

本資料は 年 月 日付けで登録区分、
変更する。 2001. 6. 20

[技術情報室]

地層処分における緩衝材に関する研究(II)

(昭和57年度)

1983年2月

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

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

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

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2001

りて

複製，

地層処分における緩衝材に関する研究(II)
(昭和57年度)

1983年2月

財団法人 工業開発研究所



「地層処分における緩衝材に関する研究(Ⅱ)」※

(昭和57年度)

藤田 矩彦 ※※

要 旨

ベントナイト、ゼオライト、石英砂混合系を対象として、透水性、核種移行性、熱的状态の検討及び粘土鉱物、沸石の熱的安定性に関する調査を行ない、次の結果を得た。

1. ベントナイトにゼオライト、石英砂を各々50%、70%混合してもその中における核種の移行過程は拡散支配と考えることができる。またベントナイトにおけるクラックの自己シール性を確認した。
2. 圧密状態と分散状態とで Cs^+ と Sr^{2+} の k_d 値に大きな差はない(ファクター10)。
 Cs にはゼオライトが有効であり、 Sr^{2+} に対しては他の添加物を検討する必要がある。
3. 乾燥状態の熱伝導度は石英砂混合により $1w/m \cdot deg$ まで増加し、ゼオライトの添加につれて漸減する。現在最も確からしいデータから処分地における熱史とベントナイトの変成を検討すると、貯蔵期間として50年が必要である。
4. 乾燥加熱に対しては、ベントナイトではNa型、ゼオライトではモルデナイト、クリノタイロライトが優れている。湿潤状態では溶液条件、材料組成により種々の影響を受ける。
今後の課題を次に列挙する。
 - 乾燥時の水の浸入速度
 - TRU及びアニオンの移行
 - 微小粒子の熱伝導データの蓄積と解析法
 - 温度場シミュレーションの精密化
 - 熱的安定性に関するデータの蓄積と変成後の物性の評価

※ 本報告書は(財)工業開発研究所が動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究の結果である。

※※ (財)工業開発研究所

Buffer Material as an Engineered Barrier in the Waste Repository System*

Norihiko Fujita**

Abstract

Through an experimental characterization on a mixed minerals of bentonite, zeolite and quartz, the following results were obtained on the permeability, the thermal stability and the ability of retarding the radionuclei movement.

- (1) It was confirmed that the diffusion process controls the transportation of radionuclei even through such mixtures as bentonite 30%/quartz 70% and bentonite 50%/zeolite 50%, and that bentonite exhibits a self-seal function for cracks as well.
- (2) The k_d values for Cs^+ and Sr^{2+} obtained through diffusion test showed almost the same order of magnitude as those through batch sorption test. And, zeolite was determined to be an effective additive to bentonite for Cs^+ absorption, while some others are to be examined for Sr^{2+} .
- (3) Thermal conductivity of an air-dried bentonite increased up to 1 W/m·deg with quartz content, whereas, on the contrary, it slightly decreased with zeolite content. The literature survey and pertinent simulation on the thermal history and the alteration process of bentonite revealed that more than 50 years are necessary before a final desposal of waste.
- (4) Na-bentonite, mordenite and clinoptilolite are more resistant to heating under a dry condition than other types of bentonite and zeolite. Meanwhile, the chemical composition both of hydrothermal solution and the clay minerals exerts a complex influence on the alteration mechanism under a wet condition.

Items to be studied hereafter are as follows: (i) the intrusion velocity of water into a dry material; (ii) the migration mechanism of TRU elements and anions; (iii) measurement and simulative analysis of heat transfer through a packed fine granule.

*) : Work performed by Industrial Research Institute, Japan under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

**) : Industrial Research Institute, Japan

目 次

	(頁)
§ 1. 緒 言	1
§ 2. 緩衝材特性試験のための材料	8
§ 3. 地下水及び核種の移行の検討	12
3.1 透水性試験	12
3.1.1 混合の影響	12
3.1.2 クラックの影響	26
3.2 核種移行試験	31
3.2.1 数式モデル	31
3.2.2 実験装置	33
3.2.3 実験方法	35
3.2.4 結果及び考察	42
§ 4. 熱的状态の検討	63
4.1 熱伝導度測定	63
4.1.1 測定方法と装置	63
4.1.2 結果及び考察	65
4.2 緩衝材の熱史に関する試算	73
4.2.1 定常状態における各部の温度の算出	74
4.2.2 計算結果の適用	76
4.2.3 ベントナイト質緩衝材の安全な使用条件	77
§ 5. 粘土鉱物及び沸石類の熱変成	83
5.1 “Dry”な条件下でのスメクタイトの熱変成	83
5.1.1 スメクタイトの脱水	83
5.1.2 脱水に伴う物性変化	90
5.1.3 天然での実例	99
5.2 “Wet (Hydrothermal)”な条件下での熱変成	100
5.2.1 混合層鉱物とは	100
5.2.2 スメクタイトとマイカ／スメクタイト混合層鉱物の安定性	105
5.2.3 スメクタイトの変化の速度論的考察	108
5.2.4 混合層形成に伴う物質の移動	114
5.2.5 混合層鉱物の変化に伴う物性変化	126
5.3 沸石類の熱変成	128
§ 6. 最適化に向けて	139
6.1 緩衝材に要求される性能	139
6.2 緩衝材の設計	141
6.3 今後の課題	147
§ 7. 総 括	149

FIGURE

Fig. 1.1.	The functions of the different barriers.....	2
3.1.1.	Blockdiagram to measure permeability and swelling pressure.....	13
3.1.2.	The permeability cell.....	13
3.1.3.	The hydraulic system to maintain the sample volume constant and to measure the swelling pressure.....	14
3.1.4.	K of bentonite/zeolite media.....	18
3.1.5.	K of bentonite/quartz media.....	19
3.1.6.	K of bentonite/quartz/zeolite(10%) media.....	20
3.1.7.	K_A values estimated under bentonite density in mixture.....	22
3.1.8.	The dependency of K of zeolite and quartz sand on hydraulic gradient.....	28
3.1.9.	Change of permeability through bentonite with artificial crack.....	30
3.2.1.	Schematic diagram for migration test apparatus.....	34
3.2.2.	Diffusion column for migration tests.....	34
3.2.3.	Variation of water-solid ratio with distance in Na-bentonite.....	36
3.2.4.	Variation of water-solid ratio with distance in Na-bentonite 70% / quartz 30% mixture.....	37
3.2.5.	Variation of water-solid ratio with distance in Na-bentonite 60% / zeolite 40% mixture.....	38
3.2.6.	Variation of water-solid ratio with distance in Na-bentonite 40% / zeolite 60% mixture.....	39
3.2.7.	Variation of water-solid ratio with distance in Na-bentonite 80% / zeolite 20% mixture.....	40
3.2.8.	Variation of water-solid ratio with distance in Na-bentonite 30%/quartz 70% mixture.....	41
3.2.9.	Sr concentration profile in Na-bentonite(100%).....	44

Fig. 3.2.10.	Sr. concentration profile in Na-bentonite 60% zeolite 40%.....	45
3.2.11.	Sr. concentration profile in Na-bentonite 40% zeolite 60%.....	48
3.2.12.	Sr concentration profile in Na-bentonite 30% quartz 70%.....	47
3.2.13.	Cs concentration profile in Na-bentonite(100%)...	48
3.2.14.	Cs concentration profile in Na-bentonite 60% zeolite 40%.....	49
3.2.15	Cs concentration profile in Na-bentonite 70%..... & quartz 30%	50
3.2.16	Effects of Peclet group, distribution ratio, and diffusivity ratio on height of a transfer unit or reaction unit.....	51
3.2.17.	Variation of k_d with zeolite content.....	53
3.2.18.	Variation of k_d with quartz content.....	54
3.2.19.	Break-through curves of Sr^{2+} in 0.2 m thick media.....	56
3.2.20.	Break-through curves of Cs^+ in 0.2 m thick media.....	57
3.2.21.	The dependence of Sr^{2+} break-through time on thickness of media. Break-through is defined by $c/c_0=0.01$	58
3.2.22.	The dependence of Cs^+ break-through time on thickness of media. Break-through is defined by $c/c_0=0.01$	59
3.2.23.	The dependence of Sr^{2+} break-through time through 0.2 m thick media on packing density.....	60
3.2.24.	The dependence of Cs^+ break-through time through 0.2 m thick media on packing density.....	61
4.1.1.	Cell of conductivity measurement.....	65
4.1.2.	Variation of thermal conductivity with material density and linear power density of heater.....	68
4.1.3.	Heat transfer model in packed bed.....	68
4.1.4.	ϕ versus k_s/kg	71
4.1.5.	k_e/k_s versus k_s/kg (measured and calculated value).....	71

Fig. 4.1.6.	Thermal conductivity of mixed minerals.....	72
4.2.1.	Configuration of canister employed in the simulation.....	75
4.2.2.	Conceptual configuration of engineered barrier in repository.....	75
4.2.3.	Thermal stability assessment for buffer.....	81
5.1.1.(a)	Diagrammatic sketch of the structure of smectite according to Hofmann, Endell, and Wilm, Marshall, and Hendricks.....	84
(b)	Diagrammatic sketch of the structure of muscovite.....	85
5.1.2.	Relation between free swelling and B-dimension for Na-montmorillonites (Mitchell 1976).....	88
5.1.3.	TG, DTA curves	88
5.1.4(a)	The first endothermic peak system for montmorillonite saturated with different exchangeable cations and hydrated at 10 % relative humidity...	90
(b)	Relationship between the peak temperature of the high temperature component of the first endothermic peak system and the "hydration energy".....	90
5.1.5.	The amount of dehydration.....	92
5.1.6.	Relationship between amount of retention of exchangeable cations on heating and wetting only and ionic radius.....	93
5.1.7.	Fixation of exchangeable cations of bentonite by heating.....	93
5.1.8.	Ca-K exchange isotherms of montmorillonite treated by various means.....	94
5.1.9.	The variation of $\ln K_c$ with equivalent fraction of K^+ in Ca-K-montmorillonite in the cases of various initial potassium fractions (N_{K^+}) at 35°C and 0.05 N.....	95
5.1.10	Ca-K exchange isotherms of vermiculite treated by various means	96
5.1.11	$\ln K_N$ as a function of Γ for the Na-Cs exchange, for different species of RCM.....	97

Fig. 5.1.12	Evolution of the d spacing of montmorillonite with the number of W-D cycles for various proportions of Ca	97
5.1.13	Variation of K exchangeability with the number of W-D cycles for various proportions of Ca	98
5.1.14	Variation of Ca exchangeability with the number of W-D cycles for various proportions of Ca	99
5.1.15	I/S clay mineralogical variation in the Mancos Shale vs. proximity to igneous pluton at Cerrillos, New Mexico	99
5.2.1	Schematic diagram of structural conversion trends of mica/smectites of different origins	101
5.2.2 (a)	XRD spectra of mixed-layer	102
(b)	XRD spectra of mixed-layer Representative X-ray powder diffraction patterns of mica/smectites with various expandabilities	103
(c)	XRD spectra of mixed-layer	104
5.2.3	Temperature and depth environments forming mica/smectites in nature	106
5.2.4.	Equilibrium boundary of kaolinite and pyrophyllite	107
5.2.5.	Extent of reaction for alkali-saturated bentonites after 7 days of hydrothermal treatment at 400°C	107
5.2.6.	The alteration of montmorillonite to the illite/montmorillonite mixed-layer	112
5.2.7	Percentage of non-exchangeable K^+ vs. percentage of illite layer in natural illite/montmorillonites and synthetic products from Ca- and X-montmorillonite	113
5.2.8(a)	Proportion of illite layers in illite/smectites as a function of depth in the finest and coarsest clay fractions	115
(b)	Variation of K_2O , MgO , and Fe_2O_3 in $<0.1\text{-}\mu\text{m}$ fraction (virtually pure illite/smectite) with depth (ignited basis)	115
(c)	Depth dependence of the Al_2O_3 and SiO_2 content of $<0.1\text{-}\mu\text{m}$ fraction (ignited basis)	115

Fig. 5.2.9	Composition of interlayer cations of mica/ smectites from the Shinzan area (WS-1,2,4,10) and rectorite-like minerals from roseki deposits	
(a)	Exchangeable cation.....	116
(b)	Non-exchangeable cation.....	117
5.2.10	Chemical composition in the 2:1 silicate layer of mica/smectites from the Shinzan area and of rectorite-like minerals from roseki deposits.....	118
5.2.11	The relationship between the percentage of ex- pandable layer and total layer charge per $O_{10}(OH)_2$ in mica/smectites of different origins.....	120
5.2.12	The relationship between the percentage of ex- pandable layer and number of non-exchangeable interlayer cations (K) per $O_{10}(OH)_2$ in mica/ smectites of different origins.....	121
5.2.13	Sr and K values (ppm weight and atom percent) for B-layer samples from Kinnekulle metasomatic samples - crosses and Billingen metamorphic samples - circles.....	122
5.2.14	Sr and Rb values (ppm weight) for Kinnekulle metasomatic samples - crosses and Billingen metamorphic samples-circles.....	122
5.2.15	The relationship between percentage of expandable layer and CEC in illite/montmorillonites.....	126
5.2.16	Plots of percentage of expandable layer vs. Δ CEC value in mica/smectites.....	127
5.3.1.	Clinoptilolite transformation at elevating temperature, PH and (Na+).....	133
6.1.1.	The Kd thickness requirements for complete containment	140
6. 2. 1.	Relative concentrations of Cs-137 at a distance of 0.2m from the canister	144
6. 2. 2.	Relative concentrations of Sr-90 at a distance of 0.2m from the canister	145
6. 2. 3.	Time required to convert smectite to illite as a function of temperature.....	146

TABLE

Table 1.1.	Barrier function versus time.....	3
2.1.	Chemical composition of buffer material employed	9
2.2.	X-ray powder diffraction data of tested materials	10
3.1.1.	Equipments used in experiments.....	15
3.1.2.	Summary of permeability tests	17
3.1.3.	Change of K_B value along with bentonite density...	23
3.1.4.	k of quartz sand and zeolite	25
3.1.5.	Permeation time through 20cm thick media	25
3.1.6.	Summary of permeability through bentonite with artificial crack	28
3.2.1.	Diffusion tests summary	43
3.2.2.	Kd values from diffusion data and batch sorption data obtained in Sandia National Laboratories.....	55
4.1.1.	ke/kg value obtained	72
4.1.2.	Preliminary estimates of properties of buffer/backfill materials compiled from KBS reports	73
4.2.1.	The amount of heat generation and surface dose rate.....	76
4.2.2.	Maximum temperature and time required for buffer to reach its maximum temperature	78
5.1.1.	Effect of interlayer cations on basal spacings (A) of smectites and vermiculites at 32, 52 and 79% relative humidities and immersed in water.....	86
5.2.1.	Thermal stabilities of mixed-layered phases.....	105
5.2.2.	Reaction products for alkali-saturated Wyoming bentonite	109
5.2.3.	Reaction products for alkali-saturated Wyoming bentonites	109
5.2.4.	The activation energy of dissolution	111
5.2.5.	Absolute thermodynamic data for aqueous Ions.....	122
5.2.6.	Analyses of Cs remaining in solution and of pollucite formation from various mixtures of clays of shales and Cs sources	124

Table 5.2.7	Analyses of Cs remaining in solution and XRD analysis of various mixtures of Cs phases with clays	125
5.3.1	Summary of zeolite dehydration behavior	129

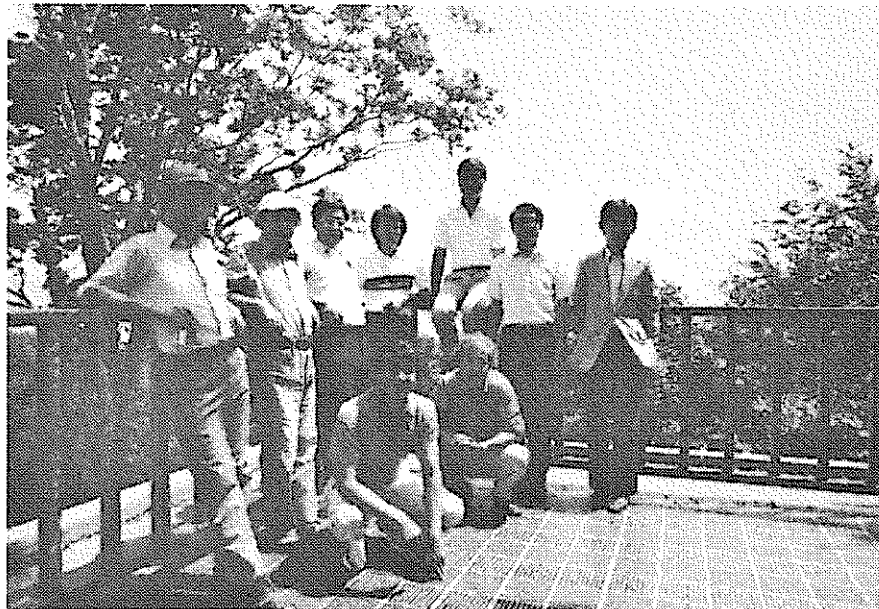
は　じ　め　に

使用済み燃料の再処理や高レベル廃棄物の地層処分システムを確立することは、我国における原子力発電を更に定着化する上で極めて肝要である。既往の知識、技術を集約して活用することは勿論のこと、関連技術の開発研究を活気的行なうことが急務である。

(財)工業開発研究所は、高レベル廃棄物の地層処分システムのなかで“緩衝材”に係わる調査及び試験研究を、動力炉核燃料開発事業団より委託され実施してきた。

本研究は下記の諸先生を主要なメンバーとして遂行されている。写真は折に触れて協力を頂いた方々も含めた研究スタッフである。

東京大学工学部	石　樽　顕　吉
東京大学理学部	歌　田　　　実
弘前大学理学部	青　木　正　博
千葉大学教養部	井　上　厚　行
東京大学教養学部	草　部　博　達



我国の地水理条件に最も適合する緩衝材を選定し、そして至適設計を完結するために、今後も関連諸氏の御指導、御鞭撻を心より切望する。

昭和58年2月

(財) 工業開発研究所

所長・副理事長

理　　事

開発研究第一部長

大　島　恵　一

田　村　孝　章

藤　田　矩　彦

我が国の商業用原子力発電は、運転開始以来19年で着実にその設備容量を増加してきた。これは原子力の発電原価が、石炭、LNG、石油火力に較べて極めて安価で経済的であり、しかも備蓄性に優れていること、さらに最近明瞭に認められることであるが、外為相場の変動に対して抵抗力をもつことが原因である。現在稼働中の商業炉の数と設備容量は24基、1700万KWであり総発電設備容量の13%弱に成長し、米国、フランス、に次いで世界第3位の容量を持つに至っている。資源エネルギー庁の調査によると、事故例の分析やそれを克服する対策の徹底化と改修工事の合理化等により、57年度の設備利用率は70%を越え、火力、水力を含めた総発電量の、20%強に達するという。建設費の急騰と運開までの長期化など、原子力の優位性を脅かす要因も散見はされるが、周辺技術の集約化と、次世代技術の開発などの支援により、今後とも原子力の増加が見込まれる。新長期計画では、65年、75年における設備容量の目標を4,600, 9,000万KWとしており、それぞれ総発電容量の22%, 30%に相当する。

我が国におけるこのような原子力依存度の増加を考慮すると、使用済み燃料の再処理と高レベル廃棄物(HLW)の貯蔵・処分に関わる技術開発や調査の拡充、及び国際間の技術交流を速やかに実施し、健全で現実的な核燃料サイクルを自国内に確立することが強く要請される。再処理を海外に委託している現状や、返還される固化体の処分問題は、このことを更に卑近なものにする。実際の放射性核種を使って、ガラス固化体を製造する実験が、PNCで57年12月に開始されたのも耳新しいところである。

高レベル放射性廃棄物(HLW)には生態系に影響を及ぼす懸念のある長寿命の超ウラン元素が含まれている。上述した核燃料サイクルの実現には、両立性の高い自然及び工学的な多重障壁を組み合わせた至適な地層処分システムを開発運用して、これらの放射性核種の生活圏に向けた移行を、極めて長期に亘りしかも確実に阻止しなければならない。多重障壁について1980年に出された米国の技術規準案、10CFR60では、HLW固化体を地下に埋設して初期1000年間の放射性核種放出を皆無、それ以降は1年間の放射性核種放出率を固化体に含まれる全放射能の 10^{-5} 以下に抑える機能を工学的障壁には求めている。

多重障壁のうち好適な自然障壁には、水理的、地質的に安定で、キャニスターの腐食、固化体の浸食、放射性核種の移行に関与する地下水のpathway数と移動速度の十分に小さい地層が最も実現性の高い候補である。

また、HLWを封じ込めた固化体とキャニスター、そしてこれを埋設する岩体とキャニスターとの間を充填して水や放射性核種の移行を遅延するとともに崩壊熱の逸散を助ける緩衝材などが工学的障壁と呼ばれるものである。HLW中に含まれる長寿命放射性核種の浸出、移行を長期間に亘って抑制する以上のような多重障壁の概念を、図1.1に、そして各々の障壁に求められる機能と、その持続すべき概ねの期間を、表1.1に示す⁽¹⁾。図1.1において緩衝材 (buffer material) はキャニスターとオーバーパック間を充填する粘土鉱物を中心とする天然物質であるが、機能的には10CFR60からも明らかなように、埋め戻し材 (back fill material) と同義に用いられることが多いので、本研究においても両者を特に区別しない。

本研究は、スウェーデン、米国等で現在実施されている研究の調査、および我国に産出する粘土鉱物、沸石を使った試験研究を通じて、地下活動の比較的盛んである我国の厳しい自然条件に適合して先の目標を達成しうる工学的障壁に関連する技術開発の一環として、緩衝材に採用すべき適切な材料の選定をまず目的としている。そして究極の目的は、地層処分システムサイトの化学的、物理的な地水理条件及び放射性核種の化学形態と諸反応特性を考慮して、HLW中の放射性核種の生活圏に向けた移行を十分に阻止することのできる tailored buffer を設計することにある。

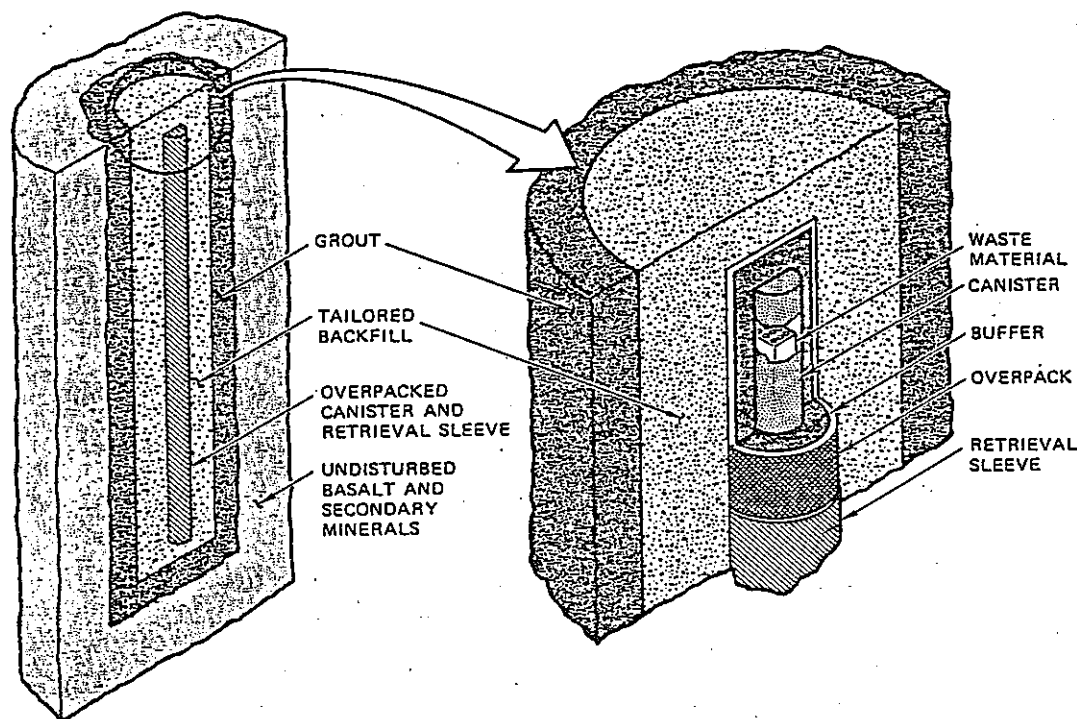


Fig 1.1 The functions of the different barriers

Table 1.1 Barrier Function versus Time

Item	Barrier	Operating Period	Function
1	Geology (basalt)	1. Thermal period ^a 2. Geologic control ^b 3. Repository life ^c	Supplementary chemical barrier to radionuclide migration Primary chemical barrier to radionuclide migration Physical isolation of waste material from man
2	Backfill	1. Thermal period 2. Geologic control	Primary chemical barrier to radionuclide migration Inhibit groundwater intrusion Secondary chemical barrier
3	Overpack	Thermal period	Primary physical barrier to groundwater intrusion Aids in retrievability
4	Buffer	Thermal period	Chemically inhibit canister corrosion in event of failed overpack
5	Canister	1. Pre-emplacment ^d 2. Thermal period 3. Geologic control	Provide physical support and protection for waste form Supplement to overpack preventing groundwater intrusion Permit retrievability Primary physical barrier to groundwater intrusion
6	Waste form	Pre-emplacment and repository life	Retard release of radionuclides in the event of containment failure

^aTime before 1000 yr of operation.^bTime after 1000 yr of operation.^cThermal period + geologic control.^dTime from canister filling to emplacement in the repository.

いずれにしても各国でその開発研究に傾注している緩衝材は、次の(1)～(8)に示すような特性、機能を持ち、その開発に当ってはこれらの機能を満足する単一或いは複合の材料を決定することが肝要である。

- (1) 地層処分システムサイトの地下水に対して極めて低い透水性を与え、また膨潤性優れており地下水の pathway を閉塞する。
- (2) キャニスター、オーバーバックの健全性の低下に大きく寄与する地下水中の Cl^- 、 CO_3^{--} 等のアニオンや、特に K^+ において顕著であるが粘土鉱物の初期特性の変化を促進するカチオンの拡散を阻止して地下水の水質を改善する。地下水の pH、Eh 或いは塩濃度を調節して金属の腐食速度を減じたり、浸出した超ウラン元素を酸化物や水酸化物として析出させる効果も求められる。
- (3) イオン交換、吸着および拡散抑制に基づいて、放射性核種に対して高い分配係数 (kd 値) を有する。この機能はカチオンに対してだけでなく、一般には低いとされている TcO_4^- 等のアニオンに対しても満足する方が好ましい。
- (4) 周辺の岩体に匹敵する、またはそれ以上の熱伝導度を持ち、崩壊熱に基づく固化体の発熱を逸散させる。この機能は固化体、キャニスター、オーバーバックの破損する可能性を低下するとともに、緩衝材の変成反応 (例えば mixed layer 鉱物の形成) を抑制して初期性能の堅持を保障する。
- (5) 温度、圧力、放射線および地下水水質等の想定される諸条件で、表 1.1 に示すような 1,000 年以上もの長時間に亘り経時変化を受けにくく、物理的、化学的安定性に優れている。

- (6) 緩衝材とキャニスター、オーバーバック、岩体の間で化学反応が進行せず両立性に富む。
- (7) 適度の可塑性を持ち、地質活動に基ずく塑性変化に追従する。
- (8) 重量、圧力に抗する充分な機械的強度を有する。

昨年度の報告書には、この機能のうちの幾つかを充足する材料を与えた。⁽²⁾ スウェーデンを始めとして緩衝材に関して今日まで行なわれた研究の結果、粘土鉱物、特にNa型ベントナイトが最も多くの要求を満足することが判明している。^{(3)~(7)} そして、本報告書に記載する結果と幾分の違いはあるが、機械的強度、熱伝導度を向上するために、スウェーデンではベントナイトを成型する所謂圧縮ベントナイト及びベントナイトと石英砂の混合物を検討している。地下水の組成、pHやEhに著しく左右されるイオン吸着性の測定(kd値測定)とそれを改善する研究もhazard indexの高いテクネチウム及び超ウラン元素に重点を置いて数多くなされている。^{(8)~(14)} 活性炭を粘土鉱物に混入するとアニオンのkd値が増加するという報告⁽⁹⁾、2価の酸化数を持つ鉄を含む鉱物 — 例えば Fe_3O_4 、 FeCO_3 など — により超ウラン元素を還元析出させてkd値を増加するという報告⁽¹⁴⁾などは特に注目される。

また、我々の研究では特に留意している点が、処分システムに埋設したHLW固化体から放出される崩壊熱に因り緩衝材の被むる熱履歴がある。長期間続くこの熱により緩衝材として適用したスメクタイトがイラストに熱変成すると、当初設計した止水性などの機能に支障をきたし、工学的障壁の健全性が損なわれる恐れがある。この点を考慮してスメクタイトを緩衝材に使用する場合の最高許容温度を、スウェーデンでは60℃、英国では250~300℃、そしてカナダでは150℃と推奨している。⁽¹⁵⁾

さて、周知のように我が国では地水理的な地下活動が盛んであるため、安定した地層を有する諸外国に比べて、工学的障壁にかかる負担は著るしく大きいことがまず想起されるし、またこの点を充分に勘案してそれは設計されなければならない。(1)~(8)の諸機能を求められる緩衝材の最適設計においてもしかりである。

一方、このような厳しく多彩な自然環境にあるため、我が国では極めて高い水準の土木施工技術が開花結実していると同時に、処分サイトや多重障壁の決定に必要な地質のおよび水理的な既往の研究データと問題の解決に有意義なnatural evidenceが豊富であることも否めない。換言すれば、この分野に卓越している多くの諸機関、研究者を助長、育成してきたことや、要求に耐え得る地層処分システムを計画する上に不可欠の今後の研究も比較的短期間に遂行可能と考えることもこのような背景に因るところが大である。

本研究では、各国で行なわれている緩衝材に関わる研究の調査を主体としてなされた昨年度(56年度)の研究を受けて、スメクタイトを中心に選定された緩衝材の候補(混合物を含む)について、アイソトープを用いる高圧カラム方式による分配係数の測定、同じく高圧カラムによる透水性の測定と理論的取り扱い、スメクタイトの初期機能の維持を困難とする可能性を与える崩壊熱

による変成作用に関する調査と，それに強く関連する緩衝材の熱伝導度測定を約一年間実施してきており，これまでに得られた成果をとりまとめたものが本報告書である。わが国に適合する地層処分システム開発に関わる基礎研究の一環としてなされた今年度の研究成果を，先述の(1)～(8)の諸機能を満足して，しかも多重障壁のなかで両立性の高い緩衝材開発研究の礎として，最適設計や実証試験に向けた不断の研究が今後ともなされねばならない。

REFERENCE

- (1) B. J. Wood, "Backfill Performance Requirements-
Estimates from Transport Model", Nucl. Tech., 59,
390 (1982)
- (2) 工開研, 「地層処分における緩衝材の研究 P17 (1982)
- (3) A. Jacobson, R. Pusch, "Deposition of High-Level Radio-
active Waste Products in Bore-Holes with Buffer Substance",
KBS Teknisk Rapport, 77-03 (1977)
- (4) T. Erikson, A. Jacobson, R. Pusch, "Ion Diffusion
through highly Compacted Bentonite", KBS Teknisk Rapport,
81-06 (1981)
- (5) R. Pusch, "Permeability of Highly Compacted Bentnite",
KBS Teknisk Rapport 80-16 (1980)
- (6) R. Pusch, "Highly Compacted Sodium Bentonite for Isolating
Rock-Deposited Radioactive Waste Products", Nucl. Tech.,
45, 153 (1979)
- (7) E. J. Nowak, "The Backfill Barrier as a Component in a
Multiple Barrier Nuclear Waste Isolation System", SAND
79-1109 (1980)
- (8) C. D. Winslow, "The Sorption of Cesium and Strontium
from Concentrated Brines by Backfill Barrier Materials,"
SAND 80-2046 (1981)
- (9) E. J. Nowak, "Radionuclide Sorption and Migration Studies
of Getters for Backfill Barriers", SAND 79-1110 (1980)
- (10) J.F. Relyea, R. J. Serne, D. Rai, "Methods for Determin-
ing Radionuclide Retardation Factors: Status Report",
PNL-3349 (1980)
- (11) B. Allard, G. W. Beall, "Sorption of Americium on Geologic
Media", J. Env. Sci. Health, A14, (6), 507 (1979)
- (12) B. Allard, G. W. Beall, T. Krajewski, "The Sorption of
Actinides in Igneous Rocks", Nucl. Tech., 49, 474 (1980)
- (13) S. Komarneni, R. Roy, "Tailor-Made Mixtures of Zeolite
and Clays", Scientific Basis for Nuclear Waste Management,
Vol. 2, 411 (C. J. M. Northrup, Jr., Ed., Plenum Press,
NY. 1980)
- (14) G. W. Beall, B. Allard, T. Krejewski, G. D. O'Kelley,
"Chemical Reactions in the Bedrock-Groundwater System
of Importance for the Sorption of Actinides", Scientific
Basis for Nuclear Waste Management, Vol. 2, 625 (C. J. M.
Northrup, Jr., Ed., Plenum Press, NY. 1980)

- (15) G. W. Bird, " Hydrothermal Stability of Potential Clay-Based Buffer Materials", AECL Technical Record, TR-199 (1982)

§ 2. 緩衝材特性試験のための材料

緩衝材として要求される物理的機能——膨潤性と止水性——の点ですぐれた性質を有する理由からNaベントナイトを、 Cs^{+} 等に対する高い吸着性を有する点でモルデナイトを、熱伝導度の向上に有効であるとの判断から石英砂を選定した。緩衝材の主成分となるスメクタイトは、キャニスターの熱のために生ずる熱水の作用で、イライト化する危険性がある。イライト化に先立って、スメクタイトの層間イオンの K^{+} による置換がおこる。地下水中の K^{+} による置換に対しては、アルカリ土類型ベントナイトの方が、Naベントナイトよりも大きな抵抗性を有すると考えられるので、上記の物質に加えて、Mgベントナイトも特性評価の対象とした。

市販のものである石英砂を除く、上記材料の鉱物学的性質を以下に述べる。各材料の化学組成を表2.1に、X線の性質を表2.2に示した。

a) Naベントナイト

山形県大江町左沢、国峰鉱化工業月布鉱業所産。新第3紀中新世女川階の硬質頁岩に介在する酸性凝灰岩層が変質してベントナイト化したものである。国峰鉱化工業では、本鉱業所のNaベントナイトを精製し、クニピアの製品名で販売しておりこれを用いた。表2.1に示す様に、層間イオンの8割以上を Na^{+} が占める一方、 K^{+} は約1%と非常に少いのが特徴である。表2.2のX線データも、典型的Naモンモリロナイトであることを示している。試料の純度は非常に高く、極めて微量の石英を認めるのみである。

b) アルカリ土類ベントナイト

青森県黒石市白沢、日本砥研工業黒石鉱業所産。新第3紀中新世の温湯層の流紋岩質凝灰岩及び、これを貫く塩基性安山岩がベントナイト化したものである。流紋岩質凝灰岩起源の部分はNaベントナイトであるが、塩基性安山岩起源の部分はMgベントナイトとして、特に鑄物工業分野で珍重されている。実験試料は、特にMg含有量の多い部分を得るために現地にて採取した物である。表2.1の化学組成を見ると、クニピアに比較してMgOの含有量が2倍となっている。しかし、交換性イオン組成を見ると、Mgは23%足らずで、Mgの増加分はほとんど8面体位置に割り当てられていることがわかる。アルカリ土類/アルカリ比は、およそ1である。表2.2のX線データも、アルカリ型——アルカリ土類型の中間的性質を示すモンモリロナイトであることを示している。若干量の緑泥石が混在している。

c) モルデナイト

島根県仁摩町馬路産。新第3紀中新世の酸性凝灰岩の変質物である。表2.1においてC.E.Cがモルデナイトとしては低い値となっているのは、かなりの石英が共存しているためと考えられる。また含有されている交換性陽イオンのトータル電荷が、C.E.Cに比較してか

Table 2.1 Chemical Composition of Buffer Material Employed

	KUROISHI BENTONITE		KUNIPIA		MORDENITE TUFF (MAJI)
SiO ₂	53.62		55.68		67.75
TiO ₂	0.53		0.23		0.35
Al ₂ O ₃	17.75		19.96		11.61
Fe ₂ O ₃	5.68		1.95		1.77
MnO	0.02		0.01		0.03
MgO	7.43		3.64		0.37
CaO	0.89		0.41		1.84
SrO	0.06		0.03		0.09
Na ₂ O	1.65		3.42		2.08
K ₂ O	0.57		0.07		1.96
H ₂ O	11.54		14.23		11.75
Total	99.74		99.63		99.60
Number of cations on the basis of O ₁₀ (OH) ₂					
Si	3.691	4.000	3.868	4.000	
Al	0.309		0.132		
Al	1.129		1.499		
Ti	0.027		0.012		
Fe ³⁺	0.294		0.102		
Mn	0.001		0.000		
Mg	0.762		0.376		
Ca	0.066		0.030		
Sr	0.002		0.001		
Na	0.220		0.460		
K	0.050		0.006		
Equivalent fraction of exchangeable cations					
Mg	22.7%		2.8 %		
Ca	25.6		12.7		
Sr	1.0		0.5		
Na	45.6		82.8		
K	5.1		1.2		
C.E.C(meq./100g)	116		135		109
Total charge of exchangeable cation (meq./100g)	110		129		67

Table 2.2 X-Ray Powder Diffraction Data of Tested Materials

1. Montmorillonite from Kuroishi Bentonite

d(A)	I/I ₀	Mineral Species(hkl)
14.5	7	Chl.(001)
12.8 B	62	Mont.(001)
5.46	2	Mont.(002)
4.48	93	Mont.(110), (020)
3.55	7	Chl.(004)
3.21B	40	Mont.(004)
2.54B	100	Mont.(005), (130), (200)
1.502	35	Mont.(060)

2. Montmorillonite from Tsukinuno Bentonite (KUNIPIA)

d(A)	I/I ₀	Mineral Species(hkl)
12.3	100	Mont.(001)
6.29	9	Mont.(002)
4.48	16	Mont.(110), (020)
3.35	1	Qz.(101)
3.13	25	Mont.(004)
2.52B	13	Mont.(005), (130), (200)
1.497	7	Mont.(060)

3. Mordenite from Maji

d(A)	I/I ₀	Mineral Species(hkl)
13.7	7	Mord.(110)
9.03	18	Mord.(200)
7.94	3	Clp.(002) ?
6.78	4	Mord.(220)
6.58	19	Mord.(111)
6.39	7	Mord.(130)
6.09	3	Mord.(021)
5.81	7	Mord.(310)
4.86	1	Mord.(131)
4.52	15	Mord.(330)
4.26	20	Qz.(100)
4.14	3	Mord.(420)
3.995	27	Mord.(150)
3.825	6	Mord.(241)
3.777	12	Mord.(002)
3.640	4	Mord.(421)
3.527	5	Mord.(022)
3.472	53	Mord.(202)
3.382	26	Mord.(350)
3.344	100	Qz.(101)
3.296	7	Mord.(222)
3.220	33	Mord.(511)
3.192	19	Mord.(530)
3.094	3	Mord.(061), (441)
2.993	7	Mord.(600), Clp.(044) ?
2.940	4	Mord.(261)
2.898	11	Mord.(402)
2.574	5	Mord.(080)
2.518	6	Mord.(352)
2.458	8	Qz.(110)
2.426	3	Mord.(532), (262)
2.284	8	Qz.(102)

なり少ないが、これは露頭部における風化作用の影響と思われる。表 2.2 の X 線データは、多量の石英と微量の斜プロル沸石の共存を示している。

§ 3. 地下水及び核種の移行の検討

3.1 透水性試験

3.1.1 混合の影響

緩衝材に要求される試機能をなるべく多く実現し、同時に地層処分地域に最も適合する材料として、昨年度言及したような混合系が考えられる。緩衝材中の地下水の移行を遅延させ、またイオン交換性に比較的優れたベントナイトがその基本物質とされていることは周知のことであるが、イオン収着性、熱伝導性等々を更に補うため、ベントナイトに添加すべき種々の物質の検討が各国で行なわれている。圧密されたベントナイトの透水係数は 10^{-14} m/s程度の値を有するが、他の特性を補う材料の添加は、その止水性を低下させることが懸念される。したがって添加量（添加比率）と止水性の関係を定量的に充分把握しておくことが、混合系緩衝材を設計する上で極めて重要な課題である。本年度は添加物としてゼオライトと石英砂を加えて圧密した混合系の透水性について検討を行なった。

a. 試験方法、装置

ベントナイト中の水は、昨年度も報告した通りそれが包蔵される場所により2つに分けられる。1つは粒子間のボイドに含まれるものであり、他はベントナイトの層状構造の中に吸着された層間水として存在するものである。水圧勾配が加わった場合、この2種類の水の流れは、通常はそれぞれ異なる挙動を示す、しかしながら、ここで考慮すべき巨視的な水の流れの記述には、Darcyの法則が適用される。

$$[\text{流量}] = K [\text{断面積}] \cdot [\text{水圧勾配}]$$

ここで水圧勾配は水柱に換算した圧力差と試料の厚さの比である。比例定数Kは透水係数と呼ばれる透水性の指針となる値である。また、小さな透水性を有すること以外に、緩衝材としてベントナイトに期待される機能として地層の変位に対するシール性の保持がある。これはベントナイトが層間に水を取り込んだときのC軸方向の体積増加に由来する。膨潤圧の測定にはその体積が不変であることが必須の条件である。透水性試験では、主にKBSレポート80-16を参考に透水性と膨潤圧を同時に測定できる装置を昨年度は試作したので今年度もこの装置により混合系緩衝材の特性試験を実施した。

測定方法の概念図3.1.1に示す。装置は加圧された水を供給する系；試料を通過した水を計量する系；水を吸収して膨潤しようとする微小な体積変化を検知し、それをフィードバックして体積を一定に保つ系；及びその時の試料の圧力を測定する系で構成される。図3.1.2に装置の中心となる透水セルを示す。試料は、ボイド系2 μ mの2枚のステンレス焼結金属製フィルターの間に置かれる。水は下部フィルターで断面全域に分散されて試料を通過し、上部フィルターへと抜ける。供給水は窒素ガス加圧により一定の圧力に保持された。試料を通過した水は内容積を校正したガラス管に導かれ計量された。

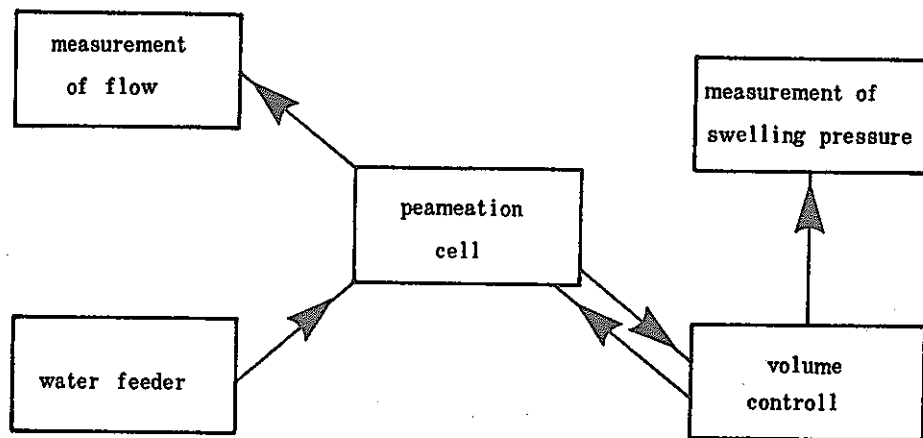


Fig. 3.1.1 Blockdiagram to measure permeability and swelling pressure

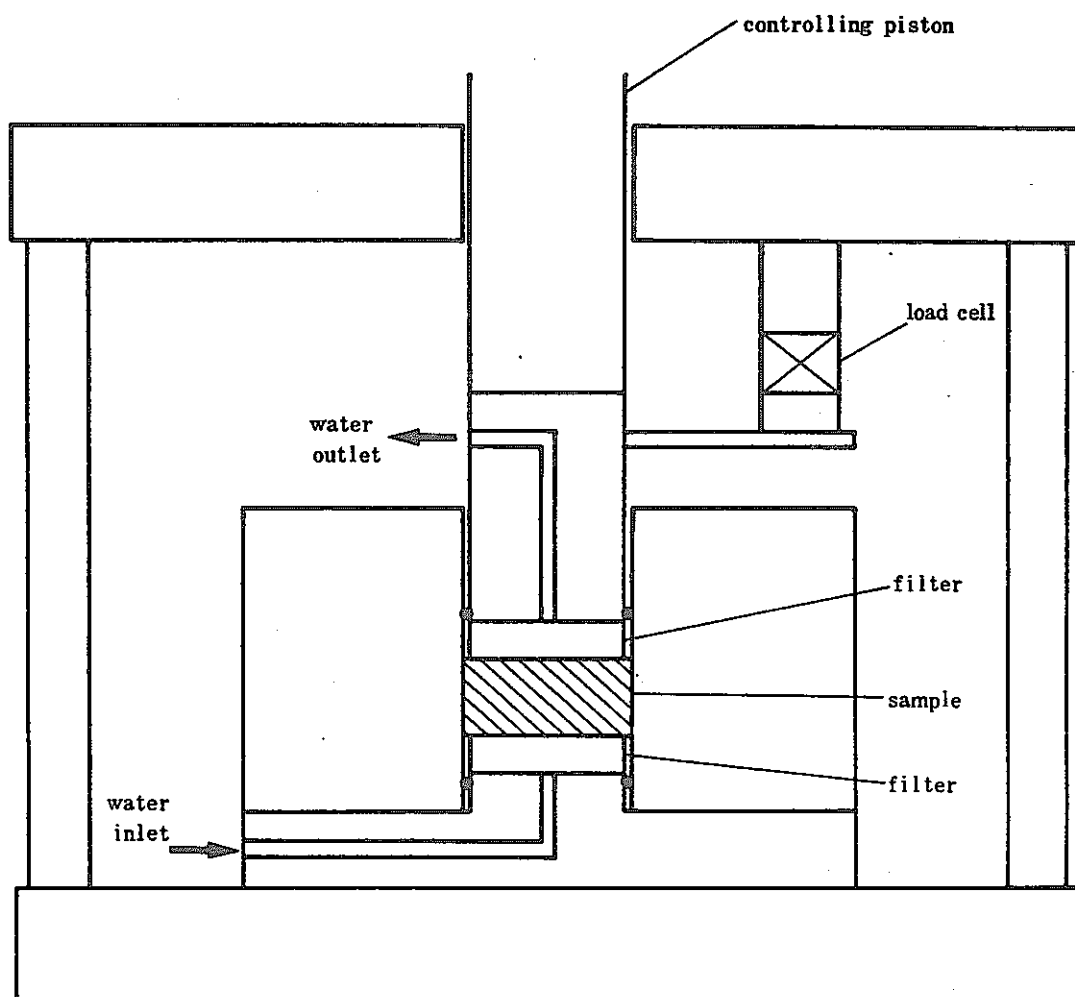


Fig. 3.1.2 The permeability cell

膨潤によるわずかな上方向への体積増加は、ロードセルに対する圧縮力として検出され、その信号が0となるまで制御ピストンが試料を下方へ圧縮する。そのときピストンを駆動する油圧から試料の膨潤圧が得られる。油圧系統図を図 3.1.3 に示す。試験中はバルブ V-1, 2, 5 を開、V-3, 4 を閉とし、ロードセルからの信号が出たときリニアヘッドを作動させ、制御ピストンを押下げる。試料着脱時のピストンの移動、注入器へのオイル補給は、リニアヘッドの上下動の切換及び各バルブを適宜操作することにより行なった。装置を写真 3.1.1 ~ 2 に、また使用した機器を表 3.1.1 にそれぞれ示す。

透水性試験に供するベントナイトは、山形県月布産と青森県黒石産の2種類、ゼオライトは島根県馬路産のものである。各試料はボールミルによりそれぞれ200メッシュ以下の粒度に調整された。他方、熱伝度性や機械的強度の向上を目的として混合する石英砂には150~200メッシュに調整された市販のものを適用した。

各粉末の真密度はピクノメータを使用して求めた。この際用いる溶剤はベントナイトではメチルアルコール、ゼオライト及び石英砂では水とした。測定の結果、月布産、黒石産ベントナイト、ゼオライト、石英砂の真密度として2.67, 2.72, 2.64, 2.32の値がそれぞれ得られた。試料の圧密は油圧プレスにより $400\text{Kg}/\text{cm}^2$ の圧力下で行ない、装置内の空隙を考慮

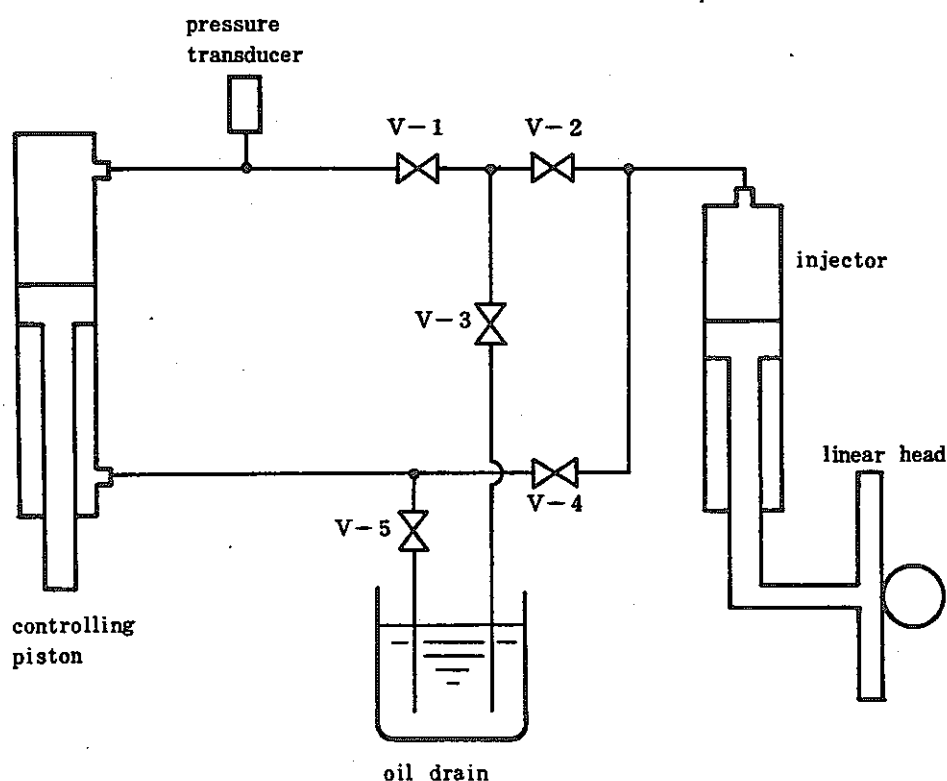


Fig. 3.1.3 The hydraulic system to maintain the sample volume constant and to measure the swelling pressure

Table . 3.1.1 Equipments used in experiments

機 器	メ ー カ ー ・ 型 式
油圧系	
リバーシブルモーター	オリエンタルモーター 4 RK 2 5 GK
リニアヘッド	同 上 AFL 1 0 - 2 , 4 GK 1 0 X
バルブ	Whitey ORS - 2
制御ピストン	太陽シリンダー 2 EA - 4 0 R - 1 4 0 B
制御／記録系	
歪アンプ	共和電業 DPM - 3 0 5 A
圧力トランスデューサ	同 上 PG - 1 0 0 KU
ブリッジアンプ	東京科学精機
ロードセル	東洋ボールドウィン TM - 1 0 0 L
レコーダ	大倉理化学研究所 D 3 R 2 M 1 リミットSW付

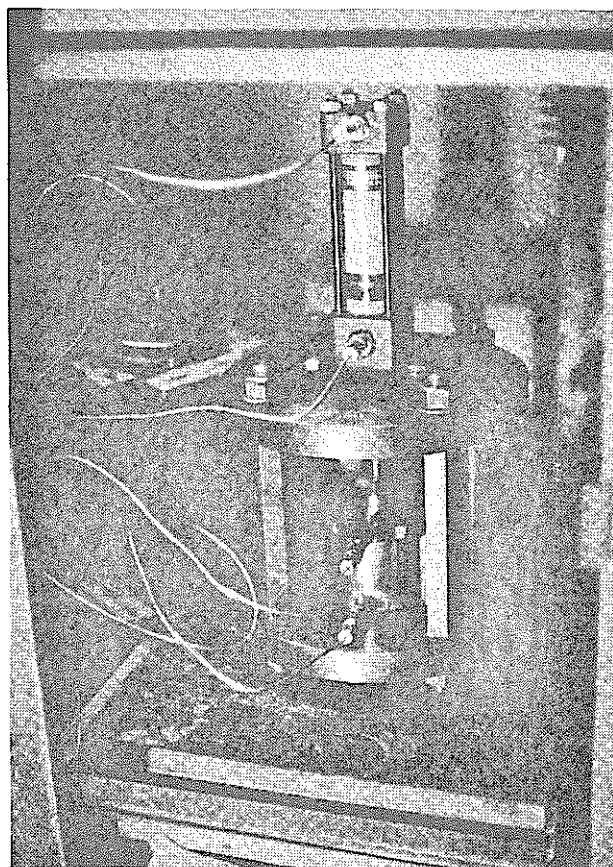


Photo . 3.1.1 The apparatus for permeability tests
in the air bath

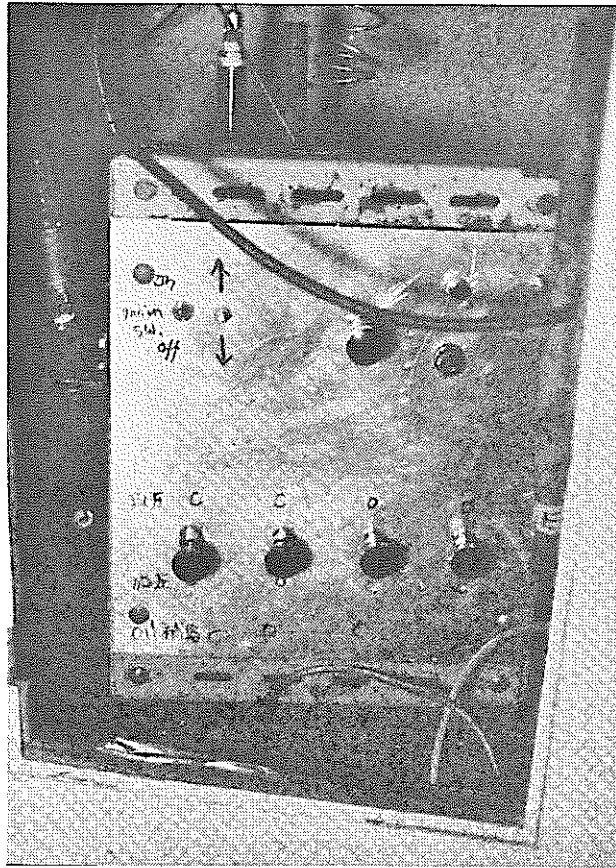


Photo . 3.1.2 The control panel of the hydraulic system

して最終的に密度 1.5 前後で実験を行なった。

測定温度の調節は、装置全体を恒温槽内に設置して行ない、 $25 \pm 0.5^{\circ}\text{C}$ に保持した。また、使用する水は溶存イオンの干渉を防ぐために蒸留水とした。

実験は次の手順で行なった。透水性装置に試料を充填した後、試料を水で飽和させるために数気圧の圧力で水を送る。膨潤圧が一定に達した後、所定の圧力 ($10 \sim 20 \text{ Kg/cm}^2$) で水を圧送して、透水係数が定常値をとるまで測定を行った。

b. 結果及び考察

ベントナイトにゼオライト、石英砂を混合したときの透水係数変化を、図 3.1.4 ~ 6 及び表 3.1.2 に示す。図 3.1.4 と 5 はゼオライト、石英砂とベントナイトの 2 元系、図 3.1.6 はゼオライト混合比を 10 % に固定したときの石英砂量に対する変化である。図中には膨潤圧の変化も併記した。透水係数は添加物量の増加とともに増加しており、またその増加する割合は添加量の多い領域で増大することが認められる。

混合物中における水の流れの解析には、minimum energy dissipation⁽¹⁾, percolation⁽²⁾, effective media⁽³⁾ などの手法が提唱されている。この内前者は最も古典的な方法であり、仮想的な流れの場で流体が失なうエネルギーを計算し、それが最小となる流れが実現されると考えるものである。この手法は電流、或いは磁束等を対象とした電磁気現象の説明に成功

Table . 3.1.2 Summary of permeability tests

Contents (%)			density (g/cm^3)	K (m/s)	Hydraulic Gradient (cm/cm)
Na-Bentonite	Zeolite	Quartz			
100	—	—	1.4	3×10^{-14}	49,000
90	10	—	1.4	7×10^{-14}	50,000
80	20	—	1.6	1.1×10^{-13}	57,000
65	35	—	1.3	8.5×10^{-13}	24,000
50	50	—	1.4	1.9×10^{-12}	24,000
85	—	15	1.5	1.1×10^{-13}	36,000
70	—	30	1.7	2.6×10^{-13}	61,000
60	—	40	1.6	3.7×10^{-13}	29,000
50	—	50	1.6	6.4×10^{-13}	28,000
30	—	70	1.7	2.9×10^{-12}	30,000
80	10	10	1.4	2.2×10^{-13}	51,000
70	10	20	1.5	3.3×10^{-13}	54,000
60	10	30	1.6	4.5×10^{-13}	28,000
50	10	40	1.6	7.4×10^{-13}	29,000
30	10	60	1.6	2.3×10^{-12}	29,000
—	—	100	1.6	6.0×10^{-12}	2,900
—	—	100	1.6	1.1×10^{-11}	5,700
—	—	100	1.6	2.6×10^{-11}	8,600
—	100	—	1.3	2.2×10^{-13}	1,200
—	100	—	1.3	6.9×10^{-12}	2,400
—	100	—	1.3	2.0×10^{-10}	4,800
Mg-Bentoniti 100	—	—	1.7	2.6×10^{-13}	61,000

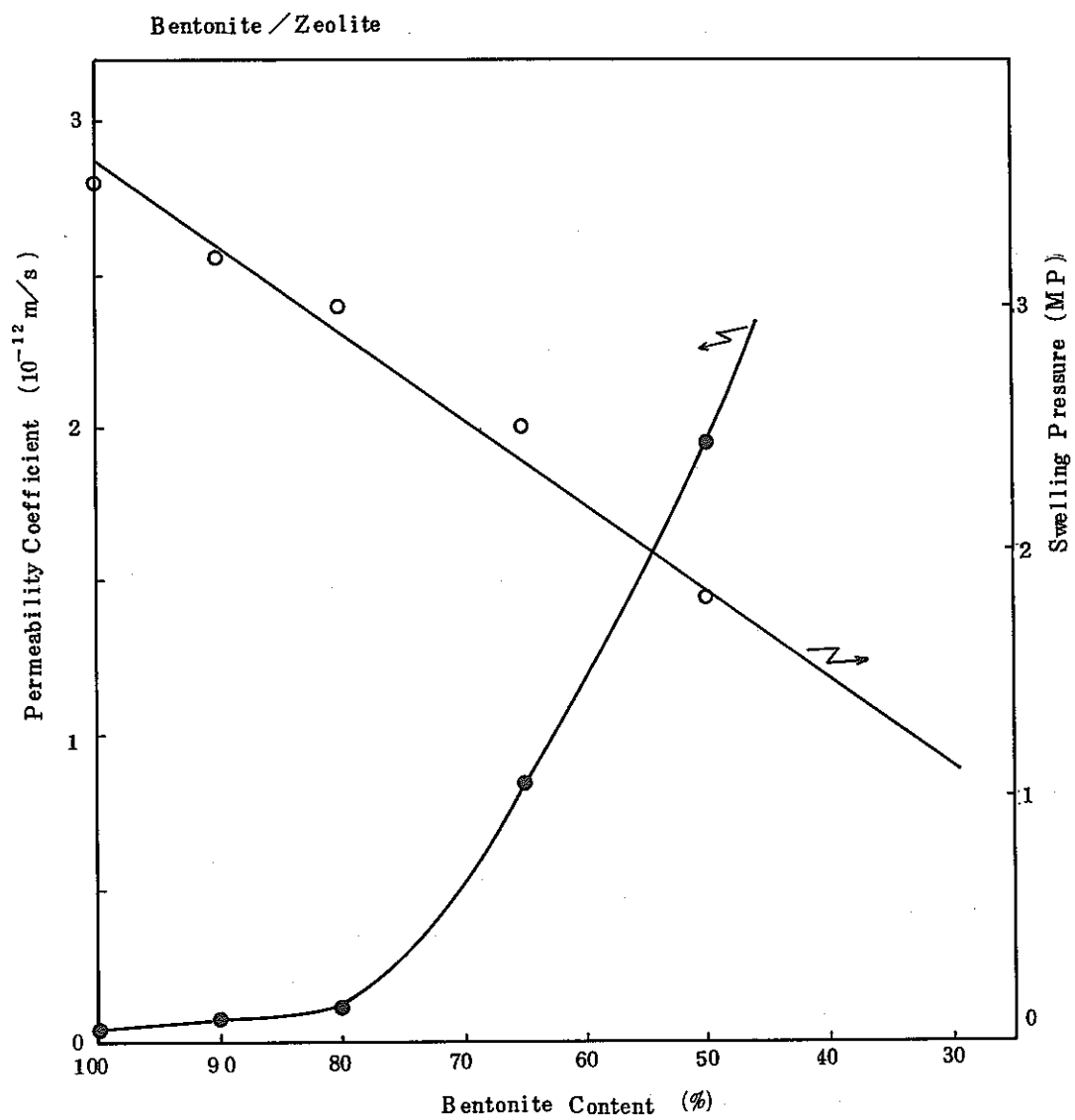


Fig. 3.1.4 K of Bentonite / Zeolite media

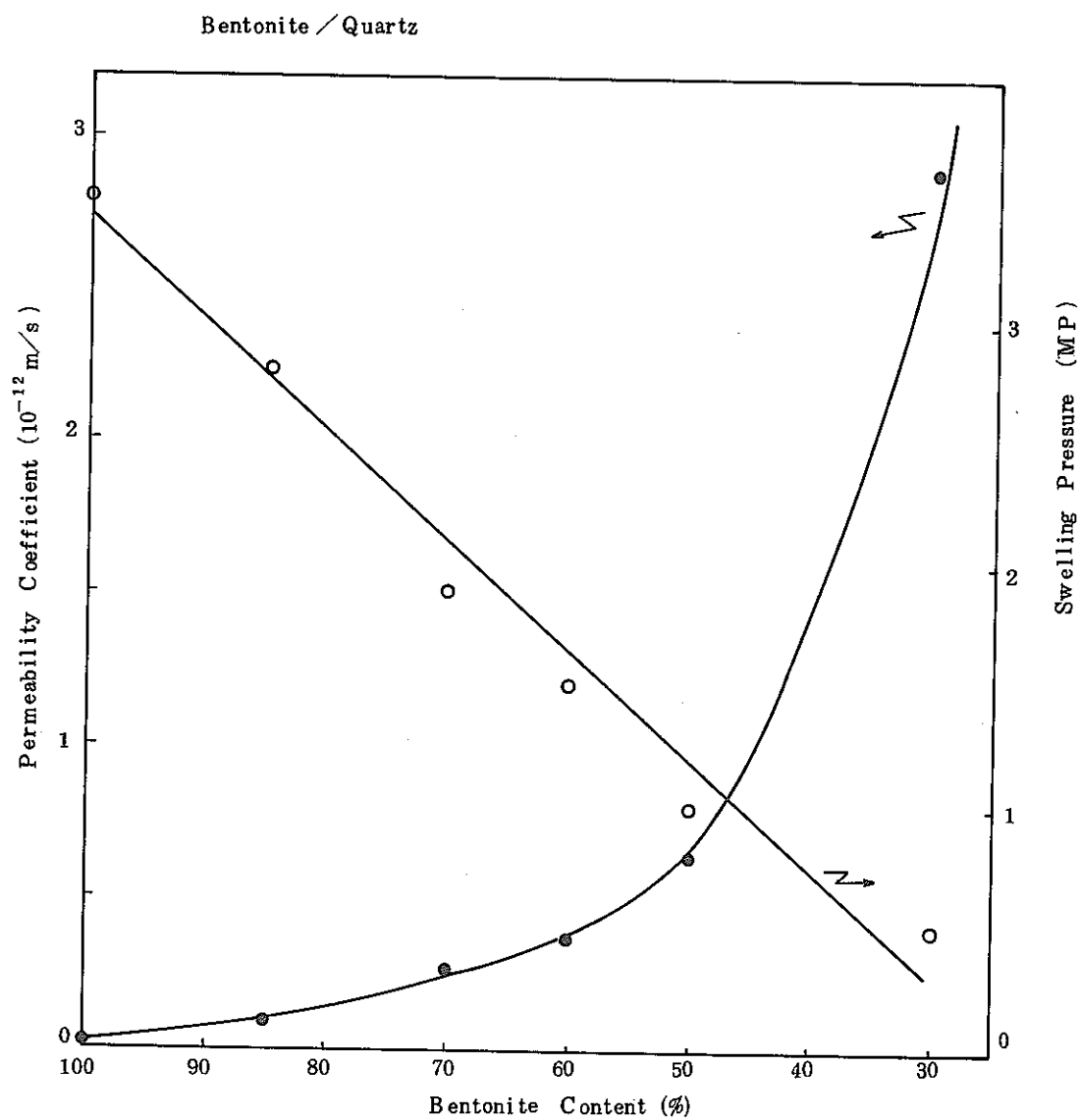


Fig. 3.1.5 K of Bentonite / Quartz media

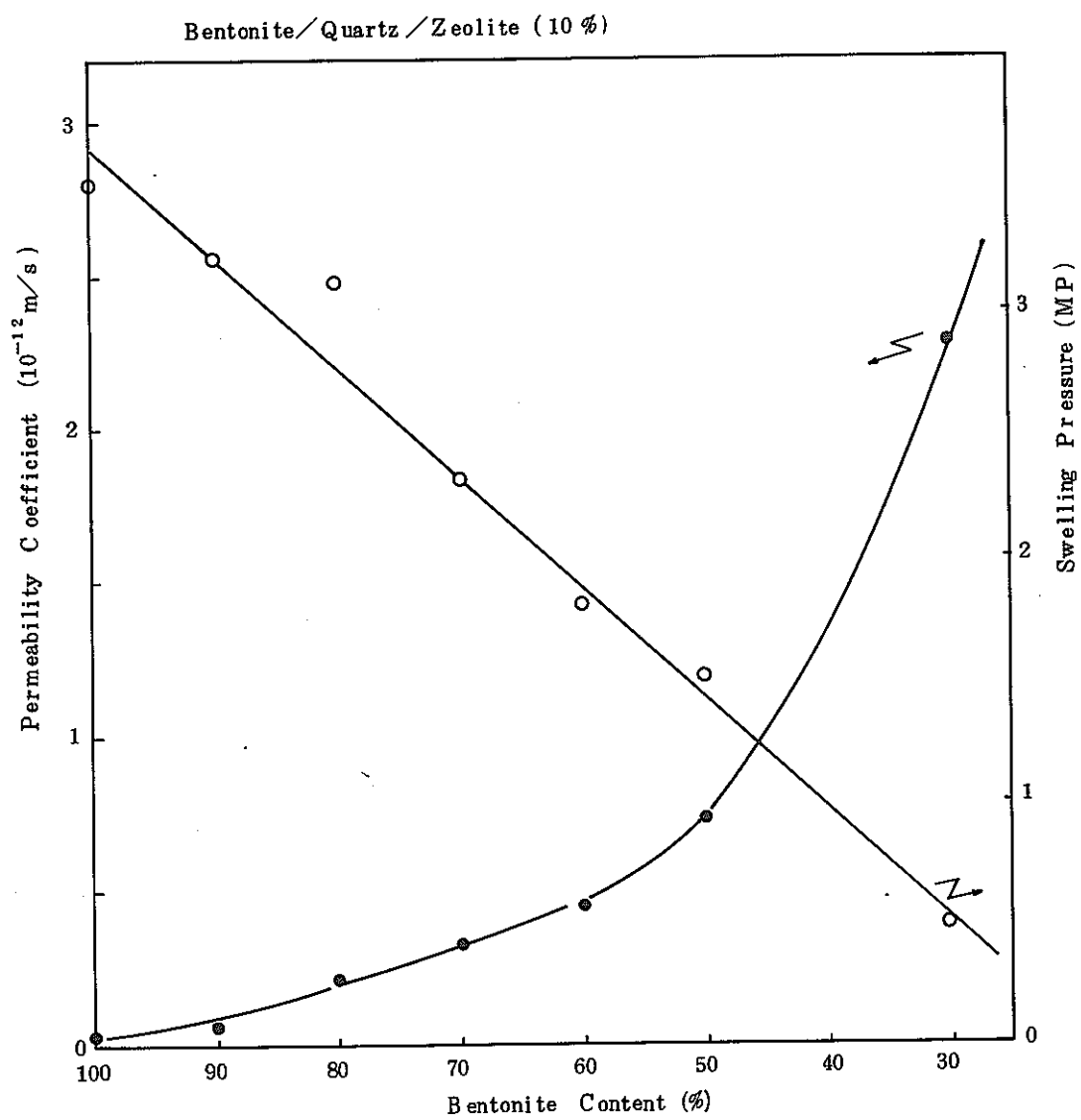


Fig. 3.1.6 K of Bentonite / Quartz / Zeolite (10 %) media

しており、これらに類似した水流にも適用されている。他方後二者は各構成要素に対応する流れ成分のネットワークを考え、各流れの確率を与えてそれを合成するものであり、種々の改良が現在加えられつつある。

本研究では minimum energy dissipation により、透水性試験で確認された結果の検討を試みることにする。ベントナイトとゼオライト或いは石英砂を混合した媒体に水を通したとき、充填時に存在する空隙はベントナイトの膨潤により消失してしまうことが予測されるので、水が通過する部分としてベントナイト中及びベントナイトと添加物の界面の2つが考えられる。ベントナイト中の水については、先述した如く更に細かく粒間水と層間水とに分類できるが、一応両者を合わせたものとしてベントナイトを均一な媒体とする。またゼオライト特に12員環を有するモルデナイトについても、粒子表面の流れ以外に細孔内の流れも存在すると考えられるが、簡略化してこれらの効果も含めたものとする。Z. Hashin と S. Shtrikman によれば、2元系の透水係数 K は(1)式で与えられる⁽¹⁾。

$$K = K_A + \frac{1 - x}{\frac{x}{3K_A} - \frac{1}{K_A - K_B}} \quad (1)$$

ここで、 K_A は ベントナイトと添加物界面及び添加物中の流れの透水係数、 K_B はベントナイト中の透水係数、そして x は添加物量（重量率）を示す。 K_A は K_B に比して大きい値と考えられるので、(1)式は次の様に変形できる。

$$K \simeq K_A + \frac{1 - x}{\frac{x}{3K_A} - \frac{1}{K_A}} = K_A \cdot \frac{2x}{3 - x} \quad (2)$$

一方、水を含んだ混合物中のベントナイト平均密度は、 x と空隙率 (ϵ) から推定することができる。推定により求めたこのベントナイト平均密度と、(2)式より計算される K_A の関係を図 3.1.7 に与える。図より、ベントナイトと添加物との界面、或いは添加物中の流れの透水係数 (K_A) はベントナイト平均密度に大きく依存しており、密度が大きくなる程小さな値をとることが明らかである。当然のことながら、ベントナイト粒子と水との相互作用は、ゼオライト或いは石英砂に比べて圧倒的に大きいので、水分子の移行に対して個々のベントナイト粒子表面は極めて大きな抵抗を与える。即ち、添加物粒子表面に近接して分布するベントナイト粒子の表面密度により、その界面を流れる水の透水係数が影響を受けると考えられる。

次に K_B について考えてみよう。ベントナイトの膨潤により空隙が均一に充填されたと考え、その密度（水を含まない）を計算すると $0.9 \sim 1.5 \text{ g/cm}^3$ の間の値をとる。この範囲での K_B を見積もるため、昨年度得られた密度 0.96 での値 $K_B = 1 \times 10^{-13} \text{ m/s}$ （水圧勾配 2×10^4 ）と、本年度に得られた密度 1.6 における値を用い、次に示されるような実験式

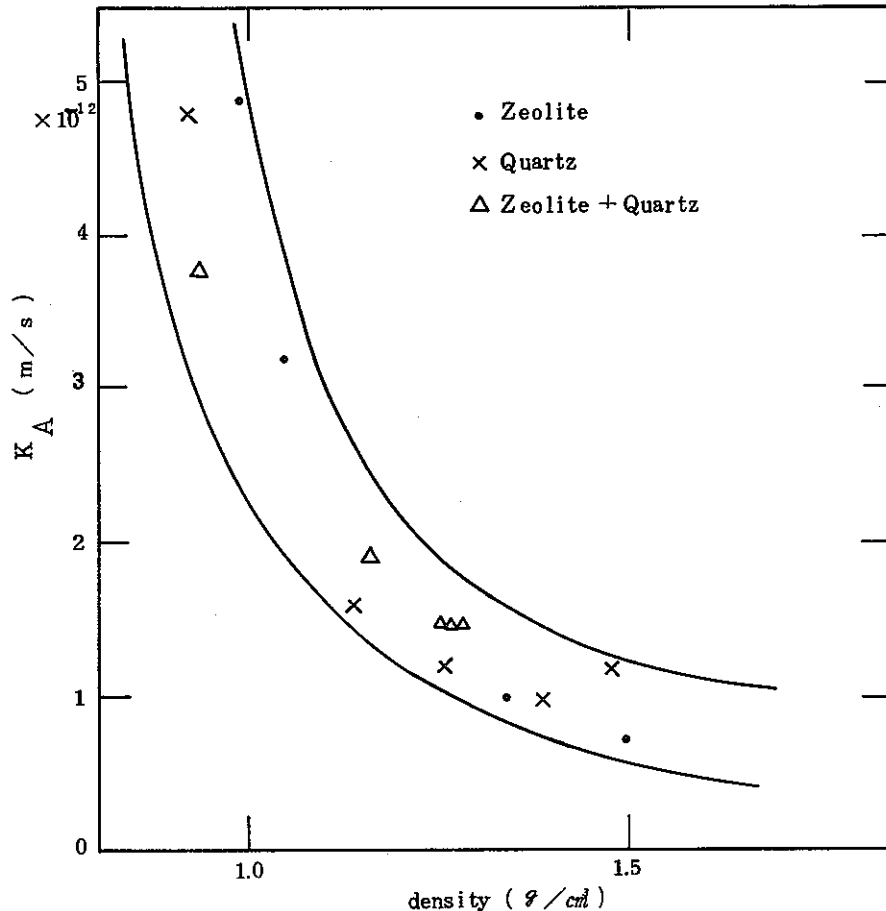


Fig. 3.1.7 KA values estimated under dry bentonite density in mixture

(3)を導出した。

$$\log KB = -\frac{\rho + 9.0}{0.77} \quad (8)$$

Pusch らの示した透水係数の密度依存性は必ずしも指数関数的とは言えないが、対象とする密度範囲が狭いときには、一次近似として(3)式からKBの値を推算することが可能であろう。

このようにして得られたKBをベントナイト平均密度及びKAとともに、表3.1.3に示す。KBはKAの数パーセントの大きさであり、このことから混合物中を流れる水の大部分は、ベントナイトと添加物の界面を流れ、その透水係数は隣接するベントナイト粒子の密度により、影響されることが理解される。

さて、図3.1.4と図3.1.5に示される石英砂或いはゼオライトとベントナイトの混合物を比較すると、透水係数の値としては石英砂の混合物の方が小さい。石英砂、ゼオライト単体で行なった測定において、透水係数は水圧勾配に強く依存しており、 10^3 程度以上の水圧勾配の場合石英砂では水圧勾配の1次、ゼオライトでは6次の依存性を与える関数となって

Table 3.1.3 Change of KB value along with
Bentonite Density

膨潤後のベントナイト 密度 (水は含まない)	K _B	K _A
1.34	3.7×10^{-14}	1.0×10^{-12}
1.50	2.3×10^{-14}	7.7×10^{-13}
1.05	8.9×10^{-14}	3.2×10^{-12}
0.99	1.1×10^{-13}	4.8×10^{-12}
1.39	3.2×10^{-14}	1.0×10^{-12}
1.48	2.5×10^{-14}	1.2×10^{-12}
1.26	4.7×10^{-14}	1.2×10^{-12}
1.14	6.8×10^{-14}	1.6×10^{-12}
0.92	1.3×10^{-13}	4.8×10^{-12}
1.26	4.7×10^{-14}	1.5×10^{-12}
1.27	4.6×10^{-14}	1.5×10^{-12}
1.28	4.5×10^{-14}	1.5×10^{-12}
1.16	6.4×10^{-14}	1.9×10^{-12}
0.94	1.2×10^{-13}	3.8×10^{-12}

いる。(表 3.1.2 ; 図 3.1.8) いずれにせよ測定を行なった範囲では、石英砂がゼオライトよりも大きな透水係数を持つことは否定できない。

透水係数 K は、粒径、形状、空隙率及び流体の粘度、密度に依存する。これらの関係は Kozeny - Carman ⁽⁵⁾ により、(4)式のように整理されている。

$$K = \frac{k \rho g}{\eta} \quad (4)$$

$$k = \frac{\epsilon^3}{m \cdot t^2 \cdot S_o^2 (1 - \epsilon)^2} \quad (4)'$$

g : 重力加速度

ρ : 流体の密度

η : 流体の粘度

m : 形状因子 ($\simeq 2.5$)

t : 流れのねじれ因子 ($\simeq \sqrt{2}$)

S_o : 単位体積当りの粒子表面積

ϵ : 空隙率

使用した石英砂とゼオライトをそれぞれ直径 $100 \mu m$, $70 \mu m$ の単分散球としたとき、(4)' により計算された k の値は表 3.1.4 のように石英砂の方がやや大きな値となる。

また、(4)式における ρ と g は同一であるので異なる K を与える原因の 1 つとして、流体の

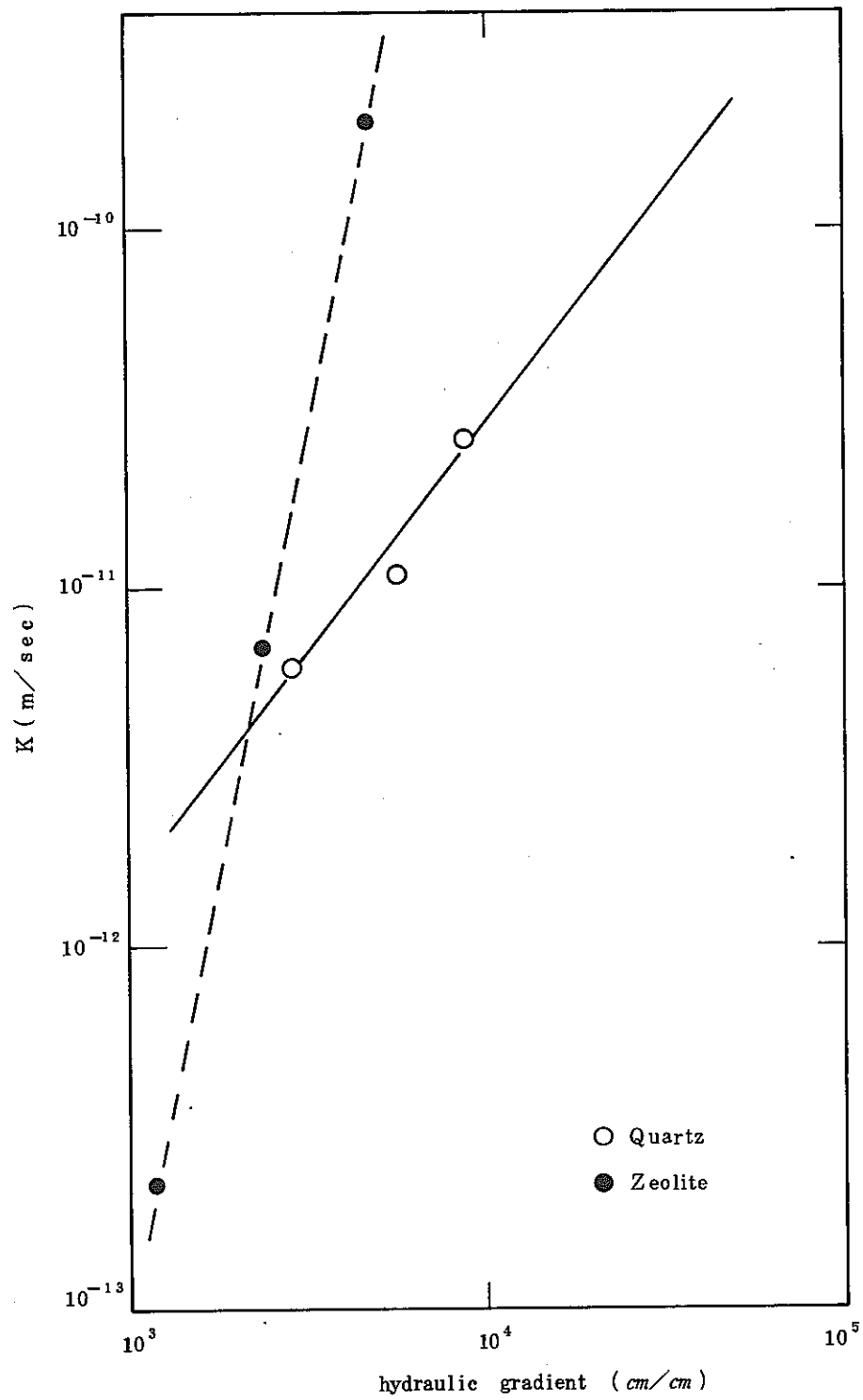


Fig. 3.1.8 The dependency of K of Zeolite and Quartz sand on hydraulic gradient

Table. 3.1.4 k of Quartz sand and Zeolite

	ϵ	k
Quartz	0.39	$8.9 \times 10^{-12} \text{ m}^2$
Zeolite	0.44	7.4×10^{-12}

粘度が粒子表面で局所的に変化している可能性が考えられる。更にこの計算では、流体は粒子内部を通過しない即ち、粒子表面に沿って流れるとしている。ここで使用したゼオライトの中には (Si, Al) O の結合で構成される 12 員環 (平均細孔径 6.6° A) を有する多孔質のモルデナイトが含まれており、ゼオライトについては (4) 式中の比表面積 S_o 及び形状因子が単純には見積もれないという指摘も行なえよう。石英砂の透水係数がゼオライトよりも小さい原因の一つとしてこのようなことも考えられよう。

実験で得られた K の値から、20 cm 厚の緩衝材を水が通過するに要する時間を計算したものが、表 3.1.5 である。

Table. 3.1.5 Permeation time through 20 cm thick media

Material			Hydraulic Gradient		
Bentonite	Zeolite	Quartz	1	10^2	10^4
100%	0%	0%	1.0×10^5 years	1.0×10^3 years	2.1×10^1 years
80	20	0	2.2×10^4	2.2×10^2	5.8
50	50	0	1.5×10^3	1.5×10^1	0.15
70	0	30	2.3×10^4	2.3×10^2	6.3
50	0	50	4.0×10^3	4.0×10^1	0.40
30	0	70	1.0×10^3	1.0×10^1	0.10

水で飽和した緩衝材中を移行する水に働く水圧勾配は、小さいと考えられている。実際 Strippa の花崗岩中で測定された値は表面近傍で 2~3、更に奥では 1 程度の値であると報告されている⁽⁶⁾。このような水圧勾配の値のもとでは、水の移行は水中のイオンの拡散に比べ充分遅く、キャニスターからの核種の移行過程は拡散によると考えることができる。

一方、乾燥した緩衝材中の空隙はほぼ大気圧の空気で満たされており、ホストロック中の地下水はその深度に応じた静水圧を有することから、 $10^3 \sim 10^4$ 程度の水圧勾配が乾燥した緩衝材中を通過する水に働くことになる。ここで、埋め戻し後地下水が緩衝材中を通過し、キャニスターに達するまでの時間を見積もることについて、2つの問題点が指摘できる。1つは水の通過速度と緩衝材が膨潤しシール性を発揮するまでの時間との関係である。水の通過速度が膨潤速度に比べて小さいときは、水のフロントの進行速度はそれが通過してきた部

分を続いて流れてくる水の通過速度により決定されるため、埋め戻し後キャニスターに水が到達するまでの時間は本実験から得られた透水係数を用いて見積もることができる。一方、水の通過速度が十分に速く、緩衝材のシール性を発揮する時間的余裕がないときには、飽和状態での透水係数を使うことはできず、膨潤速度と水の流速との関係を検討することが必要になる。もう一つの問題点は、ホストロック中の高い静水圧を有する水の緩衝材への流れ込み速度とその水量の関係である。 $10^3 \sim 10^4$ の水圧勾配で水がホストロックから緩衝材へ供給されたとき、その後同じ水圧勾配で水を流し続けるだけの水量が周囲のホストロックの透水性から可能であるか否かが問題となる。このことは、地下研究施設での実験により確認される項目であろう。

3.1.2 クラックの影響

埋め戻し後、緩衝材が水で飽和する以前に何らかの原因でクラックが発生したり、或いはスウェーデンで提唱されているように処分ピット内に円筒状に成型した緩衝材を重ねて充填するような施工を行なう場合には、積み重ねた各円筒間にギャップが存在することになる。このような空隙を膨潤によりシールすることが緩衝材の機能の1つとして期待されている。クラックを有する媒体の透水性は、バルクでの値では評価し得ない面が現われることが懸念される。ベントナイトが緩衝材の候補材料の基本物質と考えられる理由の1つに、膨潤による自己シール性を具備していることが挙げられる。本節では、それを確認するためにクラック状の空隙を有するベントナイト試料の透水性について予備的な検討を行なった。

a. 実験

試料にはNaベントナイトを用い、圧密の際にプレス下部ピストン上面に垂直に板を立てたものを使用して、クラックを模擬した空隙を形成した。(写真3.1.3～5)模擬クラックは円板状試料の通水方向に貫通しており、その幅は0.5 mm, 2.0 mmの2種類であり、長さは40 mmで通水面を二分している。3.1.1節で使用した透水セルのシリンダー内で上記のように成型された試料を透水率測定装置にセットし、前節と同様の方法で透水率の測定を行なった。

b. 結果及び考察

試験終了後、取り出した2種類の試料共、模擬クラックは膨潤により充填されてはいるものの、クラックの跡が肉眼で明瞭に確認された。この様子を写真3.1.6と7に示す。これはクラック部の粘土の密度がバルクの密度よりも小さいためと思われる。表3.1.6に試験結果をまとめた。表中の密度はベントナイトが膨潤により均一に分散すると考えた平均の値である。クラックがある場合の透水係数は0.5 mm幅で約3倍、2.0 mmで4倍の値を呈する。

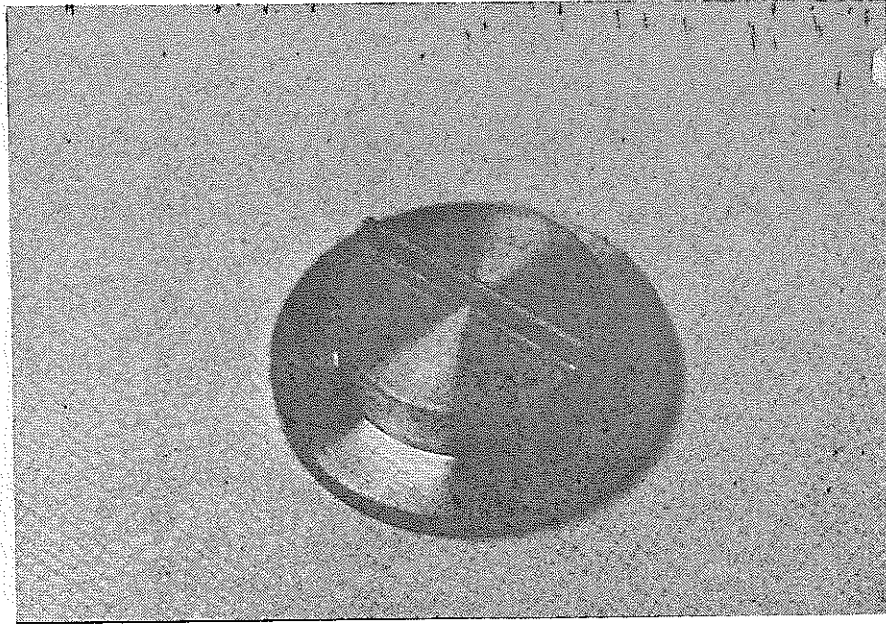


Photo . 3.1.3 Mold for formation of artificial crack in bentonite speimen

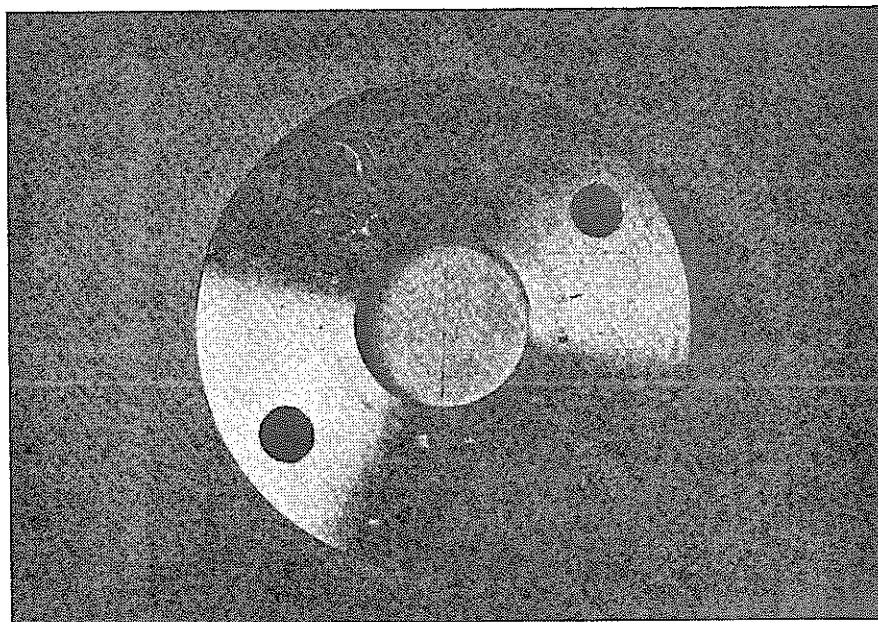


Photo . 3.1.4 Bantonite specimen with 2mm width crack before permeability test

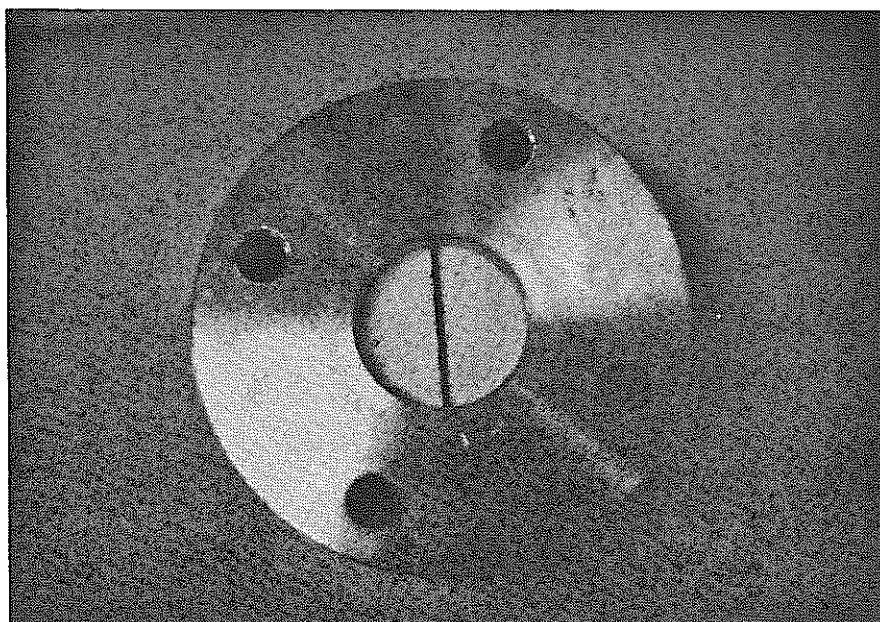


Photo . 3.1.5 Bentonite specimen with 0.5 mm width crack
before permeability test

Table 3.1.6 Summary of Permeability tests by Bentonite
with Artificial Crack

クラック幅	0	0.5	2.0 mm
K	3.0×10^{-14}	8.7×10^{-14}	$1.2 \times 10^{-13} \text{ m/s}$
密度 *	1.37	1.46	1.37 g/cm ³
P s	28	28	23 Kg/cm ²

* 試験終了後均一に分散していると考えたときの粘土の密度

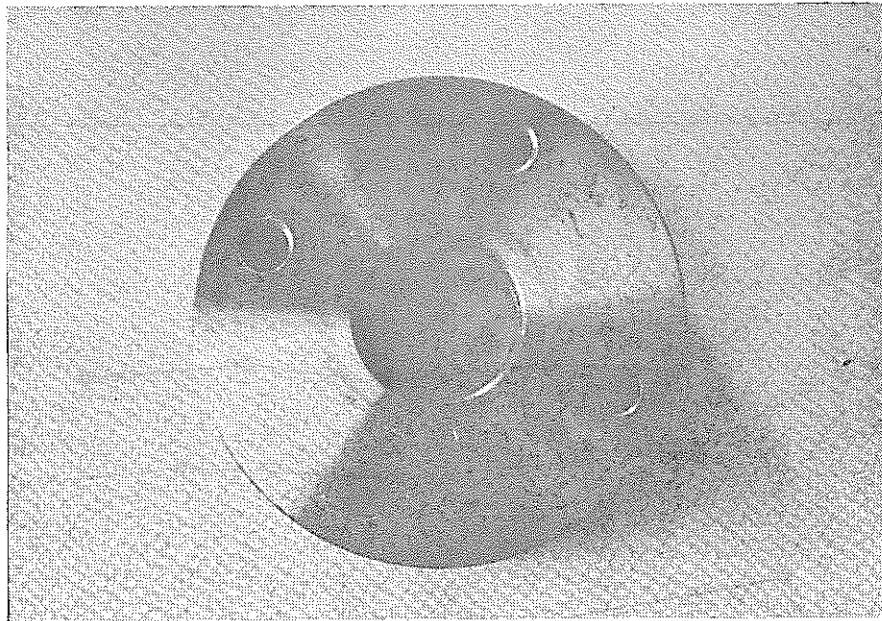


Photo . 3.1.6 Bentonite specimen with 2 *mm* width
crack after permeability test

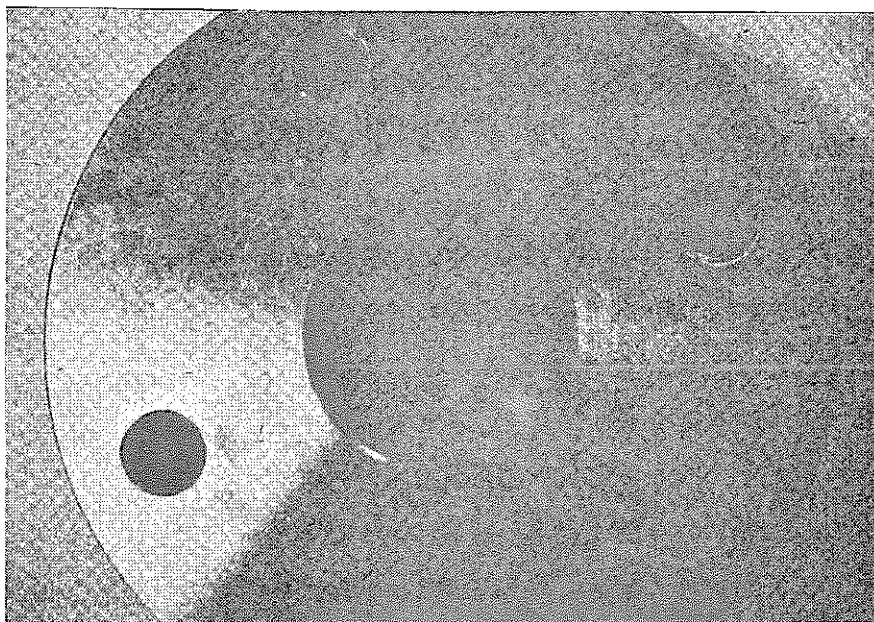


Photo . 3.1.7 Bentonite specimen with 0.5 *mm* width
crack after permeability test

図 3.1.9 に模擬クラックを有する各試料について得られた透水係数の経時変化を示す。図中で時間 0 の点は、2 ～ 3 Kg/cm^2 の圧力で水を透水セルに供給し、試料が膨潤して膨潤圧が一定に到達したことを確認した後、2.0 Kg/cm^2 の圧力で水を加圧して透水量の測定を開始した時に対応する。

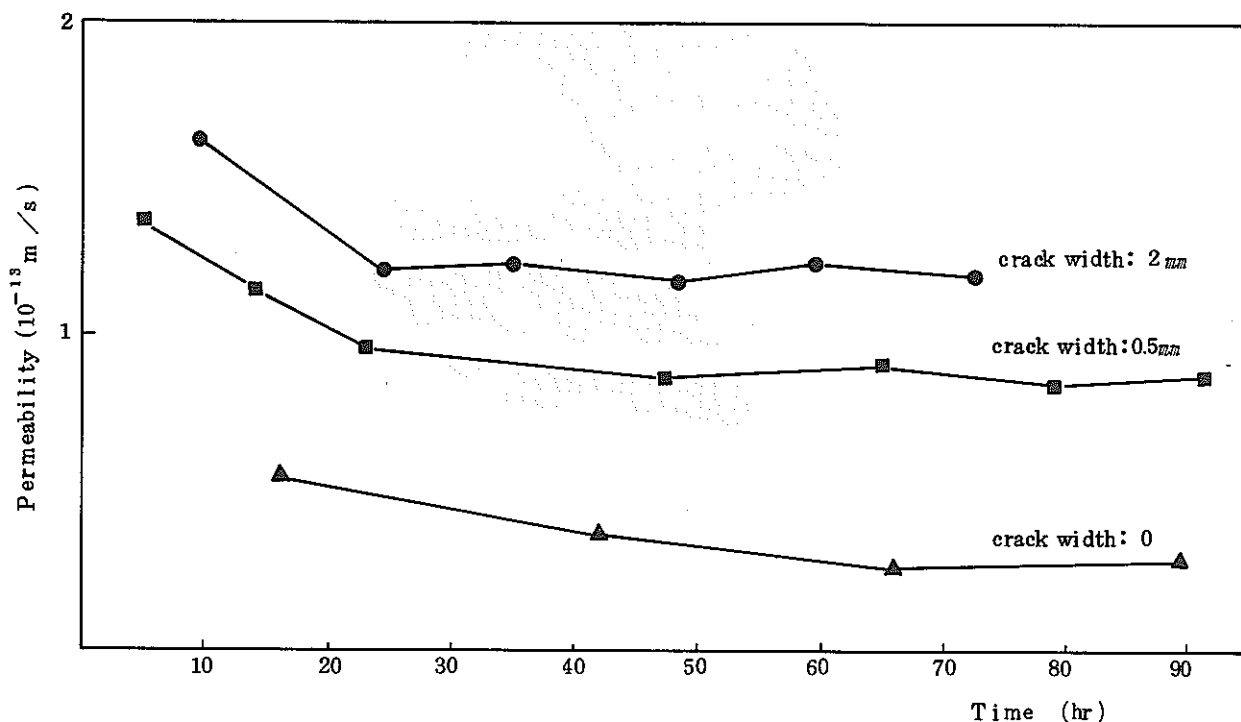


Fig. 3.1.9 Change of permeability through bentonite with artificial crack

粘土表面近傍の水は粘土表面の静電的作用により、水分子が一定の規則性で配向した構造をつくると考えられている。⁽⁷⁾ Pusch は、そのような構造をもった水の動きは通常の結晶の塑性変形と同様に記述されるとしている。⁽⁸⁾ 即ち水の単位構造のスリップに対し、その活性化エネルギーと、あるエネルギー領域に単位構造が存在する頻度因子を仮定し、粘土表面の水がつくる構造の歪速度の計算を行ない歪速度（流速）が時間に逆比例するとしている。透水係数はこのような構造水の変形と粘土表面から離れた自由な水の動きとの和として表わされる。従って、構造水の“硬化”が充分に行なわれた後に透水係数がレベルオフする値は、粘土粒子間に表面から離れて存在する自由水分子の流量に対応するものとなり、均一な媒体では充填密度がその透水性を決定する。しかしながら表 3.1.6 に示されるように、今回の実験で得られた透水係数は密度とは対応していないので、透過水はクラックを選択的に流れていると考えられる。残念ながら、本年度の実験ではクラック内を通過する流量とクラック幅、或いはベントナイト密度との間には何らかの傾向を見出すまでには到らなかった。いずれにせよ試料中に極めて大きな模擬クラックが存在する場合でも、Na ベントナイトの呈する透水係数の値は数倍の増加にとどまり、クラックの存在

は透水性に対して破綻的な影響を及ぼさないことが確認された。

3.2 核種移行試験

キャニスターの健全性が応力腐食割れ等により損なわれて、固化体からの核種の浸出が生じたとき、その生態系に向けた移行を遅延させる第一の障壁が緩衝材である。この遅延効果の見積もりが地下水の流速、緩衝材の厚み、空隙率、分配係数等をパラメータとして行なわれており、その結果から緩衝材の有効性と具備すべき特性の目標値の検討が行なわれている⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾。これらの計算の中で使用されている分配係数の値は、目標値としてアプリアリに与えられるか、或いはバッチ式吸着実験で得られたものを基にしている。液中に吸着剤粒子が分散されているバッチ式吸着実験は、地下水流速が充分小さい実際の処分地で予想される圧密された粒子と、その間隙の水との間で動的な吸着平衡を保ちつつイオンが拡散していくという状況とは異なったものであると考えられる。従って、バッチ式吸着実験で得られた値の緩衝材性能評価への適用性が問題となるが、現状では圧密条件下での研究分野では、まだ十分なデータの集積は行なわれていない。本節では、バッチ式吸着実験での分配係数と比較を行なうため、密度を1.6に圧縮したベントナイトとゼオライト或いは石英砂との混合物中での拡散定数の測定を行なった。

3.2.1 数式モデル

核種の移行は水の流れに伴う対流と濃度差に基づく拡散により行なわれ、その移行の過程で固体による吸着が起こるとして、系を簡単な一次元で考えた。時間 t 、位置 x における核種のマスバランスを考慮して次式を得る。

$$\epsilon \frac{\partial c}{\partial t} + \frac{\partial s}{\partial t} + \epsilon V \frac{\partial c}{\partial x} - \epsilon D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} = 0 \quad (1)$$

ここで ϵ は空隙率（空隙は水で飽和しているとする）、 V は空隙中を流れる水の平均流速、 D は水中の拡散定数である。第1項と第2項は水中及び粒子中の濃度変化、第3項と第4項はそれぞれ流れと拡散によって移動する核種の量である。粒子と水との間で核種の吸着平衡が成立しているとき、(1)式は(2)のように書き換えられる。

$$Rf \frac{\partial c}{\partial t} + V \frac{\partial c}{\partial x} - D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} = 0 \quad (2)$$

$$\text{ただし, } Rf = 1 + \frac{\rho k d}{\epsilon} \quad (3)$$

ここで、 Rf は遅延因子と呼ばれる量であり、 ρ は乾燥状態での充填密度、 $k d$ は分配係数である。緩衝材への核種の浸入が時間 $t=0$ で始まり、その濃度は時間に依らず一定の値 C_0 を保つとすると、(2)式を解析的に解くことができ、その解は(4)で与えられる。

$$\frac{C(\alpha, \beta)}{C_0} = 1 - \frac{2}{\sqrt{\pi}} e^{\frac{\alpha}{2}} \int_0^{\frac{\alpha}{2\sqrt{\beta}}} e^{-\xi^2} \cdot e^{-\left(\frac{\alpha}{4\xi}\right)^2} d\xi \quad (4)$$

ここで α, β は

$$\begin{aligned} \alpha &= \frac{V}{D} x \\ \beta &= \frac{V^2}{Rf \cdot D} t \end{aligned} \quad (4)'$$

で定義され、それぞれ位置及び時間を表わす無次元量である。(4)式で $V=0$ とすると、

$$\frac{C}{C_0} = 1 - \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^{\eta} e^{-\xi^2} d\xi = \operatorname{erfc}(\eta) \quad (5)$$

$$\text{ここで } \eta = \frac{x}{2\sqrt{\frac{D \cdot t}{Rf}}}$$

となり、核種の移行過程を拡散だけと考えたときの解である補誤差関数となる。なお(4)式中の被積分関数

$$\begin{aligned} f(\xi) &= \frac{2}{\sqrt{\pi}} e^{\frac{\alpha}{2}} e^{-\xi^2} e^{-\left(\frac{\alpha}{4\xi}\right)^2} \\ &= \frac{2}{\sqrt{\pi}} \exp - \left(\xi - \frac{\alpha}{4\xi}\right)^2 \end{aligned} \quad (4)''$$

は、 $\xi = \frac{\sqrt{\alpha}}{2}$ において極大値 $f\left(\frac{\sqrt{\alpha}}{2}\right) = \frac{2}{\sqrt{\pi}}$ をもち、(4)式の C/C_0 はここで変曲点をもつことになる。このとき

$$\xi \equiv \frac{\alpha}{2\beta} = \frac{\sqrt{\alpha}}{2} \text{ から } \alpha = \beta$$

となり、(4)' 式から

$$x = \frac{V}{Rf} \cdot t \quad (4)'''$$

(4)''' は水中の核種が吸着により遅延を受けながら材料中を進むフロントの中心位置を表わしており、その前後で吸着及び拡散による濃度勾配が生じている。勾配の変曲点はフロントの中心位置に対応していることが理解される。

3.2.2 実験装置

圧密下で核種の吸着試験を行なう実験装置の概念図を図 3.2.1 に示す。核種を添加された水は液体クロマトグラフ用の高圧ダブルブランチャーポンプで圧力調整弁へと送られ 100 Kg/cm^2 の圧力に保たれる。圧力調整弁を出た水は再びリザーバーと戻される。高圧水の一部は圧力計を経て試料へと送り込まれる。原理的には、透水性試験装置と同じであるが、水の加圧を気体で行なうことには RI 使用上潜在的に問題があるため、ポンプと圧力調整弁による加圧方式とした。高圧系配管及び継手の材質は SUS316、ポンプのブランチャー及びチェックバルブはサファイア製、リザーバー容器はバイレックスガラスであり、ポンプサクシオン側ラインはシリコンゴムチューブを使用した。ポンプのバルブを保護するためのフィルターには孔径 $12 \mu\text{m}$ のニュークリポアフィルターを使用した。装置の全系を写真 3.2.1 に示す。次に拡散カラムの図面を図 3.2.2 に示す。試料の直径は 40 mm 、長さは 20 mm である。供給する水の試料面への均一な分散を促し、又試料の流れ出しを防止するために 2400 メッシュのステンレス細線焼結フィルターを重ねた円板で、試料を挟み込んだ。このような装置を Sr と Cs 用に 1 台ずつ製作し実験を行なった。

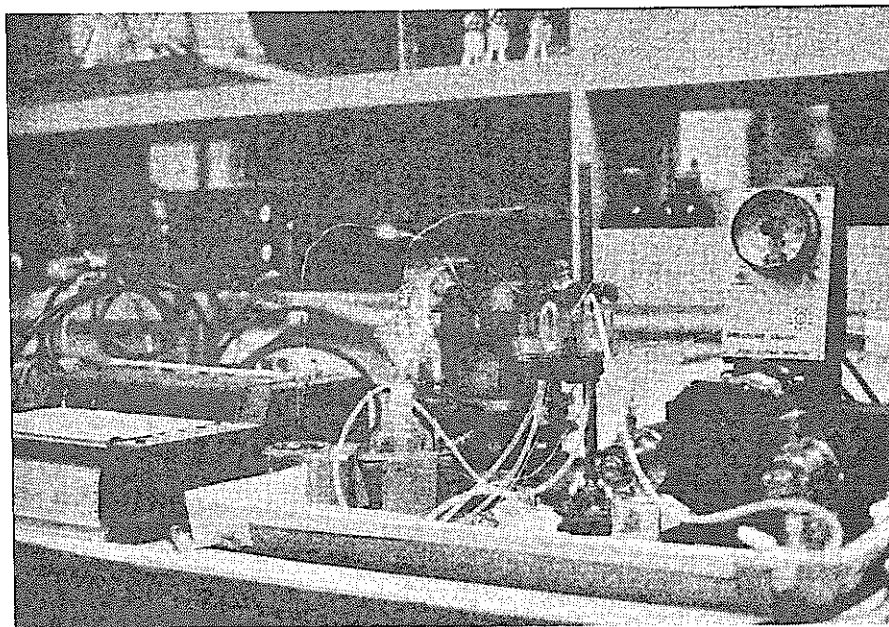


Photo. 3.2.1 Migration test apparatus

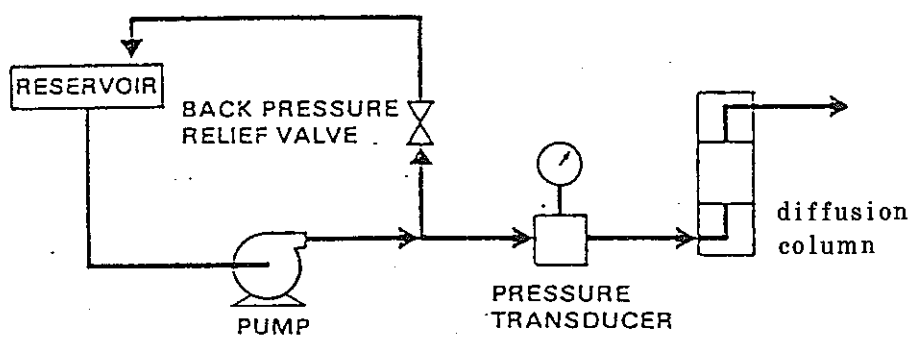


Fig. 3.2.1 Schematic Diagram of Migration test Apparatus

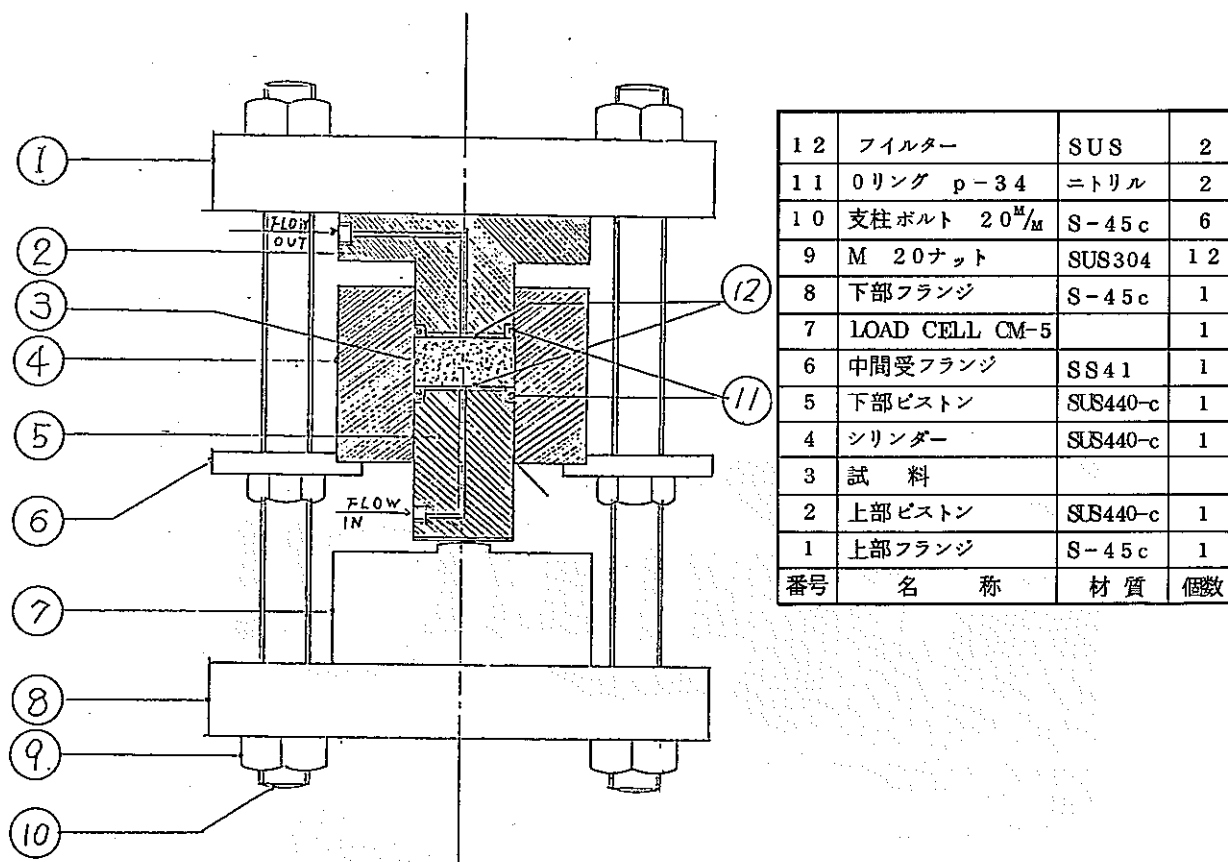


Fig. 3.2.2 Diffusion Column for Migration tests

3.2.3 実験方法

対象とした材料は山形県月布産Naベントナイトと石英砂、或いは、島根県仁摩町産ゼオライトとの混合物である。ベントナイト及びゼオライトはそれぞれボールミルで200メッシュ以下に粉碎したものを、石英砂は市販の150～200メッシュのものを使用した。各材料を所定量、計量、混合し、拡散カラムのシリンダー内へ油圧プレスで密度1.6に充填した。実験を行なった試料の組成は、Naベントナイト100%、Naベントナイトとゼオライト混合物でそれぞれ(80%, 20%), (60%, 40%), (40%, 60%), Naベントナイトと石英砂混合物で(70%, 30%), (30%, 70%), である。

シリンダーを装置に設置した後、核種を含まない蒸留水を100Kg/cm²の圧力で試料へ供給し、試料を充分飽和させた。飽和期間は各試料ともほぼ一週間である。次に模擬核種として、 γ エミッターであるSr85或いはCs134を含んだ塩化物を約0.3 μ ci/ccの濃度に調整した水を、ポンプで数日間送り続けた。Sr, Csの濃度はおよそ 10^{-6} mol/lである。試料中の流速は試験中に試料を通過した水量と試験時間から平均値として求めた値を空隙率で除し、粒間速度に換算した。

核種濃度の軸方向分布は、試料をシリンダーから0.5～2mmずつ押し出し、カッターでスライスした切片を γ 線計測して求めた。各切片は切り出された後直ちに重量を計り、放射能測定後デシケータ中に2週間保管して乾燥させた後に再び重量を計り、固体の重量と含水量を求めた。図3.2.3～8に各試料の試験終了後の含水分布の例を示す。図に見られるように、水分量は軸方向に一定ではなく、入口側から出口側へ向って減少する傾向を示している。これは、入口側ピストンを固定し出口側ピストンだけを可動として粉体の充填を行なったために生じたものと思われる。各切片の水分量を合計し、それと試料充填時のバルクの空隙との比をとると、Naベントナイト100%で1.16 g/cm³、ゼオライト20%混合で1.12 g/cm³、40%混合で1.07 g/cm³、60%混合で1.07 g/cm³、石英砂30%混合で1.04 g/cm³となり、試料全体では空隙はほぼ水で満たされていると考えられる。したがって、含水率分布は粉体充填時の空隙分布が反映されたものであり、試料の出口に近い部分で空隙の一部に空気が残存していることはないと思われる。各切片中の固体に吸着された核種のカウント数をCs、水のカウント数をCL、固定の重量をWs、含水量をWLとすると、核種の水中濃度は(6)式で与えられる。

$$\frac{CL}{WL} = \frac{Cs + CL}{WL} \bigg/ \left(1 + \frac{Cs}{CL} \right) \quad (6)$$

kdが位置、濃度によらず一定であるとすれば(6)式は次のように書ける。

$$\frac{CL}{WL} = \frac{Cs + CL}{Ws} \bigg/ \left(kd + \frac{WL}{Ws} \right) \quad (7)$$

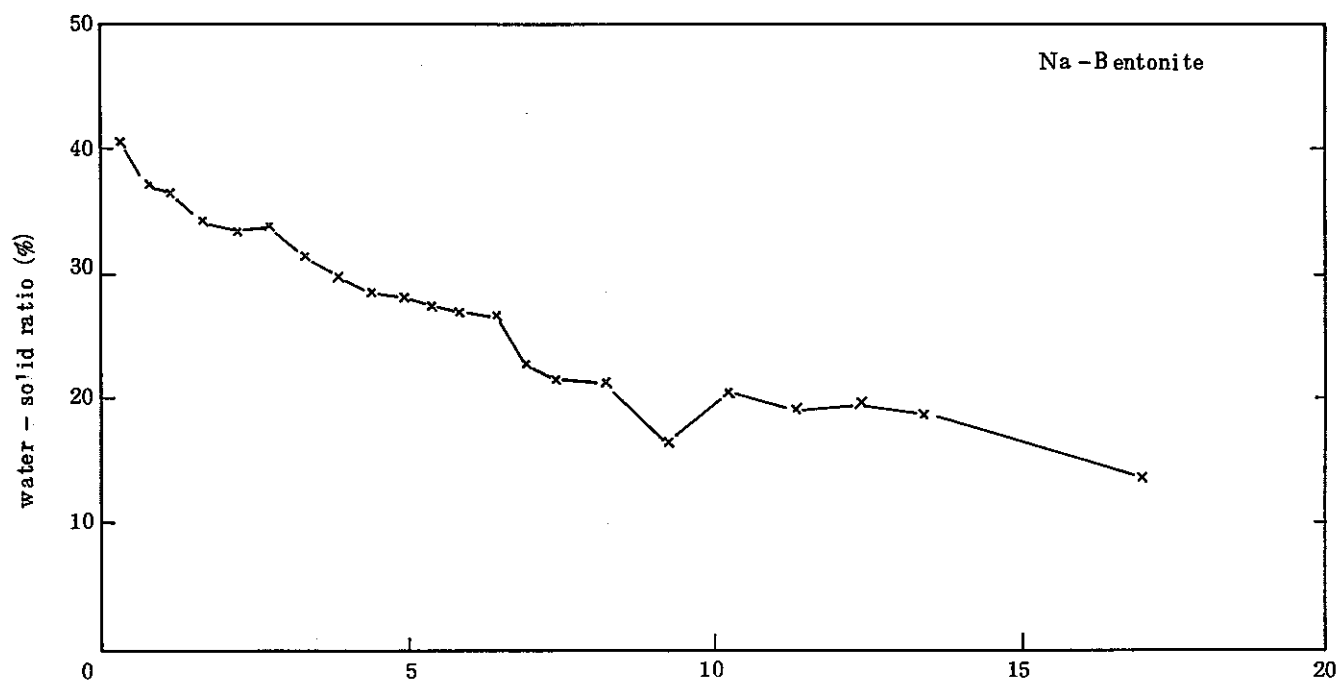


Fig. 3.2.3 Variation of water-solid ratio with distance in
Na-bentonite

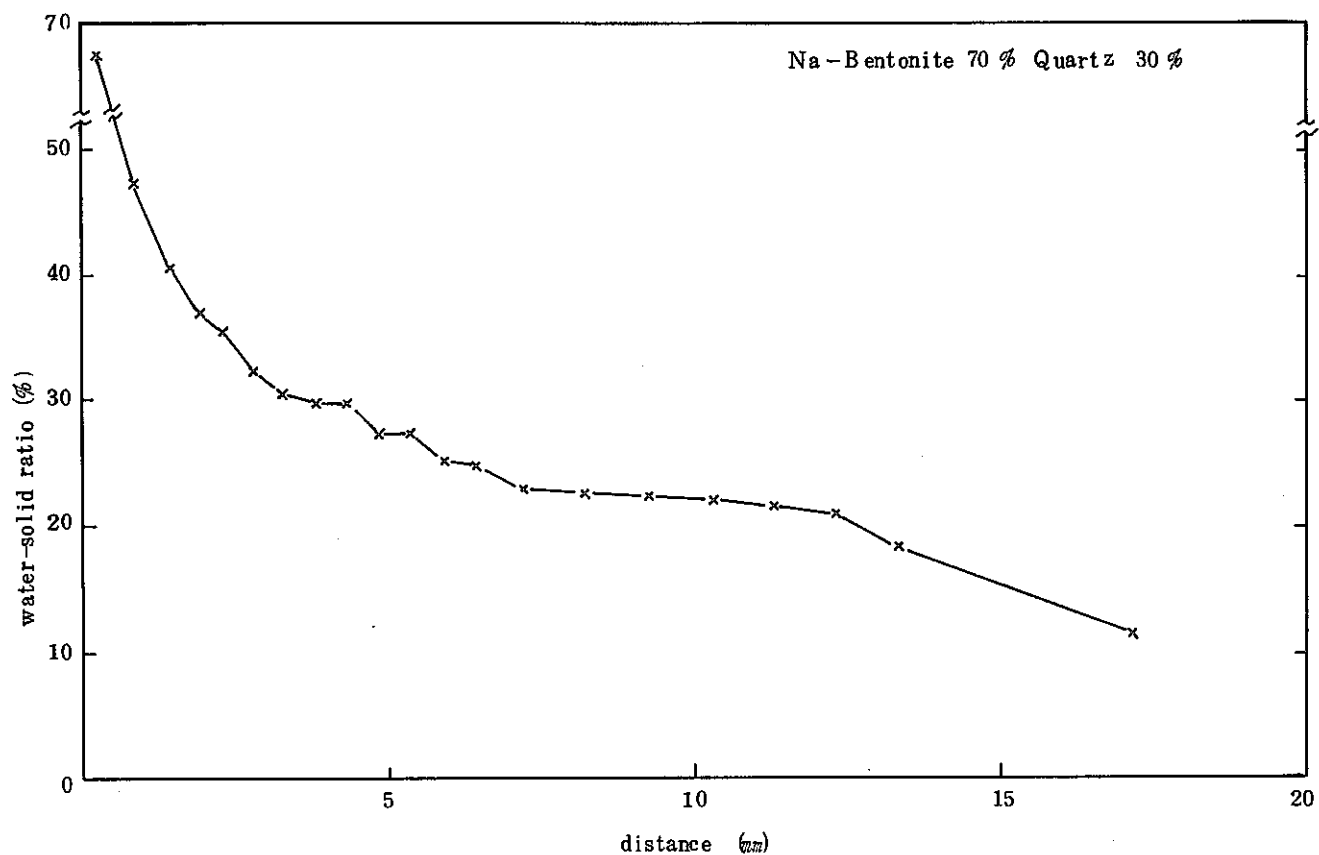


Fig. 3.2.4 Variation of water-solid ratio with distance in
Na-bentonite 70% quartz 30% mixture

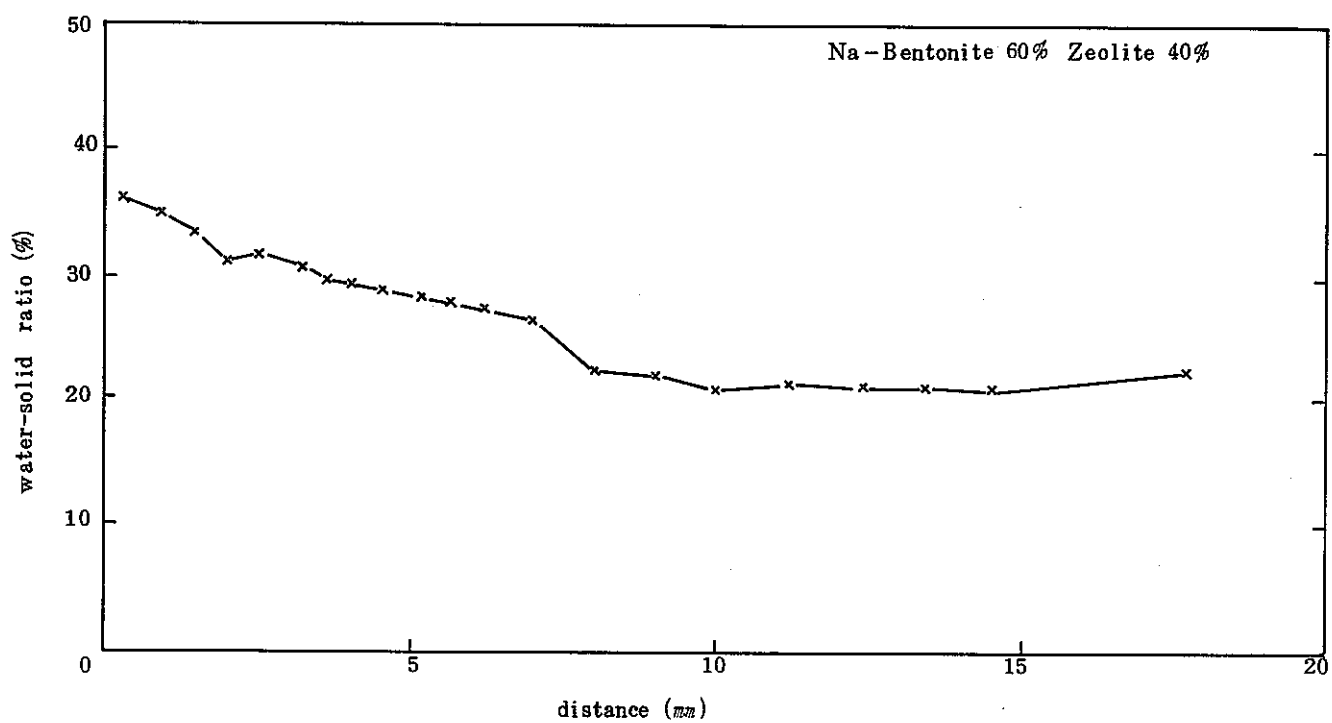


Fig. 3.2.5 Variation of water-solid ratio with distance in
Na-bentonite 60% / zeolite 40% mixture

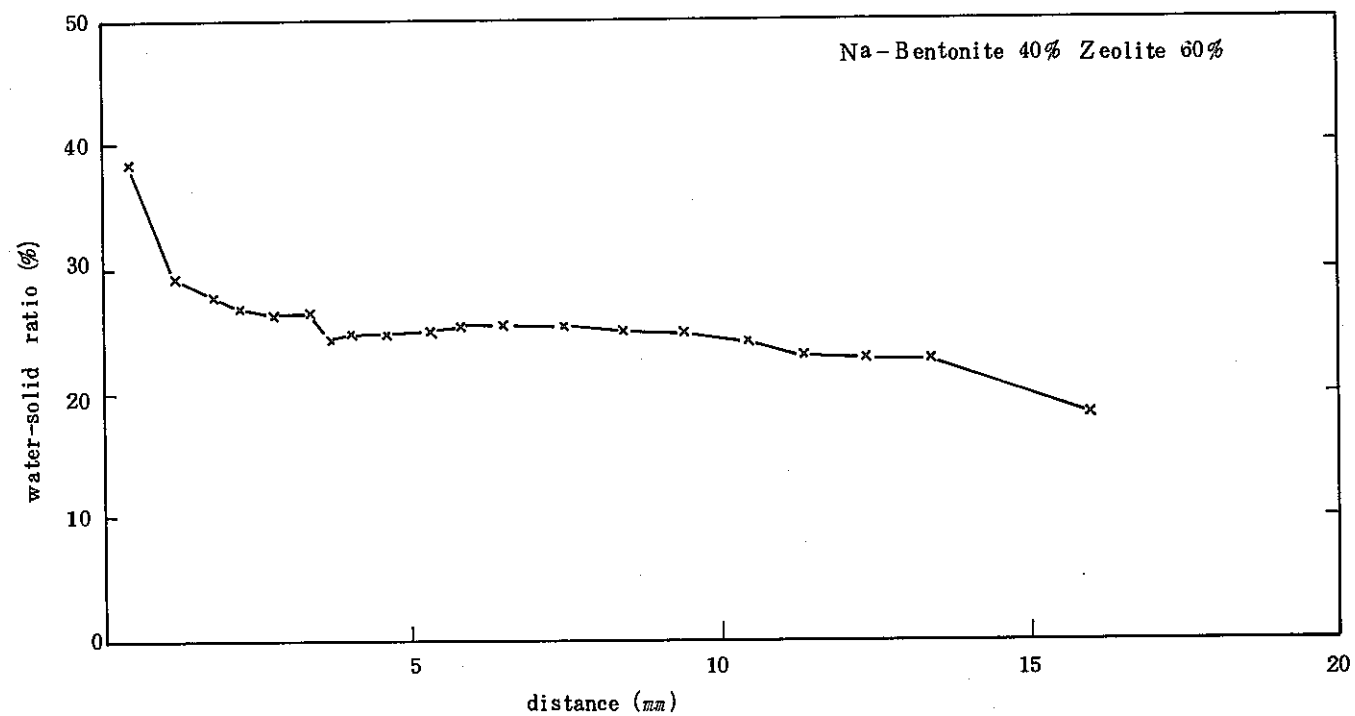


Fig. 3.2.6 Variation of water-solid ratio with distance in Na-bentonite 40% zeolite 60% mixture

