

平成 27 年度

燃料デブリの処理・処分に関する予察的調査

報 告 書

平成 28 年 3 月

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構

目 次

	頁
1. 序論	1-1
1.1 まえがき	1-1
1.2 実施内容	1-1
1.3 成果概要	1-3
1.3.1 燃料デブリ諸性状の調査に基づく仮想燃料デブリの設定	1-3
1.3.2 燃料デブリ特有の特性を踏まえたシナリオ設定及び予察的解析	1-9
1.3.3 核種移行データ取得	1-21
1.3.4 総合的な安全評価コード・モデルの整備	1-23
1.3.5 総合的な核種移行評価手法の整備	1-30
第1章の参考文献	1-57
2. 燃料デブリ諸性状の調査に基づく仮想燃料デブリの設定	2-1
2.1 目的	2-1
2.2 実施方法及び調査内容	2-1
2.3 調査結果（仮想燃料デブリ Ver.1 設定）	2-2
2.3.1 インベントリ（Ver.1）	2-2
2.3.2 発生量（Ver.1）	2-4
2.3.3 幾何学形態（Ver.1）	2-7
2.3.4 化学形態（Ver.1）	2-7
2.3.5 発熱量（Ver.1）	2-8
2.3.6 仮想燃料デブリ Ver.1 設定のまとめ	2-9
2.4 調査結果（仮想燃料デブリ H27 設定）	2-10
2.4.1 インベントリ（H27）	2-10
2.4.2 発生量（H27）	2-14
2.4.3 幾何学形態（H27）	2-22
2.4.4 化学形態（H27）	2-23
2.4.5 発熱量（H27）	2-26
2.4.6 仮想燃料デブリ H27 設定のまとめ	2-27
第2章の参考文献	2-29
3. 燃料デブリ特有の特性を踏まえたシナリオ設定及び予察的解析	3-1
3.1 はじめに	3-1
3.2 燃料デブリ特有の特性を踏まえたシナリオ設定	3-2
3.2.1 仮想デブリからの核種溶出	3-2
3.2.2 放射線による人工バリア材の劣化	3-3
3.2.3 処分場閉鎖後 10 万年以上の長期にわたる人工バリアの変質挙動	3-10
3.2.4 廃棄体からの発熱	3-13
3.2.5 海水成分、セメント成分等の溶出による処分環境への化学的影響	3-17
3.3 燃料デブリ特有の特性を踏まえた予察的解析	3-19
3.3.1 水の放射線分解等によるガス発生	3-19

3.3.2	燃料デブリの処分容器内における臨界可能性に関する検討	3-45
3.3.3	天然バリア中における臨界発生可能性に関する検討	3-57
3.4	まとめ	3-77
3.4.1	燃料デブリ特有の特性を踏まえたシナリオ設定	3-77
3.4.2	燃料デブリ特有の特性を踏まえた予察的解析	3-80
第3章	参考文献	3-84
4.	核種移行データ取得	4-1
4.1	背景及び目的	4-1
4.2	Uの核種移行特性データの取得	4-1
4.2.1	試験方法	4-1
4.2.2	結果	4-6
4.2.3	まとめ	4-9
4.3	Puの核種移行特性データの取得	4-10
4.3.1	試験方法	4-11
4.3.2	結果及び考察	4-12
4.3.3	まとめ	4-17
第4章	参考文献	4-18
5.	総合的な安全評価コード・モデルの整備	5-1
5.1	はじめに	5-1
5.2	安全評価手法の全体像	5-2
5.3	緩衝材中拡散モデルおよび物質移行-変質連成解析コードの整備	5-5
5.3.1	背景と目的	5-5
5.3.2	透過拡散試験および収着バッチ試験	5-6
5.3.3	MC-BUFFER への新拡散モデル導入に係る検討	5-28
5.3.4	結論および今後の課題	5-35
5.4	MIG2DFの整備	5-36
5.4.1	隆起・侵食に係る入力支援モジュールの作成	5-37
5.4.2	節点移動機能に係るモジュールの作成	5-43
5.4.3	モデル切り替え時の計算値継承に係るモジュールの作成	5-48
5.5	GSRW-PSAの整備	5-60
5.6	まとめ	5-65
5.6.1	緩衝材中拡散モデルおよび物質移行-変質連成解析コードの整備	5-65
5.6.2	MIG2DFの整備	5-65
5.6.3	GSRW-PSAの整備	5-66
第5章	参考文献	5-67
6.	燃料デブリの処分時の評価に対応した総合的な安全評価手法の整備	6-1
6.1	はじめに	6-1
6.2	人工バリアの変遷を対象とした安全評価	6-1
6.2.1	緩衝材変質・間隙水組成の変遷評価	6-1
6.2.2	核種移行パラメータ	6-31

6.2.3 核種移行解析	6-37
6.3 人工バリア安全機能に着目した感度解析	6-56
6.3.1 背景・目的	6-56
6.3.2 標準ケース	6-56
6.3.3 感度解析	6-73
6.3.4 人工バリア安全機能に着目した感度解析のまとめ	6-81
6.4 海水準変動と隆起・侵食を組み合わせたシナリオを対象とした安全評価	6-82
6.4.1 気候・海水準変動を考慮した地形変化シミュレーション	6-83
6.4.2 地下水流動解析	6-94
6.4.3 核種移行パラメータ	6-125
6.4.4 核種移行解析	6-126
6.5 まとめ	6-138
6.5.1 天然バリアに関する留意事項	6-138
6.5.2 人工バリアに関する重要な設計要件	6-138
6.6 燃料デブリ処理・処分への留意事項	6-140
第6章の参考文献	6-143

添付資料

Appendix-I 総合的な安全評価コード・モデルの整備

I-A 緩衝材中拡散モデルおよび物質移行-変質連成解析コードの整備	App. I -1
Appendix I の参考文献	App. I -7

Appendix-II 燃料デブリ処分時の評価に対応した総合的な安全評価手法の整備

II-A 人工バリアの変遷のシナリオを対象とした安全評価	App. II -1
II-B 海水準変動と隆起・侵食を組み合わせたシナリオを対象とした安全評価	App. II -41

Appendix-III 検討委員会委員名簿

III-A 平成27年度「燃料デブリの処理・処分に関する予察的調査」 検討委員会委員名簿	App. III-1
---	------------

図目次

	頁
図 1.3-1 OP 寿命の違いによる人工バリアからのフラックス変化.....	1-11
図 1.3-2 Np-237 の人工バリアからの移行フラックスの経時変化.....	1-12
図 1.3-3 オーバーパック内側でのガス蓄積圧力.....	1-15
図 1.3-4 オーバーパックと緩衝材の界面におけるガス蓄積圧力の経時変化.....	1-16
図 1.3-5 燃料デブリ処分容器内に埋設後地下水が浸入するイメージ図.....	1-16
図 1.3-6 燃料デブリ収納容器に対する臨界解析体系.....	1-17
図 1.3-7 均質体系、14GWd/t 燃焼燃料の実効増倍率.....	1-17
図 1.3-8 均質体系、5wt%UO ₂ の収納容器直径別の実効増倍率.....	1-18
図 1.3-9 非均質体系、5wt%UO ₂ の収納容器直径別の実効増倍率.....	1-18
図 1.3-10 濃集点におけるウラン核種の濃集量及び濃縮度の経時変化 (Case 2).....	1-20
図 1.3-11 濃集点におけるウラン核種の濃集量及び濃縮度の経時変化 (Case 6).....	1-20
図 1.3-12 砂岩及びその構成鉱物に対する Pu の Kd.....	1-22
図 1.3-13 人工バリア領域の状態変遷を解析し、核種移行解析および地下水流動解析の入力データを 提供するための評価体系.....	1-23
図 1.3-14 堆積岩サイトを想定した場合のリンケージ評価体系.....	1-24
図 1.3-15 高濃度および低濃度側タンク内の Ca 濃度の経時変化 (実験値と計算値).....	1-25
図 1.3-16 高濃度および低濃度側タンク内の Cl 濃度の経時変化 (実験値と計算値の比較).....	1-25
図 1.3-17 高濃度および低濃度側タンク内の Na 濃度の経時変化 (実験値と計算値の比較).....	1-26
図 1.3-18 計算体系概念図.....	1-26
図 1.3-19 3.0×10 ⁸ 秒後の元素濃度分布および pH 分布の計算結果と解析解の比較.....	1-27
図 1.3-20 地質環境の長期的変遷を考慮した連続的な解析の流れ.....	1-28
図 1.3-21 既存のソースタームモデルを用いた複数の廃棄物考慮解析概念図例.....	1-29
図 1.3-22 新たに整備したモデルを用いた複数の廃棄物考慮解析概念図例.....	1-29
図 1.3-23 解析体系概念図 (解析①: 発熱・セメント成分、解析②: 10 万年以降の設定).....	1-31
図 1.3-24 解析体系概念図 (解析③: 海水成分).....	1-31
図 1.3-25 有効モンモリロナイト密度の経時変化分布 (地下水質による影響).....	1-34
図 1.3-26 緩衝材領域における経時変化分布 (廃棄体からの発熱の影響).....	1-35
図 1.3-27 緩衝材領域における経時変化分布 (セメント・MCCI 成分の影響).....	1-36
図 1.3-28 10 万年時を継続 (左)、10 万年で性能喪失 (右) のシナリオ.....	1-37
図 1.3-29 10 万年時を継続 (左)、10 万年で性能喪失 (右) のシナリオ.....	1-37
図 1.3-30 緩衝材領域における経時変化分布 (海水成分の影響).....	1-38
図 1.3-31 10 万年以降の設定を継続/喪失としたときの核種移行フラックス (OP 破損 4,000 年).....	1-40
図 1.3-32 4n+2 系列核種の HLW と燃料デブリの解析結果.....	1-45
図 1.3-33 浸出速度に対する最大フラックスの比較.....	1-47
図 1.3-34 気候・海水準変動および隆起・侵食に対する影響評価体系.....	1-48
図 1.3-35 房総半島における解析断面 (遠浅/急峻モデル) の選定位置.....	1-49
図 1.3-36 海水準変動の設定.....	1-49
図 1.3-37 処分場の想定位置 (遠浅モデル).....	1-50
図 1.3-38 処分場からの移行速度 (遠浅モデル: 亜氷期を考慮した海水準変動).....	1-50
図 1.3-39 処分場の想定位置 (急峻モデル).....	1-50

図 1.3-40	処分場からの平均流速（急峻モデル：亜氷期を考慮した海水準変動）	1-51
図 1.3-41	亜氷期を考慮した海水準変動と平均化した海水準変動の比較 （遠浅モデル、処分場深度 500m）	1-51
図 1.3-42	亜氷期を考慮した海水準変動と平均化した海水準変動の比較 （急峻モデル、処分場深度 800m）	1-52
図 1.3-43	人工バリア出口フラックスの各経路への割り当て方法	1-53
図 1.3-44	移行距離（急峻モデル、陸側 800m）	1-53
図 1.3-45	移行距離（急峻モデル、海側 700m）	1-54
図 1.3-46	移行距離（遠浅モデル、海側 500m）	1-54
図 1.3-47	移行距離（遠浅モデル、海側 500m）	1-55
図 1.3-48	1本あたりの天然バリア出口フラックス（急峻モデル、陸側 800m、4n+2 系列）	1-56
図 1.3-49	1本あたりの天然バリア出口フラックス（急峻モデル、海側 700m、4n+2 系列）	1-56
図 1.3-50	1本あたりの天然バリア出口フラックス（遠浅モデル、陸側 500m、4n+2 系列）	1-57
図 1.3-51	1本あたりの天然バリア出口フラックス（遠浅モデル、海側 500m、4n+2 系列）	1-57
図 2.3-1	TMI-2 事故時の破損燃料容器	2-6
図 2.3-2	人工バリアの仕様	2-6
図 2.3-3	燃料デブリの幾何学形態（Ver.1）	2-7
図 2.4-1	TMI-2 キャニスターの臨界計算結果	2-17
図 2.4-2	加熱減圧乾燥システム（HVDS）	2-19
図 2.4-3	再結合触媒が設置された燃料キャニスター（左）と SDS 容器（右）	2-20
図 2.4-4	NUHOMS-12T：TMI-2 独立使用済み燃料貯蔵施設（ISFSI）	2-21
図 2.4-5	HSM で乾式貯蔵されている DSC 中の水素濃度	2-21
図 2.4-6	燃料デブリの幾何学形態（H27）	2-22
図 2.4-7	酸化ウランの相図	2-25
図 3.2-1	燃料マトリクス溶解速度の時間変化設定例	3-3
図 3.2-2	Cs-135 の人工バリアからの移行フラックスの経時変化	3-9
図 3.2-3	Se-79 および 4n+1 系列核種の人工バリアからの移行フラックスの経時変化	3-9
図 3.2-4	Se-79 の人工バリアからの移行フラックスの経時変化	3-11
図 3.2-5	Cs-135 の人工バリアからの移行フラックスの経時変化	3-11
図 3.2-6	Np-237 の人工バリアからの移行フラックスの経時変化	3-12
図 3.2-7	坑道安定性のための処分孔、ガラス固化体の配置	3-14
図 3.2-8	坑道安定性を考慮したガラス固化体、坑道の配置	3-15
図 3.2-9	熱伝導解析の 3次元体系	3-16
図 3.3-1	MCNP の計算体系	3-23
図 3.3-2	吸収線量率の計算結果	3-28
図 3.3-3	水の放射線分解によるガス発生速度	3-29
図 3.3-4	金属の表面積設定のための燃料デブリ容器及びオーバーパックの寸法図	3-31
図 3.3-5	金属の嫌氣的腐食によるガス発生速度の計算結果	3-32
図 3.3-6	オーバーパックの内側と外側における水の放射線分解及び金属腐食によるガス発生 速度の比較	3-33
図 3.3-7	計算厚さに対する設計圧力の関係	3-35

図 3.3-8	オーバーパック内側での累積ガス発生量	3-36
図 3.3-9	オーバーパック内側でのガス蓄積圧力	3-36
図 3.3-10	デブリ充填率に対する許容初期水量	3-37
図 3.3-11	OP 破損後までを含めた OP 外側でのガス発生速度の内訳と合計値の経時変化	3-38
図 3.3-12	オーバーパックと緩衝材の界面に蓄積するガス発生量の経時変化	3-40
図 3.3-13	オーバーパックと緩衝材の界面におけるガス蓄積圧力の経時変化	3-41
図 3.3-14	燃料デブリ処分容器内に埋設後地下水が浸入するイメージ図	3-45
図 3.3-15	燃料集合体 1 体の濃縮度別燃料棒の配置	3-47
図 3.3-16	燃料デブリ収納容器に対する臨界解析体系	3-48
図 3.3-17	均質体系、5wt%UO ₂ の実効増倍率	3-50
図 3.3-18	均質体系、3GWd/t 燃焼燃料の実効増倍率	3-50
図 3.3-19	均質体系、14GWd/t 燃焼燃料の実効増倍率	3-50
図 3.3-20	非均質体系、5wt%UO ₂ の実効増倍率	3-51
図 3.3-21	非均質体系、3GWd/t 燃焼燃料の実効増倍率	3-51
図 3.3-22	非均質体系、14GWd/t 燃焼燃料の実効増倍率	3-51
図 3.3-23	均質体系、5wt%UO ₂ の収納容器直径別の実効増倍率	3-53
図 3.3-24	均質体系、3GWd/t 燃焼燃料の収納容器直径別の実効増倍率	3-53
図 3.3-25	非均質体系、5wt%UO ₂ の収納容器直径別の実効増倍率	3-54
図 3.3-26	非均質体系、3GWd/t 燃焼燃料の収納容器直径別の実効増倍率	3-54
図 3.3-27	非均質体系、14GWd/t 燃焼燃料の収納容器直径別の実効増倍率	3-54
図 3.3-28	天然バリア中でウランが濃集するイメージ図	3-57
図 3.3-29	多孔質媒体におけるウランの沈澱イメージと最小臨界重量	3-58
図 3.3-30	砂岩中に沈着するウランの臨界質量	3-58
図 3.3-31	ウラン濃集のイメージ	3-59
図 3.3-32	一次元核種移行解析の概要	3-59
図 3.3-33	人工バリア出口における核種移行フラックスの経時変化 (Case 1,6)	3-65
図 3.3-34	人工バリア出口における核種移行フラックスの経時変化 (Case 2, 4)	3-66
図 3.3-35	人工バリア出口における核種移行フラックスの経時変化 (Case 3)	3-67
図 3.3-36	人工バリア出口における核種移行フラックスの経時変化 (Case 5)	3-68
図 3.3-37	人工バリア出口における核種移行フラックスの経時変化 (Case 7)	3-69
図 3.3-38	濃集点におけるウラン核種の濃集量及び濃縮度の経時変化 (Case 1)	3-72
図 3.3-39	濃集点におけるウラン核種の濃集量及び濃縮度の経時変化 (Case 2)	3-72
図 3.3-40	濃集点におけるウラン核種の濃集量及び濃縮度の経時変化 (Case 3)	3-72
図 3.3-41	濃集点におけるウラン核種の濃集量及び濃縮度の経時変化 (Case 4)	3-73
図 3.3-42	濃集点におけるウラン核種の濃集量及び濃縮度の経時変化 (Case 5)	3-73
図 3.3-43	濃集点におけるウラン核種の濃集量及び濃縮度の経時変化 (Case 6)	3-73
図 3.3-44	濃集点におけるウラン核種の濃集量及び濃縮度の経時変化 (Case 7)	3-74
図 4.2-1	U 標準溶液の γ 線スペクトル	4-2
図 4.2-2	UO ₂ (OH) ₂ の溶解度曲線	4-3
図 4.2-3	溶媒抽出方法の模式図	4-5
図 4.2-4	遠心分離前の沈殿生成状況 (左からケース 1、2、3)	4-6
図 4.2-5	遠心分離前の沈殿生成状況 (左からケース 4、5、6)	4-7

図 4.2-6	液体シンチレーションカウンター測定結果 (ケース 1)	4-8
図 4.2-7	液体シンチレーションカウンター測定結果 (ケース 4)	4-9
図 4.3-1	砂岩の XRD パターン	4-10
図 4.3-2	収着時間と K_d の変化	4-13
図 4.3-3	砂岩及びその構成鉱物に対する Pu の K_d (ケース 1~4、A~F)	4-16
図 4.3-4	Pu のスペシエーション	4-16
図 4.3-5	表面水酸基のサイト濃度と pH の関係	4-17
図 5.2-1	人工バリア領域の状態変遷を解析し、核種移行解析および地下水流動解析の入力 データを提供するための評価体系	5-3
図 5.2-2	堆積岩サイトを想定した場合のリンケージ評価体系	5-4
図 5.3-1	緩衝材の劣化に係る評価モデルと解析コードの体系	5-6
図 5.3-2	アクリル製拡散セル	5-9
図 5.3-3	Na 型モンモリロナイトに対する Ca^{2+} イオンの K_d 値と平衡後の Na 濃度の関係	5-16
図 5.3-4	高濃度および低濃度側タンク内の Ca 濃度の経時変化 (実験値と計算値)	5-17
図 5.3-5	高濃度および低濃度側タンク内の Ca 濃度の経時変化 (計算に使用した K_d 値を 0.024 m ³ /kg とした場合、ケース 10)	5-20
図 5.3-6	分割試料中の Ca 濃度、Na 濃度、および Ca 型化率の分布	5-22
図 5.3-7	高濃度および低濃度側タンク内の Cl 濃度の経時変化 (実験値)	5-23
図 5.3-8	高濃度および低濃度側タンク内の Na 濃度の経時変化 (実験値)	5-24
図 5.3-9	高濃度および低濃度側タンク内の Cl 濃度の経時変化 (実験値と計算値の比較)	5-25
図 5.3-10	高濃度および低濃度側タンク内の Na 濃度の経時変化 (実験値と計算値の比較)	5-26
図 5.3-11	MC-BUFFER の処理フロー	5-30
図 5.3-12	拡散係数設定ファイルの形式	5-30
図 5.3-13	拡散係数設定ファイルの入力例	5-31
図 5.3-14	電荷バランスの調整方法概念図	5-32
図 5.3-15	計算体系概念図	5-33
図 5.3-16	3.0×10 ⁸ 秒後の元素濃度分布および pH 分布の計算結果と解析解の比較	5-34
図 5.4-1	地質環境の長期的変遷を考慮した連続的な解析の流れ	5-36
図 5.4-2	断層面補間手法	5-38
図 5.4-3	北海道北部、幌延地域における地形・地質構造の変遷	5-39
図 5.4-4	UANDD_PRE テスト計算結果	5-40
図 5.4-5	UANDD_TRANSNODE テスト計算結果	5-45
図 5.4-6	地層要素の堆積・侵食判定方法 (地層の圧縮・膨張を考慮する場合)	5-51
図 5.4-7	地層要素の堆積・侵食判定方法 (地層の圧縮・膨張を考慮しない場合)	5-52
図 5.4-8	テスト計算に使用した地質モデルと解析モデルの節点 (×印)	5-54
図 5.5-1	既存のソースタームモデルを用いた複数の廃棄物考慮解析概念図例	5-61
図 5.5-2	新たに整備したモデルを用いた複数の廃棄物考慮解析概念図例	5-61
図 6.2-1	解析体系概念図 (解析①: 発熱・セメント成分、解析②: 10 万年以降の設定)	6-2
図 6.2-2	解析体系概念図 (解析③: 海水成分)	6-3
図 6.2-3	オーバーパッカー緩衝材境界温度	6-4
図 6.2-4	緩衝材領域における経時変化分布 (地下水質による影響)	6-13

図 6.2-5	OP 近傍の緩衝材領域における経時変化分布（地下水質による影響）	6-13
図 6.2-6	緩衝材領域における経時変化分布（case1）	6-14
図 6.2-7	全領域における固相空間分布（case1）	6-15
図 6.2-8	全領域における液相空間分布（case1）	6-16
図 6.2-9	全領域における $K_w \cdot De \cdot \rho_m \cdot Eps$ 空間分布（case1）	6-17
図 6.2-10	緩衝材領域における経時変化分布（廃棄体からの発熱の影響）	6-19
図 6.2-11	OP 近傍の緩衝材領域における経時変化分布（廃棄体からの発熱の影響）	6-19
図 6.2-12	緩衝材領域における経時変化分布（セメント・MCCI 成分の影響）	6-22
図 6.2-13	OP 近傍の緩衝材領域における経時変化分布（セメント・MCCI 成分の影響）	6-22
図 6.2-14	緩衝材領域における経時変化分布（セメント・MCCI 成分の影響）	6-23
図 6.2-15	OP 近傍の緩衝材領域における経時変化分布（セメント・MCCI 成分の影響）	6-23
図 6.2-16	緩衝材領域における経時変化分布（セメント・MCCI 成分の影響）	6-24
図 6.2-17	OP 近傍の緩衝材領域における経時変化分布（セメント・MCCI 成分の影響）	6-24
図 6.2-18	緩衝材領域における経時変化分布（セメント・MCCI 成分の影響）	6-25
図 6.2-19	OP 近傍の緩衝材領域における経時変化分布（セメント・MCCI 成分の影響）	6-25
図 6.2-20	10 万年時を継続（左）、10 万年で性能喪失（右）のシナリオ	6-26
図 6.2-21	10 万年時を継続（左）、10 万年で性能喪失（右）のシナリオ	6-26
図 6.2-22	緩衝材領域における経時変化分布（海水成分の影響）	6-28
図 6.2-23	OP 近傍の緩衝材領域における経時変化分布（海水成分の影響）	6-28
図 6.2-24	各解析ケースにおける溶解度の経時変化（1/2）	6-32
図 6.2-25	各解析ケースにおける収着分配係数の経時変化（1/3）	6-34
図 6.2-26	10 万年以降の設定を継続/喪失としたときの	6-39
図 6.2-27	10 万年以降の設定を継続/喪失としたときの	6-42
図 6.2-28	10 万年以降の設定を継続/喪失としたときの	6-44
図 6.2-29	各解析ケースの核種移行フラックス（case1、case8）（1/2）	6-50
図 6.2-30	各解析ケースの核種移行フラックス（case6、12）（1/2）	6-52
図 6.2-31	各解析ケースの核種移行フラックス（case7）	6-54
図 6.2-32	case1、case8、case12 の Pu の溶解度の経時変化	6-55
図 6.3-1	燃料マトリクスに対する溶解速度の時間変化設定	6-59
図 6.3-2	4n 系列核種の HLW と燃料デブリの解析結果	6-67
図 6.3-3	4n+1 系列核種の HLW と燃料デブリの解析結果	6-68
図 6.3-4	4n+2 系列核種の HLW と燃料デブリの解析結果	6-69
図 6.3-5	4n+3 系列核種の HLW と燃料デブリの解析結果	6-70
図 6.3-6	FP 核種等の HLW と燃料デブリの解析結果	6-71
図 6.3-7	燃料デブリのみに含まれる FP 核種の解析結果	6-72
図 6.3-8	浸出速度をパラメータとした場合の核種移行フラックスの経時変化	6-74
図 6.3-9	浸出速度に対する最大フラックスの比較	6-76
図 6.3-10	瞬時放出割合に対する最大フラックスの比較	6-77
図 6.3-11	OP 破損時期に対する最大フラックスの比較	6-77
図 6.3-12	元素依存パラメータ（溶解度、拡散係数、分配係数）に対する 最大フラックス比較	6-78
図 6.3-13	緩衝材厚さに対する最大フラックスの比較	6-78
図 6.4-1	処分システムに対し考慮すべき地質・気候関連事象	6-82

図 6.4-2	気候・海水準変動および隆起・侵食に対する影響評価体系.....	6-82
図 6.4-3	3次元地形変化シミュレーションの試行範囲.....	6-83
図 6.4-4	3次元地形変化シミュレーションの手順とデータの流れ.....	6-84
図 6.4-5	3次元地形変化シミュレーションのメッシュモデル.....	6-85
図 6.4-6	シミュレーションの基本概念.....	6-85
図 6.4-7	陸域および海域の標高データ（100 m メッシュ DEM）.....	6-88
図 6.4-8	基盤地質データ.....	6-88
図 6.4-9	隆起速度分布データ.....	6-89
図 6.4-10	地質係数と P 波速度の関係 ⁽⁵⁾⁰	6-89
図 6.4-11	基盤地質の地質係数.....	6-90
図 6.4-12	沖積層厚さ分布データ.....	6-90
図 6.4-13	選定した 4 種類の海水準変動シナリオの年代位置.....	6-91
図 6.4-14	氷期・間氷期 1 サイクルによる表層地質と海岸線の変化.....	6-92
図 6.4-15	12.5 万年間の標高変化量.....	6-93
図 6.4-16	海水準変動の設定.....	6-94
図 6.4-17	地下水流動解析の流れ.....	6-95
図 6.4-18	遠浅／急峻モデルに対応する領域.....	6-95
図 6.4-19	遠浅／急峻モデルに対する断面方向.....	6-96
図 6.4-20	遠浅／急峻モデルに対応する 2 次元断面の選定位置.....	6-97
図 6.4-21	地表面標高の経時変化（遠浅モデル）.....	6-97
図 6.4-22	地表面標高の経時変化（遠浅モデル）.....	6-98
図 6.4-23	房総半島における対象断面位置（赤線）と既往反射測線.....	6-99
図 6.4-24	東京湾-房総半島-九十九里沖の反射法探査断面（東西断面）.....	6-99
図 6.4-25	房総半島海域における地質平面図および断面図.....	6-100
図 6.4-26	九十九里断面編集図.....	6-101
図 6.4-27	鴨川断面編集図（凡例は図 6.4-26 と同じ）.....	6-101
図 6.4-28	解析領域（遠浅モデル）（背景：地質分布（色区分は表 6.4-4 に準拠））.....	6-103
図 6.4-29	解析に使用したメッシュ（遠浅モデル）.....	6-103
図 6.4-30	解析領域（急峻モデル）（背景：地質分布（色区分は表 6.4-4 に準拠））.....	6-103
図 6.4-31	解析に使用したメッシュ（急峻モデル）.....	6-103
図 6.4-32	房総半島の涵養量に関する評価例.....	6-104
図 6.4-33	過去 8 万年間の年間降水量の変化と涵養量（推定値）の変化.....	6-105
図 6.4-34	境界条件（地下水流動解析）.....	6-106
図 6.4-35	境界条件（物質移行解析）.....	6-106
図 6.4-36	九十九里周辺の地下水分布（青○～赤○：淡水，赤●：塩水）.....	6-107
図 6.4-37	鴨川付近の地下水分布（青○～赤○：淡水，赤●：塩水）.....	6-107
図 6.4-38	現在（0 年）の全水頭（密度を考慮）（遠浅モデル）.....	6-108
図 6.4-39	現在（0 年）の流速分布（遠浅モデル）.....	6-108
図 6.4-40	現在（0 年）の塩分濃度分布（遠浅モデル）.....	6-108
図 6.4-41	現在（0 年）の全水頭（密度を考慮）（急峻モデル）.....	6-108
図 6.4-42	現在（0 年）の流速分布（急峻モデル）.....	6-108
図 6.4-43	現在（0 年）の塩分濃度分布（急峻モデル）.....	6-108
図 6.4-44	塩淡境界付近での流れ方向.....	6-109

図 6.4-45	塩分濃度分布の経時変化（遠浅モデル：亜氷期を考慮した海水準変動）	6-110
図 6.4-46	塩分濃度分布の経時変化（遠浅モデル：亜氷期を考慮した海水準変動）	6-111
図 6.4-47	地形変化に伴う淡水化への影響	6-112
図 6.4-48	塩分濃度分布の経時変化（急峻モデル：亜氷期を考慮した海水準変動）	6-113
図 6.4-49	塩分濃度分布の経時変化（急峻モデル：平均化した海水準変動）	6-114
図 6.4-50	処分場の想定位置（遠浅モデル）	6-115
図 6.4-51	処分場の想定位置（急峻モデル）	6-115
図 6.4-52	処分場からの移行経路（1 / 2）（遠浅モデル：亜氷期を考慮した海水準変動）	6-116
図 6.4-53	処分場からの移行経路（2 / 2）（遠浅モデル：亜氷期を考慮した海水準変動）	6-117
図 6.4-54	処分場からの移行距離（遠浅モデル：亜氷期を考慮した海水準変動）	6-118
図 6.4-55	処分場からの平均流速（遠浅モデル：亜氷期を考慮した海水準変動）	6-118
図 6.4-56	処分場からの移行経路（1 / 2）（急峻モデル：亜氷期を考慮した海水準変動）	6-119
図 6.4-57	処分場からの移行経路（2 / 2）（急峻モデル：亜氷期を考慮した海水準変動）	6-120
図 6.4-58	処分場からの移行距離（急峻モデル：亜氷期を考慮した海水準変動）	6-121
図 6.4-59	処分場からの平均流速（急峻モデル：亜氷期を考慮した海水準変動）	6-121
図 6.4-60	亜氷期を考慮した海水準変動と平均化した海水準変動の比較（遠浅モデル）	6-122
図 6.4-61	亜氷期を考慮した海水準変動と平均化した海水準変動の比較（急峻モデル）	6-122
図 6.4-62	海水準変動のモデル化による平均流速の違い	6-123
図 6.4-63	海水準変動のモデル化による移行距離の違い	6-123
図 6.4-64	人工バリア出口フラックスの各経路への割り当て方法	6-127
図 6.4-65	移行距離（急峻モデル、陸側 800m）	6-127
図 6.4-66	移行距離（急峻モデル、海側 700m）	6-128
図 6.4-67	移行距離（遠浅モデル、陸側 500m）	6-128
図 6.4-68	移行距離（遠浅モデル、海側 500m）	6-129
図 6.4-69	1本あたりの人工バリア出口フラックス（ $4n+2$ 系列）	6-130
図 6.4-70	1本あたりの人工バリア出口フラックス（Se-79 および Cs-135）	6-130
図 6.4-71	1本あたりの天然バリア出口フラックス（急峻モデル、陸側 800m、 $4n+2$ 系列）	6-131
図 6.4-72	1本あたりの天然バリア出口フラックス （急峻モデル、陸側 800m、Se-79 および Cs-135）	6-132
図 6.4-73	1本あたりの天然バリア出口フラックス （急峻モデル、海側 700m、 $4n+2$ 系列）	6-132
図 6.4-74	1本あたりの天然バリア出口フラックス （急峻モデル、海側 700m、Se-79 および Cs-135）	6-132
図 6.4-75	経路別の1本あたりの天然バリア出口フラックス （急峻モデル、海側 700m、 $4n+2$ 系列）	6-133
図 6.4-76	経路別の1本あたりの天然バリア出口フラックス （急峻モデル、海側 700m、Se-79 および Cs-135）	6-134
図 6.4-77	1本あたりの天然バリア出口フラックス （遠浅モデル、陸側 500m、 $4n+2$ 系列）	6-135
図 6.4-78	1本あたりの天然バリア出口フラックス （遠浅モデル、陸側 500m、Se-79 および Cs-135）	6-136
図 6.4-79	1本あたりの天然バリア出口フラックス （遠浅モデル、海側 500m、 $4n+2$ 系列）	6-136

図 6.4-80 1本あたりの天然バリア出口フラックス
(遠浅モデル、海側 500m、Se-79 および Cs-135)6-136

表目次

	頁
表 1.3-1 1F 燃料デブリの 50 年後の放射性核種量 (Ver.1)	1-4
表 1.3-2 1F 廃棄体容器の仕様 (Ver.1)	1-5
表 1.3-3 燃料デブリの発熱量 (Ver.1)	1-5
表 1.3-4 1F 燃料デブリの 50 年後の放射性核種量 (H27)	1-8
表 1.3-5 1F 廃棄体容器の仕様 (H27)	1-9
表 1.3-6 燃料デブリの発熱量 (H27)	1-9
表 1.3-7 緩衝材の性能が喪失した状態における設定.....	1-12
表 1.3-8 処分孔竖置き方式、横置き方式における処分坑道、廃棄体の間隔.....	1-13
表 1.3-9 濃集量評価のためのケース設定.....	1-19
表 1.3-10 解析ケース一覧 (①発熱、セメント成分)	1-32
表 1.3-11 解析ケース一覧 (②10 万年以降の設定)	1-33
表 1.3-12 解析ケース一覧 (③海水成分)	1-33
表 1.3-13 人工バリア変遷シナリオ対象ケース (1)	1-39
表 1.3-14 人工バリア変遷シナリオ対象ケース (2)	1-39
表 1.3-15 10 万年以降の設定の変更により OP 破損時間毎の人工バリアからのフラックス 経時変化の特徴.....	1-41
表 1.3-16 10 万年以降の設定の違いによる OP 破損時間毎の人工バリアからのフラックス 経時変化の特徴.....	1-42
表 1.3-17 発熱、セメント成分の影響による人工バリアからのフラックス経時変化の特徴.....	1-43
表 1.3-18 感度解析ケースとパラメータ設定条件.....	1-46
表 2.3-1 1F 炉心条件と炉内燃料の照射履歴推定	2-2
表 2.3-2 1F 燃料デブリの 50 年後の放射性核種量 (Ver.1)	2-3
表 2.3-3 燃料デブリの発生量と分布 (Ver.1)	2-4
表 2.3-4 1F 廃棄体容器の仕様 (Ver.1)	2-6
表 2.3-5 燃料デブリの発熱量 (Ver.1)	2-8
表 2.4-1 デブリへの核種移行率 (H27)	2-11
表 2.4-2 1F 燃料デブリの 50 年後の放射性核種量 (H27)	2-12
表 2.4-3 ジルカロイ (Zry) 部材の初期表面積と質量 (H27)	2-13
表 2.4-4 原子炉圧力容器からの燃料デブリの落下割合 (H27)	2-14
表 2.4-5 燃料デブリの発生量と分布 (H27)	2-15
表 2.4-6 1F 廃棄体容器の仕様 (H27)	2-16
表 2.4-7 燃料デブリの発熱量 (H27)	2-26
表 3.2-1 ガラス固化体に関する安全性への影響の可能性および相関の判定 (HLW)	3-4
表 3.2-2 オーバーパックに関する安全性への影響の可能性および相関の判定 (HLW)	3-5
表 3.2-3 緩衝材に関する安全性への影響の可能性および相関の判定 (HLW)	3-6
表 3.2-4 核種インベントリ	3-8
表 3.2-5 解析ケース一覧.....	3-8
表 3.2-6 緩衝材の性能が喪失した状態における設定.....	3-13
表 3.2-7 処分孔竖置き方式、横置き方式における処分坑道、廃棄体の間隔.....	3-16

表 3.3-1	デブリの物質組成 (SAMPSON による解析結果)	3-23
表 3.3-2	MCNP の計算で用いた各媒体の組成	3-24
表 3.3-3	水を含まない緩衝材の物質組成	3-25
表 3.3-4	廃棄体 1 個あたりの光子放出量(photon/sec)	3-26
表 3.3-5	廃棄体 1 個あたりの中性子放出量(neutron/sec)	3-26
表 3.3-6	G 値一覧	3-27
表 3.3-7	金属腐食の反応 (安藤ほか、2005)	3-30
表 3.3-8	評価で用いた金属の腐食速度	3-30
表 3.3-9	胴の計算厚さから求めた設計圧力	3-35
表 3.3-10	OP 破損後までを含めた OP 外側でのガス発生速度の内訳と合計値	3-38
表 3.3-11	地下応力条件と拡散係数をパラメータとしたときの単位長さあたりの溶存水素ガス フラックスと溶存水素ガスの拡散移行速度	3-39
表 3.3-12	燃料集合体 1 体あたりの濃縮度分布	3-46
表 3.3-13	直近取替燃料の本数及び燃焼度	3-46
表 3.3-14	3GWd/t 燃料の原子個数密度(単位: atoms/barn · cm)	3-48
表 3.3-15	炭素鋼の原子個数密度	3-49
表 3.3-16	未臨界を維持できる容器直径のまとめ	3-55
表 3.3-17	砂岩の鉱物組成	3-57
表 3.3-18	1F 仮想燃料デブリ収納容器 1 本あたりの初期放射能インベントリ	3-60
表 3.3-19	濃集量評価のためのケース設定	3-61
表 3.3-20	各バリアにおける間隙率、地下水流速及び拡散係数	3-61
表 3.3-21	天然バリア中地下水及び人工バリア間隙水中の水質組成	3-62
表 3.3-22	各水質に基づく元素別溶解度	3-62
表 3.3-23	人工バリアの分配係数	3-63
表 3.3-24	天然バリア (濃集点を含む) の分配係数	3-63
表 3.3-25	濃集点におけるウラン核種の濃集量及び濃縮度の時間変化のまとめ	3-74
表 4.2-1	U(+6)の水酸化物錯体 ((UO ₂) _m (OH) _n ^{2m-n}) の生成定数 (25°C、I=0)	4-3
表 4.2-2	U 沈殿生成試験条件	4-5
表 4.2-3	ICP-MS 測定による U-238 の濃度分析結果 (ケース 1)	4-8
表 4.2-4	ICP-MS 測定による U-238 の濃度分析結果 (ケース 4~6)	4-9
表 4.3-1	砂岩及びその構成鉱物の粒径と比表面積	4-11
表 4.3-2	Pu の収着試験溶液条件	4-12
表 4.3-3	収着平衡時間確認試験結果 (ケース 1~4)	4-13
表 4.3-4	Pu と砂岩及び鉱物の収着試験結果 (ケース A~F)	4-15
表 5.3-1	透過拡散試験ケース	5-7
表 5.3-2	収着バッチ試験ケース	5-8
表 5.3-3	収着バッチ試験結果および導出した収着分配係数 <i>Kd</i> 値	5-16
表 5.3-4	Ca ²⁺ イオンの透過拡散試験を模擬した計算に使用したパラメータ	5-18
表 5.3-5	各ケースで計算されたモンモリロナイト試料中 Ca 濃度の初期値 (高濃度側)	5-20
表 5.3-6	計算ケース	5-31
表 5.4-1	地質タイムステップの補間・地層要素分割設定	5-38

表 5.4-2	解析モデル各要素に適用する地層要素および断層の物性値パラメータ	5-41
表 5.4-3	テストデータの設定	5-52
表 5.4-4	各節点における圧力水頭値	5-53
表 5.5-1	モデル毎の出力項目	5-60
表 6.2-1	代表地下水組成	6-5
表 6.2-2	鉱物モデル (1/2)	6-6
表 6.2-3	解析ケース一覧 (①発熱、セメント成分)	6-10
表 6.2-4	解析ケース一覧 (②10 万年以降の設定)	6-10
表 6.2-5	解析ケース一覧 (③海水成分)	6-11
表 6.2-6	人工バリア変遷シナリオ対象ケース (1)	6-29
表 6.2-7	人工バリア変遷シナリオ対象ケース (2)	6-29
表 6.2-8	拡散係数の設定値	6-33
表 6.2-9	10 万年以降の設定の違いによる OP 破損時間毎の	6-46
表 6.2-10	10 万年以降の設定の変更により OP 破損時間毎の	6-47
表 6.2-11	発熱、セメント成分の影響による人工バリアからのフラックス経時変化の特徴	6-55
表 6.3-1	HLW 及び燃料デブリ 1 本あたりの放射能インベントリ	6-56
表 6.3-2	燃料デブリ中の構造材金属と燃料成分に対する瞬時放出と溶解律速の割合	6-58
表 6.3-3	構造材金属の浸出率設定	6-59
表 6.3-4	標準ケースに適用した人工バリア関連パラメータ (HLW)	6-60
表 6.3-5	元素別溶解度	6-61
表 6.3-6	緩衝材中の実効拡散係数	6-62
表 6.3-7	緩衝材中の分配係数	6-63
表 6.3-8	第 2 次取りまとめのレファレンスケースにおける母岩および断層中での核種移行解析のデータ ⁽¹⁵⁾	6-64
表 6.3-9	天然バリア中の実効拡散係数	6-65
表 6.3-10	天然バリア中の分配係数	6-66
表 6.3-11	感度解析ケースとパラメータ設定条件	6-73
表 6.3-12	感度解析結果のまとめ (人工バリア出口フラックスへの影響)	6-80
表 6.3-13	感度解析結果のまとめ (天然バリア出口フラックスへの影響)	6-80
表 6.4-1	シミュレーションで使用するパラメータ	6-87
表 6.4-2	選定した 4 種類の海水準変動シナリオ	6-91
表 6.4-3	解析ケース	6-94
表 6.4-4	水理定数	6-104
表 6.4-5	将来の涵養量変化の設定値	6-105
表 6.4-6	房総半島の地下水組成	6-125
表 6.4-7	房総半島の地質	6-125

1. 序論

1. 序論

1.1 まえがき

原子力規制委員会原子力規制庁（以下「規制庁」という。）は、東京電力株式会社福島第一原子力発電所（以下「1F」という。）事故によって発生した燃料デブリの処理・処分に係る規制要件の整備に向け、これまでのガラス固化体等の地層処分（以下「地層処分」という。）を対象として蓄積された知見を基礎として、デブリの性状等を考慮した新たな技術的知見を蓄積する必要がある。

本事業では、地層処分分野の規制庁委託事業においてこれまで開発してきた総合的安全評価手法を用い、現時点での情報に基づく燃料デブリの処分を想定した安全評価解析を試行することにより、燃料デブリ処分の際の留意点及び避けるべき要素（処分時の影響が著しく大きい核種及び廃棄体特性、回避すべき地質環境等）並びに処理における要求事項を抽出するため、以下に示す業務を行う。

- (1) 燃料デブリ諸性状の調査に基づく仮想燃料デブリの設定
- (2) 燃料デブリ固有の特性を踏まえたシナリオ設定及び予察的解析
- (3) 核種移行データの取得
- (4) 総合的な安全評価コード・モデルの整備
- (5) 燃料デブリ処分時の評価に対応した総合的安全評価手法の整備

1.2 実施内容

(1) 燃料デブリ諸性状の調査に基づく仮想燃料デブリの設定

1F1号機～3号機に残存する燃料デブリの発生状況や物理・化学的性状に関する既往の情報を整理し、総合的安全評価解析を進める上で必要となる燃料デブリの諸条件を推定し「仮想デブリ」として設定した。

燃料デブリの性状に関する調査においては、国内において模擬デブリ制作実績のある日本原子力研究開発機構、東京電力株式会社等、燃料デブリに関する知見を多く有すると考えられる者からの情報を調査対象とした。また、米国スリーマイル島原子力発電所事故により生じた燃料デブリに関する情報についても、1F事故との違いを考慮しつつ、必要に応じ調査対象とした。

「仮想デブリ」設定のための燃料デブリの条件としては、インベントリ、発生量、幾何学形態、化学形態、発熱量等とし、推定に当たってはこれらの条件に係る不確実性を含めて検討を行うものとした。その際、燃料ペレットと炉内構造材との混合を伴う溶結、溶結体と海水成分・下部セメント成分等との反応を考慮した。

(2) 燃料デブリ特有の特性を踏まえたシナリオ設定及び予察的解析

従来の地層処分との違いという観点から、以下に示す7つの特性・事象について国内外の既往の情報（諸外国における直接処分の既往研究の情報を含む）に基づく調査・検討を行った。また、容器内外での臨界の発生に対しては、予察的解析等による定量的な検討を行い、(3)における評価手法の整備・改良結果を適宜フィードバックしつつ、仮想デブリの処分において安全性への影響が懸念される特性及びその影響の連鎖（シナリオ）を抽出した。さらに、それらの影響が懸念される特性及びシナリオに対し、実験的及び解析的な方法論における課題を分析した。

【本項目で調査・対象とする特性・事象】

- ・廃棄体からの発熱
- ・仮想デブリからの核種溶出
- ・放射線による人工バリア材の劣化
- ・水の放射線分解等によるガス発生
- ・海水成分、セメント成分等の溶出による処分環境への化学的影響
- ・容器内外での臨界の発生
- ・処分場閉鎖後 10 万年以上の長期にわたる人工バリアの変質挙動

(3) 核種移行データの取得

核種移行特性については、核燃料元素である U および Pu を対象として、処分環境を考慮した環境での分配係数データ取得に関する予備的な試験を実施した。U については、地下の還元環境において安定な U(IV)の放射性保存液の調整方法を検討し、分配係数データ取得に資した。Pu については、砂岩に含まれる粘土鉱物を対象とした収着試験を実施して分配係数データを取得するとともに、砂岩及び粘土鉱物に対する収着挙動のモデル化のための検討を行った。

(4) 総合的な安全評価コード・モデルの整備

地層処分分野における原子力規制庁の委託事業では、平成 26 年度までに廃棄体・人工バリアの挙動モデル及び物質移行－変質連成解析コードの開発・整備、地質・気候関連事象が処分環境中の特性変化に与える影響評価のためのモデル・コードを整備してきた。

本項目では燃料デブリの処理に関する要求事項を抽出するため、現在我が国の地層処分で想定されている人工バリア概念（オーバーパック及び緩衝材）に基づき、緩衝材劣化に係る現象（特に、緩衝材中におけるイオン種の拡散）に関して、処分環境を想定した拡散試験等を実施し、実験的及び理論的な科学的根拠を有するモデルを整備した。さらに、燃料デブリ廃棄体による緩衝材への影響を考慮可能とするため、物質移行－変質連成解析コードへの上記モデルの導入等の機能拡張を行った。

また、地質・気候関連事象の発生による影響評価のためのモデル・コードの整備として、長期的な地質環境の変化による地下水流動への影響を連続的に評価するための機能拡張を行った。さらに、核種移行・線量評価コードに対して燃料デブリに特有の特性を踏まえたコードの拡張を行い、総合的な安全評価コードの整備を実施した。

(5) 総合的な核種移行評価手法の整備

本項目では、(4)において整備した地質・気候関連事象の発生による影響評価のためのモデル・コードと廃棄体・人工バリアに係る挙動モデル・コード及び核種移行・線量評価コードとのリンケージの方法論を検討し、総合的な安全評価手法としての拡張・整備を行った。

また、(1)の性状調査結果を踏まえた廃棄物の条件における主要な核種を対象に、仮想デブリ及びガラス固化体を仮想的な堆積岩地域に処分した場合の安全評価解析を実施し、その解析結果の比較から燃料デブリの処分の安全性を著しく損なう可能性のある地質環境及び人工バリアの設計を含む条件や事象を抽出した。この際、燃料デブリに対する人工バリアの構成及び設計は既存のガラス固化体処分の場合と同様とし、処分環境の条件は平成 25 年度及び 26 年度の規制庁委託事業「地層処分の安全審査に受けた評価手法の整備」における内容を基本として設定した。

1.3 成果概要

1.3.1 燃料デブリ諸性状の調査に基づく仮想燃料デブリの設定

仮想的な燃料デブリの処分を想定し、処分の安全評価試解析のため廃棄体に関する条件を7月末までに「仮想燃料デブリ Ver.1」として設定し、その後も調査を継続し最終的に平成27年度末までに廃棄体に関する条件を「仮想燃料デブリ H27」として再設定した。

(1) 仮想燃料デブリ Ver.1 の設定

1F燃料デブリについて、「仮想燃料デブリ Ver.1」を次の通り設定した。

1) インベントリ

- ・ 50年後の放射性核種量 : 表 1.3-1
(I と Cs については、全量の40%がデブリへ移行すると仮定)
- ・ 1号機～3号機の総ウラン量 : 257 Ton
- ・ ²³⁵U 平均濃縮度 : 3.7 wt %

2) 発生量 (廃棄体容器の仕様は、表 1.3-2 参照)

- ・ 燃料デブリの総発生量 : 670 Ton
- ・ 廃棄体容器の数量 : 4,139 本 (平均ウラン装荷量 62.09 kg)
- ・ 燃料デブリ質量/容器 : 162 kg (≒ 670 Ton ÷ 4,139 本)

3) 幾何学形態

- ・ 廃棄体容器の外寸 : φ 355.6 mm × 1,350 mm
- ・ 最大燃料デブリ寸法 : < φ 345.6 mm × L 867.4 mm
- ・ 燃料デブリの形態 : 小石状、塊状、切株状、MCCI 生成物

4) 化学形態

- ・ 酸化物相 : (U, Zr) O₂ or U₃O₈
- ・ 金属相 : Zr (O) or Fe₂(Zr, U)
- ・ MCCI 生成物 : (U, Zr) O₂ (U, Zr) SiO₄ CaAl₂Si₂O₈, CaSiO₃

5) 発熱量

- 50年後の廃棄体の最大発熱量 : 42 W/廃棄体容器 (表 1.3-3 参照)

表 1.3-1 1F燃料デブリの50年後の放射性核種量 (Ver.1) ⁽¹⁾⁽²⁾

分類	核種 ⁽²⁾	原子炉压力容器内				廃棄体容器		
		1号機 ⁽¹⁾ (GBq)	2号機 ⁽¹⁾ (GBq)	3号機 ⁽¹⁾ (GBq)	炉内合計 (GBq)	移行率	最大U装荷 (kg)	1基当り (GBq)
4N 系列	Pu-240	8.89E+05	1.04E+06	1.36E+06	3.29E+06	1.00	114.9	1.47E+03
	U-236	5.80E+02	7.17E+02	6.85E+02	1.98E+03	1.00	114.9	8.86E-01
	Th-232	1.54E-06	1.84E-06	1.76E-06	5.14E-06	1.00	114.9	2.30E-09
4N+1 系列	Cm-245	3.08E+02	3.61E+02	2.90E+02	9.59E+02	1.00	114.9	4.29E-01
	Pu-241	2.01E+07	2.53E+07	2.84E+07	7.38E+07	1.00	114.9	3.30E+04
	Am-241	6.93E+06	8.48E+06	9.56E+06	2.50E+07	1.00	114.9	1.12E+04
	Np-237	6.08E+02	7.35E+02	6.97E+02	2.04E+03	1.00	114.9	9.12E-01
	U-233	1.44E-01	1.72E-01	1.63E-01	4.79E-01	1.00	114.9	2.14E-04
4N+2 系列	Th-229	8.14E-04	6.43E-04	6.13E-04	2.07E-03	1.00	114.9	9.25E-07
	Cm-246	5.06E+01	5.86E+01	4.46E+01	1.54E+02	1.00	114.9	6.88E-02
	Am-242m	1.85E+04	1.40E+04	1.78E+04	5.03E+04	1.00	114.9	2.25E+01
	Pu-242	2.85E+03	3.41E+03	3.96E+03	1.02E+04	1.00	114.9	4.57E+00
	Pu-238	3.44E+06	3.42E+06	4.11E+06	1.10E+07	1.00	114.9	4.90E+03
	U-238	8.12E+02	1.11E+03	1.11E+03	3.03E+03	1.00	114.9	1.36E+00
	U-234	6.45E+02	6.33E+02	9.37E+02	2.22E+03	1.00	114.9	9.90E-01
	Th-230	1.66E-01	1.61E-01	2.73E-01	6.00E-01	1.00	114.9	2.68E-04
4N+3 系列	Ra-226	1.31E-03	1.26E-03	2.38E-03	4.95E-03	1.00	114.9	2.21E-06
	Pb-210	4.12E-04	3.90E-04	7.87E-04	1.59E-03	1.00	114.9	7.10E-07
	Am-243	2.51E+04	2.96E+04	2.84E+04	8.31E+04	1.00	114.9	3.72E+01
	Pu-239	7.07E+05	8.94E+05	1.05E+06	2.65E+06	1.00	114.9	1.19E+03
	U-235	8.89E+01	1.36E+02	1.35E+02	3.60E+02	1.00	114.9	1.61E-01
非系列	Pa-231	1.01E-01	1.49E-01	1.48E-01	3.98E-01	1.00	114.9	1.78E-04
	Ac-227	5.25E-02	7.63E-02	7.59E-02	2.05E-01	1.00	114.9	9.15E-05
	Se-79	7.40E+01	9.04E+01	8.57E+01	2.50E+02	1.00	114.9	1.12E-01
	Zr-93	3.72E+03	4.54E+03	4.30E+03	1.26E+04	1.00	114.9	5.62E+00
	Sr-90	4.48E+07	5.72E+07	5.41E+07	1.56E+08	1.00	114.9	6.98E+04
	Nb-93m	3.18E+03	3.86E+03	3.65E+03	1.07E+04	1.00	114.9	4.78E+00
	Nb-94	2.75E-01	3.78E-01	3.48E-01	1.00E+00	1.00	114.9	4.47E-04
	Tc-99	2.71E+04	3.34E+04	3.15E+04	9.20E+04	1.00	114.9	4.11E+01
	Pd-107	1.90E+02	2.27E+02	2.13E+02	6.30E+02	1.00	114.9	2.82E-01
	Sn-126	1.23E+03	1.48E+03	1.40E+03	4.11E+03	1.00	114.9	1.84E+00
	I-129	6.20E+01	7.51E+01	7.10E+01	2.08E+02	0.40	114.9	3.72E-02
	Cs-135	1.05E+03	1.14E+03	1.10E+03	3.29E+03	0.40	114.9	5.88E-01
Cs-137	6.39E+07	8.06E+07	7.61E+07	2.21E+08	0.40	114.9	3.95E+04	
Sm-151	4.66E+05	6.11E+05	6.25E+05	1.70E+06	1.00	114.9	7.61E+02	
C-14	2.01E+02	2.43E+02	2.28E+02	6.72E+02	1.00	114.9	3.00E-01	

1F 廃棄体容器は、次の3点を想定して設定した。

- ①米国スリーマイル島原子力発電所（以下「TMI-2」と称す）事故の際使用された破損燃料容器（キャニスター）と同様に、破砕燃料デブリを直接収納することを想定した。
- ②TMI-2 キャニスターに設置されている上下部のデブリ捕獲機構や、水素ガス対策の為にベント機構を有する非密封構造となることを想定した。
- ③深地層処分時の人工バリアの構成及び設計は既存のガラス固化体処分の場合と同様にすることを想定した。

表 1.3-2 1F 廃棄体容器の仕様 (Ver.1) ⁽³⁾⁽⁴⁾

	1F 廃棄体容器 (Ver.1)	TMI-2 ⁽³⁾	人工バリア ⁽⁴⁾
キャニスター (容器) サイズ	直径 355.6 mm 高さ 1,350 mm 装荷有効高さ 867.4 mm	355.6 mm 3,803.65 mm 3,321.05 mm	440 mm 1,350 mm
ウラン量 (最大)	114.9 kg/容器	441.9 kg/容器	
ウラン量 (平均)	62.09 kg/容器	238.82 kg/容器	
ウラン量 (総量)	69 + 94 + 94 = 257 Ton	81.437 Ton	
容器数	4,139 本	341 本	4 万本 (2020 年分まで)

表 1.3-3 燃料デブリの発熱量 (Ver.1) ⁽¹⁾

経過 年数	原子炉圧力容器内				廃棄体容器		
	1号機 ⁽¹⁾	2号機 ⁽¹⁾	3号機 ⁽¹⁾	炉内合計 (W)	移行率	最大 U 装荷 (kg)	1 基当り (W)
0	8.67E+07	1.50E+08	1.49E+08	3.86E+08	1.00	114.9	1.72E+05
10	5.50E+04	6.86E+04	6.68E+04	1.90E+05	1.00	114.9	85
20	4.40E+04	5.44E+04	5.37E+04	1.52E+05	1.00	114.9	68
50	2.70E+04	3.30E+04	3.38E+04	9.38E+04	1.00	114.9	42
100	1.46E+04	1.77E+04	1.91E+04	5.14E+04	1.00	114.9	23

(2) 仮想燃料デブリ H27 の設定

1F 燃料デブリについて、「仮想燃料デブリ H27」を次の通り設定した。

1) インベントリ

- ・ 50 年後の放射性核種量 : 表 1.3-4
(炉内からデブリへの核種移行率を I は 42%、Cs は 40%、Sr は 90% と仮定)
- ・ 1 号機～3 号機の総ウラン量 : 257 Ton
- ・ ²³⁵U 平均濃縮度 : 3.7 wt %
- (参考) Zry 部材の初期総表面積 : 38,741 m² (3.96 m² / 廃棄体容器)
- 初期総質量 : 146 Ton (14.9 kg / 廃棄体容器)

2) 発生量 (廃棄体容器の仕様は、表 1.3-5 参照)

- ・ 燃料デブリの総発生量 : 670 Ton

- (内訳) 炉内構造物起因デブリ重量 : 530 Ton
 海水起因難溶性・不溶性沈殿物重量 : 80 Ton
 反応コンクリート重量 : 60 Ton
- ・廃棄体容器の数量 : 9,772 本 (平均ウラン装荷量 26.3 kg)
 (臨界評価(形状管理)要求より、廃棄体の直径を 225mm に再設定した。)
 - ・燃料デブリ質量(平均値) / 容器 : 68.6 kg (≒ 670 Ton ÷ 9,772 本)

3) 幾何学形態

- ・TMI-2 燃料キャニスター仕様模擬 1F 廃棄体容器内
 塊状切断物 : 小石状、塊状、切株状、溶融固化物状
 形 状 : 球体の場合 (< S φ 225 mm)
 円柱体の場合 (< φ 225 mm × L 857 mm)
 直方体の場合 (< □ 159 mm × L 857 mm)
- ・TMI-2 ノックアウトキャニスター仕様模擬 1F 廃棄体容器内
 フィルター捕獲物 : 砂状～小石状 (140 μ m～ペレット)
- ・TMI-2 フィルターキャニスター仕様模擬 1F 廃棄体容器内
 フィルター捕獲物 : 微細粒子状 (0.5～800 μ m)

4) 化学形態

圧力容器内

- ・酸化物 : UO_2 、 U_3O_8 、 $(\text{U}, \text{Zr})\text{O}_2$
- ・炭化物 : B_4C 、 ZrC
- ・金属 : Zr 、 $\text{Zr}(\text{O})$ 、 Fe 、 $\text{Fe}_2(\text{Zr}, \text{U})$
- ・制御棒との反応物質 : $(\text{Fe}, \text{Cr}, \text{Ni})_2\text{B}$ 、 ZrB_2
- ・海水塩との反応物質 : $(\text{Ca}, \text{Na})\text{UO}_{4-x}$

格納容器内

- ・MCCI 生成物(酸化物) : $(\text{U}, \text{Zr})\text{O}_2 + \text{SiO}_2$ 、 Fe_2O_3
- ・MCCI 生成物(ケイ酸塩) : $(\text{U}, \text{Zr})\text{SiO}_4$
- ・MCCI 生成物(コンクリート部) : $\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ 、 CaSiO_3

5) 発熱量

50 年後の廃棄体の最大発熱量 : 19.5 W / 廃棄体容器 (表 1.3-6 参照)

6) 留意事項

① 燃料デブリ外寸について

TMI-2 キャニスターの臨界評価では、中性子吸収材の装着による評価がなされているが⁽⁵⁾、1F 廃棄体容器では装着を想定せずに臨界評価を行い、直径を決定した。今後色々な観点から検討が行われ、それを反映した仮想燃料デブリの設定の見直しが行われることが望ましい。また高さについても、本研究では処分場の設計をガラス固化体の場合から大きく変えないようにするためにキャニスターの外寸高さをガラス固化体に合わせた。必ずしもそうする必要はなく、今後設定の見直しが行われることが望ましい。

② 廃棄体中の水分量について

TMI-2 キャニスターは、保管前に水抜き及び乾燥処理が行われたが⁽⁶⁾、輸送中の水素ガス発生による内圧上昇を防止するために再結合触媒が設置され、また保管中はベントシステムを使い水素ガス発生による内圧上昇を防止している⁽⁷⁾。

1Fの廃棄体容器にも同様にベントがなされた状態で保管されると想定されるが、処分までには密封することが必要となる。乾燥処理により完全に水を除去して密封することが可能なのか、ある程度の水の残留（内圧上昇、腐食）を許容することが必要なのかは、今後検討されると考えられる。

③ 燃料デブリ中の U_3O_8 酸化物について

燃料デブリ中のUが U_3O_8 に酸化されていた場合、核分裂生成物（FP）の地下水への溶出速度が大きくなり、地下水シナリオへの評価に影響がある。

分析による U_3O_8 の同定は難しく⁽⁸⁾、又 U_3O_8 以外の酸化物形態の可能性もある⁽⁹⁾。

④ 燃料デブリに含まれる有機物について

TMI-2 では、フィルターキャニスターの目詰まり防止のために有機凝集剤が使用され、デブリと一緒に回収された⁽¹⁰⁾。

1Fの場合も同様の方法が採られた場合、デブリに有機物が含まれることになり、無機化処理をしない限り、有機物影響（化学反応、核種移行への影響等）を考慮する必要が生じる。

表 1.3-4 1F 燃料デブリの 50 年後の放射性核種量 (H27)

分類	核種 ⁽²⁾	原子炉圧力容器内					廃棄体容器 1 基当り						
		炉内合計 ⁽¹⁾ (GBq)	不確実性(率)		不確実性を考慮 (GBq)		移行率	U 装荷 (kg)		不確実性を考慮 (GBq)			
			上限	下限	上限	～		下限	最大	最少	上限	～	下限
4N 系列	Pu-240	3.29E+06	1.10	0.90	3.62E+06	～	2.96E+06	1.00	48.6	0	6.84E+02	～	0
	U-236	1.98E+03	1.10	0.90	2.18E+03	～	1.78E+03	1.00	48.6	0	4.12E-01	～	0
	Th-232	5.14E-06	1.10	0.90	5.65E-06	～	4.63E-06	1.00	48.6	0	1.07E-09	～	0
4N+1 系列	Cm-245	9.59E+02	1.10	0.90	1.05E+03	～	8.63E+02	1.00	48.6	0	1.99E-01	～	0
	Pu-241	7.38E+07	1.10	0.90	8.12E+07	～	6.64E+07	1.00	48.6	0	1.54E+04	～	0
	Am-241	2.50E+07	1.10	0.90	2.75E+07	～	2.25E+07	1.00	48.6	0	5.19E+03	～	0
	Np-237	2.04E+03	1.10	0.90	2.24E+03	～	1.84E+03	1.00	48.6	0	4.24E-01	～	0
	U-233	4.79E-01	1.10	0.90	5.27E-01	～	4.31E-01	1.00	48.6	0	9.96E-05	～	0
	Th-229	2.07E-03	1.10	0.90	2.28E-03	～	1.86E-03	1.00	48.6	0	4.31E-07	～	0
4N+2 系列	Cm-246	1.54E+02	1.10	0.90	1.69E+02	～	1.38E+02	1.00	48.6	0	3.20E-02	～	0
	Am-242m	5.03E+04	1.10	0.90	5.53E+04	～	4.53E+04	1.00	48.6	0	1.05E+01	～	0
	Pu-242	1.02E+04	1.10	0.90	1.12E+04	～	9.20E+03	1.00	48.6	0	2.13E+00	～	0
	Pu-238	1.10E+07	1.10	0.90	1.21E+07	～	9.87E+06	1.00	48.6	0	2.28E+03	～	0
	U-238	3.03E+03	1.10	0.90	3.34E+03	～	2.73E+03	1.00	48.6	0	6.31E-01	～	0
	U-234	2.22E+03	1.10	0.90	2.44E+03	～	1.99E+03	1.00	48.6	0	4.61E-01	～	0
	Th-230	6.00E-01	1.10	0.90	6.60E-01	～	5.40E-01	1.00	48.6	0	1.25E-04	～	0
	Ra-226	4.95E-03	1.10	0.90	5.45E-03	～	4.46E-03	1.00	48.6	0	1.03E-06	～	0
4N+3 系列	Pb-210	1.59E-03	1.10	0.90	1.75E-03	～	1.43E-03	1.00	48.6	0	3.31E-07	～	0
	Am-243	8.31E+04	1.10	0.90	9.14E+04	～	7.48E+04	1.00	48.6	0	1.73E+01	～	0
	Pu-239	2.65E+06	1.10	0.90	2.92E+06	～	2.39E+06	1.00	48.6	0	5.51E+02	～	0
	U-235	3.60E+02	1.10	0.90	3.96E+02	～	3.24E+02	1.00	48.6	0	7.49E-02	～	0
	Pa-231	3.98E-01	1.10	0.90	4.38E-01	～	3.58E-01	1.00	48.6	0	8.28E-05	～	0
非系 系列	Ac-227	2.05E-01	1.10	0.90	2.25E-01	～	1.84E-01	1.00	48.6	0	4.26E-05	～	0
	Se-79	2.50E+02	1.10	0.90	2.75E+02	～	2.25E+02	1.00	48.6	0	5.20E-02	～	0
	Zr-93	1.26E+04	1.10	0.90	1.38E+04	～	1.13E+04	1.00	48.6	0	2.61E+00	～	0
	Sr-90	1.56E+08	1.10	0.90	1.72E+08	～	1.40E+08	0.90	48.6	0	2.92E+04	～	0
	Nb-93m	1.07E+04	1.10	0.90	1.18E+04	～	9.62E+03	1.00	48.6	0	2.22E+00	～	0
	Nb-94	1.00E+00	1.10	0.90	1.10E+00	～	9.01E-01	1.00	48.6	0	2.08E-04	～	0
	Tc-99	9.20E+04	1.10	0.90	1.01E+05	～	8.28E+04	1.00	48.6	0	1.91E+01	～	0
	Pd-107	6.30E+02	1.10	0.90	6.93E+02	～	5.67E+02	1.00	48.6	0	1.31E-01	～	0
	Sn-126	4.11E+03	1.10	0.90	4.52E+03	～	3.70E+03	1.00	48.6	0	8.55E-01	～	0
	I-129	2.08E+02	1.10	0.90	2.29E+02	～	1.87E+02	0.42	48.6	0	1.82E-02	～	0
	Cs-135	3.29E+03	1.10	0.90	3.62E+03	～	2.96E+03	0.40	48.6	0	2.74E-01	～	0
	Cs-137	2.21E+08	1.10	0.90	2.43E+08	～	1.99E+08	0.40	48.6	0	1.84E+04	～	0
	Sm-151	1.70E+06	1.10	0.90	1.87E+06	～	1.53E+06	1.00	48.6	0	3.54E+02	～	0
	C-14	6.72E+02	1.10	0.90	7.39E+02	～	6.05E+02	1.00	48.6	0	1.40E-01	～	0

表 1.3-5 1F 廃棄体容器の仕様 (H27)

	1F 廃棄体容器 (H27)	1F 廃棄体容器 (Ver.1)	TMI-2 ⁽³⁾	ガラス固化体
キャニスター (容器) サイズ	外寸直径 235 mm	355.6 mm	356 mm	430 mm
	外寸高さ 1,340 mm	1,350 mm	3,804 mm	1,340 mm
	内寸直径 225 mm	345.6 mm	343 mm	420 mm
	装荷有効高さ 857 mm	867.4 mm	3,321 mm	—
ウラン量 (最大)	48.6 kg/容器	114.9 kg/容器	441.9 kg/容器	—
ウラン量 (平均)	26.3 kg/容器	62.09 kg/容器	238.8 kg/容器	—
ウラン量 (総量)	69 + 94 + 94 = 257 Ton	69 + 94 + 94 = 257 Ton	81.437 Ton	—
容器数	9,772 本	4,139 本	341 本	4 万本 (2020 年分まで)

表 1.3-6 燃料デブリの発熱量 (H27)

経過 年数	原子炉圧力容器内				廃棄体容器 1 基当たり					
	炉内合計 ⁽¹⁾ (W)	不確実性(率)		不確実性を考慮 (W)		移行率	U 装荷 (kg)		不確実性を考慮 (W)	
		上限	下限	上限	下限		最大	最少	上限	下限
0	3.86E+08	1.10	0.90	4.24E+08	～ 3.47E+08	1.00	48.6	0	8.02E+04	～ 0
10	1.90E+05	1.10	0.90	2.09E+05	～ 1.71E+05	1.00	48.6	0	39.6	～ 0
20	1.52E+05	1.10	0.90	1.67E+05	～ 1.37E+05	1.00	48.6	0	31.6	～ 0
50	9.38E+04	1.10	0.90	1.03E+05	～ 8.44E+04	1.00	48.6	0	19.5	～ 0
100	5.14E+04	1.10	0.90	5.65E+04	～ 4.63E+04	1.00	48.6	0	10.7	～ 0

1.3.2 燃料デブリ特有の特性を踏まえたシナリオ設定及び予察的解析

(1) 燃料デブリ特有の特性を踏まえたシナリオ設定

(a) 仮想デブリからの核種溶出

1F1～3 号機の格納容器内に落下したと考えられている燃料デブリについては、その取出しに向けて調査が進められているが、処理・処分に向けた燃料デブリの性状把握、特に燃料デブリからの核種溶出については実際の燃料デブリサンプルを取得して分析・評価される必要がある。

燃料デブリからの核種の溶出については、基本的に使用済み燃料と同様に、U と Zr の熔融固化物のマトリクス溶解に支配されると考えられる。これまでに汚染水への核種溶出の観点から、模擬燃料デブリ (U,Zr)O₂ の過酸化水素水溶液への溶出反応、処理・処分へ向けた検討のために、中性子照射した模擬燃料デブリからのウランおよび FP の溶出挙動について、研究が行われており、これらの結果は今後の燃料デブリの核種溶出データ整備に向けた足がかりになるものと期待される。しかしながら、現状において、燃料デブリに直接適用可能な核種溶出データの情報は得られていない。そこで、使用済み燃料の直接処分について検討を進めている外国の取り組み、わが国における検討などを参考に、燃料マトリクスからの溶出に関するデータを整理した。

Nagra⁽¹¹⁾は使用済み燃料の直接処分の検討において、燃料マトリクスの溶解速度の時間変化を設定した。アルファ線による放射線分解において酸化種が発生することにより溶解速度が律速され、埋設初期には 10⁻⁴/y と高いが、放射線の減衰に伴って 100 万年後には溶解速度は 10⁻⁸/y 程度まで減少するとしている。

直接処分第一次とりまとめ⁽¹²⁾では、これまでにいくつかの外国の機関で取得されたデータから長期的な評価に用いる燃料マトリクスの溶解速度として 10⁻⁷/y が適切であるとしている。

しかしながら、燃料マトリクス溶解速度の設定には3桁以上の幅があり、この不確実性による核種移行への影響を定量的に把握しておく必要がある。また、直接処分では埋設後に浸入する地下水への瞬時放出成分が大きく寄与すると考えられるが、燃料デブリはすでに事故後に冷却水にさらされており、そうした瞬時放出成分の不確実性も想定される。したがって、以上の整理結果をもとに、第6章において核種溶出率や瞬時放出成分割合に関して適宜不確実性の幅を設定した感度解析を行い、これらの不確実性が核種移行に与える影響を予察的に検討した。

(b) 放射線による人工バリア材の劣化

平成22年度～平成26年度の事業において、ガラス固化体の地層処分を対象として構築したFEPデータベースを対象とし、人工バリア材の安全性に影響の可能性のある事象のうち、放射線の影響について調査を実施した。最新の「安全性への影響の可能性」における理解の現状とそれに対するJAEAの判断から、「放射線が地下水の組成を変化（酸化還元反応、ガス発生等）させる可能性」、「放射線が緩衝材に対し放射線影響を及ぼす可能性」、「放射線が緩衝材中でのコロイド形成に影響を及ぼす可能性」が抽出されたものの、いずれの可能性も放射能の高いオーバーパック（以下、OP）の早期破損を前提とする限定的なものであった。また、早期破損時であっても「地下水組成変化、コロイド形成への影響の可能性が残される、または現在の知見では不明」とどまっていた。

廃棄体1体あたりの放射能が高いガラス固化体であっても、緩衝材自体への影響はOPが健全な時点では小さく、早期破損時には不明と判断されていることから、デブリの場合には早期破損時のみ、地下水組成変化、コロイド形成への影響の可能性が残されるものと考えられた。特にデブリ廃棄体固有の要因として廃棄体内でのガス発生の可能性が高いことと、初期欠陥や水分除去の見逃しによりOP早期破損へと連鎖するシナリオが想定されたため、OP早期破損による影響評価を実施した。

福島第一原子力発電所1号機から3号機に存在すると考えられている燃料デブリ全量の放射能インベントリがガラス固化体のキャニスター1本に収納されているとし、リファレンスケースの人工バリア設計条件で、OP寿命を100年、1,000年、4,000年の3ケース設定した解析を降水系地下水環境下の設定で実施した。なお、この解析は、仮想燃料デブリ Ver.1 が設定される前に実施したものであるため、インベントリは仮想デブリ Ver.1 と異なっている。解析の結果、Se-79、Cs-135、 $4n+1$ 核種全てで、早期破損に伴う人工バリアからのフラックスの立ち上がりへの影響はあるものの、ピークフラックスへの影響はほとんど見られなかった（図 1.3-1）。

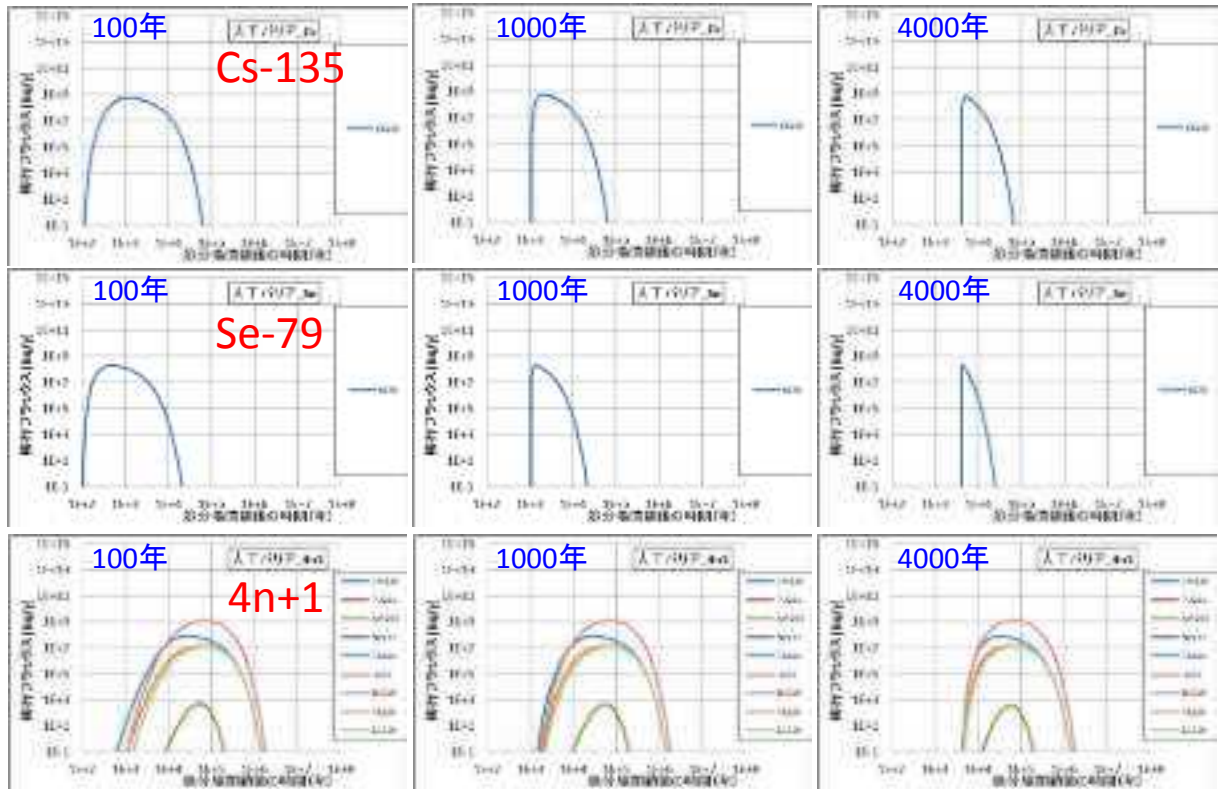


図 1.3-1 OP 寿命の違いによる人工バリアからのフラックス変化

今後の課題として、燃料デブリからの核種の溶出率等のデータの適用や、 $4n+1$ 系列以外の核種を含めた解析、ガス放出による緩衝材性能の劣化、放射線影響として想定される地下水の化学組成などによる核種移行パラメータ（溶解度や分配係数など）の変化も含めた検討が必要になってくる。この課題への対応のひとつとして、広範囲なパラメータを対象とした感度解析は、シナリオに対する今後のパラメータ設定の検討に有効であると考え、実施することとした（第 6 章 3 節）。

（c） 処分場閉鎖後 10 万年以上の長期にわたる人工バリアの変質挙動

10 万年以上の人工バリア（OP と緩衝材）の変質挙動を評価する必要性が生じる状況を判断する際のポイントとして、「10 万年時点で、核種の一定割合（例えば少なくとも半分以上）が人工バリア内に存在し、かつ、浸出抑制・移行抑制の何れかの機能が喪失していない場合」を導出した。

上記「」内の状態が、これまで実施した調査事業の解析結果において、どのようになっていたかを検討し、シナリオ設定に関する情報を抽出した。平成 25 年度、平成 26 年度を合わせ、人工バリア変遷解析を全 46 ケース実施し、その内核種移行解析を引き続き 26 ケース実施した。これら 26 ケースについて人工バリアからの核種移行フラックスを検討した結果、ガラス固化体を対象とした高レベル廃棄物の地層処分においては、OP 寿命が解析上の現設定である 4,000 年の場合、Se-79、Cs-135 は 10 万年以上の長期にわたる人工バリアの変質挙動のシナリオ設定には影響されず設定の必要性は低いこと、Np-237 ($4n+1$ 系列核種) は設定の必要性を検討する意義があることが明らかになった（図 1.3-2）。

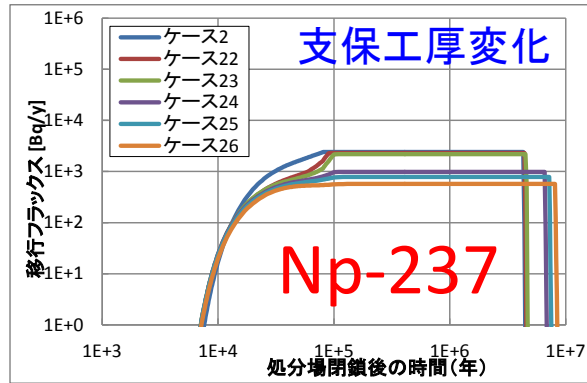


図 1.3-2 Np-237 の人工バリアからの移行フラックスの経時変化

(支保工厚は、ケース 1=60cm、ケース 22=50cm、ケース 23=40cm、
ケース 24=30cm、ケース 25=20cm、ケース 26=10cm)

ガラス固化体と燃料デブリとの相違として、スウェーデンにおけるキャニスターに対する安全機能指標基準として設定される 100 万年の閉じ込め機能を設定した場合やガラス固化体の溶解モデルと燃料デブリの溶解モデルが異なる場合については、Se-79、Cs-135 も人工バリアからのフラックスが 10 万年以降も継続する可能性があり、溶解速度、OP 寿命の不確実性を含めたパラメータを対象とした感度解析が今後のシナリオの絞り込みやパラメータ設定の検討に有効であると考え、予察的な解析を実施することとした（第 6 章 3 節）。

また、これまでデフォルトとして「10 万年時の人工バリアの変遷に関する設定をそれ以降も継続させる」となっている設定が合理的かを検討するため、10 万年時点で緩衝材性能が喪失するとしたシナリオ設定が抽出された。これら 2 つの設定で 10 万年以降の人工バリアからのフラックスにどの程度の違いがあるのかについて影響解析を行うため、性能が喪失した人工バリア（緩衝材）の性能設定について検討し、有効モンモリロナイト密度ゼロとそれを基にした核種移行パラメータ設定をすることなどを提示した（表 1.3-7）。これらのシナリオ設定の違いによる影響解析を実施することとした（第 6 章 2 節）

表 1.3-7 緩衝材の性能が喪失した状態における設定

設定項目	緩衝材の性能が喪失した状態における設定
有効モンモリロナイト密度	ゼロ
間隙率	初期間隙率である 0.4
透水係数	有効モンモリロナイト密度ゼロの 47°C 時の値である $2.16 \times 10^{-7} \text{m/s}$
核種拡散係数	47°C の自由水の拡散係数と間隙率 0.4 から $2 \times 10^{-10} \text{m}^2/\text{s}$
核種分配係数	ゼロ
pH	外部地下水と同値（降水系 8.5、海水系 8）
Eh	外部地下水と同値（降水系 -280mV、海水系 -300mV）
核種溶解度	外部地下水の pH、Eh に応じて設定

(d) 廃棄体からの発熱

HLW 地層処分においては、ガラス固化体からの発熱の影響の最優先条件を緩衝材中の最高温度とし、これを 100°C未滿とするための検討が実施された。その手順として、熱伝導解析を実施する前に、空洞安定性からの制限として、隣接する処分坑道または処分孔どうしが有意な力学的影響を受けない処分坑道離間距離または処分孔間隔が確保される必要性について検討を実施している。その結果、処分孔縦置き方式の処分体系に対する解析に基づく坑道離間距離および処分孔間隔が以下のように求められている。

- ・ 処分坑道離間距離 = 2D (硬岩系岩盤)、= 2.6D (軟岩系岩盤)、
ここで D : 処分坑道直径 = 5m、
- ・ 廃棄体ピッチ = 2d (硬岩系岩盤)、= 3d (軟岩系岩盤)、
ここで d : 処分孔径 = 2.22m、

この最も廃棄体の充填密度が高くなる配置で 3次元体系の熱伝導解析が有限要素法汎用解析コード FINAS により実施され、その結果、緩衝材中の最高温度は 100°C以下で、最も温度の上昇した硬岩系の場合でも、最高温度 80°C強であり、定置後 10~20 年で到達していた。

ガラス固化体と同じ処分孔縦置き方式の処分体系にてデブリ廃棄体を処分する限り、デブリの方が発熱は小さいため、緩衝材の最高温度は 100°Cを超えない。また、処分孔縦置き方式の場合には空洞安定性を担保するためには、上記体系以上に高密度の体系となる処分設計は不適切になるため実現できない。一方、処分孔横置き方式の処分体系は、処分孔縦置き方式と比較して空洞安定性を満たす棄体の配置を処分坑道離間距離は約 2.3 倍、廃棄体ピッチは 1.4 倍 (~軟岩系では 2.1 倍) 高く配置することが可能である (表 1.3-8)。

表 1.3-8 処分孔縦置き方式、横置き方式における処分坑道、廃棄体の間隔⁽¹³⁾

定置方式	岩盤の種類	処分坑道離間距離 [m]	廃棄体ピッチ [m]	解析ケース
処分孔 縦置き方式	硬岩系岩盤	10(2D) ^{*1}	4.44(2d) ^{*2}	左記の処分坑道離間距離、廃棄体ピッチの組み合わせを起点とし、処分坑道離間距離、廃棄体ピッチを増加させて解析を行った。
	軟岩系岩盤	13(2.6D) ^{*1}	6.66(3d) ^{*2}	
処分坑道 横置き方式	硬岩系岩盤	4.44(2D) ^{*3}	3.13 ^{*3}	
	軟岩系岩盤	5.55(2.5D) ^{*3}	3.13 ^{*3}	

*1 D: 縦置き方式の処分坑道径 (5m)、d: 縦置き方式の処分孔径 (2.22m)

*2 D: 横置き方式の処分坑道径 (2.22m)

*3 人工バリアの必要寸法からの最小廃棄体ピッチ

ガラス固化体の場合には、この配置で熱伝導解析を実施した結果からは、緩衝材の最高温度が、硬岩系で約 165°C、軟岩系で約 135°Cまで上昇することが示されているが、燃料デブリの場合にはガラス固化体よりも発熱量が低いため、この配置であっても緩衝材の最高温度が 100°Cを超えない可能性はある。これらのことから、デブリ廃棄体を処分した場合の緩衝材の最高温度の変遷は「ガラス固化体リファレンスケース相当~処分時に既に地温相当まで低下」の範囲の想定ができる。したがって、予察的解析のための設定として、この範囲の両端に相当する 2 ケースを検討することとした。すなわち、

- ・ これまでのガラス固化体の発熱による緩衝材温度変遷を踏襲したケース

- ・ 処分深度の地温 (47°C) 一定とするケース

これらのシナリオ設定の違いによる影響解析を実施することとした (第 6 章 2 節)。

(e) 海水成分、セメント成分等の溶出による処分環境への化学的影響

格納容器下部に落下した熔融燃料は、コンクリート基礎とコア・コンクリート反応 (MCCI : Molten Core Concrete Interaction) を引き起こす。コンクリートは、MCCI の影響を受けることで $\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ (灰長石・anorthite)、 CaSiO_3 (硅灰石・wollastonite) が生成する。

MCCI 生成物を格納容器底部等から回収する際には、廃棄物を全量回収するため、MCCI 生成物周囲の MCCI の影響を受けていないコンクリート部分を含めて回収することが考えられる。また、MCCI 生成物や燃料デブリが周囲のコンクリート部分に飛散した場合にも、同様に、熱の影響を受けていないコンクリート部分も含めて回収することが考えられる。このため、廃棄体に MCCI 生成物とともにセメント成分が混入する可能性をシナリオとして排除することは難しいと思われる。そこで、廃棄体に封入される MCCI 生成物の量が増加するとともに、セメント成分も増加するシナリオを想定し、下記の 3 ケースで影響解析を実施することとした (第 6 章 2 節)。

- ・ 廃棄体に MCCI 生成物の混入なし (=ガラス固化体と同じ設定)
- ・ 廃棄体に MCCI 生成物 15%、普通セメント 15%が混入
- ・ 廃棄体に MCCI 生成物 30%、普通セメント 30%が混入

海水による冷却により溶融体表面析出反応物として (Na, Ca)UO_{4-x}、また、高熱の影響を受けていない海水塩の成分 (NaCl、MgCl₂、MgSO₄、CaSO₄、KCl または Mg(OH)₂、MgCO₃、Ca(OH)₂、CaCO₃ など) は、燃料デブリ取出し時や廃棄物容器への収納時に極力取り除かれると考えられるものの、廃棄体に混入する可能性を完全には否定できない。前者は U 酸化物の塩析物であり、デブリの U の溶出速度の設定に影響を与える可能性はあるものの、直接的に人工バリアの変質へ影響する可能性は現時点で不明なため、後者の緩衝材性能への影響について、今年度は予察的に降水系地下水と海水成分を含む降水系地下水を想定した地下水として海水系地下水の 2 つの地下水を対象として、下記の体系により検討することとした (第 6 章 2 節)。

- ・ 緩衝材と降水系地下水とが直接接触する体系設定 (支保工無し)
- ・ 緩衝材と海水系地下水とが直接接触する体系設定 (支保工無し)

(2) 燃料デブリ特有の特性を踏まえた予察的解析

(a) 水の放射線分解等によるガス発生解析

本年度は、現状の燃料デブリに関する情報に基づいて、水の放射線分解及び金属の腐食によるガス発生について、ガス発生速度ならびに発生量の試算を行い、どのようなガス影響が起り得るかについてシナリオの検討を行った。

① オーバーパック内側での内圧上昇による早期破損の可能性

オーバーパック内側に関しては、水の放射線分解によるガス発生速度が支配的となり、水の存在量が有限であることを考慮して、水の枯渇する期間 (約半年) までガス発生が継続するものとして累積ガス発生量を求めた結果、水 1L を仮定した場合、ガス発生量はおよそ 1.9 m³ となった。また、廃棄体容器における燃料デブリの充填率を 90% (空間割合 10%) と保守的に仮定した場合、発生したガスによる蓄積圧力は約 14MPa (図 1.3-3) となり、オーバーパックの設計圧力である約 55MPa を超えることはないものと判断された。

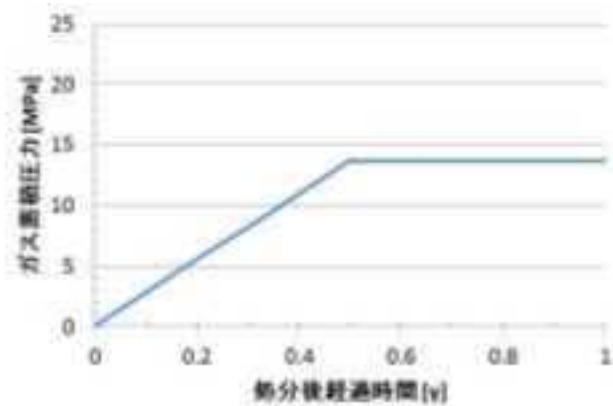


図 1.3-3 オーバーパック内側でのガス蓄積圧力

②ガス蓄圧による力学的影響の可能性及び間隙水押出しの可能性

オーバーパック外側に関しては、処分後経過時間により3つの期間に分けてガス発生速度を設定した。すなわち、オーバーパック破損時期である4,000年までは、オーバーパック外側での金属の嫌氣的腐食によるガス発生のみであり、4,000年から19,000年（腐食による金属の消失）まではそこにオーバーパック内側での放射線分解及び金属腐食によるガス発生が付加され、オーバーパックが腐食により消失する19,000年後では、オーバーパック内側での放射線分解のみが継続するものとした。

ガス蓄積の可能性について検討するため、それらのガス発生速度に関して、地下応力条件と拡散係数をパラメータとしたときの溶存水素ガスの拡散移行速度との比較を行った。その結果、ほぼすべての条件において、水素ガス発生速度が溶存水素ガスの拡散移行速度を上回っており、オーバーパックと緩衝材の界面に蓄積する可能性が示唆された。また、保守的に溶存水素ガスの拡散移行を考慮せず、発生したガスがすべてオーバーパックと緩衝材の界面に蓄積とした場合のガス蓄積圧力を評価した結果、数千年から1万数千年で諸外国において想定されている地圧（スウェーデン：15～25MPa、スイス：35MPa）や、ガス発生が停止すると考えられる平衡圧力（50～100MPa）⁽¹⁴⁾を超えてしまう結果（4,000年で約35MPa、6,000年で約55MPa、14,000年で約101MPa）となった（図1.3-4）。このようにオーバーパックと緩衝材の界面においてガス蓄積が生じる場合には、人工バリア及び周辺岩盤への力学的影響の可能性を検討する必要がある。

しかし、実際には、緩衝材はガスがある一定の圧力（破過圧）に達すると破過することが知られており、一般にその破過圧は地圧よりは低いため、ガスは緩衝材や周辺岩盤に力学的な影響を与える前に、緩衝材を破過すると考えられる（棚井ほか（1996）⁽¹⁵⁾）ことから、本計算結果のようにガス蓄積圧力が上昇し続けることはないものと考えられた。そこで、今後の課題として、破過圧や力学的影響を考慮したガス移行解析により、緩衝材や周辺岩盤への構造力学的安定性への影響の可能性や間隙水押出し等による核種移行への影響について検討を行う必要があるものとした。

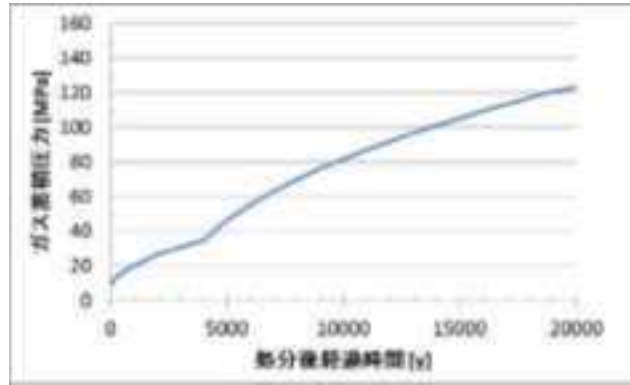


図 1.3-4 オーバーパックと緩衝材の界面におけるガス蓄積圧力の経時変化

(b) 燃料デブリの処分容器内における臨界可能性に関する検討

1F 燃料デブリの処分にあたっては、水素発生対策のために、処分容器内から十分に水分が排除されると想定され、それによって、仮想燃料デブリ Ver. 1 においては臨界が発生するおそれはない。しかし、埋設処分後、長期間経過すると、オーバーパックの閉じ込め機能が失われ、収納容器内に地下水が浸入し、容器内が地下水で満たされる可能性がある (図 1.3-5)。処分容器内で臨界になれば、核分裂連鎖反応が継続的に発生し、熱エネルギーが発生して温度が上昇するとともに、核分裂性生成ガスが発生して、処分場からの核種移行挙動に大きな影響を及ぼすことが想定される。

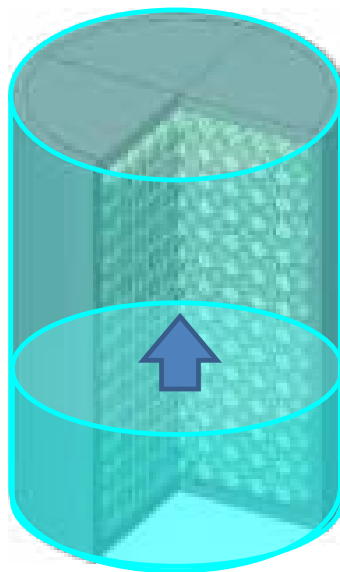


図 1.3-5 燃料デブリ処分容器内に埋設後地下水が浸入するイメージ図

そのため仮想燃料デブリ Ver. 1 の収納容器 (直径 35.56cm、高さ 86.74cm、図 1.3-6) を用いる場合に、処分環境で地下水が浸入しても未臨界を維持できるかについて、臨界解析を行った。解析では濃縮度 4.9% の燃料が 5% 以上含まれること、最小燃焼度は 3.3GWd/t であるが長期的なビルドアップを考慮して、燃焼度 0 の新燃料相当の計算も実施した。収納容器外を炭素鋼製のオーバーパックで取り囲む体系とし、臨界の観点から保守的にオーバーパック厚さを 100cm と

仮定した。収納容器内部は密度の燃料球が面心立方構造で配置されるものとし、 V_m/V_f を 0.35 ~20 の範囲で、計算コードは MVP を、核データライブラリは JENDL-4.0 を用いて評価した。

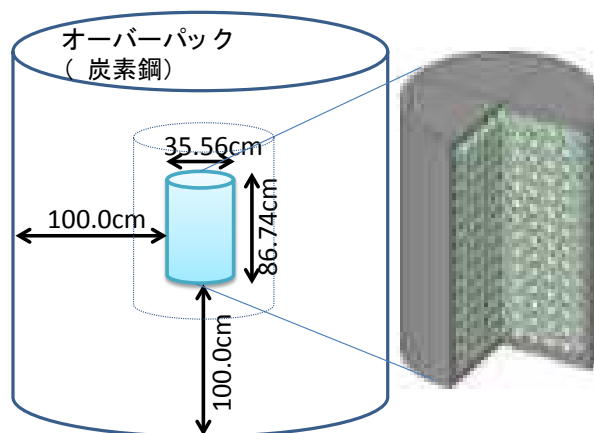


図 1.3-6 燃料デブリ収納容器に対する臨界解析体系

その結果、仮想燃料デブリ Ver. 1 の容器に収納すると仮定した場合、非均質体系では新燃料相当の燃焼度だけでなく、14GWd/t の燃焼度の燃料デブリについても、中性子実効増倍率が 1 を超えて臨界となり、均質体系の 14GWd/t の燃焼度だけが未臨界を維持できた (図 1.3-7)。

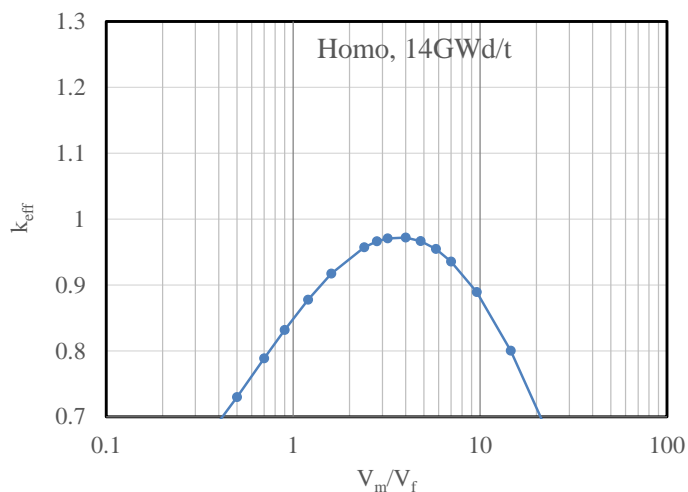


図 1.3-7 均質体系、14GWd/t 燃焼燃料の実効増倍率

いかなる V_m/V_f でも未臨界を維持できる容器直径を探るため、35.56cm から 2.5cm ずつ容器直径を小さくして、評価を行った。その結果、均質体系及び非均質体系の新燃料相当 (図 1.3-8、図 1.3-9)、非均質体系の 3GWd/t の燃料デブリについては、22.5cm の容器直径である必要がある。均質体系では 3GWd/t の燃料デブリについては 25.0cm、非均質体系の 14GWd/t については 32.5cm となった。

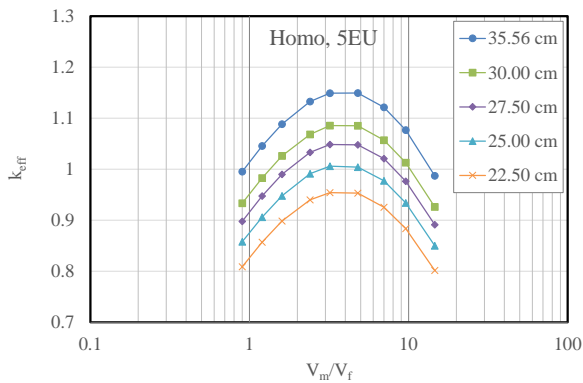


図 1.3-8 均質体系、5wt%UO₂の収納容器直径別の実効増倍率

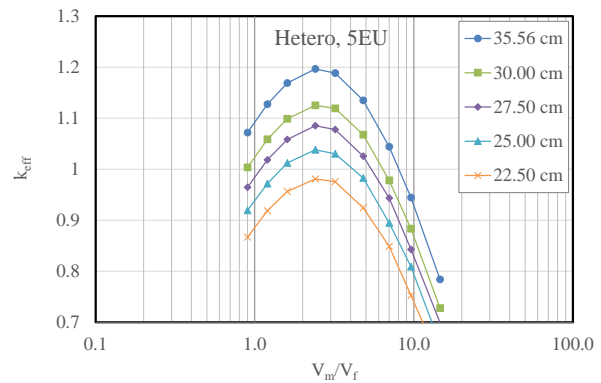


図 1.3-9 非均質体系、5wt%UO₂の収納容器直径別の実効増倍率

以上のことから、今後格納容器から回収して最終処分される際の燃料デブリの収納容器の直径は、4.9%の濃縮度を持つ燃料棒を起源とする燃料デブリだけで構成されることが否定できない場合は、22.5cm 以下であることで処分環境において未臨界を維持できる。これは中性子吸収材などを処分容器に用いない場合の評価値である。今後、格納容器内に散乱している燃料デブリの性状や濃縮度、燃焼度など核的な情報が調査によって明らかになれば、臨界を防止するための容器形状の見直しや中性子吸収材の使用といった工学的対策を含めた検討を行う必要がある。

(c) 天然バリア中における臨界発生可能性に関する検討

1F 燃料デブリの処分にあたっては、HLW と比較して放射能インベントリ中のウラン量が多いことから、処分容器内で臨界を排除できても、長期間にウランが処分場から漏出して、天然バリア中のある場所に集積して、臨界条件に到達する可能性が指摘されている。臨界になれば熱及びFP ガスの発生など、核種移行を促進させ、天然バリア出口における核種移行フラックスを上昇させることが懸念される。そこで、核種移行の観点から、ウランが天然バリア中で臨界条件を達成する程度集積する可能性があるかについて、解析的に検討を行った。

まず、既往の研究より、砂岩中で臨界に到達するのに最低限のウラン質量を見積もった。30%の間隙率をもつ地質媒体中で2.25%濃縮ウラン1トンが集中的に濃集すれば、臨界になる最低限の条件を満たすことから、燃料デブリ中の総ウラン量257トンのウランが、どのような条件で1トンを超えて濃集するかをGSRW-PSAによる一次元核種移行解析によって評価した。また、各ウラン核種の濃集量から、濃縮度の時間変化についてもあわせて評価した。なお、ウラン量1トンは臨界となる最低限の必要条件であり、臨界に最適な形状で配置されなければ臨界とはならない。

堆積岩サイトである幌延サイトの水質条件を想定して、種々のパラメータの組合せを仮定したケース設定により核種移行解析を行った(表 1.3-9)。

表 1.3-9 濃集量評価のためのケース設定

ケース	浸出率 (1/y)	処分場環境	人工バリア中 U 溶解度	濃集点 溶解度	濃集点までの移 行距離
Case 1	1.0×10^{-7}	還元性	3.1×10^{-6}	1.1×10^{-5}	100m
Case 2	1.0×10^{-7}	酸化性	5.0	1.1×10^{-5}	100m
Case 3	1.0×10^{-7}	還元性 → 酸化性 (10 万年で切替)	3.1×10^{-6} → 5.0	1.1×10^{-5}	100m
Case 4	1.0×10^{-7}	酸化性	5.0	1.1×10^{-5}	1,000m
Case 5	1.0×10^{-6}	還元性	3.1×10^{-6}	1.1×10^{-5}	100m
Case 6	1.0×10^{-7}	還元性	3.1×10^{-6}	1.1×10^{-7}	100m
Case 7	1.0×10^{-7}	還元性	3.1×10^{-5}	1.1×10^{-5}	100m

その結果を以下に示す。

- ・ 酸化性環境ではウランの溶解度が高く、人工バリア出口のフラックスが還元性環境と比較して2桁程度高くなった (Case 2、図 1.3-10)。地下水中のウラン濃度もそれと比例して高くなり、濃集点の U 溶解度に支配されてウラン濃集量は 66.2 トンと 1 トンを大きく上回る結果となった。さらに当初還元性環境で 10 万年後に酸化性環境に変化する場合でも、同様の結果となり、10 万年程度の時間遅れでは濃集点のウラン濃集量に影響を及ぼさなかった (Case 3)。一方、酸化性環境でも濃集点までの移行距離が 10 倍になることで濃集点のピーク出現時間が後退し、それに核分裂性核種の崩壊によって、濃集量の最大値は 300g 程度と解析ケース中最小値を示した (Case 4)。
- ・ また、還元性環境を維持するケースでも、濃集点における U 溶解度が非常に小さい条件 (標準ケースの 1/100) では、濃集量は 1 トンを大きく超え、221 トンと全ウラン量の 86% が濃集し、解析ケース中最大となった (Case 6、図 1.3-11)。このほか、人工バリアの U 溶解度が高い場合にも 1 トンを超える濃集量となった (Case 7)。
- ・ 一方、燃料デブリの浸出率が高いケースでも、人工バリア中の溶解度によって、人工バリア出口のフラックスが律速されるため、ウラン濃集量へは影響がなかった (Case 5)。
- ・ 濃縮度の時間変化については、濃集量が 1 トンを超えるケースでは、その時点では 2% をわずかに超える程度となるが、濃集量が最大となる時点 (1~4 億年程度) では 2% 以下となり、ウランが十分な量濃集したとしても濃縮度が低下することにより臨界可能性が低下していると考えられる。一方、浸出率が上昇するケースで溶解度の高い Np-237 が U-233 のフラックスを上昇させ、1g 未満が濃集する時期ではあるが、濃縮度が一時的に 4% 程度まで上昇する結果が示された。

以上のことから、天然バリアにおける水質環境の切替わりにおいて、U 溶解度が極端に小さくなる条件がウラン濃集量に大きな影響を与えるパラメータとなった。これは処分場が酸化性環境でも還元性環境でも、1 トン以上のウラン濃集量が得られるものである。

本解析では、いかなる条件でもウラン濃集量が1トンに満たないということを示せず、臨界となる最低限の濃集量がいくつかのケースで得られる結果となった。一方、濃集点でのウラン濃縮度の時間変化を評価することにより、1トンを超える十分な濃集量があっても、最小臨界質量の前提である濃縮度2.25%よりも低くなるケースもあり、臨界解析と組み合わせた評価が今後必要となる。さらに、上述したように、1トンを超えるウランの濃集が直ちに臨界条件を満たすものではない。濃集する場合のウランの配置、核種移行経路の3次元的な広がり、水質が切り替わる境界面などに着目し、必要に応じて臨界解析を実施して、臨界発生の可能性について検討を行う必要がある。

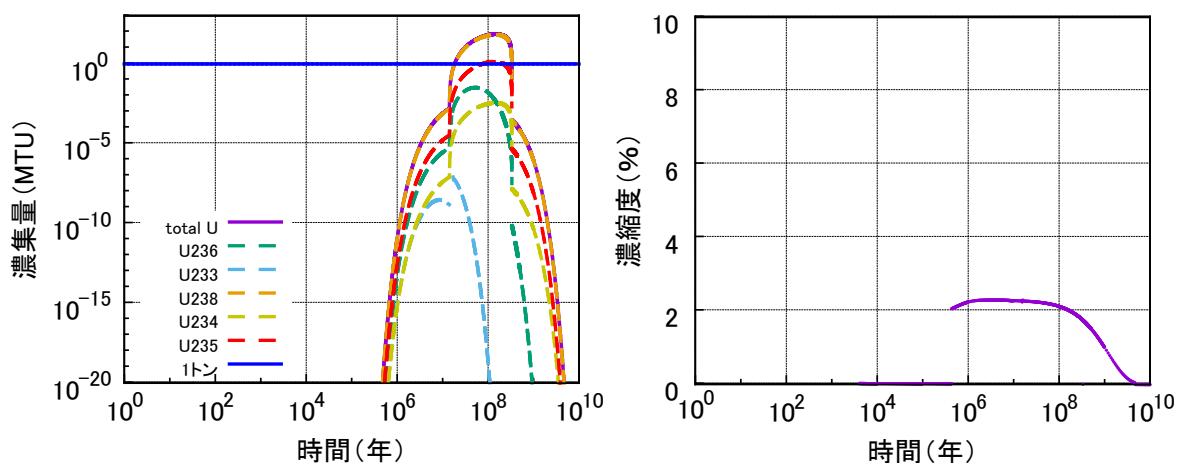


図 1.3-10 濃集点におけるウラン核種の濃集量及び濃縮度の経時変化 (Case 2)

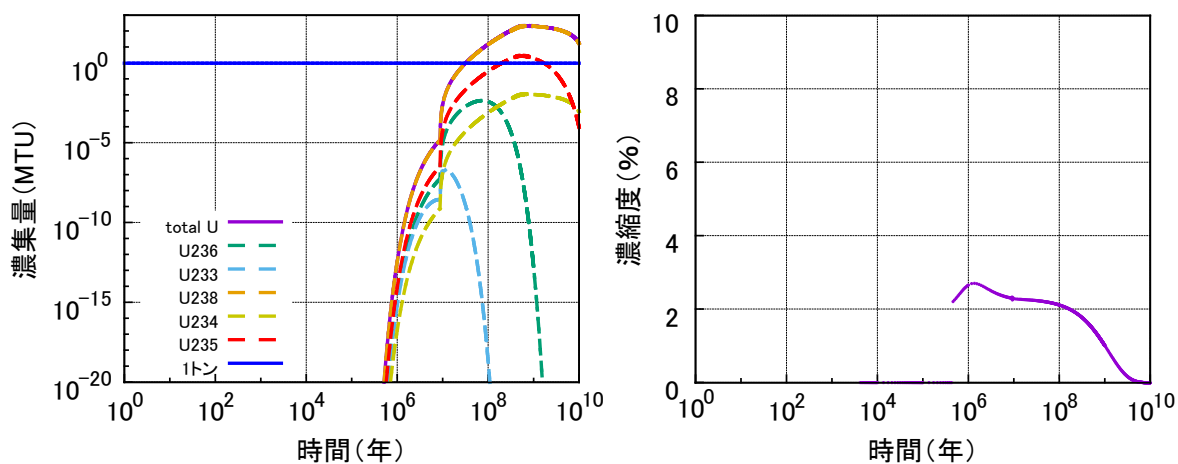


図 1.3-11 濃集点におけるウラン核種の濃集量及び濃縮度の経時変化 (Case 6)

1.3.3 核種移行特性データ取得

核燃料元素のウラン (U) やプルトニウム (Pu) の核種移行特性データの1つである収着分配係数 (Kd) について、系統的な収着試験によって得られたデータが少なく⁽¹⁶⁾、実験条件の情報 (詳細) が明らかになっていない文献が多い。そのため、燃料デブリを含む地層処分の安全評価のために Kd を評価するのは困難な状況にある。そこで、系統的な収着試験を実施し、Kd データを取得する必要がある。

今年度は、U の Kd データの取得のために、地層処分の地下の還元環境を想定し、U(+4)の収着試験実施方法を検討した。昨年度の結果より、特に U(+4)の保存液の調整が重要であることが分かっており、U の酸化還元を実験的に制御できること、天然ウランを用いて保存液が調整できることを確認するために、昨年度実施した文献調査結果に基づいて、U(+4)保存液の調整方法を予備的に試験した。U(+4)の調整方法は、主に2つあり、硝酸 (HNO₃) の U 溶液を電気分解して U(+4)に還元して調整する方法⁽¹⁷⁾⁽¹⁸⁾⁽¹⁹⁾ (電気分解法) と UO₂ の沈殿を作り分離後溶解して U(+4)保存液を作成する方法⁽²⁰⁾⁽²¹⁾ (沈殿法) である。文献からは試薬の濃度条件等は判明できるものの、例えば試薬を加える順番等不明な点が多く、調整方法の解明が必要であり、今年度は、Ar 雰囲気制御グローブボックス (GB) の空間的制限から、電解槽等の大がかりな設備を必要としない沈殿法で実施し、GB 内での試験操作で、U の沈殿を目視で確認でき、U の酸化還元を実験的に制御できること、天然ウランを用いて保存液が調整できることを確認した。溶液を添加する順番によって生成物の違いは見られなかった。固液分離に遠心分離器を使用する方法では、還元剤の量が少なく、還元が不十分となり U(+6)の存在が確認された。一方、固液分離に吸引ろ過を使用する方法では U(+6)から U(+4)に還元され、U(+4)の保存液を作ることができた。

また、Pu の Kd データの取得として、日本の代表的な堆積岩である砂岩を対象に Pu の収着試験を実施した。砂岩の Kd は、pH 8.5~9.75 で石英よりも大きいことが昨年度の結果より分かっており、石英以外の鉱物が砂岩に対する Pu の Kd を支配すると想定された。したがって、今年度は、Pu の収着を支配する砂岩の構成鉱物の確認、特に、含有量は少ないが、Kd が大きいと想定される粘土鉱物 (緑泥石等) に着目し、炭酸塩濃度と pH を系統的に変化させた収着試験を実施した。

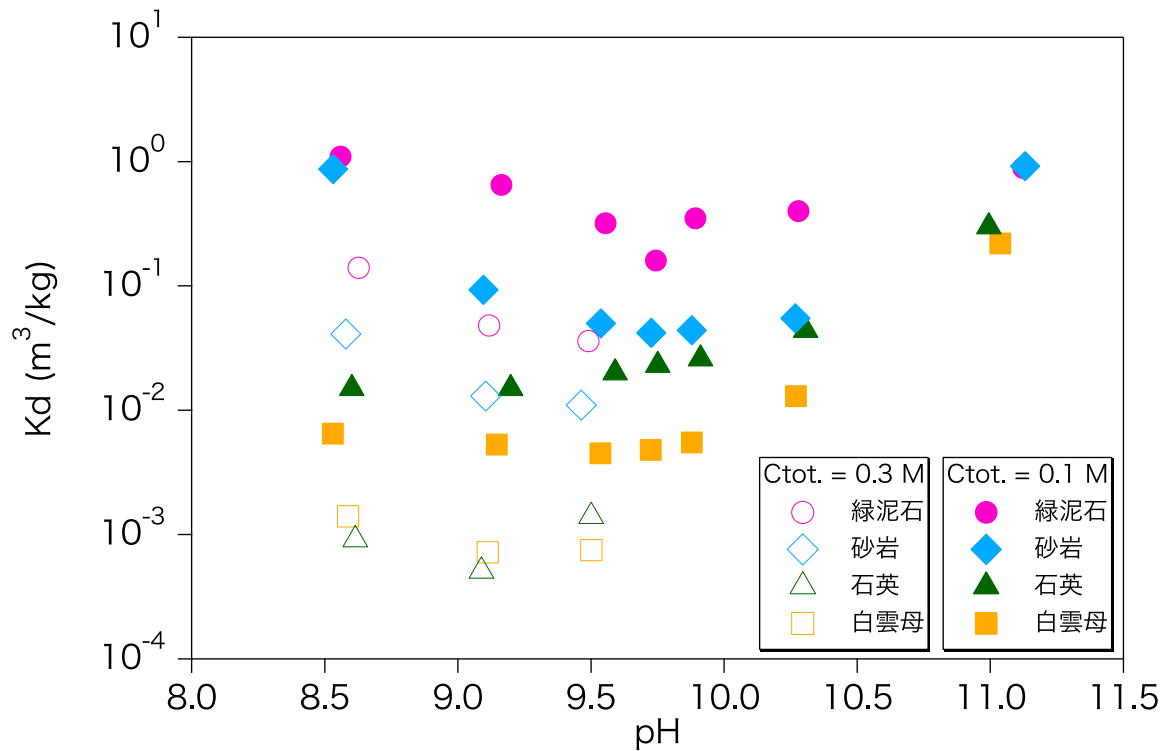


図 1.3-12 砂岩及びその構成鉱物に対する Pu の Kd

全炭酸塩濃度が 0.1 M の場合、砂岩と緑泥石に対する Pu の Kd の変化は、pH 8.5～11.1 で同じ傾向を示した。一方、白雲母と石英に対する Pu の Kd の変化は、pH 8.5～9.75 で一定、pH 9.75～11.1 で砂岩と緑泥石に対する Pu の Kd の変化と同じ傾向を示した。緑泥石が砂岩に対する Pu の Kd を支配する鉱物であることが確認され、pH 8.5～9.75 で緑泥石 $(\text{Mg, Al, Fe})_{4-6}(\text{Si, Al})_4\text{O}_{10}(\text{OH})_8$ と白雲母 $(\text{KAl}_2(\text{Si}_3\text{Al})\text{O}_{10}(\text{OH})_2)$ に対する Pu の収着挙動が異なるのは、緑泥石に含まれる鉄 (Fe) によるものと推定された。全炭酸塩濃度が 0.1 M から 0.3 M に上昇すると、砂岩及びその構成鉱物に対する Pu の Kd は、1～1.5 桁低下した。

1.3.4 総合的な安全評価コード・モデルの整備

(1) 安全評価手法の全体像

地層処分の安全評価では、人工・天然バリアの安全機能（隔離、閉じ込め）を適切に評価することが重要である。そのため、その安全評価手法としては、我が国において想定される代表的な地質、水理、熱および化学的環境を踏まえた、核種移行や被ばくに与える影響を評価できる体系的な手法（シナリオ設定、モデル、解析コード、パラメータ評価）の整備が必要となる。

また、体系的な手法にとっては、評価全体の一貫性が重要になってくることから、全体として「地質・気候関連事象を考慮した地下水流動条件を設定した上で、廃棄体から人工バリア、天然バリアを経由して放出される放射性核種のフラックスおよび生物圏における被ばく量を“ひとつながり”で評価すること」が必要であり、これを実現するため、個々の要素モデルやコード間の適切なリンケージを図った、総合的な安全評価体系の整備が求められる。

人工バリア領域を対象とした評価体系では、これまで我が国において想定される代表的な地下水の化学的環境を踏まえた、放射性核種の移行や周辺公衆への被ばくに与える影響を評価することのできる体系的な安全評価手法（シナリオ、モデル、コード）を整備してきた（図 1.3-13）。

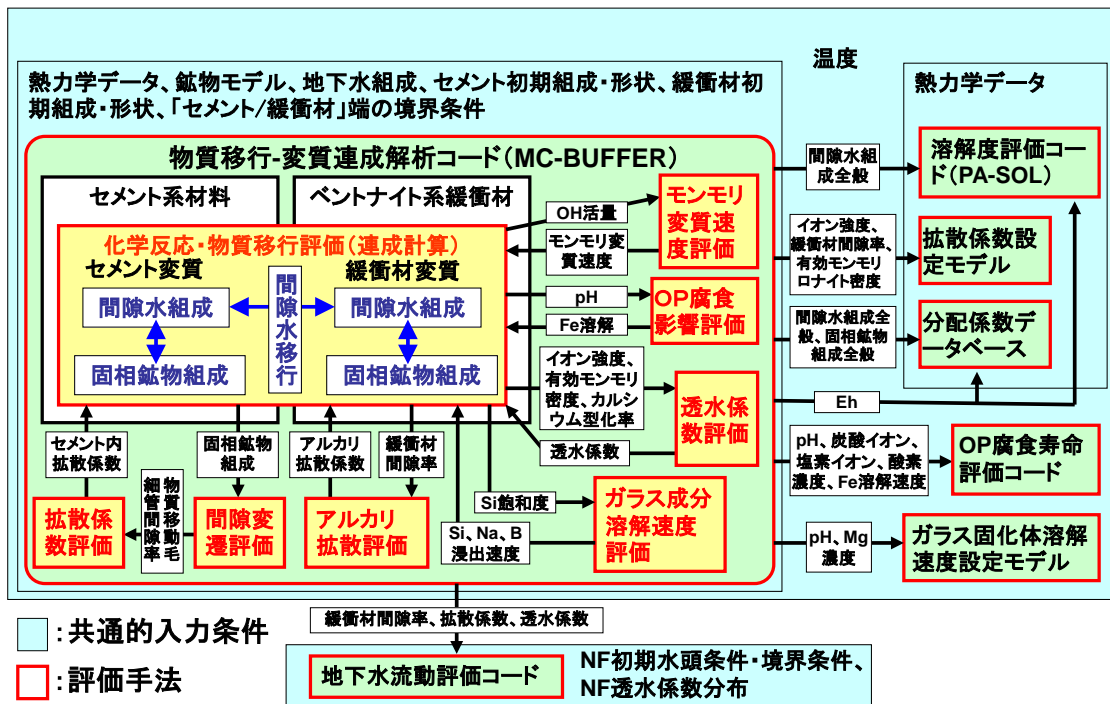


図 1.3-13 人工バリア領域の状態変遷を解析し、核種移行解析および地下水流動解析の入力データを提供するための評価体系

また、天然バリア領域を対象とした評価体系では、これまで、地質・気候関連事象（地震、火山、隆起・侵食、気候変動等）を考慮した地下水流動条件を設定した上で、廃棄体から人工バリア、天然バリアを経由して放出される放射性核種のフラックスおよび生物圏における被ばく量を総合的に評価するために、図 1.3-14 に示すようなリンケージ評価体系を整備してきた。

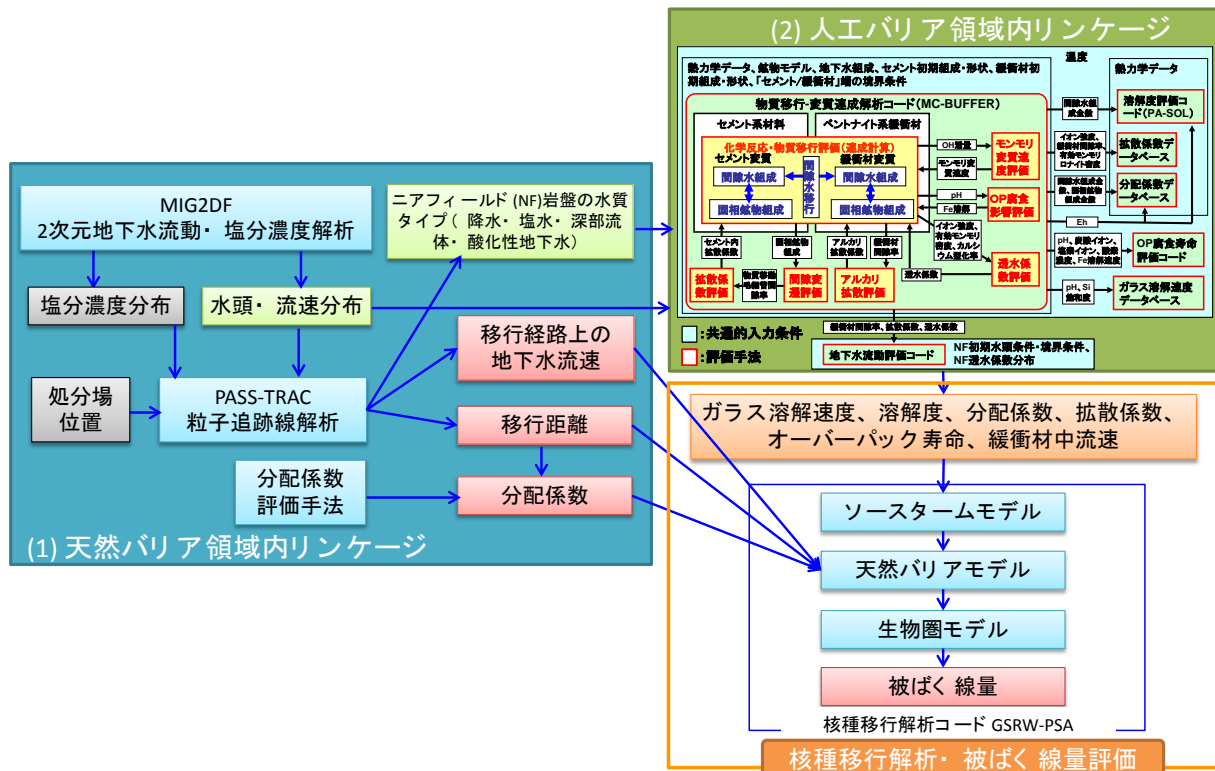


図 1.3-14 堆積岩サイトを想定した場合のリンケージ評価体系

(2) 緩衝材中拡散モデルおよび物質移行-変質連成解析コードの整備

本年度は、燃料デブリを処分する際の人工バリアとしても使用される可能性があるベントナイト系緩衝材中の化学環境解析のための拡散評価手法の整備に係る検討を行った。

具体的には、平成 26 年度に提案した見かけの拡散係数 (Da) をベースとしたイオン種の拡散モデル (新拡散モデル) の検討に資するため、非放射性的の Ca^{2+} イオン、 Na^{+} イオン、 Cl^{-} イオンを用いた Na 型モンモリロナイト圧縮体中の透過拡散試験を長期間に渡り行うとともに、これら結果を用いて当該モデルに係る検討を実施した。

Ca^{2+} イオンに係る検討では、吸着分配係数 (Kd) が小さいケースにおいては、別の試験で得られた Da と Kd を用いて、透過拡散試験結果 (高濃度側および低濃度側タンク内の Ca 濃度変化) を再現できる可能性が示された (図 1.3-15 右)。この結果は、既往の Kd データが存在する陽イオンについては、その値が小さい条件下において保持因子 (α) を簡易的に $\epsilon + \rho_b Kd$ として評価することが可能であることを示している。ここで、 ϵ はモンモリロナイト圧縮体の間隙率、 ρ_b はモンモリロナイト圧縮体の乾燥密度である。しかしながら、 Kd が大きいケースでは、同様の方法で高濃度側タンク内の Ca 濃度変化を再現することが出来なかった (図 1.3-15 左)。これは接液部におけるモンモリロナイト中 Ca 濃度の初期値が計算と実験で異なっていたためだと考えられる。しかしながら一部の高濃度側データについては十分に説明することが出来ず、高濃度側の濃度変化に関しては引き続き検討を行い、必要に応じて新拡散モデルに反映させることが重要であるとした。

Na^{+} イオンおよび Cl^{-} イオンに係る検討では、長期間の透過拡散試験を実施したにも関わらず両タンク内の濃度変化が小さかった (図 1.3-16、図 1.3-17)。また、計算値については、 Na^{+} イオンでは見かけ上 Na 型モンモリロナイトに吸着しないため、 Cl^{-} イオンでは陰イオン排除効果

があるため、 Ca^{2+} イオンの検討で使用した $\alpha (= \varepsilon + \rho_b Kd)$ の設定では実験値を再現できなく、 α を直接変動させて実験値との整合性を確認した。その結果、高濃度側のフィッティングで得られた α の値で低濃度側の実験値は再現することはできなかった。この原因としては、高濃度側および低濃度側の α が異なっている可能性があり、接する溶液に応じた α 値を設定する必要があることが示された。また、対となって移行する陽イオンと陰イオンは同じ拡散係数を用いる必要がある、特に Na^+ イオンについては共に移行するイオン種の拡散に従うことも考えられる。

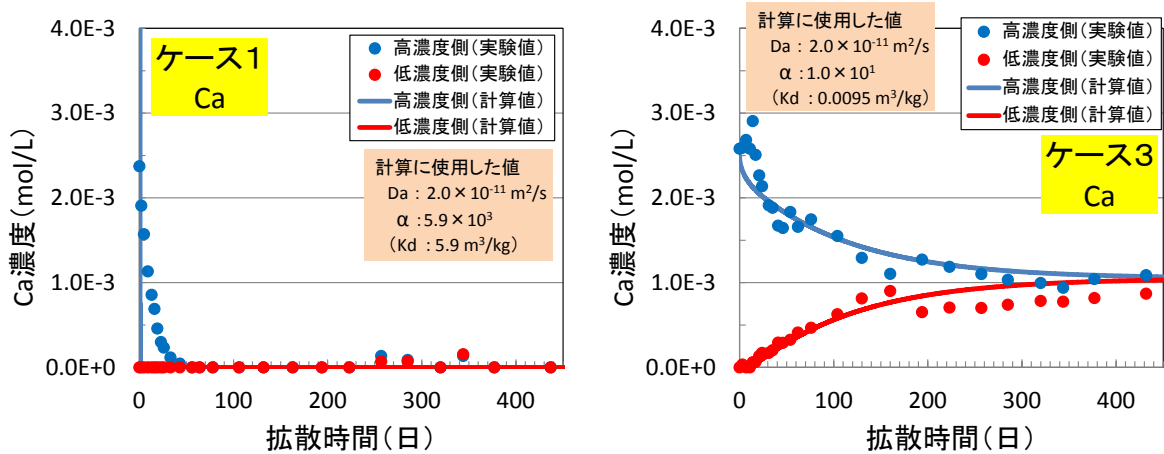


図 1.3-15 高濃度および低濃度側タンク内の Ca 濃度の経時変化 (実験値と計算値)

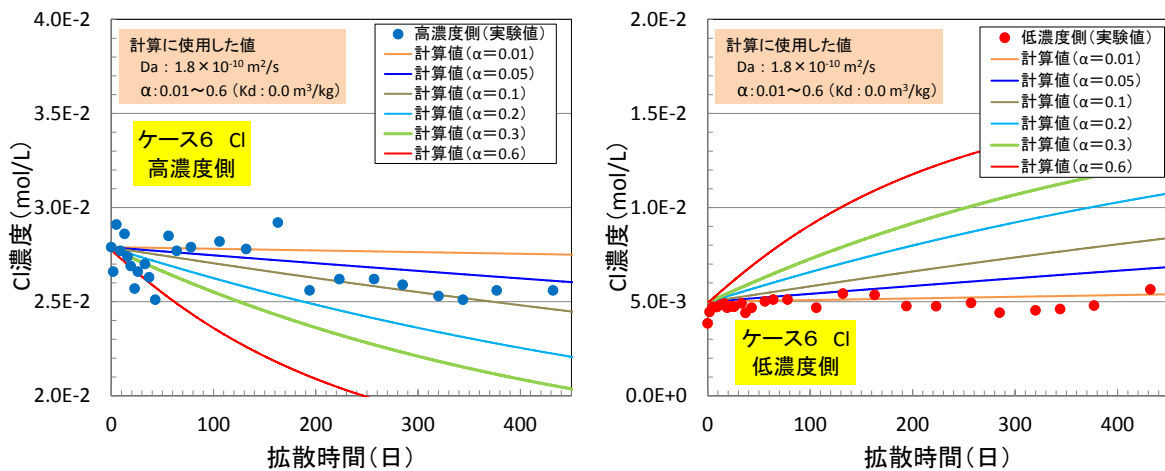


図 1.3-16 高濃度および低濃度側タンク内の Cl 濃度の経時変化 (実験値と計算値の比較)

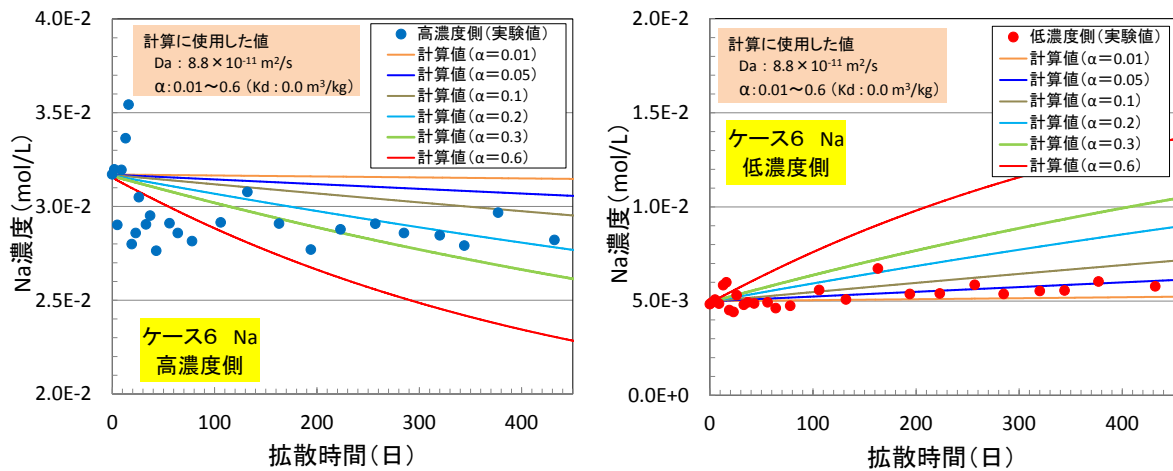


図 1.3-17 高濃度および低濃度側タンク内の Na 濃度の経時変化 (実験値と計算値の比較)

今後は、圧縮体への収着バッチ試験等により陰イオンに対する α を実験的に決定すること、放射性核種を使用した透過拡散試験を実施し、電荷バランスに縛られない、イオン種固有の拡散データを取得すること、また、これら結果を踏まえ、必要に応じて新拡散モデルに反映させることが重要であるとした。

さらに、新拡散モデルを MC-BUFFER へ導入する際の留意点を整理するとともに、具体的な導入方法として、元素ごとへの Da の設定方法、および緩衝材中に多量にある Na を用いた電荷バランスの調整方法について検討した。また、その妥当性を確認するため、MC-BUFFER プログラムの修正、および検証を実施した。計算体系は長さ 3m の 1 次元体系 (図 1.3-18) とし、物質移行は拡散のみとした。移行元素は異なる Da を設定した Na および Cl とし、Na または pH で電荷バランスの調整する方法を実施した。その結果、複数の元素をそれぞれの Da で移行させる計算を実施した場合、従来の pH で電荷バランスを調整する方法よりも Na で調整する方法の方が、系全体の pH の安定性が保たれ、当該調整方法が妥当である可能性が示された (図 1.3-19)。今後は、同一の Da を設定する複数の元素に対する群の構成、郡ごとの移行計算、保持因子 α 、固相を含む系での単位体積当たりの濃度、および地球化学反応計算で用いる間隙水中濃度への換算等についても具体的なコードへの導入方法を検討し、適宜 MC-BUFFER に取り込むとともに、物質移行-地球化学反応を連立させた計算を実施し、その妥当性を確認することが重要である。

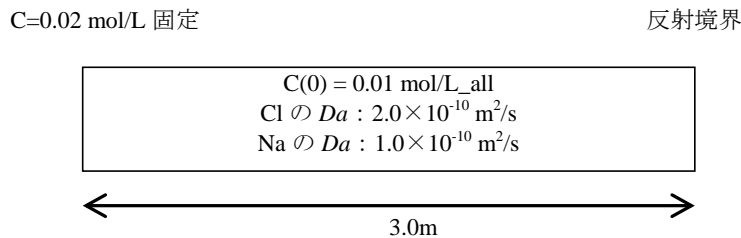


図 1.3-18 計算体系概念図

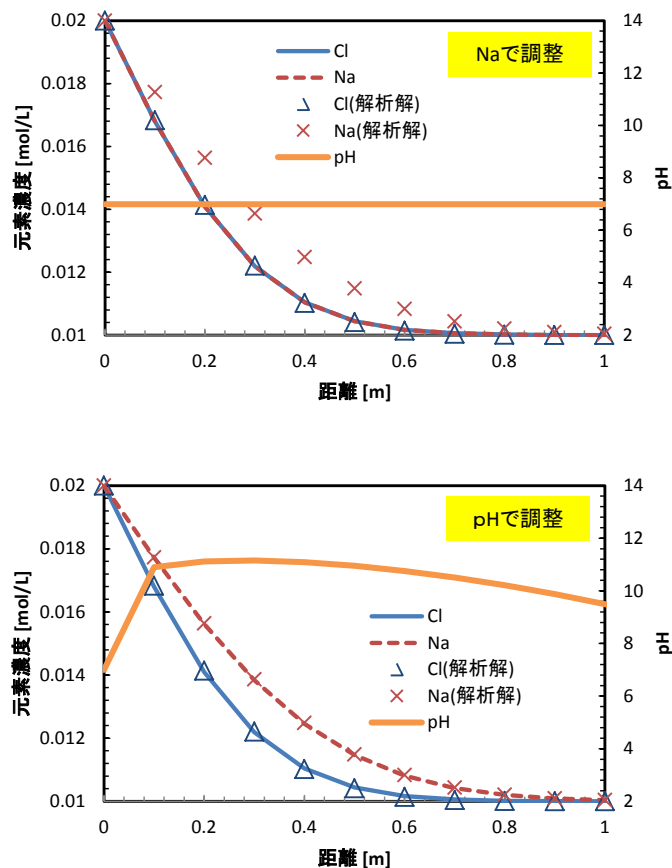


図 1.3-19 3.0×10^8 秒後の元素濃度分布および pH 分布の計算結果と解析解の比較
(電荷バランス調整方法に係る検討)

(3) MIG2DF の整備

日本原子力研究開発機構にて開発中の、多孔質媒体中での 2 次元地下水流動・核種移行評価コード：MIG2DF に対し、長期的な地質環境の変化（隆起・侵食および断層の成長）を連続的に評価するための拡張として、以下の 3 つの機能から成る外部プログラム：隆起・侵食解析用入出力データセット作成コード（PASS_UANND）を作成した。

