR-107190, Electrical Power Research Institute, California.
- [7] BIOMOV5: Scenario B7 (1990): Transport of Contaminated Groundwater to a River, BIOMOV5 Technical Report 10, Swedish Radiation Protection Institute, Stockholm.
- [8] Lawson, G. and Smith, G. M. (1985): BIOS: A Model to Predict Radionuclide Transfer and Doses to Man Following Releases from Geological Repositories, National Radiological Protection Board, NRPB-R169, HMSO, London.
- [9] Bergström, U. and Puigdomenech, I. (1987): Radiological Consequences to Man due to Leakage from a Final Repository for Reactor Waste (SFR), SKB Report SFR 87-12.
- [10] 国立天文台編(1997): 理科年表, 平成 9 年, 丸善.
- [11] Weast, R. C. (1987): Handbook of Chemistry and Physics, First Student Edition, CRC Press Inc., Boca Raton, Florida.
- [12] Freeze, R. A. and Cherry, J. A. (1979): Groundwater, Prentice Hall Inc, Englewood Cliffs, New Jersey.
- [13] Hillel, D. (1980): Fundamental of Soil Physics, Academic Press Inc., New York.
- [14] 日本水道協会(1996): 水道統計, 平成 6 年度

付表 B-1-2 コンパートメントの諸量に関するデータ（冷帯気候）

パラメータ	単位	深井戸		表面土壌		下部土壌	
		設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献
深さ	m	-	-([*] 1)	3×10^{-1}	[1],[2],[3]	2	-([*] 5)
面積	m ²	-	-([*] 1)	2×10^4	[5]([*] 3)	2×10^4	-([*] 6)
体積	m ³	2×10^6	[12]	6×10^3	-([*] 4)	4×10^4	-([*] 4)
間隙率	-	1	-([*] 9)	4×10^{-1}	[1],[2],[4]	4×10^{-1}	[2]
体積含水率	-	1	-([*] 10)	3×10^{-1}	[4]	3.5×10^{-1}	[4]
浮遊物濃度	kg m ⁻³	0	-([*] 9)	-	-([*] 1)	-	-([*] 1)
水の密度	kg m ⁻³	1×10^3	[10]	1×10^3	[10]	1×10^3	[10]
堆積物の密度	kg m ⁻³	-	-([*] 1)	2.65×10^3	[11]([*] 12)	2.65×10^3	[11]([*] 12)
パラメータ	単位	河川水		河川堆積層		沿岸海域水	
		設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献
深さ	m	5×10^{-1}	[6]	1×10^{-1}	[6]	5	[13]
面積	m ²	1×10^4	[1]	1×10^4	[1]([*] 7)	2×10^6	-([*] 8)
体積	m ³	5×10^3	-([*] 4)	1×10^3	-([*] 4)	1×10^7	-([*] 15)
間隙率	-	9.9998×10^{-1}	-([*] 11)	5×10^{-1}	-	9.999996×10^{-1}	-([*] 11)
体積含水率	-	9.9998×10^{-1}	-([*] 10)	5×10^{-1}	-([*] 10)	9.999996×10^{-1}	-([*] 10)
浮遊物濃度	kg m ⁻³	5×10^{-2}	[7],[8]	-	-([*] 1)	1×10^{-3}	[9]
水の密度	kg m ⁻³	1×10^3	[10]	1×10^3	[10]	1×10^3	[10]
堆積物の密度	kg m ⁻³	2.65×10^3	[11]([*] 12)	2.65×10^3	[11]([*] 12)	2.65×10^3	[11]([*] 12)
パラメータ	単位	沿岸海域堆積層					
		設定値	文献				
深さ	m	5×10^{-1}	[1]				
面積	m ²	2×10^6	-([*] 7)				
体積	m ³	1×10^6	-([*] 4)				
間隙率	-	5×10^{-1}	-				
体積含水率	-	5×10^{-1}	-([*] 10)				
浮遊物濃度	kg m ⁻³	-	-([*] 1)				
水の密度	kg m ⁻³	1×10^3	[10]				
堆積物の密度	kg m ⁻³	2.65×10^3	[11]([*] 12)				

【設定根拠】

- ^{*}1 本コンパートメントでは設定の必要なし。
- ^{*}2 整合を取るため、表面土壌の面積は温暖気候生物圏モデルでの設定値と同じであると仮定した。
- ^{*}3 体積 = 深さ × 面積。

- *4 表面土壌と地下水面の間の領域を示す。本検討では深さを 2 [m] と設定した。
- *5 表面土壌コンパートメントの値と同じと仮定した。
- *6 堆積層コンパートメントは水コンパートメントと同じ面積を有すると仮定した。ただし，堆積層は周期的に露出するものとする。
- *7 面積 = 体積 ÷ 深さ。
- *8 本検討では，深井戸水中に浮遊物はないと仮定した。
- *9 コンパートメントは完全に飽和していると仮定した。
- *10 浮遊物濃度と堆積物真密度から算出した。
- *11 文献[11]に示されている石英の真密度として設定した。
- *12 海岸線を 10 km，沖合までの距離を 200 m として算出した。

【参考文献】

- [1] Klos, R. A., Smith, K. R. and Smith, G. M. (1989): Calculations of the Radiological Impact of Unit Releases of Radionuclides to the Biosphere from Solid Waste Disposal Facilities. National Radiological Protection Board, NRPB-M150, Chilton, UK.
- [2] NEA/OECD (1993): PSAC01N Level 1B Intercomparison. NEA Probabilistic System Assessment Group, Nuclear Energy Agency of Organisation NEA Probabilistic System Assessment Group, Nuclear Energy Agency of Organisation for Economic Cooperation and Development, Paris.
- [3] Charles, D. and Smith, G. M. (1991): Project-90 Conversion of Releases from the Geosphere to Estimates of Individual Doses to Man. SKI Technical Report 91:14.
- [4] BIOMOV5 (1990): Scenario B6: Transport of Radionuclides to Root-zone Soil from Contaminated Groundwater. BIOMOV5 Technical Report 9, Swedish Radiation Protection Institute, Stockholm.
- [5] Witherick, M. E. and Carr, M. (1993): The Changing Face of Japan: A Geographical Perspective. Hodder and Stoughton, UK.
- [6] Smith, G. M., Watkins, B. M., Little, R. H., Jones, H. M., Mortimer, A. A. (1996): Biosphere Modelling and Dose Assessment for Yucca Mountain. EPRI Report TR-107190. Electrical Power Research Institute, California.
- [7] BIOMOV5 (1990): Scenario B7: Transport of Contaminated Groundwater to a River. BIOMOV5 Technical Report 10, Swedish Radiation Protection Institute, Stockholm.
- [8] Lawson, G. and Smith, G. M. (1985): BIOS: A Model to Predict Radionuclide Transfer and Doses to Man Following Releases from Geological Repositories. National Radiological Protection Board, NRPB-R169, HMSO, London.
- [9] Bergström, U. and Puigdomenech, I. (1987): Radiological Consequences to Man due to Leakage from a Final Repository for Reactor Waste (SFR). SKB Report SFR 87-12.
- [10] Weast, R. C. (1987): Handbook of Chemistry and Physics. First Student Edition. CRC Press Inc, Boca Raton, Florida.
- [11] Freeze, R. A. and Cherry, J. A. (1979): Groundwater. Prentice Hall Inc, Englewood Cliffs, New Jersey.
- [12] 日本水道協会 (1996) : 水道統計，平成 6 年度.
- [13] 国立天文台編 (1997) : 理科年表，平成 9 年，丸善.

付表 B-1-3 コンパートメントの諸量に関するデータ (ツンドラ気候)

パラメータ	単位	深井戸		表面土壌		下部土壌	
		設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献
深さ	m	-	-([*] 1)	3×10^{-1}	[1],[2],[3]	2	-([*] 5)
面積	m ²	-	-([*] 1)	2×10^4	[5]([*] 3)	2×10^4	-([*] 6)
体積	m ³	2×10^6	[12]	6×10^3	-([*] 4)	4×10^4	-([*] 4)
間隙率	-	1	-([*] 9)	4×10^{-1}	[1],[2],[4]	4×10^{-1}	[2]
体積含水率	-	1	-([*] 10)	3×10^{-1}	[4]	3.5×10^{-1}	[4]
浮遊物濃度	kg m ⁻³	0	-([*] 9)	-	-([*] 1)	-	-([*] 1)
水の密度	kg m ⁻³	1×10^3	[10]	1×10^3	[10]	1×10^3	[10]
堆積物の密度	kg m ⁻³	-	-([*] 1)	2.65×10^3	[11]([*] 12)	2.65×10^3	[11]([*] 12)
パラメータ	単位	河川水		河川堆積層		沿岸海域水	
		設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献
深さ	m	5×10^{-1}	[6]	1×10^{-1}	[6]	5	[13]
面積	m ²	1×10^4	[1]	1×10^4	[1]([*] 7)	2×10^6	-([*] 8)
体積	m ³	5×10^3	-([*] 4)	1×10^3	-([*] 4)	1×10^7	-([*] 15)
間隙率	-	9.9998×10^{-1}	-([*] 11)	5×10^{-1}	-	9.999996×10^{-1}	-([*] 11)
体積含水率	-	9.9998×10^{-1}	-([*] 10)	5×10^{-1}	-([*] 10)	9.999996×10^{-1}	-([*] 10)
浮遊物濃度	kg m ⁻³	5×10^{-2}	[7],[8]	-	-([*] 1)	1×10^{-3}	[9]
水の密度	kg m ⁻³	1×10^3	[10]	1×10^3	[10]	1×10^3	[10]
堆積物の密度	kg m ⁻³	2.65×10^3	[11]([*] 12)	2.65×10^3	[11]([*] 12)	2.65×10^3	[11]([*] 12)
パラメータ	単位	沿岸海域堆積層					
		設定値	文献				
深さ	m	5×10^{-1}	[1]				
面積	m ²	2×10^6	-([*] 7)				
体積	m ³	1×10^6	-([*] 4)				
間隙率	-	5×10^{-1}	-				
体積含水率	-	5×10^{-1}	-([*] 10)				
浮遊物濃度	kg m ⁻³	-	-([*] 1)				
水の密度	kg m ⁻³	1×10^3	[10]				
堆積物の密度	kg m ⁻³	2.65×10^3	[11]([*] 12)				

【設定根拠】

- ^{*}1 本コンパートメントでは設定の必要なし。
- ^{*}2 整合を取るため、表面土壌の面積は温暖気候生物圏モデルでの設定値と同じであると仮定した。
- ^{*}3 体積 = 深さ × 面積。

- *4 表面土壌と地下水面の間の領域を示す。本検討では深さを 2 [m] と設定した。
- *5 表面土壌コンパートメントの値と同じと仮定した。
- *6 堆積層コンパートメントは水コンパートメントと同じ面積を有すると仮定した。ただし、堆積層は周期的に露出するものとする。
- *7 面積 = 体積 ÷ 深さ。
- *8 本検討では、深井戸水中に浮遊物はないと仮定した。
- *9 コンパートメントは完全に飽和していると仮定した。
- *10 浮遊物濃度と堆積物真密度から算出した。
- *11 文献[11]に示されている石英の真密度として設定した。
- *12 海岸線を 10 km、沖合までの距離を 200 m として算出した。

【参考文献】

- [1] Klos, R. A., Smith, K. R. and Smith, G. M. (1989): Calculations of the Radiological Impact of Unit Releases of Radionuclides to the Biosphere from Solid Waste Disposal Facilities. National Radiological Protection Board, NRPB-M150, Chilton, UK.
- [2] NEA/OECD (1993): PSAC01N Level 1B Intercomparison. NEA Probabilistic System Assessment Group, Nuclear Energy Agency of Organisation NEA Probabilistic System Assessment Group, Nuclear Energy Agency of Organisation for Economic Cooperation and Development, Paris.
- [3] Charles, D. and Smith, G. M. (1991): Project-90 Conversion of Releases from the Geosphere to Estimates of Individual Doses to Man. SKI Technical Report 91:14.
- [4] BIOMOV5 (1990): Scenario B6: Transport of Radionuclides to Root-zone Soil from Contaminated Groundwater. BIOMOV5 Technical Report 9, Swedish Radiation Protection Institute, Stockholm.
- [5] Witherick, M. E. and Carr, M. (1993): The Changing Face of Japan: A Geographical Perspective. Hodder and Stoughton, UK.
- [6] Smith, G. M., Watkins, B. M., Little, R. H., Jones, H. M., Mortimer, A. A. (1996): Biosphere Modelling and Dose Assessment for Yucca Mountain. EPRI Report TR-107190. Electrical Power Research Institute, California.
- [7] BIOMOV5 (1990): Scenario B7: Transport of Contaminated Groundwater to a River. BIOMOV5 Technical Report 10, Swedish Radiation Protection Institute, Stockholm.
- [8] Lawson, G. and Smith, G. M. (1985): BIOS: A Model to Predict Radionuclide Transfer and Doses to Man Following Releases from Geological Repositories. National Radiological Protection Board, NRPB-R169, HMSO, London.
- [9] Bergström, U. and Puigdomenech, I. (1987): Radiological Consequences to Man due to Leakage from a Final Repository for Reactor Waste (SFR). SKB Report SFR 87-12.
- [10] Weast, R. C. (1987): Handbook of Chemistry and Physics. First Student Edition. CRC Press Inc, Boca Raton, Florida.
- [11] Freeze, R. A. and Cherry, J. A. (1979): Groundwater. Prentice Hall Inc, Englewood Cliffs, New Jersey.
- [12] 日本水道協会 (1996) : 水道統計, 平成 6 年度.
- [13] 国立天文台編 (1997) : 理科年表, 平成 9 年, 丸善.

2. コンパートメント間の移行プロセスに関するデータ

付表B-2-1 コンパートメント間の移行プロセスに関するデータ（温暖気候）

移行プロセス	単位	設定値	文献
液相による移行			
灌漑水量	m ³ y ⁻¹	1.5 × 10 ⁴	[1]
灌漑 / 飲料以外の排出量	m ³ y ⁻¹	1.985 × 10 ⁶	-(⁷)
年間浸透 / 流出量	m y ⁻¹	7 × 10 ⁻¹	-(¹)
年間洪水量	m ³ y ⁻¹	1.0 × 10 ²	-(²)
河川流量	m ³ y ⁻¹	1 × 10 ⁸	[2]
地下水流量	m ³ y ⁻¹	2 × 10 ⁶	-(⁸)
海洋拡散による希釈水量	m ³ y ⁻¹	1 × 10 ¹⁰	[7]
海洋エアロゾルの陸地への年間移行量	m ³ y ⁻¹	1 × 10 ²	-(⁹)
固相による移行			
侵食速度	m y ⁻¹	1 × 10 ⁻⁴	[3]
浚渫 / 蛇行により堆積する堆積物量	m ³ y ⁻¹	1.6	-(³)
河川堆積層からの再浮遊量	m y ⁻¹	1 × 10 ⁻⁴	-(⁴)
河川における堆積物の年間沈殿量	m y ⁻¹	1.6 × 10 ⁻⁵	[5]
ベッドロード量	kg y ⁻¹	1.6 × 10 ⁵	-(⁵)
沿岸海域での生物擾乱による拡散係数	m ² y ⁻¹	3.2 × 10 ⁻⁵	[4]
沿岸海域における堆積物の年間沈殿量	m y ⁻¹	7.5 × 10 ⁻⁵	[6]
年間の正味の沈殿量	m y ⁻¹	5 × 10 ⁻⁵	-(⁶)

【設定根拠】

- *1 全降水量(1750 mm)の40%および年間洪水量(上記)が表面土壌へ浸透すると仮定して計算した。流出量は浸透量に等しいと仮定した。
- *2 年間平均で表面土壌の10%が洪水にさらされ、全洪水量のうち50%(0.05 m)が表面土壌へ移行するとして計算した。
- *3 移行率を $5 \times 10^{-3} \sim 5 \times 10^{-2} \text{ y}^{-1}$ [4]と仮定し、沿岸海域水コンパートメント体積(付表2-1参照)を用いて計算した。
- *4 侵食速度と等しいと仮定した。
- *5 文献[8]により、河川のベッドロード量は通常、全堆積物量の5~10%とされている。
- *6 沿岸海域での堆積物の年間沈殿量の67%と仮定した。
- *7 深井戸からの年間揚水量($2.0 \times 10^6 [\text{m}^3 \text{ y}^{-1}]$)から灌漑水量や飲料水などで消費した分を差し引いた量とした。
- *8 帯水層の流量(深井戸の年間揚水量の対数平均値(日本水道協会, 1996))と同じであると仮定した。
- *9 沿岸海域水コンパートメントの体積に沿岸地帯への水の輸送割合(1×10^{-5})を乗じて算出する(Lawson and Smith, 1985)。

【参考文献】

- [1] 総務庁統計局(1997): 日本の統計 1997.
- [2] 国土開発調査会(1996): 河川便覧 平成8年.
- [3] Shimizu, K., Ishimaru, K., Furuya, K. and Yusa, Y. (1992): Natural Processes and Events Relevant to Long Term Stability of Geological Environment in Japan, In: Waste Disposal and Geology; Scientific Perspectives, Proceedings of Workshop WC-1 of the 29th International Geological Congress, Tokyo, 381-394.
- [4] Klos, R. A., Smith, K. R. and Smith, G. M. (1989): Calculations of the Radiological Impact of Unit Releases of Radionuclides to the Biosphere from Solid Waste Disposal

- Facilities, National Radiological Protection Board, NRPB-M150, Chilton, UK.
- [5] Smith, G. M., Fearn, H. S., Smith, K. R., Davis, J. P. and Klos, R. (1988): Assessment of the Radiological Impact of Disposal of Solid Radioactive Waste at Drigg, National Radiological Protection Board, NRPB-M148, Chilton, UK.
- [6] Bergström, U. and Puigdomenech, I. (1987): Radiological Consequences to Man due to Leakage from a Final Repository for Reactor Waste (SFR), SKB Report SFR 87-12.
- [7] 国立天文台編(1997)：理科年表 平成9年，丸善.
- [8] Rice, R. J. (1977): Fundamentals of Geomorphology, Longman, London.
- [9] 日本水道協会：水道統計，平成6年度(1996)
- [10] Lawson, G. and Smith, G.M. (1985): BIOS: A Model to Predict Radionuclide Transfer and Doses to Man Following Releases from Geological Repositories. National Radiological Protection Board, NRPB-R169, HMSO, London.

付表 B-2-2 コンパートメント間の移行プロセスに関するデータ（冷帯気候）

パラメータ	単位	設定値	文献
液相による移行量			
灌漑水量	m ³ y ⁻¹	6.8 × 10 ²	-([*] 1)
灌漑以外の揚水量	m ³ y ⁻¹	1.999 × 10 ⁶	-([*] 2)
年間浸透 / 流出量	m y ⁻¹	2.6 × 10 ⁻¹	-([*] 3)
年間洪水量	m ³ y ⁻¹	1.0 × 10 ²	-([*] 4)
河川流量	m ³ y ⁻¹	1 × 10 ⁸	[8]
地下水流量	m ³ y ⁻¹	2 × 10 ⁶	-([*] 8)
海洋拡散による希釈水量	m ³ y ⁻¹	1 × 10 ¹⁰	[9]
海洋エアロゾルの陸地への年間移行量	m ³ y ⁻¹	1 × 10 ²	-([*] 9)
固相による移行量			
侵食速度	m y ⁻¹	1.1 × 10 ⁻⁴	[2], [6]
河川での浚渫 / 蛇行量	m ³ y ⁻¹	1.6	-([*] 5)
河川堆積層からの再浮遊量	m y ⁻¹	1.1 × 10 ⁻⁴	-([*] 6)
河川での堆積物の年間沈殿量	m y ⁻¹	1.6 × 10 ⁻⁵	[4]
ベッドロード量	kg y ⁻¹	1.6 × 10 ⁵	-([*] 7)
沿岸海域での生物擾乱による拡散係数	m ² y ⁻¹	3.2 × 10 ⁻⁵	[3]
沿岸海域での堆積物の年間沈殿量	m y ⁻¹	7.5 × 10 ⁻⁵	[5]
年間の正味の沈殿量	m y ⁻¹	5 × 10 ⁻⁵	-([*] 5)

【設定根拠】

- ^{*}1 灌漑された農作物を生育する領域に夏季の水分蒸発量 (0.55 [m y⁻¹] [7]) と等しい量で年に一度灌漑すると仮定して算出した。また、範囲は灌漑量ゼロから設定値の 2 倍までを考慮した。人間が消費する灌漑された農作物の生育に必要な耕作面積は次式により求めた。

$$A_c = \frac{(ING_{crop} * 5)}{Y_{crop}}$$

ING_{crop} : 農作物の消費量 [kg y⁻¹]

Y_{crop} : 農作物の栽培密度 [kg y⁻¹ m⁻²]

計算は、1 世帯 5 人分の消費量に基づいて行った。また、付表 B-4 と付表 B-11-2 に基づいて、各農作物の栽培面積を以下のように設定した。

穀物 : 3.2 × 10²

米 : 6.6 × 10²

根菜 : 5.9 × 10¹

葉菜 : 2.0 × 10²

加えて、家畜に与える灌漑された飼料を栽培する領域を考慮する必要がある。牛と羊に与えられる牧草については、灌漑しないと仮定した。鶏と豚に与える飼料の 10% が農場で生産される穀物と根菜であると仮定した。さらに、付表 2-11(a) より鶏の飼料である穀物の栽培面積として 7.3 × 10² m²、根菜の栽培面積として 2.7 × 10² m² を追加した。

灌漑作物を生育する総面積は、2.2 × 10³ [m²] となる。

- ^{*}2 灌漑以外の用途（家畜の飼育水、家庭用水、工業用水）と灌漑用水を合計して 2 × 10⁶ [m³ y⁻¹] となるように設定した。
- ^{*}3 全降水量 (648 [mm]) の 40 % および洪水の 50 % (100 [m³ y⁻¹]) が表面土壌へ浸透すると仮定して計算した。流出量は浸透量と等しいと仮定した。
- ^{*}4 年間平均で表面土壌の 10 % が洪水にさらされ、洪水の 50 % (0.05 [m]) が表面土壌へ移行するとして計算した。
- ^{*}5 沿岸海域でのグロスの沈殿量の 67 % と仮定した。
- ^{*}6 本検討では、侵食速度と等しいと仮定した。

- 7 参考文献[1]には、ベッドロード量は通常全体の堆積物量の5～10%であるとされている。
- 8 帯水層の流量（深井戸の年間揚水量の対数平均値（日本水道協会，1996））と同じであると仮定した。
- 9 沿岸海域水コンパートメントの体積に沿岸地帯への水の輸送割合（ 1×10^{-5} ）を乗じて算出する(Lawson and Smith, 1985)。

【参考文献】

- [1] Rice, R. J. (1977): Fundamentals of Geomorphology. Longman, London.
- [2] Shimizu, K., Ishimaru, K., Furuya, K. and Yusa, Y. (1992): Natural Processes and Events Relevant to Long Term Stability of Geological Environment in Japan. In Waste Disposal and Geology; Scientific Perspectives. Proceedings of Workshop WC-1 of the 29th International Geological Congress, Tokyo, 381-394.
- [3] Klos, R. A., Smith, K. R. and Smith, G. M. (1989): Calculations of the Radiological Impact of Unit Releases of Radionuclides to the Biosphere from Solid Waste Disposal Facilities. National Radiological Protection Board, NRPB-M150, Chilton, UK.
- [4] Smith, G. M., Fearn, H. S., Smith, K. R., Davis, J. P. and Klos, R. (1988): Assessment of the Radiological Impact of Disposal of Solid Radioactive Waste at Drigg. National Radiological Protection Board, NRPB-M148, Chilton, UK.
- [5] Bergström, U. and Puigdomenech, I. (1987): Radiological Consequences to Man due to Leakage from a Final Repository for Reactor Waste (SFR). SKB Report SFR 87-12.
- [6] Watkins, B. M., Little, R. H., Mortimer, A. and Greenhalgh, M. (1997): Radionuclide Transport and Bioaccumulation in Natural and Semi-natural Ecosystems: Information and Database of Parameter Values for Temperate Upland, Alpine, Boreal and Tundra Environments. Report IE4303-3 Version 1.0.
- [7] Strahler, A. N. (1978): Physical Geography (Fourth Edition). Wiley International Edition.
- [8] 国土開発調査会（1996）：河川便覧，平成8年。
- [9] 国立天文台（1997）：理科年表，平成9年，丸善。
- [10] 日本水道協会(1996)：水道統計，平成6年度
- [11] Lawson, G. and Smith, G.M. (1985): BIOS: A Model to Predict Radionuclide Transfer and Doses to Man Following Releases from Geological Repositories. National Radiological Protection Board, NRPB-R169, HMSO, London.

付表 B-2-3 コンパートメント間の移行プロセスに関するデータ（ツンドラ気候）

パラメータ	単位	設定値	文献
液相による移行量			
灌漑水量	$\text{m}^3 \text{y}^{-1}$	2.2×10^1	-([*] 1)
灌漑以外の揚水量	$\text{m}^3 \text{y}^{-1}$	1.999×10^6	-([*] 2)
年間浸透 / 流出量	$\text{m} \text{y}^{-1}$	6.5×10^{-2}	-([*] 3)
年間洪水量	$\text{m}^3 \text{y}^{-1}$	1.0×10^2	-([*] 4)
河川流量	$\text{m}^3 \text{y}^{-1}$	1×10^8	[8]
地下水流量	$\text{m}^3 \text{y}^{-1}$	2×10^6	-([*] 8)
海洋拡散による希釈水量	$\text{m}^3 \text{y}^{-1}$	1×10^{10}	[9]
海洋エアロゾルの陸地への年間移行量	$\text{m}^3 \text{y}^{-1}$	1×10^2	-([*] 9)
固相による移行量			
侵食速度	$\text{m} \text{y}^{-1}$	1×10^{-3}	[2], [6]
河川での浚渫 / 蛇行量	$\text{m}^3 \text{y}^{-1}$	1.6	-([*] 5)
河川堆積層からの再浮遊量	$\text{m} \text{y}^{-1}$	1×10^{-3}	-([*] 6)
河川での堆積物の年間沈殿量	$\text{m} \text{y}^{-1}$	1.6×10^{-5}	[4]
ベッドロード量	$\text{kg} \text{y}^{-1}$	1.6×10^5	-([*] 7)
沿岸海域での生物擾乱による拡散係数	$\text{m}^2 \text{y}^{-1}$	3.2×10^{-5}	[3]
沿岸海域での堆積物の年間沈殿量	$\text{m} \text{y}^{-1}$	7.5×10^{-5}	[5]
年間の正味の沈殿量	$\text{m} \text{y}^{-1}$	1×10^{-4}	-([*] 5)

【設定根拠】

- ^{*}1 灌漑された農作物を生育する領域に夏季の水分蒸発量 ($0.025 \text{ [m y}^{-1}]$ [6]) と等しい量で年に一度灌漑すると仮定して算出した。また、範囲は灌漑量ゼロから設定値の 2 倍までを考慮した。人間が消費する灌漑された農作物の生育に必要な耕作面積は次式により求めた。

$$A_c = \frac{(ING_{crop} * 5)}{Y_{crop}}$$

ING_{crop} : 農作物の消費量 [kg y^{-1}]

Y_{crop} : 農作物の栽培密度 [$\text{kg y}^{-1} \text{m}^{-2}$]

計算は、1 世帯 5 人分の消費量に基づいて行った。また、付表 B-4 と付表 B-11-3 に基づいて、各農作物の栽培面積を以下のように設定した。

根菜 : 1.6×10^2

葉菜 : 7.4×10^2

加えて、家畜に与える灌漑された飼料を栽培する領域を考慮する必要があるが、牧草については、灌漑しないと仮定した。灌漑作物を生育する総面積は、 $9.0 \times 10^2 \text{ [m}^2]$ となる。

- ^{*}2 灌漑以外の用途（家畜の飼育水、家庭用水、工業用水）と灌漑用水を合計して $2 \times 10^6 \text{ [m}^3 \text{y}^{-1}]$ となるように設定した。
- ^{*}3 全降水量 (648 [mm]) の 40 % および洪水の 50 % ($100 \text{ [m}^3 \text{y}^{-1}]$) が表面土壌へ浸透すると仮定して計算した。流出量は浸透量と等しいと仮定した。
- ^{*}4 年間平均で表面土壌の 10 % が洪水にさらされ、洪水の 50 % (0.05 [m]) が表面土壌へ移行するとして計算した。
- ^{*}5 範囲の幾何平均を設定値とした。（浚渫蛇行 $0.5 \sim 5$; 正味の沈殿 $7.5 \times 10^{-6} \sim 3.7 \times 10^{-3}$ ）
- ^{*}6 本検討では、侵食速度と等しいと仮定した。
- ^{*}7 参考文献[1]には、ベッドロード量は通常全体の堆積物量の 5 ~ 10% であるとされている。
- ^{*}8 帯水層の流量（深井戸の年間揚水量の対数平均値（日本水道協会，1996））と同じであると仮定した。
- ^{*}9 沿岸海域水コンパートメントの体積に沿岸地帯への水の輸送割合 (1×10^{-5}) を乗じて算出する (Lawson and Smith, 1985)。

【参考文献】

- [1] Rice, R. J. (1977): Fundamentals of Geomorphology. Longman, London.
- [2] Shimizu, K., Ishimaru, K., Furuya, K. and Yusa, Y. (1992): Natural Processes and Events Relevant to Long Term Stability of Geological Environment in Japan. In Waste Disposal and Geology; Scientific Perspectives. Proceedings of Workshop WC-1 of the 29th International Geological Congress, Tokyo, 381-394.
- [3] Klos, R. A., Smith, K. R. and Smith, G. M. (1989): Calculations of the Radiological Impact of Unit Releases of Radionuclides to the Biosphere from Solid Waste Disposal Facilities. National Radiological Protection Board, NRPB-M150, Chilton, UK.
- [4] Smith, G. M., Fearn, H. S., Smith, K. R., Davis, J. P. and Klos, R. (1988): Assessment of the Radiological Impact of Disposal of Solid Radioactive Waste at Drigg. National Radiological Protection Board, NRPB-M148, Chilton, UK.
- [5] Bergström, U. and Puigdomenech, I. (1987): Radiological Consequences to Man due to Leakage from a Final Repository for Reactor Waste (SFR). SKB Report SFR 87-12.
- [6] Watkins, B. M., Little, R. H., Mortimer, A. and Greenhalgh, M. (1997): Radionuclide Transport and Bioaccumulation in Natural and Semi-natural Ecosystems: Information and Database of Parameter Values for Temperate Upland, Alpine, Boreal and Tundra Environments. Report IE4303-3 Version 1.0.
- [7] Strahler, A. N. (1978): Physical Geography (Fourth Edition). Wiley International Edition.
- [8] 国土開発調査会 (1996) : 河川便覧, 平成 8 年.
- [9] 国立天文台 (1997) : 理科年表, 平成 9 年, 丸善.
- [10] 日本水道協会 (1996) : 水道統計, 平成 6 年度
- [11] Lawson, G. and Smith, G.M. (1985): BIOS: A Model to Predict Radionuclide Transfer and Doses to Man Following Releases from Geological Repositories. National Radiological Protection Board, NRPB-R169, HMSO, London.

3. 被ばく経路に関するデータ

付表B-3 実効線量係数

核種	実効線量係数					文 献
	内部被ばく		文 献	外部被ばく		
	経口摂取 [mSv Bq ⁻¹]	吸入摂取 [mSv Bq ⁻¹]		水 [(mSv h ⁻¹) / (Bq m ⁻³)]	土壌(堆積物) [(mSv h ⁻¹) / (Bq m ⁻³)]	
Sm-151	9.8 × 10 ⁻⁸	2.6 × 10 ⁻⁶	[1]	2.2 × 10 ⁻¹⁶	1.0 × 10 ⁻¹⁷	[2]
Cs-137(*1)	1.3 × 10 ⁻⁵	6.7 × 10 ⁻⁶	[1]	1.5 × 10 ⁻¹⁰	6.8 × 10 ⁻¹¹	[2]
Cs-135	2.0 × 10 ⁻⁶	9.9 × 10 ⁻⁷	[1]	3.0 × 10 ⁻¹⁴	2.6 × 10 ⁻¹⁶	[2]
I-129	1.1 × 10 ⁻⁴	9.6 × 10 ⁻⁵	[1]	2.3 × 10 ⁻¹²	1.1 × 10 ⁻¹³	[2]
Sn-126(*1)	5.1 × 10 ⁻⁶	1.8 × 10 ⁻⁵	[1]	5.1 × 10 ⁻¹⁰	2.4 × 10 ⁻¹⁰	[2]
Pd-107	3.7 × 10 ⁻⁸	2.9 × 10 ⁻⁷	[1]	0	0	[2]
Tc-99	7.8 × 10 ⁻⁷	3.2 × 10 ⁻⁶	[1]	9.8 × 10 ⁻¹⁴	1.8 × 10 ⁻¹⁵	[2]
Nb-94	1.7 × 10 ⁻⁶	2.5 × 10 ⁻⁵	[1]	4.1 × 10 ⁻¹⁰	2.0 × 10 ⁻¹⁰	[2]
Mo-93	2.6 × 10 ⁻⁶	1.4 × 10 ⁻⁶	[1]	1.8 × 10 ⁻¹³	8.3 × 10 ⁻¹⁵	[2]
Zr-93	2.8 × 10 ⁻⁷	2.9 × 10 ⁻⁵	[1]	0	0	[2]
Nb-93m	1.2 × 10 ⁻⁷	8.6 × 10 ⁻⁷	[1]	3.1 × 10 ⁻¹⁴	1.5 × 10 ⁻¹⁵	[2]
Sr-90(*1)	3.1 × 10 ⁻⁵	7.9 × 10 ⁻⁵	[1]	2.8 × 10 ⁻¹²	5.4 × 10 ⁻¹³	[2]
Se-79	2.9 × 10 ⁻⁶	3.1 × 10 ⁻⁶	[1]	1.2 × 10 ⁻¹⁴	3.2 × 10 ⁻¹⁷	[2]
Ni-63	1.5 × 10 ⁻⁷	2.0 × 10 ⁻⁶	[1]	0	0	[2]
Co-60	3.4 × 10 ⁻⁶	1.7 × 10 ⁻⁵	[1]	6.5 × 10 ⁻¹⁰	3.2 × 10 ⁻¹⁰	[2]
Ni-59	6.3 × 10 ⁻⁸	8.3 × 10 ⁻⁷	[1]	5.7 × 10 ⁻¹⁵	1.0 × 10 ⁻¹⁶	[2]
Cl-36	9.3 × 10 ⁻⁷	5.1 × 10 ⁻⁶	[1]	7.0 × 10 ⁻¹³	6.8 × 10 ⁻¹⁴	[2]
C-14	5.8 × 10 ⁻⁷	5.8 × 10 ⁻⁷	[1]	7.4 × 10 ⁻¹⁵	1.6 × 10 ⁻¹⁷	[2]
Cm-244	1.2 × 10 ⁻⁴	1.7 × 10 ⁻²	[1]	3.3 × 10 ⁻¹⁴	1.6 × 10 ⁻¹⁵	[2]
Pu-240	2.5 × 10 ⁻⁴	3.2 × 10 ⁻²	[1]	3.3 × 10 ⁻¹⁴	2.1 × 10 ⁻¹⁵	[2]
U-236	4.6 × 10 ⁻⁵	6.3 × 10 ⁻³	[1]	3.5 × 10 ⁻¹⁴	3.4 × 10 ⁻¹⁵	[2]
Th-232	2.2 × 10 ⁻⁴	2.9 × 10 ⁻²	[1]	5.6 × 10 ⁻¹⁴	8.2 × 10 ⁻¹⁵	[2]
Ra-228(*1)	6.7 × 10 ⁻⁴	1.7 × 10 ⁻³	[1]	2.5 × 10 ⁻¹⁰	1.2 × 10 ⁻¹⁰	[2]
Th-228(*1)	1.4 × 10 ⁻⁴	2.7 × 10 ⁻²	[1]	4.3 × 10 ⁻¹⁰	2.1 × 10 ⁻¹⁰	[2]
Cm-245	2.1 × 10 ⁻⁴	2.7 × 10 ⁻²	[1]	2.2 × 10 ⁻¹¹	6.5 × 10 ⁻¹²	[2]
Pu-241(*1)	4.7 × 10 ⁻⁶	5.8 × 10 ⁻⁴	[1]	1.2 × 10 ⁻¹⁵	3.6 × 10 ⁻¹⁶	[2]
Am-241	2.0 × 10 ⁻⁴	2.7 × 10 ⁻²	[1]	5.0 × 10 ⁻¹²	4.5 × 10 ⁻¹³	[2]
Np-237	1.1 × 10 ⁻⁴	1.5 × 10 ⁻²	[1]	6.0 × 10 ⁻¹²	1.3 × 10 ⁻¹²	[2]
Pa-233	8.7 × 10 ⁻⁷	3.2 × 10 ⁻⁶	[1]	5.1 × 10 ⁻¹¹	2.1 × 10 ⁻¹¹	[2]
U-233	5.0 × 10 ⁻⁵	6.9 × 10 ⁻³	[1]	9.5 × 10 ⁻¹⁴	2.7 × 10 ⁻¹⁴	[2]
Th-229(*1)	6.0 × 10 ⁻⁴	8.0 × 10 ⁻²	[1]	8.2 × 10 ⁻¹¹	3.2 × 10 ⁻¹¹	[2]
Cm-246	2.1 × 10 ⁻⁴	2.7 × 10 ⁻²	[1]	3.0 × 10 ⁻¹⁴	1.4 × 10 ⁻¹⁵	[2]
Pu-242	2.4 × 10 ⁻⁴	3.1 × 10 ⁻²	[1]	2.8 × 10 ⁻¹⁴	1.9 × 10 ⁻¹⁵	[2]
U-238(*1)	4.7 × 10 ⁻⁵	5.7 × 10 ⁻³	[1]	8.9 × 10 ⁻¹²	3.0 × 10 ⁻¹²	[2]
U-234	4.9 × 10 ⁻⁵	6.8 × 10 ⁻³	[1]	5.1 × 10 ⁻¹⁴	6.6 × 10 ⁻¹⁵	[2]
Th-230	2.1 × 10 ⁻⁴	2.8 × 10 ⁻²	[1]	1.1 × 10 ⁻¹³	2.0 × 10 ⁻¹⁴	[2]
Ra-226(*1)	2.8 × 10 ⁻⁴	2.2 × 10 ⁻³	[1]	4.7 × 10 ⁻¹⁰	2.2 × 10 ⁻¹⁰	[2]
Pb-210(*1)	1.1 × 10 ⁻³	7.4 × 10 ⁻⁴	[1]	1.0 × 10 ⁻¹²	9.0 × 10 ⁻¹⁴	[2]
Po-210	2.4 × 10 ⁻⁴	2.2 × 10 ⁻³	[1]	2.2 × 10 ⁻¹⁵	1.1 × 10 ⁻¹⁵	[2]
Am-243(*1)	2.0 × 10 ⁻⁴	2.7 × 10 ⁻²	[1]	5.5 × 10 ⁻¹¹	1.7 × 10 ⁻¹¹	[2]
Pu-239	2.5 × 10 ⁻⁴	3.2 × 10 ⁻²	[1]	2.6 × 10 ⁻¹⁴	5.5 × 10 ⁻¹⁵	[2]
U-235(*1)	4.6 × 10 ⁻⁵	6.1 × 10 ⁻³	[1]	4.2 × 10 ⁻¹¹	1.6 × 10 ⁻¹¹	[2]
Pa-231	7.1 × 10 ⁻⁴	8.9 × 10 ⁻²	[1]	9.3 × 10 ⁻¹²	4.0 × 10 ⁻¹²	[2]
Ac-227(*1)	1.2 × 10 ⁻³	6.4 × 10 ⁻¹	[1]	8.8 × 10 ⁻¹¹	3.5 × 10 ⁻¹¹	[2]

【設定根拠】

- 1 当該核種の短半減期の娘核種（半減期 25 日以下）は解析対象とせず，これらの娘核種からの被ばくについては，解析対象である直近の親核種にビルドアップ分として加算してその影響を考慮した。

【参考文献】

- [1] 科学技術庁（2000）：“ICRP1990 年勧告の取り入れ等による放射線障害防止法関連法令の改正（平成 12 年 10 月 23 日公布）”。
- [2] C. R. Macdonald and M. Laverock (1996): External ICRP 60 Dose Conversion Factors for Air and Water Immersion, Groundshine and Soil, TR-739, COG-96-106.

付表 B-4-1 食物などの摂取量（温暖気候および冷帯気候）

食物		単位	設定値	文献
農作物	根菜	kg-fw y ⁻¹	47.2	[5]
	葉菜	kg-fw y ⁻¹	26.7	[5]
	穀物	kg-fw y ⁻¹	28.5	[5]
	米	kg-fw y ⁻¹	59.8	[5]
	果物	kg-fw y ⁻¹	28.5	[5]
畜産物	牛肉	kg-fw y ⁻¹	8.8	[5]
	羊肉	kg-fw y ⁻¹	0.6	[6]
	豚肉	kg-fw y ⁻¹	9.5	[5]
	鶏肉	kg-fw y ⁻¹	7.4	[5]
	牛レバー	kg-fw y ⁻¹	0.2	[6]
	鶏レバー	kg-fw y ⁻¹	0.3	[6]
	鶏卵	kg-fw y ⁻¹	15.4	[5]
	牛乳	kg-fw y ⁻¹	46.0	[5]
淡水産物 (¹)	淡水魚	kg-fw y ⁻¹	0.4	[5], [7]
	淡水甲殻類	kg-fw y ⁻¹	0.2	[5], [7]
海産物	海水魚	kg-fw y ⁻¹	14.9	[5]
	海洋甲殻類	kg-fw y ⁻¹	2.9	[8]
	軟体動物	kg-fw y ⁻¹	1.8	[8]
	海藻類	kg-fw y ⁻¹	1.9	[5]
そのほか	水	m ³ y ⁻¹	0.61	[2], [3]
	土壌	kg-fw y ⁻¹	0.037	[1], [4]

¹fw: fresh weight

【設定根拠】

¹ 冷帯気候では淡水魚のみを摂取すると仮定した。

【引用文献】

- [1] Yu, C., Loureiro, C., Cheng, J-J., Jones, L. G., Wang, Y. Y., Chia, Y. P. and Faillace, E. (1993): Data Collection Handbook to Support Modelling the Impacts of Radioactive Material in Soil, Argonne National Laboratory, Report ANL/EAIS-8.
- [2] ICRP (1975): Report of the Task Group on Reference Man, ICRP Publication 23, Pergamon Press, Oxford.
- [3] IAEA (1995): Generic Models and Parameters for Assessing the Environmental Transfer of Radionuclides from Routine Release Safety Series No 57 (draft), IAEA, Vienna.
- [4] Linsley, G. S., Dionian, J., Simmonds, J. R. and Burgess, J. (1984): An Assessment of the Radiation Exposure of Members of the Public in West Cumbria as a Result of Discharges from BNFL Sellafield, National Radiological Protection Board, NRPB-R170, Chilton, UK.
- [5] 厚生省(1997): 国民栄養の現状 -平成7年国民栄養調査成績-.
- [6] 農林水産省畜産局食肉鶏卵課編(1997): 食肉便覧(平成8年).
- [7] 水産庁漁政部企画課(1996): 水産統計指標(平成6年).
- [8] 農林水産省統計情報部(1996): 第71次農林水産省統計表(平成6年~7年).

付表 B-4-2 食物などの摂取量（ツンドラ気候）

食物		単位	設定値	文献
農作物	根菜	kg-fw/y	47.2	[3]
	葉菜	kg-fw/y	26.7	[3]
	穀物	kg-fw/y	28.5	[3]
	米	kg-fw/y	59.8	[3]
	果物	kg-fw/y	28.5	[3]
畜産物	肉類(2)	kg-fw/y	26.3	[3],[4]
	レバー類(3)	kg-fw/y	0.5	[4]
	卵	kg-fw/y	15.4	[3]
	ミルク	kg-fw/y	46.0	[3]
淡水産物	淡水魚(4)	kg-fw/y	0.6	[3],[5]
海産物	海水魚(5)	kg-fw/y	21.5	[3],[6]
その他	水	m ³ /y	0.6	[7]
	土壌	kg-fw/y	0.03	[1],[2]

【設定根拠】

- *1 原則として現在の食生活が継続すると仮定し、食物摂取量を設定した。
- *2 肉類については、温暖気候で設定した肉類(牛肉, 羊肉, 豚肉, 鶏肉)の摂取量を合計して、肉類の摂取量として設定した。
- *3 レバー類については、温暖気候で設定したレバー類(牛レバー, 鶏レバー)の摂取量を合計して、レバー類の摂取量として設定した。
- *4 淡水産物については淡水魚のみを摂取すると仮定されていることから、温暖気候で設定した淡水魚と淡水産物の摂取量を合計して、淡水魚の摂取量として設定した。
- *5 海産物については海水魚のみを摂取すると仮定されていることから、温暖気候で設定した海産物(海水魚, 海洋甲殻類, 軟体動物, 海藻類)の摂取量を合計して、海水魚の摂取量として設定した。

【参考文献】

- [1] Yu, C., Loureiro, C., Cheng, J.-J., Jones, L. G., Wang, Y. Y., Chia, Y. P. and Faillace, E. (1993): Data Collection Handbook to Support Modelling the Impacts of Radioactive Material in Soil. Argonne National Laboratory, Report ANL/EAIS-8.
- [2] Linsley, G. S., Dionian, J., Simmonds, J. R. and Burgess, J. (1984): An Assessment of the Radiation Exposure of Members of the Public in West Cumbria as a Result of Discharges from BNFL Sellafield. National Radiological Protection Board. NRPB-R170, Chilton, UK.
- [3] 厚生省(1997): 国民栄養の現状, -平成7年国民栄養調査成績-
- [4] 農林水産省畜産局食肉鶏卵課編(1997): 食肉便覧(平成8年).
- [5] 水産庁漁政部企画課(1996): 水産統計指標(平成6年).
- [6] 農林水産省統計情報部(1996): 第71次農林水産省統計表(平成6年~7年).
- [7] AMAP (1998): AMAP Assessment report: Arctic Pollution Issues. Arctic Monitoring and Assessment Programme (AMAP), Oslo, Norway.

付表 B-5 生物圏における土壌などの分配係数（全気候共通）（単位：[m³ kg⁻¹]

元素	表面土壌，下部土壌		河川堆積層		沿岸海域堆積層	
	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献
C	1.0×10 ⁻¹	[1], [4]	1.0×10 ⁻¹	[3], [5]	1.0×10 ⁻¹	[4]
Cl	1.0×10 ⁻³	[1]	1	[10]	1.0×10 ⁻⁴	-(⁵)
Co	6.0×10 ⁻²	[8]	1.0×10 ¹	[5]	2.0×10 ¹	-(⁶)
Ni	4.0×10 ⁻¹	[8]	1.0×10 ¹	[3], [4], [5]	2.0×10 ¹	-(⁶)
Se	1.5×10 ⁻¹	[8], [9]	1×10 ⁻²	[4]	1	[3]
Sr	1.3×10 ⁻²	[8]	5.0×10 ⁻¹	[3], [4]	1	[3]
Mo	7.4×10 ⁻³	[8]	1.0×10 ⁻¹	-(⁴)	1.0×10 ⁻¹	-(⁴)
Zr	6.0×10 ⁻¹	[8], [9]	1×10 ¹	[3], [4]	1×10 ¹	[4]
Nb	1.6×10 ⁻¹	[8], [9]	1×10 ¹	[3], [4]	1×10 ¹	[4]
Tc	1.4×10 ⁻⁴	[8]	1×10 ⁻¹	[5], [7]	1×10 ⁻¹	[3]
Pd	5.5×10 ⁻²	[8], [9]	2	[1]	5×10 ¹	[3]
Sn	1.3×10 ⁻¹	[8], [9]	1×10 ¹	[3], [4]	1×10 ¹	[4]
I	1.0×10 ⁻³	[8]	1.0×10 ⁻¹	[5]	2.0×10 ⁻²	[3]
Cs	2.7×10 ⁻¹	[8], [9]	2	[2]	3	[3]
Sm	2.4×10 ⁻¹	[8]	1×10 ²	-(²)	2×10 ³	[3]
Pb	2.7×10 ⁻¹	[8], [9]	1×10 ¹	[3], [4]	2×10 ²	[3]
Po	1.5×10 ⁻¹	[8], [9]	1×10 ¹	-(¹)	2×10 ²	-(¹)
Ra	4.9×10 ⁻¹	[8], [9]	1	[2]	5	[3]
Ac	4.5×10 ⁻¹	[8], [9]	1×10 ²	-(²)	2×10 ³	-(²)
Th	3.0	[8], [9]	5×10 ³	[3]	5×10 ³	[4]
Pa	5.4×10 ⁻¹	[8], [9]	5×10 ³	[3]	5×10 ³	[4]
U	3.3×10 ⁻²	[8], [9]	5×10 ⁻²	[3], [4]	5×10 ⁻¹	[4]
Np	4.1×10 ⁻³	[8]	5×10 ⁻¹	[3]	2	[6]
Pu	5.4×10 ⁻¹	[8], [9]	1×10 ²	[3], [4]	2×10 ³	-(³)
Am	2.0	[8], [9]	1×10 ²	[5]	2×10 ³	[3]
Cm	4.0	[8], [9]	1×10 ²	[5]	2×10 ³	[3]

【設定根拠】

- *1 Pb データをアナログとして使用した。
 *2 Am データをアナログとして使用した。
 *3 Kd の推奨値は，他のアクチニドと整合を取るため文献[6]に記載の範囲（1×10¹～1×10³ m³ kg⁻¹）の上限値に近い値とした。
 *4 Tc データをアナログとして使用した。
 *5 推奨値は文献[3]で推奨されている値よりも保守性のためわずかに高い。
 *6 値は文献[3]に記載の範囲の下限値とする。

【参考文献】

- [1] Ashton, J., and Sumerling, T. J. (1988): Biosphere Database for Assessments of Radioactive Waste Disposals (Edition 1) UK DoE Report DOE/RW/88.083, Department of the Environment, London, U.K.
 [2] Smith, G. M., Fearn, H. S., Smith, K. R., Davis, J. P. and Klos, R. (1988): Assessment of the Radiological Impact of Disposal of Solid Radioactive Waste at Drigg, U.K. National Radiological Protection Board, NRPB-M148, Chilton, UK.
 [3] IAEA (1985): Sediment K_ds and Concentration Factors for Radionuclides in the Marine Environment, IAEA Tech. Rep. Series No. 247, IAEA, Vienna.

- [4] Kane, P. (1984): ECOS: Sorption, Dose, Consumption and Miscellaneous Data, U.K. Department of Environment Report DOE/RW/84.124.
- [5] Vieno, T. and Suolonen, V. (1991): Biosphere Analysis for the VLJ Repository (in Finnish), Nuclear Waste Commission of Finnish Power Companies, Report YJT-91-11, Helsinki, Finland.
- [6] Higgo, J. J. W. (1988): Radionuclide Interactions with Marine Sediments, Nirex Safety Studies Series Report NSS/R142.
- [7] Coughtrey, P. J., Jackson, D. and Thorne, M. C. (1983-85): Radionuclide Distribution and Transport in Terrestrial and Aquatic Ecosystems: A Compendium of Data, Vols. 1-6, A A Balkema, Rotterdam.
- [8] IAEA/IUR (1994): Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Temperate Environments, Technical Reports Series No 364. IAEA, Vienna.
- [9] Yu, C., Loureiro, C., Cheng, J-J., Jones, L. G., Wang, Y. Y., Chia, Y. P. and Faillace, E. (1993): Data Collection Handbook to Support Modelling the Impacts of Radioactive Material in Soil, Argonne National Laboratory Report ANL/EAIS-8.
- [10] Karlson and Bergstrom (2002): Element specific parameter value used in the biospheric models of the safety assessments SR97 and SAFE , SKB.

付表 B-6-1 土壌から農作物への核種の移行係数 (温暖気候)
 (単位: [(Bq kg⁻¹ (fresh weight of crop))/(Bq kg⁻¹ (dry weight of soil))])

元素	根菜		葉菜		穀物		牧草		米		果物	
	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献
C	1×10 ⁻¹	[2],[3]	1×10 ⁻¹	[2],[3]	1×10 ⁻¹	[2],[3]	1×10 ⁻¹	[2],[3]	1×10 ⁻¹	-([*] 1)	1×10 ⁻¹	[2],[3]
Cl	5	[1],[4]	5	[1],[4]	5	[1],[4]	5	[1],[4]	5	-([*] 1)	5	-([*] 1)
Co	3×10 ⁻²	-([*] 4)	3×10 ⁻²	-([*] 2)	3×10 ⁻²	-([*] 4)	6×10 ⁻³	[2]	3×10 ⁻²	-([*] 1)	1×10 ⁻²	[5]
Ni	3×10 ⁻²	-([*] 4)	3×10 ⁻²	-([*] 4)	5×10 ⁻²	-([*] 4)	2×10 ⁻²	-([*] 4)	5×10 ⁻²	-([*] 1)	1×10 ⁻²	-([*] 3)
Se	1	[1]	1	[1]	1	[1]	1	[1]	1	-([*] 8)	5×10 ⁻¹	-([*] 10)
Sr	9×10 ⁻²	-([*] 4)	3	-([*] 4)	8×10 ⁻²	-([*] 4)	3	-([*] 4)	8×10 ⁻²	-([*] 8)	5×10 ⁻¹	-([*] 3)
Mo	7×10 ⁻²	[2]	5×10 ⁻¹	[2]	3×10 ⁻¹	[2]	1×10 ⁻¹	[2]	3×10 ⁻¹	-([*] 1)	5×10 ⁻²	[2]
Zr	5×10 ⁻³	[1]	5×10 ⁻³	[1]	5×10 ⁻³	[1]	5×10 ⁻³	[1]	5×10 ⁻³	-([*] 8)	5×10 ⁻³	-([*] 10)
Nb	1×10 ⁻²	-([*] 2)	1×10 ⁻²	-([*] 2)	1×10 ⁻²	-([*] 2)	1×10 ⁻²	-([*] 4)	1×10 ⁻²	-([*] 1)	5×10 ⁻³	-([*] 1)
Tc	1×10 ¹	-([*] 5)	1×10 ¹	-([*] 5)	1×10 ¹	-([*] 5)	1×10 ¹	-([*] 5)	1×10 ¹	-([*] 1)	2×10 ¹	[2]
Pd	6×10 ⁻²	[5]	2×10 ⁻¹	[5]	2×10 ⁻¹	[5]	2×10 ⁻¹	[5]	2×10 ⁻¹	-([*] 8)	2×10 ⁻¹	[5]
Sn	1×10 ⁻¹	-([*] 4)	1×10 ⁻¹	-([*] 2)	2×10 ⁻¹	[1],[4]	2×10 ⁻¹	-([*] 2)	2×10 ⁻¹	-([*] 1)	1×10 ⁻¹	-([*] 3)
I	1×10 ⁻¹	-([*] 4)	1×10 ⁻¹	-([*] 4)	1×10 ⁻¹	-([*] 4)	1×10 ⁻¹	-([*] 4)	1×10 ⁻¹	-([*] 1)	5×10 ⁻²	[3]
Cs	3×10 ⁻²	-([*] 4)	3×10 ⁻²	-([*] 2)	2×10 ⁻²	-([*] 4)	3×10 ⁻²	-([*] 2)	2×10 ⁻²	[4]	5×10 ⁻²	[2]
Sm	2×10 ⁻³	[1]	2×10 ⁻³	[1]	2×10 ⁻³	[1]	2×10 ⁻³	[1]	2×10 ⁻³	-([*] 6)	2×10 ⁻³	-([*] 10)
Pb	1×10 ⁻²	[1]	1×10 ⁻²	[1]	1×10 ⁻²	[1]	1×10 ⁻²	[1]	1×10 ⁻²	-([*] 8)	1×10 ⁻²	-([*] 10)
Po	2×10 ⁻⁴	[1]	2×10 ⁻⁴	[1]	2×10 ⁻⁴	[1]	2×10 ⁻⁴	[1]	2×10 ⁻⁴	-([*] 8)	2×10 ⁻⁴	-([*] 9)
Ra	4×10 ⁻²	[1]	4×10 ⁻²	[1]	4×10 ⁻²	[1]	4×10 ⁻²	[1]	4×10 ⁻²	-([*] 8)	4×10 ⁻²	-([*] 10)
Ac	1×10 ⁻³	[1]	1×10 ⁻³	[1]	1×10 ⁻³	[1]	1×10 ⁻³	[1]	1×10 ⁻³	-([*] 8)	5×10 ⁻⁴	-([*] 10)
Th	5×10 ⁻⁴	[1]	5×10 ⁻⁴	[1]	5×10 ⁻⁴	[1]	5×10 ⁻⁴	[1]	5×10 ⁻⁴	-([*] 8)	5×10 ⁻⁴	-([*] 10)
Pa	4×10 ⁻²	[1]	4×10 ⁻²	[1]	4×10 ⁻²	[1]	4×10 ⁻²	[1]	4×10 ⁻²	-([*] 8)	4×10 ⁻²	-([*] 10)
U	1×10 ⁻³	-([*] 4)	1×10 ⁻³	-([*] 4)	1×10 ⁻⁴	-([*] 4)	1×10 ⁻³	-([*] 5)	1×10 ⁻⁴	-([*] 6)	1×10 ⁻⁴	[2]
Np	1×10 ⁻³	-([*] 5)	1×10 ⁻²	-([*] 5)	3×10 ⁻⁴	[2]	5×10 ⁻³	-([*] 4)	3×10 ⁻⁴	-([*] 7)	3×10 ⁻⁴	[2]
Pu	1×10 ⁻³	-([*] 2)	1×10 ⁻⁴	-([*] 2)	3×10 ⁻⁵	-([*] 4)	1×10 ⁻³	-([*] 4)	1×10 ⁻³	[4]	1×10 ⁻⁴	[2]
Am	1×10 ⁻³	[1]	1×10 ⁻³	-([*] 5)	1×10 ⁻⁵	-([*] 4)	5×10 ⁻³	-([*] 4)	1×10 ⁻³	[4]	1×10 ⁻³	[2]
Cm	1×10 ⁻³	-([*] 11)	1×10 ⁻³	-([*] 11)	1×10 ⁻⁵	-([*] 11)	5×10 ⁻³	-([*] 11)	1×10 ⁻⁵	-([*] 8)	1×10 ⁻³	-([*] 12)

【設定根拠】

- *1 データがないので、他の農作物に対する値と等しいと仮定した。
- *2 文献[1], [2], [3], [4], [5], [6], [7], [8], [9], [10], [11]で一致が得られた値を設定した。
- *3 文献[2], [3], [5] で一致が得られた値を設定した。
- *4 文献[1], [2], [3], [4], [5], [6], [7], [8], [9], [10], [11]における値の範囲の平均値を採用した。
- *5 設定値については、文献間で大きな差が見られた。文献[1], [2], [3], [4], [5], [6], [7], [8], [9], [10], [11] における値の範囲の平均値を採用した。
- *6 データがないので、穀物の値と等しいと仮定した。
- *7 文献[4]では、茎および葉部に対する値の範囲を 2×10⁻²~1×10⁻¹としている。ここでは、文献[3]の葉への値に比べて1~2桁小さい値を設定した。
- *8 穀物に対する値と等しいと仮定した。
- *9 他の農作物に対する値と等しいと仮定した。
- *10 文献[1]および[2]に準拠した。
- *11 文献[1], [2]および[4]に準拠した。
- *12 文献[2]および[4]に準拠した。

【参考文献】

- [1] Smith, G. M., Fearn, H. S., Smith, K. R., Davis, J. P. and Klos, R. (1988): Assessment of the Radiological Impact of Disposal of Solid Radioactive Waste at Drigg, National Radiological Protection Board, NRPB-M148, Chilton, UK.
- [2] Mitchell, N. G. and Jones, B. (1987): A Review of Soil-Plant Concentration Ratios for Use in the Biosphere Models ECOS and SECOS, ANS Technical Note 595-26.
- [3] Jackson, D. (1984): Derivation and Ranges of Aquatic Organism and Terrestrial Plant Data for Use with the Biosphere Code ECOS, UKDOE Report No. DOE/RW/84.127.
- [4] Coughtrey, P. J., Jackson, D., Thorne, M. C. (1983-85): Radionuclide Distribution and Transport in Terrestrial and Aquatic Ecosystems, Volumes 1-6, AA Balkema, Rotterdam.
- [5] Ashton, J. and Sumerling, T. J. (1988): Biosphere Database for Assessments of Radioactive Waste Disposals, UKDOE Report No. DOE/RW/88.083.
- [6] Grogan, H. A. (1985): Concentration Ratios for BIOPATH: Selection of Soil-to-Plant Concentration Ratio Database, Nagra Technical Report 85-16.
- [7] IAEA (1982): Generic Models and Parameters for Assessing the Environmental Transfer of Radionuclides from Routine Releases, IAEA Safety Series No. 57, Vienna.
- [8] International Union of Radioecologists (1985): IVth Report of the Workgroup on Soil-to-Plant Transfer Factors, Appendix A, Report prepared by RIVM, Netherlands.
- [9] Klos, R. A., Smith, K. R. and Smith, G. M. (1989): Calculations of the Radiological Impact of Unit Releases of Radionuclides to the Biosphere from Solid Waste Disposal Facilities, National Radiological Protection Board, NRPB-M150, Chilton, UK.
- [10] Leigh, C. D., Thompson, B. M., Campbell, J. E., Longsine, D. E., Kennedy, R. A. and Napier, B. A. (1993): User's guide for GENII-S: A Code for Statistical and Deterministic Simulations of Radiation Doses to Humans from Radionuclides in the Environment, Sandia Report SAND91-0561.
- [11] Simmonds, J. R. and Crick, M. J. (1982): Transfer Parameters for Use in Terrestrial Foodchain Models, National Radiological Protection Board, NRPB-M63, Chilton, UK.

付表 B-6-2 土壌から農作物への核種の移行係数（冷帯気候およびツンドラ気候）
 （単位：[(Bq kg⁻¹ (fresh weight of crop))/(Bq kg⁻¹ (dry weight of soil))]）

元素	根菜		葉菜		穀物 ⁽⁹⁾		牧草		米 ⁽⁹⁾		果物 ⁽¹⁰⁾	
	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献
C	1×10 ⁻¹	[2],[3]	1×10 ⁻¹	[2],[3]	1×10 ⁻¹	[2],[3]	1×10 ⁻¹	[2],[3]	1×10 ⁻¹	- ⁽¹⁾	1×10 ⁻¹	
Cl	5	[1],[4]	5	[1],[4]	5	[1],[4]	5	[1],[4]	5	- ⁽¹⁾	50	
Co	3×10 ⁻²	- ⁽³⁾	3×10 ⁻²	- ⁽²⁾	3×10 ⁻²	- ⁽³⁾	6×10 ⁻³	[2]	3×10 ⁻²	- ⁽¹⁾	1×10 ⁻²	
Ni	3×10 ⁻²	- ⁽³⁾	3×10 ⁻²	- ⁽³⁾	5×10 ⁻²	- ⁽³⁾	2×10 ⁻²	- ⁽³⁾	5×10 ⁻²	- ⁽¹⁾	1×10 ⁻²	
Se	1	[1]	1	[1]	1	[1]	1	[1]	1	- ⁽⁷⁾	2.5×10 ⁻²	[5]
Sr	9×10 ⁻²	- ⁽³⁾	3	- ⁽³⁾	8×10 ⁻²	- ⁽³⁾	3	- ⁽³⁾	8×10 ⁻²	- ⁽⁷⁾	5×10 ⁻¹	
Mo	7×10 ⁻²	[2]	5×10 ⁻¹	[2]	3×10 ⁻¹	[2]	1×10 ⁻¹	[2]	3×10 ⁻¹	- ⁽¹⁾	1×10 ⁻¹	
Zr	5×10 ⁻³	[1]	5×10 ⁻³	[1]	5×10 ⁻³	[1]	5×10 ⁻³	[1]	5×10 ⁻³	- ⁽⁷⁾	3×10 ⁻⁴	[5]
Nb	1×10 ⁻²	- ⁽²⁾	1×10 ⁻²	- ⁽²⁾	1×10 ⁻²	- ⁽²⁾	1×10 ⁻²	- ⁽³⁾	1×10 ⁻²	- ⁽¹⁾	2.5×10 ⁻³	[5]
Tc	1×10 ¹	- ⁽⁴⁾	1×10 ¹	- ⁽⁴⁾	1×10 ¹	- ⁽⁴⁾	1×10 ¹	- ⁽⁴⁾	1×10 ¹	- ⁽¹⁾	1.8×10 ¹	[5]
Pd	6×10 ⁻²	[5]	2×10 ⁻¹	[5]	2×10 ⁻¹	[5]	2×10 ⁻¹	[5]	2×10 ⁻¹	- ⁽⁷⁾	2×10 ⁻¹	[5]
Sn	1×10 ⁻¹	- ⁽³⁾	1×10 ⁻¹	- ⁽²⁾	2×10 ⁻¹	[1],[4]	2×10 ⁻¹	- ⁽²⁾	2×10 ⁻¹	- ⁽¹⁾	1×10 ⁻¹	[5]
I	1×10 ⁻¹	- ⁽³⁾	1×10 ⁻¹	- ⁽³⁾	1×10 ⁻¹	- ⁽³⁾	1×10 ⁻¹	- ⁽³⁾	1×10 ⁻¹	- ⁽¹⁾	4×10 ⁻²	
Cs	3×10 ⁻²	- ⁽³⁾	3×10 ⁻²	- ⁽²⁾	2×10 ⁻²	- ⁽³⁾	3×10 ⁻²	- ⁽²⁾	2×10 ⁻²	[4]	6.2×10 ⁻¹	-
Sm	2×10 ⁻³	[1]	2×10 ⁻³	[1]	2×10 ⁻³	[1]	2×10 ⁻³	[1]	2×10 ⁻³	- ⁽⁵⁾	2×10 ⁻³	- ⁽⁷⁾
Pb	1×10 ⁻²	[1]	1×10 ⁻²	[1]	1×10 ⁻²	[1]	1×10 ⁻²	[1]	1×10 ⁻²	- ⁽⁷⁾	1×10 ⁻²	[5]
Po	2×10 ⁻⁴	[1]	2×10 ⁻⁴	[1]	2×10 ⁻⁴	[1]	2×10 ⁻⁴	[1]	2×10 ⁻⁴	- ⁽⁷⁾	3.4×10 ⁻⁴	[5]
Ra	4×10 ⁻²	[1]	4×10 ⁻²	[1]	4×10 ⁻²	[1]	4×10 ⁻²	[1]	4×10 ⁻²	- ⁽⁷⁾	3×10 ⁻³	[5]
Ac	1×10 ⁻³	[1]	1×10 ⁻³	[1]	1×10 ⁻³	[1]	1×10 ⁻³	[1]	1×10 ⁻³	- ⁽⁷⁾	6.1×10 ⁻⁵	[5]
Th	5×10 ⁻⁴	[1]	5×10 ⁻⁴	[1]	5×10 ⁻⁴	[1]	5×10 ⁻⁴	[1]	5×10 ⁻⁴	- ⁽⁷⁾	1×10 ⁻⁵	[5]
Pa	4×10 ⁻²	[1]	4×10 ⁻²	[1]	4×10 ⁻²	[1]	4×10 ⁻²	[1]	4×10 ⁻²	- ⁽⁷⁾	2.8×10 ⁻⁴	[5]
U	1×10 ⁻³	- ⁽³⁾	1×10 ⁻³	- ⁽³⁾	1×10 ⁻⁴	- ⁽³⁾	1×10 ⁻³	- ⁽⁴⁾	1×10 ⁻⁴	- ⁽⁵⁾	1×10 ⁻⁴	[5]
Np	1×10 ⁻³	- ⁽⁴⁾	1×10 ⁻²	- ⁽⁴⁾	3×10 ⁻⁴	[2]	5×10 ⁻³	- ⁽³⁾	3×10 ⁻⁴	- ⁽⁶⁾	3×10 ⁻⁴	[5]
Pu	1×10 ⁻³	- ⁽²⁾	1×10 ⁻⁴	- ⁽²⁾	3×10 ⁻⁵	- ⁽³⁾	1×10 ⁻³	- ⁽³⁾	1×10 ⁻³	[4]	4×10 ⁻⁵	[5]
Am	1×10 ⁻³	[1]	1×10 ⁻³	- ⁽⁴⁾	1×10 ⁻⁵	- ⁽³⁾	5×10 ⁻³	- ⁽³⁾	1×10 ⁻³	[4]	1×10 ⁻⁵	[5]
Cm	1×10 ⁻³	- ⁽⁸⁾	1×10 ⁻³	- ⁽⁸⁾	1×10 ⁻⁵	- ⁽⁸⁾	5×10 ⁻³	- ⁽⁸⁾	1×10 ⁻⁵	- ⁽⁷⁾	6.1×10 ⁻⁵	[5]

【設定根拠】

- *1 データがないので、他の農作物に対する値と等しいと仮定した。
- *2 文献[1], [2], [3], [4], [5], [6], [7], [8], [9], [10], [11]で一致が得られた値を設定した。
- *3 文献[1], [2], [3], [4], [5], [6], [7], [8], [9], [10], [11]における値の範囲の平均値を採用した。
- *4 設定値については、文献間で大きな差が見られた。文献[1], [2], [3], [4], [5], [6], [7], [8], [9], [10], [11]における値の範囲の平均値を採用した。
- *5 データがないので、穀物の値と等しいと仮定した。
- *6 文献[4]では、茎および葉部に対する値の範囲を 2×10⁻²~1×10⁻¹としている。ここでは、文献[3]の葉への値に比べて1~2桁小さい値を設定した。
- *7 穀物に対する値と等しいと仮定した。
- *8 文献 [1], [2]および[4]に準拠した。
- *9 ツンドラ気候では根菜、葉菜および果物のみを摂取すると仮定した。
- *10 草木果物（ベリー類）の値を採用した。

【参考文献】

[1] Smith, G. M., Fearn, H. S., Smith, K. R., Davis, J. P. and Klos, R. (1988) : Assessment

- of the Radiological Impact of Disposal of Solid Radioactive Waste at Drigg, National Radiological Protection Board, NRPB-M148, Chilton, UK.
- [2] Mitchell, N. G. and Jones, B. (1987) : A Review of Soil-Plant Concentration Ratios for Use in the Biosphere Models ECOS and SECOS, ANS Technical Note 595-26.
 - [3] Jackson, D. (1984) : Derivation and Ranges of Aquatic Organism and Terrestrial Plant Data for Use with the Biosphere Code ECOS, UKDOE Report No. DOE/RW/84.127.
 - [4] Coughtrey, P. J., Jackson, D., Thorne, M. C. (1983-85) : Radionuclide Distribution and Transport in Terrestrial and Aquatic Ecosystems, Volumes 1-6, AA Balkema, Rotterdam.
 - [5] Ashton, J. and Sumerling, T. J. (1988) : Biosphere Database for Assessments of Radioactive Waste Disposals, UKDOE Report No. DOE/RW/88.083.
 - [6] Grogan, H. A. (1985) : Concentration Ratios for BIOPATH: Selection of Soil-to-Plant Concentration Ratio Database, Nagra Technical Report 85-16.
 - [7] IAEA (1982) : Generic Models and Parameters for Assessing the Environmental Transfer of Radionuclides from Routine Releases, IAEA Safety Series No. 57, Vienna.
 - [8] International Union of Radioecologists (1985) : IVth Report of the Workgroup on Soil-to-Plant Transfer Factors, Appendix A, Report prepared by RIVM, Netherlands.
 - [9] Klos, R. A., Smith, K. R. and Smith, G. M. (1989) : Calculations of the Radiological Impact of Unit Releases of Radionuclides to the Biosphere from Solid Waste Disposal Facilities, National Radiological Protection Board, NRPB-M150, Chilton, UK.
 - [10] Leigh, C. D., Thompson, B. M., Campbell, J. E., Longsine, D. E., Kennedy, R. A. and Napier, B. A. (1993) : User's guide for GENII-S: A Code for Statistical and Deterministic Simulations of Radiation Doses to Humans from Radionuclides in the Environment, Sandia Report SAND91-0561.
 - [11] Simmonds, J. R. and Crick, M. J. (1982) : Transfer Parameters for Use in Terrestrial Foodchain Models, National Radiological Protection Board, NRPB-M63, Chilton, UK.

付表 B-7-1 飼料から畜産物への核種の濃縮係数（温暖気候および冷帯気候）
（単位：[d kg⁻¹ (fresh weight of product)]）

元素	牛肉		羊肉		豚肉		鶏肉	
	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献
C	1.2×10 ⁻¹	[1]	1.7	[1]	5.8×10 ⁻¹	[1]	23	[1]
Cl	4.3×10 ⁻²	[1]	6.2×10 ⁻¹	[1],[3]	2.2×10 ⁻¹	[1]	8.7	[1]
Co	2.9×10 ⁻²	[1]	1.9×10 ⁻¹	[1]	6.7×10 ⁻²	[1]	6.8×10 ⁻¹	[1]
Ni	3.0×10 ⁻²	[1]	1.2×10 ⁻¹	[1],[3]	4.1×10 ⁻²	[1]	1.7	[1]
Se	5.4×10 ⁻¹	[1]	1.4	[1]	7.2×10 ⁻¹	[1]	8.3	[1]
Sr	8.0×10 ⁻³	[6](⁺ 1)	4.0×10 ⁻²	[6]	4.0×10 ⁻²	[6](⁺ 1)	8.0×10 ⁻²	[6]
Mo	1.0×10 ⁻²	[5]	2.0×10 ⁻³	-(⁺ 9)	1.0×10 ⁻³	(⁺ 9)	4.0×10 ⁻²	(⁺ 9)
Zr	3.1×10 ⁻³	[1]	1.0×10 ⁻²	[1]	3.5×10 ⁻³	[1]	1.4×10 ⁻¹	[1]
Nb	2.0×10 ⁻⁴	[6](⁺ 1)	2.0×10 ⁻³	[6]	1.0×10 ⁻³	[6](⁺ 1)	4.0×10 ⁻²	[6]
Tc	6.0×10 ⁻³	[1]	8.6×10 ⁻²	[1]	1.0×10 ⁻⁴	[9](⁺ 5)	1.2	[1]
Pd	7.1×10 ⁻⁵	[1]	1.0×10 ⁻⁴	[1]	3.6×10 ⁻⁵	[1]	1.4×10 ⁻³	[1]
Sn	1.9×10 ⁻³	[1]	1.3×10 ⁻²	[1]	4.4×10 ⁻³	[1]	1.8×10 ⁻¹	[1]
I	3.0×10 ⁻³	[6](⁺ 1)	6.0×10 ⁻³	[6](⁺ 1)	4.0×10 ⁻³	[6](⁺ 1)	2.0×10 ⁻¹	[6]
Cs	5.0×10 ⁻²	[6](⁺ 1)	3.0×10 ⁻¹	[6](⁺ 1)	2.4×10 ⁻¹	[6](⁺ 1)	1.2×10 ¹	[6]
Sm	5.1×10 ⁻⁴	[1]	3.2×10 ⁻⁴	[1]	1.0×10 ⁻⁴	[1]	3.9×10 ⁻³	[1]
Pb	1.0×10 ⁻²	[1]	8.8×10 ⁻²	[1]	3.1×10 ⁻²	[1]	1.2	[1]
Po	4.0×10 ⁻³	[2]	5.0×10 ⁻²	[2]	3.1×10 ⁻²	-(⁺ 2)	1.2	-(⁺ 2)
Ra	1.3×10 ⁻³	[8](⁺ 3)	9.9×10 ⁻²	[1]	3.5×10 ⁻²	[1]	4.8×10 ⁻¹	[1]
Ac	1.6×10 ⁻⁴	[1]	4.7×10 ⁻⁴	[1]	1.7×10 ⁻⁴	[1]	6.6×10 ⁻³	[1]
Th	2.7×10 ⁻³	[1]	1.3×10 ⁻²	[1]	4.6×10 ⁻³	[1]	1.8×10 ⁻¹	[1]
Pa	5.0×10 ⁻⁵	[8](⁺ 4)	3.4×10 ⁻⁴	[1]	1.1×10 ⁻⁴	[1]	4.1×10 ⁻³	[1]
U	6.9×10 ⁻⁴	[1]	7.4×10 ⁻³	[1]	2.6×10 ⁻³	[1]	1.0×10 ⁻¹	[1]
Np	1.2×10 ⁻⁴	[1]	1.4×10 ⁻⁴	[1]	4.5×10 ⁻⁵	[1]	1.7×10 ⁻³	[1]
Pu	2.0E×10 ⁻⁴	[6](⁺ 1)	1.0×10 ⁻³	[6](⁺ 1)	8.3×10 ⁻⁵	[1],[9]	1.0×10 ⁻¹	[6](⁺ 1)
Am	4.0×10 ⁻⁴	[6](⁺ 1)	2.0×10 ⁻³	[6](⁺ 1)	1.0×10 ⁻³	[6](⁺ 1)	1.0×10 ⁻¹	[6](⁺ 1)
Cm	9.8×10 ⁻⁵	[1]	3.0×10 ⁻⁴	[1]	9.9×10 ⁻⁵	[1]	4.0×10 ⁻³	[1]

元素	牛レバー		鶏レバー		牛乳		鶏卵(⁺ 8)	
	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献
C	1.2×10 ⁻¹	[1]	23	[1]	1.0×10 ⁻²	[1]	23	[1]
Cl	4.3×10 ⁻²	[1]	8.7	[1]	1.7×10 ⁻²	[3],[7]	8.7	[1]
Co	3.2×10 ⁻¹	[1]	3.4	[1]	3.0×10 ⁻⁴	[9]	6.8×10 ⁻¹	[1]
Ni	3.0×10 ⁻²	[1]	1.7	[1]	1.0×10 ⁻³	[2],[3]	1.7	[1]
Se	1.0×10 ¹	[1]	7.6×10 ¹	[1]	4.0×10 ⁻³	[2]	8.3	[1]
Sr	1.9×10 ⁻²	[1]	5.7×10 ⁻¹	[1]	3.0×10 ⁻³	[6](⁺ 1)	3.0×10 ⁻¹	[1],[4]
Mo	2.0×10 ⁻¹	[5]	2.2×10 ⁻²	(⁺ 9)	1.0×10 ⁻³	(⁺ 10)	5.0×10 ⁻¹	[4]
Zr	3.1×10 ⁻³	[1]	1.4×10 ⁻¹	[1]	3.0×10 ⁻⁵	[2]	1.4×10 ⁻¹	[1]
Nb	1.7×10 ⁻⁴	[1]	2.2×10 ⁻²	[1]	2.0×10 ⁻²	[2]	2.2×10 ⁻²	[1]
Tc	2.1×10 ⁻²	[1],[3]	1.2	[1]	7.5×10 ⁻³	[1]	1.2	[1]
Pd	9.8×10 ⁻³	[1]	9.8×10 ⁻¹	[1]	2.5×10 ⁻⁴	[1]	1.4×10 ⁻³	[1]
Sn	2.2×10 ⁻²	[1]	1.0	[1]	1.0×10 ⁻³	[1],[2]	1.8×10 ⁻¹	[1]
I	8.0×10 ⁻³	[1]	1.6	[1]	3.0×10 ⁻³	[1],[3]	1.6	[1]
Cs	3.1×10 ⁻²	[1]	1.2×10 ¹	[1]	8.0×10 ⁻³	[6],[9]	4.0×10 ⁻¹	[9]
Sm	5.8×10 ⁻¹	[1]	2.6	[1]	2.0×10 ⁻⁵	[2]	3.9×10 ⁻³	[1]
Pb	8.1×10 ⁻¹	[10]	7.7×10 ¹	[1]	3.0×10 ⁻⁴	[2]	1.2	[1]
Po	1.1×10 ⁻¹	[10]	7.7×10 ¹	-(⁺ 6)	3.0×10 ⁻⁴	[2],[9]	1.2	-(⁺ 2)
Ra	1.9×10 ⁻²	[1]	4.8×10 ⁻¹	[1]	1.3×10 ⁻³	[8],[9](⁺ 7)	2.5×10 ⁻¹	[1]
Ac	1.4×10 ⁻¹	[1]	2.7	[1]	4.0×10 ⁻⁷	[2]	1.6×10 ⁻²	[1]
Th	6.3×10 ⁻²	[1]	2.1	[1]	5.0×10 ⁻⁶	[2]	1.8×10 ⁻¹	[1]
Pa	1.1×10 ⁻³	[1],[10]	1.1	[1]	5.0×10 ⁻⁶	[1],[2]	4.1×10 ⁻³	[1]
U	6.9×10 ⁻⁴	[1]	1.0×10 ⁻¹	[1]	4.0×10 ⁻⁴	[2],[9]	1.0×10 ⁻¹	[1]
Np	1.5×10 ⁻²	[1]	1.3×10 ⁻¹	[1]	5.0×10 ⁻⁶	[2],[9],[11]	1.7×10 ⁻²	[1]
Pu	6.8×10 ⁻²	[1]	1.4	[1]	5.0×10 ⁻⁶	[1]	8.0×10 ⁻³	[1]
Am	6.8×10 ⁻²	[1]	1.4	[1]	5.0×10 ⁻⁶	[1]	3.9×10 ⁻³	[1]
Cm	3.2×10 ⁻²	[1]	6.3×10 ⁻¹	[1]	9.0×10 ⁻⁶	[1]	4.0×10 ⁻²	[1]

【設定根拠】

- *1 文献[6]より，連続放出条件に基づくデータを引用した。
- *2 データがないため，アナログであるPbのデータを引用した。
- *3 最近の文献調査結果をまとめた文献[8]の推奨値を採用した。
- *4 比較的最近の調査である文献[8]でもほとんどデータがないため，文献[8]で推奨されている 5.0×10^{-5} を採用した。
- *5 Tc-95mに基づく値を設定した。文献[7]では文献調査からTc-99の値を推定するのは困難であることが指摘されている。
- *6 文献[5]より値は化合物の化学的特性に依存する。たとえば，Seの単体，酸化物および水酸化物に対する値は 6.0×10^{-2} ，そのほかすべてのセレン化合物に対する値は 1.0×10^0 としている。データ範囲の推奨値は，これらのデータをすべて包含するように設定されている。
- *7 最近の文献調査結果をまとめたデータ集[8]で推奨されている値を採用した。
- *8 卵全体ではなく，中身に対する値を設定している。
- *9 データがないためNbのデータをアナログとした。
- *10 放射性同位元素トレーサー試験における $(\text{NH}_4)_2\text{MoO}_4$ を基にした。

【参考文献】

- [1] Ashton, J. and Sumerling, T. J. (1988): Biosphere Database for Assessments of Radioactive Waste Disposals, UK Department of the Environment Report DOE/RW/88/083.
- [2] Smith, G. M., Fearn, H. S., Smith, K. R., Davis, J. P. and Klos, R. (1988): Assessment of the Radiological Impact of Disposal of Solid Radioactive Waste at Drigg, National Radiological Protection Board, NRPB-M148, Chilton, UK.
- [3] Coughtrey, P. J., Jackson, D., Thorne, M. C. (1983-85): Radionuclide Distribution and Transport in Terrestrial and Aquatic Ecosystems: A Compendium of Data, Volumes 1-6, A A Balkema, Rotterdam.
- [4] Ng, Y. C., Colsher, C. S. and Thompson, S. E. (1982): Transfer Coefficients for Assessing the Dose from Radionuclides in Meat and Eggs, NUREG/CR-2976.
- [5] Simmonds, J. R. and Crick, M. J. (1982): Transfer Parameters for Use in Terrestrial Foodchain Models, National Radiological Protection Board, NRPB-M63, Chilton, UK.
- [6] Coughtrey, P. J. (1990): Radioactivity Transfer to Animal Products, Commission of the European Communities, EUR 12608, Luxembourg.
- [7] Bishop, G. P., Beetham, C. J. and Cuff, Y. S. (1989): Review of Literature for Chlorine, Technetium, Iodine and Neptunium, Nirex Safety Studies Report NSS/R193.
- [8] Morgan, J. E. and Beetham, C. J. (1990): Review of Literature for Radium, Protactinium, Tin and Carbon, Nirex Safety Studies Report NSS/R220.
- [9] IAEA/IUR: Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Temperate Environments, Technical Reports Series No 364, IAEA, Vienna (1994).
- [10] ICRP (1979-81): Limits for Intakes of Radionuclides by Workers, Parts 1-3, ICRP Publication 30, Pergamon Press.
- [11] Ng, Y. C. (1982): A Review of Transfer Factors for Assessing the Dose from Radionuclides in Agricultural Products, Nuclear Safety, Vol. 23, No 1, pp57.

付表 B-7-2 飼料から畜産物への核種の濃縮係数 (ツンドラ気候)
(単位: [d kg⁻¹ (fresh weight of product)])

元素	肉類 ⁽⁴⁾		レバー類 ⁽⁵⁾		ミルク ⁽⁶⁾		卵 ⁽⁷⁾	
	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献
C	1.7	[1]	1.2×10 ⁻¹	[1]	1.0×10 ⁻²	[2]	2.3×10 ¹	[1]
Cl	6.2×10 ⁻¹	[1],[3]	4.3×10 ⁻²	[1]	1.7×10 ⁻²	[3],[10]	8.7	[1]
Co	1.9×10 ⁻¹	[1]	3.2×10 ⁻¹	[1]	3.0×10 ⁻⁴	[8]	6.8×10 ⁻¹	[1]
Ni	1.2×10 ⁻¹	[1],[3]	3.0×10 ⁻²	[1]	1.0×10 ⁻³	[2],[3]	1.7	[1]
Se	1.4	[1]	1.0×10 ¹	[1]	4.0×10 ⁻³	[2]	8.3	[1]
Sr	4.0×10 ⁻²	[6]	1.9×10 ⁻²	[1]	3.0×10 ⁻³	[6] ⁽¹⁾	3.0×10 ⁻¹	[1],[4]
Zr	1.0×10 ⁻²	[1]	3.1×10 ⁻³	[1]	3.0×10 ⁻⁵	[2]	1.4×10 ⁻¹	[1]
Nb	2.0×10 ⁻³	[6]	1.7×10 ⁻⁴	[1]	2.0×10 ⁻²	[2]	2.2×10 ⁻²	[1]
Mo	1.0×10 ⁻²	[5]	2.0×10 ⁻¹	[5]	1.0×10 ⁻³	[10] ⁽⁸⁾	5.0×10 ⁻¹	[4]
Tc	8.6×10 ⁻²	[1]	2.1×10 ⁻²	[1],[3]	7.5×10 ⁻³	[1]	1.2	[1]
Pd	1.0×10 ⁻⁴	[1]	9.8×10 ⁻³	[1]	2.5×10 ⁻⁴	[1]	1.4×10 ⁻³	[1]
Sn	1.3×10 ⁻²	[1]	2.2×10 ⁻²	[1]	1.0×10 ⁻³	[1],[2]	1.8×10 ⁻¹	[1]
I	6.0×10 ⁻³	[6]	8.0×10 ⁻³	[1]	3.0×10 ⁻³	[1],[3]	1.6	[1]
Cs	1.0	[11]	3.1×10 ⁻²	[1]	8.0×10 ⁻³	[6],[8]	4.0×10 ⁻¹	[8]
Sm	5.1×10 ⁻⁴	[1]	5.8×10 ⁻¹	[1]	2.0×10 ⁻⁵	[2]	3.9×10 ⁻³	[1]
Pb	3.6×10 ⁻¹	[12]	8.1×10 ⁻¹	[9]	3.0×10 ⁻⁴	[2]	1.2	[1]
Po	3.8×10 ⁻¹	[12]	1.1×10 ⁻¹	[9]	3.0×10 ⁻⁴	[2],[8]	1.2	- ⁽²⁾
Ra	9.9×10 ⁻²	[12]	1.9×10 ⁻²	[1]	1.3×10 ⁻³	[7],[8] ⁽³⁾	2.5×10 ⁻¹	[1]
Ac	4.7×10 ⁻⁴	[1]	1.4×10 ⁻¹	[1]	4.0×10 ⁻⁷	[2]	1.6×10 ⁻²	[1]
Th	1.3×10 ⁻²	[1]	6.3×10 ⁻²	[1]	5.0×10 ⁻⁶	[2]	1.8×10 ⁻¹	[1]
Pa	3.4×10 ⁻⁴	[1]	1.1×10 ⁻³	[1],[9]	5.0×10 ⁻⁶	[1],[2]	4.1×10 ⁻³	[1]
U	7.4×10 ⁻³	[1]	6.9×10 ⁻⁴	[1]	4.0×10 ⁻⁴	[2],[8]	1.0×10 ⁻¹	[1]
Np	1.4×10 ⁻⁴	[1]	1.5×10 ⁻²	[1]	5.0×10 ⁻⁶	[2],[8],[10]	1.7×10 ⁻²	[1]
Pu	1.0×10 ⁻³	[6] ⁽¹⁾	6.8×10 ⁻²	[1]	5.0×10 ⁻⁶	[1]	8.0×10 ⁻³	[1]
Am	2.0×10 ⁻³	[6] ⁽¹⁾	6.8×10 ⁻²	[1]	5.0×10 ⁻⁶	[1]	3.9×10 ⁻³	[1]
Cm	3.0×10 ⁻⁴	[1]	3.2×10 ⁻²	[1]	9.0×10 ⁻⁶	[1]	4.0×10 ⁻²	[1]

【設定根拠】

- ¹ 文献[6]から，連続放出条件に基づきデータを引用した。
- ² データがないため，アナログである Pb のデータを引用した。
- ³ 最近の文献調査結果をまとめたデータ集[7]で推奨されている値を採用した。
- ⁴ 本検討では，ツンドラ環境で摂取する肉類として，可能なかぎり鹿の値を採用した。その他については，羊あるいは牛の値で代用した。
- ⁵ 牛レバーの値を採用した。
- ⁶ 牛乳の値を採用した。
- ⁷ 卵全体ではなく，中身に対する値を設定し，鶏の値を採用した。
- ⁸ 放射性同位元素トレーサー試験における (NH₄)₂MoO₄ を基にした。

【参考文献】

- [1] Ashton, J. and Sumerling, T. J. (1988): Biosphere database for assessments of radioactive waste disposals. UKDoE Report No. DoE/RW/88.083.
- [2] Smith, G. M., Fearn, H. S., Smith, K. R., Davis, J. P. and Klos, R. (1988): Assessment of the radiological impact of disposal of solid radioactive waste at Drigg. National Radiological Protection Board, NRPB-M148, Chilton, UK.
- [3] Coughtrey, P. J., Jackson, D., Thorne, M. C. (1983-85): Radionuclide Distribution and Transport in Terrestrial and Aquatic Ecosystems. Volumes 1-6. AA Balkema, Rotterdam.
- [4] Ng, Y. C., Colsher, C. S. and Thompson, S. E. (1982): Transfer coefficients for

- assessing the dose from radionuclides in meat and eggs. NUREG/CR-2976.
- [5] Simmonds, J. R. and Crick, M. J. (1982): Transfer parameters for use in terrestrial foodchain models. National Radiological Protection Board, NRPB-M63, Chilton, UK.
 - [6] Coughtrey, P. J. (1990): Radioactivity transfer to animal products. Commission of the European Communities, EUR 12608, Luxembourg.
 - [7] Morgan, J. E. and Beetham, C. J. (1990): Review of literature for radium, protactinium, tin and carbon. Nirex Safety Studies Report NSS/R220.
 - [8] IAEA/IUR (1994): Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Temperate Environments. Technical Reports Series No 364. IAEA, Vienna.
 - [9] ICRP (1979-81): Limits for Intakes of Radionuclides by Workers, Parts 1-3. ICRP Publication 30, Pergamon Press.
 - [10] Ng, Y. C. (1982): A review of transfer factors for assessing the dose from radionuclides in agricultural products. Nuclear Safety, Vol. 23, No 1, pp57.
 - [11] Johanson, K. J. (1994): Radiocaesium in Game Animals on Nordic Countries. Nordic Radioecology: The Transfer of Radionuclides through Nordic Ecosystems to Man, Studies in Environmental Science 62, pp.287-302.
 - [12] Thomas, P., Sheard, J. W. and Swason, S. (1994): Uranium Series Radionuclides, Polonium-210 and Lead-210, in the Lichen-Caribou-Wolf Food Chain of the Northwest Territories. Environment Canada.

付表 B-8 淡水産物への核種の濃縮係数（全気候共通）（単位：[kg⁻¹]）

元素	淡水魚		淡水甲殻類(7)	
	設定値	文献	設定値	文献
C	9 × 10 ³	[1], [2]	9 × 10 ³	-(³)
Cl	5 × 10 ¹	-(¹)	5 × 10 ¹	-(³)
Co	3 × 10 ²	-(¹)	1 × 10 ⁴	[4]
Ni	1 × 10 ²	-(¹)	1 × 10 ²	-(²)
Se	2 × 10 ²	[5], [11]	2 × 10 ³	[2]
Sr	6 × 10 ¹	-(¹)	1 × 10 ²	[6]
Mo	1 × 10 ¹	[2]	1 × 10 ²	[2]
Zr	3 × 10 ²	[5]	1 × 10 ²	[4]
Nb	3 × 10 ²	-(¹)	1 × 10 ²	-(²)
Tc	2 × 10 ¹	-(¹)	5	-(²)
Pd	2 × 10 ¹	-(⁴)	5 × 10 ²	-(⁴)
Sn	1 × 10 ³	[1], [6]	1 × 10 ³	-(³)
I	3 × 10 ¹	[6]	2 × 10 ²	-(²)
Cs	2 × 10 ³	-(¹)	1 × 10 ³	-(²)
Sm	3 × 10 ¹	-(⁸)	1 × 10 ³	-(⁶)
Pb	3 × 10 ²	[5], [9], [11]	1 × 10 ²	[4]
Po	5 × 10 ¹	[5], [9]	2 × 10 ⁴	[4]
Ra	5 × 10 ¹	[5], [9], [11]	3 × 10 ²	[4]
Ac	8 × 10 ²	-(⁵)	3 × 10 ³	-(⁵)
Th	3 × 10 ¹	[5]	5 × 10 ²	[4]
Pa	1 × 10 ¹	[5], [11]	1 × 10 ²	[4]
U	1 × 10 ¹	-(¹)	1 × 10 ²	-(²)
Np	1 × 10 ¹	-(¹)	4 × 10 ²	[1], [4]
Pu	4	-(¹)	1 × 10 ²	-(²)
Am	8 × 10 ²	[6]	3 × 10 ³	-(²)
Cm	3 × 10 ¹	[10]	1 × 10 ³	[10]

【設定根拠】

- ¹ 文献[1], [2], [3], [4], [5], [6], [7], [8], [9]で一致が得られた値を設定した。
- ² 文献[1], [2], [4], [8]で一致が得られた値を設定した。
- ³ データがないので、淡水魚の値と等しいと仮定した。
- ⁴ 文献[2]の値と文献[4]および[5]の Ni および Ag に対する値の平均値に準拠した。
- ⁵ Am に対する値と同じと仮定した。
- ⁶ 文献[4]に記載されている Pm の値に等しいと仮定した。
- ⁷ 冷帯気候およびツンドラ気候では淡水魚のみを摂取すると仮定した。

【参考文献】

- [1] Ashton, J. and Sumerling, T. J. (1988): Biosphere Database for Assessments of Radioactive Waste Disposals, UKDOE Report No. DOE/RW/88.083.
- [2] Jackson, D. (1984): Derivation and Ranges of Aquatic Organism and Terrestrial Plant Data for Use with the Biosphere Code ECOS, UKDOE Report No. DOE/RW/84.127.
- [3] Miller, C. W. (ed.) (1984): Models and Parameters for Environmental Radiological Assessments, DOE/TIC-11468.
- [4] IAEA (1982): Generic Models and Parameters for Assessing the Environmental Transfer of Radionuclides from Routine Releases, Safety series No. 57.

- [5] Smith, G. M., Fearn, H. S., Smith, K. R., Davis, J. P. and Klos, R. (1988): Assessment of the Radiological Impact of Disposal of Solid Radioactive Waste at Drigg, National Radiological Protection Board, NRPB-M148, Chilton, UK.
- [6] Coughtrey, P. J., Jackson, D. and Thorne, M. C. (1983-85): Radionuclide Distribution and Transport in Terrestrial and Aquatic Ecosystems, Volumes 1-6, AA Balkema, Rotterdam.
- [7] Klos, R. A., Smith, K. R. and Smith, G. M. (1989): Calculations of the Radiological Impact of Unit Releases of Radionuclides to the Biosphere from Solid Waste Disposal Facilities, National Radiological Protection Board, NRPB-M150, Chilton, UK.
- [8] Leigh, C. D., Thompson, B. M., Campbell, J. E., Longsine, D. E., Kennedy, R. A. and Napier, B. A. (1993): User's Guide for GENII-S: A Code for Statistical and Deterministic Simulations of Radiation Doses to Humans from Radionuclides in the Environment, Sandia Report SAND91-0561.
- [9] IAEA/IUR (1994): Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Temperate Environments, Technical Reports Series No 364. IAEA, Vienna.
- [10] Wang, Y-Y., Biwer, B. M. and Yu, C. (1993): A Compilation of Radionuclide Transfer Factors for the Plant, Meat, Milk and Aquatic Food Pathways and the Suggested Default Values for the RESRAD Code, Argonne National Laboratory Report ANL/EAIS/TM-103.
- [11] IAEA (1995): Generic Models and Parameters for Assessing the Environmental Transfer of Radionuclides from Routine Release, Safety Series No 57 (draft), IAEA, Vienna.

付表 B-9 海産物への核種の濃縮係数（全気候共通）（単位：[l kg⁻¹]

元素	海水魚		海洋甲殻類(*3)		軟体動物(*3)		海藻(*3)	
	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献
C	2 × 10 ⁴	-(¹)	2 × 10 ⁴	-(¹)	2 × 10 ⁴	-(¹)	1 × 10 ⁴	[11]
Cl	1	[2]	1	[2]	1	[2]	1	[2]
Co	1 × 10 ³	-(¹)	5 × 10 ³	-(¹)	5 × 10 ³	-(¹)	1 × 10 ⁴	-(¹)
Ni	5 × 10 ²	[1],[2],[4]	1 × 10 ³	[4]	2 × 10 ³	[4]	2 × 10 ³	[4]
Se	6 × 10 ³	[4]	5 × 10 ³	[4]	6 × 10 ³	[4]	1 × 10 ³	[4]
Sr	2	[4]	1 × 10 ¹	[2],[4]	5	[11]	5	[4]
Mo	5 × 10 ¹	[3]	1 × 10 ²	[3]	100	[3]	1 × 10 ²	[3]
Zr	2 × 10 ¹	[4]	2 × 10 ²	[4]	5 × 10 ³	[4]	3 × 10 ³	[4]
Nb	1 × 10 ¹	-(¹)	2 × 10 ²	[4]	1 × 10 ³	[4]	3 × 10 ³	[4]
Tc	3 × 10 ¹	-(¹)	1 × 10 ³	-(²)	1 × 10 ³	-(²)	1 × 10 ³	-(²)
Pd	3 × 10 ²	[4]	3 × 10 ²	[4]	3 × 10 ²	[4]	1 × 10 ³	[4]
Sn	5 × 10 ⁴	-(²)	5 × 10 ⁴	[4]	5 × 10 ⁴	[4]	2 × 10 ⁴	[4]
I	1 × 10 ¹	-(¹)	1 × 10 ¹	-(¹)	10	-(¹)	1 × 10 ³	-(¹)
Cs	1 × 10 ²	-(²)	3 × 10 ¹	-(²)	2 × 10 ¹	-(¹)	1 × 10 ²	-(¹)
Sm	5 × 10 ²	[4]	1 × 10 ³	[4],[5]	5 × 10 ³	[4]	3 × 10 ³	[4],[5]
Pb	2 × 10 ²	[4],[10]	1 × 10 ³	[4],[5]	1 × 10 ³	[4]	1 × 10 ³	[4],[5]
Po	2 × 10 ³	[4],[10]	5 × 10 ⁴	[4],[5]	1 × 10 ⁴	[4]	1 × 10 ³	[4],[5]
Ra	5 × 10 ²	[4],[10]	1 × 10 ²	[4],[5]	1 × 10 ³	[4]	1 × 10 ²	[4]
Ac	5 × 10 ¹	[4]	1 × 10 ³	[4]	1 × 10 ³	[4]	1 × 10 ³	[4]
Th	6 × 10 ²	[4],[10]	1 × 10 ³	[4],[5]	1 × 10 ³	[4]	2 × 10 ²	[4]
Pa	5 × 10 ¹	[4]	1 × 10 ¹	[4]	5 × 10 ²	[4]	1 × 10 ²	[4],[5]
U	1	[1],[4],[10]	1 × 10 ¹	[4]	3 × 10 ¹	[4]	1 × 10 ²	-(²)
Np	1 × 10 ¹	[4],[10]	1 × 10 ²	[4],[5]	4 × 10 ²	-(²)	5 × 10 ¹	-(²)
Pu	4 × 10 ¹	-(²)	2 × 10 ²	-(¹)	3 × 10 ³	[4]	2 × 10 ³	[4]
Am	5 × 10 ¹	-(²)	5 × 10 ²	-(²)	2 × 10 ⁴	[4]	8 × 10 ³	[4]
Cm	5 × 10 ¹	[4]	5 × 10 ²	[4]	3 × 10 ⁴	[4]	8 × 10 ³	[4]

【設定根拠】

- *1 文献[1], [2], [3], [4], [5], [6], [7], [8], [9]の値の平均値を採用した。
 *2 文献[1], [2], [3], [4], [5], [6], [7], [8], [9]でおよその一致が得られた値を採用した。
 *3 冷帯気候およびツンドラ気候では, 海水魚のみを摂取すると仮定した。

【参考文献】

- [1] IAEA (1982): Generic Models and Parameters for Assessing the Environmental Transfer of Radionuclides from Routine Releases, IAEA Safety Series No. 57, Vienna.
 [2] Coughtrey, P. J., Jackson, D. and Throne, M. C. (1983-85): Radionuclide Distribution and Transport in Terrestrial and Aquatic Ecosystems, Volumes 1-6, A A Balkema, Rotterdam.
 [3] Jackson, D. (1984): Derivation and Ranges of Aquatic Organism and Terrestrial Plant Data for Use with the Biosphere code ECOS, UKDOE Report No. DOE/RW/84.127.
 [4] IAEA (1985): Sediment K_ds and Concentration Factors for Radionuclides in the Marine Environment, IAEA Technical Reports Series no. 247, Vienna.
 [5] Smith, G. M., Fearn, H. S., Smith, K. R., Davis, J. P. and Klos, R. (1988): Assessment of the Radiological Impact of Disposal of Solid Radioactive Waste at Drigg, National Radiological Protection Board, NRPB-M148, Chilton, UK.
 [6] Ashton, J. and Sumerling, T. J. (1988): Biosphere Database for Assessments of Radioactive Waste Disposals, UK Department of the Environment Report DOE/RW/88/083.
 [7] IAEA (1978): The Radiological Basis of the IAEA Revised Definition and Recommendations

Concerning High-Level Radioactive Waste Unsuitable for Dumping at Sea, IAEA-TECDOC-211, Vienna.

- [8] Klos, R. A., Smith, K. R. and Smith, G. M. (1988): Calculations of the Radiological Impact of Unit Releases of Radionuclides to the Biosphere from Solid Waste Disposal Facilities, National Radiological Protection Board, NRPB-M150, Chilton, UK.
- [9] Leigh, C. D., Thompson, B. M., Campbell, J. E., Longsine, D. E., Kennedy, R. A. and Napier, B. A. (1993): User's Guide for GENII-S: A Code for Statistical and Deterministic Simulations of Radiation Doses to Humans from Radionuclides in the Environment, Sandia Report SAND91-0561.
- [10] IAEA: Generic Models and Parameters for Assessing the Environmental Transfer of Radionuclides from Routine Release Safety Series No 57 (draft), IAEA, Vienna (1995).
- [11] IAEA (2004): Sediment Distribution Coefficients and Concentration Factors for Biota in the Marine Environment, Technical Report Series No422, IAEA.

付表 B-10-1 人間の呼吸率，滞在時間など（温暖気候）

被ばくグループ	コンパートメント	呼吸率 [m ³ h ⁻¹]		滞在時間 [h y ⁻¹]		ダストレベル [kg m ⁻³]		エアロゾルレベル [m ³ m ⁻³]	
		設定値	文献	設定値 (^6)	文献	設定値	文献	設定値	文献
農作業従事者	河川水	4.5 × 10 ⁻¹	[1] (^1)	1.2 × 10 ²	- (^7)	5 × 10 ⁻⁸	[3]	0	- (^4)
	表面土壌	1.8	[1] (^2)	1.3 × 10 ³	[6]	2 × 10 ⁻⁶	[2]	0	- (^4)
淡水漁業従事者	河川水	1.2	[1] (^3)	2.2 × 10 ³	- (^8)	0	- (^5)	0	- (^4)
	河川堆積層	1.2	[1] (^3)	2.2 × 10 ³	- (^8)	5 × 10 ⁻⁸	[3]	0	- (^4)
海洋漁業従事者	沿岸海域水	1.2	[1] (^3)	2.2 × 10 ³	- (^8)	0	- (^5)	1 × 10 ⁻¹¹	[5]
	沿岸海域堆積層	1.2	[1] (^3)	2.2 × 10 ³	- (^8)	1 × 10 ⁻⁷	[4]	0	- (^4)

【設定根拠】

- ^1 休息時の値を設定した。
- ^2 軽労働時と重労働時の中間の値を設定した。
- ^3 軽労働時の値を設定した。
- ^4 考慮しない。
- ^5 考慮の必要がない。
- ^6 例示的な設定値を設定した。
- ^7 入浴時間として設定した。
- ^8 1日6時間作業に従事すると仮定した。

【参考文献】

- [1] ICRP (1975): Report of the Task Group on Reference Man. ICRP Publication 23. Pergamon Press, Oxford.
- [2] NEA/OECD (1993): PSAC0IN Level 1B Intercomparison, NEA Probabilistic System Assessment Group, Nuclear Energy Agency of Organisation for Economic Cooperation and Development, Paris.
- [3] BIOMOV5 II (1996): Biosphere Modelling for Dose Assessments of Radioactive Waste Repositories. Final Report of the Complementary Studies Working Group. BIOMOV5 II Technical Report No.12 published on behalf of the BIOMOV5 II Steering Committee by Swedish Radiation Protection Institute, Sweden.
- [4] Haslam, I. K., Brennan, S. A., Green, N., Hammond, D. J. and Wilkins, B. T. (1994): Assessment of Current Doses Arising from the Occupancy of Cumbrian Beaches and Preliminary Studies of the Radionuclide Behaviour in Beach Systems. National Radiological Protection Board, NRPB-M462, Chilton, UK.
- [5] Lawson, G. and Smith, G. M. (1985): BIOS: A Model to Predict Radionuclide Transfer and Doses to Man Following Releases from Geological Repositories. National Radiological Protection Board, NRPB-R169, HMSO, London.
- [6] 総務庁統計局 (1997) : 日本の統計 1997.

付表 B-10-2 人間の呼吸率，滞在時間など（冷帯気候）

被ばくグループ	コンパートメント	呼吸率[m ³ h ⁻¹]		滞在時間[h y ⁻¹]		ダストレベル [kg m ⁻³]		エアロゾルレベル [m ³ m ⁻³]	
		設定値	文献	設定値 (*7)	文献	設定値	文献	設定値	文献
農作業従事者	深井戸	0.45	[1]([*] 1)	1.2 × 10 ²	-	0	-([*] 6)	0	-([*] 5)
	表面土壌	1.8	[1]([*] 2)	2.3 × 10 ³	[6]	5 × 10 ⁻⁸	[5]	0	-([*] 5)
淡水漁業従事者	河川水	1.2	[1]([*] 3)	2.2 × 10 ³	-([*] 3)	0	-([*] 6)	0	-([*] 5)
	河川堆積層	1.2	[1]([*] 3)	2.2 × 10 ³	-([*] 3)	5 × 10 ⁻⁸	[2]	0	-([*] 5)
海洋漁業従事者	沿岸海域水	1.2	[1]([*] 3)	2.2 × 10 ³	-([*] 3)	0	-([*] 4)	1 × 10 ⁻¹¹	[4]
	沿岸海域堆積層	1.2	[1]([*] 3)	2.2 × 10 ³	-([*] 3)	1 × 10 ⁻⁷	[3]	0	-([*] 5)

【設定根拠】

- *1 休息時を想定した。
- *2 軽労働と重労働の中間の値を設定した。
- *3 軽労働時を想定した。
- *4 ダストレベルの上限値はリアリスティックではあるが非常に高く，滞在時間（作業時間）が短い場合にのみ関係すると想定される。
- *5 本コンパートメントでは考慮しない。
- *6 本コンパートメントでは必要としない。
- *7 例示的な設定値として設定した。

【参考文献】

- [1] ICRP (1975): Report of the Task Group on Reference Man. ICRP Publication 23. Pergamon Press, Oxford.
- [2] BIOMOV5 II (1996): Biosphere Modelling for Dose Assessments of Radioactive Waste Repositories. Final Report of the Complementary Studies Working Group. BIOMOV5 II Technical Report No.12 published on behalf of the BIOMOV5 II Steering Committee by Swedish Radiation Protection Institute, Sweden.
- [3] Haslam, I. K., Brennan, S. A., Green, N., Hammond, D. J. and Wilkins, B. T. (1994): Assessment of Current Doses Arising from the Occupancy of Cumbrian Beaches and Preliminary Studies of the Radionuclide Behaviour in Beach Systems. National Radiological Protection Board, NRPB-M462, Chilton, UK.
- [4] Lawson, G. and Smith, G. M. (1985): BIOS: A Model to Predict Radionuclide Transfer and Doses to Man Following Releases from Geological Repositories. National Radiological Protection Board, NRPB-R169, HMSO, London.
- [5] Watkins, B. M., Little, R. H. and Cooper, N. S. (1994): Provision of Information on the Effects of Climate Change on the Biosphere Transport of Repository Derived Radionuclides. Report No. IE3965-1.
- [6] SCB Statistics Sweden (1997): Agriculture and Environment. <http://www.scb.se/scbeng/mhtm/argiyearbook.htm>

付表 B-10-3 人間の呼吸率，滞在時間など（ツンドラ気候）

被ばくグループ	コンパートメント	呼吸率[m ³ h ⁻¹]		滞在時間[h y ⁻¹]		ダストレベル [kg m ⁻³]		エアロゾルレベル [m ³ m ⁻³]	
		設定値	文献	設定値 (7)	文献	設定値	文献	設定値	文献
農作業従事者	深井戸（入浴）	0.45	[1](*1)	1.2 × 10 ²	-	5 × 10 ⁻⁸	[3]	0	-(5)
	表面土壌	1.8	[1](*2)	7.3 × 10 ²	[6]	5 × 10 ⁻⁸	[6]	0	-(5)
淡水漁業従事者	河川水	1.2	[1](*3)	7.3 × 10 ²	[6]	0	-(6)	0	-(5)
	河川堆積層	1.2	[1](*3)	7.3 × 10 ²	[6]	5 × 10 ⁻⁸	[3]	0	-(5)
海洋漁業従事者	沿岸海域水	1.2	[1](*3)	7.3 × 10 ²	[6]	0	-(6)	1 × 10 ⁻¹¹	[5]
	沿岸海域堆積層	1.2	[1](*3)	7.3 × 10 ²	[6]	1 × 10 ⁻⁷	[4]	0	-(5)

【設定根拠】

- *1 休息時を想定した。
- *2 軽労働と重労働の中間の値を設定した。
- *3 軽労働時を想定した。
- *4 ダストレベルの上限値はリアリスティックではあるが非常に高く，滞在時間（作業時間）が短い場合にのみ関係すると想定される。
- *5 本コンパートメントでは考慮しない。
- *6 本コンパートメントでは必要としない。
- *7 例示的な設定値として設定した。

【参考文献】

- [1] ICRP (1975): Report of the Task Group on Reference Man. ICRP Publication 23. Pergamon Press, Oxford.
- [2] Amiro, B. D. and Davis, P. D. (1991): A Pathways Model to Assess Transport of Radionuclides from Terrestrial and Aquatic Surfaces to the Atmosphere. Waste Management, Vol.11, pp.41-57.
- [3] BIOMOVs II (1996): Biosphere Modelling for Dose Assessments of Radioactive Waste Repositories. Final Report of the Complementary Studies Working Group. BIOMOVs II Technical Report No.12 published on behalf of the BIOMOVs II Steering Committee by Swedish Radiation Protection Institute, Sweden.
- [4] Haslam, I. K., Brennan, S. A., Green, N., Hammond, D. J. and Wilkins, B. T. (1994): Assessment of Current Doses Arising from the Occupancy of Cumbrian Beaches and Preliminary Studies of the Radionuclide Behaviour in Beach Systems. National Radiological Protection Board, NRPB-M462, Chilton, UK.
- [5] Lawson, G. and Smith, G. M. (1985): BIOS: A Model to Predict Radionuclide Transfer and Doses to Man Following Releases from Geological Repositories. National Radiological Protection Board, NRPB-R169, HMSO, London.
- [6] Watkins, B. M., Little, R. H. and Cooper, N. S. (1994): Provision of Information on the Effects of Climate Change on the Biosphere Transport of Repository Derived Radionuclides. MAFF Food Science Division, Report IE3965-1, Version 2.0.

付表 B-11-1 家畜に関するデータ (温暖気候)

家畜	飼料摂取量 [kg(fresh weight d ⁻¹)] ^(*)		土壌摂取量 [kg(wet weight of soil) d ⁻¹]		水摂取量[m ³ d ⁻¹]	
	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献
牛	5 × 10 ¹	[1], [2]	6 × 10 ⁻¹	[1]	7 × 10 ⁻²	[3]
羊	7	[1], [6]	8 × 10 ⁻²	[1]	4 × 10 ⁻³	[5]
豚	1 × 10 ¹	[1]	2 × 10 ⁻¹	[1]	5 × 10 ⁻³	[1]
鶏	3 × 10 ⁻¹	[1]	2 × 10 ⁻²	[1]	5 × 10 ⁻⁴	[1], [4]
家畜	呼吸率[m ³ h ⁻¹]		滞在時間[h d ⁻¹]		飼育密度[m ⁻²]	
	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献
牛	5.4	[6]	2.4 × 10 ¹	[6]	4.3 × 10 ⁻⁴	[6]
羊	3.6 × 10 ⁻¹	[6]	2.4 × 10 ¹	[6]	4.8 × 10 ⁻⁴	[6]
豚	5.0 × 10 ⁻¹	[6]	2.4 × 10 ¹	[6]	4.3 × 10 ⁻⁴	[6]
鶏	1.0 × 10 ⁻²	[6]	2.4 × 10 ¹	[6]	3.0	[6]

【設定根拠】

*1 牛と羊は牧草を，豚は根菜を，鶏は穀物を摂取すると仮定する。

【参考文献】

- [1] Ashton, J. and Sumerling, T. J. (1988): Biosphere Database for Assessments of Radioactive Waste Disposals. UKDoE Report No. DoE/RW/88.083.
- [2] Yu, C., Loureiro, C., Cheng, J-J., Jones, L. G., Wang, Y. Y., Chia, Y. P. and Faillace, E. (1993): Data Collection Handbook to Support Modelling the Impacts of Radioactive Material in Soil. Argonne National Laboratory, Report ANL/EAIS-8.
- [3] BIOMOVs II (1996): Biosphere Modelling for Dose Assessments of Radioactive Waste Repositories. Final Report of the Complementary Studies Working Group. BIOMOVs II Technical Report No. 12 published on behalf of the BIOMOVs II Steering Committee by Swedish Radiation Protection Institute, Sweden.
- [4] Bergström, U. and Puigdomenech, I. (1987): Radiological Consequences to Man due to Leakage from a Final Repository for Reactor Waste (SFR). SKB Report SFR 87-12.
- [5] Pinner, A. V. and Hill, M. D. (1982): Radiological Protection Aspects of Shallow Land Burial of PWR Operating Wastes. National Radiological Protection Board, NRPB-R138, HMSO, London.
- [6] Smith, G. M., Watkins, B. M., Little, R. H., Jones, H. M., Mortimer, A. A. (1996): Biosphere Modelling and Dose Assessment for Yucca Mountain. EPRI Report TR-107190, Electrical Power Research Institute, California.

付表 B-11-2 家畜に関するデータ (冷帯気候)

家畜	飼料の摂取量[kg(fresh weight d ⁻¹)(¹)		土壌の摂取量[kg(wet weight of soil) d ⁻¹)(¹)		水の摂取量[m ³ d ⁻¹)(²)	
	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献
牛	5 × 10 ⁻¹	[1], [2]	6 × 10 ⁻³	[1]	7 × 10 ⁻²	[4], [5]
羊	7 × 10 ⁻²	[1], [3]	8 × 10 ⁻⁴	[1]	4 × 10 ⁻³	[6]
豚	1	[1]	2 × 10 ⁻²	[1]	5 × 10 ⁻³	[1]
鶏	3 × 10 ⁻²	[1]	2 × 10 ⁻³	[1]	5 × 10 ⁻⁴	[1], [5]
家畜	呼吸率[m ³ h ⁻¹]		滞在時間[h d ⁻¹)(³)		飼育密度[m ⁻²]	
	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献
牛	5.4	[7]	12	[7]	2.8 × 10 ⁻⁴	[8]
羊	3.6 × 10 ⁻¹	[7]	12	[7]	3.2 × 10 ⁻⁴	[8]
豚	5.0 × 10 ⁻¹	[7]	12	[7]	4.3 × 10 ⁻⁴	[8]
鶏	1.0 × 10 ⁻²	[7]	12	[7]	2.0 × 10 ⁻²	[8]

【設定根拠】

- ¹ 飼料および土壌摂取量は、本検討で仮定された栽培密度（付表 B-12-2 参照）を説明するための値であり、実際は、全飼料を汚染された土地から生産するのは不可能である。鶏と豚の飼料の 10%および牛と羊の飼料の 1%が汚染された土地で栽培されると仮定する。また、牛と羊は牧草を、豚は根菜を、鶏は穀物を消費すると仮定する。
- ² 家畜は、汚染された井戸水のみを摂取すると仮定する。
- ³ 冬季は雪に覆われているため、滞在時間は減少する。また、冷帯気候では飼育密度も減少すると仮定する。滞在時間の減少率を 50%と仮定する。

【参考文献】

- [1] Ashton, J. and Sumerling, T. J. (1988): Biosphere Database for Assessments of Radioactive Waste Disposals. UKDoE Report No. DoE/RW/88.083.
- [2] Yu, C., Loureiro, C., Cheng, J.-J., Jones, L. G., Wang, Y. Y., Chia, Y. P. and Faillace, E. (1993): Data Collection Handbook to Support Modelling the Impacts of Radioactive Material in Soil. Argonne National Laboratory, Report ANL/EAIS-8.
- [3] Smith, G. M., Fearn, H. S., Smith, K. R., Davis, J. P. and Klos, R. (1988): Assessment of the Radiological Impact of Disposal of Solid Radioactive Waste at Drigg. National Radiological Protection Board, NRPB-M148, Chilton, UK.
- [4] BIOMOVs II (1996): Biosphere Modelling for Dose Assessments of Radioactive Waste Repositories. Final Report of the Complementary Studies Working Group. BIOMOVs II Technical Report No. 12 published on behalf of the BIOMOVs II Steering Committee by Swedish Radiation Protection Institute, Sweden.
- [5] Bergström, U. and Puigdomenech, I. (1987): Radiological Consequences to Man due to Leakage from a Final Repository for Reactor Waste (SFR). SKB Report SFR 87-12.
- [6] Pinner, A. V. and Hill, M. D. (1982): Radiological Protection Aspects of Shallow Land Burial of PWR Operating Wastes. National Radiological Protection Board, NRPB-R138, HMSO, London.
- [7] Smith, G. M., Watkins, B. M., Little, R. H., Jones, H. M., Mortimer, A. A. (1996): Biosphere Modelling and Dose Assessment for Yucca Mountain. EPRI Report TR-107190, Electrical Power Research Institute, California.
- [8] Watkins, B. M., Little, R. H. and Cooper, N. S. (1994): Provision of Information on the Effects of Climate Change on the Biosphere Transport of Repository derived Radionuclides. Report No. IE3965-1.

付表 B-11-3 家畜に関するデータ (ツンドラ気候)

飼料の摂取量 [kg (fresh weight d ⁻¹) (*1, *2)]		土壌の摂取量 [kg (wet weight of soil) d ⁻¹] (*1, *2)]		水の摂取量 [m ³ d ⁻¹]	
設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献
2.3 × 10 ¹	[4]	6 × 10 ⁻²	[1]	7 × 10 ⁻²	[2], [3]
呼吸率 [m ³ h ⁻¹] (*1)]		滞在時間 [h d ⁻¹] (*1, *3)]		飼育密度 [m ⁻²] (*1)]	
設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献
3.6 × 10 ⁻¹	[5]	2.4	[5]	3.3 × 10 ⁻⁶	[5]

【設定根拠】

- *1 ツンドラ気候において摂取する家畜の種類は現在のものと異なることが予想されるため、ツンドラ気候で一般的な家畜を摂取することを仮定した。
- *2 実際、全飼料を汚染された土地から生産するのは不可能である。飼料の 10% が汚染された土地で栽培されると仮定する。
- *3 飼料の 10% が汚染された土地で栽培されるという仮定から、汚染された土地に 1 年の 10 分の 1 だけ滞在すると仮定した。

【参考文献】

- [1] Ashton, J. and Sumerling, T. J. (1988): Biosphere Database for Assessments of Radioactive Waste Disposals. UKDoE Report No. DoE/RW/88.083.
- [2] BIOMOVs II (1996): Biosphere Modelling for Dose Assessments of Radioactive Waste Repositories. Final Report of the Complementary Studies Working Group. BIOMOVs II Technical Report No. 12 published on behalf of the BIOMOVs II Steering Committee by Swedish Radiation Protection Institute, Sweden.
- [3] Bergström, U. and Puigdomenech, I. (1987): Radiological Consequences to Man due to Leakage from a Final Repository for Reactor Waste (SFR). SKB Report SFR 87-12.
- [4] Watkins, B. M., Little, R. H. and Cooper, N. S. (1994): Provision of Information on the Effects of Climate Change on the Biosphere Transport of Repository derived Radionuclides. Report No. IE3965-1.
- [5] Watkins, B. M., Little, R. H., Mortimer, A and Greenhalgh, M. (1997): Radionuclide Transport and Bioaccumulation in Natural and Semi-natural Ecosystems: Information and Database of Parameter Values for Temperate Upland, Alpine, Boreal and Tundra Environments. Report IE 4303-3 Version 1.0.

付表 B-12-1 農作物の栽培に関するデータ（温暖気候）

農作物	農作物への土壌の 付着量 [kg(dw soil)/kg(fw of crop)]		栽培密度（収穫 量）[kg m ⁻²]		農作物に利用される単位 面積あたりの灌漑水量 [m y ⁻¹]		灌漑水の阻止率[-]	
	設定値 (*4)	文献	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献
根菜	1.5 × 10 ⁻⁴	[1]	2.4	[7]	0.7	[8](*5)	3.0 × 10 ⁻¹	[3]
葉菜	1.0 × 10 ⁻⁴	[1]	3.1	[7]	0.7	[8](*5)	3.0 × 10 ⁻¹	[3]
穀物	9.0 × 10 ⁻⁵	[2]	0.4	[7]	0.7	[8](*5)	5.0 × 10 ⁻²	[3], [4]
牧草	3.4 × 10 ⁻³	[4]	3.9	[7]	0	[8](*2)	0	-(*2)
米	9 × 10 ⁻⁵	-(*1)	0.5	[7]	1.9	[8](*5)	5.0 × 10 ⁻²	-(*3)
果物	1.5 × 10 ⁻⁴	[1]	1.4	[7]	0.7	[8](*5)	5.0 × 10 ⁻¹	[1]

【設定根拠】

- *1 データがないため、穀物に対する値と等しいと仮定した。
 *2 十分な降水量があると仮定されるため、牧草への灌漑はないと仮定した。
 *3 米へのスプレー灌漑は仮定しない。洪水を灌漑代わりに利用すると仮定する。
 *4 文献[1]および[4]には作物の乾燥重量に対するデータが与えられている。文献[5]および[6]の情報をを用いて、湿潤重量に対するデータに変換した。
 *5 文献[8]に示された水田と畑地についての灌漑用水量と耕地面積、さらに畑地については畑地灌漑施設整備状況をもとに以下のように設定した。

(1) 灌漑用水量

- ・水田：559 億 m³ y⁻¹
- ・畑地：22 億 m³ y⁻¹

(2) 耕地面積

- ・水田：2,868 千 ha
- ・畑地：2,410 千 ha（ただし、畑地の灌漑施設整備状況は 13.4%）

以上より、

$$\begin{aligned} \text{水田灌漑量} &= \frac{559 \times 10^8}{2,868 \times 10^7} = 1.9 [m^3 m^{-2} y^{-1}] \\ \text{畑地灌漑量} &= \frac{22 \times 10^8}{2,410 \times 10^7} \times 0.134 = 0.7 [m^3 m^{-2} y^{-1}] \end{aligned}$$

【参考文献】

- [1] Ashton, J. and Sumerling, T. J. (1988): Biosphere Database for Assessments of Radioactive Waste Disposals, UKDOE Report No. DOE/RW/88.083.
 [2] BIOMOV5 II (1996): Biosphere Modelling for Dose Assessments of Radioactive Waste Repositories, Final Report of the Complementary Studies Working Group, BIOMOV5 II Technical Report No 12 published on behalf of the BIOMOV5 II Steering Committee by Swedish Radiation Protection Institute, Sweden.
 [3] Klos, R. A., Smith, K. R. and Smith, G. M. (1989): Calculations of the Radiological Impact of Unit Releases of Radionuclides to the Biosphere from Solid Waste Disposal Facilities, National Radiological Protection Board, NRPB-M150, Chilton, UK.
 [4] NEA/OECD (1993): PSAC0IN Level 1B Intercomparison, NEA Probabilistic System Assessment Group, Nuclear Energy Agency of Organisation for Economic Cooperation and Development, Paris.
 [5] IAEA/IUR (1994): Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide

- Transfer in Temperate Environments. Technical Reports Series No.364. IAEA, Vienna.
- [6] NRC (1983): Radiological Assessment. A Textbook on Environmental Dose Analysis. Oak Ridge National Laboratory, NUREG/CR-3332 (ORNL-5968), Oak Ridge, Tenn., USA.
 - [7] 総務庁統計局(1997): 日本の統計 1997.
 - [8] 水資源協会(1996): 国土庁長官官房水資源部監修 96 水資源便覧, 山海堂.