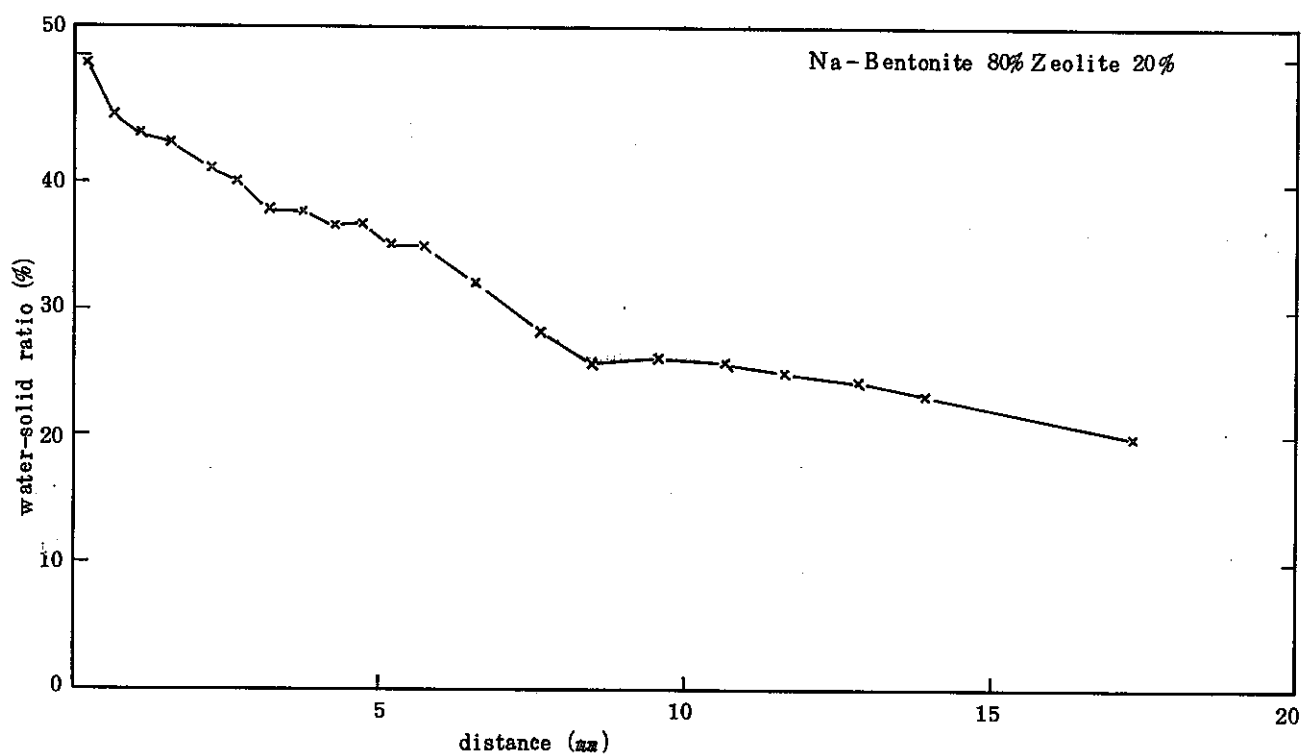


Fig . 3.2.7 Variation of water-solid ratio with dittance in
Na-bentonite 80% zeolite 20% mixture

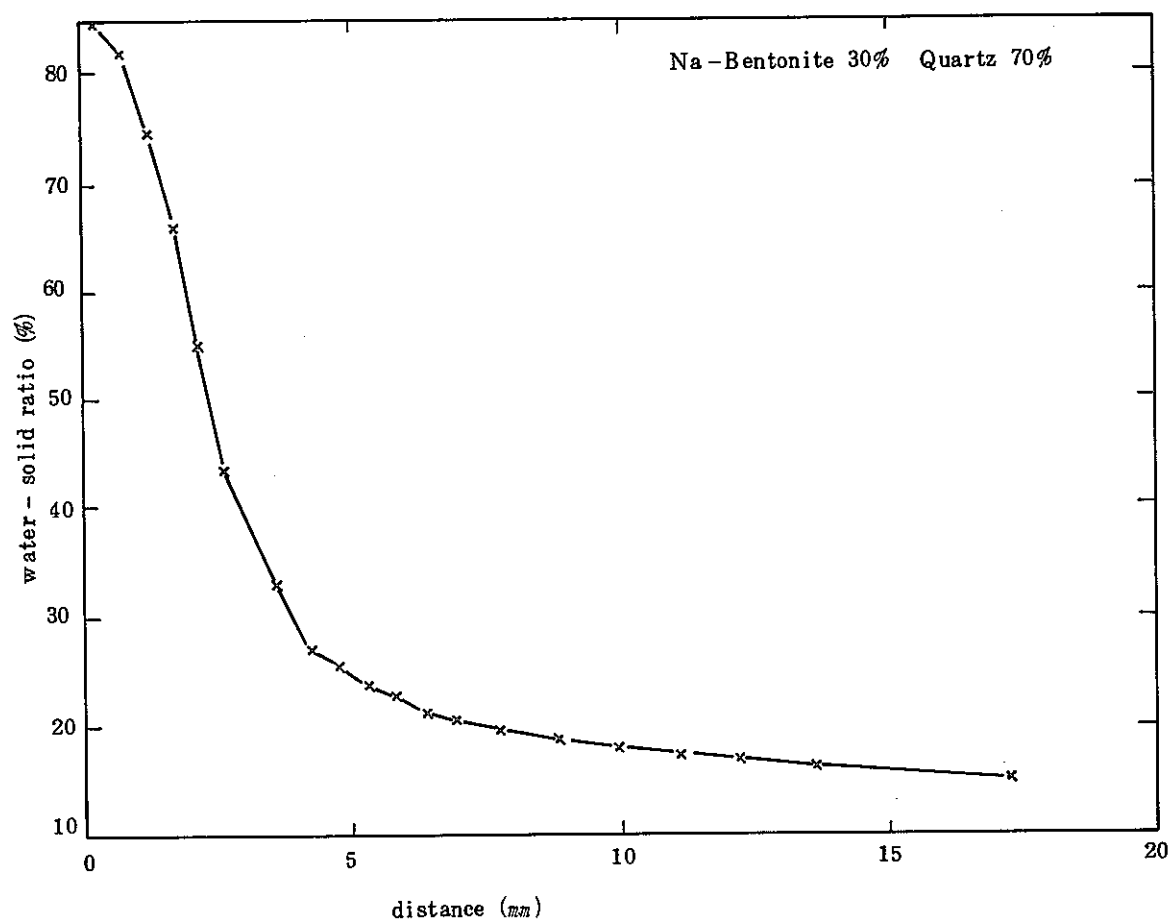


Fig. 3.2.8 Variation of water-solid ratio with distance
Na-bentonite 30% quartz 70% mixture

W_s と W_L の比は図 3.2.3～7 に示されているように、軸方向に変化しているが、その値は 1 以下であり k_d に比べ小さいので、近似的に(8)式が成立する。

$$\frac{C_L}{W_L} \propto \frac{C_s + C_L}{W_s} \quad (8)$$

したがって、(4)式の核種の水中濃度 C に対応する C_L/W_L は、切片全体のカウント数と乾燥後の切片の重量からその相対値が得られる。

通水中の試料は拡散カラム中でその体積を一定に保たれているが、試料取り出し時には大気圧とバランスするまで膨潤する。このため、切り出した切片の厚みをそのまま積算して通水中の位置を算出すると核種の見かけの拡散定数を過大に見積もることになる。カラム中での各切片の厚さ、重量、密度をそれぞれ Δx_i , Δw_i , ρ_i とし、またバルクの平均密度を ρ_b , 試料の断面積を S とすると、 Δx_i は(9)式で与えられる。

$$\Delta x_i = \frac{\rho_b}{\rho_i} \cdot \Delta w_i \cdot \frac{\Sigma \Delta x_i}{\Sigma \Delta w_i} \quad (9)$$

$\Sigma \Delta x_i$ は 20 mm, f_b と f_i はほぼ等しいとして、各切片の重量及びその合計から各切片のカラム中での厚さを求め、その厚さの中心を入口からの距離とした。

このようにして求めた軸方向の相対的濃度プロファイルを(4)式に最小自乗法で回帰させて、相対的入口濃度 C_0 及び見かけの拡散定数 $D_{obs} \equiv D/Rf$ を求めた。回帰計算プログラムは日立ソフトウェアワークス製の BMDP (Biomedical Computer Programs - P) 3 R に、(4)式をサブルーチンとして組み込んだものを使用した。

3.2.4 結果及び考察

各組成の材料について実験値を(4)式にフィッティングしたときの濃度プロファイルを図 3.2.9～15 に示す。見かけの拡散定数 D_{obs} と各材料の真密度から計算した空隙率を用いて、(3)式から求めた k_d の値を表 3.2.1 に示す。ここで(3)式の Rf には、流れのねじれ効果を勘案して、(10)式の如く水中拡散定数 D を $\sqrt{2} D_{obs}$ で除した値を用いた。

$$Rf \equiv \frac{D}{\sqrt{2} D_{obs}} = 1 + \frac{\rho \cdot k_d}{\epsilon} \quad (10)$$

D は化学便覧の値を採用し、 Sr^{2+} は $1.2 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{sec}$, Cs^+ は $2.0 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{sec}$ として計算を行なった。

試料は先述の如く直径に比べ厚さの小さい円盤状 ($40 \text{ mm} \phi \times 20 \text{ mm}$) であり、もし入口から軸方向の核種移行と同時に半径方向の移行が起こり、後者が前者に対しある程度大きくなると 1 次元数式モデルでは扱えなくなることも懸念される。

Table 3.2.1 Diffusion tests Summary

Ion	Material	ϵ	Dobs (m^2/s)	Kd (ml/g)	Dobs of KBS (m^2/s)
Sr	Na-bentonite	0.40	2.9×10^{-11}	7.2	2.3×10^{-11}
	Na-bentonite 60% zeolite 40%	0.37	5.8×10^{-12}	34	
	Na-bentonite 40% zeolite 60%	0.35	5.6×10^{-12}	33	
	Na-bentonite 70% quartz 30%	0.40	1.9×10^{-11}	11	
	Na-bentonite 30% quartz 70%	0.40	7.6×10^{-12}	28	
Cs	Na-bentonite	0.40	6.1×10^{-12}	56	7.5×10^{-12}
	Na-bentonite 80% zeolite 20%	0.38	2.3×10^{-12}	150	
	Na-bentonite 60% zeolite 40%	0.37	3.4×10^{-13}	970	
	Na-bentonite 70% quartz 30%	0.40	2.3×10^{-12}	150	
	Na-bentonite 30% quartz 70%	0.40	4.5×10^{-12}	79	

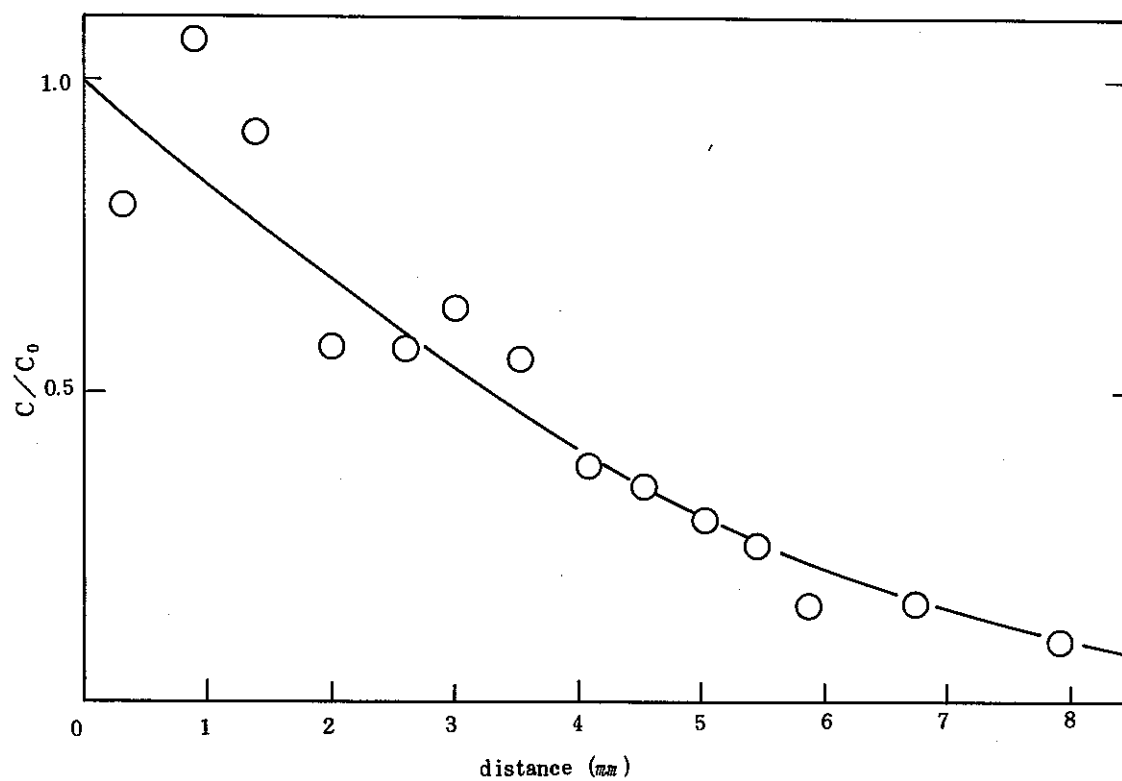


Fig. 3.2.9 Sr concentration profile in Na-bentonite (100%)

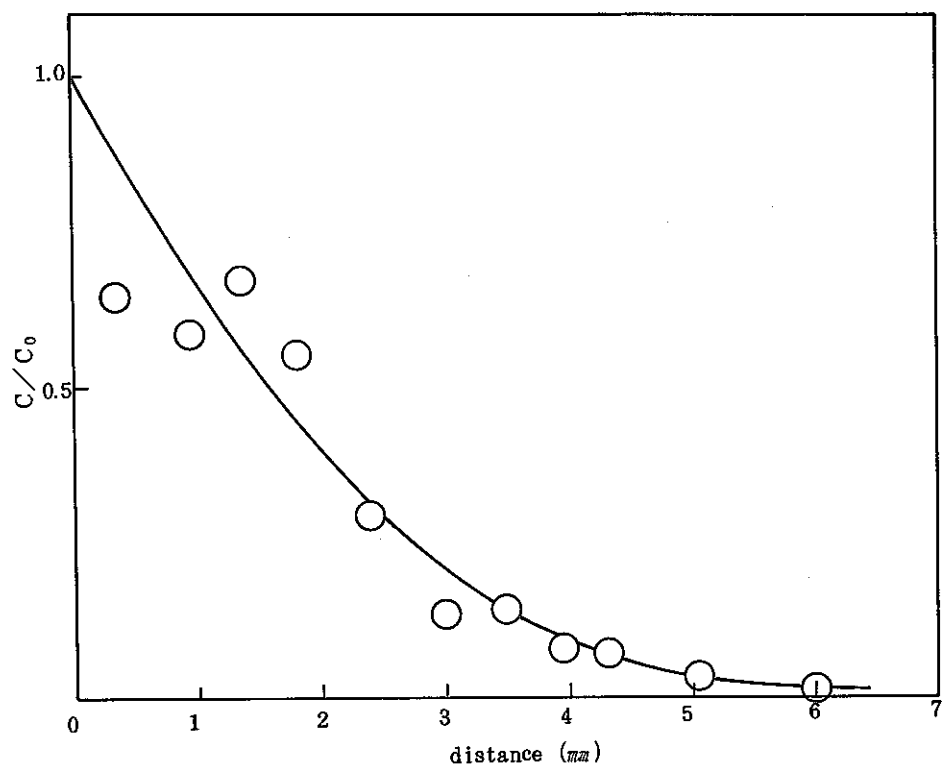


Fig. 3.2.10 Sr concentration profile in Na-bentonite
60% zeolite 40%

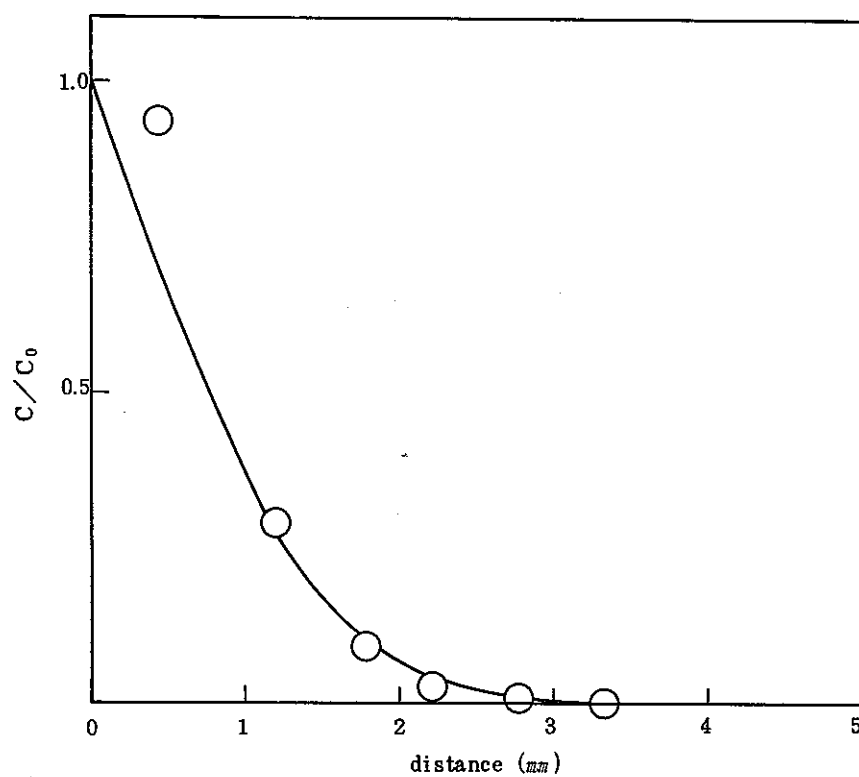


Fig. 3.2.11 Sr concentration profile in Na-bentonite 40%
zeolite 60%

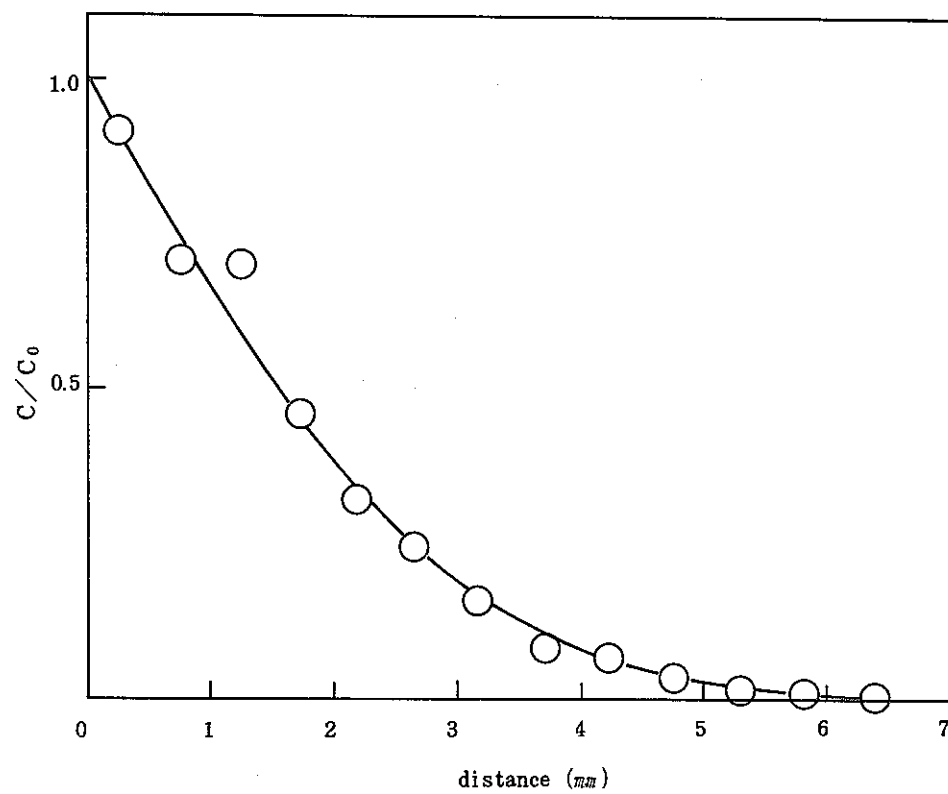


Fig. 3.2.12 Sr concentration profile in Na-bentonite 30%
quartz 70%

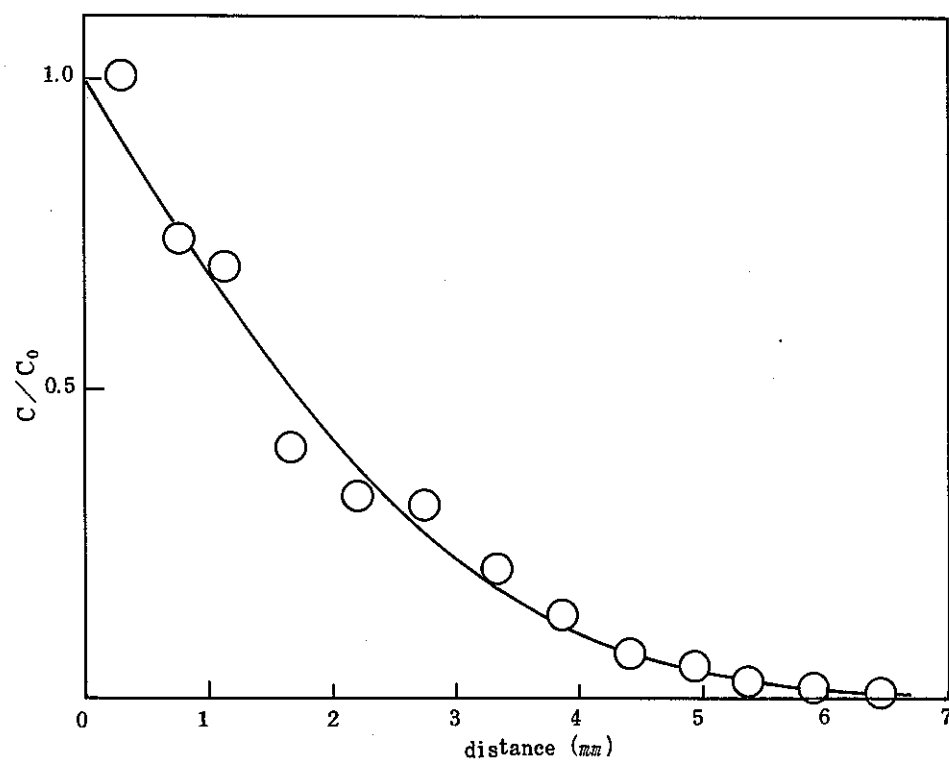


Fig . 3.2.13 Cs concentration profile in Na-bentonite (100%)

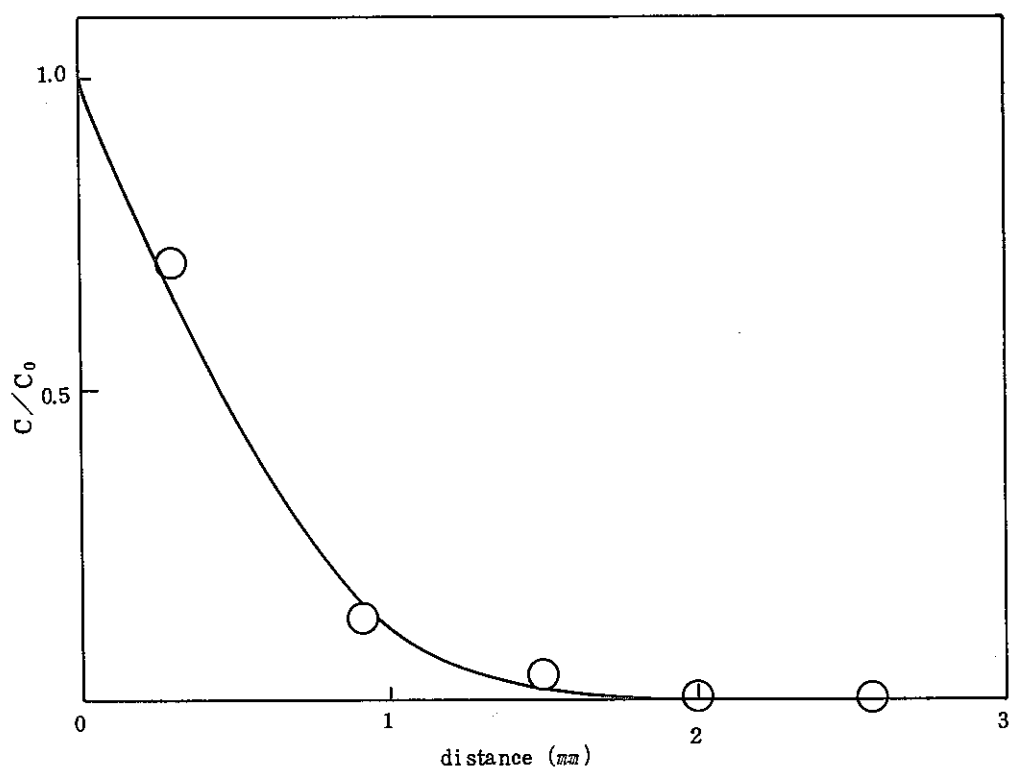


Fig. 3.2.14 Cs concentration profile in Na-bentonite 60%
zeolite 40%

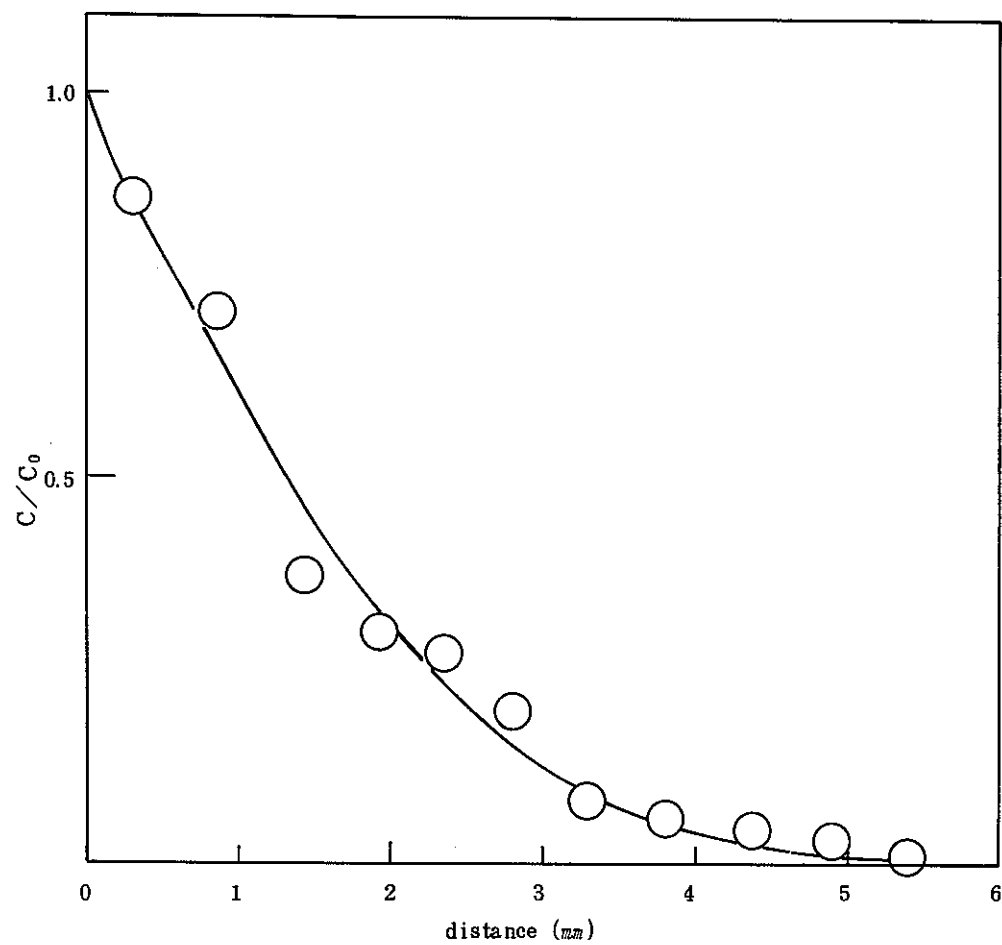


Fig. 3.2.15 Cs concentration profile in Na-bentonite 70%
Quartz 30%

切り出した切片の中から任意に選んだ2つを0.686 gと0.860 g及び0.638 gと0.382 gに分割し、その各々の放射能濃度を求めたところ、それぞれ、 2.52×10^4 cpm/gと 2.56×10^4 cpm/g及び 7.74×10^3 cpm/gと 7.87×10^3 cpm/gとなり、半径方向にはほぼ均一な濃度となっていることが確認できた。これは試料の入口側に置いたフィルター内での核種の移行が、試料中に比べ充分大きな速度で行なわれているため、フィルターに接している試料面では半径方向に均一な濃度が実現されたものと思われる。また、拡散のみによる移行モデル(5)式に実験値を回帰させたとき、そこで得られたDobsは(4)式の結果と2桁目まで一致しており、実験で採用した程度の速度をもつ水流は、核種の移行に殆んど寄与していないことが確認された。これは Vermulen らが作成したグラフ⁽¹⁾(図3.2.16)から予想される結果とも一致している。

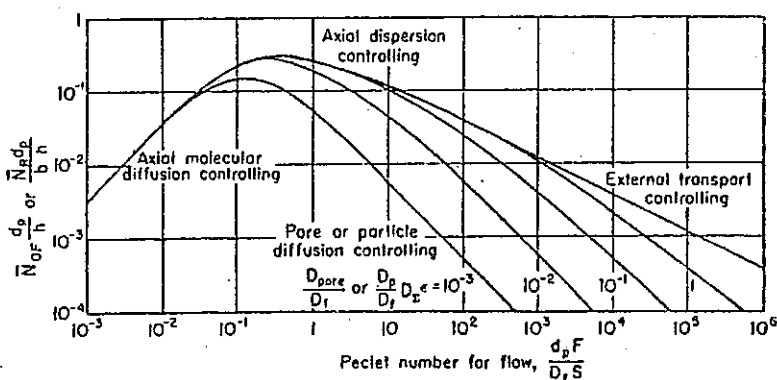


Fig. 3.2.16 Effects peclet group, distribution ratio, and diffusivity ratio on height of a transfer unit or reaction unit

本実験と同様の核種移行実験結果は、スウェーデンのKBS⁽²⁾以外に米国のSandia研究所⁽³⁾で行なわれたものが一部公表されている。これは低充填密度($\rho=0.9\sim1.0$)ブライン中の拡散であるため、単純に本実験との比較はできない。高密度での実験は現在進行中であり、これでは模擬ガラス固仕体を材料と接触させ、それからのリーチングにより核種の放出を行なっている。したがってKBSでの結果を本実験との比較対象とする。KBSでの試料密度は水を飽和した後の値 2.19 g/cm^3 のみが報告されている。使用しているNaベントナイトの真密度を本実験のそれと同じとすると、乾燥状態の密度 1.8 g/cm^3 、空隙率0.33程度と推定できる。これらの値を用いるとKBSで試験に供したNaベントナイトkd値は、本実験で得た値の7割程度となるはずである。KBSのNaベントナイトはCaをNa型にイオン交換したものであり、また模擬地下水としてAllard's waterを使用していると思われる、これがkbの差の原因と考えられる。

(4)式へ実験値を回帰させて得た見かけの拡散定数から計算したkdを図3.2.17.18に示す。図中には、移行実験と同じく蒸留水を用いたパッチ式吸着実験の結果に併記した。ゼオライト

混合系の場合 Cs^+ に対してはその k_d ゼオライト量とともに大きく増加しており、ゼオライト添加の有効性が示唆されているが、他方 Sr^{2+} に対してはゼオライト量とともに k_d は増加するが、 Cs^+ 程の効果は見られず、その絶対値も小さい。石英砂混合系の場合、カラム実験での Cs^+ において石英砂30%に極大が現われるものの、他は増加あるいは一定値をとる傾向が見られる。本来熱導度を改善する目的で添加される石英砂が、ベントナイトと同程度か若しくはそれ以上の吸着能を有するということは注目に値しよう。拡散定数から得た k_d 値をバッチ実験の結果と比較すると、 Cs^+ については、極大値が現われた石英砂30%を除くとファクター2以内で一致が見られた。石英砂30%の場合、バッチでの値はカラム実験の1/4となっている。 Sr^{2+} については、概して両者の間には Cs^+ の場合程の一致は見られず、いずれもバッチでの値がカラム実験の値を上回っており、最大で10倍の違いが認められた。これらの差が試料密度の違いが反映されたものか否かは、一般に k_d 値が小さく誤差が相対的に大きくなっているため、現在のところ断定することはできない。

Sandia 研究所で行なわれている低密度ベントナイト中の拡散実験とバッチ実験の結果を表3.2に示す。⁽⁴⁾ ことでの研究は岩塩層中での処分を対象としているため模擬地下水として濃厚食塩水を使用しており、ベントナイトへ Cs^+ ゲッターとしてモルデナイト、 Sr^{2+} に対してはチタン酸ナトリウムをそれぞれ添加している。 k_d の絶対値は本実験に比べ小さい値となっているが、この場合にも拡散定数から得た k_d がバッチ式のベントナイトの Sr^{2+} 吸着の k_d 値=0のケースを除くとバッチと拡散実験の差はファクター4以内で一致している。

いずれにせよ、 Cs^+ 、 Sr^{2+} に対してはバッチ式の k_d と拡散定数から求めた k_d には著しい違いは無いと考えられよう。

3.1で述べたように、水が飽和した材料中でのイオンの移行は拡散により行なわれる。処分場において固化体から核種が浸出してくる場合はこのような状況が実現されていると考えてよいであろう。⁽⁵⁾ 式を用いて、本実験で得られた見かけの拡散定数或いは分配係数の範囲で、種々の条件の基での核種の破過を見積ってみる。Fig 3.2.19と20に本実験と同じ密度1.6の材料0.2mの位置における相対濃度の時間変化を示す。いずれの曲線も類似した形状をしており、 k_d 即ち見かけの拡散定数に応じて時間軸に平行移動させたものである。 Sr^{2+} の移行では石英砂70%添加、ゼオライト60%添加がそれぞれ4倍、5倍程度の破過時間の増加をもたらしている。 Cs^+ ではゼオライト60%添加により破過時間は約20倍に増加し、石英砂70%添加においてもベントナイトと同程度の破過時間を有する。材料を本研究の対象内に限れば、破過時間を増加させる方法としては、材料の厚さを増すこと、及び充填密度を大きくすることが考えられる。図3.2.21と22に密度1.6の材料の厚さを変えたときの破過時間を示す。ここで破過は入口濃度の1%の濃度として計算を行なった。⁽⁵⁾ 式から明らかなように破過時間は厚さの自乗に比例する。熱的、及び機械的強度の制約の範囲内で緩衝材の厚さを最大とすることが核種移行及び止水性の観点から望ましい。密度を変えたときの破過時間の変化を図3.2.23と24に示す。

ゼオライトの真比重はペントナイトに比べ小さいので、ゼオライト混合系では破過時間の密度依存性が大きく現われている。密度を増加させることは核種移行のみならず、止水性や熱伝導度の向上にもつながる有効な方法であろう。

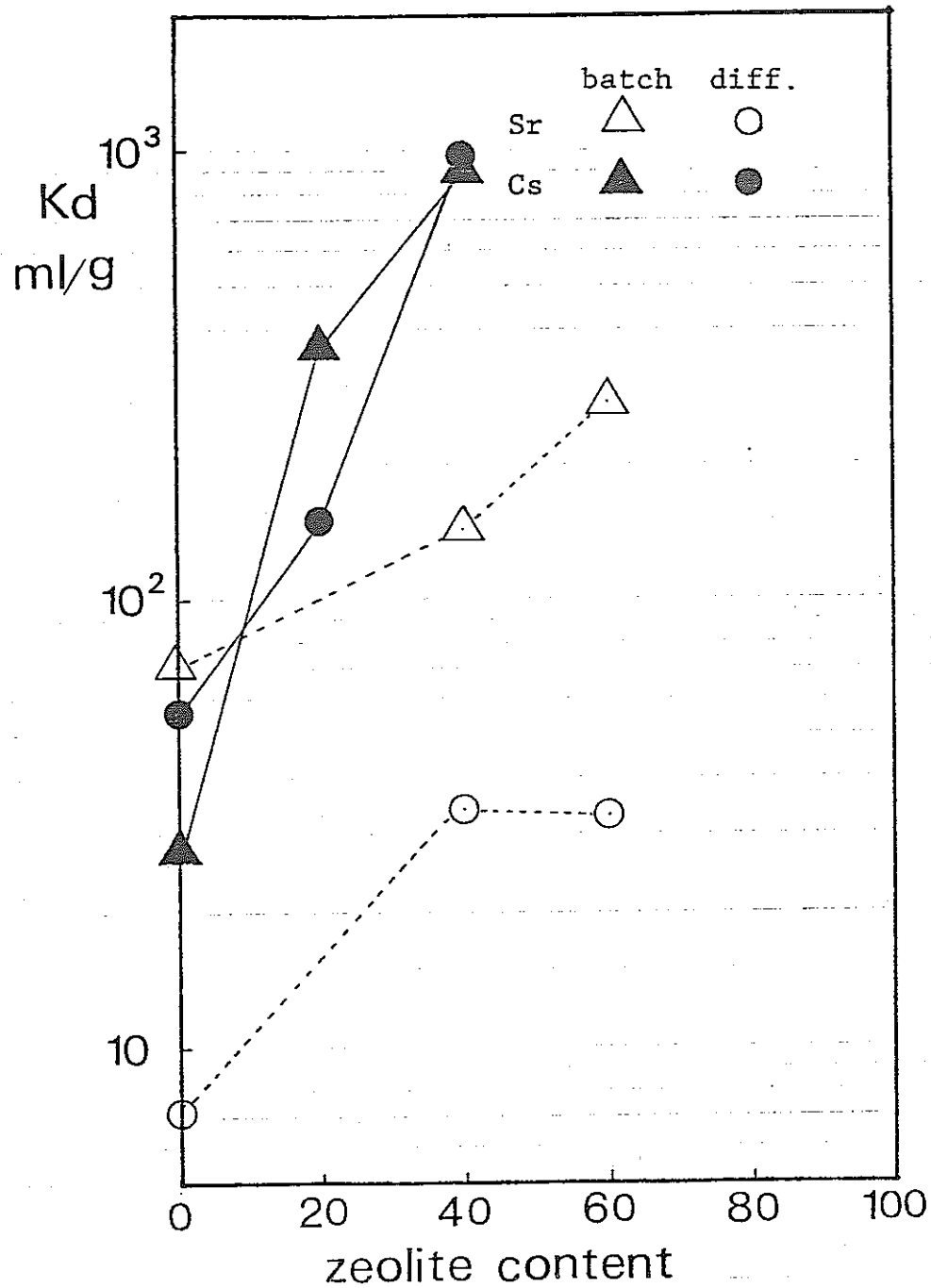


Fig 3.2.17 Variation of k_d with Zeolite content

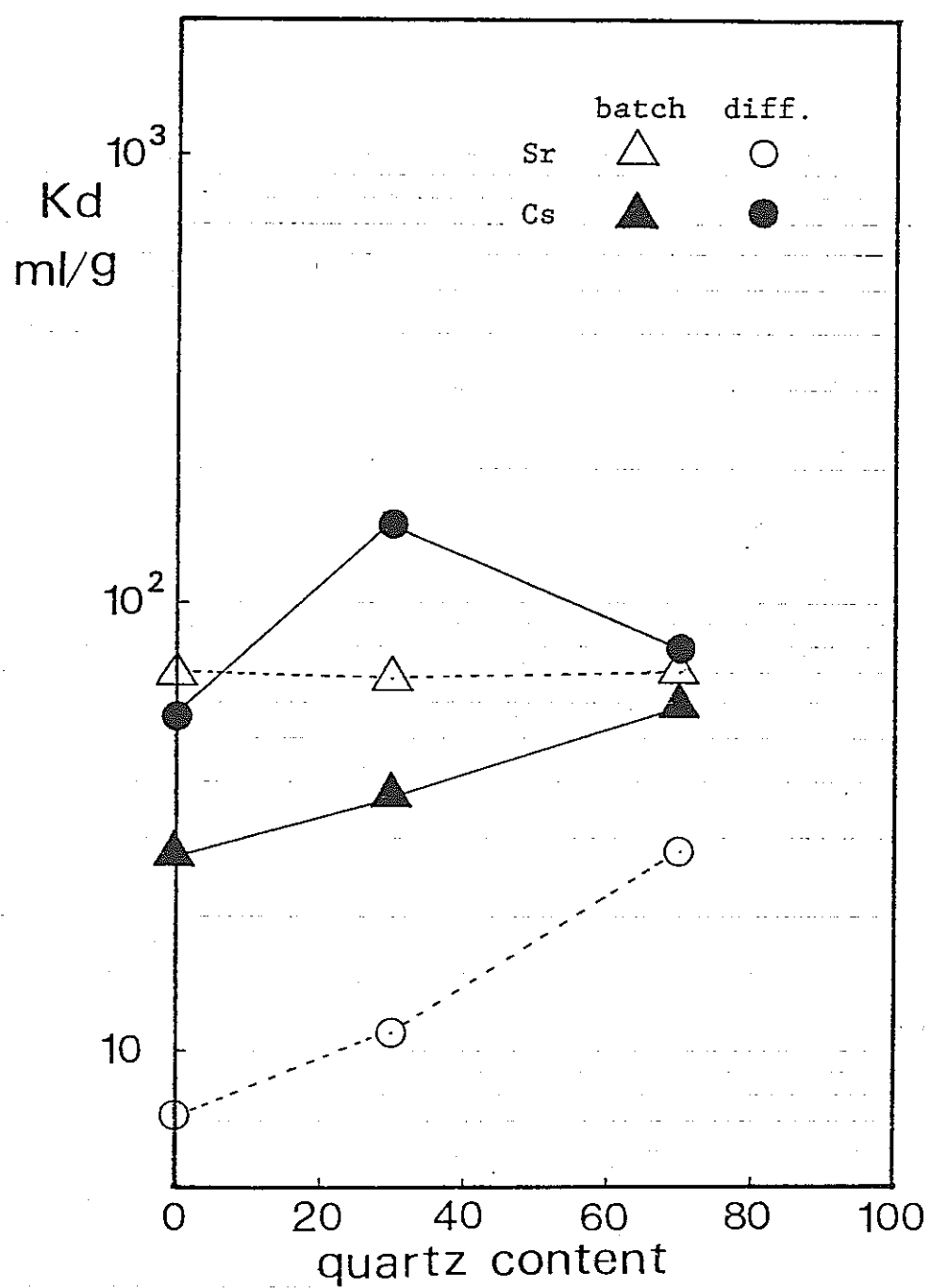


Fig 3.2.18 Variation of k_d with quartz content

Table 3.2.2 Kd values from diffusion data and batch sorption data obtained in
Sandia National Laboratories

Diffusing Radionuclide	Backfill Material Mixture	Apparent Sorption Coefficient K_{da} , m^3/kg	Batch Sorption Coefficient K_d , m^3/kg	Apparent Diffusivity, D_a , m^2/s
¹³⁷ cesium(I)	40 wt.% mordenite	0.02	0.01	2×10^{-11}
	60 wt.% bentonite			
	bentonite	0.009	0.005	4×10^{-11}
⁸⁵ strontium(II)	10 wt.% sodium titanate*	0.04	0.01	1×10^{-11}
	90 wt.% bentonite			
	bentonite	0.005	0	7×10^{-11}
⁹⁹ per technetate	70 wt.% charcoal	0.5	0.7	1×10^{-12}
	30 wt.% bentonite			
¹⁵² europium(III)	bentonite	3	0.4	1×10^{-13}

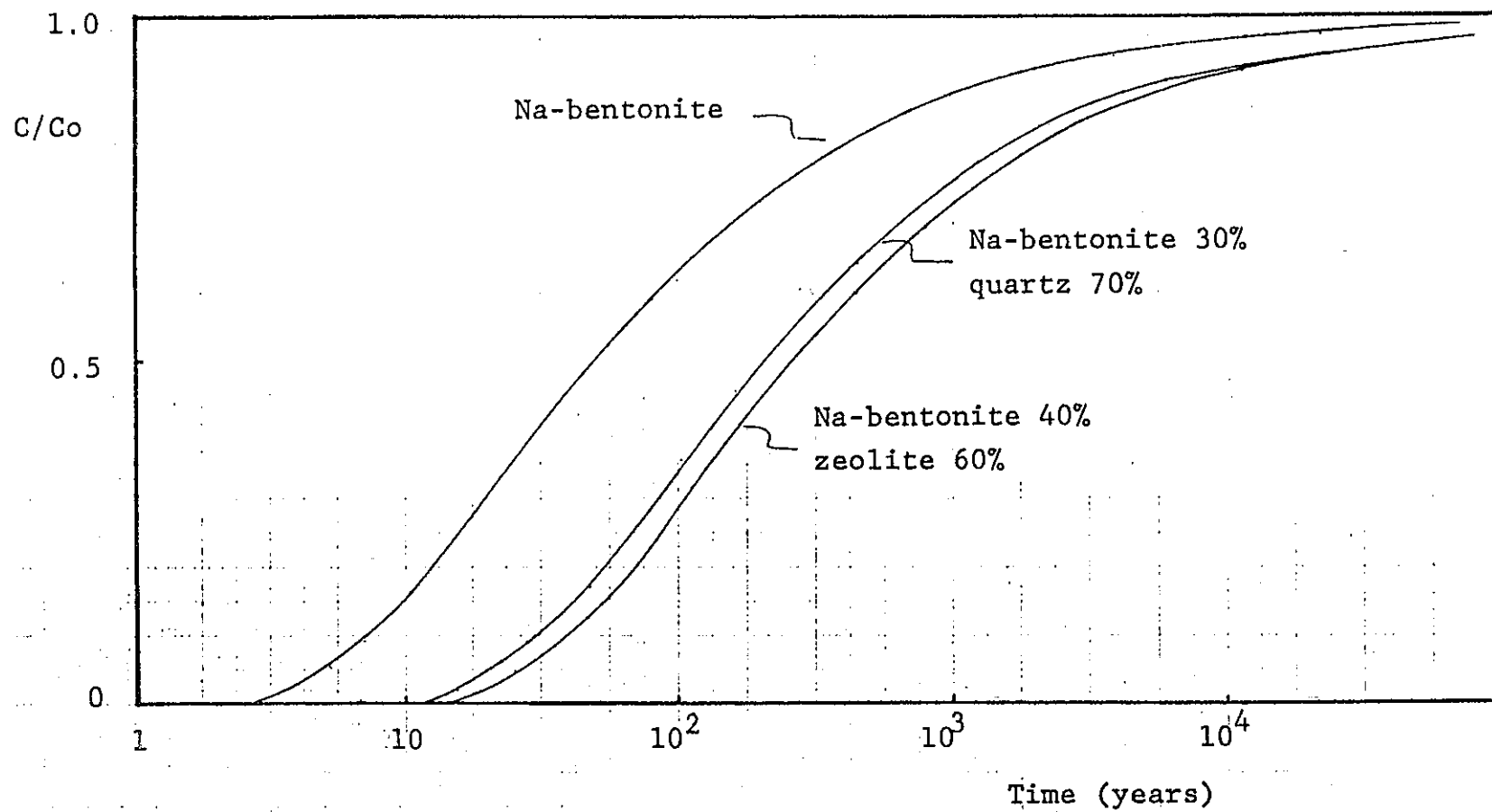


Fig 3.2.19 Break-through curves of Sr^{2+} in 0.2 m thick media

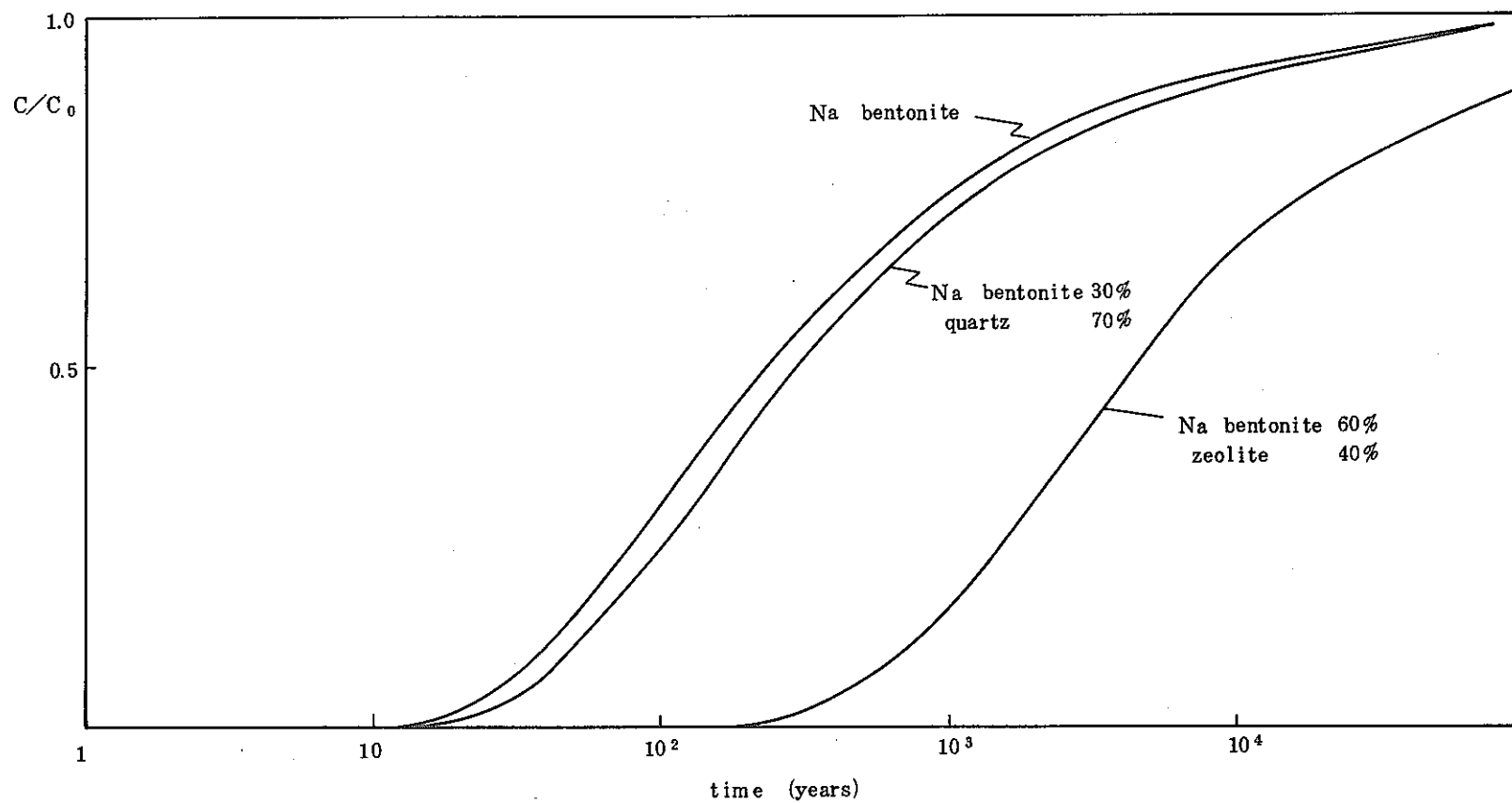


Fig 3.2.20 Break-through curves of Cs^+ in 0.2m thick media

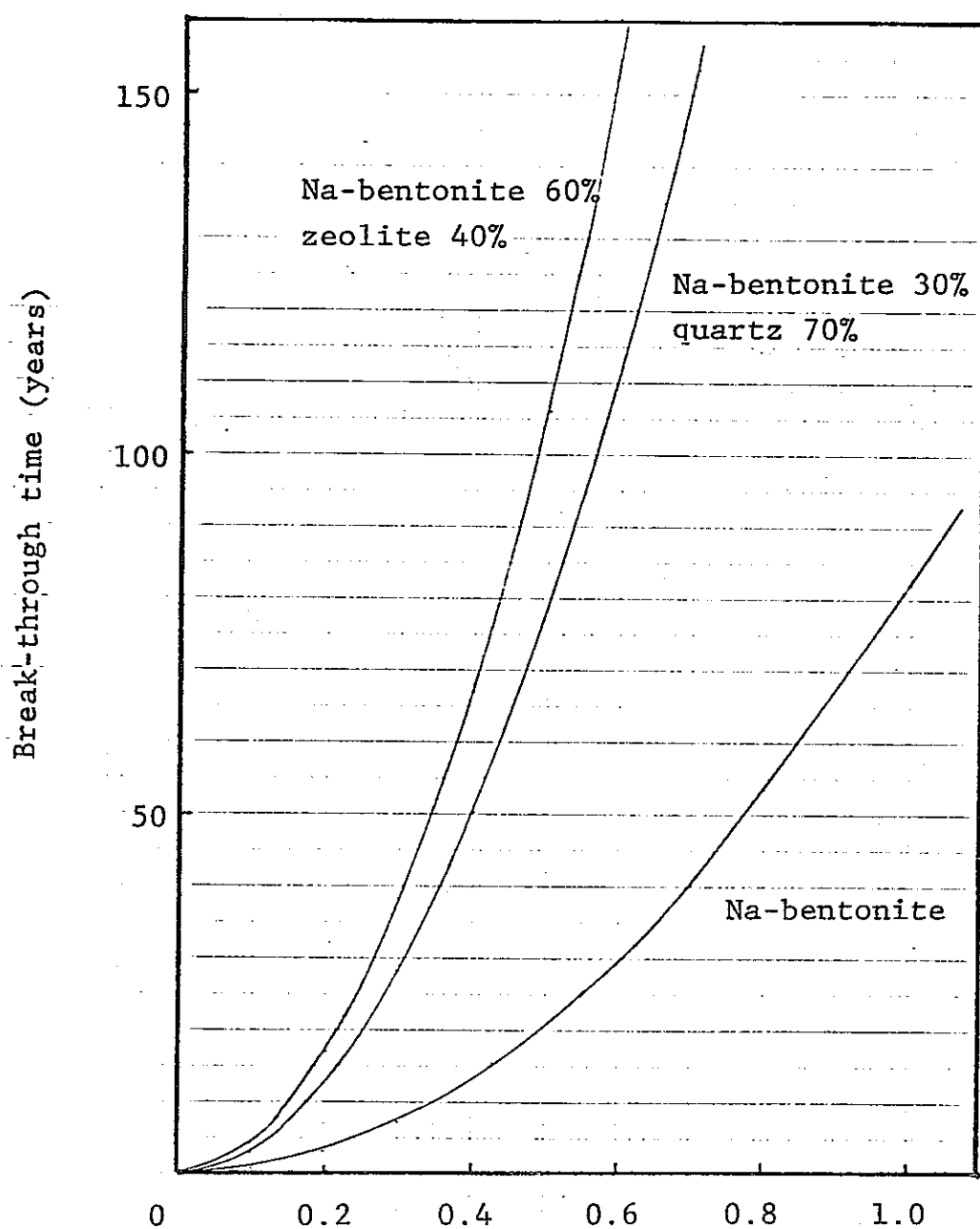


Fig 3.2.21 The dependence of Sr^{2+} breakthrough time on thickness of media. Break-through is defined by $C/C_0 = 0.01$

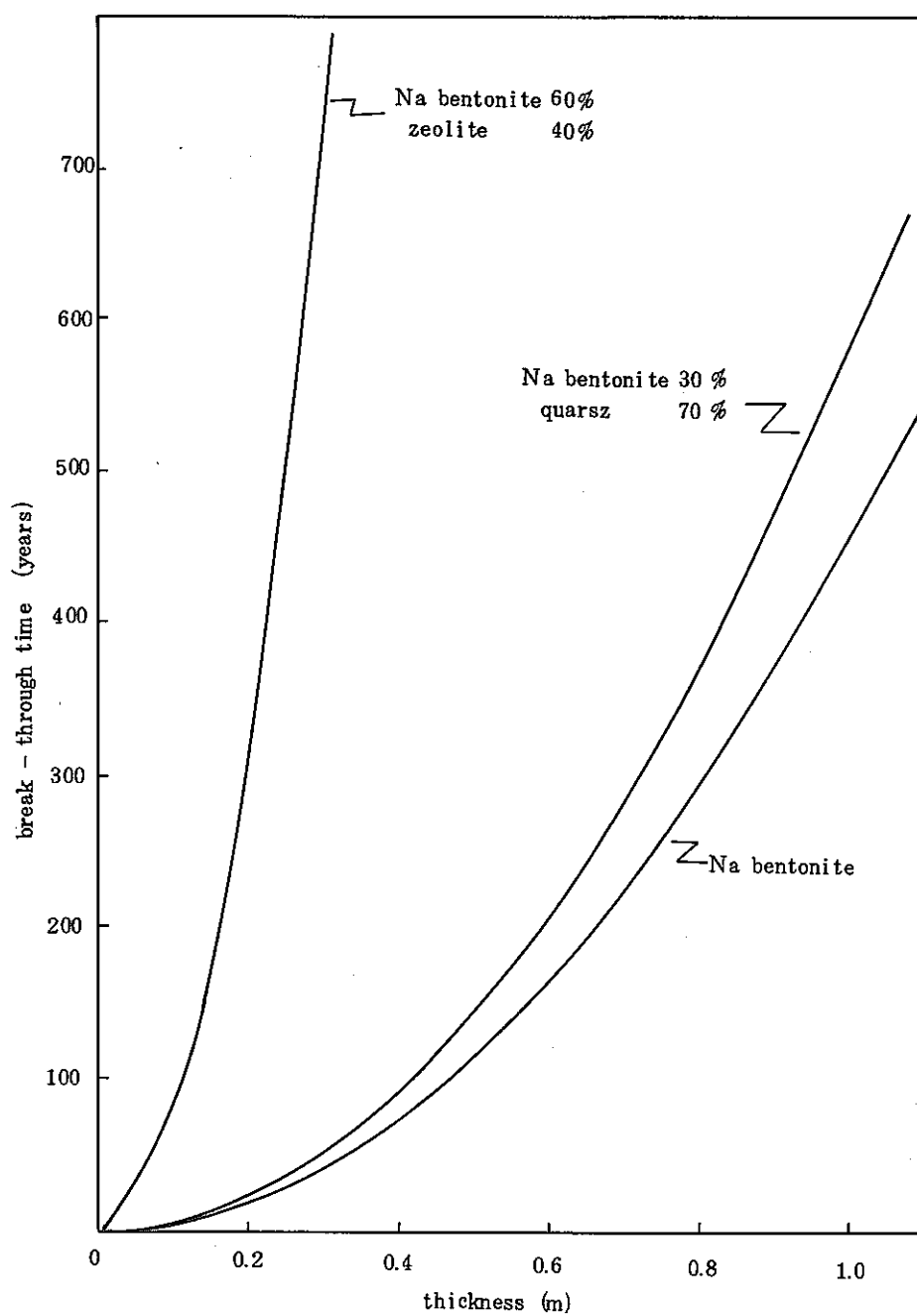


Fig 3.2.22 The dependence of Cs^+ breakthrough time on thickness of media . Break-through is defined by $C/C_0=0.01$

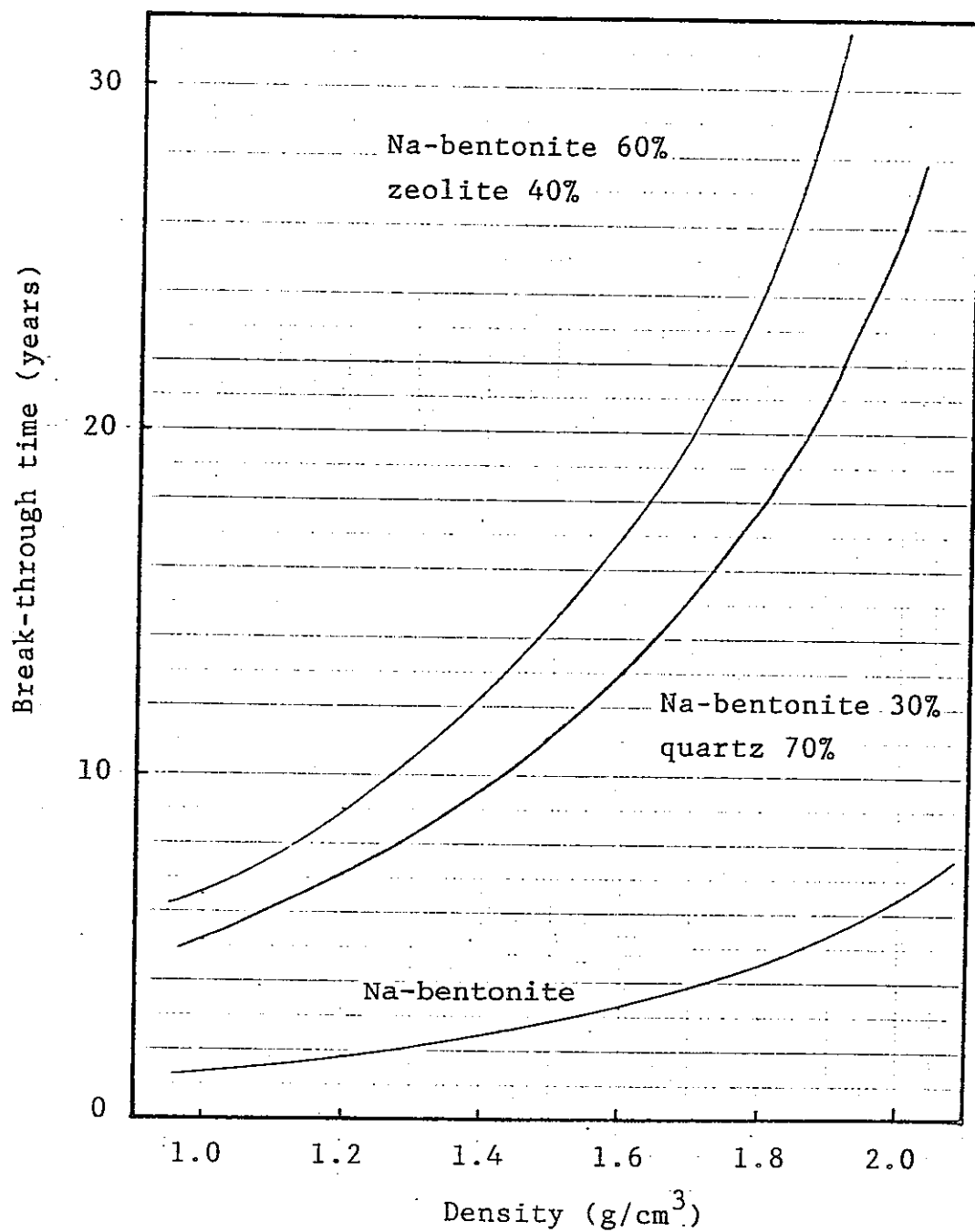


Fig 3.2.23 The dependence of Sr^{2+} breakthrough time through 0.2m thick media on packing density

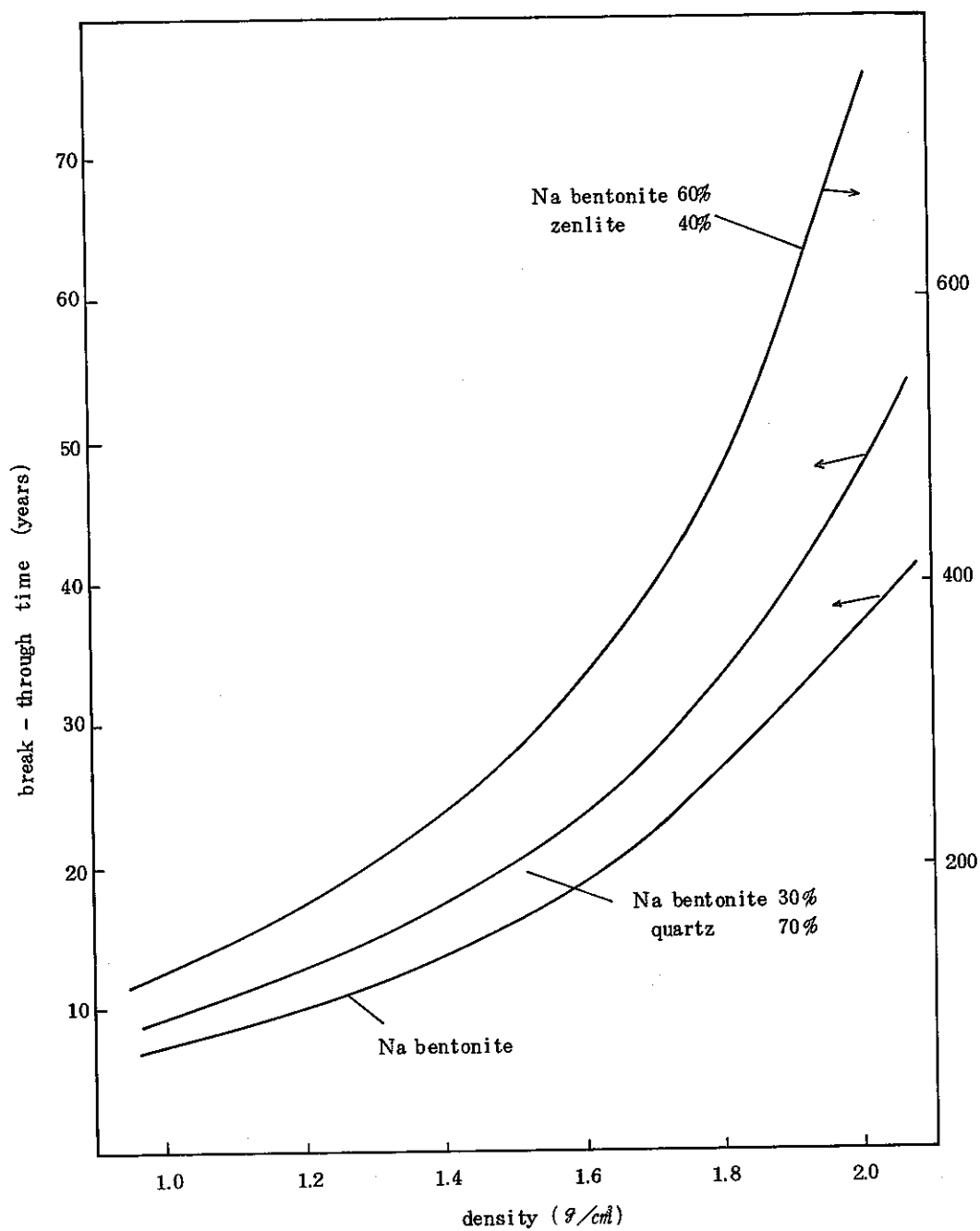


Fig 3.2.24 The dependence of Cs^+ breakthrough time through 0.2 m thick media on packing density

Reference

- 1) Z.Hashin, S.Shtrikman : A Variational Approach to the Theory of the Effective Magnetic Permeability of Multiphase Materials J.Appl.Phys., Vol.33, No.10, PP3125-3131, 1962
- 2) V.A.Vyssotsky et al : Critical percolation probabilities(bond problem), Phys.Rev., Vol.123, PP1566-1567
- 3) T.J.Shankland et al : Conductivity of fluidbearing rocks. J.geophys.Res., Vol.79, PP4863-4867
- 4) R.Pusch : Highly Compacted Solium bentonite for Isolating Rock-deposited Radioactive Waste Products, Nucl.Tech.,Vol.45, Sept. PP153-157, 1979
- 5) A.E.Scheidegger : The Pysics of Flow through Porous Media, University of Toronto Press, 330P., 1960
- 6) 小島圭二 : 東京大学原子力研究総合センターシンポジウム, Jan., 1983
- 7) W.Drost-Mansen : Structure of Water near Solid Interfaces Ind. Eng.Chem. Vol.61,No.11, PP10-47, 1969
- 8) R.Pusch : Permeability of Highly Compacted bentonite,SKBF/KBS Teknisk Rapport, 80-16, 41P.
- 9) E.J.Nowak : The Backfill barrier as a Component in a Multiple Barrier Nuclear Waste Isolation System, SAND79-1109, 27P.,1980
- 10) B.J.Wood : The Backfill Performance Requirements-Estimates from transport Models, Nucl. Tech., Vol.59, Dec., 1982, PP390-404
- 11) T.Vermeuler et al : Adsorption and Ion Exchange, Section 16 in Chemical Engineer's Handbook, Fifth Edition, Mc Graw-Hills, New York, 1973
- 12) T.Eriksen, A.Jacobsson, R.Puch : Ion diffusion through highly compacted bentonite, SKBF/KBS Teknisk Rapport 81-06
- 13) E.J.Nowak : The diffusion of Cs(I) and Sr(II) in liquid beds of Backfill Materials, SAND82-0750, 55P., 1982
- 14) E.J.Nowak : Private Communication

§ 4. 熱的状態の検討

4.1 熱伝導度測定

止水性、核種吸着性等の緩衝材に求められる各種機能は、1000年～10000年という時間範囲で安定に維持されなければならない。再処理後の貯蔵期間に依るが、埋め戻し後の一定期間は固化体を封入したキャニスターからの発熱量が多く、熱或いは地下水と熱による作用が緩衝材に適用した材料の安定性に大きな影響を及ぼす可能性がある。本研究で対象としている粘土鉱物であるベントナイトや沸石であるゼオライトは、比較的低温で生成する鉱物であり、熱水条件での熱力学的安定性に余り大きな期待はかけられないことが懸念される。また乾燥状態においても陽イオンの固着によるイオン交換容量の変化、不可逆脱水などの特性変化が起こり得る。熱的安定性に関するこれらの問題の克服は、i) 安定性に優れた材料の探索、ii) 安定性を高める或いはその変成速度を遅らせる物質の添加、iii) 緩衝材中の温度を低下させる方策の検討、開発を通じて行なわれる必要がある。この中で3番目の温度は緩衝材だけに止まらず、ホストロック、ガラス固化体の安定性にも係わる大きな問題である。湿潤状態と乾燥状態とでは最高許容温度が異なるが、短期間の実験から推定する鉱物の熱変成反応速度の値は、研究者により大幅に分布している。スウェーデンでは、最高許容温度を60℃と極めて低く見積もり、逆に英国では250℃と高い値を推定している所以である。¹⁾ 鉱物の熱的安定性に関しては、5章で詳しく論ずることとする。本節においては緩衝材中の温度分布に関連して、材料の熱伝導度を、ベントナイトとゼオライト或いは石英砂混合物について行なった。

4.1.1 測定方法と装置

時間 $\Delta \tau$ の間に面積 ΔS の面を通してその面に垂直に流れる熱量 Q は、フーリエの法則により次式で表わされる。ここで T は温度 k は熱伝導率、 n は面に垂直な法線である。

$$\Delta Q = -k \frac{\partial T}{\partial n} \Delta S \Delta t \quad (1)$$

物質に固定された3次元座標系では、単位体積当りの発熱量を W とすると、微小体積中の熱収支は

$$\rho C \frac{\partial T}{\partial \tau} = k \nabla^2 T + W \quad (2)$$

となる。ここで ρ は物質の密度、 C は比熱である。熱伝導率の測定は、レーザービームフラッシュ法、周波数応答法などの非定常法と、物質内の平衡に達した温度分布を測定する定常法に大別できる。前者は系に短時間の温度勾配を与え、系内のある位置における温度の時間的変化を記録し、その熱場を解析して熱伝導率を算出する方法であり、短時間に測定が行なえるという利点を持つ反面、解析が複雑であり、そのために精度が低くなるという短所がある。一方、定常法は熱の定常流を得るまでに長時間を要するが、非定常法に比べ、測定精度を上げることができること

から本実験では定常法を採用した。

定常熱伝導測定装置は境界条件から(2)式の解が正確に得られる幾可学的構造であることが必要であり、一般には円筒形、球形、平行板形等の形状のものが用いられている。ここでは、試料の圧密、及び試料粒子とシリンダー内壁との密着性のために、試料粉末を充填することを考慮して、円筒形のものを採用した。定常法で等方的かつ、端面の熱損失が無視できる円筒形試料の軸にヒーターを置いたとき、(2)式は円柱座標で次のように一次元の形に書き換えることができる。

$$\frac{d}{dr} \left(r \frac{dT}{dr} \right) = 0 \quad (3)$$

(3)式は、境界条件

$$\begin{aligned} T(r_1) &= T_1 \\ T(r_2) &= T_2 \end{aligned} \quad (4)$$

のもとで次の解を与える。

$$Q = -2\pi k \ell \frac{T_1 - T_2}{\ln(r_2/r_1)} \quad (5)$$

ここで Q は、ヒーターの出力、 ℓ は長さである。このように熱伝導度 k は試料中の2点の位置と温度から求めることができる。

測定装置の概念図を図4.1.1に、装置の全景及び機器を写真4.1.1～3に示す。試料の長さは20cm、直径は4cmである。試料の圧密は、シリンダー内に小分けした粉末試料を入れ上部フランジを固定し、油圧ジャッキで下部フランジを持ち上げる作業を繰り返すことで行なった。シリンダーには試料が接する内壁の温度を一定に保つため、ウォータージャケットが付けられている。上部ピストンは中空で、その中を熱電対及びヒーターが通っている。温度勾配は半径方向に各2点、角度を120°づつずらして3方向で行なった。熱電対の半径方向の位置ずれは直接熱伝導度の誤差を与えるので、シース型熱電対の先端に長さ10cm、直径1.0mmのビスをロー付けし、それを下部ピストンにナットで固定することにより、軸方向の中心部で $r=8.0$ 及び13.0mmの位置に設定した。試料充填時の熱電対の位置を写真4.1.4に示す。熱電対は直径1.0mmのシース型クロメル-アルメル熱電対である。ヒーターには、直径1.6mm抵抗10Ω、長さ85cmのシースヒーターを用いた。電源は昭和電子工業㈱製のCVC110-10 直流安定化電源を使用した。

測定を行なった材料は、3章2節で核種移行試験を行なった組成に対応させ、Naベントナイト100%、Naベントナイトのゼオライト40%と60%混合物及び石英砂30%と70%混合物である。各材料は3章における試験と同様に、Naベントナイトとゼオライトはボールミルで200メッシュ以下に調整し、石英砂は市販の150～200メッシュのものを使用した。混合物は、所定の比率に計量した材料を、V型ブレンダーにより40 cycle/minの回転速度で2時間混合した。

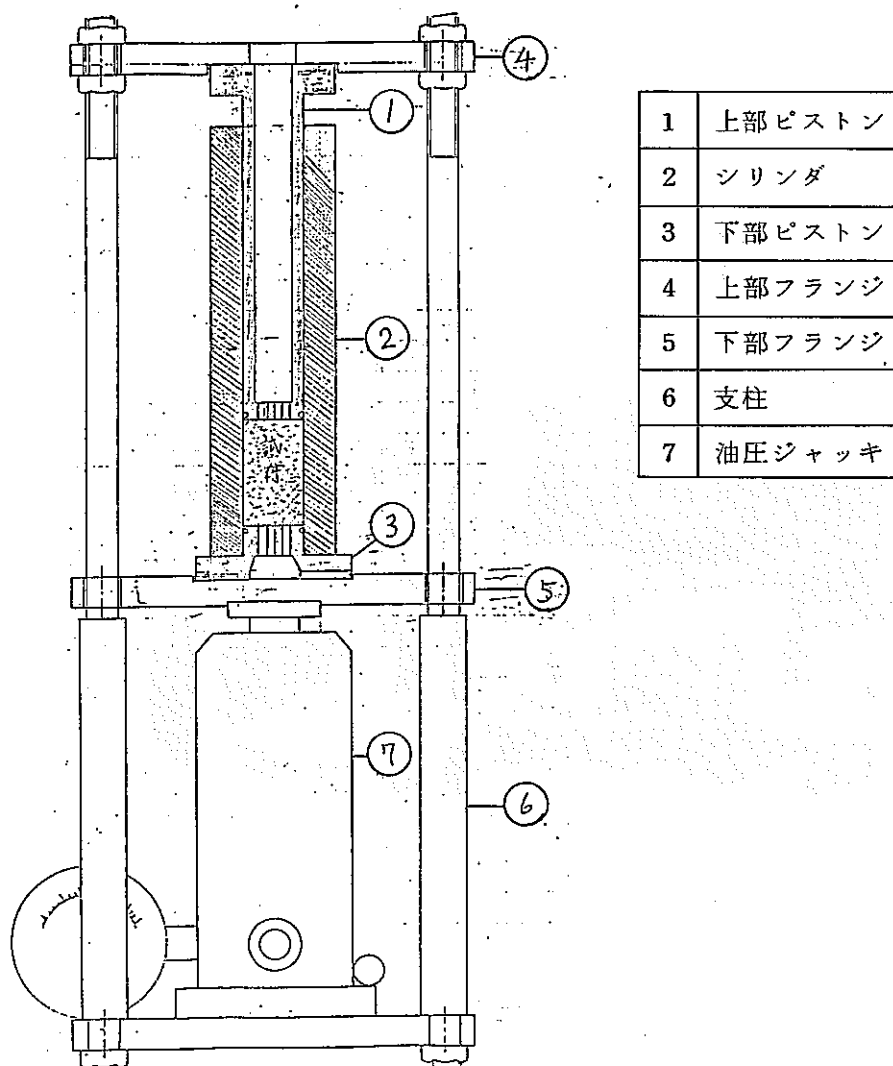


Fig. 4. 1. 1 Cell for thermal conductivity measurement

4. 1. 2 結果及び考察

Naベントナイトの密度を1.6, 1.8, 2.0と変えたときの充填層の有効熱伝導度を, 図4. 1. 2に示す。予期に違わず, 有効熱伝導度は密度と共に増加しており, この傾向は高密度になる程著しい。ヒーターの出力を変化させたときの有効熱伝導度の差は, 低密度で明瞭に現われ, 有効熱伝導度の温度依存性に対して, 主に空隙中に存在する空気を媒体とした熱移動の温度依存性が反映されていることを示唆している。

本実験条件のように充填層が固体粒子とその空隙に存在する流れを伴わない流体から成る場合の熱伝導については, 矢木, 国井の理論がある。これは, 流れを伴わない固定層を図4. 1. 3のようにモデル化して考える。即ち, この固定層中に温度勾配がある場合, 熱エネルギーの移動は次のような機構で行なわれるものと仮定する。固相を伝わる伝熱機構 : ①接触面における伝導伝熱 (h^*) ②接触面(点)近傍の流体膜を通ずる伝導伝熱 ③固体面-固体面の輻射伝熱 (hrs) ④固体内伝導伝熱, 空隙を伝わる伝熱機構 : ⑤空隙内流体の伝導伝熱 ⑥空隙-空

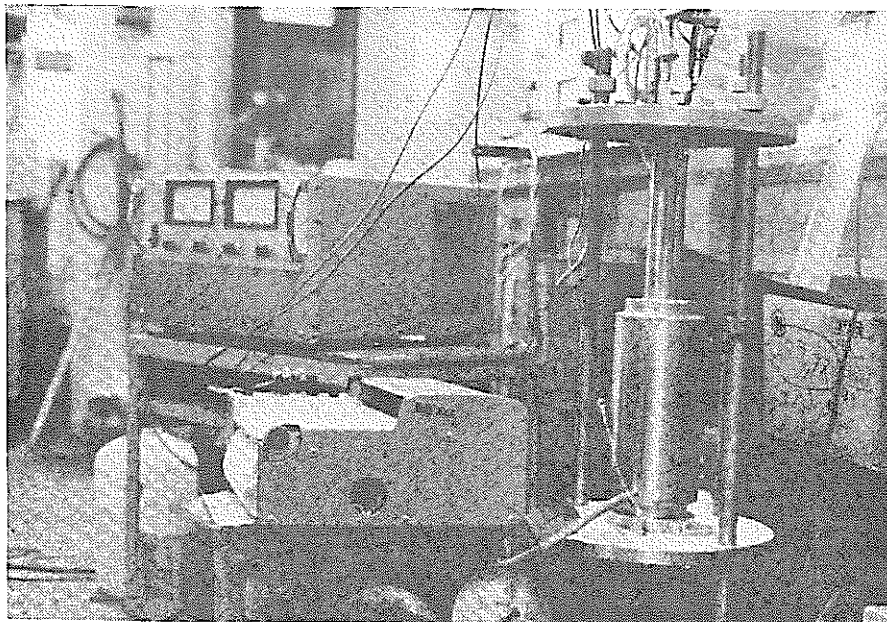


Photo.4.1.1 Equipments for thermal conductivity measurement

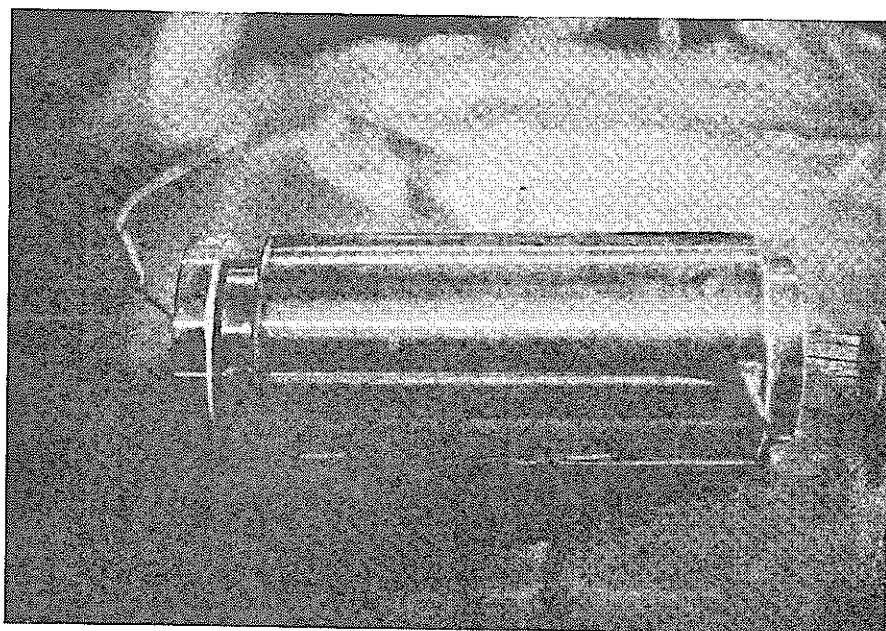


Photo.4.1.2 Cylinder with jacket to maintain the temperature on the surface of inner
wall constant

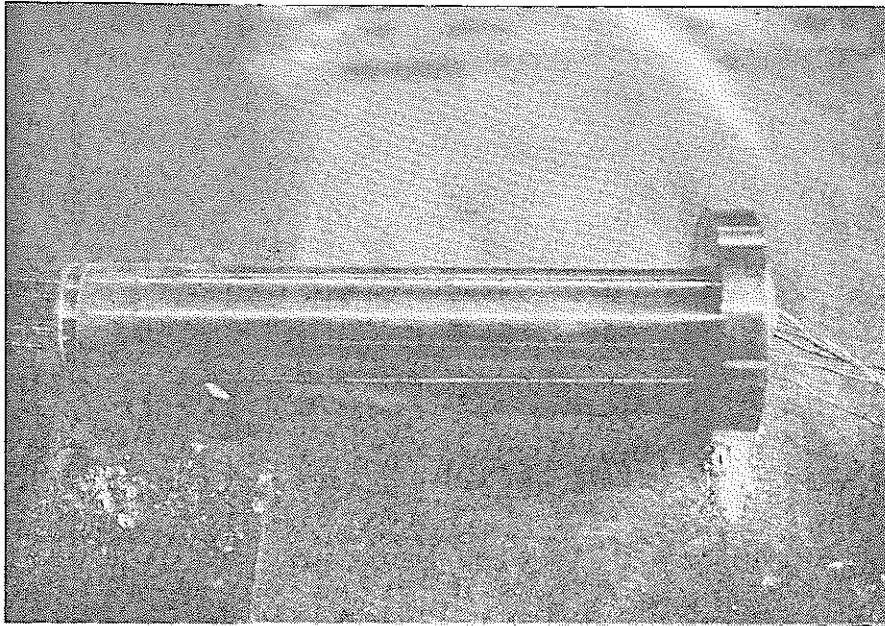


Photo.4. 1. 3 Upper piston for compaction of sumple

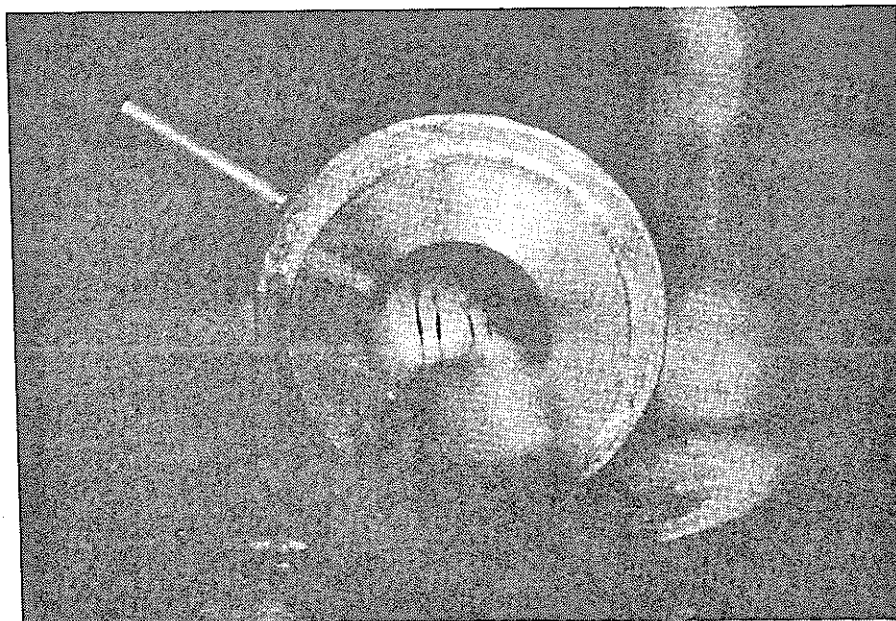


Photo.4. 1. 4 Heater and thermocouples buried in compated sumple

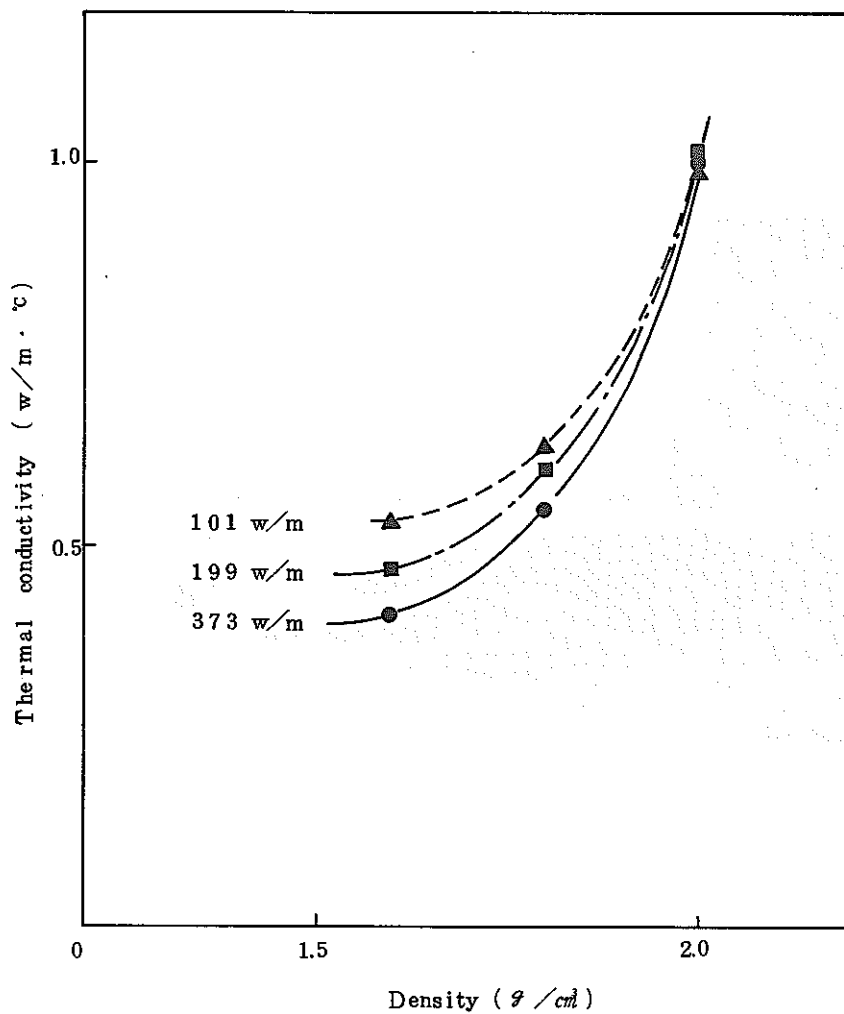


Fig. 4.1.2 Variation of Thermal Conductivity with Material Density and
Linear power Density of Heater

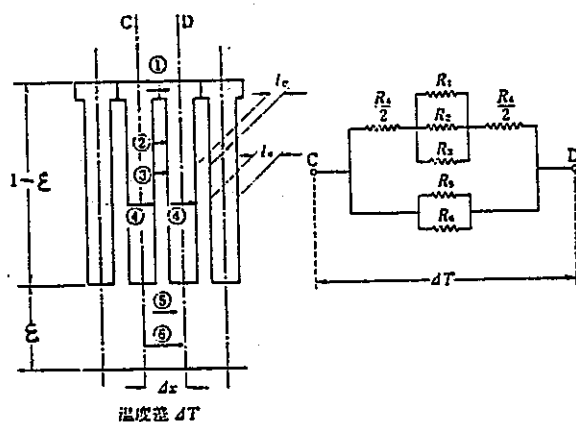


Fig. 4.1.3 Heat Transfer Model in Packed Bed

隙の輻射伝熱（黒体面 B と B' の放射伝熱， h_{ru} ）。図 4.1.3 の C，D 面間に $\frac{\Delta T}{\Delta x}$ の温度勾配がある場合の有効熱伝導度 ke° は次式で表される。

$$ke^\circ \left(\frac{\Delta T}{\Delta x} \right) = \epsilon \left(\frac{kg}{\Delta x} + h_{ru} \right) \Delta T + \frac{(1 - \epsilon) \Delta T}{\frac{\ell_s}{ks} + \frac{1}{\frac{kg}{\ell_u} + h^* + h_{rs}}} \quad (6)$$

ここで kg は流体の熱伝導度， ks は固体の熱伝導度である。また，粒子間平均中心距離 Δx ，空隙内流体膜平均厚さ ℓ_u ，固体相平均厚さ ℓ_s をそれぞれ粒径に対する比を示すパラメータ β ， ϕ ， r を導入して(6)式を書き換えると，

$$\frac{ke^\circ}{kg} = \epsilon \left(1 + \beta \frac{h_{ru} dp}{kg} \right) + \frac{\beta (1 - \epsilon)}{\frac{1}{\frac{1}{\phi} + \frac{dp}{kg} (h_{rs} + h^*)} + r \left(\frac{kg}{ks} \right)} \quad (7)$$

一般の粉粒体固定層において空隙内の流体が存在する場合には，粒子と粒子の固体的接触による項 h^* は他の項に対して無視できる。粒子を直径 dp の球として，熱流方向の有効厚さ ℓ_s は同じ断面積，同じ体積の円柱で表わせると仮定すれば $r = \frac{2}{3}$ となる。また一般の固定層では $\beta = 1$ としても大きな差にはならない。したがって，(7)式を書き換えると

$$\frac{ke^\circ}{kg} = \epsilon \left(1 + \frac{h_{ru} dp}{kg} \right) + \frac{1 - \epsilon}{\frac{1}{\frac{1}{\phi} + \frac{h_{rs} dp}{kg}} + \frac{2}{3} \left(\frac{kg}{ks} \right)} \quad (8)$$

本実験で使用した材料のような小粒径粒子では，放射伝熱数 h_{rs} ， h_{ru} の数値は小さく，放射伝熱は問題にならない。したがって，(8)式より，

$$\frac{ke^\circ}{kg} = \epsilon + \frac{1 - \epsilon}{\phi + \left(\frac{2}{3} \right) \left(\frac{kg}{ks} \right)} \quad (9)$$

前述した伝熱機構②を定量化する為のパラメータ ϕ は，次のようにして計算できる。今 2 つの粒子を球とし，熱エネルギーの流れは中心軸に平行であると仮定する。さて，球状粒子の固定層において，半球上の接触点の数は 1 個に限らず，最疎充填として立方体配列，最密充填として斜方晶形配列を考え，全方向に関する平均値を求めると，

立方体配列での接触点の数 $N_1 = 1.5$

斜方晶形配列での接点の数 $N_2 = 4.3$

このモデルに基づき計算した ϕ の値を図 4.1.4 に示す。ここで， ϕ_1 は最疎充填の場合， ϕ_2 は最密充填の場合の値を示す。図 4.1.4 は球の立方体配列すなわち $\epsilon_1 = 0.476$ ，斜方晶形配列すなわち空隙率 $\epsilon_2 = 0.260$ の両場合にだけ対応するものであって，一般の固定層で示される

$\epsilon = 0.30 \sim 0.45$ 程度のものにそのまま適用することはできない。そこで、一般の固定層のスケールから見れば小さな最密充填の小塊がいろいろな向きに存在しており、それらの食い違いの部分が正方形配列に近い状態になっているものと仮定し、次のように考えてみる。

$$\phi = \phi_2 + (\phi_1 - \phi_2) \frac{\epsilon - \epsilon_2}{\epsilon_1 - \epsilon_2} = \phi_2 + (\phi_1 - \phi_2) \frac{\epsilon - 0.260}{0.216} \quad (10)$$

(ただし、 $0.260 \leq \epsilon \leq 0.476$ の場合) これを用いて(9)式を計算したものが、図 4.1.5 である。以上の理論から、有効熱伝導度と空気の熱伝導度の比及び、図 4.1.5 を用いて Na ベントナイトの熱伝導を求めることが原理的には可能となる。

ヒーターの各出力密度に対応する測定区間の平均温度、そのときの空気の熱伝導度⁵⁾及びそれと有効熱伝導度との比を表 4.1.1 に示す。いずれの場合も k_s/kg の値は、20 前後である。図 4.1.5 に示されるように、 k_s/kg に対し、 k_e/kg は急激に増加している。 k_e/kg が 20 程度では、 $\epsilon = 0.33, 0.40$ に対して k_s/kg は、数 100 ~ 10000 の範囲となる。ちなみにこれから Na ベントナイトの熱伝導度を推定しようとする、 $10 \sim 300 \text{ W/m} \cdot \text{C}$ という過大な値になってしまう。このことは、矢木、国井理論が本来 k_s/kg から有効熱伝導度を推定するものであり、また対象とする粒径が数 100 μm ~ 数 cm にわたる比較的大きなものであることによるものであろう。

最後に、ゼオライトと石英砂を Na ベントナイトに混合したときの有効熱伝導度の変化を図 4.1.6 に示す。図中 Na ベントナイト 100 % の値は、空隙率が混合物と近い値のものをプロットした。バルクの熱伝導度が $7 \sim 8 \text{ W/m} \cdot \text{C}$ である石英砂の混合により、確かに熱伝導性は約 $1 \text{ W/m} \cdot \text{deg}$ にまで改善されるものの、その効果は添加量に対して飽和傾向を示している。これは粒子を微細化して充填したために、粒子-粒子間の熱移動が大きく阻害されたためと考えられる。ゼオライト混合の場合には、熱伝導度は添加量に対し、減少傾向を示している。これからゼオライトの熱伝導度は、Na ベントナイトに比べ小さい値であることが予想される。

さて、昨年度はベントナイト/石英砂混合物の熱伝導度を整理して、表 4.1.2 のような値を得ている。この混合系では水飽和状態で約 $3 \text{ W/m} \cdot \text{C}$ 程度の熱伝導度を、そして乾燥状態では極めて低い $0.3 \text{ W/m} \cdot \text{C}$ の値である。今回の測定で得た熱伝導度の値は、乾燥状態で約 $1 \text{ W/m} \cdot \text{C}$ であり、非常に良好な結果であるといえよう。

Rothman の試算によれば、乾燥状態及び水飽和状態でそれぞれ $1.0, 1.5 \text{ W/m} \cdot \text{C}$ の熱伝導度を持つ 1 フォートの厚さの緩衝材を 21.6 kW/can のキャニスターの周りに設置したとき、ピーク温度は 290°C に達し、 200°C 以上の期間は 45 年以上にも及ぶとしている。⁽⁶⁾ 緩衝材中の温度分布と再処理後の貯蔵期間や緩衝材の厚さの関係に関する議論は、次節で詳細に行うことにしよう。

いずれにせよ、対象とする充填層の理論的解析が不可能である以上、今後数種の熱伝導度の異なる流体を用いた実験を行ない各材料の熱伝導度を求め、更に多くの条件での実験を通じてデータを集積し、混合系の組成からの熱伝導予測と、逆に必要な熱伝導度を有する材料の設計とが可

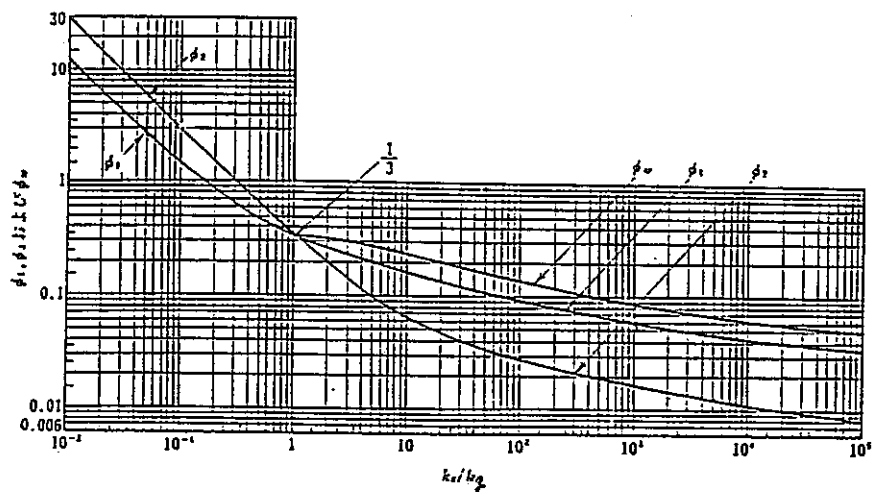
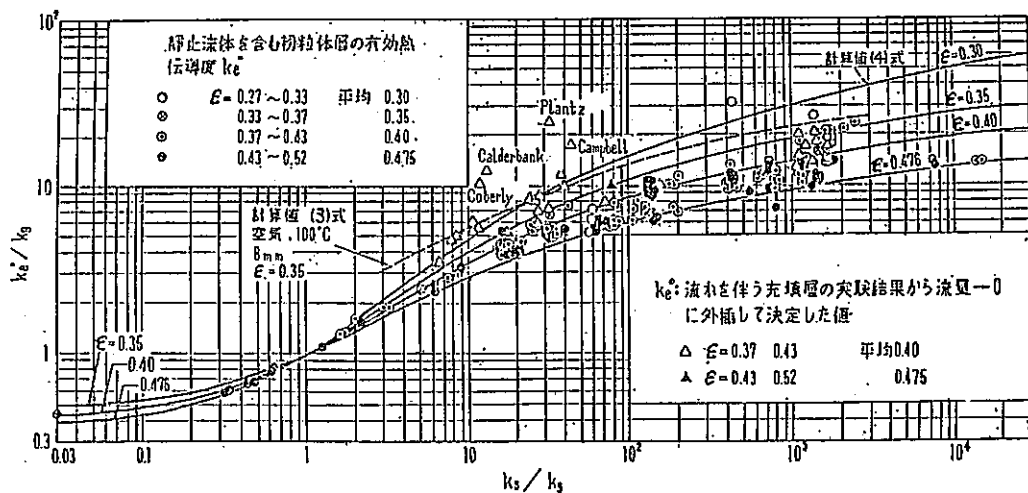


Fig. 4.1.4 ϕ versus k_s/k_g



図の k° 実測値に対する実験条件範囲

固体：ジフェニールアミン，ナフタレン，石炭，方解石，石英，カーボランダム，銅，鉛，
銅，アルミニウム
平均粒径 $0.027\text{mm} \sim 8\text{mm}$
液体：ガス：炭酸ガス，空気，窒素，メタン，プロパン，ヘリウム，水素
液：水，グリセリン，イソオクタン，エチルアルコール，水銀

図の k° 外挿値に対する実験条件範囲

固体：軽石，石炭石，石英，ガラス，セラライト，耐火断熱煉瓦，銅，鉛，アルミニウム
平均粒径 $0.016\text{mm} \sim 16.5\text{mm}$
液体：ガス：空気，天然ガス
液：イソオクタン，エチルアルコール，水

Fig. 4.1.5 k_e/k_s versus k_s/k_g
(Measured and Calculated Value)

Table . 4 . 1 . 1 k_e/kg value obtained

ϵ	T (°C)	kg(W/m°C)	k_e/kg
0.4	40	0.027	21
	60	0.029	19
	110	0.032	18
0.33	20	0.026	22
	30	0.026	22
	53	0.028	20
0.25	30	0.026	22
	43	0.027	21
	75	0.030	19

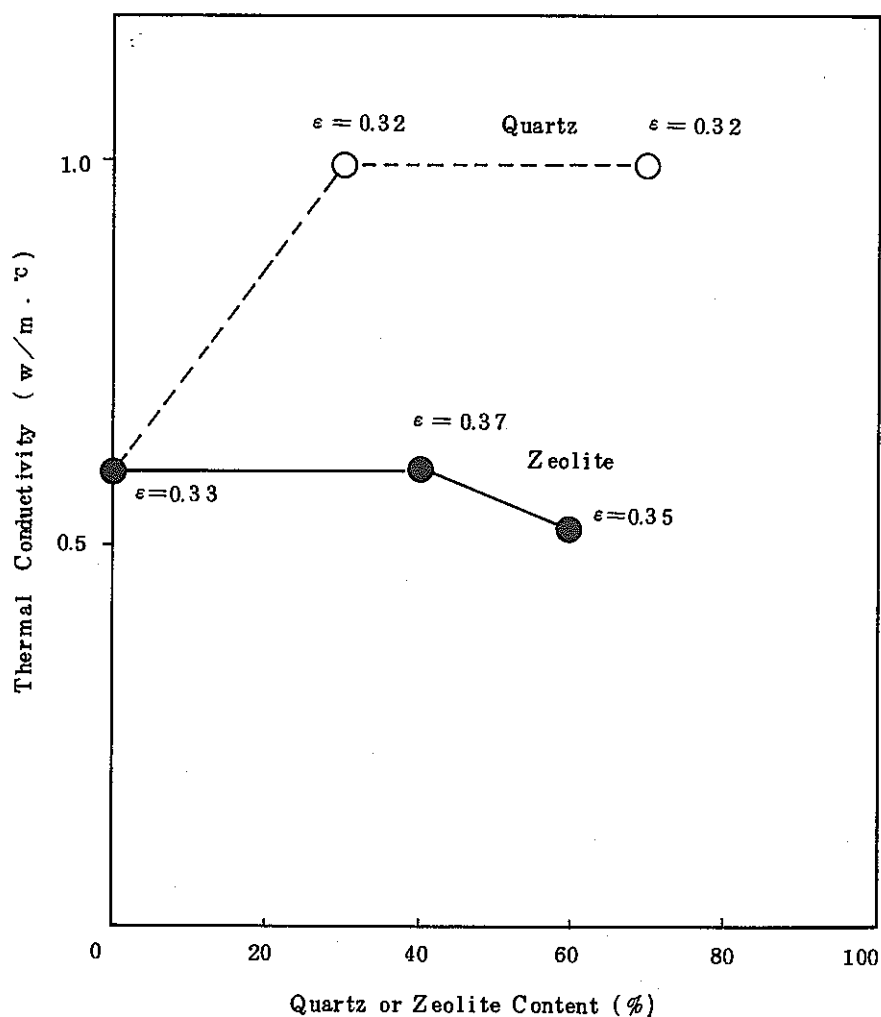


Fig.4. 1. 6 Thermal Conductivity of Mixed Minerals

Table 4.1.2 PRELIMINARY ESTIMATES OF PROPERTIES OF BUFFER/
BACKFILL MATERIALS COMPILED FROM KBS REPORTS.

Property	20/80 Bentonite/Quartz	10/90 Bentonite/Quartz	KBS Highly Compacted Bentonite
Bearing capacity	Poor after saturation; decreased by radiation and high salinity	Good after saturation; not affected by radiation or salinity	Good after saturation; may be affected by radiation and high salinity
Thermal conductivity (W/(m·°C))			
saturated	2.5 - 3.0	3.0 - 3.5	0.9 - 1.3
unsaturated	0.2 - 0.5	0.2 - 0.5	
Swelling pressure - constant volume uptake from air dry to equilibrium (MPa)	0.11	0.03	5 - 10
Ion exchange capacity (meq/100 g)	16 - 20	8 - 10	80 - 100
Density (t/m ³)	1.4 - 1.7	1.4 - 1.7	2.05 - 2.2
Water content at saturation		~ 30%	16%
Hydraulic conductivity (m/s)	10 ⁻¹¹	10 ⁻¹⁰	10 ⁻¹³
Diffusivity - % of that of water	10%	10%*	1%*
Hydrothermal stability	Dependent on groundwater chemistry, temperature; may be some recrystallization		Properties more affected by chemical changes
Thermally induced moisture migration	Some migration when saturation is ~ 15-75%		None

能となるような研究が必要である。

4.2 緩衝材の熱史に関する試算

緩衝材の候補物質としてのベントナイト、ゼオライトは、含水鉱物であり、高温条件下での長時間安定性は本来あまり期待できない。例えば、ベントナイトの主成分鉱物であるス멕タイトは、膨潤性の乏しいイライトへと、速度論的過程を経て、徐々に転移してゆく。転移速度は、温度により大きく影響される故、緩衝材としての長期安定性を評価する為には、それがたどる熱史の見種もりが不可欠である。

放射性廃棄物の発熱量は時間とともに減衰してゆく。又、キャニスターが地層中に埋設された後発生する熱量は、廃棄物、緩衝材、母岩の温度上昇のために一部吸収され、残部は母岩中に放散されてゆく。この種の状況は、本来、三次元非定常熱伝導問題として取り扱われるべきであるが、

それはかなり複雑であり、困難な作業となる。我々が必要とするのは、必ずしも厳密解ではなくむしろ安全側に引く一つの基準であることを考慮し、簡略化したモデル—— 均一に熱が発生する円柱状発熱体から半径方向への二次元定常熱伝導モデル —— に対して解を求め議論することを試みた。計算方法、計算に使用した諸パラメータの選定に関して述べた後、計算結果とその適用方法を検討する。更に、これらの検討結果を踏まえて、ベントナイト質緩衝材の安全な使用条件について一つの基準を示したい。

4.2.1 定常状態における各部の温度の算出

ガラス固化体とそれを包むキャニスターの大きさは、図 4.2.1 に示す様なものとする。又、キャニスター 1 個あたりの発熱量は再処理後の年数によって表 4.2.1 の様に変化するものとする。キャニスターは図 4.2.2 の様に、地層中に埋設されるものとする。但し垂直方向への熱の移動は考慮しない。図 4.2.2 中の数字は夫々、1 : ガラス固化体の中心、2 : ガラス固化体の外面、3 : 緩衝材の内面、4 : 緩衝材の外面、5 : 母岩中の基準位置を示す。5 の位置に対して境界温度条件 25°C を与え、1 ~ 4 の各部の定常状態における温度を算出した。結果は Appendix I に示してある。1 地点から 5 地点までの距離が 5 m から 200 m までの範囲を検討したが、これはサイトの、地質学的（水理地質学的）条件により異なるであろう周辺岩石中への放熱効率の相違に対する配慮である。

キャニスター 1 個あたりの総発熱量を、 HKcal/hr 、各構成物質の熱伝導率を、ガラス固化体 λ_0 、キャニスター材 λ_1 、緩衝材 λ_2 、母岩 λ_3 等とする。又、各部分の温度差を 1 → 2 地点 ΔT_1 、2 ↔ 3 地点 ΔT_2 、3 ↔ 4 地点 ΔT_3 、4 ↔ 5 地点 ΔT_4 、そして基準点（= 5 地点）の温度を T_r と置くと、ガラス固化体の中心温度 T_1 は、

$$T_1 = \Delta T_1 + \Delta T_2 + \Delta T_3 + \Delta T_4 + T_r$$

ガラス固化体の表面温度 T_2 は

$$T_2 = T_1 - \Delta T_1$$

緩衝材の内壁温度 T_3 は

$$T_3 = T_2 - \Delta T_2$$

緩衝材の外壁温度 T_4 は

$$T_4 = T_3 - \Delta T_3$$

等となる。一方、ガラス固化体中心から各部までの距離を、1 → 2 地点 r_1 、1 → 3 地点 r_2 、1 → 4 地点 r_3 、1 → 5 地点 r_4 と置くと、 $\Delta T_1 \sim \Delta T_4$ は次式で与えられる。

$$\Delta T_1 = H r_1^2 / 4 \lambda_0$$

$$\Delta T_2 = H r_1^2 \ln(r_2/r_1) / 2 \lambda_1$$

$$\Delta T_3 = H r_2^2 \ln(r_3/r_2) / 2 \lambda_2$$

$$\Delta T_4 = H r_3^2 \ln(r_4/r_3) / 2 \lambda_3$$

廃棄物の発熱量は時間の関数であるが、個々の時間断面における発熱量に対して、定常状態の

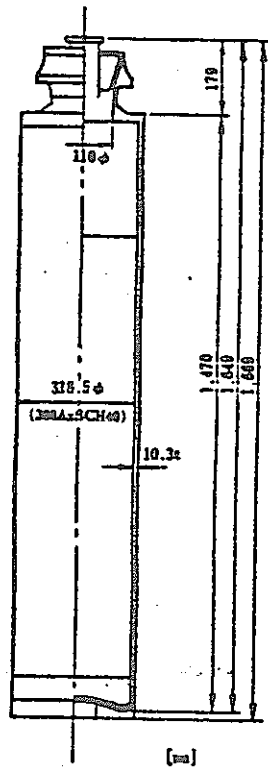


Fig. 4. 2. 1 Configuration of Canister Employed in the Simulation

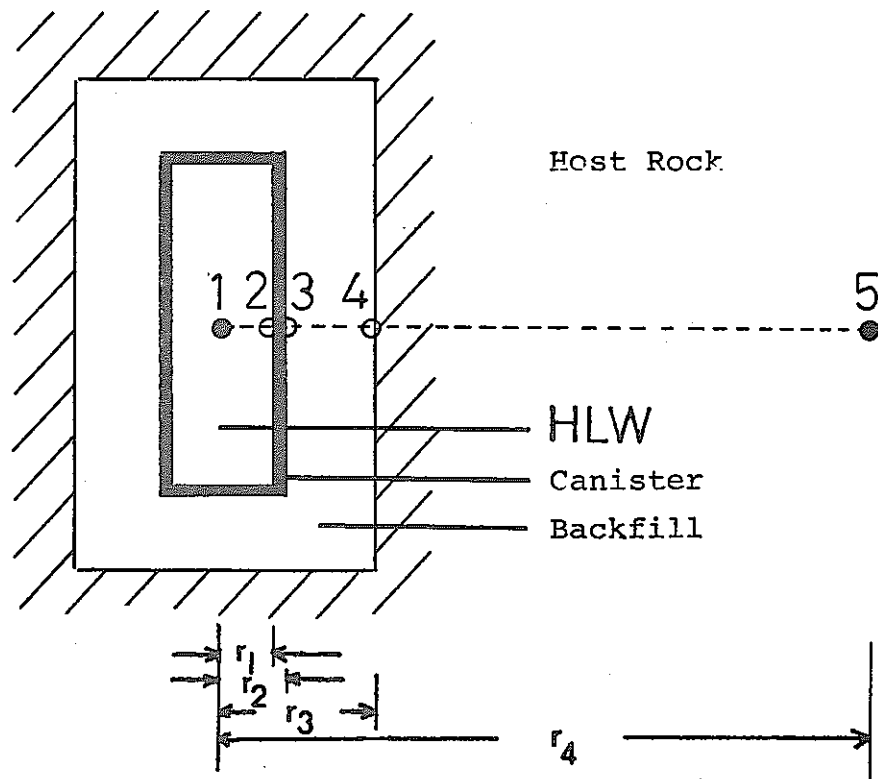


Fig. 4. 2. 2 Conceptual Configuration of Engineered Barrier in Repository

Table 4. 2. 1 The Amount of Heat Generation and Surface Dose Rate

再 処 理 の 年 数	項目 表面線量率 (mrem/hr)	キャニスター 1 本あ たりの発熱量 (KW)
5	1.9×10^7	1.38
10	1.7×10^7	0.89
20	9.7×10^6	0.64
30	8.0×10^6	0.49
50	4.8×10^6	0.31
100	1.4×10^6	0.098
200	1.3×10^4	0.014
500	1.0×10^3	0.002

温度を求め、時間軸に沿って配列することにより、Appendix I に示した様に、各部の熱史を得ることができる。

各部分の熱伝導率としては次の値を使用した。

ガラス固化体： $0.938 \text{ Kcal/m.hr.deg}$ (パイレックスガラス⁽⁷⁾)。キャニスター材： $21.08 \text{ Kcal/m.hr.deg}$ (ステンレス⁽⁷⁾)。緩衝材： $0.43 \text{ Kcal/m.hr.deg}$ (乾燥状態の粘土⁽⁸⁾)。密度 1.6 に圧密された Na-ベントナイト⁽⁹⁾)。 $0.86 \text{ Kcal/m.hr.deg}$ (湿った状態の粘土⁽⁸⁾)、密度 2.0 に圧密された Na-ベントナイト⁽⁹⁾)、 $1.29 \text{ Kcal/m.hr.deg}$ (添加物により伝導度を高め得た場合の仮想的値)。母岩： $2.88 \text{ Kcal/m.hr.deg}$ (花崗岩⁽¹⁰⁾)。

4.2.2 計算結果の適用

定常熱伝導モデルによる結果を適用するには、定常状態に至るための十分な時間と十分な供給熱量の保証が前提条件である。

廃棄物周辺の熱史を数年～数 10 年以上のスケールで考える時には、恐らく供給熱量だけが、制限条件となるであろう。それは、暖められる岩体のスケールに比して発熱量が十分に大きくない為である。埋設後数年間～数十年間の温度は、熱量不定のため定常モデルによる計算温度よりもかなり低い温度で上昇傾向に推移し、定常状態に達する頃に 1 つのピークを迎え、以後は計算曲線に沿って下降するものと考えられる。

定常状態に達するまでの所要時間によって到達最高温度は異って来る。廃棄物より発生する熱量のうち、廃棄物-緩衝材-母岩システムの温度上昇の為に消費される割合を仮定することによって、この所要時間そして温度の上限を粗く見積もって見る。

廃棄物埋設直後のシステムを初期温度 25 °C から熱的定常状態における温度分布にまで加熱する為に必要な熱エネルギーは、個々の時間断面におけるシステム各部の温度条件をキャニスター中心から距離軸に沿って積分することにより得られる。

廃棄物の発熱量が時間とともに減衰しシステム各部の温度も対応して低下するので、必要な熱エネルギーは時間の経過に伴って同様に減少する。一方埋設直後からの累積発生熱エネルギーは、単位時間あたりの発生エネルギーを時間軸に沿って積分することにより容易に求まる。これは当然ながら時間の経過に伴って増加してゆく。時間軸に対して、正負逆の勾配をもった 2 つの曲線が交差する時間座標は、定常状態まで加熱するのに必要な最低エネルギーに到達する時点の意味する。実際には、定常状態に達するまでに、系外に流出する熱エネルギーの量はかなりの比率に達すると考えられる。従って、Appendix I に示した緩衝材の熱史は、上記 2 曲線の交差した時点以後かなり経ってからではじめて適用されることになる。定常状態に達するまでに系が吸収した熱量の累積発生熱エネルギー量に対する割合が 100 %, 50 %, 25 %, 10 % の各場合について、エネルギーの交差点の時間座標とそのときの緩衝材の最高温度を求め、表 4.2.2 に示した。

なお、吸収熱エネルギーの計算にあたり、システム各部の物質の比熱、比重としては、次の数値を用いた。

ガラス固化体：比熱 0.186 cal/g deg ，比重 2.32 (パイレックスガラス)

キャニスター：比熱 0.121 cal/g deg ，比重 8 (ステンレス)

緩 衝 材：比熱 0.1775 cal/g deg ，比重 2.83 (マスコバイト)

母 岩： 0.2 cal/g deg ，比重 2.7 (花崗岩)

緩衝材の熱伝導度は $0.43 \text{ Kcal/m.hr.deg}$ (低密度の乾燥ベントナイトに対応) とし、厚みが 20 cm と 30 cm の場合、貯蔵期間が 30 年と 50 年の場合、合計 4 通りのケースを検討した。

大局的に数値を見ると吸収エネルギー比の小さい程、また境界温度条件を与えた地点がキャニスターより遠いほどピーク温度に達するまでの所要時間が長く、到達最高温度も低くなっている。温度勾配が大きいということは岩体の熱放散能力が大きいことを意味するので、表 4.2.2 の様な座標系に数値を配列した場合、意味をもった数値は、右上から左下方向に並ぶと考えられる。勿論、表 4.2.2 の対角線位置に有効なデータが存在するということではない。定常状態に達するまでに系に吸収される熱量比率を仮に、5 m 地点 $\Rightarrow$ 25 °C の場合 25 %，10 m 地点 $\Rightarrow$ 25 °C の場合 50 %，20 m 以上の地点 $\Rightarrow$ 25 °C の場合 100 %，というラインを引き、緩衝材の安定性を考えてみる。このラインは現実よりも恐らくかなり高温側にあると思われる。

4.2.3 ベントナイト質緩衝材の安全な使用条件

ベントナイトの主成分鉱物であるスメクタイトが、前節までに見積もられた熱的環境において、どの程度イライト化を起こすかを見積もって見よう。これは本研究において極めて興味を持たれる命題である。スメクタイト $\rightarrow$ イライト転移反応の速度論的パラメータは、Eberl & Hower

Table 4.2.2 Maximum Temperature and Time Required for Buffer

to Reach its Maximum Temperature

緩衝材厚 20 cm, 貯蔵 50年

温度上昇過程において吸収される熱エネルギー比	100%		50%		25%		10%	
境界温度条件=25℃を与えた地点からキャニスター中心までの距離	time (years)	temp (°C)	time (years)	temp (°C)	time (years)	temp (°C)	time (years)	temp (°C)
5m	1.5	(198)	3	(191)	6	(178)	13	(154)
10m	5.5	(209)	10	(191)	18	(160)	36	(115)
15m	11	(201)	19	(168)	34	(128)	61	(85)
20m	18	(181)	31	(141)	50	(103)	89	(66)
30m	33	(145)	52	(107)	84	(73)		
40m	49	(116)	77	(82)				

緩衝材厚 30 cm, 貯蔵 50年

温度上昇過程において吸収される熱エネルギー比	100%		50%		25%		10%	
境界温度条件=25℃を与えた地点からキャニスター中心までの距離	time (years)	temp (°C)	time (years)	temp (°C)	time (years)	temp (°C)	time (years)	temp (°C)
5m	2	(267)	4	(254)	8	(233)	19	(182)
10m	8	(277)	14	(241)	26	(187)	52	(120)
15m	16	(251)	28	(196)	47	(139)	82	(89)
20m	26	(215)	42	(160)	67	(111)		
30m	46	(160)	74	(110)				
40m	67	(124)						

(1976)⁽¹⁾ によるデータを用いることにする。このデータは第5章でも詳しくのべるが、 K^+ 型スメクタイト／イライト混合層鉱物の組成をX線的に決定して得た実験値である。地質学的観察実験から推定されるよりもかなり大きな速度を与えるということが、しばしば指摘されているが、これは、天然のスメクタイトおよび地層水の組成が、Eberl らの実験条件よりは、かなり K^+ に乏しい為と説明されている。

Table 4.2.2 Maximum Temperature and Time Required Buffer

to Reach its Maximum Temperature (continued)

緩衝材厚 20 cm, 貯蔵 30 年

温度上昇過程において 吸収される熱エネルギー比	100%		50%		25%		10%	
境界温度条件=25℃ を与えた地点から キャニスター中心までの距離	time (years)	temp (°C)	time (years)	temp (°C)	time (years)	temp (°C)	time (years)	temp (°C)
5 m	1	(304)	2.5	(295)	6	(275)	11	(247)
10 m	5	(328)	9	(301)	19	(244)	37	(163)
15 m	11	(313)	19	(265)	33	(192)	62	(112)
20 m	18	(286)	30	(217)	49	(146)	85	(85)
30 m	32	(222)	52	(148)	80	(94)		
40 m	49	(163)	75	(106)				

緩衝材厚 30 cm, 貯蔵 30 年

温度上昇過程において 吸収される熱エネルギー比	100%		50%		25%		10%	
境界温度条件=25℃ を与えた地点から キャニスター中心までの距離	time (years)	temp (°C)	time (years)	temp (°C)	time (years)	temp (°C)	time (years)	temp (°C)
5 m	2	(412)	4	(396)	9	(355)	18	(294)
10 m	8	(441)	15	(375)	27	(283)	50	(173)
15 m	16	(403)	28	(303)	46	(203)	81	(112)
20 m	26	(336)	42	(233)	65	(151)		
30 m	45	(236)	70	(151)				
40 m	66	(167)						

Roberson ら (1981)⁽¹²⁾ の実験データなどを参考にすると, Na^+ 型, Mg^{2+} , Ca^{2+} 型ベントナイトを使用した場合には, Eberl らの値よりも, 1 桁ないし 2 桁程度, 転移が遅くなる可能性がある。緩衝材がピーク温度を迎える頃には, ベントナイトが乾燥し, 反応溶液が存在しない可能性もある。この場合には, 上記転移反応は更に遅くなるであろう。従って, Eberl らの速度パラメータを使用して作る安定性評価の基準は, 十分に安全側にあると考えてよいと判断する。

Appendix IIに膨潤層100%のス멕タイトより出発して、膨潤層80%、60%、40%、20%、のス멕タイト／イライト混合層鉱物へと変化するまでの所要時間を示した。活性化エネルギーが19.6 Kcalの場合、膨潤層60%の混合層鉱物にまで変化するには、200℃で24年、240℃で47年、そして280℃では、わずか1.2年しか要しない。表4.2.2のピーク温度と比較するなら、貯蔵の年数と緩衝材の厚さを適切に選択する必要性は明らかである。前節に示したラインにより最高到達温度を決め、Appendix IIに示された転移曲線を用いて、四つのケースの安全性を評価してみる。

a. 貯蔵期間50年、緩衝材厚20cmの場合

5m⇒25℃の放冷効率の場合、埋設後6年目にピーク温度180℃に達した後徐冷し、20年後には約120℃になる。10m⇒25℃の放冷効率の場合、10年目にピーク温度約190℃に達した後20年で153℃にまで冷える。20m⇒25℃の放冷効率の場合は、18年目にピーク温度約180℃に達した後、20年で約120℃まで冷える。いずれの場合も、埋設後200年ではほとんど基準温度まで冷えてしまう。一方ス멕タイトの転移反応については、膨潤層60%の混合層鉱物に転移するまでに、200℃で24年、180℃では66年を要する。従って、この条件では、イライト化による緩衝材の劣化の危険はないと考えられる。

b. 貯蔵期間50年、緩衝材厚30cmの場合

5m⇒25℃の放冷効率の場合、埋設後8年目でピーク温度約230℃に達した後5年で、208℃、10年で185℃、20年で153℃まで冷却する。10m⇒25℃の放冷効率の場合14年目にピーク温度約250℃に達し、それから5年で213℃、10年で194℃、20年で161℃まで冷却する。20m⇒25℃の冷却効率の場合は26年目にピーク温度215℃に達したのち、5年で196℃、20年で148℃まで冷却する。一方、膨潤層60%の混合層に変化するまでに要する時間は240℃で約5年、220℃で約10年である。従って、この条件においてもス멕タイトのイライト化は深刻にならない。

c. 貯蔵期間30年、緩衝材厚さ20cmの場合

5m⇒25℃の放冷効率の場合、埋設後6年目にピーク温度275℃に達し、その10年後でも220℃以上にある。10m⇒25℃の放冷効率の場合は、9年目にピーク温度300℃に達し、その10年後においても240℃以上にある。20年⇒25℃の放冷効率においては、18年目にピーク温度286℃に達し、その後10年でも、225℃以上にある。膨潤層60%の混合層に変化するまでに要する時間は220℃以上では10年以下である。従って、この条件ではス멕タイトのイライト化はかなり進行する。

d. 貯蔵期間30年、緩衝材厚30cmの場合

5m、10m、25m⇒25℃の放冷効率のいずれにおいても220℃以上の期間が20年以

上続く。このような温度条件では、スメクタイトは膨潤層40%以下の混合層になってしまう。
従ってこの埋設条件に対しては緩衝材の安定性は全く期待できない。

以上の結論をまとめ、緩衝材の安定性を期待できる領域を、図4.2.3.に示した。

今回の議論には、仮定に頼る部分が多く、結果にも任意性が大きいとの印象は否定でき

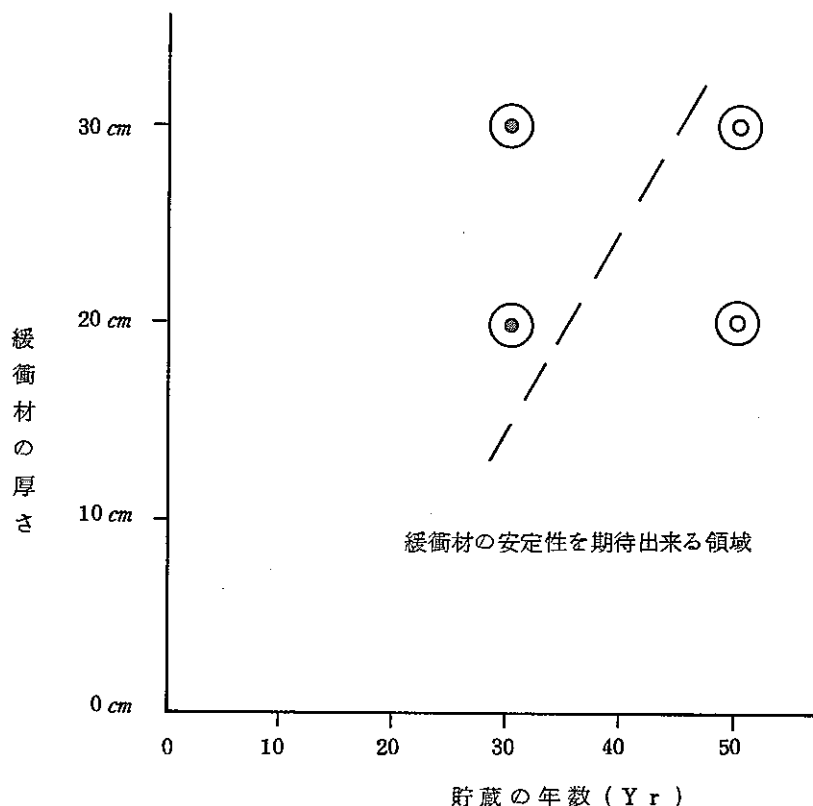


Fig. 4.2.3 Thermal Stability Assessment for Buffer

ない。これは、母岩の放冷効率や、定常状態に至るまでに系が吸収する熱量の見積もり方法等の粗さに原因がある。スウェーデンの Stripa における実規模の熱伝導試験等によりこの点の見積り精度を高める事が是非必要であろう。ペントナイト質緩衝材の安定性に関する上述の結論は、飽くまでも初歩的な緩衝材設計のためのものであることを改めて強調しておきたい。

Reference

- 1) G.W.Bird, 'Hydrothermal Stability of Potential Clay-Based Buffer Materials : A Review', AECL TR-199 (1982)
- 2) 矢木栄, 国井大蔵 : 化学工業, 18, 576, (1954)
- 3) S.Yagi, D.Kunii : A.I.Ch.E.J., 3, 373, (1957)
- 4) D.Kunii, J.M.Smith : A.I.Ch.E.J., 6, 71, (1960)
- 5) 伝熱工学資料, 日本機械学会 熱, 熱力学部門委員会 伝熱工学資料調査分科会編 改定第2版, 1966 日本機械学会
- 6) A.J.Rothman, WPI-81-WI0518A (1981)
- 7) 理科年表(1983)
- 8) Exploration Geophysics (1950)
- 9) 本報告書, 熱伝導測定 4.1 節
- 10) Handbook of Physical Constants (1965)
- 11) D. D. Eberl, J. Hower, Geol. Soc. Amer. Bull., 87, 1326 (1976)
- 12) H. E. Roberson, R. W. Lahann, Clays Clay Miner., 29, 129 (1981)

§ 5. 粘土鉱物及び沸石類の熱変成

H L Wを投棄する地質環境における物理化学的条件を鑑みると、粘土鉱物の熱変成を2つに分けて考えるのが妥当であろう。1つは“Dry”な条件下での熱変成であり、他の1つは“Wet”あるいは“Hydrothermal”の条件下での熱変成である。“Dry”な条件とは、キャニスターの発熱量が比較的大きく、また緩衝材への地下水の浸入が充分には行なわれていない埋め戻し直後の状況などを想定することができる。一方の“Wet”の条件とは熱のほか地表水、地下水など天水が地下深部に浸透したり、元々堆積物中に含まれていた間隙水や、層間水などが反応に関与する所謂熱水条件を想定している。以下にこの2つの観点から、粘土鉱物と沸石類の熱変成に伴う構造、組成および物性変化について実験と天然の事例の両面に亘ってまとめた。

5.1 “Dry”な条件下でのスメクタイトの熱変成

“Dry”な条件下で起こる加熱変化は主にスメクタイトの脱水である。この条件下での脱水反応に関しては、天然の例と同時に示差熱分析(DTA)・熱重量分析(TGA)のデータやその他の加熱実験のデータが参考になる。

5.1.1. スメクタイトの脱水

図5.1.1(a)(b)にスメクタイトと雲母鉱物の結晶構造の模式図を示す。⁽¹⁾粘土鉱物の主体をなす層状ケイ酸塩鉱物は結晶構造内に水(H_2O)を含んでいる。その水は層間水と結晶水(あるいは構造水)の2種類に分けられる。層間水はケイ酸塩層とケイ酸塩層の間に挟まれる比較的ゆるく結合した水である。結晶水は構造内の八面体層を形成する陰イオンの一部として、OHの形で存在する。層間水を含む粘土鉱物の代表はスメクタイトであり、その他パーミキュライトや、ハロイサイトが知られている。これら以外の粘土鉱物は本来層間水を含まないが、その粒子サイズが小さい場合や、それが変質を受けている場合などには少量の層間水を含むことが多い。

スメクタイトやパーミキュライトの層間水の量は、ケイ酸塩層のもつ負の層電荷の大きさ、層間に存在する陽イオンの種類、および相対湿度などによって異なる。表5.1.1はスメクタイトとパーミキュライトのC軸方向の長さの変化を相対湿度、層間陽イオン種および負の層電荷⁽²⁾(鉱物種)の関数としてまとめたものである。層間水の量の変化によるa・b軸方向の変化は小さいが、⁽³⁾(図5.1.2)層に垂直なC軸方向の長さは大きく伸縮する。従って、C軸方向の長さ⁽⁴⁾⁽⁵⁾の変化を層間水の量の変化に対応させることができる。結晶水の量は、粘土鉱物が2:1型(例えばスメクタイト)、1:1型(例えばカオリナイト)あるいは2:1:1型(例えばクロライト)というグループの違いによって変化するだけで、1つのグループ内では基本的に変化がなく一定している。

この様な粘土鉱分に熱を加えると脱水反応が起こり、それに伴って構造、物性変化が生ずる。

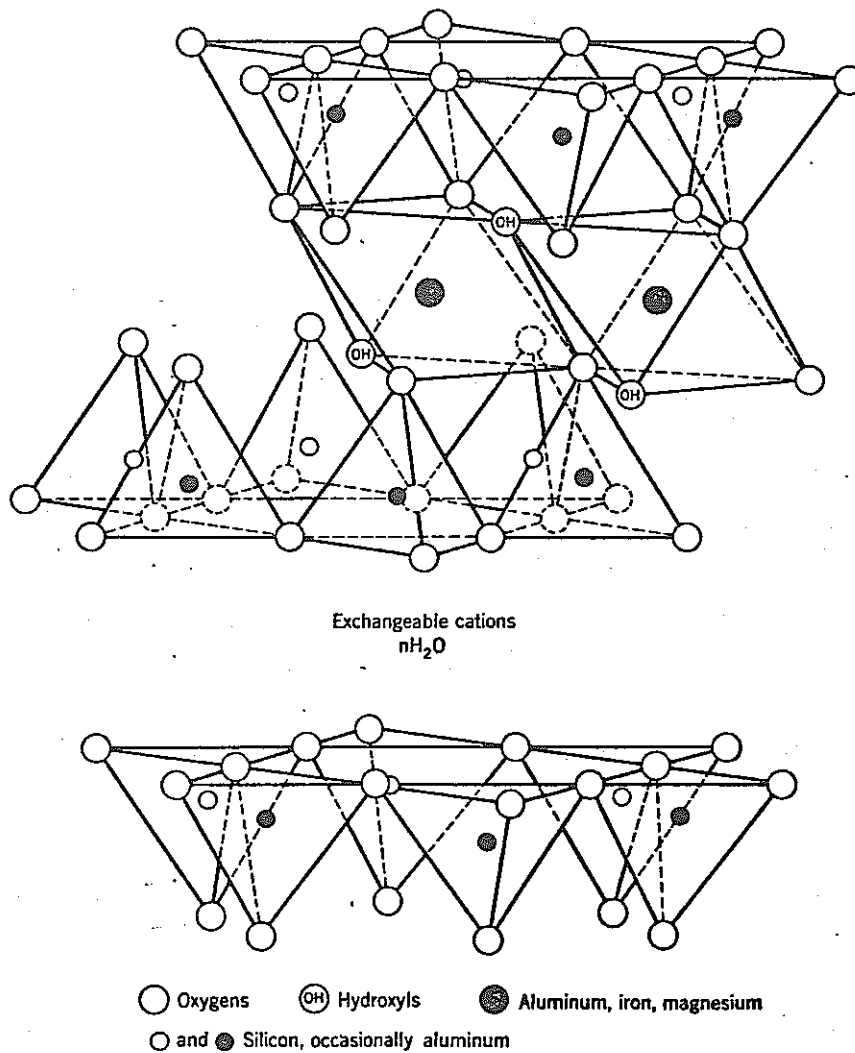


Fig. 5.1.1(a) Diagrammatic sketch of the structure of smectite according to Hofmann, Endell, and Wilm, Marshall, and Hendricks.⁽¹⁾

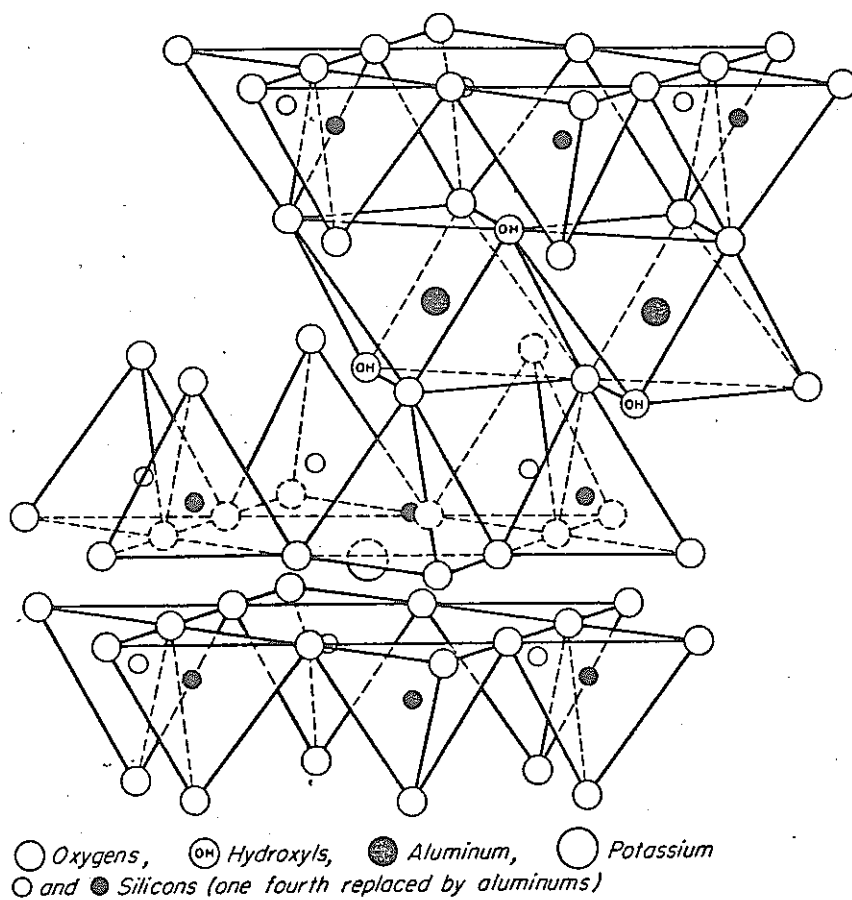
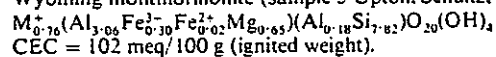


Fig 5.1.1(b) Diagrammatic sketch of the structure muscovite.⁽¹⁾

Table 5.1.1 Effect of interlayer cations on basal spacings (Å) of smectites and vermiculites at 32, 52 and 79% relative humidities and immersed in water

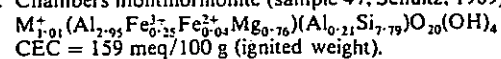
1. Wyoming montmorillonite (sample 5 Upton, Schultz, 1969)



CEC = 102 meq/100 g (ignited weight).