1) 隆起・侵食に係る入力支援モジュール（UANDD_PRE）

ある時刻の地質モデルデータ（地表面、地質境界、断層面の情報）から、計算時刻毎の地質モデルデータを補間して作成する。

2) 節点移動機能に係るモジュール（UANDD_TRANSNODE）

地質モデルデータをもとに解析モデルデータを更新する。地質構造の任意の形状変化に応じてモデル全体の節点を移動することを可能とする。

3) モデル切り替え時の計算値継承に係るモジュール（CalVaS）

長期的な地質構造の変遷に対する非定常解析を連続的に行うにあたって、地質構造の変化に伴う解析モデル更新時に、地層との位置関係に応じて節点の計算値を更新前のモデルから継承する。

本コードを MIG2DF と共に用いることで、長期的な地質環境の変化による地下水流動への影

響を連続的に評価することが可能となる。例として、地質調査等によって過去および現在の各時点での地質構造が得られており、これらに基づき未来の地質構造が推定されている場合における、過去～現在～未来に対する地質環境の変化の連続的な評価の流れを、図 1.3-20 に示す。

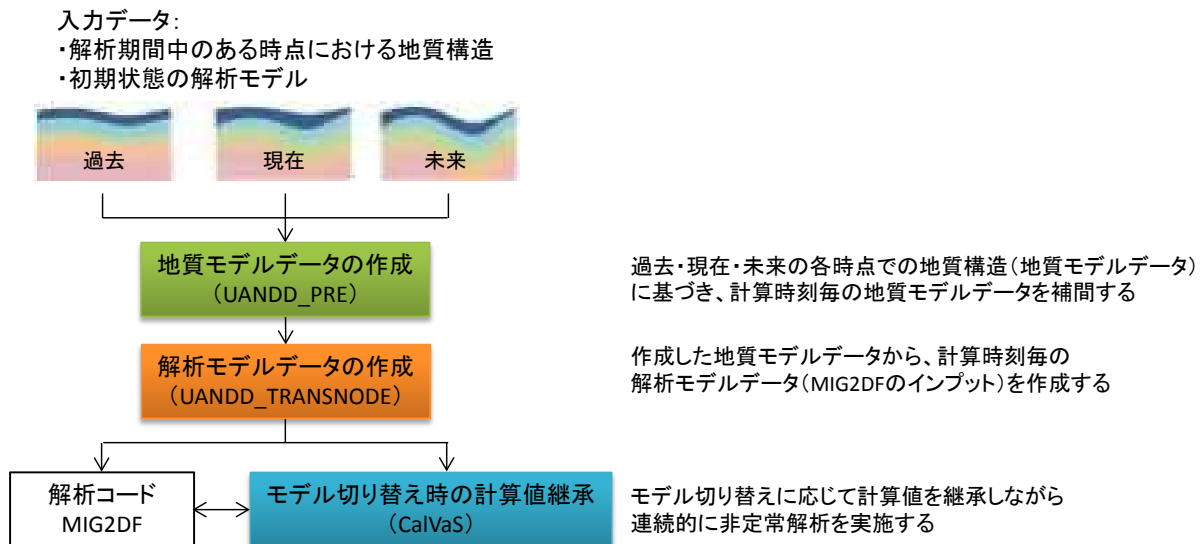


図 1.3-20 地質環境の長期的変遷を考慮した連続的な解析の流れ

(4) GSRW-PSA の整備

確率論的安全評価コード GSRW-PSA は、HLW あるいは TRU 廃棄物の地層処分にかかる評価シナリオに基づいた安全評価を行うためのコードとしてこれまで整備されてきた。GSRW-PSA を用いて燃料デブリに特有の特性を踏まえた解析を行うことができるように以下のとおりコードの拡張を行った。

(a) ソースタームモデルの拡張

燃料デブリは、 UO_2 ペレット、被覆管のジルカロイ、制御棒材料、炉内構造物などが溶解・混合・固化し、化学形なども大きく異なることが想定される。最終的に固化した状態では、ガいくつかの部位から異なる浸出率で核種が溶出することが想定される。既存のコードでは、廃棄体からの核種浸出とコンパートメント中の核種移行は一続きの計算として解析されていたため、燃料デブリのように不均質な廃棄体を評価することができなかった。瞬時放出を含む複数の異なるパラメータでそれぞれ評価されたフラックスを足し合わせて浸出フラックスとできるようにコードの拡張を行った。既存のソースタームコンパートメントモデル(mod_cmtm)を2つに分離し、浸出率の計算のみを行う浸出モデル(mod_waste)と、浸出モデルの計算結果を用いて人工バリア中の移行解析を行うソースタームコンパートメントモデル(mod_scmt)に整備しなおした。

既存のコードでは、廃棄体からの核種浸出とコンパートメント中の核種移行は一続きの計算として解析されていた(図 1.3-21)。複数の廃棄物について解析を行う際には、核種流出量の計算および人工バリア中の移行解析を廃棄物毎に行う必要があった。異なる浸出率の部分が混合するという燃料デブリの特性に即した形の解析が可能となるよう、廃棄物毎

の流出フラックスを計算できるように整備を行うとともに、廃棄物毎に行っていた人工バリア中移行解析をまとめて行えるよう整備を行った（図 1.3-22）。

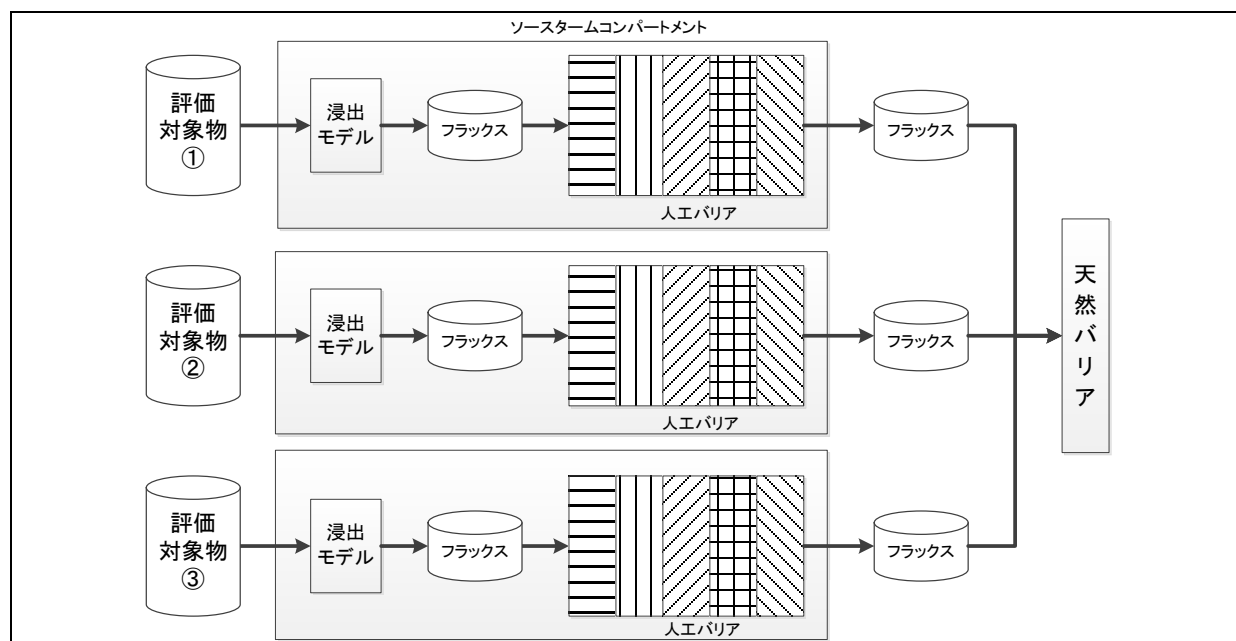


図 1.3-21 既存のソースタームモデルを用いた複数の廃棄物考慮解析概念図例

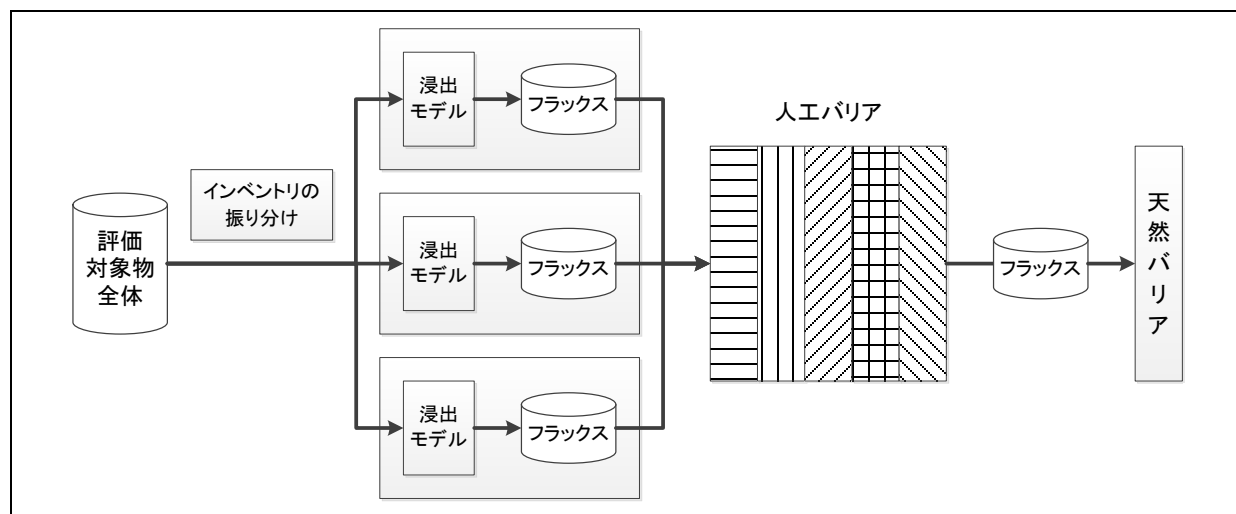


図 1.3-22 新たに整備したモデルを用いた複数の廃棄物考慮解析概念図例

(b) 核種濃度の出力機能の追加

核種移行解析によって濃集量を求め、容器外臨界の可能性を評価するために、天然バリアモデル（亀裂性媒体近似モデル・多孔質媒体近似モデル）に対して、指定した位置における各タイムステップの核種濃度のテキスト出力を行う機能を整備した。

(c) 要素の生成・削除による領域の長さの設定

これまでの天然バリアモデルは、境界条件が適用されている「領域全体の長さ」を設定し、それとは別に設定する「移行距離」が示す地点を透過するフラックスを計算するモデ

ルとなっていた。「領域全体の長さ」は固定されており、「移行距離」を変化させることによって隆起侵食による移行経路の短絡などの移行経路の変化を表現していた。

「移行距離」に合わせて下流側境界条件を設定する節点番号を変更する機能の整備を行った。

1.3.5 総合的な核種移行評価手法の整備

(1) 人工バリアの変遷シナリオを対象とした安全評価

1.3.2において検討を行い抽出したシナリオに基づいた人工バリアに対する影響解析を行い、その結果より燃料デブリの処分の安全性を著しく損なう可能性のある人工バリアの設計を含む条件や事象を抽出するため、以下の解析を実施した。

- ① 廃棄体からの発熱およびセメント成分のパラメータ影響解析
- ② 10万年以降の緩衝材の状態設定に係わる影響解析
- ③ 廃棄体に含まれる海水成分による緩衝材への影響解析

解析①については、地下水組成、発熱考慮の有無、セメント成分、OP寿命を組み合わせた設定について検討を行った。解析②については、解析①の一部について、10万年以降の設定を変更させた設定について検討した。両者ともインベントリには仮想デブリ Ver.1を用いた。

解析③については、海水成分が緩衝材に与える影響を予察的にみるため、緩衝材と海水成分とが直接接触する体系を設定した。

解析①②の体系は、我が国の処分環境を考慮して地層処分研究開発第2次取りまとめ⁽²²⁾および第二次 TRU レポート⁽²³⁾を参考に、平成26年度にも設定した HLW を模擬した1次元解析体系とした。(図 1.3-23)

解析③の海水成分による影響については、海水成分を内部からではなく外部地下水の海水成分を設定し、緩衝材と地下水が直接接触させ、支保工が無い解析体系とした。(図 1.3-24) 地層処分研究開発第2次取りまとめでは、人工バリアの外側には掘削影響領域(以下、「EDZ」という。)があり、境界条件として緩衝材外側に濃度固定条件を与えることにより、常にフレッシュな地下水が接する条件とし、OP内側の境界には濃度勾配0の条件を与えた。

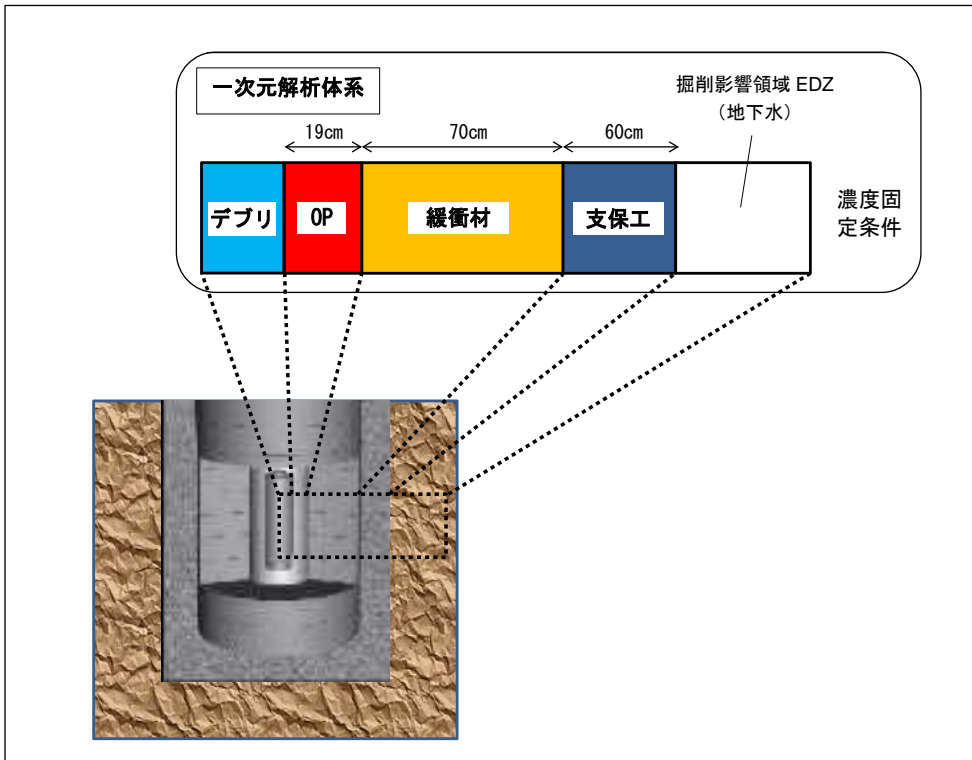


図 1.3-23 解析体系概念図（解析①：発熱・セメント成分、解析②：10万年以降の設定）

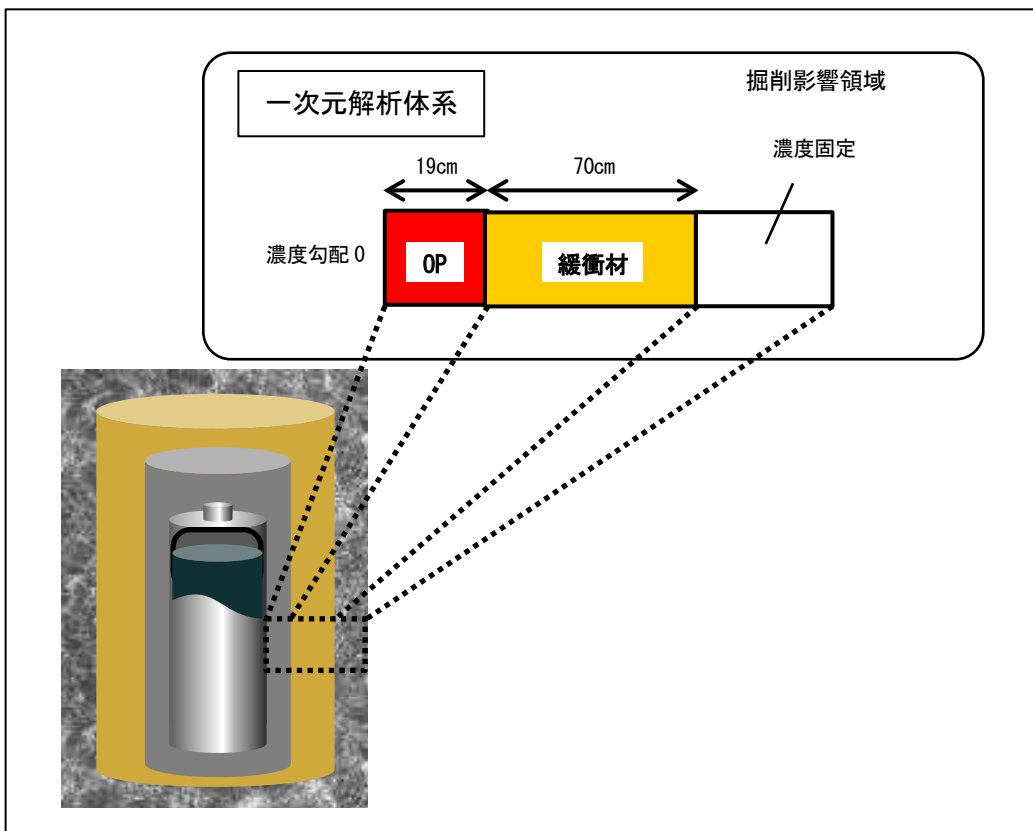


図 1.3-24 解析体系概念図（解析③：海水成分）

①の解析ケースは、降水系地下水と海水系地下水に対し、廃棄体の発熱考慮の有無、MCCI生成物およびセメント成分の割合、OP破損時期を組み合わせた25ケース（case1～25）を設定した。表 1.3-10 に解析ケース一覧を示す。

②の10万年以降の設定による影響に対する解析ケースは、解析①のcase1～3について、10万年時の設定を10万年以降も継続させる設定または緩衝材の性能喪失状態を想定した全6ケース（case1～3、case1deg～3deg）を設定した。なお、6ケースの内3ケースは①の解析と同じ設定である。表 1.3-11 に解析ケース一覧を示す。

③の海水成分の影響に対する解析ケースは、地下水質特性を変化させた2ケース（case26、27）を設定した。表 1.3-12 に解析ケース一覧を示す。

表 1.3-10 解析ケース一覧（①発熱、セメント成分）

ケース	地下水質特性	温度 [°C]	MCCI生成物の割合[%]	OP破損 [年]	緩衝材厚さ [cm]	乾燥密度 [g/cm ³]	混合率 [Bnt.:Qtz.]	支保工厚さ [cm]
1	降水系	100～47	0	4,000	70	1.6	7:3	60
2				50,000				
3				100,000				
4			30	4,000				
5				50,000				
6				4,000				
7		50,000						
8		47	0	4,000				
9				50,000				
10				30				
11			50,000					
12			4,000					
13			50,000					
14	海水系	100～47	0	4,000	70	1.6	7:3	60
15				50,000				
16				30				
17			50,000					
18			4,000					
19			50,000					
20		47	0	4,000				
21				50,000				
22				30				
23			50,000					
24			4,000					
25			50,000					

表 1.3-11 解析ケース一覧 (②10 万年以降の設定)

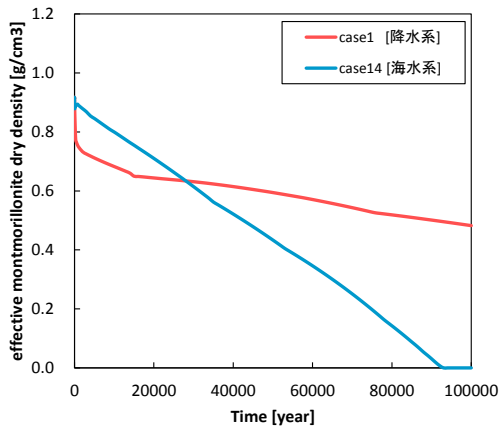
ケース	地下水質特性	温度 [°C]	MCCI 生成物の割合[%]	OP 破損 [年]	10 万年以降の設定	緩衝材厚さ [cm]	乾燥密度 [g/cm ³]	混合率 [Bnt.:Qtz.]	支保工厚さ [cm]
1	降水系	100~47	0	4,000	10 万年時を継続	70	1.6	7:3	60
2				50,000					
3				100,000					
1deg				4,000	性能が喪失した状態				
2deg				50,000					
3deg				100,000					

表 1.3-12 解析ケース一覧 (③海水成分)

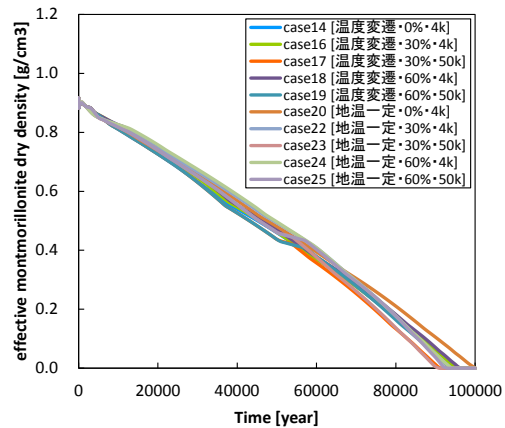
ケース	地下水質特性	温度 [°C]	MCCI 生成物の割合[%]	OP 破損 [年]	緩衝材厚さ [cm]	乾燥密度 [g/cm ³]	混合率 [Bnt.:Qtz.]	支保工厚さ [cm]
26	降水系	100~47	0	-	70	1.6	7:3	0
27	海水系							

緩衝材変質・間隙水組成の変遷の観点からは、MCCI 生成物の割合がゼロのケースでは OP 破損による廃棄体内部からの化学的影響は解析上考慮されないため、case1~case3、case8 と case9、case14 と case15、case20 と case21 はそれぞれ同じ解析結果となる。

それぞれの解析結果を比較、検討し、地下水質特性、廃棄体の発熱考慮の有無、MCCI 生成物およびセメント成分の割合、OP 破損時期の違いによる緩衝材性能劣化に与える特徴的な相違が見られるものを抽出した。また、降水系地下水に対するケース設定である case1~case3 を基に、10 万年以降の設定の違いによる緩衝材変質・間隙水組成の変遷設定を行った。海水成分については、降水系と海水系とで緩衝材性能劣化にどのような違いがあるかについて検討した。なお、後述のグラフにおける緩衝材領域の経時変化分布についての各値は、緩衝材領域平均とし、pH および Eh のグラフについては、緩衝材のオーバーパック接触領域付近における経時変化とした。また、透水係数については、緩衝材領域における等価透水係数値を示している。



(a) 地下水質の違いによる比較



(b) 海水系地下水全ケース

図 1.3-25 有効モンモリロナイト密度の経時変化分布（地下水質による影響）
 [廃棄体からの発熱考慮、セメント・MCCI成分：0%]

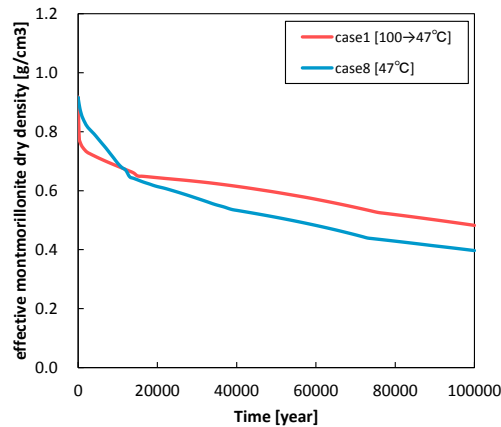
図 1.3-25(a)の有効モンモリロナイト密度の地下水質による比較の通り、有効モンモリロナイト密度は降水系地下水のケースでは 100,000 年後においても 0.48 g/cm^3 残存するが、海水系地下水のケースでは約 94,000 年後に消失する結果となった。海水系地下水のケースは線形的にモンモリロナイトの溶解が進んでいるのに対し、降水系地下水のケースでは約 15,000 年後に有効モンモリロナイト密度がやや横ばいに推移する傾向に変化している。これは緩衝材と支保工との境界の緩衝材領域側において局所的な間隙率低下が発生し、支保工側からのアルカリ成分流入が抑制されたことにより、モンモリロナイトが残存する結果となったものと考えられる。

図 1.3-25(b)の海水系地下水全ケースにおける有効モンモリロナイト密度からわかるように、どの海水系地下水においても有効モンモリロナイト密度はほぼ線形的に低下し、100,000 年後には残存しないという結果となった。

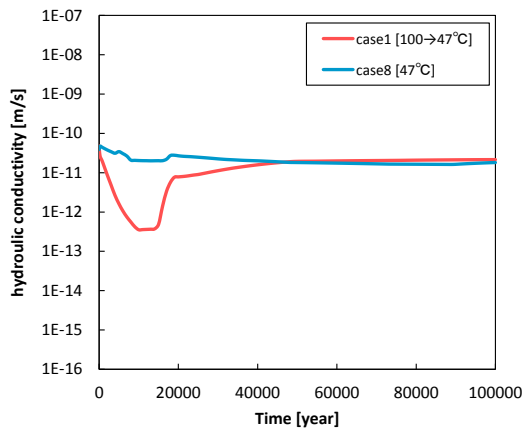
以上の地下水質による影響解析結果により、地下水質の違いによる間隙率低下の度合いが有効モンモリロナイト密度の減少傾向に大きく影響することが示された。

海水系地下水による影響は傾向的にほぼ一定であることから、解析結果の検討はモンモリロナイトが 100,000 万年以上残存する降水系地下水のケースについて絞って示すこととする。

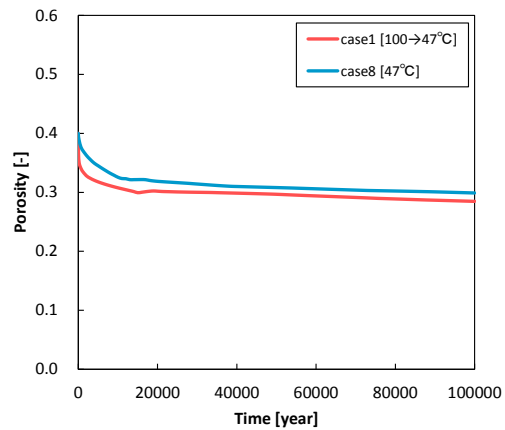
次に、廃棄体からの発熱の有無を考慮したケースの有効モンモリロナイト密度、透水係数、間隙率の経時変化についての比較を示す。



(a)有効モンモリロナイト密度



(b)透水係数



(c)間隙率

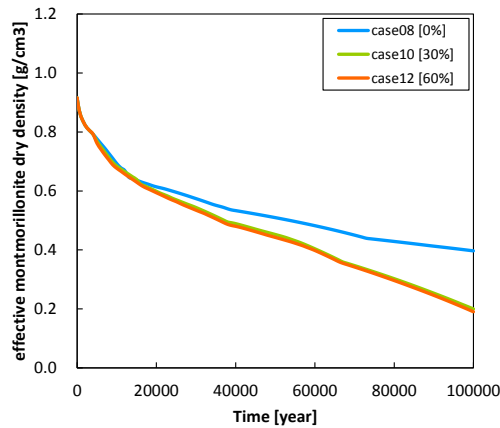
図 1.3-26 緩衝材領域における経時変化分布（廃棄体からの発熱の影響）
[降水系地下水、セメント・MCCI成分：0%]

図 1.3-26(a)に示すとおり、有効モンモリロナイト密度は発熱を考慮したケースにおいて100,000年間で 0.48 g/cm^3 残存、地温一定のケースにおいても 0.40 g/cm^3 残存する結果となった。両ケースにおいても緩衝材領域と支保工との境界付近における局所的な間隙率低下によるものであるが、地温一定ケースにおいては間隙率低下の箇所が支保工側で発生していた。

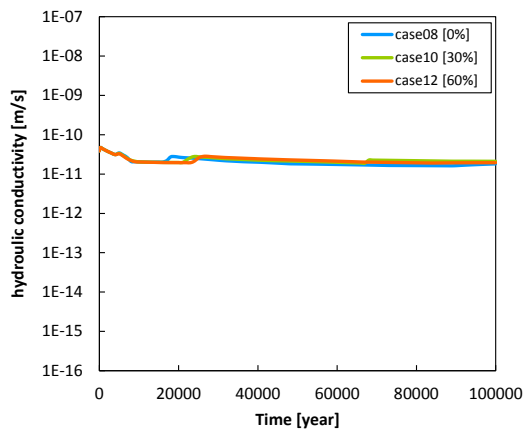
図 1.3-26(b)の透水係数について、発熱を考慮したケースにおいては、支保工付近の緩衝材領域における局所的な間隙閉塞の影響が強く表れていることがわかる。地温一定のケースについては緩衝材と支保工境界の間隙率低下が発生している箇所が支保工側であるため、緩衝材領域の透水係数には影響を及ぼしていない。

以上の廃棄体からの発熱による影響解析結果より、発熱の有無によって間隙率低下の発生の度合いや発生場所等が変化し、モンモリロナイトの溶解挙動に影響をおよぼすことが示された。

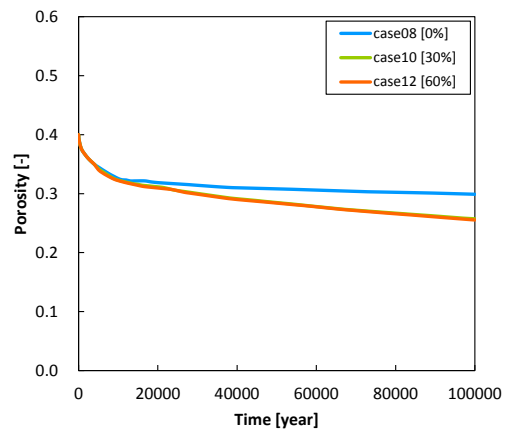
続いて、デブリ廃棄体からのセメント分量を変化させたケースの有効モンモリロナイト密度、透水係数、間隙率の経時変化についての比較を示す。



(a)有効モンモリロナイト密度



(b)透水係数



(c)間隙率

図 1.3-27 緩衝材領域における経時変化分布 (セメント・MCCI 成分の影響)
[降水系地下水、地温一定]

図 1.3-27(a)に示すとおり、モンモリロナイトはセメント成分を含まないケースにおいて 100,000 年間で 0.40 g/cm^3 残存するのに対し、セメントおよび MCCI 成分を 30% 含むケースでは 0.20 g/cm^3 、60% 含むケースでは 0.19 g/cm^3 残存する結果となり、セメント成分を含む 2 ケースの方が、モンモリロナイト溶解が促進される結果となった。またセメントを含む 2 ケースにおいては含まれるセメント成分によらず似たような有効モンモリロナイト密度の減少傾向を示した。図 1.3-27(b)の透水係数について、3 ケース共に緩衝材と支保工の境界の局所的な間隙率低下が発生している箇所が支保工側であるため、緩衝材領域の透水係数への影響としては現れていない。またこの緩衝材と支保工との境界の支保工側での間隙率低下は、3 ケースともほぼ同じ傾向であった。

以上のセメント・MCCI 成分の影響解析結果より、デブリに含まれるセメント成分は少量であってもモンモリロナイト溶解に影響をおよぼす可能性が示された。

10 万年以降の設定の違いによる緩衝材変質・間隙水組成の変遷設定を case1~case3 の解析結果を基に 3.2.3 に述べたシナリオ設定により緩衝材の性能が喪失した状態を反映させ case1deg~case3deg の設定を行った。10 万年時を継続させた場合 (case1~case3) と 10 万年で喪失させた場合 (case1deg~case3deg) の緩衝材領域における pH、Eh の経時変化を図 1.3-28 に、特性の経時変化を図 1.3-29 に示す。

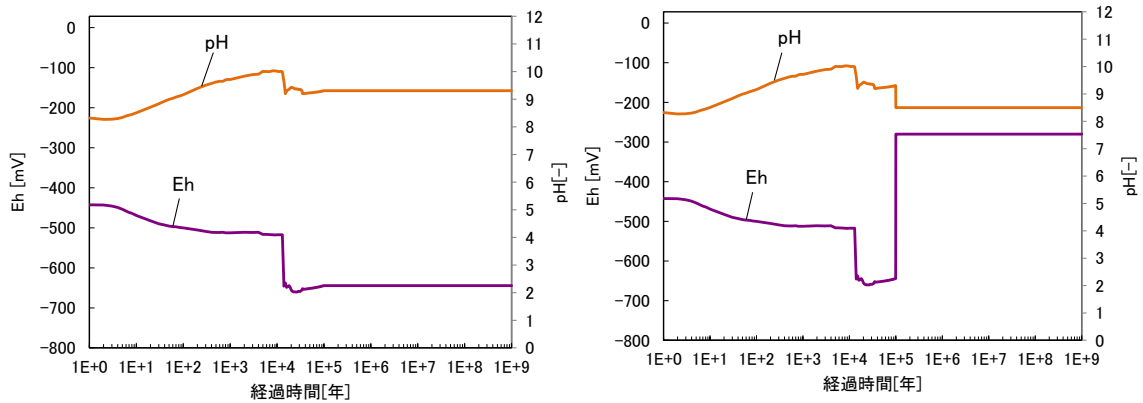


図 1.3-28 10 万年時を継続 (左)、10 万年で性能喪失 (右) のシナリオに基づく緩衝材領域における pH、Eh の経時変化

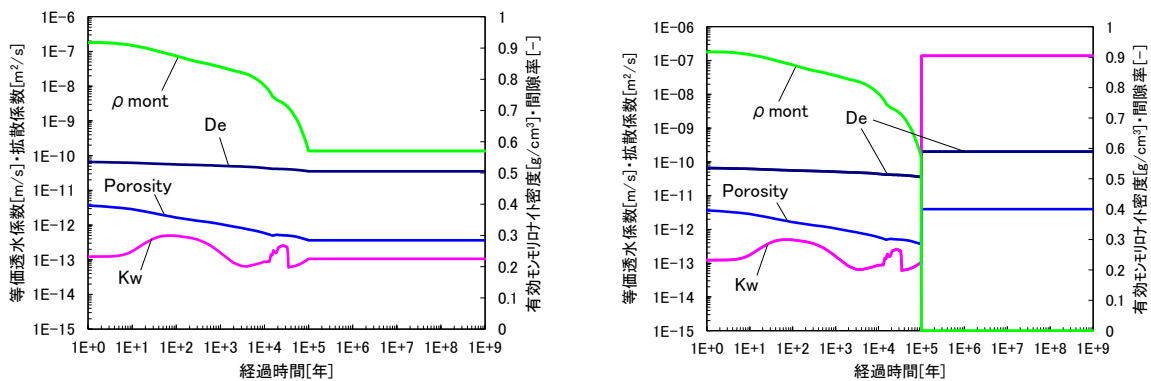


図 1.3-29 10 万年時を継続 (左)、10 万年で性能喪失 (右) のシナリオに基づく緩衝材領域における特性の経時変化

最後に、緩衝材の海水成分（海水系地下水）による影響解析結果の、緩衝材領域の地下水との境界における間隙率と、その境界を除いた緩衝材領域の有効モンモリロナイト密度の経時変化を示す。

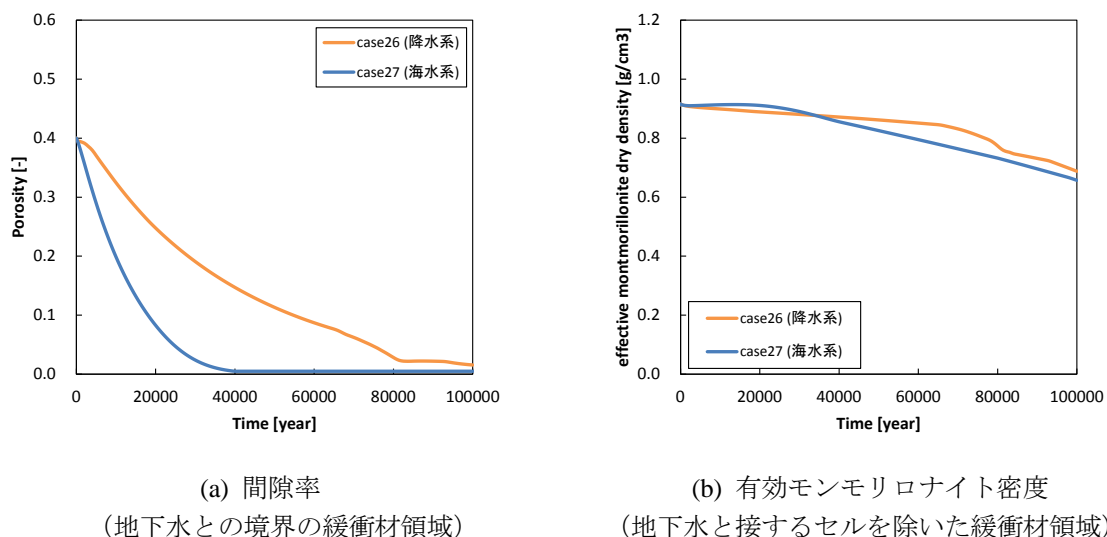


図 1.3-30 緩衝材領域における経時変化分布（海水成分の影響）
[廃棄体からの発熱考慮、セメント・MCCI成分：0%]

図 1.3-30(a)の間隙率についての経時変化のとおりに、地下水との境界における間隙率では大きな傾向の違いが見られたものの、境界部を除く緩衝材領域全体においてはほぼ同じ傾向となっていたことから、影響は非常に局所的であった。

図 1.3-30(b)の有効モンモリロナイト密度への影響は、あまり大きく現れない結果となった。

以上の検討内容から、地下水の水質（降水系地下水、海水系地下水）、デブリ廃棄体からの発熱、廃棄体内のセメント成分などの組み合わせにより、緩衝材の性能劣化に対して多様な影響が存在することが示唆された。また海水成分による影響は大きくは現れなかったが、今後は内側に配置した廃棄体に含まれる海水成分の影響、海水成分とセメント成分の相乗的影響などについての解析が必要と考えられる。

人工バリアの変遷シナリオを対象とした安全評価として、解析結果より検討した7ケースについて実施した。選定した人工バリア変遷シナリオ対象ケースを表 1.3-10、表 1.3-14 に示す。

表 1.3-13 人工バリア変遷シナリオ対象ケース（1）

ケース	地下水質特性	温度 [°C]	MCCI 生成物の割合 [%]	OP 破損 [年]	10 万年以降の設定	緩衝材厚さ [cm]	乾燥密度 [g/cm ³]	混合率 [Bnt.:Qtz.]	支保工厚さ [cm]
1	降水系	100~47	0	4,000	10 万年時を継続	70	1.6	7:3	60
2				50,000					
3				100,000					
1deg				4,000	性能が喪失した状態				
2deg				50,000					
3deg				100,000					

表 1.3-14 人工バリア変遷シナリオ対象ケース（2）

ケース	地下水質特性	温度 [°C]	MCCI 生成物の割合 [%]	OP 破損 [年]	緩衝材厚さ [cm]	乾燥密度 [g/cm ³]	混合率 [Bnt.:Qtz.]	支保工厚さ [cm]
6	降水系	100~47	60	4,000	70	1.6	7:3	60
7				50,000				
8		47	0	4,000				
12			60	4,000				

以上のケースについて、各評価への人工バリア変遷解析データを提供し、核種移行データを決定した。核種移行データの設定結果に基づいて、仮想デブリ Ver.1 のインベントリに対して確率論的安全評価コード GSRW-PSA コード)を用いて人工バリアからの核種移行フラックスを計算した。一例として Case1 と case1deg のフラックスについて図 1.3-31(1/2)、(2/2)に示す。

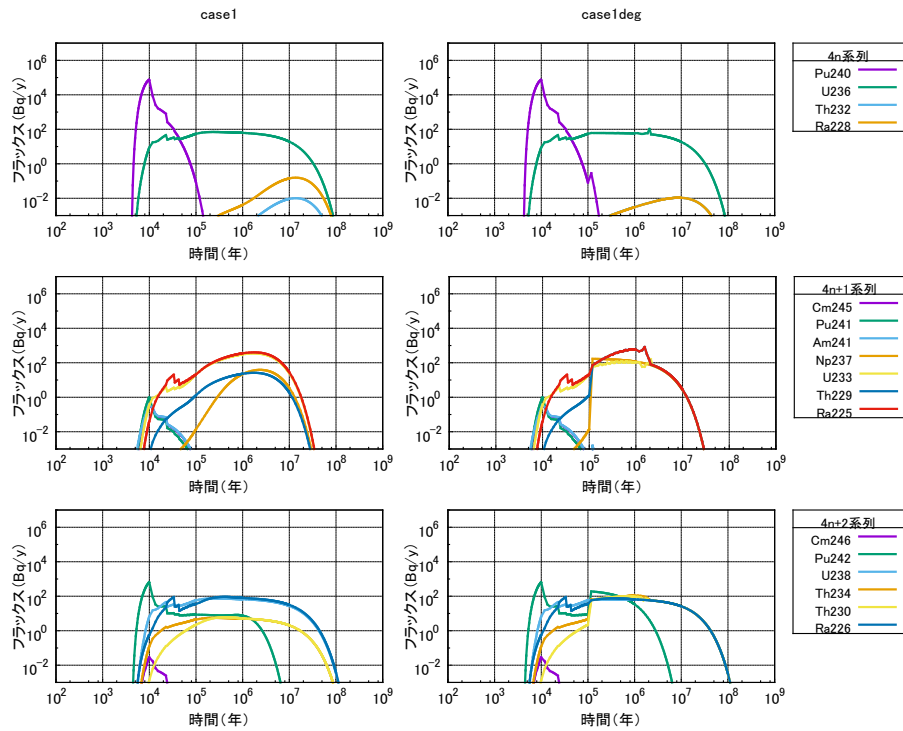


図 1.3-31 10 万年以降の設定を継続/喪失としたときの
核種移行フラックス (OP 破損 4,000 年) (1/2)

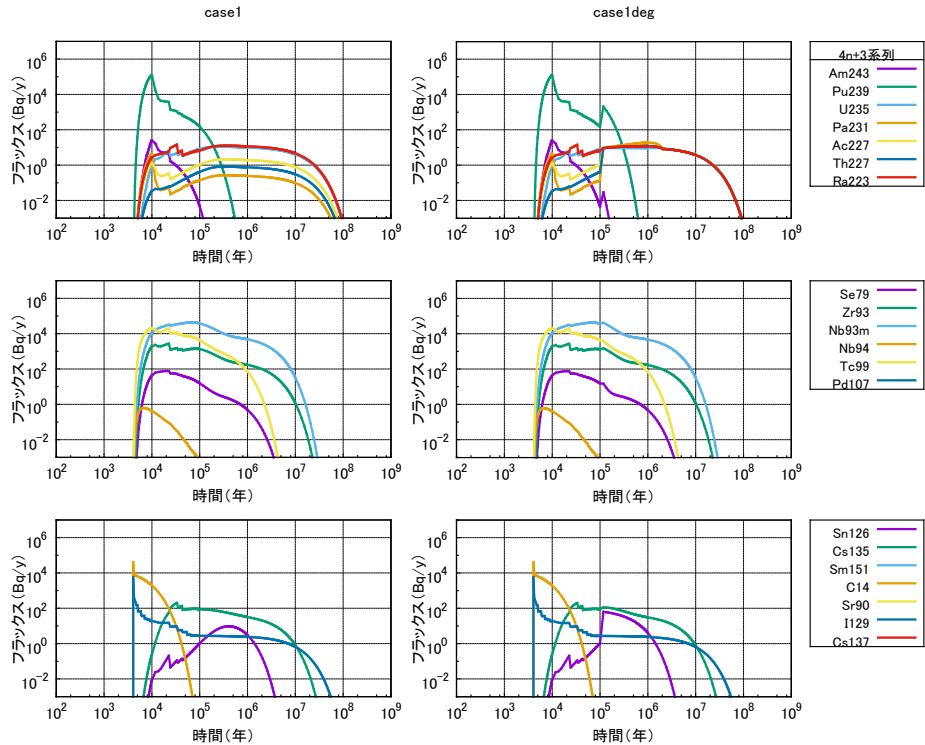


図 1.3-31 10 万年以降の設定を継続/喪失としたときの
核種移行フラックス (OP 破損 4,000 年) (2/2)

表 1.3-11 の 10 万年以降の設定による影響解析では、人工バリア材の変質挙動に対するシナリオ設定について、10 万年時の緩衝材の状態設定を継続するケースと 10 万以降は緩衝材性能が喪失した状態を設定するケースとで、人工バリアからの核種フラックスが OP の破損時期の違いを検討した。表 1.3-15 に継続/喪失の設定の違いにより、人工バリアからの核種フラックスのピーク値が OP の破損時期の違いにより大きく異なる結果となった核種を示す。

表 1.3-15 10 万年以降の設定の変更により OP 破損時間毎の人工バリアからのピークフラックス値が高くなった核種

	継続設定よりも喪失設定でピークが高くなった核種
4,000 年破損	放射平衡核種 : Np-237、Th-229、Th-234、Th-230、Th-227 他の系列核種 : なし その他の核種 : Sn-126
5 万年破損	放射平衡核種 : Np-237、Th-229、Th-234、Th-230、Pa-231、Ac-227、Th-227 他の系列核種 : Pu-240、Pu-242、Am-243、Pu-239 その他の核種 : Sn-126
10 万年破損	放射平衡核種 : Np-237、Th-229、 <u>Ra-225</u> 、 <u>U-238</u> 、Th-234、Th-230、 <u>Ra-226</u> 、Pa-231、Ac-227、Th-227、 <u>Ra-223</u> 他の系列核種 : Pu-240、Pu-242、Am-243、Pu-239 その他の核種 : Se-79、Zr93、Nb-93m、Nb-94、Tc-99、Sn-126、Cs-135、I-129

ガラス固化体に対する基本ケースとして OP 破損 4,000 年、10 万年以降も状態設定を継続するケースにおいては、Pu-240、Pu-239、Nb-93m、Tc-99、C-14、I-129 のピークが 10^4 Bq/y 以上と高かった。これらのうち、Pu-240、Pu-239、C-14 については、OP 寿命を 5 年以上に長くすることで大幅にピーク値を低減できるため、重要な設計要件となると考えられる。

10 万年以降の人工バリアの変遷を継続/性能喪失としたことにより、多くの核種がフラックスへの影響を大きく受ける結果が得られた。特に、性能喪失に伴い保守的に分配係数をゼロと設定したことにより、特に OP 破損 5 万年、10 万年の設定でピーク値が大きく変化した核種が見られた。表 1.3-16 に、設定の違いによる OP 破損時期毎のフラックス経時変化の特徴を示す。

表 1.3-16 10 万年以降の設定の違いによる OP 破損時間毎の
人工バリアからのフラックス経時変化の特徴

	継続設定	劣化設定
4,000 年破損	放射平衡核種：分配係数比に応じ親核種と相似的な経時変化。 他の系列核種：Pu-240、Pu-239 のピークが特に高い。Pu-242、Pu-239 を除いた短半減期核種は 10 万年までに下降。 その他の核種：Nb-93m、C-14、I-129 が 10^5 Bq/y 近くまで到達。	放射平衡核種：Kd ゼロを設定したため親核種と同一の経時変化。これに伴い Np-237、Th-229、Th-234、Th-230、Pa-231、Th-227 は 10 万年時に上昇。Ra-225 は 100 万年以降に再上昇。 他の系列核種：Pu-242、Pu-239 は 10 万年時に再上昇 (Kd ゼロによる)。 その他の核種：Sn-126 は 10 万年時に再上昇 (Kd ゼロの影響)。
5 万年破損	放射平衡核種：分配係数比に応じ親核種と相似的なより明確な経時変化。 他の系列核種：Pu-242 のピークは若干、Pu-240、Pu-239 は大きく減少。Pu-239 のピークは 1 万年から約 20 万年に、Pu-242 は 100 万年に後退。 その他の核種：C-14 のみピークが減少。	放射平衡核種：Kd ゼロを設定したため親核種と同一の経時変化。これに伴い Np-237、Th-229、Th-234、Th-230、Pa-231、Th-227 は 10 万年時により明確な上昇。 他の系列核種：Pu-242、Pu-239 のピークが 10 万年直後に出現。値も継続設定よりそれぞれ 1 桁、4 桁大きい。 その他の核種：Sn-126 のピークが 10 万年直後に出現。値も継続設定より 1 桁大きい。Sn-126 以外には大きなフラックス変化はない。
10 万年破損	放射平衡核種：同上の傾向 他の系列核種：同上の傾向 その他の核種：同上の傾向	放射平衡核種：同上の傾向 他の系列核種：同上の傾向 その他の核種：Sn-126 以外にも、Nb-93m、Tc-99、Se-79、Cs-135、I-129 などの長寿命の核種で 10 万年時に継続設定より 1 桁程度大きなピークが発生 (Kd ゼロの影響)。

分配係数は、有効モンモリロナイトの減少、緩衝材中溶液の組成、pH、Eh に大きく影響され、燃料デブリのインベントリ元素には、Eh、pH で価数が増える元素が多く、価数の変化で分配係数は大きく変化する。緩衝材中溶液は周囲の地下水の pH、Eh に時間とともに置き換えられると考えられたため、どの程度の時間で切り替わるのかという観点から、重要な設計要件になると考えられる。

熱・セメント成分による影響解析においては、人工バリア材の変質挙動に対する発熱のシナリオ設定について、ガラス固化体相当の緩衝材の熱変遷を設定するケースと発熱は無く処分深度の地温一定と設定するケース、また、セメント成分のシナリオ設定について、デブリ廃棄体内に MCCI 生成物、セメント成分を含まないケースとそれぞれ 30% ずつ含むケースを設定し、

これらを組み合わせて解析を実施した。解析結果から、それぞれの影響において発熱を考慮した場合、セメント成分を含むケース側に見られたフラックス経時変化の特徴を表 1.3-17 に示す。

表 1.3-17 発熱、セメント成分の影響による人工バリアからのフラックス経時変化の特徴

	発熱を考慮した場合、セメント成分を含むケース側に見られたフラックス経時変化の特徴
発熱による影響	放射平衡核種： <ul style="list-style-type: none"> ・発熱による影響は見られなかった。 他の系列核種： <ul style="list-style-type: none"> ・ Cm-245、Pu-241、Am-241 はピーク値が 2 桁程度上昇。 ・ Pu-240、Pu-239、Pu-242、Am-243 はピーク値が 1 桁程度上昇。 ・ Cm-246 のフラックスが出現。 その他の核種： <ul style="list-style-type: none"> ・発熱による影響は見られなかった。
セメント成分による影響	放射平衡核種： <ul style="list-style-type: none"> ・ Np-237 は立ち上がりが早くなりピーク値がやや上昇。 ・ Ra-225 および Ra-226 は $10^4 \sim 10^5$ 年にピークが出現。 ・ Pu-242 はセメントを含まないケースで出ていた 10^4 年のピークが 1 桁以上低下し、$10^5 \sim 10^6$ 年のピークが上昇。 他の系列核種： <ul style="list-style-type: none"> ・ Pu-240、Pu-239 は 1 桁以上低下。 ・ Ra-228 は立ち上がりが遅くなり、ピークはやや低下。 ・ Cm-245、Pu-241、Am-241 のピーク値が 2 桁程度低下。 ・ Am-243 のピーク値は 2 桁程度低下。 その他の核種： <ul style="list-style-type: none"> ・ Sn-126 は 1 桁程度上昇。 ・ Cs-135 は $10^4 \sim 10^5$ 年にピークが出現。

セメント成分を含まず発熱の影響を考慮しないケースでは、発熱の影響を考慮するケースと比べ、Pu、Am、Cm について溶解度制限によりピークフラックスが 1 桁以上低減された。一方で、U-238、U-235、Cs-135、Ra-226、Ra-223 のフラックスは分配係数が低下することにより上昇するなど、元素、核種により相反する影響となって現れる傾向が見られた。影響の大きさは、「熱影響あり+セメントなし」→「熱影響なし+セメントなし」→「熱影響あり+セメントあり」→「熱影響なし+セメントあり」の順で大きくなった。これらのことから、特に、デブリ廃棄体に含まれる核種を対象として、10 万年までの人工バリアからの核種移行フラックスのピーク値や変化に影響を及ぼすパラメータとして、緩衝材中の核種分配係数、核種溶解度が挙げられた。したがって、これらに影響を与える緩衝材中の溶液組成、固相組成を合理的に求める手法を提示することは重要な設計要件になると考えられる。

(2) 人工バリア安全機能に着目した感度解析

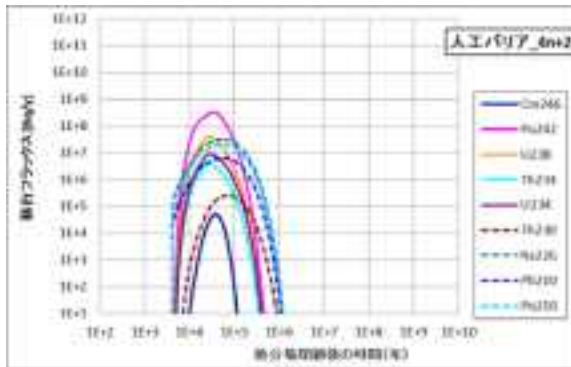
燃料デブリ処分において求められるバリア機能の概略的な把握を目的として、人工バリア安全機能の各条件に対して、感度解析を実施した。はじめに標準ケースを設定し、仮想燃料デブリ Ver.1 を対象とした評価を行い、HLW ガラス固化体を対象としたケースと比較するとともに、標準ケースに対して各パラメータの不確実性を考慮したパラメータ変化を与えて、感度の大きいパラメータを抽出した。

標準ケースは燃料デブリを対象とした解析の基本となるケースで、HLW 第二次とりまとめ⁽²²⁾のレファレンスケースを参考として核種移行解析を行った。HLW 及び燃料デブリ 1 本あたりの放射能インベントリは、HLW については処分後 100 年時点のインベントリを、燃料デブリについては事故後 50 年時点で埋設処分されると仮定した仮想燃料デブリ Ver. 1 のインベントリである。

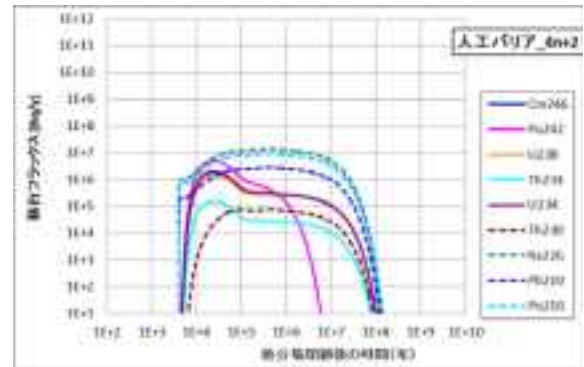
次に、西原ら⁽¹⁾1～3 号機原子炉内インベントリデータから、格納容器内で混合していると考えられる構造材金属と燃料デブリの放射能インベントリについて、瞬時放出成分と溶解律速成分に分類した。また、燃料デブリ中の燃料成分については、その状態が不明で溶解速度に関するデータがないため、本解析では、燃料マトリクスと同様の扱いとし、Nagra が設定した燃料マトリクスの溶解速度の時間変化⁽¹¹⁾を参考とした。Nagra では初期に 10^{-4} (1/y) で 10 万年にかけて 10^{-7} (1/y) まで減少し、10 万年以降も溶解速度が減少する設定を与えているが、直接処分第一次とりまとめ⁽¹²⁾では溶解速度を 1×10^{-7} (1/y) と与えていることから、これを下限値として、10 万年以降は 1×10^{-7} (1/y) が継続するものとした。また、構造材金属についてはすべてステンレスの浸出速度 1.18×10^{-4} (1/y) を適用した。このほか、天然バリアにおける核種移行条件は、第 2 次取りまとめ⁽²²⁾のレファレンスケースにおける母岩および断層中での核種移行解析のデータを参照した。亀裂内の地下水流速は、対数正規分布の累積 75% タイル値を採用し、3.7m/y とした。

図 1.3-32 に標準ケースにおける 4n+2 系列核種の核種別移行フラックスの経時変化 (HLW と燃料デブリ) を示す。人工バリア出口については、ピークフラックスは総じて HLW の方が高いが、100 万年までに放出を終えるのに対し、燃料デブリでは 1 億年にかけて継続的にほぼ一定の値を放出する結果となった。天然バリア出口では、ピーク出現時間に大きな差はなく、燃料デブリの方がピークフラックスの値は高くなった。これは U-238 の総インベントリが燃料デブリの方が 1 桁程度高いことを反映した結果となった。

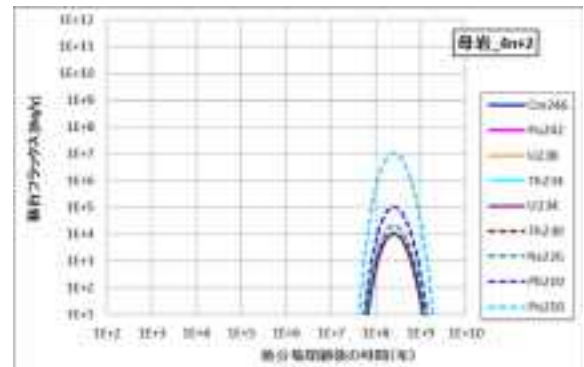
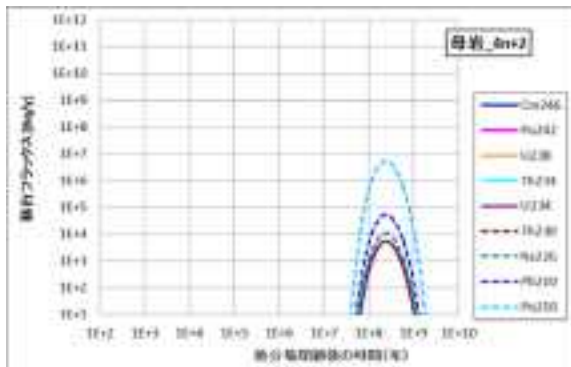
HLW (ガラス固化体 4 万本)



燃料デブリ (4,139 本)



人工バリア



天然バリア (母岩出口)

図 1.3-32 4n+2 系列核種の HLW と燃料デブリの解析結果

このほか、FP 核種については、人工バリア出口でピークフラックスは高いもので 3 桁以上 HLW の方が高くなり、天然バリア出口でも Se-79 で 4 桁程度、Cs-135 及び Nb-93m で 3 桁程度 HLW の方が高い値を示した。また、燃料デブリ含有核種 (C-14, Sr-90, I-129, Cs-137) については、Cs-137 及び Sr-90 については半減期が 30 年程度であり、人工バリア出口フラックスには出現しなかった。C-14 については瞬時放出成分が大きくオーバーパック破損と同時に高いピークを示す。I-129 についてもオーバーパック破損と同時にピークを示すが、C-14 よりもなだらかに減少し 5,000 万年程度まで放出を継続する。天然バリア出口では 2~5 万年程度にピークフラックスを示した。C-14 の半減期が 5700 年程度であり、ピーク出現時期には 1 桁以上減衰していることにより、I-129 とのピーク差が 1 桁以内に収まっている。

以上の結果、HLW との比較から、燃料デブリでは、総インベントリの大きい U-238 (半減期: 4.47×10^9 y) を含む 4n+2 系列核種が人工バリア及び天然バリア出口のフラックスが大きく、それ以外の系列核種では HLW を超えることはなかったことから、4n+2 系列核種のフラックスの影響を評価することが重要となる。また、FP 核種及び燃料被覆の放射化による C-14 は人工バリア及び天然バリア出口フラックスにおいて大きな値を示すことから、感度解析においてその不確かさの影響を確認するのに重要な核種と考えられる。

感度解析

表 1.3-18 に感度解析ケースとパラメータ設定条件を示す。各ケースにおいて、標準ケースで設定した値に対して、最小値、最大値の評価を行い、ピークフラックスの最大値を整理して、パラメータの核種移行への影響について比較を行った。以下の整理では標準ケースで影響の大きかった $4n+2$ 核種及び FP 核種 (C-14 含む) を対象とした。

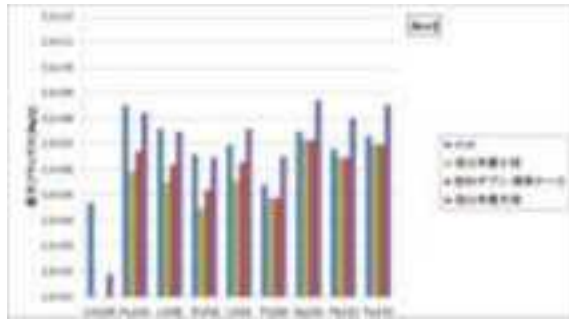
表 1.3-18 感度解析ケースとパラメータ設定条件

No	不確実性	分類	パラメータ	最小値	設定値	最大値	単位
1	核種溶出特性	浸出速度	燃料マトリクス浸出速度	1.0×10^{-7}	時間変化	1.0×10^{-4}	1/y
			構造材金属浸出速度	1.18×10^{-5}	1.18×10^{-4}	1.18×10^{-3}	1/y
2		瞬時放出割合	瞬時放出割合	0	元素ごと	100	%
3	核種閉じ込め機能・設計	OP 破損時期	OP 破損時期	400	4,000	40,000 400,000*2	年
4	核種移行特性	元素依存パラメータ	溶解度	$\times 1/10$	元素ごと	$\times 10$	mol/L
			拡散係数	$\times 1/10$	元素ごと	$\times 10$	m ² /y
			分配係数*1	$\times 10$	元素ごと	$\times 1/10$	m ³ /kg
5	核種閉じ込め設計	緩衝材厚さ	設計厚さ	40	70	100	cm

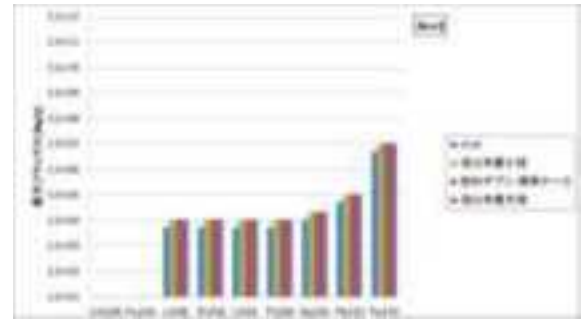
*1 分配係数は小さいほど移行しやすくなる $\times 10$ を最小値、 $\times 1/10$ を最大値とした

*2 OP の素材として銅を想定した場合の値として設定した

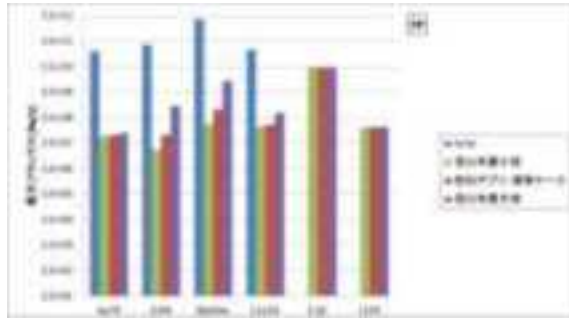
図 1.3-33 に浸出速度に対する最大フラックスの比較グラフを示す。 $4n+2$ 系列核種について、人工バリア出口フラックスでは浸出率最大の場合標準と比較してフラックスは 1 桁以上大きい。一方、天然バリア出口フラックスでは、燃料デブリはいずれの条件でも HLW よりも数倍程度高くなったが、浸出速度の違いがフラックスに影響しない結果となった。FP 核種について、人工バリア出口フラックスで見ると、Zr-93, Nb-93m, Cs-135 は浸出速度が高いほどフラックスが高いが、Se-79, C-14, I-129 は浸出速度の感度はみられなかった。天然バリア出口フラックスで見ると燃料デブリの Se-79, Zr-93, Nb-93m, Cs-135 の最大フラックスは、いずれの条件でも HLW を上回ることはなかった。



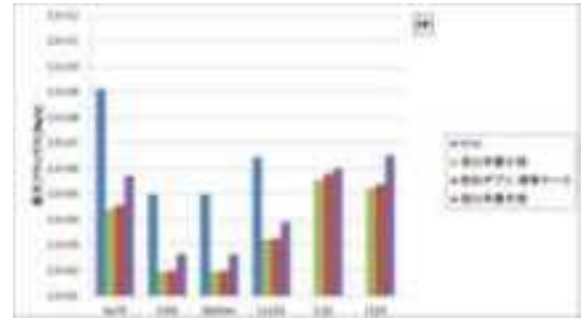
人工バリア出口 (4n+2)



天然バリア出口 (4n+2)



人工バリア出口 (FP 核種)



天然バリア出口 (FP 核種)

総量 (HLW : 4 万本、燃料デブリ : 4139 本)

図 1.3-33 浸出速度に対する最大フラックスの比較

そのほかのパラメータについても同様の評価を行った結果、人工バリア出口フラックスへの影響の観点からは、4n+2 系列核種は OP 破損時期以外のパラメータについては影響が大きく、特に燃料デブリに特有なパラメータである浸出速度及び瞬時放出割合といった廃棄物からの核種溶出に係る不確実性の影響は重要となることがわかった。また、半減期の比較的短い C-14、Se-79 については OP 破損時期が 4 万年、40 万年になると減衰の効果が認められる。

天然バリア出口フラックスへの影響の観点からは、4n+2 系列核種については人工バリア出口のフラックスの違いをすべて吸収してしまい、すべてパラメータについて、天然バリア出口には影響を及ぼさない結果となった。分配係数が小さい核種については、人工バリア出口でのフラックスの違いが天然バリア出口にも反映され、特に浸出速度、瞬時放出割合について感度が大きい。C-14、Se-79 については OP 破損時期が 4 万年、40 万年になると影響が反映される。

以上のことから、浸出速度及び瞬時放出割合といった燃料デブリからの核種溶出に係る不確実性の影響は重要となることがわかった。特に FP 核種に対して重要であり、系列核種は天然バリアの性能に依存し、天然バリアの性能が低い場合には影響が現れてくる可能性がある。また、半減期が比較的短い核種に対しては OP 破損時期が評価上重要であり、C-14 や Se-79 に対しては OP の耐久年数を増加させることで有効に減衰させることが可能であることがわかった。

今後は、燃料デブリからの核種溶出に係るモデル及びパラメータの不確実性を低減することで、より精度の高い評価を行うこと可能となると考えられる。また、本年度の感度解析では、天然バリアのパラメータについては固定して評価を行った。今後は、天然バリアのバリア性能との組合せを考慮した感度解析により、どのような天然バリア条件において人工バリアの不確実性が顕在化するか検討する必要がある。

(3) 海水準変動と隆起・侵食を組み合わせたシナリオを対象とした安全評価

日本原子力研究開発機構では、処分システムに対し考慮すべき地質・気候関連事象（「火山・火成活動」、「地震・断層活動」、「隆起・侵食」、「気候・海水準変動」）に対し、これまで主に個別に評価を行ってきた。しかし沿岸域のサイトを対象とした場合、地形変化による汀線位置の変化や、海水準変動に伴う海食の影響を考慮する必要があるため、「気候・海水準変動」と「隆起・侵食」の両者を組み合わせて考慮する必要がある。

そこで本評価では、仮想的な沿岸域のサイトを対象に、気候・海水準変動を考慮した地形変化シミュレーションに基づき、将来十数万年の気候・海水準変動および隆起・侵食による、天然バリアにおける地下水流動および処分システムからの核種移行への影響を評価することを目的とする。核種移行への影響評価は、核種移行解析に必要な一連の解析のパラメータをリンクさせた総合的な安全評価体系により実施した（図 1.3-34）。

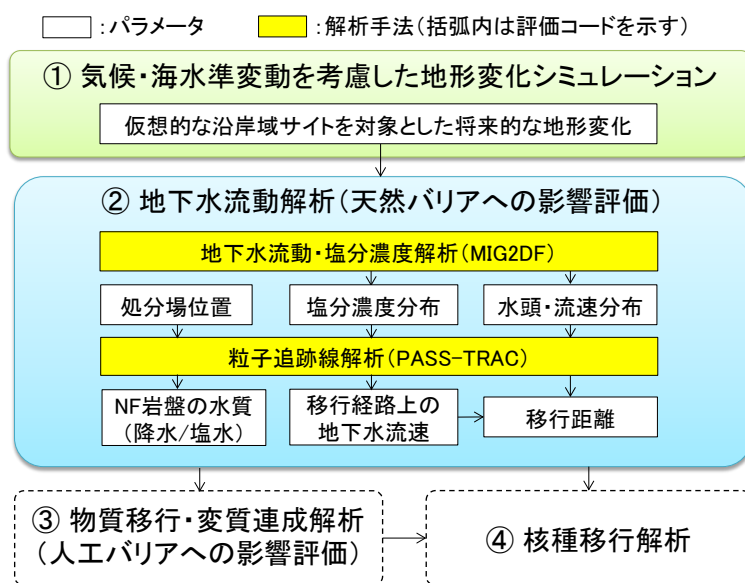


図 1.3-34 気候・海水準変動および隆起・侵食に対する影響評価体系

(a) 地下水流動解析

気候・海水準変動および隆起・侵食を考慮した影響を、現在～12.5 万年後（氷期・間氷期 1 サイクル経過後）までを対象に、以下の点に着目して評価した。

➤ サイトの特性による影響の違い

沿岸域のサイトを対象とした場合、気候・海水準変動および隆起・侵食による影響は以下の観点から分類できると想定される。

- 処分システムが、陸側/海側のどちらにあるか
- 対象領域が、遠浅/急峻な領域のどちらに対応するか
 (遠浅：地形的に平坦であり、隆起量が小さい領域
 急峻：地形的に急峻であり、隆起量が大きい領域)

これらのサイトの特性の違いが、結果にどのように反映されるかを調査した。

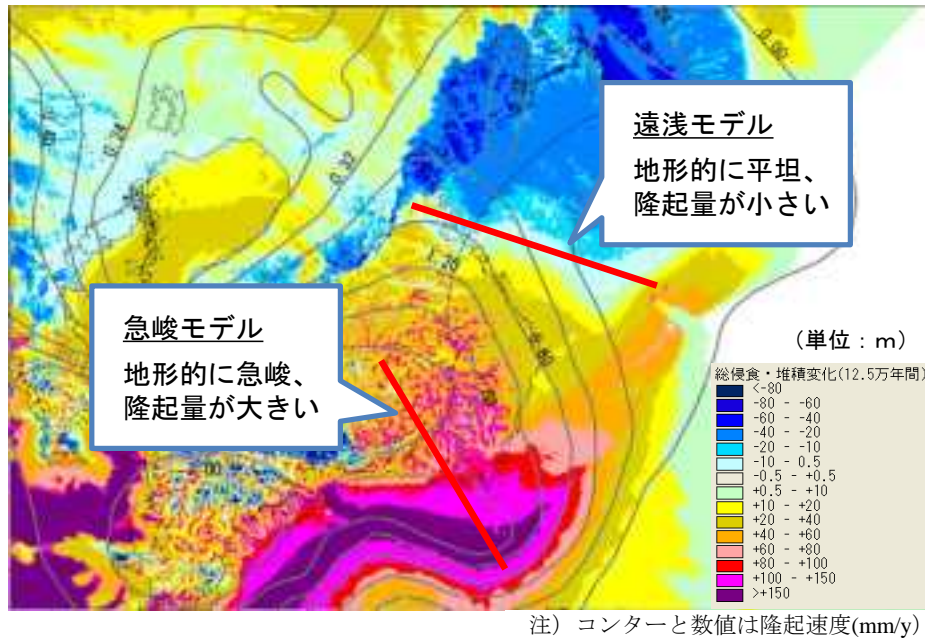


図 1.3-35 房総半島における解析断面（遠浅／急峻モデル）の選定位置

➤ 評価上重要な項目の検討

一般に海水準変動を考慮する場合、解析上簡単のために平均化した海水準変動により評価が行われることが多い（図 1.3-36）。これらの解析上の設定の違いが、結果にどのように反映されるかを調査した。

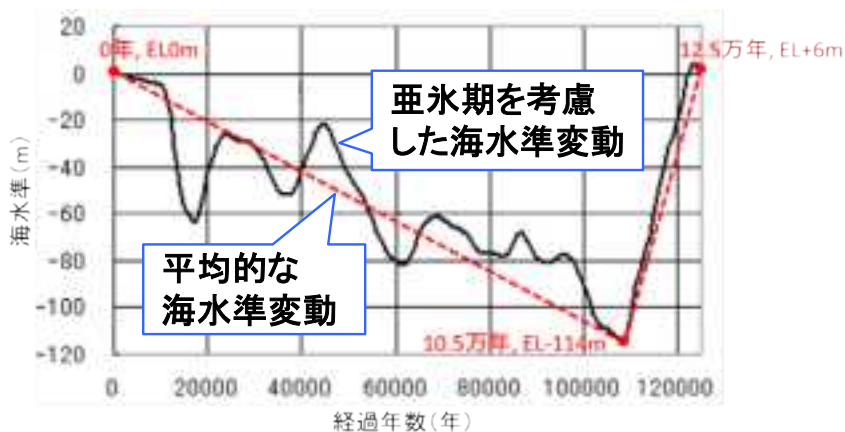


図 1.3-36 海水準変動の設定

上で構築した各モデルに対して陸側／海側（現海水準から±2km）に仮想的な処分場（幅 2km、深度 300m 以深（高透水性の層は設置されないと想定））を仮定し、処分場からの流路が放出時刻によりどのように変化するかを調べた。流路解析は、処分場（幅 2km）に対して等間隔に発生させた 50 点に対して実施した。粒子追跡開始時刻は 0～13 万年までの 1 万年毎とし、各時刻ごとに非定常な地下水流動解析の結果に対して流路解析を行った。亜氷期を考慮した海水準変動に対して流路解析を行った結果（地表到達までの平均速度）を、以下に示す。

① 遠浅モデル

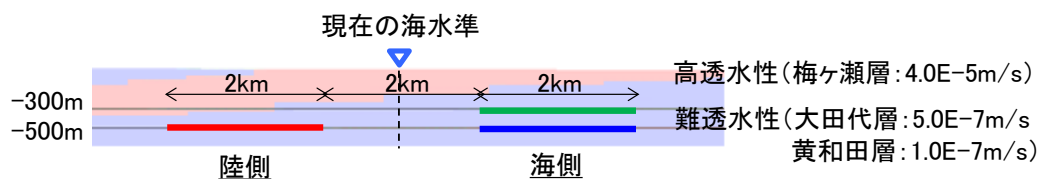


図 1.3-37 処分場の想定位置 (遠浅モデル)

処分場から地表面到達までの平均流速の計算結果を図 1.3-38 に示す。

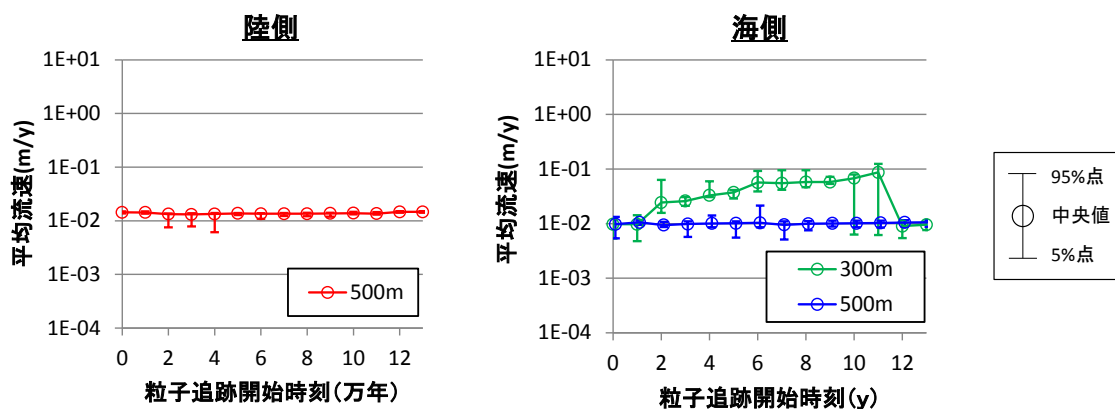


図 1.3-38 処分場からの移行速度 (遠浅モデル：亜氷期を考慮した海水準変動)

以上より、遠浅モデルでは以下の特徴が確認された。

処分場 (陸側)

海水準変動に伴う経時的な変化は小さく、処分場内の位置によるばらつきも小さい。

処分場 (海側)

深度 300m では海水準変動に伴う経時的な変化、および、処分場内の位置によるばらつきが大きく、移行距離で最大 2 桁、平均流速で最大 1 桁程度変化する。

これらの影響は、深度を 500m 程度に下げることによって小さくなる。

② 急峻モデル

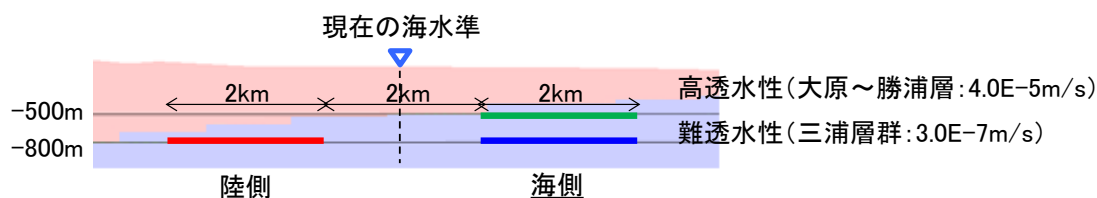


図 1.3-39 処分場の想定位置 (急峻モデル)

処分場から地表面到達までの平均流速の計算結果を図 1.3-40 に示す。

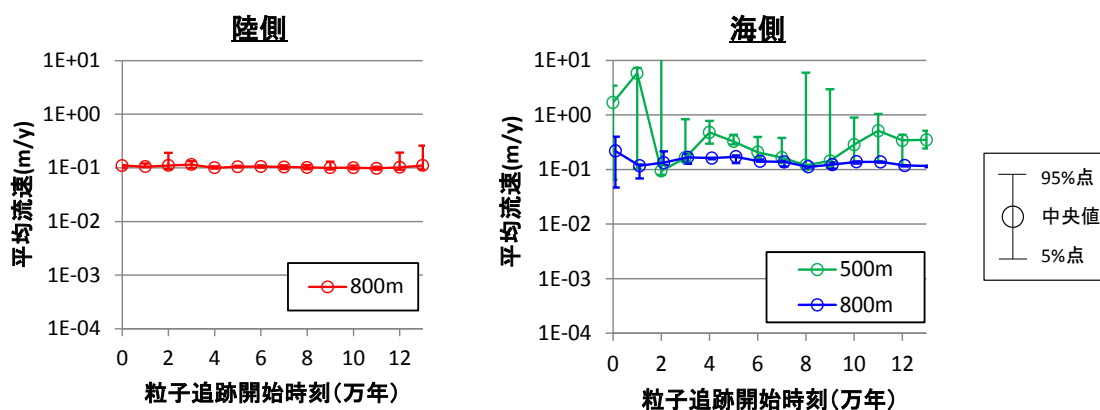


図 1.3-40 処分場からの平均流速（急峻モデル：亜氷期を考慮した海水準変動）

以上より、急峻モデルでは以下の特徴が確認された。

処分場（陸側）

海水準変動に伴う経時的な変化、および、処分場内の位置によるばらつきは小さい。

処分場（海側）

深度 500m では海水準変動に伴う経時的な変化、および、処分場内の位置によるばらつきが大きく、移行距離で最大 1 桁、平均流速で最大 2 桁程度変化する。

平均流速に対する変動は、深度を 800m 程度に下げることによって小さくなる。

以上より、遠浅モデルでは深度 500m、急峻モデルでは深度 800m に処分場を仮定すれば、海水準変動に伴う経時的変化や処分場内の位置によるばらつきが抑えられることがわかった。

これらの深度に対し、平均化した海水準変動に対しても同様に流路解析を行い、亜氷期の海水準変動を考慮した場合の平均流速の結果と比較した。以下にその結果を示す。

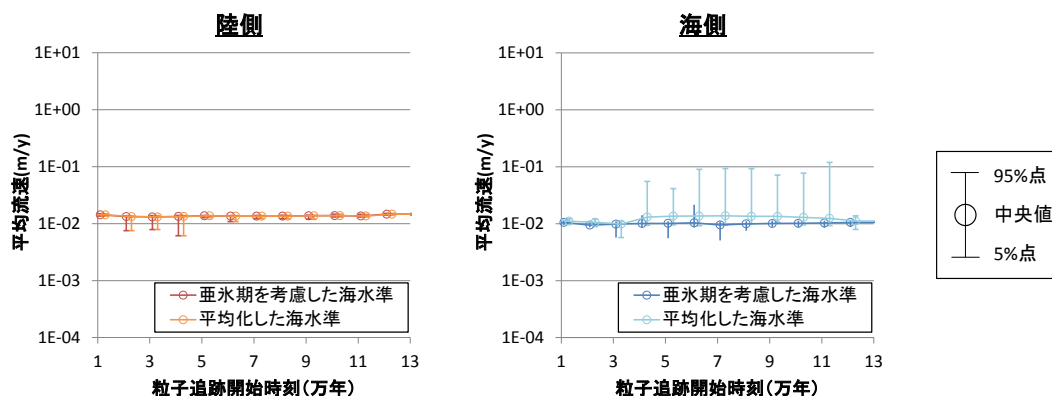


図 1.3-41 亜氷期を考慮した海水準変動と平均化した海水準変動の比較

（遠浅モデル、処分場深度 500m）

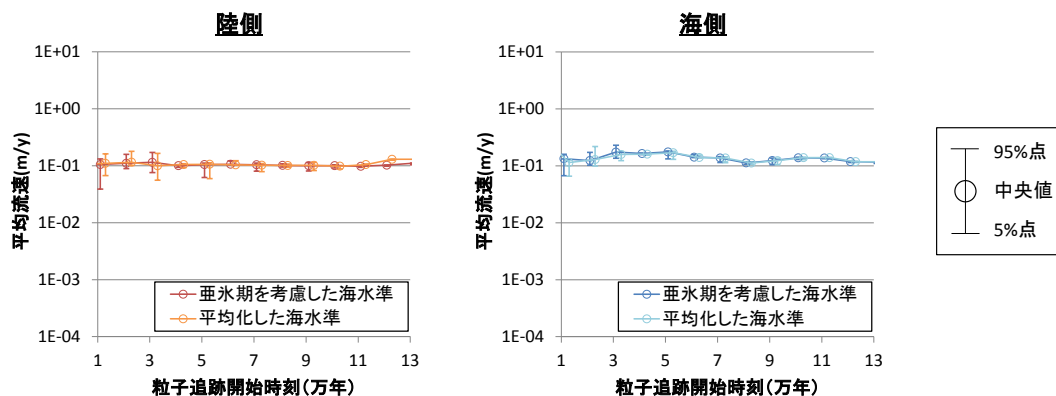


図 1.3-42 亜氷期を考慮した海水準変動と平均化した海水準変動の比較
(急峻モデル、処分場深度 800m)

図 1.3-41 および図 1.3-42 より、亜氷期を考慮した海水準と平均化した海水準では、処分場内の位置によるばらつきの傾向が異なるものの、中央値はほぼ同様であり、海水準を平均化することによる影響はそれほど大きくなかった。これは、今回の評価体系では海水準変動のモデル化による汀線位置の違いが、処分場からの移行経路の範囲外に現れているためである。

しかし地質構造や想定する処分場の位置によっては、移行経路の範囲内において海水準変動のモデル化による汀線位置の違いが現れることが十分想定され、そのような場合には想定する海水準変動のモデルによって移行経路が大きく変わる可能性がある。

(b) 核種移行解析

地下水流動解析の結果を受け、遠浅／急峻モデル、処分場位置陸側／海側の違いによる影響を確認するため、以下の4ケースについて核種移行解析を行った。ソースタームを燃料デブリとした場合と比較のため、ソースタームを HLW とした場合についても同じ天然バリアを設定して解析を行った。

- 急峻モデル、陸側 800m、亜氷期を考慮した海水準変動
- 急峻モデル、海側 700m、亜氷期を考慮した海水準変動
- 遠浅モデル、陸側 500m、亜氷期を考慮した海水準変動
- 遠浅モデル、海側 500m、亜氷期を考慮した海水準変動

図 1.3-43 に示すように、核種が人工バリアから放出される時間ごとに天然バリアの異なる経路を移行するものとして、人工バリア出口フラックスを1～14の各経路に割り当てて、GSRW-PSAによる核種移行解析を実施した。そして、14の経路別のフラックスはすべて同じ帯水層に供給されると仮定して足し合わせたものを天然バリア出口フラックスとして評価した。PASS-TRACによる流路解析の結果のうち、核種移行解析で用いた天然バリア移行経路を図 1.3-44～図 1.3-47 に示す。遠浅モデルにおいては、地下水流動解析の結果によると折り返して逆行するような経路を取るが、実際にこのような長い経路を通ることを保証できないため、核種移行解析上は保守的に逆行する経路を無視し、太田代層を通過した時点で帯水層下限（地表から40m地下）に到達したとみなすこととした。

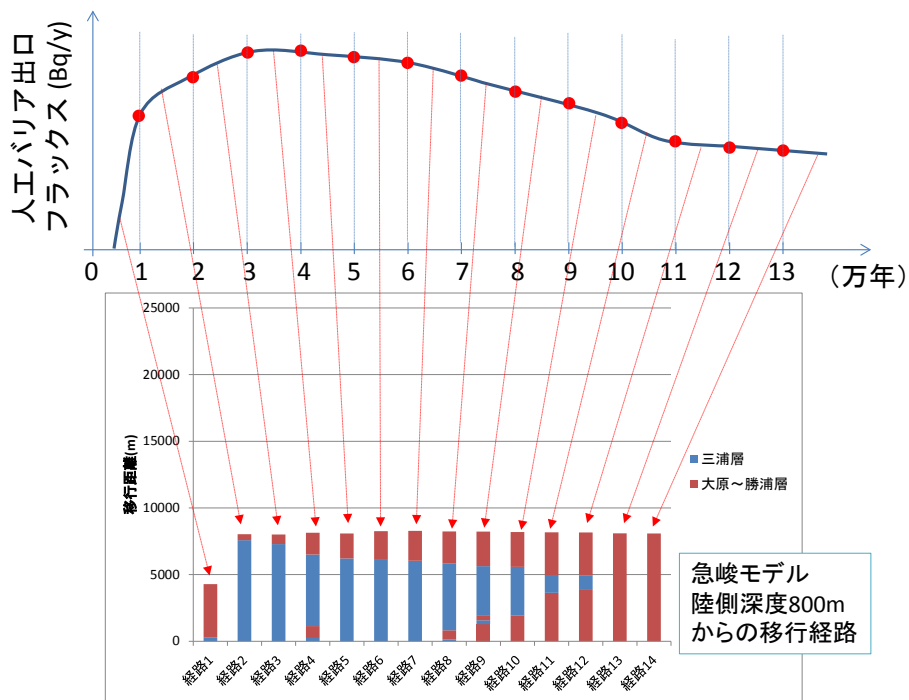


図 1.3-43 人工バリア出口フラックスの各経路への割り当て方法

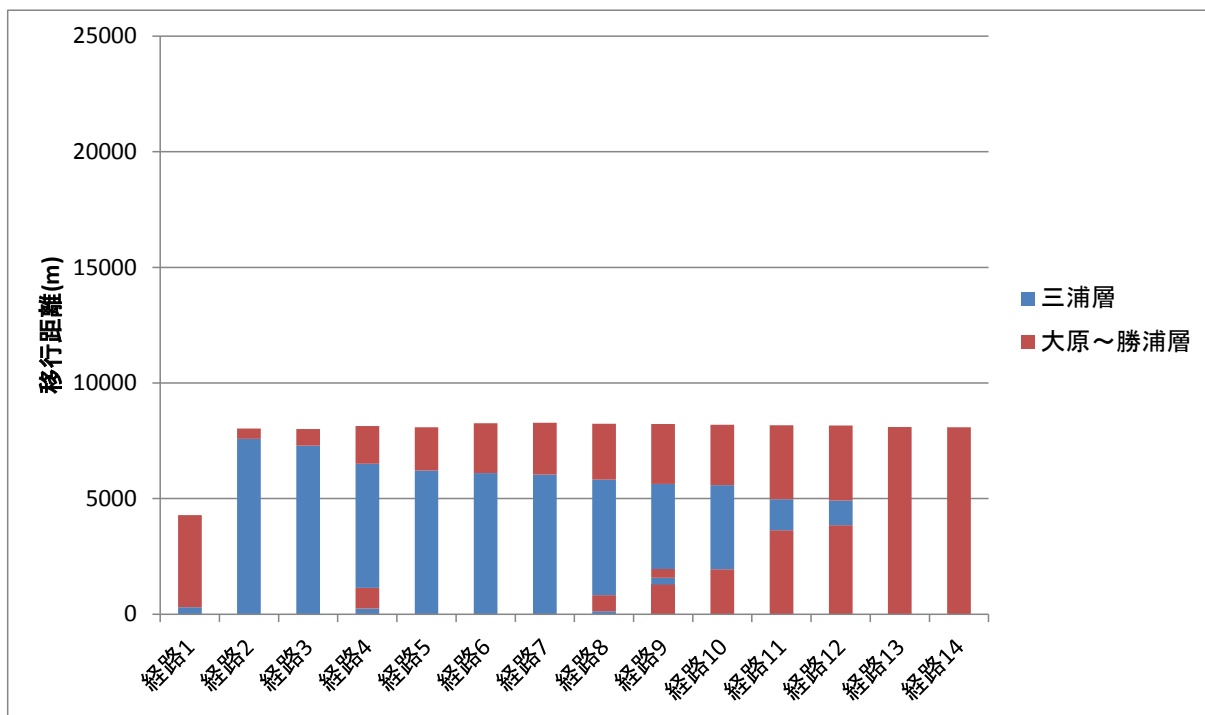


図 1.3-44 移行距離 (急峻モデル、陸側 800m)

経路 1 の $4.28 \times 10^3 \sim 4.29 \times 10^3 \text{m}$ は地下水 2。それ以外は地下水 1。

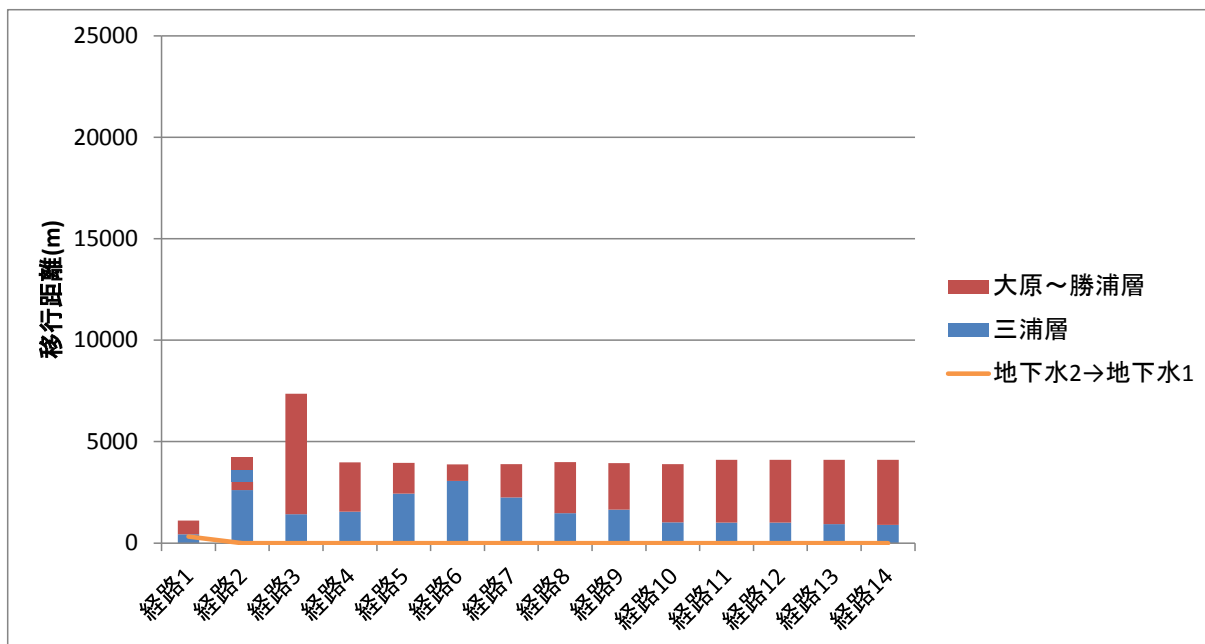


図 1.3-45 移行距離（急峻モデル、海側 700m）

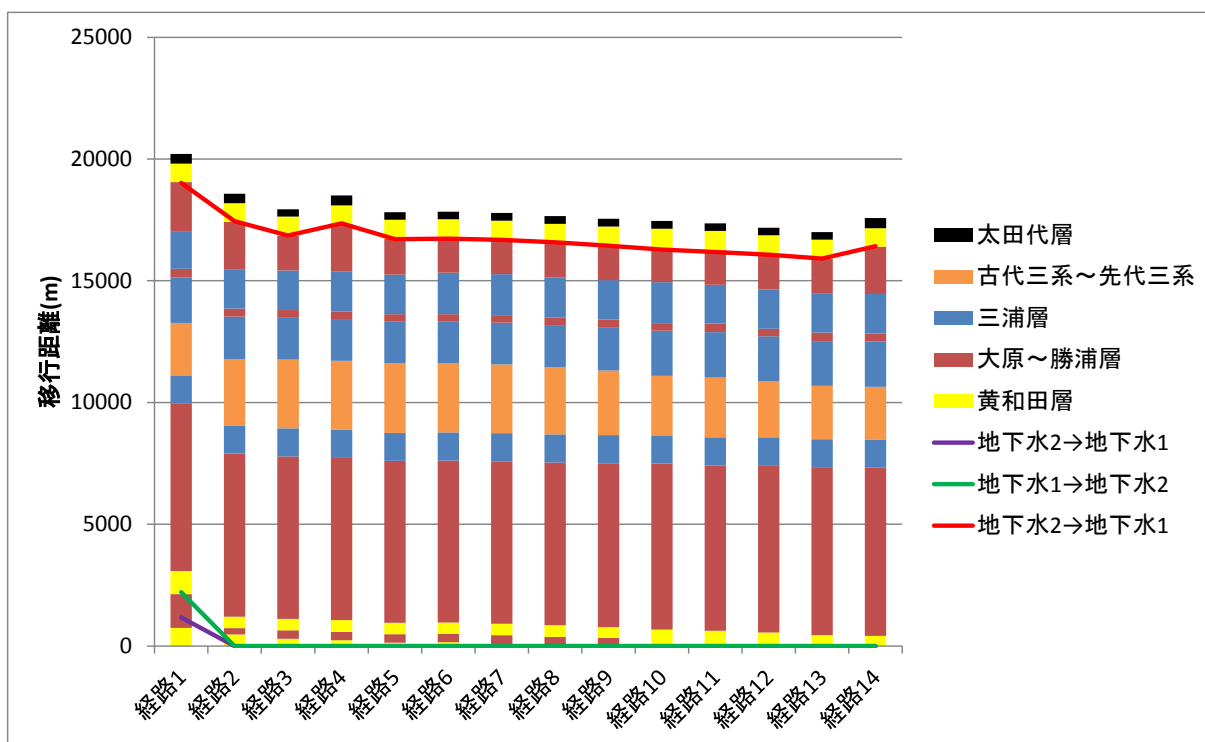


図 1.3-46 移行距離（遠浅モデル、海側 500m）

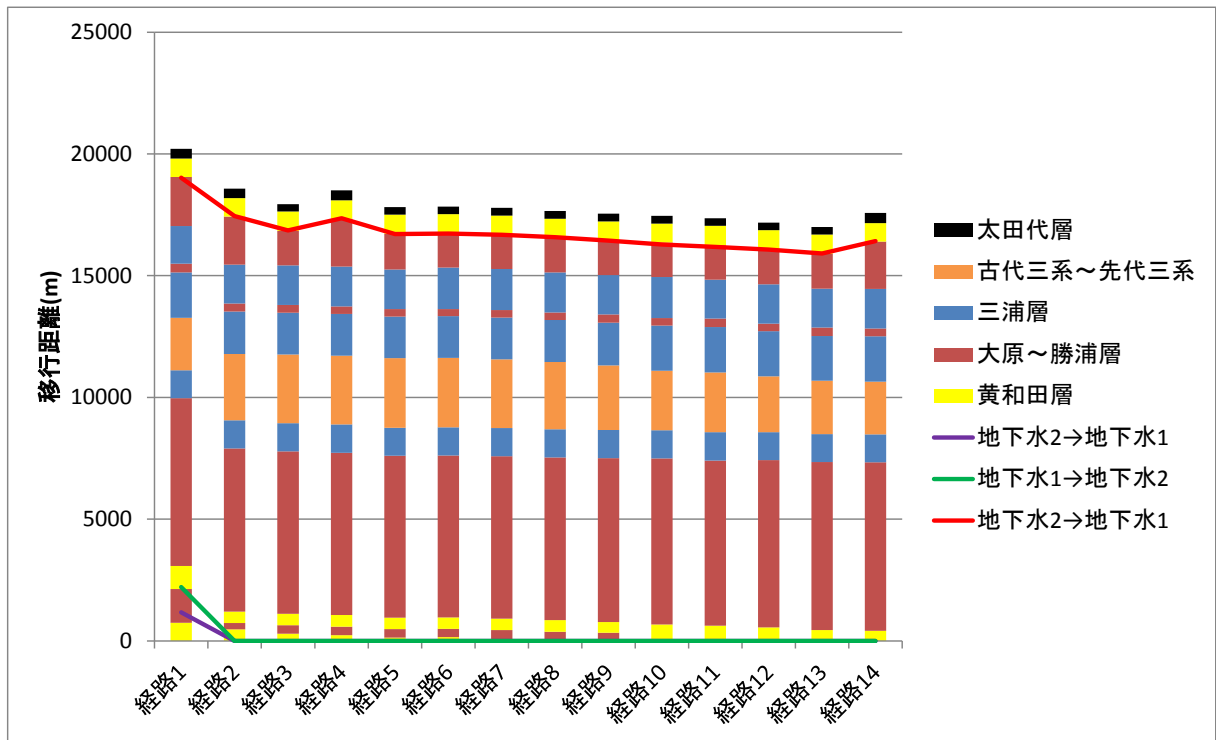


図 1.3-47 移行距離 (遠浅モデル、海側 500m)

核種移行解析により得られた $4n+2$ 系列核種の天然バリア出口フラックスを図 1.3-48～図 1.3-51 に示す。陸側、海側ともに急峻モデルに比べ、遠浅モデルでは移行距離が長くなるのに加えて、地下水流速も小さくなり、さらに $4n+2$ 系列核種に対して分配係数の大きくなる水質（地下水 2）を長距離移行するため、天然バリア出口フラックスを低減できることが示された。また、燃料デブリと HLW の核種浸出モデルの違いを反映して、天然バリア出口フラックスでもフラックスの形状に違いが現れる場合があることが示された。人工バリアから放出される時間ごとに経路を変えることにより、経路の設定によっては燃料デブリと HLW の天然バリア出口フラックスの大小関係はインベントリの大小関係と必ずしも一致しないことが示された。

以上のことから、地形変化の大きい領域の沿岸地域を対象とした核種移行評価では、地形変化と汀線位置の変動によって、移行経路（移行距離、流速、地質・水質）が大きく変動して、核種移行への影響が大きくなることから、将来の地形変化と海水準変動を適切に組み合わせて、評価する必要がある。

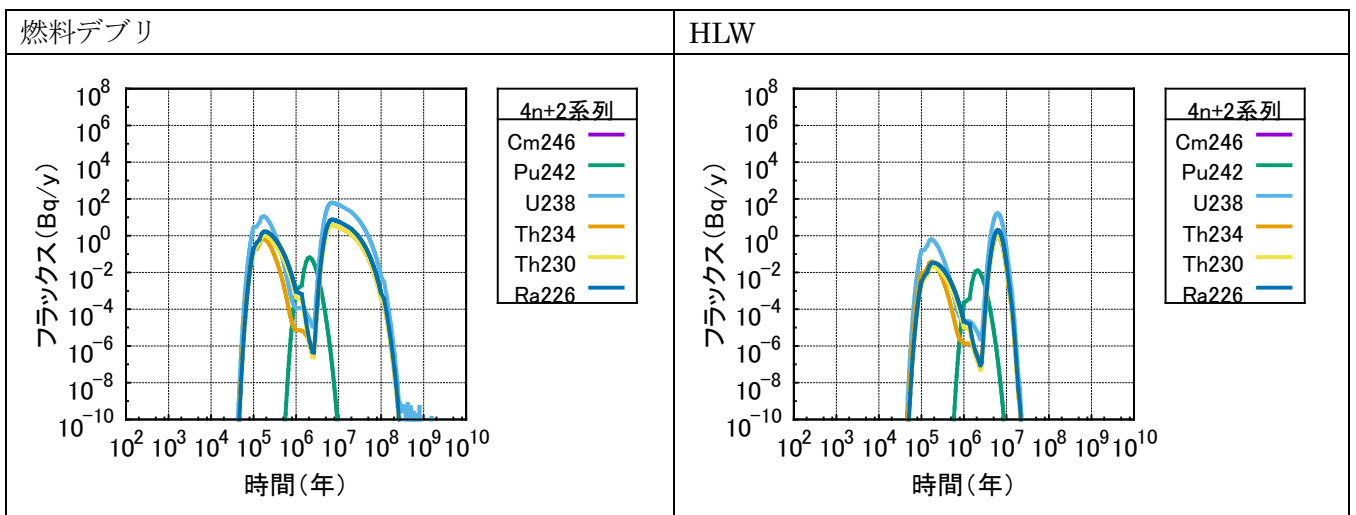


図 1.3-48 1本あたりの天然バリア出口フラックス（急峻モデル、陸側 800m、 $4n+2$ 系列）

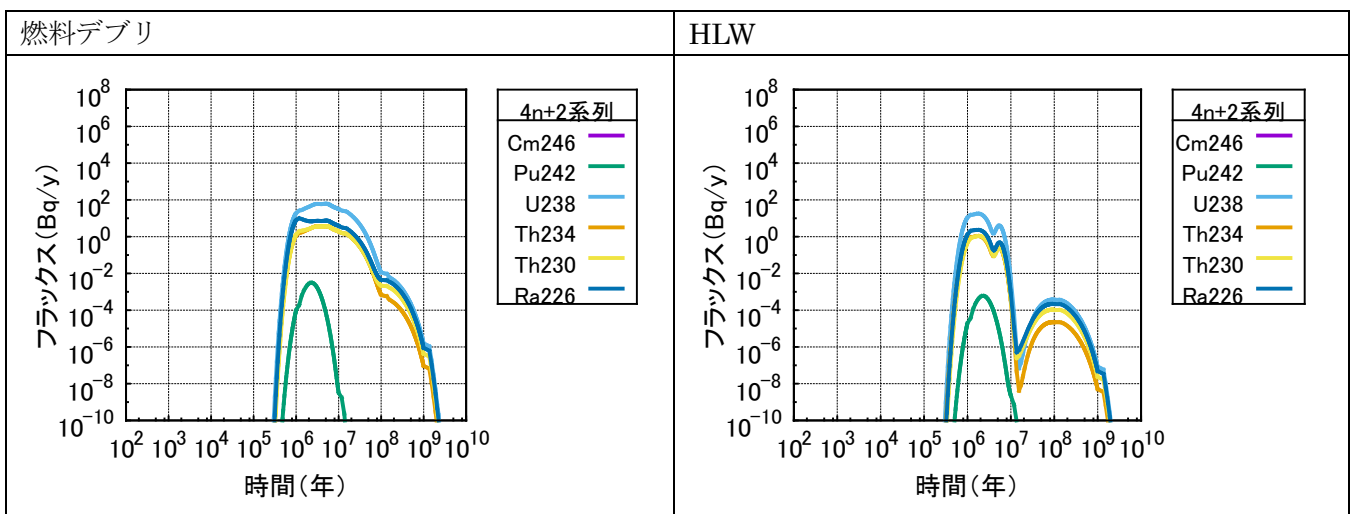


図 1.3-49 1本あたりの天然バリア出口フラックス（急峻モデル、海側 700m、 $4n+2$ 系列）

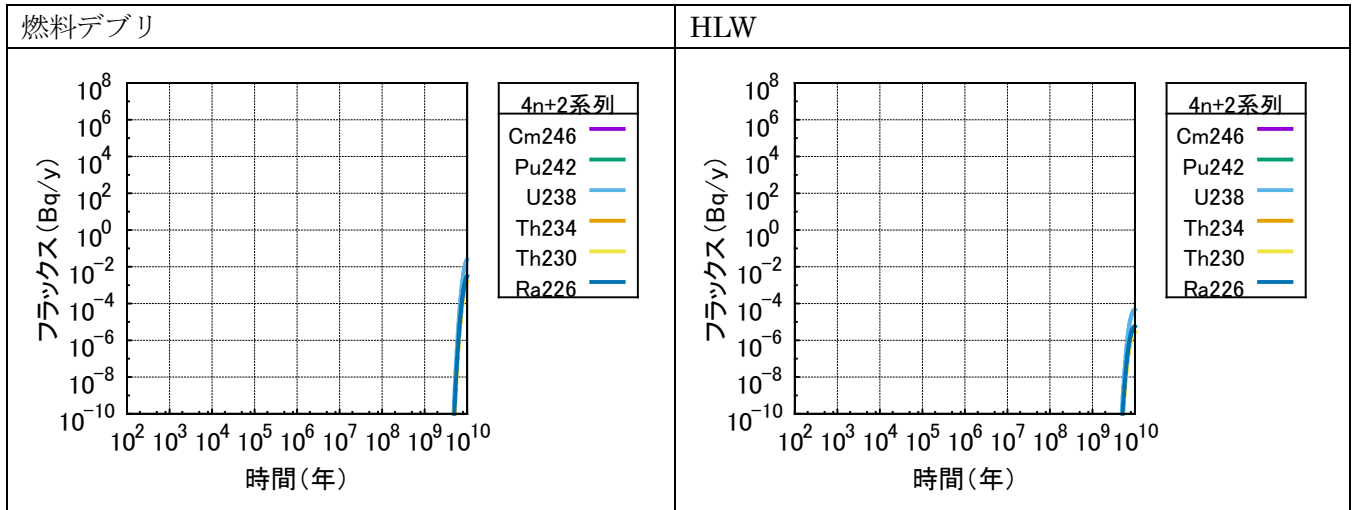


図 1.3-50 1本あたりの天然バリア出口フラックス（遠浅モデル、陸側500m、4n+2系列）

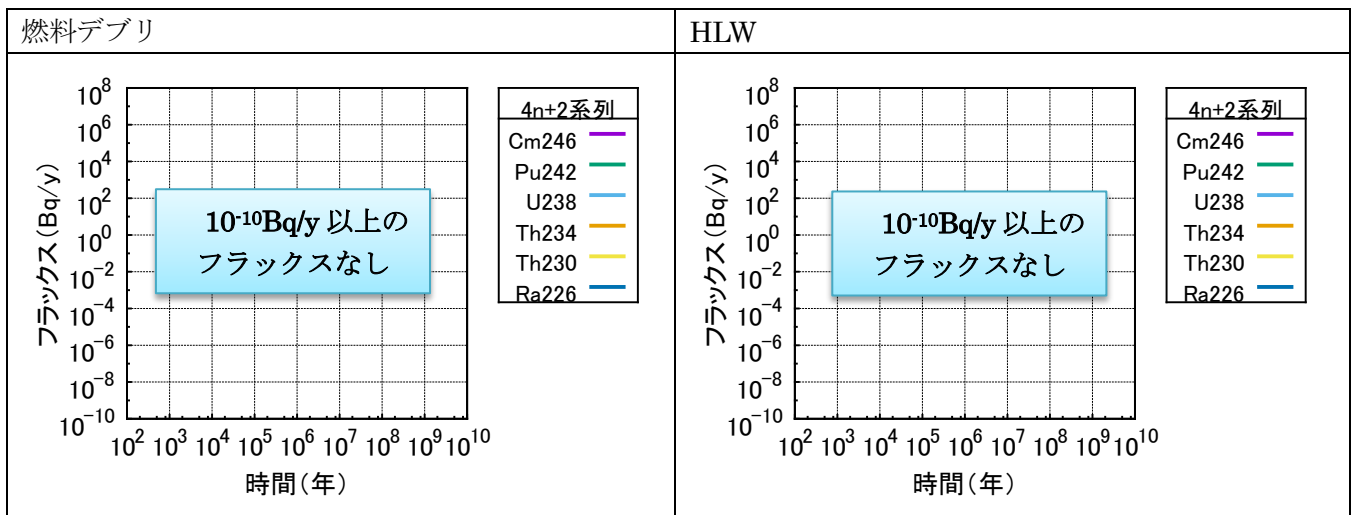


図 1.3-51 1本あたりの天然バリア出口フラックス（遠浅モデル、海側500m、4n+2系列）

第1章の参考文献

- (1) 西原健司・岩元大樹・須山賢也、福島第一原子力発電所の燃料組成評価、JAEA-Data/Code 2012-018, p.72, 2012.
- (2) 武田聖司・山口徹治・長澤寛和・渡邊正敏・関岡靖司・神崎裕・佐々木利久・落合透・宗像雅弘・田中忠夫・木村英雄・中山真一、高レベル放射性廃棄物地層処分の安全性の評価、JAEA-Research 2009-034, p.187, 2009.
- (3) DOE Assistant Secretary for Environmental Management Office of Nuclear Material and Spent Fuel, TMI FUEL CHARACTERISTICS FOR DISPOSAL CRITICALITY ANALYSIS, DOE/SNF/REP-084, p.24, 2003.
- (4) 新計画策定会議 技術検討小委員会（第1回）資料第5号、使用済燃料の直接処分概念に関する検討、平成16年8月10日, p.12, 2004.
- (5) Pettus, W. G., Hassler, L. A., Holman, P. L., Jones, H. M., Worsham, J. R., TMI-2 DEFUELING CANISTER REACTIVITY CALCULATIONS, Waste Management Symposia-1985, pp.285-287,

- 1985.
- (6) Beller, B., Fuel Drying Activities by the Environmental Management Program at Idaho National Laboratory. Summer Board Meeting, August 6, 2014, U.S. Nuclear Waste Technical Review Board, 2014.
 - (7) Henrie, J. O., The effects of hydrogen generation on radioactive waste handling technology. *Nuclear Technology* 87, pp.729-736, 1989.
 - (8) Hayner, G. O., Caldwell, C. S., Microanalysis of TMI-2 core debris samples, EPRI NP-6590, 1989.
 - (9) 石井保・内藤奎爾, ウラン酸化物の物性と構造—不定比性を中心として—, JAERI-4045, p.5, 1968.
 - (10) Holton, W. C., Negin, C. A., Owrutsky, S. L., The Cleanup of Three Mile Island Unit 2, A Technical History: 1979 to 1990, EPRI NP-6931, 1990.
 - (11) Nagra, Project Opalinus Clay Safety Report, Demonstration of disposal feasibility for spent fuel, vitrified high-level waste and long-lived intermediate-level waste (Entsorgungsnachweis), Nagra NTB 02-05, p.360, 2002.
 - (12) 日本原子力研究開発機構, わが国における使用済燃料の地層処分システムに関する概括的評価—直接処分第1次取りまとめ—, JAEA-Research 2015-016, p.217, 2015.
 - (13) 核燃料サイクル開発機構, わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ— 分冊2 地層処分の工学技術, JNC TN1400 99-022, 1999.
 - (14) Nerentnieks, I., Some aspects of the use of iron canisters in deep lying repositories for nuclear waste, Nagra Technical Report 85-35, p.29, 1985.
 - (15) 棚井憲治, Christophe Galle, 菅野毅, 圧縮ベントナイトの水素ガス移行特性評価, PNC TN8410 96-289, p.25, 1996.
 - (16) 陶山忠宏, 舘幸男.: 収着データベース (JAEA-SDB) の開発: 土壌系及びセメント系を含む収着データの拡充. JAEA-Data/Code 2011-022, 日本原子力研究開発機構 (2012).
 - (17) Yajima, T., Kawamura, Y., Ueta, S.: Uranium(IV) solubility and hydrolysis constants under reduced conditions. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **353**, 1137-1142 (1995).
 - (18) 矢島達哉.: ウラン及びニオブの溶解度測定. 弥生研究会報告書, UTNL-R-0331, 東京大学工学部附属原子力工学研究施設, 127-144 (1994).
 - (19) Mibus, J., Sachs, S., Pfingsten, W., Nebelung, C., Bernhard, G.: Migration of uranium(IV)/(VI) in the presence of humic acids in quartz sand: A laboratory column study. *J. Contam. Hydrol.* **89**, 199-217 (2007).
 - (20) Baston, G. M. N., Berry, J. A., Brownsword, M., Cowper, M. M., Heath, T. G., Tweed, C. T.: The sorption of uranium and technetium on bentonite, tuff and granodiorite. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **353**, 989-996 (1995).
 - (21) Evans, N., Warwick, P., Lewis, T., Bryan, N.: Influence of humic acid on the sorption of uranium(IV) to kaolin. *Environ. Chem. Lett.* **9**, 25-30 (2011).
 - (22) 核燃料サイクル開発機構, わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ— 分冊3 地層処分システムの安全評価, JNC TN1400 99-023, 1999.
 - (23) 電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, TRU 廃棄物処分技術検討書—第2次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ—, JNC TY1400 2005-013, 2005.

2. 燃料デブリ諸性状の調査に基づく 仮想燃料デブリの設定

2. 燃料デブリ諸性状の調査に基づく仮想燃料デブリの設定

2.1 目的

東京電力（株）福島第一原子力発電所（以下「1F」と称す）1号機から3号機に残存する燃料デブリの発生状況や、物理・化学的性状に関する既往の情報を整理し、総合的安全評価解析を進める上で必要となる燃料デブリの諸条件を推定し「仮想燃料デブリ」として設定することを目的に、国内外の燃料デブリの性状に関する情報を調査した。

国内においては、模擬デブリ製作実績のある国立研究開発法人・日本原子力研究開発機構（以下「JAEA」と称す）、東京電力株式会社（以下「TEPCO」と称す）等、燃料デブリに関する知見を多く有すると考えられる者からの公開情報を調査対象とし、国外では米国スリーマイル島原子力発電所（以下「TMI-2」と称す）事故により生じた燃料デブリに関する情報についても、1F事故との違いを考慮しつつ、必要に応じ調査対象とした。

「仮想燃料デブリ」設定項目としては、廃棄体のインベントリ、発生量、幾何学形態、化学形態、発熱量等とし、推定に当たってはこれらの条件に係る不確実性を含めて検討を行った。その際、燃料ペレットと炉内構造材との混合を伴う溶結、溶結体と海水成分・下部セメント成分等との反応も考慮対象とした。

2.2 実施方法及び調査内容

国内における模擬デブリの実験経験のあるJAEA情報や、燃料デブリに関する知見を多く有する者の公開情報、及びTMI-2事故の情報を調査対象として、仮想燃料デブリとして安全解析評価に必要な情報を抽出し、不確実性も含めて検討した。

具体的な調査対象としては、技術研究組合・国際廃炉研究開発機構（以下「IRID」と称す）、JAEA、旧独立行政法人・原子力安全基盤機構（以下「JNES」と称す）、TEPCO、一般財団法人・エネルギー総合工学研究所（以下「IAE」と称す）、一般社団法人・日本原子力学会（以下「AESJ」と称す）、経済産業省・資源エネルギー庁（以下「METI」と称す）、原子力規制委員会（以下「NRA」と称す）等、国内の公開情報を調査した。

又TMI-2事故関連資料に関しては、Web上調査はもとより図書館資料も調査した。

燃料デブリに関する国内外の調査結果より、廃棄体のインベントリ、発生量、幾何学形態、化学形態、発熱量等の情報を対象に不確実性を含めて検討した。

更に仮想的な燃料デブリの処分を想定し、処分の安全評価試解析のため廃棄体に関する条件を7月末までに「仮想燃料デブリ Ver.1」として設定し、その後も調査を継続し最終的にH27年度末までに廃棄体に関する条件を「仮想燃料デブリ H27」として再設定することとした。

2.3 調査結果（仮想燃料デブリ Ver.1 設定）

2.3.1 インベントリ（Ver.1）

西原らが 1F 各号機の 2011 年 3 月 11 日時点、及びその後の放射性核種量を ORIGEN2 コードにより評価した報告書⁽¹⁾より、地層処分の評価上重要な核種⁽²⁾の 50 年後の放射能を抜き出し、更にデブリへの移行率を考慮して次式より燃料デブリを収納した容器（廃棄体容器）1 基当たりの放射性核種量を算出し、今後のシナリオ作成時の情報として「仮想燃料デブリ Ver.1」を設定した。放射性核種の評価に使用した 1F 炉心の条件と炉内燃料の照射履歴推定を、表 2.3-1 に示す。

（廃棄体容器 1 基当たりの放射性核種量）

$$= (\text{炉内合計放射性核種量}) \times (\text{廃棄体への移行率}) \times (\text{廃棄体容器 1 基の最大装荷U量 114.9kg}) \div (1 \sim 3 \text{号機の総U量 257 Ton})$$

廃棄体容器 1 基の最大装荷U量 114.9kg は、2.3.2 項の発生量（Ver.1）で設定した 1F 廃棄体（Ver.1）の収納容器 1 基に含まれているウランの最大量で、TMI-2 キャニスターに収納された最大ウラン量から容器の収納体積比を掛けて求めた値である（表 2.3-4 参照）。

セシウム（Cs-135, 137）やヨウ素（I-129）は、事故時の炉外放出や、その後の冷却水への溶出があり、炉内燃料デブリに含まれる量は評価報告書⁽¹⁾記載値よりも少ないと考えられる。1F 事故に係る Katata らの報告書⁽⁹⁾によると環境への放出量は約 2%とされている。

船坂の報告書⁽³⁾では水処理で回収したセシウム（Cs-137）は約 36%とされており、これらを除く約 60%がデブリに含まれる可能性があると考えられているが、この評価は 2013.10.30 までの放出量で評価しており、その後の水処理装置の吸着量を見込んでいないため、50 年後の廃棄体のインベントリを評価するにはこれより小さい値が妥当ではないかと考えられる。

これに対し、TMI-2 事故に係る米国アイダホ国立研究所（以下「INL」と称す）の報告書⁽⁵⁾において、デブリとして回収されたヨウ素（I-129）及びセシウム（Cs-137）は約 40%と直接燃料デブリの残存核種量を評価しているため、今回仮想燃料デブリ Ver.1 ではデブリへの移行率をヨウ素（I-129）及びセシウム（Cs-137）に関して次の通り設定した。

・ヨウ素（I-129）： 40% ・セシウム（Cs-135, 137）： 40%

この移行率を使い廃棄体容器 1 基に対する、50 年後の放射性核種量を算出したものが、表 2.3-2 である。

表 2.3-1 1F 炉心条件と炉内燃料の照射履歴推定⁽¹⁾

		1号機		2号機		3号機		合計	備考	
原子炉	原子炉形式	—		BWR 3		BWR 4		—		
	熱出力	MW		1,380		2,381		6,142		
	²³⁵ U 平均濃縮度	wt %		3.7		3.7		—		
	U 装荷量	TonHM		69		94		257		
	平均燃焼度	GWd/tHM		25.8		23.1		21.8		
	照射履歴推定	体数/燃焼度 (GWd/tHM)	64	5.2	116	3.3	32	4.5	—	3号機 MOX
			64	15.2	116	15.8	116	4.7	—	3号機 UO ₂
			80	24.2	120	26.0	112	15.5	—	
			68	33.3	120	35.2	140	28.5	—	
			64	37.5	76	40.6	112	36.2	—	
60			40.2	—	—	36	40.5	—		
燃料集合体数量	体/炉		400		548		548	1,496		
制御棒数量	体/炉		97		137		137	371		

表 2.3-2 1F 燃料デブリの 50 年後の放射性核種量 (Ver.1)

分類	核種 ⁽²⁾	原子炉圧力容器内				廃棄体容器		
		1号機 ⁽¹⁾ (GBq)	2号機 ⁽¹⁾ (GBq)	3号機 ⁽¹⁾ (GBq)	炉内合計 (GBq)	移行率	最大 U 装荷 (kg)	1 基当り (GBq)
4N 系列	Pu-240	8.89E+05	1.04E+06	1.36E+06	3.29E+06	1.00	114.9	1.47E+03
	U-236	5.80E+02	7.17E+02	6.85E+02	1.98E+03	1.00	114.9	8.86E-01
	Th-232	1.54E-06	1.84E-06	1.76E-06	5.14E-06	1.00	114.9	2.30E-09
4N+1 系列	Cm-245	3.08E+02	3.61E+02	2.90E+02	9.59E+02	1.00	114.9	4.29E-01
	Pu-241	2.01E+07	2.53E+07	2.84E+07	7.38E+07	1.00	114.9	3.30E+04
	Am-241	6.93E+06	8.48E+06	9.56E+06	2.50E+07	1.00	114.9	1.12E+04
	Np-237	6.08E+02	7.35E+02	6.97E+02	2.04E+03	1.00	114.9	9.12E-01
	U-233	1.44E-01	1.72E-01	1.63E-01	4.79E-01	1.00	114.9	2.14E-04
	Th-229	8.14E-04	6.43E-04	6.13E-04	2.07E-03	1.00	114.9	9.25E-07
4N+2 系列	Cm-246	5.06E+01	5.86E+01	4.46E+01	1.54E+02	1.00	114.9	6.88E-02
	Am-242m	1.85E+04	1.40E+04	1.78E+04	5.03E+04	1.00	114.9	2.25E+01
	Pu-242	2.85E+03	3.41E+03	3.96E+03	1.02E+04	1.00	114.9	4.57E+00
	Pu-238	3.44E+06	3.42E+06	4.11E+06	1.10E+07	1.00	114.9	4.90E+03
	U-238	8.12E+02	1.11E+03	1.11E+03	3.03E+03	1.00	114.9	1.36E+00
	U-234	6.45E+02	6.33E+02	9.37E+02	2.22E+03	1.00	114.9	9.90E-01
	Th-230	1.66E-01	1.61E-01	2.73E-01	6.00E-01	1.00	114.9	2.68E-04
	Ra-226	1.31E-03	1.26E-03	2.38E-03	4.95E-03	1.00	114.9	2.21E-06
4N+3 系列	Pb-210	4.12E-04	3.90E-04	7.87E-04	1.59E-03	1.00	114.9	7.10E-07
	Am-243	2.51E+04	2.96E+04	2.84E+04	8.31E+04	1.00	114.9	3.72E+01
	Pu-239	7.07E+05	8.94E+05	1.05E+06	2.65E+06	1.00	114.9	1.19E+03
	U-235	8.89E+01	1.36E+02	1.35E+02	3.60E+02	1.00	114.9	1.61E-01
	Pa-231	1.01E-01	1.49E-01	1.48E-01	3.98E-01	1.00	114.9	1.78E-04
非系列	Ac-227	5.25E-02	7.63E-02	7.59E-02	2.05E-01	1.00	114.9	9.15E-05
	Se-79	7.40E+01	9.04E+01	8.57E+01	2.50E+02	1.00	114.9	1.12E-01
	Zr-93	3.72E+03	4.54E+03	4.30E+03	1.26E+04	1.00	114.9	5.62E+00
	Sr-90	4.48E+07	5.72E+07	5.41E+07	1.56E+08	1.00	114.9	6.98E+04
	Nb-93m	3.18E+03	3.86E+03	3.65E+03	1.07E+04	1.00	114.9	4.78E+00
	Nb-94	2.75E-01	3.78E-01	3.48E-01	1.00E+00	1.00	114.9	4.47E-04
	Tc-99	2.71E+04	3.34E+04	3.15E+04	9.20E+04	1.00	114.9	4.11E+01
	Pd-107	1.90E+02	2.27E+02	2.13E+02	6.30E+02	1.00	114.9	2.82E-01
	Sn-126	1.23E+03	1.48E+03	1.40E+03	4.11E+03	1.00	114.9	1.84E+00
	I-129	6.20E+01	7.51E+01	7.10E+01	2.08E+02	0.40	114.9	3.72E-02
	Cs-135	1.05E+03	1.14E+03	1.10E+03	3.29E+03	0.40	114.9	5.88E-01
	Cs-137	6.39E+07	8.06E+07	7.61E+07	2.21E+08	0.40	114.9	3.95E+04
	Sm-151	4.66E+05	6.11E+05	6.25E+05	1.70E+06	1.00	114.9	7.61E+02
C-14	2.01E+02	2.43E+02	2.28E+02	6.72E+02	1.00	114.9	3.00E-01	

2.3.2 発生量 (Ver.1)

(1) 炉内燃料デブリの発生量

平成 26 年 5 月に IRID と IAE が刊行した事故進展解析技術の高度化による炉内状況報告⁽¹³⁾の中で、デブリの発生量を MAAP 解析により 1 号機が 180Ton (炉内 0Ton)・2 号機が 239Ton (炉内 0Ton)・3 号機が 222Ton (炉内 0Ton)と全号機共に炉内にデブリは存在せず格納容器内へ放出された可能性がある結果となっており、SAMPSON 解析では 1 号機が 160Ton (炉内 72Ton)・2 号機が 226Ton (炉内 152Ton)・3 号機が 226Ton (炉内 144Ton)と推定しており、MAAP 解析と Zr の酸化の進み方が異なり発熱量の少ない SAMPSON の方が炉心部に残りやすい傾向にあることが記載されている。

平成 26 年 12 月発行 JAEA の廃止措置及び環境回復への取組み報告⁽¹⁴⁾の中で、処理対象デブリの総量を約 670Ton、炉内構造物起因のデブリ重量を約 530Ton、海水起因難溶性・不溶性沈殿物重量を約 80Ton、反応コンクリート重量を約 60Ton と推定している。

以上の調査結果を表 2.3-3 に比較表として示す。

仮想燃料デブリの発生量は、最大解析値の JAEA 報告⁽¹⁴⁾の約 670Ton を採用する事とした。

表 2.3-3 燃料デブリの発生量と分布 (Ver.1)

			1号機	2号機	3号機	炉内合計	参考文献
MAAP 解析	炉内	Ton	0	0	0	0	(13) IRID, IAE
	ペDESTAL床上	Ton	91	97	58	246	
	ドライウエル床上	Ton	89	142	164	395	
	合計	Ton	180	239	222	641	
SAMPSON 解析	炉内	Ton	72	152	144	368	(13) IRID, IAE
	ペDESTAL床上	Ton	88	74	82	244	
	ドライウエル床上	Ton	0	0	0	0	
	合計	Ton	160	226	226	612	
炉内構造物起因デブリ重量		Ton	-	-	-	530	(14) JAEA
海水起因難溶性、不溶性沈殿物重量		Ton	-	-	-	80	
反応コンクリート重量		Ton	-	-	-	60	
合計		Ton	-	-	-	670	

(2) 1F 廃棄体の発生量

廃棄体としての燃料デブリの発生量を設定するために、TMI-2 事故時の破損燃料容器を参考に 1F 燃料デブリの収納容器（廃棄体容器）を設定し、その数量を算出した。

図 2.3-1 に示す様に TMI-2 事故時の破損燃料容器には、3 種類の SUS304L 製キャニスター（341 本）が使用され、臨界解析は集合体初期の²³⁵U 最大量 13.72Kg で実施し、水素ガスを逃がすためにドレインチューブが設けられた構造になっている⁽¹⁶⁾。

キャニスターは、INEL（アイダホ国立技術研究所、現 INL）のプール内で貯蔵されたのち加熱真空乾燥システムで水を除去し、炭素鋼製乾式遮蔽容器（DSC : Dry Shielded Canister）へ 12 体ずつ収納して保管される構造である。DSC の蓋は、溶接接合であるがガス排出の為にフランジ付き構造（DSC には密封機能は無く、蓋のスクリーンフィルターを經由して常時弁開とされる構造）である。

- ・燃料キャニスター : フルサイズの燃料要素を収納 268 基
- ・ロックアウトキャニスター : 140 μ m 粒子デブリ～ペレット 12 基

- ・フィルターキャニスター : 0.5 μm～800 μm 粒子デブリ 61 基
- ・キャニスター容器仕様
 - 3種キャニスター外寸 : φ 355.6 mm (14 in) × L 3,803.65 mm (149-3/4 in)
 - 燃料キャニスター内寸 : □231.8 mm (9.125 in) × L 3,465.5 mm (136-7/16 in)
 - 他キャニスター内寸 : φ 342.9 mm (13.5 in) × L 3,321.05 mm (130-3/4 in)
 - 容器肉厚 : t 6.35 mm (0.25 in)
- (参考) 収納物・PWR 燃料及び制御棒集合体 : □210 mm × 約 L 4,000 mm

1F 廃棄体容器は、次の3点を想定して設定した。

- ・米国スリーマイル島原子力発電所事故の際使用された破損燃料容器（キャニスター）と同様に、破砕燃料デブリを直接収納することを想定した。
- ・TMI-2 キャニスターに設置されている上下部のデブリ捕獲機構や、水素ガス対策の為にベント機構を有する非密封構造となることを想定した。
- ・深地層処分時の人工バリアの構成及び設計は既存のガラス固化体処分の場合と同様にすることを想定した。

又、深地層処分時の人工バリアの構成及び設計は、既存のガラス固化体処分の場合と同様にすることとした。オーバーパックにも DSC と同様のフランジがつけられた場合は、地下水との接触が早まりオーバーパックからの早期漏洩及び、放射線分解等のシナリオへの影響を検討するものとした。

人工バリア仕様は、図 2.3-2 に示す様に次の通りである⁽²²⁾。

- ・容器外寸（オーバーパック内寸） : φ 440 mm × L 1,350 mm
- ・容器有効内寸（=容器外寸－肉厚） : φ 430 mm
- ・容器肉厚 : t 5 mm

1F 廃棄体容器は、外寸（直径）を TMI-2 キャニスターと同等に、外寸（高さ）及び容器肉厚を人工バリア仕様と同等に、デブリ保管有効高さを TMI-2 キャニスターの有効高さから TMI-2 外寸（高さ）と 1F 廃棄体容器外寸（オーバーパック内寸）差を引いて設定した（TMI-2 キャニスターのフィルター及びベント構造部寸法は確保する）。

- ・外寸（直径） : φ 355.6 mm
- ・外寸（高さ） : L 1,350 mm
- ・内寸（直径） : φ 345.6 mm
- ・装荷有効高さ : L 867.4 mm (= 3,321.05 - (3,803.65 - 1,350))
- ・1F 容器の収納体積 : TMI-2 キャニスター収納体積の 0.26 倍
(≐ (867.4 × 345.6²) ÷ (3,321.05 × 342.9²))

1F 廃棄体容器の仕様を、TMI-2 キャニスター及び人工バリア仕様と比較して表 2.3-4 に示す。1F 廃棄体容器への装荷 U 量は、TMI-2 キャニスターの装荷 U 量に容器収納体積比（0.26 倍）を掛けて算出した。

- ・1F 廃棄体の装荷 U 量（最大） = 0.26 × (441.9 kg / 容器) ≐ 114.9 kg
- ・1F 廃棄体の装荷 U 量（平均） = 0.26 × (238.82 kg / 容器) ≐ 62.09 kg

1F 廃棄体容器の発生量は、廃棄体容器に平均ウラン量を装荷したとして算出すると、容器数は 4,139 本 (≐ 257 × 10³ ÷ 62.09) となる。

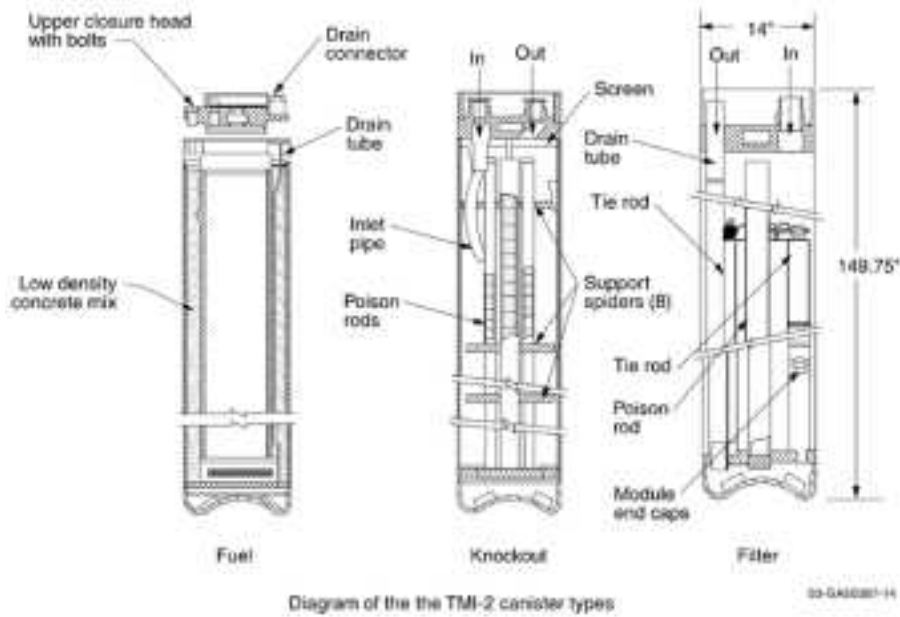


図 2.3-1 TMI-2 事故時の破損燃料容器⁽¹⁶⁾

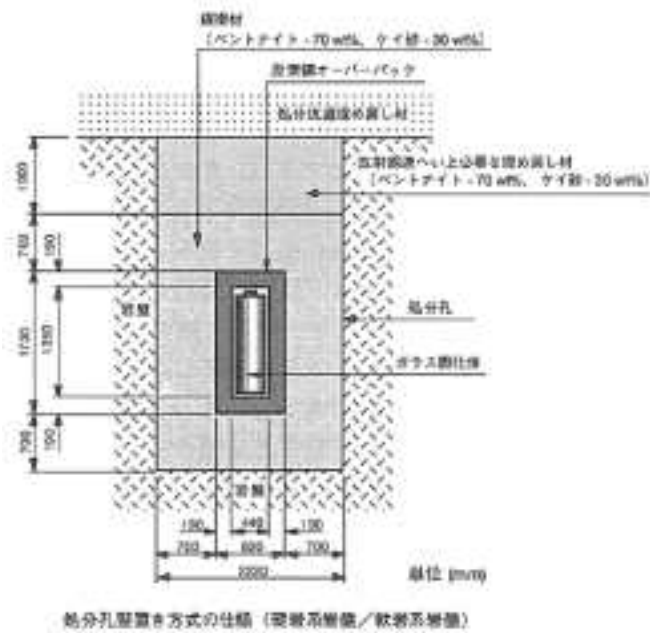


図 2.3-2 人工バリアの仕様⁽²²⁾

表 2.3-4 1F 廃棄体容器の仕様 (Ver.1)

	1F 廃棄体容器 (Ver.1)	TMI-2 ⁽¹⁶⁾	人工バリア ⁽²²⁾
キャニスター (容器) サイズ	直径 355.6 mm 高さ 1,350 mm 装荷有効高さ 867.4 mm	355.6 mm 3,803.65 mm 3,321.05 mm	440 mm 1,350 mm
ウラン量 (最大)	114.9 kg/容器	441.9 kg/容器	
ウラン量 (平均)	62.09 kg/容器	238.82 kg/容器	
ウラン量 (総量)	69 + 94 + 94 = 257 Ton	81.437 Ton	
容器数	4,139 本	341 本	4 万本 (2020 年分まで)

2.3.3 幾何学形態 (Ver.1)