付表 B-12-2 農作物の栽培に関するデータ（冷帯気候）

農作物	農作物への土壌の 付着量 [kg-dw soil/kg-fw crop]		栽培密度（収穫量） [kg-fw crop/m ²]		農作物に利用され る単位面積あたり の灌漑水量 [m y ⁻¹]		灌漑水の阻止率[-]	
	設定値 (⁴)	文献	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献
根菜	1.5×10^{-4}	[1]	4.0	[8]	0.55	- (⁵)	0.3	[2]
葉菜	1.0×10^{-4}	[1]	6.7×10^{-1}	[8]	0.55	- (⁵)	0.3	[2]
穀物	9.0×10^{-5}	[9]	4.5×10^{-1}	[7]	0.55	- (⁵)	5.0×10^{-2}	[2], [3]
牧草	3.4×10^{-3}	[3]	6.7×10^{-2}	[8]	0	- (²)	0	- (²)
米	9×10^{-5}	- (¹)	4.5×10^{-1}	- (¹)	1	- (³)	5.0×10^{-2}	- (³)
果物	1.5×10^{-4}	[1]	1.1×10^{-1}	[6]	0	- (²)	0	- (²)

【設定根拠】

- ¹ データがないため、穀物に対する値と等しいと仮定した。
- ² 十分な降水があるため、牧草と果物には灌漑しないと仮定した。
- ³ 米へのスプレー灌漑は仮定しない。そのかわりに洪水による灌漑(田への洪水)を仮定する。
- ⁴ 参考文献[1]および[4]では乾重量に対するデータを記載している。参考文献[4]および[5]の情報を利用して湿重量のデータに換算した。
- ⁵ 各農作物への灌漑水量は、夏季の水分蒸発量 (0.55 m y^{-1}) [11]と等しいとして設定した。

【参考文献】

- [1] Ashton, J. and Sumerling, T. J. (1988): Biosphere Database for Assessments of Radioactive Waste Disposals. UKDoE Report No. DoE/RW/88.083.
- [2] Klos, R. A., Smith, K. R. and Smith, G. M. (1988): Calculations of the Radiological Impact of Unit Releases of Radionuclides to the Biosphere from Solid Waste Disposal Facilities. National Radiological Protection Board, NRPB-M150, Chilton, UK.
- [3] NEA/OECD (1993): PSAC01N Level 1B Intercomparison. NEA Probabilistic System Assessment Group, Nuclear Energy Agency of Organisation for Economic Cooperation and Development, Paris.
- [4] IAEA/IUR (1994): Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Temperate Environments. Technical Reports Series No.364. IAEA, Vienna.
- [5] NRC (1983): Radiological Assessment. A Textbook on Environmental Dose Analysis. Oak Ridge National Laboratory, NUREG/CR-3332 (ORNL-5968), Oak Ridge, Tenn., USA.
- [6] Watkins, B. M., Little, R. H., Mortimer, A. and Greenhalgh, M. (1997): Radionuclide Transport and Bioaccumulation in Natural and Semi-natural Ecosystems: Information and Database of Parameter Values for Temperate Upland, Alpine, Boreal and Tundra Environments. Report IE4303-3 Version 1.0.
- [7] SCB Statistics Sweden (1997): Agriculture and Environment.
- [8] Watkins, B. M., Little, R. H. and Cooper, N. S. (1994): Provision of Information on the Effects of Climate Change on the Biosphere Transport of Repository Derived Radionuclides. MAFF Food Sciences Division, Report IE3965-1, Version 2.0.
- [9] BIOMOV5 II (1996): Biosphere Modelling for Dose Assessments of Radioactive Waste Repositories, Final Report of the Complementary Studies Working Group, BIOMOV5 II Technical Report No 12 published on behalf of the BIOMOV5 II Steering Committee by Swedish Radiation Protection Institute, Sweden.

付表 B-12-3 農作物の栽培に関するデータ（ツンドラ気候）

農作物	農作物への土壌の 付着量 [kg-dw soil/kg-fw crop]		栽培密度（収穫量） [kg-fw crop/m ²]		農作物に利用され る単位面積あたり の灌漑水量 [m y ⁻¹]		灌漑水の阻止率[-]	
	設定値 (*4)	文献	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献
根菜	1.5×10^{-4}	[1]	1.5	[2>(*1)	2.5×10^{-2}	-(*)3)	3.0×10^{-1}	[3]
葉菜	1.0×10^{-4}	[1]	1.8×10^{-1}	[8>(*1)	2.5×10^{-2}	-(*)3)	3.0×10^{-1}	[3]
飼料	3.4×10^{-3}	[4]	2.0×10^{-2}	[8]	0	-(*)2)	0.0	-(*)2)
果物	1.5×10^{-4}	[1]	1.1×10^{-1}	[7]	0	-(*)2)	0.0	-(*)2)

【設定根拠】

- *1 データがないため、文献[8]で用いられている冷帯気候のデータから、ツンドラ気候では栽培密度は2桁低いと仮定した。
- *2 飼料と果物には灌漑しないと仮定した。
- *3 各農作物への灌漑水量は、夏季の水分蒸発量 (0.025 m y^{-1}) [10]と等しいとして設定した。
- *4 参考文献[1]および[4]では乾重量に対するデータを記載している。参考文献[5]および[6]の情報を利用して湿重量のデータに換算した。

【参考文献】

- [1] Ashton, J. and Sumerling, T. J. (1988): Biosphere Database for Assessments of Radioactive Waste Disposals. UKDoE Report No. DoE/RW/88.083.
- [2] SCB Statistics Sweden (1997): Agriculture and Environment.
- [3] Klos, R. A., Smith, K. R. and Smith, G. M. (1988): Calculations of the Radiological Impact of Unit Releases of Radionuclides to the Biosphere from Solid Waste Disposal Facilities. National Radiological Protection Board, NRPB-M150, Chilton, UK.
- [4] NEA/OECD (1993): PSAC01N Level 1B Intercomparison. NEA Probabilistic System Assessment Group, Nuclear Energy Agency of Organisation for Economic Cooperation and Development, Paris.
- [5] IAEA/IUR (1994): Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Temperate Environments. Technical Reports Series No.364. IAEA, Vienna.
- [6] NRC (1983): Radiological Assessment. A Textbook on Environmental Dose Analysis. Oak Ridge National Laboratory, NUREG/CR-3332 (ORNL-5968), Oak Ridge, Tenn., USA.
- [7] Watkins, B. M., Little, R. H., Mortimer, A. and Greenhalgh, M. (1997): Radionuclide Transport and Bioaccumulation in Natural and Semi-natural Ecosystems: Information and Database of Parameter Values for Temperate Upland, Alpine, Boreal and Tundra Environments. Report IE4303-3 Version 1.0.
- [8] Watkins, B. M., Little, R. H. and Cooper, N. S. (1994): Provision of Information on the Effects of Climate Change on the Biosphere Transport of Repository Derived Radionuclides. MAFF Food Sciences Division, Report IE3965-1, Version 2.0.

付表 B-13 ウェザリング率（全気候共通）（単位：[y⁻¹]

元素	根菜，牧草		葉菜，果物(*4)		穀物，米(*3)	
	設定値(*1, *2)	文献	設定値(*1)	文献	設定値(*1)	文献
C	1.8 × 10 ¹	[1], [2]	1.8 × 10 ¹	[1], [2](*2)	8.4	[1], [2]
Cl	1.8 × 10 ¹	[1], [2]	1.8 × 10 ¹	[1], [2](*2)	8.4	[1], [2]
Ni	1.8 × 10 ¹	[1], [2]	1.8 × 10 ¹	[1], [2](*2)	8.4	[1], [2]
Co	1.8 × 10 ¹	[1], [2]	1.8 × 10 ¹	[1], [2](*2)	8.4	[1], [2]
Se	1.8 × 10 ¹	[1]	1.8 × 10 ¹	[1]	8.4	[1]
Sr	1.8 × 10 ¹	[1], [2]	1.8 × 10 ¹	[1], [2](*2)	8.4	[1], [2]
Zr	1.8 × 10 ¹	[1]	1.8 × 10 ¹	[1]	8.4	[1]
Nb	1.8 × 10 ¹	[1], [2]	1.8 × 10 ¹	[1], [2](*2)	8.4	[1], [2]
Mo	1.8 × 10 ¹	[1]	1.8 × 10 ¹	[1]	8.4	[1]
Tc	1.8 × 10 ¹	[1], [2]	1.8 × 10 ¹	[1], [2](*2)	8.4	[1], [2]
Pd	1.8 × 10 ¹	[1]	1.8 × 10 ¹	[1]	8.4	[1]
Sn	1.8 × 10 ¹	[1], [2]	1.8 × 10 ¹	[1], [2](*2)	8.4	[1], [2]
I	1.8 × 10 ¹	[1], [2]	1.8 × 10 ¹	[1], [2](*2)	8.4	[1], [2]
Cs	1.8 × 10 ¹	[1], [2]	1.8 × 10 ¹	[1], [2](*2)	8.4	[1], [2]
Sm	1.8 × 10 ¹	[1]	1.8 × 10 ¹	[1]	8.4	[1]
Pb	1.8 × 10 ¹	[1]	1.8 × 10 ¹	[1]	8.4	[1]
Po	1.8 × 10 ¹	[1]	1.8 × 10 ¹	[1]	8.4	[1]
Ra	1.8 × 10 ¹	[1]	1.8 × 10 ¹	[1]	8.4	[1]
Ac	1.8 × 10 ¹	[1]	1.8 × 10 ¹	[1]	8.4	[1]
Th	1.8 × 10 ¹	[1]	1.8 × 10 ¹	[1]	8.4	[1]
Pa	1.8 × 10 ¹	[1]	1.8 × 10 ¹	[1]	8.4	[1]
U	1.8 × 10 ¹	[1], [2]	1.8 × 10 ¹	[1], [2]	8.4	[1], [2]
Np	1.8 × 10 ¹	[1], [2]	5.1 × 10 ¹	[1], [2](*2)	5.1 × 10 ¹	[1], [2]
Pu	1.8 × 10 ¹	[1], [2]	5.1 × 10 ¹	[1], [2]	5.1 × 10 ¹	[1], [2]
Am	1.8 × 10 ¹	[1], [2]	5.1 × 10 ¹	[1], [2]	5.1 × 10 ¹	[1], [2]
Cm	1.8 × 10 ¹	[1]	1.8 × 10 ¹	[1]	8.4	[1]

【設定根拠】

- *1 文献[2]に示されているウェザリング半減期 ($T_{0.5w}$ [d]) を用いて、 $\frac{\ln 2}{T_{0.5w}/365}$ より算出した値をウェザリング率とした。
- *2 文献[2]では、全評価核種および全農作物について $1.8 \times 10^1 \text{ y}^{-1}$ を推奨している。より適切なデータがないため、本評価ではこの値を採用した。
- *3 米に対するデータがないため、穀物に対するデータに準拠した。
- *4 文献[1]および[2]では果物に対するデータはないため、葉菜のデータに準拠した。

【参考文献】

- [1] Smith, G. M., Fearn, H. S., Smith, K. R., Davis, J. P. and Klos, R. (1988): Assessment of the Radiological Impact of Disposal of Solid Radioactive Waste at Drigg, National Radiological Protection Board, NRPB-M148, Chilton, UK.
- [2] Simmonds, J. R. and Crick, M. J. (1982): Transfer Parameters for Use in Terrestrial Foodchain Models, National Radiological Protection Board, NRPB-M63, Chilton, UK.

付表 B-14 転流割合 (全気候共通) (単位: [-])

元素	根菜		葉菜, 牧草 ⁽⁷⁾		穀物, 米 ⁽⁸⁾		果物	
	設定値	文献	設定値	文献	設定値	文献	設定値 ⁽²⁾	文献
C	4.0×10^{-1}	[1]	5.8×10^{-1}	[1] ⁽¹²⁾	1.6×10^{-1}	[1]	2.0×10^{-1}	[1]
Cl	1.9×10^{-1}	[1]	1.9×10^{-1}	[1]	8.8×10^{-2}	[1]	1.1×10^{-1}	[1]
Co	1.7×10^{-1}	[1]	1.8×10^{-1}	[1]	8.0×10^{-2}	[1]	7.5×10^{-2}	[1]
Ni	3.9×10^{-2}	[1]	3.7×10^{-1}	[1] ⁽¹⁾	1.6×10^{-1}	[1]	1.6×10^{-1}	[1]
Se	6.8×10^{-2}	[1]	3.0×10^{-1}	[1] ⁽⁴⁾	1.3×10^{-1}	[1]	1.2×10^{-1}	[1]
Sr	1.4×10^{-1}	[1]	2.0×10^{-1}	[1] ⁽¹⁾	1.2×10^{-1}	[1]	4.0×10^{-3}	[1]
Zr	5.3×10^{-1}	[1]	1.3×10^{-1}	[1] ⁽⁹⁾	5.6×10^{-2}	[1]	6.2×10^{-2}	[1]
Nb	5.3×10^{-1}	[1]	5.2×10^{-1}	[1] ⁽¹²⁾	5.6×10^{-2}	[1]	6.2×10^{-2}	[1]
Mo	1.0×10^{-1}	[2] ⁽¹³⁾	5.2×10^{-1}	- ⁽¹⁴⁾	5.6×10^{-2}	- ⁽¹⁴⁾	6.2×10^{-2}	[1] ⁽¹⁴⁾
Tc	1.1×10^{-1}	[1]	2.8×10^{-1}	[1] ⁽¹⁾	1.2×10^{-1}	[1]	1.2×10^{-1}	[1]
Pd	3.9×10^{-2}	[1]	3.7×10^{-1}	[1] ⁽³⁾	1.7×10^{-1}	[1]	1.6×10^{-1}	[1]
Sn	2.2×10^{-1}	[1]	2.2×10^{-1}	[1] ⁽³⁾	1.0×10^{-1}	[1]	1.1×10^{-1}	[1]
I	7.4×10^{-2}	[1]	6.1×10^{-1}	[1] ⁽¹⁾	2.8×10^{-1}	[1]	3.3×10^{-1}	[1]
Cs	3.0×10^{-1}	[1]	1.9×10^{-1}	[1] ⁽³⁾	8.8×10^{-2}	[1]	9.8×10^{-2}	[1]
Sm	2.0×10^{-2}	[1]	7.6×10^{-2}	[1] ⁽³⁾	4.8×10^{-2}	[1]	2.9×10^{-2}	[1]
Pb	2.2×10^{-1}	[1]	2.2×10^{-1}	[1] ⁽³⁾	1.0×10^{-1}	[1]	1.1×10^{-1}	[1]
Po	2.2×10^{-1}	- ⁽⁶⁾	2.2×10^{-1}	- ⁽⁶⁾	1.0×10^{-1}	- ⁽⁶⁾	1.1×10^{-1}	- ⁽⁶⁾
Ra	9.9×10^{-2}	[1]	1.8×10^{-1}	[1] ⁽³⁾	8.0×10^{-2}	[1]	7.3×10^{-2}	[1]
Ac	2.9×10^{-1}	[1]	4.5×10^{-1}	[1] ⁽³⁾	2.0×10^{-1}	[1]	2.1×10^{-1}	[1]
Th	2.9×10^{-1}	[1]	3.8×10^{-2}	[1] ⁽⁵⁾	1.3×10^{-1}	[1]	1.3×10^{-1}	[1]
Pa	2.9×10^{-1}	[1]	4.5×10^{-1}	[1] ⁽³⁾	2.0×10^{-1}	[1]	2.1×10^{-1}	[1]
U	4.3×10^{-2}	[1]	3.6×10^{-1}	[1] ⁽³⁾	1.6×10^{-1}	[1]	1.9×10^{-1}	[1]
Np	2.9×10^{-1}	[1]	4.5×10^{-1}	[1] ⁽³⁾	2.0×10^{-1}	[1]	2.1×10^{-1}	[1]
Pu	4.3×10^{-2}	[1]	3.6×10^{-1}	[1] ⁽³⁾	1.6×10^{-1}	[1]	1.9×10^{-1}	[1]
Am	2.9×10^{-1}	[1]	2.8×10^{-1}	[1] ⁽³⁾	1.3×10^{-1}	[1]	1.3×10^{-1}	[1]
Cm	1.1×10^{-1}	[1] ⁽¹⁰⁾	2.7×10^{-1}	[1] ⁽¹¹⁾	2.0×10^{-1}	[2]	2.1×10^{-1}	[1]

【設定根拠】

- ¹ 文献[1]において, 豆科植物よりも保守的な値である葉菜の値を採用した。
- ² 文献[1]で草木果物に対して設定された値を設定した。
- ³ 文献[1]での豆科植物に対する値を設定した。
- ⁴ 文献[1]で豆科植物に対して設定されている値は 7.4×10^{-2} である。
- ⁵ 文献[1]で豆科植物に対して設定されている値は 2.8×10^{-1} である。
- ⁶ アナログである Pb のデータに準拠した。
- ⁷ 牧草に対するデータがないため, 葉菜に準拠して設定値を設定した。
- ⁸ 米に対するデータがないため, 穀物に対する値に準拠して値を設定した。
- ⁹ 文献[1]で豆科植物に対して設定されている値は 5.2×10^{-1} である。
- ¹⁰ 文献[1]で芋類に対して設定されている値は 2.9×10^{-1} である。
- ¹¹ 記載されている値は葉菜の値である。文献[1]では, 豆科植物に対して 4.6×10^{-1} が設定されている。
- ¹² 文献[1]において, 葉菜よりも保守的な値である豆科植物の値を採用した。
- ¹³ 葉にためられた Mo-93 の約 10% が根菜へ転流するという文献[2]を基とした。
- ¹⁴ アナログである Nb のデータに準拠した。Nb のデータは文献[1]を参照した。

【参考文献】

- [1] Ashton, J. and Sumerling, T. J. (1988): Biosphere Database for Assessments of Radioactive Waste Disposals, UKDOE Report No. DOE/RW/88.083.
- [2] Coughtrey, P. J., Jackson, D., Thorne, M. C. (1983-85): Radionuclide Distribution and Transport in Terrestrial and Aquatic Ecosystems: A Compendium of Data, Volumes 1-6, A A Balkema, Rotterdam.

付表 B-15 農作物表面汚染の調理時ロス割合（全気候共通）（単位：[-]）

元素	根菜，果物 ⁽⁶⁾		葉菜		穀物，米 ⁽⁵⁾	
	設定値 ⁽¹⁾	文献	設定値 ⁽²⁾	文献	設定値 ^(3,4)	文献
C	0	[1]	9.0×10^{-1}	[2]	8.5×10^{-1}	[2]
Cl	0	[1]	9.0×10^{-1}	[2]	8.5×10^{-1}	[2]
Co	0	[1]	9.0×10^{-1}	[2]	8.5×10^{-1}	[2]
Ni	0	[1]	9.0×10^{-1}	[2]	8.5×10^{-1}	[2]
Se	0	[1]	9.0×10^{-1}	[1], [2]	8.5×10^{-1}	[1], [2]
Sr	0	[1]	9.0×10^{-1}	[2]	8.5×10^{-1}	[2]
Mo	0	[1]	9.0×10^{-1}	[1], [2]	8.5×10^{-1}	[1], [2]
Zr	0	[1]	9.0×10^{-1}	[1], [2]	8.5×10^{-1}	[1], [2]
Nb	0	[1]	9.0×10^{-1}	[2]	8.5×10^{-1}	[2]
Tc	0	[1]	9.0×10^{-1}	[2]	5.0×10^{-1}	[2]
Pd	0	[1]	9.0×10^{-1}	[2]	8.5×10^{-1}	[2]
Sn	0	[1]	9.0×10^{-1}	[2]	8.5×10^{-1}	[2]
I	0	[1]	9.0×10^{-1}	[2]	5.0×10^{-1}	[2]
Cs	0	[1]	9.0×10^{-1}	[2]	5.0×10^{-1}	[2]
Sm	0	[1]	9.0×10^{-1}	[1], [2]	8.5×10^{-1}	[1], [2]
Pb	0	[1]	9.0×10^{-1}	[1], [2]	8.5×10^{-1}	[1], [2]
Po	0	[1]	9.0×10^{-1}	[1], [2]	8.5×10^{-1}	[1], [2]
Ra	0	[1]	9.0×10^{-1}	[1], [2]	8.5×10^{-1}	[1], [2]
Ac	0	[1]	9.0×10^{-1}	[1], [2]	8.5×10^{-1}	[1], [2]
Th	0	[1]	9.0×10^{-1}	[1], [2]	8.5×10^{-1}	[1], [2]
Pa	0	[1]	9.0×10^{-1}	[1], [2]	8.5×10^{-1}	[1], [2]
U	0	[1]	9.0×10^{-1}	[2]	8.5×10^{-1}	[2]
Np	0	[1]	9.0×10^{-1}	[2]	9.0×10^{-1}	[2]
Pu	0	[1]	9.0×10^{-1}	[2]	9.0×10^{-1}	[2]
Am	0	[1]	9.0×10^{-1}	[2]	9.0×10^{-1}	[2]
Cm	0	[1]	9.0×10^{-1}	[1], [2]	8.5×10^{-1}	[1], [2]

【設定根拠】

- ¹ 汚染物質の調理によるロスの割合は根菜の皮を除去しているか否か，あるいは熱を用いた料理であるか否かに依存するが，文献[1]では調理時ロスは保守的になしと仮定している。
- ² （たとえば，キャベツ，サラダ用野菜の）外側の葉を取り除くことで，汚染物質の残留割合はかなり低減する。
- ³ すべての元素に関して，調理方法の相違（たとえば，加熱・漂白・酢ノ塩漬け）が放射能のロス割合に影響する可能性がある。
- ⁴ 外側の汚染は，製粉・精白・精製により除去される。
- ⁵ 米に対するデータがないため，穀物に対する値となどしいと仮定した。
- ⁶ データがないため，保守的に調理時ロスはないと仮定した。

【参考文献】

- [1] Simmonds, J. R. and Crick, M. J. (1982): Transfer Parameters for Use in Terrestrial Foodchain Models, National Radiological Protection Board, NRPB-M63, Chilton, UK.
- [2] Smith, G. M., Fearn, H. S., Smith, K. R., Davis, J. P. and Klos, R. (1988): Assessment of the Radiological Impact of Disposal of Solid Radioactive Waste at Drigg, National Radiological Protection Board, NRPB-M148, Chilton, UK.

付表 B-16 エアロゾルにおける濃縮係数（全気候共通）（単位：[-]）

元素	設定値	文献
C	1	[1]
Cl	1	[1]
Co	1	[1]
Ni	1	[1]
Se	1	[1]
Sr	1	[1]
Mo	1	[1]
Zr	1	[1]
Nb	1	[1]
Tc	1	[1]
Pd	1	[1]
Sn	1	[1]
I	10	[1]
Cs	1	[1]
Sm	1	[1]
Pb	10	[1]
Po	10	[1]
Ra	10	[1]
Ac	10	[1]
Th	10	[1]
Pa	10	[1]
U	10	[1]
Np	10	[1]
Pu	10	[1]
Am	10	[1]
Cm	10	[1]

【参考文献】

- [1] Eakins, J. D., Lally, A. E., Burton, P. J., Kilworth, D. R. and Pratley, F. A. (1982): Studies in Environmental Radioactivity in Cumbria: Part 5, The Magnitude and Mechanism of Enrichment of Sea Spray with Actinides in West Cumbria, Harwell, UKAEA Report AERE-R10127.

4. その他のデータ

付表 B-17 核種の半減期と崩壊定数

核種	半減期[y]	崩壊定数[y ⁻¹]
Sm-151	9.00 × 10 ¹	7.70 × 10 ⁻³
Cs-137	3.00 × 10 ¹	2.31 × 10 ⁻²
Cs-135	2.30 × 10 ⁶	3.01 × 10 ⁻⁷
I-129	1.57 × 10 ⁷	4.41 × 10 ⁻⁸
Sn-126	1.00 × 10 ⁵	6.93 × 10 ⁻⁶
Pd-107	6.50 × 10 ⁶	1.07 × 10 ⁻⁷
Tc-99	2.13 × 10 ⁵	3.25 × 10 ⁻⁶
Nb-94	2.03 × 10 ⁴	3.41 × 10 ⁻⁵
Mo-93	3.50 × 10 ³	1.98 × 10 ⁻⁴
Zr-93	2.03 × 10 ⁴	4.53 × 10 ⁻⁷
Nb-93m	1.53 × 10 ⁶	5.09 × 10 ⁻²
Sr-90	2.91 × 10 ¹	2.38 × 10 ⁻²
Se-79	6.50 × 10 ⁴	1.07 × 10 ⁻⁵
Ni-63	9.20 × 10 ¹	7.53 × 10 ⁻³
Co-60	5.27 × 10 ⁰	1.32 × 10 ⁻¹
Ni-59	8.00 × 10 ⁴	8.66 × 10 ⁻⁶
Cl-36	3.01 × 10 ⁵	2.30 × 10 ⁻⁶
C-14	5.73 × 10 ³	1.21 × 10 ⁻⁴
Cm-244	1.81 × 10 ¹	3.83 × 10 ⁻²
Pu-240	6.54 × 10 ³	1.06 × 10 ⁻⁴
U-236	2.34 × 10 ⁷	2.96 × 10 ⁻⁸
Th-232	1.41 × 10 ¹⁰	4.93 × 10 ⁻¹¹
Ra-228	6.70 × 10 ⁰	1.03 × 10 ⁻¹
Th-228	1.91 × 10 ⁰	3.62 × 10 ⁻¹
Cm-245	8.50 × 10 ³	8.15 × 10 ⁻⁵
Pu-241	1.44 × 10 ¹	4.81 × 10 ⁻²
Am-241	4.33 × 10 ²	1.60 × 10 ⁻³
Np-237	2.14 × 10 ⁶	3.24 × 10 ⁻⁷
Pa-233	7.40 × 10 ⁻²	9.38 × 10 ⁰
U-233	1.59 × 10 ⁵	4.37 × 10 ⁻⁶
Th-229	7.34 × 10 ³	9.44 × 10 ⁻⁵
Cm-246	4.73 × 10 ³	1.46 × 10 ⁻⁴
Pu-242	3.87 × 10 ⁵	1.79 × 10 ⁻⁶
U-238	4.47 × 10 ⁹	1.55 × 10 ⁻¹⁰
U-234	2.45 × 10 ⁵	2.83 × 10 ⁻⁶
Th-230	7.71 × 10 ⁴	9.00 × 10 ⁻⁶
Ra-226	1.60 × 10 ³	4.33 × 10 ⁻⁴
Pb-210	2.23 × 10 ¹	3.11 × 10 ⁻²
Po-210	3.79 × 10 ⁻¹	1.83 × 10 ⁰
Am-243	7.39 × 10 ³	9.39 × 10 ⁻⁵
Pu-239	2.41 × 10 ⁴	2.88 × 10 ⁻⁵
U-235	7.04 × 10 ⁸	9.84 × 10 ⁻¹⁰
Pa-231	3.28 × 10 ⁴	2.11 × 10 ⁻⁵
Ac-227	2.18 × 10 ¹	3.18 × 10 ⁻²

【参考文献】

- [1] Croff, A. G.: ORIGEN2 - A Revised and Updated Version of the Oak Ridge Isotope Generation and Depletion Code, Oak Ridge National Laboratory, ORNL-5621 (1980).

4-13 レファレンスケースの核種移行及び線量評価結果(4.5.2.8)

1. はじめに

第2次 TRU レポートの核種移行解析(4.5.2.8)において実施したレファレンスケースの解析結果について、各グループの廃棄体の放射エネルギーの経時変化、人工バリアからの核種の移行率、断層からの核種の移行率及び線量評価結果について示す。さらに、各グループの線量の最大値と主要線量支配核種についてまとめる。

2. 各グループの解析結果

グループ1の放射エネルギーの経時変化、人工バリアからの核種の移行率、断層からの核種の移行率及び線量評価結果を図-1.1~1.4に示す。グループ1については、放射エネルギーのほとんどは、I-129であり、ここで示した結果においては、I-129しか結果に現れていない。

次に、グループ2の結果について図-2.1~2.4に示す。初期において放射エネルギーは、放射化生成物のCo-60やNi-63によって支配されているが、人工バリアからの核種の移行率を見るとこれらの核種は、崩壊により減衰するため、人工バリア外側では見られなくなる。C-14やCl-36については、金属の腐食に基づく浸出率を与えているため、移行率はフラットになっている。図-2.4の線量評価結果を見ると線量を支配している核種はC-14(有機)であり、その次はCl-36である。

その次に、グループ3の結果について図-3.1~3.4に示す。初期において放射エネルギーは、Cs-137、Pu-241、Sr-90によって支配されている。人工バリアからの核種の移行率を見ると、グループ3については緩衝材を用いていない処分概念のため、これらの核種が人工バリア内で減衰せずに人工バリア外側に移行している。図-3.4の線量評価結果を見ると線量を支配している核種はI-129、C-14(有機)、Se-79、Tc-99である。

最後に、グループ4の結果について図-4.1~4.4に示す。初期において放射エネルギーは、グループ3と同様にCs-137、Pu-241、Sr-90によって支配されている。人工バリアからの核種の移行率を見ると、グループ4についても緩衝材を用いていない処分概念のため、これらの核種が人工バリア内で減衰せずに人工バリア外側に移行している。図-4.4の線量評価結果を見ると線量を支配している核種はI-129、C-14(有機)、Se-79、Pb-210であり、他のグループと比較して線量の最大値は 10^{-9}Sv/y と小さい。

3. 結論

各グループの最大線量とその時の時間及び線量支配核種を以下にまとめる。すべてのグループにおいて、I-129が線量支配核種となっている。グループ1を除けばC-14(有機)も共通する線量支配核種である。

	最大線量 (Sv/y)	時間 (y)	線量支配核種(上位3核種)
グループ1	2×10^{-6}	10,000	I-129
グループ2	1×10^{-7}	10,000	C-14(有機), Cl-36, I-129
グループ3	5×10^{-7}	1,000	I-129, C-14(有機), Se-79
グループ4	1×10^{-9}	6,000	I-129, C-14(有機), Pb-210

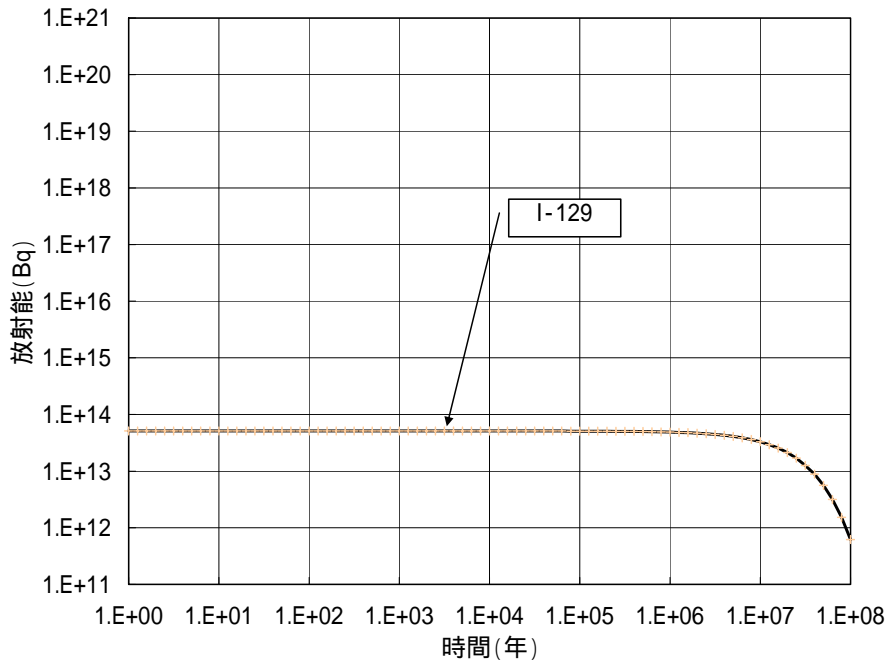


図-1.1 グループ 1 の放射量の経時変化

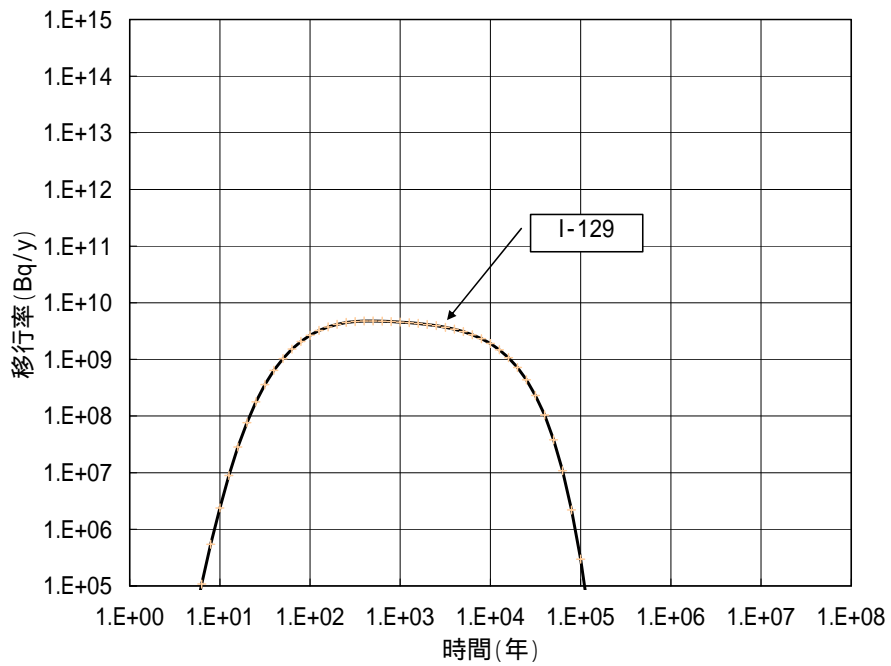


図-1.2 グループ 1 の人工バリアからの核種の移行率

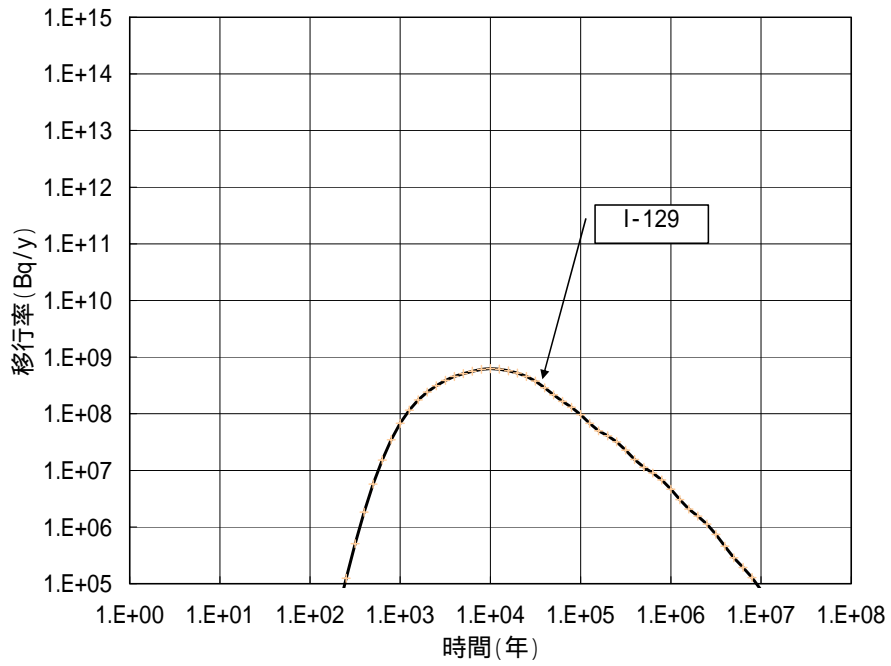


図-1.3 グループ 1 の断層からの核種の移行率

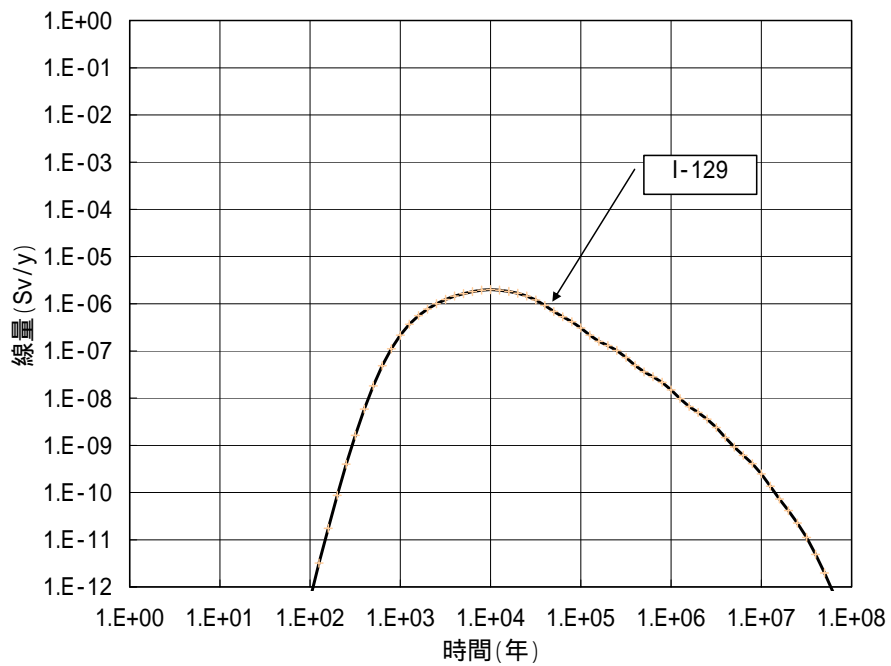


図-1.4 グループ 1 の線量評価結果

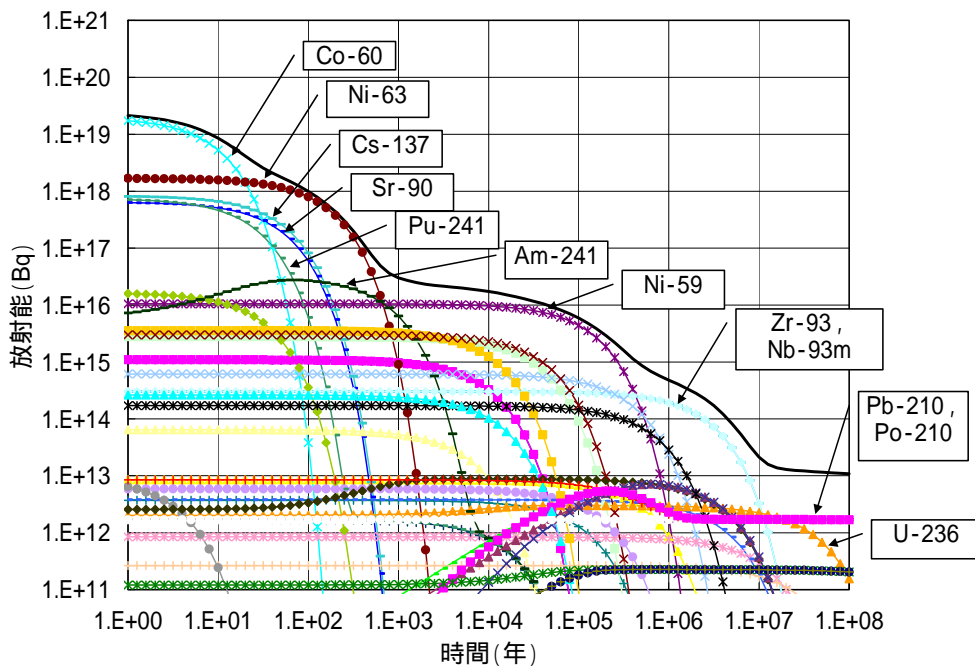


図-2.1 グループ2の放射能量の経時変化

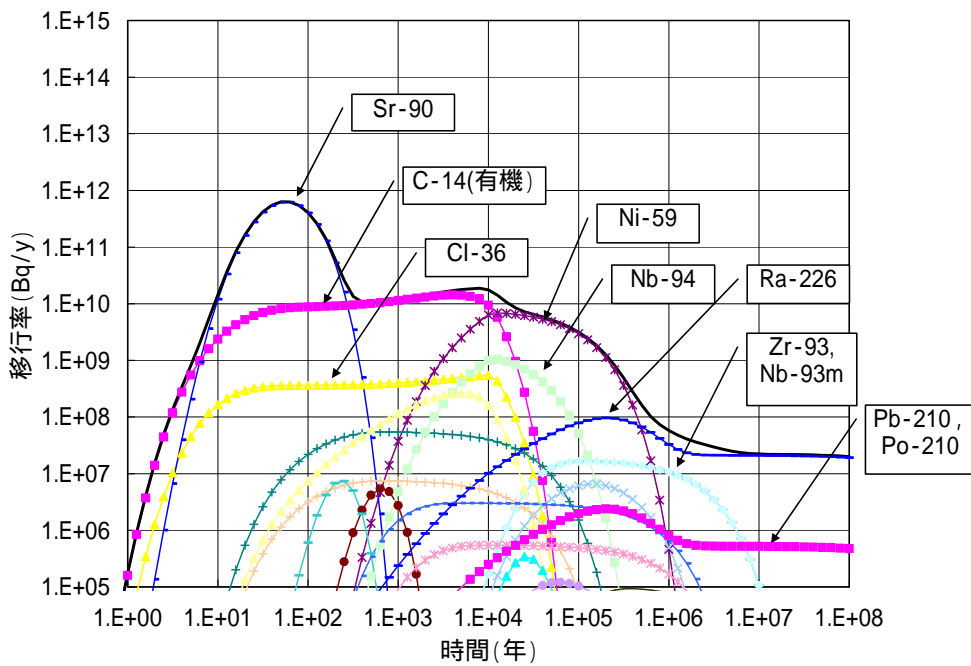


図-2.2 グループ2の人工バリアからの核種の移行率

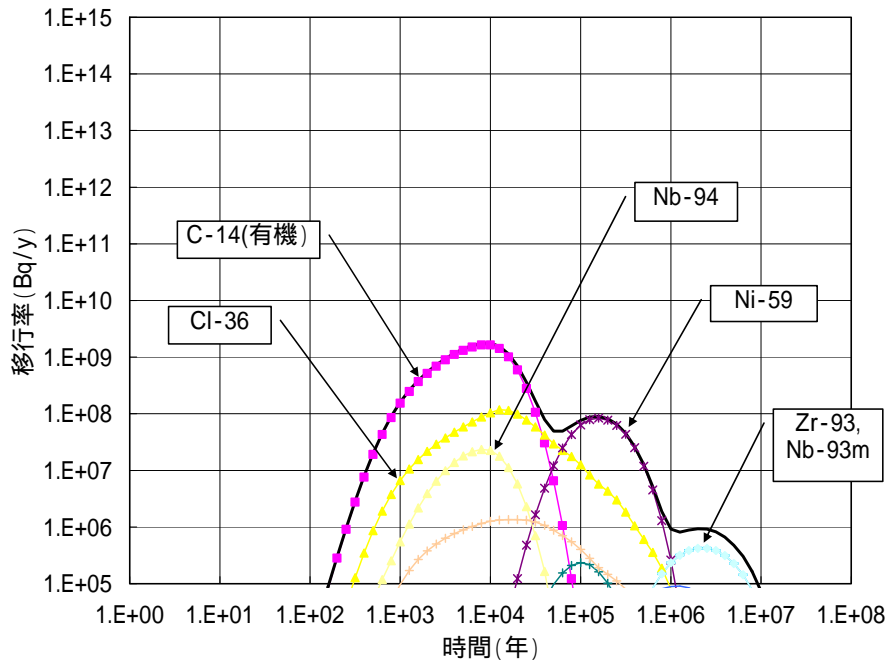


図-2.3 グループ 2 の断層からの核種の移行率

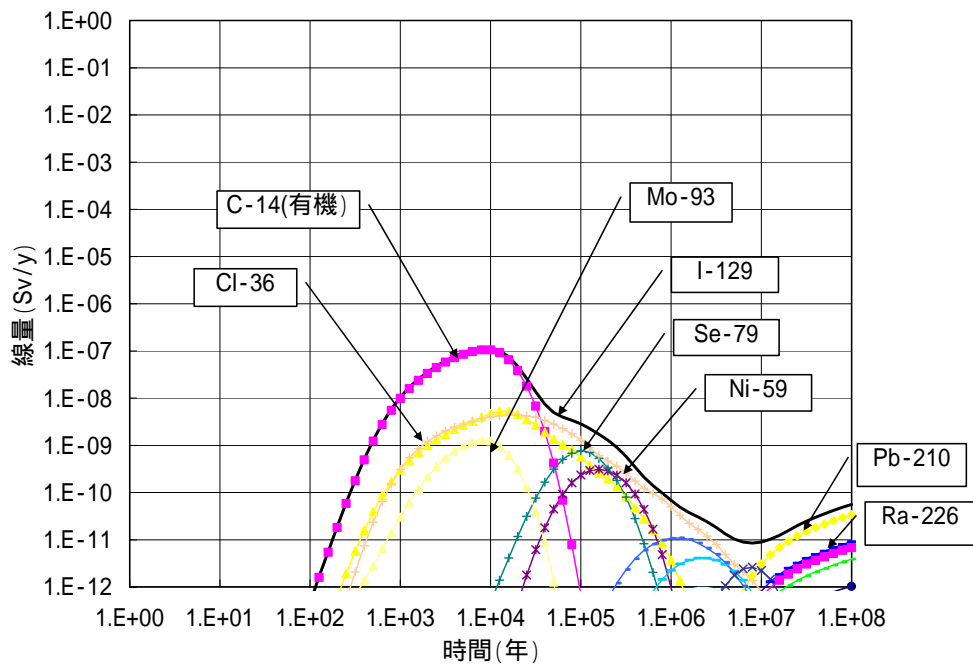


図-2.4 グループ 2 の線量評価結果

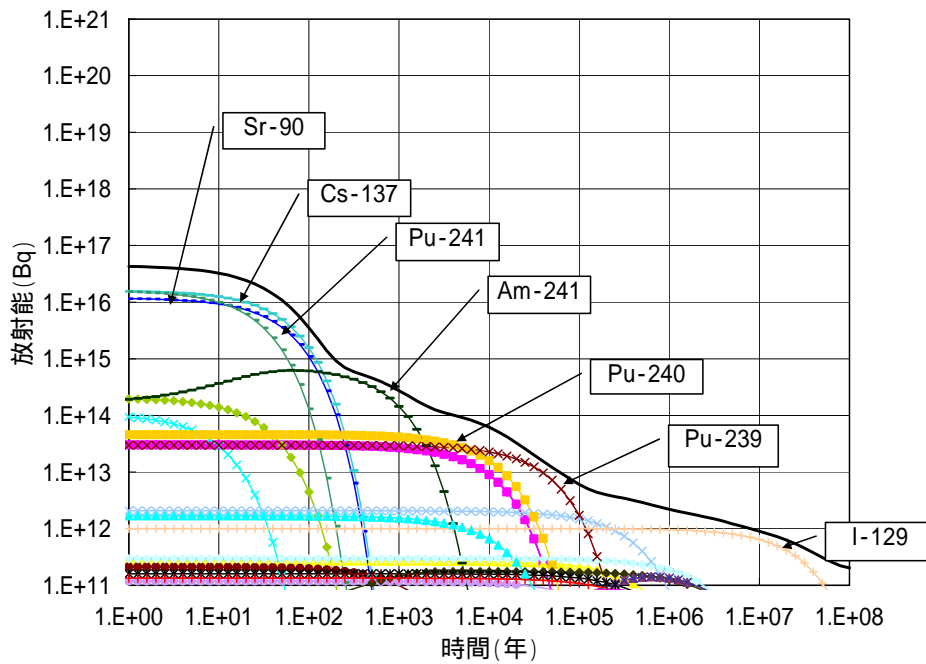


図-3.1 グループ3の放射能の経時変化

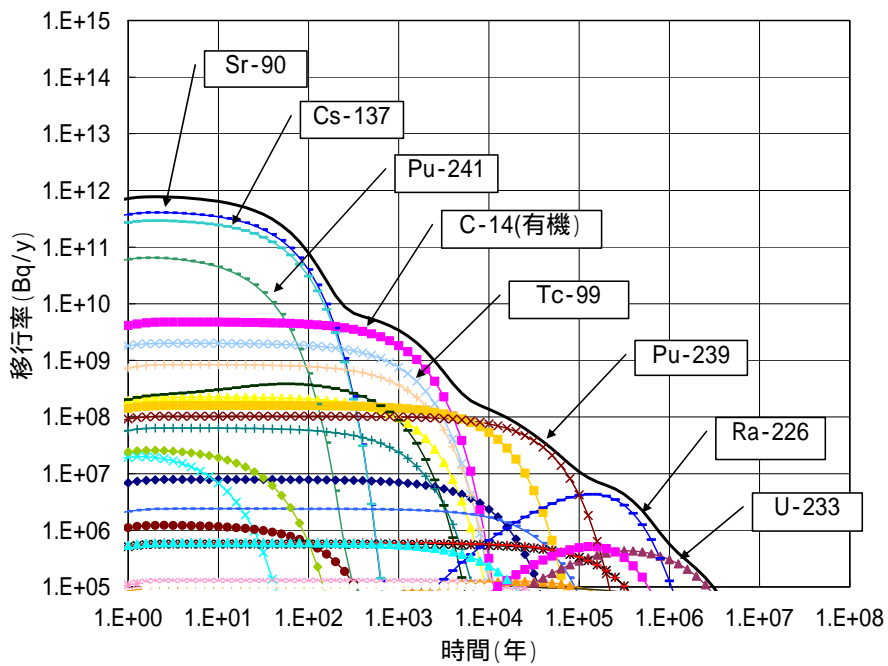


図-3.2 グループ3の人工バリアからの核種の移行率

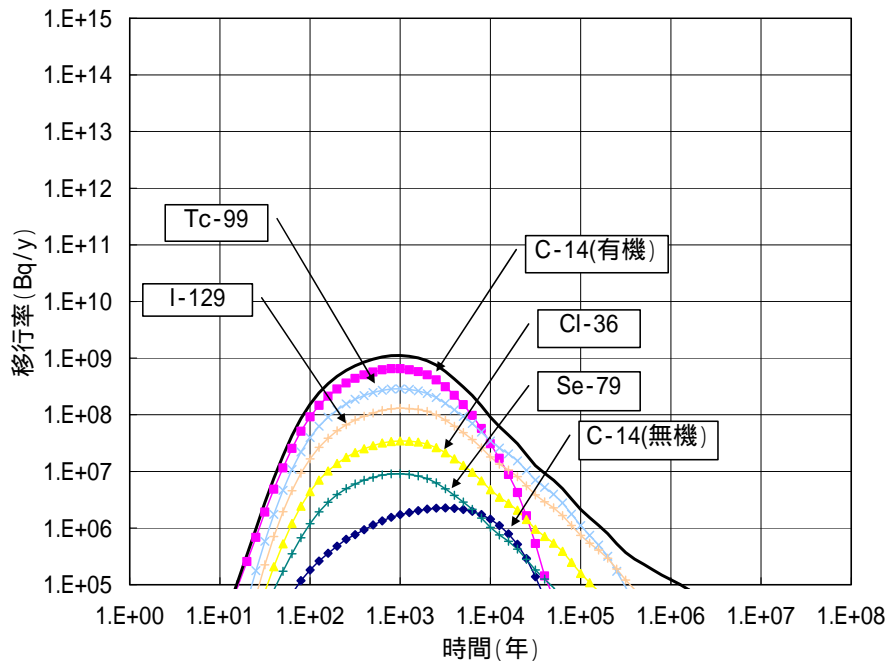


図-3.3 グループ3の断層からの核種の移行率

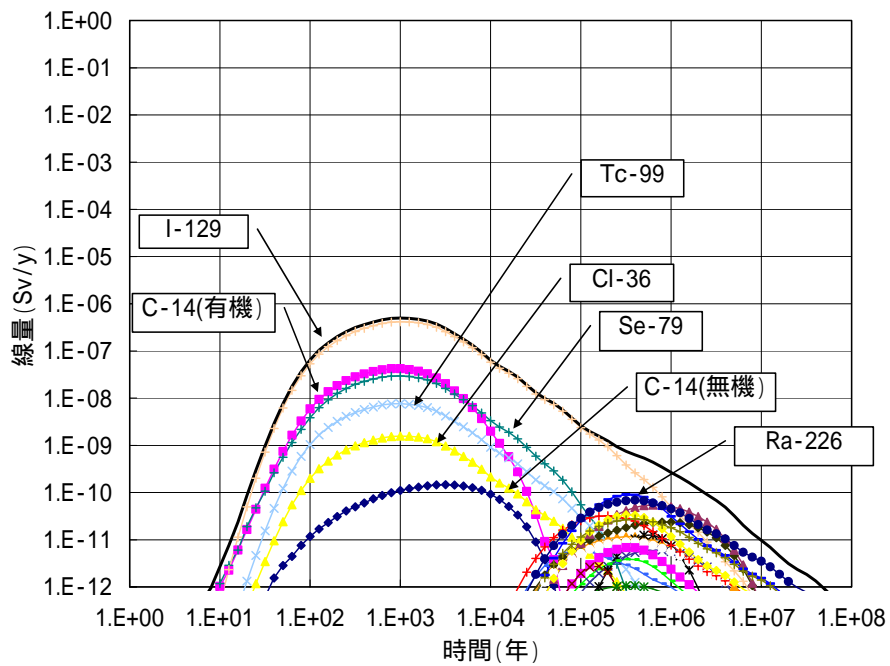


図-3.4 グループ3の線量評価結果

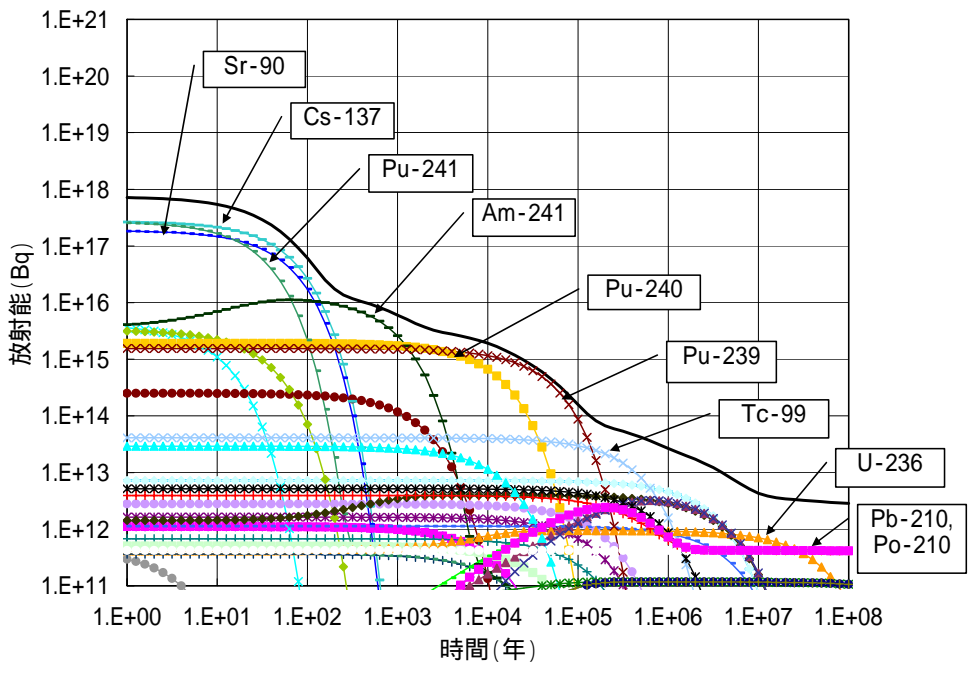


図-4.1 グループ4の放射能量の経時変化

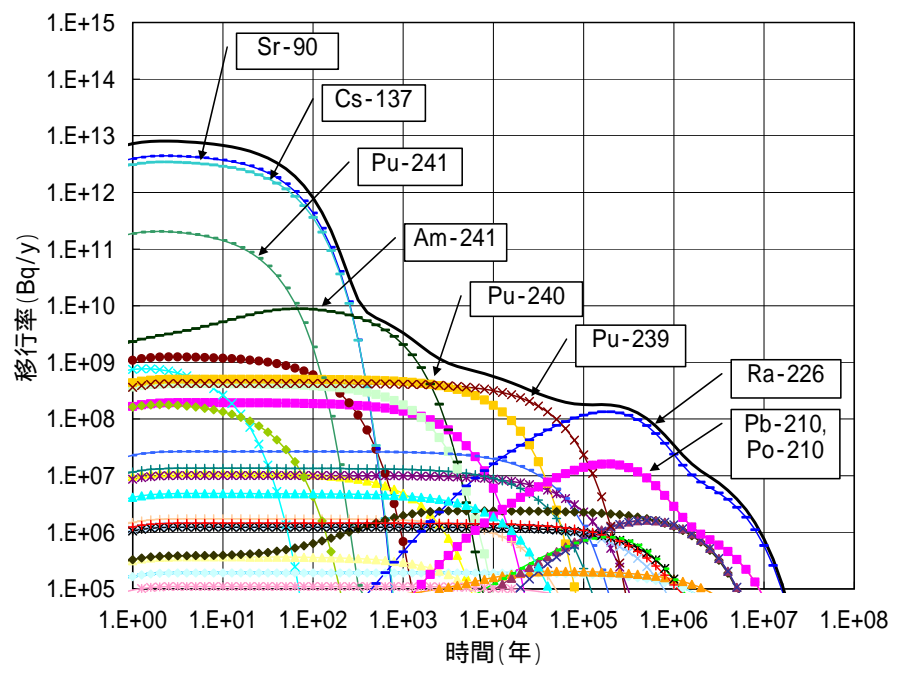


図-4.2 グループ4の人工バリアからの核種の移行率

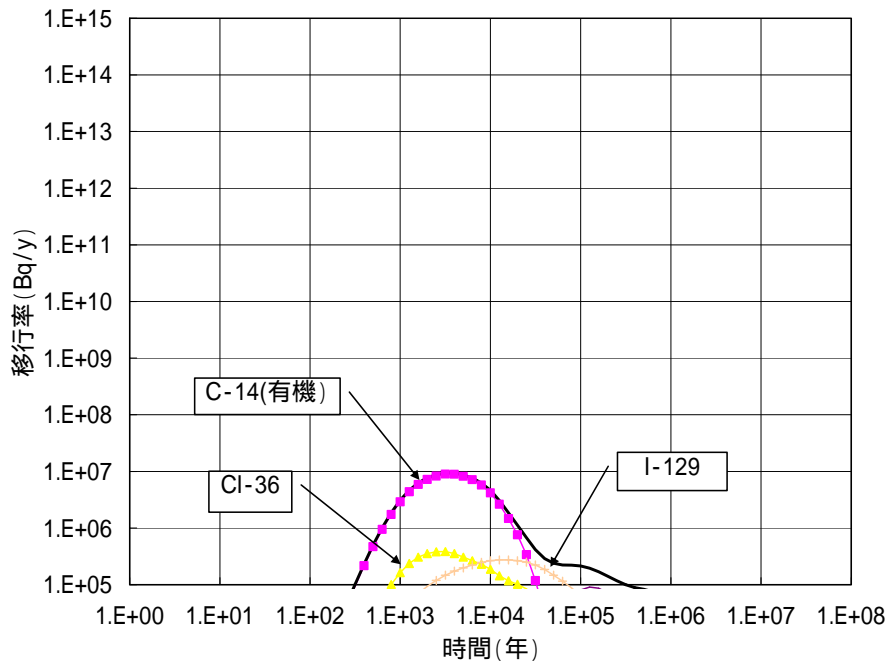


図-4.3 グループ4の断層からの核種の移行率

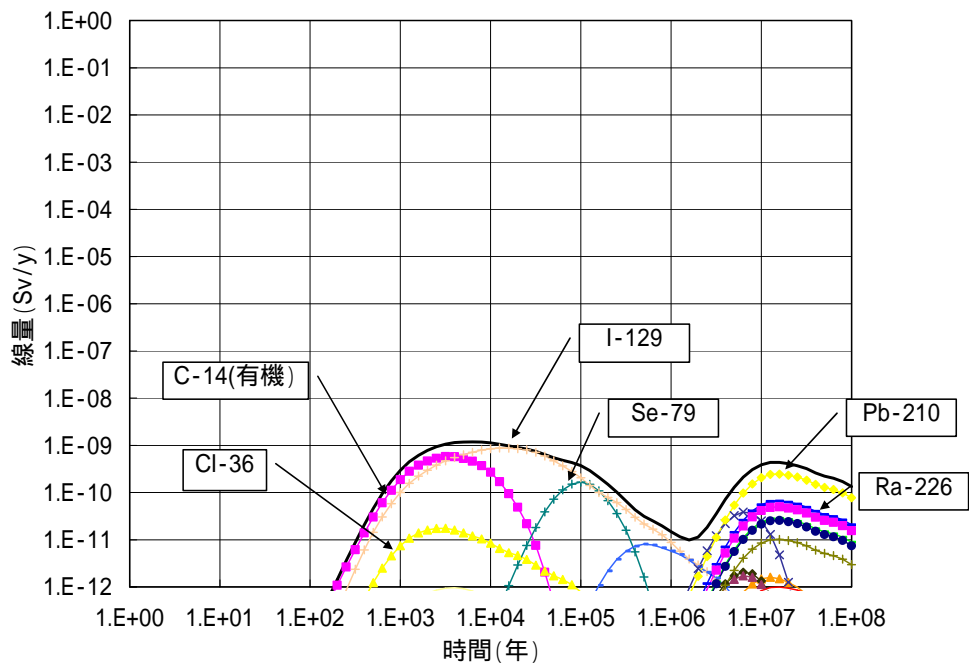


図-4.4 グループ4の線量評価結果

4-14 代替ケースに用いた解析モデル及び設定パラメータ根拠(4.5.3.1及び4.5.3.2)

1. はじめに

第2次 TRU レポート 4.5.3 では、レファレンスケースに対して想定される不確実性の影響の検討を目的として、人工バリアの時間的な変遷やコロイド影響及びガス影響について、解析モデルの追加を行い、線量評価を実施した。ここでは、第2次 TRU レポート 4.5.3.2(1)～(6)の各代替ケースに用いられた解析モデル及びパラメータの詳細と設定根拠を示すものとする。

2. 代替ケースの解析条件の詳細

(1) 人工バリア変質影響ケース

人工バリア材料に用いられるセメントは、地下水との反応により施設内の化学的条件や物質移行特性が時間とともに変化する。また、セメント系材料の溶解により形成される高 pH の間隙水が隣接するベントナイト緩衝材領域に浸入し、ベントナイト系材料の特性を時間とともに変化させる可能性がある。そのため、人工バリア変質影響ケースでは、セメント系材料とベントナイト系材料の物質移行パラメータの値を時間的に変化させることにより、レファレンスケースの解析結果との比較を行った。

a. 解析モデル

人工バリア材料の物質移行特性は、時間の経過とともに生じるものである。そのため、各バリアの物質移行特性を表すパラメータについても、時間の経過に伴い変化していくものと予想される。しかしながら、変遷途中の収着分配係数や溶解度及び透水係数の値は、空間的にも異なり、かつ、熱力学データの不確実性、溶解速度モデルの不確実性が存在することから、一意に決定することは困難である。そのため、核種移行解析では、特定の時刻に各パラメータが速やかに変化するモデルを用いるものとし、変化が生じる時刻を幅広く設定することにより、時間的な変遷の核種移行率への影響を幅として評価するものとした。また、変化の生じる以前のパラメータ値の設定は、レファレンスケースと同じとした。

b. 変化の生じる時刻の設定

第2次 TRU レポート 4.4.2「人工バリア材料の長期挙動」における個別現象の評価結果を以下に再記する。

- ・ 人工バリアの変質シナリオ、鉍物変遷、鉍物の溶解速度及び物質移行パラメータの不確実性を考慮して、化学反応と物質移行を組み合わせたモデルで解析し、ほとんどの解析ケースで、セメント/ベントナイト境界のセメント側の間隙が閉塞する結果を得た。
- ・ 間隙閉塞に伴い、セメント系材料の変遷領域の pH12.5 以上が長期間継続する結果となった（例えば、Region I が 10^5 年）。
- ・ また、ベントナイト緩衝材の止水性能は、 10^5 年間継続することが示された。
- ・ 鉍物の熱力学データの不確実性、溶解速度モデルの不確実性及びセメンテーションによる

膨潤性喪失を悲観的に見込んだ場合、数千年間で緩衝材の止水性が失われる結果となった。

この結果に基づき、セメント系材料が化学的に安定でかつ緩衝材の低透水性が保たれる期間と考えられる 10^5 年を中心に、上下 1 桁の変動 (10^6 , 10^4 年) を、更に、鉱物の熱力学データの不確実性、溶解速度モデルの不確実性及びセメンテーションによる膨潤性喪失を悲観的に見込んだ場合の数千年 (設定では、 10^3 年) の 4 つのケース設定を行った。

表-1 人工バリア変質影響ケースにおける設定値 1

パラメータ	設定値
パラメータの変動を仮定する時刻	$10^3, 10^4, 10^5, 10^6$ 年

c. 間隙率、透水係数、実効拡散係数の設定

第 2 次 TRU レポート 4.4.4 では、セメントペーストの溶出の有無により、セメントモルタルに対する間隙率、透水係数の設定がなされている。人工バリア材料が変化後の透水係数としては、セメントペーストが溶出した状態を仮定するものとした。人工バリア材料が変化後の緩衝材に対する間隙率及び透水係数についても、スメクタイトの溶解が生じた場合の透水係数を仮定するものとした。また、人工バリア材料の変化前の緩衝材中の拡散係数については、グループ 1, 3, 4 では圧縮形成ベントナイトに対する核種実効拡散係数の陰イオン核種に対する値を、グループ 2 では、中性核種に対する値を用いた。これは、線量の最大値に寄与する核種を考慮したものである。人工バリア材料の変化後の緩衝材中の拡散係数は、スメクタイト含有率をゼロと仮定し、自由水中の拡散係数と同等になるものと仮定した。なお、自由水中の拡散係数は、 60°C の温度を考慮し、 C_s の値である $4 \times 10^{-9} \text{m}^2/\text{s}$ (佐藤ほか, 1992) を用いた。

表-2 人工バリア変質影響ケースにおける設定値 2

パラメータ (変質後)		設定値	
		変動前	変動後
セメント充填材	間隙率	0.19	0.46
	透水係数	$4 \times 10^{-6} \text{m/s}$	10^{-5}m/s
	実効拡散係数	$8 \times 10^{-10} \text{m}^2/\text{s}$	$2 \times 10^{-9} \text{m}^2/\text{s}$
緩衝材	間隙率	0.40	0.40
	透水係数	$2 \times 10^{-11} \text{m}^2/\text{s}$	10^{-5}m/s
	実効拡散係数	グループ 1, 3, 4: $4 \times 10^{-11} \text{m}^2/\text{s}$ グループ 2: $3 \times 10^{-10} \text{m}^2/\text{s}$	$2 \times 10^{-9} \text{m}^2/\text{s}$

d. 溶解度、収着分配係数

緩衝材の変質後の溶解度については、緩衝材の止水性が喪失することによるコロイドによる影響等を考慮し、緩衝材を用いないグループ 3, 4 でのレファレンスケースの設定と同様に、すべて

の核種に沈殿を想定しないモデルを適用した。

セメント系充填材における収着分配係数は、セメントモルタルの喪失を考慮し、データベース RAMDA (Mihara and Sasaki, 2005) から、Region I, II, IIIの中から核種毎に最小のデータを選択し、設定を行った。緩衝材における収着分配係数については、スメクタイト溶出後のベントナイトに対する収着分配係数に関するデータが不在であることから、全ての核種に安全側の $0\text{m}^3/\text{kg}$ を仮定し解析を実施した。

表-3 人工バリア変質影響ケースにおける設定値 3

単位: m ³ /kg		人工バリア変質影響ケース			
		グループ1	グループ2	グループ3	グループ4
セメント系 充填材		レファレンスケースでの設定とRegionⅢデータの最小値	レファレンスケースでの設定とRegionⅢデータの最小値 × (ISA影響: TRU:1/20, 他:1)	レファレンスでの設定, 海水RegionⅢ, 酸化性データの最小値	レファレンスケースでの設定とRegionⅢデータの最小値
	C	0.00025	0.00025	0	0.00025
	I	0	0	0	0
	Cs	0.0025	0.0025	0.0025	0.0025
	Th	0.25	0.0125	0.25	0.25
	U	0.25	0.0125	0.025	0.25
	Np	0.25	0.0125	0.25	0.25
	Am	0.25	0.0125	0.25	0.25
緩衝材		スメクタイト溶出を考慮	スメクタイト溶出を考慮		
	C	0	0	-	-
	I	0	0	-	-
	Cs	0	0	-	-
	Th	0	0	-	-
	U	0	0	-	-
	Np	0	0	-	-
	Am	0	0	-	-
母岩		レファレンスケースに同じ	レファレンスケースに同じ	レファレンスケースに同じ	レファレンスケースに同じ
	C	0.0001	0.0001	0	0.0001
	I	0.0001	0.0001	0	0.0001
	Cs	0.05	0.05	0.005	0.05
	Th	1	1	1	1
	U	1	1	0.005	1
	Np	1	1	0.005	1
	Am	5	5	5	5

表-4 人工バリア変質影響ケースにおける設定値 4

単位: mol/m ³		人工バリア変質影響ケース	
		グループ1	グループ2
セメント系 充填材		ベントナイト劣化を考慮しグループ3及び4の設定と同様に核種の沈殿を考慮しない設定とした	
	C	易溶性	易溶性
	I	易溶性	易溶性
	Cs	易溶性	易溶性
	Th	沈殿を考慮しない	沈殿を考慮しない
	U	沈殿を考慮しない	沈殿を考慮しない
	Np	沈殿を考慮しない	沈殿を考慮しない
	Am	沈殿を考慮しない	沈殿を考慮しない

e. 解析結果

人工バリア変質影響ケース，すなわち，セメント系充填材及び緩衝材の劣化について時間的な変遷を考慮したケースでは，変質の生じる時刻が 10^3 年のケースで，線量最大値が微増するものの，全ての変動時刻の設定条件においてレファレンスケースと同程度の最大線量であった。

人工バリアの変質が早期に生じるケース（図-1，図-2 参照）では，グループ 2 及びグループ 4 からの I の移行率が増加している。この結果は，グループ 1 では非線形効果による収着性能の低下，グループ 3 では硝酸塩影響による収着性能の低下が I の収着分配係数にレファレンスケースの段階で見込まれていることから，人工バリア変質の影響による収着分配係数の変動幅が小さいためと考えられる。C-14 の移行挙動や Am-241 系列の移行挙動は，実効拡散係数や溶解度が変化しているにも関わらず，レファレンスケースからの変化は見られない。C-14 については，レファレンスケースの条件においても人工バリアでの核種保持性能が低く，Am-241 系列では，天然バリアによる核種移行遅延が人工バリアでの移行遅延を大きく上回るため，人工バリア変質の線量最大値への影響はほとんどなかったものと考えられる。

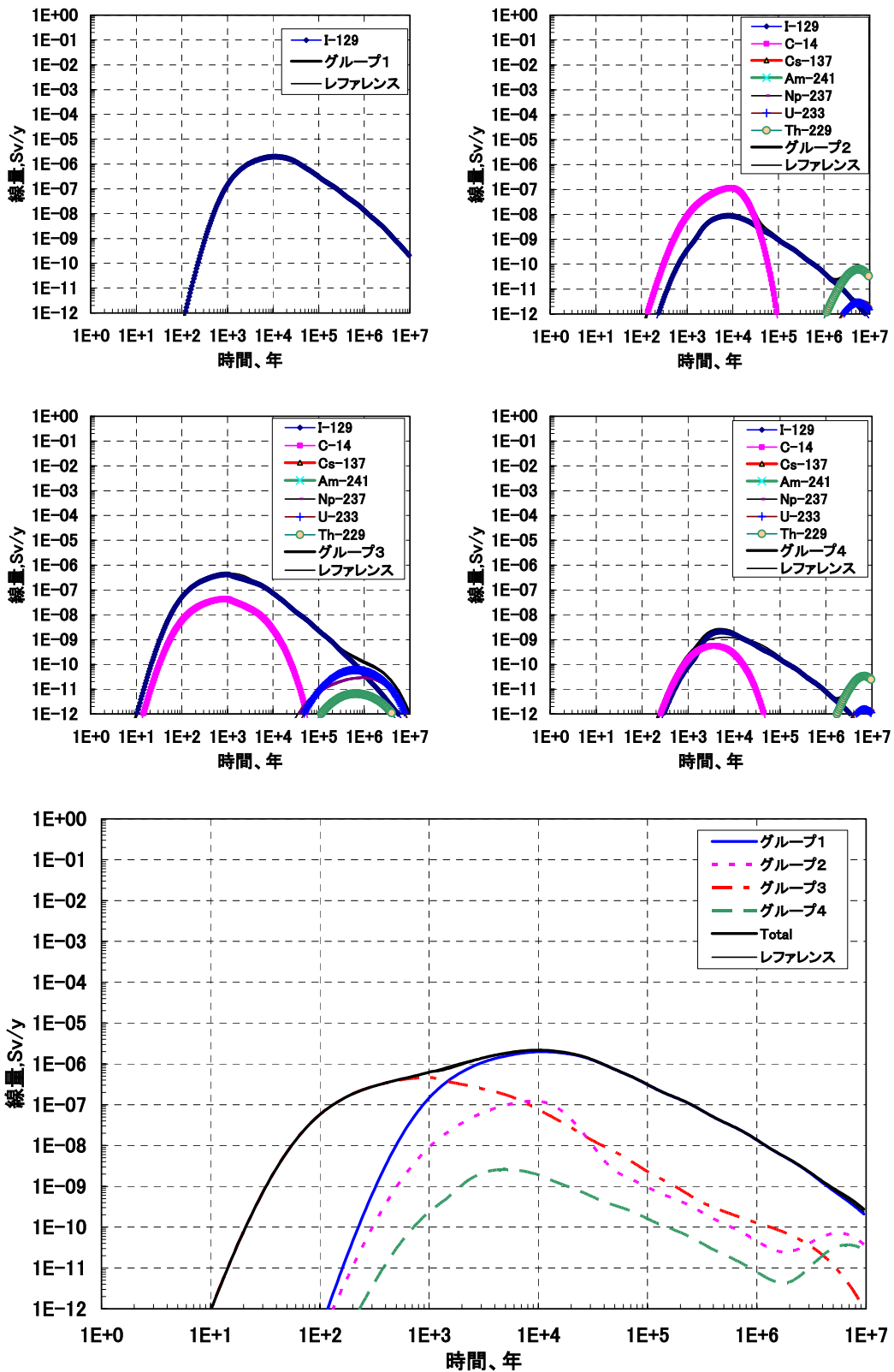


図-1 人工バリア変質影響ケース解析結果, (ケース1: 変質設定時刻 10³年)

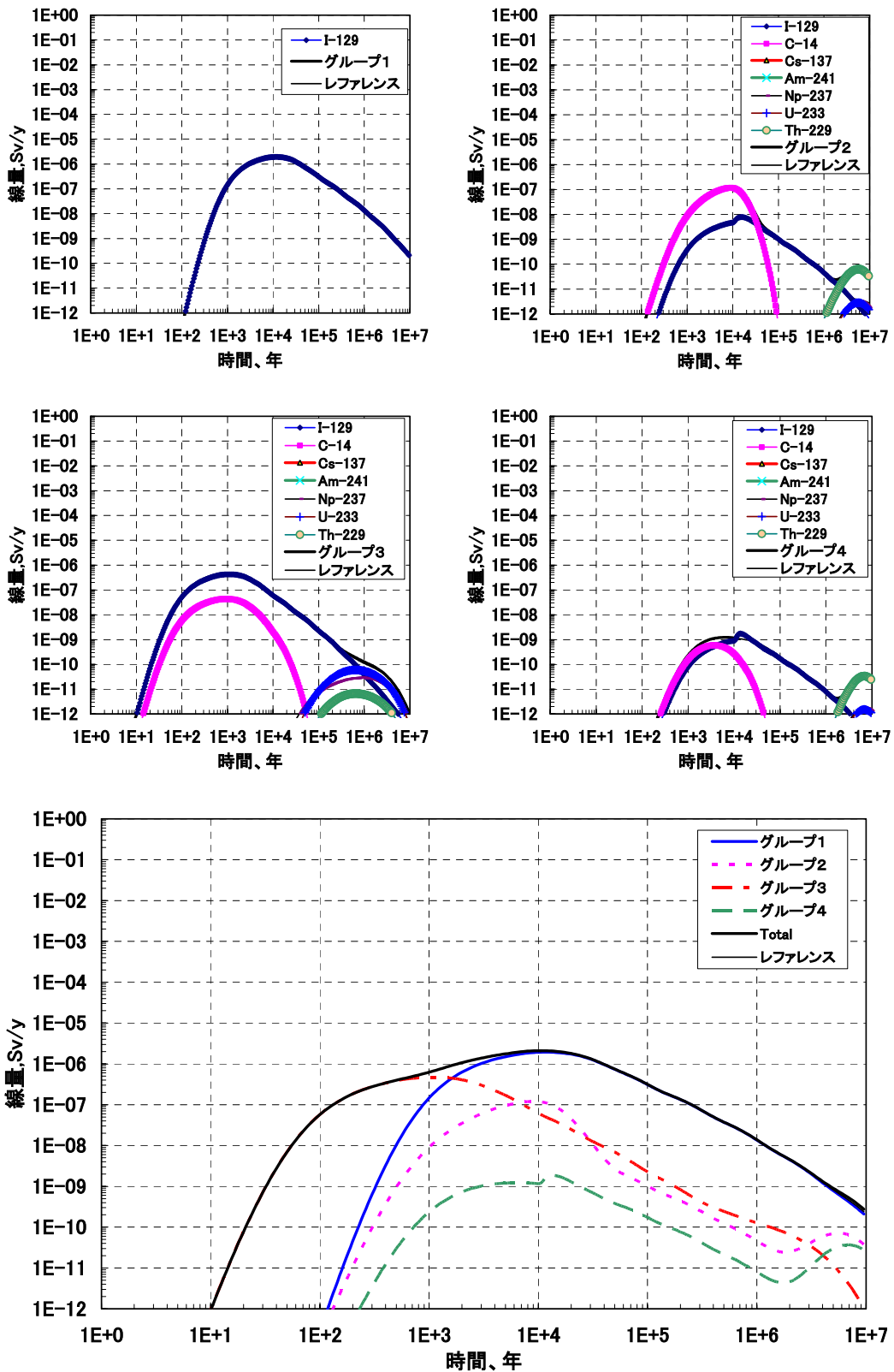


図- 2 人工バリア変質影響ケース解析結果, (ケース 2 : 変質設定時刻 10⁴年)

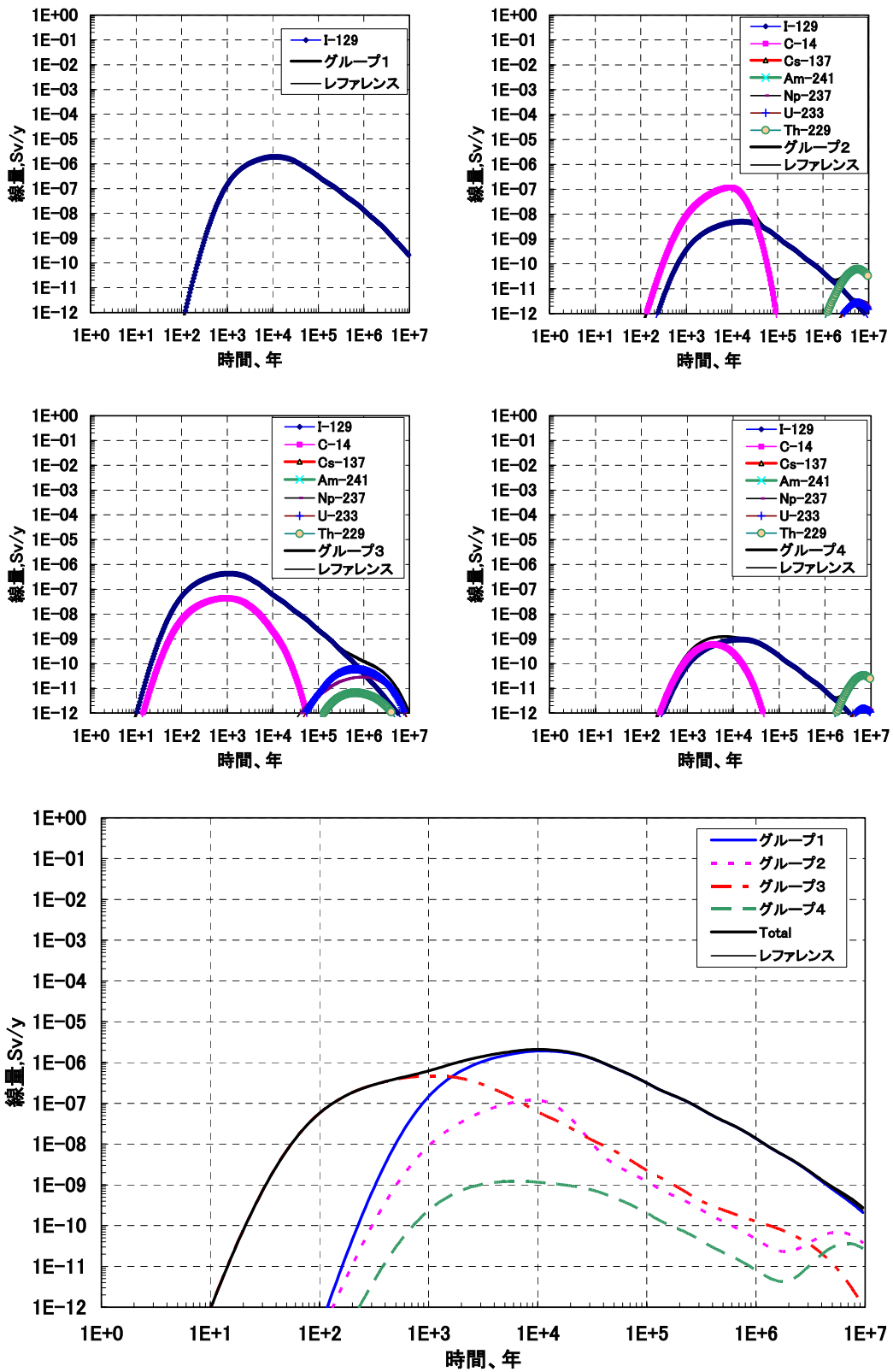


図- 3 人工バリア変質影響ケース解析結果，(ケース 3：変質設定時刻 10⁵年)

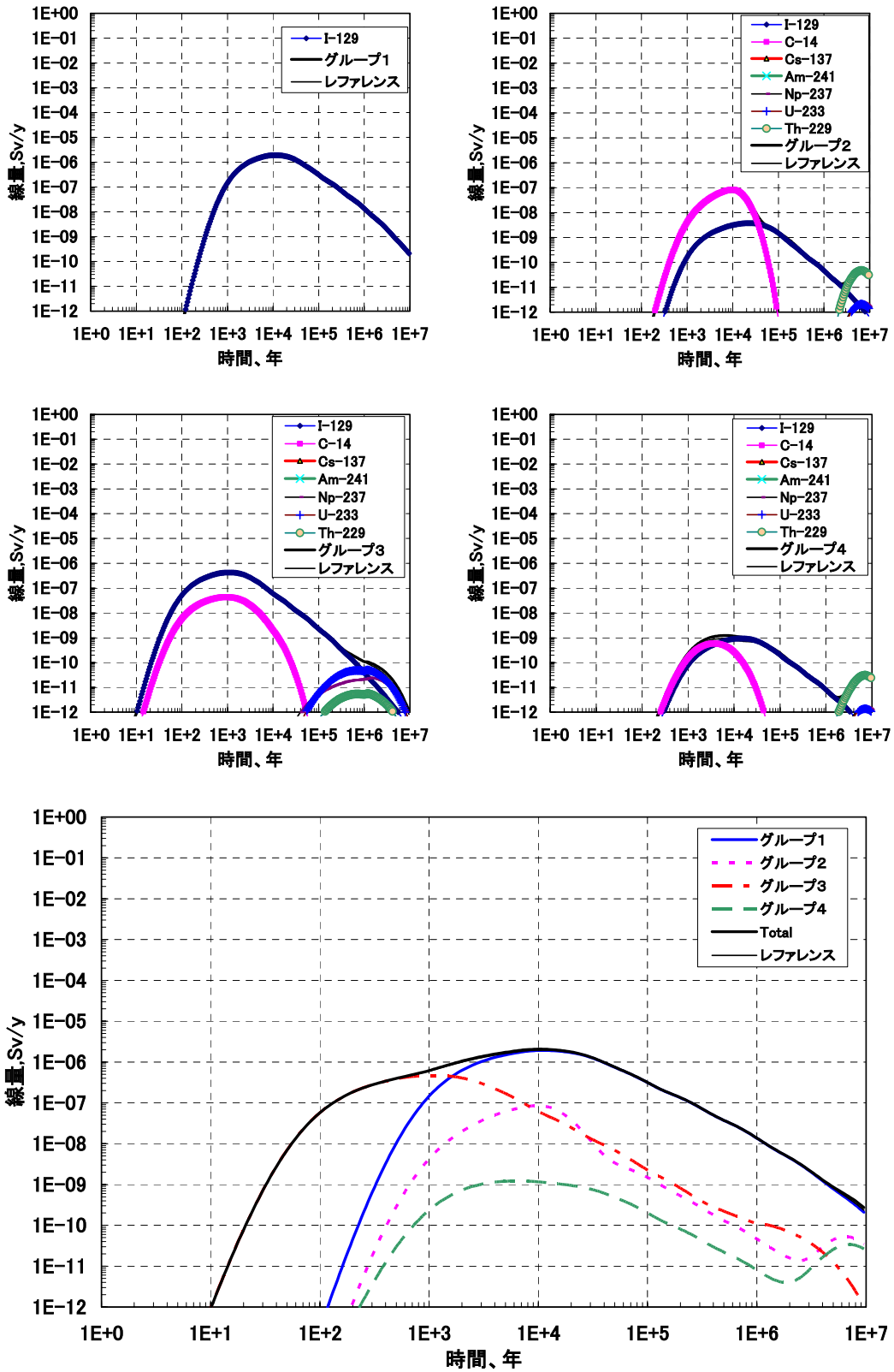


図-4 人工バリア変質影響ケース解析結果, (ケース4: 変質設定時刻 10⁶年)

(2) 高 pH による母岩変質影響ケース

第2次 TRU レポート 4.4.3 の「周辺岩盤のアルカリ変質」での評価結果を以下に再記載する。

- ・ 鉱物のアルカリ反応性に関する調査及び試験結果により、主として結晶性の低い鉱物の溶解や、C-S-H ゲルなどの二次鉱物生成の可能性が示された。
- ・ 鉱物の化学反応と物質移行を連成させて解析を行った結果、核種の収着特性が高い C-S-H ゲル相などの二次鉱物が処分施設周辺岩盤中に生成する結果となった。
- ・ また、岩盤の構成鉱物の溶解や二次鉱物の生成による空隙の変化に関しては、岩盤の長期的な力学挙動については連成を行えていないが、顕著な変化が生じる領域は処分場近傍に限定された範囲であること、また、選択的に二次鉱物の沈殿が生じる領域では空隙の減少が生じる可能性も考えられる。
- ・ これらの結果から、アルカリ成分による周辺岩盤への影響は施設近傍で生じ、核種移行経路全体に対する顕著な影響は生じないと評価した。
- ・ 二次鉱物の生成による周辺岩盤の収着分配係数の変化、核種のマトリクス拡散の抑制、空隙の減少による物質移行の抑制、といった現象については知見が十分ではなく、これらを考慮した評価が今後必要である。

この結果に基づき、レファレンスケースでは、母岩とアルカリ成分との反応により生成した二次鉱物による周辺岩盤の収着分配係数の変化、核種のマトリクス拡散の抑制、空隙の減少による物質移行の抑制の可能性について核種移行パラメータに反映させてはいない。しかしながら、これらの現象についての知見は、現状において十分ではなく、母岩とアルカリ反応による母岩の核種閉じ込め性能が変化する可能性は否定できない。そのため、代替ケースでは、核種のマトリクス拡散の抑制に着目し、仮想的なデータを設定し安全側の解析設定を行った。

a. 解析モデル

周辺母岩に収着特性の高い C-S-H ゲル相などの二次鉱物の沈殿の生成に伴う核種の収着性能の上昇の可能性については、解析の保守性の観点から考慮しないものとした。

解析では、母岩とアルカリ成分との反応により生成した二次鉱物が、地下水の流路である亀裂表面に沈殿することにより、核種のマトリクスへの拡散が抑制される可能性を考慮するものとした。また、母岩とアルカリ成分との反応の影響が生じる範囲は人工バリアの近傍であるものと予想されるものの、亀裂性媒体における高 pH プルームの挙動に関して、現状、知見が十分ではないことから、母岩及び断層の全域でマトリクス拡散が抑制されるものとした。母岩とアルカリ反応は、時間的及び空間的に生じるものと考えられるが、解析では、処分初期から、マトリクス拡散が抑制される状態を想定するものとした。

マトリクス拡散の抑制に係るパラメータとしては、母岩表面での二次鉱物の沈殿による影響を評価することから、マトリクス拡散寄与面積比に代替設定を行うものとした。

b. マトリクス拡散寄与面積比の設定

アルカリと母岩の反応による二次鉱物の沈殿により影響を受ける亀裂表面の割合については、知見が十分ではなく、また、亀裂性媒体における解析評価も研究の端緒にある。そのため、具体的な設定値として信頼性の高いデータの適用は困難であり、感度解析的にレファレンスケースの設定値である 50%の 1/10 倍とし、解析を実施した。これは、母岩で想定している核種移行距離 (100m) のうち、90mの区間でマトリクス拡散による効果が制限されるものと同等であると考えられる。

表-5 高 pH による母岩変質影響に関する設定

パラメータ	設定値(レファレンス)	設定値
マトリクス拡散寄与面積比 (-)	0.5	0.05

c. 解析結果

図-5 に解析結果を示す。

高 pH による母岩変質影響ケースでは、レファレンスケースに比較して最大線量が 2 倍程度増加した。線量に支配的となる I-129 の核種移行率が、全てのグループにおいて増加しているため、最大線量が増加している。グループ 2 及び 4 では、Am-241 系列からの Th-229 による線量の増加が著しいが、全体の線量に支配的となるほどの線量増加ではなかった。

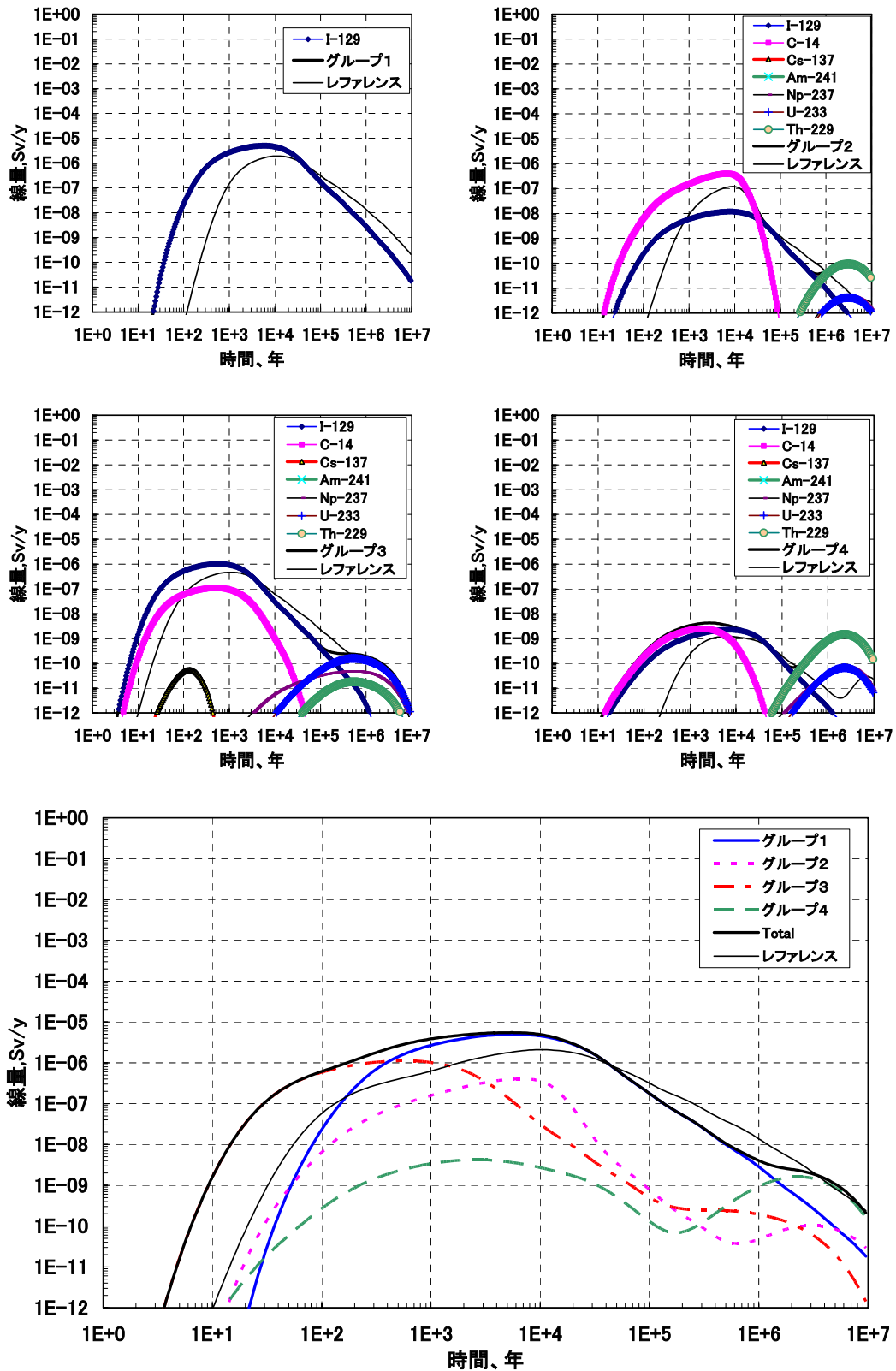


図- 5 高 pH による母岩変質影響ケース解析結果

(3) 初期酸化性影響ケース

処分場の内部が本来想定される還元性雰囲気から酸化性雰囲気に変動する原因としては、①地下水の放射線分解による雰囲気の変動、②硝酸塩による雰囲気の変動、③処分場建設時の大気からの酸素や炭酸ガスによる影響、が考えられる。この中で、第2次 TRU レポート 4.4.8 で示されたように、本検討書における処分概念においては、①による環境変化の可能性は低いものと予想されている。②については、レファレンスケースのグループ3の評価で考慮されている。そのため、③による影響として、代替ケースを設定するものとした。

a. 解析モデル

処分場閉鎖後、処分場は再冠水するとともに、建設時に処分場に持ち込まれた酸素や炭酸ガスは地下水に溶解し、廃棄体や廃棄体パッケージに含まれる金属成分や緩衝材及び母岩中の還元鉱物と反応し速やかに消費され（千葉ほか、1999）、本来の地下水化学環境である還元性に回帰するものと予想される。したがって、再冠水が継続する期間、処分場に大気中の酸素が残存する可能性は否定できない。このことから、解析では、再冠水に要する時間を目安として、酸化性雰囲気の継続する期間を設定するものとする。

酸化性雰囲気が継続する期間の、人工バリア中の各バリアの収着分配係数や溶解度は、酸化性雰囲気環境で想定されるデータを用い、酸化性雰囲気から還元性雰囲気に変化するとともに収着分配係数や溶解度は、還元性の値（レファレンスケースでの設定値）に変動するものと仮定した。

酸化性雰囲気、すなわち、再冠水中の人工バリア内部は、不飽和であることが予想されるとともに地下水の挙動も飽和後の挙動と異なるものと考えられるが、解析では、飽和した状態で、かつ、定常的な地下水の流動条件を想定した。

b. 酸化性雰囲気継続期間の設定

安藤ら（2005）は処分施設の地下水の再冠水を気液二相流モデルを用い評価を行っている。この結果では、500年以内で処分施設はほぼ地下水で飽和されるものと予想している。この結果から、酸化性雰囲気の継続を100年と1000年の2つのケースについて設定するものとした。また、仮想的なケースではあるが、酸化性雰囲気の継続を10000年とするケースを加え、3つのケースについて評価を実施するものとした。

表-6 初期酸化性影響ケースにおける設定値 1

パラメータ	設定値
パラメータの変動を仮定する時刻	10 ³ , 10 ⁴ , 10 ⁵ 年

c. 溶解度、収着分配係数

溶解度及び収着分配係数は、酸化性雰囲気が継続する期間と還元性雰囲気に回帰した後の期間の2つの期間において、設定するものとする。還元性雰囲気での溶解度及び収着分配係数は、本来の環境条件であることから、レファレンスケースの設定値と同じとした。酸化性雰囲気である期間における溶解度と収着分配係数は、データベース RAMDA の中から、条件に一致するデータを

選択するものとした。ただし、酸化性の条件と還元性の条件を比較し、安全側の解析結果が得られるようにデータを選択した。

表-7 初期酸化性影響ケース収着分配係数設定値

単位: m ³ /kg		初期酸化性影響ケース			
		グループ1	グループ2	グループ3	グループ4
セメント系 充填材		レファレンスでの設定値, 酸化性データの最小値 Iについては, 非線形吸着の効果を考慮し, 1/10倍とする	レファレンスでの設定値, 酸化性データの最小値 × ISA影響 (TRU:1/20, 他:1)	レファレンスに同じ	レファレンスでの設定値, 酸化性データの最小値
	C	0	0	0	0
	I	0.000125	0.00125	0	0.00125
	Cs	0.0025	0.0025	0.0025	0.0025
	Th	0.25	0.0125	0.25	0.25
	U	0.025	0.00125	0.025	0.025
	Np	0.25	0.0125	0.25	0.25
	Am	0.25	0.0125	0.25	0.25
緩衝材		レファレンスでの設定値, 酸化性データの最小値	レファレンスでの設定値, 酸化性データの最小値		
	C	0	0	-	-
	I	0	0	-	-
	Cs	0.01	0.01	-	-
	Th	1	1	-	-
	U	0.005	0.005	-	-
	Np	0.005	0.005	-	-
	Am	1	1	-	-
母岩		レファレンスに同じ	レファレンスに同じ	レファレンスに同じ	レファレンスに同じ
	C	0.0001	0.0001	0	0.0001
	I	0.0001	0.0001	0	0.0001
	Cs	0.05	0.05	0.005	0.05
	Th	1	1	1	1
	U	1	1	0.005	1
	Np	1	1	0.005	1
	Am	5	5	5	5

表-8 初期酸化性影響ケース溶解度設定値

単位: mol/m ³		初期酸化性影響ケース	
		グループ1	グループ2
セメント系 充填材		レファレンスでの設定値と酸化性データの最大値	レファレンスでの設定値と酸化性データの最大値 × ISA影響 (TRU:20, 他:1)
	C	易溶性	易溶性
	I	易溶性	易溶性
	Cs	易溶性	易溶性
	Th	1.0E-06	2.0E-05
	U	5.0E+01	1.0E+03
	Np	5.0E-02	1.0E+00
	Am	5.0E-07	1.0E-05

d. 解析結果

図-6, 7, 8に初期酸化性影響ケースの解析結果を示す。

初期酸化性影響ケースでは、再冠水で予測される時間である 500 年よりはるかに長い酸化性雰囲気の状態の継続期間が 10^4 年とするケースにおいてグループ 2 の線量最大値が微増するものの、線量最大値は、レファレンスケースとほぼ同程度であった。これらの解析結果では、レファレンスケースと同様にグループ 1, 3, 4 では I-129 が、グループ 2 では C-14 が各グループの線量の最大値を支配している。I-129, C-14 は易溶性で、かつ人工バリア材料への収着性が低いことから、人工バリアの性能の変遷に影響され難いため、最大線量への影響は顕著に現れなかったものと考えられる。

グループ 2 では、酸化還元環境に強く影響されると考えられる Am-241 系列の核種も、天然バリアからの核種放出率で評価する限り、レファレンスケースと差異はなかった。これは、酸化性状態の継続期間が Am-241 系列核種の移行時間に比較して短いことや、高レベル放射性廃棄物に比較して廃棄体中の核種量が少なく、レファレンスケースの想定においても溶解度に達していない可能性があるためと考えられる。

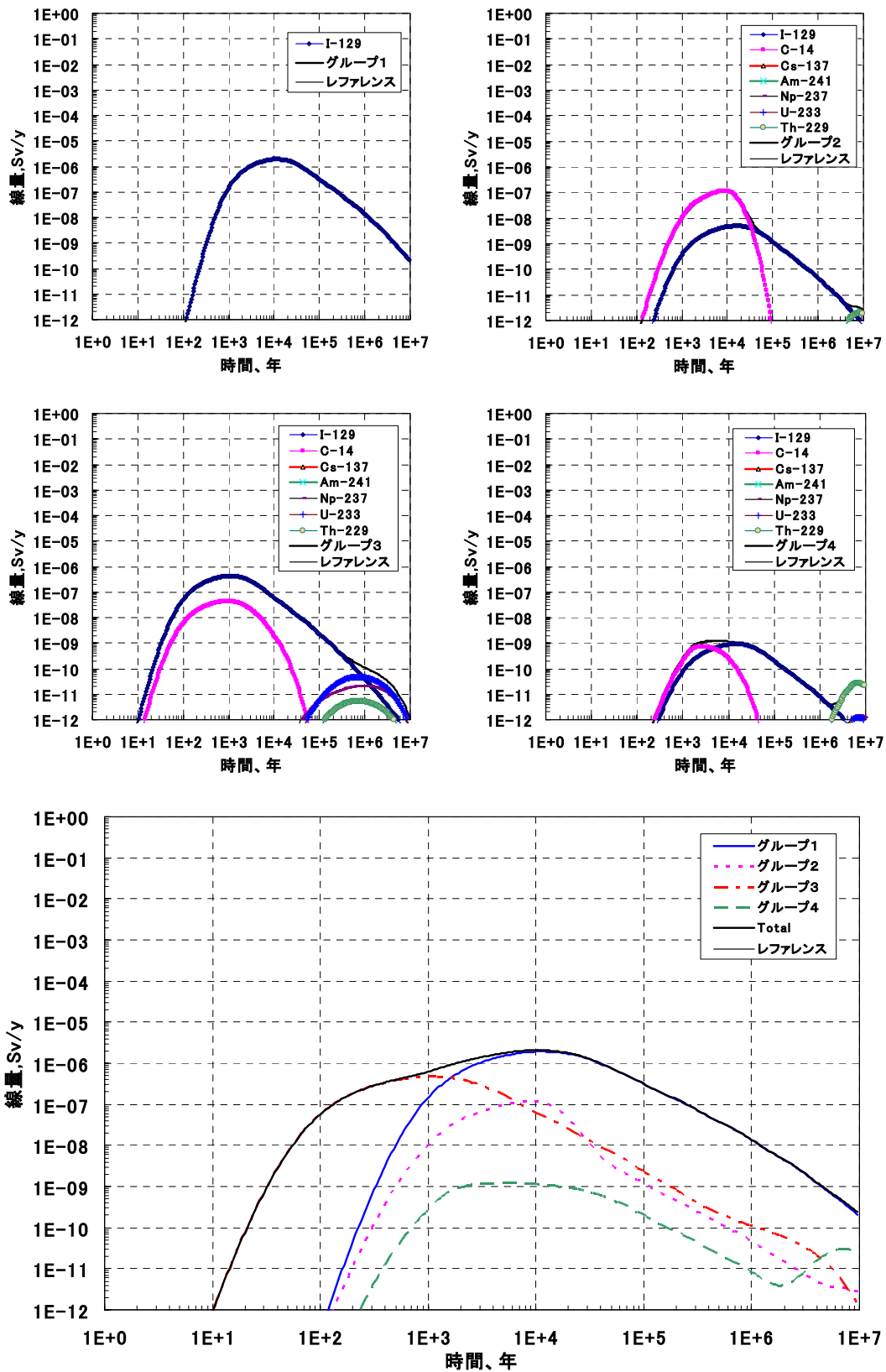


図-6 初期酸化性影響ケース解析結果 (酸化性雰囲気継続期間 10²年)

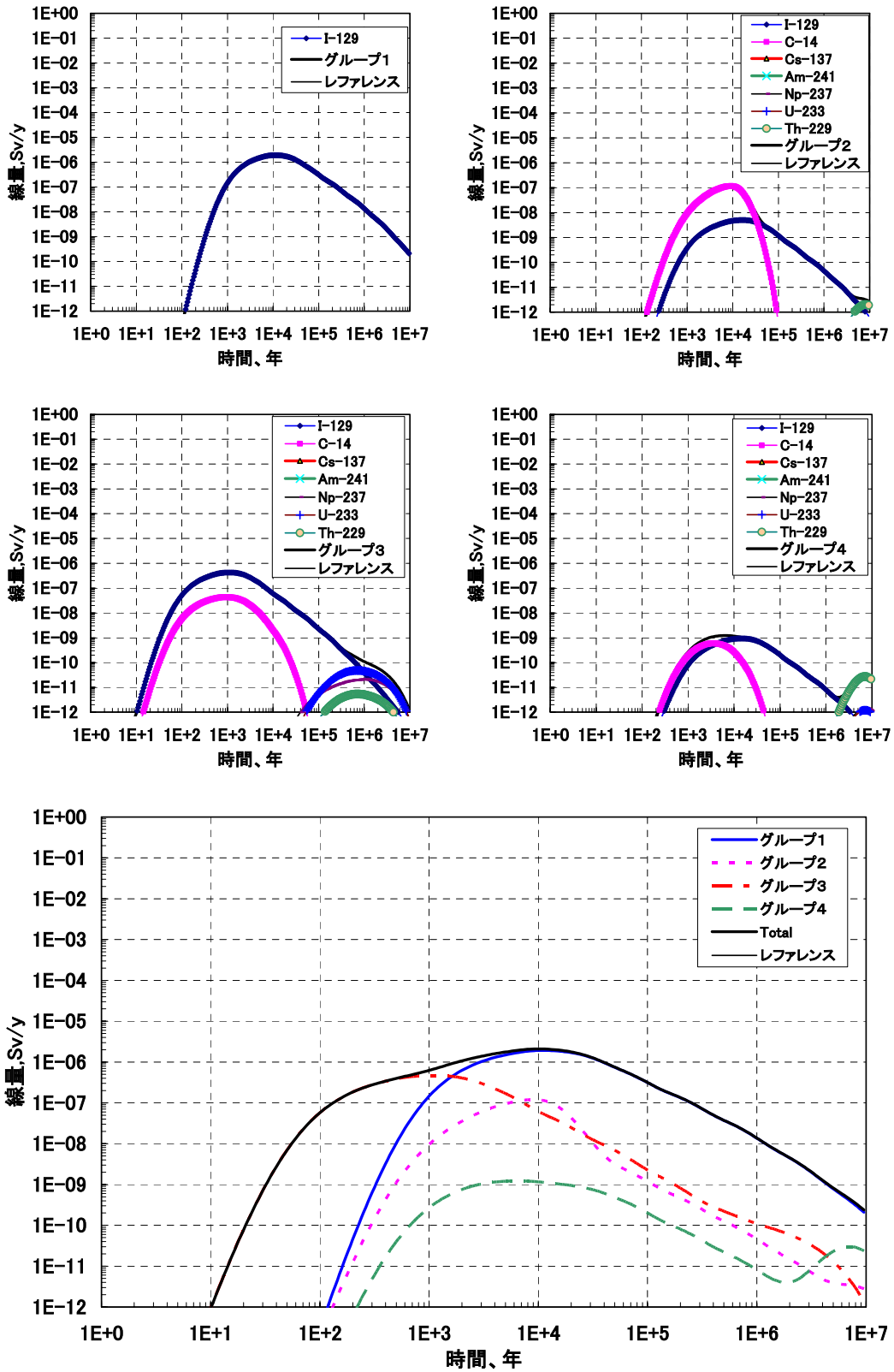


図- 7 初期酸化性影響ケース解析結果 (酸化性雰囲気継続期間 10^3 年)

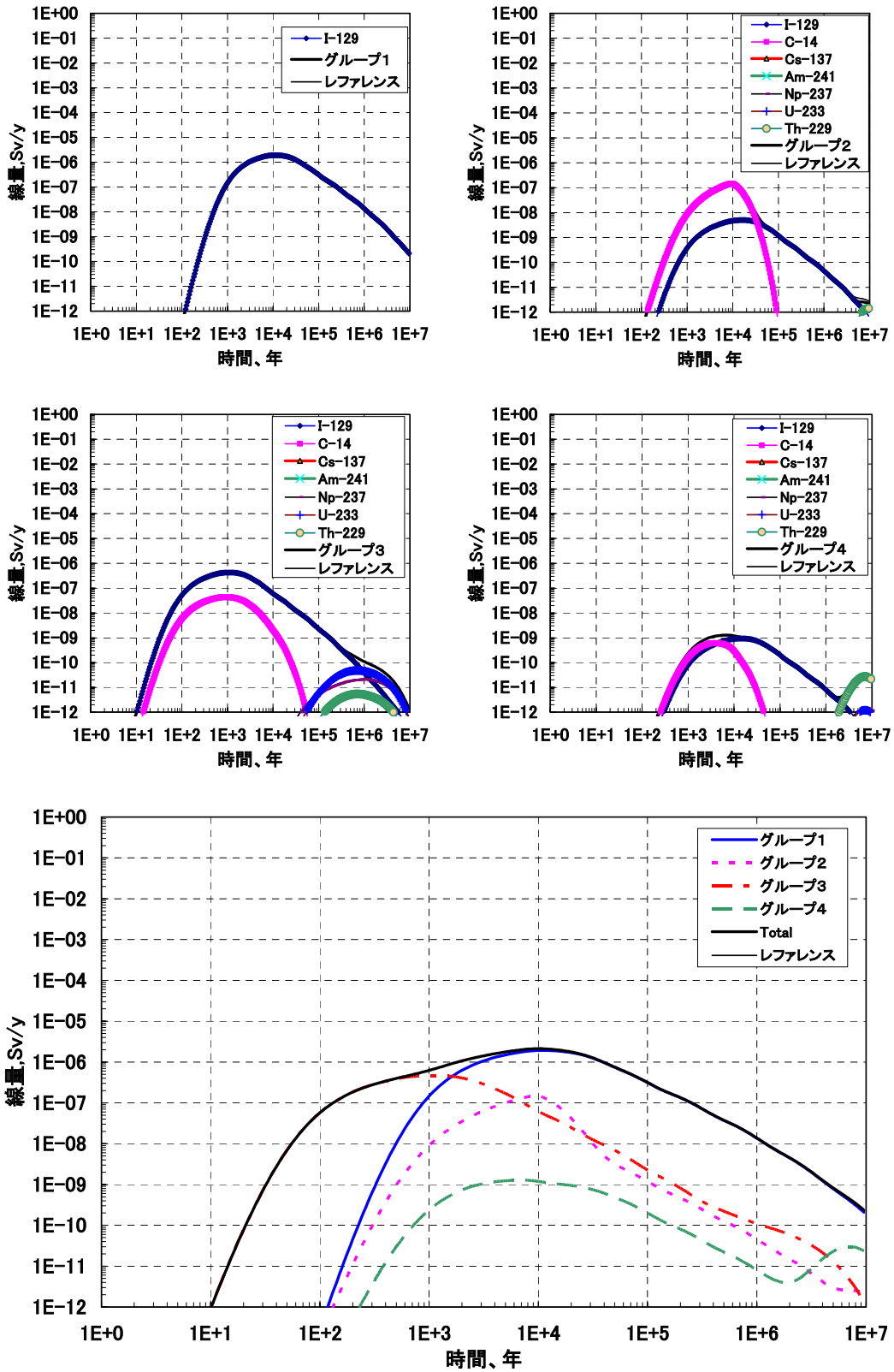


図-8 初期酸化性影響ケース解析結果 (酸化性雰囲気継続期間 10^4 年)

(4) コロイド影響ケース

第2次 TRU レポート 4.4.5 では、コロイドが核種移行に及ぼす影響として、天然バリア領域におけるコロイドの影響評価が重要であるものの、天然バリア中のコロイドの挙動については、考慮すべきコロイドの特性の多様性や移行媒体特性の不均一性などの情報が不足していることから、定量的な評価において、その影響を明確に示すことが困難であると述べられている。ただし、核種移行解析においては、また、H12 レポート（核燃料サイクル開発機構，1999）以降のコロイドの収着反応速度を考慮した評価（黒澤，2005）によれば、レファレンスケースで用いられた水理地質条件で想定される地下水流速での収着反応速度の影響は、小さいことが示されていることからコロイドへの核種の瞬時平衡での収着を仮定した H12 で用いられた解析モデルを用い、コロイドの影響による線量の増加の程度を示すものとした。

a. 解析モデル

解析モデルは、前述のように H12 レポート同様のモデルを用いるものとした。H12 レポートでの概念モデルを以下に示す。

- ・ コロイドの亀裂表面への収着は、保守的に考慮しない。
- ・ コロイドは、粒径が比較的大きく、一般に岩石と同じ負に帯電していることから、コロイドの岩石基質内への拡散は、保守的に考慮しない。
- ・ 亀裂中でのコロイドの分散長は、核種の分散長と等しい。
- ・ 核種のコロイドへの収着は、瞬時／線形／可逆とする。
- ・ フィルター効果や凝集沈殿によるコロイド濃度の低下は、保守的に考慮しない。
- ・ コロイド濃度は場所や時間にかかわらず一定とする。

数学的定式化についても、H12 レポートと同じ取り扱いを行うものとし、見掛けの遅延係数 (R'_n)、見かけの地下水流速 (v')、見かけの拡散係数 (D'_L) 及び見かけの掘削影響領域流量 (Q') を、コロイドの濃度 (χ , kg/m³) 及びコロイドへの核種収着分配係数 (K_c , m³/kg) から算出することとした。

$$R'_n = 1 + \chi K_c$$

$$v' = v \left(1 + \frac{v_c}{v} \chi K_c \right)$$

$$D'_L = D_L \left(1 + \frac{v_c}{v} \chi K_c \right)$$

$$Q' = Q \left(1 + \frac{v_c}{v} \chi K_c \right)$$

ここで、

v : 亀裂内の地下水流速, m/y

- v_c : コロイドの移行速度, m/y
 D_L : 核種の分散係数, m²/y
 Q : 掘削影響領域の流量, m³/y

b. コロイド濃度及びコロイド移行速度

コロイド濃度の設定は、H12 レポートと同様の根拠に基づくものとし、海外で実施された地下深部の結晶質岩（花崗岩）中での測定結果（天然コロイドの濃度は0.1 ppm 以下, Degueudre et al., 1996）及び東濃鉱山における堆積岩層での地下水の測定結果（コロイド濃度は約 1～5ppm 動力炉・核燃料開発事業団, 1996）を参考として、1ppm とした。

コロイドへの核種収着分配係数については、測定データが少なくかつ天然コロイドの組成や元素の収着性は場所により異なると考えられ、現実的な条件設定は困難である。そのため、海外原位データの Am の測定例（Degueudre, 1994）を参考に、解析では全元素に対して一律、収着分配係数 1,000 m³/kg を用いることとする。

コロイドはその大きさの影響から、水の流れの中心部の流速が早い領域に分布して、平均的なコロイドの移流速度は平均的な地下水流速よりも早くなる傾向があることが指摘されている（Prieve and Hoysan, 1978）。ただし、その影響は過大に見積もっても 1.3 倍以下との見解があり（Grindrod, 1993）、ここでは、地下水流速に対して 1.3 倍のコロイド移行速度比を仮定した。

表-9 コロイド影響ケースにおける設定値

パラメータ	設定値
コロイド濃度	10 ⁻³ kg/m ³
コロイドへの核種収着分配係数	1,000 m ³ /kg
コロイドの移行速度比($\frac{v_c}{v}$)	1.3

c. 解析結果

図-9 にコロイド影響ケースにおける解析結果を示す。

天然バリア中のコロイドへの核種収着を考慮するケースでは、レファレンスケースに比較して最大線量は 2 倍程度増加する。核種の移動速度に対して、見かけの遅延係数と見かけの流速は相殺することから、ここでの線量の増加は、コロイド影響による掘削影響領域の見かけの流量増加に依存しているものと考えられる。

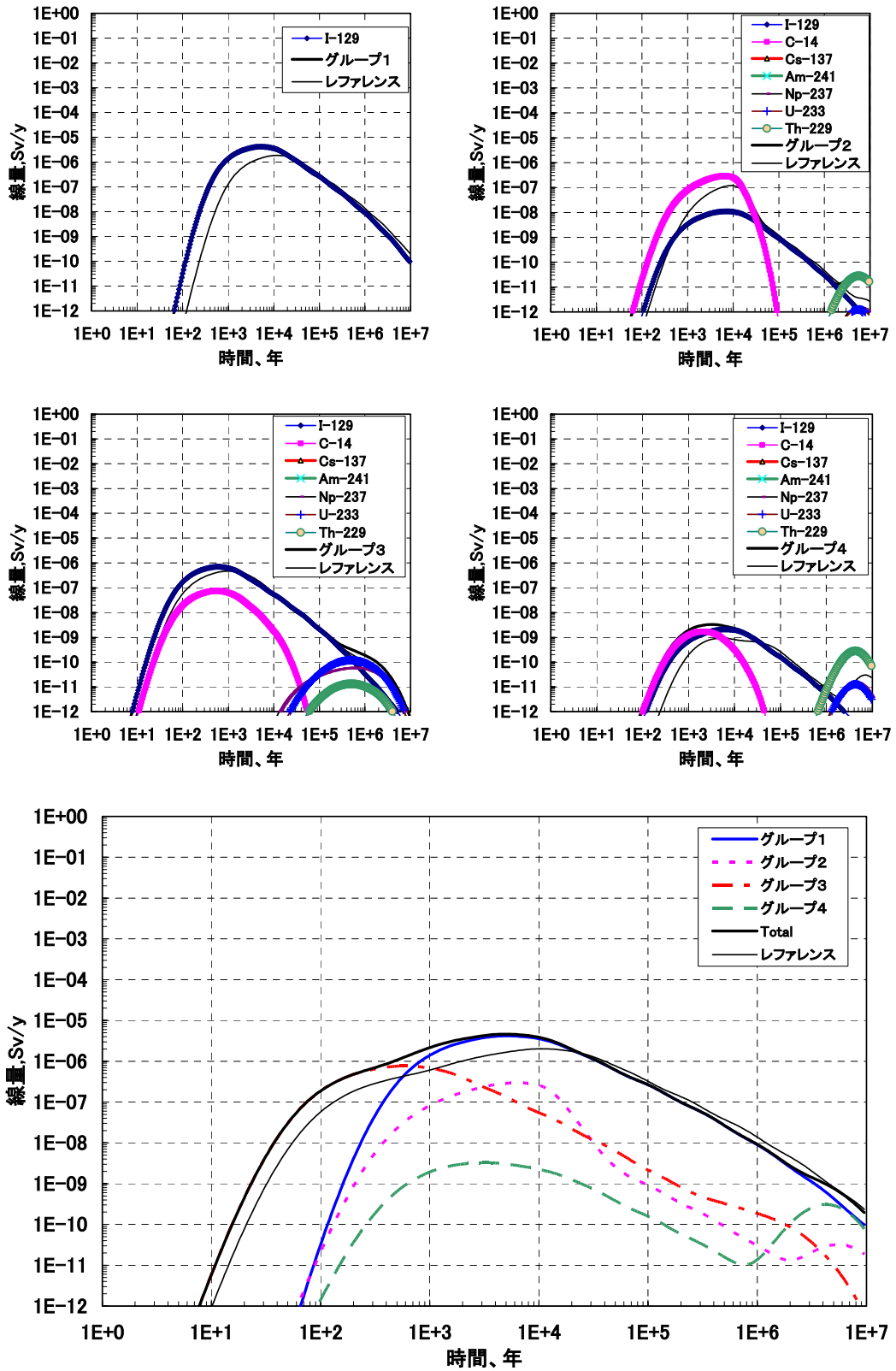


図-9 コロイド影響ケース解析結果

(5) 有機物影響ケース

レファレンスケースでは、グループ2に含まれるセルロースの影響を含め解析が実施されている。ただし、天然起源有機物による母岩での核種の挙動に関する影響は考慮していない。母岩または地下水中の有機物の存在は、処分を対象とする地質環境に強く依存する。そのため、地質環境を特定しない本評価では、仮想的なシナリオとして分類されている。

有機物影響ケースでは、天然有機物の影響の程度を把握するために、H12 レポートと同様に地質媒体に対する保守的な分配係数を設定し、核種移行解析を実施するものとした。

a. 解析モデル

解析モデルとしては、レファレンスケースと同じものを使用する。ただし、核種の母岩に対する吸着分配係数を保守的に設定して核種移行解析を実施するものとする。

b. パラメータ設定

母岩の吸着分配係数について、H12 レポートで示された、データ不確実ケースの吸着分配係数の最小値と、レファレンスケースの値を比較し、小さいデータを採用した。また、HLW の評価で対象外の核種である I, C については、Se の吸着分配係数の値を参考として設定した。

表-10 天然有機物影響ケース吸着分配係数設定値

単位: m ³ /kg		天然有機物影響ケース			
		グループ1	グループ2	グループ3	グループ4
セメント系 充填材		レファレンスに同じ	レファレンスに同じ	レファレンスに同じ	レファレンスに同じ
	C	0.00025	0.00025	0	0.00025
	I	0.000125	0.00125	0	0.00125
	Cs	0.0025	0.0025	0.0025	0.0025
	Th	0.25	0.0125	0.25	0.25
	U	0.25	0.0125	0.025	0.25
	Np	0.25	0.0125	0.25	0.25
	Am	0.25	0.0125	0.25	0.25
緩衝材		レファレンスに同じ	レファレンスに同じ		
	C	0	0	-	-
	I	0	0	-	-
	Cs	0.05	0.05	-	-
	Th	5	5	-	-
	U	5	5	-	-
	Np	5	5	-	-
	Am	1	1	-	-
母岩		有機物影響として レファレンスでの設定値と H12レポートデータ不確実 性ケースの最小値	有機物影響として レファレンスでの設定値と H12レポートデータ不確実 性ケースの最小値	有機物影響として レファレンスでの設定値とH12 レポートデータ不確実性ケ ースの最小値	有機物影響として レファレンスでの設定値と H12レポートデータ不確実 性ケースの最小値
	C	0	0	0	0
	I	0	0	0	0
	Cs	0.001	0.001	0.001	0.001
	Th	0.1	0.1	0.1	0.1
	U	0.1	0.1	0.005	0.1
	Np	0.1	0.1	0.005	0.1
	Am	0.05	0.05	0.05	0.05

c. 解析結果

天然有機物影響ケースでの解析結果を図-10 に示す。天然有機物の存在を仮想的に想定することにより、線量最大値は、3 倍程度増加した。Am-241 系列の Th-229 による被ばく線量の増加は著しいが、線量に支配的となる核種は、I-129, C-14 であった。

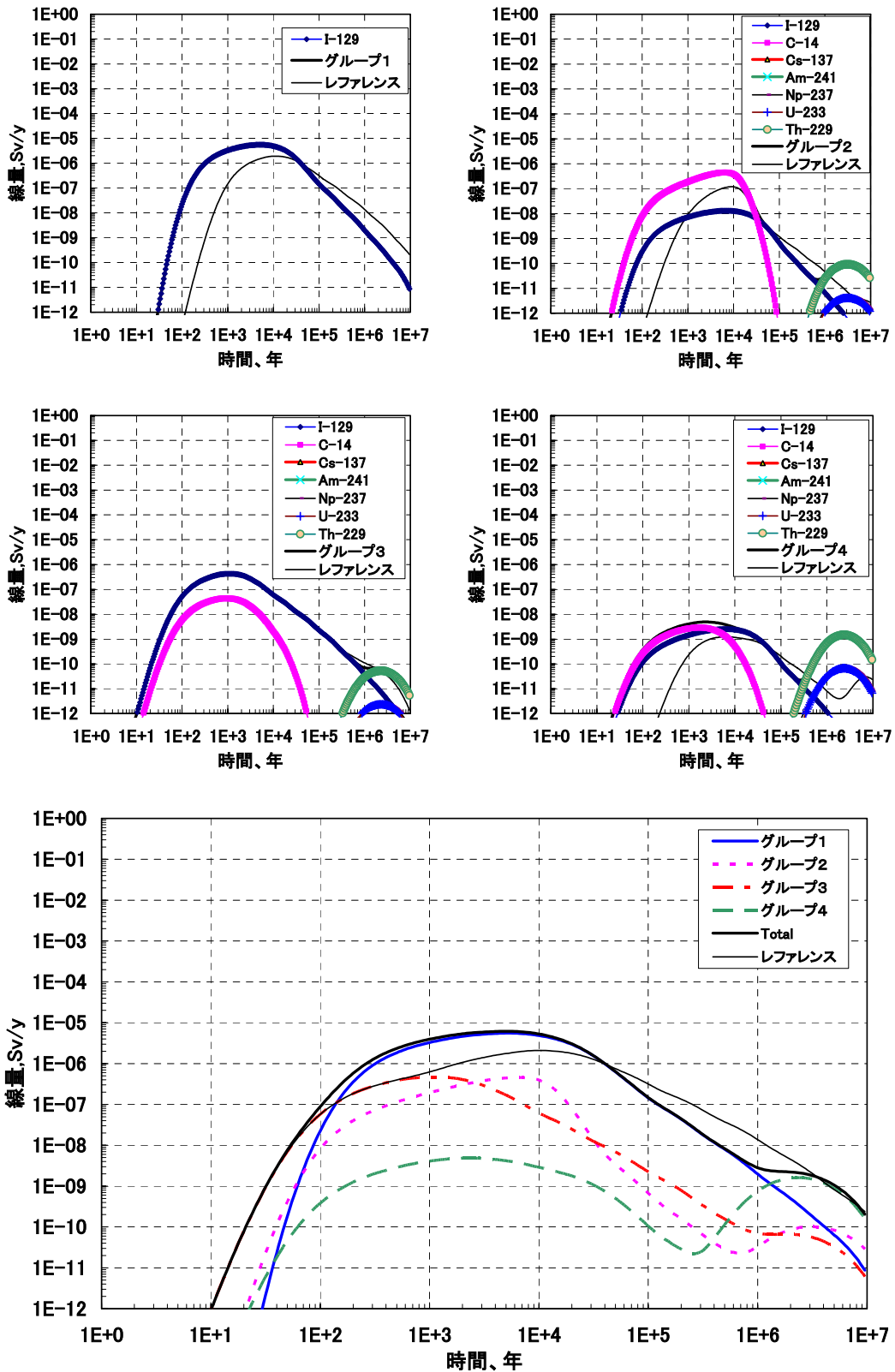


図-10 天然有機物影響ケースの解析結果

(6) ガス影響ケース

第2次 TRU レポート 4.4.10 におけるガス影響評価では、ガス影響により緩衝材の力学的破壊の可能性が小さいものと判断されている。そのため、ガスによる影響として、ガスによる地下水の排水の影響を評価するものとした。また、グループ2及びグループ3におけるガス状核種の移行の可能性として CH₄ によるガス状の放射性核種の移行が考慮されていることから、この結果をガス影響ケースに加算し解析結果を導出することとした。

a. 解析モデル

ガス影響による核種の移行への影響として、発生した H₂ ガスが溶解度を超えて気相を形成するとともに人工バリア内の間隙水を排水する効果をモデル化し評価するものとした。ガス移行解析による間隙水排水量の評価結果に基づき、人工バリア内部の各領域での地下水の流速を評価し、これに動水勾配を駆動力とした地下水流速を加算し核種移行解析を行った。

$$v_g = v_d + \frac{Q_{gas}}{S T_{gas}} H(t - T_s) H(T_s + T_{gas} - t)$$
$$T_{gas} = Q_{gas} / Q_{max}$$

v_g : ガスによる排水影響を考慮した領域内の地下水流速, [m/y]

v_d : 動水勾配による地下水流速, [m/y]

Q_{gas} : 単位坑道長さあたりの総間隙水排水量, [m³/m]

S : 単位坑道長さあたりの地下水の通過面積(各領域の内側表面積を使用する), [m²/m]

T_{gas} : ガスによる排水影響の継続期間, [y]

T_s : ガスによる排水影響が有意となる時刻, [y]

t : 時間, [y]

Q_{max} : 単位坑道長さあたりの最大間隙水排水速度, [m³/y/m]

$H()$: ヘビサイド関数

ガス発生により地下水流速が影響を受ける領域としては、セメント系充填材、緩衝材（グループ1及び2）、掘削影響領域とし、天然バリアの流速はガスによる影響を受けないものと仮定した。また、地下水への H₂ ガスの溶解や水の分解による地下水化学への影響は考慮しないものとした。

b. パラメータ設定値

ガス影響によるパラメータの設定は、第2次 TRU レポート 4.4.10 に示された解析結果のなかで、結晶質岩盤(処分深度 1,000m)を対象とした結果を用いるものとした。ガスによる排水影響が有

意になる時刻の設定は、最大間隙水排出速度の出現時刻を参考として表-11 に示す値を与えるものとした。

表-11 ガス影響ケースにおける設定値

影響を受ける パラメータ	単位	レファレンス ケース	廃棄体グループ			
			グループ1	グループ2	グループ3	グループ4
総排水量	m ³ /m	-	2.6	1.0	1.9	1.9
最大排水速度	m ³ /m/y	-	0.26	0.17	0.007	0.024
排水開始時刻	y	-	1000	100	30	10
排水期間	y	-	総排水量/最大排水速度とする			

c. 解析結果

図-11 にガス影響ケースの解析結果を示す。

ガス影響を考慮するケースにおいて、線量最大値のレファレンスケースからの増加はほとんど見られない。しかしながら、グループ1及び3では、ガスの影響が生じる時間の近傍で、核種移行率の増加がみられた。これに対して、グループ2及び4では、同様の効果が明確ではなかった。これは、グループ1及び3におけるIの収着分配係数がグループ2、4より小さいためと考えられる。

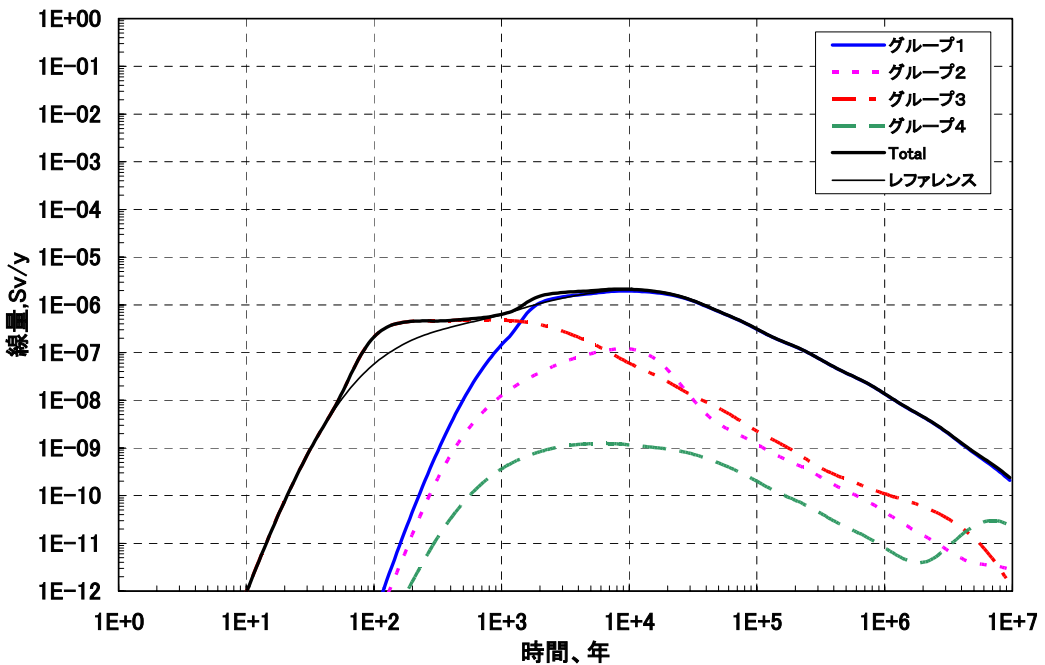
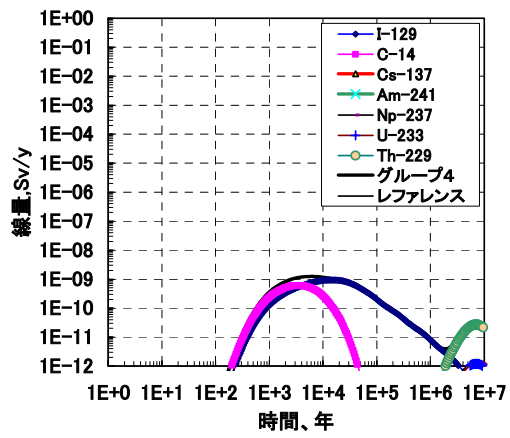
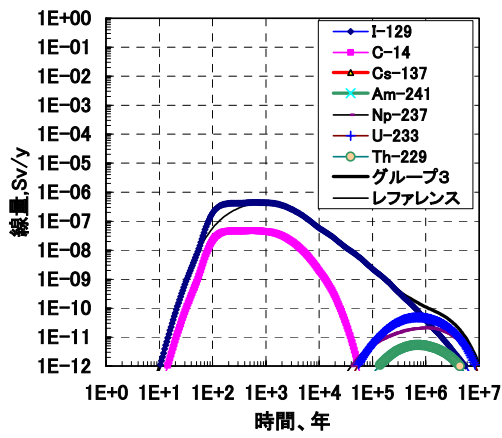
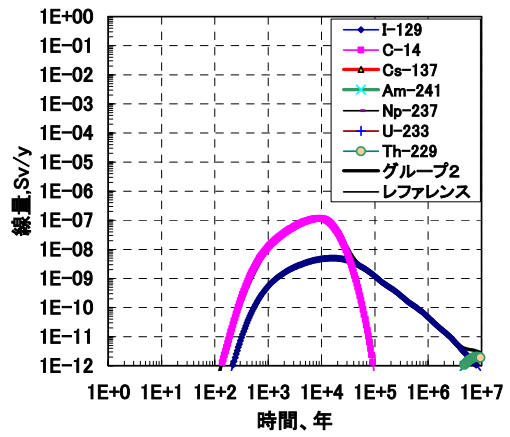
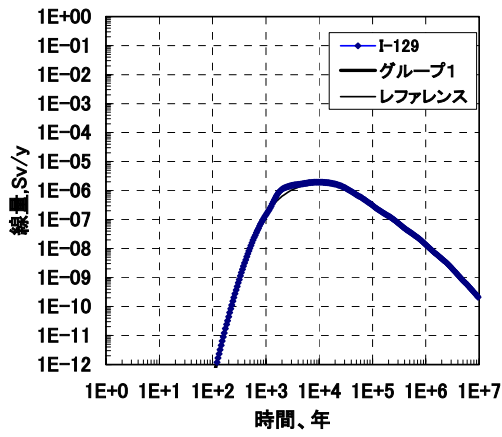


図-11 ガス影響ケース解析結果

3. 結論

代替ケースに用いられた解析モデル及びパラメータ設定値をまとめると共に、各代替ケースの線量の解析結果を提示した。全ての代替ケースの条件において、線量の最大値はレファレンスケースでの最大値（約 $2\mu\text{Sv/y}$ ）の数倍程度の範囲に収まり、わが国の自然放射能による影響（ $900\sim 1200\mu\text{Sv/y}$ ）及び諸外国の線量基準（ $100\sim 300\mu\text{Sv/y}$ ）を下回る結果であった。

参考文献

- 安藤賢一，納多勝，山本幹彦，三原守弘(2005):TRU 廃棄物処分におけるガス発生・移行解析, JNC TN8400 2005-026.
- 千葉保，笹本広，三木崇史，稲垣学，油井三和（1999）：ニアフィールドにおける酸化還元状態の変遷に関する予察解析，核燃料サイクル開発機構 JNC TN8400 99-027.
- Degueldre, C., Pfeiffer, H. R., Alexander, W., Wernli, B. and Bruetsch, R. (1996) : Colloid properties in granitic groundwater systems. I: Sampling and characterisation, Applied Geochemistry, Vol.11, pp.677-695.
- Degueldre, C. (1994) : Colloid properties in groundwaters from crystalline formations, Nagra Technical Report 92-05.
- 動力炉・核燃料開発事業団 (1996) : 地層処分研究情報交換会報告書, PNC TN1100 96-010.
- Grindrod, P. (1993) : The impact of colloids on the migration and dispersal of radionuclides within fractured rock, Journal of Contaminant Hydrology, Vol.13, pp.167-181.
- 核燃料サイクル開発機構(1999):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, 地層処分研究開発第2次取りまとめ, JNC TN1400 99-020, 021, 022, 023.
- 黒澤進 (2005) : 高レベル放射性廃棄物地層処分システムにおける核種移行評価に及ぼすコロイド影響に関する研究, 核燃料サイクル開発機構 JNC TN8400 2005-007
- Mihara, M. and Sasaki, R. (2005) : RAMDA; Radio-nuclides Migration Datasets (RAMDA) on cement, bentonite and rock for TRU waste repository in Japan, JNC TN8400 2005-027.
- Prieve, D.C. and Hoysan, P.M. (1978) : Role of colloidal forces in hydrodynamic chromatography, Journal of Colloid Interface Science, Vol.64, No.2, pp.201-213.
- 佐藤治夫，芦田敬，小原幸利，油井三和，梅木博之，石黒勝彦（1992）：ベントナイト及び岩石中の核種の実効拡散係数, PNC TN8410 92-164.