Interlayer cation	32% RH	52% RH	79% RH	in water
Na	12.5	12.5	14.8 (br)	Ind
NH ₄	11.7	11.7 (br)	11.9	12.4 (asymm high)
K	11.9	11.9	12.1	Ind
Li	12.9 (br)	14.1 (br)	15.1 (br)	27.0
Cs	12.5	12.4	12.4	12.5
Ca	15.2	15.1	15.5	19.0
Mg	15.1	15.1	15.2	19.5
Sr	15.1	15.3	15.6	19.0
Ba	13.2 (br)	14.5 (br)	15.6	18.8

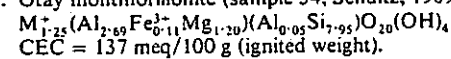
2. Chambers montmorillonite (sample 47, Schultz, 1969).



CEC = 159 meq/100 g (ignited weight).

Interlayer cation	32% RH	52% RH	79% RH	in water
Na	12.8	12.8	14.5 (br)	18.8
NH ₄	12.1	12.2	12.3	12.4
K	12.2	12.2	12.2	Ind
Li	13.7 (br)	14.7 (br)	15.1 (br)	15.9 (br)
Cs	12.5	12.3	12.5	12.5
Ca	15.2	15.1	15.1	19.0
Mg	14.9	14.9	15.1	19.5
Sr	15.1	15.3	15.3	19.2
Ba	12.7	12.7	12.7	19.0

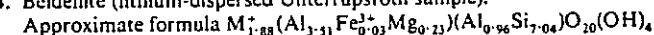
3. Otay montmorillonite (sample 34, Schultz, 1969).



CEC = 137 meq/100 g (ignited weight).

Interlayer cation	32% RH	52% RH	79% RH	in water
Na	12.5	12.5	12.8 (br)	19.0 (br → Ind)
NH ₄	12.4	12.4	12.4 (br)	12.4 (br)
K	11.9 (br)	11.9 (br)	12.1 (br)	12.2 (br → Ind)
Li	12.8 (br)	12.6 (br)	13.7 (br)	19.0
Cs	12.4	12.4	12.4	12.4
Ca	15.1	15.2	15.2	18.7
Mg	14.9	14.9	15.1	19.5
Sr	15.1	15.3	15.6	18.7
Ba	12.8	12.8	12.8	18.7

4. Beidellite (lithium-dispersed Unterrupstoth sample).



Interlayer cation	32% RH	52% RH	79% RH	in water
Na	12.5	12.5	12.5	14.8
NH ₄	11.8	11.9	11.9	12.0
K	11.8	11.9	11.9	12.1 (br)
Li	12.4	13.5 (br)	14.8	Ind
Cs	11.9	11.9	11.9	12.1
Ca	15.1	15.1	15.1	15.1
Mg	14.7	14.7	15.0	15.9
Sr	14.5 (asymm low)	14.7 (asymm low)	15.4	16.0 (asymm high)
Ba	12.5	12.5	14.7 (br)	16.0 (br)

Table 5.1.1 (Cont)

5. Saponite (St. Cyrus, Kincardineshire, Scotland, Mitchell, 1954).
Approximate formula $M_{0.70}^{+}(Al_{0.6}Fe_{0.5}Mg_{4.9})(Al_{1.3}Si_{6.7})O_{20}(OH)_4$.
CEC = 99 meq/100 g.

Interlayer cation	32% RH	52% RH	79% RH	in water
Na	12.5	12.5	12.8 (asymm high)	15.5 (br → Ind)
NH ₄	12.2	12.7	12.7	13.5 (br)
K	12.4	12.4	12.5	15.4 (br)
Li	12.4	12.4	14.1 } 16.6 }	Ind
Cs	12.4	12.2	12.3	12.5 18.8 (w)
Ca	15.1	15.2	15.2	15.8
Mg	14.7	14.7	14.7	19.0
Sr	15.2	15.2	15.2	18.7
Ba	12.8	12.8	12.9 (br asymm high)	18.7

6. Vermiculite (Kenya, Mathieson and Walker, 1954).
 $M_{1.60}^{+}(Al_{0.32}Fe_{0.96}Mg_{4.72})(Al_{2.36}Si_{5.44})O_{20}(OH)_4$
CEC = 130 meq/100 g.

Interlayer cation	32% RH	52% RH	79% RH	in water
Na	12.3	12.6 (asymm high)	14.6	14.9
NH ₄	10.8 (br)	10.8 (br)	11.0 (br)	12.9 (br)
K	10.4 (v.br asymm high)	10.4 (v.br asymm high)	10.5 (v.br asymm high)	10.5 } (v.br) 14.3 }
Li	12.5	12.5	12.5	14.8 (→ Ind)
Cs	12.6 (br)	12.6 (br)	12.6 (br)	12.6 (br)
Ca	14.8	14.9	14.9	14.9
Mg	14.3	14.4	14.4	14.6
Sr	14.9	14.9	14.9	15.2
Ba	12.4	12.5	12.6	15.4

7. Loch Scye vermiculite (Smith Aitken, 1965).
Low iron, high charge vermiculite CEC = 180 meq/100 g

Interlayer cation	32% RH	52% RH	79% RH	in water
Na	12.1	14.7	14.7	14.9
NH ₄	10.8	10.8	10.8	11.0
K	11.0	11.0	11.0	11.0
Li	12.1	12.4	12.0 (asymm high)	14.6 13.0
Cs	11.4 (br)	11.4 (br)	11.4 (br)	11.5 (br)
Ca	14.9	14.9	14.9	15.1
Mg	14.4	14.4	14.4	14.6
Sr	14.9	14.9	—	15.2 13.2
Ba	12.3	12.4	12.0 (asymm high)	14.9 13.0

KEY. (br) = broad, probable indication of interstratification; asymm high/low = asymmetrical towards high/low spacings; → Ind = tendency to indefinite swelling; w = weak; CEC = cation exchange capacity.

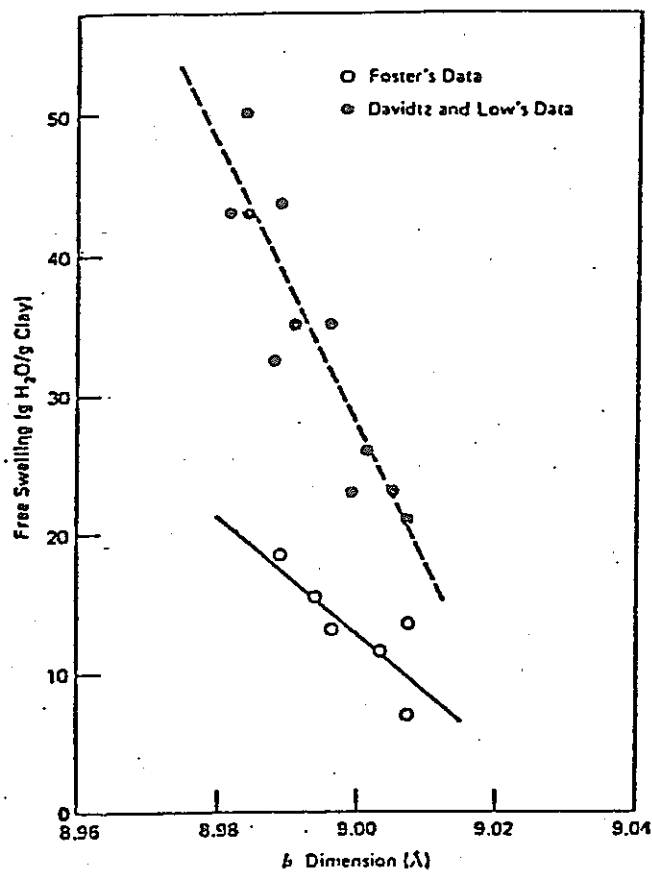


Fig. 5.1.2 RELATION BETWEEN FREE SWELLING AND B-DIMENSION FOR Na-MONTMORILLONITES (MITCHELL 1976) (3)

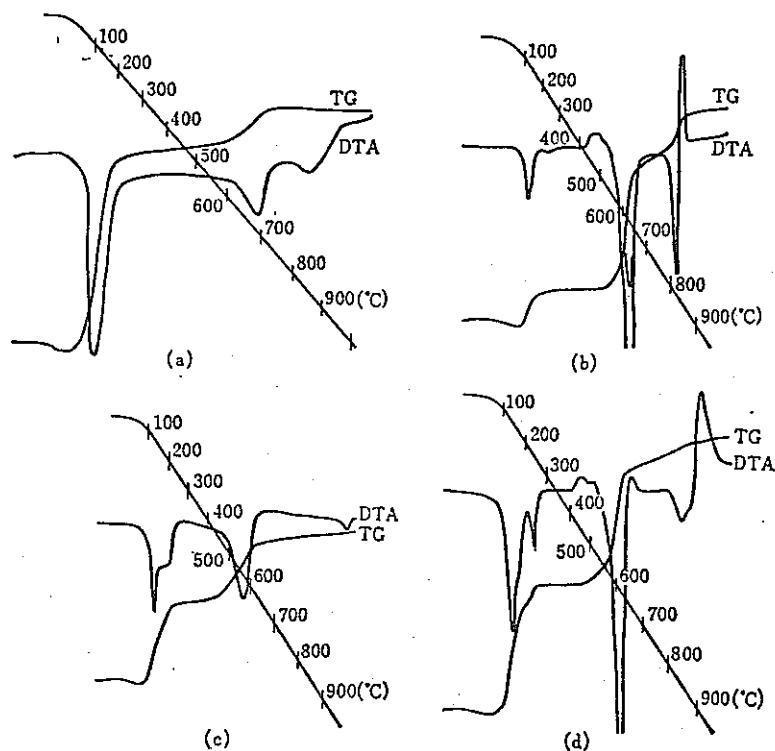


Fig 5.1.3 TG, DTA Curves (昇温速度: 平均毎分 10 °C, 同時記録) (実験 下田右) (Sudo, Shimoda, Nishigaki and Aoki, 1967). (a) モンモロロナイト (山形県左沢) (国峰砒化工業株式会社試料). (b) 緑泥石 (ロイヒテンバージャイトーシェリダナイト) (島根県鰐淵鉾山) (坂本卓試料). (c) 雲母-モンモロロナイトの混合層鉱物 (長崎県五島鉾山) (下田右試料). (d) トスダイト (青森県上北鉾山) (児玉秀臣試料).

図 5.1.3 にモンモリロナイト (スメクタイトの一端成分) の DTA 曲線・TGA 曲線の一例を示した。⁽⁶⁾ DTA 曲線において、室温から 1000℃ 位までの温度範囲でみられるピークは、100℃～200℃ に著しい吸熱ピーク (N_1)、500°～600℃ に現われる吸熱ピーク (N_2)、そして 900℃ 付近で見られる発熱ピーク (N_3) である。 N_3 ピークは発熱ピークが現われる前に吸熱ピークを伴って、所謂 S 字型ピークとなることがある。

N_1 ピークは層間水の脱水に起因するものであり、 N_2 ピークは構造中の OH (結晶水) の脱水によるものである。 N_3 ピークは、スメクタイトの構造崩壊に伴う体積の膨張と再結晶によるピークである。スメクタイトの化学組成にもよるが、スメクタイトが分解して再結晶する鉱物相としてスピネル・石英・モリストバライト・ムライトなどが知られている。⁽⁷⁾ N_2 ピークを 2 つ有するスメクタイトも知られている。このスメクタイトが性質の異なる層 (例えば、層毎に負電荷密度が異なるもの) の混合層である場合、しばしば 2 つの吸熱ピークを伴う。⁽⁸⁾⁽⁹⁾ N_2 ピークの温度は、測定条件が一定であっても、粘土粒子サイズ、結晶度、層間陽イオンの組成によっても変化する。 N_1 ピークに関しても、それが 1 本の場合と 2 本見られる場合がある。一般に 1 価のアルカリ金属陽イオンが層間陽イオンとして含まれる場合、 N_1 ピークは 1 本であり、2 価のアルカリ土類陽イオンが含まれている場合には、図 5.1.4 (a) の如く 2 本であることが多い。⁽⁷⁾ この違いは、アルカリ金属とアルカリ土類でスメクタイトの層間域における水和状態が異なり、アルカリ土類では水和水が簡単に脱水せず、2 つ以上の素過程によって脱水が完了することによるものと考えられている。 N_1 ピークのうち、より低温側のピークの温度は、アルカリ金属、あるいはアルカリ土類の間でもそれぞれのイオンの水和エネルギーの違いにより変化し、図 5.1.4 (b) に見られるように水和エネルギーが大きい程脱水温度も高くなる。⁽⁷⁾

スメクタイトの層間にアルカリ金属とアルカリ土類が種々の割合で混合している場合の脱水量変化を図 5.1.5 に示す。⁽¹⁰⁾ K^+ と Ca^{2+} の混合系において層間陽イオンの当量分率の 70% 以上が K^+ で占められている場合、 Ca^{2+} の影響はほとんど現われず、 K^+ に対する 1 本の N_1 ピークしか検知されない。しかし、 Ca^{2+} の含有量が 30% を越えると、 Ca^{2+} の影響の方が卓越して来て、 N_1 ピークは 2 本検知されるようになる。 K^+ と Ca^{2+} の混合系では、層間水の含有量は K-モンモリロナイトの機械的混合物としての挙動を示さず、むしろそれより小さく、しかも組成に対して図 5.1.5 に示されるように階段状に変化する。このことは層間域に K^+ と Ca^{2+} が共存すると何らかの相互作用が働き、一種の混合層が形成されたことによって生じた現象であろうと考えられる。⁽¹⁰⁾

脱水に必要なエネルギーは DTA 及び DSC の解析などから求められている。 N_1 ピークに対して、9.8 kcal/mol (16.4 wt.% の脱水量)、 N_2 ピークは 17.7 ± 0.7 kcal/mol (3.6 wt.% の脱水量) である。⁽⁶⁾ この実験に用いられた試料は、山形県月布産のモンモリロナイトである。参考までに、カオリナイトの結晶水の脱水のエネルギーは、13～35.7 kcal/mol⁽⁷⁾ という範囲で求められている。

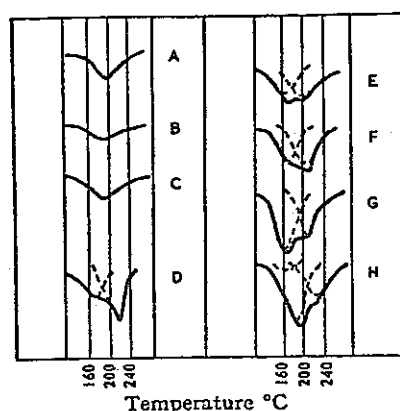


Fig. 5.1.4(a) The first endothermic peak system for montmorillonite saturated with different exchangeable cations and hydrated at 10 per cent relative humidity (after Hendricks, Nelson and Alexander 1940); A—Cs-saturated, 0.040 g H₂O/g; B—K-saturated, 0.030 g H₂O/g; C—Na-saturated, 0.040 g H₂O/g; D—Li-saturated, 0.085 (0.030 + 0.055) g H₂O/g; E—Ba-saturated, 0.075 (0.030 + 0.045) g H₂O/g; F—Sr-saturated, 0.085 (0.035 + 0.050) g H₂O/g; G—Ca-saturated, 0.105 (0.060 + 0.045) g H₂O/g; H—Mg-saturated, 0.115 (0.005 + 0.070 + 0.040) g H₂O/g. Figures in parentheses show the division of the total sorbed water into amounts proportional to the areas of the individual peaks.

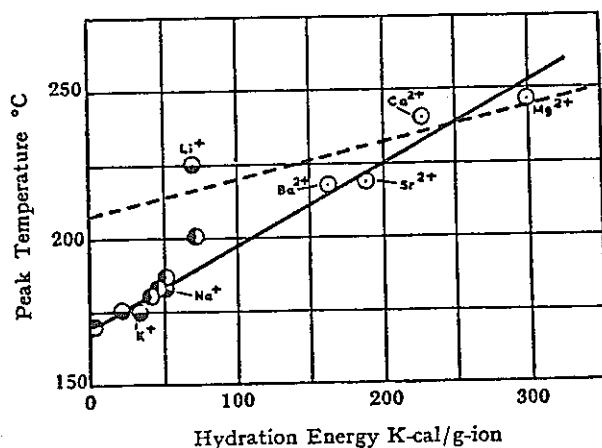


Fig. 5.1.4(b) Relationship between the peak temperature of the high temperature component of the first endothermic peak system and the "hydration energy" (after Mackenzie 1950, with modification).

5.1.2 脱水に伴う物性変化

(a) 層間陽イオンの固定

スメクタイトやバーミキュライトのグループに属する粘土鉱物の層間陽イオンは室温で容易に他の陽イオンと置き換えることができる。層間水の脱水に伴って、このような交換性の陽イオンが非交換性となり、陽イオンの固定化が起こることが知られている。⁽¹⁾ 図 5.1.6

は様々な陽イオン種に対して、そのイオン半径と非交換性となる割合との関係を示したものである。⁽¹²⁾ この関係の細部は実験に使用した試料固有の性質に依存すると考えられるが、一般的に言うと、図 5. 1. 6 で明らかなように固定現象の顕著な陽イオンは、それが固定される機構の違いによって 2 つのグループに大別される。⁽¹¹⁾

A グループ：イオン半径が $1.3 \text{ \AA}$ より大きな陽イオン。

代表的な陽イオンとして、 K^+ , Rb^+ , Cs^+

A グループに属する 2 価のアルカリ土類イオンの固定現象は明らかでない。

B グループ：イオン半径が $0.8 \text{ \AA}$ より小さな陽イオン。

代表的な陽イオンとして Li^+ , Be^{2+} , Al^{3+}

A グループの陽イオンの固定機構は、層間域で陽イオンに配位していた水和水が脱水し裸の状態になった時、その陽イオンがケイ酸塩層の酸素と直接しっかりと結合するため非交換性になると定性的に説明されている。この考えは、天然の代表的な層状ケイ酸塩鉱物である白雲母（図 5. 1. 1 参照）中の層間陽イオンが主に K イオンであり、従って K イオンと似たイオン半径をもつ陽イオンは SiO_4 四面体の作る六角リングに対して最も安定にフィットするであろうという仮定に基付いている。

B グループに属する陽イオンの固定は、脱水することにより裸の陽イオンが SiO_4 四面体の六角リングを通して構造内に侵入する結果、非交換性となると考えられている。従ってこの機構によって固定される陽イオンは、イオン半径の小さなものに限定されている。その代表は Li^+ イオンである。⁽¹³⁾ この機構によるスメクタイト中への Al^{3+} イオンの付加は、天然の続成作用下でスメクタイトからイライトへ変化する時に起こる Al イオンの増加のメカニズムとも関係づけることができる。⁽¹⁴⁾

(b) 陽イオン交換能 (CEC) の変化

図 5. 1. 7 はスメクタイトを 100°C ~ 700°C まで加熱した後、その CEC とその時の浸出陽イオン量の変化を示したものである。⁽¹⁵⁾ 図に示すように、層間陽イオンが主として Na から成っている山形のモンモリロナイトでは、 400°C ~ 500°C 程度の加熱では CEC の減少は顕著ではなく、それより高温に加熱する事によって、はじめて CEC の減少が認められる。一方、層間陽イオンとして Na より Ca や Mg に富む宮城のモンモリロナイトでは、 300°C くらいの加熱で、すでに CEC の減少が認められる。この宮城のモンモリロナイトを Na 置換すると、加熱に対する CEC の変化の挙動は山形のモンモリロナイトと類似したものになる。

ここで示した CEC の減少は、層間域に存在する陽イオンの一部が加熱によって非交換性になったことを意味している。別の見方をすれば、層間陽イオン種による CEC 減少の違いは、加熱脱水後の復水力の差を表わしている。粘土鉱物の水の吸着実験において、吸着と脱着の等温線が一致しない所謂ヒステリシス現象がしばしば見られる。⁽¹⁶⁾ 層間水の脱水だけが起こる温度まで加熱した場合、それを室内で冷却すると、陽イオン種により時間的な差はあ

るが、普通ほとんど完全に復水して元の状態に戻る。⁽¹⁶⁾ 図 5.1.7 のデータは、Na で飽和したモンモリロナイトでは、この復水可能な温度がより高い値まで可能である事を示すものである。Na-モンモリロナイトでは、恐らく結晶水の脱水が起こるまでの温度範囲内の加熱であれば復水後はほぼ元の状態に戻ることが可能であろう。しかし Ca など 2 価の陽イオンや、1 価のアルカリ金属の中でも Na⁺ より水和エネルギーの小さな陽イオンで飽和されたモンモリ

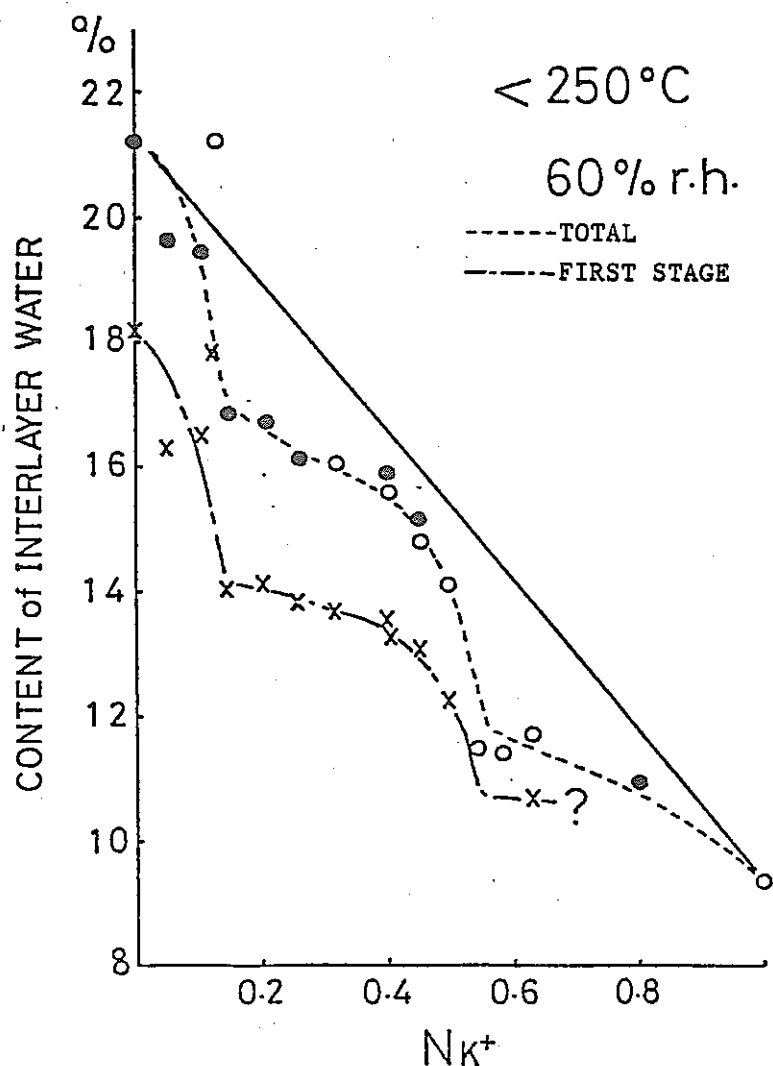


Fig. 5.1.5 The Amount of Dehydration⁽¹⁰⁾

Plots of interlayer water content vs. equivalent fraction of K⁺ in the interlayer of montmorillonite. Solid line refers to mechanical mixtures. -x = dehydrated water in first stage; o = total dehydrated water. Solid and open circles refer to Ca- and K-montmorillonite as starting materials, respectively.

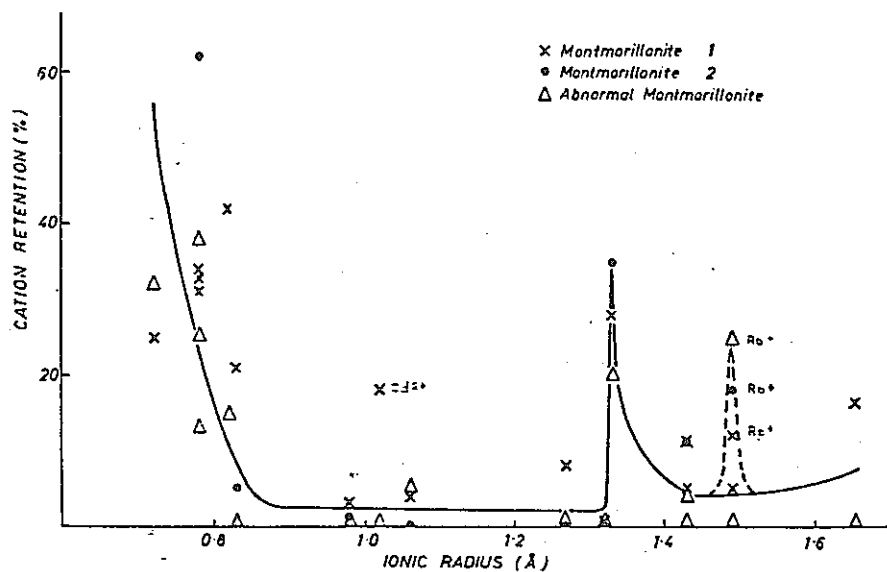


Fig. 5.1.6 Relationship between amount of retention of exchangeable cations on heating and Wetting only and ionic radius⁽¹²⁾

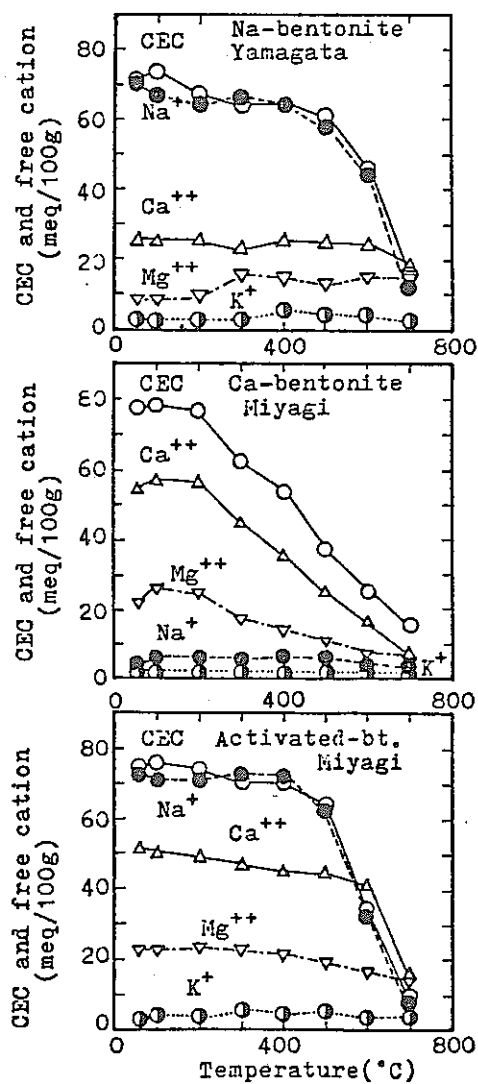


Fig. 5.1.7 Fixation of exchangeable cations of bentonite by heating⁽¹⁵⁾

ロナイトでは、この復水可能な温度は Na^+ の場合より低いであろう。

(c) 陽イオン選択性の変化

図 5.1.8 は、モンモリロナイトの $\text{Ca}-\text{K}$ イオン交換反応における加熱の効果を示したものである。⁽¹⁰⁾ Ca で飽和したモンモリロナイトを、 300°C までの温度で加熱しても、冷却した後は、Wetの状態と同じ交換等温線を与える。これに反して K で飽和したモンモリロナイトでは、Wetの状態でのみ $\text{Ca}-$ モンモリロナイトと同じ等温線を示し、 80°C 以上の高度で加熱した場合層間の K イオンが固定され、見掛け上本来のモンモリロナイトの K イオンに対する選択性よりも、大きな選択性を示す。このような K イオンの固定による見掛けの選択性の上昇は、図 5.1.9 の如く層間域の組成に依存する。⁽¹⁰⁾ 元々モンモリロナイトより負の層電荷の大きなバーミキュライトでは、ここで示した K イオンの固定による見掛け上の選択性係数の

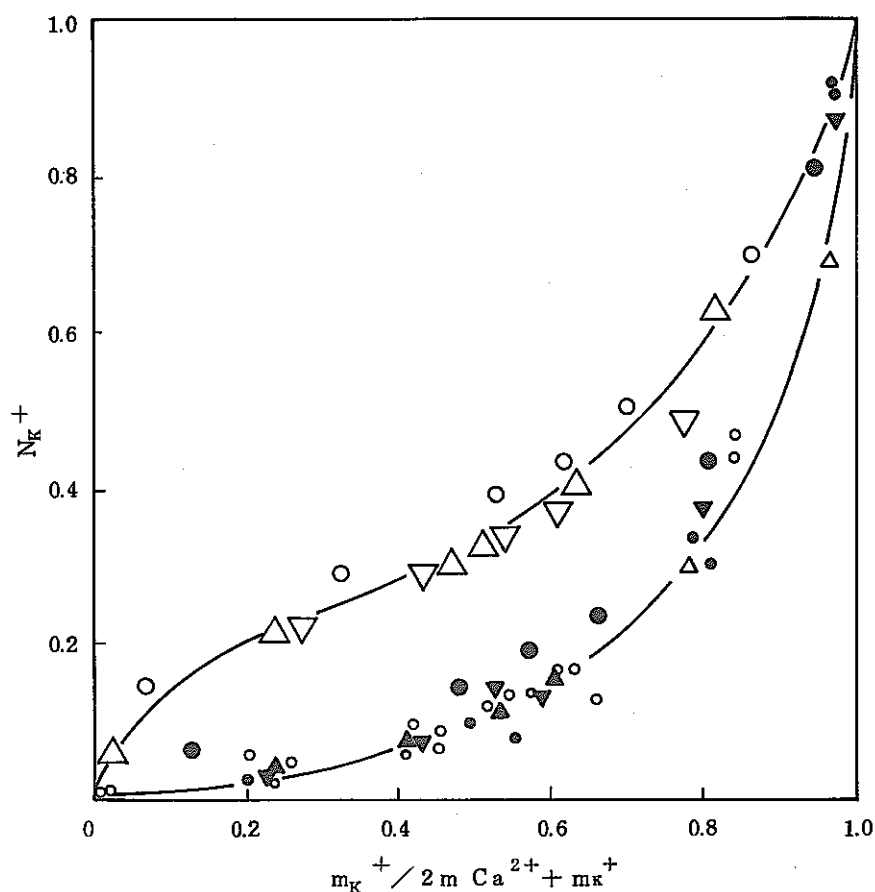


Fig. 5.1.8

(10)

Ca-K exchange isotherms of montmorillonite treated by various means. ●● : wet materials; ○● : materials dried at 80°C ; ▲▲ : materials dried at 200°C ; ▼▼ : materials dried at 300°C . Solid and open designs refer to Ca- and K-montmorillonite, respectively.

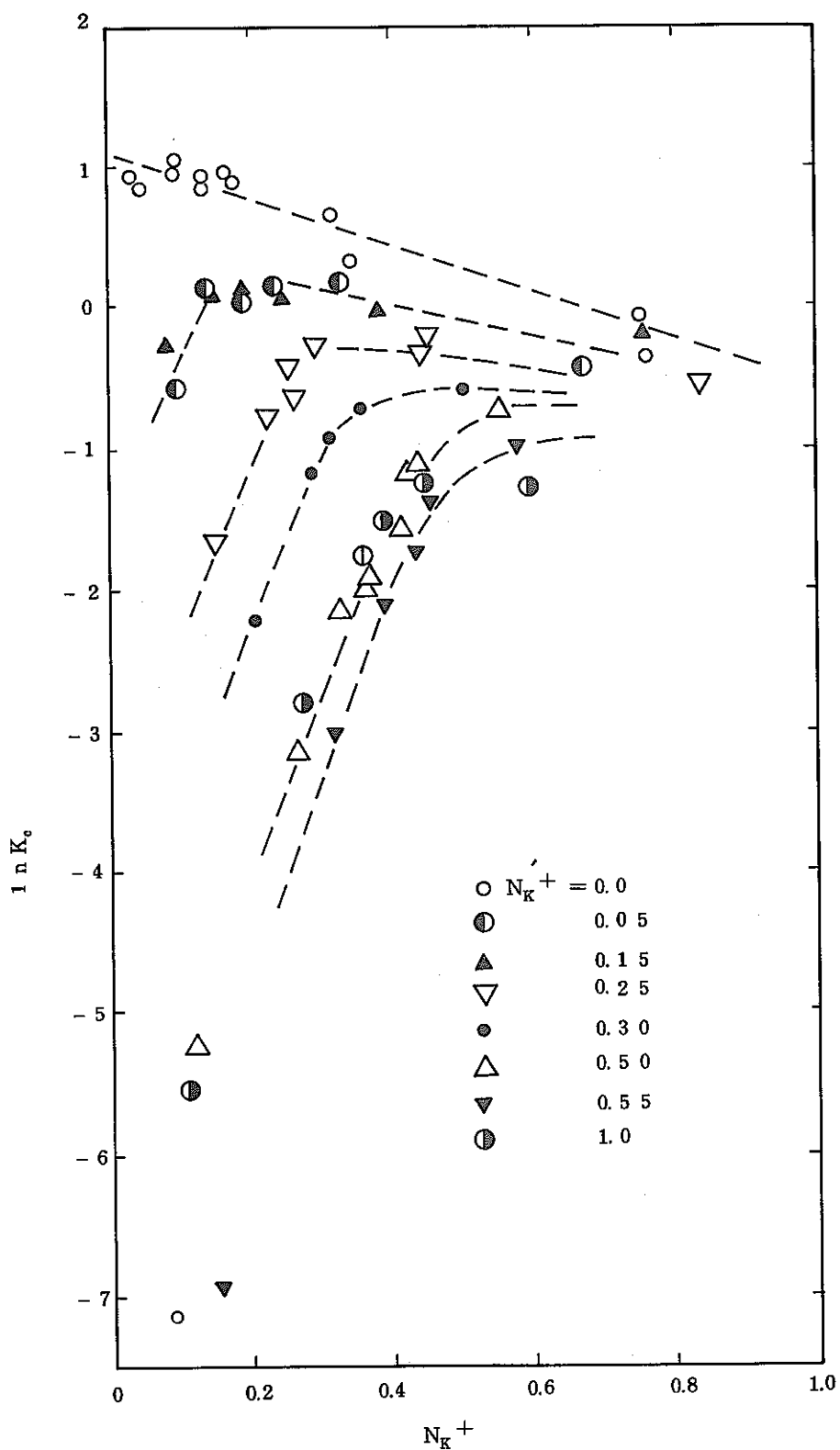


Fig. 5.1.9

(10)

The variation of $\ln K_c$ with equivalent fraction of K^+ in Ca-K-montmorillonite in the cases of various initial potassium fractions (N_{K^+}) at 35°C and 0.05 N.

上昇の効果は、図 5.1.10 のように更に顕著である。⁽¹⁷⁾ 80℃～300℃ の加熱範囲では、K イオンの固定量は粘土鉱物の種類によってある固有の値をもっており、その値は層電荷の大きさによって決っているらしい。⁽¹⁸⁾

図 5.1.11 はスメクタイトの Na - Cs イオン交換反応で Cs⁺ に対する選択性係数と負の層電荷の関係を示したものである。⁽¹⁹⁾ この実験で用いられた種々の層電荷をもつスメクタイトは、

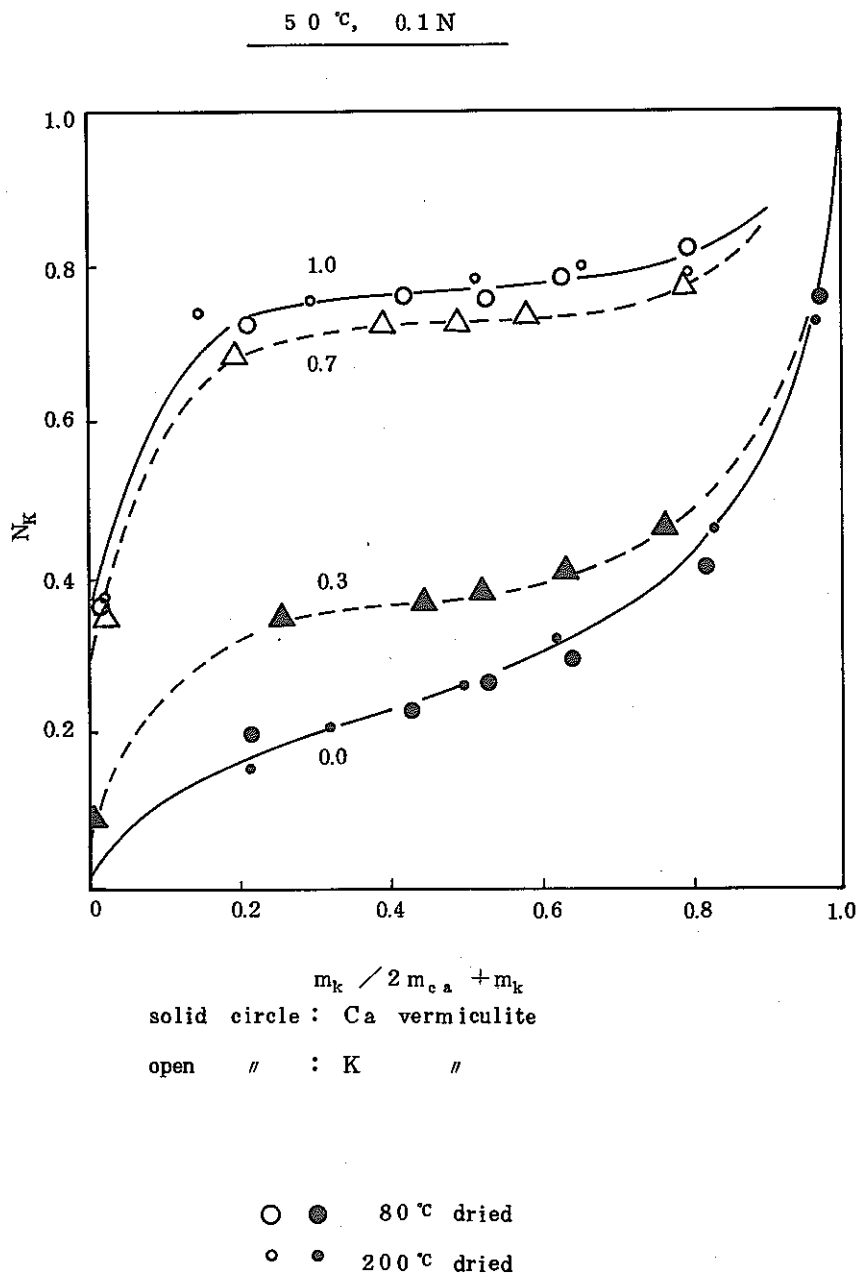
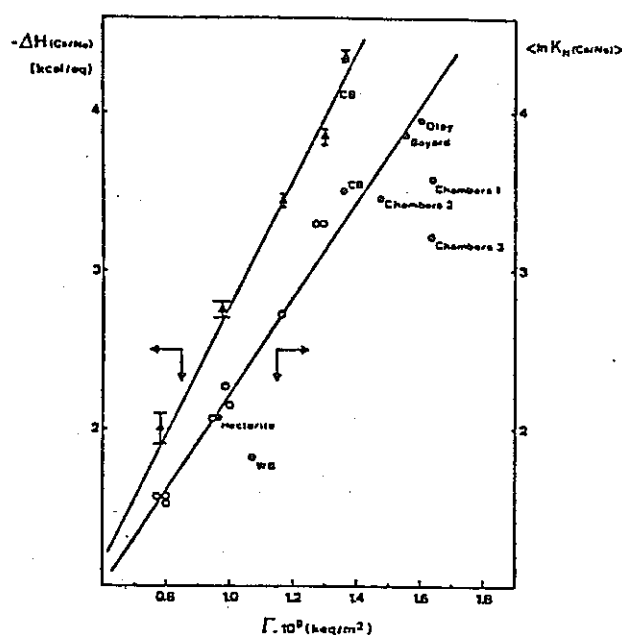


Fig. 5.1.10

(17)

Ca-K exchange isotherms of vermiculite treated by various means. ○● : materials dried at 80°C; ○● : materials dried at 200°C. Solid and open designs refer to Ca- and K-vermiculite, respectively. The figures indicate the initial equivalent fraction of K⁺ in the interlayer of vermiculite.



(19)

Fig. 5.1.11 $\ln K_N$ as a function of Γ for the Na-Cs exchange, for different species of RCM (circles) and clays as indicated, viz. Otay, hectorite (from Maes and Cremers, 1978); original Camp Berteau montmorillonite (from Cremers and Thomas, 1968); Baynard montmorillonite (from Eliason, 1966); Wyoming bentonite (from Gast, 1969); and Chambers montmorillonite (1, from Lewis and Thomas, 1973; 2, from Eliason, 1966; 3, from Gast, 1972). The enthalpy of the Na-Cs exchange reaction on the RCM samples and the original Camp Berteau (from Cremers and Thomas, 1968) are also shown. The numerical values of $-\Delta H$ and $\ln K_N$ (Cs/Na) are arbitrarily put on the same scale.

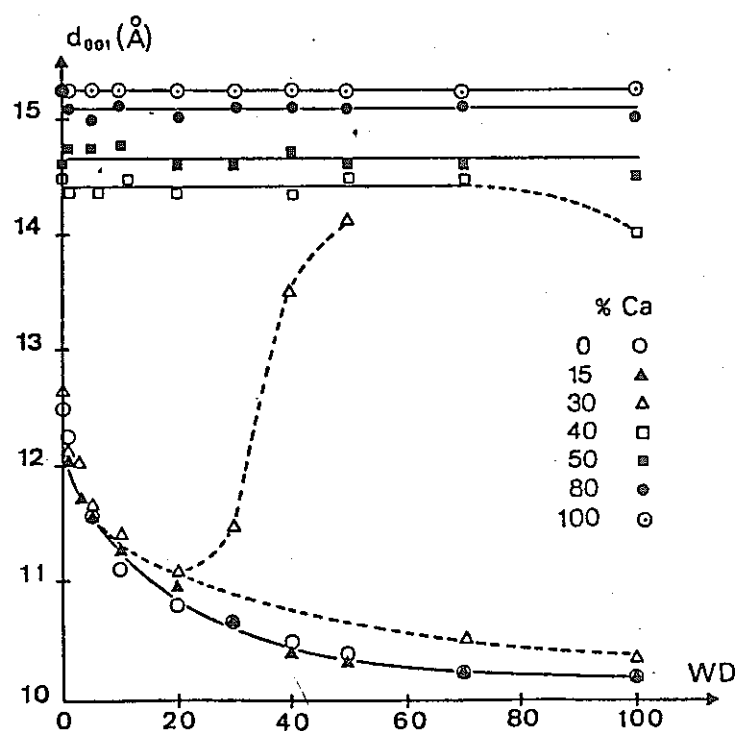


Fig. 5.1.12 Evolution of the d_{001} spacing of montmorillonite with the number of W-D cycles for various proportions of Ca. At 20° C and at a relative water vapor pressure of 0.7. For all the samples, the d_{001} spacing corresponds to the larger of the two maxima in the X ray diffraction band; but in the case of 30 % ca montmorillonite the relative intensities of the two maxima are inverted after 20 W-D cycles.

1つのスメクタイトに様々な割合で Li^+ 置換を行い、それ等を加熱して得られたものである。前述のごとく、層間の Li イオンは、それが加熱脱水することにより、構造内へ侵入する。その結果、構造内の正の電荷が増加し、CECや全体の負の層電荷が減少する。図5.1.11の関係は、層電荷が小さくなるにつれて Cs^+ に対する選択性が弱くなることを示している。

(d) 構造変化

数回程度の層間水の加熱脱水では再び冷却することによって、そのスメクタイトはほぼもと通り復水可能である。しかし更に脱水・復水を繰り返した場合スメクタイトにどのような影響が出てくるであろうか。

種々の割合の Ca と K イオンを層間にもつモンモリロナイトでWettingとDryingを繰り返した時の構造変化の一例を、図5.1.12に示す。⁽²⁰⁾またそれに伴う陽イオンの浸出量(交換性陽イオン量)の変化も図5.1.13と図5.1.14に示した。⁽²⁰⁾ Ca -モンモリロナイトでは、100回の操作の後でもすべての層間の Ca イオンは図5.1.14のように交換性のまま保存される。一方 K -モンモリロナイト中の K イオンは、回数を重ねるにつれて徐々に非交換性となっていく。このような K イオンの固定によって、始めに、或る濃度以上に K イオンが含まれている場合そのモンモリロナイトでは K イオンの性質が卓越し、固定化現象に伴う構造変化がX線で検知できる。この時の変化は Ca -モンモリロナイトとイライトの混合層形成である。

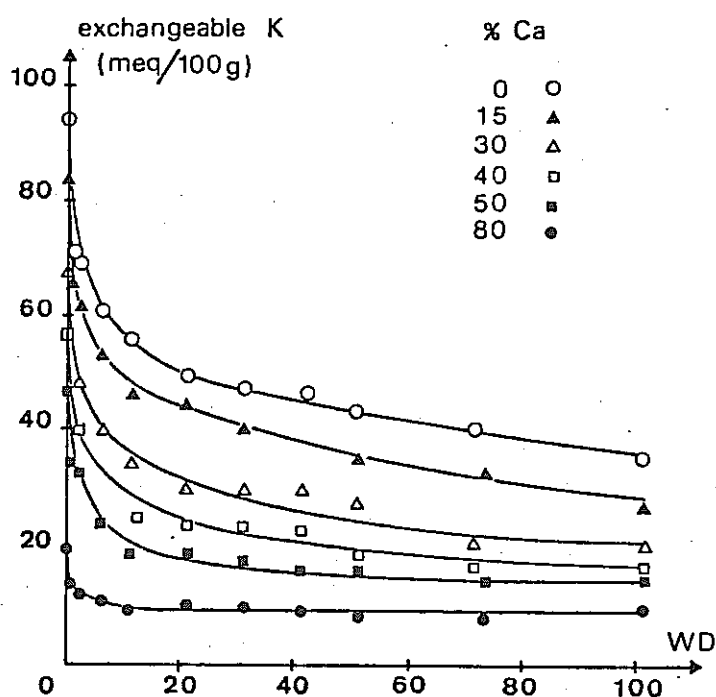


Fig. 5.1.13 Variation of K exchangeability with the number of W-D cycles for various proportions of Ca. ⁽²⁰⁾

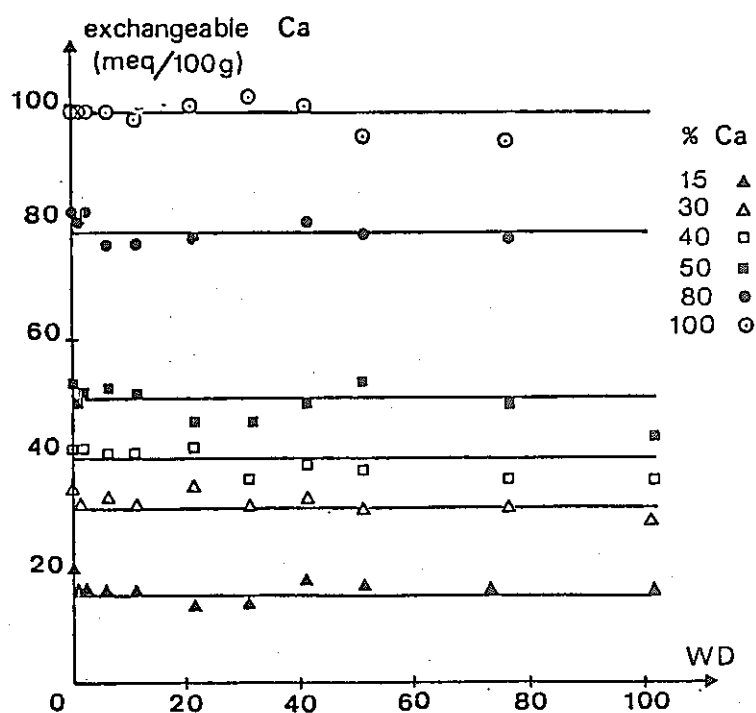


Fig. 5.1.14 Variation of Ca exchangeability with the number of W-D cycles for various proportion of Ca. (20)

5.1.3 天然での実例

米国ロッキー山脈の Mancos Shale に於て、続成作用が進行しているところに火成岩の貫入した例が知られている。⁽²¹⁾ 貫入した火成岩の初生温度は約 750℃であったと考えられている。この貫入岩の熱の影響は周囲 5 Km 程度におよび、それまで続成作用で進行していたモンモリロナイトのイライト化を更に促進した。図 5.1.15 に示されるように続成作用だけの場合には、せいぜい 50% ほどのイライト成分を持つ混合層であったが、それに熱が加わることによって、300℃で 70~80% ほどイライト成分をもつ混合層に変化している。⁽²¹⁾ 実際にこのような熱の影響を考える場合には、その温度でどのくらいの期間加熱されたかという所謂有効温度が、構造変化を起し得るであろうかどうかを決めるであろう。

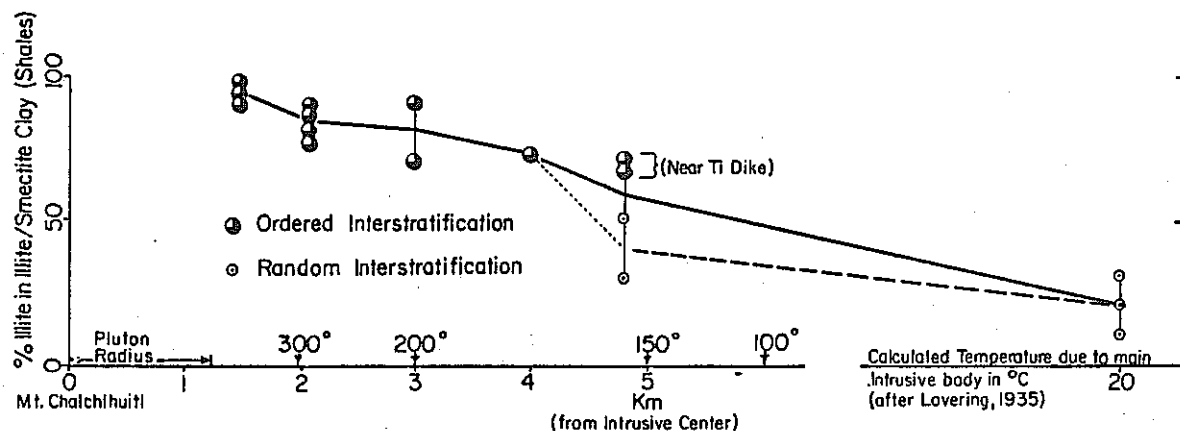


Fig. 5.1.15 I/S clay mineralogical variation in the Mancos Shale vs. proximity to igneous pluton at Cerrillos, New Mexico. (21)

また、単なる加熱だけでは顕著な構造変化は起こり難く、むしろ加熱脱水と同時に起こると考えられる層間水の移動による物質移動の方が構造変化にとって支配的であろう。 Mancos Shale に於ても火成岩の貫入に伴って温度勾配に沿った物質移動が起こり、貫入岩の周辺部に金属鉱床を生成している。⁽²¹⁾

5.2 “Wet (Hydrothermal)” な条件下での熱変成

熱水条件下（ここで言う熱水条件とは地表温度より少しでも高い温度の水溶液の関与する系すべてを含む）でのスメクタイトの反応は、続成作用の環境や熱水変質帯でふつうに観察されるところのスメクタイトから混合層を経てイライトへ変化する反応で代表される。⁽¹¹⁾ この変化は生成環境の諸条件に対して敏感に応答するため続成作用などのインディケーターとして重要であると考えられている。⁽²²⁾ 従って、“Wet” の条件でのスメクタイトの熱変成を考えることは、とりもなおさず続成作用・熱水変質作用の環境でのスメクタイトから混合層が形成される反応機構を考えることである。

5.2.1 混合層鉱物とは

初めに混合層鉱物について簡単に説明する。混合層鉱物とは、性質の異なる複数の成分層が単位格子のオーダーで一次元方向に積層し、単一相のような様相を呈する鉱物をいう（理論的には、電子密度の異なる成分層の一次元積層不整構造をもつ結晶として扱うことができる）。これから主として扱うイライト／モンモリロナイト混合層を例にとって考えてみる。モンモリロナイトは、図 5.1.1 に示したように水や有機分子をその層間にとり込み、その結果 C 軸方向に格子が伸びる（膨潤あるいは膨張という）。この性質を持つためモンモリロナイト層は膨潤層と呼ばれる。それに対してマイカ鉱物は一般に水や有機分子とは反応せず非膨潤層と呼ばれる。イライト／モンモリロナイト混合層では、一種の膨潤層と一種の非膨潤層の積層によって形成されており、膨潤層は純粋のモンモリロナイトに近い性質を示し、非膨潤層は純粋のイライトあるいはマイカに近い性質を示す。便宜上イライト／モンモリロナイト混合層と呼んでいるが、実際には混合層内の個々の成分層の性質は純粋なものと違っている可能性がある。

混合層鉱物を記載する場合、成分層の割合（存在確率）と成分層の重なり方の規則性（推移確率と Reichweite σ ）が重要なパラメーターである。図 5.2.1 にイライト／モンモリロナイト混合層をその構造と成因に基いて分類した。⁽²³⁾ 図中の A から G までの領域は、それぞれ存在確率および Reichweite の値によって区別される。天然でふつうに見られるマイカ／スメクタイト混合層の X 線粉末回析線図を、図 5.2.2 に示した。⁽²³⁾ A, B のパターンは、ほぼ完全なモンモリロナイトのものである。C, D は約 55 % の膨潤層を含む Reichweite $\sigma = 0$ のランダムな構造をもつ混合層で、図 5.2.1 の A の領域にプロットされる。E, F は約 45 % の膨潤層を含む Reichweite $\sigma = 1$ の規則的な混合層であり、図 5.2.1 の E の領域にプロットされる。G, H は約 12 % の膨潤層を含む Reichweite $\sigma = 2$ の規則的な混合層で、図 5.2.1 の G の領域にプ

The classification of illite/montmorillonite mixed-layer

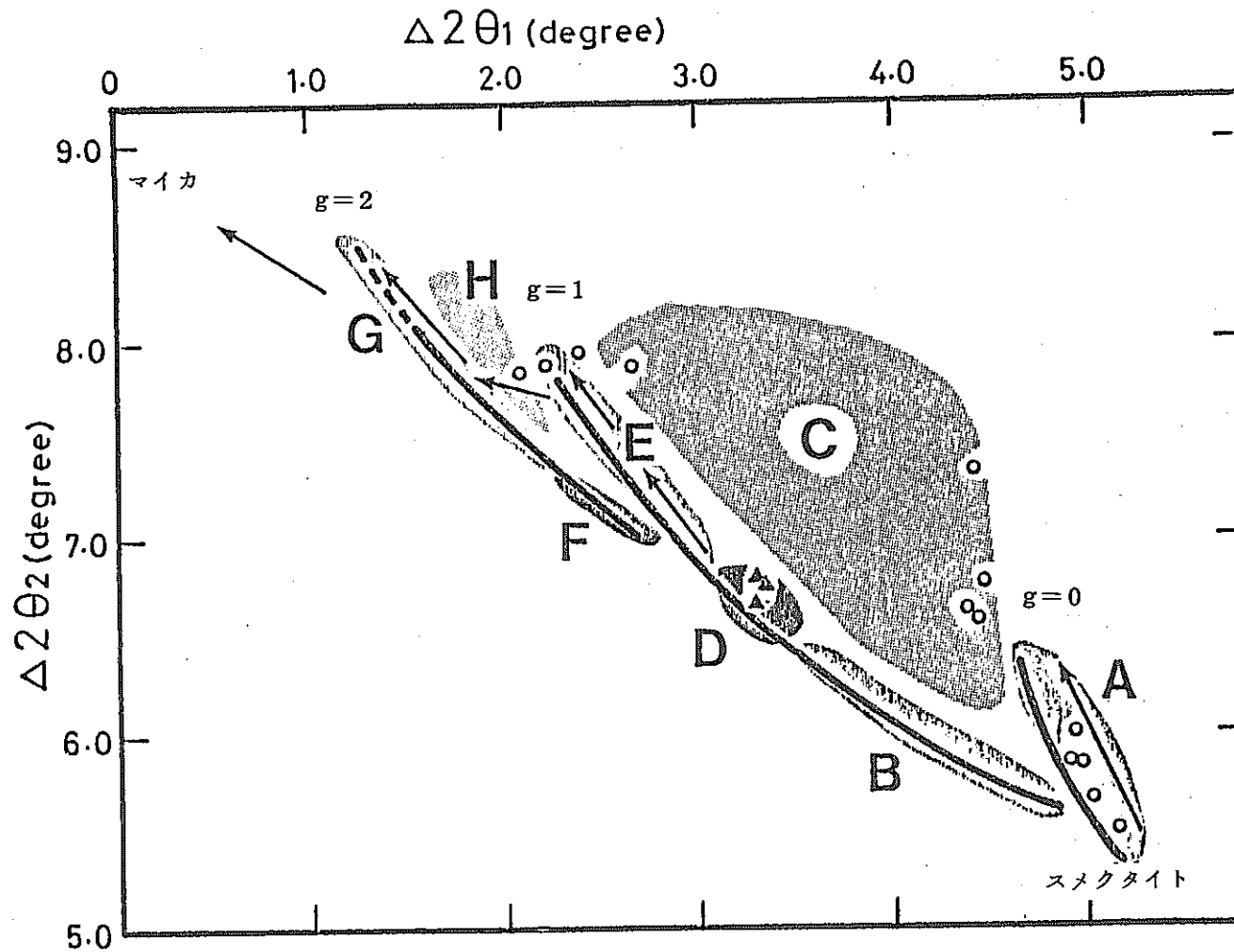


Fig. 5.2.1. Schematic diagram of structural conversion trends of mica/smectites of different origins. ○ : Gulf Coast (Perry and Hower, 1970), ▲ : rectorite-like minerals from Roseki deposits, ← : conversion trend in the Shinzan hydrothermal alteration area.

(23)

ロットされる。Iはレクトライトと呼ばれる膨潤層を約50%含むReiehweite $\sigma=1$ の完全に規則的な混合層である。これは図5.2.1でDの領域にプロットされる。Jはイライト（セリサイト）である。このように、混合層は成分層の割合と積層の規則性に応じて、それぞれ特徴的なX線回折パターンを示す。

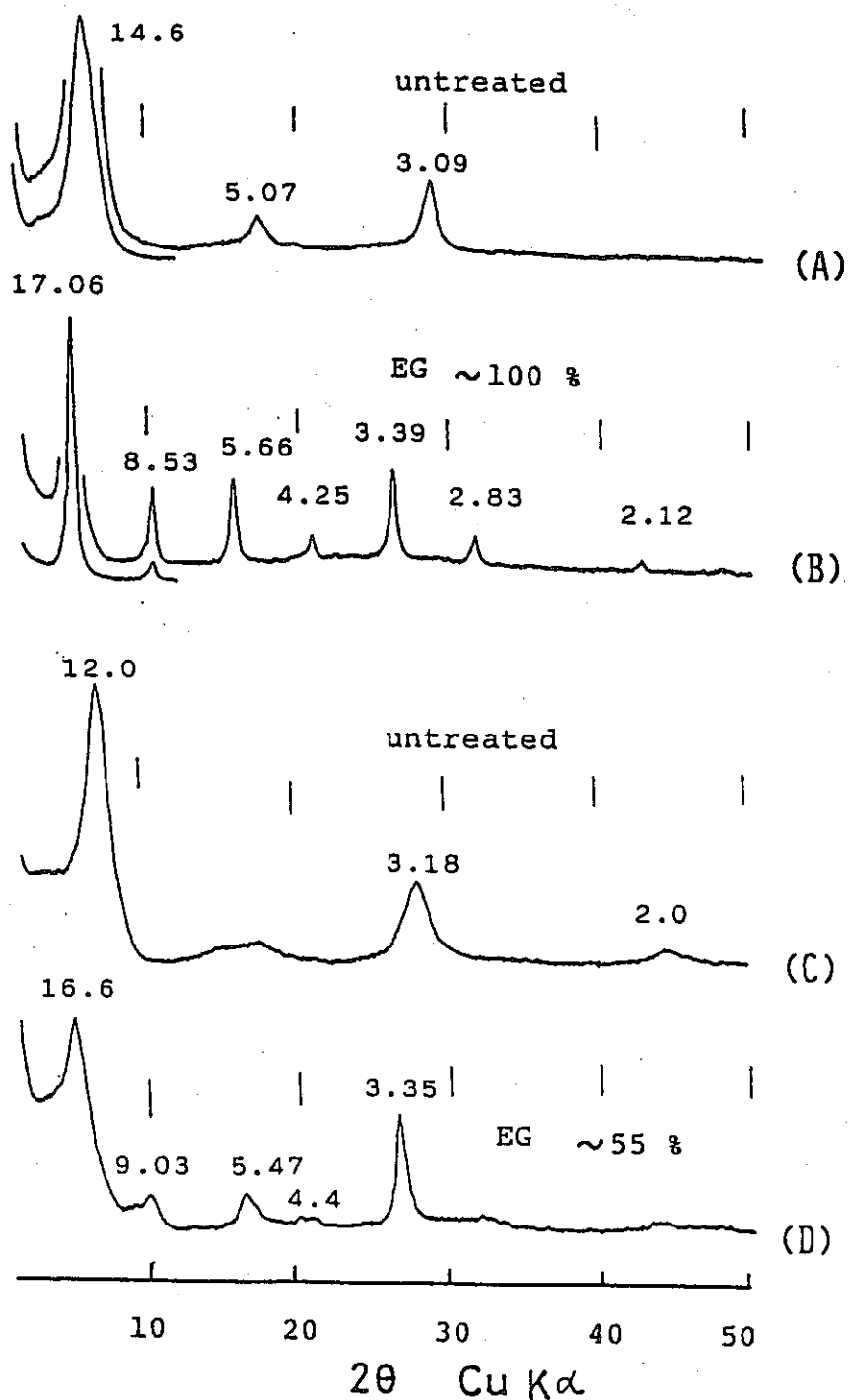


Fig. 5.2.2(a) XRD spectra of mixed-layer (23)

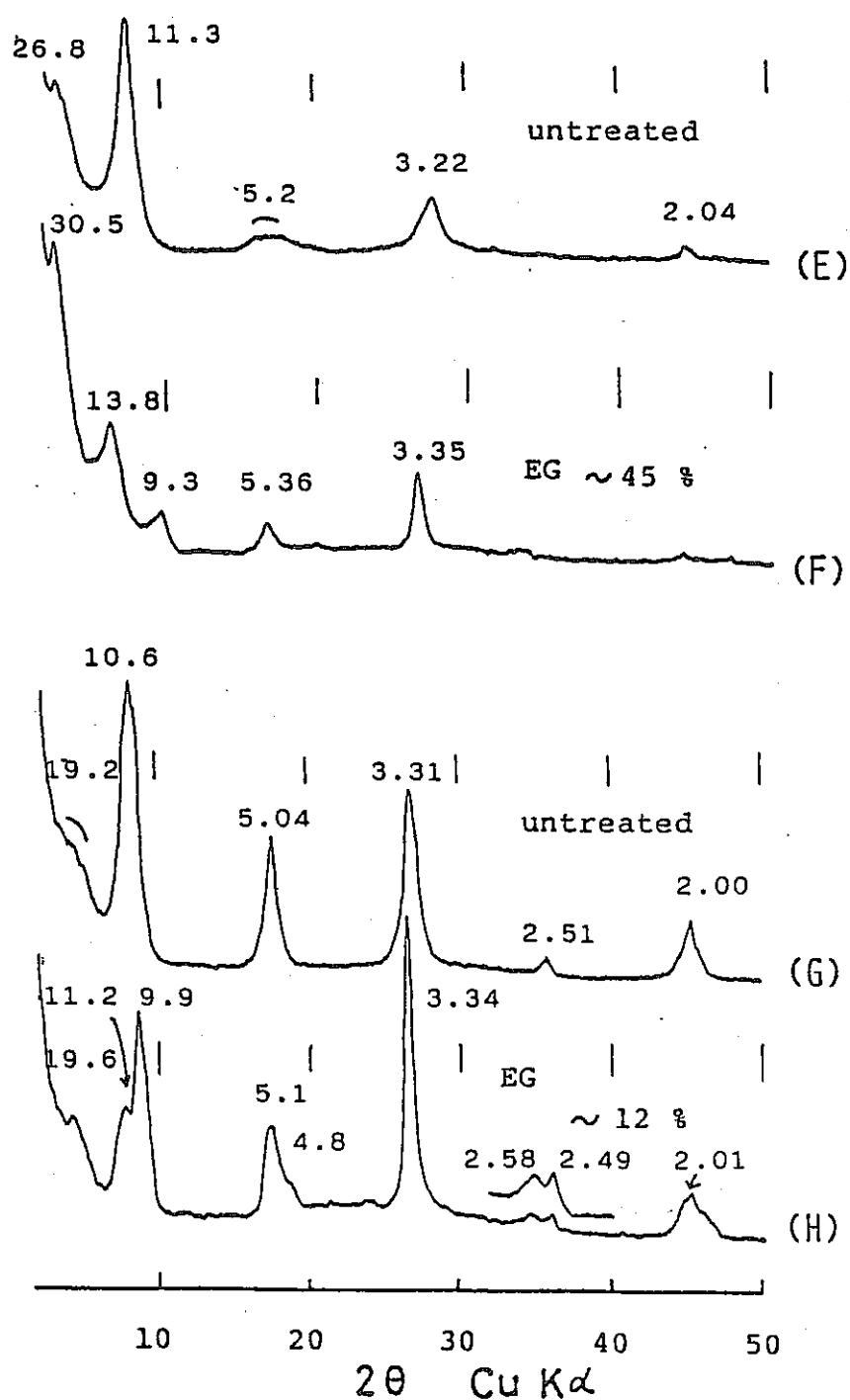


Fig. 5.2.2 (b) XRD spectra of mixed-layer (23)

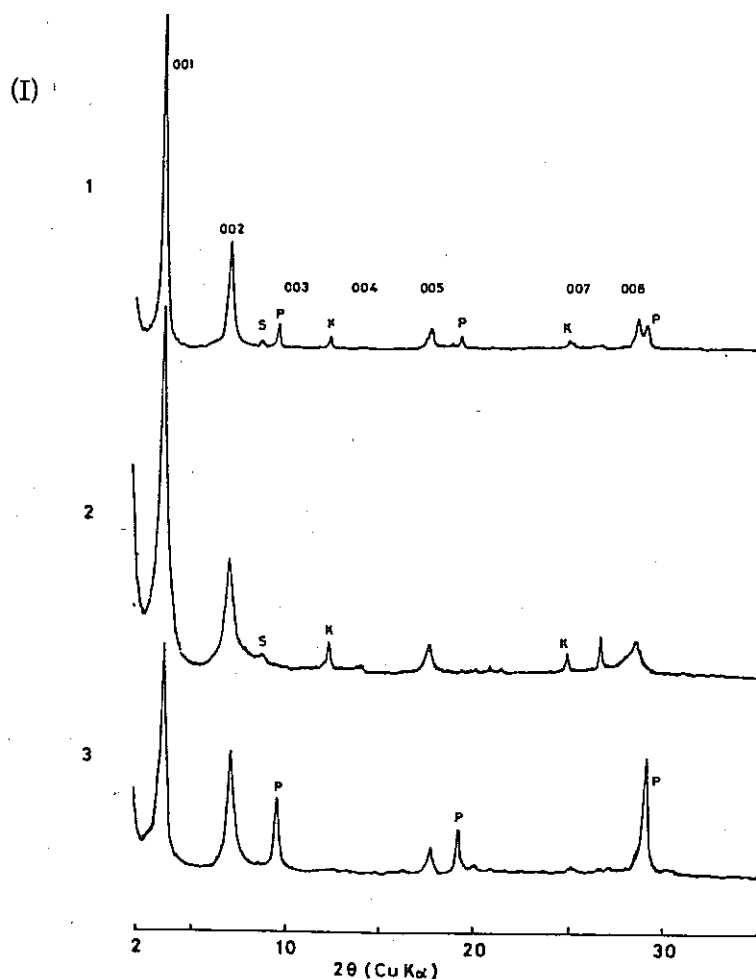
Representative X-ray powder diffraction patterns of mica/smectites with various expandabilities.

(A), (B): ~100% exp. layers; (C), (D): ~55% exp. layers;

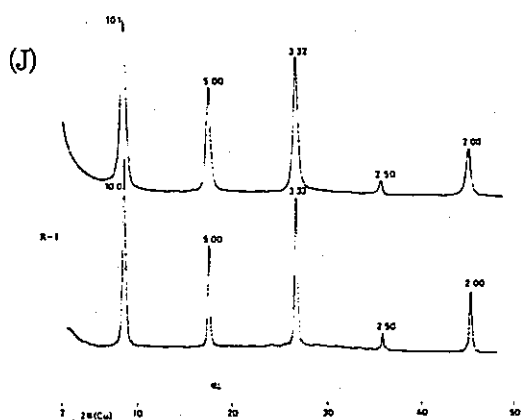
(E), (F): ~45% exp. layers; (G), (H): ~12% exp. layers

(A), (C), (E), (G): untreated specimens

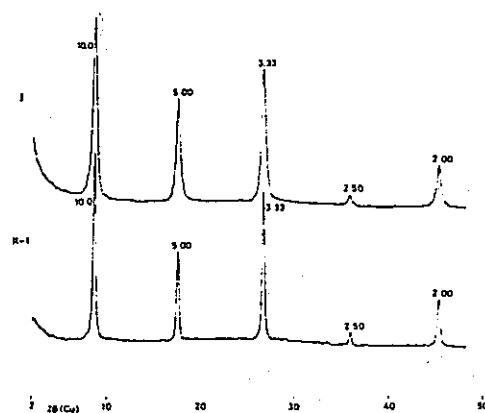
(B), (D), (F), (H): specimens treated by ethylene glycol



XRD patterns of the Mitsubishi (1), Sano (2), and Funyu (3) specimens. Oriented, 50% R.H.
S=sericite, K=kaolinite, P=pyrophyllite, Q=quartz.



X-ray basal reflection patterns of potassium mica minerals (natural state).



X-ray basal reflection patterns of potassium mica minerals (glycerol solvation).

Fig. 5.2.2 (c) XRD spectra of mixed-layer (23)

5.2.2 スメクタイトとマイカ/スメクタイト混合層鉱物の安定性

スメクタイトやマイカ/スメクタイト混合層鉱物の熱水条件下での安定性に関しては室内でのオートクレーブ実験と天然の産状の両面から研究されている。表 5.2.1 はオートクレーブ実験で得られたスメクタイトと混合層鉱物の安定限界温度をまとめたものである。⁽²⁴⁾ 表中のデータの殆んどは反応溶液として純水を用いているためそれぞれの粘土鉱物の安定上限を示すものと考えられる。しかし天然環境で反応に関与する水は、その中に様々のイオンを含む水溶液であり、且つ PH や Eh の値も純水とはかなり異なっている。⁽¹¹⁾ 従って表 5.2.1 に示したデータは天然の産状から類推される粘土鉱物の安定限界とはかなり違っているであろう。

図 5.2.3 は、代表的な堆積盆地・地熱変質帯に見られる混合層鉱物の変化をまとめたものである。⁽²³⁾ それによると、地域によって多少の差異は認められるが、モンモリロナイトは概略 50° ~ 80 °C の温度に達すると混合層へと変化し始める。更に温度が上昇すると、より膨潤層の割合の少ない混合層を経て最終的に 200 °C ~ 230 °C くらいでイライトあるいはセリサイトへ変換する。明らかに、これらの温度は表 5.2.1 のデータに比べてかなり低い値を示している。

マイカ/スメクタイト混合層の仲間には、図 5.2.3 に示したイライト/モンモリロナイト混合層の外にレクトライトと呼ばれるものがある。(図 5.2.2 の I)。レクトライトはふつうロウ石鉱床や陶石鉱床でパイロフィライトやセリサイトと共存して産することが多い。時々カオ

Thermal Stabilities of Fully Expandable Phases

Type	Elements in 2:1 lattices	Reference	1-2Kb pressure temp, °C
K dioct	(AlSi)	Velde, 1969	230
K dioct.	(MgAlSi)	Velde, 1973	400
Na dioct	(AlSi)	Sand, <i>et al.</i> , 1957 Koizumi and Roy, 1958	350-450
Ca dioct	(AlSi)	Chatterjee, 1969 Hemley, <i>et al.</i> , 1971	300-500
Mg trioct	(MgSi)	Esquevin, 1960 Velde, 1973	<250
Mg trioct	(MgAlSi)	Velde, 1973	430
Na trioct beidellite	(MgAlSi)	Iiyama and Roy, 1963	550
Na trioct hectorite	(MgAlSiNa)	Iiyama and Roy, 1963	800

Thermal Stabilities of Mixed Layered Phases

K dioct	(AlSi)	Velde, 1969	400
K dioct	(AlSiMg)	Velde, 1972	430
Na trioct beidellite	(MgAlSi)	Iiyama and Roy, 1963	780
Na trioct hectorite	(MgAlSiNa)	Iiyama and Roy, 1963	800

Table 5.2.1 Thermal stabilities of mixed-layered phases ⁽²⁴⁾

リナイトとも共存することもある。図 5.2.4 は、カオリナイトとパイロフィライトを含む $\text{Al}_2\text{O}_3 - \text{SiO}_2 - \text{H}_2\text{O}$ 系の平衡反応曲線の一部を示したものである。⁽²⁵⁾ 現在までの実験データによると、パイロフィライトの生成温度の下限は 2 Kb 程度の圧力下で 270 °C くらいである。この温度は、圧力の低下によってやや低温にシフトするか、常圧でも 250 °C 程度である。従ってレクトライトと呼ばれる混合層は、図 5.2.3 に示したイライト/モンモリロナイト混合層よりも高温まで安定に存在することが出来ると考えられる。安定の上限温度は不明である。続成作用の

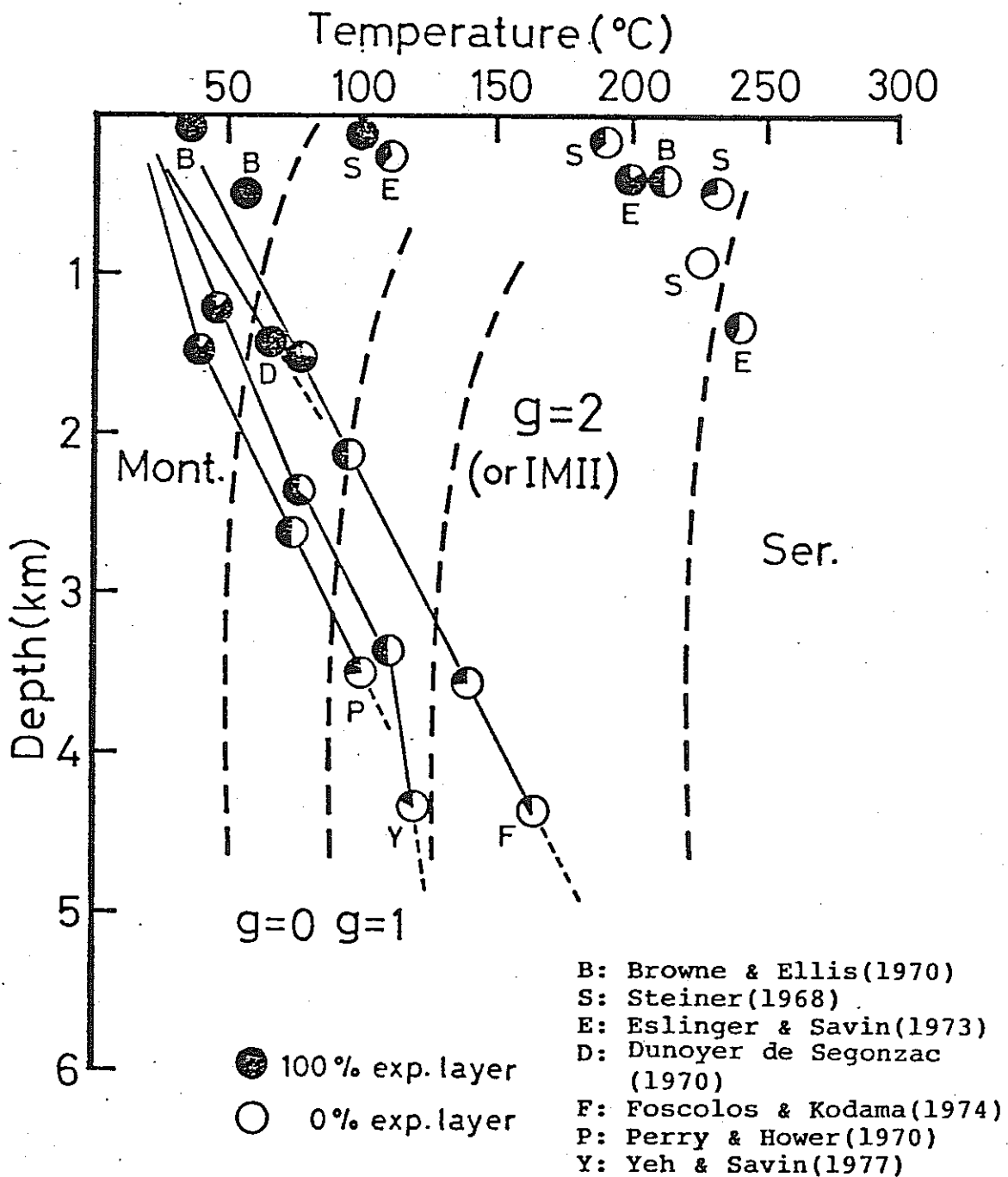


Fig. 5.2.3 Temperature and depth environments forming mica/smectites in nature.⁽²³⁾

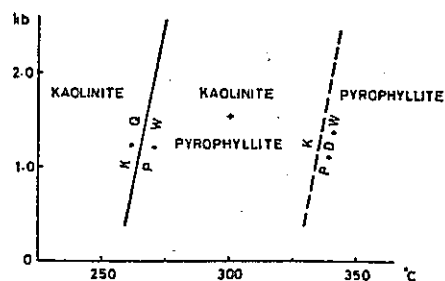


Fig. 5.24 Equilibrium boundary of kaolinite and pyrophyllite (25)

Q : 石英, P : バイフロイト,
K : カオリン, D : ダアイスボア

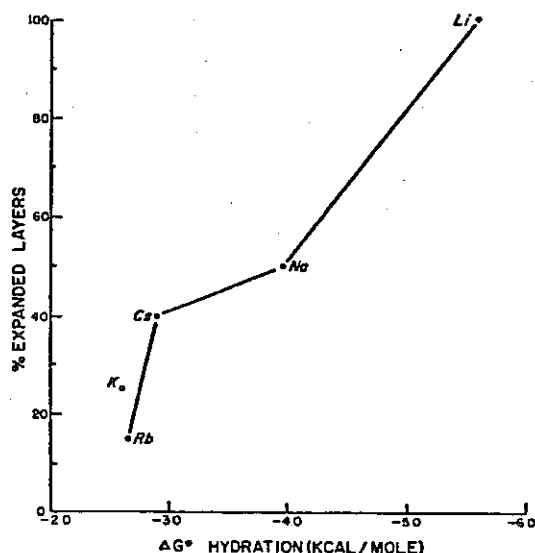


Fig. 5.25 Extent of reaction for alkali-saturated bentonites after 7 days of hydrothermal treatment at 400°C (29)

条件下でこのようなレクトライトの産する例は少ないが、スイスアルプスに於てパイロフィライトと共生するレクトライトの例などが報告されている。(26)(27)

このように同様の混合層鉱物でありながらその安定限界に差があるのは、混合層における化学組成の違い、ひいてはそれら混合層が生成した時に関与した溶液の組成の違いに因ると考えられる。表 5.2.1 でも明らかなように、スメクタイトや混合層鉱物の安定性は層間陽イオンとケイ酸塩層の両方の組成に影響される。そのうち、特にスメクタイトの反応性に対する層間陽イオン組成の効果は、Eberl らによって熱心に研究されている。(28)~(31)

Eberl は、アルカリ金属、アルカリ土類で飽和したスメクタイトを純水とオートクレーブ中で

300℃と400℃で一定期間反応させた。その時の反応生成物をそれぞれ表5.2.2と5.2.3にまとめた。⁽²⁹⁾ この実験の溶液の最終PHは4~5の酸性である。⁽³⁰⁾ 表に示すようにスメクタイトの反応性は層間陽イオンの水和エネルギーと密接に関係する。表5.2.2に示されるアルカリ金属の場合、それぞれの陽イオンに対してある決った温度に達してはじめてオーダーした構造をもつ混合層が形成される。その温度は負の水和の自由エネルギーの大きいもの程ひくい。この関係を図に表わしたものが図5.2.5である。⁽²⁹⁾ アルカリ土類に関してもアルカリ金属の場合と同様の傾向が認められるが、アルカリ土類の反応では陽イオン種の形態などの複雑な要因を含むため、アルカリ金属ほど明瞭な関係は示せない。またアルカリ土類イオンを用いた実験の生成物である混合層中の非膨潤層は、マイカよりもむしろタルク(Mgの場合)や、パイロフィライト(Mg以外の陽イオンを用いた場合)に近い性質をもつ層からなっているようである。⁽²⁹⁾

上に述べた実験は、反応系に含まれる陽イオンが単一の場合である。反応系が複数のイオン種からなっている場合には反応の途中で異種の陽イオン同志の交換反応を伴うため、単一の陽イオンを用いた実験と同じ膨潤層の割合を持つ混合層が形成されるためにはより高温条件が必要となる。⁽¹⁸⁾ そのうえ、複数の陽イオンを含む場合、そこで起こる構造変化は単一陽イオンの場合と異なり、ランダム構造を通して徐々に膨潤層が減少するらしい。

スメクタイトの反応は、PH条件によっても影響を受ける。酸性条件下では混合層の外に、カオリナイトなどのAlに富む相が共存し、⁽²⁸⁾ アルカリ性条件下では、カオリナイトは生成せず、ゼオライトや長石が生成する。⁽¹⁸⁾⁽³²⁾ これは溶液のPH条件の違いによって溶存イオン種の形態が異なり、酸性よりアルカリ性条件の方がスメクタイトへAlを供給してイライトを形成するのに有利に働く。また混合層の形成される温度も酸性よりアルカリ条件下の方が低いようである。⁽¹⁸⁾ 出発物質の違いによっても反応性や反応機構が影響される。スメクタイトを用いた場合とそれと同一組成のゲルを用いた場合とでは、前者の方が早くしかも低温で混合層が形成される。これは出発物質として用いたスメクタイトが元々ある程度オーダーした構造をもっていることに因る。⁽²⁹⁾ ゲルを用いた場合、系の陽イオン種が単一であっても、構造変化はランダム構造を経て徐々に膨潤層が減少するらしい。⁽³³⁾

5.2.3 スメクタイトの変化の速度論的考察

前項では混合層鉱物をP-T空間である安定領域をもつ相と見做して議論を進めた。しかし図5.2.3に示すように、続成作用下でのモンモリロナイトのイライト化反応には地域によってその速度に違いが認められる。このことは、部分的には地温勾配や溶液の組成の違いによる効果として説明されるが、それでもなお反応の速度論的効果も無視できない。これまでの合成実験における反応時間は、長くともせいぜい一年程度であり、混合層鉱物の安定性を完全に保障するに至っていない。

続成作用におけるモンモリロナイトのイライト化反応を速度論的に考えてみる。簡単のため、この反応を均一系一次反応として取扱う。⁽³³⁾⁽³⁴⁾ そうするとこの反応は次のように表わされる。

Table 5.2.2 Reaction products for alkali-saturated
Wyoming bentonites

Cation	ΔG° Interlayer Hydration (Kcal/Mole)	Reaction Temperature and Time		
		400°C, 7 days	400°C, 30 days	300°C, 30 days
K ⁺	-2.62	C/X (25) kao, fspar, qtz	C/X (20) kao, qtz	C/X (40) qtz
Rb ⁺	-2.66	C/X (15) kao, qtz	C/X (13) kao, qtz	C/X (30) kao, qtz
Cs ⁺	-2.90	C/X (40) kao, qtz	C/X (20) kao, qtz	C/X (35) kao, qtz
Na ⁺	-3.97	rect (50) qtz	rect (50) kao, qtz	smectite (100) qtz
Li ⁺	-5.59	smectite (100) (high charge) kao, qtz	Li-tosudite kao, qtz	smectite (100) kao (trace), qtz

All of the mixed-layer phases show regular interstratification (see REYNOLDS and HOWER, 1970). C/X (40) = a mixed-layer clay composed of collapsed and expanded layers of which 40% are expanded; rect. = a rectorite-like, perfectly ordered, 50% expandable mixed-layer clay; kao = kaolinite; qtz = quartz; fspar = feldspar. Free energies of interlayer hydration for a montmorillonite are from GARRELS and TARDY (in preparation).

Table 5.2.3 Reaction products for alkali-saturated
Wyoming bentonites

Cation	ΔG° Interlayer Hydration (Kcal/Mole)	Reaction Temperature and Time		
		400°C, 7 days	400°C, 30 days	300°C, 30 days
Ba ⁺⁺	-5.96	smectite, rect (total exp = 91) kao, qtz	rect, smectite (trace), 14 Å (?) kao, qtz	smectite qtz
Sr ⁺⁺	-6.00	rect, smectite (total exp = 75) kao, qtz	rect, smectite (trace), kao, qtz	smectite qtz
Mg ⁺⁺	-6.60	rect, smectite (total exp = 59) kao, qtz	sample lost	smectite kao (trace), qtz
Ca ⁺⁺	-7.42	rect, smectite (total exp = 80) kao, qtz	rect, smectite (trace), 14 Å (?), kao, qtz	smectite qtz
Be ⁺⁺	--	rect (total exp = 50) kao, qtz	C/X (40) (1M and 1M1 ordering) kao, qtz	smectite qtz

Total exp = 91 means that the percentage of expanding layers for rectorite + smectite = 91%.
See Table 1 for an explanation of other symbols.

$$\ln (M/M_0) = -kt \quad (1)$$

M_0 はモンモリロナイトの最初の濃度, M はその t 時間後の濃度, k は速度定数である。速度定数はアレニウスの式によって反応の活性化エネルギーと関係づけられる。

$$k = A \exp (-E/RT) \quad (2)$$

A は頻度定数, E は活性化エネルギー, R はガス定数である。そこで(1)式は

$$\ln (M/M_0) = -A \cdot t \cdot \exp (-E/RT) \quad (3)$$

となる。

ここで実際の地層の埋没を考え埋没深度 (D), 埋没地点の温度 (T), 地表平均温度 (T_0), 堆積時間 (t), 地温勾配 (G), 沈下速度 (S) とすると,

$$\left. \begin{aligned} G &= (T - T_0) / D \\ S &= D / t \\ T &= S \cdot G \cdot t + T_0 \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

という関係が成立する。これらは, 堆積層に於ける深度・温度・時間の間に示される条件である。(4)式より

$$t = (T - T_0) / S \cdot G \quad (5)$$

(3)式に(5)式を代入すると

$$\ln (M/M_0) = -A \cdot \exp (-E/RT) \cdot \frac{(T - T_0)}{S \cdot G} \quad (6)$$

$$M/M_0 = \exp \left\{ -\frac{1}{S \cdot G} \cdot A \cdot e^{-E/RT} \cdot (T - T_0) \right\} \quad (7)$$

となる。一定温度のもとでの反応は(7)式で表現される。一方, 反応速度が温度変化と共に変化する場合(7)式では不充分である。しかし時間・温度変化が極めて小さい場合には, 温度の時間変化は(4)式より

$$dT/dt = S \cdot G \quad (4)'$$

であるから(3)式は

$$M/M_0 = \exp \left(-\frac{1}{S \cdot G} \cdot A \cdot \int_{T_0}^T e^{-E/RT} dT \right) \quad (8)$$

となる。この式は累進的な温度変化に伴って進む反応に用いられる。(7)式が用いられる

“Isothermal model” は天然の状態では堆積盆地において沈降または堆積, 或いは両方が中絶された状態に相当し, (8)式の示す “nonisothermal model” は特定の深度まで沈降に伴って堆積が間断なく進行している状態に相当する。

速度論的パラメーターに対して, Eberlらはオートクレーブ実験をとおして, 純水中でK-モンモリロナイトが混合層を経てイライトへ変化する反応の活性化エネルギーを, 19.6 Kcal/mol と決定した。⁽³³⁾ この値はマイカの塩酸等による分解反応の活性化エネルギーに近く(表 5.2.4) このため Eberlらは得られた活性化エネルギーを構造内の Si-O 結合を切断するの

Table 5.2.4 The activation energy of dissolution
A comparison of activation energies for the clays-
acid or alkaline solutions reactions

Reaction	mineral	pH of solution	extra cation	temperature (°C)	activation energy (kcal/mol)	reference
Mg, Fe, Al dissolution	montmorillonite nontronite	1.0 N (HCl)		25 - 100	17 - 18	Osthaus (1956)
Mg, Fe, Al dissolution	palygorskite sepiolite	2.5 N (HCl) 5.0 N (HCl)		60 - 80	18.4	Abdul-Latif et al. (1969)
K dissolution	glauconite	0.5 N (HCl)		50 - 80	14.0 - 19.2	Thompson et al. (1973)
Mg, Fe, Al dissolution	clinochlore	2.0 N (HCl)		25 - 60	21	Ross (1967)
Al, Si, Mg dissolution	bentonite	1.0 N (HCl)		67 - 103	7.27	Granquist et al. (1959)
K, Mg dissolution	phlogopite	0.0036 N (HCl)	0.2 M (Ca ²⁺)	25 - 80	9.4	Inoue et al. (1981)
Si dissolution	Na-montmorillonite	9.0 (HCO ₃ ⁻)	400ppm (K ⁺) 400ppm (K ⁺) 9400ppm (Na ⁺)	200 - 350	5.2 10.4	Lahann et al. (1980)
% exp. layer in I/M	gel with K-beidellite	4 - 5		260 - 390	19.6	Eberl et al. (1976)
% exp. layer in I/M	Na-montmorillonite	9.0 (HCO ₃ ⁻)	400ppm (K ⁺) 9400ppm (Na ⁺)	270 - 350	25 - 35	Roberson et al. (1981)

に必要なエネルギーに対応させた。この活性化エネルギー値を使い(7)で表わされる isothermal model に基づいて計算すると、図 5.2.6 に示すように、80℃くらいの温度に保つとモンモリロナイトは $10^4 \sim 10^5$ 年で 20% くらい膨潤層をもつイライト/モンモリロナイト混合層へ変換する。⁽³³⁾ この変化は天然と比較すると速すぎるらしい。天然環境で反応を遅らせる因子としては、溶液あるいは層間中に K^+ イオンより脱水し難い陽イオン（例えば、 Na^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} など）が存在することなどが考えられる。実験的にも、系内に Na^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} などが共存すると反応の活性化エネルギーが大きくなり速度が遅くなることが知られている。Roberson と Lahann⁽³⁵⁾ は $PH=9$ の条件下で K^+ 以外に Na^+ が共存すると、構造変化に対する活性化エネルギーは表 5.2.4 に示されるように、約 30 Kcal/mol に増加することを示した。⁽³⁵⁾ いずれにしても、固体の関与するモンモリロナイトからイライトへの変換反応は不均一系であり、実験で得られたデ

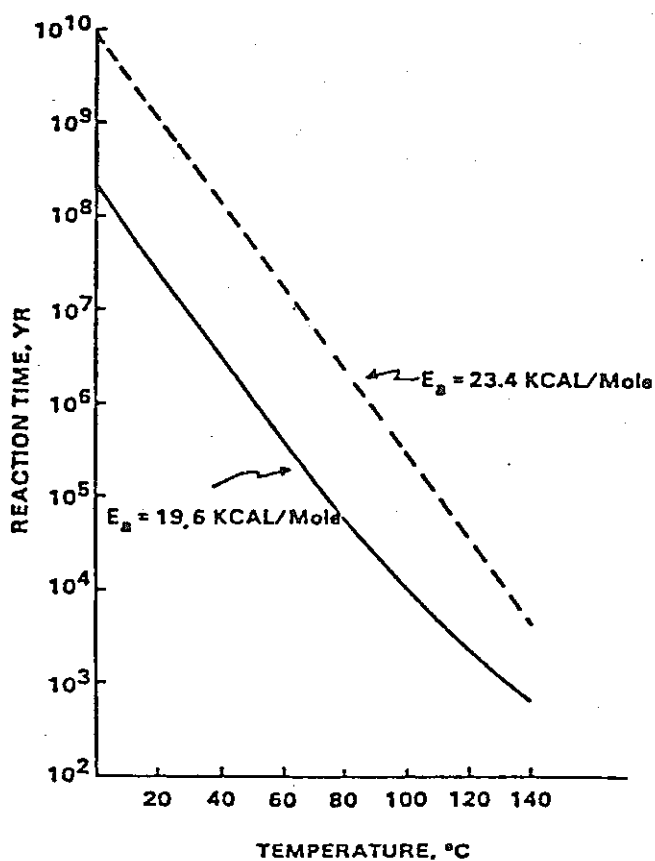


Fig. 5.2.6 The alteration of montmorillonite to the illite/montmorillonite mixed-layer (33)

The relationship between temperature and the time it would take to form a mica/smectite with 20% expandable layers from smectite with 100% expandable layers. $E_a = 19.6$ kcal/mole is the activation energy for the reaction. $E_a = 23.4$ kcal/mole assumes maximum error.

ータを均一系として解析して得られた活性化エネルギーは、その物理的意味が不明である。

また、これまでの実験データは再現性の点で信頼性に欠ける。須藤は日本の堆積盆地のボーリングコアのデータから簡単なモデル化を行なって活性化エネルギーを見積った。⁽³⁴⁾ その値は約 10 Kcal/mol である。この値は、それまでの実験値より更に小さな値であり疑問が残る。

Lahann と Roberson は Na-モンモリロナイトから Si が溶脱する反応の活性化エネルギーは、表 5.2.4 に示すように膨潤層の変化（構造変化）に対する値より小さな値となることを示した。⁽³⁶⁾

図 5.2.7 は天然産のイライト／モンモリロナイト混合層と合成実験で得られたイライト／モンモリロナイト混合層における非交換性層間陽イオン量と非膨潤層成分の割合の関係を示したものである。⁽¹⁸⁾ 明らかに両者は一致せず、むしろ常に非交換性層間陽イオン量の方が大きな値となることを示している。これらの事実は、混合層形成過程において構造変化と化学組成変化とは一対一に対応せず、別の反応としてとらえるべきであることを意味している。更に、これらの事実は化学組成変化の方が構造変化よりも速く進行するであろうことを示唆している。

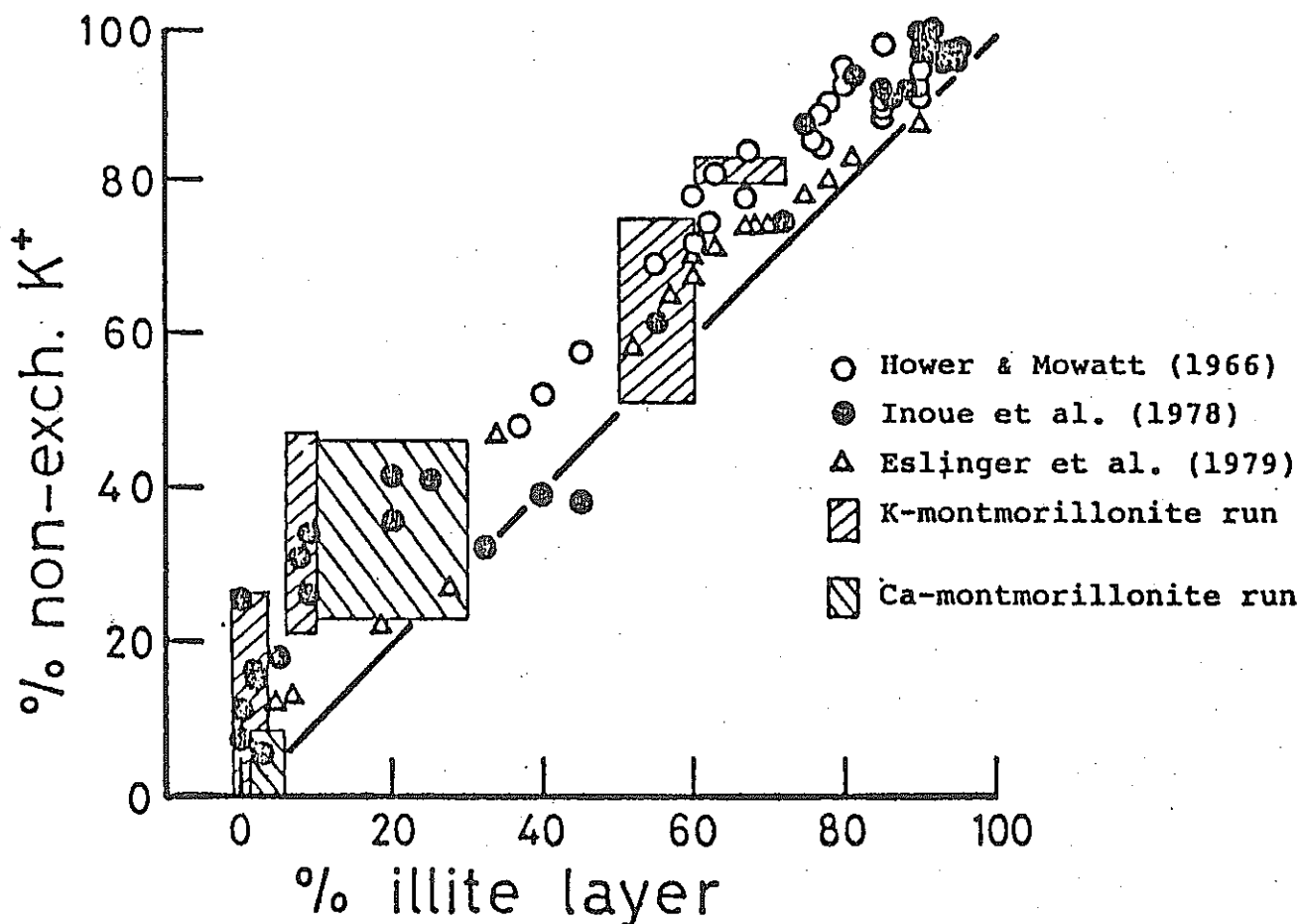


Fig. 5.2.7

(18)

Percentage of non-exchangeable K^+ vs. percentage of illite layer in natural illite/montmorillonites and synthetic products from Ca- and X-montmorillonite.

5.2.4 混合層形成に伴う物質の移動

(a) 主成分元素

スメクタイトが混合層を経てマイカ鉱物まで変化する過程で起こる化学組成変化の一例を
図 5.2.8 に示す。⁽²⁷⁾ これらのデータは粘土鉱物以外の鉱物も含む岩石のバルクの値である。図
に示すように、膨潤層の割合が減少するにつれて、K, Al が増加し Si, Mg, Fe が減少する。
そして Ca や Na も同様に減少する。このような元素の変化に伴いスメクタイトがイライトへ変
化する時の反応式を簡単に書くと、 $\text{Smectite} + \text{Al}^{3+} + \text{K}^+ = \text{illite} + \text{Si}^{4+}$ と表わされる
であろう。定性的には、このデータでも混合層が形成されるときに起こる組成変化が理解さ
れる。しかし厳密には鉱物単独の化学組成変化を知る必要がある。

鉱物単独の化学組成変化を考える場合、スメクタイトでは組成変化の起こる席が3箇所あ
る。すなわち層間席・八面体席・四面体席である。(図 5.1.1 参照)。図 5.2.9 はスメクタ
イトから連続的にイライトまで変化するタイプのマイカ/スメクタイト混合層とレクトライ
トタイプの混合層中の層間における交換性・非交換性陽イオン組成をプロットしたものであ
る。⁽²³⁾ 交換性陽イオンの組成は、それぞれの混合層が生成した環境で反応に関与した熱水の組
成やその温度を反映して多岐に亘っている。一般的に言うと、膨潤層の割合にかかわらず交
換性陽イオンとして K^+ や Mg^{2+} の量は少なく、大部分 Na^+ と Ca^{2+} から成っている。混合層
中の膨潤層が減少すると、その分だけ交換性陽イオンの Na^+ や Ca^{2+} の含有量も減少する傾
向に進むであろう。層間の非交換性陽イオン組成も生成環境の違いによる差が著しい。続成
作用やある種の熱水変質帯で見られるスメクタイトからイライトまで連続的に変化するタイ
プの混合層では、非交換性陽イオンは大部分 K^+ である。一方、ロウ石・陶石鉱床に産する
レクトライトタイプの混合層では、 K^+ をかなり多量に含むものも知られているが、その他、
常に無視できない量の Ca^{2+} や Na^+ を含んでいる。従って、膨潤層の減少につれて顕著に K^+
に富む傾向を示す混合層はレクトライトタイプ以外のものであるといえる。

⁽²³⁾
骨格をなすケイ酸塩層内の化学組成変化は図 5.2.10 に示した。三角ダイアグラムの各項
点はそれぞれパイロフィライト $\text{Al}_2(\text{Si}_4)\text{O}_{10}(\text{OH})_2(\text{Pr})$ 、マスコバイト $\text{Me}^+\text{Al}_2(\text{Si}_3\text{Al})\text{O}_{10}(\text{OH})_2(\text{Mu})$ 、リューコフィライト $\text{Me}^+(\text{AlMg})(\text{Si}_4)\text{O}_{10}(\text{OH})_2(\text{Lp})$ (Me^+
は1価の陽イオン)の組成をとっている。Pr-Mu 辺の方向の変化は、四面体席での Si と
Al の置換量変化を表わし、Pr-Lp 辺に沿う変化は、八面体席での Al と Mg の置換量変化
を表わしている。天然のイライト/モンモリロナイトの構造内には鉄イオン (Fe^{2+} , Fe^{3+})
もふつうに含まれているが、便宜上図 5.2.10 では Fe^{2+} と Fe^{3+} をそれぞれ Mg^{2+} と Al^{3+} の量
に変換してプロットしてある。図に示したように、モンモリロナイトからイライト(あるい
はセリサイト)へ変化する時、主として四面体席での Si と Al の置換が進行してイライト(セ
リサイト)へ近づく。八面体席での Mg と Al の置換は大きくないため、全体として負の層電
荷も大きくなっていく。この過剰の負電荷を中和するために層間席に余分の陽イオンを溶液

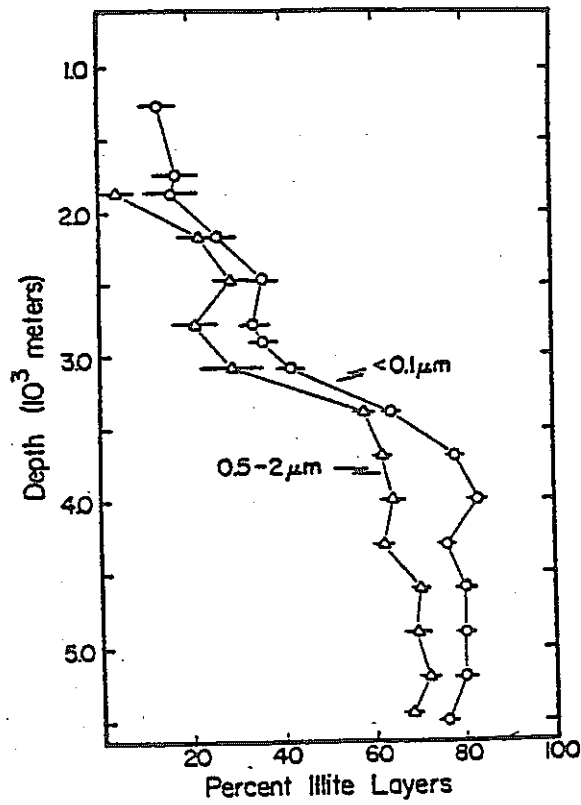


Fig 5.2.8(a)

Proportion of illite layers in illite/smectite as a function of depth in the finest and coarsest clay fractions.

(27)

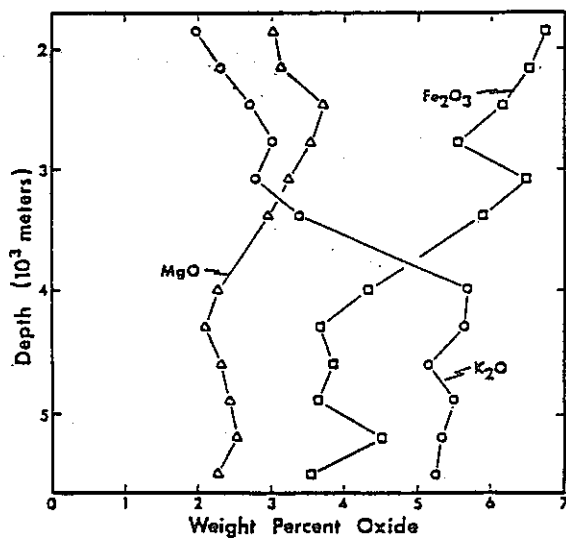


Fig 5.2.8(b)

Variation of K₂O, MgO, and Fe₂O₃ in <0.1-μm fraction (virtually pure illite/smectite) with depth (ignited basis).

(27)

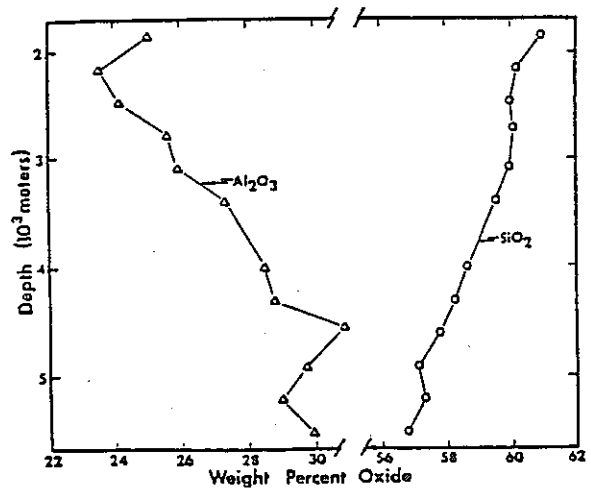


Fig 5.2.8(c)

Depth-dependence of the Al₂O₃ and SiO₂ content of <0.1-μm fraction (ignited basis).

(27)

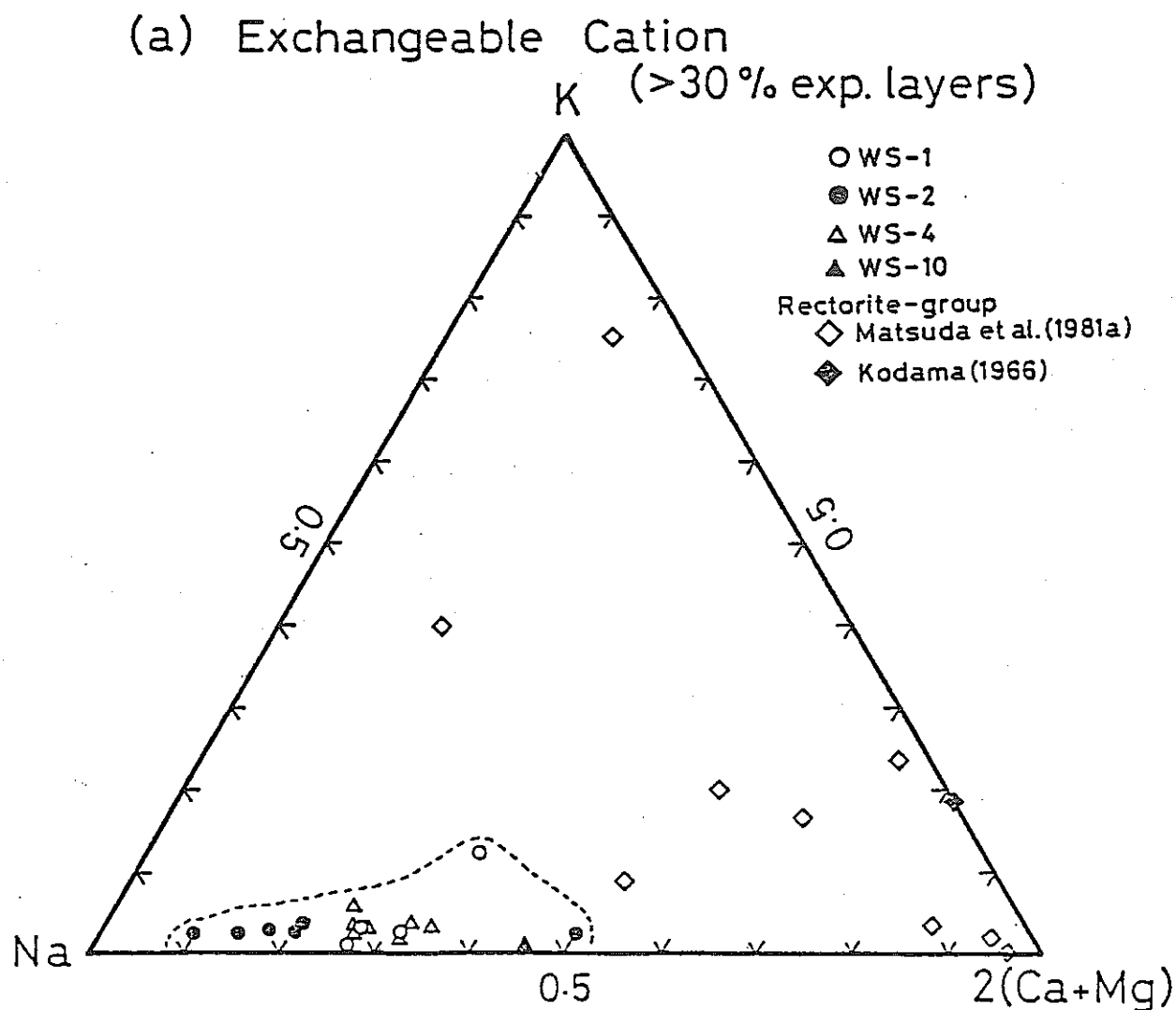


Fig 5.2.9 Composition

(23)

Composition of interlayer cations of mica/smectites from the Shinzan area (WS-1,2,4,10) and rectorite-like minerals from Roseki deposits. (a) exchangeable cations of mica/smectites with more than 30% expandable layers, (b) non-exchangeable cations of mica/smectites with less than 70% expandable layers.

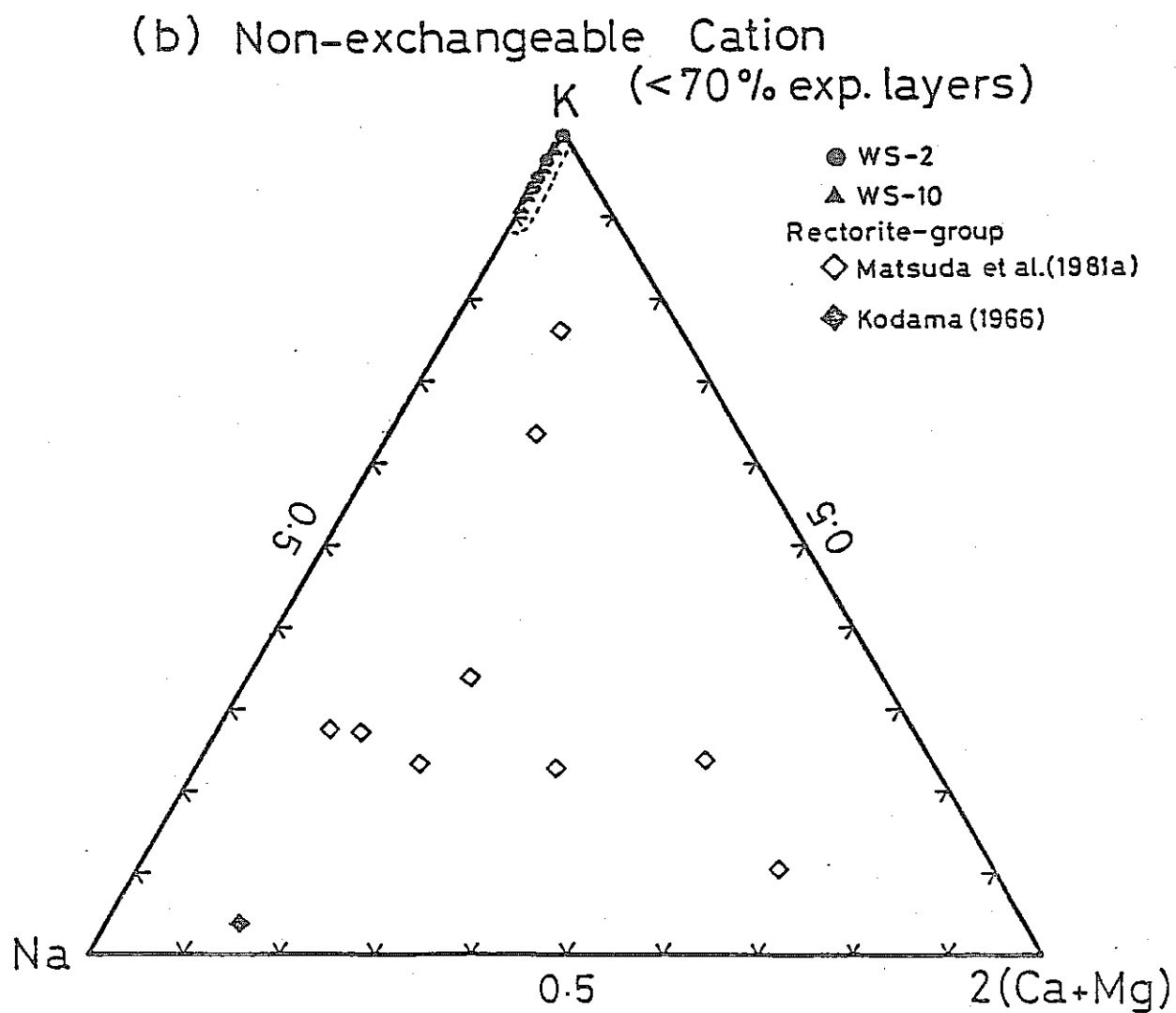


Fig 5.2.9(b)

(23)

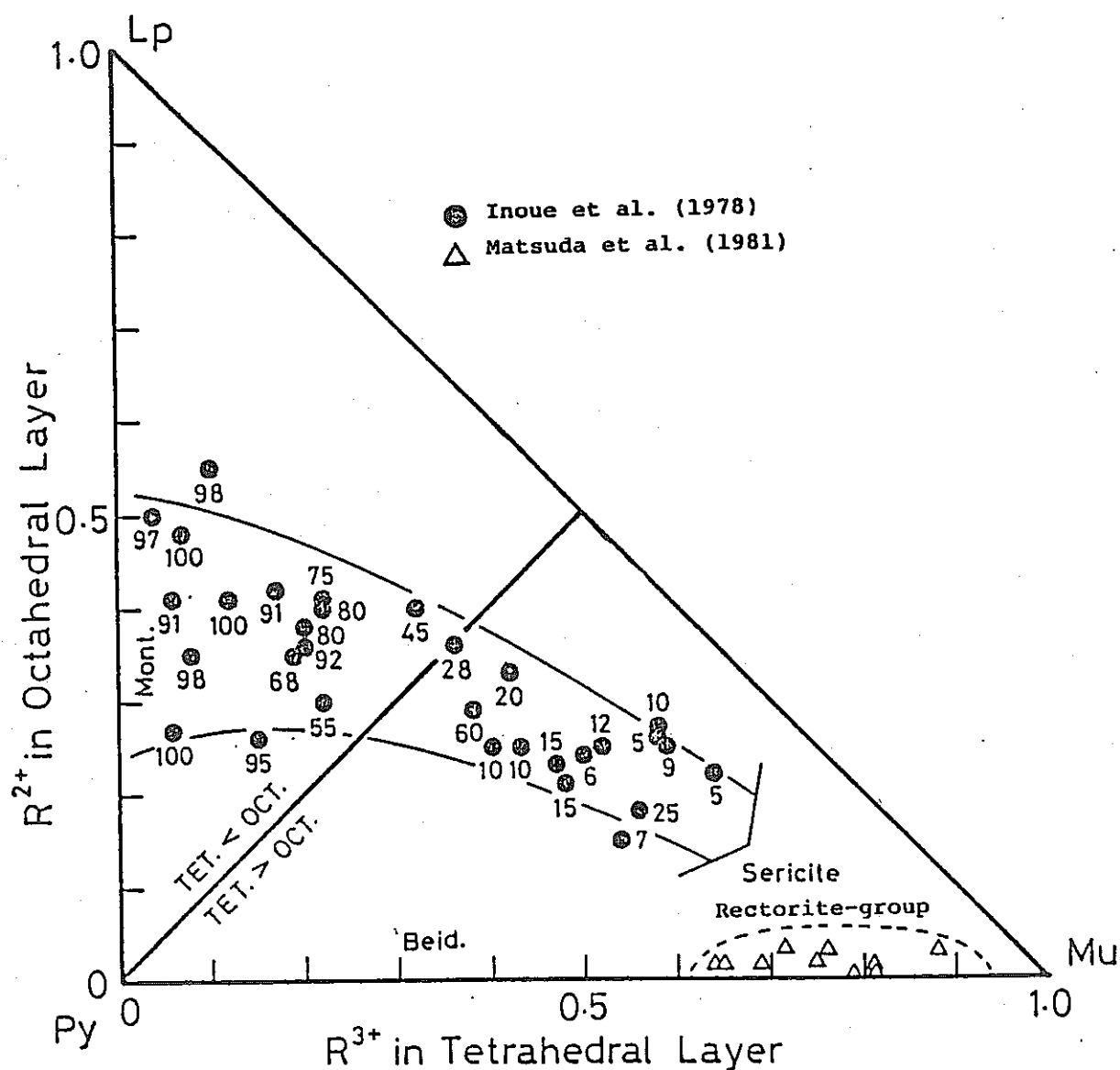


Fig 5.2.10

(23)

Chemical compositions in the 2:1 silicate layer of mica/smectites from the Shinzan area (●) and of rectorite-like minerals from Roseki deposits (△). The figures indicate the percentage of expandable layer of mica/smectites. Lp: leucophyllite, Mu: muscovite, Py: pyrophyllite.

から取り込むのである。結晶内の負電荷の発生する位置は、図 5.2.10 の例では、混合層中の膨潤層の割合が 100%~30% までは主として八面体層にあり、それより膨潤層が少なくなると四面体層の方が優勢になる。

レクトライトのグループは図 5.2.10 中で Pr-Mu 辺に沿ったセリサイトに近い組成の位置にプロットされる。レクトライトのグループは、たとえ膨潤層の割合が同じであっても、続成作用やある種の熱水変質帯にみられるイライト/モンモリロナイト混合層に比べて、Al に富み、かつ負の層電荷が大きい事が特徴である。そして、レクトライト中の膨潤層の性質は、モンモリロナイトよりもむしろバイデライトに近いものと考えられている。⁽³⁸⁾

レクトライトにおける組成上の差は、図 5.2.11 に示すように混合層中の膨潤層の割合と負の層電荷の大きさとの関係に明瞭に現われている。⁽²³⁾ 熱水変質帯で生成した混合層は、モンモリロナイトとイライトの平均の層電荷の間を結んだ線よりやや層電荷の大きい方へプロットされる。レクトライトは、更に負の層電荷の大きな側への偏りが大きい。この効果は結果として図 5.2.12 のように層間席中の非交換性陽イオン量にも現われている。⁽²³⁾ 図 5.2.9 に示したように、レクトライト中の非交換性陽イオンとして K^+ の外に Na^+ や Ca^{2+} もかなり含まれている。ここで、表 5.2.5 に示すように、 Na^+ や Ca^{2+} は K^+ に比べて水和エネルギーが大きい。⁽⁴¹⁾ このような Na^+ や Ca^{2+} が層間に存在する時、それらは K^+ に比べてより強固に水分子と結びついているであろう。このためそれらを脱水させ、層間距離を縮めるためには K^+ の場合よりもっと大きな負電荷が必要となるであろう。

(b) 微量成分元素の変化

Velde らはスウェーデンの Kinnekulle 地域におけるシルル紀・オルドビス紀のベントナイト層中に含まれるイライト/モンモリロナイト混合層の化学組成変化を調べた。⁽³⁹⁾ この地域に産する混合層の膨潤層の割合は 70~10% の範囲のものであり、それらの構造は、図 5.2.2 の D, F, G で示したものと似ている。⁽⁴⁰⁾ 検討された元素 (K, Al, Sr, Rb) のうち、主成分である K と Al に関しては、前項で述べたと同様に膨潤層の減少につれて K と Al は共に増加する。そして両方の含有量の間の相関は良く、産状が違っていても同一回帰線でその関係を表わすことができる。微量成分である Sr, Rb と K との関係を図 5.2.13 と 5.2.14 に示したが、⁽³⁹⁾ Sr は K と負の相関々係にあり (図 5.2.13) 同様に Rb と Sr の量の関係は、Billingen と Kinnekulle のデータをそれぞれに見ると、独立に負の相関を示す (図 5.2.14)。つまり、続成作用が進んで混合層中の膨潤層が減少すると、主成分の K, Al は増加し、微量成分のうち Sr は減少、Rb は増加する。このような Sr と Rb の挙動は、そのイオン半径と水和エネルギーの値 (表 5.2.5) から考えて、 Sr^{2+} は Ca^{2+} とまた Rb^+ は K^+ と似た挙動を示すだろうと予想される。

Kinnekulle の混合層は続成作用の効果だけで生成したものと考えられるが、Billingen のものは続成作用の途中で輝緑岩の貫入による熱の影響を受けている。そのため前述の Man-

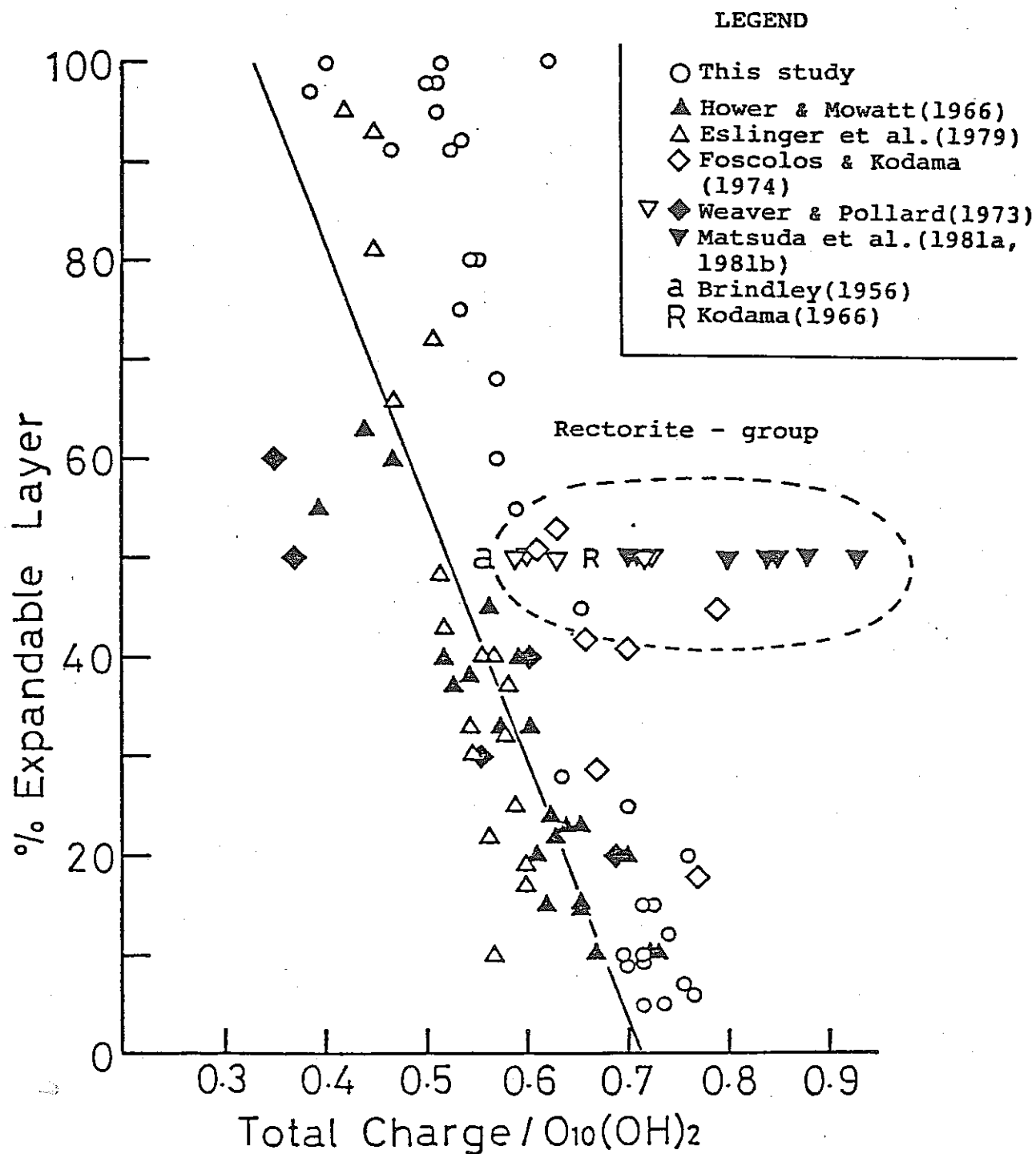


Fig 5.2.11 (23)
The relationship between the percentage of expandable layer and total layer charge per $O_{10}(OH)_2$ in mica/smectites of different origins. The line is drawn between 0.33 of montmorillonite and 0.72 of illite.