武田 (2015)⁽²³⁾ は、燃料デブリは冷却材の喪失により原子炉燃料が溶融して原子炉構造材や制御棒と共に冷えて固まったものと定義し、その形状を炉内上部に「小石状」、炉内中央部に「塊状」、炉壁近くに溶融せずにのこった「切株状」、格納容器に落下しコンクリートと反応した「MCCI 生成物 (MCCI : Molten Core Concrete Interaction)」を提唱している (図 2.3-3 参照)。

炉内溶融物を粉砕して取出し、表 2.3-4 に示した 1F 廃棄体容器に収める場合、燃料デブリの形態は次の様になると考えられる。

- ・廃棄体容器外寸 : $\phi 355.6 \text{ mm} \times L 1,350 \text{ mm}$
- ・最大燃料デブリ寸法 : $< \phi 345.6 \text{ mm} \times L 867.4 \text{ mm}$
- ・燃料デブリの形態 : 小石状、塊状、切株状、MCCI 生成物

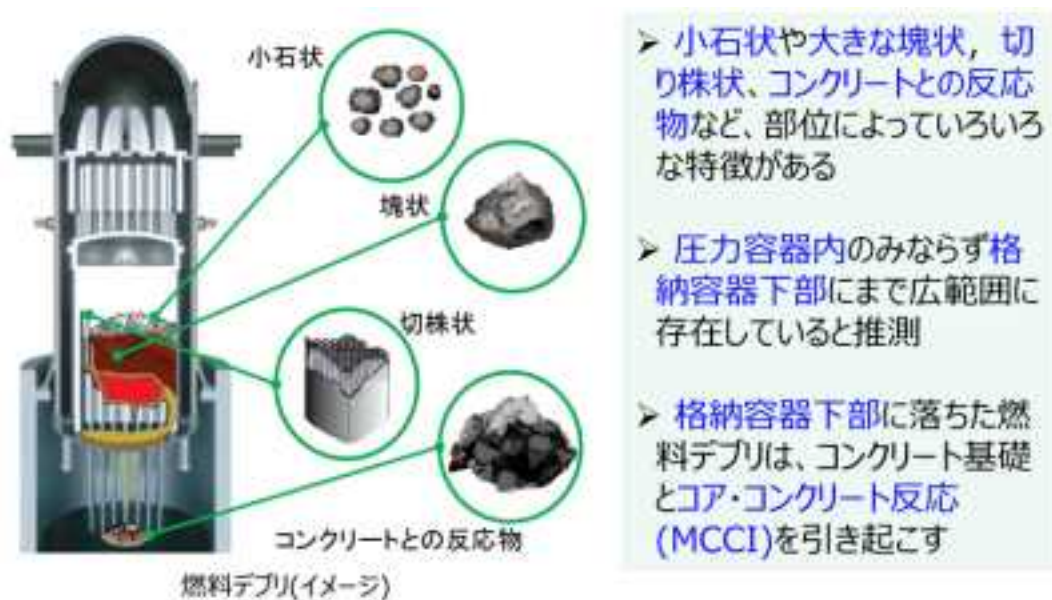


図 2.3-3 燃料デブリの幾何学形態 (Ver.1) ⁽²³⁾

2.3.4 化学形態 (Ver.1)

JAEA (2014)⁽¹⁴⁾ では、1F2 号機を対象とした安全解析結果より、次の様な炉内の反応 (状況) が起きていると推定している。

- ・燃料棒の崩落により上部に空洞ができ、炉心支持板上に燃料デブリが堆積する。上部に堆積した燃料デブリには U 及び O の割合が多く、下部に堆積 (炉心支持板直上に堆積) した燃料デブリには Fe や Zr の割合が多くなることが予想される。
 - ・上部に堆積した燃料デブリの酸化物相が先に凝固し (U, Zr) O₂ が生成され、金属相としては主に酸素を固溶した Zr が生成される。
- 下部に堆積 (炉心支持板直上に堆積) した燃料デブリの酸化物相は (U, Zr) O₂ として固相を留め、金属相は Zr (O), や Fe₂(Zr, U) の様な合金が生成される。

- ・格納容器床面における燃料デブリ（MCCI 生成物）の形態は、U 及び Zr の大部分が (U, Zr) O₂ 及び (U, Zr) SiO₄ として存在し、コンクリート由来の成分として CaAl₂Si₂O₈（灰長石）及び CaSiO₃（硅灰石）が生成される。

よって炉内燃料デブリは、次の様な化学形態をとると考えられる。

- ・酸化物相 : (U, Zr) O₂ or U₃O₈
- ・金属相 : Zr (O) or Fe₂(Zr, U)
- ・MCCI 生成物 : (U, Zr) O₂ (U, Zr) SiO₄ CaAl₂Si₂O₈, CaSiO₃

酸化物相が UO₂ のままなのか、事故時に U₃O₈ に酸化されているかは、デブリからの核種溶出評価に大きく影響する。

UO₂ 自身はほとんど溶解せず、放射線分解で生成した酸化剤によって U₃O₈ に酸化された部分に含まれていた核種が溶出するため、酸化物相が UO₂ のままであれば使用済み燃料からの核種溶出と同様の評価が可能であると考えられるが、U₃O₈ に酸化されていれば U (VI) と U (IV) の混合原子価酸化物なので U (VI) が溶け出しやすい。U (VI) が選択的に溶け出してしまうと、核種溶出に対するバリア性能は無くなってしまう可能性があるため、今後のシナリオ設定に当たり検討が必要になる。

2.3.5 発熱量 (Ver.1)

西原らが 1F 各号機の 2011 年 3 月 11 日時点、及びその後の放射性核種量を ORIGEN2 コードにより評価した報告書⁽¹⁾より、50 年後の記載核種すべての発熱量を合計し、安全を見てデブリへの核種移行率を 1 として、廃棄体容器 1 基当たりの発熱量を次式にて算出した。事故後 100 年までの廃棄体容器 1 基当たりの発熱量（計算結果）を、表 2.3-5 に示す。50 年後の廃棄体容器 1 基当たりの発熱量を、42W と設定した。

（廃棄体容器 1 基当たりの発熱量）

$$= (\text{炉内合計核種発熱量}) \times (\text{廃棄体への移行率}) \times (\text{廃棄体容器 1 基の最大装荷 U 量 } 114.9\text{kg}) \div (1 \sim 3 \text{ 号機の総 U 量 } 257 \text{ Ton})$$

表 2.3-5 燃料デブリの発熱量 (Ver.1)

経過年数	原子炉圧力容器内				廃棄体容器		
	1号機 ⁽¹⁾	2号機 ⁽¹⁾	3号機 ⁽¹⁾	炉内合計(W)	移行率	最大 U 装荷 (kg)	1 基当り (W)
0	8.67E+07	1.50E+08	1.49E+08	3.86E+08	1.00	114.9	1.72E+05
10	5.50E+04	6.86E+04	6.68E+04	1.90E+05	1.00	114.9	85
20	4.40E+04	5.44E+04	5.37E+04	1.52E+05	1.00	114.9	68
50	2.70E+04	3.30E+04	3.38E+04	9.38E+04	1.00	114.9	42
100	1.46E+04	1.77E+04	1.91E+04	5.14E+04	1.00	114.9	23

2.3.6 仮想燃料デブリ Ver.1 設定のまとめ

1F 燃料デブリについて、「仮想燃料デブリ Ver.1」を次の通り設定した。

(1) インベントリ

- ・ 50 年後の放射性核種量 : 表 2.3-2
(I と Cs については、全量の 40% がデブリへ移行すると仮定)
- ・ 1 号機～3 号機の総ウラン量 : 257 Ton
- ・ ^{235}U 平均濃縮度 : 3.7 wt %

(2) 発生量

- ・ 燃料デブリの総発生量 : 670 Ton
- ・ 廃棄体容器の数量 : 4,139 本 (平均ウラン装荷量 62.09 kg)
- ・ 燃料デブリ質量(平均値)/容器 : 162 kg (≒ 670 Ton ÷ 4,139 本)

(3) 幾何学形態

- ・ 廃棄体容器の外寸 : $\phi 355.6 \text{ mm} \times 1,350 \text{ mm}$
- ・ 最大燃料デブリ寸法 : $< \phi 345.6 \text{ mm} \times \text{L } 867.4 \text{ mm}$
- ・ 燃料デブリの形態 : 小石状、塊状、切株状、MCCI 生成物

(4) 化学形態

- ・ 酸化物相 : $(\text{U}, \text{Zr}) \text{O}_2$ or U_3O_8
- ・ 金属相 : $\text{Zr}(\text{O})$ or $\text{Fe}_2(\text{Zr}, \text{U})$
- ・ MCCI 生成物 : $(\text{U}, \text{Zr}) \text{O}_2$ $(\text{U}, \text{Zr}) \text{SiO}_4$ $\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$, CaSiO_3

(5) 発熱量

- 50 年後の廃棄体の最大発熱量 : 42 W/廃棄体容器

2.4 調査結果（仮想燃料デブリ H27 設定）

2.4.1 インベントリ（H27）

西原らが 1F 各号機の 2011 年 3 月 11 日時点、及びその後の放射性核種量を ORIGEN2 コードにより評価した報告書⁽¹⁾より、地層処分の評価上重要な核種⁽²⁾の 50 年後の放射能を抜き出し、更にデブリへの移行率を考慮して次式より廃棄体容器 1 基当たりの放射性核種量を算出した。

（廃棄体容器 1 基当たりの放射性核種量）

$$= (\text{炉内合計放射性核種量}) \times (\text{炉内評価誤差}) \times (\text{廃棄体への移行率}) \times \\ (\text{廃棄体容器 1 基の装荷U量}) \div (\text{1～3号機の総U量 257 Ton})$$

廃棄体容器 1 基の装荷U量は、2.4.2 項の発生量（H27）で設定した 1F 廃棄体容器（H27）1 基に含まれているウランの量で、TMI-2 キャニスターに収納されたウラン量から容器の収納体積比を掛けて求めた値である（表 2.4-6 参照）。

セシウム（Cs-135, 137）やヨウ素（I-129）及びストロンチウム（Sr-90）は、事故時の炉外放出や、その後の冷却水への溶出があり、炉内燃料デブリに含まれる量は評価報告書⁽¹⁾記載値よりも少ないと考えられる。

以下に燃料デブリに残存する核種の評価報告例を挙げるが、全ての報告には不確実性（誤差）が含まれており、50 年後の廃棄体のインベントリを評価するのに信頼性が高いと考えられる値を採用することとした。

1F 事故に係る報告書で、炉内燃料デブリから廃棄体への放射性核種量の移行率に関して、JAEA 船坂の報告書⁽³⁾ではセシウム（Cs-137）の炉内残量を初期インベントリの約 60%と評価している。この評価は 2013.10.30 までの放出量で評価しており、その後の水処理装置の吸着量を見込んでいないため、50 年後の廃棄体のインベントリを評価するにはこれより小さい値が妥当ではないかと考えられる。

西原らが AESJ へ投稿した滞留水への放射性核種放出に係る論文⁽⁴⁾より炉内残量を算出すると、セシウム（Cs-137）は 80%、ストロンチウム（Sr-90）は 98%である。論文中で「評価に使用した滞留水の試料採取の頻度は乏しく、滞留水中のインベントリ評価の精度は十分ではない。評価で用いた滞留水量の評価日は 5 月 31 日であるが、5 月 31 日以降の追加放出も考慮する必要がある、これらが評価の不確定要因となる。」と記載されており、50 年後の廃棄体のインベントリの推定値としては妥当ではないと考えられる。

TMI-2 事故に係る INL の報告書⁽⁵⁾において、事故後の炉内残量はヨウ素（I-129）が 42%、セシウム（Cs-135, 137）が 40%、ストロンチウム（Sr-90）が 90%と評価し、溶融しなかった健全な燃料棒の核種量を多く含み 1F での炉外放出（大気、汚染水）事故と大きな違いがあるが、閉ざされた領域での燃料デブリに含まれる核種の残量なので信頼性が高く評価用に適用できるものと考えられる。

JAEA における TMI-2 事故時のデブリサンプル分析報告書⁽⁶⁾では、セシウム（Cs-135, 137）のデブリ残量を 6%以下と評価しているが、INL での評価は JAEA での評価より大きな値を示す結果となっており、デブリの採取位置や評価手法により差が出ており JAEA 評価の過小評価が懸念される。

McIsaac, C. V. らの報告書⁽⁷⁾は汚染水側への溶出率を評価したものであるが、残量が全て燃料デブリに存在していると仮定するとヨウ素 (I-129) は 86%、セシウム (Cs-137) は 59%、ストロンチウム (Sr-90) は 98%となる。Akers, D. W. らの報告書⁽⁸⁾も汚染水側への溶出率を評価したものであるが、残量が全て燃料デブリに存在していると仮定するとヨウ素 (I-129) が 45%、セシウム (Cs-137) は 45%、ストロンチウム (Sr-90) が 97%となる。

これらの移行率をまとめると表 2.4-1 のようになり、測定核種の時期や解析手法の違い及び実デブリ測定部位の違いなどでばらつきがあり、又 TMI-2 事故時の解析結果をそのまま 1F に適用できるか問題が残るが、現実的な TMI-2 評価結果で直接燃料デブリの残存核種量を評価している INL の報告書⁽⁵⁾の値を、1F 事故時の炉内からデブリへの移行率として採用することとした。

- ・ヨウ素 (I-129) : 42%
- ・セシウム (Cs-135, 137) : 40%
- ・ストロンチウム (Sr-90) : 90%

この移行率を使い廃棄体容器 1 基当たりの放射性核種量を算出したものが、表 2.4-2 である。又、西原らは評価報告書⁽¹⁾の中で、「炉内放射能核種量は、ORIGEN2 コードと JENDL-3.3 を使い解析されたもので、評価対象は被照射燃料中のウラン燃料及び放射化されたジルカロイ被覆管である。この手法による誤差は、主要な核分裂生成物、アクチノイド核種に対して 10%以下であり、Cm-244 等の高次アクチノイド核種に対しては 20%程度の過小評価が見込まれる。」としているため、炉内インベントリの不確実性の幅を±10%として表内に併記した。更に廃棄体容器にはウランが 0kg から最大装荷量までばらついて存在するため (表 2.4-6 参照)、廃棄体のインベントリをウラン装荷量によるバラツキ幅を持たせて記載した。

燃料デブリの処分の安全評価試解析のための廃棄体に関する条件として、水の放射線分解によるガス発生に関与すると考えられるジルカロイ部材 (端栓等の特殊形状部材を除く) の初期表面積及び質量を、BWR 燃料集合体の基本仕様⁽²⁴⁾⁽²⁵⁾⁽²⁶⁾を基に算出した結果を表 2.4-3 に示す。ジルカロイ部材の初期総表面積は 38,741 m² で、総質量は 146.0 Ton である。廃棄体容器 1 基あたりの試解析条件は、表面積 3.96 m²、質量 14.9 kg となる。

表 2.4-1 デブリへの核種移行率 (H27)

	ヨウ素 (I-129)	セシウム (Cs-135, 137)	ストロンチウム (Sr-90)	参考文献
1F 解析 (%)	—	60	—	(3) (9)
	—	80	98	(4)
TMI-2 分析 (%)	42	40	90	(5)
	—	6	—	(6)
	86	59	98	(7)
	45	45	97	(8)

表 2.4-2 1F 燃料デブリの 50 年後の放射性核種量 (H27)

分類	核種 ⁽²⁾	原子炉圧力容器内					廃棄体容器 1 基当り						
		炉内合計 ⁽¹⁾ (GBq)	不確実性(率)		不確実性を考慮 (GBq)		移行率	U 装荷 (kg)		不確実性を考慮 (GBq)			
			上限	下限	上限	～		下限	最大	最少	上限	～	下限
4N 系列	Pu-240	3.29E+06	1.10	0.90	3.62E+06	～	2.96E+06	1.00	48.6	0	6.84E+02	～	0
	U-236	1.98E+03	1.10	0.90	2.18E+03	～	1.78E+03	1.00	48.6	0	4.12E-01	～	0
	Th-232	5.14E-06	1.10	0.90	5.65E-06	～	4.63E-06	1.00	48.6	0	1.07E-09	～	0
4N+1 系列	Cm-245	9.59E+02	1.10	0.90	1.05E+03	～	8.63E+02	1.00	48.6	0	1.99E-01	～	0
	Pu-241	7.38E+07	1.10	0.90	8.12E+07	～	6.64E+07	1.00	48.6	0	1.54E+04	～	0
	Am-241	2.50E+07	1.10	0.90	2.75E+07	～	2.25E+07	1.00	48.6	0	5.19E+03	～	0
	Np-237	2.04E+03	1.10	0.90	2.24E+03	～	1.84E+03	1.00	48.6	0	4.24E-01	～	0
	U-233	4.79E-01	1.10	0.90	5.27E-01	～	4.31E-01	1.00	48.6	0	9.96E-05	～	0
	Th-229	2.07E-03	1.10	0.90	2.28E-03	～	1.86E-03	1.00	48.6	0	4.31E-07	～	0
4N+2 系列	Cm-246	1.54E+02	1.10	0.90	1.69E+02	～	1.38E+02	1.00	48.6	0	3.20E-02	～	0
	Am-242m	5.03E+04	1.10	0.90	5.53E+04	～	4.53E+04	1.00	48.6	0	1.05E+01	～	0
	Pu-242	1.02E+04	1.10	0.90	1.12E+04	～	9.20E+03	1.00	48.6	0	2.13E+00	～	0
	Pu-238	1.10E+07	1.10	0.90	1.21E+07	～	9.87E+06	1.00	48.6	0	2.28E+03	～	0
	U-238	3.03E+03	1.10	0.90	3.34E+03	～	2.73E+03	1.00	48.6	0	6.31E-01	～	0
	U-234	2.22E+03	1.10	0.90	2.44E+03	～	1.99E+03	1.00	48.6	0	4.61E-01	～	0
	Th-230	6.00E-01	1.10	0.90	6.60E-01	～	5.40E-01	1.00	48.6	0	1.25E-04	～	0
	Ra-226	4.95E-03	1.10	0.90	5.45E-03	～	4.46E-03	1.00	48.6	0	1.03E-06	～	0
4N+3 系列	Pb-210	1.59E-03	1.10	0.90	1.75E-03	～	1.43E-03	1.00	48.6	0	3.31E-07	～	0
	Am-243	8.31E+04	1.10	0.90	9.14E+04	～	7.48E+04	1.00	48.6	0	1.73E+01	～	0
	Pu-239	2.65E+06	1.10	0.90	2.92E+06	～	2.39E+06	1.00	48.6	0	5.51E+02	～	0
	U-235	3.60E+02	1.10	0.90	3.96E+02	～	3.24E+02	1.00	48.6	0	7.49E-02	～	0
	Pa-231	3.98E-01	1.10	0.90	4.38E-01	～	3.58E-01	1.00	48.6	0	8.28E-05	～	0
非系 系列	Ac-227	2.05E-01	1.10	0.90	2.25E-01	～	1.84E-01	1.00	48.6	0	4.26E-05	～	0
	Se-79	2.50E+02	1.10	0.90	2.75E+02	～	2.25E+02	1.00	48.6	0	5.20E-02	～	0
	Zr-93	1.26E+04	1.10	0.90	1.38E+04	～	1.13E+04	1.00	48.6	0	2.61E+00	～	0
	Sr-90	1.56E+08	1.10	0.90	1.72E+08	～	1.40E+08	0.90	48.6	0	2.92E+04	～	0
	Nb-93m	1.07E+04	1.10	0.90	1.18E+04	～	9.62E+03	1.00	48.6	0	2.22E+00	～	0
	Nb-94	1.00E+00	1.10	0.90	1.10E+00	～	9.01E-01	1.00	48.6	0	2.08E-04	～	0
	Tc-99	9.20E+04	1.10	0.90	1.01E+05	～	8.28E+04	1.00	48.6	0	1.91E+01	～	0
	Pd-107	6.30E+02	1.10	0.90	6.93E+02	～	5.67E+02	1.00	48.6	0	1.31E-01	～	0
	Sn-126	4.11E+03	1.10	0.90	4.52E+03	～	3.70E+03	1.00	48.6	0	8.55E-01	～	0
	I-129	2.08E+02	1.10	0.90	2.29E+02	～	1.87E+02	0.42	48.6	0	1.82E-02	～	0
	Cs-135	3.29E+03	1.10	0.90	3.62E+03	～	2.96E+03	0.40	48.6	0	2.74E-01	～	0
	Cs-137	2.21E+08	1.10	0.90	2.43E+08	～	1.99E+08	0.40	48.6	0	1.84E+04	～	0
	Sm-151	1.70E+06	1.10	0.90	1.87E+06	～	1.53E+06	1.00	48.6	0	3.54E+02	～	0
	C-14	6.72E+02	1.10	0.90	7.39E+02	～	6.05E+02	1.00	48.6	0	1.40E-01	～	0

表 2.4-3 ジルカロイ (Zry) 部材の初期表面積と質量 (H27)

		1号機	2号機	3号機	合計	備考		
燃料集合体	高燃焼度 8×8	体/炉	68	0	0	68		
	9×9 B型 (NFI 製)	体/炉	332	548	0	880		
	9×9 A型 (GNFJ 製)	体/炉	0	0	516	516		
	MOX 8×8	体/炉	0	0	32	32		
	長尺燃料棒総本数	本/炉	27,984	39,456	35,976	103,416		
	部分長燃料棒総本数	本/炉	0	0	4,128	4,128		
	ウォーターロッド総本数	本/炉	400	548	1,064	2,012		
ジルカロイ部材	長尺燃料棒総表面積 (Zry-2)	m ² /炉	7,357	10,209	9,526	27,092		
	部分長燃料棒総表面積 (Zry-2)	m ² /炉	0	0	680	680		
	ウォーターロッド総表面積 (Zry-2)	m ² /炉	455	658	646	1,758		
	チャンネルボックス総表面積 (Zry-4)	m ² /炉	1,841	2,523	2,523	6,886		
	スペーサー総表面積 (Zry-2)	m ² /炉	615	857	852	2,324		
	合計	m²/炉	10,268	14,246	14,226	38,741		
	長尺燃料棒総体積 (Zry-2)	m ³ /炉	2.85	3.82	3.66	10.33		
	部分長燃料棒総体積 (Zry-2)	m ³ /炉	0.00	0.00	0.26	0.26		
	ウォーターロッド総体積 (Zry-2)	m ³ /炉	0.23	0.34	0.34	0.91		
	チャンネルボックス総体積 (Zry-4)	m ³ /炉	2.82	3.87	3.87	10.56		
	スペーサー総体積 (Zry-2)	m ³ /炉	0.09	0.13	0.13	0.35		
	合計	m³/炉	6.00	8.15	8.25	22.40		
	長尺燃料棒総質量 (Zry-2)	Ton/炉	18.6	24.9	23.8	67.3	Zry 密度 (Ton/m ³): 6.52	
	部分長燃料棒総質量 (Zry-2)	Ton/炉	0.0	0.0	1.7	1.7		
	ウォーターロッド総質量 (Zry-2)	Ton/炉	1.5	2.2	2.2	5.9		
チャンネルボックス総質量 (Zry-4)	Ton/炉	18.4	25.2	25.2	68.8			
スペーサー総質量 (Zry-2)	Ton/炉	0.6	0.8	0.8	2.3	廃棄体容器数: 9,772		
合計	Ton/炉	39.1	53.1	53.8	146.0	kg / 容器 1 基: 14.9		
長尺被覆管		本/体	外径 (mm)	肉厚 (mm)	内径 (mm)	長さ (mm)	表面積 (m ² /体)	体積 (m ³ /体)
	高燃焼度 8×8	60	12.3	0.86	10.58	4,000	17.24	7.97E-03
	9×9 B型 (NFI 製)	72	11.0	0.70	9.60	4,000	18.63	6.96E-03
	9×9 A型 (GNFJ 製)	66	11.2	0.71	9.78	4,000	17.39	6.59E-03
	MOX 8×8	60	12.3	0.86	10.58	4,000	17.24	7.97E-03
部分長被覆管		本/体	外径 (mm)	肉厚 (mm)	内径 (mm)	長さ (mm)	表面積 (m ² /体)	体積 (m ³ /体)
	高燃焼度 8×8	0	—	—	—	—	—	—
	9×9 B型 (NFI 製)	0	—	—	—	—	—	—
	9×9 A型 (GNFJ 製)	8	11.2	0.71	9.78	2,500	1.32	4.99E-04
	MOX 8×8	0	—	—	—	—	—	—
ウォーターロッド		本/体	外径 (mm)	肉厚 (mm)	内径 (mm)	長さ (mm)	表面積 (m ² /体)	体積 (m ³ /体)
	高燃焼度 8×8 (太管)	1	34.0	1	32	4,000	0.83	4.27E-04
	9×9 B型 (角管)	1	38.5	1	37	4,000	1.20	6.16E-04
	9×9 A型 (太管)	2	24.9	1	23	4,000	1.20	6.25E-04
	MOX 8×8 (太管)	1	34.0	1	32	4,000	0.83	4.27E-04
チャンネルボックス		個/体	外径 (mm)	肉厚 (mm)	内径 (mm)	長さ (mm)	表面積 (m ² /体)	体積 (m ³ /体)
	高燃焼度 8×8 (角管)	1	140	3	134	4,200	4.60	7.06E-03
	9×9 B型 (角管)	1	140	3	134	4,200	4.60	7.06E-03
	9×9 A型 (角管)	1	140	3	134	4,200	4.60	7.06E-03
	MOX 8×8 (角管)	1	140	3	134	4,200	4.60	7.06E-03
スペーサー		個/体	幅 (mm)	肉厚 (mm)	高さ (mm)	枚数/個	表面積 (m ² /体)	体積 (m ³ /体)
	高燃焼度 8×8	7	133	0.3	42	18	1.41	2.11E-04
	9×9 B型 (NFI 製)	7	133	0.3	42	20	1.56	2.35E-04
	9×9 A型 (GNFJ 製)	7	133	0.3	42	20	1.56	2.35E-04
	MOX 8×8	7	133	0.3	42	18	1.41	2.11E-04

NFI:原子燃料工業(株)、GNFJ:(株)グローバル・ニュークリア・フュエル・ジャパン

2.4.2 発生量 (H27)

(1) 原子炉圧力容器からの燃料デブリの落下割合

1F 炉内燃料デブリの圧力容器からの落下割合を解析した報告を次に、詳細比較を表 2.4-4 に示す。

平成 26 年 2 月発行 JAEA の廃止措置に向けた取り組み報告⁽³⁾において、TEPCO 評価 (MAAP 解析) では 1 号機が 100%・2 号機が 57%・3 号機が 63%落下しており、JAEA 評価 (MELCOR 解析) では 1 号機が 100%・2 号機が 70%・3 号機が 64%落下した解析結果となっている。

平成 27 年 7 月発行 IRID (日立GE、東芝) の MAAP 改良と事故解析報告⁽¹¹⁾においては、1 号機が 90%・2 号機が 0%・3 号機が 77%落下しており、2 号機は炉内と圧力容器底部に燃料デブリが留まった状況にある。

平成 27 年 9 月発行 IAE の SAMPSON コードによる事故解析報告⁽¹²⁾においては、1 号機が 95%・2 号機が 0%・3 号機が 92%落下しており、前記 IRID 報告同様 2 号機は炉内と圧力容器底部に燃料デブリが留まった状況にある。

表 2.4-4 原子炉圧力容器からの燃料デブリの落下割合 (H27)

		1 号機	2 号機	3 号機	炉内合計	参考文献
MAAP 解析	炉内	%	0	43	37	-
	ペDESTAL 床上	%	100	57	63	-
MELCOR 解析	炉内	%	0	30	36	-
	ペDESTAL 床上	%	100	70	64	-
改良版 MAAP 解析	炉内	%	0	65	0	-
	RPV 底部	%	10	35	23	-
	ペDESTAL 床上	%	90	0	77	-
SAMPSON 解析	炉内	%	0	50	0	-
	RPV 底部	%	5	50	8	-
	ペDESTAL 床上	%	95	0	92	-

(2) 炉内燃料デブリの発生量と分布

1F 炉内燃料デブリの発生量と分布を解析した報告 (Ver.1 設定以降の調査結果) を次に、Ver.1 設定調査結果を含めた詳細比較を表 2.4-5 に示す。

平成 27 年 9 月発行 IAE の SAMPSON コードによる事故解析報告⁽¹²⁾においては、1 号機が 121Ton (炉内 6Ton)・2 号機が 87Ton (炉内 87Ton)・3 号機が 188Ton (炉内 15Ton) と推定している。

平成 27 年 10 月に IRID と IAE が刊行した炉内状況把握の高度化報告⁽¹⁵⁾において、MAAP 及び SAMPSON 解析の総合的な分析・評価結果が記載されており、MAAP 解析では 1 号機が 152Ton (炉内 16Ton)・2 号機が 85Ton (炉内 85Ton)・3 号機が 209Ton (炉内 49Ton)と推定し、SAMPSON 解析では 1 号機が 116Ton (炉内 0Ton)・2 号機が 87Ton (炉内 87Ton)・3 号機が 187Ton (炉内 0Ton)と推定している。

この解析では概ね MAAP 解析結果と SAMPSON 解析が整合しており、1 号機ではデブリの大部分が格納容器側へ移行しており、2 号機では全量圧力容器内に残り圧力容器の破損はない結果となり、3 号機では圧力容器に破損が発生し炉心燃料のほぼ全量が落下した結果となっている。

上記の様に解析手法及び境界条件設定の違いにより解析結果に大きな差がで、又燃料デブリの範囲をどのように定めるかでも発生量に違いが表れている。
 仮想燃料デブリ H27 の発生量は、Ver.1 と同様に最大解析値の JAEA 報告⁽¹⁴⁾ の約 670Ton を採用する事とした。

表 2.4-5 燃料デブリの発生量と分布 (H27)

		1号機	2号機	3号機	炉内合計	参考文献
MAAP 解析	炉内	Ton	0	0	0	(13) IRID, IAE
	ペDESTアル床上	Ton	91	97	246	
	ドライウエル床上	Ton	89	142	395	
	合計	Ton	180	239	641	
SAMPSON 解析	炉内	Ton	72	152	144	(13) IRID, IAE
	ペDESTアル床上	Ton	88	74	244	
	ドライウエル床上	Ton	0	0	0	
	合計	Ton	160	226	612	
炉内構造物起因デブリ重量		Ton	-	-	530	(14) JAEA
海水起因難溶性、不溶性沈殿物重量		Ton	-	-	80	
反応コンクリート重量		Ton	-	-	60	
合計		Ton	-	-	670	
SAMPSON 解析	炉内	Ton	0	2	2	(12) IAE
	RPV 底部	Ton	6	85	106	
	ペDESTアル床上	Ton	115	0	288	
	合計	Ton	121	87	396	
MAAP 解析	炉内	Ton	0	20	20	(15) IRID, IAE
	RPV 底部	Ton	16	65	130	
	ペDESTアル床上	Ton	136	0	296	
	合計	Ton	152	85	446	
SAMPSON 解析	炉内	Ton	0	2	2	(15) IRID, IAE
	RPV 底部	Ton	0	85	85	
	ペDESTアル床上	Ton	116	0	303	
	合計	Ton	116	87	390	

(3) 1F 廃棄体の発生量

廃棄体としての燃料デブリの発生量を設定するために、TMI-2 事故時の破損燃料容器を参考に 1F 燃料デブリの収納容器（廃棄体容器）を設定し、その数量を算出した。
 1F 廃棄体容器は、Ver.1 のオーバーパック内寸法からガラス固化体自体の寸法（φ 430 mm × L 1,340 mm、肉厚 5 mm）に変更し、更に第 3 章の臨界（形状管理）要求より廃棄体の最大外径（225 mm）を使い再設定した（小数点以下を丸めて記載）。

- ・外寸（直径）：φ 235 mm
- ・外寸（高さ）：L 1,340 mm
- ・内寸（直径）：φ 225 mm（臨界評価要求）
- ・容器肉厚：t 5 mm
- ・装荷有効高さ：L 857 mm（= 3,321 mm - (3,804 mm - 1,340 mm)）
- ・1F 容器の収納体積：TMI-2 キャニスター収納体積の 0.11 倍

$$\left(\div (857 \times 225^2) \div (3,321 \times 343^2) \right)$$

1F 廃棄体容器の仕様を、TMI-2 キャニスター及び高レベル放射性廃棄物（ガラス固化体）容器と比較して表 2.4-6 に示す。1F 廃棄体容器への装荷 U 量は、TMI-2 容器の装荷 U 量に容器収納体積比（0.11 倍）を掛けて算出した。

- ・ 1F 廃棄体の装荷 U 量（最大） = $0.11 \times (441.9 \text{ kg} / \text{容器}) \div 48.6 \text{ kg}$
- ・ 1F 廃棄体の装荷 U 量（平均） = $0.11 \times (238.8 \text{ kg} / \text{容器}) \div 26.3 \text{ kg}$
（小数点以下第 2 位を丸める）

1F 廃棄体容器の発生量は、廃棄体容器に平均ウラン量を装荷したとして算出すると、容器数は 9,772 本（ $\div 257 \times 10^3 \div 26.3$ ）となる。

表 2.4-6 1F 廃棄体容器の仕様（H27）

	1F 廃棄体容器（H27）	1F 廃棄体容器（Ver.1）	TMI-2 ⁽¹⁶⁾	ガラス固化体 ⁽¹⁷⁾
キャニスター （容器）サイズ	外寸直径 235 mm	355.6 mm	356 mm	430 mm
	外寸高さ 1,340 mm	1,350 mm	3,804 mm	1,340 mm
	内寸直径 225 mm	345.6 mm	343 mm	420 mm
	装荷有効高さ 857 mm	867.4 mm	3,321 mm	—
ウラン量（最大）	48.6 kg/容器	114.9 kg/容器	441.9 kg/容器	—
ウラン量（平均）	26.3 kg/容器	62.09 kg/容器	238.8 kg/容器	—
ウラン量（総量）	69 + 94 + 94 = 257 Ton	69 + 94 + 94 = 257 Ton	81.437 Ton	—
容器数	9,772 本	4,139 本	341 本	4 万本 (2020 年分まで)

TMI-2 燃料デブリ収納容器（キャニスター）の臨界評価設計の特徴は、下記に示す様に 3 種類のキャニスター共に中性子吸着材を備えている事である⁽¹⁶⁾⁽³⁰⁾⁽⁴⁸⁾。

1) 燃料キャニスター

- ・ 収納容積 : $\square 231.8 \text{ mm (9.125 in)} \times L 3,465.5 \text{ mm (136-7/16 in)}$
- ・ 中性子吸収材 : BORALTM (boron aluminide) を SUS304L で包み込んだ密封積層板型 $\square 231.8 \text{ mm}$ 角管 (Shroud)、boron-10 表面密度 $\geq 0.040 \text{ gm/cm}^2$
- ・ 遮蔽物 : LICONTM (低密度コンクリート) で内部角管と外周円管の間を充填

2) ノックアウトキャニスター

- ・ 収納容積 : $\phi 342.9 \text{ mm (13.5 in)} \times L 3,321.05 \text{ mm (130-3/4 in)}$
- ・ 中性子吸収材 : 5 本のボロンカーバイト (B₄C) ペレット装荷管を保有する、boron-10 密度 $\geq 1.45 \text{ gm/cm}^3$
- ・ 中央太径管 : B₄C ペレット $\phi 49.7 \text{ mm (1.955 in)} \times L 3,321.05 \text{ mm (130-3/4 in)}$ 1 本
- ・ 外周細径管 : B₄C ペレット $\phi 19.6 \text{ mm (0.770 in)} \times L 3,327.4 \text{ mm (131 in)}$ 4 本

3) フィルターキャニスター

- ・ 収納容積 : $\phi 342.9 \text{ mm (13.5 in)} \times L 3,321.05 \text{ mm (130-3/4 in)}$
- ・ 中性子吸収材 : 1 本のボロンカーバイト (B₄C) 粉末充填管を保有する、boron-10 密度 $\geq 1.45 \text{ gm/cm}^3$
- ・ 中央充填管 : 管内径 $\phi 50.8 \text{ mm (1.999 in)} \times L 3,321.05 \text{ mm (130-3/4 in)}$ 1 本

全てのキャニスターは、燃料デブリ取出し・輸送・保管を通して、中性子吸収材を備え

た状態で反応基準 $K_{eff} = 0.95$ を超えないことが要求されている。
 モンテカルロ臨界コード (KENO4) に使われた計算モデルは、次の保守的な仮定であり、その解析結果である中性子実効増倍率 (K-effective) は、図 2.4-1 の通りである⁽⁴⁸⁾。
 全てのケースで、余裕を持って基準上限 $K_{eff} = 0.95$ を満足していた。

【臨界計算モデル上の保守的な主要仮定】

- ・ 製造公差を含めた ^{235}U 最大濃縮度の燃料は、全て新燃料 (未燃焼燃料) であり、炉心の 3 分の 1 を占めるものとする。
- ・ 最適な燃料塊サイズ、状態、燃料/H₂O 比を選定する。
- ・ ボロン又は炉心制御毒物構造体は、非溶解とする。
- ・ 被覆管又は炉心構造物は、無しとする。
- ・ 10°C 等温状態とする。
- ・ 複数のキャニスターは、457.2 mm 正方形無限配列配置とする。
- ・ 保管ラック構造材料は、無しとする。
- ・ 事故キャニスターは、接触した配置で解析する。

Description	Maximum k-effective
<u>Filter Canister</u>	
Single, Standard Configuration	0.804
18" Array, Standard Configuration	0.834
Single, Accident Configuration	0.892
<u>Fuel Canisters</u>	
Single, Standard or Accident Configuration	0.857
18" Array, Standard Configuration	0.877
<u>Knockout Canister</u>	
Single, Standard Configuration	0.873
18" Array, Standard Configuration	0.911
Single, Accident Configuration	0.887

図 2.4-1 TMI-2 キャニスターの臨界計算結果⁽⁴⁸⁾

1F 燃料デブリ収納容器 (廃棄体容器) の臨界評価は、燃料デブリの形状を球形とし、最大燃料量を充填率 74% (減速材対燃料体積比 $V_m/V_f=0.35$) として、球形燃料内に空隙が含まれることを想定し、空隙率に応じて V_m/V_f を 0.35~20 の間で解析したものであり、「仮想燃料デブリ Ver.1」で設定したステンレス製廃棄体容器の外寸 35.56 cm では、中性子実効増倍率 (K_{eff}) 1 以下を満足していなかった。再解析の結果では、未臨界を維持する廃棄体の外形寸法が 22.5 cm 以下となり、「仮想燃料デブリ H27」では燃料デブリの外寸 (廃棄体容器の内寸) を 22.5 cm に変更して再設定した (臨界評価の詳細

細は第3章参照)。

今回の評価は、中性子吸収体の影響を除外し、燃料デブリの形状を変化させる(ガラス固化体等にする)事はせずに評価したものであり、今後は色々なケースについて検討を進めていくため、「仮想燃料デブリ H27」の設定も変更していく必要がある。

(4) 廃棄体中の水分量

残留水の放射線分解で発生する水素ガスで破裂するのを防ぐために、燃料デブリ収納容器にはベントが設けられている。このベントを閉止しないと、核種の早期溶出や地下水の侵入による放射線分解等が懸念され、ベントを開けたままでは、そもそも隔離型処分になっていないこととなる。

TMI-2 事故時の燃料デブリ収納容器(キャニスター)には、デブリ収納後 20 psig (137.9 KPa) までアルゴンガスで加圧し、水抜き操作を行うためのコネクタが取付けられ⁽²⁷⁾、更に残水の放射線分解によるガス発生対策として水素・酸素再結合触媒が設置されている⁽³⁹⁾。

又、TMI-2 燃料キャニスターを使った乾燥試験報告書⁽⁴³⁾によると、燃料キャニスター(有効搭載量 1,000 ポンド (453.6kg)) が水抜きだけで乾燥されないと相当量の水が、主に燃料バケットの下部ヘッド部、デブリに付着する水、LICON と呼ばれるコンクリート充填物に残留するとしている。

燃料バケットの下部ヘッド部に残る水は 13 ポンド (5.9kg) であり、デブリに付着する水はデブリと一緒に 3% 流入すると評価し(試験では溶岩デブリで 27 ポンド (12.2kg)、100 メッシュ砂で 70 ポンド (31.8kg) の水が残留)、LICON と呼ばれるコンクリート充填物に 100~160 ポンド (45.4~72.6kg) 残留し、合計最大 243 ポンド (110.2kg) 残留していたと報告している。

更に 300 °F (148.9°C) 以下の加熱・パージング方法では完全に乾燥できない。325 °F (162.8°C) 以上で 50 時間加熱すれば乾燥できるかもしれないとしている。

Palmer, A. J. は、燃料デブリ収納容器の設計にあたって次の事項を検討する必要があると指摘している⁽⁴³⁾。

- ・ゴムのシール材はさける。
- ・水が滞留しやすい構造は避ける。
- ・水除去のあとに底部に水が残りにくい構造にする。
- ・LICON のような水分を含む充填材は使用しない。

これ自身を 1F 廃棄体容器の設計に反映させることは難しくないと考えられるが、水がないことを保証することは非常に困難と思われる。

水のたまるポケット構造を避け、下部ヘッド部を水の残らない形状に設計し、LICON の様な水分を含む充填剤を使用しないとすれば、1F 廃棄体容器に残留する水分は、水抜き処理だけだとデブリと一緒に流入する 3~7% (試験実績) となり、1F 廃棄体容器 1 基のデブリ質量 68.6 kg (≒ 670 Ton ÷ 9,772 本) に対して水分量は 2.1~4.8 kg となる。更に乾燥処理を加えると残留水分量がどうなるか、今後のシナリオ設定に当たり検討が必要である。

1) 乾燥処理で残留水をなくすことが可能か

TMI-2 事故時に使用された燃料デブリのキャニスターは、当初の計画では図 2.4-2 に示す加熱減圧乾燥システム (HVDS : Heated Vacuum Drying System) で乾燥させる計画であった ($< 8.8 \times 10^5$ g-water/cm³-fuel が当初の臨界安全解析)。

しかし、乾燥に時間がかかりすぎる (80 時間以上) ことと、乾燥の指標としていた炉内圧力があまり適切な指標ではないことが判明したことにより、臨界安全解析が再度行われた (LICON が含む水はあるものとして解析された)。

残留水が 8 Liter までなら未臨界との結果となり、貯蔵中に取り込む量を 1 Liter として、デブリ中の拘束水とデブリ中の自由水をあわせて 7 Liter 以下とすることにした。これなら 25 時間未満で可能であり、HVDS を合計 87 回運転して 341 本のキャニスターを乾燥させた⁽³⁴⁾。なお、乾燥に 80 時間かけているのは契約期間内に乾式貯蔵が終わらないという事情もあった⁽³⁵⁾。



図 2.4-2 加熱減圧乾燥システム (HVDS)⁽³⁴⁾

2) ガラス固化、アスファルト固化により放射線分解される水をなくすことが可能か

TMI-2 の水処理設備のひとつであるカートリッジ型脱塩器 EPICOR-II システムは、吸着材 (有機イオン交換物質) は固形化することが認可の条件だったが、固形化されなかった。容器から出すだけでも技術的に困難であり、固形化の方法も未確立であった。

固形化の方法を検討し容器内固着 (in-vessel solidification) ができるような容器に変える必要があると分かったのは、大量の Cs が吸着した廃吸着塔の発生後の事であった⁽³⁶⁾。

結局コンクリート製高性能容器 (HIS : High-Integrity Container) で処分することが決まった後、米国エネルギー省 (DOE : Department of Energy) による研究として、EPICOR-II の吸着材 (有機と有機+ゼオライト) の固形化 (セメントとエステル・スチレン・ビニール) と、TMI-2 のもうひとつの水処理設備である浸漬脱塩システム

(SDS : Submerged Demineralizer System) のゼオライトのガラス固化が行われたのみである⁽³⁷⁾⁽³⁸⁾。

3) 再結合触媒を入れれば、水素と酸素が再結合して水に戻ってくれるか

TMI-2 のデブリを収納して乾式貯蔵している燃料キャニスター (図 2.4-3 左図) には、上部と下部にそれぞれ 100 g ずつ再結合触媒が設置された。再結合触媒は、耐放射線性に優れた Engelhard Deoxo-D (アルミナにパラジウムコーティングした物) 80% と耐水性に優れた AECL シリコンコーティング (アルミナにプラチナコーティングした物) 20% から出来ている⁽²⁷⁾。これにより、TMI-2 から INEL への輸送の間のガス濃度の上昇はなかった (<0.1%)⁽³⁹⁾。

SDS (図 2.4-3 右図) についても、Johnson screen 部 (ベント管フィルター部) と出入口管ノズルに 236 g の Engelhard Deoxo-D 触媒を詰めておくことにより、TMI-2 からハンフォードへの輸送の間にガス圧上昇はなく、その後 1200 日間にわたって内圧がモニターされ、水素ガスの 99% 超が再結合されたことがわかった。ただし、再結合は輸送の安全確保が目的であり、長期の貯蔵についてはベントシステムで対応されている⁽³⁹⁾。

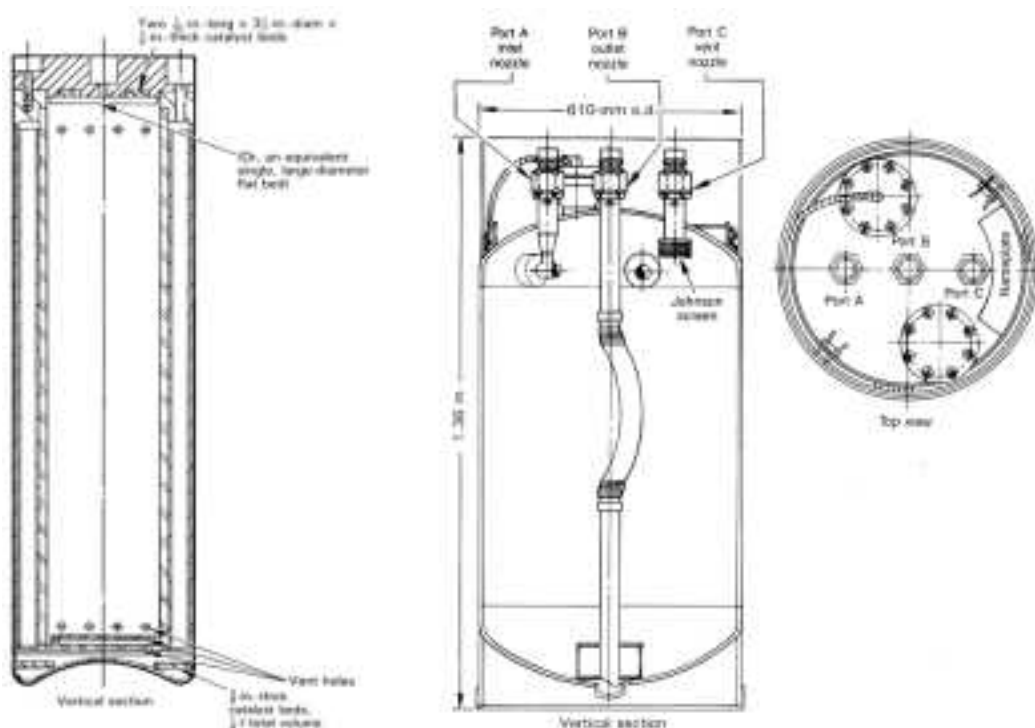


図 2.4-3 再結合触媒が設置された燃料キャニスター (左) と SDS 容器 (右)

4) 年月が経てば水素の発生は止むか

TMI-2 独立使用済み燃料貯蔵施設 (ISFSI : Independent Spent Fuel Storage Installation) は、INL (ISFSI への設置が行われた 2000 年~2001 年当時はアイダホ国立工学環境研究所: INEEL) にある原子力技術及び工学センター (INTEC : Idaho Nuclear Technology and Engineering Center) 内に設置されており、NUHOMS 使用済み燃料貯

蔵システムを部分改良したもので NUHOMS-12T と呼ばれる燃料デブリの中間貯蔵施設である (図 2.4-4 参照)。施設内にある 30 基の NUHOMS-12T モジュールは、横置き貯蔵モジュール (HSM : Horizontal Storage Module) と呼ばれ、内部に 1 基の乾式遮蔽キャニスター (DSC) を収納しており、各 DSC 内に 12 体の TMI-2 (燃料、ロックアウト、フィルター) キャニスターが水平に乾式貯蔵可能である。貯蔵中は、高性能微粒子 (HEPA) フィルターを通して放射線分解で発生した水素ガス及びモニタリングやパーズングガスを放出するベントシステムを備えている⁽²⁸⁾。

図 2.4-5 に、HSM 中に乾式貯蔵されている DSC の水素濃度の変動を示す⁽²⁹⁾。燃料デブリは、ベントを開けた状態で保管され、水素ガス発生は長期にわたって継続すると想定される。内容物の劣化 (酸化) を防ぐためにも、処分のためにも、いずれ密封することが望ましいが、水素ガス発生によって破裂しないことを保証する方法は確立されていない。



図 2.4-4 NUHOMS-12T : TMI-2 独立使用済み燃料貯蔵施設 (ISFSI)⁽³⁴⁾

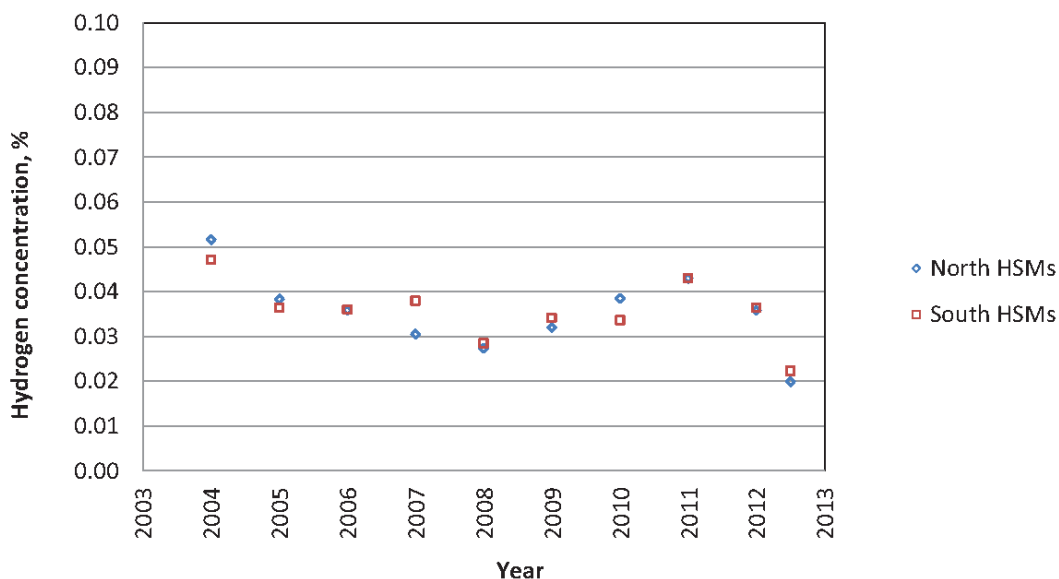


図 2.4-5 HSM で乾式貯蔵されている DSC 中の水素濃度⁽²⁹⁾

2.4.3 幾何学形態 (H27)

1F 原子炉内の燃料損傷状態に関して TMI-2 事故時の炉心状況より推定した報告⁽¹⁸⁾では、炉内上部に位置する「ルースデブリ」、炉内中央部に位置する「熔融固化物 (熔融プール)」、炉壁近くに熔融せずにのこった「切株状燃料」、压力容器下部に落下し熔融物が固化した「熔融固化デブリ」、同じく压力容器下部で固化した「粒状固化体」、格納容器に落下しコンクリートと反応した「火山状 MCCI 生成物」を TMI-2 事故時の写真等を使いその形状を示している (図 2.4-6 参照)。

炉内熔融物を粉砕して取出し、表 2.4-6 に示した 1F 廃棄体容器に収める場合、燃料デブリの形状は次の様になると考えられる。

- ・ TMI-2 燃料キャニスター仕様模擬 1F 廃棄体容器
 - 塊状切断物：小石状、塊状、切株状、熔融固化物状
 - 形状：球体の場合 ($< S \phi 225 \text{ mm}$)
 - 円柱体の場合 ($< \phi 225 \text{ mm} \times L 857 \text{ mm}$)
 - 直方体の場合 ($< \square 159 \text{ mm} \times L 857 \text{ mm}$)
 - (収納物・BWR 燃料 : $\square 140 \text{ mm} \times L 4,000 \text{ mm}$)
 - (収納物・BWR 制御棒 : $\phi 250 \text{ mm} \times L 4,500 \text{ mm}$)
- ・ TMI-2 ノックアウトキャニスター仕様模擬 1F 廃棄体容器
 - フィルター捕獲物：砂状～小石状 ($140 \mu\text{m}$ ～ペレット)
- ・ TMI-2 フィルターキャニスター仕様模擬 1F 廃棄体容器
 - フィルター捕獲物：微細粒子状 ($0.5 \sim 800 \mu\text{m}$)

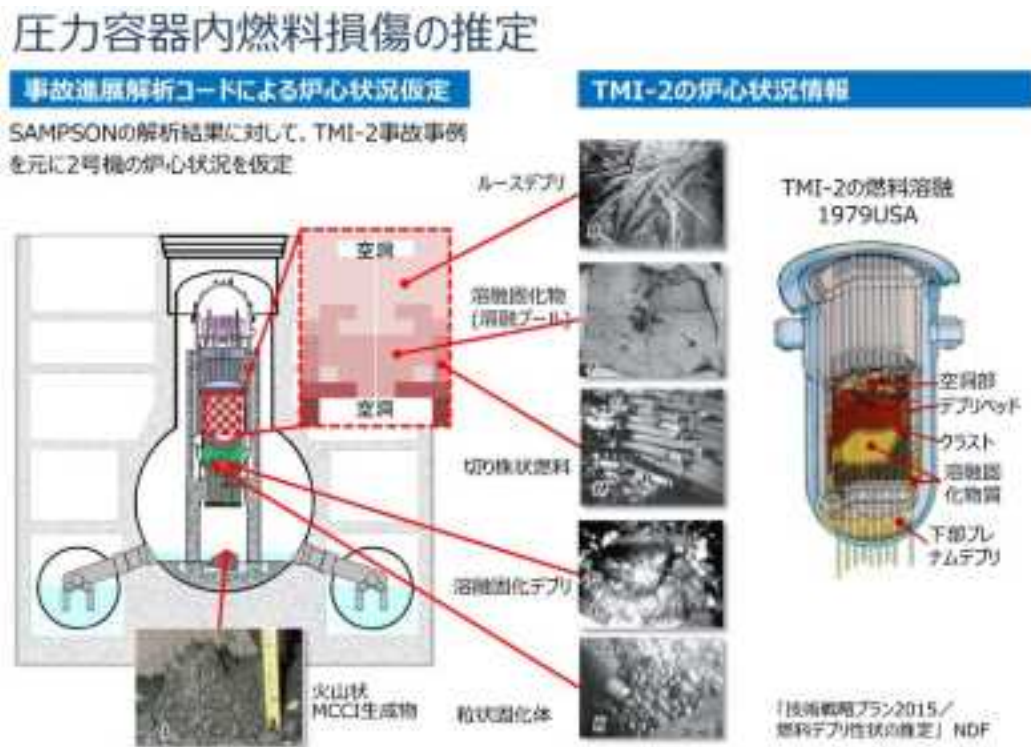


図 2.4-6 燃料デブリの幾何学形態 (H27)⁽¹⁸⁾

2.4.4 化学形態 (H27)

(1) 燃料デブリの化学形態

炉内燃料デブリの化学形態は、Ver.1 設定⁽¹⁴⁾以降の追加調査報告書⁽¹⁹⁾⁽²⁰⁾より次の様な形態をとると考えられる。

【圧力容器内】

- ・酸化物 : UO_2 、 U_3O_8 、 $(\text{U}, \text{Zr})\text{O}_2$
- ・炭化物 : B_4C 、 ZrC
- ・金属 : Zr 、 $\text{Zr}(\text{O})$ 、 Fe 、 $\text{Fe}_2(\text{Zr}, \text{U})$
- ・制御棒との反応物質⁽¹⁹⁾ : $(\text{Fe}, \text{Cr}, \text{Ni})_2\text{B}$ 、 ZrB_2
- ・海水塩との反応物質 : $(\text{Ca}, \text{Na})\text{UO}_{4-X}$

【格納容器内】

- ・MCCI 生成物(酸化物)⁽²⁰⁾ : $(\text{U}, \text{Zr})\text{O}_2 + \text{SiO}_2$ 、 Fe_2O_3
- ・MCCI 生成物(ケイ酸塩)⁽²⁰⁾ : $(\text{U}, \text{Zr})\text{SiO}_4$
- ・MCCI 生成物(コンクリート部) : $\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ 、 CaSiO_3

鷲谷らの報告書⁽¹⁹⁾では、次の様な炉内の反応(状況)が起きていると推定している。

- ・1Fでは、燃料デブリが圧力容器底部を溶融し、ペDESTAL底部のコンクリート上に落下し溶融燃料とコンクリートの高温反応MCCIが生じたと推定されている。
- ・生成する燃料デブリの化学形態は、系内の酸素量に大きく影響を受けるが、酸化物としては $(\text{U}, \text{Zr})\text{O}_2$ 、金属としては $\text{Zr}(\text{O})$ 、 $\text{Fe}_2(\text{Zr}, \text{U})$ が主要な形態と推定された。
- ・1Fに特有な事象として、炉心冷却時に用いられた海水の影響や制御材の材質(B_4C)の影響、ペDESTAL(PCV)底部での溶融燃料とコンクリートの反応MCCIが挙げられる。又、MOX燃料やGd含有燃料が使用されていたことも挙げられる。
- ・海水との反応では、Mg塩がMgOの結晶となりデブリ取出し時に表面に付着し、もっとも反応性の高いCaは、高酸素分圧下で高温のデブリ表面に緻密なウラン酸塩層を形成し、低酸素分圧下ではデブリ表層に拡散固溶する可能性がある。
- ・制御材の材質(B_4C)の影響として、ホウ化物 $(\text{Fe}, \text{Cr}, \text{Ni})_2\text{B}$ 及び ZrB_2 の析出が挙げられる。

日高の報告書⁽²¹⁾では、 B_4C 制御材の影響について、次の様な炉内の反応(状況)が起きていると推定している。

- ・ B_4C 制御棒(融点2,620K)とステンレス被覆管(融点1,673~1,723K)の共晶反応により、本来の温度より低い温度で液化が始まり流下し、その溶融物は炉心下部で冷やされ固化して留まる。又、1,500K前後の温度から B_4C 自身の酸化により反応熱と H_2 が発生する。
- ・BWRの炉心では、 B_4C に対するステンレスの割合が大きく、ほとんどの B_4C はステンレスの中に共晶反応で融解し、その状態で低温部の下方へ移行する。
- ・ B_4C に対するステンレスの割合が小さい場合は、 B_4C の健全性が維持され水蒸気によって酸化される可能性が高い。酸化過程では、遊離したCがCOやCO₂及びCH₄となりヨウ素やセシウムとの反応の影響も考慮する必要がある。

燃料デブリ中のウランが地下水に溶けにくい UO_2 ではなく、事故によって U_3O_8 等に酸化されていた場合、核分裂生成物(FP: fission products)の地下水への溶出速度が大

きくなり、地下水シナリオの被ばく線量が高くなるので留意が必要である。

1) デブリを分析すればわかるか

TMI-2 ではコアデブリの詳細な分析がなされ、(U, Zr) O₂ が同定されている。電子線マイクロアナライザー (EPMA-WDS) やオージェ分光で UO_{2+x} や (U, Zr) O_{2+x} も見つかっている。この +x は過化学量論 (hyperstoichiometry) と呼ばれて注目された。ただし、分析の誤差の可能性もあり、同定のためにはさらなる調査が必要とされた⁽⁴²⁾。

また、X線回折によって格子定数の変化が調べられ、(U, Zr)₂ の格子定数からのずれが見られた。これも hyperstoichiometry によるものである可能性が検討されたが、U₃O₈ の格子定数にはなっていないとされている⁽⁴⁰⁾。

ウラン酸化物には UO₂, U₄O₉, U₃O₇, U₅O₁₃, U₃O₈, UO₃ などがある他、UO_{2±x}, U₄O_{9-y}, U₃O_{7±u}, U₅O_{13±v}, U₃O_{8-z} などの不定比化合物が存在する⁽⁴⁶⁾ ため、分析によって同定するのも容易ではない。

2) 燃料が高温になっていた時期には格納容器内に酸素はなかったことから U₃O₈ 等への酸化を否定できるか

UO₂ を空気中で加熱すると U₃O₈ になるのはよく知られている。又、2% O₂ 雰囲気でも U₃O₈ の生成が確認されている⁽⁴⁴⁾。

格納容器は、もともと不可性ガスで充填されており、地震・津波で冷却が困難になった後は内圧が上昇しているため、空気が流入したとは考えられず、U₃O₈ への酸化は起こらなかつたであろうと言えるかもしれない。

O/U 比は、通常の核分裂反応では初期の 2.00 からずれることはないとされているが⁽⁴⁷⁾、事故時の高温状態ではジルカロイとの反応や FP の放出により 2.00 からずれると推定される。相図 (図 2.4-7 参照) によれば高温では UO_{2±x} の一相になりうるが、常温に冷えると、O/U 比 < 2.00 であれば αU と UO₂ の 2 相に、2.00 < O/U 比 < 2.25 であれば UO_{2+x} と U₄O_{9-y} の 2 相になり、UO_{2.00} よりも不安定な (水に溶けやすい) 形態となる。

3) TMI-2 では FP の水への溶け方はどうだったのか

TMI-2 では、燃料取り出し時の水処理で微生物を殺すために過酸化水素 (300 ppm) が 2 回投入された。そのたびに、冷却水中の放射性核種濃度の上昇が見られた⁽⁴¹⁾。デブリは、酸化還元で敏感な状態にあると考えられる (単純な UO₂ ではないと考えるのが妥当)。

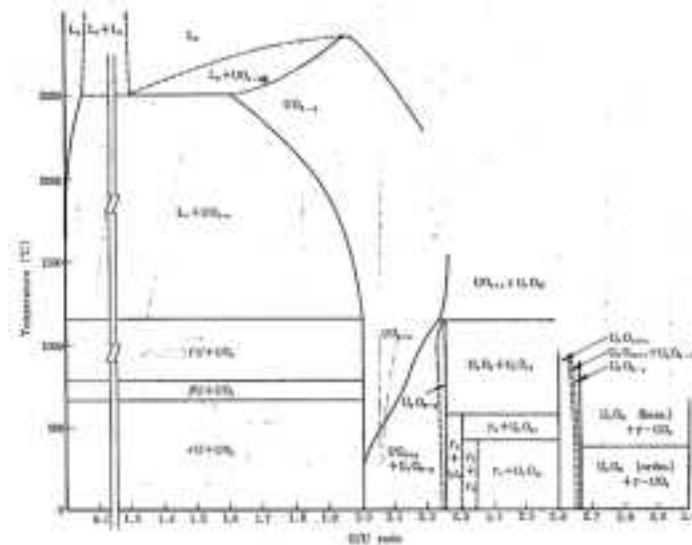


図 2.4-7 酸化ウランの相図⁽⁴⁶⁾

(2) 冷却水中の異物等による処分シナリオへの影響について

TMI-2 事故で使用されたフィルターキャニスターは、管状の多孔質 SUS316 焼結体を有し、燃料デブリ 0.5~800 μm の粒子を捕獲するものである。

使用開始直後、無機物（主に水和金属酸化物でコロイド状懸濁）がフィルターの目詰まりを起こしたため、有機凝集剤と珪藻土をフィルターの上流側へ投入して浮遊する微細な無機物（コロイド）を大きく成長させ、フィルター表面に層を形成させ目詰まりを防止する対策をとっている⁽³⁶⁾⁽⁴⁵⁾。

有機凝集剤としては、ポリ塩化ジアリルジメチルアンモニウムや、メラミンホルムアルデヒドが挙げられている⁽³¹⁾⁽³²⁾。

又、水処理において微生物の発生による水の懸濁が問題となり、過酸化水素水の投入で防止している⁽³³⁾。

1F 事故においても廃棄体に有機物が含まれる可能性があるとする、処分後に有機物が地下水に溶解し、放射性元素の溶解度を上昇させたり、分配係数を低下させたりすることが懸念されるが、過酸化水素水の投入については特に処分シナリオへの影響はないものとする。

デブリ取出し時の水処理で透明度を確保するために高分子凝集剤を用いた場合、それがデブリ廃棄物として回収され、処分の安全評価で有機物影響を考慮せざるを得ない。

1) 有機凝集剤を使わなくても水処理はできるか

処理済み水の透明度が必要なのは、水をためてデブリ取出しを行うからである。水をためることをしなければ、有機凝集剤まで用いた水処理は不要となる可能性が高い。格納容器に水をためるとなった場合には、TMI-2 のデブリ取出し時とはけた違いの水量となるため、凝集剤は処理に最適なものが選ばれる可能性が高い。TMI-2 では様々な対策案が比較検討され、必要な処理速度が発揮できる唯一の方法として有機凝集剤とフィルター助剤を加える方法が選ばれた⁽⁴⁵⁾。

なお、1Fの多核種除去設備の鉄共沈プロセスでも高分子凝集剤を加えていることからわかるように、有機凝集剤の添加は水処理の常套手段といえる。格納容器に水をためなかったとしても通常の水処理の中で高分子凝集剤が用いられる可能性もある。なお、凝集剤ではないのかもしれないが、1Fのモバイル型ストロンチウム除去装置においては、処理対象であるRO濃縮水に、「粉末状吸着材」を添加混合し、それをSSフィルターとウルトラフィルターで濾過することによりSrを除去しているが、その粉末状吸着材の材質は公開されていない。

2) 無機化（焼却処理）が可能か

TMI-2の廃棄物管理で、放射能レベルの低い廃棄物の減容化の代替案として焼却が1981年に検討されたが、政治的、経済的、規制上の未確定要素のために断念された。技術的な懸念として、有害なオフガスを出さないためには廃棄物の分別が必要になること、焼却施設の耐火材の耐放射線性が不明であること、耐火材の交換修理となった場合の被ばくがあった。技術的な懸念以外に、どれだけの廃棄物が発生するか不明だったこと、廃棄物処分場が未定だったこと、DOEがどれだけ費用負担するか未定だったこと、連邦政府と州政府から焼却施設の許認可を得るのが大変で近隣住民の反対も予想されたことが影響した。最終的には、1981年12月にDOEが予算の縮小を決めたことで、焼却のような大規模実証プロジェクトはできなくなった⁽³⁶⁾。

2.4.5 発熱量 (H27)

西原らが1F各号機の2011年3月11日時点、及びその後の放射性核種量をORIGEN2コードにより評価した報告書⁽⁴⁾より、50年後の記載核種すべての発熱量を合計し、安全を見てデブリへの核種移行率を1として、廃棄体容器1基当たりの発熱量を次式にて算出した。事故後100年までの廃棄体容器1基当たりの発熱量（計算結果）を、表2.4-7に示す。50年後の廃棄体容器1基当たりの発熱量を、19.5~0Wと設定した。

（廃棄体容器1基当たりの発熱量）

$$= (\text{炉内合計核種発熱量}) \times (\text{炉内評価誤差}) \times (\text{廃棄体への移行率}) \times (\text{廃棄体容器1基の装荷U量}) \div (1 \sim 3 \text{号機の総U量 } 257 \text{ Ton})$$

表 2.4-7 燃料デブリの発熱量 (H27)

経過年数	原子炉压力容器内				廃棄体容器1基当たり					
	炉内合計 ⁽¹⁾ (W)	不確実性(率)		不確実性を考慮(W)		移行率	U装荷(kg)		不確実性を考慮(W)	
		上限	下限	上限	下限		最大	最少	上限	下限
0	3.86E+08	1.10	0.90	4.24E+08	~ 3.47E+08	1.00	48.6	0	8.02E+04	~ 0
10	1.90E+05	1.10	0.90	2.09E+05	~ 1.71E+05	1.00	48.6	0	39.6	~ 0
20	1.52E+05	1.10	0.90	1.67E+05	~ 1.37E+05	1.00	48.6	0	31.6	~ 0
50	9.38E+04	1.10	0.90	1.03E+05	~ 8.44E+04	1.00	48.6	0	19.5	~ 0
100	5.14E+04	1.10	0.90	5.65E+04	~ 4.63E+04	1.00	48.6	0	10.7	~ 0

2.4.6 仮想燃料デブリ H27 設定のまとめ

1F 燃料デブリについて、「仮想燃料デブリ H27」を次の通り設定した。

(1) インベントリ

- ・ 50 年後の放射性核種量 : 表 2.4-2
(炉内からデブリへの核種移行率を I は 42%、Cs は 40%、Sr は 90% と仮定)
- ・ 1 号機～3 号機の総ウラン量 : 257 Ton
- ・ ^{235}U 平均濃縮度 : 3.7 wt %
- (参考) Zry 部材の初期総表面積 : 38,741 m² (3.96 m² / 廃棄体容器)
- 初期総質量 : 146 Ton (14.9 kg / 廃棄体容器)

(2) 発生量

- ・ 燃料デブリの総発生量 : 670 Ton
 - (内訳) 炉内構造物起因デブリ重量 : 530 Ton
 - 海水起因難溶性・不溶性沈殿物重量 : 80 Ton
 - 反応コンクリート重量 : 60 Ton
- ・ 廃棄体容器の数量 : 9,772 本 (平均ウラン装荷量 26.3 kg)
- ・ 燃料デブリ質量(平均値)/容器 : 68.6 kg (≒670 Ton ÷ 9,772 本)

(3) 幾何学形態

- ・ TMI-2 燃料キャニスター仕様模擬 1F 廃棄体容器内
 - 塊状切断物 : 小石状、塊状、切株状、溶融固化物状
 - 形状 : 球体の場合 (< S φ 225 mm)
 - 円柱体の場合 (< φ 225 mm × L 857 mm)
 - 直方体の場合 (< □159 mm × L 857 mm)
- ・ TMI-2 ノックアウトキャニスター仕様模擬 1F 廃棄体容器内
 - フィルター捕獲物 : 砂状～小石状 (140 μm～ペレット)
- ・ TMI-2 フィルターキャニスター仕様模擬 1F 廃棄体容器内
 - フィルター捕獲物 : 微細粒子状 (0.5～800 μm)

(4) 化学形態

圧力容器内

- ・ 酸化物 : UO_2 、 U_3O_8 、 $(\text{U}, \text{Zr})\text{O}_2$
- ・ 炭化物 : B_4C 、 ZrC
- ・ 金属 : Zr 、 $\text{Zr}(\text{O})$ 、 Fe 、 $\text{Fe}_2(\text{Zr}, \text{U})$
- ・ 制御棒との反応物質 : $(\text{Fe}, \text{Cr}, \text{Ni})_2\text{B}$ 、 ZrB_2
- ・ 海水塩との反応物質 : $(\text{Ca}, \text{Na})\text{UO}_{4-x}$

格納容器内

- ・ MCCI 生成物(酸化物) : $(\text{U}, \text{Zr})\text{O}_2 + \text{SiO}_2$ 、 Fe_2O_3
- ・ MCCI 生成物(ケイ酸塩) : $(\text{U}, \text{Zr})\text{SiO}_4$
- ・ MCCI 生成物(コンクリート部) : $\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ 、 CaSiO_3

(5) 発熱量

- 50 年後の廃棄体の最大発熱量 : 19.5 W / 廃棄体容器

(6) 留意事項

1) 燃料デブリ外寸について

TMI-2 キャニスターの臨界評価では、中性子吸収材の装着による評価がなされているが、1F 廃棄体容器では装着を想定せずに臨界評価を行い、直径を決定した。今後色々な観点から検討が行われ、それを反映した仮想燃料デブリの設定の見直しが行われることが望ましい。また高さについても、本研究では処分場の設計をガラス固化体の場合から大きく変えないようにするためにキャニスターの外寸高さをガラス固化体に合わせた。必ずしもそうする必要はなく、今後設定の見直しが行われることが望ましい。

2) 廃棄体中の水分量について

TMI-2 キャニスターは、保管前に水抜き及び乾燥処理が行われたが、輸送中の水素ガス発生による内圧上昇を防止するために再結合触媒が設置され、また保管中はベントシステムを使い水素ガス発生による内圧上昇を防止している。

1F の廃棄体容器にも同様にベントがなされた状態で保管されると想定されるが、処分までには密封することが必要となる。乾燥処理により完全に水を除去して密封することが可能なのか、ある程度の水の残留（内圧上昇、腐食）を許容することが必要なのかは、今後検討されると考えられる。

3) 燃料デブリ中の U_3O_8 酸化物について

燃料デブリ中の U が U_3O_8 に酸化されていた場合、核分裂生成物（FP）の地下水への溶出速度が大きくなり、地下水シナリオへの評価に影響がある。

分析による U_3O_8 の同定は難しく、又 U_3O_8 以外の酸化物形態の可能性もある。

4) 燃料デブリに含まれる有機物について

TMI-2 では、フィルターキャニスターの目詰まり防止のために有機凝集剤が使用され、デブリと一緒に回収された。

1F の場合も同様の方法が採られた場合、デブリに有機物が含まれることになり、無機化処理をしない限り、有機物影響（化学反応、核種移行への影響等）を考慮する必要が生じる。

第2章の参考文献

- (1) 西原健司・岩元大樹・須山賢也、福島第一原子力発電所の燃料組成評価、JAEA-Data/Code 2012-018, p.72, 2012.
- (2) 武田聖司・山口徹治・長澤寛和・渡邊正敏・関岡靖司・神崎裕・佐々木利久・落合透・宗像雅弘・田中忠夫・木村英雄・中山真一、高レベル放射性廃棄物地層処分の安全性の評価、JAEA-Research 2009-034, p.187, 2009.
- (3) 船坂英之、福島第一原子力発電所事故への対応状況 廃止措置に向けた取り組み、第6回原子力委員会資料第1号、平成26年2月14日, p.5, 2014.
- (4) 西原健司・山岸巧・安田健一郎・石森健一郎・田中究・久野剛彦・稲田聡・後藤雄一、福島第一原子力発電所の滞留水への放射性核種放出、日本原子力学会和文論文誌 Vol.11 No.1, p.13-19, 2012.
- (5) Miller, C. J., Review of Destructive Assay Methods for Nuclear Materials Characterization from the Three Mile Island (TMI) Fuel debris, INL/EXT-13-30078, p.14, 2013.
- (6) 上塚寛・永瀬文久・鈴木敏夫、TMI-2 デブリに対するガンマ線分析、JAEA-Research 95-084, p.4, 1995.
- (7) McIsaac, C. V., Kohli, R., Denning, R. S., Akers, D. W., Fission Product Behavior Distribution in the TMI-2 Reactor Building, EGG-M--88202, Idaho National Engineering Laboratory, 1988.
- (8) Akers, D. W., McCardell, R. K., Russell, M. L., Worku, G., TMI core materials and fission product inventory, Nucl. Eng. Des., 118, p.451-461, 1990.
- (9) Katata, G., Chino, M., Kobayashi, T., Terada, H., Ota, M., Nagai, H., Kajino, M., Draxler, R., Hort, M. C., Malo, A., Torii, T., Sanada, Y., Detailed source term estimation of the atmospheric release for the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident by coupling simulations of an atmospheric dispersion model with an improved deposition scheme and oceanic dispersion model, Atmos. Chem. Phys., 15, p.1029-1070, 2015.
- (10) 欠番
- (11) 藤井正・酒井健・西田浩二・小島良洋・千原瑠為・狩野善二、シビアアクシデントコード MAAP の改良と事故解析、日本保全学会 第12回学術講演会(1-D-1-1)、2015.7.14, p.45, 2015.
- (12) 内藤正則、SAMPSON コードによる事故事象進展の解析、日本原子力学会 2015 秋の大会 廃炉検討委員会セッション 個別セッション(B-2)、平成27年9月11日, p.18, 2015.
- (13) 国際廃炉研究開発機構・エネルギー総合工学研究所、事故進展解析技術の高度化による炉内状況把握 平成25年度実績概要、平成26年5月29日, p.10, 2014.
- (14) 日本原子力研究開発機構、東京電力(株)福島第一原子力発電所事故に係る廃止措置及び環境回復への原子力機構の取り組み (2014年版)、p.24-41, 2014.
- (15) 国際廃炉研究開発機構・エネルギー総合工学研究所、事故進展解析及び実機データ等による炉内状況把握の高度化 平成27年度進捗状況、平成27年10月, p.19, 2015.
- (16) DOE Assistant Secretary for Environmental Management Office of Nuclear Material and Spent Fuel, TMI FUEL CHARACTERISTICS FOR DISPOSAL CRITICALITY ANALYSIS, DOE/SNF/REP-084, p.24, 2003.
- (17) 経済産業省 資源エネルギー庁、高レベル放射性廃棄物処分について、平成25年5月, p.2, 2013.
- (18) 及川清志、廃炉に向けた研究開発、IRID シンポジウム 2015 in 福島、2015年7月23日, p.22, 2015.
- (19) 鷲谷忠博・荻野英樹・高野公秀・矢野公彦・鍛冶直也、燃料デブリの特性に関する研究概要、日本保全学会 第12回学術講演会(1-D-1-2)、2015.6.25, p.47, 2015.
- (20) 日本原子力研究開発機構、平成24年度 地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連 先進的地層処分概念 性能評価技術高度化開発 (原子力事故廃棄物の処理・処分に係る対応) 報告書、平成25年3月, p.3.2.-22, 2013.
- (21) 日高昭秀、B₄C 制御材がシビアアクシデント時の炉心熔融過程およびヨウ素やセシウムの化学形に与える影響、日本原子力学会和文論文誌 Vol.14 No.1, p.51-61, 2015.
- (22) 新計画策定会議 技術検討小委員会 (第1回) 資料第5号、使用済燃料の直接処分概念に関する検討、平成16年8月10日, p.12, 2004.
- (23) 武田誠一郎、廃止措置への取り組み、平成26年度福島研究開発部門成果報告会、平成27年2月12日, p.9, 2015.
- (24) 東北大学 流体科学研究所 圓山・小宮・岡島研究室、原子炉内崩壊熱のみによって加熱されている場合に必要水の投入量の推定、2011.5.27、改訂5, p.1, 2011.
- (25) 広瀬勉・土井莊一、核燃料工学の基礎 第2回軽水炉燃料(1)、日本原子力学会誌 Vol.46 No.6、

- 2004年, p.412, 2004.
- (26) 田辺朗・広瀬勉・土井荘一、核燃料工学の基礎 第3回軽水炉燃料(2)、日本原子力学会誌 Vol.46 No.7、2004年, p.469, 2004.
 - (27) Deltete, C. P., Hahn, R. E., TMI-2 WASTE MANAGEMENT EXPERIENCE, EPRI TR-100640, 1992.
 - (28) Hall, G.G., ANNUAL RADIOLOGICAL ENVIRONMENTAL MONITORING PROGRAM REPORT FOR THE THREE MILE ISLAND, UNIT 2, INDEPENDENT SPENT FUEL STORAGE INSTALLATION, DOE/ID-10739(2002), p.1, 2003.
 - (29) Argyle, M., Carlson, A., Christensen, A., Fadeley, R., Hall, G., Stalnaker, J., Storage of TMI-2 and Other Damaged Fuels at the Idaho Nuclear Technology and Engineering Center, Transactions of the American Nuclear Society, Vol. 112, San Antonio, Texas, June 7-11, 2015, p.161-164, 2015.
 - (30) Childress, P. C., McGuinn, E. J., DEFUELING CANISTER DESIGNS FOR THE TMI-2 CORE REMOVAL PROGRAM, Waste Management Symposia-1985, p.289-291, 1985.
 - (31) Vance, J. N., Filtration Improvement Study at Three Mile Island Unit 2. EPRI NP-5367, 1987.
 - (32) Smith, M. D., Use of deep-bed filtration technology in the cleanup of Three Mile Island unit 2. Nuclear Technology 87, p.824-836, 1989.
 - (33) Hofstetter, K. J., Ausmus, B. S., The identification and control of microorganisms at three mile island unit 2. Nuclear Technology 87, p.837-844, 1989.
 - (34) Beller, B., Fuel Drying Activities by the Environmental Management Program at Idaho National Laboratory. Summer Board Meeting, August 6, 2014, U.S. Nuclear Waste Technical Review Board, 2014.
 - (35) Christensen, A. B., Custer, K., Gardner, R., Kaylor, J., Stalnaker, J., Receipt and storage issues at the TMI-2 irradiated fuel storage installation. Proc. ICONE 10, Arlington, VA, April 14-18, 2002.
 - (36) Holton, W. C., Negin, C. A., Owrutsky, S. L., The Cleanup of Three Mile Island Unit 2, A Technical History: 1979 to 1990. EPRI NP-6931, 1990.
 - (37) Neilson, Jr. R. M. and McConnell, J. W., Solidification of EPICOR-II resin waste forms. GEND-INF-055, 1984.
 - (38) Bryan, G. H., Goles, R. W., Knox, C. A., Knowlton, D. E., Vitrification of TMI decontamination zeolite. Nuclear and Chemical Waste Management, 7, p.141-148, 1987.
 - (39) Henrie, J. O., The effects of hydrogen generation on radioactive waste handling technology. Nuclear Technology 87, p.729-736, 1989.
 - (40) Akers, D. W., Bart, G., Bottomley, P., Brown, A., Cox, D. S., Hofmann, P., Jensen, S. M., Kleykamp, H., Manley, A. J., Neimark, L. A., Trotabas, M., TMI-2 examination results from the OECD/CSNI program Volumes 1 & 2. EGG-OECD-9168, 1992.
 - (41) Baston, V. F., Hofstetter, K. J., Ryan, R. F., A comparison of measured radionuclide release rates from Three Mile Island Unit-2 core debris for different oxygen chemical potentials. Nuclear Technology, 76, p.377-389, 1987.
 - (42) Hayner, G. O., Caldwell, C. S., Microanalysis of TMI-2 core debris samples. EPRI NP-6590, 1989.
 - (43) Palmer, A. J., Drying test conducted on Three Mile Island fuel canisters containing simulated debris. CONF-9606116-18, p.6, 1996.
 - (44) Sasaki, T., Takeno, Y., Kirishima, A., Sato, N., Leaching test of gamma-emitting Cs, Ru, Zr, and U from neutron-irradiated UO_2/ZrO_2 solid solutions in non-filtered surface seawater. J Nucl. Sci. Technol., 52, p.147-151, 2015.
 - (45) Van Stolk, P. R., Smith, M. D., Design of a filter aid and coagulant addition system at Three Mile Island unit 2. Nuclear Technology 87, p.797-802, 1989.
 - (46) 石井保・内藤奎爾、ウラン酸化物の物性と構造—不定比性を中心として—、JAERI-4045, p.5, 1968.
 - (47) 原子力安全研究協会、軽水炉燃料のふるまい。実務テキストシリーズ No.3 改訂第5版, p.136, 2013.
 - (48) Pettus, W. G., Hassler, L. A., Holman, P. L., Jones, H. M., Worsham, J. R., TMI-2 DEFUELING CANISTER REACTIVITY CALCULATIONS, Waste Management Symposia-1985, p.285-287, 1985.

3. 燃料デブリ特有の特性を踏まえた シナリオ設定及び予察的解析

3. 燃料デブリ特有の特性を踏まえたシナリオ設定及び予察的解析

3.1 はじめに

従来の再処理した使用済燃料をガラス固化した廃棄体を地層処分する場合との違いという観点から、以下に関する燃料デブリ固有の特性・事象について国内外の既往の実験的及び解析的研究から得られる情報（諸外国における直接処分の既往研究の情報を含む）の調査・検討を行った。

- ・ 仮想デブリからの核種溶出
- ・ 放射線による人工バリア材の劣化
- ・ 処分場閉鎖後 10 万年以上の長期にわたる人工バリアの変質挙動
- ・ 廃棄体からの発熱
- ・ 海水成分、セメント成分等の溶出による処分環境への化学的影響
- ・ 水の放射線分解等によるガス発生
- ・ 容器内外での臨界の発生

これらのうち、仮想デブリからの核種溶出、放射線による人工バリア材の劣化、処分場閉鎖後 10 万年以上の長期にわたる人工バリアの変質挙動、廃棄体からの発熱、海水成分、セメント成分等の溶出による処分環境への化学的影響に対しては、可能な限り既往情報等による定量的な検討を行い、6 章における総合的安全評価手法（予察的な解析としての人工バリアの変遷を対象とした安全評価や人工バリア安全機能に着目した感度解析）へと反映させた。そして、解析などの結果を踏まえ、燃料デブリの処分の安全性を著しく損なう可能性のある人工バリアの設計を含む条件や天然バリアにおける事象を抽出した。

また、水の放射線分解等によるガス発生、容器内外での臨界の発生に対しては、予察的解析等による定量的な検討を行い、5 章における評価手法の整備・改良結果を適宜フィードバックしつつ、仮想デブリの処分において安全性への影響が懸念される特性及びその影響の連鎖（シナリオ）を抽出した。

以下に、検討内容について記述する。なお、一部の項目に関する解析についての詳細については、6 章にて報告した。

3.2 燃料デブリ特有の特性を踏まえたシナリオ設定

3.2.1 仮想デブリからの核種溶出

1F1～3号機の格納容器内に落下したと考えられている燃料デブリについては、その取出しに向けて調査が進められている⁽¹⁾が、その位置に関する情報も把握できておらず、処理・処分にに向けた燃料デブリの性状把握、特に燃料デブリからの核種溶出については実際の燃料デブリサンプルを取得して分析・評価される必要がある。しかし、サンプルを取得できるのはまだ時間を要すると見込まれており、取出し方法などを早期に検討するために、模擬燃料デブリを作製し、その特性を分析する試みが実施されている⁽²⁾。

燃料デブリからの核種の溶出については、UとZrの溶融固化物のマトリクス溶解に支配されると考えられる。これまでに汚染水への核種溶出の観点から、模擬燃料デブリ(U,Zr)O₂の過酸化水素水溶液への溶出反応、処理・処分へに向けた検討のために、中性子照射した模擬燃料デブリからのウランおよびFPの溶出挙動について、研究が行われている。

熊谷ら⁽³⁾は、燃料デブリの冷却水への溶解挙動の推定を目指して、模擬デブリとして(U,Zr)O₂を用いて過酸化水素水溶液中でのウランの溶出を調べた。その結果、(U,Zr)O₂からのウランの溶出は酸化ウラン(IV)(UO₂)に比べて遅いことが分かった。また、UO₂では消費された過酸化水素の約70%がウランの溶出に寄与するのに対して、(U,Zr)O₂では1%程度しか寄与しないことが分かった。これらの結果から、(U,Zr)O₂表面ではウランの酸化に寄与しない過酸化水素の分解反応が進行し、ウランの溶出が抑制されることが示唆された。

Sasakiら⁽⁴⁾は、中性子照射した模擬燃料デブリ(UO₂-ZrO₂固溶体：U/Zrモル比を90:10, 50:50, 10:90の3種設定)を用いた海水への溶出実験を行った。浸漬液中にはアルカリ土類金属(Ba-140)や4価金属(Zr-95)など複数種のFP、およびウランやPu-239の親核種であるNp-239などのアクチノイド元素が確認され、多くの核種の浸漬試料からの溶出率は時間とともに増加する傾向が見られた。酸化処理した試料の溶出率は還元処理したそれらよりも高く、U/Zrモル比が90/10および50/50試料にはU₃O₈相が見られたが、ZrO₂が過剰となる10/90試料ではウランの酸化が抑制されており、試料の相状態が核種の溶出率に影響することが分かった。

これらの結果は今後の燃料デブリの核種溶出データ整備に向けた足がかりになるものと期待されるが、今後の処分形態に向けた検討を行うためには、十分とは言えない。そこで、使用済み燃料の直接処分について検討を進めている外国の取り組み、わが国における検討などを参考に、燃料マトリクスからの溶出に関するデータを整理した。

Nagra⁽⁵⁾は使用済み燃料の直接処分の検討において、燃料マトリクスの溶解速度の時間変化を設定した。アルファ線による放射線分解において酸化種が発生することにより溶解速度が律速され、放射線の減衰に伴って溶解速度が減少するとしている。

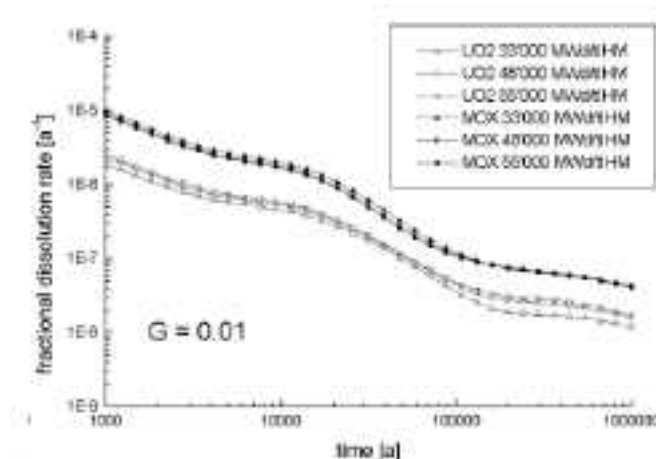


図 3.2-1 燃料マトリクス溶解速度の時間変化設定例

直接処分第一次とりまとめ⁽⁶⁾では、これまでにいくつかの外国の機関で取得されたデータから長期的な評価に用いる燃料マトリクスの溶解速度として 10^{-7} y が適切であるとしている。

しかしながら、燃料マトリクスの溶解速度の設定には3桁以上の幅があり、この不確実性による核種移行への影響を定量的に把握しておく必要がある。また、直接処分では埋設後に浸入する地下水への瞬時放出成分が大きく寄与すると考えられるが、燃料デブリはすでに事故後に冷却水にさらされており、そうした瞬時放出成分の不確実性も想定される。したがって、以上の整理結果をもとに、第6章において仮想燃料デブリにおける核種溶出率や瞬時放出成分割合の設定などにより、核種移行への影響を感度解析によって予察的に評価した。以下、第6章を参照のこと。

3.2.2 放射線による人工バリア材の劣化

(1) HLW 地層処分地下水シナリオの FEP データベースを対象とした調査

インベントリは異なるものの、デブリと同じ放射線源であるガラス固化体の地層処分に対する地下水シナリオにおける放射線影響について調査を実施し、その結果を基にデブリによる放射線による人工バリア材（オーバーパック、ベントナイト系緩衝材）への影響について検討した。

これまで、平成22年度～平成26年度にわたりガラス固化体の地層処分におけるシナリオ設定手法の整備を進めてきた^{(7),(8),(9),(10),(11),(12),(13),(14),(15),(16)}。平成22年度には「安全性への影響の可能性」と「安全機能」との関係整理、平成23年度には最新知見の取り込みによる FEP 更新、平成24年度には諸外国における長期変遷事象のリスク論的扱いに関する調査、平成25年度には安全機能への影響の連鎖の見直し・追加等の整備（FEP 更新）、そして平成26年度には発生確率は低い隔離機能への影響が大きい事象の整理と影響シナリオの記述を実施した。

FEP データベースでは、処分システム内における、熱、水理、応力、化学、放射線、核種移行/物質移動の現象や特性などを FEP としてリスト化している。平成25年度の最新の「安全性への影響の可能性」⁽¹⁴⁾をもとに、ガラス固化体の地層処分における放射線の人工バリア材への影響について抽出した（表 3.2-1～表 3.2-3）。

表 3.2-1 ガラス固化体に関する安全性への影響の可能性および相関の判定 (HLW)

注) 追加・修正箇所は赤字、斜体文字で表現した。

	安全性への影響の可能性	理解の現状	相関の判定
放射線	G5①:核種の放射性崩壊に伴う地下水への放射線が、地下水の組成を変化(酸化還元反応、ガス発生等)させる可能性。 [G4①と同様] <放射線, 化学> G5.1→G5.2→G4.2	【文献からの知見】 オーバーパック破損後 ,地下水がガラス固化体に接触した段階でα線による放射線分解が重要とされる。酸化種発生量は10万年後に1,000molと想定される。SKBでは放射線分解した地下水が核種移行/物質移動挙動に与える影響を、実験を基に検討している。(参照 FEP:G5.2,B6.3.6) オーバーパックが健全な期間では、透過γ線による地下水の放射線分解が重要である。核種崩壊に伴う放射線が地下水組成を変化させることが予想される。 α核種を添加したガラス固化体(SON68)をブームレイ中に埋設し、Coでガンマ線照射しながら温度約30℃と90℃で一定期間(最長10年)保管してガラスの変質が調べられ、約3.3年経過後の状況として、α核種を添加したサンプルの方が添加していないものより変質層が僅かに厚くなっている、その厚さはαβγ放射能の増加と共に増えているらしい事などが報告されている。(参考 FEP:G5.1) 【JAEAによる判断】 還元能力は放射線分解の影響を考慮しない場合に比べ10%程度失われるものの、地下水中の還元雰囲気は維持されると考えられる。また、地下水の放射線分解によるガス発生については、炭素鋼腐食による水素ガスの発生に比べれば無視できる程度と考えられる。	D:(OP 健全)オーバーパックの遮蔽効果によって、放射線強度は低い状態(最大でも0.84[mSv/h])で推移し、地下水中の生成酸化種と還元種は再結合し易い(なおオーバーパック腐食に伴って水素が発生し、地下水中には還元雰囲気形成される) D:(OP 破損後):1,000年以降においては、地下水がガラス固化体に接触した段階でα線による放射線分解が重要といわれている。酸化種発生量は10万年後に1,000molと想定される。オーバーパックの腐食に伴う還元種発生により還元雰囲気は維持される。Kristallin-1での解析でも、酸化状態が進展しないと評価している。 B(OP 早期破損):オーバーパックが早期に破損した場合、地下水への放射線が地下水組成に影響する可能性がある。
	G5②:核種の放射性崩壊によって放出された放射線が、固化体及び他バリア材に対し放射線影響を及ぼす可能性。<放射線> G5.1(→)G1.1, G5.1(→)G2.1, G5.1(→)G3.1, G5.1(→)G4.1, 5.1(→)G6.2, G5.1→G6.1→G6.4, G5.1(→)OP4.1, G5.1(→)B4.2	【文献からの知見】 ガラス固化体における特性への影響は特にα線による影響が重要で、数万年の照射線量に相当する量を照射した実験から、ガラス固化体の硬度とヤング率は照射量に対して指数関数的に減少すること、破壊靱性は増加すること、核種の浸出率の増加は3倍以下であること、難溶性核種の浸出、溶解度を制限する固相形態が変化することなどの報告がある。 臨界の影響についても懸念されているが、実験により影響が小さいという結果が得られている。 また、ガラスの溶解は、マトリクスの自己照射によって、あるいは、周辺媒体の照射によって著しい影響を受けることはないとしている(参照 FEP:G3.1,B6.4.1,G5.2,G6.2) ガラス固化体中でのα核種の崩壊によるHeの蓄積の評価のためにR777ガラスを対象にHeの拡散速度が測定されている。試験は3He(d,α)1H反応を利用した3Heイオン注入法で、10,000年間貯蔵の30倍の濃度、温度は253K~323Kで行われた。その結果、活性化エネルギーとして0.55±0.03eVが得られた(参照 FEP:G5.1) PNC-TN8410-92-056「実廃液ガラス固化体のα加速試験(II)」によると、α崩壊の加速年数においてわずかに浸出量が増加する傾向が認められている。一方浸出液のpHはα崩壊の加速年数が長いほどわずかに高い傾向がある。この傾向からは、α崩壊が水質に影響し、ガラス変質を促進させているのではなく、α崩壊がガラスマトリクスや変質層の性質に影響を与え、それによりわずかな促進が生じているものと推定される。 【JAEAによる判断】 核種崩壊に伴うα線が、ガラス固化体の化学特性に影響を及ぼすことが考えられる。しかし影響は小さいと考えられる。緩衝材への放射線の影響について検討が必要と考えられるが、影響は不明である。	B(ガラス固化体自体):数万年の照射量に相当する量を放出する実験結果から、核種崩壊に伴う放射線が、ガラス固化体の力学特性・化学特性に影響を及ぼす可能性が考えられる。しかし、実際の処分環境における長期間における照射量でこの現象が発生するかどうか不明な部分が多いため、B判定とする。 C(他バリア材):他バリア材への放射線の影響について検討が必要と考えられるが、影響は不明である。

表 3.2-2 オーバーパックに関する安全性への影響の可能性および相関の判定 (HLW)

注) 追加・修正箇所は赤字、斜体文字で表現した。

	安全性への影響の可能性	理解の現状	相関の判定
放射線	<p>OP5①: 腐食生成物中における放射性核種からの放射線による地下水の放射線分解により生成した水素ガス、酸化性化学種等が、腐食生成物中の地下水化学に影響を及ぼす可能性。<放射線、化学></p> <p>G5.1 → OP5.1 → OP5.2 → OP4.2</p>	<p>【文献からの知見】 具体的な影響の可能性を示すデータは得られていない。緩衝材に関して示している「第 2 次取りまとめ」には、ガラス固化体から浸出、収着された核種のα崩壊の影響については、崩壊による反跳核の影響で、結晶構造の変化や収着特性に影響を及ぼす可能性が指摘されたが、影響を受けるスメクタイトは数%程度と推定されることや、損傷による変質物質が収着性能を有することなどから、核種移行/物質移動に有意な影響はないとしている。(参照 FEP: B5.1)</p> <p>放射線分解生成物によるオーバーパックの腐食に対して緩衝材が有する緩衝能力について明らかにするため、γ線(30~50Gy/h)を照射して炭素鋼の腐食速度を測定した。その結果、水溶液中では従来^の知見のとおり腐食速度がわずかに増加する傾向が認められたが、圧縮ベントナイト中に埋め込まれた炭素鋼についてはγ線の照射による腐食量の増加は観測されなかった。また、放射線照射下において腐食電位を測定したところ、照射の有無にかかわらず自然電位の変化はないことが確認された。その原因としては、鉄腐食生成物、緩衝材中の黄鉄鉱や有機物による酸化性化学種の消費などが理由として考えられている。(参照 FEP: B5.2)</p> <p>【JAEAによる判断】 腐食生成物中における放射性核種からの放射線により生成した水素ガス、酸化性化学種等が、腐食生成物中の地下水化学に影響を及ぼす可能性が考えられる。しかし、酸化剤が生じたとしても、十分な量の還元物質(腐食生成物、地下水中の還元物質等)が存在し、還元性雰囲気^が保たれると考えられる。</p>	<p>A(早期破損): OP 内側のガラス固化体内部に浸入した水の放射線分解が考えられる。</p> <p>D(1,000 年以降の破損): 放射線分解による水素ガス等は、腐食生成物中の地下水化学を変化させる。しかし、酸化剤が生じたとしても、十分な量の還元物質(腐食生成物、地下水中の還元物質等)が存在し、還元性雰囲気が保たれると考えられる。</p>

表 3.2-3 緩衝材に関する安全性への影響の可能性および関連の判定 (HLW)

注) 追加・修正箇所は赤字、斜体文字で表現した。

	安全性への影響の可能性	理解の現状	関連の判定
放射線	B5①:核種の放射性崩壊に起因した地下水への放射線が、地下水の組成を変化(酸化還元反応,ガス発生等)させる可能性。<放射線, 化学> G5.1 → B5.1 → B5.2 → B4.2	<p>【文献からの知見】 地下水の放射線分解では、H₂O₂などの酸化剤が発生し、緩衝材中の地下水化学は変化する可能性があるが、この定量的な数値に関するデータは整備されていない。(参照 FEP: B5.2)</p> <p>【諸外国の判断の現状】 『フランス Dossier2005』によると、水の放射線分解による酸化性化学種の発生により酸化還元状態が変化する影響については不確実性として取り扱っている。『スウェーデン SR-Can TR-06-18』によると、キャニスタの壁厚は外部に対するγ線放射線分解の効果を無視するには十分なものであるとしている。</p> <p>【JAEAによる判断】 酸化剤が生じたとしてもオーバーパック腐食による還元剤の供給により核種移行/物質移動に及ぼす影響はほとんどないものと考えられる。</p>	<p>A(OP 早期破損):オーバーパックが早期破損した場合、地下水の放射線分解と地下水組成の変化が起こる可能性がある。</p> <p>D(1,000 年以降の破損):核種崩壊に伴う放射線分解の影響は少なく、安全評価上有意ではないと考えられる。</p>
	B5②:核種の放射性崩壊によって放出された放射線が、緩衝材に対し放射線影響を及ぼす可能性<放射線> G5.1 → B5.1 (→) B1.1, G5.1 → B5.1 (→) B2.1, G5.1 → B5.1 (→) B3.1, G5.1 → B5.1 (→) B4.1, G5.1 → B5.1 (→) B6.1	<p>【文献からの知見】 『第2次取りまとめ』では、スメクタイトのγ線照射試験では影響が小さいことを述べている。また、ガラス固化体から浸出し、収着された核種のα崩壊の影響については、崩壊による反跳核の影響で、結晶構造の変化や収着特性に影響を及ぼす可能性が指摘されているが、影響を受けるスメクタイトは多くても数%程度と推定されることや、損傷による変質物質が収着性能を有することなどから、核種移行/物質移動に有意な影響を与えることはないとしている。緩衝材以外の周辺人工バリア材への影響は『第2次取りまとめ』には述べられていない。(参照 FEP: B5.1)</p> <p>【諸外国の判断の現状】 『フランス Dossier2005』によると、具体的な影響の記述は見られない。『スウェーデン SR-Can TR-06-18』によると、ベントナイトが曝される線量はモンモリロナイトの濃度変化を及ぼすほどではないとしている。</p> <p>【JAEAによる判断】 『第2次取りまとめ』等より、オーバーパックによる遮蔽効果も合わせ、緩衝材の放射線影響は小さいと考えられる。</p>	<p>D(OP 早期破損):オーバーパックが早期破損した場合であっても、放射線影響が、核種移行/物質移動に有意な影響を与えることはないとしている。</p> <p>D(1,000 年以降の破損):核種崩壊に伴う放射線分解の影響は少なく、安全評価上有意ではないと考えられる。</p>
	B5③:核種の放射性崩壊に起因した地下水への放射線が、緩衝材中でのコロイド形成に影響を及ぼす可能性。<放射線, 化学> G5.1 → B5.1 → B5.2 → B4.7	<p>【文献からの知見】 スウェーデンの M. Holmboeらは、人工バリアに用いられるベントナイトの放射線照射による影響を確認するため、Cs-137 ガンマ線源(0~53kGy)を用いた Na 型モンモリロナイトのコロイド粒子の凝集速度に及ぼす影響を調べた。その結果、照射によりコロイドの持続性が増していることが示されている。それは、水の放射線分解によってコロイド粒子の表面電位が増加し、コロイド状ベントナイト粒子が安定的に水中で分散するためであるとしている。『NUMO-TR-11-01』によると、ガラス固化体からは中性子線とγ線が照射されているが、オーバーパックの遮へい効果によりγ線の方が影響は大きく、オーバーパック表面におけるγ線の線量は、オーバーパックの厚さに依存するが、数 10 mGy/h 程度としている。(参照 FEP: B5.2)</p> <p>【JAEAによる判断】 放射線によるコロイド形成への影響が考えられるが、ガラス固化体 50 年冷却後のオーバーパック外側表面の放射線量は約 0.0027Sv/h であるとの報告もあり、オーバーパックが健全な場合は緩衝材内部では、放射線によるコロイド形成に対する影響はほとんど無いと考えられる。</p>	<p>B(OP 早期破損):オーバーパックが早期破損した場合、放射線によるコロイド形成の可能性がある。</p> <p>D(1,000 年以降の破損):核種崩壊に伴う放射線によるコロイド形成の影響は少なく、安全評価上有意ではないと考えられる。</p>

表 3.2-1～表 3.2-3 の理解の現状についての結果から、各人工バリア材に対する JAEA の判断は、下記のように記述されている。

- 還元能力は放射線分解の影響を考慮しない場合に比べ 10%程度失われるものの、地下水中の還元雰囲気は維持されると考えられる。また、地下水の放射線分解によるガス発生については、炭素鋼腐食による水素ガスの発生に比べれば無視できる程度と考えられる。
- 核種崩壊に伴う α 線が、ガラス固化体の化学特性に影響を及ぼすことが考えられる。しかし影響は小さいと考えられる。緩衝材への放射線の影響について検討が必要と考えられるが、影響は不明である。
- 腐食生成物中における放射性核種からの放射線により生成した水素ガス、酸化性化学種等が、腐食生成物中の地下水化学に影響を及ぼす可能性が考えられる。しかし、酸化剤が生じたとしても、十分な量の還元物質（腐食生成物、地下水中の還元物質等）が存在し、還元性雰囲気が保たれると考えられる。
- 酸化剤が生じたとしてもオーバーパック腐食による還元剤の供給により核種移行/物質移動に及ぼす影響はほとんどないものと考えられる。
- 『第2次取りまとめ』等より、オーバーパックによる遮蔽効果も合わせ、緩衝材の放射線影響は小さいと考えられる。
- 放射線によるコロイド形成への影響が考えられるが、ガラス固化体 50 年冷却後のオーバーパック外側表面の放射線量は約 0.0027 Sv/h であるとの報告もあり、オーバーパックが健全な場合は緩衝材内部では、放射線によるコロイド形成に対する影響はほとんど無いと考えられる。

これらの判断をまとめると、「放射線が地下水の組成を変化（酸化還元反応、ガス発生等）させる可能性」、「放射線が緩衝材に対し放射線影響を及ぼす可能性」、「放射線が緩衝材中でのコロイド形成に影響を及ぼす可能性」はあるものの、いずれの可能性も放射線の高いオーバーパック（以下、OP）の早期破損時を前提とする限定的なものであり、早期破損時であっても「地下水組成変化、コロイド形成への影響の可能性が残される、または現在の知見では不明」にとどまっていた。

廃棄体 1 体あたりの放射能が高いガラス固化体であっても、緩衝材自体への影響は OP が健全な時点では小さく、早期破損時においては不明と判断されている。デブリの場合には OP 早期破損時に廃棄体と地下水とが接触するが、 α 線は緩衝材に到達する前に地下水に影響すると考えられる。このことから他の放射線の影響も含め、デブリ廃棄体による放射線は、OP 早期破損時のみ地下水組成変化、コロイド形成への影響の可能性が残されるものと考えられる。

ガラス固化体と異なるデブリ固有の重要な要因として、デブリ廃棄体内（OP 内）ではガス発生の可能性が高いことが挙げられる。この要因と OP 製造における欠陥とその見逃し、デブリ内水分除去不足の見逃し等の要因が重なった場合、OP 早期破損となるシナリオが想定される。さらに、OP 早期破損が発生した場合にはそれに引き続き、ガラス固化体の場合と同様に地下水組成の変化、コロイドの形成へ連鎖するシナリオが想定される。

これらのことから、本年度の検討の端緒として、燃料デブリのインベントリを対象とした予察的な OP 早期破損シナリオに基づく影響評価を実施することとした。

(2) OP 早期破損影響解析

本解析は仮想燃料デブリ Ver.1 設定前に実施したため、下記のように核種インベントリおよ

び廃棄体からの核種放出挙動の設定を行った。

福島第一原子力発電所 1 号機から 3 号機に存在すると考えられている燃料デブリ全量の放射能インベントリ (表 3.2-4) がガラス固化体のキャニスタ 1 本に収納されているとした。また、緩衝材は 70 cm 厚さで金属容器を取り囲み、表 3.2-5 に示すように、金属容器の寿命を 100 年、1,000 年、4,000 年の 3 ケース設定した。また、処分施設の水質は降水系とした。なお、放射能インベントリは、福島第一原子力発電所 1 号機から 3 号機まで事故時に炉内に装荷されていた核燃料に対する燃焼計算⁽¹⁷⁾の 50 年冷却後の値を引用するとともに、事故時に大気、海洋、滞留水中へ放出された核種量を公開文献に基づき特定し、放出によるインベントリの減少を可能な限り考慮した。Se-79 及び系列核種は放出に関する情報が得られなかったため、放出によるインベントリの減少はないものとした。一方、Cs-135 の放出割合については、Cs-137 の大気・海洋放出⁽¹⁸⁾、滞留水への放出量^{(19),(20)}に関する情報に基づき設定した。

表 3.2-4 核種インベントリ

		初期インベントリ(Bq)	割合(%)				残留量(Bq)
			50.0YR	大気	海洋	滞留水	
非系列	Cs135	3.28E+12	0.9	0.5	36.6	62.1	2.04E+12
	Cs137	2.21E+17	0.9	0.5	36.6	62.1	1.37E+17
	Se79	2.50E+11				100.0	2.50E+11
4n+1	Cm245	9.59E+11				100.0	9.59E+11
	Pu241	7.38E+16				100.0	7.38E+16
	Am241	2.50E+16				100.0	2.50E+16
	Np237	2.04E+12				100.0	2.04E+12
	Pa233	2.04E+12				100.0	2.04E+12
	U233	4.79E+08				100.0	4.79E+08
	Th229	2.07E+06				100.0	2.07E+06
	Ra225	2.07E+06				100.0	2.07E+06
Ac225	2.07E+06				100.0	2.07E+06	

：データがないが、同位体核種と同じ放出割合と仮定

表 3.2-5 解析ケース一覧

ケース	金属容器の寿命
case1F-A	100y
case1F-B	1000y
case1F-C	4000y

図 3.2-2 に Cs-135 の人工バリアからのフラックスの容器破損による違いを示す。Case1F-A では 100 年の OP 破損直後から Cs-135 の人工バリアからの移行フラックスが上昇する。1,000 年程度でピークを示し、6 万年程度まで放出が継続する。

Case1F-B、Case1F-C では 1,000 年、4,000 年の OP 破損直後から Cs-135 の人工バリアからの移行フラックスがそれぞれ上昇している。フラックス上昇の開始時期が 900 年、約 400 年それぞれ平行移動しただけで、Case 1F-A と比較してピークフラックス値に差異はない。

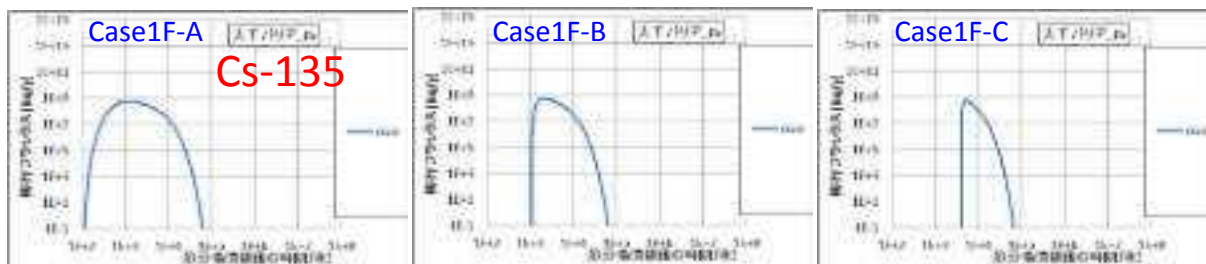


図 3.2-2 Cs-135 の人工バリアからの移行フラックスの経時変化

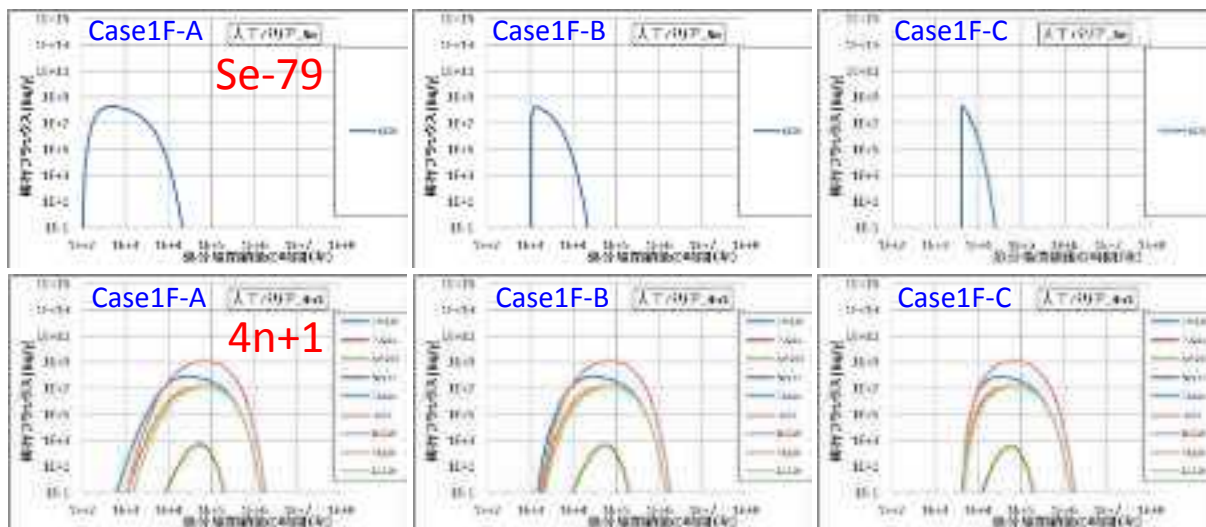


図 3.2-3 Se-79 および 4n+1 系列核種の人工バリアからの移行フラックスの経時変化

図 3.2-3 に Se-79 および 4n+1 系列核種の人工バリアからのフラックスの容器破損時期による違いを示す。Se-79 は、Cs-135 と比較して早いピークを示し、2 万年程度まで放出が継続するが、OP 破損時期の違いによる移行フラックスの傾向は Cs-135 と同様であった。

4n+1 系列核種は、OP 破損後 700 年程度を経過して人工バリアからの移行フラックスが立ち上がる。緩衝材中では溶解度制限にかかることはなく、拡散に支配され、Ra-225 は 10 万年程度でピークを示し、200 万年程度まで放出を継続する。3 ケースでピークフラックス値に差異はない。

上述のように本解析では予察的に燃料デブリを地層処分した場合の核種移行解析を金属容器の寿命（閉じ込め機能喪失時期 100 年、1,000 年、4,000 年）をパラメータに Se-79, Cs-135 及び 4n+1 系列核種を対象に実施したが、人工バリアからの移行フラックスの上昇時期に変化がみられるだけであった。

今回は予察的な解析としたため、仮想デブリ Ver.1 のインベントリではなく、4n+1 系列核種のみ、地下水水質は降水系と設定したが、4n+1 系列以外の核種を含めたインベントリの設定や地下水水質の違いに応じた条件を加えたりして解析を進めて行く必要がある。また、燃料デブリの性状、特に溶解速度を考慮せず、容器破損と同時に緩衝材最内部のコンパートメントに全核種を与えるという仮定で解析を行っているため、燃料デブリからの核種の溶出率等のデータは適用されていない。今後の課題として、溶出率等のデータが充実されてきた場合にはこれらのデータを適用することによって、人工バリアからの放出フラックスも変化することが想定される。

OP 破損時にガスが緩衝材中に放出された場合、放出状況によっては緩衝材の物理的構造を破壊し、核種の移行抑制性能の劣化を引き起こす可能性も想定される。また、地下水の化学組成変化による溶解度、分配係数等の核種移行パラメータも変化するため、これらを含めた広範囲なパラメータの影響を検討する必要がある。この課題への対応のひとつとして、多くのパラメータを対象としてそれらの影響を総合的に判断できる感度解析が有効であり、その結果からは、今後のシナリオ設定の絞り込みなどへフィードバックするために有益な情報が得られるものと考えられる。そのため、核種移行への影響を感度解析によって予察的に実施することとした(第6章3節)。

3.2.3 処分場閉鎖後 10 万年以上の長期にわたる人工バリアの変質挙動

(1) 10 万年以降のシナリオ設定の判断ポイント

処分場閉鎖後 10 万年以上の人工バリア(OP と緩衝材)の変質挙動を評価する必要性を判断する際のポイントとして、逆説的に、評価の必要のない状況となる条件について検討し、下記の結果を得た。

A) 10 万年までに人工バリアからの核種フラックスがピークを過ぎ、ほぼゼロまで低下

B) 10 万年までに人工バリア材の安全機能がほぼ完全に喪失

すなわち、A の場合には、核種がほぼ全て人工バリア領域外に移動してしまっているので、10 万年以降の人工バリアの変遷挙動の状態に核種移行は影響されない。同様に、B の場合には、OP の浸出抑制機能と緩衝材の移行抑制機能の両機能が既に喪失しているので、人工バリアの変遷挙動を 10 万年以降も評価する合理的必要性は見出しにくい。ここで、合理的必要性とは、10 万年以降に緩衝材の性能が向上する可能性はあるものの、それを評価に採り入れることに対して保守性の観点から合理的な必要性は低いことを意味する。

したがって、10 万年以上の人工バリアの変遷挙動についてシナリオ設定する必要性が生じる場合は、「AUB であること」の対偶に相当する「10 万年時点で、核種の一定割合(例えば少なくとも半分以上)が人工バリア内に存在し、かつ、浸出抑制・移行抑制の何れかの機能が喪失していない場合」になると考えられる。そこで、上記「」内の状態が、これまで実施した人工バリア変遷に関する影響解析の結果において、どのようになっていたのかを検討し、シナリオ設定に関する情報を抽出することとした。

(2) HLW 地層処分における適用性調査

前事業(地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備)では、平成 25 年度に海水系地下水を対象として、人工バリアの設計条件である緩衝材厚さ、緩衝材乾燥密度、支保工厚さ、ベントナイト珪砂混合率のパラメータを系統的に変化させ、人工バリアの変質解析、およびその結果にリンクさせた人工バリア内の核種移行解析から、人工バリアから放出される核種移行フラックスの経時変化を求めた。特に、人工バリアの設計がリファレンスケースの場合については、海水系と降水系との比率を変えて混合させた地下水組成の場合についても解析を実施した^{(13),(14)}。また、平成 26 年度には降水系地下水を対象として、平成 25 年度の人工バリアの設計条件を踏襲したケースを設定して、人工バリア変質-核種移行リンケージ解析を実施し、各パラメータの変化に対する人工バリアの安全機能や核種移行フラックスへの影響について調べた^{(15),(16)}。

平成 25、平成 26 年度を合わせ、人工バリア変遷解析を全 46 ケース、その内核種移行解析を 26 ケース引き続き実施した。Se-79 については、全 26 ケースで 10 万年までに核種が人工バリア外へ移動する結果となった。代表的なフラックスの変化として、図 3.2-4 にリファレンスの

人工バリア設計に対し、地下水水質を海水系－降水系の比率を変化させて設定したケースの結果を示す。他の 25 ケースについても同様に、10 万年までに人工バリアからのフラックスが大幅に減少している結果となった。この結果を踏まえると、10 万年以降の人工バリア変質挙動に関するシナリオ設定の必要性は低いと判断できる。

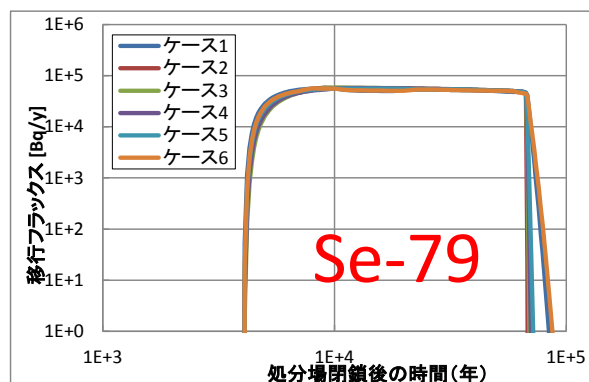


図 3.2-4 Se-79 の人工バリアからの移行フラックスの経時変化
(降水系：海水系の比率が、ケース 1=100:0、ケース 2=0:100、ケース 3=30:70、
ケース 4=50:50、ケース 5=70:30、ケース 6=99:1)

Cs-135 については、地下水水質を海水系－降水系の比率を変化させて設定したケース（図 3.2-5 左）、降水系地下水で支保工厚さを変化させたケース（図 3.2-5 右）のみで、10 万年以降も人工バリアからのフラックスがわずかに継続するケースが存在した。このうち、最も 10 万年時のフラックスが高い 26P のケースであっても、ピークフラックスよりも 1 桁少ない値であり、フラックスの経時変化から核種の大部分が既に人工バリア外へ移動していることを踏まえると、10 万年以降の人工バリア変質挙動に関するシナリオ設定の必要性は低いと判断できる。

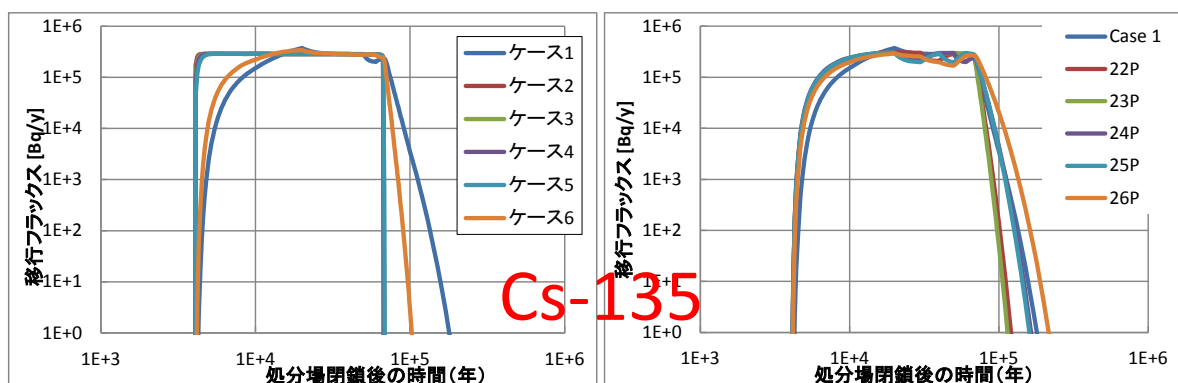


図 3.2-5 Cs-135 の人工バリアからの移行フラックスの経時変化
(左図のケース名は図と同じ。右図の支保工厚は Case1：60cm、22P：50cm、
23P：40cm、24P：30cm、25P：20cm、26P：10cm)

4n+1 系列核種を代表して Np-237 については、全ケースでフラックスが数百万年まで継続した。一例として海水系地下水で支保工厚さを変化させたケースを図 3.2-6 に示す。フラックスの経時変化から、核種の大部分は 10 万年時点で人工バリア内に留まっていることを踏まえると、10 万年以降の人工バリア変質挙動に関するシナリオ設定の必要性は高いと判断できる。

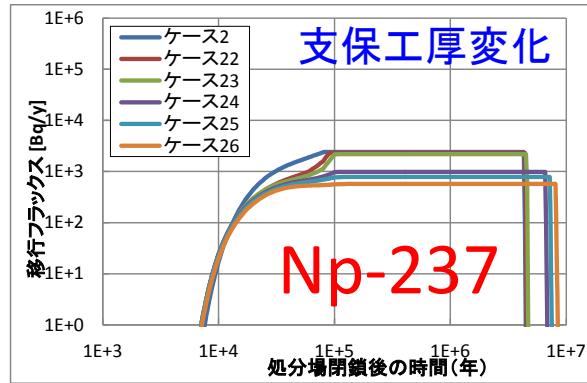


図 3.2-6 Np-237 の人工バリアからの移行フラックスの経時変化
 (支保工厚は、ケース 1=60cm、ケース 22=50cm、ケース 23=40cm、
 ケース 24=30cm、ケース 25=20cm、ケース 26=10cm)

これらの検討結果をまとめると、ガラス固化体を対象とした高レベル廃棄物の地層処分においては、OP 寿命が解析上の現設定である 4,000 年の場合、Se-79、Cs-135 は 10 万年以上の長期にわたる人工バリアの変質挙動のシナリオ設定には影響されず設定の必要性は低いこと、Np-237 (4n+1 系列核種) は設定の必要性を検討する意義があることが明らかになった。

(3) 燃料デブリへの適用性の検討とシナリオ対応

ここで、ガラス固化体と燃料デブリとの相違を踏まえ、上記結果を再検討すると、以下のような要因が抽出される。

- ・ スウェーデンにおける安全評価でキャニスタに対する安全機能指標基準として設定される 100 万年の閉じ込め機能のように、OP (廃棄体容器) の寿命を延ばす措置が取られた場合、あるいは効果的な人工バリアの設計、適切な天然バリアの選定により、結果的に OP 寿命が現設定と比較して大幅に伸びた場合、Se-79、Cs-135 であっても人工バリアからのフラックスが 10 万年以降も継続する可能性がある。
- ・ ガラス固化体の溶解モデルと燃料デブリの溶解モデルとが異なる場合、より長期にわたり廃棄体から放射性核種の溶出が継続する可能性があり、その場合には Se-79、Cs-135 であっても人工バリアからのフラックスが 10 万年以降も継続する可能性がある。
- ・ 図 3.2-6 の 4n+1 系列のフラックスの変化について示されているとおり、10 万年以降のフラックスは 10 万年以前のフラックスの値を引き継ぐようにして継続している。この原因は、現在のパラメータ設定が「10 万年時の人工バリアの変遷に関する設定をそれ以降も継続させる」こととなっているため、10 万年時点での変遷状態における緩衝材の固相中組成、液相中組成に基づき設定された核種移行パラメータが 10 万年以降も継続して解析に使用されるためであるが、この設定方法が合理的か、についての検討が必要である。

最初の 2 つに対しては、3.2.2 で述べたように、溶解速度、OP 寿命の不確実性を含めたパラメータを対象とした感度解析が、今後のシナリオの絞り込みやパラメータ設定の検討に有効であると考え、予察的な解析を実施することとした (第 6 章 3 節)。

一方、10 万年時の緩衝材の状態設定を継続させることの合理性を検討するためには、10 万年時点で緩衝材性能が喪失したとするシナリオ設定を行い、これら 2 つの設定で 10 万年以降の人工バリアからのフラックスにどの程度の違いがあるのかについて影響解析を行うことが有益と

考えた。この解析を実施するため、性能が喪失した緩衝材の性能設定について検討した。

現在の人工バリア変遷解析連成コード (MC-BUFFER) に組み込まれている要素モデルの個々の適用性限界などを総合的に考慮すると、10 万年時点の計算結果に含まれる不確実性の大きさを保守的に捉えた場合、「10 万年時点で有効モンモリロナイト密度はゼロにまで低下」とすることには一定の合理性はあると考えられる。有効モンモリロナイト密度をゼロとすることは、透水係数や核種移行パラメータの設定に反映させるため、劣化した緩衝材の透水係数は、 1.2×10^{-7} m/s に温度の補正項を乗じた値を設定し、47°C の場合には、 2.16×10^{-7} m/s となる。また、拡散係数は、47°C の自由水の拡散係数と初期の緩衝材間隙率 0.4 とから、 2×10^{-10} m/s² を設定する。分配係数は、主要な収着鉱物であるモンモリロナイトが消失したことから、保守的にゼロと設定する。また、緩衝材中の溶解度は、外部地下水の pH、Eh に対する値を設定する。以上をまとめると表 3.2-6 となる。

表 3.2-6 緩衝材の性能が喪失した状態における設定

設定項目	緩衝材の性能が喪失した状態における設定
有効モンモリロナイト密度	ゼロ
間隙率	初期間隙率である 0.4
透水係数	有効モンモリロナイト密度ゼロの 47°C 時の値である 2.16×10^{-7} m/s
核種拡散係数	47°C の自由水の拡散係数と間隙率 0.4 から 2×10^{-10} m/s ²
核種分配係数	ゼロ
pH	外部地下水と同値 (降水系 8.5、海水系 8)
Eh	外部地下水と同値 (降水系-280 mV、海水系-300 mV)
核種溶解度	外部地下水の pH、Eh に応じて設定

以上の検討に基づき、予察的解析のための設定として、下記の 2 ケースを検討することとした。すなわち、

- ・ 10 万年時の緩衝材の状態設定を 10 万年以降も継続させる
- ・ 10 万年時の緩衝材の状態設定をその時点で喪失 (有効モンモリロナイト密度をゼロとするなどを設定) とする

これらのシナリオ設定の違いによる影響解析の体系、設定、結果については 6 章 2 節にて詳述する。

3.2.4 廃棄体からの発熱

(1) HLW 地層処分における発熱影響

廃棄体からの発熱が高い状態で埋設した場合、廃棄体外側の緩衝材温度が高温となり、緩衝材の各種安全機能に悪影響を及ぼす。このため、ガラス固化体の場合には、ガラス固化体の間隔や処分坑道の間隔をパラメータとして、熱伝導解析を実施し、ガラス固化体の発熱による周辺緩衝材温度を求めている。

第 2 次取りまとめ⁽²¹⁾によると、熱伝導解析を実施する前に、空洞安定性からの制限として、隣接する処分坑道または処分孔どうしが有意な力学的影響を受けない処分坑道離間距離または処分孔間隔が確保される必要性について検討を実施している。その結果、図 3.2-7 に示す処分

孔縦置き方式の処分体系に対する解析に基づく坑道離間距離および処分孔間隔は、

- ・ 処分坑道離間距離 = $2D$ (硬岩系岩盤)、 = $2.6D$ (軟岩系岩盤)、

ここで D : 処分坑道直径 = 5 m、

- ・ 廃棄体ピッチ = $2d$ (硬岩系岩盤)、 = $3d$ (軟岩系岩盤)、

ここで d : 処分孔径 = 2.22 m、

であった。

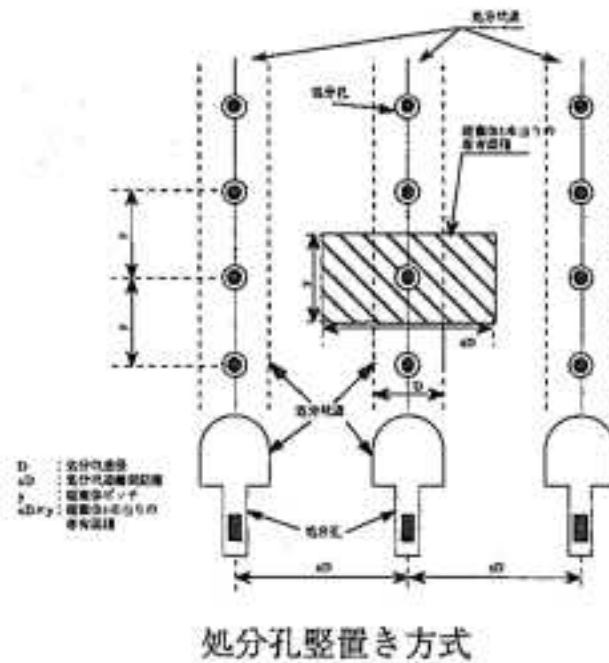
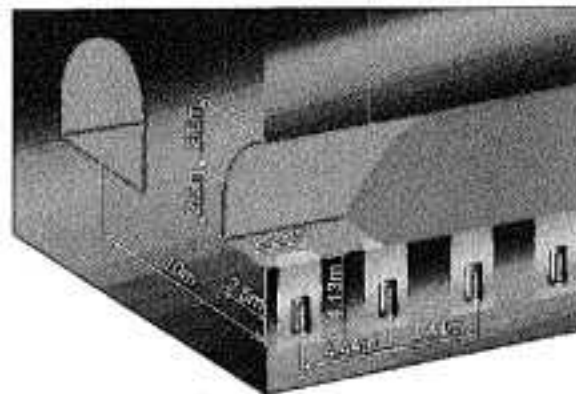
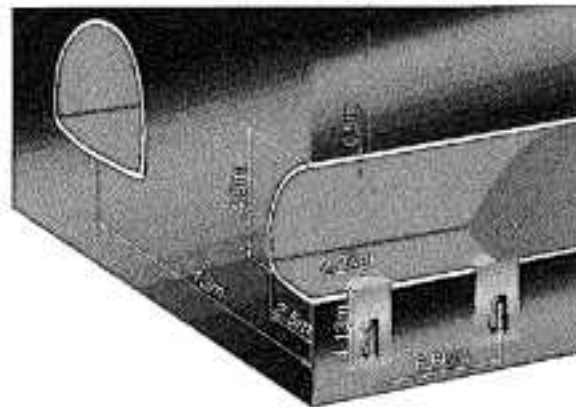


図 3.2-7 坑道安定性のための処分孔、ガラス固化体の配置⁽²¹⁾



(a) 処分孔設置方式（硬岩系岩盤）



(b) 処分孔設置方式（軟岩系岩盤）

図 3.2-8 坑道安定性を考慮したガラス固化体、坑道の配置⁽²¹⁾

熱伝導解析は、坑道安定性の観点から求められた図 3.2-8 に示した最も廃棄体の充填密度が高くなる体系で実施している。すなわち、上記間隔で、3次元体系の熱伝導解析が有限要素法汎用解析コード FINAS により実施された。ここで、ガラス固化体の処分時の発熱量 350 W/本、鉛直方向は地上までと廃棄体以深 200m の範囲、地表 15°C、地温勾配 3°C/100m、処分深度 1,000m、水平方向は廃棄体を原点として離間距離/2 と廃棄体ピッチ/2 の面を断熱境界に設定している（図 3.2-9 参照）。熱伝導解析の結果、緩衝材中の最高温度は 100°C 以下であった。最も温度の上昇した硬岩系の場合でも、最高温度 80°C 強であり、定置後 10~20 年で到達していた。

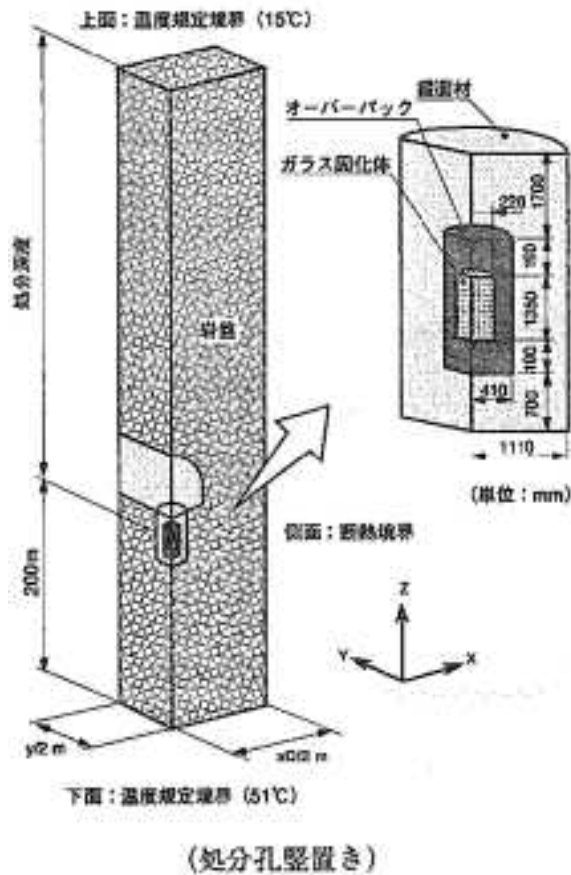


図 3.2-9 熱伝導解析の3次元体系⁽²¹⁾

(2) デブリ廃棄体に対するシナリオ設定

ガラス固化体と同じ処分孔縦置き方式の処分体系にてデブリ廃棄体を処分する限り、デブリの方が発熱量は小さいため（仮想デブリ Ver.1、事故後 50 年、42W/本）、緩衝材の最高温度は 100°C を超えない。また、空洞安定性を担保するためには、上記体系以上に高密度の体系となる処分設計は不適切になるため実現できないと考えられる。

表 3.2-7 処分孔縦置き方式、横置き方式における処分坑道、廃棄体の間隔⁽²¹⁾

設置方式	岩盤の種類	処分坑道間隔 距離 [m]	廃棄体ピッチ [m]	解析ケース
処分孔 縦置き方式	硬岩系岩盤	10(2D) ^{*1}	4.44(3d) ^{*2}	左記の処分坑道間隔距離、廃棄体ピッチの組み合わせを起点とし、処分坑道間隔距離、廃棄体ピッチを増加させて解析を行った。
	軟岩系岩盤	13(2.6D) ^{*1}	6.66(3d) ^{*2}	
処分坑道 横置き方式	硬岩系岩盤	4.44(2D) ^{*1}	3.11 ^{*3}	
	軟岩系岩盤	5.55(2.5D) ^{*1}	3.11 ^{*3}	