添付資料 代替ケースにおける解析に関する補足資料

代替ケースの解析では、TRU2 次レポート 4.5.1 で分類された解析ケースに応じた評価を実施した。その際、人為的な条件となる設計条件で排除できるシナリオについては、評価の対象からは除外した。TRU2 次レポートでの処分場の設計は、幅広い地質環境に対して評価を実施していることから、概念設計の段階である。今後、具体的な地質条件が決定される場合には、保守的に見積もられた条件が現実的なものに絞られるものと予想される。その反面、処分場の設計に制約が加えられる可能性も現段階では否定できない。そのため、ここでは、仮想的な設計条件として以下の3つの事象について予備的な代替ケースを作成し解析を実施した。

- ・ グループ3の硝酸塩の影響が、他のグループの廃棄体及び移行経路に及ぼすケース
- ・ 硝酸イオンが還元され生成するアンモニアが核種と錯体形成するケース
- ・ 掘削影響領域の流量が増加するケース

①硝酸塩による影響がグループ1, 2, 4に及ぶ場合の核種移行解析結果

●解析条件

第2次 TRU レポートの基本的な処分概念においては、グループ3を他の廃棄体と分離する処分が考えられている。しかしながら、処分地層を特定しない現時点では硝酸塩プルームの挙動に対して正確な予測を行うことは困難であり、また、処分場が決定された場合においても、地形や地質条件の制限によって硝酸塩を含むグループ3を他のグループと確実に分離し得ない可能性も否定できない。そのため、グループ1, 2, 4にグループ3から生じた硝酸塩プルームが影響する仮想的なケースについて評価を実施した。

硝酸塩プルームが影響を及ぼす可能性として、以下に示す2つのケースを仮定する。

- ・ 天然バリア中の核種の移行経路に影響を及ぼすケース(ケース1)
- ・ 人工バリア及び天然バリア中の核種の移行経路に影響を及ぼすケース(ケース2)

硝酸塩プルームの核種移行パラメータに及ぼす影響については、グループ3におけるレファレンスケースでの想定と同様に、高イオン強度でかつ酸化性の雰囲気に変動するものと仮定し、溶解度や収着分配係数の設定を行った。表-添付1に硝酸塩影響ケースの溶解度及び収着分配係数の設定値を示す。

表-添付1 硝酸塩影響ケースにおける設定値

単位: m ³ /kg		収着分配係数			
		グループ1	グループ2	グループ3	グループ4
セメント系 充填材		グループ3のレファレンスに同じ	グループ3のレファレンス設定×ISA影響 (TRU:1/20, 他:1)	-	グループ3のレファレンスに同じ
	C	0	0	0	0
	I	0	0	0	0
	Cs	0.0025	0.0025	0.0025	0.0025
	Th	0.25	0.0125	0.25	0.25
	U	0.025	0.00125	0.025	0.025
	Np	0.25	0.0125	0.25	0.25
	Am	0.25	0.0125	0.25	0.25
緩衝材		グループ3のレファレンスに同じ	グループ3のレファレンスに同じ		
	C	0	0	-	-
	I	0	0	-	-
	Cs	0.01	0.01	-	-
	Th	0.1	0.1	-	-
	U	0.005	0.005	-	-
	Np	0.005	0.005	-	-
	Am	1	1	-	-
母岩 ケース2		グループ3のレファレンスに同じ	グループ3のレファレンスに同じ	レファレンスに同じ	グループ3のレファレンスに同じ
	C	0	0	0	0
	I	0	0	0	0
	Cs	0.005	0.005	0.005	0.005
	Th	1	1	1	1
	U	0.005	0.005	0.005	0.005
	Np	0.005	0.005	0.005	0.005
	Am	5	5	5	5
単位: mol/m ³		溶解度			
		グループ1	グループ2	グループ3	グループ4
セメント系 充填材		レファレンスと海水系のRegion I, II, 酸化性の最大値	レファレンスと海水系のRegion I, II, 酸化性の最大値×ISA影響 (TRU:500, 他:1)	-	-
	C	易溶性	易溶性	-	-
	I	易溶性	易溶性	-	-
	Cs	易溶性	易溶性	-	-
	Th	1.0E-06	2.0E-05	-	-
	U	5.0E+01	1.0E+03	-	-
	Np	5.0E-02	1.0E+00	-	-
	Am	5.0E-07	1.0E-05	-	-

●硝酸塩影響ケースにおける解析結果

解析結果を図-添付1及び図-添付2に示す。

硝酸塩影響がグループ3以外のグループの天然バリア中の移行経路に影響を及ぼすケース(図-添付1)では、各グループで約3~4倍程度の最大線量の増加が見込まれる。線量に最も寄与する廃棄体はグループ1であり、レファレンスケースと同じであった。

硝酸塩影響が人工バリア内部及び天然バリアに影響を及ぼすケース(図-添付2)では、グループ1, 2では4倍程度の最大線量の増加に止まるが、グループ4のみは、20倍程度の線量の増加となった。これは、グループ4で最大線量に寄与する核種であるI-129の人工バリア内部での収着分配係数の大幅な低下によるものと考えられる。グループ1でも、同様の影響が予想されるが、グループ1では、核種の濃度が高く収着の非線形性を考慮していることから、I-129の廃棄体への収着分配係数の変動がグループ4に比較して小さいため、被ばく線量の変動範囲が小さなものとなったと予想される。線量に最も寄与する廃棄体はグループ1であり、レファレンスケースと同じであった。

ケース1及びケース2の両ケース共に、線量の最大値は $10\mu\text{Sv/y}$ を下回る結果となった。

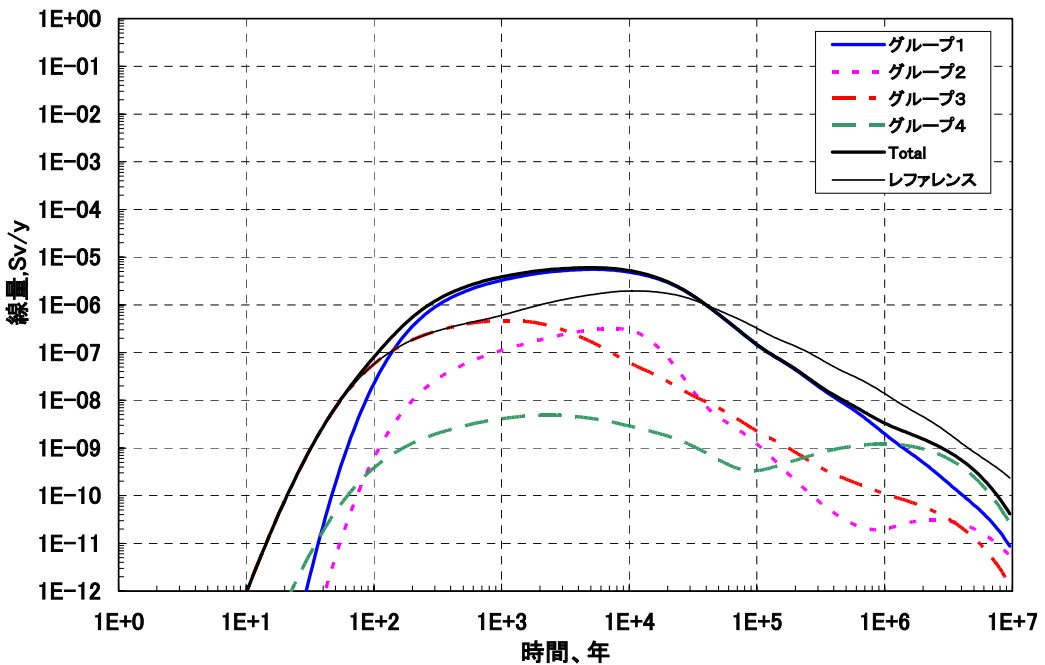
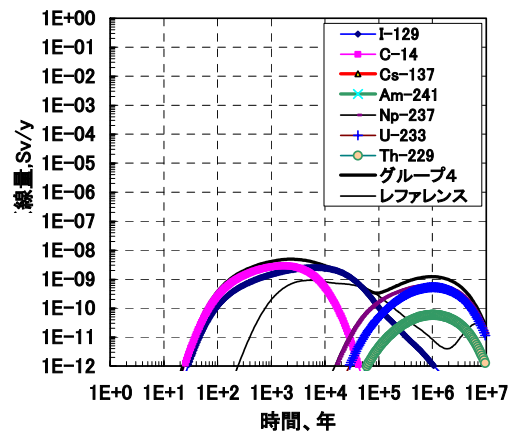
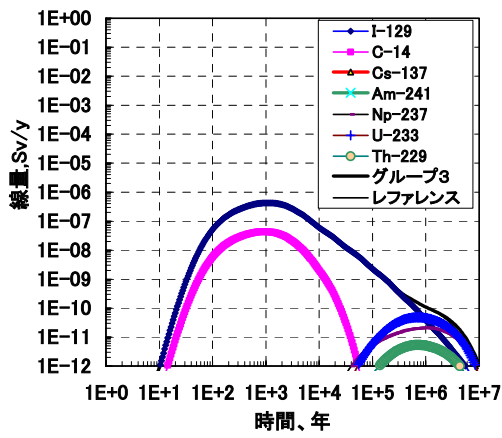
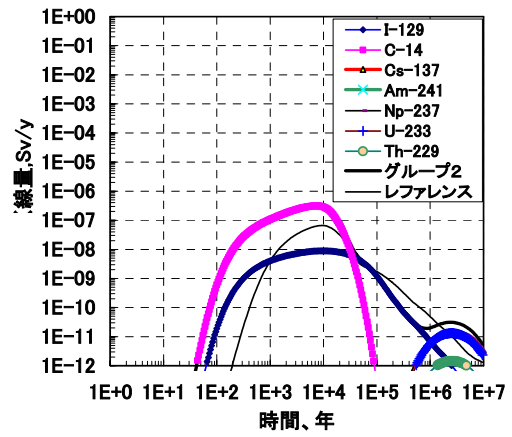
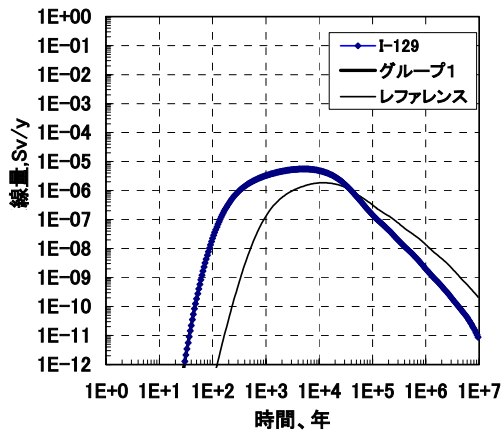


図-添付1 硝酸塩影響ケース, ケース1

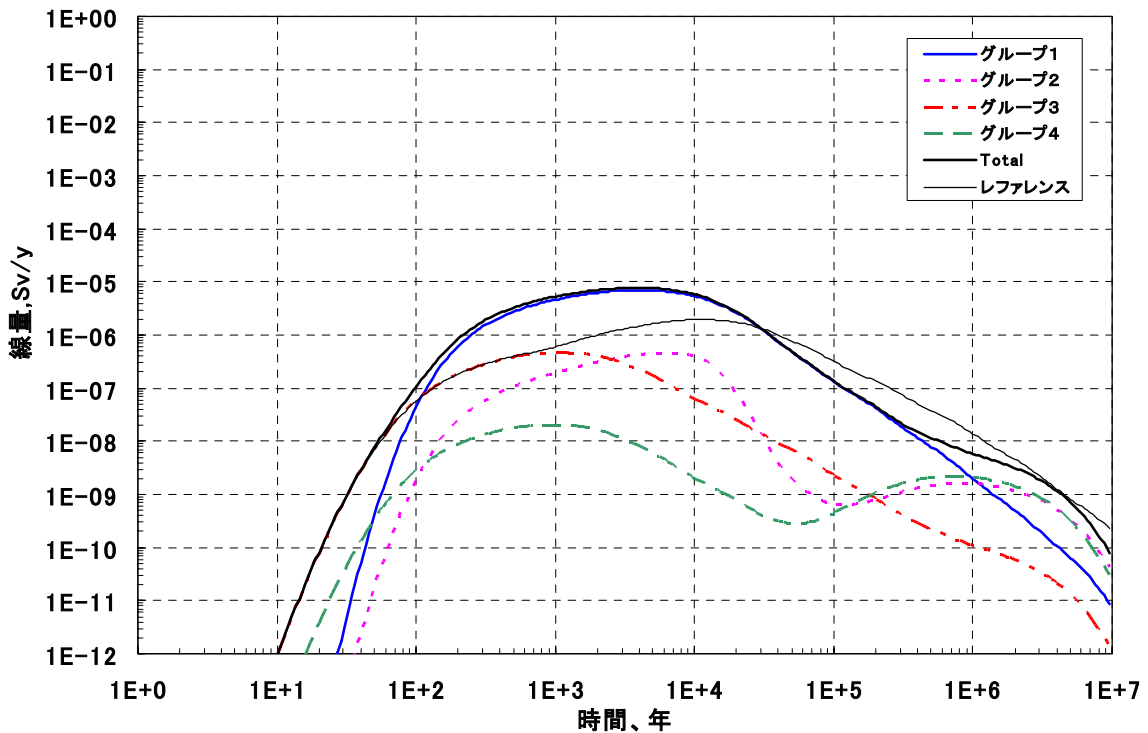
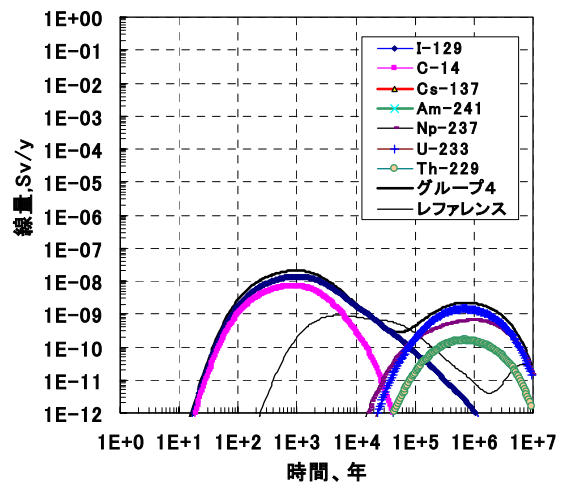
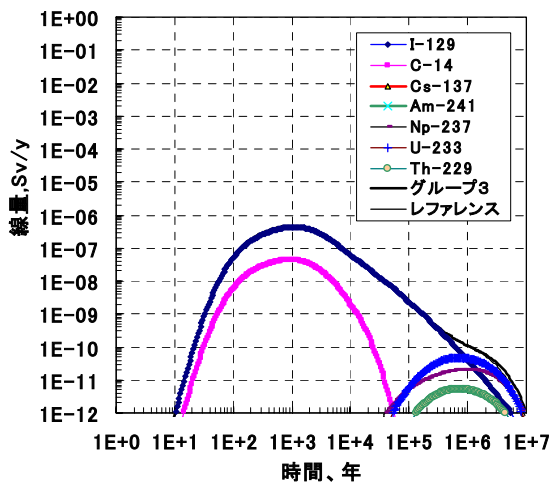
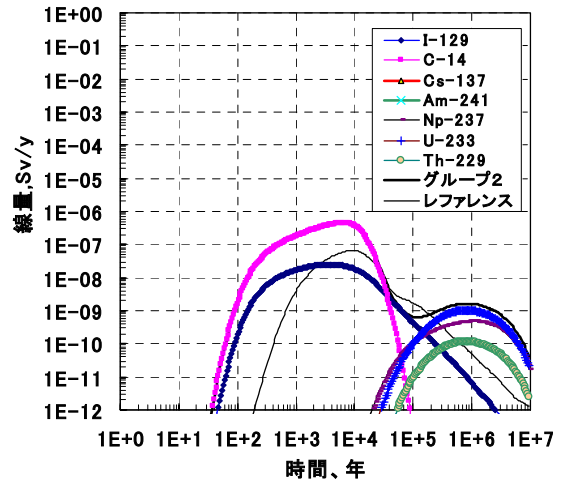
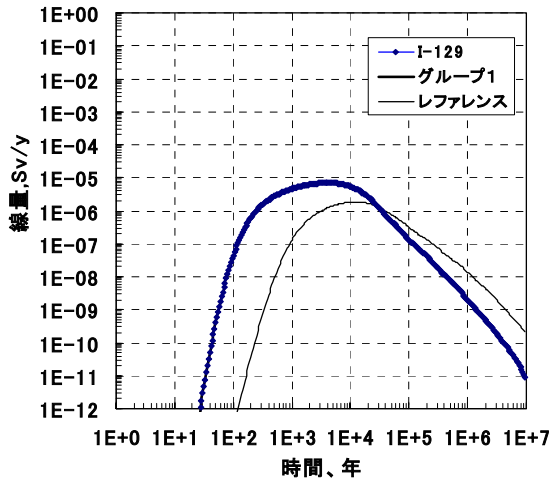


図-添付2 硝酸塩影響ケース, ケース 2

②硝酸イオンが還元され生成するアンモニアが核種と錯体形成するケース

第2次 TRU レポートにおけるレファレンスケースにおいては、グループ3の廃棄体に対して硝酸塩の影響を考慮した解析が行われている。硝酸塩の影響として、処分環境が酸化性条件及び高いイオン強度の条件になることを想定して核種移行パラメータの設定がされている。硝酸イオンや硝酸イオンが還元され生成するアンモニアが核種と錯体形成する可能性もあるため、この錯体生成の影響を考慮して、人工バリアや天然バリアに対する核種の収着分配係数を低下させた核種移行解析を実施した。

a. 解析方法

根拠資料集の資料4-9によれば、硝酸イオンの濃度にもよるが、錯体生成の可能性のある核種としてアクチノイド(V)が考えられる。酸化性条件を考慮するとアクチノイド(V)の元素として、Np及びPaが考えられる。また、アンミン錯体形成の可能性のある元素として、Co, Ni, Nb, Mo, Tc, Pd, Sn, Pb及びPoである。これらの情報から、TRU廃棄物の処分における核種移行解析対象のPo(生物圏評価で親核種と放射平衡として評価する)を除いた元素に対して、人工バリア及び天然バリアに対する収着分配係数をレファレンスケースの条件に対して仮想的に $0\text{m}^3/\text{kg}$ と設定して解析を行った。

b. 解析結果

解析結果を図添付3に示す。本解析は、2で述べたように、仮想的に過度に保守側のデータ設定が行われたケースである。線量を支配する核種はI-129, C-14(有機), Tc-99以外に、崩壊系列の核種のPb-210が線量を支配する核種となっている。その線量の最大値はI-129の $0.5\mu\text{Sv}/\text{年}$ と同程度であり、 $0.4\mu\text{Sv}/\text{年}$ であった。Np-237やPa-231は収着分配係数を $0\text{m}^3/\text{kg}$ にしているが、線量には大きく影響してこない。

c. 結論

硝酸イオンやアンモニアとの核種の錯体形成を考慮して、過度に保守的なデータ設定にて解析を行ったが、レファレンスケースの線量の最大値と大きく変わらなかった。線量に大きく影響する核種は、Pb-210であり、他の核種の影響はそれほど大きくはなかった。

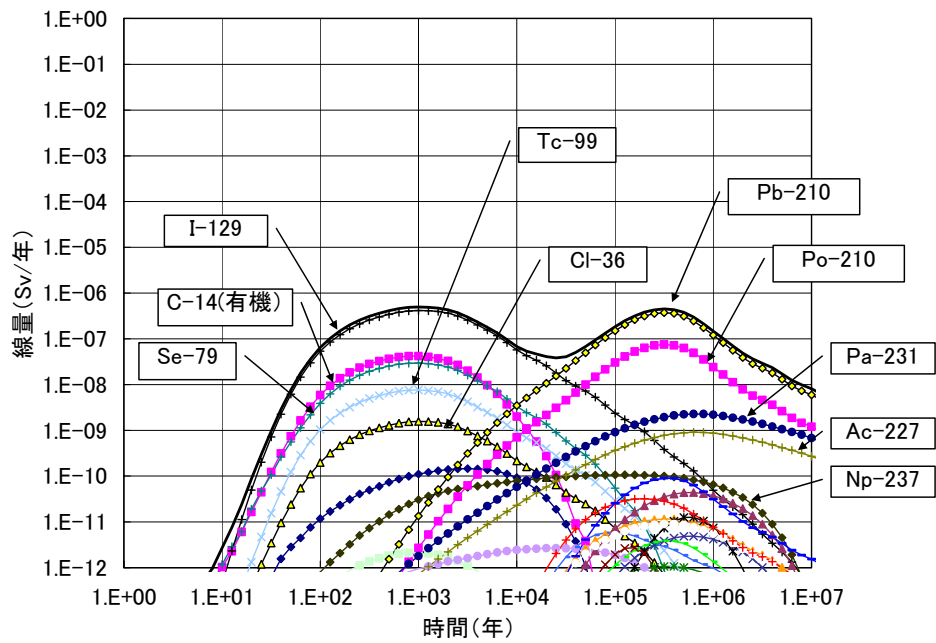


図-添付3 硝酸塩影響代替ケース

③掘削影響領域の流量の増加が想定される場合の核種移行解析結果

処分坑道に対して地下水流向が平行となる場合には、流向が坑道に垂直な場合に比較して数百倍となる可能性が水理解析で示されている(根拠資料 4-6 参照)。処分場の設計概念では、流向に対して坑道が垂直に配置されるものと想定しているが、仮想的に掘削影響領域内部の流量が増加するケースについて感度解析を実施した。核種移行率への影響の程度を確認するために、流向が坑道に垂直な場合の掘削影響領域を通過する流量を基準とし、その倍率をパラメータとして検討を実施した。

図-添付 4 に解析結果を示す。各グループの最大線量は、基準とした流量の 40～50 倍程度の流量の増加で停止している。これは、人工バリアの外側境界条件をゼロ濃度とする場合に漸近した結果であると考えられる。したがって、掘削影響領域の流量がこれ以上増加しても、最大線量は増加しないものと考えられる。

掘削影響領域の流量の増加を想定するケースでは、線量の最大値が 3 倍程度上昇する結果となった。

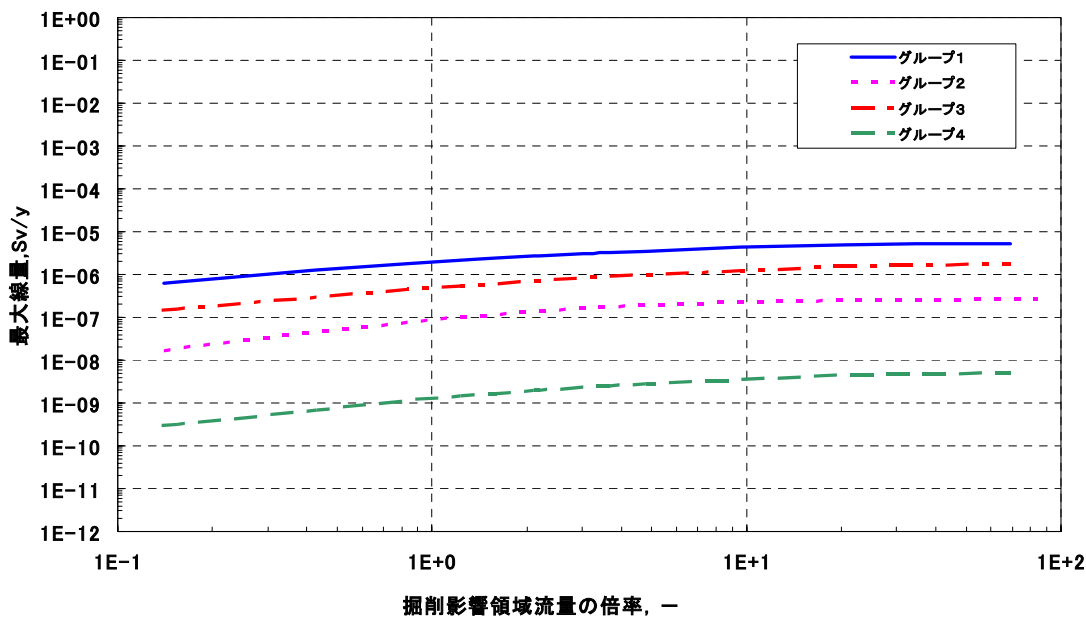
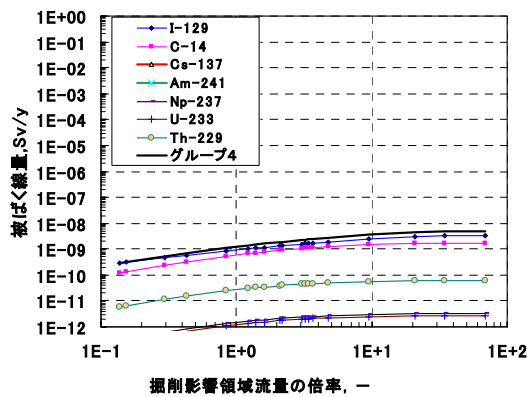
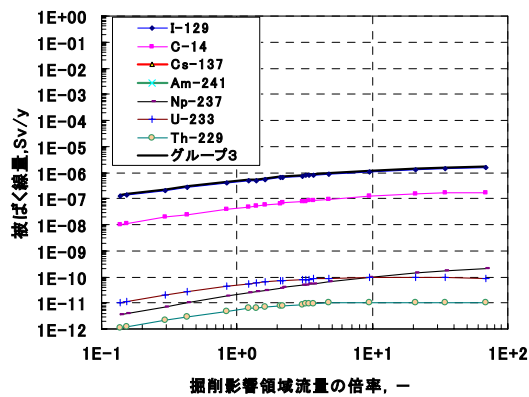
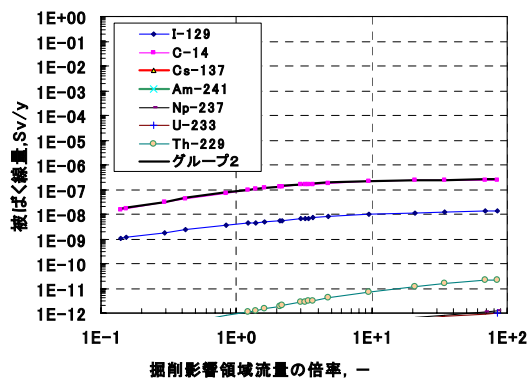
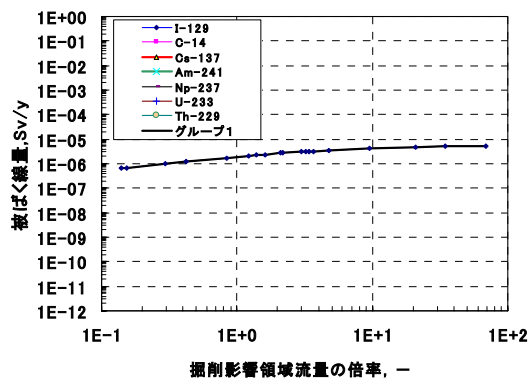


図-添付 4 掘削影響領域の流量の変動に対する最大線量の変化

4-15 包括的感度解析におけるパラメータ範囲の設定根拠(4.5.4.2)

1. はじめに

第2次 TRU レポート 4.5.4 で実施した包括的感度解析では、核種移行に関与するほぼ全てのパラメータについて範囲を設定することが必要である。実際の解析では、次項の添付に示すパラメータ範囲を参考として、解析の目的に合わせ一部のパラメータ値を固定しながら評価を実施していくこととなる。解析の端緒においては、添付に示す範囲を用い解析を実施した。

2. パラメータ値範囲の設定根拠

パラメータの変動範囲は、概ね、文献に示されたデータの上限及び下限から設定を行った。また、設計条件等については、概念設計で示された値の上下を採用することとした。

パラメータ値の不確実性の程度が不明なものに関しては、レファレンスで採用された設定値に対して感度解析的に桁で上下限を設定した。

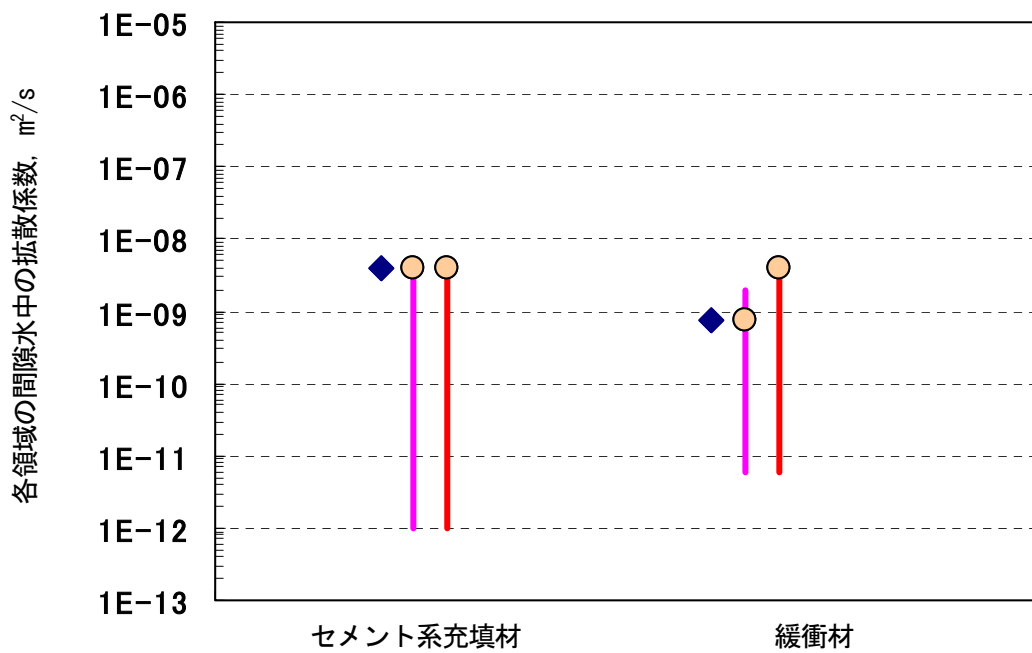
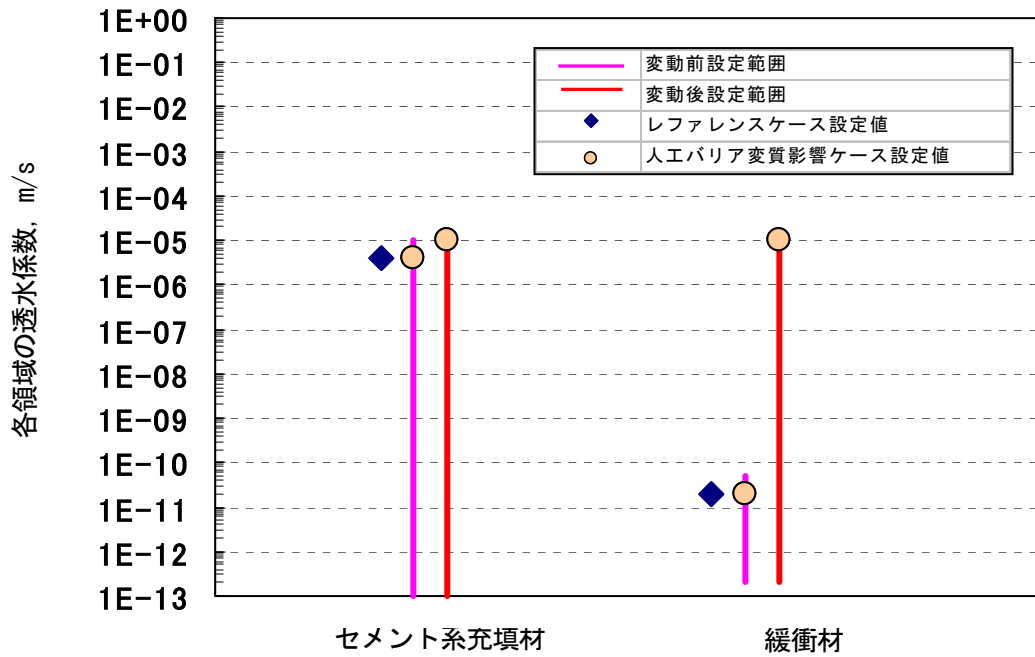
セメント系充填材の形状やセメント系充填材の処分密度、線量換算係数についても設計条件や処分環境のバリエーションに基づきパラメータ範囲を決定したが、第2次 TRU レポートにおける解析では使用しなかったため割愛した。

3. 結論

図-1 と図-2 に、第2次 TRU レポート 4.5.2 及び 4.5.3 で設定された解析条件の一部と包括的感度解析で設定されたパラメータ範囲を示す。包括的感度解析で用いられたパラメータは、図に示したパラメータ以外にも数多くあるが、コロイド影響等、解析のためのモデルが異なることから、レファレンスケースの条件と比較できないパラメータも多い。

図-1, 2 で示した例では、概ね、包括的感度解析のパラメータ値の設定範囲に、サブシナリオから作成された解析ケースで用いるパラメータ値が内包される。しかしながら、図-5 の溶解度設定では、人工バリア変質影響ケースに対しては、代替ケースでの設定が包括的感度解析におけるパラメータ設定範囲を超える結果となっている。これは、代替ケースにおいて概念モデルを変更したためであるが、このようなパラメータ範囲については、今後、パラメータ範囲及び適用モデルを見直していく必要があるものの、グループ2における解析結果(図-6 参照)に見られるように、線量最大値に影響を与えるパラメータは、Np の溶解度のみであった。また、Np の溶解度が 10^{-6}mol/dm^3 を超える場合には、線量の増加に影響を与えない結果となっている。このことは、溶解度がある程度以上となると、可溶性とみなすことが可能であり、設定の上限が必ずしも正確な必要はなく、上限値よりも線量に対する感度の情報がより重要となるものと考えられる。

図-10 まで、レファレンスケースの設定値と包括的感度解析の入力パラメータを比較する。包括的感度解析における設定は、概ね、レファレンス及び代替ケースの設定値が内包されるように選択されている。



(図は、グループ1に対する条件設定)

図-1 レファレンスケース及び人工バリア変質影響ケースと包括的感度解析の
パラメータ値範囲の比較

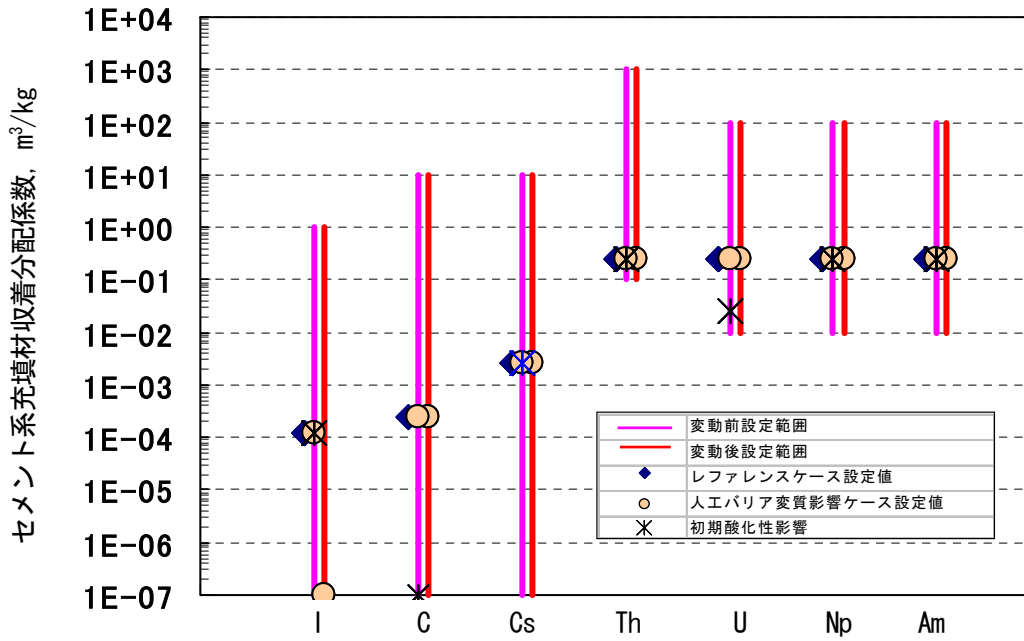


図-2 セメント系充填材の収着分配係数の設定範囲

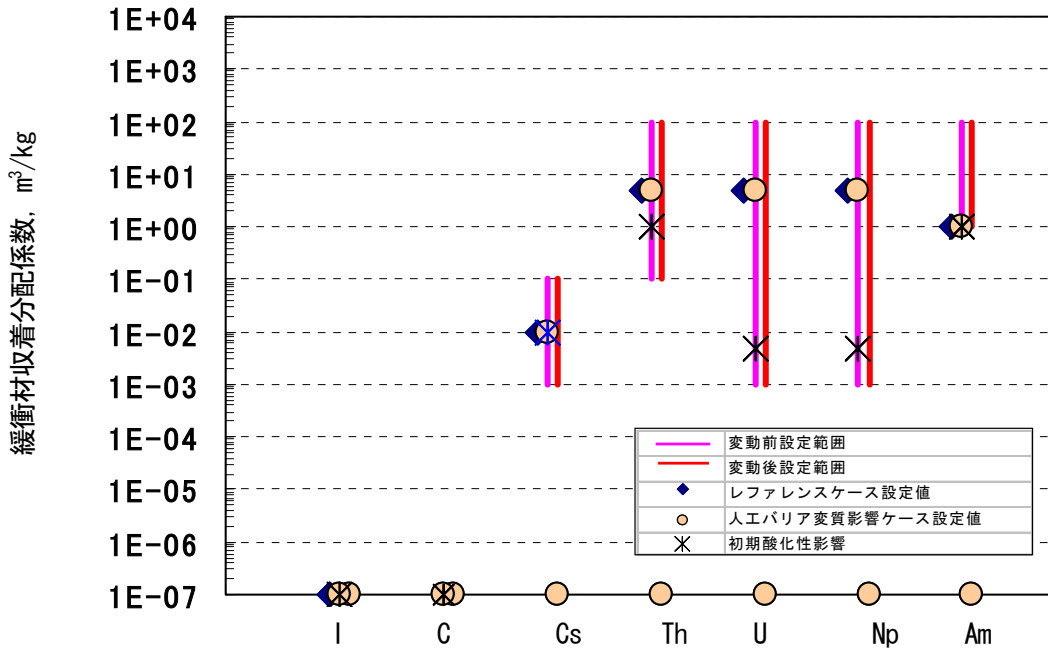
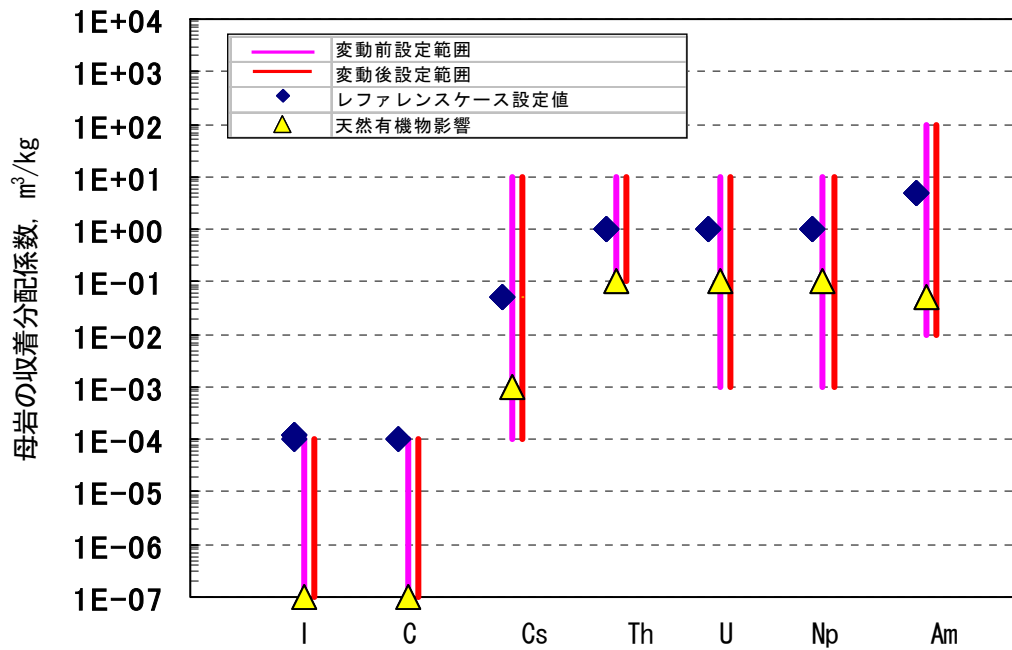


図-3 緩衝材の収着分配係数の設定範囲



(図は、グループ1の環境に対する条件設定)

図-4 母岩の収着分配係数の設定範囲

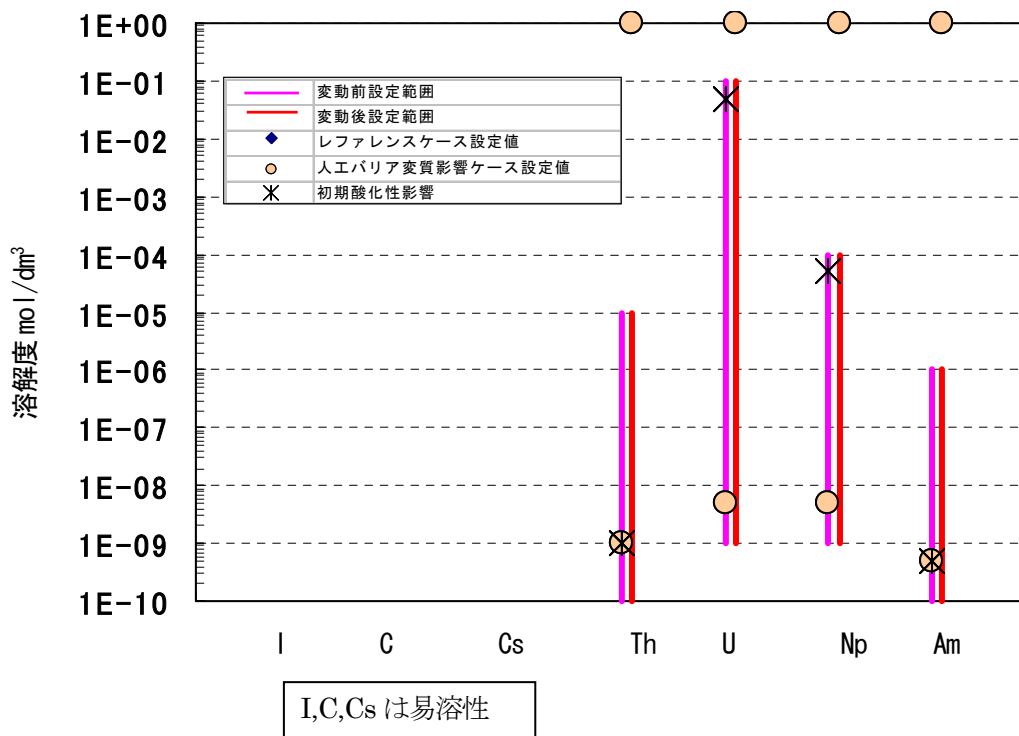


図-5 溶解度に対するパラメータ値設定範囲

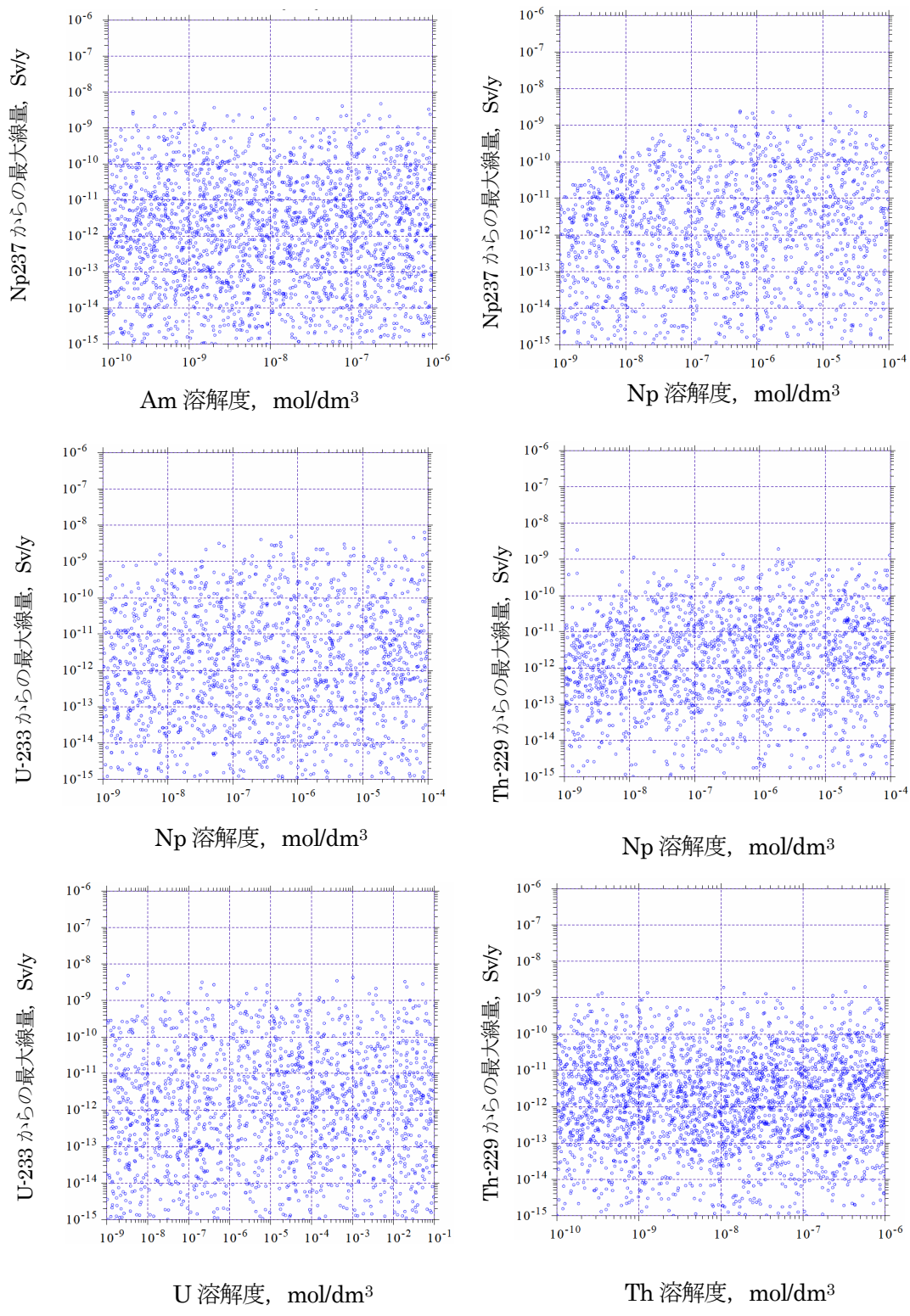


図-6 グループ2の各元素の溶解度と核種放出率の関係

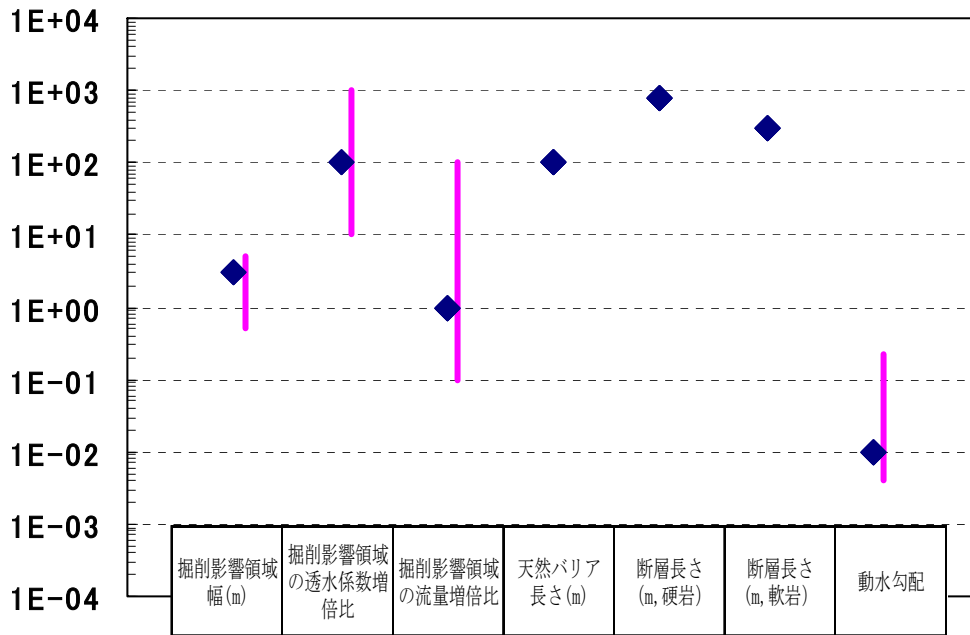


図-7 地質環境に対する設定値 1

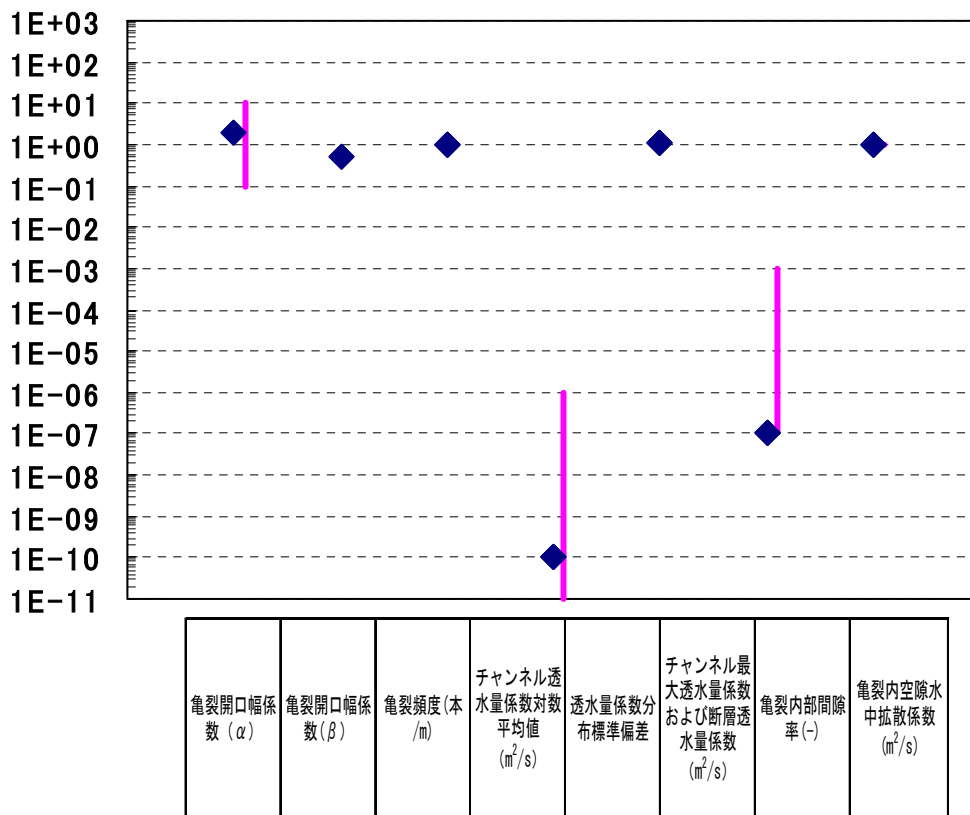


図-8 地質環境に対する設定値 2

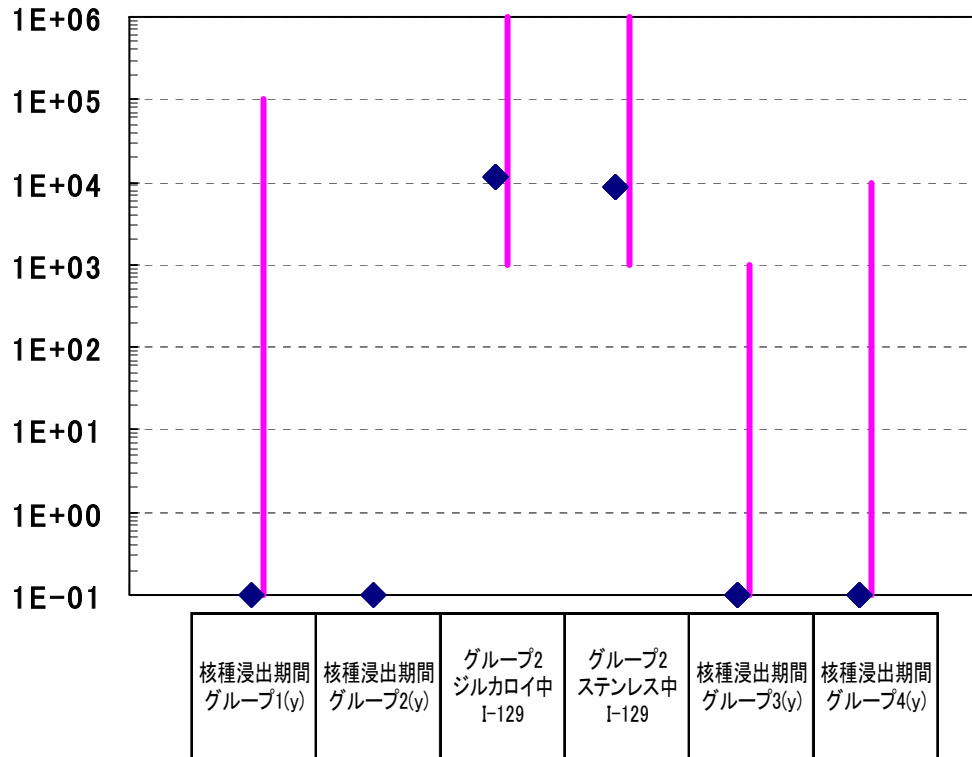


図-9 核種浸出期間に対する設定

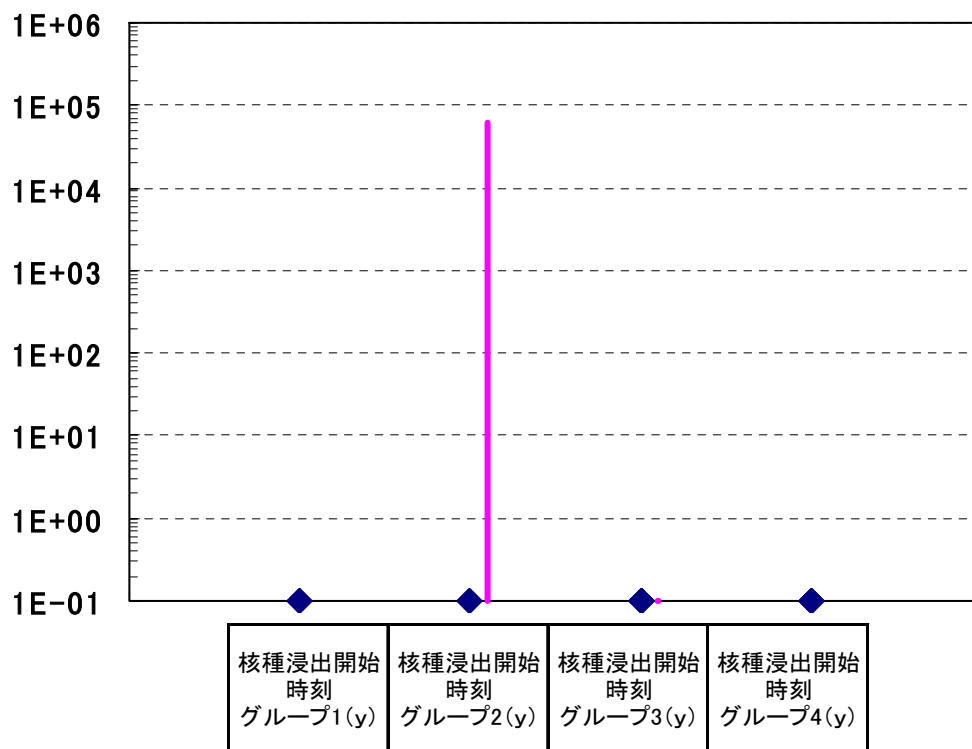


図-10 核種閉じ込め期間に対する設定

表-1 設計条件：人工バリア厚さ，真密度

パラメータ	領域	レファレンス設定	最小値	最大値	*適用	備考（パラメータ設定根拠）
緩衝材厚さ(m) グループ 1, 2	緩衝材	1	0.1	3	線形	現実的な設計範囲として想定
緩衝材厚さ(m) グループ 3, 4	緩衝材	0	—	—	—	—
モルタル真密度 (kg/m ³)	セメント系充填材	2,580	—	—	—	第2次 TRU レポート 4.5.2 参照
ベントナイト真密度(kg/m ³)	緩衝材	2,680	—	—	—	ベントナイト中のスメクタイは48%、ベントナイトの混合率70%（けい砂30%）を考慮して設定。 クニゲル V1：2,700kg/m ³ ，ケイ砂：2,640kg/m ³ より 2,682kg/m ³ を算出。一桁目を丸めて設定。
岩真密度(kg/m ³)	母岩	2,700	—	—	—	第2次 TRU レポート 4.5.2 参照 酸性岩（花崗岩）のデータを使用

*適用：解析時のサンプリング方法を表す。線形/Uniform分布からサンプリング，対数/Log-Uniform分布からサンプリング

表-2 解析条件：核種浸出開始時刻,分散長比率

パラメータ	領域	レファレンス設定	最小値	最大値	適用	備考（パラメータ設定根拠）
廃棄体からの核種の浸出開始時刻(年) グループ 1, 3, 4	セメント系充填材	0	—	—	—	処分後速やかに、廃棄体は地下水と接触するものとした。
廃棄体からの核種の浸出開始時刻(年) グループ 2	セメント系充填材	0	0	6E4	対数	現在、ハル・エンドピースからの核種の浸出を抑制するため廃棄体容器等の開発が行われ、C-14については、数万年間（6 万年）の閉じこめ性を確保することで、グループ 2 に起因する線量を低下させることが可能であるとの見通しが示されている（第 2 次 TRU レポート 6 章参照）。このため、パラメータ範囲を速やかな接触から 6 万年までと設定した。
分散長比率	人工バリア全領域	0.1	—	—	—	各人工バリアの領域に対して 1 /10 とした。
分散長比率	母岩	0.1	0.01	1	対数	（核燃料サイクル開発機構 d, 1999, pV-64）に示される分散長幅、0.01～1 の範囲を想定した。

表-3 解析条件：掘削影響領域流速像倍率，掘削影響領域厚さ，天然バリア長さ，動水勾配，断層破碎帯長さ

パラメータ	領域	レファレンス設定	最小値	最大値	適用	備考（パラメータ設定根拠）
掘削影響領域幅(m)	掘削影響領域	3	0.5	5	対数	最小値は（核燃料サイクル開発機構 a, 1999, V-51）に示されている 0.5m とした。 レファレンス設定値はロックボルト長さ 3m を採用。 最大値は、坑道半径程度として、広い範囲を適用した。
掘削影響領域の透水係数増倍比率	掘削影響領域	100	10	1,000	対数	ロックボルト施工による透水性の上昇を保守的に考慮したレファレンス値に対して，上下 1 桁の変動を考慮した。
掘削影響領域流量倍率	掘削影響領域	-	0.1	100	対数	0 濃度境界条件に達する程度大きな倍率の範囲まで仮定した。
天然バリア長さ	母岩	100	-	-	-	（核燃料サイクル開発機構、2000, p4-210, p4-233）を参照。亀裂ネットワークモデルにより導出された水理環境と整合性するように，固定値とした。
断層長さ（結晶質岩系）	断層	800	-	-	-	H12 レポートと同じ設定とした。 処分深度 1,000m に対して破碎帯 800m を想定
断層長さ（堆積岩系）	断層	300	-	-	-	H12 レポートと同じ設定とした。 処分深度 500m に対して破碎帯 300m
動水勾配	全域	0.01	0.004	0.23	対数	0,01：平野 0.05：山地／丘陵 変動範囲については（核燃料サイクル開発機構 b, 1999, III-29, 図 3.3-3 から）平均値 $10^{-1.5}$ 、標準偏差 0.86 として、 $\pm 2\sigma$ の範囲で設定。

表-4 バリア特性：核種放出に関するパラメータ（核種浸出期間：グループ1）

パラメータ	領域	レファレンス設定	最小値	最大値	適用	備考（パラメータ設定根拠）
グループ1 核種浸出期間 (y) C-14	セメント系充填材	0.1	0.1	1E5	対数	浸出期間に関しては、ガラス固化、HIP、セメント固化等の今後のヨウ素保持材料の新技术の投入も見込み、セメント固化体や銅マトリックス固化体に対して期待されている保持性能 10 ⁵ 年（斉藤ほか、2001）（福本ほか、2001）を考慮し、最大浸出期間を 10 ⁵ 年とした。レファレンス設定値は最小値とし、瞬時溶解に近い値である 0.1年とした。
I-129	セメント系充填材	0.1	0.1	1E5	対数	
Cs-137	セメント系充填材	0.1	0.1	1E5	対数	
Th-229	セメント系充填材	0.1	0.1	1E5	対数	
U-233	セメント系充填材	0.1	0.1	1E5	対数	
Np-237	セメント系充填材	0.1	0.1	1E5	対数	
Am-241	セメント系充填材	0.1	0.1	1E5	対数	

表-5 バリア特性：核種放出に関するパラメータ（核種浸出期間：グループ2）

パラメータ	領域	レファレンス設定	最小値	最大値	適用	備考（パラメータ設定根拠）
グループ2 核種浸出期間（y） C-14：酸化膜分	セメント系充填材	0.1	—	—	—	C-14の含まれる割合は第2次TRUレポート4.5.2から設定（0.13）。 ジルカロイ酸化皮膜に含まれるC-14を瞬時に溶解するとした。
C-14：ステンレス鋼分	セメント系充填材	8,500	1E3	1E6	対数	C-14の含まれる割合は第2次TRUレポート4.5.2から設定（0.34）腐食速度を感度解析的に幅広く設定。
C-14：ジルカロイ分	セメント系充填材	11,400	1E3	1E6	対数	C-14含まれるの割合は第2次TRUレポート4.5.2から設定（0.53） 腐食速度を感度解析的に幅広く設定。
I-129	セメント系充填材	0.1	—	—	—	表面付着および酸化皮膜分を考慮して瞬時溶解に近い値である0.1年とした。
Cs-137	セメント系充填材	0.1	—	—	—	
Th-229	セメント系充填材	0.1	—	—	—	
U-233	セメント系充填材	0.1	—	—	—	
Np-237	セメント系充填材	0.1	—	—	—	
Am-241	セメント系充填材	0.1	—	—	—	

表-6 バリア特性：核種放出に関するパラメータ（核種浸出期間：グループ3）

パラメータ	領域	レファレンス設定	最小値	最大値	適用	備考（パラメータ設定根拠）
核種浸出期間 (y) グループ3 C-14	セメント系充填材	0.1	0.1	1E3	対数	アスファルト浸出試験（九石ほか、1997）における浸出率は $3.65e-03m/y$ 、半径 $0.5m$ と想定すると、 $137y$ で全溶解する。この場合の浸出率は $7.3e-03/y$ である。これらの値を参考にして、最大浸出期間を 10^3 年とした。最小値は、瞬時溶解に近い値である 0.1 年とした。
I-129	セメント系充填材	0.1	0.1	1E3	対数	
Cs-137	セメント系充填材	0.1	0.1	1E3	対数	
Th-229	セメント系充填材	0.1	0.1	1E3	対数	
U-233	セメント系充填材	0.1	0.1	1E3	対数	
Np-237	セメント系充填材	0.1	0.1	1E3	対数	
Am-241	セメント系充填材	0.1	0.1	1E3	対数	

表-7 バリア特性：種放出に関するパラメータ（核種浸出期間：グループ4）

パラメータ	領域	レファレンス設定	最小値	最大値	適用	備考（パラメータ設定根拠）
グループ4 核種浸出期間（y） C-14	セメント系充填材	0.1	0.1	1E4	対数	グループ4の浸出率に関しては、グループ3の浸出率を参考にしつつ、アスファト固化体よりも小さな浸出率が期待できるものと考えて、最大浸出期間を10 ⁴ 年とした。最小値は、瞬時溶解に近い値である0.1年とした。
I-129	セメント系充填材	0.1	0.1	1E4	対数	
Cs-137	セメント系充填材	0.1	0.1	1E4	対数	
Th-229	セメント系充填材	0.1	0.1	1E4	対数	
U-233	セメント系充填材	0.1	0.1	1E4	対数	
Np-237	セメント系充填材	0.1	0.1	1E4	対数	
Am-241	セメント系充填材	0.1	0.1	1E4	対数	

表-8 バリア特性：セメント系充填材のバリア特性に関するパラメータ

パラメータ	領域	レファレンス設定	変動前		変動後		適用	備考（パラメータ設定根拠）
			最小	最大値	最小	最大値		
透水係数 (m/s)	セメント系充填材	4E-6	1E-13	1E-5	1E-13	1E-5	対数	<p>変動前の最小値および最大値は、以下を参照して健全時コンクリートの値を想定した。</p> <p>健全なコンクリートの透水係数（供試体レベルの試験）</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ 1.0E-13～1.0E-12m/s：（岡田ほか、p202、図 4-76） <p>健全なコンクリートの透水係数（実規模レベルの試験）</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ 1.0E-11m/s：（坂口ほか、1997） ・ セメントモルタルにひび割れがない場合の間隙率との関係式 $k = 4.34 \times 10^{-9} \varepsilon^3 / (1 - \varepsilon)^2$ $\varepsilon = 0.19$ <p>コンクリートに対する水の絶対透過係数</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ 1.0E-11m/s（Mayer, et al, 1992） <p>変動後については、最小値は変動前の最小値と同じとし、最大値については（核燃料サイクル開発機構ほか、2000、4-209）を参考として、劣化したコンクリート（C-S-H ゲルがほとんど存在しない）の状態を仮定し、細粒砂程度の透水係数 1. E-05 を想定した。</p>
空隙水中の拡散係数 (m ² /s)	セメント系充填材	4E-9	1E-12	4E-9	1E-12	4E-9	対数	<p>変動前の最小値及び最大値については（Idemitsu, et al, 1997）、（稲場ほか、1998）の試験結果およびセメントモルタルにひび割れがない場合の間隙率との関係式（$= 4. E-09 \varepsilon^{3.05}$）を参照して、1. 3E-13 及び 2. 0E-12（間隙率 0. 1）、3. 0E-11（間隙率 0. 19）を健全なコンクリートの実効拡散係数の範囲とし、これらを参照して設定した。変動後については、最小値は変動前と同じとし、最大値については（動力炉・核燃料開発事業団、1992、4-108）の自由水中の Cs の拡散係数（自由水中の拡散係数の最大値：60 度）4. 0E-09m²/s とした。</p>
間隙率 (-)	セメント系充填材	0. 19	0. 1	0. 2	0. 1	0. 46	線形	<p>間隙率については、（核燃料サイクル開発機構ほか、2000、4-209）を参考とし、健全なセメント系材料の間隙率（0. 15）の変動を 0. 1～0. 2 と仮定した。変動後については、最小値は変動前と同じとし、最大値についてはモルタル中のセメントペースト部分が全て流出したことを想定し、0. 46 と仮定。</p>

表-9 バリア特性：緩衝材のバリア特性に関するパラメータ

パラメータ	領域	レファレンス設定	変動前 最小～最大値		変動後 最小～最大値		適用	備考（パラメータ設定根拠）
透水係数 (m/s)	緩衝材	2E-11	2E-13	5E-11	2E-13	1E-5	対数	変動前については、(核燃料サイクル開発機構 c, 1999, IV-88, 89) を参考として、温度及び液性（蒸留水／人工海水）の違いを考慮して変動範囲を 2.0E-13～5.0E-11 と仮定し、変動範囲を設定した。 変動後については、最小値は基本条件の最小値と同じとし、最大値は緩衝材の劣化による水道形成等を考慮し、劣化したセメントと同じ細粒砂程度の透水係数を仮定した。
空隙水中の拡散係数 (m ² /s)	緩衝材	7.5E-10	6E-12	2E-9	6E-12	4E-9	対数	変動前については（核燃料サイクル開発機構 d, 1999, pV-47～50）を参考にして、核種による違い等を考慮して実効拡散係数として 2.0E-12～5.4E-10 の変動幅を設定した。間隙率を 0.33 として空隙水中の拡散係数を算出した。 変動後については、最小値は変動前の最小値と同じとし、最大値は、セメント系充填材と同様に Cs の自由水中の拡散係数を適用した。
間隙率 (-)	緩衝材	0.4	0.33	0.4	0.33	0.65	線形	間隙率に関して、変動前の最小値及び最大値については、乾燥密度を 1.6～1.8 として、真密度 2.7 のベントナイトの間隙率の変動範囲 0.33～0.4 を設定した。変動後については、最小値は変動前の最小値と同じとし、最大値は、(Noy, et al, 2000) に基づき上限を 0.65 とした。

表-10 バリア特性：掘削影響領域・堆積岩のバリア特性に関するパラメータ

パラメータ	領域	レファレンス設定	最小値	最大値	適用	備考（パラメータ設定根拠）
透水係数 (m/s)	掘削影響領域	—	—	—	—	堆積岩の母岩の透水係数に掘削影響領域の透水係数増倍比率を乗じて算出
透水係数 (m/s)	堆積岩	1E-09	1.0E-10	1.0E-06	対数	地質環境条件の設定範囲(1.0E-10～1.0E-08)の上側を2桁拡張して設定
空隙水中 拡散係数 (m/s)	掘削影響領域 ／堆積岩	3E-11	2.5E-12	4E-09	対数	(核燃料サイクル開発機構ほか、2000, 4-211)の天然バリアの実効拡散係数の変動範囲(3.0E-12～8.0E-10)と(核燃料サイクル開発機構 d, 1999, V-69)の母岩の間隙率0.2の天然バリアの実効拡散係数の変動範囲(5.0E-13～2.0E-11)を参照し、空隙拡散係数の範囲を設定した。
間隙率	掘削影響領域 ／堆積岩	0.3	0.15	0.6	対数	(核燃料サイクル開発機構ほか、2000, 1-24)の堆積岩系岩盤の間隙率から設定

表-11 バリア特性：結晶質岩のバリア特性に関するパラメータ (1/2)

パラメータ	領域	レファレンス設定	最小値	最大値	適用	備考 (パラメータ設定根拠)
亀裂開口幅係数 (α)	母岩	2	0.1	10	対数	(核燃料サイクル開発機構, 1999a) を参考とし亀裂開口幅と透水量係数に経験的なべき乗則を適用した。 β を固定し α の幅を設定する。亀裂開口幅 $2b = \alpha \sqrt{T}$ ここで、Tは透水量係数 (m^2/s)。
亀裂開口幅係数 (β)	母岩	0.5	0.5		—	
亀裂頻度(本/m)	母岩	0.3	—	—	—	(核燃料サイクル開発機構, 1999a) で用いられた亀裂ネットワークモデルでは、0.3 本/m (3次元亀裂密度 $0.8m^2/m^3$) の亀裂頻度を仮定している。ただし、これと等価の平行平板亀裂重ね合わせモデルでは、亀裂頻度は使用しない。
チャンネル透水量係数対数平均値 (m^2/s)	母岩	1E-10	1.0E-11	1.0E-06	対数	(核燃料サイクル開発機構ほか、2000) の平均透水量係数、釜石の測定データを反映して設定。透水量係数の分布は、対数正規分布を仮定する。
透水量係数分布標準偏差	母岩	1.07	1.07	—	—	(核燃料サイクル開発機構ほか、2000) の平均透水量係数、釜石の測定データを反映して設定。
チャンネル最大透水量係数および断層透水量係数 (m^2/s)	母岩	1E-7	透水量係数の分布の最大値を使用	—	—	平行平板亀裂重ね合わせモデルでの透水量係数上下限は、透水量対数平均値の $\pm 3\sigma$ とする。最大の透水量係数を $+3\sigma$ とする。
亀裂内部間隙率(-)	母岩	1	1	—	線形	(核燃料サイクル開発機構, 1999a) と同様のモデルを用いるものとし、開口亀裂を想定
亀裂内空隙水中拡散係数 (m^2/s)	母岩	4E-09	—	—	—	自由水中の C_s の拡散係数 (自由水中の拡散係数の最大値: $60^\circ C$) $4.0E-09m^2/s$

表-12 バリア特性：結晶質岩のバリア特性に関するパラメータ (2/2)

パラメータ	領域	レファレンス 設定	最小値	最大値	適用	備考 (パラメータ設定根拠)
マトリクス拡散深さ (m)	母岩	0.1	0.01	1	対数	(核燃料サイクル開発機構, 1999a) のデータ不確実性ケースの上限を設定、下限は (核燃料サイクル開発機構, 1999a) で示される亀裂周辺の母岩変質領域より設定を行った。
マトリクス実効拡散係数 (m ² /s)	母岩	1.5E-10	6E-12	4E-9	対数	(核燃料サイクル開発機構, 1999a) データ不確実性ケースの上下限を適用。最小の実効拡散係数 6E-14, 間隙率 0.01、最大の実効拡散係数 1E-10, 間隙率 0.03 より設定。レファレンス設定は、結晶質岩 (酸性岩) の値を用いる。
マトリクス拡散寄与面積比率 (-)	母岩	0.5	0.1	1	線形	(核燃料サイクル開発機構, 1999a) のデータ不確実性ケースの上下限を適用。
間隙率 (-)	母岩	0.02	0.003	0.08	線形	(核燃料サイクル開発機構, 1999a, VI-94) の母岩間隙率の振れ幅の上限を適用。

表-13 収着分配係数：セメント系充填材

パラメータ	領域	レファレンス設定	変動前 最小～最大値		変動後 最小～最大値		適用	備考（パラメータ設定根拠）
I の収着分配係数 (m ³ /kg)	セメント系充填材	0.000125	1E-7	1E0	1E-7	1E0	対数	<p>各元素の収着分配係数の最小値及び最大値については、以下の文献を参考に幅広に設定した。</p> <p>I の収着分配係数: JNC 技報 No. 14, 2002, P177 C の収着分配係数: JNC 技報 No. 14, 2002, P177 Cs の収着分配係数: JNC TN8400 2001-029 SDB Th の収着分配係数: AEA(実験値) U の収着分配係数: JNC TN8400 2001-029 SDB Np の収着分配係数: JNC 技報 No. 14, 2002, P177 Am の収着分配係数: JNC 技報 No. 14, 2002, P177</p> <p>I のレファレンス設定は、非線形吸着を考慮し 0.1 倍とする。遠心分離試験に基づくデータを用い、降水系地下水、RegionII の値を設定。グループ 2 に対して TRU 核種は、ISA 影響を考慮して 1/500 とする。</p>
C の収着分配係数 (m ³ /kg)	セメント系充填材	0.00025	1E-7	1E1	1E-7	1E1	対数	
Cs の収着分配係数 (m ³ /kg)	セメント系充填材	0.0025	1E-7	1E1	1E-7	1E1	対数	
Th の収着分配係数 (m ³ /kg)	セメント系充填材	0.25	1E-1	1E3	1E-1	1E3	対数	
U の収着分配係数 (m ³ /kg)	セメント系充填材	0.25	1E-2	1E2	1E-2	1E2	対数	
Np の収着分配係数 (m ³ /kg)	セメント系充填材	0.25	1E-2	1E2	1E-2	1E2	対数	
Am の収着分配係数 (m ³ /kg)	セメント系充填材	0.25	1E-2	1E2	1E-2	1E2	対数	

表-14 収着分配係数：緩衝材

パラメータ	領域	レフ アレ ンス 設定	変動前 最小～最大値		変動後 最小～最大値		適用	備考（パラメータ設定根拠）
I の収着分配係数 (m ³ /kg)	緩衝材	0	—	—	—	—	—	<p>各元素の収着分配係数の最小値及び最大値については、以下の文献を参考に幅広く設定した。</p> <p>I の収着分配係数： C の収着分配係数： Cs の収着分配係数： 最小値 H12 レポート, 第三分冊, VI-86 最大値 JNC 技報 No. 14, 2002, P154 Th の収着分配係数： 最小値 TRU 処分概念検討書, 4-214 最大値 JNC 技報 No. 14, 2002, P154 U の収着分配係数： 最小値 H12 レポート, 第三分冊, VI-86 最大値 JNC 技報 No. 14, 2002, P154 Np の収着分配係数： 最小値 H12 レポート, 第三分冊, VI-86 最大値 JNC 技報 No. 14, 2002, P154 Am の収着分配係数： 最小値 TRU 処分概念検討書, 4-214 最大値 JNC 技報 No. 14, 2002, P154</p> <p>遠心分離試験に基づくデータを用い、降水系地下水、RegionII の値を設定。</p>
C の収着分配係数 (m ³ /kg)	緩衝材	0	—	—	—	—	—	
Cs の収着分配係数 (m ³ /kg)	緩衝材	0.01	1E-3	1E-1	1E-3	1E-1	対数	
Th の収着分配係数 (m ³ /kg)	緩衝材	5	1E-1	1E2	1E-1	1E2	対数	
U の収着分配係数 (m ³ /kg)	緩衝材	5	1E-3	1E2	1E-3	1E2	対数	
Np の収着分配係数 (m ³ /kg)	緩衝材	5	1E-3	1E2	1E-3	1E2	対数	
Am の収着分配係数 (m ³ /kg)	緩衝材	1	1E0	1E2	1E0	1E2	対数	

表-15 収着分配係数：母岩

パラメータ	領域	レファレンス設定	変動前 最小～最大値		変動後 最小～最大値		適用	備考（パラメータ設定根拠）
I の収着分配係数 (m ³ /kg)	母岩	0.0001	1E-7	1E-4	1E-7	1E-4	対数	各元素の収着分配係数の最小値及び最大値については、以下の文献を参考に幅広に設定した。 I の収着分配係数： 最小値 最大値 TRU 処分概念検討書, 4-214 C の収着分配係数： 最小値 最大値 TRU 処分概念検討書, 4-214 Cs の収着分配係数： 最小値 H12 レポート, 第三分冊, VI-100 最大値 JNC 技報 No. 14, 2002, P154 Th の収着分配係数： 最小値 JNC 技報 No. 14, 2002, P154 最大値 JNC 技報 No. 14, 2002, P154 U の収着分配係数： 最小値 H12 レポート, 第三分冊, VI-100 最大値 JNC 技報 No. 14, 2002, P154 Np の収着分配係数： 最小値 H12 レポート, 第三分冊, VI-100 最大値 JNC 技報 No. 14, 2002, P154 Am の収着分配係数： 最小値 JNC 技報 No. 14, 2002, P154 最大値 JNC 技報 No. 14, 2002, P154
C の収着分配係数 (m ³ /kg)	母岩	0	1E-7	1E-4	1E-7	1E-4	対数	
Cs の収着分配係数 (m ³ /kg)	母岩	0.05	1E-4	1E1	1E-4	1E1	対数	
Th の収着分配係数 (m ³ /kg)	母岩	1	1E-1	1E1	1E-1	1E1	対数	
U の収着分配係数 (m ³ /kg)	母岩	1	1E-3	1E1	1E-3	1E1	対数	
Np の収着分配係数 (m ³ /kg)	母岩	1	1E-3	1E1	1E-3	1E1	対数	
Am の収着分配係数 (m ³ /kg)	母岩	5	1E-2	1E2	1E-2	1E2	対数	

表-16 溶解度

パラメータ	領域	レファレンス設定	変動前 最小～最大値		変動後 最小～最大値		適用	備考（パラメータ設定根拠）
I の溶解度 (mol/dm ³)	人工バリア領域	易溶性	易溶性	—	—	—	—	易溶性の解析上の溶解度設定 = 1,000mol/dm ³
C の溶解度 (mol/dm ³)	人工バリア領域	易溶性	易溶性	—	—	—	—	同上
Cs の溶解度 (mol/dm ³)	人工バリア領域	易溶性	易溶性	—	—	—	—	同上
Th の溶解度 (mol/dm ³)	人工バリア領域	1E-9	1E-10	1E-5	1E-10	1E-5	対数	各核種の溶解度の最小値及び最大値については、以下の文献を参考に幅広に設定した。 Th の溶解度： 最小値 TRU 処分概念検討書, 4-212 最大値 JNC 技報 No. 14, 2002, P154 U の溶解度： 最小値 JNC 技報 No. 14, 2002, P154 最大値 H12 レポート, 第三分冊, VI-100 Np の溶解度： 最小値 JNC 技報 No. 14, 2002, P154 最大値 H12 レポート, 第三分冊, VI-10Np の溶解度： Am の溶解度： 最小値 TRU 処分概念検討書, 4-212 最大値 JNC 技報 No. 14, 2002, P154
U の溶解度 (mol/dm ³)	人工バリア領域	5E-9	1E-9	1E-1	1E-9	1E-1	対数	
Np の溶解度 (mol/dm ³)	人工バリア領域	5E-9	1E-9	1E-4	1E-9	1E-4	対数	
Am の溶解度 (mol/dm ³)	人工バリア領域	5E-10	1E-10	1E-6	1E-10	1E-6	対数	

(ベントナイトを施工するグループ 1 および 2 のみに溶解度を想定する)

表-17 コロイドに関するパラメータ

パラメータ	領域	レファレンス設定	最小値	最大値	適用	備考（パラメータ設定根拠）
擬似コロイド流速比	セメント系充填材	—	1	2	線形	擬似コロイドの流速と平均地下水流速の比 (V_c/V) は、Grindrod (Grindrod, 1993) らの研究結果から 1.3 倍未満とされている。
擬似コロイド核種量	セメント系充填材	—	0	1	線形	擬似コロイド核種量 (χK_c) は、コロイド濃度 χ に擬似コロイドへの収着分配係数 K_c をかけて求める。コロイド濃度は保守的に見て 1ppm 未満であり (核燃料サイクル開発機構 d, 1999, VI-54)、吸着性の高い元素の収着分配係数を非常に高めに見積もって 1,000 [kg/m ³] としても、 χK_c の最大値は 1 となる。
擬似コロイド流速比	緩衝材	—	1	2	線形	セメント系充填材と同じ
擬似コロイド核種量	母岩	—	0	1	線形	セメント系充填材と同じ
擬似コロイド流速比	セメント系充填材	—	1	2	線形	擬似コロイドの流速と平均地下水流速の比 (V_c/V) は、Grindrod (Grindrod, 1993) らの研究結果から 1.3 倍未満とされている。また、鉛管流における理論値が 2 倍であることから 2 倍を設定した。
擬似コロイド核種量	緩衝材	—	0	1	線形	擬似コロイド核種量 (χK_c) は、コロイド濃度 χ に擬似コロイドへの収着分配係数 K_c をかけて求める。コロイド濃度は保守的に見て 1ppm 未満であり (核燃料サイクル開発機構 d, 1999, VI-54)、吸着性の高い元素の収着分配係数を非常に高めに見積もって 1,000 [kg/m ³] としても、 χK_c の最大値は 1 となる。

表-18 ガス影響に関するパラメータ

パラメータ	領域	レファレンス 設定	最小値	最大値	適用	備考（パラメータ設定根拠）
発生するガスによる地下水の押し出しに寄与する割合		-	1			発生するガスの全体積が施設内地下水の押し出しに寄与するものとした。
ガス発生による施設ボイド排水開始時刻(y)		-	0.1	1,000	対数	第2次 TRU レポート 4.4.10 ガス移行解析結果から、最大値をグループ1による解析結果の1,000年とした。
総排水量(m ³ /m) グループ1		-	2.5		-	第2次 TRU レポート 4.4.10 ガス移行解析結果に基づき設定。
総排水量(m ³ /m)グループ2		-	1.0		-	
総ガ総排水量(m ³ /m)グループ3		-	1.9		-	
総ガ総排水量(m ³ /m)グループ4		-	1.9		-	
最大排水速度 グループ1		-	0.026	2.6	対数	第2次 TRU レポート 4.4.10 ガス移行解析結果に基づき設定 不確実性の影響の程度を見積もるために、感度解析的に1桁上下を設定した。
ガス発生速度 グループ2		-	0.017	1.7	対数	
ガス発生速度 グループ3		-	0.0007	0.07	対数	

表-19 地球化学異常・バリア劣化に関するパラメータ

パラメータ	領域	レファレンス設定	最小値	最大値	適用	備考（パラメータ設定根拠）
人工バリア健全維持期間(年)	セメント系充填材/緩衝材	—	1E3	1E6	対数	(核燃料サイクル開発機構ほか、2000)で示されたコンクリート影響継続期間である、Region-Iの継続期間1,000年、Region-IIの期間5万年、Region-IIIの期間約6E5年である。これらの期間を含む広い範囲で、人工バリアの健全を設定した。
収着分配係数の変動開始時刻(年)	セメント系充填材/緩衝材	—	健全維持期間	—	対数	人工バリア健全維持期間終了時とした
溶解度の変動開始時刻(年)	セメント系充填材/緩衝材	—	健全維持期間	—	対数	人工バリア健全維持期間終了時とした
間隙率、拡散係数の劣化開始時刻(年)	セメント系充填材/緩衝材	—	健全維持期間	—	対数	人工バリア健全維持期間終了時とした
間隙率、拡散係数の劣化継続期間(年)	セメント系充填材/緩衝材	—	∞	—	—	劣化後の間隙率及び拡散係数の回復を想定せず、劣化継続期間は ∞ とした。
透水係数の劣化開始時刻(年)	緩衝材	—	健全維持期間	—	対数	人工バリア健全維持期間終了時とした。
透水係数の劣化継続期間(年)	緩衝材	—	∞	—	—	劣化後の透水係数の回復を想定せず、劣化継続期間は ∞ とした。

参考文献

- Noy,D., Savage,D. (2000): “Modelling of the Interaction of Bentonite with Hyperalkaline Fluids:A sensitivity study” . QSR-Report 1008B-2
- 動力炉・核燃料開発事業団(1992): “化学形態を考慮したヨウ素の移行挙動研究(III)” , 委託研究成果報告書, PNC TJ1262 91-001,
- 福本雅弘, 須黒寿康 (2001): “廃ヨウ素吸着剤の銅マトリックス固化体の腐食速度測定試験 (II)” , 日本原子力学会「2001 春の年会」要旨集 L11, p.609
- Idemitsu. K, et al (1997): “Diffusion paths of cesium in water-saturated mortar”, Nuclear Technology, Vol. 118, No.3, pp.233-241
- 稲場房恵, 他 (1998): “セメント系材料中での実効拡散係数に及ぼす材料の物理的及び化学的变化の影響” , 日本原子力学会「1998 春の年会」要旨集 L4, p.588
- 核燃料サイクル開発機構(1999a): “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-地層処分研究開発第2次とりまとめ-総論レポート” ,JNC TN1400 99-020
- 核燃料サイクル開発機構(1999b): “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-地層処分研究開発第2次とりまとめ-分冊1 わが国の地質環境” ,JNC TN1400 99-021
- 核燃料サイクル開発機構(1999c): “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-地層処分研究開発第2次とりまとめ-分冊2 地層処分の工学技術” ,JNC TN1400 99-022
- 核燃料サイクル開発機構(1999d): “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-地層処分研究開発第2次とりまとめ-分冊3 地層処分システムの安全評価” , JNC TN1400 99-023
- 核燃料サイクル開発機構(2000): “人工バリアシステム中のガスの移動に関する研究(V)” , JNC TJ8400 2000-032
- 核燃料サイクル開発機構,電気事業連合会(2000): “TRU 廃棄物処分概念検討書” , JNC TY1400 2000-001,TRU TR-2000-01
- Mayer G., et al(1992): “Experimental determination and numerical simulation of the permeability of cementitious materials” Nuclear

Engineering and Design Vol.138, pp.171-177

岡田清, 他 : 土木材料科学, 国民科学社

坂口, 他(1997): ”中空円筒コンクリート構造物の長期透水性評価試験”, コンクリート工学年次論文報告集, Vol.19, NO.1, p.643~648

斎藤典之, 他 (2001): “放射性よう素の固定化技術の開発(1)”, 日本原子力学会「2001秋の大会」予稿集 O28, p.906

九石正美, 他 (1997): “模擬アスファルト固化体からの可溶性元素の浸出挙動,” 日本原子力学会「1997秋の年会」I21, p.663

4-16 包括的感度解析における解析結果 (4.5.4.3)

1. はじめに

第2次 TRU レポートでは、4.5.4において廃棄体グループ1に対して、核種移行に関係するパラメータについての不確実性の範囲を想定し、レファレンスとする地質環境下において、目標線量を下回るための条件を探し出した。この際、目標とする線量を $10 \mu\text{Sv/y}$ とし、見出された条件を成立条件と定義した。

ここでは、上記の作業により見出された成立条件を前提とした場合に、グループ1以外の廃棄体に起因する線量を評価し、グループ2, 3, 4の処分を想定する場合に、成立条件に追加すべき条件がある場合には、これを提示するものとする。また、グループ2に対しては、統計的解析結果に対する感度分析を行い、線量を低減させるために重要となるパラメータを同定するものとする。下表にグループ1に関する成立条件の一例を示し、ここでの検討では、表に示す範囲を処分場性能の範囲と仮定し、グループ2, 3, 4に対する解析を実施した。

表-1に示された以外のパラメータについては、保守的な範囲を想定し（根拠資料集4-15参照）解析を実施することとした。

表-1 グループ1における成立条件

パラメータ	制限範囲
インベントリー	$\leq 5.11 \times 10^{13} \text{ Bq}$
線量換算係数	$\leq 3.19 \times 10^{-15} \text{ Sv/Bq}$
亀裂透水量係数の対数平均値	$\leq 1 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$
動水勾配	≤ 0.01
母岩マトリクス間隙率	$0.02 \leq$
緩衝材厚さ	$1\text{m} \leq$
掘削影響領域の厚さ	$\leq 3\text{m}$
掘削影響領域流量倍率	≤ 1
マトリクス拡散深さ	$0.1\text{m} \leq$
Iのマトリクスへの収着分配係	$8 \times 10^{-5} \text{ m}^3/\text{kg} \leq$
マトリクス拡散寄与面積比	$0.5 \leq$
その他のパラメータ	設定範囲全域

2. 解析結果

(1) グループ2

グループ2における統計的な解析では、表-1に示したパラメータの中で、特に線量最大値に強い影響を及ぼすインベントリーと線量換算係数及び前提となる条件である亀裂透水量係数の対数平均値、動水勾配については、表に示した条件の最大値を用い、解析を簡素化した（その他のパラメータの設定範囲は、根拠資料集4-15参照）。

図-1に統計的解析結果を示す。線量の最大値に寄与する核種は、主に、C-14であり、I-129, Np-237による線量が支配的となるケースも存在するが、これらの核種が支配的となるケースでは、

線量は、 10^{-9}Sv/y 程度の範囲に収まっている。

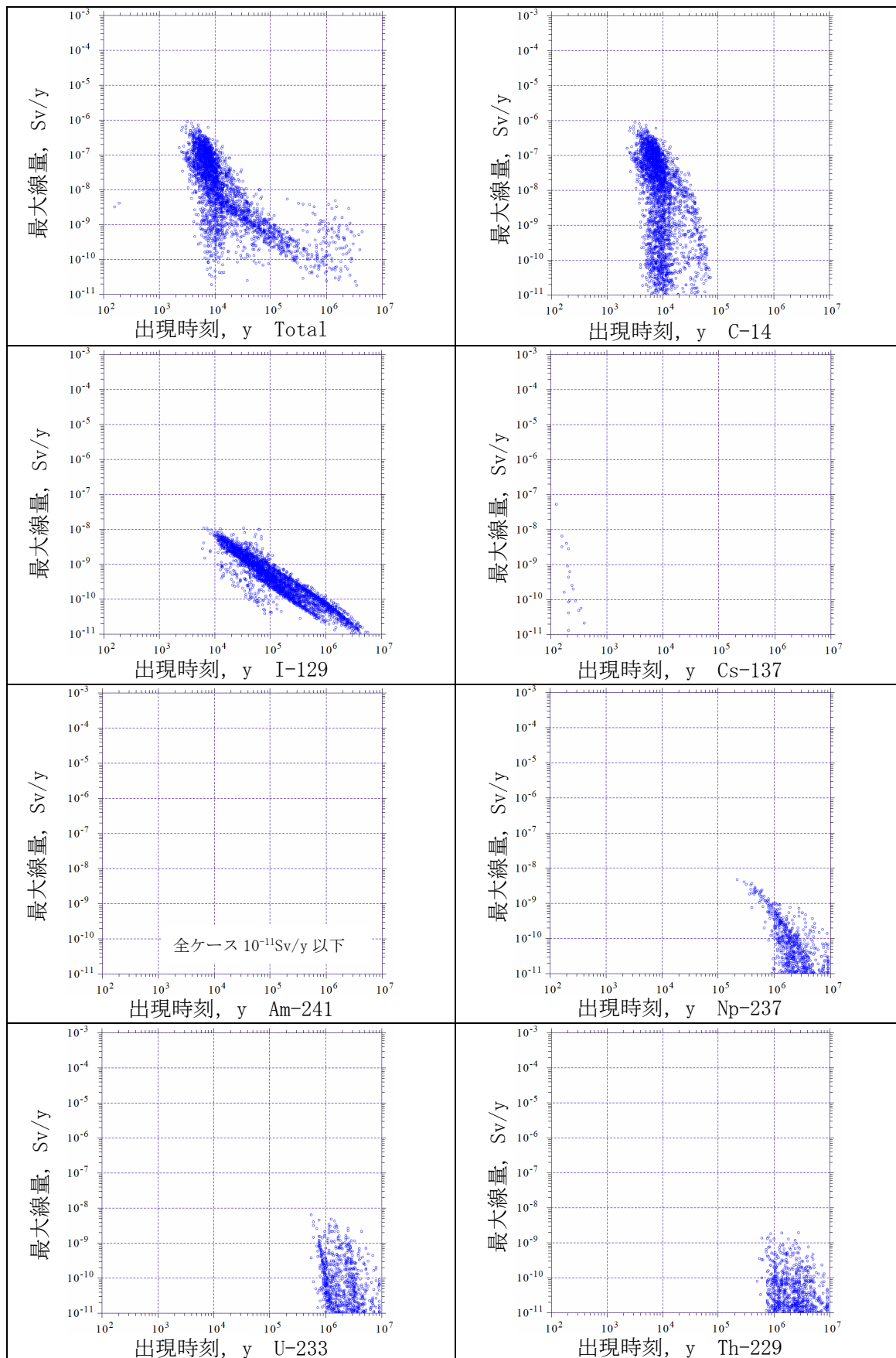


図-1 グループ 2 における統計的解析結果

C-14 による線量は、概ね 10^{-6} Sv/y 以下であり、核種放出率の上昇が見込まれるようなパラメータ設定（例えば、セメント系充填材の収着分配係数をゼロとする）においても、目標線量を上回ることにはないものと予想される。

図-2, 3 に示される感度解析結果からは、セメント系充填材の分配係数や核種浸出開始時刻を遅らせることにより最大線量が大きく低下することが示されており、廃棄体の構成や廃棄体パッケージの高度化により、グループ 2 からの核種放出率を効果的に低減できる可能性が示されている。また、C-14 に対するセメント系充填材の収着分配係数が大きな感度を有していることから、高吸着性材料も効果的であると考えられる。それ以外に、大きな感度を有するパラメータの多くは天然バリアの性能を律するパラメータであることから、第 2 次 TRU レポートで示された I-129 に対する効果と同様に、天然バリアの性能が重要と考えられる。

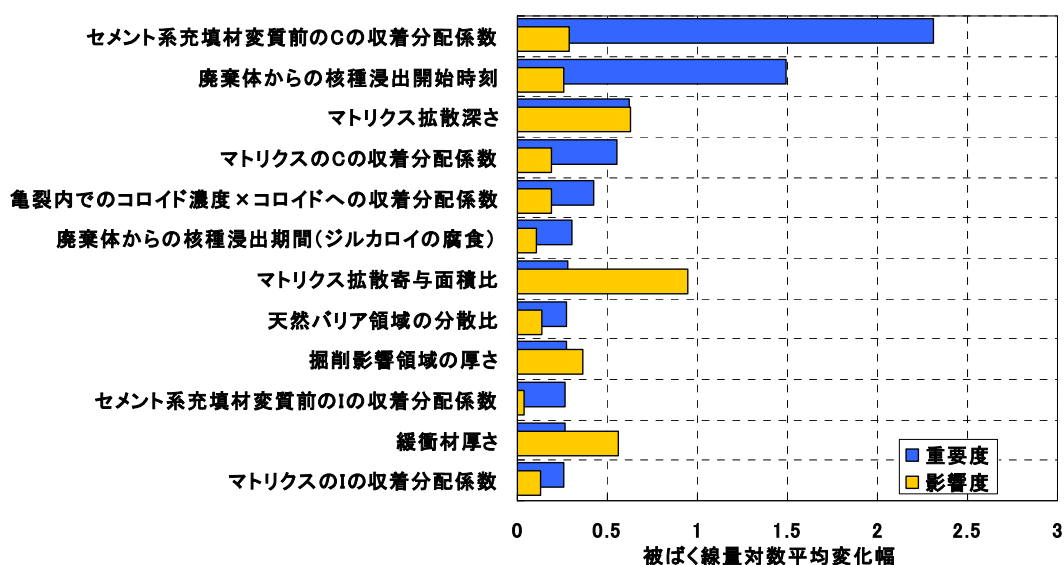


図-2 グループ 2, 総線量に対する感度分析結果

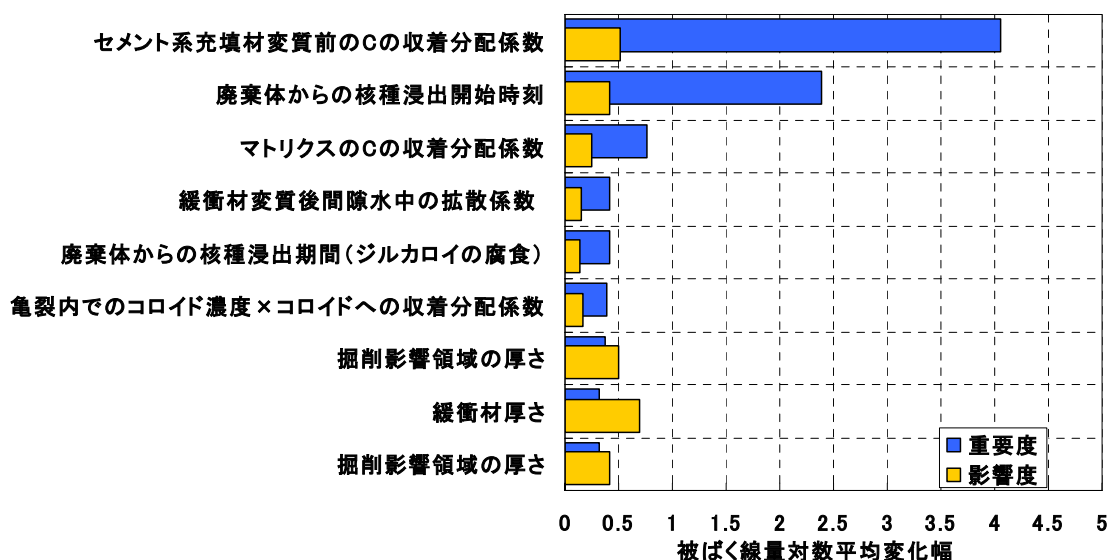


図-3 グループ 2, C-14 からの線量に対する感度分析結果

(2) グループ 3, 4

グループ 3 及び 4 の解析では、統計的解析で最大線量となるケースが現れやすいように、セメント系充填材及び母岩における I 以外の収着分配係数について、検討された範囲の中で保守的な値を用い解析することとした。これは、ここでの統計的解析の目的がどの程度の最大線量となるかを把握するためである。

表-2 グループ 3 及び 4 に対する収着分配係数の設定

核種	セメント系充填材 m ³ /kg	母岩マトリクス m ³ /kg
C	0	0
Cs	0	0.0001
Am	0.01	0.01
Np	0.01	0.001
U	0.01	0.001
Th	0.1	0.1

グループ 3 における統計的解析結果を図-4 に示す。グループ 3 では、I-129 及び C-14 が線量最大値を支配する。統計的解析の中で得られた最大線量は、約 0.2 μ Sv/y であることから、グループ 1 の処分が成立する環境下においては、グループ 3 は、新たな制約条件や人工バリアの構成を考えなくとも、目標線量を上回ることはないものと予測される。

グループ 4 における統計的解析結果を図-5 に示す。グループ 4 からの核種放出率の特徴としては、Np-237 が線量の最大値を支配するケースが多いことである。セメント系充填材及び母岩マトリクスに保守的な収着分配係数を設定した結果ではあるが、グループ 3 の結果と同様に目標線量を上回ることはないものと予測される。

3. 結論

グループ 1 の廃棄体の処分が可能な地質条件及び人工バリア条件において、グループ 2~4 の廃棄体に対して幅広いパラメータ範囲で統計的解析を実施した。その結果、グループ 1 が処分可能な処分条件においては、他のグループに起因する線量は、グループ 1 の線量解析結果を上回るはないものと予測される。

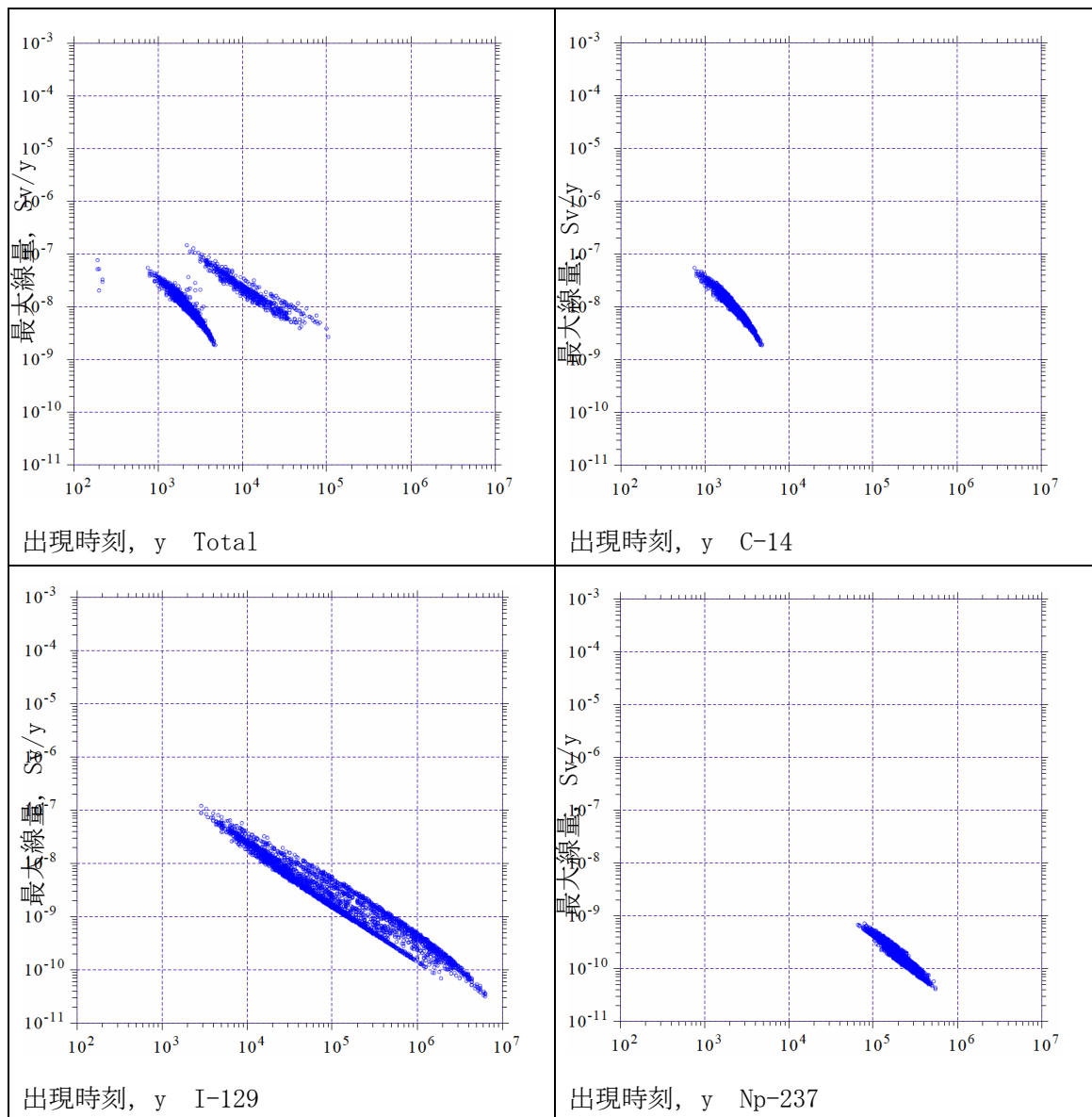


図-4 グループ3における統計的解析結果

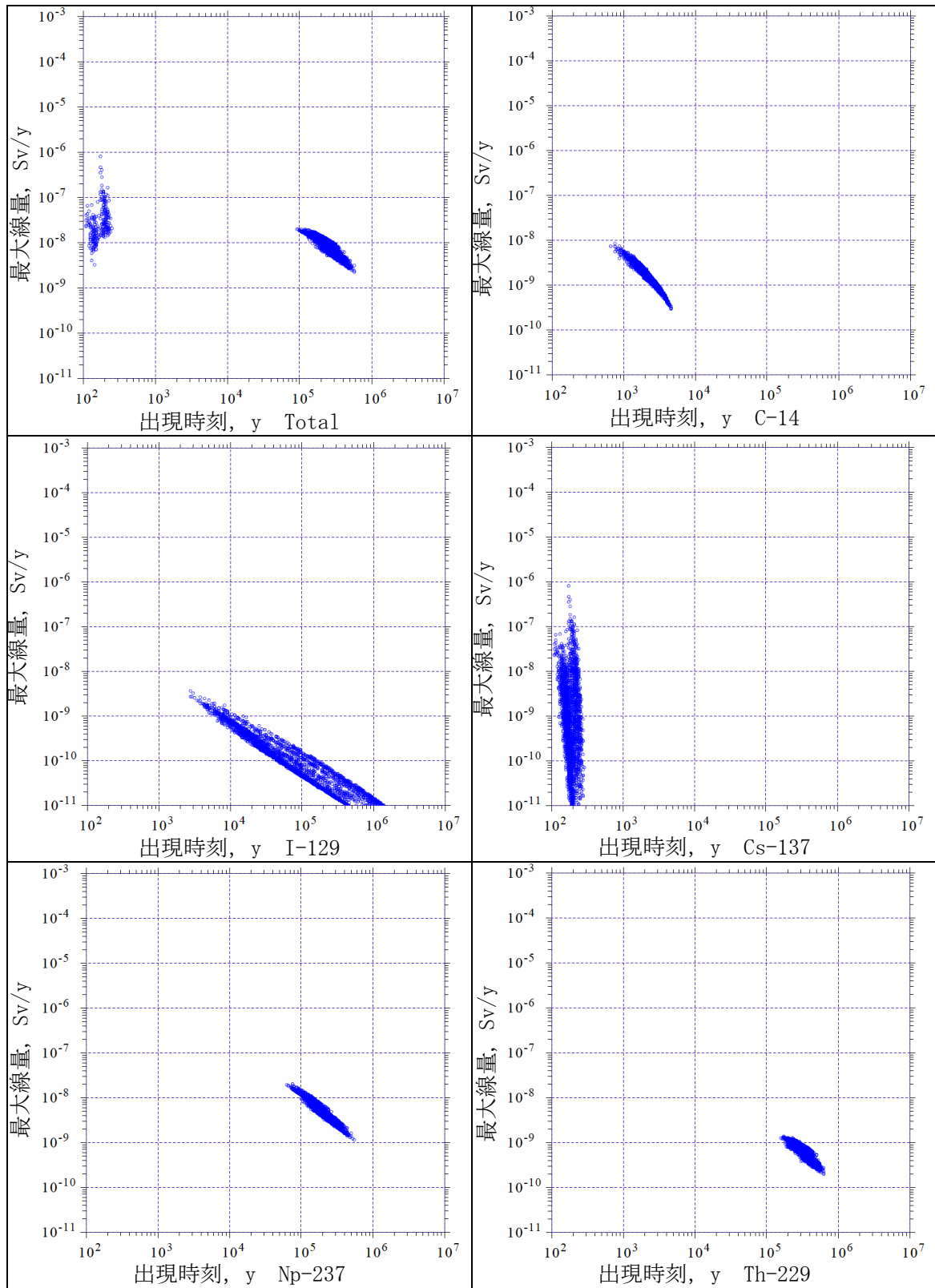


図-5 グループ4における統計的解析結果

4-17 変動シナリオの解析結果詳細 (4.5.5)

1. はじめに

第2次 TRU レポートの「4.5.5 変動シナリオの解析」においては、一部のシナリオを除いて、その評価結果は TRU 廃棄物全体の線量として表示されている。変動シナリオの評価結果を正しく理解し、今後 TRU 廃棄物地層処分の安全性をさらに高めてゆくための施策を検討する上では、これに加えて、各廃棄体グループの影響度の大小、あるいは線量に対する核種の寄与の大小に関する補足情報が極めて有益である。

そこで本根拠資料では、変動シナリオの評価結果詳細、すなわち各廃棄体グループの評価結果における各核種の線量への寄与について整理する。

2. 各変動シナリオにおける線量への核種の寄与

2.1 隆起・侵食

隆起・侵食シナリオにおける線量への核種の寄与を図-1及び図-2に示す。

2.2 気候・海水準変動

気候・海水準変動シナリオにおける線量への核種の寄与を図-3～図-12に示す。

2.3 シーリングミス

シーリングミスシナリオにおける線量への核種の寄与を図-13に示す。

2.4 井戸の掘削・採水

井戸の掘削・採水シナリオにおける線量への核種の寄与を図-14に示す。

2.5 ボーリングによる新たな移行経路の形成

ボーリングによる新たな移行経路の形成シナリオにおける線量への核種の寄与を図-15及び図-16に示す。

3. 考察

第2次 TRU レポートの4.5.2に示されているように、レファレンスケースでは、グループ1あるいはグループ3のI-129及びグループ2のC-14が線量評価における支配核種となっており、TRU 廃棄物の地層処分の安全性もこれらの核種の挙動から議論される。

これに対して、変動シナリオの場合、レファレンスケースと同様にI-129及びC-14が支配核種となったケースがある一方で、とくに廃棄体グループごとに注目した場合、異なる核種が線量を支配するケースも認められる。レファレンスケースとは異なる核種が支配的となる理由は、変動シナリオの各解析ケースにおける核種移行経路の考え方とそのときの条件設定とから説明できる。表-1に変動シナリオにおける核種移行経路の考え方と条件設定を示す。