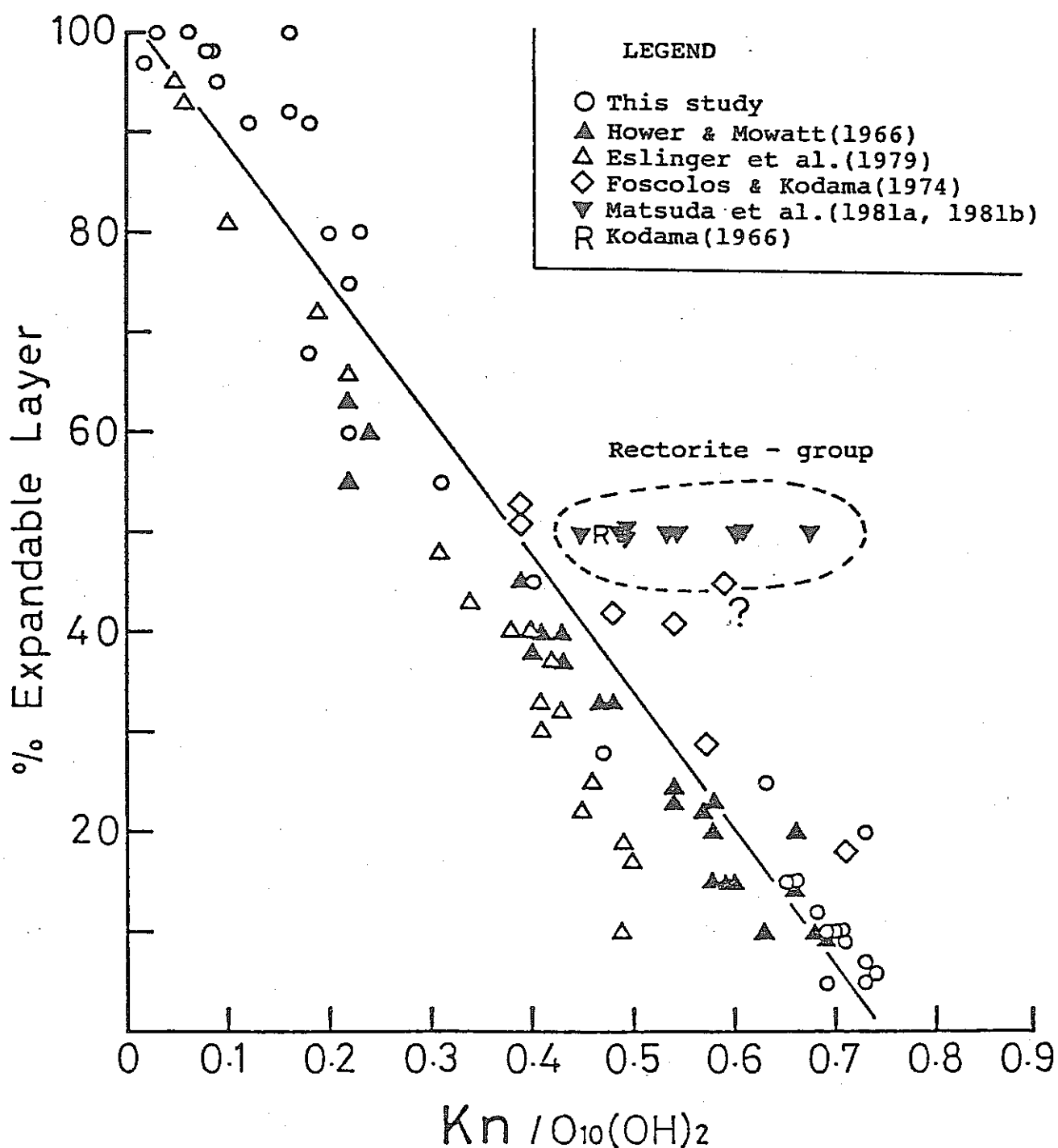


Fig 5.2.12

(23)

The relation ship between the percentage of expandable layer and number of non-exchangeable interlayer cations (K_n) per $O_{10}(OH)_2$ in mica/smectites of different origins. The curve indicates a regression one for mica/smectites which have predominantly non-exchangeable K^+ in the interlayer.

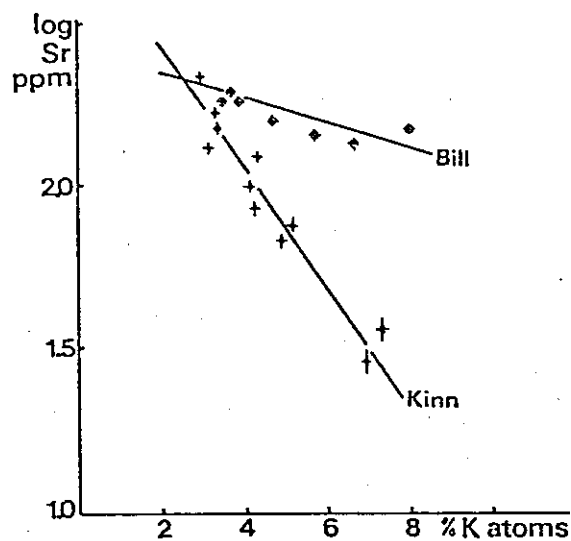


Fig. 5.2.13

(39)

Sr and K values (ppm weight and atom percent) for B-layer samples from Kinnekulle metasomatic samples - crosses and Billingen metamorphic samples - circles.

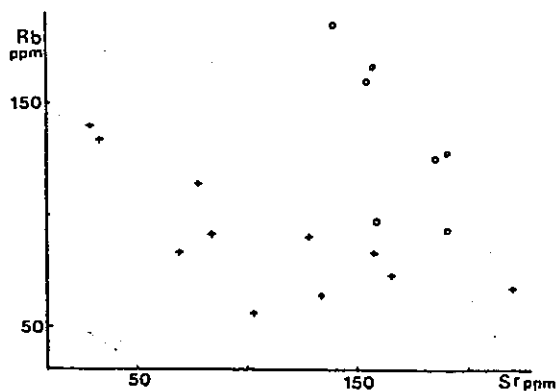


Fig. 5.2.14

(39)

Sr and Rb values (ppm, weight) for Kinnekulle metasomatic samples-crosses and Billingen metamorphic samples-circles.

Table 5.2.5 ABSOLUTE THERMODYNAMIC DATA FOR AQUEOUS IONS (298°K)

Ion	r_{ion} , ångstroms	ΔH_{hyd}^* , kcal/mole	ΔS_{hyd}^* , cal/mole-deg	ΔG_{hyd}^* , kcal/mole
H ⁺	—	-267.9	-29.3	-259.2
F ⁻	1.33	-113.2	-34.1	-103.1
Cl ⁻	1.81	-80.9	-20.3	-74.8
Br ⁻	1.96	-72.7	-16.3	-67.9
I ⁻	2.19	-62.4	-11.3	-59
Zn ²⁺	0.70	-503.0	-70.5	-482
Cu ²⁺	0.69	-516.4	-72.2	-494.9
Ni ²⁺	0.72	-519.5	-88.1	-491.5
Co ²⁺	0.74	-505	-87.4	-479
Fe ²⁺	0.76	-473.4	-76.7	-450.5
Fe ³⁺	0.64	-1038	-121	-1002
Mn ²⁺	0.80	-455.4	-68.3	-435.1
Cr ²⁺	0.84	-456.6	-43.8	-443.5
Cr ³⁺	0.69	-1044	-127	-1006
Al ³⁺	0.45	-1135.3	-121.1	-1099.2
La ³⁺	1.15	-806.3	-96.6	-777.5
Mg ²⁺	0.65	-473.8	-70.3	-452.9
Ca ²⁺	0.94	-395.1	-56.8	-378.2
Sr ²⁺	1.10	-354.2	-53.1	-338.4
Ba ²⁺	1.29	-326.1	-44.8	-312.7
Li ⁺	0.68	-130.3	-31.7	-120.8
Na ⁺	0.98	-104.1	-23.8	-97
K ⁺	1.33	-84.0	-15.7	-79.3
Rb ⁺	1.48	-78.0	-12.9	-74.2
Cs ⁺	1.67	-70.1	-12.2	-66.5

cos Shale の例と同様, Billingen の混合層の方が Kinnekulle のものより膨潤層の割合が小さい。このように成因の異なる 2 種のイライト／モンモリロナイト混合層の系列に対して, 主成分の K と Al はどちらも 1 つの関係で表わされるにもかかわらず, 微量成分の Sr, Rb の量は生成環境の違いにより別々の関係で表わされる (図 5.2.13, 5.2.14)。この事実に基づいて Velde らは, ベントナイト層の変化の過程で主成分元素に比べて微量成分元素の方が移動性に富むと推論している。しかし, この推論に貫入岩による熱水の添加とその移動の効果も考慮しなくては危険である。イオン半径の大きさだけを考慮すると, K^+ に比べて Rb^+ の方が雲母の構造に対して親和力が弱く不安定かもしれない。これが事実だとすると, Rb^+ の方が K^+ より雲母の結晶構造から造出され易いかもしれない。また微量成分の Sr や Rb はふつうの続成作用の条件下ではそれらを含む単独の鉱物相を形成することはできない。従って, スメクタイトが熱変成を受けた場合, 余分の Rb や Sr は固相の中に固定されるよりも溶液中に濃集して移動性となり易いであろう。この仮定は Cs^+ を含む系の熱変成実験で明らかである。

Komarneni らは種々の粘土鉱物やそれらを含む Shale と Cs 化合物 (Cs_2MoO_4 , $CsOH$, CsI , $\beta-Cs_2U_2O_7$) をオートクレーブの中で反応させ, その時の溶液中に残存する Cs^+ を定量した。⁽³²⁾ その結果の一部を表 5.2.6 と 5.2.7 に示す。表 5.2.7 の粘土と Cs_2MoO_4 の系のデータを見ると, 粘土以外に生成物がほとんど存在しない場合は用いた粘土鉱物の, CEC に対応した量の Cs^+ が吸着され, これにより溶液中に残存する Cs^+ 量は変化する。 Cs_2MoO_4 と $CsOH$ 系を比較すると, 明らかに $CsOH$ を用いた場合の方が溶存 Cs^+ 量は小さい。両者の違いは Cs^+ を含むケイ酸塩鉱物 Pollucite ($CsAlSi_2O_6$) の生成量に見られる。この実験で採用された条件は出発物質の粘土鉱物を分解する方向に働くものである。仮りに粘土鉱物が分解する条件であったとしても, その条件で Cs^+ を主成分とする新しい鉱物相が生成可能であれば, Cs^+ はその固相に固定されて溶液中に溶存せず, 移動性に乏しくなるのであろう。ここで示した例では, その新しい鉱物相として Pollucite がある。Pollucite は比較的 S_2 に之しい鉱物であるため, 表 5.2.7 の $CsOH$ 系のデータが示すように, 出発物質の粘土鉱物の S/A_1 比が小さな物ほど Pollucite の生成量が多い。溶液の PH がアルカリ性になるほど, Pollucite の生成は助長される。

このように, スメクタイトの熱変成に伴う物質移動は, その主成分元素に関してはスメクタイトからイライトへ変化する間に, その構造変化に必要な物質を周囲の溶液との交換反応によって構造内へ取り込む。微量元素に関しては, スメクタイトや混合層が安定に存在し得る範囲では, それらの CEC の大きさによって微量元素の移動性は支配される。粘土鉱物が分解してしまう条件では, 微量成分を主成分とする新しい鉱物相がその条件下で形成されるか否かによって, 元素の移動性は決定される。

Table 5.2.6

(32)

Analyses of Cs remaining in solution and of pollucite formation from various mixtures¹ of clays or shales and Cs sources.

Sample	Weight of clay ² or shale ² + Cs phase (mg)	Weight of Cs added ³ (mg)	100°C		200°C		300°C	
			% Cs in solution	Pollucite formation by XRD	% Cs in solution	Pollucite formation by XRD	% Cs in solution	Pollucite formation by XRD
<i>Cs₂MoO₄ source</i>								
Kaolinite	120.8	12.9	89.7	ND ⁴	88.4	SI	15.9	SI
Montmorillonite	127.8	17.2	53.7	ND	55.6	ND	38.8	ND
Mica	120.5	12.5	92.1	ND	77.7	ND	42.5	St
Illite	128.6	17.8	81.3	ND	68.3	SI	4.7	V. St
Chlorite	114.4	9.0	97.3	ND	83.8	Tr	69.2	SI
Salona shale	120.9	13.0	89.1	ND	44.3	M	13.4	V. St
Antrim shale	126.6	16.6	93.5	ND	75.3	M	5.2	V. St
Brallier shale	125.2	15.7	92.3	ND	64.9	M	10.8	V. St
Conasauga shale	124.3	15.2	88.0	ND	17.9	V. St	5.0	V. St
Catskill shale, reduced	134.5	21.5	96.4	ND	71.0	St	46.2	V. St
Catskill shale, oxidized	129.9	18.7	86.1	ND	66.9	St	7.4	V. St
<i>CsI source</i>								
Kaolinite	125.2	12.9	—	—	—	—	92.9	ND
Montmorillonite	133.6	17.2	—	—	—	—	49.4	ND
Mica	124.5	12.5	—	—	—	—	81.5	ND
Illite	134.8	17.8	—	—	—	—	75.4	ND
Chlorite	117.6	9.0	—	—	—	—	81.8	SI
Salona shale	125.5	13.0	—	—	—	—	30.8	V. St
Antrim shale	132.4	16.6	—	—	—	—	69.4	St
Brallier shale	130.7	15.7	—	—	—	—	84.3	ND
Conasauga shale	129.7	15.2	—	—	85.0	ND	63.7	ND
Catskill shale, reduced	142.1	21.5	—	—	99.9	ND	66.6	St
Catskill shale, oxidized	136.5	18.7	—	—	—	—	48.9	V. St
<i>CsOH source</i>								
Kaolinite	114.6	12.9	—	—	5.4	St	—	—
Montmorillonite	119.6	17.2	—	—	3.4	V. St	—	—
Mica	114.5	12.5	—	—	19.7	Tr	—	—
Illite	120.1	17.8	—	—	4.8	St	—	—
Chlorite	110.1	9.0	—	—	73.0	ND	—	—
Salona shale	114.7	13.0	—	—	17.6	V. St	—	—
Antrim shale	118.7	16.6	—	—	18.9	V. St	—	—
Brallier shale	117.7	15.7	—	—	17.6	V. St	—	—
Conasauga shale	117.1	15.2	—	—	8.1	V. St	—	—
Catskill shale, reduced	124.3	21.5	—	—	26.4	V. St	—	—
Catskill shale, oxidized	121.1	18.7	—	—	22.4	V. St	—	—
<i>β-Cs₂U₂O₇ source</i>								
Kaolinite	141.4	12.9	37.9	ND	7.8	SI	9.0	Tr
Montmorillonite	155.3	17.2	29.3	ND	35.5	ND	25.4	ND
Mica	140.2	12.5	30.5	ND	19.8	ND	5.5	St
Illite	157.2	17.8	31.3	ND	31.2	M	2.0	V. St
Chlorite	128.9	9.0	35.1	ND	16.3	ND	7.4	Tr
Salona shale	141.9	13.0	19.5	ND	10.5	ND	4.3	St
Antrim shale	153.3	16.6	18.5	ND	24.9	ND	19.1	St
Brallier shale	150.5	15.7	20.5	ND	11.4	ND	5.8	St
Conasauga shale	148.7	15.2	35.2	ND	17.9	St	9.7	St
Catskill shale, reduced	169.1	21.5	20.9	ND	7.7	Tr	46.7	Tr
Catskill shale, oxidized	160.0	18.7	17.0	ND	7.9	ND	22.5	M

¹ Hydrothermally treated at 100°, 200° and 300°C/300 bars for 4, 2, and 1 months, respectively.² Weight of clay or shale is 100 mg in all cases.³ Molar ratio of Si in clay or shale to Cs added in all cases is 8.⁴ ND = None detected; Tr = Trace; SI = Slight; M = Moderate; St = Strong; V. St = Very strong.

Table 5.2.7

(32)

Analyses of Cs remaining in solution and XRD analysis of various mixtures¹ of Cs phases with clays.

Sample	Molar ratio of Si in clay to Cs added	Weight of Cs added (mg)	% Cs in solution	Pollucite formation by XRD	Changes in clay by XRD	Other phases by XRD
<i>Clay² + Cs₂MoO₄ mixtures heated for 10 days</i>						
Kaolinite	2	51.6	97.9	Slight	No obvious change	ND ³
Kaolinite	8	12.9	93.8	Slight	No obvious change	ND
Montmorillonite	2	69.6	92.1	ND	15.5 Å collapsed to ~12 Å	Powellite
Montmorillonite	8	17.4	68.7	ND	15.5 Å collapsed to ~12 Å	Powellite
Mica	2	51.2	86.9	ND	No obvious change	ND
Mica	8	12.8	85.2	ND	No obvious change	ND
Illite	2	71.2	91.3	Moderate	Better crystallized	ND
Illite	8	17.8	84.8	ND	Better crystallized	ND
<i>Clay + Cs₂MoO₄ mixtures heated for 60 days</i>						
Kaolinite	2	51.6	75.2	Moderate	Some clay consumed	ND
Kaolinite	8	12.9	88.4	Slight	No obvious change	ND
Montmorillonite	2	69.6	71.1	Moderate	Most clay consumed	Powellite
Montmorillonite	8	17.4	55.6	ND	15.5 Å collapsed to ~12 Å	Powellite
Mica	2	51.2	92.7	Slight	No obvious change	ND
Mica	8	12.8	77.7	ND	No obvious change	ND
Illite	2	71.2	85.1	Moderate	Better crystallized	ND
Illite	8	17.8	68.3	Slight	Better crystallized	ND
<i>Clay + CsOH mixtures heated for 10 days</i>						
Kaolinite	2	51.6	2.1	Very strong	Totally consumed	Boehmite
Kaolinite	8	12.9	7.8	Strong	Some clay consumed	Boehmite
Montmorillonite	2	69.6	28.3	Very strong	Totally consumed	ND
Montmorillonite	8	17.4	14.7	Strong	15.5 Å collapsed to ~12 Å	ND
Mica	2	51.2	6.4	Moderate	Totally consumed	Strong CsAlSiO ₄
Mica	8	12.8	28.0	Slight	Some clay consumed	Moderate CsAlSiO ₄
Illite	2	71.2	14.4	Strong	Totally consumed	Slight CsAlSiO ₄
Illite	8	17.8	8.1	Strong	Better crystallized	ND
<i>Clay + CsOH mixtures heated for 60 days</i>						
Kaolinite	2	51.6	1.9	Very strong	Totally consumed	Boehmite
Kaolinite	8	12.9	5.4	Strong	Most clay consumed	Boehmite
Montmorillonite	2	69.6	29.4	Very strong	Totally consumed	ND
Montmorillonite	8	17.4	3.4	Very strong	15.5 Å collapsed to ~12 Å	ND
Mica	2	51.2	4.3	Slight	Totally consumed	Very strong CsAlSiO ₄
Mica	8	12.8	19.7	Trace	Some clay consumed	Moderate CsAlSiO ₄
Illite	2	71.2	11.8	Very strong	Totally consumed	Slight CsAlSiO ₄
Illite	8	17.8	4.8	Strong	Most clay consumed	ND

¹ = Hydrothermally treated at 200°C and 300 bars pressure.² Weight of clay is 100 mg in all cases.³ ND = None detected.

5.2.5 混合層鉱物の変化に伴う物性変化

イライト／モンモリロナイト混合層中の膨潤層は混合層を形成している場合でも本来のモンモリロナイトと同じ性質を示すであろうか。図 5.2.15 はイライト／モンモリロナイト混合層⁽⁴²⁾の膨潤層の割合と CEC の関係を示したものである。この関係は、CEC を測定した方法により傾きは異なるが、ほぼ直線で近似される。このことは CEC という性質に関しては混合層はモンモリロナイトとイライトの機械的混合物として挙動することを意味している。図 5.2.15 において、直線を膨潤層 0% の点に延長した時でさえ CEC の値は零でなく 15~20 meq/100g 程度の値をもつ。これらの試料に関して、溶液から吸着した Sr^{2+} の量と層間から追い出され

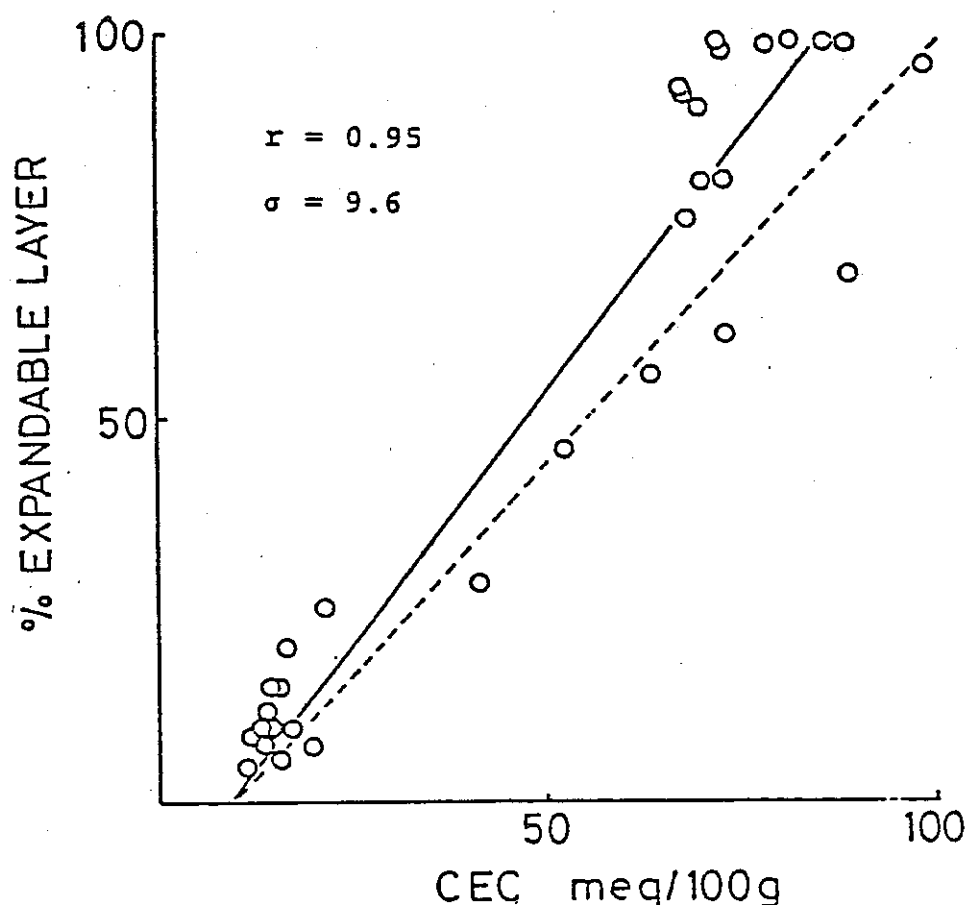


Fig. 5.2.15

(42)

The relationship between percentage of expandable layer and CEC in illite/montmorillonites. Dashed line is obtained by extrapolating the line by Hower and Mowatt (1966). "r" indicates the correlation coefficient. "σ" indicates the standard deviation of CEC value.

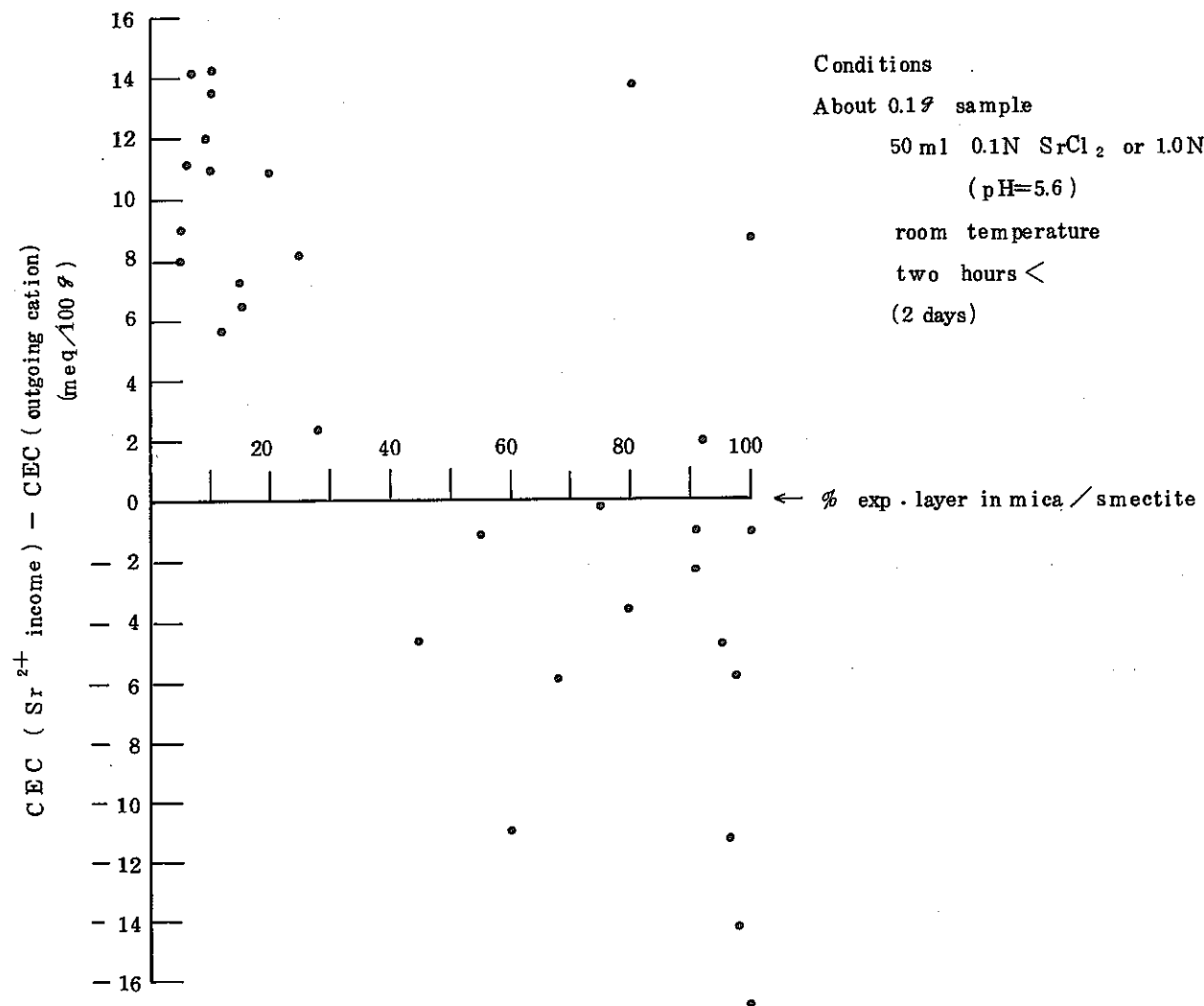


Fig. 5.2.16 Plots of percentage of expandable layer vs. ΔCEC value in mica/smectites. ΔCEC indicates the difference between retained Sr^{2+} and interlayer cations outgoing from the interlayer.

た交換性の陽イオン (Na, K, Ca, Mg) の量の差 (ΔCEC) を膨潤層の割合に対してプロットし図 5.2.16 に示す。その関係は、膨潤層の多い混合層では、 ΔCEC の値は負であり、膨潤層の少ない混合層では正であるというような対照的な分布を示す。 ΔCEC の値が負であるということは、 Sr^{2+} 置換後余分の塩類を洗滌する時、膨潤層の多い混合層ほど簡単に構造内から洗い出されてしまうことを意味している。他方、 ΔCEC が正であることは洗い出しの影響に勝って過剰の Sr^{2+} を吸着していることを示す。イライトの層間中にはここで対象とした交換性陽イオン以外に NH_4^+ や H_3O^+ などふつうに存在する。 ΔCEC の正の値は、これらの分析外イオンの効果にもよるが、それ以外にエッジでの吸着の効果もかなり寄与している。イライト等ではエッジに露出する Broken Bond の箇所で Cs, Rb, Sr 等の大きな陽イオンの吸着が無視できない。この効果は CEC に対して約 $10 \sim 20 \text{ meq} / 100 \text{ g}$ の値を占めると考えられている。⁽¹⁾ レクトライトのグループも多少のパラッキはあるが膨潤層の量に見合った CEC の値をもつ。CEC の性質以外に吸水性に関する性質も理論的には考察されているが実験データはほとんどない。

5.3 沸石類の熱変成

沸石はアルカリ又はアルカリ土類のアルミノケイ酸塩で、多少の水分子を結晶格子中に主成分として含んでいる。粘土鉱物と同様、アルカリ又はアルカリ土陽イオンがイオン交換しうる特徴をもつが、粘土鉱物が脱水加水により層間が伸縮するのに対し、三次元網目構造をもつ沸石類では、本質的な格子構造の変化は認められず、結晶水は結晶構造を保ったまま、加熱、加圧により脱離する。

各種の沸石類についての加熱、脱水作用については従来多くの実験がなされておりその結果は表 5.3.1 に示す通りである。⁽⁴³⁾ 熱的安定的の高い沸石としては次のものが挙げられる。モルデン沸石 (mordenite), 斜ブチロル沸石 (clinoptilolite), 方沸石 (analcime), エリオン石 (erionite), ダキアルド沸石 (D' Achiardite), リョウ沸石 (Chabagite), 水和ホウソーダ石 (hydrous sodalite), 合成沸石 A, O, N-A, X, Y, L, 等は $700^\circ\text{C} \sim 800^\circ\text{C}$ まで加熱しても構造は破壊されない。これに対し 250°C 以下で構造が不安定になったり、他の鉱物種に変化したり又は分解する沸石類もある。この種の沸石類としては、ジュウ十字沸石 (harmotome) 灰十字沸石 (phillipsite), 輝沸石 (heulandite), 束沸石 (stilbite), ジスモンド沸石 (gismondine), エジントン沸石 (edingtonite), ソーダ沸石 (natrolite) 等が挙げられる。⁽⁴³⁾

地層処分における緩衝材の候補材料として特性評価試験を行なっている斜ブチロル沸石とモルデン沸石は表 5.3.1 から明らかな通りいずれも熱的安定性 (加熱, 脱水) に関しては他の沸石類よりも高温まで安定である。沸石類の中には天然での産出が稀なものも多いが、斜ブチロル沸石、モルデン沸石はいずれも他の沸石類よりも大量に産出し、Cs, Rb, Sr 等の元素のイオン交換能が優れている点でも緩衝材としての使用には好都合である。

沸石の熱的安定性を論じるに際しては沸石の置かれた物理化学的環境を考慮する必要がある。

Table 5.3.1 Summary of Zeolite Dehydration Behavior (43)

<i>Zeolite</i>	<i>TGA a, b</i>	<i>DTA c, d</i>	<i>Structure</i>	<i>Remarks</i>
<i>Group 1</i>				
Analcime	Cont., 8.7% at 400°	End. 200-400°	None up to 700°	
Harmotome	Step., 170-190°; 15.0% at 300°		New structure at 250° forms celsian 700°	
Phillipsite	Step., 130°, 18.0% at 300°	End. 100°, 200°, 300°	New structure 160-200°	Rehydrate if not heated > 250°
Gismondine	Step., 115-140°; 18.2%	End. 140°, 160°, 190°, 270°	Five metastable phases; feldspar 375°	
P	Step., 83°; 16.9%	End. 190°	New structure 530°	Structure contracts at 165° by 15.9 vol %
Paulingite	— 28%	—	Stable to 250°	Crystals decrepitate
Laumontite	Step., 200, 370, 500°; 15%	End. 71, 267, 430, 467°	Structure change at 500°	Rehydrates below 200°
Yugawaralite	Step., 200, 400°; 14%	End. 200, 350°; Ex. 540°	New structure 400°	Rehydrates below 400°
<i>Group 2</i>				
Erionite	Cont., 14.8%	End. 50-400°; Ex. 920°	Stable 750°	Stable to H ₂ O at 375°
Levynite	Cont., 17.6%			Stable at 340°
O (Offretite)	Cont., 9.8%	End. 160, 410, 560°; Ex. 1092°	No change 965°	TMA removed above 350°
T	Cont., 9.8%			
Omega	Cont. to 485°, Step. 485° 22.8%	End. 180, 255° Ex. 410, 510, 675°	Stable to 700°	TMA removed above 400°
Sodalite Hydrate	15%	End. 100-300; Ex. 805°	Stable to 900°	High temp. form reported
<i>Group 3</i>				
A	Cont., 22.5%	End. 25-300°; Ex. 860, 910°	Stable to 700°	β-Cristobalite 800°
N-A	Cont., 15.0%	End. 100-200°; Ex. 350, 600 860°	Stable to 700°	TMA removed above 300°
ZK-4	25.8%		Stable to 550°	

Table 5.3.1 Summary of Zeolite Dehydration Behavior (continued) ⁽⁴³⁾

<i>Zeolite</i>	<i>TGA a, b</i>	<i>DTA c, d</i>	<i>Structure</i>	<i>Remarks</i>
<i>Group 4</i>				
Faujasite	Cont., 25%		Stable to 475°	
X	Cont., 26.2%	End. 50-350°; Ex 772, 933°	No change 700°	Stability varies with cation
Y	Cont., 26%	End. 100-400°; Ex. 793°	No change 760°	Stability varies with cation
Chabazite	Cont., 23%	End. 25-300°; Ex. 900°	No change 700°	Stability varies with cation
Gmelinite	Cont., 20%		Structure change at > 300°	
Zeolite L	Cont., 16.7%		No change 800°	
<i>Group 5</i>				
Natrolite	Step., 240°, 9.7%	End. 350°	New structure 565°; amorphous 785°	Rehydrates to 785°; nepheline at 970-1010°
Scolecite	Step., 200, 400°, 14%	End. 225, 410°; Ex. 1000°	Structure decomposes at 490°	No rehydration above 330°
Mesolite	Step., 200, 350°, 13%	End. 225, 380°; Ex. 1040°	Structure decomposes at 440-490°	Feldspar at 910°
Thomsonite	Step., 150, 300°, 15%	End. 175, 325, 400, 440, 520°	Structure collapse at 520°	No rehydration above 370°
Gonnardite	Step., 100, 200, 300°, 14.4%	End. 75, 220, 450°	Structure collapse at 460°	No rehydration above 360°
Edingtonite	Step., 100, 250, 400°, 13.1%	End. 160, 270, 450°; Ex. 500°	Recrystallizes to feldspar 500°	
<i>Group 6</i>				
Mordenite	Cont., 16%	End. 25-300°; Ex. > 1000°	No change 800°	
Epistilbite	— 15.5%			Stable to at least 250°
Bikitaite	Step., 9.8%	End. 190-475°	Goes to β -spodumene at 750°	
Ze'on-Na	Cont.	End. 25-300°; Ex. > 1000°		

Table 5.3.1 Summary of Zeolite Dehydration Behavior (continued) ⁽⁴³⁾

<i>Zeolite</i>	<i>TGA</i> ^{a, b}	<i>DTA</i> ^{c, d}	<i>Structure</i>	<i>Remarks</i>
<i>Group 7</i>				
Heulandite	Step., 100, 250°, 17%	End. 25-300°; 300°	Heulandite "B" at 250°	Structure collapse at > 360°; cation effects stability
Clinoptilolite	Cont., 14%	End. 125-300°; Ex. > 1000°	No change 750°	
Stilbite	Step., 100, 200°, 17%	End. 191, 262°; Ex. 500°	Change at 120°; collapse at 400°	Structure shrinks along <i>b</i>
Stellerite	17%		No change 300°	Rehydrates
Brewsterite	12.4%		No change 300°	Rehydrates
<i>Group 8</i>				
Li-A	21.2%		Stable 360°	
F	13.4%		Stable 500°	
Z	12.5%		Stable > 300°	Forms kaliophilite 600°
H	18%		Unstable 100°	Decomposes
Li-H	13.4%		Stable 350°	Structure change 430°
J	7.7%		Stable 350°	
E	17.4%		Unstable 150°	Some divalent forms stable at 200°
M	9.1%		Stable 350°	
Q	15.5%		Unstable 200°	
W	18%		Stable 350°	

^a Cont. = continuous loss with increasing temperature

^b Weight percent loss based on original weight

^c End. = endothermic reaction

^d Ex. = exothermic reaction

上に述べた加熱、脱水による熱的安定性は、沸石類に対して水溶液の関与しないドライな条件下での反応を示している。しかしながら、天然での沸石類の産状を考えた場合、これが火山ガラスから生成してきた事実、続成作用、熱水変質作用、埋没変成作用等により、他の鉱物種へ変化していく過程が多くみられ、その過程については未解決の部分が多い。溶液の関与した場合の沸石類の熱的安定性は、ドライな条件のもとでの熱的安定性とは著るしく異なることが予想される。この点については、関与する溶液の化学組成や物理条件の変化について、今後更に詳しく検討していく必要がある。

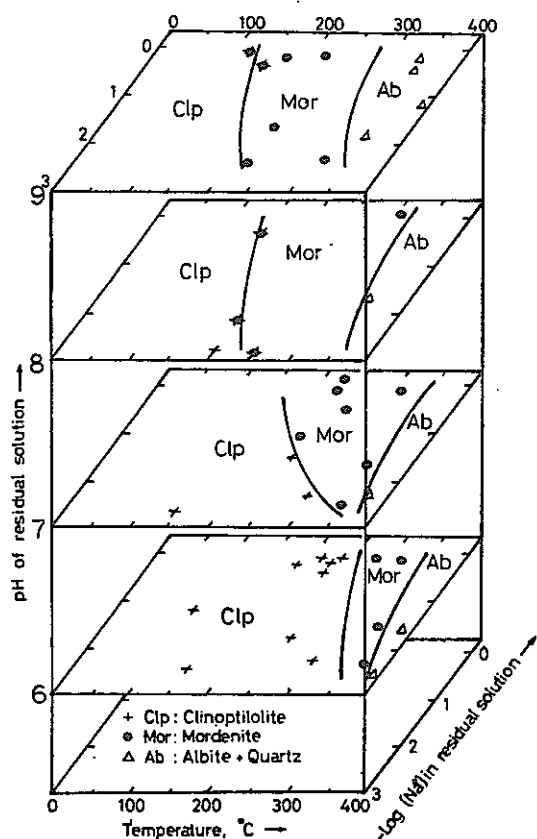
沸石類は一般には酸性条件よりもアルカリ条件下で生成し、又は他の沸石類や長石類へ変化しやすい傾向がある。しかしながら、原岩の化学組成や溶液の温度、濃度（イオン活動度）、含まれるイオン種の差異により、他の鉱物種へ変化する際の温度、圧力条件、反応速度、更には変化する鉱物種の種類も異なってくるであろう。緩衝材が長期間安定に存在するための物理的・化学的条件の範囲を実験的に確認する必要があり、そのためには今後溶液の関与する場合の緩衝材の安定性についての調査研究を行なっていかなければならない。

斜ブチロル沸石、モルデン沸石の間における安定関係は図 5.3.1 に示されているが、⁽⁴⁴⁾この図から明らかとなっており安定関係は温度だけに依存するものではなく、溶液中の Na^+ 濃度や PH 条件等の変化により、大きく変わる事が明らかである。図 5.3.1 は室内実験（反応溶液 NaOH 、出発物質：板谷産斜ブチロル沸石、実験期間 5 日）にもとづいて作成されたものである。天然ではどのくらいの温度条件まで移行するか、また反応速度がどの程度になるのかは今後更に実験検討される必要がある。

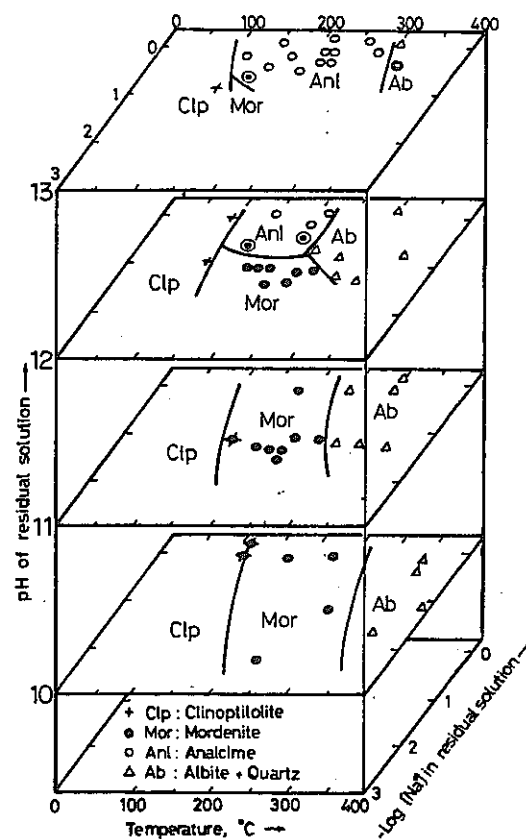
本研究の究極の目的が初期機能を維持する長期安定性を有する緩衝材の選定である点を考えれば、今後の研究課題は次の点に絞られてくるだろう。

- (1) 溶液の存在下での緩衝材の安定性（ことに温度、PH、各種イオン濃度、化学組成の変化に対して。）
- (2) 緩衝材（斜ブチロル沸石、モルデン沸石）が他の鉱物種に変化せず、存続しうるための条件設定
- (3) 仮に緩衝材が他の鉱物種（沸石等）に変化する場合には、変化すると考えられる個々の鉱物種がイオン交換能、膨潤性等について緩衝材として安全圏内にあるか否かを、予想される反応生成物について検討しておくこと。

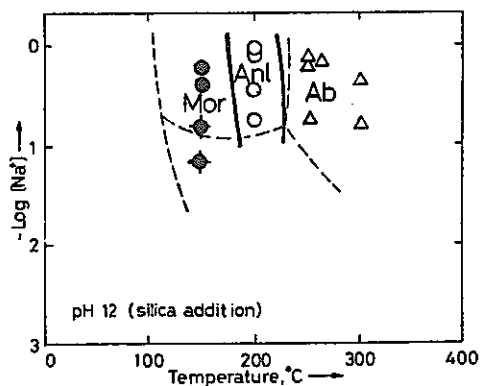
これらのうち、(1)については Na^+ 濃度だけでなく K^+ 、 Ca^{2+} 、 Si^{4+} 等の他の陽イオンの影響についても検討しなければならない。(2)については、天然での沸石類の生成条件をもとに考えると、一般に酸性岩（ SiO_2 に富む）からは、斜ブチロル沸石やモルデン沸石が生成し、塩基性岩（ SiO_2 が少ない）からはよりシリカに之しい沸石類が生成している。従って、原岩の鉱物種の化学組成を変化させる事により、緩衝材が長期間安定な（他の鉱物種に変化しにくい）条件を実験的に確認できる可能性もある。(3)については合成実験により生成した個々の鉱物相につ



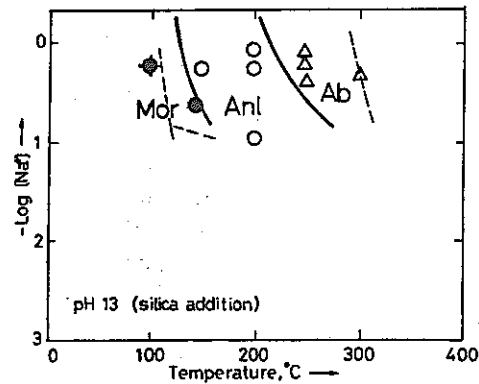
(a) Relations of clinoptilolite, mordenite and albite with increasing temperature, pH and Na^+ concentration of the solution in the pH range from 6 to 9.



(b) Relations of clinoptilolite, mordenite, analcime and albite with increasing temperature, pH and Na^+ concentration of the solution in the pH range from 10 to 13



(c) Relations of clinoptilolite, mordenite, analcime and albite as a function of Na^+ concentration and temperature in the presence of additional silica (solid line) at final $\text{pH} \approx 12$. Broken line indicates the phase boundary shown in Fig. 2. Mor; Mordenite + Quartz, Anl; Analcime + Quartz, Ab; Albite + Quartz



(d) Relations of clinoptilolite, mordenite, analcime and albite as a function of Na^+ concentration and temperature in the presence of additional silica (solid line) at final $\text{pH} \approx 13$. Broken line indicates the phase boundary shown in Fig. 2. Mor; Mordenite + Quartz, Anl; Analcime + Quartz, Ab; Albite + Quartz

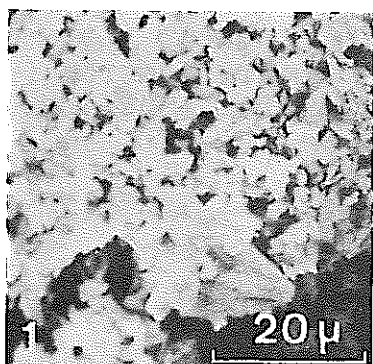
Fig. 5.3.1 Clinoptilolite Transformation at Elevating Temperature, PH and $[\text{Na}^+]$ (44)

いて、それぞれのイオン交換能や膨潤性等を個別に検討し、緩衝材が他の鉱物種に変化した場合の対応を考えておけば、安全性に寄与することができるであろう。

反応速度、並びに天然での実際の生成温度や圧力条件を合成実験だけで決定することは、粘土鉱物と同様に沸石鉱物の場合にも困難な事が多い。この点に関しては、野外での沸石鉱物の産状や生成環境についての調査を補足していくことが必要になろう。沸石以外の鉱物種を緩衝材として用いる事も十分に考えられるが、この場合にもこれまで述べて来た各種の検討を行ない、熱的安定性に対し十分な考慮を行なっておく必要があるだろう。とくに、緩衝材を混合して用いる場合には、互いに悪影響を及ぼさないような条件に可能な限りしなければならない。予想される化学反応を考えた上で緩衝材が長期間その効果を維持し得るように、添加物の種類、混合比などについても考慮する事が肝要であろう。

図 5.3.1 から明らかな通り、熱水合成実験の結果からは斜プロロ沸石やモルデン沸石は極端に高い PH 条件やアルカリイオン濃度 (Na^+ 濃度) のもとでは方沸石や曹長石 (albite) へ変化する。出発物質及び、合成されたモルデン沸石、方沸石、曹長石の走査型電子顕微鏡写真を Photo 5.3.1 (a)~(d) に示す。溶液濃度や PH 条件の変化は液中へ溶出するイオン種の種類や量にも変化を及ぼす⁽⁴⁵⁾。また、天然での沸石の産状から推察すると、斜プロロ沸石、モルデン沸石はカリ長石や粘土鉱物などを伴ったり、またはこれらの鉱物と累帯分布を呈する事が稀ではない⁽⁴⁴⁾。従って、図 5.3.1 の Na 濃度に加えて、K 濃度の影響もまた、沸石鉱物の熱的安定性に対し重要な影響を及ぼすと考えられる。また溶液中へのイオンの溶出という点からは、高い PH 条件下での Si^{4+} の溶存量やその溶存形態も変化するであろう。

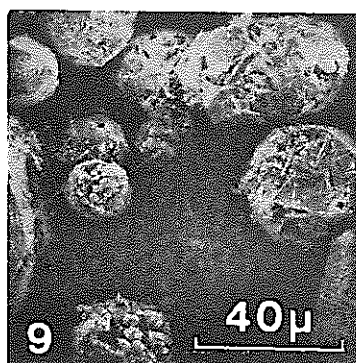
これらの事を考えると、放射性廃棄物の処分に際し種々のイオン種を含みまた温度や PH 条件の異なる溶液がどの程度緩衝材に関与してくるかは、緩衝材の安定性に対し重要な問題であると考えられる。今後は考えられる反応溶液に対する緩衝材の熱的安定性について調査していく必要があるだろう。高い PH 条件で変化する方沸石の生成領域は、系に加えられ過剰のシリカにより変化する事が図 5.3.1 (c) および (d) のように確認されている。これは、この節での研究課題(2)に示した点についての効果を示唆するものであり、今後は緩衝材の健全性を確認する上でこのような溶液反応について実験を推進していく必要があると思われる。



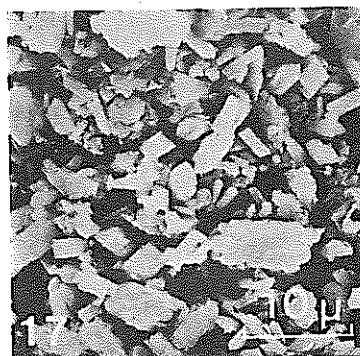
(a) clinoptilolite
(starting material)



(b) mordenite



(c) analcime



(d) albite + quartz

Photo 5.3.1 Scanning electron micrographs of starting material (clinoptilolite) and synthetic phase.

References

- 1) G. R. E. Grim, Clay Mineralogy (McGraw-Hill) (1968)
- 2) D. M. C. MacEwan, M. J. Wilson, Crystal Structures of Clay Minerals and their X-ray Identification (Edited by G. W. Brindley, G. Brown, Mineral. Soc. London, 1980)
- 3) J. K. Mitchell, Fundamentals of Soil Behavior (John Wiley & Sons, 1976)
- 4) P. F. Low, Soil Sci. Soc. Amer. J., 44, 667-676 (1980)
- 5) P. F. Low, Soil Sci. Soc. Amer. J., 45, 1074-1078 (1981)
- 6) 須藤俊男, 粘土鉱物学 (岩波書店, 1974)
- 7) R. Greene-Kelly, Differential Thermal Investigation of Clays (Edited by R.C. Mackenzie, Mineral. Soc. London, 1957)
- 8) W. F. Cole, Hosking, J. S, The Differential Thermal Investigation of Clays (Miner. Soc. London, 1957), 248-274
- 9) S. Shimoda, Oinuma, K, Sudo, T, Proc. Intern. Clay Conf., Tokyo, 1969), 523-531
- 10) A. Inoue, H. Minato, Clays Clay Miner., 27, 393-401 (1979)
- 11) 工業開発研究所, 地層処分における緩衝材の研究 (1982)
- 12) R. C. Mackenzie, Proc. Intern. Clay Conf., Stockholm, 183-193 (1962)
- 13) R. Tetlenhorst, Amer. Mineral. 47, 769-772 (1962)
- 14) C. O. Pollard, Geol. Soc. Amer. Spec. paper 134, 79-93 (1971)
- 15) 近藤三二, 粘土科学 21, 1-13 (1981)
- 16) H. Van Olphen, Soil Components vol.2, Inorganic Components (Springer, 1975) 497-527
- 17) 井上厚行・湊秀雄, 第22回粘土科学討論会要旨 (1978)

- 18) A. Inoue, Clays Clay Miner. 31 (in press) (1983)
- 19) A. Maes, A. Cremers, J. Chem, Soc. Faraday Trans. I.,
73, 1807-1814 (1977)
- 20) J. P. Gaultier, J. Mamy, Proc. Intern. Clay Conf., Oxford
(Elsevier) 167-175 (1979)
- 21) P. H. Nadeau, R. C. Reynolds, Jr., Clays Clay Miner.
29, 249-259 (1981)
- 22) J. Srodon, Proc. Intern. Clay Conf., Oxford (Elsevier)
251-260 (1979)
- 23) A. Inoue, M. Utada, Clays Clay Miner. 31 (to be published)
(1983)
- 24) B. Velde, Clays and Clay Minerals in Natural and Synthetic
Systems (Elsevier) (1977)
- 25) 逸見吉之助, 松田敏彦, 須藤俊男教授退官記念論文集 151-156, 1975
- 26) G. V. Henderson, Clays Clay Miner. 18, 239-246 (1970)
- 27) M. Frey, Sedimentology, 15, 261-279 (1970)
- 28) D. D. Eberl, J. Hower, Clays Clay Miner., 25, 215-227
(1977)
- 29) D. D. Eberl, Geochim. Cosmochim. Acta 42, 1-7 (1970)
- 30) D. D. Eberl, Clays Clay Miner., 26, 327-340 (1978)
- 31) D. D. Eberl, G. Whitney, H. Khoury, Amer. Mineral.,
63, 401-409 (1978)
- 32) S. Komarneni, W. B. White, Clays Clay Miner., 29, 299-308
(1981)
- 33) D. D. Eberl, J. Hower, Geol. Soc. Amer. Bull., 87, 1326-
1330 (1976)
- 34) 須藤俊男, 粘土科学 22, 3, 94-126 (1982)
- 35) H. E. Roberson, R. W. Lahann, Clays Clay Miner., 29,
129-135 (1981)
- 36) R. W. Lahann, H. E. Roberson, Geochim. Cosmochim. Acta,
44, 1937-1943 (1980)
- 37) J. Hower, E. V. Eslinger, M. E. Hower, E. A. Perry, Geol.
Soc. Amer. Bull., 87, 725-737 (1976)

- 38) H. Kodama, Amer. Mineral., 51, 1035-1055 (1966)
- 39) B. Velde, A. M. Brusewitz, Geochim. Cosmochim. Acta, 46, 447-452 (1982)
- 40) J. Hower, T. Mowatt, Amer. Mineral., 51, 821-854 (1966)
- 41) K. B. Harvey, G. B. Porter, Inorganic Physical Chemistry (Addison-Wesley, 1963)
- 42) A. Inoue, H. Minato, M. Utada, Clay Sci., 5, 123-136 (1978)
- 43) D. W. Breck, "Zeolite Molecular Sieves," (John Wiley & Sons 1979)
- 44) H. Kusakaba, "A Interpretation of Zeolite Zoning around Kuroko Ore Deposits on the Basis of Hydrothermal Experiments" (Minin. Geol., 32, 435-442(1982))
- 45) H. Kusakaba, H. Minato, M. Utada and T. Yamanaka, "Phase Relations of Clinoptilolite, Mordenite, Analcime and Albite with Increasing PH, Sodium Ion Concentration and Temperature", Sci. Pap. Coll. Gen. Educ. Univ. Tokyo, 31, 39-59 (1981)

§ 6. 最適化に向けて

6.1 緩衝材に要求される性能

既に昨年度報告書中にも述べられているように、高レベル放射性廃棄物の地層処分においては多重障壁 (multi-barrier) によって放射性核種を隔離し、安全性を確保することが基本的な考え方となっている。緩衝材は処分場 (repository) における工学的障壁の一つであり、それに要求される性能は多重障壁システム全体として評価されるべきである。

わが国における処分場の性能に関する考え方は現在のところ未だ明確になってはいない。しかし米国 NRC の考え方 (10CFR60) は今後日本にも大きく影響を及ぼすと考えられるので、現時点では 10CFR60 にもとづいて評価を行なうのが妥当であろう。10CFR60 の規準は以下の2点からなる。

(I) 処分場施設を閉止後、少なくとも1000年間は放射性核種の放出がない廃棄物パッケージでなければならない。

(II) 施設閉止1000年後は放射性核種の年間放出量が存在量の $\frac{1}{10^5}$ を越えてはならない。

第I点が達成されるための条件として固化体が地下水にさらされても最初1000年間核種を浸出しないなどという事は極めて考えにくいので、(1)固化体の容器であるキャニスターが1000年間腐食に耐え、健全性を維持するかあるいは(2)1000年以内にキャニスターが破損しても放射性核種が緩衝材中に保持されるかの2点が考えられる。緩衝材はこの両者に寄与するものでなければならないであろう。

1000年間キャニスターの腐食を抑制するには地下水の浸透を抑えることが重要である。しかし、1000年間地下水からキャニスターを隔離することは極めて困難であろうから、緩衝材としては極力地下水の到着を遅延させ、腐食を促進するようなイオン (例えば Cl^-) の拡散を抑え、腐食に好ましくない環境因子、例えばPHやEhを緩和することが必要である。

万一、1000年前にキャニスターが腐食によって破損しても放射性核種の放出を起こさないためには、核種の拡散を抑え、核種を緩衝材中に保持しておくことが必要である。

放射性核種の緩衝材中の拡散は(1)式で記述される。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{D}{R\tau} \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (1)$$

但しRはretardation factorと呼ばれ、次式で定義される。

$$R = 1 + Kd \frac{\rho}{\epsilon} \quad (2)$$

Kdは核種の分配係数、 ρ は緩衝材固体の密度、 ϵ は多孔度 (porosity) である。(1)式を解いて(3)式が得られる。

$$C = C_0 \operatorname{erfc} \left[\frac{x}{\sqrt{Dt/R\tau}} \right] \quad (3)$$

$D = 10^{-9} \text{ m}^2 \text{ S}^{-1}$, τ (tortuosity) = 1

として(3)式から100年、300年および1000年放射性核種閉じ込めに必要なKdと緩衝材の厚みを $W_{\text{Wood}}^{(1)}$ は計算している。但しここに閉じ込めては $C/C_0=0.05$ となる点を意味しており、完全な閉じ込めと意味が異なる。図6.1.1より緩衝材の厚みを25cmとすれば、1000年閉じ込めに必要なKd値は190、100年で19、300年で57となる。従ってKd値が200以上であるような核種に対しては(I)の要件は達成し得る可能性がある。しかしこの条件を満たさない核種に対しては、(1)(2)式の根拠となっている吸着拡散モデルが適用できる限り緩衝材のみで浸出した核種を1000年間閉じ込めておく事は不可能となる。

第IIの要件は固化体からの leach rate とも関連しており評価が容易ではない。leach rate の大きな核種に対して大きなKd値が好ましい。

以上緩衝材の性能として要件(I)、(II)に直接関連する物性について述べたが、これらは昨年度の報告書で述べた分類にしたがえば、下記の(a)~(d)に相当する。

- (a) 止水性
- (b) イオン収着性
- (c) 化学緩衝性
- (d) 膨潤および自己シール性

緩衝材にはこのような本質的機能を発揮および維持するために必要な補助的な性能が要求される。この補助的な性能の中で過去1年間の研究成果をふまえて極めて重要と考えられるに到った事項が2つある。これらは相互に関連がある。

- (e) 熱伝導性
- (f) 化学安定性

第1の熱伝導性は、固化体、キャニスター、緩衝材からなるシステムの安定性を考える上で極

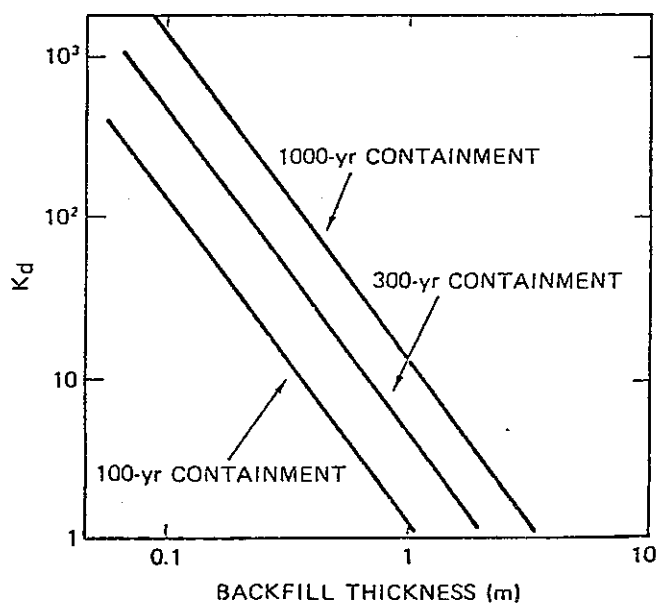


Fig 6.1.1 The Kd thickness Requirements for Complete Containment

めて重要である。現在考えられている緩衝材としての候補は主として粘土鉱物であり、断熱的傾向が強い。廃棄物固化体は初期において崩壊に伴う相当の熱を放出するが、緩衝材の熱伝導率が低い場合、固化体および緩衝材自身の温度上昇を来す。固化体の温度上昇は例えばガラス固化体を想定した場合、ガラスの結晶化という形で破損につながる。この限界値は系の圧力および高温の継続する時間とも関連している。固化体の温度上昇は当然キャニスターの温度上昇を引き起し、その腐食環境に大きな影響を及ぼす。

緩衝材自身の温度上昇は緩衝材の熱変成と関連する。粘土鉱物が高温で地下水環境下に長時間置かれると、化学反応の進行によって熱変成を起し、イオン交換容量や膨潤能など本質的な機能が本来要求される水準から大幅に低下する可能性がある。どこまで温度上昇を許容しうるかは、地下水条件、特にPHや共存イオン (K^+ , Mg^{++} , Ca^{++} など) と密接に関係しており、処分場サイトに大きく依存した問題でもある。

先に述べた要件(I), (II)は緩衝材を厚くすることによって達成が容易になる。しかしながら熱伝導性の低い緩衝材の厚みを大きくすれば、固化体や緩衝材自身の温度上昇を大きくすることとなり、この面での制約が緩衝材の厚みを決定する可能性が強い。

粘土鉱物の熱変成については既に昨年度の報告書においても指摘したところである。既にPuschらもこの点に大きな感心を示していたことは述べたが、最近AECLのBird⁽²⁾もこの点に注意を喚起するレビューを発表しており、重要な問題としての認識が高まりつつあるように思われる。

6.2 緩衝材の設計

これまでに述べて来た緩衝材に要求される性能は一般的な要件である。これらの要件を総合的に単一物質で満す事は容易でなく、いくつかの物質を混合して要求を達成しようとする"tailored buffer material"の考え方が支配的である。本研究においても、ベントナイトを中心とした混合系を第1候補材と考えて、各種実験を行なって来ている。ここでは、これら実験結果をふまえ、ベントナイト混合系を適用するに当たっての問題点を議論することとする。

ベントナイトを主成分とする混合系を緩衝材として使用する場合、処分場を閉止後地下水が緩衝材を飽和する以前と地下水の前線がキャニスターに到達し緩衝材が充分地下水によって飽和された後の状態とに分けて考える必要があるであろう。

地下水による飽和が起る以前の状態では、キャニスター近傍のベントナイトは固化体からの放熱によって加熱され、乾燥状態にあると考えられる。この時期には固化体の放熱レベルも高く、ベントナイトの乾燥状態での熱伝導率は余り大きくないので、系の温度上昇に拍車がかかる可能性もある。まずベントナイト混合系が地下水によって飽和されるのにどの程度の時間を要するかが第1の問題である。

ベントナイトの透水率については、昨年度透水係数の測定を行ない報告書において議論している。議論は(4)式のDarcyの法則にもとづいて行われる。

$$V = \frac{K}{\epsilon} \frac{dh}{dx} \quad (4)$$

V ; 媒体を通しての流体の線速度

K ; 透水係数

ϵ ; ポロシティ

$\frac{dh}{dx}$; 水圧勾配

(4)式自身が現実の問題に適用可能かどうかとの議論もあるが、それ以外にも初期のベントナイト混合系の透水性を考える上での2つの問題点が存在する。測定されたベントナイト混合系の透水率は、ベントナイトが水で飽和された状態での値であり、これはスウェーデン等における測定についても全く同じである。第1の問題点は乾燥状態における透水率は飽和状態の透水率と同じと考えてよいかどうかである。第2の問題点は初期の乾燥状態における水圧勾配 $\frac{dh}{dx}$ をどう評価するかである。通常の状態における岩石中水圧勾配について、Puschらは $10^{-2} \sim 10^{-3}$ のような低い値を考えているが、これは定常状態における値であり、処分場閉止直後における過渡状態においてはWood⁽¹⁾が考えているように、地下水圧で議論する方が妥当であろう。今地下Z(m)に処分場があるとし、緩衝材厚みがX(m)であるとすれば、初期における水圧勾配は Z/X に近い値であると考えられる。ベントナイト混合系の透水係数を昨年度報告書に記されているように $10^{-13} \sim 10^{-1}$ ms⁻¹ とし、空隙率を0.4、処分場を仮に地下1000mとすれば

$$V = 2.5 \times 10^{-10} / X \quad \text{ms}^{-1}$$

X = 0.25(m) の緩衝材を飽和するに要する時間は、約8年と計算される。ただこの場合、地下1000mにおける地下水圧を静水圧と等しく取っているので、水圧勾配を大きく評価しすぎている可能性もあるが、ここでは相当早い時期にベントナイト混合系が地下水で飽和される可能性があることを指摘したい。

ベントナイト混合系が水で飽和していない状態での熱伝導率は、本報告書に見られるように余り大きくない。この時の模擬システムでの熱伝導の計算が本報告書で行なわれている。この計算も予備的なものであり、今後解決せねばならない課題がある。第1点は既に論じられているが、本報告書で示された計算は定常状態における解であり、定常状態に到達する以前の温度分布とその時間的推移を知る必要がある。第2は解析に当って、キャニスター — 緩衝材、緩衝材 — 岩石間のギャップの熱伝導をどう評価するかである。これは廃棄物を埋め戻す際の施行法とも関連している。本報告書においては、これらギャップの存在は全く無視して行われている。定常状態が早やかに実現されるときには、ギャップコンダクタンスの値如何によっては、ピーク温度は更に高温側に修正される可能性もありうる。

本報告書で既に述べられているように乾燥状態でのベントナイトの熱変成は脱水反応であり、まず層間水の放出が100～200℃で起り、その後結晶水の放出が起り陽イオンの固定化にすすむ。後者の温度はNa型ベントナイトを使用することにより500℃以上にまで改善され、乾燥

状態でのベントナイトの熱変成よりは、むしろ固化体（ガラス）の結晶化が温度上昇を制約する条件となるであろう。ただし10年近くにわたって層間水の放出が続いた後に地下水が到来した時、完全に可逆的にベントナイトが膨潤しうるかどうかは問題として残るであろう。

次に、緩衝材が地下水で飽和された後の状態について考える。まず緩衝材に要求される性能として第1に放射性核種の移行を抑制する機能が上げられる。緩衝材中の核種は拡散と対流により移行し、その過程で吸着による遅延を蒙る。拡散による移行は濃度分布により支配され、固化体の leach rate と密接に関係する。leach rate に対する緩衝材の化学緩衝材については今年度の研究では検討が及ばなかったもので、ここでは取り上げないが、対流による核種移行が拡散に比らば充分小さくなるような透水性を緩衝材が備えることが望まれる。前出表 3.2.1.9 に示されているように、核種移行が拡散支配と見なし得る領域は、ペクレ数が 10^{-2} 以下である。3章で得られたベントナイトへの石英70%混合物の透水性は、充分この条件を満足すると判断される。

吸着性については、昨年度のバッチ法で測定した K_d 値の場合、ベントナイト単独では特に Sr^{2+} に対して低い値となり保持能力が低い事が明らかにされた。この欠点を補うためゼオライトを混入することが考えられ、今年度は混合系について拡散定数と K_d 値の測定が行われた。図 6.2.1, 2 に実験から得られた拡散定数を用いて計算した $Cs-134$, $Sr-90$ の濃度変化を示す。 Cs に対しては昨年度バッチ法によりゼオライトが大きな分配係数を有することが明らかにされているが、今年度ベントナイトとの40%混合系においても、キャニスターからの放出濃度を 2×10^{-5} 以下に低減することが確認された。しかしながら Sr に対しては、ゼオライトの添加の有効性は Cs 程顕著ではなく、最初に述べた(I) (1000年間放出)の要件を満足するためには、地下水の飽和に要する時間を50年と考えても、900年以上キャニスターが地下水にさらされた状態で腐食に耐える必要がある。これは地下水の組成にもよるが、キャニスターの材料の選択及びガラス固化処理方法（残留応力の問題）に大きな制約を加えることになる。また多重障壁の redundancy の考えからすれば、1000年間の大部分の期間をキャニスターのみで保たせるとするのは好ましい事ではなく、 Sr に対する吸着性の改善がイオン交換によっては困難であるなら、同形置換或いは吸着等によりそれを補償する Na_2TiO_3 , $BaSO_4$, $CaSO_4 \cdot 2H_2O$ 等を他の材料との両立性を考慮しつつ検討すべきであろう。

一方、緩衝材の厚みを増すことは放射性核種の保持という立場からは有効である。しかしながら前述のように、固化体及びキャニスターの温度上昇の問題が残る。地下水飽和後はベントナイトの熱伝導度が上昇すること、及び処分場閉止後数十年経過しており固化体からの放熱量が低下している事を考慮すれば、温度上昇に関しては、乾燥状態に比して条件が楽になる。温度条件に制約を付するのはガラス固化体の温度上昇による結晶化ではなく、緩衝材の熱変成であると考えられる。乾燥時にくらべると地下水が飽和した状態での緩衝材の熱変成は条件が厳しくなる。既述のように、ベントナイトもその一種類と考えられるスメクタイト (smectite) は高温

で層間水を放出して K^+ が固定されたイライト (illite) に変化し、イライト - スメクタイト混合層となる。イライトには膨潤作用はなく、イオン交換容量も変化する。スメクタイトのイライトへの変化反応の温度依存性は Eberl⁽³⁾ によって活性化エネルギー値が、 19.6 ± 3.5 kcal/mol と報告されている。この値は実験室規模での実験結果であり、天然の条件下では更に低い活性化エネルギー値となるとの説もあり、また地下水組成によっては、これより大きい値となるとの報告もある⁽⁴⁾。しかし現時点では Eberl の data を基礎に議論を進めるのが妥当であろう。図 6.2.3 には 100% スメクタイトがイライトに変換して 20% にまで減少するに要する時間を温度の関数として示してある。温度が 140℃ の高温であっても、約 1000 年を必要とす

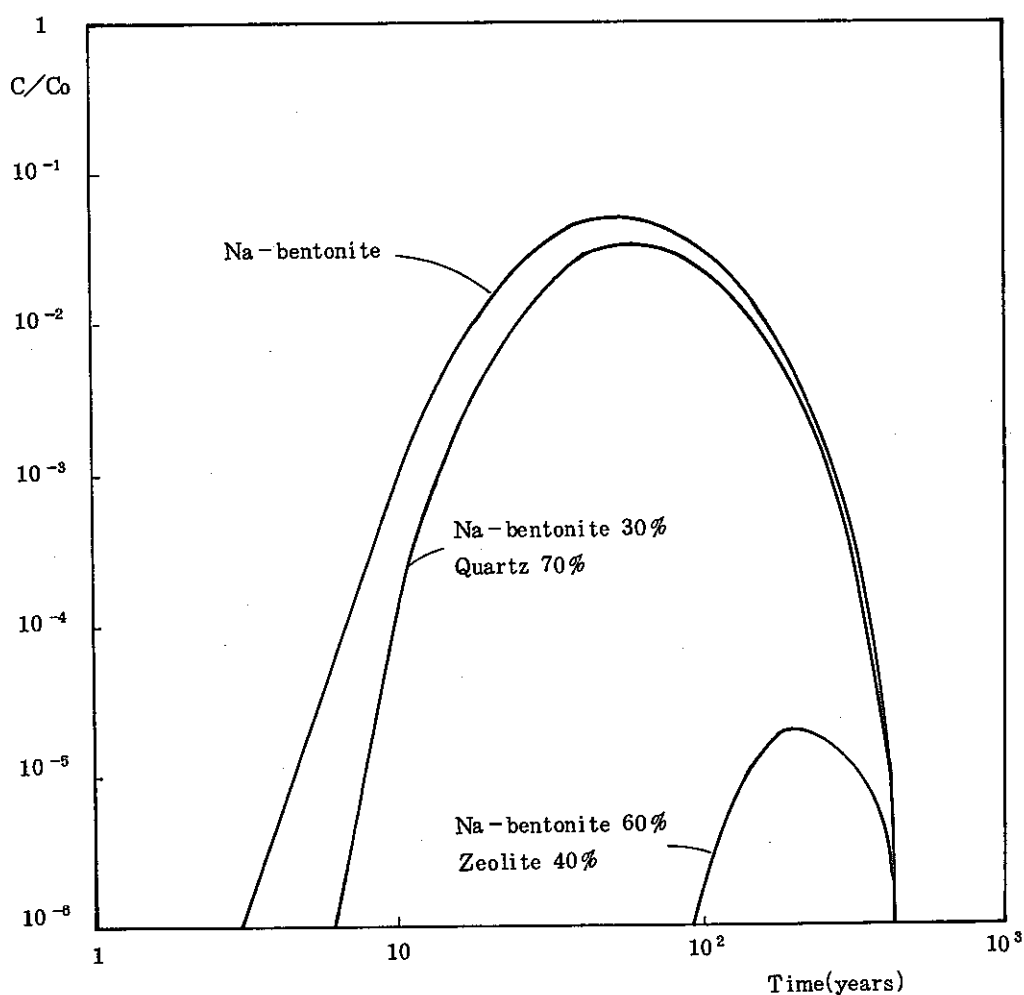


Fig. 6.2.1 Relative concentrations of Cs-137 at a distance of 0.2m from the canister

ることがわかる。また、 100°C で約 10^4 年を要することになる。したがって緩衝材が 20 cm というような比較的薄い場合には地下水飽和後の熱変成は余り問題とならないと考えてよいであろう。

次に要件Ⅲに関連して、 1000 年後の核種移行を考えてみる。この時点においては、本研究でKd測定を行なったSrやCsなど比較的半減期の短い核種は減衰が大きく、安全上からは半減期の長い ^{99}Tc 、 ^{79}Se やアクチナイドが問題となるであろう。 ^{129}I は再処理過程で除去されるとして、除かれている。アクチナイドのベントナイトに対するKd値の測定は今後の課題であるが、岩石に対するKd値の類推からすれば、Sr、Csより相当大きな値となる可能性もある。

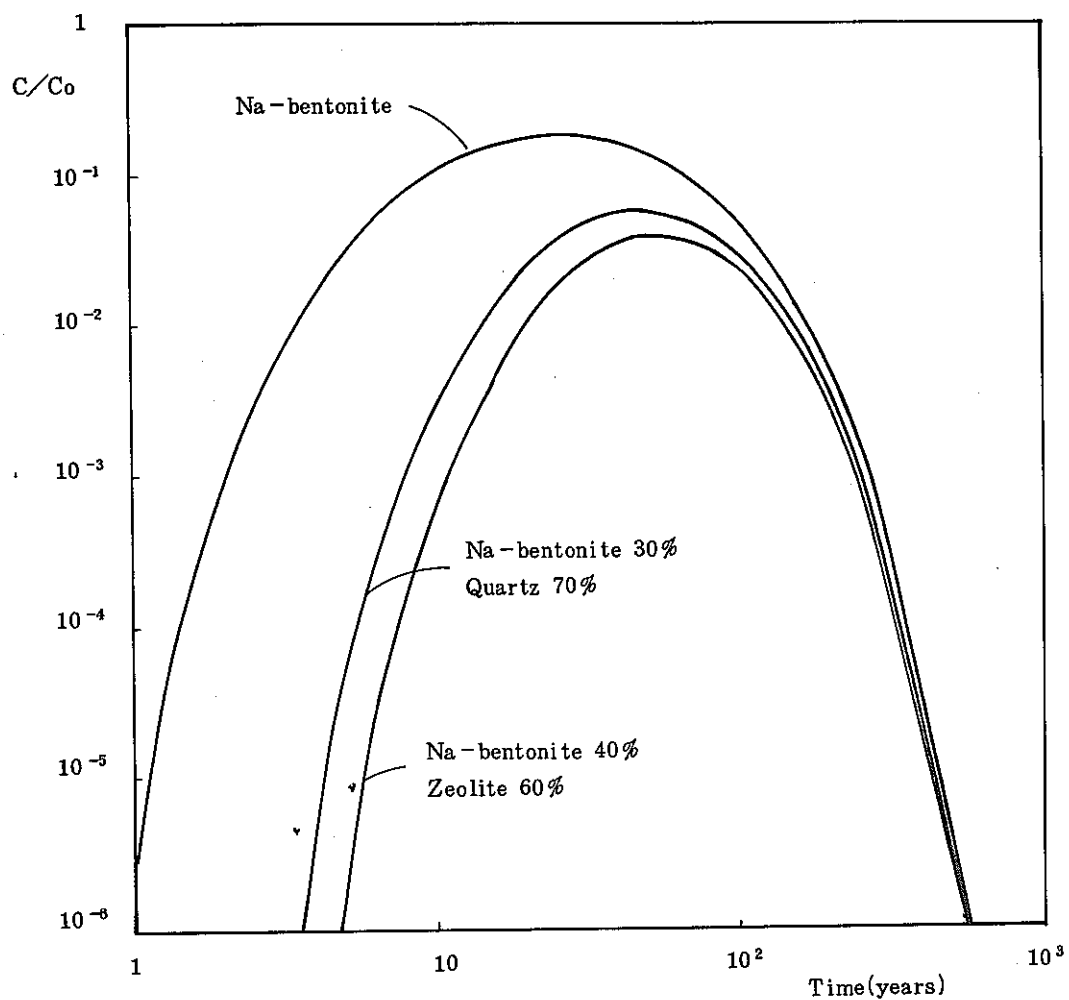


Fig. 6.2.2 Relative concentrations of Sr-90 at a distance of 0.2m from the canister

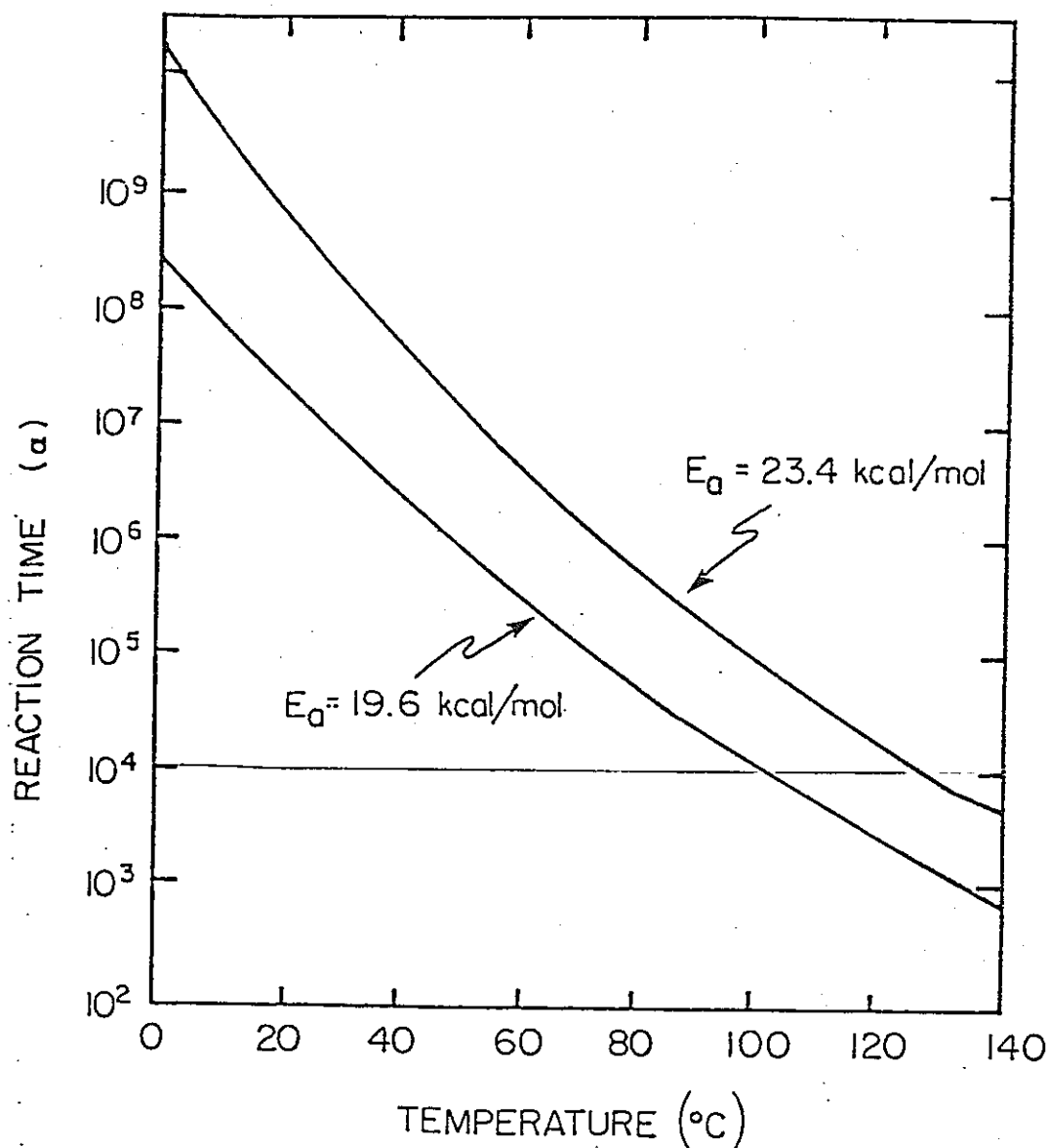


Fig 6.2.3 Time Required to Convert Smectite to Illite as a Function of Temperature. E_a is the activation energy for reaction in kilocalories per mole (1 kilocalorie = 4.187 kilojoules). Redrawn from Eberl and Hower (34).

Tc は通常アニオンの形態を取っており、岩石や粘土鉱物に対して Kd 値が小さく問題となる核種である。しかしながら昨年度も指摘したように Pusch⁽⁵⁾らは膨潤状態でのベントナイト中で I^- , Cl^- などアニオンの移行が極めて遅い事を報告している。この点に関して本年度の実験で追試することが出来なかったが、来年度は是非行いべきであると考えている。アニオンの移行は要件(I)に関連して、キャニスターの腐食とも関る問題であり、重要である。以上要するにベントナイトを緩衝材として使用する事を考える場合、地下水によって飽和される以前の乾燥状態と地下水によって飽和された後の状態に分けて考える必要がある。乾燥状態では固化体から放出される熱による温度上昇が問題となりうる。乾燥状態から飽和に到るに要する時間をより精度高く評価する必要がある。キャニスターが腐食によって1000年以内の早い時期に破損したとすると、要件(I)を達成する事は薄い緩衝材厚みでは困難であり、更に厚みを増すと温度上昇が

問題となり得る。1000年後の要件(Ⅲ)は、leach rate と併せて考えるべきであり、Tc や Np などアクチニドの一部が問題核種となる可能性がある。

6.3 今後の課題

これまでの議論をもとに、今後更に緩衝材の設計について検討を精密化するために必要な事項を列記すると以下のごとくである。一応候補材はベントナイト混合系に絞って考えた場合についての議論である。この中には、サイトとの関連が大きいデータ、またパイロットスケールの試験を行なってはじめて得られるデータなども含まれている。

(1) Sr, Cs 以外の核種の移行データ

例えばアクチニド, Tc アニオンなど。

(2) 地下水組成に関する情報

サイトとの関連。

(3) 変成に関する更に精度高いデータ

放射線効果などを含む。

(4) 乾燥状態での熱解析, 熱伝導データ

非定常状態, ギャップの伝熱など。

(5) 地下水の移行に関するデータ

特に過渡状態も含めて。

(6) キャニスター, 岩石, 他成分との Compatibility 問題

Reference

- (1) B.J.Wood,"Backfill Performance Requirements-Estimation from Transport Models",Nucl.Tech.,59,390(1982)
- (2) G.W.Bird,"Hydrothermal Stability of Potential Clay-Based Buffer Materials",AECL TR-199(1982)
- (3) D.Eberl,J.Hower,"Kinetics of Illite Formation",Bull.Geol. Soc.Amer.,87,1326(1976)
- (4) H.E.Roberson,R.W.Lahann,"Smectite Illite Conversion Rate: Effects of Solution Chemistry",Clays and Clay Minerals,29, 129(1981)
- (5) T.Eriksen,A.Jacobsson,R.Pusch,"Swedish Nuclear Fuel Safety Project Report",KBS 81-06(1981)

§ 7. 総 括

我国の自然条件に最も適合する高レベル廃棄物地層処分システムにおける工学的障壁を開発する一環として、財工業開発研究所は緩衝材の候補材料を選定し、その具備すべき機能の代表的なものについて特性を確認する試験を行なってきた。調査と試験結果を概観すると、膨潤性、止水性、或いはイオン収着性を、米国の工学的障壁に係わる技術基準10CFR60に示されている程の長期間に亘って維持することの困難さが本報告書では示された。これは粘土鉱物であるスメクタイトの熱的変質が大きな要因となっている。化学緩衝性、核種収着性、膨潤性及び止水性等の機能を向上するには、緩衝材の厚さを増加したい。しかしながら、ホストロックよりも熱伝導度の低下する緩衝材層を厚くすると、固化体から発熱する熱量の放散が妨げられて緩衝材の熱変成速度が増加するため、初期機能の維持が困難となる。更に、工学的障壁自体の機械的強度の低下や容積の増大なども附随して懸念される。4章と5章ではこの熱的不安定さに絞って検討を行なったが、貯蔵期間を50年と長くすることが一応の打開策であると結論された。

透水性の試験は昨年度から継続して実施しており、粘土鉱物と沸石や石英の混合物についてデータが揃ってきた。ベントナイト30%、石英70%混合物の透水係数は 3×10^{-12} m/sであり、飽和後地下水が20 cmの距離を移動するのに数1000年を要する。したがって、この中での核種の移行過程は拡散だけで議論することが可能である。

0.5 mmと2 mmの模擬クラックを介在した止水性と膨潤性の試験は、緩衝材の評価或いは開発に極めて好都合な結果を与えた。透水係数Kは表3.1.6に示されるように、0.5 mmと2 mmのクラックの場合にそれぞれクラックの無い場合の3倍と4倍にしかならず、止水性はさほど低下しないことが確認された。密度 1.37 g/cm^3 でクラックの存在しない試験片の呈する膨潤圧は 28 Kg/cm^2 であり、他方同密度でクラック幅2 mmのそれが 23 Kg/cm^2 と概ね同様の値であることも明るい材料である。

核種移行性に関して超ウラン元素やアニオンに対する検討がなされていないので、化学緩衝性やHazard Indexについて詳しく議論のできない段階である。Cs-137に対してはゼオライト添加が有効であり、40%添加で放出濃度を200年後最大でも 2×10^{-5} まで低下できることが確認された。他方Sr-90に対しては、60%添加でも50年後に最大 4×10^{-2} の放出が起り、より優れた収着剤、例えば Na_2TiO_3 、 $\text{BaSO}_4 \cdot \text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 等の検討が必要と考えられる。また熱伝導性改善を目的として添加した石英は、必ずしも核種収着性を阻害するものではないことが示された。この効果は界面電気化学的な作用と考えられる。今後核種移行性の検討は多成分混合系について、しかもアニオンや超ウラン元素について実施される研究を通じて綿密に行なわれなければならない。

最後に本研究を通じて痛感した点を以下に述べる。緩衝材の機能を明確にして最適設計を行なうには、多重障壁を骨子とする工学的障壁の概念とそれに対する要請を、それぞれ独立して議論

するだけでなく，“相互に”十分な検討を展開することが肝要である。米国の10CFR60に匹敵する我国に適合した技術規準を一刻も早く策定することも併せて急務であると考えられる。

付 録

Appendix I

定常熱伝導モデルによる緩衝材の熱史

貯蔵期間	30年	緩衝材厚さ	30cm		155
"	"	"	20cm		189
"	50年	"	30cm		224
"	"	"	20cm		257

Thermal History Simulation for Backfill Material

Basic parameters incorporated are as follows:

Thermal conductivity for waste glass = 0.938 Kcal/mhdeg	Ref. 1)
for canister metal = 21.08 Kcal/mhdeg	1)
for backfill material = 0.43-1.29 Kcal/mhdeg	2)
for granitic host rock = 2.8 Kcal/mhdeg	3)

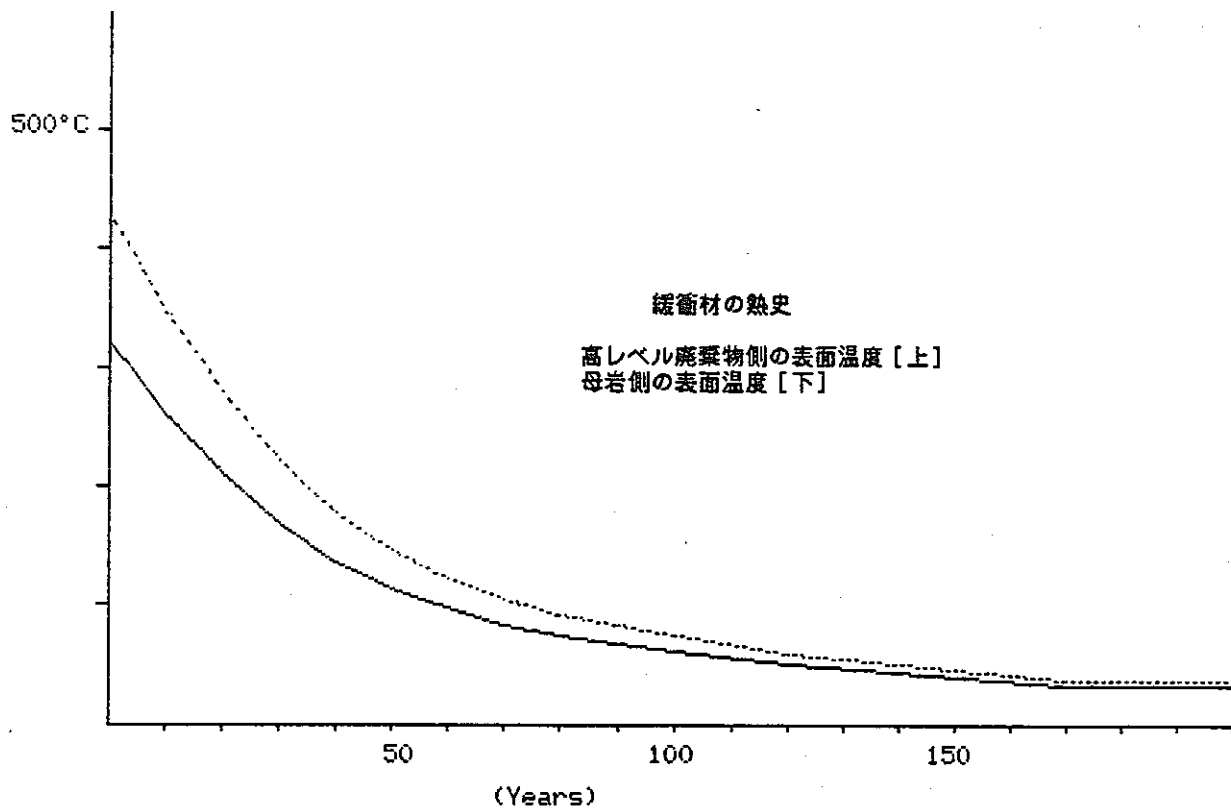
1)リカネビ[®]ヨウ(1983), 2)Exploration Geophysics(1950),
3)Handbook of Physical Constants(1966)

Thickness of backfill = 0.3m

貯蔵30年の場合

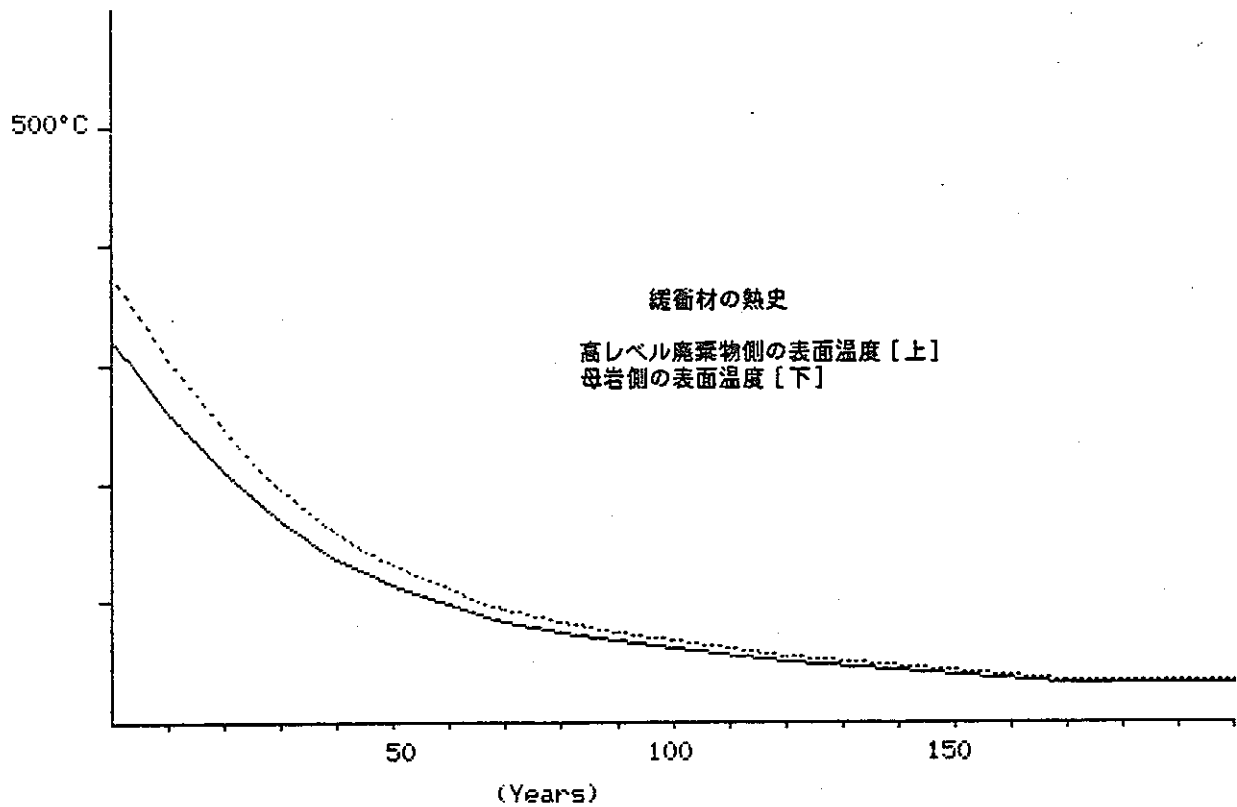
Assumption = 25°C at 5 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	450.3	428.9	428.8	320.8
5	0.43	406.9	387.7	387.6	290.6
10	0.43	363.5	346.5	346.4	260.4
15	0.43	328.8	313.5	313.4	236.3
20	0.43	294.1	280.5	280.5	212.1
25	0.43	259.4	247.6	247.5	188.0
30	0.43	233.3	222.8	222.8	169.9
35	0.43	207.3	198.1	198.1	151.8
40	0.43	185.6	177.5	177.5	136.7
45	0.43	168.2	161.0	161.0	124.6
50	0.43	153.5	147.0	147.0	114.3
55	0.43	140.4	134.6	134.6	105.3
60	0.43	129.2	123.9	123.9	97.4
65	0.43	117.9	113.2	113.2	89.6
70	0.43	110.1	105.8	105.8	84.2
80	0.43	94.4	90.9	90.9	73.3
90	0.43	85.8	82.7	82.7	67.3
100	0.43	77.1	74.5	74.4	61.2
120	0.43	59.7	58.0	58.0	49.1
170	0.43	37.2	36.5	36.5	33.5
470	0.43	26.7	26.6	26.6	26.2



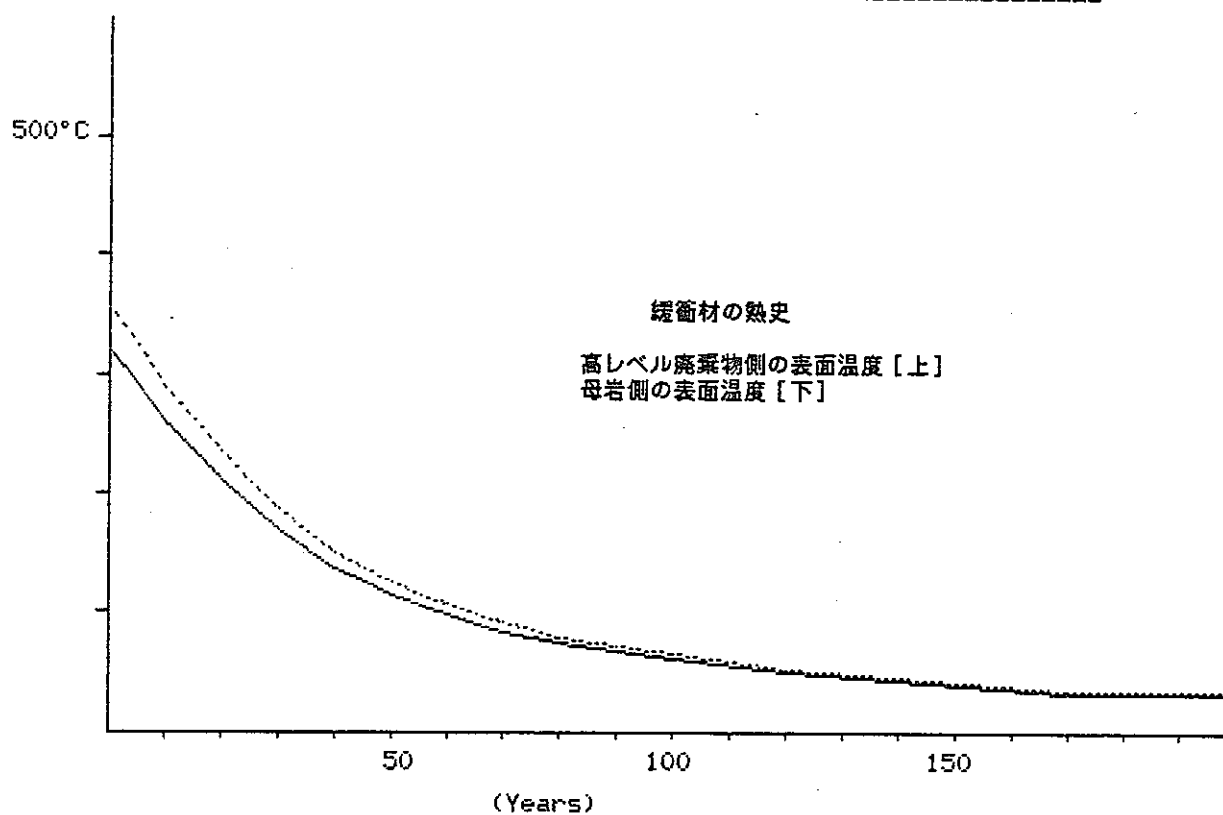
Assumption = 25°C at 5 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	396.3	374.9	374.8	320.8
5	0.86	358.4	339.2	339.1	290.6
10	0.86	320.5	303.5	303.4	260.4
15	0.86	290.2	274.9	274.9	236.3
20	0.86	259.9	246.4	246.3	212.1
25	0.86	229.6	217.8	217.7	188.0
30	0.86	206.9	196.4	196.3	169.9
35	0.86	184.1	175.0	174.9	151.8
40	0.86	165.2	157.1	157.1	136.7
45	0.86	150.0	142.8	142.8	124.6
50	0.86	137.2	130.7	130.7	114.3
55	0.86	125.8	120.0	119.9	105.3
60	0.86	115.9	110.7	110.7	97.4
65	0.86	106.1	101.4	101.4	89.6
70	0.86	99.3	95.0	95.0	84.2
80	0.86	85.6	82.1	82.1	73.3
90	0.86	78.0	75.0	75.0	67.3
100	0.86	70.5	67.8	67.8	61.2
120	0.86	55.3	53.6	53.6	49.1
170	0.86	35.6	35.0	35.0	33.5
470	0.86	26.5	26.4	26.4	26.2



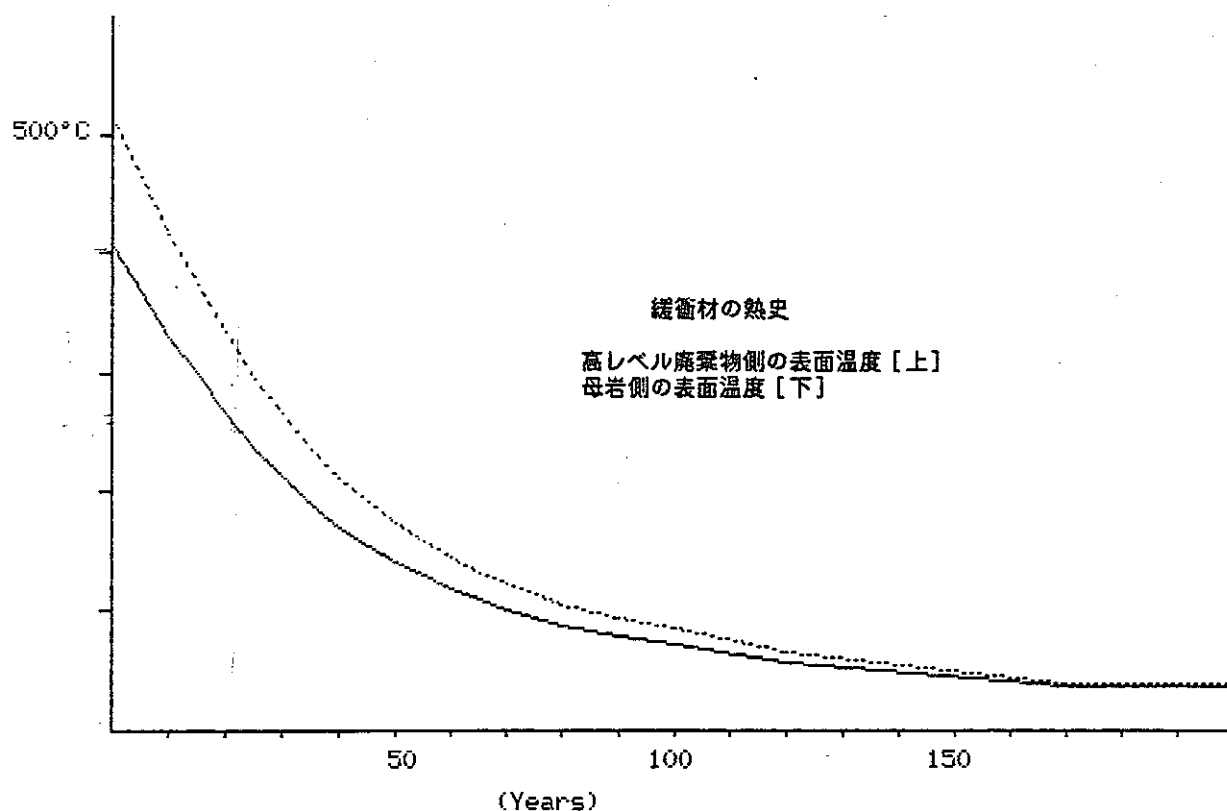
Assumption = 25°C at 5 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	378.3	356.9	356.8	320.8
5	1.29	342.3	323.0	322.9	290.6
10	1.29	306.2	289.2	289.1	260.4
15	1.29	277.4	262.1	262.0	236.3
20	1.29	248.5	235.0	234.9	212.1
25	1.29	219.7	207.9	207.8	188.0
30	1.29	198.1	187.6	187.5	169.9
35	1.29	176.4	167.2	167.2	151.8
40	1.29	158.4	150.3	150.3	136.7
45	1.29	144.0	136.8	136.7	124.6
50	1.29	131.7	125.2	125.2	114.3
55	1.29	120.9	115.1	115.1	105.3
60	1.29	111.5	106.3	106.3	97.4
65	1.29	102.2	97.5	97.5	89.6
70	1.29	95.7	91.4	91.4	84.2
80	1.29	82.7	79.2	79.2	73.3
90	1.29	75.5	72.4	72.4	67.3
100	1.29	68.3	65.6	65.6	61.2
120	1.29	53.8	52.1	52.1	49.1
170	1.29	35.1	34.5	34.5	33.5
470	1.29	26.4	26.4	26.4	26.2



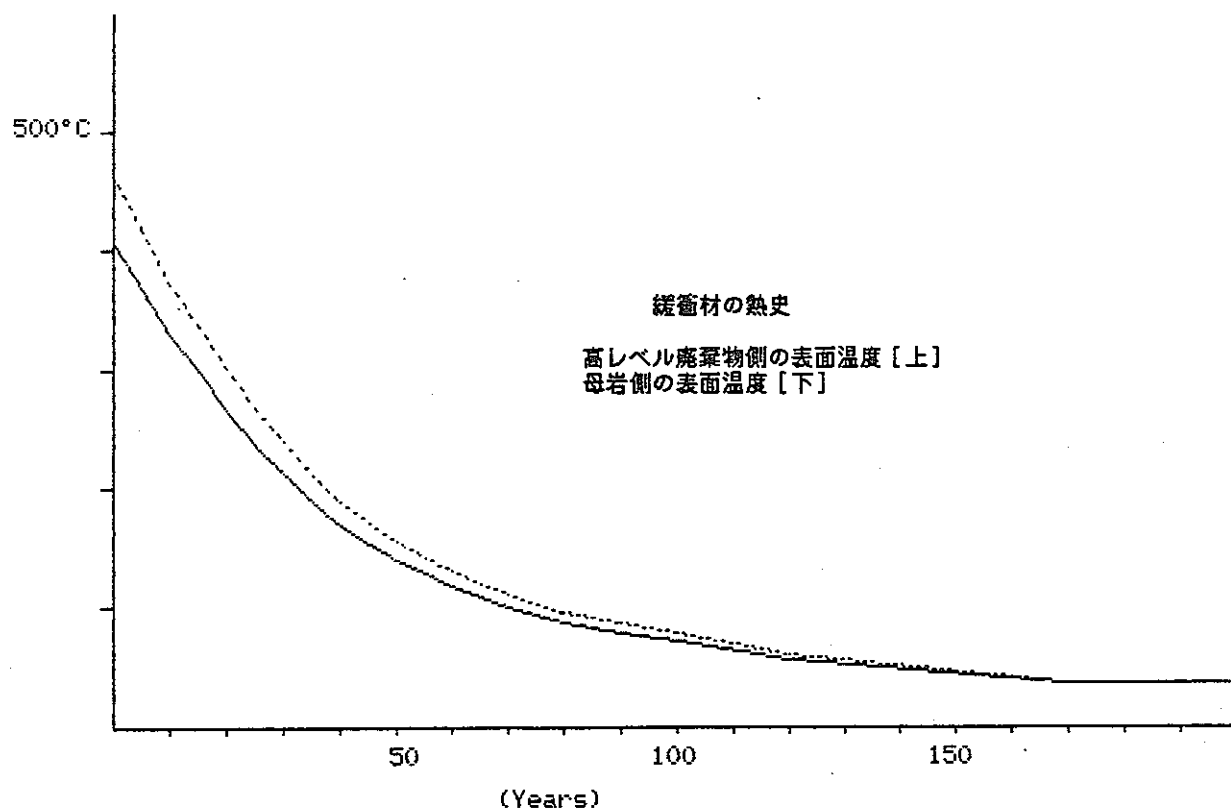
Assumption = 25°C at 10 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	537.0	515.6	515.5	407.4
5	0.43	484.7	465.5	465.4	368.4
10	0.43	432.5	415.5	415.4	329.4
15	0.43	390.7	375.4	375.3	298.2
20	0.43	348.9	335.4	335.3	267.0
25	0.43	307.1	295.3	295.2	235.7
30	0.43	275.8	265.3	265.2	212.3
35	0.43	244.4	235.2	235.2	188.9
40	0.43	218.3	210.2	210.2	169.4
45	0.43	197.4	190.2	190.2	153.8
50	0.43	179.6	173.2	173.1	140.5
55	0.43	164.0	158.2	158.1	128.8
60	0.43	150.4	145.1	145.1	118.7
65	0.43	136.8	132.1	132.1	108.5
70	0.43	127.4	123.1	123.1	101.5
80	0.43	108.6	105.1	105.1	87.4
90	0.43	98.1	95.1	95.1	79.6
100	0.43	87.7	85.1	85.1	71.8
120	0.43	66.8	65.0	65.0	56.2
170	0.43	39.6	39.0	39.0	35.9
470	0.43	27.1	27.0	27.0	26.6



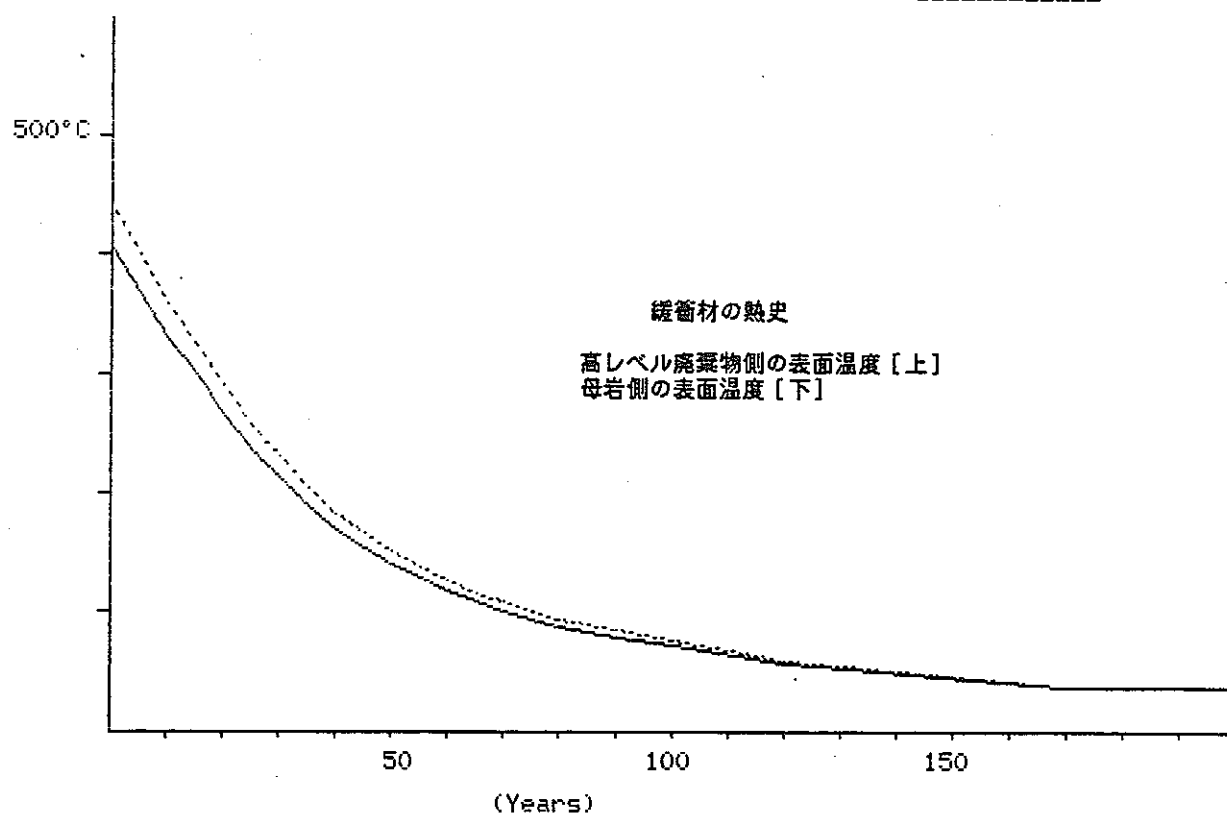
Assumption = 25°C at 10 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	483.0	461.6	461.4	407.4
5	0.86	436.3	417.0	416.9	368.4
10	0.86	389.5	372.5	372.4	329.4
15	0.86	352.1	336.8	336.7	298.2
20	0.86	314.7	301.2	301.1	267.0
25	0.86	277.4	265.6	265.5	235.7
30	0.86	249.3	238.8	238.8	212.3
35	0.86	221.3	212.1	212.0	188.9
40	0.86	197.9	189.8	189.8	169.4
45	0.86	179.2	172.0	172.0	153.8
50	0.86	163.3	156.9	156.8	140.5
55	0.86	149.3	143.5	143.5	128.8
60	0.86	137.2	131.9	131.9	118.7
65	0.86	125.0	120.3	120.3	108.5
70	0.86	116.6	112.3	112.3	101.5
80	0.86	99.8	96.3	96.3	87.4
90	0.86	90.4	87.4	87.3	79.6
100	0.86	81.1	78.5	78.4	71.8
120	0.86	62.4	60.6	60.6	56.2
170	0.86	38.1	37.5	37.5	35.9
470	0.86	26.9	26.8	26.8	26.6



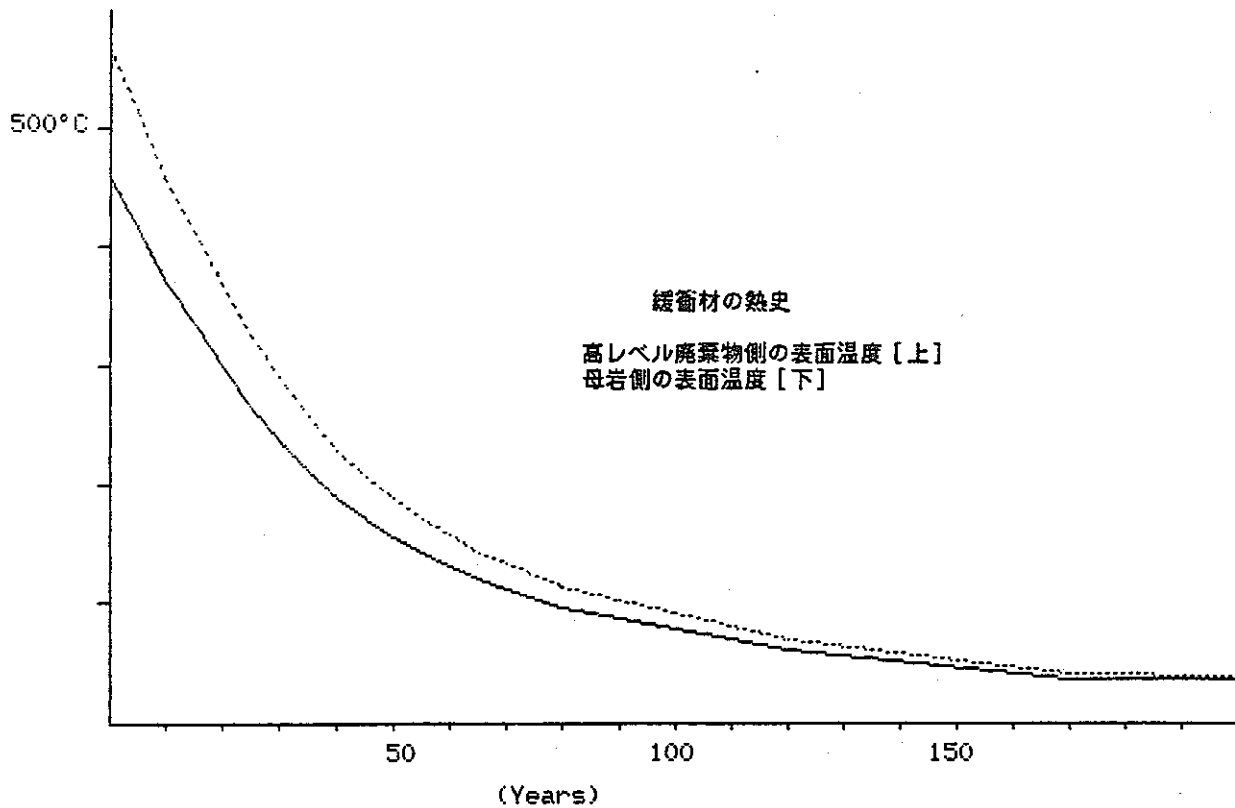
Assumption = 25°C at 10 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	465.0	443.6	443.4	407.4
5	1.29	420.1	400.9	400.7	368.4
10	1.29	375.2	358.1	358.0	329.4
15	1.29	339.3	324.0	323.9	298.2
20	1.29	303.4	289.8	289.7	267.0
25	1.29	267.4	255.6	255.6	235.7
30	1.29	240.5	230.0	230.0	212.3
35	1.29	213.6	204.4	204.3	188.9
40	1.29	191.1	183.0	183.0	169.4
45	1.29	173.2	165.9	165.9	153.8
50	1.29	157.9	151.4	151.4	140.5
55	1.29	144.4	138.6	138.6	128.8
60	1.29	132.8	127.5	127.5	118.7
65	1.29	121.1	116.4	116.4	108.5
70	1.29	113.0	108.7	108.7	101.5
80	1.29	96.8	93.3	93.3	87.4
90	1.29	87.9	84.8	84.8	79.6
100	1.29	78.9	76.3	76.2	71.8
120	1.29	60.9	59.2	59.2	56.2
170	1.29	37.6	37.0	37.0	35.9
470	1.29	26.8	26.7	26.7	26.6



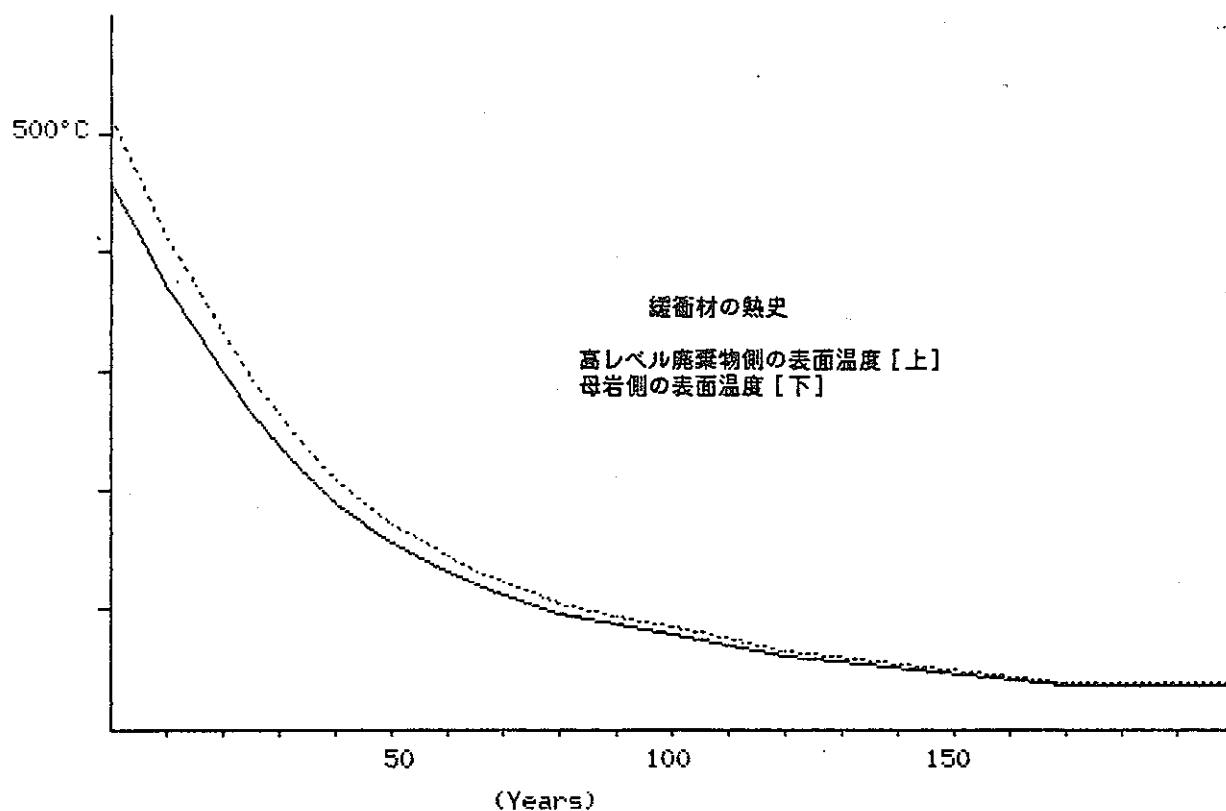
Assumption = 25°C at 15 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	587.7	566.3	566.1	458.1
5	0.43	530.3	511.0	510.9	413.9
10	0.43	472.8	455.8	455.7	369.7
15	0.43	426.9	411.6	411.5	334.4
20	0.43	381.0	367.4	367.4	299.0
25	0.43	335.0	323.2	323.2	263.7
30	0.43	300.6	290.1	290.0	237.1
35	0.43	266.1	257.0	256.9	210.6
40	0.43	237.4	229.4	229.3	188.5
45	0.43	214.5	207.3	207.2	170.8
50	0.43	195.0	188.5	188.4	155.8
55	0.43	177.7	171.9	171.9	142.6
60	0.43	162.8	157.6	157.5	131.1
65	0.43	147.9	143.2	143.2	119.6
70	0.43	137.5	133.3	133.2	111.6
80	0.43	116.9	113.4	113.3	95.7
90	0.43	105.4	102.3	102.3	86.9
100	0.43	93.9	91.3	91.3	78.0
120	0.43	70.9	69.2	69.2	60.4
170	0.43	41.1	40.5	40.5	37.4
470	0.43	27.3	27.2	27.2	26.8



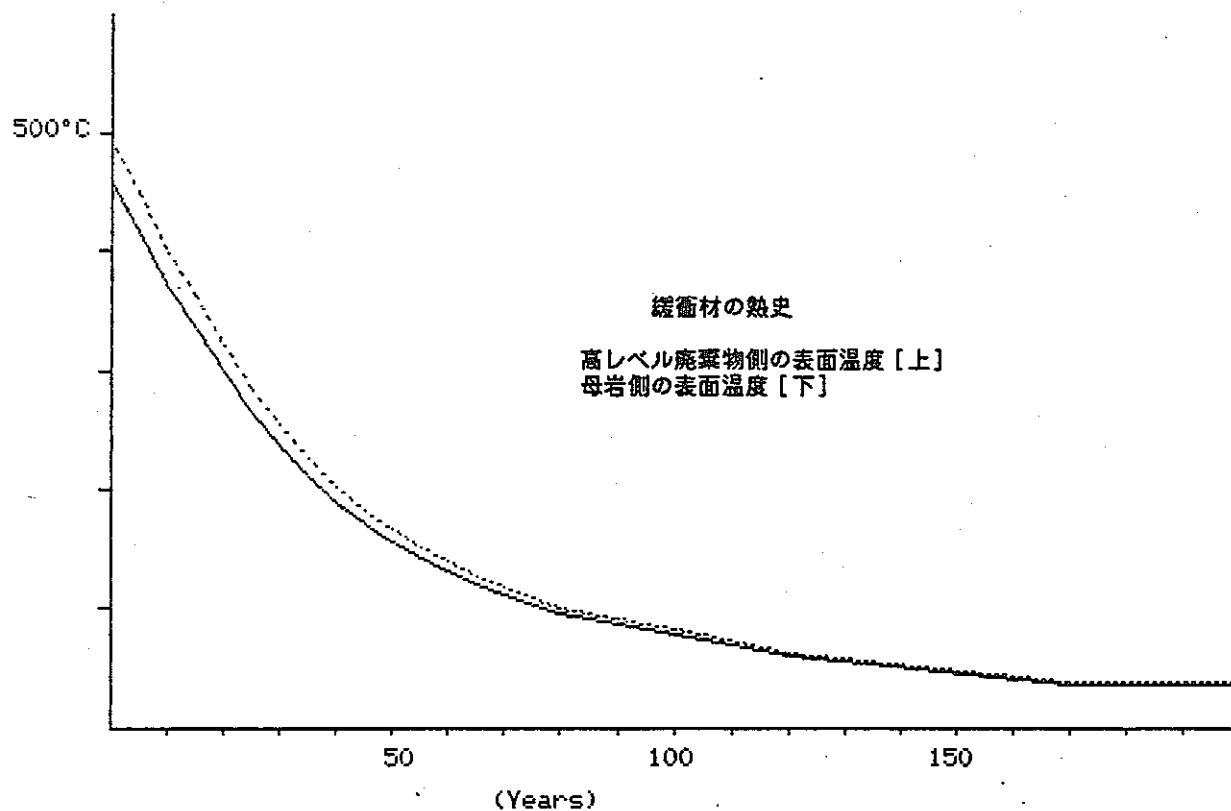
Assumption = 25°C at 15 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	533.7	512.3	512.1	458.1
5	0.86	481.8	462.5	462.4	413.9
10	0.86	429.9	412.8	412.7	369.7
15	0.86	388.3	373.0	373.0	334.4
20	0.86	346.8	333.3	333.2	299.0
25	0.86	305.3	293.5	293.4	263.7
30	0.86	274.1	263.7	263.6	237.1
35	0.86	243.0	233.8	233.8	210.6
40	0.86	217.1	209.0	208.9	188.5
45	0.86	196.3	189.1	189.0	170.8
50	0.86	178.6	172.2	172.1	155.8
55	0.86	163.1	157.3	157.2	142.6
60	0.86	149.6	144.3	144.3	131.1
65	0.86	136.1	131.4	131.4	119.6
70	0.86	126.7	122.5	122.4	111.6
80	0.86	108.0	104.6	104.5	95.7
90	0.86	97.7	94.6	94.6	86.9
100	0.86	87.3	84.7	84.6	78.0
120	0.86	66.5	64.8	64.8	60.4
170	0.86	39.5	38.9	38.9	37.4
470	0.86	27.1	27.0	27.0	26.8



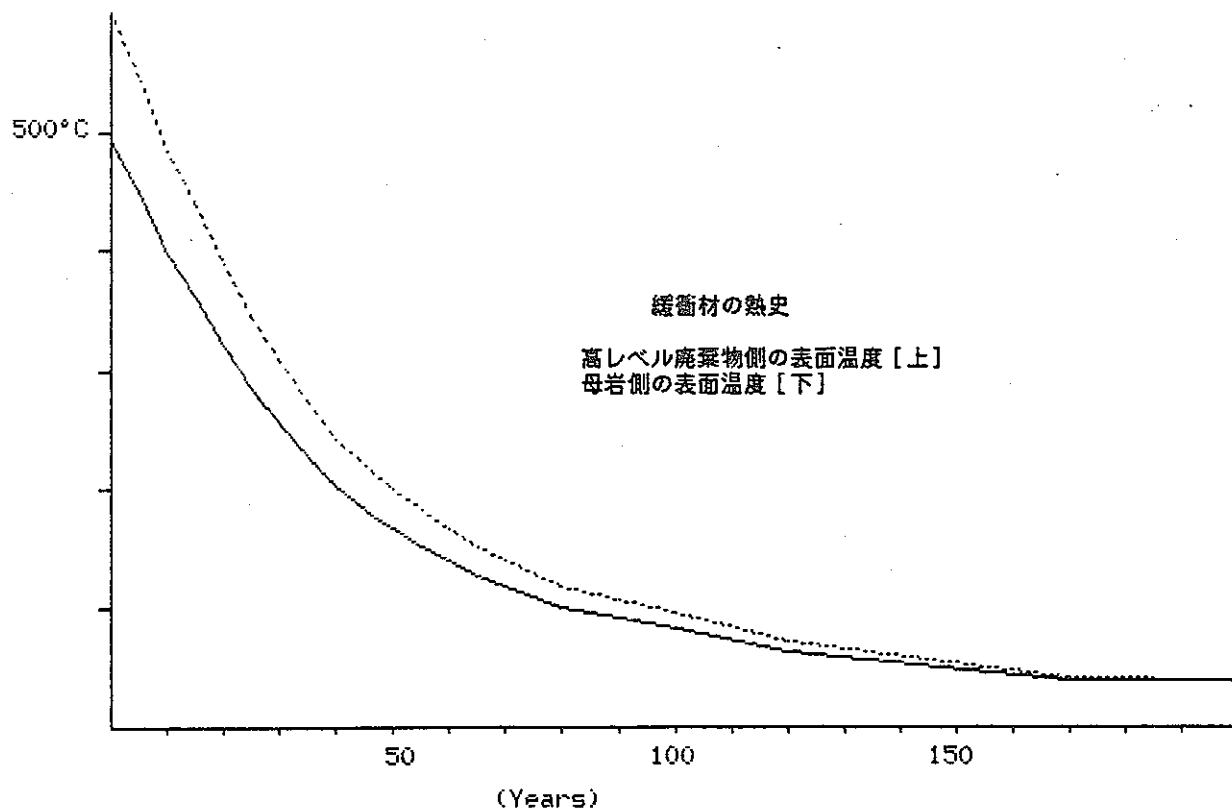
Assumption = 25°C at 15 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	515.7	494.3	494.1	458.1
5	1.29	465.6	446.4	446.3	413.9
10	1.29	415.5	398.5	398.4	369.7
15	1.29	375.5	360.2	360.1	334.4
20	1.29	335.4	321.9	321.8	299.0
25	1.29	295.4	283.6	283.5	263.7
30	1.29	265.3	254.8	254.8	237.1
35	1.29	235.3	226.1	226.1	210.6
40	1.29	210.3	202.2	202.1	188.5
45	1.29	190.2	183.0	183.0	170.8
50	1.29	173.2	166.7	166.7	155.8
55	1.29	158.2	152.4	152.3	142.6
60	1.29	145.2	139.9	139.9	131.1
65	1.29	132.1	127.5	127.4	119.6
70	1.29	123.1	118.9	118.8	111.6
80	1.29	105.1	101.6	101.6	95.7
90	1.29	95.1	92.0	92.0	86.9
100	1.29	85.1	82.5	82.4	78.0
120	1.29	65.1	63.3	63.3	60.4
170	1.29	39.0	38.4	38.4	37.4
470	1.29	27.0	26.9	26.9	26.8