*1 D-縦置き方式の処分坑道径 (5m)、E-縦置き方式の処分孔径 (2.11m)

*2 D-横置き方式の処分坑道径 (2.21m)

*3 人工バリアの必要寸法からの最小廃棄体ピッチ

一方、処分孔横置き方式の処分体系は、処分孔縦置き方式と比較して空洞安定性を満たす棄体の配置をより高密度にすることが可能である（表 3.2-7）。これによれば、処分孔横置き方式では縦置き方式と比較して、処分坑道離間距離は約 2.3 倍、廃棄体ピッチは 1.4 倍（～軟岩系では 2.1 倍）高く配置することが可能なことが示されている。しかしながら、この配置で熱伝導解析を実施した結果からは、緩衝材の最高温度が、硬岩系で約 165℃、軟岩系で約 135℃まで上昇することが示されている。これを踏まえ、ガラス固化体の場合には、処分孔横置き方式の場合には、処分坑道離間距離と廃棄体ピッチの間隔を調整し、緩衝材の最高温度が 100℃を下回る配置を検討している。燃料デブリの場合にはガラス固化体よりも発熱量が低いいため、横置き方式の最も充填密度が高い配置であっても緩衝材の最高温度が 100℃を超えない可能性はあると考えられるものの、緩衝材の最高温度の変遷がこれまでガラス固化体で想定していた温度変遷に近くなることも想定される。

以上の検討を踏まえると、処分孔縦置き方式の場合には、坑道安定性が満たされる最大の充填密度でガラス固化体を配置した場合でも、緩衝材の最高温度は 100℃を超えないものの、現状でのデブリの性状調査等に基づく不均一性を考慮すると、デブリ廃棄体の発熱をガラス固化体並みとするシナリオ設定は妥当と考えられる。一方、処分坑横置き方式の場合には、坑道安定性が満たされる最大の充填密度でガラス固化体を配置した場合、緩衝材の最高温度は 100℃を超えるものの、平均的なデブリ廃棄体であれば、高密度で処分した場合でも緩衝材の最高温度が 100℃を超えず、ガラス固化体のリファレンスケースの温度変遷程度に収まるとするシナリオ設定は妥当と考えられる。なお、デブリ廃棄体 1 本あたりの発熱量は、廃棄体の大きさ、各種のデブリ廃棄物に対する処理方法、廃棄体の構造（特に断熱性の高い気体部分の量や分布）などによる不確実性が大きく、今後の進展によりシナリオの絞り込みが進むと推察される。

これらのことから、デブリ廃棄体を処分した場合の緩衝材の最高温度の変遷は「ガラス固化体リファレンスケース相当～処分時に既に地温相当まで低下」の範囲の想定ができる。したがって、予察的解析のための設定として、この範囲の両端に相当する 2 ケースを検討することとした。すなわち、

- ・ これまでのガラス固化体の発熱による緩衝材温度変遷を踏襲したケース
- ・ 処分深度の地温（47℃）一定とするケース

これらのシナリオ設定の違いによる影響解析の体系、設定、結果については 6 章 2 節にて詳述する。

3.2.5 海水成分、セメント成分等の溶出による処分環境への化学的影響

(1) セメント成分

2 章の検討から、格納容器下部に落下した熔融燃料は、コンクリート基礎とコア・コンクリート反応（MCCI : Molten Core Concrete Interaction）を引き起こす。コンクリートは、MCCI の影響を受けることで下記の鉱物が生成する。

$\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ （灰長石・anorthite）

CaSiO_3 （硅灰石・wollastonite）

灰長石は長石グループの鉱物で、カルシウムに富む斜長石であり曹長石（ $\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$ ）と連続固溶体をつくり、火成岩や変成岩に普通に含まれる造岩鉱物である。また、硅灰石は石灰岩に花崗岩などのマグマが貫入してきた際、その接触部付近にできるスカルン鉱物で、方解石（ CaCO_3 ）中のカルシウムとマグマ中のケイ酸が反応してできる。なお、2 章の調査結果から、 $(\text{U}, \text{Zr})\text{O}_2+\text{SiO}_2$ 、 $(\text{U}, \text{Zr})\text{SiO}_4$ が、それぞれ酸化物の MCCI 生成物、ケイ酸塩の MCCI 生成物として発生することが示されているが、これらは放射性核種のインベントリとして扱う方が適切と

考え、本検討では鉍物としての扱いが可能な灰長石、硅灰石を化学的な影響の対象とすることとした。

MCCI 生成物を格納容器底部等から回収する際には、確実に廃棄物を全量回収するため、MCCI 生成物周囲の MCCI の影響を受けていないコンクリート部分を含めて回収することが考えられる。また、MCCI 生成物や燃料デブリが周囲のコンクリート部分に飛散した場合にも、同様に確実に回収する必要から、熱の影響を受けていないコンクリート部分も含めて回収することが考えられる。このため、廃棄体に MCCI 生成物とともにセメント成分が混入する可能性をシナリオとして排除することは難しいと思われる。

今年度は、廃棄体に封入される MCCI 生成物の量が増加するとともに、セメント成分も増加するシナリオを想定し、下記の 3 ケースを設定することとした。すなわち、

- ・ 廃棄体に MCCI 生成物の混入なし (= ガラス固化体と同じ設定)
- ・ 廃棄体に MCCI 生成物 15%、普通セメント 15% が混入
- ・ 廃棄体に MCCI 生成物 30%、普通セメント 30% が混入

これらのシナリオ設定の違いによる影響解析の体系、設定、結果については 6 章 2 節にて詳述する。

(2) 海水成分

2 章の検討から、海水により冷却されたことによる溶融体と海水との反応で、圧力容器内に海水塩との反応物質 ($(\text{Na}, \text{Ca})\text{UO}_{4-x}$) が生成し、廃棄体に含まれる可能性がある。しかしながら、この反応物質は、U 酸化物の塩析物であり、デブリの溶解挙動として U の溶出速度という観点において ($\text{U}, \text{Zr})\text{O}_2$ 、 UO_2 、 U_3O_8 等との相違がある場合、その量や特性が大きく影響する可能性は高いものの、直接人工バリアの変質への影響を与える可能性については現時点では不明であるため、本年度の検討の範囲外とした。

一方、海水塩の成分が析出物となり廃棄体に混入する可能性については上記と異なり、直接的に人工バリアの変質への影響を与える可能性がある。この場合、海塩析出物が、燃料集合体の溶解時の高温の影響の有無で組成が異なる可能性がある。

海塩析出物が高熱 ($\sim 1500^\circ\text{C}$) の影響を受けている場合には、海水中の塩成分である、 NaCl 、 MgCl_2 、 KCl については蒸発、 MgSO_4 、 CaSO_4 については MgO 、 CaO に変化する。 CaO については、水との反応により $\text{Ca}(\text{OH})_2$ となる。

一方、海塩析出物が高熱の影響を受けていない場合には、 NaCl 、 MgCl_2 、 MgSO_4 、 CaSO_4 、 KCl または $\text{Mg}(\text{OH})_2$ 、 MgCO_3 、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 、 CaCO_3 などの成分はそのままデブリ等に付着した状態で存在する可能性がある。海塩析出物は、燃料デブリ取出し時や廃棄物容器への収納時に一部が取り除かれたり、何らかの処理の過程で分解されたりする可能性はあると考えられるものの、廃棄体に混入するシナリオを完全には否定できない。混入した場合には、海塩析出物が廃棄体から溶出し、緩衝材領域に移動することにより、緩衝材性能に影響する可能性がある。

本年度は、非常に予察的ながら、廃棄体内部からではなく、外部地下水からの影響として、降水系地下水と海水成分を含む降水系地下水を想定した地下水として海水系地下水の 2 つの地下水を対象として支保工を設けず直接的に緩衝材と接触する場合における緩衝材への変質挙動の影響解析として下記の 2 ケースを設定した。

- ・ 緩衝材と降水系地下水とが直接接触する体系設定 (支保工無し)
- ・ 緩衝材と海水系地下水とが直接接触する体系設定 (支保工無し)

これらのシナリオ設定の違いによる影響解析の体系、設定、結果については 6 章 2 節にて詳述する。

3.3 燃料デブリ特有の特性を踏まえた予察的解析

3.3.1 水の放射線分解等によるガス発生

(1) 背景・目的

(a) 背景

放射性廃棄物の地層処分における安全評価では、施設内で種々の要因によって発生するガスのバリア性能への影響が検討されている（第2次取りまとめ, 1999⁽¹⁾⁽²⁾; Rodwell et al., 1999⁽³⁾; Rodwell, 2000⁽⁴⁾; Rodwell et al., 2003⁽⁵⁾; 第2次 TRU レポート, 2005⁽⁶⁾; 原環センター, 2015⁽⁷⁾）。一般に、地層処分の文脈におけるガス発生の要因とその主なガスの種類として、還元性環境下における金属の嫌氣的腐食による水素ガス、有機物の微生物分解によるメタン及び二酸化炭素、水の放射線分解による水素ガス、が挙げられる。

これらの発生したガスによる影響として、ヨーロッパを中心としたガス発生・移行に関する国際プロジェクト (joint EC (DG XH) and NEA project: Rodwell et al., 1999⁽³⁾, FORGE: Shaw, 2015⁽⁸⁾) では、廃棄物容器の加圧、地下水フラックスへの影響、母岩の物質移行特性への影響、処分場の埋め戻し材及びシール材への影響、放射性ガスの放出といったことが懸念されている。このうち特に、人工バリアとして低透水な材料、つまり、ベントナイト緩衝材を使用する場合には、その透気性も非常に低いため、廃棄体から発生したガスが施設内に蓄積し、その蓄圧によって人工バリアや周辺岩盤が力学的な損傷を受ける可能性があること、放射性核種に汚染された間隙水が押し出されて直ちに施設外へ流出する可能性や、放射性核種を含むガス（放射性ガス）が地表に到達し直接的被ばくをもたらす可能性もあることから、放射性廃棄物処分の安全評価では、ガス発生の影響を定量的に評価することが重要であるとされる（藤山ほか, 2008）⁽⁹⁾。

HLW の地層処分に関して、第2次取りまとめ⁽¹⁾⁽²⁾では、炭素鋼オーバーパックの嫌氣的腐食により発生する水素ガスが、オーバーパックと緩衝材の間に蓄積されることで緩衝材の構造を変化させ、緩衝材の物質移動特性やニアフィールド内の地下水流動を変化させる可能性について検討するため、ガスが緩衝材中の間隙水に溶存し拡散移行するとして解析と、ガス/水の二相流モデルによるガス移行解析が実施された。その結果、溶存水素の拡散解析では、拡散移行により移動する水素ガスの割合はガス発生速度に比較して少量であり、ガス発生量のほとんどが炭素鋼オーバーパックと緩衝材の界面に気相を形成して蓄積されると評価されたものの、ガス移行解析では、ガス発生による間隙圧への寄与は小さく、ガスが岩盤側部へ侵入した後も緩衝材が水で飽和した状態のままガスが移動するという結果が得られ、炭素鋼オーバーパックの腐食により発生する水素ガスは、緩衝材や岩盤の構造力学的安定性や核種移行に影響を与えないと判断された。

一方、燃料デブリの地層処分に関しても、HLW と同様に炭素鋼オーバーパックを適用することで、オーバーパック破損時期までの間、オーバーパック外側でのガス発生やその影響について、HLW と同様の評価をある程度適用可能であるものと考えられる。しかし、燃料デブリの場合、廃棄物に含まれる水が処理段階で十分に除去されずに燃料デブリ中に残留する可能性が想定され、オーバーパック内側では、処分直後からオーバーパック破損までの期間においても、燃料デブリ中や廃棄体容器に含まれる金属の腐食や廃棄物からの放射線による水の分解により、水素ガスが発生し、オーバーパックを内側から加圧する可能性が懸念される。また、燃料デブリでは、U や Pu を処理せずに処分することも想定されるので、使用済燃料と同様に HLW や TRU 廃棄物に比べて廃棄体 1 本あたりから放出される α 線量が大きく⁽¹⁰⁾、 γ 線や β 線が減衰してしまうようなオーバーパック破損後の地下水との接触時においても、 α 線量は十分に減衰しないため、水の放射線分解によるガス発生の影響について検討する必要がある。なお、微生物分解に関しては、廃棄体周辺は高放射線場となることが予想されるため、微生物の活動は抑制さ

れ、ガス発生への寄与は小さいものと考えられる。

(b) 目的

そこで、本年度では、燃料デブリの特性を踏まえて、水の放射線分解等によるガス発生について、国内外の既往の文献に関する調査を行い、ガス発生モデル及び評価手法を整理するとともに、ガス発生量の試算を行うものとした。また、これらの文献調査及び試算結果に基づき、想定されるガス影響シナリオの検討を行った。

なお、燃料デブリの地層処分に関して、その処分概念は現状において未定であるが、第2次取りまとめ⁽¹⁾⁽²⁾のような HLW の処分概念を踏襲する場合、オーバーパックとして炭素鋼、緩衝材としてベントナイトの使用が想定される。また、燃料デブリには、炭素鋼以外にも、廃棄物として燃料被覆管などの金属（ジルカロイやインコネル）、廃棄体容器としてステンレスも含まれる。なお、ここでは、燃料デブリの固化処理は現状において未定のため考慮しないものとした。

ただし、ガス発生に影響する燃料デブリ特有な擾乱要素として、以下のことが想定されるが、現状における燃料デブリの性状に関する知見の不足に伴う不確実性のため、本年度の評価では考慮しないものとした。

- 燃料デブリに付着した海水に有機物が含まれる場合には、有機物の微生物分解や放射線分解の可能性がある。
- コンクリートが含まれているため、コンクリート中に含まれる有機物の微生物分解や放射線分解が生じる可能性がある。

また、放射性ガスの直接被ばくに関しては、発生する放射性ガスを C-14 からなるメタン ($^{14}\text{CH}_4$) として評価している第2次 TRU レポート (2005) において、すべての C-14 が放射性ガスとなったとしても、地下水移行による線量値に比較して十分に低い結果が得られており、その TRU 廃棄物の廃棄体グループ 2 (Gr2-C) における C-14 の初期インベントリ $5.0 \times 10^{14} \text{Bq}$ に対して、燃料デブリにおける C-14 の初期インベントリ $6.72 \times 10^{11} \text{Bq}$ (50年時点) は十分に低いことから、本検討では評価対象外とした。

(c) 実施概要

本年度行った実施項目の概要を以下に示す。

① ガス発生量の試算

- 本年度は、現状の情報に基づいて、水の放射線分解及び金属の腐食によるガス発生について、ガス発生速度ならびに発生量の試算を行った。

② シナリオの検討

- 上記検討をもとに、今後の評価手法の整備・改良や燃料デブリの処分において安全性への影響が懸念される特性及びその影響の連鎖（シナリオ）の抽出に向けて理解の現状を整理した。
 - オーバーパック内側では、ガスの蓄積による内圧の上昇によって、オーバーパックが腐食寿命よりも早く破損する可能性（早期破損の可能性）について検討した。
 - オーバーパック外側では、破損前におけるオーバーパック外表面での金属腐食やオーバーパックを透過してきた放射線（ γ 線及び中性子線）による分解に伴うガス発生に加え、破損後におけるオーバーパック内側でそれまでに発生したガスやそれ以降

に発生するガスに関して、オーバーパックとベントナイト緩衝材の間に蓄積されるガス圧が人工バリアや周辺岩盤への構造力学的な損傷をもたらす可能性（ガス蓄圧による力学的影響の可能性）や放射性核種で汚染した間隙水を押し出す可能性（間隙水押し出しの可能性）について検討した。

(2) ガス発生量の試算

(a) ガス発生量算定の前提

ガス発生量算定の前提として、オーバーパック内側及び外側に対して、次の現象を考慮した。

- OP 内側
 - 水の放射線分解： γ 線、中性子線、 α 線、 β 線
 - 金属腐食：炭素鋼（OP）、ステンレス鋼（廃棄体容器）、ジルカロイ（被覆管）
- OP 外側
 - 水の放射線分解： γ 線、中性子線
 - 金属腐食：炭素鋼（OP）

(b) 水の放射線分解

水の放射線分解では、放射性核種からの放射線の作用により、水分子が分解され、水素ラジカル（ $\text{H}\cdot$ ）やヒドロキシルラジカル（ $\text{OH}\cdot$ ）などのラジカルが生じ、それらのラジカル同士が反応することで、水素（ H_2 ）及び過酸化水素（ H_2O_2 ）といった分子状生成物が生じる。

放射線分解による水素や過酸化水素の収率は、G 値（一般に、100eV あたりの発生量 [molecule/100eV]）を用いて評価することが可能である。

以下に、水の放射線分解によるガス発生速度に関する評価手法、計算条件、計算結果を示す。

① 評価手法

ここでは、水の放射線分解によるガス発生速度の計算式及びガス発生速度の評価に必要な吸収線量の評価手法について、以下に示す。

i) 放射線分解によるガス発生速度の計算式

放射線分解によるガス発生速度は、廃棄体あるいは模擬間隙水の照射試験によって求められた G 値と水または廃棄体の吸収線量率から、以下の式により求めることができる（安藤ほか、2005⁽¹¹⁾; NDA, 2010⁽¹²⁾）。

$$R_R = G \times D \times M \times \frac{V_M \times 6.242 \times 10^{18} [\text{eV}/\text{J}]}{100 N_A} = G \times D \times M \times C \quad (3.3-1)$$

- R_R : 放射線分解によるガス発生速度 [m^3/y]
- G : ガス発生に係る G 値 [molecule/100eV]
- D : 吸収線量率 [$\text{Gy}/\text{y}=\text{J}/\text{kg}\cdot\text{y}$]
- M : 質量 [kg]
- V_M : 気体 1mol の体積 [= 0.0224 m^3/mol atSTP]
- N_A : アボガドロ数 [= 6.02×10^{23} molecule/mol]
- C : 定数 [2.33×10^{-9} eV $\cdot\text{m}^3/\text{Gy}/\text{kg}/\text{molecule}$]

ii) 吸収線量の評価手法： γ 線、中性子線

γ 線、中性子による廃棄物混合体（廃棄物と残留水が混合したもの）及び緩衝材（間隙水を含む）の吸収線量率は、MCNP Version 5⁽¹³⁾⁽¹⁴⁾によって求めた。核データライブラリは、光子に対して MCPLIB84⁽¹⁵⁾、中性子に対して ENDF/B-VII.1⁽¹⁶⁾を使用した。

評価体系及び物質組成

MCNP の計算に使用した評価体系を図 3.3-1 に示す。燃料デブリ容器（ステンレス鋼）の外側に、厚さ 19cm の炭素鋼オーバーパックがあり、オーバーパックの外側には 70cm のベントナイト緩衝材があるものとした。燃料デブリ容器の寸法は、本年度設定した仮想デブリ Ver.1 幾何形状を基に設定したが、遮へい計算に影響のでない程度に、単純化した（例えば、燃料デブリ容器とオーバーパックの間の隙間を除外していること、燃料デブリ容器上部のフィルター類を除外し空気としていること、など）。また、燃料デブリ容器に含まれる燃料デブリの寸法は、TMI-2 デブリの加重平均密度 (7.60g/cm^3) とデブリ全体の質量 146.4kg から、体積 $19,262 [\text{cm}^3]$ の円柱形とし、燃料デブリ容器の内寸と同じ半径 (17.3 cm) とした場合の高さとして約 20.5cm を設定した。ここで、デブリ全体の質量は、内藤 (2015)⁽¹⁷⁾による SAMPSON コード解析結果（全量を合計したもの）におけるデブリの組成（表 3.3-1）を基に、ウラン装荷量 115kg に対する値として求めたものである。燃料デブリ容器内側の燃料デブリ以外の部分は空気とした。

計算に用いた仮想デブリ、空気、ステンレス、炭素鋼、緩衝材の組成を表 3.3-2 に示す。仮想デブリの組成は、SAMPSON コードの解析結果⁽¹⁷⁾によるデブリの組成（表 3.3-1）に 1kg の水が均一に混合しているとするものとして求めた。緩衝材は、表 3.3-3 の水を含まない緩衝材の組成を基に、真密度 2.6g/cm^3 、間隙率 0.4 として、間隙を水が満たしているものとして設定した。

放射線吸収線量を評価する領域として、オーバーパック内側に関しては、1L の水と燃料デブリの混合体の吸収線量を求め、外側に関しては、緩衝材の 1cm ごとの領域ごとの吸収線量を求め、厚さ 70cm の合計線量として求めた。

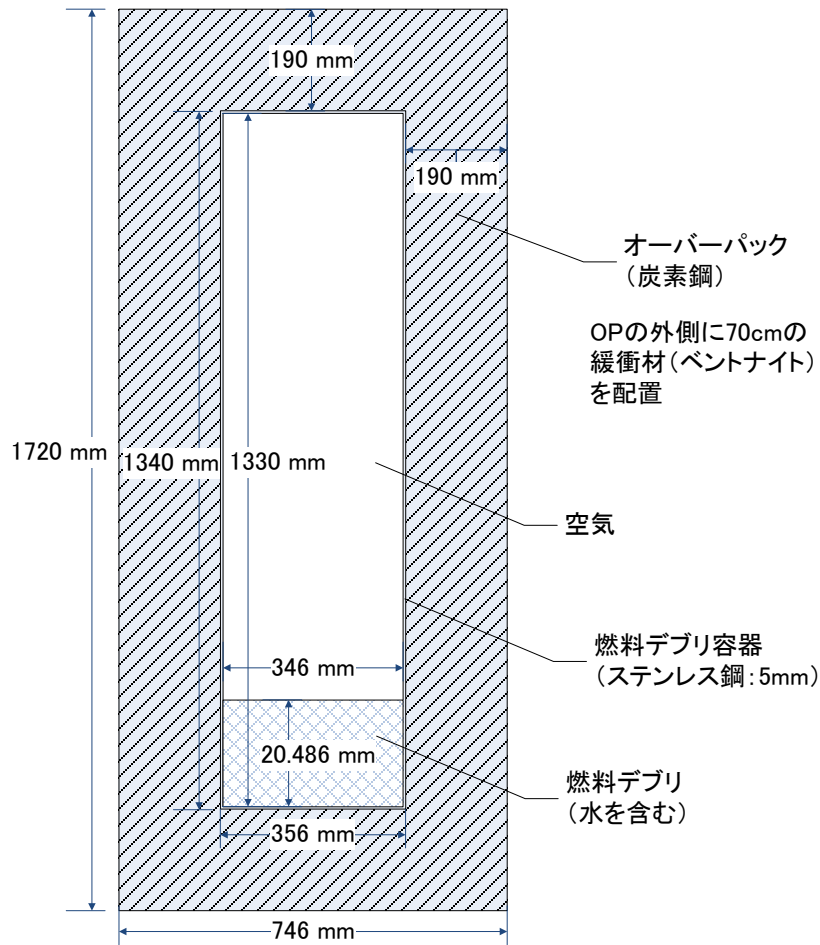


図 3.3-1 MCNP の計算体系

表 3.3-1 デブリの物質組成 (SAMPSON による解析結果⁽¹⁷⁾)

デブリ		7.60 g/cm ³
元素	Weight %	
B10	0.0002814	
B11	0.0011325	
C12	0.0003885	
C13	4.202E-06	
O16	0.1201619	
Fe54	0.0022305	
Fe56	0.0350141	
Fe57	0.0008086	
Fe58	0.0001076	
Zr90	0.0279454	
Zr91	0.0060942	
Zr92	0.0093151	
Zr94	0.00944	
Zr96	0.0015208	
U235	0.0290655	
U238	0.7564895	

表 3.3-2 MCNP の計算で用いた各媒体の組成

デブリ(含水) 7.65 g/cm³

元素	Weight %
H1	0.0007592
H2	8.731E-08
O16	0.0060253
B10	0.0002794
B11	0.0011248
C12	0.0003859
C13	4.174E-06
O16	0.1193467
Fe54	0.0022154
Fe56	0.0347766
Fe57	0.0008031
Fe58	0.0001069
Zr90	0.0277558
Zr91	0.0060529
Zr92	0.0092519
Zr94	0.009376
Zr96	0.0015105
U235	0.0288683
U238	0.7513571

ステンレス 7.9 g/cm³

元素	組成比(Weight%)
Fe54	0.0406
Fe56	0.63732
Fe57	0.01472
Fe58	0.00196
C12	0.0004
Si28	0.00461
Si29	0.00023
Si30	0.00015
Mn55	0.01
Cr50	0.00826
Cr52	0.1592
Cr53	0.01805
Cr54	0.00449
Ni58	0.06808
Ni60	0.02622
Ni61	0.00114
Ni62	0.00363
Ni64	0.00093

空気 1.2049E-03 g/cm³

元素	組成比(Weight%)
H1	9.99885E-06
H2	1.15E-09
C12	0.00013
N14	0.76186
N15	0.00283
O16	0.23517

炭素鋼 7.8 g/cm³

元素	組成比(Weight%)
Fe54	0.0579
Fe56	0.90014
Fe57	0.02061
Fe58	0.00275
C12	0.0035
Si28	0.00323
Si29	0.00016
Si30	0.00011
Mn55	0.011
P31	0.00003
S32	0.000028497
S33	0.000000225
S34	0.000001275
S36	0.00000003

緩衝材(含水) 1.96 g/cm³

元素	組成比(Weight%)
H1	0.025895536
H2	2.97833E-06
O16	0.599855364
Na23	0.011516929
Mg24	0.009617669
Mg25	0.001217581
Mg26	0.001340556
Al27	0.068402398
Si28	0.260208106
Si29	0.013218774
Si30	0.008724109

表 3.3-3 水を含まない緩衝材の物質組成

緩衝材

ベントナイト (クニゲルV1)	$\text{Si}_8(\text{Al}_{3.34}\text{Mg}_{0.66})\text{Na}_{0.66}\text{O}_{20}(\text{OH})_4$	70wt%
ケイ砂	SiO_2	30wt%

緩衝材		1.60 g/cm ³
元素	組成比 (Weight%)	
H	0.0038	
O	0.5259	
Na	0.0145	
Mg	0.0153	
Al	0.0859	
Si	0.3545	

線源強度

燃料デブリ廃棄体 1 本当たりの光子、中性子放出量は、西原ら (2012) ⁽¹⁸⁾による福島第一原子力発電所の燃料組成評価から、光子、中性子放出量を 1 号機～3 号機について足し合わせ、U 量比 (容器保管最大 U 量 / 1 号機～3 号機の総 U 量) をかけて、燃料デブリ発生から 0 年、50 年、100 年、1,000 年時点に関して算出し、使用した (表 3.3-4、表 3.3-5)。なお、廃棄体への移行率を考慮し、Cs137 インベントリの 60% に相当する大気放出等による減少分の光子放出量を差し引いている。

西原ら (2012) ⁽¹⁸⁾の光子放出量はエネルギーごとに示されているので、それをそのまま使用した。一方、中性子放出量は核種ごとに示されているため、エネルギースペクトルは以下の通り設定した。

自発核分裂による中性子のスペクトルは、MCNP ユーザーマニュアル⁽¹⁴⁾より、以下の式で表される。

$$\begin{aligned} \text{Watt fission energy spectrum: } p(E) &= C \exp(-E/a) \sinh(bE)^{1/2}. \\ \text{Defaults: } a &= 0.965 \text{ MeV, } b = 2.29 \text{ MeV}^{-1}. \end{aligned} \quad (3.3-2)$$

また、(α, n)反応による中性子のスペクトルは、ガラス固化体 (若杉ほか, 2003) ⁽¹⁹⁾と同じと仮定し、各放出時点の総発生数で補正して使用した。

表 3.3-4 廃棄体 1 個あたりの光子放出量(photon/sec)

エネルギー(MeV)	0YR	50.0YR	100.0YR	1000.0YR
1.0000E-02	8.1803E+16	9.1369E+12	5.0129E+12	9.0298E+11
2.5000E-02	1.2961E+16	1.3371E+12	6.0243E+11	6.8995E+10
3.7500E-02	1.7421E+16	6.8670E+12	2.1605E+12	7.9510E+09
5.7500E-02	6.9201E+15	5.1577E+12	4.4820E+12	9.9782E+11
8.5000E-02	3.8028E+16	6.4481E+11	2.1593E+11	2.8540E+10
1.2500E-01	3.9094E+16	5.1674E+11	1.4435E+11	1.7598E+10
2.2500E-01	6.0215E+16	5.7753E+11	1.7696E+11	1.1452E+10
3.7500E-01	3.5478E+16	2.5655E+11	7.8778E+10	4.3108E+09
5.7500E-01	6.8507E+16	4.6370E+13	1.4637E+13	4.4701E+09
8.5000E-01	7.6055E+16	1.5917E+11	1.7359E+10	2.4009E+08
1.2500E+00	4.2551E+16	1.4056E+11	8.3445E+09	6.2969E+07
1.7500E+00	1.5854E+16	5.8981E+09	7.5694E+08	2.3898E+06
2.2500E+00	8.2689E+15	1.0458E+06	3.0334E+05	3.7651E+05
2.7500E+00	3.7876E+15	1.7059E+07	1.0444E+07	4.3034E+04
3.5000E+00	1.8648E+15	2.5629E+05	7.0154E+04	3.2569E+04
5.0000E+00	8.8716E+14	1.0927E+05	2.9667E+04	1.3416E+04
7.0000E+00	8.5169E+12	1.2551E+04	3.3739E+03	1.5317E+03
9.5000E+00	1.5020E+09	1.4390E+03	3.8491E+02	1.7533E+02
TOTAL	5.0970E+17	7.1170E+13	2.7538E+13	2.0444E+12
MeV/SEC	2.6217E+17	2.3643E+13	7.5740E+12	8.0105E+10

※ 西原ら (2012) ⁽¹⁸⁾ の全光子放出量から廃棄体 1 個あたりに換算。Cs137 の大気放出等による 0.662MeV 光子 (0.575MeV グループ) の減少を考慮。

表 3.3-5 廃棄体 1 個あたりの中性子放出量(neutron/sec)

(a) 自発核分裂中性子

	0YR	50.0YR	100.0YR	1000.0YR
U238	1.3826E+03	1.3826E+03	1.3826E+03	1.3826E+03
PU238	2.7647E+04	2.0584E+04	1.3890E+04	1.3658E+01
PU240	1.5860E+05	1.5874E+05	1.5804E+05	1.4368E+05
PU242	5.4566E+04	5.4568E+04	5.4567E+04	5.4495E+04
CM242	2.2246E+07	3.2577E+03	2.5936E+03	4.2813E+01
CM244	1.4340E+07	2.1159E+06	3.1216E+05	3.4205E-10
CM246	5.4211E+04	5.3860E+04	5.3467E+04	4.6862E+04
CF252	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00
TOTAL	3.6889E+07	2.4087E+06	5.9644E+05	2.4671E+05

(b) (α , n)反応中性子

	0YR	50.0YR	100.0YR	1000.0YR
U238	1.1528E+01	1.1528E+01	1.1528E+01	1.1528E+01
PU238	1.6953E+05	1.2622E+05	8.5173E+04	8.3750E+01
PU239	2.3108E+04	2.3341E+04	2.3309E+04	2.2730E+04
PU240	3.0086E+04	3.0113E+04	2.9981E+04	2.7257E+04
AM241	1.8038E+04	2.8954E+05	2.9181E+05	6.9546E+04
AM243	8.1411E+02	8.5730E+02	8.5328E+02	7.8412E+02
CM242	4.5847E+06	6.7133E+02	5.3446E+02	8.8226E+00
CM243	1.2164E+03	3.6054E+02	1.0686E+02	3.3320E-08
CM244	1.1910E+05	1.7574E+04	2.5927E+03	2.8409E-12
TOTAL	4.9469E+06	4.8884E+05	4.3453E+05	1.2062E+05

※ 西原ら (2012) ⁽¹⁸⁾ の中性子放出量から廃棄体 1 個あたりに換算。

iii) 吸収線量の評価手法：α線、β線

α線、β線の吸収線量は、燃料デブリと水の接触形態が不明なため、保守的に水とデブリが均等に混合しており、全量寄与するものとして、以下の式により算出した。

$$D[\text{Gy}/s] = \frac{q[\text{Bq}]}{m[\text{kg}]} \times 1[(\text{崩壊}/s)/\text{Bq}] \times E[\text{MeV}/\text{崩壊}] \times 1.6 \times 10^{-13}[\text{J}/\text{MeV}] \quad (3.3-3)$$

D : 吸収線量 [Gy/s]
 q : α線の放射エネルギー [Bq]
 m : 吸収媒体の質量 [kg]
 E : 1崩壊あたりの放出エネルギー [MeV/崩壊]

② 計算条件

i) G値

原環センターによる「平成19年度 地層処分技術調査等委託費 TRU 廃棄物処分技術人工バリア長期性能評価技術開発 報告書（第2分冊）—ガス移行挙動の評価—」⁽²⁰⁾（以下、「ガス移行挙動の評価レポート」と呼ぶ。）におけるG値の文献値リストを参考に、最も保守的な値となる純水に対するG値を用いた。本解析で用いた純水に対するG値を表3.3-6に示す。純水に対するH₂のG値は、ガス移行挙動の評価レポート⁽²⁰⁾に記載のあったWiborgh（1995）⁽²¹⁾の値を参照した。ただし、中性子線に対するG値はガス移行挙動の評価レポート⁽²⁰⁾に記載がないため、Christensen and Bjergbakke（1982）⁽²²⁾の値を参照した。

表 3.3-6 G値一覧

発生化学種	被照射物	放射線種類	G値		文献
			文献値	単位	
H ₂	純水	γ・β	0.5	molecule/100eV	*1
H ₂	純水	α	1.5	molecule/100eV	*1
H ₂	純水	中性子	1.12	molecule/100eV	*2

*1 : Wiborgh(ed.), 1995 (SKB TR 95-03)⁽²¹⁾

*2 : Christensen and Bjergbakke, 1982 (SKB TR 82-02)⁽²²⁾

ii) 吸収線量の計算で使用する廃棄物に含まれる水の初期量の仮定的設定

廃棄物に含まれる水の量については、現状において情報が得られないため、以下のように仮想的に設定した。

- 容器1本あたりの燃料デブリ全質量146,000g ÷ 密度7.6g/cm³ = 19.2Lから、そのうちの5%程度の水（含水率5%）を含むものとし、19.2L × 0.05 = 0.96Lから、おおよそ1Lの水が含まれているものと仮定した。
- また、この1Lの水が燃料デブリと均等に混合していると仮定した。

③ 計算結果

i) 吸収線量率

オーバーパック内側における廃棄物混合体（廃棄物と残留水が混合したもの）とオーバーパック外側における緩衝材（間隙水を含む）に対する各放射線からの吸収線量率を燃料デブリ発生からの期間に対してプロットしたものを図 3.3-2 に示す。ここでは、燃料デブリ発生からの期間が 50 年のものを処分するものとした。なお、0 年のものが処分されることはないが、参考として掲載した。

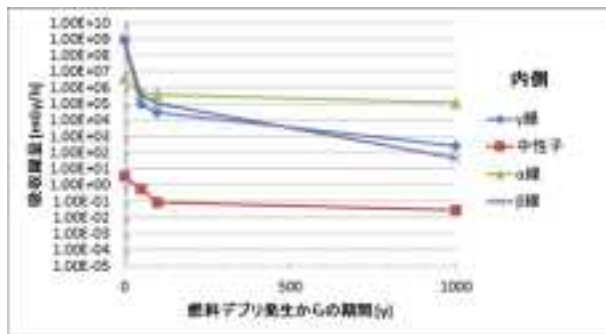
内側の結果に関して、発生直後の 0 年では β 線及び γ 線の線量が大きいものの、それらは経時的に減少（50 年で 3 桁以上減衰）し、処分時期として想定した 50 年以降は α 線の線量が大きく、1,000 年時点では α 線が支配的となり、そのほかの放射線の寄与は無視できる程度に小さくなる。

一方、外側に関して、処分時期として想定した 50 年と 100 年では γ 線が支配的であるが、1,000 年では γ 線が減衰し、中性子よりも寄与が小さくなる。なお、本計算におけるオーバーパック厚さ 19cm での 50 年時点の吸収線量率（およそ 0.08mGy/h）は、第 2 次取りまとめ（1999）⁽¹⁾ におけるガラス固化体からの放射線による厚さ 20cm のオーバーパック表面での吸収線量率およそ 2mGy/h よりも 1 桁程度低い値となっている。中性子に関して、50 年以降であれば第 2 次取りまとめ（1999）⁽¹⁾ よりも概ね 1 桁程度小さい値となっている。

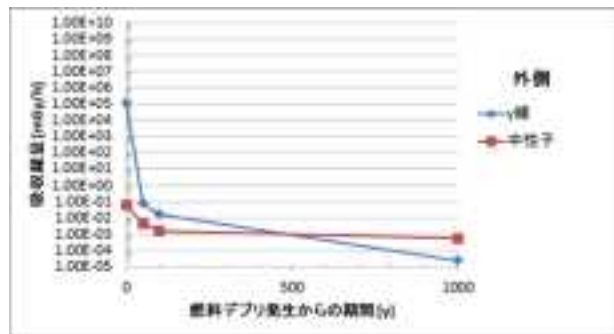
内側と外側で比較した場合、外側の方が遮蔽効果により、 γ 線による線量は大きく減衰していることがわかる。

mGy/h	0YR	50.0YR	100.0YR	1000.0YR
γ 線	7.84E+08	8.71E+04	2.78E+04	2.47E+02
中性子	3.20E+00	5.32E-01	8.05E-02	2.76E-02
α 線	3.40E+06	4.21E+05	3.76E+05	1.11E+05
β 線	8.88E+08	3.41E+05	1.02E+05	4.32E+01

mGy/h	0YR	50.0YR	100.0YR	1000.0YR
γ 線	1.11E+05	7.65E-02	1.67E-02	2.30E-05
中性子	6.34E-02	4.37E-03	1.52E-03	5.45E-04



(a) オーバーパック内側



(b) オーバーパック外側

図 3.3-2 吸収線量率の計算結果

ii) 水の放射線分解によるガス発生速度

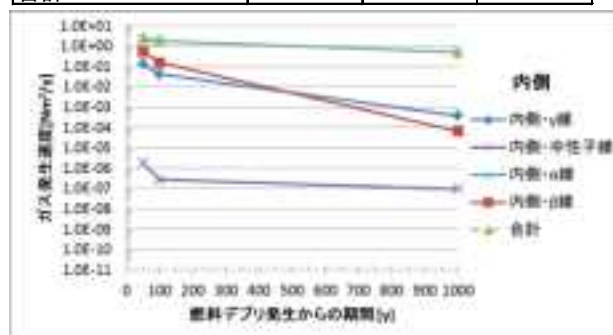
上述の吸収線量率をもとに、式(3.3-1)により求めた水の放射線分解によるガス発生速度を燃料デブリ発生からの期間の関数（50年、100年、1,000年）として図 3.3-3 に示す。

内側に関しては、50年以降すべての期間でα線によるガス発生が支配的となっている。50年時点におけるガス発生速度の合計値 2.54Nm³/y は、第2次取りまとめ（1999）⁽¹⁾におけるオーバーパック外側での嫌氣的腐食によるガス発生速度の最大評価値 2.3×10⁻¹ Nm³/y（腐食速度 10μm/y）よりも1桁程度大きい値となった。

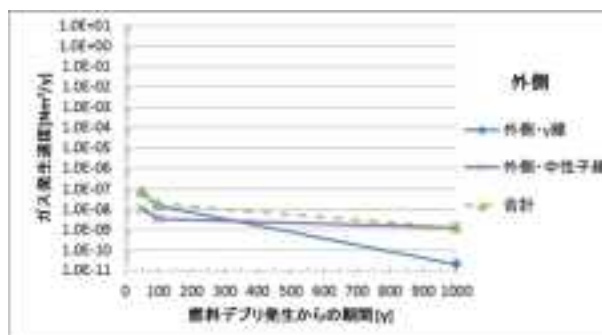
外側に関しては、100年まではγ線によるガス発生が支配的であるが、その後減衰し、中性子線によるガス発生が支配的となる。しかし、合計値でみた場合でも、第2次取りまとめ（1999）⁽¹⁾におけるオーバーパック外側での嫌氣的腐食によるガス発生速度の最小評価値 2.3×10⁻² Nm³/y（腐食速度 10μm/y）と比較しても、十分に小さい値であり、オーバーパック外側では、水の放射線分解によるガス発生は有意とはならないものと考えられる。

Nm ³ /y	50.0YR	100.0YR	1000.0YR
内側・γ線	1.31E-01	4.18E-02	3.70E-04
内側・中性子線	1.79E-06	2.71E-07	9.26E-08
内側・α線	1.90E+00	1.69E+00	4.99E-01
内側・β線	5.12E-01	1.53E-01	6.49E-05
合計	2.54E+00	1.89E+00	4.99E-01

Nm ³ /y	50.0YR	100.0YR	1000.0YR
外側・γ線	6.70E-08	1.49E-08	1.95E-11
外側・中性子線	9.98E-09	3.47E-09	1.25E-09
合計	7.70E-08	1.84E-08	1.27E-09



(a) オーバーパック内側



(b) オーバーパック外側

図 3.3-3 水の放射線分解によるガス発生速度

(c) 金属腐食

燃料デブリの廃棄体に含まれると想定される金属の種類は、被覆管としてのジルカロイ、構造材としてのステンレス鋼やインコネル（原子力学会特別専門委員会、2014）⁽²³⁾であり、処分時点では、オーバーパックとしての炭素鋼、キャニスタとしてのステンレス鋼が考えられる。

そこで、以下ではこれらの金属の嫌氣的腐食に伴い発生するガスの発生速度を評価した。

① 計算手法

i) 金属腐食によるガス発生速度の計算式

表 3.3-7 に示す金属腐食の反応（安藤ほか、2005）⁽¹¹⁾から、還元性雰囲気における嫌氣的腐食の場合に、水素ガスが発生することがわかる。

ガス発生速度の導出に際しては、表 3.3-7 の腐食反応式に基づき、下式を用いて計算した（第2次取りまとめ、1999⁽¹⁾；安藤ほか、2005⁽¹¹⁾；NDA, 2010⁽¹²⁾）。

$$R_{H_2i} = (A_i \cdot R_i \cdot \rho_i / M_i) \cdot r_i \cdot \frac{22.4}{1000} \quad (3.3-4)$$

R_{H_2i} : 金属 i による H_2 ガス発生速度 [Nm^3/y]¹

A_i : 金属 i の表面積 [m^2]

R_i : 金属 i の腐食速度 [m/y]

ρ_i : 金属 i の密度 [g/m^3]

r_i : 金属 i からの H_2 発生 mol 比 (発生 H_2 /腐食金属)

M_i : 金属 i のモル重量 [g/mol]

表 3.3-7 金属腐食の反応 (安藤ほか、2005)⁽¹¹⁾

金属	プロセス	反応式
鉄 (炭素鋼・ステンレス鋼)	酸化性雰囲気	$Fe + 1/2O_2 + H_2O \rightarrow Fe(OH)_2$
	還元性雰囲気	$3Fe + 4H_2O \rightarrow Fe_3O_4 + 4H_2$
ジルカロイ	酸化性雰囲気	$Zr + O_2 \rightarrow ZrO_2$
	還元性雰囲気	$Zr + 2H_2O \rightarrow ZrO_2 + 2H_2$

② 計算条件

i) 金属の腐食速度

本評価で使用した金属腐食を表 3.3-8 に示す。

炭素鋼の還元性雰囲気における腐食速度は、平成 26 年度報告書⁽²⁴⁾におけるオーバーパックの腐食寿命に用いた腐食速度 ($10\mu m/y$) を用いた。ステンレス鋼及びジルカロイの腐食速度は、還元性雰囲気の値に関しては (安藤ほか、2005)⁽¹¹⁾を参照した。

表 3.3-8 評価で用いた金属の腐食速度

金属	腐食環境	腐食速度 (m/y)	出典
炭素鋼	還元	1×10^{-5}	平成 26 報告書 ⁽²⁴⁾
ステンレス鋼	還元	2×10^{-8}	安藤ほか (2005) ⁽¹¹⁾
ジルカロイ	還元	5×10^{-9}	安藤ほか (2005) ⁽¹¹⁾

また、炭素鋼の腐食速度を $10\mu m/y$ とした場合、炭素鋼オーバーパックの厚さは、190mm なので、オーバーパックが外側からの腐食により消失するのに、19,000 年かかるものとした。一方、オーバーパックの寿命は、腐食表面の凹凸の影響を考慮して、腐食速度 $10\mu m/y$ から計算した腐食深さの 2 倍とした場合に、最大腐食深さが 80mm に達したとき、つまり 4,000 年をオーバーパックの腐食寿命としている⁽²⁴⁾。

なお、実際には金属の腐食速度は経時的に低下することが知られている (第 2 次取りまとめ、1999)⁽¹⁾が、ここでは、金属の腐食速度は、時間変化しないものと仮定した。

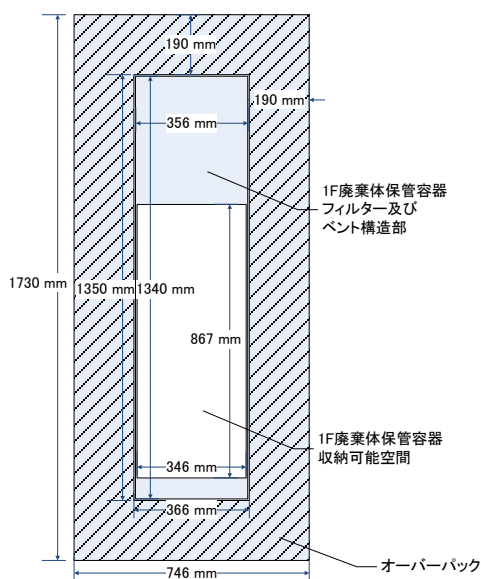
ii) 金属の表面積

金属の表面積設定のための燃料デブリ容器及びオーバーパックの寸法図を図 3.3-4 に示す。

¹ Nm^3 の N はノルマル (ノーマル) と読み、標準状態 ($0^\circ C$ 、1 気圧) を表す。

この寸法図を基に、各金属の表面積を次のように設定した。なお、金属の表面積も経時的に減少することが考えられるが、ここでは、金属の表面積は、時間変化しないものと仮定した。

- 炭素鋼
 - 内側：オーバーパックの内寸（直径φ366mm及び高さL1,350mm）から、その表面積を1.76 m²とした。
 - 外側：オーバーパックの外寸（直径φ746mm及び高さL1,730mm）から、その表面積を4.93 m²とした。
- ステンレス鋼（OP内側）
 - ステンレス鋼は主に、1F廃棄体保管容器の材料として使用されることを想定し、1F廃棄体保管容器の外寸（直径φ356mm及び高さL1340mm）の表面積1.70 m²と、内寸（直径φ346mm及び高さL867mm）の表面積1.13 m²を合計した2.83 m²を表面積とした。
- ジルカロイ（OP内側）
 - BWR燃料集合体の基本仕様を基に算出したジルカロイ部材（端栓等の特殊形状部材を除く）の初期総表面積である38,741 m²から、廃棄体容器1基あたりの表面積を3.96 m²とした。
- インコネル（OP内側）
 - 詳細が不明のため、ジルカロイと同様とした。



寸法	キャニスタ		オーバーパック	
	内寸	外寸	内寸	外寸
直径 [mm]	346	356	366	746
高さ [mm]	867	1,340	1,350	1,730
表面積 [m ²]	1.13	1.70	1.76	4.93

図 3.3.4 金属の表面積設定のための燃料デブリ容器及びオーバーパックの寸法図

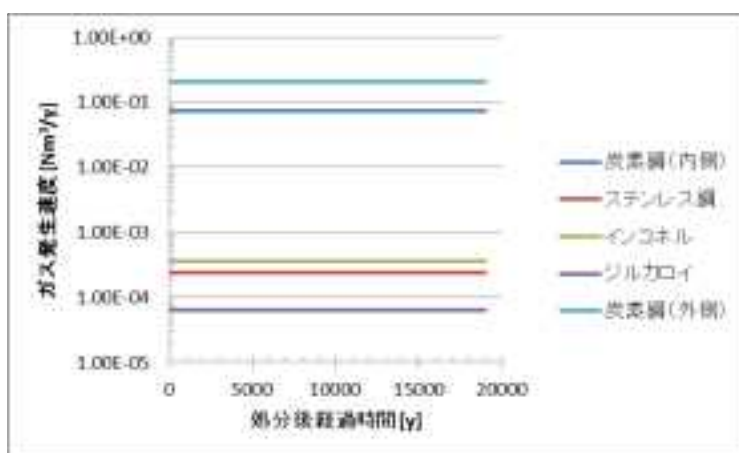
③ 計算結果

i) 金属の嫌氣的腐食によるガス発生速度

金属の嫌氣的腐食によるガス発生速度の計算結果を図 3.3-5 に示す。図ではオーバーパック (OP) が外側からの腐食により消失するとした 19,000 年まで、ガス発生速度は一定であるものと仮定した。

OP 内側では、炭素鋼がほかの金属よりも 2 桁から 3 桁以上高く、炭素鋼の寄与が支配的であった。

OP 外側での炭素鋼の嫌氣的腐食によるガス発生速度は、表面積が大きいため、OP 内側でのガス発生速度の合計値よりも大きい。また、第 2 次取りまとめ (1999) ⁽⁴⁾におけるオーバーパック外側での嫌氣的腐食によるガス発生速度の最大評価値 $2.3 \times 10^{-1} \text{ Nm}^3/\text{y}$ (腐食速度 $10 \mu\text{m}/\text{y}$) とは、OP 表面積がわずかに異なるのみであるため、ほぼ同程度の値となった。



パラメータ	記号	単位	OP内側					OP外側
			炭素鋼	ステンレス鋼	インコネル	ジルカロイ	合計	炭素鋼
表面積	A_i	m^2	1.76	2.83	3.96	3.96	-	4.93
腐食速度	C_i	m/y	$1.00\text{E}-05$	$2.00\text{E}-08$	$2.00\text{E}-08$	$5.00\text{E}-09$	-	$1.00\text{E}-05$
密度	ρ_i	g/m^3	$7.80\text{E}+06$	$7.90\text{E}+06$	$8.42\text{E}+06$	$6.50\text{E}+06$	-	$7.80\text{E}+06$
原子量	M_i	g/mol	55.9	55.9	55.9	91.22	-	55.9
H_2 発生モル比	r_i	-	1.33	1.33	1.33	2.00	-	1.33
ガス発生速度	R_{H_2}	Nm^3/y	$7.33\text{E}-02$	$2.39\text{E}-04$	$3.56\text{E}-04$	$6.32\text{E}-05$	$7.40\text{E}-02$	$2.05\text{E}-01$

図 3.3-5 金属の嫌氣的腐食によるガス発生速度の計算結果

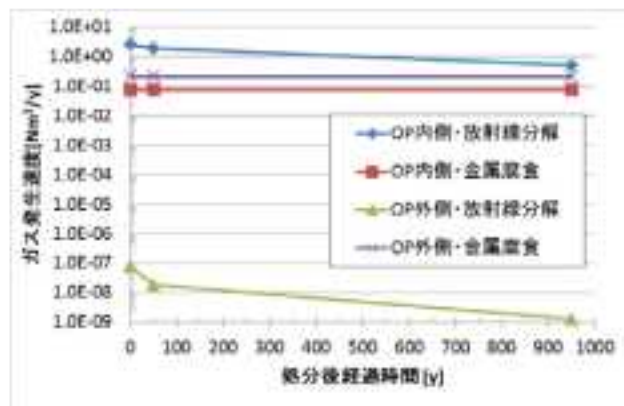
(d) ガス発生量と影響評価

① ガス発生速度の整理

上述したオーバーパック (OP) の内側と外側における水の放射線分解及び金属腐食によるガス発生速度を比較したものを図 3.3-6 に示す。図では、燃料デブリ発生からの期間 50 年時点を処分後経過時間 0 年とした。

OP 内側では、水の放射線分解によるガス発生が支配的なプロセスとなっていることが分かる。また、OP 内側では、放射線分解により発生した過酸化水素が消費されず、酸素となるものと仮定し、水の組成比から水素ガスの 1/2 の量の酸素ガスが発生するものとして発生量を評価した。つまり、OP 内側では、ガス発生量評価のためのガス発生速度として、図 3.3-6 に示す水の放射線分解による水素ガス発生速度 (2.54 Nm³/y) を 1.5 倍した値 (3.81 Nm³/y) に、金属腐食による水素ガス発生速度 (0.074 Nm³/y) を加算した値 (3.88 Nm³/y) を使用した。なお、水素ガスと酸素ガスの再結合は考慮しないものとした。

OP 外側では、主要なガス発生源は金属の嫌氣的腐食であり、放射線分解によるガス発生は金属腐食に比較して 7 桁以上低い値となっているため、OP 破損までの期間 (4,000 年) は金属の嫌氣的腐食によるガス発生が主要なガス発生源となる。しかし、950 年時点における OP 内側での放射線分解によるガス発生速度は、α 核種の減衰に伴いガス発生速度が 0 年時点に比べて 1 桁程度減少するものの、OP 外側での金属腐食によるガス発生速度に比べて数倍程度大きいことから、OP の腐食寿命による破損後にも、水との再接触によりガス発生源として寄与することを示唆している。さらに破損後に接触する大量の地下水は還元性と考えられることから、OP 内側表面の腐食は嫌氣的腐食によって水素ガスを発生させる。したがって、OP 破損後の OP 外側でのガス発生量の評価では、OP 内側での放射線分解及び金属腐食によるガス発生速度を加味して評価するものとした。



処分後経過時間 [y]	ガス発生速度 [Nm ³ /y]		
	0	50	950
OP内側・放射線分解	2.54E+00	1.89E+00	4.99E-01
OP内側・金属腐食	7.40E-02	7.40E-02	7.40E-02
OP外側・放射線分解	7.70E-08	1.84E-08	1.27E-09
OP外側・金属腐食	2.05E-01	2.05E-01	2.05E-01

図 3.3-6 オーバーパックの内側と外側における水の放射線分解及び金属腐食によるガス発生速度の比較

(燃料デブリ発生からの期間 50 年時点を処分後経過時間 0 年とした)

② オーバーパック内側

i) オーバーパックの許容引張応力の計算

一般に、内圧を保持する圧力容器における円筒胴の計算厚さは、JIS B8265「圧力容器の構造 - 一般事項」の附属書 E2.2⁽²⁵⁾⁽²⁶⁾に示された次式により求められる。

a) $P \leq 0.385\sigma_a\eta$

$$t = \frac{PD_i}{2\sigma_a\eta - 1.2P} \quad (\text{内径基準}) \quad (3.3-5)$$

b) $P > 0.385\sigma_a\eta$

$$t = \frac{D_i}{2}(\sqrt{Z} - 1) \quad (\text{内径基準}) \quad (3.3-6)$$

$$Z = \frac{\sigma_a\eta + P}{\sigma_a\eta - P}$$

t : 円筒胴の計算厚さ [mm]

P : 設計圧力 [MPa]

D_i : 胴の内径 [mm]

σ_a : 設計温度における材料の許容引張応力 [N/mm²]

η : 溶接継手効率 [-]

例えば、JIS B8265 の附属書 B⁽²⁵⁾によると、炭素鋼 SFVC1（第2次取りまとめ⁽¹⁾⁽²⁾で言及している試作オーバーパック）の 100°Cにおける許容引張応力は、103 N/mm²であり、この許容引張応力には既に溶接継手効率が含まれている値であるため、 $0.385\sigma_a\eta = 39.655$ MPa となる。

そこで、39.655 MPa 以下の圧力であれば式(3.3-5)を、それより大きければ式(3.3-6)を適用できるので、それぞれ計算厚さの関数として設計圧力 P について整理すると、次のようになる。

a) $P = \frac{2\sigma_a\eta t}{D_i + 1.2t} \quad (3.3-7)$

b) $P = \frac{2\sigma_a\eta t^2 + 2\sigma_a\eta t D_i}{2t^2 + 2tD_i + D_i^2} \quad (3.3-8)$

胴の計算厚さから求めた設計圧力を表 3.3-9 及び図 3.3-7 に示す。これらの計算結果から、第2次取りまとめ⁽¹⁾⁽²⁾におけるガラス固化体のオーバーパック厚さの仕様推奨値である 190 mm に対して腐食代である 40 mm を除いた厚さ 150 mm とした場合でも、設計上およそ 55 MPa までの内圧に耐えることができる。

表 3.3-9 胴の計算厚さから求めた設計圧力

計算厚さ	a)	b)	設計圧力
t[mm]	P[MPa]	P[MPa]	P[MPa]
0	0	0	0
10	5.449735	5.474851	5.449735
20	10.5641	10.645	10.5641
30	15.37313	15.51701	15.37313
40	19.90338	20.10046	19.90338
50	24.1784	24.40703	24.1784
60	28.21918	28.44972	28.21918
70	32.04444	32.2423	32.04444
80	35.671	35.79887	35.671
90	39.11392	39.13348	39.11392
100	42.38683	42.25994	42.25994
110	45.50201	45.19164	45.19164
120	48.47059	47.94139	47.94139
130	51.30268	50.52138	50.52138
140	54.00749	52.94316	52.94316
150	56.59341	55.21755	55.21755
160	59.0681	57.35474	57.35474
170	61.4386	59.36419	59.36419
180	63.71134	61.25477	61.25477
190	65.89226	63.03468	63.03468
200	67.9868	64.71156	64.71156

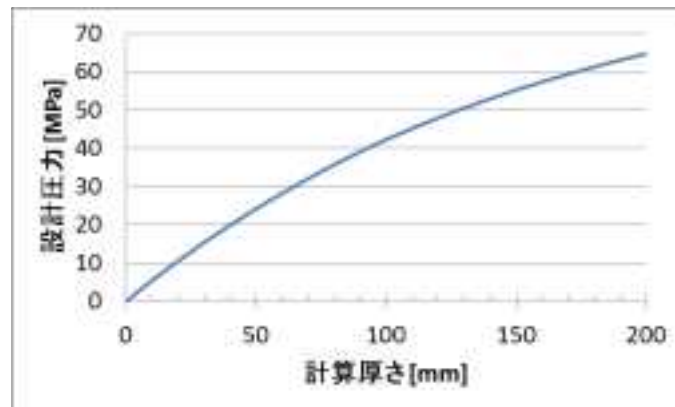


図 3.3-7 計算厚さに対する設計圧力の関係

ii) ガス発生量の評価と許容引張応力との比較

オーバーパック内側に関しては、水の存在量は有限なので、水の枯渇する期間までガス発生が継続するものとして累積ガス発生量を求めた。ここでは、発生した水素ガスと同等のモル数の水が消費されるものとして、処分経過時間0yでの水素ガス発生速度 $2.61 \text{ Nm}^3/\text{y}$ (= 116.6 [mol/y])の場合には、本評価において仮定した 1kg ($1,000 \text{ [g]} \div 18.016 \text{ [g/mol]} = 55.5 \text{ [mol]}$)の水であれば、 $55.5 \text{ [mol]} / 116.6 \text{ [mol/y]} = 0.476 \text{ [y]}$ であるため、約半年 (0.5 y) で枯渇するものとした。

オーバーパック内側での累積ガス発生量を図 3.3-8 に示す。上述したように、水の放射線分解による水素ガス発生速度 ($2.54 \text{ Nm}^3/\text{y}$) を1.5倍した値 ($3.81 \text{ Nm}^3/\text{y}$) に、金属腐食による水素ガス発生速度 ($0.074 \text{ Nm}^3/\text{y}$) を加算した値 ($3.88 \text{ Nm}^3/\text{y}$) を用い、ガス発生速度は一定と仮定した。その結果、オーバーパック内側では、およそ半年で廃棄体1本あたりおよそ 1.9 Nm^3 のガス(水素及び酸素)が発生するものと評価された。

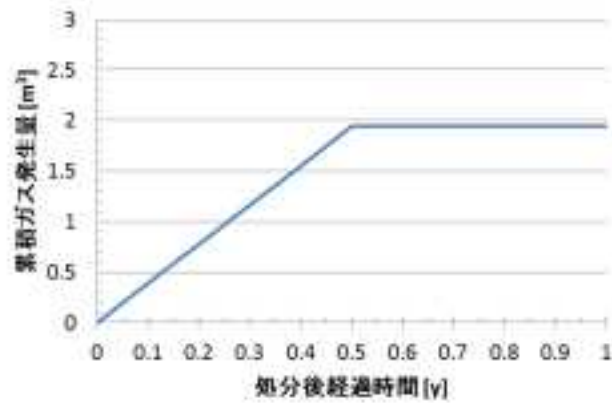


図 3.3-8 オーバーパック内側での累積ガス発生量

気体の状態方程式に基づき、上記のガス発生量から OP 内側に掛かる圧力を求めた。ここで、OP 内側の圧力の初期値は大気圧（≒0.1MPa）として、OP 内側には空間体積の 90%が燃料デブリ等の廃棄物で充填されているものと仮定して計算した。なお、最密充填構造の充填率が 74%であり、ここで仮定した 90%というのは、現実には想定し得ないほど高い仮定であることに注意が必要である。

$$pV = nRT \quad (3.3-9)$$

- p : オーバーパック内側に掛かる圧力 [MPa]
- V : OP 内側の空間体積 [= (1-充填率) × 0.142 m³]
- n : ガス発生モル数 [mol]
- R : 気体定数 [8.314 Pa・m³/K・mol]
- T : 絶対温度 [273 K (=0°C)]

オーバーパック内側でのガス蓄積圧力を図 3.3-9 に示す。オーバーパック内側には、約 14MPa 程度の圧力が掛かるものと評価された。

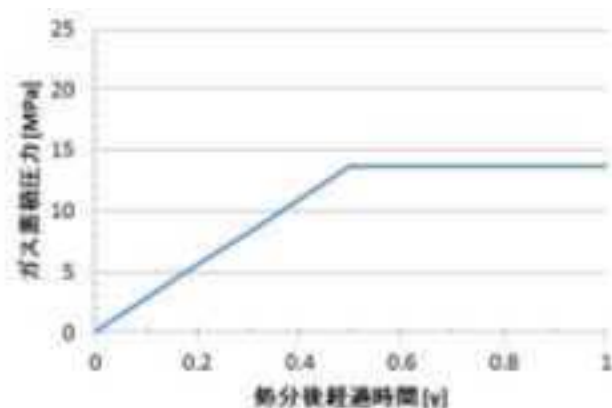


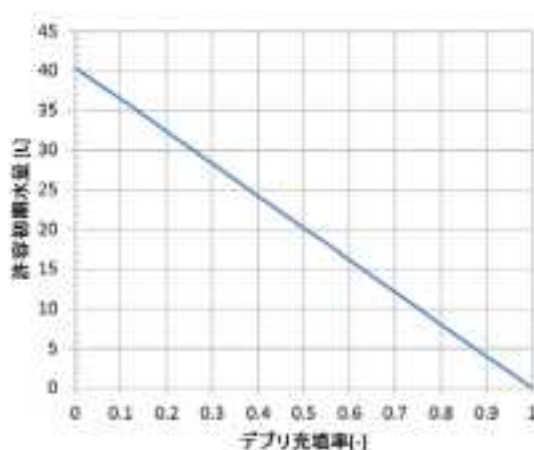
図 3.3-9 オーバーパック内側でのガス蓄積圧力

したがって、水 1L を仮定した場合であれば、水の放射線分解により発生したガスによる蓄積圧力は約 14MPa となり、オーバーパックの設計圧力である約 55MPa を超えることはない。

よって、水の放射線分解に伴うガス発生によりオーバーパックが早期破損する可能性は低いものと考えられる。

また、以上の考察から、オーバーパック内側での最終的なガス発生量は、水が有限であるため、ガス発生速度によらず、初期水量（その水がすべて水素ガスと酸素ガスになるものとする）によって決まり、そのときの蓄積圧力はデブリ充填率（ガスが存在するための空間の割合に影響）によって決定されることがわかる。

そのため、初期に存在する水の量が 1L よりも多い場合や燃料デブリの充填率が大きい（ガスが存在するための空間が小さい）場合には、ガス発生速度によらず、発生したガスの蓄積圧力が設計圧力を超える可能性があることが推測される。そこで、デブリ充填率に対する許容初期水量を求めたものを図 3.3-10 に示す。つまり、この図では、直線より下の範囲のデブリ充填率と初期水量であれば、その水がすべてガスになった場合でも蓄積圧力は設計圧力（55MPa）を超えることはないことを示している。



※ 直線より下の範囲であれば蓄積圧力は設計圧力を超えない

図 3.3-10 デブリ充填率に対する許容初期水量

以上の検討により、燃料デブリに含まれる初期水量と燃料デブリ容器内のデブリ充填率（空間率）をコントロールすることで、オーバーパック内側のガス蓄圧による早期破損の可能性は低減することができる。

一方、発生した水素の炭素鋼への吸蔵による水素脆化が発生する可能性もある。これに関して、第 2 次取りまとめ（1999）⁽¹⁾では、高压（10MPa）の水素ガスと接した場合の炭素鋼の水素脆化の可能性が検討されており、実験的にも解析的にも炭素鋼中の水素濃度は 0.03ppm 以下であり、水素脆化が発生する可能性のある 1ppm に比して十分に低いものとして、水素ガスの接触による水素脆化は発生しないと判断されている。そのため、オーバーパック内側の圧力が 10MPa を超える場合には、炭素鋼に吸蔵される水素濃度を評価し、水素脆化が発生するかどうかについて今後さらなる検討が必要になる。

また、本評価においては、オーバーパックの腐食による厚さの減少に伴う設計圧力の減少に関しては、腐食代（40mm）を除いた厚さ（150mm）として扱うことで考慮したが、今後は、腐食による厚さの経時的な減少と、オーバーパックの内圧の経時的な上昇を組合せて考慮した場合に、早期破損が発生するかどうかの検討を行っていく必要がある。

③ オーバーパック外側

OP 破損後までを含めた OP 外側でのガス発生速度の内訳と合計値を表 3.3-10 に、その経時変化を図 3.3-11 に示す。OP 破損時期である 4,000 年までは、OP 外側での金属の嫌氣的腐食によるガス発生のみであり、4,000 年から 19,000 年まではそこに OP 内側での放射線分解及び金属腐食によるガス発生が付加され、OP が腐食により消失する 19,000 年後では、OP 内側での放射線分解のみが継続するものとした。なお、OP 内側での放射線分解は、経時的に減少することが予想されるが、ここでは保守的に処分後経過時間 950 年時点の値で一定とした。

表 3.3-10 OP 破損後までを含めた OP 外側でのガス発生速度の内訳と合計値

処分後経過時間[y]	ガス発生速度[Nm ³ /y]			
	OP 内側:放射線分解	OP 内側:金属腐食	OP 外側:金属腐食	合計値
0 ~ 4000	-	-	0.205	0.205
4,000 ~ 19,000	0.499	0.074	0.205	0.778
19,000 ~	0.499	-	-	0.499

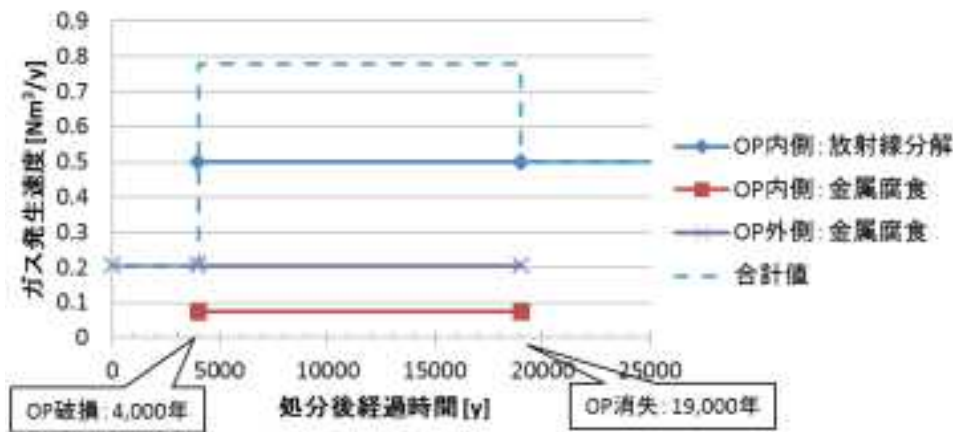


図 3.3-11 OP 破損後までを含めた OP 外側でのガス発生速度の内訳と合計値の経時変化

i) 溶存水素ガスの簡易的移行計算の方法

ここでは、オーバーパック外側でのガス発生速度（表 3.3-10）との比較のため、溶存水素ガスの拡散移行速度の概算を行った。

まず、棚井ほか（1996）⁽²⁷⁾による方法を参考に、一定量の液体に溶解する気体の質量が圧力に比例するというヘンリーの法則に基づき、オーバーパック表面（OP と緩衝材の界面）の溶存水素濃度を求めた。気体の水に対する溶解度（ヘンリー定数）は、0.016 [Ncm³/cm³]（40℃～100℃において、1 atm (=101325 Pa ≒ 0.1 MPa) の気体が水 1cm³ 中に溶解するときの容積を、0℃、1atm のときの容積に改算した値[Ncm³])⁽²⁸⁾とした。

次に、上記で求めたオーバーパック表面の溶存水素濃度を対して、溶存水素ガスの拡散移行速度を求めた。溶存水素の移行計算モデルは、Wikramaratna et al. (1993)⁽²⁹⁾及び棚井ほか（1996）⁽²⁷⁾を参考に、円筒座標一次元モデルでの放射状拡散とし、半径方向へのガス拡散移行のみを扱い、軸方向への拡散は考慮しないものとした。オーバーパックの単位長さあたりの溶存水素ガスフラックスは、円筒座標における定常拡散方程式から求められ、境界での濃度条件を与えたときの解析解は次式となる⁽²⁷⁾⁽²⁹⁾。

$$q = \frac{2\pi D^*(c_1 - c_2)}{\ln(b/a)} \quad (3.3-10)$$

- q : 単位長さあたりの溶存水素ガスフラックス [Nm³/m・s]
 D^* : 拡散係数 [m²/s]
 c_1 : オーバーパック表面の溶存水素濃度 [Nm³/m³水]
 c_2 : 緩衝材外側の溶存水素濃度 (=0) [Nm³/m³水]
 b : オーバーパック中心から緩衝材外側までの距離 (=2.146) [m]
 a : オーバーパックの半径 (=0.746) [m]

ii) ガス蓄積の可能性

本評価では、地下応力条件 (5~30 MPa) と拡散係数をパラメータ ($2 \times 10^{-12} \sim 2 \times 10^{-10}$ m²/s) として計算を行った。ここで、拡散係数は、棚井ほか (1999) ⁽³⁰⁾における拡散試験結果の平均である 2×10^{-11} m²/s を基準として、上下 1 桁変動させた値を使用した。なお、オーバーパックの長さは仮想燃料デブリの寸法から 1.73 m とした。

地下応力条件と拡散係数をパラメータとしたときの単位長さあたりの溶存水素ガスフラックスと溶存水素ガスの拡散移行速度の結果を表 3.3-11 に示す。これら溶存水素ガスの拡散移行速度をオーバーパック外側でのガス発生速度 (表 3.3-10) と比較すると、ほぼすべての条件において、水素ガス発生速度が溶存水素ガスの拡散移行速度を上回っており、オーバーパックと緩衝材の界面に蓄積する可能性が示唆された。一方、拡散係数 2×10^{-10} m²/s で地下応力条件 20MPa 以上の条件に関しては、処分後経過時間 0~4,000 年の間であれば、溶存水素ガスの拡散移行速度がガス発生速度 0.205 Nm³/y を上回るため蓄積しないが、4,000 年以降では、ガス発生速度が 0.778 Nm³/y (19,000 年以降でも 0.499 Nm³/y) となるため、ガスが蓄積することになる。

表 3.3-11 地下応力条件と拡散係数をパラメータとしたときの単位長さあたりの溶存水素ガスフラックスと溶存水素ガスの拡散移行速度

地下応力条件	OP表面のガス溶存濃度	拡散係数	単位長さあたりの溶存水素ガスフラックス	長さ (オーバーパック高さ)	溶存水素ガスの拡散移行速度
MPa	Nm ³ /m ³ 水	m ² /s	Nm ³ /m・s	m	Nm ³ /y
5	0.8	2E-12	9.51E-12	1.73	0.0005
10	1.6	2E-12	1.90E-11	1.73	0.0010
15	2.4	2E-12	2.85E-11	1.73	0.0016
20	3.2	2E-12	3.81E-11	1.73	0.0021
25	4	2E-12	4.76E-11	1.73	0.0026
30	4.8	2E-12	5.71E-11	1.73	0.0031
5	0.8	2E-11	9.51E-11	1.73	0.0052
10	1.6	2E-11	1.90E-10	1.73	0.0104
15	2.4	2E-11	2.85E-10	1.73	0.0156
20	3.2	2E-11	3.81E-10	1.73	0.0208
25	4	2E-11	4.76E-10	1.73	0.0260
30	4.8	2E-11	5.71E-10	1.73	0.0311
5	0.8	2E-10	9.51E-10	1.73	0.0519
10	1.6	2E-10	1.90E-09	1.73	0.1038
15	2.4	2E-10	2.85E-09	1.73	0.1557
20	3.2	2E-10	3.81E-09	1.73	0.2076
25	4	2E-10	4.76E-09	1.73	0.2595
30	4.8	2E-10	5.71E-09	1.73	0.3114

iii) ガス発生量とガス蓄積圧力

上記の検討の結果、オーバーパックと緩衝材の界面にガスが蓄積する可能性が示唆された。そこで、ここでは、保守的に溶存水素ガスの拡散移行を考慮せず、発生したガスがすべてオーバーパックと緩衝材の界面に蓄積するとした場合のガス発生量ならびにそれに対応するガス蓄積圧力を評価した。また、オーバーパック破損時期である 4,000 年時点でそれまでにオーバーパック内側で発生した累積ガス発生量（約 1.9Nm³）も加算したが、それまでにオーバーパック外側で発生した累積ガス発生量（約 820Nm³）に比して小さい。

まず、オーバーパックと緩衝材の界面に蓄積するガス発生量は、保守的に溶存水素ガスの拡散移行を考慮せず、発生したガスがすべて蓄積するとした場合、図 3.3-12 のようになる。

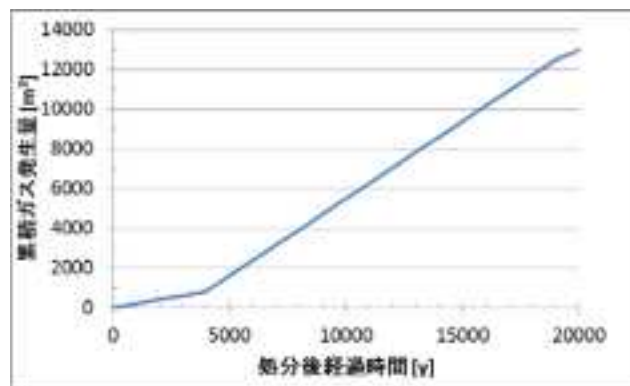


図 3.3-12 オーバーパックと緩衝材の界面に蓄積するガス発生量の経時変化

次にガス蓄積圧力に関しては、第 2 次取りまとめ（1999⁽¹⁾）におけるガス移行評価に関する根拠レポートである棚井ほか（1999）⁽³⁰⁾の方法に基づき、オーバーパックと緩衝材の界面に蓄積したガス圧力によって緩衝材が体積弾性変形することでガス溜まりが生じるものと仮定し、ガス体積（発生量）と蓄積ガス圧の関係を次式により求めた。

$$P = \frac{P_l}{2} + 0.5 \cdot \sqrt{P_l^2 + 4 \cdot K \cdot P_a \cdot V_s / V} \quad (3.3-11)$$

- P : 蓄積するガス圧 [MPa]
- P_l : 地下水圧 [MPa]
- K : 緩衝材の体積弾性係数 [MPa]
- P_a : 大気圧 [MPa]
- V_s : ガス体積 [Nm³]
- V : 弾性変形対象容積 [m³]

ここで、緩衝材の体積弾性係数は、棚井ほか（1999）⁽³⁰⁾の方法に従って、次式により求めた。

$$K = E / (3(1 - 2.0 \cdot \nu)) = 3 / (3(1 - 2.0 \cdot 0.4)) = 5 \quad (3.3-12)$$

- E : 弾性係数 (=3 ; 含水比 22%) [MPa]
- ν : ポアソン比 (=0.4) [-]

また、緩衝材の弾性変形対象容積は、棚井ほか（1999）⁽³⁰⁾の方法に従って、次式により求め

た。

$$V = (V_r + V_z) \cdot w_b = (5.5 + 0.61) \cdot 0.7 = 4.28 \quad (3.3-13)$$

$$\begin{aligned} V_r &= \pi \cdot (r_B)^2 \cdot h_o - \pi \cdot (r_o)^2 \cdot h_o && \text{(半径方向)} \\ &= \pi \cdot (1.073)^2 \cdot 1.73 - \pi \cdot (0.373)^2 \cdot 1.73 = 5.5 \end{aligned} \quad (3.3-14)$$

$$\begin{aligned} V_z &= \pi \cdot (r_o)^2 \cdot 2t_B && \text{(軸方向)} \\ &= \pi \cdot (0.373)^2 \cdot 1.4 = 0.61 \end{aligned} \quad (3.3-15)$$

V_r : 半径方向の緩衝材容積 [m³]

V_z : 軸方向の緩衝材容積 [m³]

w_b : ベントナイト混合率 (=0.7 : 30wt% ケイ砂混合材料) [-]

r_B : 緩衝材の半径 [m]

h_o : オーバーパックの長さ [m]

r_o : オーバーパックの半径 [m]

なお、地下水圧は、地下水面は地表付近に存在すると仮定して、処分深度 1,000 m での 10MPa とした。

以上の解析条件に基づく、オーバーパックと緩衝材の界面におけるガス蓄積圧力の経時変化を図 3.3-13 に示す。このように発生したガスが地下水に溶解せず、オーバーパックと緩衝材の界面にすべて蓄積するものと仮定すると、諸外国において想定されている地圧 (スウェーデン : 15~25MPa、スイス : 35MPa) や、ガス発生が停止すると考えられる平衡圧力 (50~100MPa)⁽³¹⁾ を数千年で超えてしまう結果 (4,000 年で約 35MPa、6,000 年で約 55MPa、14,000 年で約 101MPa) となった。

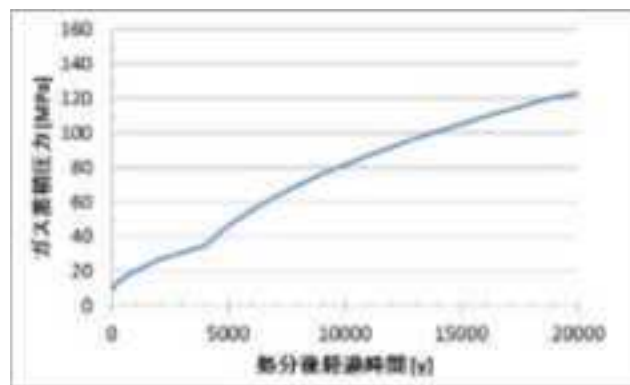


図 3.3-13 オーバーパックと緩衝材の界面におけるガス蓄積圧力の経時変化

このようにオーバーパックと緩衝材の界面においてガス蓄積が生じる場合には、人工バリア及び周辺岩盤への力学的影響の可能性を検討する必要がある。

しかし、緩衝材はガスがある一定の圧力 (破過圧) に達すると破過することが知られており、一般にその破過圧は地圧よりは低いため、ガスは緩衝材や周辺岩盤に力学的な影響を与える前に、緩衝材を破過すると考えられる (棚井ほか (1996)⁽²⁷⁾) ことから、実際には、本計算結果

のようにガス蓄積圧力が上昇し続けることはないものと考えられる。ただし、そのような破過が発生した場合には、緩衝材の性能に対する影響が懸念される。また一方で、実験的には、繰り返しの透過試験においても、破過前後での破過圧の違いはみられず (Tanai et al., 1997)⁽³²⁾、透水性に関しても顕著な違いはみられていない (田中, 2007⁽³³⁾; 2009⁽³⁴⁾) ことが知られており、棚井ほか (1999)⁽³⁰⁾におけるガス移行解析でも、発生した水素ガスのほぼ全量が周辺岩盤に移動するとともに、間隙圧力への寄与は小さく、緩衝材中の間隙水の排出量も 30 年以降ほぼゼロに近い値になると評価されており、ガス発生が緩衝材や岩盤の構造力学的安定性や核種移行に影響を与えないことが示されている。

ただし、棚井ほか (1999)⁽³⁰⁾のガス移行解析では、飽和した高密度ベントナイト中のガス移行に対し、連続媒体の気液 2 相流コード (TOUGH2) を適用して、ガス発生の影響を概略的に評価したものであったため、棚井・山本 (2004)⁽³⁵⁾では、可塑性、膨潤性を有する粘土系材料中のガス/水の移行については、以下のことを考慮する必要があるとして、気液 2 相流コード (TOUGH2) の拡張を行っている。

- ガス侵入圧力に threshold 値が存在すること
- 浸透率が圧力によって変化すること

その後、ガス移行解析を行った第 2 次 TRU レポート⁽⁶⁾及びガス影響評価の根拠レポートである安藤ほか (2005)⁽⁴¹⁾では、卓越流路の形成と、ガス圧力による透過性の変化を反映させるための 2 相流パラメータの設定、圧力の変化による透過係数の変化に対するモデルの導入、Kozeny-Carman モデルによる破過/停止 (breakthrough/shut-in) 再現モデルを採用するなど、飽和ベントナイト中のガス移行挙動の評価の改善を図っている。

また、従来の連続媒体に対する気液 2 相流理論では、力の釣合条件考慮されておらず、供試体の変形や変形に伴う応力、さらには土圧や排水・排気量が厳密に評価されていないため、従来の気液 2 相流モデルとベントナイトの応力ひずみ関係を連成させた解析手法が有効であるとの指摘もある (田中, 2010)⁽³⁶⁾。

したがって、可塑性、膨潤性を有する粘土系材料中でのガス移行評価を行うには、ベントナイトの変形による力学的影響を考慮した気液 2 相流モデルでの評価が今後必要になるものと考えられる。

(3) シナリオの検討

以上を整理すると、燃料デブリでは、オーバーパック内側に関して、廃棄体内に水が残留することを想定して、オーバーパック腐食寿命により破損する前の期間においても、金属腐食や放射線分解（ γ 線、中性子線、 α 線、 β 線）により発生する水素ガスが、オーバーパック内側の圧力を上昇させ、腐食寿命よりも早く破損させる可能性（早期破損の可能性）が懸念される。また、オーバーパック外側では、破損前におけるオーバーパック外表面での金属腐食やオーバーパックを透過してきた放射線（ γ 線及び中性子線）による分解に伴うガス発生に加え、破損後におけるオーバーパック内側でそれまでに発生したガスやそれ以降に発生するガスに関して、オーバーパックとベントナイト緩衝材の間に蓄積されるガス圧が人工バリアや周辺岩盤への構造力学的な損傷をもたらす可能性（ガス蓄圧による力学的影響の可能性）や放射性核種で汚染した間隙水を押し出す可能性（間隙水押し出しの可能性）について検討する必要がある。

(a) 早期破損の可能性

オーバーパック内側では、ガスの蓄積による内圧の上昇によって、オーバーパックが腐食寿命よりも早く破損する可能性（早期破損の可能性）について検討した結果、早期破損の可能性は低く、燃料デブリに含まれる初期水量と燃料デブリ容器内のデブリ充填率（空間率）をコントロールすることで、オーバーパック内側のガス蓄圧による早期破損の可能性は低減することができることを示した。

(b) ガス蓄圧による力学的影響の可能性及び間隙水押し出しの可能性

オーバーパック外側では、発生したガスが間隙水に溶存し拡散移行するとした場合でも、溶存水素ガスの拡散移行速度よりもガス発生速度の方が高く、オーバーパックとベントナイト緩衝材の間に蓄積される可能性が示唆された。しかし、本評価では、気相としてガス移行解析を行っていないため、ガス蓄圧による力学的影響の可能性及び間隙水押し出しの可能性については検討することができなかった。そこで、今後の課題として、破過圧や力学的影響を考慮したガス移行解析により、ガス発生・移行が人工バリアや周辺岩盤への構造力学的な損傷をもたらす可能性（ガス蓄圧による力学的影響の可能性）や放射性核種で汚染した間隙水を押し出す可能性（間隙水押し出しの可能性）について検討を行う必要があることを示した。

(4) まとめ

① ガス発生量の試算

- 本年度は、現状の情報に基づいて、水の放射線分解及び金属の腐食によるガス発生について、ガス発生速度ならびに発生量の試算を行った。
 - ▶ オーバーパック内側に関しては、水の放射線分解によるガス発生速度が支配的となり、水の存在量が有限であることを考慮して、水の枯渇する期間（約半年）までガス発生が継続するものとして累積ガス発生量を求めた結果、水 1L を仮定した場合、ガス発生量は 1.9 m^3 となった。また、廃棄体容器における燃料デブリの充填率を 90%（空間割合 10%）とした場合、発生したガスによる蓄積圧力は約 14MPa となり、オーバーパックの設計圧力である約 55MPa を超えることはないものと判断された。
 - ▶ オーバーパック外側に関しては、処分後経過時間により 3 つの期間に分けてガス発生速度を設定した。すなわち、OP 破損時期である 4,000 年（ガラス固化体での評価）までは、OP 外側での金属の嫌氣的腐食によるガス発生のみであり、4,000 年から 19,000 年（腐食による金属の消失）まではそこに OP 内側での放射線分解及び金属腐

食によるガス発生が付加され、OPが腐食により消失する19,000年後では、OP内側での放射線分解のみが継続するものとした。ガス蓄積の可能性について検討するため、それらのガス発生速度に関して、地下応力条件と拡散係数をパラメータとしたときの溶存水素ガスの拡散移行速度との比較を行った。その結果、ほぼすべての条件において、水素ガス発生速度が溶存水素ガスの拡散移行速度を上回っており、オーバーパックと緩衝材の界面に蓄積する可能性が示唆された。また、保守的に溶存水素ガスの拡散移行を考慮せず、発生したガスがすべてオーバーパックと緩衝材の界面に蓄積するとした場合のガス蓄積圧力を評価した結果、数千年から1万数千年で諸外国において想定されている地圧（スウェーデン：15～25MPa、スイス：35MPa）や、ガス発生が停止すると考えられる平衡圧力（50～100MPa）⁽³¹⁾を超えてしまう結果（4,000年で約35MPa、6,000年で約55MPa、14,000年で約101MPa）となった。このようにオーバーパックと緩衝材の界面においてガス蓄積が生じる場合には、人工バリア及び周辺岩盤への力学的影響の可能性を検討する必要がある。しかし、実際には、緩衝材はガスがある一定の圧力（破過圧）に達すると破過することが知られており、一般にその破過圧は地圧よりは低いいため、ガスは緩衝材や周辺岩盤に力学的な影響を与える前に、緩衝材を破過すると考えられる（棚井ほか（1996）⁽²⁷⁾）ことから、本計算結果のようにガス蓄積圧力が上昇し続けることはないものと考えられた。そこで、今後の課題として、破過圧や力学的影響を考慮したガス移行解析により、緩衝材や周辺岩盤への構造力学的安定性への影響や核種移行への影響について検討を行う必要があるものとした。

② シナリオの検討

- 上記検討をもとに、今後の評価手法の整備・改良や燃料デブリの処分において安全性への影響が懸念される特性及びその影響の連鎖（シナリオ）の抽出に向けて理解の現状を整理した。
 - ▶ オーバーパック内側では、ガスの蓄積による内圧の上昇によって、オーバーパックが腐食寿命よりも早く破損する可能性（早期破損の可能性）について検討した結果、早期破損の可能性は低く、燃料デブリに含まれる初期水量と燃料デブリ容器内のデブリ充填率（空間率）をコントロールすることで、オーバーパック内側のガス蓄圧による早期破損の可能性は低減することができることを示した。
 - ▶ オーバーパック外側では、発生したガスが間隙水に溶存し拡散移行するとした場合でも、溶存水素ガスの拡散移行速度よりもガス発生速度の方が高く、オーバーパックとベントナイト緩衝材の間に蓄積される可能性が示唆された。しかし、本評価では、気相としてガス移行解析を行っていないため、ガス蓄圧による力学的影響の可能性及び間隙水押し出しの可能性については検討することができなかった。そこで、今後の課題として、破過圧や力学的影響を考慮したガス移行解析により、ガス発生・移行が人工バリアや周辺岩盤への構造力学的な損傷をもたらす可能性（ガス蓄圧による力学的影響の可能性）や放射性核種で汚染した間隙水を押し出す可能性（間隙水押し出しの可能性）について検討を行う必要があることを示した。

3.3.2 燃料デブリの処分容器内における臨界可能性に関する検討

(1) 背景と目的

福島第一原子力発電所の燃料デブリを回収し、廃棄物埋設地に埋設する際に、仮想燃料デブリ Ver.1 の処分容器 1 本に含まれるウラン重量は 62.09kg であり、ウラン濃縮度や燃焼度によっては臨界になる可能性を否定できない。特に、廃棄体作成時には水分を可能な限り排除されるが、図 3.3-14 に示すように埋設後オーバーパックが破損して、収納容器内に地下水が浸入し、容器内が地下水で満たされる可能性がある。処分容器内で臨界になれば、核分裂連鎖反応が継続的に発生し、熱エネルギーが発生して温度が上昇するとともに、核分裂性生成ガスが発生して、処分場からの核種移行挙動に大きな影響を及ぼすことが想定される。

1F 炉心溶融事故時の原子炉に装荷されていた燃料の平均濃縮度(装荷時)は 3.7% であったが、4.9% の燃料棒が全体の 5% 以上含まれており、かつ、炉心全体の燃焼度は 14GWd/t であったが、直近の取替燃料では 3~5GWd/t と燃焼度が低い燃料も含まれていた。濃縮度の高いウランの臨界量は極めて小さく、こうした濃縮度の高い燃料デブリが格納容器内に偏在している可能性もあり、今後処分のために容器に収納される際にそうした燃料デブリが集中して収納されることも想定される。

本検討では仮想燃料デブリ Ver. 1 の収納容器中で、未臨界を維持できるかについて、特に埋設処分後の状況を想定した臨界解析を実施した。そしてある条件で臨界を達成してしまう場合には、いかなる条件でも未臨界を維持可能な容器直径について検討を行うこととした。

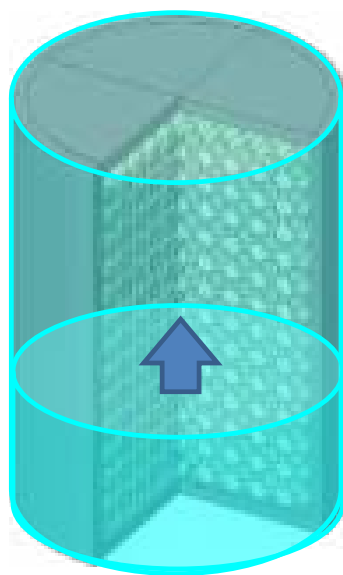


図 3.3-14 燃料デブリ処分容器内に埋設後地下水が浸入するイメージ図

(2) 仮想燃料デブリ Ver. 1 の収納容器における臨界評価の設定

(a) 1F 燃料デブリの濃縮度及び燃焼度

表 3.3-12 に 1F 原子炉の燃料集合体 1 体あたりの U-235 濃縮度の分布を示す⁽³⁷⁾。集合体 1 体のウラン量 170.9kg のうち、5.6% が濃縮度 4.9% のウランで構成されている。図 3.3-15 に燃料集合体中の濃縮度別の燃料棒配置を示す。4.9% 濃縮度の燃料棒はウォーターチャンネルの外側の四隅に配置されており、炉心溶融時にこれだけが集積して溶融固化することは考えにくいだが、その可能性は否定できないため、4.9% 濃縮度燃料だけで構成される燃料デブリと仮定した。

また、炉心全体の平均燃焼度は 14GWd/t とされているが、表 3.3-13 に示すように、直近の

取替燃料は2号機で116体が3.3GWd/tと燃焼度の低い燃料デブリが存在することを示していることから、最低燃焼度である3GWd/tを臨界評価の設定の一つとなると考えられる。

さらに、一定時間の中性子照射を受けた燃料は、Puを含むTRU核種が生成されており、これらが長期的に系列崩壊することにより、ウランの濃縮度は20万年にかけて上昇する。したがって、3GWd/t燃料デブリの濃縮度が上昇することを考慮するため、その上限として燃焼度0すなわち新燃料を対象として臨界評価することが適当と考えられる。

表 3.3-12 燃料集合体1体あたりの濃縮度分布

²³⁵ U濃縮度	質量 (kgU)
4.9 wt%	9.6
4.4 wt%	76.8
3.9 wt%	28.8
3.4 wt%	19.2
2.1 wt%	9.6
G (3.4 wt%)	26.9
合計	170.9

表 3.3-13 直近取替燃料の本数及び燃焼度

号機	運転日数	燃料集合体数 (取替/総数)	燃焼度 (GWd/t)
1号機	189日	64 (UO ₂) / 400	5.2
2号機	113日	116 (UO ₂) / 548	3.3
3号機	169日	116 (UO ₂) 32 (MOX) / 548	4.7

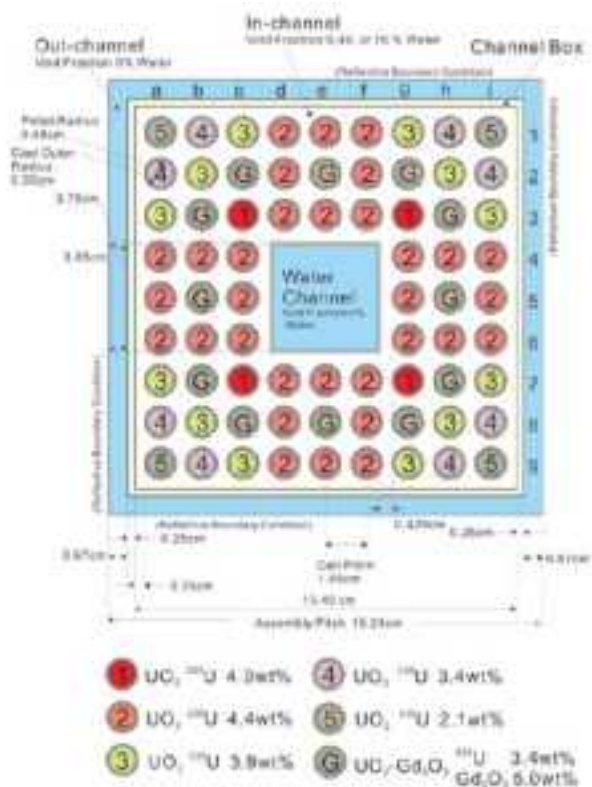


図 3.3-15 燃料集合体 1 体の濃縮度別燃料棒の配置

(b) 処分容器内における燃料デブリの配置

仮想燃料デブリ Ver. 1 は TMI-2 などの収納容器を参考に設定されたもので、1 体あたりの平均ウラン量や最大量が示されているが、容器収納の際に計量管理がされない場合、その収納量は容器の寸法のみ依存する。容器寸法は容器直径が 35.56cm、容器高さが 135cm、デブリ収納可能高さが 86.74cm となっている。デブリ収納可能高さが指定されているため、それ以上の高さにはならないものとする。

寸法が確定した処分容器に収納される燃料デブリ量はデブリの性状（大きさ、空隙）に依存するため、デブリ収納量は一意に設定できない。埋設後、オーバーパックが破損した後に浸入する中性子減速材（水）は、燃料デブリ以外の領域（デブリ内の空隙を含む）を満たすことになる。このとき、燃料デブリ収納量（Vf）が大きければ減速材量（Vm）が小さくなり、Vf が小さくなれば Vm が大きくなるという関係が成立する。現在、格納容器中のデブリの性状（形状、空隙率、他材料との混合率）は観察されたことがなく、特定できないため、Vm/Vf は広い範囲をとりうる必要がある。中性子実効増倍率 k_{eff} は、Vm/Vf の値に大きく依存することから、濃縮度や燃焼度を考慮しつつ、Vm/Vf を幅広く設定して、いかなる条件でも臨界とならない容器の直径を決定する必要がある。

なお、この際、中性子吸収材などを容器に配置して、実効増倍率を低下させる方法が想定されるが、埋設処分では長期的にその状態が確保される必要があるため、中性子吸収材が燃料デブリよりも先に変質し、容器から漏出することなどまで想定することとなる。本年度は、そうした可能性を排除して未臨界を維持できる容器直径を見つけることとした。

(3) 臨界解析

(a) 概要

図 3.3-16 に燃料デブリ収納容器に対する臨界解析体系を示す。燃料デブリに対しても HLW の処分体系を適用するが、臨界解析の観点から、収納容器を取り囲むオーバーパックの厚さを 19cm から 100cm へ変更した。外部を減速材の水として取り囲むよりも、鉄の反射材としての役割で保守的な評価になるように設定したものである。

また、収納容器内は燃料球 ($\rho=11.63\text{g/cm}^3$) が面心立方構造で最密に配置されている充填率 74% を最大の燃料収納量とすると V_m/V_f は 0.35 となり、これを最小の値とした。燃料球に表面と接続する空隙があるとして、 V_m/V_f を最大 40 まで広げて、この範囲で実効増倍率を評価した。この空隙に減速材である水が入り込むことを想定している。

計算コードは MVP⁽³⁸⁾ を、核データライブラリは JENDL-4.0⁽³⁹⁾ を用いて評価した。総ヒストリ数は 500 万とした。また、表 3.3-14 に解析に用いた 3GWd/t 燃料の原子個数密度を示す。ここで用いた単位は 10^{-24}cm^3 あたりの原子個数である ($1\text{ barn} = 10^{-24}\text{cm}^2$)。また、表 3.3-15 に収納容器外側を取り囲む炭素鋼オーバーパックの原子個数密度を示す。

対象燃料は(2)で検討したように 4.9%濃縮度燃料が 5%以上存在することから 5%濃縮度で新燃料 (燃焼度 0)、3GWd/t 及び炉心平均燃焼度の 14GWd/t の 3 ケースとした。

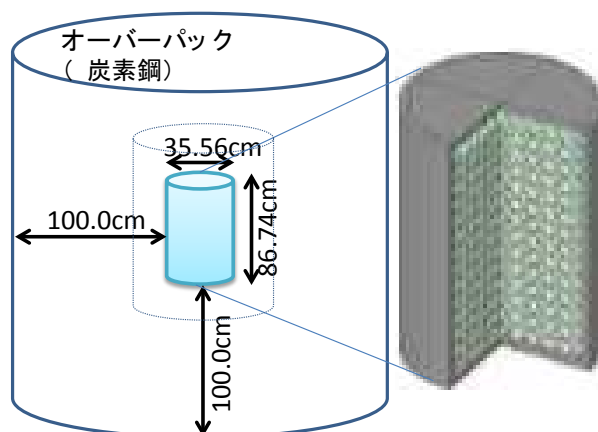


図 3.3-16 燃料デブリ収納容器に対する臨界解析体系

表 3.3-14 3GWd/t 燃料の原子個数密度(単位: atoms/barn・cm)

U234	8.27237E-06	MO 95	4.55222E-06
U235	1.04212E-03	TC 99	4.49927E-06
U238	2.14574E-02	RH103	2.38566E-06
PU238	7.03047E-09	CS133	4.84767E-06
PU239	2.89710E-05	ND143	4.10846E-06
PU240	1.21565E-06	ND145	2.76577E-06
PU241	1.38437E-07	SM147	1.15257E-06
PU242	2.71678E-09	SM149	1.28028E-07
AM241	3.85316E-08	SM150	6.81432E-07
		SM152	2.96044E-07
		EU153	1.45740E-07
		GD155	9.46075E-09

表 3.3-15 炭素鋼の原子個数密度

元素	成分比 [wt%]	元素個数密度 [atoms/barn・cm]	質量数	存在比 [a/o]	核種個数密度 [atoms/barn・cm]
Fe	99.1	8.3319E-02	54	5.845	4.8700E-03
			56	91.754	7.6449E-02
			57	2.119	1.7655E-03
			58	0.282	2.3496E-04
Mn	0.3	2.5650E-04	55	100	2.5650E-04
Si	0.2	3.3449E-04	28	92.223	3.0848E-04
			29	4.685	1.5671E-05
			30	3.092	1.0342E-05
S	0.04	5.8599E-05	32	94.99	5.5663E-05
			33	0.75	4.3949E-07
			34	4.25	2.4905E-06
			36	0.01	5.8599E-09
P	0.04	6.0660E-05	31	100	6.0660E-05
C	0.32	1.2514E-03			

(4) 臨界解析結果

(a) 仮想燃料デブリ Ver. 1 収納容器 (直径 35.56cm) を対象とした解析結果

図 3.3-17 に均質体系で 5%濃縮ウラン新燃料を収納した場合、図 3.3-18 に均質体系で 3GWd/t の燃料デブリを収納した場合、図 3.3-19 に均質体系で 14GWd/t の燃料デブリを収納した場合の V_f/V_m に応じた実効増倍率の変化を示す。3 つすべてのケースで k_{eff} は $V_m/V_f = 3 \sim 4$ で最大となった。14GWd/t では k_{eff} の最大値は 0.97 程度となり、すべての V_m/V_f で未臨界を維持できることが示された。

一方、非均質体系で同様に 3 つのケースの解析結果を図 3.3-20～図 3.3-22 に示す。均質体系とやや異なり、3 つすべてのケースで k_{eff} は $V_m/V_f = 2 \sim 3$ で最大となった。また、5%新燃料はもとより、炉心平均燃焼度 14GWd/t でも $K_{eff} \geq 1$ となる領域があり、いかなる V_m/V_f においても未臨界を維持できるとはならなかった。均質よりも非均質で評価する方が保守的な結果が得られた。

以上の結果より、仮想燃料デブリ Ver. 1 の収納容器直径では、埋設処分後、容器内に水が浸入してくる場合に、未臨界を維持できない可能性があることから、現在の容器直径 35.56cm を徐々に小さくして、いかなる V_m/V_f でも未臨界となる容器直径を調査することとした。

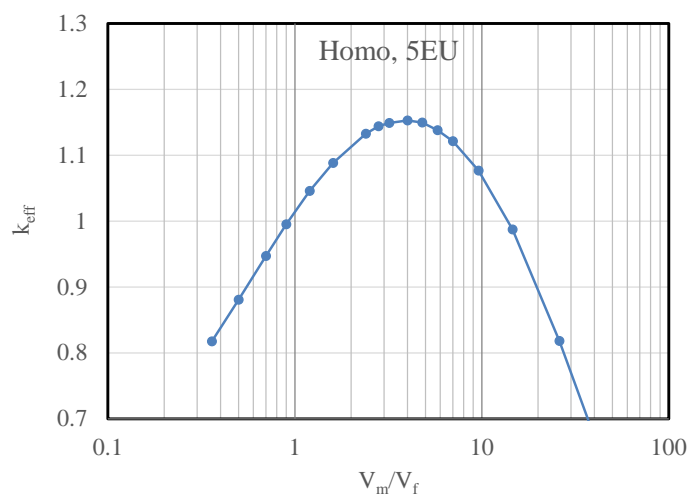


図 3.3-17 均質体系、5wt% UO_2 の実効増倍率

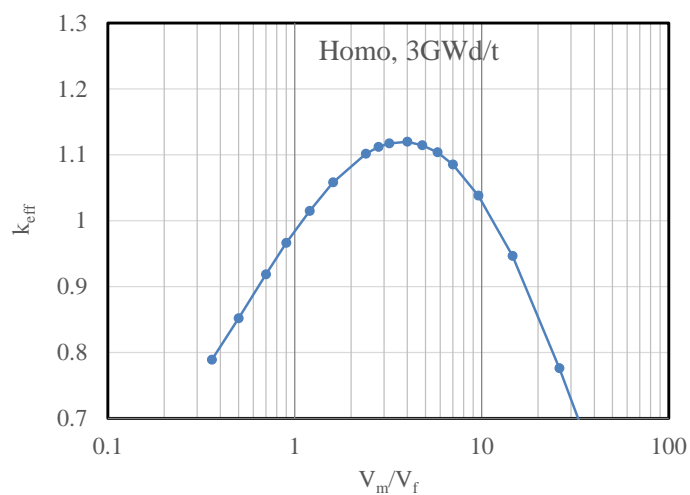


図 3.3-18 均質体系、3GWd/t 燃焼燃料の実効増倍率

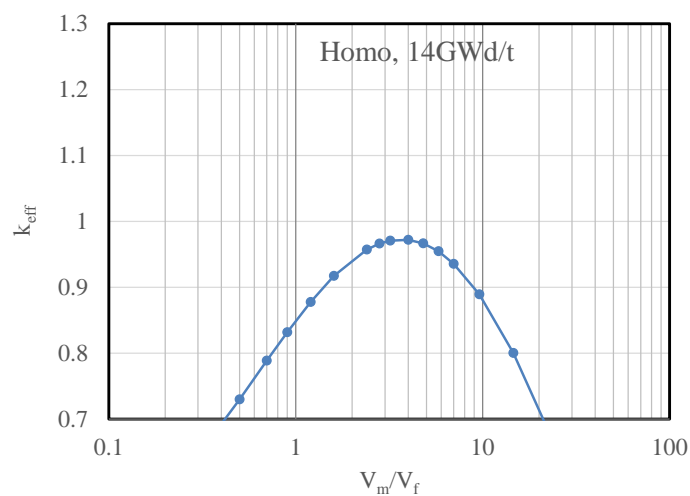


図 3.3-19 均質体系、14GWd/t 燃焼燃料の実効増倍率

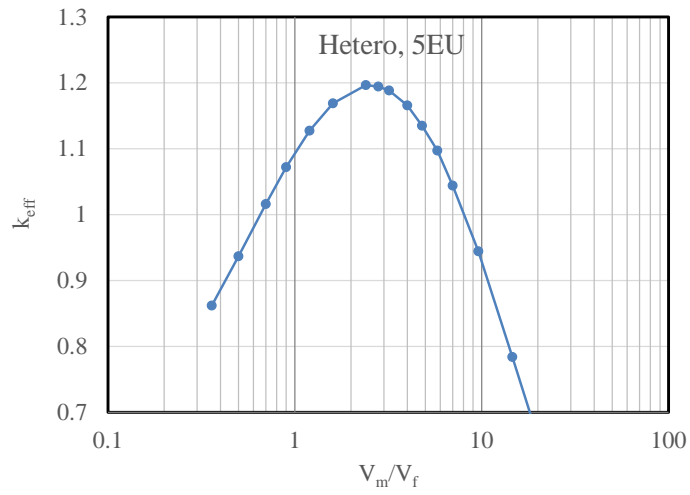


図 3.3-20 非均質体系、5wt%UO₂の実効増倍率

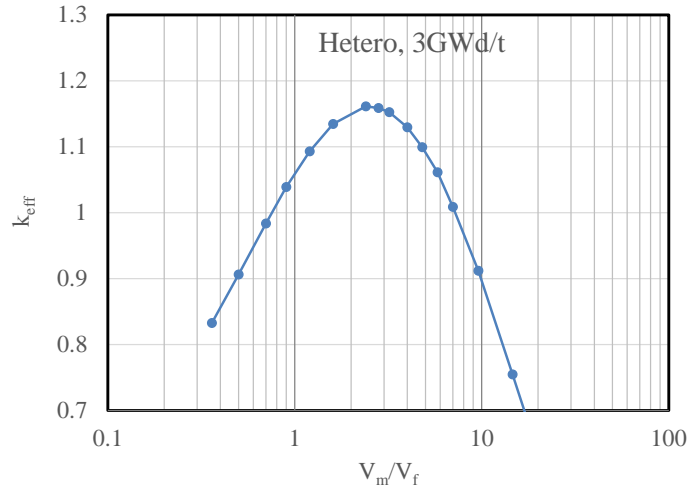


図 3.3-21 非均質体系、3GWd/t 燃焼燃料の実効増倍率

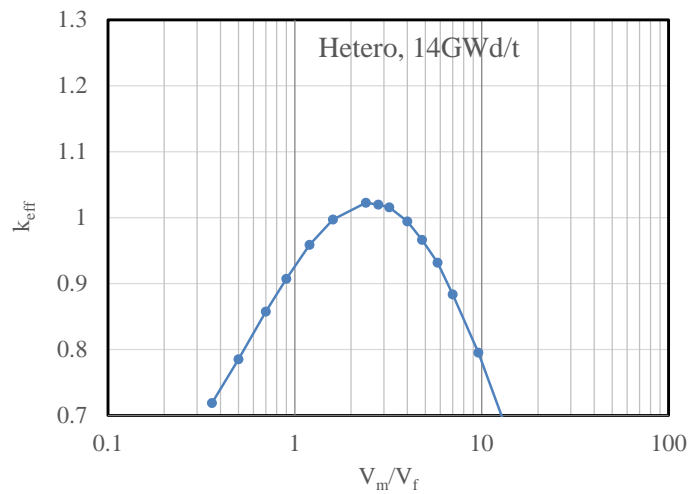


図 3.3-22 非均質体系、14GWd/t 燃焼燃料の実効増倍率

(b) いかなる V_m/V_f でも未臨界を維持できる容器直径

はじめに均質体系での解析結果を示す。図 3.3-23 に 5%濃縮度新燃料の場合の容器直径別の実効増倍率の変化を示す。容器直径が 25.0cm でも最大 1.0 をわずかに超えることから、22.5cm まで小さくすれば、未臨界を維持できる。次に図 3.3-24 に 3GWd/t の燃料デブリの場合の容器直径別の実効増倍率の変化を示す。この場合直径 25.0cm でも未臨界を維持できる結果となった。なお、14GWd/t の場合はすでに(a)で示したように、仮想燃料デブリ Ver. 1 の容器直径 35.56cm でも未臨界を維持できるため、評価は省略した。

次に非均質体系で評価した場合を示す。図 3.3-25 に 5%濃縮度新燃料の場合の容器直径別の実効増倍率の変化を示す。均質体系よりもやや安全側の結果となっているが、2.5cm ずつの区分の評価では、均質体系と同様に 22.5cm まで小さくすれば未臨界を維持できる結果となった。次に図 3.3-26 に 3GWd/t の燃料デブリの場合の容器直径別の実効増倍率の変化を示す。均質体系と同様に容器直径 25.0cm で未臨界を維持できる結果となった。図 3.3-27 に 14GWd/t の燃料デブリの場合の容器直径別の実効増倍率の変化を示す。容器直径が 32.5cm であれば未臨界を維持できる結果となった。

以上のことから、今後格納容器から回収して最終処分される際の燃料デブリの収納容器の直径は、4.9%の濃縮度を持つ燃料棒を起源とする燃料デブリだけで構成されることが否定できない場合は、22.5cm 以下であることで処分環境において未臨界を維持できる。これは中性子吸収材などを処分容器に用いない場合の評価値である。今後、格納容器内に散乱している燃料デブリの性状や濃縮度、燃焼度など核的な情報が調査によって明らかになれば、容器直径は大きくなる方向で見直されるものである。

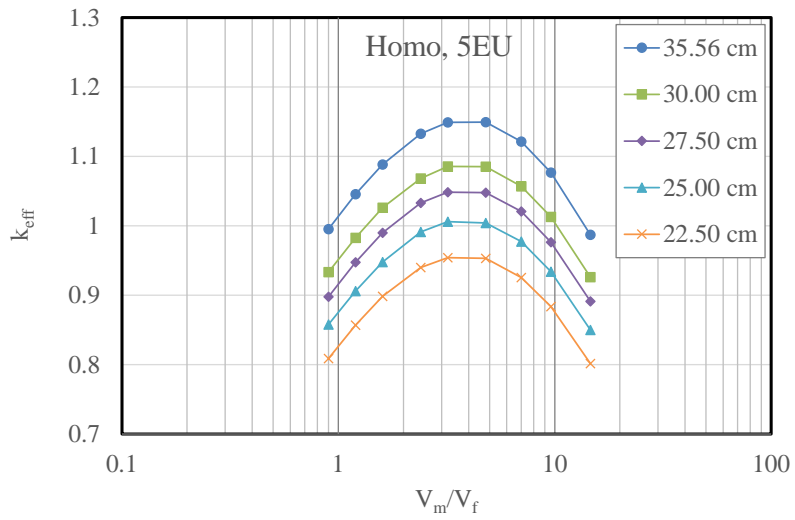


図 3.3-23 均質体系、5wt% UO_2 の収納容器直径別の実効増倍率

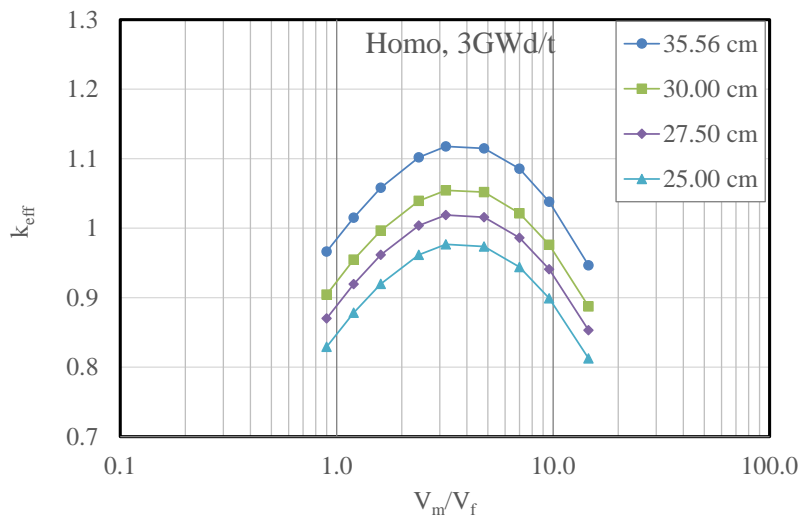


図 3.3-24 均質体系、3GWd/t 燃焼燃料の収納容器直径別の実効増倍率

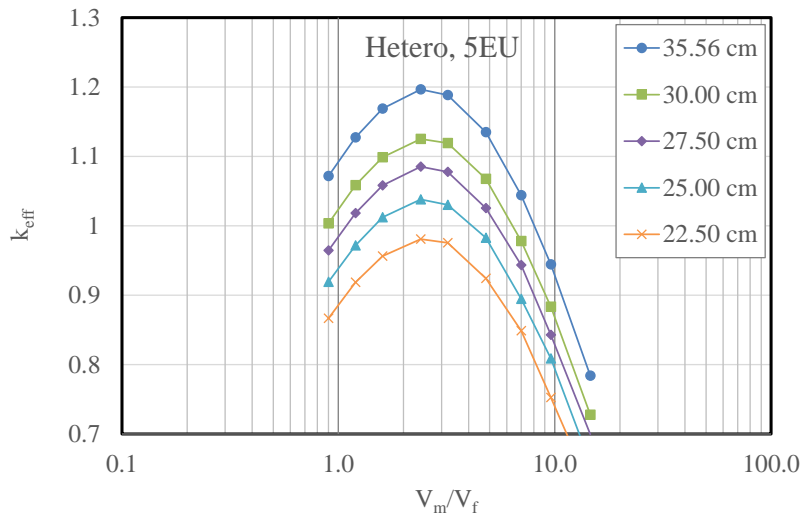


図 3.3-25 非均質体系、5wt% UO_2 の収納容器直径別の実効増倍率

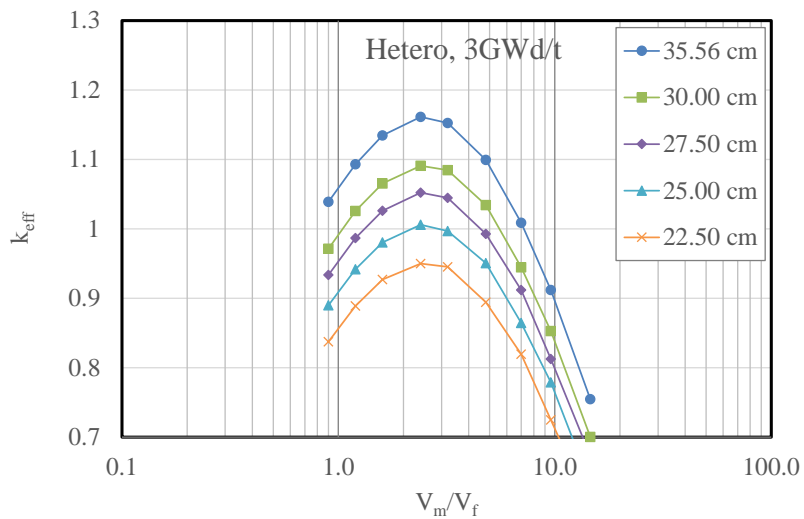


図 3.3-26 非均質体系、3GWd/t 燃焼燃料の収納容器直径別の実効増倍率

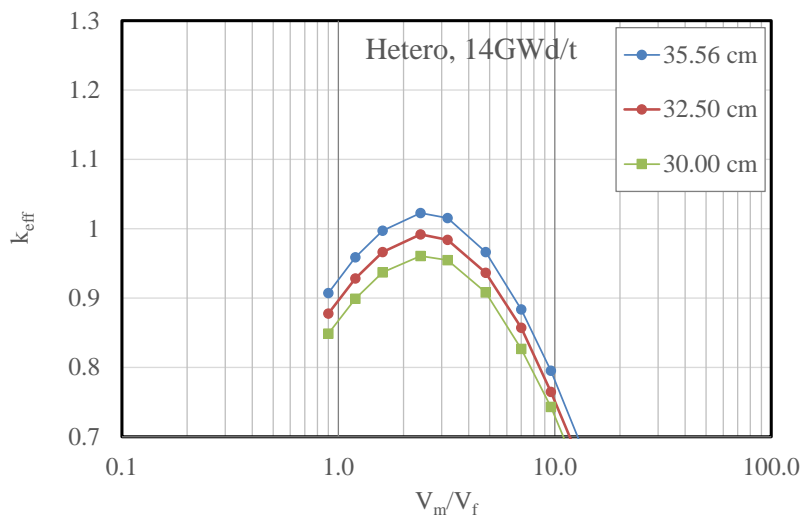


図 3.3-27 非均質体系、14GWd/t 燃焼燃料の収納容器直径別の実効増倍率

(5) まとめ

1F 燃料デブリの処分にあたっては、水素発生対策のために、処分容器内から十分に水分が排除されると想定され、それによって、仮想燃料デブリ Ver. 1 においては臨界が発生するおそれはない。しかし、埋設処分後、長期間経過すると、収納容器を取り囲んで、水との接触を防いでいたオーバーパックが腐食して、その閉じ込め機能が失われ、収納容器内に地下水が浸入し、容器内が地下水で満たされる可能性がある。処分容器内で臨界になれば、核分裂連鎖反応が継続的に発生し、熱エネルギーが発生して温度が上昇するとともに、核分裂性生成ガスが発生して、処分場からの核種移行挙動に大きな影響を及ぼすことが想定される。

そのため仮想燃料デブリ Ver. 1 の収納容器を用いる場合に、処分環境で地下水が浸入しても未臨界を維持できるかについて、臨界解析を行った。解析では濃縮度 4.9%の燃料が 5%以上含まれること、最小燃焼度は 3.3GWd/t であるが長期的なビルドアップを考慮して、燃焼度 0 の新燃料相当の計算も実施した。収納容器外を炭素鋼製のオーバーパックで取り囲む体系とし、臨界の観点から保守的にオーバーパック厚さを 100cm と仮定した。収納容器内部は密度の燃料球が面心立方構造で配置されるものとし、 V_m/V_f を 0.35~20 の範囲で、計算コードは MVP を、核データライブラリは JENDL-4.0 を用いて評価した。総ヒストリ数は 500 万とした。

その結果、非均質体系では新燃料相当の燃焼度だけでなく、14GWd/t の燃焼度の燃料デブリについても、臨界となり、均質体系の 14GWd/t の燃焼度だけが未臨界を維持できた。

いかなる V_m/V_f でも未臨界を維持できる容器直径を探るため、35.56cm から 2.5cm ずつ容器直径を小さくして、評価を行った。表 3.3-16 にその結果のまとめを示す。均質体系及び非均質体系の新燃料相当、非均質体系の 3GWd/t の燃料デブリについては、22.5cm の容器直径である必要がある。均質体系では 3GWd/t の燃料デブリについては 25.0cm、非均質体系の 14GWd/t については 32.5cm となった。

表 3.3-16 未臨界を維持できる容器直径のまとめ

評価体系	対象燃料	燃焼度 (GWd/t)	容器直径
均質体系	5wt% 濃縮ウラン 燃料	新燃料 (燃焼度 0)	22.5 cm
		3	25.0 cm
		14	35.56 cm
非均質体系		新燃料 (燃焼度 0)	22.5 cm
		3	22.5 cm
		14	32.5 cm

以上のことから、今後格納容器から回収して最終処分される際の燃料デブリの収納容器の直径は、4.9%の濃縮度を持つ燃料棒を起源とする燃料デブリだけで構成されることが否定できない場合は、22.5cm 以下であることで処分環境において未臨界を維持できる。これは中性子吸収材などを処分容器に用いない場合の評価値である。今後、格納容器内に散乱している燃料デブリの性状や濃縮度、燃焼度など核的な情報が調査によって明らかになれば、容器直径は大きくなる方向で見直されるものである。

また、本検討では、早期に流失してしまうことを排除するために、処分容器に中性子吸収材を用いないことを前提に評価したが、長期的に容器内に留まることが担保される方策がある場合には、それを考慮した評価が今後必要となる。また、劣化ウランを混入させるなど、ウラン

の濃縮度を低下させる方法によって、臨界のリスクが低減される可能性もあることから、具体化した際には、そうした効果を反映させた評価が必要となる。

3.3.3 天然バリア中における臨界発生可能性に関する検討

(1) 背景と目的

福島第一原子力発電所の燃料デブリを回収し、廃棄物埋設地に埋設する際に、仮想燃料デブリ Ver.1 の処分容器 1 本に含まれる核分裂性核種は高レベル放射性廃棄物であるガラス固化体 1 本よりも 10 倍以上である。3.2 で検討した処分容器内での臨界の可能性を排除できても、図 3.3-28 に示すように、長期的に隆起・侵食に伴い対地深度が減少し酸化性地下水が処分場に入り込み、ウランを中心とする核分裂性核種が想定よりも多量に溶出して、天然バリア中を移行した後に、ある点に集積することによって臨界条件を達成する可能性は、オクロの天然原子炉の例のように、排除できない。そこで、本検討では、核種移行の観点から、地質媒体中で臨界質量を上回るウランがある点に濃集しうるかについて、解析的に検討を実施した。

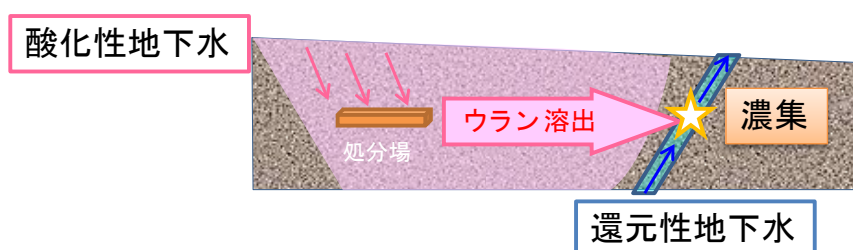


図 3.3-28 天然バリア中でウランが濃集するイメージ図

(2) 1F 燃料デブリを対象とした地質媒体中での臨界可能性に関する既往研究

Liu ら⁽⁴⁰⁾は、1F 燃料デブリに対して、表 3.3-17 に示す砂岩中にどの程度ウランが濃集すると臨界条件を達成するかについて解析的に研究を行った。このとき、ウランの濃縮度は現在の燃料デブリの内容が変わらずに、系列核種の崩壊だけを考慮した際の最大値 2.25% に固定して、臨界解析を実施した。図 3.3-29 に砂岩である多孔質媒体中にウランが沈殿する概念図と臨界評価での最小臨界質量を求める考え方を示す。最小臨界質量となる球形を前提に、地質媒体中の間隙にウランと減速材である水が適当な割合で保持される条件で実効増倍率を解析するものである。間隙率を 0~30% とした場合の地質媒体中に濃集して、臨界となる質量を図 3.3-30 に示す。間隙率 (Void Volume Fraction) が 0.30 程度であれば、臨界質量は 1MTU 程度となることを示している。すなわち、1F 燃料デブリのウラン総量 257MTU のうち、1MTU の濃集で臨界条件を達成する可能性を示している。しかしながら、1MTU は必要条件であり、ウランと水および岩盤が最適な割合で球形に配置されるような条件でなければ、臨界には到達しない。

表 3.3-17 砂岩の鉱物組成

鉱物	割合 (%)	鉱物	割合 (%)
SiO ₂	78.7	CaO	5.5
TiO ₂	0.25	Na ₂ O	0.45
Al ₂ O ₃	4.8	K ₂ O	1.3
Fe ₂ O ₃	1.1	H ₂ O	1.3
FeO	0.3	P ₂ O ₅	0.08
MnO	0.03	CO ₂	0.5
MgO	1.2		

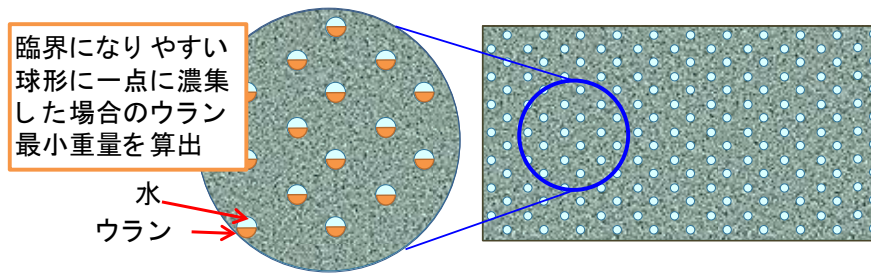


図 3.3-29 多孔質媒体におけるウランの沈殿イメージと最小臨界重量

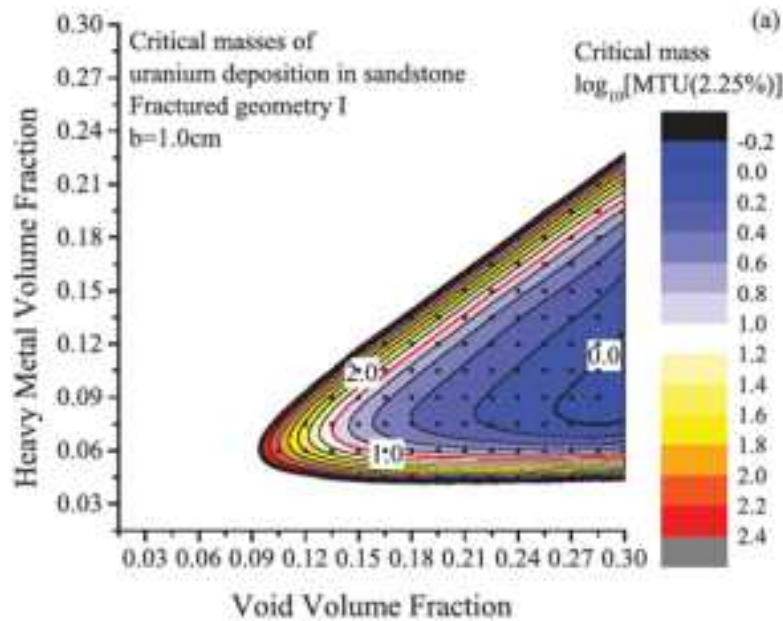


図 3.3-30 砂岩中に沈着するウランの臨界質量

(3) 一次元核種移行解析

(a) 概要

上述したように 1MTU の 2.25%濃縮ウランが天然バリア中のある場所に集積すると臨界を達成する最低条件が満たされるが、それが直ちに臨界発生を意味するものではない。すなわち、1MTU の 2.25%濃縮ウランが水および岩盤と最適な割合で球形体積の地質空隙を満たすように配置されるような十分条件を満たさなければ臨界とはならない。例えば、移行先で沈殿したウランが固相のまま運ばれ、臨界に最適な配置の鉱床を形成するような場合にのみ、臨界が生じる可能性がある。ウランが薄く広がった配置や減速材が十分でない配置では臨界にならないことに注意が必要である。しかしながら、1F 燃料デブリには 257MTU のウランが含まれており、そのうちの 1MTU が移行先で沈殿する可能性は必ずしも否定できないことから、核種移行解析によって、どのような条件で沈殿しうるかについて検討を行った。

仮想燃料デブリ Ver.1 収納容器の装荷 U 量は、TMI-2 容器の装荷 U 量を容器収納体積比 (0.26 倍) で以下のように算出された。

- 1F 廃棄体の装荷 U 量 (最大) = $0.26 \times (441.9 \text{ kg/容器}) \cong 114.9 \text{ kg}$
- 1F 廃棄体の装荷 U 量 (平均) = $0.26 \times (238.82 \text{ kg/容器}) \cong 62.09 \text{ kg}$

1F 廃棄体の発生量は、収納容器に平均ウラン量を装荷したとして算出すると、廃棄体収納容

器数は4,139本（ $\approx 257 \times 10^3 \div 62.09$ ）となる。

燃料デブリ収納容器1本あたりウラン量は平均62kgであり、1本単体では臨界質量に到達しない。図3.3-31に示すように収納容器1本ごとの核種移行経路4,139本すべてが、ある場所に集合し、そこでウランが沈殿することを想定して、核種移行解析を行い、4,139本分の濃集量を評価することとした。

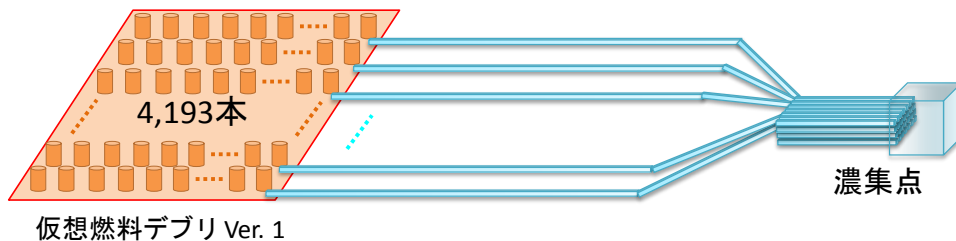


図 3.3-31 ウラン濃集のイメージ

図3.3-32に収納容器1本あたりの核種移行解析の概要を示す。人工バリア内の間隙水の水質を設定し、水質に応じた溶解度、拡散係数、分配係数など核種移行パラメータを元素別に設定する。各パラメータの設定数値などについての詳細は(c)に記述する。オーバーパックはHLWと同様に炭素鋼19cm厚さとし、その閉じ込め機能は4,000年後に失われるものとした。緩衝材もHLWと同様に70cm厚さとして、人工バリア出口フラックスの経時変化を算出した。

人工バリアから放出されたフラックスは天然バリアに引き継がれ、砂岩である多孔質媒体中を移行する。天然バリア中の移行は地下水流速、元素別の分配係数、拡散係数などから計算される。なお、天然バリア中では溶解度は考慮していない。濃集点は地質・水質が切り替わる場所に形成されると考えられるため、単位体積1のコンパートメントモデルに接続して、流入する地下水中のウラン濃度と切替わった環境における溶解度に基づいてウランの沈殿量の時間変化を評価する。

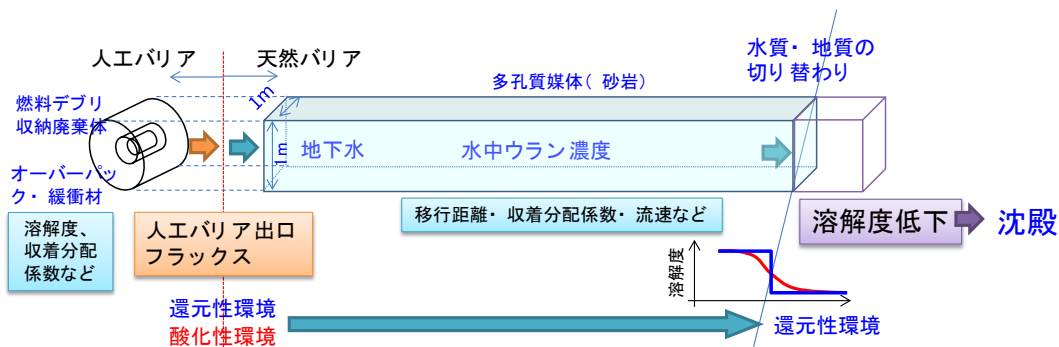


図 3.3-32 一次元核種移行解析の概要

収納容器1本あたりの初期の放射能インベントリは表3.3-18に示すように、事故発生50年後の値を用いた。

表 3.3-18 1F 仮想燃料デブリ収納容器 1 本あたりの初期放射能インベントリ

系列	核種	半減期 (y)	燃料デブリ (Bq/本)	核分裂性核種
4n	Pu-240	6.56E3	7.94E11	
	U-236	2.34E7	4.79E8	
4n+1	Cm-245	8.5E3	2.32E8	○
	Pu-241	14.1	1.78E12	
	Am-241	432	6.03E12	
	Np-237	2.16E6	4.93E8	
	Pa-233	7.38E-2	4.93E8	
	U-233	1.59E5	1.16E5	○
4n+2	Cm-246	4.76E3	3.72E7	
	Am-242m	141	1.21E10	
	Cm-242	0.446	9.99E9	
	Pu-242	3.75E5	2.47E9	
	Pu-238	87.1	2.65E12	
	U-238	4.47E9	7.32E8	
	Th-234	0.066	7.32E8	
	U-234	2.46E5	5.35E8	
4n+3	Cm-243	29.1	5.59E9	
	Am-243	7.37E3	2.01E10	
	Pu-239	2.41E4	6.4E11	○
	U-235	7.04E8	8.7E7	○

(b) ケース設定

表 3.3-19 に本検討で対象とする 7 ケースの設定表を示す。標準ケースとなる Case 1 は、還元性環境で燃料デブリの溶出率を使用済燃料の直接処分の検討結果⁽⁴¹⁾より $1.0 \times 10^{-7}/y$ とし、人工バリア中及び濃集点の溶解度は水質に基づく溶解度を PA-SOL により評価した結果を設定した。標準の移行距離は 100m とした。Case 2 は処分時点から処分環境が十分に還元されていないケースで、酸化性環境を設定し人工バリア中の U 溶解度が高い条件である。Case 3 は処分時点では還元性環境が確保されているが、10 万年時点で酸化性環境に切り替わることを想定したケースである。この切り替わりにおいては緩衝材における水質の緩慢な変化は考慮せず、設定した水質が瞬時に切り替わり、溶解度などのパラメータもあわせて瞬時に切り替わるものとした。なお、この Case 3 に関しては、処分場が長期的に隆起・侵食により上昇して地表面付近の酸化性雰囲気さらされることを想定したもので、実際の処分環境においてもこのような状況は想定し得る。Case 4 は処分時点で酸化性環境であるが濃集点を下流側の 1,000m の地点と想定したケースである。Case 5 は還元性環境であるが燃料デブリの溶出特性やデータの不確実性を想定したケースで、燃料デブリの浸出率が 10 倍となる条件である。Case 6 及び Case 7 は処分環境及び濃集点の地下水組成の不確実性を想定したケースで、Case 6 は還元性環境であるが濃集点における U 溶解度が 2 桁低下する条件、Case 7 は還元性環境であるが人工バリア中の U 溶解度が 10 倍増加する条件である。