今回の変動シナリオの評価結果からは、支配核種がレファレンスケースとは異なる理由として以下の可能性が指摘できる。

◆天然バリアの水理環境の変化のために、核種がより早期に生物圏に到達するケース

気候・海水準変動シナリオ（内陸立地、水理増大）のグループ4におけるCs-137（図-3及び図-4参照）、気候・海水準変動シナリオ（沿岸立地、淡水領域）のグループ4におけるCs-137（図

-7 及び図-8 参照), 気候・海水準変動シナリオ (沿岸立地, 塩淡境界) のグループ 2 における Nb-94 及びグループ 3, 4 における Cs-137 (図-9 及び図-10 参照), シーリングミスシナリオのグループ 4 における Cs-137 (図-13 参照) がこれにあたる。

とくに, 半減期が短く ($T_{1/2}=30$ 年) レファレンスケースでは十分に減衰している Cs-137 が, 天然バリアの地下水流速が増大するなどして減衰しないまま生物圏に到達した結果, これらの廃棄体グループにおける支配核種となっており, さらには他の要因 (後述する生物圏での線量への換算係数の増大) との相乗効果によって, TRU 廃棄物全体の線量を増大させてしまうケースも生じている (気候・海水準変動 (沿岸立地, 塩淡境界))。

◆天然バリアのバリア性能がほとんど機能していないケース

隆起・侵食シナリオで風化帯に遷移したときのグループ 2, 4 における Ra-226, Np-237 等アクチニド及びその娘核種 (図-1 及び図-2 参照), ボーリングによる新たな移行経路の形成シナリオのグループ 2 における Sr-90, グループ 3, 4 における Am-241 等のアクチニド (図-15 及び図-16 参照) がこれにあたる。

隆起・侵食シナリオでは, 処分場が風化帯に遷移するのが約 100 万年, 1,000 万年であり, この時点でもあまり減衰せずに有意な量が残存している Np-237 及び放射平衡にある娘核種の線量が増大している。ボーリングによる新たな移行経路形成シナリオでは, シナリオの発生時期を 300 年後及び 1,000 年後と仮定しているために, Sr-90 や Am-241 等, もともと潜在的な毒性は高いもののレファレンスケースの条件下では十分に減衰していた核種による影響が顕在化する結果となっている。

◆生物圏での線量への換算係数が増大しているケース

気候・海水準変動シナリオ (沿岸立地, 塩淡境界) のグループ 2 における Nb-94 及びグループ 3, 4 における Cs-137 (図-9 及び図-10 参照) がこれにあたる。

本評価では, 気候・海水準変動シナリオの生物圏モデルはレファレンスケースとは大きく異なることを想定し, 異なる生態系/核種放出域/被ばく集団に対応した生物圏モデルを構築した。様式化されつつあるレファレンスケースの生物圏モデル (温帯気候/河川水/農作業従事者) に対して, 上記シナリオに対応した代替的な生物圏モデル (冷帯・ツンドラ気候/沿岸海域堆積層/海洋漁業従事者) はなお多くの不確実性を有しており, 保守的な設定を行った結果, 一部の核種 (Cs-137, Nb-94 等) の線量への換算係数が相対的に増大した。この効果と, 前述の早期到達の効果の相乗によって, 当該シナリオにおける TRU 廃棄物全体の線量も増大する結果となった。

4. 結論

変動シナリオでは, 移行経路の考え方, 天然バリアの水理環境, 及び生物圏モデルの各要因あるいはその相乗効果によって, レファレンスケースとは支配核種が異なる場合があるとともに, TRU 廃棄物の安全性にも大きく影響する可能性があることも示唆された。今後, 変動シナリオの評価に対する信頼性をより向上させるためには, 上記要因に関する知見を深め, それらに付随する不確実性についてさらに検討することが重要である。

表-1 変動シナリオにおける核種移行経路の考え方と条件設定

解析ケース	人工バリア	EDZ	母岩	断層破碎帯	生物圏モデル
レファレンス	グループ 3 を除き 還元性・降水型 地下水	水理解析から EDZ 通過地下水 流量を設定	亀裂性媒体 100m	800m	温暖気候／河川水 ／農作業従事者グループ
隆起・侵食	風化帯では酸化 性地下水	同一設定	将来, 風化帯に遷移	移行媒体とし て見込まない	同一設定
気候・海水準 変動 (内陸/ 水理増大)	同一設定	通過地下水流量 10 倍	凍土部分融解部によ り地下水流速 10 倍	移行媒体とし て見込まない	冷帯・ツンドラ気候/ 河川水／農作業従 事者グループ
気候・海水準 変動 (内陸/ 水理抑制)	同一設定	通過地下水流量 1/10 倍	広範囲の凍土により 地下水流速 1/10 倍	移行媒体とし て見込まない	
気候・海水準 変動 (沿岸/ 淡水領域)	同一設定	通過地下水流量 5 倍	海食による地形勾配 の上昇から地下水流 速 5 倍	移行媒体とし て見込まない	
気候・海水準 変動 (沿岸/ 塩淡境界)	海水系地下水	通過地下水流量 10 倍	保守的に地下水流速 10 倍	移行媒体とし て見込まない	冷帯・ツンドラ気候/ 沿岸海域堆積層/ 海洋漁業従事者グループ
気候・海水準 変動 (沿岸/ 塩水領域)	海水系地下水	通過地下水流量 1/10 倍	塩水領域での停滞的 な流動状況から地下 水流速 1/10 倍	移行媒体とし て見込まない	グループ
シーリングミス	同一設定	通過地下水流量 10 倍	保守的に地下水流速 10 倍(アクセス坑道 を想定)	移行媒体とし て見込まない	同一設定
井戸掘削・採 水	同一設定	同一設定	同一設定	同一設定	温暖気候／深井戸 ／農作業従事者グループ
ホールディング移行 経路形成	酸化性地下水	通過地下水流量 10 倍	移行媒体として見込 まない	移行媒体とし て見込まない	同一設定

(網掛け部はレファレンスケースとは異なる設定となっていることを表す)

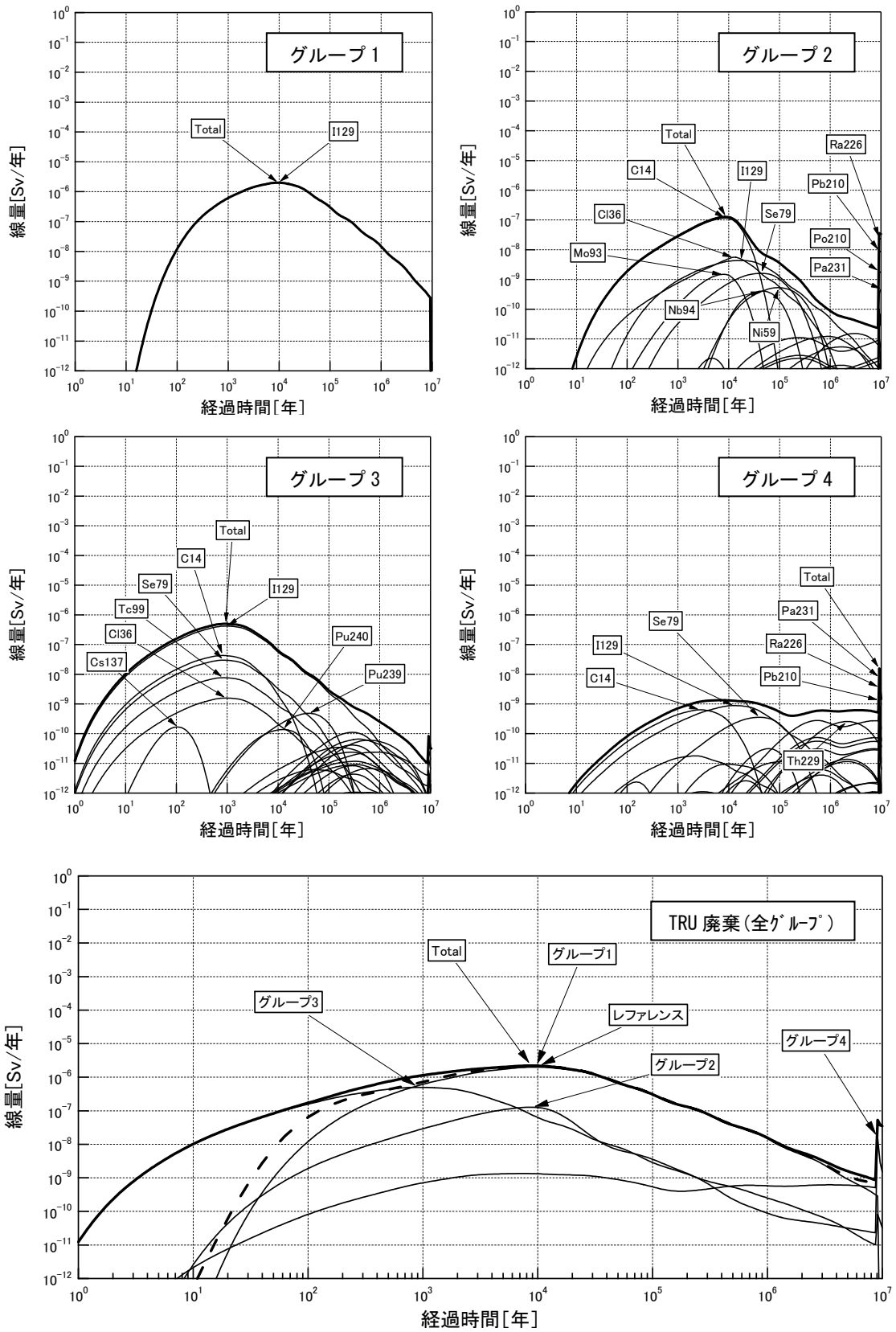


図-1 隆起・侵食シナリオの評価結果詳細 (隆起・侵食速度: 0.1mm/y)

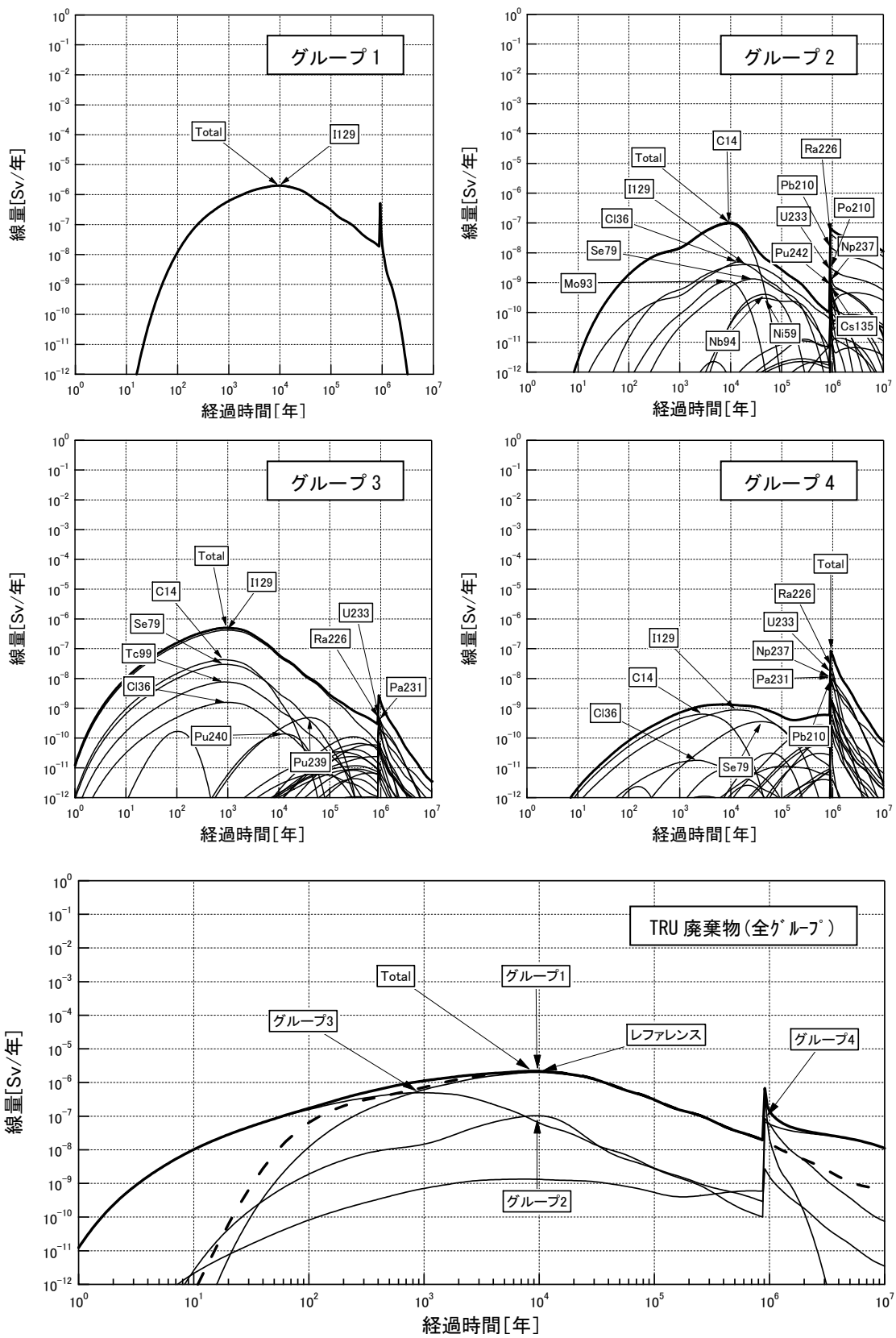


図-2 隆起・侵食シナリオの評価結果詳細（隆起・侵食速度：1mm/y）

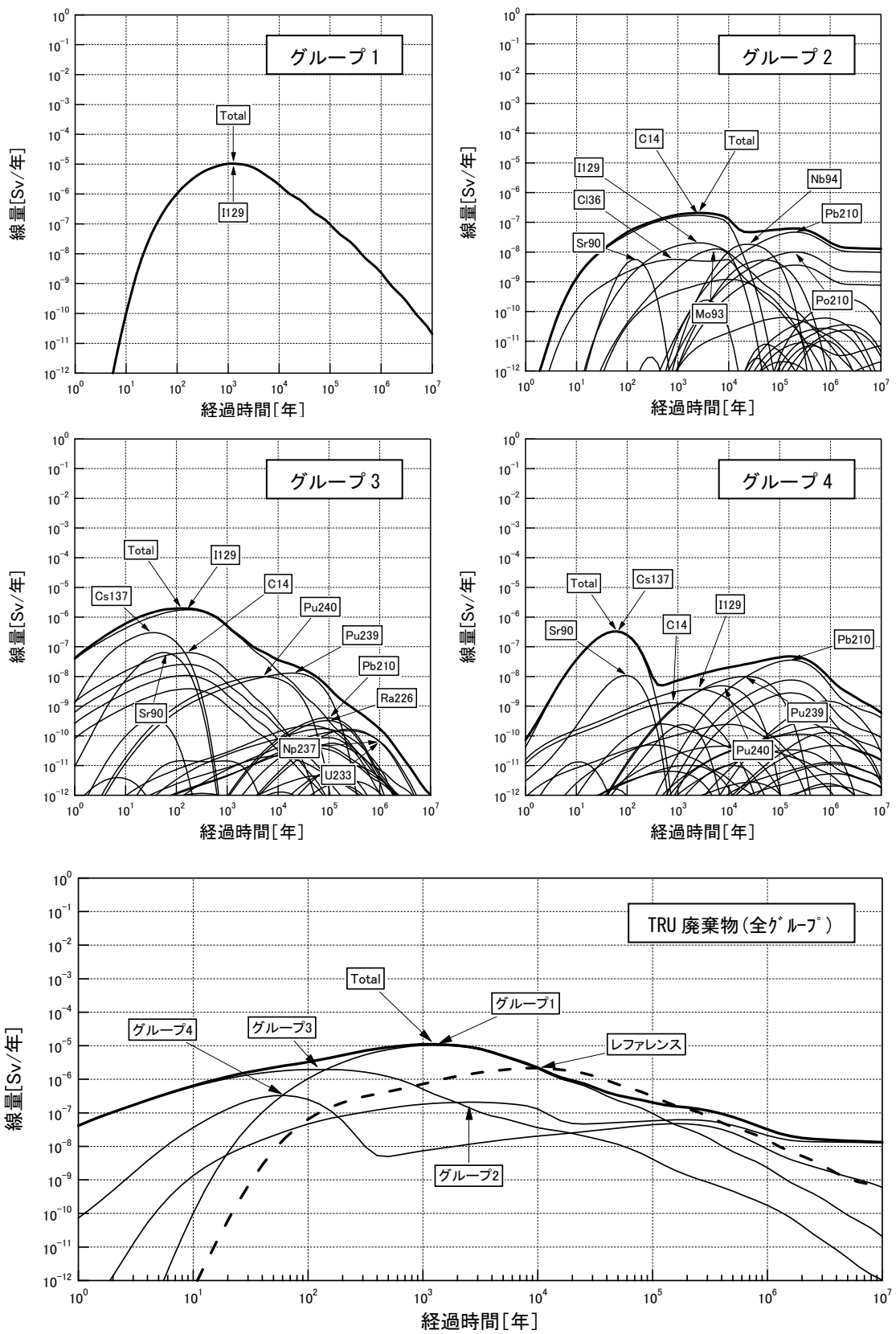


図-3 気候・海水準変動シナリオの評価結果詳細 (内陸, 水理増大, 冷帯気候)

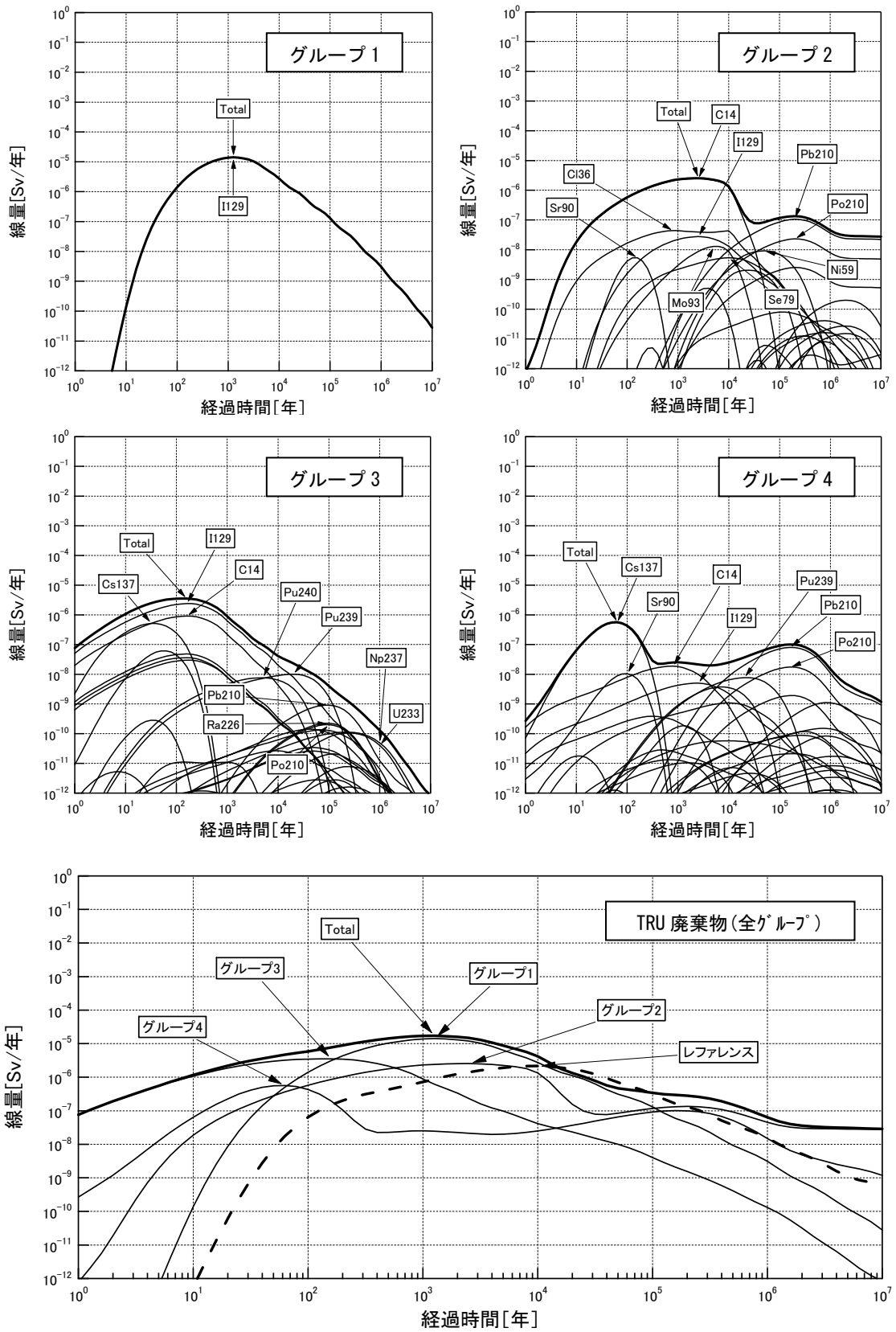


図-4 気候・海水準変動シナリオの評価結果詳細（内陸，水理増大，ツンドラ気候）

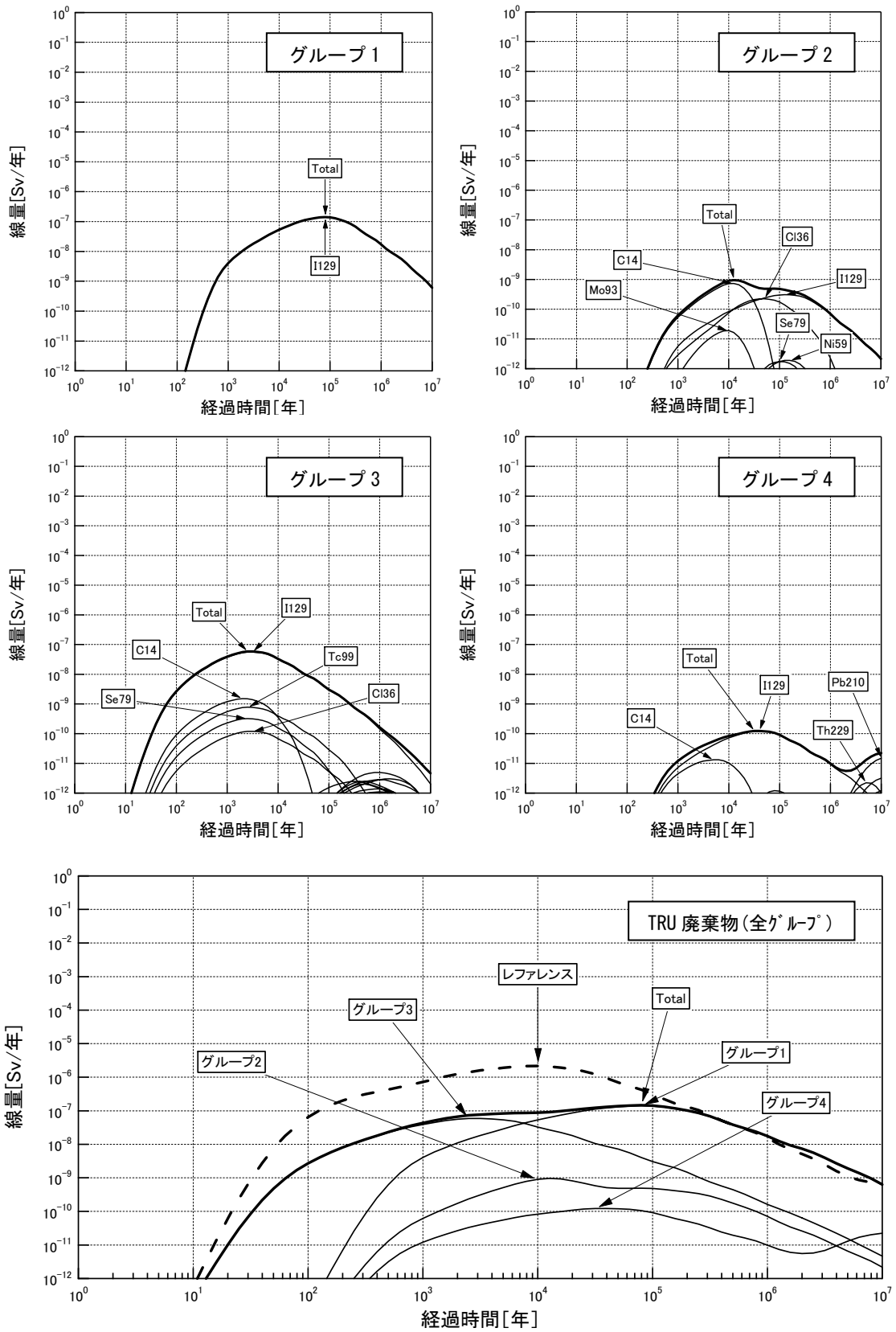


図-5 気候・海水準変動シナリオの評価結果詳細（内陸，水理抑制，冷帯気候）

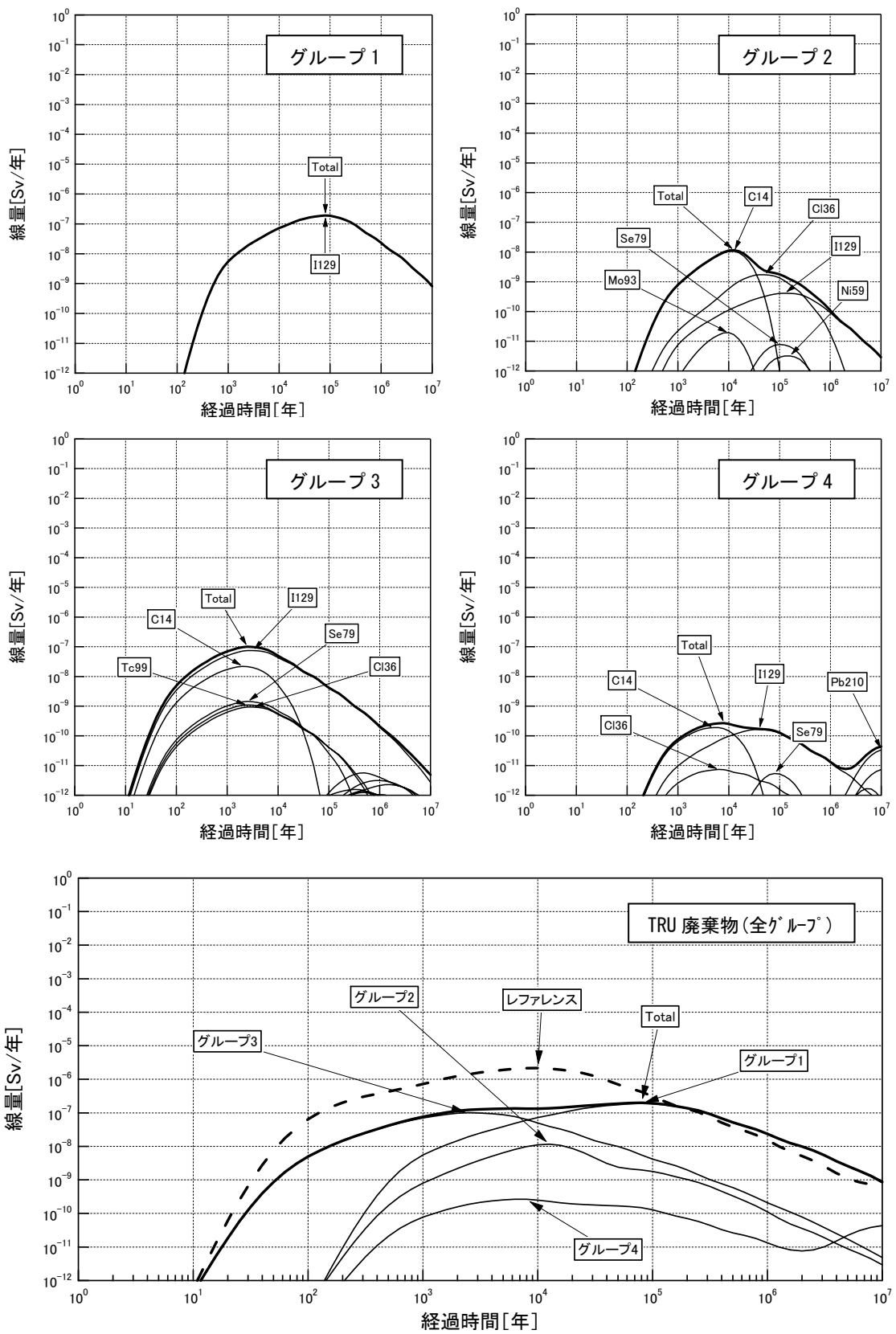


図-6 気候・海水準変動シナリオの評価結果詳細（内陸，水理抑制，ツンドラ気候）

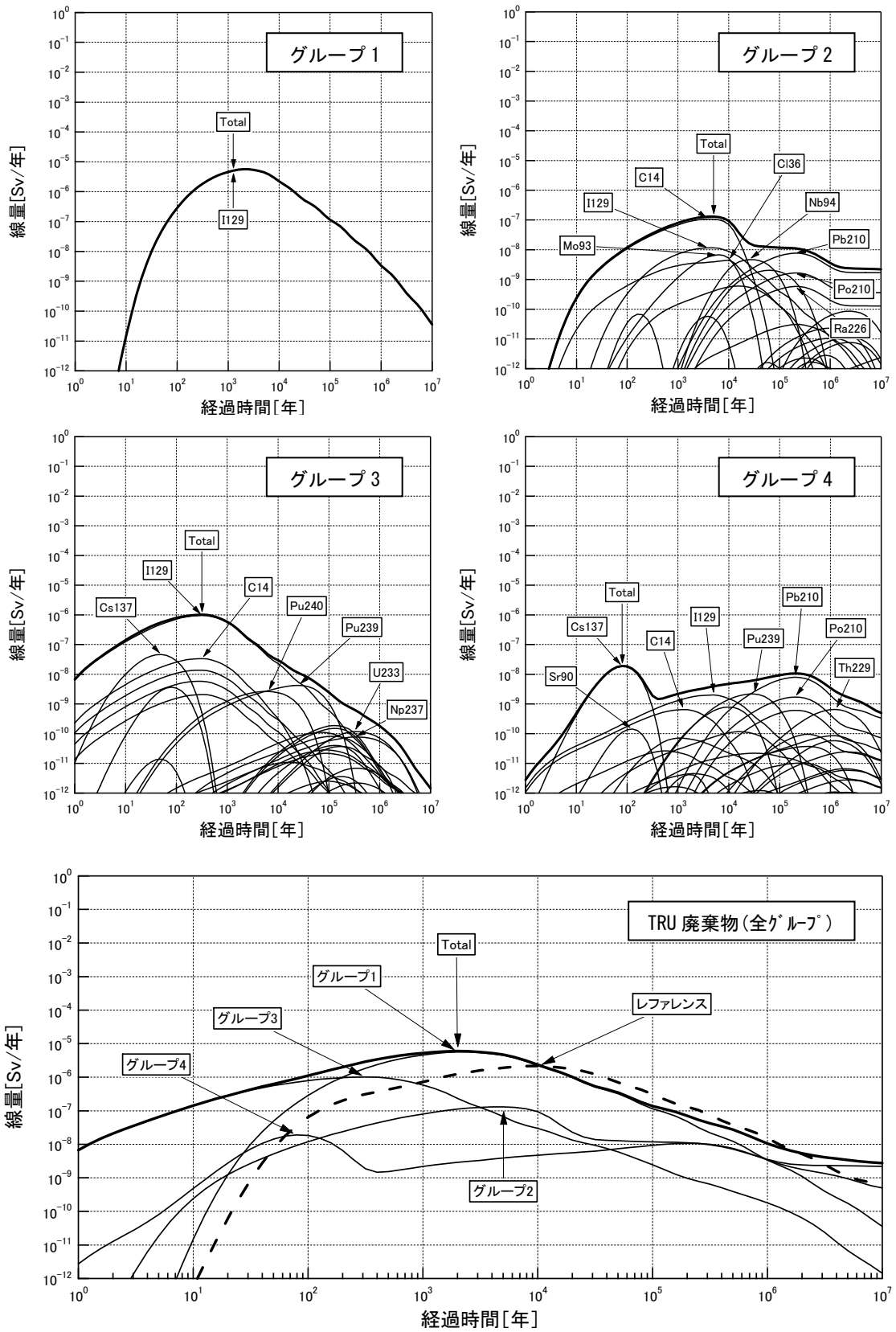


図-7 気候・海水準変動シナリオの評価結果詳細（沿岸，淡水領域，冷帯気候）

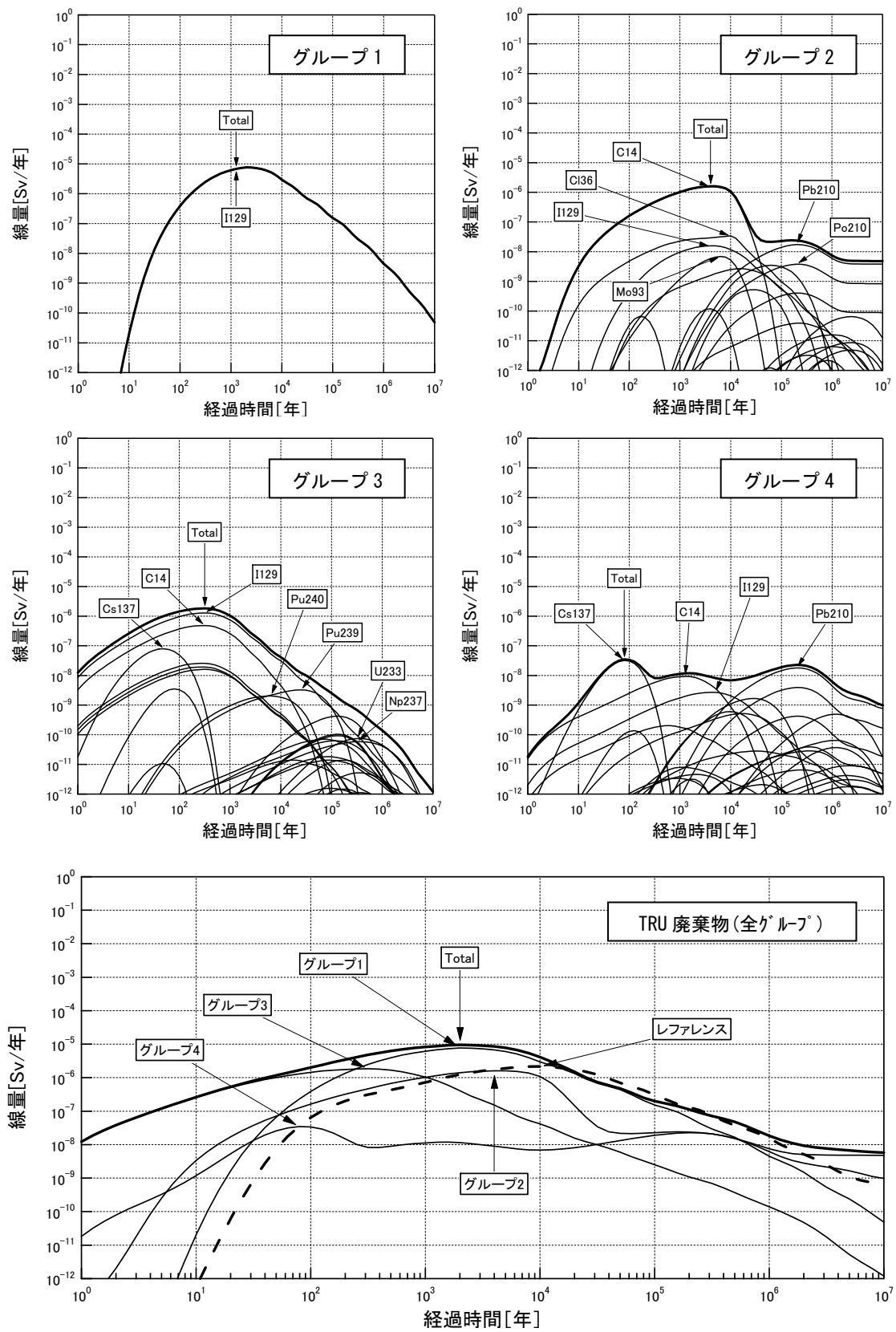


図-8 気候・海水準変動シナリオの評価結果詳細 (沿岸, 淡水領域, ツンドラ気候)

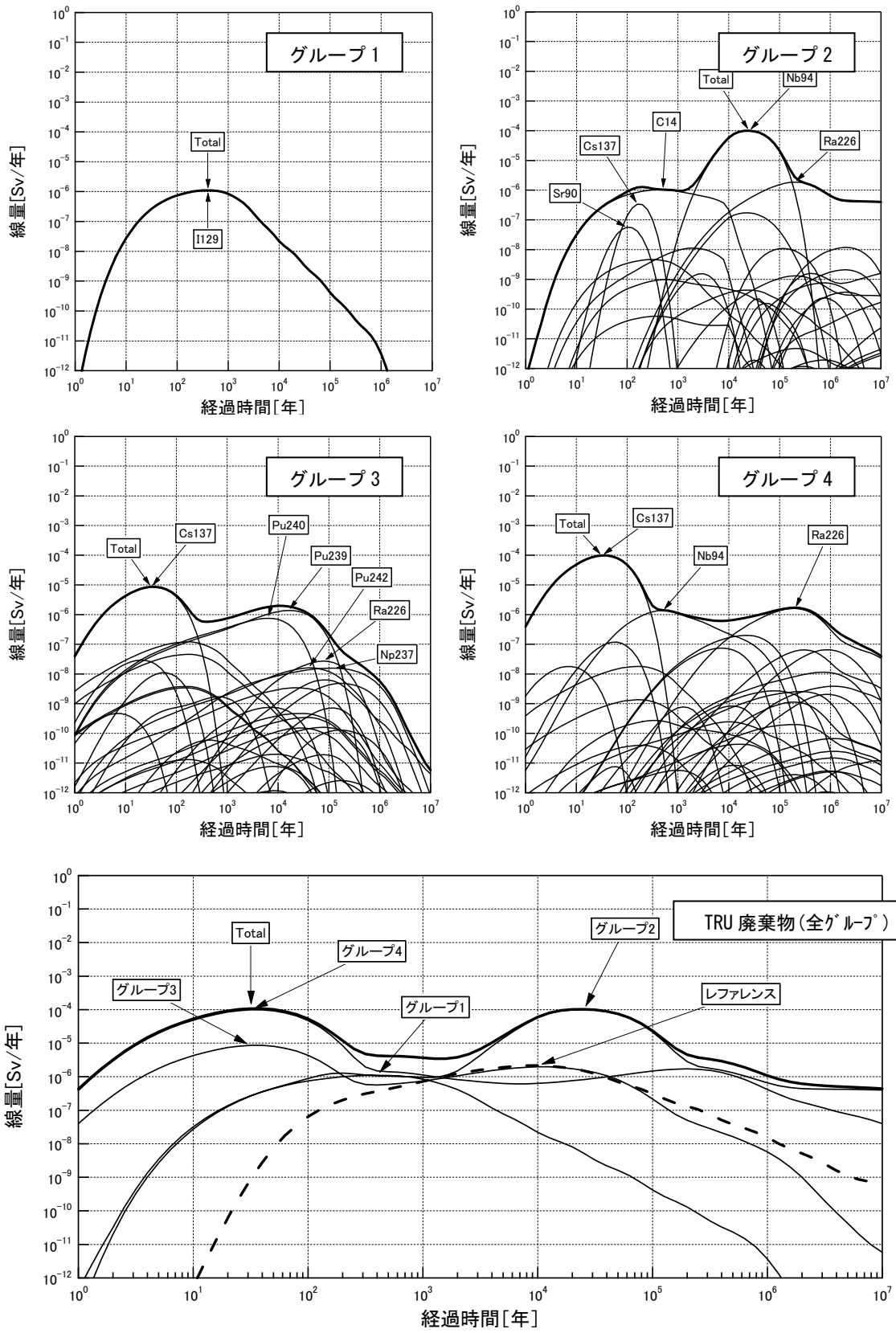


図-9 気候・海水準変動シナリオの評価結果詳細 (沿岸, 塩淡境界, 冷帯気候)

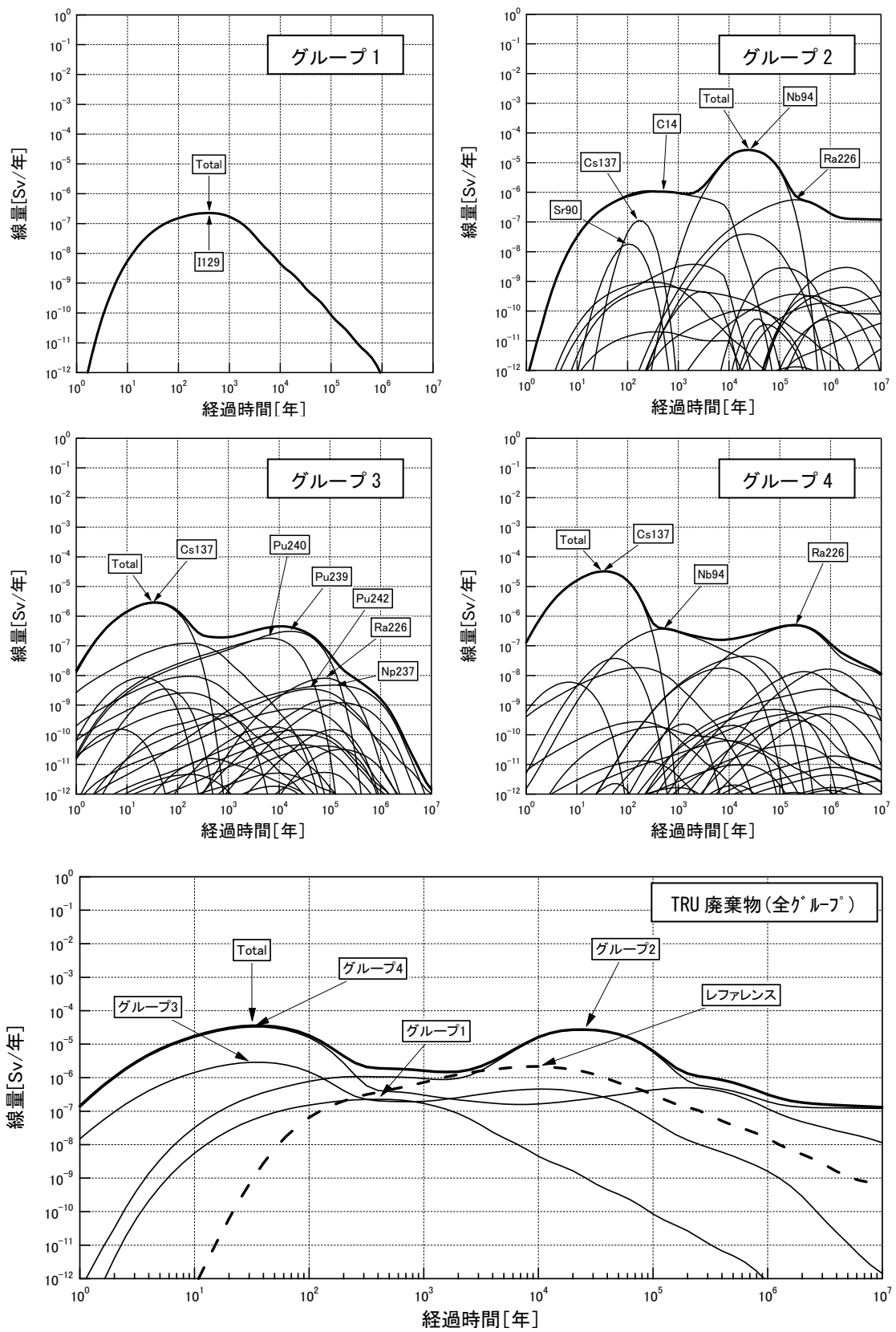


図-10 気候・海水準変動シナリオの評価結果詳細 (沿岸, 塩淡水境界, ツンドラ気候)

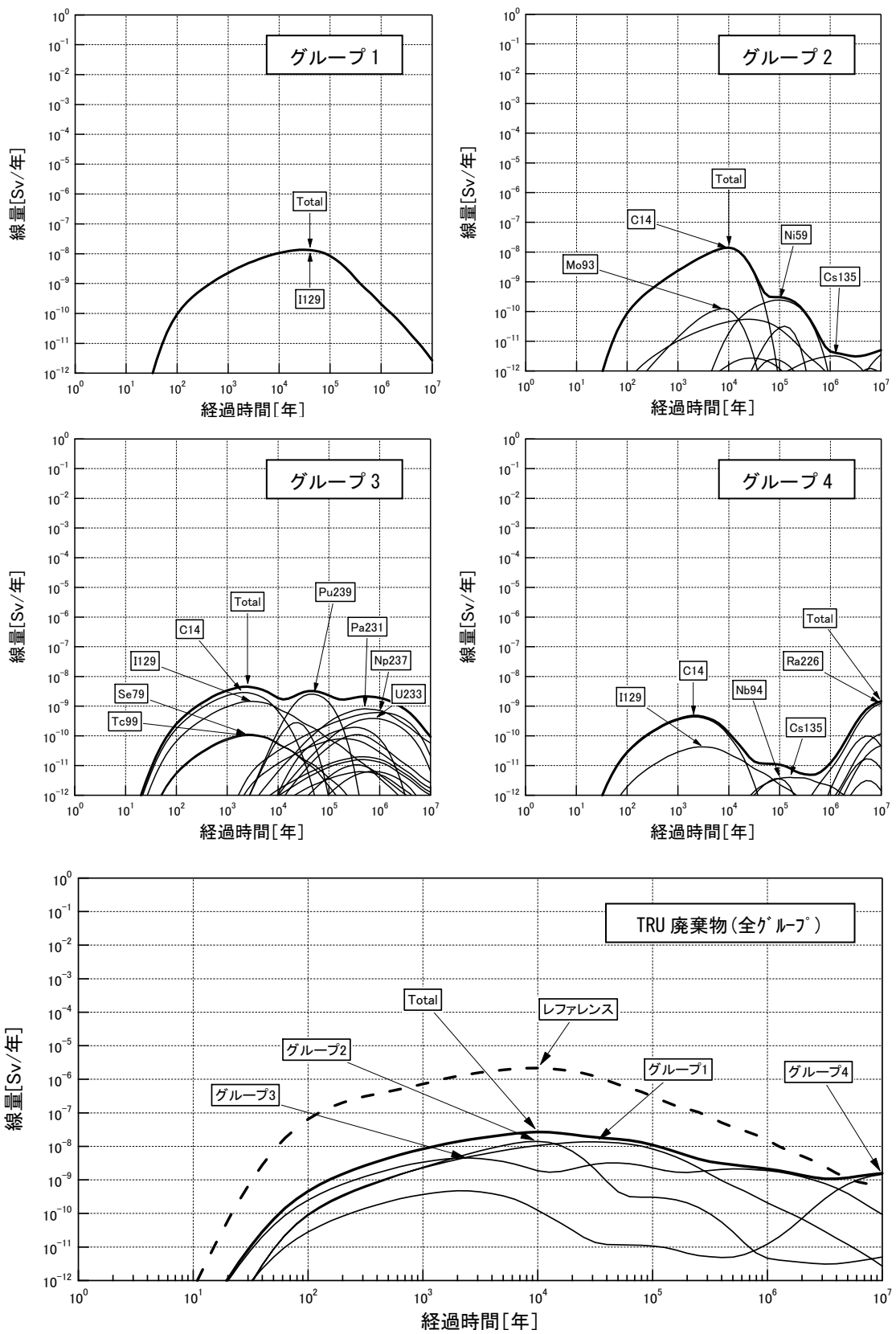


図-11 気候・海水準変動シナリオの評価結果詳細（沿岸，塩水領域，冷帯気候）

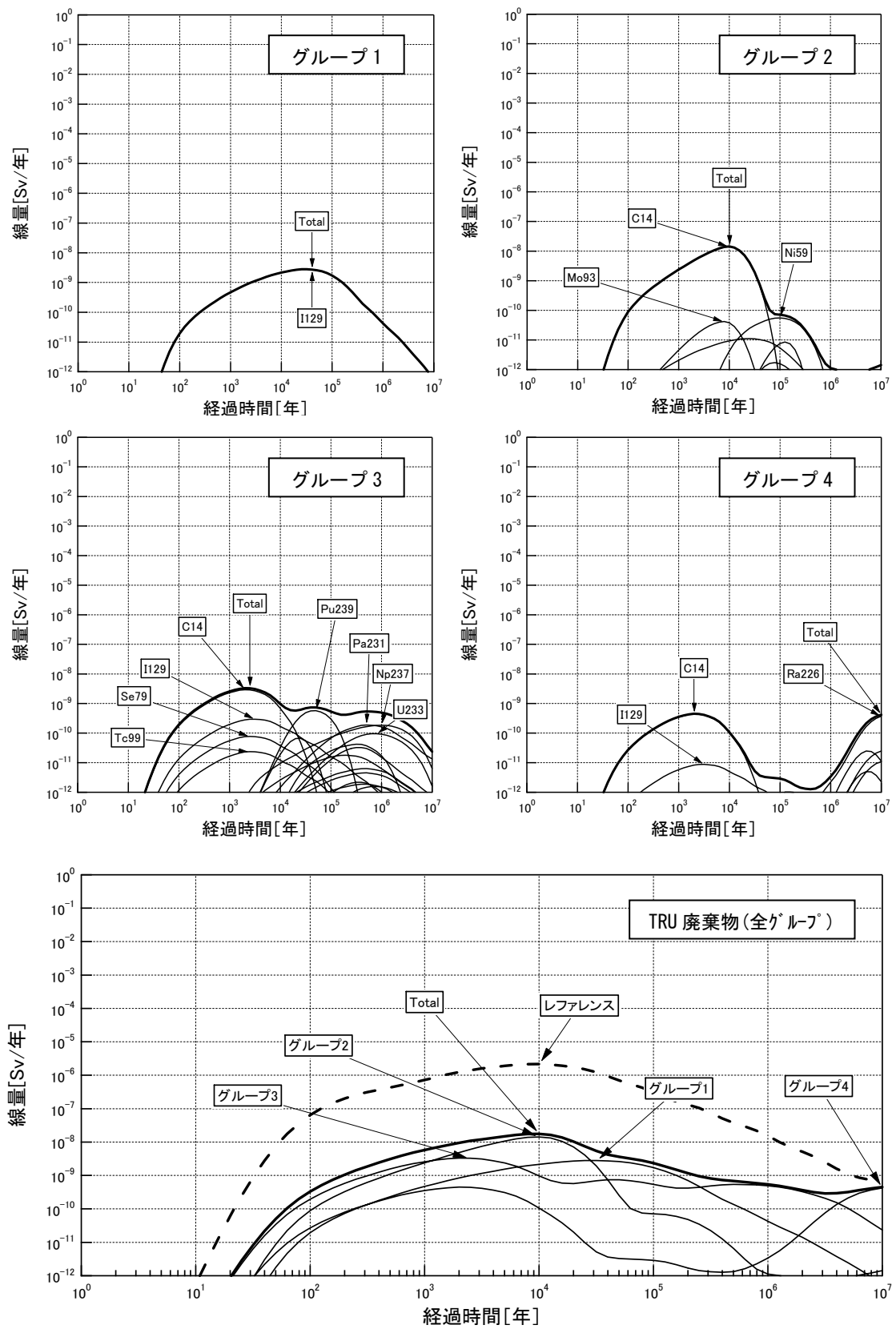


図-12 気候・海水準変動シナリオの評価結果詳細 (沿岸, 塩水領域, ツンドラ気候)

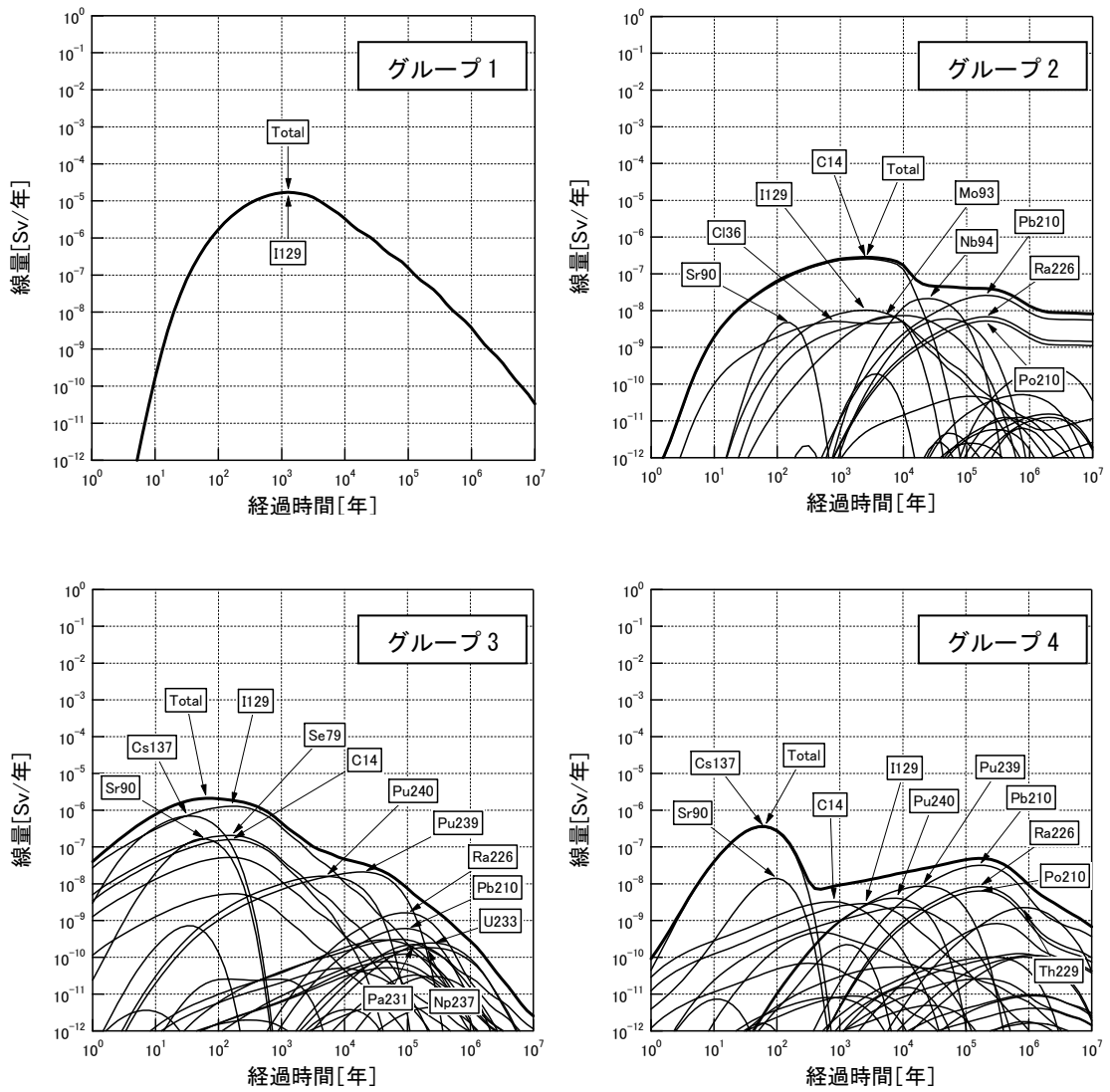


図-13 シーリングミスシナリオの評価結果詳細

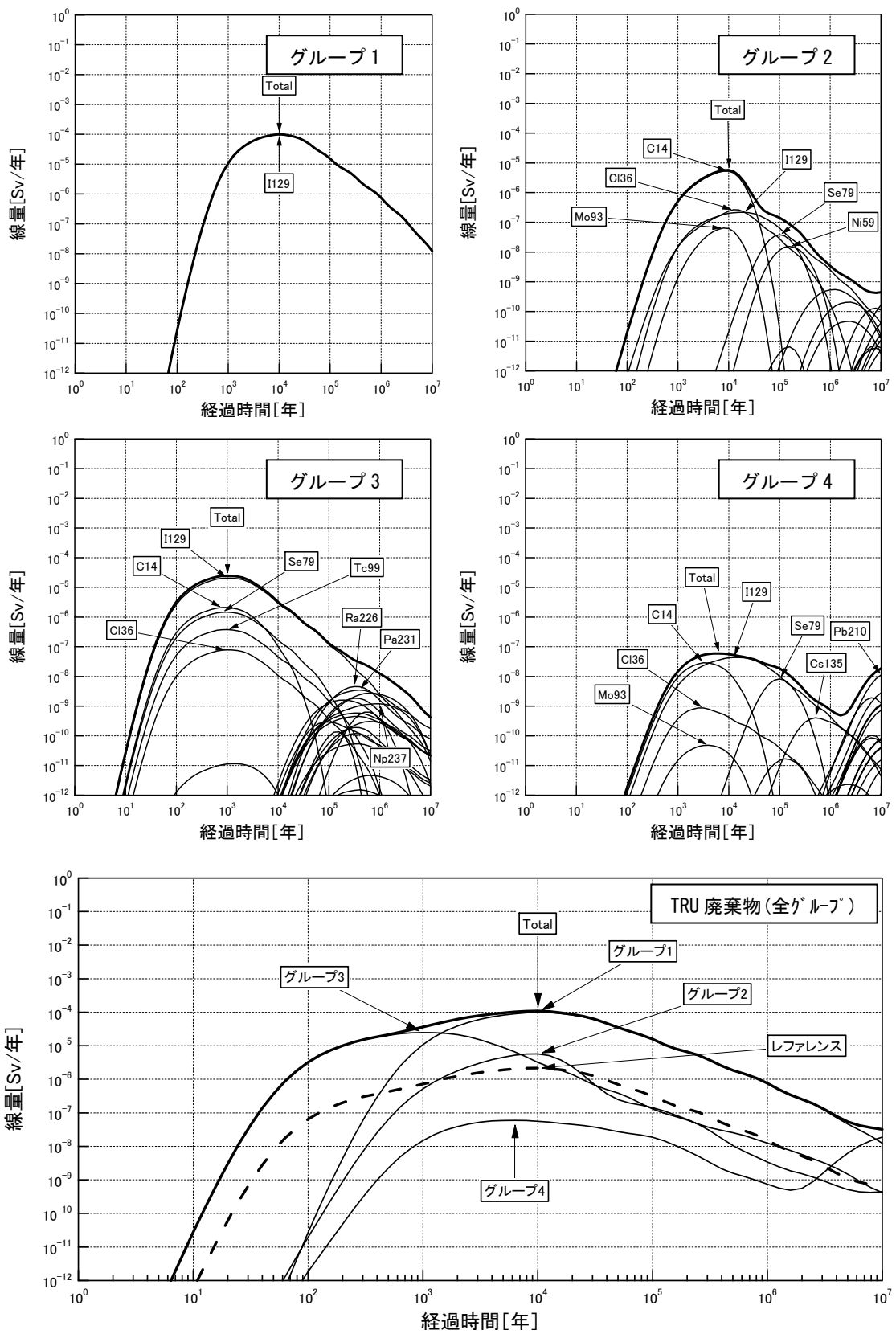


図-14 井戸掘削・採水シナリオの評価結果詳細

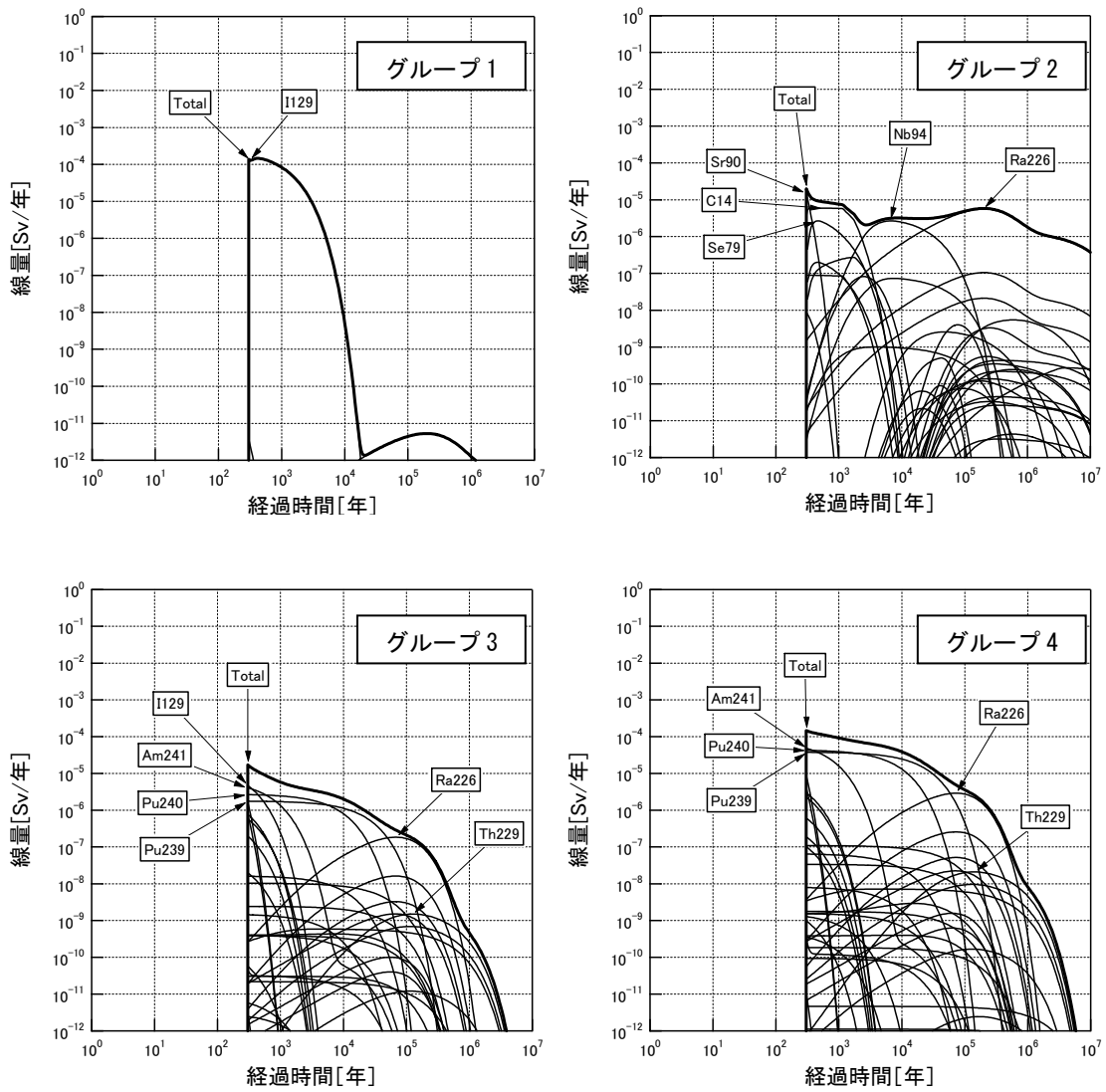


図-15 ボーリングによる移行経路形成シナリオの評価結果詳細 (300年後の事象発生)

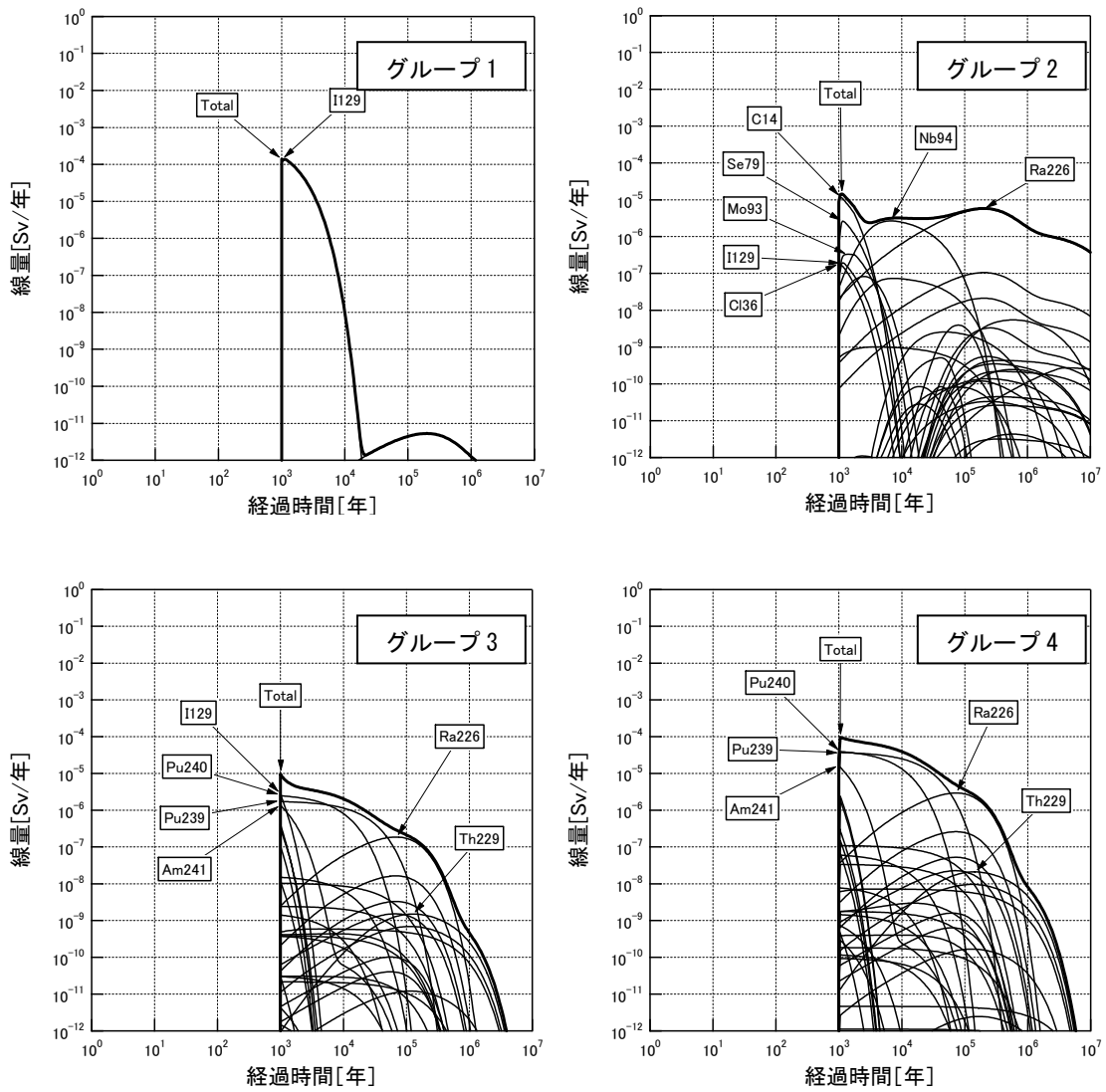


図-16 ボーリングによる移行経路形成シナリオの評価結果詳細(1,000年後の事象発生)

6-1 TRU 廃棄物と高レベル放射性廃棄物との併置処分に関する検討 (6.2)

1. はじめに

本書は、第2次 TRU レポートの「6.2 高レベル放射性廃棄物との併置処分に関する検討」に記載されている TRU 廃棄物と HLW の併置処分に関する検討結果の詳細を記述したものであり、諸外国における併置処分状況、TRU 廃棄物処分施設と HLW 処分施設の相互影響因子の抽出、相互影響評価のモデルと解析結果及び併置処分概念の検討から構成されている。

2. 諸外国における併置処分の状況

2.1 概要

わが国の TRU 廃棄物に相当する放射性廃棄物について、地層処分を計画あるいは実施している国としては、再処理施設を保有しているイギリス、フランス、アメリカ及び再処理を過去に実施したあるいは海外に再処理を委託しているドイツ、スイス、ベルギー、オランダ及びスペイン等があげられる。これらの国々のうち、スイス、フランス、ベルギー、ドイツ及びアメリカの概要を表 2.1-1 にまとめて示す。

TRU 廃棄物と HLW の併置処分概念が示されている代表国としては、フランスとスイスの2ヶ国があげられる。フランスでは TRU 廃棄物、HLW 及び使用済燃料の処分施設はそれぞれ区分して設置される。これは、両者の相互作用を回避するためであるとされているが、詳細な記述はほとんどない(ANDRA, 2001)。

スイスでは、長寿命・中レベル放射性廃棄物の処分坑道は HLW・使用済燃料処分坑道から数 100m 離れた場所に設置することが示されており、長寿命・中レベル放射性廃棄物処分坑道の高 pH プルームが HLW・使用済燃料処分坑道に及ぼす影響の可能性を回避することができるとしている(Nagra, 2002)。(図 2.1-1 参照)

また、併置処分における相互影響を検討している事例として、スイス、スウェーデン、フランス及び英国における検討項目及び状況は、以下のとおりである。

各国における併置処分に関する検討項目は、以下の4項目である。但し、これらに関する詳細な結果は公表されていない。

- HLW又は使用済燃料の発熱
- TRU廃棄物中の有機物
- TRU廃棄物中の劣化物
- 高pHプルーム

スイスでは、長寿命・中レベル放射性廃棄物処分坑道のセメント系埋戻し材及び構造躯体から発生する高pHプルームが母岩を変質させるとともに、HLW・使用済燃料処分坑道のベントナイトを変質させる可能性があるとしている。そのため、結晶質岩サイトでは母岩の亀裂を利用して長寿命・中レベル放射性廃棄物処分坑道とHLW・使用済燃料処分坑道を隔離し、堆積岩サイトでは母岩が比較的均質であるため、数100 mの離間距離を確保するとしている(NAGRA, 1994; NAGRA, 2002)。

スウェーデンでは、SFL2(使用済燃料処分施設)からの発熱、SFL3~5中の腐食生成物及びSFL3の有機物が考慮されている。また、これらを踏まえてSFL2とSFL3~5は相

相互作用を回避するため、1 kmの離間距離を確保し、両施設間の連絡坑道は埋め戻しとプラグにより隔離するとしている。さらに、SFL3～5は、支配的な地下水勾配の観点からSFL2の下流に設置することを計画している(SKB, 1999)。

フランスでは、TRU廃棄物、HLW及び使用済燃料の相互影響を軽減するため、処分エリアを分割し、数100mの離間距離を確保するとされているが、詳細は不明である(ANDRA, 2001)。

英国では、中低レベル廃棄物とHLW・使用済燃料の相互影響として高pHブルームを考慮しており、両施設の離間距離として500mを確保している(King and Poole, 2002)。

表 2.1-1 諸外国における放射性廃棄物の処分概念

国名	スイス	フランス	ベルギー	ドイツ	アメリカ
処分方式	併置処分 長寿命・中レベル廃棄物※ 高レベル廃棄物 (ガラス固化体及び 使用済燃料)	併置処分 カテゴリ-B廃棄物※ 高レベル廃棄物 (ガラス固化体及び 使用済燃料)	併置処分 カテゴリ-B廃棄物※ カテゴリ-C廃棄物の一部※ 高レベル廃棄物 (ガラス固化体及び 使用済燃料)	併置処分 発熱性廃棄物※ 非発熱性廃棄物の一部※ 高レベル廃棄物 (ガラス固化体及び 使用済燃料)	単独処分 TRU廃棄物※ (軍事的)
岩種・深度	オパリナス粘土:約650m 結晶質岩:約1,000m	堆積岩:約500m 結晶質岩:未定	ブーム粘土:約240m	未定 (サイト選定見直し中) (ゴアレーヘンの場合、岩 塩層:840m~1,200m)	操業中 (ニューメキシコ州カー ルスバッド近郊) 岩塩層:約650m
レイアウト	同一地層で高レベル廃 棄物処分エリアとTRU廃 棄物処分エリアは、500m 程度離される(参考図参 照)	同一地層で高レベル廃 棄物処分エリアとTRU 廃棄物処分エリアに区 分されている(離間距離 は今後検討)	同一地層で高レベル廃 棄物処分エリアとTRU 廃棄物処分エリアに区 分されている(離間距離 は今後検討)	未定	—

スイス : Kristalin-I, NTB 93-09E, May 1994, Nagra.

Project Opalinus Clay, Safety Report, NTB02-05, December 2002, Nagra.

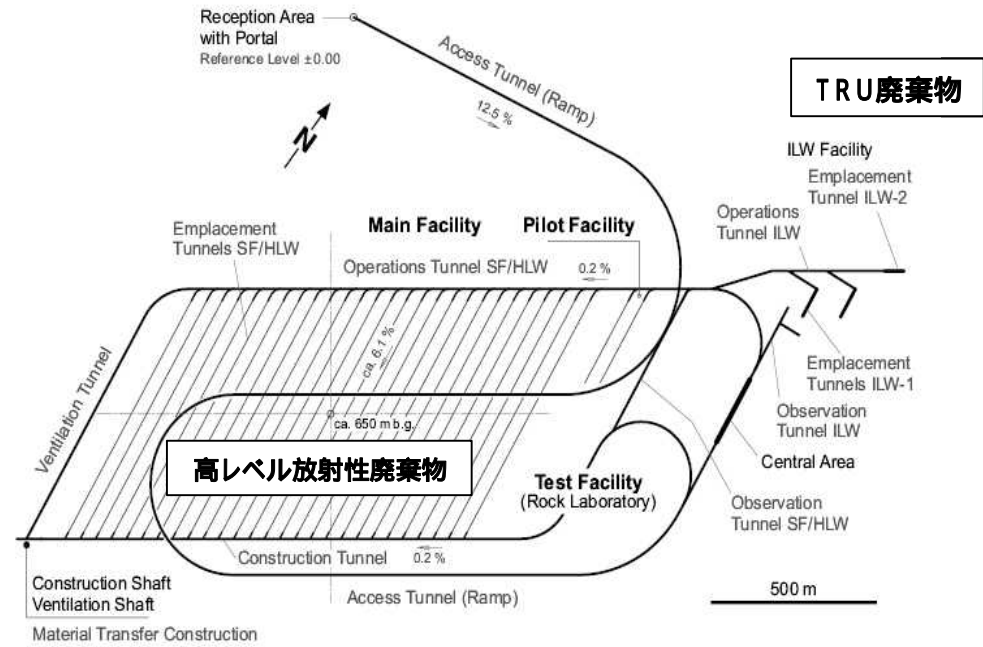
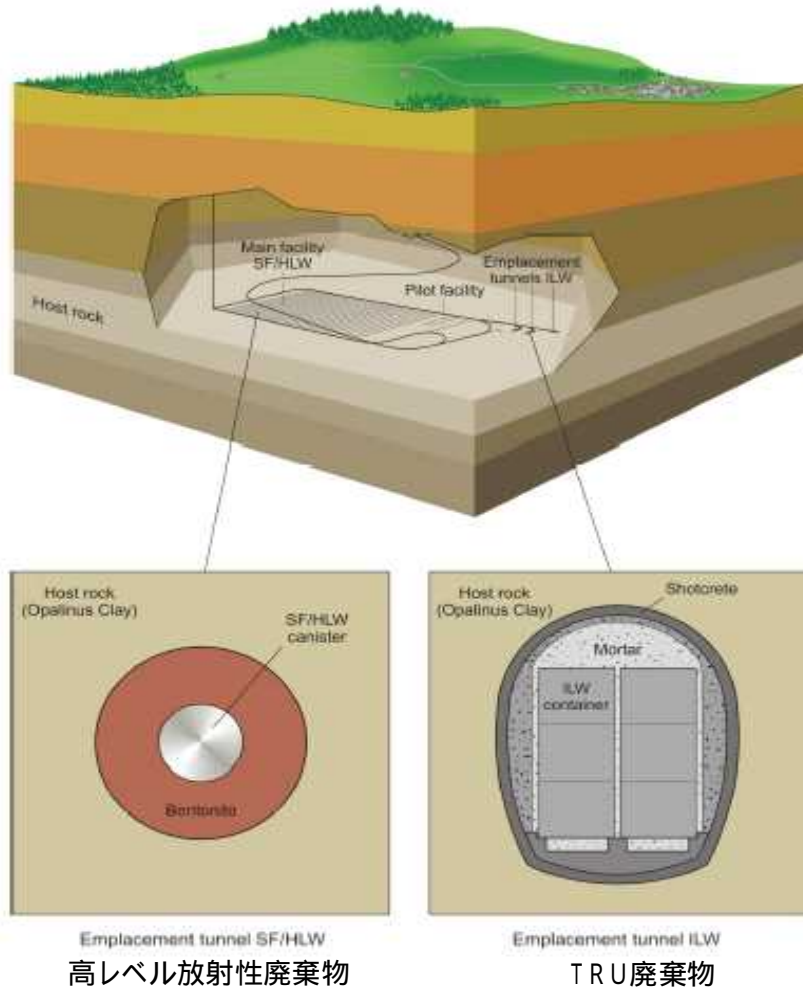
フランス : "DOSSIER 2001 ARGILE: Progress Report on Feasibility Studies & Research into Deep Geological Disposal of High-Level, Long-Lived Waste (Synthesis report)"

ベルギー : Safety Assessment and Feasibility Interim Report 2; SAFIR2, ONDRAF/NIRAS (2001)

ドイツ : "Environmental Policy : Joint convention on the safety of spent fuel management and on the safety of radioactive waste management", BMU(2003) DBE Webサイト: <http://www.dbe.de/>

アメリカ : WIPP Web サイト: <http://www.wipp.ws/>

※日本では、地層処分が想定されるTRU廃棄物に相当する。



オパリナス粘土層における地層処分場レイアウト

オパリナス粘土層における地層処分施設断面図

図2.1-1 スイスにおけるHLW・使用済燃料とTRU廃棄物の併置処分概念図(Nagra, 2002)

2.2 各国の状況

(1) ベルギー

2001年12月に公表されたSAFIR2 (ONDRAF/NIRAS, 2001) によれば、ベルギーでは放射性廃棄物は表2.2-1に示すように3カテゴリに分類される。長寿命放射性核種(主としてTRU核種)を多量に含有し、地層処分の対象となる長寿命・中低レベル放射性廃棄物はカテゴリB又はカテゴリCの一部に含まれる。

表2.2-1 ベルギーにおける放射性廃棄物の分類

カテゴリA	<p>以下の20核種に対して (廃棄物中の核種濃度[Bq/m³] / 最大許容濃度[Bq/m³]) で表される比率を積算し、その合計値が1より小さくなる放射性廃棄物</p> <p>核種: H-3, C-14, Cl-36, Ni-59, Ni-63, Sr-90, Nb-94, Tc-99, I-129, Cs-137, Pu-241</p> <p>核種: Ra-226, U-234, U-235, U-238, Np-237, Pu-238, Pu-239, Pu-240, A-241</p> <p>(核種の最大許容濃度は400~4,000Bq/g)</p>
カテゴリB	<p>カテゴリAの基準を満たさない放射性廃棄物で、発熱量が20W/m³以下の廃棄物</p>
カテゴリC	<p>カテゴリAの基準を満たさない放射性廃棄物で、発熱量が20W/m³を超える廃棄物</p>

上記の他に特殊なカテゴリとして、OlenのUMICORE施設で貯蔵されているカテゴリRがある。これはラジウム線源又はラジウムで汚染された物質及び土壌であり、現時点では地層処分の対象とはなっていない。

廃棄物カテゴリは、さらに廃棄物クラスに細分される。カテゴリCには、わが国のTRU廃棄物に相当する放射性廃棄物の他にガラス固化体又は使用済燃料も含まれ、これらは廃棄物クラスによって区別される。カテゴリC廃棄物のうち、TRU廃棄物に相当するクラスはHAGALC2及びHAGALP1~3である。カテゴリB廃棄物は、MAGALC, LAGAL及びRAGAL等の13のクラスに分類される。廃棄物カテゴリ及びクラスの分類の例を以下の表に示す。表2.2-2に示した例は、今後再処理を実施しないオプションに対応する。

表2.2-2 ベルギーにおける廃棄物カテゴリ及びクラス（今後再処理を実施しない場合）

Class	Description	Matrix	Category	Quantity (# Packages)	Package External volume (m³)	Section
ZAGALC	Vitrified waste: current contracts	Glass	C	420	0.180	2.3.1.1
ZAGALS	Irradiated uranium fuel: Doel 1-2	Sand	C	1669	0.326	2.3.1.2
ZAGALS	Irradiated uranium fuel: Tihange 1-2 / Doel 3	Sand	C	4780	0.444	2.3.1.2
ZAGALS	Irradiated uranium fuel: Tihange 3 / Doel 4	Sand	C	3266	0.517	2.3.1.2
ZAGALS	Irradiated MOX fuel: Tihange 2 / Doel 3	Sand	C	144	0.444	2.3.1.3
HAGALC2	COGEMA structural and technological waste	None	C	820	0.175	2.3.2.1
HAGALP1	Reprocessing waste (ex-EUROCHEMIC)	Glass	C	1501	0.07	2.3.2.2
HAGALP2	Reprocessing waste (ex-EUROCHEMIC)	Glass	C	700	0.195	2.3.2.2
HAGALP3	Reprocessing waste (ex-EUROCHEMIC)	Concrete	C	160	0.195	2.3.2.2
TOTAL WASTE CATEGORY C				13460		
MAGALC	COGEMA bituminized coprecipitation sludge	Bitumen	B	480	0.238	2.3.3.1
MAGALE	BELGOPROCESS (EUROBITUM) bituminized waste: Drum type A	Bitumen	B	5816	0.245	2.3.3.2
MAGALE	BELGOPROCESS (EUROBITUM) bituminized waste: Drum type B	Bitumen	B	7590	0.245	2.3.3.2
MAGAL	PAMELA Medium-level secondary solid waste	Cement	B	186	0.245	2.3.3.3
MAGAL	HRA / Solarium medium-level waste	Cement	B	1200	0.5	2.3.3.3
MAGAL	HRA / Solarium medium-level waste	Cement	B	142	2.5	2.3.3.3
MAGAL	Medium-level waste: Power station dismantling	Cement	B	2075	0.5	2.3.3.3
MAGAL	Medium-level waste: Dismantling of SCK-CEN reactors	Cement	B	67	0.5	2.3.3.3
LAGAL	Waste from current production of MOX fuels	Cement	B	1459	0.5	2.3.4.1
LAGAL	Waste from dismantling of MOX fuel production plants	Cement	B	1901	0.5	2.3.4.1
LAGAL	Dismantling waste (ex-EUROCHEMIC)	Cement	B	642	0.5	2.3.4.1
LAGAL	Various wastes from the ex SCK-CEN 'WASTE' department	Cement	B	170	0.5	2.3.4.1
RAGAL	Ra contaminated low-level wastes	P.M.	B	P.M.	P.M.	2.3.4.2
TOTAL WASTE CATEGORY B				21728		
TOTAL				35188		

TRU廃棄物に相当するカテゴリC廃棄物のうち、COGEMA社における再処理で発生したハル・エンドピース（HAGALC2）は圧縮処理されるが、EUROCHEMIC再処理プラントで発生した液体廃棄物（HAGALP1,2）はガラス固化され、ハル・エンドピースの残渣（HAGALP3）はコンクリート固化される。

ここでガラス固化される液体廃棄物は高濃縮ウラン燃料の再処理から発生したものであり、低濃縮ウラン燃料の再処理から発生する液体廃棄物と比較してはるかに比放射能が低い。カテゴリB廃棄物では、COGEMA社における再処理スラッジ（MAGALC）及びEUROCHEMIC再処理プラントにおける中レベル液体廃棄物等（MAGALE）はビチューメン固化され、その他の廃棄物はセメント固化される。

SAFIR2では、ブームクレイと呼ばれる粘土層中の地層処分施設において、長寿命・中低レベル放射性廃棄物はガラス固化体又は使用済燃料の処分領域とは異なる専用の処分坑道に定置される計画が示されている。長寿命・中低レベル放射性廃棄物の処分施設の設計はまだ初期段階であり今後の検討事項とされているが、現時点での予備的設計では、水平の処分坑道は直径が3～6mであり、廃棄物は坑道に積み上げられ、その間隙はコンクリートで充填される。坑道の区画あたりで積み上げる廃棄物の数量は、廃棄物中の空隙の比率や熱発生量等の複数の要件から設定される。

ガラス固化体及び長寿命・中低レベル放射性廃棄物を併置する地層処分施設について性能評価が実施されており、そこで用いられた予備的なレイアウトを図2.2-1に示す。本レイアウトでは、

カテゴリB廃棄物は内径3.5m、長さ800mの4本の処分坑道に定置される。ハル・エンドピース(HAGALC2)は5番目の処分坑道への定置が想定されている。ハル・エンドピース(HAGALC2)及びカテゴリB廃棄物の処分施設は、ガラス固化体(ZAGALC)の処分施設とはアクセス立坑の反対側に位置する。

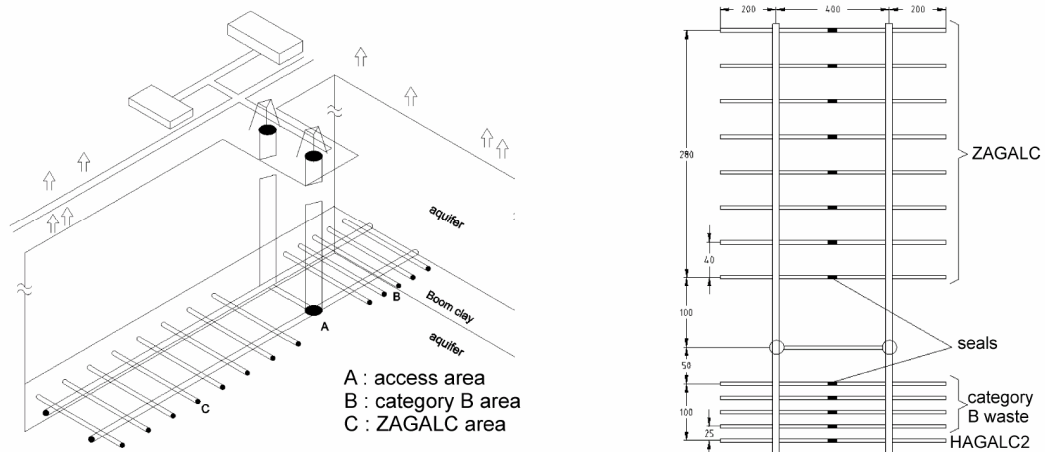


図 2.2-1 同一の処分施設におけるカテゴリ B 廃棄物及びガラス固化体(ZAGALC)の全体構成

上記の性能評価で仮定された、ハル・エンドピース(HAGALC2)の処分坑道の断面を図 2.2-2 に示す。19体のキャニスタが円筒状コンテナに収納され、コンテナ内の空隙にはコンクリートが充填される。コンテナは、内径2.5mの処分坑道に定置される。

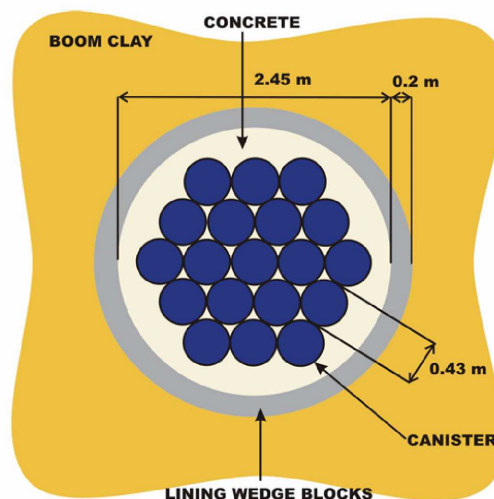


図 2.2-2 ハル・エンドピース(HAGALC2)の処分坑道の断面図

SAFIR2において、長寿命・中低レベル放射性廃棄物の処分坑道をガラス固化体又は使用済燃料の処分坑道から分離する理由として、以下のものが挙げられている。

- ・ 発熱性のHLWと同時に処分することが、必ずしも必要ではないこと
- ・ ガス発生量の相違

- ・異なるタイプの廃棄物と埋戻材との相互作用（高pHブルーム等）による複雑化の回避
- ・回収可能性の向上

しかしながら、発熱性のHLWと長寿命・中低レベル放射性廃棄物の相互作用について、詳細な検討はなされていない。

(2) フランス

フランスでは、放射性廃棄物は表2.2-3に示すように3カテゴリに分類されており、長寿命放射性核種（主としてTRU核種）を多量に含有した低中レベル放射性廃棄物を 廃棄物（カテゴリB）と規定している。

表2.2-3 フランスにおける放射性廃棄物の分類

カテゴリA	半減期が30年を超えない短寿命の中低レベル放射性廃棄物であり、浅地中処分される。
カテゴリB	カテゴリAよりも高いレベルの放射性核種（3.7GBq/ton以上）を含む長寿命中低レベル放射性廃棄物
カテゴリC	ガラス固化した高レベル放射性廃棄物

カテゴリB廃棄物は原廃棄物として貯蔵されるか、セメント固化又はビチューメン固化されている。減容処理は、圧縮処理、焼却処理及び濃縮処理である。固化処理方法としては、ハル・エンドキャップは圧縮処理、再処理スラッジはビチューメン固化、雑固体廃棄物はセメント固化されている（Tchemitcheff and Verdier, 1993）。

2001年12月に公表されたDOSSIER 2001（ANDRA,2001）によれば、カテゴリB廃棄物、カテゴリC廃棄物（ガラス固化体）と使用済燃料は、物理的及び化学的な相互作用が最小限になるように十分な離間距離を確保すると記載されている。

フランスでは、1998年の政府決定により、地層処分のフィージビリティ研究を2種類の岩盤（堆積岩、結晶質岩）について実施しなければならない。堆積岩についてはMeuseとHaute-Marneとの境界のCallovo-Oxfordian粘土層の調査を実施するための地下研究所を建設中である。一方、結晶質岩系岩盤については、ANDRAが15カ所のサイトにおいて地元との対話を試みたが、全国的な反対を受け、2000年5月に政府は地元住民との対話を中断した。

堆積岩での処分施設構造は図2.2-3に示すようにモジュール構造とし、カテゴリB廃棄物、カテゴリC廃棄物及び使用済燃料であるUOXとMOXの4箇所の処分区域に分割する計画である。モジュール化することによる利点として以下のことが挙げられる。

段階的に処分施設開発することにより、得られた経験が次のモジュールを設計する際に利用可能である。

モジュールアプローチにより処分施設を区分化でき、安全性が向上する。

カテゴリB廃棄物の定置方法としては、図2.2-3(右)に示すように廃棄物容器を積み上げる縦置きと廃棄物容器を押してハンドリングする横置きを検討している。また、カテゴリC廃棄物についてもカテゴリB廃棄物と同様に縦置きと横置きを検討している。

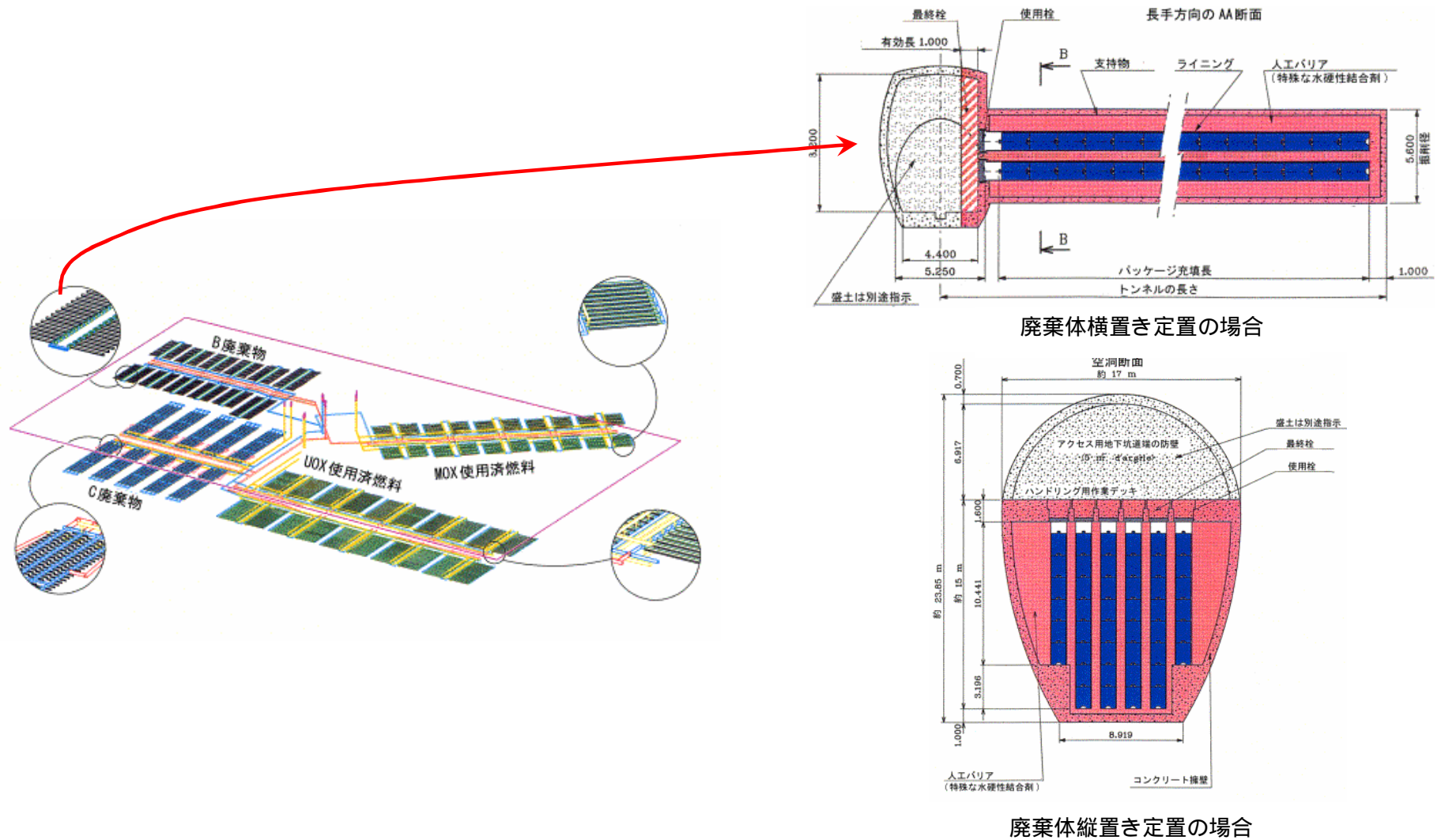


図2.2-3 フランスにおけるカテゴリB廃棄物の処分概念(堆積岩)

(3) スイス

スイスでは、放射性廃棄物の分類として下記の3カテゴリを用いている。

高レベル放射性廃棄物（ガラス固化体，廃棄物とみなされた使用済燃料）

長寿命・中レベル放射性廃棄物（主に再処理によって発生する 核種を含む廃棄物）

低中レベル放射性廃棄物（その他の放射性廃棄物で大部分が短寿命なもの）

長寿命・中レベル放射性廃棄物の主要な発生源は，再処理工場である。長寿命・中レベル放射性廃棄物としては，セメント固化（あるいは圧縮体化）したハル・エンドピースや雑固体，セメントあるいはピチューメンで固化した沈殿・濃縮物などがある。

スイスではわが国と同じく再処理契約に基づき，フランスとイギリスの再処理工場から発生する廃棄物が返還されるため，再処理廃棄物と使用済燃料に対して十分な収容量を有する集中中間貯蔵施設（ZWILAG）が建設された。さらに，初期の原子力開発の研究活動によって発生した 核種汚染廃棄物が存在している。スイスでは，放射性廃棄物は下記の2タイプの処分施設にそれぞれ処分される予定である。

表2.2 4 処分施設と廃棄物種類の関係

処分施設	対象廃棄物
低中レベル放射性廃棄物の処分施設	原子力発電所，医療，産業及び研究施設の運転及び解体から発生する低中レベル廃棄物 再処理から発生する低レベル雑固体廃棄物
使用済燃料，HLW及び長寿命中レベル放射性廃棄物の処分施設	使用済燃料 高レベル放射性廃棄物（ガラス固化体）（HLW） 長寿命・中レベル放射性廃棄物（ILW）：主として再処理工場から発生

2002年12月に公表されたNAGRA(2002)では，オパリナス粘土層と呼ばれる堆積岩層に設置される地層処分施設のレイアウト（図2.2 4参照）が示されており，長寿命・中レベル放射性廃棄物は使用済燃料及びHLW処分施設とは異なる専用の処分坑道に定置されることが計画されている。

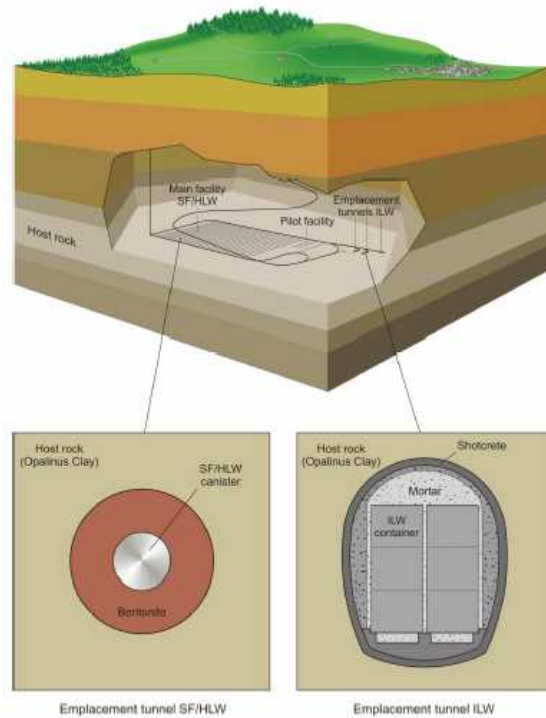


図2.2-4 オパリナス粘土層における地層処分施設レイアウト

長寿命・中レベル放射性廃棄物のバリアシステムは図2.2-5に示すとおりであり、鋼製ドラム缶等内にセメント固化（あるいは一部を圧縮体化）及びピチューメン固化した後、コンクリート製コンテナに収納してモルタルで充填した後に処分される。また、長寿命・中レベル放射性廃棄物処分坑道は、使用済燃料及びHLWの処分坑道よりも断面が大きく、コンテナ定置後の間隙はモルタルで充填される計画である。

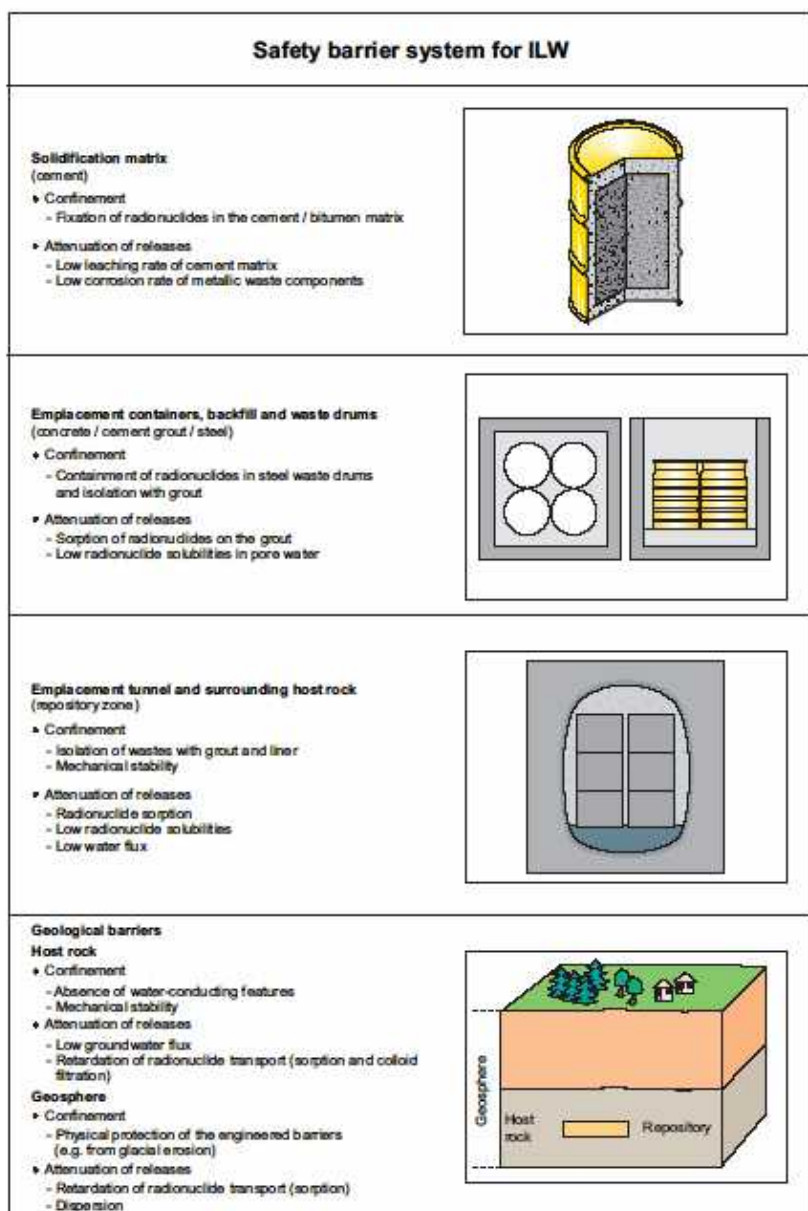


図2.2 5 長寿命中レベル廃棄物のバリアシステム

NAGRA(2002)では、処分施設レイアウトの主要な特徴として、長寿命・中レベル放射性廃棄物の処分坑道は、使用済燃料・HLWの処分坑道から500mほど離れた場所に設置することが記されており、長寿命・中レベル放射性廃棄物処分坑道から使用済燃料・HLWの処分坑道へのアルカリブームによる影響の可能性を除くことができるとしている。

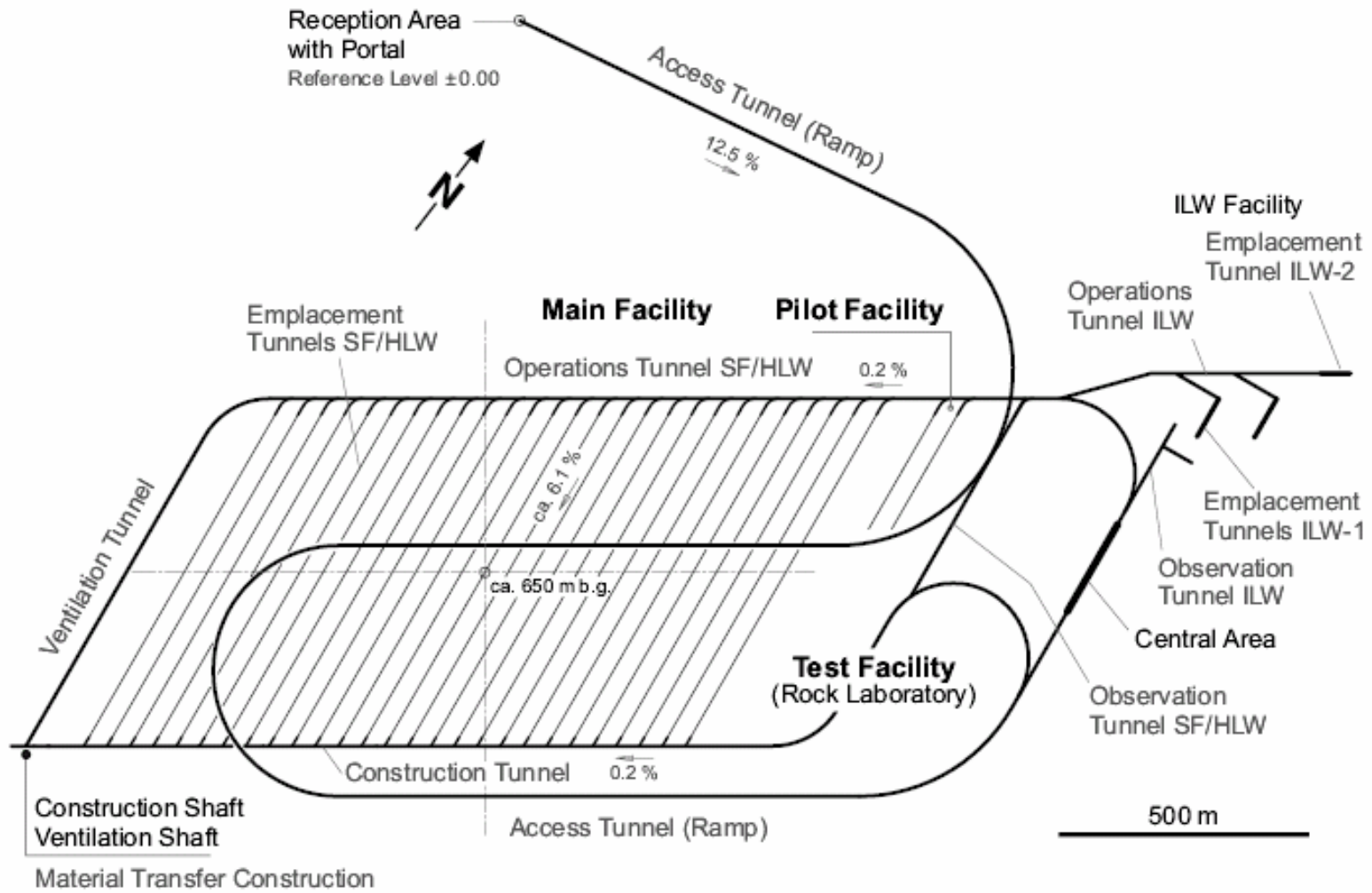


図2.2-6 スイスにおける使用済燃料・HLWと長寿命・中レベル廃棄物の処分概念(NAGRA,2002)

(4) ドイツ

ドイツでは、放射性廃棄物は処分時に地層への熱影響を考慮しなければならない発熱性放射性廃棄物と、熱の影響を無視できる非発熱性放射性廃棄物に分類され、いずれも地層処分が計画されている。日本のTRU廃棄物に相当する廃棄物は、熱影響の度合いによって発熱性及び非発熱性のいずれかに分類される。

表2.2-5 ドイツにおける放射性廃棄物の分類

発熱性放射性廃棄物	廃棄物の発熱による処分母岩の温度上昇が3度以上で放射性核種の濃度が高レベルもしくは中レベルのもの
非発熱性放射性廃棄物	廃棄物の発熱による処分母岩の温度上昇が3度未満で放射性核種の濃度が中レベルもしくは低レベルのもの

発熱性放射性廃棄物の処分施設については、1970年代からGorlebenを候補としてサイト特性調査が行われてきたが、1998年に成立した連立政権の原子力政策見直しの一環として2000年以降は新たな探査活動は凍結され、現在はサイト選定手続や要件の見直し検討が行われており、処分施設は未定となっている。

非発熱性放射性廃棄物については、旧鉄鉱山のKonradに処分される計画である。

サイト選定手続や要件の検討をしているサイト選定手続委員会(AkEnd)の報告書によると、発熱性放射性廃棄物については、フランスへ再処理委託して返還される中レベル放射性廃棄物は高レベルと同様に処分でき、イギリスへ再処理委託して返還される中レベル放射性廃棄物はボーリング孔又は坑道に処分することができるとされている。非放射性廃棄物については、中レベル及び低レベルの処分方法の違いに関する記述はない。

2.3 併置処分における相互影響の検討事例

2.1の調査対象国の中から、併置処分における相互影響を検討している事例として、スイス、スウェーデン、フランス及び英国の併置処分施設の概要及び検討状況を整理し、表2.3-1及び表2.3-2に示す。各国における検討項目及び状況は、以下に示すとおりである。

各国における併置処分に関する検討項目は、以下の4項目である。但し、これらに関する詳細な結果は公表されていない。

- HLW又は使用済燃料の発熱
- TRU廃棄物中の有機物
- TRU廃棄物中の劣化物
- 高pHブルーム

スイスでは、長寿命・中レベル放射性廃棄物処分坑道のセメント系埋戻し材及び構造躯体から発生する高pHブルームが母岩を変質させるとともに、HLW・使用済燃料処分坑道のベントナイトを変質させる可能性があるとしている。そのため、結晶質岩サイトでは母岩の亀裂を利用して長寿命・中レベル放射性廃棄物処分坑道とHLW・使用済燃料処分坑道を隔離し、堆積岩サイトでは母岩が比較的均質であるため、500mほどの離間距離を確保するとしている。

スウェーデンでは、SFL2（使用済燃料処分施設）からの発熱、SFL3～5中の腐食生成物及びSFL3の有機物が考慮されている。また、これらを踏まえてSFL2とSFL3～5は相互作用を回避するため、1kmの離間距離を確保し、両施設間の連絡坑道は埋め戻しとプラグにより隔離するとしている。さらに、SFL3～5は、支配的な地下水勾配の観点からSFL2の下流に設置することを計画している。

フランスでは、TRU廃棄物、HLW及び使用済燃料の相互影響を軽減するため、処分エリアを分割し、数100mの離間距離を確保するとされているが、詳細は不明である。

表2.3-1 各国における併置処分施設の概要

国名	対象廃棄物	TRU廃棄物処分施設	全体レイアウト
スイス	高レベル放射性廃棄物 ガラス固化体，使用済燃料 長寿命・中レベル放射性廃棄物 ハル・エンドピース，ピチューメン固化体 及びセメント固化体	水平処分坑道の寸法： 9mH × 7mW × 数100mL	ガラス固化体・使用済燃料処分坑道とILW処分坑道は，500m程度離される。
スウェーデン	高レベル放射性廃棄物 使用済燃料（SFL2） 長寿命中・低レベル放射性廃棄物 長寿命廃棄物（SFL3）， - 解体廃棄物（SFL4） 及び原子炉構造物（SFL5）	水平処分坑道（SFL3）の寸法： 15mW × 18mH × 80mL	使用済燃料処分施設と長寿命・中低レベル放射性廃棄物の処分施設群から構成されている。
フランス	高レベル放射性廃棄物 ガラス固化体，使用済燃料 カテゴリB廃棄物*1 ハル・エンドピース，ピチューメン固化体 及び雑固体廃棄物	水平処分坑道（堆積岩）の寸法 廃棄体縦置き：17～24mH × 100m 廃棄体横置き：5.6m × 約100m	ガラス固化体，使用済燃料とTRU廃棄物処分エリアに区分されている。
英国	高レベル放射性廃棄物 ガラス固化体，使用済燃料 長寿命・中低レベル放射性廃棄物 ハル・エンドピース及びセメント固化体	水平処分坑道の寸法： 16mW × 16mH × 数100mL 14.4mW × 16.5mH × 数100mL	ガラス固化体，使用済燃料とILW/LLW処分エリアに区分されており，両者は500m離されている。

*1カテゴリB廃棄物： 放射性核種（3.7GBq/t以上）を含む長寿命・中低レベル放射性廃棄物

表2.3-2 各国の併置処分における想定事象及び対応策

	スイス(NAGRA, 1994a; 2002)	スウェーデン(Wiborgh, 1995)	フランス(ANDRA, 2001)	英国(King et al., 2002)
基本的な考え方	人工バリア材及び劣化生成物の影響を回避するために、中レベル放射性廃棄物(ILW)処分坑道はHLW・使用済燃料処分坑道と分離する。	SFL2とSFL3～5は相互影響を回避するため、離間距離を確保して建設する。ただし、長期的観点から、施設間の相互作用は完全に排除できない。	TRU廃棄物とHLWの相互影響を軽減するために処分エリアを2分割し、ある程度の離間距離を確保する。	ILW/LLW処分施設からのセメントブルームとHLW・使用済燃料処分施設のベントナイトの相互作用を回避するため、両者を分離する。
想定する事象	ILW処分坑道の埋戻し材及び構造躯体から発生する高pHブルームは母岩を変質させ、HLW・使用済燃料処分坑道のベントナイトを変質させる可能性がある。	SFL2では熱が発生するが、温度上昇がSFL2の水流及びSFL3～5の人工バリアに影響を及ぼす可能性は低い。 SFL3～5中の腐食性物質等がキャニスタ寿命及びベントナイト安定性に影響を与える可能性がある。 SFL3のセルロース分解生成物は、放射性核種放出又は遅延に影響する可能性がある。	詳細不明	熱的影響は、100mの離間距離を確保すれば、許容できるレベルになる。 ILW/LLW処分施設からの高pH及び有機物の分解生成物が、HLW・使用済燃料処分施設のベントナイト、ガラスの溶解速度及び核種の溶解度等に影響する可能性がある。
対応策	結晶質岩サイトではILW処分坑道は母岩亀裂を利用し、HLW・使用済燃料処分坑道から隔離する。 堆積岩サイトでは、母岩が比較的均質であるため、ILW処分坑道はHLW・使用済燃料処分坑道から500mの離間距離を確保する。	SFL2とSFL3～5は相互作用を回避するため、1 kmの離間距離を確保し、両施設間の連絡坑道は埋戻し及びプラグにより隔離する。 SFL3～5は、支配的な地下水勾配の観点からSFL2の下流に設置することを検討すべきである。	詳細不明	HLW・使用済燃料処分施設とILW/LLW処分施設の間には低透水性岩盤が必要である。また、アクセス坑道にはプラグを設置し、トンネル周辺岩盤にはグラウトする。 標準的な離間距離は、500mである。

3. 相互影響評価

3.1 影響因子の抽出・整理

TRU 廃棄物と HLW の両地層処分施設を同一のサイトに併置処分することを想定した場合に、閉鎖後の安全性能に関して、両処分施設間で相互に影響を及ぼす可能性のある項目を抽出・整理した。

(1) 相互影響の基本機構

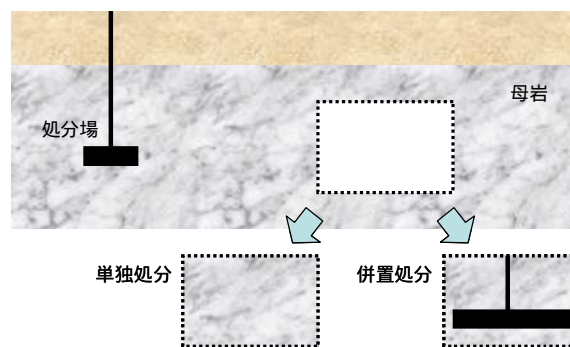
併置処分における 2 種の処分施設間での相互影響は、次の 2 つの基本機構によって発現する。

a. 地質環境の擾乱 (図 3.1-1a 参照)

単独処分では本来健全な母岩である領域に、併置処分では母岩とは諸特性の異なるもうひとつの処分施設エリア (処分坑道、連絡坑道、アクセス坑道、付帯地下施設、掘削影響領域等を含む) が出現することとなる。結果として、単独処分の場合に比較して併置処分の場合には種々の環境条件がより擾乱を受けた状態にあると言える。

b. エネルギー伝播、物質移動 (図 3.1-1b 参照)

2 つの処分施設に同種のエネルギー / 物質が含まれていて、その物理量が周辺環境に比較して大きい場合、あるいは両者の絶対値に顕著な差異がある場合、それらエネルギー伝播挙動あるいは物質移動挙動に相互影響が生じうる。例えば、HLW 処分施設に起因する TRU 廃棄物処分施設への熱伝播がこれに相当する。また、2 つの処分施設のうちの一方にのみ含まれている固有の物質の伝播は、当該物質の存在を基本的に想定していない他方の処分施設への影響因子となる。TRU 廃棄物処分施設に起因する有機物、高 pH 及び硝酸塩等の HLW 処分施設への物質移動がこれに相当する。



a) 地質環境の擾乱



b) エネルギー伝播、物質移動

図3.1-1 併置処分における相互影響の 2 つの基本機構

(2) 相互影響の体系的整理

a. 地質環境の擾乱に起因する相互影響

地質環境の擾乱に起因する相互影響の大きさについては次のことが言える。

処分エリアが大きいほど、地質環境の擾乱が大きくなる。

離間距離を大きくとることで、相互影響を防止あるいは緩和できる。

TRU廃棄物処分施設とHLW処分施設について、現在想定されている処分エリアの大きさを実スケールと同じ縮尺で図3.1-2に表示する。HLW処分施設の方がはるかに広いエリアを要する設計となっており、併置処分の場合、相互影響の方向性はHLW TRU廃棄物となること、換言すれば、TRU廃棄物処分施設の環境条件評価においては、HLW処分施設の存在による擾乱についてより多くの注意を払う必要があることを意味している。



図3.1-2 処分エリアの比較

b. エネルギー伝播、物質移動に起因する相互影響（表3.1-1下段参照）

エネルギー伝播、物質移動に起因する相互影響の大きさについては次のことが言える。

エネルギー量あるいは固有物質量を減少させることで、相互影響を防止あるいは緩和できる。

離間距離を大きくとることで、相互影響を防止あるいは緩和できる。

表3.1-1 TRU廃棄物 HLW処分施設の相互影響の整理

a) 地質環境の擾乱

【TRU】	相互影響機構		【HLW】
温度		HLW処分施設のエリアが広く，その熱物性が母岩とは異なる場合，TRU廃棄物処分施設周辺の温度に影響 (軽微)	温度
水理		HLW処分施設のエリアが広く，その水理特性が母岩とは異なる場合，TRU処分施設周辺の地下水流動に影響 TRU廃棄物処分施設が小さいため，顕著な影響はないと考えられるが，核種移行にも関連する。	水理
力学		HLW処分施設のエリアが広く，その力学的特性が母岩とは異なる場合，TRU処分施設周辺の応力場に影響 (軽微)	力学
化学		TRU処分施設は小さいものの，母岩とは顕著に異なる化学特性を有している。 (軽微)	化学
放射線		(軽微)	放射線
核種移行		HLW処分施設が，TRU処分における有意な核種移行経路となる可能性 TRU処分施設が，HLW処分における有意な核種移行経路となる可能性	核種移行

b) エネルギー伝播，物質移動

【TRU】	相互影響機構		【HLW】
温度		HLW処分施設からの発熱が，TRU廃棄物処分施設周辺の温度に影響 (軽微)	温度
水理	-	(該当しない)	-
	-	(該当しない)	-
力学	-	(該当しない)	-
		(該当しない)	
化学		HLW処分施設で発生したガスとTRU廃棄物処分施設で発生したガスとの天然バリアでの連行 TRU廃棄物処分施設に起因する，高アルカリ，有機物，硝酸塩，セメントコロイド及びガスによるHLWへの影響	化学
放射線		(軽微)	放射線
		(軽微)	
核種移行		HLW起因の核種プルームによる，TRU処分における濃度干渉	核種移行
		TRU起因の核種プルームによる，HLW処分における濃度干渉	

矢印の向きは影響の方向性を，矢印の数は影響の相対的大きさを示す。

(3) 潜在的に重要な相互影響機構

前項表3.1-1で抽出された相互影響機構のうち、相対的な影響の大きさが中以上（矢印2つ分以上）と判断されているものを潜在的に重要な相互影響機構として抽出する。

温度

影響の方向：TRU廃棄物 HLW

基本機構：地質環境の擾乱 / エネルギー伝播

潜在的に重要な相互影響機構：母岩とは異なる熱物性を有する領域（HLW処分施設）による擾乱が存在する環境下でのTRU廃棄物処分施設近傍での温度の時間的・空間的变化への影響

水理

影響の方向：TRU廃棄物 HLW

基本機構：地質環境の擾乱

潜在的に重要な相互影響機構：母岩とは異なる水理学的物性を有する領域（HLW処分施設及びTRU廃棄物処分施設）による擾乱が存在する環境下でのHLWとTRU廃棄物処分施設近傍、あるいは広域での地下水流動への影響

応力

影響の方向：TRU廃棄物 HLW

基本機構：地質環境の擾乱

潜在的に重要な相互影響機構：母岩とは異なる力学的物性を有する領域（HLW処分施設）による擾乱が存在する環境下でのTRU廃棄物処分施設近傍での応力場への影響

化学

影響の方向：TRU廃棄物 HLW

基本機構：地質環境の擾乱，物質移動

潜在的に重要な相互影響機構：母岩とは異なる化学的特性を有する領域（TRU廃棄物処分施設）による擾乱が存在する環境下での、HLW処分施設近傍での地球化学的環境の時空変化への影響。より具体的には、TRU廃棄物処分施設に由来する、高pH、有機物、硝酸塩、セメントコロイド及びガス等が細目として挙げられる。

放射線場

TRU廃棄物処分施設あるいはHLW処分施設の個別施設内においても、放射線場の影響が顕在化することはないと考えられていることから、離間距離の長短に関わらず、放射線場に関する相互影響は無視できるほど小さいとする。

核種移行

影響の方向：TRU廃棄物 HLW

基本機構：地質環境の擾乱 / 物質移行

潜在的に重要な相互影響機構：母岩とは異なる水理学的物性及び物質移行特性を有する領域（HLW処分施設及びTRU廃棄物処分施設）による擾乱が存在する環境下での、HLWとTRU廃棄物処分施設近傍、あるいは広域での核種移行への影響

(4) 本検討のための相互影響機構のスクリーニング

前項まででは、HLW処分施設とTRU廃棄物処分施設が同一サイトに建設されるとした場合に、シナリオ解析上想定されうる相互影響機構を幅広く抽出している。しかしながら、相互影響機構の検討の目的は、サイト条件、各処分施設レイアウト、各人工バリア仕様及び廃棄体仕様等の不確定要因が多く残されている現状において、併置処分の成立性の意思決定に資する材料をまずは取り揃えることにあり、その意味では、前項で抽出されている潜在的な相互影響機構の全てについて定量的に検討することは、必ずしも現実的ではない。

表3.1-2では、前項で抽出した潜在的に重要な影響機構をスクリーニングし、次項以降での定量的検討から除外できる項目とその除外理由を示している。

地質環境の擾乱に関する影響機構は、サイトの地質環境条件(地質層序、断層の有無、異方性、不均質性など)に強く依存している。これらは、併置処分を事業として実施する段階では重要な検討事項となる可能性があるが、サイトが特定できない現状においては、これら影響機構の定量的評価結果が肯定的・否定的いずれの場合であっても、それを併置処分の成立性の判断に用いることは適切ではないと判断した。

TRU廃棄物処分施設からのセメントコロイドの物質移行によるHLW処分施設への影響については、TRU廃棄物処分施設でもセメントコロイドの影響が発現するかどうか必ずしも議論が統一されていないこと、HLW処分施設でも支保等にセメント系材料を用いる可能性があること、また、実施する他の検討(例：高pHブルーム)での離間距離が確保できるなら、セメントコロイドの影響は十分緩和されることから除外した。

TRU廃棄物処分施設からのガスの物質移行によるHLW処分施設への影響については、現状、HLW処分施設からのガス発生は無視しうるとされていること(H12レポート(核燃料サイクル開発機構、1999b))から、天然バリアでのHLWとTRU廃棄物のガス移行は検討の対象とならない。

TRU廃棄物処分施設からの漏洩核種とHLW処分施設からの漏洩核種の濃度干渉性への相互影響については、HLWとTRU廃棄物処分施設間の濃度干渉性よりは、それぞれの処分施設における隣接する処分坑道間での濃度干渉性の方がより重要であり、併置処分の成立性への影響は小さいと判断した。

以上から、次節以降では、閉鎖後の安全性能の観点から TRU 廃棄物と HLW の併置処分の成立性を判断する上で重要であると考えられる相互影響機構として下記 4 項目を取り上げ、定量的に検討することとした。

HLW処分施設からTRU廃棄物処分施設への熱の伝播

TRU廃棄物処分施設からHLW処分施設への有機物の移行と影響

TRU廃棄物処分施設からHLW処分施設への硝酸塩の移行と影響

TRU廃棄物処分施設からHLW処分施設への高pHブルームの移行と影響

表3.1-2 潜在的に重要とされた相互影響機構のスクリーニング

分野	内容	影響の方向	除外理由
温度	環境擾乱	TRU HLW	<p>サイトの地質環境条件(地質層序,断層の有無,異方性,不均質性など)に強く依存する。併置処分を事業として実施する段階では重要な検討事項となりうるが,サイトが特定できない現状における,これら影響機構の定量的評価結果を併置処分の成立性の判断に用いることは適切ではない。</p>
水理	環境擾乱	TRU HLW TRU HLW	
力学	環境擾乱	TRU HLW	
化学	環境擾乱	TRU HLW	
核種移行	環境擾乱	TRU HLW TRU HLW	
化学	物質移動 セメントコロイド	TRU HLW	<p>TRU廃棄物処分でのセメントコロイドの取扱いの確からしさ自身が未定である。HLWでも支保等にセメント系材料を使用する可能性がある。</p> <p>また,実施する他の検討(例:高pH)での離間距離が確保できるならば,セメントコロイドの影響は小さいことが予想される。</p>
水理	物質移動 ガス	TRU HLW	<p>現状,HLWからのガス発生は無視しうるとされていること(H12レポート)から,天然バリアでのHLW/TRU廃棄物のガス移行は検討の対象とならない。</p>
核種移行	物質移動 濃度干渉	TRU HLW TRU HLW	<p>HLW/TRU廃棄物間の濃度干渉性よりは,それぞれの処分施設における隣接する処分坑道間での濃度干渉性の方がより重要であり,併置処分の成立性への影響は小さい。</p>