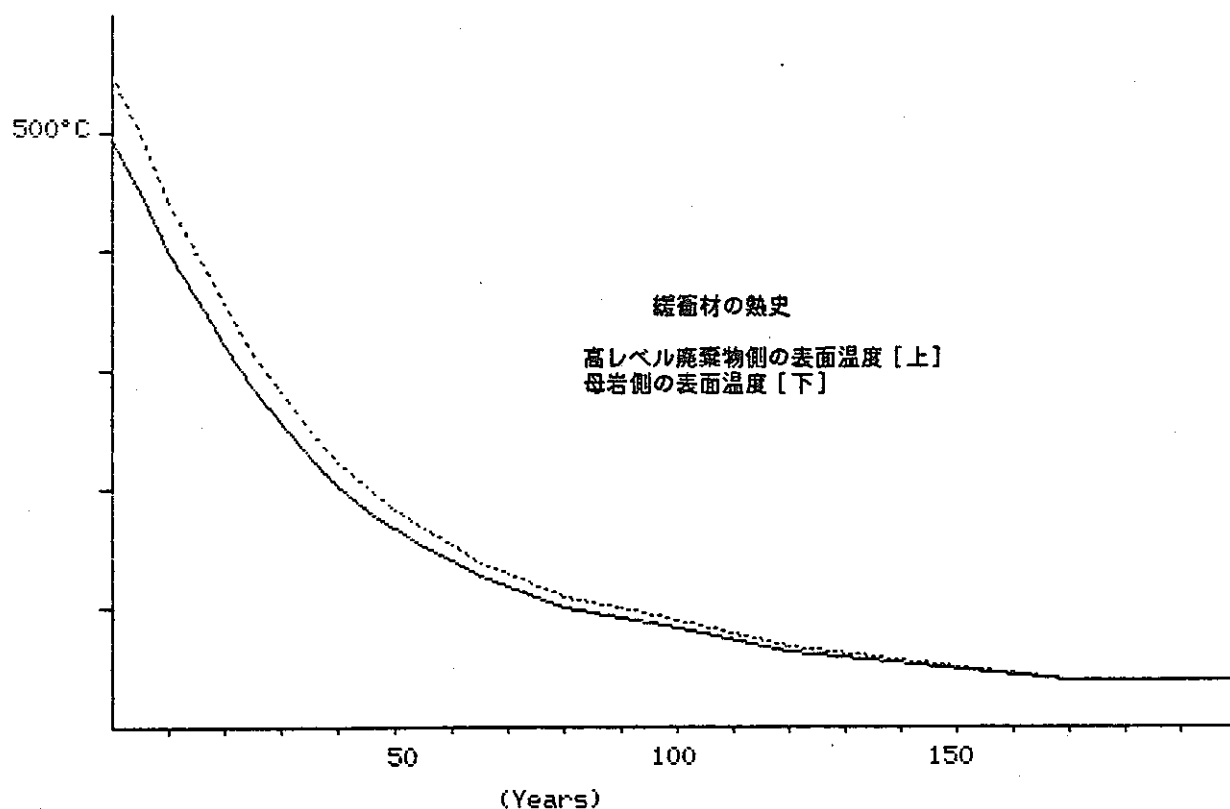
Assumption = 25°C at 20 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	623.6	602.2	602.1	494.1
5	0.43	562.6	543.3	543.2	446.2
10	0.43	501.5	484.4	484.3	398.4
15	0.43	452.6	437.3	437.2	360.1
20	0.43	403.7	390.2	390.1	321.8
25	0.43	354.9	343.1	343.0	283.5
30	0.43	318.2	307.7	307.7	254.8
35	0.43	281.6	272.4	272.3	226.0
40	0.43	251.0	242.9	242.9	202.1
45	0.43	226.6	219.4	219.3	183.0
50	0.43	205.8	199.3	199.3	166.7
55	0.43	187.5	181.7	181.6	152.3
60	0.43	171.6	166.4	166.3	139.9
65	0.43	155.7	151.0	151.0	127.4
70	0.43	144.7	140.4	140.4	118.8
80	0.43	122.7	119.2	119.2	101.6
90	0.43	110.5	107.5	107.4	92.0
100	0.43	98.3	95.7	95.7	82.4
120	0.43	73.9	72.1	72.1	63.3
170	0.43	42.1	41.5	41.5	38.4
470	0.43	27.4	27.4	27.4	26.9



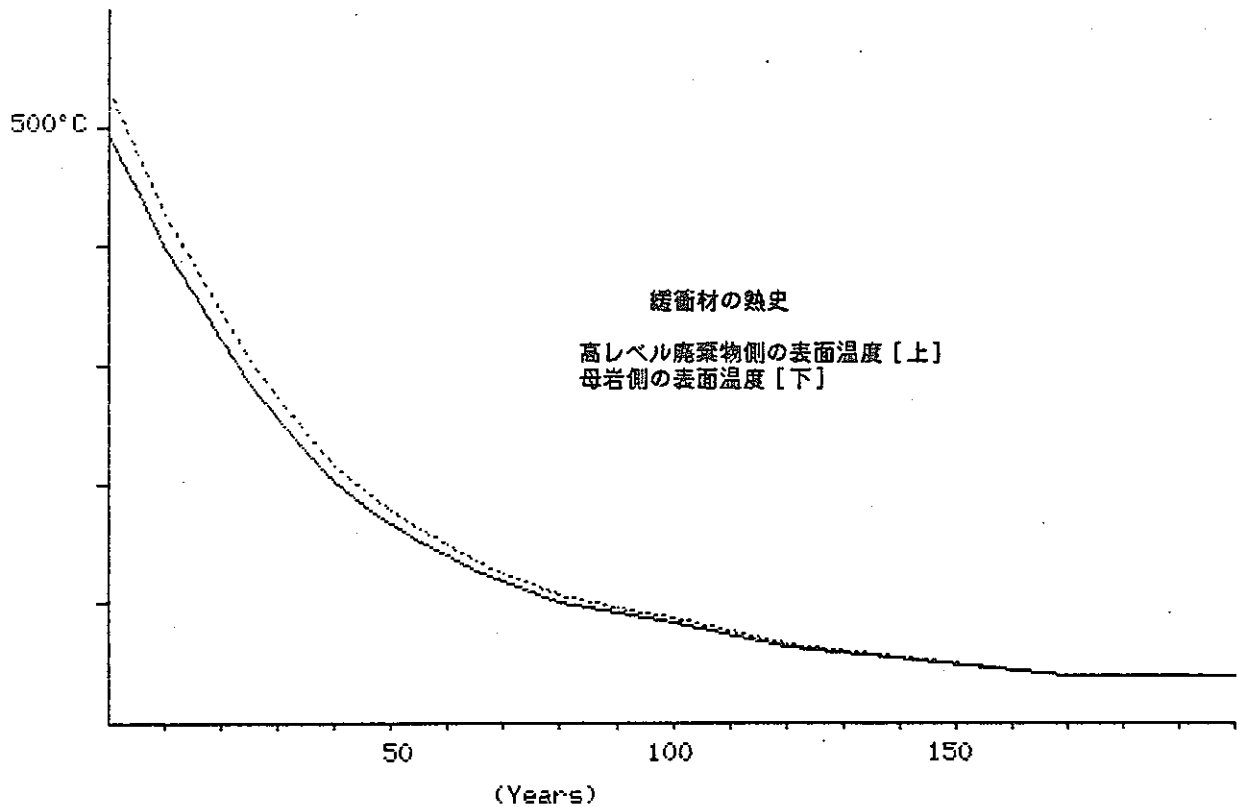
Assumption = 25°C at 20 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	569.6	548.2	548.1	494.1
5	0.86	514.1	494.8	494.7	446.2
10	0.86	458.5	441.4	441.3	398.4
15	0.86	414.0	398.7	398.6	360.1
20	0.86	369.6	356.0	355.9	321.8
25	0.86	325.1	313.3	313.2	283.5
30	0.86	291.8	281.3	281.2	254.8
35	0.86	258.4	249.2	249.2	226.0
40	0.86	230.6	222.5	222.5	202.1
45	0.86	208.4	201.2	201.1	183.0
50	0.86	189.5	183.0	183.0	166.7
55	0.86	172.8	167.0	167.0	152.3
60	0.86	158.4	153.1	153.1	139.9
65	0.86	143.9	139.3	139.2	127.4
70	0.86	133.9	129.6	129.6	118.8
80	0.86	113.9	110.4	110.4	101.6
90	0.86	102.8	99.7	99.7	92.0
100	0.86	91.7	89.1	89.1	82.4
120	0.86	69.5	67.7	67.7	63.3
170	0.86	40.6	39.9	39.9	38.4
470	0.86	27.2	27.1	27.1	26.9



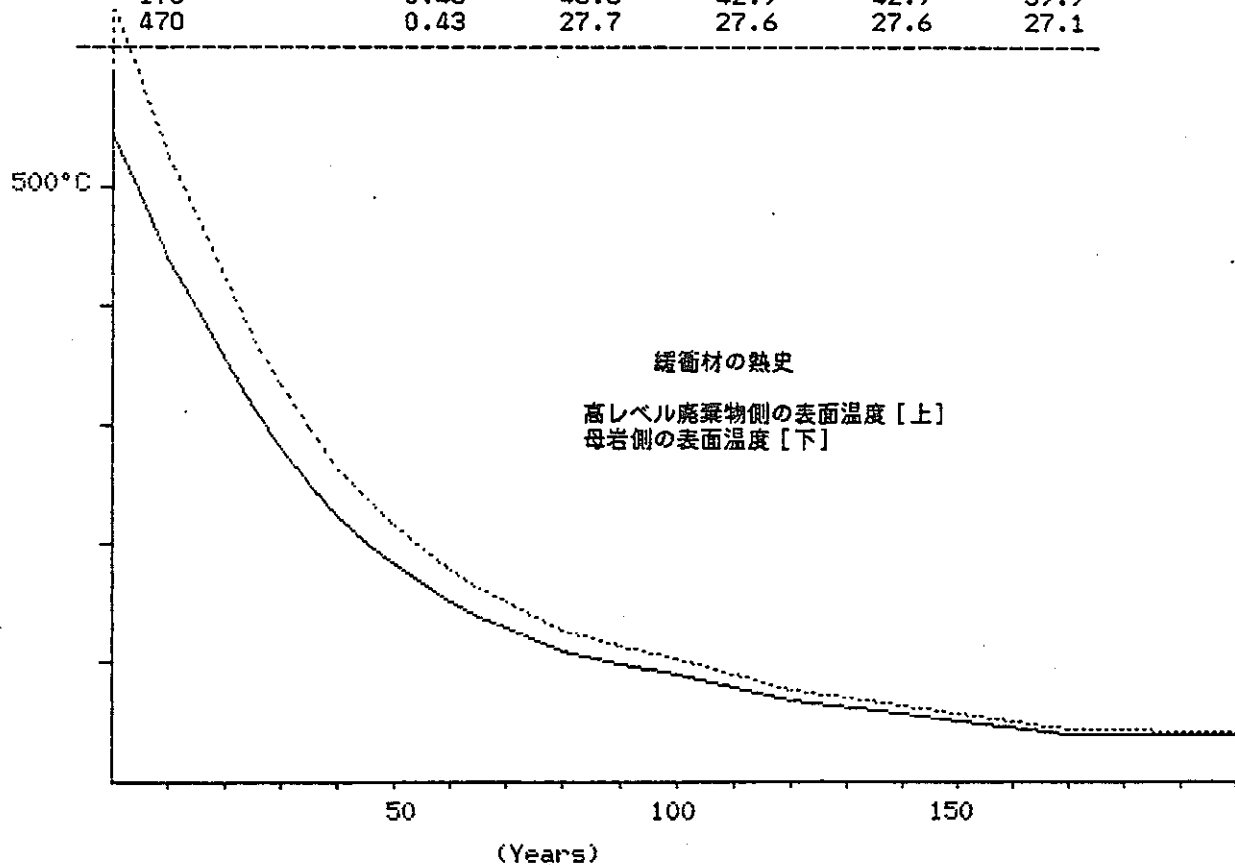
Assumption = 25°C at 20 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	551.6	530.2	530.1	494.1
5	1.29	497.9	478.7	478.6	446.2
10	1.29	444.2	427.1	427.0	398.4
15	1.29	401.2	385.9	385.8	360.1
20	1.29	358.2	344.6	344.6	321.8
25	1.29	315.2	303.4	303.3	283.5
30	1.29	282.9	272.5	272.4	254.8
35	1.29	250.7	241.5	241.5	226.0
40	1.29	223.8	215.7	215.7	202.1
45	1.29	202.3	195.1	195.1	183.0
50	1.29	184.1	177.6	177.6	166.7
55	1.29	167.9	162.1	162.1	152.3
60	1.29	154.0	148.7	148.7	139.9
65	1.29	140.0	135.3	135.3	127.4
70	1.29	130.3	126.0	126.0	118.8
80	1.29	111.0	107.5	107.5	101.6
90	1.29	100.2	97.2	97.2	92.0
100	1.29	89.5	86.9	86.8	82.4
120	1.29	68.0	66.2	66.2	63.3
170	1.29	40.0	39.4	39.4	38.4
470	1.29	27.1	27.1	27.1	26.9



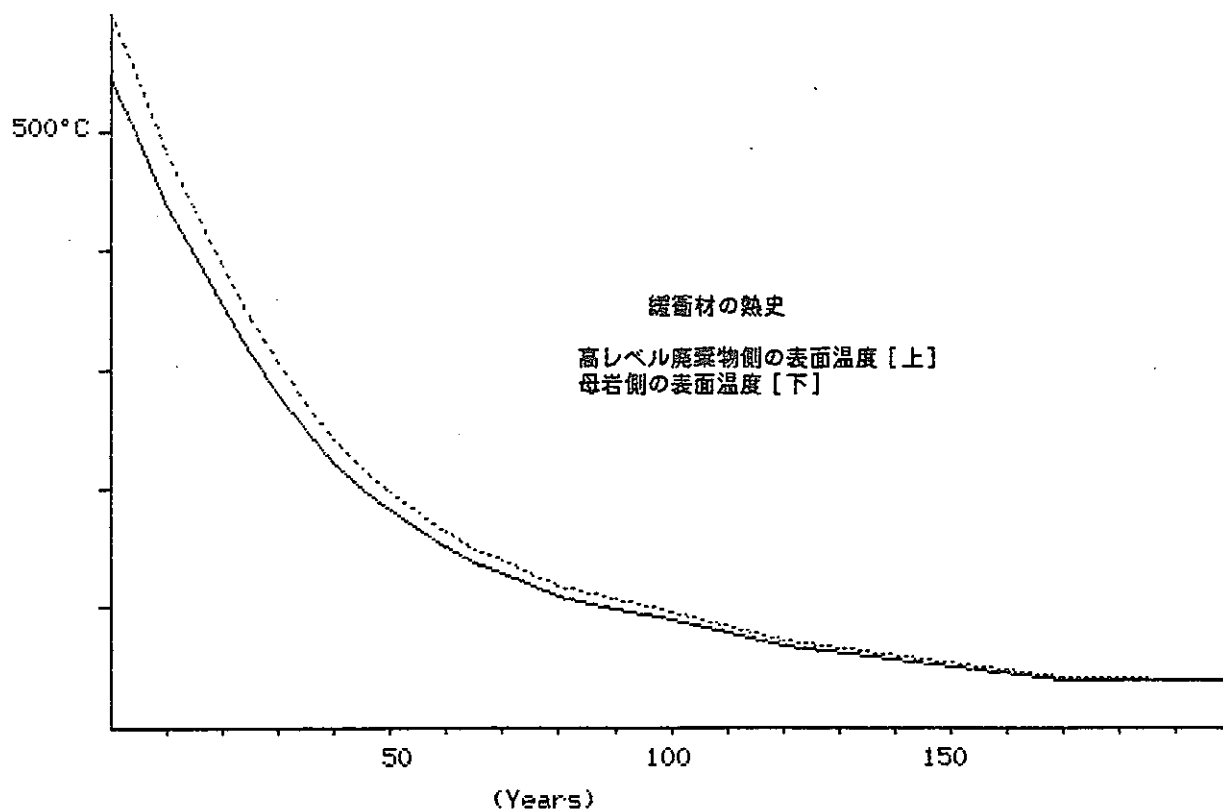
Assumption = 25°C at 30 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	674.3	652.9	652.8	544.8
5	0.43	608.1	588.8	588.7	491.7
10	0.43	541.8	524.8	524.7	438.7
15	0.43	488.8	473.5	473.4	396.3
20	0.43	435.8	422.3	422.2	353.8
25	0.43	382.8	371.0	370.9	311.4
30	0.43	343.0	332.6	332.5	279.6
35	0.43	303.3	294.1	294.1	247.8
40	0.43	270.2	262.1	262.0	221.2
45	0.43	243.7	236.4	236.4	200.0
50	0.43	221.1	214.7	214.6	182.0
55	0.43	201.2	195.4	195.4	166.1
60	0.43	184.0	178.8	178.7	152.3
65	0.43	166.8	162.1	162.1	138.5
70	0.43	154.9	150.6	150.6	129.0
80	0.43	131.0	127.5	127.5	109.9
90	0.43	117.8	114.7	114.7	99.3
100	0.43	104.5	101.9	101.9	88.6
120	0.43	78.0	76.3	76.2	67.4
170	0.43	43.6	42.9	42.9	39.9
470	0.43	27.7	27.6	27.6	27.1



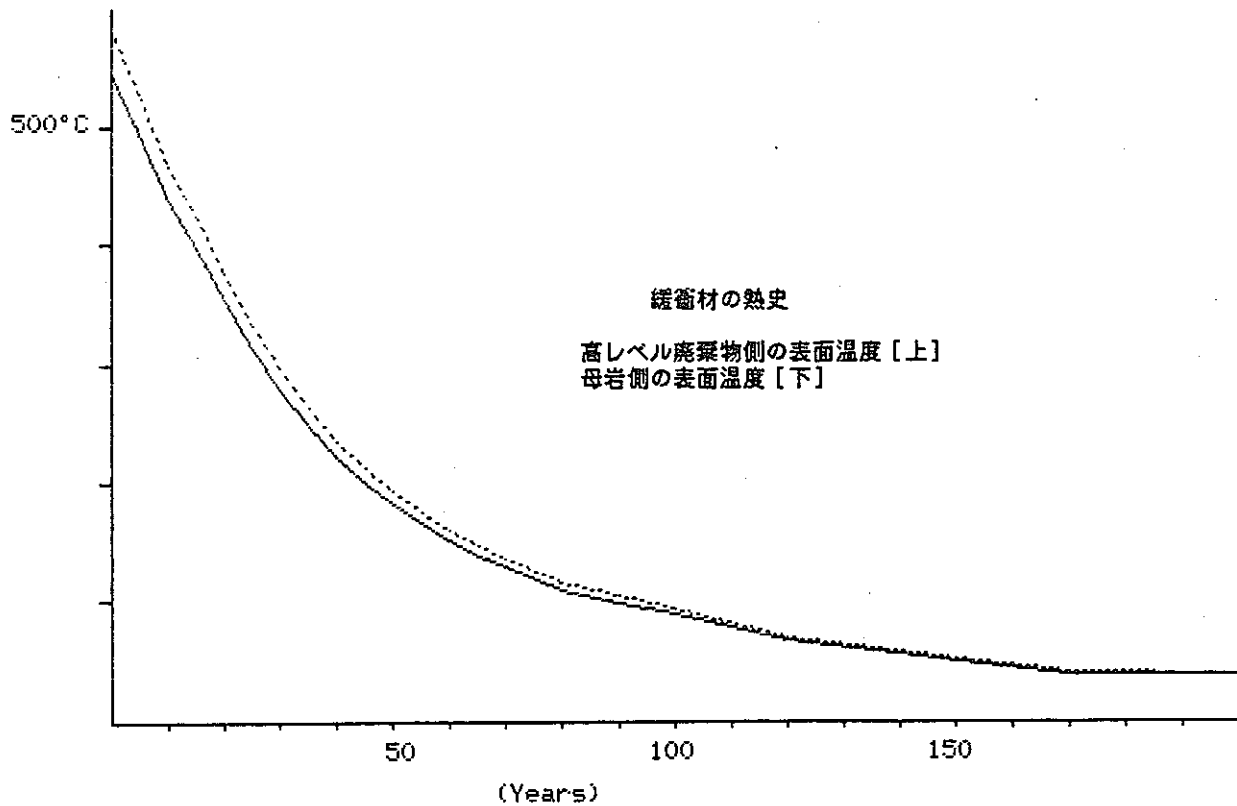
Assumption = 25°C at 30 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	620.3	598.9	598.8	544.8
5	0.86	559.6	540.3	540.2	491.7
10	0.86	498.8	481.8	481.7	438.7
15	0.86	450.2	434.9	434.9	396.3
20	0.86	401.6	388.1	388.0	353.8
25	0.86	353.0	341.2	341.2	311.4
30	0.86	316.6	306.1	306.0	279.6
35	0.86	280.1	271.0	270.9	247.8
40	0.86	249.8	241.7	241.6	221.2
45	0.86	225.5	218.3	218.2	200.0
50	0.86	204.8	198.3	198.3	182.0
55	0.86	186.6	180.8	180.7	166.1
60	0.86	170.8	165.5	165.5	152.3
65	0.86	155.0	150.3	150.3	138.5
70	0.86	144.1	139.8	139.8	129.0
80	0.86	122.2	118.7	118.7	109.9
90	0.86	110.0	107.0	107.0	99.3
100	0.86	97.9	95.3	95.3	88.6
120	0.86	73.6	71.8	71.8	67.4
170	0.86	42.0	41.4	41.4	39.9
470	0.86	27.4	27.3	27.3	27.1



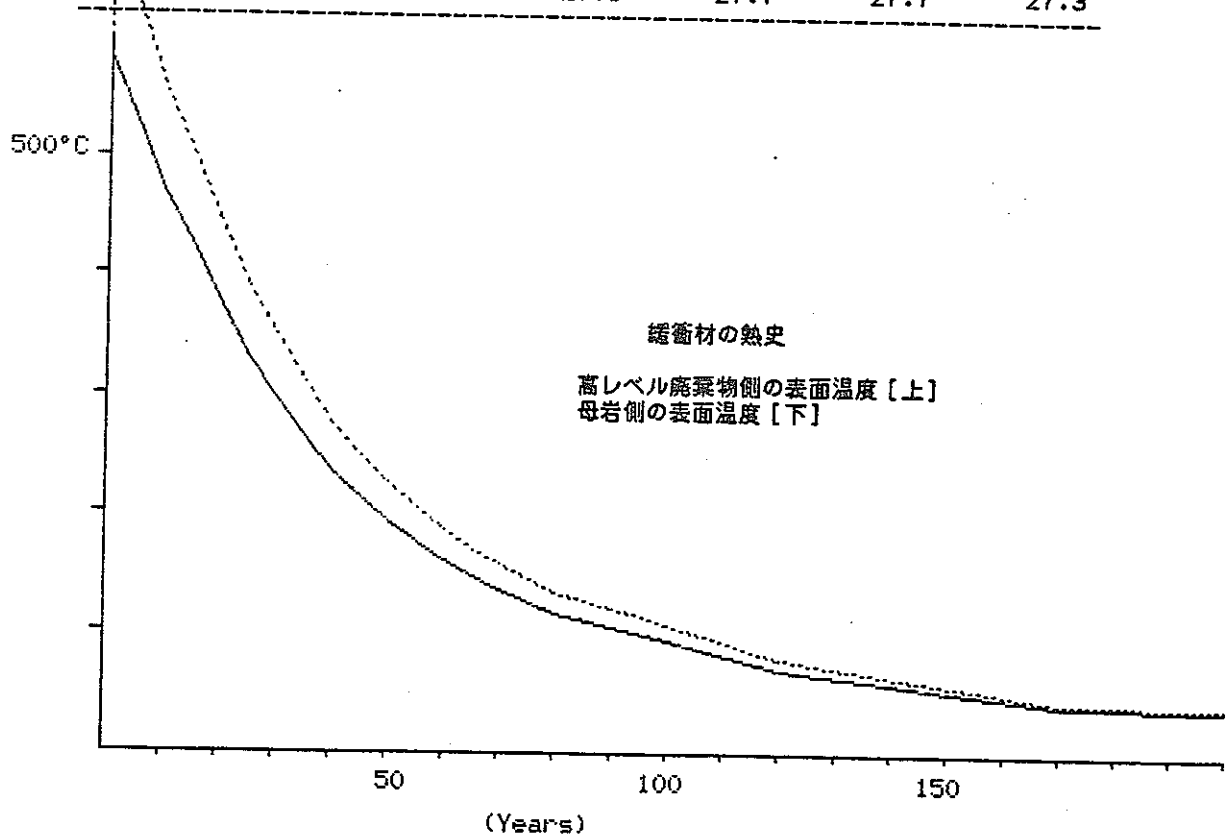
Assumption = 25°C at 30 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	602.3	580.9	580.8	544.8
5	1.29	543.4	524.2	524.1	491.7
10	1.29	484.5	467.5	467.4	438.7
15	1.29	437.4	422.1	422.0	396.3
20	1.29	390.2	376.7	376.6	353.8
25	1.29	343.1	331.3	331.3	311.4
30	1.29	307.8	297.3	297.2	279.6
35	1.29	272.4	263.2	263.2	247.8
40	1.29	243.0	234.9	234.8	221.2
45	1.29	219.4	212.2	212.2	200.0
50	1.29	199.4	192.9	192.9	182.0
55	1.29	181.7	175.9	175.9	166.1
60	1.29	166.4	161.1	161.1	152.3
65	1.29	151.1	146.4	146.4	138.5
70	1.29	140.5	136.2	136.2	129.0
80	1.29	119.3	115.8	115.7	109.9
90	1.29	107.5	104.4	104.4	99.3
100	1.29	95.7	93.1	93.1	88.6
120	1.29	72.1	70.4	70.4	67.4
170	1.29	41.5	40.9	40.9	39.9
470	1.29	27.4	27.3	27.3	27.1



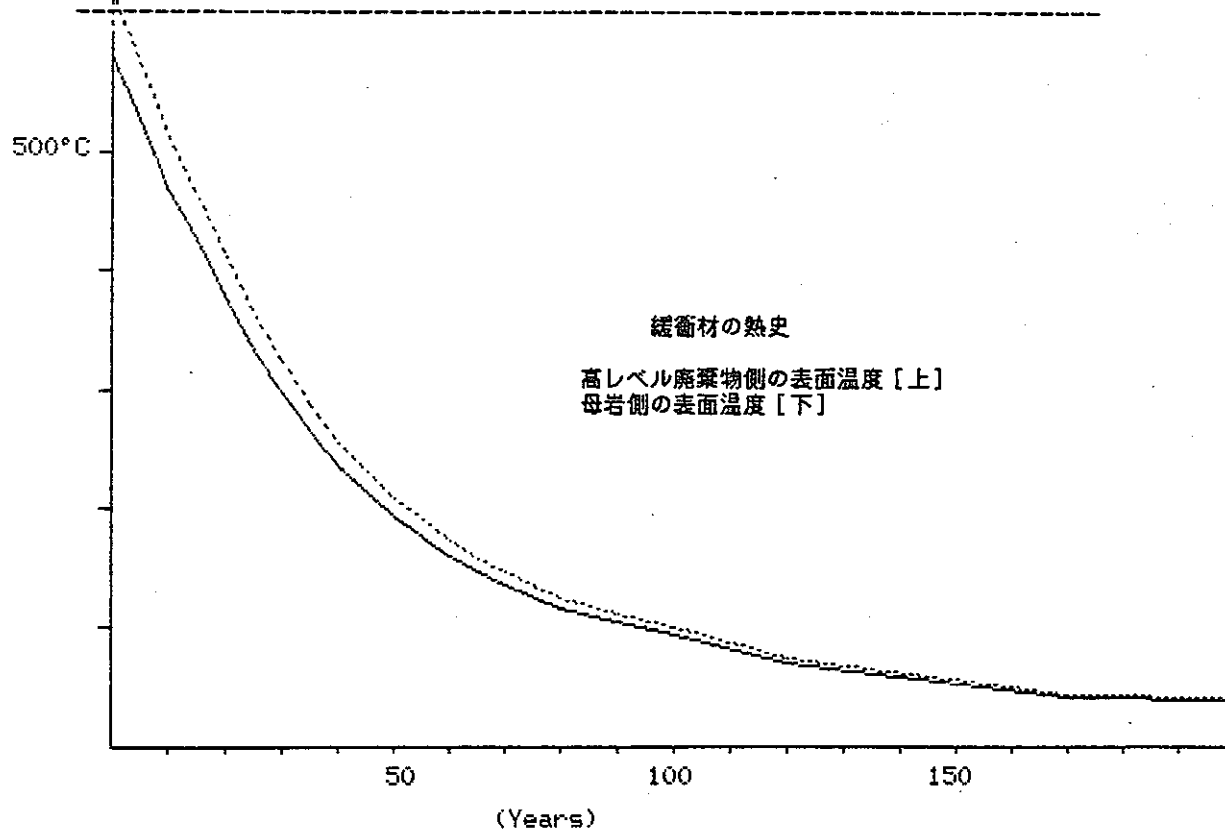
Assumption = 25°C at 40 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	710.3	688.9	688.8	580.7
5	0.43	640.4	621.1	621.0	524.0
10	0.43	570.4	553.4	553.3	467.3
15	0.43	514.5	499.2	499.1	422.0
20	0.43	458.6	445.0	444.9	376.6
25	0.43	402.6	390.8	390.7	331.2
30	0.43	360.7	350.2	350.1	297.2
35	0.43	318.7	309.5	309.5	263.2
40	0.43	283.7	275.6	275.6	234.8
45	0.43	255.8	248.6	248.5	212.1
50	0.43	232.0	225.5	225.5	192.9
55	0.43	211.0	205.2	205.2	175.8
60	0.43	192.8	187.6	187.6	161.1
65	0.43	174.6	170.0	169.9	146.4
70	0.43	162.1	157.8	157.8	136.1
80	0.43	136.9	133.4	133.4	115.7
90	0.43	122.9	119.8	119.8	104.4
100	0.43	108.9	106.3	106.3	93.1
120	0.43	80.9	79.2	79.2	70.4
170	0.43	44.6	44.0	44.0	40.9
470	0.43	27.8	27.7	27.7	27.3



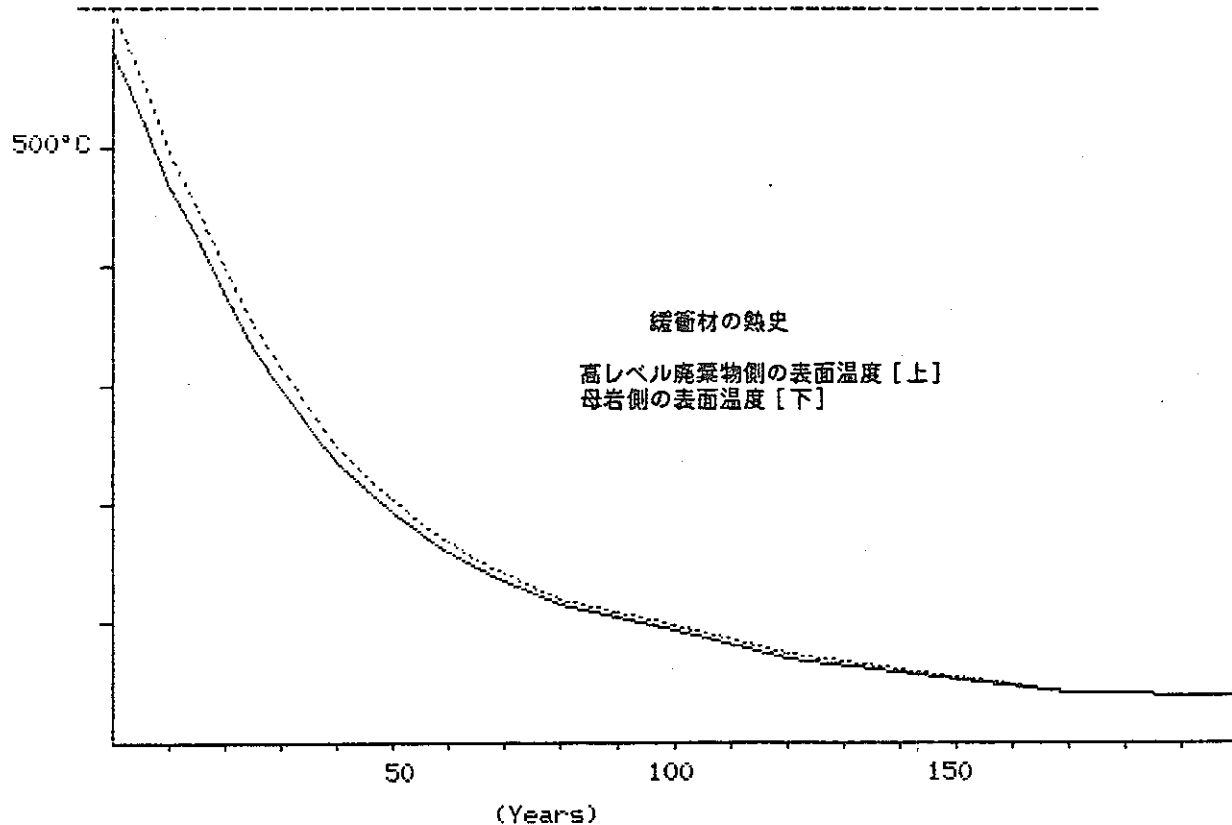
Assumption = 25°C at 40 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	656.3	634.9	634.8	580.7
5	0.86	591.9	572.6	572.5	524.0
10	0.86	527.5	510.4	510.3	467.3
15	0.86	475.9	460.6	460.5	422.0
20	0.86	424.4	410.8	410.8	376.6
25	0.86	372.9	361.1	361.0	331.2
30	0.86	334.2	323.7	323.7	297.2
35	0.86	295.6	286.4	286.3	263.2
40	0.86	263.3	255.3	255.2	234.8
45	0.86	237.6	230.4	230.3	212.1
50	0.86	215.7	209.2	209.2	192.9
55	0.86	196.4	190.5	190.5	175.8
60	0.86	179.6	174.4	174.3	161.1
65	0.86	162.9	158.2	158.2	146.4
70	0.86	151.3	147.0	147.0	136.1
80	0.86	128.1	124.6	124.6	115.7
90	0.86	115.2	112.1	112.1	104.4
100	0.86	102.3	99.7	99.7	93.1
120	0.86	76.5	74.8	74.8	70.4
170	0.86	43.0	42.4	42.4	40.9
470	0.86	27.6	27.5	27.5	27.3



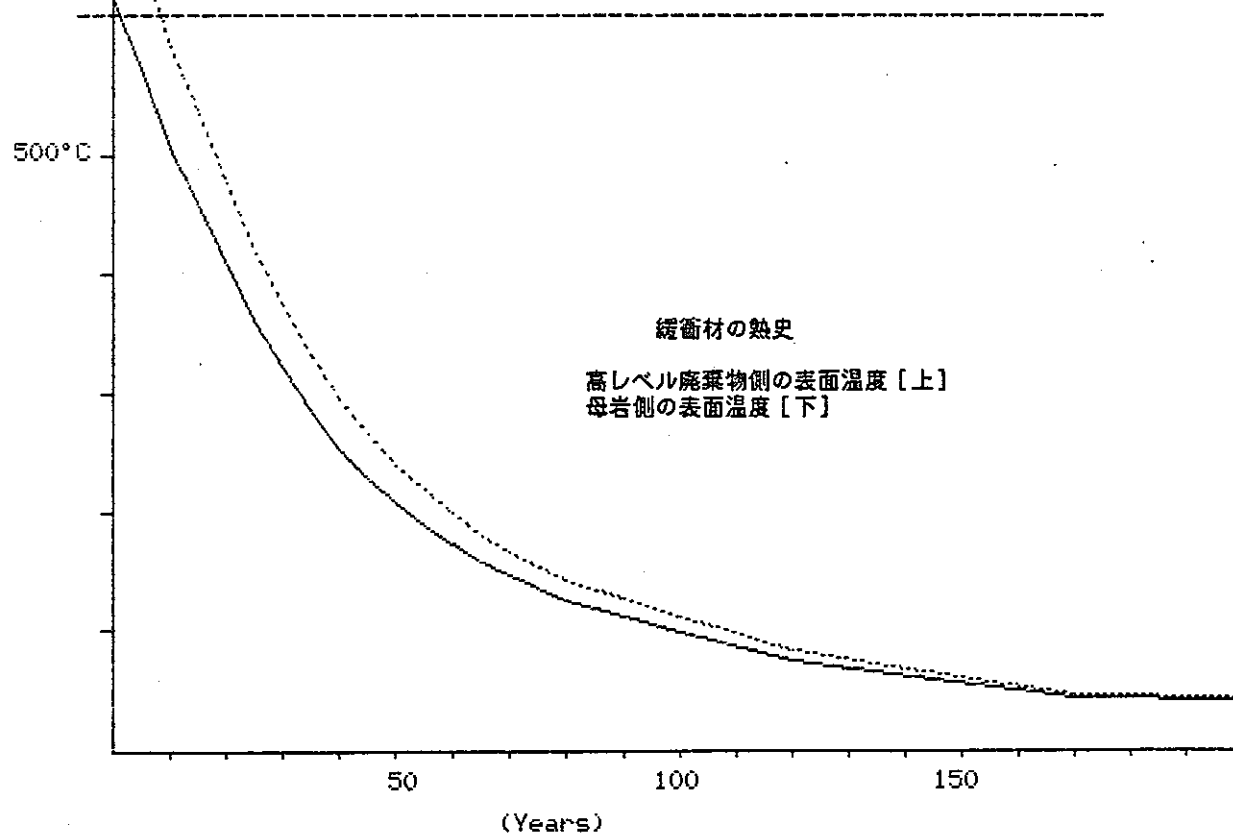
Assumption = 25°C at 40 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	638.3	616.9	616.8	580.7
5	1.29	575.7	556.5	556.4	524.0
10	1.29	513.1	496.1	496.0	467.3
15	1.29	463.1	447.8	447.7	422.0
20	1.29	413.0	399.4	399.4	376.6
25	1.29	362.9	351.1	351.1	331.2
30	1.29	325.4	314.9	314.8	297.2
35	1.29	287.8	278.7	278.6	263.2
40	1.29	256.5	248.5	248.4	234.8
45	1.29	231.5	224.3	224.3	212.1
50	1.29	210.2	203.8	203.7	192.9
55	1.29	191.5	185.7	185.6	175.8
60	1.29	175.2	169.9	169.9	161.1
65	1.29	158.9	154.2	154.2	146.4
70	1.29	147.7	143.4	143.4	136.1
80	1.29	125.1	121.6	121.6	115.7
90	1.29	112.6	109.6	109.5	104.4
100	1.29	100.1	97.5	97.5	93.1
120	1.29	75.1	73.3	73.3	70.4
170	1.29	42.5	41.9	41.9	40.9
470	1.29	27.5	27.4	27.4	27.3



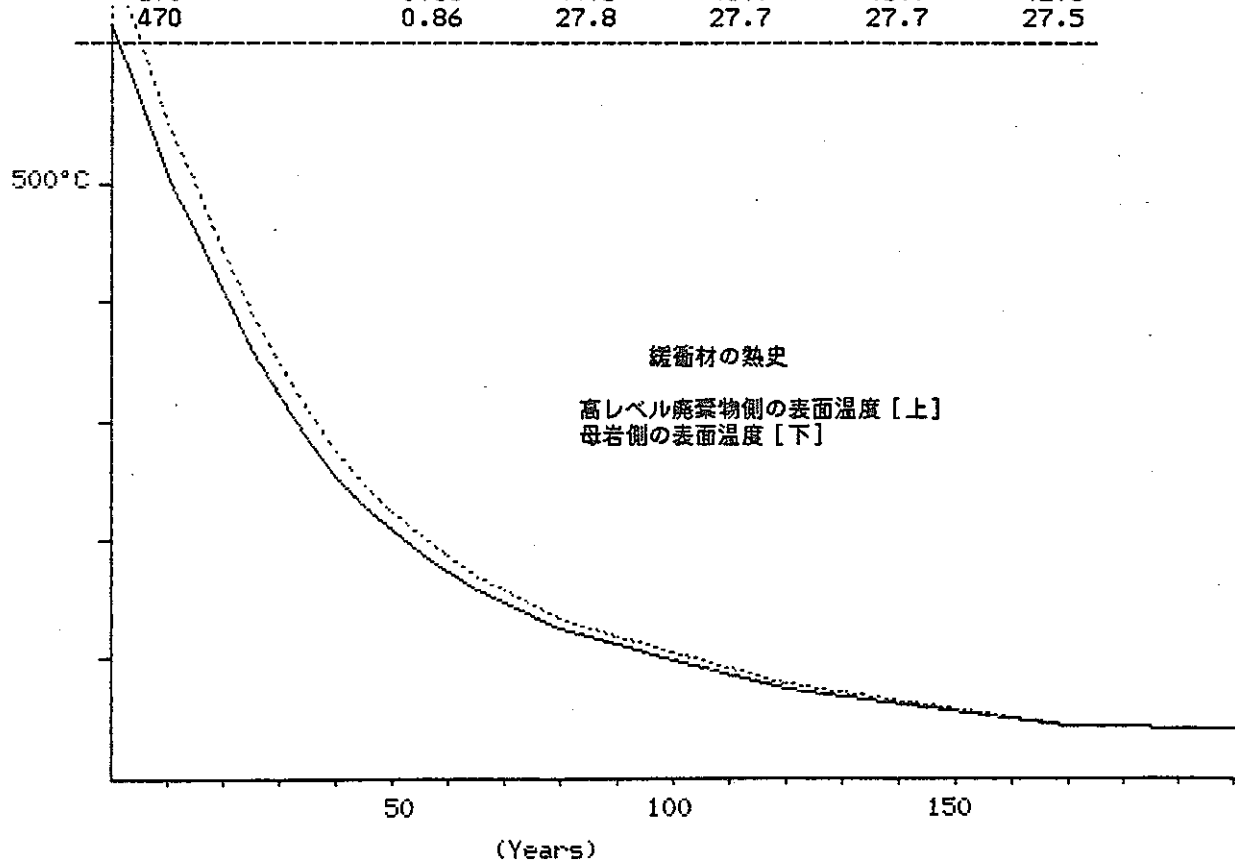
Assumption = 25°C at 60 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	761.0	739.6	739.5	631.4
5	0.43	685.9	666.7	666.5	569.6
10	0.43	610.8	593.7	593.6	507.7
15	0.43	550.7	535.4	535.3	458.2
20	0.43	490.6	477.1	477.0	408.7
25	0.43	430.5	418.7	418.7	359.2
30	0.43	385.5	375.0	374.9	322.0
35	0.43	340.4	331.2	331.2	284.9
40	0.43	302.9	294.8	294.7	254.0
45	0.43	272.8	265.6	265.6	229.2
50	0.43	247.3	240.8	240.8	208.2
55	0.43	224.8	219.0	218.9	189.6
60	0.43	205.2	200.0	200.0	173.5
65	0.43	185.7	181.0	181.0	157.4
70	0.43	172.2	167.9	167.9	146.3
80	0.43	145.2	141.7	141.6	124.0
90	0.43	130.1	127.1	127.1	111.6
100	0.43	115.1	112.5	112.5	99.3
120	0.43	85.1	83.3	83.3	74.5
170	0.43	46.0	45.4	45.4	42.3
470	0.43	28.0	27.9	27.9	27.5



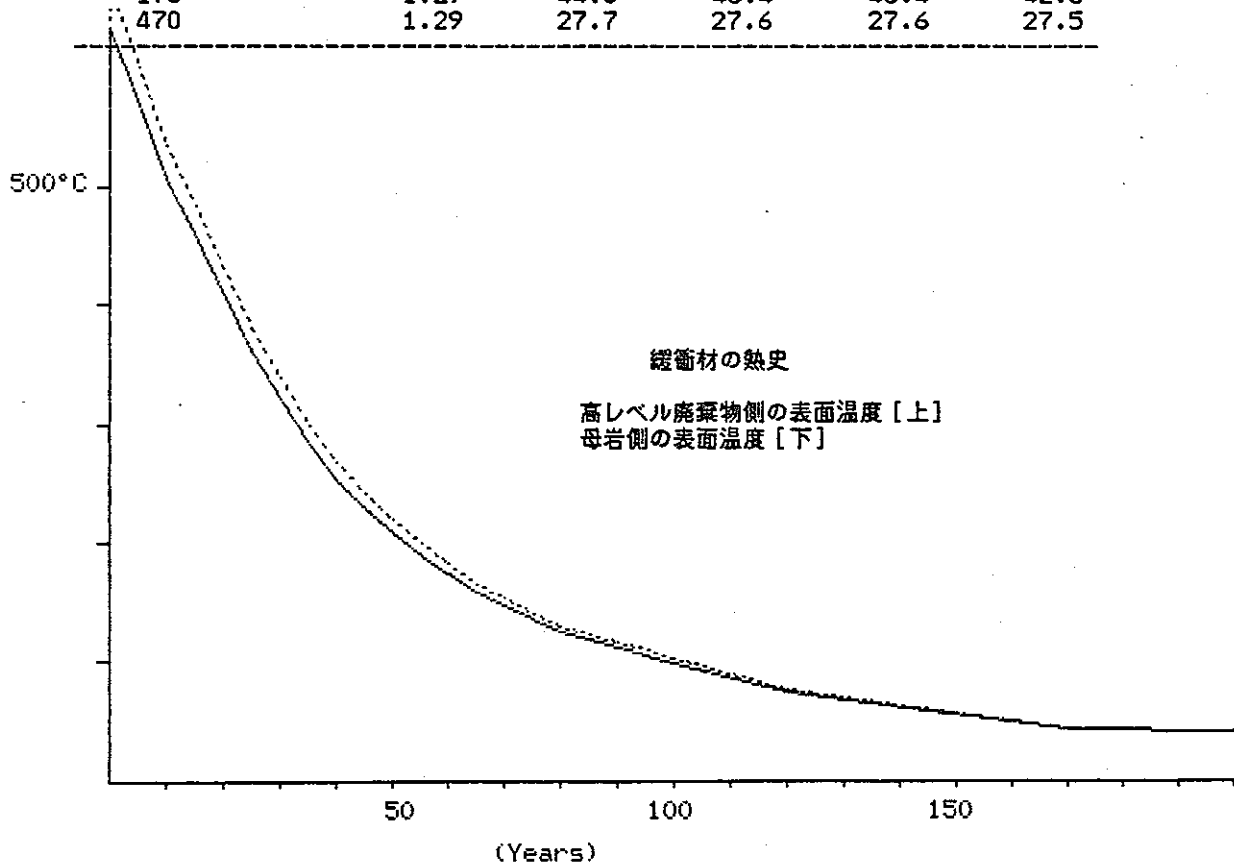
Assumption = 25°C at 60 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	707.0	685.6	685.4	631.4
5	0.86	637.4	618.2	618.1	569.6
10	0.86	567.8	550.8	550.7	507.7
15	0.86	512.1	496.8	496.7	458.2
20	0.86	456.5	442.9	442.8	408.7
25	0.86	400.8	389.0	388.9	359.2
30	0.86	359.0	348.5	348.5	322.0
35	0.86	317.3	308.1	308.0	284.9
40	0.86	282.5	274.4	274.4	254.0
45	0.86	254.6	247.4	247.4	229.2
50	0.86	231.0	224.5	224.5	208.2
55	0.86	210.1	204.3	204.3	189.6
60	0.86	192.0	186.8	186.7	173.5
65	0.86	173.9	169.2	169.2	157.4
70	0.86	161.4	157.1	157.1	146.3
80	0.86	136.3	132.8	132.8	124.0
90	0.86	122.4	119.4	119.3	111.6
100	0.86	108.5	105.9	105.9	99.3
120	0.86	80.7	78.9	78.9	74.5
170	0.86	44.5	43.9	43.9	42.3
470	0.86	27.8	27.7	27.7	27.5



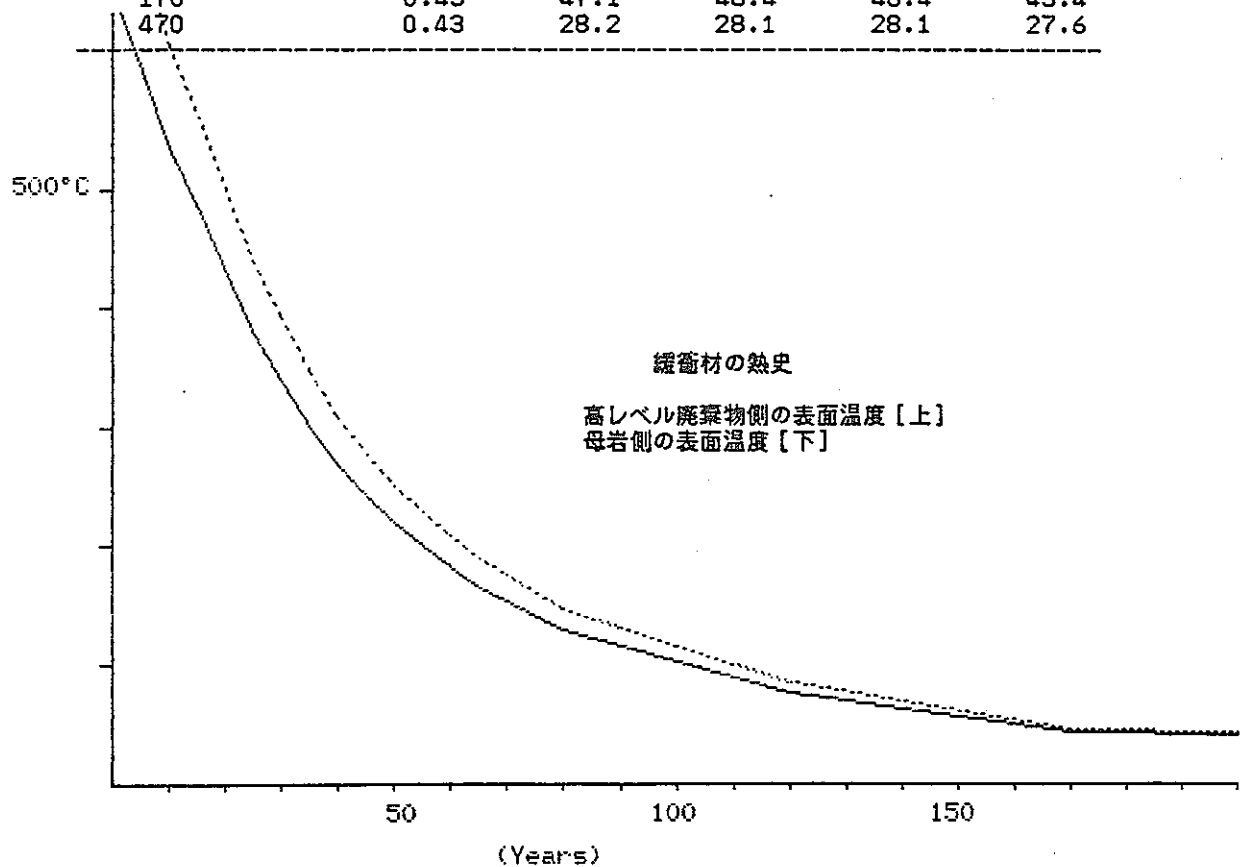
Assumption = 25°C at 60 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	689.0	667.6	667.4	631.4
5	1.29	621.2	602.0	601.9	569.6
10	1.29	553.5	536.4	536.3	507.7
15	1.29	499.3	484.0	483.9	458.2
20	1.29	445.1	431.5	431.4	408.7
25	1.29	390.9	379.1	379.0	359.2
30	1.29	350.2	339.7	339.7	322.0
35	1.29	309.6	300.4	300.3	284.9
40	1.29	275.7	267.6	267.6	254.0
45	1.29	248.6	241.4	241.3	229.2
50	1.29	225.5	219.1	219.0	208.2
55	1.29	205.2	199.4	199.4	189.6
60	1.29	187.6	182.4	182.3	173.5
65	1.29	170.0	165.3	165.3	157.4
70	1.29	157.8	153.5	153.5	146.3
80	1.29	133.4	129.9	129.9	124.0
90	1.29	119.9	116.8	116.8	111.6
100	1.29	106.3	103.7	103.7	99.3
120	1.29	79.2	77.5	77.4	74.5
170	1.29	44.0	43.4	43.4	42.3
470	1.29	27.7	27.6	27.6	27.5



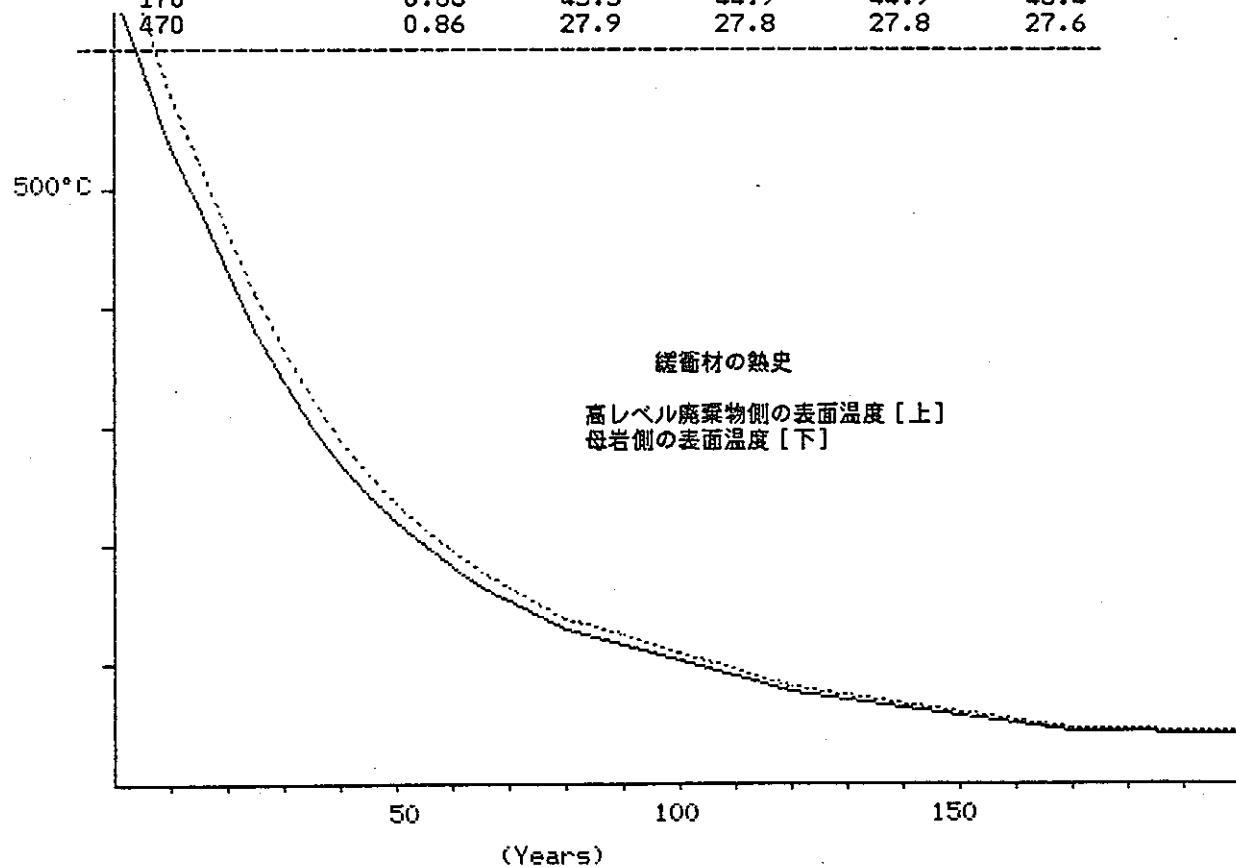
Assumption = 25°C at 80 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	797.0	775.5	775.4	667.4
5	0.43	718.2	699.0	698.8	601.9
10	0.43	639.4	622.4	622.3	536.3
15	0.43	576.4	561.1	561.0	483.9
20	0.43	513.4	499.8	499.8	431.4
25	0.43	450.4	438.6	438.5	379.0
30	0.43	403.1	392.6	392.6	339.6
35	0.43	355.8	346.7	346.6	300.3
40	0.43	316.5	308.4	308.3	267.5
45	0.43	284.9	277.7	277.7	241.3
50	0.43	258.2	251.7	251.7	219.0
55	0.43	234.5	228.7	228.7	199.4
60	0.43	214.1	208.8	208.8	182.3
65	0.43	193.6	188.9	188.9	165.3
70	0.43	179.4	175.1	175.1	153.5
80	0.43	151.0	147.5	147.5	129.9
90	0.43	135.3	132.2	132.2	116.8
100	0.43	119.5	116.9	116.9	103.7
120	0.43	88.0	86.3	86.3	77.4
170	0.43	47.1	46.4	46.4	43.4
470	0.43	28.2	28.1	28.1	27.6



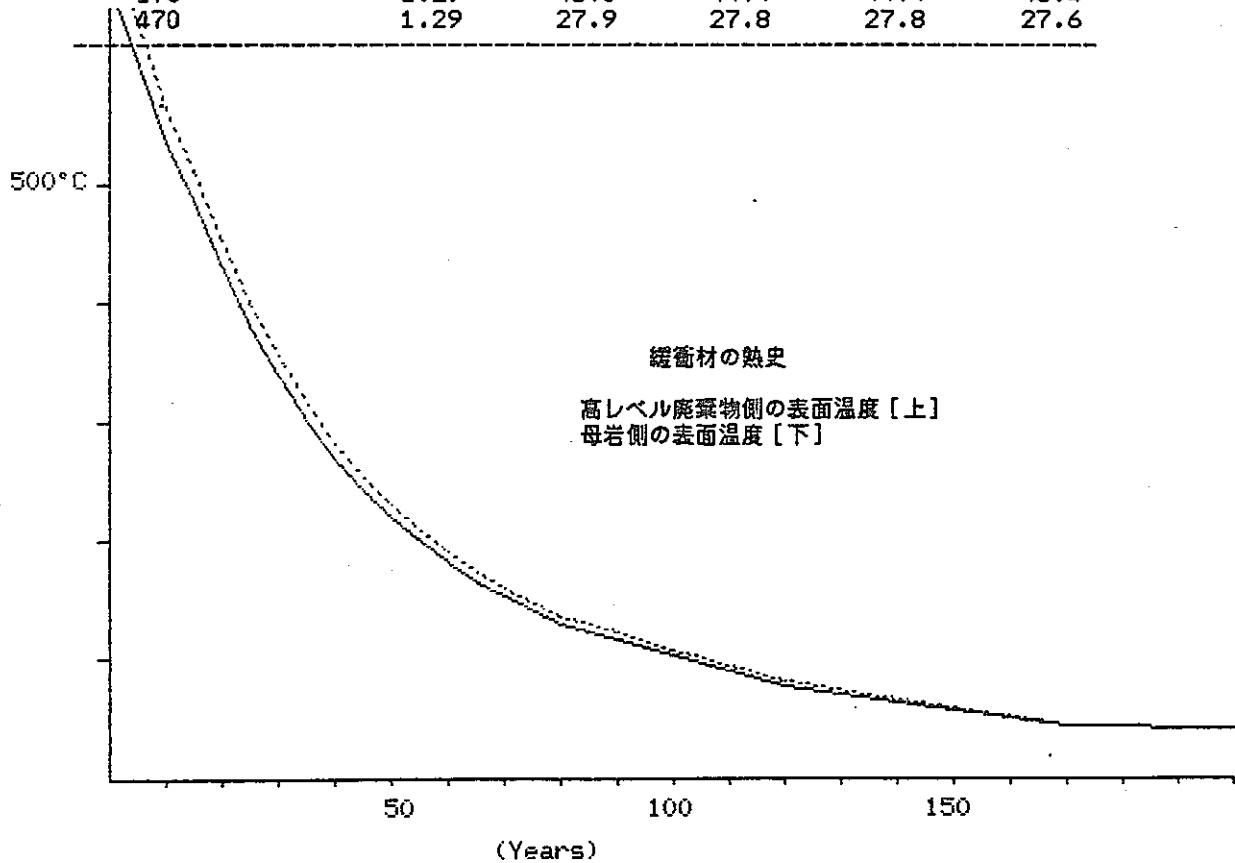
Assumption = 25°C at 80 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	742.9	721.5	721.4	667.4
5	0.86	669.7	650.5	650.3	601.9
10	0.86	596.4	579.4	579.3	536.3
15	0.86	537.8	522.5	522.4	483.9
20	0.86	479.2	465.7	465.6	431.4
25	0.86	420.6	408.8	408.7	379.0
30	0.86	376.6	366.2	366.1	339.6
35	0.86	332.7	323.5	323.5	300.3
40	0.86	296.1	288.0	287.9	267.5
45	0.86	266.8	259.5	259.5	241.3
50	0.86	241.8	235.4	235.3	219.0
55	0.86	219.9	214.1	214.0	199.4
60	0.86	200.8	195.6	195.5	182.3
65	0.86	181.8	177.1	177.1	165.3
70	0.86	168.6	164.3	164.3	153.5
80	0.86	142.2	138.7	138.7	129.9
90	0.86	127.6	124.5	124.5	116.8
100	0.86	112.9	110.3	110.3	103.7
120	0.86	83.6	81.9	81.8	77.4
170	0.86	45.5	44.9	44.9	43.4
470	0.86	27.9	27.8	27.8	27.6



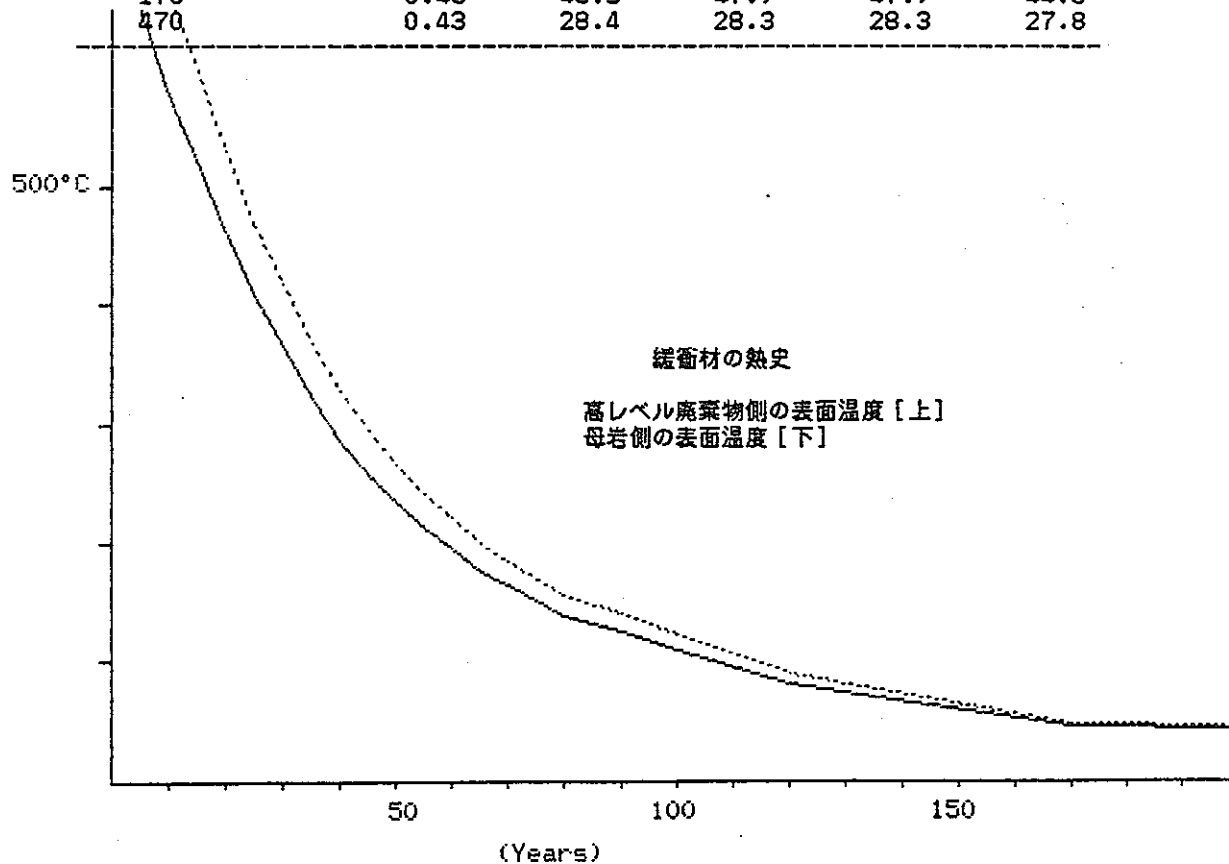
Assumption = 25°C at 80 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	724.9	703.5	703.4	667.4
5	1.29	653.5	634.3	634.2	601.9
10	1.29	582.1	565.1	565.0	536.3
15	1.29	525.0	509.7	509.6	483.9
20	1.29	467.8	454.3	454.2	431.4
25	1.29	410.7	398.9	398.8	379.0
30	1.29	367.8	357.3	357.3	339.6
35	1.29	325.0	315.8	315.7	300.3
40	1.29	289.3	281.2	281.1	267.5
45	1.29	260.7	253.5	253.4	241.3
50	1.29	236.4	229.9	229.9	219.0
55	1.29	215.0	209.2	209.1	199.4
60	1.29	196.4	191.2	191.1	182.3
65	1.29	177.8	173.2	173.1	165.3
70	1.29	165.0	160.7	160.7	153.5
80	1.29	139.3	135.8	135.8	129.9
90	1.29	125.0	121.9	121.9	116.8
100	1.29	110.7	108.1	108.1	103.7
120	1.29	82.1	80.4	80.4	77.4
170	1.29	45.0	44.4	44.4	43.4
470	1.29	27.9	27.8	27.8	27.6



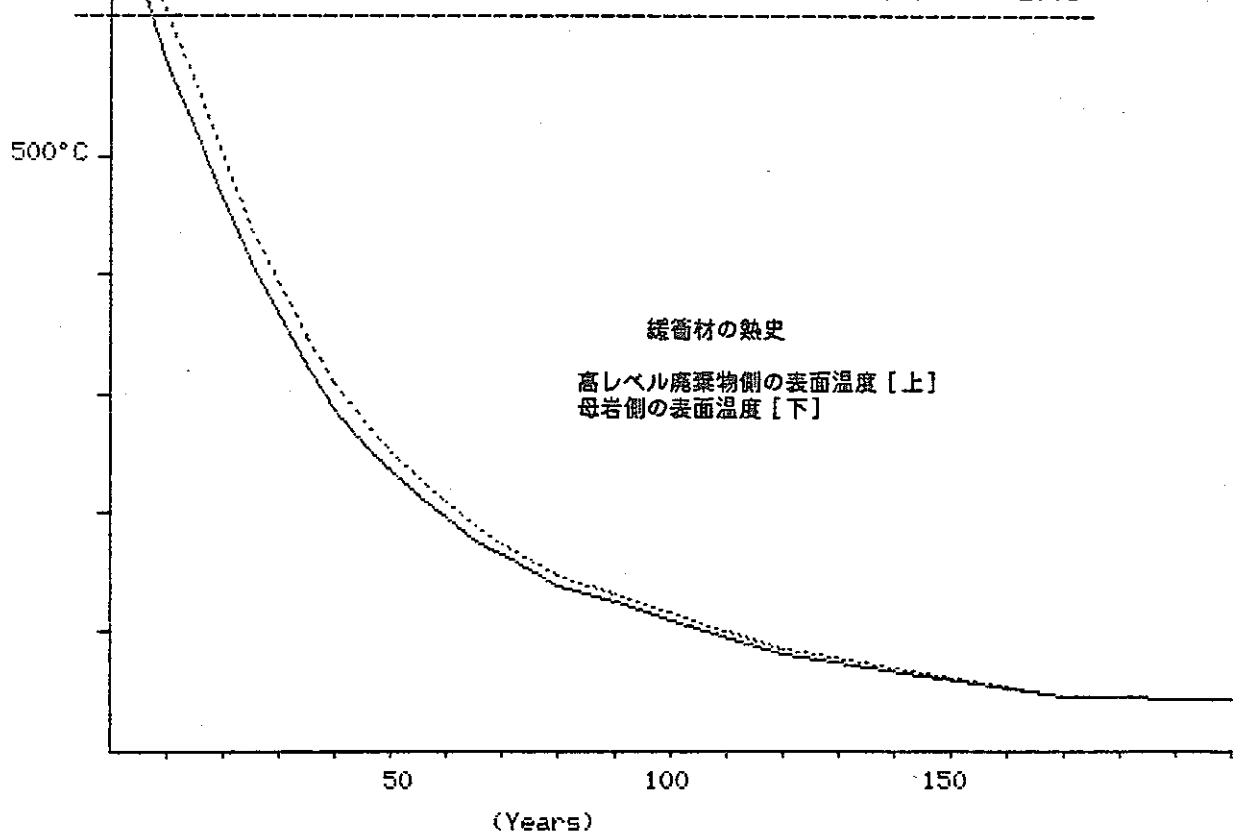
Assumption = 25°C at 120 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	847.6	826.2	826.1	718.1
5	0.43	763.7	744.5	744.4	647.4
10	0.43	679.8	662.7	662.6	576.6
15	0.43	612.6	597.3	597.2	520.1
20	0.43	545.4	531.9	531.8	463.5
25	0.43	478.3	466.5	466.4	406.9
30	0.43	427.9	417.4	417.4	364.5
35	0.43	377.6	368.4	368.3	322.0
40	0.43	335.6	327.5	327.5	286.7
45	0.43	302.0	294.8	294.8	258.4
50	0.43	273.5	267.0	267.0	234.3
55	0.43	248.3	242.5	242.4	213.1
60	0.43	226.5	221.2	221.2	194.7
65	0.43	204.6	200.0	199.9	176.3
70	0.43	189.5	185.2	185.2	163.6
80	0.43	159.3	155.8	155.8	138.2
90	0.43	142.5	139.5	139.4	124.0
100	0.43	125.7	123.1	123.1	109.9
120	0.43	92.2	90.4	90.4	81.6
170	0.43	48.5	47.9	47.9	44.8
270	0.43	28.4	28.3	28.3	27.8



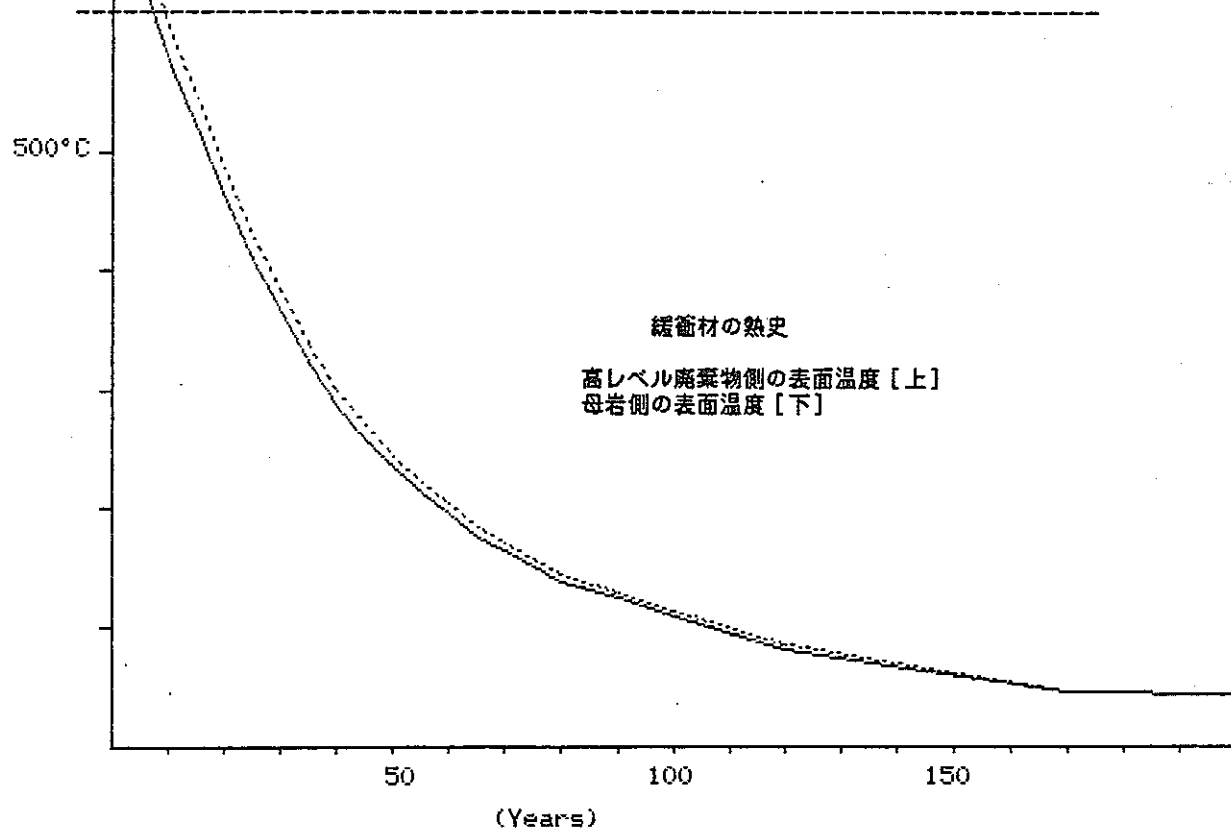
Assumption = 25°C at 120 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	793.6	772.2	772.1	718.1
5	0.86	715.2	696.0	695.9	647.4
10	0.86	636.8	619.7	619.6	576.6
15	0.86	574.0	558.7	558.6	520.1
20	0.86	511.3	497.7	497.7	463.5
25	0.86	448.5	436.7	436.7	406.9
30	0.86	401.5	391.0	390.9	364.5
35	0.86	354.4	345.2	345.2	322.0
40	0.86	315.2	307.1	307.1	286.7
45	0.86	283.8	276.6	276.6	258.4
50	0.86	257.2	250.7	250.7	234.3
55	0.86	233.6	227.8	227.8	213.1
60	0.86	213.2	208.0	208.0	194.7
65	0.86	192.8	188.2	188.1	176.3
70	0.86	178.7	174.4	174.4	163.6
80	0.86	150.5	147.0	147.0	138.2
90	0.86	134.8	131.7	131.7	124.0
100	0.86	119.1	116.5	116.5	109.9
120	0.86	87.7	86.0	86.0	81.6
170	0.86	47.0	46.3	46.3	44.8
470	0.86	28.1	28.0	28.0	27.8



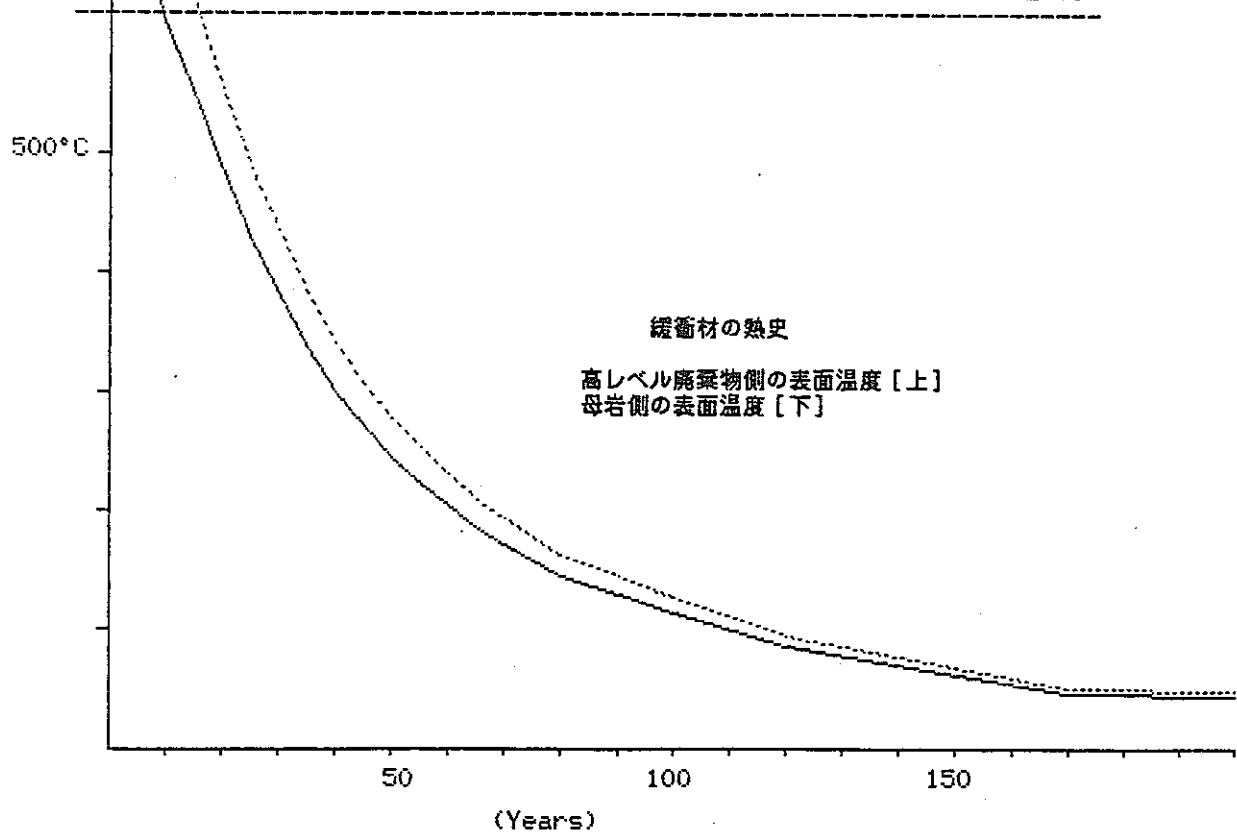
Assumption = 25°C at 120 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	775.6	754.2	754.1	718.1
5	1.29	699.0	679.8	679.7	647.4
10	1.29	622.4	605.4	605.3	576.6
15	1.29	561.2	545.9	545.8	520.1
20	1.29	499.9	486.3	486.3	463.5
25	1.29	438.6	426.8	426.7	406.9
30	1.29	392.7	382.2	382.1	364.5
35	1.29	346.7	337.5	337.5	322.0
40	1.29	308.4	300.3	300.3	286.7
45	1.29	277.8	270.6	270.5	258.4
50	1.29	251.7	245.3	245.2	234.3
55	1.29	228.7	222.9	222.9	213.1
60	1.29	208.8	203.6	203.6	194.7
65	1.29	188.9	184.2	184.2	176.3
70	1.29	175.1	170.8	170.8	163.6
80	1.29	147.6	144.1	144.0	138.2
90	1.29	132.2	129.2	129.2	124.0
100	1.29	116.9	114.3	114.3	109.9
120	1.29	86.3	84.5	84.5	81.6
170	1.29	46.4	45.8	45.8	44.8
470	1.29	28.1	28.0	28.0	27.8



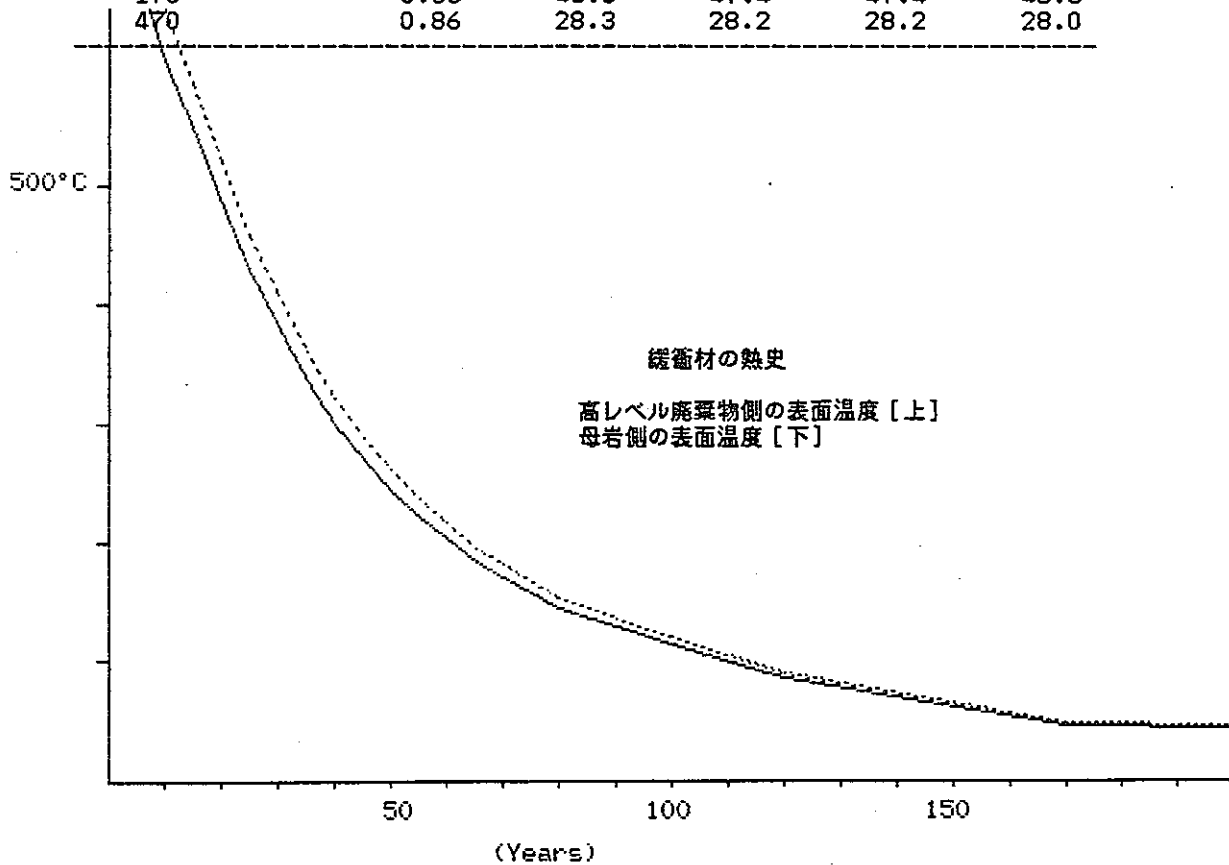
Assumption = 25°C at 160 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	883.6	862.2	862.1	754.1
5	0.43	796.0	776.8	776.7	679.7
10	0.43	708.4	691.3	691.2	605.3
15	0.43	638.3	623.0	622.9	545.8
20	0.43	568.2	554.7	554.6	486.2
25	0.43	498.1	486.3	486.2	426.7
30	0.43	445.5	435.1	435.0	382.1
35	0.43	393.0	383.8	383.7	337.5
40	0.43	349.2	341.1	341.0	300.3
45	0.43	314.1	306.9	306.9	270.5
50	0.43	284.3	277.9	277.8	245.2
55	0.43	258.1	252.2	252.2	222.9
60	0.43	235.3	230.0	230.0	203.5
65	0.43	212.5	207.8	207.8	184.2
70	0.43	196.7	192.4	192.4	170.8
80	0.43	165.2	161.7	161.7	144.0
90	0.43	147.7	144.6	144.6	129.2
100	0.43	130.1	127.5	127.5	114.3
120	0.43	95.1	93.3	93.3	84.5
170	0.43	49.5	48.9	48.9	45.8
470	0.43	28.5	28.4	28.4	28.0



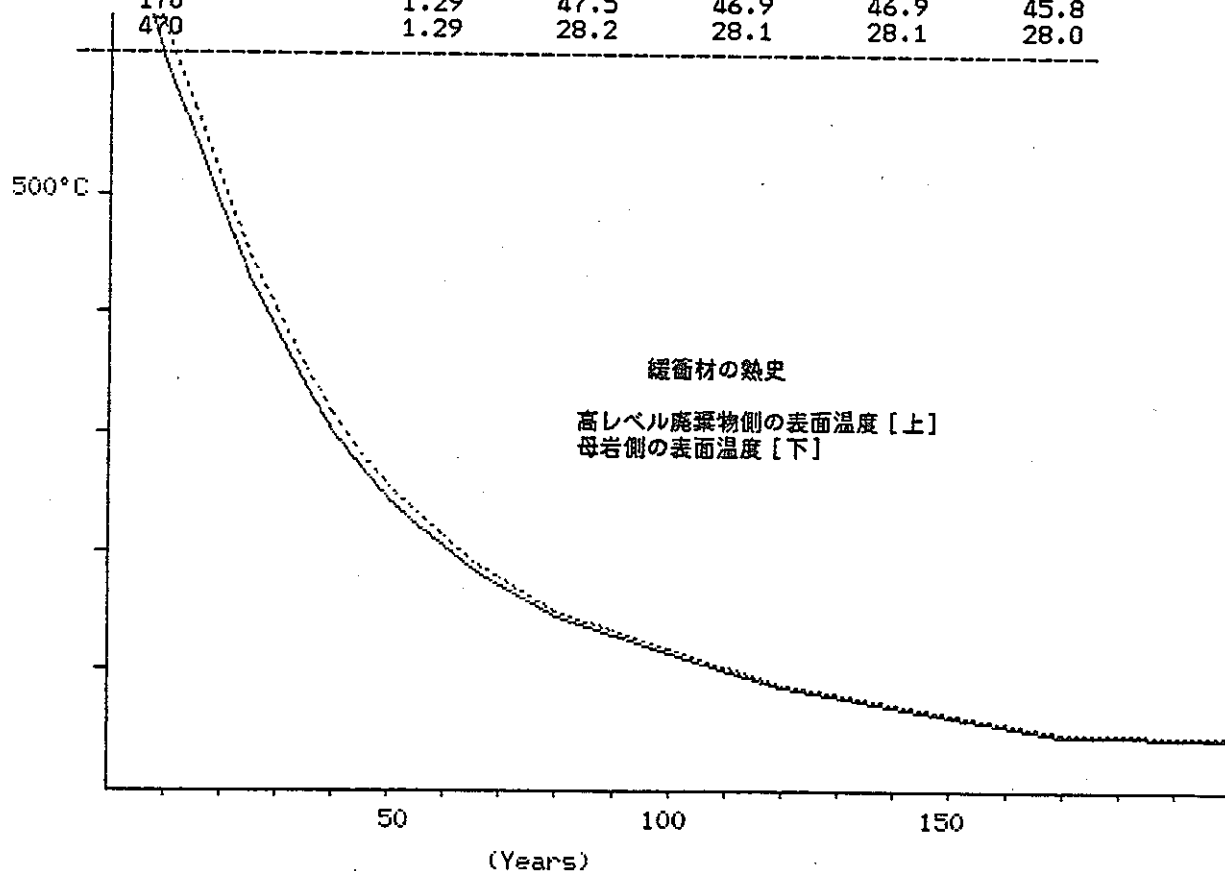
Assumption = 25°C at 160 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	829.6	808.2	808.1	754.1
5	0.86	747.5	728.3	728.2	679.7
10	0.86	665.4	648.4	648.3	605.3
15	0.86	599.7	584.4	584.3	545.8
20	0.86	534.0	520.5	520.4	486.2
25	0.86	468.4	456.6	456.5	426.7
30	0.86	419.1	408.6	408.5	382.1
35	0.86	369.8	360.7	360.6	337.5
40	0.86	328.8	320.7	320.6	300.3
45	0.86	295.9	288.7	288.7	270.5
50	0.86	268.0	261.6	261.5	245.2
55	0.86	243.4	237.6	237.5	222.9
60	0.86	222.0	216.8	216.8	203.5
65	0.86	200.7	196.0	196.0	184.2
70	0.86	185.9	181.6	181.6	170.8
80	0.86	156.4	152.9	152.8	144.0
90	0.86	139.9	136.9	136.9	129.2
100	0.86	123.5	120.9	120.9	114.3
120	0.86	90.7	88.9	88.9	84.5
170	0.86	48.0	47.4	47.4	45.8
470	0.86	28.3	28.2	28.2	28.0



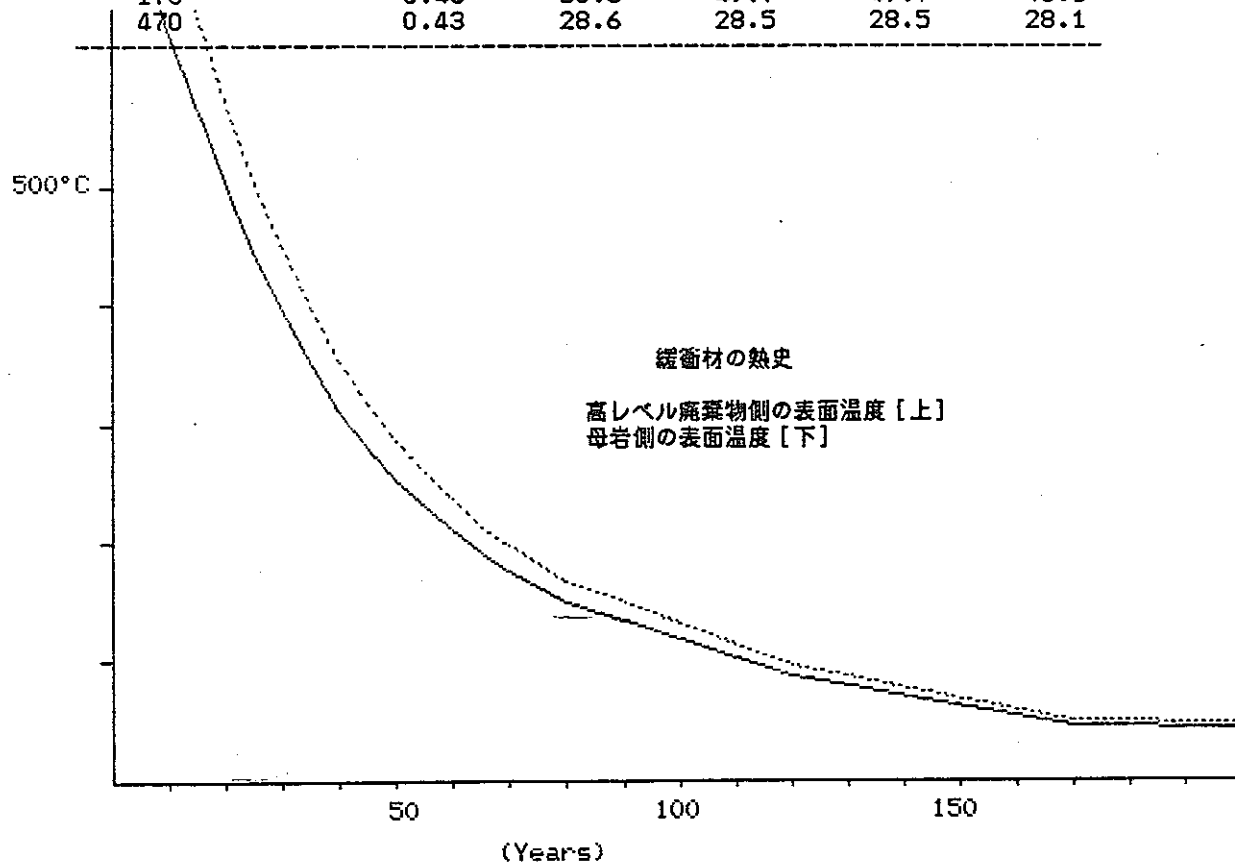
Assumption = 25°C at 160 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	811.6	790.2	790.1	754.1
5	1.29	731.3	712.1	712.0	679.7
10	1.29	651.1	634.0	633.9	605.3
15	1.29	586.9	571.6	571.5	545.8
20	1.29	522.6	509.1	509.0	486.2
25	1.29	458.4	446.6	446.6	426.7
30	1.29	410.3	399.8	399.7	382.1
35	1.29	362.1	352.9	352.9	337.5
40	1.29	322.0	313.9	313.8	300.3
45	1.29	289.9	282.7	282.6	270.5
50	1.29	262.6	256.1	256.1	245.2
55	1.29	238.5	232.7	232.7	222.9
60	1.29	217.6	212.4	212.4	203.5
65	1.29	196.8	192.1	192.1	184.2
70	1.29	182.3	178.0	178.0	170.8
80	1.29	153.4	149.9	149.9	144.0
90	1.29	137.4	134.3	134.3	129.2
100	1.29	121.3	118.7	118.7	114.3
120	1.29	89.2	87.5	87.5	84.5
170	1.29	47.5	46.9	46.9	45.8
470	1.29	28.2	28.1	28.1	28.0



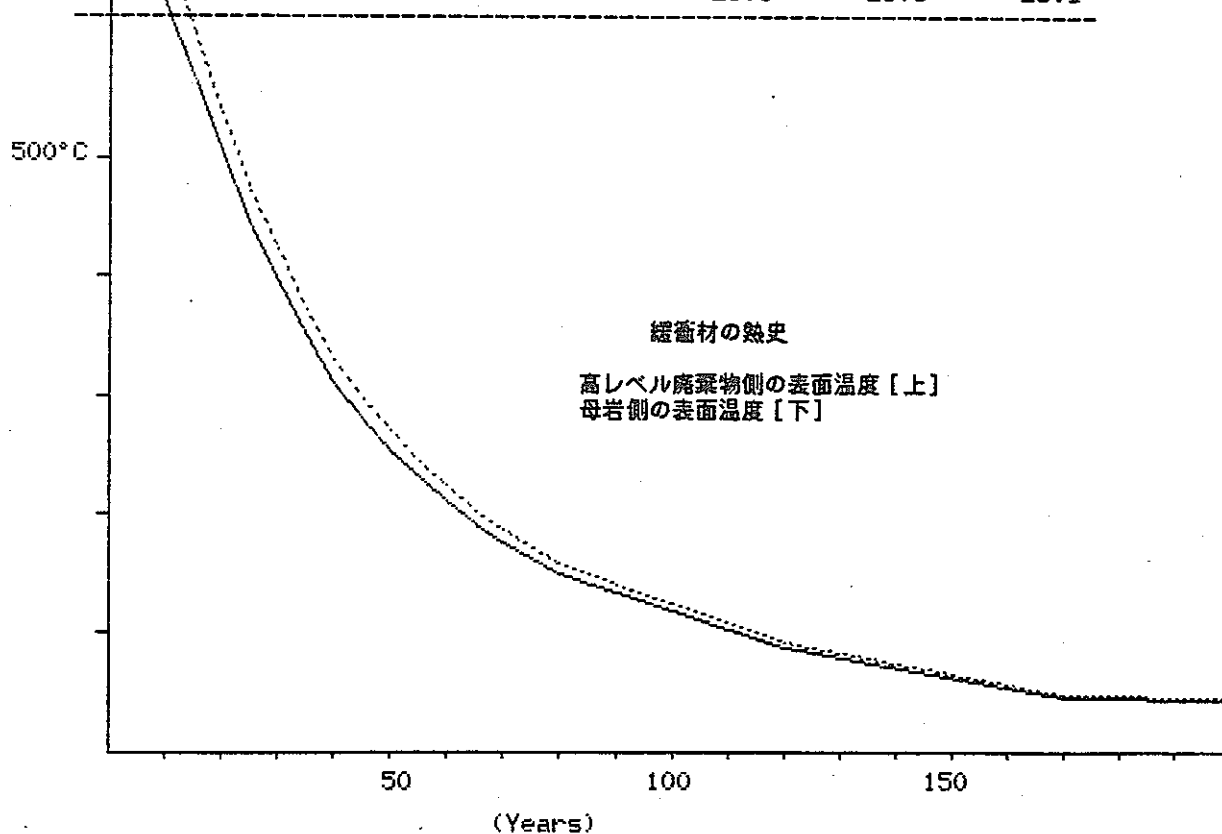
Assumption = 25°C at 200 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	911.5	890.1	890.0	782.0
5	0.43	821.0	801.8	801.7	704.7
10	0.43	730.6	713.5	713.4	627.5
15	0.43	658.2	642.9	642.8	565.7
20	0.43	585.9	572.3	572.2	503.9
25	0.43	513.5	501.7	501.6	442.1
30	0.43	459.2	448.7	448.7	395.8
35	0.43	404.9	395.8	395.7	349.4
40	0.43	359.7	351.6	351.6	310.8
45	0.43	323.5	316.3	316.3	279.9
50	0.43	292.8	286.3	286.3	253.6
55	0.43	265.6	259.8	259.8	230.5
60	0.43	242.1	236.9	236.8	210.4
65	0.43	218.6	213.9	213.9	190.3
70	0.43	202.3	198.0	198.0	176.4
80	0.43	169.7	166.2	166.2	148.6
90	0.43	151.6	148.6	148.6	133.1
100	0.43	133.6	130.9	130.9	117.7
120	0.43	97.4	95.6	95.6	86.8
170	0.43	50.3	49.7	49.7	46.6
470	0.43	28.6	28.5	28.5	28.1



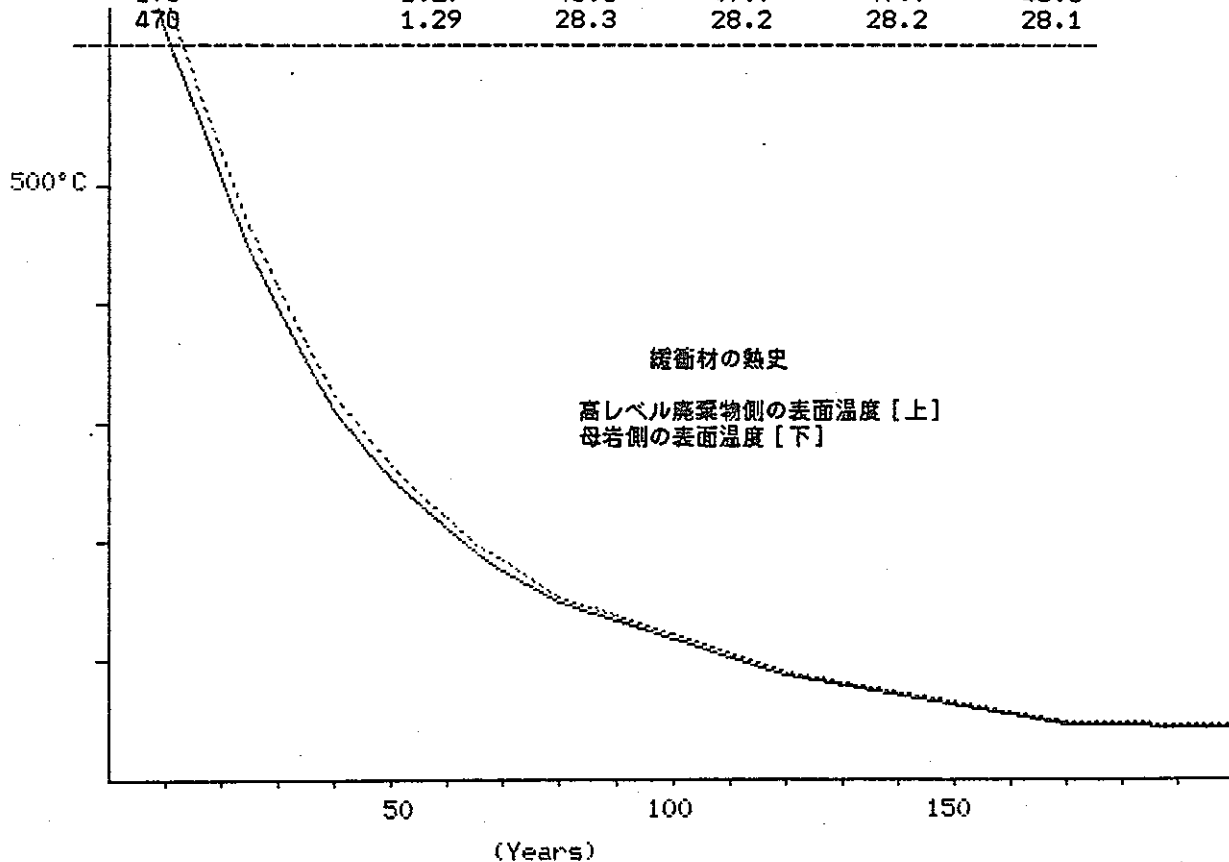
Assumption = 25°C at 200 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	857.5	836.1	836.0	782.0
5	0.86	772.6	753.3	753.2	704.7
10	0.86	687.6	670.6	670.5	627.5
15	0.86	619.6	604.3	604.3	565.7
20	0.86	551.7	538.1	538.1	503.9
25	0.86	483.7	471.9	471.9	442.1
30	0.86	432.8	422.3	422.2	395.8
35	0.86	381.8	372.6	372.6	349.4
40	0.86	339.3	331.2	331.2	310.8
45	0.86	305.3	298.1	298.1	279.9
50	0.86	276.4	270.0	269.9	253.6
55	0.86	251.0	245.2	245.1	230.5
60	0.86	228.9	223.6	223.6	210.4
65	0.86	206.8	202.1	202.1	190.3
70	0.86	191.5	187.2	187.2	176.4
80	0.86	160.9	157.4	157.4	148.6
90	0.86	143.9	140.9	140.9	133.1
100	0.86	126.9	124.3	124.3	117.7
120	0.86	93.0	91.2	91.2	86.8
170	0.86	48.8	48.2	48.2	46.6
470	0.86	28.4	28.3	28.3	28.1



Assumption = 25°C at 200 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	839.5	818.1	818.0	782.0
5	1.29	756.4	737.2	737.0	704.7
10	1.29	673.3	656.2	656.1	627.5
15	1.29	606.8	591.5	591.4	565.7
20	1.29	540.3	526.7	526.7	503.9
25	1.29	473.8	462.0	461.9	442.1
30	1.29	423.9	413.4	413.4	395.8
35	1.29	374.1	364.9	364.8	349.4
40	1.29	332.5	324.4	324.4	310.8
45	1.29	299.3	292.1	292.0	279.9
50	1.29	271.0	264.5	264.5	253.6
55	1.29	246.1	240.3	240.2	230.5
60	1.29	224.5	219.2	219.2	210.4
65	1.29	202.9	198.2	198.2	190.3
70	1.29	187.9	183.6	183.6	176.4
80	1.29	158.0	154.5	154.5	148.6
90	1.29	141.4	138.3	138.3	133.1
100	1.29	124.7	122.1	122.1	117.7
120	1.29	91.5	89.7	89.7	86.8
170	1.29	48.3	47.7	47.7	46.6
470	1.29	28.3	28.2	28.2	28.1



Thermal History Simulation for Backfill Material

Basic parameters incorporated are as follows:

Thermal conductivity for waste glass = 0.938 Kcal/mhdeg	Ref. 1)
for canister metal = 21.08 Kcal/mhdeg	1)
for backfill material = 0.43-1.29 Kcal/mhdeg	2)
for granitic host rock = 2.8 Kcal/mhdeg	3)

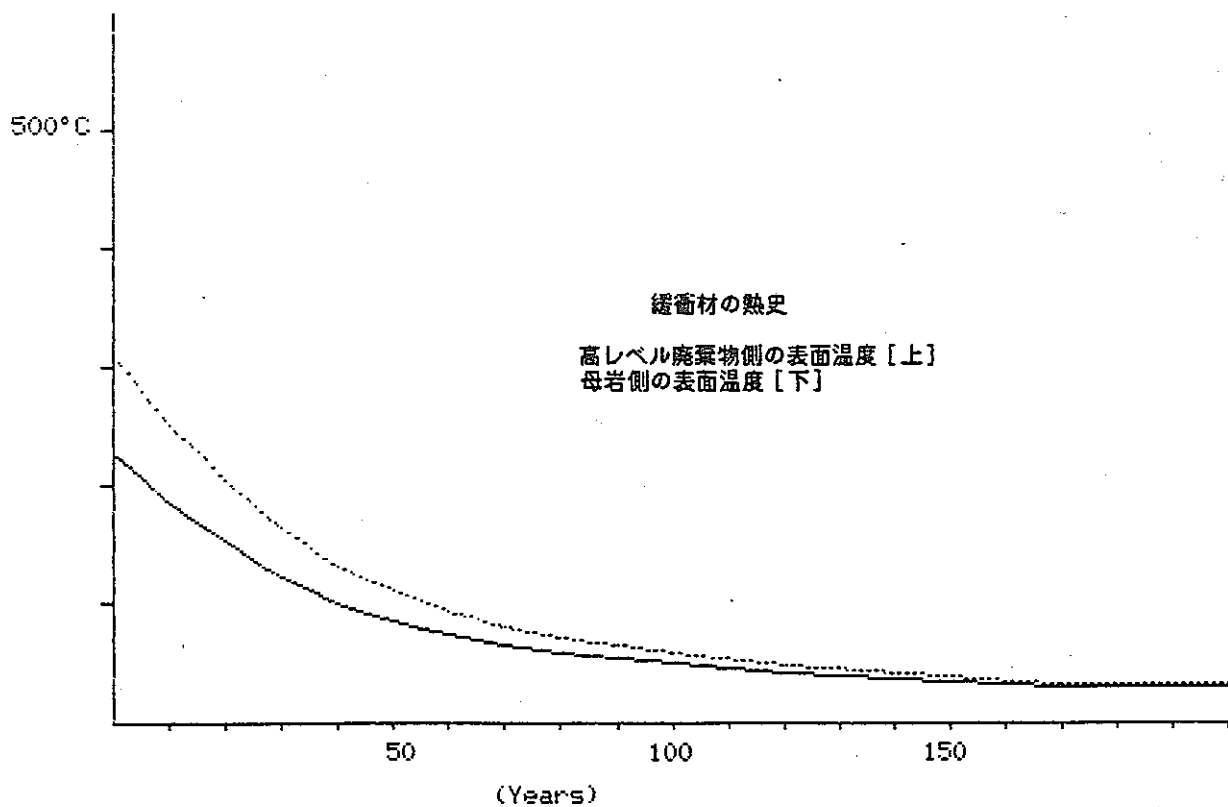
1)リカネンビョウ(1983), 2)Exploration Geophysics(1950),
3)Handbook of Physical Constants(1966)

Thickness of backfill = 0.2m

貯蔵30年の場合

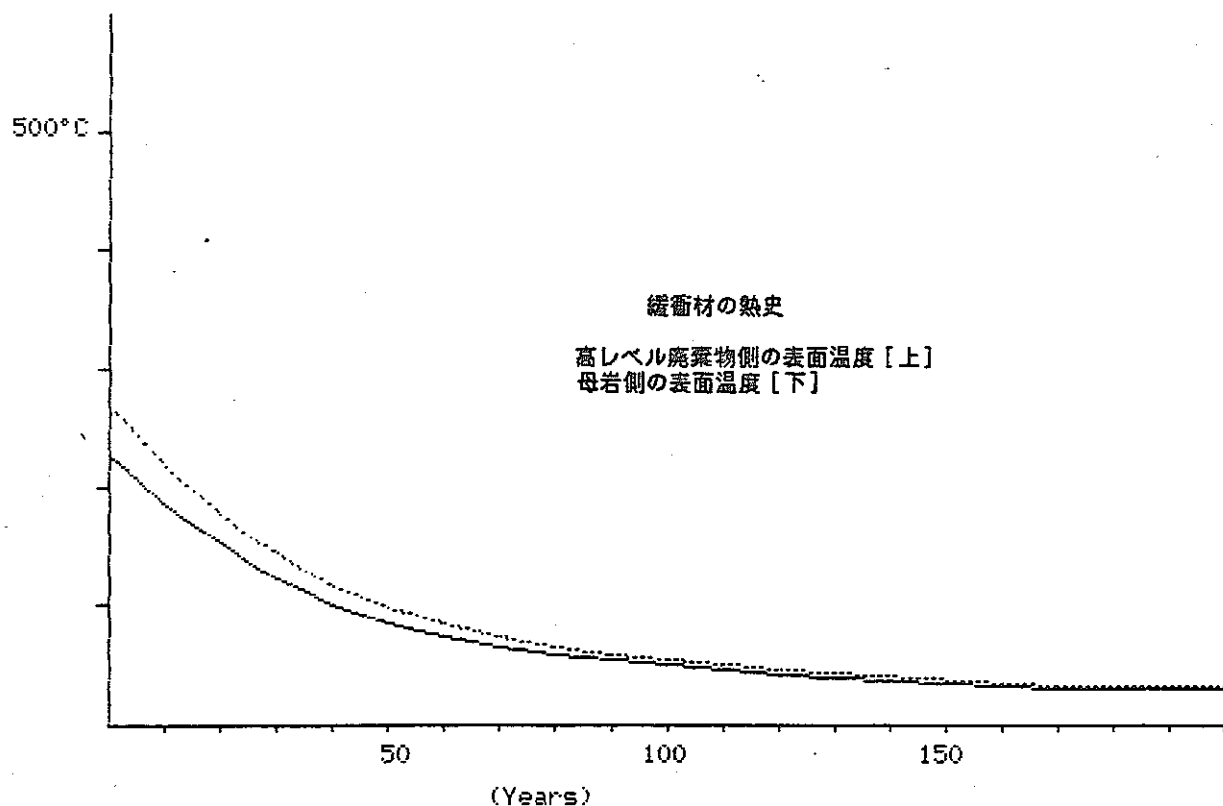
Assumption = 25°C at 5 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	330.9	309.5	309.3	226.7
5	0.43	299.7	280.4	280.3	206.1
10	0.43	268.5	251.4	251.3	185.5
15	0.43	243.5	228.2	228.1	169.1
20	0.43	218.5	205.0	204.9	152.6
25	0.43	193.5	181.7	181.7	136.1
30	0.43	174.8	164.3	164.3	123.8
35	0.43	156.1	146.9	146.9	111.4
40	0.43	140.5	132.4	132.4	101.2
45	0.43	128.0	120.8	120.7	92.9
50	0.43	117.4	110.9	110.9	85.9
55	0.43	108.0	102.2	102.2	79.8
60	0.43	99.9	94.7	94.6	74.4
65	0.43	91.8	87.1	87.1	69.0
70	0.43	86.2	81.9	81.9	65.3
80	0.43	74.9	71.4	71.4	57.9
90	0.43	68.7	65.6	65.6	53.8
100	0.43	62.5	59.8	59.8	49.7
120	0.43	50.0	48.2	48.2	41.5
170	0.43	33.7	33.1	33.1	30.8
470	0.43	26.2	26.2	26.2	25.8



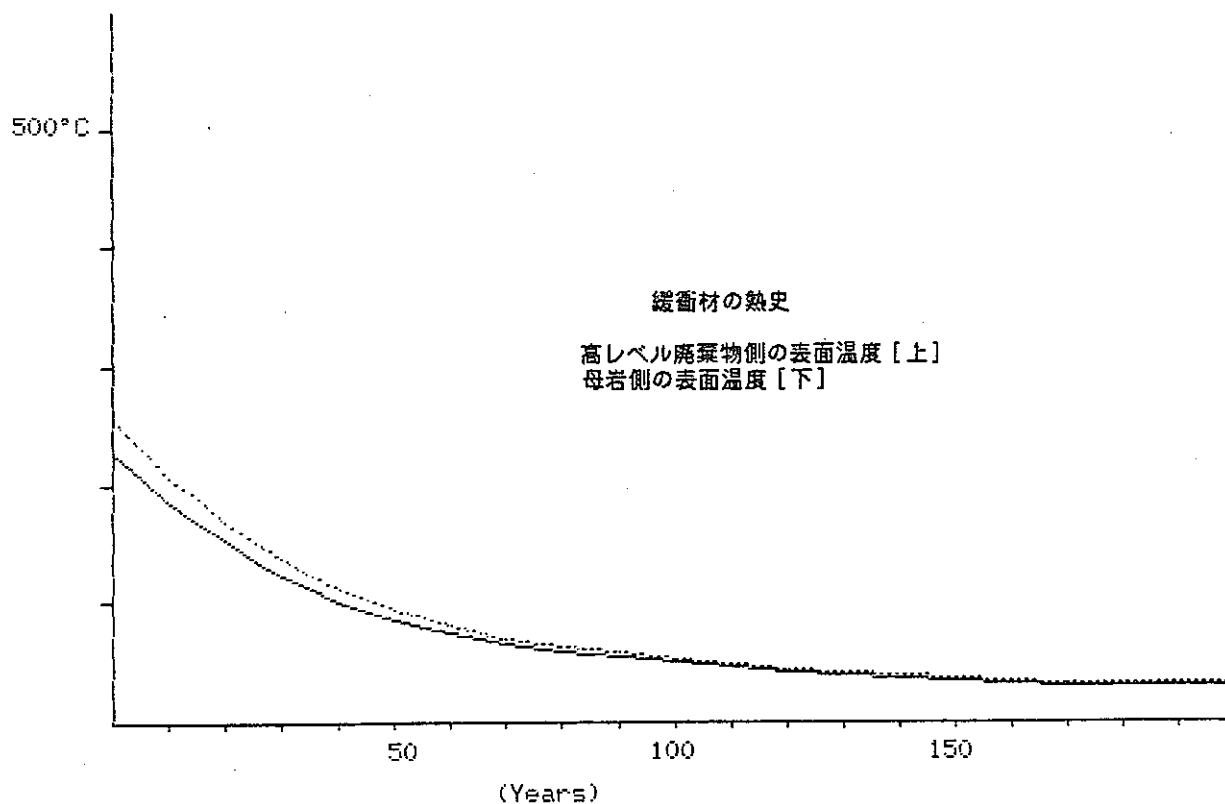
Assumption = 25°C at 5 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	289.6	268.1	268.0	226.7
5	0.86	262.6	243.3	243.2	206.1
10	0.86	235.6	218.5	218.4	185.5
15	0.86	214.0	198.7	198.6	169.1
20	0.86	192.4	178.8	178.8	152.6
25	0.86	170.8	159.0	158.9	136.1
30	0.86	154.6	144.1	144.0	123.8
35	0.86	138.4	129.2	129.2	111.4
40	0.86	124.9	116.8	116.8	101.2
45	0.86	114.1	106.9	106.8	92.9
50	0.86	104.9	98.4	98.4	85.9
55	0.86	96.8	91.0	91.0	79.8
60	0.86	89.8	84.5	84.5	74.4
65	0.86	82.8	78.1	78.1	69.0
70	0.86	77.9	73.6	73.6	65.3
80	0.86	68.2	64.7	64.7	57.9
90	0.86	62.8	59.7	59.7	53.8
100	0.86	57.4	54.8	54.8	49.7
120	0.86	46.6	44.8	44.8	41.5
170	0.86	32.6	31.9	31.9	30.8
470	0.86	26.1	26.0	26.0	25.8



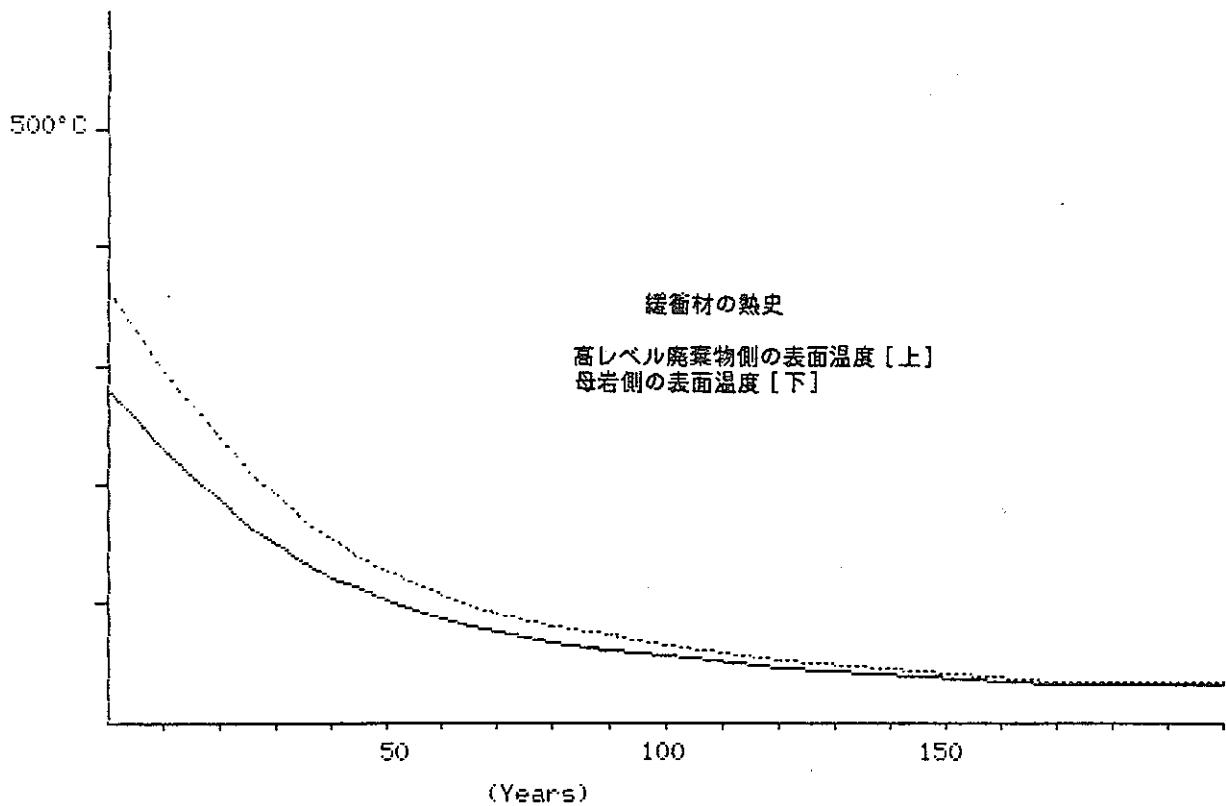
Assumption = 25°C at 5 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	275.8	254.4	254.3	226.7
5	1.29	250.2	231.0	230.9	206.1
10	1.29	224.6	207.6	207.5	185.5
15	1.29	204.1	188.8	188.8	169.1
20	1.29	183.7	170.1	170.0	152.6
25	1.29	163.2	151.4	151.3	136.1
30	1.29	147.8	137.3	137.3	123.8
35	1.29	132.5	123.3	123.3	111.4
40	1.29	119.7	111.6	111.6	101.2
45	1.29	109.5	102.2	102.2	92.9
50	1.29	100.7	94.3	94.2	85.9
55	1.29	93.1	87.3	87.2	79.8
60	1.29	86.4	81.2	81.1	74.4
65	1.29	79.8	75.1	75.1	69.0
70	1.29	75.2	70.9	70.9	65.3
80	1.29	65.9	62.4	62.4	57.9
90	1.29	60.8	57.8	57.8	53.8
100	1.29	55.7	53.1	53.1	49.7
120	1.29	45.5	43.7	43.7	41.5
170	1.29	32.2	31.6	31.6	30.8
470	1.29	26.0	25.9	25.9	25.8



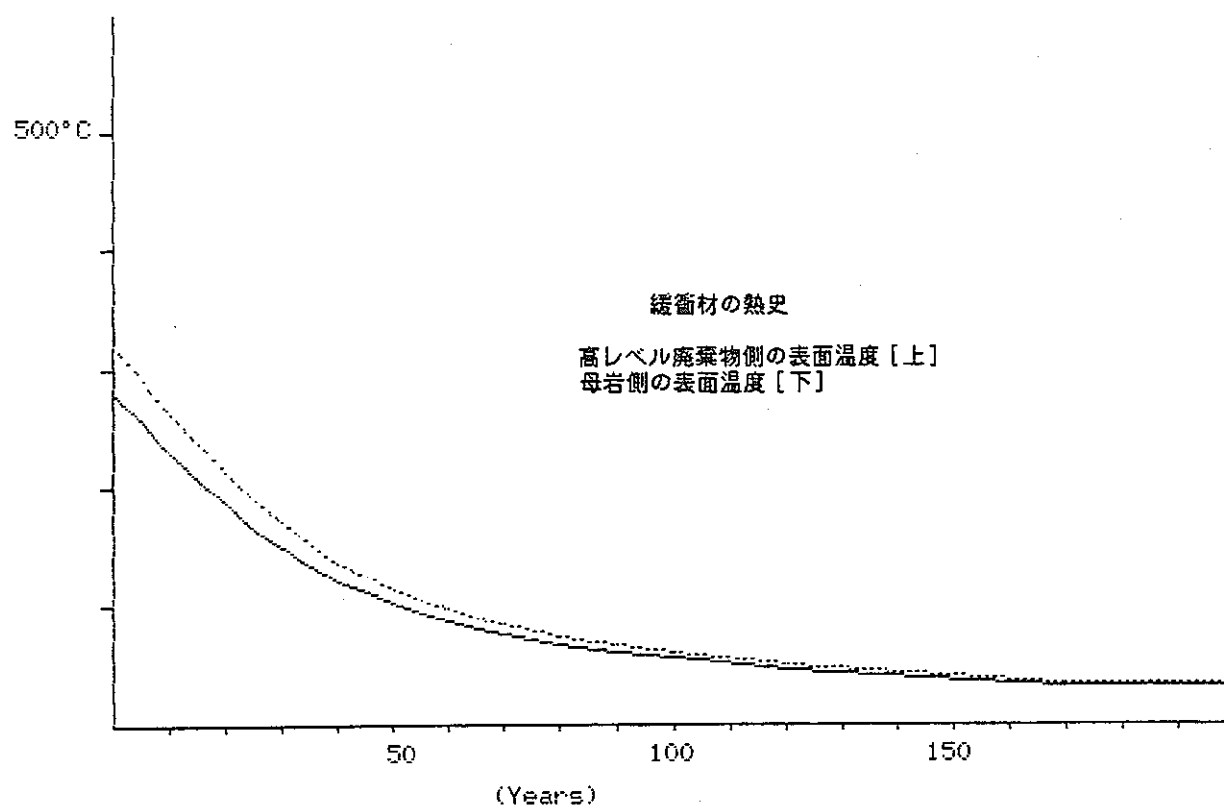
Assumption = 25°C at 10 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	384.5	363.1	363.0	280.4
5	0.43	347.8	328.6	328.5	254.3
10	0.43	311.2	294.1	294.0	228.3
15	0.43	281.8	266.5	266.4	207.4
20	0.43	252.5	238.9	238.8	186.6
25	0.43	223.1	211.3	211.2	165.7
30	0.43	201.1	190.6	190.6	150.1
35	0.43	179.1	169.9	169.9	134.4
40	0.43	160.7	152.7	152.6	121.4
45	0.43	146.1	138.9	138.8	111.0
50	0.43	133.6	127.1	127.1	102.1
55	0.43	122.6	116.8	116.7	94.3
60	0.43	113.0	107.8	107.8	87.5
65	0.43	103.5	98.8	98.8	80.8
70	0.43	96.9	92.6	92.6	76.1
80	0.43	83.7	80.2	80.2	66.7
90	0.43	76.4	73.3	73.3	61.5
100	0.43	69.0	66.4	66.4	56.3
120	0.43	54.3	52.6	52.6	45.8
170	0.43	35.3	34.7	34.7	32.3
470	0.43	26.5	26.4	26.4	26.0



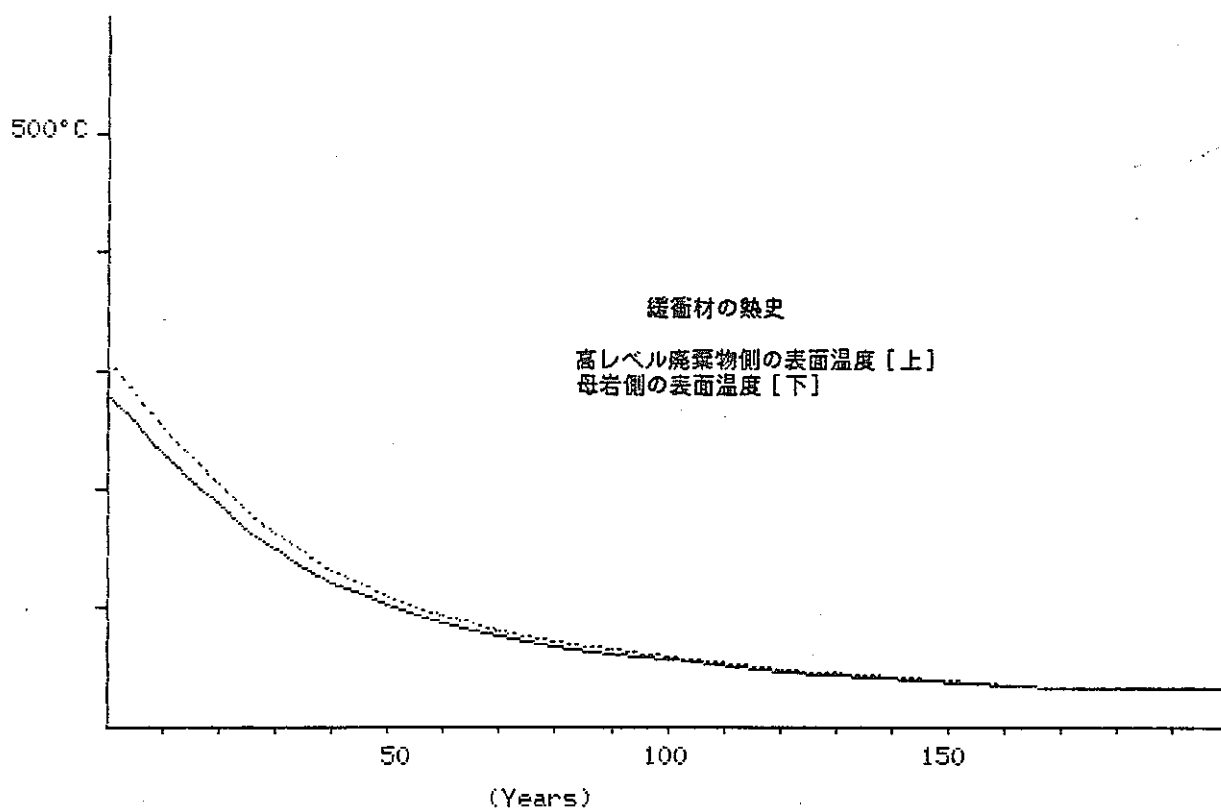
Assumption = 25°C at 10 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	343.2	321.8	321.7	280.4
5	0.86	310.8	291.5	291.4	254.3
10	0.86	278.3	261.2	261.1	228.3
15	0.86	252.3	237.0	236.9	207.4
20	0.86	226.3	212.8	212.7	186.6
25	0.86	200.3	188.5	188.5	165.7
30	0.86	180.9	170.4	170.3	150.1
35	0.86	161.4	152.2	152.2	134.4
40	0.86	145.1	137.1	137.0	121.4
45	0.86	132.2	124.9	124.9	111.0
50	0.86	121.1	114.6	114.6	102.1
55	0.86	111.4	105.6	105.5	94.3
60	0.86	102.9	97.7	97.7	87.5
65	0.86	94.5	89.8	89.8	80.8
70	0.86	88.6	84.4	84.3	76.1
80	0.86	77.0	73.5	73.4	66.7
90	0.86	70.5	67.4	67.4	61.5
100	0.86	64.0	61.3	61.3	56.3
120	0.86	51.0	49.2	49.2	45.8
170	0.86	34.1	33.5	33.5	32.3
470	0.86	26.3	26.2	26.2	26.0



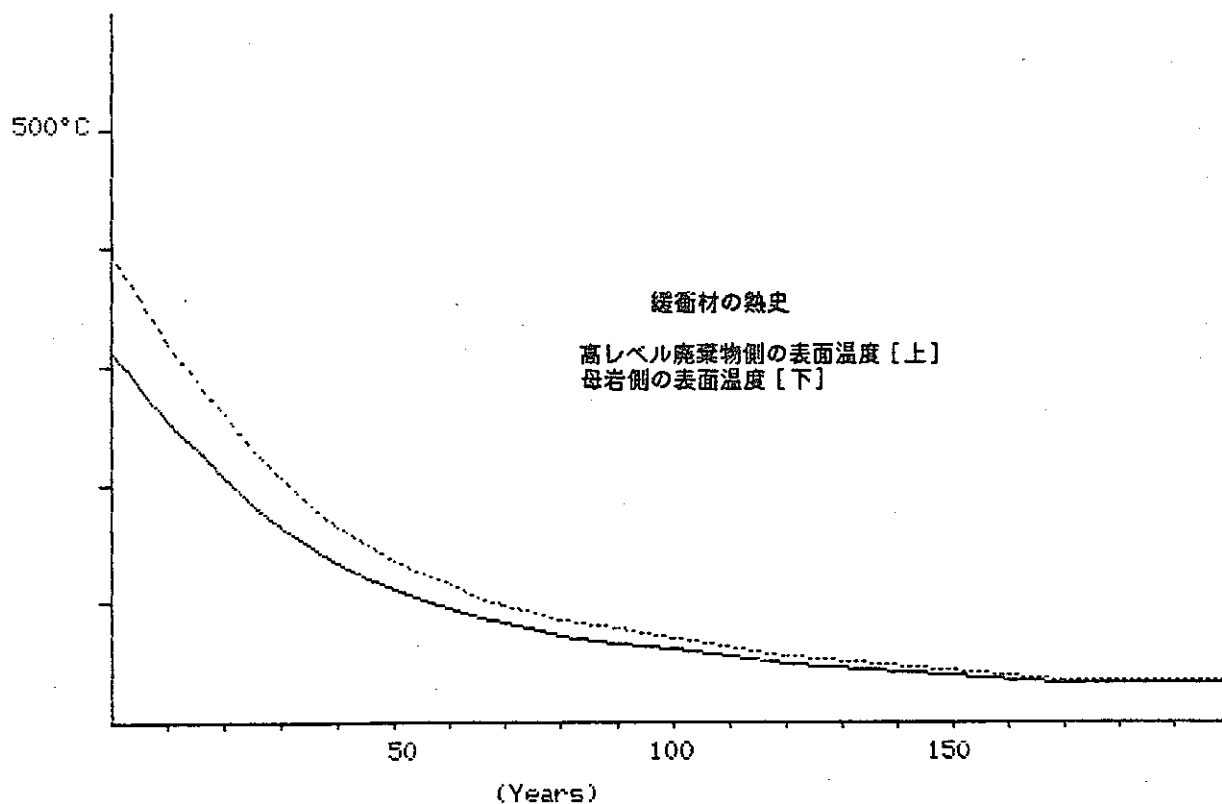
Assumption = 25°C at 10 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	329.5	308.0	307.9	280.4
5	1.29	298.4	279.2	279.0	254.3
10	1.29	267.3	250.3	250.2	228.3
15	1.29	242.5	227.2	227.1	207.4
20	1.29	217.6	204.1	204.0	186.6
25	1.29	192.8	181.0	180.9	165.7
30	1.29	174.1	163.6	163.6	150.1
35	1.29	155.5	146.3	146.2	134.4
40	1.29	139.9	131.9	131.8	121.4
45	1.29	127.5	120.3	120.3	111.0
50	1.29	117.0	110.5	110.5	102.1
55	1.29	107.6	101.8	101.8	94.3
60	1.29	99.6	94.3	94.3	87.5
65	1.29	91.5	86.8	86.8	80.8
70	1.29	85.9	81.6	81.6	76.1
80	1.29	74.7	71.2	71.2	66.7
90	1.29	68.5	65.4	65.4	61.5
100	1.29	62.3	59.7	59.6	56.3
120	1.29	49.9	48.1	48.1	45.8
170	1.29	33.7	33.1	33.1	32.3
470	1.29	26.2	26.2	26.2	26.0