表 3.3-19 濃集量評価のためのケース設定

ケース	浸出率 (1/y)	処分場環境	人工バリア中 U 溶解度	濃集点 溶解度	濃集点までの移 行距離
Case 1	1.0×10^{-7}	還元性	3.1×10^{-6}	1.1×10^{-5}	100m
Case 2	1.0×10^{-7}	酸化性	5.0	1.1×10^{-5}	100m
Case 3	1.0×10^{-7}	還元性 → 酸化性 (10 万年で切替)	3.1×10^{-6} → 5.0	1.1×10^{-5}	100m
Case 4	1.0×10^{-7}	酸化性	5.0	1.1×10^{-5}	1,000m
Case 5	1.0×10^{-6}	還元性	3.1×10^{-6}	1.1×10^{-5}	100m
Case 6	1.0×10^{-7}	還元性	3.1×10^{-6}	1.1×10^{-7}	100m
Case 7	1.0×10^{-7}	還元性	3.1×10^{-5}	1.1×10^{-5}	100m

(c) 核種移行パラメータの設定

表 3.3-20 に各バリアにおける間隙率、地下水流速及び拡散係数を示す。天然バリアは平成 26 年度地層処分の安全審査において解析を行った幌延サイトにおける設定を与えた。緩衝材は処分後 4000 年時点の間隙水の水質に基づいて評価した設定であり、その後の人工バリアの変遷については考慮しなかった。表 3.3-21 に示す天然バリア中地下水及び人工バリア間隙水中の水質組成に基づき、緩衝材中及び天然バリアにおける溶解度を PA-SOL によって評価した。表 3.3-22 に各水質別の元素別溶解度を示す。また、人工バリアの分配係数を表 3.3-23 に、天然バリアの分配係数を表 3.3-24 にそれぞれ示す。

表 3.3-20 各バリアにおける間隙率、地下水流速及び拡散係数

	人工バリア	天然バリア
間隙率	0.41	0.3
地下水流速 (m/y)	1.5×10^{-6}	1×10^{-4}
拡散係数 (m ² /y)	8.4×10^{-3}	3.2×10^{-2}

表 3.3-21 天然バリア中地下水及び人工バリア間隙水中の水質組成

	降水系地下水	間隙水 還元性	間隙水 酸化性
pH	6.8	10.0	6.0
pe	-3.6	-10.0	3.38
Al	1.9E-7	7.1E-7	1.9E-7
C	5.0E-3	8.9E-2	4.0E-4
Ca	2.8E-3	1.2E-3	1.0E-4
Cl	8.8E-2	6.6E-2	5.3E-4
Fe	6.0E-5	1.2E-9	5.4E-7
K	2.6E-3	7.9E-3	8.2E-5
Mg	2.5E-3	6.3E-8	9.9E-5
Na	1.1E-1	6.5E-2	6.9E-4
S	8.1E-5	5.1E-3	9.8E-5
Si	3.9E-4	3.3E-3	3.6E-4

水中元素濃度の単位：mol/L

表 3.3-22 各水質に基づく元素別溶解度

溶解度 (mol/m ³)	天然バリア	人工バリア緩衝材間隙水（降水系）	
	降水系地下水	還元性地下水	酸化性地下水
Th	1.2×10 ⁻⁵	1.5×10 ⁻⁵	1.5×10 ⁻⁶
U	1.1×10 ⁻⁵	3.1×10 ⁻⁶	5.0
Np	6.2×10 ⁻⁶	9.8×10 ⁻⁷	6.2×10 ⁻⁴
Pu	1.5×10 ⁻³	2.7×10 ⁻⁸	3.3×10 ⁻⁸
Am	3.3×10 ⁻²	4.4×10 ⁻⁵	0.65
Cm	3.3×10 ⁻²	4.4×10 ⁻⁵	0.65

表 3.3-23 人工バリアの分配係数

< m³/kg >

元素	設定値	設定根拠
Am	1E+1	JNC 第2次取りまとめ設定値 ⁽²⁾
Cm	1E+1	JNC 第2次取りまとめ設定値 ⁽²⁾
Pa	1E+0	JNC 第2次取りまとめ設定値 ⁽²⁾
Th	1E+0	実測値 (平成 25 核種移行データ報告書 ⁽⁴²⁾)
U	1E+0	Th のアナログ
Np	1E+0	Th のアナログ
Pu	1E+0	Th のアナログ

表 3.3-24 天然バリア (濃集点を含む) の分配係数

泥質岩の分配係数

< m³/kg >

元素	液相分類	設定値	設定根拠
Th	降水系	7E-2	pHと長石含有率
Am	降水系	8E+1	データベースに収録された全てのAmのデータ数(Kd>0m ³ /kg)のうち泥質岩に分類される岩石は、粘板岩95のみであった。また、液相分類は降水系(酸化性:86、不明:9)のみであった。そこで、上記のデータについて統計値(対数平均:8E+1m ³ /kg、最小値:2E+0m ³ /kg、最大値:8E+2m ³ /kg)を算出した。算出された対数平均を設定値とした。
Cm	降水系	8E+1	Amの化学アナログとして設定した。
U	降水系	7E-2	Thのアナログ
Np	降水系	7E-2	Thのアナログ
Pu	降水系	7E-2	Thのアナログ

(4) 一次元核種移行解析による濃集量評価結果

(a) 人工バリア出口フラックス (燃料デブリ収納容器 1 本あたり)

図 3.3-33 に処分場が還元性環境にある場合 (Case 1 及び Case 6) の人工バリア出口フラックスの経時変化を示す。人工バリア中では U 溶解度制限により、U-235, U-238, U-236 のフラックスが低く抑えられている。一方、U-233 については Np-237 に支配される。次に、図 3.3-34 に処分場が酸化性環境にある場合 (Case 2 及び Case 4) の人工バリア出口フラックスの経時変化を示す。酸化性環境になると人工バリア中で U 溶解度制限にかかわらず U-235, U-238, U-236 のフラックスは燃料デブリからの浸出速度のみによってフラックスが律速されている。また、還元性環境に比べ、酸化性環境の U 核種の最大フラックスは 10~100 倍程度となる。図 3.3-35 に初期に還元性環境で 10 万年度に酸化環境に変化する場合 (Case 3) の人工バリア出口のフラックスの経時変化を示す。10 万年で酸化性環境に変化し、U の溶解度が急激に上昇するため、それまで溶解度制限にかかっていた U のフラックスが急激に上昇する。Pu については酸化性環境に変化しても溶解度に変化はなく、また、濃度も低いことから溶解度制限にかかることはない。U-233 の親核種である Np-237 は酸化性環境で溶解度は上昇するが、溶解度制限にかからないため、フラックスの経時変化は還元環境と大きく変化しない。図 3.3-36 に還元性環境で燃料デブリの浸出率が 10 倍の場合 (Case 5) の人工バリア出口フラックスの経時変化を示す。浸出率が大きくなっても U は溶解度制限にかかるため、U-235, U-238, U-236 の経時変化は Case 1 と変わらない。一方、Case 1~6 では溶解度制限にかからなかった Np が溶解度制限にかかるまで Np-237 のフラックスが増加し、一定期間ピークが平らな形状を示している。Np-237 の子孫核種である U-233 の経時変化はこれを反映している。図 3.3-37 に還元性環境で U 溶解度が 10 倍となった場合 (Case 7) の人工バリア出口フラックスの経時変化を示す。U 溶解度が上昇したため、U-235, U-238, U-236 のフラックス最大値も 10 倍増加した。U-233 については 2 倍程度増加した。

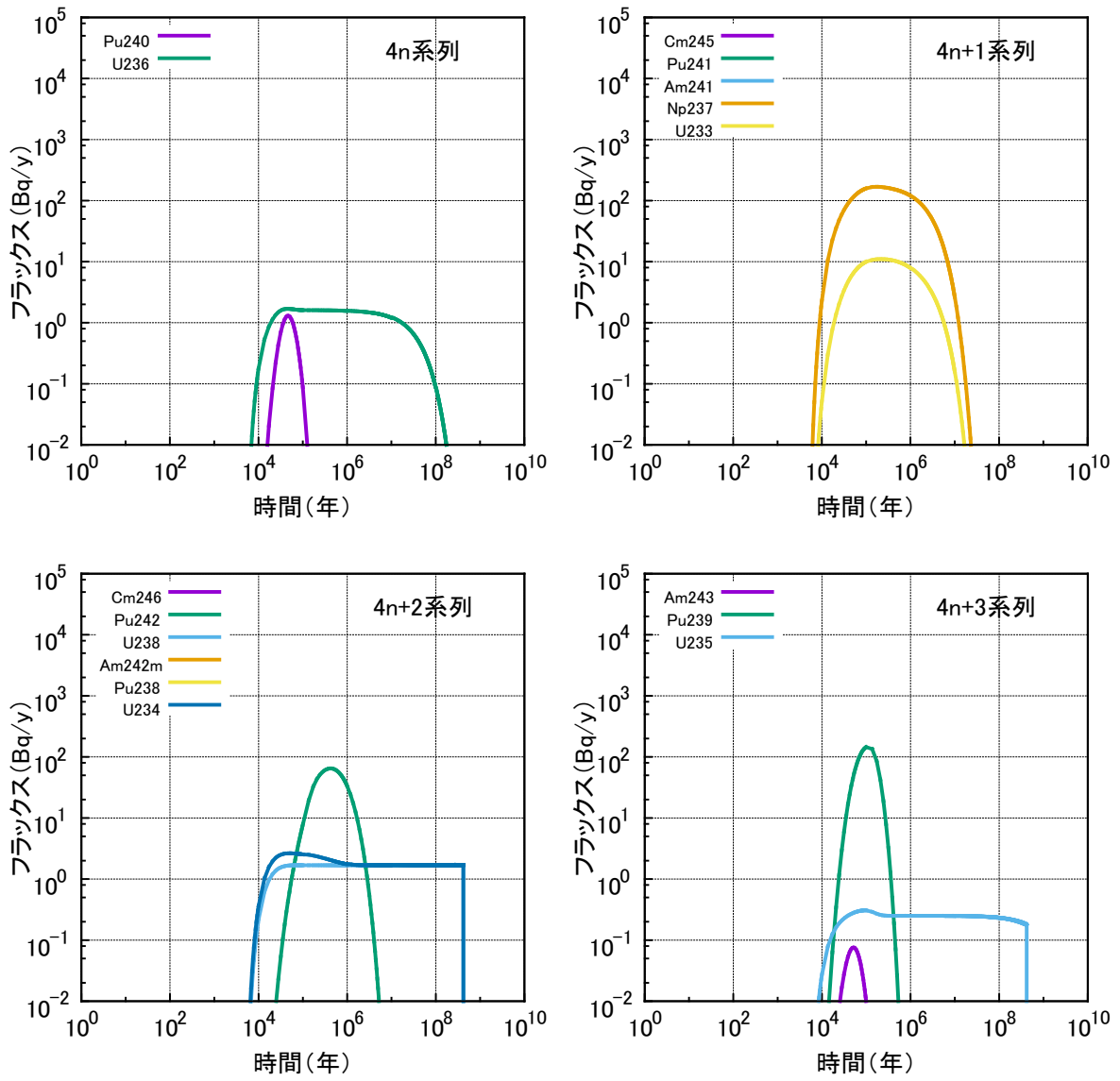


図 3.3-33 人工バリア出口における核種移行フラックスの経時変化 (Case 1,6)

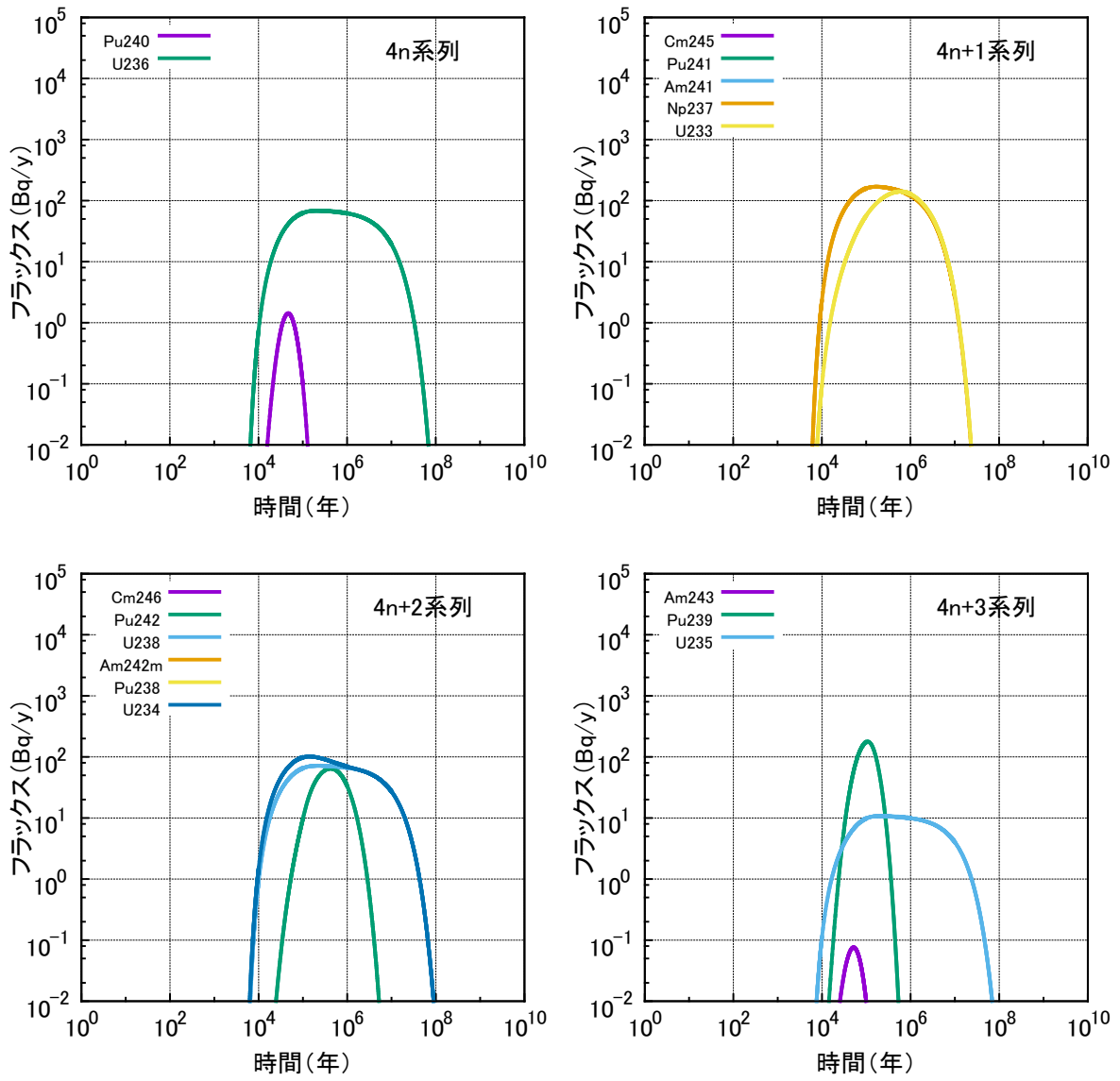


図 3.3-34 人工バリア出口における核種移行フラックスの経時変化 (Case 2, 4)

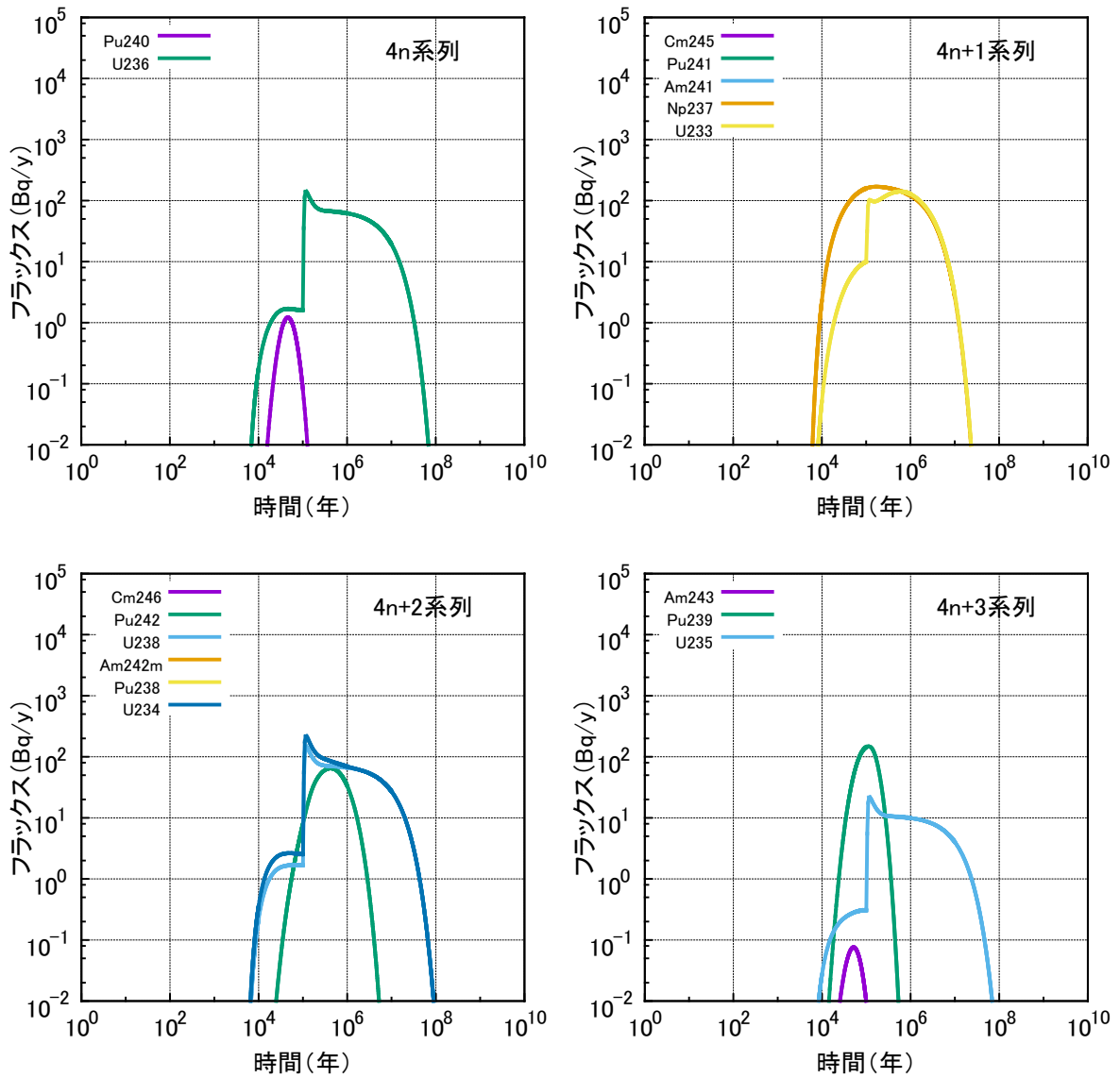


図 3.3-35 人工バリア出口における核種移行フラックスの経時変化 (Case 3)

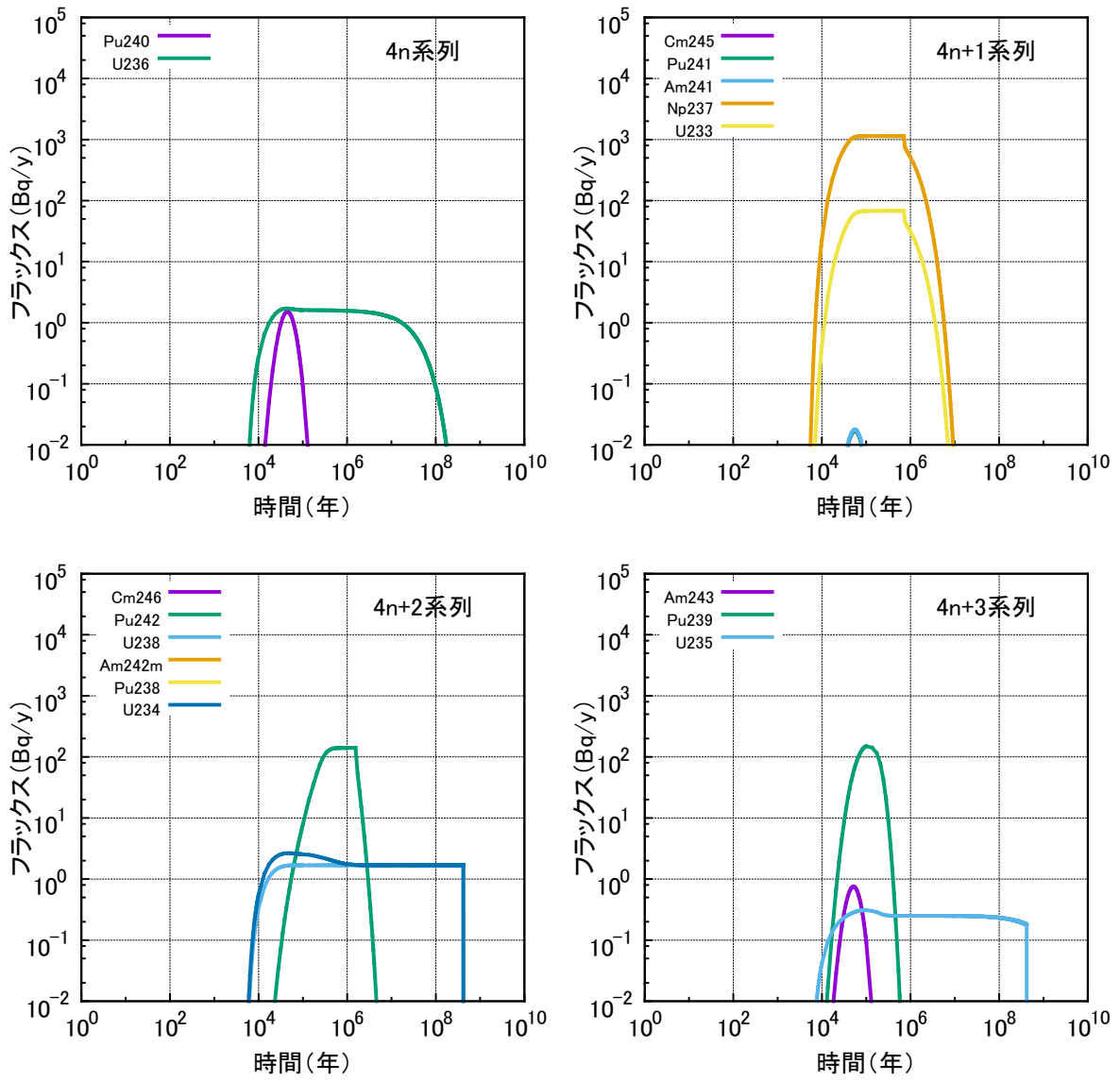


図 3.3-36 人工バリア出口における核種移行フラックスの経時変化 (Case 5)

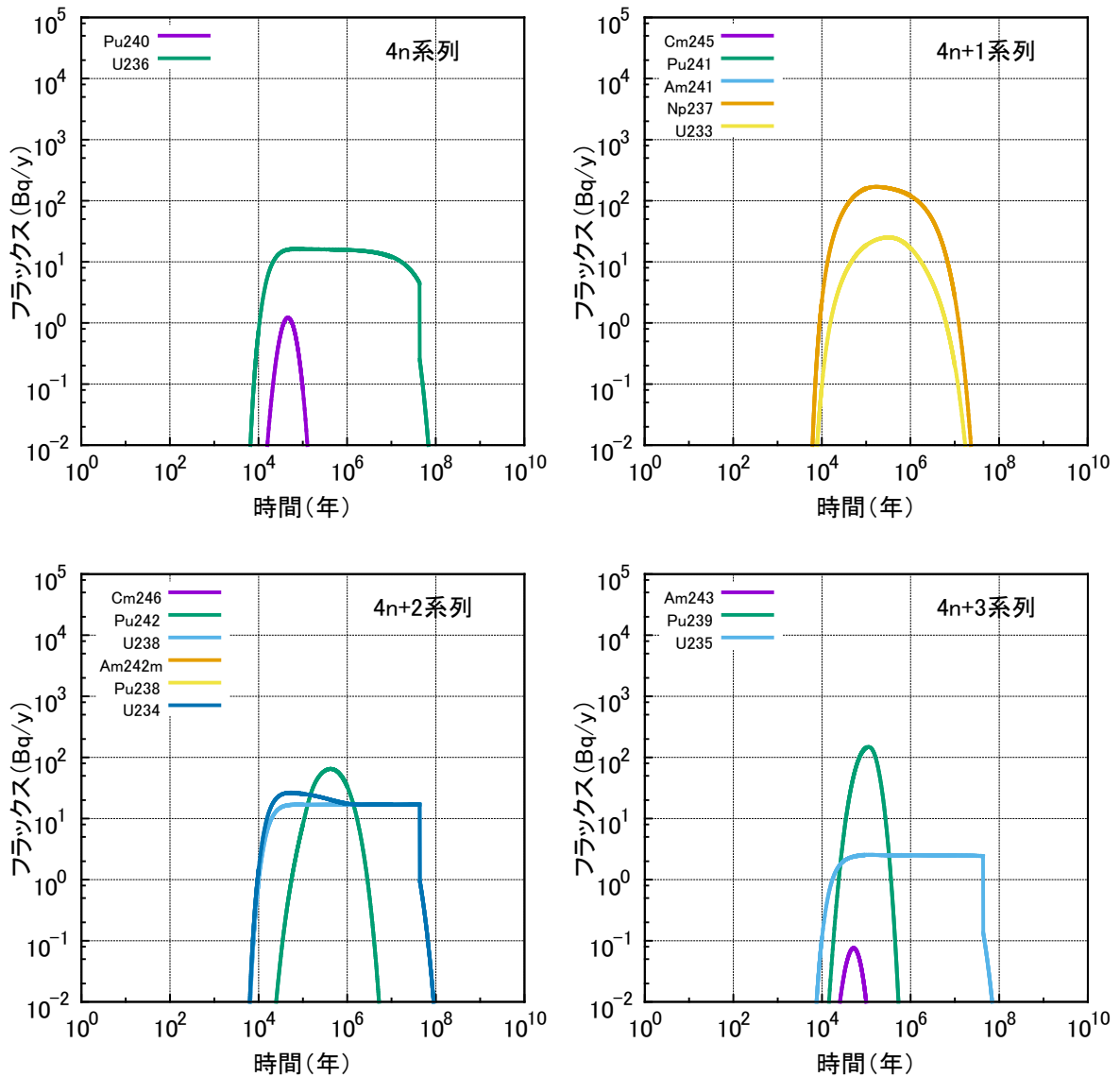


図 3.3-37 人工バリア出口における核種移行フラックスの経時変化 (Case 7)

(b) 濃集点におけるウラン核種の濃集量及び濃縮度の時間変化 (4,139 本合計値)

以下に各ケースの濃集量及び濃縮度の時間変化を示す。濃縮度が 2.25%から低下する前に全ウランの濃集量が 1 トンを超えていれば、既往文献から示される臨界になる最低限の条件を満たす。

濃集量は GSRW-PSA で算出された各ウラン同位体の濃集量及び全ウランの濃集量の合計である。なお、ここで濃集量とは、地下水中に溶解するウラン、地質媒体に収着するウラン、間隙中で沈殿するウランの合計量とした。濃縮度は各ウラン同位体の濃集量から以下の式により算出した。ただし、濃集量が少なくなると誤差が大きく正確な値を得られないため、以降の図では $[U_{233}] + [U_{235}] < 1 \times 10^{-20}$ のときは 0 として描画した。

$$c = \frac{[U_{233}] + [U_{235}]}{[U_{233}] + [U_{234}] + [U_{235}] + [U_{236}] + [U_{238}]} \quad (3.3-16)$$

c : 濃縮度(-)

$[U_n]$: U_n の濃集量(mol)

図 3.3-38 に Case 1 における濃集量及び濃縮度の時間変化を示す。濃集点と設定した場所においては、溶解度制限にかかることなく、地下水中に溶解するウラン及び地質媒体に収着するウランのみで濃集量が表された。500 万年後からウラン濃集量が 1g を超え、約 4 億年後にピークの濃集量を示し、U-238 で 1kg 程度、U-235 で 20g 程度が最大蓄積される。濃集量 1g に満たない 100 万年の時点で濃縮度は 2.7% 程度のピーク値を示すが、濃集量がピークを示す約 4 億年後では 1.7% まで低下している。

図 3.3-39 に Case 2 における濃集量及び濃縮度の時間変化を示す。処分時点から酸化性環境であり、高い溶解度で人工バリア出口のフラックスが高い。100 万年程度から濃集量は上昇を始めるが、この時点では溶解度制限にかからず、1,000 万年を過ぎてから地下水中のウラン濃度が溶解度を上回り、沈殿を開始し、濃集量が急激に上昇した。1,000 万年を過ぎたあたりから濃集点において濃集量 1g を超え、2,000 万年より前に 1 トンを超え、1~2 億年後かけて最大 66 トン程度となった。濃縮度は濃集量が 1 トンを超える時期では 2.25% 程度で濃集量が最大となる時期には 2.0% 程度まで低下する。酸化性環境で溶解度が上昇し、地下水中のウラン濃度が上昇する条件では、濃集点でウラン濃集量は 1 トンを大きく超える結果となった。

図 3.3-40 に Case 3 における濃集量及び濃縮度の時間変化を示す。Case 2 における酸化性環境が 10 万年後に切り替わるケースであるが、Case 2 と Case 3 の天然バリア出口におけるフラックスの時間変化に差異は見られない。濃縮度の時間変化も Case 2 と同様となった。したがって、還元性環境を維持する期間は 10 万年程度ではウラン濃集量を有意に減少させることはできなかった。

図 3.3-41 に Case 4 における濃集量及び濃縮度の時間変化を示す。Case 2 と同様の設定だが、濃集点までの移行距離が 10 倍の 1,000m のケースである。濃集点と設定した場所においては、溶解度制限にかかることなく、地下水中に溶解するウラン及び地質媒体に収着するウランのみで濃集量が表された。1~2 億年後にかけて濃集量が 1g を超え、7~8 億年後に濃集量が最大となるが、その量は 300g 程度となった。最大の濃集量を示す時点での濃縮度は 1.5% であった。以上より、燃料デブリ処分後、仮に酸化性環境に変化しても、濃集点までの移行距離が十分に確保できる条件がある場合、ウラン濃集量を 1 トン未満に抑えられる可能性がある。なお、解析では幌延サイトの地下水流動条件を用いているため、地下水流速は比較的遅い条件となっている。

図 3.3-42 に Case 5 における濃集量及び濃縮度の時間変化を示す。燃料デブリの浸出率が 10 倍のケースであるが、Case 1 と同様に 500 万年後からウラン濃集量が 1g を超え、約 4 億年後に濃集量がピークの 1kg 程度を示した。人工バリア出口のフラックスが溶解度に支配されているため、浸出率が大きくなっても濃集量には影響がない結果となった。一方、濃縮度については、濃集量が 1g に満たない 100 万年近辺に限定されるがピーク値 4.0% を示した。これは、ウラン濃集量は 1g に満たないため臨界可能性は否定される。しかし、燃料デブリの内容が変化しなければ濃縮度の上昇は最大 2.25% までであり、核種移行を伴うことによってある濃集点での濃縮度が元素別核種パラメータの違いによって大きく上昇する可能性があることを示している。この結果は安ら⁽⁴³⁾の評価と整合するものである。濃縮度が 4% 程度まで上昇する要因として、浸

出率が上昇することにより、図 3.3-36 に示したように Np-237 の人工バリア出口フラックスが上昇して、あわせて U-233 も上昇する。

図 3.3-43 に Case 6 における濃集量及び濃縮度の時間変化を示す。濃集点における U 溶解度が標準に対して 1/100 であるケースである。1,000 万年後からウラン濃集量が 1g を超え、約 4 億年後にピーク値 211 トンを示した。本条件では全量 257 トンのウランのうち、82% が濃集する結果となった。還元性環境が維持されても、濃集点の U 溶解度が極端に小さい場合には、地下水中のウランのほとんどが沈殿して濃集することを示唆している。濃縮度の変化については Case 1 と同様であり、濃集量がピークとなる 4 億年では 1.7% 程度まで低下した。

図 3.3-44 に Case 7 における濃集量及び濃縮度の時間変化を示す。還元性環境が維持されているが、人工バリア中の U 溶解度が 10 倍高いケースである。人工バリア出口のフラックスが 10 倍高く、地下水中のウラン濃度も 10 倍になっており、2,000 万年程度からウラン濃集量が 1g を超え、1~2 億年後にピーク値 62.3 トンを示した。Case 2, 3 とほぼ同様の挙動であるが、ウラン濃集量が 1g を超える時期がそれらよりもやや遅く、ピーク値も約 5% 減少した。

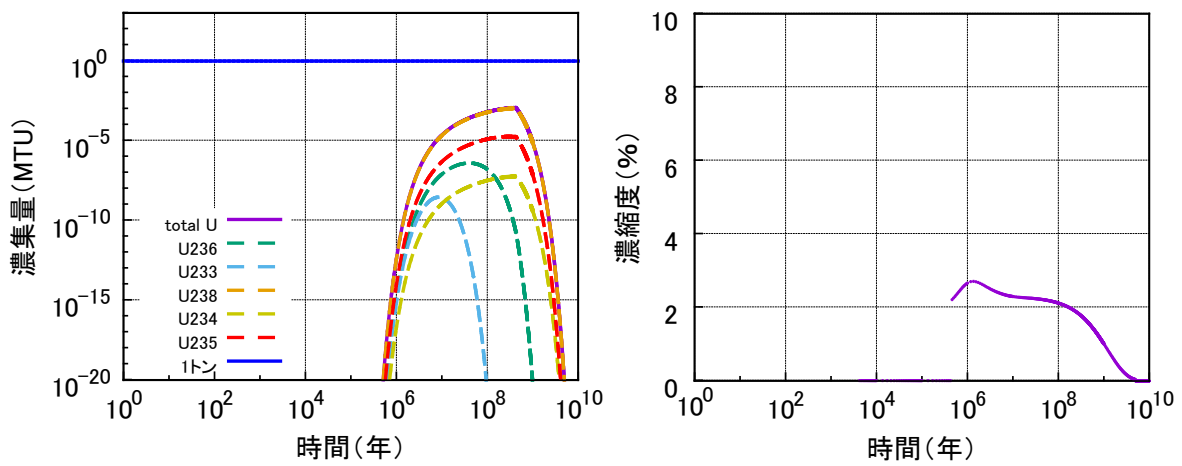


図 3.3-38 濃集点におけるウラン核種の濃集量及び濃縮度の経時変化 (Case 1)

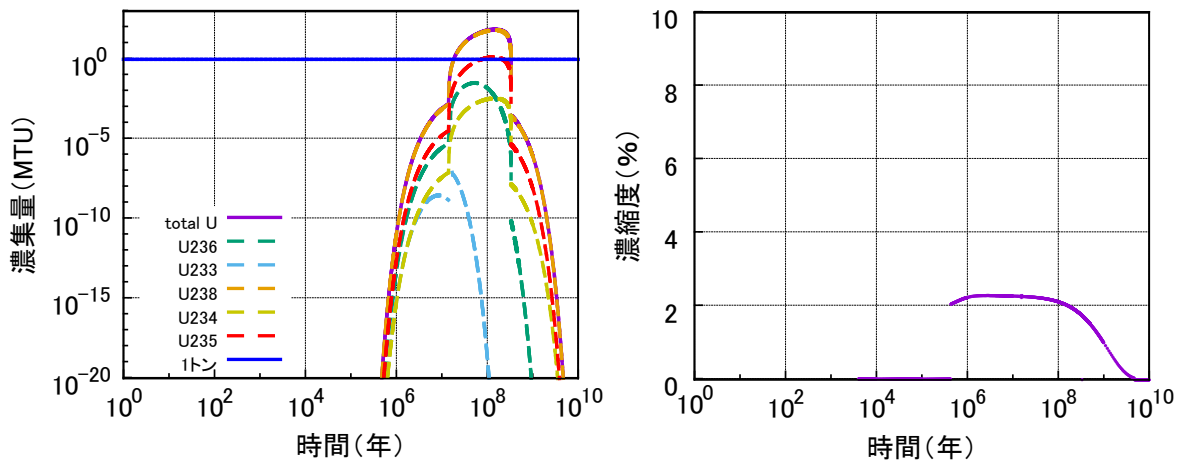


図 3.3-39 濃集点におけるウラン核種の濃集量及び濃縮度の経時変化 (Case 2)

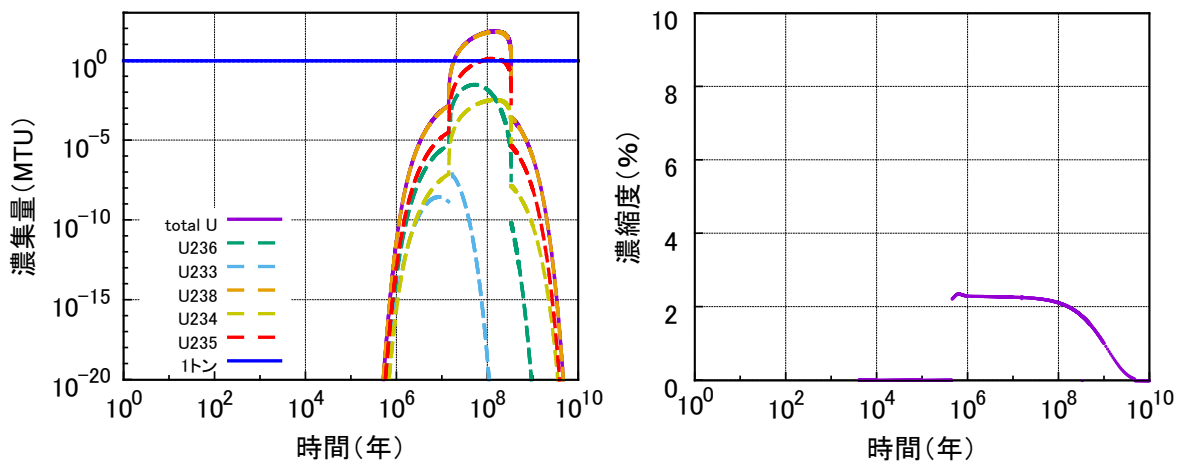


図 3.3-40 濃集点におけるウラン核種の濃集量及び濃縮度の経時変化 (Case 3)

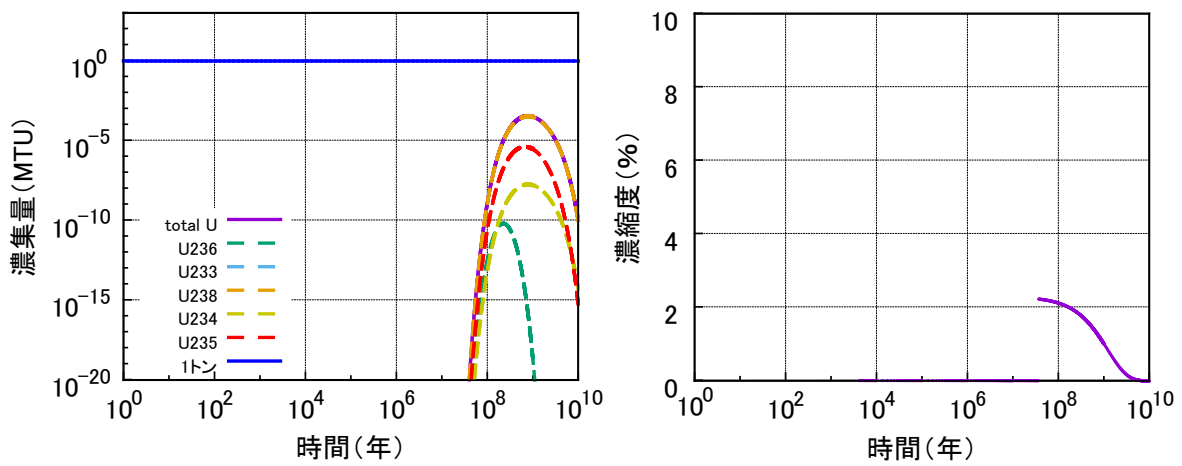


図 3.3-41 濃集点におけるウラン核種の濃集量及び濃縮度の経時変化 (Case 4)

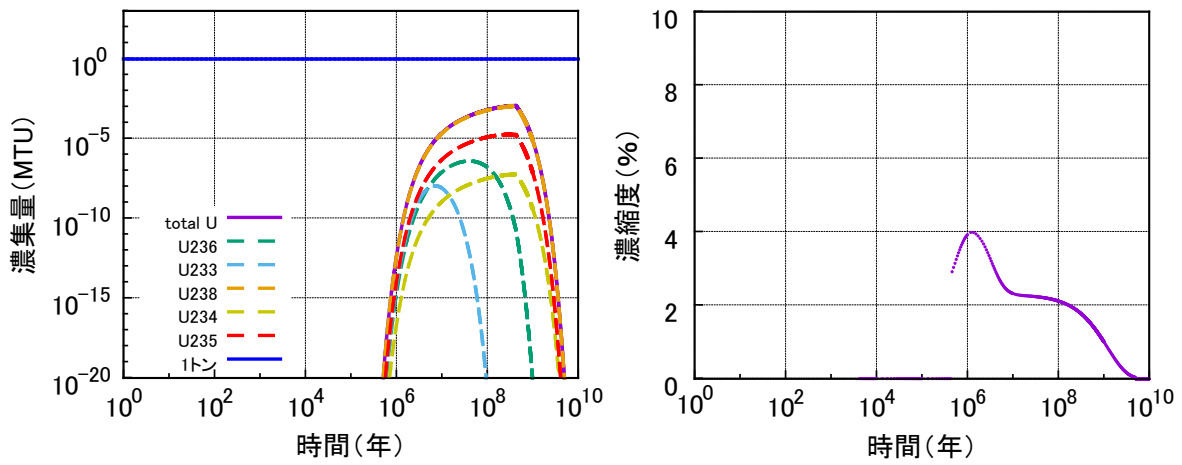


図 3.3-42 濃集点におけるウラン核種の濃集量及び濃縮度の経時変化 (Case 5)

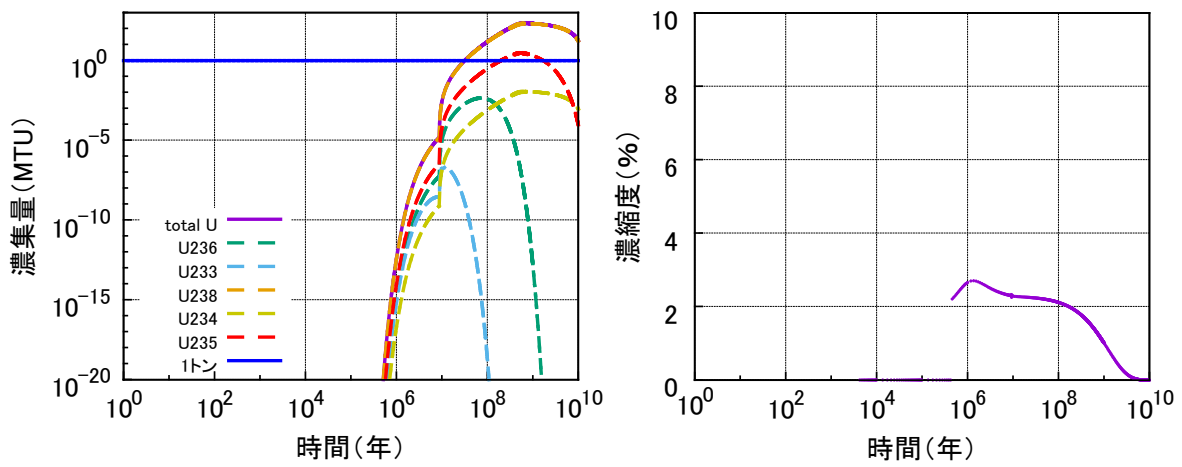


図 3.3-43 濃集点におけるウラン核種の濃集量及び濃縮度の経時変化 (Case 6)

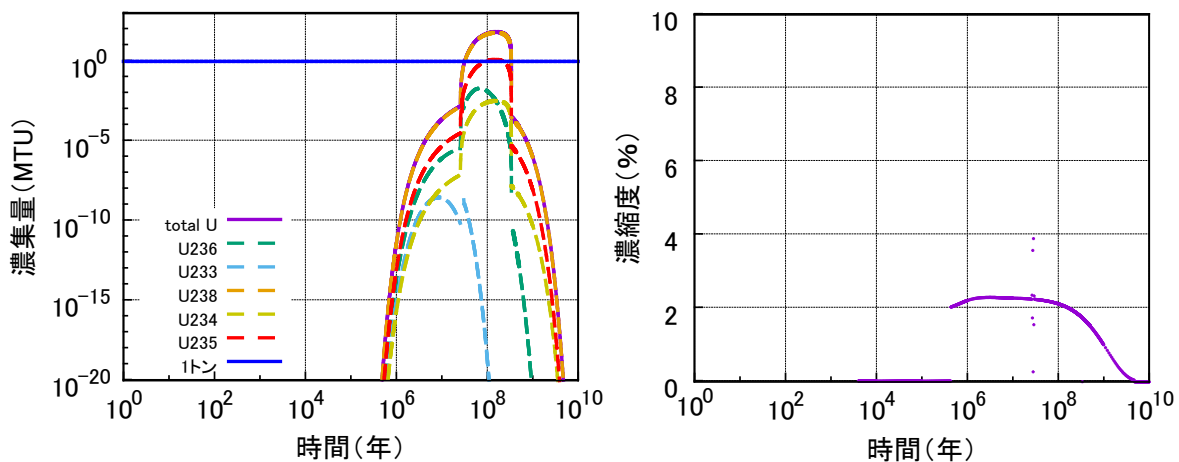


図 3.3-44 濃集点におけるウラン核種の濃集量及び濃縮度の経時変化 (Case 7)

表 3.3-25 に濃集点におけるウラン核種の濃集量及び濃縮度の経時変化評価結果のまとめを示す。還元性環境及び酸化性環境にかかわらず、人工バリアの U 溶解度が濃集点の U 溶解度よりも高くなる条件でウラン濃集量が 1 トンを超える結果となった、特に、今回の解析条件では濃集点での U 溶解度の感度が大きい結果となった。浸出率を 10 倍にしても U は緩衝材中で溶解度制限を受けるため濃集量に変化はなかったものの、Np-237 及び U-233 の人工バリア出口でのフラックスが比較的早い時期に上昇するため、100 万年前後の濃縮度の時間変化に影響を与えた。また、処分場に酸化性環境となっても濃集点までの移行距離が 1,000m で地下水のトラベルタイムが 1,000 万年程度となると濃集量は 1 トンに達しない結果となった。これは幌延サイトの地質、水質条件に基づく地下水流速を用いていることも要因の一つとなっている。

表 3.3-25 濃集点におけるウラン核種の濃集量及び濃縮度の時間変化のまとめ

ケース	浸出率 (1/y)	処分場環境	人工バリア中 U 溶解度 (mol/L)	濃集点溶解度 (mol/L)	濃集点までの移行距離	ウラン最大濃集量 (トン)	最大濃集量時の濃縮度 (%)
Case 1	1.0×10^{-7}	還元性	3.1×10^{-6}	1.1×10^{-5}	100m	0.001	1.7
Case 2	1.0×10^{-7}	酸化性	5.0	1.1×10^{-5}	100m	66.1	2.0
Case 3	1.0×10^{-7}	還元性 → 酸化性 (10 万年で切替)	3.1×10^{-6} → 5.0	1.1×10^{-5}	100m	66.1	2.0
Case 4	1.0×10^{-7}	酸化性	5.0	1.1×10^{-5}	1,000m	0.0003	1.5
Case 5	1.0×10^{-6}	還元性	3.1×10^{-6}	1.1×10^{-5}	100m	0.001	1.7
Case 6	1.0×10^{-7}	還元性	3.1×10^{-6}	1.1×10^{-7}	100m	211	1.7
Case 7	1.0×10^{-7}	還元性	3.1×10^{-5}	1.1×10^{-5}	100m	62.3	2.0

(5) まとめ

1F 燃料デブリの処分にあたっては、HLW と比較して放射能インベントリ中のウラン量が多いことから、処分容器内で臨界を排除できても、長期間にウランが処分場から漏出して、天然バリア中のある場所に集積して、臨界条件に到達する可能性が指摘されている。臨界になれば熱及びFP ガスの発生など、核種移行を促進させ、天然バリア出口における核種移行フラックスを上昇させることが懸念される。そこで、核種移行の観点から、ウランが天然バリア中で臨界条件を達成する程度集積する可能性があるかについて、解析的に検討を行った。

まず、既往の研究より、砂岩中で臨界に到達するのに最低限のウラン質量を見積もった。30%の間隙率をもつ地質媒体中で2.25%濃縮ウラン1 トンが集中的に濃集すれば、臨界になる最低限の条件を満たすことから、燃料デブリ中の総ウラン量257 トンのウランが、どのような条件で1 トンを超えて濃集するかをGSRW-PSAによる一次元核種移行解析によって評価した。また、各ウラン核種の濃集量から、濃縮度の時間変化についてもあわせて評価した。なお、ウラン量1 トンは臨界となる最低限の必要条件であり、臨界に適した配置でなければ臨界とはならない。

堆積岩サイトである幌延サイトの水質条件を利用して、核種移行解析を行った。その結果を以下に示す。

- ・ 酸化性環境ではウランの溶解度が高く、人工バリア出口のフラックスが還元性環境と比較して2桁程度高くなった。地下水中のウラン濃度もそれと比例して高くなり、濃集点のU溶解度に支配されてウラン濃集量は66.2 トンと1 トンを大きく上回る結果となった。さらに当初還元性環境で10 万年後に酸化性環境に変化する場合でも、同様の結果となり、10 万年程度の時間遅れでは濃集点のウラン濃集量に影響を及ぼさなかった。一方、酸化性環境でも濃集点までの移行距離が10 倍になると放射性核種の崩壊による減少によって、濃集量の最大値は300g 程度と解析ケース中最小値を示した。
- ・ また、還元性環境を維持するケースでも、濃集点におけるU溶解度が非常に小さい条件（標準ケースの1/100）では、濃集量は1 トンを大きく超え、221 トンと全ウラン量の86%が濃集し、解析ケース中最大となった。このほか、人工バリアのU溶解度が高い場合にも1 トンを超える濃集量となった。
- ・ 一方、燃料デブリの浸出率が高いケースでも、人工バリア中の溶解度によって、人工バリア出口のフラックスが律速されるため、ウラン濃集量へは影響がなかった。
- ・ 濃縮度の時間変化については、濃集量が1 トンを超えるケースでは、その時点では2%をわずかに超える程度となるが、濃集量が最大となる時点（1~4 億年程度）では2%以下となり、ウランが十分な量濃集したとしても濃縮度が低下することにより臨界可能性が低下していると考えられる。一方、溶解度の高いNp-237が浸出率が上昇するケースでU-233のフラックスを上昇させ、1g未満が濃集する時期ではあるが、濃縮度が一時的に4%程度まで上昇する結果が示された。

以上のことから、天然バリアにおける水質環境の切替わりにおいて、U溶解度が極端に小さくなる条件がウラン濃集量に大きな影響を与えるパラメータとなった。これは処分場が酸化性環境でも還元性環境でも、1 トン以上のウラン濃集量が得られるものである。

本解析では、いかなる条件でもウラン濃集量が1 トンに満たないということを示せず、臨界となる最低限の濃集量がいくつかのケースで得られる結果となった。一方、濃集点でのウラン濃縮度の時間変化を評価することにより、1 トンを超える十分な濃集量があっても、最小臨界質量の前提である濃縮度2.25%よりも低くなるケースもあり、濃縮度をパラメータとした臨界解析と組み合わせた評価が今後必要となる。

なお、本年度の解析は、地下水流速の比較的小さい条件で行ったものであり、地下水流速が大きくなると地下水中のウラン濃度が低下することも想定されることから、今後は地下水流速をパラメータとした解析を実施する必要がある。また、酸化性環境と設定した場合に燃料デブリの溶出率など連動して変化するパラメータについて、適切な相関を与えていない条件でケース解析を実施した。今後は、連動するパラメータについて整理したうえで、適切な設定の下で引き続き解析を実施する必要がある。

さらに、上述したように、1 トンを超えるウランの濃集が直ちに臨界条件を満たすものではない。今回の濃集量評価では最大 211 トンのウランが濃集する結果となったが、仮に 257 トン全量が濃集しても、濃集の形状、ウラン配置によっては臨界とならない。例えば、地質媒体中でウランが沈殿すれば、間隙中にウランが存在することにより、間隙率が低下して、局所的に地下水流動が変化することが考えられる。これは、ウランが 1 点に濃集できない可能性を示唆している。また、水質の切替わりの変化はステップ状ではなく、ある程度の幅で勾配を持つことも想定される。このこともある広がりを持ってウランが濃集する可能性を示唆している。こうしたことから、濃集する場合のウランの配置、核種移行経路の 3 次元的な広がり、水質が切り替わる境界面などに着目し、必要に応じて臨界解析を実施して、臨界発生の可能性について検討を行う必要がある。

3.4 まとめ

3.4.1 燃料デブリ特有の特性を踏まえたシナリオ設定

(1) 仮想燃料デブリからの核種溶出

1F1～3号機の格納容器内に落下したと考えられている燃料デブリについては、その取出しに向けて調査が進められているが、処理・処分に向けた燃料デブリの性状把握、特に燃料デブリからの核種溶出については実際の燃料デブリサンプルを取得して分析・評価される必要がある。

燃料デブリからの核種の溶出については、基本的に使用済み燃料と同様に、UとZrの溶融固化物のマトリクス溶解に支配されると考えられる。これまでに汚染水への核種溶出の観点から、模擬燃料デブリ(U,Zr)O₂の過酸化水素水溶液への溶出反応、処理・処分へ向けた検討のために、中性子照射した模擬燃料デブリからのウランおよびFPの溶出挙動について、研究が行われており、これらの結果は今後の燃料デブリの核種溶出データ整備に向けた足がかりになるものと期待される。しかしながら、現状において、燃料デブリに直接適用可能な核種溶出データの情報は得られていない。そこで、使用済み燃料の直接処分について検討を進めている外国の取り組み、わが国における検討などを参考に、燃料マトリクスからの溶出に関するデータを整理した。

Nagra⁽¹⁾は使用済み燃料の直接処分の検討において、燃料マトリクスの溶解速度の時間変化を設定した。アルファ線による放射線分解において酸化種が発生することにより溶解速度が律速され、埋設初期には10⁻⁴/yと高いが、放射線の減衰に伴って100万年後には溶解速度は10⁻⁸/y程度まで減少するとしている。

直接処分第一次とりまとめ⁽²⁾では、これまでにいくつかの外国の機関で取得されたデータから長期的な評価に用いる燃料マトリクスの溶解速度として10⁻⁷/yが適切であるとしている。

しかしながら、燃料マトリクスの溶解速度の設定には3桁以上の幅があり、この不確実性による核種移行への影響を定量的に把握しておく必要がある。また、直接処分では埋設後に浸入する地下水への瞬時放出成分が大きく寄与すると考えられるが、燃料デブリはすでに事故後に冷却水にさらされており、そうした瞬時放出成分の不確実性も想定される。したがって、以上の整理結果をもとに、第6章において核種溶出率や瞬時放出成分割合に関して適宜不確実性の幅を設定した感度解析を行い、これらの不確実性が核種移行に与える影響を予察的に検討した。

(2) 放射線による人工バリア材の劣化

平成22年度～平成26年度の事業において、ガラス固化体の地層処分を対象として構築したFEPデータベースを対象とし、人工バリア材の安全性に影響の可能性のある事象のうち、放射線の影響について調査を実施した。最新の「安全性への影響の可能性」における理解の現状とそれに対するJAEAの判断から、「放射線が地下水の組成を変化（酸化還元反応、ガス発生等）させる可能性」、「放射線が緩衝材に対し放射線影響を及ぼす可能性」、「放射線が緩衝材中でのコロイド形成に影響を及ぼす可能性」が抽出されたものの、いずれの可能性も放射能の高いオーバーパック（以下、OP）の早期破損時を前提とする限定的なものであった。また、早期破損時であっても「地下水組成変化、コロイド形成への影響の可能性が残される、または現在の知見では不明」とどまっていた。

廃棄体1体あたりの放射能が高いガラス固化体であっても、緩衝材自体への影響はOPが健全な時点では小さく、早期破損時においては不明と判断されていることから、デブリの場合には早期破損時のみ、地下水組成変化、コロイド形成への影響の可能性が残されるものと考えられた。特にデブリ廃棄体固有の要因として廃棄体内でのガス発生の可能性が高いことと、初期欠陥や水分除去の見逃しによりOP早期破損へと連鎖するシナリオが想定されたため、OP早期

破損による影響評価を実施した。

福島第一原子力発電所1号機から3号機に存在すると考えられている燃料デブリ全量の放射能インベントリがガラス固化体のキャニスタ1本に収納されているとし、リファレンスケースの人工バリア設計条件で、OP寿命を100年、1,000年、4,000年の3ケース設定した解析を降水系地下水環境下の設定で実施した。なお、この解析は、仮想燃料デブリ Ver.1 が設定される前に実施したものであるため、インベントリは仮想デブリ Ver.1 と異なっている。解析の結果、Se-79、Cs-135、4n+1 核種全てで、早期破損に伴う人工バリアからのフラックスの立ち上がりへの影響はあるものの、ピークフラックスへの影響はほとんど見られなかった。

今後の課題として、燃料デブリからの核種の溶出率等のデータの適用や、4n+1 系列以外の核種を含めた解析、ガス放出による緩衝材性能の劣化、放射線影響として想定される地下水の化学組成などによる核種移行パラメータ（溶解度や分配係数など）の変化も含めた検討が必要になってくる。この課題への対応のひとつとして、広範囲なパラメータを対象とした感度解析は、シナリオに対する今後のパラメータ設定の検討に有効であると考え、実施することとした（第6章3節）。

(3) 処分場閉鎖後10年以上の長期にわたる人工バリアの変質挙動

10年以上の人工バリア（OPと緩衝材）の変質挙動を評価する必要性が生じる状況を判断する際のポイントとして、「10年時点で、核種の一定割合（例えば少なくとも半分以上）が人工バリア内に存在し、かつ、浸出抑制・移行抑制の何れかの機能が喪失していない場合」を導出した。

上記「」内の状態が、これまで実施した調査事業の解析結果において、どのようになっていたかを検討し、シナリオ設定に関する情報を抽出した。平成25年度、平成26年度を合わせ、人工バリア変遷解析を全46ケース実施し、その内核種移行解析を引き続き26ケース実施した。これら26ケースについて人工バリアからの核種移行フラックスを検討した結果、ガラス固化体を対象とした高レベル廃棄物の地層処分においては、OP寿命が解析上の現設定である4,000年の場合、Se-79、Cs-135は10年以上の長期にわたる人工バリアの変質挙動のシナリオ設定には影響されず設定の必要性は低いこと、Np-237（4n+1系列核種）は設定の必要性を検討する意義があることが明らかになった。

ガラス固化体と燃料デブリとの相違として、スウェーデンにおけるキャニスタに対する安全機能指標基準として設定される100年の閉じ込め機能を設定した場合やガラス固化体の溶解モデルと燃料デブリの溶解モデルが異なる場合については、Se-79、Cs-135も人工バリアからのフラックスが10年以降も継続する可能性があり、溶解速度、OP寿命の不確実性を含めたパラメータを対象とした感度解析が今後のシナリオの絞り込みやパラメータ設定の検討に有効であると考え、予察的な解析を実施することとした（第6章3節）。

また、これまでデフォルトとして「10年時の人工バリアの変遷に関する設定をそれ以降も継続させる」となっている設定が合理的かを検討するため、10年時点で緩衝材性能が喪失するとしてシナリオ設定が抽出された。これら2つの設定で10年以降の人工バリアからのフラックスにどの程度の違いがあるのかについて影響解析を行うため、性能が喪失した人工バリア（緩衝材）の性能設定について検討し、有効モンモリロナイト密度ゼロとそれを基にした核種移行パラメータ設定をすることなどを提示した。これらのシナリオ設定の違いによる影響解析を実施することとした（第6章2節）。

(4) 廃棄体からの発熱

HLW 地層処分においては、ガラス固化体からの発熱の影響の最優先条件を緩衝材中の最高温度とし、これを 100°C 未満とするための検討が実施された。その手順として、熱伝導解析を実施する前に、空洞安定性からの制限として、隣接する処分坑道または処分孔どうしが有意な力学的影響を受けない処分坑道離間距離または処分孔間隔が確保される必要性について検討を実施している。その結果、処分孔縦置き方式の処分体系に対する解析に基づく坑道離間距離および処分孔間隔が以下のように求められている。

- ・ 処分坑道離間距離 = $2D$ (硬岩系岩盤)、 $=2.6D$ (軟岩系岩盤)、
ここで D : 処分坑道直径 = 5m、
- ・ 廃棄体ピッチ = $2d$ (硬岩系岩盤)、 $=3d$ (軟岩系岩盤)、
ここで d : 処分孔径 = 2.22m、

この最も廃棄体の充填密度が高くなる配置で 3 次元体系の熱伝導解析が有限要素法汎用解析コード FINAS により実施され、その結果、緩衝材中の最高温度は 100°C 以下で、最も温度の上昇した硬岩系の場合でも、最高温度 80°C 強であり、定置後 10~20 年で到達していた。

ガラス固化体と同じ処分孔縦置き方式の処分体系にてデブリ廃棄体を処分する限り、デブリの方が発熱は小さいため、緩衝材の最高温度は 100°C を超えない。また、処分孔縦置き方式の場合には空洞安定性を担保するためには、上記体系以上に高密度の体系となる処分設計は不適切になるため実現できない。一方、処分孔横置き方式の処分体系は、処分孔縦置き方式と比較して空洞安定性を満たす棄体の配置を処分坑道離間距離は約 2.3 倍、廃棄体ピッチは 1.4 倍 (~軟岩系では 2.1 倍) 高く配置することが可能である。

ガラス固化体の場合には、この配置で熱伝導解析を実施した結果からは、緩衝材の最高温度が、硬岩系で約 165°C、軟岩系で約 135°C まで上昇することが示されているが、燃料デブリの場合にはガラス固化体よりも発熱量が低いため、この配置であっても緩衝材の最高温度が 100°C を超えない可能性はある。これらのことから、デブリ廃棄体を処分した場合の緩衝材の最高温度の変遷は「ガラス固化体リファレンスケース相当~処分時に既に地温相当まで低下」の範囲の想定ができる。したがって、予察的解析のための設定として、この範囲の両端に相当する 2 ケースを検討することとした。すなわち、

- ・ これまでのガラス固化体の発熱による緩衝材温度変遷を踏襲したケース
- ・ 処分深度の地温 (47°C) 一定とするケース

これらのシナリオ設定の違いによる影響解析を実施することとした (第 6 章 2 節)。

(5) 海水成分、セメント成分等の溶出による処分環境への化学的影響

格納容器下部に落下した溶融燃料は、コンクリート基礎とコア・コンクリート反応 (MCCI : Molten Core Concrete Interaction) を引き起こす。コンクリートは、MCCI の影響を受けることで $\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ (灰長石・anorthite)、 CaSiO_3 (硅灰石・wollastonite) が生成する。

MCCI 生成物を格納容器底部等から回収する際には、廃棄物を全量回収するため、MCCI 生成物周囲の MCCI の影響を受けていないコンクリート部分を含めて回収することが考えられる。また、MCCI 生成物や燃料デブリが周囲のコンクリート部分に飛散した場合にも、同様に、熱の影響を受けていないコンクリート部分も含めて回収することが考えられる。このため、廃棄体に MCCI 生成物とともにセメント成分が混入する可能性をシナリオとして排除することは難しいと思われる。そこで、廃棄体に封入される MCCI 生成物の量が増加するとともに、セメント成分も増加するシナリオを想定し、下記の 3 ケースで影響解析を実施することとした (第 6 章 2 節)。

- ・ 廃棄体に MCCI 生成物の混入なし (= ガラス固化体と同じ設定)
- ・ 廃棄体に MCCI 生成物 15%、普通セメント 15% が混入
- ・ 廃棄体に MCCI 生成物 30%、普通セメント 30% が混入

海水による冷却により溶融体表面析出反応物として (Na, Ca)UO_{4-x}、また、高熱の影響を受けていない海水塩の成分 (NaCl、MgCl₂、MgSO₄、CaSO₄、KCl または Mg(OH)₂、MgCO₃、Ca(OH)₂、CaCO₃ など) は、燃料デブリ取出し時や廃棄物容器への収納時に極力取り除かれると考えられるものの、廃棄体に混入する可能性を完全には否定できない。前者は U 酸化物の塩析物であり、デブリの U の溶出速度の設定に影響を与える可能性はあるものの、直接的に人工バリアの変質へ影響する可能性は現時点で不明なため、後者の緩衝材性能への影響について、今年度は予察的に降水系地下水と海水成分を含む降水系地下水を想定した地下水として海水系地下水の 2 つの地下水を対象として、下記の体系により検討することとした (第 6 章 2 節)。

- ・ 緩衝材と降水系地下水とが直接接触する体系設定 (支保工無し)
- ・ 緩衝材と海水系地下水とが直接接触する体系設定 (支保工無し)

3.4.2 燃料デブリ特有の特性を踏まえた予察的解析

(1) 水の放射線分解等によるガス発生解析

本年度は、現状の燃料デブリに関する情報に基づいて、水の放射線分解及び金属の腐食によるガス発生について、ガス発生速度ならびに発生量の試算を行い、どのようなガス影響が起り得るかについてシナリオの検討を行った。

(a) オーバーパック内側での内圧上昇による早期破損の可能性

オーバーパック内側に関しては、水の放射線分解によるガス発生速度が支配的となり、水の存在量が有限であることを考慮して、水の枯渇する期間 (約半年) までガス発生が継続するものとして累積ガス発生量を求めた結果、水 1L を仮定した場合、ガス発生量はおよそ 1.9 m³ となった。また、廃棄物容器における燃料デブリの充填率を 90% (空間割合 10%) と保守的に仮定した場合、発生したガスによる蓄積圧力は約 14MPa (図 3.3-9) となり、オーバーパックの設計圧力である約 55MPa を超えることはないものと判断された。

(b) ガス蓄圧による力学的影響の可能性及び間隙水押し出しの可能性

オーバーパック外側に関しては、処分後経過時間により 3 つの期間に分けてガス発生速度を設定した。すなわち、オーバーパック破損時期である 4,000 年までは、オーバーパック外側での金属の嫌氣的腐食によるガス発生のみであり、4,000 年から 19,000 年 (腐食による金属の消失) まではそこにオーバーパック内側での放射線分解及び金属腐食によるガス発生が付加され、オーバーパックが腐食により消失する 19,000 年後では、オーバーパック内側での放射線分解のみが継続するものとした。

ガス蓄積の可能性について検討するため、それらのガス発生速度に関して、地下応力条件と拡散係数をパラメータとしたときの溶存水素ガスの拡散移行速度との比較を行った。その結果、ほぼすべての条件において、水素ガス発生速度が溶存水素ガスの拡散移行速度を上回っており、オーバーパックと緩衝材の界面に蓄積する可能性が示唆された。また、保守的に溶存水素ガスの拡散移行を考慮せず、発生したガスがすべてオーバーパックと緩衝材の界面に蓄積とした場合のガス蓄積圧力を評価した結果、数千年から 1 万数千年で諸外国において想定されている地圧 (スウェーデン: 15~25MPa、スイス: 35MPa) や、ガス発生が停止すると考えられる平衡圧力 (50~100MPa)⁽³⁾ を超えてしまう結果 (4,000 年で約 35MPa、6,000 年で約 55MPa、14,000

年で約 101MPa) となった (図 3.3-13)。このようにオーバーパックと緩衝材の界面においてガス蓄積が生じる場合には、人工バリア及び周辺岩盤への力学的影響の可能性を検討する必要がある。

しかし、実際には、緩衝材はガスがある一定の圧力 (破過圧) に達すると破過することが知られており、一般にその破過圧は地圧よりは低いため、ガスは緩衝材や周辺岩盤に力学的な影響を与える前に、緩衝材を破過すると考えられる (棚井ほか (1996) ⁽⁴⁾) ことから、本計算結果のようにガス蓄積圧力が上昇し続けることはないものと考えられた。そこで、今後の課題として、破過圧や力学的影響を考慮したガス移行解析により、緩衝材や周辺岩盤への構造力学的安定性への影響の可能性や間隙水押し出し等による核種移行への影響について検討を行う必要があるものとした。

(2) 燃料デブリの処分容器内における臨界可能性に関する検討

1F 燃料デブリの処分にあたっては、水素発生対策のために、処分容器内から十分に水分が排除されると想定され、それによって、仮想燃料デブリ Ver. 1 においては臨界が発生するおそれはない。しかし、埋設処分後、長期間経過すると、オーバーパックの閉じ込め機能が失われ、収納容器内に地下水が浸入し、容器内が地下水で満たされる可能性がある (図 3.3-14)。処分容器内で臨界になれば、核分裂連鎖反応が継続的に発生し、熱エネルギーが発生して温度が上昇するとともに、核分裂性生成ガスが発生して、処分場からの核種移行挙動に大きな影響を及ぼすことが想定される。

そのため仮想燃料デブリ Ver. 1 の収納容器 (直径 35.56cm、高さ 86.74cm) を用いる場合に、そのため仮想燃料デブリ Ver. 1 の収納容器 (直径 35.56cm、高さ 86.74cm、図 3.3-16) を用いる場合に、処分環境で地下水が浸入しても未臨界を維持できるかについて、臨界解析を行った。解析では濃縮度 4.9% の燃料が 5% 以上含まれること、最小燃焼度は 3.3GWd/t であるが長期的なビルドアップを考慮して、燃焼度 0 の新燃料相当の計算も実施した。収納容器外を炭素鋼製のオーバーパックで取り囲む体系とし、臨界の観点から保守的にオーバーパック厚さを 100cm と仮定した。収納容器内部は密度の燃料球が面心立方構造で配置されるものとし、Vm/Vf を 0.35 ~ 20 の範囲で、計算コードは MVP を、核データライブラリは JENDL-4.0 を用いて評価した。

その結果、仮想燃料デブリ Ver. 1 の容器に収納すると仮定した場合、非均質体系では新燃料相当の燃焼度だけでなく、14GWd/t の燃焼度の燃料デブリについても、中性子実効増倍率が 1 を超えて臨界となり、均質体系の 14GWd/t の燃焼度だけが未臨界を維持できた (図 3.3-19)。

いかなる Vm/Vf でも未臨界を維持できる容器直径を探るため、35.56cm から 2.5cm ずつ容器直径を小さくして、評価を行った。その結果、均質体系及び非均質体系の新燃料相当 (図 3.3-23、図 3.3-25)、非均質体系の 3GWd/t の燃料デブリについては、22.5cm の容器直径である必要がある。均質体系では 3GWd/t の燃料デブリについては 25.0cm、非均質体系の 14GWd/t については 32.5cm となった。

以上のことから、今後格納容器から回収して最終処分される際の燃料デブリの収納容器の直径は、4.9% の濃縮度を持つ燃料棒を起源とする燃料デブリだけで構成されることが否定できない場合は、22.5cm 以下であることで処分環境において未臨界を維持できる。これは中性子吸収材などを処分容器に用いない場合の評価値である。今後、格納容器内に散乱している燃料デブリの性状や濃縮度、燃焼度など核的な情報が調査によって明らかになれば、臨界を防止するための容器形状の見直しや中性子吸収材の使用といった工学的対策を含めた検討を行う必要がある。

(3) 天然バリア中における臨界発生可能性に関する検討

1F 燃料デブリの処分にあたっては、HLW と比較して放射能インベントリ中のウラン量が多いことから、処分容器内で臨界を排除できても、長期間にウランが処分場から漏出して、天然バリア中のある場所に集積して、臨界条件に到達する可能性が指摘されている。臨界になれば熱及び FP ガスの発生など、核種移行を促進させ、天然バリア出口における核種移行フラックスを上昇させることが懸念される。そこで、核種移行の観点から、ウランが天然バリア中で臨界条件を達成する程度集積する可能性があるかについて、解析的に検討を行った。

まず、既往の研究より、砂岩中で臨界に到達するのに最低限のウラン質量を見積もった。30%の間隙率をもつ地質媒体中で1トンが集中的に濃集すれば、臨界になる最低限の条件を満たすことから、燃料デブリ中の総ウラン量257トンのウランが、どのような条件で1トンを超えて濃集するかをGSRW-PSAによる一次元核種移行解析によって評価した。また、各ウラン核種の濃集量から、濃縮度の時間変化についてもあわせて評価した。なお、ウラン量1トンは臨界となる最低限の必要条件であり、1m³程度の球の中に1トンが均質に配置されなければ臨界とはならない。

堆積岩サイトである幌延サイトの水質条件を想定して、種々のパラメータの組合せを仮定したケース設定により核種移行解析を行った(表 3.3-19)。

その結果を以下に示す。

- ・ 酸化性環境ではウランの溶解度が高く、人工バリア出口のフラックスが還元性環境と比較して2桁程度高くなった(Case 2、図 3.3-39)。地下水中のウラン濃度もそれと比例して高くなり、濃集点のU溶解度に支配されてウラン濃集量は66.2トンと1トンを大きく上回る結果となった。さらに当初還元性環境で10万年後に酸化性環境に変化する場合でも、同様の結果となり、10万年程度の時間遅れでは濃集点のウラン濃集量に影響を及ぼさなかった(Case 3)。一方、酸化性環境でも濃集点までの移行距離が10倍になることで濃集点のピーク出現時間が後退し、それに伴う放射能の減衰によって、濃集量の最大値は300g程度と解析ケース中最小値を示した(Case 4)。
- ・ また、還元性環境を維持するケースでも、濃集点におけるU溶解度が非常に小さい条件(標準ケースの1/100)では、濃集量は1トンを大きく超え、221トンと全ウラン量の86%が濃集し、解析ケース中最大となった(Case 6、図 3.3-43)。このほか、人工バリアのU溶解度が高い場合にも1トンを超える濃集量となった(Case 7)。
- ・ 一方、燃料デブリの浸出率が高いケースでも、人工バリア中の溶解度によって、人工バリア出口のフラックスが律速されるため、ウラン濃集量へは影響がなかった(Case 5)。
- ・ 濃縮度の時間変化については、濃集量が1トンを超えるケースでは、その時点では2%をわずかに超える程度となるが、濃集量が最大となる時点(1~4億年程度)では2%以下となり、ウランが十分な量濃集したとしても濃縮度が低下することにより臨界可能性が低下していると考えられる。一方、浸出率が上昇するケースで溶解度の高いNp-237がU-233のフラックスを上昇させ、1g未満が濃集する時期ではあるが、濃縮度が一時的に4%程度まで上昇する結果が示された。

以上のことから、天然バリアにおける水質環境の切替わりにおいて、U溶解度が極端に小さくなる条件がウラン濃集量に大きな影響を与えるパラメータとなった。これは処分場が酸化性環境でも還元性環境でも、1トン以上のウラン濃集量が得られるものである。

本解析では、いかなる条件でもウラン濃集量が1トンに満たないということを示せず、臨界となる最低限の濃集量がいくつかのケースで得られる結果となった。一方、濃集点でのウラン濃縮度の時間変化を評価することにより、1トンを超える十分な濃集量があっても、最小臨界質量の前提である濃縮度2.25%よりも低くなるケースもあり、臨界解析と組み合わせた評価が今後必要となる。さらに、上述したように、1トンを超えるウランの濃集が直ちに臨界条件を満たすものではない。濃集する場合のウランの配置、核種移行経路の3次元的な広がり、水質が切り替わる境界面などに着目し、必要に応じて臨界解析を実施して、臨界発生の可能性について検討を行う必要がある。

第3章の参考文献

3.2 の参考文献

- (1) 東京電力：「原子炉格納容器内部調査技術の開発」ペDESTAL外側_1階グレーチング上調査（B1調査）の現地実証試験の結果について、平成27年4月30日公表資料。
- (2) 鷺谷忠博：燃料デブリの特性に関する研究概要、日本保全学会 第12回学術講演会、講演資料集、2015年7月14日、茨城県日立市。
- (3) 熊谷友多、高野公秀、渡邊雅之：模擬燃料デブリ(U,Zr)O₂の過酸化水素水溶液への溶出反応、日本原子力学会2015年春の年会予稿集
- (4) Takayuki Sasaki, Yuu Takeno, Akira Kirishima and Nobuaki Sato, Leaching test of gamma-emitting Cs, Ru, Zr, and U from neutron-irradiated UO₂/ZrO₂ solid solutions in non-filtered surface seawater, Journal of Nuclear Science and Technology, 2015, Vol. 52, No. 2, 147-151.
- (5) Nagra (2002): Project Opalinus Clay Safety Report, Demonstration of disposal feasibility for spent fuel, vitrified high-level waste and long-lived intermediate-level waste (Entsorgungsnachweis), Nagra NTB 02-05, 360 p.
- (6) JAEA, わが国における使用済燃料の地層処分システムに関する概括的評価ー 直接処分第1次取りまとめ ー、JAEA-Research 2015-016, 2015, p.217.
- (7) 日本原子力研究開発機構, 平成22年度地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書, 平成23年3月, 2011.
- (8) 日本原子力研究開発機構, 平成22年度地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書 [添付資料編], 平成23年3月, 2011.
- (9) 日本原子力研究開発機構, 平成23年度地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書, 平成24年3月, 2012.
- (10) 日本原子力研究開発機構, 平成23年度地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書 [添付資料編], 平成24年3月, 2012.
- (11) 日本原子力研究開発機構, 平成24年度地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書, 平成25年3月, 2013.
- (12) 日本原子力研究開発機構, 平成24年度地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書 [添付資料編], 平成25年3月, 2013.
- (13) 日本原子力研究開発機構, 平成25年度地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書, 平成26年3月, 2014.
- (14) 日本原子力研究開発機構, 平成25年度地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書 [添付資料編], 平成26年3月, 2014.
- (15) 日本原子力研究開発機構, 平成26年度地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書, 平成27年3月, 2015.
- (16) 日本原子力研究開発機構, 平成26年度地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書 [添付資料編], 平成27年3月, 2015.
- (17) 西原健司, 岩元大樹, 須山賢也. 福島第一原子力発電所の燃料組成評価. 2012. JAEA-Data/Code 2012-018.
- (18) 東京電力株式会社, 東北地方太平洋沖地震の影響による福島第一原子力発電所の事故に伴う大気および海洋への放射性物質の放出量の推定について. 2012年5月24日.
- (19) 放射性核種の移行評価から廃棄物のインベントリ評価へ. 目黒義弘, ほか. 2014. 第3回福島技術開発成果報告会.

- (20) 放射性廃棄物処理・処分に関する研究の現状と課題. 宮本泰明, 石川真澄. 2014年, 日本原子力学会誌, Vol.56, No.8.
- (21) 核燃料サイクル開発機構, わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ— 分冊2 地層処分の工学技術, JNC TN1400 99-022, 1999.

3.3 の参考文献

- (1) 核燃料サイクル開発機構, わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—分冊2, JNC-TN1400 99-022, 1999, 690p.
- (2) 核燃料サイクル開発機構, わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—分冊3, JNC-TN1400 99-023, 1999, 526p.
- (3) Rodwell, W. R., Harris, A. W., Horseman, S. T., Lalieux, P., Müller, W., Ortiz Amaya, L., Pruess, K., Gas Migration and Two-Phase Flow through Engineered and Geological Barriers for a Deep Repository for Radioactive Waste, A Joint EC/NEA Status Report, EUR 19122 EN, 1999.
- (4) Rodwell, W. R., Research into Gas Generation and Migration in Radioactive Waste Repository Systems (PROGRESS Project), EUR 19133EN, 2000.
- (5) Rodwell, W. Norris, S., Cool, W., Cuñado, M., Johnson, L., Mäntynen, M., Müller, W., Sellin, P., Snellman, M., Talandier, J., Vieno, T. and Vines, S., A Thematic Network on Gas Issues in Safety Assessment of Deep Repositories for Radioactive Waste (GASNET). Final Report on the Treatment in Safety Assessments of Issues Arising from Gas Generation. European Atomic Energy Community (EURATOM), 2003.
- (6) 核燃料サイクル研究開発機構, TRU 廃棄物処分技術検討書—第2次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ, JNC TY1400 2005-013, 2005, 591p.
- (7) 公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成26年度地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発報告書(第5分冊)—ガス移行連成挙動評価手法の開発—, 2015.
- (8) SHAW, R. P., The Fate of Repository Gases (FORGE) project, Gas Generation and Migration in Deep Geological Radioactive Waste Repositories, Geological Society Special Publication 415, 2015.
- (9) 藤山哲雄、田中幸久、廣永道彦、森敦史、ベントナイト・セメント系材料のガス移行評価に関する文献調査, 電力中央研究所研究報告 N07021, 2008.
- (10) 原子力機構 (2015) : わが国における使用済燃料の地層処分システムに関する概括的評価—直接処分第1次取りまとめ—, JAEA-Research 2015-016, p. 327.
- (11) 安藤賢一, 納多勝, 山本幹彦, 三原守弘, TRU 廃棄物処分におけるガス発生・移行解析, JNCTN8400 2005-026, 2005, 131p.
- (12) NDA, Geological Disposal: Gas status report, NDA/RWMD/037, 2010.
- (13) X-5 Monte Carlo Team, MCNP — A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5, Volume I: Overview and Theory, LA-UR-03-1987, 2003 (Revised 2008).
- (14) X-5 Monte Carlo Team, MCNP — A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5, Volume II: User's Guide, LA-CP-03-0245, 2003 (Revised 2008).
- (15) White, M. (2012): Further Notes on MCPLIB03/04 and New MCPLIB63/84 Compton Broadening Data For All Versions of MCNP5, LA-UR-12-00018.

- (16) M.B. Chadwick et al. (2011): "ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data". In: Nuclear Data Sheets 112.12 (2011), pp. 2887–2996. ISSN: 0090-3752. DOI: 10.1016/j.nds. 2011.11.002.
URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S009037521100113X>.
- (17) 内藤正則 (2015) : シビアアクシデント解析コードの概要, 日本原子力学会 2015 秋の大会.
- (18) 西原健司, 岩元大樹, 須山賢也. 福島第一原子力発電所の燃料組成評価, JAEA-Data/Code 2012-018, 2012.
- (19) 若杉圭一郎, 宮原要, 牧野仁史, 石黒勝彦, 澤村英範, 根山敦史, 西村和哉, ガラス固化体からの放射線量に関する検討, JNC TN8400 2003-022, 2003.
- (20) 公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 26 年度地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発報告書 (第 5 分冊) - ガス移行連成挙動評価手法の開発 - ドラフト版, 2015.
- (21) Wiborgh, M. (Ed.), Prestudy of final disposal of long-lived low and intermediate level waste, SKB Technical Report 95-03, 1995.
- (22) Christensen, H., Bjergbakke, E., Radiolysis of groundwater from HLW stored in copper canisters, SKB Technical Report 82-02, 1982.
- (23) 原子力学会特別専門委員会、福島第一原子力発電所事故により発生する放射性廃棄物の処理・処分 平成 25 年度報告書、2014.
- (24) 日本原子力研究開発機構, 平成 26 年度地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備, 平成 27 年 3 月, 2015.
- (25) 日本工業規格, 圧力容器の構造 - 一般事項, JIS B8265:2010, 2010
- (26) 小林英男, 圧力容器の構造と設計 JIS B 8265 及び JIS B 8267, 日本規格協会, 2011
- (27) 棚井憲治, Christophe Galle, 菅野毅 (1996) : 圧縮ベントナイトの水素ガス移行特性評価, PNC TN8410 96-289, p. 25.
- (28) 国立天文台編 (2015) : 理科年表, 丸善.
- (29) Wikramaratna, R. S., Goodfield, M. Rodwell, W. R., Nash, P. J., Agg, P. J (1993) : A preliminary assessment of gas migration from the copper/steel canister, SKB Technical Report 93-31, p. 51.
- (30) 棚井憲治, 佐藤治夫, 村上文啓, 井上雅弘 (1999) : 地層処分場におけるガスの拡散・移行に関する検討, JNC TN8400 99-045, p. 108.
- (31) Nerentnieks, I. (1985) : Some aspects of the use of iron canisters in deep lying repositories for nuclear waste, Nagra Technical Report 85-35, p. 29.
- (32) Tanai, K., Kanno, T. and Gallé, C. (1997) : Experimental Study of Gas Permeabilities and Breakthrough Pressures in Clays, MRS Volume 465, pp.995-1002.
- (33) 田中幸久、廣永道彦、工藤康二 (2007) : 飽和した高密度ベントナイトのガス移行メカニズムとそのモデル化, 電力中央研究所研究報告 : N07005.
- (34) 田中幸久、廣永道彦、工藤康二 (2009) : 飽和した高密度ベントナイトのガス移行メカニズムとそのモデル化, 土木学会論文集 C, Vol. 65 No. 1, pp. 303-320.
- (35) 棚井憲治、山本幹彦、ガス移行挙動評価モデルに関する検討、JNC TN8400 2003-051、2004
- (36) 田中幸久、飽和した高密度ベントナイトの力学連成ガス移行解析手法の開発, 土木学会論文集 C, Vol. 66, No.3, pp. 530-549, 2010.
- (37) K. Tonoike, et al., "Major Safety and Operational Concerns for Fuel Debris Criticality Control," proc. of GLOBAL 2013, Salt Lake City, USA, (2013).

- (38) MVP/GMVP II : General Purpose Monte Carlo Codes for Neutron and Photon Transport Calculations based on Continuous Energy and Multigroup Methods, JAERI1348, 2005.
- (39) K. Shibata, O. Iwamoto, T. Nakagawa, N. Iwamoto, A. Ichihara, S. Kunieda, S. Chiba, K. Furutaka, N. Otuka, T. Ohsawa, T. Murata, H. Matsunobu, A. Zukeran, S. Kamada, and J. Katakura: "JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering," J. Nucl. Sci. Technol.. 48(1), 1-30 (2011).
- (40) Liu, et. al. : Conditions for criticality by uranium deposition in water-saturated geological formations., Journal of Nuclear Science and Technology, Volume 52 (3), 2015.
- (41) SKB, Data report for the safety assessment SR-Site, SKB TR-10-52, 2010.
- (42) 日本原子力研究開発機構、平成 25 年度地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備（核種移行データベースの整備）報告書、2014.
- (43) 安 俊弘, Ehud Greenspan, Paul L. Chambré : 地層処分された高レベル廃棄物による臨界現象発生のメカニズムとその可能性、原子力バックエンド研究、Vol. 4 (1997-1998) No. 2、p. 3-20.

3.4 の参考文献

- (1) Nagra, Project Opalinus Clay Safety Report, Demonstration of disposal feasibility for spent fuel, vitrified high-level waste and long-lived intermediate-level waste (Entsorgungsnachweis), Nagra NTB 02-05, p.360, 2002.
- (2) 日本原子力研究開発機構、わが国における使用済燃料の地層処分システムに関する概括的評価 ー直接処分第 1 次取りまとめー, JAEA-Research 2015-016, p.217, 2015.
- (3) Nerentnieks, I., Some aspects of the use of iron canisters in deep lying repositories for nuclear waste, Nagra Technical Report 85-35, p.29, 1985.
- (4) 棚井憲治, Christophe Galle, 菅野毅, 圧縮ベントナイトの水素ガス移行特性評価, PNC TN8410 96-289, p.25, 1996.

4. 核種移行特性データ取得

4. 核種移行特性データ取得

4.1 背景及び目的

核燃料元素のウラン (U) やプルトニウム (Pu) の核種移行特性データの1つである収着分配係数 (Kd) について、系統的な収着試験によって得られたデータが少なく⁽¹⁾、実験条件の情報 (詳細) が明らかになっていない文献が多い。そのため、燃料デブリを含む地層処分の安全評価のために Kd を評価するのは困難な状況にある。そこで、系統的な収着試験を実施し、Kd データを取得する必要がある。

今年度は、U の Kd データの取得のために、地層処分の地下の還元環境を想定し、U(+4)の収着試験実施方法を検討する。昨年度の結果より、特に U(+4)の保存液の調整が重要であることが分かっており、U の酸化還元を実験的に制御できること、天然ウランを用いて保存液が調整できることを確認する。また、Pu の Kd データの取得として、日本の代表的な堆積岩である砂岩を対象に Pu の収着試験を実施する。砂岩の Kd は、pH 8.5~9.75 で石英よりも大きいことが昨年度の結果より分かっており、砂岩の Kd を支配する石英以外の鉱物が存在すると想定される。したがって、今年度は、Pu の収着を支配する砂岩の構成鉱物の確認、特に、含有量は少ないが、Kd が大きいと想定される粘土鉱物 (緑泥石等) に着目し、炭酸塩濃度と pH を系統的に変化させた収着試験を実施する。

4.2 U の核種移行特性データの取得

昨年度実施した文献調査結果に基づいて、U(+4)保存液の調整方法を試験する。文献からは試薬の濃度条件等は判明できるものの、例えば試薬を加える順番等不明な点が多く、調整方法の解明が必要である。

4.2.1 試験方法

U(+4)は、溶存酸素により容易に U(+6)へ酸化される⁽²⁾ので、大気雰囲気下での試験や溶液調整は行わず、濃度分析の操作を除き、Ar 雰囲気制御グローブボックス (GB) 内で実施する。U(+4)の調整方法は、主に2つあり、硝酸 (HNO₃) の U 溶液を電気分解して U(+4)に還元して調整する方法⁽³⁾⁽⁴⁾⁽⁵⁾ (電気分解法) と還元剤により UO₂ の沈殿を作り分離後溶解して U(+4)保存液を作成する方法⁽⁶⁾⁽⁷⁾ (沈殿法) である。電気分解法については、例えば、矢島⁽³⁾⁽⁴⁾が還元剤としてヒドラジンを加えた硝酸ウラニル溶液を電気分解し、U(+4)の溶解度試験に用いている。今年度は、GB の空間的制限から、電解槽等の大がかりな設備を必要としない沈殿法で実施することにした。

沈殿法に関する文献は2つある。Baston ら⁽⁶⁾の方法は、U(+6)の酸性溶液に亜二チオン酸ナトリウム (Na₂S₂O₄) を添加し、U を還元、さらに水酸化ナトリウム (NaOH) を加えて含水 U(+4) 酸化物の沈殿を作り、洗浄及び遠心分離後に 1 M 塩酸 (HCl) 溶液を加えて溶かして保存液とする方法である。Evans ら⁽⁷⁾の方法は、250 mL の炭酸塩を含まない 0.4 M NaOH 溶液、500 mL の 0.1 M Na₂S₂O₄ 溶液、250 mL の 0.01 M UO₂(NO₃)₂ 溶液を混合することにより、UO₂·2H₂O(am) を沈殿させ、2週間後に遠心分離し、0.05 M Na₂S₂O₄ 溶液で洗浄し、再び 5,500 rpm で遠心分離するという方法である。以上をまとめると、U の溶液として U(+6)の酸性溶液、還元剤として Na₂S₂O₄ を使用し、NaOH で UO₂ の沈殿を作り、沈殿を分離後、沈殿を洗浄というのが共通的な手順である。特に、還元剤として使用する Na₂S₂O₄ は酸で分解する性質があり、溶液をアルカリ性にしてから Na₂S₂O₄ を加えるのか、もしくは酸性のまま分解される分を考慮して過剰に加えるのか、といった点を試験操作で確認する必要がある。

また、GB 内の限られた空間で U(+4)の調整を実施するために、沈殿を含む溶液の処理（固液分離）方法からも試験条件を検討した。固液分離に遠心分離器を使用する場合、1.5 mL の遠心チューブ（ザルスタット製 62.548.004ZS）が使用できる最大限の試験容器であり、遠心分離にかけられる液量はその容積の半分の 750 μ L である。固液分離に吸引ろ過を使用する場合は、50 mL の遠心チューブ（ザルスタット製 A.1500Z）が最大となる。

試験に用いる天然ウランは、純分定量用金属ウラン標準試料 JAERI-U4⁽⁸⁾である。また、同位体組成は、U-234: 0.0057%、U-235: 0.72%、U-238: 99.27% である。これを HNO₃ で溶解し、U 濃度が 272 mg/mL (1.14 M) の約 0.5 M HNO₃ 溶液 (U 標準溶液) にした。試験に用いる液量は 1 試験あたり 73.5 μ L である。念のため U 標準溶液を Ge 半導体検出器 (CANBERRA 製) にて測定し、天然ウラン及びその娘核種以外の元素が含まれていないことを確認した (図 4.2-1)。

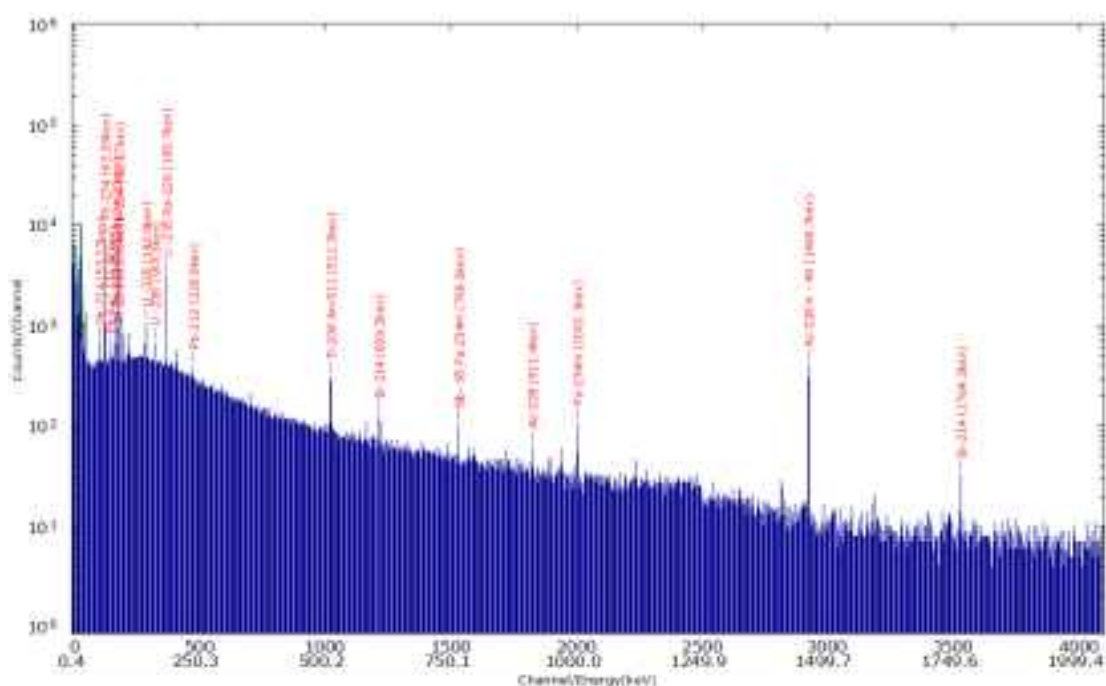
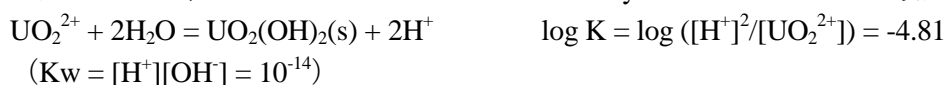


図 4.2-1 U 標準溶液の γ 線スペクトル

固液分離に吸引ろ過を使用する場合は、試験容器の容積に余裕があり、Na₂S₂O₄ の酸による分解を考慮し、水を加え、酸を弱めてから Na₂S₂O₄ を添加することにした。その場合、溶解している U(+6)の UO₂²⁺が水を加えることにより沈殿が生じるかどうかを大まかに予測するために、溶解度が pH に対してどのように変化するかについて、U の溶解度曲線を作成し、検討した。まず、沈殿を水酸化ウラニル UO₂(OH)₂(s) とし、この沈殿の生成平衡に関する定数 K もしくは溶解度積 K_{sp} を以下のように示す。なお、以下の生成定数は、イオン強度 (I) がゼロの値を用いており、OECD NEA の Chemical Thermodynamics Vol.5⁽⁹⁾からの引用である。



また、



の錯生成定数 $\beta_{n,m}^0$ を

$$\beta_{n,m}^0 = [(\text{UO}_2)_m(\text{OH})_n^{2m-n}][\text{H}^+]^n / [\text{UO}_2^{2+}]^m$$

とする。 $\text{UO}_2(\text{OH})_2(\text{s})$ と平衡にある溶液中の全ての化学種の濃度を前述の定数 K と $\text{U}(+6)$ の水酸化物錯体の生成定数 (表 4.2-1) を用いて求め、溶液中の全ての化学種の濃度の総和を S とすれば、溶解度曲線は図 4.2-2 のように示される。

表 4.2-1 $\text{U}(+6)$ の水酸化物錯体 $(\text{UO}_2)_m(\text{OH})_n^{2m-n}$ の生成定数 (25°C、 $I=0$)

(n,m)	化学種	$\log \beta_{n,m}^0$
(2,2)	$(\text{UO}_2)_2(\text{OH})_2^{2+}$	-5.62
(4,3)	$(\text{UO}_2)_3(\text{OH})_4^{2+}$	-11.9
(5,3)	$(\text{UO}_2)_3(\text{OH})_5^+$	-15.55
(1,1)	UO_2OH^+	-5.25
(2,1)	$\text{UO}_2(\text{OH})_2(\text{aq})$	-12.15
(3,1)	$\text{UO}_2(\text{OH})_3^-$	-20.25
(4,1)	$\text{UO}_2(\text{OH})_4^{2-}$	-32.4
(1,2)	$(\text{UO}_2)_2\text{OH}^{3+}$	-2.7
(7,3)	$(\text{UO}_2)_3(\text{OH})_7^-$	-32.2
(7,4)	$(\text{UO}_2)_4(\text{OH})_7^+$	-21.9

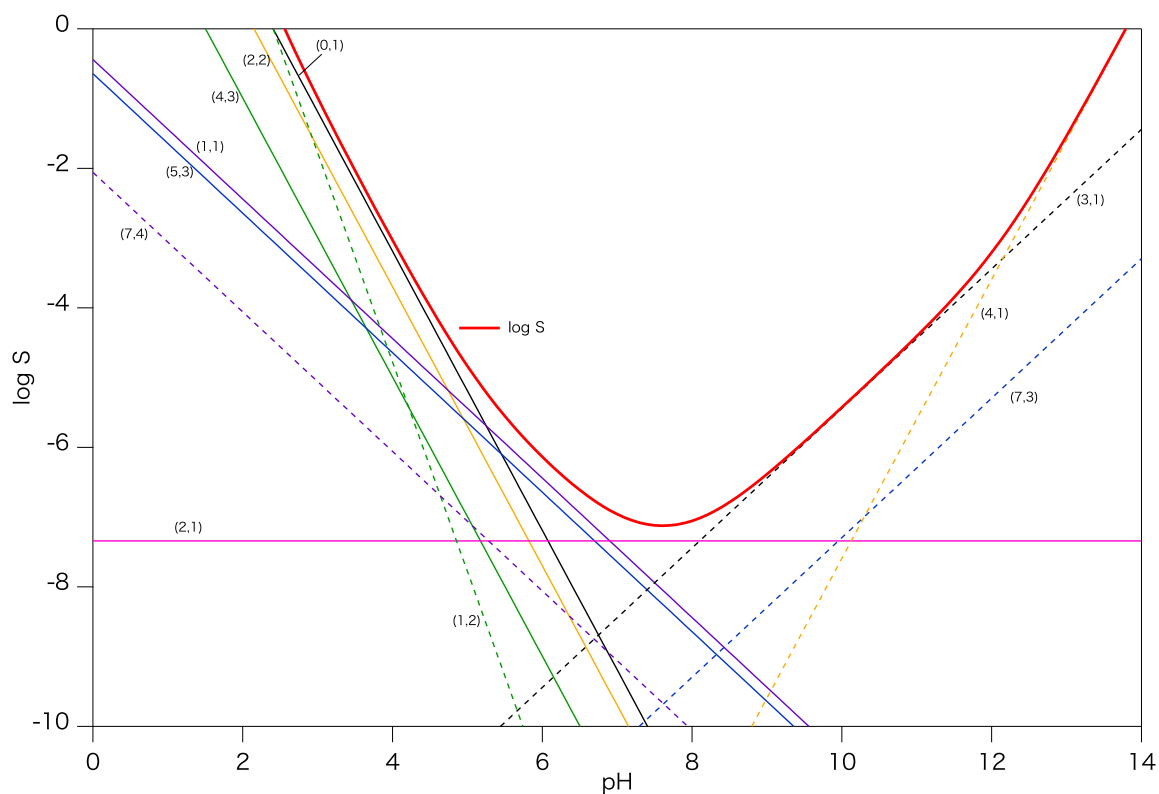


図 4.2-2 $\text{UO}_2(\text{OH})_2$ の溶解度曲線

溶解度曲線 $\log S$ 以上の濃度では $\text{UO}_2(\text{OH})_2$ の沈殿が生じていることを示しており、溶解度を決めるのは酸性では(0,1)、つまり、 UO_2^{2+} と(2,2)の $(\text{UO}_2)_2(\text{OH})_2^{2+}$ であり、アルカリ性では(3,1)の $\text{UO}_2(\text{OH})_3^-$ である。

U 標準溶液を水で 100 倍に希釈した場合、 $[\text{UO}_2^{2+}] = 1.14\text{E-}02$ (1.14×10^{-2}) M、pH は 2.3 程度 (0.5 M HNO_3 溶液を 100 倍希釈) であり、 $\log[\text{UO}_2^{2+}]$ が溶解度曲線 $\log S$ を下回り、沈殿は生じず、U は安定に溶解していると予測される。

固液分離に遠心分離器を使用する場合、U 標準溶液 (73.5 μL) と同量の NaOH 溶液を添加すると、0.5 M $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ (和光純薬工業製) 溶液を添加できる量は、750 μL - 73.5 $\mu\text{L} \times 2 = 603 \mu\text{L}$ である。この場合、U と $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ のモル比は 1:7.2 となる。また、各溶液 (U 標準溶液、 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 溶液及び NaOH 溶液) を加える順番によって沈殿の生成に違いが見られるかどうかを確認するために、3 つのケースを想定した。ケース 1 として、Baston ら⁽⁶⁾の手順を基に試験条件を設定した。具体的には、酸性の状態では $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 溶液を加えると $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ が分解する可能性があるが、溶存している UO_2^{2+} を U(+4)に還元し、その後 NaOH 溶液を加えて $\text{UO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O(am)}$ の沈殿を作るという手順である。ケース 2 は、最初に酸性の U 標準溶液を NaOH 溶液に加え、液性が酸性からアルカリ性に移る過程で U の沈殿が生じる可能性があるが、アルカリ性で $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 溶液を加えて U(+6)から U(+4)へ還元する手順である。ケース 3 は、Evans ら⁽⁷⁾の手順を基に試験条件を設定した。最初に NaOH 溶液と $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 溶液を混合し、 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ が分解されていない状態で U 標準溶液を加えるという手順である。

一方、固液分離に吸引ろ過を使用する場合は、U 標準溶液 (73.5 μL) を水で 100 倍に希釈し (7.35 mL)、Evans ら⁽⁷⁾の方法と同じく、U と $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ のモル比が 1:50 となるように 0.5 M $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 溶液を 3.36 mL 添加することにした。固液分離に遠心分離器を使用する場合と同じく、NaOH 溶液は、U 標準溶液と同量の 73.5 μL を添加することにし、ケース 1~3 と同様の手順をそれぞれケース 4~6 に設定した。

なお、希釈及び試薬の調製には、真空ポンプで脱気した超純水 (脱気水) を用いた。また、用いる NaOH 溶液は、含まれる炭酸塩によって U と錯形成し、沈殿が生じにくくなる可能性があるため、10 mL の 10 M NaOH (和光純薬工業製) 溶液に対し、0.7 mL の $\text{BaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ (和光純薬工業製) の飽和溶液を加えて 48 時間以上静置し、 BaCO_3 を沈殿⁽³⁾させ、上澄みをポリフッ化ビニリデン製の 0.1 μm のフィルター (Merck 製 Millex-VV Syringe Filter Unit, SLVV033RS) でろ過し、炭酸塩を除去し、脱気水で 10 倍に希釈したものである。以上の U 沈殿生成試験条件を表 4.2-2 に取りまとめる。

表 4.2-2 U 沈殿生成試験条件
(ケース 1~3 : 1.5 mL 遠心チューブ、4~6 : 50 mL 遠心チューブ)

ケース	①	②	③	
遠心分離	1	Na ₂ S ₂ O ₄	U	NaOH
	2	NaOH	U	Na ₂ S ₂ O ₄
	3	NaOH	Na ₂ S ₂ O ₄	U
吸引ろ過	4	水+U	Na ₂ S ₂ O ₄	NaOH
	5	水+U	NaOH	Na ₂ S ₂ O ₄
	6	NaOH	Na ₂ S ₂ O ₄	水+U

U: U 標準溶液 (U: 272 mg/mL) 73.5 μL (黄色液体)

水: 脱気水 7.2765 mL

Na₂S₂O₄: 0.5 M Na₂S₂O₄ 溶液 (無色液体)

NaOH: 約 1 M NaOH 73.5 μL (無色液体)

U 沈殿生成試験では、表中の各溶液を①、②、③の順に添加し、添加直後の状況を観察した。沈殿の生成期間は 20 日程度とした。沈殿生成期間後の固液分離は、遠心分離器を使用する場合には、12,000 rpm で 15 分間実施し、吸引ろ過を使用する場合には、ポリエーテルスルホン製の 0.22 μm のフィルター (Merck 製 Steriflip-GP, SCGP00525) を用いた。沈殿を 10 mL の 1 M HCl (多摩化学工業製) 溶液で溶解し保存液とした。2 mL の保存液に対し、2 mL の 1 M HNO₃ (関東化学製) 溶液、4 mL の 0.4 M TTA (ALDRICH 製) /キシレン (和光純薬工業製) 溶液を添加し、溶媒抽出⁽¹⁰⁾により U 価数確認試験を実施した (図 4.2-3)。溶媒抽出により、有機相 (0.4 M TTA/キシレン溶液) に U(+4)が抽出され、U(+6)が水相 (1 M HNO₃ 溶液) に残る。U の価数確認は、沈殿を酸で溶かした保存液及び溶媒抽出後の水相からそれぞれ 1 mL を分取し、予備的に液体シンチレーションカウンター (BECKMAN 製 LS 6500) で分析した⁽¹¹⁾。保存液及び溶媒抽出後の水相中の U (U-238) の濃度は 5% HNO₃ 溶液で適宜希釈し、ICP-MS (PerkinElmer 製 ELAN DRC-e) で分析した。

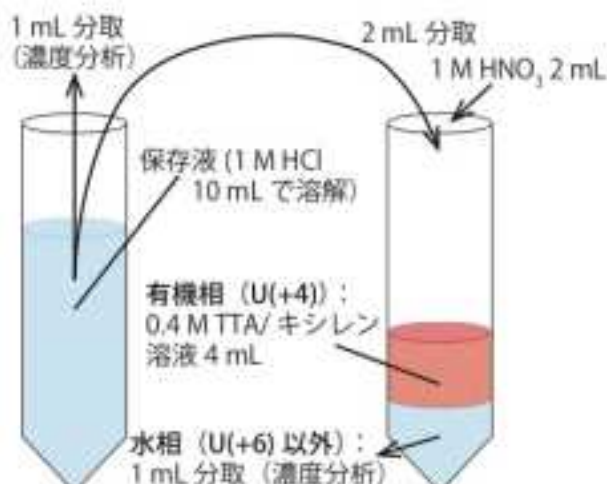


図 4.2-3 溶媒抽出方法の模式図

4.2.2 結果

(1) 各溶液添加直後の状況

- ・ケース 1：黄色沈殿が生じ、黒色液体が上澄みに生じた。
- ・ケース 2：① (NaOH) + ② (U) で少量の白色沈殿が黄色溶液中に生じ、③ ($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$) を添加するとオレンジ～茶色のまだらな沈殿が生じた。③を添加した直後の上澄みは黒色だったが、透明に変化した。
- ・ケース 3：③ (U) を添加すると黄白色沈殿と黒色液体がまだらに生じた。
- ・ケース 4：① (U) + ② ($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$) で黒色液体となり、③ (NaOH) を添加し 5～10 分後、黒色液体中に沈殿が見られたが、沈殿の色は判別できなかった。
- ・ケース 5：① (U) + ② (NaOH) で黄色液体であり、沈殿は目視で確認できなかった。③ ($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$) を添加すると黒色液体になった。5～10 分間の観察では沈殿は見られなかった。
- ・ケース 6：① (NaOH) + ② ($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$) + ③ (U) で黒色液体となり、ケース 4 と同様に沈殿が見られた。

(2) 沈殿生成期間後の状況

- ・ケース 1～3：容器上から順に黄薄色液体、黒褐色、オリーブ色、黄白色の 3 種類の沈殿が見られた (図 4.2-4)。遠心分離後、オリーブ色沈殿が見えなくなった。



図 4.2-4 遠心分離前の沈殿生成状況 (左からケース 1、2、3)

- ・ ケース 4～6：黒緑色沈殿が見られた（図 4.2-5）。

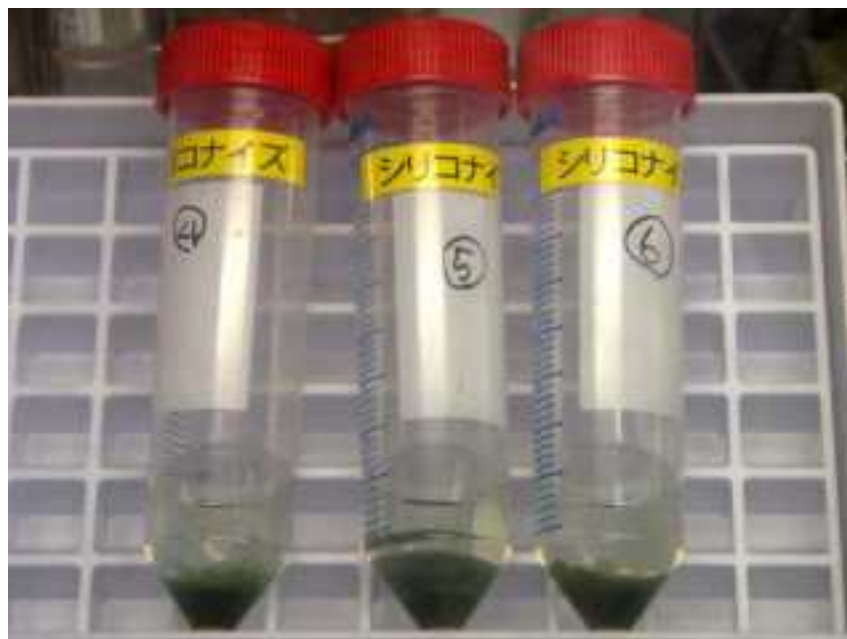


図 4.2-5 遠心分離前の沈殿生成状況（左からケース 4、5、6）

（3）U 価数確認試験（ケース 1～3）

ケース 1～3 のうち、ケース 1 を代表とし、遠心分離後の黒褐色沈殿と黄白色沈殿をそれぞれ分取し、10 mL の 1 M HCl 溶液で溶解し、保存液とした。これを溶媒抽出し、液体シンチレーションカウンターで分析した結果、黒褐色沈殿は、溶媒抽出後の水相 (U(+6)) の α 領域のカウント数が保存液に比べ著しく少なかった（図 4.2-6）。これは、黒褐色沈殿中の U が +4 価に還元されていることを示し、 $\text{UO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O(am)}$ の存在が示唆された。一方、黄白色沈殿は、保存液と水相 (U(+6)) のカウント数の差が小さく、黄白色沈殿は +6 価の U が主に存在し、沈殿の色から $\text{UO}_3^{(12)}$ と想定される。ICP-MS による濃度分析（表 4.2-3）からも同様の結果が得られた。

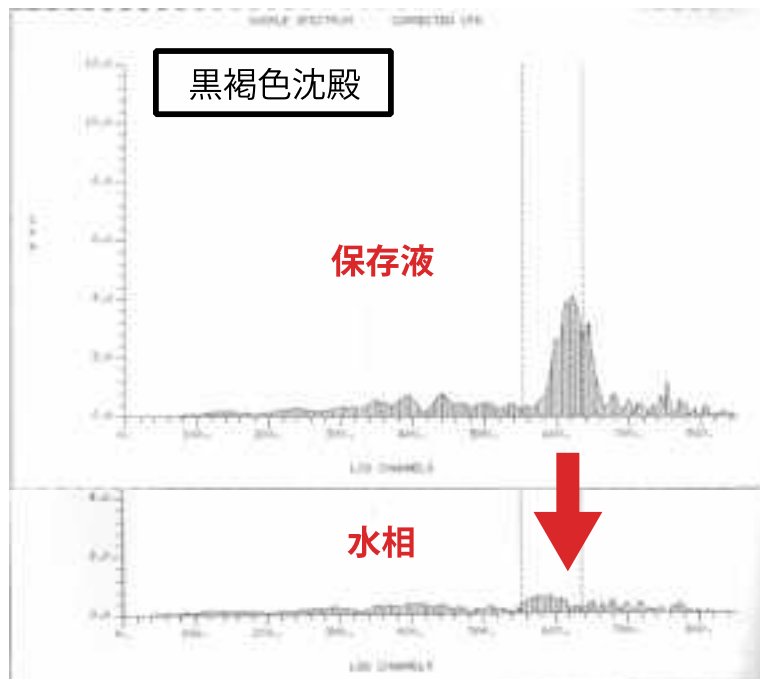


図 4.2-6 液体シンチレーションカウンター測定結果 (ケース 1)

表 4.2-3 ICP-MS 測定による U-238 の濃度分析結果 (ケース 1)

	溶媒抽出後の水相 (U(+6)) の U-238 濃度(M)	保存液中の U-238 濃度 (M)	保存液中の U(+4)の 存在割合(%)
黒褐色沈殿	(1.57E-04±0.02E-04)	(6.09E-04±0.06E-04)	74.2
黄白色沈殿	(5.15E-04±0.05E-04)	(6.66E-04±0.07E-04)	22.6

(4) U 価数確認試験 (ケース 4~6)

吸引ろ過後の黒緑色沈殿をそれぞれ 5 mL の 0.05 M $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 溶液で洗浄後、10 mL の 1 M HCl 溶液で溶解し、保存液とした。これらを溶媒抽出し、液体シンチレーションカウンターで分析した結果、いずれの溶媒抽出後の水相 (U(+6)) も、 α 領域のカウント数が保存液に比べ著しく少なかった (図 4.2-7)。また、溶媒抽出の操作で、有機相の 0.4 M TTA/キシレン溶液が、振とう開始前の薄黄色から振とう中に濃い赤茶色へ変色するのが確認され、この現象は、水相に多く存在する U(+4) が有機相へ抽出されたためと考えられる。これらの結果は、+6 価から +4 価へ U が還元されていることを示す。ICP-MS で U-238 の濃度を分析した結果 (表 4.2-4) からは保存液中の U の 9 割が +4 価として存在していることが分かった。

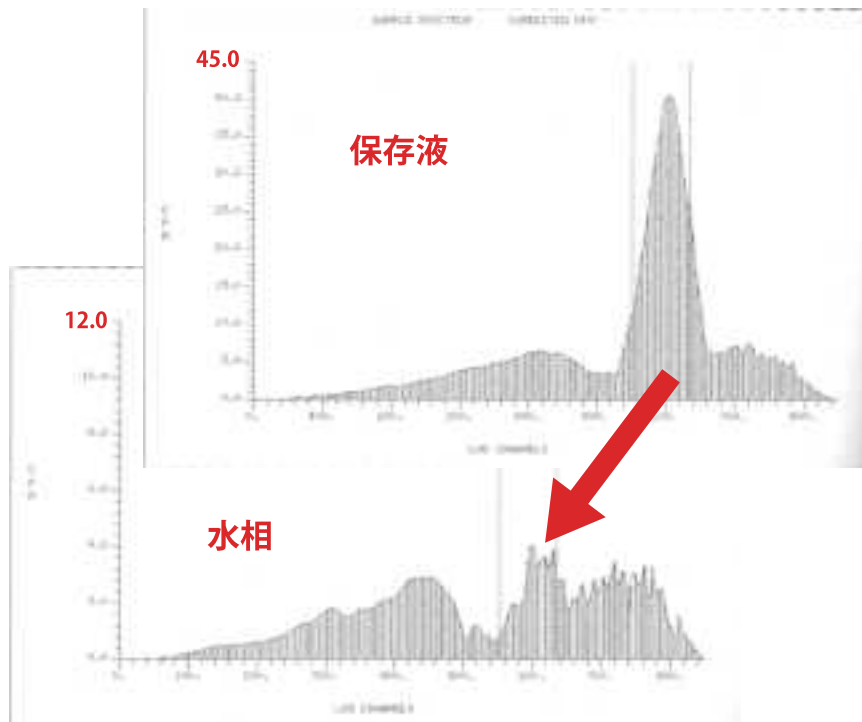


図 4.2-7 液体シンチレーションカウンター測定結果 (ケース 4)

表 4.2-4 ICP-MS 測定による U-238 の濃度分析結果 (ケース 4~6)

ケース	溶媒抽出後の水相 (U(+6)) の U-238 濃度(M)	保存液中の U-238 濃度 (M)	保存液中の U(+4)の 存在割合(%)
4	(7.76E-04±0.14E-04)	(8.29E-03±0.10E-03)	90.6
5	(8.42E-04±0.14E-04)	(8.75E-03±0.10E-03)	90.4
6	(8.80E-04±0.14E-04)	(8.16E-03±0.10E-03)	89.2

4.2.3 まとめ

U(+4)の調整方法として沈殿法を採用し、GB 内での試験操作で、U の沈殿を目視で確認でき、U の酸化還元を実験的に制御できること、天然ウランを用いて保存液が調整できることを確認した。溶液を添加する順番によって生成物の違いは見られなかった。固液分離に遠心分離器を使用する方法では、還元剤の量が少なく還元が不十分となり、沈殿が黒褐色沈殿と黄白色沈殿の2種類が生成した。一方、固液分離に吸引ろ過を使用する方法では黒緑色沈殿のみが生成し、U(+6)から U(+4)に還元され、U(+4)の保存液を作ることができた。

4.3 Puの核種移行特性データの取得

砂岩に対するPuのKdは、pH 8.5~9.75で石英よりも大きいことが昨年度の成果より分かっており、石英以外の鉱物が砂岩に対するPuのKdを支配すると想定される。砂岩のXRDパターンを図4.3-1に示す。

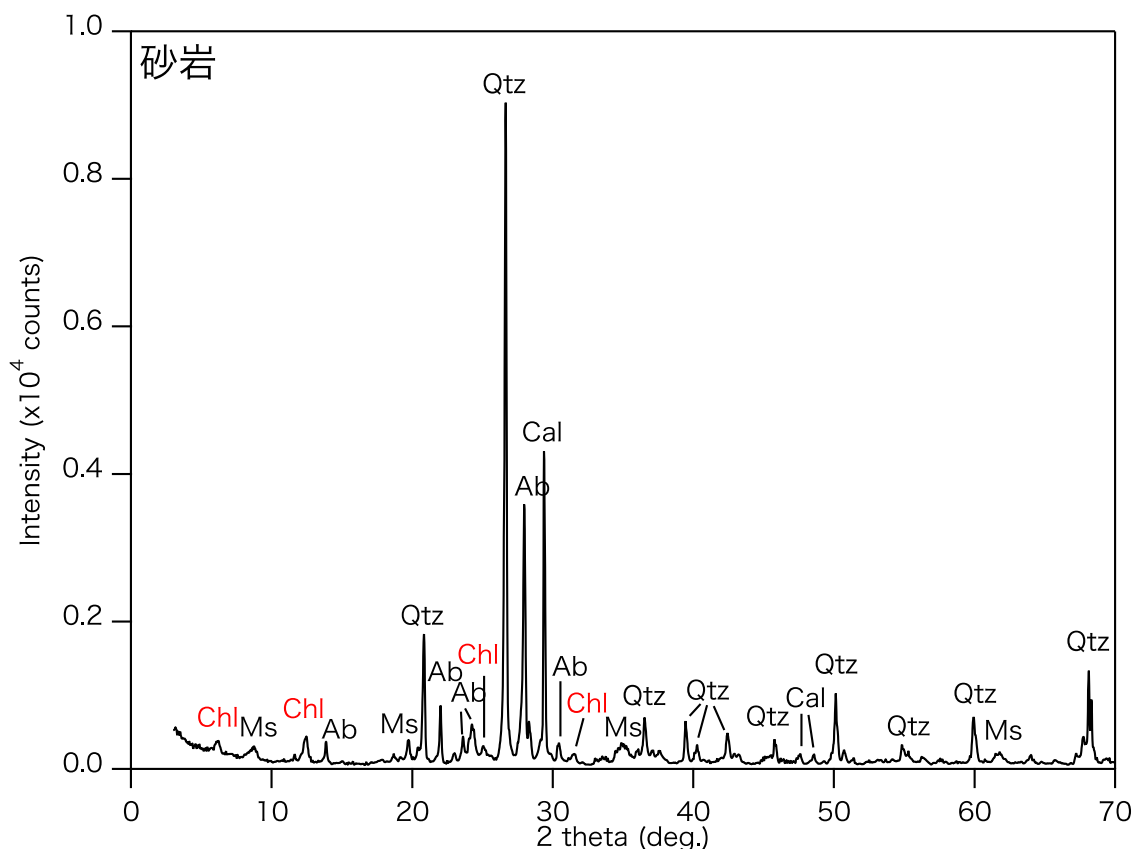


図 4.3-1 砂岩のXRDパターン
(Qtz = 石英, Ab = 曹長石, Cal = 方解石, Chl = 緑泥石, Ms = 白雲母)

砂岩の構成鉱物は、含有率が高い順に、石英、曹長石、方解石、緑泥石及び白雲母である。今年度は、Puの収着を支配する砂岩の構成鉱物を推定し、それを用いて収着試験を実施し、Puの構成鉱物への収着挙動を確認する。過去の文献やデータベースから、鉱物に対するPuの数少ないKdデータを基に、今年度の試験条件（炭酸塩含有溶液）を考慮しつつ、各構成鉱物に対するPuのKdを仮定し、砂岩に対するPuのKdを支配する鉱物を推定した。

まず、曹長石について、「岩石と核種の相互作用に関する研究 (IV) ⁽¹³⁾」によれば、約pH 7で曹長石に対するPuのKdは4.3~6.7 m³/kg、石英に対するPuのKdが6~11 m³/kgと示されている。Mucdiardiら⁽¹⁴⁾によれば、0.03 M NaHCO₃溶液を用いた収着試験で、収着反応終了時のpHが9.4で石英が0.82、曹長石が0.18 m³/kgと示されている。これらの結果から、曹長石に対するPuのKdは石英と同程度であり、砂岩に対するPuのKdへの寄与は小さいと判断した。方解石については、Zavarinら⁽¹⁵⁾によれば、pH 9.75で全炭酸塩濃度 (C_{tot}) が0.07 Mのとき、方解石に対するPuのKdが0.06 m³/kgと報告されている。昨年度の成果で示されたように、炭酸塩濃度が上昇するにつれてKdが小さくなるという傾向を適用すれば、方解石に対するPuの

Kd はさらに小さくなると考えられ、砂岩に対する Pu の Kd への寄与は小さいと判断した。したがって、今年度は、砂岩の構成鉱物のうち、Pu の収着を支配する鉱物、特に、含有量は少ないが比表面積が大きく、Kd が大きいと想定される粘土鉱物（緑泥石等）に着目し、炭酸塩濃度と pH を系統的に変化させた収着試験を実施した。また、収着平衡時間を確認するために、いくつかの溶液条件で収着試験を実施し、収着試験期間中に複数回サンプリングし、収着時間に対する Kd の変化を確認した。

4.3.1 試験方法

(1) 固相（岩石及び鉱物）の調整

試験に用いる砂岩は、平成 17 年に採掘したボーリングコアであり、採取深度が 229～230 m のものである⁽¹⁶⁾。鉱物は試薬の石英（関東化学製）、高知県本山町産の緑泥石（岩本鉱産物商会製）及び福島県石川町産の白雲母（岩本鉱産物商会製）である。石英を除く固相は、破碎後、ナイロン製ふるい（筒井理化学器械製）を用い、砂岩については 250～500 μm、緑泥石と白雲母については 63～250 μm に分級した。また、固相の比表面積を BET 比表面積・細孔分布測定装置（Quantachrome 製 NOVA 1200e）の NOVA モードにて測定した（表 4.3-1）。

表 4.3-1 砂岩及びその構成鉱物の粒径と比表面積

	粒径(μm)	比表面積(m ² /g)
砂岩	250-500	6.5
石英	< 63	7.0×10 ⁻¹
緑泥石	63-250	1.8
白雲母	63-250	4.0

(2) バッチ式収着試験

バッチ式収着試験は、濃度分析を除き、Ar 雰囲気制御 GB（20～25℃）内で実施した。試験溶液は、0.5 M NaHCO₃（和光純薬工業製）溶液、0.5 M Na₂CO₃（和光純薬工業製）溶液及び 0.5 M NaCl（和光純薬工業製）溶液を用いて各試験溶液を 30 mL のポリプロピレン製遠心チューブ（ザルスタット製 60.544S）に、イオン強度（I）が 0.5 mol/kg となるように、25 mL に調整した（表 4.3-2）。各試験溶液に Pu の保存液（Pu-238 が 9×10⁻⁸ M の 1 M HNO₃ 溶液）を 10 μL 投入し、手で振とう後、サンプリングを行った。サンプリングは、次の手順にて実施し、以降のサンプリングも同じ手順である。まず、セルロース混合エステル製の 0.45 μm のフィルター（Merck 製 Millex-HA Syringe Filter Unit, SLHA033SS）、5 mL のシリンジ（テルモ製 SS-05SZ）及びミニバイアル（カルテル製 934）のコンディショニングのために試験溶液から 0.4 mL を分取した。コンディショニング後の溶液を捨て、試験溶液から新たに 1.3 mL を分取し、フィルターでろ過後、ろ液から 1 mL をミニバイアルに分取し、濃度分析に使用した。Pu の濃度は、液体シンチレーションカウンター（BECKMAN 製 LS 6500）を用いて測定した。液体シンチレーションカウンターによる Pu の濃度分析は、1 mL のサンプルに対し、3 mL のシンチレーター（National Diagnostics 製 Hydrofluor）を加え、実施した。測定条件は、30 分間の 6 回連続測定を 1 サイクルとし、それを 2 回実施し、合計の測定時間をサンプル 1 つにつき 6 時間とした。Pu が安定に溶けていることを確認するために、サンプリングは保存液投入直後、24 時間後及び 48 時間後に 1 回ずつ実施した。Pu が安定に溶けている場合の濃度は 3.6E-11 M (5.5 Bq/mL)

である。Pu が安定に溶けているのを確認した後に、0.5 g の砂岩またはその構成鉱物が入った 30 mL のポリプロピレン製遠心チューブそれぞれに試験溶液 (19.91 mL) を移し、収着を開始した。ケース 1~4 については、収着平衡時間を確認するために、収着開始後 1 時間、24 時間、48 時間、144 時間及び 168 時間 (1 週間) 毎に 1 回サンプリングし、Pu の濃度分析を実施した。振とうは、最終サンプリングを除き、各サンプリング後に手で 1 分間実施した。それら以外のケース (A~F) は、168 時間後に 1 回サンプリングし、休日以外 1 日 1 回手で 1 分間振とうした。最終サンプリング時に試験溶液の pH (ThermoSCIENTIFIC 製 Orion 8172BNWP) 及び Eh (ThermoSCIENTIFIC 製 Orion 9502BNWP) を測定した。白雲母のケース 3 及び 4 については、pH 及び Eh 測定後に容器から試験溶液及び固相を取り出し、脱気水で試験容器を洗浄し、3 mL の 1 M HNO₃ で 3 回、容器壁面を洗浄した。それぞれの洗浄液から 1 mL サンプリングし、100 µL の 10 M NaOH 溶液を加えて中和後、3 mL のシンチレーターを加え、液体シンチレーションカウンターで壁面に吸着している Pu の量を前述の測定条件で分析した。

表 4.3-2 Pu の収着試験溶液条件

ケース	Ctot.	[HCO ₃ ⁻]	[CO ₃ ²⁻]
1	0.1	0.1	0
2	0.1	0	0.1
3	0.3	0.3	0
4	0.3	0.2	0.1
A	0.1	0.08	0.02
B	0.1	0.06	0.04
C	0.1	0.05	0.05
D	0.1	0.04	0.06
E	0.1	0.04	0.06
F	0.3	0.25	0.05

4.3.2 結果及び考察

(1) 収着平衡時間確認試験結果

試験結果を表 4.3-3、収着時間と Kd の変化を図 4.3-2 に示す。

表 4.3-3 収着平衡時間確認試験結果 (ケース 1~4)

ケース	Kd(m ³ /kg)					168 時間 後 pH	168 時間 後 Eh(mV)	
	1 時間後	24 時間後	48 時間後	144 時間後	168 時間後			
砂岩	1	3.6E-02	1.2E+00	9.2E-01	8.5E-01	8.7E-01	8.53	-85.3
	2	2.3E-02	1.3E-01	2.6E-01	7.1E-01	9.2E-01	11.1	-253
	3	1.9E-02	3.8E-02	3.9E-02	4.0E-02	4.1E-02	8.58	-72.1
	4	3.2E-03	6.8E-03	7.4E-03	1.0E-02	1.1E-02	9.46	-154
緑泥石	1	3.8E-02	1.7E+00	1.4E+00	1.2E+00	1.1E+00	8.56	37.8
	2	3.3E-02	4.4E-01	6.2E-01	8.9E-01	8.9E-01	11.1	-53.1
	3	3.2E-02	1.9E-01	1.9E-01	1.5E-01	1.4E-01	8.63	441
	4	1.4E-02	3.1E-02	3.5E-02	3.6E-02	3.6E-02	9.49	440
白雲母	1	3.4E-03	4.1E-03	5.3E-03	6.1E-03	6.5E-03	8.53	43.3
	2	2.4E-02	1.1E-01	1.4E-01	2.1E-01	2.2E-01	11.0	-37.3
	3	1.7E-03	2.0E-03	1.8E-03	1.1E-03	1.4E-03	8.59	40.8
	4	8.1E-04	7.9E-04	1.6E-03	6.2E-04	7.5E-04	9.50	25.8
石英	1	2.8E-03	6.7E-03	9.3E-03	1.4E-02	1.5E-02	8.60	-114
	2	1.6E-02	8.3E-02	1.4E-01	2.7E-01	3.0E-01	11.0	-188
	3	3.3E-04	7.4E-04	6.3E-04	8.6E-04	9.1E-04	8.61	-108
	4	1.9E-04	1.0E-03	1.2E-03	1.5E-03	1.4E-03	9.50	-126

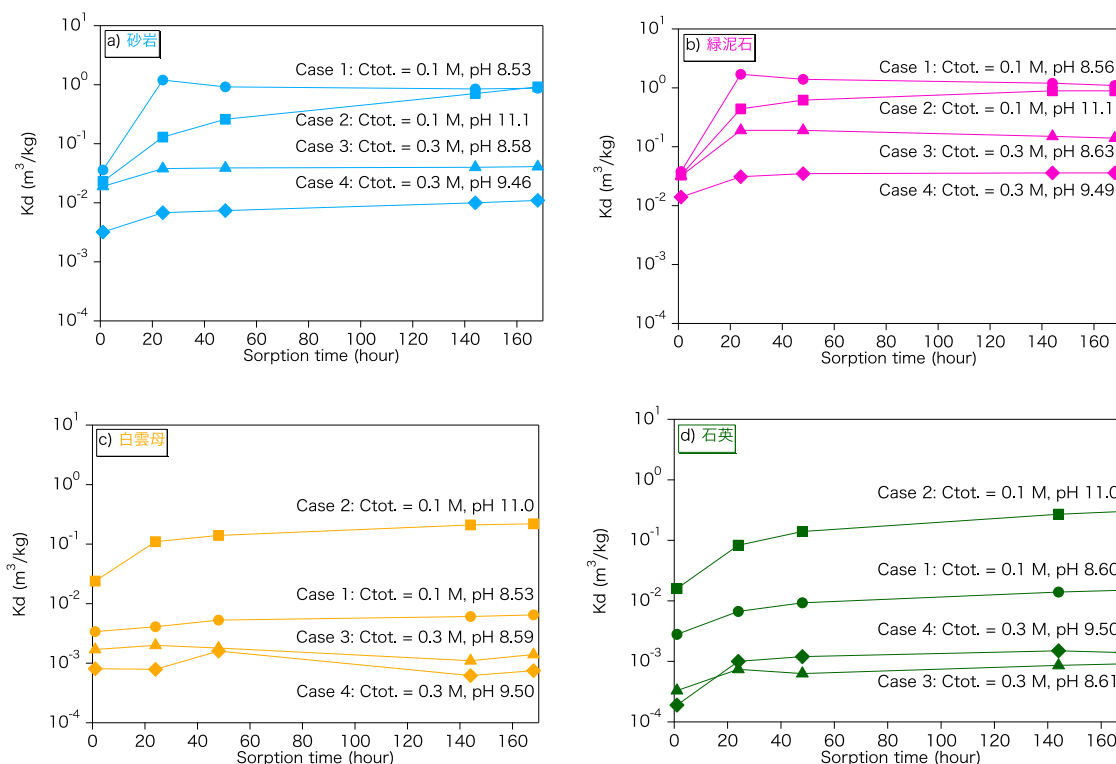


図 4.3-2 収着時間と Kd の変化 (a: 砂岩、b: 緑泥石、c: 白雲母、d: 石英)

n回のサンプリングで収着平衡となった場合、Kd(m³/kg)は、式(4.3-1)で示される。

$$Kd = \frac{(C_0 - C_n) \cdot V_0 - (C_1 + \dots + C_{n-1} - (n-1) \cdot C_n) \cdot V_s}{C_n \cdot M} \quad (4.3-1)$$

C₀: 反応開始時の液相中の Pu の濃度(M)

C_x: x 回目にサンプリングしたときの液相中の Pu の濃度(M)

V₀: 反応開始時の液相の体積(m³)

V_s: 1回あたりのサンプリング量(m³)

M: 固相試料の乾燥質量(kg)

白雲母のケース 3 及び 4 においては、C₀ と C_x の差が小さく、Kd を算出する際に、試験容器壁面への吸着量を考慮する必要がある⁽¹⁷⁾。今回、壁面洗浄液のカウント数とバックグラウンドのカウント数に有意な差が見られず、試験容器壁面への Pu の吸着量はゼロと評価した。

いずれの砂岩及び鉱物についても、収着開始後 24～48 時間と 168 時間の間で Kd がほとんど変化していないことから 24～48 時間で収着平衡に達したと判断した。

(2) 砂岩及び鉱物に対する Pu の収着試験結果

砂岩及び鉱物に対する Pu の収着試験結果を表 4.3-4 及び図 4.3-3 に示す。図 4.3-3 のケース 1～4 の Kd は、168 時間後の値を載せた。

ケース A～F の Kd(m³/kg)は式(4.3-2)、その誤差 σ_{Kd}は式(4.3-3)で示される。

$$Kd = \frac{(C_0 - C_{eq}) \cdot V_0}{C_{eq} \cdot M} \quad (4.3-2)$$

$$\sigma_{Kd} = \frac{V_0}{C_{eq}^2 \cdot M} \sqrt{C_{eq}^2 \cdot \sigma_{C_0}^2 + C_0^2 \cdot \sigma_{C_{eq}}^2} \quad (4.3-3)$$

C₀: 反応開始時の液相中の Pu の濃度(M)

C_{eq}: 収着平衡時の液相中の Pu の濃度(M)

V₀: 反応開始時の液相の体積(m³)

M: 固相試料の乾燥質量(kg)

σ_x: 添え字 x のデータが有する誤差

C₀及び C_{eq}に Pu の放射能測定にかかる誤差として 95%信頼限界 (2σ) を付与した。

全炭酸塩濃度が 0.1 M の場合、砂岩と緑泥石に対する Pu の Kd は、pH 8.5～9.75 で低下し、pH 9.75～11.1 で上昇した。一方、白雲母と石英に対する Pu の Kd は、pH 8.5～9.75 で一定、pH 9.75～11.1 で上昇した。砂岩の構成鉱物である緑泥石 ((Mg, Al, Fe)₄₋₆(Si, Al)₄O₁₀(OH)₈) と白雲母 (KAl₂(Si₃Al)O₁₀(OH)₂) 及び石英 (SiO₂) の大きな違いは、鉱物に鉄が含まれるかどうかである。鉄を含む鉱物、例えば黒雲母は Pu を多く収着することが知られている⁽¹³⁾⁽¹⁴⁾。Pu のスペシエーション (図 4.3-4) を考慮すると、pH 8～11 で支配的に存在する負に帯電した Pu の炭酸錯体 (Pu(OH)₂(CO₃)₂²⁻) が、正に帯電した鉱物の表面水酸基 (図 4.3-5: >FeOH₂⁺及び >AlOH₂⁺) に吸着し、pH が上昇するにつれて、正に帯電した表面水酸基の濃度が低下し、それとともに Kd が低下する傾向を示している。pH 8.5～9.75 では、>FeOH₂⁺及び >AlOH₂⁺の正に帯電した表面水酸基が見られるが、その pH 領域の緑泥石と白雲母に対する Pu の Kd を比較すると緑泥石は低下傾向が見られるものの、白雲母は一定である。このことから、>AlOH₂⁺は Pu の収着には

ほとんど寄与しておらず、緑泥石が砂岩に対する Pu の Kd を支配する鉱物であると考えられる。

一方、pH 9.75～11.1 では負に帯電した鉱物の表面水酸基が支配的となり（図 4.3-5: >SiO⁻、>FeO⁻及び>AlO⁻）、Pu(OH)₄(aq)の濃度が上昇する傾向（図 4.3-4）と同じく Kd も全ての構成鉱物で上昇している。この傾向は、負に帯電した鉱物表面水酸基（>SO⁻）に、電氣的に中性の化学種が収着する⁽¹⁸⁾という次の考え方に一致している。



全炭酸濃度が 0.3 M の方が Pu(OH)₄(aq)の濃度が低く、全炭酸塩濃度が 0.1 M から 0.3 M に上昇すると、砂岩及びその構成鉱物に対する Pu の Kd は、1～1.5 桁低下した。

表 4.3-4 Pu と砂岩及び鉱物の収着試験結果（ケース A～F）

ケース	Kd(m ³ /kg)	pH	Eh(mV)	
砂岩	A	(9.3E-02±1.7E-03)	9.10	360
	B	(5.0E-02±9.7E-04)	9.54	312
	C	(4.2E-02±9.9E-04)	9.73	-11.5
	D	(4.4E-02±8.7E-04)	9.88	212
	E	(5.5E-02±1.1E-03)	10.3	107
	F	(1.3E-02±5.8E-04)	9.10	-51.5
緑泥石	A	(6.5E-01±2.3E-02)	9.16	382
	B	(3.2E-01±8.2E-03)	9.55	325
	C	(1.6E-01±4.3E-03)	9.74	12.8
	D	(3.5E-01±9.2E-03)	9.89	245
	E	(4.0E-01±1.1E-02)	10.3	125
	F	(4.8E-02±1.2E-03)	9.12	-11.7
白雲母	A	(5.3E-03±4.7E-04)	9.15	395
	B	(4.5E-03±4.6E-04)	9.54	340
	C	(4.8E-03±4.8E-04)	9.72	11.6
	D	(5.5E-03±4.7E-04)	9.88	302
	E	(1.3E-02±5.6E-04)	10.3	183
	F	(7.2E-04±4.2E-04)	9.11	-26.3
石英	A	(1.5E-02±6.0E-04)	9.20	298
	B	(2.0E-02±6.9E-04)	9.59	255
	C	(2.3E-02±7.1E-04)	9.75	233
	D	(2.6E-02±7.3E-04)	9.91	202
	E	(4.4E-02±1.0E-03)	10.31	160
	F	(5.1E-04±4.1E-04)	9.09	-141

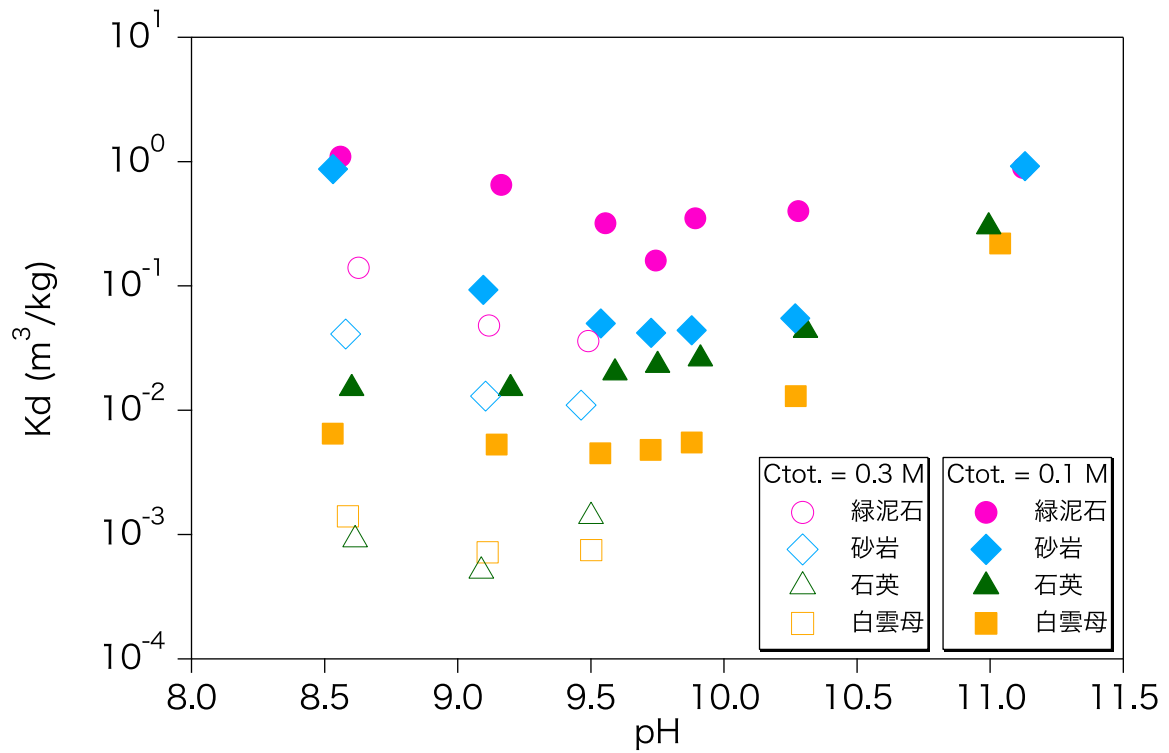


図 4.3-3 砂岩及びその構成鉱物に対する Pu の K_d (ケース 1~4、A~F)

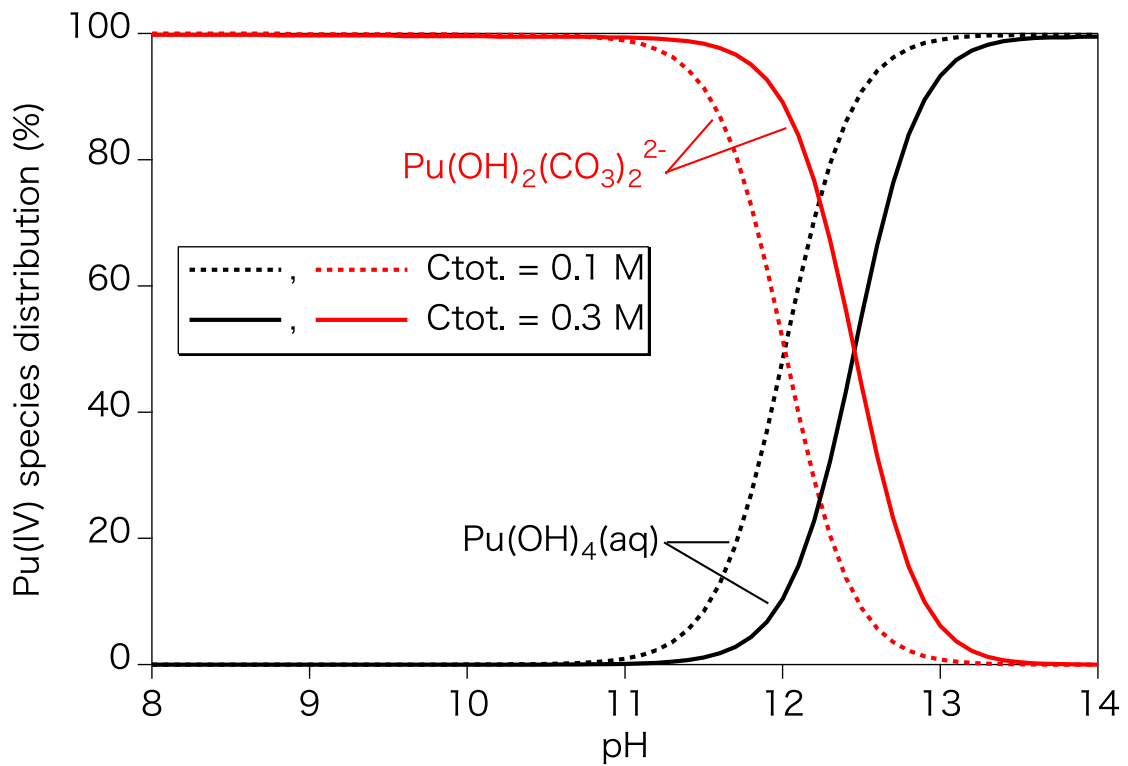


図 4.3-4 Pu のスペシエーション
(JAEA の熱力学データベース⁽¹⁹⁾の値を用いて PHREEQC Ver.3⁽²⁰⁾により計算)

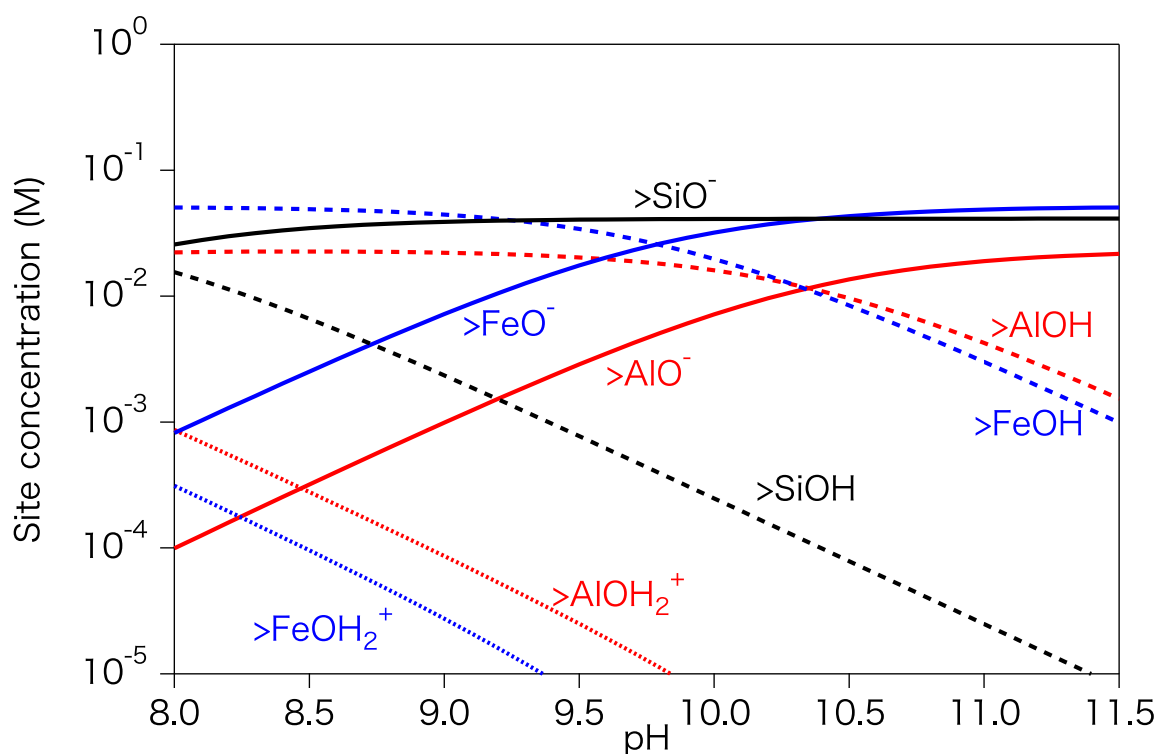


図 4.3-5 表面水酸基のサイト濃度と pH の関係

(Hydrous ferric oxide、Amorphous silica 及び Amorphous alumina の熱力学的収着モデリングパラメーター⁽²¹⁾を使用し、非静電的モデルより Visual Minteq Ver.3.1b⁽²²⁾で計算)

4.3.3 まとめ

全炭酸塩濃度が 0.1 M の場合、砂岩と緑泥石に対する Pu の Kd の変化は、pH 8.5~11.1 で同じ傾向を示した。一方、白雲母と石英に対する Pu の Kd の変化は、pH 8.5~9.75 で一定、pH 9.75~11.1 で砂岩と緑泥石に対する Pu の Kd の変化と同じ傾向を示した。緑泥石が砂岩に対する Pu の Kd を支配する鉱物であることが確認され、pH 8.5~9.75 で緑泥石 ((Mg, Al, Fe)₄₋₆(Si, Al)₄O₁₀(OH)₈) と白雲母 (KAl₂(Si₃Al)O₁₀(OH)₂) に対する Pu の収着挙動が異なるのは、緑泥石に含まれる鉄 (Fe) によるものと推定された。全炭酸塩濃度が 0.1 M から 0.3 M に上昇すると、砂岩及びその構成鉱物に対する Pu の Kd は、1~1.5 桁低下した。

第4章の参考文献

- (1) 陶山忠宏, 館幸男.: 収着データベース (JAEA-SDB) の開発: 土壌系及びセメント系を含む収着データの拡充. JAEA-Data/Code 2011-022, 日本原子力研究開発機構 (2012).
- (2) Rai, D., Felmy, A. R., Ryan, J. L., and J. L.: Uranium(IV) hydrolysis constants and solubility product of $\text{UO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}(\text{am})$. *Inorg. Chem.* **29**, 260-264 (1990).
- (3) Yajima, T., Kawamura, Y., Ueta, S.: Uranium(IV) solubility and hydrolysis constants under reduced conditions. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **353**, 1137-1142 (1995).
- (4) 矢島達哉.: ウラン及びニオブの溶解度測定. 弥生研究会報告書, UTNL-R-0331, 東京大学工学部附属原子力工学研究施設, 127-144 (1994).
- (5) Mibus, J., Sachs, S., Pflingsten, W., Nebelung, C., Bernhard, G.: Migration of uranium(IV)/(VI) in the presence of humic acids in quartz sand: A laboratory column study. *J. Contam. Hydrol.* **89**, 199-217 (2007).
- (6) Baston, G. M. N., Berry, J. A., Brownsword, M., Cowper, M. M., Heath, T. G., Tweed, C. T.: The sorption of uranium and technetium on bentonite, tuff and granodiorite. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **353**, 989-996 (1995).
- (7) Evans, N., Warwick, P., Lewis, T., Bryan, N.: Influence of humic acid on the sorption of uranium(IV) to kaolin. *Environ. Chem. Lett.* **9**, 25-30 (2011).
- (8) 橋谷博, 星野昭, 安達武雄.: 純分定量用金属ウラン標準試料 JAERI-U4. JAERI-M 5343 (1973).
- (9) Guillaumont, R., Fanghanel, T., Neck, V., Fuger, J., Palmer, D. A., Grenthe, I., Rand, M. H.: Update on the Chemical Thermodynamics of Uranium, Neptunium, Plutonium, Americium, and Technetium. Elsevier, Amsterdam (2003).
- (10) Foti, S. C., Freiling, E. C.: The determination of the oxidation states of tracer uranium, neptunium and plutonium in aqueous media. *Talanta* **11**, 385-392 (1964).
- (11) Ticknor, K. V.: Uranium sorption on geological materials. *Radiochim. Acta* **64**, 229-236 (1994).
- (12) 岩波書店.: 理化学辞典 第4版. (1987).
- (13) (財) 原子力安全研究協会: 岩石と核種の相互作用に関する研究(IV) (昭和59年度). PNC TJ114 85-01 (1985).
- (14) Mucciardi, A. N., Booker, I. J., Orr, E. C., Cleveland, D.: Statistical investigation of the mechanics controlling radionuclide sorption. Part II. Final technical report. Battelle Pacific Northwest Laboratory Report, PNL-SA-7352(VOL.2), 333-425 (1978).
- (15) Zavarin, M., Roberts, S. K., Hakem, N., Sawvel, A. M., Kersting, A. B.: Eu(III), Sm(III), Np(V), Pu(V), and Pu(IV) sorption to calcite. *Radiochim. Acta* **93**, 93-102 (2005).
- (16) 日本原子力研究開発機構: 平成22年度地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書. (2011).
- (17) 邊見光, 山口徹治, 飯田芳久.: 花崗閃緑岩, 凝灰質砂岩試験片に対するヨウ素, スズの分配係数. *原子力バックエンド研究* **22**, 3-10 (2011).
- (18) Yamaguchi, T., Nakayama, S., Yoshida, T.: Interactions between anionic complex species of actinides and negatively charged mineral surfaces. *Radiochim. Acta* **92**, 677-102 (2004).
- (19) Kitamura, A., Doi, R., Yoshida, Y.: Update of JAEA-TDB: Update of thermodynamic data for palladium and tin, refinement of thermodynamic data for protactinium, and preparation of PHREEQC database for use of the Brønsted-Guggenheim-Scatchard model. JAEA-Data/Code 2014-009, Japan Atomic Energy Agency (2014).
- (20) Parkhurst, D. L., Appelo, C. A. J.: Description of input and examples for PHREEQC version 3—A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations: U.S. Geological Survey Techniques and Methods, book 6, chap. A43, 497 p., available only at <http://pubs.usgs.gov/tm/06/a43>. (2013).
- (21) OECD and NEA: Thermodynamic sorption modelling in support of radioactive waste disposal safety cases: NEA Sorption Project Phase III, OECD Publishing, Paris (2012).