3.2 熱影響

(1) 廃棄体の発熱量

HLW(ガラス固化体)の発熱率は、表 3.2-1 及び図 3.2-1 に示すように TRU 廃棄物の中で発熱率が最も高いハル・エンドピースと比較して 10 倍以上高い。また、TRU 廃棄物処分施設に処分されるハル・エンドピースの廃棄体数は約 29,000 本であり、ガラス固化体 43,500 本よりも少ないことから、熱及び温度の影響は HLW 処分施設から TRU 廃棄物処分施設への方向が主であり、逆方向の影響を考慮する必要はないと考えられる。ガラス固化体を 50 年中間貯蔵した場合の発熱率の経時変化は、表 3.2-2 及び図 3.2-2 に示すとおりである。

表 3.2-1 廃棄体 1 体当たりの発熱率の比較

経過時間 [年]	ガラス固化体 [W/本]	ハル・エンドピース [W/本]
基準年	2.4E+03	2.1E+02
10	9.0E+02	6.3E+01
100	1.3E+02	2.8E+00
1000	6.0E+00	4.9E-01

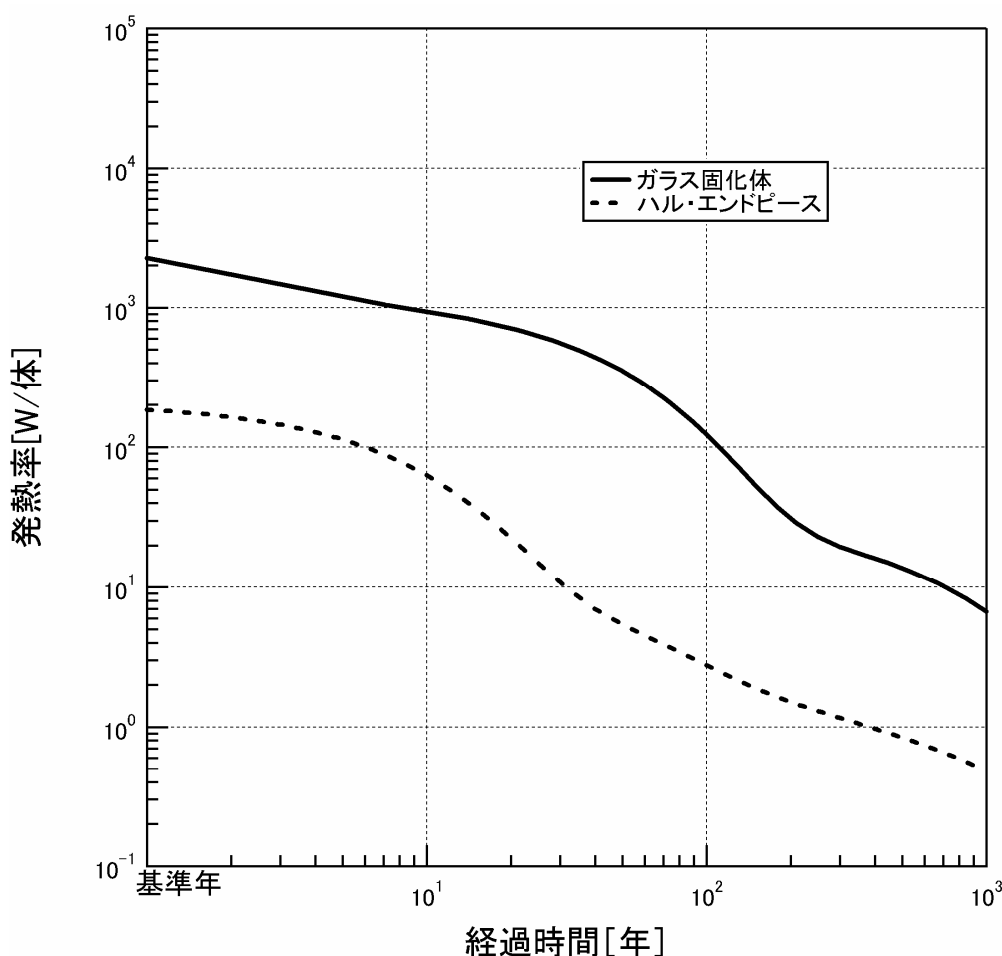


図 3.2-1 ガラス固化体とハル・エンドピースの発熱率の経時変化

表 3.2-2 ガラス固化体を 50 年間貯蔵した場合の発熱率

経過時間 [年]	ガラス固化体 [W/本]
処分直後	3.5E+02
1	3.4E+02
10	2.8E+02
100	5.3E+01
1000	6.3E+00

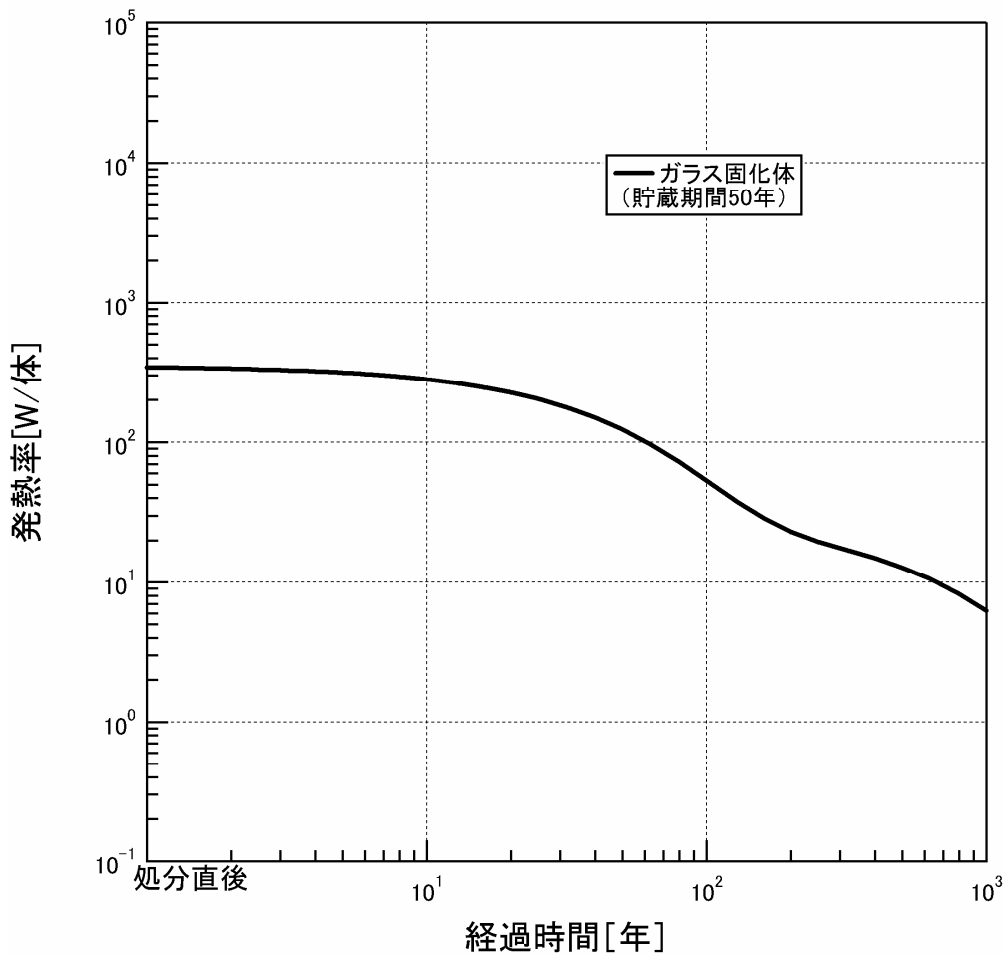


図 3.2-2 ガラス固化体の発熱率の経時変化(中間貯蔵期間 50 年)

(2) 解析体系及びモデル

今回の熱解析では、HLW処分施設の処分形態（縦置き、横置き）及び母岩の熱特性の差異を把握するため、結晶質岩系岩盤及び堆積系岩盤について実施した。

熱移動には、上述したように伝導伝熱、対流伝熱（境膜伝熱）と放射伝熱の3形式があるが、地層処分環境下においては岩盤が存在し、かつ、地下水流速が十分小さいことから、HLWの発熱による岩盤中に発生する温度勾配に基づく伝導伝熱が支配的であり、これを考慮すればよい。また、HLWの処分施設は2km四方の薄い平板で代表することができることから、解析体系は2次元で取り扱うことができると考えられる。

したがって、今回の解析では図3.2-3に示すような体系を設定し、処分施設及び母岩は2次元で取扱い、HLW処分施設からTRU廃棄物処分施設への熱移動は、熱伝導解析コード「TRUMP」を使用することとした。

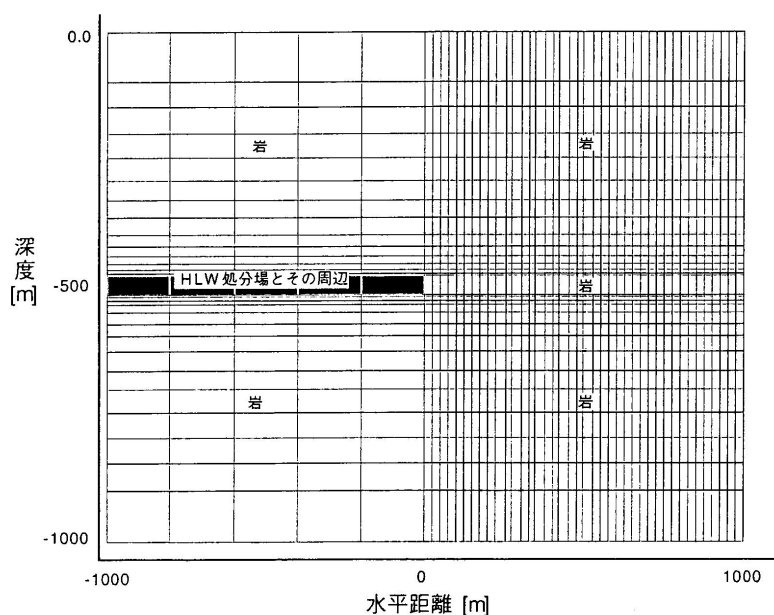
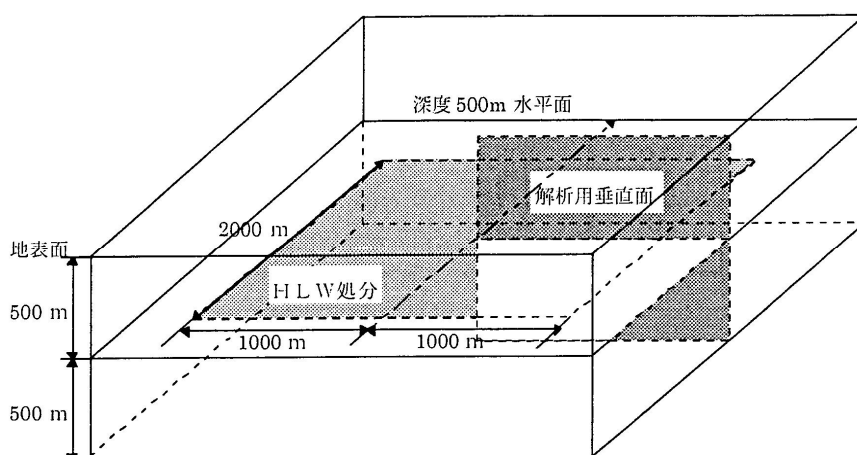


図3.2-3 熱伝導解析のモデル

また、境界条件は、上下方向にそれぞれ 500m離れた地点を温度一定境界(地表面温度：15℃ ，地下500m ，温度：30℃ ，地温勾配：3℃ / 100m)とし、水平方向はHLW処分施設中心から2,000 m離れた地点を断熱境界とした。今回の熱解析に使用する人工バリア及び岩盤の熱的物性値は、表3.2-3に示すとおりである。

表3.2-3 人工バリア及び岩盤の熱的物性値

対象物	熱伝導率 (W / m · K)	比熱 (J / kg · K)	単位体積重量 (Mg / m ³)	空隙率 (%)
ガラス固化体	1.2	960	2.8	-
オーバーパック	53.0	460	7.8	-
緩衝材	1.7	1,000	2.1	-
埋め戻し材	2.4	1,400	1.85	-
結晶質岩	2.8	1,000	2.7	2
堆積岩 (SR-C)	2.2	1,400	2.7	30

(3) 解析結果

HLW 処分施設の発熱による岩盤の温度上昇と離間距離の関係を、図 3.2-4～3.2-5 及び表 3.2-4～3.2-5 に示す。50 年間中間貯蔵した場合には、HLW 処分施設から 100m離れた地点では、結晶質岩系岩盤及び堆積岩系岩盤とも温度上昇は 5℃ 以下であり、300m離れた地点では 1℃ 以下である。

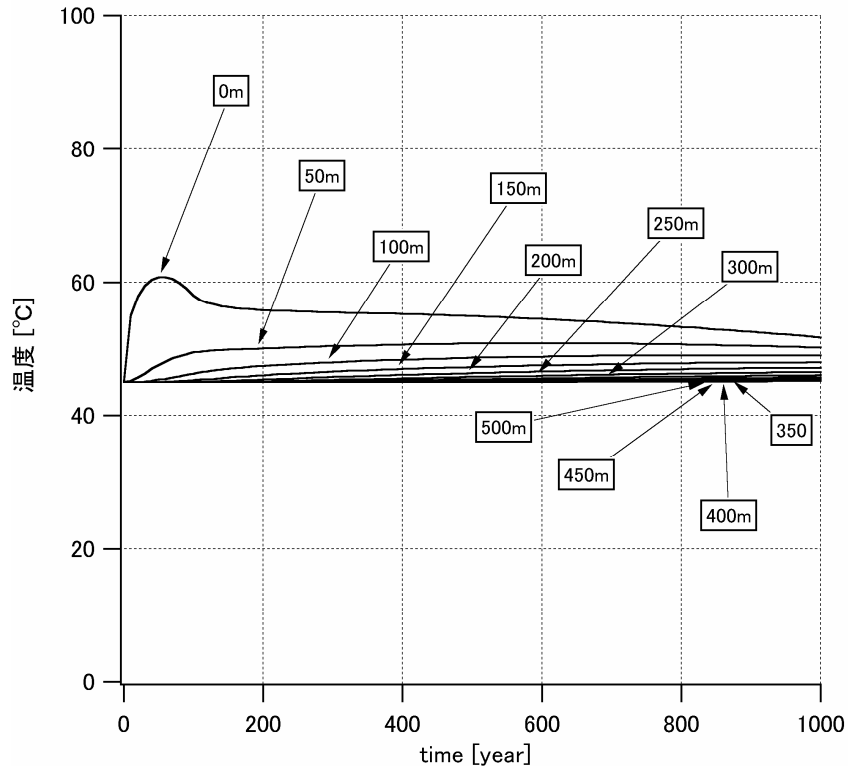


図 3.2.4 結晶質岩系岩盤（縦置き）における温度変化と離間距離

表 3.2.4 温度上昇と離間距離の関係（結晶質岩系岩盤）

離間距離 (m)	到達温度 (°C)	到達年 (年)
0	60.82	50
50	50.83	600
100	49.03	840
150	47.96	1000
200	47.16	1000
250	46.53	1000
300	46.06	1000
350	45.71	1000
400	45.47	1000
450	45.30	1000
500	45.18	1000
550	45.11	1000
600	45.06	1000
650	45.03	1000
700	45.02	1000
750	45.01	1000
800	45.00	1000
850	45.00	0
900	45.00	0
950	45.00	0
1000	45.00	0

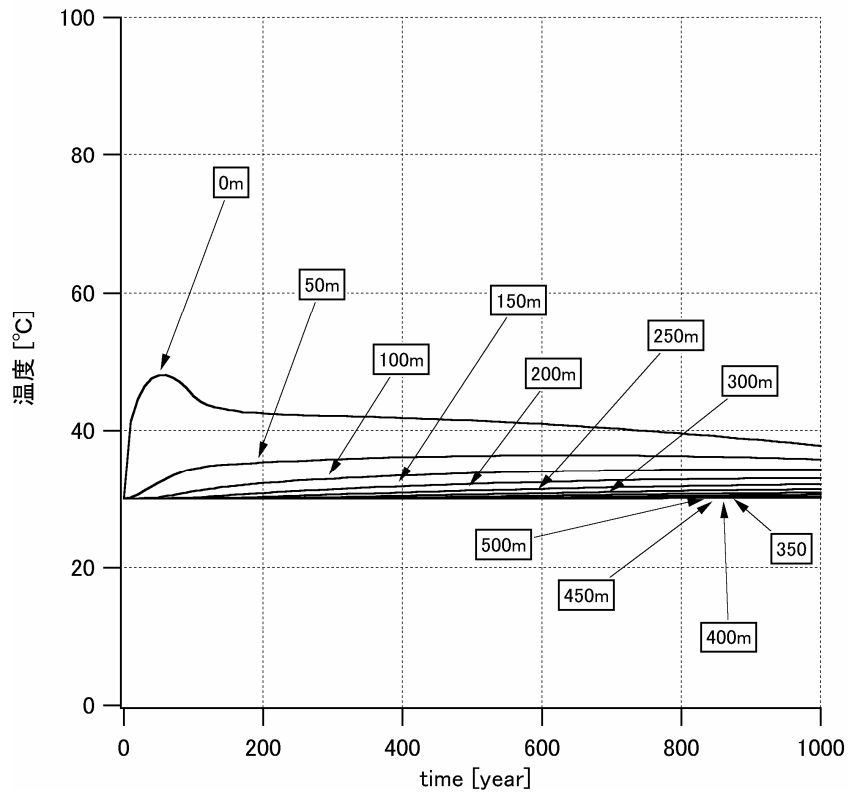


図 3.2-5 堆積岩系岩盤 (SR-C) における温度変化と離間距離

表 3.2-5 温度上昇と離間距離の関係 (堆積岩系岩盤(SR-C))

離間距離 (m)	到達温度 (°C)	到達年 (年)
0	48.07	60
50	36.41	630
100	34.30	890
150	33.04	1000
200	32.11	1000
250	31.41	1000
300	30.91	1000
350	30.57	1000
400	30.34	1000
450	30.20	1000
500	30.11	1000
550	30.06	1000
600	30.03	1000
650	30.02	1000
700	30.01	1000
750	30.00	990
800	30.00	990
850	30.00	1000
900	30.00	940
950	30.00	930
1000	30.00	990

(4) 廃棄物の発熱が人工バリア性能に与える影響

廃棄物の発熱により、人工バリア内の温度が上昇すると、溶解度、収着分配係数及び拡散係数等の核種の収着挙動が変化するとともに、人工バリアの変質が促進される可能性がある。

HLW 処分施設では、緩衝材が長期に亘り顕著な変質を起こさないように、最高温度が 100 未満となるように定置間隔が設定されている。これは国内外の試験・評価及びナチュラルアナログに基づき、100 を超えない温度であれば、ベントナイトの主要構成鉱物であるスメクタイトの鉱物学的変化は起こらないことに基づくものである（核燃料サイクル開発機構、1999b）。

TRU 廃棄物処分施設については、人工バリア材としてセメント系材料とベントナイト系材料を使用しているため、第 1 次 TRU レポートではセメント系材料について放射性核種の吸着性が低下しない（C-S-H ゲルが結晶化しない）上限温度として 80 を設定し、廃棄体（ハル・エンドピース）の処分坑道への定置密度及び処分坑道の離間距離が設定されている。（図 3.2-6 参照）

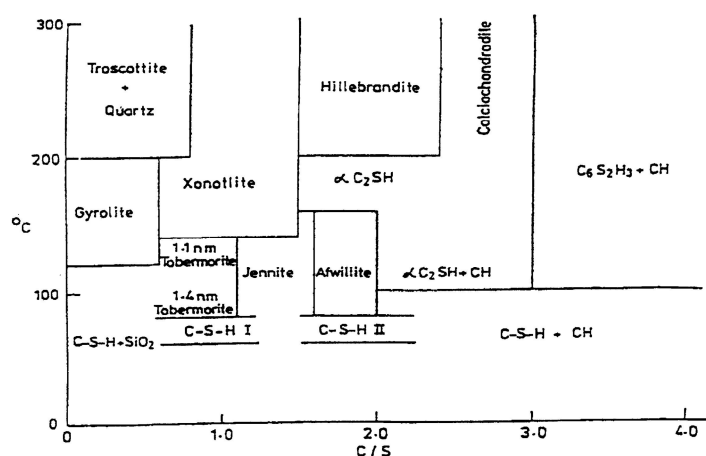


図 3.2-6 C-S-H ゲルの熱変成

(5) 廃棄物の発熱が天然バリア性能へ与える影響

今回の熱解析に基づけば、HLW を 50 年中間貯蔵した場合、HLW 処分施設近傍の温度上昇は 20 以下（処分深度 500m における地質環境温度が 30 の場合、50 以下）であることから、岩盤中の鉱物に変質することはないと考えられる。

熱移動には、伝導伝熱、対流伝熱（境膜伝熱）と放射伝熱の 3 形式がある。伝導伝熱は固体及び液体を経由した熱移動であり、対流伝熱は主として流体の移動を伴う伝熱である。これに対し、放射伝熱は前二者と異なり、直接媒体を経ずに空間を経由することから、地層処分環境のように岩盤が存在する場合には考慮する必要はない。

地層処分環境下においては、HLW 処分施設からの発熱により地下水の温度が上昇し、その密度が変化することにより地下水は浮力を受けて対流を生じ、処分施設近傍の水理が擾乱される可能性がある。対流は流体の移動が伴う強制対流と静止流体中の流体の密度勾配により発生する自然対流に大別できるが、地層処分環境では岩盤の透水係数及び動水勾配が十分に小さく、地下水の流れは極めて緩慢であることから、自然対流のみを考慮すればよいと考えられる。

自然対流は温度勾配がある限界を超えると発生するとされ、次式の無次元数であるレイリー数 R により判断できる。一般的には、レイリー数が 40 以下であれば自然対流は起こらないとされて

いる。

$$R = \frac{\rho_a g c_a \alpha_v K_v L_c \Delta T}{\mu k_v} \quad (3.2-1 \text{ 式})$$

上式において、 ρ_a は対象母岩の密度、 c_a は比熱、 α_v は線膨張係数、 K_v は鉛直方向の固有透過係数、 k_v は鉛直方向の透水係数、 μ は地下水の動粘性係数、 L_c は岩盤厚さ、 ΔT は温度差である。後述する HLW 処分施設の伝熱計算による周辺母岩の温度影響範囲と温度差及び堆積岩系岩盤及び結晶質岩系岩盤の物性値に基づけば、レイリー数は 40 を超えないことから、対流伝熱を考慮する必要はないと予想される。

(6) まとめ

HLW 処分施設の発熱による影響は、HLW 処分施設から 100m 離れた地点では結晶質岩系岩盤及び堆積岩系岩盤とも温度上昇は 5 以下であり、300m 離れた地点では 1 以下であることから、TRU 廃棄物と HLW 処分施設の離間距離は数 100m 確保することにより、その影響を考慮する必要はないと考えられる。

3.3 有機物影響

(1) 廃棄物中の有機物の種類

第2次 TRU レポートの「2.5 廃棄体の特性」における廃棄体含有物質情報に基づけば、TRU 廃棄物には複数の有機物が含まれるが、アスファルト及び廃溶媒については核種の溶解度及び収着挙動に与える影響は小さいという結論が得られていることから、本項では JNC のハル・エンドピースに含まれるセルロース系有機物について検討することとする。

英国 AEA 及びスイス PSI の既往研究に基づけば、放射性核種の分配係数及び溶解度に影響を与える物質としてはセルロースの分解生成物であるイソサッカリン酸 (ISA : Iso Saccharinic Acid) が錯生成の高い物質として指摘されており、英国、スイス及びスウェーデン等の諸外国の安全評価においても取り上げられている (Bradbury et al., 1994)。セルロースは図 3.3-1 に示すように $(C_6H_{10}O_5)_n$ の基本構造を有しており、ISA はその分解生成物である。

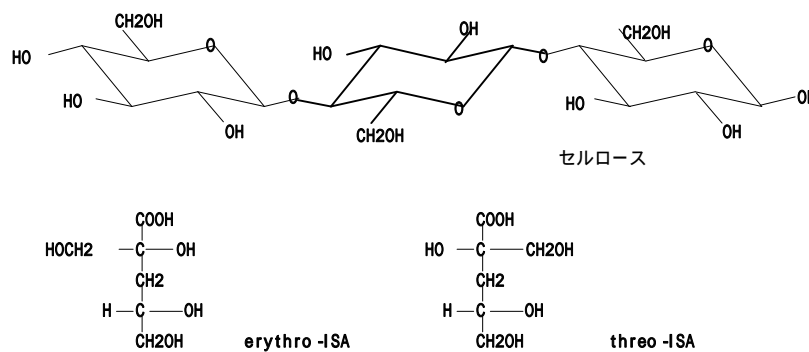


図 3.3-1 セルロース及び ISA の化学構造 (Greenfield and Holtom, 1995)

(2) 有機物プルームの評価

JNC ハル・エンドピースに含まれる有機物は全てセルロース系有機物であるとし、その分解生成物である ISA の収率は 100% と仮定する。TRU 廃棄物処分施設から漏洩した ISA プルームの母岩中での挙動は、次の条件に依存する。

- ISA のインベントリ
- セメント系材料への ISA の収着分配係数
- 母岩への ISA の収着分配係数
- 母岩での地下水流向と流速

有機物プルームの解析では母岩の水理特性の差異を把握するため、解析対象は結晶質岩系岩盤及び堆積系岩盤の2ケースについて実施した。ISAは人工バリア及び天然バリアにその一部が吸着すると予想されるが、定量的なデータが蓄積・整備されていないことから、今回の解析ではセメント系材料には吸着されるが、母岩には吸着されず、地下水により希釈されると仮定する。また、解析体系は処分施設及び周辺岩盤を2次元で取扱うため、2次元物質移行解析コード「AZURE」を使用した。今回の解析に使用するモデルを図3.3-2に示す。また、解析に使用するパラメータ、人工バリア及び岩盤の水理特性を表3.3-1に示す。

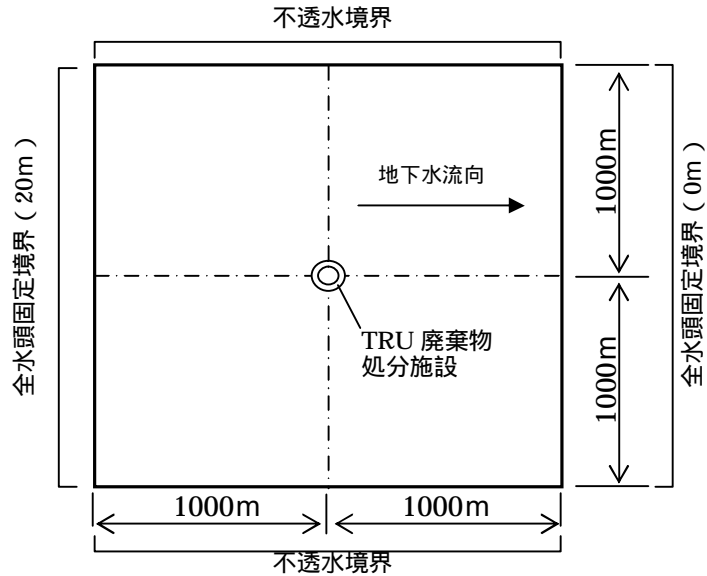


図3.3-2 解析モデル図

表3.3-1 使用パラメータ及び物性値

パラメータ		単位	結晶質岩	堆積岩
有機物量	ISA量	kg	540 (= 0.5kg × 1,084体)	
透水係数	セメントの透水係数	m/s	4×10^{-6}	
	ベントナイトの透水係数	m/s	2×10^{-11}	
拡散係数	セメントでの実効拡散係数	m^2/s	8×10^{-10}	
	ベントナイトでの実効拡散係数	m^2/s	3×10^{-10}	
	母岩での実効拡散係数	m^2/s	8×10^{-11}	1.2×10^{-9}
分配係数	セメントでの収着分配係数	m^3/kg	0.17	
	ベントナイトでの収着分配係数	m^3/kg	0	
	母岩での収着分配係数	m^3/kg	0	
人工バリア 形状	対象処分施設	-	廃棄体グループ2	
	処分施設寸法	m	8.8	11.3
天然バリア	透水係数	m/s	$1 \times 10^{-8}, 1 \times 10^{-9}, 1 \times 10^{-10}$	
	間隙率	-	0.02	0.30
	真密度	Mg/m^3	2.7	2.7
	動水勾配	m/m	0.01	
	分散長	-	移行距離の1/10	

(3) 解析結果

有機物の2次元物質移行解析結果を図3.3-3～図3.3-8に示す。結晶質岩系岩盤と堆積岩系岩盤では空隙率と実効拡散係数が異なるため、有機物プルームの挙動は異なる。

岩盤の透水係数が 1×10^{-10} m/sの場合、結晶質岩系岩盤では 1×10^{-6} mol/dm³のプルームは施設近傍に限定されており、 1×10^{-7} 及び 1×10^{-8} mol/dm³のプルームは処分施設の地下水の上流側では150m以内であり、地下水の下流側ではそれぞれ100及び150m程度である。堆積岩系岩盤では空隙率が大きく、結晶質岩に比較して希釈水量が大きく、かつ、地下水流速も小さいことから、 1×10^{-6} mol/dm³のプルームは処分施設内であり、 1×10^{-7} 及び 1×10^{-8} mol/dm³のプルームは処分施設の地下水の上流側及び下流側ともそれぞれ50及び100m程度である。

岩盤の透水係数が 1×10^{-9} m/sの場合、結晶質岩系岩盤では 1×10^{-6} mol/dm³のプルームは施設近傍に限定されており、 1×10^{-7} 及び 1×10^{-8} mol/dm³のプルームは処分施設の地下水の上流側では100m以内であり、地下水の下流側ではそれぞれ200及び300m程度である。堆積岩系岩盤では空隙率が大きく、結晶質岩に比較して希釈水量が大きく、かつ、地下水流速も小さいことから、 1×10^{-6} mol/dm³のプルームは処分施設内であり、 1×10^{-7} 及び 1×10^{-8} mol/dm³のプルームは処分施設の地下水の上流側及び下流側ともそれぞれ50及び100m程度である。

岩盤の透水係数が 1×10^{-8} m/sの場合、結晶質岩系岩盤では 1×10^{-6} mol/dm³のプルームは施設近傍に限定されており、 1×10^{-7} 及び 1×10^{-8} mol/dm³のプルームは処分施設の地下水の上流側では50m以内であり、地下水の下流側ではそれぞれ400m以上に及ぶ。堆積岩系岩盤では空隙率が大きく、結晶質岩に比較して希釈水量が大きく、かつ、地下水流速も小さいことから、 1×10^{-6} mol/dm³のプルームは処分施設内であり、 1×10^{-7} 及び 1×10^{-8} mol/dm³のプルームは処分施設の地下水の上流側では100m以内であり、地下水の下流側ではそれぞれ100及び200m程度である。

(4) 有機物が人工バリア及び天然バリア性能へ与える影響

セルロース系有機物のアルカリ分解の結果生じるISAは配位子として作用し、核種と相互作用して(錯体の生成)、間隙水中での存在形態を変化させる。その結果、溶解度の上昇及び分配係数の低下等の影響をもたらす、人工/天然バリアの核種移行遅延性能を損なう可能性がある。ISAの放射性核種の溶解度に与える試験データとしては、いくつか報告されている。Greenfield et al. (1995)の報告に基づけば、Puの溶解度は図3.3-9に示すようにISA濃度が 1×10^{-6} mol/dm³を超えると上昇し始める。

また、Tits et al. (2002)は、Eu()とTh()の方解石(Valanginian marlの主要成分)への吸着についてISAの影響を試験・評価している。本レポートによれば、Eu()とTh()の分配係数は、ISA濃度がそれぞれ 1×10^{-5} mol/dm³及び 2×10^{-5} mol/dm³を超えると低下すると結論づけられている。(図3.3-10参照)

さらに、Bradbury and Sarott(1994)は、ISA濃度が主要元素の溶解度に与える影響を表3.3-2に示すように設定しており、ISA濃度の影響下限値は 1×10^{-6} mol/dm³である。

(5) まとめ

諸外国の文献に基づけば、セルロース系有機物の分解生成物である ISA が核種の溶解度及び吸着挙動に影響を与える濃度は $1 \times 10^{-6} \text{ mol/dm}^3$ である。今回の解析結果に基づけば、 $1 \times 10^{-6} \text{ mol/dm}^3$ のプルームの拡がりは処分施設の極近傍に限定されていることから、TRU 廃棄物と HLW 処分施設との離間距離を 100m 確保すれば、その影響を考慮する必要はないと考えられる。

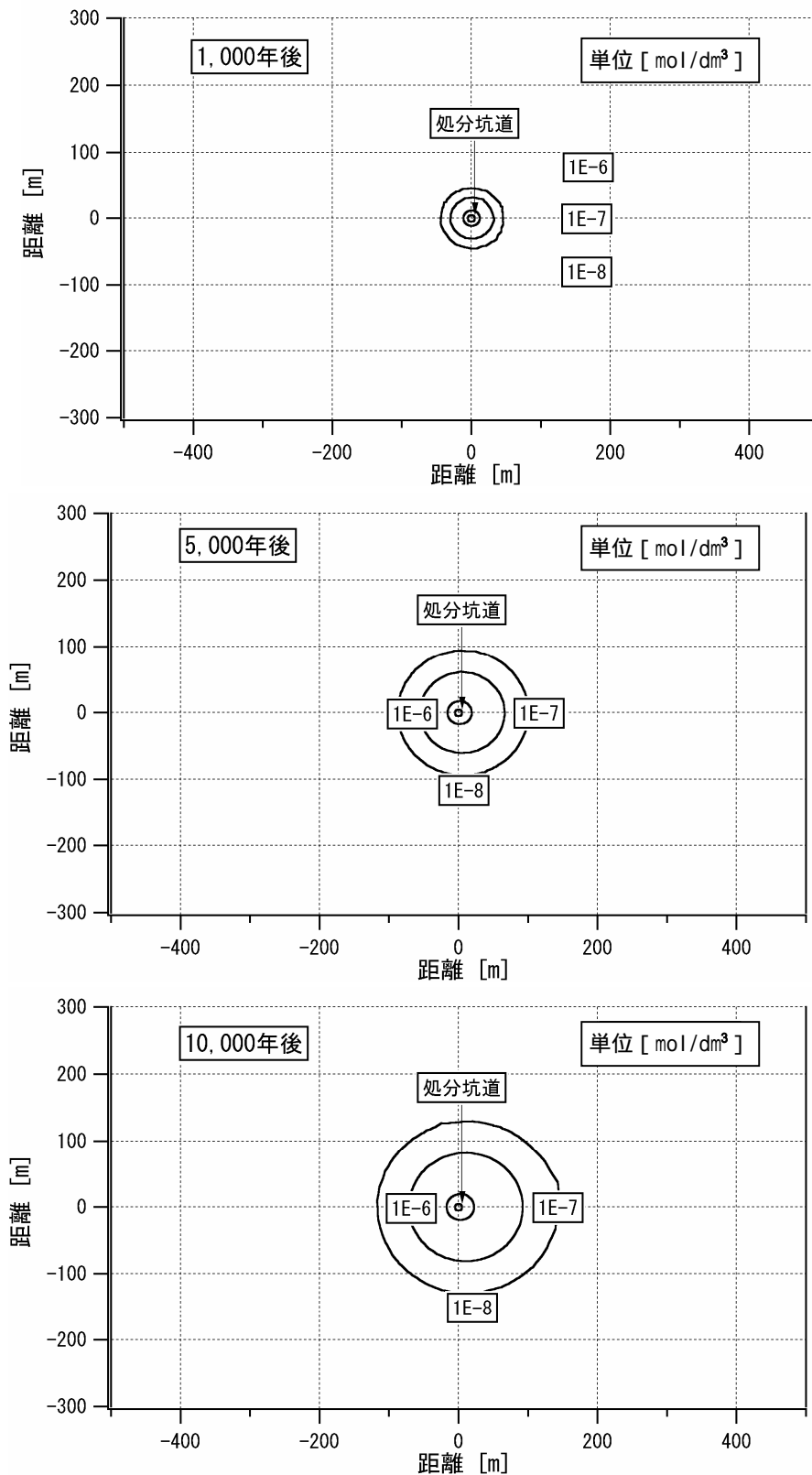


図 3.3-3 結晶質岩系岩盤の有機物プルーム解析結果 (透水係数: 1×10^{-10} m/s)

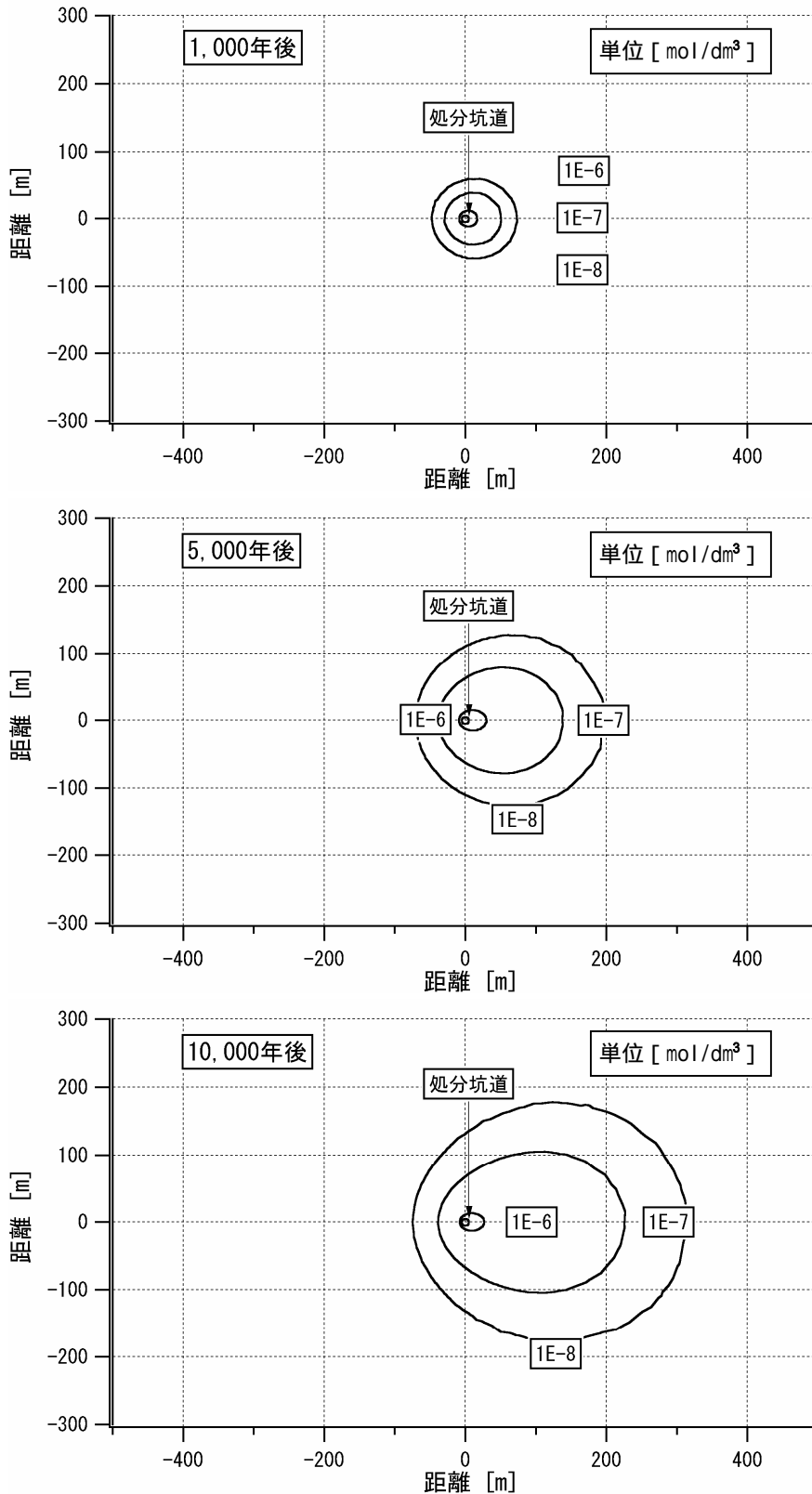


図 3.3 4 結晶質岩系岩盤の有機物プルーム解析結果 (透水係数 : 1×10^{-9} m/s)

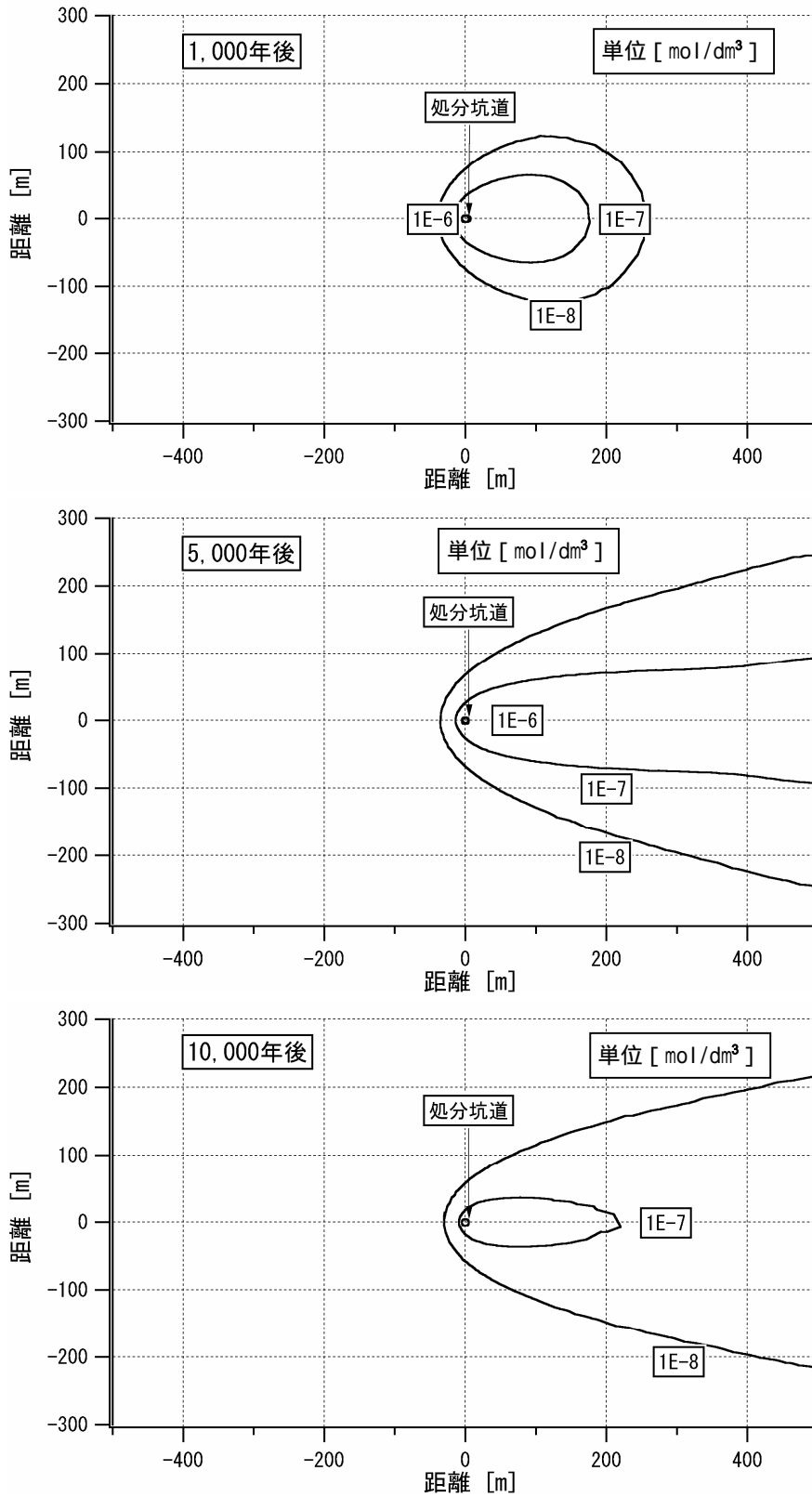


図 3.3-5 結晶質岩系岩盤の有機物プルーム解析結果 (透水係数: 1×10^{-8} m/s)

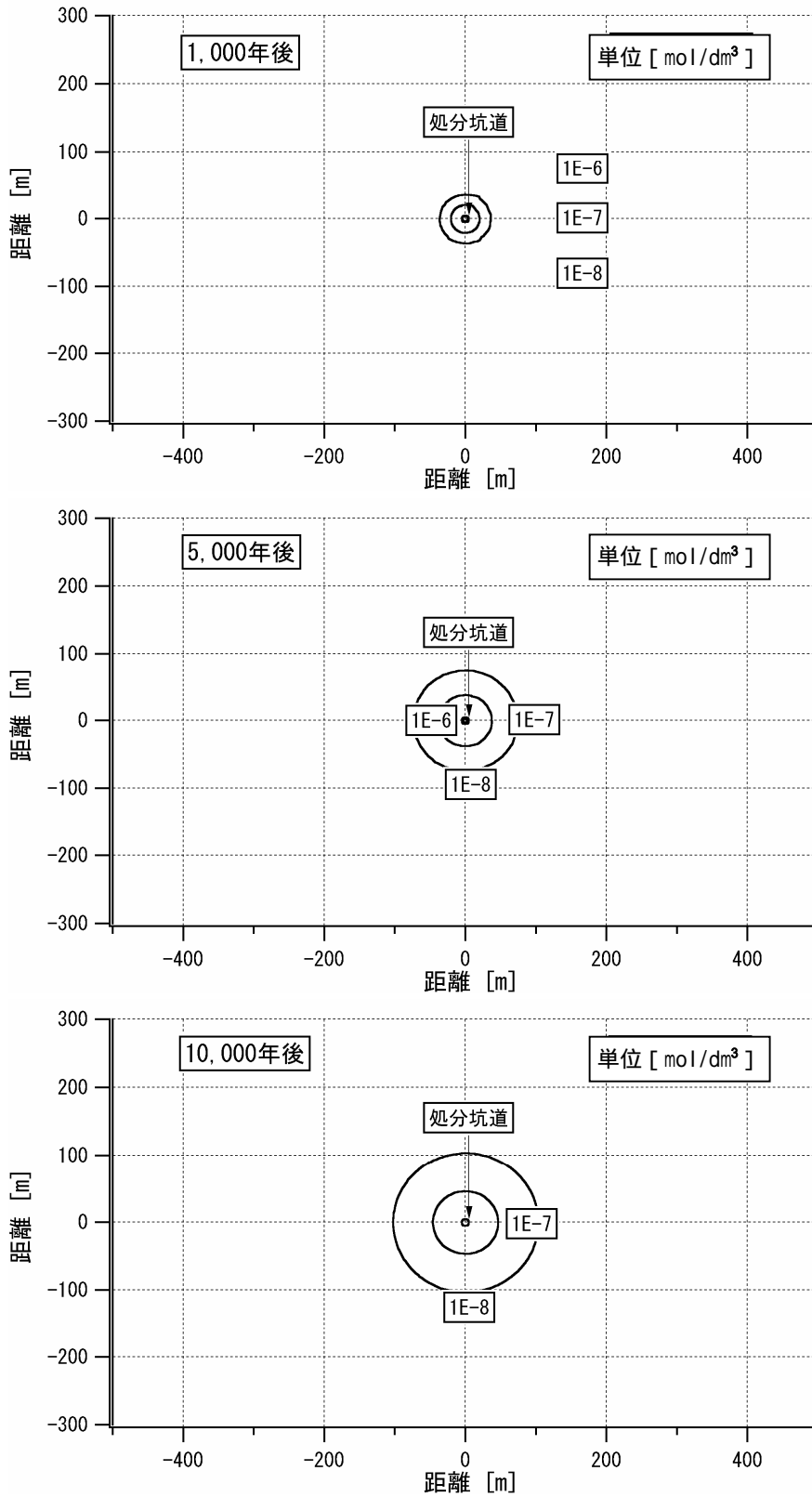


図 3.3-6 堆積岩系岩盤の有機物プルーム解析結果 (透水係数 : 1×10^{-10} m/s)

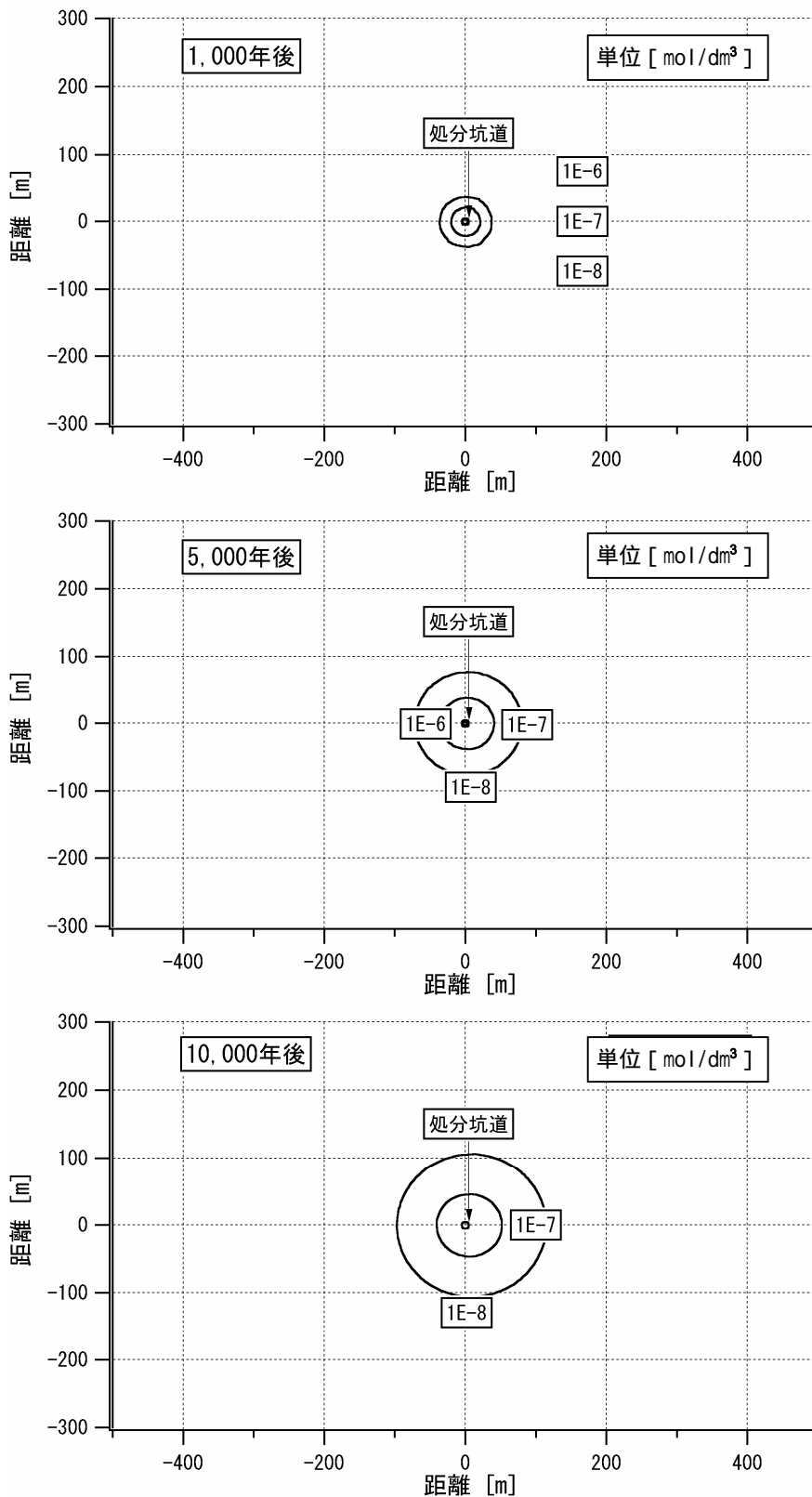


図 3.3-7 堆積岩系岩盤の有機物プルーム解析結果（透水係数： 1×10^{-9} m/s）

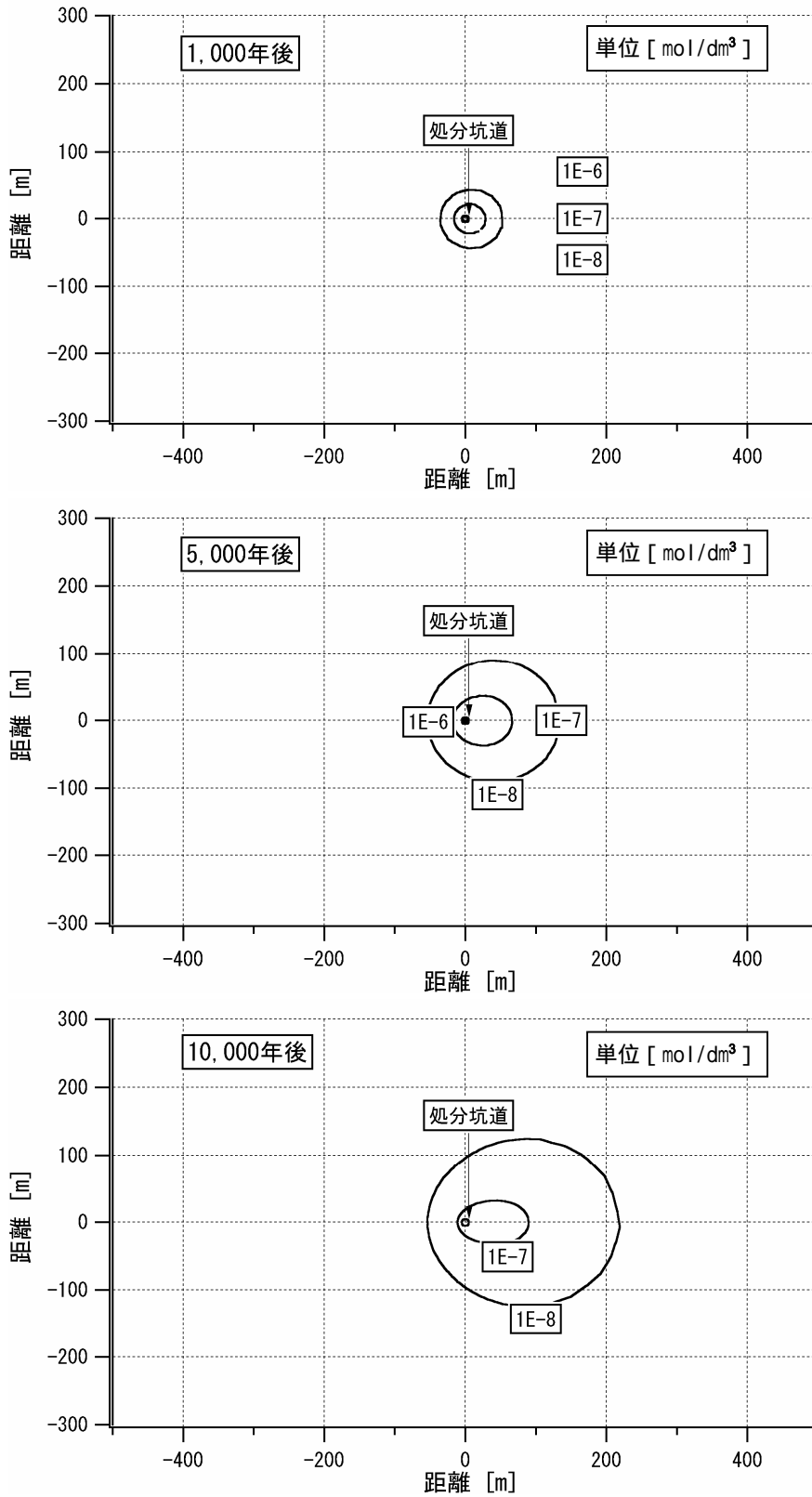


図 3.3-8 堆積岩系岩盤の有機物プルーム解析結果 (透水係数: 1×10^{-8} m/s)

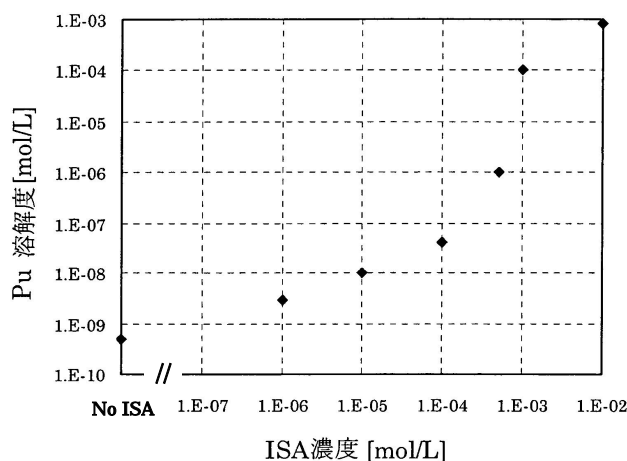


図 3.3-9 Pu 溶解度と ISA 濃度の関係 (Greenfield et al., 1995)

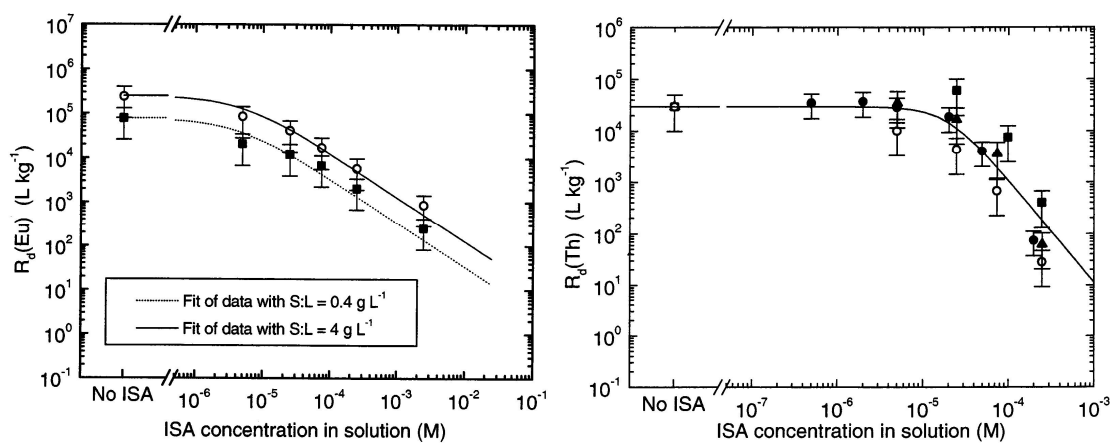


図 3.3-10 Eu 及び Th の分配係数と ISA 濃度の関係 (Tits et al., 2002)

表 3.3-2 ISA 濃度と主要元素の溶解度上昇率の関係 (Bradbury and Sarott, 1994)

ISA 濃度 (mol/dm ³)	溶解度上昇率 (Solubility enhancement factors)					
	Pu ()	Am ()	Th ()	U ()	Np ()	Tc ()
1E-06	1	1	1	1	1	1
1E-05	20	20	20	1	1	1
1E-04	500	500	500	~2	~2	1
1E-03	2E+04	2E+04	2E+04	~100	~100	~10
1E-02	1E+06	1E+06	1E+06	~5E+03	~5E+03	~500

3.4 硝酸塩影響

TRU 廃棄物処分施設から放出された硝酸塩の影響は、地下水中の硝酸塩濃度によって影響の度合いが異なる。TRU 廃棄物処分施設からの硝酸塩プルームを水理・物質移行解析により評価した。

(1) 解析条件

TRU 廃棄物中の硝酸塩が溶解することにより生じると考えられる NO_3^- は、一部金属等との反応により還元され、その化学形態が変化する可能性があるが、本評価ではバリア材への収着性が乏しいと考えられる NO_3^- を想定した。

また地質媒体中では、硝酸塩を分解する脱窒菌等による微生物活動が考えられるが、微生物活動はサイト条件に強く依存すると考えられるため、本検討においては考慮しないこととした。

地層処分相当の TRU 廃棄物のうち、硝酸塩含有廃棄物は NaNO_3 換算で約 $3.25 \times 10^6 \text{kg}$ と見積もられている。硝酸塩の主成分は易溶性の NaNO_3 であるため、廃棄物中の硝酸塩は地下水と接触すれば容易に溶解してバリア材の間隙中に広がると考えられる。しかし、アスファルト・ビチューメン固化体として処分される硝酸塩含有廃棄物については、固体マトリクスから NO_3^- が溶解する浸出期間を見込めると考えられる。ここではアスファルト・ビチューメン固化体については、1,000 年の浸出期間を想定することにした。

TRU 廃棄物処分施設の充てん材領域に与える硝酸塩の初期濃度としては、以下のとおりである。

アスファルト・ビチューメン固化体以外の廃棄物：初期濃度 3.93mol/L

アスファルト・ビチューメン固化体： NaNO_3 の浸出期間 1,000 年

NaNO_3 の総モル数 $1.78 \times 10^7 \text{mol}$

NO_3^- のバリア材に対する収着分配係数については同じ陰イオン形態である I^- の収着分配係数に着目した。JNC-SDB (澁谷ほか, 1999, 陶山ほか, 2004) を使用し、 I^- の収着分配係数を整理した結果を図 3.4-1 に示す。液相の組成には NaCl 溶液, NaHCO_3 溶液, 地下水, 固相には、岩石として花崗岩類, 砂岩, 角閃石, 鉱物としては長石類, 輝石類, 黒雲母を選択した。図 3.4-1 中の Na^+ 濃度は硝酸塩飽和濃度よりも小さいが、 I^- の収着分配係数は Na^+ 濃度が異なる溶液に対し $0.0001 \text{m}^3/\text{kg}$ よりも大きな値を示している。ここではバリア材の収着分配係数としては $0.0001 \text{m}^3/\text{kg}$ を設定した。

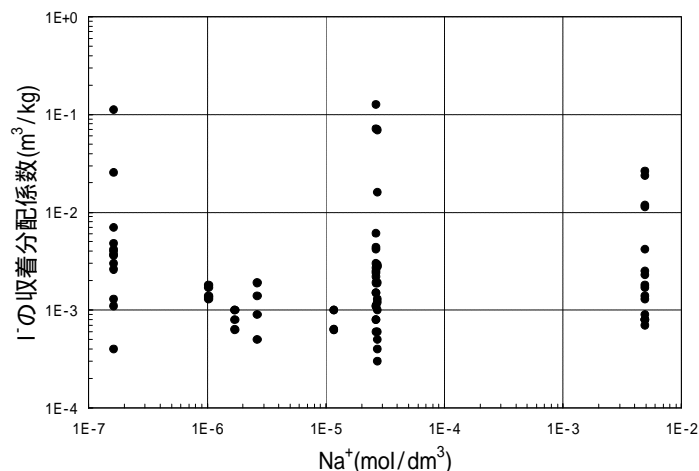


図 3.4-1 I^- の岩石への収着分配係数と液相中 Na^+ 濃度との関係

解析モデルを図 3.4-2 に示す。解析モデルは、硝酸塩含有廃棄物の対象施設である廃棄体グループ 3 相当の TRU 廃棄物処分施設と処分施設の上流側 300m、下流側 500m の周辺岩盤を含む 2 次元垂直断面モデルである。岩盤中の地下水の流動方向は、水平方向を仮定した。

解析には公開された解析コードである「Dtransu-2D・EL」(例えば菱谷ほか, 1999) を使用した。また解析に使用したパラメータ, 人工バリア及び岩盤の物性値を表 3.4-1 に示す。

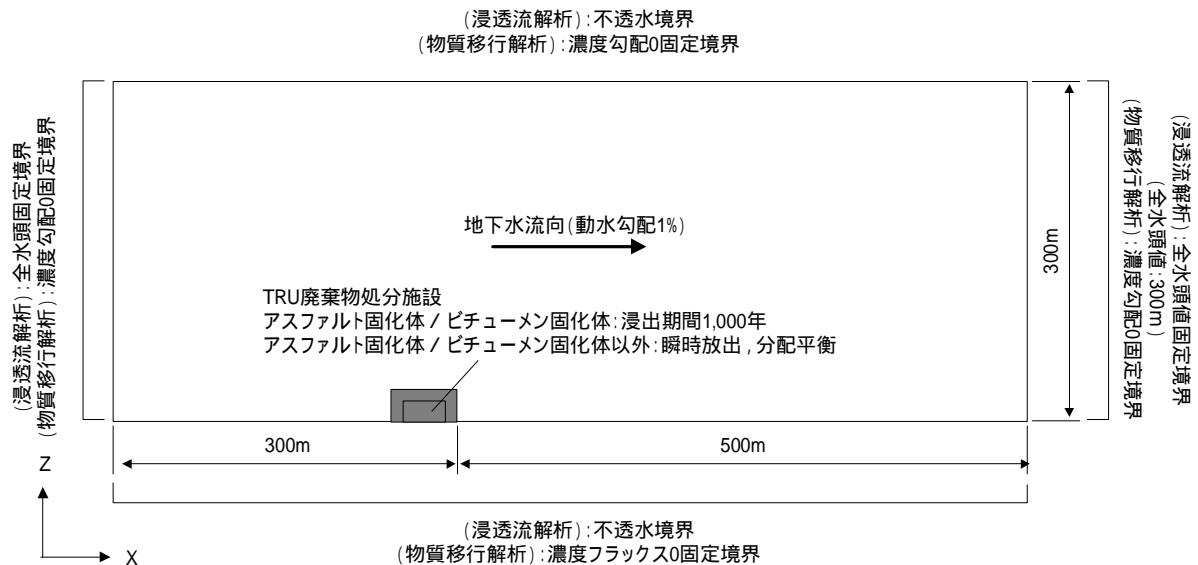


図 3.4-2 解析モデル図

表 3.4-1 使用パラメータ及び物性値

パラメータ		単位	結晶質岩	堆積岩
硝酸塩量		kg	3.25 × 10 ⁶	
透水係数	セメントの透水係数	m/s	4 × 10 ⁻⁶	
拡散係数	セメントでの実効拡散係数	m ² /s	8 × 10 ⁻¹⁰	
	母岩での実効拡散係数	m ² /s	8 × 10 ⁻¹¹	1.2 × 10 ⁻⁹
収着分配係数	セメントでの収着分配係数	m ³ /kg	0.0001	
	母岩での収着分配係数	m ³ /kg	0.0001	
対象処分施設		-	廃棄体グループ3	
天然バリア	透水係数	m/s	1 × 10 ⁻⁸ , 1 × 10 ⁻⁹ , 1 × 10 ⁻¹⁰	
	間隙率	-	0.02	0.30
	真密度	Mg/m ³	2.7	2.7
	動水勾配	m/m	0.01	
	分散長	-	移行距離の1/10	

(2) 結果

結晶質岩系岩盤を対象岩盤としたケースの硝酸塩の濃度分布の時間変化を図 3.4-3~図 3.4-5 に示す。また堆積岩系岩盤を対象岩盤としたケースについては図 3.4-6~図 3.4-8 に示す。

HLW 処分場に到達する可能性がある硝酸塩プルームは、TRU 廃棄物処分施設から主に移流により到達する場合と横方向の分散や拡散により到達する場合では、硝酸塩影響を受ける時間と度合い

が異なると考えられた。ここでは、

地下水流向の上流側に向かう方向

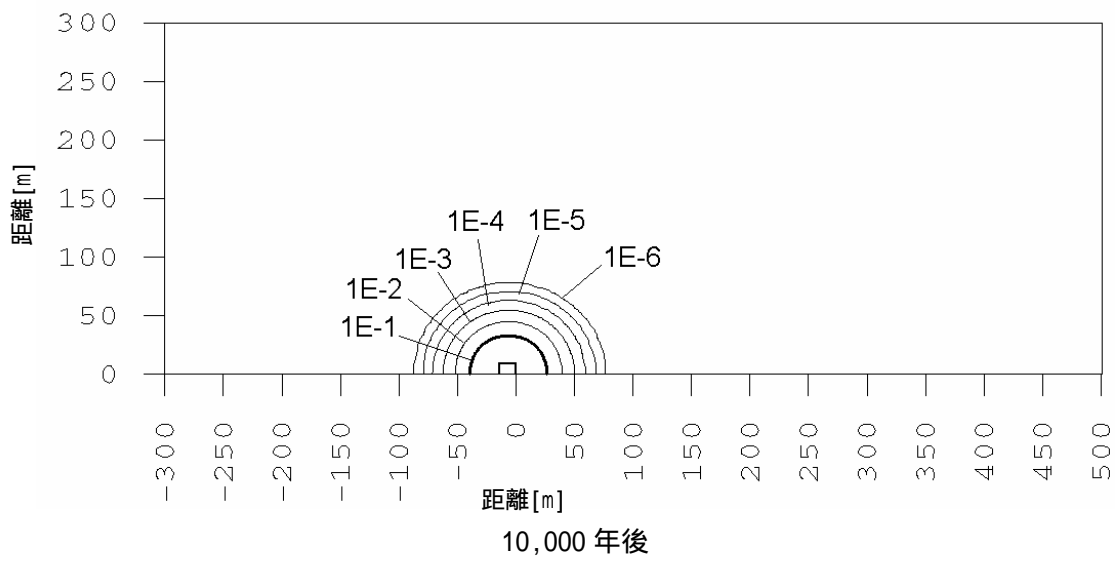
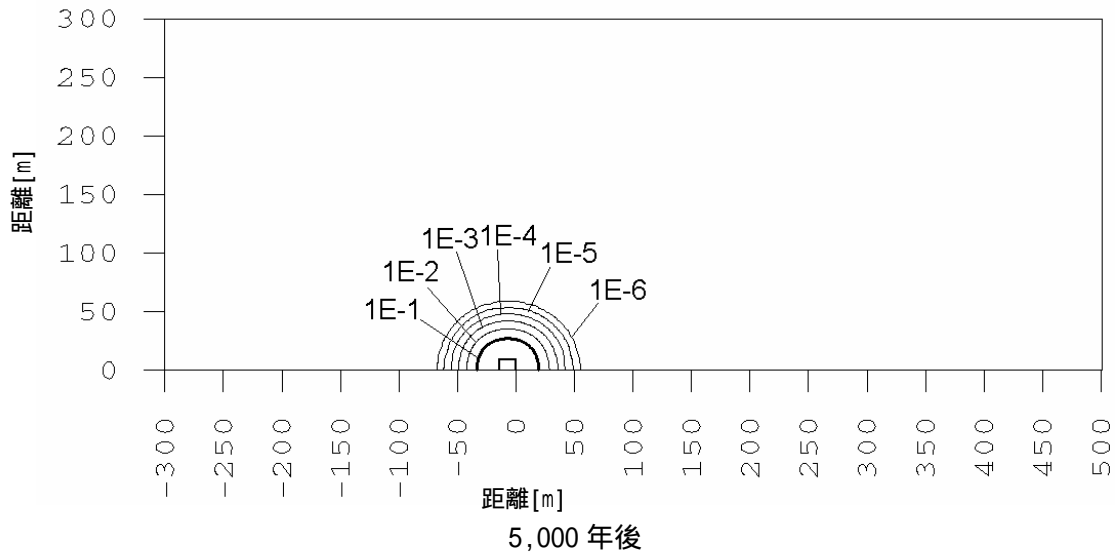
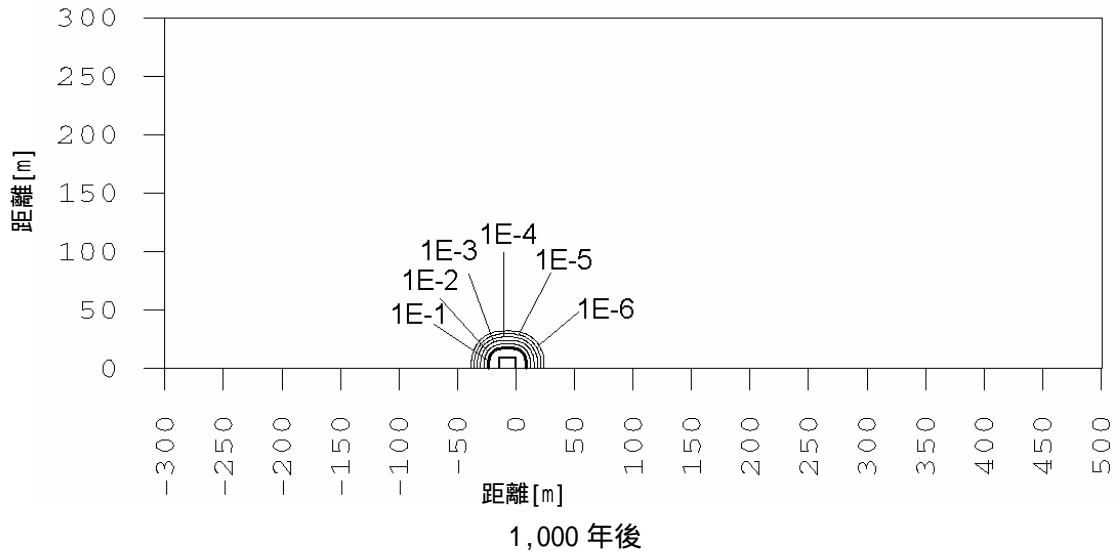
地下水流向に垂直な方向

地下水流向の下流側に向かう方向

に区別して、TRU 廃棄物処分施設から 50m, 100m, 200m, 300m 離れた地点 (ただし については 400m 離れた地点と 500m 離れた地点を追加) の 10 万年間における硝酸塩濃度が到達した濃度の最大値をそれぞれ表 3.4-2 ~ 表 3.4-5 に示す。

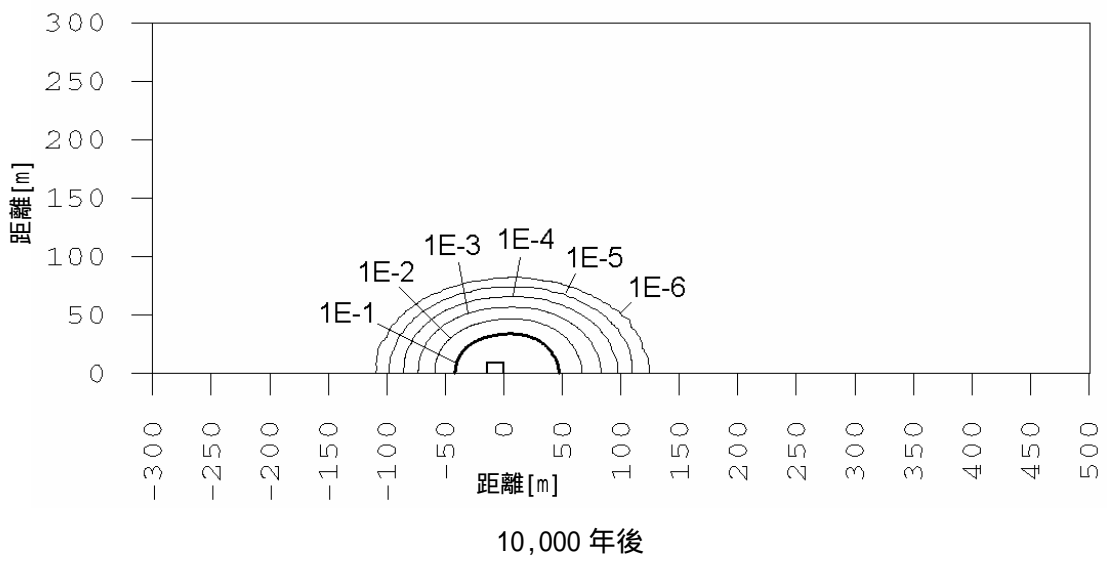
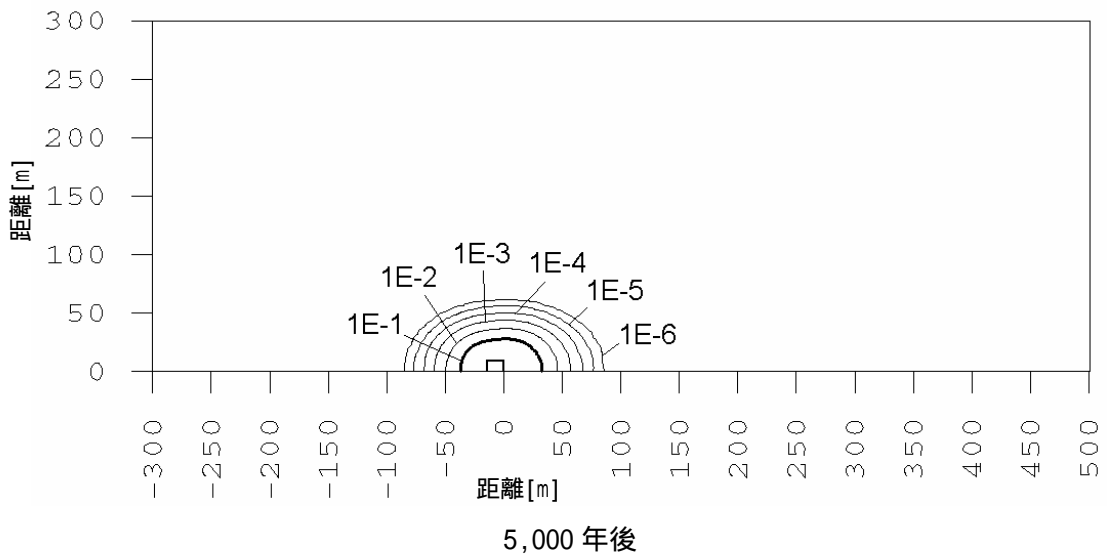
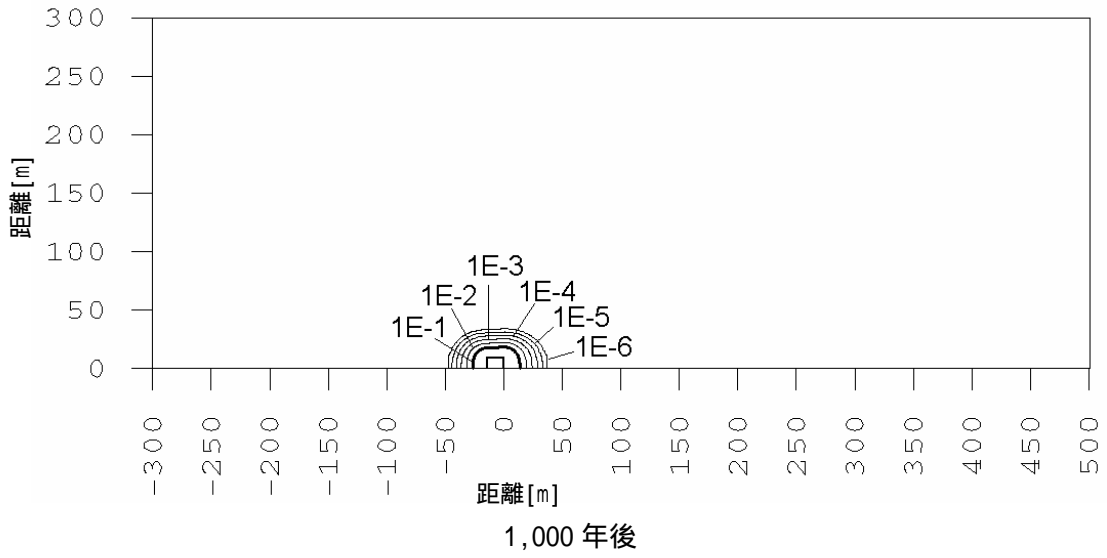
地下水流向の上流側に向かう方向と地下水流向に垂直な方向への硝酸塩プルームは、TRU 廃棄物処分施設から 100m 離れた地点では $0.01\text{mol}/\text{dm}^3$ のオーダーもしくはそれ以上に硝酸塩濃度が高くなる解析ケースが存在するが、300m 離れた地点では $1 \times 10^{-4}\text{mol}/\text{dm}^3$ オーダーよりも小さい濃度までしか到達していない。

また地下水流向の下流側に向かう方向への硝酸塩プルームについては、特に空隙率が小さい結晶質岩の場合には TRU 廃棄物処分施設から遠い地点まで高濃度の硝酸塩プルームが到達する。TRU 廃棄物処分施設から 500m 離れた地点においても硝酸塩濃度は $0.01\text{mol}/\text{dm}^3$ オーダーの濃度に到達するが、その到達時間は 1×10^4 年のオーダーである。



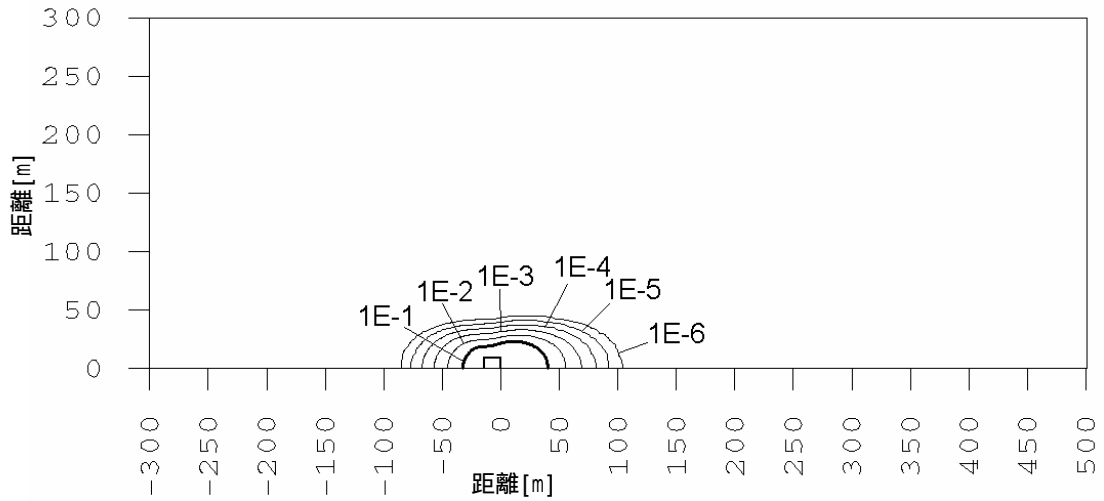
[単位：mol/dm³]

図 3.4-3 硝酸塩濃度分布の時間変化（結晶質岩：岩盤の透水係数 1×10^{-10} m/s）

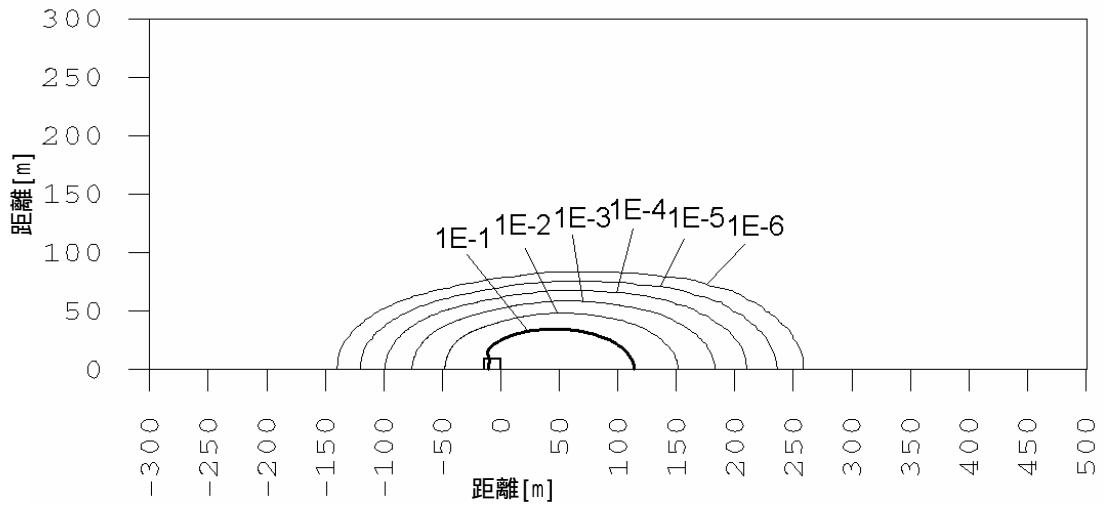


[単位：mol/dm³]

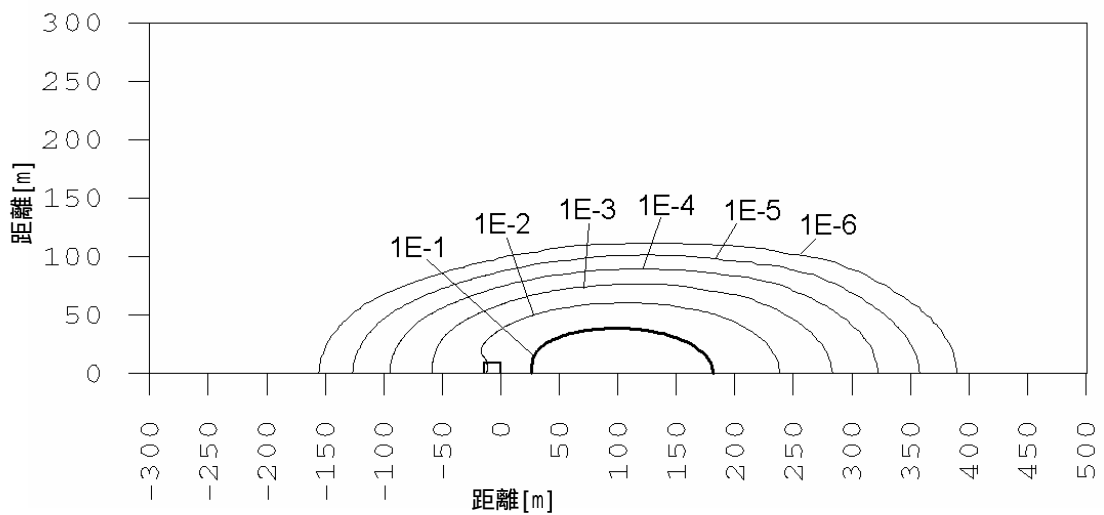
図 3.4 4 硝酸塩濃度分布の時間変化（結晶質岩：岩盤の透水係数 1×10^{-9} m/s）



1,000 年後



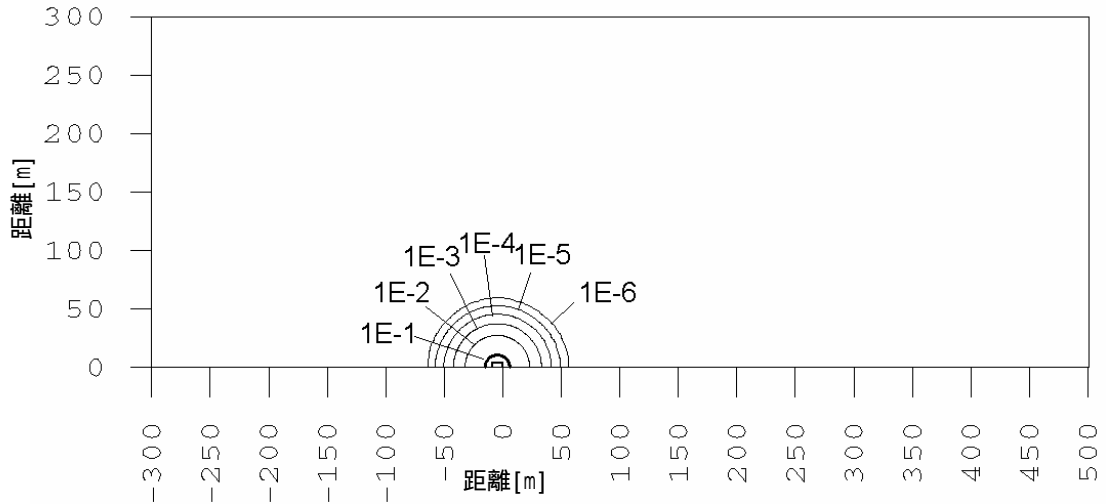
5,000 年後



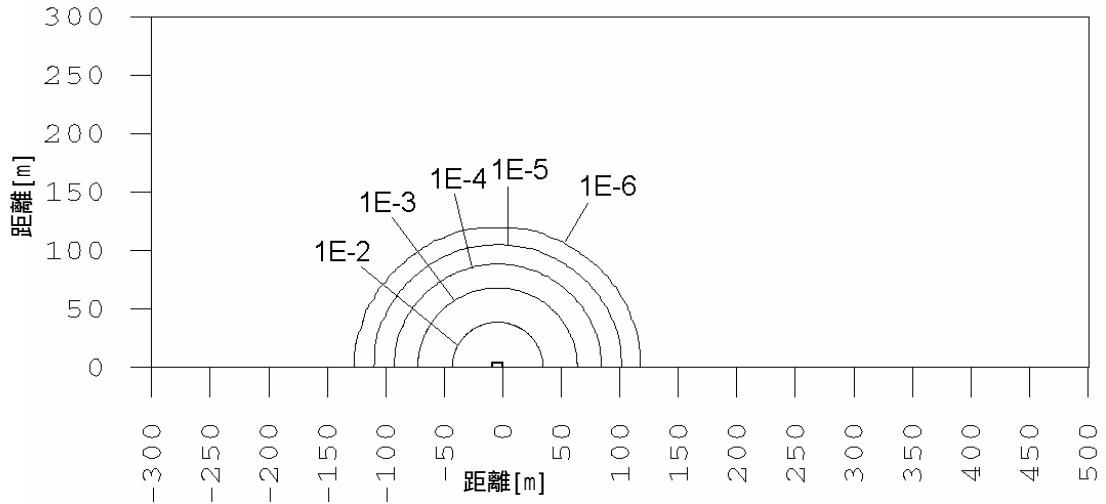
10,000 年後

[単位：mol/dm³]

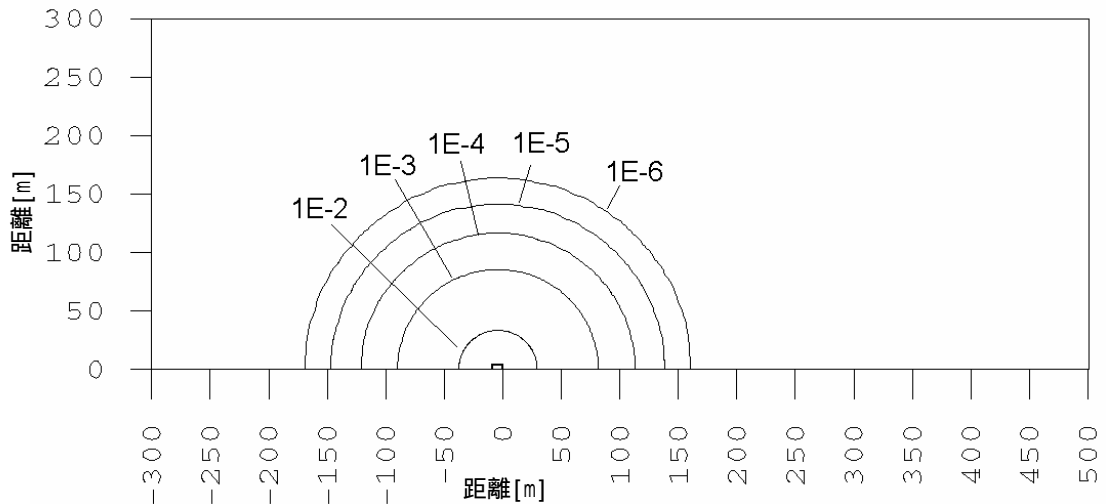
図 3.4 5 硝酸塩濃度分布の時間変化（結晶質岩：岩盤の透水係数 1×10^{-8} m/s）



1,000 年後



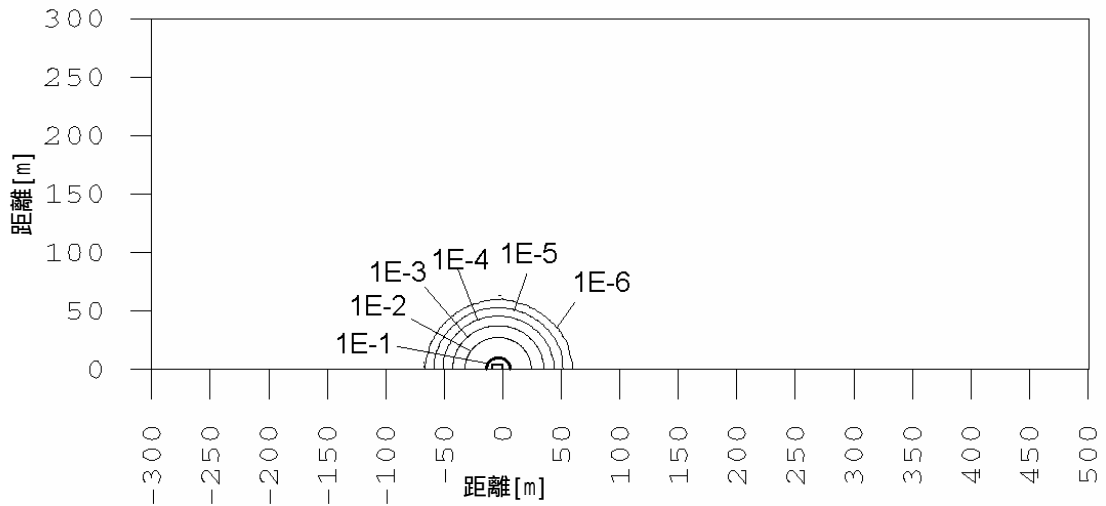
5,000 年後



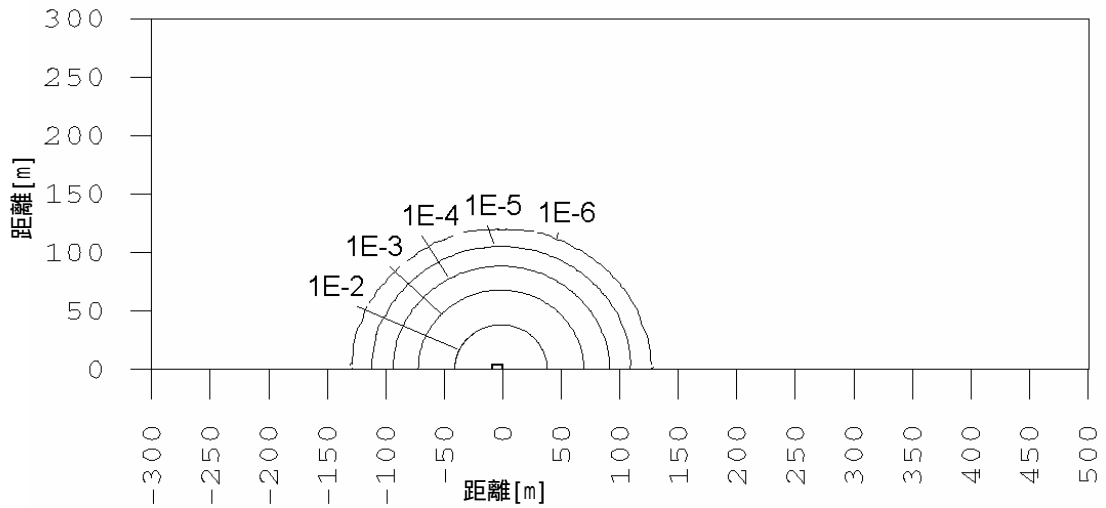
10,000 年後

[単位: mol/dm³]

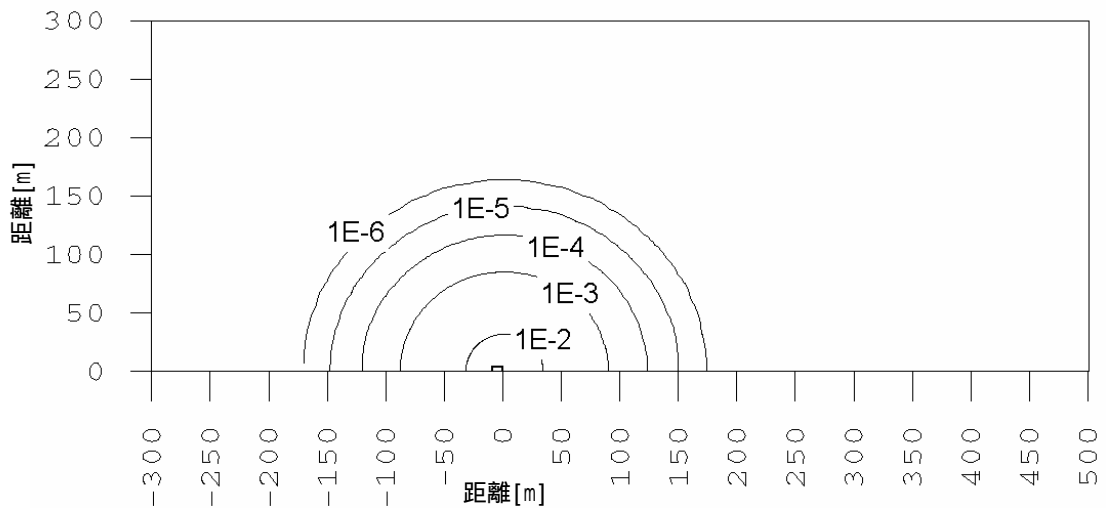
図 3.4-6 硝酸塩濃度分布の時間変化 (堆積岩: 岩盤の透水係数 1×10^{-10} m/s)



1,000 年後



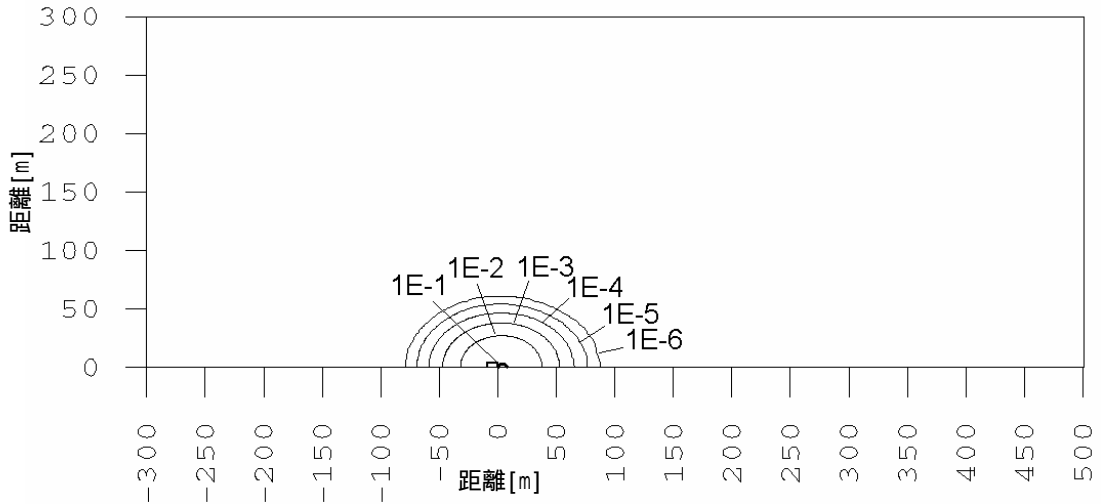
5,000 年後



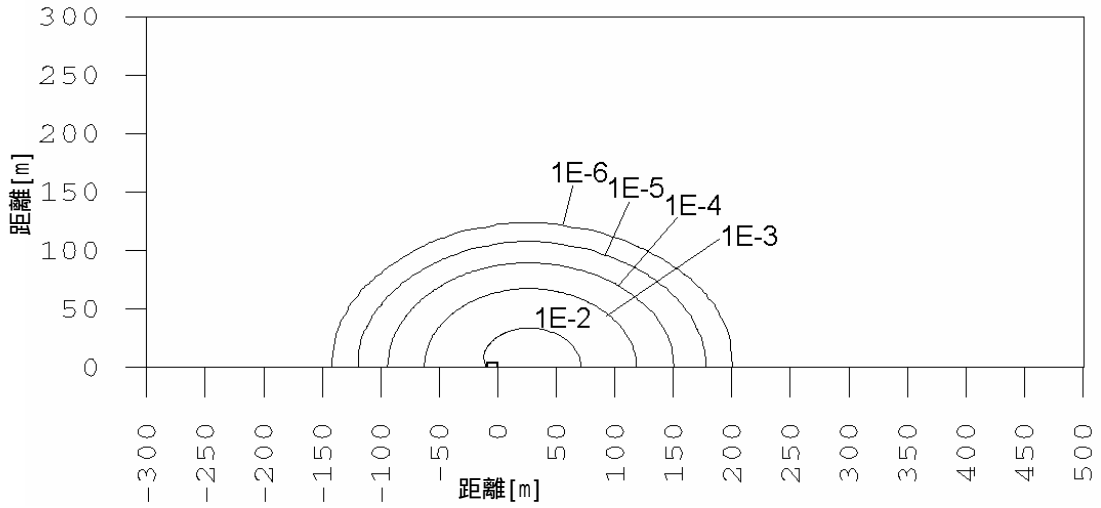
10,000 年後

[単位：mol/dm³]

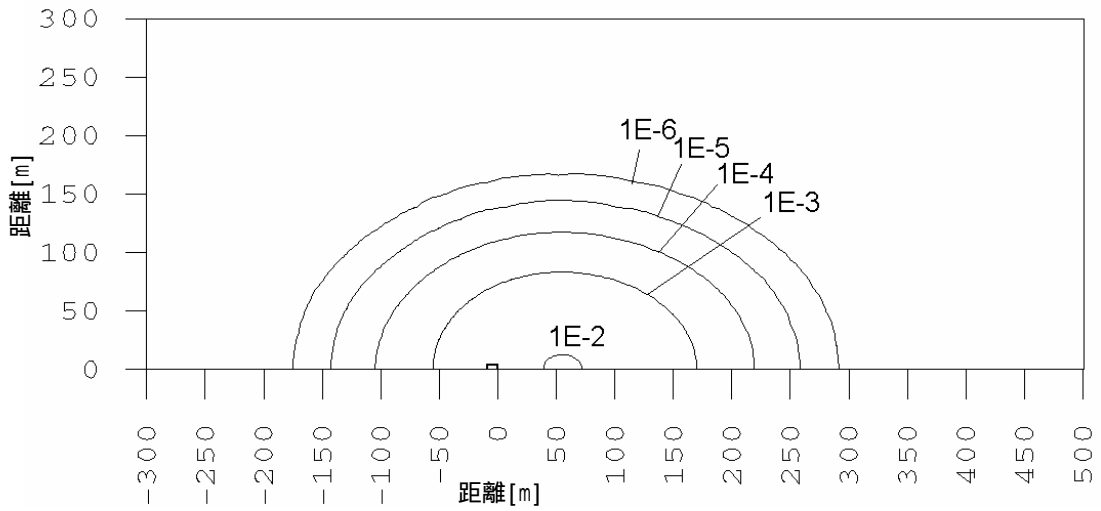
図 3.4-7 硝酸塩濃度分布の時間変化（堆積岩：岩盤の透水係数 1×10^{-9} m/s）



1,000 年後



5,000 年後



10,000 年後

[単位: mol/dm³]

図 3.4-8 硝酸塩濃度分布の時間変化 (堆積岩: 岩盤の透水係数 1×10^{-8} m/s)

表 3.4-2 10 万年間での TRU 廃棄物処分施設から上流側に離れた各地点における硝酸塩プルームの最大到達濃度

岩種：結晶質岩系岩盤 (単位：mol/dm ³)			
離間距離 (m)	レファレンスケース	感度解析ケース	
	岩盤の透水係数1E-9m/s	岩盤の透水係数1E-8m/s	岩盤の透水係数1E-10m/s
50	5.1E-2	1.4E-2	1.4E-1
100	1.6E-3	9.7E-5	1.5E-2
200	3.0E-6	3.3E-8	7.7E-6
300	0.0E+0	0.0E+0	0.0E+0
岩種：堆積岩系岩盤 (単位：mol/dm ³)			
離間距離 (m)	レファレンスケース	感度解析ケース	
	岩盤の透水係数1E-9m/s	岩盤の透水係数1E-8m/s	岩盤の透水係数1E-10m/s
50	5.9E-3	2.1E-3	6.8E-3
100	1.2E-3	1.3E-4	1.6E-3
200	1.7E-4	1.3E-6	3.4E-4
300	0.0E+0	0.0E+0	0.0E+0

表 3.4-3 10 万年間での TRU 廃棄物処分施設から地下水流向と垂直な方向に離れた各地点における硝酸塩プルームの最大到達濃度

岩種：結晶質岩系岩盤 (単位：mol/dm ³)			
離間距離 (m)	レファレンスケース	感度解析ケース	
	岩盤の透水係数1E-9m/s	岩盤の透水係数1E-8m/s	岩盤の透水係数1E-10m/s
50	6.3E-2	3.7E-3	1.3E-1
100	3.2E-3	4.0E-6	1.1E-2
200	2.7E-6	1.2E-11	4.3E-6
300	5.2E-11	1.2E-16	3.6E-11
岩種：堆積岩系岩盤 (単位：mol/dm ³)			
離間距離 (m)	レファレンスケース	感度解析ケース	
	岩盤の透水係数1E-9m/s	岩盤の透水係数1E-8m/s	岩盤の透水係数1E-10m/s
50	6.0E-3	3.3E-3	6.1E-3
100	1.3E-3	2.7E-4	1.4E-3
200	3.1E-4	9.3E-6	3.5E-4
300	9.3E-5	8.6E-7	1.0E-4

表 3.4-4 10 万年間での TRU 廃棄物処分施設から下流側に離れた各地点における硝酸塩プルームの最大到達濃度

岩種：結晶質岩系岩盤 (単位：mol/dm ³)			
離間距離 (m)	レファレンスケース	感度解析ケース	
	岩盤の透水係数1E-9m/s	岩盤の透水係数1E-8m/s	岩盤の透水係数1E-10m/s
50	3.7E-1	7.7E-1	1.3E-1
100	1.9E-1	4.6E-1	2.0E-2
200	4.7E-2	2.5E-1	1.7E-5
300	1.5E-3	1.7E-1	2.5E-10
400	7.8E-6	1.2E-1	3.4E-16
500	1.5E-8	1.8E-2	0.0E+0
岩種：堆積岩系岩盤 (単位：mol/dm ³)			
離間距離 (m)	レファレンスケース	感度解析ケース	
	岩盤の透水係数1E-9m/s	岩盤の透水係数1E-8m/s	岩盤の透水係数1E-10m/s
50	6.2E-3	1.7E-2	4.9E-3
100	2.1E-3	7.4E-3	1.4E-3
200	6.9E-4	3.2E-3	3.5E-4
300	1.8E-4	2.1E-3	5.5E-5
400	2.5E-5	1.5E-3	4.2E-6
500	3.2E-6	1.3E-3	3.2E-7

(3) 既存の硝酸塩影響に関する知見の整理

TRU 廃棄物処分施設内での硝酸塩影響については、窒素の化学形態の変遷とともに、セメント系材料の変質挙動に対する影響、放射性核種の溶解度等の核種移行パラメータへの影響が懸念されている。しかし、本項の目的が TRU 廃棄物と HLW を併置処分した場合の HLW 処分坑道側に対する影響評価であることを鑑み、ここではセメント系材料以外の緩衝材や岩盤等のバリア材を対象とした知見について整理した。

a. ベントナイト系材料と岩盤の鉱物学的な影響

ベントナイト系材料と岩盤の鉱物学的影響については、 NaNO_3 飽和濃度とその $1/1000$ に相当する $0.01\text{mol}/\text{dm}^3$ での最長 18 ヶ月間の確認試験が実施されている（中澤ほか，2004）。図 3.4-9 は変質試験前後のベントナイト試料の X 線回折結果であり、 NaNO_3 共存下では出発試料からの顕著な変化は確認されていない。ただし、ベントナイトのイオン交換反応については、 NaNO_3 飽和濃度ではセメント系材料に起因するアルカリ成分を考慮しているにも係らず Na 型が支配的であるが、硝酸塩濃度が $0.01\text{mol}/\text{dm}^3$ と $0\text{mol}/\text{dm}^3$ では Ca 型がほぼ同様に支配的であることが確認されている。

また 2 種類の堆積岩については、 NaNO_3 の存在に係らず試料中に含まれる石英や斜長石等の初期鉱物には顕著な変化が確認されていない。

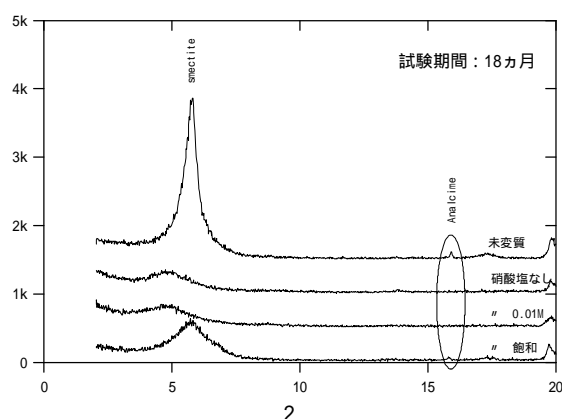
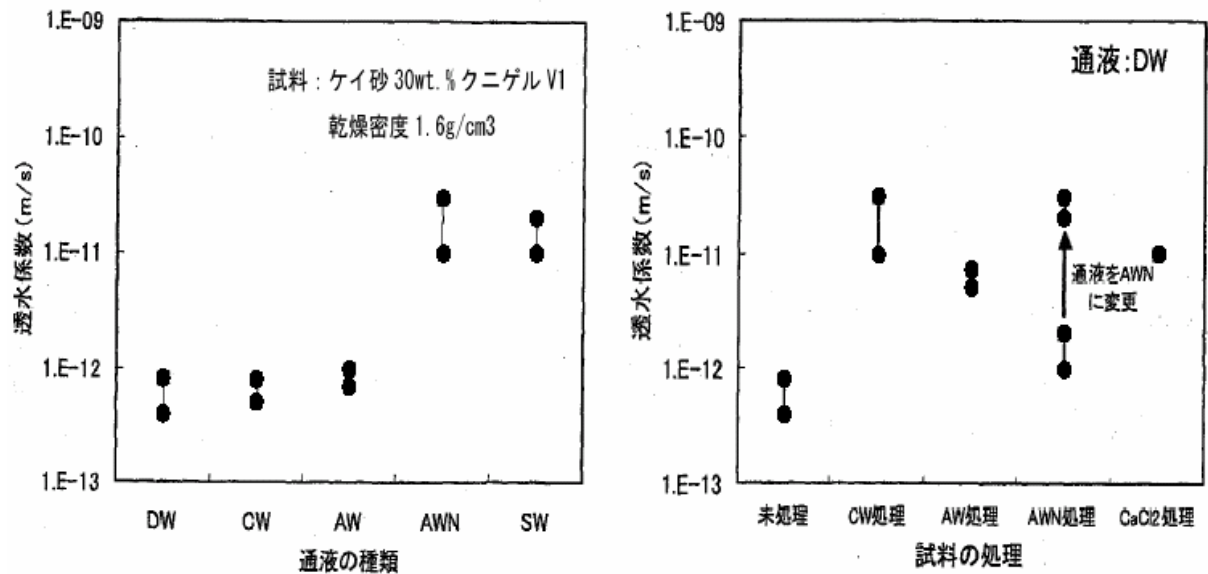


図 3.4-9 変質試験前後におけるベントナイト試料の X 線回折結果（中澤ほか，2004）

b. ベントナイト系材料の透水性に対する影響

ベントナイト系材料の透水性に関しては、人工海水のように溶存イオンの濃度が高い場合にはベントナイト粒子の凝集に起因する膨潤性能の低下により透水係数の増加が確認されている（核燃料サイクル開発機構，2002）。実際に pH13 程度で $3\text{mol}/\text{dm}^3$ の NaNO_3 を含む水溶液を使用して実施した透水試験では、図 3.4-10 に示すように人工海水 (SW) の場合と同様にベントナイト系試料の透水係数が増加する結果が得られている（三原ほか，2004）。しかし、この現象は硝酸塩の存在に特化した現象ではなく、H12 レポート（核燃料サイクル開発機構，1999b）における地下水組成が海水系地下水であった場合の HLW 処分場の性能評価で同程度の影響が考慮されていると考えられる。



(a) 透水係数の通液の種類依存性 (b) 透水係数の試料の処理方法の依存性

注 1: DW: 脱気した脱イオン水, CW: pH12.5 の高アルカリ溶液, AW: pH13.2 の高アルカリ溶液, Awn: AW に NaNO₃ を 3mol/dm³ の割合で添加した溶液, SW: 人工海水。

図 3.4 -10 3mol/dm³ の硝酸ナトリウムを含む溶液を使用した透水試験結果
(三原ほか, 2004 を一部修正)

c. 放射性核種の人工バリア・天然バリアへの収着性への影響

三倉ら (2004) は, 放射化金属から浸出した有機 C -14, Cl -36, Np -237 の健全なセメント (OPC 及び OPC/BFS=1/9) に対する収着分配係数と堆積岩に対する有機 C -14 の収着分配係数を評価した。セメント系材料に対する有機 C -14, Cl -36 の収着性については, NaNO₃ 飽和濃度の 1/1000 倍に相当する 0.007mol/dm³ では有意な収着分配係数の低下は認められないものの, NaNO₃ 飽和濃度では NaNO₃ が共存しない条件に比べて 1 オーダー程度の収着分配係数の低下が認められた。またセメント系材料に対する Np -237 の収着性については NaNO₃ 飽和濃度においても有意な収着分配係数の低下は認められていない。また堆積岩に対する有機 C -14 の収着性については, セメント系材料の場合と同様に 0.007mol/dm³ では有意な収着分配係数の低下は認められないものの, NaNO₃ 飽和濃度では NaNO₃ が共存しない条件に比べて 1 オーダー程度の収着分配係数の低下が認められている。しかしながら, NaNO₃ 濃度が 0.01mol/dm³ 程度から飽和濃度までの範囲のバリア材に対する放射性核種の収着分配係数に関しては知見が得られていない。既往の知見で参考となるものとして JNC -SDB (澁谷ほか, 1999, 陶山ほか, 2004) を使用し, HLW の処分重要核種となっている Cs について, Na イオン濃度と分配係数の関係を図 3.4 -11 に整理した。液相の組成は濃度が異なる NaCl, Na₂CO₃, Na₂SO₄, NaHCO₃ 溶液を選択し, 固相は天然バリア中の岩盤に含まれると思われる玄武岩, 花崗岩・花崗閃緑岩, 頁岩, 赤鉄鉱, 微斜長石を対象とした。図 3.4 -11 によれば Na⁺濃度が 0.1mol/dm³ よりも濃い濃度で Cs⁺の分配係数が若干低下することが確認できる。

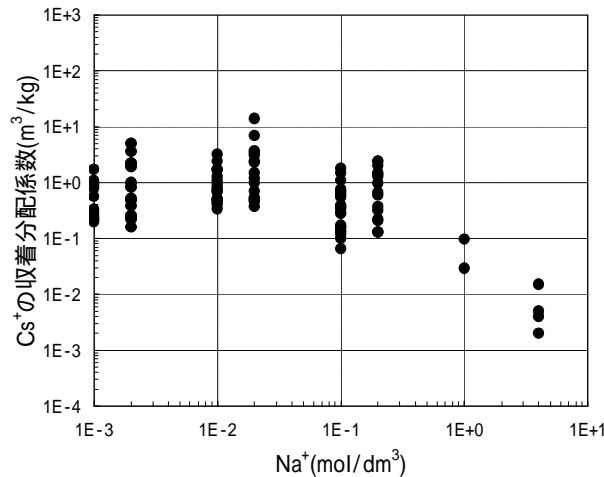


図 3.4 -11 Cs⁺の岩石・鉱物への吸着分配係数と液相中 Na⁺濃度との関係

d. 炭素鋼などの金属腐食に対する影響

HLW 処分施設において検討されている炭素鋼オーバーパックスの腐食に対する影響としては、応力腐食割れの原因物質になり得る可能性及び酸化性化学種として硝酸イオンが局部腐食の駆動力となる可能性が考えられる。

H12 レポートにおける前者の取り扱いについては、放射線分解により生成される窒素を含むイオン及びラジカルの濃度は $2 \times 10^{-4} \text{ mol/dm}^3$ 程度と評価し、Beavers ら(1987)の 0.001 mol/dm^3 の沸騰硝酸カリウム水溶液中の低歪み速度試験では応力腐食割れが生じていないこと、また炭酸塩や塩化物と共存した場合には応力腐食割れが抑制されること(小岩, 1983)などの知見を踏まえ、処分環境における硝酸塩による応力腐食割れが生じる可能性は低いと評価している。

後者については、H12 レポート(核燃料サイクル開発機構, 1999a)の「放射線分解による腐食への影響」に示された考え方が参考になる。この考え方とは、水溶液の放射性分解により生成する酸化性化学種により供給されるカソード電流密度が、炭素鋼が不動態化した場合の不動態保持電流密度を超えなければ、局部腐食の駆動力とはならないというものである。硝酸イオンについても同様の考え方をとることができる。硝酸イオンが緩衝材中を拡散して、オーバーパックス表面でアンモニアに還元されることによりカソード電流を供給すると仮定して評価を行い、不動態保持電流密度相当のカソード電流密度を供給する緩衝材外側の硝酸イオン濃度を評価すると $4.5 \times 10^{-4} \text{ mol/dm}^3$ となった。したがって、硝酸イオンの濃度がこの濃度を超えなければ局部腐食の駆動力とはならないと考えられる。

(4) まとめ

HLW 処分施設は TRU 廃棄物処分施設に対して、直接 TRU 廃棄物処分施設からの種々の影響を受けないように地下水流向の上流側や横方向に距離をとって配置することが検討されている。このため、HLW 処分施設への硝酸塩影響は TRU 廃棄物処分施設から見て地下水流向の上流側や地下水流向に対して横方向への拡がりによる影響である。前述(2)の硝酸塩プルームを評価した結果では、例えば TRU 廃棄物処分施設から 300m 離れた地点では硝酸塩濃度は最大でも $1 \times 10^{-4} \text{ mol/dm}^3$ 程度の

濃度まで低下すると考えられる。このため、上記(3)にまとめた既存の硝酸塩影響に関する知見を踏まえると、HLW 処分施設におけるバリア材の鉱物学的な変質、ベントナイト系材料の透水係数、バリア材への収着分配係数及び炭素鋼オーバーパックの腐食に対して有意な影響を生じることはないと考えられる。

なお、長期的な地形、地質構造の変化などの要因による地下水流向の変化により、TRU 廃棄物処分施設と HLW 処分施設の地下水流向に対する位置関係が変化する可能性が考えられる。その場合の最も極端な例として HLW 処分施設が TRU 廃棄物処分施設の下流に位置した場合を想定すると、前述(2)の硝酸塩プルームを評価した結果から、岩種及び岩盤の透水係数の設定に依存するが、上流側や横方向への拡がりにより生じる硝酸塩濃度よりも高い硝酸塩濃度が到達する可能性が生じる。検討対象とした地質環境条件の幅の中では、岩盤の透水係数が $1 \times 10^{-8} \text{m/s}$ の結晶質岩系岩盤の解析ケースが最も硝酸塩プルームが下流側に到達する結果となった。ただし、このような場合を想定したとしても、仮に TRU 廃棄物処分施設を HLW 処分場から 500m 離れた地点に配置した場合は、硝酸塩濃度が $1 \times 10^{-4} \text{mol/dm}^3$ 以上となるのは約 20,000 年経過後であること、及びここで想定したような極端な地形等の変化は長期的な変化であると考えられることを踏まえると、HLW 処分施設において物理的な閉じ込め性をオーバーパックが確保している期間に対して有意な影響を生じる可能性は小さいと考えられる。

以上のことから、硝酸イオンの化学形態、地質媒体の不均質性、微生物影響等についての技術的課題が存在するものの、これらの課題の影響がないとすれば、TRU 廃棄物処分施設を HLW 処分施設よりも地下水流向に対して数 100m 下流側や立体的に離して配置することにより、顕著な硝酸塩影響は回避できると考えられる。

3.5 高 pH 影響

TRU 廃棄物処分施設では多量のセメント系材料が使用され、処分施設の間隙水はセメント系材料の溶出によって高 pH となっている。セメント系材料のアルカリ成分は地下水中へ溶解し、徐々に天然バリアへ移行し、天然バリア中の地下水の pH が高くなる領域（高 pH プルーム）が形成されると考えられる。セメント系材料から移行する高 pH プルームがバリア性能に与える影響としては以下のものが想定される。

- ・ベントナイト系材料の物質移行特性に与える影響
- ・モンモリロナイトの Ca 型化
- ・ベントナイト系材料への鉱物学的な影響
- ・オーバパックに用いられる炭素鋼の腐食に与える影響
- ・天然バリア中への鉱物学的な影響
- ・天然バリアでの核種移行特性への影響

本項では、TRU 廃棄物処分施設から移行する高 pH プルームを評価し、評価結果をもとに高 pH プルームによる影響について記述する。

(1) 高 pH プルームの評価

TRU 廃棄物処分施設において多量に使用されるセメント系材料は長期的には地下水との反応により変質を生じる。その結果、接触する間隙水は高アルカリとなり周囲のベントナイト系材料及び天然バリアとの反応を生じる。これらの高アルカリ成分の移行、及び鉱物との反応による影響を検討するため 2 次元 地球化学・水理・物質輸送連成解析コード「PHREEQC-TRANS」を用いた。

a. 解析対象施設

本検討ではアルカリ成分の拡がりや緩衝材との反応により緩和されない廃棄体グループ 4 の施設（緩衝材を設けていない施設）を対象とすることとし、12m の円形断面の処分施設を等価な断面積の正方形と置き換えて体系を 1 次元化した。高 pH プルームを評価するために処分施設の上流側、下流側ともに 200m の岩盤を解析領域としてモデル化した。上流端、下流端において地下水濃度および水頭を固定して解析を行った。モデル化した解析領域図を図 3.5-1 に示す。

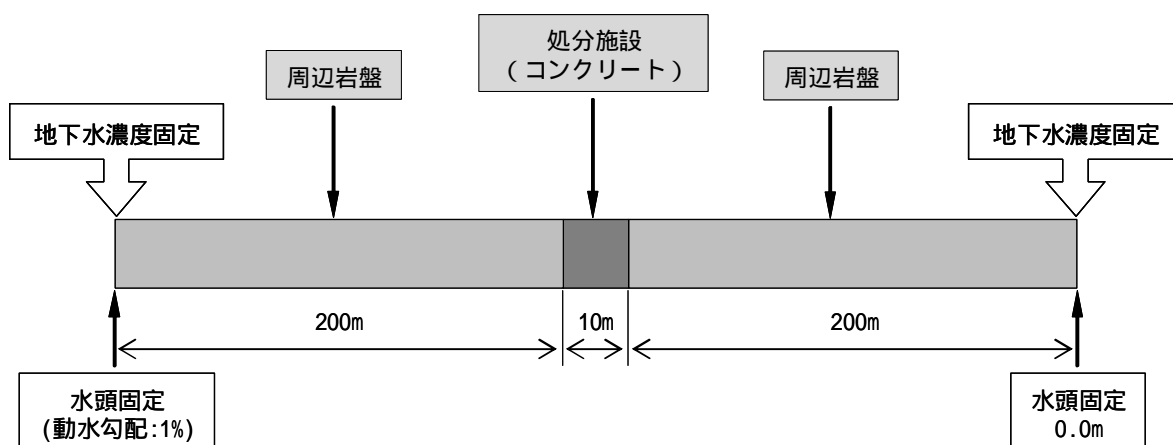


図 3.5-1 解析領域図

b. 母岩における鉱物組成の設定

処分施設周囲の母岩領域においては，処分施設から移行するアルカリ成分と母岩の構成鉱物との間の反応が生じ，構成鉱物の溶解及び二次鉱物の生成や間隙水組成の変化が生じる。ただし，母岩の構成鉱物はサイト条件により異なり，現状のサイトを特定しない評価においてはそれを明確に定めることはできない。そのため本検討においては，仮想的な岩盤を想定することとした。

本検討において想定する岩盤の構成鉱物は TRU 処分施設からのアルカリ成分との反応が容易に想定されるシリカ鉱物を想定することとした。シリカ鉱物としては，その結晶性などによりクォーツ，クリストバライト，カルセドニ，非晶質シリカなどの複数の存在形態がある(都城ほか，1972)。ここではこれらの中より，結晶性の鉱物として降水系地下水型地下水の設定においても考慮されており，かつベントナイトの随伴鉱物として考えられているカルセドニを想定した。

また，地下水の流路となる亀裂中などにおける充填鉱物としては非晶性のシリカ鉱物(都城ほか，1972)，粘土鉱物(核燃料サイクル開発機構，1999b)が考えられることから，これらについても考慮することとした。粘土鉱物としてモンモリロナイトを想定し，その熱力学データを用いて検討を行った。なお，これらの存在量自体は微量であると想定されるため，その反応量は 0.1wt% とした(表 3.5-2 参照)。なお，ここでアルカリ成分との反応を想定した以外の固相中の鉱物については反応性が非常に低いものと考え，化学反応に寄与しないものとして取り扱った。