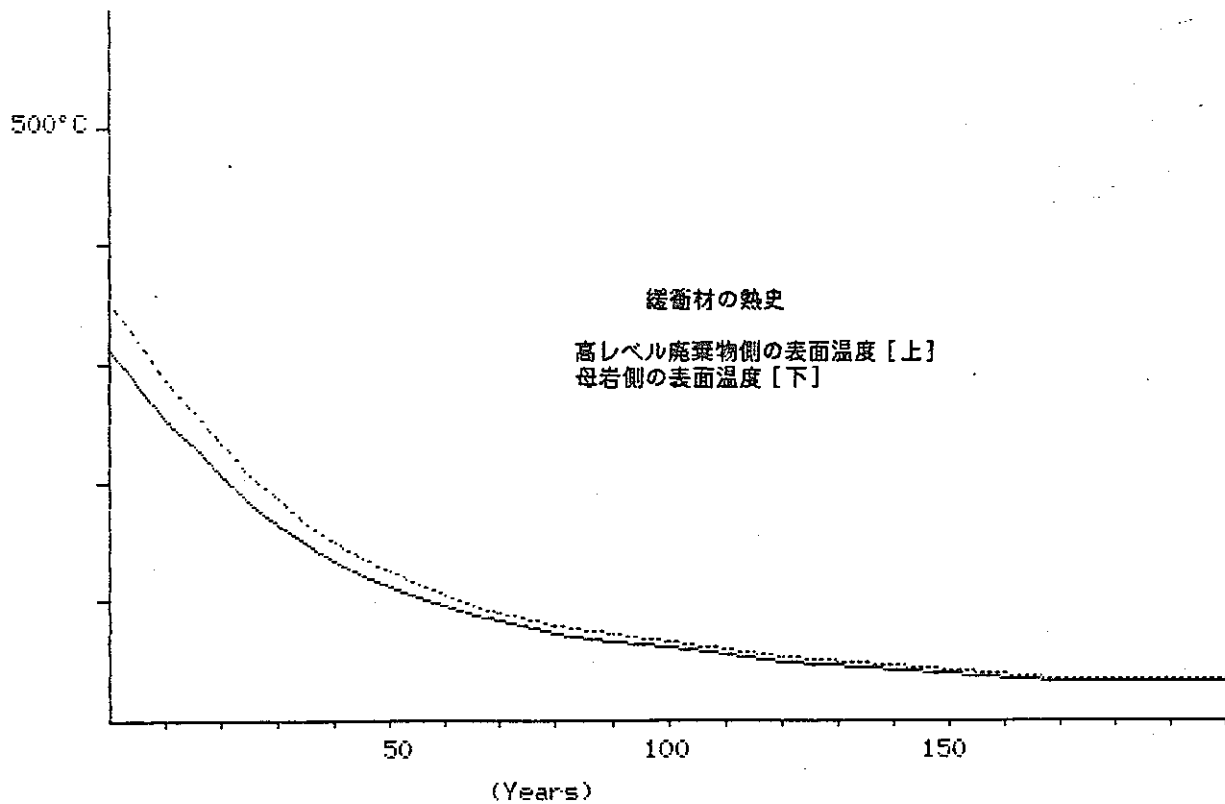
Assumption = 25°C at 15 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	415.9	394.5	394.4	311.8
5	0.43	376.0	356.8	356.7	282.5
10	0.43	336.1	319.1	319.0	253.2
15	0.43	304.2	288.9	288.8	229.8
20	0.43	272.3	258.8	258.7	206.4
25	0.43	240.4	228.6	228.5	183.0
30	0.43	216.5	206.0	205.9	165.5
35	0.43	192.5	183.4	183.3	147.9
40	0.43	172.6	164.5	164.5	133.3
45	0.43	156.6	149.4	149.4	121.6
50	0.43	143.1	136.6	136.6	111.6
55	0.43	131.1	125.3	125.3	102.8
60	0.43	120.7	115.5	115.5	95.2
65	0.43	110.4	105.7	105.7	87.6
70	0.43	103.2	98.9	98.9	82.4
80	0.43	88.8	85.3	85.3	71.8
90	0.43	80.8	77.8	77.8	66.0
100	0.43	72.9	70.2	70.2	60.1
120	0.43	56.9	55.2	55.2	48.4
170	0.43	36.2	35.6	35.6	33.2
470	0.43	26.6	26.5	26.5	26.2



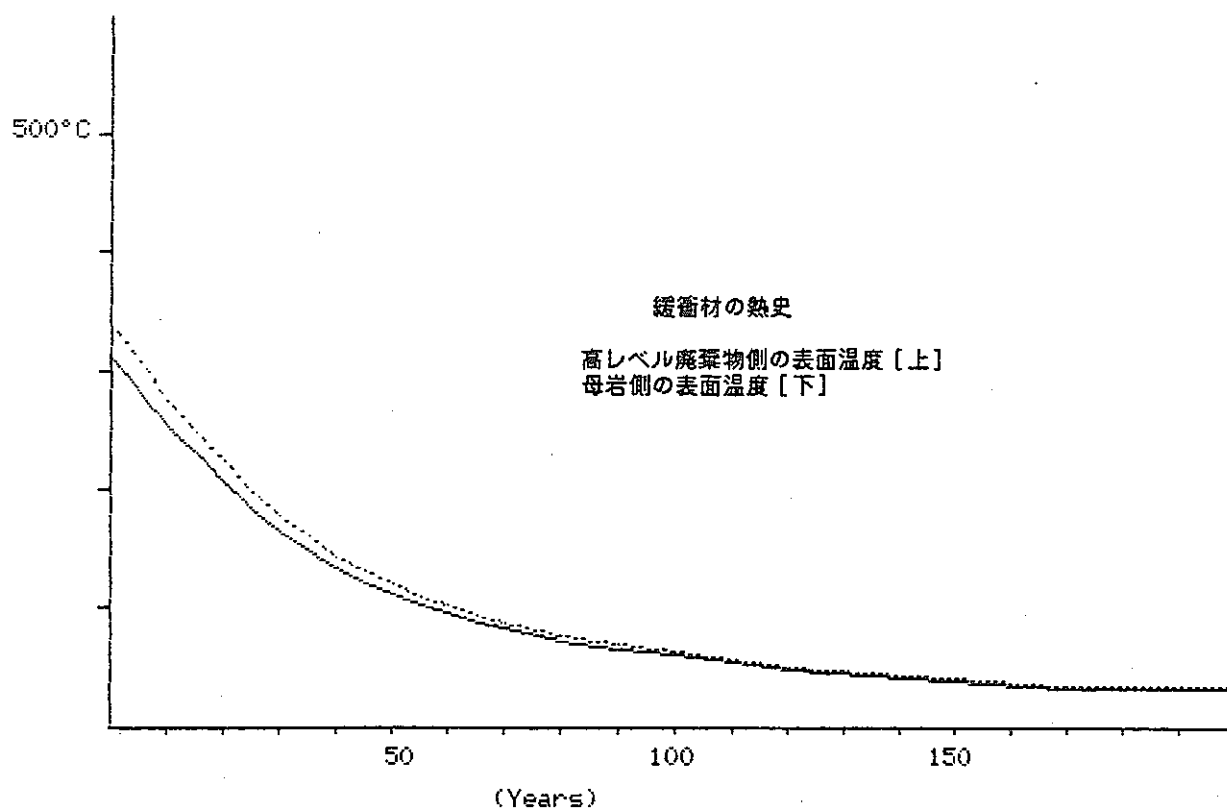
Assumption = 25°C at 15 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	374.6	353.2	353.1	311.8
5	0.86	338.9	319.7	319.6	282.5
10	0.86	303.3	286.2	286.1	253.2
15	0.86	274.7	259.4	259.3	229.8
20	0.86	246.2	232.6	232.6	206.4
25	0.86	217.6	205.8	205.8	183.0
30	0.86	196.2	185.7	185.7	165.5
35	0.86	174.8	165.7	165.6	147.9
40	0.86	157.0	148.9	148.9	133.3
45	0.86	142.7	135.5	135.5	121.6
50	0.86	130.6	124.1	124.1	111.6
55	0.86	119.9	114.1	114.0	102.8
60	0.86	110.6	105.4	105.3	95.2
65	0.86	101.3	96.7	96.6	87.6
70	0.86	94.9	90.6	90.6	82.4
80	0.86	82.1	78.6	78.6	71.8
90	0.86	74.9	71.9	71.9	66.0
100	0.86	67.8	65.2	65.2	60.1
120	0.86	53.5	51.8	51.8	48.4
170	0.86	35.0	34.4	34.4	33.2
470	0.86	26.4	26.3	26.3	26.2



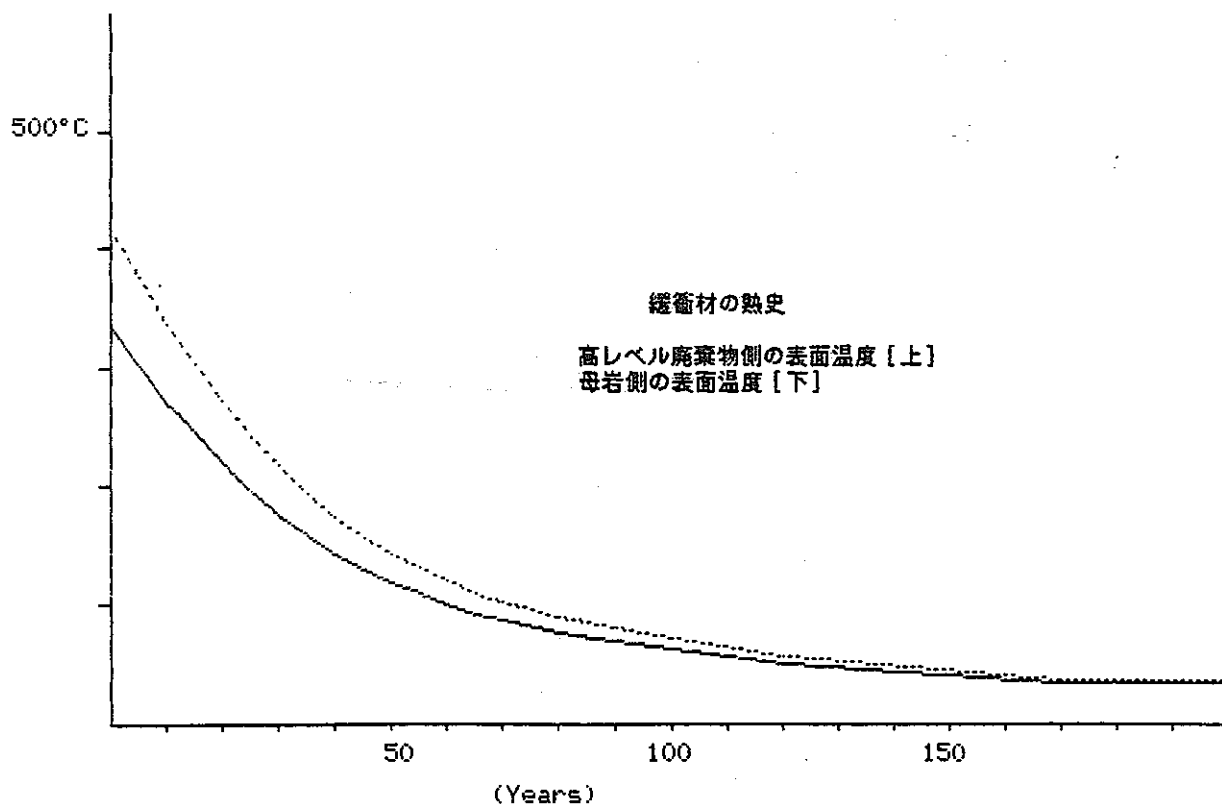
Assumption = 25°C at 15 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	360.8	339.4	339.3	311.8
5	1.29	326.6	307.3	307.2	282.5
10	1.29	292.3	275.3	275.2	253.2
15	1.29	264.9	249.6	249.5	229.8
20	1.29	237.5	223.9	223.8	206.4
25	1.29	210.1	198.3	198.2	183.0
30	1.29	189.5	179.0	178.9	165.5
35	1.29	168.9	159.8	159.7	147.9
40	1.29	151.8	143.7	143.7	133.3
45	1.29	138.1	130.9	130.8	121.6
50	1.29	126.4	120.0	119.9	111.6
55	1.29	116.2	110.3	110.3	102.8
60	1.29	107.2	102.0	102.0	95.2
65	1.29	98.3	93.7	93.6	87.6
70	1.29	92.2	87.9	87.9	82.4
80	1.29	79.8	76.3	76.3	71.8
90	1.29	73.0	69.9	69.9	66.0
100	1.29	66.1	63.5	63.5	60.1
120	1.29	52.4	50.7	50.7	48.4
170	1.29	34.6	34.0	34.0	33.2
470	1.29	26.4	26.3	26.3	26.2



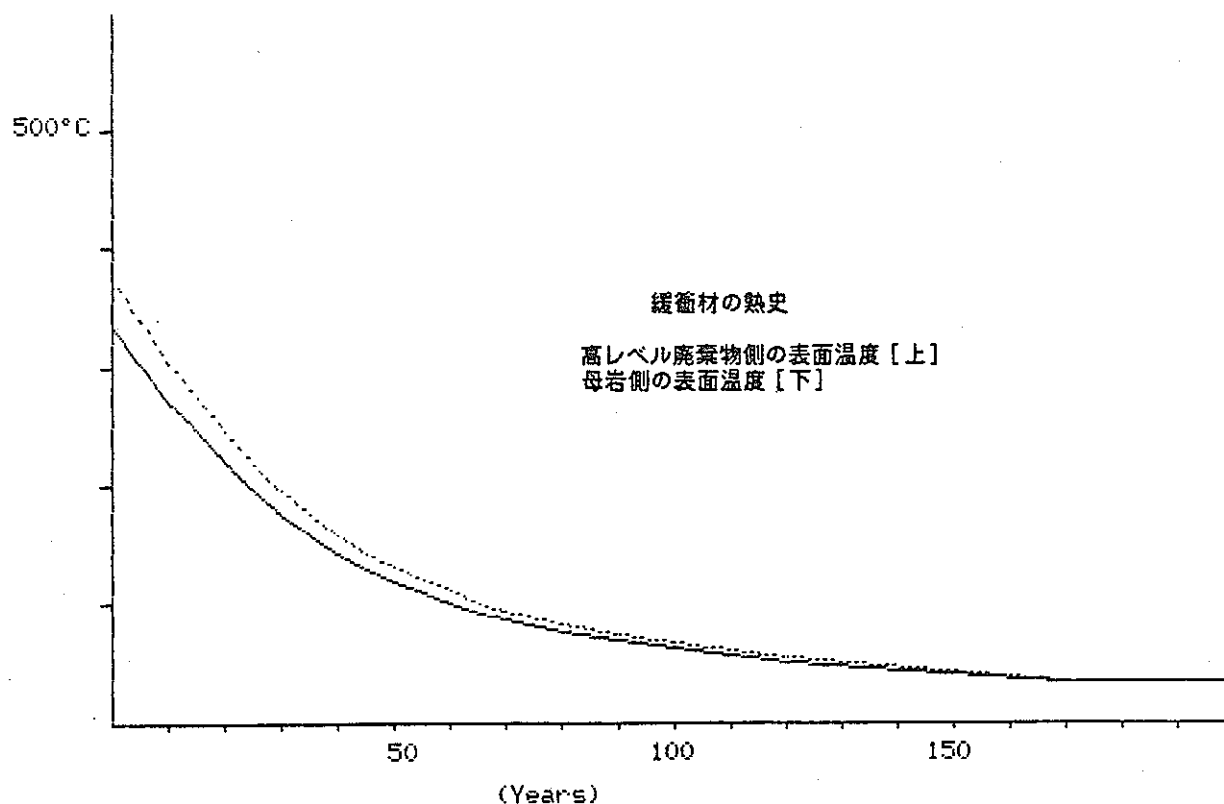
Assumption = 25°C at 20 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	438.2	416.8	416.7	334.0
5	0.43	396.0	376.8	376.7	302.5
10	0.43	353.9	336.8	336.7	271.0
15	0.43	320.1	304.8	304.8	245.7
20	0.43	286.4	272.9	272.8	220.5
25	0.43	252.7	240.9	240.8	195.3
30	0.43	227.4	216.9	216.8	176.4
35	0.43	202.1	192.9	192.9	157.4
40	0.43	181.0	172.9	172.9	141.7
45	0.43	164.1	156.9	156.9	129.1
50	0.43	149.8	143.3	143.3	118.3
55	0.43	137.2	131.3	131.3	108.9
60	0.43	126.2	120.9	120.9	100.7
65	0.43	115.2	110.6	110.5	92.5
70	0.43	107.6	103.4	103.3	86.8
80	0.43	92.5	89.0	88.9	75.5
90	0.43	84.0	81.0	81.0	69.1
100	0.43	75.6	73.0	73.0	62.8
120	0.43	58.7	57.0	57.0	50.2
170	0.43	36.8	36.2	36.2	33.8
470	0.43	26.7	26.6	26.6	26.3



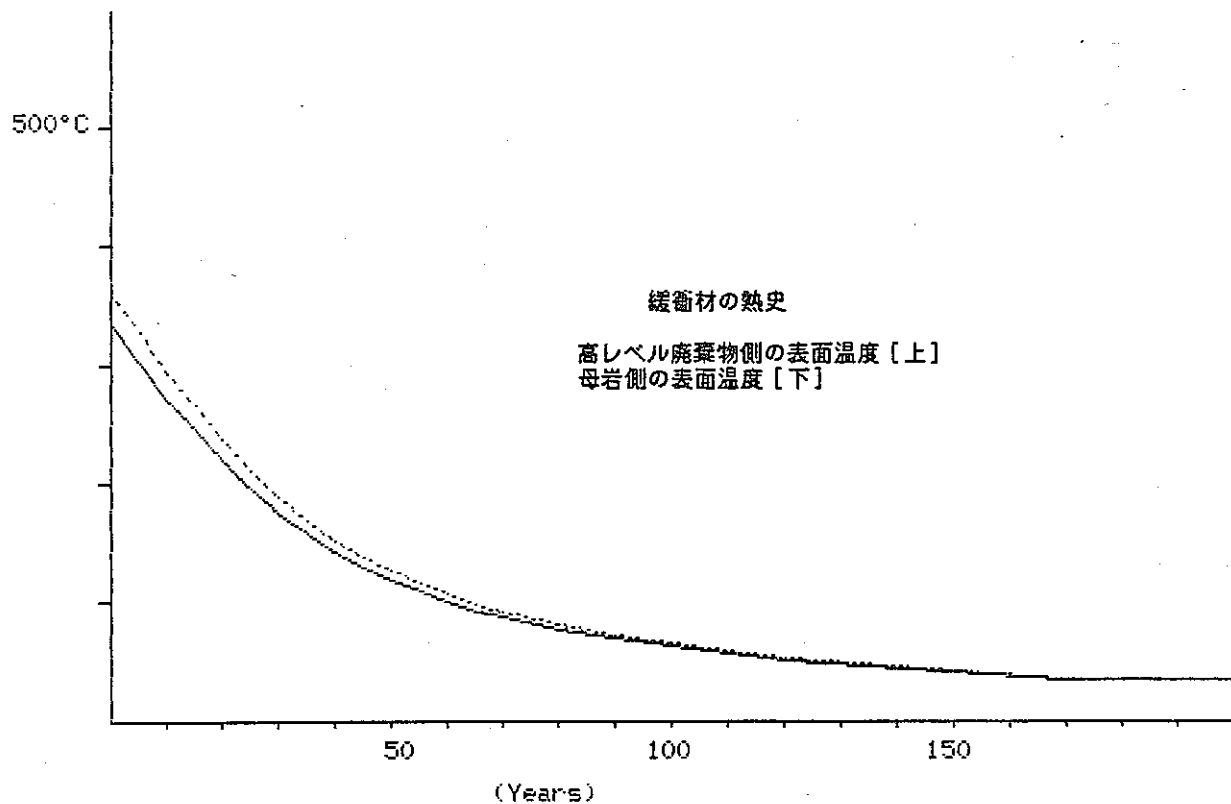
Assumption = 25°C at 20 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	396.9	375.5	375.3	334.0
5	0.86	358.9	339.7	339.6	302.5
10	0.86	321.0	303.9	303.8	271.0
15	0.86	290.6	275.3	275.2	245.7
20	0.86	260.3	246.7	246.6	220.5
25	0.86	229.9	218.1	218.0	195.3
30	0.86	207.1	196.7	196.6	176.4
35	0.86	184.4	175.2	175.1	157.4
40	0.86	165.4	157.3	157.3	141.7
45	0.86	150.2	143.0	143.0	129.1
50	0.86	137.3	130.9	130.8	118.3
55	0.86	125.9	120.1	120.1	108.9
60	0.86	116.1	110.8	110.8	100.7
65	0.86	106.2	101.5	101.5	92.5
70	0.86	99.4	95.1	95.1	86.8
80	0.86	85.7	82.2	82.2	75.5
90	0.86	78.1	75.1	75.0	69.1
100	0.86	70.5	67.9	67.9	62.8
120	0.86	55.4	53.6	53.6	50.2
170	0.86	35.6	35.0	35.0	33.8
470	0.86	26.5	26.4	26.4	26.3



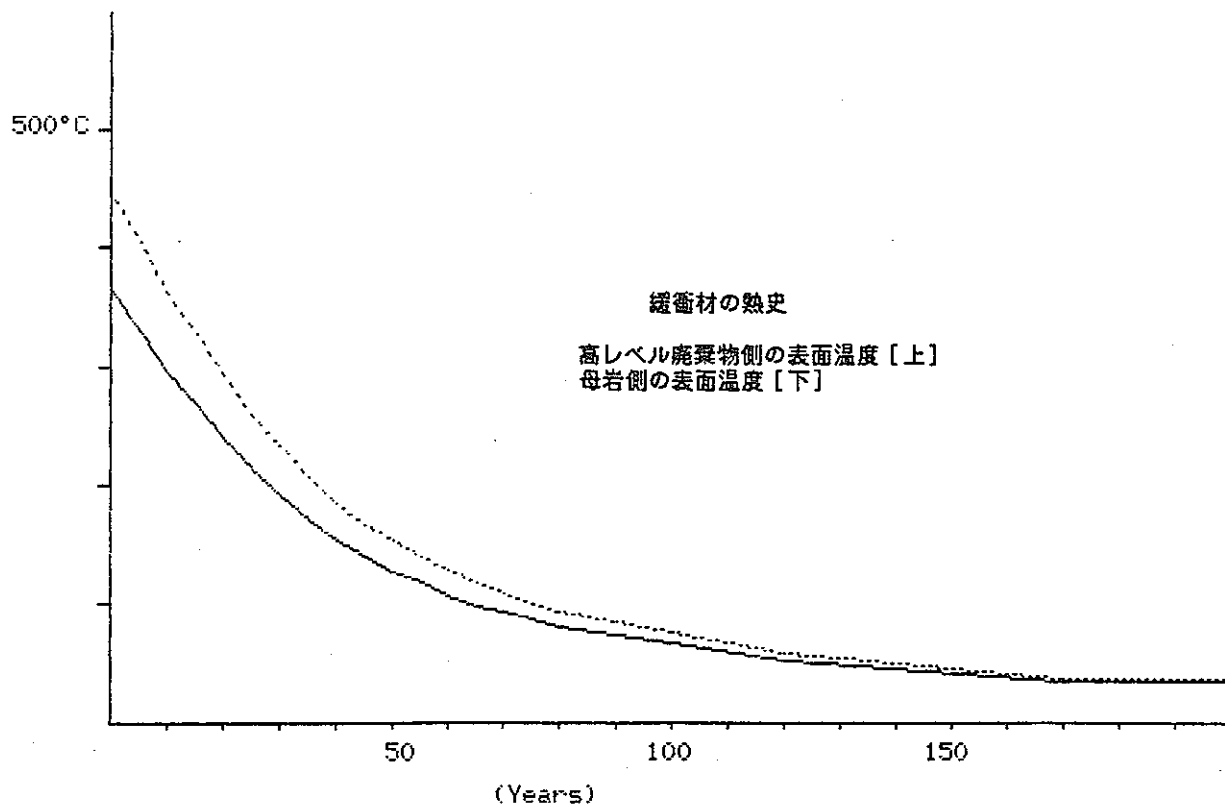
Assumption = 25°C at 20 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	383.1	361.7	361.6	334.0
5	1.29	346.6	327.3	327.2	302.5
10	1.29	310.0	293.0	292.9	271.0
15	1.29	280.8	265.5	265.4	245.7
20	1.29	251.6	238.0	237.9	220.5
25	1.29	222.3	210.5	210.5	195.3
30	1.29	200.4	189.9	189.9	176.4
35	1.29	178.5	169.3	169.2	157.4
40	1.29	160.2	152.1	152.1	141.7
45	1.29	145.6	138.4	138.3	129.1
50	1.29	133.2	126.7	126.7	118.3
55	1.29	122.2	116.4	116.4	108.9
60	1.29	112.7	107.5	107.4	100.7
65	1.29	103.2	98.5	98.5	92.5
70	1.29	96.6	92.3	92.3	86.8
80	1.29	83.5	80.0	80.0	75.5
90	1.29	76.2	73.1	73.1	69.1
100	1.29	68.9	66.2	66.2	62.8
120	1.29	54.2	52.5	52.5	50.2
170	1.29	35.2	34.6	34.6	33.8
470	1.29	26.5	26.4	26.4	26.3



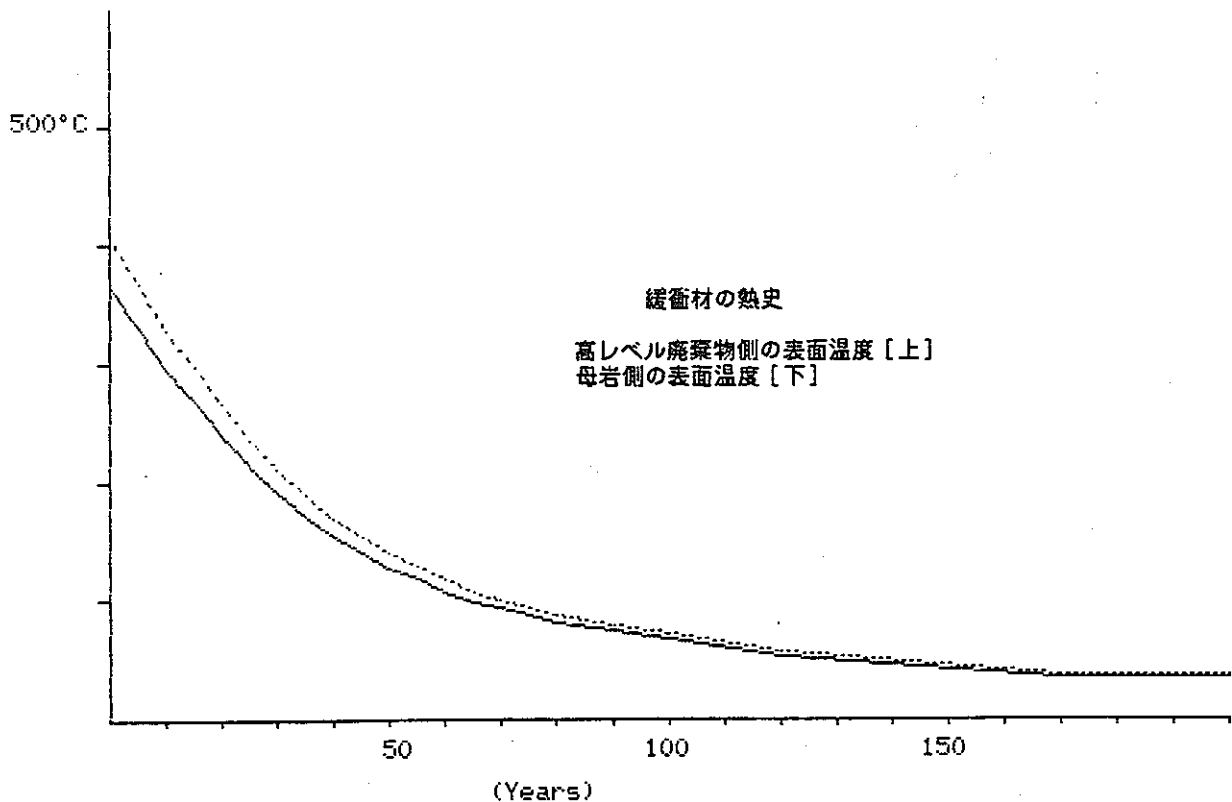
Assumption = 25°C at 30 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	469.6	448.2	448.0	365.4
5	0.43	424.2	405.0	404.9	330.7
10	0.43	378.9	361.8	361.7	295.9
15	0.43	342.6	327.3	327.2	268.2
20	0.43	306.3	292.7	292.6	240.4
25	0.43	270.0	258.2	258.1	212.6
30	0.43	242.8	232.3	232.2	191.7
35	0.43	215.5	206.4	206.3	170.9
40	0.43	192.9	184.8	184.7	153.5
45	0.43	174.7	167.5	167.5	139.6
50	0.43	159.3	152.8	152.8	127.8
55	0.43	145.7	139.9	139.8	117.4
60	0.43	133.9	128.6	128.6	108.4
65	0.43	122.1	117.4	117.4	99.3
70	0.43	113.9	109.6	109.6	93.1
80	0.43	97.6	94.1	94.1	80.6
90	0.43	88.5	85.5	85.4	73.6
100	0.43	79.4	76.8	76.8	66.7
120	0.43	61.3	59.5	59.5	52.8
170	0.43	37.7	37.1	37.1	34.7
470	0.43	26.8	26.7	26.7	26.4



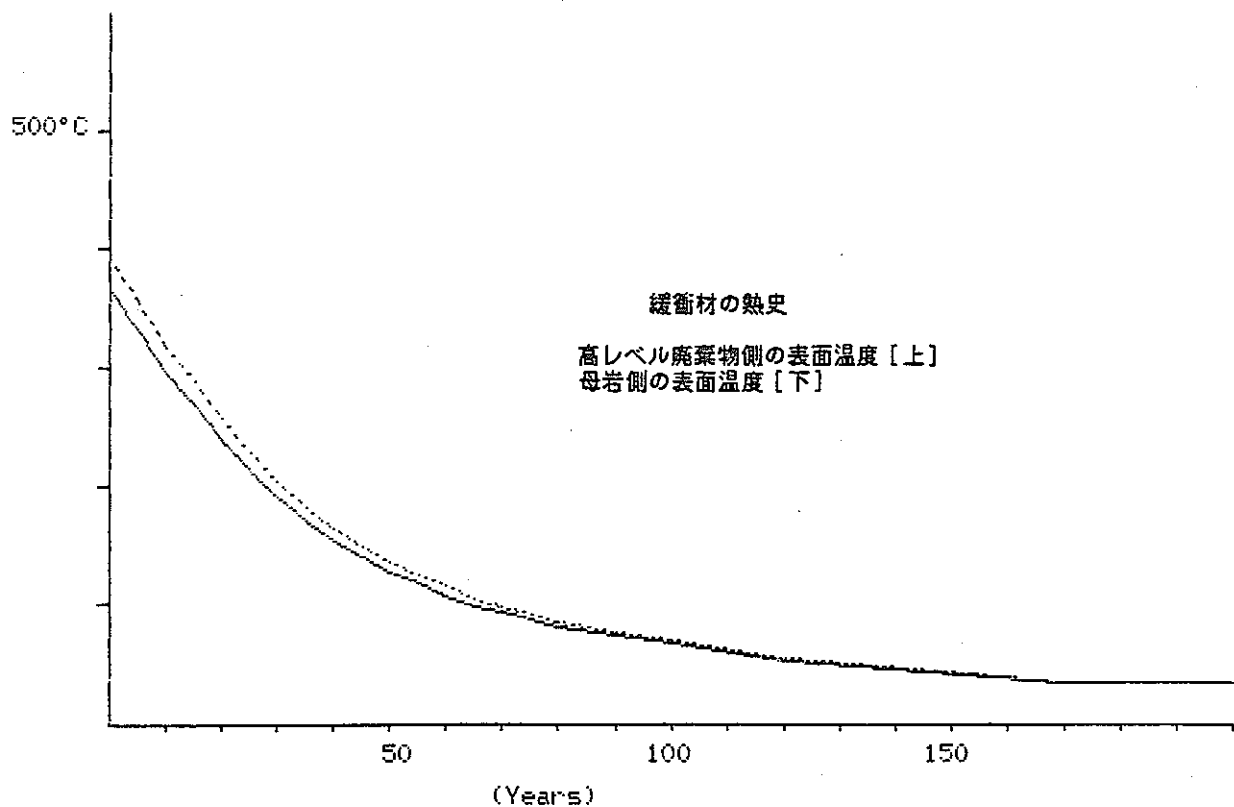
Assumption = 25°C at 30 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	428.3	406.9	406.7	365.4
5	0.86	387.1	367.9	367.8	330.7
10	0.86	346.0	328.9	328.8	295.9
15	0.86	313.1	297.8	297.7	268.2
20	0.86	280.1	266.6	266.5	240.4
25	0.86	247.2	235.4	235.3	212.6
30	0.86	222.5	212.0	212.0	191.7
35	0.86	197.8	188.7	188.6	170.9
40	0.86	177.3	169.2	169.1	153.5
45	0.86	160.8	153.6	153.5	139.6
50	0.86	146.8	140.3	140.3	127.8
55	0.86	134.5	128.6	128.6	117.4
60	0.86	123.8	118.5	118.5	108.4
65	0.86	113.1	108.4	108.4	99.3
70	0.86	105.7	101.4	101.3	93.1
80	0.86	90.8	87.3	87.3	80.6
90	0.86	82.6	79.6	79.5	73.6
100	0.86	74.4	71.8	71.7	66.7
120	0.86	57.9	56.2	56.2	52.8
170	0.86	36.5	35.9	35.9	34.7
470	0.86	26.6	26.6	26.6	26.4



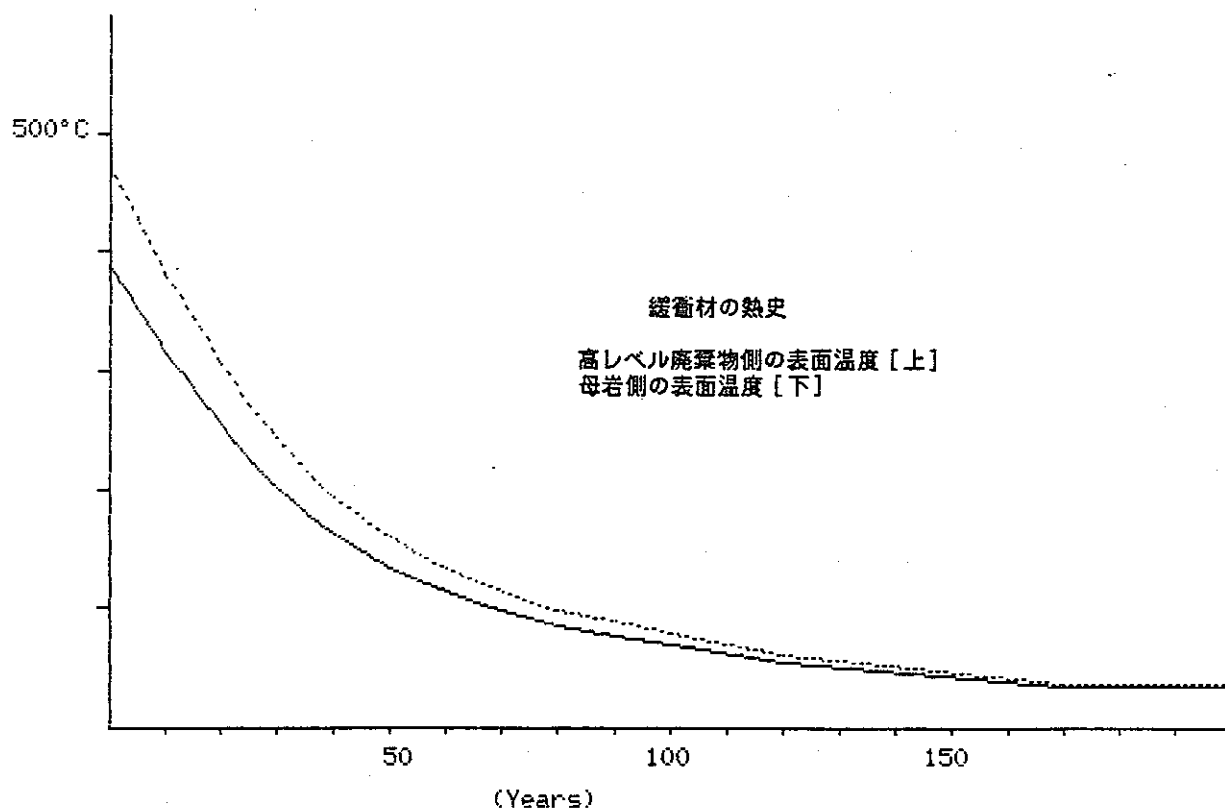
Assumption = 25°C at 30 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	414.5	393.1	393.0	365.4
5	1.29	374.8	355.5	355.4	330.7
10	1.29	335.0	318.0	317.9	295.9
15	1.29	303.2	287.9	287.8	268.2
20	1.29	271.4	257.9	257.8	240.4
25	1.29	239.6	227.8	227.8	212.6
30	1.29	215.8	205.3	205.2	191.7
35	1.29	191.9	182.7	182.7	170.9
40	1.29	172.1	164.0	163.9	153.5
45	1.29	156.2	148.9	148.9	139.6
50	1.29	142.6	136.2	136.1	127.8
55	1.29	130.7	124.9	124.9	117.4
60	1.29	120.4	115.1	115.1	108.4
65	1.29	110.1	105.4	105.4	99.3
70	1.29	102.9	98.6	98.6	93.1
80	1.29	88.6	85.1	85.1	80.6
90	1.29	80.6	77.6	77.6	73.6
100	1.29	72.7	70.1	70.1	66.7
120	1.29	56.8	55.0	55.0	52.8
170	1.29	36.1	35.5	35.5	34.7
470	1.29	26.6	26.5	26.5	26.4



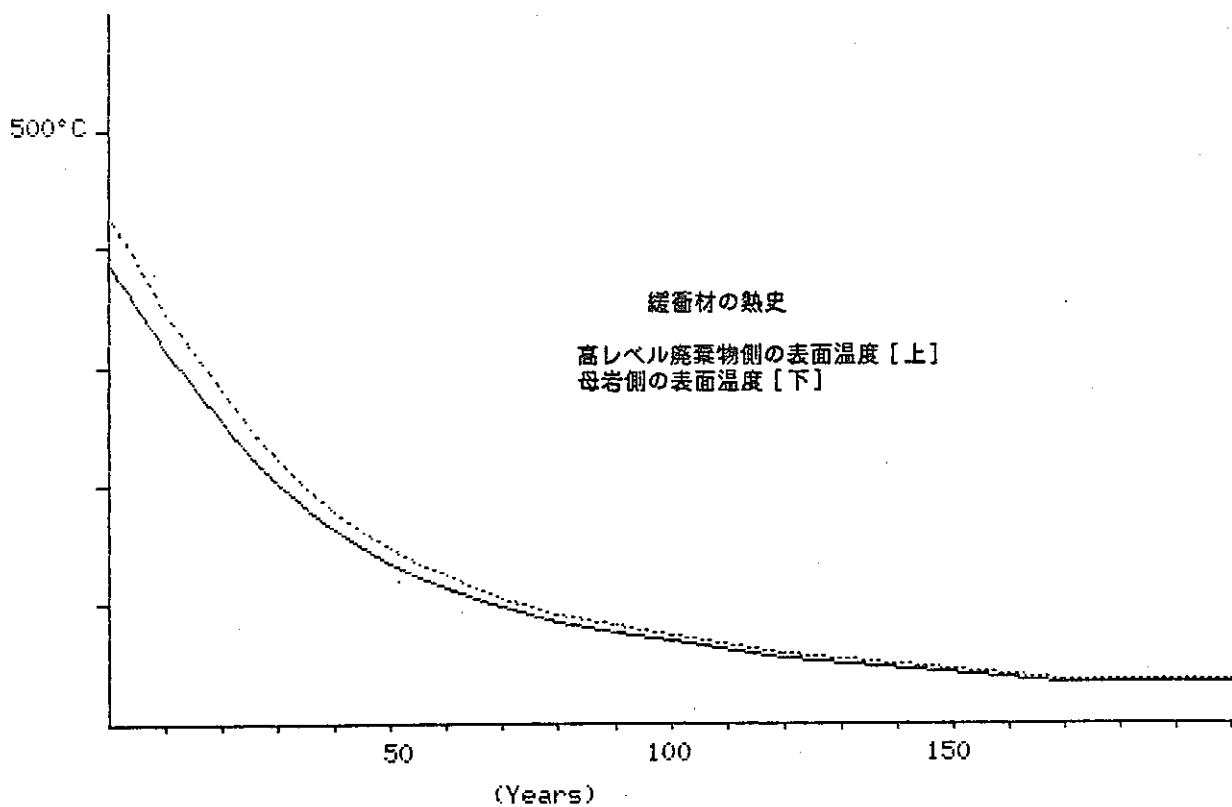
Assumption = 25°C at 40 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	491.9	470.4	470.3	387.7
5	0.43	444.2	425.0	424.9	350.7
10	0.43	396.6	379.5	379.4	313.7
15	0.43	358.5	343.2	343.1	284.1
20	0.43	320.4	306.8	306.7	254.5
25	0.43	282.2	270.4	270.4	224.9
30	0.43	253.7	243.2	243.1	202.6
35	0.43	225.1	215.9	215.9	180.4
40	0.43	201.3	193.2	193.1	161.9
45	0.43	182.2	175.0	175.0	147.1
50	0.43	166.0	159.5	159.5	134.5
55	0.43	151.7	145.9	145.9	123.4
60	0.43	139.3	134.1	134.1	113.8
65	0.43	126.9	122.3	122.2	104.2
70	0.43	118.4	114.1	114.1	97.5
80	0.43	101.2	97.7	97.7	84.2
90	0.43	91.7	88.6	88.6	76.8
100	0.43	82.2	79.5	79.5	69.4
120	0.43	63.1	61.4	61.4	54.6
170	0.43	38.3	37.7	37.7	35.4
470	0.43	26.9	26.8	26.8	26.5



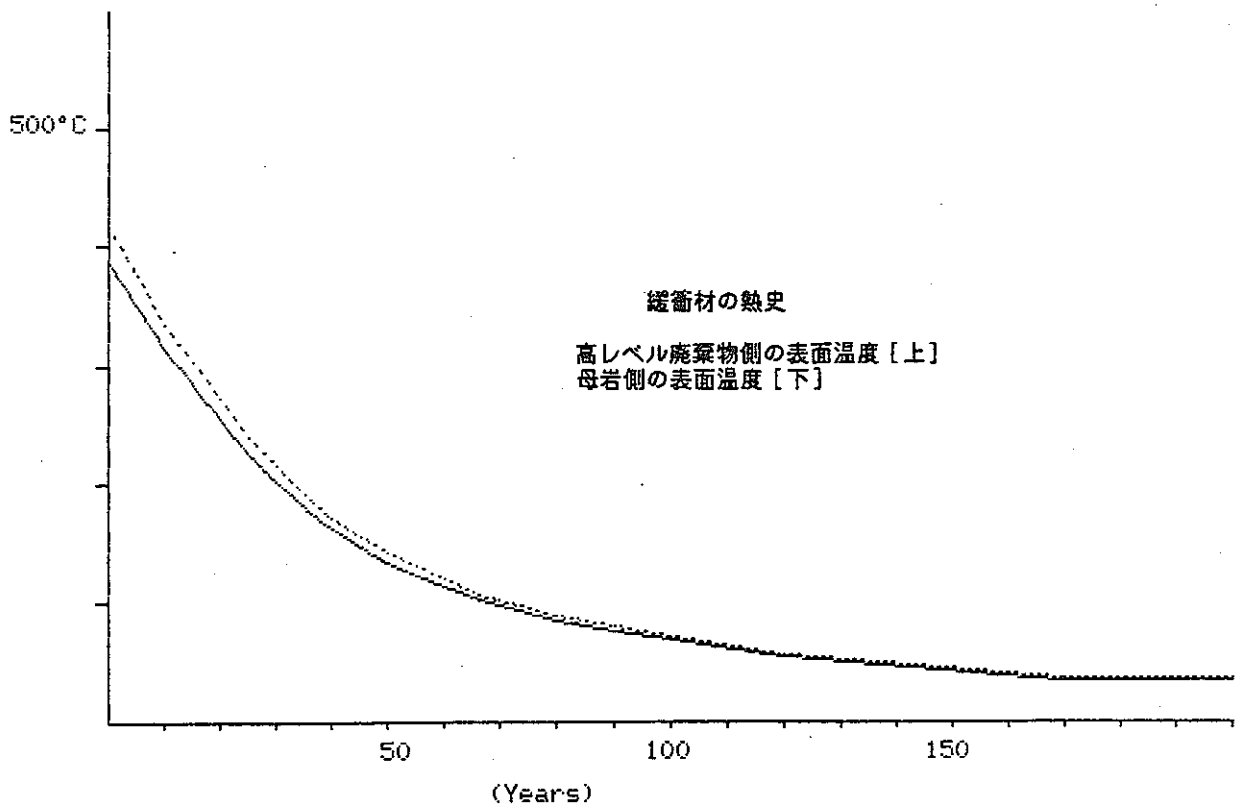
Assumption = 25°C at 40 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	450.5	429.1	429.0	387.7
5	0.86	407.1	387.9	387.8	350.7
10	0.86	363.7	346.7	346.6	313.7
15	0.86	329.0	313.7	313.6	284.1
20	0.86	294.2	280.7	280.6	254.5
25	0.86	259.5	247.7	247.6	224.9
30	0.86	233.4	222.9	222.9	202.6
35	0.86	207.4	198.2	198.1	180.4
40	0.86	185.7	177.6	177.5	161.9
45	0.86	168.3	161.1	161.0	147.1
50	0.86	153.5	147.1	147.0	134.5
55	0.86	140.5	134.7	134.7	123.4
60	0.86	129.2	124.0	123.9	113.8
65	0.86	117.9	113.2	113.2	104.2
70	0.86	110.1	105.8	105.8	97.5
80	0.86	94.5	91.0	91.0	84.2
90	0.86	85.8	82.7	82.7	76.8
100	0.86	77.1	74.5	74.5	69.4
120	0.86	59.7	58.0	58.0	54.6
170	0.86	37.2	36.5	36.5	35.4
470	0.86	26.7	26.6	26.6	26.5



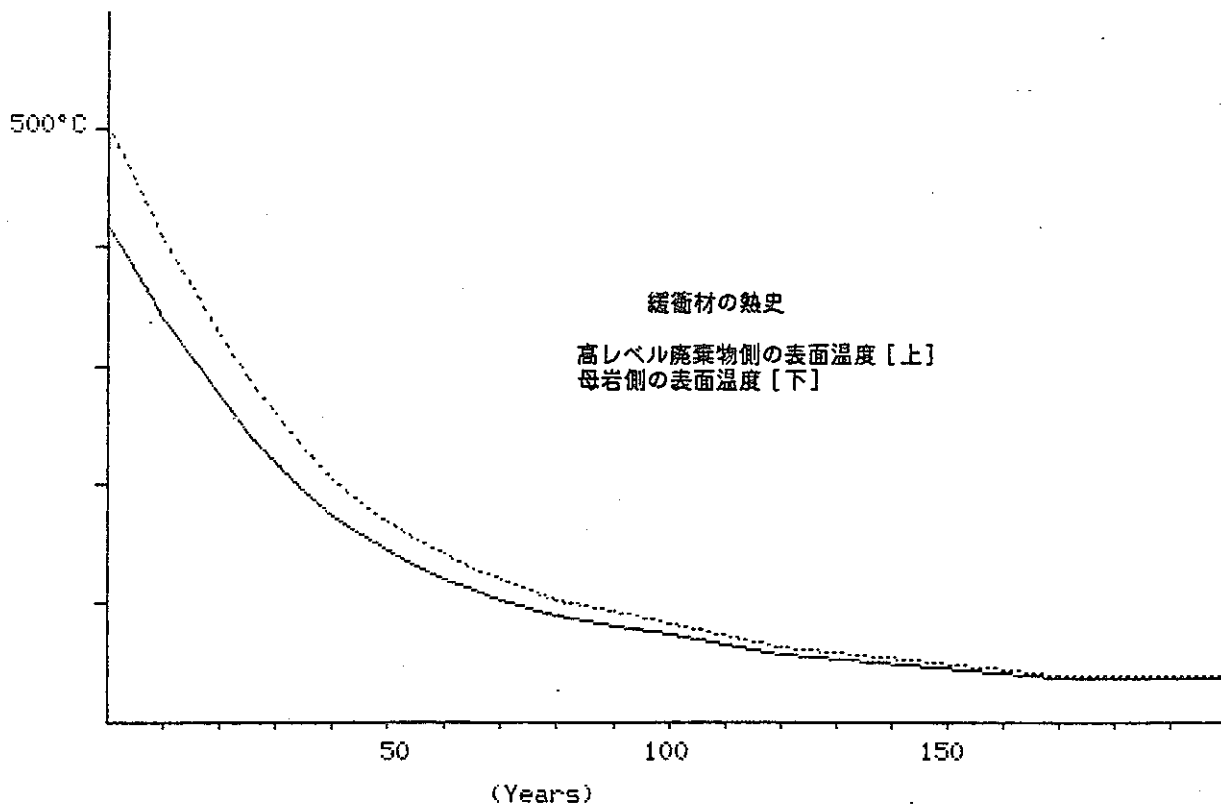
Assumption = 25°C at 40 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	436.8	415.4	415.2	387.7
5	1.29	394.8	375.5	375.4	350.7
10	1.29	352.7	335.7	335.6	313.7
15	1.29	319.1	303.8	303.7	284.1
20	1.29	285.5	272.0	271.9	254.5
25	1.29	251.9	240.1	240.0	224.9
30	1.29	226.7	216.2	216.1	202.6
35	1.29	201.5	192.3	192.2	180.4
40	1.29	180.5	172.4	172.3	161.9
45	1.29	163.7	156.4	156.4	147.1
50	1.29	149.4	142.9	142.9	134.5
55	1.29	136.8	131.0	130.9	123.4
60	1.29	125.8	120.6	120.6	113.8
65	1.29	114.9	110.2	110.2	104.2
70	1.29	107.4	103.1	103.0	97.5
80	1.29	92.2	88.7	88.7	84.2
90	1.29	83.8	80.8	80.7	76.8
100	1.29	75.4	72.8	72.8	69.4
120	1.29	58.6	56.9	56.9	54.6
170	1.29	36.8	36.2	36.1	35.4
470	1.29	26.7	26.6	26.6	26.5



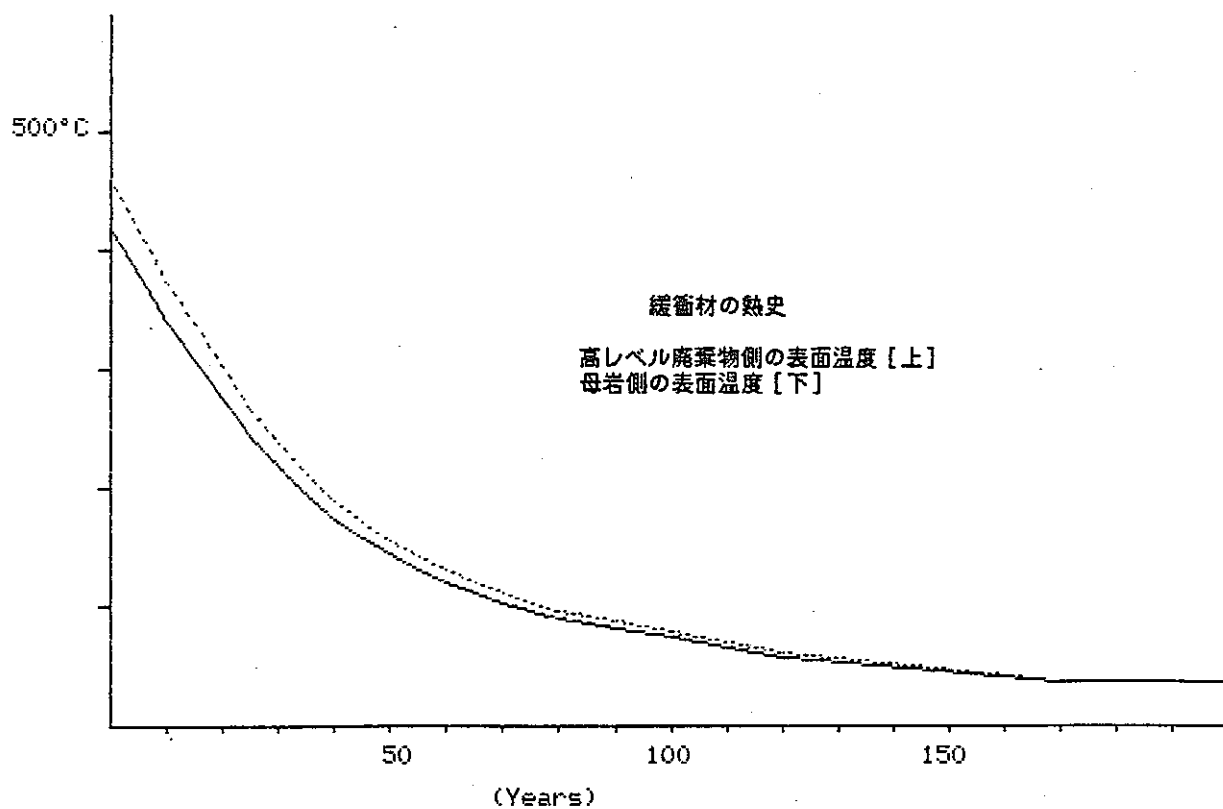
Assumption = 25°C at 60 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	523.2	501.8	501.7	419.1
5	0.43	472.4	453.2	453.1	378.9
10	0.43	421.6	404.5	404.4	338.7
15	0.43	380.9	365.6	365.5	306.5
20	0.43	340.2	326.7	326.6	274.3
25	0.43	299.5	287.7	287.7	242.1
30	0.43	269.0	258.5	258.5	218.0
35	0.43	238.5	229.4	229.3	193.9
40	0.43	213.1	205.0	205.0	173.8
45	0.43	192.8	185.6	185.5	157.7
50	0.43	175.5	169.0	169.0	144.0
55	0.43	160.2	154.4	154.4	132.0
60	0.43	147.0	141.8	141.7	121.5
65	0.43	133.8	129.1	129.1	111.1
70	0.43	124.6	120.4	120.3	103.8
80	0.43	106.3	102.8	102.8	89.3
90	0.43	96.2	93.1	93.1	81.3
100	0.43	86.0	83.4	83.4	73.3
120	0.43	65.7	63.9	63.9	57.2
170	0.43	39.2	38.6	38.6	36.3
470	0.43	27.0	26.9	26.9	26.6



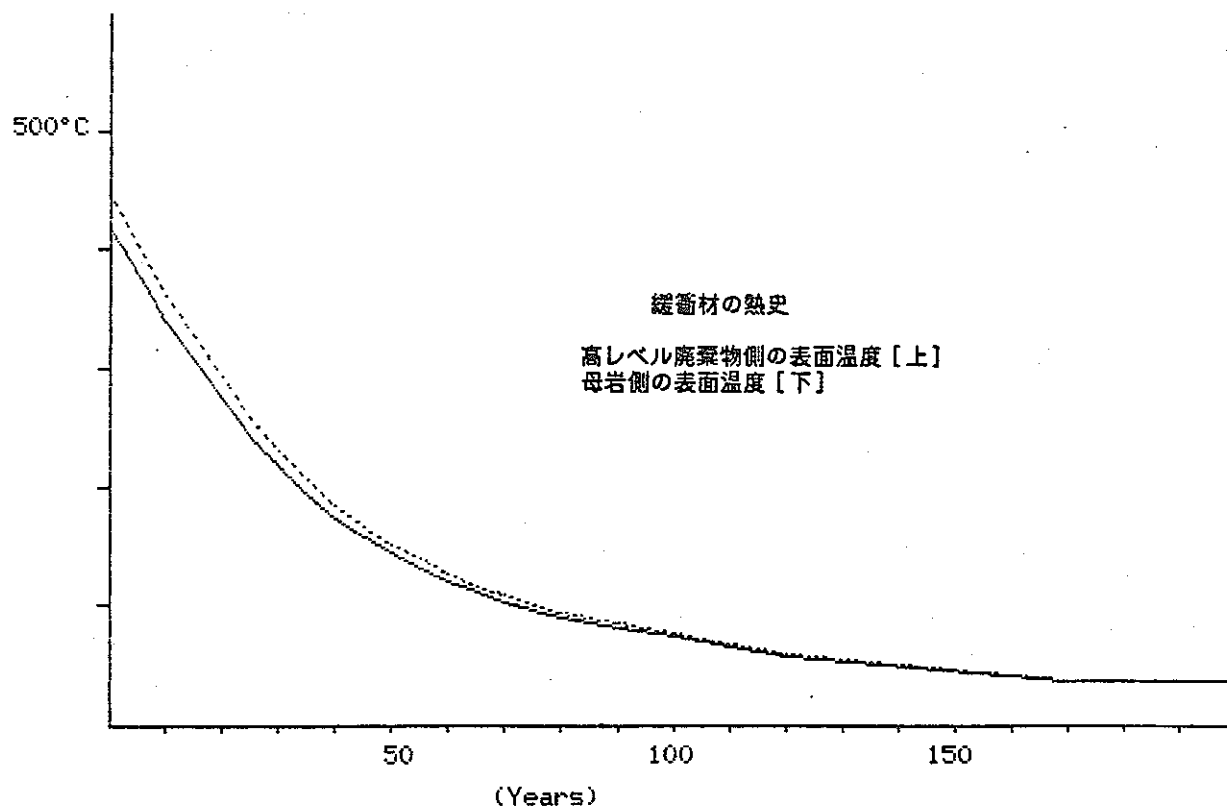
Assumption = 25°C at 60 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	481.9	460.5	460.4	419.1
5	0.86	435.3	416.1	416.0	378.9
10	0.86	388.7	371.6	371.5	338.7
15	0.86	351.4	336.1	336.0	306.5
20	0.86	314.1	300.5	300.5	274.3
25	0.86	276.8	265.0	264.9	242.1
30	0.86	248.8	238.3	238.3	218.0
35	0.86	220.8	211.6	211.6	193.9
40	0.86	197.5	189.4	189.4	173.8
45	0.86	178.9	171.7	171.6	157.7
50	0.86	163.0	156.5	156.5	144.0
55	0.86	149.0	143.2	143.2	132.0
60	0.86	136.9	131.7	131.6	121.5
65	0.86	124.8	120.1	120.1	111.1
70	0.86	116.4	112.1	112.1	103.8
80	0.86	99.6	96.1	96.1	89.3
90	0.86	90.3	87.2	87.2	81.3
100	0.86	81.0	78.3	78.3	73.3
120	0.86	62.3	60.6	60.5	57.2
170	0.86	38.1	37.4	37.4	36.3
470	0.86	26.9	26.8	26.8	26.6



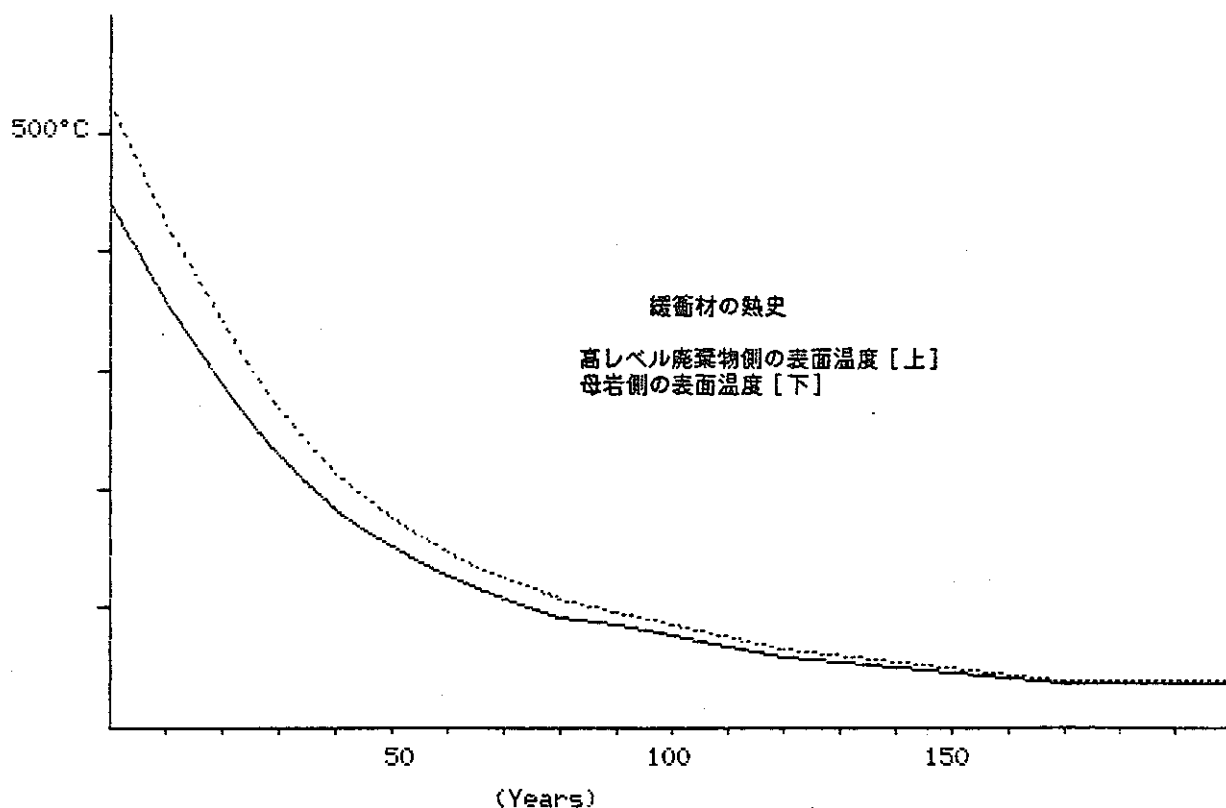
Assumption = 25°C at 60 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	468.2	446.7	446.6	419.1
5	1.29	422.9	403.7	403.6	378.9
10	1.29	377.7	360.7	360.6	338.7
15	1.29	341.5	326.2	326.2	306.5
20	1.29	305.4	291.8	291.7	274.3
25	1.29	269.2	257.4	257.3	242.1
30	1.29	242.1	231.6	231.5	218.0
35	1.29	214.9	205.7	205.7	193.9
40	1.29	192.3	184.2	184.2	173.8
45	1.29	174.2	167.0	167.0	157.7
50	1.29	158.9	152.4	152.3	144.0
55	1.29	145.3	139.5	139.4	132.0
60	1.29	133.5	128.3	128.3	121.5
65	1.29	121.8	117.1	117.1	111.1
70	1.29	113.6	109.3	109.3	103.8
80	1.29	97.4	93.9	93.8	89.3
90	1.29	88.3	85.2	85.2	81.3
100	1.29	79.3	76.6	76.6	73.3
120	1.29	61.2	59.4	59.4	57.2
170	1.29	37.7	37.0	37.0	36.3
470	1.29	26.8	26.7	26.7	26.6



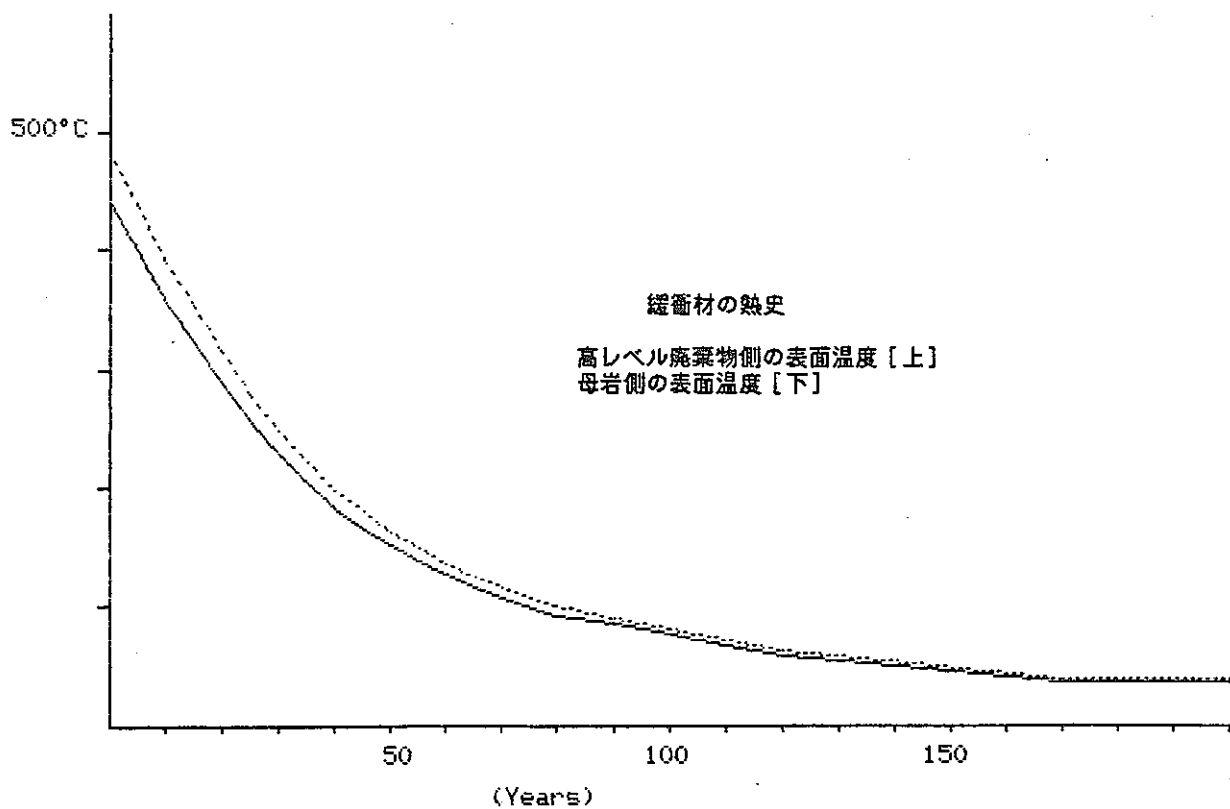
Assumption = 25°C at 80 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	545.5	524.1	524.0	441.4
5	0.43	492.4	473.2	473.1	398.9
10	0.43	439.3	422.2	422.1	356.4
15	0.43	396.8	381.5	381.4	322.4
20	0.43	354.3	340.8	340.7	288.4
25	0.43	311.8	300.0	299.9	254.4
30	0.43	279.9	269.5	269.4	228.9
35	0.43	248.1	238.9	238.8	203.4
40	0.43	221.5	213.4	213.4	182.2
45	0.43	200.3	193.1	193.0	165.2
50	0.43	182.2	175.7	175.7	150.8
55	0.43	166.3	160.5	160.4	138.0
60	0.43	152.5	147.2	147.2	127.0
65	0.43	138.7	134.0	134.0	115.9
70	0.43	129.1	124.8	124.8	108.3
80	0.43	110.0	106.5	106.5	93.0
90	0.43	99.4	96.3	96.3	84.5
100	0.43	88.7	86.1	86.1	76.0
120	0.43	67.5	65.7	65.7	59.0
170	0.43	39.9	39.3	39.3	36.9
470	0.43	27.1	27.0	27.0	26.7



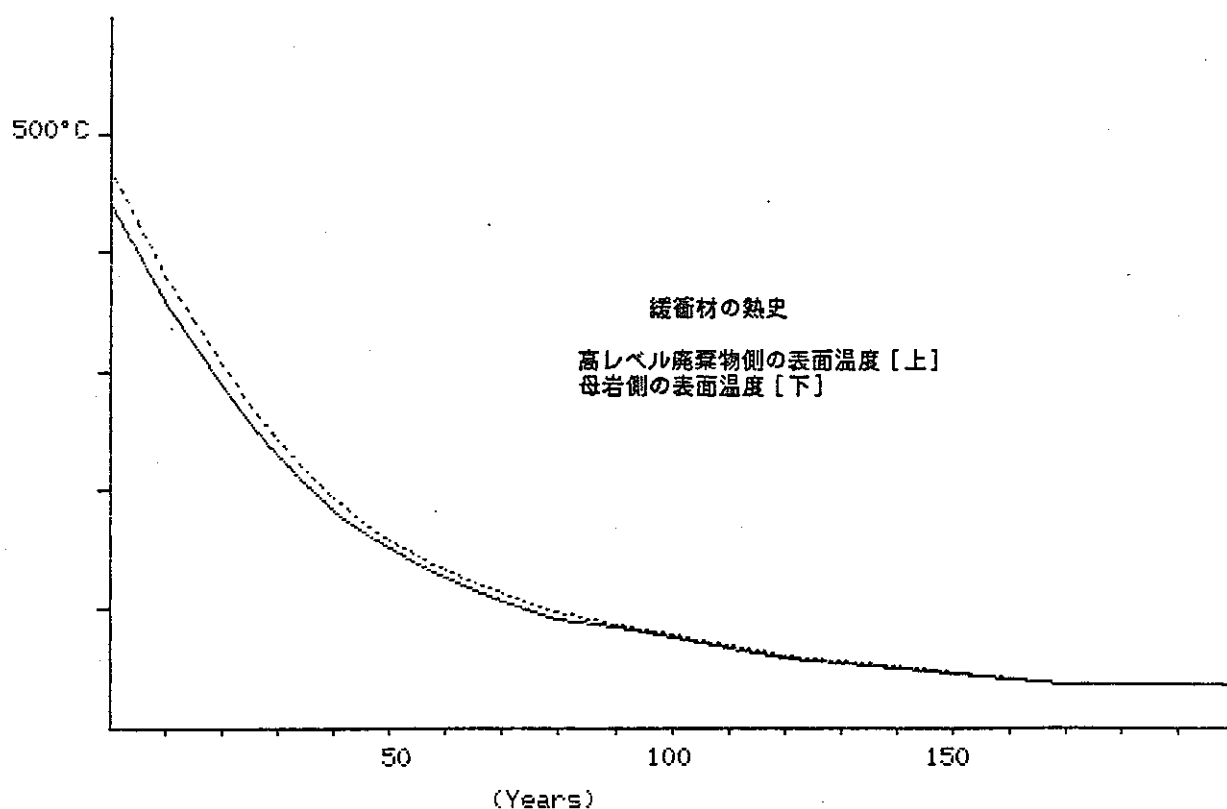
Assumption = 25°C at 80 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	504.2	482.8	482.7	441.4
5	0.86	455.3	436.1	436.0	398.9
10	0.86	406.4	389.4	389.3	356.4
15	0.86	367.3	352.0	351.9	322.4
20	0.86	328.2	314.6	314.5	288.4
25	0.86	289.1	277.2	277.2	254.4
30	0.86	259.7	249.2	249.2	228.9
35	0.86	230.4	221.2	221.1	203.4
40	0.86	205.9	197.8	197.8	182.2
45	0.86	186.4	179.2	179.1	165.2
50	0.86	169.7	163.3	163.2	150.8
55	0.86	155.1	149.3	149.2	138.0
60	0.86	142.4	137.1	137.1	127.0
65	0.86	129.6	125.0	124.9	115.9
70	0.86	120.8	116.6	116.5	108.3
80	0.86	103.2	99.7	99.7	93.0
90	0.86	93.5	90.4	90.4	84.5
100	0.86	83.7	81.1	81.0	76.0
120	0.86	64.1	62.4	62.4	59.0
170	0.86	38.7	38.1	38.1	36.9
470	0.86	27.0	26.9	26.9	26.7



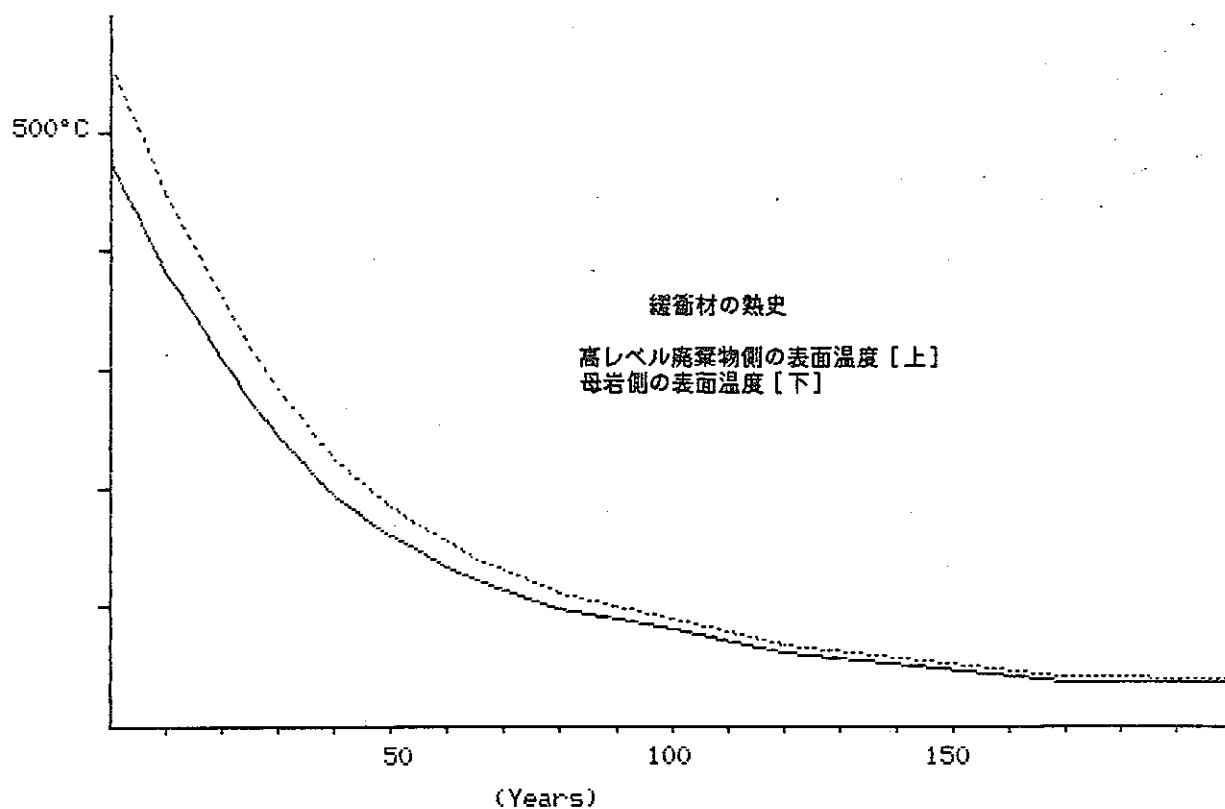
Assumption = 25°C at 80 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	490.4	469.0	468.9	441.4
5	1.29	442.9	423.7	423.6	398.9
10	1.29	395.4	378.4	378.3	356.4
15	1.29	357.5	342.2	342.1	322.4
20	1.29	319.5	305.9	305.8	288.4
25	1.29	281.5	269.7	269.6	254.4
30	1.29	253.0	242.5	242.4	228.9
35	1.29	224.5	215.3	215.2	203.4
40	1.29	200.7	192.6	192.6	182.2
45	1.29	181.7	174.5	174.5	165.2
50	1.29	165.6	159.1	159.1	150.8
55	1.29	151.3	145.5	145.5	138.0
60	1.29	139.0	133.7	133.7	127.0
65	1.29	126.6	122.0	121.9	115.9
70	1.29	118.1	113.8	113.8	108.3
80	1.29	101.0	97.5	97.5	93.0
90	1.29	91.5	88.4	88.4	84.5
100	1.29	82.0	79.4	79.4	76.0
120	1.29	63.0	61.2	61.2	59.0
170	1.29	38.3	37.7	37.7	36.9
470	1.29	26.9	26.8	26.8	26.7



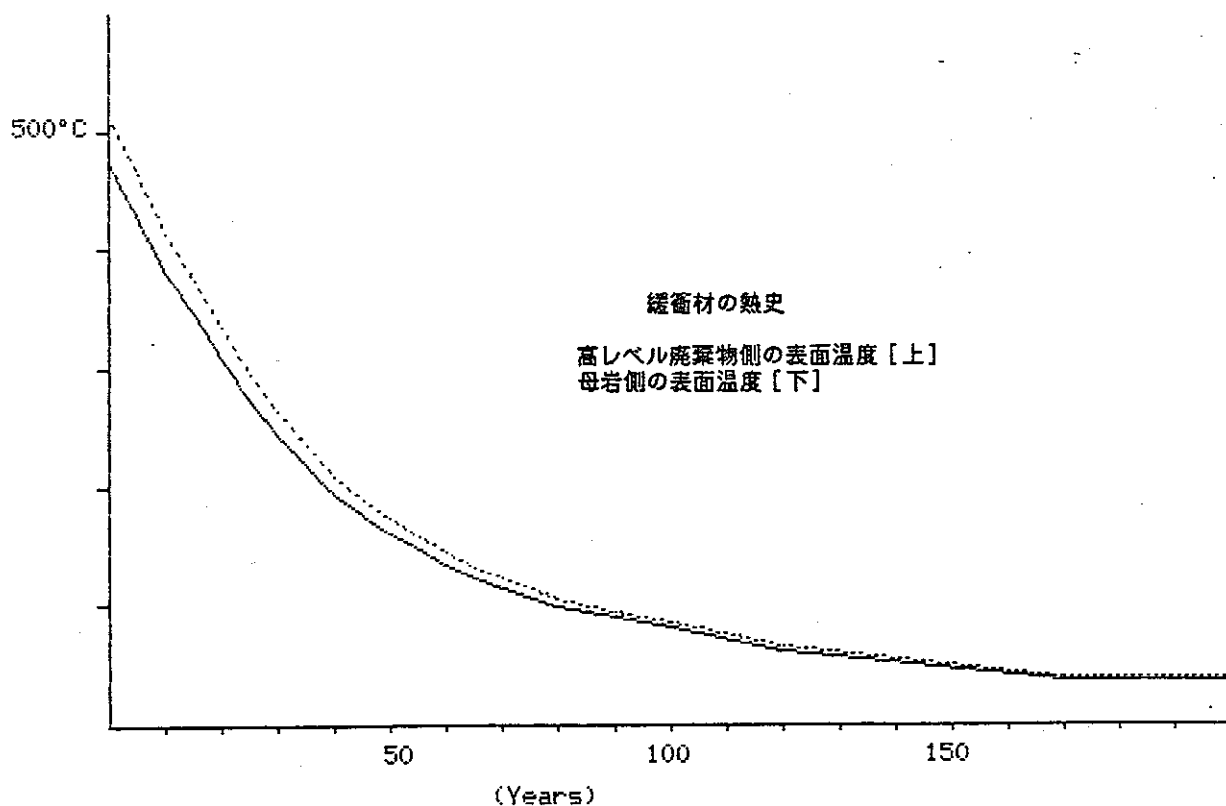
Assumption = 25°C at 120 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	576.9	555.5	555.4	472.7
5	0.43	520.6	501.4	501.2	427.1
10	0.43	464.3	447.2	447.1	381.4
15	0.43	419.2	403.9	403.8	344.8
20	0.43	374.2	360.6	360.5	308.3
25	0.43	329.1	317.3	317.2	271.7
30	0.43	295.3	284.8	284.8	244.3
35	0.43	261.5	252.4	252.3	216.9
40	0.43	233.4	225.3	225.2	194.0
45	0.43	210.8	203.6	203.6	175.8
50	0.43	191.7	185.2	185.2	160.2
55	0.43	174.8	169.0	169.0	146.5
60	0.43	160.2	154.9	154.9	134.7
65	0.43	145.5	140.8	140.8	122.8
70	0.43	135.4	131.1	131.1	114.5
80	0.43	115.1	111.6	111.6	98.1
90	0.43	103.8	100.8	100.8	89.0
100	0.43	92.6	90.0	89.9	79.8
120	0.43	70.1	68.3	68.3	61.6
170	0.43	40.8	40.2	40.2	37.8
470	0.43	27.3	27.2	27.2	26.8



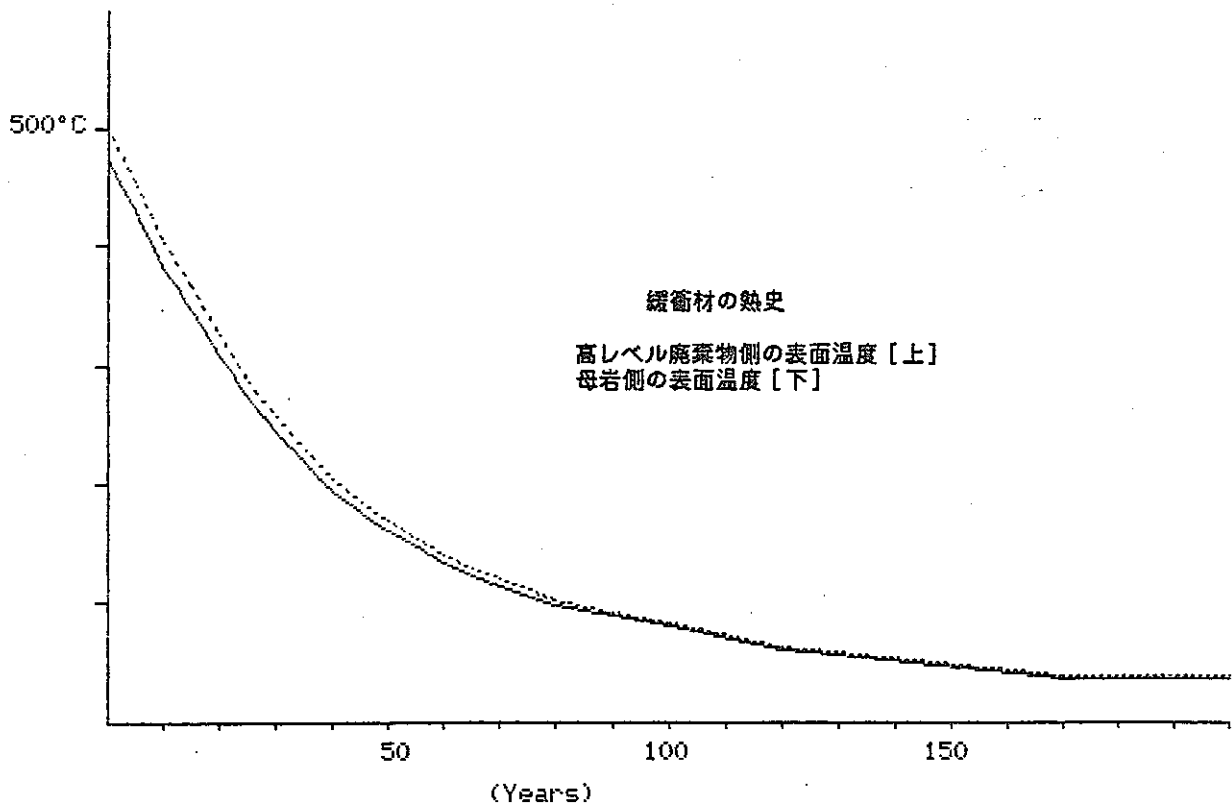
Assumption = 25°C at 120 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	535.6	514.2	514.1	472.7
5	0.86	483.5	464.3	464.2	427.1
10	0.86	431.4	414.3	414.2	381.4
15	0.86	389.7	374.4	374.3	344.8
20	0.86	348.0	334.5	334.4	308.3
25	0.86	306.3	294.5	294.5	271.7
30	0.86	275.1	264.6	264.5	244.3
35	0.86	243.8	234.6	234.6	216.9
40	0.86	217.8	209.7	209.6	194.0
45	0.86	196.9	189.7	189.7	175.8
50	0.86	179.2	172.8	172.7	160.2
55	0.86	163.6	157.8	157.7	146.5
60	0.86	150.0	144.8	144.8	134.7
65	0.86	136.5	131.8	131.8	122.8
70	0.86	127.1	122.8	122.8	114.5
80	0.86	108.4	104.9	104.8	98.1
90	0.86	97.9	94.9	94.9	89.0
100	0.86	87.5	84.9	84.9	79.8
120	0.86	66.7	64.9	64.9	61.6
170	0.86	39.6	39.0	39.0	37.8
470	0.86	27.1	27.0	27.0	26.8



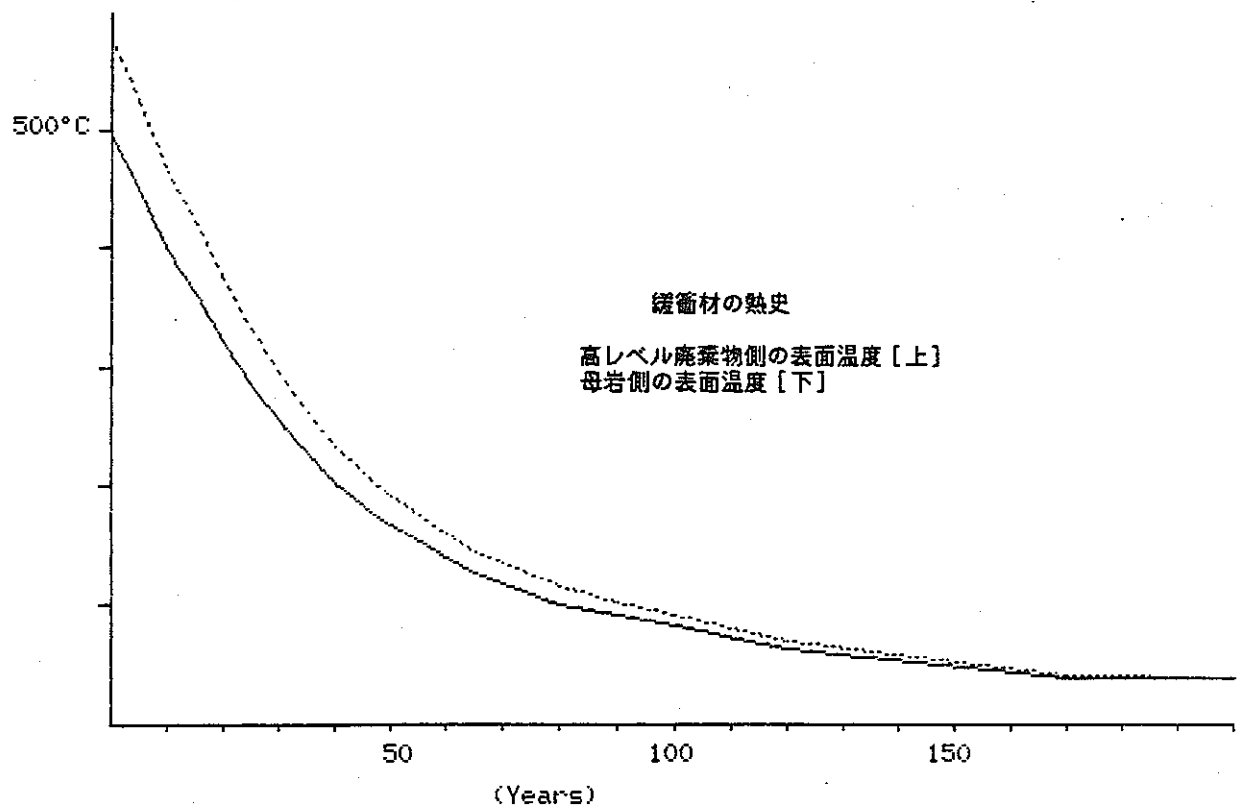
Assumption = 25°C at 120 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	521.8	500.4	500.3	472.7
5	1.29	471.1	451.9	451.8	427.1
10	1.29	420.4	403.4	403.3	381.4
15	1.29	379.9	364.6	364.5	344.8
20	1.29	339.3	325.8	325.7	308.3
25	1.29	298.8	287.0	286.9	271.7
30	1.29	268.3	257.9	257.8	244.3
35	1.29	237.9	228.7	228.7	216.9
40	1.29	212.6	204.5	204.4	194.0
45	1.29	192.3	185.1	185.0	175.8
50	1.29	175.1	168.6	168.6	160.2
55	1.29	159.9	154.0	154.0	146.5
60	1.29	146.7	141.4	141.4	134.7
65	1.29	133.5	128.8	128.8	122.8
70	1.29	124.4	120.1	120.1	114.5
80	1.29	106.1	102.6	102.6	98.1
90	1.29	96.0	92.9	92.9	89.0
100	1.29	85.8	83.2	83.2	79.8
120	1.29	65.6	63.8	63.8	61.6
170	1.29	39.2	38.6	38.6	37.8
470	1.29	27.0	26.9	26.9	26.8



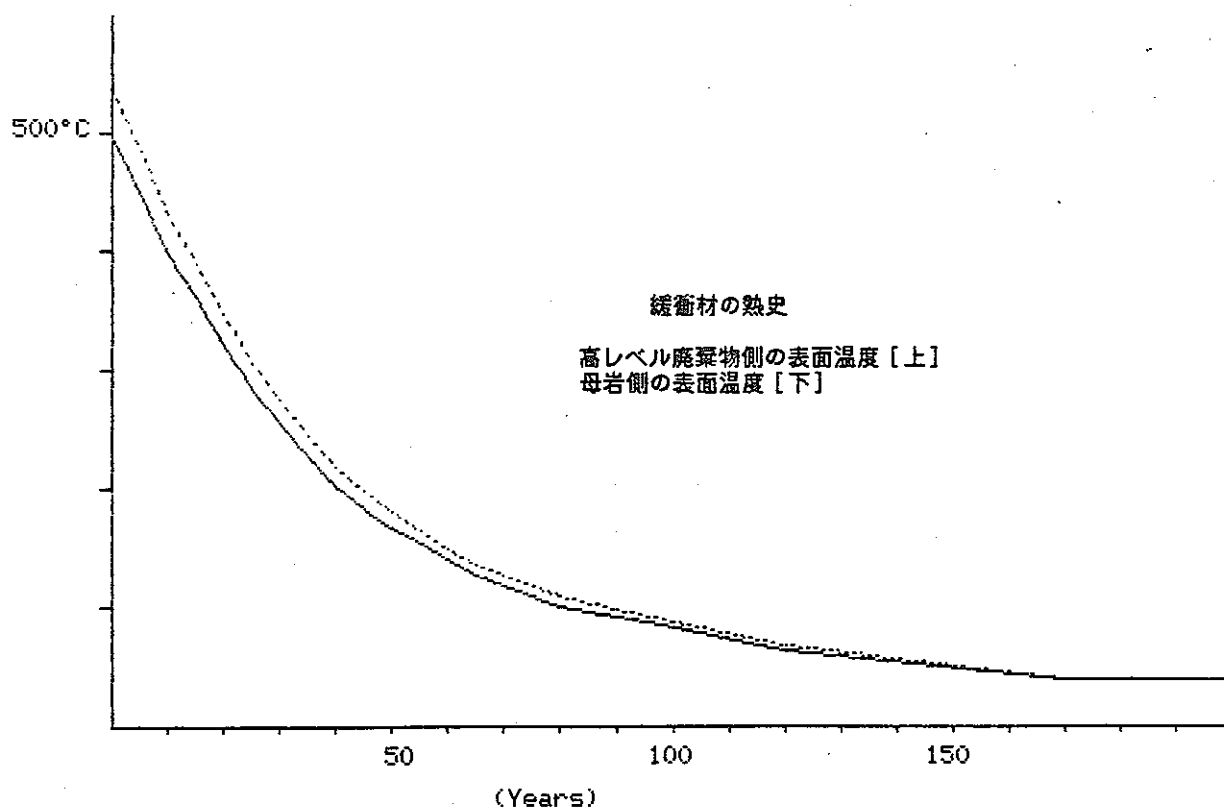
Assumption = 25°C at 160 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	599.2	577.8	577.6	495.0
5	0.43	540.6	521.4	521.2	447.1
10	0.43	482.0	465.0	464.9	399.1
15	0.43	435.1	419.8	419.7	360.7
20	0.43	388.3	374.7	374.6	322.4
25	0.43	341.4	329.6	329.5	284.0
30	0.43	306.2	295.7	295.7	255.2
35	0.43	271.1	261.9	261.8	226.4
40	0.43	241.8	233.7	233.6	202.5
45	0.43	218.3	211.1	211.1	183.3
50	0.43	198.4	192.0	191.9	167.0
55	0.43	180.8	175.0	175.0	152.6
60	0.43	165.6	160.4	160.3	140.1
65	0.43	150.4	145.7	145.7	127.6
70	0.43	139.8	135.6	135.5	119.0
80	0.43	118.7	115.2	115.2	101.7
90	0.43	107.0	104.0	103.9	92.1
100	0.43	95.3	92.7	92.7	82.6
120	0.43	71.9	70.1	70.1	63.4
170	0.43	41.4	40.8	40.8	38.4
470	0.43	27.3	27.3	27.3	26.9



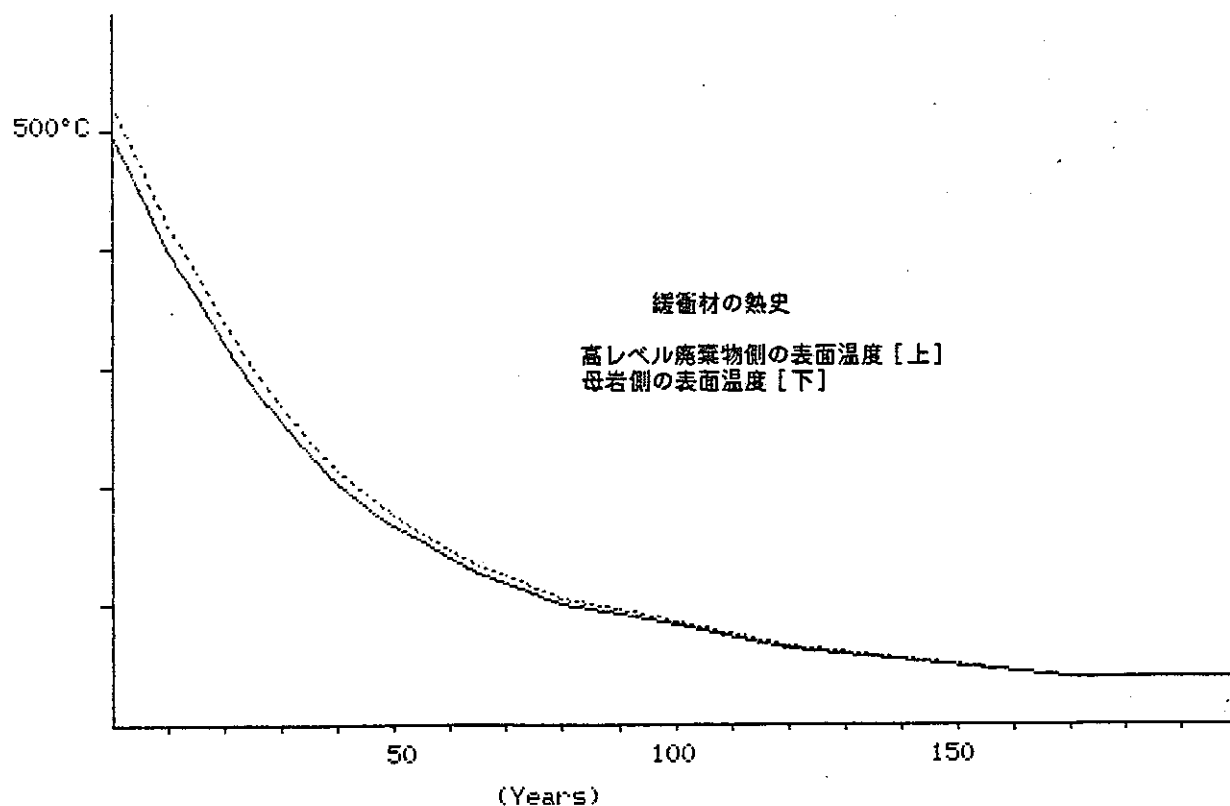
Assumption = 25°C at 160 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	557.9	536.4	536.3	495.0
5	0.86	503.5	484.3	484.1	447.1
10	0.86	449.1	432.1	432.0	399.1
15	0.86	405.6	390.3	390.2	360.7
20	0.86	362.1	348.6	348.5	322.4
25	0.86	318.6	306.8	306.8	284.0
30	0.86	286.0	275.5	275.4	255.2
35	0.86	253.4	244.2	244.1	226.4
40	0.86	226.2	218.1	218.1	202.5
45	0.86	204.4	197.2	197.2	183.3
50	0.86	185.9	179.5	179.4	167.0
55	0.86	169.6	163.8	163.8	152.6
60	0.86	155.5	150.3	150.2	140.1
65	0.86	141.4	136.7	136.7	127.6
70	0.86	131.6	127.3	127.3	119.0
80	0.86	112.0	108.5	108.5	101.7
90	0.86	101.1	98.1	98.0	92.1
100	0.86	90.2	87.6	87.6	82.6
120	0.86	68.5	66.8	66.7	63.4
170	0.86	40.2	39.6	39.6	38.4
470	0.86	27.2	27.1	27.1	26.9



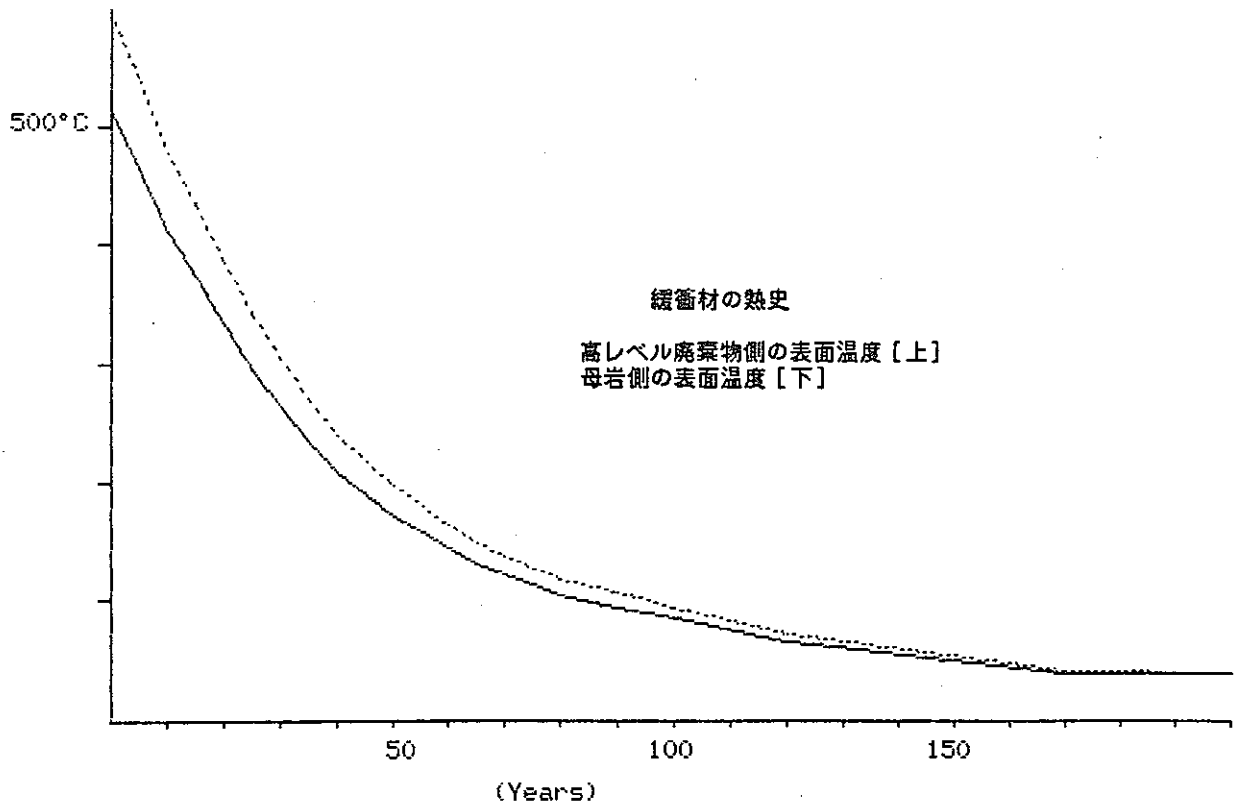
Assumption = 25°C at 160 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	544.1	522.7	522.6	495.0
5	1.29	491.1	471.9	471.8	447.1
10	1.29	438.2	421.1	421.0	399.1
15	1.29	395.8	380.5	380.4	360.7
20	1.29	353.4	339.9	339.8	322.4
25	1.29	311.0	299.2	299.2	284.0
30	1.29	279.2	268.8	268.7	255.2
35	1.29	247.5	238.3	238.2	226.4
40	1.29	221.0	212.9	212.9	202.5
45	1.29	199.8	192.6	192.5	183.3
50	1.29	181.8	175.3	175.3	167.0
55	1.29	165.9	160.1	160.1	152.6
60	1.29	152.1	146.9	146.8	140.1
65	1.29	138.4	133.7	133.6	127.6
70	1.29	128.8	124.5	124.5	119.0
80	1.29	109.7	106.3	106.2	101.7
90	1.29	99.2	96.1	96.1	92.1
100	1.29	88.6	85.9	85.9	82.6
120	1.29	67.4	65.6	65.6	63.4
170	1.29	39.8	39.2	39.2	38.4
470	1.29	27.1	27.0	27.0	26.9



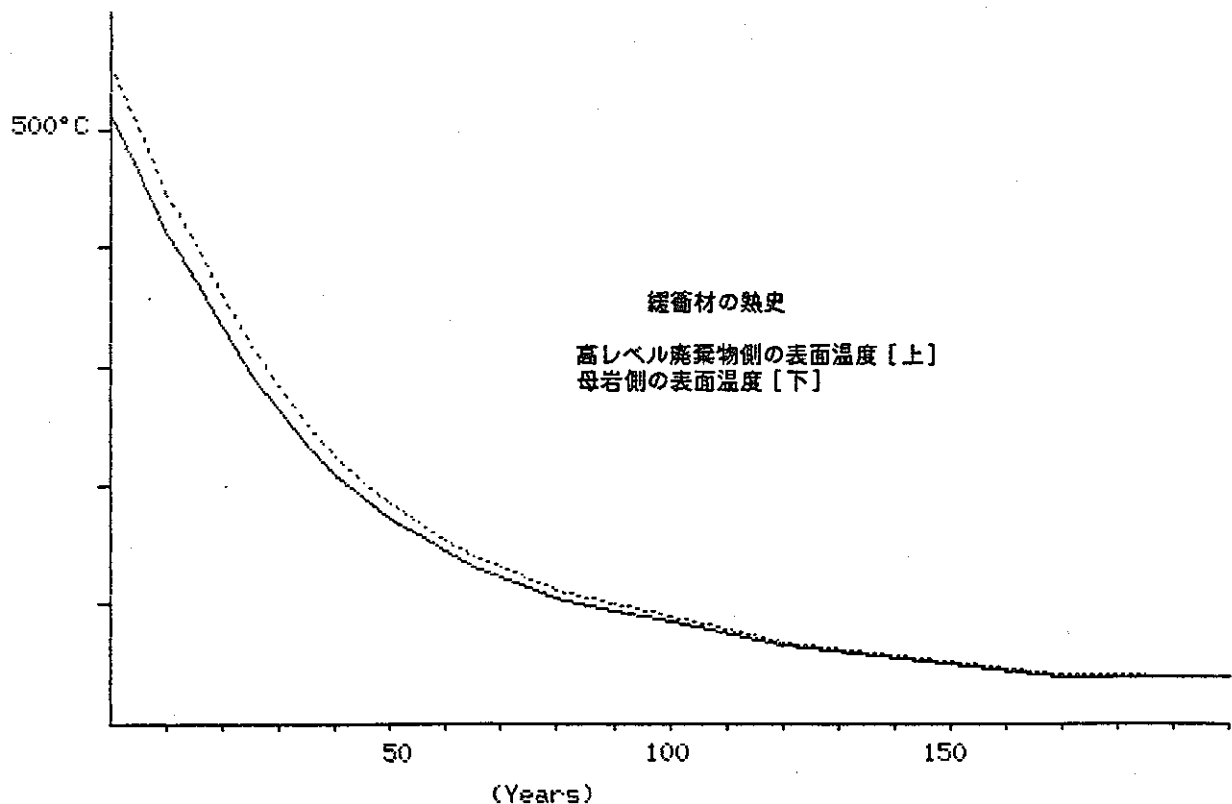
Assumption = 25°C at 200 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	616.5	595.0	594.9	512.3
5	0.43	556.1	536.9	536.8	462.6
10	0.43	495.7	478.7	478.6	412.8
15	0.43	447.5	432.2	432.1	373.1
20	0.43	399.2	385.6	385.6	333.3
25	0.43	350.9	339.1	339.0	293.5
30	0.43	314.7	304.2	304.1	263.7
35	0.43	278.5	269.3	269.2	233.8
40	0.43	248.3	240.2	240.2	209.0
45	0.43	224.2	217.0	216.9	189.1
50	0.43	203.6	197.2	197.1	172.2
55	0.43	185.5	179.7	179.7	157.3
60	0.43	169.8	164.6	164.6	144.3
65	0.43	154.2	149.5	149.5	131.4
70	0.43	143.3	139.0	139.0	122.5
80	0.43	121.6	118.1	118.0	104.6
90	0.43	109.5	106.4	106.4	94.6
100	0.43	97.4	94.8	94.8	84.7
120	0.43	73.3	71.5	71.5	64.8
170	0.43	41.9	41.3	41.3	38.9
470	0.43	27.4	27.3	27.3	27.0



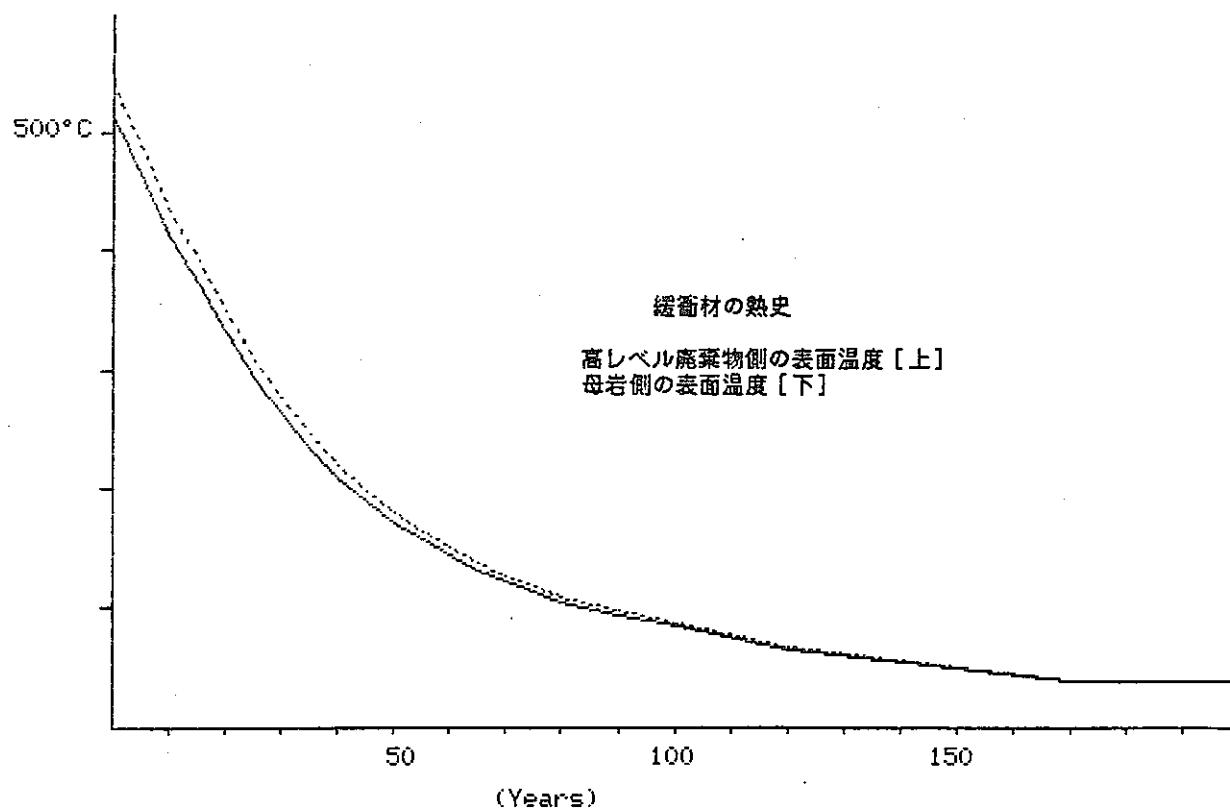
Assumption = 25°C at 200 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	575.1	553.7	553.6	512.3
5	0.86	519.0	499.8	499.7	462.6
10	0.86	462.9	445.8	445.7	412.8
15	0.86	418.0	402.7	402.6	373.1
20	0.86	373.0	359.5	359.4	333.3
25	0.86	328.1	316.3	316.3	293.5
30	0.86	294.5	284.0	283.9	263.7
35	0.86	260.8	251.6	251.5	233.8
40	0.86	232.7	224.6	224.6	209.0
45	0.86	210.3	203.0	203.0	189.1
50	0.86	191.2	184.7	184.7	172.2
55	0.86	174.3	168.5	168.5	157.3
60	0.86	159.7	154.5	154.5	144.3
65	0.86	145.1	140.5	140.4	131.4
70	0.86	135.0	130.7	130.7	122.5
80	0.86	114.8	111.3	111.3	104.6
90	0.86	103.6	100.5	100.5	94.6
100	0.86	92.4	89.7	89.7	84.7
120	0.86	69.9	68.2	68.2	64.8
170	0.86	40.7	40.1	40.1	38.9
470	0.86	27.2	27.2	27.2	27.0



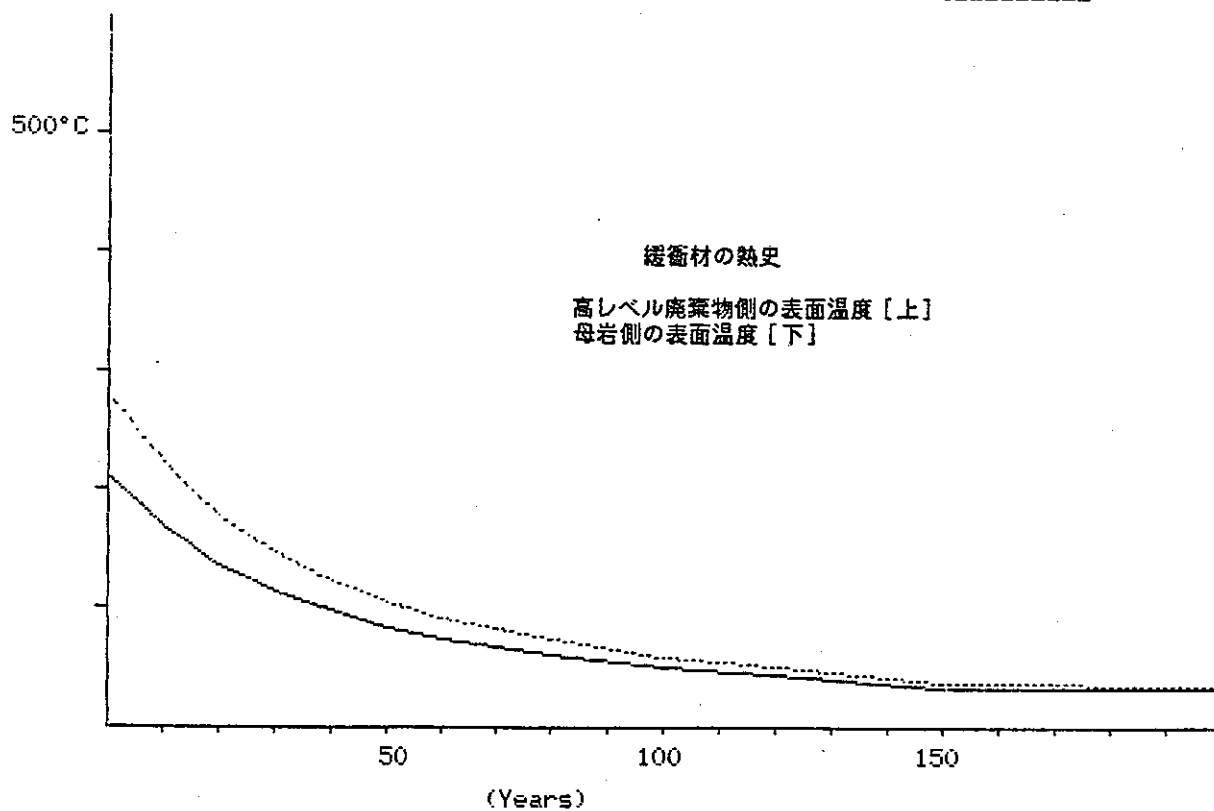
Assumption = 25°C at 200 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	561.4	539.9	539.8	512.3
5	1.29	506.6	487.4	487.3	462.6
10	1.29	451.9	434.9	434.8	412.8
15	1.29	408.1	392.8	392.7	373.1
20	1.29	364.3	350.8	350.7	333.3
25	1.29	320.5	308.7	308.7	293.5
30	1.29	287.7	277.2	277.2	263.7
35	1.29	254.9	245.7	245.6	233.8
40	1.29	227.5	219.4	219.4	209.0
45	1.29	205.6	198.4	198.4	189.1
50	1.29	187.0	180.5	180.5	172.2
55	1.29	170.6	164.8	164.7	157.3
60	1.29	156.4	151.1	151.1	144.3
65	1.29	142.1	137.4	137.4	131.4
70	1.29	132.3	128.0	128.0	122.5
80	1.29	112.6	109.1	109.1	104.6
90	1.29	101.6	98.6	98.5	94.6
100	1.29	90.7	88.1	88.0	84.7
120	1.29	68.8	67.0	67.0	64.8
170	1.29	40.3	39.7	39.7	38.9
470	1.29	27.2	27.1	27.1	27.0



Assumption = 25°C at 5 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	294.1	280.5	280.5	212.1
5	0.43	259.4	247.6	247.5	188.0
10	0.43	233.3	222.8	222.8	169.9
15	0.43	207.3	198.1	198.1	151.8
20	0.43	185.6	177.5	177.5	136.7
25	0.43	168.2	161.0	161.0	124.6
30	0.43	153.5	147.0	147.0	114.3
35	0.43	140.4	134.6	134.6	105.3
40	0.43	129.2	123.9	123.9	97.4
45	0.43	117.9	113.2	113.2	89.6
50	0.43	110.1	105.8	105.8	84.2
60	0.43	94.4	90.9	90.9	73.3
70	0.43	85.8	82.7	82.7	67.3
80	0.43	77.1	74.5	74.4	61.2
100	0.43	59.7	58.0	58.0	49.1
150	0.43	37.2	36.5	36.5	33.5
450	0.43	26.7	26.6	26.6	26.2



Thermal History Simulation for Backfill Material

Basic parameters incorporated are as follows:

Thermal conductivity for waste glass = 0.938 Kcal/mhdeg	Ref. 1)
for canister metal = 21.08 Kcal/mhdeg	1)
for backfill material = 0.43-1.29 Kcal/mhdeg	2)
for granitic host rock = 2.8 Kcal/mhdeg	3)

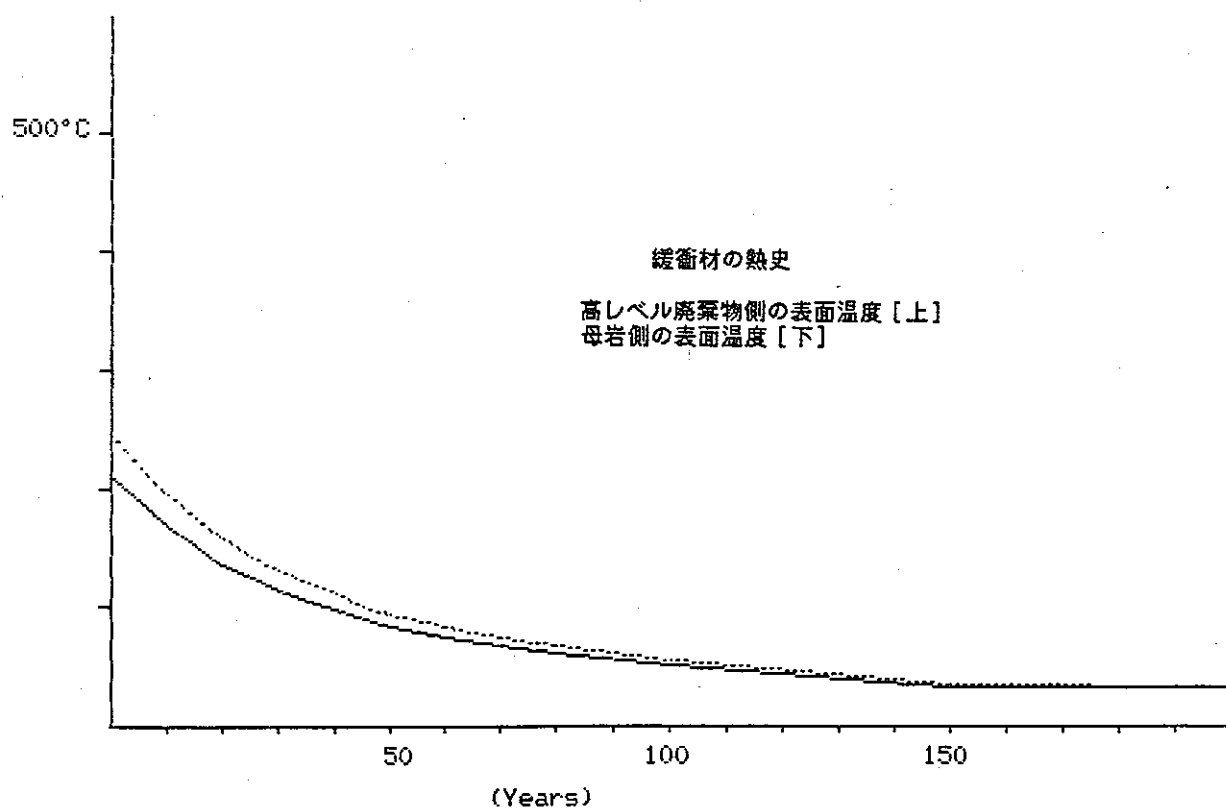
1)リカネンビョウ(1983), 2)Exploration Geophysics(1950),
3)Handbook of Physical Constants(1966)

Thickness of backfill = 0.3m

貯蔵50年の場合

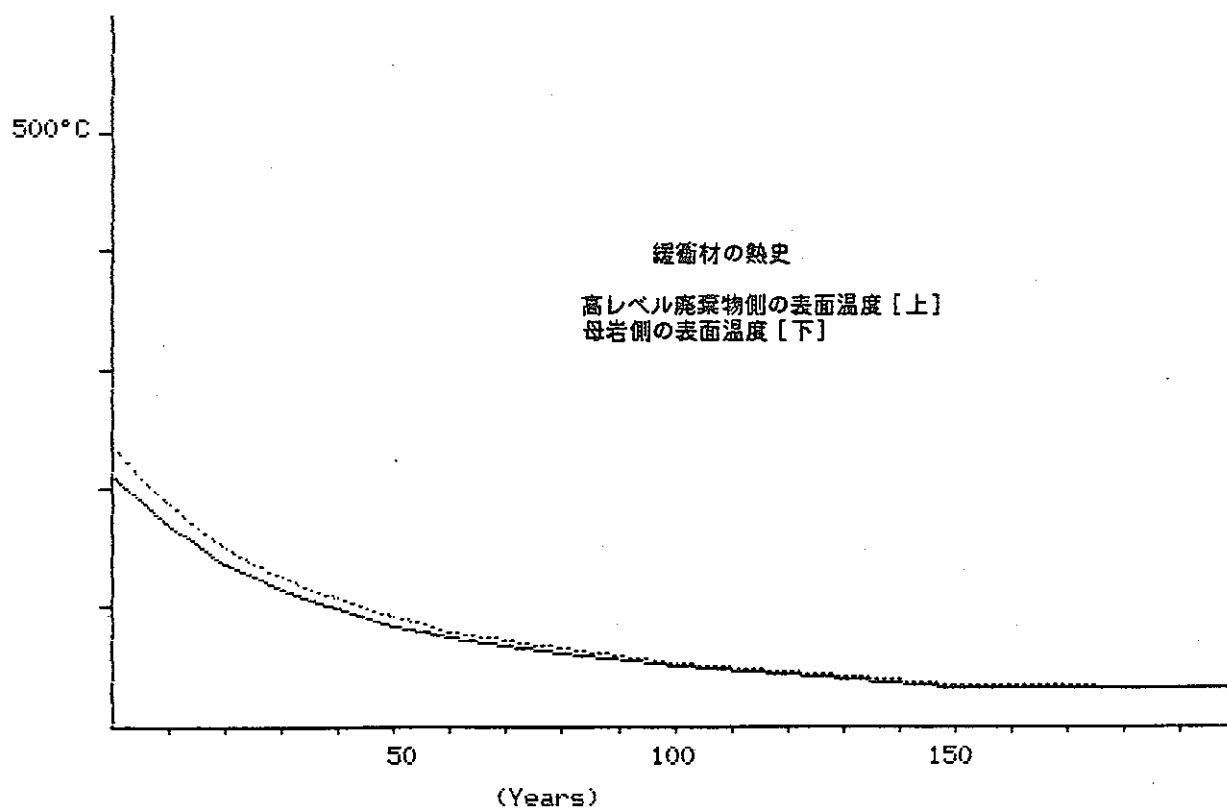
Assumption = 25°C at 5 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	259.9	246.4	246.3	212.1
5	0.86	229.6	217.8	217.7	188.0
10	0.86	206.9	196.4	196.3	169.9
15	0.86	184.1	175.0	174.9	151.8
20	0.86	165.2	157.1	157.1	136.7
25	0.86	150.0	142.8	142.8	124.6
30	0.86	137.2	130.7	130.7	114.3
35	0.86	125.8	120.0	119.9	105.3
40	0.86	115.9	110.7	110.7	97.4
45	0.86	106.1	101.4	101.4	89.6
50	0.86	99.3	95.0	95.0	84.2
60	0.86	85.6	82.1	82.1	73.3
70	0.86	78.0	75.0	75.0	67.3
80	0.86	70.5	67.8	67.8	61.2
100	0.86	55.3	53.6	53.6	49.1
150	0.86	35.6	35.0	35.0	33.5
450	0.86	26.5	26.4	26.4	26.2



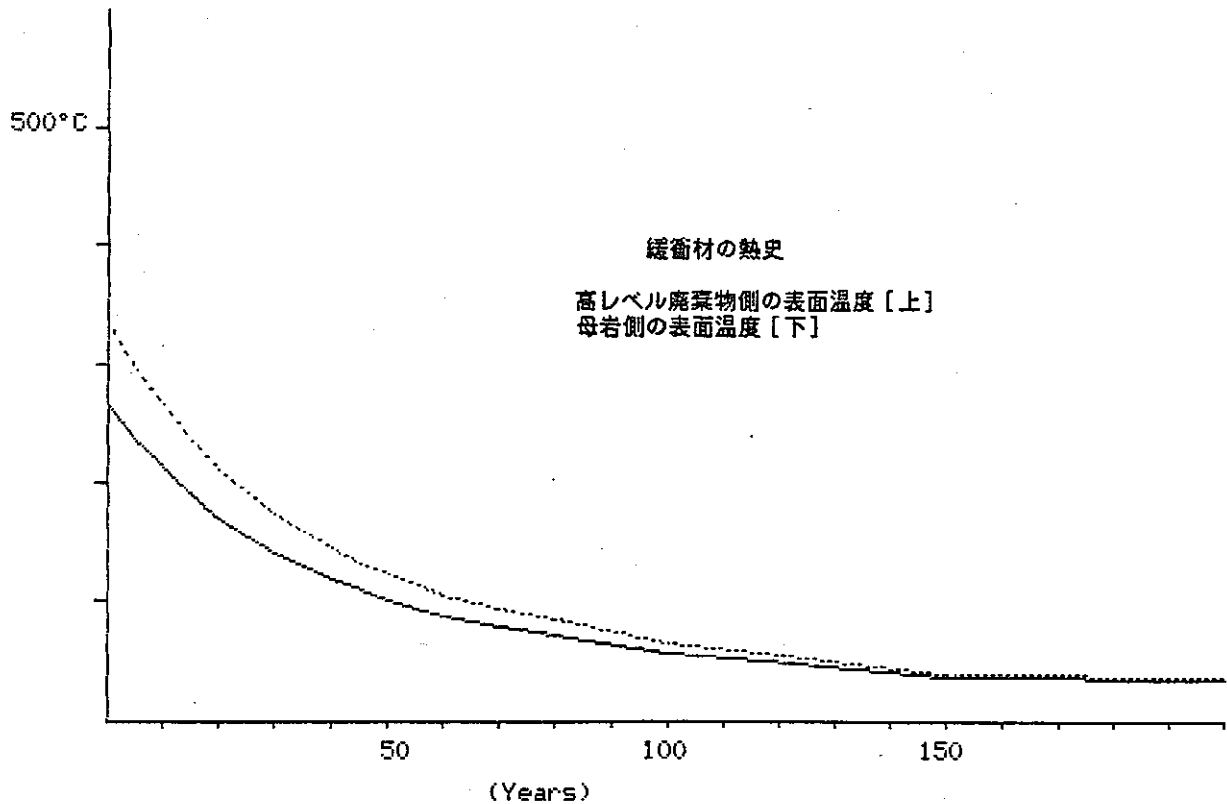
Assumption = 25°C at 5 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	248.5	235.0	234.9	212.1
5	1.29	219.7	207.9	207.8	188.0
10	1.29	198.1	187.6	187.5	169.9
15	1.29	176.4	167.2	167.2	151.8
20	1.29	158.4	150.3	150.3	136.7
25	1.29	144.0	136.8	136.7	124.6
30	1.29	131.7	125.2	125.2	114.3
35	1.29	120.9	115.1	115.1	105.3
40	1.29	111.5	106.3	106.3	97.4
45	1.29	102.2	97.5	97.5	89.6
50	1.29	95.7	91.4	91.4	84.2
60	1.29	82.7	79.2	79.2	73.3
70	1.29	75.5	72.4	72.4	67.3
80	1.29	68.3	65.6	65.6	61.2
100	1.29	53.8	52.1	52.1	49.1
150	1.29	35.1	34.5	34.5	33.5
450	1.29	26.4	26.4	26.4	26.2



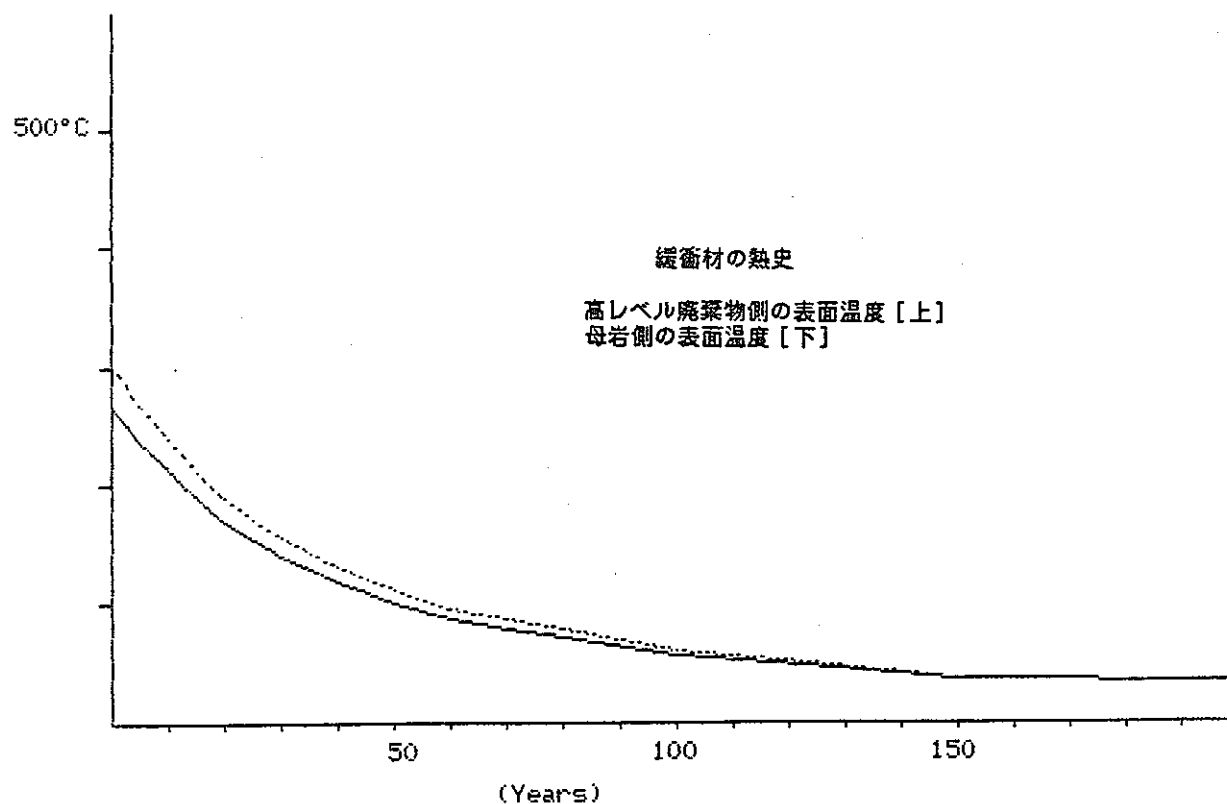
Assumption = 25°C at 10 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	348.9	335.4	335.3	267.0
5	0.43	307.1	295.3	295.2	235.7
10	0.43	275.8	265.3	265.2	212.3
15	0.43	244.4	235.2	235.2	188.9
20	0.43	218.3	210.2	210.2	169.4
25	0.43	197.4	190.2	190.2	153.8
30	0.43	179.6	173.2	173.1	140.5
35	0.43	164.0	158.2	158.1	128.8
40	0.43	150.4	145.1	145.1	118.7
45	0.43	136.8	132.1	132.1	108.5
50	0.43	127.4	123.1	123.1	101.5
60	0.43	108.6	105.1	105.1	87.4
70	0.43	98.1	95.1	95.1	79.6
80	0.43	87.7	85.1	85.1	71.8
100	0.43	66.8	65.0	65.0	56.2
150	0.43	39.6	39.0	39.0	35.9
450	0.43	27.1	27.0	27.0	26.6