- (22) Gustafsson, J. P.: Geochemical equilibrium speciation model Visual MINTEQ Ver. 3.1b. KTH, Department of Land and Water Resources Engineering, Stockholm, Sweden (2014).

5. 総合的な安全評価コード・モデルの整備

5. 総合的な安全評価コード・モデルの整備

5.1 はじめに

地層処分分野における原子力規制庁委託事業では、平成 22 年度から平成 26 年度までに廃棄体・人工バリアの挙動モデルおよび物質移行-変質連成解析コードの開発・整備、地質・気候関連事象が処分環境中の特性変化に与える影響評価のためのモデル・コード整備並びに各モデル・コードおよび評価用データとのリンケージを図った総合的な安全評価手法を整備してきた⁽¹⁾⁻⁽⁵⁾。

燃料デブリの処理に関する要求事項を抽出するため、現在我が国の地層処分で想定されている人工バリア概念（オーバーパック（以下、「OP」）および緩衝材）に基づいた、燃料デブリの直接処分を想定した総合的安全評価解析を実施する必要がある。そのため、本事業では総合的な安全評価手法の整備を前事業から引き続いて実施することとした。

本年度は、廃棄体・人工バリアに係る挙動モデル・コード整備として、緩衝材劣化に係る現象（緩衝材中におけるイオン種の拡散）に関して、処分環境を想定した拡散試験等を実施し、実験的および理論的な科学的根拠を有するモデルの整備を実施した。さらに、燃料デブリ廃棄体による緩衝材への影響を考慮可能とするため、物質移行-変質連成解析コードへの上記モデルの導入等の機能拡張を実施した。

また、地質・気候関連事象の発生による影響評価のためのモデル・コードの整備として、長期的な地質環境の変化による地下水流動への影響を連続的に評価するための機能拡張を行った。さらに、核種移行・線量評価コードに対して燃料デブリに特有の特性を踏まえたコードの拡張を行い、総合的な安全評価コードの整備を実施した。

また、「5.2 安全評価手法の全体像」では、体系的な安全評価手法としてこれまで整備している人工バリア領域におけるリンケージ解析の評価体系や天然バリア領域における評価体系、そして本年度実施した整備概要について示した。個々のモデル/コード整備に係る詳細な実施内容については、「5.3 緩衝材中拡散モデルおよび物質移行-変質連成解析コードの整備」、「5.4 MIG2DF の整備」、「5.5 GSRW-PSA の整備」にそれぞれ示す。

5.2 安全評価手法の全体像

地層処分の安全評価では、人工・天然バリアの安全機能（隔離、閉じ込め）を適切に評価することが重要である。そのため、その安全評価手法としては、我が国において想定される代表的な地質、水理、熱および化学的環境を踏まえた、核種移行や被ばくに与える影響を評価できる体系的な手法（シナリオ設定、モデル、解析コード、パラメータ評価）の整備が必要となる。

また、体系的な手法にとっては、評価全体の一貫性が重要になってくることから、全体として「地質・気候関連事象を考慮した地下水流動条件を設定した上で、廃棄体から人工バリア、天然バリアを経由して放出される放射性核種のフラックスおよび生物圏における被ばく量を“ひとつながり”で評価すること」が必要であり、これを実現するため、個々の要素モデルやコード間の適切なリンケージを図った、総合的な安全評価体系の整備が求められる。

（1）人工バリア領域を対象とした評価体系

我が国において想定される代表的な地下水の化学的環境を踏まえた、放射性核種の移行や周辺公衆への被ばくに与える影響を評価することのできる体系的な安全評価手法（シナリオ、モデル、コード）の整備をこれまで進めてきた⁽¹⁾⁽⁵⁾。

平成22年度は、人工バリアの各評価モデルとの適切なリンケージの方法について、現状の知見として、モデルやコード間でのデータの受け渡しについて整理を行った⁽¹⁾。平成23年度には、人工バリア領域の変質評価に用いる、モデル、コード、パラメータについて、データの入出力関係、共通的に使用する設定データ（初期条件、境界条件）の適用関係について整理するとともに、従来の「緩衝材—支保工—EDZ」の人工バリア体系に、新たにOPを加え、OPの溶解（鉄の溶出）をリンクさせた評価手法をリンケージ解析のプロトタイプとして整備した⁽²⁾。平成24年度には、人工バリア領域の温度変遷、10万年解析のためのリスタート機能、全面腐食時の最大溶解速度設定見直し、ガラス固化体溶解速度設定（Caを除外しMg濃度のみとする）等の整備を反映させた⁽³⁾。平成25、26年度には、これまでに整備した人工バリア領域における変遷を評価するための各性能評価モデル/パラメータのリンケージについて、鉄珪酸塩鉱物の鉱物モデル・熱力学データを追加するとともに、核種溶解度にPA-SOLを適用し、ガラス固化体溶解速度設定手法の見直しなどの整備を反映させた（図5.2-1参照）^{(4),(5)}。

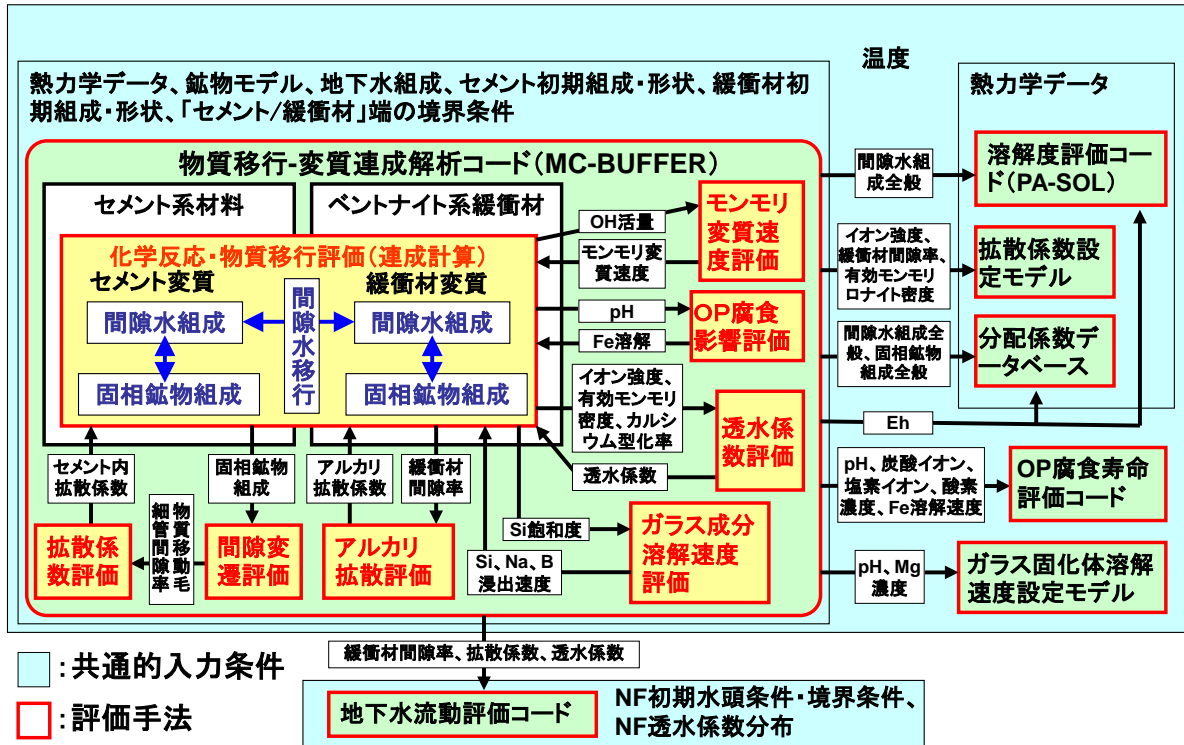


図 5.2-1 人工バリア領域の状態変遷を解析し、核種移行解析および地下水流動解析の入力データを提供するための評価体系

本年度は、燃料デブリ廃棄体による緩衝材への影響を評価可能とするため、ベントナイト系緩衝材中における拡散評価手法に係る整備を実施した。具体的には、平成 26 年度に提案した見かけの拡散係数をベースとしたイオン種の拡散モデルの検討に資するため、種々の条件における透過拡散試験を実施してより長期な検証用データの蓄積を図るとともに、それらデータおよび最新知見等を反映させたモデルの改良を行った。また、当該モデルを物質移行-変質連成解析コード (MC-BUFFER) に導入するための検討を行った。

(2) 天然バリア領域を対象とした評価体系

HLW 等を対象とした地層処分では、地震、火山、隆起・侵食、気候変動等の地質・気候関連事象が発生することが想定される場合に、処分サイト内の地質環境および処分施設における熱、水理、力学、化学的な特性 (以下、THMC) の変化の程度を評価し、さらに、その特性変化が処分施設からの核種移行に与える影響を評価する必要がある。これまで、地質・気候関連事象を考慮した地下水流動条件を設定した上で、廃棄体から人工バリア、天然バリアを経由して放出される放射性核種のフラックスおよび生物圏における被ばく量を総合的に評価するために、図 5.2-2 に示すようなリンケージ評価体系を整備してきた。

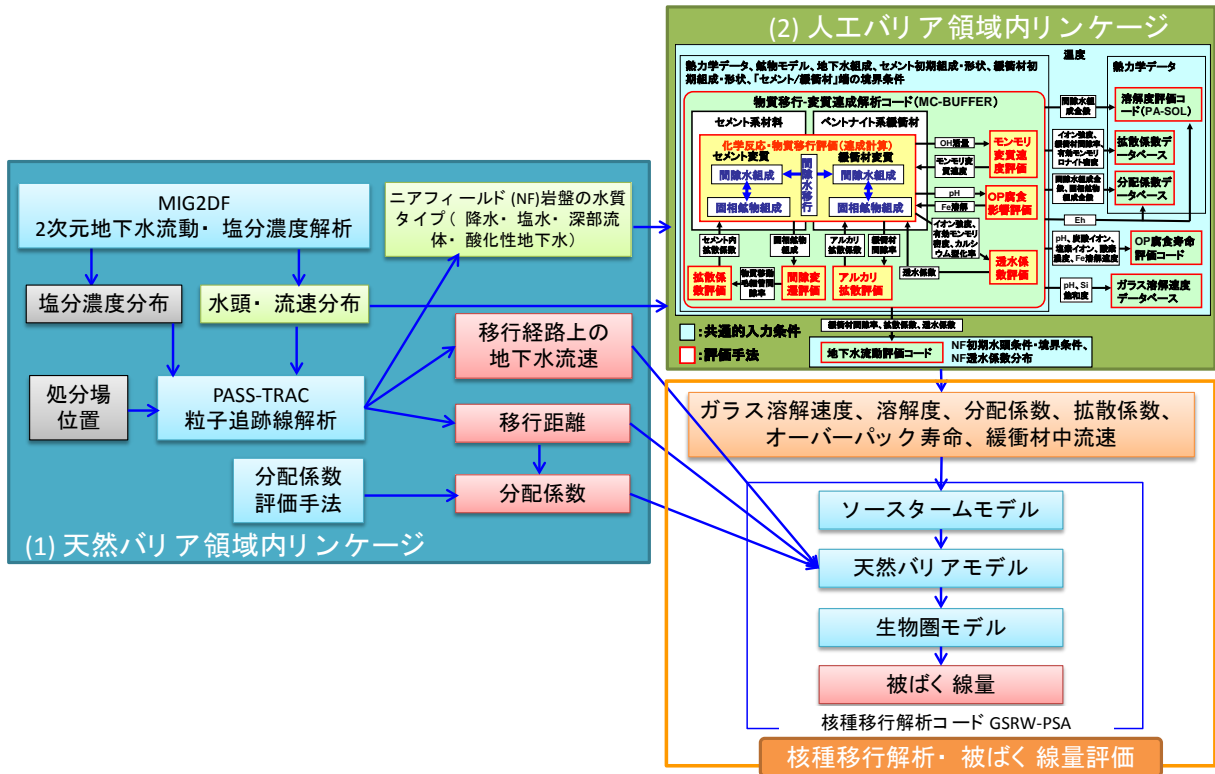


図 5.2-2 堆積岩サイトを想定した場合のリンケージ評価体系

天然バリア領域内では、まず、ガラーキン法を用いた有限要素法による2次元地下水流動解析コードMIG2DFにより、水頭・流速分布および塩分濃度分布の時間変化を計算する。連動した粒子追跡法による移行時間・移行経路の解析コード(PASS-TRAC)により、確率論的安全評価コードGSRW-PSAを用いて安全評価を行う際の天然バリアにおける核種移行の評価に必要なパラメータ(地下水流速、移行経路、水質条件等)を算出する。また、算出された岩種や水質の情報を基に、核種移行データベースの整備の一環で進めている核種の分配係数評価手法により、移行経路上の分配係数を設定する。一方、ニアフィールド岩盤における水質の解析結果は、(1)に示した人工バリアにおけるリンケージ解析の入力となり、ガラス溶解速度や緩衝材中の分配係数、拡散係数などの核種移行パラメータを算出する。以上のパラメータ条件を基に、GSRW-PSAにより人工バリア内から天然バリア、生物圏に至るまでの核種移行の解析を実施している。

本年度は、長期的な地質環境の変遷に伴う地下水流動の変化を連続的に評価するための拡張を、MIG2DFに対して行った。具体的には、調査等により作成された過去～未来のある時刻の地質モデル(地表面、地質境界、断層面の情報)を基にした計算時刻毎の地質モデルの作成、作成した地質モデルに対応する解析モデルの作成、モデルの入れ替わりによる計算値の変化を考慮した計算を可能とする外部プログラムを整備した。

また、燃料デブリに特有の特性を踏まえた解析を行うための拡張を、GSRW-PSAに対して行った。具体的には、燃料デブリのように不均質な廃棄体の評価、容器外臨界の可能性の評価等を可能とするような機能の拡張を行った。

5.3 緩衝材中拡散モデルおよび物質移行-変質連成解析コードの整備

5.3.1 背景と目的

高レベル放射性廃棄物等の地層処分システムにおいて緩衝材の有力な候補材であるベントナイトは、止水機能、核種収着機能など、地層処分の安全性を確保する上で重要なバリア機能が期待されているが、当該処分システムの構造材料（処分坑道の支保工等）として多量に使用するとされるセメント系材料を起源とする高アルカリ性地下水によって変質し、期待されるバリア機能が長期的に損なわれることが懸念される⁽¹⁾。そのため、安全審査の際に事業者が評価する緩衝材の各バリア機能およびその挙動の妥当性を適切に評価するためには、時間スケールや処分環境を考慮した「セメント起源のアルカリ成分がベントナイト系緩衝材へ影響を及ぼす期間および影響の程度を明らかにする手法」を整備する必要がある⁽²⁾。

過去の原子力規制庁（旧原子力安全・保安院、旧原子力安全基盤機構も含む）の委託事業である「放射性廃棄物処分の長期的評価手法の調査」（平成13～21年度）においては、処分場での使用が想定されるベントナイト-砂混合土圧縮成型体を用いてベントナイトの変質に係る諸現象を実験的に定量化するとともに、ベントナイト系緩衝材に期待されている止水機能（透水係数）の長期的な変動を評価するためのモデル、ならびに、セメント系材料の変質にともなう固相および液相成分の変化を評価するための信頼性あるセメント鉱物モデル、およびセメント間隙変遷モデル^{*1}の構築、さらに、これらのモデルを導入した物質移行-変質連成解析コード（MC-BUFFER）の整備・検証を行ってきた（図5.3-1）。また、同委託事業の「安全審査に向けた評価手法の整備」（平成22～26年度）では、我が国の地下環境（淡水、海水、酸化性条件、還元性条件など）を考慮した緩衝材劣化に係る試験を実施するとともに、その試験結果とMC-BUFFER等による計算結果との比較を行い、当該モデルの地下環境への適用性に係る検討を実施した。その結果、ベントナイト透水係数評価モデルの改良案を提示するとともに、これまで整備してきた一連の緩衝材劣化に係る評価モデルについては、まだ解明されていない課題が残されているが、検証計算では概ね実現象が再現できていることが確認できた。そのため、まだ若干課題があることを認識しつつ、現段階では「総合的な安全評価手法」において使用することとした。さらに、緩衝材中の環境状態設定するために重要であると考えられるイオン種の分布を評価するためには、現行の「全てのイオン種に対して（OH⁻の拡散試験結果から構築した）拡散モデルを用いる評価」は不適切であると考えられることから、「電気的中性条件を保ちつつ、全てのイオン種の拡散現象を評価可能なモデル」を構築し、MC-BUFFERに組込むことを今後の当該モデル整備の方針として示した。平成26年度は、拡散モデル整備に係るこの方針を踏まえ、緩衝材中の化学環境解析における拡散評価においては、今後「見かけの拡散係数（ D_a ）をベースとしたシンプルで科学的に合理的なベントナイト内拡散モデル」（以下、「新拡散モデル」）を整備し、MC-BUFFERに取り込むこととした（平成26年度に実施した、当該モデルの導入に係る検討内容をAppendix I-A-1に記載する）。また、新拡散モデルの原案を提示するとともに、その検証に資するため、非放射性のイオン種（Na⁺イオン、Ca²⁺イオン、Cl⁻イオン、）を用いたNa型モンモリロナイト中の透過拡散試験を実施した。

ベントナイトは、福島第一原子力発電所事故によって発生した燃料デブリを処分する際の人工バリアとしても使用される可能性があり、また、燃料デブリにもセメント成分（格納容器に

※1 「セメント間隙変遷モデル」は、①セメント硬化体中の間隙を成因や物質移行特性、化学反応場としての機能に基づいて分類するモデル（間隙モデル）と②セメントの変質によるこれらの間隙の量の変化を記述するモデル（変遷モデル）から成り、物質移動に寄与する間隙の間隙率（物質移動毛細管間隙率）と有効拡散係数は正比例するというモデルである。

落下しコンクリートと反応した MCCI (Molten Core Concrete Interaction) 生成物、本報告書第2章参照) や海水成分が含まれることから、緩衝材の内側 (廃棄体側) からの変質を評価するためにも、これまで整備してきた上記評価手法が適用可能と考えられる。そこで本事業では、前事業から継続して、緩衝材劣化に係る評価手法の整備を行うこととした。

平成 27 年度は、より長期な拡散データを取得するため、平成 26 年度から開始した透過拡散試験を引き続き行うとともに、イオン強度が拡散挙動に与える影響を把握するため、Ca²⁺イオンを用いた透過拡散試験を新たな条件で行い、新拡散モデルに係る検討を実施した。また、MC-BUFFER に Da を用いた新拡散モデルを導入するための留意点を整理するとともに、具体的な導入方法に係る検討を実施した。さらに、その妥当性を確認するため、MC-BUFFER プログラムの修正、および検証を実施した。

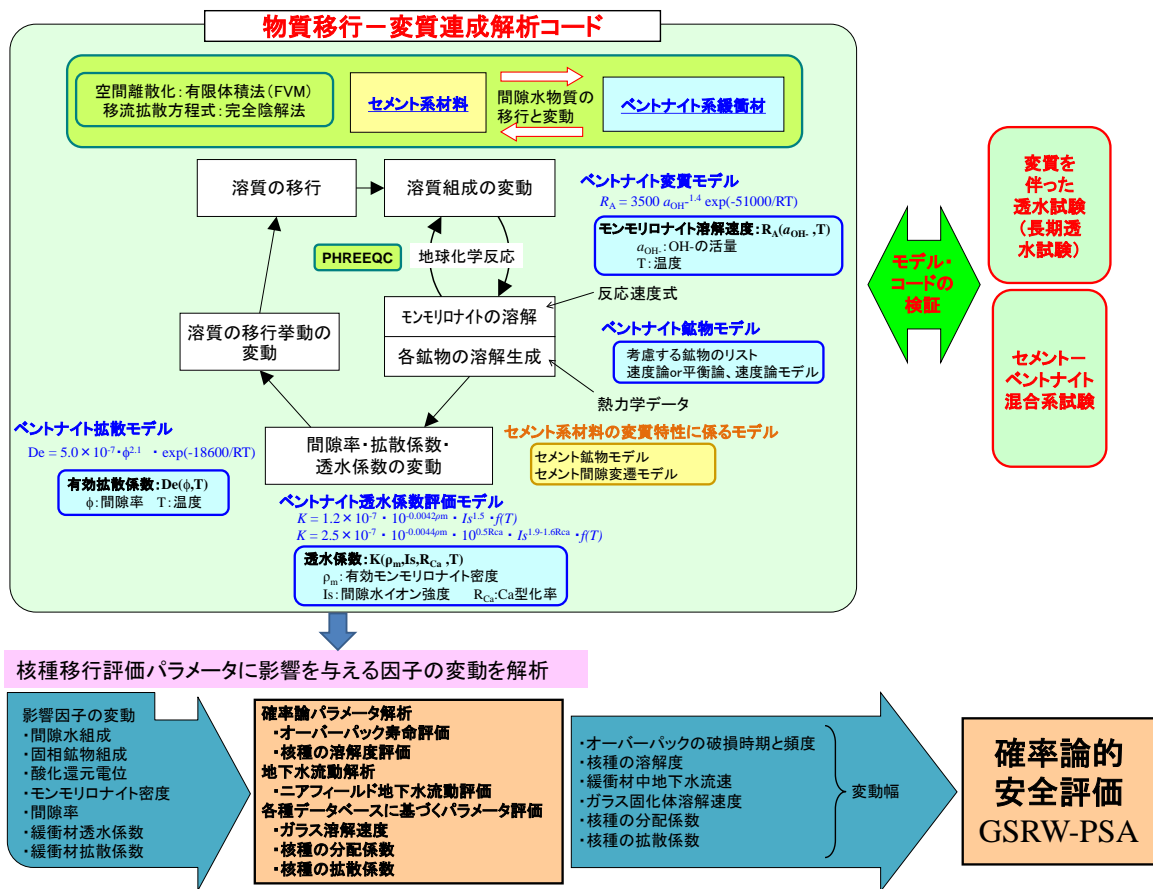


図 5.3-1 緩衝材の劣化に係る評価モデルと解析コードの体系

5.3.2 透過拡散試験および収着バッチ試験

(1) 目的、試験概要、および試験ケース

上述したように新拡散モデルの検討に資するため、非放射性の Ca²⁺イオン、Na⁺イオン、Cl⁻イオンを Na 型モンモリロナイト圧縮体に透過させる拡散試験を平成 26 年度より実施している。本年度はより長期な拡散データを取得するため、これら透過拡散試験を継続して実施するとともに、イオン強度が拡散挙動に与える影響を把握するため、0.02~0.2 M の NaCl 溶液をベースとした Ca²⁺イオンの透過拡散試験を新たに実施した。試験ケースを表 5.3-1 に示す。なお、当

該圧縮体の初期状態が拡散試験結果に与える影響を小さくするため、Na型モンモリロナイト圧縮体を膨潤させるために用いた溶液は、低濃度側タンクの初期組成と同じ濃度のNaCl溶液を用いることとした。

表 5.3-1 透過拡散試験ケース

ケース	高濃度側タンク内の初期溶液	低濃度側タンク内の初期溶液	備考	
1	0.0025 M CaCl ₂ 溶液 +0.005 M NaCl 溶液	0.005 M NaCl 溶液	Ca ²⁺ 、Cl ⁻ の拡散挙動を確認	平成 26 年度 から継続し て実施
2	0.0025 M CaCl ₂ 溶液	0.005 M NaCl 溶液	Ca ²⁺ の拡散挙動を確認	
3	0.0025 M CaCl ₂ 溶液 +0.5 M NaCl 溶液	0.5 M NaCl 溶液	Ca ²⁺ の拡散挙動を確認	
4	0.01 M NaCl 溶液	0.005 M NaCl 溶液	Na ⁺ 、Cl ⁻ の拡散挙動を確認	
5	0.02 M NaCl 溶液	0.005 M NaCl 溶液	Na ⁺ 、Cl ⁻ の拡散挙動を確認	
6	0.03 M NaCl 溶液	0.005 M NaCl 溶液	Na ⁺ 、Cl ⁻ の拡散挙動を確認	
7	0.0025 M CaCl ₂ 溶液 +0.02 M NaCl 溶液	0.02 M NaCl 溶液	Ca ²⁺ の拡散挙動を確認	平成 27 年度 から新たに 実施
8	0.0025 M CaCl ₂ 溶液 +0.05 M NaCl 溶液	0.05 M NaCl 溶液	Ca ²⁺ の拡散挙動を確認	
9	0.0025 M CaCl ₂ 溶液 +0.1 M NaCl 溶液	0.1 M NaCl 溶液	Ca ²⁺ の拡散挙動を確認	
10	0.0025 M CaCl ₂ 溶液 +0.2 M NaCl 溶液	0.2 M NaCl 溶液	Ca ²⁺ の拡散挙動を確認	

さらに、上述の透過拡散試験の検証で用いる保持因子 (α) の設定に係る検討に資するため、収着バッチ試験を実施し、Na型モンモリロナイトに対するCa²⁺イオンの収着分配係数 (K_d) を取得することとした。本年度実施した収着バッチ試験ケース (①~⑧) を、平成 26 年度に実施したケースの結果と併せて表 5.3-2 に示す。

各試験の詳細については、後述する (2)、(3) に記載する。

表 5.3-2 収着バッチ試験ケース

ケース	浸漬溶液	備考 (対応する透過拡散 試験ケース)	平成 26 年度実施の有 無/取得した Kd 値	
—	0.0025 M CaCl ₂ 溶液	ケース 2 本年度は実施しない	○	1.6×10 ¹ m ³ /kg
①	0.0025 M CaCl ₂ 溶液 + 0.005 M NaCl 溶液	ケース 1	○	4.4×10 ⁰ m ³ /kg
②	0.0025 M CaCl ₂ 溶液 + 0.01 M NaCl 溶液		×	—
③	0.0025 M CaCl ₂ 溶液 + 0.02 M NaCl 溶液	ケース 7	×	—
④	0.0025 M CaCl ₂ 溶液 + 0.05 M NaCl 溶液	ケース 8	×	—
⑤	0.0025 M CaCl ₂ 溶液 + 0.1 M NaCl 溶液	ケース 9	×	—
⑥	0.0025 M CaCl ₂ 溶液 + 0.2 M NaCl 溶液	ケース 10	×	—
⑦	0.0025 M CaCl ₂ 溶液 + 0.4 M NaCl 溶液		×	—
⑧	0.0025 M CaCl ₂ 溶液 + 0.5 M NaCl 溶液	ケース 3	○	1.1×10 ² m ³ /kg

(2) 透過拡散試験

試験に用いたモンモリロナイト試料はクニミネ工業製クニピア F である。精製前のモンモリロナイトの交換性陽イオンの大半は Na だが、10 % 程度の Ca も含んでいる⁽³⁾。Na 型への置換は次の手順で行った。まず、モンモリロナイト粉末 20 g を 1 M の NaCl 水溶液 2 dm³ に加え、24 時間以上攪拌させた後、24 時間静置して沈殿させた。上澄み液を取り除き、新たに同濃度の新しい NaCl 水溶液 2 dm³ を加え、同様の操作を計 3 回繰り返した。次に、完全に Na 型に置換したモンモリロナイトを透析用セルロースチューブ (UC36-32-100: VISKASE SALES CORP 製) の中に入れ、イオン交換水と接触させることにより、試料中の過剰塩を除去した。イオン交換水は、0.5 M の硝酸銀溶液による白濁反応が確認されなくなるまで定期的に交換した。その後、モンモリロナイト試料をセルロースチューブより出し、凍結乾燥 (-110℃、24 時間以上) させた。乾燥後、試料をメノウ製マグネット乳鉢 (1-6020-04: アズワン(株)製) および乳鉢スターラー (1-6016-11: アズワン(株)製) によって自動粉碎し、ふるいを用いて粒径が 100-200 メッシュ (75-150 μm) の試料 (以下、「Na 型モンモリロナイト試料」) を得た。

Na 型モンモリロナイト試料を 90℃ の恒温槽内で乾燥させた後、直径 20 mm、厚さ 10 mm の円柱状に乾燥密度 1,000 kg/m³ となるように圧縮成型し、その両端にステンレス鋼製焼結フィルター (孔サイズ 1 μm) を付け、図 5.3-2 のアクリル製拡散セルを組み立てた。さらに、両タンク内に、表 5.3-1 で示した「低濃度側タンク内の初期溶液 (0.005 M ~ 0.5 M の NaCl 溶液)」をそれぞれ 0.11 dm³ 入れ、当該圧縮体と接触させた。なお、この際、試料中の空気を取り除き、NaCl 溶液の浸透を促進させるため、拡散セルごとデシケーター中で一度減圧させる操作を行った。この後、当該圧縮体を常温、常圧下で 28 日以上静置することにより膨潤させた。膨潤終了後、各タンク (高濃度側タンクおよび低濃度側タンク) 内の膨潤溶液を、表 5.3-1 に示した所定の試験用溶液を入れ換えることで拡散試験を開始した。なお、試験開始時の溶液交換の際にも拡散セル内の空気を取り除くため、減圧させる必要があるが、高濃度側タンク内の初期溶液を入れた状態で減圧すると、測定対象のイオン種が拡散以外の駆動力で試料内に浸入してしまうおそれがある。そのため、溶液の入れ換え操作では、ケース 2 の高濃度側タンクには脱イオン水を、その他のタンクには「低濃度側タンク内の初期溶液 (0.005 M ~ 0.5 M の NaCl 溶液)」

を入れ、数分間脱気した後に測定対象のイオン種を含む溶液を高濃度側タンク内に添加することで、初期溶液となるように調整した。拡散試験開始時における両タンク内の溶液量はそれぞれ 0.11 dm^3 とし、液面の高さを同じとした。また、当該拡散セルは、試験期間を通じて冷却機能付き恒温槽内で静置させ、 298 K に維持した。各ケースで実施する試験数は 1 Run ずつとした。

試験開始後、高濃度側タンクから 0.005 dm^3 、低濃度タンク側から 0.01 dm^3 の溶液を定期的に採取し、 $0.45 \mu\text{m}$ のシリンジフィルターで濾過後、高周波プラズマ発光分光分析装置 (ICP-AES、SPS7800 : エスアイアイ・ナノテクノロジー(株)製) で Na^+ イオン濃度および Ca^{2+} イオン濃度を、塩素複合電極 (9617BNWP : サーモフィッシャーサイエンティフィック(株)製) で Cl^- イオン濃度を経時的に測定した。なお、採取後は、低濃度側タンクに初期溶液をそれぞれ 0.0095 dm^3 添加し、両タンクの液面の高さが等しく、かつ、常にモンモリロナイト試料が液面上に露出しないように溶液の量を調整した。

試験終了後、後述のケース 1~3 については、拡散セルを解体し、ノギスで測りながらモンモリロナイト試料を 1.0 mm 程度ずつ押し出し、カッターでスライスした。その後、それぞれの試料片と 1 M の NH_4Cl 溶液 0.01 dm^3 を遠心チューブに封入し、振とう機 (NR-10 : TAITEC(株)製) で一昼夜攪拌させることによってモンモリロナイトに収着している Na^+ イオンと Ca^{2+} イオンを脱離させた。攪拌後、チューブ内の固相と液相を遠心分離させ、その上澄みを 0.009 dm^3 採取し、 $0.45 \mu\text{m}$ のシリンジフィルターで濾過後、ICP-AES で Na^+ イオン濃度および Ca^{2+} イオン濃度を測定した。上澄みを採取した後のチューブに再び上記 NH_4Cl 溶液 0.009 dm^3 を入れ、同様の操作を 4 回繰り返した。4 回目の上澄み採取後に遠沈チューブに残ったモンモリロナイト試料は、 313 K の恒温槽内で一昼夜放置後、真空デシケーター内に入れて一週間真空引きすることにより水分を除去、再び 313 K の恒温槽内に放置後、重量を測定し、乾燥重量とした。なお、上記操作中も適宜重量測定を行い、乾燥重量とした値が恒量値であることを確認した。

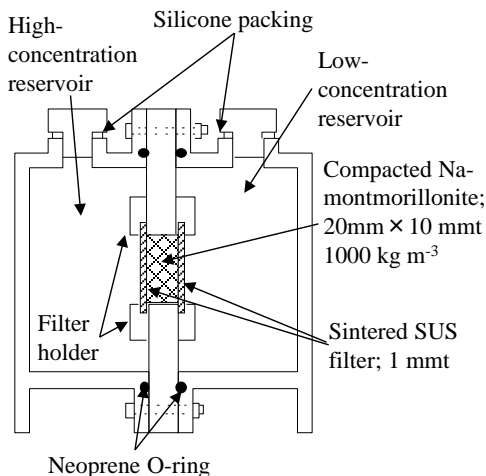


図 5.3-2 アクリル製拡散セル

(3) 収着バッチ試験

収着バッチ試験は、日本原子力学会標準「深地層処分のバリア材を対象とした K_d の測定方法の基本手順」⁽⁴⁾ に準拠した方法で実施した。上述の Na 型モンモリロナイト試料 (粉末) 0.1 g を遠心チューブに入れ、表 5.3-2 に示した所定の溶液を 0.01 dm^3 加えた。なお、本手順書においては、試験の固液比は 1:10 が推奨されているが、本試験で設定したケース①、②等で用いる

低イオン強度溶液中では、固相と液相が十分に混ざらない(モンモリロナイトが懸濁しにくい)ことを事前に確認していたため、固液比を 1:100 とした。その後、チューブに蓋をし、ハンドシェイクにて攪拌し、298 K の冷却機能付き恒温槽内で静置させた。静置期間中は 1 日 1 回、ハンドシェイクにより試料を攪拌させ、固相と液相が十分に混ざり合っていることを確認した。この操作を 1 週間繰り返した後、当該チューブ内の固相と液相を遠心分離させ、その上澄みを 0.45 μm のシリンジフィルターで濾過し、高周波プラズマ発光分光分析装置 (ICP-AES、SPS7800: エスアイアイ・ナノテクノロジー(株)製) で Na^+ イオン濃度および Ca^{2+} イオン濃度を測定した。各ケースで実施する試験数は 3 Run ずつとした。

(4) 解析

新拡散モデルを検証するため、上述した透過拡散試験結果と当該モデルを用いて計算した結果を比較することとした。以下に本検証で用いたモデル計算の方法を記す。

上述した透過拡散試験の試験方法、体系を考慮すると、一次元体系として解くこと可能であり、Fick の第 2 法則は式(5.3-1)となる。

$$\frac{\partial C_{bi}(x,t)}{\partial t} = D_{ai} \left(\frac{\partial^2 C_{bi}(x,t)}{\partial x^2} \right) \quad (5.3-1)$$

高濃度側タンクから低濃度側タンクへ、モンモリロナイト試料を通じてイオン種が拡散する際の位置 x におけるベントナイト中のイオン種濃度 $C_{bi}(x,t)$ は、式(5.3-1)を以下の初期条件および境界条件で解くことによって得られる。

$$\text{初期条件} \quad : \quad C_{bi}(x,0) = 0 \quad (0 \leq x \leq L)$$

$$\text{境界条件} \quad : \quad t > 0 \quad , \quad C_{bi}(0,t) = C_{biH}(t) \quad , \quad C_{bi}(L,t) = C_{biL}(t)$$

ここで、

$C_{biH}(t)$: 高濃度側タンク溶液と試料の界面におけるモンモリロナイト中のイオン種濃度 [mol/m³]

$C_{biL}(t)$: 低濃度側タンク溶液と試料の界面におけるモンモリロナイト中のイオン種濃度 [mol/m³]

D_{ai} : モンモリロナイト中におけるイオン種の見かけの拡散係数 [m²/s]

である。

また、境界条件となるベントナイト-液相境界における C_{bi} は、液相中のイオン種濃度 C_{li} [mol/m³] と保持因子 α_i [-] を用いて式(5.3-2)の形で表すこととした。さらに、陽イオン (Ca^{2+} イオン) については、 α_i を式(5.3-3)に示す形で表すことが出来ると仮定し、本検証に使用することとした。なお、当該モデルで使用する濃度は「(単位体積当たりの) モンモリロナイト中のイオン種濃度: C_{bi} 」であり、間隙水中濃度は考えていない。保持因子はあくまでも C_{bi} と「(境界外側の) 液相中のイオン種濃度 C_{li} 」の比例定数 (C_{bi}/C_{li}) であることを前提とする。

$$C_{bi} = \alpha_i C_{li} \quad (5.3-2)$$

$$= (\varepsilon + \rho_b K_{di}) C_{li} \quad (5.3-3)$$

高濃度側タンクおよび低濃度側タンクのイオン種濃度は時間の関数となるため解析解を得ることが難しい。そこで、以下に記す方法により両タンク中におけるイオン種濃度の経時変化の導出を図る。

まず、透過したイオン種による低濃度側タンク濃度の増加が無視できる微小時間 Δt [s] を考える。このとき $C_{biH}(t)$ 、 $C_{biL}(t)$ は定数となるので、位置 x におけるイオン種濃度 $C_{bi}(x,t)$ は、

$$C_{bi}(x,t) = C_{biH}(t) + \{C_{biL}(t) - C_{biH}(t)\} \frac{x}{L} + \frac{2}{\pi} \sum_n \frac{C_{biL}(t) \cos n\pi - C_{biH}(t)}{n} \sin \frac{n\pi x}{L} \exp\left(-\frac{D_{ai} n^2 \pi^2}{L^2} t\right) \quad (5.3-4)$$

となる⁽⁵⁾。また、その際の拡散フラックス J_i [mol/m²/s] は Fick の第 1 法則を用いて式(5.3-5)で表される。

$$J_i = -D_{ai} \left(\frac{\partial C_{bi}(x,t)}{\partial x} \right) = D_{ai} \{C_{biH}(t) - C_{biL}(t)\} \frac{1}{L} - \frac{2D_{ai}}{L} \sum_n \{C_{biL}(t) \cos n\pi - C_{biH}(t)\} \cos \frac{n\pi x}{L} \exp\left(-\frac{D_{ai} n^2 \pi^2}{L^2} t\right) \quad (5.3-5)$$

従って、時間 t から微小時間 Δt 経過する間に、モンモリロナイト試料中の位置 x を通過するイオン種の量 $\Delta Q(x,t)$ [mol] は、式(5.3-5)を時間積分することで以下の式(5.3-6)のようになる。

$$\Delta Q(x,t) = A \int_t^{t+\Delta t} J_i dt = A \left[D_{ai} \{C_{biH}(t) - C_{biL}(t)\} \frac{\Delta t}{L} - \frac{2L}{\pi^2} \sum_n \frac{C_{biL}(t) \cos n\pi - C_{biH}(t)}{n^2} \cos \frac{n\pi x}{L} \left\{ \exp\left(-\frac{D_{ai} n^2 \pi^2}{L^2} t\right) - \exp\left(-\frac{D_{ai} n^2 \pi^2}{L^2} (t + \Delta t)\right) \right\} \right] \quad (5.3-6)$$

ここで、 A は試料の断面積 [m²] である。

同様にモンモリロナイト試料中に浸入するイオン種量 $\Delta Q(0,t)$ および 試料を透過して低濃度側タンクに漏出するイオン種量 $\Delta Q(L,t)$ は式(5.3-6)において、 $x=0$ および $x=L$ のときの値なので、式(5.3-2)の関係式と合わせて、それぞれ以下のように表される。

$$\Delta Q(0,t) = A \left[D_{ai} \{\alpha_H C_{iH}(t) - \alpha_L C_{iL}(t)\} \frac{\Delta t}{L} + \frac{2L}{\pi^2} \sum_n \frac{\alpha_H C_{iH}(t) - \alpha_L C_{iL}(t) \cdot (-1)^n}{n^2} \left\{ \exp\left(-\frac{D_{ai} n^2 \pi^2}{L^2} t\right) - \exp\left(-\frac{D_{ai} n^2 \pi^2}{L^2} (t + \Delta t)\right) \right\} \right] \quad (5.3-7)$$

$$\Delta Q(L,t) = A \left[D_{ai} \{ \alpha_H C_{iH}(t) - \alpha_L C_{iL}(t) \} \frac{\Delta t}{L} + \frac{2L}{\pi^2} \sum_n \frac{\alpha_H C_{iH}(t)(-1)^n - \alpha_L C_{iL}(t)}{n^2} \left\{ \exp\left(-\frac{D_{ai} n^2 \pi^2}{L^2} t\right) - \exp\left(-\frac{D_{ai} n^2 \pi^2}{L^2} (t + \Delta t)\right) \right\} \right] \quad (5.3-8)$$

ここで、

$C_{iH}(t)$: 高濃度側タンクのイオン種濃度 [mol/m³]

$C_{iL}(t)$: 低濃度側タンクのイオン種濃度 [mol/m³]

α_H : 高濃度側タンク内溶液と接するモンモリロナイト試料の保持因子 [-]

α_L : 低濃度側タンク内溶液と接するモンモリロナイト試料の保持因子 [-]

である。

一方、さらに Δt 時間が経過した、 $t + \Delta t$ から $(t + \Delta t) + \Delta t$ の間のイオン種の移動量は、高濃度側タンクからイオン種が $\Delta Q(0,t)$ 分減少、低濃度側タンク内へはイオン種が $\Delta Q(L,t)$ 分増加するため、その増減した濃度をそれぞれ新たに $C_{iH}(t + \Delta t)$ 、 $C_{iL}(t + \Delta t)$ とすると、浸入量と透過量はそれぞれ式(5.3-9)、式(5.3-10)で示される。

$$\Delta Q(0,t + \Delta t) = A \left[D_{ai} \{ \alpha_H C_{iH}(t + \Delta t) - \alpha_L C_{iL}(t + \Delta t) \} \frac{\Delta t}{L} + \frac{2L}{\pi^2} \sum_n \frac{\alpha_H C_{iH}(t + \Delta t) - \alpha_L C_{iL}(t + \Delta t) \cdot (-1)^n}{n^2} \left\{ \exp\left(-\frac{D_{ai} n^2 \pi^2}{L^2} (t + \Delta t)\right) - \exp\left(-\frac{D_{ai} n^2 \pi^2}{L^2} (t + 2\Delta t)\right) \right\} \right] \quad (5.3-9)$$

$$\Delta Q(L,t + \Delta t) = A \left[D_{ai} \{ \alpha_H C_{iH}(t + \Delta t) - \alpha_L C_{iL}(t + \Delta t) \} \frac{\Delta t}{L} + \frac{2L}{\pi^2} \sum_n \frac{\alpha_H C_{iH}(t + \Delta t)(-1)^n - \alpha_L C_{iL}(t + \Delta t)}{n^2} \left\{ \exp\left(-\frac{D_{ai} n^2 \pi^2}{L^2} (t + \Delta t)\right) - \exp\left(-\frac{D_{ai} n^2 \pi^2}{L^2} (t + 2\Delta t)\right) \right\} \right] \quad (5.3-10)$$

$$C_{iH}(t + \Delta t) = C_{iH}(t) - \frac{\Delta Q(0,t)}{V_{iH}} \quad (5.3-11)$$

$$C_{iL}(t + \Delta t) = C_{iL}(t) + \frac{\Delta Q(L,t)}{V_{iL}} \quad (5.3-12)$$

ここで、

V_{iH} : 高濃度側タンクの体積 [m³]

V_{iL} : 低濃度側タンクの体積 [m³]

である。同様に、 $m\Delta t$ から $m\Delta t + \Delta t$ の間の浸入量および透過量は式(5.3-13)、式(5.3-14)で与えられる。

$$\Delta Q(0, m\Delta t) = A \left[D_{ai} \{ \alpha_H C_{iH}(m\Delta t) - \alpha_L C_{iL}(m\Delta t) \} \frac{\Delta t}{L} + \frac{2L}{\pi^2} \sum_n \frac{\alpha_H C_{iH}(m\Delta t) - \alpha_L C_{iL}(m\Delta t) \cdot (-1)^n}{n^2} \left\{ \exp\left(-\frac{D_{ai} n^2 \pi^2}{L^2} m\Delta t\right) - \exp\left(-\frac{D_{ai} n^2 \pi^2}{L^2} (m+1)\Delta t\right) \right\} \right] \quad (5.3-13)$$

$$\Delta Q(L, m\Delta t) = A \left[D_{ai} \{ \alpha_H C_{iH}(m\Delta t) - \alpha_L C_{iL}(m\Delta t) \} \frac{\Delta t}{L} + \frac{2L}{\pi^2} \sum_n \frac{\alpha_H C_{iH}(m\Delta t) (-1)^n - \alpha_L C_{iL}(m\Delta t)}{n^2} \left\{ \exp\left(-\frac{D_{ai} n^2 \pi^2}{L^2} (m\Delta t)\right) - \exp\left(-\frac{D_{ai} n^2 \pi^2}{L^2} (m+1)\Delta t\right) \right\} \right] \quad (5.3-14)$$

$$C_{iH}(m\Delta t) = C_{iH}(m\Delta t - \Delta t) - \frac{\Delta Q(0, m\Delta t - \Delta t)}{V_{iH}} \quad (5.3-15)$$

$$C_{iL}(m\Delta t) = C_{iL}(m\Delta t - \Delta t) + \frac{\Delta Q(L, m\Delta t - \Delta t)}{V_{iL}} \quad (5.3-16)$$

本検証では、既往の In-diffusion 試験結果から得られた Da 、および後述する収着バッチ試験結果より導出される Kd または α を用いて、時間 $t=0$ より所定の時間 $t=k\Delta t$ まで、 k 回のステップの計算を行い、 Δt 間の $\Delta Q(0, t)$ および $\Delta Q(L, t)$ を計算することにより、 $C_{iH}(t)$ 、 $C_{iL}(t)$ の経時変化（計算値）を導出し、透過拡散試験結果（実験値）と比較することとした。

なお、当該透過拡散試験では、評価対象イオン種はモンモリロナイト圧縮体以外に焼結フィルターを拡散する。このため、上述した解析によって使用する Da は両フィルター中の拡散の影響を含んだ値としなければいけない。そこで、式(5.3-17)⁽⁶⁾を用いて導出した Da の値を解析では用いることとした。なお、フィルター中のイオン種の見かけの拡散係数 D_{a,i_filt} [m^2/s]については、フィルターにイオン種は収着しない ($Kd=0$) と仮定し、フィルター中のイオン種の有効拡散係数 De ($4 \times 10^{-10} m^2/s$)⁽⁷⁾とフィルターの間隙率 ε (0.4) を用い、 $Da=De/\varepsilon$ から導出した値 ($1.0 \times 10^9 m^2/s$) とした。

$$Da = \frac{L_{mont} + 2L_{filt}}{\frac{L_{mont}}{D_{a,i_mont}} + \frac{2L_{filt}}{D_{a,i_filt}}} \quad (5.3-17)$$

ここで、

L_{mont} : モンモリロナイト試料の厚さ [m] (=0.01 m)

L_{filt} : フィルターの厚さ [m] (=0.001 m)

D_{a,i_mont} : モンモリロナイト圧縮体中のイオン種 i の見かけの拡散係数 [m^2/s]

D_{a,i_filt} : フィルター中のイオン種 i の見かけの拡散係数 [m^2/s] (= $1.0 \times 10^9 m^2/s$)

である。

また、Na 型モンモリロナイトに対する Ca^{2+} イオンの Kd_{ca} [m^3/kg] の導出については、以下の式⁽⁴⁾を用いることで、収着バッチ試験結果からその値を得た。

$$Kd_{ca} = \frac{V}{M} \cdot \frac{C_{0ca} - C_{ca}}{C_{ca}} \times 10^{-3} \quad (5.3-18)$$

ここで、

V : 収着バッチ試験に用いた溶液の体積 [ml] (= 0.01 dm^3)

M : 収着バッチ試験に用いた試料の質量 [g] (= 0.1 g)

C_{0ca} : 収着バッチ試験に用いた溶液の初期 Ca 濃度 [mol/m^3]

C_{ca} : 収着バッチ試験終了後 (平衡後) 溶液の Ca 濃度 [mol/m^3]

である。

さらに、試験終了後に分割したモンモリロナイト試料片から脱離させた Na^+ イオンおよび Ca^{2+} イオンの総量は以下の式から導出した。

$$M_i = \sum_1^4 C_{super,i}^n V_{super} \quad (5.3-19)$$

ここで、

M_i : モンモリロナイト試料片から脱離されたイオン種 i の総量 [mol]

$C_{super,i}^n$: n 回目の攪拌操作後の上澄み中のイオン種 i 濃度 [mol/m^3]

V_{super} : 採取した上澄みの体積 [m^3] (= $9 \times 10^{-6} \text{ m}^3$ (= 0.009 dm^3))

である。

(5) 結果と考察

Ca^{2+} イオン

収着バッチ試験結果として、浸漬溶液の初期および平衡後の Na^+ イオン濃度 (以下、「Na 濃度」)、 Ca^{2+} イオン濃度 (以下、「Ca 濃度」)、式(5.3-18)を用いて導出した Na 型モンモリロナイトに対する Ca^{2+} イオンの Kd 値を表 5.3-3 に示す。導出された Kd 値は、浸漬溶液の Na 濃度に依存し、当該 Na 濃度が高いケースほど Kd 値は小さくなる傾向が見られた。また、図 5.3-3 に示す通り、当該 Kd 値は平衡後の Na 濃度に比例する結果となった。これは、Na 型モンモリロナイトへの Ca^{2+} イオンの収着機構がイオン交換であるためである。

イオン交換反応メカニズムを考慮した場合、Na 型モンモリロナイトへの Ca^{2+} イオンのイオン交換反応は以下の式で表される。



ここで、 Rs はイオン交換サイト (モンモリロナイト) である。このとき、質量作用の法則と質量保存の法則から、式(5.3-20)の平衡定数 (K) は以下ようになる。

$$K = \frac{[Ca^{2+}Rs_2] \cdot (Na^+)^2}{[Na^+Rs]^2 \cdot (Ca^{2+})} \quad (5.3-21)$$

ここで、[]は固相中の濃度[mol/kg]、()は液相中の濃度[mol/m³]をそれぞれ示す。
Ca²⁺イオンの収着分配係数 (Kd) は[Ca²⁺Rs₂]/(Ca²⁺)で表されるので、式(5.3-21)より、

$$Kd = \frac{[Ca^{2+}Rs_2]}{(Ca^{2+})} = K \cdot \frac{[Na^+Rs]^2}{(Na^+)^2} \quad (5.3-22)$$

となる。また、陽イオン交換容量 CEC[eq/kg]を CEC=[Na⁺Rs]+ 2・[Ca²⁺Rs₂]とすると、式(5.3-22)を用いて、

$$2(Ca^{2+})Kd + \frac{(Na^+)}{\sqrt{K}} \sqrt{Kd} - CEC = 0 \quad (5.3-23)$$

となる。さらに \sqrt{Kd} を変数として式(5.3-23)を解くと、

$$\sqrt{Kd} = \frac{-(Na^+) + \sqrt{(Na^+)^2 + 8(Ca^{2+}) \cdot CEC \cdot K}}{4(Ca^{2+})\sqrt{K}} \quad (5.3-24)$$

$$Kd = \frac{(Na^+)^2 - (Na^+)\sqrt{(Na^+)^2 + 8(Ca^{2+}) \cdot CEC \cdot K} + 4(Ca^{2+}) \cdot CEC \cdot K}{8(Ca^{2+})^2 K} \quad (5.3-25)$$

となる。

平衡後の Na 濃度、Ca 濃度、CEC (=1.086×10⁻³ eq/g⁽³⁾)、平衡定数 (K=1) を式(5.3-25)に代入して計算した結果、一般的な Kd 導出式 (式(5.3-18)) とほぼ同じ値を示した (図 5.3-3)。これは、Na 型モンモリロナイトへの Ca²⁺イオンの収着機構はイオン交換であること、Na-Ca 系における当該 Kd データは平衡後 Na 濃度、Ca 濃度で整理できることを示している。しかしながら、本研究では、Mg や K を含む系における検討は未実施である。これら元素を含む系における Ca²⁺イオンの Kd についても今後検討し、評価に反映させることが重要と考えられる。

表 5.3-3 収着バッチ試験結果および導出した収着分配係数 K_d 値

ケース	浸漬溶液の初期濃度		平衡後（試験後）の溶液濃度		Caの K_d ※1		備考				
	Na濃度 (mol/m ³)	Ca濃度 (mol/m ³)	Na濃度 (mol/m ³)	Ca濃度 (mol/m ³)	(m ³ /kg)						
-	0.0025M CaCl ₂ 溶液	—	2.8×10 ⁰	4.7×10 ⁰	1.6×10 ⁻²	18	H26年度実施				
					1.8×10 ⁻²	16					
					1.9×10 ⁻²	15					
①	0.0025M CaCl ₂ 溶液 + 0.005M NaCl溶液	4.5×10 ⁰	2.6×10 ⁰	9.8×10 ⁰	4.6×10 ⁻²	5.6	8.1	H26年度実施			
						2.4×10 ⁻²			11		
		4.5×10 ⁰	2.8×10 ⁰	9.0×10 ⁰	6.1×10 ⁻²	4.5	4.4	H26年度実施			
					6.2×10 ⁻²	4.4					
					6.3×10 ⁻²	4.3					
②	0.0025M CaCl ₂ 溶液 + 0.01M NaCl溶液	9.4×10 ⁰	2.5×10 ⁰	1.5×10 ¹	1.5×10 ¹	6.9×10 ⁻²	3.4	3.4			
										6.6×10 ⁻²	3.6
										8.0×10 ⁻²	3.0
③	0.0025M CaCl ₂ 溶液 + 0.02M NaCl溶液	1.8×10 ¹	2.4×10 ⁰	2.1×10 ¹	2.1×10 ¹	3.4×10 ⁻¹	0.60	0.75			
										2.5×10 ⁻¹	0.84
										2.6×10 ⁻¹	0.80
④	0.0025M CaCl ₂ 溶液 + 0.05M NaCl溶液	4.6×10 ¹	2.6×10 ⁰	5.0×10 ¹	5.0×10 ¹	7.8×10 ⁻¹	0.23	0.22			
										7.7×10 ⁻¹	0.23
										8.6×10 ⁻¹	0.20
⑤	0.0025M CaCl ₂ 溶液 + 0.1M NaCl溶液	8.8×10 ¹	2.6×10 ⁰	9.9×10 ¹	9.9×10 ¹	1.6×10 ⁰	0.064	0.067			
										1.5×10 ⁰	0.070
										1.5×10 ⁰	0.069
⑥	0.0025M CaCl ₂ 溶液 + 0.2M NaCl溶液	1.8×10 ²	2.8×10 ⁰	2.0×10 ²	2.0×10 ²	2.5×10 ⁰	0.013	0.013			
										2.5×10 ⁰	0.014
										—	—
⑦	0.0025M CaCl ₂ 溶液 + 0.4M NaCl溶液	3.8×10 ²	3.1×10 ⁰	4.0×10 ²	4.0×10 ²	2.8×10 ⁰	0.013	0.0075			
										3.0×10 ⁰	0.0023
										—	—
⑧	0.0025M CaCl ₂ 溶液 + 0.5M NaCl溶液	4.7×10 ²	3.0×10 ⁰	5.1×10 ²	5.1×10 ²	2.7×10 ⁰	0.0095	0.0070	H26年度実施		
										2.9×10 ⁰	0.0045
										—	—
		4.3×10 ²	3.3×10 ⁰	4.4×10 ²	4.4×10 ²	3.0×10 ⁰	0.0089	0.0112			
										2.9×10 ⁰	0.012
										2.9×10 ⁰	0.012

※1 式(5.3-18)を用いて導出した一般的な収着分配係数

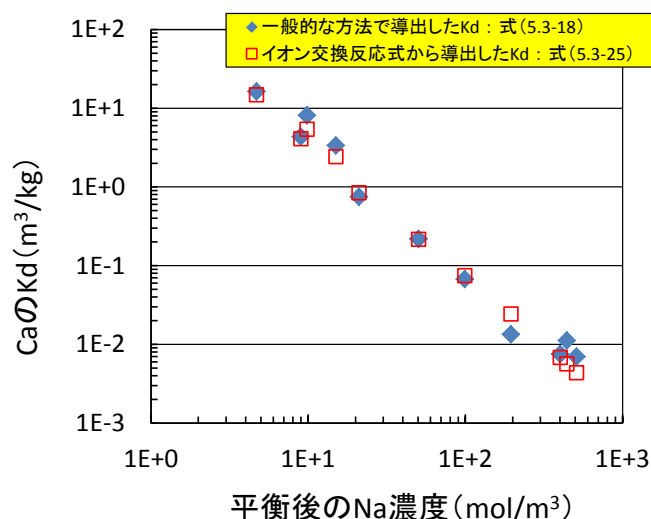


図 5.3-3 Na型モンモリロナイトに対する Ca²⁺イオンの K_d 値と平衡後の Na 濃度の関係 (式(5.3-18) および式(5.3-25) からそれぞれ導出した K_d 値の比較)

次に、透過拡散試験により得られた高濃度側および低濃度側タンク内の Ca 濃度（実験値）の経時変化（ケース 1～3、7～10）をそれぞれ Na 濃度が低い順に図 5.3-4 に示す。さらに、これら経時変化の図には 5.3.2（4）で示した解析方法により導出した計算値も併せて示すとともに、計算に使用した保持因子 α と見かけの拡散係数 Da に係るパラメータを表 5.3-4 に示す。透過拡散試験結果は、拡散期間 432 日（ケース 1, 3）、399 日（ケース 2）、193 日（ケース 7～10）までの濃度変化データである。

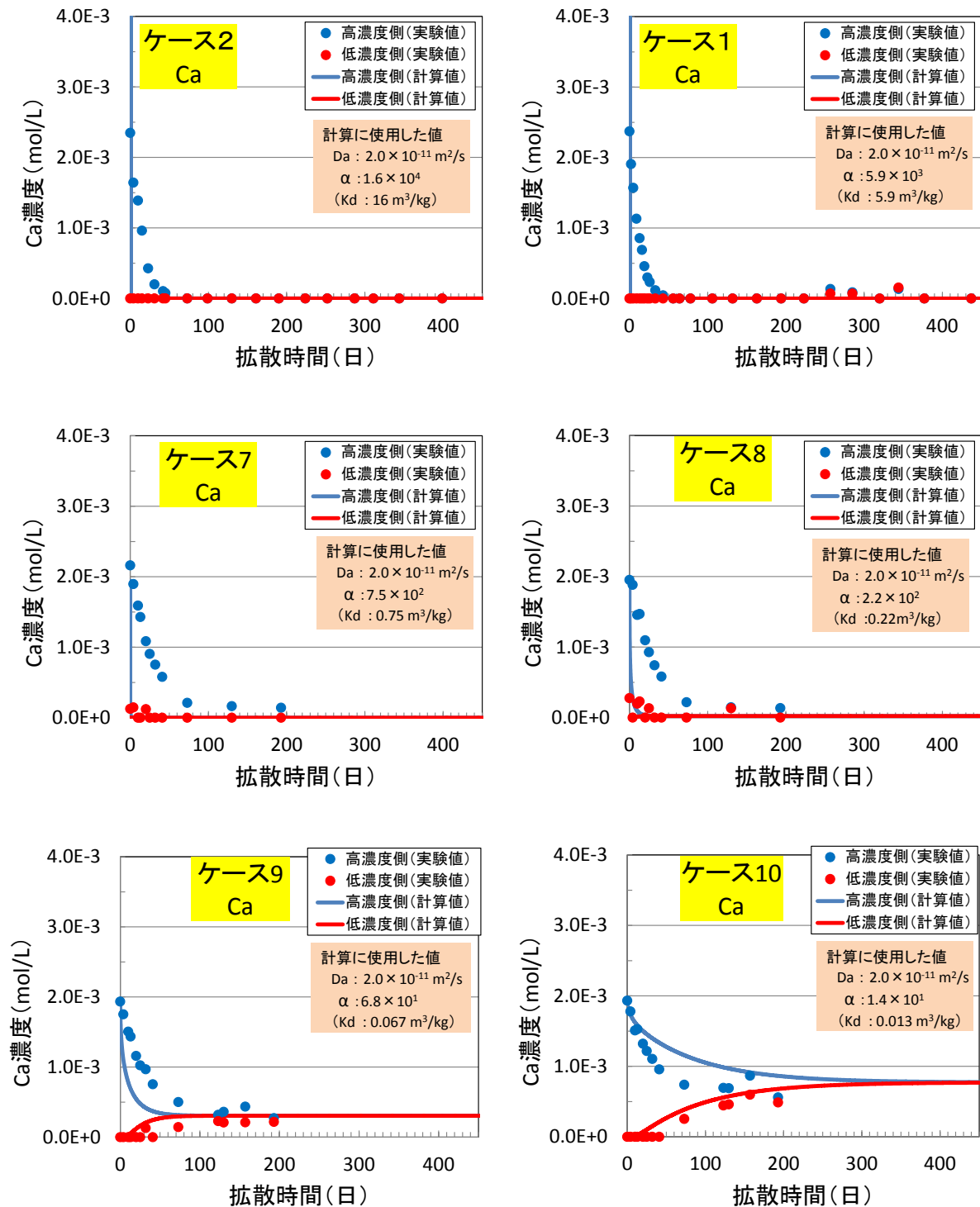


図 5.3-4 高濃度および低濃度側タンク内の Ca 濃度の経時変化（実験値と計算値）（1 / 2）

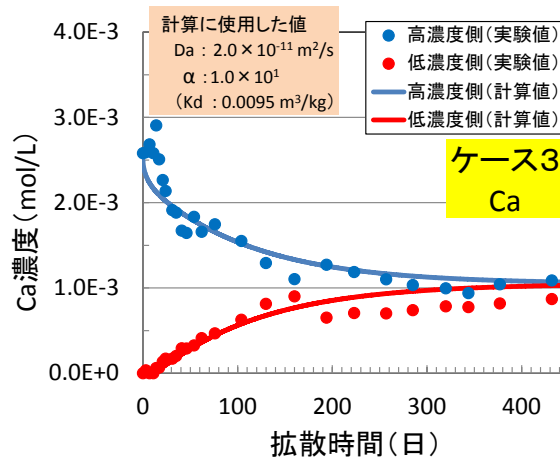


図 5.3-4 高濃度および低濃度側タンク内の Ca 濃度の経時変化（実験値と計算値）（2 / 2）

表 5.3-4 Ca²⁺イオンの透過拡散試験を模擬した計算に使用したパラメータ

体種	ケース	保持因子に係るパラメータ		見かけの拡散係数に係るパラメータ	
		収着分配係数 K_d [m ³ /kg] ^{※1}	計算に使用 した α [-] ^{※2}	モンモリロイト圧縮体中の 見かけの拡散係数 D_{a,i_mont} [m ² /s] ^{※3}	計算に使用した Da [m ² /s] ^{※4}
Ca ²⁺	1	5.9	5.9×10^3	$1.7 \times 10^{-11(8)}$	2.0×10^{-11}
	2	16	1.6×10^4		
	3	0.0095	1.0×10^1		
	7	0.75	7.5×10^2		
	8	0.22	2.2×10^2		
	9	0.067	6.8×10^1		
	10	0.013	1.4×10^1		

※1 Ca²⁺イオンの K_d 値は、対応する収着パッチ試験結果から式(5.3-18)を用いて導出した（表 5.3-2-参照）。

※2 式(5.3-3)から導出した値。また、本計算では、高濃度側および低濃度側タンク内溶液と接するベントナイトの保持因子は同一の値を使用した。

※3 本試験と同じ試料、温度条件（乾燥密度 1,000 kg/m³ の Na 型モンモリロイト圧縮体、25℃）で、In-diffusion 試験（脱イオン水系）により取得された Da 値。

※4 式(5.3-17)から導出した値。

図 5.3-4 に示した一連の透過拡散試験結果（実験値）より、高濃度側および低濃度側タンク内の Na 濃度が低いケース（ケース 1, 2, 7, 8）においては、高濃度側タンク内の Ca 濃度は徐々に低下し、ケース 1, 2 では約 40 日後にはほぼ 0 M に、ケース 7, 8 では約 70 日後には 2×10^{-4} M 以下になった。また、低濃度側タンク内の Ca 濃度は試験期間を通じて変化はなく、0 M のままであった。一方、両タンク内の Na 濃度が比較的高いケース 3, 9, 10 においては、高濃度側タンク内の Ca 濃度の減少、および低濃度側タンク内の Ca 濃度の上昇が確認され、ケース 3 では約 350 日後、ケース 9 では約 120 日後、ケース 10 では約 160 日後に両タンク内の Ca 濃度がほ

ほぼ同等となり、平衡状態となったことが確認された。なお、ケース3の高濃度側および低濃度側タンク内では、160日目までにそれぞれ減少、上昇したCa濃度が194日目で一度上昇、減少する変化が見られたが、これは194日目以降の測定では高濃度側の希釈倍率を1000倍から100倍に変更したこと、また、それに伴い検量線の範囲を変更したことが原因と考えられる。

両タンク内におけるCa濃度の実験値と計算値の比較では、ケース3の高濃度側および全てのケースの低濃度側において、計算値は実験値を良く再現する結果となったが、ケース1, 2, 7, 8の計算値は、試験開始直後に高濃度側タンク内のCa濃度がほぼ0Mとなり、実験値とは異なる結果となった。また、ケース9, 10の高濃度側の計算値は、試験開始直後の急激なCa濃度の減少は示さなかったものの、実験値とは若干異なる傾向を示した。

ケース1, 2, 7, 8で高濃度側タンク内の実験値と計算値に差異が生じたのは、接液部におけるモンモリロナイト中Ca濃度の初期値($C_{b,Ca,H}(0)$)が計算と実験で異なっていたことが原因の一つであると考えられる。各ケースで計算された $C_{b,Ca,H}(0)$ を表5.3-5に示す。ケース1, 2, 7, 8の $C_{b,Ca,H}(0)$ は、乾燥密度 $1,000 \text{ kg/m}^3$ のCa型モンモリロナイト中のCa濃度($5.4 \times 10^2 \text{ mol/m}^{3*2}$)より大きな値であった。しかしながら、 Kd 値が大きいケースの場合、実際の試験では Ca^{2+} イオンは試料接液部に多量に収着するが、接液部でのCa濃度は上記Ca型モンモリロナイト中のCa濃度を超えることはない。そのため、これらケースの計算では接液部の初期Ca濃度が過大評価され、試料中の濃度勾配、および高濃度側タンク内から試料への Ca^{2+} イオンの浸入量が実際の試験より大きくなり、実験値と計算値に差異が生じたと考えられる。しかしながら、 $C_{b,Ca,H}(0)$ が $5.4 \times 10^2 \text{ mol/m}^3$ より小さいケース9においても差異が生じた原因については、上記検討では十分に説明できず、現在のところ明らかにはなっていない。この原因については引き続き検討し、必要に応じて新拡散モデルに反映させることが重要である。

一方、ケース10では、上記ケース1, 2, 7~9とは異なり、高濃度側タンク内Ca濃度の実験値が計算値を下回る結果となった。これは、計算に用いた Kd 値が小さかったことが原因と考えられる。図5.3-3に示すように、本ケースで使用した Kd 値($0.013 \text{ m}^3/\text{kg}$)は式(5.3-23)を用いて計算された Kd 値($0.024 \text{ m}^3/\text{kg}$)と若干の差異がある。そこで、後者の Kd 値を用いて高濃度側および低濃度側タンク内のCa濃度を再計算した(図5.3-5)。その結果、計算値は実験値を良く再現することが出来た。これは、Na-Ca系においては、式(5.3-23)が妥当であることを示している。

※2 当該試験で用いたモンモリロナイト試料の陽イオン交換容量($\text{CEC} = 1.086 \times 10^{-3} \text{ [eq/g]}$ ⁽³⁾)から計算した単位体積当たりのCa濃度。

$$1.086 \times 10^{-3} \text{ [eq/g]} / 2 \text{ [eq/mol]} \times 1,000 \text{ [kg/m}^3] \times 10^3 = 543 \text{ [mol/m}^3]$$

表 5.3-5 各ケースで計算されたモンモリロナイト試料中 Ca 濃度の初期値（高濃度側）

ケース	計算に使用した保持因子 α [-]	高濃度側タンク内溶液 ^{※1} と試料の界面におけるモンモリロナイト中 Ca 濃度の初期値（計算値） $C_{b,Ca,H}(0)$ [mol/m ³] ^{※2}	実際の試験における接液部のモンモリロナイト中 Ca 濃度
1	5.9×10^3	1.5×10^4	< 5.4×10^2 mol/m ³ ^{※3}
2	1.6×10^4	4.0×10^4	
3	1.0×10^1	2.5×10^1	
7	7.5×10^2	1.9×10^3	
8	2.2×10^2	5.5×10^2	
9	6.8×10^1	1.7×10^2	
10	1.4×10^1	3.4×10^1	

※1 高濃度側タンク内溶液の Ca 濃度：0.0025M (=2.5 mol/m³)

※2 式(5.3-2)から導出した値

※3 1,000 kg/m³の Ca 型モンモリロナイト中の Ca 濃度

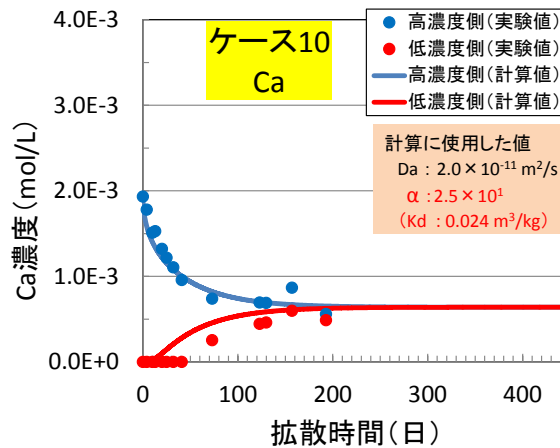


図 5.3-5 高濃度および低濃度側タンク内の Ca 濃度の経時変化
(計算に使用した K_d 値を $0.024 \text{ m}^3/\text{kg}$ とした場合、ケース 10)

また、ケース 1~3 については上述した期間で拡散試験を終了させた。試験終了後に分割したモンモリロナイト試料中の Ca^{2+} イオン、および Na^+ イオンの総量を式(5.3-19)から計算するとともに、各分割試料の乾燥重量から逆算して体積を求め、これら値を用いて分割試料ごとの単位体積当たりの Ca 濃度、Na 濃度、および Ca 型化率を導出した（これらの導出に使用した試験データは Appendix I-A-2 に示す）。得られた各濃度および Ca 型化率の分布を図 5.3-6 に示す。タンク内の溶液と接していた両端のデータを除外した場合、全てのケースにおいて当該 Ca 濃度、Na 濃度、Ca 型化率の試料内の分布は、一部 Ca 濃度と Na 濃度が連動して若干高くなっているデータも見られるが、ほぼ一定となる結果となった。これは K_d 値が大きいケース 1, 2 では、低濃度側タンクに Ca^{2+} イオンが透過することなく、試料内に留まり、さらに長時間経過したことによって、試料中の Ca 濃度が均一化してしまったからだと考えられる。ケース 3 では、試験終了時には平衡に達していたため、これら濃度および Ca 型化率が一定になったと考えられる。なお、上述の Ca 濃度と Na 濃度が連動して若干高くなった原因は、相補的に「Ca 濃度+2×Na 濃度」が一定になる液相の濃度測定ではなく、乾燥重量から導出した体積の方に問

題があったからである。実際に当該濃度が高くなっている試料片、ケース 1-3 (ケース 1 の高濃度側から 3 カット目、以下同様)、ケース 2-6、ケース 3-8 は、Appendix I -A-2 に示すように、他の試料片に比べて乾燥重量、および逆算して導出した体積が小さくなっている。すなわち、これら試料片の乾燥重量 (体積) が小さすぎたため、測定誤差が大きくなり、その値を使って導出した当該濃度を過大に見積もってしまったと考えられる。

Ca^{2+} イオンの浸入量と浸出量から計算した試料全体の Ca 型化率は、ケース 1, 2 で約 15%、ケース 3 で約 4%であったのに対し、分割試料中の Ca^{2+} イオン量から計算した Ca 型化率 (図 5.3-6 に示した Ca 型化率) の平均値は、ケース 1 で約 19%、ケース 2 で約 18%、ケース 3 で約 3%であった。ケース 1, 2 では前者と後者に 3~4%の違いがみられたが、初期の高濃度側タンク内に存在する Ca^{2+} イオン量から導出される Ca 型化率の最大値は 16%^{※3}であることから、後者の Ca 型化率 (約 18~19%) は、4 回の上澄み溶液の測定における誤差等により、過大に見積もられた値であると考えられる。

また、ケース 3 の高濃度側および低濃度側タンク内の溶液と接する試料中 Ca 濃度は、それぞれ 15 mol/m³、14 mol/m³であった。これらは、試験終了後のタンク内 Ca 濃度 (高濃度側 : 1.1 mol/m³、低濃度側 : 0.87 mol/m³) と保持因子 α (=10) から計算される値 (高濃度側 : 11 mol/m³、低濃度側 : 8.7 mol/m³) より若干高い値であったが、上述の誤差による過大評価を考慮すると妥当な値であると考えられる。

※3 高濃度側タンク内に初期に存在する Ca 量は 2.75×10^{-4} mol (=0.0025 mol/L × 0.11 L)、当該試験で用いたモンモリロナイト試料 (3.14 g) の陽イオン交換容量 (CEC) は 1.086×10^{-3} eq/g⁽³⁾ であることから、高濃度側タンク内の Ca^{2+} イオンが全てモンモリロナイト試料に収着すると、試料全体 (平均) の Ca 型化率は 16%となる。

$$(2.75 \times 10^{-4} [\text{mol}] \times 2 [\text{eq/mol}]) / (1.086 \times 10^{-3} [\text{eq/g}] \times 3.14 [\text{g}]) = 0.16$$

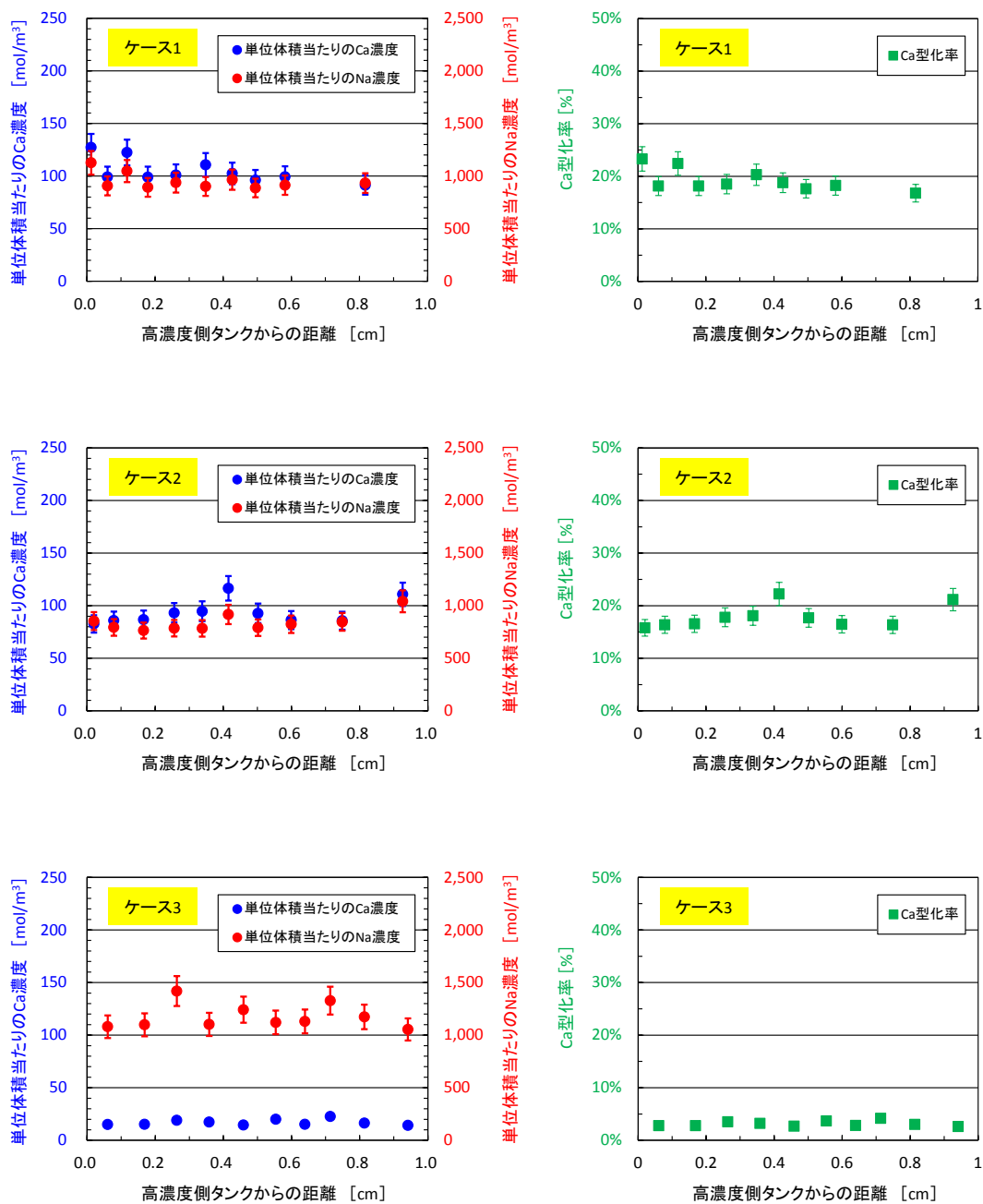


図 5.3-6 分割試料中の Ca 濃度、Na 濃度、および Ca 型化率の分布

以上より、 Kd 値が小さいケース ($Kd \leq 0.024 \text{ m}^3/\text{kg}$) においては、別の試験で得られた Da 値と Kd 値を用いて、透過拡散試験結果 (高濃度側および低濃度側タンク内の Ca 濃度変化) を再現できる可能性が示された。一方、 Kd 値が大きいケースでは、同様の方法で高濃度側タンク内の Ca 濃度変化を再現することが出来なかったが、これは接液部におけるモンモリロナイト中 Ca 濃度の初期値 ($C_{b,Ca,H}(0)$) が計算と実験で異なっていたためだと考えられる。しかしながら一部のデータ (ケース 9 の高濃度側タンク内 Ca 濃度の経時変化) については十分に説明することが出来ず、引き続き検討を行い、必要に応じて新拡散モデルに反映させることが重要であると考えられる。

Cl⁻イオン、Na⁺イオン

透過拡散試験により得られた高濃度側および低濃度タンク内の Cl⁻イオン濃度（以下、「Cl 濃度」）の経時変化（ケース 1, 4~6）、および Na 濃度の経時変化（ケース 4~6）をそれぞれ図 5.3-7、図 5.3-8 に示す。これら透過拡散試験結果は、拡散期間 432 日までの濃度変化データである。

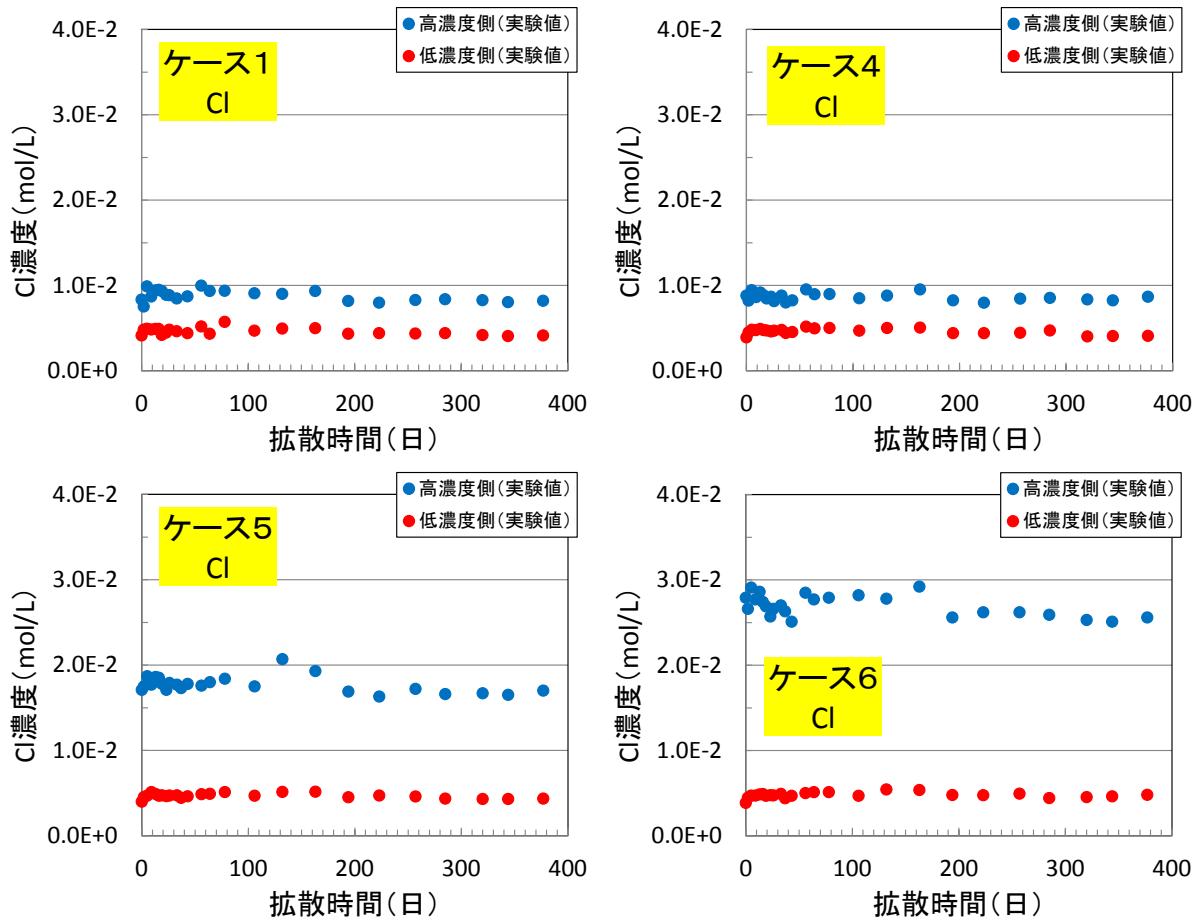


図 5.3-7 高濃度および低濃度側タンク内の Cl 濃度の経時変化（実験値）

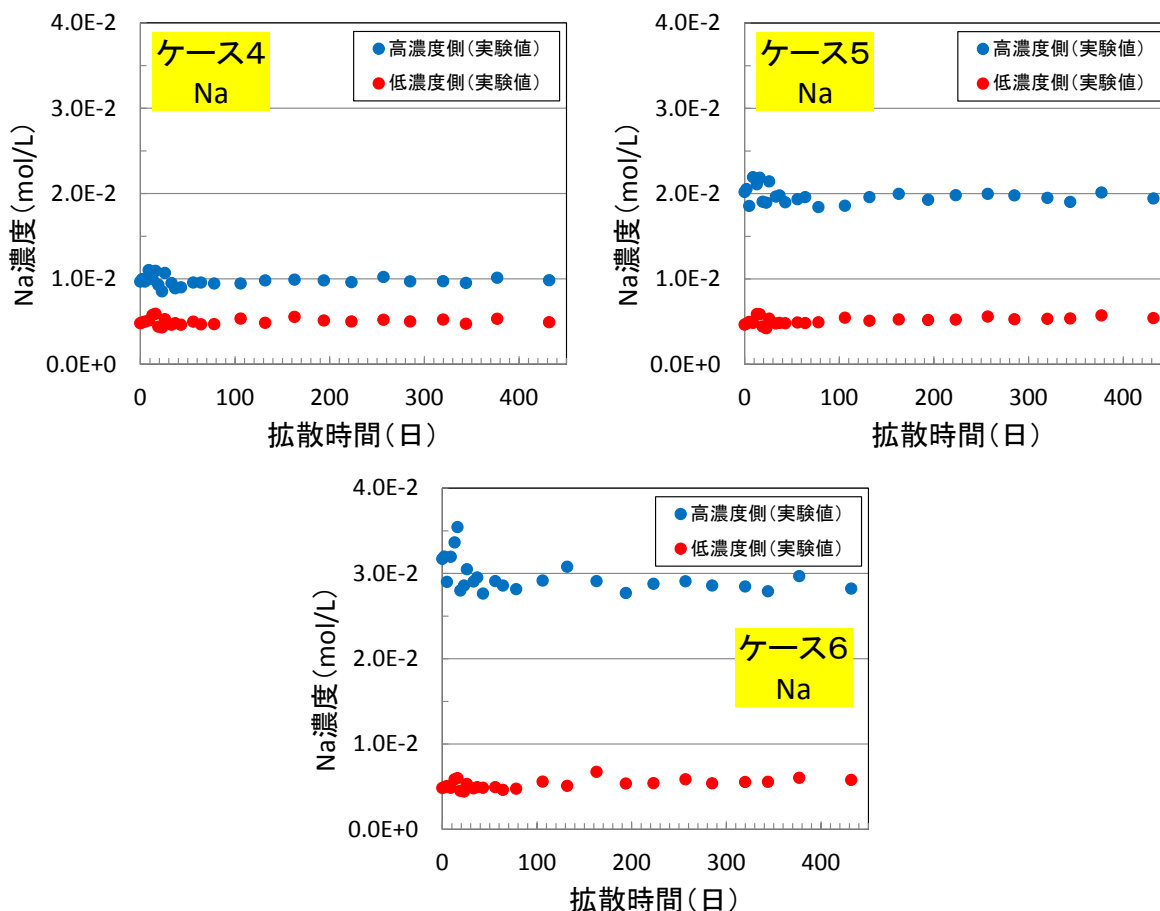


図 5.3-8 高濃度および低濃度側タンク内の Na 濃度の経時変化 (実験値)

ケース 1 の両タンク内の Cl 濃度についてもほとんど変化がなく、同時に移行する陽イオン種が異なるケース 4 との違いは見られなかった (図 5.3-7)。ケース 1 とケース 4 の結果に差が表れなかった原因としては、ケース 1 では試験初期には Cl⁻イオンは Ca²⁺イオンとともに拡散する状態であったが、Ca²⁺イオンがモンモリロナイト中の Na⁺イオンとイオン交換することによって、高濃度側タンク内の Na 濃度が上昇し、ケース 4 と同様の (Cl⁻イオンと Na⁺イオンがともに拡散する) 状態になったためだと考えられる。また、ケース 4~6 の高濃度側および低濃度側タンク内の Cl 濃度、Na 濃度の経時変化については、ほとんど同様の傾向を示し、ケース 6 の高濃度側では若干の濃度低下が見られるものの、ケース 4,5 の高濃度側および全てのケースの低濃度側では濃度変化はほとんど見られなかった (図 5.3-7、図 5.3-8)。

平成 26 年度の検討では、80 日程度までのデータを用い、Cl 濃度の経時変化を、新拡散モデルを用いて再現可能かどうかについて検証を行った。その際、Cl⁻イオンに対する保持因子 α の値は、 $Kd=0$ とし、式(5.3-3)から導出した値 (0.6) を用いたのだが、計算結果と試験結果に整合性が見られなかった。この不整合は、保持因子 α の設定方法が不適切であったことが原因と考えられる。一般に、モンモリロナイトは負に帯電しており、当該圧縮体中を拡散する陰イオン種は、この負電荷の反発によりモンモリロナイト表面から排除されると考えられている。これは「陰イオン排除効果」と呼ばれ、この効果によってベントナイト中においては、陰イオン種が拡散可能な間隙は限定的になる。また、陰イオン種が拡散可能な間隙の割合 (有効間隙率)

は、通常ベントナイト圧縮体の間隙率 ε よりも小さくなるが、間隙水のイオン強度が高くなると、陽イオン種の濃度の増大により陰イオン排除効果が低下するため、有効間隙率は増大し、間隙率 ε に近づくとされている⁽⁹⁾。そのため、陰イオン種の拡散に関しては、陰イオン排除効果を考慮した保持因子 α の設定について検討し、モデルに反映することが重要であると考えられる。

そこで、本年度は濃度差が最も大きいケース 6 のデータを用いて、保持因子の検討を行った。Cl⁻イオンの Da 値を $1.8 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ (モンモリロナイト中の Da 値 ($1.5 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ ⁽¹⁰⁾) とフィルター中の Da 値 ($1.0 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$) から計算した値) に固定し、 α を 0.01~0.6 の範囲で変動させて実験値と比較した (図 5.3-9)。その結果、 α を 0.1 としたとき、高濃度側の Cl 濃度の計算値は実験値と近い経時変化をとることが確認出来たが、同一の α 値 (=0.1) を用いた低濃度側の計算値は実験値を上回り、同じ α 値を用いて両タンク内の Cl 濃度の変化を再現することは出来なかった。

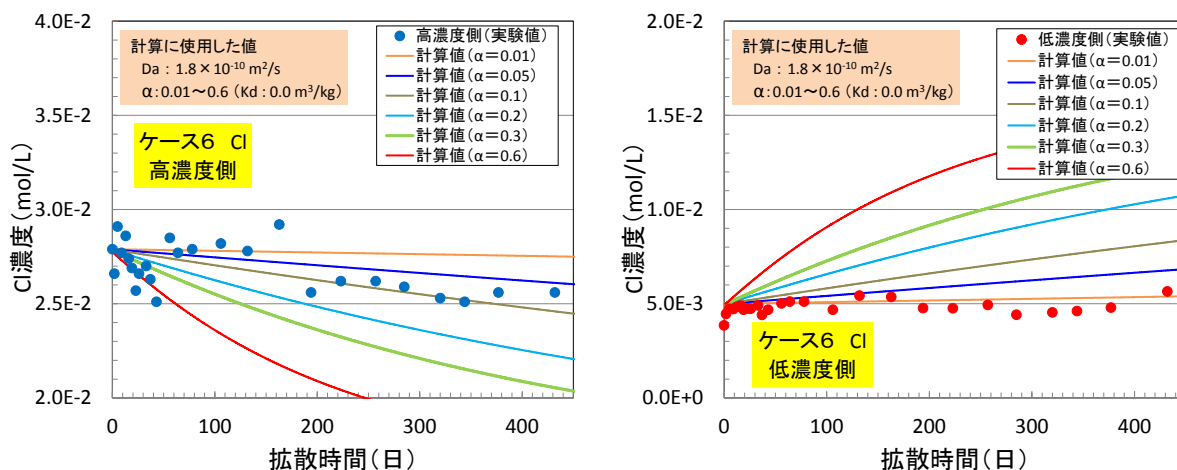


図 5.3-9 高濃度および低濃度側タンク内の Cl 濃度の経時変化 (実験値と計算値の比較)

また、Na⁺イオンに対してもケース 6 のデータを用いて、保持因子の検討を行った。なお、本試験で使用しているモンモリロナイトは Na 型 100% であるため、見かけ上 Na⁺イオンは試料に収着しない。そのため、 α 値の設定については、Ca²⁺イオンの検討で使用した式(5.3-3)を用いず、Cl⁻イオンの検討と同様に、 α 値を直接変動させることとした。Na⁺イオンの Da 値を $8.8 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ (モンモリロナイト中の Da 値 ($7.4 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ ⁽¹¹⁾) とフィルター中の Da 値 ($1.0 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$) から計算した値) に固定し、 α を 0.01~0.6 の範囲で変動させて実験値と比較した結果を図 5.3-10 に示す。 α を 0.2 としたとき、高濃度側の Na 濃度の計算値は実験値と近い経時変化をとったが、同一の α 値 (=0.2) を用いた低濃度側の計算値は実験値を上回り、Cl⁻イオンの検討と同様、同じ α 値を用いて両タンク内の Na 濃度の変化を再現することは出来なかった。

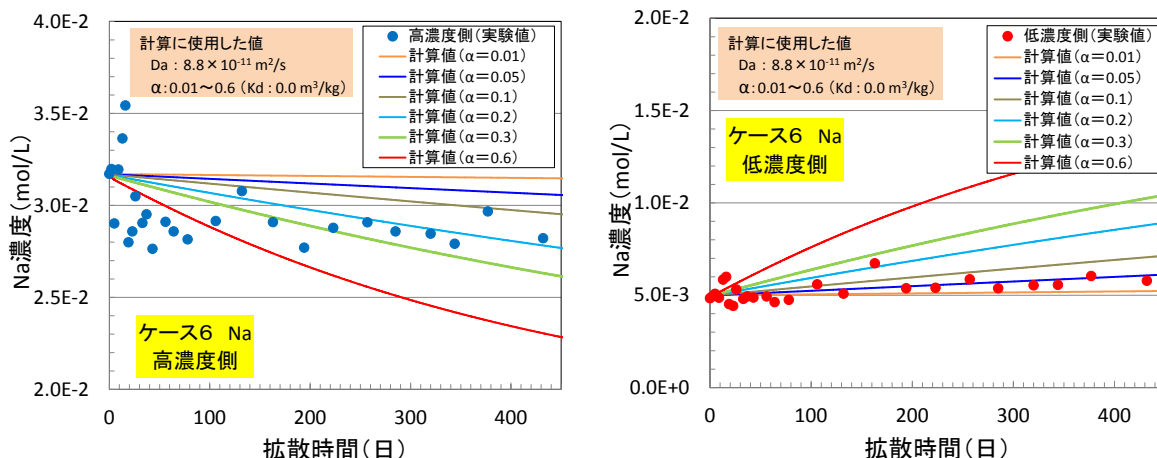


図 5.3-10 高濃度および低濃度側タンク内の Na 濃度の経時変化（実験値と計算値の比較）

上述した Cl⁻イオンおよび Na⁺イオンに係る検討では、高濃度側の計算値と実験値の整合性から決定した α を用いても、低濃度側の計算値は実験値を再現することが出来なかった。本計算では接液部における試料中濃度 C_{bi} を高濃度側または低濃度側タンク内溶液濃度に α を掛けることで決定しているが（式(5.3-2)参照）、Ca²⁺イオンの検討と同様に、高濃度側と低濃度側で同じ α 値を用いたことがこの原因の一つと考えられる（表 5.3-4 ※2 参照）。すなわち、ケース 6 におけるタンク内の NaCl 濃度は、高濃度側で約 0.03 M、低濃度側で約 0.005 M と 6 倍の違いがあり、Cl⁻イオンの場合、上述したように間隙水のイオン強度が高くなると、陰イオン排除効果が低下するため、高濃度側の α 値は低濃度側に比べ高い値であった可能性がある。また、電荷バランスを保つために Na⁺イオンと Cl⁻イオンは共に移行すると考えられるため、Na⁺イオンに対する α についても同様の影響を受ける可能性がある。実際に低濃度側の α 値を高濃度側のフィッティングから決定した α 値より小さくした場合、低濃度側の計算値の傾きは小さくなり、実験値に近づく結果となった（図 5.3-9、図 5.3-10）。これは上記仮説を支持するものである。

その他の原因としては、 Da の設定が考えられる。本年度の計算で使用した Na⁺イオンの Da は、放射性 Na を用いた試験により得られた自己拡散係数であるが、濃度勾配により拡散した結果を示す当該実験値に対して、その Da 値を使うのは不適切であった。また、上述の通り Na⁺イオンは Cl⁻イオンとともに移行すると考えられるが、その場合、両イオン種の Da は同じ値を使用すべきである。仮に Cl⁻イオンが固有の Da で拡散とした場合、Cl⁻イオンの拡散により崩れたモンモリロナイト中の電荷バランスは交換性陽イオンとして多量にある Na⁺イオンで補填されると考えられる。すなわち、この場合、Na⁺イオンの Da は Cl⁻イオン固有の Da と等しくなる。実際、高濃度側の Na 濃度は、上記 Cl⁻イオンの Da 値 ($1.8 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$) および $\alpha = 0.1$ を用いても再現することができ、本仮説を支持する結果となった。

以上より、Cl⁻イオンおよび Na⁺イオンに係る検討では、長期間の透過拡散試験を実施したにも関わらず両タンク内の濃度変化が小さかったため、結果に対して十分な検討を行うことが出来なかったが、 α 値および Da 値の設定に係る留意点を整理することが出来た。前者については、高濃度側および低濃度側の α 値は同一にせず、接する溶液に応じた値を設定した方が実験値を再現できること、また、後者については、対となって移行する陽イオンと陰イオンは同じ拡散係数を用いる必要があり、特に Na⁺イオンについては、Na が交換性陽イオンとして緩衝材中に多量に存在する場合、共に移行するイオン種の拡散に従うことが示された。

(6) まとめと今後の課題

本年度は、より長期な拡散データを取得するため、平成 26 年度から開始した非放射性の Ca^{2+} イオン、 Na^+ イオン、 Cl^- イオンを用いた透過拡散試験を引き続き行うとともに、イオン強度が拡散挙動に与える影響を把握するため、 Ca^{2+} イオンを用いた透過拡散試験を新たな条件で行い、新拡散モデルに係る検討を実施した。 Ca^{2+} イオンに係る検討では、 Kd 値が小さいケースにおいては、別の試験で得られた Da 値と Kd 値を用いて、透過拡散試験結果（高濃度側および低濃度側タンク内の Ca 濃度変化）を再現できる可能性が示された。この結果は、既往の Kd データが存在する陽イオンについては、その値が小さい条件下において保持因子 α を簡易的に $\varepsilon + \rho_b Kd$ （式(5.3-3)）として評価することが可能であることを示している。しかしながら、 Kd 値が大きいケースでは、同様の方法で高濃度側タンク内の Ca 濃度変化を再現することが出来なかった。これは接液部におけるモンモリロナイト中 Ca 濃度の初期値が計算と実験で異なっていたためだと考えられる。しかしながら一部の高濃度側データについては十分に説明することが出来ず、高濃度側の濃度変化に関しては引き続き検討を行い、必要に応じて新拡散モデルに反映させることが重要であるとした。 Cl^- イオンおよび Na^+ イオンに係る検討では、長期間の透過拡散試験を実施したにも関わらず両タンク内の濃度変化が小さかったため、結果に対して十分な検討を行うことが出来なかったが、 α 値および Da 値の設定に係る留意点を整理し、高濃度側および低濃度側の α 値は同一にせず、接する溶液に応じた値を設定する必要があること、また、対となって移行する陽イオンと陰イオンは同じ拡散係数を用いる必要があり、特に Na^+ イオンについては共に移行するイオン種の拡散に従うことを示した。

Ca^{2+} イオン等の陽イオンに関しては紛体試料を用いた収着バッチ試験により得られた Kd を用いて α を設定できる可能性を示せたが、 Cl^- イオン等の陰イオンに対する α については、今後、圧縮体への収着バッチ試験等により実験的に決定する必要があるかもしれない。その際は、イオン強度依存性等についても把握することが重要であると考えられる。また、5.2.3 で後述する「MC-BUFFER の計算では、 Na^+ イオンでベントナイト中の電荷バランスを調整する」ことへの妥当性を確認するため、放射性核種を使用した拡散試験を実施し、電荷のバランスに縛られない、イオン種固有の拡散データを取得することも今後の検討に有用である。さらに複数の放射性核種を使用した拡散試験を実施すれば、濃度プロファイル法により複数核種の Da を取得することが可能である。

新拡散モデルを用いる評価手法では、緩衝材の化学環境解析で対象になる全てのイオン種に対して Da や α （または Kd ）を設定しなければならない。そのため、対象になると考えられるイオン種（以下、16 種。 Na^+ を除くと 15 種）について、これらパラメータに係る現状の知見を一度整理する必要があるが、知見がない主要なイオン種については、In-diffusion 試験や収着バッチ試験を実施して Da や α （または Kd ）を取得する等の必要性が出てくるかもしれない。しかしながら、全てのイオン種についてこれらパラメータを設定するのは困難であることから、類似性が認められれば、一価の陰イオン種（ OH^- 以外）は Cl^- イオン等、代表的なイオン種の同値とするという方法も合理的であると考えられる。

陽イオン種	:	(Na^+) K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 FeOH^+
陰イオン種	:	Cl^- 、 OH^- 、 CO_3^{2-} 、 HCO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 $\text{Si}(\text{OH})_5^-$ 、 $\text{Al}(\text{OH})_4^-$ 、 $\text{Fe}(\text{OH})_3^-$
中性種	:	$\text{Fe}(\text{OH})_2$ 、 $\text{Si}(\text{OH})_4$

さらに、 Da は温度、有効モンモリロナイト密度、 Kd および α はイオン強度、温度、モンモリロナイト割合等に依存すると考えられることから、将来的にはそれらの関係性を定式化する

ことも重要である。

5.3.3 MC-BUFFER への新拡散モデル導入に係る検討

(1) 目的、実施概要

5.3.2 で検討した Da を用いた新拡散モデルを用いた緩衝材中の化学環境解析を実施するためには、当該モデルを MC-BUFFER に導入する必要がある。そこで本年度は、MC-BUFFER に Da を用いた新拡散モデルを導入するための留意点を整理するとともに、具体的な導入方法に係る検討を実施した。さらに、その妥当性を確認するため、MC-BUFFER プログラムの修正、および検証を実施した。

(2) 概念設計

新拡散モデル導入における留意点の整理

MC-BUFFER の物質移行計算に Da を用いた新拡散モデルを導入する際の留意点(①~⑧)を以下に整理した。

- ① 実験により得ることが可能なのは元素の拡散係数であること、また、収着分配係数についても通常元素ごとに設定されていることから、移行計算については、イオン種ごとではなく、元素ごとの計算を行うこととする。
- ② 緩衝材中の(拡散による)物質移行計算を新拡散モデルに変更する。具体的には、元素ごとに Da を設定し、単位体積当たりの元素濃度 (C_b) 勾配による移行を評価出来るように改良する。
- ③ 現行の MC-BUFFER の移行計算では、1 回に 1 つの元素に対する評価しか出来ないため、異なる拡散係数の元素の移行を評価するには複数回の計算を行い、最後に統合させる必要がある。しかしながら、全ての元素について拡散係数をセットするのは困難であり、類似性が認められる元素については、代表的な元素と同じ値を用いることが想定される。そこで、同一の拡散係数を与える元素で群を構成し、群ごとに移行計算を行うことで、移行計算の回数を減少させる等の工夫を図ることとする。
- ④ 地下水やその他のバリア材との界面における緩衝材中の C_b (境界条件) は、地下水中(またはその他のバリア材を通過後の浸出溶液)の元素濃度 C_l と保持因子 α を用いて、「 $C_b = \alpha C_l$ 」で設定する。
- ⑤ 化学環境解析では解析体系中の電荷バランスを取る必要がある。そのため、元素が各々の Da で拡散する新拡散モデルを用いた拡散評価においては、移行計算後に場の電荷バランスを調整する必要がある。その方法の一例としては、モンモリロナイト中に多量にあると想定される Na^+ イオンで電荷バランスを調整する方法が考えられる^{※4}(この場合、 Na^+ イオンの拡散は計算しない)。なお、電荷バランスの調整の際にはモンモリロナイト

※4 ベントナイト系緩衝材のバリア機能特性は、主成分であるモンモリロナイトによって決定される。現在我が国の地層処分において使用が想定されるベントナイトに含まれるモンモリロナイトは Na 型であり、交換性陽イオンとして Na^+ イオンが豊富に存在し、負電荷となっているモンモリロナイト表面に収着していると考えられる。本検討では、この豊富に存在する Na^+ イオンで電荷バランスの調整を行うこととする。なお、モンモリロナイトの Ca 型化が進んだ状態においては Na^+ イオンで電荷バランスをとることは適切でないが、ここではモンモリロナイト中に Na^+ イオンが多量に存在する条件であることを前提とし、検討を進めることとした。当該方法の是非については、検証計算の結果を踏まえ、引き続き検討する必要があると考えられる。

の負電荷も考慮する必要がある。

- ⑥ 移行計算で用いる濃度は単位体積当たりの元素濃度 (C_b) とするが、地球化学反応計算では水中濃度を用いる必要があるため、間隙水中濃度に換算することとする。
- ⑦ 5.3.2 (6) で述べたように、 Da は温度、有効モンモリロナイト密度等、 α はイオン強度、温度、モンモリロナイト割合等に依存すると考えられることから、将来的にはその関係性の定式化を図る予定である。そのため、これらパラメータの設定については、定数またはモデル式の選択ができるようにする。また、その選択肢の一つとして式(5.3-3) ($\alpha = \epsilon + \rho_b Kd$) を設定できるようにする。
- ⑧ 新拡散モデルだけではなく、これまでの拡散評価モデルも使用可能とするため、どちらのモデルを使用するかを選択できるようにする。

新拡散モデルを導入するための MC-BUFFER の大きな改良点としては、上記留意点を踏まえ、(i) 元素ごとに Da を設定すること (留意点②、⑦、⑧に関連)、(ii) Na^+ イオンで電荷バランスを調整すること (留意点⑤に関連) が考えられ、本年度はこの2点に係る検討を実施することにした。また、留意点③の群計算、留意点④の α の設定、留意点⑥の間隙水中濃度を用いた地球化学反応計算 (電荷バランス調整の際に考慮する負電荷を持つモンモリロナイトを含めた地球化学反応計算) については、上記2点の検討結果を踏まえ、図 5.3-11 に示す処理フローに取り込む際に適宜反映させることとする。なお、留意点①の元素による移行計算については、現行の MC-BUFFER で対応済みであるため、コードの改良は行わないこととした。

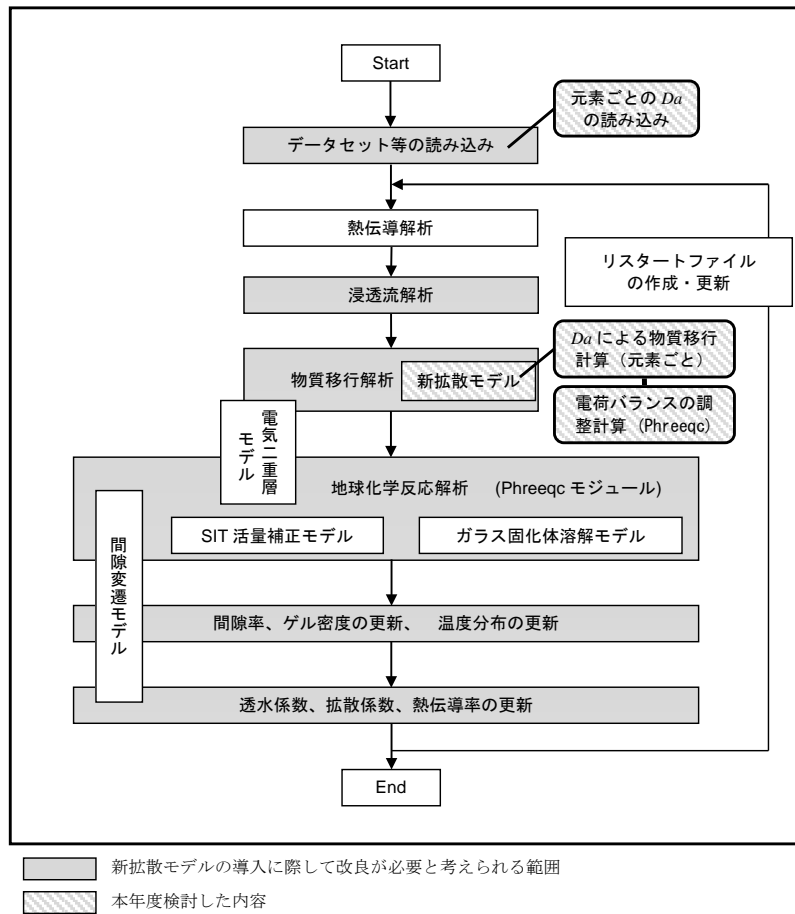


図 5.3-11 MC-BUFFER の処理フロー

以下に (i) 元素ごとへの D_a の設定、および (ii) 電荷バランスの調整に係る本年度の検討内容を記す。

(i) 元素ごとへの D_a の設定

元素名と元素ごとの D_a を入力する「拡散係数設定ファイル」を新たに作成し、計算を実行するディレクトリに当該ファイルが存在すれば、元素ごとの拡散係数を考慮する計算を行うこととした。当該ファイルが存在しない場合は、従来通り、全元素が同じ拡散係数で移行する計算を行うこととした。「拡散係数設定ファイル」の入力形式、入力例を図 5.3-12、図 5.3-13 に示す。

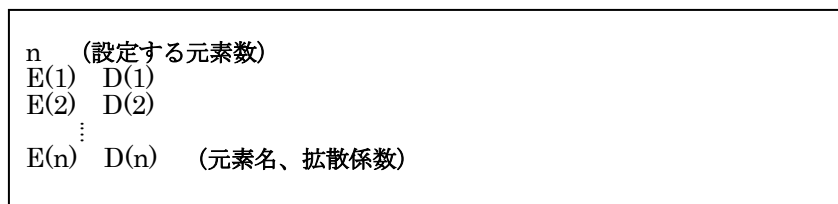


図 5.3-12 拡散係数設定ファイルの形式

l1	
Si	1.0e-11
S	2.0e-11
Na	3.0e-11
Mg	4.0e-11
K	5.0e-11
Fe	6.0e-11
Cl	1.0e-10
Ca	7.0e-11
C	8.0e-11
B	9.0e-11
Al	5.0e-12

図 5.3-13 拡散係数設定ファイルの入力例

(ii) 電荷バランスの調整

MC-BUFFER では、図 5.3-11 の処理フローに示したように、物質移行計算と地球化学反応計算を別々に順番に行うステップ法である。「(i) 元素ごとへの Da の設定」で記載した複数の元素を個別の拡散係数で移行させる計算では、物質移行計算ステップで行うことになるが、拡散係数が異なる場合、液相組成の電荷バランスが崩れてしまう可能性がある。液相組成の電荷バランスが崩れたまま化学反応計算ステップを行うと、その化学反応計算は正しく行うことができない。そこで、この電荷バランスの調整方法について検討した。なお、 Da を用いた移行計算では単位体積当たりの濃度（セル内濃度）を用いる必要があるが、現行の MC-BUFFER では、地球化学反応計算で用いる間隙水中濃度への換算についても考慮する必要がある「セル内濃度」の設定はまだ導入できていない。そのため本年度の検討では、セルの間隙率を 1（固相がなく、「セル内濃度＝液相中の濃度」となる条件）とし、液相の電荷バランスの調整を対象を絞った検討を実施した。

上述した通り本検討では Na イオンと表面負電荷で電荷バランスの調整を行うこととした。具体的な調整方法としては、MC-BUFFER の計算処理フローのうち、「物質移行解析」と「地球化学反応解析(Phreeqc)」の間に、液相組成の電荷バランスを調整するための化学反応解析(Phreeqc)を追加することとした。追加する計算フローの概念図を図 5.3-14 に示す。なお、MC-BUFFER では、pH (H^+ 、 OH^- イオン) の物質移行計算は行っていない（液相組成の物質移行後に行う化学反応計算で算出される pH が、その場の pH と同等であると考えられるため）。そこで、今回追加する「液相組成の電荷バランスを調整するための化学反応計算(Phreeqc)」においては pH を指定する必要があるが、ここで使用する pH は前計算ステップの pH とする。これは、計算ステップ 1 回における変化は小さいと考えられ、pH の変化も小さいと想定されるためである。なお、この pH の設定のため、計算ステップは、大きな変化にならないような Δt の設定が必要となる。また、この Phreeqc による電荷バランス調整計算においては、Phreeqc の溶液 (SOLUTION) 計算機能を使い、Na にフラグ (charge) を付け、Na 量を増減させることによって当該液相の電荷バランスを調整することとした。なお、本年度は液相のみを検討対象としたが、固相も考慮する場合はモンモリロナイトを陰イオン (Mont-) として設定し、電荷バランスの調整を行うこととする。

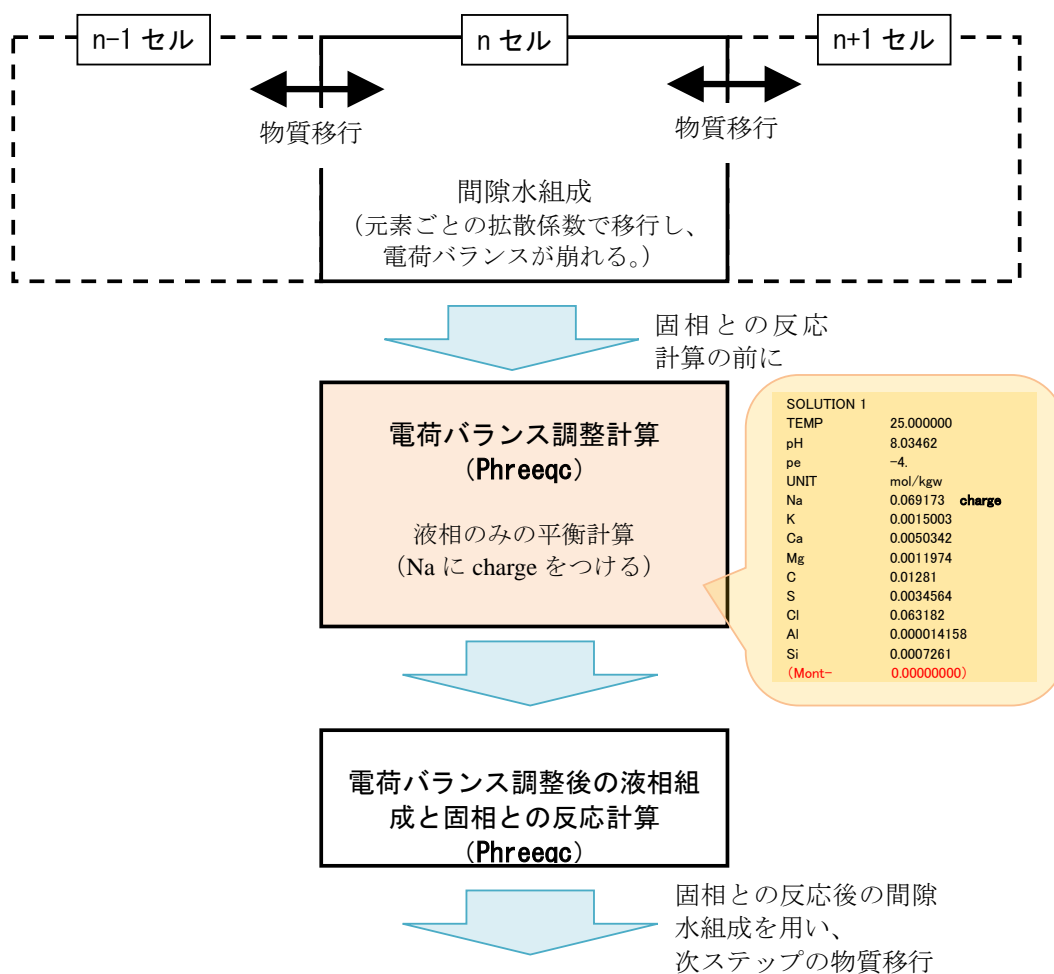


図 5.3-14 電荷バランスの調整方法概念図

(3) MC-BUFFER プログラムの修正および検証

上述の検討 (5.3.3 (2) の (i) および (ii)) を踏まえた MC-BUFFER プログラムの修正を行い、以下の試計算を行った。

計算体系は図 5.3-15 に示すように長さ 3m の 1 次元体系、メッシュ間隔 0.1m とした。物質移行は拡散のみであり、また、固相は存在しない (固相との反応はない) とした。初期条件は全領域で $C(0)=0.01$ (mol/L)、境界条件は左端を濃度 0.02 mol/L に固定、右端を反射境界とした。

計算ケースを表 5.3-6 に示す。移行元素は Na および Cl とし、ケース 1~3 では Na で電荷バランスの調整が行われることとした。一方、ケース 4~6 では Na を用いた電荷バランス調整は行わず、従来のどおり pH でバランスを調整することとした。

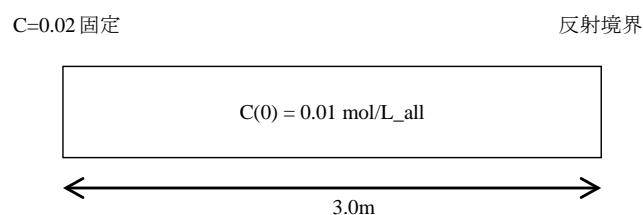


図 5.3-15 計算体系概念図

表 5.3-6 計算ケース

計算 ケース	計算に使用する見かけの 拡散係数 D_a (m^2/s)		電荷バランス 調整方法
	Na	Cl	
1	1.0×10^{-10}	1.0×10^{-10}	Na で調整
2	1.0×10^{-10}	2.0×10^{-10}	
3	2.0×10^{-10}	1.0×10^{-10}	
4	1.0×10^{-10}	1.0×10^{-10}	pH で調整 (従来の方法)
5	1.0×10^{-10}	2.0×10^{-10}	
6	2.0×10^{-10}	1.0×10^{-10}	

Na で電荷バランス調整した場合（ケース 1～3）、および pH で電荷バランス調整した場合（ケース 4～6）における 3.0×10^8 秒後（約 10 年後）の元素濃度分布、pH 分布の計算結果（以下、「計算値」）を解析解と併せて図 5.3-16 に示す。

ケース 1～3 における Na と Cl の濃度分布の計算値は、いずれのケースにおいても一致する結果となった。また、pH 分布の計算値も拡散期間を通じて一定の値をとっていた。ケース間の比較では、ケース 1 とケース 3 は同一となり、ケース 2 は若干移行が速かった。さらに、解析解との比較では、Na の計算値は Na の解析解ではなく、Cl の解析解と一致した。すなわち、各元素の移行は Cl の拡散係数で決定される結果となり、電荷バランスの調整に用いられる Na は、Cl の動きに従う、という結果となった。

一方、ケース 4～6 における Na と Cl の濃度分布の計算値および解析解は一致し、それぞれの拡散係数で移行したのがわかる。しかしながら、電荷バランスの調整を pH で行っているため、その値は不安定な値を示した。なお、ケース 4 は、Na と Cl が同じ拡散速度で移行するため、電荷バランスが崩れず、ケース 1 と同じ結果となった。