表 3.5-2 地球化学反応に寄与すると考慮する鉱物

	組成	反応量(wt%)
カルセドニ	SiO ₂	10
非晶質シリカ	SiO ₂	0.1
カルサイト	CaCO ₃	0.1
モンモリロナイト	Na _{0.33} Mg _{0.33} Al _{1.67} Si ₄ H ₂ O ₁₂	0.1

c. 処分施設におけるセメント水和鉱物の設定

処分施設内は支保，構造躯体，廃棄体などの部位ごとにモルタルが使用される部位とコンクリートが使用される部位があり，それぞれ異なる示方配合となると考えられるが，本検討においてはすべてのセメント系材料をモルタルとして取り扱うこととした。モデルモルタルの仕様としては第 2 次 TRU レポートの付録 3B に示されている第 2 次 TRU レポートでの各種評価において前提とする共通仕様に基づき設定した。示方配合，鉱物組成，化学組成をそれぞれ表 3.5-3～表 3.5-5 に示す。また，セメント中の遊離アルカリ成分である Na，K はコンクリートが一定期間以上にわたって健全であることや C-S-H ゲルなどへの吸着が考えられることから，間隙水中への放出が抑制されると考えられるが，ここでは全量瞬時放出とし，速やかに移行するものとした。

表 3.5-3 セメントの化学組成 (wt%)

	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	SO ₃	Na ₂ O	K ₂ O
普通ポルトランドセメント	21.3	5.31	2.57	64.8	1.95	1.94	0.24	0.56

表 3.5 4 モデルモルタルの示方配合

水セメント比 W/C(%)	単位量 (kg/m ³)		
	水 (W)	OPC (C)	細骨材量
55	266	483	1,449

表 3.5 5 セメント鉱物組成 (mol/dm³ water)

	エトリン ガイト	C ₃ FH ₆	C ₃ AH ₆	C-S-Hゲ ル	ポルトラ ンダイト	ブルーサ イト	Na ₂ O	K ₂ O
モルタル	0.211	0.416	1.132	16.4	7.45	1.247	0.097	0.15

d. 地下水組成

TRU 廃棄物処分施設からの高 pH プルームは周囲の地下水流動状況等に加え化学反応により影響を受ける。地質環境条件の多様性を考えた場合、岩盤中の地下水組成としてはレファレンスとして想定されている降水系地下水に加え海水系地下水も考慮する必要がある。そこで、化学反応において影響が大きいと考えられる地下水組成に関して、本検討では降水系地下水と海水系地下水（表 3.5 6 参照）の 2 種類を考慮した。

表 3.5 6 解析に使用する地下水組成（核燃料サイクル開発機構，1999c）

	降水系地下水 (レファレンスケース)	海水系地下水*1 (地質環境変更ケース)
pH	8.5	8.0
Eh [mV]	-281	-303
単位：[mol l ⁻¹]		
Na (Total)	3.6×10 ⁻³	6.2×10 ⁻¹ *5
Ca (Total)	1.1×10 ⁻⁴	3.3×10 ⁻⁴
K (Total)	6.2×10 ⁻⁵	1.1×10 ⁻²
Mg (Total)	5.0×10 ⁻⁵	2.5×10 ⁻⁴
Fe (Total)	9.7×10 ⁻¹⁰	3.9×10 ⁻⁸
Al (Total)	3.4×10 ⁻⁷	3.2×10 ⁻⁹
C (Total)	3.5×10 ⁻³ *2	3.5×10 ⁻² *6
S (Total)	1.1×10 ⁻⁴ *3	3.0×10 ⁻² *7
B (Total)	2.9×10 ⁻⁴ *4	1.7×10 ⁻³ *4
P (Total)	2.9×10 ⁻⁶ *4	2.6×10 ⁻⁷ *4
F (Total)	5.4×10 ⁻⁵ *4	1.0×10 ⁻⁴ *4
Br (Total)	—	5.3×10 ⁻⁴ *4
I (Total)	—	2.0×10 ⁻⁴ *4
N (Total)	2.3×10 ⁻⁵ *4	5.2×10 ⁻³ *4
Cl (Total)	1.5×10 ⁻⁵ *5	5.9×10 ⁻¹
Si (Total)	3.4×10 ⁻⁴	3.0×10 ⁻⁴

*1 海水を起源として、鉱物との平衡反応、有機物による還元反応を考慮したモデル地下水 (Yui et al., 1999)

*2 無機炭素 = 3.5×10⁻³ mol l⁻¹, CH₄(aq) = 1.5×10⁻¹⁰ mol l⁻¹

*3 SO₄²⁻ = 1.1×10⁻⁴ mol l⁻¹, HS⁻ = 3.8×10⁻⁹ mol l⁻¹, H₂S(aq) = 1.2×10⁻¹⁰ mol l⁻¹

*4 実測地下水の平均値より設定

*5 電荷バランスをとるために調整

*6 無機炭素 = 1.5×10⁻² mol l⁻¹, CH₄(aq) = 2.0×10⁻² mol l⁻¹

*7 SO₄²⁻ = 3.2×10⁻⁵ mol l⁻¹, HS⁻ = 2.8×10⁻² mol l⁻¹, H₂S(aq) = 2.1×10⁻³ mol l⁻¹

e. シリカ鉱物の反応モデル

本検討においては、岩盤中のシリカ鉱物として、カルセドニおよび非晶質シリカを想定している。この中で、カルセドニに関しては処分施設における化学環境及びバリア材の長期性能の評価計算等において緩衝材中の随伴鉱物として考慮されている。このような緩衝材中での評価においては、緩衝材の低透水性により物質移行は拡散支配となることから鉱物の溶解速度に対して物質移行時間のほうが十分に長くなる。そのため、化学反応としては瞬時平衡として取り扱うことができると考えられる。一方、岩盤を対象とした本検討においては、透水係数が非常に高い状況では化学平衡状態まで達する十分な反応時間が維持されない場合が想定され、溶解速度が反応量を律速する状況も考えられる。そこで、本検討においてはカルセドニの反応については溶解速度を考慮することとした。対して、非晶質シリカは反応性が高いため、周辺岩盤の透水係数が高い状況においても瞬時平衡による取り扱いが可能であると考えられる。そのため、非晶質シリカの反応は瞬時平衡として取り扱うこととした。

カルセドニの溶解速度は以下の式で表される。

$$R = k [a_{H^+}]^n \left(1 - \frac{Q}{K}\right) A_0 \left(\frac{m}{m_0}\right)^b \quad (3.5-1 \text{ 式})$$

R : カルセドニの単位溶液体積あたりの溶解速度 [mol L⁻¹ s⁻¹]

k : 反応速度定数 [mol m⁻² s⁻¹]

a_{H^+} : H⁺の活量

Q : 溶解反応のイオン活量積

K : 溶解反応の平衡定数

A_0 : 鉱物の反応表面積 [m² L⁻¹]

なお、 $A_0 = C_0 M$ であり、

C_0 : 単位溶液体積あたりの溶解鉱物の初期存在量 [mol L⁻¹]

M : 式量 [g mol⁻¹]

: 比表面積 [m² g⁻¹] 設定値は表 3.5-7 参照

m : 考慮する時点での溶解鉱物の量 [mol L⁻¹]

m_0 : 初期の溶解鉱物の量 [mol L⁻¹]

b : 形状定数 (物質の溶解が 3 次元等方的である場合, $b=2/3$)

表 3.5-7 速度論的パラメータ

	Log ₁₀ [k]	n	C ₀ [mol/L]	M [g/mol]	[m ² /g]
カルセドニ	-14.5	-0.52	220.1 [結晶質岩] 14.2 [堆積岩]	60.09	0.0226

各バリア材料において考慮した鉱物種を表 3.5-8 に示す。

表 3.5-8 各バリア材料において考慮した鉱物

バリア材	初期鉱物	二次鉱物	
セメント系材料	ポルトランドイト	C ₃ ASH ₄	フリーデル氏塩
	C-S-Hゲル	C ₂ ASH ₈	カルサイト
	C ₃ AH ₆	C ₃ AS ₃	カルセドニ
	エトリンガイト	カオリナイト	アナルサイム
	ブルーサイト	パイロフィライト	ローモンタイト
岩盤	カルセドニ	C-S-Hゲル	ブルーサイト
	非晶質シリカ	C ₃ ASH ₄	アナルサイム
	カルサイト	C ₂ ASH ₈	ローモンタイト
	モンモリロナイト	C ₃ AS ₃	クリノタイロライト

f. 解析ケース

本検討ではアルカリ成分の処分場周囲への拡がりに関して、母岩の水理特性の差異による影響を把握することから、岩種として結晶質岩系岩盤及び堆積岩系岩盤の2ケース、更に透水係数に関して3ケースを想定して実施した。また、周辺地下水組成の違いによる影響を把握することから、地下水組成として降水系地下水及び海水系地下水の2ケースを想定した。なお、それぞれの岩種の解析上の取り扱いとしては、両者とも多孔質媒体としてモデル化を行い、岩種の違いとしては間隙率の違いを考慮した。

解析に使用したパラメータ、人工バリア及び岩盤の水理特性を表 3.5-9 に、解析ケースを表 3.5-10 に示す。

表 3.5-9 高 pH プルーフ解析に使用するパラメータ及び物性値

パラメータ		単位	結晶質岩	堆積岩
透水係数	セメントの透水係数	m/s	4 × 10 ⁻⁶	
拡散係数	セメントでの実効拡散係数	m ² /s	8 × 10 ⁻¹⁰	
	母岩での実効拡散係数	m ² /s	8 × 10 ⁻¹¹	1.2 × 10 ⁻⁹
形状	対象処分施設	-	廃棄体グループ4	
天然バリア	透水係数	m/s	1 × 10 ⁻⁸ , 1 × 10 ⁻⁹ , 1 × 10 ⁻¹⁰	
	間隙率	-	0.02	0.30
	真密度	Mg/m ³	2.7	2.7
	動水勾配	m/m	0.01	

表 3.5 -10 解析ケース

	天然バリアの透水係数 [m/s]			地下水水質		岩種	
	1×10^{-8}	1×10^{-9}	1×10^{-10}	降水系 地下水	海水系 地下水	結晶質岩	堆積岩
Case -1							
Case -2							
Case -3							
Case -4							
Case -5							
Case -6							
Case -7							
Case -8							
Case -9							
Case -10							
Case -11							
Case -12							

g. 解析結果

結晶質岩系岩盤を対象とし、透水係数が 1×10^{-9} m/s である Case -2, Case -5 について降水系地下水, 海水系地下水とともに 10,000 年後における施設近傍での液相濃度, 固相体積割合の変化を図 3.5 -2 ~ 図 3.5 -5 に, pH の変化を図 3.5 -6 ~ 図 3.5 -7 に示す。また, 堆積岩系岩盤を対象とするケースも含めて透水係数が 1×10^{-9} m/s である Case -2, Case -5, Case -8, Case -11 の液相濃度の分布と鉱物相の濃度分布を図 3.5 -8 ~ 図 3.5 -11 に示す。さらに岩盤中の pH の変化として, 領域と時間の関係を図 3.5 -12 ~ 図 3.5 -15 に示す。

(a) 鉱物の変質

岩盤中の鉱物の変質としては, セメント中の遊離アルカリ成分である Na, K が移行する際に粘土鉱物の変質して二次鉱物としてクリノタイロライトが生成した。また, 施設近傍からは非晶質シリカの溶解が続く領域では, Ca/Si 比の低い C-S-H ゲル (Ca/Si=0.4) が生成した。非晶質シリカが消失した領域では徐々に Ca/Si 比が高くなり, カルセドニの溶解によって生成する C-S-H ゲル (Ca/Si=0.9) が沈殿した。

海水系地下水のケースでは地下水中の Cl 濃度が高いため, 処分施設内でエトリンサイト, ハイドロガーネットが溶解し, フリーデル氏塩が生成する。この反応により, 処分施設内の pH は 13.7 程度と降水系地下水のケースよりも高い pH となり, より pH の高いブルームとなる。

岩盤中の鉱物は降水系地下水のケースと同じく, セメント中の遊離アルカリ成分である Na, K が移行する際に粘土鉱物の変質してクリノタイロライトが生成し, 非晶質シリカの溶解に伴って Ca/Si 比の低い C-S-H ゲルが生成した。遊離アルカリ成分が散逸した後は, 海水系地下水のケースは地下水中の Na 濃度が高いため, 処分施設近傍から徐々にクリノタイロライトが溶解してアナルサイムが生成した。

(b) 高 pH プルーム

岩盤中の pH はセメント中のアルカリ成分の移行により高くなるが、遊離アルカリ成分である Na, K が短期間で移行するケースでは pH11 程度の領域が広がる。しかし、遊離アルカリ成分が移行する際にクリノタイロライトが生成することにより、特に K が多量に鉱物相へ固定化され、Na と K の移行の進展フロントは時間的な差が生じ、遊離アルカリ成分による pH への影響は小さくなる。遊離アルカリ成分が散逸した後は非晶質シリカの溶解によって生成する C-S-H ゲル (Ca/Si=0.4) の平衡によって決まる pH10.0 となった。非晶質シリカが消失した領域ではカルセドニの溶解によって生成する C-S-H ゲル (Ca/Si=0.9) の平衡で決まる pH10.8 となった。

高 pH プルームは天然バリア中の流速に大きく影響される結果となった。天然バリアの透水係数が 1×10^{-8} m/s のケースでは移流により処分施設中の高アルカリ成分は下流側へ移行し、HLW 処分施設が設置される上流側への影響は限定的であった。また、結晶質岩のケースでは実流速が大きいため 1×10^{-9} m/s のケースでも上流側への影響は小さい。天然バリア中の実流速が小さいケースではアルカリ成分が拡散により上流側へ移行し、100 ~ 200m の範囲で地下水中の初期の pH よりも高くなる結果となったが、pH の変化の幅は小さく pH9 ~ 10 程度であった。

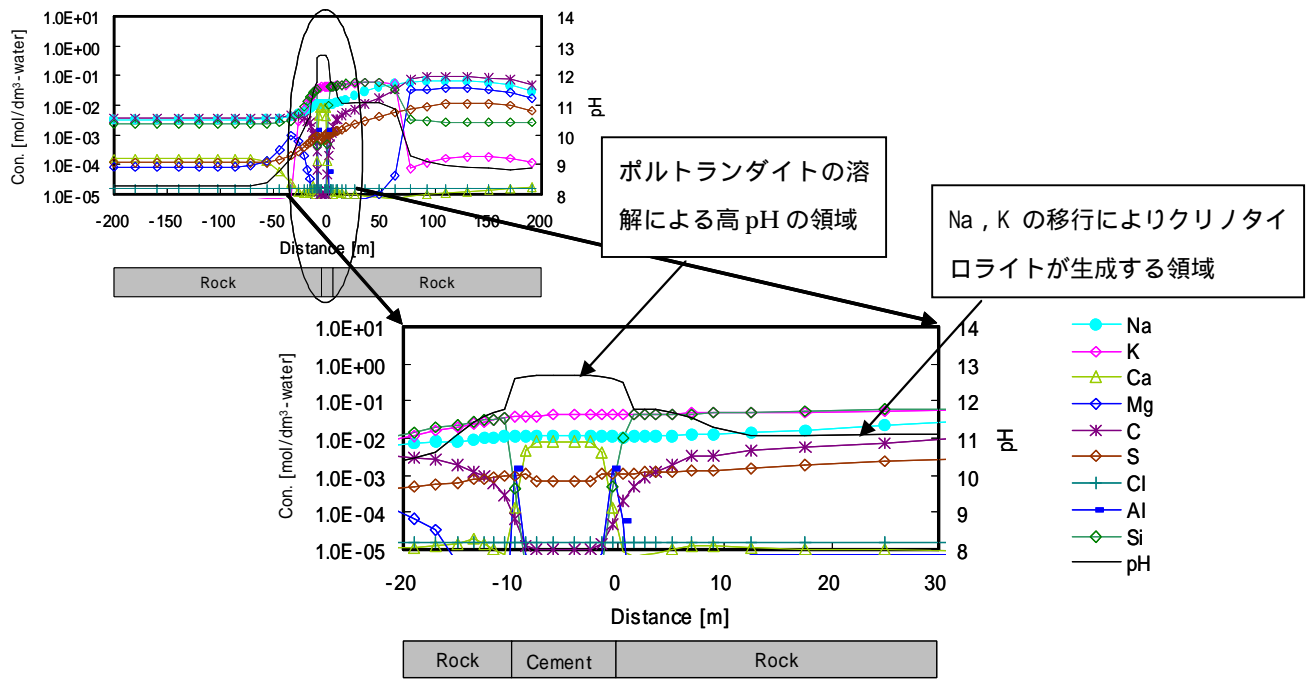
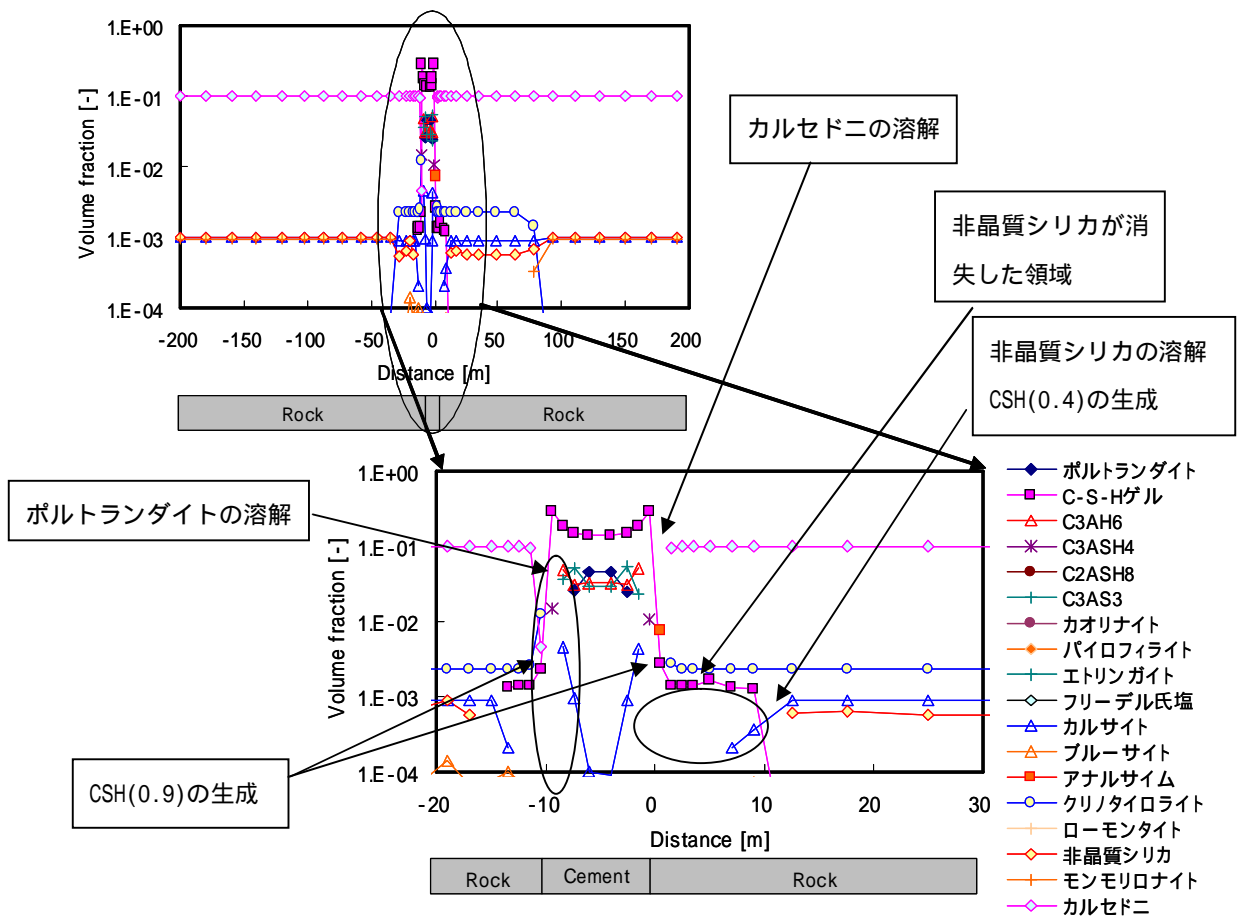


図 3.5-2 10,000 年後の液相濃度分布（降水系地下水，結晶質岩）



注 1 : C-S-Hゲルの表記は CSH(Ca/Si 比)としている

図 3.5-3 10,000 年後の固相体積割合分布（降水系地下水，結晶質岩）

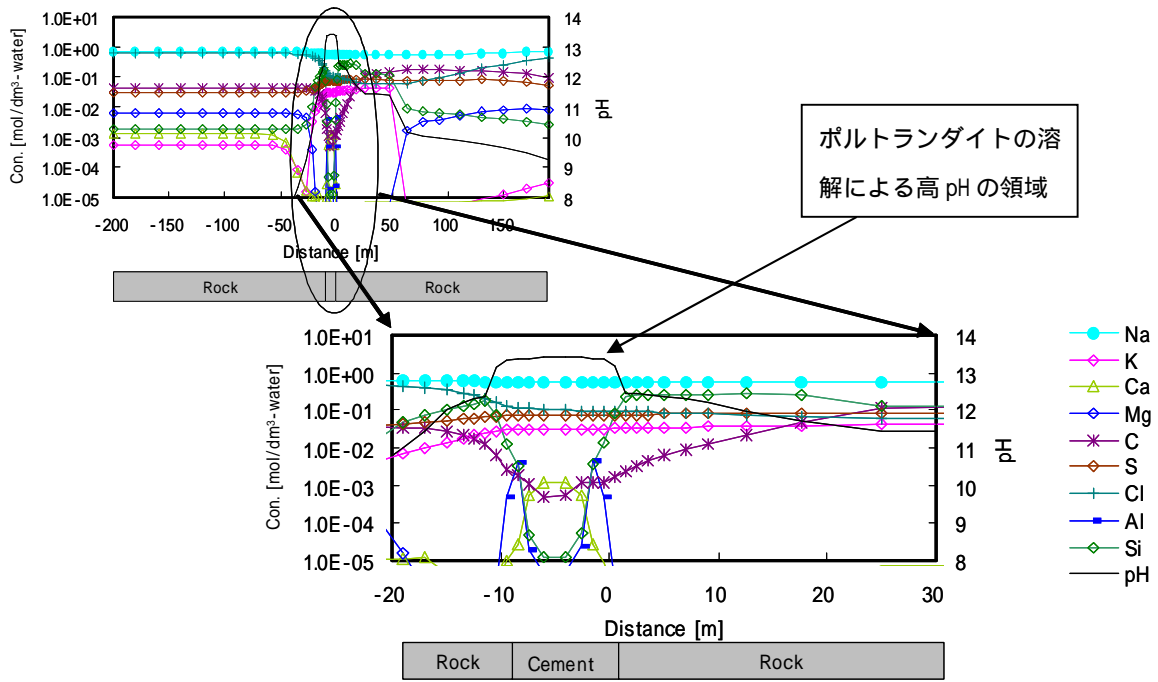
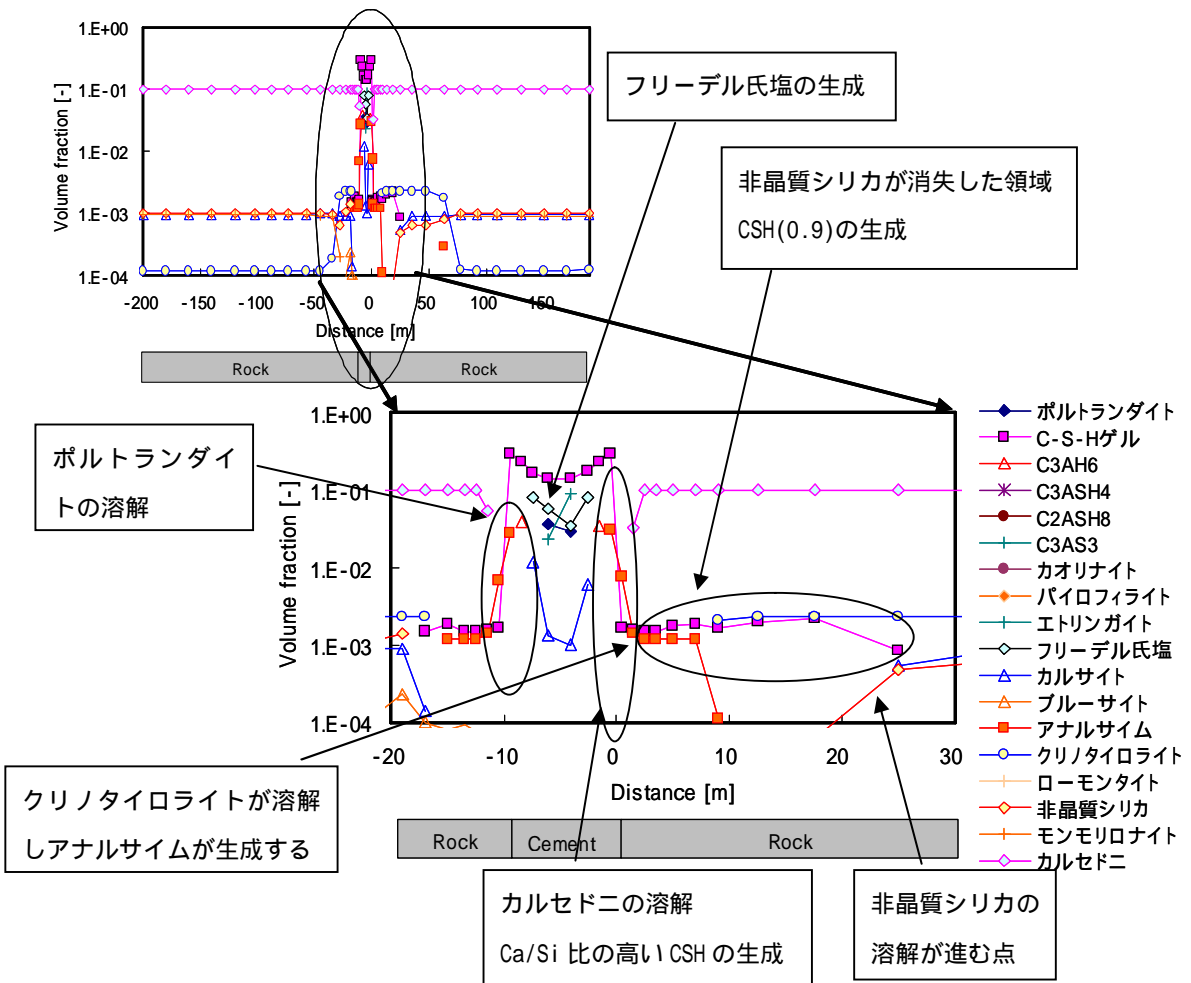


図 3.5.4 10,000 年後の液相濃度分布 (海水系地下水, 結晶質岩)



注 1 : C-S-Hゲルの表記は CSH(Ca/Si 比)としている

図 3.5.5 10,000 年後の固相体積割合分布 (海水系地下水, 結晶質岩)

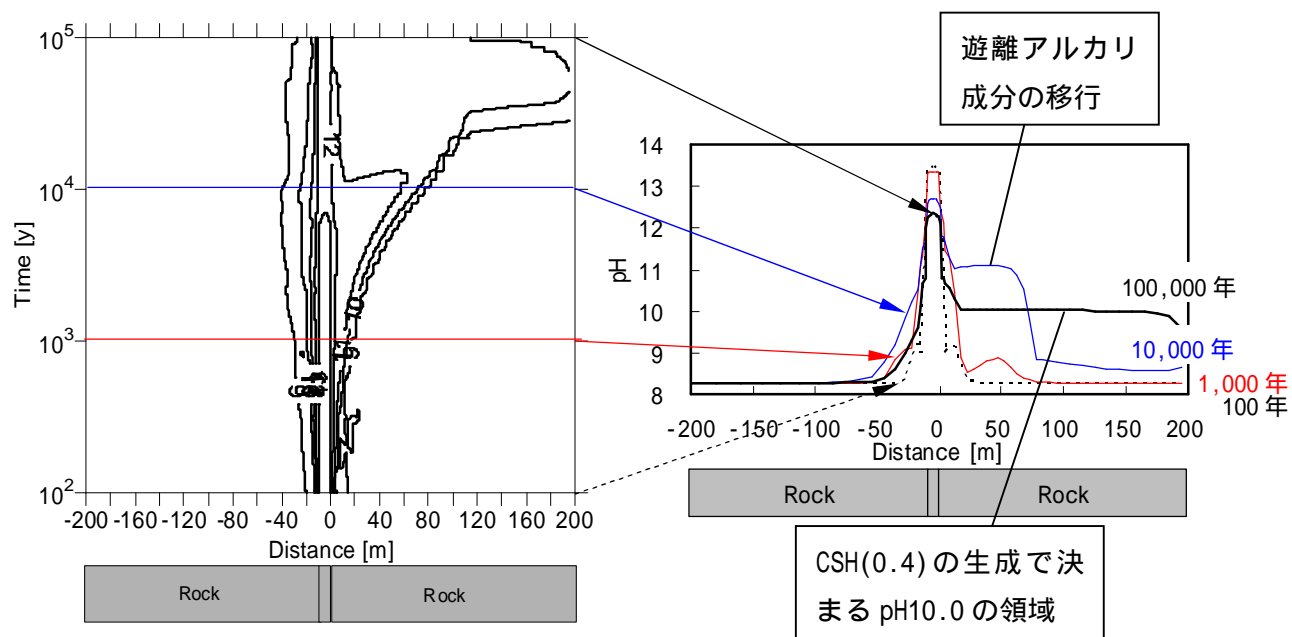


図 3.5-6 pHの変遷 (1×10^{-9} m/s, 降水系地下水, 結晶質岩)

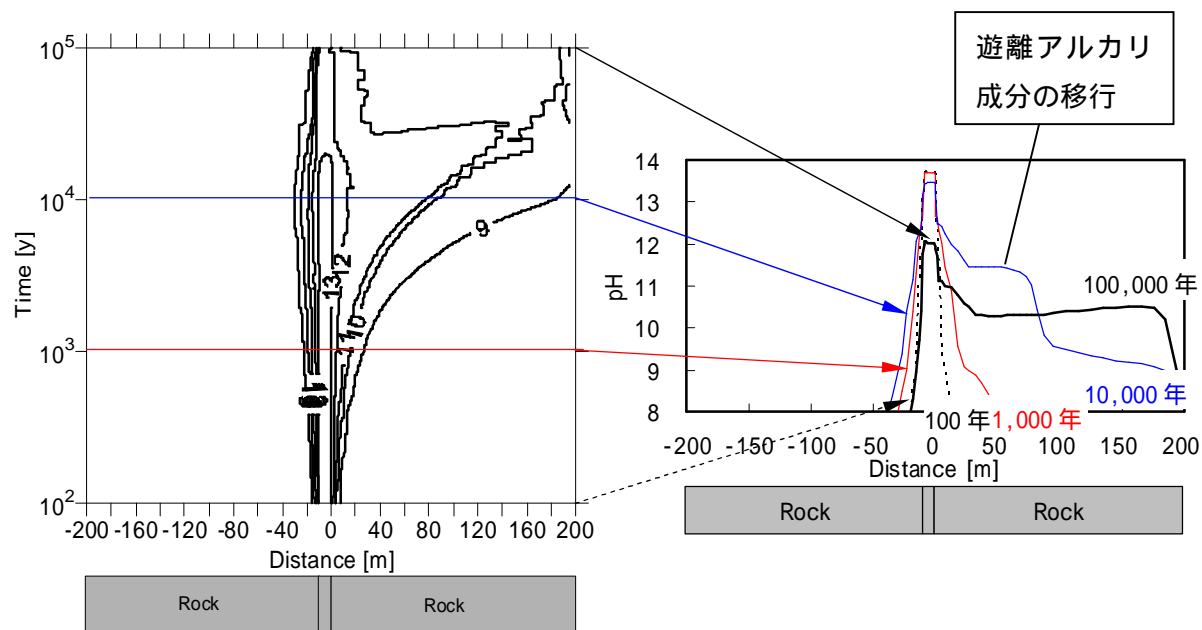
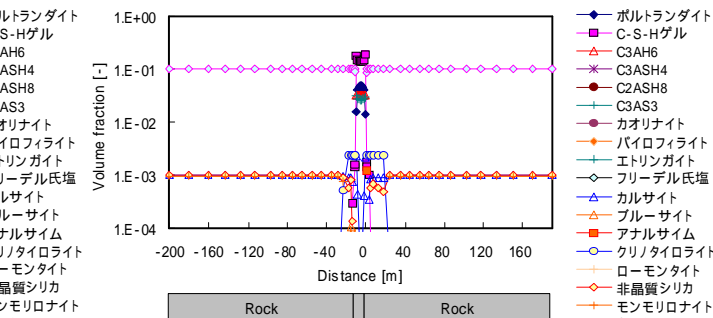
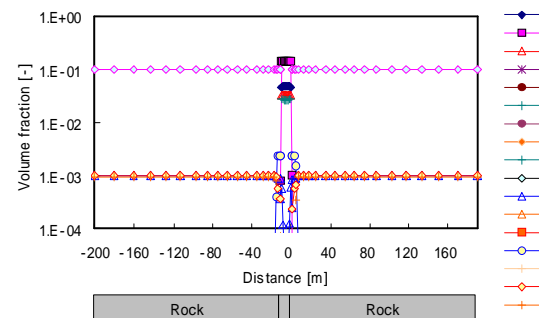
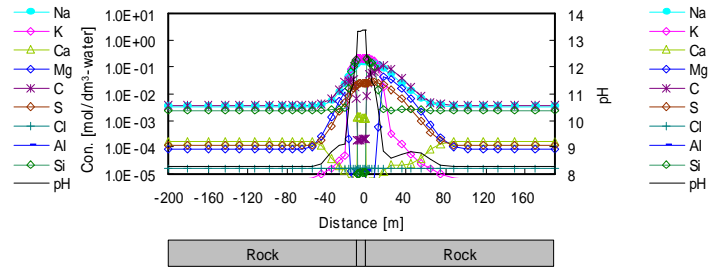
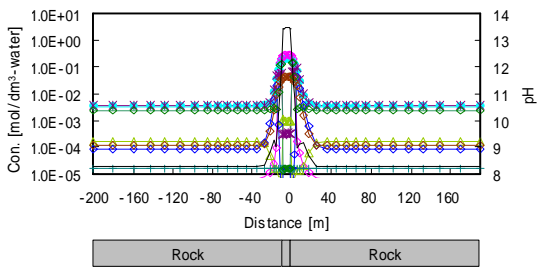


図 3.5-7 pHの変遷 (1×10^{-9} m/s, 海水系地下水, 結晶質岩)

Case-2 (降水系地下水): 100年

: 1,000年



: 10,000年

: 100,000年

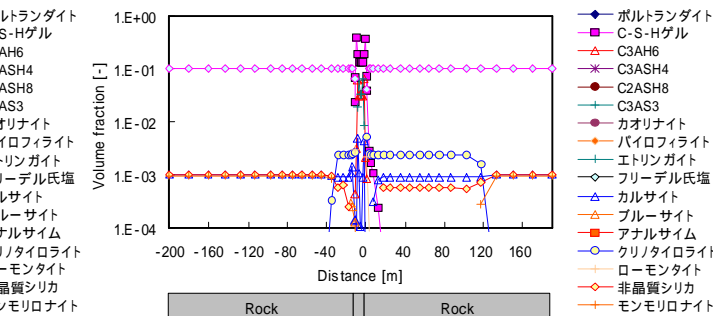
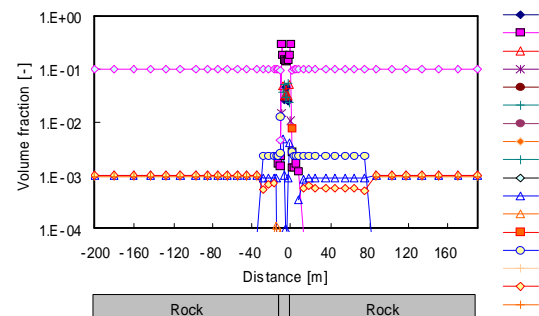
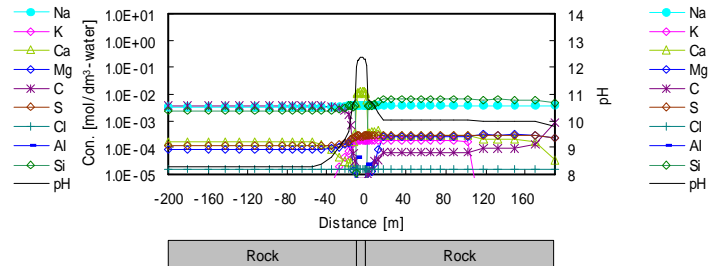
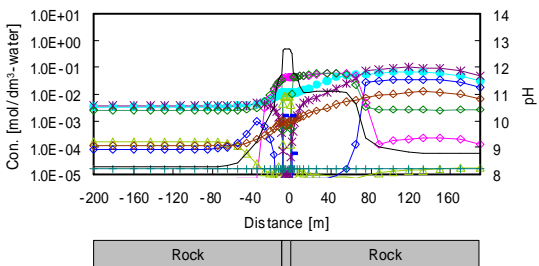
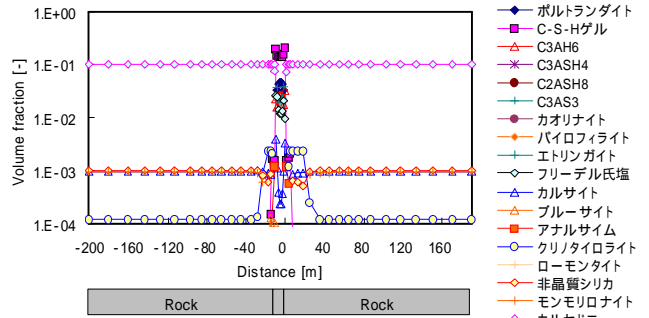
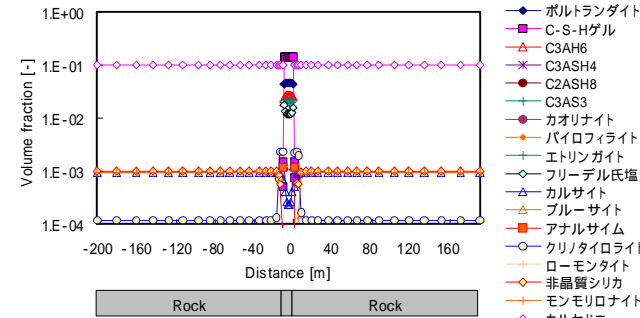
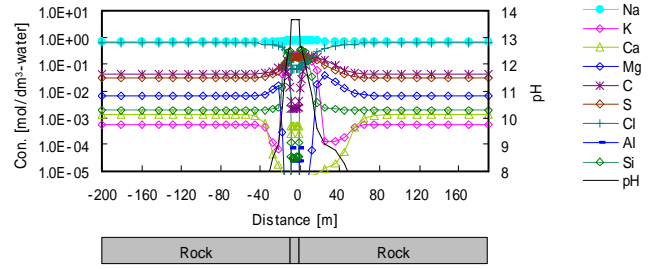
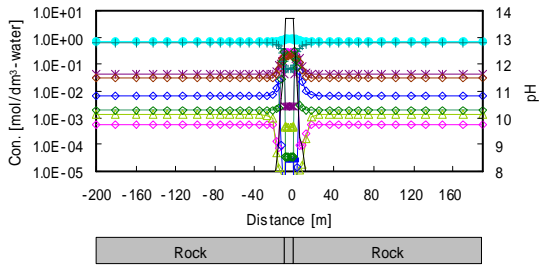


図 3.5-8 Case-2 (降水系地下水, 1×10^{-9} m/s, 結晶質岩) 液相, 鉱物相の濃度分布

Case 5 (海水系地下水): 100年

: 1,000年



: 10,000年

: 100,000年

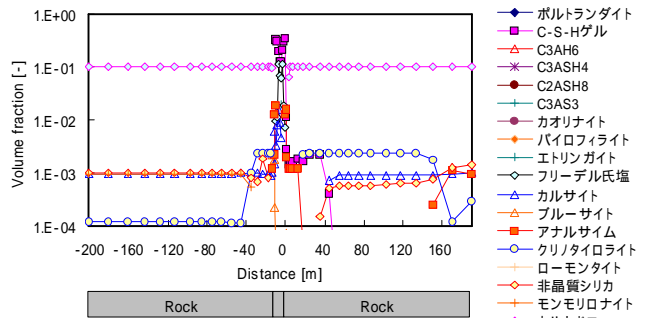
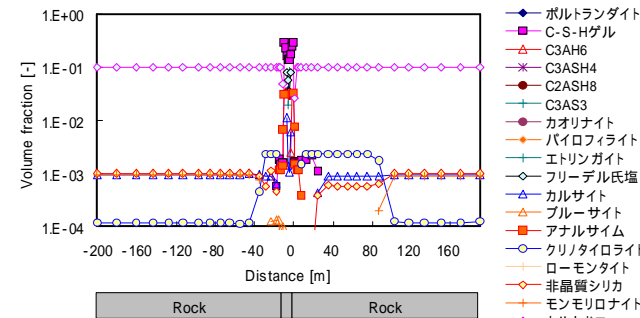
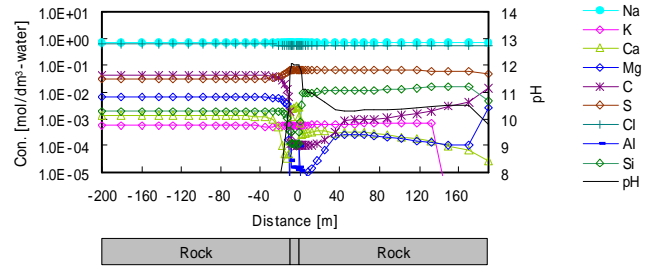
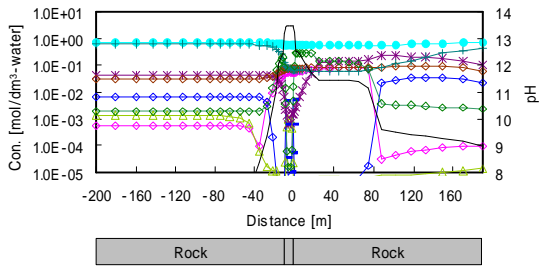
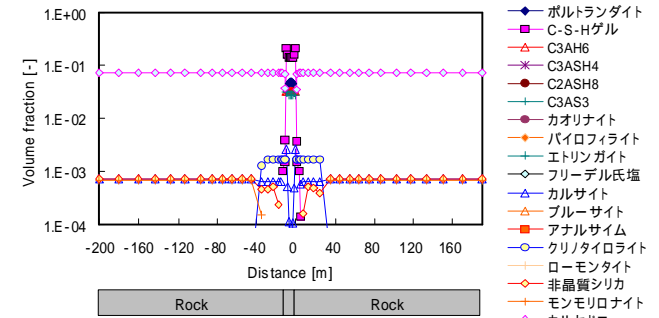
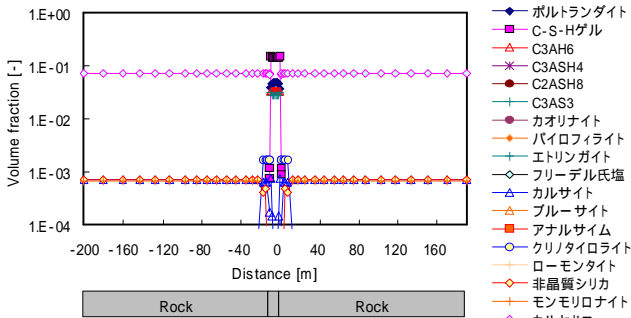
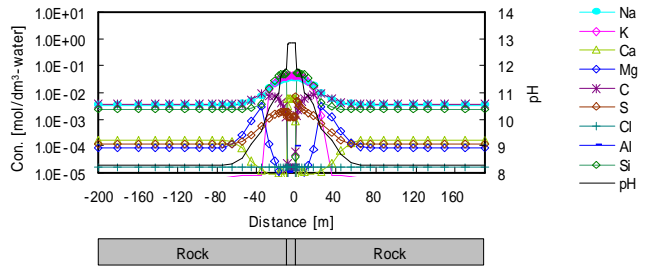
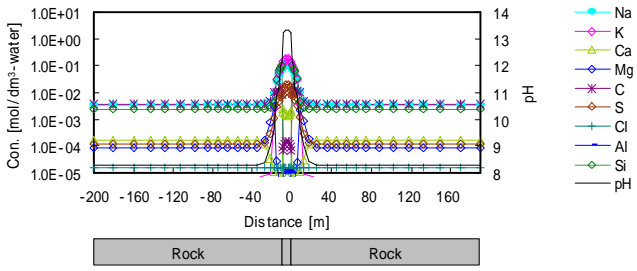


図 3.5-9 Case 5 (海水系地下水, $1 \times 10^{-9} \text{m/s}$, 結晶質岩) 液相, 鉱物相の濃度分布

Case-8 (降水系地下水): 100年

: 1,000年



: 10,000年

: 100,000年

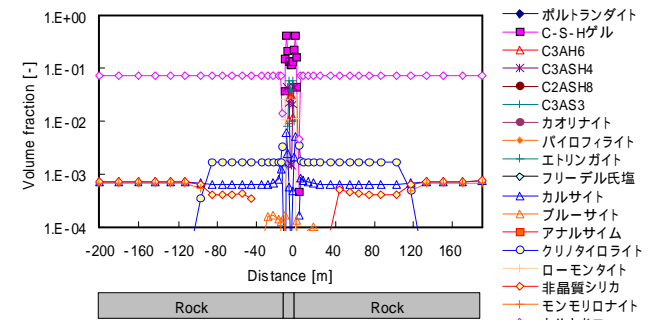
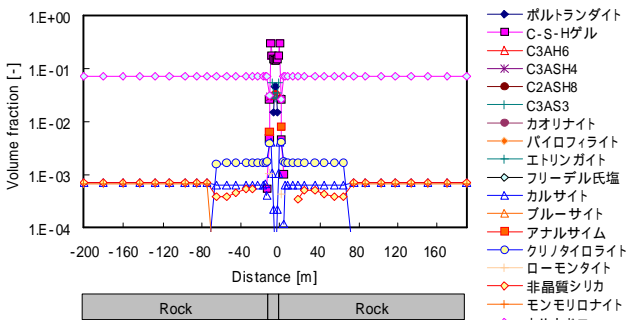
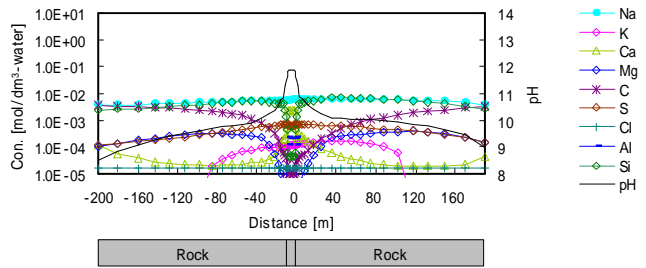
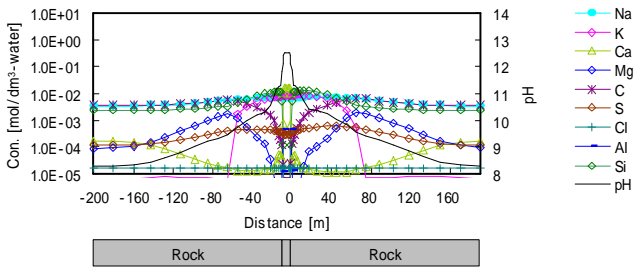
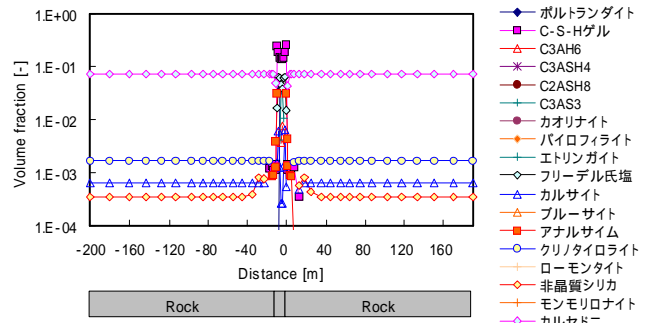
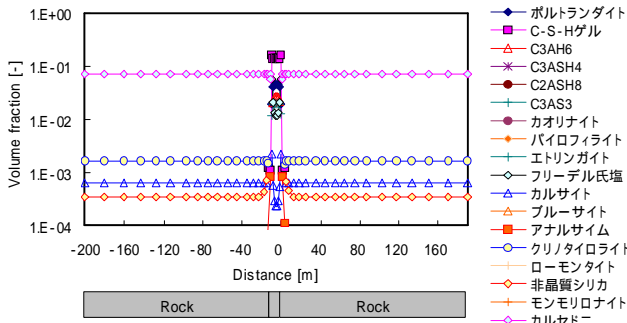
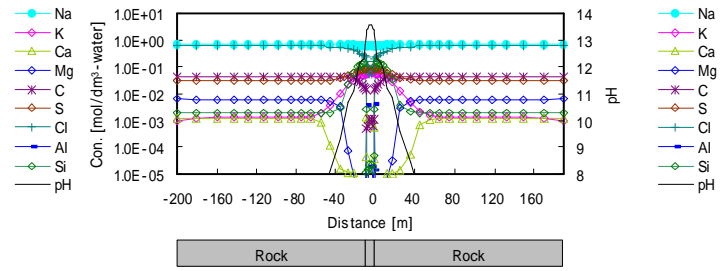
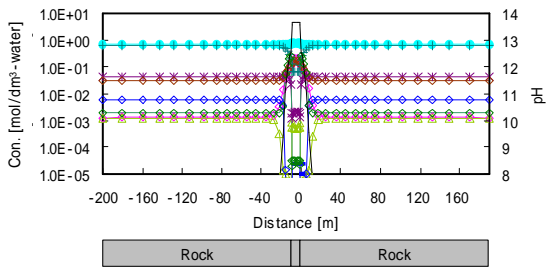


図 3.5-10 Case-8 (降水系地下水, $1 \times 10^{-9} \text{m/s}$, 堆積岩) 液相, 鉱物相の濃度分布

Case -11 (海水系地下水): 100年

: 1,000年



: 10,000年

: 100,000年

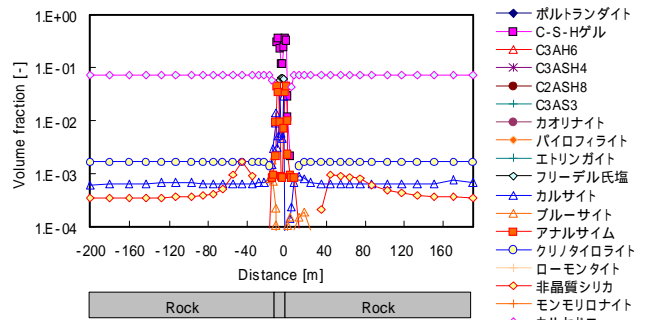
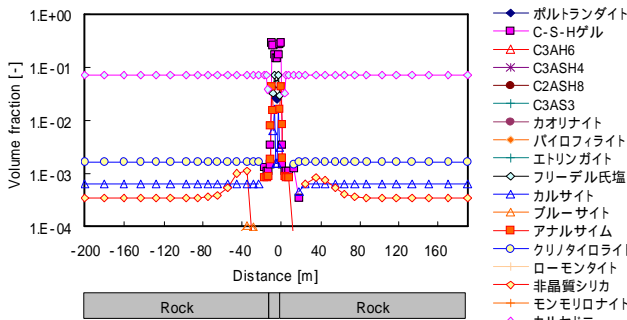
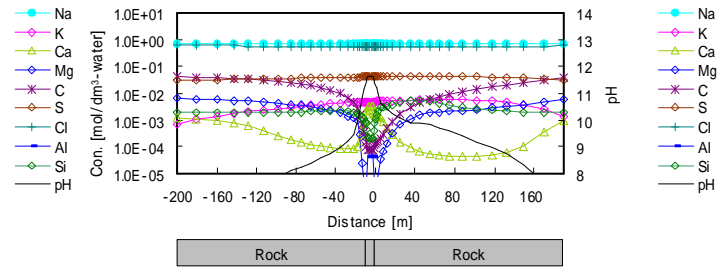
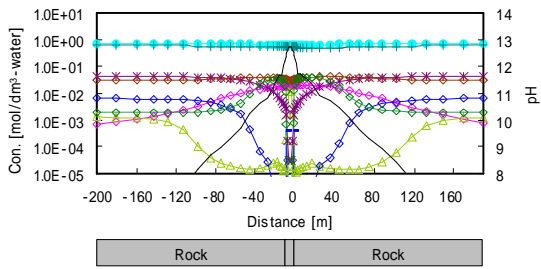
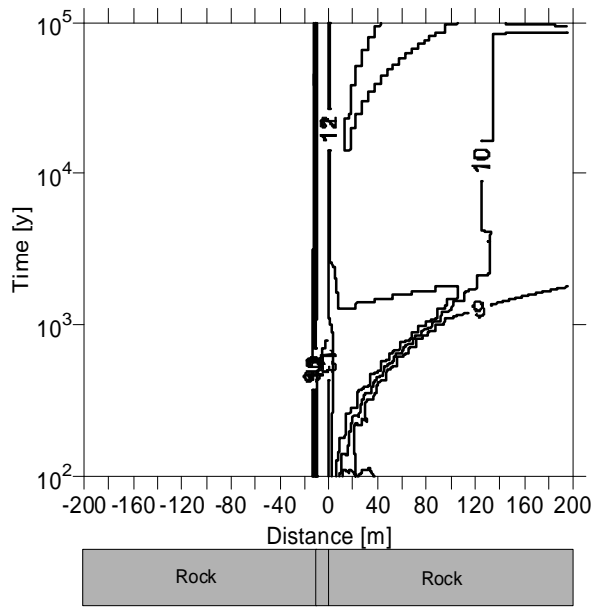
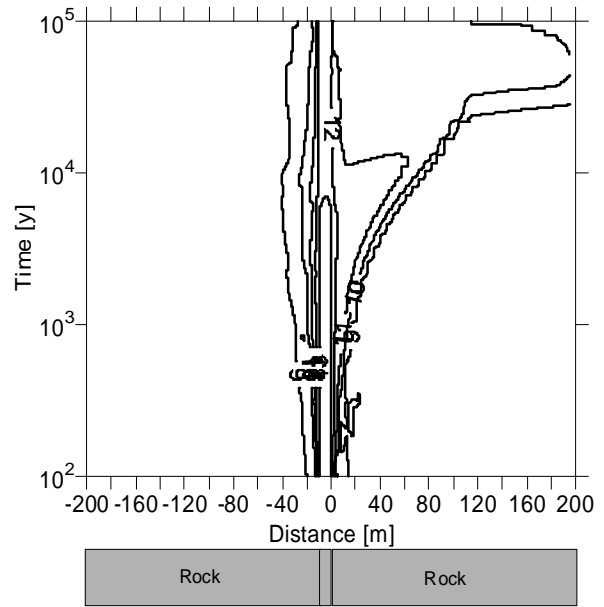


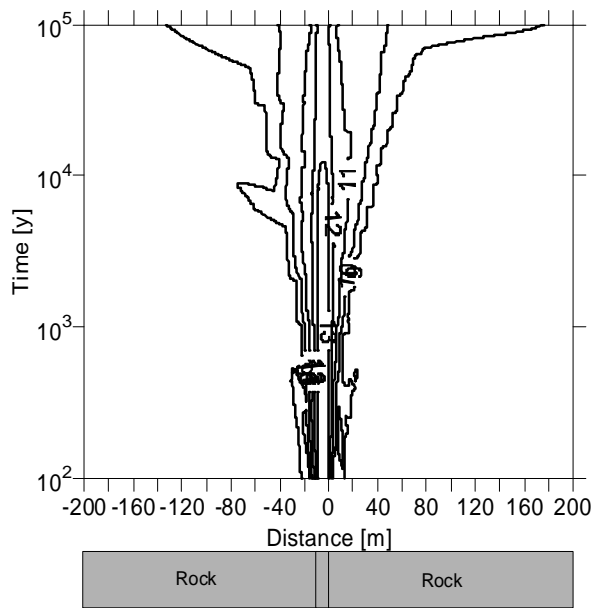
図 3.5 -11 Case -11 (海水系地下水, 1×10^{-9} m/s, 堆積岩) 液相, 鉱物相の濃度分布



(Case -1 : $1 \times 10^{-8} \text{m/s}$)

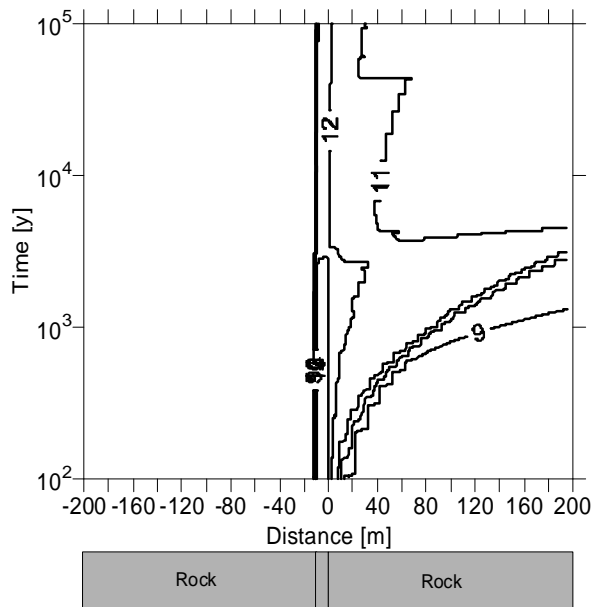


(Case -2 : $1 \times 10^{-9} \text{m/s}$)

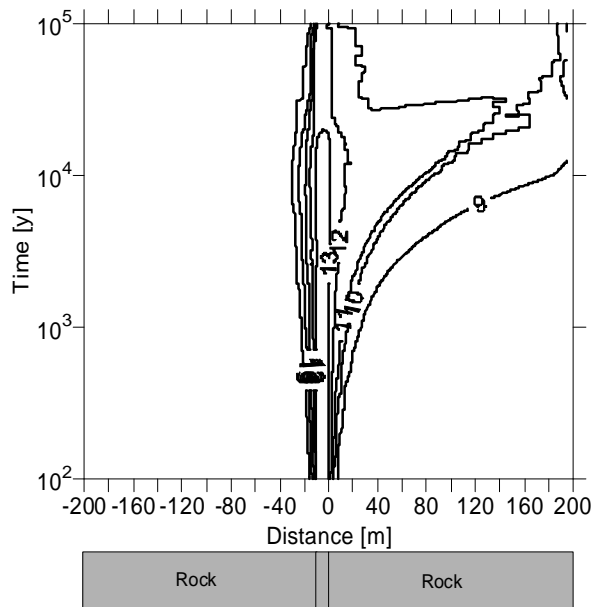


(Case -3 : $1 \times 10^{-10} \text{m/s}$)

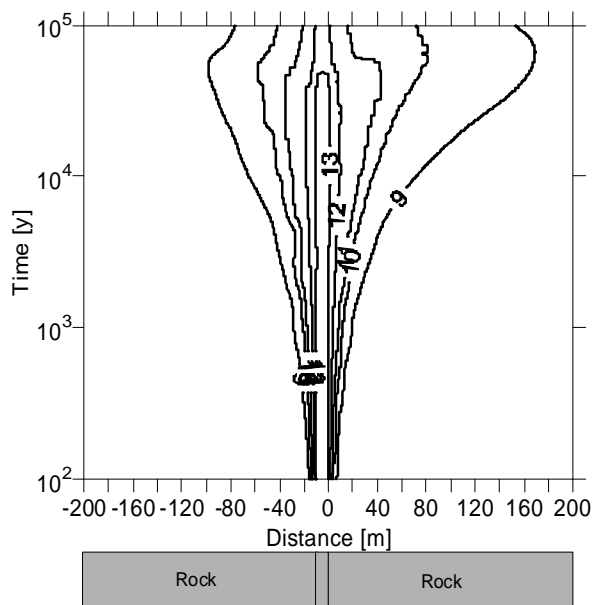
図 3.5 -12 高 pH ブルームの時間的・空間的変遷 (降水系地下水, 結晶質岩)



(Case 4 : $1 \times 10^{-8} \text{m/s}$)

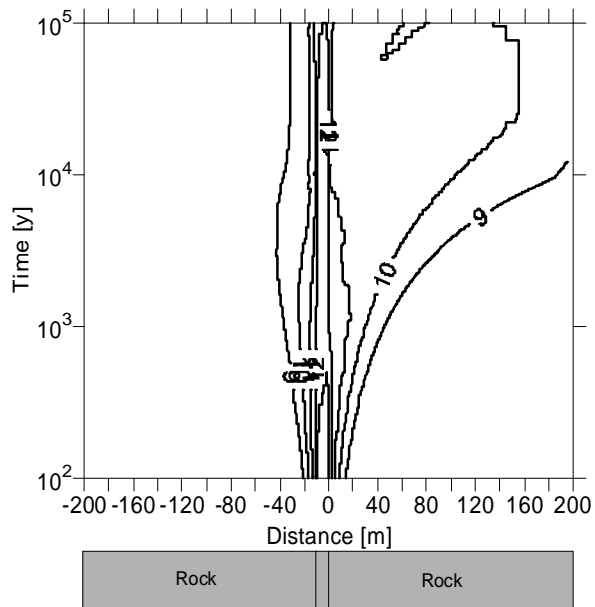


(Case 5 : $1 \times 10^{-9} \text{m/s}$)

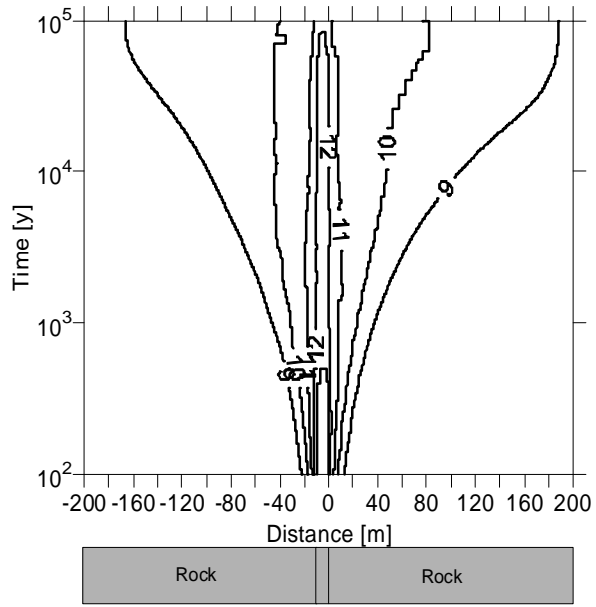


(Case 6 : $1 \times 10^{-10} \text{m/s}$)

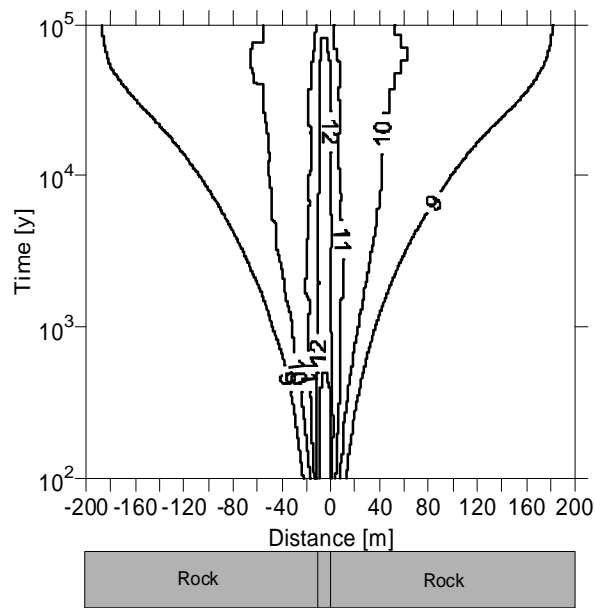
図 3.5 -13 高 pH プルームの時間的・空間的変遷 (海水系地下水, 結晶質岩)



(Case 7 : $1 \times 10^{-8} \text{m/s}$)

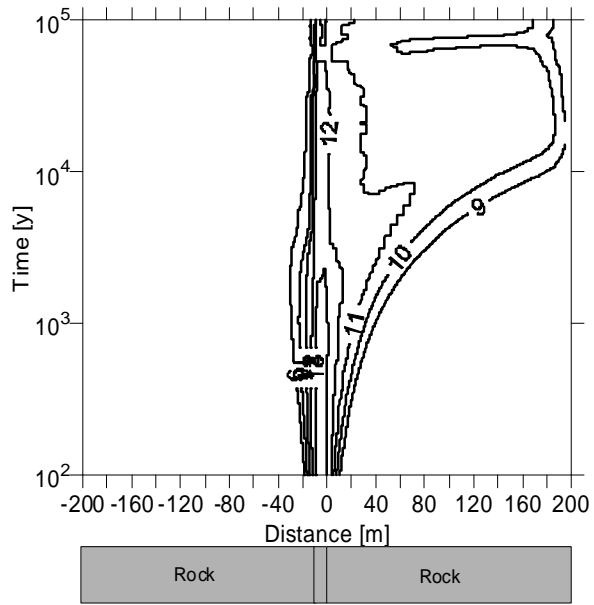


(Case 8 : $1 \times 10^{-9} \text{m/s}$)

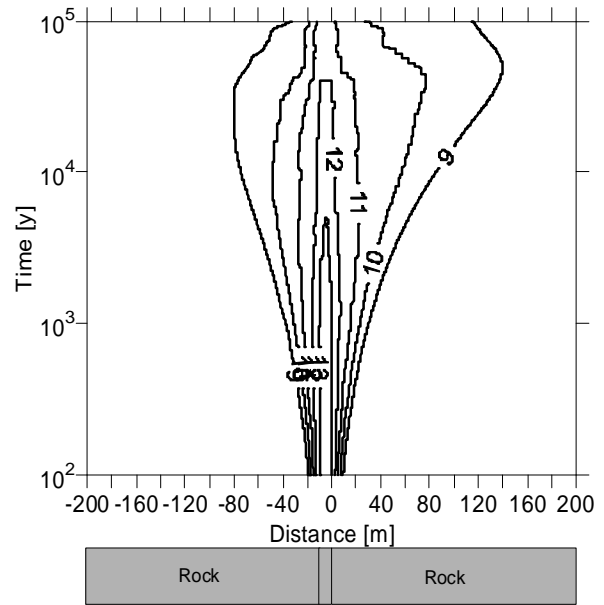


(Case 9 : $1 \times 10^{-10} \text{m/s}$)

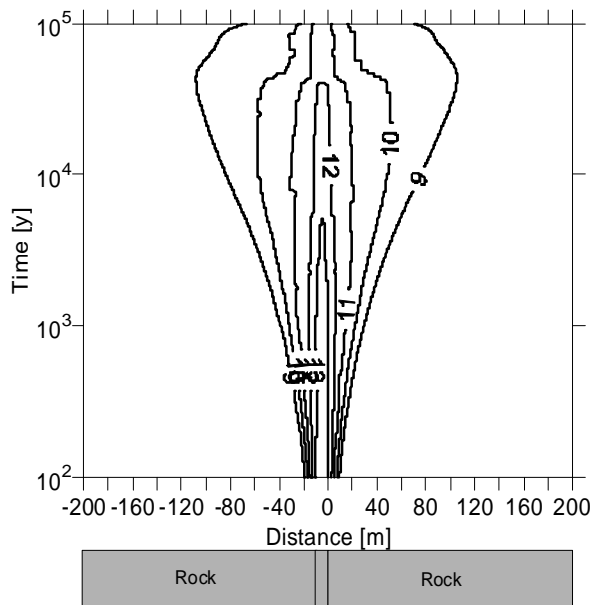
図 3.5-14 高 pH プルームの時間的・空間的変遷 (降水系地下水, 堆積岩)



(Case -10 : $1 \times 10^{-8} \text{m/s}$)



(Case -11 : $1 \times 10^{-9} \text{m/s}$)



(Case -12 : $1 \times 10^{-10} \text{m/s}$)

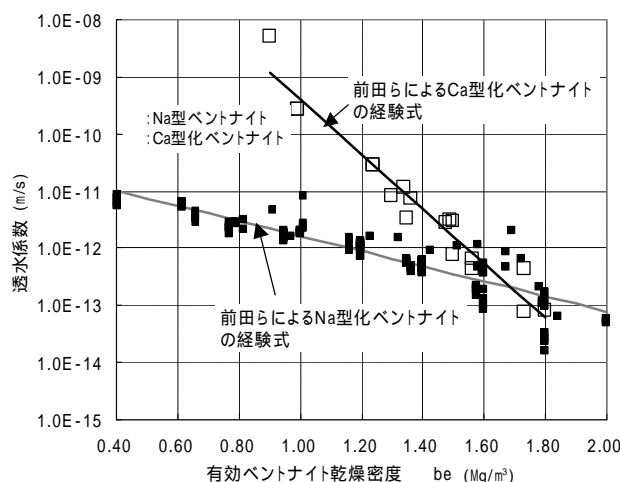
図 3.5 -15 高 pH プルームの時間的・空間的変遷 (海水系地下水, 堆積岩)

(2) 既存のアルカリ成分の影響に関する知見のまとめ

a. アルカリ成分が人工バリア性能に与える影響

セメント系材料成分が地下水に溶出すれば、大量のCaイオンが溶出し、スメクタイトの層間陽イオンのNa⁺がCa²⁺と置換するCa型化が起こるとともに、高pH環境ではベントナイトの主成分であるスメクタイトが溶解し、二次鉱物としてC-S-Hゲル及びゼオライトが生成することが室内試験において確認されており、ナチュラルアナログ研究においても支持されている。

Ca型化したベントナイトは、Na型ベントナイトに比較して膨潤性が低下する。図3.5-16に示すように、透水係数に関しては有効ベントナイト乾燥密度が1.6~1.7Mg/m³以上であればNa型の値と同等であるが、それ以下の有効ベントナイト乾燥密度ではNa型の値を上回り、1.36Mg/m³ (乾燥密度1.6Mg/m³の30%砂配合のベントナイト混合土相等)では、約1桁程度高くなる。一方、図3.5-17に示すように、実効拡散係数については乾燥密度(100%クニゲルV1単体での試験結果であり、上記有効ベントナイト乾燥密度と同等)が1.2~1.8Mg/m³の範囲ではNa型のそれと同程度である。



PNC TN8410 98-021 (前田ら, 1998) に基づき作図

図3.5-16 ベントナイトの透水係数試験結果

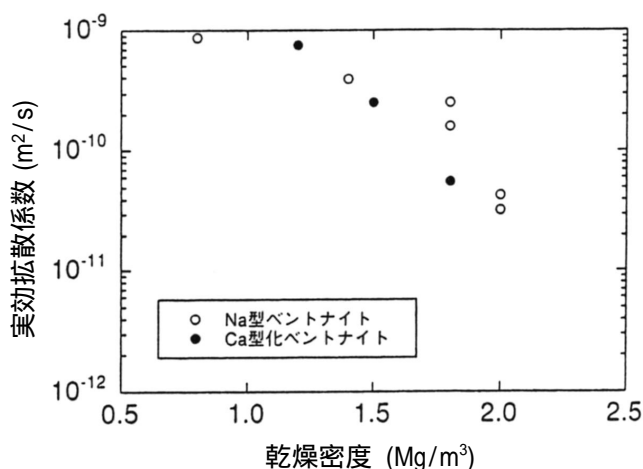


図3.5-17 ベントナイトの拡散係数(三原, 2000)

スメクタイトの変質には pH 及び温度依存性が認められており、黒木ら (2000) の報告に基づけば、表 3.5 -11 に示すように pH11 で温度が 100 以下の条件では、スメクタイトの溶解速度も遅く、2 年間の変質試験では二次鉱物の生成も認められていない。これは、粘土鉱物の安定限界を pH11 として取り扱うこととした Bradbury and Baeyens(1997) の見解とも整合する。

スウェーデンにおいては、主に ECOCLAY プロジェクトにおける既存の知見より、緩衝材及び埋め戻し材の安定性の観点から、地下水の pH が 11 以下であることを基準としている (SKB, 2004a ; SKB, 2004b)。

また、図 3.5 -18 に示すようにスメクタイトの溶解速度についても pH 依存性が認められており、Huertas et al. (2001) は -0.34 の傾きを、Sato et al. (2003) は -0.21 ~ -0.25 を提示している。この結果からは pH の低下に伴い溶解速度の低下が認められるが、スメクタイトの溶解速度は pH 依存項のみではなく温度、表面積及び抑制項なども大きく影響することから、単に pH 依存性のみから影響の生じない範囲を論じることはできない。

表 3.5 -11 アルカリ溶液におけるベントナイトの変質 (黒木ほか, 2000)

浸漬液	Ca(OH) ₂					
	10.5		11.5		12.5	
pH	ベントナイト	生成鉱物	ベントナイト	生成鉱物	ベントナイト	生成鉱物
50	Ca型化したが、720日までにほぼ残存	720日までに認められない	Ca型化したが720日までにほぼ残存	720日までに認められない	180日までにほぼ消失	30~180日CAHとC S H 360日でCAH 720日CASHも生成
80	Ca型化したが、720日までにほぼ残存	720日までに認められない	Ca型化720日でやや減少	180~360日混合層鉱物 720日でC S HとCASH	90日までにほぼ消失	30~360日C S HとCASH 720日で混合層鉱物層も生成
100			Ca型化したが、14日までにほぼ残存	14日までは認められない	7日までにほぼ消失	7~30日C S HとCASH

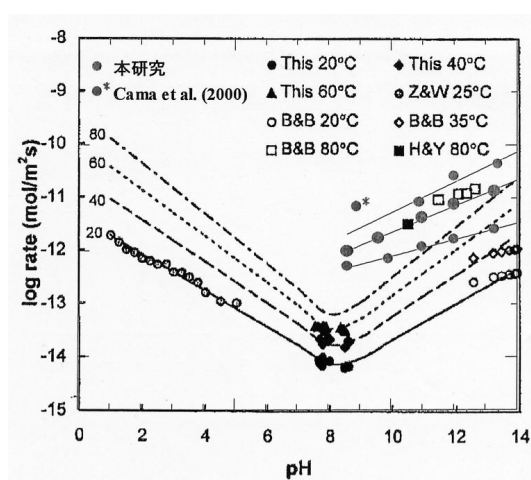


図 3.5 -18 スメクタイトの溶解速度の pH 依存性 (Sato et al., 2003)

また、ガラス固化体のオーバーパックに使用される炭素鋼の腐食の観点からは、図 3.5-19 に示すようにベントナイト周囲の地下水 pH が 12.5 以下であるならば、不動態化せず、全面腐食が起こるとされている(谷口ほか, 2002)。

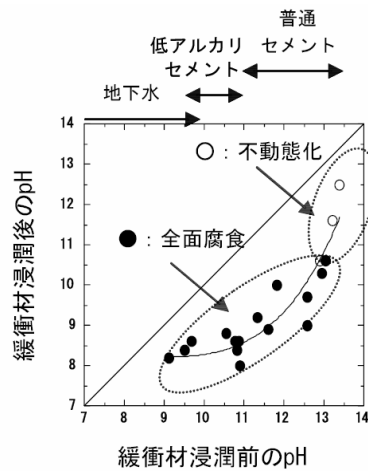


図 3.5-19 緩衝材中における炭素鋼の不動態化条件

b. アルカリ成分が天然バリア性能に与える影響

TRU 廃棄物処分施設に大量に使用されるセメント系材料は地下水中に徐々に溶出し、母岩中に高アルカリ性溶液が拡大する。pH プルームは長期間(数 1,000 ~ 数 100,000 年)に亘り、12.5 以上が維持されることから、高 pH の地下水が移行する母岩中の鉱物は溶解または二次鉱物を生成して沈殿し、地下水化学も変化する。その結果、岩盤の空隙構造、透水係数及び放射性核種の収着分配係数・溶解度が変化することが予想される。

Bradbury and Baeyens(1997)によれば、生成する鉱物相として C-S-H, CASH 及びゼオライト等があげられるが、そのシステムは非常に複雑であり、時間的・空間的に変化するとされている。

また、中澤ら(2004)によればアルカリ影響による岩盤変質試験の結果、岩石中の鉱物の中で結晶性鉱物の溶解は認められておらず、対して非晶質性鉱物は溶解し、溶出した Si とセメントから溶出する Ca との反応により、C-S-H ゲルが生成する可能性が示唆されている。

(3) まとめ

前述の(1)項において高 pH プルームによる天然バリアの地下水の pH の変化について TRU 処分施設から上流側、下流側ともに 200m の領域について 10 万年後まで評価を行った。その結果、高 pH プルームは天然バリア中の実流速に大きく依存し、実流速が大きいケースでは HLW 処分施設が設置される TRU 廃棄物処分施設の上流側への影響は限定的であることが示唆された。天然バリア中の実流速が小さいケースでは拡散による移行が顕著となり、TRU 廃棄物処分施設の上流側において数 10m から 200m 程度までアルカリ成分が移行し、pH が初期の地下水水質のものに比べ高くなった。しかし、広範囲に pH が高くなるケースでもその値は pH9 ~ 10 程度であった。

また、(2)項においてアルカリ成分の影響に関する知見をまとめた。ここでは地下水の pH の条件として、HLW 処分施設の緩衝材の安定性の観点からは pH11 以下であること、またオーバーパックで使用される炭素鋼が不動態化せず、全面腐食となるためには pH12.5 以下であることが示され

た。これらのことから pH11 以下であれば HLW 処分施設への影響は小さいと考えられる。

上記のように、HLW 処分施設の緩衝材に影響を与えるような高 pH (pH11 以上) となる領域は処分施設近傍に限定される結果であり、数 10m 以上離れた地点での HLW 処分施設への影響は小さいと考えられる。

また、長期的な地質条件の変化により地下水流向が HLW 処分施設へ向かう方向へ変化したと仮定したとしても、処分施設内に多量に存在する Ca の移行により地下水が高 pH となる領域は数 10m 以内となった。本検討で設定したケースの中では、セメント中の遊離アルカリ成分である Na, K の移行により短期間高 pH となることも想定されるが、この影響については二次鉱物の設定など不確実性が大きい。

以上の結果から、地下水流向の変化を考慮した場合においても TRU 廃棄物処分施設と HLW 処分施設の離間距離を 100m 程度確保することにより高 pH プルームによる影響は有意に生じないと考えられる。

4. 併置処分概念に関する検討

本項では、前項までの評価結果に基づき、併置処分概念及びレイアウトの検討結果を示す。

(1) 相互影響の対応策

TRU廃棄物処分施設とHLW処分施設の相互影響として、今回は熱、有機物、硝酸塩及び高pHブルームの影響を評価した。諸外国の対応策を踏まえれば、上記影響に対する対策としては、下記のもものが挙げられる。

離間距離の確保

施設レイアウト（地下水流向、母岩亀裂（破碎帯）の利用等）

工学的対策（プラグの設置等）

、及び を組合せることにより、廃棄体の発熱、廃棄体の含有物（有機物、硝酸塩）及び人工バリア材として使用されるセメントアルカリ成分の影響は対応可能であると考えられる。前項までの相互影響の解析結果に基づけば、TRU廃棄物処分施設とHLW処分施設は数100mの離間距離を確保することにより、処分の安全性は基本的に確保できると考えられる。

なお、相互影響因子そのものの原因となる物質又は材料の影響を低減するという観点からは、廃棄物の処理方法及び人工バリア材の仕様変更も有効であると考えられる。

(2) 処分施設概念及びレイアウトの検討

以上の検討結果を踏まえて、TRU廃棄物とHLWの併置処分の概念図を作成した。概念図作成における基本的な考え方は、以下に示すとおりである。

今回の解析結果に基づけば、TRU廃棄物とHLW処分施設間の相互影響は一般的な地質環境を想定した場合、300m程度の離間距離を確保することにより、その影響をほぼ回避することができる見通しが得られた。海外では、HLWとTRU廃棄物の離間距離は数100～500m程度確保しているケースが多い。

上記を踏まえて、TRU廃棄物処分施設とHLW処分施設との離間距離は数100m確保することとする。また、各処分施設の主要坑道及び連絡坑道にはプラグを設置し、各坑道が両施設の支配経路にならないように工学的対策を施す。

TRU廃棄物とHLW処分施設は建設、操業及び閉鎖期間が異なるとともに、それぞれの作業が干渉しないように、両施設はアクセス坑道を中心と対象となるように配置する。

TRU廃棄物処分施設から溶出する有機物、硝酸塩及び高pHブルームがHLW処分施設に影響する可能性を低減するため、TRU廃棄物とHLW処分施設は地下水流向に対して平行に配置することとする。

上記の検討結果に基づき、TRU廃棄物とHLWの併置処分概念を図4-1に例示した。同図の右側はHLW処分施設とTRU廃棄物処分施設の併置処分のイメージ図であり、地下水流行に対して両施設を平行に配置し、かつ、数100mの離間距離を確保することをイメージしたものである。また、同図の左側はTRU廃棄物処分施設の平面図である。TRU廃棄物とHLWの併置処分の鳥瞰図を図4-2に示す。本図は、地下水流向が画面奥

から手前に流れ，同一深度に配置する場合を想定したレイアウトである。離間距離の確保は具体的な地質環境条件では上下方向を含む立体的な配置によることも可能であると考えられる。

また，今回の相互影響に関する解析は保守的な仮定も多く，かつ，亀裂性母岩に対する評価の不確実性もあることから，今後は具体的な地質環境条件においてより詳細な解析を実施すれば，TRU廃棄物処分施設とHLW処分施設はさらに近接して設置することも可能であると考えられる。

5. 結論

TRU 廃棄物と HLW 処分施設の離間距離として数 100mを確保することにより 相互影響をほぼ回避することができるという見通しが得られた。ただし，今回の相互影響に関する解析は保守的な仮定も多く，かつ，亀裂性母岩に対する評価の不確実性もあることから，今後は具体的な地質環境条件においてより詳細な解析を実施する必要があると考えられる。

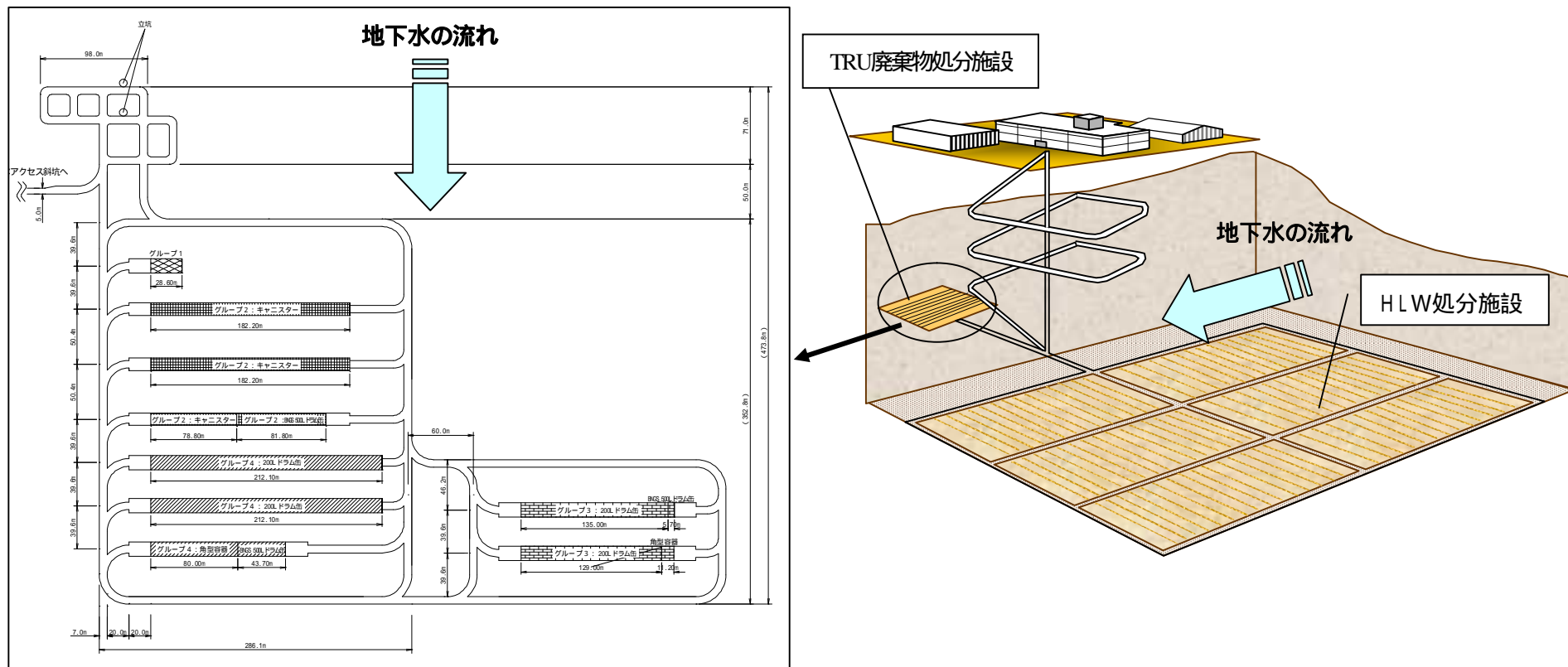
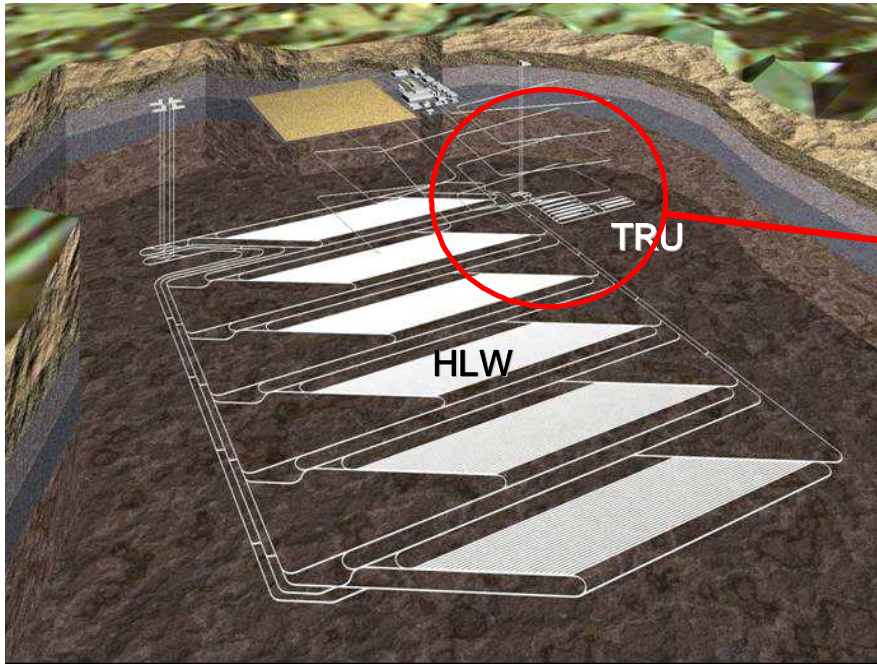


図4-1 TRU廃棄物 HLW併置処分の概念図例

併置処分の全体レイアウトの例



TRU廃棄物処分区域付近

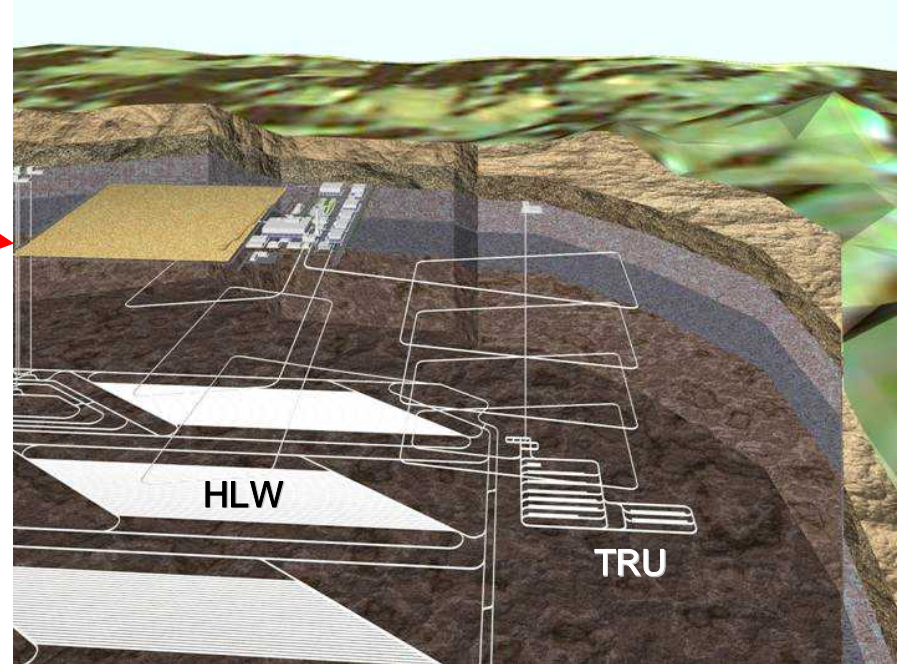


図4-2 TRU廃棄物 HLW併置処分の鳥瞰図

参考文献

- ANDRA (2001): Progress Report on Feasibility Studies & Research into Deep Geological Disposal of High-level, Long-lived Waste, DOSSIER 2001 ARGILE.
- Beavers, J.A., Thompson, N.G. and Parkins, R.N. (1987): Stress Corrosion Cracking of Low-Strength Carbon Steels in Candidate High-Level Waste Repository Environment, NUREG/CR-3861.
- Bradbury, M.H. and Sarott, F.A. (1994): Sorption Databases for the Cementitious Near-Field of a L/ILW Repository for Performance Assessment.
- Bradbury, M.H. and Baeyens, B. (1997): Far-Field Sorption Data Bases for Performance Assessment of a L/ILW Repository in a Disturbed/Altered Palfris Marl Host Rock, Paul Scherrer Institute, PSI Bericht Nr.97-16.
- 電気事業連合会(2003): TRU 廃棄物の地層処分費用について, 電気事業分科会 コスト等検討小委員会
- 原子力安全委員会(2000): 低レベル放射性固体廃棄物の陸地処分の安全規制に関する基準値について(第3次中間報告書).
- 原子力安全委員会(2004): 放射性廃棄物処分の安全規制における共通的な重要事項について.
- 原子力委員会(2000): 超ウラン核種を含む放射性廃棄物処理処分の基本的考え方について.
- Greenfield, B.F., Holtom, G.J. (1995): The Identification of Isosaccharinic Acid, A Cellulose Degradation Product, MRS Symp. Proc., Vol.353.
- 菱谷智幸, 西垣誠, 橋本学(1999): 物質移動を伴う密度依存地下水流の3次元数値解析手法に関する研究, 土木学会論文集, 第3巻, 第638号, pp.59-69.
- Huertas, F.J., Caballero, E., de Cisneros, C.J., Huertas, F. and Linares, J. (2001): Kinetics of montmorillonite dissolution in granitic solutions, Applied Geochemistry 16 397-407
- 核燃料サイクル開発機構(1999a): 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 - 地層処分研究開発第2次とりまとめ - 第2分冊, JNC-TN1400-99-022.
- 核燃料サイクル開発機構(1999b): 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 - 地層処分研究開発第2次とりまとめ - 第3分冊, JNC-TN1400-99-023.
- 核燃料サイクル開発機構(2002): 高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する研究開発 - 平成13年度報告 -, JNC TN1400 2002-003.
- King, S.J. and Poole, M. (2002): Issues Associated with the Co-disposal of ILW/LLW and HLW/SF in the United Kingdom, WM '02.
- 小岩正倫(1983): 金属の腐食損傷と防食技術, アグネ.
- 小佐古敏荘(2004): 放射性物質の特性に応じた危険度の指標について, 保健物理学会誌, vol.39, No.4, 2004.
- 黒木泰貴, 久保博, 川地武(2000): ベントナイト-消石灰系反応の促進試験(その4) Ca(OH)_2 -NaOH-KOH 混合溶液による長期養生, 粘土化学討論会講演要旨集, Vol.44, pp.268-269.

- 共同作業チーム(2000): TRU 廃棄物処分概念検討書, 平成 12 年 3 月.
- 前田宗弘, 棚井憲治, 伊藤勝, 三原守弘, 田中益弘(1998): カルシウム型化及びカルシウム型ベントナイトの基本特性 - 膨潤圧, 透水係数, 一軸圧縮強度及び弾性係数 -, PNC TN8410 98 -021.
- 三原守弘(2000): ナトリウム型ベントナイトのカルシウム型化に伴う透水係数及び核種の実効拡散係数の変化, サイクル機構技報, No.6.
- 三原守弘, 本田明, 大井貴夫, 藤井研介, 田島孝敏, 久保博(2004): TRU 廃棄物処分における硝酸塩の影響に関する研究() セメント系材料の環境下における NaNO_3 の圧縮成型ベントナイトの水理特性に及ぼす影響, 日本原子力学会「2004 年春の年会」予稿集, 第三分冊, p.849.
- 都城秋穂, 久城育夫(1972): 岩石学, 共立全書.
- NAGRA (1994a): Conclusions from the regional investigation programme for siting a HLW repository in the crystalline basement of Northern Switzerland, NTB 93 -09E.
- NAGRA (1994b): Kristallin -, Safety Assessment Report, Technical Report 93 -22.
- NAGRA (2002): Demonstration of disposal feasibility for spent fuel, vitrified high -level waste and long -lived intermediate -level waste, NTB 02 -05.
- 中澤俊之, 加藤博康, 村瀬拓也, 塚本政樹, 稲継成文(2004): TRU 廃棄物処分における硝酸塩の影響(3) - ベントナイト系材料及び岩盤の変質への影響, 日本原子力学会「2004 年秋の大会」予稿集分冊, p.677.
- 日本原子力研究所(2005): 放射性廃棄物処分の長期的評価手法の調査[ウラン・TRU廃棄物の基準整備に係る調査].
- ONDRAF/NIRAS(2001): Safety Assessment and Feasibility Interim Report 2; SAFIR2 ", NIROND 2001 -05 E.
- SKB (1999): Deep repository for long -lived low -and intermediate -level waste Preliminary safety assessment, Technical Report 99 -28.
- SKB (2004a): Interim process report for the safety assessment SR -Can., SKB -R -04 -33.
- SKB (2004b): Interim Main Report of the Safety Assessment SR -Can., SKB TR -04 -11.
- 三倉通孝, 立山伸治, 加藤博康, 金子昌章, 村瀬拓也, 塚本政樹, 稲継成文(2004): TRU 廃棄物処分における硝酸塩の影響(4) - セメント系材料及び岩の分配係数への影響 -, 日本原子力学会「2004 年秋の大会」予稿集分冊, p.678.
- Sato, T., Kuroda, M., Yokoyama, S., Nakayama, S., Akita, N., Ozeko, M. and Arai, S. (2003): Smectite - Hyperalkaline Fluid Interaction and Formation of Secondary Minerals under Hyperalkaline Environments, International Workshop on chemistry and stability of bentonites in radioactive waste disposal.
- 澁谷朝紀, 柴田雅博, 陶山忠宏(1999): 核種のベントナイトおよび岩石に対する収着データベース, JNC TN8400 99 -050.
- 陶山忠宏, 笹本広(2004): JNC 収着データベース (JNC -SDB) の更新: 1998 年 ~ 2003 年までに公開された文献データの追加, N8410 2003 -018.

- 谷口直樹,川上進,森田光男(2002):ベントナイト/ケイ砂混合体における炭素鋼の不動態化条件,
サイクル機構技術資料, JNC TN8400 2001 -025.
- Tits, J., Bradbury, M., Eckert, P., Schaible,A., and Wieland,E.(2002): The Uptake of Eu
(III) and Th (IV) by Calcite under Hyperalkaline Conditions, The Influence of Gluconic
and Isosaccharinic Acid ”, NAGRA NTB 02 -08.
- Wiborgh, M. (1995): Prestudy of final disposal of long-lived low and intermediate level
waste, Technical Report 95 -03.

6-2 余裕深度処分の濃度上限値及び 核種濃度区分値(6.3)

1. はじめに

本書は、第2次 TRU レポートの「6.3 余裕深度処分の 核種濃度区分値による影響」に記載されている余裕深度処分対象廃棄物の濃度上限値及び 核種濃度区分値の導出方法について詳細に記述したものである。

2. 濃度上限値の導出

2.1 基本的考え方

TRU 核種を含む放射性廃棄物(以下、「TRU 廃棄物」という)の埋設処分における濃度上限値の検討に際し、原子力安全委員会 放射性廃棄物安全基準専門部会報告書「低レベル放射性廃棄物の陸地処分の安全規制に関する基準値について」(第3次中間報告)(以下、「第3次中間報告」という)(原子力安全委員会,2000)等を踏まえ、余裕深度処分における重要核種を検討するとともに、濃度上限値を算出した。

なお、第3次中間報告では内部被ばく線量係数(吸入・経口)に ICRP Pub.30 (ICRP, 1988)を適用し、TRU 核種の崩壊連鎖は考慮されていないが、今回の検討では、内部被ばく線量係数(吸入・経口)に ICRP Pub.72 (ICRP, 1996)を適用するとともに、TRU 核種の崩壊連鎖を考慮した。

2.2 重要核種の選定

TRU 廃棄物の重要核種の選定においては、第3次中間報告において原子炉施設から発生する放射性廃棄物について導出した方法と同じ方法を採用し、放射性核種ごとに被ばく経路の重畳を考慮した $10 \mu\text{Sv/y}$ 相当濃度の最小値(C)と対象廃棄物中の平均放射性核種濃度(D)の比である相対重要度 $(D/C)^{-1}$ が上位3桁(相対重要度の最も高い核種の相対重要度と同じ桁を1桁とし、それに続く2桁までを指す。)の範囲に入る核種とする。なお、生成過程及び決定経路が同じ核種は、相対重要度のより高い核種で代表する。(表-1 参照)

TRU 廃棄物の核種組成は、再処理工場から発生する代表的な TRU 廃棄物を対象として平均的な核種組成(民間再処理工場及び民間 MOX 加工施設から発生する操業廃棄物の放射性物質濃度と廃棄物発生量に基づき加重平均して算出した。ただし、CB 及び BP は含まない。)に基づき、設定することとした。

表 1 TRU 廃棄物の各処分区分における相対重要度

相対重要度	トレンチ処分	コンクリートピット処分	余裕深度処分
1 桁目	Sr 90	Ni 63 , Sr 90 , Tc 99 Pu 240/241 , Am 241	Tc 99 , I 129
2 桁目	Co 60 , Cs 137 , Pu 238/241	Cl 36 , Co 60 , Nb 94 I 129 , Cs 137 , Pu 238/239	Cl 36 , U 238 , Np 237 Pu 238/241
3 桁目	Ni 63 , Nb 94 , Tc 99	C 14 , Ni 59 , Mo 93 , U 238 Np 237 , Am 242m/243 , Cm 244	Zr 93 , U 234 , Am 241
備考	Nb 94 : Co 60 で代表 Tc 99 : Sr 90 で代表 アクチニド : 全 で代表	Cl 36 , Ni 59 , Mo 93 : Ni 63 で代表 Tc 99 : Sr 90 で代表 アクチニド : 全 で代表	Zr 93 : Tc 99 で代表 アクチニド : Pu 238 , Am 241 で代表

*1 : 相対重要度とは、検討対象とする廃棄物の平均濃度 D と各シナリオにおける基準線量に相当する濃度のうちの最小濃度 C (決定経路の濃度) との比であり、これが大きいほど安全評価上重要な放射性核種となる。

TRU 廃棄物の各処分区分における重要核種及びその詳細は、表 2 及び表 3 に示すとおりである。

表 2 TRU 廃棄物の各処分区分における重要核種

処分区分	重要核種	参考 (発電所廃棄物)
トレンチ処分	Co 60 , Ni 63 , Sr 90 , Cs 137 , 全	Co 60 , Ni 63 , Sr 90 , Cs 137 , 全
コンクリートピット処分	C 14 , Co 60 , Ni 63 , Sr 90 , Nb 94 , I 129 , Cs 137 , 全	C 14 , Co 60 , Ni 63 , Sr 90 , Cs 137 , 全
余裕深度処分	Cl 36 , Tc 99 , I 129 , Pu 238	C 14 , Cl 36 , Tc 99 , Np 237

表-3 TRU 廃棄物の各処分区分における相対重要度

No.	核種	半減期 (年)	10 μSv/y相当濃度			放射性物質濃度						
			トレンチ処分	コンクリート ビット処分	余裕深度処分	民間再処理 廃棄物	トレンチ処分	コンクリート ビット処分	余裕深度処分			
			Bq/t	Bq/t	Bq/t	Bq/t	(D/C)	(D/C)	(D/C)			
1	H-3	1.23E+01	1.2E+08	5.5E+15	-	4.21E+10	3.54E+02	(5)	7.65E-06			
2	Be-10	1.51E+06	1.4E+08	2.8E+09	3.8E+11							
3	C-14	5.73E+03	1.3E+07	3.4E+09	3.2E+13	9.9E+09	7.70E+02	(5)	2.94E+00	(3)	3.15E-04	(4)
4	Cl-36	3.01E+05	3.2E+05	6.7E+06	9.3E+09	1.9E+08	6.07E+02	(5)	2.92E+01	(2)	2.11E-02	(2)
5	Ca-41	1.03E+05	2.8E+07	5.5E+08	2.8E+13	7.38E+06	2.80E-01		1.34E-02	(5)	2.68E-07	
6	Fe-55	2.73E+00	2.1E+15	3.7E+18	-	3.98E+19	1.87E-02		1.07E-05			
7	Co-60	5.27E+00	6.9E+08	4.1E+12	-	7.55E+13	1.09E+05	(2)	1.84E+01	(2)		
8	Ni-59	7.60E+04	1.2E+09	2.5E+10	3.8E+15	6.15E+10	5.18E+01		2.47E+00	(3)	1.61E-05	(5)
9	Ni-63	1.00E+02	7.1E+08	8.9E+10	-	9.42E+12	1.33E+04	(3)	1.06E+02	(1)		
10	Se-79	6.50E+04	5.2E+06	1.1E+08	5.7E+13	2.99E+07	5.76E+00		2.76E-01	(4)	5.25E-07	
11	Rb-87	4.75E+10	7.7E+06	1.6E+08	5.4E+09							
12	Sr-90	2.88E+01	6.0E+05	6.5E+09	-	5.46E+12	9.16E+06	(1)	8.40E+02	(1)		
13	Zr-93	1.53E+06	2.7E+08	5.7E+09	6.9E+11	1.85E+09	6.77E+00		3.26E-01	(4)	2.67E-03	(3)
14	Nb-93M	1.61E+01	1.3E+18	1.3E+19	-							
15	Nb-94	2.03E+04	1.5E+06	1.1E+09	4.0E+18	1.75E+10	1.15E+04	(3)	1.59E+01	(2)	4.37E-09	
16	Mo-93	4.00E+03	4.1E+06	8.9E+07	-	4.89E+08	1.18E+02	(5)	5.44E+00	(3)		
17	Tc-98	4.20E+06	1.5E+05	3.1E+06	1.1E+10							
18	Tc-99	2.11E+05	4.7E+05	9.8E+06	4.4E+10	4.95E+09	1.05E+04	(3)	5.06E+02	(1)	1.13E-01	(1)
19	Rh-102	2.90E+00	1.7E+11	-	-							
20	Pd-107	6.50E+06	2.7E+08	5.6E+09	9.4E+12	6.58E+06	2.43E-02		1.17E-03		7.03E-07	
21	Ag-108M	4.18E+02	1.6E+06	1.1E+08	-	4.11E+07	2.57E+01		3.62E-01	(4)		
22	Cd-113M	1.41E+01	2.5E+06	1.9E+13	-							
23	Sn-121M	5.50E+01	3.0E+09	1.6E+12	-	7.01E+09	2.36E+00		4.28E-03			
24	Sn-126	1.00E+05	1.2E+06	2.3E+09	4.4E+11	6.61E+07	5.54E+01		2.83E-02	(5)	1.52E-04	(4)
25	Sb-125	2.76E+00	1.6E+12	2.9E+14	-	7.82E+12	4.80E+00		2.70E-02	(5)		
26	Te-125M	1.57E-01	-	-	-	1.91E+12						
27	I-129	1.57E+07	6.8E+05	1.4E+07	2.2E+09	3.97E+08	5.81E+02	(5)	2.79E+01	(2)	1.83E-01	(1)
28	Cs-134	2.08E+00	2.8E+13	1.9E+13	-	3.35E+12	1.20E-01		1.76E-01	(4)		
29	Cs-135	2.30E+06	2.5E+07	5.2E+08	4.3E+12	3.45E+07	1.38E+00		6.63E-02	(5)	7.98E-06	
30	Cs-137	3.01E+01	3.7E+06	1.0E+11	-	7.63E+12	7.85E+05	(2)	7.50E+01	(2)		
31	Ba-133	1.05E+01	1.8E+08	5.9E+14	-							
32	La-137	6.00E+04	5.4E+08	1.9E+11	4.1E+16							
33	Ce-142	5.00E+16	2.1E+14	3.4E+16	3.6E+17							
34	Pm-145	1.77E+01	2.3E+09	2.7E+16	-							
35	Pm-146	5.53E+00	1.7E+09	-	-							
36	Pm-147	2.62E+00	1.8E+15	8.5E+19	-							
37	Sm-146	1.03E+08	1.4E+07	2.9E+08	4.0E+10							
38	Sm-147	1.08E+11	1.5E+07	3.2E+08	4.4E+10							
39	Sm-151	9.00E+01	1.1E+10	1.7E+12	-	2.20E+10	1.95E+00		1.27E-02	(5)		
40	Eu-150	3.58E+01	4.4E+06	5.6E+11	-							
41	Cu-152	1.95E+01	2.0E+07	4.0E+13	-							
42	Eu-154	8.59E+00	1.1E+08	3.3E+13	-	5.89E+11	5.24E+03	(4)	1.79E-02	(5)		
43	Eu-155	4.76E+00	1.2E+11	1.6E+16	-	2.98E+11	2.55E+00		1.86E-05			
44	Tb-157	9.30E+01	4.0E+09	8.1E+11	-							
45	Ho-166M	1.20E+03	1.4E+06	1.5E+09	-							
46	Hf-182	9.00E+06	1.4E+08	3.0E+09	5.7E+11							
47	Ta-182	3.14E-01	-	-	-							
48	Re-187	4.35E+10	2.0E+08	4.1E+09	1.9E+13							
49	Pt-193	5.00E+01	1.0E+09	7.8E+11	-							
50	Pb-210	2.23E+01	1.0E+06	6.8E+10	-							
51	Po-210	3.79E-01	-	-	-							
52	Ra-226	1.60E+03	1.5E+05	3.4E+06	-							
53	Ra-228	5.75E+00	5.6E+07	4.0E+13	-							
54	Ac-227	2.18E+01	4.3E+06	5.5E+11	-							
55	Th-228	1.91E+00	4.8E+12	2.9E+12	-							
56	Th-229	7.34E+03	8.6E+05	1.9E+07	-	4.90E+00	5.71E-06		2.61E-07			
57	Th-230	7.54E+04	1.4E+05	3.1E+06	-							
58	Th-232	1.41E+10	1.6E+05	3.3E+06	4.8E+08							
59	Pa-231	3.28E+04	5.1E+04	1.1E+06	-							
60	Pa-233	7.39E-02	9.0E+14	9.1E+14	3.4E+17							
61	U-232	6.89E+01	7.3E+05	3.5E+08	-	1.52E+06	2.08E+00		4.33E-03			
62	U-233	1.59E+05	8.8E+05	1.8E+07	1.6E+11	6.86E+02	7.98E-04		3.76E-05		4.36E-09	
63	U-234	2.46E+05	2.1E+05	4.6E+06	5.6E+09	3.01E+08	1.46E+01		6.48E-01	(4)	5.39E-04	(4)
64	U-235	7.04E+08	5.0E+04	1.1E+06	2.2E+09	1.04E+06	2.05E+01		9.86E-01	(4)	4.68E-04	(4)
65	U-236	2.34E+07	6.0E+06	1.3E+08	9.6E+10	1.80E+07	2.98E+00		1.43E-01	(4)	1.87E-04	(4)
66	U-238	4.47E+09	1.2E+05	2.7E+06	3.8E+08	1.49E+07	1.25E+02	(5)	5.56E+00	(3)	3.95E-02	(2)
67	Np-236	1.54E+05	2.4E+06	6.8E+07	3.9E+11							
68	Np-237	2.14E+06	5.4E+05	1.1E+07	3.7E+09	2.34E+07	4.32E+01		2.04E+00	(3)	6.38E-03	(3)
69	Pu-236	2.86E+00	1.7E+07	8.1E+09	-							
70	Pu-238	8.77E+01	8.8E+06	3.1E+09	1.6E+13	1.97E+11	2.24E+04	(3)	6.31E+01	(2)	1.26E-02	(2)
71	Pu-239	2.41E+04	5.4E+06	2.5E+08	6.4E+13	1.72E+10	3.17E+03	(4)	6.83E+01	(2)	2.68E-04	(4)
72	Pu-240	6.58E+03	5.5E+06	2.6E+08	3.4E+14	2.74E+10	5.02E+03	(4)	1.06E+02	(1)	8.00E-05	(5)
73	Pu-241	1.44E+01	2.2E+08	7.5E+09	5.5E+14	6.45E+12	2.98E+04	(3)	8.63E+02	(1)	1.18E-02	(2)
74	Pu-242	3.73E+05	5.9E+06	2.6E+08	6.4E+12	1.16E+09	1.95E+01		4.43E-01	(4)	1.80E-05	(5)
75	Pu-244	6.08E+07	1.1E+06	9.7E+07	1.7E+11							
76	Am-241	4.32E+02	7.2E+06	2.6E+08	1.8E+13	5.41E+10	7.49E+03	(4)	2.11E+02	(1)	2.98E-03	(3)
77	Am-242M	1.41E+02	6.4E+06	4.1E+08	1.2E+13	7.18E+08	1.12E+02	(5)	1.74E+00	(3)	6.16E-05	(5)
78	Am-243	7.37E+03	4.8E+06	1.6E+08	2.1E+14	1.28E+09	2.68E+02	(5)	7.98E+00	(3)	6.08E-06	
79	Cm-242	4.46E-01	1.7E+09	6.1E+11	3.1E+15	6.19E+09	3.60E+00		1.01E-02	(5)	2.02E-06	
80	Cm-243	2.91E+01	2.2E+07	1.6E+11	5.3E+16	1.36E+09	6.08E+01		8.50E-03		2.55E-08	
81	Cm-244	1.91E+01	7.5E+07	9.3E+10	1.2E+17	1.49E+11	1.98E+03	(4)	1.59E+00	(3)	1.20E-06	
82	Cm-245	8.50E+03	3.6E+06	1.2E+08	9.2E+11	1.60E+07	4.49E+00		1.34E-01	(4)	1.74E-05	(5)
83	Cm-246	4.73E+03	6.8E+06	3.2E+08	5.1E+14							
84	Cm-248	3.40E+05	1.0E+06	8.3E+07	3.9E+13							
85	Cf-249	3.51E+02	1.8E+06	6.5E+07	2.2E+13							
86	Cf-250	1.31E+01	5.2E+07	1.1E+11	1.8E+17							

2.3 濃度上限値

(1) 余裕深度処分の濃度上限値

TRU 廃棄物の余裕深度処分における重要核種は原子力発電所から発生した廃棄物とは異なり、FP 核種と TRU 核種の相対重要度が高いことから、下記の核種で代表することが適切であると考えられる。

Cl -36, Tc -99, I -129, Pu -238, Am -241

今回の検討では、TRU 核種の崩壊を考慮したため、TRU 核種の相対重要度が上昇し、U -234、U -235、U -236、U -238、Pu -238、Pu -241、Np -237 及び Am -241 が相対重要度 D/C の 3 桁以内に含まれる。

主要な TRU 廃棄物の U -238、Pu -238、Np -237 及び Am -241 の放射性物質濃度は表 4 に示すとおりであり、TRU 廃棄物中の濃度は Pu -238 及び Am -241 で支配されており、U -238 及び Np -237 の放射性物質濃度はこれらに比較して 1/1,000 以下であり、かつ、濃度上限値に対しても十分な裕度を有する。また、Pu -238 と U -238 の相対重要度 D/C は同じ 2 桁目に含まれているが、Pu -238 及び全濃度を制限することにより、U -238 濃度は自ずと制限される。

表 4 主要な TRU 廃棄物の放射性物質濃度 (Bq/t)

廃棄物	U -238	Pu -238	Np -237	Am -241	全
10 μ Sv/y 相当濃度 \times 10 倍	3.8E+09	1.6E+14	3.7E+10	1.8E+14	
民間再処理廃棄物 (平均)	5.4E+06	7.1E+10	8.4E+06	1.9E+10	1.6E+11
JNFL ハル・エンドピース	7.9E+07	1.0E+12	1.2E+08	2.8E+11	2.4E+12
JNFL 低レベル濃縮廃液	5.8E+05	7.6E+09	8.9E+05	2.1E+09	1.7E+10
COGEMA ビチューメン固化体	2.6E+07	1.3E+11		3.4E+11	5.2E+11
JNFL 操業不燃廃棄物	7.0E+05	2.8E+10	2.1E+07	3.5E+10	1.2E+11

以上の検討に基づき、TRU 核種の濃度上限値は Pu -238 及び Am -241 で代表することとする。

なお、D/C の上位 3 桁に含まれる核種のうち、Zr -93 は生成機構及び被ばく経路が同じ Tc -99 で代表することとする。TRU 廃棄物の余裕深度処分における重要核種及び濃度上限値は、表 5 に示すとおりとなる。

表 5 TRU 廃棄物の余裕深度処分における濃度上限値

対象核種	濃度上限値 (Bq/t)	参考 (発電所廃棄物)
C -14		3.7E+10
Cl -36	9.3E+10	1.0E+11
Tc -99	4.4E+11	8.2E+11
I -129	2.2E+10	
Pu -238	1.6E+14	
Am -241	1.8E+14	
Np -237		1.3E+10

表 6 余裕深度処分の 10 μSv/y 相当濃度

	[Bq/l]				
	河川水利用経路 (No.1~6)	河川岸建設 作業経路 (No.7,8)	河川岸居住経路 No.9,10	河川岸農耕経路 (No.11~14)	最小値
H-3	-	-	-	-	-
Be-10	3.8E+11	6.6E+12	1.0E+12	5.8E+11	3.8E+11
C-14	3.2E+13	-	4.4E+19	2.0E+16	3.2E+13
Cl-36	4.0E+10	9.0E+13	1.3E+13	9.3E+09	9.3E+09
Ca-41	2.8E+13	6.0E+18	3.6E+19	3.3E+13	2.8E+13
Fe-55	-	-	-	-	-
Co-60	-	-	-	-	-
Ni-59	7.3E+15	1.2E+19	7.2E+19	3.8E+15	3.8E+15
Ni-63	-	-	-	-	-
Se-79	1.1E+14	6.4E+17	1.2E+17	5.7E+13	5.7E+13
Rb-87	5.4E+09	4.5E+13	6.5E+12	7.7E+09	5.4E+09
Sr-90	-	-	-	-	-
Zr-93	6.9E+11	2.0E+14	6.6E+14	1.8E+12	6.9E+11
Nb-93m	-	-	-	-	-
Nb-94	1.8E+19	2.8E+19	4.0E+18	1.4E+19	4.0E+18
Mo-93	-	-	-	-	-
Tc-98	1.4E+10	3.4E+12	4.8E+11	1.1E+10	1.1E+10
Tc-99	5.7E+10	1.9E+16	3.1E+15	4.4E+10	4.4E+10
Rh-102	-	-	-	-	-
Pd-107	1.3E+13	5.2E+16	1.9E+17	9.4E+12	9.4E+12
Ag-108m	-	-	-	-	-
Cd-113m	-	-	-	-	-
Sn-121m	-	-	-	-	-
Sn-126	9.7E+11	3.1E+12	4.4E+11	1.5E+12	4.4E+11
Sb-125	-	-	-	-	-
Te-125m	-	-	-	-	-
I-129	2.2E+09	7.5E+13	1.2E+13	6.3E+10	2.2E+09
Cs-134	-	-	-	-	-
Cs-135	4.3E+12	2.0E+17	3.8E+16	5.2E+13	4.3E+12
Cs-137	-	-	-	-	-
Ba-133	-	-	-	-	-
La-137	1.3E+17	2.8E+17	4.1E+16	1.4E+17	4.1E+16
Ce-142	1.7E+18	2.5E+18	3.6E+17	1.3E+18	3.6E+17
Pm-145	-	-	-	-	-
Pm-146	-	-	-	-	-
Pm-147	-	-	-	-	-
Sm-146	4.0E+10	5.8E+11	3.5E+12	9.7E+10	4.0E+10
Sm-147	4.4E+10	6.6E+11	3.9E+12	1.1E+11	4.4E+10
Sm-151	-	-	-	-	-
Eu-150	-	-	-	-	-
Eu-152	-	-	-	-	-
Eu-154	-	-	-	-	-
Eu-155	-	-	-	-	-
Tb-157	-	-	-	-	-
Ho-166m	-	-	-	-	-
Hf-182	5.7E+11	1.2E+13	2.3E+13	6.7E+11	5.7E+11
Ta-182	-	-	-	-	-
Re-187	1.9E+13	4.1E+19	-	6.6E+13	1.9E+13
Pt-193	-	-	-	-	-
Pb-210	-	-	-	-	-
Po-210	-	-	-	-	-
Ra-226	-	-	-	-	-
Ra-228	-	-	-	-	-
Ac-227	-	-	-	-	-
Th-228	-	-	-	-	-
Th-229	-	-	-	-	-
Th-230	-	-	-	-	-
Th-232	5.5E+08	3.0E+09	5.5E+08	8.0E+08	5.5E+08
Pa-231	-	-	-	-	-
Pa-233	7.6E+17	9.1E+17	5.0E+17	3.4E+17	3.4E+17
U-232	-	-	-	-	-
U-233	3.5E+11	4.2E+11	2.3E+11	1.6E+11	1.6E+11
U-234	4.7E+09	1.2E+11	2.5E+10	2.2E+09	2.2E+09
U-235	2.4E+09	4.9E+10	3.9E+10	2.2E+09	2.2E+09
U-236	1.0E+11	6.5E+12	1.6E+13	9.4E+11	1.0E+11
U-238	3.2E+08	7.9E+09	1.7E+09	1.5E+08	1.5E+08
Np-236	2.4E+12	2.5E+12	3.9E+11	1.1E+12	3.9E+11
Np-237	6.6E+09	1.0E+10	5.6E+09	3.7E+09	3.7E+09
Pu-236	-	-	-	-	-
Pu-238	1.3E+13	3.3E+14	7.1E+13	6.0E+12	6.0E+12
Pu-239	7.0E+13	1.4E+15	1.1E+15	6.4E+13	6.4E+13
Pu-240	3.6E+14	2.3E+16	5.7E+16	3.3E+15	3.6E+14
Pu-241	9.8E+14	1.5E+15	8.4E+14	5.5E+14	5.5E+14
Pu-242	5.3E+12	1.3E+14	2.9E+13	2.5E+12	2.5E+12
Pu-244	6.2E+10	2.0E+11	4.6E+10	1.1E+11	4.6E+10
Am-241	3.3E+13	5.1E+13	2.8E+13	1.8E+13	1.8E+13
Am-242M	9.8E+12	2.5E+14	5.3E+13	4.5E+12	4.5E+12
Am-243	2.3E+14	4.6E+15	3.7E+15	2.1E+14	2.1E+14
Cm-242	2.6E+15	6.5E+16	1.4E+16	1.2E+15	1.2E+15
Cm-243	5.8E+16	1.2E+18	9.3E+17	5.3E+16	5.3E+16
Cm-244	1.3E+17	8.4E+18	2.1E+19	1.2E+18	1.3E+17
Cm-245	1.7E+12	2.6E+12	1.4E+12	9.2E+11	9.2E+11
Cm-246	4.2E+14	1.1E+16	2.3E+15	2.0E+14	2.0E+14
Cm-248	1.5E+13	4.6E+13	1.1E+13	2.6E+13	1.1E+13
Cf-249	4.0E+13	6.3E+13	3.4E+13	2.2E+13	2.2E+13
Cf-250	1.5E+17	3.8E+18	8.3E+17	7.1E+16	7.1E+16

(2) コンクリートピット処分の濃度上限値

TRU 廃棄物のコンクリートピット処分の重要核種は、下記の核種で代表できると考えられる。

C-14, Co-60, Ni-63, Sr-90, Nb-94, I-129, Cs-137, 全

今回の検討では、TRU 核種の崩壊を考慮したため、TRU 核種の相対重要度が上昇し、Am-241, U-234, U-238, Pu-238, Pu-239 と Pu-241 が相対重要度 D/C の 3 桁以内に含まれる。このうち、Pu-241 を除く TRU 核種は、従来の考えどおり全 にて代表できると考えられる。

Pu-241 は半減期が 14.4 年と比較的短く、それ自体が線量評価上の重要核種になるのではなく、その子孫核種として生成する Am-241 及び Np-237 が線量評価上重要となる。Am-241 は浅地中処分の跡地利用の評価で重要であり、Np-237 及びその子孫核種は余裕深度処分で重要となる。

TRU 核種は一般的に 線を放出し、単位放射性物質質量あたりの吸入や経口摂取時の線量換算係数が大きいという特徴を有するが、Pu-241 自体は 線をほとんど放出しない 核種であり、TRU 核種を代表する核種ではないといえる。

これまでの濃度上限値の検討では、子孫核種の生成を考慮しないで濃度上限値が導出されてきているが、「核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律施行令」(2002 年 5 月 7 日政令第 167 号)の 13 条の 9 (廃棄物埋設)において濃度上限値が記載される際に、「その埋設を行う時以後において」という文章があり、これによって、核種 (Am-241) 及び Np-237 等は Pu-241 等から生成する放射能も含めることが規定されている。

上記の理由から、濃度上限値の設定にあたっては現行での規定どおり、「その埋設を行う時以後において」と記載することによって、Pu-241 等の短半減期の親核種を包含することが適切であると考えられる。

また、TRU 廃棄物中の U-234 及び U-238 の放射性物質濃度は、Pu-238 の 1/10,000 程度であることから、TRU 廃棄物の全 濃度は Pu 及び Am/Cm で代表できると考えられる。

したがって、TRU 廃棄物のコンクリートピット処分における 核種濃度上限値は、Pu-238, Pu-239, Pu-240 と Am-241 に基づき、設定することとする。具体的には、Pu-238, Pu-239, Pu-240 及び Am-241 の 10 μ Sv/y 相当濃度は下表に示すとおりであり、線量評価上は Pu-239, Pu-240 及び Am-241 が厳しいことから、TRU 廃棄物のコンクリートピット処分における 核種濃度上限値は Am-241 で代表し、その 10 μ Sv/y 相当濃度を 10 倍した 2.5E+09Bq/t とする。

表 7 コンクリートピット処分の 10 μ Sv/y 相当濃度

対象核種	10 μ Sv/y 相当濃度 (Bq/t)
Pu-238	3.1E+09
Pu-239	2.5E+08
Pu-240	2.5E+08
Am-241	2.5E+08

また、D/C の上位 3 桁に含まれる核種のうち、Cl -36、Ni -59 及び Mo -93 は生成機構及び被ばく経路が同じ相対重要度の高い Ni -63 で代表し、Tc -99 も同様に相対重要度の高い Sr -90 で代表することとする。

以上の検討結果に基づけば、TRU 廃棄物のコンクリートピット処分における重要核種及び濃度上限値は下表に示すとおりとなる。

表 8 TRU 廃棄物のコンクリートピット処分における濃度上限値

対象核種	濃度上限値 (Bq/t)	参考 (発電所廃棄物)
C -14	3.4E+10	3.7E+10
Co -60	4.1E+13	1.1E+13
Ni -63	8.9E+11	1.1E+12
Sr -90	6.5E+10	7.4E+10
Nb -94	1.1E+10	
I -129	1.4E+08	
Cs -137	1.0E+12	1.1E+12
全	2.5E+09	1.1E+9