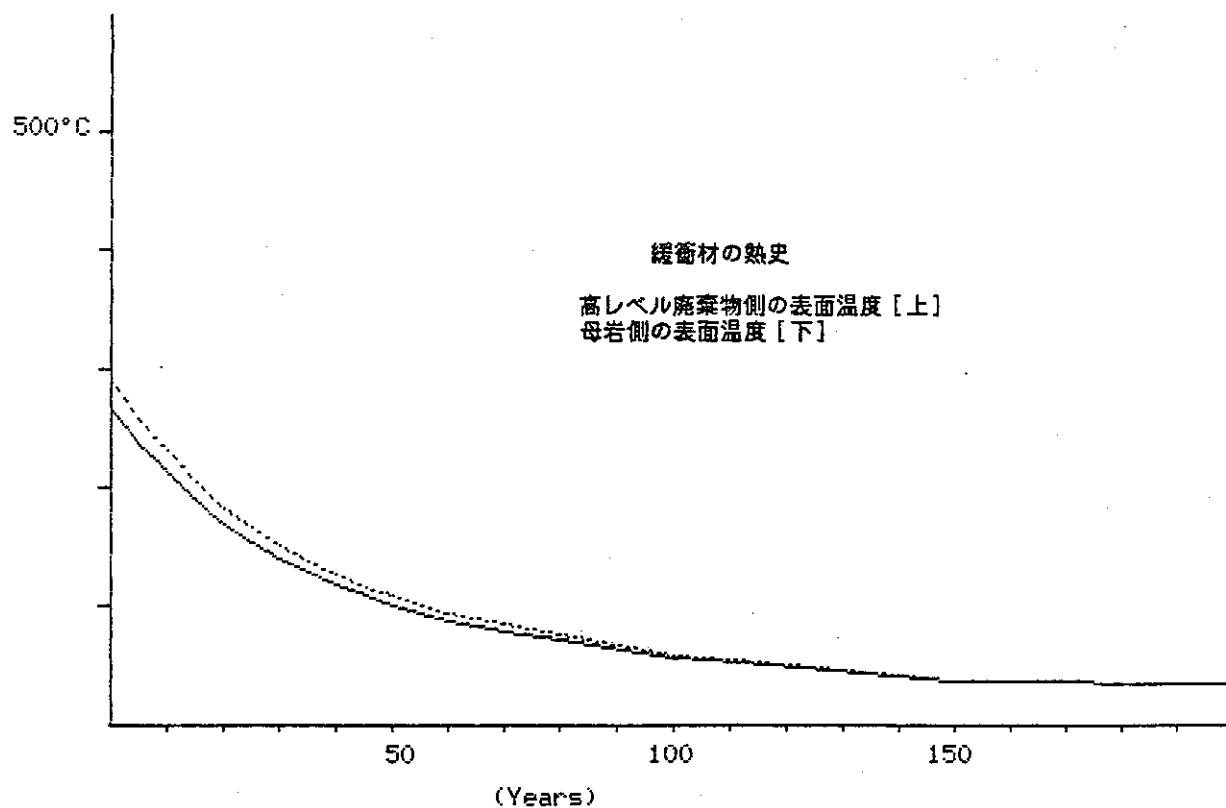
Assumption = 25°C at 10 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	314.7	301.2	301.1	267.0
5	0.86	277.4	265.6	265.5	235.7
10	0.86	249.3	238.8	238.8	212.3
15	0.86	221.3	212.1	212.0	188.9
20	0.86	197.9	189.8	189.8	169.4
25	0.86	179.2	172.0	172.0	153.8
30	0.86	163.3	156.9	156.8	140.5
35	0.86	149.3	143.5	143.5	128.8
40	0.86	137.2	131.9	131.9	118.7
45	0.86	125.0	120.3	120.3	108.5
50	0.86	116.6	112.3	112.3	101.5
60	0.86	99.8	96.3	96.3	87.4
70	0.86	90.4	87.4	87.3	79.6
80	0.86	81.1	78.5	78.4	71.8
100	0.86	62.4	60.6	60.6	56.2
150	0.86	38.1	37.5	37.5	35.9
450	0.86	26.9	26.8	26.8	26.6



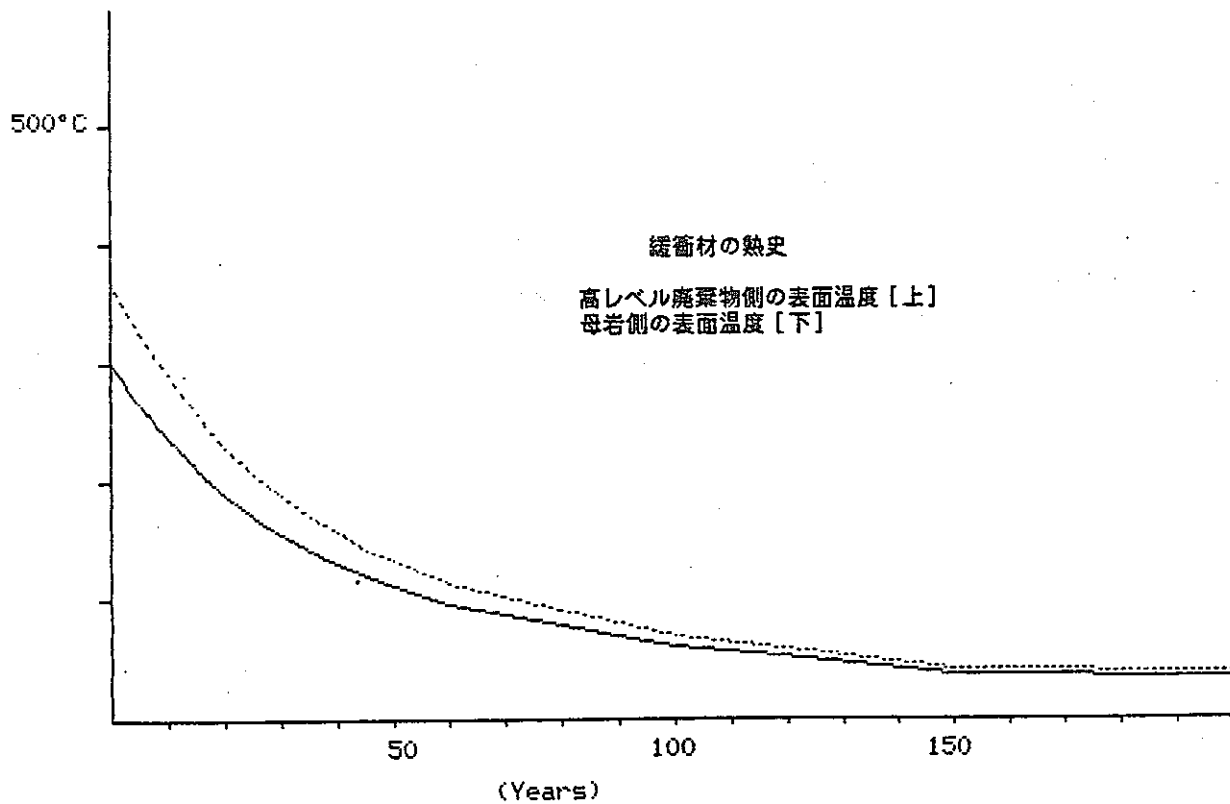
Assumption = 25°C at 10 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	303.4	289.8	289.7	267.0
5	1.29	267.4	255.6	255.6	235.7
10	1.29	240.5	230.0	230.0	212.3
15	1.29	213.6	204.4	204.3	188.9
20	1.29	191.1	183.0	183.0	169.4
25	1.29	173.2	165.9	165.9	153.8
30	1.29	157.9	151.4	151.4	140.5
35	1.29	144.4	138.6	138.6	128.8
40	1.29	132.8	127.5	127.5	118.7
45	1.29	121.1	116.4	116.4	108.5
50	1.29	113.0	108.7	108.7	101.5
60	1.29	96.8	93.3	93.3	87.4
70	1.29	87.9	84.8	84.8	79.6
80	1.29	78.9	76.3	76.2	71.8
100	1.29	60.9	59.2	59.2	56.2
150	1.29	37.6	37.0	37.0	35.9
450	1.29	26.8	26.7	26.7	26.6



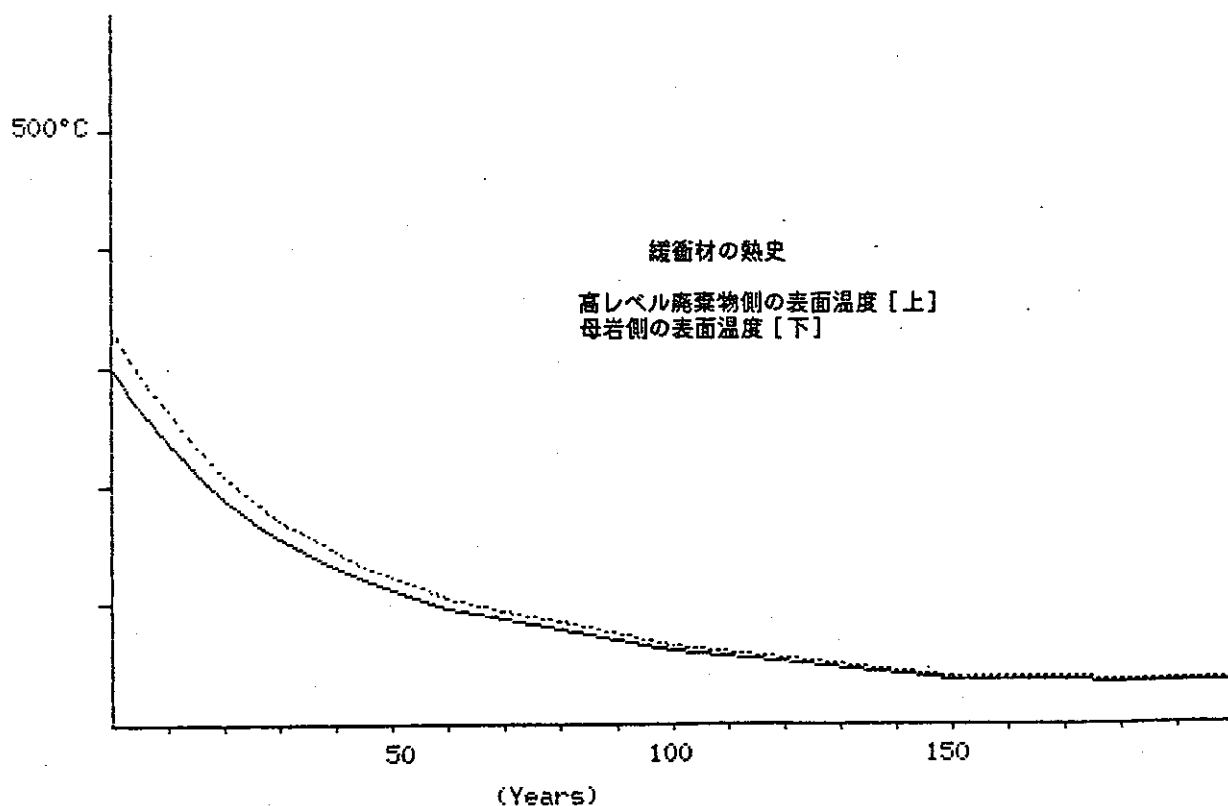
Assumption = 25°C at 15 (m) distance from the center of canister-

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	381.0	367.4	367.4	299.0
5	0.43	335.0	323.2	323.2	263.7
10	0.43	300.6	290.1	290.0	237.1
15	0.43	266.1	257.0	256.9	210.6
20	0.43	237.4	229.4	229.3	188.5
25	0.43	214.5	207.3	207.2	170.8
30	0.43	195.0	188.5	188.4	155.8
35	0.43	177.7	171.9	171.9	142.6
40	0.43	162.8	157.6	157.5	131.1
45	0.43	147.9	143.2	143.2	119.6
50	0.43	137.5	133.3	133.2	111.6
60	0.43	116.9	113.4	113.3	95.7
70	0.43	105.4	102.3	102.3	86.9
80	0.43	93.9	91.3	91.3	78.0
100	0.43	70.9	69.2	69.2	60.4
150	0.43	41.1	40.5	40.5	37.4
450	0.43	27.3	27.2	27.2	26.8



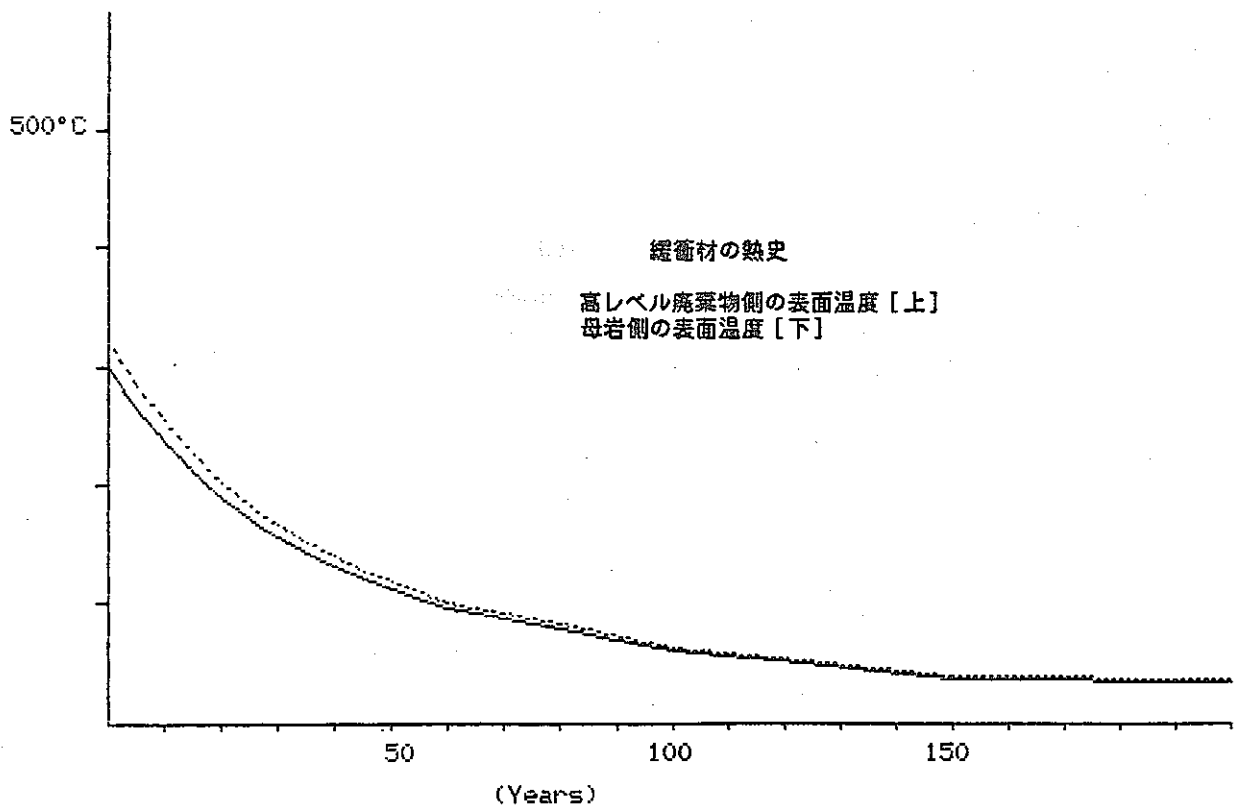
Assumption = 25°C at 15 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	346.8	333.3	333.2	299.0
5	0.86	305.3	293.5	293.4	263.7
10	0.86	274.1	263.7	263.6	237.1
15	0.86	243.0	233.8	233.8	210.6
20	0.86	217.1	209.0	208.9	188.5
25	0.86	196.3	189.1	189.0	170.8
30	0.86	178.6	172.2	172.1	155.8
35	0.86	163.1	157.3	157.2	142.6
40	0.86	149.6	144.3	144.3	131.1
45	0.86	136.1	131.4	131.4	119.6
50	0.86	126.7	122.5	122.4	111.6
60	0.86	108.0	104.6	104.5	95.7
70	0.86	97.7	94.6	94.6	86.9
80	0.86	87.3	84.7	84.6	78.0
100	0.86	66.5	64.8	64.8	60.4
150	0.86	39.5	38.9	38.9	37.4
450	0.86	27.1	27.0	27.0	26.8



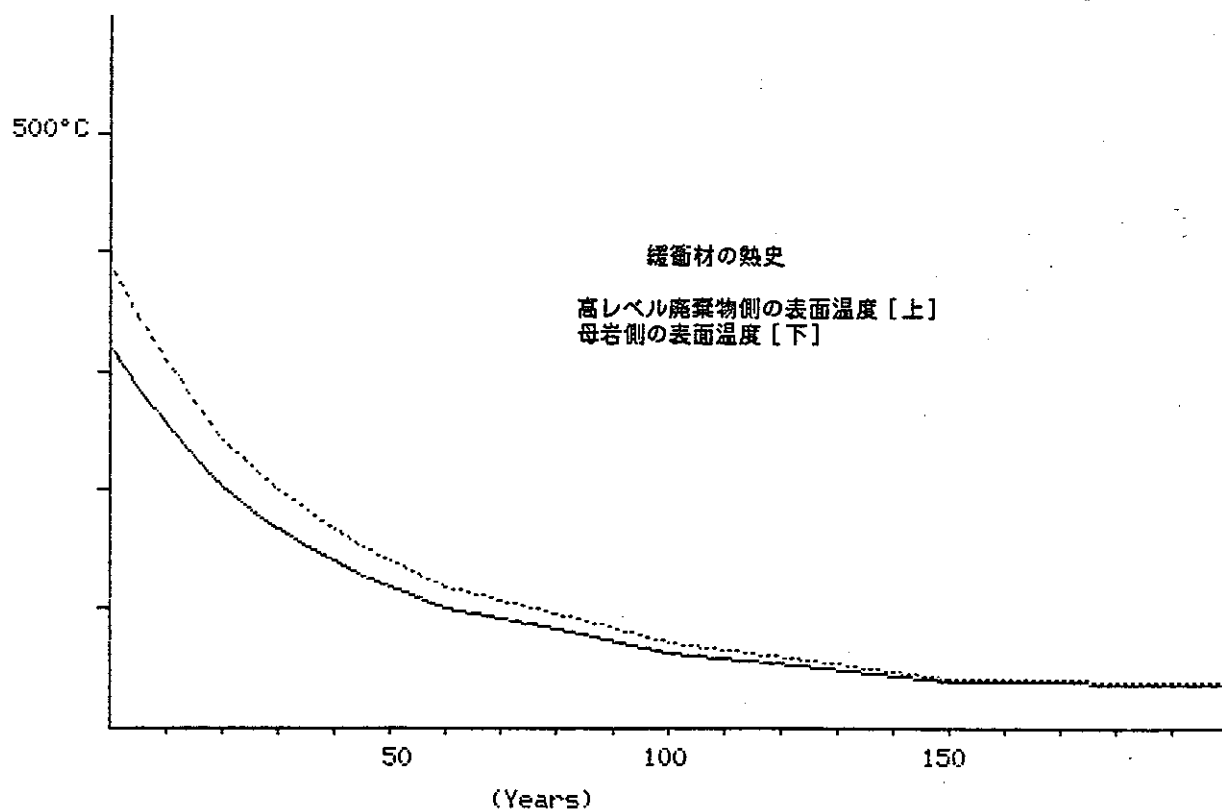
Assumption = 25°C at 15 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	335.4	321.9	321.8	299.0
5	1.29	295.4	283.6	283.5	263.7
10	1.29	265.3	254.8	254.8	237.1
15	1.29	235.3	226.1	226.1	210.6
20	1.29	210.3	202.2	202.1	188.5
25	1.29	190.2	183.0	183.0	170.8
30	1.29	173.2	166.7	166.7	155.8
35	1.29	158.2	152.4	152.3	142.6
40	1.29	145.2	139.9	139.9	131.1
45	1.29	132.1	127.5	127.4	119.6
50	1.29	123.1	118.9	118.8	111.6
60	1.29	105.1	101.6	101.6	95.7
70	1.29	95.1	92.0	92.0	86.9
80	1.29	85.1	82.5	82.4	78.0
100	1.29	65.1	63.3	63.3	60.4
150	1.29	39.0	38.4	38.4	37.4
450	1.29	27.0	26.9	26.9	26.8



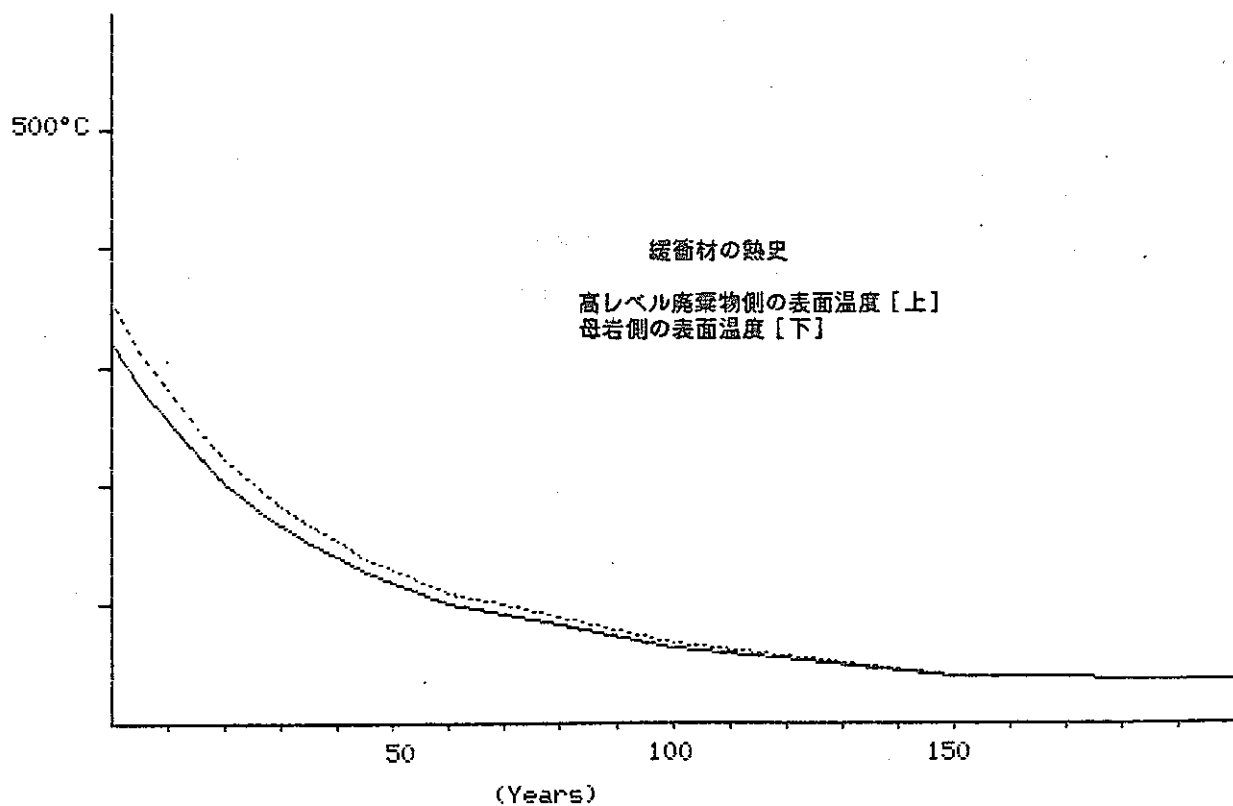
Assumption = 25°C at 20 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	403.7	390.2	390.1	321.8
5	0.43	354.9	343.1	343.0	283.5
10	0.43	318.2	307.7	307.7	254.8
15	0.43	281.6	272.4	272.3	226.0
20	0.43	251.0	242.9	242.9	202.1
25	0.43	226.6	219.4	219.3	183.0
30	0.43	205.8	199.3	199.3	166.7
35	0.43	187.5	181.7	181.6	152.3
40	0.43	171.6	166.4	166.3	139.9
45	0.43	155.7	151.0	151.0	127.4
50	0.43	144.7	140.4	140.4	118.8
60	0.43	122.7	119.2	119.2	101.6
70	0.43	110.5	107.5	107.4	92.0
80	0.43	98.3	95.7	95.7	82.4
100	0.43	73.9	72.1	72.1	63.3
150	0.43	42.1	41.5	41.5	38.4
450	0.43	27.4	27.4	27.4	26.9



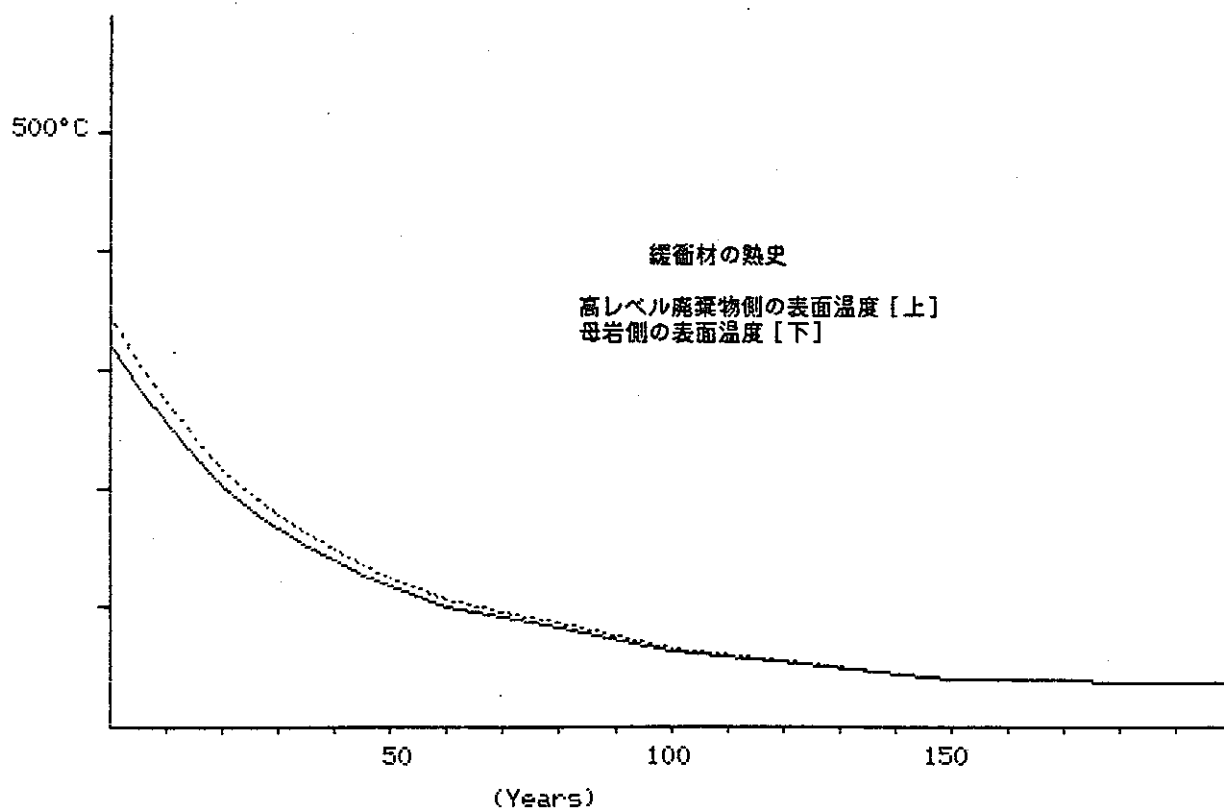
Assumption = 25°C at 20 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	369.6	356.0	355.9	321.8
5	0.86	325.1	313.3	313.2	283.5
10	0.86	291.8	281.3	281.2	254.8
15	0.86	258.4	249.2	249.2	226.0
20	0.86	230.6	222.5	222.5	202.1
25	0.86	208.4	201.2	201.1	183.0
30	0.86	189.5	183.0	183.0	166.7
35	0.86	172.8	167.0	167.0	152.3
40	0.86	158.4	153.1	153.1	139.9
45	0.86	143.9	139.3	139.2	127.4
50	0.86	133.9	129.6	129.6	118.8
60	0.86	113.9	110.4	110.4	101.6
70	0.86	102.8	99.7	99.7	92.0
80	0.86	91.7	89.1	89.1	82.4
100	0.86	69.5	67.7	67.7	63.3
150	0.86	40.6	39.9	39.9	38.4
450	0.86	27.2	27.1	27.1	26.9



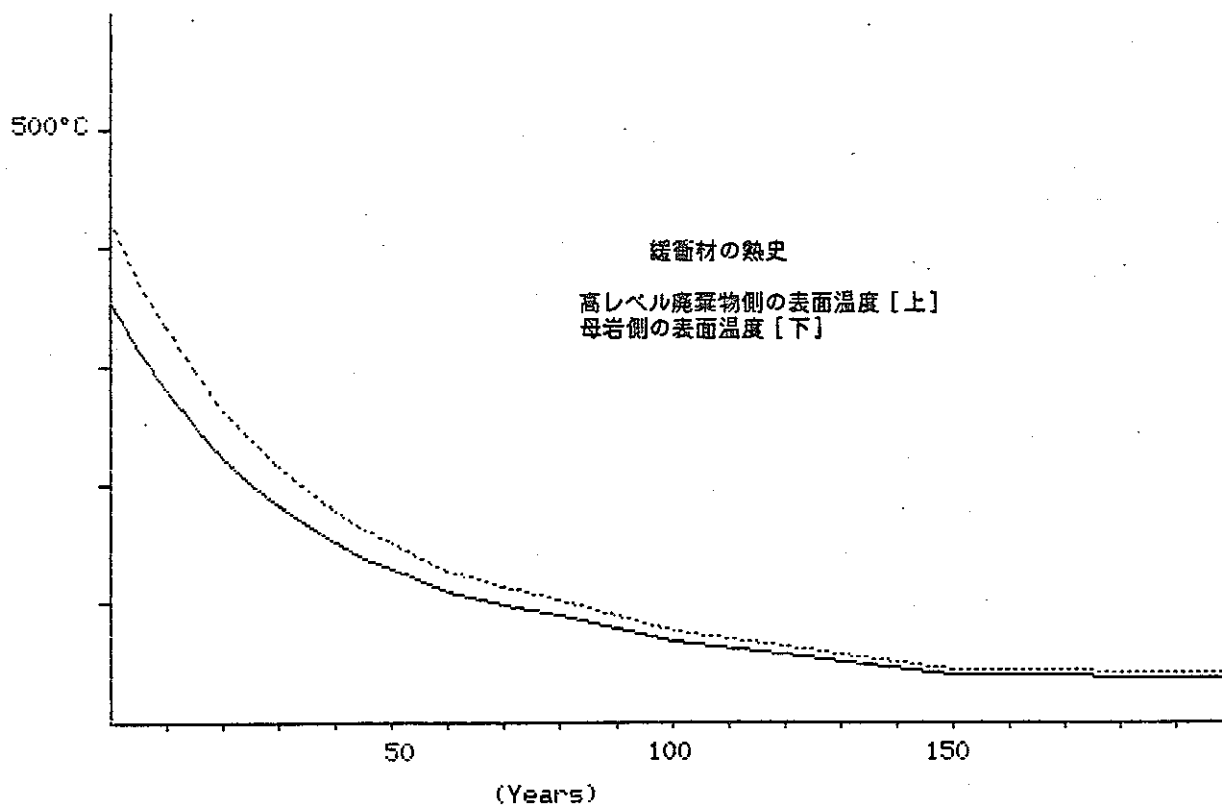
Assumption = 25°C at 20 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	358.2	344.6	344.6	321.8
5	1.29	315.2	303.4	303.3	283.5
10	1.29	282.9	272.5	272.4	254.8
15	1.29	250.7	241.5	241.5	226.0
20	1.29	223.8	215.7	215.7	202.1
25	1.29	202.3	195.1	195.1	183.0
30	1.29	184.1	177.6	177.6	166.7
35	1.29	167.9	162.1	162.1	152.3
40	1.29	154.0	148.7	148.7	139.9
45	1.29	140.0	135.3	135.3	127.4
50	1.29	130.3	126.0	126.0	118.8
60	1.29	111.0	107.5	107.5	101.6
70	1.29	100.2	97.2	97.2	92.0
80	1.29	89.5	86.9	86.8	82.4
100	1.29	68.0	66.2	66.2	63.3
150	1.29	40.0	39.4	39.4	38.4
450	1.29	27.1	27.1	27.1	26.9



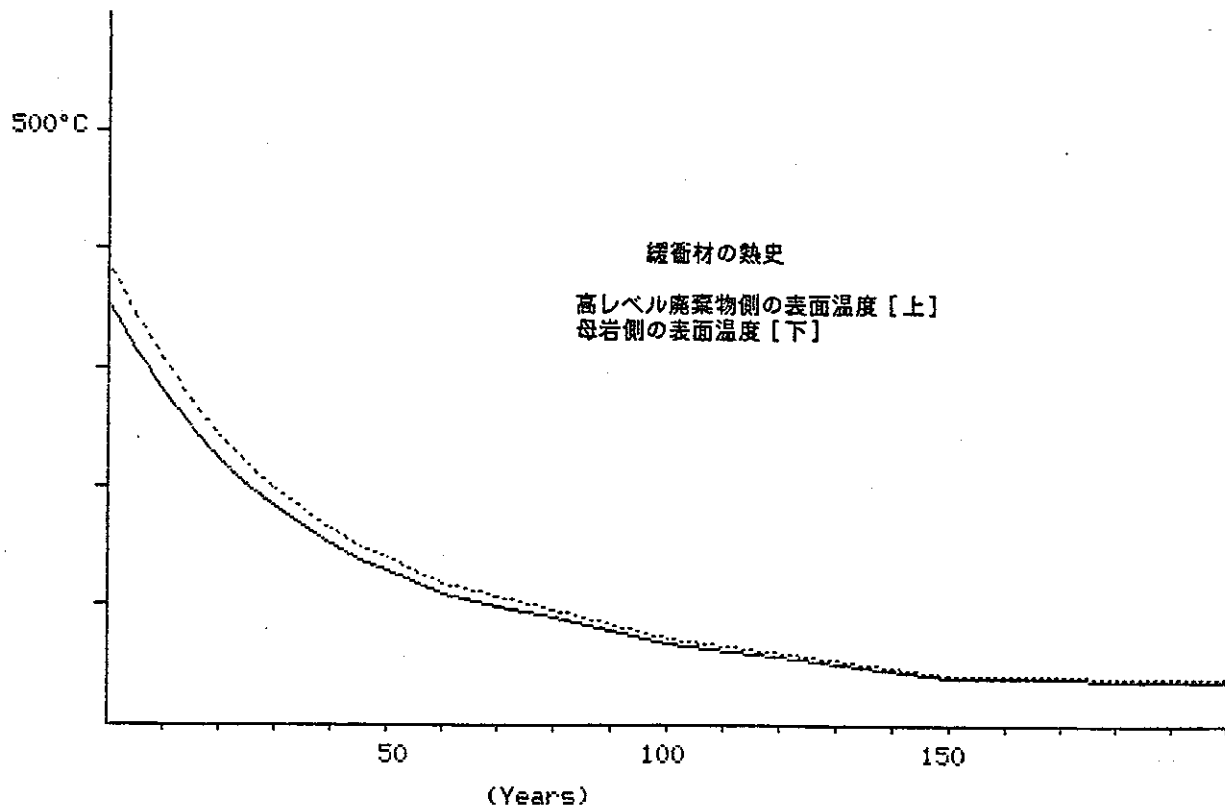
Assumption = 25°C at 30 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	435.8	422.3	422.2	353.8
5	0.43	382.8	371.0	370.9	311.4
10	0.43	343.0	332.6	332.5	279.6
15	0.43	303.3	294.1	294.1	247.8
20	0.43	270.2	262.1	262.0	221.2
25	0.43	243.7	236.4	236.4	200.0
30	0.43	221.1	214.7	214.6	182.0
35	0.43	201.2	195.4	195.4	166.1
40	0.43	184.0	178.8	178.7	152.3
45	0.43	166.8	162.1	162.1	138.5
50	0.43	154.9	150.6	150.6	129.0
60	0.43	131.0	127.5	127.5	109.9
70	0.43	117.8	114.7	114.7	99.3
80	0.43	104.5	101.9	101.9	88.6
100	0.43	78.0	76.3	76.2	67.4
150	0.43	43.6	42.9	42.9	39.9
450	0.43	27.7	27.6	27.6	27.1



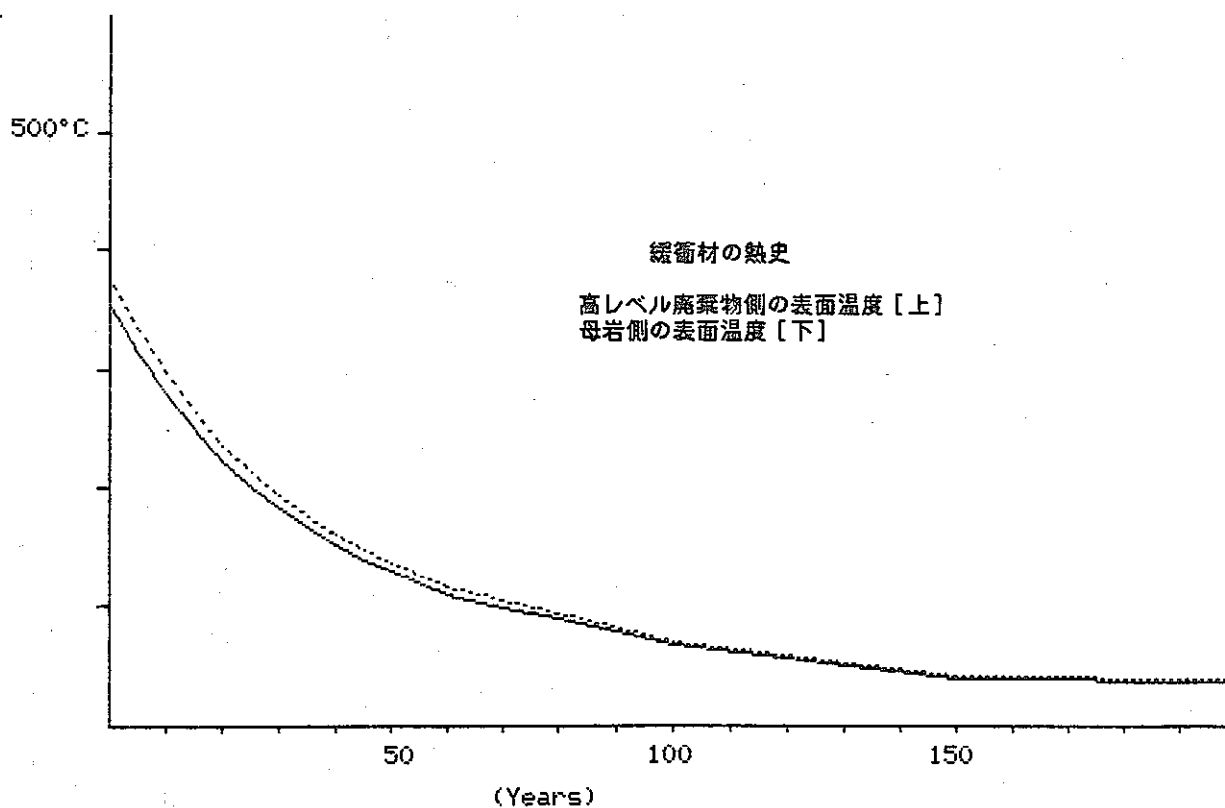
Assumption = 25°C at 30 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	401.6	388.1	388.0	353.8
5	0.86	353.0	341.2	341.2	311.4
10	0.86	316.6	306.1	306.0	279.6
15	0.86	280.1	271.0	270.9	247.8
20	0.86	249.8	241.7	241.6	221.2
25	0.86	225.5	218.3	218.2	200.0
30	0.86	204.8	198.3	198.3	182.0
35	0.86	186.6	180.8	180.7	166.1
40	0.86	170.8	165.5	165.5	152.3
45	0.86	155.0	150.3	150.3	138.5
50	0.86	144.1	139.8	139.8	129.0
60	0.86	122.2	118.7	118.7	109.9
70	0.86	110.0	107.0	107.0	99.3
80	0.86	97.9	95.3	95.3	88.6
100	0.86	73.6	71.8	71.8	67.4
150	0.86	42.0	41.4	41.4	39.9
450	0.86	27.4	27.3	27.3	27.1



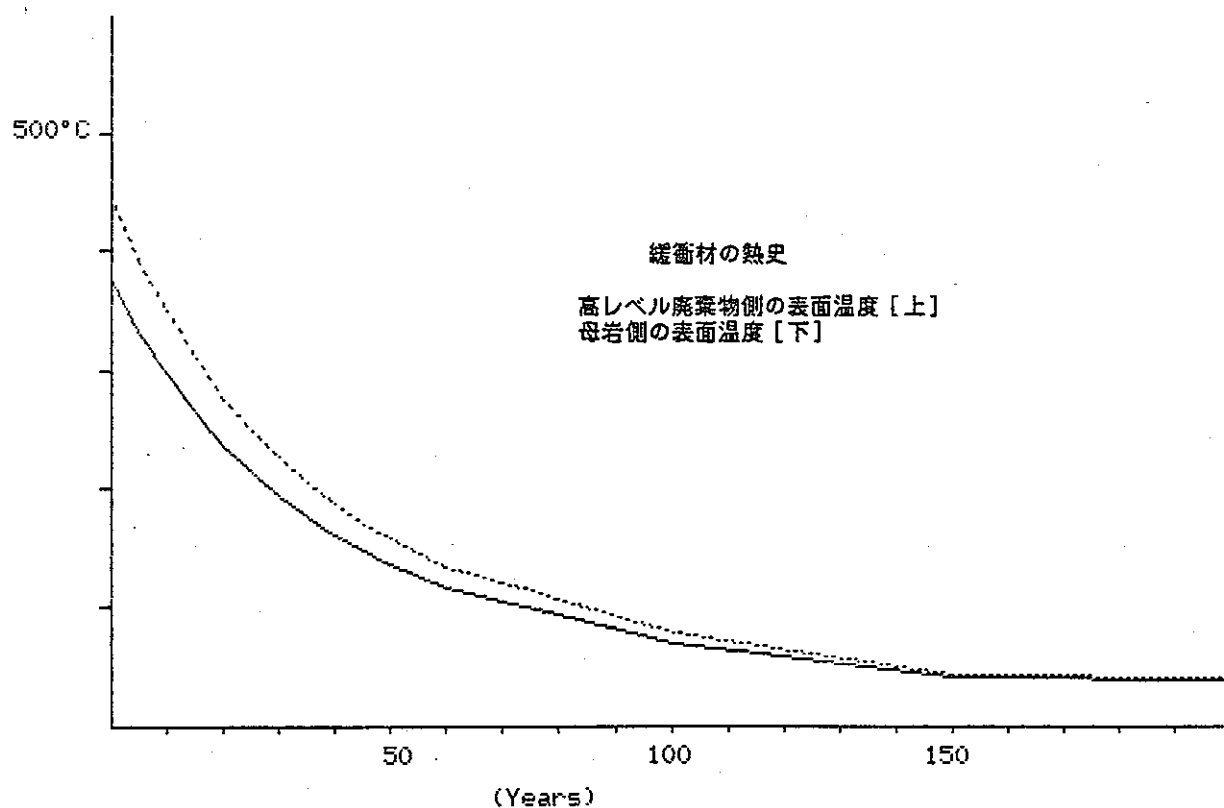
Assumption = 25°C at 30 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	390.2	376.7	376.6	353.8
5	1.29	343.1	331.3	331.3	311.4
10	1.29	307.8	297.3	297.2	279.6
15	1.29	272.4	263.2	263.2	247.8
20	1.29	243.0	234.9	234.8	221.2
25	1.29	219.4	212.2	212.2	200.0
30	1.29	199.4	192.9	192.9	182.0
35	1.29	181.7	175.9	175.9	166.1
40	1.29	166.4	161.1	161.1	152.3
45	1.29	151.1	146.4	146.4	138.5
50	1.29	140.5	136.2	136.2	129.0
60	1.29	119.3	115.8	115.7	109.9
70	1.29	107.5	104.4	104.4	99.3
80	1.29	95.7	93.1	93.1	88.6
100	1.29	72.1	70.4	70.4	67.4
150	1.29	41.5	40.9	40.9	39.9
450	1.29	27.4	27.3	27.3	27.1



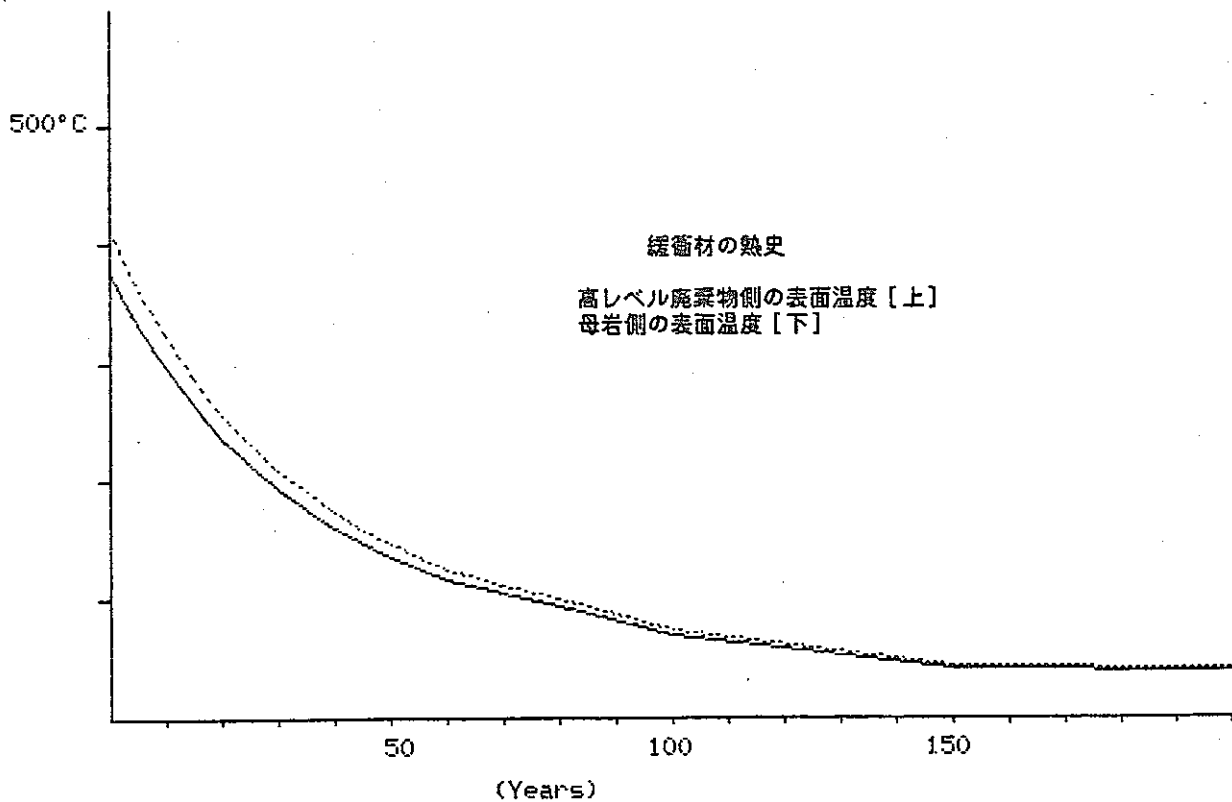
Assumption = 25°C at 40 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	458.6	445.0	444.9	376.6
5	0.43	402.6	390.8	390.7	331.2
10	0.43	360.7	350.2	350.1	297.2
15	0.43	318.7	309.5	309.5	263.2
20	0.43	283.7	275.6	275.6	234.8
25	0.43	255.8	248.6	248.5	212.1
30	0.43	232.0	225.5	225.5	192.9
35	0.43	211.0	205.2	205.2	175.8
40	0.43	192.8	187.6	187.6	161.1
45	0.43	174.6	170.0	169.9	146.4
50	0.43	162.1	157.8	157.8	136.1
60	0.43	136.9	133.4	133.4	115.7
70	0.43	122.9	119.8	119.8	104.4
80	0.43	108.9	106.3	106.3	93.1
100	0.43	80.9	79.2	79.2	70.4
150	0.43	44.6	44.0	44.0	40.9
450	0.43	27.8	27.7	27.7	27.3



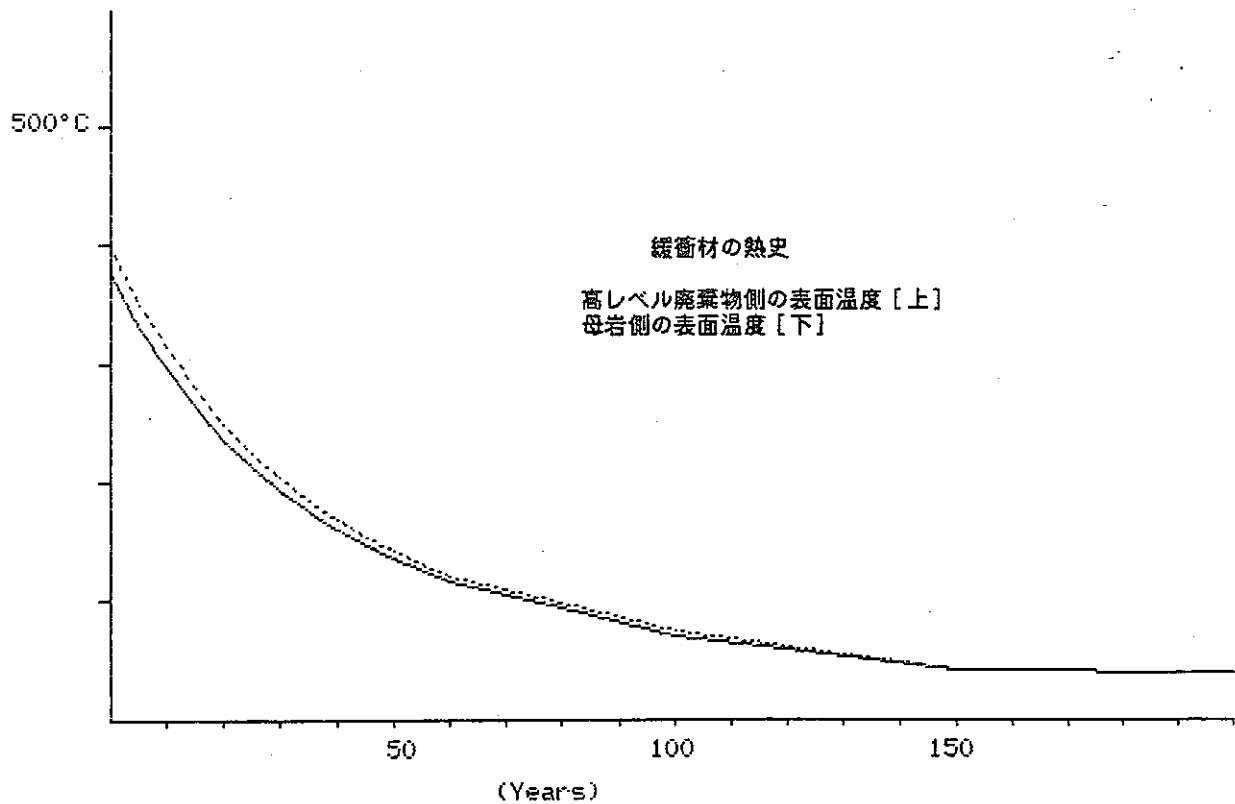
Assumption = 25°C at 40 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	424.4	410.8	410.8	376.6
5	0.86	372.9	361.1	361.0	331.2
10	0.86	334.2	323.7	323.7	297.2
15	0.86	295.6	286.4	286.3	263.2
20	0.86	263.3	255.3	255.2	234.8
25	0.86	237.6	230.4	230.3	212.1
30	0.86	215.7	209.2	209.2	192.9
35	0.86	196.4	190.5	190.5	175.8
40	0.86	179.6	174.4	174.3	161.1
45	0.86	162.9	158.2	158.2	146.4
50	0.86	151.3	147.0	147.0	136.1
60	0.86	128.1	124.6	124.6	115.7
70	0.86	115.2	112.1	112.1	104.4
80	0.86	102.3	99.7	99.7	93.1
100	0.86	76.5	74.8	74.8	70.4
150	0.86	43.0	42.4	42.4	40.9
450	0.86	27.6	27.5	27.5	27.3



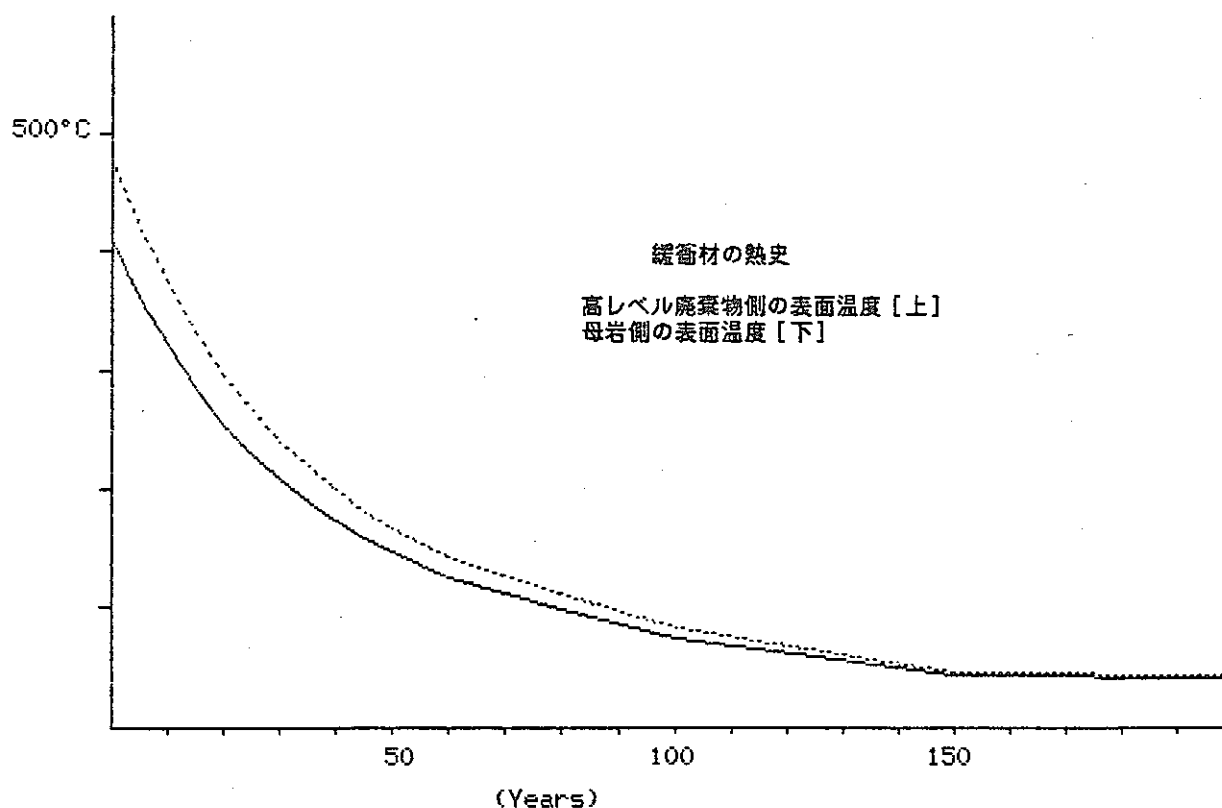
Assumption = 25°C at 40 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	413.0	399.4	399.4	376.6
5	1.29	362.9	351.1	351.1	331.2
10	1.29	325.4	314.9	314.8	297.2
15	1.29	287.8	278.7	278.6	263.2
20	1.29	256.5	248.5	248.4	234.8
25	1.29	231.5	224.3	224.3	212.1
30	1.29	210.2	203.8	203.7	192.9
35	1.29	191.5	185.7	185.6	175.8
40	1.29	175.2	169.9	169.9	161.1
45	1.29	158.9	154.2	154.2	146.4
50	1.29	147.7	143.4	143.4	136.1
60	1.29	125.1	121.6	121.6	115.7
70	1.29	112.6	109.6	109.5	104.4
80	1.29	100.1	97.5	97.5	93.1
100	1.29	75.1	73.3	73.3	70.4
150	1.29	42.5	41.9	41.9	40.9
450	1.29	27.5	27.4	27.4	27.3



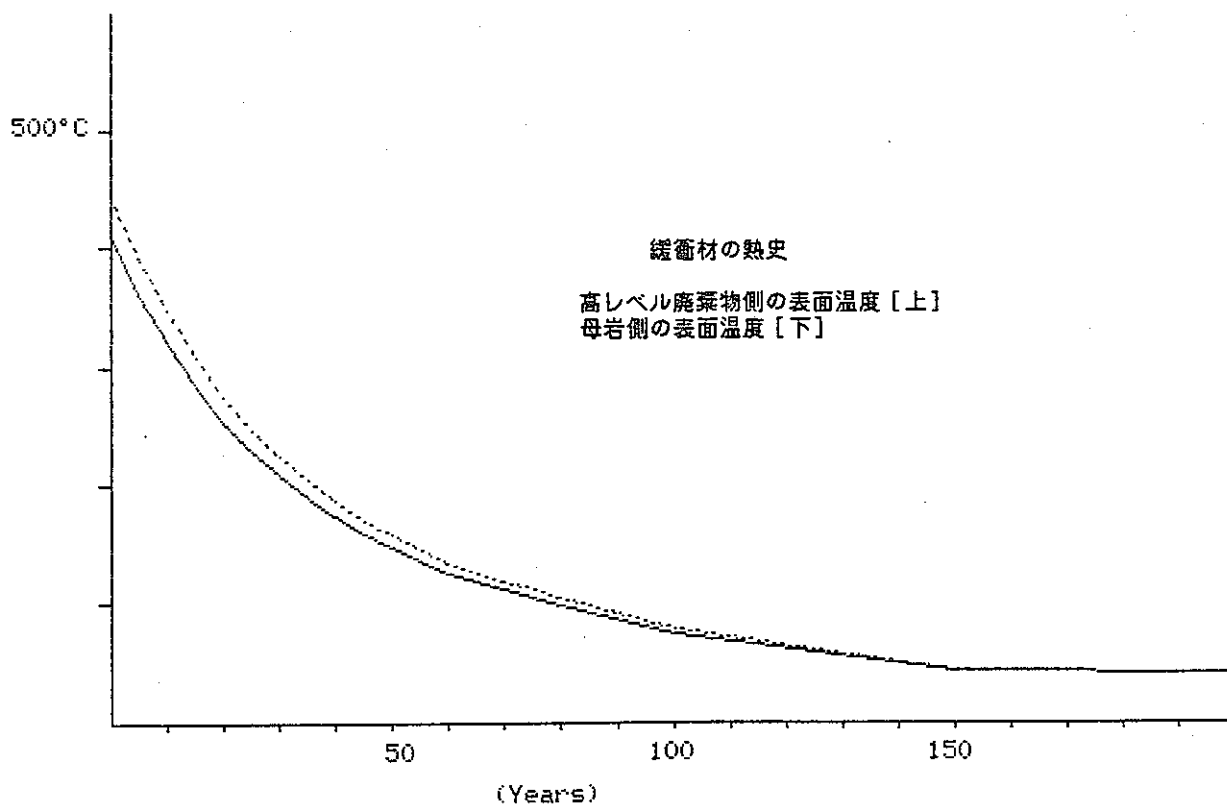
Assumption = 25°C at 60 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	490.6	477.1	477.0	408.7
5	0.43	430.5	418.7	418.7	359.2
10	0.43	385.5	375.0	374.9	322.0
15	0.43	340.4	331.2	331.2	284.9
20	0.43	302.9	294.8	294.7	254.0
25	0.43	272.8	265.6	265.6	229.2
30	0.43	247.3	240.8	240.8	208.2
35	0.43	224.8	219.0	218.9	189.6
40	0.43	205.2	200.0	200.0	173.5
45	0.43	185.7	181.0	181.0	157.4
50	0.43	172.2	167.9	167.9	146.3
60	0.43	145.2	141.7	141.6	124.0
70	0.43	130.1	127.1	127.1	111.6
80	0.43	115.1	112.5	112.5	99.3
100	0.43	85.1	83.3	83.3	74.5
150	0.43	46.0	45.4	45.4	42.3
450	0.43	28.0	27.9	27.9	27.5



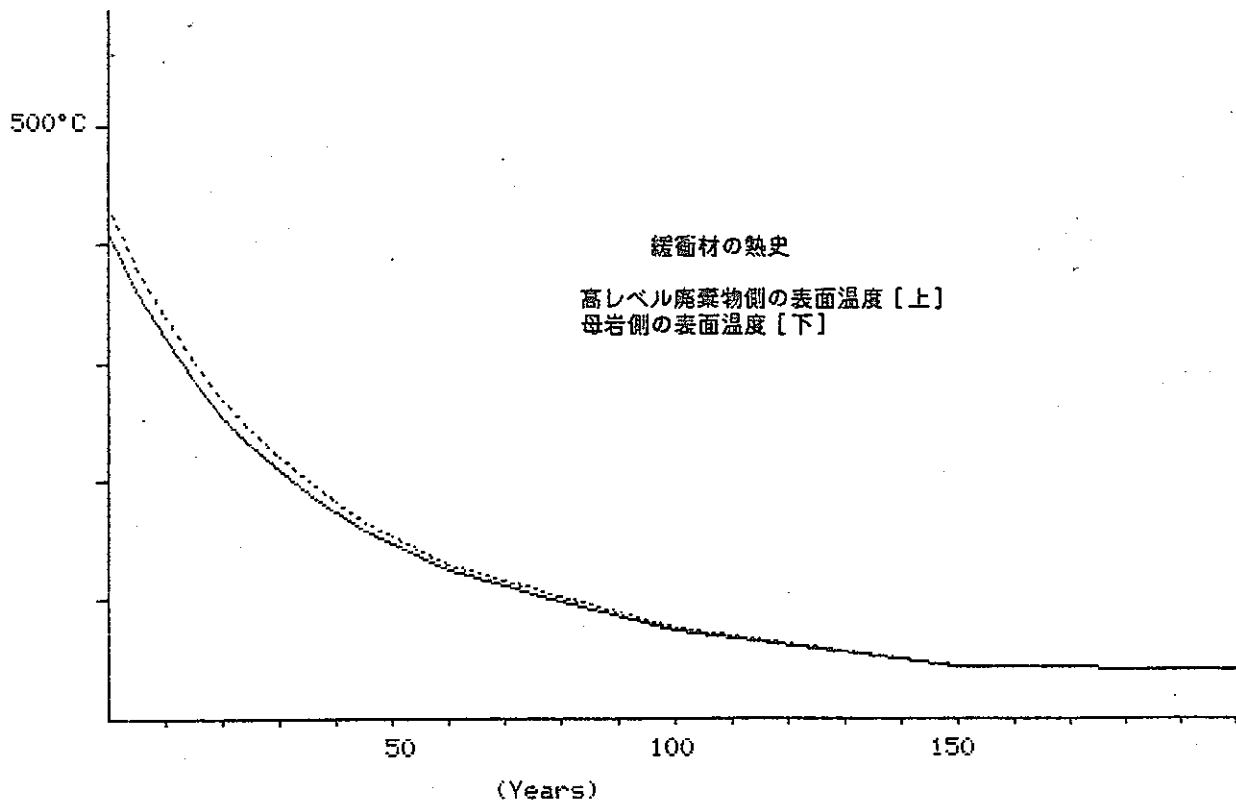
Assumption = 25°C at 60 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	456.5	442.9	442.8	408.7
5	0.86	400.8	389.0	388.9	359.2
10	0.86	359.0	348.5	348.5	322.0
15	0.86	317.3	308.1	308.0	284.9
20	0.86	282.5	274.4	274.4	254.0
25	0.86	254.6	247.4	247.4	229.2
30	0.86	231.0	224.5	224.5	208.2
35	0.86	210.1	204.3	204.3	189.6
40	0.86	192.0	186.8	186.7	173.5
45	0.86	173.9	169.2	169.2	157.4
50	0.86	161.4	157.1	157.1	146.3
60	0.86	136.3	132.8	132.8	124.0
70	0.86	122.4	119.4	119.3	111.6
80	0.86	108.5	105.9	105.9	99.3
100	0.86	80.7	78.9	78.9	74.5
150	0.86	44.5	43.9	43.9	42.3
450	0.86	27.8	27.7	27.7	27.5



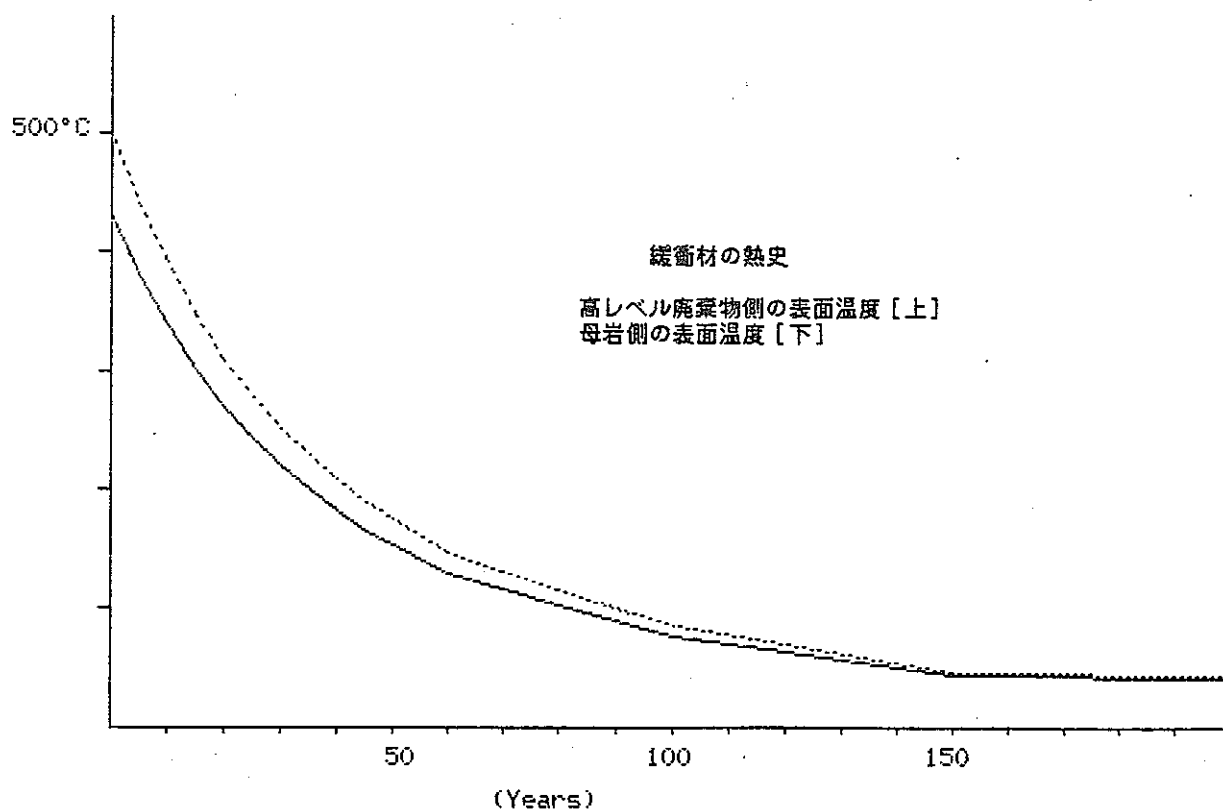
Assumption = 25°C at 60 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	445.1	431.5	431.4	408.7
5	1.29	390.9	379.1	379.0	359.2
10	1.29	350.2	339.7	339.7	322.0
15	1.29	309.6	300.4	300.3	284.9
20	1.29	275.7	267.6	267.6	254.0
25	1.29	248.6	241.4	241.3	229.2
30	1.29	225.5	219.1	219.0	208.2
35	1.29	205.2	199.4	199.4	189.6
40	1.29	187.6	182.4	182.3	173.5
45	1.29	170.0	165.3	165.3	157.4
50	1.29	157.8	153.5	153.5	146.3
60	1.29	133.4	129.9	129.9	124.0
70	1.29	119.9	116.8	116.8	111.6
80	1.29	106.3	103.7	103.7	99.3
100	1.29	79.2	77.5	77.4	74.5
150	1.29	44.0	43.4	43.4	42.3
450	1.29	27.7	27.6	27.6	27.5



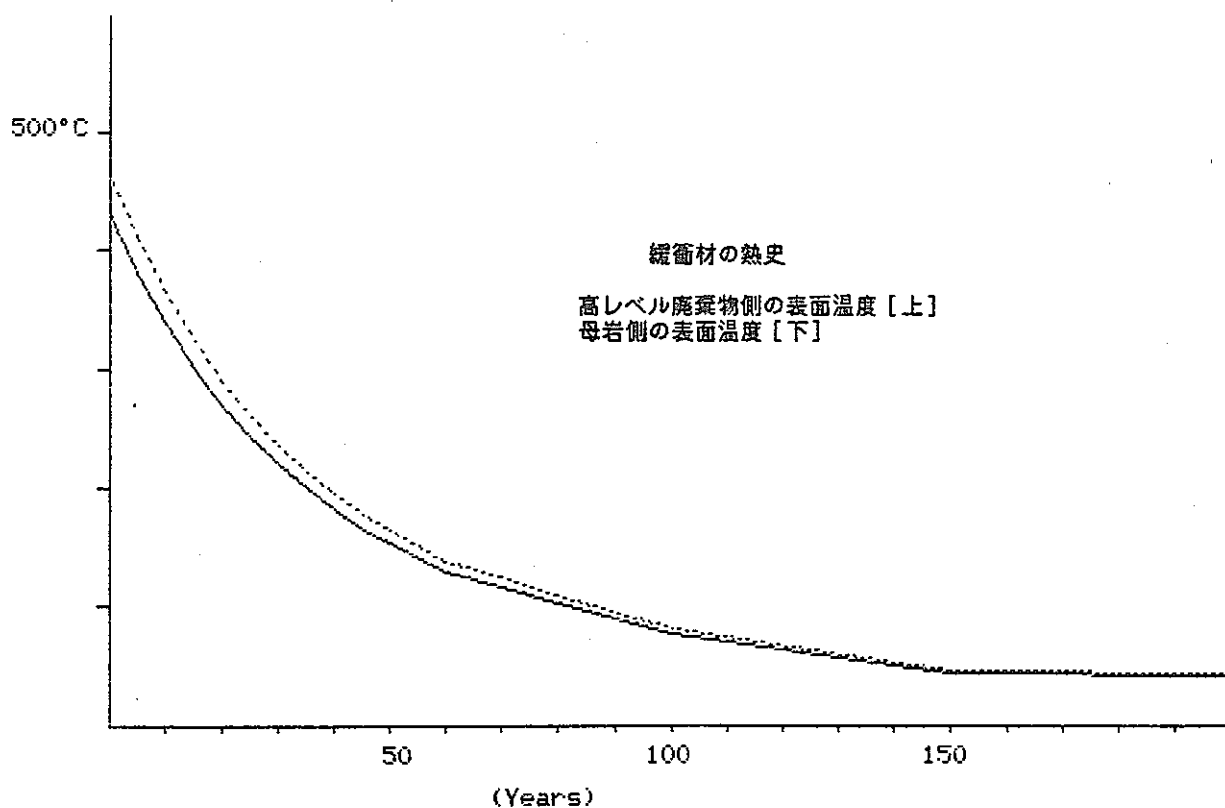
Assumption = 25°C at 80 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	513.4	499.8	499.8	431.4
5	0.43	450.4	438.6	438.5	379.0
10	0.43	403.1	392.6	392.6	339.6
15	0.43	355.8	346.7	346.6	300.3
20	0.43	316.5	308.4	308.3	267.5
25	0.43	284.9	277.7	277.7	241.3
30	0.43	258.2	251.7	251.7	219.0
35	0.43	234.5	228.7	228.7	199.4
40	0.43	214.1	208.8	208.8	182.3
45	0.43	193.6	188.9	188.9	165.3
50	0.43	179.4	175.1	175.1	153.5
60	0.43	151.0	147.5	147.5	129.9
70	0.43	135.3	132.2	132.2	116.8
80	0.43	119.5	116.9	116.9	103.7
100	0.43	88.0	86.3	86.3	77.4
150	0.43	47.1	46.4	46.4	43.4
450	0.43	28.2	28.1	28.1	27.6



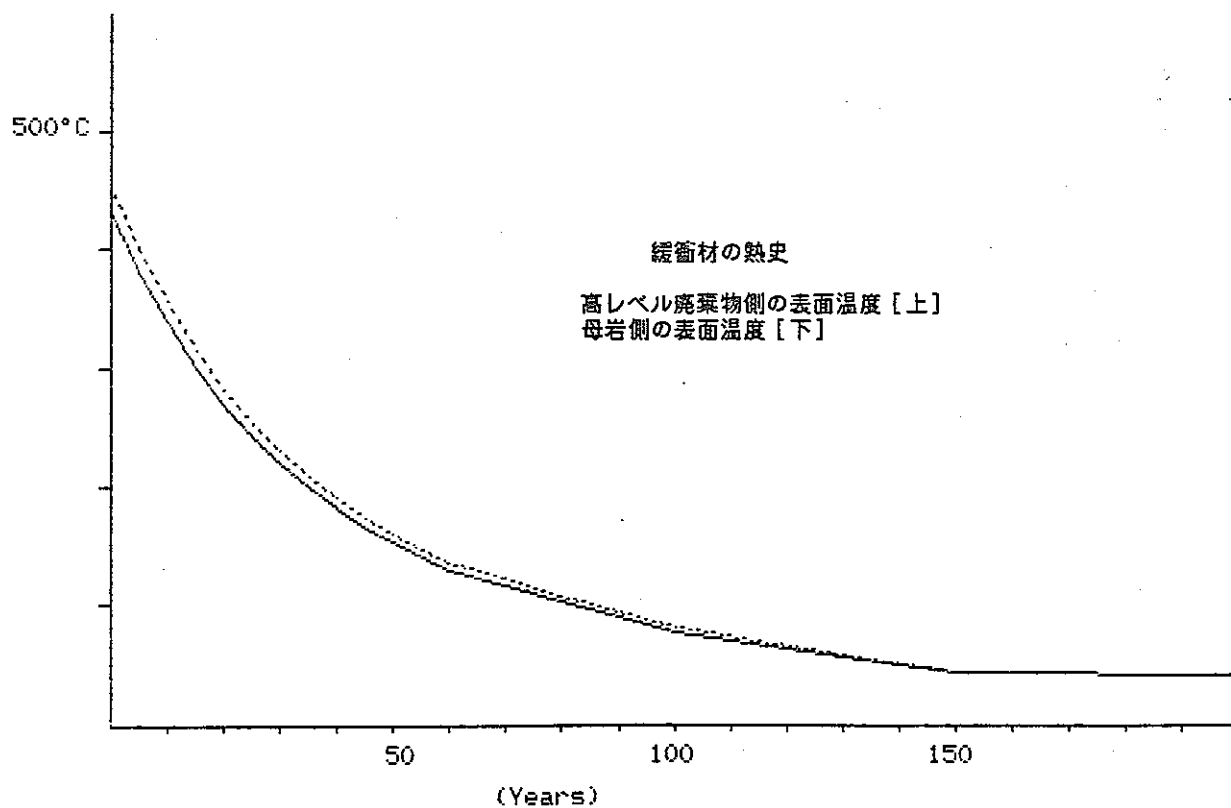
Assumption = 25°C at 80 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	479.2	465.7	465.6	431.4
5	0.86	420.6	408.8	408.7	379.0
10	0.86	376.6	366.2	366.1	339.6
15	0.86	332.7	323.5	323.5	300.3
20	0.86	296.1	288.0	287.9	267.5
25	0.86	266.8	259.5	259.5	241.3
30	0.86	241.8	235.4	235.3	219.0
35	0.86	219.9	214.1	214.0	199.4
40	0.86	200.8	195.6	195.5	182.3
45	0.86	181.8	177.1	177.1	165.3
50	0.86	168.6	164.3	164.3	153.5
60	0.86	142.2	138.7	138.7	129.9
70	0.86	127.6	124.5	124.5	116.8
80	0.86	112.9	110.3	110.3	103.7
100	0.86	83.6	81.9	81.8	77.4
150	0.86	45.5	44.9	44.9	43.4
450	0.86	27.9	27.8	27.8	27.6



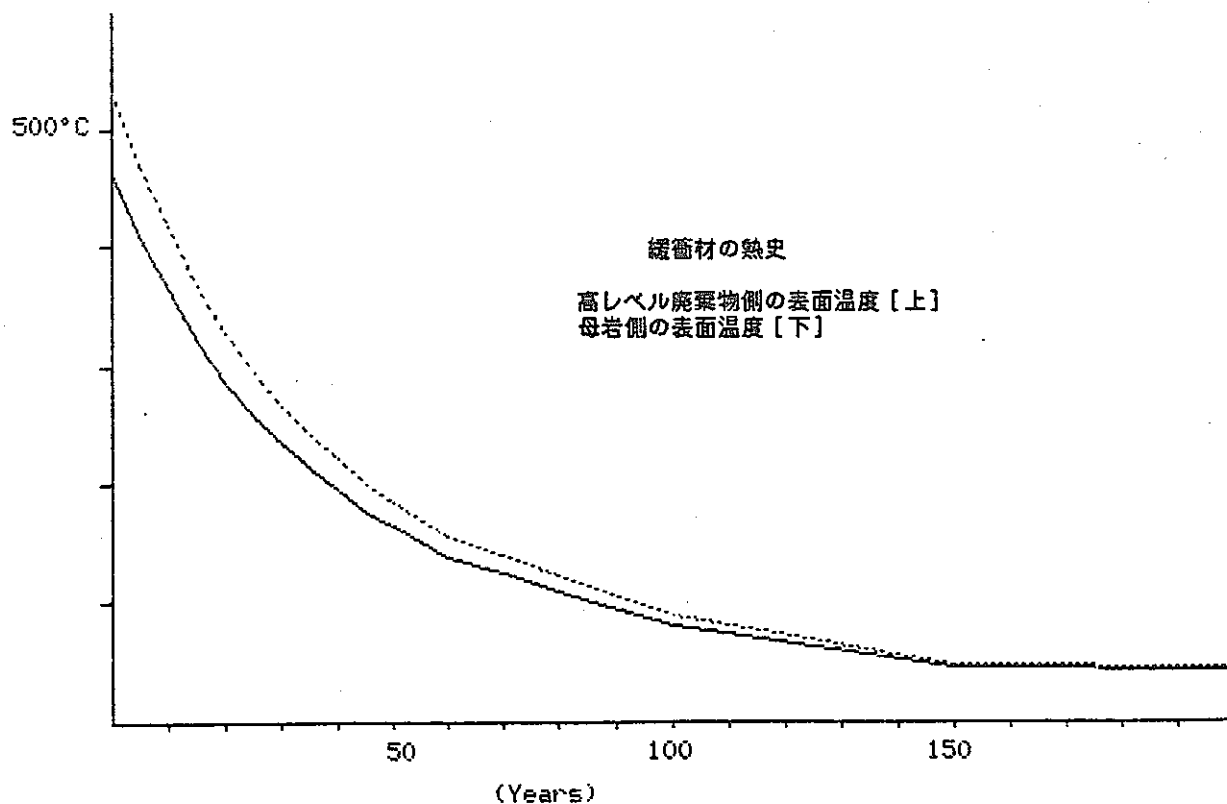
Assumption = 25°C at 80 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	467.8	454.3	454.2	431.4
5	1.29	410.7	398.9	398.8	379.0
10	1.29	367.8	357.3	357.3	339.6
15	1.29	325.0	315.8	315.7	300.3
20	1.29	289.3	281.2	281.1	267.5
25	1.29	260.7	253.5	253.4	241.3
30	1.29	236.4	229.9	229.9	219.0
35	1.29	215.0	209.2	209.1	199.4
40	1.29	196.4	191.2	191.1	182.3
45	1.29	177.8	173.2	173.1	165.3
50	1.29	165.0	160.7	160.7	153.5
60	1.29	139.3	135.8	135.8	129.9
70	1.29	125.0	121.9	121.9	116.8
80	1.29	110.7	108.1	108.1	103.7
100	1.29	82.1	80.4	80.4	77.4
150	1.29	45.0	44.4	44.4	43.4
450	1.29	27.9	27.8	27.8	27.6



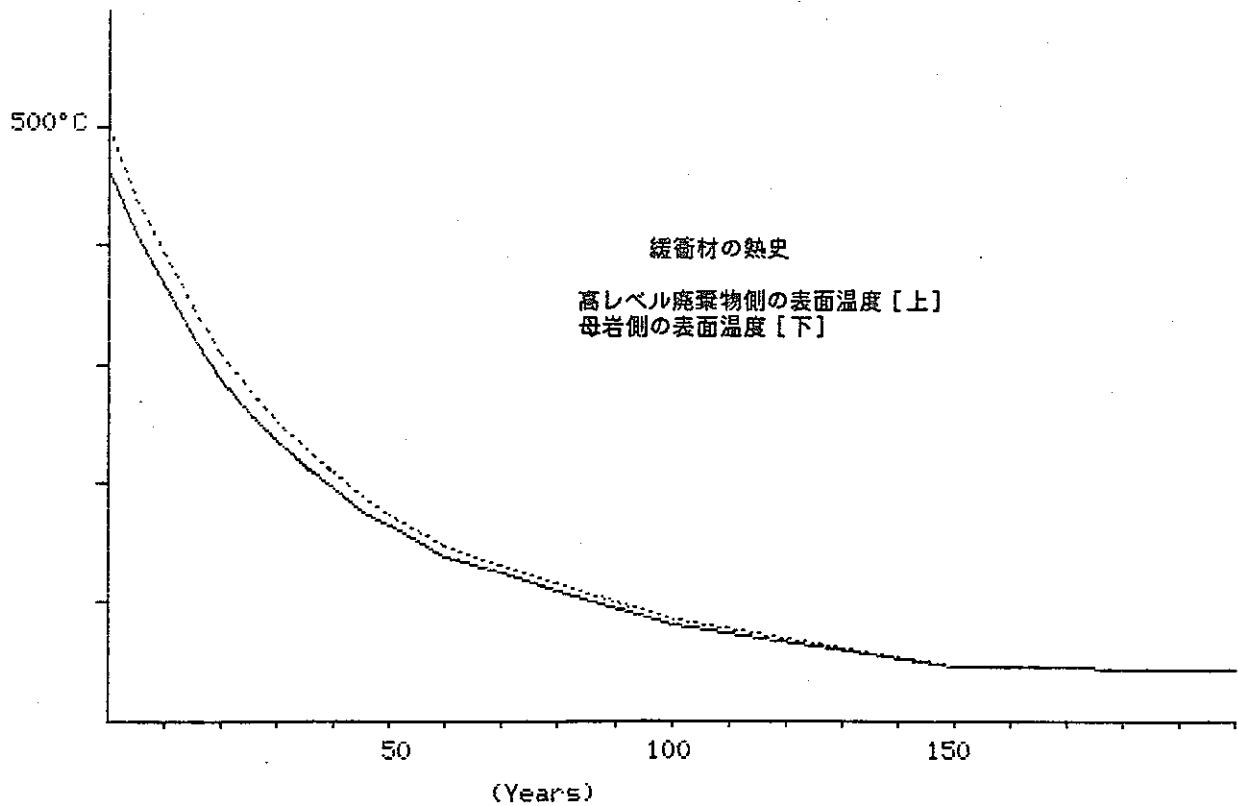
Assumption = 25°C at 120 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	545.4	531.9	531.8	463.5
5	0.43	478.3	466.5	466.4	406.9
10	0.43	427.9	417.4	417.4	364.5
15	0.43	377.6	368.4	368.3	322.0
20	0.43	335.6	327.5	327.5	286.7
25	0.43	302.0	294.8	294.8	258.4
30	0.43	273.5	267.0	267.0	234.3
35	0.43	248.3	242.5	242.4	213.1
40	0.43	226.5	221.2	221.2	194.7
45	0.43	204.6	200.0	199.9	176.3
50	0.43	189.5	185.2	185.2	163.6
60	0.43	159.3	155.8	155.8	138.2
70	0.43	142.5	139.5	139.4	124.0
80	0.43	125.7	123.1	123.1	109.9
100	0.43	92.2	90.4	90.4	81.6
150	0.43	48.5	47.9	47.9	44.8
450	0.43	28.4	28.3	28.3	27.8



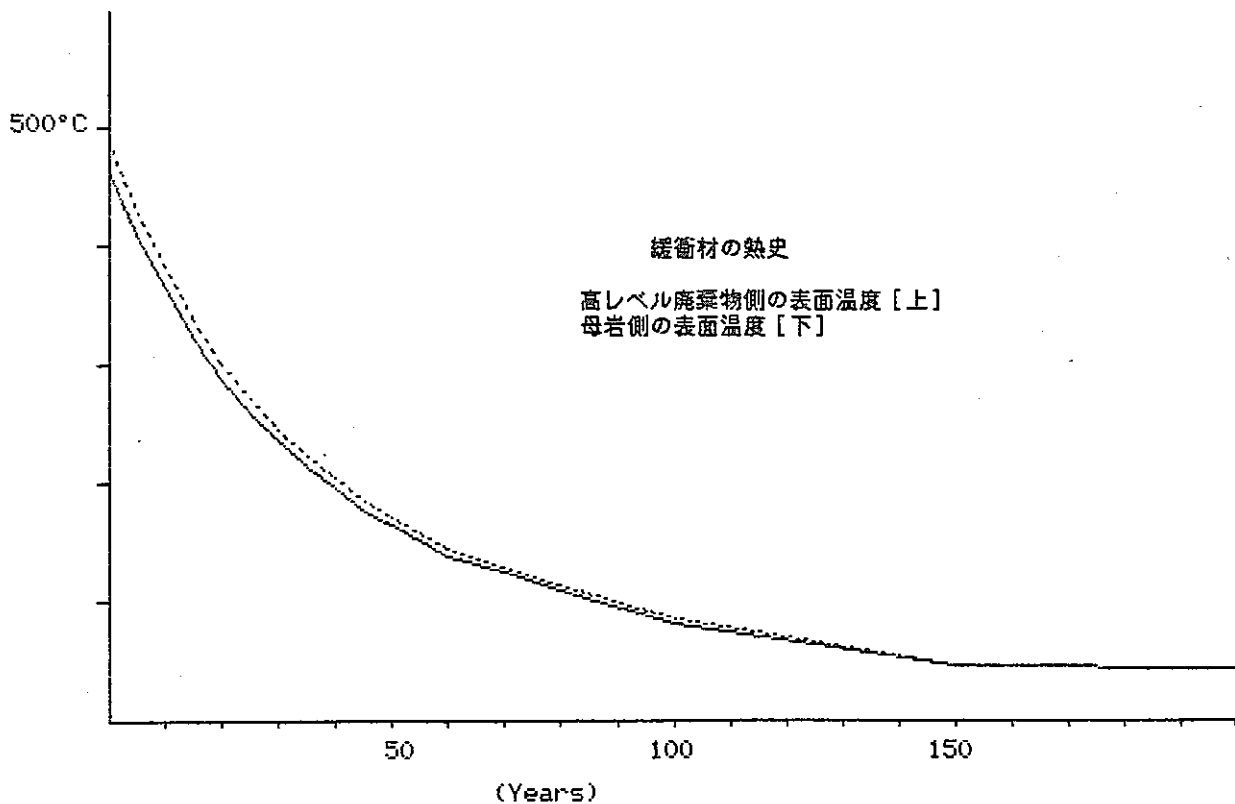
Assumption = 25°C at 120 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	511.3	497.7	497.7	463.5
5	0.86	448.5	436.7	436.7	406.9
10	0.86	401.5	391.0	390.9	364.5
15	0.86	354.4	345.2	345.2	322.0
20	0.86	315.2	307.1	307.1	286.7
25	0.86	283.8	276.6	276.6	258.4
30	0.86	257.2	250.7	250.7	234.3
35	0.86	233.6	227.8	227.8	213.1
40	0.86	213.2	208.0	208.0	194.7
45	0.86	192.8	188.2	188.1	176.3
50	0.86	178.7	174.4	174.4	163.6
60	0.86	150.5	147.0	147.0	138.2
70	0.86	134.8	131.7	131.7	124.0
80	0.86	119.1	116.5	116.5	109.9
100	0.86	87.7	86.0	86.0	81.6
150	0.86	47.0	46.3	46.3	44.8
450	0.86	28.1	28.0	28.0	27.8



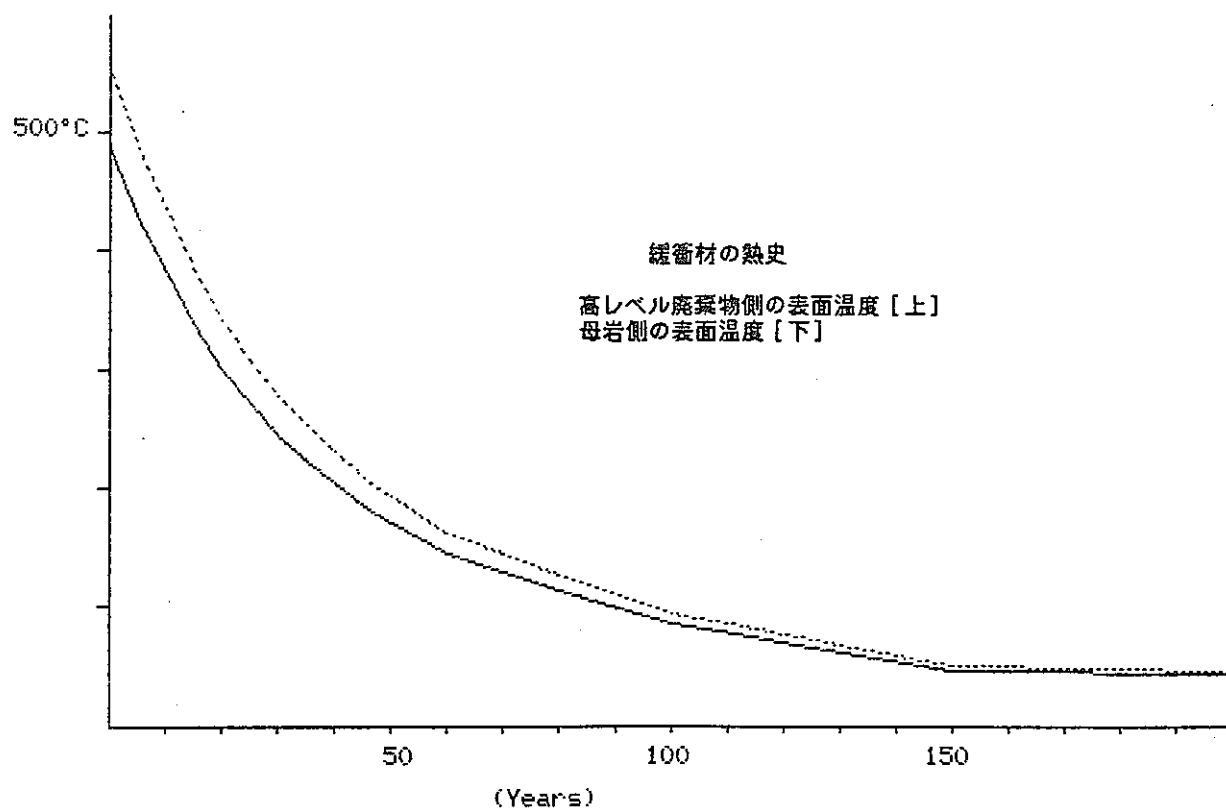
Assumption = 25°C at 120 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	499.9	486.3	486.3	463.5
5	1.29	438.6	426.8	426.7	406.9
10	1.29	392.7	382.2	382.1	364.5
15	1.29	346.7	337.5	337.5	322.0
20	1.29	308.4	300.3	300.3	286.7
25	1.29	277.8	270.6	270.5	258.4
30	1.29	251.7	245.3	245.2	234.3
35	1.29	228.7	222.9	222.9	213.1
40	1.29	208.8	203.6	203.6	194.7
45	1.29	188.9	184.2	184.2	176.3
50	1.29	175.1	170.8	170.8	163.6
60	1.29	147.6	144.1	144.0	138.2
70	1.29	132.2	129.2	129.2	124.0
80	1.29	116.9	114.3	114.3	109.9
100	1.29	86.3	84.5	84.5	81.6
150	1.29	46.4	45.8	45.8	44.8
450	1.29	28.1	28.0	28.0	27.8



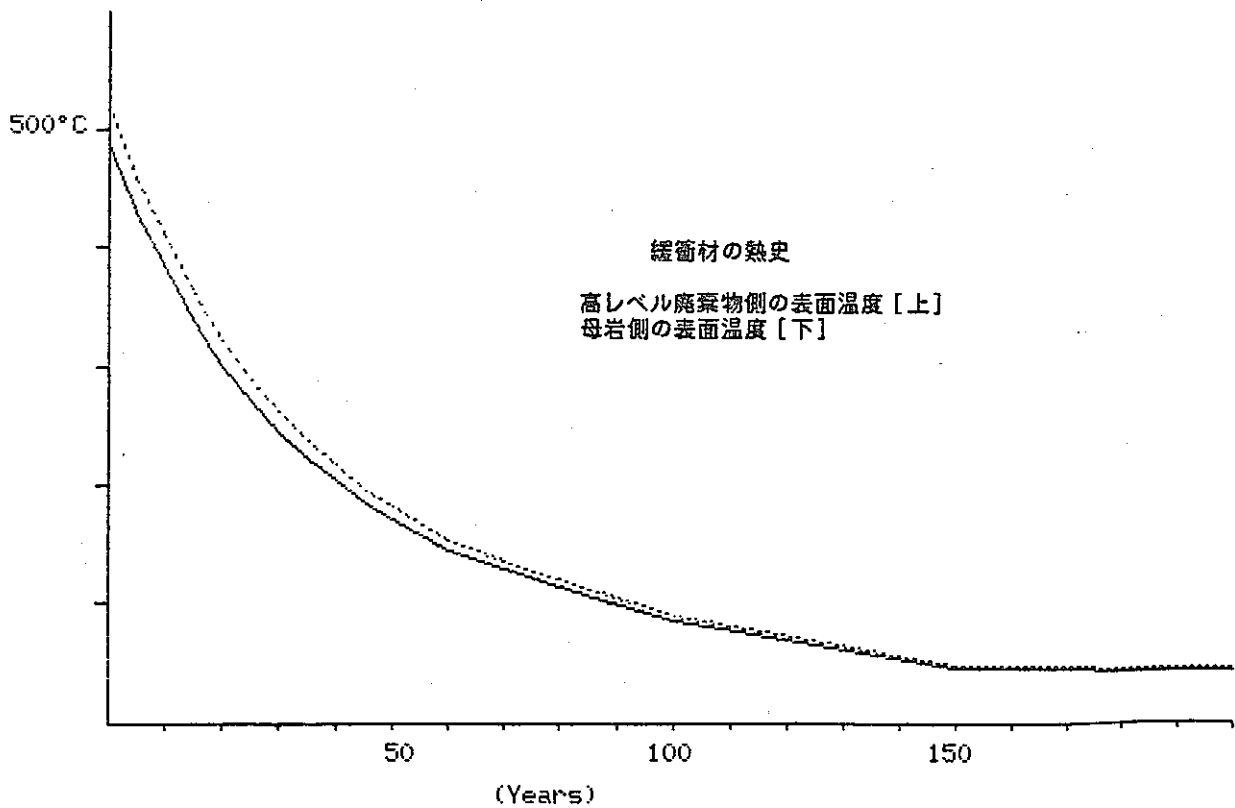
Assumption = 25°C at 160 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	568.2	554.7	554.6	486.2
5	0.43	498.1	486.3	486.2	426.7
10	0.43	445.5	435.1	435.0	382.1
15	0.43	393.0	383.8	383.7	337.5
20	0.43	349.2	341.1	341.0	300.3
25	0.43	314.1	306.9	306.9	270.5
30	0.43	284.3	277.9	277.8	245.2
35	0.43	258.1	252.2	252.2	222.9
40	0.43	235.3	230.0	230.0	203.5
45	0.43	212.5	207.8	207.8	184.2
50	0.43	196.7	192.4	192.4	170.8
60	0.43	165.2	161.7	161.7	144.0
70	0.43	147.7	144.6	144.6	129.2
80	0.43	130.1	127.5	127.5	114.3
100	0.43	95.1	93.3	93.3	84.5
150	0.43	49.5	48.9	48.9	45.8
450	0.43	28.5	28.4	28.4	28.0



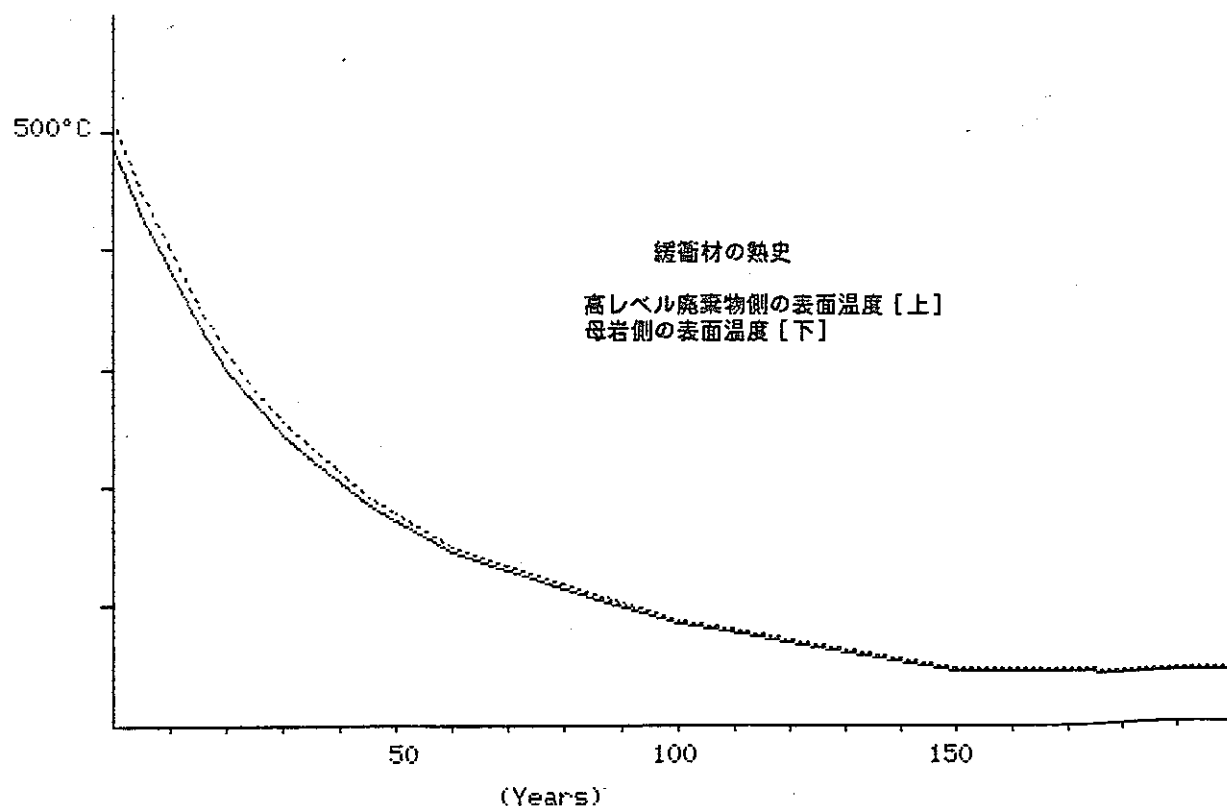
Assumption = 25°C at 160 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	534.0	520.5	520.4	486.2
5	0.86	468.4	456.6	456.5	426.7
10	0.86	419.1	408.6	408.5	382.1
15	0.86	369.8	360.7	360.6	337.5
20	0.86	328.8	320.7	320.6	300.3
25	0.86	295.9	288.7	288.7	270.5
30	0.86	268.0	261.6	261.5	245.2
35	0.86	243.4	237.6	237.5	222.9
40	0.86	222.0	216.8	216.8	203.5
45	0.86	200.7	196.0	196.0	184.2
50	0.86	185.9	181.6	181.6	170.8
60	0.86	156.4	152.9	152.8	144.0
70	0.86	139.9	136.9	136.9	129.2
80	0.86	123.5	120.9	120.9	114.3
100	0.86	90.7	88.9	88.9	84.5
150	0.86	48.0	47.4	47.4	45.8
450	0.86	28.3	28.2	28.2	28.0



Assumption = 25°C at 160 (m) distance from the center of canister

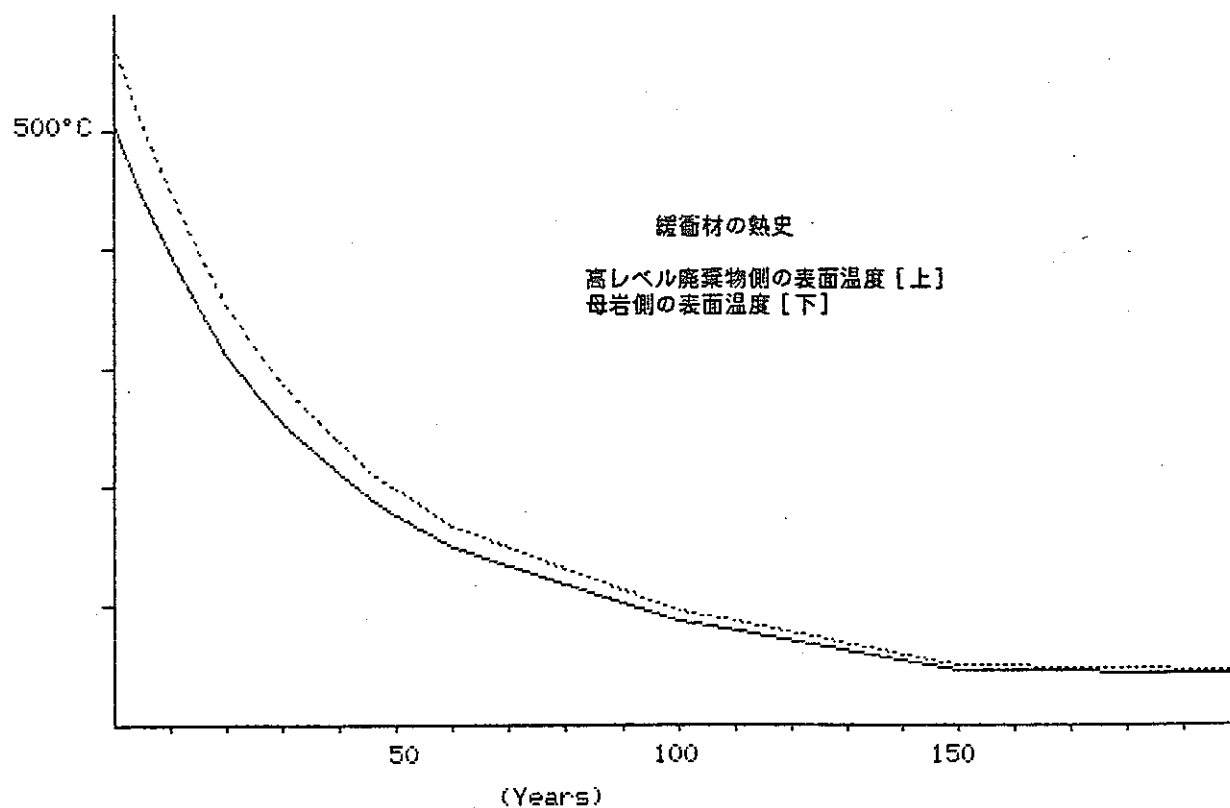
Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	522.6	509.1	509.0	486.2
5	1.29	458.4	446.6	446.6	426.7
10	1.29	410.3	399.8	399.7	382.1
15	1.29	362.1	352.9	352.9	337.5
20	1.29	322.0	313.9	313.8	300.3
25	1.29	289.9	282.7	282.6	270.5
30	1.29	262.6	256.1	256.1	245.2
35	1.29	238.5	232.7	232.7	222.9
40	1.29	217.6	212.4	212.4	203.5
45	1.29	196.8	192.1	192.1	184.2
50	1.29	182.3	178.0	178.0	170.8
60	1.29	153.4	149.9	149.9	144.0
70	1.29	137.4	134.3	134.3	129.2
80	1.29	121.3	118.7	118.7	114.3
100	1.29	89.2	87.5	87.5	84.5
150	1.29	47.5	46.9	46.9	45.8
450	1.29	28.2	28.1	28.1	28.0



0

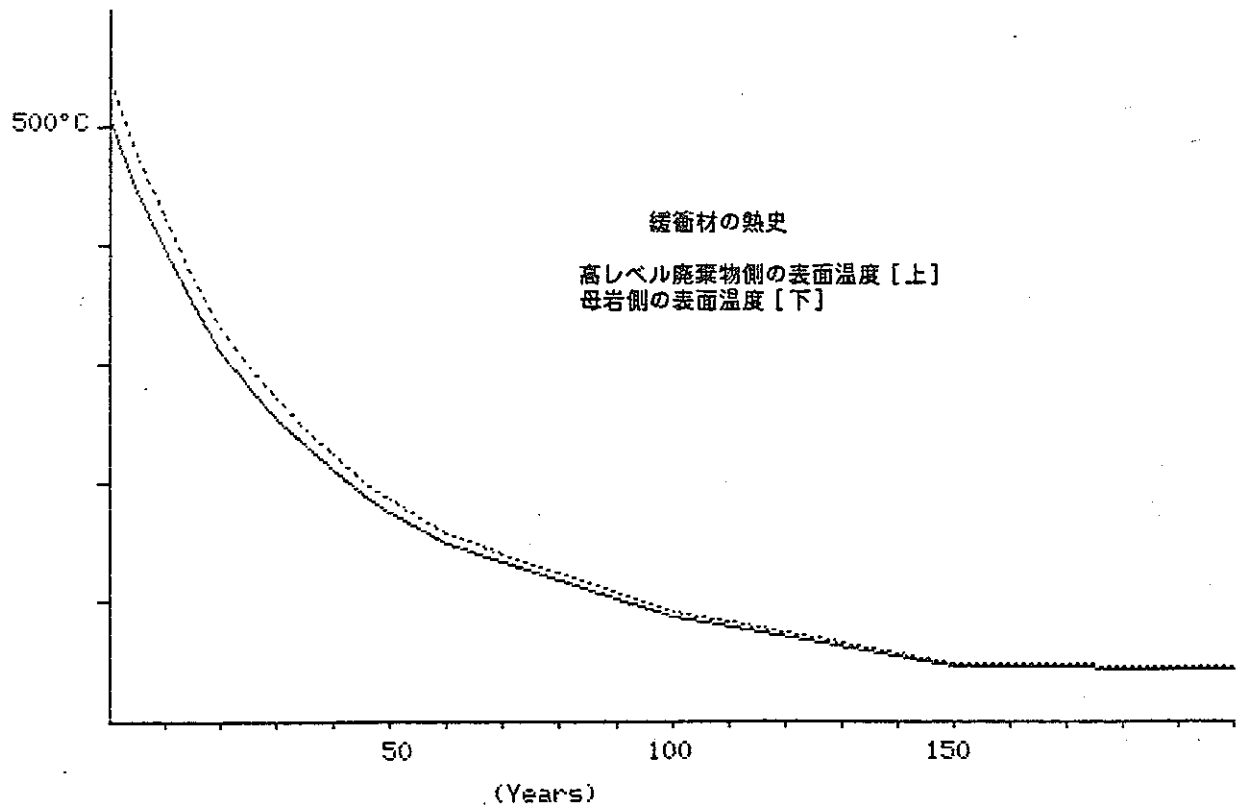
Assumption = 25°C at 200 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	585.9	572.3	572.2	503.9
5	0.43	513.5	501.7	501.6	442.1
10	0.43	459.2	448.7	448.7	395.8
15	0.43	404.9	395.8	395.7	349.4
20	0.43	359.7	351.6	351.6	310.8
25	0.43	323.5	316.3	316.3	279.9
30	0.43	292.8	286.3	286.3	253.6
35	0.43	265.6	259.8	259.8	230.5
40	0.43	242.1	236.9	236.8	210.4
45	0.43	218.6	213.9	213.9	190.3
50	0.43	202.3	198.0	198.0	176.4
60	0.43	169.7	166.2	166.2	148.6
70	0.43	151.6	148.6	148.6	133.1
80	0.43	133.6	130.9	130.9	117.7
100	0.43	97.4	95.6	95.6	86.8
150	0.43	50.3	49.7	49.7	46.6
450	0.43	28.6	28.5	28.5	28.1



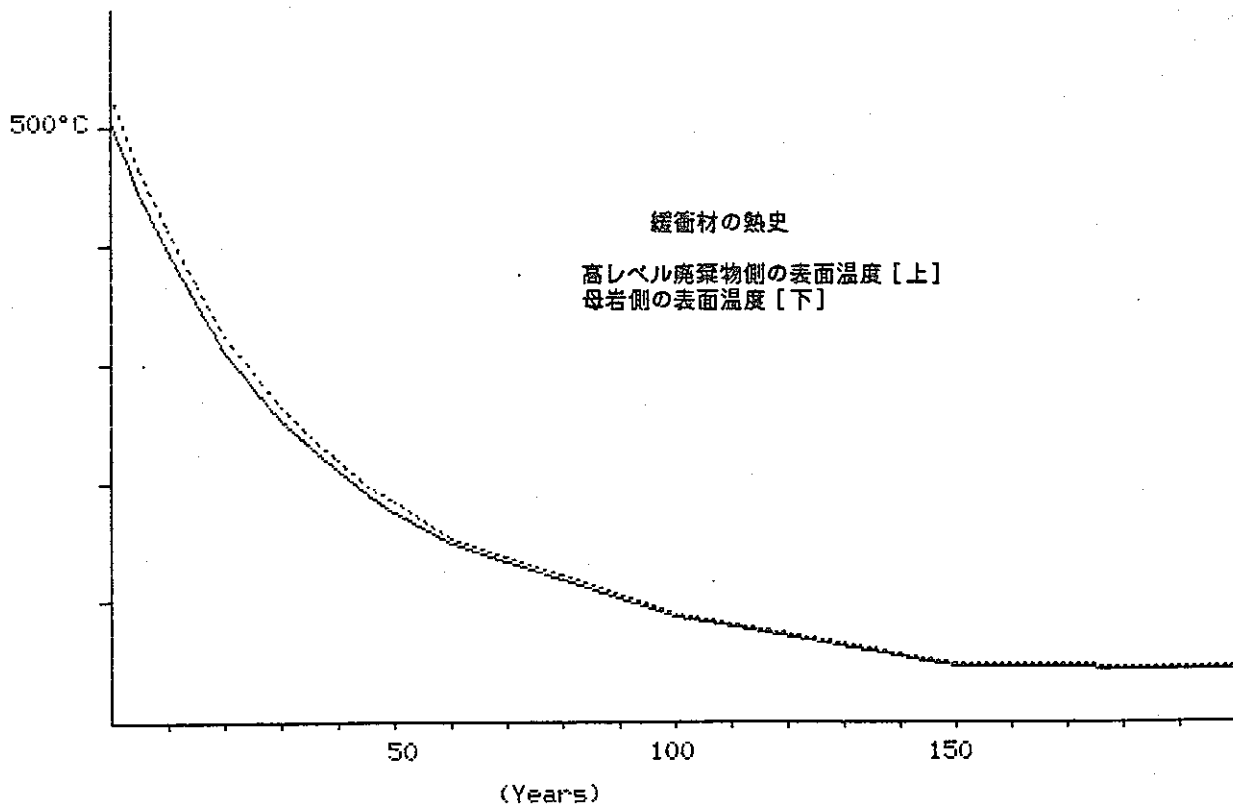
Assumption = 25°C at 200 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	551.7	538.1	538.1	503.9
5	0.86	483.7	471.9	471.9	442.1
10	0.86	432.8	422.3	422.2	395.8
15	0.86	381.8	372.6	372.6	349.4
20	0.86	339.3	331.2	331.2	310.8
25	0.86	305.3	298.1	298.1	279.9
30	0.86	276.4	270.0	269.9	253.6
35	0.86	251.0	245.2	245.1	230.5
40	0.86	228.9	223.6	223.6	210.4
45	0.86	206.8	202.1	202.1	190.3
50	0.86	191.5	187.2	187.2	176.4
60	0.86	160.9	157.4	157.4	148.6
70	0.86	143.9	140.9	140.9	133.1
80	0.86	126.9	124.3	124.3	117.7
100	0.86	93.0	91.2	91.2	86.8
150	0.86	48.8	48.2	48.2	46.6
450	0.86	28.4	28.3	28.3	28.1



Assumption = 25°C at 200 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	540.3	526.7	526.7	503.9
5	1.29	473.8	462.0	461.9	442.1
10	1.29	423.9	413.4	413.4	395.8
15	1.29	374.1	364.9	364.8	349.4
20	1.29	332.5	324.4	324.4	310.8
25	1.29	299.3	292.1	292.0	279.9
30	1.29	271.0	264.5	264.5	253.6
35	1.29	246.1	240.3	240.2	230.5
40	1.29	224.5	219.2	219.2	210.4
45	1.29	202.9	198.2	198.2	190.3
50	1.29	187.9	183.6	183.6	176.4
60	1.29	158.0	154.5	154.5	148.6
70	1.29	141.4	138.3	138.3	133.1
80	1.29	124.7	122.1	122.1	117.7
100	1.29	91.5	89.7	89.7	86.8
150	1.29	48.3	47.7	47.7	46.6
450	1.29	28.3	28.2	28.2	28.1



Thermal History Simulation for Backfill Material

Basic parameters incorporated are as follows:

Thermal conductivity for waste glass = 0.938 Kcal/mhdeg	Ref. 1)
for canister metal = 21.08 Kcal/mhdeg	1)
for backfill material = 0.43-1.29 Kcal/mhdeg	2)
for granitic host rock = 2.8 Kcal/mhdeg	3)

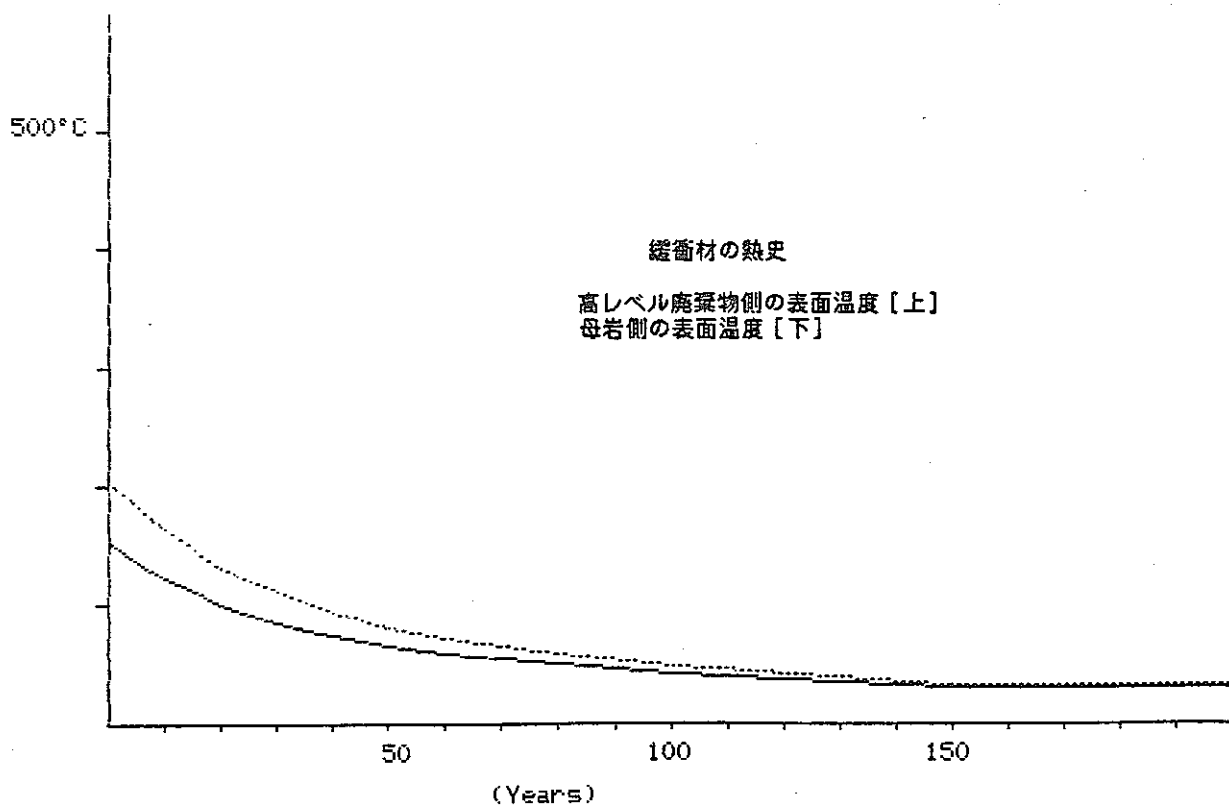
1)リカネンヒョウ(1983), 2)Exploration Geophysics(1950),
3)Handbook of Physical Constants(1966)

Thickness of backfill = 0.2m

貯蔵50年の場合

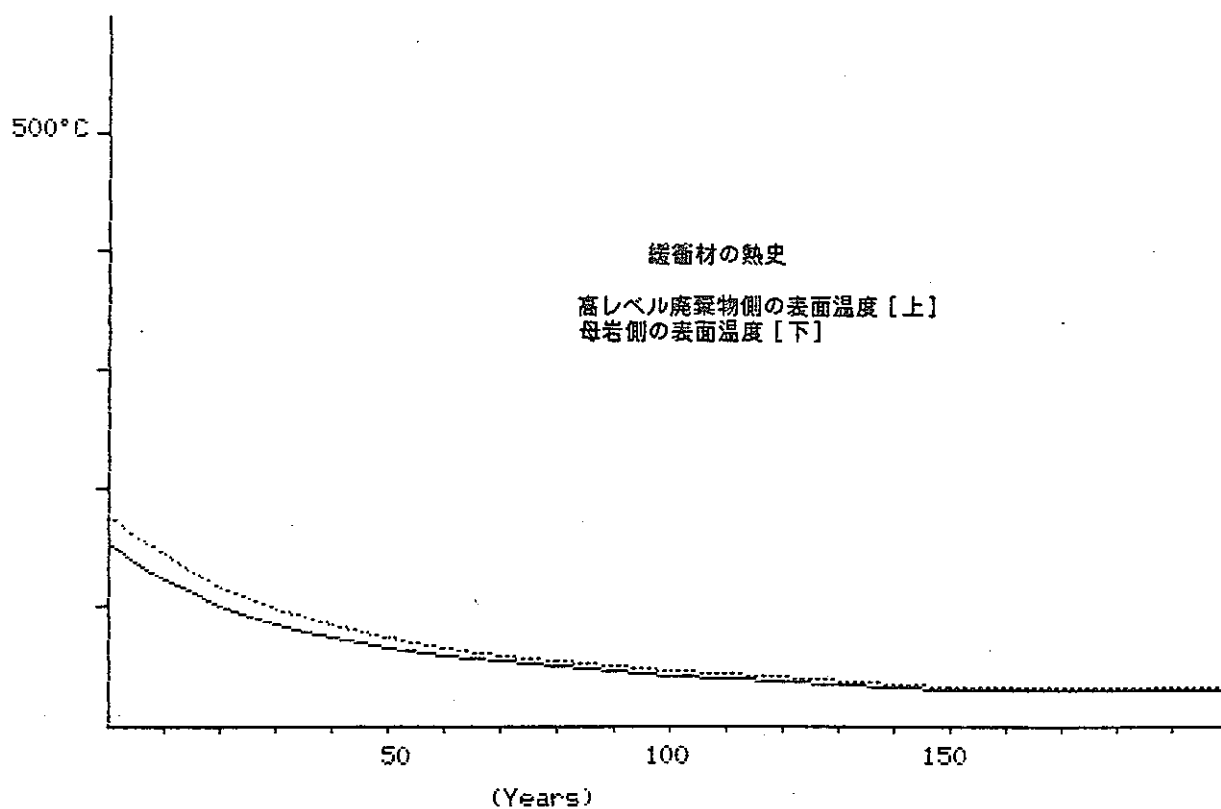
Assumption = 25°C at 5 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	218.5	205.0	204.9	152.6
5	0.43	193.5	181.7	181.7	136.1
10	0.43	174.8	164.3	164.3	123.8
15	0.43	156.1	146.9	146.9	111.4
20	0.43	140.5	132.4	132.4	101.2
25	0.43	128.0	120.8	120.7	92.9
30	0.43	117.4	110.9	110.9	85.9
35	0.43	108.0	102.2	102.2	79.8
40	0.43	99.9	94.7	94.6	74.4
45	0.43	91.8	87.1	87.1	69.0
50	0.43	86.2	81.9	81.9	65.3
60	0.43	74.9	71.4	71.4	57.9
70	0.43	68.7	65.6	65.6	53.8
80	0.43	62.5	59.8	59.8	49.7
100	0.43	50.0	48.2	48.2	41.5
150	0.43	33.7	33.1	33.1	30.8
450	0.43	26.2	26.2	26.2	25.8



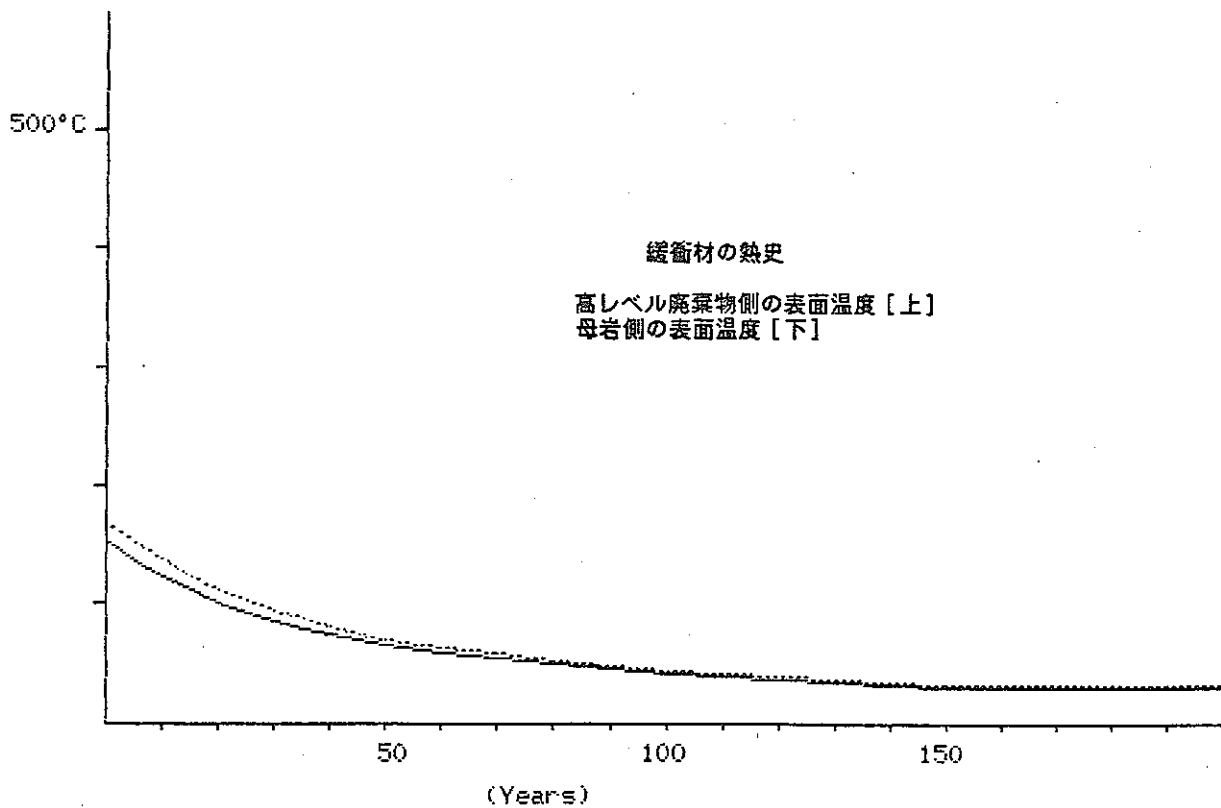
Assumption = 25°C at 5 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	192.4	178.8	178.8	152.6
5	0.86	170.8	159.0	158.9	136.1
10	0.86	154.6	144.1	144.0	123.8
15	0.86	138.4	129.2	129.2	111.4
20	0.86	124.9	116.8	116.8	101.2
25	0.86	114.1	106.9	106.8	92.9
30	0.86	104.9	98.4	98.4	85.9
35	0.86	96.8	91.0	91.0	79.8
40	0.86	89.8	84.5	84.5	74.4
45	0.86	82.8	78.1	78.1	69.0
50	0.86	77.9	73.6	73.6	65.3
60	0.86	68.2	64.7	64.7	57.9
70	0.86	62.8	59.7	59.7	53.8
80	0.86	57.4	54.8	54.8	49.7
100	0.86	46.6	44.8	44.8	41.5
150	0.86	32.6	31.9	31.9	30.8
450	0.86	26.1	26.0	26.0	25.8



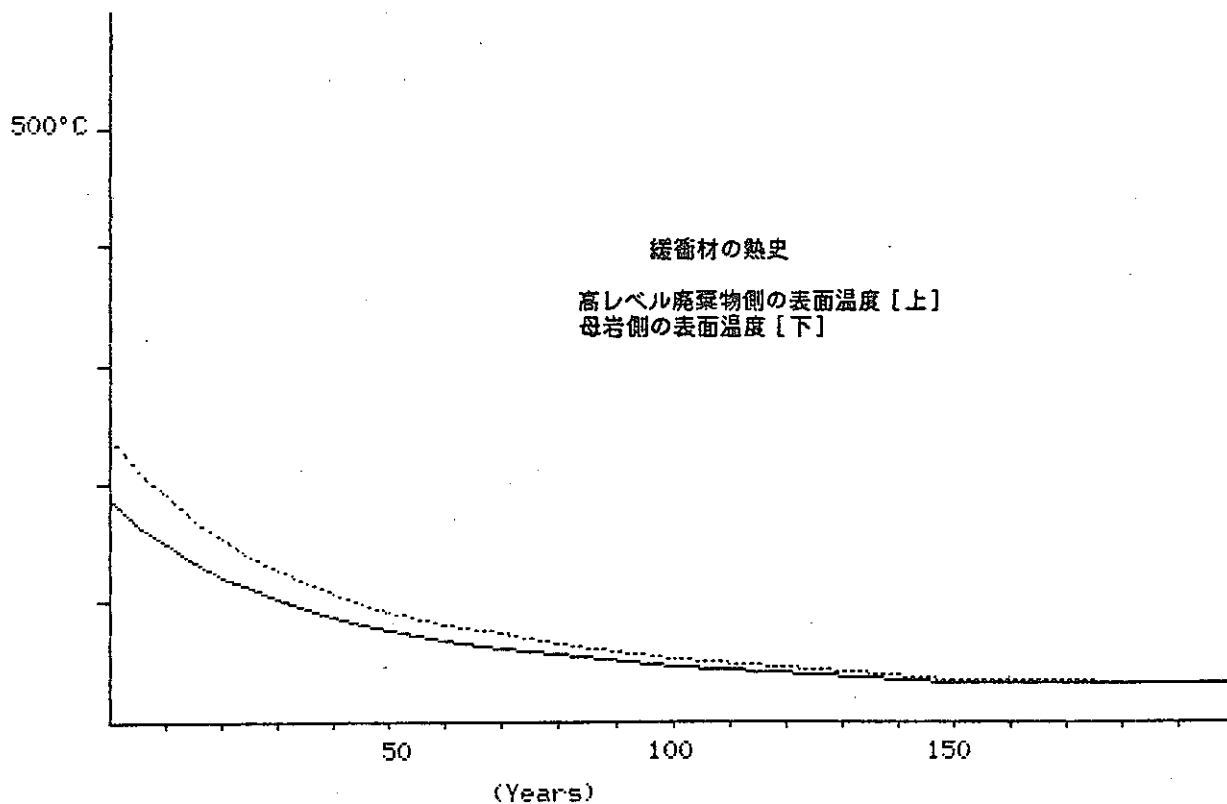
Assumption = 25°C at 5 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	183.7	170.1	170.0	152.6
5	1.29	163.2	151.4	151.3	136.1
10	1.29	147.8	137.3	137.3	123.8
15	1.29	132.5	123.3	123.3	111.4
20	1.29	119.7	111.6	111.6	101.2
25	1.29	109.5	102.2	102.2	92.9
30	1.29	100.7	94.3	94.2	85.9
35	1.29	93.1	87.3	87.2	79.8
40	1.29	86.4	81.2	81.1	74.4
45	1.29	79.8	75.1	75.1	69.0
50	1.29	75.2	70.9	70.9	65.3
60	1.29	65.9	62.4	62.4	57.9
70	1.29	60.8	57.8	57.8	53.8
80	1.29	55.7	53.1	53.1	49.7
100	1.29	45.5	43.7	43.7	41.5
150	1.29	32.2	31.6	31.6	30.8
450	1.29	26.0	25.9	25.9	25.8