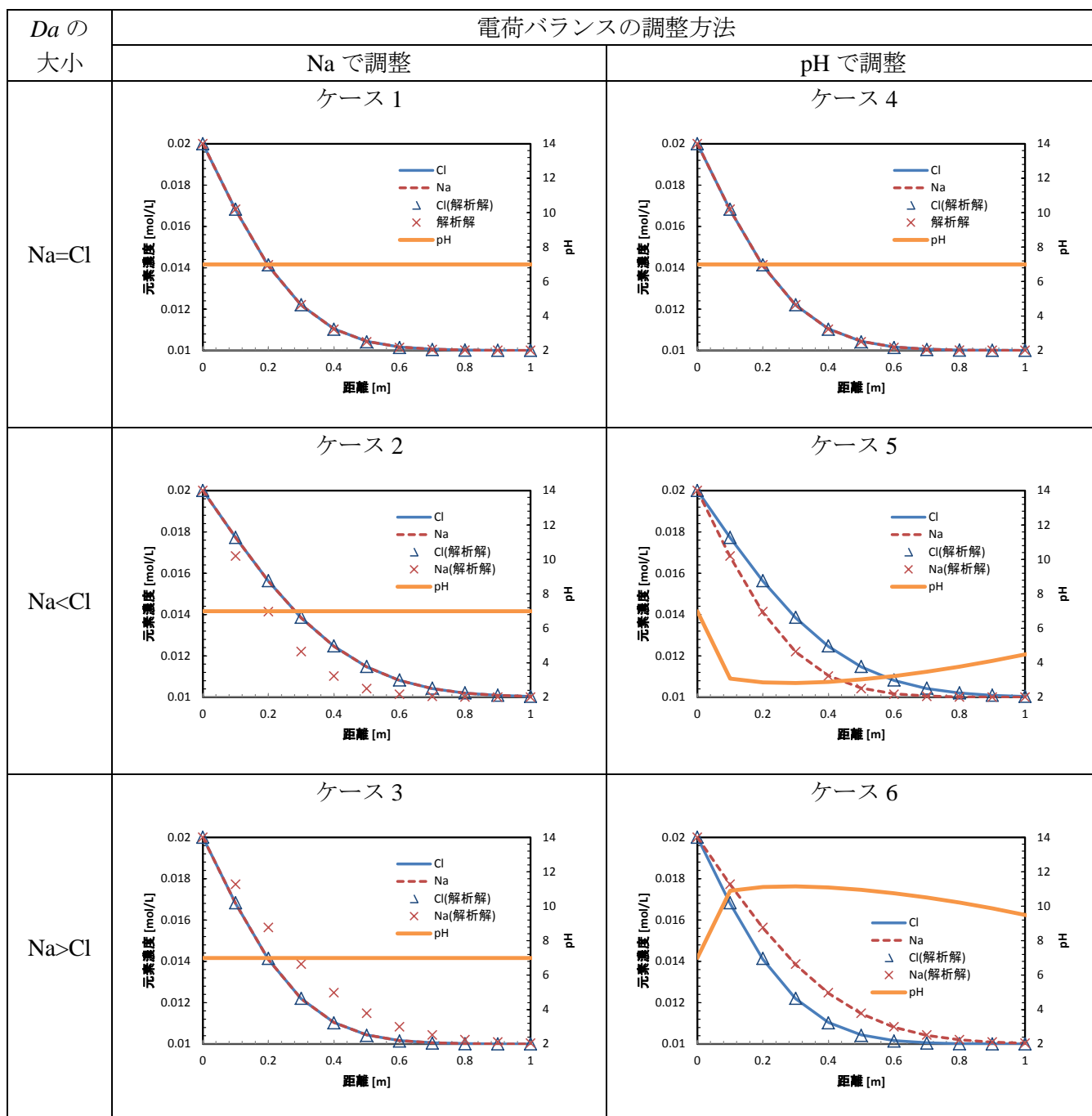


図 5.3-16 3.0×10^8 秒後の元素濃度分布および pH 分布の計算結果と解析解の比較
(電荷バランス調整方法に係る検討)

以上の検証結果より、複数の元素をそれぞれの Da で移行させる計算を実施する場合、従来の pH で電荷バランスを調整する方法よりも Na で調整する方法の方が、系全体の pH の安定性が保たれ、当該調整方法が妥当である可能性が示された。

(4) まとめと今後の課題

新拡散モデルを MC-BUFFER へ導入する際の留意点を整理するとともに、具体的な導入方法として、元素ごとへの Da の設定、および電荷バランスの調整について検討した。また、その妥当性を確認するため、MC-BUFFER プログラムの修正、および検証を実施した。その結果、複数の元素をそれぞれの Da で移行させる計算を実施する場合、従来の pH で電荷バランスを調整する方法よりも Na で調整する方法の方が、系全体の pH の安定性が保たれ、当該調整方法が妥当である可能性が示された。今後は、同一の Da を設定する複数の元素に対する群の構成、郡ごとの移行計算、保持因子 α 、固相を含む系での単位体積当たりの濃度、および地球化学反応計算で用いる間隙水中濃度への換算等についても具体的なコードへの導入方法を検討し、適宜 MC-BUFFER に取り込むとともに、物質移行-地球化学反応を連立させた計算を実施し、その妥当性を確認することが重要である。

5.3.4 結論および今後の課題

平成 27 年度は、燃料デブリを処分する際の人工バリアとしても使用される可能性があるベントナイト系緩衝材中の化学環境解析のための拡散評価手法の整備に係る検討を行った。

具体的には、平成 26 年度に提案した見かけの拡散係数 Da をベースとしたイオン種の拡散モデル（新拡散モデル）の検討に資するため、非放射性のイオン種（ Ca^{2+} イオン、 Na^+ イオン、 Cl^- イオン）を用いた Na 型モンモリロナイト中の透過拡散試験を長期間に渡り行うとともに、これら結果を用いて当該モデルに係る検討を実施した。その結果、 Ca^{2+} イオンを用いた透過拡散試験に係る検討では、収着分配係数 Kd の値が小さいケースにおいては、別の試験で得られた Da と Kd を用いて、透過拡散試験結果を再現できる可能性が示された。しかしながら、 Kd の値が大きいケースでは、接液部におけるモンモリロナイト中 Ca 濃度の初期設定が計算と実験で異なっていたこと等から試験結果を再現することが出来なかった。また、 Cl^- イオンおよび Na^+ イオンに係る検討では、長期間の透過拡散試験を実施したにも関わらず両タンク内の濃度変化が小さかったため、結果に対して十分な検討を実施することが出来なかったが、保持因子 α および Da の設定に係る留意点を整理し、接する溶液に応じた α の値を設定する必要があること、また、対となって移行する陽イオンと陰イオンは同じ拡散係数を用いる必要があり、特に Na^+ イオンについては共に移行するイオン種の拡散に従うことを示した。今後は、圧縮体への収着バッチ試験等により陰イオンに対する α を実験的に決定すること、放射性核種を使用した透過拡散試験を実施し、電荷バランスに縛られない、イオン種固有の拡散データを取得すること、また、これら結果を踏まえ、必要に応じて新拡散モデルに反映させることが重要であるとした。

また、新拡散モデルを物質移行-変質連成解析コード（MC-BUFFER）へ導入する際の留意点を整理するとともに、具体的な導入方法として、元素ごとへの Da の設定、および電荷バランスの調整について検討した。また、その妥当性を確認するため、MC-BUFFER プログラムの修正、および検証を実施した。その結果、複数の元素をそれぞれの Da で移行させる計算を実施する場合、電荷バランスを Na で調整する方法が妥当である可能性が示された。今後は、同一の Da を設定する複数の元素に対する群の構成、郡ごとの移行計算、保持因子 α 、固相を含む系での単位体積当たりの濃度、および地球化学反応計算で用いる間隙水中濃度への換算等についても具体的なコードへの導入方法を検討し、適宜 MC-BUFFER に取り込むとともに、一連の物質移行-地球化学反応計算を実施し、その妥当性を確認することが重要であるとした。

5.4 MIG2DF の整備

日本原子力研究開発機構では、多孔質媒体中での2次元地下水流動・核種移行評価コード：MIG2DF⁽¹⁾を開発している。これまで本コードに対して、地質環境の長期安定性を評価するための様々な機能が追加されてきた。今年度は従来の機能に加え、長期的な地質環境の変化（隆起・侵食および断層の成長）を連続的に評価するための拡張として、以下の3つの機能から成る外部プログラム：隆起・侵食解析用入出力データセット作成コード（PASS_UANDD）を作成した。

- 1) 隆起・侵食に係る入力支援モジュール
(Uplift and Denudation Preprocessor (以下、UANDD_PRE))
- 2) 節点移動機能に係るモジュール
(Uplift and Denudation Node Translator (以下、UANDD_TRANSNODE))
- 3) モデル切り替え時の計算値継承に係るモジュール
(Calculated Value Succession Program (以下、CalVaS))

本コードをMIG2DFと共に用いることで、長期的な地質環境の変化による地下水流動への影響を連続的に評価することが可能となる。例として、過去～現在～未来に対する地質環境の変化を評価する場合の流れを、図5.4-1に示す。

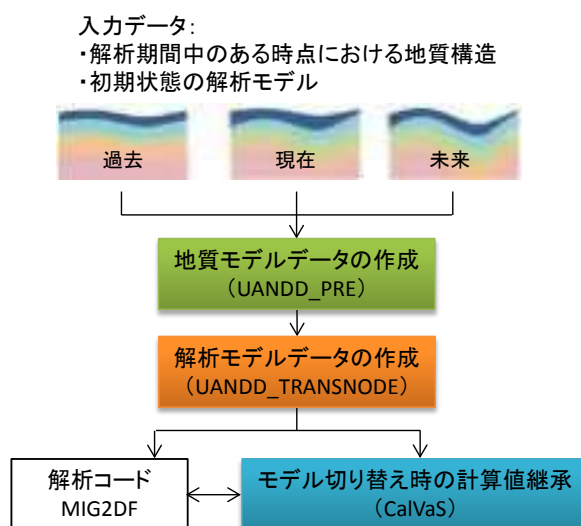


図 5.4-1 地質環境の長期的変遷を考慮した連続的な解析の流れ

処分場として選定されたサイトに対し、地質調査等によって過去および現在の各時点での地質構造（以下、地質モデルデータ）が得られており、これらに基づき未来の地質モデルデータが推定されているとする。これらに加え、初期状態（過去）のMIG2DFの入力データ（以下、解析モデルデータ）を入力とし、以下の流れで連続的な計算を行うことが可能となる。

- ① UANDD_PREにより、過去・現在・未来の各時点での地質モデルデータに基づき、計算時刻毎の地質モデルデータを補間する。
- ② UANDD_TRANSNODEにより、初期状態の解析モデル（MIG2DFのインプットデータ）に基づき、①で求めた計算時刻毎の地質モデルに応じた解析モデルを作成する。
- ③ ②で作成した解析モデルを入力として、モデル切り替えに応じてCalVaSによって計算値を引き継ぎながらMIG2DFによる解析を反復的に行い、過去～現在～未来までの計算を連続的に実行する。

5.4.1 隆起・侵食に係る入力支援モジュールの作成

(1) 拡張内容

従来の MIG2DF では、隆起・侵食に伴う地質境界の変化を入力する機能があったが、各地質境界の移動速度を地質境界の定義位置ごとに入力する必要があり、複数の地質境界に対して任意の経時変化を与えることが困難であった。

今年度は、いくつかの地質モデルデータ（地表面、地質境界、断層面の情報）から計算時刻毎の地質モデルデータを補間して作成する、入力支援モジュール (UANDD_PRE) を作成した。

(2) 処理内容

UANDD_PRE は、以下の流れで実施される。

①地表面・地層要素の作成

与えられた地質構造の地層境界面データをもとに、地質モデルデータの地層要素（地層境界を表すために作成される要素（※解析で使用されるメッシュとは異なる））を作成する。地表面は、地表面にある地層要素の線分として作成する。

②地表面の年代間補間

③地層要素の年代間補間

④断層面の年代間補間

与えられた地表面、地層要素、断層面の年代間を補間し、全ステップの地質モデルデータを作成する。

以下に、各処理内容の詳細を示す。

①地表面・地層要素の作成

鉛直線固定点の X 座標と鉛直線固定点間に配置する水平方向等分割点数をもとに、地層要素を分割する鉛直線を設定する。鉛直線と地質構造データの地層境界との交点を地層要素格子点として地層要素を作成する。各鉛直線の X 座標は全地質タイムステップを通して共通であり、地層要素には固有の識別子を与える。侵食を受けて消失した地層要素や、後の堆積によって発生するがある地質タイムステップにおいては存在しない地層要素は、Z 方向の厚みが 0 であるとして表現される。

各鉛直線上の最上位にある地層要素格子点を地表面節点とし、これを連結して地表面とする。

②地表面の年代間補間

地質タイムステップ t_m における地質モデル Mt_m と地質タイムステップ t_n における地質モデル Mt_n ($t_m < t_n$) 間の地質タイムステップ補間数に応じて、各地表面節点の Z 座標を線形補間する。

$$Y_t = \frac{(t - t_m)Y_{t_n} + (t_n - t)Y_{t_m}}{t_n - t_m} \quad (5.4-1)$$

t_m, t_n : 地質構造データの入力年代 ($t_m < t_n$)

t : 補間地質タイムステップの年代 ($t_m \leq t \leq t_n$)

Z_t, Z_{t_m}, Z_{t_n} : 各地質タイムステップにおける節点の Z 座標

③地層要素の年代間補間

地層要素格子点の補間は、地層要素格子点と地表面との位置関係によって異なる手法をとる。

- 1) 地質モデル M_{t_m} 、 M_{t_n} でともに地層要素格子点が地中に位置する場合
地質モデル間で、地層要素格子点の Z 座標を線形補間する。
- 2) 地質モデル M_{t_m} 、 M_{t_n} で地層要素格子点が地表に接する場合
地表面節点と同じ座標をとる。
- 3) 地質モデル M_{t_m} では地中にある地層要素格子点が M_{t_n} では地表面にある場合
対象地層要素格子点が地表面に接するまでは、一つ下の地層要素格子点との鉛直方向長さを一定に保つよう補間する。地層要素固定点が地表面と接した後は、地表面節点座標と同じ座標をとる。
- 4) 地質モデル M_{t_m} では地表に接する地層要素格子点が M_{t_n} では地中にある場合
対象地層要素格子点と一つ下の地層要素格子点は M_{t_m} 、 M_{t_n} において地中にあるので、線形補間される。 M_{t_n} における対象地層要素格子点と一つ下の地層要素格子点間の Z 方向長さが一定になるように、対象地層要素格子点の Z 座標を補間する。補間地質タイムステップにおいて Z 方向長さが M_{t_n} における Z 方向長さよりも短い場合は、対象地層要素は地表面節点と同じ座標をとる。また、 M_{t_m} における鉛直方向長さが M_{t_n} における鉛直方向長さよりも長い場合は、対象地層要素格子点の Z 座標を線形補間により求める。

④断層面の年代間補間

断層面は連続した線分によって表現され、各線分の端点を断層節点と呼び、一つの断層面の各断層節点 X 座標は常に増加するように定義される。断層節点 X 座標は地層要素を分割する鉛直線とは独立に設定でき、地質構造データの入力年代においては地質構造データの断層節点と地質モデルの断層節点は同一の座標をとる。地質モデル M_{t_m} 、 M_{t_n} 間の断層面の補間手法の模式図を図 5.4-2 に示す。

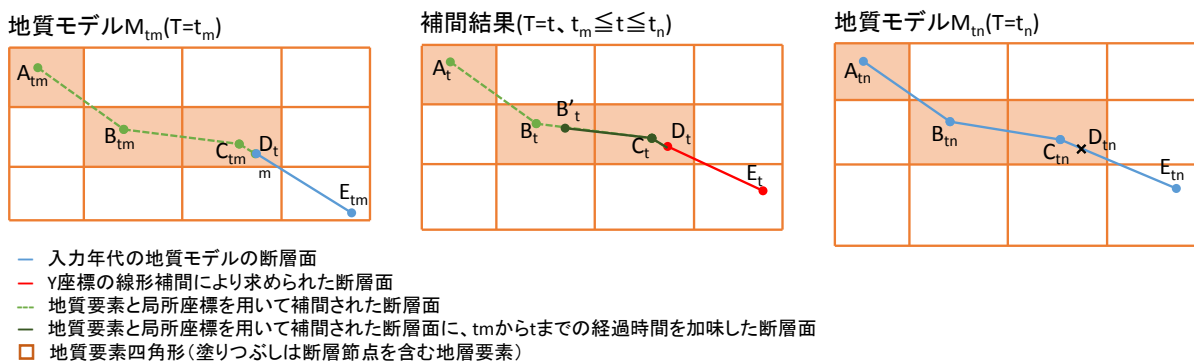


図 5.4-2 断層面補間手法

- $X_D \leq x \leq X_E$ の範囲

M_{t_m} と M_{t_n} で共通する X 座標範囲であるため、断層節点(D、E)の Z 座標は線形補間できる。 M_{t_n} で節点 D_{t_n} は定義されていないが、これは線分 $C_{t_n}E_{t_n}$ から座標値を得る。

- $x < X_D$ の範囲

断層の延伸が進んだ結果である M_{t_n} の断層節点を基準として補間を行う。点 A_{t_n} 、点 B_{t_n} 、点 C_{t_n} の属する地層要素と局所座標を求め、 $T=t$ での地層要素の形状を用いて局所座標から全

体座標に変換することで、断層節点の補間を行う。これにより $T=t$ における点 B_t 、点 C_t の座標が得られる。また、点 A_t については属する地層要素が地表面と接しており、上辺が侵食を受けている可能性がある。そこで、点 A_t の Z 座標を点 A_{t_n} の Z 座標と地層要素下辺の鉛直方向長さを一定に保つように補間する。

・点 A～点 B～点 C～点 D の範囲

$T=t_m$ から $T=t_n$ の間に延伸が進んだ範囲であるので、 $T=t$ の断層面には延伸の進展度合いを加味する必要がある。以下を満たす線分 B_tD_t 間の点 B'_t を求める

$$|B'_tC_t| + |C_tD_t| = (|A_tB_t| + |B_tC_t| + |C_tD_t|) \times \frac{t - t_n}{t_m - t_n} \quad (5.4-2)$$

また、補間された断層 A~B~C~D が地表面と交差した場合は、節点 D に最も近い地表面との交点までを地質モデルの断層面とする。

(3) テスト計算

テスト計算に用いる地質構造として、新里ら (2007) で示された北海道北部、幌延地域の地形・地質構造 (図 5.4-3) を使用した。なお、新里ら (2007) では現在から 2.5Ma までの地質構造が示されているが、テスト計算には断層面の発達を示される 1.5Ma 以降を用いた。S4 断層 (図 5.4-3 赤枠内の断層) については、0.5Ma での断層形状が示されていないため、図 5.4-3 の現在の地質構造で示される S4 断層の下端座標を、0.5Ma における S4 断層の上端座標と仮定した。時間補間・地層要素分割の設定として表 5.4-1 を用いた。

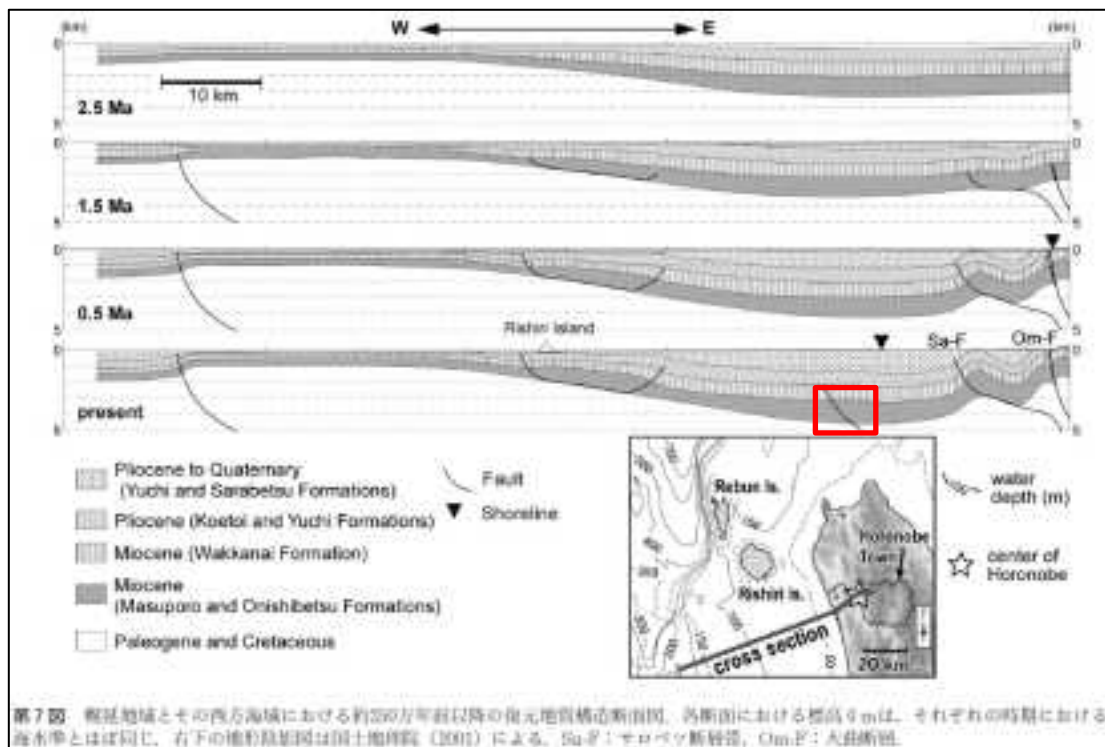


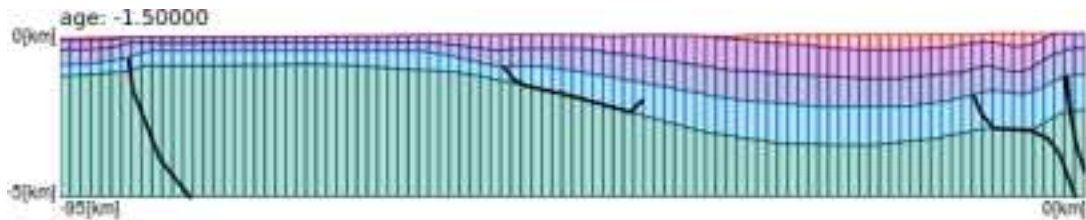
図 5.4-3 北海道北部、幌延地域における地形・地質構造の変遷 (新里ら (2007) ⁽²⁾より、水平方向 100km、深度方向 5km の範囲)

表 5.4-1 地質タイムステップの補間・地層要素分割設定

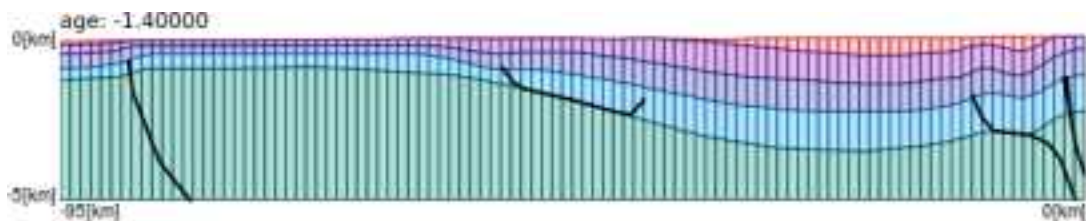
項目	設定
入力地質構造データの年代	1.5、0.5、0.0[Ma]
地質タイムステップ補間	0.01Ma 毎
地質モデルの領域	東西方向 95[km] (地質図の東端から西に 95[km]の範囲) 深度方向 5[km] (底面標高-5[km])
地層要素の分割設定	鉛直線固定点：-95、0[km] -95~0[km]間の鉛直線固定点間の等分割点数：99 (100 分割)

テスト計算の結果 (0.01Ma 毎) を、図 5.4-4 に示す。(a)1.5Ma、(k)0.5Ma、(p)0.0Ma (現在) が入力地質モデルデータ、それ以外は UANDD_PRE によって得られた地質モデルデータである。

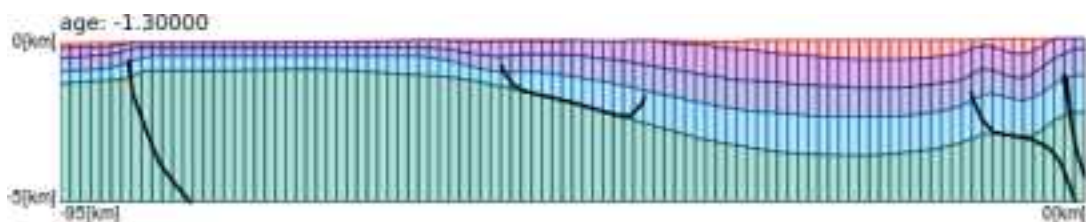
(a) 1.5Ma (入力地質モデルデータ)



(b) 1.4Ma (補間結果)



(c) 1.3Ma (補間結果)



(d) 1.2Ma (補間結果)

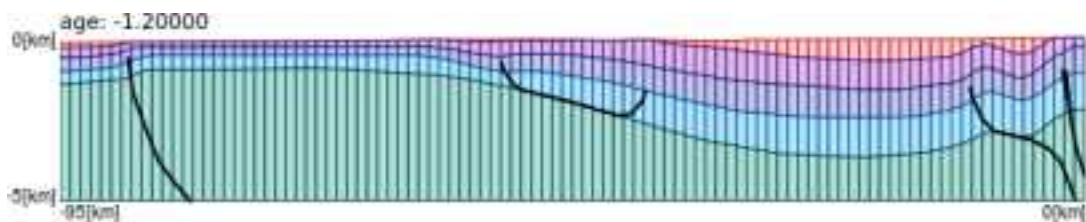
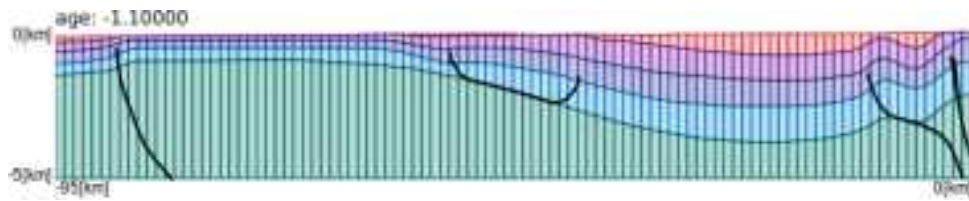
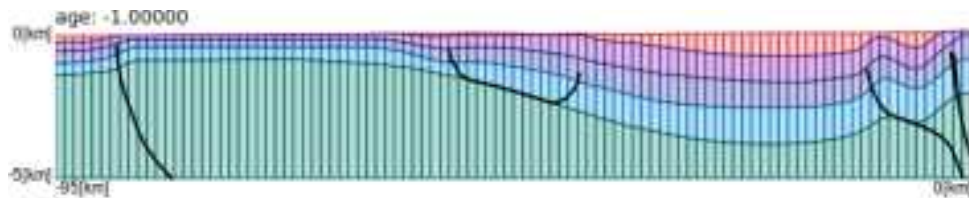


図 5.4-4 UANDD_PRE テスト計算結果 (1/3) (鉛直方向を 3 倍に拡大)

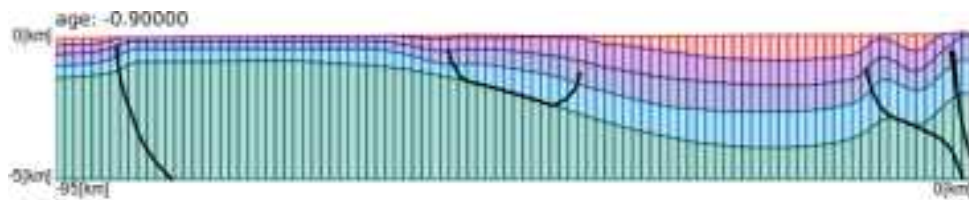
(e) 1.1Ma (補間結果)



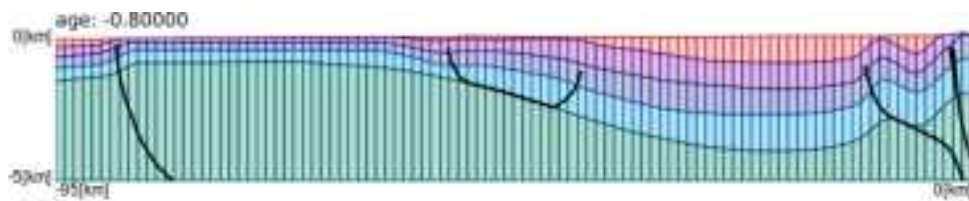
(f) 1.0Ma (補間結果)



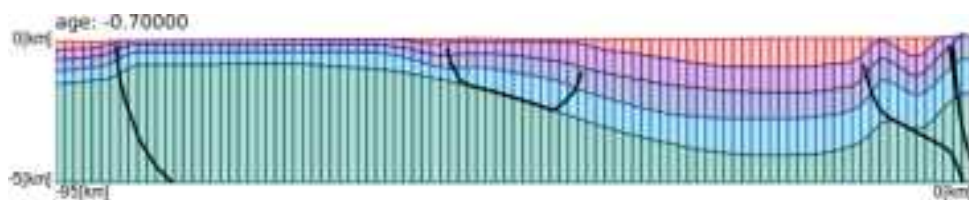
(g) 0.9Ma (補間結果)



(h) 0.8Ma (補間結果)



(i) 0.7Ma (補間結果)



(j) 0.6Ma (補間結果)

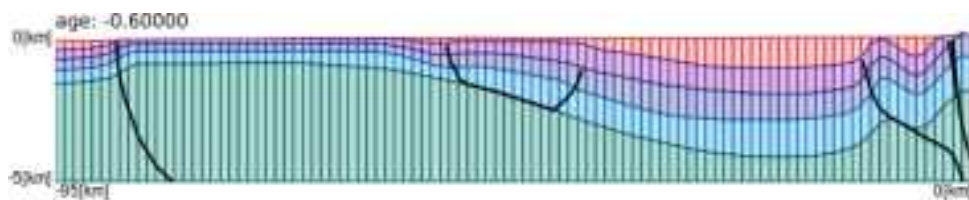
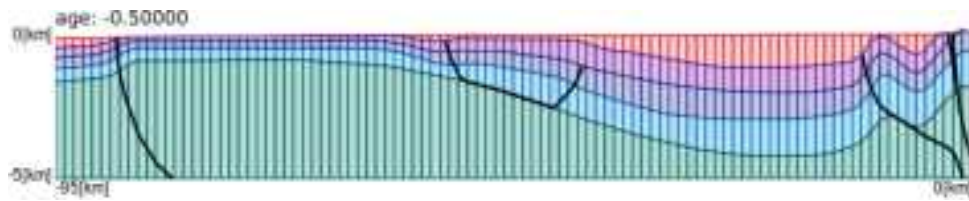
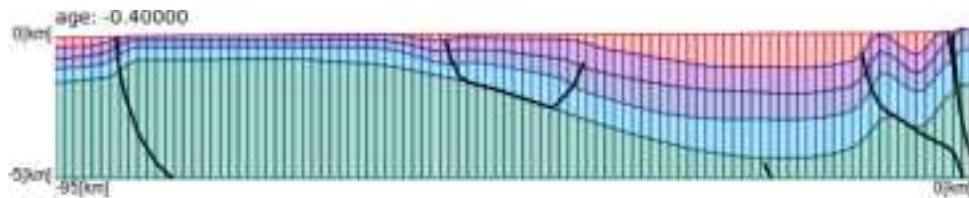


図 5.4-4 UANDD_PRE テスト計算結果 (2/3) (鉛直方向を 3 倍に拡大)

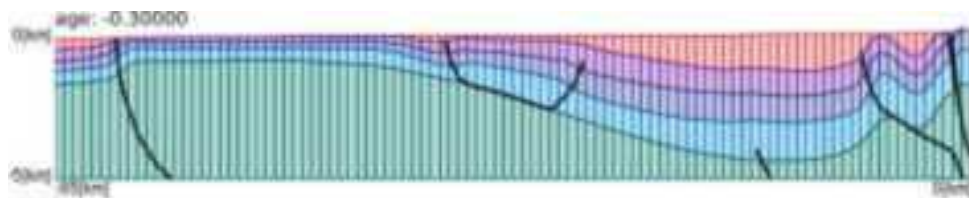
(k) 0.5Ma (入力地質モデルデータ)



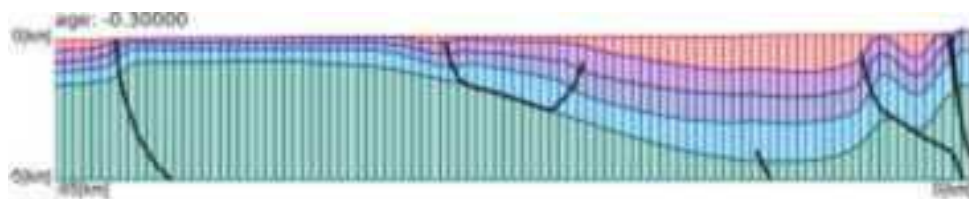
(l) 0.4Ma (補間結果)



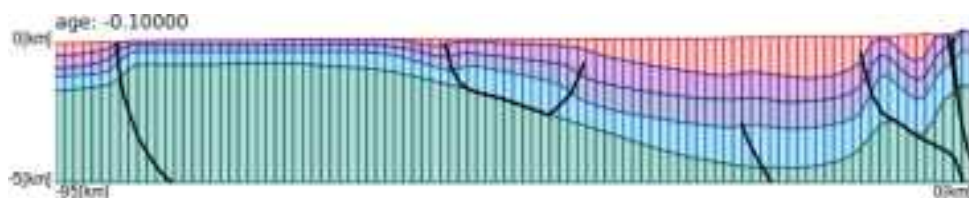
(m) 0.3Ma (補間結果)



(n) 0.2Ma (補間結果)



(o) 0.1Ma (補間結果)



(p) 0.0Ma (入力地質モデルデータ)

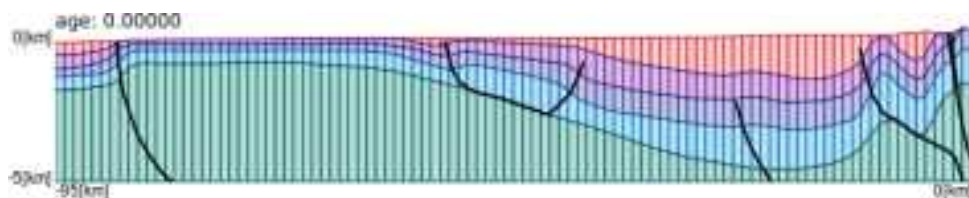


図 5.4-4 UANDD_PRE テスト計算結果 (3/3) (鉛直方向を3倍に拡大)

5.4.2 節点移動機能に係るモジュールの作成

(1) 拡張内容

従来の MIG2DF では、隆起・侵食を表すための有限要素法の節点移動機能があったものの、ある領域を指定して一様に移動させることしかできなかった。

今回の拡張では実際の隆起・侵食を模擬するため、地質構造の任意の形状変化に応じてモデル全体の節点を移動することができる機能として、地質モデルデータをもとに解析モデルデータを更新する節点移動モジュール (UANDD_TRANSNODE) を作成した。

節点移動機能は以下の機能を有する。

- ①地質モデルの地表面形状に合わせて節点を移動する機能
- ②地質モデルの地質構造にあわせて要素の物性値パラメータを変更する機能
- ③節点圧力水頭初期値設定機能
- ④海水位拘束が適用された節点に対する塩分濃度拘束時刻歴データ設定機能
- ⑤海水位拘束が適用された節点について、節点の Z 座標が海水位より高い場合に圧力水頭ゼロの定水頭へと再設定する機能

(2) 処理内容

①地質モデルの地表面形状に合わせて節点を移動する機能

対象とする解析モデルは、複数の鉛直線上に同数の節点を配置した格子状の構造でなければならない。また水平方向については整列している必要はない。

解析モデルを任意の深度を用いて上層部分と下層部分に分け、上層部分の上端の節点は地質モデルデータの地表面形状と一致させる。この時、上層部分の鉛直方向の長さ(節点間の距離)は変化させず固定とし、下層部分の鉛直方向の長さのみを変化させる(メッシュの伸縮)。ただし、下層部分における節点間の鉛直方向の長さ比率は固定とする。

②地質モデルの地質構造にあわせて要素の物性値パラメータを変更する機能

①において移動した節点を構成要素とする解析モデル各要素(4 節点四角形)に、地質モデルデータの地層要素、断層および表層の物性値パラメータを適用する(表 5.4-2)。

表 5.4-2 解析モデル各要素に適用する地層要素および断層の物性値パラメータ

No.	パラメータ名	型
1	透水係数番号	I5
2	透水関数番号	I5
3	核種第 1 物性番号	I5
4	核種第 2 物性番号	I5
5	塩分濃度物性番号	I5
6	化学種物性番号	I5
7	温度物性番号	I5
8	間隙率	F10.0

1) 地層要素の物性値パラメータの適用

要素の中心座標が属する地層要素を探索し、その地層要素の物性値パラメータを適用する。厚みが0である地層要素の物性値パラメータは適用対象から除外する。

2) 断層の物性値の適用

地質モデルデータでは断層は連続した線分で定義される。断層線分と交わる要素については、断層の物性値パラメータを地層要素の物性値パラメータよりも優先して適用する。要素が複数の断層と交わる場合は、地質モデルデータにおける定義順の早い断層の物性値パラメータを適用する。また、断層のマージン幅を与えることで、断層線分と交わる要素の左右マージン幅分の要素について、断層の物性値パラメータを適用することができる。

3) 表層の物性値の適用

地質モデルデータに UANDD_SURFPAR が設定されている場合に用いられる。要素中心の地表面からの深度が地質モデルデータの表層深度よりも浅い要素に、表層の物性値パラメータが地層要素や断層よりも優先して適用される。

③節点圧力水頭初期値設定機能

節点の圧力水頭初期値を設定する。圧力水頭の設定方法は①全水頭を一定とする方法、②全水頭を地表面標高とする方法、③圧力水頭を一定とする方法の3つがあり、オプションによって切り替えることができる。また、圧力水頭初期値は陸域・海域ごとに設定することができる。

④海水位拘束が適用された節点に対する塩分濃度拘束時刻歴データ設定機能

節点に海水位拘束条件が与えられている場合は、移動後の節点 Z 座標と海水位高をもとに塩分濃度拘束時刻歴データを生成し、時刻に応じた塩分濃度を適用することができる。

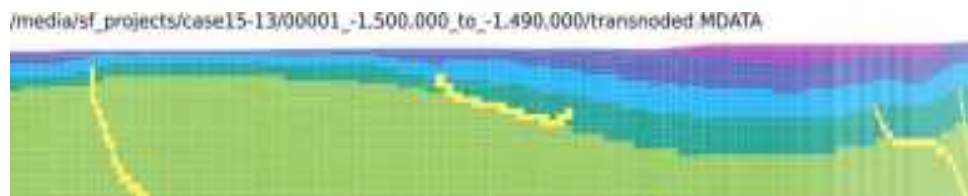
⑤海水位拘束が適用された節点について、節点の Z 座標が海水位より高い場合に圧力水頭ゼロの定水頭へと再設定する機能

節点に海水位拘束条件が与えられている場合、節点 Z 座標が海水位の最大値よりも高い場合に、節点を圧力水頭ゼロの定水頭として設定することができる。

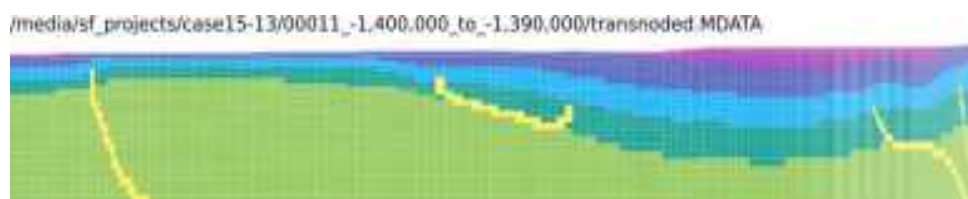
(3) テスト計算

図 5.4-4 で示した地質モデルデータ、および、1.5Ma に対して作成した解析モデルデータを
入力として、UANDD_TRANSNODE により 0.01Ma の解析モデルデータを作成した。結果を
0.1Ma 毎に図 5.4-5 に示す。

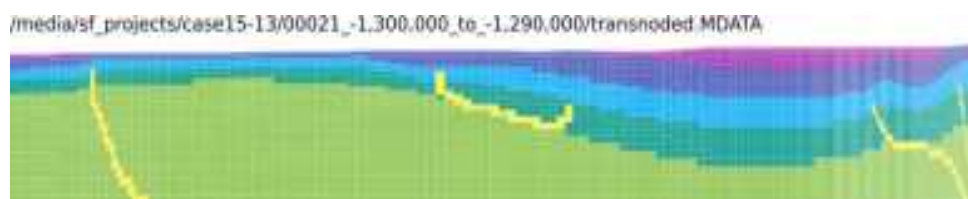
(a) 1.5Ma (入力データ)



(b) 1.4Ma (出力結果)



(c) 1.3Ma (出力結果)



(d) 1.2Ma (出力結果)

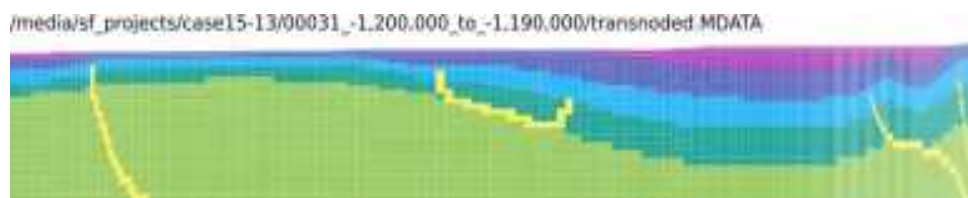
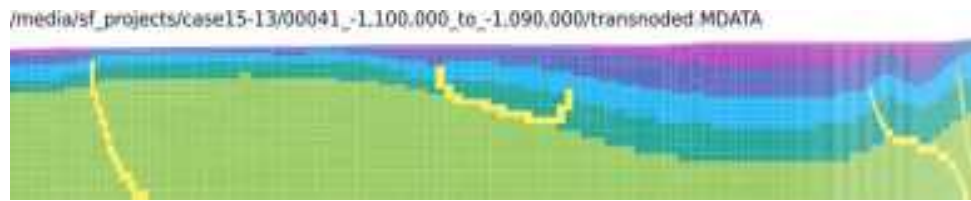
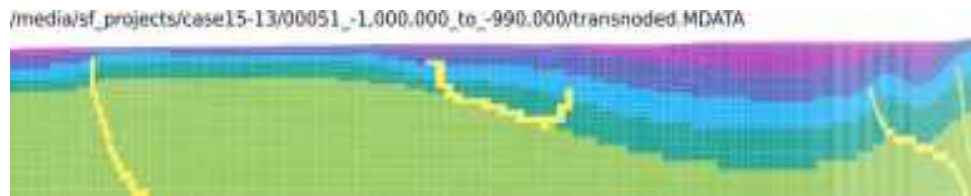


図 5.4-5 UANDD_TRANSNODE テスト計算結果 (1/3) (鉛直方向を3倍に拡大)

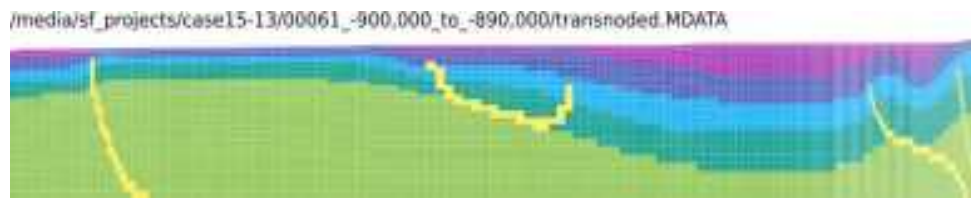
(e) 1.1Ma (出力結果)



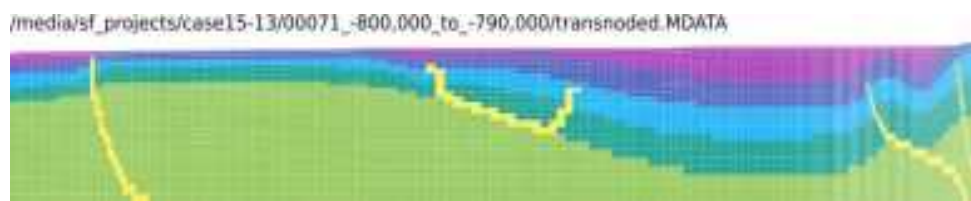
(f) 1.0Ma (出力結果)



(g) 0.9Ma (出力結果)



(h) 0.8Ma (出力結果)



(i) 0.7Ma (出力結果)



(j) 0.6Ma (出力結果)

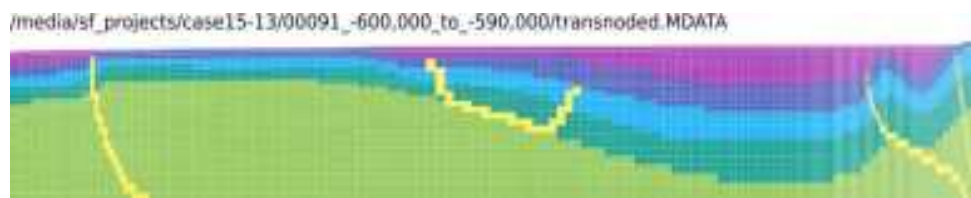
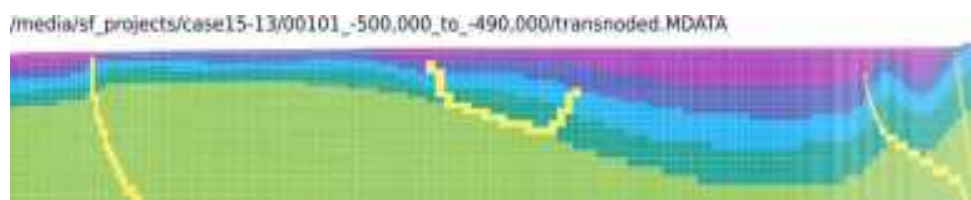
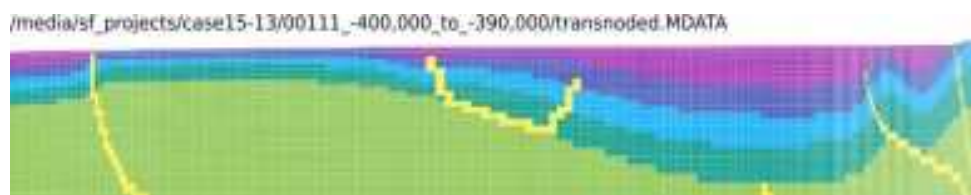


図 5.4-5 UANDD_TRANSNODE テスト計算結果 (2/3) (鉛直方向を3倍に拡大)

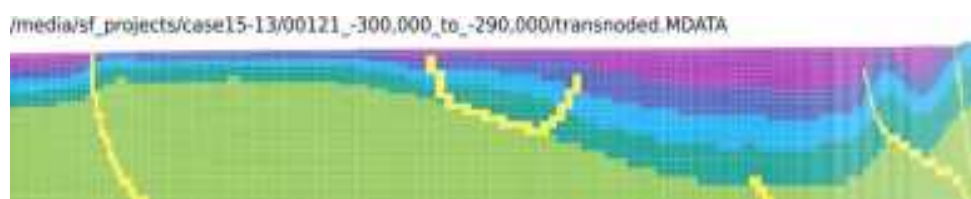
(k) 0.5Ma (出力結果)



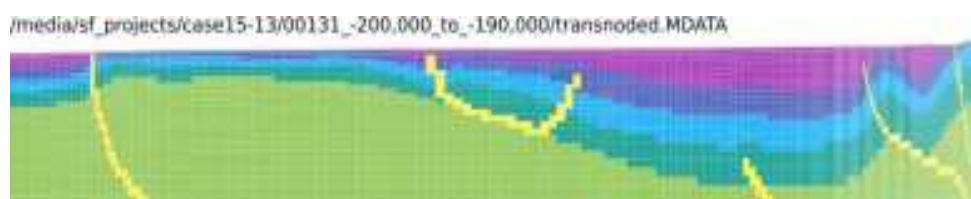
(l) 0.4Ma (出力結果)



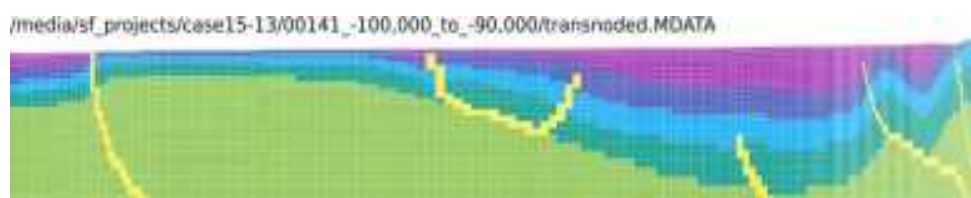
(m) 0.3Ma (出力結果)



(n) 0.2Ma (出力結果)



(o) 0.1Ma (出力結果)



(p) 0.0Ma (出力結果)

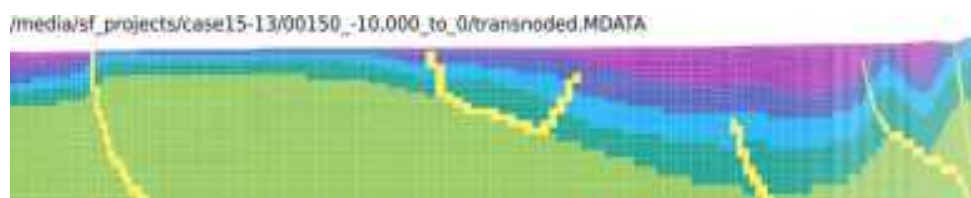


図 5.4-5 UANDD_TRANSNODE テスト計算結果 (3/3) (鉛直方向を3倍に拡大)

5.4.3 モデル切り替え時の計算値継承に係るモジュールの作成

(1) 拡張内容

従来の MIG2DF では、非定常解析の中で隆起・侵食に伴う節点移動を行った場合、同じ番号の節点に対する移動前の計算値が、そのまま移動後に引き継がれていた。

今回の拡張では、解析モデル更新時に地層との位置関係に応じて、節点の計算値を更新前のモデルから継承するための計算値継承モジュール (CalVaS) を作成した。

(2) 処理内容

CalVaS は、以下の流れで実施される。

- ①解析モデル節点における計算値継承
- ②堆積・侵食状態にある節点の計算値継承
- ③断層内節点の計算値継承

以下に、各処理内容の詳細を示す。

①解析モデル節点における計算値継承

解析モデル節点における計算値継承は、以下の手順で行われる。

- (a) 新解析モデルにおける節点 (以下、新節点) が属する新地層モデルの地層の決定
- (b) 新節点の新地層モデルにおける位置 (全体座標から局所座標) の計算
- (c) 新節点の旧解析モデルにおける位置 (局所座標から全体座標) の計算
- (d) 新節点の旧解析モデルにおいて属する要素の決定
- (e) 新節点の旧解析モデルにおける位置 (全体座標から局所座標) の計算
- (f) 新節点の旧解析モデルにおける位置 (局所座標) から節点変数値 (圧力水頭、濃度等) の計算

地質モデルを構成する要素 (以後、地層要素) は四角形と三角形があるが、上記手順の対象となる地層要素は四角形である。また、旧地質タイムステップと新地質タイムステップ間で隆起・侵食に伴う地層の消滅がない、あるいは新地質タイムステップにおいて新地層の出現していない場合に適用される。①～⑥で示す手順を以後「変形継承法」と記す。

(a) 新節点が属する新地層モデルの地層の決定

地層モデルは複数の四角形で構成されている。新節点の座標値と新地層モデルを用いて、新節点が地層モデルのどの地層要素に属しているかを決定する。新節点の含まれる地層四角形の判別には、外積を用いた。新節点と地層要素を構成する節点で作られるベクトルの向き (外積の符号) が全て同じであれば、新節点はある地層要素内に存在すると判別できる。なお、要素を構成する線上に点がある (外積が 0) 場合も内包と判別する。

(b) 新節点 (全体座標) の新地層モデルにおける位置 (局所座標) の計算

四角形の 1 次アイソパラメトリック要素では、基になる四角形を規格化し、節点における関数値を用いて、要素内の任意の位置における関数値を求められる。

要素内における全体座標は、変換点の要素内における局所座標、4 節点の全体座標、および形状関数から、以下の式で求められる。

$$x = \sum_{i=1}^4 N_i(\xi, \eta) x_{ND_i}, y = \sum_{i=1}^4 N_i(\xi, \eta) y_{ND_i} \quad (5.4-3)$$

ここで、

x, y	:	変換点 P の全体座標
x_{ND_i}, y_{ND_i}	:	4 節点の全体座標
N_i	:	節点形状関数 (局所座標の関数)
ξ, η	:	変換点局所座標

である。

形状関数は局所座標の関数であり、1 次アイソパラメトリック要素の形状関数は以下の式で示される。

$$\begin{aligned} N_1 &= \frac{1}{4}(1 + \xi)(1 + \eta) & N_2 &= \frac{1}{4}(1 - \xi)(1 + \eta) \\ N_3 &= \frac{1}{4}(1 - \xi)(1 - \eta) & N_4 &= \frac{1}{4}(1 + \xi)(1 - \eta) \end{aligned} \quad (5.4-4)$$

全体座標から局所座標を算出するには、既知である変換点 P の全体座標(x, y)から規格化された四角形要素における局所座標(ξ, η)を計算する。しかし、局所座標が未知であるため、上記の式から直接計算を行う事が出来ない。そこで、局所座標を仮設定し、仮設定した局所座標から得られた全体座標と変換点 P のずれが許容値以下になるまで計算を繰り返し行う事で、局所座標を求める。

仮設定した点 P_0 と変換点 P の全体座標におけるずれは以下の式で求められる。

$$\begin{aligned} \Delta x &= x - x_0 = x - \sum_{i=1}^4 N_i(\xi_0, \eta_0) x_{ND_i} \\ \Delta y &= y - y_0 = y - \sum_{i=1}^4 N_i(\xi_0, \eta_0) y_{ND_i} \end{aligned} \quad (5.4-5)$$

全体座標におけるずれ($\Delta x, \Delta y$)と局所座標におけるずれ($\Delta \xi, \Delta \eta$)の関係を以下に示す。

$$\begin{aligned} \frac{\partial x}{\partial \xi} &= \sum_{i=1}^4 \frac{\partial N_i}{\partial \xi} x_{ND_i} & \frac{\partial x}{\partial \eta} &= \sum_{i=1}^4 \frac{\partial N_i}{\partial \eta} x_{ND_i} \\ \frac{\partial y}{\partial \xi} &= \sum_{i=1}^4 \frac{\partial N_i}{\partial \xi} y_{ND_i} & \frac{\partial y}{\partial \eta} &= \sum_{i=1}^4 \frac{\partial N_i}{\partial \eta} y_{ND_i} \end{aligned} \quad (5.4-6)$$

$$\begin{Bmatrix} \Delta x \\ \Delta y \end{Bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{\partial x}{\partial \xi} & \frac{\partial x}{\partial \eta} \\ \frac{\partial y}{\partial \xi} & \frac{\partial y}{\partial \eta} \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} \Delta \xi \\ \Delta \eta \end{Bmatrix} \quad (5.4-7)$$

上式を変形すると以下の様になる。

$$\begin{Bmatrix} \Delta \xi \\ \Delta \eta \end{Bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{\partial x}{\partial \xi} & \frac{\partial x}{\partial \eta} \\ \frac{\partial y}{\partial \xi} & \frac{\partial y}{\partial \eta} \end{bmatrix}^{-1} \begin{Bmatrix} \Delta x \\ \Delta y \end{Bmatrix} = \frac{1}{\frac{\partial x}{\partial \xi} \frac{\partial y}{\partial \eta} - \frac{\partial x}{\partial \eta} \frac{\partial y}{\partial \xi}} \begin{bmatrix} \frac{\partial y}{\partial \eta} & -\frac{\partial x}{\partial \eta} \\ -\frac{\partial y}{\partial \xi} & \frac{\partial x}{\partial \xi} \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} \Delta x \\ \Delta y \end{Bmatrix} \quad (5.4-8)$$

以上より、全体座標におけるずれ($\Delta x, \Delta y$)から局所座標におけるずれ($\Delta \xi, \Delta \eta$)が求められる。この値を補正值として、新しい点 P_0 の局所座標を($\xi_0 + \Delta \xi, \eta_0 + \Delta \eta$)とすると、 P_0 をより P に近い点に移動できる。計算された局所座標におけるずれは、元の位置 P_0 における値である。 P と P_0 が離れていれば補正值が必ずしも正しい値ではない。ただし、この作業を繰り返せば P と P_0 の位置のずれを許容値以下にすることが出来る。計算は($\Delta x, \Delta y$)が両方とも許容値以下になるまで繰り返す。

(c) 新節点 (局所座標) の旧地層モデルにおける位置 (全体座標) の計算

UANDD_PRE の出力である地層モデルデータでは、メッシュ番号と地層番号で地層要素を定義しているため、メッシュ番号と地層番号が分かれば地層要素は容易に求められる。そのため、まずはメッシュ番号と地層番号を用いて節点が含まれる地層要素を検索する。次に、検索した地層要素を構成する 4 節点と 0 で求めた新節点の局所座標から、旧地層モデルにおける位置 (全体座標) を計算する。

(d) 新節点の旧解析モデルにおいて属する要素の決定

旧解析モデルで使用している旧地層モデルにおける新節点の位置 (全体座標) を用いて、その座標が旧解析モデルでどの要素に属しているかを検索する。検索方法は、0 と同様に外積を用いた内包判定を用いる。

(e) 新節点 (全体座標) の旧解析モデルにおける位置 (局所座標) の計算

0 で求めた全体座標と 0 で求めた要素番号から、新節点の旧解析モデルにおける局所座標を計算する。全体座標から局所座標への変換の手順は 0 と同様である。

(f) 新節点の旧解析モデルにおける位置から節点変数値の計算

形状関数と局所座標を用いて、新節点の節点変数値を計算する。計算式を以下に示す。

$$var = N_1 var(1) + N_2 var(2) + N_3 var(3) + N_4 var(4) \quad (5.4-7)$$

ここで、

N_i : 節点形状関数 (局所座標の関数)
 $var(i)$: 節点における変数値 (圧力水頭など)

である。

②堆積・侵食状態にある節点の計算値継承

(a) 堆積・侵食の判定

堆積・侵食の判定方法は、要素の形状が四角形か三角形かによって異なる。以下では、地表面の地層要素が四角形から四角形に変化した場合について示す。

四角形から四角形への変化の場合、以下の 2 通りの方法のいずれかを用いて堆積・侵食の判定を行う。

- ・地層の圧縮・膨張を考慮した地層厚さによる判定
- ・地層の圧縮・膨張を考慮しない地層厚さによる判定

1) 地層の圧縮・膨張を考慮した地層厚さによる判定

地層の圧縮・膨張量を計算する際の基準として、直下の地層における値を参考にするため、直下の地層上面標高と、その地層の固定面（隆起・沈降などにより上昇・下降することが無い面）の標高を与えておく。堆積・侵食が発生する地層（以下、堆積・侵食層）直下の地層上面標高を Z_{LU1} （旧地質タイムステップ）、 Z_{LU2} （新地質タイムステップ）、固定面標高 Z_{LL} から、以下の式により直下地層の厚さ変化率 α を計算する。

$$\alpha = \frac{Z_{LU2} - Z_{LL}}{Z_{LU1} - Z_{LL}} \quad (5.4-8)$$

堆積・侵食層は、下位の地層に比べ固結度が低く、変形しやすいと考えられる。そのため、直下地層の厚さ変化率 α に係数 F を乗じた値を堆積・侵食層の厚さ変化率とする。旧地質タイムステップにおける堆積・侵食層の厚さ ΔZ_{U1} から、新地質タイムステップにおける堆積・侵食層の予想厚さを $\alpha F \Delta Z_{U1}$ として計算し、新地質タイムステップにおける堆積・侵食層の厚さ ΔZ_{U2} がそれより厚い場合を堆積状態、薄い場合に侵食状態にあると判定する。

概念図を図 5.4-6 に示す。

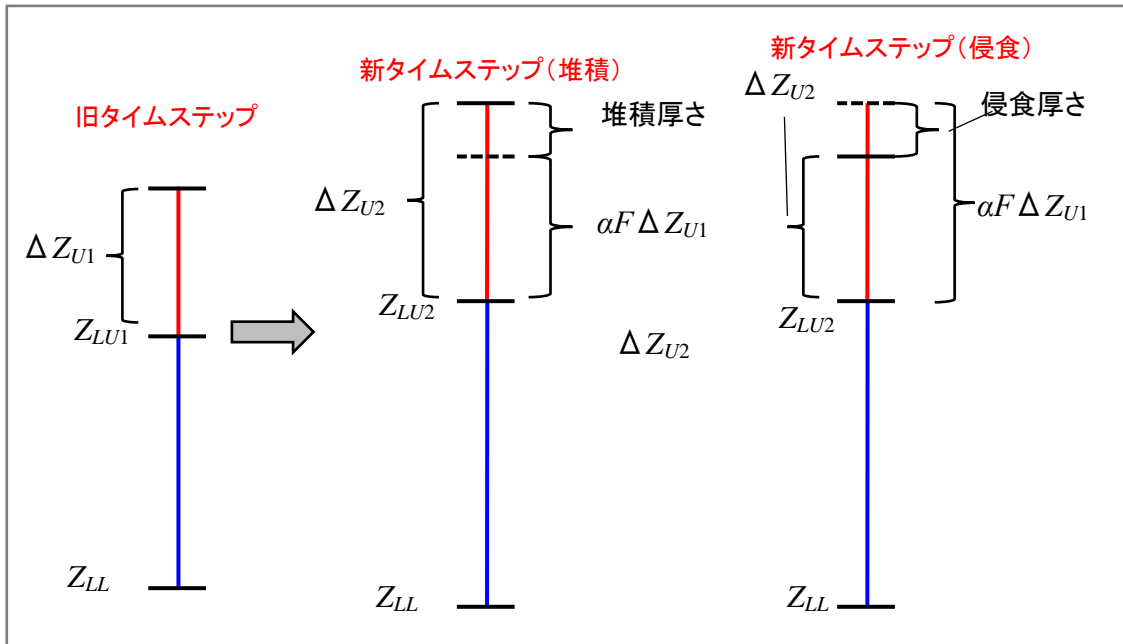


図 5.4-6 地層要素の堆積・侵食判定方法（地層の圧縮・膨張を考慮する場合）

2) 地層の圧縮・膨張を考慮しない地層厚さによる判定

地層の圧縮・膨張を考慮しない場合には、堆積・侵食層直下の地層上面の Z 座標変化量（隆起・沈降量）がそのまま上位の地層に適用される。旧地質タイムステップにおける堆積・侵食層の厚さ ΔZ_{U1} と新地質タイムステップにおける堆積・侵食層の厚さ ΔZ_{U2} を比較し、旧地質タイムステップより厚い場合を堆積状態、薄い場合に侵食状態にあると判定する。

- i)、ii)のいずれかの方法を用いて、地層要素の鉛直2辺の侵食・堆積を判定する。判定結果は、
a) 両辺が侵食、b) 両辺が体積、c) 1辺が侵食、1辺が体積の3つに分類される。

概念図を図 5.4-7 に示す。

a) 両辺が侵食された場合には、地層要素全てに侵食継承法を適用する。b) 両辺が堆積した場合には、旧地質タイムステップに存在した領域には変形継承法、新たに堆積した領域には堆積継承法を適用する。c) 1 辺が侵食、1 辺が堆積した場合には、旧地質タイムステップには存在したが侵食された領域には侵食継承法、新たに堆積した領域には堆積継承法を適用する。

また、一辺が侵食、一辺が変化なしの場合は地質要素全てに侵食継承法を適用する。一辺が堆積、一辺が変化なしの場合は、旧地質タイムステップには存在した領域には侵食継承法、新たに堆積した領域には堆積継承法を適用する。

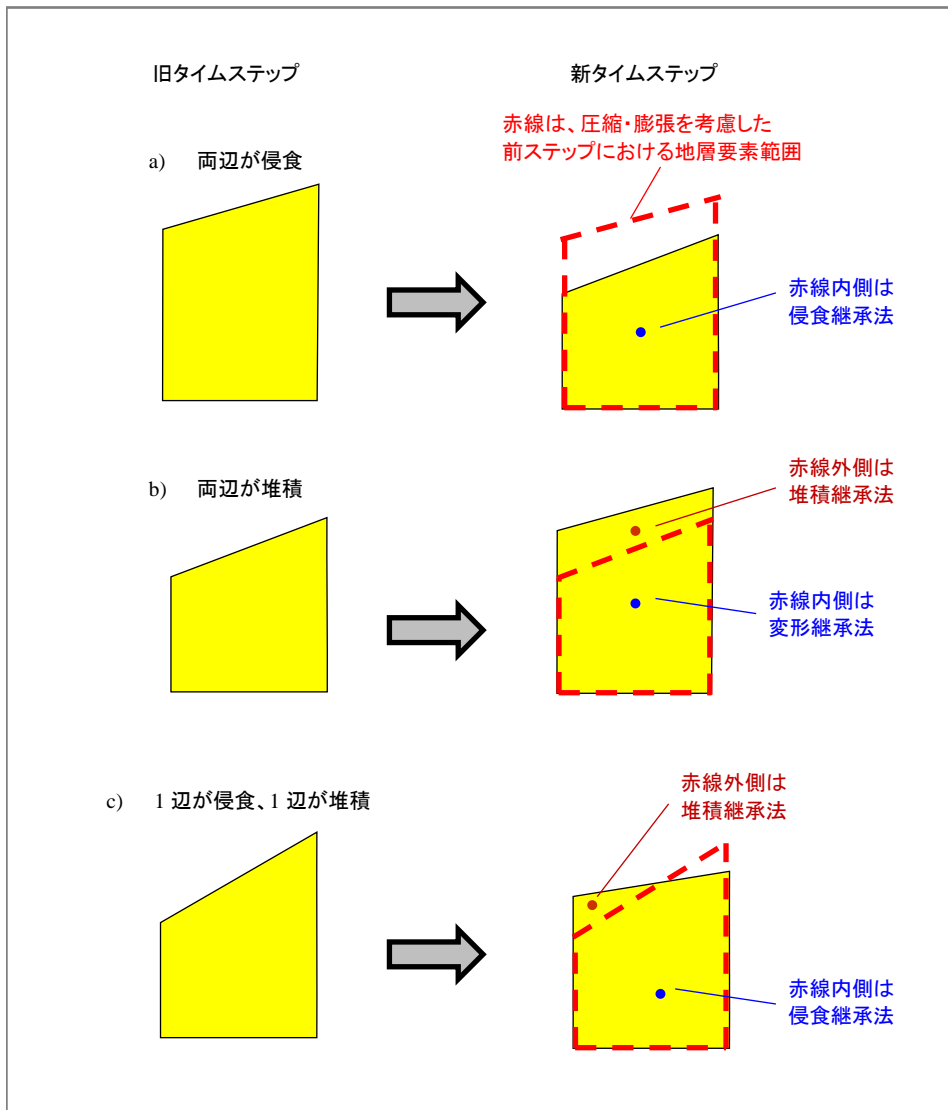


図 5.4-7 地層要素の堆積・侵食判定方法（地層の圧縮・膨張を考慮しない場合）

(b) 堆積継承法

堆積状態にある地層要素については、新規に圧力水頭値、塩分濃度、核種濃度を与える必要がある。圧力水頭については、地表面から水が静水圧状態（全水頭が堆積層内で同じ）であることを想定する。地表面の圧力水頭値に関しては、海面下にある場合は海水による静水圧 $p = \rho gh$ （水頭換算値）を与えるが、海面下に無い場合はゼロとする。堆積層中の計算点の圧力水頭 H_p は以下の式で計算する。

$$H_p = \rho_{sea} \times D_{sea} + D_{sf} \quad (5.4-9)$$

- ρ_{sea} : 海水と淡水の密度比（海水/淡水）
 D_{sea} : 海水面から地表面までの距離（海水が無い場合は 0）
 D_{sf} : 地表面から計算点までの深度 (m)

塩分濃度、核種濃度については、基本的に 0 とするが、特定の値を与えたい場合は設定可能とする。これは堆積層の粒子への核種付着、海面下での堆積による地下水の塩分含有などの可能性に対処するためである。

上記の計算手法が適用されるのは、新規堆積と判断された地層要素に含まれる節点のうち、旧地層要素の地層上面より上部にあると判断された節点である。その際、新地質タイムステップにおける全体座標を用いて圧力水頭等を計算することとする。

(c) 侵食継承法

侵食状態にある地層要素については、直下にある地層上面からの距離が同じである旧地質タイムステップ点の値を継承するようにする。ただし、地層の圧縮・膨張を考慮する場合は、距離の計算にその点を加味する。計算手順を以下に示す。

- 1) 新地層モデルにおいて、直下にある地層上面との距離 h を算出する。地層の圧縮・膨張を考慮した場合には、 h に鉛直両辺の距離から計算した圧縮率を乗じる。
- 2) 旧地層モデルにおいて、直下にある地層上面との距離 h に対応する全体座標の Y 座標を算出する。
- 3) その点が含まれる旧解析モデルの要素を検出し、局所座標を計算する。
- 4) 計算された局所座標と形状関数を用いて計算値を継承する。

③断層内節点の計算値継承

断層と判別される節点（以下、断層節点）の計算値継承方法は、以下の二つから選べるものとした。

- 1) 地層と判断された節点（以下、地層節点）と同じ継承方法を適用する。
- 2) 断層節点と判断された場合はそのまま計算値を継承する。

1)の方法は、断層節点も他の地層節点と同じように、節点が含まれる地層要素の形状で計算値継承法を設定する。断層節点は、周囲の節点と圧力水頭差が大きくなるため、断層節点をそれ以外の節点と分け、断層節点間のみで値を継承することを検討した。しかし、この方法では、

- ・断層と判断された要素の形状変化に対応するが難しい
 - ・節点位置の移動による値（全水頭値）の変動が断層の影響よりも大きい可能性がある
- 事が考えられた。そこで断層に対して特別な処理を実施しない 2)の方法も選べるものとした。

(3) テスト計算

①テストデータ

テストデータとして、図 5.4-8 に示した地質モデルおよび解析モデルを準備した。テスト計算を行ったデータの設定内容を以下に示す。

表 5.4-3 テストデータの設定

設定対象	内容
地質モデル	タイムステップは3つ。地層数は3。X方向メッシュ数は4。
解析モデル	160 要素、189 節点から成る。地質モデルの地表面に沿った形状とした。解析モデルは全て四角形要素。
海水面	全タイムステップを通して水位高 $Z=12\text{m}$ と設定

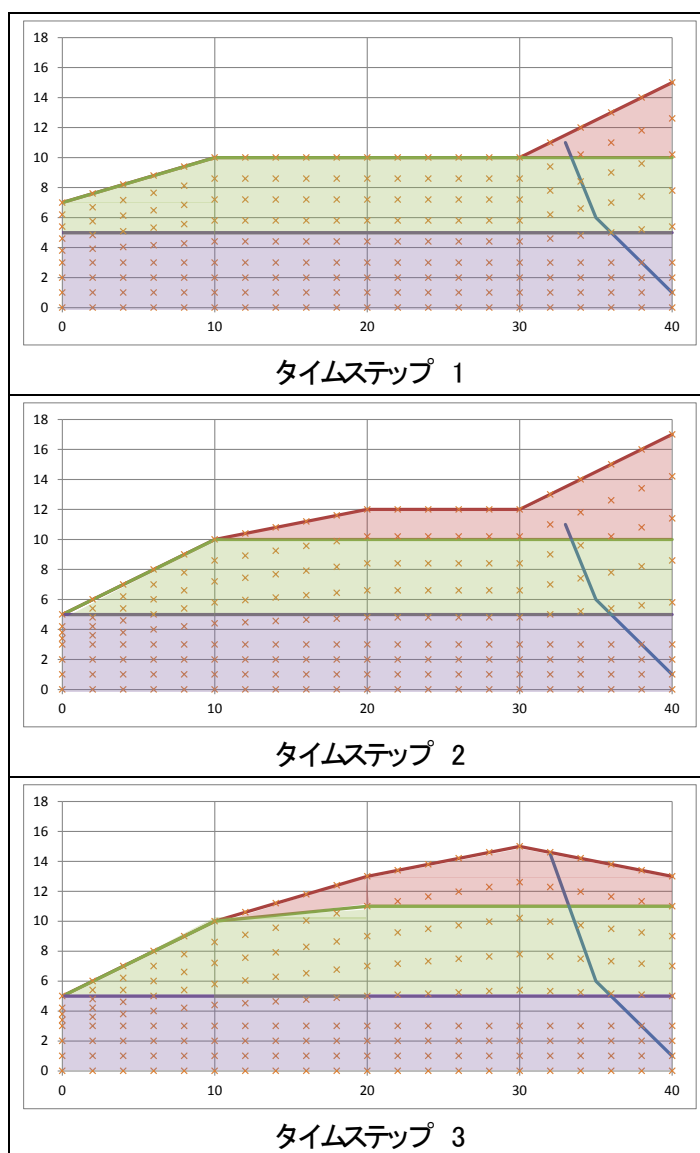


図 5.4-8 テスト計算に使用した地質モデルと解析モデルの節点 (×印)

解析条件ファイルの設定内容を以下に示す。この条件を、全タイムステップに適用した。

```

*-----
* CalVaS 入力ファイル(*が付いている行はコメントアウト文)
*-----
*
* 地層厚さによる判定で地層の圧縮・膨張を考慮するか(0:no/1:yes)
1
* 係数 F(≠1.0):圧縮を考慮する場合に使用する係数
0.5
* 固定面深さ(m)
0.0
*-----
* 地表面から地層上面までの深度による方法(侵食のみ判定可)を使用するか(0:no/1:yes)
* : この方法は地表面でない地層について侵食があったと判定する為の方法。
0
* 判定対象とする地層数とその地層番号
* (1つ目の数値:地層数、2つ目~:地層番号。それぞれの数値はi5で入力)
  2  1  2
* 判定値(m):上記方法を選択した場合に使用する
10.0
*-----
* 新規堆積した地層に塩分濃度を与えるか(0:no/1:yes)。与える場合は塩分濃度をスペースを空けて入力。
0 0.0
* 新規堆積した地層に核種濃度を与えるか(0:no/1:yes)。与える場合は核種数をスペースを空けて入力。
0 1
* 核種名と核種濃度。最大で5核種まで。1行に1核種。
* なお、核種濃度を与えない(上の行で0と設定した)場合はコメントアウトしておくこと。コメントアウトして
おかないと読み取り時にエラーが発生する。
*Cs137 10
*-----
* 断層を考慮するか否か(0:no/1:yes)
1

```

なお、計算値継承機能は変数値のいずれにおいても同様の計算を行う為、今回は圧力水頭のみを計算対象とした。圧力水頭は以下の様に与えた。タイムステップ3はタイムステップ2の値から圧力水頭を求めるので、計算開始時には設定しない。

表 5.4-4 各節点における圧力水頭値

	タイムステップ1の圧力水頭(m)	タイムステップ2の圧力水頭(m)
節点 1~21	20.0	16.0
節点 22~42	15.0	14.0
節点 43~63	12.0	11.0
節点 64~189	10.0	10.0

②計算結果

地表面を構成する地質要素内に含まれている節点を数点抽出し、計算値継承の判別が正しく行われているか、また継承計算が正しく行われているかを確認した。確認は、プログラムの計算結果と Excel 等を用いた手計算の計算結果を比較する事で行った。

(a) タイムステップ 2 の節点 A : node=8,(x,z)=(14.0, 10.8)

節点 A は、タイムステップ 1 では存在していなかった地層 1 に含まれる節点である。新規堆積した地層には堆積継承法が適用される。また、節点 A は Z 座標が 10.8m であり、海面は 12m と設定したため、海水面下になる。よって、圧力水頭値は

$$H_p = \rho_{sea} \times D_{sea} + D_{sf} = \frac{1025}{1000} \times (12.0 - 10.8) + 0 = 1.23$$

と計算出来た。CalVaS の出力を確認すると

INIT	8	1.23000	8	1
------	---	---------	---	---

であり、同じ値であることが確認できた。よって新規堆積の判別および計算は正しく行われているといえる。

(b) タイムステップ 2 の節点 B : node=3 (x,z)=(4.0, 7.0)

節点 B は四角形から三角形に変化する地層要素に含まれる節点であり、計算値継承には地層要素全体に侵食継承法が適用される。

まず、新地質モデルにおいて、節点と直下の地層上面からの距離を計算する。圧縮・膨張を考慮していないため、距離 h は以下の式で求められる。

$$h = 7.0 - 5.0 = 2.0$$

次に旧地質モデルにおいて、求めた h を直下の地層上面からの距離として旧地層モデルにおける Z 座標を求めた。

$$B'(z) = 5.0 + 2.0 = 7.0$$

この節点が含まれる旧解析モデルの要素は 22 であった。この要素を構成する 4 節点から、B'(4.0, 7.0)の旧解析モデルにおける局所座標を求めると、 $(\xi, \eta) = (0.692307692, -1)$ であった。この局所座標を得た際の形状関数を用いて圧力水頭を計算したところ、以下の値を得た

要素 42 の 構成節点番号	X 座標	Z 座標	形状関数値(A)	水頭値(B)	(A)×(B)
23	2.00000	6.68000	0	15.0000	0
44	2.00000	5.76000	0	12.0000	0
45	4.00000	4.12000	0.153846154	12.0000	1.846153848
24	4.00000	7.16000	0.846153846	15.0000	12.69230769

(A)×(B)の和 **14.53846154**

CalVaS の出力を確認したところ、

INIT	3	14.53846	3	1
------	---	----------	---	---

であり、手計算で得た値と同じであることが確認できた。よって作成したプログラムによる計算値継承方法の判別および計算は正しく行われているといえる。

(c) タイムステップ 2 の節点 C : node=40, (x,z) =(36, 12.6)

節点 C は、三角形から四角形に変化する地層要素に含まれる節点である。三角形から四角形に地層要素が変化する場合、基本的には堆積継承法を適用するが、節点の位置が地表面以下にある場合には変形継承法を適用する。

まず、計算対象節点 C が旧地層要素内に含まれるか否かを判別する。判別には、直下の地層上面からの距離を用いる。なお、距離の算出時には地層厚さの変化率 αF は用いない。節点 C は地層 1、メッシュ番号 4 の地層要素に含まれる。直下の地層上面からの距離は、

$$h = (12.6 - 10.0) = 2.6$$

である。この距離を旧地質モデルの地層 1、メッシュ番号 4 の地層要素の直下の地層上面からの距離として Z 座標を算出すると、

$$C'(z) = 10.0 + 2.6 = 12.6$$

である。この位置は旧地質モデルの地層 1、メッシュ番号 4 の地層要素の上面より下にあるので、この地層要素に含まれると判別した。算出した座標 $C'(36, 12.6)$ が含まれる旧解析モデルの要素は 18 であった。この要素を構成する 4 節点から、旧解析モデルにおける局所座標を求めた所、 $(\xi, \eta) = (0.6, -1)$ となった。得られた局所座標に対応した形状関数を用いて圧力水頭値を計算したところ、以下の値を得た。

要素 18 の 構成節点番号	X 座標	Z 座標	形状関数値(A)	水頭値(B)	(A)×(B)
18	34.00000	12.0000	4.44E-17	20.0000	0.0000
39	34.00000	10.2000	1.11E-17	15.0000	0.0000
40	36.00000	11.0000	0.2	15.0000	3.0000
19	36.00000	13.0000	0.8	20.0000	16.0000

(A)×(B)の和 **19.0000**

CalVaS の出力結果を確認すると、

INIT	40	19.00000	40	1
------	----	----------	----	---

であり、手計算の結果と同じ値であることが確認できた。よって作成したプログラムによる計算値継承方法の判別および計算は正しく行われているといえる。

(d) タイムステップ 3 の節点 D : node=17, (x, z) = (32, 14.6)

節点 E は、新地質タイムステップにおいて断層節点と判別される点である。解析条件ファイルで『断層を考慮する』と設定した場合は、旧地質タイムステップと新地質タイムステップでの断層番号を比較し、同じである場合に値をそのまま引き継ぎ、そうでない場合は変形継承法等を適用する。節点 D は新地質タイムステップでは断層であるが、旧地質タイムステップでは断層ではない。そのため、地層節点と同じように計算値継承方法の判別を行う。

節点 D は一辺が侵食、一辺が堆積と判断された地層要素に含まれる。旧地質タイムステップの地質要素内に節点がある場合は侵食継承法が、要素外にある場合は堆積継承法が適用される。直下の地層上面からの距離を算出すると、

$$h = 14.6 - 11.0 = 3.6$$

この距離を旧地質タイムステップでの直下の地層上面からの距離として Z 座標を算出すると、

$$D'(z) = 10.0 + 3.6 = 13.6$$

である。計算された z 座標と旧地質タイムステップでの地表面の x=32 での z 座標=13.0 を比較すると、D'(z)の方が上位にあるので、堆積継承法が適用される。さらにこの位置は海水面よりも上であるので、圧力水頭は 0(m)が適用される。

CalVaS の出力ファイルを確認すると、

INIT	17	0.00000	17	1
------	----	---------	----	---

となっており、手計算の結果と同じであることが確認できた。

よって作成したプログラムにおいて、断層における計算値継承方法の判別および計算は正しく行われているといえる。

(e) タイムステップ 3 の節点 E : node=39, (x, z) = (34, 11.96)

節点 E は、新地質タイムステップにおいて断層節点と判別された。解析条件ファイルで『断層を考慮する』と設定した場合は、旧地質タイムステップと新地質タイムステップでの断層番号を比較し、同じである場合に値をそのまま引き継ぎ、そうでない場合は変形継承法等を適用する。動作確認では『断層を考慮する』として計算を実行した。

節点 E は旧地質タイムステップにおいても断層節点であり、同じ断層番号であるため、値がそのまま継承される。旧地質タイムステップでの節点 39 の圧力水頭は 14(m)である。CalVaS の出力結果を確認すると、

INIT	39	14.00000	39	1
------	----	----------	----	---

となっており、旧地質タイムステップでの値がそのまま継承されていることが確認できた。よって断層を考慮した場合の挙動は正しく行われていると言える。

(f) タイムステップ 3 の節点 F : node=10, (x, z) = (18, 12.4)

三角形→三角形に変化する地層要素に含まれる節点である。三角形の面積を比較して、新地質タイムステップで大きくなっていれば堆積、小さくなっていれば侵食と判断するが、今回準備したテストデータでは、面積は変化していない。その場合、直下の地層上面からの距離から、侵食継承法の手法を用いて計算値を継承する。

新地質モデルにおいて、節点 F の直下の地層上面からの距離 h は、

$$\begin{aligned} \text{傾き } a & : a = \frac{z_2 - z_1}{x_2 - x_1} = \frac{11 - 10}{20 - 10} = 0.1 \\ \text{切片 } b & : b = z_1 - a \times x_1 = 10 - 0.1 \times 0.1 = 9 \\ x = 18 \text{ における } z \text{ 座標} & : z = a \times x_p + b = 0.1 \times 18 + 9 = 10.8 \\ h & : h = 12.4 - 10.8 = 1.6 \end{aligned}$$

である。求められた h を用いて、旧地質モデルにおける Z 座標を算出すると、

$$F'(z) = 10.0 + 1.6 = 11.6$$

である。この座標 F'(18, 11.6) が含まれる旧解析モデルの要素を検索したところ、要素 9 であった。この要素を構成する 4 節点から、旧解析モデルにおける局所座標を求めた所、(ξ, η) = (1, -1) となった。得られた局所座標に対応した形状関数を用いて圧力水頭値を計算したところ、以下の値を得た。

要素 9 の 構成節点番号	X 座標	Z 座標	形状関数値(A)	水頭値(B)	(A)×(B)
9	16.0000	11.2000	0.00000	16.0000	0.0000
30	16.0000	9.56000	0.00000	14.0000	0.0000
31	18.0000	9.88000	1.67E-16	14.0000	2.34E-15
10	18.0000	11.6000	1.00000	16.0000	16.0000

(A)×(B)の和 **16.0000**

CalVaS の結果を見ると、

INIT	10	16.00000	10	1
------	----	----------	----	---

となっており、手計算の結果と同じ値となっていることが確認できた。よって作成したプログラムによる計算値継承方法の判別および計算は正しく行われているといえる。

以上①～⑥の結果から、作成した計算値継承プログラム CalVaS は正常に動作していることが確認できた。

5.5 GSRW-PSA の整備

確率論的安全評価コード GSRW-PSA は、HLW あるいは TRU 廃棄物の地層処分にかかる評価シナリオに基づいた安全評価を行うためのコードとして整備されてきた。HLW ガラス固化体または TRU 廃棄物において想定される廃棄体から溶出した核種の人工バリアおよび天然バリア中の地下水による移行と、生物圏内の核種の移行およびある個人への被ばく線量を計算することができる。GSRW-PSA は、3つのサブモデル（ソースタームモデル、天然バリアモデル、生物圏モデル）の計算モジュール部分と、確率論的解析のための既往のパラメータサンプリングコード LHS⁽¹⁾および統計解析コード SPOP^{(2), (3)}により構成される。また、GSRW-PSA では、シナリオの不確実性を考慮して、「地下水移行シナリオ」に加えて、「隆起・侵食シナリオ」や「人工バリア損傷シナリオ」、「コロイド影響シナリオ」の評価を行うことが可能である。

平成 27 年度は、GSRW-PSA を用いて燃料デブリに特有の特性を踏まえた解析を行うことができるようにコードの拡張を行った。

(1) ソースタームモデルの拡張

燃料デブリは、 UO_2 ペレット、被覆管のジルカロイ、制御棒材料、炉内構造物などが熔融・混合・固化し、化学形なども大きく異なることが想定される。最終的に固化した状態では、ガいくつかの部位から異なる浸出率で核種が溶出することが想定される。既存のコードでは、廃棄体からの核種浸出とコンパートメント中の核種移行は一続きの計算として解析されていたため、燃料デブリのように不均質な廃棄体を評価することができなかった。瞬時放出を含む複数の異なるパラメータでそれぞれ評価されたフラックスを足し合わせて浸出フラックスとできるようにコードの拡張を行った。既存のソースタームコンパートメントモデル (mod_cmtm) を 2 つに分離し、浸出率の計算のみを行う浸出モデル (mod_waste) と、浸出モデルの計算結果を用いて人工バリア中の移行解析を行うコンパートメントモデル (mod_scmt) に整備しなおした。

既存のコードでは、廃棄体からの核種浸出とコンパートメント中の核種移行は一続きの計算として解析されていた (図 5.5-1)。複数の廃棄物について解析を行う際には、核種流出量の計算および人工バリア中の移行解析を廃棄物毎に行う必要があった。異なる浸出率の部分が混合するという燃料デブリの特性に即した形の解析が可能となるよう、廃棄物毎の流出フラックスを計算できるよう整備を行うとともに、廃棄物毎に行っていた人工バリア中移行解析をまとめて行えるよう整備を行った (図 5.5-2)。

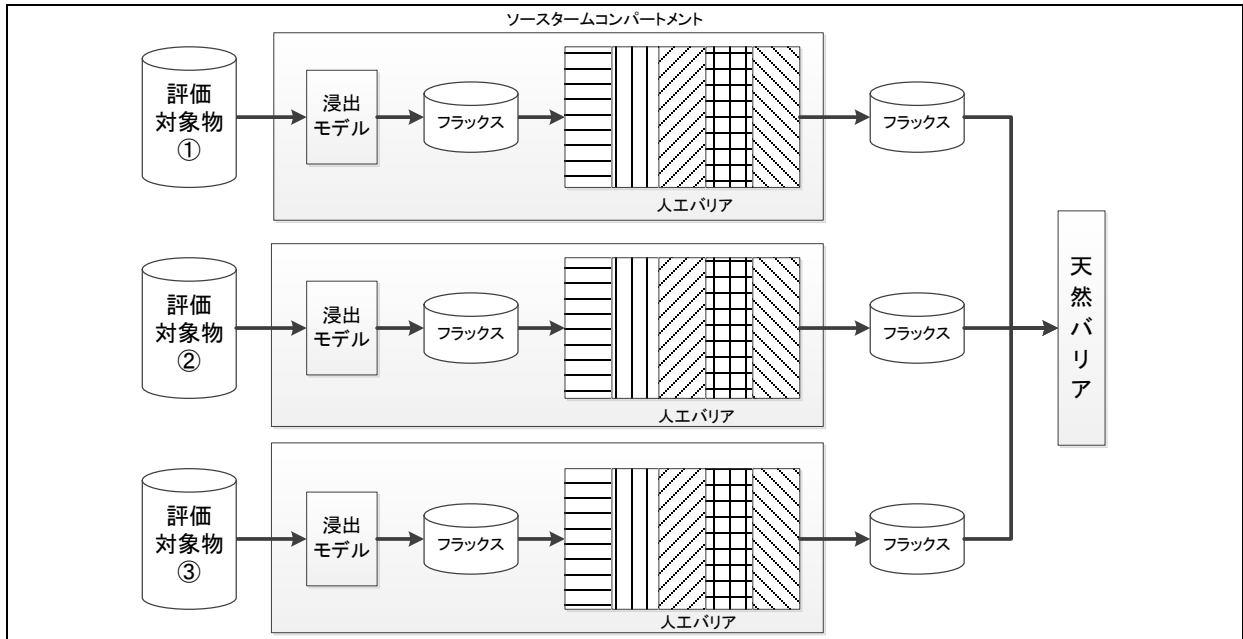


図 5.5-1 既存のソースタームモデルを用いた複数の廃棄物考慮解析概念図例

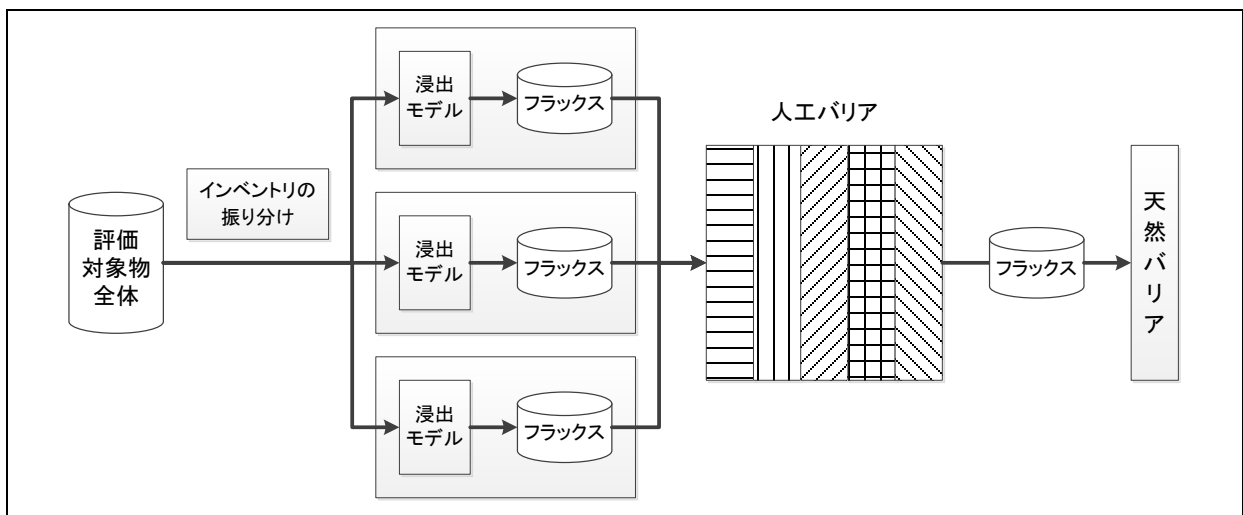


図 5.5-2 新たに整備したモデルを用いた複数の廃棄物考慮解析概念図例

(2) 核種濃度の出力機能の追加

燃料デブリに特有の特性を踏まえたシナリオとして、容器内外での臨界が挙げられている。このうち、容器外臨界のシナリオでは天然バリア中を移行した核分裂核種がある1点に濃集して臨界可能な量に達することを想定する。

核種移行解析によって濃集量を求め、臨界可能性を評価するために、天然バリアモデル（亀裂性媒体近似モデル・多孔質媒体近似モデル）に対して、指定した位置における各タイムステップの核種濃度のテキスト出力を行う機能を整備した。

各節点位置における液相の核種濃度は既にプログラム内で計算されているため、液相以外における核種濃度の計算、指定した位置における各相の核種濃度の内挿計算、単位換算、テキスト出力処理を行うサブルーチンの整備を行った。単位換算には既存の単位換算ファンクションを使用し、出力単位を mol/m^3 , Bq/m^3 , atom 数/m^3 から選択できるように整備した。

a) モデル毎の出力項目

モデル毎の出力項目を表 5.5-1 に示す。亀裂性媒体近似モデルでは、マトリクス領域における節点位置毎の核種濃度の出力も行えるよう整備した。

表 5.5-1 モデル毎の出力項目

	コロイド影響	
	なし	あり
亀裂性媒体近似モデル	C_f^i, S_s^i, C_p^i	$C_f^i, S_s^i, S_m^i, S_\sigma^i, C_p^i$
多孔質媒体近似モデル	C^i, S_s^i	$C^i, S_s^i, S_m^i, S_\sigma^i$

C_f^i : 核種 i の液相濃度 [atom/m^3]

S_s^i : 核種 i の亀裂表面／多孔質媒体に収着している量 [atom/m^2]

C_p^i : 核種 i の岩石マトリクスにおける液相濃度 [atom/m^3]

S_m^i : 核種 i の移動性コロイドに収着している量 [atom/m^3]

S_σ^i : 核種 i のろ過されたコロイドに収着している量 [atom/m^2]

b) 液相以外における核種濃度の計算

コロイド影響を評価しないとした場合、およびコロイド影響評価に瞬時平衡モデルを使用した場合には、既存のコードでは液相およびマトリクス領域の核種濃度しか計算されない。亀裂性媒体近似モデルでは、亀裂表面、移動性コロイド、ろ過されたコロイドへ収着した核種量は(5.5-1)～(5.5-3)式で求めた。

$$S_s^i = K_s^i C_f^i \quad (5.5-1)$$

$$S_m^i = MK_m^i C_f^i \quad (5.5-2)$$

$$S_\sigma^i = \sigma K_\sigma^i C_f^i \quad (5.5-3)$$

C_f^i : 核種*i*の亀裂における液相濃度 [atom/m³]

S_s^i : 核種*i*の亀裂表面に収着している量 [atom/m²]

S_m^i : 核種*i*の移動性コロイドに収着している量 [atom/m³]

S_σ^i : 核種*i*のろ過されたコロイドに収着している量 [atom/m²]

K_s^i : 核種*i*の亀裂表面に対する分配係数 [m]

M : 移動性コロイドの濃度 [kg/m³]

K_m^i : 核種*i*の移動性コロイドに対する分配係数 [m³/kg]

σ : ろ過されたコロイドの濃度 [kg/m²]

K_σ^i : 核種*i*のろ過されたコロイドに対する分配係数 [m³/kg]

なお、コロイド影響を評価しない場合、亀裂性媒体近似モデルでは分配係数ではなく遅延係数を用いて計算を行っている。遅延係数は(5.5-4)式から求められるので、逆算して分配係数を求めるものとした。

$$R^i = 1 + \frac{K_s^i}{b} + \frac{\sigma K_\sigma^i}{b} + MK_m^i \quad (5.5-4)$$

多孔質媒体近似モデルでは、多孔質媒体、移動性コロイド、ろ過されたコロイドへ収着した核種量は(5.5-5)～(5.5-7)式で求めた。

$$S_s^i = \frac{\rho_b}{\varepsilon} K_d^i C^i \quad (5.5-5)$$

$$S_m^i = MK_m^i C^i \quad (5.5-6)$$

$$S_\sigma^i = \sigma K_\sigma^i C^i \quad (5.5-7)$$

C^i : 核種*i*の水中濃度 [atom /m³]

- S_s^i : 核種*i*の多孔質媒体に収着している量 [atom/m³]
- S_m^i : 核種*i*の移動性コロイドに収着している量[atom/m³]
- S_σ^i : 核種*i*のろ過されたコロイドに収着している量 [atom/m³]
- ρ_b : 多孔質媒体のかさ密度 [kg/m³]
- ε : 間隙率 [-]
- Kd^i : 核種*i*の多孔質媒体に対する分配係数 [m³/kg]
- M : 移動性コロイドの濃度 [kg/m³]
- K_m^i : 核種*i*の移動性コロイドに対する分配係数 [m³/kg]
- σ : ろ過されたコロイドの濃度 [kg/m³]
- K_σ^i : 核種*i*のろ過されたコロイドに対する分配係数 [m³/kg]

多孔質媒体近似モデルでは、遅延係数の入力方法として分配係数を使用するほかに、ライブラリの遅延係数を使用することも可能となっている。遅延係数は(5.5-8)式から求められるので、遅延係数を使用した場合は逆算して分配係数を求めるものとした。

$$R^i = 1 + \frac{\rho_b}{\varepsilon} Kd^i + MK_m^i + \sigma K_\sigma^i \quad (5.5-8)$$

ただし、どちらのモデルもコロイド影響を評価しない場合にはコロイドへの収着量の計算は行わない。

(3) 要素の生成・削除による領域の長さの設定

これまでの天然バリアモデルは、境界条件が適用されている「領域全体の長さ」を設定し、それとは別に設定する「移行距離」が示す地点を透過するフラックスを計算するモデルとなっていた。「領域全体の長さ」は固定されており、「移行距離」を変化させることによって隆起侵食による移行経路の短絡などの移行経路の変化を表現していた。

「移行距離」に合わせて下流側境界条件を設定する節点番号を変更することにより移行距離を変化させる機能の整備を行った。「移行距離」が節点位置と重ならなかった場合は、最終要素の要素幅の変更を行い、移行距離に最終節点の位置を変更することとした。変更後の節点位置の核種濃度は変更前の節点位置における核種濃度から線形内挿で求める。

5.6 まとめ

5.6.1 緩衝材中拡散モデルおよび物質移行-変質連成解析コードの整備

平成 27 年度は、燃料デブリを処分する際の人工バリアとしても使用される可能性があるベントナイト系緩衝材中の化学環境解析のための拡散評価手法の整備に係る検討を行った。

具体的には、平成 26 年度に提案した見かけの拡散係数 Da をベースとしたイオン種の拡散モデル（新拡散モデル）の検討に資するため、非放射性のイオン種を用いた Na 型モンモリロナイト中の透過拡散試験を長期間に渡り行うとともに、これら結果を用いて当該モデルに係る検討を実施した。その結果、 Ca^{2+} イオンを用いた透過拡散試験に係る検討では、収着分配係数 Kd の値が小さいケースにおいては、別の試験で得られた Da と Kd を用いて、透過拡散試験結果を再現できる可能性が示された。しかしながら、 Kd の値が大きいケースでは、接液部におけるモンモリロナイト中 Ca 濃度の初期設定が計算と実験で異なっていたこと等から試験結果を再現することが出来なかった。また、Cl⁻ イオンおよび Na⁺ イオンに係る検討では、長期間の透過拡散試験を実施したにも関わらず両タンク内の濃度変化が小さかったため、結果に対して十分な検討を実施することが出来なかったが、保持因子 α および Da の設定に係る留意点を整理し、接する溶液に応じた α の値を設定する必要があること、また、対となって移行する陽イオンと陰イオンは同じ拡散係数を用いる必要があり、特に Na⁺ イオンについては共に移行するイオン種の拡散に従うことを示した。今後は、圧縮体への収着バッチ試験等により陰イオンに対する α を実験的に決定すること、放射性核種を使用した透過拡散試験を実施し、電荷バランスに縛られない、イオン種固有の拡散データを取得すること、また、これら結果を踏まえ、必要に応じて新拡散モデルに反映させることが重要であるとした。

また、新拡散モデルを物質移行-変質連成解析コード（MC-BUFFER）へ導入する際の留意点を整理するとともに、具体的な導入方法として、元素ごとへの Da の設定、および電荷バランスの調整について検討した。また、その妥当性を確認するため、MC-BUFFER プログラムの修正、および検証を実施した。その結果、複数の元素をそれぞれの Da で移行させる計算を実施する場合、電荷バランスを Na で調整する方法が妥当である可能性が示された。今後は、同一の Da を設定する複数の元素に対する群の構成、郡ごとの移行計算、保持因子 α 、固相を含む系での単位体積当たりの濃度、および地球化学反応計算で用いる間隙水中濃度への換算等についても具体的なコードへの導入方法を検討し、適宜 MC-BUFFER に取り込むとともに、一連の物質移行-地球化学反応計算を実施し、その妥当性を確認することが重要であるとした。

5.6.2 MIG2DF の整備

日本原子力研究開発機構で開発中の、多孔質媒体中での 2 次元地下水流動・核種移行評価コード：MIG2DF に対して、長期的な地質環境の変遷（隆起・侵食および断層の成長）を連続的に評価するための拡張として、以下の 3 つの機能から成る外部プログラム：隆起・侵食解析用入出力データセット作成コード（PASS_UANDD）を作成した。

(1) 隆起・侵食に係る入力支援モジュール（UANDD_PRE）

ある時刻の地質モデルデータ（地表面、地質境界、断層面の情報）から、計算時刻毎の地質モデルデータを補間して作成する。

(2) 節点移動機能に係るモジュール（UANDD_TRANSNODE）

地質モデルデータをもとに解析モデルデータを更新する。地質構造の任意の形状変化に応じてモデル全体の節点を移動することを可能とする。

(3) モデル切り替え時の計算値継承に係るモジュール (CalVaS)

長期的な地質構造の変遷に対する非定常解析を連続的に行うにあたって、地質構造の変化に伴う解析モデル更新時に、地層との位置関係に応じて節点の計算値を更新前のモデルから継承する。

本コードを MIG2DF と共に用いることで、長期的な地質環境の変化による地下水流動への影響を連続的に評価することが可能となった。

5.6.3 GSRW-PSA の整備

確率論的安全評価コード GSRW-PSA は、HLW あるいは TRU 廃棄物の地層処分にかかる評価シナリオに基づいた安全評価を行うためのコードとしてこれまで整備されてきた。GSRW-PSA を用いて燃料デブリに特有の特性を踏まえた解析を行うことができるように以下のとおりコードの拡張を行った。

(1) ソースタームモデルの拡張

燃料デブリは、 UO_2 ペレット、被覆管のジルカロイ、制御棒材料、炉内構造物などが溶融・混合・固化し、化学形なども大きく異なることが想定される。最終的に固化した状態では、がいくつかの部位から異なる浸出率で核種が溶出することが想定される。既存のコードでは、廃棄体からの核種浸出とコンパートメント中の核種移行は一続きの計算として解析されていたため、燃料デブリのように不均質な廃棄体を評価することができなかった。瞬時放出を含む複数の異なるパラメータでそれぞれ評価されたフラックスを足し合わせて浸出フラックスとできるようにコードの拡張を行った。既存のソースタームコンパートメントモデル (mod_cmtm) を 2 つに分離し、浸出率の計算のみを行う浸出モデル (mod_waste) と、浸出モデルの計算結果を用いて人工バリア中の移行解析を行うソースタームコンパートメントモデル (mod_scmt) に整備しなおした。

(2) 核種濃度の出力機能の追加

核種移行解析によって濃集量を求め、容器外臨界の可能性を評価するために、天然バリアモデル (亀裂性媒体近似モデル・多孔質媒体近似モデル) に対して、指定した位置における各タイムステップの核種濃度のテキスト出力を行う機能を整備した。

(3) 核種濃度の出力機能の追加

これまでの天然バリアモデルは、境界条件が適用されている「領域全体の長さ」を設定し、それとは別に設定する「移行距離」が示す地点を透過するフラックスを計算するモデルとなっていた。「領域全体の長さ」は固定されており、「移行距離」を変化させることによって隆起侵食による移行経路の短絡などの移行経路の変化を表現していた。

「移行距離」に合わせて下流側境界条件を設定する節点番号を変更する機能の整備を行った。

第5章の参考文献

5.1 の参考文献

- (1) 日本原子力研究開発機構、平成 22 年度 地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書、2011.
- (2) 日本原子力研究開発機構、平成 23 年度 地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書、2012.
- (3) 日本原子力研究開発機構、平成 24 年度 地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書、2013.
- (4) 日本原子力研究開発機構、平成 25 年度 地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書、2014.
- (5) 日本原子力研究開発機構、平成 26 年度 地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書、2015.

5.2 の参考文献

- (1) 日本原子力研究開発機構、平成 22 年度 地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書、2011.
- (2) 日本原子力研究開発機構、平成 23 年度 地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書、2012.
- (3) 日本原子力研究開発機構、平成 24 年度 地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書、2013.
- (4) 日本原子力研究開発機構、平成 25 年度 地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書、2014.
- (5) 日本原子力研究開発機構、平成 26 年度 地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書、2015.

5.3 の参考文献

- (1) 原子力発電環境整備機構、地層処分事業の安全確保（2010 年度版）－確かな技術による安全な地層処分の実現のために－，技術報告書 NUMO-TR-11-01 (2011).
- (2) 独立行政法人原子力安全基盤機構、放射性廃棄物処理・処分に係る規制支援研究計画（平成 22 年度～平成 26 年度），平成 21 年 10 月 19 日 (2009).
- (3) 鈴木啓三，天然および合成スメクタイト，会報 Filler. Vol.4 No.6 December, pp.144-157 (1999).
- (4) 日本原子力学会，収着分配係数の測定方法－深地層処分のバリア材を対象とした測定の基本手順：2006，AESJ-SC-F008:2006 (2006).
- (5) J. Crank, The Mathematic of Diffusion, 2nd ed., Clarendon Press, Oxford (1975).
- (6) Kato, H., Nakazawa, T., Ueta, S. and Yato, T., Measurements of Effective Diffusivities of Tritiated Water in Sand-Mixed Bentonite. Proceedings of the 7th International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation-ASEM 1999, Nagoya, Japan, September 26-30, 1999 (1999).
- (7) Yamaguchi, T., Nakayama, S., Nagao, S., Kizaki, M., Diffusive Transport of Neptunium and Plutonium through Compacted Sand-Bentonite Mixtures under Anaerobic Conditions. Radiochim. Acta, 95, 115-125 (2007).
- (8) Kozaki, T., Adachi, Y., Inada, K., Sato, S., Ohashi, H., Diffusion Behavior of Ca^{2+} Ions in Compacted Na-Montmorillonite, Scientific Basis for Nuclear Waste Management, 663, 629-635 (2001).

- (9) 石寺孝充, 宮本真哉, 佐藤治夫, 圧縮ベントナイト中の C, Cl, I の拡散挙動に及ぼすケイ砂混合率及び NaNO_3 の影響, JNC TN8400 2004-001 (2004).
- (10) Kozaki, T., Saito, N., Fujishima, A., Sato, S., Ohashi, H., Activation Energy for Diffusion of Chloride Ions in Compacted Sodium Montmorillonite. Journal of Contaminant Hydrology, 35, 67-75 (1998).
- (11) Kozaki, T., Fujishima, A., Sato, S., Ohashi, H., Self-diffusion of sodium ions in compacted sodium montmorillonite. Nuclear Technology 121 (1), 63-69 (1998).

5.4 の参考文献

- (1) Kimura, H., The MIG2DF Computer Code User's Manual, JAERI-M 92-115, 1992.
- (2) 新里忠史, 舟木泰智, 安江健一, 北海道北部、幌延地域における後期鮮新世以降の古地理と地質構造発達史, 地質学雑誌, Vol.113, No Supplement P S119-S135, 2007.

5.5 の参考文献

- (1) R. L. Iman and M. J. Shortencarier, A FORTRAN 77 Program and User's Guide for the Generation of Latin Hypercube and Random Samples for Use with Computer Models, NUREG/CR-3624, 1984.
- (2) 本間俊充、笹原孝、確率論的システム評価コードによる不確かさ・感度解析 (I)、JAERI-M 93-207、1993.
- (3) A. Saltelli, T.HOMMA, LISA PACKAGE USER GUIDE Part III, SPOP (Statistical POst Processor) Uncertainty and Sensitivity Analysis for Model Output. Program Description and User Guide, EUR 13924 EN, 1992.

6. 総合的な核種移行評価手法の整備

6. 燃料デブリの処分時の評価に対応した総合的安全評価手法の整備

6.1 はじめに

本項目では、5章において整備した地質・気候関連事象の発生による影響評価のためのモデル・コードと廃棄体・人工バリアに係る挙動モデル・コード及び核種移行・線量評価コードとのリンケージの方法論を検討し、総合的な安全評価手法としての拡張・整備を行った。はじめに、人工バリアの変遷を対象とした評価において、3章のシナリオ設定で抽出した発熱、セメント及び海水成分などをはじめとするシナリオに基づき、人工バリアへの影響解析を実施した。

また、2章の仮想燃料デブリ Ver. 1 及び HLW のガラス固化体の両者を対象に、3章において検討した核種溶出をはじめ、即時放出成分割合や緩衝材中の元素依存核種移行パラメータなど、人工バリア安全機能に着目した感度解析を実施し、各パラメータの感度の大きさを比較した。

さらに、仮想燃料デブリ Ver. 1 あるいはガラス固化体を沿岸域の仮想的な堆積岩地域に処分した場合の解析を実施し、海水準変動と隆起・侵食の両者を組み合わせた地下水流動及び塩分濃度解析結果に基づき、核種移行評価を行った。

これらの解析結果の比較から燃料デブリの処分の安全性を著しく損なう可能性のある地質環境及び人工バリアの設計を含む条件や事象を抽出した。

6.2 人工バリアの変遷を対象とした安全評価

6.2.1 緩衝材変質・間隙水組成の変遷評価

3.2.3～3.2.5 において検討を行い抽出したシナリオに基づいた人工バリアに対する影響解析を行い、その結果より燃料デブリの処分の安全性を著しく損なう可能性のある人工バリアの設計を含む条件や事象を抽出するため、以下の解析を実施した。

- ① 廃棄体からの発熱およびセメント成分の組み合わせによる影響解析
- ② 10 万年以降の緩衝材の状態設定に係わる影響解析
- ③ 廃棄体に含まれる海水成分による緩衝材への影響解析

解析①については、地下水組成、発熱考慮の有無、セメント成分、OP 寿命を組み合わせ設定について検討を行った。解析②については、解析①の一部について、10 万年以降の設定を変更させた設定について検討した。両者ともインベントリには仮想デブリ Ver.1 を用いた。解析③については、海水成分が緩衝材に与える影響を予察的にみるため、緩衝材と海水成分とが直接接触する体系を設定した。

(1) 解析体系

解析①②の体系は、我が国の処分環境を考慮して第2次取りまとめ⁽¹⁾および第2次 TRU レポート⁽²⁾を参考に、平成 26 年度にも設定した HLW を模擬した 1 次元解析体系とした。図 6.2-1 に本解析体系概念図を示す。仮想燃料デブリ Ver.1 において、収納容器サイズはガラス固化体のキャニスター（直径 355.6mm）と合わせることであり、半径 17.8cm を設定した。オーバーパックについては、第2次取りまとめにおいて人工バリア構成の配置として、処分孔への横置き方式および縦置き方式に検討され、岩盤の種類、オーバーパックの部位によらず、放射線遮蔽厚さ 15cm に腐食代 4cm を加えた 19cm が厚さとして提示されており、これを設定した。緩衝材については、第2次取りまとめにてオーバーパック及び緩衝材の材料、厚さ等の仕様に関する設計や、製作・施工性も含め検討され、性能に余裕を持たせた合理的な人工バリアの仕様例として提示されている厚さ 70cm に設定した。支保工については、第2次取りまとめおよび TRU2 レポートにて提案されているものから厚さ 60cm を設定した。

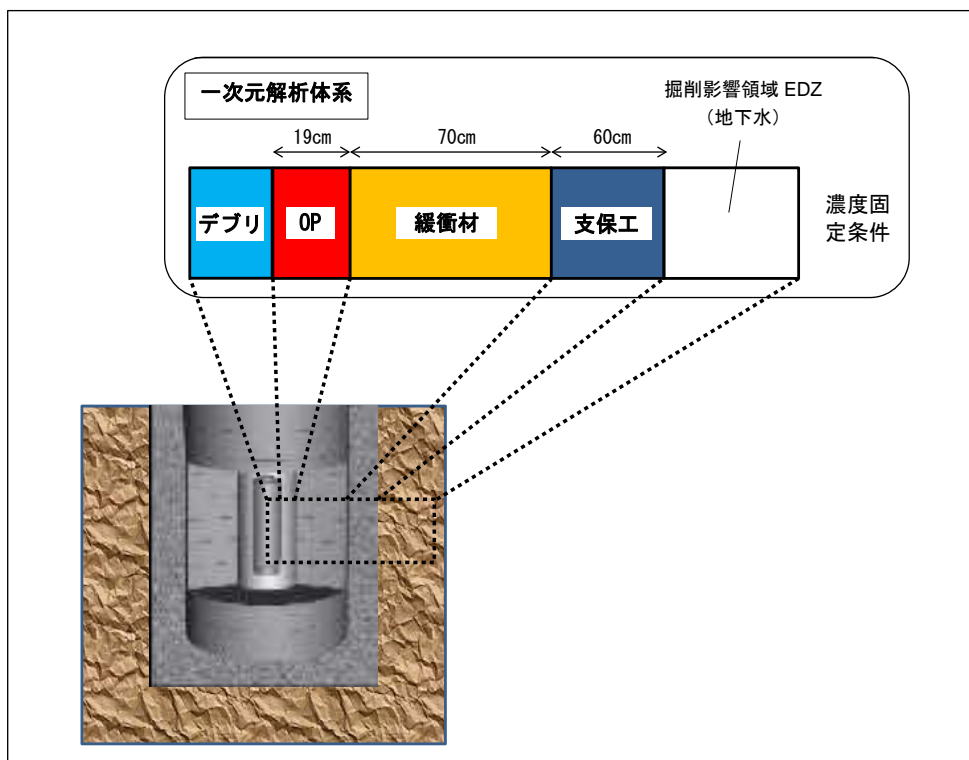


図 6.2-1 解析体系概念図（解析①：発熱・セメント成分、解析②：10万年以降の設定）

解析③の海水成分による影響については、海水成分を内部からではなく外部地下水の海水成分を設定し、緩衝材と地下水が直接接触させ、支保工が無い解析体系とした。第2次取りまとめでは、人工バリアの外側には掘削影響領域（以下、EDZ）があり、境界条件として緩衝材外側に濃度固定条件を与えることにより、常にフレッシュな地下水が接する条件とし、OP内側の境界には濃度勾配0の条件を与えた。

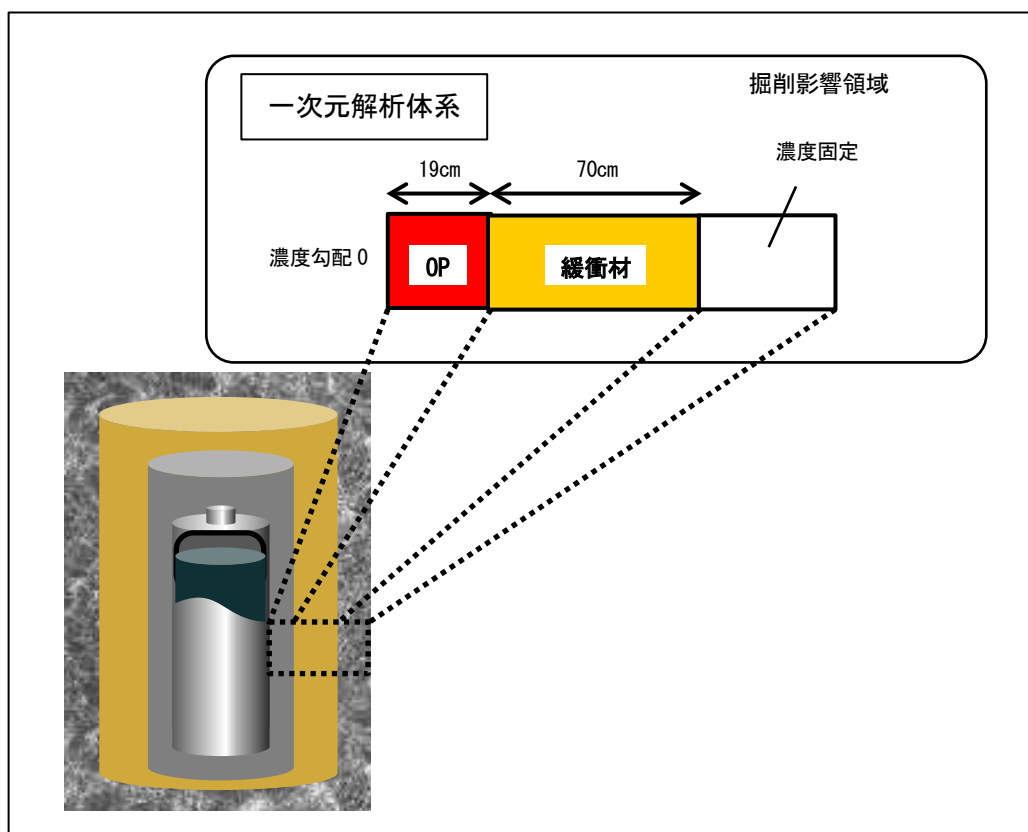


図 6.2-2 解析体系概念図（解析③：海水成分）

(2) 解析条件

解析評価時間は、平成 26 年度と同様に 10 万年を評価時間と設定した。また、本解析ではタイムステップを基本的に 1 ヶ月と設定したが、10 万年までの解析において、間隙の閉塞などが要因となり計算が停止してしまうケースがあり、それらのケースについては、MC-BUFFER のリスタート計算機能を使用し、タイムステップを変更することで 10 万年までの評価を実施した。オーバーパックの破損時期を 4,000 年としたケースについては、0～4,000 年間で「OP-緩衝材-支保工体系」で解析した結果を用い、その後 4,000～10 万年間はデブリ廃棄体領域を付加した「デブリ廃棄体-OP-緩衝材-支保工体系」として引き続き解析を行った。OP 破損時期を 5 万年としたケースも同様に、5 万年の前後で計算体系を変更して解析を行った。

(a) 温度

温度については、3.2.4 における廃棄体からの発熱のシナリオ設定より、ガラス固化体相当の発熱量から処分時にはほぼゼロの発熱量の範囲での廃棄体を想定し、以下の 2 ケースを設定した。

- ・ガラス固化体における緩衝材温度変遷（100℃～47℃）を踏襲したケース
- ・処分深度の地温（47℃）一定のケース

オーバーパックの温度変化については、第 2 次とりまとめでの「ニアフィールドの温度経時変化および隙間の影響」よりガラス固化体が 50 年中間貯蔵された 350W/本の発熱量のものを対

象とし、処分孔縦置き方式による硬岩系岩盤、処分坑道離間距離 10m、廃棄体ピッチ 4.44m にて解析された緩衝材中温度の経時変化のうち、ガラス固化体に近い点を参照した。なお、第 2 次とりまとめでは、廃棄体定置後約 1 万年で人工バリアの温度は初期の地温に戻るとの評価であることから、1 万年以降のオーバーパックの温度については、47°C一定とした。図 6.2-3 に設定したオーバーパック－緩衝材境界温度を示す。

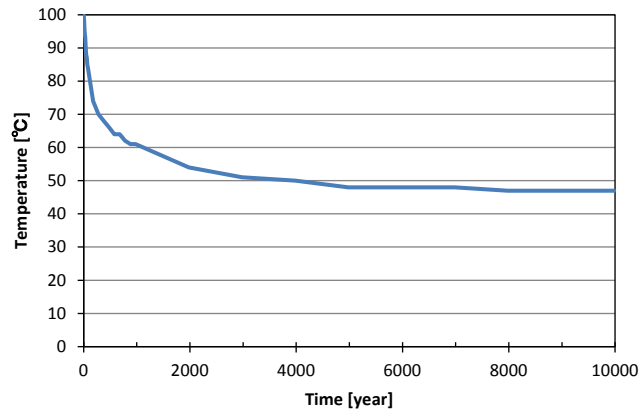


図 6.2-3 オーバーパック－緩衝材境界温度

(b) 地下水組成

①～③の解析における地下水組成は平成 26 年度と同様に第 2 次とりまとめにて高 pH 系代表的地下水として設定されている降水系および海水系地下水を設定した。表 6.2-1 に解析に使用した代表地下水組成を示す。

表 6.2-1 代表地下水組成

降水系地下水		海水系地下水	
pH	8.5	pH	8.0
Na	3.42E-03 mol/L	Na	6.42E-01 mol/L
K	6.20E-05 mol/L	K	1.10E-02 mol/L
Ca	1.10E-04 mol/L	Ca	3.30E-04 mol/L
Mg	5.00E-05 mol/L	Mg	2.50E-04 mol/L
C	3.50E-03 mol/L	C	3.50E-02 mol/L
S	1.10E-04 mol/L	S	3.00E-02 mol/L
Cl	1.50E-05 mol/L	Cl	5.90E-01 mol/L
Al	3.40E-07 mol/L	Al	3.20E-09 mol/L
Si	3.40E-04 mol/L	Si	3.00E-04 mol/L
Fe	9.70E-10 mol/L	Fe	2.00E-09 mol/L

(c) 鉱物組成

緩衝材領域のベントナイトについては、第 2 次取りまとめにおいて示されているベントナイト系緩衝材の国内外ベントナイト鉱物組成より、また第 2 次 TRU レポートでも変質評価解析にて使用されているクニゲル V1 を採用した。解析に用いるベントナイト系緩衝材の鉱物組成については、平成 25 年度～平成 26 年度と同様の緩衝材初期鉱物組成を設定した。支保工については、第 2 次 TRU レポートで人工バリアに使用されるセメント系材料として示されている普通ポルトランドセメント（以下、OPC）を採用した。なお、OPC での W/C（水セメント比）は 55% に設定をした。オーバーパックについては、Fe(c)を設定し、水との化学反応を計算するため、便宜的に空隙率 40% の多孔質と仮定した。燃料デブリ廃棄体に含まれるコンクリート成分については、熔融燃料との MCCI 反応によって生成された MCCI 生成物 $\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ （灰長石・anorthite）および CaSiO_3 （硅灰石・wollastonite）を、また熱影響を受けていないセメント成分として OPC を設定した。

二次鉱物は、平成 23 年度と同様に平成 21 年度報告書⁽³⁾の「セメントーベントナイト接合試験の結果を用いたセメント空隙変遷モデルおよび解析コードの検証」にて報告されているセメント・ベントナイト接合系の二次鉱物を設定した。鉄鉱物については、平成 25 年度に報告した鉄鉱物の検討によって選定した鉱物を二次鉱物として設定した。上記の初期鉱物および二次鉱物を考慮し設定した鉱物モデルについて表 6.2-2 に示す。

表 6.2-2 鉱物モデル (1/2)

		計算に用いた鉱物	初期鉱物量 (wt%)	溶解反応の計算 (溶解速度式)
支保工初期鉱物 (OPC W/C=55%)		Ca(OH) ₂	17.0	平衡論
		C-S-H (1.8)	58.6	〃
		Monosulfate (AFm)	10.6	〃
		Hydrogarnet	11.7	〃
		Brucite	2.1	〃
ベントナイト 系緩衝材 初期鉱物	クニゲル V1 (含有率 10～ 100%)	Montmorillonite	49.0	速度論
		Quartz	38.0	平衡論
		Analcime	3.0	〃
		Calcite	2.5	〃
	Pyrite	0.6	〃	
	ケイ砂	SiO ₂	100.0	速度論
オーバーパック初期鉱物		Fe(c)	100.0	〃
燃料デブリ初期鉱物 (MCCI 生成物, OPC W/C=55%)		Anorthite	25.0	平衡論
		Wollastonite	25.0	〃
		Ca(OH) ₂	8.5	〃
		C-S-H (1.8)	29.3	〃
		Monosulfate (AFm)	5.3	〃
		Hydrogarnet	5.9	〃
		Brucite	1.1	〃
上記以外に生成を許す鉱物		C-S-H(1.5), (1.3), (1.1), (1.0), (0.9), (0.833), (0.6), (0.4)	0	〃
		Ettringite (AFt)	0	〃
		Gypsum	0	〃
		Laumontite	0	〃
		Brucite	0	〃
		Kaolinite	0	〃
		Katoite	0	〃
		AS ₄ H	0	〃
		Friedel's salt	0	〃
		Gibbsite	0	〃
		Sepiolite	0	〃
		Hydrotalcite	0	〃
		Siderite	0	〃

表 6.2-2 鉱物モデル (2/2)

	計算に用いた鉱物	初期鉱物量 (wt%)	溶解反応の計算 (溶解速度式)
上記以外に生成を許す鉱物	Fe(OH) ₂ (s)	0	平衡論
	Magnetite	0	//
	Chukanovite	0	//
	Goethite	0	//
	Melanterite	0	//
	Berthierine	0	//
	Gleenalite	0	//

(d) 評価モデル

評価モデルは、これまでに「放射性廃棄物処分の長期的評価手法の調査」においてベントナイト変質における評価手法として整備したモンモリロナイト溶解速度モデル、ベントナイト透水係数評価モデル、アルカリ拡散モデル、quartz 溶解速度モデル、セメント間隙変遷モデル、表 6.2-2 で示した鉱物モデルを使用する。式(6.2-1)～式(6.2-12)に各評価モデル式を示す。ベントナイト透水係数式については、昨年度設定した適用条件を踏まえ、式(6.2-2)～式(6.2-4)のとおりに設定した。また、オーバーパックについては、炭素鋼腐食反応速度モデルを使用する。炭素腐食反応速度モデルについては、式(6.2-11)に示すように腐食反応速度 pH と硫化水素イオン (HS⁻) 濃度で表されているが、式の特性上、HS⁻濃度が低い場合には式(6.2-12)に漸近するように HS⁻濃度依存性を設定している。本解析では、HS⁻濃度が濃度依存性の影響を受けるまで上昇しないことを仮定し、HS⁻を 0 とした、pH 依存性のみの式(6.2-12)を使用した。なお、腐食速度は最大 1.5 μm/y となるよう設定した。支保工における透水係数 (K_w) の設定は、セメント間隙変遷モデルより式(6.2-10)に示す 1.0×10⁻¹⁵ m/s の一定条件としている。

- ・モンモリロナイトの溶解速度式

$$R_A = 3500 (a_{\text{OH}^-})^{1.4} e^{-51000/RT} \quad (6.2-1)$$

R_A : 溶解速度(kg m⁻³ s⁻¹)

a_{OH^-} : OH⁻活量(mol dm⁻³)

T : 温度(K)

R : 気体定数(8.314 Jmol⁻¹ K⁻¹)

- ・ベントナイト透水係数式

$$K_w = 1.2 \times 10^{-7} I_s^{1.5} 10^{-0.0042\rho_m} (7.9 \times 10^{-5} T^2 - 1.9 \times 10^{-2} T - 0.21) \quad (6.2-2)$$

○ただし、イオン強度 I_s が 0.1 mol L⁻¹ 以下の適用条件式

$$K_w = 1.2 \times 10^{-7} 0.1^{1.5} 10^{-0.0042\rho_m} (7.9 \times 10^{-5} T^2 - 1.9 \times 10^{-2} T - 0.21) \quad (6.2-3)$$

○また、 ρ_m が 0.04 g cm³ 以下の適用条件式

$$Kw = 1.2 \times 10^{-7} (7.9 \times 10^{-5} T^2 - 1.9 \times 10^{-2} T - 0.21) \quad (6.2-4)$$

Kw : 透水係数($m s^{-1}$)

ρ_m : 有効モンモリロナイト密度($kg m^{-3}$)

I_s : イオン強度($mol dm^{-3}$)

T : 温度(K)

- 緩衝材中におけるアルカリ拡散係数式

$$De = 5.0 \times 10^{-7} \phi^{2.1} e^{(-18600/RT)} \quad (6.2-5)$$

De : 有効拡散係数($m^2 s^{-1}$)

ϕ : 間隙率(-)

T : 間隙水の絶対温度(K)

R : ガス定数($8.31 kJ mol^{-1} K^{-1}$)

- quartz の溶解速度式

$$R = k A (a_{H^+})^n (1 - Q/K) \quad (6.2-6)$$

$\log k$: quartz の速度定数 (= -13.8 (70°C)) ($mol/m^2/s$)

A : quartz の表面積 (= 9.53×10^3) (m^2/m^3)

a_{H^+} : H^+ の活量

n : 定数 (= -0.55 (70°C)) (-)

Q/K : quartz の飽和指数 (Q : イオン活量積、 K : 平衡定数)

- セメント間隙変遷モデル式

$$De = 5.37 \times 10^{-10} \phi_{tra} \quad (6.2-7)$$

$$\phi_{tra}(t) = V_{cp-tra}(t) / V_{tot} \quad (6.2-8)$$

$$\Delta V_{cp-tra}(t) = \frac{V_{cp-tra}(0)}{V_{cp-tra}(0) + V_{cp-sto}(0) + V_a(0)} \Delta V_{pore}(t) \quad (6.2-9)$$

De : 有効拡散係数($m^2 s^{-1}$)

$\phi_{tra}(t)$: 物質移動毛細管間隙率

V_{tot} : セメント硬化体の総体積

$V_{cp-tra}(t)$: 物質移動毛細管間隙の体積

$V_{cp-tra}(0)$: 初期の物質移動毛細管間隙の体積

$V_{cp-sto}(0)$: 初期の貯留毛細管間隙の体積

$V_a(0)$: 初期の水泡体積 (計算では 0)

$V_{pore}(t)$: セメント硬化体間隙の体積

$$Kw = 1.0 \times 10^{-15} \text{ (一定)} \quad (6.2-10)$$

K_w : 透水係数($m s^{-1}$)

・炭素鋼腐食反応速度式

$$R = \frac{\log(10^{1.5} + 10^{340[HS^-]^{0.85}})}{1 + 10^{(pH-9.6)}} \quad (6.2-11)$$

$$R = \frac{1.5}{1 + 10^{(pH-9.6)}} \quad (6.2-12)$$

R : 腐食反応速度($\mu m y^{-1}$)

HS^- : 硫化水素イオン濃度($mol dm^{-3}$)

(e) 熱力学データベース

熱力学データベースは、多項式または van't Hoff 式を使って平衡定数の温度依存性を考慮している Spron-JNC⁽⁴⁾をベースに、CSH ゲル (CSH(0.833)~CSH(1.8)) に A. Atkinson⁽⁵⁾によるデータを考慮した熱力学データベースを使用した。この熱力学データベースは、「放射性廃棄物処分の長期的評価手法の調査」におけるベントナイトおよびセメント変質評価解析で使用された実績がある。オーバーパックにおける熱力学データについては、平成 19 年度に報告されている鉄化学種および平成 25 年度に報告されている鉄鉱物の検討によって選定された鉱物の熱力学データを使用した。なお、大塚ら⁽⁶⁾の報告ではカソード反応は水素発生反応が支配的で、炭酸イオン (CO_3^{2-}) や硫酸イオン (SO_4^{2-}) の還元生成物であるメタン (CH_4) や硫化物イオン (HS^-) が検出されていないことから、熱力学データベースからメタンと硫化物イオンの反応を除外することも検討されたが、本解析では考慮していない。

(3) 解析ケース

①の解析ケースは、表 6.2-1 に示した降水系地下水と海水系地下水に対し、廃棄体の発熱考慮の有無、MCCI 生成物およびセメント成分の割合、OP 破損時期を組み合わせた 25 ケースを設定した。表 6.2-3 に解析ケース一覧を示す。

②の 10 万年以降の設定による影響に対する解析ケースは、解析①の case1~3 について、10 万年時の設定を 10 万以降も継続させる設定または緩衝材の性能喪失状態を想定した全 6 ケースを設定した。なお、6 ケースの内 3 ケースは①の解析と同じ設定である。表 6.2-4 に解析ケース一覧を示す。

また、③の海水成分の影響に対する解析ケースは、地下水質特性を変化させた 2 ケースを設定した。表 6.2-5 に解析ケース一覧を示す。

表 6.2-3 解析ケース一覧 (①発熱、セメント成分)

ケース	地下水質特性	温度 [°C]	MCCI 生成物の割合[%]	OP 破損 [年]	緩衝材 厚さ [cm]	乾燥 密度 [g/cm ³]	混合率 [Bnt.:Qtz.]	支保工 厚さ [cm]
1	降水系	100~47	0	4,000	70	1.6	7:3	60
2				50,000				
3				100,000				
4				4,000				
5				50,000				
6				4,000				
7		50,000						
8		47	0	4,000				
9				50,000				
10				4,000				
11				50,000				
12				4,000				
13				50,000				
14	海水系	100~47	0	4,000	70	1.6	7:3	60
15				50,000				
16				4,000				
17				50,000				
18				4,000				
19				50,000				
20		47	0	4,000				
21				50,000				
22				4,000				
23				50,000				
24				4,000				
25	50,000							

表 6.2-4 解析ケース一覧 (②10 万年以降の設定)

ケース	地下水質特性	温度 [°C]	MCCI 生成物の割合[%]	OP 破損 [年]	10 万年以降の設定	緩衝材 厚さ [cm]	乾燥 密度 [g/cm ³]	混合率 [Bnt.:Qtz.]	支保工 厚さ [cm]
1	降水系	100~47	0	4,000	10 万年時を継続	70	1.6	7:3	60
2				50,000					
3				100,000					
1deg				4,000	性能が喪失した状態				
2deg				50,000					
3deg				100,000					

表 6.2-5 解析ケース一覧 (③海水成分)

ケース	地下水 質特性	温度 [°C]	MCCI 生成物の 割合[%]	OP 破損 [年]	緩衝材 厚さ [cm]	乾燥 密度 [g/cm ³]	混合率 [Bnt. : Qtz.]	支保工 厚さ [cm]
26	降水系	100~47	0	-	70	1.6	7 : 3	0
27	海水系							

(4) 解析結果

緩衝材変質・間隙水組成の変遷の観点からは、MCCI 生成物の割合がゼロのケースでは OP 破損による廃棄体内部からの化学的影響は解析上考慮されないため、case1~case3、case8 と case9、case14 と case15、case20 と case21 はそれぞれ同じ解析結果となる。

後述のグラフにおける緩衝材領域の経時変化分布についての各値は、緩衝材領域平均とし、pH および Eh のグラフについては、緩衝材のオーバーパック接触領域付近における経時変化とした。また、透水係数については、緩衝材領域における等価透水係数値を示している。

(a) 地下水水質による影響解析

地下水質の違いによる影響解析結果を図 6.2-4~図 6.2-5 に示す。図 6.2-4 (a) にある通り、有効モンモリロナイト密度は降水系地下水である case1 では 10 万年後においても 0.48 g/cm³ 残存するが、海水系地下水である case14 では約 94,000 年後に消失する結果となった。case14 は線形的にモンモリロナイトの溶解が進んでいるのに対し、降水系地下水の case1 では約 15,000 年後に有効モンモリロナイト密度がやや横ばいに推移する傾向に変化している。これは緩衝材と支保工との境界の緩衝材領域側において局所的な間隙率低下が発生し、支保工側からのアルカリ成分流入が抑制されたことにより、モンモリロナイトが残存する結果となったものと考えられる。図 6.2-4(b) の海水系地下水全ケースにおける有効モンモリロナイト密度をみてもわかる通り、どの海水系地下水においても有効モンモリロナイト密度はほぼ線形的に低下し、100,000 年後には残存していないという結果となった。図 6.2-4(c) の透水係数をみると降水系地下水の case1 で発生した局所的な間隙率低下の影響が現れているのがわかる。図 6.2-5 (a) の pH について、case1 では 1 万年後近辺で pH10.3 から 9.5 程度まで、case8 では 13,000 年後近辺で pH10.4 から 9.8 程度まで低下していることが確認できる。Eh をみても同時期に約 -440mV から約 -550mV に低下していることがわかる。これは、緩衝材領域における Calcite が消滅に向かうことにより SO₄²⁻・CO₃²⁻ が全て還元したために H₂ が支配的となり、Eh も低下することで Berthierine が安定となり緩衝材領域に生成することで pH を低下させているものと推測される。