表 9 コンクリートピット処分の 10 μSv/y 相当濃度

	[Bq/t]				
	住居建設 シナリオ	居 住 シナリオ	地下水移行 シナリオ	スカイ シャイン	決定経路 の濃度
H-3	-	5.5E+15	-	-	5.5E+15
Be-10	7.7E+13	2.8E+09	4.4E+10	-	2.8E+09
C-14	3.3E+18	5.6E+10	3.4E+09	-	3.4E+09
Cl-36	1.4E+13	6.7E+06	1.6E+10	2.0E+18	6.7E+06
Ca-41	-	5.5E+08	6.4E+11	2.9E+19	5.5E+08
Fe-55	-	-	-	3.7E+18	3.7E+18
Co-60	-	-	-	4.1E+12	4.1E+12
Ni-59	-	2.5E+10	6.3E+12	2.3E+18	2.5E+10
Ni-63	-	8.9E+10	-	-	8.9E+10
Se-79	1.7E+18	1.1E+08	9.7E+10	-	1.1E+08
Rb-87	6.4E+15	1.6E+08	3.8E+08	-	1.6E+08
Sr-90	1.5E+14	6.5E+09	-	-	6.5E+09
Zr-93	-	5.7E+09	6.9E+10	-	5.7E+09
Nb-93m	-	-	-	1.3E+19	1.3E+19
Nb-94	1.1E+09	1.9E+09	3.9E+12	1.4E+13	1.1E+09
Mo-93	-	8.9E+07	-	2.0E+17	8.9E+07
Tc-98	1.7E+09	3.1E+06	1.2E+10	-	3.1E+06
Tc-99	3.9E+15	9.8E+06	4.0E+10	-	9.8E+06
Rh-102	-	-	-	-	-
Pd-107	-	5.6E+09	8.8E+12	-	5.6E+09
Ag-108m	3.1E+09	1.1E+08	-	2.8E+13	1.1E+08
Cd-113m	1.9E+20	1.3E+13	-	-	1.3E+13
Sn-121m	-	1.6E+12	-	1.9E+18	1.6E+12
Sn-126	2.3E+09	2.7E+09	2.5E+09	-	2.3E+09
Sb-125	-	-	-	2.9E+14	2.9E+14
Te-125m	-	-	-	-	-
I-129	7.4E+18	1.4E+07	1.6E+08	-	1.4E+07
Cs-134	-	-	-	1.9E+13	1.9E+13
Cs-135	1.0E+17	5.2E+08	4.6E+10	-	5.2E+08
Cs-137	8.7E+12	1.0E+11	-	8.1E+13	1.0E+11
Ba-133	2.2E+19	3.1E+18	-	5.9E+14	5.9E+14
La-137	-	1.9E+11	8.4E+13	-	1.9E+11
Ce-142	3.4E+16	-	-	-	3.4E+16
Pm-145	-	2.7E+16	-	3.6E+16	2.7E+16
Pm-146	-	-	-	-	-
Pm-147	-	-	-	8.5E+19	8.5E+19
Sm-146	3.4E+16	2.9E+08	4.3E+09	-	2.9E+08
Sm-147	3.4E+16	3.2E+08	4.7E+09	-	3.2E+08
Sm-151	-	1.7E+12	-	-	1.7E+12
Eu-150	5.6E+11	4.9E+12	-	-	5.6E+11
Eu-152	4.2E+15	8.7E+16	-	4.8E+13	4.8E+13
Eu-154	2.5E+19	-	-	3.3E+13	3.3E+13
Eu-155	-	-	-	1.6E+16	1.6E+16
Tb-157	-	8.1E+11	-	-	8.1E+11
Ho-166m	1.5E+09	7.2E+09	-	4.1E+13	1.5E+09
Hf-182	1.9E+18	3.0E+09	1.4E+11	-	3.0E+09
Ta-182	-	-	-	-	-
Re-187	-	4.1E+09	1.6E+12	-	4.1E+09
Pt-193	-	7.8E+11	-	-	7.8E+11
Pb-210	3.3E+16	6.8E+10	-	6.4E+16	6.8E+10
Po-210	-	-	-	-	-
Ra-226	3.6E+08	3.4E+06	-	1.6E+13	3.4E+06
Ra-228	-	-	-	4.0E+13	4.0E+13
Ac-227	4.4E+14	5.5E+11	-	1.8E+14	5.5E+11
Th-228	-	-	-	2.9E+12	2.9E+12
Th-229	8.9E+09	1.9E+07	-	6.5E+12	1.9E+07
Th-230	3.5E+08	3.1E+06	3.3E+13	1.3E+19	3.1E+06
Th-232	1.4E+08	3.3E+06	1.1E+08	2.9E+19	3.3E+06
Pa-231	3.0E+10	1.1E+06	-	1.8E+16	1.1E+06
Pa-233	-	-	1.9E+16	9.1E+14	9.1E+14
U-232	3.1E+09	3.5E+08	-	7.8E+18	3.5E+08
U-233	1.0E+10	1.8E+07	8.8E+09	2.2E+19	1.8E+07
U-234	5.4E+08	4.6E+06	1.8E+08	1.2E+19	4.6E+06
U-235	2.9E+10	1.1E+06	2.6E+09	1.2E+15	1.1E+06
U-236	8.6E+10	1.3E+08	1.3E+10	-	1.3E+08
U-238	3.2E+08	2.7E+06	1.6E+08	4.5E+15	2.7E+06
Np-236	1.2E+09	6.8E+07	2.8E+10	1.7E+15	6.8E+07
Np-237	1.0E+10	1.1E+07	2.1E+09	2.8E+16	1.1E+07
Pu-236	7.1E+10	8.1E+09	-	8.0E+18	8.1E+09
Pu-238	1.5E+12	3.1E+09	5.1E+11	1.1E+19	3.1E+09
Pu-239	5.7E+14	2.5E+08	7.3E+13	6.6E+19	2.5E+08
Pu-240	3.1E+14	2.6E+08	4.7E+13	1.2E+19	2.6E+08
Pu-241	1.5E+15	7.5E+09	3.1E+14	-	7.5E+09
Pu-242	3.8E+12	2.6E+08	4.7E+11	1.6E+19	2.6E+08
Pu-244	1.6E+09	9.7E+07	8.4E+09	2.2E+13	9.7E+07
Am-241	4.9E+13	2.6E+08	1.0E+13	5.3E+16	2.6E+08
Am-242M	1.1E+12	4.1E+08	3.8E+11	1.3E+18	4.1E+08
Am-243	8.2E+11	1.6E+08	2.3E+14	6.9E+14	1.6E+08
Cm-242	3.0E+14	6.1E+11	1.0E+14	9.9E+18	6.1E+11
Cm-243	2.3E+15	1.6E+11	6.0E+16	1.9E+15	1.6E+11
Cm-244	1.1E+17	9.3E+10	1.7E+16	1.2E+19	9.3E+10
Cm-245	2.5E+12	1.2E+08	5.2E+11	5.3E+15	1.2E+08
Cm-246	9.8E+10	3.2E+08	3.7E+13	1.3E+18	3.2E+08
Cm-248	2.9E+08	8.3E+07	9.9E+10	3.4E+13	8.3E+07
Cf-249	9.9E+10	6.5E+07	1.3E+13	8.4E+13	6.5E+07
Cf-250	3.5E+13	1.1E+11	1.3E+16	3.1E+17	1.1E+11

(3) トレンチ処分

トレンチ処分の重要核種は、下記の核種で代表できると考えられる。

Co -60, Ni -63, Sr -90, Cs -137, 全

今回の検討では、TRU 核種の崩壊を考慮したため、TRU 核種の相対重要度が上昇し、その重要核種として、Pu -238 と Pu -241 が相対重要度 D/C の上位 3 桁に含まれる。Pu -238 は従来の考えどおり全にて代表し、Pu -241 はコンクリートピット処分と同様に Am -241 で代表することが適切であると考えられる。

したがって、TRU 廃棄物のトレンチ処分における核種濃度上限値は、Pu -238 と Pu -241 から生成する Am -241 に基づき、設定することとする。具体的には、Pu -238 及び Am -241 の $10 \mu\text{Sv/y}$ 相当濃度は、それぞれ $8.8\text{E}+06\text{Bq/t}$ 及び $7.2\text{E}+06\text{Bq/t}$ であることから、TRU 廃棄物のトレンチ処分における核種濃度上限値は Am -241 にて代表し、 $10 \mu\text{Sv/y}$ 相当濃度を 10 倍した $7.2\text{E}+07\text{Bq/t}$ とする。

また、D/C の上位 3 桁に含まれる核種のうち、Nb -94 は生成機構及び被ばく経路が同じ相対重要度の高い Co -60 で代表し、Tc -99 も同様に相対重要度の高い Sr -90 で代表することとする。

TRU 廃棄物のトレンチ処分における重要核種及び濃度上限値は、下表に示すとおりである。

表 -10 TRU 廃棄物のトレンチ処分における濃度上限値

対象核種	濃度上限値 (Bq/t)	参考 (発電所廃棄物)
Co -60	6.9E+09	8.1E+09
Ni -63	7.2E+09	7.2E+09
Sr -90	6.0E+06	4.7E+06
Cs -137	9.7E+07	1.0E+08
全	7.2E+07	1.7E+07

表-11 トレンチ処分の10μSv/y相当濃度

	【Bq/t】				
	建設シナリオ	居住シナリオ	地下水移行シナリオ	スカイシャイン	決定経路の濃度
H-3	4.2E+13	1.2E+08	7.5E+08	-	1.2E+08
Be-10	1.1E+09	1.4E+08	1.0E+09	-	1.4E+08
C-14	3.4E+10	2.6E+09	1.3E+07	-	1.3E+07
Cl-36	6.8E+08	3.2E+05	4.4E+08	2.0E+18	3.2E+05
Ca-41	3.6E+12	2.6E+07	9.1E+09	2.9E+19	2.6E+07
Fe-55	2.8E+17	2.1E+15	-	3.9E+18	2.1E+15
Co-60	6.9E+08	7.4E+08	-	1.1E+13	6.9E+08
Ni-59	7.8E+11	1.2E+09	3.4E+10	2.3E+18	1.2E+09
Ni-63	3.8E+11	7.1E+08	-	-	7.1E+08
Se-79	2.6E+10	5.2E+06	4.1E+08	-	5.2E+06
Rb-87	1.0E+10	7.7E+06	2.1E+07	-	7.7E+06
Sr-90	1.4E+08	6.0E+05	-	-	6.0E+05
Zr-93	2.6E+10	2.7E+08	1.4E+10	1.3E+18	2.7E+08
Nb-93m	-	-	-	1.3E+18	1.3E+18
Nb-94	1.5E+06	2.9E+06	5.5E+08	2.3E+13	1.5E+06
Mo-93	1.8E+11	4.1E+06	5.6E+09	1.8E+17	4.1E+06
Tc-98	1.7E+06	1.5E+05	3.4E+08	-	1.5E+05
Tc-99	7.3E+09	4.7E+05	1.1E+09	-	4.7E+05
Rh-102	1.7E+11	2.3E+11	-	-	1.7E+11
Pd-107	1.1E+12	2.7E+08	2.0E+11	-	2.7E+08
Ag-108m	1.6E+06	2.0E+06	1.3E+14	3.2E+13	1.6E+06
Cd-113m	1.2E+10	2.5E+06	-	-	2.5E+06
Sn-121m	7.6E+09	3.0E+09	-	3.0E+17	3.0E+09
Sn-126	1.2E+06	4.3E+06	1.9E+07	-	1.2E+06
Sb-125	1.6E+12	6.1E+12	-	2.0E+14	1.6E+12
Te-125m	-	-	-	-	-
I-129	6.8E+08	6.8E+05	4.4E+06	-	6.8E+05
Cs-134	3.0E+13	3.1E+13	-	2.8E+13	2.8E+13
Cs-135	1.9E+10	2.5E+07	6.3E+08	-	2.5E+07
Cs-137	1.3E+07	9.7E+06	-	8.1E+13	9.7E+06
Ba-133	1.8E+08	1.2E+09	-	4.6E+14	1.8E+08
La-137	5.4E+08	9.3E+09	1.2E+12	-	5.4E+08
Ce-142	2.2E+14	2.1E+14	-	-	2.1E+14
Pm-145	2.9E+09	4.8E+10	-	3.1E+16	2.9E+09
Pm-146	1.7E+09	4.1E+09	-	-	1.7E+09
Pm-147	9.2E+15	1.6E+15	-	8.6E+19	1.6E+15
Sm-146	5.9E+07	1.4E+07	9.7E+07	-	1.4E+07
Sm-147	6.8E+07	1.5E+07	1.1E+08	-	1.5E+07
Sm-151	1.9E+11	1.1E+10	-	-	1.1E+10
Eu-150	4.4E+06	1.3E+07	-	-	4.4E+06
Eu-152	2.8E+07	4.3E+07	-	4.5E+13	2.8E+07
Eu-154	1.1E+08	1.6E+09	-	3.6E+13	1.1E+08
Eu-155	1.2E+11	3.2E+12	-	7.1E+15	1.2E+11
Tb-157	4.0E+09	6.3E+09	-	-	4.0E+09
Ho-166m	1.4E+06	3.4E+06	3.2E+10	3.1E+13	1.4E+06
Hf-182	2.0E+09	1.4E+08	3.1E+09	-	1.4E+08
Ta-182	-	-	-	-	-
Re-187	1.0E+14	2.0E+08	4.4E+10	-	2.0E+08
Pt-193	6.2E+13	1.0E+09	-	-	1.0E+09
Pb-210	2.4E+08	1.0E+06	-	4.3E+16	1.0E+06
Po-210	-	-	-	-	-
Ra-226	1.5E+06	1.5E+05	2.5E+06	2.3E+13	1.5E+05
Ra-228	2.8E+08	5.6E+07	-	5.2E+13	5.6E+07
Ac-227	4.9E+06	6.5E+06	-	2.1E+14	4.9E+06
Th-228	-	-	-	4.8E+12	4.8E+12
Th-229	2.1E+06	8.6E+05	1.1E+10	1.0E+13	8.6E+05
Th-230	1.3E+06	1.4E+05	3.3E+06	5.5E+18	1.4E+05
Th-232	7.8E+05	1.6E+05	6.0E+06	1.1E+19	1.6E+05
Pa-231	8.2E+05	5.1E+04	2.8E+08	1.4E+16	5.1E+04
Pa-233	-	-	1.9E+15	9.0E+14	9.0E+14
U-232	2.2E+06	7.3E+05	-	3.4E+18	7.3E+05
U-233	2.3E+06	8.6E+05	9.0E+08	8.6E+18	8.6E+05
U-234	2.0E+06	2.1E+05	1.1E+07	5.2E+18	2.1E+05
U-235	7.7E+05	5.0E+04	4.4E+08	1.2E+15	5.0E+04
U-236	7.5E+07	6.0E+06	2.9E+09	-	6.0E+06
U-238	1.1E+06	1.2E+05	1.0E+08	3.9E+15	1.2E+05
Np-236	6.7E+06	2.4E+06	2.0E+09	1.6E+15	2.4E+06
Np-237	1.9E+06	5.4E+05	8.0E+08	2.0E+16	5.4E+05
Pu-236	5.0E+07	1.7E+07	-	3.5E+18	1.7E+07
Pu-238	8.8E+06	1.9E+07	3.1E+10	4.5E+18	8.8E+06
Pu-239	5.4E+06	1.2E+07	4.9E+09	2.4E+19	5.4E+06
Pu-240	5.5E+06	1.2E+07	1.5E+11	4.9E+18	5.5E+06
Pu-241	2.2E+08	2.5E+08	1.1E+14	-	2.2E+08
Pu-242	5.9E+06	1.3E+07	1.1E+09	6.7E+18	5.9E+06
Pu-244	1.1E+06	2.5E+06	4.6E+08	3.0E+13	1.1E+06
Am-241	7.2E+06	8.1E+06	3.7E+12	3.6E+16	7.2E+06
Am-242M	6.4E+06	8.4E+06	2.3E+10	6.7E+17	6.4E+06
Am-243	4.8E+06	7.4E+06	1.0E+10	7.0E+14	4.8E+06
Cm-242	1.7E+09	3.8E+09	6.1E+12	4.2E+18	1.7E+09
Cm-243	2.2E+07	6.5E+07	4.0E+12	1.8E+15	2.2E+07
Cm-244	7.5E+07	1.7E+09	5.5E+13	4.9E+18	7.5E+07
Cm-245	3.6E+06	5.7E+06	1.8E+10	4.5E+15	3.6E+06
Cm-246	6.6E+06	1.4E+07	8.1E+10	6.7E+17	6.6E+06
Cm-248	1.0E+06	1.3E+06	1.7E+08	4.5E+13	1.0E+06
Cf-249	4.5E+06	1.8E+06	4.2E+11	1.0E+14	1.8E+06
Cf-250	2.5E+08	5.2E+07	2.9E+13	1.8E+17	5.2E+07

(4) まとめ

TRU 核種を含めた濃度上限値については、すでに原子炉施設からの放射性廃棄物を対象として定められており、濃度上限値の導出する手法としてはこれに準じ、ICRP Pub.72 の線量換算係数と TRU 廃棄物の核種組成から、重要核種の濃度上限値を求めた。結果を表-1 に示す。

この表からわかるとおり、評価対象核種は発生施設の特徴が反映され、試算された濃度上限値は原子炉施設の値と大きな差はなく、余裕深度処分においては日本原子力研究所における試算(日本原子力研究所, 2005)とも大きな差がない結果となった。

表-12 TRU 廃棄物の濃度上限値の試算値

(単位: Bq/t)

核種	余裕深度処分			コンクリートピット処分		トレンチ処分	
	TRU 廃棄物	(参考)*1 発電所廃棄物	(参考)*2 TRU 廃棄物 (原研試算)	TRU 廃棄物	(参考)*1 発電所廃棄物	TRU 廃棄物	(参考)*1 発電所廃棄物
H-3	-	-	-	-	-	-	3.0E+09
C-14	-	5.2E+14	5.2E+14	3.4E+10	3.7E+10	-	1.1E+08
Cl-36	9.3E+10	1.0E+11	9.7E+10	-	-	-	-
Co-60	-	-	-	4.1E+13	1.1E+13	6.9E+09	8.1E+09
Ni-63	-	-	-	8.9E+11	1.1E+12	7.2E+09	7.2E+09
Sr-90	-	-	-	6.5E+10	7.4E+10	6.0E+06	4.7E+06
Nb-94	-	-	-	1.1E+10	-	-	-
Tc-99	4.4E+11	8.2E+11	4.6E+11	-	-	-	-
I-129	2.2E+10	-	2.3E+10	1.4E+08	-	-	-
Cs-137	-	-	-	1.0E+12	1.1E+12	9.7E+07	1.0E+08
核種	1.6E+14 (Pu-238) 1.8E+14 (Am-241)	1.3E+10 (Np-237)	2.6E+14 (Am-241)	2.5E+09 (Am-241)	1.1E+09 (Am-241)	7.2E+07 (Am-241)	1.7E+07 (Am-241)

*1: 第3次中間報告(原子力安全委員会, 2000)

*2: 「放射性廃棄物処分の長期的評価手法の調査-ウラン・TRU 廃棄物の基準整備に係る調査-(原子力安全・保安院委託)」(日本原子力研究所, 2005)

3. 核種濃度区分値の導出

3.1 基本的な考え方

「超ウラン核種を含む放射性廃棄物処理処分の基本的考え方について」(原子力委員会, 2000)では, 目安区分値(1GBq/t)を大きく超えない TRU 廃棄物については余裕深度処分できる可能性があることが述べられているが, ここでは「放射性廃棄物処分の安全規制における共通的な重要事項について」(原子力安全委員会, 2004)におけるリスク論的な考え方などを参考に以下の複数の考え方で試算することとした。(図-1 参照)

管理期間終了以降において, 余裕深度処分場への人間侵入(ボーリング)による線量が, 低頻度事象であることを考慮した線量基準値以下となる 核種濃度
余裕深度処分場において, 処分施設の地質が安定で社会的環境も大きな変化がないとみなせる期間後に, 廃棄物中の 核種濃度が浅地中コンクリートピット処分における全濃度上限値(1GBq/t)まで減衰する 核種濃度
長期の潜在的影響度(放射性物質/年摂取限度)の時間的変化が, 発電所廃棄物を主体とする高 低レベル廃棄物の潜在的影響度の時間的変化と同等とみなせる 核種濃度

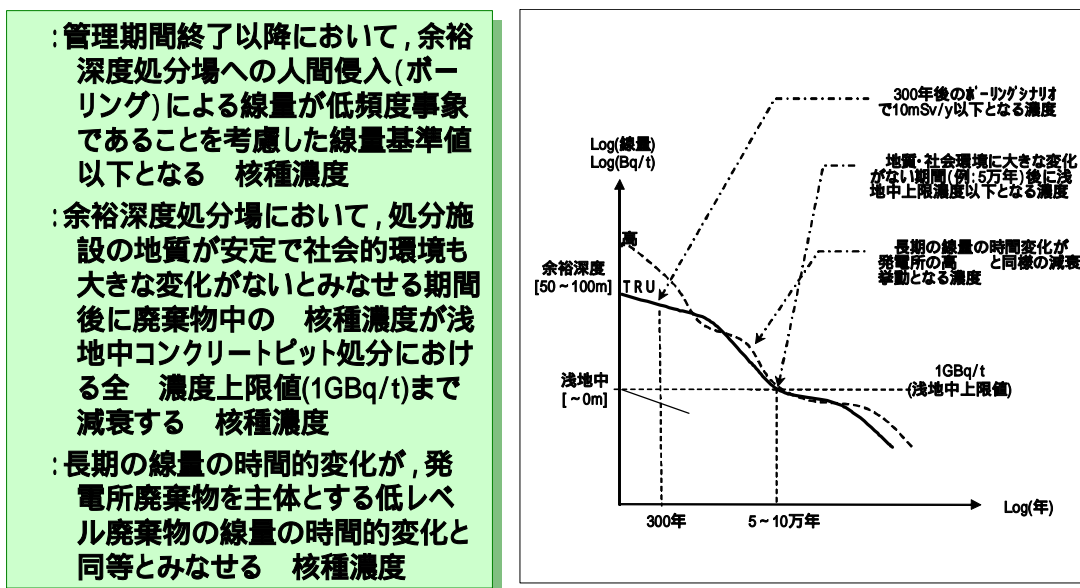


図-1 核種濃度区分値の導出方法

3.2 核種濃度区分値の試算

のボーリングシナリオによる評価については, 定量的な確率に基づくリスク論は現時点では定まった方法がないため, 概略的なリスク論の評価を試みた。

ボーリングデータベースによる 50m 以深の全地区ボーリング頻度は図-2 に示すとおりであり, ほぼ対数正規に分布していることから, 対数平均値である約 2×10^{-8} 本/m²/年(日本原子力研究所, 2005)と余裕深度処分場廃棄体占有面積(300m×500m 程度)より得られる発生確率は約 3×10^{-4} /年程度, すなわち 10^{-3} /年オーダーと評価することができる。一般的に起こりやすい事象の確率を

10⁰/年オーダーとすると、低頻度事象としての確率比は 10⁻³/10⁰=10⁻³ 程度となる。

一般的に起こりやすい事象の線量基準 10 μSv/y に対し、上述の確率比を考慮して 1,000 倍すると、低頻度事象における線量目安は 10mSv/回となる。

TRU 廃棄物処分場のボーリングシナリオに対して 10mSv/回を適用すると、核種濃度区分値は約 200GBq/t となる。(ボーリングシナリオの詳細は、3.3 参照)

なお、ここで適用した低頻度事象における線量目安 10mSv/回は、ICRP Pub.81 (ICRP, 1998) のそれ以下では介入が正当化できそうもない一般参考レベルとも符合する(本来、既汚染を対象に導入される介入の考え方とは一致しないが、線量のオーダーとして比較した)。また、この値の大きさとしては、公衆の線量限度(1mSv/y)と職業人の線量限度(50mSv/y, 100mSv/5y)の中間的なものである。

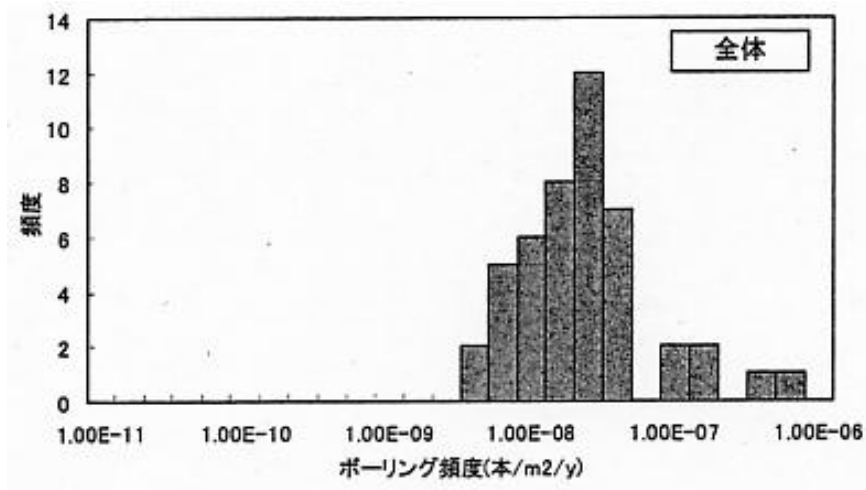


図 2 ボーリング発生頻度ヒストグラム (日本原子力研究所, 2005)

の一定期間後に廃棄物中の核種濃度が浅地中コンクリートピット処分における全濃度上限値(1GBq/t)まで減衰することの評価については、処分施設の地質が安定で社会的環境も大きな変化がないとみなせる期間として設定する年数に依存する。

一般的に、地質や人間環境に大きな変化がないと見通せる年数は数万年と言われていることから、主要廃棄物の核種濃度(図 3 参照)より平均的な濃度での減衰を評価すると、1 万年後で約 1/20, 5 万年後で約 1/100 となる。これらの期間後に 1GBq/t になる初期濃度は、それぞれ約 20GBq/t, 約 100GBq/t となり、数 10GBq/t ~ 100GBq/t がこの考え方の場合の核種濃度区分値のオーダーとなる。

なお、この期間については、H12 レポートにおける地殻構造上大きな変化がないとされる期間が 10 万年であること、仮に隆起事象を仮定し速度を保守的に 1mm/y とした場合、50 ~ 100m 深度から浅地中まで隆起する年数は約 5 ~ 10 万年となり、ともに数万年の範囲を逸脱しない。

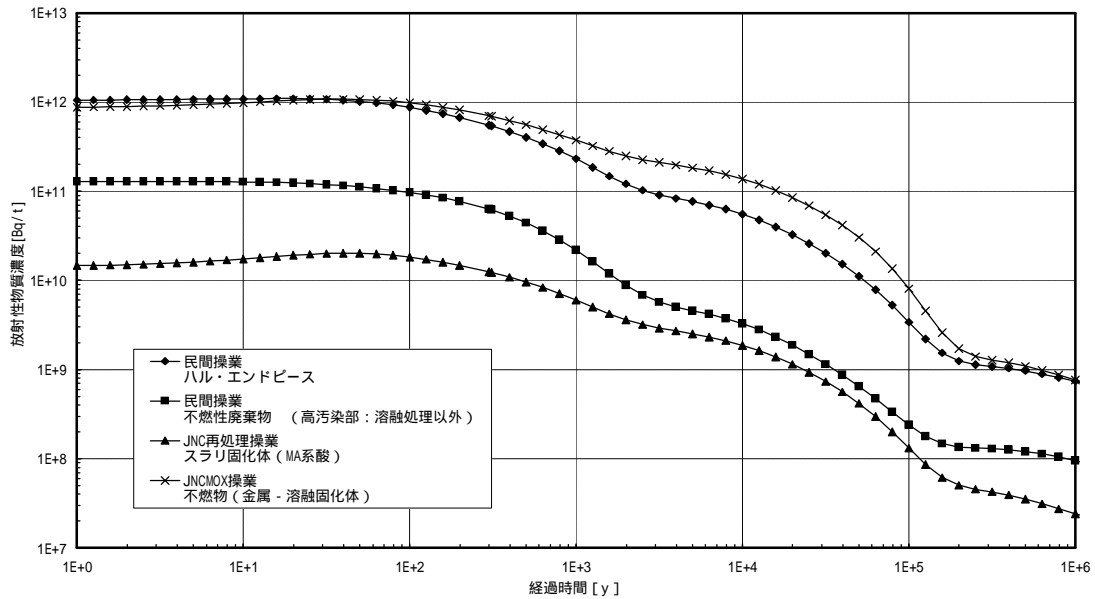


図 3 主要廃棄物 濃度の経時変化

の発電所廃棄物における潜在的影響度の時間的変化と同等となるような核種濃度については第3次中間報告(原子力安全委員会, 2000)に試算例が載せられており, この場合, 核種の最大濃度が約 20GBq/t と評価されている。

ここでは, 余裕深度処分対象の原子炉廃棄物と核種濃度区分値を 1GBq/t と 100GBq/t とした場合の余裕深度処分対象の TRU 廃棄物及びコンクリートピット処分対象の TRU 廃棄物の経口摂取毒性指数(廃棄体単位重量当りの放射性物質を経口摂取による年摂取限度で除したものを)を比較した。その結果は, 図 4 に示すとおりであり, 余裕深度処分対象の原子炉廃棄物の経口摂取毒性指数とは核種濃度区分値を 100GBq/t とした場合の TRU 廃棄物のそれはほぼ同等である。

TRU 廃棄物を対象として, 種々の考え方で余裕深度処分と地層処分を区分する核種濃度区分値を試算した結果, 約 20GBq/t ~ 約 200GBq/t という評価結果が得られた。

したがって, TRU 廃棄物の核種濃度区分値としては, 余裕深度処分の安全評価への影響を確認する観点から, 中間値である 100GBq/t とすることが適切であると考えられる。

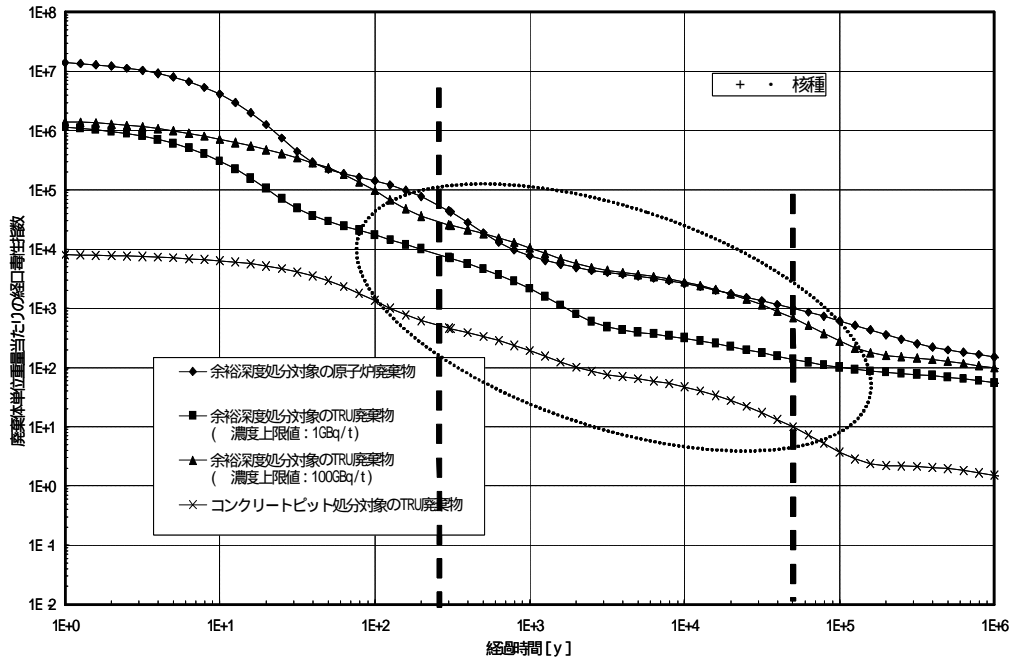


図 4 各廃棄物の放射性物質濃度の経時変化

3.3 ボーリングシナリオの詳細

(1) 基本的な考え方

管理期間終了後の人間活動のうち、余裕深度処分の安全性に影響する可能性のある事象として、バリアの損傷や移行経路の短絡など地下水移行シナリオに影響するものと、掘削されたボーリングコアや掘削くずなどに含まれる放射性核種による被ばくの2つが考えられる。特に後者は廃棄物そのものが生活環境に移動することになり、生じた際の影響度が大きいと考えられるため、ここでの検討対象とする。

既存の評価事例を参考にすると、ボーリングによる廃棄物の地表への移動に関する被ばく（以下、「ボーリングシナリオ」という）としては、

- ボーリング作業者の被ばく
- ボーリングコア観察者の被ばく
- ボーリング掘削くずからの被ばく

などがあげられるが、本書では代表的なシナリオである「及び」を評価することとする。

「及び」の被ばく経路としては、コアや掘削くずからの外部被ばく、コアや掘削くずから生じるダストの吸入被ばく及び手などに付着したダストを介した経口摂取被ばくが考えられる。

(2) 評価モデル

被ばく線量の計算モデルは次式のとおりである。

$$H(t) = H_{\text{ext}}(t) + H_{\text{inh}}(t) + H_{\text{ing}}(t)$$

$$H_{\text{ext}}(t) = \sum_i \text{DCF}_i^{\text{ext}} \cdot C_i(t) \cdot G_i \cdot T$$

$$H_{\text{inh}}(t) = \sum_i \text{DCF}_i^{\text{inh}} \cdot C_i(t) \cdot f_{\text{dil}} \cdot d_{\text{ust}} \cdot B \cdot T$$

$$H_{\text{ing}}(t) = \sum_i \text{DCF}_i^{\text{ing}} \cdot C_i(t) \cdot f_{\text{dil}} \cdot M \cdot T$$

$H(t)$: 被ばく線量 [Sv/y]

$C_i(t)$: 時刻 t における廃棄体中の核種 i の放射性物質濃度 [Bq/g]

DCF_i : 核種 i の線量換算係数 [(Sv/h)/(Bq/g) 又は Sv/Bq]

T : 作業 (被ばく) 時間 [h/y]

G_i : 遮へい, 幾何学係数 [-]

f_{dil} : 岩くず等との希釈係数 [-]

d_{ust} : 作業時の空气中ダスト濃度 [g/m³]

B : 作業時の呼吸率 [m³/h]

M : 摂取率 [g/h]

(3) 種々の被ばく形態

a. ボーリング作業者の被ばく

ボーリング作業者は、掘削中のボーリングコアからの外部被ばくと掘削中のダストの吸入による被ばくが考えられる。また、コアの取り扱いに関して経口摂取が生じる可能性もある。さらに、ボーリングの際に生じる掘削くずについては、通常泥水ボーリングが行われるので、泥水ピットを線源とした評価も実施する。被ばく概念を図 5 に示す。また、評価に用いたパラメータをまとめて表 13 に示す。

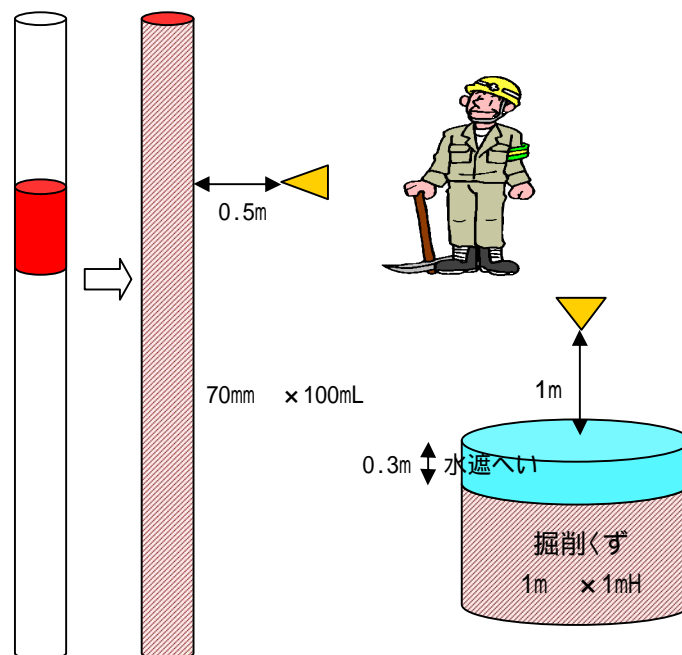


図 5 ボーリング作業者の被ばく概念図 (ボーリング作業, 泥水ピット)

b. ボーリングコア観察者の被ばく

ボーリングコア観察者は、観察中のボーリングコアからの外部被ばく、ダストの吸入及び経口摂取による被ばくが考えられる。ボーリングによって採取されたコアをコア箱に収納して、コアを観察することを想定する。処分深度を 50m、掘削深度を 100m として、その中には廃棄体を貫通した 1m の廃棄物が混入したコアが含まれる可能性がある。ボーリングコアと観察者の位置関係については、1m 長さの幅 0.5m ボーリングコア箱が横に敷き詰められた状態を想定して、図 6 のように観察者が順次コアを観察するものとする。

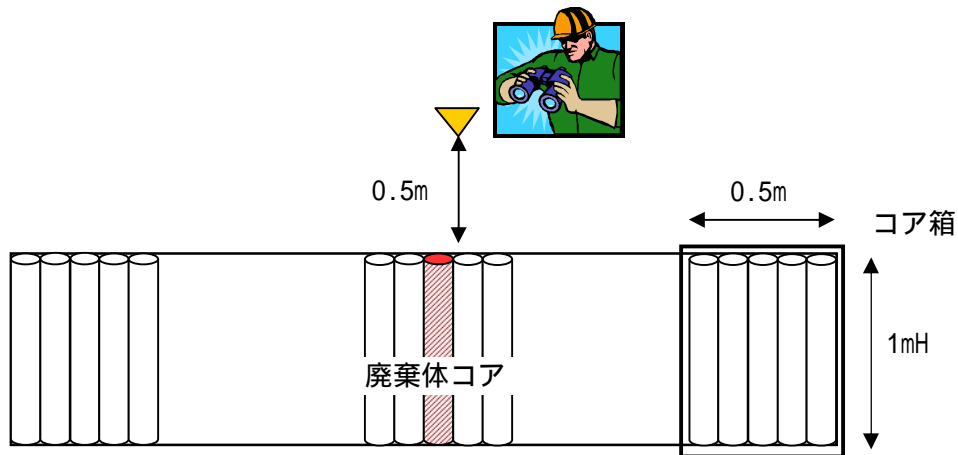


図 6 ボーリングコア観察者の被ばく概念図

上図のような状況を想定した場合には、距離による減衰効果は 0.1 程度（ボーリングコアからの距離をパラメータとしたと被ばく線量率の計算結果より）となることが予想されるので、この効果を形状因子として 0.1 を用いる。また、評価に用いたパラメータをまとめて表 43 に示す。

表-13 ボーリングシナリオの評価に用いる主要パラメータ

シナリオ		掘削作業	泥水ピット	コア観察	数値の根拠
線源形状		70mm *1 100mL *2 @0.5m	1m 1mH *8 @1m	50mm *10 1mL @0.5m	注1：処分深度は50mを想定 注2：ボーリングは処分深度の2倍の100mまでを想定 注3：廃棄物の高さは1mと想定 注4：各パラメータの設定根拠の詳細は、巻末の参考資料を参照のこと *1：H15 全国標準積算資料岩盤ボーリング最大 68mm *2：コア全長の長さ *3：コア全長 100m に対し、廃棄物層が 1m であることから、0.01 とした。 *4：コア全長 100m に対し、廃棄物層が 1m であることから、0.01 とし、さらにボーリング屑と水との混合を考慮した。 *5：廃棄体層に達した後の時間：80h =50m/(4.5m/d / 7h/d), 4.5m/d=NQ 掘削速度 *6：IAEA TECDOC 401(1987) *7：SERGD92/22 より, 2cm ² × 0.5g/cm ³ × 0.01cm × 1/h *8：積算資料岩盤ボーリングの HQ 相当孔径 98mm を 10cm とし、100m 分の掘削くずを収納する大きさを想定 *9：NUREG/CR 4370 の泥水ピット水遮へい 1ft を丸めて 30cm とした。 *10：H15 全国標準積算資料 NQ 相当 48mm *11：10h=0.013 人工/m × 7h/人工 × 100m 0.013 人工/m 積算資料 ボーリングコア調査 *12：20m 幅にコア箱を並べた際の距離減衰補正係数
外部 被ばく	希釈率	6.25E -3 *4	0.01 *3	1	
	被ばく時間(h)	80 *5	80 *5	10 *11	
	減衰係数	1	水 30cm *9	0.1 *12	
吸入 被ばく	希釈率	0.01 *3	0.01 *3	0.01 *3	
	被ばく時間(h)	80 *5	80 *5	10 *11	
	ダスト濃度(g/m ³)	5E -4 *6	5E -4 *6	5E -4 *6	
経口摂取 被ばく	希釈率	0.01 *3	0.01 *3	0.01 *3	
	被ばく時間 (h)	80 *5	80 *5	10 *11	
	摂取率 (g/h)	0.01 *7	0.01 *7	0.01 *7	

(4) 評価結果

ボーリングシナリオの評価結果は、図 7~8 に示すとおりである。「掘削作業シナリオ」では、10mSv/回に相当する核種濃度は約 200GBq/t であり、「コア観察シナリオ」では、10mSv/回に相当する核種濃度は約 2,000GBq/t である。

したがって、TRU 廃棄物処分場のボーリングシナリオに対しては希頻度事象であるとして 10mSv/回を適用し、線量評価結果がより厳しい「掘削作業シナリオ」を適用すれば、核種濃度区分値は約 200GBq/t となる。

4. 結論

TRU 核種を含めた濃度上限値については、すでに原子炉施設からの放射性廃棄物を対象として定められており、濃度上限値を導出する手法としてはこれに準じ、ICRP Pub.72 の線量換算係数と TRU 廃棄物の核種組成から、重要核種の濃度上限値を求めた結果、評価対象核種は発生施設の特徴が反映され、試算された濃度上限値は原子炉施設の値と大きな差はなく、余裕深度処分においては日本原子力研究所における試算とも大きな差がない結果が得られた。

また、TRU 廃棄物を余裕深度処分対象と地層処分対象に区分する方法として、複数の方法を検討し、核種濃度を試算したところ約 20 GBq/t ~ 約 200GBq/t という結論が得られたことから、核種濃度区分値は余裕深度処分の安全評価への影響を確認する観点から中間値の 100GBq/t とすることが適切であると考えられる。

参考文献

原子力安全委員会(2000)：低レベル放射性固体廃棄物の陸地処分の安全規制に関する基準値について（第3次中間報告）。

原子力安全委員会(2004)：放射性廃棄物処分の安全規制における共通的な重要事項について。

原子力委員会(2000)：超ウラン核種を含む放射性廃棄物処理処分の基本的考え方について。

ICRP(1988)：Limits for Intakes of Radionuclides by Workers, ICRP Publication 30.

ICRP(1996)：Age dependent Doses to Members of the Public from Intakes of Radionuclides: Part 5 Compilation of Ingestion and Inhalation Dose Coefficients, ICRP Publication 72.

ICRP(1998)：Radiation Protection Recommendations as Applied to the Disposal of Long-lived Solid Radioactive Waste, ICRP Publication 81.

日本原子力研究所(2005)：放射性廃棄物処分の長期的評価手法の調査-ウラン・TRU 廃棄物の基準整備に係る調査-(原子力安全・保安院委託)。

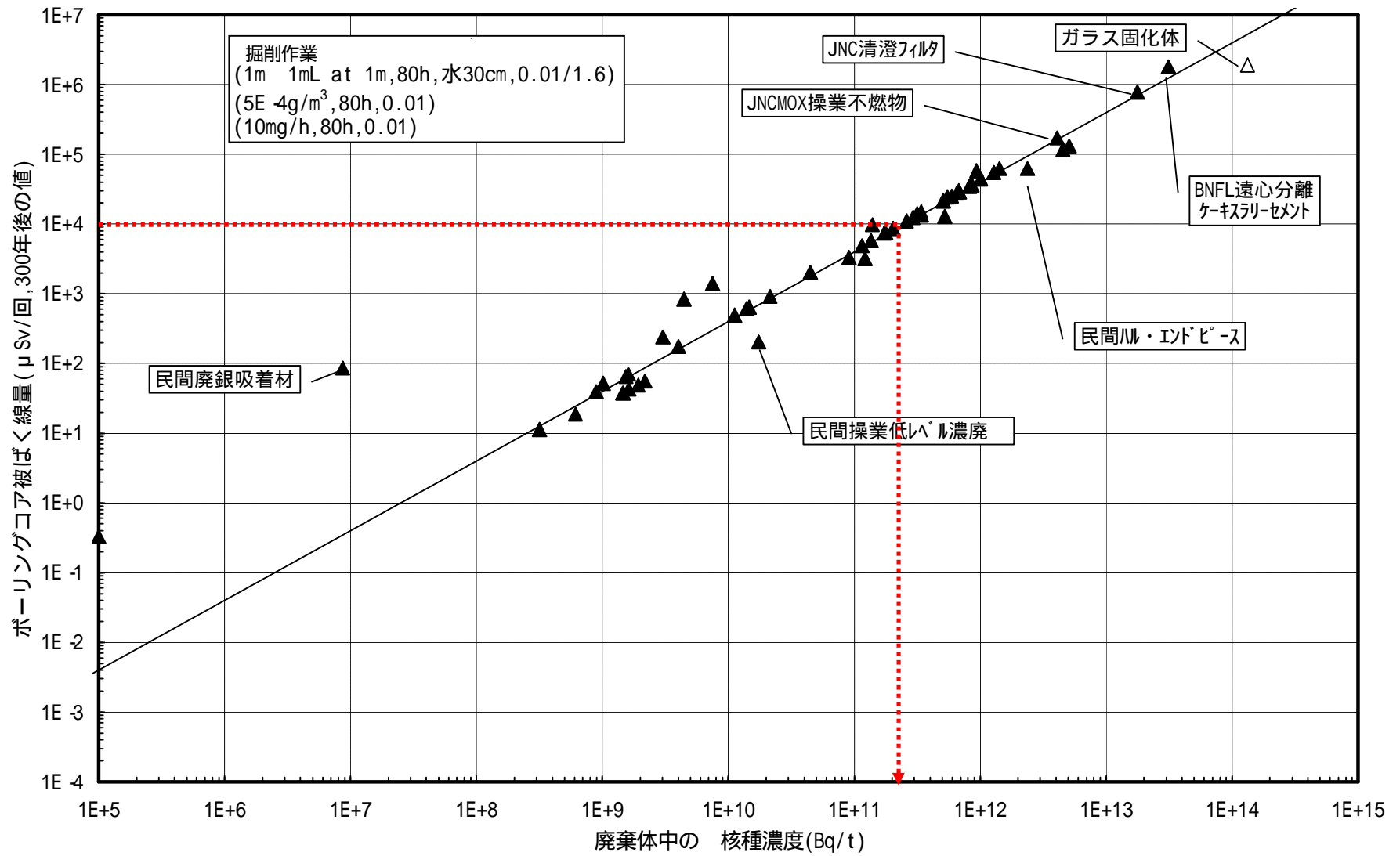


図 7 廃棄体 核種濃度とボーリング(掘削作業)による被ばく線量の相関

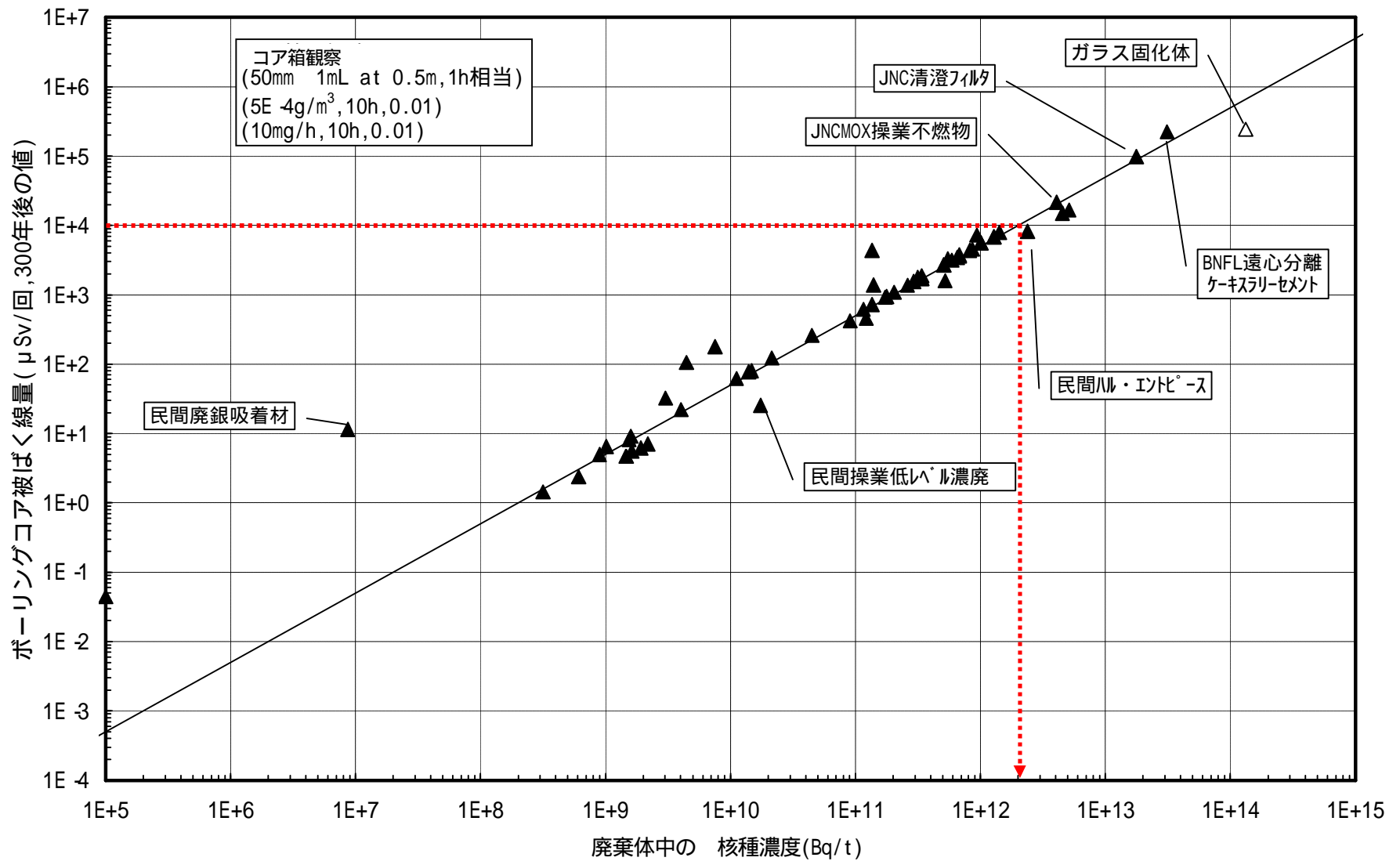


図 8 廃棄体 核種濃度とボーリング (コア箱観察) による被ばく線量の相関

ボーリングシナリオ評価パラメータ設定根拠

1. 掘削作業

(1) 共通事項

パラメータ名	被ばく時間	記号	T_{drill}
設定値	80	単位	h
<p>【設定値根拠】 「全国標準積算資料 土質調査・地質調査 平成 15 年度改定歩掛版」((社)全国地質調査業協会連合会)における掘削速度 4.5m/d とし, 処分場深度を 50m とし, 標準労働時間 7(h/d) から算出した数値 78(h) を切上げた数値である。</p>			

(2) 外部被ばく

パラメータ名	希釈率	記号	
設定値	6.25E -03	単位	-
<p>【設定値根拠】 コア全長に 100m に対し, 廃棄物層 1m であることから 0.01 に希釈されるとし, さらに密度 2.5g/cm³ のボーリング屑が水と混合して土壌水(密度: 1.6g/cm³)になるとしたときの希釈率 土壌水の密度(1.6g/cm³)は, NUREG 4370 “Update of Part 61 Impacts Analysis Methodology” (10 CFR Part61 の影響解析手法の改訂に関する NUREG 報告書)における土壌水密度から引用した。</p>			

パラメータ名	減衰係数 (汚水ピットの水厚さ)	記号	
設定値	30	単位	cm
<p>【設定値根拠】 NUREG 4370 “Update of Part 61 Impacts Analysis Methodology” の Drilling シナリオ(処分場操業終了後に, 制度的管理が一時的に停止し, 侵入者が家屋を建設するために井戸を掘削するシナリオ)の泥水ピットでの水の厚さ 1ft を丸めて 30cm とした。</p>			

(3) 吸入被ばく

パラメータ名	希釈率	記号	
設定値	0.01	単位	-
<p>【設定値根拠】 コア全長に 100m に対し, 廃棄物層 1m であることから, 0.01 とした。</p>			

パラメータ名	ダスト濃度	記号	C_{dust}
設定値	5E-4	単位	g/m^3
<p>【設定値根拠】</p> <p>IAEA TECDOC-401 "Exemption of Radiation Source and Practice from Regulatory Control" (1987) (放射線源及び行為の規制管理からの免除に関する IAEA 中間技術報告書) の跡地建設シナリオにおける想定範囲 ($1E-3 \sim 1E-4 g/m^3$) の中央値</p>			

(4) 経口摂取被ばく

パラメータ名	希釈率	記号	
設定値	0.01	単位	-
<p>【設定値根拠】</p> <p>コア全長に 100m に対し、廃棄物層 1m であることから、0.01 とした。</p>			

パラメータ名	摂取率	記号	Q_{ing}
設定値	0.01	単位	g/h
<p>【設定値根拠】</p> <p>SERGD/92/22 "INSTITUT DE PROTECTION ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE" に基づき設定した。指先の面積を $2(cm^2)$ とし、1 時間に 1 度舐めるものとした。また、指先に付着したダストの密度を $0.5(g/cm^3)$、ダスト厚さを $0.01(cm)$ とした。</p>			

2. コア観察

(1) 共通事項

パラメータ名	被ばく時間	記号	T_{obs}
設定値	10	単位	H
<p>【設定値根拠】</p> <p>「全国標準積算資料 土質調査・地質調査 平成 15 年度改定歩掛版」((社)全国地質調査業協会連合会)におけるコア長観察 1m 当たりの人工 $0.013(工/d)$ に標準労働時間 7(h) 及びコア全長 100(m) を乗じた値 9.1(h) を切上げた数値である。</p>			

パラメータ名	コア径	記号	d_{obs}
設定値	50	単位	mm
<p>【設定値根拠】</p> <p>「全国標準積算資料 土質調査・地質調査 平成 15 年度改定歩掛版」((社)全国地質調査業協会連合会)において例示された、ワイヤライン工法で用いる 3 種類 (BQ: 36mm, NQ: 48mm, HQ: 64mm) の孔径中、中間である NQ の内径 48mm を切上げた数値である。</p>			

パラメータ名	コア長	記号	L_{obs}
設定値	1	単位	m
【設定値根拠】 NAGRA 85-08 (Grisak G, Pickens J. F, 1985. Hydrogeological Testing of Crystalline Rocks during the NAGRA Deep Drilling Program) において使用されている数値を設定			

パラメータ名	コア密度	記号	ρ_{obs}
設定値	2.5	単位	g/cm^3
【設定値根拠】 廃棄体密度の設定値 対象廃棄物の2030年までの累積発生量が廃棄体ベースで約50,000ton及び約20,000 m^3 と推定されていることから、施設内も廃棄体と同等と仮定し、見かけ密度を50,000ton / 20,000 $m^3 = 2.5g/cm^3$ に設定した。			

(2)外部被ばく

パラメータ名	希釈率	記号	-
設定値	1	単位	-
【設定値根拠】 考慮しない。			

パラメータ名	減衰係数	記号	
設定値	0.1	単位	
【設定値根拠】 コア箱と観察者の距離を0.5mとし、コア箱長さを20m(1mコアを5本ずつ収納したコア箱を一定間隔で20列配置するとした。)と想定した場合の距離による減衰効果を算出した。			

パラメータ名	コア表面からの距離	記号	D_{obs}
設定値	0.5	単位	m
【設定値根拠】 NAGRA 85-08 (Grisak G, Pickens J. F, Hydrogeological Testing of Crystalline Rocks during the NAGRA Deep Drilling Program) において使用されている数値			

(3)吸入被ばく

パラメータ名	希釈率	記号	
設定値	0.01	単位	-
【設定値根拠】 コア全長に100mに対し、廃棄物層1mであることから、0.01とした。			

パラメータ名	ダスト濃度	記号	C_{dust}
設定値	5E-4	単位	g/m ³
<p>【設定値根拠】</p> <p>IAEA TECDOC-401 "Exemption of Radiation Source and Practice from Regulatory Control" (1987) (放射線源及び行為の規制管理からの免除に関する IAEA の中間技術報告書) の跡地建設シナリオにおける想定範囲 (1E-3 ~ 1E-4g/m³) の中央値</p>			

(4) 経口摂取被ばく

パラメータ名	摂取率	記号	Q_{ing}
設定値	0.01	単位	g/h
<p>【設定値根拠】</p> <p>SERGD/92/22 "INSTITUT DE PROTECTION ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE" (クリアランスレベルに関するフランスの報告書) に基づき設定した。</p> <p>指先の面積を 2(cm²) として、1 時間に 1 度舐めるものとした。また、指先に付着したダストの密度を 0.5(g/cm³)、ダスト厚さを 0.01(cm) とした。</p>			

6-3 低レベル廃液固化体の処理・処分方法の検討(6.4)

1. はじめに

本書では、第2次 TRU レポート 6.4 における低レベル廃液固化体の特性及び数量の設定根拠となる処理方法と処分の安全性について記述する。

2. 低レベル廃液固化体の処理方法

2.1 低レベル廃液の概要

(1) 背景

電気事業者は、一部の使用済燃料の再処理を英国 BNGS 及び仏国 COGEMA に委託している。海外再処理により発生する放射性廃棄物は、原則として輸送及び貯蔵に適した形態の廃棄物（以下、「返還廃棄物」という）として、電気事業者が委託した再処理量に相当する廃棄物量が返還されることとなっている。

COGEMA は放射性廃棄物の種類を以下のように分類しており、同じ分類の中で顧客である電気事業者が返還廃棄物を選択し、委託した再処理量に相当する量が返還されることとなっている。このうち、地層処分対象の TRU 廃棄物は、ハル・エンドピース、雑固体廃棄物及び低レベル廃液である。

表-1 COGEMA における放射性廃棄物の種類と返還廃棄物の形態

放射性廃棄物の種類	返還廃棄物の形態	処分区分
高レベル廃液	・ガラス固化体	HLW (高レベル放射性廃棄物)
ハル・エンドピース	・固型物収納体 (・セメント固化体)	地層処分対象 TRU 廃棄物
雑固体廃棄物	・固型物収納体 (・雑固体)	地層処分対象 TRU 廃棄物
低レベル廃液	・低レベル廃液固化体 ^{*1} ・ピチューメン固化体	地層処分対象 TRU 廃棄物

注1：括弧を付した廃棄物形態は、電気事業者が選択していないことを示す。

*1：UP2-400 施設の廃止措置に伴う洗浄廃液を特性に応じて処理したガラス固化体

(2) 低レベル廃液の発生源

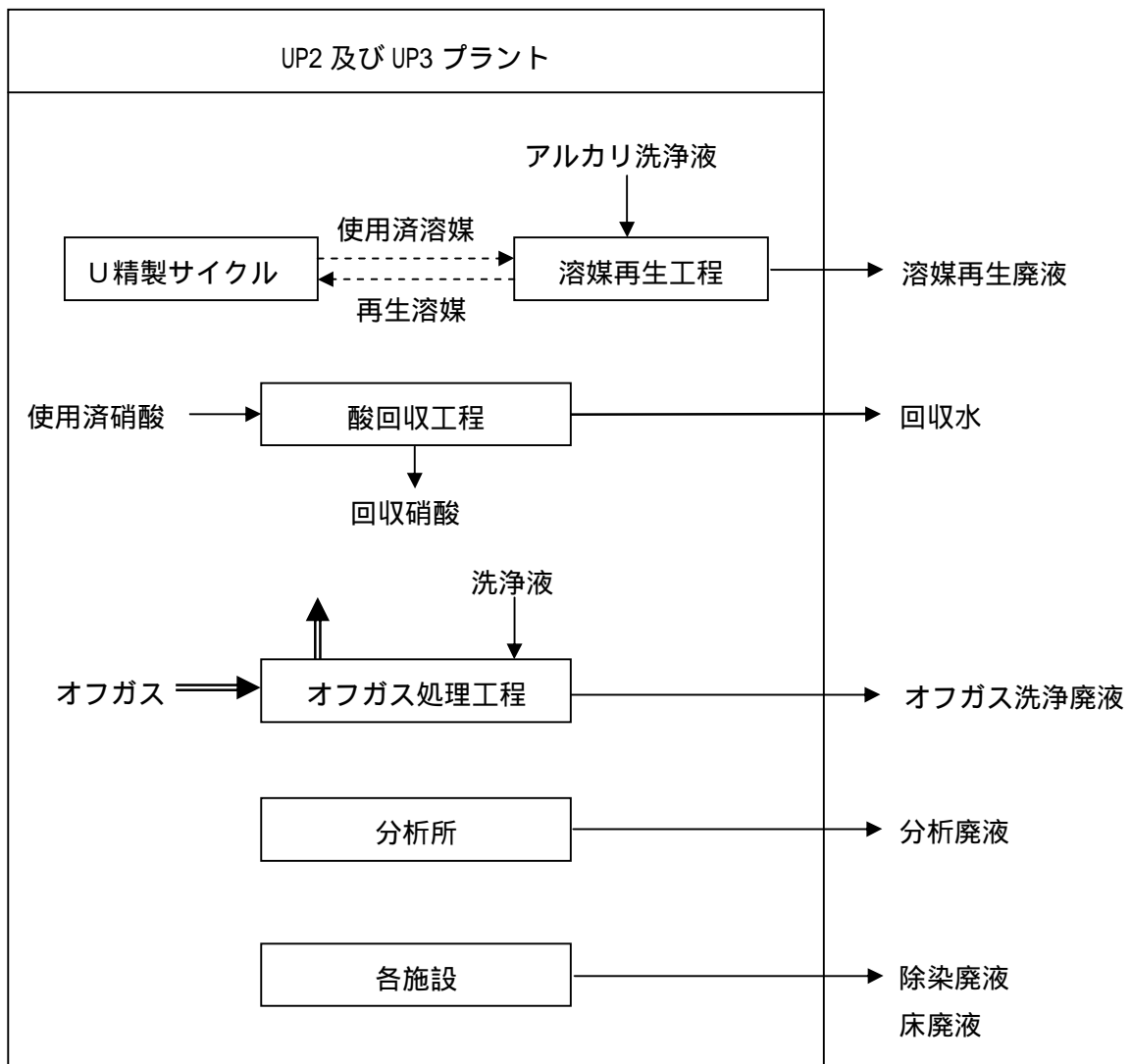
COGEMA のラ・アーグ再処理工場の各施設で発生する低レベル廃液は、STE3（ピチューメン固化体製造施設）へと移送される。低レベル廃液はそこで化学処理され、発生したスラッジはピチューメン固化体として処理されている。低レベル廃液の発生源の一例を図-1 に示す。

ラ・アーグ再処理工場においては、1976年からUP2-400施設にて軽水炉燃料の再処理を開始し、その後、海外の使用済燃料を再処理するためにUP3施設を建設し、1990年から操業を開始している。また、処理能力増強等の観点から、UP2-400施設の一部を改造したUP2-800施設を1994年から操業している。現在、使用しなくなったUP2-400施設については、廃止措置の準備が進められ

ている。

一方、COGEMA のマルクール再処理工場においては、UP1 施設が 1958 年以来稼動していたが、1997 年 12 月に操業が停止され、現在、廃止措置プロジェクトが進行中である。仏国では、役割を終え、老朽化した核燃料施設については、CEA（仏国原子力庁）と COGEMA が中心になり、廃止措置プロジェクトを計画的に進めており、UP2-400 施設についてもこれらの知見を反映して実施することとなる。

UP2-400 施設の廃止措置においても低レベル廃液が発生するため、現状では STE3 施設でピッチューメン固化体に処理されることになるが、COGEMA は新たに低レベル廃液をガラスで固化する方法を開発し、低レベル廃液固化体を製造することにより、廃棄物量を低減する計画である。



(注 1：一部の廃液については、現在処理方法が変更となっている。)

図 1 低レベル廃液の発生源

(3) 低レベル廃液の処理方法

低レベル廃液固化体となる低レベル廃液は、UP2-400 施設の廃止措置に伴う洗浄廃液であり、図 2 に示すフローにて洗浄廃液の特性に応じて処理された後、ガラス固化にして低レベル廃液固

化体が製造される。なお、低レベル廃液の一部は、従来どおりピチューメン固化処理される。

ソーダ洗浄：水酸化ナトリウムにより洗浄，ガラス固化のナトリウム含有量の制限を超えるものはピチューメン固化される。ソーダ洗浄廃液のうち，ごく少量のみが低レベル廃液固化体に処理される。

酸洗浄：硝酸により洗浄，濃縮後ガラス固化される。

特別洗浄：炭酸ナトリウム，過マンガン酸カリウム，セリウム，シュウ酸及び酒石酸等による洗浄を想定している。それぞれ廃液処理され，濃縮後ガラス固化される。ガラス固化のナトリウム含有量の制限を超えるものはピチューメン固化される。

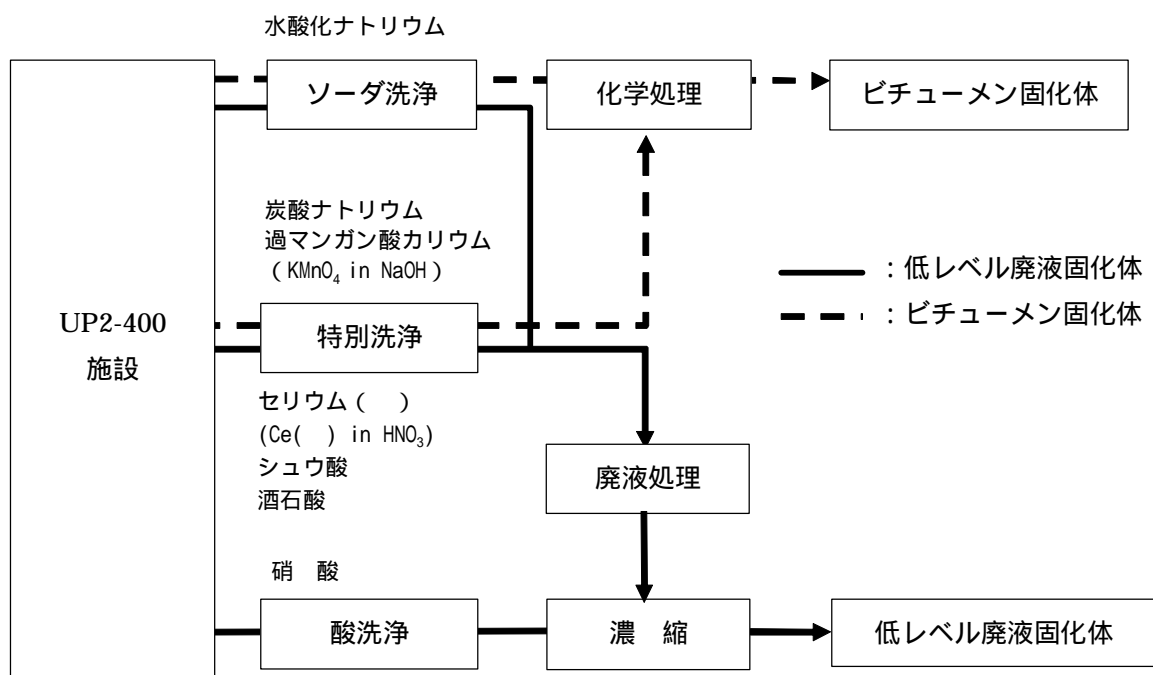


図 2 低レベル廃液の処理フロー

2.2 低レベル廃液固化体の製造工程

(1) 製造工程

COGEMA は低レベル廃液をガラス成分と共に溶融した後，ステンレス鋼製容器に注入することにより，低レベル廃液固化体を製造する計画である。仏国では，これまで CEA が中心となり，AVM (Atelier de Vitriification Marcoule：マルクール商用廃棄物ガラス固化施設) 法と呼ばれるガラス固化技術（か焼及びガラス固化技術）を開発しているが，この方法に改良を加えることにより，低レベル廃液固化体を製造する計画である。（現在は，ラ・アーク再処理工場のガラス固化施設（R7/T7）に導入されている。）現在計画されている低レベル廃液固化体の製造工程を図 3 に示す。

廃液移送

UP2 400 施設の廃止措置に伴う洗浄廃液は，UP2 施設のガラス固化施設（R7）の供給タンクに移送される。

廃液調整

廃液組成の調整のため、調整溶液が供給タンクに注入される。

か焼

定量供給装置からか焼炉へ廃液が供給され、廃液は強熱され灰状の物質となる。

熔融

か焼物はガラスフリットとともに熔融炉で混合される。

注入

熔融されたガラスはステンレス鋼製容器に注入され、冷却された後、蓋が溶接により取り付けられる。

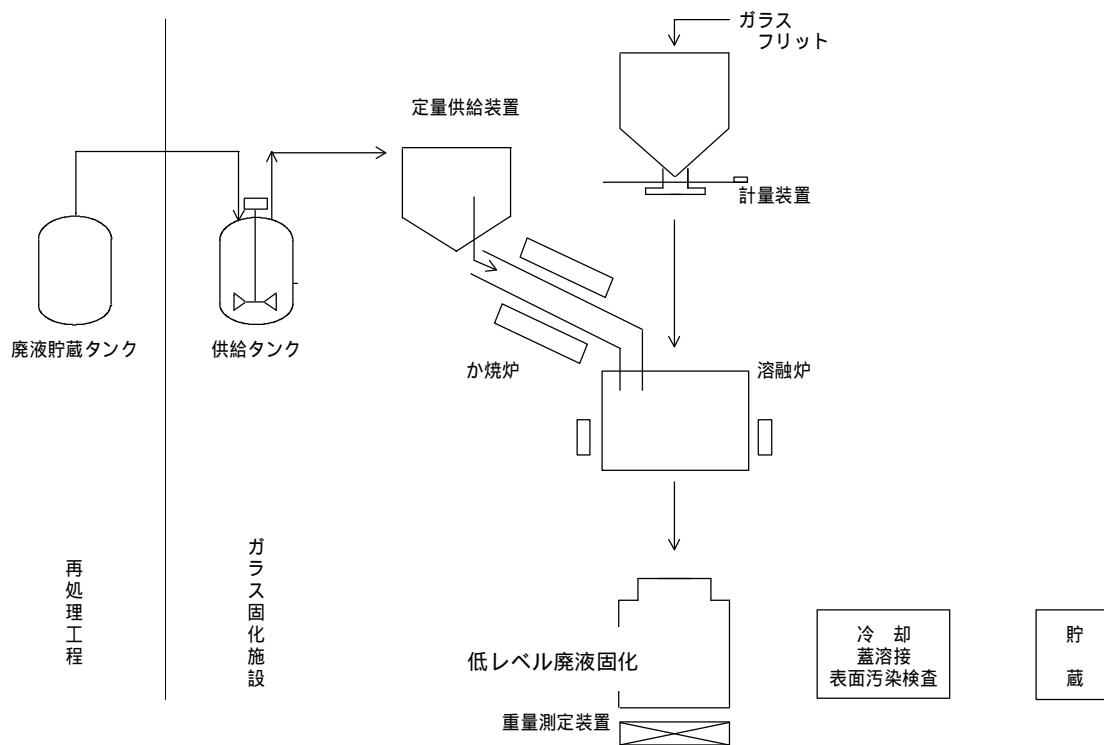


図 3 低レベル廃液固化体の製造工程

2.3 低レベル廃液固化体の特徴

(1) 廃液の特徴

低レベル廃液固化体として処理される廃液の起源は洗浄廃液であることから、 $30 \sim 100\text{kg/m}^3$ 程度の比較的高いナトリウム濃度となることが想定される。また、ホウ素、硫黄をはじめ、僅かながらセリウム、鉄及びモリブデンも含まれると想定される。

現在、仏国において、所定のガラス組成を仮定した初期試験は完了しており、ナトリウムを比較的多く含む廃液であっても、化学的耐性（浸出率）が比較的安定した低レベル廃液固化体を製造できることが確認されている。

(2) 技術開発の考え方

現在、CEA と COGEMA は、低レベル廃液固化体に関する技術開発を実施しているが、廃液組成の把握及び選定、廃液組成に応じた固化ガラス組成の開発、最適な固化プロセスの選定（図4参照）という作業を繰り返し実施することにより、低レベル廃液固化体を開発している。図5に固化プロセス選定の一例を示す。

なお、仏国では廃棄物の技術開発に際しては、RFS.III.2.f.（安全性に関する基本規則、DSIN（1991））を参照し、処分に係る性能目標を設定している。

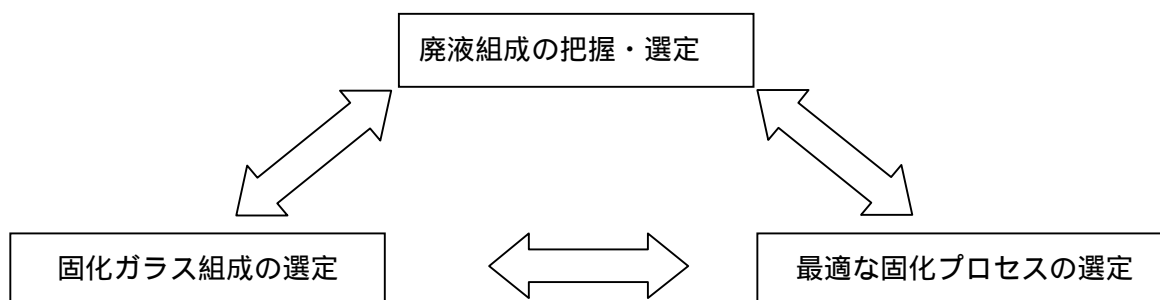
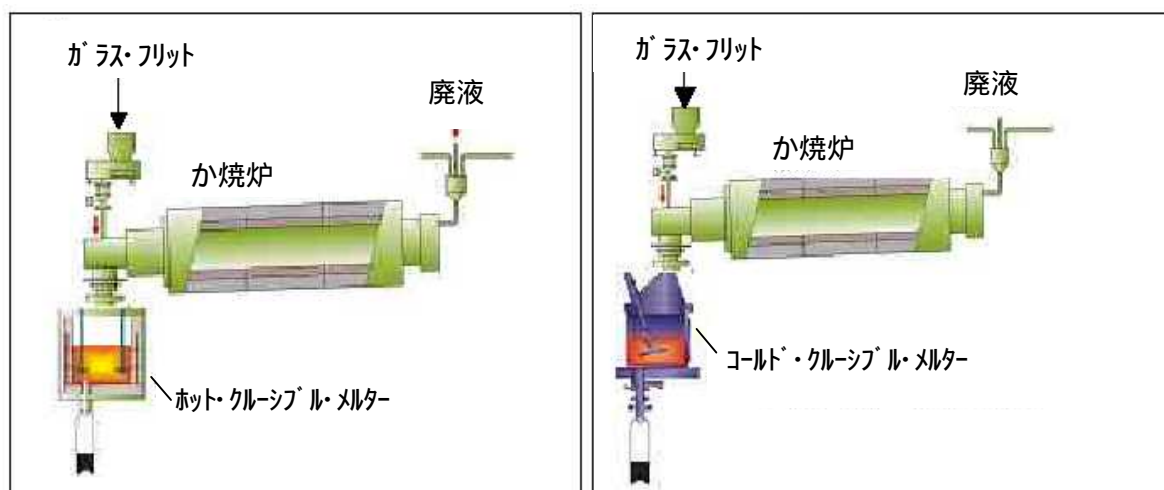


図4 技術開発の概念図



(例1) か焼炉 + ホット・クルーシブル・メルター

(例2) か焼炉 + コールド・クルーシブル・メルター

図5 固化プロセス選定の一例

(参考)

コールド・クルーシブル・メルターの採用により、従来よりも高い溶融温度(約1,200~1,300)での溶融が可能となり、廃棄物充填率の向上が期待できる。(ホット・クルーシブル・メルター：約1,100)

3. 処分の安全性に関する検討

3.1 低レベル廃液固化体の処分概念

低レベル廃液固化体はガラス固化体であることから，廃棄体の長期的な閉じ込め性能を発揮させるためには，HLW ガラス固化体の処分施設と同様に高 pH 環境を避け，廃棄体の周囲を低透水場に維持し，岩盤等からの物理的な影響を緩和するために，廃棄体の周囲にベントナイトを敷設することが望ましいと考えられる。

低レベル廃液固化体は現在技術開発中であることから，その処分概念は固化体の開発に合わせて具体化する必要があるが，上述の考え方に基つけば，図-6に示すような比較的小断面の坑道に廃棄体パッケージに収納し，その周囲に緩衝材を敷設することが望ましいと考えられる。

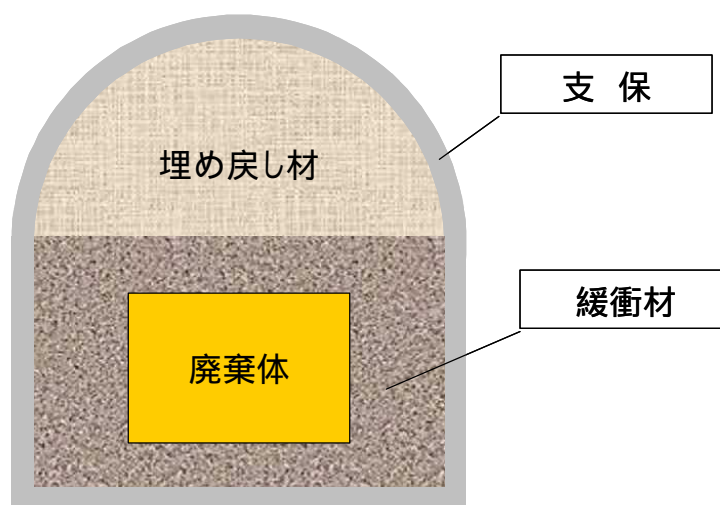


図-6 低レベル廃液固化体の処分概念

3.2 低レベル廃液固化体の安全評価

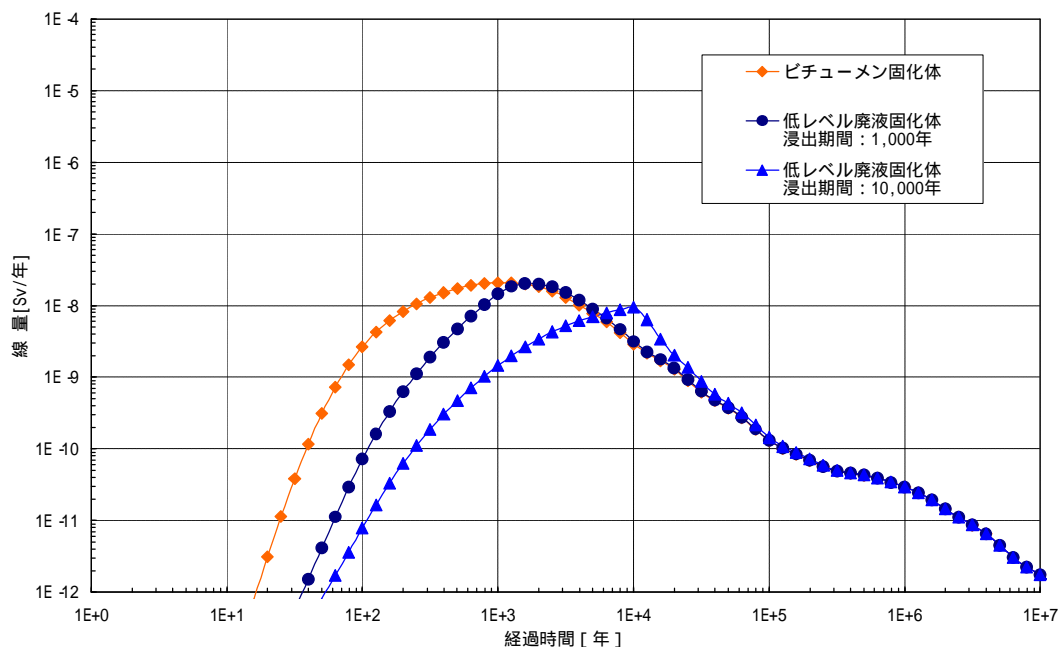
(1) 低レベル廃液固化体の浸出率

HLW ガラス固化体からの放射性核種の放出メカニズムについては，ANDRA(2001)に記述されており，安全評価では HLW ガラス固化体の浸出率として $1 \times 10^{-5}/y$ が採用されている。また，最近ではガラス固化体の溶解現象について知見が蓄積されつつあり， $1 \times 10^{-7}/y$ のオーダーという現実的な浸出率を用いることにより，HLW ガラス固化体に対してより一層の閉じ込め性能を期待できることも指摘されている。

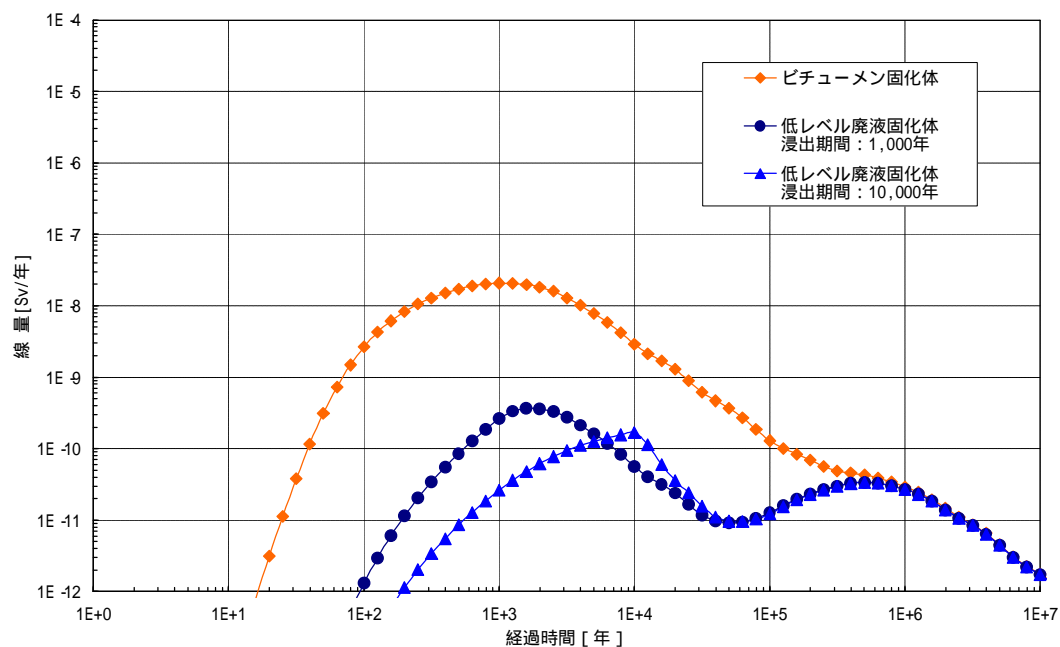
低レベル廃液固化体については，上述したとおり，現在技術開発中であり，その浸出率は決定されていないが，固化体中のナトリウム成分が比較的高いことから，HLW ガラス固化体に比較して浸出率は高くなることが予想される。そのため，低レベル廃液固化体の浸出率は，HLW ガラス固化体のそれよりも 10～100 倍高いとし，浸出期間について 1,000 年と 10,000 年の 2 ケースを想定した。また，低レベル廃液に含まれる元素のうち，I-129 についてはガラス固化される過程において揮発されることが予想されるため，第 2 次 TRU レポートに記載されている放射性物質(表 6.4.1.4-3)と同じ 100%残存する場合と 1%残存する場合の 2 ケースを想定することとした。

(2) 低レベル廃液固化体の線量評価結果

(1)の設定に基づき,ピチューメン固化体と低レベル廃液固化体の線量を評価した結果は,図-7に示すとおりである。I-129が100%残存する場合,低レベル廃液固化体の線量はピチューメン固化体と同等であるが,浸出期間が長くなるにつれて徐々に低下する。また,I-129が1%残存する場合には,低レベル廃液固化体の線量はピチューメン固化体に比較して1/100以下になる。



(a) 低レベル廃液固化体中のI-129の残存率が100%の場合



(b) 低レベル廃液固化体中のI-129の残存率が1%の場合

図-7 ピチューメン固化体と低レベル廃液固化体の線量評価結果

4. 結 論

COGEMA は、現在稼働中の UP2 再処理工場のうち、すでに操業を終了した一部の施設の洗浄廃液をガラス材料で固化することにより低レベル廃液固化体を製造する予定であり、現在、技術開発中である。

技術開発の内容は、すでに返還実績のある HLW ガラス固化体と同様に廃液の組成に合せたガラス組成及び製造プロセスの最適化である。仏国において、所定のガラス組成を仮定した初期試験では、ナトリウムを比較的多く含む廃液であっても、化学的耐性（浸出率）が比較的安定した低レベル廃液固化体を製造できることが確認されており、今後の技術開発を通じて最適化が図られることとなっている。

一方、今回の地層処分概念の検討及び線量評価結果に基づけば、詳細については低レベル廃液固化体の技術開発の進展に合わせて検討する必要があるものの、他の TRU 廃棄物及び HLW 処分技術を適用することで低レベル廃液固化体は適切に処分することができ、その安全性は確保できる見通しが得られたと考えられる。

参考文献

ANDRA (2001): Progress Report on Feasibility Studies & Research into Deep Geological Disposal of High -level, Long -lived Waste, DOSSIER 2001 ARGILE.

DSIN (1991) : Règle Fondamentale de Sûreté III.2.f.

7-1 ヨウ素固定化技術(7.2)

1. はじめに

第2次 TRU レポートでは、7.2 ヨウ素固定化技術の提示において、固化体によるヨウ素固定化方法とヨウ素放出抑制能の検討を行っている。本根拠資料集では、ヨウ素放出抑制能の根拠となったデータ群を整理し、固化体のヨウ素放出抑制能根拠を示す。具体的には、ヨウ素固定化技術(8種類)のヨウ素固定化原理と岩石固化体、AgI ガラス固化体、銅マトリクス固化体、及びセメント固化体の長期浸漬試験データを提示する。

2. ヨウ素固定化技術の特徴

廃銀吸着材により吸着、回収される I-129 の処理、処分について開発されている技術(原子力環境整備促進・資金管理センター(2005))は、そのヨウ素の放出機構により大きくは以下の3種類に分類することができる。

- ・浸出モデル(粒間拡散、調和溶解)
- ・分配平衡モデル
- ・溶解度平衡モデル

ここで、浸出モデルにより評価される放出機構とは、ヨウ素を固定化した固化体内の粒間に物理的に閉じ込め、粒間への地下水の浸入によりヨウ素が拡散により固化体外へ放出されるものと固化体表面からマトリクスが溶解し、ヨウ素が地下水中に放出されるものである。分配平衡モデルにおいては、固化体成分の水和物へのヨウ素の吸着性により保持、放出するものである。溶解度平衡モデルは、ヨウ素を難溶性の鉱物の成分として合成し、鉱物中に保持するものである。これらの特徴を持つ以下の8技術は、幅広い地質環境についても対応可能な特長をそれぞれ持っており、ヨウ素固定化技術として有望と考えられる。8つの固化体中でのヨウ素の固定化方法と想定する性能評価モデルを表-1に示す。

表-2には、各固化体の性状評価結果を整理する。

表-1 各固化体のヨウ素固定化方法と性能評価モデル

固化技術	固化体中でのヨウ素固定化	性能評価モデル(想定)
岩石固化体	SiO ₂ (石英)粒間にAgIを固定	石英粒間拡散モデル
AgIガラス	ガラス(3AgI-2Ag ₂ O-P ₂ O ₅)構成成分として固定	浸出モデル
BPIガラス	ガラス(6.5PbO-3B ₂ O ₃ -0.5ZnO)マトリクス中にヨウ素を固定	浸出モデル
アパタイト固化体	フッ素アパタイト(Ca ₁₀ (PO ₄) ₆ F ₂)マトリクス中にヨウ素吸着ゼオライトを固定	浸出モデル
セメント固化体	エリンガイトとモルサルフェートにIO ₃ ⁻ を吸着	分配平衡モデル
難溶性鉱物化/ 合成ソーダライト	合成ソーダライト(Na ₈ (AlSiO ₄) ₆ I ₂)成分としてヨウ素を固定	溶解度制限モデル
難溶性鉱物化/ 合成鉛アパタイト	合成鉛アパタイト(Pb ₁₀ (VO ₄) ₆ I ₂)成分としてヨウ素を固定	吸着モデル(イオン交換)
銅マトリクス固化体	銅マトリクス中に廃銀吸着材を固定	浸出モデル

表-2 各固化体の性状

	岩石 固化体	AgI ガラス	BPI ガラス	アパタイト 固化体	セメント 固化体	合成 ソーダライト	合成 鉛アパタイト	銅 マトリクス
ヨウ素含有率(wt%)	14	30	2	2	1.85	11	7.2	0.7
割れ、クラック	なし (×55倍)	なし	なし	なし (Cutレーザ)	—	—	隙間あり (目視)	なし
均質性	均質 (EPMA)	均質	均質 (EPMA)	均質 (EPMA)	均質	均質 (ソーダライト、 非晶質)	均質	—
密度(g/cm ³)	>2.0	5.9	6.7	—	1.74	—	6.4	8.9
一軸圧縮強度(MPa)	>100	90	14.3	—	約22	—	—	—
空隙率(%)	—	—	—	<0.39~ 0.88	—	—	約17	—
透水係数(m/s)	<10 ⁻⁸	—	—	—	—	—	—	—
比表面積(m ² /g)	—	—	—	—	2.9	—	—	—
ヴィッカーズ硬度(GPa)	—	—	—	—	—	—	4.3	—
熱伝導率(W/m/K)	—	0.28	0.46	—	—	—	—	—
軟化点(°C)	—	500	約520	—	—	—	—	—
熱膨張係数(10 ⁻⁷ /°C)	—	318	122	—	—	—	—	—

ヨウ素固定化技術開発では、固化体性状評価や 30 日程度の比較的短期の浸漬試験等の実施により、固化体の前処理・固化処理条件の選定を実施している。さらに、各種条件下での長期浸漬試験等の実施により固化体からのヨウ素放出メカニズムの把握と性能評価モデルの構築を実施している。今後、長期的なヨウ素放出抑制能に見通しの得られた固化技術については実用化に向けた開発が考えられている。ヨウ素固定化技術開発フローを図-1 に示す。

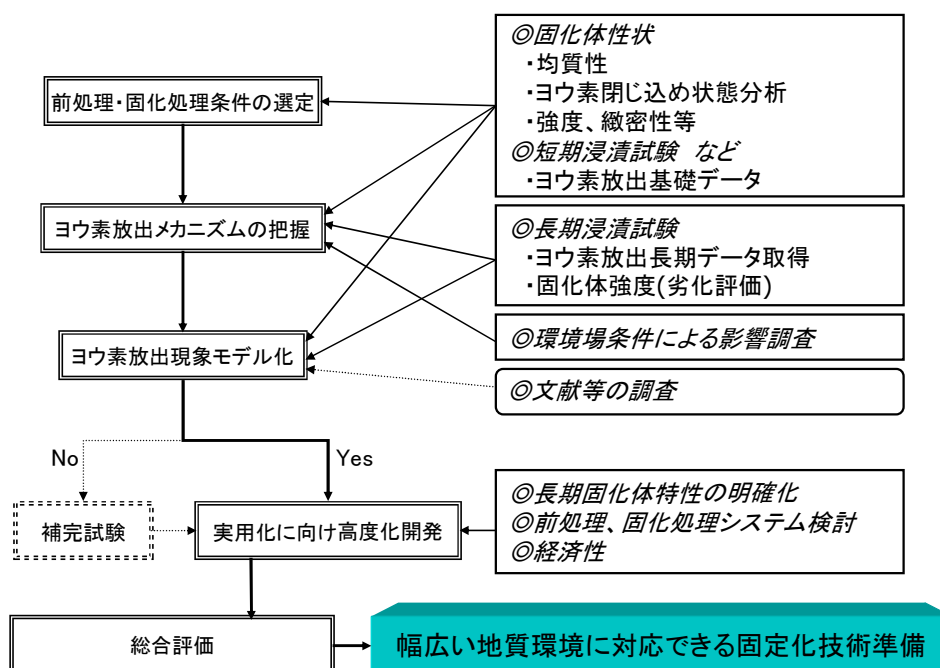


図-1 ヨウ素固定化技術開発フロー

各固定化技術の開発状況を表-3 に整理する。

表-3 ヨウ素固定化技術の開発状況

技術名称	前処理 条件選定	固化処理 条件選定	ヨウ素溶解 挙動把握	長期 評価	モデル化	固化処理 プロセス検討
岩石固化* ²⁾	必要なし	済み	済み (確認)	済み* ¹⁾ (確認)	済み (確認)	実施 (見直し)
AgI ガラス固化	済み	済み	済み (確認)	済み* ¹⁾ (確認)	済み (確認)	実施 (見直し)
BPI ガラス固化	済み	済み	実施	実施	実施	実施
アパタイト固化	済み	実施	実施	実施	実施	実施
セメント固化	済み	済み	済み (確認)	済み* ¹⁾ (確認)	済み (確認)	実施 (見直し)
難溶性鉱物化) 合成ソーダライト	済み	済み	実施	実施	実施	実施
難溶性鉱物化) 合成鉛アパタイト	実施	済み	実施	実施	実施	実施
銅マトリクス固化	済み	済み	済み	済み	済み	実施

* 1) 想定される処分場環境を模擬した条件下での浸漬試験(約1年間)結果に基づくヨウ素放出抑制能の評価を実施済み

* 2) 廃銀吸着材: 銀シリカゲル(Ag-S)

岩石固化技術, AgI ガラス固化技術, セメント固化技術及び銅マトリクス固化技術については実験サイズ(固化体体積で数百 ml)での前処理・固化処理条件の選定を終了している。また, 固化体の性状評価や各種浸漬試験結果に基づくモデル化まで検討しており, ヨウ素放出抑制能に期待できる固定化技術であることが示されている。現在, 様々な処分場環境による固化体性能への影響などの確認を実施している。BPI ガラス固化技術と合成ソーダライト技術は実験サイズでの前処理・固化処理条件の選定を終了し, 現在, 各種浸漬試験の実施によりヨウ素溶解挙動の把握を実施している。アパタイト固化技術と鉛アパタイト固化技術は前処理・固化処理条件の選定, 並びにヨウ素溶解挙動の把握を実施している。

3. 岩石固化技術

(1) ヨウ素固定化原理

岩石固化技術とは, ヨウ素を吸着した廃銀吸着材を HIP(Hot Isostatic Pressing)固化処理することにより, 稠密固化された石英粒間にヨウ素をヨウ化銀 (AgI) の形で包蔵し, 固定化するものである。

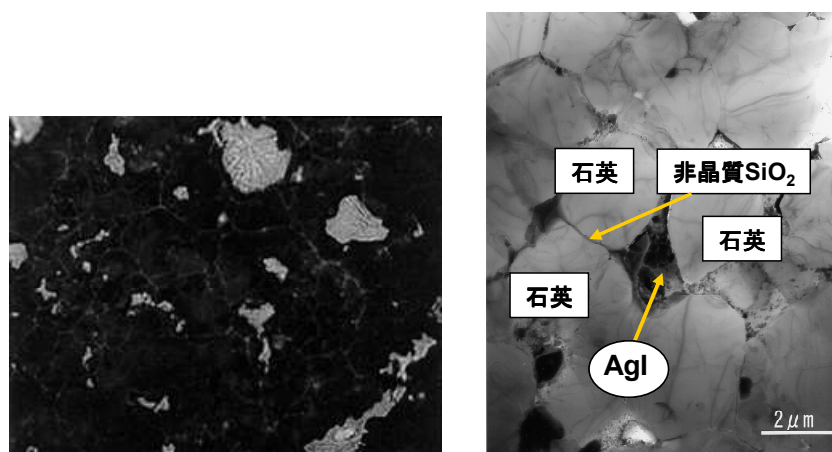
HIP 法は一般産業界において, 高強度切削工具等の高強度材料, 粉末冶金歯車等の高靱性材料, フェライト磁気ヘッド等の電子部品の製造等に活用されている。花崗岩等の天然の硬質岩は, 長期耐久性を有し, マトリクス自身は溶解しにくく, 透水しにくいことから, 容易には内部の化学元素が放出されない。HIP 法により結晶質に変質した岩石状の固化体は, 長期間に亘り外形を保ち, 強度を維持し, 低い透水性を有することにより, 硬質岩と同様の長期耐久性, すなわちヨウ

素保持性能が期待できるものと考えられる。

(2) 岩石固化体

HIP 固化処理では、まず廃銀吸着材を粉砕し、加熱前処理後カプセルへ充填し、密封する。その後、750℃、100MPa の条件下で、1 時間 HIP 固化処理を行う。本処理では、核種を廃銀吸着材から分離しないこと、また廃銀吸着材を金属カプセルで密封した状態で処理を行うため、二次廃棄物の発生が非常に少ない。

岩石固化体内部の写真を図-2(左：光学顕微鏡, 右：TEM)に示す。



固化体薄片試料の光学顕微鏡写真(×1,000)

備考) 黒褐色:SiO₂, 白色:AgI

AgI近傍のTEM観察写真

図-2 岩石固化体内部の観察写真

図-2 の TEM 観察写真よりマトリクスの SiO₂ は直径数~10 μm まで成長した石英結晶粒で構成されており、粒の周囲は幅 30~50nm の非晶質の SiO₂ で覆われていることがわかる。また、ヨウ素の化学形態は AgI 結晶であり、マトリクスの間隙に約 20nm の微結晶で凝集して閉じ込められている。

表-2 に示したように岩石固化体の圧縮強度は 100MPa 以上と高いため、処分後に割れが発生しにくいと考えられ、また、透水性が低いことを確認している。

(3) 岩石固化体の長期性能

TRU 処分場環境を想定した高 pH, 還元条件下で実施した長期浸漬試験(300 日)の装置の概略図と試験条件を図-3 と表-4 にそれぞれ示す。

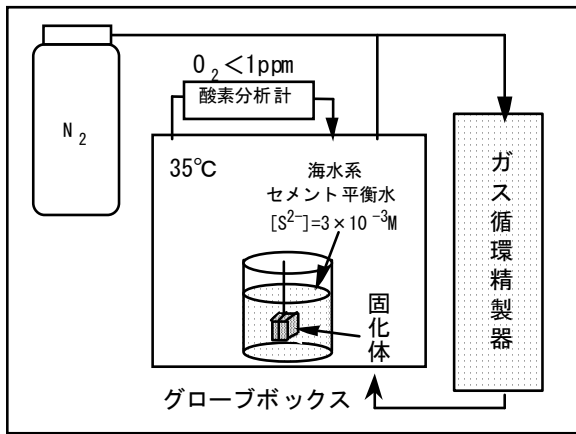


図-3 長期浸漬試験装置の概略図

表-4 長期浸漬試験条件

項目	条件値
試料サイズ	20mm×20mm×20mm
試験溶液	海水系セメント平衡水
同 pH	pH=12
試験温度	35°C
還元剤 (濃度)	Na ₂ S (3×10 ⁻³ M)
固液比	0.1 cm ⁻¹
気相部酸素濃度	O ₂ < 1ppm
試験期間	300日

試験期間中の Eh と pH の測定結果を図-4 と図-5 にそれぞれ示す。また、岩石固化体から浸出したヨウ素とケイ素の溶液中濃度の経時変化を図-6 に示す。

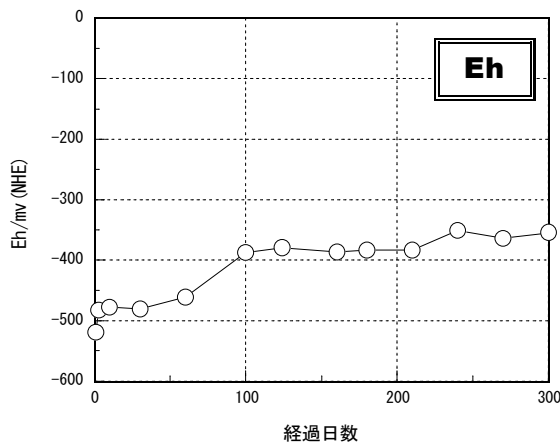


図-4 Eh の経時変化

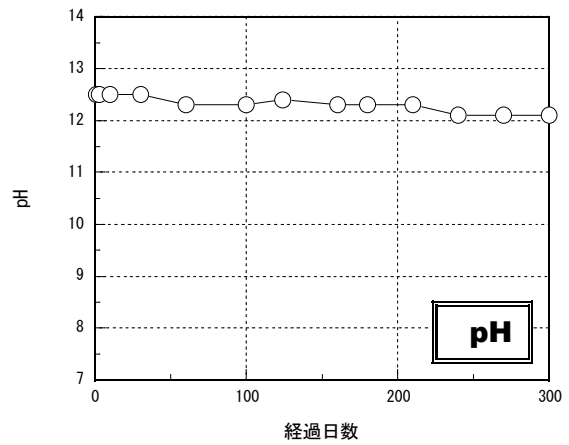


図-5 pH の経時変化

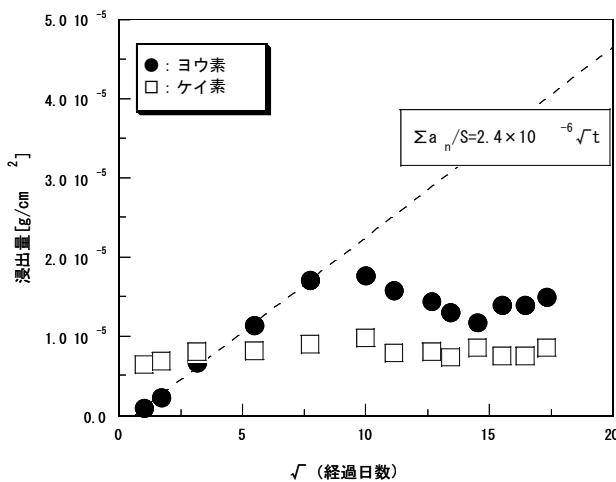


図-6 長期浸漬試験でのヨウ素, ケイ素浸出量と√(浸漬期間 : t) の関係

$$\frac{\sum a_n}{A_0} = 2 \frac{S}{V} \left(\frac{D_e \cdot t}{\pi} \right)^{\frac{1}{2}}$$

$\sum a_n$ = 溶液中への核種浸出積算量

A_0 = 廃棄体中の初期核種含有量

V = 廃棄体体積

S = 廃棄体表面積

D_e = 実効拡散係数

岩石固化体からのヨウ素の放出は、石英マトリクスの粒間を充填している非晶質 SiO₂ の溶解により形成された約 50nm の粒間に保持された AgI が浸入した溶液中に存在する還元剤によりヨウ化銀が溶解し、溶液中を拡散し固化体外へ放出されると考えられる。浸出 60 日までにける岩石固化体からのヨウ素放出挙動を模式的に図-7 に示す。

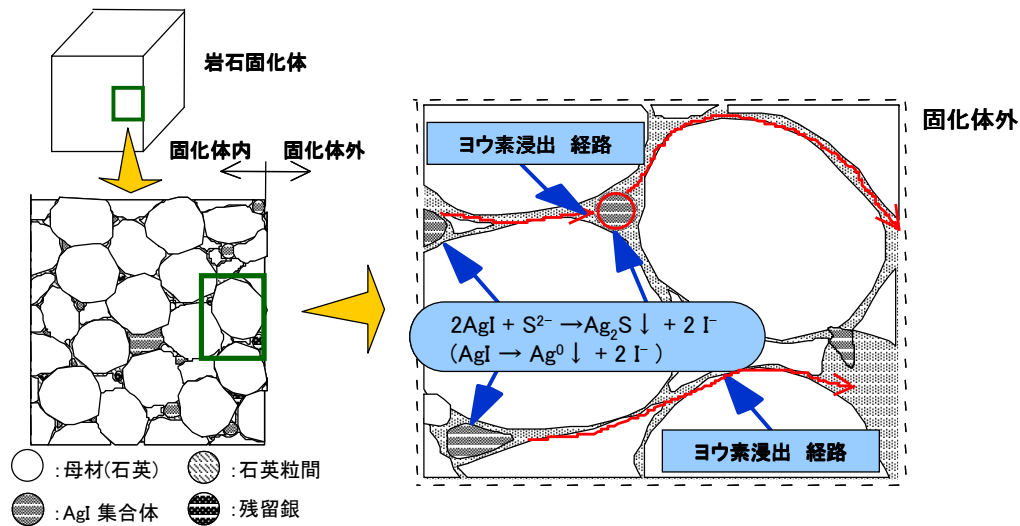


図-7 岩石固化体からのヨウ素放出挙動模式図

図-6 によると、浸出 60 日程度までは直線性を示しており、拡散律速であることがわかる。しかし、その後は経時的に減少する傾向が認められた。

これらの結果より、岩石固化体は石英マトリクス粒間での拡散による放出抑制性能を有しており、さらに高圧縮強度、低透水性を有すること、石英マトリクスは還元環境においても低溶解性であること等の理由により、固化体のヨウ素保持性能は長期的に維持可能であると考えられる。

長期的にはヨウ素浸出量は低減し安定化する傾向が見られることより、ヨウ素浸出抑制性能が附加されるものと考えられる。

ヨウ素浸出量経時変化データと図-6 中の式によって算出される拡散係数は $De=4.1 \times 10^{-20} (\text{m}^2/\text{s})$ と非常に小さく、ヨウ素の放出抑制能が高いことが確認している。

(4) まとめ

岩石固化によるヨウ素固化体は、高強度、低透水性及びマトリクスとなる石英結晶の安定性等の特徴より、長期に亘りヨウ素を保持し、優れたヨウ素放出抑制能 ($De=4.1 \times 10^{-20} (\text{m}^2/\text{s})$) を有するヨウ素固定化技術であることが確認されている。

4. AgI ガラス固化技術

(1) ヨウ素固定化原理

AgI ガラスは高イオン伝導性ガラスとして開発されており、組成は $\text{AgI-Ag}_2\text{O-MxO}_y$ で表され、安定にガラスを形成することが示されており、放射性的 AgI を安定に固定化できると考えられる。

MxOy としては固化体として製作時の融点、ガラス化した後のヨウ素閉じ込め性等をパラメトリックに検証し、 P_2O_5 を選択している。

AgI ガラス固化技術とは、ヨウ素をガラス中に化学的に取り込み、AgI 自身をガラスの構成成分として、固定化するものである。

(2) AgI ガラス固化体

AgI ガラス固化体は、ヨウ素を吸着した廃銀吸着材の中の AgI のみをガラス構造成分として利用するため、前処理として廃銀吸着材を減圧下で加熱し、AgI のみを蒸発させて吸着材から脱離する。その AgI 蒸気を下流側の冷却部で凝縮、回収し、ガラス化助剤であるリン酸銀を用いて、 $3AgI-2Ag_2O-P_2O_5$ の組成で、 $500^{\circ}C$ 、6 時間加熱することにより作製する。

AgI ガラス固化体の構造図を図-8 に示す。

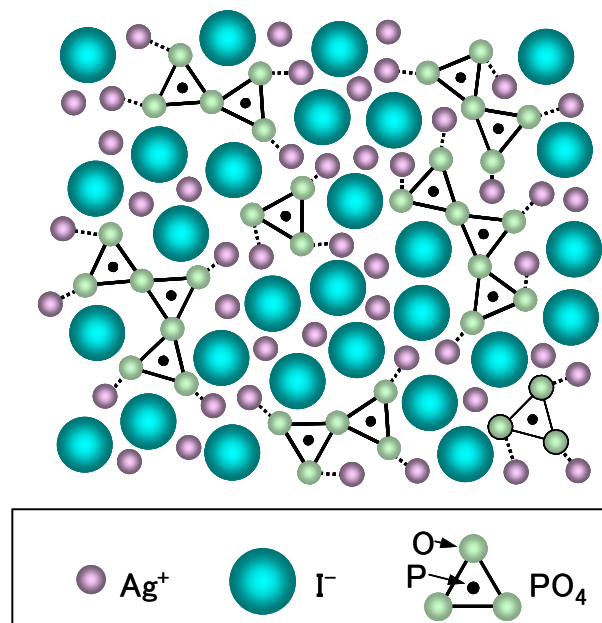


図-8 AgI ガラス構造の模式図

この図に示されるように、AgI ガラス構造中ではヨウ素自身がガラス構造を形成しており、固化体内に均質に取り込まれている。

AgI ガラス固化体のヨウ素含有率が 30wt% と高く、比重が大きいため、優れた減容性を持ち、圧縮強度が 90MPa であることより埋設に耐えうる十分な強度を持っていることがわかる。

(3) AgI ガラス固化体の長期性能

AgI ガラス固化体の浸出試験結果及び予想される浸出挙動を図-9 に示す。

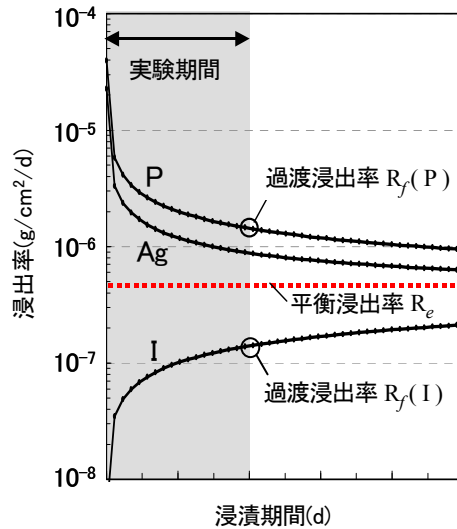


図-9 AgI ガラス固化体の浸出挙動(イメージ)

浸出初期における AgI ガラスの浸出挙動は、Ag 及び P に比べ I の浸出率が大幅に低い非調和溶解となる。これは、ガラスマトリクス¹⁾の溶解により表面近傍で Ag^+ 濃度の高い環境が形成され、I が安定な AgI 層として析出するためである。この AgI 層は還元環境においてもガラスの表面近傍においては溶解せず、安定に存在することができる。形成した AgI 層はガラスマトリクスへの水の浸入を阻害する拡散バリアとして機能し、ガラスの浸出を抑制する。これにより、AgI ガラスの Ag, P 成分の浸出率は時間とともに減少し、浸出率がある段階まで低下すると今度は AgI 層への Ag^+ の供給量が減少するため AgI 層が表面から溶出を開始する。このため、長期的には AgI 層はある一定の厚さに収束し、調和溶解に近づいていくと考えられる。浸出モデルの考え方を図-10 に示す。

また、本モデルにおいては、調和溶解に達したときの平衡浸出率を、リンとヨウ素の過渡浸出率の相乗平均から求めることができる。よって現実的な実験期間において調和溶解に達していなくても、実験結果から平衡浸出率を予測することが可能である。

- ①ガラス表面近傍の拡散層内では
リン酸銀成分の溶解により供給される Ag^+ で I の溶解が制限
→ AgI析出層を生成(非調和溶解)
- ②AgI析出層が拡散バリアとなり
拡散層内の $Ag^+, P_2O_7^{4-}$ 濃度が減少
→ I の溶解量が増大
→ 長期的には調和溶解へ漸近

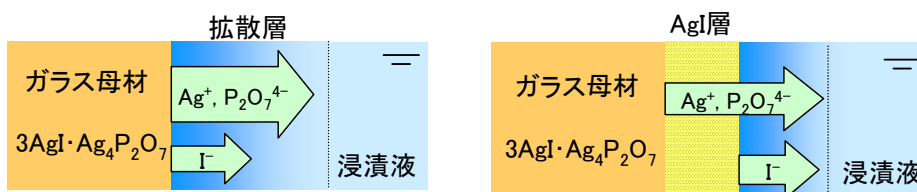


図-10 AgI ガラスの浸出モデル

TRU 処分場環境を想定した高 pH, 還元条件下で実施した長期浸漬試験 (728 日間) の試験条件と試験結果を表-5 と図-11 にそれぞれ示す。

表-5 長期浸漬試験条件

項目	条件値
試料サイズ	13mm×13mm×13mm
試験溶液	海水系セメント平衡水
同 pH	pH=12
試験温度	35℃
還元剤	電解鉄粉, 3% H_2 ガス
固液比	0.1 cm^{-1}
気相部酸素濃度	$O_2 < 1ppm$
試験期間	728日

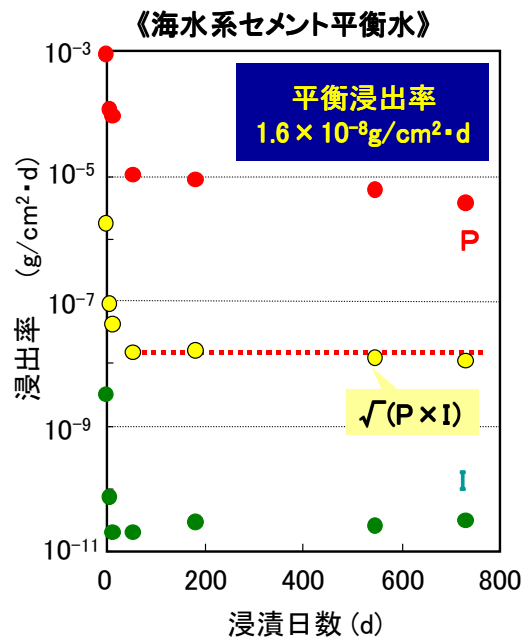


図-11 長期浸漬試験結果

試験結果から、リンとヨウ素の浸出率の相乗平均は浸漬初期を除いてほぼ一定値となっており、これが平衡浸出率であると考えられる。また、純水や降水系地下水等のほかの試験溶液に浸漬した場合にも同様の傾向であり、いずれの場合も平衡浸出率は $3 \times 10^{-7} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{d}$ 以下であった。よって本浸出モデルは処分環境におけるさまざまな液性に対して適応することが可能である。長期浸出試験結果について表-6 にまとめる。

ただし、硫化物イオン濃度が $3 \times 10^{-4} \text{ mol/L}$ よりも高い場合には、浸出率が大きくなる傾向があった。よって、AgI ガラス固化体を埋設処分する際には、地下水中の硫化物イオン濃度を配慮する必要があると考えられる。

表-6 長期浸漬試験結果まとめ

浸漬液種類	表面層組成	平衡浸出率 (g/cm ² ・d)
降水系地下水	AgI, 微量 Ag	1.9E-7
純水	AgI	2.3E-7
海水系セメント平衡水	AgI, AgCl	1.6E-8
Na ₂ S 水溶液 (10 ⁻⁴ mol/L)	AgI, 微量 Ag ₂ S	2.8E-7

(4) まとめ

AgI ガラス固化体によるヨウ素固定化は、固化体の高強度、固化体表面への拡散バリアとしての AgI 層の形成による低浸出性等の特徴より、長期間ヨウ素を保持し、コントロールリリースを行うことのできる技術であると考えられる。

5. 銅マトリクス固化技術

(1) ヨウ素固定化原理

銅は、構造物用工業材料として唯一の貴金属性を持つ金属であり、酸素等の酸化剤の存在しない水中では熱力学的に安定である。深部地下の本来の環境は還元性であるので、銅は初期の酸化性の期間を除いて熱力学的に安定であるといえ、オーバーパック材料としても検討がなされている。

銅マトリクス固化体とは、このような性質を利用し、ヨウ素を吸着した廃銀吸着材を銅マトリクス中に物理的に閉じ込めることによりヨウ素を固定化するものである。

(2) ヨウ素固定化原理

銅マトリクス固化体は、廃銀吸着材と銅粉末を混合し、銅カプセルに封入後、ホットプレス処理することにより作製する。廃銀吸着材を金属カプセルで密封した状態で処理を行うため、二次廃棄物の発生が非常に少ない。

銅マトリクス固化体の構造模式図を図-12 に示す。

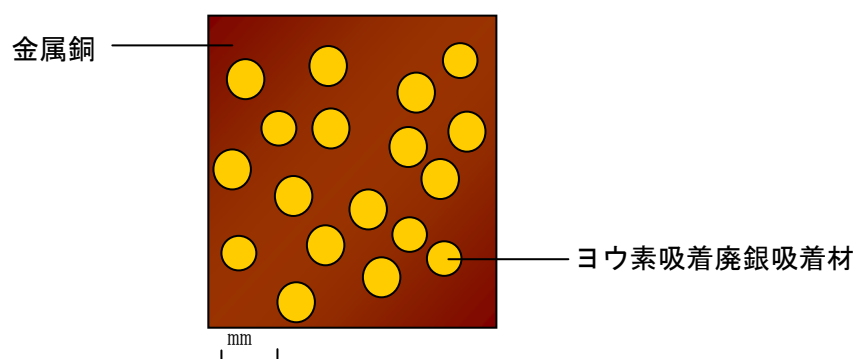


図-12 銅マトリクス固化体の構造模式図

作製した固化体は、ヨウ素を吸着した廃銀吸着材は固化前の形状を維持した状態で銅マトリクス中に分散保持され、緻密な固化体が形成される。また、ヨウ素は固化処理前と同様、吸着材部分で確認されており、銅マトリクス部分には移行しない。

(3) 銅マトリクス固化体の長期性能

銅マトリクス固化体からのヨウ素の放出は、銅の腐食に伴い廃銀吸着材が地下水と接触することにより起こり、銅の腐食機構に基づく浸出モデル(本田ほか, 2005)により評価することができる。銅粉末をホットプレスした銅マトリクスは、金属銅単体と比較してとくに異なる腐食挙動が見られず、銅マトリクス固化体の腐食速度は金属銅の数倍である。

さまざまな地下環境を模擬した腐食試験により、1,440 時間における銅マトリクス固化体の腐食速度は $1 \mu\text{m/y}$ 程度であり、時間とともに更に低下する傾向が見られる。また、還元性環境ではより小さな値となる。

(4) まとめ

銅マトリクス固化体からのヨウ素の放出は、銅の腐食に伴い起こる。銅は還元環境下で高耐食性が期待でき、空隙が存在しない緻密な固化体であるため、物理的にヨウ素を閉じ込めることが可能である。

6. セメント固化技術

(1) ヨウ素固定化原理

セメント固化技術は、一般的なセメント系材料には、陰イオン(ヨウ素イオン等)に対する収着性の高い水和物は少ないが、セメント水和物の一つであるアルミン酸硫酸カルシウム系化合物(エトリンガイト： $\text{Ca}_6[\text{Al}(\text{OH})_6]_2 \cdot 24\text{H}_2\text{O}$ (SO_4) $_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ (以降, AFt と略す)、モノサルフェート： $[\text{Ca}_2\text{Al}(\text{OH})_6]_2(\text{SO}_4) \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (以降, AFm と略す))が陰イオンを取り込みやすいことに着目し、これら水和物の含有量を増大させることでヨウ素イオンの収着性を高めたセメント系材料を用いることが特徴である。また、図-13 の陰イオンの種類による収着性(分配係数)の影響を考慮して、陰イオン共存での影響を低減させるために、より収着性が高いヨウ素酸イオンの形態で固定する技術である。

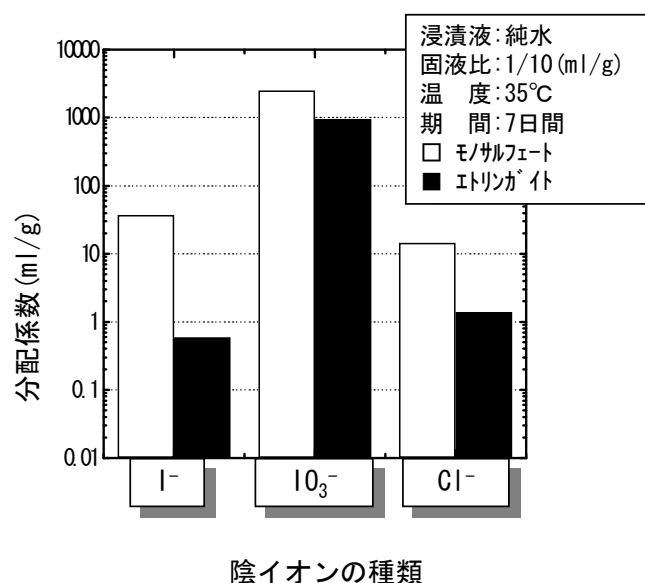


図-13 各陰イオンに対する分配係数

(2) セメント固化体

セメント固化体は、前処理として溶液中で廃銀吸着材から還元処理によりヨウ素を脱離させ、オゾンによる酸化処理によりヨウ素酸イオンに転換し、このヨウ素酸イオン溶液を陰イオン収着性の高いセメント系材料と混練固化し、ヨウ素を固定化した固化体である。

前処理は、すべてアルカリ性の溶液反応で実施するため、ヨウ素のガス系への移行はほとんどないこと、ヨウ素回収率が 99.96%以上と非常に高いことを確認している。また、固化体作製規模は 20L 規模まで確認できている。

(3) セメント固化体の長期性能

セメント固化体のヨウ素の収着性評価としては、共存陰イオンの影響が大きい海水系セメント平衡模擬地下水を用い還元性雰囲気下で長期浸漬試験を実施している。

長期浸漬試験結果を図-14 に示す。図から、共存陰イオンの影響が大きい条件下においても、ヨウ素の分配係数は 900ml/g 以上維持でき、ヨウ素は AFt に固定化されていることが確認できる。これらのことから、このセメント固化体は分配平衡モデルの適用が可能であると考え、図-15 の長期評価モデルを構築した。

長期評価モデルは、接触する液相量によって固相が溶解し減少することを評価に取り込み、セメント固化体のヨウ素の分配係数変化を接液量との関係で表したものである。

長期性能を加速的な実験から検討するために、液交換試験を実施している。実験条件は、交換液に海水系セメント平衡模擬地下水を用い、還元性雰囲気下で最大積算液固比 3000ml/g まで実施している。

図-16 に試験結果を示す。図から、積算液固比 3000ml/g においてもヨウ素の分配係数は 100ml/g 以上あることが確認できる。また、実験結果を長期評価モデルの解析によって、評価できることが確認できる。

このことから、セメント固化体の長期的なヨウ素放出挙動を構築した長期評価モデルで評価できると考えている。

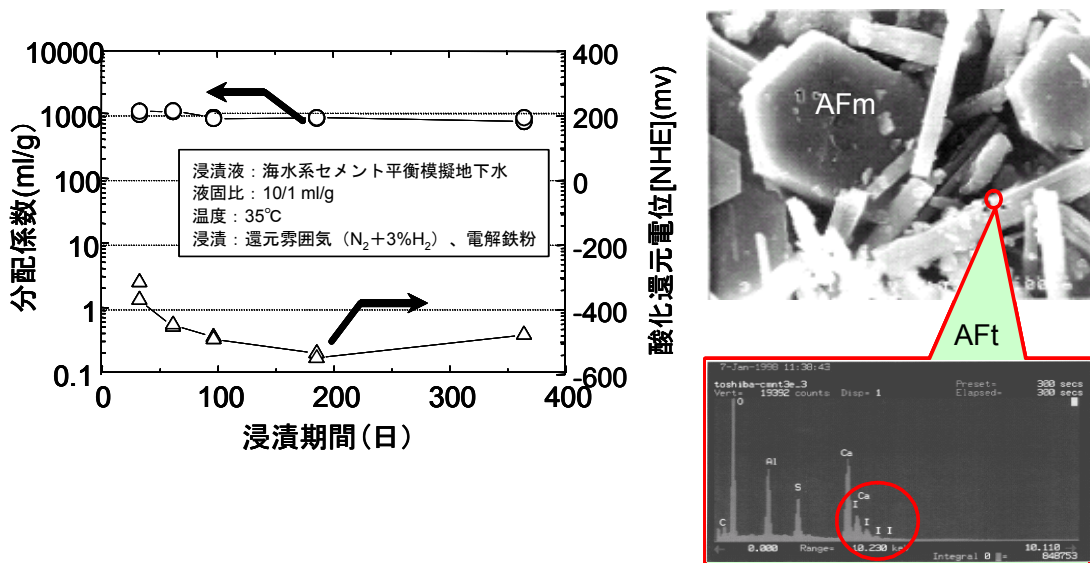


図-14 セメント固化体の長期浸漬試験結果

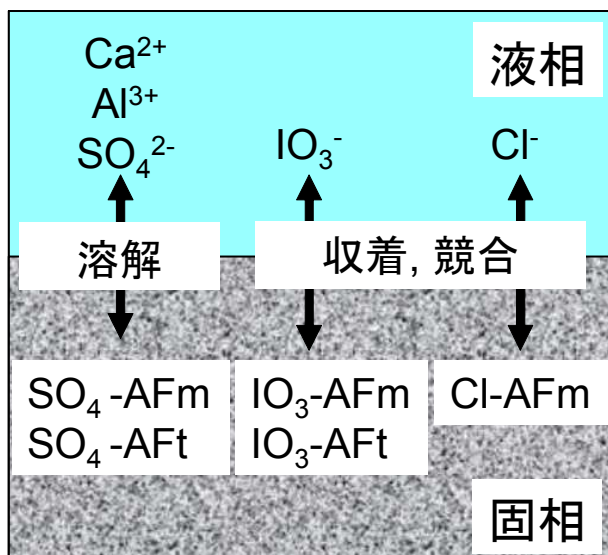


図-15 長期評価モデルの考え方

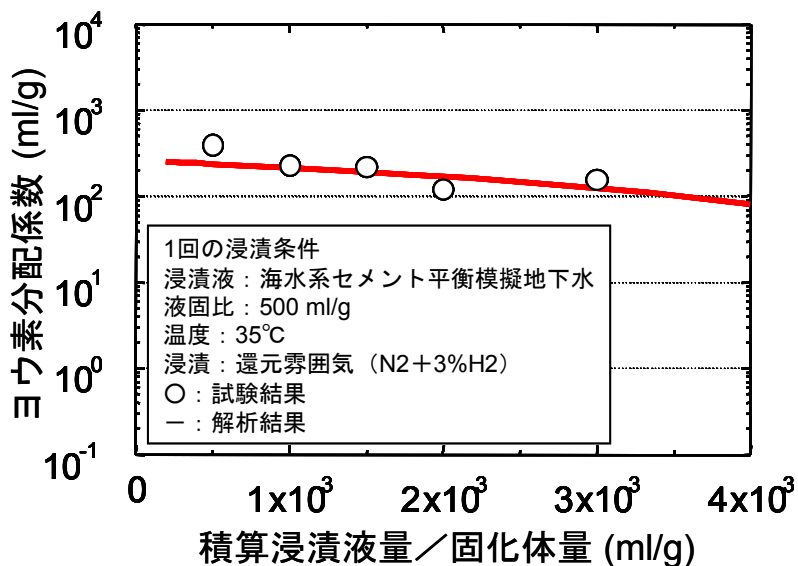


図-16 積算浸漬液量に対するヨウ素の分配係数変化

(4) まとめ

セメント固化体によるヨウ素の固定化は、陰イオンの収着性の高いセメント系材料とヨウ素酸イオンとの分配平衡等の特徴により、長期間ヨウ素をコントロールリリースすることができる固定化技術であると考えられる。