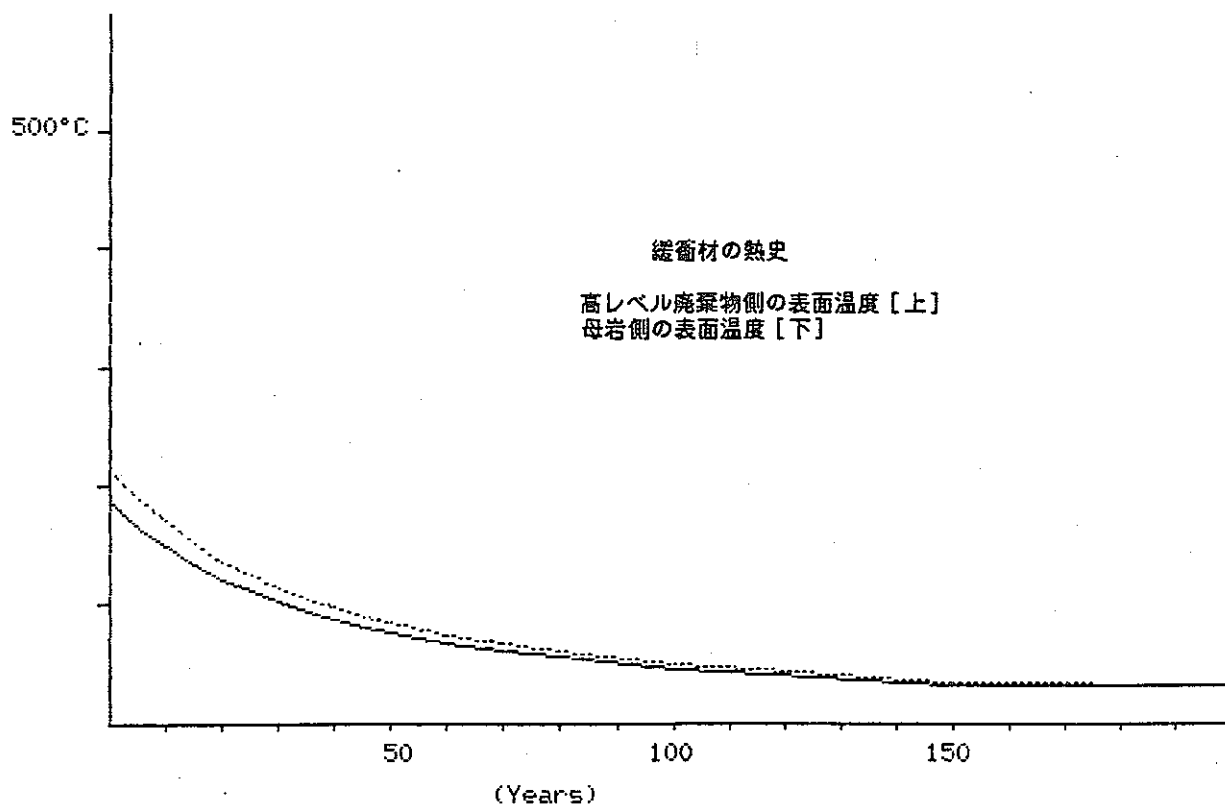
Assumption = 25°C at 10 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	252.5	238.9	238.8	186.6
5	0.43	223.1	211.3	211.2	165.7
10	0.43	201.1	190.6	190.6	150.1
15	0.43	179.1	169.9	169.9	134.4
20	0.43	160.7	152.7	152.6	121.4
25	0.43	146.1	138.9	138.8	111.0
30	0.43	133.6	127.1	127.1	102.1
35	0.43	122.6	116.8	116.7	94.3
40	0.43	113.0	107.8	107.8	87.5
45	0.43	103.5	98.8	98.8	80.8
50	0.43	96.9	92.6	92.6	76.1
60	0.43	83.7	80.2	80.2	66.7
70	0.43	76.4	73.3	73.3	61.5
80	0.43	69.0	66.4	66.4	56.3
100	0.43	54.3	52.6	52.6	45.8
150	0.43	35.3	34.7	34.7	32.3
450	0.43	26.5	26.4	26.4	26.0



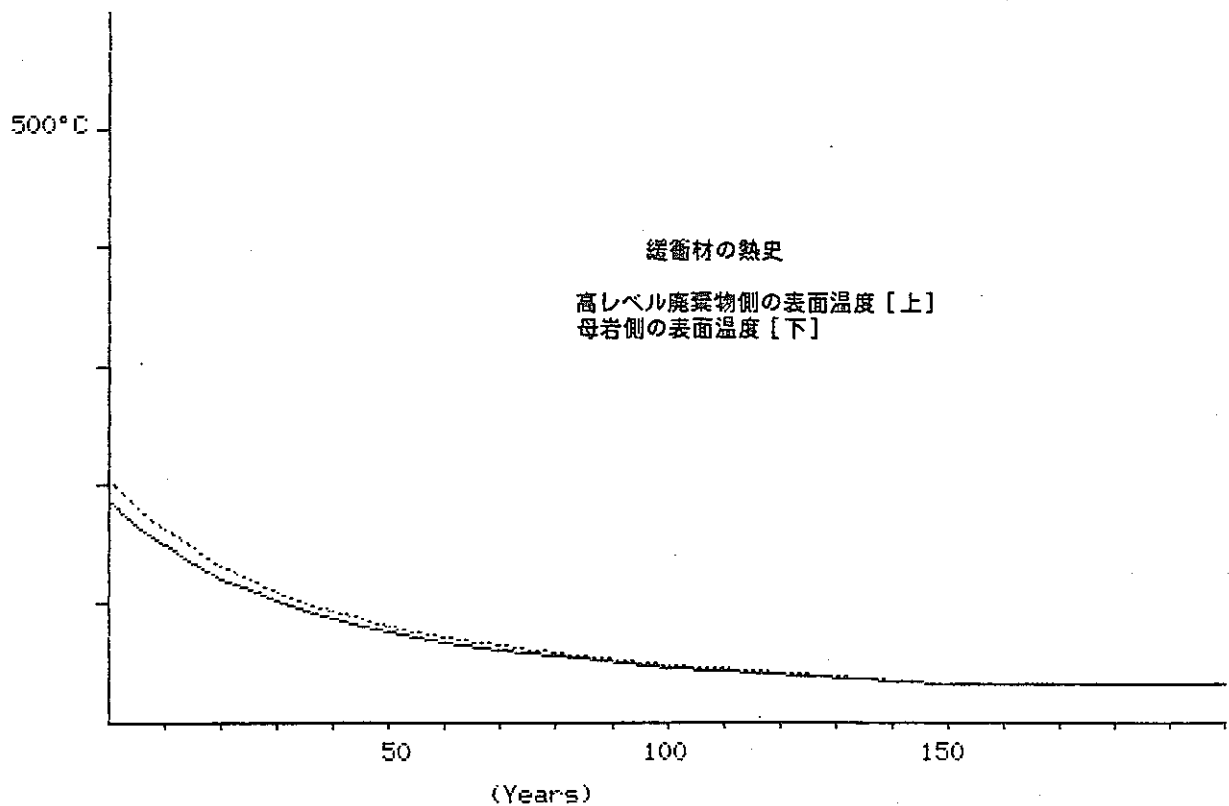
Assumption = 25°C at 10 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	226.3	212.8	212.7	186.6
5	0.86	200.3	188.5	188.5	165.7
10	0.86	180.9	170.4	170.3	150.1
15	0.86	161.4	152.2	152.2	134.4
20	0.86	145.1	137.1	137.0	121.4
25	0.86	132.2	124.9	124.9	111.0
30	0.86	121.1	114.6	114.6	102.1
35	0.86	111.4	105.6	105.5	94.3
40	0.86	102.9	97.7	97.7	87.5
45	0.86	94.5	89.8	89.8	80.8
50	0.86	88.6	84.4	84.3	76.1
60	0.86	77.0	73.5	73.4	66.7
70	0.86	70.5	67.4	67.4	61.5
80	0.86	64.0	61.3	61.3	56.3
100	0.86	51.0	49.2	49.2	45.8
150	0.86	34.1	33.5	33.5	32.3
450	0.86	26.3	26.2	26.2	26.0



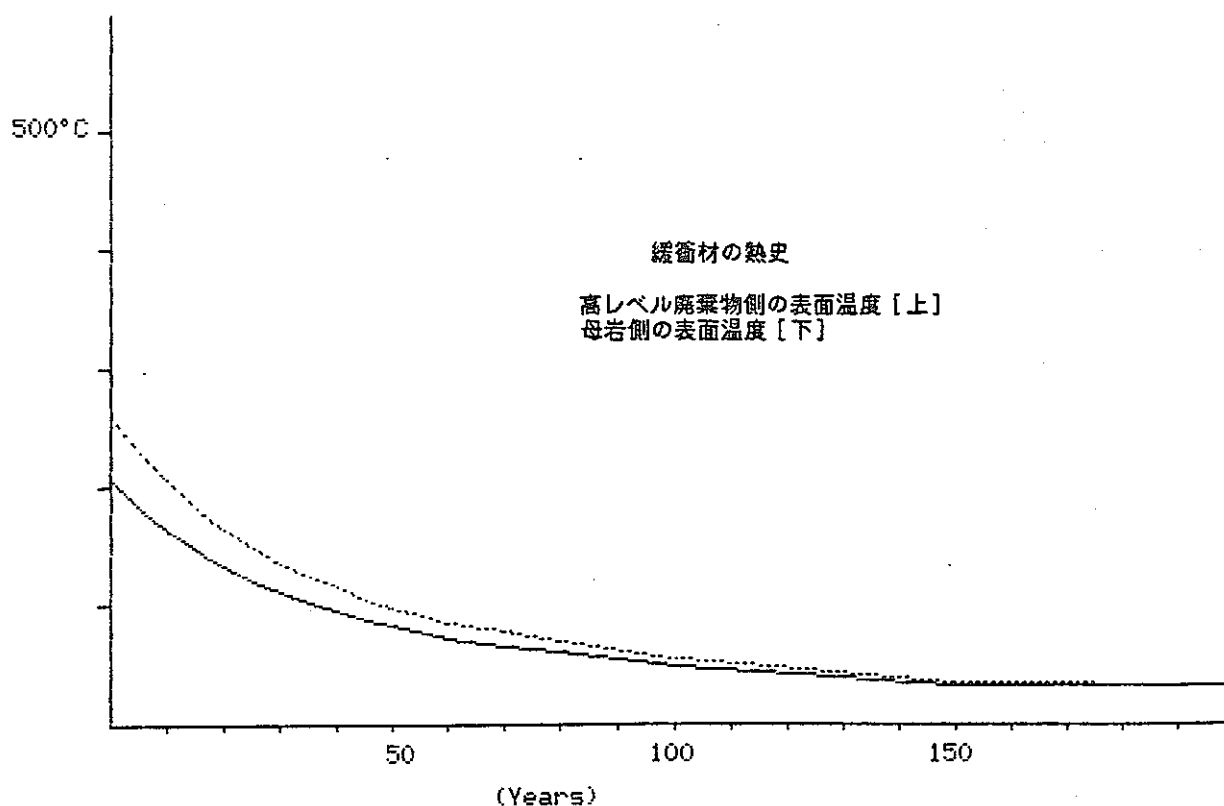
Assumption = 25°C at 10 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	217.6	204.1	204.0	186.6
5	1.29	192.8	181.0	180.9	165.7
10	1.29	174.1	163.6	163.6	150.1
15	1.29	155.5	146.3	146.2	134.4
20	1.29	139.9	131.9	131.8	121.4
25	1.29	127.5	120.3	120.3	111.0
30	1.29	117.0	110.5	110.5	102.1
35	1.29	107.6	101.8	101.8	94.3
40	1.29	99.6	94.3	94.3	87.5
45	1.29	91.5	86.8	86.8	80.8
50	1.29	85.9	81.6	81.6	76.1
60	1.29	74.7	71.2	71.2	66.7
70	1.29	68.5	65.4	65.4	61.5
80	1.29	62.3	59.7	59.6	56.3
100	1.29	49.9	48.1	48.1	45.8
150	1.29	33.7	33.1	33.1	32.3
450	1.29	26.2	26.2	26.2	26.0



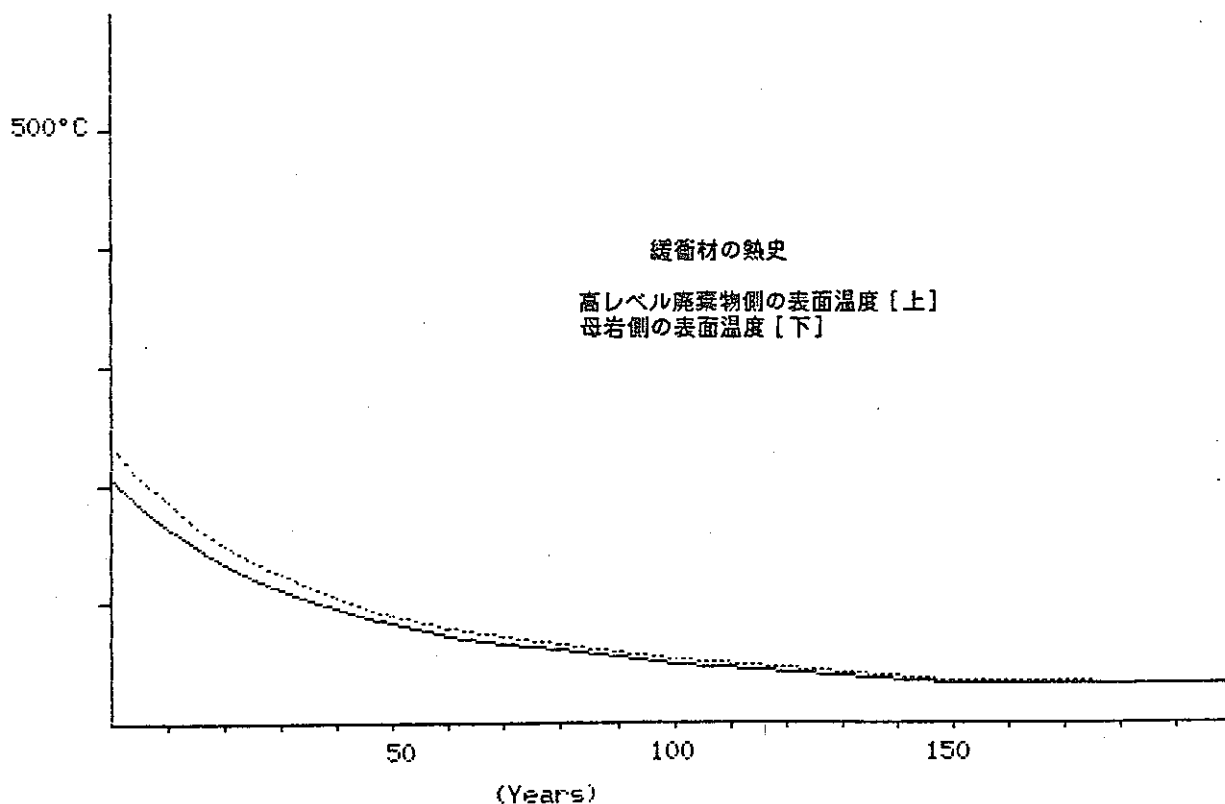
Assumption = 25°C at 15 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	272.3	258.8	258.7	206.4
5	0.43	240.4	228.6	228.5	183.0
10	0.43	216.5	206.0	205.9	165.5
15	0.43	192.5	183.4	183.3	147.9
20	0.43	172.6	164.5	164.5	133.3
25	0.43	156.6	149.4	149.4	121.6
30	0.43	143.1	136.6	136.6	111.6
35	0.43	131.1	125.3	125.3	102.8
40	0.43	120.7	115.5	115.5	95.2
45	0.43	110.4	105.7	105.7	87.6
50	0.43	103.2	98.9	98.9	82.4
60	0.43	88.8	85.3	85.3	71.8
70	0.43	80.8	77.8	77.8	66.0
80	0.43	72.9	70.2	70.2	60.1
100	0.43	56.9	55.2	55.2	48.4
150	0.43	36.2	35.6	35.6	33.2
450	0.43	26.6	26.5	26.5	26.2



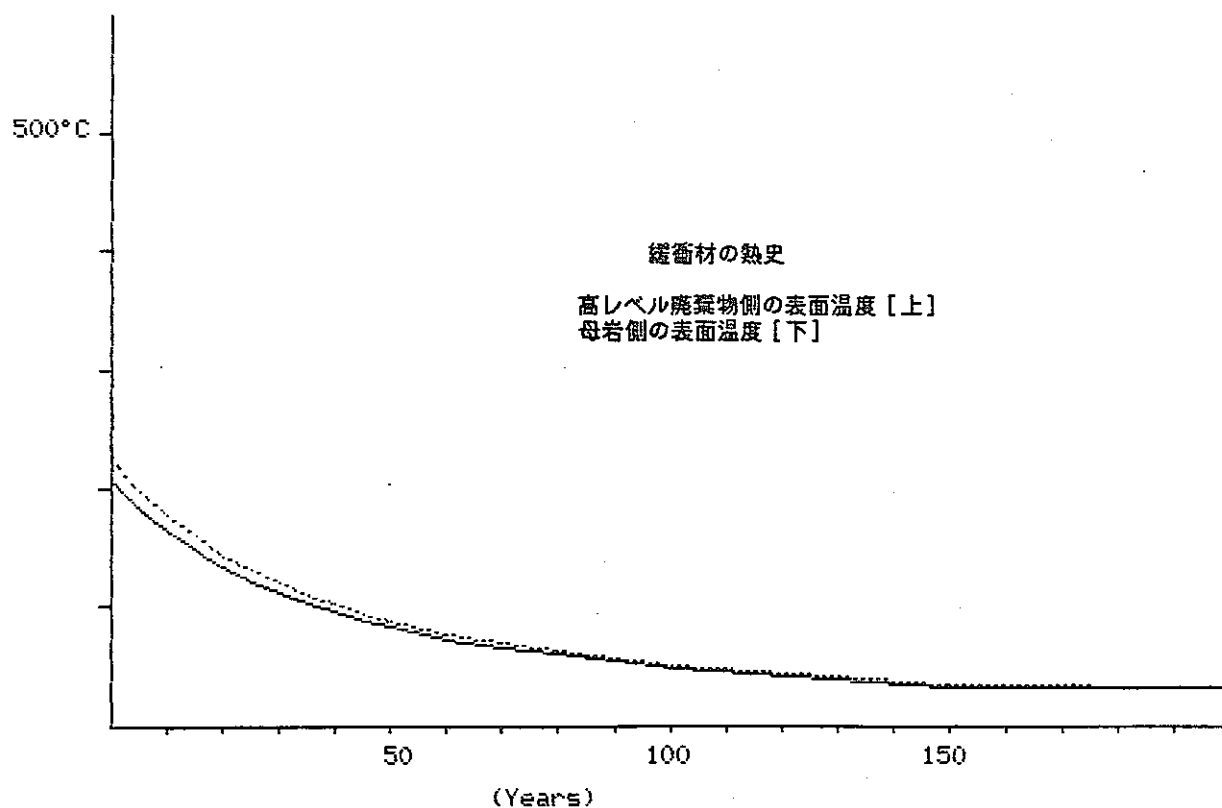
Assumption = 25°C at 15 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	246.2	232.6	232.6	206.4
5	0.86	217.6	205.8	205.8	183.0
10	0.86	196.2	185.7	185.7	165.5
15	0.86	174.8	165.7	165.6	147.9
20	0.86	157.0	148.9	148.9	133.3
25	0.86	142.7	135.5	135.5	121.6
30	0.86	130.6	124.1	124.1	111.6
35	0.86	119.9	114.1	114.0	102.8
40	0.86	110.6	105.4	105.3	95.2
45	0.86	101.3	96.7	96.6	87.6
50	0.86	94.9	90.6	90.6	82.4
60	0.86	82.1	78.6	78.6	71.8
70	0.86	74.9	71.9	71.9	66.0
80	0.86	67.8	65.2	65.2	60.1
100	0.86	53.5	51.8	51.8	48.4
150	0.86	35.0	34.4	34.4	33.2
450	0.86	26.4	26.3	26.3	26.2



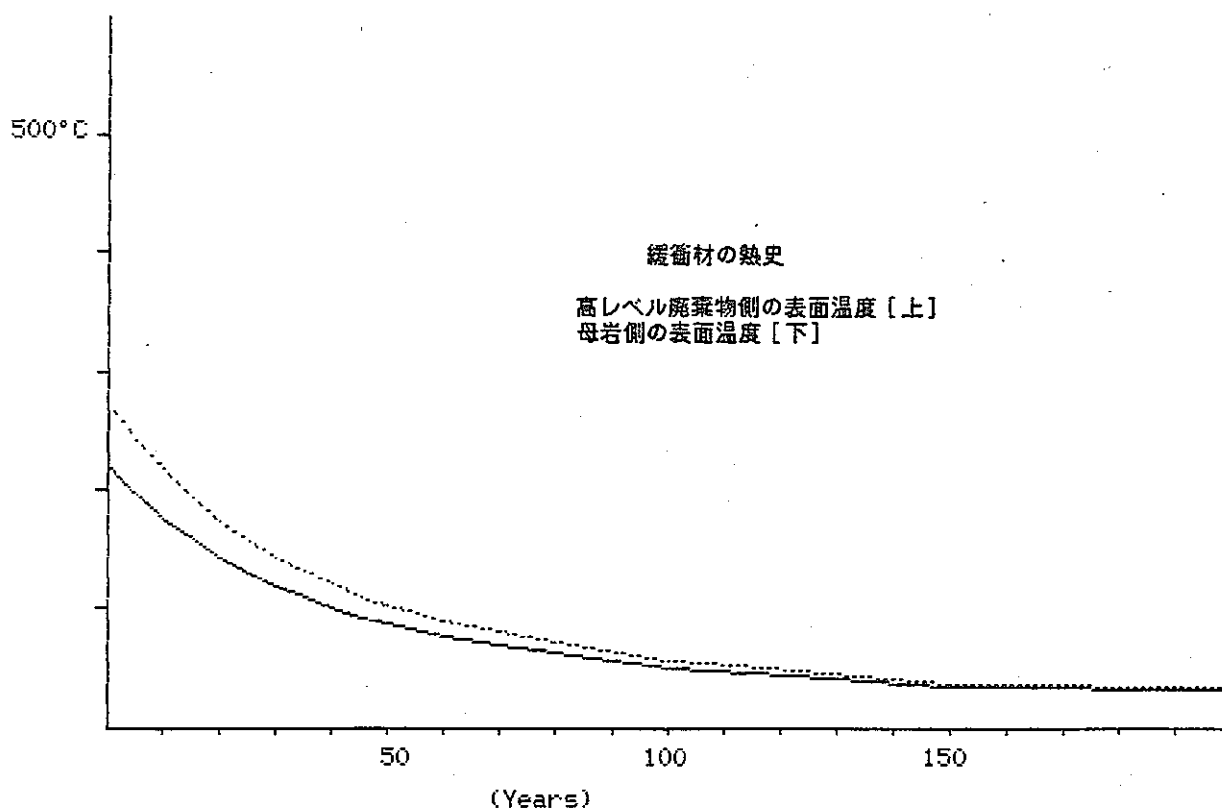
Assumption = 25°C at 15 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	237.5	223.9	223.8	206.4
5	1.29	210.1	198.3	198.2	183.0
10	1.29	189.5	179.0	178.9	165.5
15	1.29	168.9	159.8	159.7	147.9
20	1.29	151.8	143.7	143.7	133.3
25	1.29	138.1	130.9	130.8	121.6
30	1.29	126.4	120.0	119.9	111.6
35	1.29	116.2	110.3	110.3	102.8
40	1.29	107.2	102.0	102.0	95.2
45	1.29	98.3	93.7	93.6	87.6
50	1.29	92.2	87.9	87.9	82.4
60	1.29	79.8	76.3	76.3	71.8
70	1.29	73.0	69.9	69.9	66.0
80	1.29	66.1	63.5	63.5	60.1
100	1.29	52.4	50.7	50.7	48.4
150	1.29	34.6	34.0	34.0	33.2
450	1.29	26.4	26.3	26.3	26.2



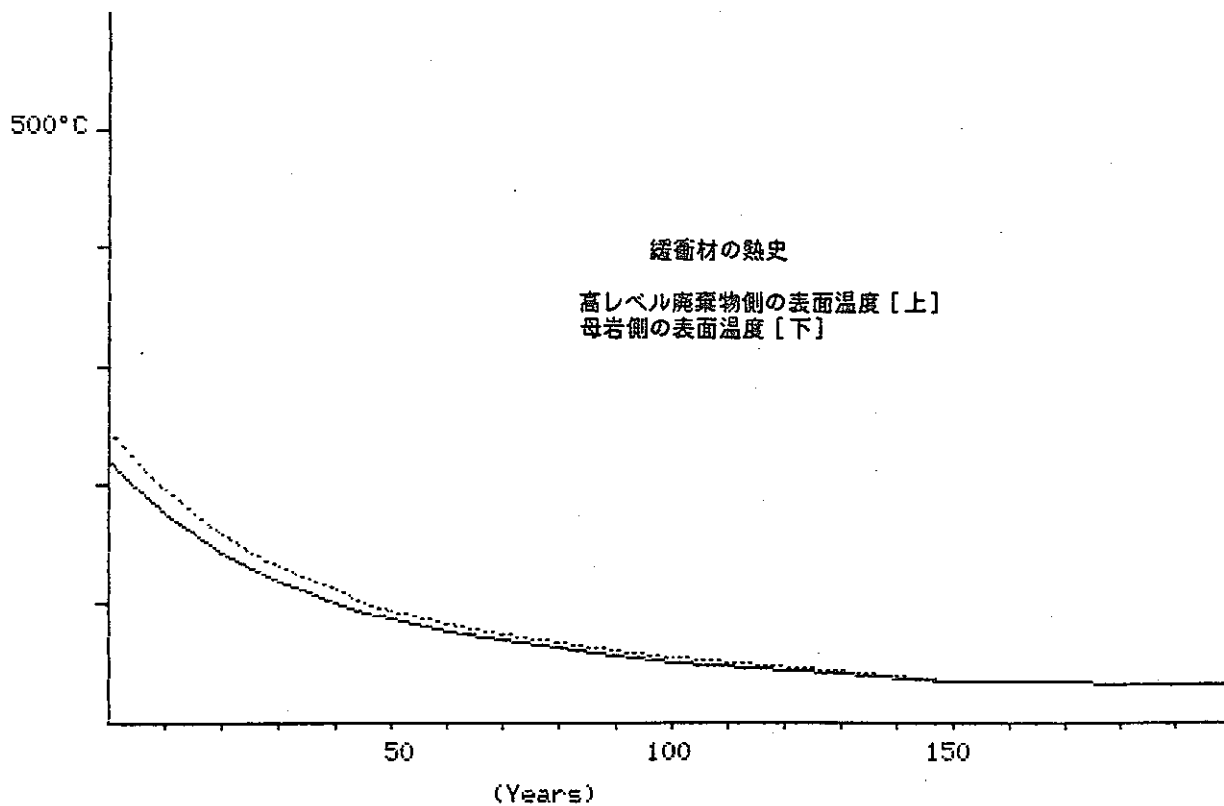
Assumption = 25°C at 20 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	286.4	272.9	272.8	220.5
5	0.43	252.7	240.9	240.8	195.3
10	0.43	227.4	216.9	216.8	176.4
15	0.43	202.1	192.9	192.9	157.4
20	0.43	181.0	172.9	172.9	141.7
25	0.43	164.1	156.9	156.9	129.1
30	0.43	149.8	143.3	143.3	118.3
35	0.43	137.2	131.3	131.3	108.9
40	0.43	126.2	120.9	120.9	100.7
45	0.43	115.2	110.6	110.5	92.5
50	0.43	107.6	103.4	103.3	86.8
60	0.43	92.5	89.0	88.9	75.5
70	0.43	84.0	81.0	81.0	69.1
80	0.43	75.6	73.0	73.0	62.8
100	0.43	58.7	57.0	57.0	50.2
150	0.43	36.8	36.2	36.2	33.8
450	0.43	26.7	26.6	26.6	26.3



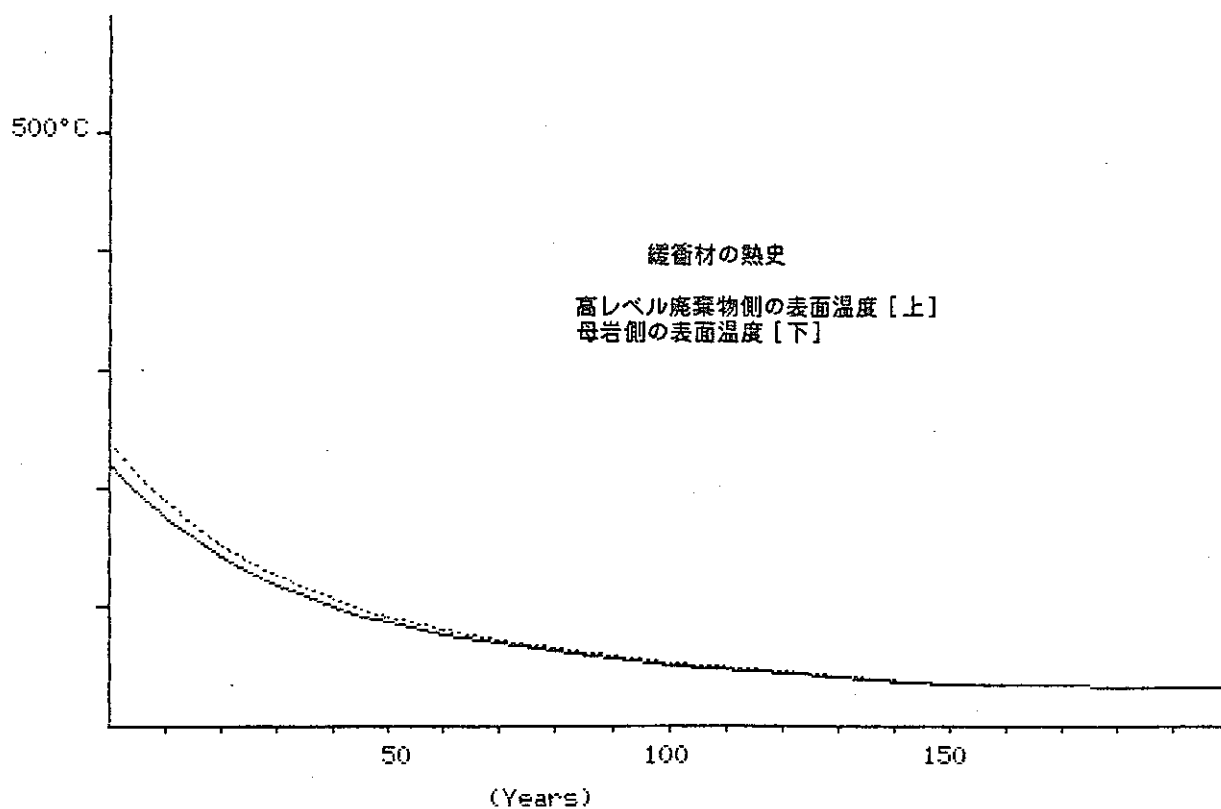
Assumption = 25°C at 20 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	260.3	246.7	246.6	220.5
5	0.86	229.9	218.1	218.0	195.3
10	0.86	207.1	196.7	196.6	176.4
15	0.86	184.4	175.2	175.1	157.4
20	0.86	165.4	157.3	157.3	141.7
25	0.86	150.2	143.0	143.0	129.1
30	0.86	137.3	130.9	130.8	118.3
35	0.86	125.9	120.1	120.1	108.9
40	0.86	116.1	110.8	110.8	100.7
45	0.86	106.2	101.5	101.5	92.5
50	0.86	99.4	95.1	95.1	86.8
60	0.86	85.7	82.2	82.2	75.5
70	0.86	78.1	75.1	75.0	69.1
80	0.86	70.5	67.9	67.9	62.8
100	0.86	55.4	53.6	53.6	50.2
150	0.86	35.6	35.0	35.0	33.8
450	0.86	26.5	26.4	26.4	26.3



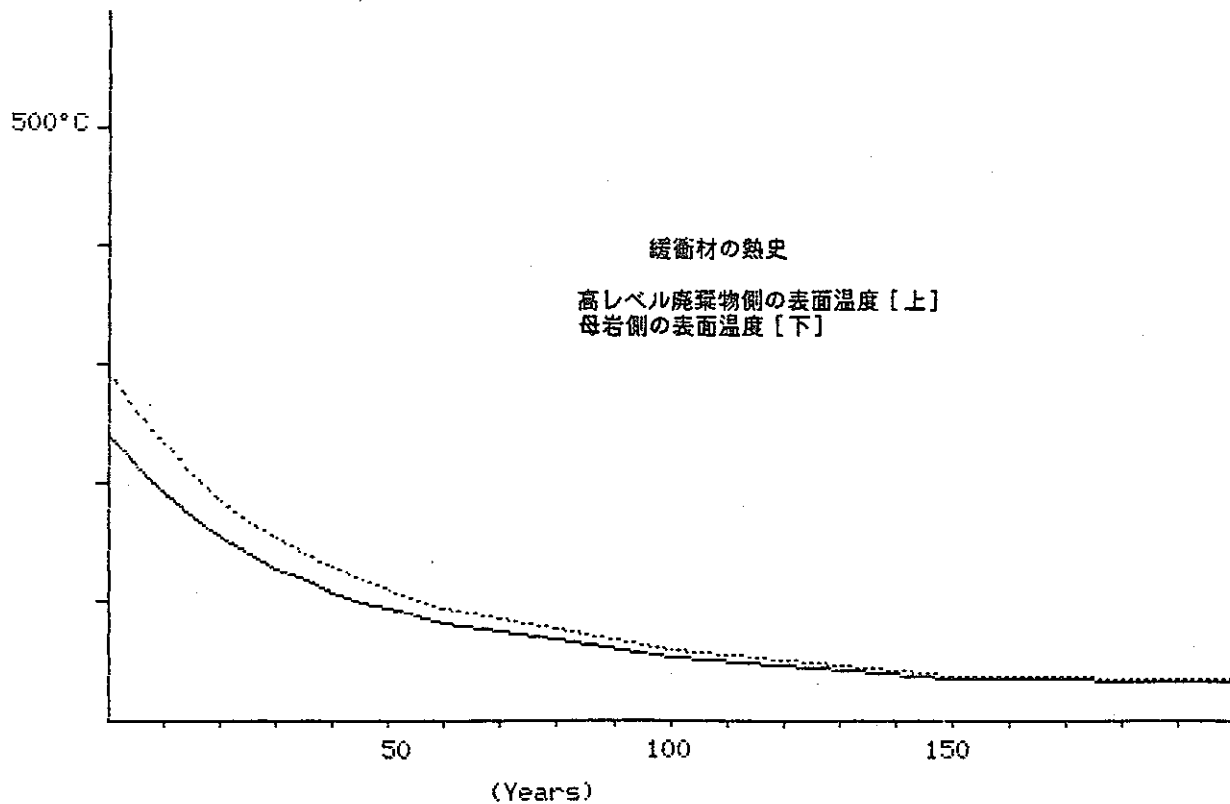
Assumption = 25°C at 20 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	251.6	238.0	237.9	220.5
5	1.29	222.3	210.5	210.5	195.3
10	1.29	200.4	189.9	189.9	176.4
15	1.29	178.5	169.3	169.2	157.4
20	1.29	160.2	152.1	152.1	141.7
25	1.29	145.6	138.4	138.3	129.1
30	1.29	133.2	126.7	126.7	118.3
35	1.29	122.2	116.4	116.4	108.9
40	1.29	112.7	107.5	107.4	100.7
45	1.29	103.2	98.5	98.5	92.5
50	1.29	96.6	92.3	92.3	86.8
60	1.29	83.5	80.0	80.0	75.5
70	1.29	76.2	73.1	73.1	69.1
80	1.29	68.9	66.2	66.2	62.8
100	1.29	54.2	52.5	52.5	50.2
150	1.29	35.2	34.6	34.6	33.8
450	1.29	26.5	26.4	26.4	26.3



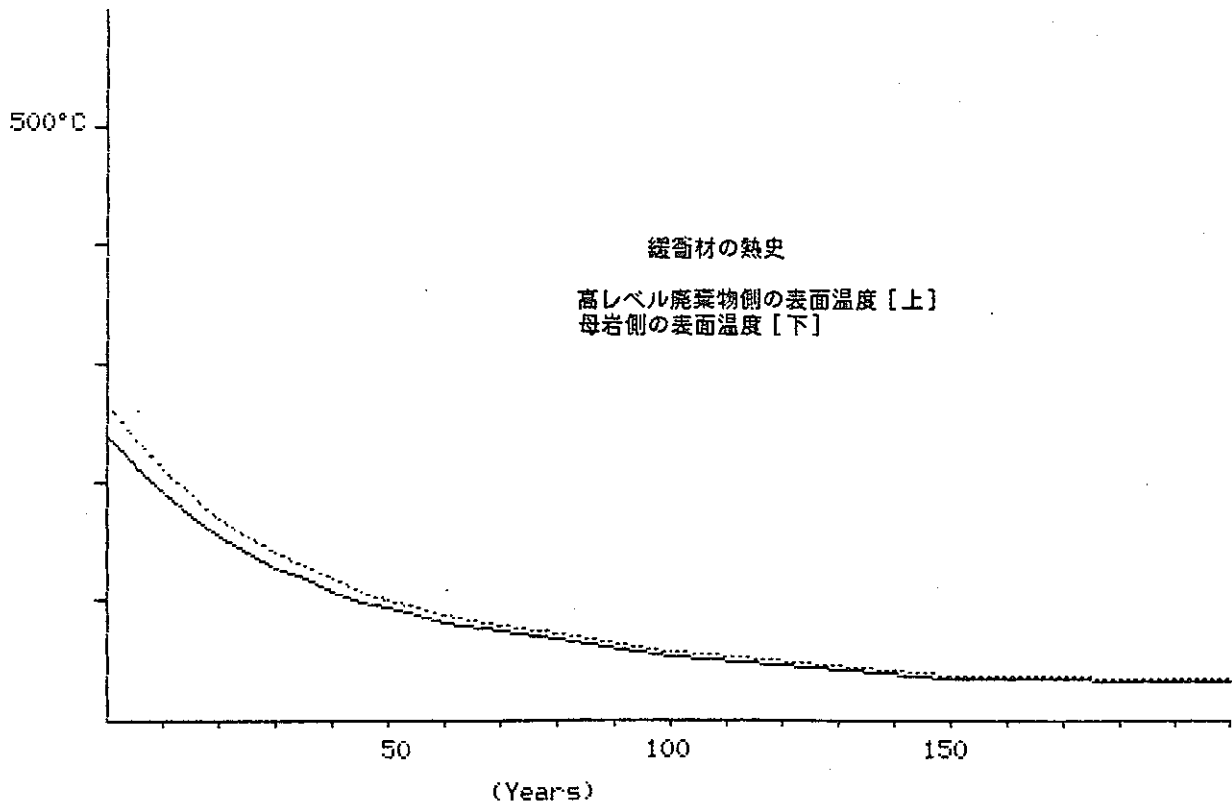
Assumption = 25°C at 30 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	306.3	292.7	292.6	240.4
5	0.43	270.0	258.2	258.1	212.6
10	0.43	242.8	232.3	232.2	191.7
15	0.43	215.5	206.4	206.3	170.9
20	0.43	192.9	184.8	184.7	153.5
25	0.43	174.7	167.5	167.5	139.6
30	0.43	159.3	152.8	152.8	127.8
35	0.43	145.7	139.9	139.8	117.4
40	0.43	133.9	128.6	128.6	108.4
45	0.43	122.1	117.4	117.4	99.3
50	0.43	113.9	109.6	109.6	93.1
60	0.43	97.6	94.1	94.1	80.6
70	0.43	88.5	85.5	85.4	73.6
80	0.43	79.4	76.8	76.8	66.7
100	0.43	61.3	59.5	59.5	52.8
150	0.43	37.7	37.1	37.1	34.7
450	0.43	26.8	26.7	26.7	26.4



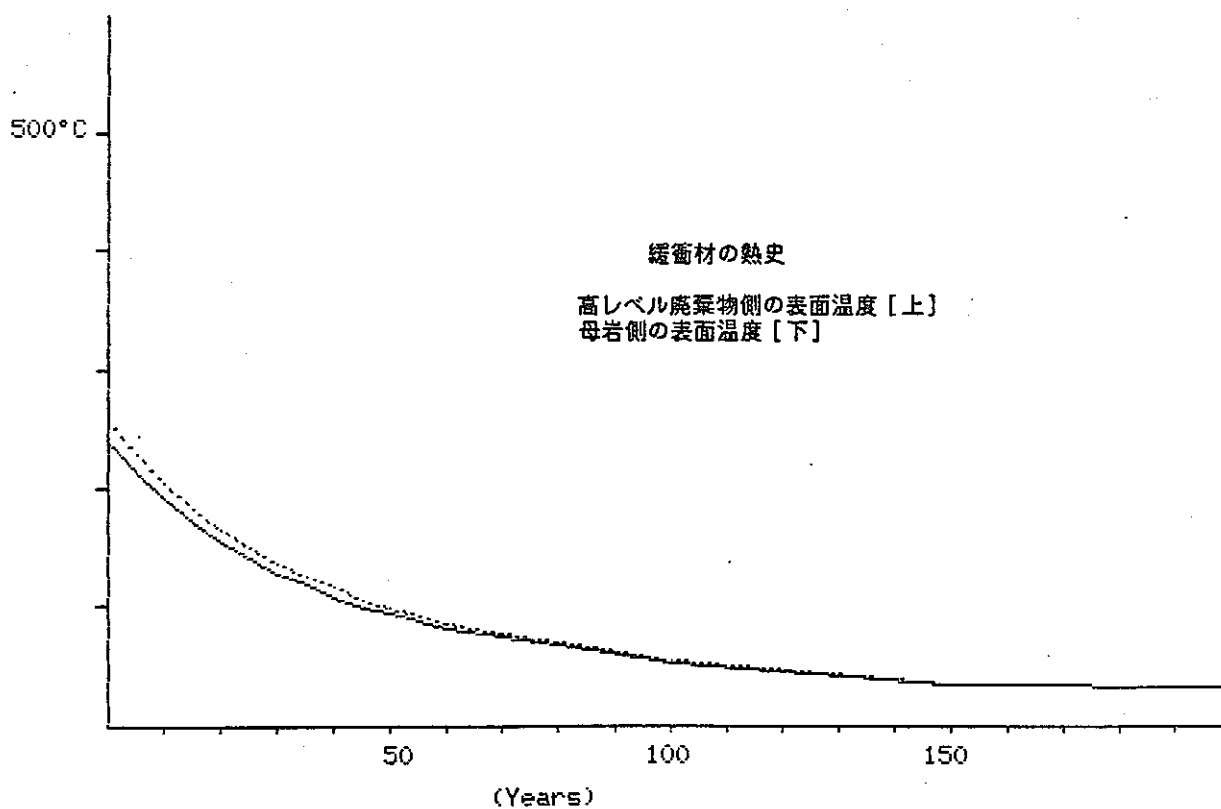
Assumption = 25°C at 30 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	280.1	266.6	266.5	240.4
5	0.86	247.2	235.4	235.3	212.6
10	0.86	222.5	212.0	212.0	191.7
15	0.86	197.8	188.7	188.6	170.9
20	0.86	177.3	169.2	169.1	153.5
25	0.86	160.8	153.6	153.5	139.6
30	0.86	146.8	140.3	140.3	127.8
35	0.86	134.5	128.6	128.6	117.4
40	0.86	123.8	118.5	118.5	108.4
45	0.86	113.1	108.4	108.4	99.3
50	0.86	105.7	101.4	101.3	93.1
60	0.86	90.8	87.3	87.3	80.6
70	0.86	82.6	79.6	79.5	73.6
80	0.86	74.4	71.8	71.7	66.7
100	0.86	57.9	56.2	56.2	52.8
150	0.86	36.5	35.9	35.9	34.7
450	0.86	26.6	26.6	26.6	26.4



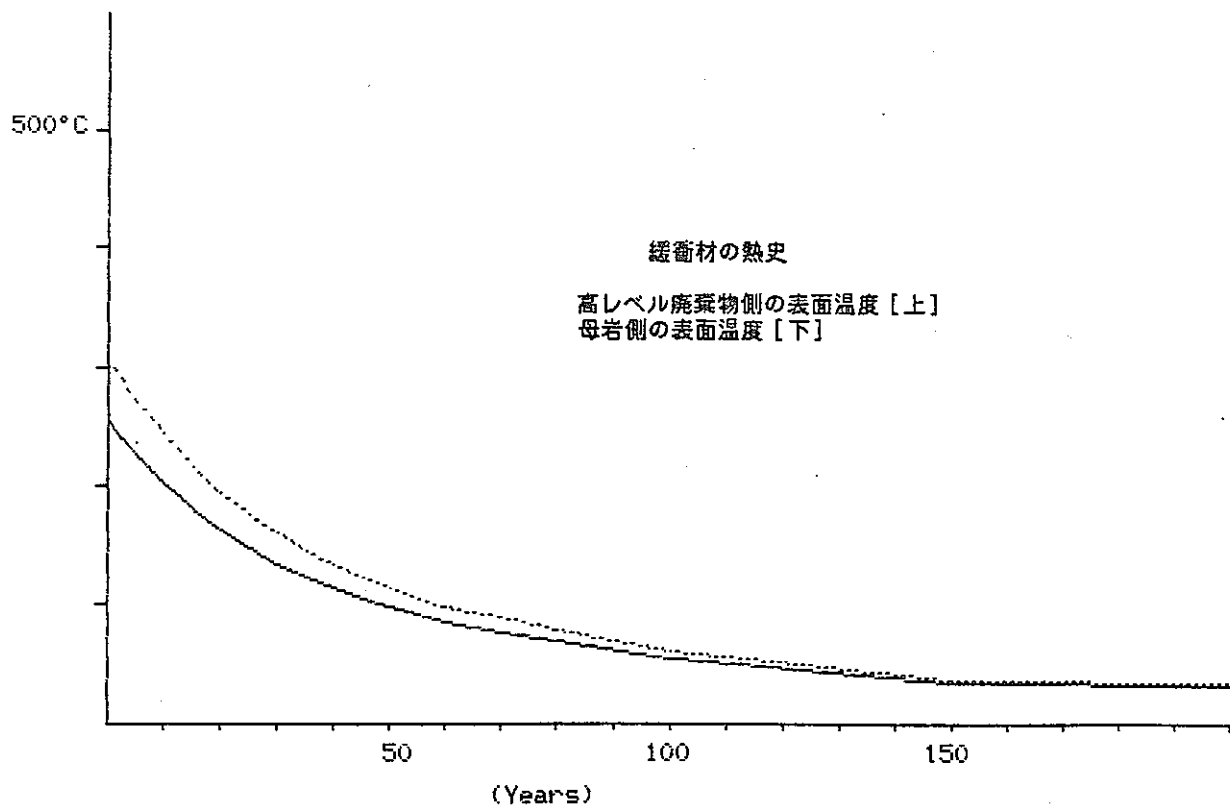
Assumption = 25°C at 30 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	271.4	257.9	257.8	240.4
5	1.29	239.6	227.8	227.8	212.6
10	1.29	215.8	205.3	205.2	191.7
15	1.29	191.9	182.7	182.7	170.9
20	1.29	172.1	164.0	163.9	153.5
25	1.29	156.2	148.9	148.9	139.6
30	1.29	142.6	136.2	136.1	127.8
35	1.29	130.7	124.9	124.9	117.4
40	1.29	120.4	115.1	115.1	108.4
45	1.29	110.1	105.4	105.4	99.3
50	1.29	102.9	98.6	98.6	93.1
60	1.29	88.6	85.1	85.1	80.6
70	1.29	80.6	77.6	77.6	73.6
80	1.29	72.7	70.1	70.1	66.7
100	1.29	56.8	55.0	55.0	52.8
150	1.29	36.1	35.5	35.5	34.7
450	1.29	26.6	26.5	26.5	26.4



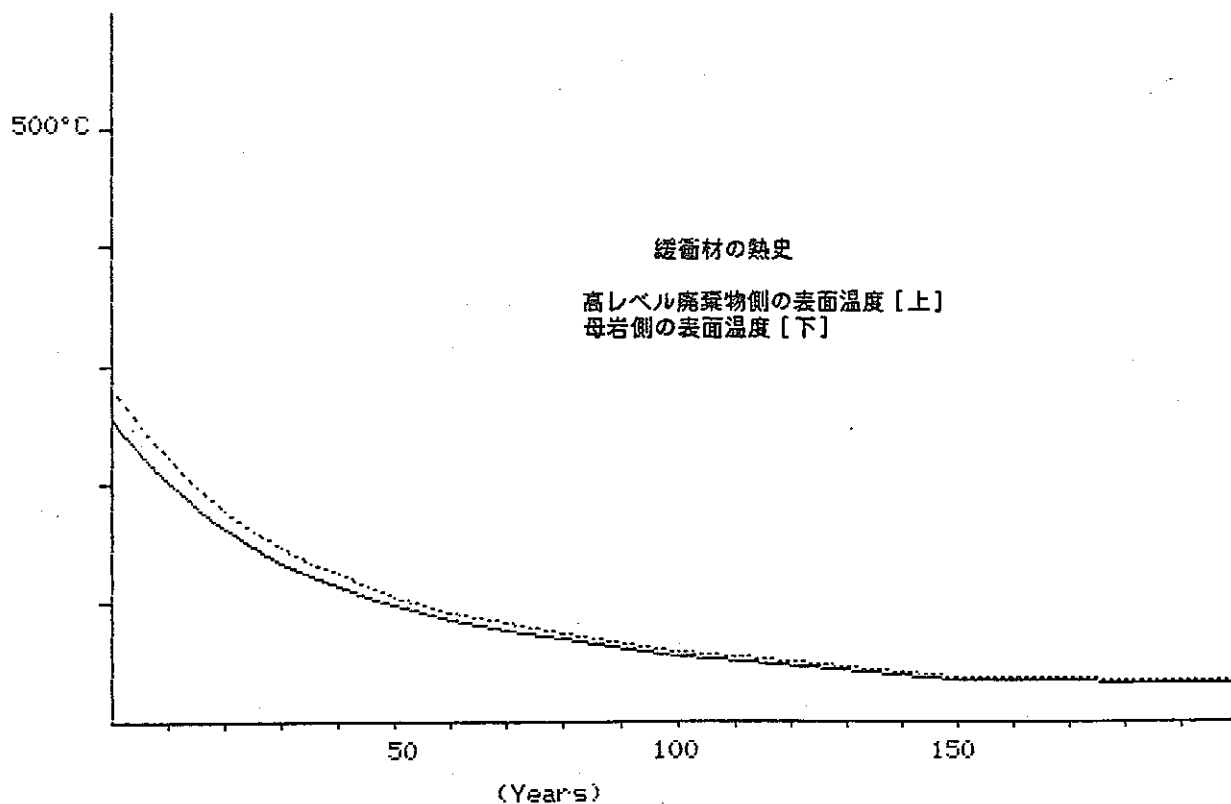
Assumption = 25°C at 40 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	320.4	306.8	306.7	254.5
5	0.43	282.2	270.4	270.4	224.9
10	0.43	253.7	243.2	243.1	202.6
15	0.43	225.1	215.9	215.9	180.4
20	0.43	201.3	193.2	193.1	161.9
25	0.43	182.2	175.0	175.0	147.1
30	0.43	166.0	159.5	159.5	134.5
35	0.43	151.7	145.9	145.9	123.4
40	0.43	139.3	134.1	134.1	113.8
45	0.43	126.9	122.3	122.2	104.2
50	0.43	118.4	114.1	114.1	97.5
60	0.43	101.2	97.7	97.7	84.2
70	0.43	91.7	88.6	88.6	76.8
80	0.43	82.2	79.5	79.5	69.4
100	0.43	63.1	61.4	61.4	54.6
150	0.43	38.3	37.7	37.7	35.4
450	0.43	26.9	26.8	26.8	26.5



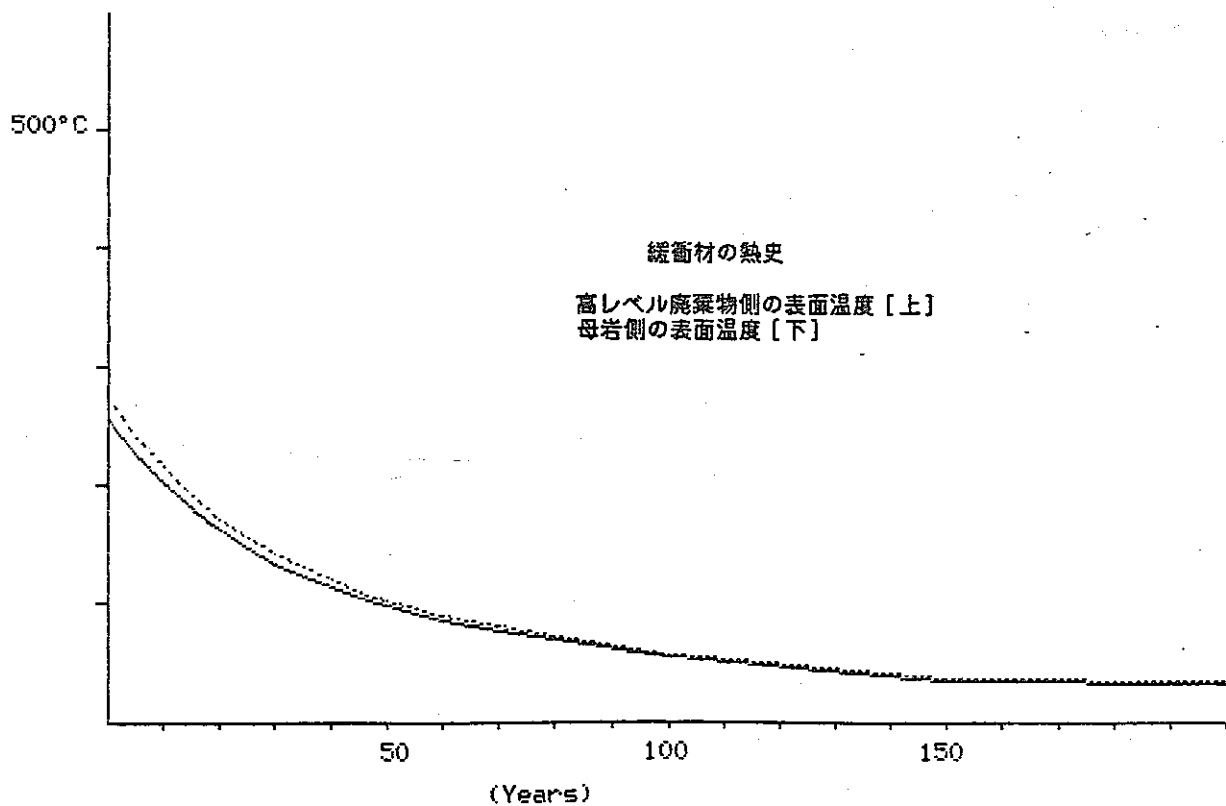
Assumption = 25°C. at 40 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	294.2	280.7	280.6	254.5
5	0.86	259.5	247.7	247.6	224.9
10	0.86	233.4	222.9	222.9	202.6
15	0.86	207.4	198.2	198.1	180.4
20	0.86	185.7	177.6	177.5	161.9
25	0.86	168.3	161.1	161.0	147.1
30	0.86	153.5	147.1	147.0	134.5
35	0.86	140.5	134.7	134.7	123.4
40	0.86	129.2	124.0	123.9	113.8
45	0.86	117.9	113.2	113.2	104.2
50	0.86	110.1	105.8	105.8	97.5
60	0.86	94.5	91.0	91.0	84.2
70	0.86	85.8	82.7	82.7	76.8
80	0.86	77.1	74.5	74.5	69.4
100	0.86	59.7	58.0	58.0	54.6
150	0.86	37.2	36.5	36.5	35.4
450	0.86	26.7	26.6	26.6	26.5



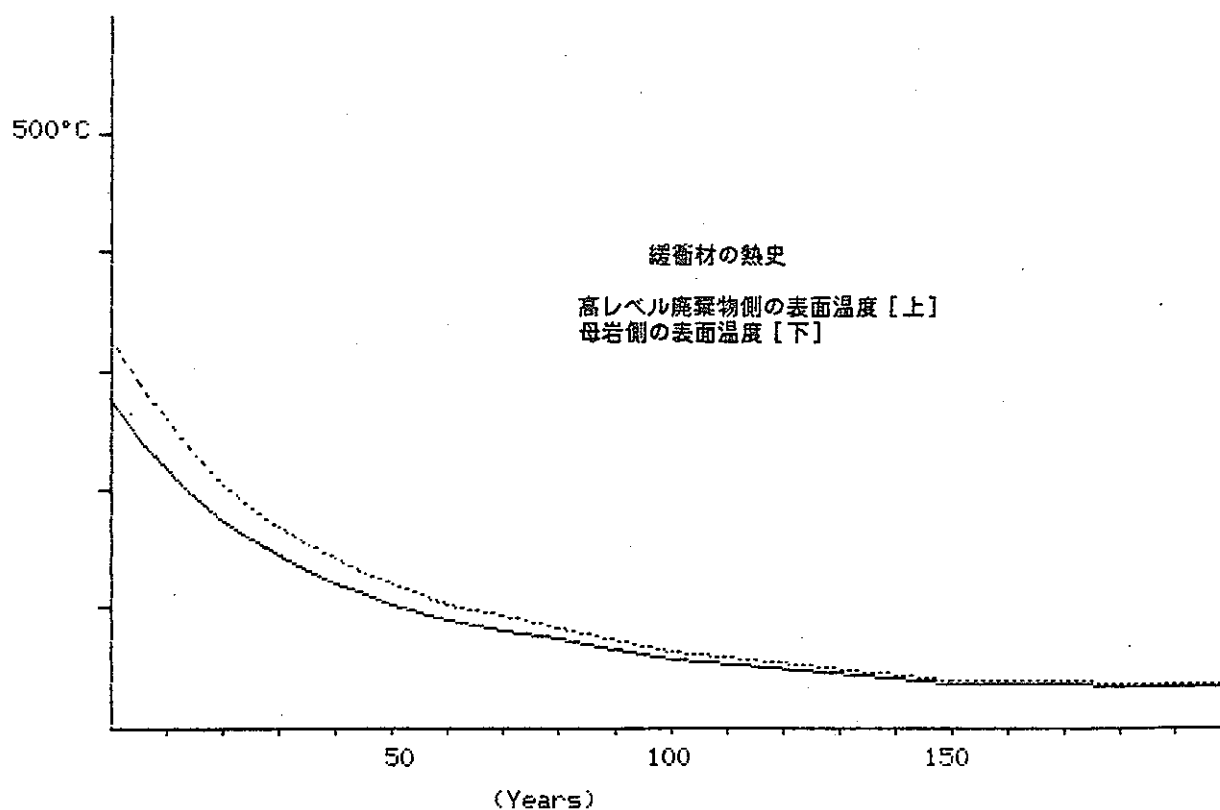
Assumption = 25°C at 40 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	285.5	272.0	271.9	254.5
5	1.29	251.9	240.1	240.0	224.9
10	1.29	226.7	216.2	216.1	202.6
15	1.29	201.5	192.3	192.2	180.4
20	1.29	180.5	172.4	172.3	161.9
25	1.29	163.7	156.4	156.4	147.1
30	1.29	149.4	142.9	142.9	134.5
35	1.29	136.8	131.0	130.9	123.4
40	1.29	125.8	120.6	120.6	113.8
45	1.29	114.9	110.2	110.2	104.2
50	1.29	107.4	103.1	103.0	97.5
60	1.29	92.2	88.7	88.7	84.2
70	1.29	83.8	80.8	80.7	76.8
80	1.29	75.4	72.8	72.8	69.4
100	1.29	58.6	56.9	56.9	54.6
150	1.29	36.8	36.2	36.1	35.4
450	1.29	26.7	26.6	26.6	26.5



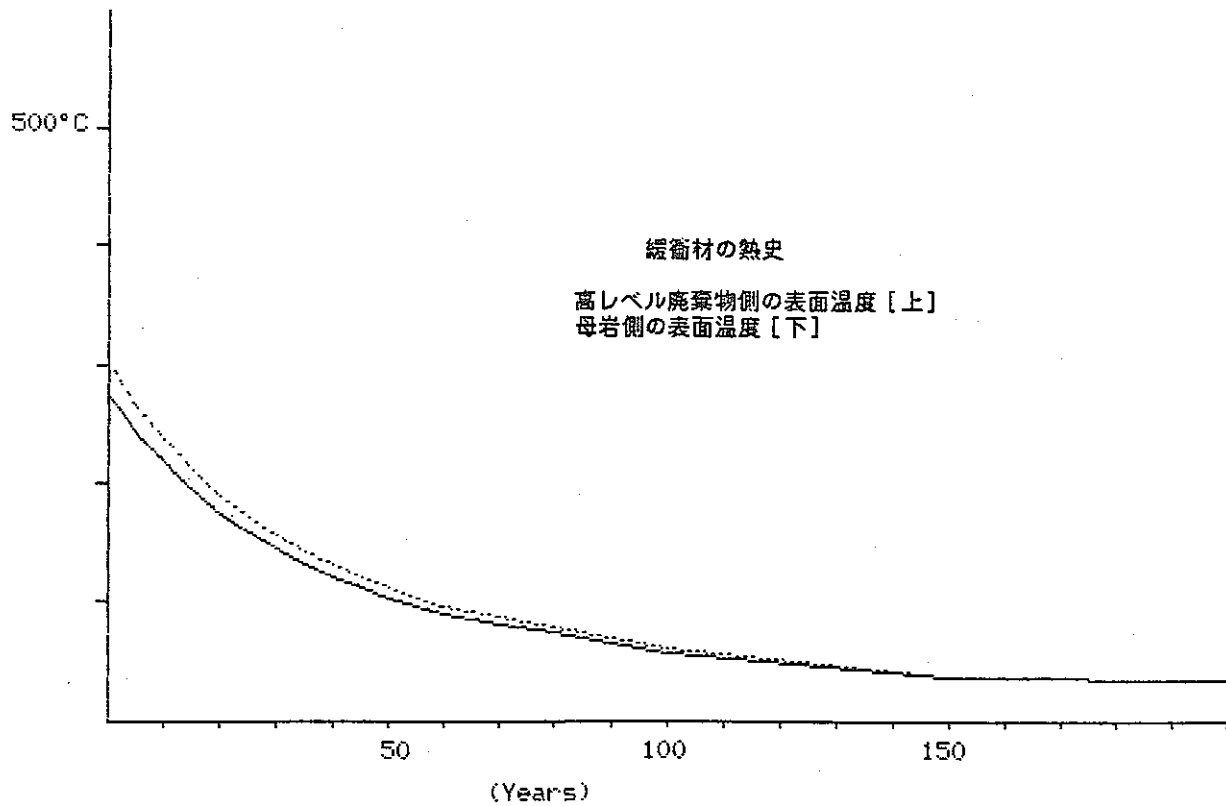
Assumption = 25°C at 60 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	340.2	326.7	326.6	274.3
5	0.43	299.5	287.7	287.7	242.1
10	0.43	269.0	258.5	258.5	218.0
15	0.43	238.5	229.4	229.3	193.9
20	0.43	213.1	205.0	205.0	173.8
25	0.43	192.8	185.6	185.5	157.7
30	0.43	175.5	169.0	169.0	144.0
35	0.43	160.2	154.4	154.4	132.0
40	0.43	147.0	141.8	141.7	121.5
45	0.43	133.8	129.1	129.1	111.1
50	0.43	124.6	120.4	120.3	103.8
60	0.43	106.3	102.8	102.8	89.3
70	0.43	96.2	93.1	93.1	81.3
80	0.43	86.0	83.4	83.4	73.3
100	0.43	65.7	63.9	63.9	57.2
150	0.43	39.2	38.6	38.6	36.3
450	0.43	27.0	26.9	26.9	26.6



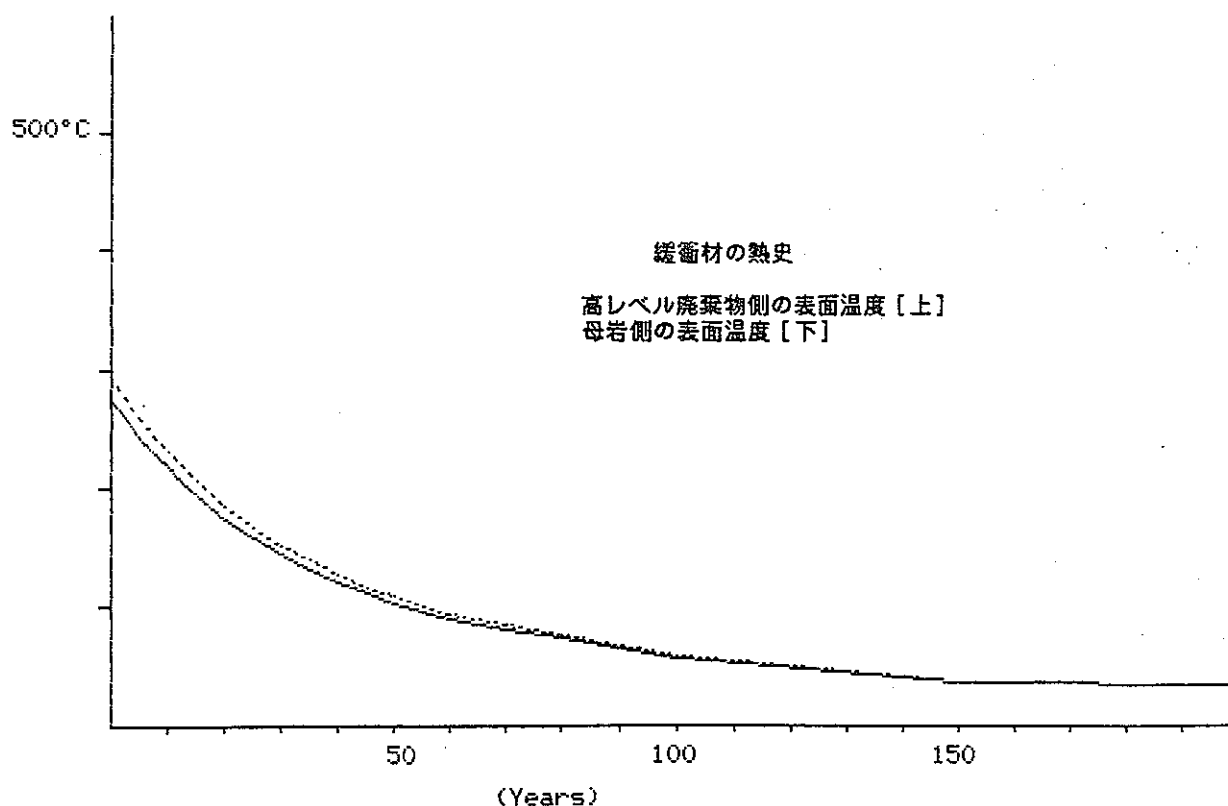
Assumption = 25°C at 60 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	314.1	300.5	300.5	274.3
5	0.86	276.8	265.0	264.9	242.1
10	0.86	248.8	238.3	238.3	218.0
15	0.86	220.8	211.6	211.6	193.9
20	0.86	197.5	189.4	189.4	173.8
25	0.86	178.9	171.7	171.6	157.7
30	0.86	163.0	156.5	156.5	144.0
35	0.86	149.0	143.2	143.2	132.0
40	0.86	136.9	131.7	131.6	121.5
45	0.86	124.8	120.1	120.1	111.1
50	0.86	116.4	112.1	112.1	103.8
60	0.86	99.6	96.1	96.1	89.3
70	0.86	90.3	87.2	87.2	81.3
80	0.86	81.0	78.3	78.3	73.3
100	0.86	62.3	60.6	60.5	57.2
150	0.86	38.1	37.4	37.4	36.3
450	0.86	26.9	26.8	26.8	26.6



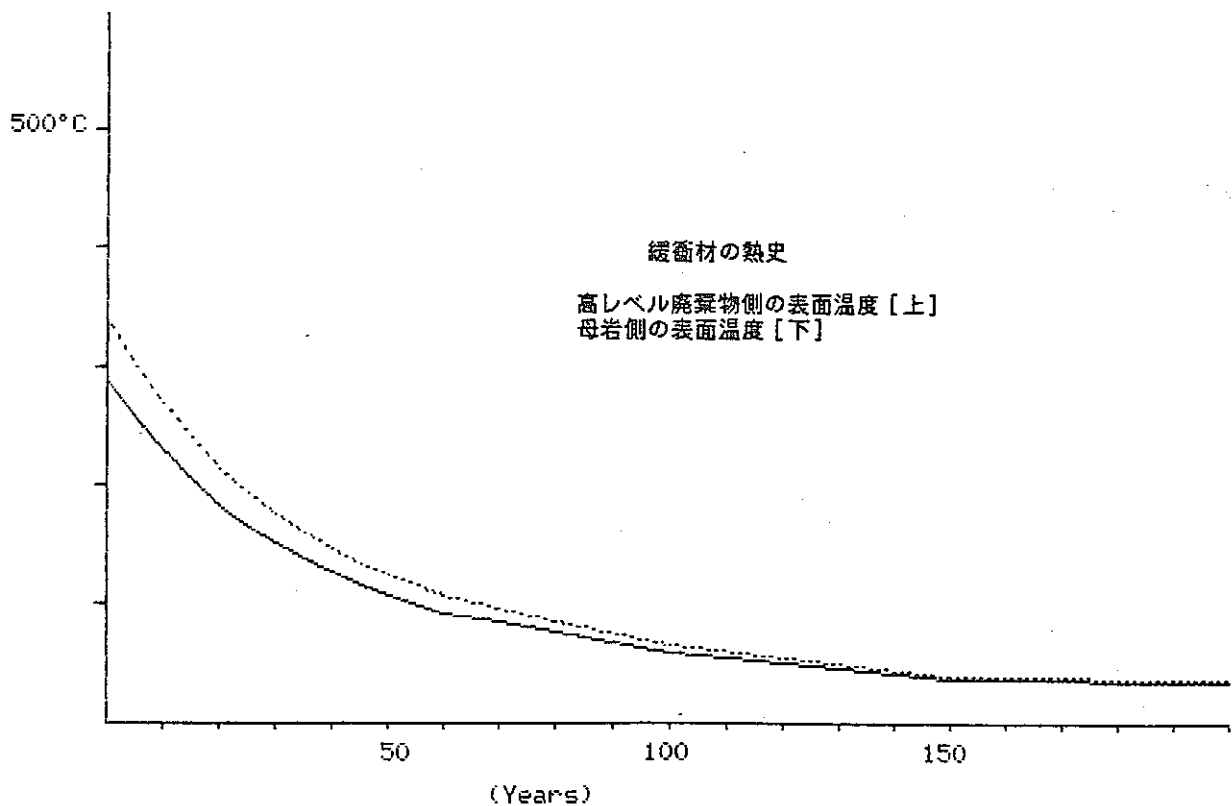
Assumption = 25°C at 60 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	305.4	291.8	291.7	274.3
5	1.29	269.2	257.4	257.3	242.1
10	1.29	242.1	231.6	231.5	218.0
15	1.29	214.9	205.7	205.7	193.9
20	1.29	192.3	184.2	184.2	173.8
25	1.29	174.2	167.0	167.0	157.7
30	1.29	158.9	152.4	152.3	144.0
35	1.29	145.3	139.5	139.4	132.0
40	1.29	133.5	128.3	128.3	121.5
45	1.29	121.8	117.1	117.1	111.1
50	1.29	113.6	109.3	109.3	103.8
60	1.29	97.4	93.9	93.8	89.3
70	1.29	88.3	85.2	85.2	81.3
80	1.29	79.3	76.6	76.6	73.3
100	1.29	61.2	59.4	59.4	57.2
150	1.29	37.7	37.0	37.0	36.3
450	1.29	26.8	26.7	26.7	26.6



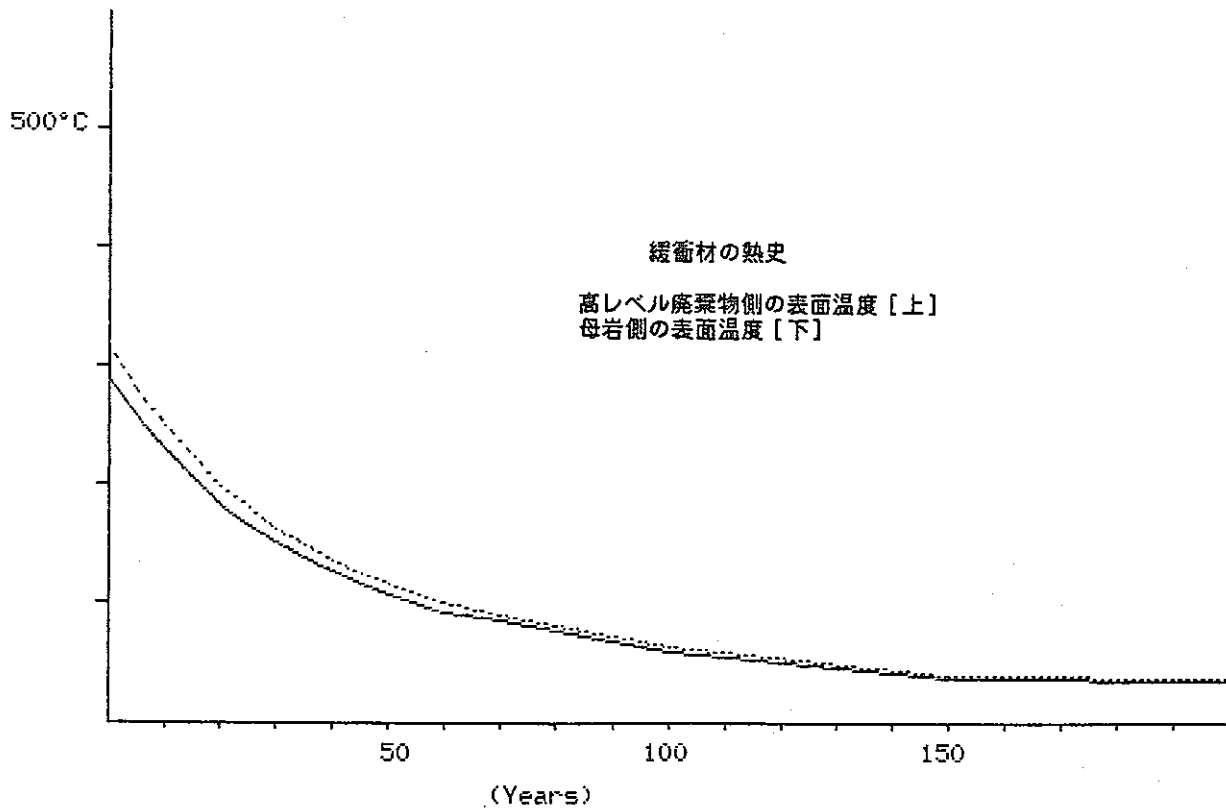
Assumption = 25°C at 80 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	354.3	340.8	340.7	288.4
5	0.43	311.8	300.0	299.9	254.4
10	0.43	279.9	269.5	269.4	228.9
15	0.43	248.1	238.9	238.8	203.4
20	0.43	221.5	213.4	213.4	182.2
25	0.43	200.3	193.1	193.0	165.2
30	0.43	182.2	175.7	175.7	150.8
35	0.43	166.3	160.5	160.4	138.0
40	0.43	152.5	147.2	147.2	127.0
45	0.43	138.7	134.0	134.0	115.9
50	0.43	129.1	124.8	124.8	108.3
60	0.43	110.0	106.5	106.5	93.0
70	0.43	99.4	96.3	96.3	84.5
80	0.43	88.7	86.1	86.1	76.0
100	0.43	67.5	65.7	65.7	59.0
150	0.43	39.9	39.3	39.3	36.9
450	0.43	27.1	27.0	27.0	26.7



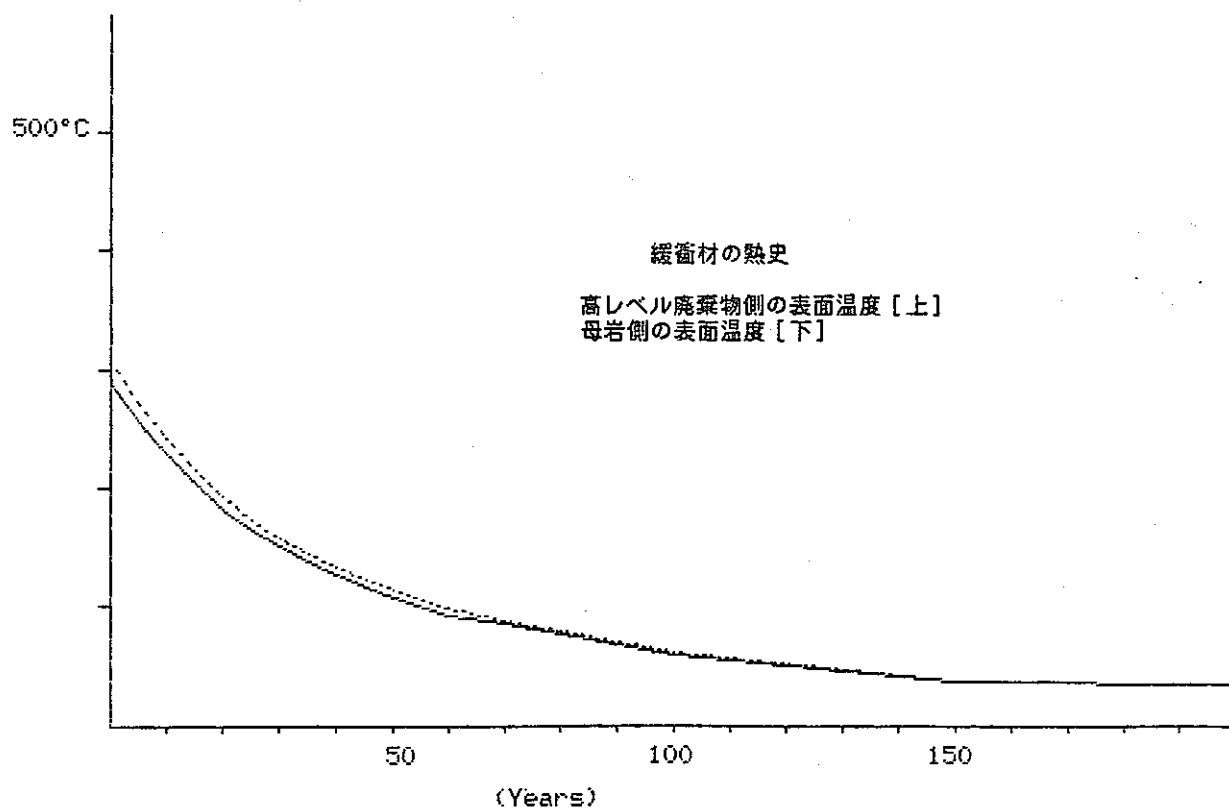
Assumption = 25°C at 80 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	328.2	314.6	314.5	288.4
5	0.86	289.1	277.2	277.2	254.4
10	0.86	259.7	249.2	249.2	228.9
15	0.86	230.4	221.2	221.1	203.4
20	0.86	205.9	197.8	197.8	182.2
25	0.86	186.4	179.2	179.1	165.2
30	0.86	169.7	163.3	163.2	150.8
35	0.86	155.1	149.3	149.2	138.0
40	0.86	142.4	137.1	137.1	127.0
45	0.86	129.6	125.0	124.9	115.9
50	0.86	120.8	116.6	116.5	108.3
60	0.86	103.2	99.7	99.7	93.0
70	0.86	93.5	90.4	90.4	84.5
80	0.86	83.7	81.1	81.0	76.0
100	0.86	64.1	62.4	62.4	59.0
150	0.86	38.7	38.1	38.1	36.9
450	0.86	27.0	26.9	26.9	26.7



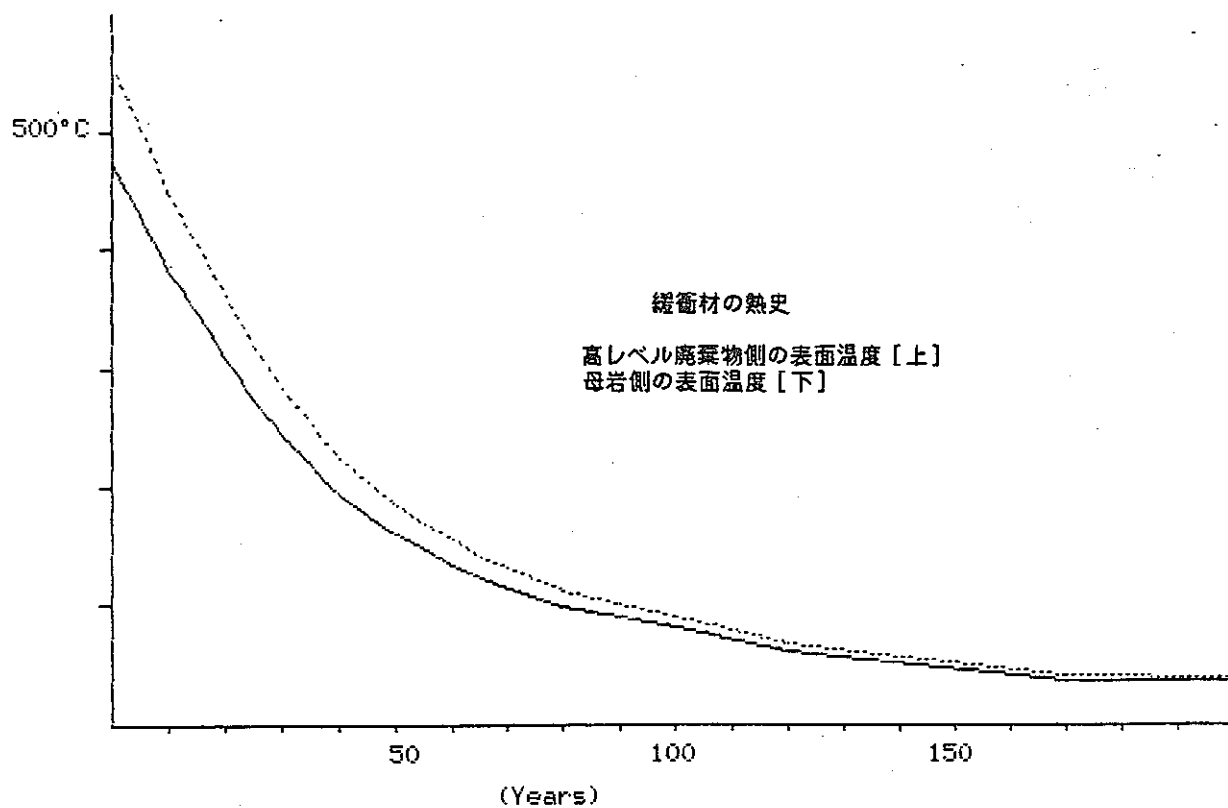
Assumption = 25°C at 80 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	319.5	305.9	305.8	288.4
5	1.29	281.5	269.7	269.6	254.4
10	1.29	253.0	242.5	242.4	228.9
15	1.29	224.5	215.3	215.2	203.4
20	1.29	200.7	192.6	192.6	182.2
25	1.29	181.7	174.5	174.5	165.2
30	1.29	165.6	159.1	159.1	150.8
35	1.29	151.3	145.5	145.5	138.0
40	1.29	139.0	133.7	133.7	127.0
45	1.29	126.6	122.0	121.9	115.9
50	1.29	118.1	113.8	113.8	108.3
60	1.29	101.0	97.5	97.5	93.0
70	1.29	91.5	88.4	88.4	84.5
80	1.29	82.0	79.4	79.4	76.0
100	1.29	63.0	61.2	61.2	59.0
150	1.29	38.3	37.7	37.7	36.9
450	1.29	26.9	26.8	26.8	26.7



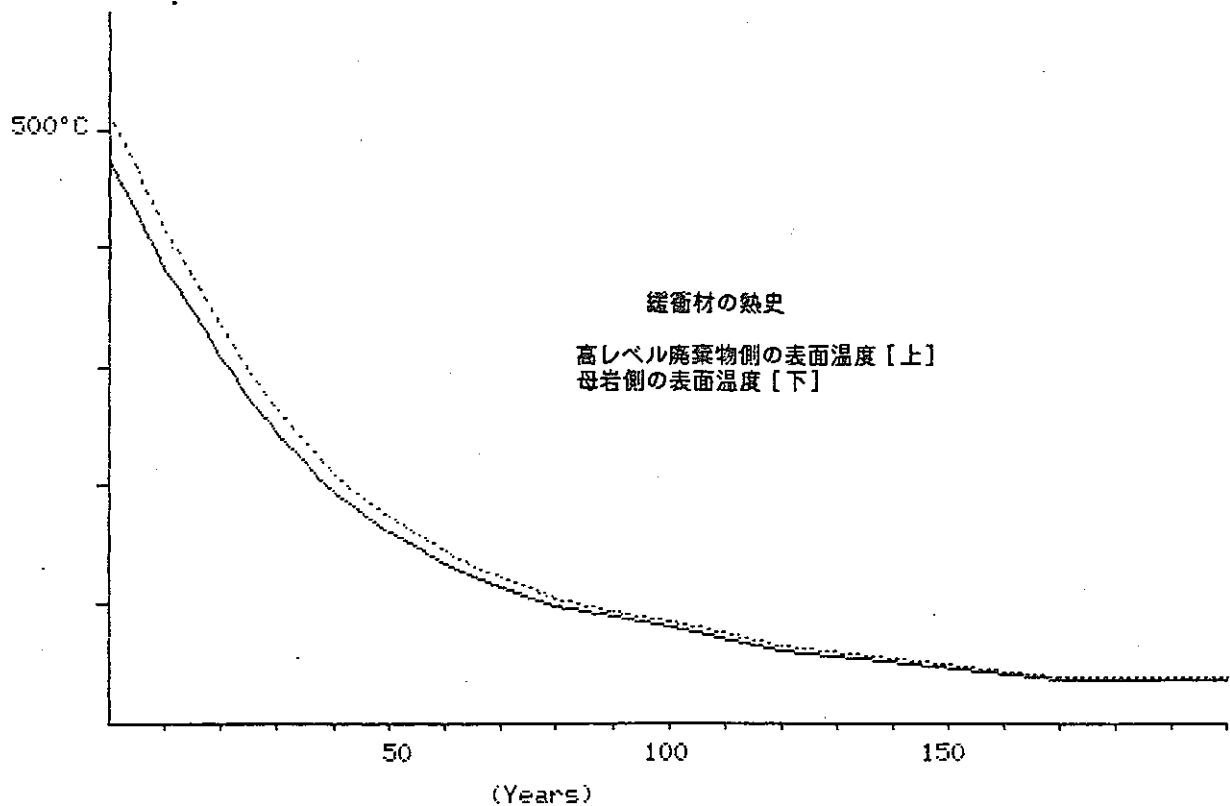
Assumption = 25°C at 120 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	576.9	555.5	555.4	472.7
5	0.43	520.6	501.4	501.2	427.1
10	0.43	464.3	447.2	447.1	381.4
15	0.43	419.2	403.9	403.8	344.8
20	0.43	374.2	360.6	360.5	308.3
25	0.43	329.1	317.3	317.2	271.7
30	0.43	295.3	284.8	284.8	244.3
35	0.43	261.5	252.4	252.3	216.9
40	0.43	233.4	225.3	225.2	194.0
45	0.43	210.8	203.6	203.6	175.8
50	0.43	191.7	185.2	185.2	160.2
55	0.43	174.8	169.0	169.0	146.5
60	0.43	160.2	154.9	154.9	134.7
65	0.43	145.5	140.8	140.8	122.8
70	0.43	135.4	131.1	131.1	114.5
80	0.43	115.1	111.6	111.6	98.1
90	0.43	103.8	100.8	100.8	89.0
100	0.43	92.6	90.0	89.9	79.8
120	0.43	70.1	68.3	68.3	61.6
170	0.43	40.8	40.2	40.2	37.8
470	0.43	27.3	27.2	27.2	26.8



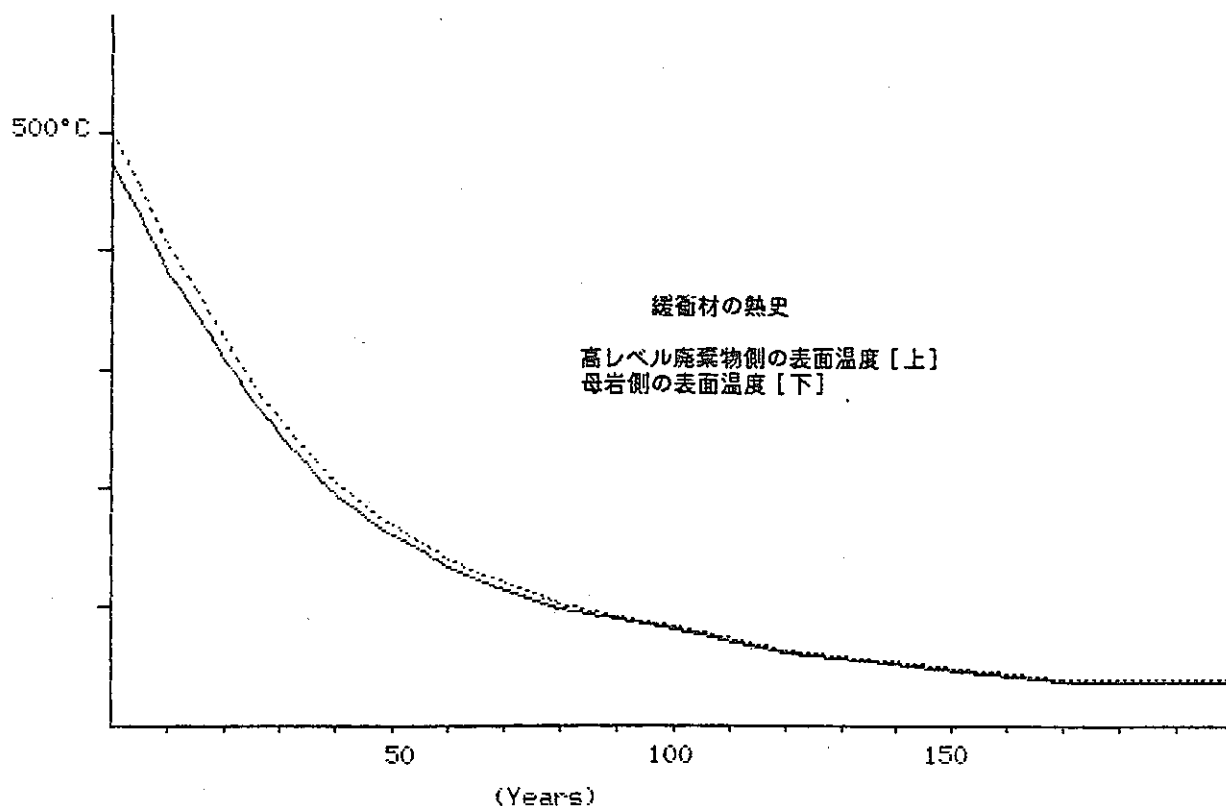
Assumption = 25°C at 120 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	535.6	514.2	514.1	472.7
5	0.86	483.5	464.3	464.2	427.1
10	0.86	431.4	414.3	414.2	381.4
15	0.86	389.7	374.4	374.3	344.8
20	0.86	348.0	334.5	334.4	308.3
25	0.86	306.3	294.5	294.5	271.7
30	0.86	275.1	264.6	264.5	244.3
35	0.86	243.8	234.6	234.6	216.9
40	0.86	217.8	209.7	209.6	194.0
45	0.86	196.9	189.7	189.7	175.8
50	0.86	179.2	172.8	172.7	160.2
55	0.86	163.6	157.8	157.7	146.5
60	0.86	150.0	144.8	144.8	134.7
65	0.86	136.5	131.8	131.8	122.8
70	0.86	127.1	122.8	122.8	114.5
80	0.86	108.4	104.9	104.8	98.1
90	0.86	97.9	94.9	94.9	89.0
100	0.86	87.5	84.9	84.9	79.8
120	0.86	66.7	64.9	64.9	61.6
170	0.86	39.6	39.0	39.0	37.8
470	0.86	27.1	27.0	27.0	26.8



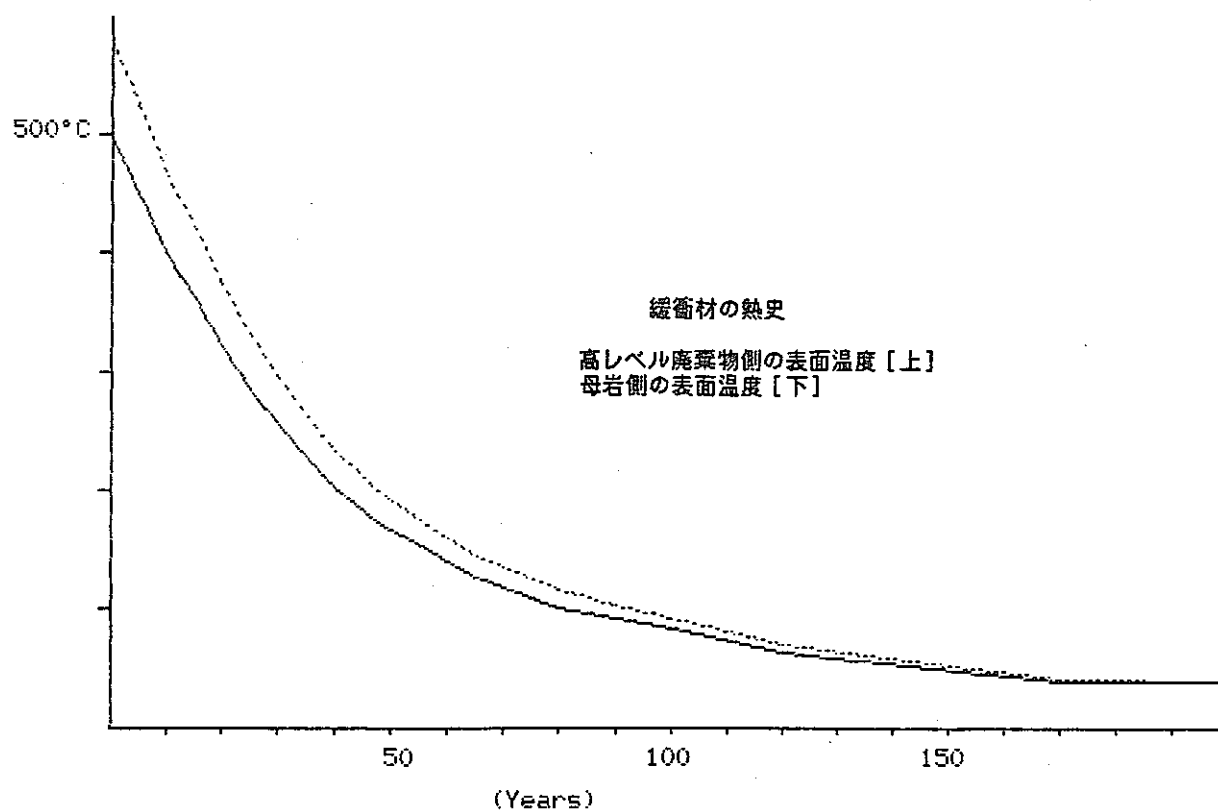
Assumption = 25°C at 120 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	521.8	500.4	500.3	472.7
5	1.29	471.1	451.9	451.8	427.1
10	1.29	420.4	403.4	403.3	381.4
15	1.29	379.9	364.6	364.5	344.8
20	1.29	339.3	325.8	325.7	308.3
25	1.29	298.8	287.0	286.9	271.7
30	1.29	268.3	257.9	257.8	244.3
35	1.29	237.9	228.7	228.7	216.9
40	1.29	212.6	204.5	204.4	194.0
45	1.29	192.3	185.1	185.0	175.8
50	1.29	175.1	168.6	168.6	160.2
55	1.29	159.9	154.0	154.0	146.5
60	1.29	146.7	141.4	141.4	134.7
65	1.29	133.5	128.8	128.8	122.8
70	1.29	124.4	120.1	120.1	114.5
80	1.29	106.1	102.6	102.6	98.1
90	1.29	96.0	92.9	92.9	89.0
100	1.29	85.8	83.2	83.2	79.8
120	1.29	65.6	63.8	63.8	61.6
170	1.29	39.2	38.6	38.6	37.8
470	1.29	27.0	26.9	26.9	26.8



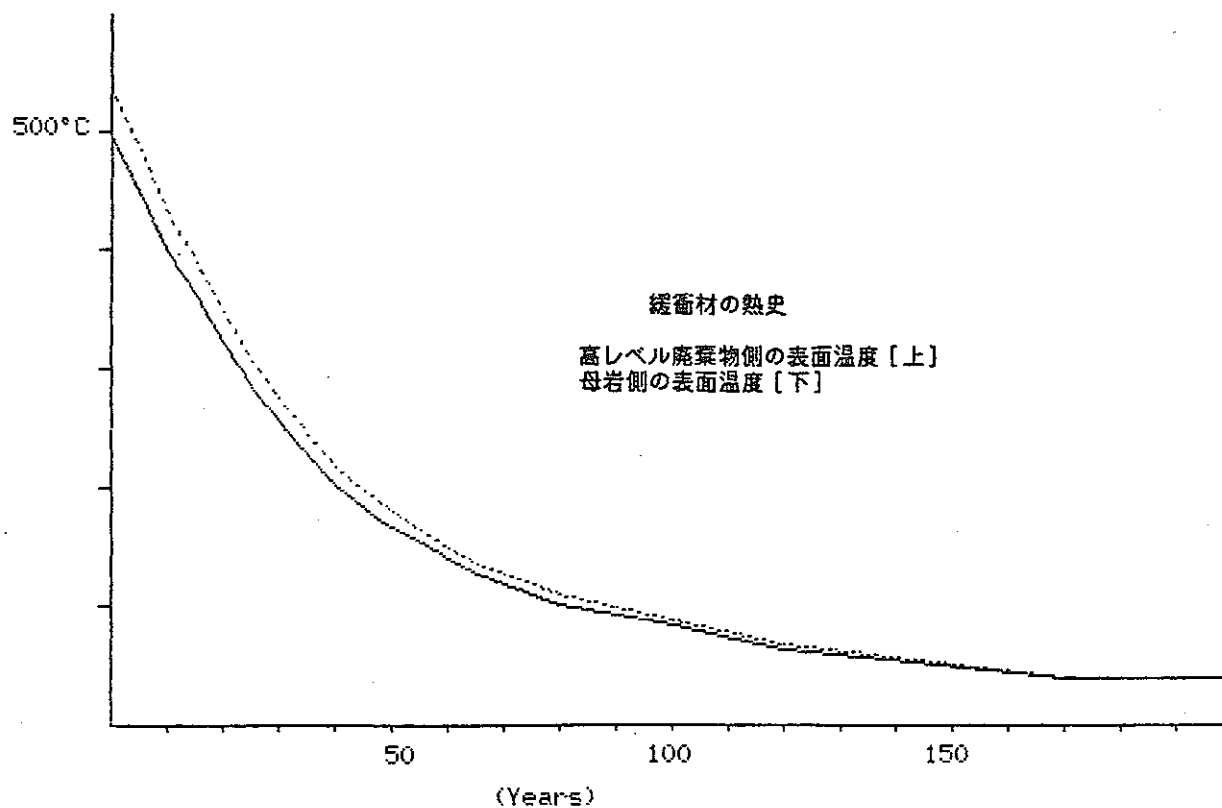
Assumption = 25°C at 160 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	599.2	577.8	577.6	495.0
5	0.43	540.6	521.4	521.2	447.1
10	0.43	482.0	465.0	464.9	399.1
15	0.43	435.1	419.8	419.7	360.7
20	0.43	388.3	374.7	374.6	322.4
25	0.43	341.4	329.6	329.5	284.0
30	0.43	306.2	295.7	295.7	255.2
35	0.43	271.1	261.9	261.8	226.4
40	0.43	241.8	233.7	233.6	202.5
45	0.43	218.3	211.1	211.1	183.3
50	0.43	198.4	192.0	191.9	167.0
55	0.43	180.8	175.0	175.0	152.6
60	0.43	165.6	160.4	160.3	140.1
65	0.43	150.4	145.7	145.7	127.6
70	0.43	139.8	135.6	135.5	119.0
80	0.43	118.7	115.2	115.2	101.7
90	0.43	107.0	104.0	103.9	92.1
100	0.43	95.3	92.7	92.7	82.6
120	0.43	71.9	70.1	70.1	63.4
170	0.43	41.4	40.8	40.8	38.4
470	0.43	27.3	27.3	27.3	26.9



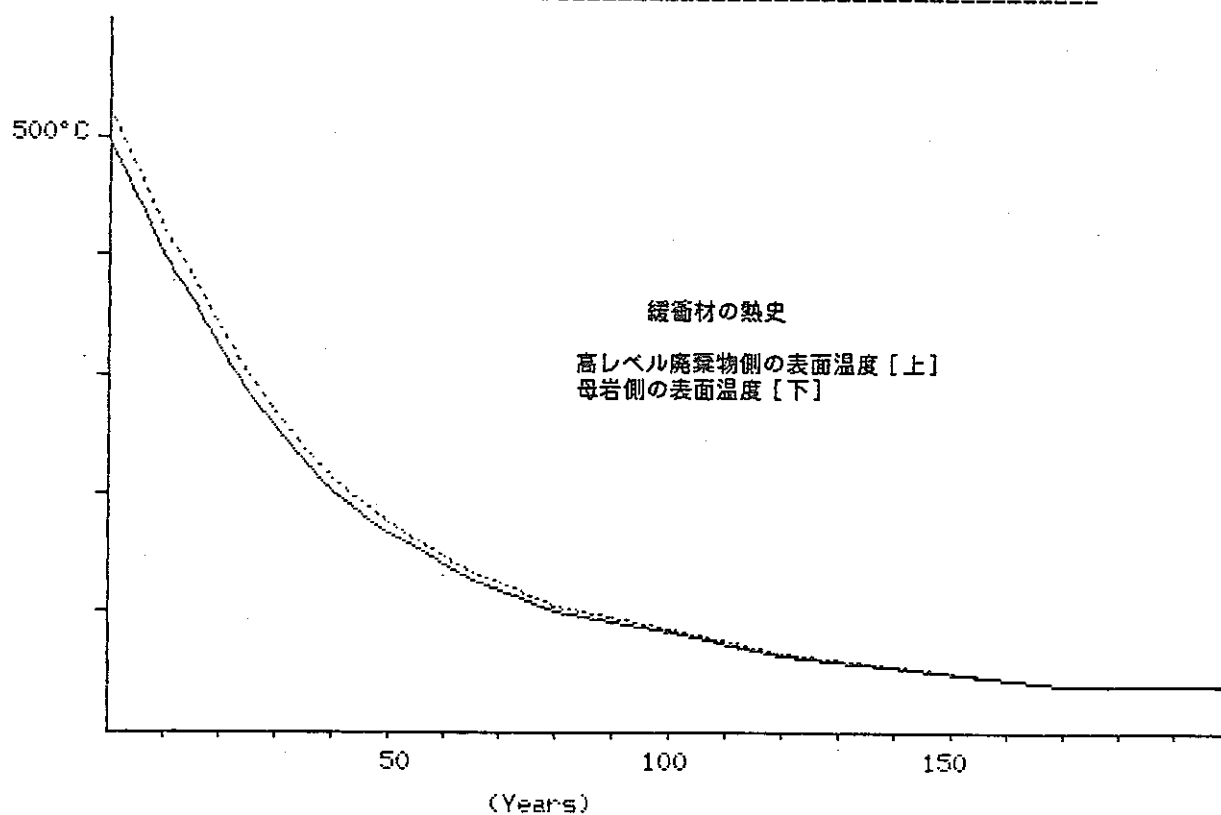
Assumption = 25°C at 160 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	557.9	536.4	536.3	495.0
5	0.86	503.5	484.3	484.1	447.1
10	0.86	449.1	432.1	432.0	399.1
15	0.86	405.6	390.3	390.2	360.7
20	0.86	362.1	348.6	348.5	322.4
25	0.86	318.6	306.8	306.8	284.0
30	0.86	286.0	275.5	275.4	255.2
35	0.86	253.4	244.2	244.1	226.4
40	0.86	226.2	218.1	218.1	202.5
45	0.86	204.4	197.2	197.2	183.3
50	0.86	185.9	179.5	179.4	167.0
55	0.86	169.6	163.8	163.8	152.6
60	0.86	155.5	150.3	150.2	140.1
65	0.86	141.4	136.7	136.7	127.6
70	0.86	131.6	127.3	127.3	119.0
80	0.86	112.0	108.5	108.5	101.7
90	0.86	101.1	98.1	98.0	92.1
100	0.86	90.2	87.6	87.6	82.6
120	0.86	68.5	66.8	66.7	63.4
170	0.86	40.2	39.6	39.6	38.4
470	0.86	27.2	27.1	27.1	26.9



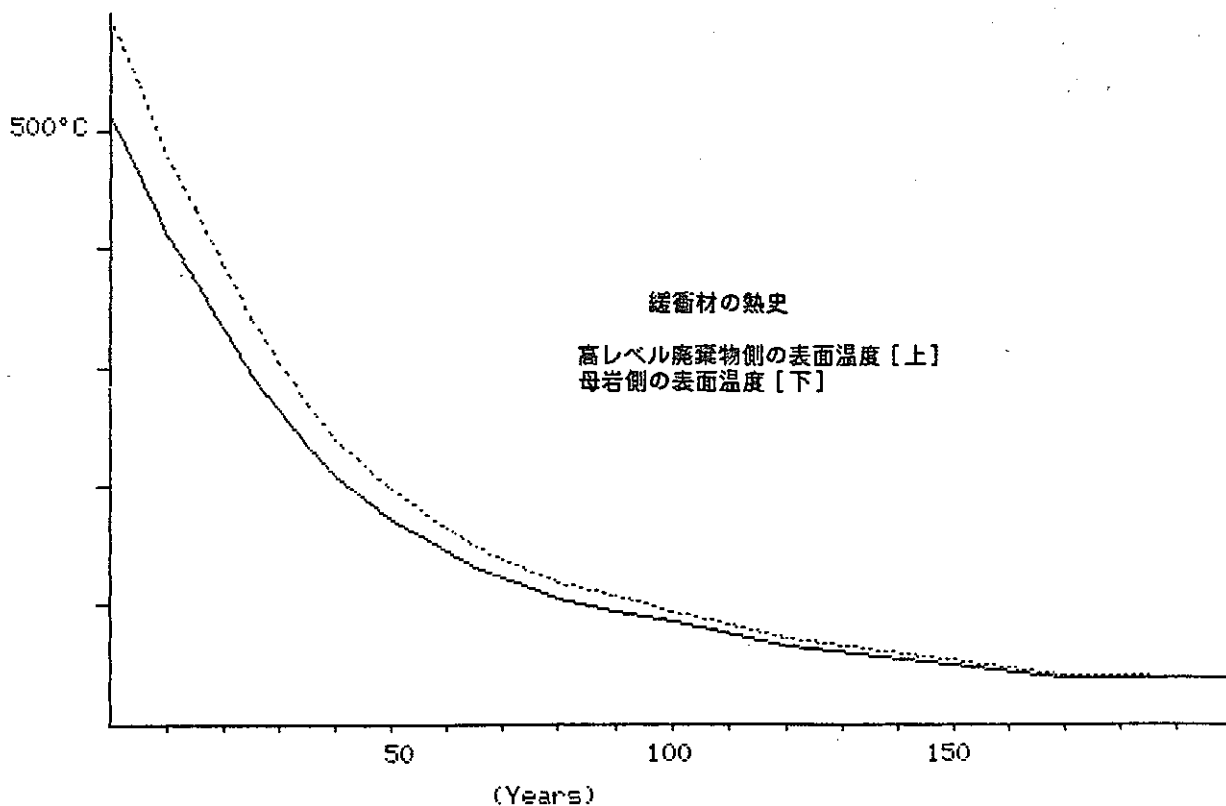
Assumption = 25°C at 160 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	544.1	522.7	522.6	495.0
5	1.29	491.1	471.9	471.8	447.1
10	1.29	438.2	421.1	421.0	399.1
15	1.29	395.8	380.5	380.4	360.7
20	1.29	353.4	339.9	339.8	322.4
25	1.29	311.0	299.2	299.2	284.0
30	1.29	279.2	268.8	268.7	255.2
35	1.29	247.5	238.3	238.2	226.4
40	1.29	221.0	212.9	212.9	202.5
45	1.29	199.8	192.6	192.5	183.3
50	1.29	181.8	175.3	175.3	167.0
55	1.29	165.9	160.1	160.1	152.6
60	1.29	152.1	146.9	146.8	140.1
65	1.29	138.4	133.7	133.6	127.6
70	1.29	128.8	124.5	124.5	119.0
80	1.29	109.7	106.3	106.2	101.7
90	1.29	99.2	96.1	96.1	92.1
100	1.29	88.6	85.9	85.9	82.6
120	1.29	67.4	65.6	65.6	63.4
170	1.29	39.8	39.2	39.2	38.4
470	1.29	27.1	27.0	27.0	26.9



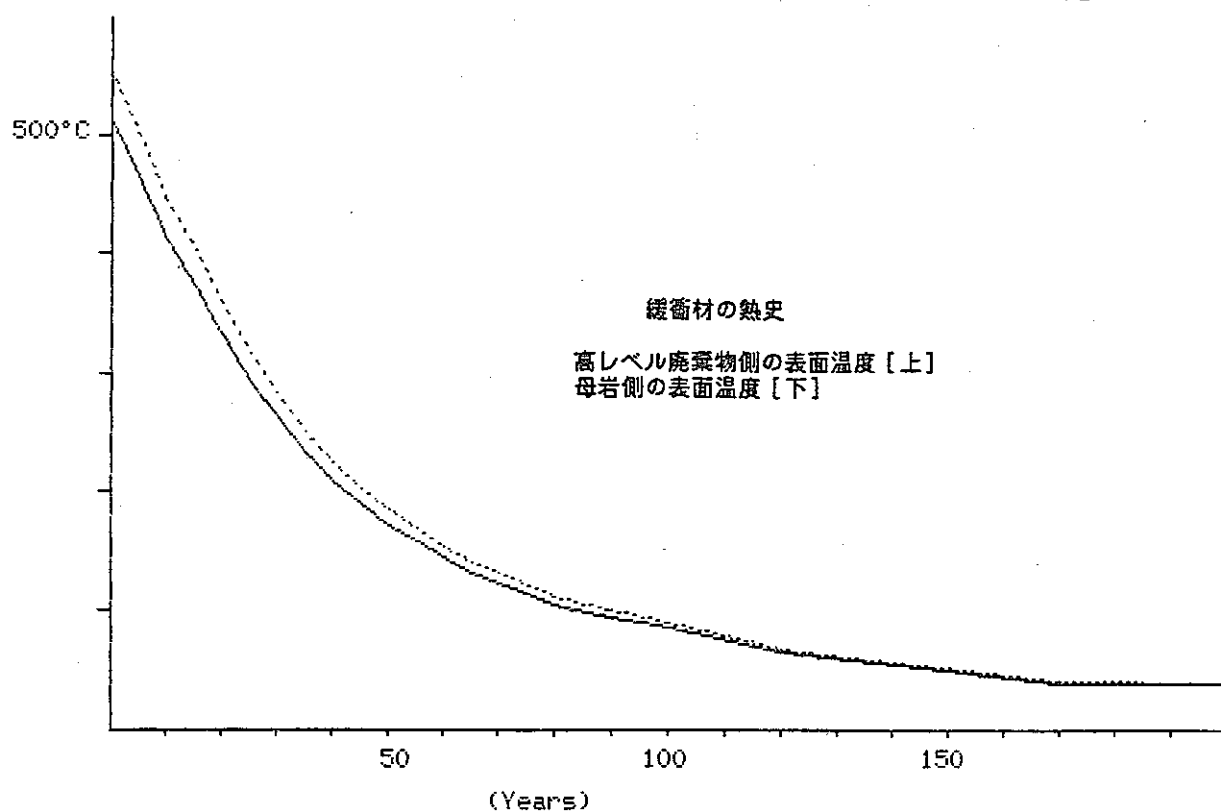
Assumption = 25°C at 200 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.43	616.5	595.0	594.9	512.3
5	0.43	556.1	536.9	536.8	462.6
10	0.43	495.7	478.7	478.6	412.8
15	0.43	447.5	432.2	432.1	373.1
20	0.43	399.2	385.6	385.6	333.3
25	0.43	350.9	339.1	339.0	293.5
30	0.43	314.7	304.2	304.1	263.7
35	0.43	278.5	269.3	269.2	233.8
40	0.43	248.3	240.2	240.2	209.0
45	0.43	224.2	217.0	216.9	189.1
50	0.43	203.6	197.2	197.1	172.2
55	0.43	185.5	179.7	179.7	157.3
60	0.43	169.8	164.6	164.6	144.3
65	0.43	154.2	149.5	149.5	131.4
70	0.43	143.3	139.0	139.0	122.5
80	0.43	121.6	118.1	118.0	104.6
90	0.43	109.5	106.4	106.4	94.6
100	0.43	97.4	94.8	94.8	84.7
120	0.43	73.3	71.5	71.5	64.8
170	0.43	41.9	41.3	41.3	38.9
470	0.43	27.4	27.3	27.3	27.0



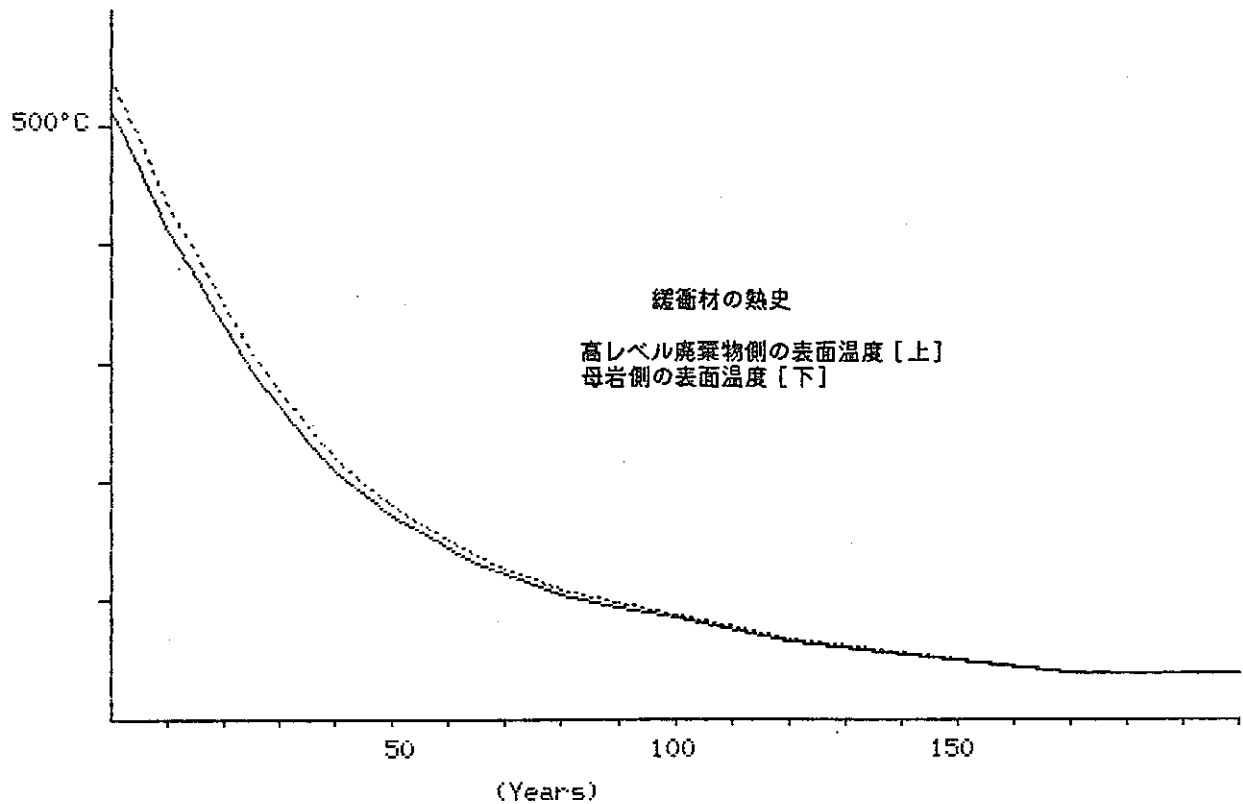
Assumption = 25°C at 200 (m) distance from the center of canister

Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	0.86	575.1	553.7	553.6	512.3
5	0.86	519.0	499.8	499.7	462.6
10	0.86	462.9	445.8	445.7	412.8
15	0.86	418.0	402.7	402.6	373.1
20	0.86	373.0	359.5	359.4	333.3
25	0.86	328.1	316.3	316.3	293.5
30	0.86	294.5	284.0	283.9	263.7
35	0.86	260.8	251.6	251.5	233.8
40	0.86	232.7	224.6	224.6	209.0
45	0.86	210.3	203.0	203.0	189.1
50	0.86	191.2	184.7	184.7	172.2
55	0.86	174.3	168.5	168.5	157.3
60	0.86	159.7	154.5	154.5	144.3
65	0.86	145.1	140.5	140.4	131.4
70	0.86	135.0	130.7	130.7	122.5
80	0.86	114.8	111.3	111.3	104.6
90	0.86	103.6	100.5	100.5	94.6
100	0.86	92.4	89.7	89.7	84.7
120	0.86	69.9	68.2	68.2	64.8
170	0.86	40.7	40.1	40.1	38.9
470	0.86	27.2	27.2	27.2	27.0



Assumption = 25°C at 200 (m) distance from the center of canister

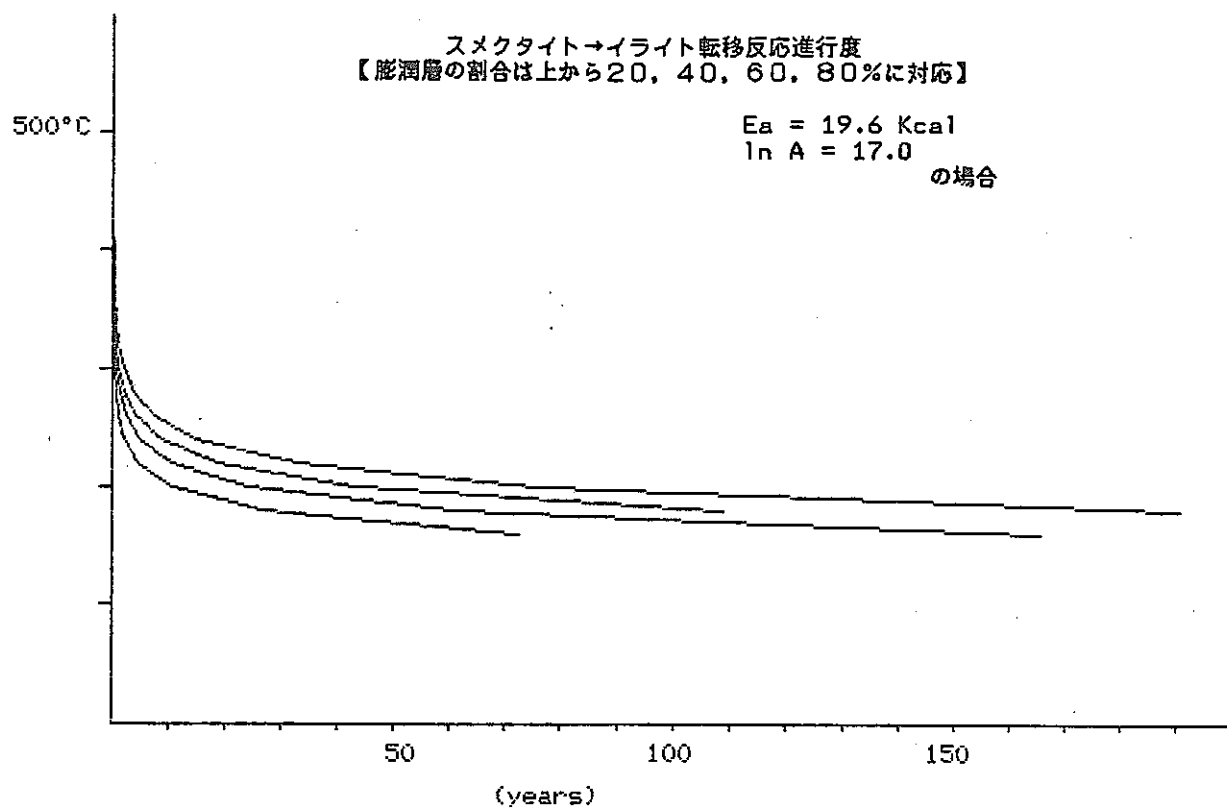
Time After Burial (Years)	Thermal Conductivity (Kcal/mhdeg)	Temperature °C in canister		Temperature °C in backfill	
		Max.	Min.	Max.	Min.
0	1.29	561.4	539.9	539.8	512.3
5	1.29	506.6	487.4	487.3	462.6
10	1.29	451.9	434.9	434.8	412.8
15	1.29	408.1	392.8	392.7	373.1
20	1.29	364.3	350.8	350.7	333.3
25	1.29	320.5	308.7	308.7	293.5
30	1.29	287.7	277.2	277.2	263.7
35	1.29	254.9	245.7	245.6	233.8
40	1.29	227.5	219.4	219.4	209.0
45	1.29	205.6	198.4	198.4	189.1
50	1.29	187.0	180.5	180.5	172.2
55	1.29	170.6	164.8	164.7	157.3
60	1.29	156.4	151.1	151.1	144.3
65	1.29	142.1	137.4	137.4	131.4
70	1.29	132.3	128.0	128.0	122.5
80	1.29	112.6	109.1	109.1	104.6
90	1.29	101.6	98.6	98.5	94.6
100	1.29	90.7	88.1	88.0	84.7
120	1.29	68.8	67.0	67.0	64.8
170	1.29	40.3	39.7	39.7	38.9
470	1.29	27.2	27.1	27.1	27.0



Appendix II

Eberl & Hower の速度パラメーター
による, スメクタイト→イライト転移反応
進行度

活性化エネルギー	19.6 Kcal の場合		293
"	23.4 Kcal の場合		296



Ea=19.6Kcal

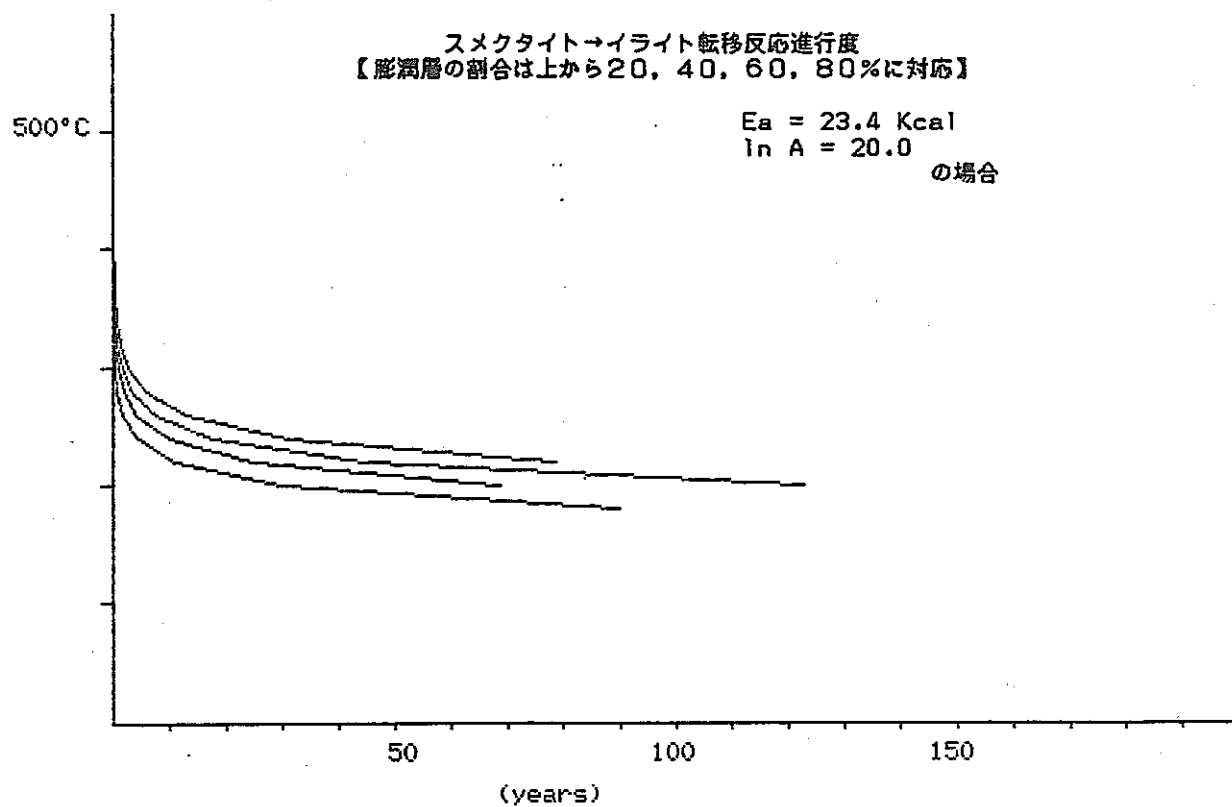
Ln(A)=17.0

Temperature °C	Proportion of smectite	time (years)
20.0	0.2	27835200.0
40.0	0.2	3238550.0
60.0	0.2	487896.0
80.0	0.2	91086.0
100.0	0.2	20358.2
120.0	0.2	5299.8
140.0	0.2	1571.8
160.0	0.2	521.5
180.0	0.2	190.8
200.0	0.2	76.0
220.0	0.2	32.6
240.0	0.2	14.9
260.0	0.2	7.3
280.0	0.2	3.7
300.0	0.2	2.0
320.0	0.2	1.1
340.0	0.2	0.6
360.0	0.2	0.4
380.0	0.2	0.2
400.0	0.2	0.2
420.0	0.2	0.1
440.0	0.2	0.1
460.0	0.2	0.0
480.0	0.2	0.0
500.0	0.2	0.0
20.0	0.4	15847200.0
40.0	0.4	1843780.0
60.0	0.4	277771.0
80.0	0.4	51857.4
100.0	0.4	11590.4
120.0	0.4	3017.3
140.0	0.4	894.8
160.0	0.4	296.9
180.0	0.4	108.6
200.0	0.4	43.2
220.0	0.4	18.6
240.0	0.4	8.5
260.0	0.4	4.1
280.0	0.4	2.1
300.0	0.4	1.1
320.0	0.4	0.6
340.0	0.4	0.4
360.0	0.4	0.2
380.0	0.4	0.1
400.0	0.4	0.1
420.0	0.4	0.1
440.0	0.4	0.0
460.0	0.4	0.0
480.0	0.4	0.0
500.0	0.4	0.0

Ea=19.6Kcal

Ln(A)=17.0

Temperature °C	Proportion of smectite	time (years)
20.0	0.6	8834730.0
40.0	0.6	1027900.0
60.0	0.6	154855.0
80.0	0.6	28910.1
100.0	0.6	6461.6
120.0	0.6	1682.1
140.0	0.6	498.9
160.0	0.6	165.5
180.0	0.6	60.5
200.0	0.6	24.1
220.0	0.6	10.3
240.0	0.6	4.7
260.0	0.6	2.3
280.0	0.6	1.2
300.0	0.6	0.6
320.0	0.6	0.4
340.0	0.6	0.2
360.0	0.6	0.1
380.0	0.6	0.1
400.0	0.6	0.0
420.0	0.6	0.0
440.0	0.6	0.0
460.0	0.6	0.0
480.0	0.6	0.0
500.0	0.6	0.0
20.0	0.8	3859270.0
40.0	0.8	449014.0
60.0	0.8	67645.2
80.0	0.8	12628.8
100.0	0.8	2822.6
120.0	0.8	734.8
140.0	0.8	217.9
160.0	0.8	72.3
180.0	0.8	26.4
200.0	0.8	10.5
220.0	0.8	4.5
240.0	0.8	2.1
260.0	0.8	1.0
280.0	0.8	0.5
300.0	0.8	0.3
320.0	0.8	0.2
340.0	0.8	0.1
360.0	0.8	0.1
380.0	0.8	0.0
400.0	0.8	0.0
420.0	0.8	0.0
440.0	0.8	0.0
460.0	0.8	0.0
480.0	0.8	0.0
500.0	0.8	0.0



Ea=23.4Kcal

Ln(A)=20.0

Temperature °C	Proportion of smectite	time (years)
20.0	0.2	947067000.0
40.0	0.2	72611600.0
60.0	0.2	7579000.0
80.0	0.2	1021930.0
100.0	0.2	170825.0
120.0	0.2	34257.3
140.0	0.2	8026.7
160.0	0.2	2150.5
180.0	0.2	647.2
200.0	0.2	215.6
220.0	0.2	78.5
240.0	0.2	30.9
260.0	0.2	13.1
280.0	0.2	5.9
300.0	0.2	2.8
320.0	0.2	1.4
340.0	0.2	0.7
360.0	0.2	0.4
380.0	0.2	0.2
400.0	0.2	0.1
420.0	0.2	0.1
440.0	0.2	0.0
460.0	0.2	0.0
480.0	0.2	0.0
500.0	0.2	0.0
20.0	0.4	539189000.0
40.0	0.4	41339600.0
60.0	0.4	4314910.0
80.0	0.4	581812.0
100.0	0.4	97255.0
120.0	0.4	19503.5
140.0	0.4	4569.8
160.0	0.4	1224.3
180.0	0.4	368.5
200.0	0.4	122.7
220.0	0.4	44.7
240.0	0.4	17.6
260.0	0.4	7.4
280.0	0.4	3.3
300.0	0.4	1.6
320.0	0.4	0.8
340.0	0.4	0.4
360.0	0.4	0.2
380.0	0.4	0.1
400.0	0.4	0.1
420.0	0.4	0.0
440.0	0.4	0.0
460.0	0.4	0.0
480.0	0.4	0.0
500.0	0.4	0.0

Ea=23.4Kcal

Ln(A)=20.0

Temperature °C	Proportion of smectite	time (years)
20.0	0.6	300594000.0
40.0	0.6	23046500.0
60.0	0.6	2405530.0
80.0	0.6	324356.0
100.0	0.6	54219.0
120.0	0.6	10873.1
140.0	0.6	2547.6
160.0	0.6	682.6
180.0	0.6	205.4
200.0	0.6	68.4
220.0	0.6	24.9
240.0	0.6	9.8
260.0	0.6	4.2
280.0	0.6	1.9
300.0	0.6	0.9
320.0	0.6	0.4
340.0	0.6	0.2
360.0	0.6	0.1
380.0	0.6	0.1
400.0	0.6	0.0
420.0	0.6	0.0
440.0	0.6	0.0
460.0	0.6	0.0
480.0	0.6	0.0
500.0	0.6	0.0
20.0	0.8	131308000.0
40.0	0.8	10067400.0
60.0	0.8	1050810.0
80.0	0.8	141688.0
100.0	0.8	23684.4
120.0	0.8	4749.7
140.0	0.8	1112.9
160.0	0.8	298.2
180.0	0.8	89.7
200.0	0.8	29.9
220.0	0.8	10.9
240.0	0.8	4.3
260.0	0.8	1.8
280.0	0.8	0.8
300.0	0.8	0.4
320.0	0.8	0.2
340.0	0.8	0.1
360.0	0.8	0.1
380.0	0.8	0.0
400.0	0.8	0.0
420.0	0.8	0.0
440.0	0.8	0.0
460.0	0.8	0.0
480.0	0.8	0.0
500.0	0.8	0.0