7. 難溶性鉱物化技術 (合成ソーダライト)

(1) ヨウ素固定化原理

ソーダライトは、アルミノケイ酸塩鉱物の一種で、天然ではNaに富む火成岩中に産出される。理想的な化学式は、 $\text{Na}_8(\text{AlSiO}_4)_6\text{X}_2$ (X:ハロゲン元素) で表され、XをClやほかのハロゲン元素及び SO_4^{2-} や NO_3^- 等のアニオンで置換できる。これより、ソーダライト固化体では、同族であるヨウ素について塩素と置換することができると想定される。

ソーダライト固化体とは、ヨウ素を難溶解性鉱物であるソーダライトの結晶構造中に閉じ込め、固定化するものである。

(2) 合成ソーダライト

合成ソーダライトは、前処理として廃銀吸着材からヨウ素を脱離させ、NaI の形態とし、原料として SiO_2 及び NaAlO_2 を化学量論比で加え、 800°C にて 2 時間乾式にて合成する。

ヨウ素は図-17 に示すように、ソーダライトのかご型構造中に取り込まれる。

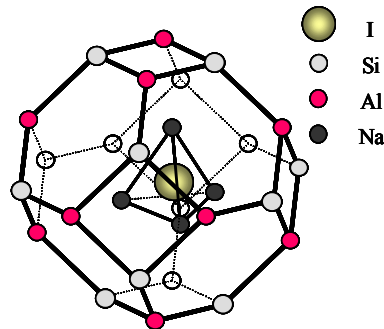


図-17 合成ソーダライトの結晶構造模式図

(3) まとめ

合成ソーダライトへのヨウ素の固定化は、難溶性鉱物として構造内に取り込まれ、ソーダライトの溶解度平衡により長期性能を評価できる技術であると考えられる。

8. 難溶性鉱物化技術（合成鉛アパタイト）

(1) ヨウ素固定化原理

難溶性鉱物は、結晶構造内部に種々の元素を閉じ込めた状態で産出されることからヨウ素についても同様に安定に固定化できると想定することができる。アパタイトはハロゲン元素を結晶構造内部に閉じ込めることが可能であり、オクロの天然原子炉にて希土類元素等の長期間放射性核種を保持した実績からも、耐放射線性にも優れていると想定される。

鉛アパタイト固化体とは、ヨウ素を低溶解性である $\text{Pb}_{10}(\text{VO}_4)_6\text{I}_2$ の化学形態で結晶構造内に固定するものである。

(2) 合成鉛アパタイト

合成鉛アパタイトは、前処理として廃銀吸着材からヨウ素を脱離させ、 PbI_2 の形態とし、原料として PbO 及び V_2O_5 を化学量論比で加え、室温で混合後、真空中 700°C で 2 時間乾式にて合成する。合成後、鉛アパタイトを粉砕し 500°C で加圧 (9MPa) することで固化体を成型する。

ヨウ素は図-18 に示すように、合成鉛アパタイトのかご型構造中に取り込まれる。

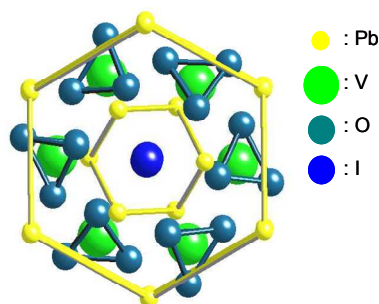


図-18 合成鉛アパタイトの結晶構造模式図

(3) まとめ

鉛アパタイトは難溶性であり，合成鉛アパタイトはヨウ素を構造内に取り込むため，ヨウ素放出抑制能に期待できると考えられる。

9. BPI ガラス固化技術

(1) ヨウ素固定化原理

BiPbO₂NO₃(BPN)は，各種の工業廃液及び原子力発電に伴い発生する陰イオン，とくにハロゲンの除去及び固型化を目的として開発された無機イオン交換体である。

BPI (BiPbO₂I) の結晶構造は天然鉱物 Perite (BiPbO₂) と類似しており，化学的に安定である。

BPI ガラス固化体とは，放射線遮蔽として利用されている鉛ガラスの一種である B₂O₃-PbO 系ガラスと BPI を混合し，熔融固化したものであり，BiPbO₂I の化学形態でヨウ素を回収し，マトリクス相でヨウ素を固定するものである。

(2) BPI ガラス固化体

BPI ガラス固化体は，ヨウ素を吸着した廃銀吸着材に水素等の還元剤を用いてヨウ素を溶離し，この溶離されたヨウ素をアルカリ溶液中の BPN に吸着させて，BPI の形態で回収し，乾燥後，B₂O₃-SiO₂-PbO ガラスフリットと混合し，520℃で1.5時間加熱熔融し，形成する。

BPI ガラス固化体の化学組成と構造図を表-7 と図-19 にそれぞれ示す。

表-7 BPI ガラスの化学組成

	wt%	mol%
I	2.0	1.0
B	3.5	19.8
Pb	75.2	22.1
Zn	1.8	1.6
Bi	3.3	1.0
O	14.3	54.5

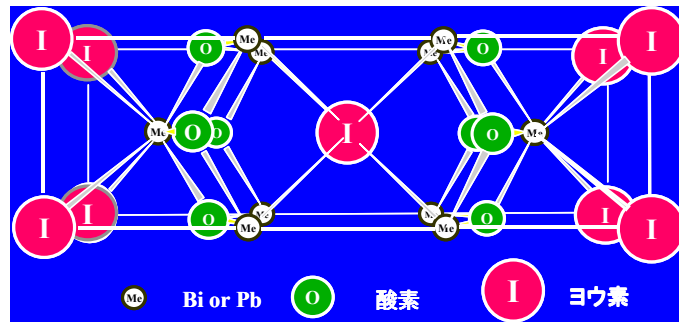


図-19 BPI の結晶構造図

BPI ガラス固化体は緻密であり, 図-20 に示すEPMA マッピングによる固化体表面の元素分布分析により, ヨウ素はほぼ均質に分布していることが確認されている。

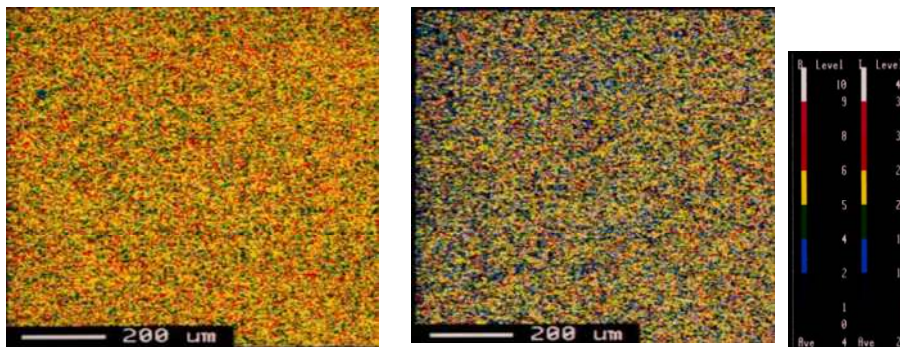


図-20 BPI ガラス固化体表面の元素分布(左:ヨウ素, 右:ホウ素)

(3) まとめ

BPI ガラス固化体からのヨウ素の放出は, 固化体マトリクス溶解により評価できると考えられる。

10. アパタイト固化技術

(1) ヨウ素固定化原理

アパタイトは強固なイオン結晶体であり, 水に対し難溶性を示す。特にフッ化アパタイトはアパタイトの中でも水への溶解度が最も小さく, 超難溶解性無機化合物である。このため, ヨウ素の処分に際して, アパタイトによる閉じ込めを行うことで埋設環境での長期安定性が期待できる。

アパタイト固化体とは, 所定の吸着材にヨウ素を吸着, 回収し, その吸着材をアパタイトマトリクスで包蔵することにより地下水との接触を遅延し, ヨウ素を固化体内に固定するものである。

(2) アパタイト固化体

アパタイト固化体は, 前処理として廃銀吸着材中の AgI を高温ガスにより脱離させ, 脱離したヨウ素を新たに吸着材(ゼオライト)に吸着, 回収する。そのヨウ素を吸着したゼオライト吸着材を, アパタイトコーティングし, さらにアパタイト粉末と混練し, 900°C, 50MPa の条件にて放電プラズマ焼結法により固化するものである。アパタイト固化体の模式図を図-21 に示す。

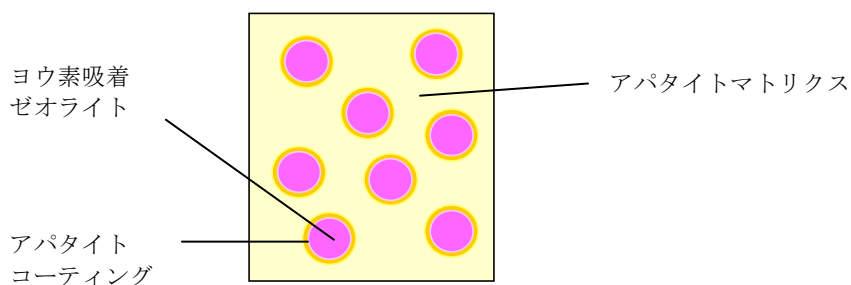


図-21 アパタイト固化体の構造模式図

この図に示すように、ヨウ素を難溶性のアパタイトマトリクス中に均一に分散するように固定化する。

(3) まとめ

アパタイト固化体からのヨウ素の放出は、単純な固化体マトリクスの調和溶解により評価することができると考えられる。

アパタイト固化体へのヨウ素の固定化は、難溶性のアパタイトでヨウ素吸着材を包蔵することであり、ヨウ素放出抑制能に期待できる技術であると考えられる。

11. ヨウ素固定化技術の結論

各固化体をヨウ素固定化原理に基づき分類したものを以下に示す。

- ・ 結晶性マトリクス(難溶性のマトリクス中にヨウ素包蔵によるヨウ素浸出抑制) : 銅マトリクス固化体, 岩石固化体, アパタイト固化体
- ・ ガラス(溶液への浸漬により形成される表面層によるヨウ素浸出抑制) : AgI ガラス固化体, BPI ガラス
- ・ セメント(セメント鉱物への収着) : セメント固化体
- ・ 合成鉱物(ヨウ素を成分とする鉱物の溶解度) : 合成ソーダライト, 合成鉛アパタイト

また、上述固化体のうちヨウ素保持性能である拡散, 浸出, 分配, あるいは溶解度のデータが取得されている岩石固化体, AgI ガラス固化体, セメント固化体, 及び銅マトリクス固化体について整理したものを表-8 にまとめる。

表-8 岩石, AgI ガラス, セメント及び銅マトリクス固化体のヨウ素放出抑制能

	岩石固化	AgI ガラス固化	セメント固化	銅マトリクス固化
ヨウ素放出機構	マトリクス粒間からの拡散	表面 (AgI) 層からの溶解	セメント系水和物への収着	銅マトリクスの溶解に伴う浸出
評価対象モデル	石英粒間拡散モデル	浸出モデル	分配平衡モデル	浸出モデル
ヨウ素放出抑制能	粒内拡散係数 D_e : $1.0E-20$ (m^2/s)	規格化浸出率 NL : $1.0E-4 \sim -3$ ($g/m^2/d$)	分配係数 K_d : $> 1.0m^3/kg$	$9E+8$ (Bq/y)

参考文献

財団法人 原子力環境整備促進・資金管理センター：平成 16 年度 地層処分技術調査等 TRU 廃棄物関連処分技術調査 ヨウ素固定化技術調査報告書，(2005)．

本田明，佐々木良一，須黒寿康：放射性ヨウ素の銅マトリックス固化体からの放出挙動評価，JNC TN8400 2004-029(2005)．

7-2 C-14 長期閉じ込め技術 (7.3)

1. はじめに

第2次 TRU レポートでは7.3において、C-14 長期閉じ込め技術について紹介し、その効果について述べた。ここではC-14 長期閉じ込めを可能とする技術について、その根拠及び研究成果等についてとりまとめる。

2. 概要

TRU 廃棄物に含まれる放射性核種のうち、環境への影響の大きい核種はグループ1 廃棄物に含まれる I-129 及びグループ2 廃棄物に含まれる C-14 である。TRU 廃棄物処分場の安全性及び信頼性を高めるためには、これら核種による影響を低減するための技術開発が必要である。I-129 の影響を低減させるための固定化技術に関しては別に述べた。ここでは、C-14 の影響を低減させるための技術として、原子力環境整備促進・資金管理センターが行っている、廃棄体開発調査（原子力環境整備促進・資金管理センター，2005）において検討中の、C-14 の閉じ込めを目的とした廃棄体パッケージについて、その検討内容を紹介する。

3. 概要

廃棄体開発調査において検討されている C-14 長期閉じ込め技術とキャニスター用リファレンス容器との比較を表1に示す。

表1に示すように、C-14 長期閉じ込め技術としては、高強度高緻密コンクリート（以下 UHPC とする）を用いたコンクリート容器又は Ti-Pd 合金を用いた金属容器が検討されている。これらは、容器に求められる設計要件である、耐圧性、熱特性等の構造の健全性、落下安全性等を考慮して設計されたものである。また、C-14 の自己β線励起光触媒による、有機形 C-14 の無機化の検討も行っている。ここでは、それぞれの開発経緯とその成果について述べる。

表-1 C-14 影響低減型パッケージの種類と特徴

仕様 及び機能	廃棄体パッケージ	C-14 対策用パッケージ			
	リファレンス パッケージ B	廃棄体 (2b) / キャニスター用コンクリート容器	廃棄体 (5) / キャニスター用金属容器	廃棄体 (4) 光触媒 / 光触媒を用いるコンセプト	
概念図					
目的・コンセプト	キャニスター収納用パッケージ	・高強度高緻密コンクリートによる閉じ込め型容器 ・Group2 の C-14 を 60,000 年間閉じ込め	・チタン合金との複合による閉じ込め型容器 ・Group2 の C-14 を 60,000 年間閉じ込め	・ハンドリング、強度等を考慮した金属容器の現実的設計 ・光触媒による有機 C-14 の無機化	
基本仕様	寸法	1.50m×1.50m×1.10m	1.8m×1.8m×1.6m	1.038m×1.038m×1.726m	1.5m×1.5m×1.5m
	材質	本体：炭素鋼 充填：セメントモルタル	高強度高緻密コンクリート	ハンドリング容器：炭素鋼 本体：チタン合金/炭素鋼複合、充填：珪砂	本体：炭素鋼 充填：光触媒
	重量	約 7ton	約 13ton	約 6.5ton	約 15ton
	収納本数	4 本(キャニスター)	6 本(キャニスター)	4 本(キャニスター)	9 本(キャニスター)
機能	構造の健全性				
	・ 収納効率	考慮	考慮	考慮	考慮
	・ 充填材	セメントモルタル	なし	内容物保持のみ	光触媒
	・ 構造検討	段積みを考慮	段積み、落下を考慮	段積み、落下を考慮	段積み、落下を考慮
	・ 耐圧性	未考慮	地圧・側圧を考慮	地圧・側圧を考慮	地圧・側圧を考慮
	・ 熱特性	80℃以下を担保	80℃以下を担保	80℃以下を担保	80℃以下を担保
	閉じ込め性		6 万年(水浸透抑制による)	6 万年(腐食抑制による)	再取り出し期間(100 年)を考慮
	・ 化学劣化	未考慮	溶脱と AFt 生成を考慮	腐食機構、水素脆化応力腐食割れを評価	一部、容器の腐食期間を含めた検討も実施
	・ 核種拡散係数		× (閉じ込めコンセプトのため)	× (閉じ込めコンセプトのため)	× (短期間対象のため)
	・ 水密性/水浸透挙動		考慮の上閉じ込め評価	腐食挙動及び SCC を評価	× (短期間対象のため)
	・ 耐食性		化学劣化として評価	考慮して閉じ込め評価	考慮して閉じ込め評価
	製作性	従来の技術での製作が可能な設計	打ち継ぎ目、硬化時のひび割れを排除	既存の溶接技術で製作可能な材料・設計	従来の技術での製作が可能な設計
	製作性の確認 ・ スケールモデルでの実証	未確認	60cm×60cm×60cm モデルまでは確認。		
	定置/ハンドリング性	フォークリフト及びクレーンを想定	フォークリフトでのハンドリングを想定	フォークリフト及びクレーンを想定	トレーナ&クレーンを想定
落下時の安全性	未検討	4.5m (ハンドリング時の最大高さ) からのコーナー落下を評価	5.5m (縦積み時) からの垂直落下を評価	6.5m (ハンドリング時) からのコーナー落下を評価	
ガス対策(ガスベントなど)	未考慮	内部に十分な空間を有するため、部材強度で内圧を担保できる			
放射線遮蔽性	期待しない	ハンドリング時、追加遮蔽が必要	表面：1mSv/h, 1m: 50µSv/h	未評価	
その他 コスト削減検討/C-14 対策(光触媒)等		6 万年閉じ込めによる C-14 影響抑制		光触媒による有機 C-14 の無機化	

4. コンクリート容器

C-14 対策として長期間（6 万年：C-14 の半減期の約 10 倍の期間）の閉じ込め性を期待するコンクリート容器である廃棄体(2b)は、高強度高緻密コンクリート（UHPC）を打ち継ぎ目を作らないように一体成形し、UHPC の持つ高い水密性によって、容器内の廃棄物への地下水の到達を抑制するものである。

4.1 特徴

主材料として採用する UHPC は、空隙率が非常に低いことから高い止水性が得られるものと期待されている。コンクリートの緻密さ（＝止水性）はその圧縮強度と高い相関がある。そこで、高い止水性を確保する必要から、用いる高強度高緻密コンクリートに対して、設計基準強度を 200MPa と設定した。廃棄体(2b)の閉じ込めの考え方を、図 1 に示す。

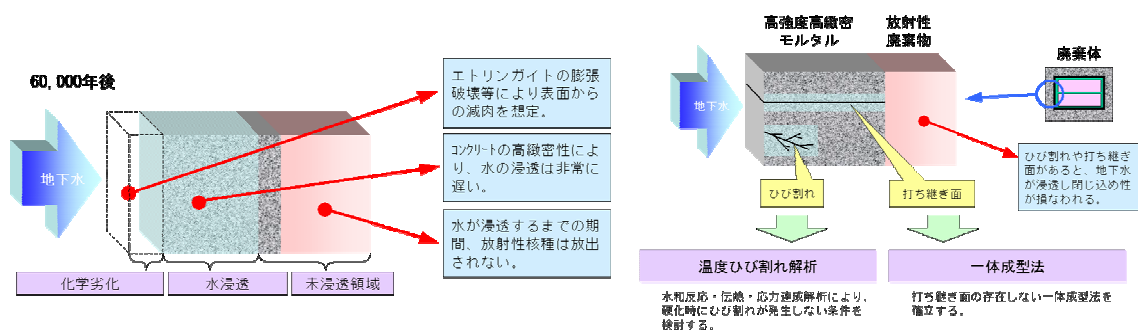


図-1 廃棄体(2b)の閉じ込めの考え方

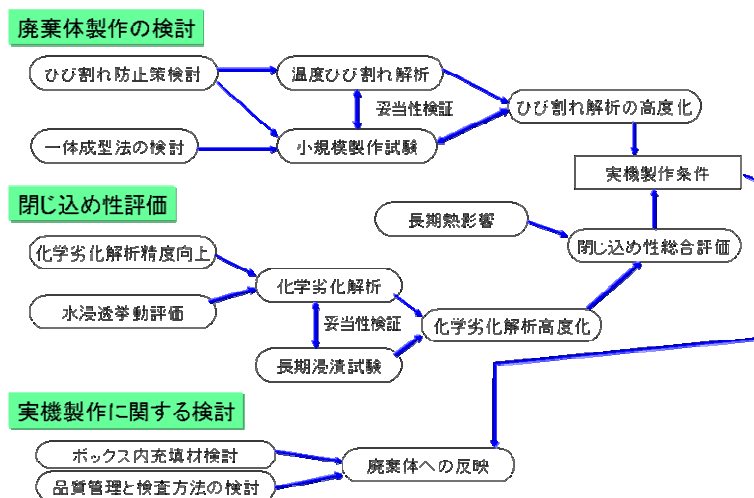


図-2 廃棄体(2b)の開発フロー

地下水が廃棄体の壁厚を通過し、ハル・エンドピース圧縮体キャニスター表面に達する（以下、再冠水と略す）までの期間は、ハル・エンドピース圧縮体キャニスターへの外部からの水の接触は生じない。容器に生じたひび割れは水みちとなり、地下水が容易に廃棄物に到達し、放射性核種の移行を速める。また、製作時の打ち継ぎ目は、その他の部分と比較して止水性が劣る可能性があり、やはり放射性核種の移行を速めることが考えられる。そのため、コンクリート容器の閉じ込め性を担保するためには、ひび割れ及び止水性の低い打ち継ぎ目等の高透水部を生じさせない製作手法の構築が必要である。また、ひび割れ及び打ち継ぎ目の無い容器を製作できた場合でも、容器そのものの長期挙動を評価し、6 万年間の閉じ込めを達成し得る性能を有することを示す

ことも必要である。

そこで、廃棄体(2b)の開発にあたっては、閉じ込め容器の製作性の検討と閉じ込め性評価とに重点を置き、それぞれの結果を容器の設計に反映することとした。

4.2 製作手法

4.2.1 一体成型法の検討

高透水性を作らない容器の製作手法について、

- ①廃棄物の吊り下げ
- ②軽量モルタル予備固化（浮力による位置決め）
- ③蓋無しの内部容器（浮力による位置決め）
- ④底部と一体となる脚を用いる

等の各手法について、製作の容易さ、止水性の担保、内容物の位置決め性などを検討した結果、廃棄物の吊り下げによる一体成型法を採用することとした。

容器の一体成型にあたっては、キャニスターを所定の位置に保持するための方策及び吊り具をどのようにして取り外すかが問題となった。吊り具を取り外した際に、上部コンクリートが流動性を失っていると、その部分に孔が残り、硬化後に充填しても水みちを形成する可能性があるため、吊り具の取り外しは上部コンクリートの硬化以前に行う必要がある。このとき、下部のコンクリートが流動性を有していると、キャニスターを所定の位置に保持することができない。そこで、その対策として、キャニスターを鋼製の内部容器に収納し、内部容器外側を一体成型のコンクリート容器とすることで、内容物の底面積を大きくし、下部コンクリートへの荷重を低減するとともに、下部コンクリートの硬化を速め、上部コンクリートと下部コンクリートとの硬化時間の差を利用して吊り具を取り外す方法（硬化促進連続打設法）を採用することとした。図3に、硬化促進連続打設法の内容を示す。

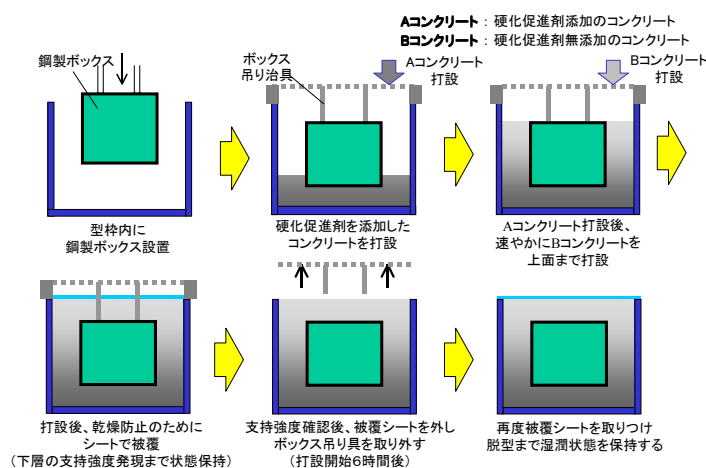


図-3 硬化促進連続打設法の内容

4.2.2 ひび割れ防止策の検討

コンクリートの施工時にひび割れを生じさせる原因としては、

- ①硬化時の水和発熱に起因する温度応力（温度差に起因して発生する応力）
- ②硬化時のコンクリートの収縮に伴って生じる応力

が考えられる。コンクリートの収縮及び水和発熱量は、その配合に固有のものであるため、これらを考慮した設計により、応力を低減し、ひび割れの発生を抑制する必要がある。

(1) 硬化時の温度応力対策

上述の通り、水和発熱はその配合に固有のものであるが、容器の設計や製作時（養生時）の温度条件の調整等により、温度応力を低減できる。容器の設計等により温度応力を低減させるためには、硬化時の発熱の正確な評価と、その結果生じる温度応力の評価を行う必要がある。

水和発熱は、コンクリートに含まれる硬化成分の水和に伴って発生するため、打設後の時間経過に伴って発熱量も変化する。また、水和速度は温度に対する依存性があるため、容器の部位ごとに温度が異なれば、発熱量も異なる。コンクリートの強度も水和に伴って増大する。そのため、容器の硬化時に生じる温度応力を正確に評価するためには、容器の各部位の時間ごとの水和度をもとめ、そのときの発熱量と強度とから、ひび割れ発生確率（ひび割れ指数）を求める必要がある。

そこで、各温度に於ける UHPC の水和に伴う発熱量を測定し（図 4）、各水和度における水和反応の活性化エネルギーと発熱量を求め（図 5）、各時点で予測される強度と比較することにより、ひび割れ指数を算出した。図 6 に示す硬化時温度応力解析によって、各容器設計及び養生条件に於ける容器の各部位のひび割れ発生確率を評価することで、温度応力によるひび割れの発生を抑えた設計が可能となった。

(2) 硬化時の収縮による応力対策

廃棄体容器を一体成形とした結果、容器内の内部容器が内側での拘束となり、硬化時の収縮に伴って引っ張り応力を発生させ、ひび割れの原因となる可能性がある。後述の通り 60cm×60cm×60cm の小型容器では硬化時の収縮対策を講じていなくとも、ひび割れのない容器を作成可能であるが、実規模へのスケールアップ時には内部拘束によるひび割れ発生の可能性も残されている。そこで、内部拘束の低減策として、内部容器の周辺へのヤング率の低い内部緩衝材の設置について検討した。

図 6 は内部緩衝材の効果確認のための歪み測定試料の写真である。内部拘束材と UHPC との間に種々の緩衝材を設置し、硬化時の歪み量を測定した。その結果、図 7 に示すように、緩衝材を設置した試料では、内部拘束のないブランク試料とほぼ同様の歪み挙動を示し、緩衝材の効果を確認できた。

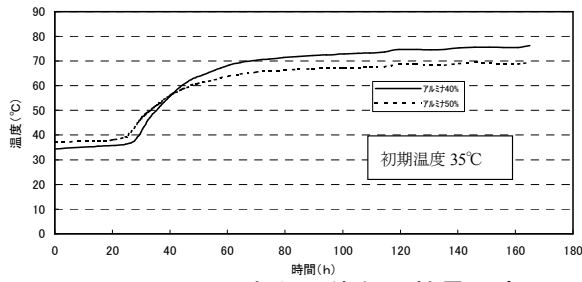
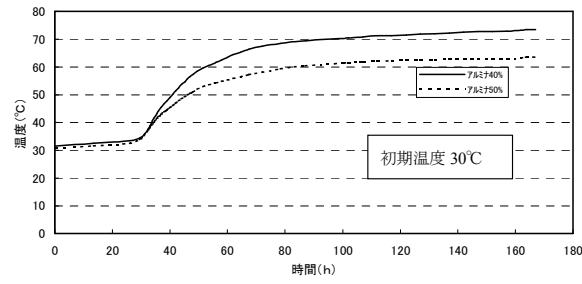
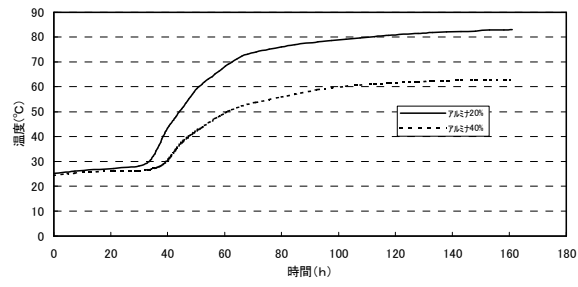


図-4 UHPC の水和に伴う発熱量の変化

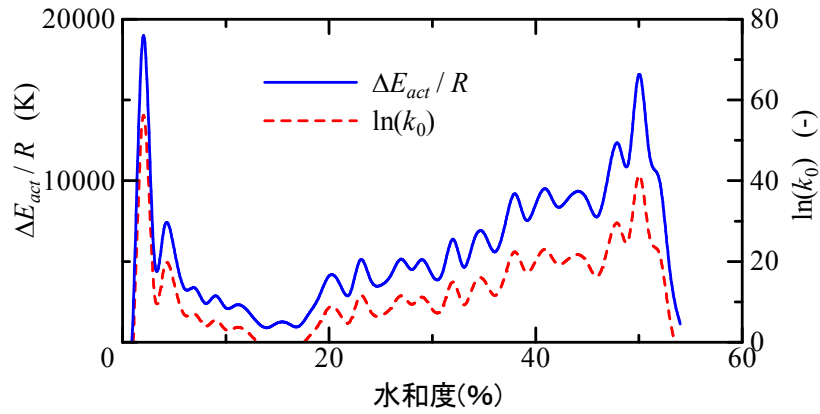


図-5 熱力学データベース

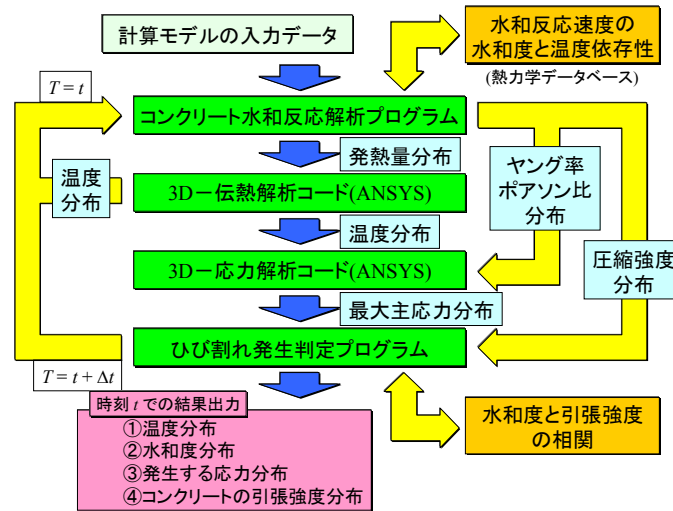


図-6 硬化時温度応力解析のフロー図



図-7 内部緩衝材の効果確認用試料

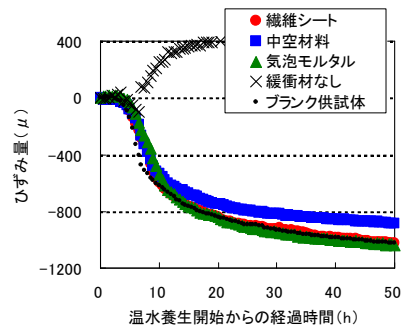


図-8 各緩衝材の硬化 (歪み測定結果)

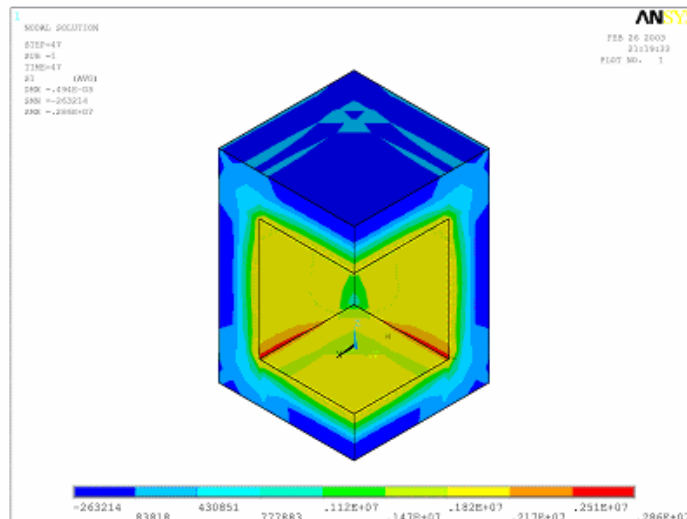


図-9 温度応力解析結果の一例

(3) 小規模試験体の製作による製作性の確認

(1)で述べた、硬化時温度応力解析の結果（一例を図9に示す）を反映した設計及び養生条件によって、図10に示す60cm×60cm×60cmの小型容器の製作試験を行った。

内部緩衝材の有無、養生条件（温水養生時の昇降温速度及び温水養生の有無）の異なる条件で作成し、それらの影響を調べた。その結果、温水養生時の昇降温速度を1.5°C/hとし、内部緩衝材を設置した場合及び温水養生を行わない（常温養生）で、ひび割れの発生を防止できることが分かった。図11にひび割れを生じていない小規模容器の写真を示す。小規模試験体の歪みを打設直後から継続的に測定した結果、図12に示すように、製作後約半年経過後以降に歪みの増加は見られず、製作時にひび割れが発生していなければ、その後ひび割れが発生する可能性が低いことが示された。

4.2.3 閉じ込め性能

再冠水までの期間は、廃棄体容器の健全性（ひび割れの有無、ひび割れ幅など）と、廃棄体容器への水浸透挙動、さらに水浸透に伴って生じる廃棄体コンクリートの化学劣化（エトリンガイトの生成に伴うコンクリート表面の剥離、カルシウムの溶脱に伴う空隙率の上昇及び炭酸イオンの浸透に伴う中性化）によって定まるものと考えられる。

図13に、水浸透挙動評価のフロー図を示す。

UHPCは一般的なコンクリート構造物とは異なり、空隙をほとんど有しないことが特徴である。そのため透水係数も極端に小さく、一般的にコンクリートの透水性測定に用いられているインプット-アウトプット法での透水性の測定は困難である。そこで、岩盤の透水性測定に用いられる手法であるフローポンプ法（図14）と、高い静水圧を印加した時の水浸透距離から水の拡散係数並びに透水係数を求めるCIP法（図15）によって透水係数の測定を試みた。それら測定結果を基に、空隙率と透水係数との関係を求め、数値シミュレーションにより水浸透挙動を評価した。また、数値シミュレーション結果の保守性を確認するため、1MPaから10MPaの水圧での水浸透挙動を観察する、低水圧法による長期測定も実施した。これら試験の結果得られた、緻密なコンクリートの空隙率と透水係数との関係を図16に示す。

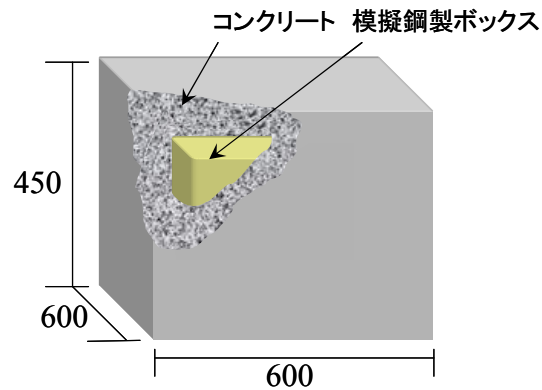


図-10 小規模容器の模式図



図-11 小規模試験体の外観

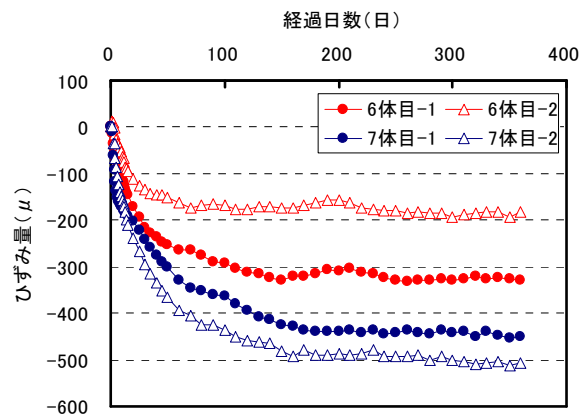


図-12 小型模擬廃棄体の外観

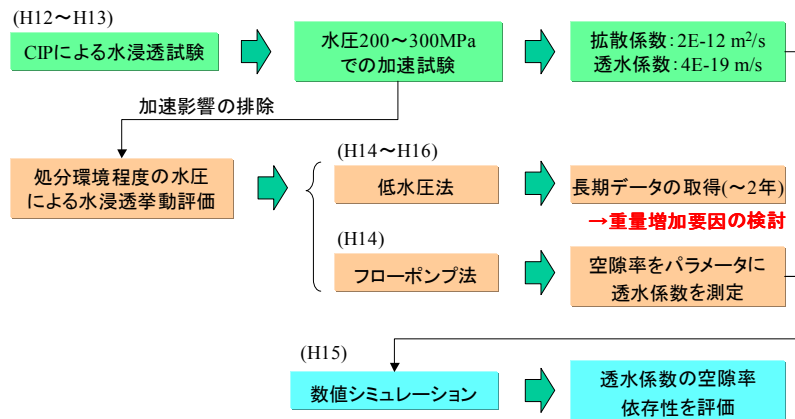


図-13 水浸透挙動評価のフロー図

測定結果からは、設計圧縮強度が 200MPa のコンクリートでは、それ以下 (100 及び 60MPa) のコンクリートの空隙率と透水係数との関係から予測される透水係数と比較して低い値をとることが示されたが、この結果は、パーコレーションモデルを用いたシミュレーション結果(図中に+印で示した)とも一致している。パーコレーションモデルによる解析からは、空隙率が約 5%を下回る場合には水浸透がある一定の距離から進まなくなり、極端に低い透水係数となることが予測された。

また、現在継続している低水圧法での確認試験では、図 17 に示すような質量上昇が認められた。このときの質量の増加量は、試料の空隙率と予測される水浸透距離とから推定される質量変化とほぼ同等であったが、試料に水浸透の形跡は認められなかった。この質量増加に関しては、乾燥時の質量変化及び熱分析結果から、自由水の増加によるものとは考えにくく、UHPC に含まれる多量の未水和セメントの水和によって生じたものと考えられた。

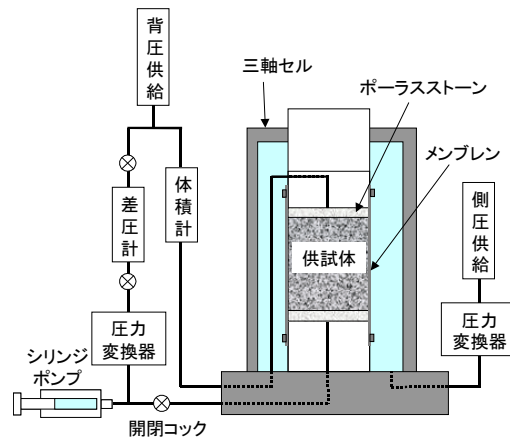


図-14 フローポンプ法の模式図

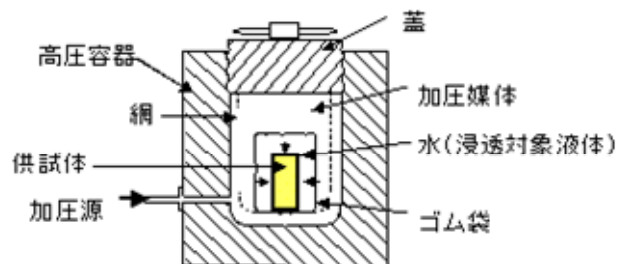


図-15 CIP 法の模式図

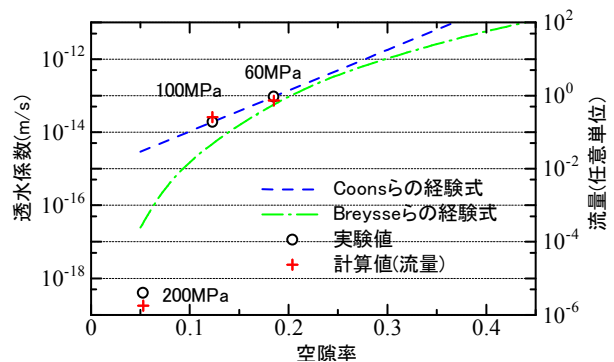


図-16 透水係数の測定結果

UHPC の化学劣化挙動に関しては、

- ①地下水へのセメント成分の溶脱
- ②エトリングタイトの生成による膨張破壊
- ③空隙率の変化に伴う水浸透特性の変化

をモデル化した、図 18 に示す水浸透化学劣化連成解析によって予測した。解析に用いる入力値として、空隙率と水の拡散係数（及び拡散係数から求めた透水係数）との関係を取得し、解析の基礎データとし、水浸透距離は、ダルシーの法則と連続の式から導出される、1 次元非飽和・非定常浸透流解析における支配方程式（真島光保ほか, 1994）に基づいて解析した。化学劣化挙動に関しては、地下水へのセメント成分（主にカルシウム）の溶脱及びエトリングタイトの生成による表面組織の剥離を考慮した。低圧法によって硫酸塩濃度の高い模擬海水に浸漬した際のエトリングタイトの生成部の試料表面からの深さの進展を基礎データとして取得し、化学劣化深さと仮定した。

水浸透／化学劣化連成解析においては、C-S-H の溶脱は Glasser らの平衡反応と平衡定数（Glasser et al, 1994）を用いて解析を行った。

また、エトリングタイトの生成に伴う化学劣化厚さの評価は、エトリングタイトの膨張圧とその圧縮

応力 f とが等しいと仮定し、その場の空隙率 ε' との間に $\log f = -2\varepsilon' + 3$ の相関がある（セメント協会, 1985）こと、コンクリートの引張強度 f'_c は、圧縮強度 f_c との間に $f'_c = 0.35 \cdot f_c \cdot 0.5$ の関係がある（日本土木学会, 1996）ことを用いて、エトリングタイトの膨張圧がコンクリートの引張強度を上回ったときに破壊がおきると仮定して行った。ここで、エトリングタイトによる膨張破壊は通常表面層から徐々に内部に進行していくものであることを考慮して、廃棄体表面において破壊が起こった場合、その領域に相当する空間分を廃棄体肉厚から削除し、そのすぐ内側の層を廃棄体表面層に置き換えて、計算を続けることとした。

これら仮定及び設定に基づいて、水浸透距離及び化学劣化深さを解析した結果、図 19 に示すように、6 万年後で水浸透距離及び化学劣化深さがそれぞれ約 14cm, 約 4cm となり、C-14 を効果的に閉じ込めるのに十分な耐久性を有している可能性が示された。

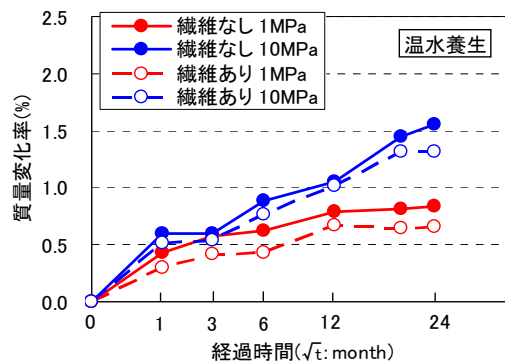


図-17 低水圧法での質量変化

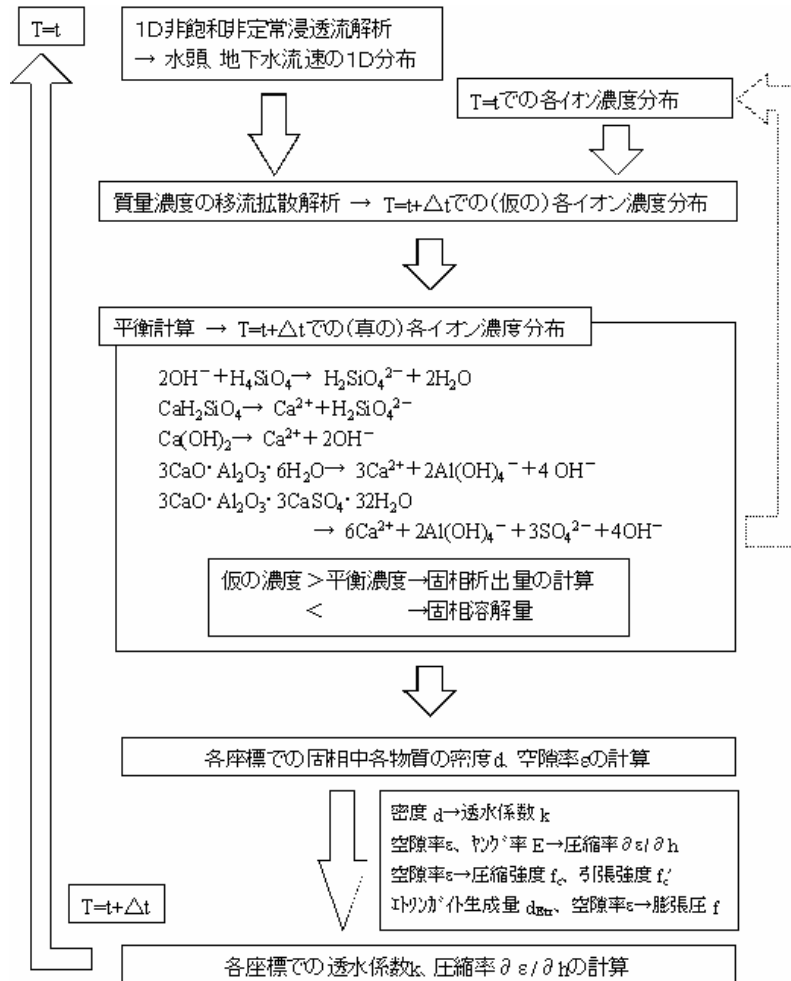


図-18 水浸透化学劣化連成解析のフロー図

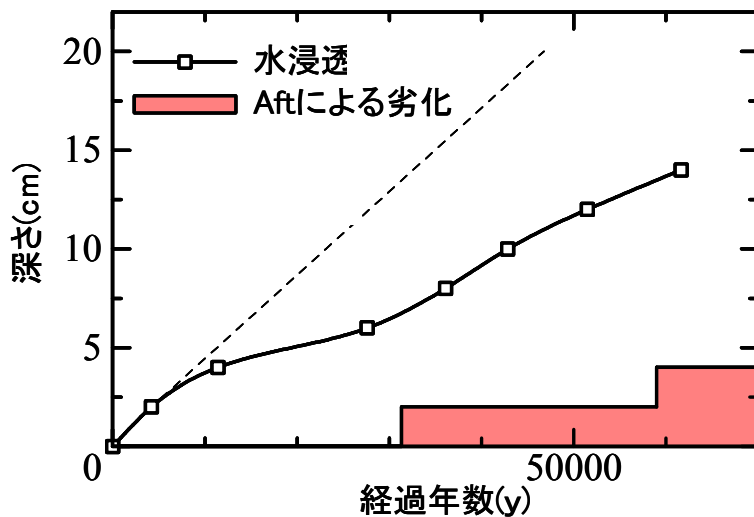


図-19 水浸透化学劣化連成解析結果

5. 金属容器

6 万年間の閉じ込め性を期待する金属容器である，廃棄体(5)は，図 20 に示すチタン合金と炭素鋼との複合容器を用いるものであり，閉じ込め性はチタン合金を用いた高耐食性密封容器によって担保する。また，ハンドリング時の落下や段積み荷重に対しては，炭素鋼製のハンドリング容器及び強度層で担保する。

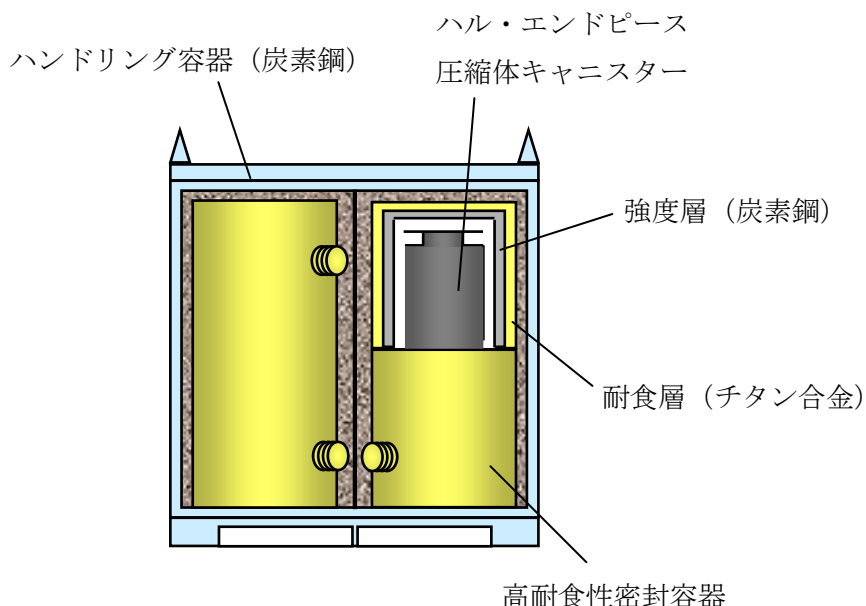


図-20 長期閉じ込め型パッケージ（金属容器）

5.1 特徴

この長期閉じ込め型パッケージ（金属容器）は，ハンドリング容器と密封容器とで機能分担し，さらに密封容器は，耐食層と強度層とで部材別に機能を分担している。耐食層には，高い耐食性を有する金属材料としてチタン合金を使用し，長期の腐食挙動を評価することにより，その閉じ込め性の検証を試みている。

長期閉じ込め性に関しては，チタン合金の高い耐腐食性を利用している。想定される処分環境条件における腐食形態の評価として，表 2 に示すように，処分場閉鎖後初期の酸化性雰囲気下に関する不働態健全性及びすき間腐食感受性と，閉鎖後一定期間経過後の還元性雰囲気下に関する，水素吸収に起因する水素化物層の成長と応力腐食割れ（以下，SCC とする）の進展とで，それぞれ評価している。

5.2 製作手法

廃棄体(5)の製作については，表 1 に示したとおり，既存の溶接技術での製作が可能な材料及び設計としている。とくに密封容器の製作に関しては，工場製作及びサイト内製作の工程，手順を検討し，各段階での製作技術上の課題を整理すると共に，図 21 に示すような容器構造，並びに表 3 に示すような施工方法を提示している。

表2 Ti-Pd合金の長期健全性評価の考え方

腐食形態	要求性能	選定基準
脱不働態化	感受性無し	電位評価
すきま腐食	感受性無し	$E_{SP} < E_{R,CREV}$
水素吸収に起因するSCC	目標期間内は発生しない	発生進展モデル

ESP: 自然腐食電位
ER,CREV: すき間腐食生起臨界電位

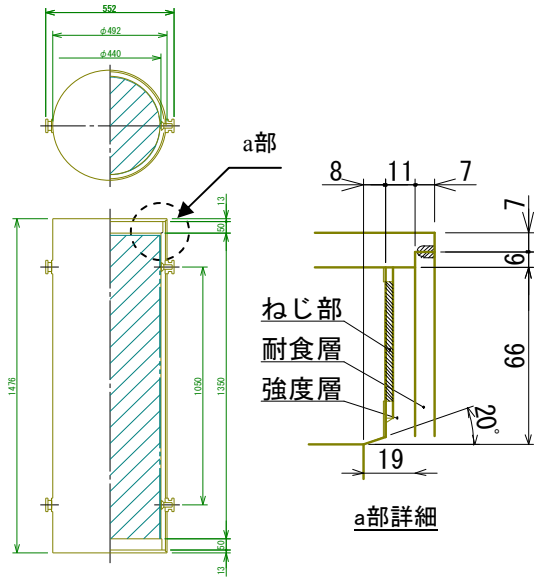


図-21 密封容器構造

表-3 耐食層・強度層の施工方法

材質	耐食層: Ti-Pd合金 強度層: SGV 410 (JIS G 3118)
耐食層の強度層への取付	胴: 圧延クラッド 蓋: 挿入法
耐食層・強度層の接合施工方法	強度層: 支圧面構造 / 平行ねじ方式 耐食層: 溶接
溶接施工	レーザ溶接 (第2候補: TIG溶接)

5.3 閉じ込め性

廃棄体(5)の耐食層で用いるチタン合金は、想定される処分環境条件において、幾つかの腐食形態による腐食が発生する可能性がある。したがって、長期閉じ込め性評価としては、図 22 に示す検討フローに基づき、それぞれの腐食形態に対して6万年間に渡って健全性を維持することが可能なチタン合金種の選定、評価を実施してきた。

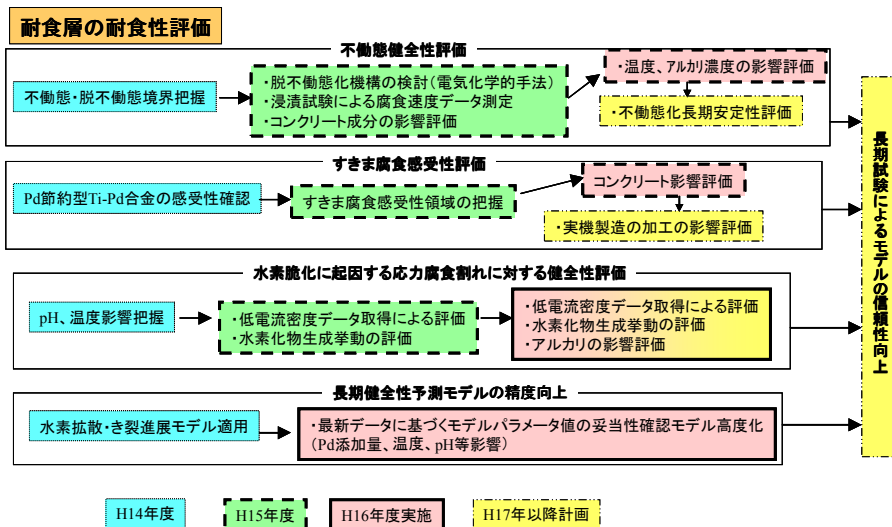


図-22 耐食層の耐食性評価検討フロー

5.3.1 不動態健全性評価

チタン合金は、その表面に不動態皮膜と呼ばれる緻密で強固な皮膜が生成するため、極めて微小な腐食速度を示す高耐食性金属である。しかし強酸性あるいは高アルカリ性環境下においては、脱不動態化することによって耐食性を失う可能性がある。廃棄体の処分環境として想定されるコンクリート環境は、高アルカリ性であり、さらに想定環境温度も 80°C と高温であることから、比較的厳しい条件であると言える。したがって、処分環境において、チタン合金が脱不動態化せず、十分な裕度をもって安定した不動態層を保つことの確認を行った。

図 23 は、工業用純チタンの不動態-脱不動態遷移図であり、TRU 処分環境下では、チタン合金が脱不動態化せず、健全な不動態層が維持されることを示している。また、図 24, 25 に示す結果は、高温及び高 pH 環境下では不動態保持電流密度は高くなるが、処分場内の温度変化を保守的に高めに見積もった場合でも、6 万年後の腐食減肉量は約 4mm であった。

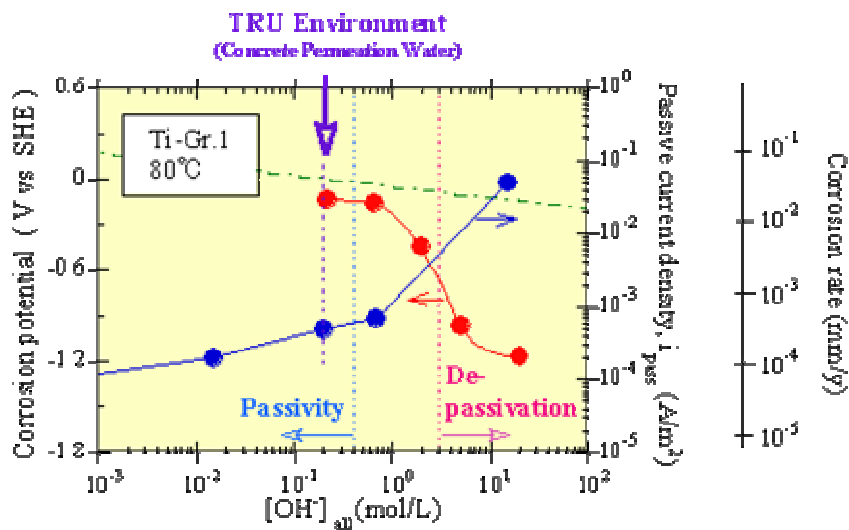


図-23 Ti-Gr. 1 の 80°C における不動態-脱不動態遷移

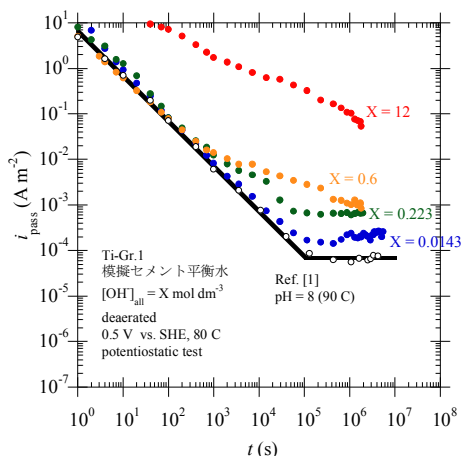


図-24 種々の $[OH^-]_{all}$ 条件の模擬コンクリート平衡水中で 0.5 V vs. SHE に定電位保持されたTi-Gr. 1の i_{pass} の時間依存性

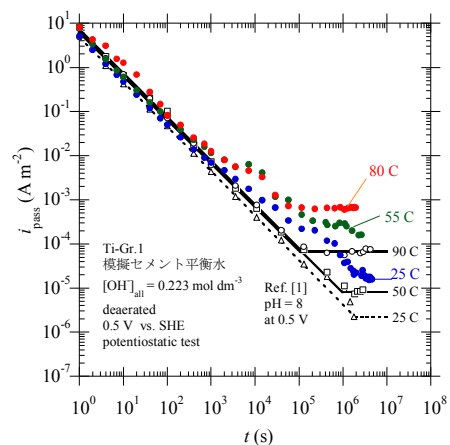


図-25 種々の温度条件の模擬コンクリート平衡水中で 0.5 V vs. SHE に定電位保持されたTi-Gr. 1の i_{pass} の時間依存性

5.3.2 すきま腐食感受性評価

すきま腐食は、すきま腐食生起臨界電位 ($E_{R, CREV}$) が想定処分環境の自然腐食電位 (E_{SP}) よりも低い場合に発生する。チタン合金が脱不動態化していない場合、自然腐食電位は pH 依存性がある

る。一方、すきま腐食生起臨界電位は、チタン合金種、温度、塩化物濃度などに依存する。工業用純チタン(Ti-Gr. 1)は想定処分環境ですきま腐食を起こす可能性が広く知られていることから、耐食性がTi-Gr. 1よりも高いPd (パラジウム) を添加したTi-Pd合金のすきま腐食感受性領域の作成を行い、想定処分環境ですきま腐食を起こさないことを確認すると共に、環境側の裕度(想定処分環境と腐食環境との離れ具合)を確認、評価した。

図26は、すきま腐食生起臨界電位 ($E_{R, CREV}$) のPd添加量依存性の関係を示しているが、Ti-Gr. 1の $E_{R, CREV}$ は低く、Pdを添加することによって、可使用温度が上昇することがわかった。また、図27に示す結果は、Ti-XPd合金のすきま腐食生起領域とTRU廃棄物の地層処分で想定される環境の比較を示した図であるが、TRU 想定処分環境上限である 80°C, 0.6mol/L[NaCl]条件では、Ti-Pd合金はすきま腐食を起こさないことが確認できた。

5.3.3 水素脆化に起因する応力腐食割れに対する健全性評価

チタン合金は、水素吸収によるSCCの可能性があることから、水素吸収とSCC発生の挙動を定量的に評価する必要がある。水素に起因するSCCに関しては、処分期間における想定環境下での水素発生量、並びに水素吸収量の見積を行い、水素化物の生成、水素化物層の成長(=水素化物層厚さ)及び水素化物層の割れ(=き裂深さ)を観察するほか、水素に起因するSCC発生臨界水素量の把握を実施した。その上で、水素に起因するSCCを生起しない条件(水素吸収量<SCC発生臨界水素量)で使用可能なチタン合金を確認、評価した。

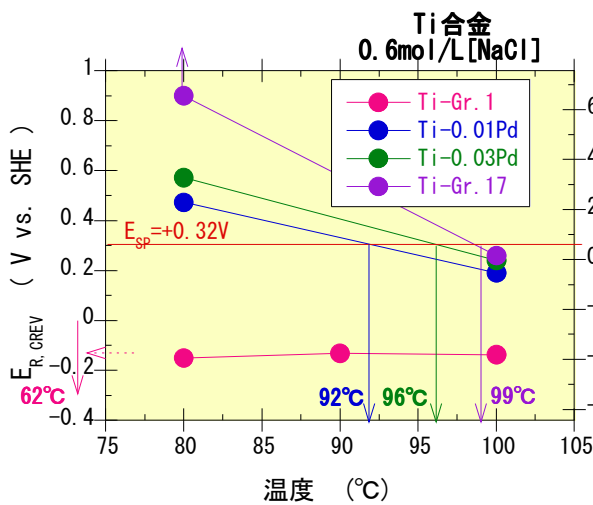


図-26 0.6mol/L[NaCl]環境における $E_{R, CREV}$ の温度依存性、及び $E_{sp}=+0.32V$ との比較によるすきま腐食生起下限温度の推定

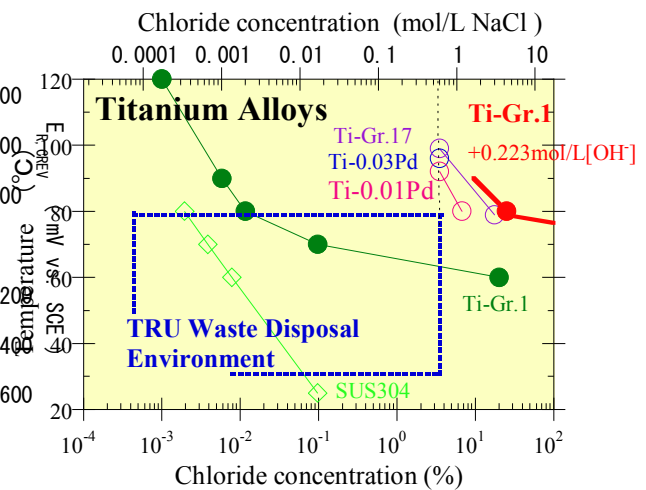


図-27 Ti合金のすきま腐食生起領域とTRU 想定処分環境の比較による確認

図28は、水素化物層の生成及びき裂の発生過程までの観察結果である。金属表面から水素化物層が形成、進展し、水素化物層厚さが破壊限界厚さ(〜10 μm)に到達すると水素化物層に割れが発生した後、き裂先端で露出した新生面から再び水素化物層が生成されるメカニズムを確認した。また、図29は、水素化物層厚さの電流密度依存性を示している。水素化物層厚さにおよぼす各種因子として、電流密度の低下、通電電気量の増加とともに水素化物層は厚くなることが確認できた。

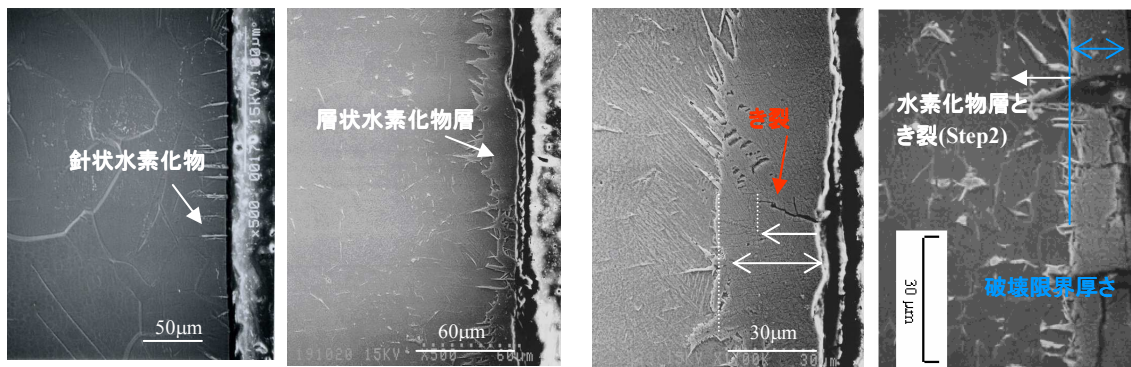


図-28 針状水素化物層の生成から層状水素化物層，き裂発生への移行過程

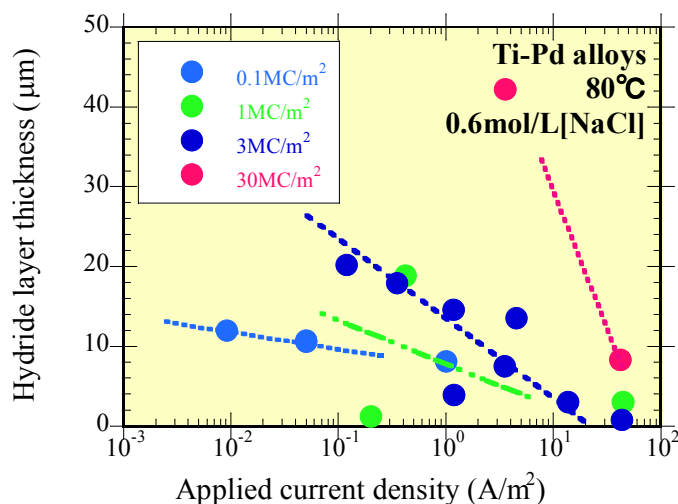


図-29 水素化物層厚さの電流密度依存性

5.3.4 長期健全性予測モデルの精度向上

想定処分環境における水素発生量の時間依存性，水素化物層厚さ及び SCC によるき裂深さの時間依存性から，チタン合金の水素化物生成挙動，並びに水素脆化に起因する SCC 発生・進展モデルを構築し，閉じ込めを期待する期間に水素に起因する SCC が発生しないことを確認，評価すると共に，基礎試験データを反映させた長期健全性予測モデルの精度向上を実施した。

既往の研究成果から，水素化物層厚さ δ と時間の平方根 $t^{1/2}$ の間には生成速度を A として，次式(1)の関係が成立することが分かった。

$$\delta = At^{0.5} \quad \dots (1)$$

また，水素化物層の生成速度 A と通電電流密度との関係は，次式 (2) の関係がある (図 30) ことが分かった。

$$A = 2A_0(i/i_0) \exp[-Q/RT] \quad \dots (2)$$

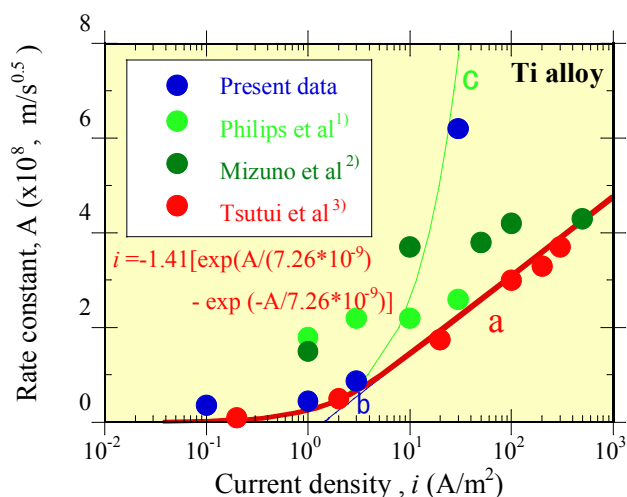


図-30 水素化物層の生成速度Aの電流密度依存性

これらに実験値を代入し、水素化物生成速度Aを最大 $2.01 \times 10^{-4} (\text{m/s}^{0.5})$ と評価した。水素化物層の生成速度は液性及び温度に依存するため、この値を用いて、処分場内の温度変遷を保守的に考慮したケースにおける6万年後の水素化物層厚さを求めたところ、約 $7 \mu\text{m}$ であった。また、処分場温度が6万年一定で 80°C に保たれたケースでの水素化物層厚さを求めたところ、約 $35 \mu\text{m}$ であった。

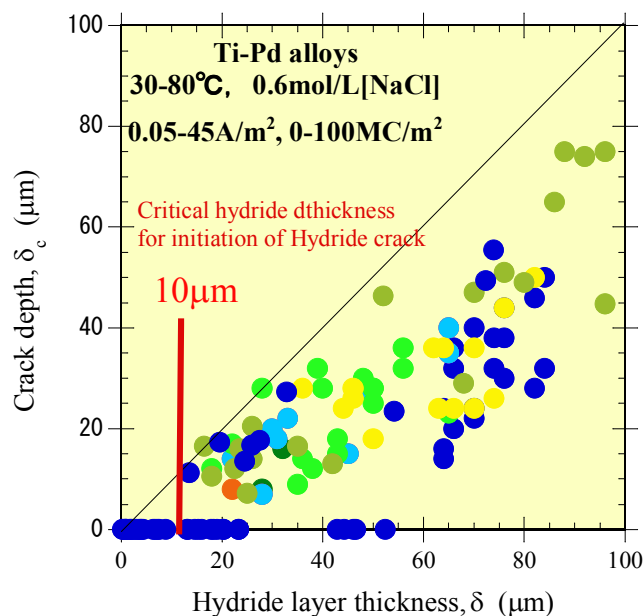


図-31 水素化物層厚さとき裂深さの関係

これらの結果を基に、SCCによる亀裂深さを考察した。図31は、水素化物層厚さとき裂深さとの関係を示すものである。SCCは水素化物層厚さが $10 \mu\text{m}$ 未満では発生しないことから、処分場内の温度変遷を保守的に考慮したケースではSCCの発生は起こらないことが予測された。また、

処分場温度が6万年一定で80°Cに保たれたケースについて、き裂進展を評価したところ、6万年後に予想されるき裂深さは約17μmであった。

以上までの長期閉じ込め性に関わる評価の結果、廃棄体(5)で設計した耐食層(チタン合金：厚さ7mm)は、6万年間の閉じ込め期間に対して、想定処分環境下で不動態保持時に想定される腐食深さ、すきま腐食、水素吸収に起因するSCCのいずれの腐食形態に関しても、十分な適用性を有することが示された。

6. 長期閉じ込めの性能評価への影響

上述のように、C-14への対策として、長期閉じ込め容器が開発されており、6万年間の閉じ込め可能性が示されている。ここでは、グループ2のハル・エンドピースに含まれるC-14の影響に対する長期閉じ込めの有効性について述べる。

図32は、結晶質岩形岩盤、透水係数 10^{-9} m/sのケースにおいて、閉じ込め期間を0年及び6万年としたケースでのニアフィールドからのC-14のフラックスを示したものである。図から明らかのように、長期(6万年)の閉じ込めにより、ニアフィールドからのC-14の放出率は約1/1000に低減されることがわかる。

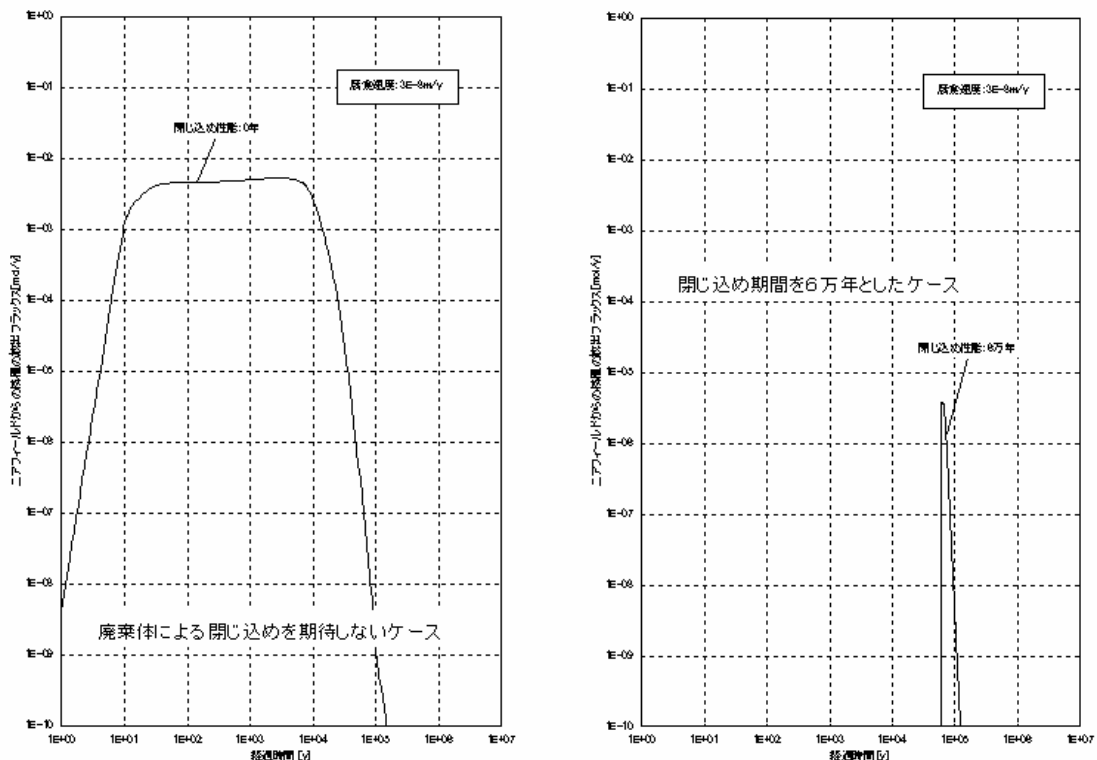


図-32 結晶質岩系岩盤，グループ2の閉じ込め期間なし及び6万年におけるC-14フラックス

7. 有機形 C-14 の無機化

前節では、長期閉じ込めによりその間に C-14 を減衰させその影響を低減する容器について述べた。ここでは、原子力環境整備促進・資金管理センターが行っている、廃棄体開発調査（原子力環境整備促進・資金管理センター，2005）において検討中の、光触媒を用いた有機形 C-14 を無機化による、影響低減技術について述べる。

7.1 特徴

有機形 C-14 は人工バリア及び天然バリアへの分配係数が極端に小さく、吸着による放射線影響低減を見込むことが難しいため、とくに有機形 C-14 を多く含むグループ 2 廃棄物においてその影響が大きい。これに対し、無機形態の C-14 は有機形のそれと比較して、各バリア材への分配係数が大きい。また、無機形態の C-14 は、処分場内のセメント系材料から溶脱するカルシウムとの反応により、 CaCO_2 などの沈殿を生成すると考えられるため、無機化により C-14 の影響を低減できるものと考えられる。

有機物の無機化は、主に紫外線等を用いた光触媒について広く知られ、実用化されている。光触媒材料には、無機化触媒として実用化されているもののうち、反応効率、化学的安定性、安全性などを考慮して、紫外線触媒として用いられる酸化チタンを選定し、光源を C-14 からの β 線とした、自己 β 線による触媒効果について検討した。

7.2 光触媒による有機形 C-14 の無機化

無機化要素試験では、図 33 に示す光触媒とダミー材とを、各々図 34 に示すように、2.5kBq/ml 及び 25kBq/ml の標識メタノール、標識ホルムアルデヒド、標識ギ酸溶液に浸漬し、有機 C-14、無機 C-14 の濃度の変化を取得した。その結果の一例を図 35 に示す。いずれの場合にも、図 36 と同様に開始後 100 日未満で、液相から有機 C-14 の 80%以上が除去された。いずれの場合でも、

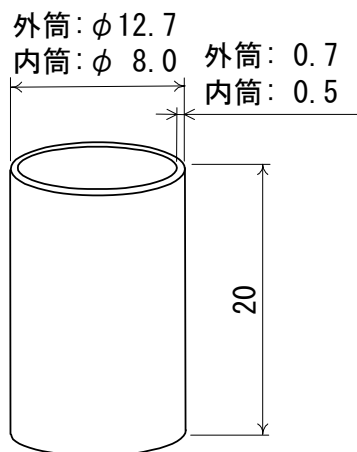


図-33 触媒材形状

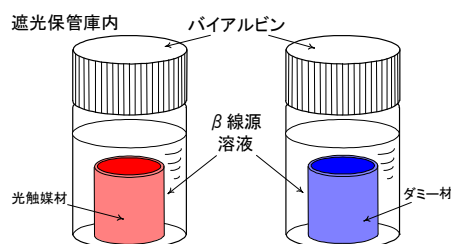


図-34 自己 β 線照射試験 模式図

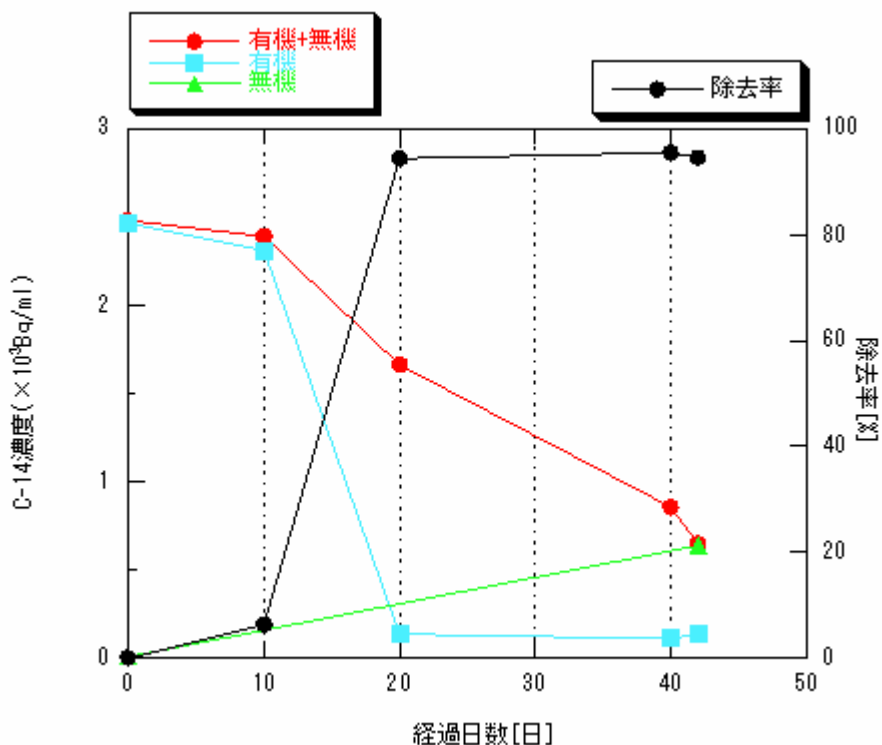


図-35 標識メタノール 2.5kBq/ml 溶液の光触媒による C-14 除去率の変化

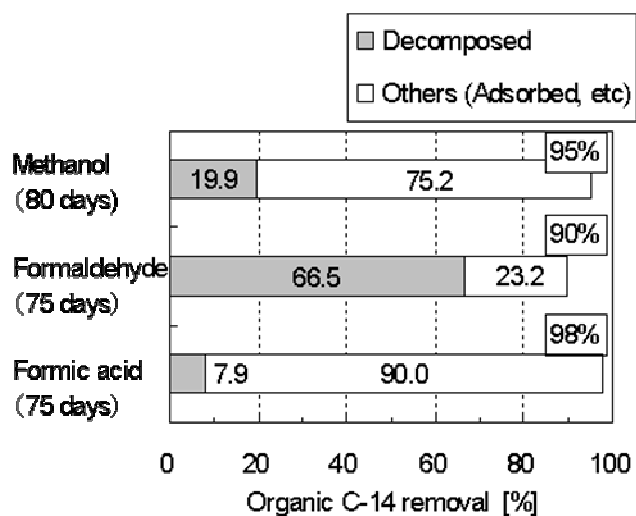


図-36 各有機形 C-14 の除去率と無機化率

図 36 に示すように、液相から除去された C-14 は、触媒表面への吸着等によって除去されたものが多いが、一部は無機化されたことが確認された。光触媒によるメタノール分解試験結果 (Jian Chen et al ,1999) 及び光触媒に吸着したエトキシエタノールの分解メカニズム検討 (Sadam Yamagata et al ,1989) をもとにした Chen らのメタノール分解メカニズム検討 (Jian Chen et al ,1999) によれば、光触媒によるメタノールの分解は、光触媒表面へのメタノールの吸着の後、触媒作用により、触媒表面で酸化され、ホルムアルデヒド、ギ酸を経て二酸化炭素となって脱着

する過程によるとされている。このことは、試験結果において収着等によって液相から除去された C-14 についても、触媒作用によって無機化され比較的短期間に無機化できる可能性を示している。

7.3 C-14 の無機化の性能評価への影響

図 37 に、光触媒効果を仮定した場合及び光触媒効果を仮定しない場合のニアフィールドからの C-14 のフラックスを示す。図から明らかなように、光触媒効果により、有機形 C-14 を無機化することで、人工バリアからの C-14 の放出を低減することが可能である。また、光触媒能を、室内試験の 1/100 とした場合でも、約 1 桁の影響低減が見込まれることから、図 38 のように、触媒の設置方法等により、触媒の有効な表面積が低下した場合等においても、効果が得られるものと考えられる。

8. 結論

グループ 2 廃棄物に含まれる C-14 の影響を低減するための代替技術として、廃棄体容器による C-14 の長期閉じ込め技術及び光触媒による有機形態の C-14 の無機化について検討し、それぞれ、長期閉じ込めの可能性及び C-14 の無機化の可能性を示した。

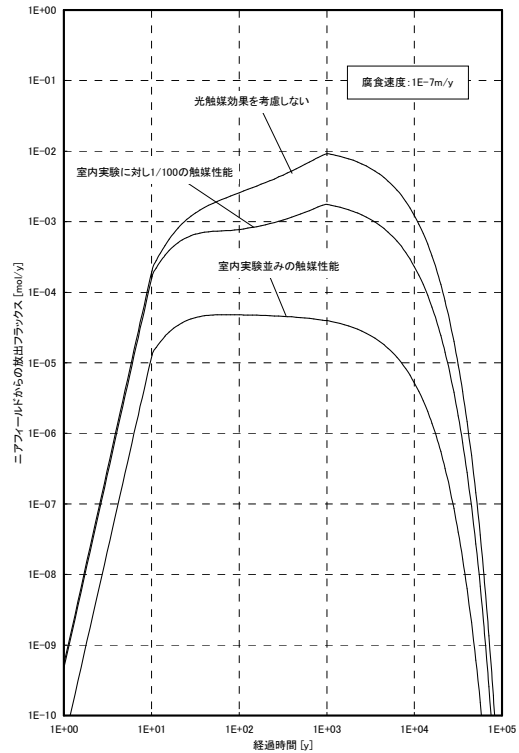


図-37 光触媒効果の有無による人工バリアからの C-14 フラックス

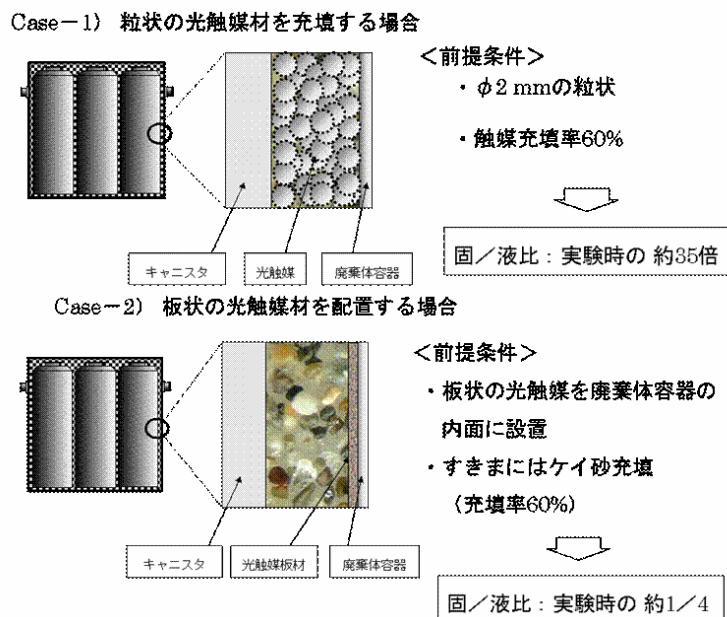


図-38 光触媒の配置と触媒表面積／液相比

参考文献

- 財団法人 原子力環境整備促進・資金管理センター(2005):平成 16 年度 地層処分技術調査等 TRU 廃棄物関連処分技術調査 廃棄体開発調査報告書.
- 真島光保ほか(1994):繊維補強セメント・コンクリート複合材料, 技報堂.
- Glasser, F. P., Atkins, M. (1994):Mater. Res. Soc. Bull., 33.
- セメント協会(1985):コンクリート技術者のためのセメント化学雑論, セメント協会, p59.
- 日本土木学会(1996):コンクリート標準示方書 [施工編], p190.
- Nakayama, G., Nakamura, N., Fukaya, Y., Akashi, M. and Ueda, H. (2003): Workshop “Prediction of Long Term Corrosion Behavior in Nuclear Waste Systems, EFC Number 36, p. 373-394, NANEY.
- Chen, J. et al. (1999):Photocatalyzed Oxidation of Alcohols and Organochlorides in the Presence of Native TiO₂ and Metallized TiO₂ Suspensions. Part (II): Photocatalytic Mechanisms, Water Research, Vol.33, No.3, pp.669-676.
- Yamagata, S. et al. (1989): Photocatalytic Decomposition of 2-Ethoxyethanol on Titanium Dioxide, Bull. Chem. Soc. Jpn., Vol.62, No.4, pp.1004-1010.

7-3 セメント原料の組成を調整した低アルカリ性セメント(7.4.1)

1. はじめに

第2次 TRU レポートでは、セメント系材料の高 pH 間隙水による影響を低減する対策として、7.4 において、低アルカリ性セメントについて紹介している。ここでは、低アルカリ性セメントのうち、セメントの組成を制御した低アルカリ性セメントについてその開発状況を述べる。

2. 概要

普通ポルトランドセメントが水和した場合には、 Ca(OH)_2 が生成され、この水和物が長期間にわたり間隙水の pH を 12.5 程度に維持する。セメント系材料の間隙水の pH を低減する方策としては、別途まとめるポゾラン材料を添加し、 Ca(OH)_2 の生成を抑える方法の他、セメントの組成を制御し、異なる鉱物組成の水和物を生成させる方法についても検討されている。Boden ら (2005) は主に岩盤の亀裂をシールするためのグラウト材として用いることを前提に、種々の低アルカリ性セメントについて検討を加えており、Super Sulphate Cement (以下「SSC」という) 及び、Low Alkalinity Cement (以下「LAC」という) についても検討されている。

ここでは、国内で検討されている低アルカリ性セメントである LAC についてその開発状況を述べる。

3. セメントの基本的コンセプト

本セメントの基本的コンセプトは、セメント原料の組成を制御することにより、間隙水が高 pH になる原因鉱物である Ca(OH)_2 等の鉱物の生成を抑制するものである。このような低アルカリ性セメントの例としては、ガラス繊維強化コンクリート中のガラス繊維の腐食を防止する目的で用いられるセメントなどの例があり、多くはカルシウムアルミネートやカルシウムサルフォアルミネートを主要鉱物とするものが多い (田中ほか, 1984; 原田ほか, 1979; 内田ほか, 1983)。LAC は、これらと同様のコンセプトをもとに人工バリア材用セメントとして用いるために適した pH となるよう、開発されている低アルカリ性セメントである (坂本ほか, 1996)。

表-1 アーウィン-ビーライト-フェライト-セッコウを原料としたクリンカーに含まれる鉱物の組成 (田熊ほか, 1996)

Clinker	Mineral composition (mass%)			
	C_2S	$\text{C}_3\text{A}_3 \cdot \text{CaSO}_4$	C_4AF	CaSO_4
A	35.0	35.0	10.0	20.0
B	16.8	53.6	4.4	25.3

間隙水の pH の低い水和物としては、エトリンガイト、ゲーレナイトハイドレート、トバモライト、ヒドロタルサイト及び低 Ca/Si 比の C-S-H ゲルがあげられる (Atkins ほか, 1992)。また、C-S-H ゲルの平衡時の pH は、その Ca/Si 比が小さくなるにつれて低下することが知られている (Fujii ほか, 1983 ; Greenberg ほか, 1965)。これらをもとに、表-1 に示すアーウィン-ビーライト-フェライト-セッコウを原料としたクリンカー (セメント原料を焼成したもの) に、高炉スラグ (以下、「BFS」という) を加えることにより、セメント材料の組成及び混合比を変化させることで、間隙水の pH の制御が試みられている (田熊ほか, 1996)。

図-1 に、坂本ら (1996) で得られたセメントの水和物の X 線回折のパターンを示す。図からわかるように LAC の硬化体に含まれる鉱物は、エトリンガイト、セッコウ等であり、pH の高い $\text{Ca}(\text{OH})_2$ や高 Ca/Si 比の C-S-H ゲル等を含まないものであった。また、浸出液の pH は、図-2 に示すように、BFS 量が少ないほど低かった (坂本ほか, 1996)。

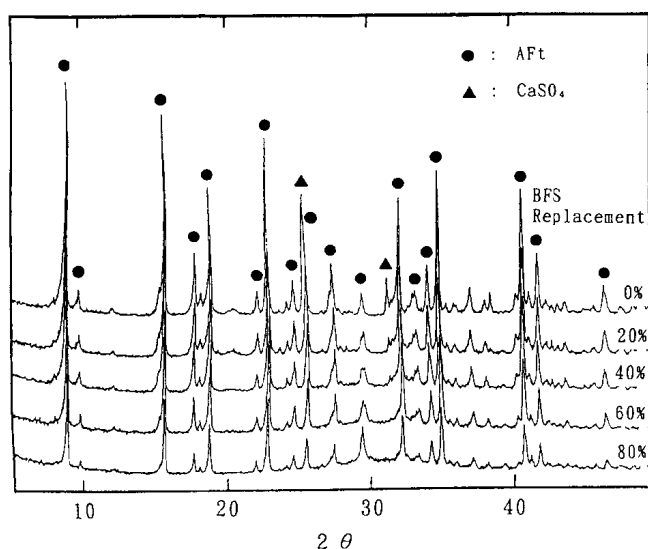


図-1 種々の BFS 添加量の LAC 水和物の XRD パターン (坂本ほか, 1996)

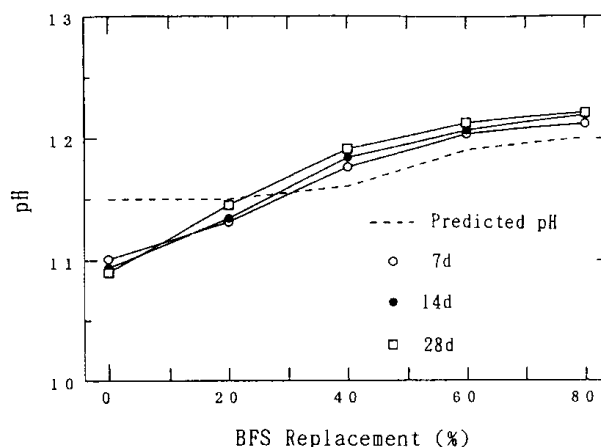


図-2 LAC の BFS 添加量と浸出液の pH との関係 (坂本ほか, 1996)

また、LACには、目的とする pH 領域ごとに異なる組成を持つものがある。ここでは、比較的 pH の低い LAC-C と、LAC-C にシリカフェームを添加し、さらに低アルカリ性化した LAC-S（藤田ほか、1998）を中心に、その性質について述べる。

4. LAC の特性

4.1 浸漬液の pH の変化

図-3 に LAC-C 及び LAC-S の浸漬液の pH の変化を示す。LAC-C 及び LAC-S のいずれにおいても、OPC 及び $\text{Ca}(\text{OH})_2$ の pH と比較して低い pH で推移しており、セメント原料組成の調整による低アルカリ性化の効果が示されている。

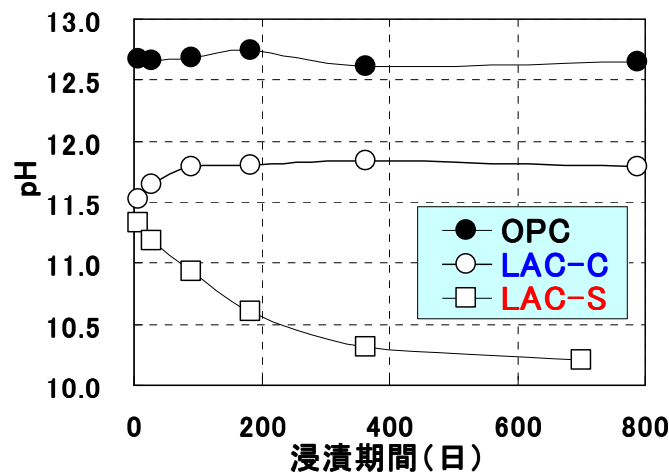


図-3 OPC, LAC-C 及び LAC-S の浸漬液の pH の変化（藤田ほか、1998）

4.2 機械的特性

図-4 に OPC 及び LAC-S の材令に伴う圧縮強度の変化を示す。LAC-S の強度は初期の材令においては OPC のそれと比較して低い値となっているが、材令を増すことにより、OPC のそれを上回ることがわかっている（藤田ほか、1998）。したがって、初期強度を必要とする吹付けコンクリート等の用途以外への適用は強度の面から問題はないものと考えられる。また、構造部材へ

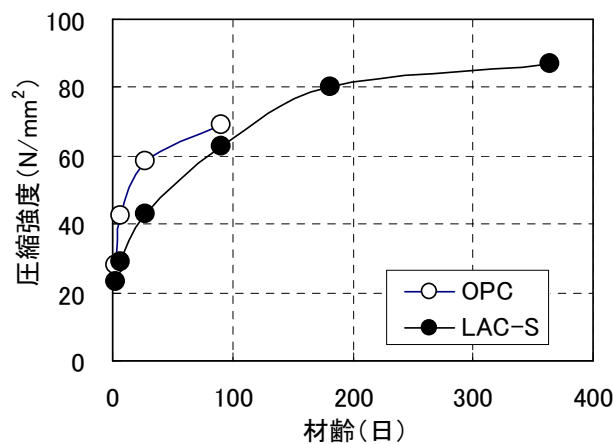


図-4 OPC 及び LAC-S の圧縮強度の変化（藤田ほか、1998）

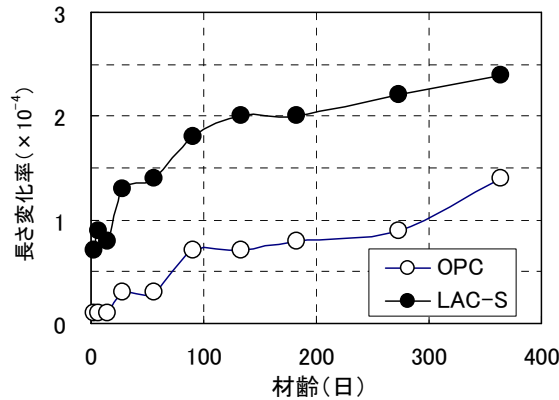


図-5 OPC 及び LAC-S の施工後の長さ変化 (藤田ほか, 2005)

の適用においてはひび割れ発生等の抑制の観点から、硬化時及び硬化後の寸法安定性も必要と考えられる。図-5 に藤田ら (2005) の測定した LAC-S の施工後の長さ変化を示す。LAC-S の施工後の寸法変化は OPC のそれと比較して大きい、長さ変化率は 3×10^{-4} 程度であり、構造物の構築上問題とならないものと考えられる。

4.3 発熱特性

セメント系材料は硬化時に水和熱を発生する。そのため、水和熱によって生じる温度差や温度応力によるひび割れの原因になるとともに、坑道内の温度上昇の原因にもなる。図-6 に藤田ら (2005) の測定した OPC 及び LAC-S の断熱温度上昇曲線を示す。LAC-S では、OPC と比較して低い温度上昇量で推移しており、発熱特性の面からは OPC を適用可能な部材、構造物に対する LAC-S の適用可能性が示されている。

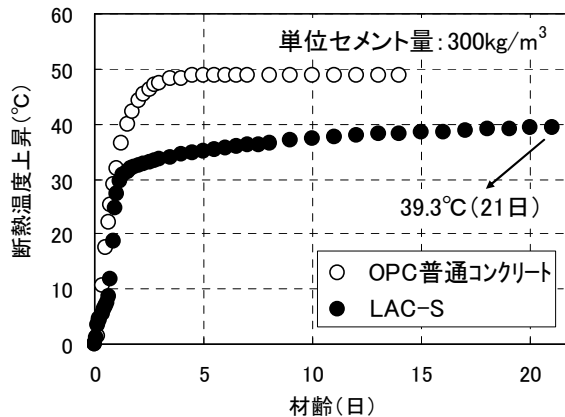


図-6 OPC 及び LAC-S の断熱温度上昇曲線 (藤田ほか, 2005)

4.4 熱物性

TRU 廃棄物の地層処分にあたっては、セメント系材料の変質を抑制する観点から、その温度上限値を 80°C としている。そのため、処分坑道の設計においてもその上限を超えないように材料及び構成が検討されている。セメント系材料の熱特性、とくに熱伝導率及び比熱は、廃棄物の発熱に伴う温度上昇を考える上で重要な物性である。

表-2 に藤田ら (2005) の、OPC 及び LAC-S の熱特性を示す。LAC-S の躯体コンクリートは、

表-2 LAC-S 及び OPC の熱物性値 (藤田ほか, 2005)

コンクリート種類	熱伝導率		熱拡散率 m ² /h	比熱	
	kcal/(m·h·°C)	W/(m·K)		kcal/(kg·°C)	J/(kg·K)
LAC-S 躯体	1.82	2.12	3.12×10^{-3}	0.256	1072
OPC 普通	1.3~3.1	—	$2 \sim 6 \times 10^{-3}$	0.22~0.24	—

OPC のそれと比較して、熱伝導率及び比熱ともに大きく、内部の温度が上昇しにくいことが示されており、温度上昇の観点からも、その適用可能性が示されている。

4.5 亀裂への充填性

処分場建設時及び閉鎖後の止水性を確保する目的で、岩盤等の亀裂部のセメント系のグラウト材の注入も考えられるが、岩盤を構成する鉱物と高アルカリ成分との反応等、評価上の不確実性を考慮した設計が必要となっている。そのため、種々の低アルカリ性セメントについて、グラウトとして用いるための基礎的な試験が行われている (Boden et al. 2005)。

その中で、LAC についても試験が行われており、その pH の変化等について示されている。

注入材として用いるためには、高い流動性とともに、可使用時間(練り混ぜから打設までの許容時間)の長さ等が要求される。そのため LAC についてはシュウ酸等の遅延材の使用が必要であるが、Boden et al. (2005)においては、有機物の影響を抑制する目的から遅延材の使用量を制限したため、良好な結果を得ることができておらず、材料の改良が必要であると結論づけている。

5. 結論

セメント原料の組成を制御した低アルカリ性セメントの例として、国内で開発されている LAC について、その諸特性についてまとめた。浸出液の pH の変化及び機械的特性、熱特性からは、LAC の適用可能性が示されたが、グラウト用途に関しては材料の改良が必要との知見が示された。

参考文献

- Atkins, M. , Glasser, F.P. and Kindness, A. (1992) : Cement Hydrate Phases: Solubility AT 25°C. Cem. Conc. Res., Vol.22, p241.
- Boden, A. and Sievanen, U. :Low-pH injection grout for deep repositories, SKB R-05-40.
- Fujii, K. and Kondo, W. (1983) : Estimation of Thermochemical Data for Calcium Silicate Hydrate (C-S-H), Communications of the American Ceramic Society, p220.
- 藤田英樹, 野口聡, 廣永道彦(1998):アーウィン系低アルカリセメントの開発—pH挙動に及ぼすシリカフューム添加の影響—, 日本原子力学会「1998秋の年会」, pp. 823.
- 藤田英樹, 廣長道彦, 小松進一, 稲継成文(2005):アーウィン系低アルカリ性セメントを用いたコンクリート及びモルタルの物理的特性, 日本原子力学会「2005春の年会」, p655.
- Greenberg, S.A. and Chan, T.N. (1965) : Investigation of the Colloidal Hydrated Calcium Silicates. II Solubility Relationships in the Calcium Oxide-Silica-Water System at 25°C, J.Phys Chem, Vol. 69, p182.
- 原田 宏, 太田 威, 須藤儀一(1979) : CaO-Al₂O₃-SO₃-SiO₂系クリンカーの生成反応と水和性状, セメント技術年報, 33, p95.
- 坂本浩幸, 芳賀和子, 柴田真仁, 藤田英樹, 小林久美子(1996) : 人工バリア用セメントの pH 調整, 日本原子力学会誌, Vol. 38, No. 4.
- 田熊靖久, 藤田英樹, 坂本浩幸, 小林久美子, 芳賀和子, 宇智田俊一郎 (1996) : アーウィン含有クリンカー—セッコウスラグ系セメントの水和反応と pH 挙動, 日本セラミックス協会学術論文誌, 104, 11, 1040.
- 田中光男, 内田郁夫, 桜田孝幸, 渡辺邦孝(1984) : けい酸石灰—アウイン—スラグ系低アルカリ性セメントを使用した G R C に関する研究, セメント技術年報, 38, p365.
- 内田郁夫, 相馬累司, 田中光男(1983) : けい酸石灰—アウイン—スラグ系低アルカリ性セメントに関する研究, セメント技術年報, 37, p41.

7-4 ポゾラン材料を多量に添加した低アルカリ性セメント(7.4.2)

1. はじめに

第2次 TRU レポートでは、セメント系材料の高 pH 間隙水による影響を低減する対策として、7.4 において、低アルカリ性セメントについて紹介している。ここでは、低アルカリ性セメントのうち、ポゾラン材料を大量に添加した低アルカリ性セメントについてその開発状況を述べる。

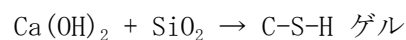
2. 概要

普通ポルトランドセメントが水和した場合には、水酸化カルシウムが生成され、この水和物が長期間にわたり間隙水の pH を 12.5 程度に維持する。このため、ポゾラン材料を添加することにより、水和初期において水酸化カルシウムの生成を低減させ、かつ生成されるカルシウム珪酸塩水和物 (C-S-H ゲル) のカルシウムとシリコンのモル比を低減させたセメントがこの低アルカリ性セメントである。ポゾラン材料として、石炭火力発電所から発生するフライアッシュ及び半導体の原料となるフェロシリコンアロイの生成の過程に発生するシリカフュームを多量に添加 (合計で 60wt%以上添加) している。これらの両材料は産業副産物であり、セメントに多量に添加し有効に利用することは重要である。特にフライアッシュについては、その有効利用を図るため 50wt%程度セメントに混合し、高流動コンクリートとして実構造物に適用した研究が行われている (成田・関野, 2003)。今後もこれらの産業副産物を多量に混合したコンクリートに関する研究が実施されるものと考えられる。

本報において、これまで開発を行ってきたフライアッシュを高含有させたシリカフュームセメント (HFSC:Highly Fly-ash contained Silicafume Cement) の開発状況について述べる。

3. セメントの基本的コンセプト

前述したように本セメントの基本的コンセプトは、フライアッシュやシリカフュームをセメントに混合することによりセメントの水和の際に生成する水酸化カルシウムを低カルシウム・シリコンモル比の C-S-H ゲルを生成させ、間隙水の pH を低下させるものである。このような反応はポゾラン反応と呼ばれている (荒井, 1991)。



シリカフュームは、そのほとんどが SiO_2 (98wt%以上) であり、非晶質かつ非常に大きな比表面積を持つこと (213,450 cm^2/g) から (大和田ほか, 1999)、上述したポゾラン反応が非常に早期に進む。一方、フライアッシュも非晶質な SiO_2 を有するものの、その含有率は 50%程度であり、比表面積は 2,000 cm^2/g 程度とシリカフュームの 100 分の 1 であり、ポゾラン反応は遅い。このため、フライアッシュを混合したコンクリートの 28 日材齢における強度は低いが、6 ヶ月以上の長期強度は普通コンクリートよりもまさるとされており、水和熱も低いのでマスコンクリート工事に適するとされている (荒井, 1991)。

ポゾラン反応を早期に進行させ、コンクリートの間隙水の pH を低減させるには、シリカフュー

ームの多量添加が考えられるが、上述したようにシリカフェームの比表面積は非常に大きいため、施工に必要な流動性が得られなくなる。このようなことを考慮して、本セメントの設計においては、普通ポルトランドセメントにシリカフェームの最大混合率を 20wt%にしている。フライアッシュの混合率を変化させ、表-1 に示す配合の HFSC を検討している。

表-1 HFSC の基本混合率 (単位:wt%)

	普通ポルトランドセメント	シリカフェーム	フライアッシュ
HFSC424	40	20	40
HFSC325	30	20	50
HFSC226	20	20	60

4. セメント硬化体の浸出液組成

4.1 HFSC424 の浸出液組成の変化

HFSC424 に対して、セメントを早期に完全に水和させることを目的として水セメント比 150%と大きく設定し練混ぜ硬化させた後、28 日間室温で養生させ 74 μm 以下に微粉碎したセメント硬化体試料を作製した。さらにフライアッシュのポゾラン反応の進行を促進させるために、60℃の恒温槽において約 40 日間養生させ浸出試験に供した。浸出試験の方法は、三原ら (1997) が実施したように、試料 50g に対して蒸留水を添加し、一定期間の後浸出液を蒸留水に交換し累積浸出液量にともなう浸出液の pH や主要元素濃度の変化を調べるものである。普通ポルトランドセメント及び HFSC424 硬化体の浸出液の pH の変化及び主要元素濃度の変化を図-1 に示す。

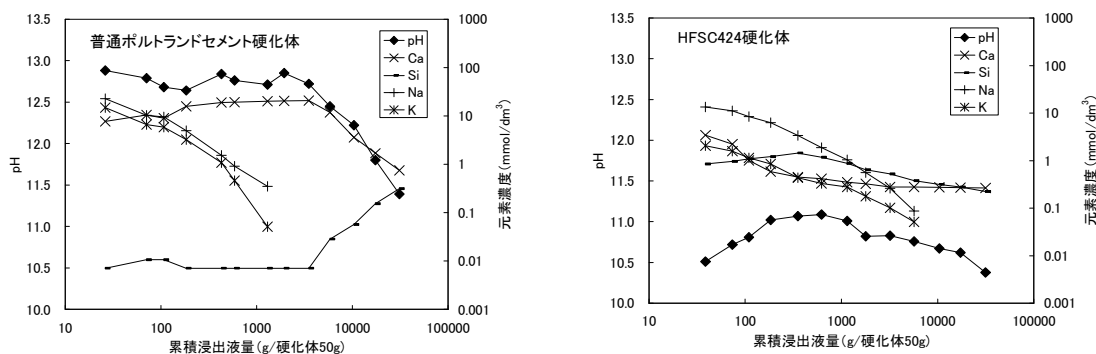


図-1 セメント硬化体の浸出液の変化

(左図：普通セメント，右図：HFSC424)

普通ポルトランドセメント硬化体の浸出液の pH は、セメントの水和物の水酸化カルシウムの平衡時の pH12.5 を上回る値であり、累積浸出液量が小さい時には、Na 及び K が元素濃度を支配し、累積浸出液量が 100g を超えると Ca が支配的となっている。それに対して HFSC424 の浸出液の pH は 11 程度であり、Na 及び K 濃度も普通ポルトランドセメント硬化体の値よりも低い。Ca 及び Si 濃度については、0.1~1mmol/dm³ で推移しており、普通ポルトランドセメント硬化体の浸出液の pH が 11.5 程度と水酸化カルシウムが溶出した時点での Ca 及び Si 濃度と良く類似している。このことは普通ポルトランドセメント硬化体の浸出過程のモデル化手法 (たとえば Atkinson, 1987 ; Bernner, 1988) を応用できることが示唆される。

Owada, et al. (1999) は化学平衡モデルを用いて HFSC 硬化体の浸出挙動についてモデル化を行っている。HFSC の硬化体は、普通ポルトランドセメント硬化体のアルカリ金属並びに Ca(OH)₂

がすべて浸出した後の状態を設定することにより概ねモデル化が可能であることが示されている。

4.2 HFSC 施工後における浸出液の pH の変化

4.1 においては、高水セメント比の試料かつポゾラン反応を促進させた条件において浸出試験を実施した。HFSC を施工後、実際に施工を想定した低水セメント比において浸出液の pH の低下挙動について調査を行なった（核燃料サイクル開発機構，2005）。水セメント比 40% の HFSC424，325 及び 226 硬化体について、20°C において、浸出液の pH 変化が調べられており、約 500 日後において、浸出液の pH は HFSC424 及び 325 で 11～11.5 程度であった。3.1 で述べたような pH になるまでには、より長期の期間を要するものと考えられる。HFSC424 の試験結果から得られた pH の時間依存性を直線近似することにより外挿すると pH が 11 以下に低下するには 10 年程度を要すると推定される（核燃料サイクル開発機構，2005）。この期間は、処分施設の操業期間の数十年に比べて短いものであり、処分施設閉鎖時点においては、pH はより低下するものと考えられる。吉田・三原は、HFSC の浸出液の pH 低下挙動について、シリカフェームの溶解速度を考慮した化学平衡論に基づく解析を行っており、最終的には HFSC424 及び 325 ともに浸出液の pH は 10.3 程度になることを示している（吉田・三原，2005）。

5. 充填モルタルへの適用性の検討

処分施設においては、様々な部位においてセメント系材料が使用されることが想定される。本章では廃棄体間の充填材への適用性について記載する。

充填材モルタルに要求される特性として主に①狭い隙間を流動可能な流動性、②材料を均一に保つための分離抵抗性が求められる。HFSC424 及び 325* に対して、流下時間及び簡易型の充填性試験の結果から配合を設定した。設定した充填モルタルの配合と流動性試験結果を表-2 に示す（大和田ほか，1999）。

表-2 充填モルタルの配合と流動性試験結果

	水セメント比	単位量 (kg/m ³)				フロー (mm)	流下時間 (秒)
		水	セメント	細骨材	混和剤添加量		
HFSC424	45	400	889	638	17.78	360	34
HFSC325	45	400	889	606	19.56	385	30

これらのモルタルを用いて、50cm 角の型枠に 15mm 以上の粗骨材を充填し、注入試験を行なった。試験体のコア抜きの結果から、ブリージングの影響とみられる骨材下面に微小な空隙が見られたものの、充填状況は両セメントともに良好であった。さらに、試験体の上部及び下部に対してコアを採取し、圧縮強度を測定したがその差は、1～2MPa と小さくほぼ均質なコンクリートとなっていることが確認された。モルタルの凝結時間、圧縮強度及びコア試料の圧縮強度を表-3 にまとめる。フライアッシュを多量に含む方が始発時間が長くなっている。モルタルの 28 日材齢以降の強度増加も見られる。

* 早強ポルトランドセメントを使用。

表-3 充填モルタルの凝結及び圧縮強度試験結果

	凝結時間 (時-分)		圧縮強度 (MPa) *1						
	始発	終結	2日	3日	7日	28日	91日	上部	下部
HFSC424	26-50	31-40	5.1	8.5	16.7	37.7	50.0	19.2	21.0
HFSC325	28-20	32-10	5.7	8.2	12.3	26.4	39.8	18.1	19.0

*1: 上部, 下部については, 28日材齢のコア試料 (φ10×20cm), その他については φ5×10cm のモルタル試料

6. 高流動コンクリートへの適用性の検討

処分施設は, 地下数百メートルであり, コンクリート施工時における締め固めは容易ではない。このため, 締め固め不要でかつ自己充填型の高流動コンクリートへの適用性について検討を行なった。高流動コンクリートは, 処分施設における構造物, トンネルの二次覆工及びセグメントへの適用が想定される。

高流動コンクリートの配合として, 粉体系, 増粘剤系及び併用系がある(土木学会, 2002)が増粘剤として有機系の材料が主流である。処分施設における長期の評価を単純化させるため, 有機系の材料を極力使用しない方が好ましい。このため, 前者の粉体系の高流動コンクリートへの適用性を検討した(大和田ほか, 1999)。

検討された高流動コンクリートの配合を表-4に示す。水セメント比を30%とし, 単位コンクリートあたりの粉体量を500kgとし, 必要な流動性を得るために, セメント重量に対して3wt%の高性能AE減水剤を要した。

表-4 高流動コンクリートの配合と流動性試験結果

	水セメント比	単位量 (kg/m ³)					スランプフロー (cm)	○漏斗流下時間 (秒)
		水	セメント	細骨材	粗骨材	混和剤添加量		
HFSC424	30	150	500	906	750	15.0	72.5	5.9
HFSC325	30	150	500	896	741	15.0	73.5	6.0

ここで示した高流動コンクリートについて, 50cm角のU字型構造物に対して一方向からのコンクリートの打設を行い, 充填性が良好であることが確認された(大和田ほか, 1999)。高流動コンクリートの凝結時間, 圧縮強度及びU字型構造物のコア試料の圧縮強度(28日材齢)を表-5に示す。

表-5 高流動コンクリートの凝結及び圧縮強度試験結果

	凝結時間 (時-分)		圧縮強度 (MPa) *2							
	始発	終結	2日	3日	7日	28日	91日	流入側	底面	流出側
HFSC424	25-15	27-40	14.3	22.8	38.0	69.4	105.7	65.6	66.9	71.9
HFSC325	26-50	29-05	14.5	21.3	32.5	63.4	93.5	60.9	58.1	61.0

*1: 流入側, 底面, 流出面については, U字型構造物 28日材齢のコア試料 (φ10×20cm)

凝結時間は充填モルタルと同程度であり、圧縮強度は水セメント比を小さく設定したため、91日材齢で100MPa程度と非常に高強度となっている。コア試料の強度は、流入、底面及び流出側で大きな差は見られなかった。

さらに、これらの高流動コンクリートに対して乾燥収縮試験及び断熱温度上昇試験を実施した。乾燥収縮については、材齢91日までにおいて、高流動の普通コンクリートの報告値とほぼ同程度の値であった（大和田ほか，1999）。断熱温度上昇については、HFSCはフライアッシュを多量に使用しているため終局断熱温度上昇量は小さく、同じ単位セメント量の普通コンクリートの70%程度の値であった。このことから、HFSCは、処分施設におけるマスコンクリートとしての使用の可能性がある。

7. セグメント及び吹き付けコンクリートへの適用

6.で示した高流動コンクリートの配合を参考とし、実規模のトンネルセグメントの試作を行った。試験体の形状は外径5600mm×厚さ250mm×幅1200mmの円弧形とし、セグメントの製作工場でHFSC226を用いたコンクリートを鋼製型枠に打込んで脱枠し製作した（核燃料サイクル開発機構，2002）。試作したセグメントを図-2(左図)に示す。作製において大きな問題は見られなかった。セグメントを1年間気中及び水中養生後に、2点集中荷重载荷による曲げ破壊試験に供した。両養生条件において設計上必要なひび割れ発生強度や破壊強度を有し、破壊性状も一般的なものとほとんど変わらないことを確認した（中山ほか，2004）。

吹き付けコンクリートについては、現状のHFSCでは吹き付けに必要な初期の付着強度が発現しにくいいため、急結剤を添加した。セメントの配合はHFSC424, 325, 226を用い、吹き付けコンクリートのため水セメント比として50%を選定した。急結剤は普通セメントに用いられている市販のカルシウムサルフォアルミネート系の無機材料のうちpHが10~11のものを使用した。検討した配合を基に実際に、模擬トンネルの壁面にHFSCを用いたコンクリートへの吹き付け試験を行なった。図-2(右図)に吹き付けコンクリートの施工状況を示す。付着をはじめ圧送・リバウンド・粉塵の各性状が普通セメントの吹き付けコンクリートと同等であり、施工可能なことを確認した（核燃料サイクル開発機構，2005）。



図-2 セグメント及び吹き付けコンクリートの施工状況
(左図：セグメント，右図：吹き付けコンクリート)

8. 硬化セメント系材料の諸性質

これまで得られた HFSC 系材料（モルタル及びコンクリート）の諸特性について、上述した内容も含めデータを整理する。

充填モルタル及び高流動コンクリートの一軸圧縮強度及びモルタルのクリープひずみの経時変化を図-3 に示す。強度については、モルタルとコンクリートの違いはあるが、水セメント比を 45%から 30%とすることで、一軸圧縮強度が 2 倍程度と大きくなっている。クリープひずみについては、水セメント比 45%のモルタルについてのデータである。HFSC のクリープひずみが普通セメント（OPC）に対して小さいことが分かる。

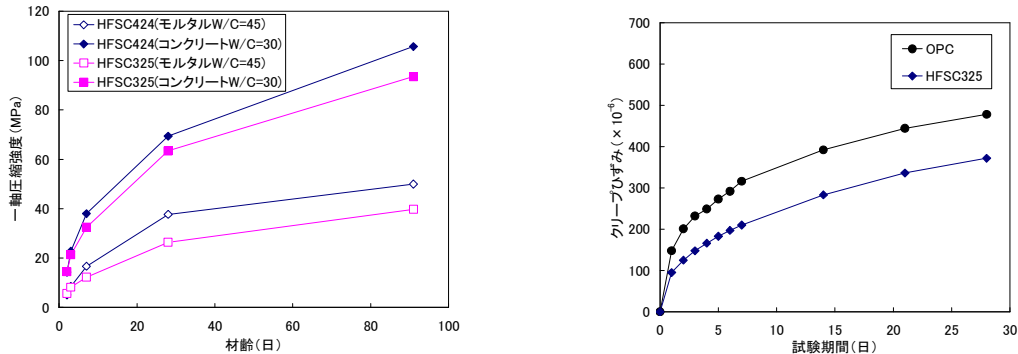


図-3 一軸圧縮強度とクリープひずみの経時変化
(HFSC325 については早強ポルトランドセメントを使用)
(左図：一軸圧縮強度，右図：クリープひずみ)

高流動コンクリートに対して取得した乾燥収縮及び自己収縮の測定結果を図-4 に示す。これらの値は、水セメント比 30%のコンクリートに対する結果である。両 HFSC の乾燥収縮ひずみは、試験期間 91 日において 500~600×10⁻⁶であり OPC の値とほぼ同程度の値であった。自己収縮ひずみについては HFSC の値は 1 週間ではほぼ一定となり、試験期間 91 日において 100~200×10⁻⁶であった。これらの値は OPC のものより小さかった。

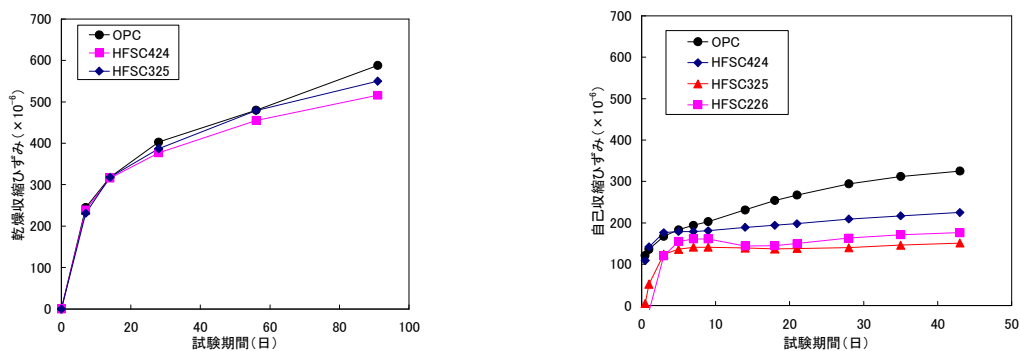


図-4 乾燥収縮ひずみ及び自己収縮ひずみの経時変化
(左図：乾燥収縮 (HFSC325 については早強ポルトランドセメントを使用)
, 右図：自己収縮)

塩分の浸透については、水セメント比 30%のコンクリートを 28 日間水中養生した後、ASTM の模擬海水相当の溶液に 91 日間浸漬し、コンクリート中の塩化物イオン濃度の分布を測定した結果を図-5 に示す。OPC, HFSC424 及び 325 については、HFSC424 及び 325 における浸透深さ 0.5cm における塩分の浸透量が OPC と比較して大きいですが、浸透深さ 1.5cm になるとコンクリート初期に含まれる塩分量と同オーダーの量であった。しかしながら、HFSC226 については、他のコンクリートに比べ塩分の浸透量は大きい（入矢ほか、2003）。HFSC226 は、フライアッシュを 60%混合しており、普通ポルトランドセメント量が小さい。フライアッシュのポゾラン反応には時間を要するとともに、ポゾラン反応に必要な水酸化カルシウムが不足し、ポゾラン反応が進行していないため、他のコンクリートに比べ空隙率が高くなっている可能性がある。

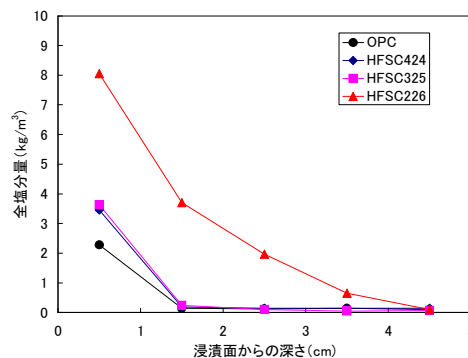


図-5 各コンクリートの塩分浸透状況

鉄筋を埋設した HFSC226 のコンクリート供試体を 3 年間海水に暴露した結果によると、1 年目で鉄筋の表面積の 6%に腐食がみられたが、3 年目においては、腐食面積は 1 年目とほぼ変わらなかった。鉄筋の腐食は塩分が浸透していないコンクリートにおいても確認されていた（核燃料サイクル開発機構、2005）。このことは、HFSC226 は、外部からの酸素が供給されやすいコンクリートであることを示唆している。時間が経つに伴い鉄筋の腐食が低減する可能性があるが、HFSC226 を鉄筋コンクリートとして用いる場合には、酸素の供給によって腐食しにくいステンレス鋼などの鉄筋を用いるなどの対策が必要になる可能性がある。

9. 結論

これまで実施してきた試験結果より HFSC コンクリートは、力学特性や施行特性等において OPC と同程度かそれ以上の特性を有していることが確認された。HFSC におけるポゾラン反応は、数十年かけて進行していき、長期的には間隙水の pH は 10 程度になることが考えられる。鉄筋コンクリートとして HFSC を使用する場合には、フライアッシュの混合率に注意を有する。今後は、処分施設の各部位に要求される機能に応じて HFSC の配合を検討していく必要がある。さらに、このようなコンクリートの施工実績がないため、地下研究施設等における施工試験によって施工に関わるデータを蓄積する必要がある。

参考文献

- 成田健, 関野一男(2003): "フライアッシュを多量に使用した高流動コンクリートの配合設計法と性状に関する研究", コンクリート工学論文集, 第14巻第1号, p. 43-56.
- 荒井康夫(1991): "セメントの材料科学 改訂2版", 大日本図書.
- 大和田仁, 三原守弘, 入矢桂史郎, 松井淳(2000): 放射性廃棄物地層処分システムにおけるセメント系材料の検討 - 浸出液のpHを低くしたセメント系材料の施工性と機械的特性-, サイクル開発機構技術資料, JNC TN8400 99-057.
- 三原守弘, 入矢桂史郎ほか(1997): シリカフュームを混合したセメントペーストの浸出試験とモデル化, 放射性廃棄物研究, vol. 3, No. 2, 71.
- Owada, H., Mihara, M., Tatsuya, M., Neyama, A., Iriya, K. and Arimoto, T. (1999): The geochemical modeling study on leaching behavior of HFSC for cementitious radioactive waste repository, Proceedings of ICEM'99, 1087.
- 核燃料サイクル開発機構: "高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する知識基盤の構築 平成17年度取りまとめ ドラフト一分冊2 工学技術の開発-", JNC TN1400 2005-004.
- 吉田泰, 三原守弘(2005): 低アルカリ性セメント (HFSC) 硬化体浸出液のpH低下挙動に関する研究 - HFSC のポゾラン反応を考慮したモデル化, サイクル開発機構技術資料, JNC TN8400 2005-xxx.
- 土木学会(2002): 【2002年制定】コンクリート標準示方書[施工編], 丸善.
- 中山雅, 藤島敦, 入矢桂史郎, 栗原雄二(2004): ポゾラン反応を利用した低アルカリ性セメントの開発, 原子力学会北海道支部第22回研究発表会講演要旨集, pp. 18-19.
- 入矢桂史郎, 藤井健介, 田島孝敏, 竹田宣典, 久保博(2003): 低アルカリ性コンクリートの実用性試験及び変質評価, JNC TJ8400 2003-062.