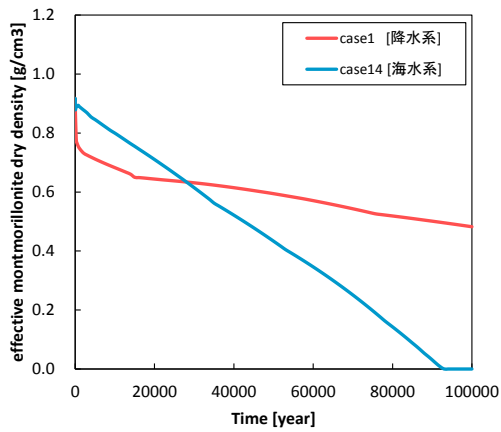
以上の地下水質による影響解析結果により、海水系地下水による影響は傾向的にほぼ一定であることから、解析結果の検討はモンモリロナイトが 10 万年以上残存する降水系地下水のケースについて絞って示すこととする。なお海水系地下水の解析ケースの経時変化分布および空間分布については、Appendix II -A に示す。

case1 についての経時変化分布、固相空間分布、液相空間分布を図 6.2-6~図 6.2-9 に示す。本ケースは平成 25 年度成果報告書⁽⁷⁾で報告した基本ケースとほぼ同条件であるが、平成 27 年度は設定したオーバーパック破損時期前後で解析体系を変化させていること、また鉱物モデルに MCCI 生成物として anorthite および wollastonite の追加を行ったことから、解析結果に変化が生じている。

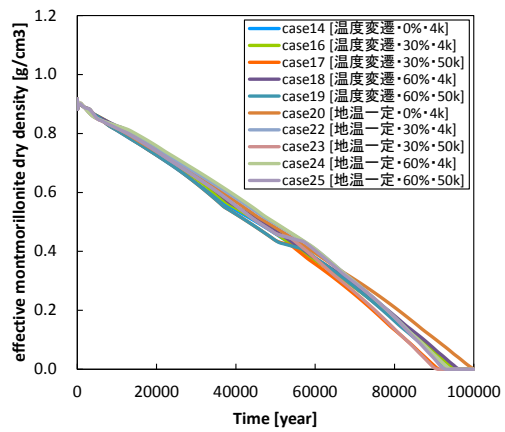
図 6.2-4 (a) に示すように有効モンモリロナイト密度は 10 万年後において 0.48 g/cm^3 残存する結果となった。平成 25 年度の同条件における結果では 0.68 g/cm^3 残存する結果となっているが、支保工境界近辺の緩衝材領域における局所的な間隙率低下が平成 25 年では解析上の間隙閉塞（間隙率=0.005）まで一時的に低下しているのに対し、本ケースにおいては間隙率が低下に向かうものの閉塞には至らず、その後解消の方向に推移していることから、本年度の解析ではモンモリロナイトの溶解が進む結果になったと考えられる。透水係数は 10 万年後において $2.2 \times 10^{-11} \text{ m/s}$ となったが、平成 25 年度では $4.5 \times 10^{-12} \text{ m/s}$ という結果となっており、これは上述した支保工境界近辺の緩衝材領域における間隙率が平成 25 年度ほど低下せず、支保工からのアルカリ成分が流入することによりモンモリロナイト溶解が進んだためと考えられる。

図 6.2-7 の固相空間分布をみると、100 年後には支保工近辺の緩衝材領域に wollastonite が生成しているのが確認できる。その後 1,000 年後に支保工領域の両端に生成し始めた wollastonite が支保工中央に向かって生成が進むと同時に同領域の C-S-H の溶解が進み、1 万年後には C-S-H が消滅し wollastonite が支保工全体に一様に生成する結果となった。これは C-S-H から wollastonite への変遷が進んだものと考えられる。

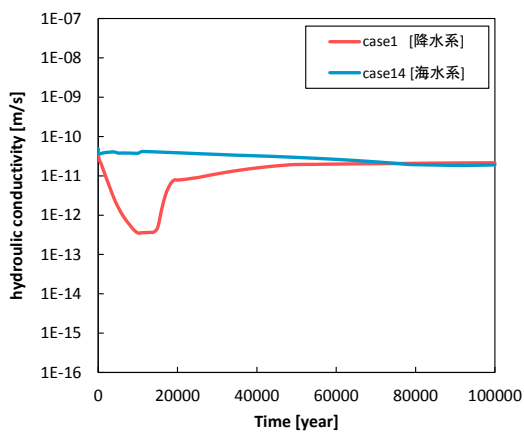
この case1 は人工バリア変遷シナリオについての安全評価へとリンクするケースとした。



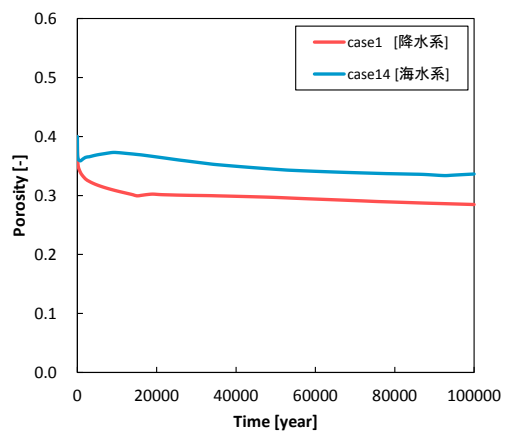
(a) 有効モンモリロナイト密度



(b) 有効モンモリロナイト密度 (海水系全ケース)

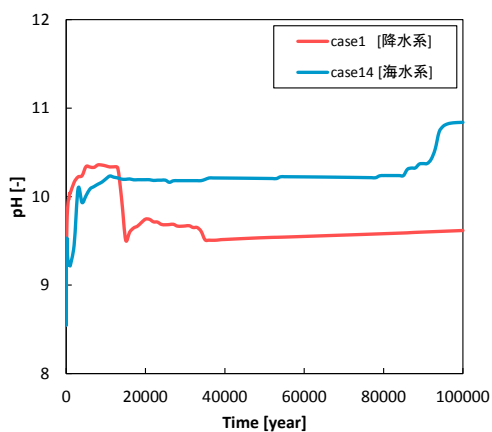


(c) 透水係数

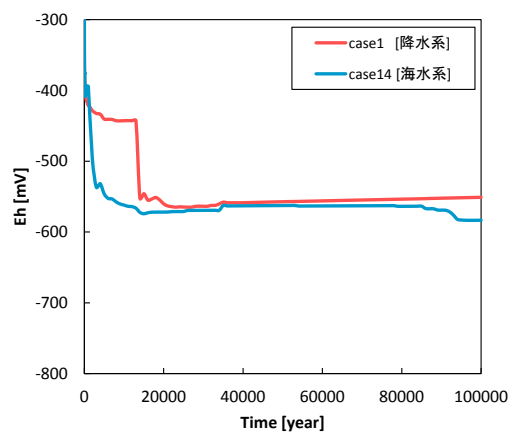


(d) 間隙率

図 6.2-4 緩衝材領域における経時変化分布 (地下水質による影響)
[廃棄体からの発熱考慮、セメント・MCCI成分：0%]

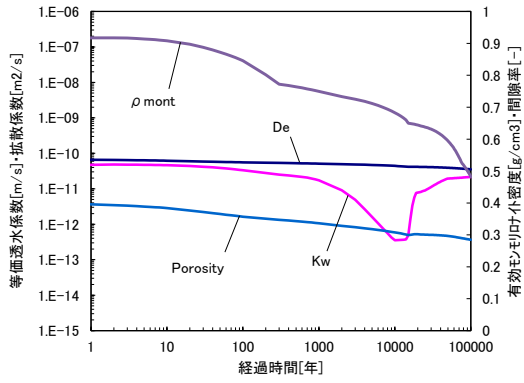


(a) pH

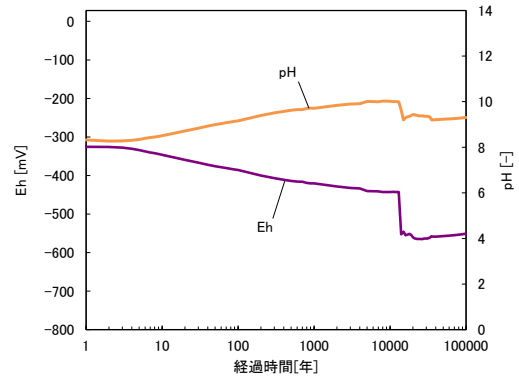


(b) Eh

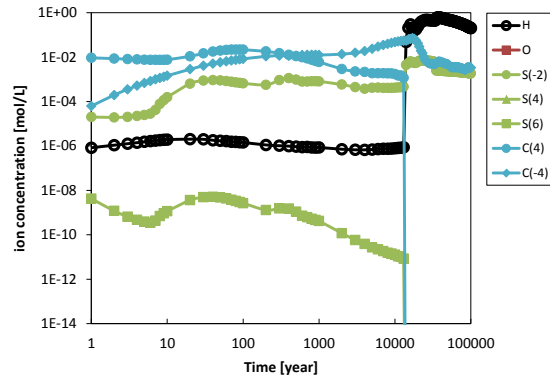
図 6.2-5 OP 近傍の緩衝材領域における経時変化分布 (地下水質による影響)
[廃棄体からの発熱考慮、セメント・MCCI成分：0%]



(a) 透水係数・拡散係数・有効モル比密度・間隙率

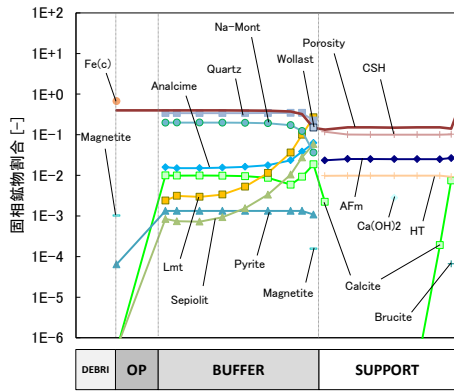


(b) 酸化還元電位

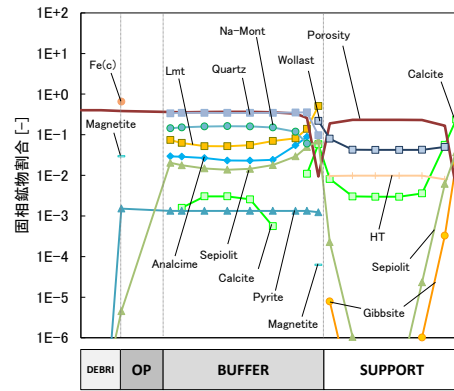


(c) 炭素種・硫黄種・溶存水素・溶存酸素濃度

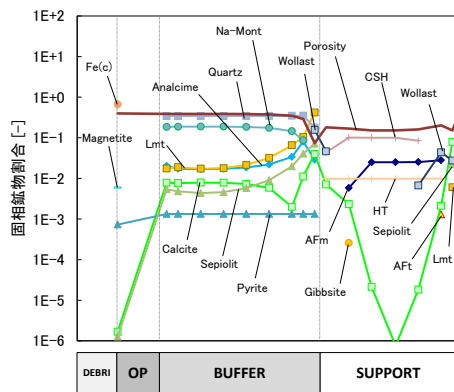
図 6.2-6 緩衝材領域における経時変化分布 (case1)



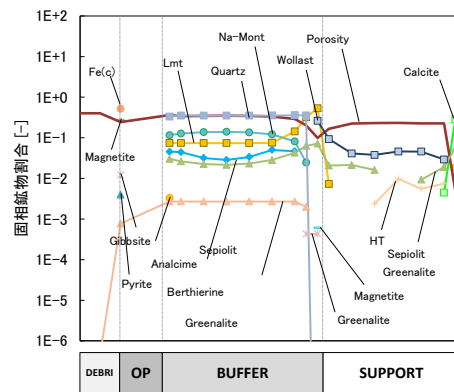
100 年後



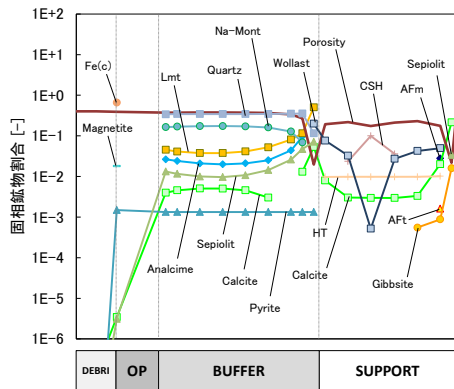
10,000 年後



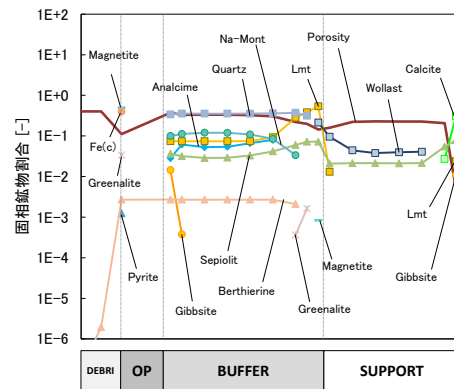
1,000 年後



50,000 年後



5,000 年後



100,000 年後

図 6.2-7 全領域における固相空間分布 (case1)

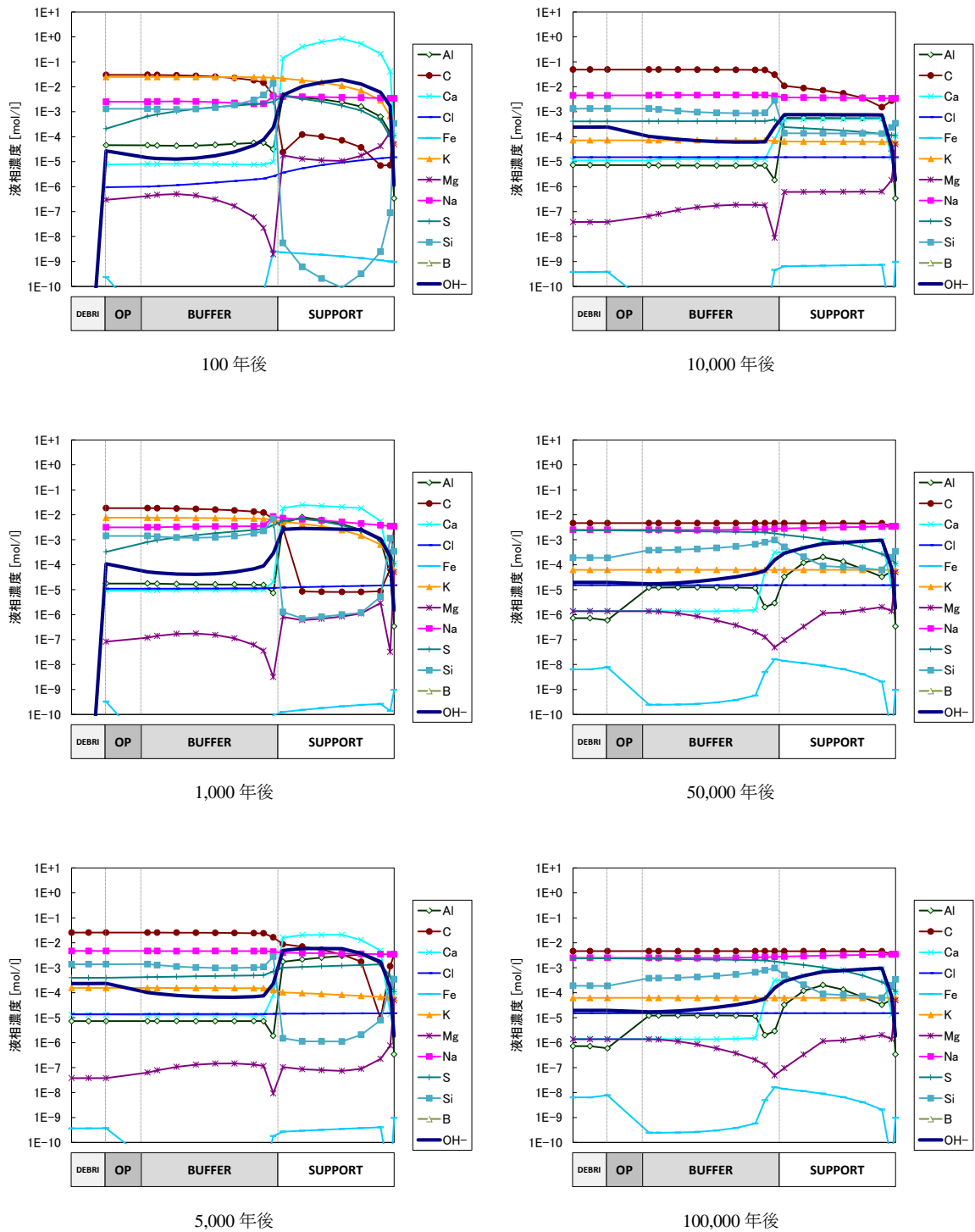
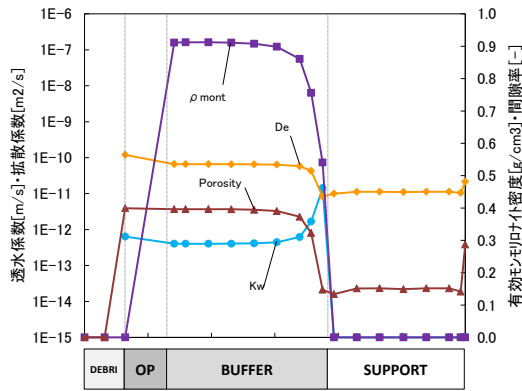
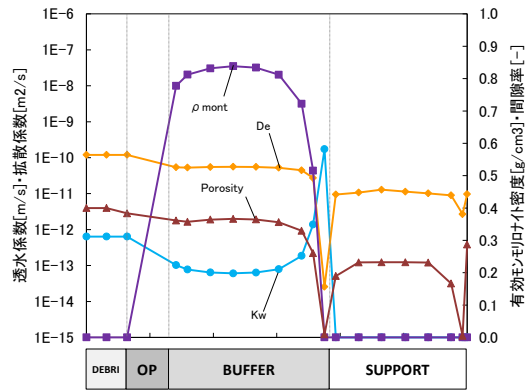


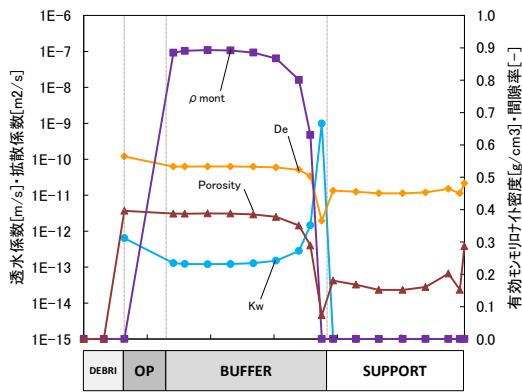
図 6.2-8 全領域における液相空間分布 (case1)



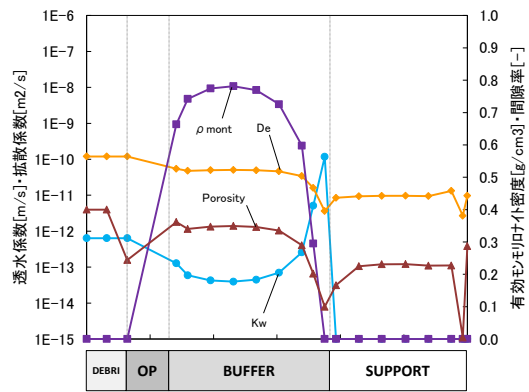
100 年後



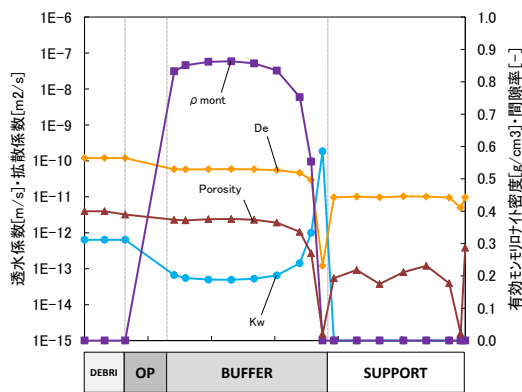
10,000 年後



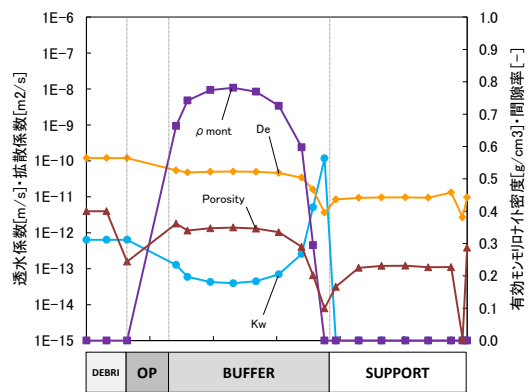
1,000 年後



50,000 年後



5,000 年後



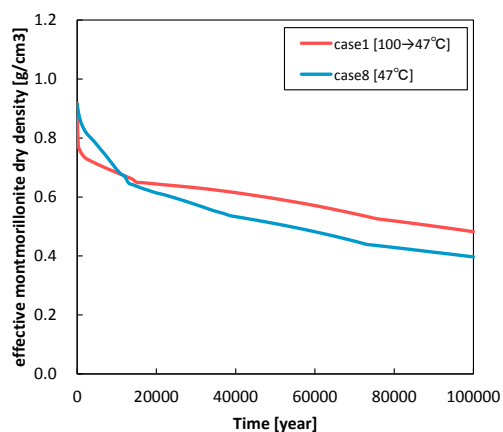
100,000 年後

図 6.2-9 全領域における Kw · De · ρ_m · Eps 空間分布 (case1)

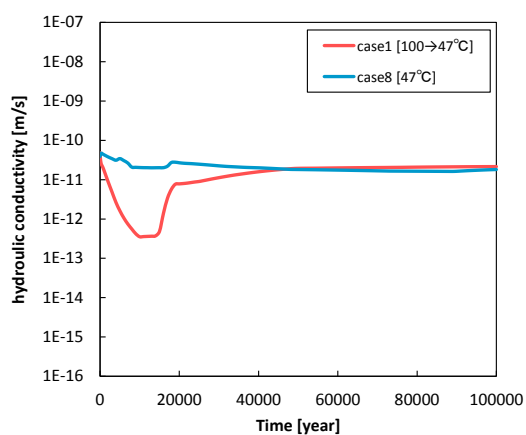
(b) 廃棄体からの発熱による影響解析

case1 および case8 の降水系地下水における廃棄体からの発熱の有無を考慮した影響解析結果を図 6.2-10～図 6.2-11 に示す。図 6.2-11(a)に示すとおり、モンモリロナイトは発熱を考慮した case1 において 10 万年間で 0.48 g/cm^3 残存、地温一定の case8 においても 0.40 g/cm^3 残存する結果となった。case1、case8 の双方ともに 13,000～14,000 年後で有効モンモリロナイト密度がやや横ばいに推移する傾向に変化している。これは (a) 項で述べた case1 と同様に case8 においても緩衝材領域と支保工との境界付近における局所的な間隙率低下によるものであるが、case1 においては支保工領域側の境界にて 12,000 年後にかけ低下し続けた間隙率がそれ以降 10 万年後まで解消されること無く継続したため、支保工からのアルカリ成分流入が抑制されたためにモンモリロナイト溶解が抑制されたと考えられる。図 6.2-10 (b)の透水係数について、case1 については (a) 項で述べたとおり、支保工付近の緩衝材領域における局所的な間隙閉塞の影響が強く表れていることがわかる。case8 については緩衝材と支保工の境界の局所的な間隙率低下が発生している箇所が支保工側であるため、緩衝材領域の透水係数には影響を及ぼしていない。図 6.2-11 (a)の pH について、case1 では 1 万年後近辺で pH10.3 から 9.5 程度まで、case8 では 13,000 年後近辺で pH10.4 から 9.8 程度まで低下していることが確認できる。Eh をみても同時期に約-440mV から約-550mV に低下していることがわかる。これは、緩衝材領域における Calcite が消滅に向かうことにより $\text{SO}_4^{2-} \cdot \text{CO}_3^{2-}$ が全て還元したために H_2 が支配的となり、Eh も低下することで Berthierine が安定となり緩衝材領域に生成することで pH を低下させているものと推測される。

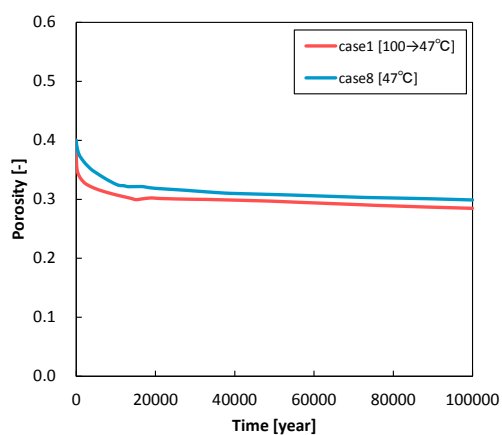
以上の解析結果より、人工バリア変遷シナリオについて安全評価へリンクするケースは廃棄体からの発熱による傾向が基本ケースと異なる case8 を採用した。case8 の経時変化分布および空間分布については、Appendix II-A に示す。



(a) 有効モンモリロナイト密度

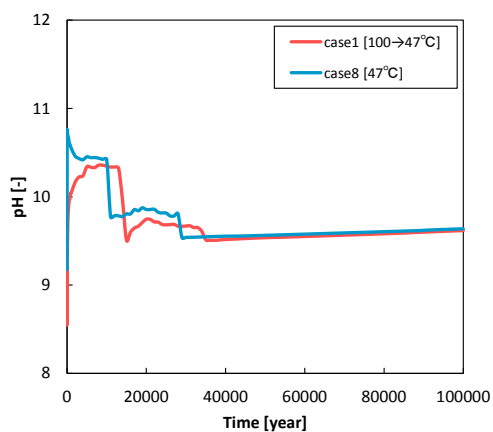


(b) 透水係数

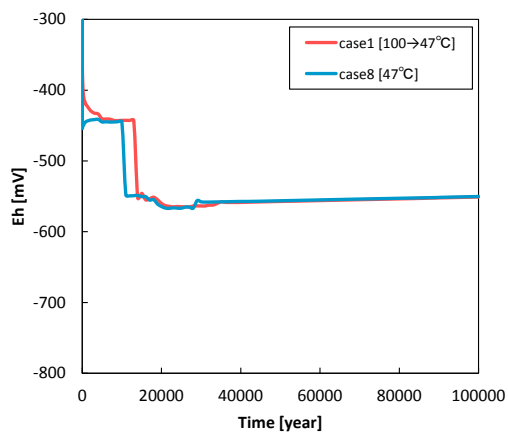


(c) 間隙率

図 6.2-10 緩衝材領域における経時変化分布 (廃棄体からの発熱の影響)
[降水系地下水、セメント・MCCI 成分：0%]



(a) pH



(b) Eh

図 6.2-11 OP 近傍の緩衝材領域における経時変化分布 (廃棄体からの発熱の影響)
[降水系地下水、セメント・MCCI 成分：0%]

(c) セメント成分による影響解析

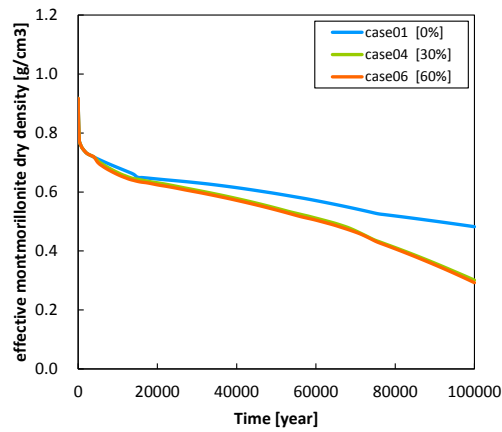
case1、case4 および case6 の降水系地下水で廃棄体からの発熱を考慮し OP 破損時期を 4,000 年とした条件における、廃棄体のセメント成分の有無を考慮した影響解析結果を図 6.2-12～図 6.2-13 に示す。モンモリロナイトはセメント成分を含まない case1 において 10 万年間で 0.48 g/cm^3 残存するのに対し、セメントおよび MCCI 成分を 30% 含む case4 では 0.30 g/cm^3 、60% 含む case6 では 0.29 g/cm^3 残存する結果となった。図 6.2-12 の透水係数については、(a) 項で述べた case1 と同様に case4 や case6 においても支保工近辺の緩衝材領域における局所的な間隙率低下が起きており、その影響を受けていることがわかる。図 6.2-13 の pH については、case4 および case6 において 4,000 年後に pH10.2 から 10.6 に上昇していることがわかる。これらのケースでは 4,000 年後に OP 破損する設定としており、4,000 年後にデブリに含まれるセメントからのアルカリ成分が流入したためである。図 6.2-13 の Eh については、case4 および case6 において約 18,000 年近辺で 2 度 Eh が低下していることが確認できる。case6 の Eh について詳しく確認すると、約 16,000 年後に約 -440mV から約 -520mV に低下し、さらに約 21,000 年後には約 -520mV から約 -570mV に低下しているが、はじめの Eh 低下時には OP 領域内に析出していた Calcite が消滅し、2 回目の Eh 低下時にはデブリ領域内の Calcite が消滅していた。これは Calcite が消滅に向かうことにより $\text{SO}_4^{2-} \cdot \text{CO}_3^{2-}$ が全て還元したために H_2 が支配的となり Eh が低下したと考えられる。

case8、case10 および case12 の降水系地下水で廃棄体からの発熱が無く OP 破損時期を 4,000 年とした条件における、廃棄体のセメント成分の有無を考慮した影響解析結果を図 6.2-14～図 6.2-15 に示す。モンモリロナイトはセメント成分を含まない case8 において 10 万年間で 0.40 g/cm^3 残存するのに対し、セメントおよび MCCI 成分を 30% 含む case10 では 0.20 g/cm^3 、60% 含む case12 では 0.19 g/cm^3 残存する結果となった。図 6.2-14 (b) の透水係数については、3 ケース共に緩衝材と支保工の境界の局所的な間隙率低下が発生している箇所が支保工側であるため、緩衝材領域の透水係数への影響としては現れていない。またこの緩衝材と支保工との境界の支保工側での間隙率は約 5,000 年掛けて低下した後、間隙閉塞には至らないものの 10 万年後まで低い間隙率を維持しており、3 ケースともほぼ同じ傾向であった。また、図 6.2-15 の pH および Eh の挙動は、前述の廃棄体からの温度変遷を考慮したケースと同様の傾向を示していた。

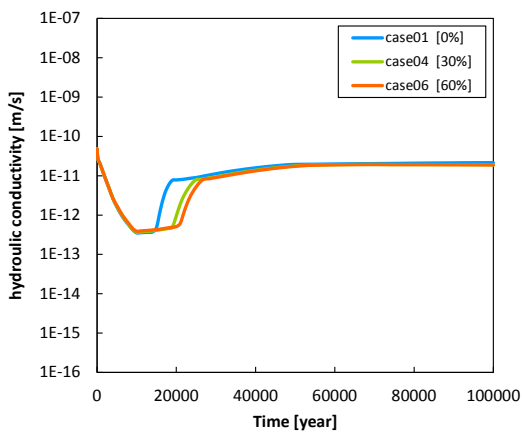
case2、case5 および case7 の降水系地下水で廃棄体からの発熱を考慮し OP 破損時期を 50,000 年とした条件における、廃棄体のセメント成分の有無を考慮した影響解析結果を図 6.2-16～図 6.2-17 に示す。モンモリロナイトはセメント成分を含まない case2 において 10 万年間で 0.48 g/cm^3 残存するのに対し、セメントおよび MCCI 成分を含む 2 ケースはどちらも 0.40 g/cm^3 残存する結果となった。

case9、case11 および case13 の降水系地下水で廃棄体からの発熱が無く OP 破損時期を 5 万年とした条件における、廃棄体のセメント成分の有無を考慮した影響解析結果を図 6.2-18～図 6.2-19 に示す。モンモリロナイトはセメント成分を含まない case9 において 10 万年間で 0.40 g/cm^3 残存、セメントおよび MCCI 成分を 30% 含む case10 では 0.31 g/cm^3 、60% 含む case12 では 0.30 g/cm^3 残存する結果となった。図 6.2-18 (b) の透水係数については、3 ケース共に緩衝材と支保工の境界の局所的な間隙率低下が発生している箇所が支保工側であるため、緩衝材領域の透水係数への影響としては現れていない。同条件で温度変遷を考慮した図 6.2-16 と比較すると、緩衝材領域での局所的な間隙率低下が発生しないため、その分支保工領域からアルカリ成分の流入したことが有効モンモリロナイトの残存の差として現れたと考えられる。図 6.2-19 のオーバーバック近傍の pH および Eh については、温度変遷を考慮したケースと同じ傾向を示している。

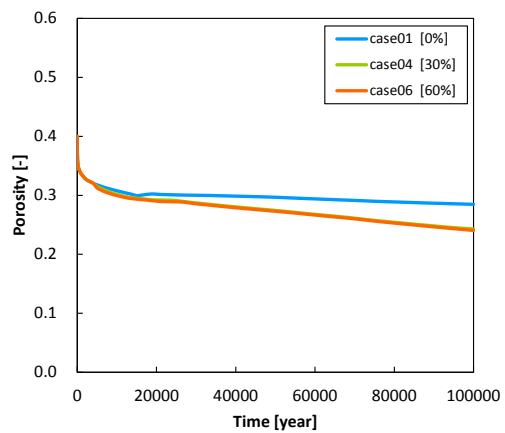
以上の解析結果より、人工バリア変遷シナリオについて安全評価へリンクするケースは、降水系地下水の廃棄体からの発熱を考慮したケースにおいて基本ケースと傾向の異なる、セメントおよびMCCI成分を60%含むcase6を、また同条件でOP破損時期が異なるcase7を採用した。さらに降水系地下水の地温一定条件では、(b)で選出したcase8と傾向が対称的なcase12を採用した。case6、case7およびcase12の経時変化分布および空間分布については、Appendix II-Aに示す。



(a) 有効モンモリロナイト密度

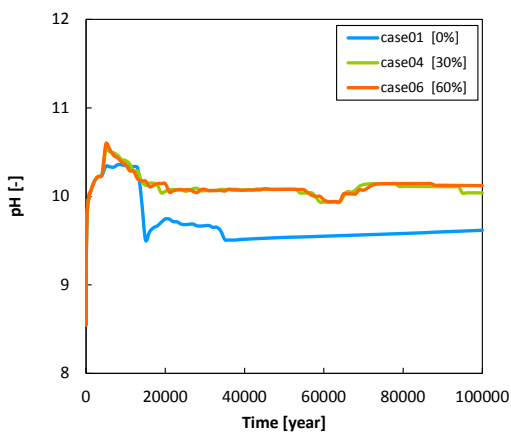


(b) 透水係数

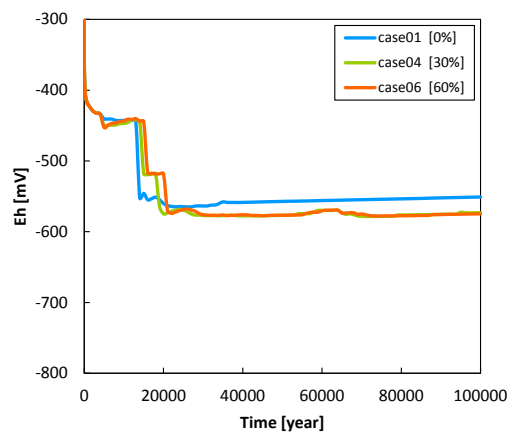


(c) 間隙率

図 6.2-12 緩衝材領域における経時変化分布 (セメント・MCCI 成分の影響)
[降水系地下水、廃棄体からの発熱考慮、OP 破損時期：4,000 年]

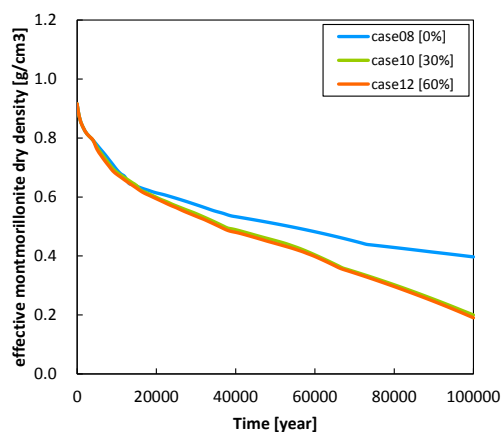


(a) pH

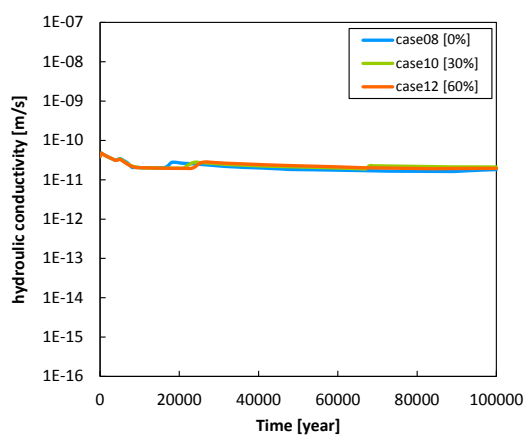


(b) Eh

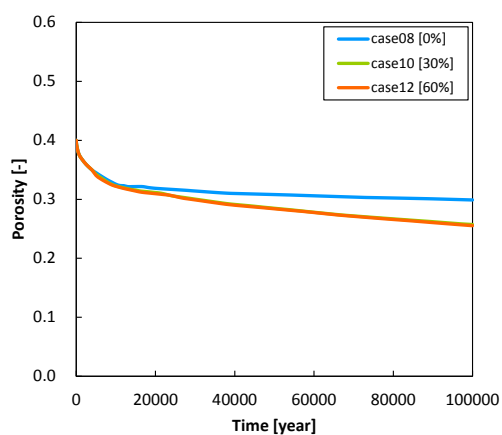
図 6.2-13 OP 近傍の緩衝材領域における経時変化分布 (セメント・MCCI 成分の影響)
[降水系地下水、廃棄体からの発熱考慮、OP 破損 4,000 年]



(a) 有効モンモリロナイト密度

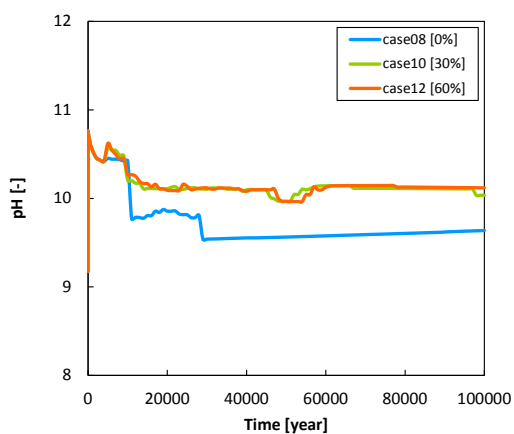


(b) 透水係数

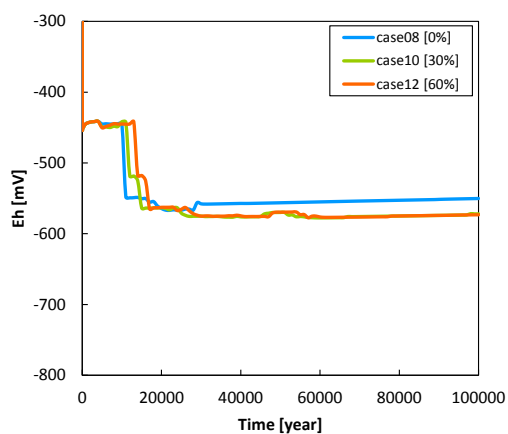


(c) 間隙率

図 6.2-14 緩衝材領域における経時変化分布 (セメント・MCCI 成分の影響)
[降水系地下水、地温一定、OP 破損 4,000 年]

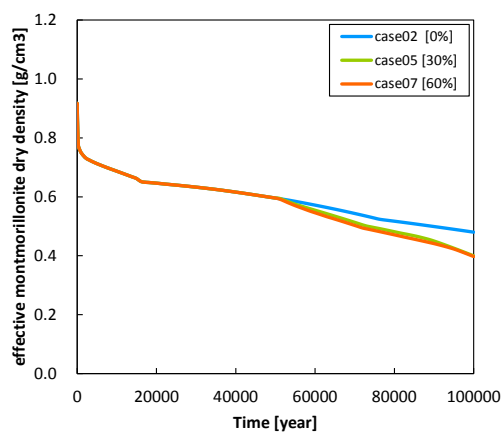


(a) pH

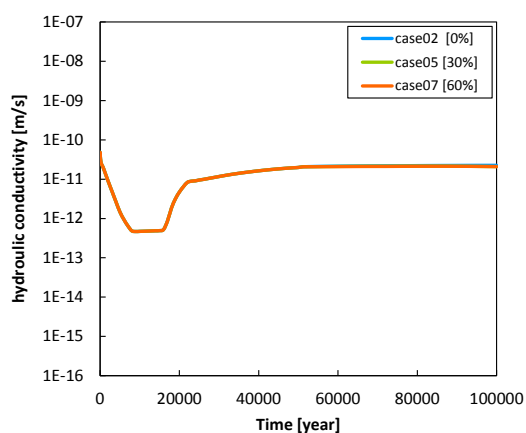


(b) Eh

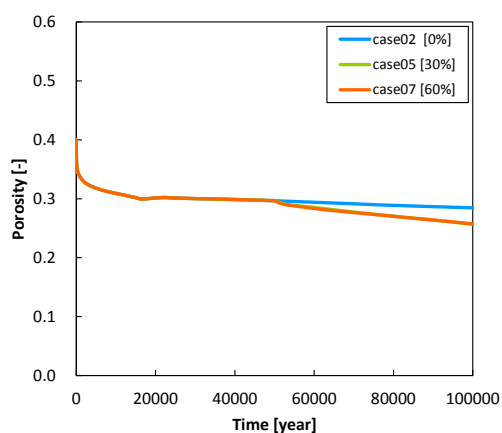
図 6.2-15 OP 近傍の緩衝材領域における経時変化分布 (セメント・MCCI 成分の影響)
[降水系地下水、地温一定、OP 破損 4,000 年]



(a) 有効モンモリロナイト密度

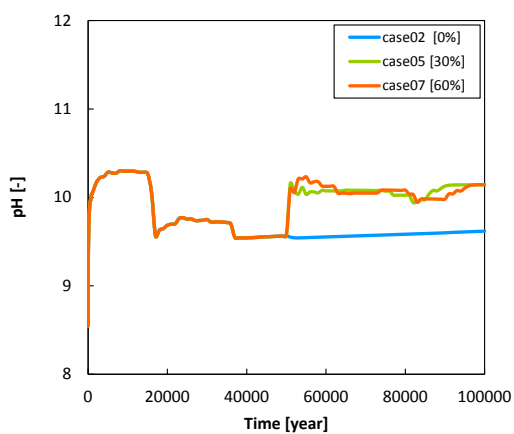


(b) 透水係数

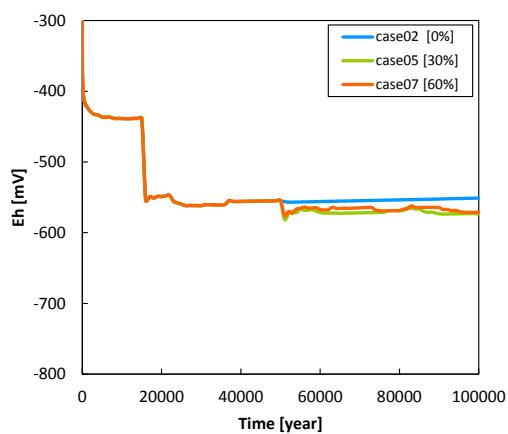


(c) 間隙率

図 6.2-16 緩衝材領域における経時変化分布 (セメント・MCCI 成分の影響)
[降水系地下水、廃棄体からの発熱考慮、OP 破損 50,000 年]

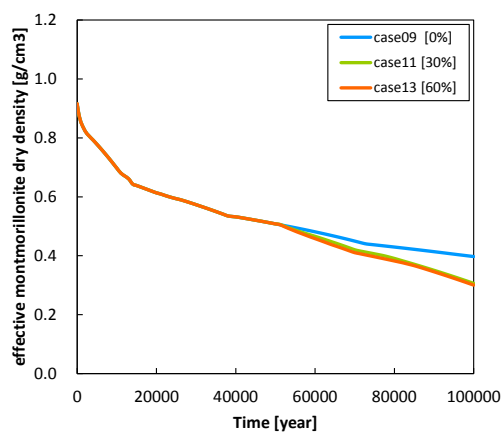


(a) pH

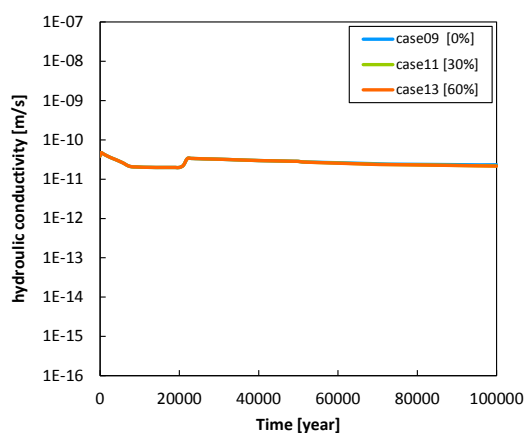


(b) Eh

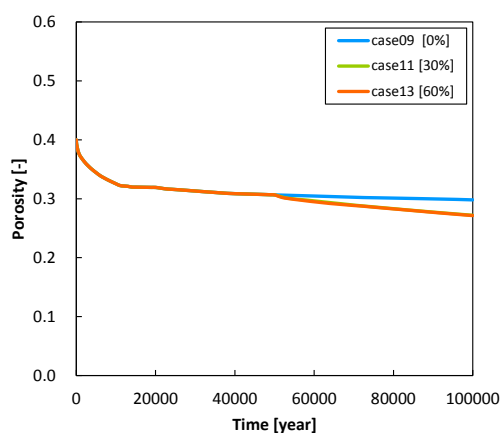
図 6.2-17 OP 近傍の緩衝材領域における経時変化分布 (セメント・MCCI 成分の影響)
[降水系地下水、廃棄体からの発熱考慮、OP 破損 50,000 年]



(a) 有効モンモリロナイト密度

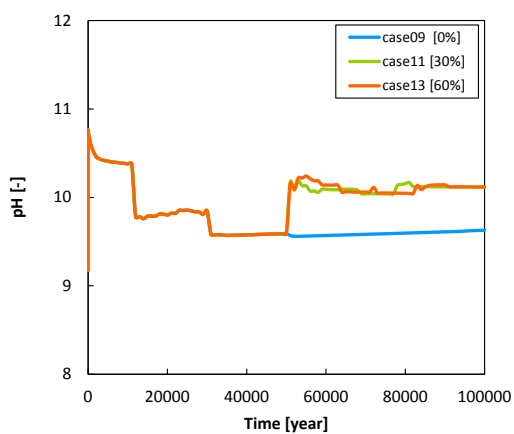


(b) 透水係数

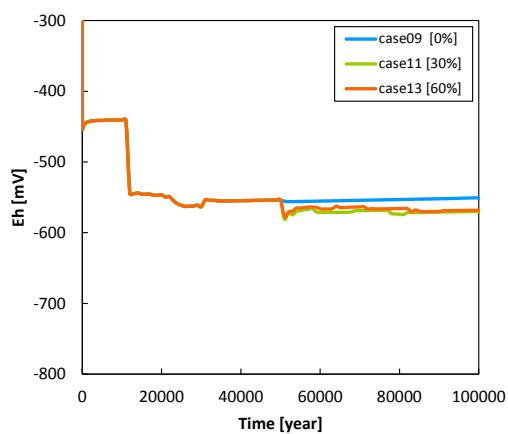


(c) 間隙率

図 6.2-18 緩衝材領域における経時変化分布 (セメント・MCCI 成分の影響)
[降水系地下水、地温一定、OP 破損 50,000 年]



(a) pH



(b) Eh

図 6.2-19 OP 近傍の緩衝材領域における経時変化分布 (セメント・MCCI 成分の影響)
[降水系地下水、地温一定、OP 破損 50,000 年]

(d) 10 万年以降の設定による影響解析

10 万年以降の設定の違いによる case1~case3、case1deg~case3deg の解析結果は、case1 に対する 10 万年までの解析結果を基に、3.2.3 に述べたシナリオ設定により 10 万年以降の設定を追加したものとなる。10 万年時を継続させた場合と 10 万年で緩衝材の性能が喪失した場合の各シナリオに基づく緩衝材領域における pH、Eh の経時変化を図 6.2-20 に、特性の経時変化を図 6.2-21 に示す。

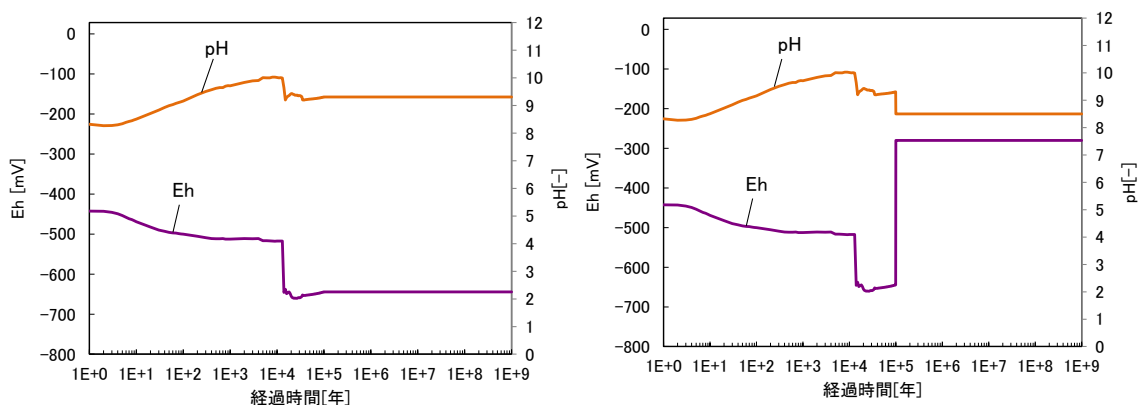


図 6.2-20 10 万年時を継続 (左)、10 万年で性能喪失 (右) のシナリオに基づく緩衝材領域における pH、Eh の経時変化

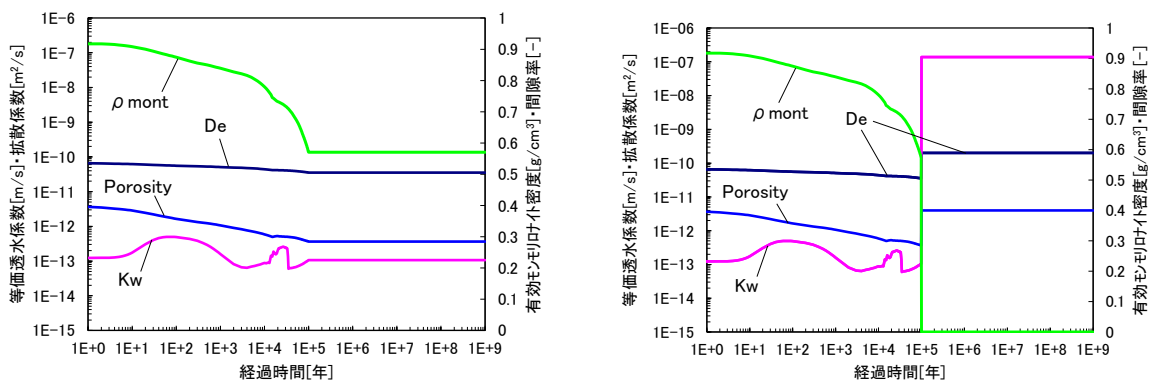


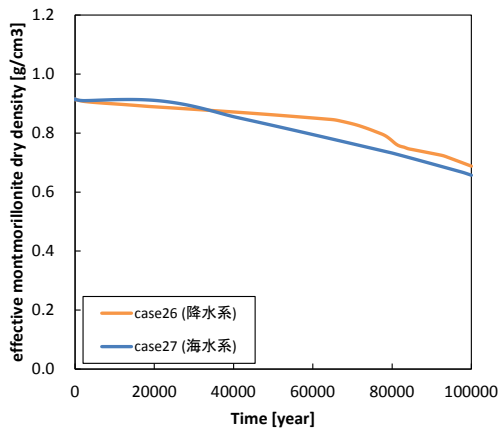
図 6.2-21 10 万年時を継続 (左)、10 万年で性能喪失 (右) のシナリオに基づく緩衝材領域における特性の経時変化

(e) 海水成分による影響解析

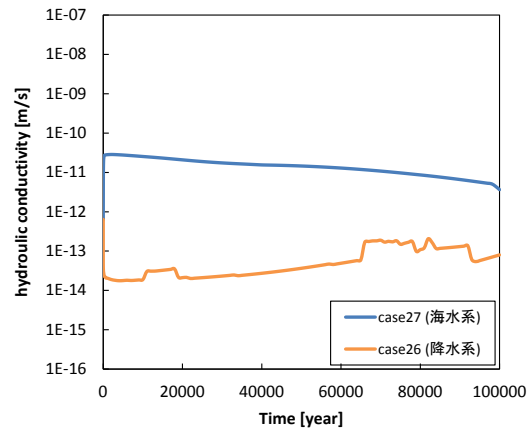
case26 および case27 の緩衝材の海水成分（海水系地下水）による影響解析結果を図 6.2-22～図 6.2-23 に示す。図 6.2-22 (c)の地下水との境界の緩衝材領域における間隙率を見ると、海水系と降水系との変化に大きな傾向の違いが現れている。海水系地下水では緩衝材と地下水との境界において間隙率が低下し続け、約 4 万年後に間隙閉塞状態となり 10 万年後においても解消・変遷することはなかった。また降水系地下水では緩やかに間隙率が低下し続け、間隙閉塞には至らないものの一度も解消に向かうことなく 10 万年後まで低い間隙率を維持する結果となった。これらの局所的な間隙率低下により、有効モンモリロナイト密度や透水係数においても同じ境界領域において局所的な値の上昇、低下として現れることで衝材領域全体の結果にも影響するため、ここでは地下水との境界を除いた緩衝材領域における経時変化を示している。

図 6.2-22 (c)、(d)の間隙率についての 2 つの解析結果をみると、地下水との境界における間隙率では大きな傾向の違いが見られたものの、境界部を除く緩衝材領域全体においてはほぼ同じ傾向となっていることから、影響は非常に局所的であることがわかる。モンモリロナイトは図 6.2-22 (a)の通り、降水系地下水の case26 において 10 万年間で 0.69 g/cm^3 、海水系地下水の case27 では 0.66 g/cm^3 残存する結果となった。

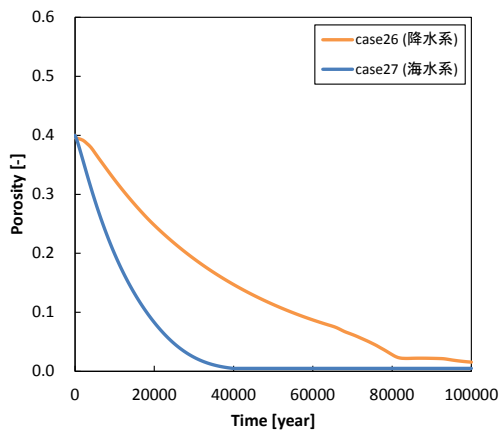
図 6.2-23 (a)の pH では case26 において約 66,000 年後に 10.1 から 9.8 程度に低下していることが確認できる。さらに図 6.2-23 (b)の Eh をみると同時期に約 -490mV から -620mV に低下していることがわかる。これらは、(a) 項で述べた現象と同様に、緩衝材領域における Calcite の消滅に向かうことにより CO_3^{2-} が全て還元したために H_2 が支配的となり、Eh も低下することで Berthierine が安定となり緩衝材領域に生成することで pH を低下させているものと推測される。



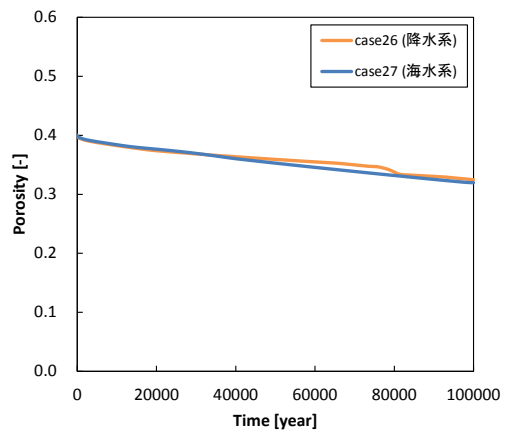
(a) 有効モンモリロナイト密度
(地下水と接するセルを除いた緩衝材領域)



(b) 透水係数
(地下水と接するセルを除いた緩衝材領域)

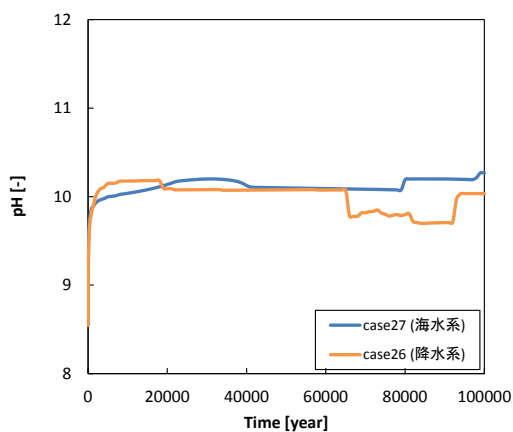


(c) 間隙率
(地下水との境界の緩衝材領域)

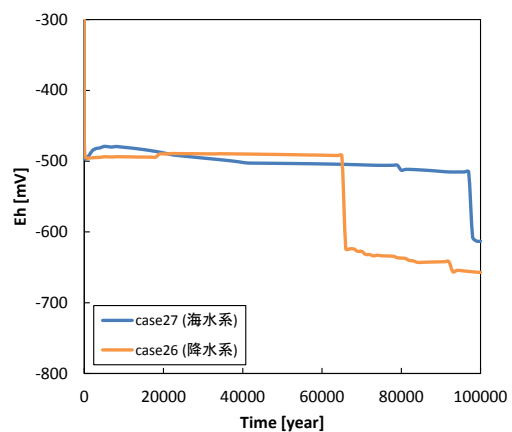


(d) 間隙率
(地下水と接するセルを除いた緩衝材領域)

図 6.2-22 緩衝材領域における経時変化分布 (海水成分の影響)



(a) pH



(b) Eh

図 6.2-23 OP 近傍の緩衝材領域における経時変化分布 (海水成分の影響)

(5) 各評価へのデータのリンケージ

人工バリアの変遷シナリオを対象とした安全評価として、(4) 項の解析結果より検討した7 ケースについて実施することとした。選定した人工バリア変遷シナリオ対象ケースを表 6.2-6、表 6.2-7 に示す。

表 6.2-6 人工バリア変遷シナリオ対象ケース (1)

ケース	地下水質特性	温度 [°C]	MCCI 生成物の割合 [%]	OP 破損 [年]	10 万年以降の設定	緩衝材厚さ [cm]	乾燥密度 [g/cm ³]	混合率 [Bnt.:Qtz.]	支保工厚さ [cm]
1	降水系	100~47	0	4,000	10 万年時を継続	70	1.6	7 : 3	60
2				50,000					
3				100,000					
1deg				4,000	性能が喪失した状態				
2deg				50,000					
3deg				100,000					

表 6.2-7 人工バリア変遷シナリオ対象ケース (2)

ケース	地下水質特性	温度 [°C]	MCCI 生成物の割合 [%]	OP 破損 [年]	緩衝材厚さ [cm]	乾燥密度 [g/cm ³]	混合率 [Bnt.:Qtz.]	支保工厚さ [cm]
6	降水系	100~47	60	4,000	70	1.6	7 : 3	60
7				50,000				
8				4,000				
12		47	60	4,000				

以上のケースについて、各評価への人工バリア変遷解析データの提供を行った。提供するリンケージデータについては以下に示すとおりである。

(a) 核種移行パラメータ評価

核種移行パラメータ評価へのリンケージは、以下のデータを提供する。

- ・ 間隙水 Na 濃度 (オーバーパック接触領域、支保工接触領域、緩衝材平均)
- ・ 間隙水 HCO₃⁻ 濃度 (オーバーパック接触領域、支保工接触領域、緩衝材平均)
- ・ 間隙水 CO₃²⁻ 濃度 (オーバーパック接触領域、支保工接触領域、緩衝材平均)
- ・ 間隙水 K⁺ 濃度 (オーバーパック接触領域、支保工接触領域、緩衝材平均)
- ・ pH (オーバーパック接触領域、支保工接触領域、緩衝材平均)
- ・ pe (オーバーパック接触領域、支保工接触領域、緩衝材平均)
- ・ 銻物組成 (緩衝材平均)

- ・間隙率（緩衝材平均）
- ・乾燥密度（緩衝材平均）

(b) ニアフィールド地下水流動評価

地下水流動評価へのリンクージは、以下のデータを提供する。

- ・透水係数（緩衝材各セル）
- ・間隙率（緩衝材各セル）

(6) 緩衝材変質評価における今後の課題

本年度、仮想燃料デブリ Ver.1 の設定を基に、デブリ廃棄体に含まれるコンクリート成分について、溶融燃料との MCCI 反応によって生成された MCCI 生成物として、 $\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ （灰長石・anorthite）および CaSiO_3 （硅灰石・wollastonite）の鉱物データベースへの追加を実施し解析を行った。その結果、解析計算上で支保工の OPC に含まれる CSH が wollastonite に変遷するケースが見られたが、実際には今回の温度設定においては発生しないとされている。解析計算上で廃棄体に MCCI 生成物が含まれるケースの再現する方法については今後検討する必要がある。

6.2.2 核種移行パラメータ

(1) 溶解度

6.2.1 の解析によって得られた各解析ケースの緩衝材中の間隙水組成に基づいて、地球化学平衡計算により放射性核種の溶解度を求めた。計算には、確率論的溶解度解析コード PA-SOL (Probabilistic Analysis Code of Uncertainty of Solubility Limit for Radioactive Element in Geological Disposal) を用いた。PA-SOL は、地下水水質と熱力学データに関する不確かさが溶解度に与える影響の定量的評価を目的として、原子力機構が整備したコードであり、PHREEQC⁽⁸⁾などの地球化学計算コードにモンテカルロ法による確率論的解析機能を追加したコードである。

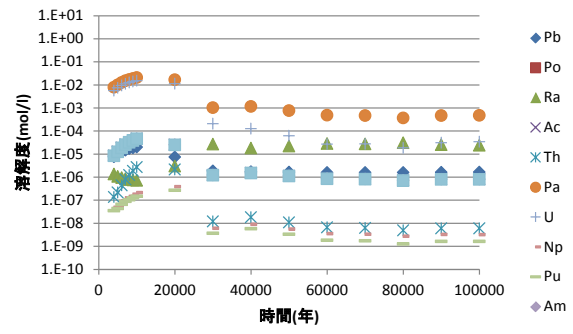
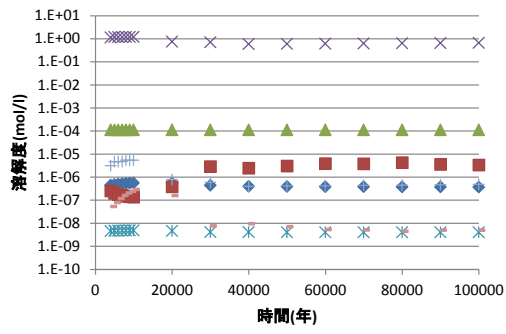
解析に使用した熱力学データは、JAEA-TDB (version 100331c2)⁽⁹⁾を基に、山口ら⁽¹⁰⁾がデータ選定プロセスの一貫性や溶解度評価の保守性、最新データの検証の観点からレビューし、選定したものを使用した。活量係数の補正については、Davies の式を用いた。また、計算においては、上記の JAEA-TDB において、熱力学データが最も整備されている 25°C の条件で計算を行った。

なお、Ra、Ac 及び Cm については、熱力学データが十分に整備されていないため、既存の文献や化学アナログを考慮して設定するものとした。解析の概要を以下に示す。

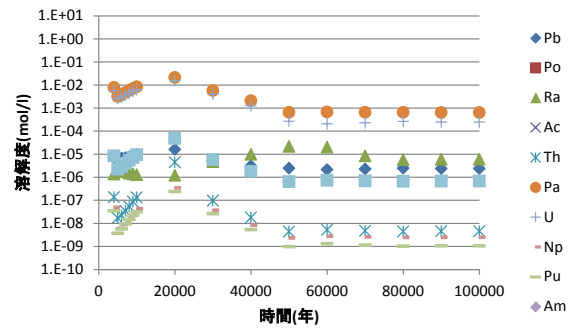
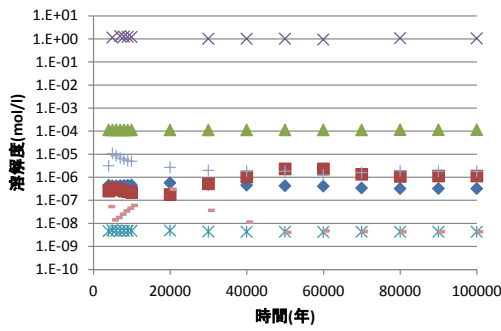
- C : 有機炭素の化学形態が不明であることから、溶解度制限を考慮しない。
- Se : Se(cr, trigonal)を溶解度制限固相として仮定した。
- Sr : SrCO₃(strontianite)を溶解度制限固相として仮定した。
- Zr : Zr(OH)₄(am, fresh)を溶解度制限固相として仮定した。
- Nb : Nb₂O₅(s)を溶解度制限固相として仮定した。
- Tc : TcO₂1.6H₂O(s)を溶解度制限固相として仮定した。
- Pd : Pd(s)を溶解度制限固相として仮定した。
- Sn : SnO₂(am)を溶解度制限固相として仮定した。
- I : 易溶性のため溶解度制限を考慮しない。
- Cs : 易溶性のため溶解度制限を考慮しない。
- Sm : Am の化学アナログとして設定した。
- Pb : PbCO₃(cerussite)を溶解度制限固相として仮定した。
- Po : Pb-210 と Po-210 の放射平衡より Pb と同値とする。
- Ra : RaCO₃(cr)を溶解度制限固相として仮定した。
- Ac : AcCO₃OH(am)を溶解度制限固相として仮定した。
- Th : ThO₂(am, aged)を溶解度制限固相として仮定した。
- Pa : Pa₂O₅(cr)を溶解度制限固相として仮定した。
- U : UO₂(am)を溶解度制限固相として仮定した。
- Np : NpO₂(am)を溶解度制限固相として仮定した。
- Pu : PuO₂(am)を溶解度制限固相として仮定した。
- Am : AmCO₃OH(am)を溶解度制限固相として仮定した。
- Cm : CmCO₃OH(am)を溶解度制限固相として仮定した。

各解析ケースにおける溶解度の経時変化を図 6.2-24 に示す。

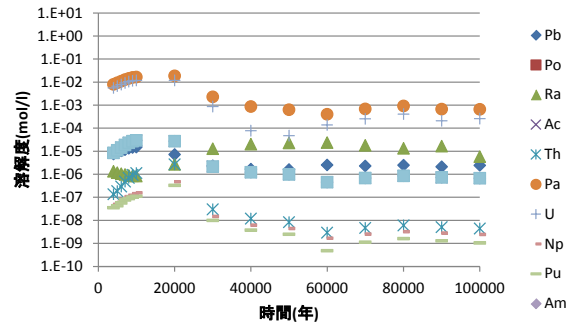
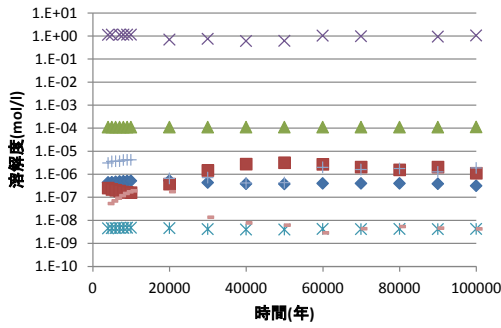
ただし、図 6.2-24 において Pd はスケール範囲外 (溶解度は 10⁻²³ 程度) となっている。



case1

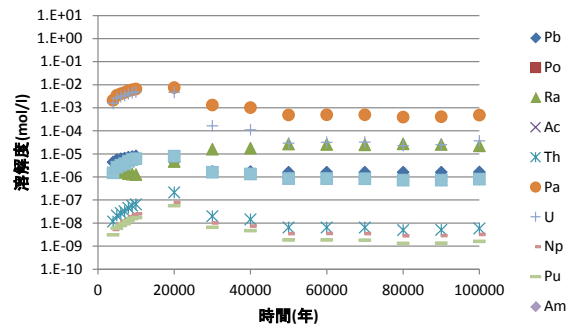
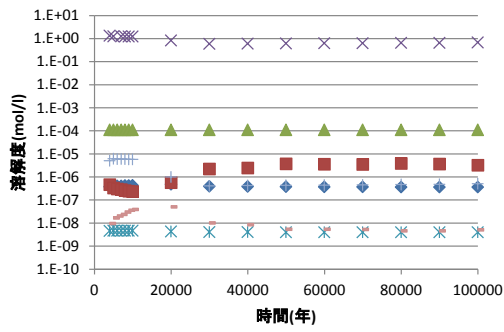


case6

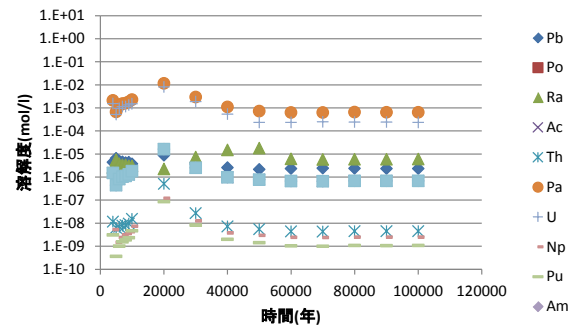
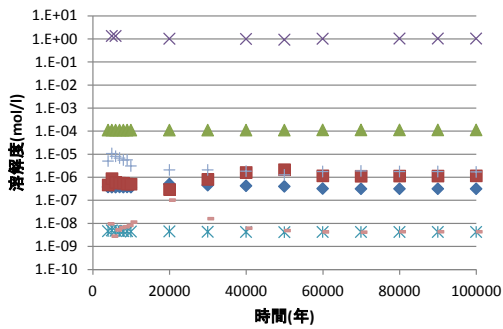


case7

図 6.2-24 各解析ケースにおける溶解度の経時変化 (1/2)



case8



case12

図 6.2-24 各解析ケースにおける溶解度の経時変化 (2/2)

(2) 拡散係数

6.2.1 の解析の間隙水組成条件を平成 25 年度と同様としたことから、平成 25 年に使用した設定値を参考に表 6.2-8 の値を設定した。

表 6.2-8 拡散係数の設定値

	Se	その他核種
10 万年以前	1.3×10^{-10}	2.0×10^{-10}
10 万年以降	1.8×10^{-10}	2.7×10^{-10}

(3) 吸着分配係数

6.2.1 の解析によって得られた各解析ケースの緩衝材中の間隙水組成に基づいて、放射性核種の分配係数を求めた。各解析ケースにおける分配係数の経時変化を図 6.2-25 に示す。

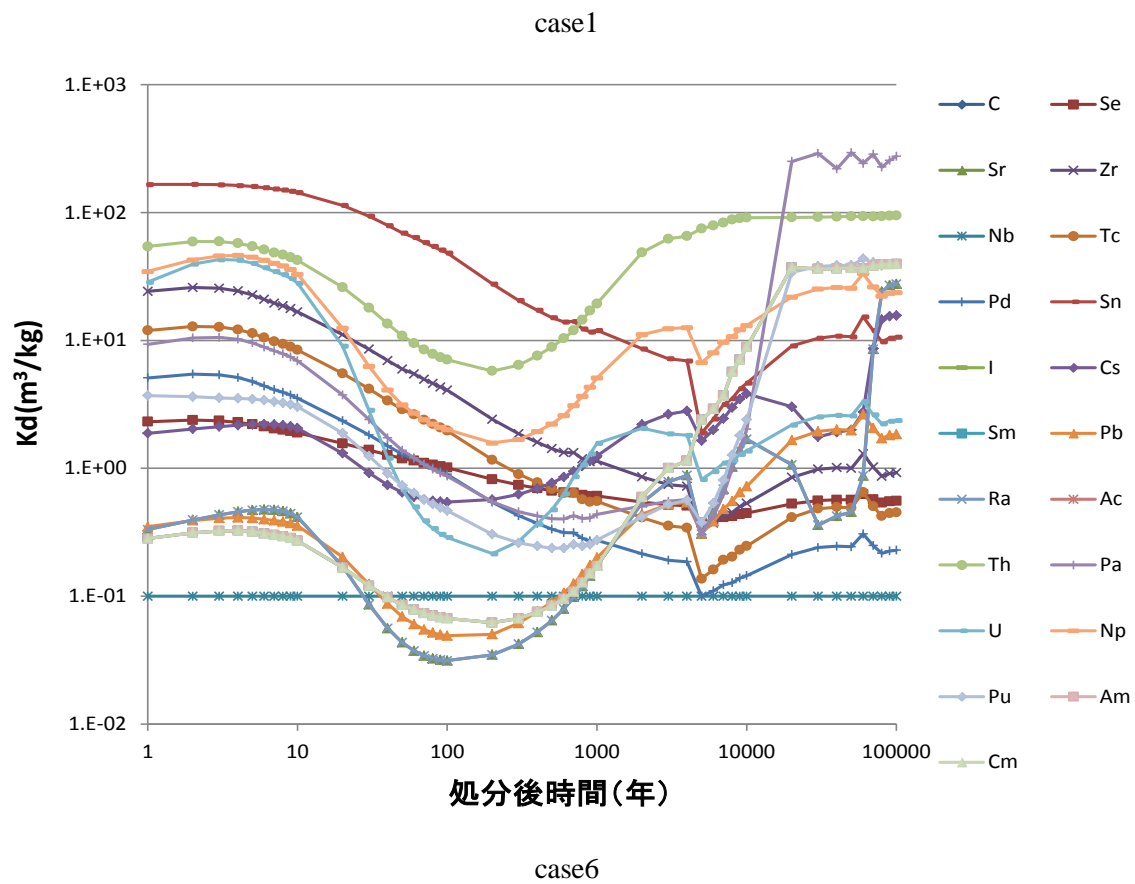
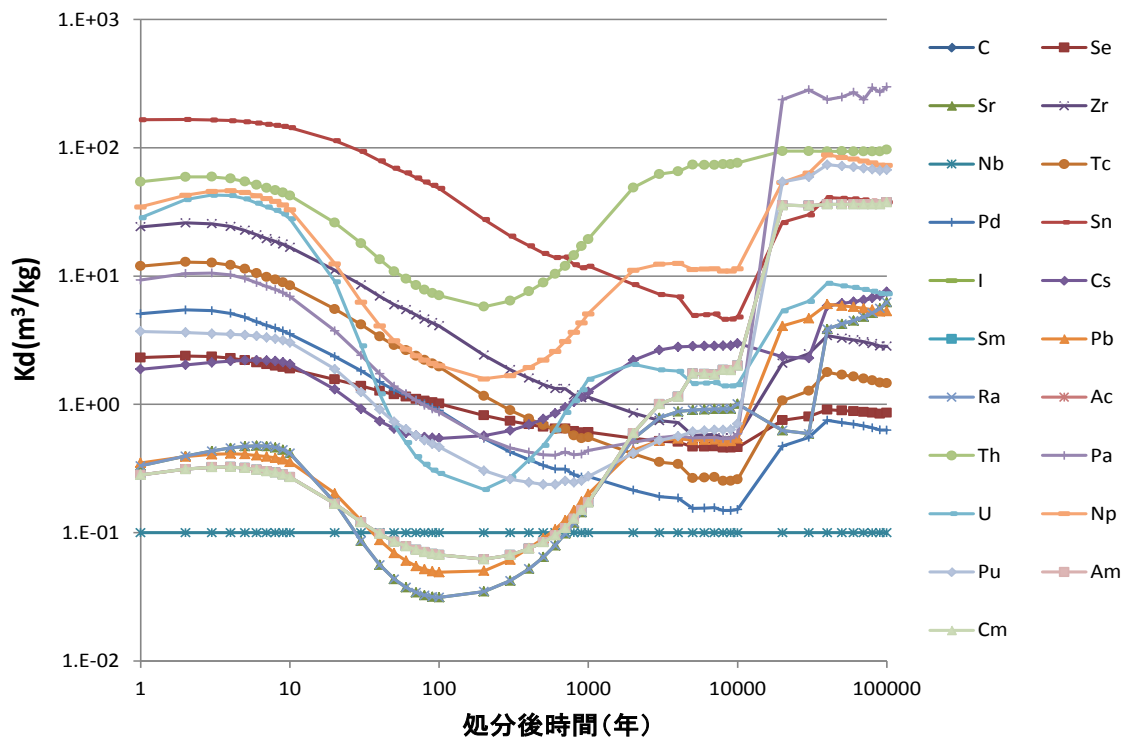
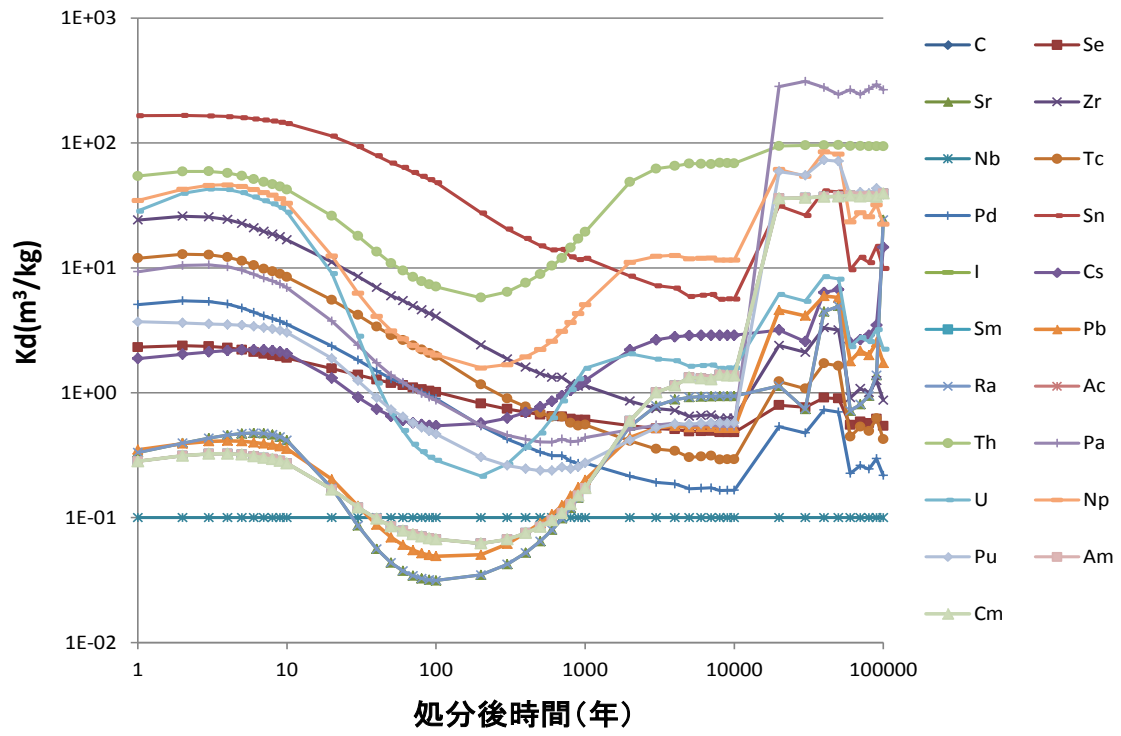
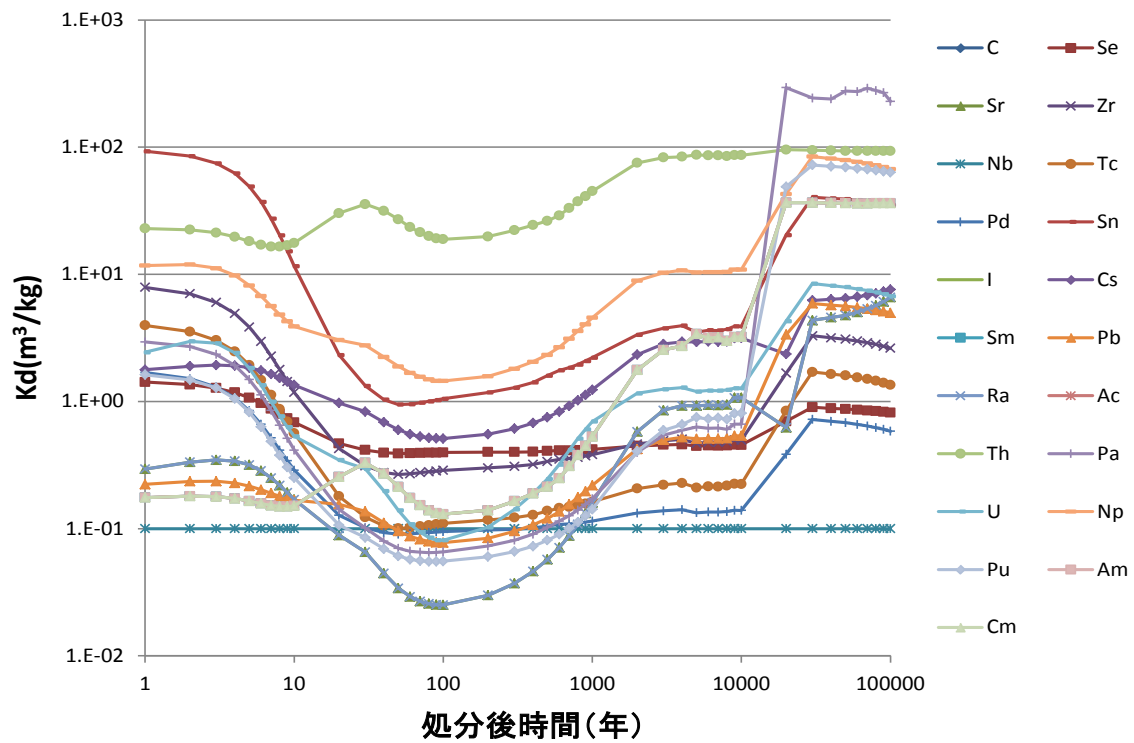


図 6.2-25 各解析ケースにおける収着分配係数の経時変化 (1/3)

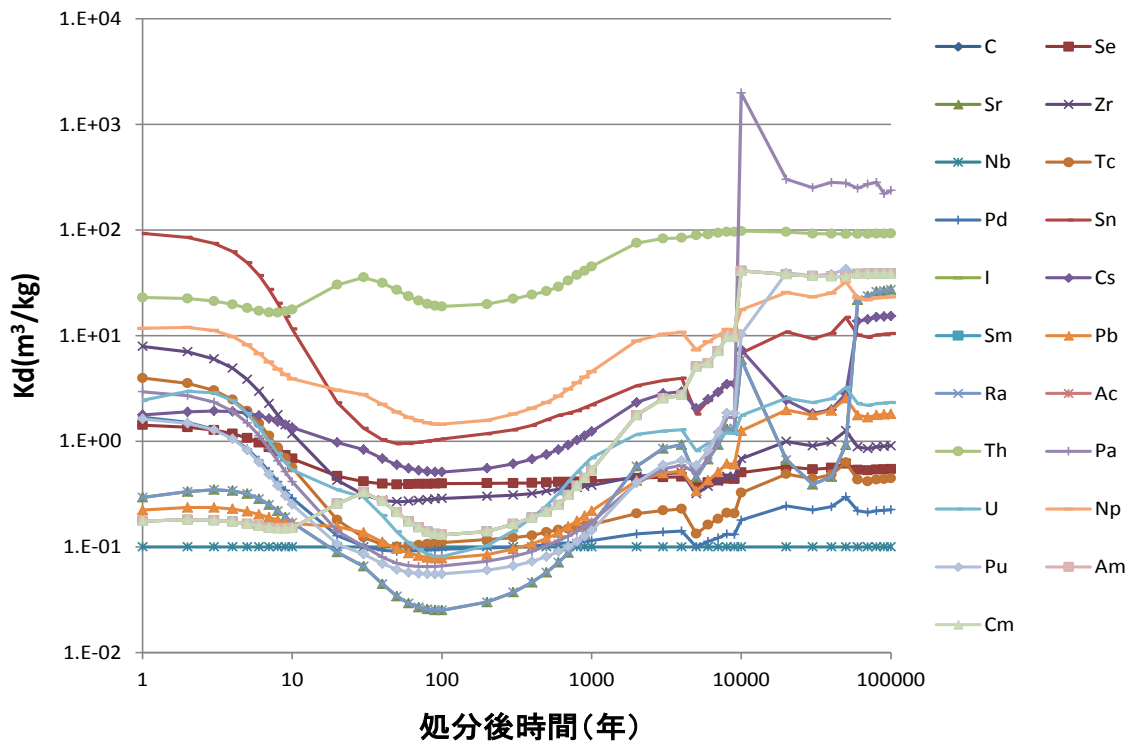


case7



case8

図 6.2-25 各解析ケースにおける収着分配係数の経時変化 (2/3)



case12

図 6.2-25 各解析ケースにおける収着分配係数の経時変化 (3/3)

6.2.3 核種移行解析

6.2.2 では、緩衝材変質・間隙水組成の変遷の進行に伴う溶解度、核種拡散係数、吸着分配係数の核種移行パラメータの変動を 6.2.1(5)で選定したケースについて設定した。これらの核種移行パラメータの設定結果に基づいて、確率論的安全評価コード GSRW-PSA⁽¹¹⁾⁽¹²⁾コード⁽¹³⁾を用いて人工バリアフラックスを計算した。核種移行解析の解析結果を以下に示す。なお、緩衝材中の地下水実流速については、平成 25 年度の人工バリア変遷解析のリファレンスケース (case 1、降水系地下水、緩衝材厚さ 70cm、支保工厚さ 60cm)⁽¹⁴⁾を参考に、全ケースで時間変化は与えず 1×10^{-6} m/y と設定した。なお、この地下水流速と設定した拡散係数に対するペクレ数は 0.01 程度であり、すべての時間に対して緩衝材における物質移行は拡散支配となっている。

GSRW-PSA コードによる人工バリアの核種移行解析では、人工バリアの構成要素であるデブリ廃棄体、オーバーパック、緩衝材及び岩盤を一次元体系として、これらの連続したコンパートメントとして考えることにより核種移行解析を行う。オーバーパックの破損後、デブリの溶解により溶出した核種の濃度は、溶解度限度よりも高い場合、その溶解度に核種濃度は制限される。核種の溶解及び沈殿の現象は瞬時／可逆を仮定し、溶解度を制限する固層が沈殿している場合、溶解度を維持するための再溶解が生じる。緩衝材中の核種は移流－拡散により移行する。なお、オーバーパックは破損によりバリア機能を失うとし、破損後の核種移行の遅延機能は考慮しない。また、支保工についても核種移行に対するバリア機能は考慮せず、評価体系に組み込んでいない。したがって、人工バリア移行フラックスは、緩衝材外側のフラックスである。

(a) 10 万年以降の設定による影響解析

OP 破損 4,000 年の場合の、10 万年以降の緩衝材に関する設定を 10 万年時の状態を継続させる設定 (case1) と緩衝材性能が喪失したとする設定 (case1deg) のそれぞれについて、6.2.2 で設定した核種移行パラメータを使用して人工バリアからの核種移行フラックスの経時変化を求めた結果を図 6.2-26 に示す。

4,000 年破損でピークフラックスが高かった核種は、Pu-240、Pu-239 で 10^5 Bq/y に達していた。系列外核種では、Nb-93m、C-14、I-129 が 10^5 Bq/y 近くまで達していた。ただし、これらの核種は 10 万年までにフラックスのピークが出現していることから、継続/喪失の設定による違いは見られなかった。

上記の核種と比べるとピーク値は低いものの、フラックスの経時変化やピーク値に継続/喪失の設定の違い (case1 と case1deg) の影響がいくつかの核種で現れている。特に顕著に表れている核種は、4n+1 系列の Np-237 以下の核種 (Np-237-U-233-Th-229-Ra-225)、4n+2 系列の U-238 以下の核種 (U-238-Th-234-Th-230-Ra-226)、4n+3 系列の U-235 以下の核種 (U-235-Pa-231-Ac-227-Th-227-Ra-223) であった。これらの系列核種については、系列親核種と子孫核種が放射平衡にほぼ到達しているため、case1 では、各核種の分配係数の違いにより親核種のフラックスの相似的なフラックスが人工バリアから放出されているが、case1deg では、全ての核種に分配係数ゼロを設定したため、親核種と同一のフラックスとなって人工バリアから放出される結果となった。

このような要因に伴い、case1deg において 10 万年後に急激にフラックスが上昇した核種には、Np-237、Th-229、Th-234、Th-230、Pa-231、Th-227 があつた。これらの核種は元素としての分配係数が 10 万年までとそれ以降の喪失設定とで大きく変化したが、フラックスの大きな変化として現れたものと考えられる。また、4n+1 系列の Ra-225 では、case1 ではフラックスのピ

ークが 100 万年以降に出現すること、上記のように親核種の Th-229 が case1deg では 10 万年以降のフラックスが急上昇したことの相乗効果により、ピークフラックスが case1deg の方が高くなる結果が見られた。

Pu-242、Pu-239 は、case1deg で 10 万年以降、フラックスが大きく上昇している。Pu-242 は放射平衡になる核種ではないため、元素としての分配係数が 10 万年までとそれ以降の喪失設定とで大きく変化したことによるものと考えられる。

系列外の核種については、Sn-126 が Np-237 などと同様に 10 万年後に急激にフラックスが上昇した。この理由も、元素としての分配係数が 10 万年までとそれ以降の喪失設定とで大きく変化したためと考えられる。一方、case1deg の Nb-93m、Zr-93、Se-79 については、case1 と大きな変化がないフラックス変化となったが、これは case1 でも分配係数が低い値であり、両ケースでの分配係数の違いが大きく変化しなかったためと考えられる。

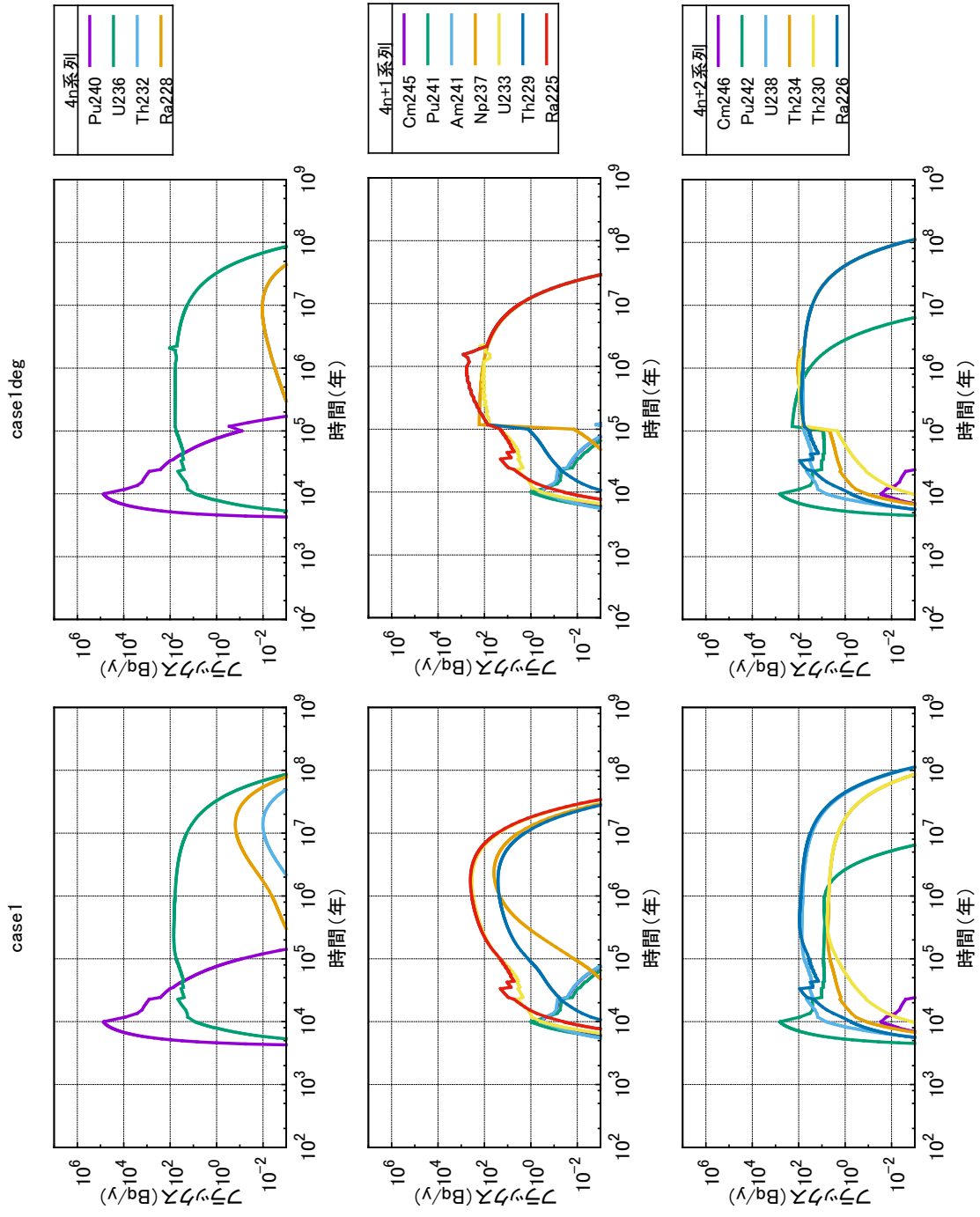


図 6.2-26 10 万年以降の設定を継続/喪失としたときの核種移行フラックス (OP 破損 4,000 年) (1/2)

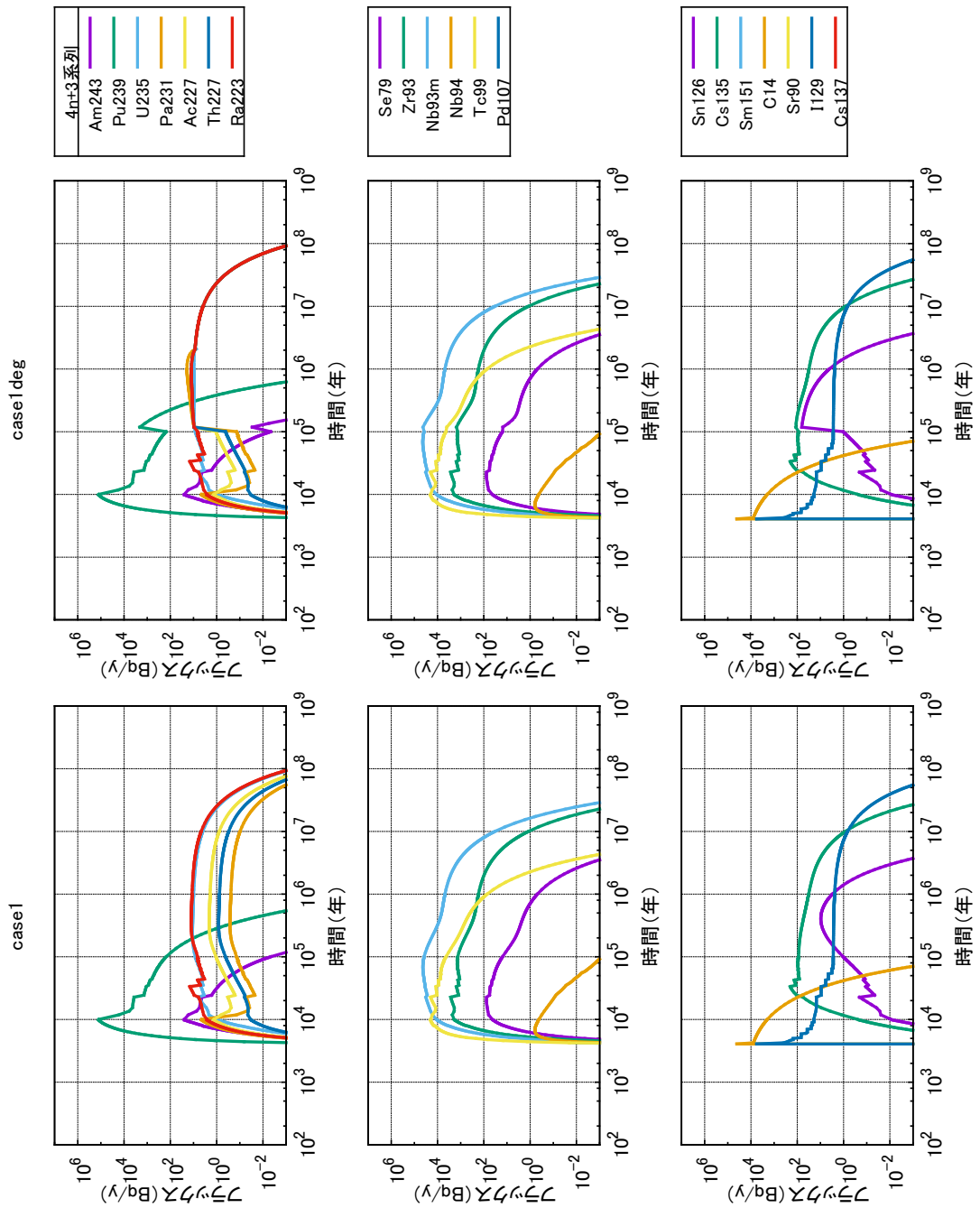


図 6.2-26 10 万年以降の設定を継続/喪失としたときの核種移行フラックス (OP 破損 4,000 年) (2/2)

OP 破損 5 万年の場合の、継続/喪失の設定について、解析した人工バリアからの核種移行フラックスの経時変化を図 6.2-27 に示す。

OP 破損 5 万年になると、OP 破損 4,000 年の case1 でフラックスのピークが高かった Pu-240 は、case2 で確認できないほど、Pu-239 は 6 桁程度減少した。また、Pu-239 はピーク時間が 1 万年から約 20 万年まで後退した。これは、Pu-240 の半減期が約 6,600 年、Pu-239 の親核種である Am-243 の半減期が 7,400 年と短いため、5 万年の OP 破損までに大きく減衰してしまったことによると考えられる。なお、Pu-242 もピーク時間が 1 万年から 100 万年まで後退した。系列外核種では半減期の短い C-14 のピークフラックスの減少が大きい、他の 2 核種は半減期が長い (Nb-93m は親核種の Zr-93) ため、case1 と比較してフラックスの立ち上がり時期が遅れたこと、緩衝材性能が I-129 にとって 4,000 年より 5 万年時の方が劣化したことにより高いピーク値となったこと以外に大きな違いは見られなかった。

放射平衡となる各系列核種についての case2 と case2deg との特徴の差違は case1 と case1deg の特徴の差違について述べた傾向と同じであった。さらに、case1deg において 10 万年後に急激にフラックスが上昇した Np-237、Th-229、Th-234、Th-230、Pa-231、Th-227 についても同様の傾向が見られた。

Pu-242、Pu-239 については case1 と case1deg のフラックスの傾向の違いと異なり、ピーク値自体が case2 より case2deg が Pu-242 で 1 桁以上、Pu-239 では 4 桁以上高くなるなど大きく異なる結果となった。

系列外の核種については、10 万年後に急激にフラックスが上昇した Sn-126 についても case1 と case1deg の特徴の差違について述べた傾向と同様であった。一方、case2deg の Nb-93m、Zr-93、Se-79 については case2 と大きな変化がないフラックス変化となったが、これは case2 でも分配係数が低い値であったことによるものと考えられる。

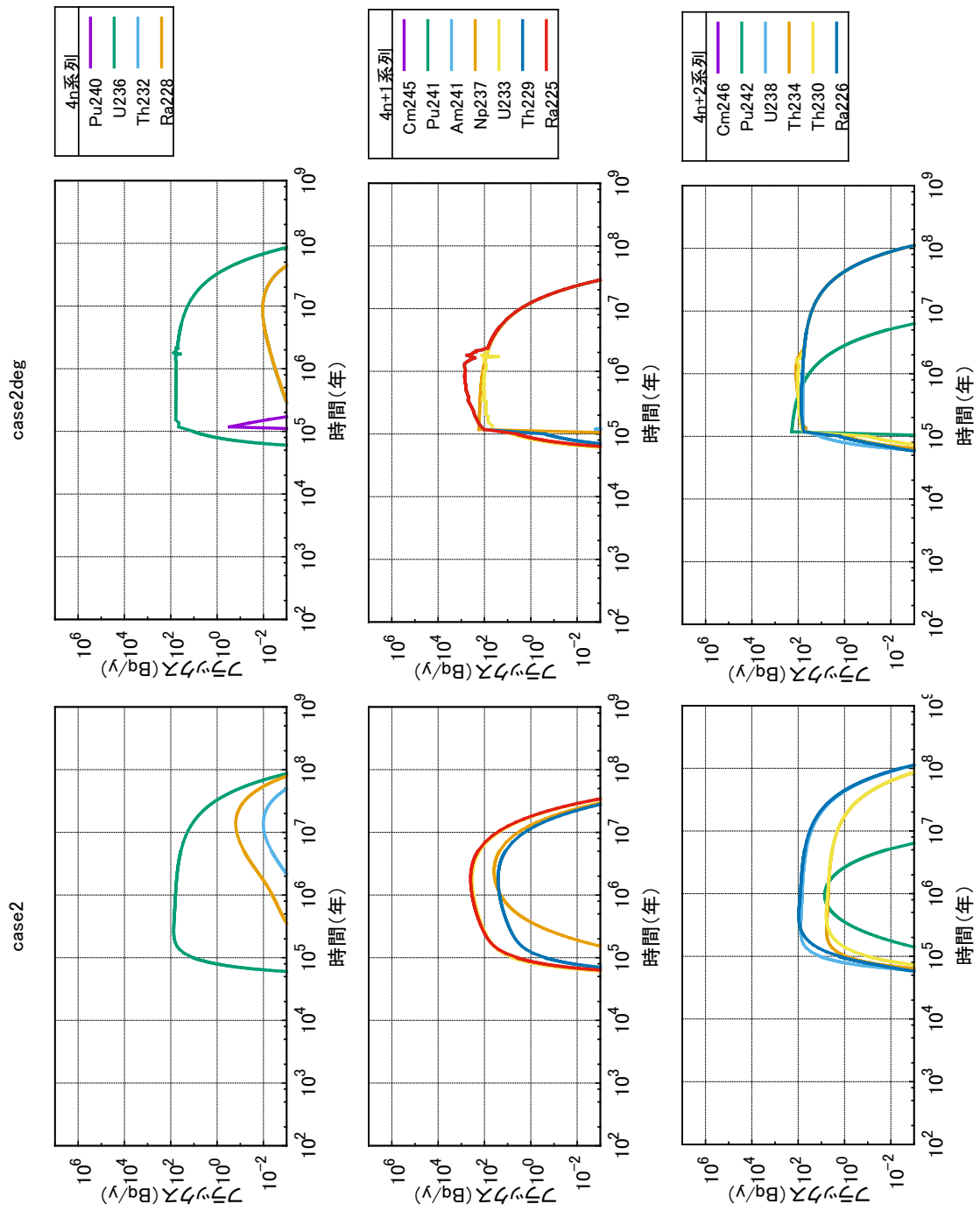


図 6.2-27 10 万年以降の設定を継続/喪失としたときの核種移行フラックス (OP 破損 5 万年) (1/2)

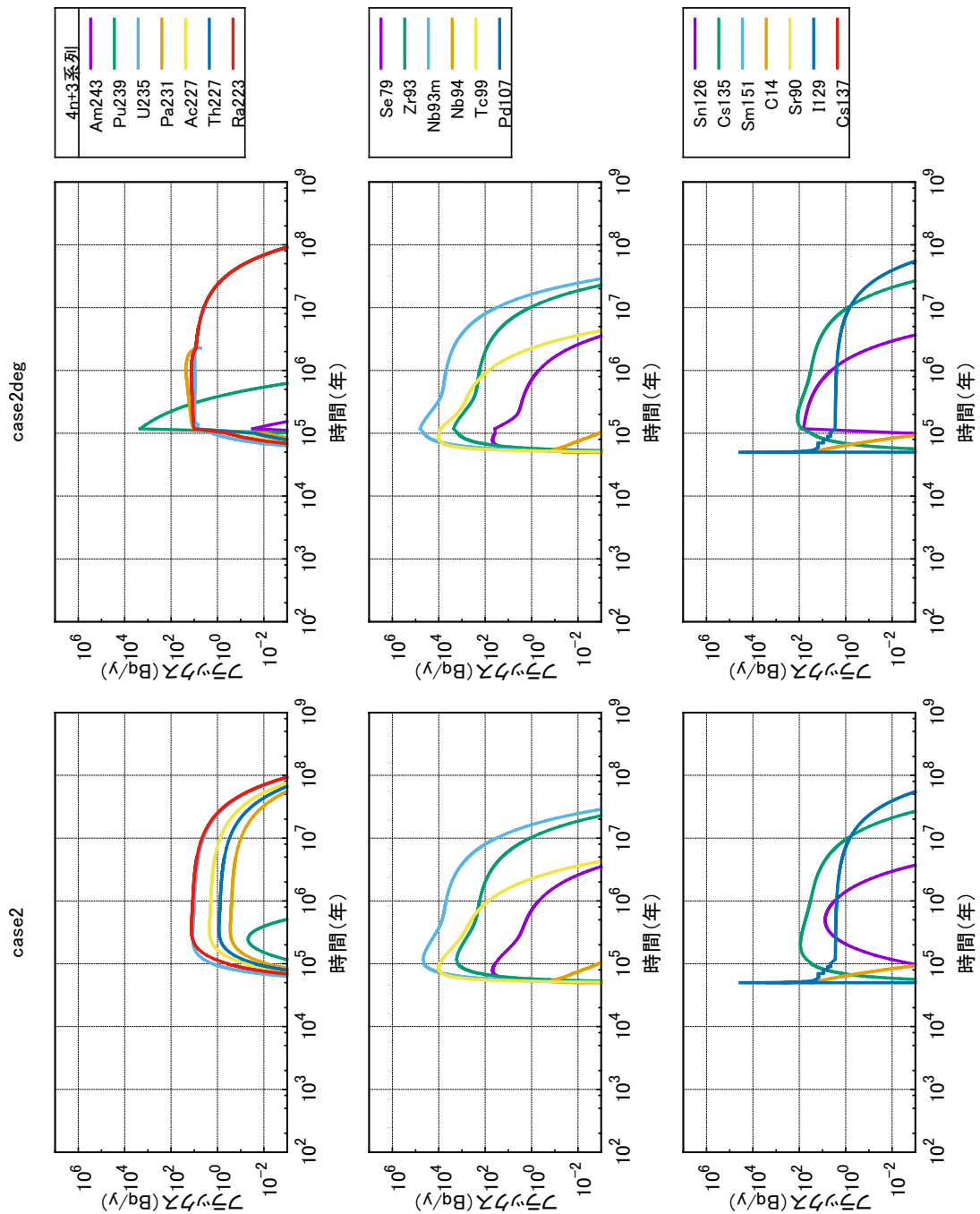


図 6.2-27 10 万年以降の設定を継続/喪失としたときの核種移行フラックス (OP 破損 5 万年) (2/2)

OP 破損 10 万年の場合の、継続/喪失の設定について、解析した人工バリアからの核種移行フラックスの経時変化を図 6.2-28 に示す。

OP 破損 10 万年の、継続/喪失の設定の違いによる case3、case3deg の 4n~4n+3 の系列核種についてのフラックス変化の傾向は、5 万年破損のケース (case2、case2deg) のフラックス変化から、半減期の短い核種や、ピークフラックスの小さかった核種がより整理された傾向であるものの、全体的にはほぼ同様の傾向であった。それ以外の核種については、5 万年の OP 破損

の case2deg で大きなピークフラックスが生じた Sn-126 以外にも、Nb-93m、Tc-99、Se-79、Cs-135、I-129 などの長寿命の核種で、10 万年時に case3 と比較して 1 桁程度大きなピークが発生した。これらは、OP 破損 10 万年時点で既に緩衝材機能が喪失し分配係数をゼロに設定した影響であると考えられる。

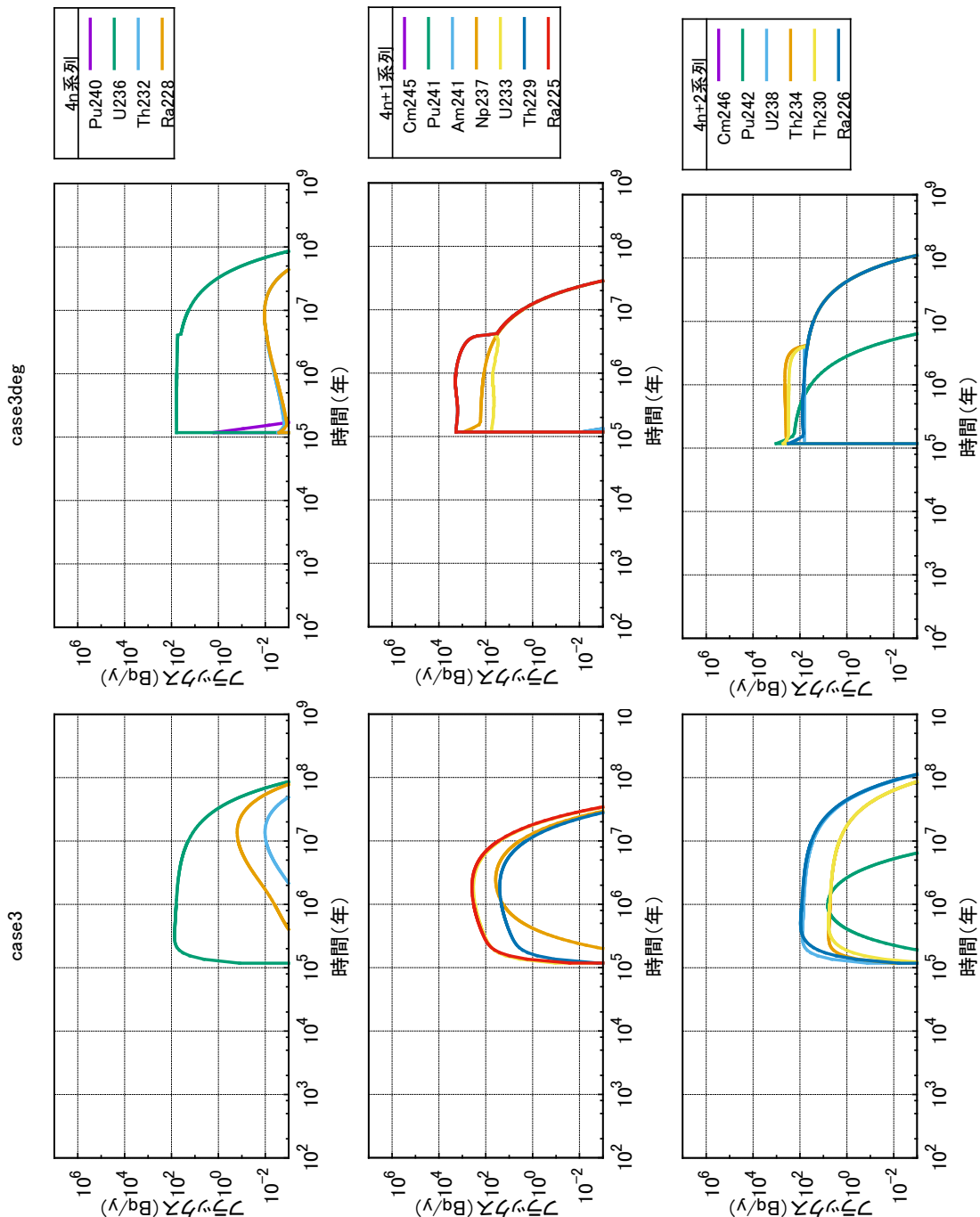


図 6.2-28 10 万年以降の設定を継続/喪失としたときの核種移行フラックス (OP 破損 10 万年) (1/2)

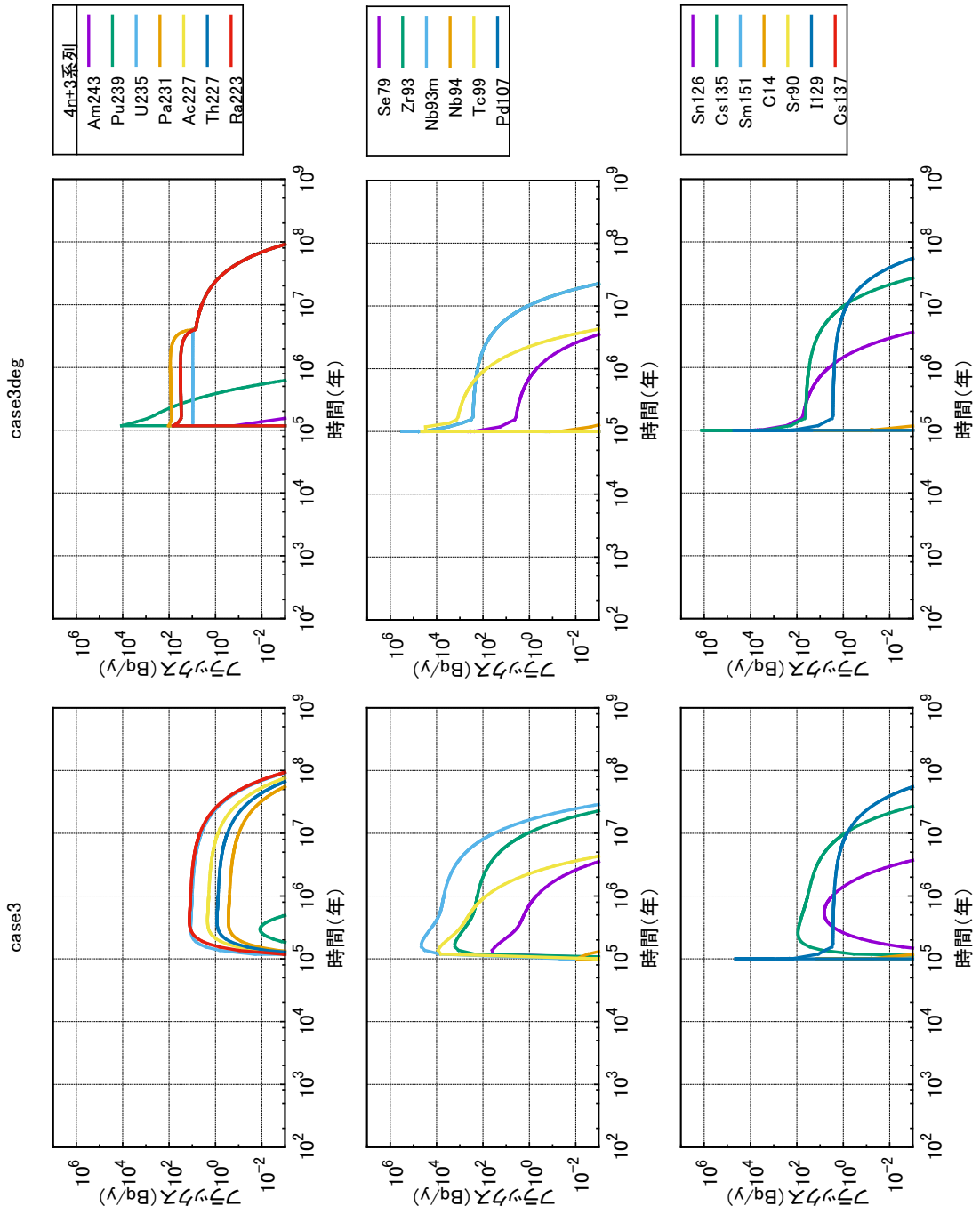


図 6.2-28 10 万年以降の設定を継続/喪失としたときの
核種移行フラックス (OP 破損 10 万年) (2/2)

以上の結果をまとめたものを表 6.2-9 に示す。なお、放射平衡核種は、Np-237 以下の核種 (Np-237-U-233-Th-229-Ra-225)、 $4n+2$ 系列の U-238 以下の核種 (U-238-Th-234-Th-230-Ra-226)、 $4n+3$ 系列の U-235 以下の核種 (U-235-Pa-231-Ac-227-Th-227-Ra-223)、他の系列核種は、Pu-240、Pu-242、Pu-239、Pu-241、Am-241、Cm-246、Am-243 など、その他の核種は、Nb-93m、C-14、I-129 などを指す。

表 6.2-9 10 万年以降の設定の違いによる OP 破損時間毎の人工バリアからのフラックス経時変化の特徴

	継続設定	劣化設定
4000 年破損	放射平衡核種：分配係数比に応じ親核種と相似的な経時変化。 他の系列核種：Pu-240、Pu-239 のピークが特に高い。Pu-242、Pu-239 を除いた短半減期核種は 10 万年までに下降。 その他の核種：Nb-93m、C-14、I-129 が 10^5 Bq/y 近くまで到達。	放射平衡核種：Kd ゼロを設定したため親核種と同一の経時変化。これに伴い Np-237、Th-229、Th-234、Th-230、Pa-231、Th-227 は 10 万年時に上昇。Ra-225 は 100 万年以降に再上昇。 他の系列核種：Pu-242、Pu-239 は 10 万年時に再上昇 (Kd ゼロによる)。 その他の核種：Sn-126 は 10 万年時に再上昇 (Kd ゼロの影響)。
5 万年破損	放射平衡核種：分配係数比に応じ親核種と相似的なより明確な経時変化。 他の系列核種：Pu-242 のピークは若干、Pu-240、Pu-239 は大きく減少。Pu-239 のピークは 1 万年から約 20 万年に、Pu-242 は 100 万年に後退。 その他の核種：C-14 のみピークが減少。	放射平衡核種：Kd ゼロを設定したため親核種と同一の経時変化。これに伴い Np-237、Th-229、Th-234、Th-230、Pa-231、Th-227 は 10 万年時により明確な上昇。 他の系列核種：Pu-242、Pu-239 のピークが 10 万年直後に出現。値も継続設定よりそれぞれ 1 桁、4 桁大きい。 その他の核種：Sn-126 のピークが 10 万年直後に出現。値も継続設定より 1 桁大きい。Sn-126 以外には大きなフラックス変化はない。
10 万年破損	放射平衡核種：同上の傾向 他の系列核種：同上の傾向 その他の核種：同上の傾向	放射平衡核種：同上の傾向 他の系列核種：同上の傾向 その他の核種：Sn-126 以外にも、Nb-93m、Tc-99、Se-79、Cs-135、I-129 などの長寿命の核種で 10 万年時に継続設定より 1 桁程度大きなピークが発生 (Kd ゼロの影響)。

また、継続/喪失の設定の変更により、人工バリアからの核種フラックスのピーク値が OP の破損時期の違いにより大きく異なる結果となった核種は、表 6.2-10 のようにまとめられた。

表 6.2-10 10 万年以降の設定の変更により OP 破損時間毎の人工バリアからのピークフラックス値が高くなった核種

	継続設定よりも喪失設定でピークが高くなった核種
4000 年破損	放射平衡核種：Np-237、Th-229、Th-234、Th-230、Th-227 他の系列核種：なし その他の核種：Sn-126
5 万年破損	放射平衡核種：Np-237、Th-229、Th-234、Th-230、 Pa-231 、 Ac-227 、Th-227 他の系列核種： Pu-240 、 Pu-242 、 Am-243 、 Pu-239 その他の核種：Sn-126
10 万年破損	放射平衡核種：Np-237、Th-229、 Ra-225 、 U-238 、Th-234、Th-230、 Ra-226 、Pa-231、Ac-227、Th-227、 Ra-223 他の系列核種：Pu-240、Pu-242、Am-243、Pu-239 その他の核種： Se-79 、 Zr93 、 Nb-93m 、 Nb-94 、 Tc-99 、Sn-126、 Cs-135 、 I-129

これのうち、青字で示した核種が 5 万年破損で追加された理由は、OP 破損時期が 4,000 年の場合には 1 万年でピーク値が出現しているため両設定で違いが無かった状況が、OP 破損時期が遅くなることにより、減衰してもなお残った核種 (Pu-240、Pu-242、Am-243、Pu-239) および、親核種と放射平衡になっている核種 (Pa-231、Ac-227) の移行に、緩衝材設定が 10 万年以降の設定 (特に分配係数設定) へと変更されたことに大きく影響されたものと考えられる。

また、U-238 を除くアンダーラインで示した核種が 10 万年破損で追加された理由は、それぞれの親核種 (Np-237、U-238、U-235) の 10 万年時のフラックスの急上昇による増加部分の放射平衡への寄与が、これらの子孫核種のフラックスを押し上げたことによるものと考えられる。このフラックスの急上昇は、OP 破損時点で既に緩衝材性能が喪失した状態になっているという設定のためであるが、赤字で示した核種が 10 万年破損で追加された理由も、10 万年時のフラックスの急上昇の影響であり、特に Se-79、Tc-99、I-129、Cs-135 の核種については瞬時放出インベントリとして設定された 2~4% の成分がパルス状のピークを形成したことによると考えられる。

(b) 廃棄体からの発熱による影響解析

発熱を考慮した設定と廃棄体からの発熱を考慮せず地温一定とした設定との比較において、MCCI成分およびセメント成分を0%としたケース（case1およびcase8）の結果を図6.2-29に示す。ピークフラックスの高かった核種のうち、設定の違いによる影響が大きかった核種は、Pu-240、Pu-239で、case1で約 10^5 Bq/yであった値がcase8では約 10^4 Bq/yと、1桁程度の上昇が見られた。4n+1系列核種では、上記核種と比較してピークフラックスは相対的に小さいもののCm-245、Pu-241、Am-241はcase1が2桁程度高かった。4n+2系列核種ではPu-242、また4n+3系列核種ではAm-243は4n+1系列と同様にcase1が1桁以上高くなる結果となった。一方、系列外核種においては発熱考慮の有無の設定による違いは見られず、全体的にほぼ同様の傾向であった。

6.2.1(4)(b)で述べたように、case1とcase8では、case1の有効モンモリロナイト密度は初期の1万年でcase8より低く、それ以降はcase1が高くなっている以外は、間隙率、pH、Ehも両ケースでそれほど顕著な違いは見られなかった。Pu-240、Pu-239でcase1のピーク値が高かったのは、ピークの出現時期が1万年と、上記の有効モンモリロナイト密度の低い時期に合致したためと考えられる。これに相当する期間について、Puに対する分配係数と溶解度を比較してみると、分配係数はcase8の方が1桁弱低いものの、溶解度についてはcase8の方が約1桁小さくなっており、溶解度制限がかかっている状態であることが分かった。このため、ピークフラックスの値はcase1よりcase8の方が小さくなったものと考えられる。また、Cm、Amについては、この期間、分配係数はそれほど差が無いが、溶解度がcase8の方が小さくなっており、その影響でピークフラックスに差ができたものと考えられる。

(c) セメント成分による影響解析

廃棄体にMCCI生成物およびセメント成分が含まれない設定とMCCI生成物およびセメント成分がそれぞれ30%ずつ含まれる設定との比較において、廃棄体からの発熱を考慮し、OP破損時期が4,000年の場合の解析ケース（case1、case6）の結果を図6.2-29と図6.2-30にそれぞれ示す。ピークフラックスが高いPu-240、Pu-239は、セメント成分を含むcase6が約1桁低くなる結果となった。4n系列核種ではRa-228のピークが1桁弱低くなっていた。4n+1系列核種ではNp-237のピーク値がcase6の方が高くなっており、立ち上がりも早くなっていた。また、Cm-245、Pu-241、Am-241については、case6には現れないほど低いフラックスとなっていた。Ra-225についてはcase6のみ 10^4 ~ 10^5 年にピークが出現する結果となった。4n+2系列核種ではPu-242のcase6の方が約1桁低くなる結果となった。U-238はcase6の方がフラックスピークにかけて上昇が急になるとともに、ピーク値も高くなっていた。またRa-226は、4n+1系列のRa-225と同様の変化が見られた。4n+3系列核種ではAm-243がcase6の方が2桁以上低くなった。U-235とRa-223については、4n+2系列のU-238、Ra-226と同様な傾向であった。系列外核種では、Sn-126のcase6におけるピーク値が1桁少々高くなり、ピーク位置もやや早くなった。またCs-135は、case6でピークがやや低くなる結果となった。

セメント成分がある場合（case6）の方が、Puのピーク値が低下した原因は、溶解度の1桁低下により溶解度制限がかかったためであると考えられる。また、他の主な放射平衡の親核種のフラックスについてcase6の方が高くなった原因は、分配係数がcase6の方がUでおおよそ1桁など、概ね低下したためと考えられる。

一方、MCCI生成物およびセメント成分がそれぞれ30%ずつ含む設定において、廃棄体からの発熱を考慮したOP破損時期が4,000年破損と5万年の場合の解析ケース（case6、case7）の結果を図6.2-30と図6.2-31にそれぞれ示す。case6でピーク値の高かったPu-240、Pu-239は、

case7 では Pu-240 は確認できないほど、Pu-239 は 6 桁程度減少した。また、case6 で既にピークが低かった Pu-241、Am-241、Am-243 などは、case7 ではフラックスが確認できないほど低下した。4n+1 系列、4n+2 系列、4n+3 系列では、OP 破損時期のずれに応じたフラックスの時間ずれが生じた。また、それぞれの系列の末端の核種となる Ra-225、Ra-226、Ra-223 のフラックスは、case6 のそれぞれの核種の 5 万年以前のフラックス部分が整理され、case7 の 5 万～10 万年にわたるピークに集約されるような特徴的な変化を示していた。このような Ra の特徴的なピークは、セメント成分を含まない OP 破損 5 万年の設定である case2 の傾向と異なるもので、セメント成分による分配係数の低下によるものと考えられる。

次に廃棄体からの発熱を考慮せず地温一定とした設定において、廃棄体に MCCI 生成物およびセメント成分が含まれない設定と MCCI 生成物およびセメント成分がそれぞれ 30% ずつ含まれる設定 (case8、case12) の結果について図 6.2-29 および図 6.2-30 にそれぞれ示す。ピークフラックスが高い Pu-240、Pu-239 は、case12 の方が 1 桁以上低くなり、廃棄体からの発熱を考慮した場合と同様の結果となった。4n 系列核種の Ra-228、4n+1 系列核種の Np-237、Ra-225 については、廃棄体からの発熱を考慮した場合の case1 および case6 と同様の傾向であった。また、Cm-245、Pu-241、Am-241 については、case12 が 2 桁以上低くなる結果となった。4n+2 系列核種では Pu-242 のピークが case6 は 10^4 年に出ていたが、case12 では 10^4 年のピークが 1 桁以上小さくなったことにより $10^5 \sim 10^6$ 年のフラックスがピークになった。4n+3 列核種の Am-243、系列外核種の Sn-126 については、廃棄体からの発熱を考慮した場合の case1 および case6 と同様であった。また Cs-135 においては、Pu-242 と同様に $10^4 \sim 10^5$ にピークがずれる結果となった。

case1 と比較して Pu-240、Pu-239、Pu-241、Cm-245、Am-241 のピークが低くなった case8 よりもさらに case12 でピーク値が低下した原因は、0～1 万年の期間の case8 よりも、Pu の溶解度がさらに 1 桁低下したため、溶解度制限による液相中濃度がより低下したことによると考えられる (図 6.2-32)。その他の違いの影響は、分配係数の違いによるものと考えられる。

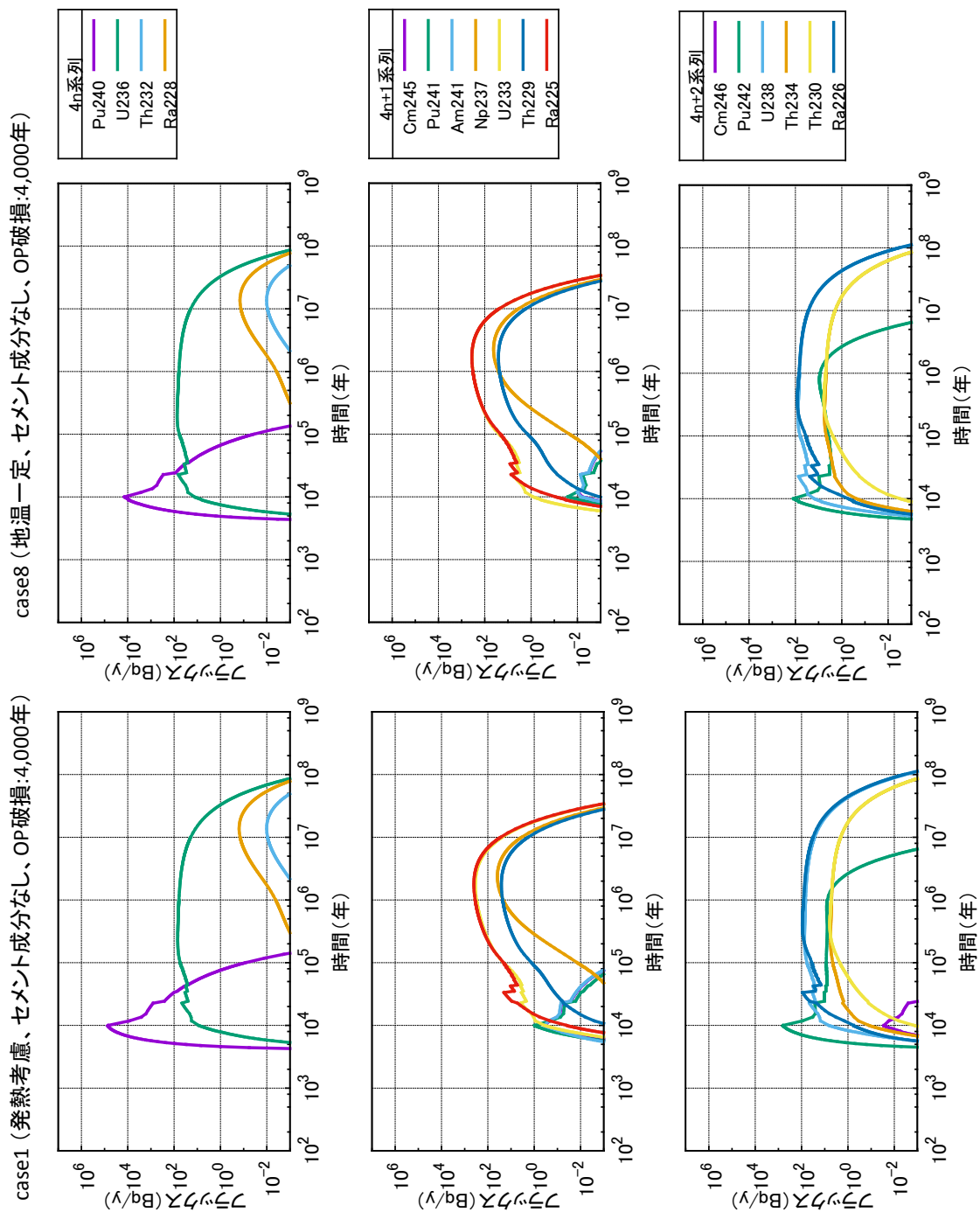


図 6.2-29 各解析ケースの核種移行フラックス (case1、case8) (1/2)

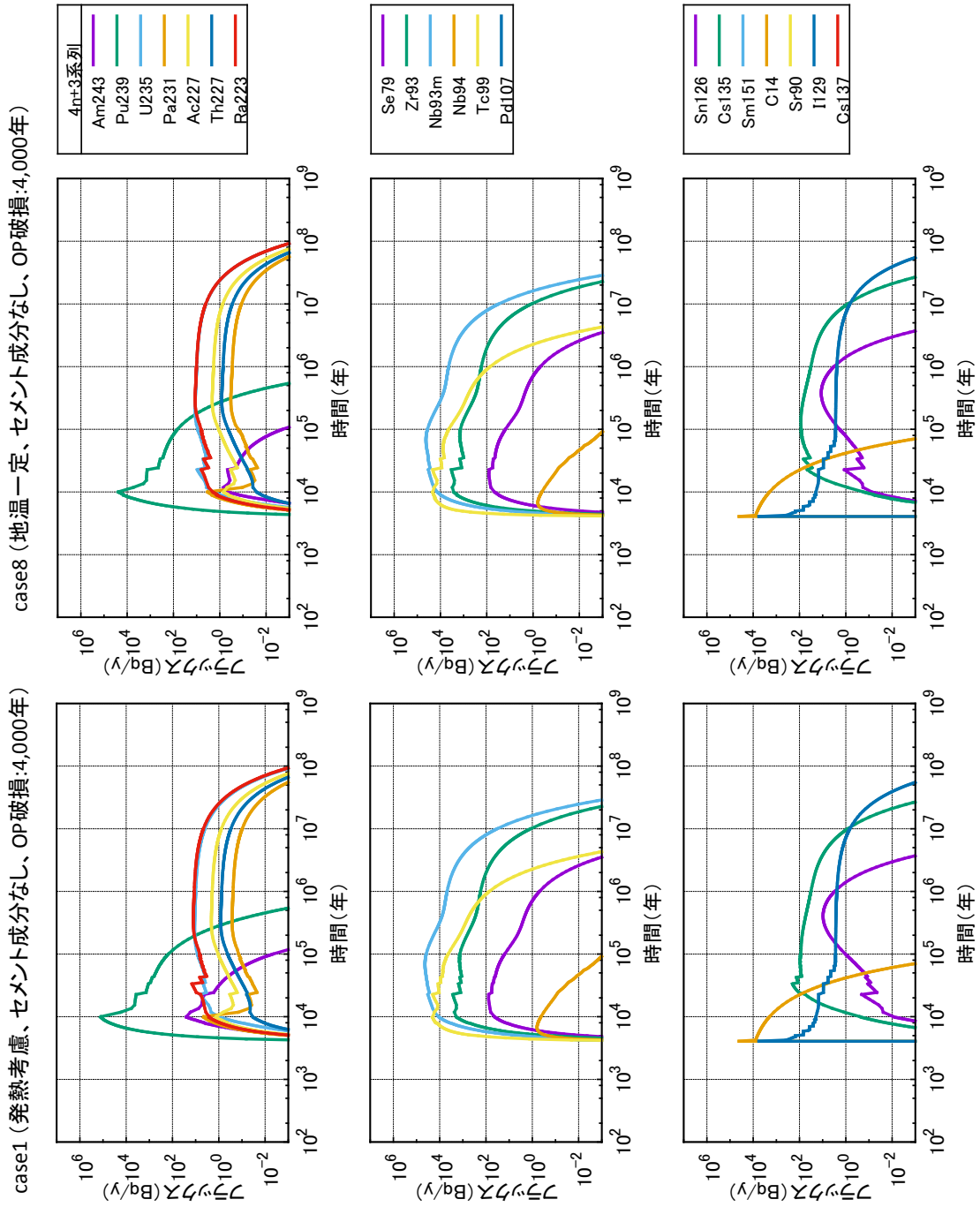


図 6.2-29 各解析ケースの核種移行フラックス (case1、case8) (2/2)

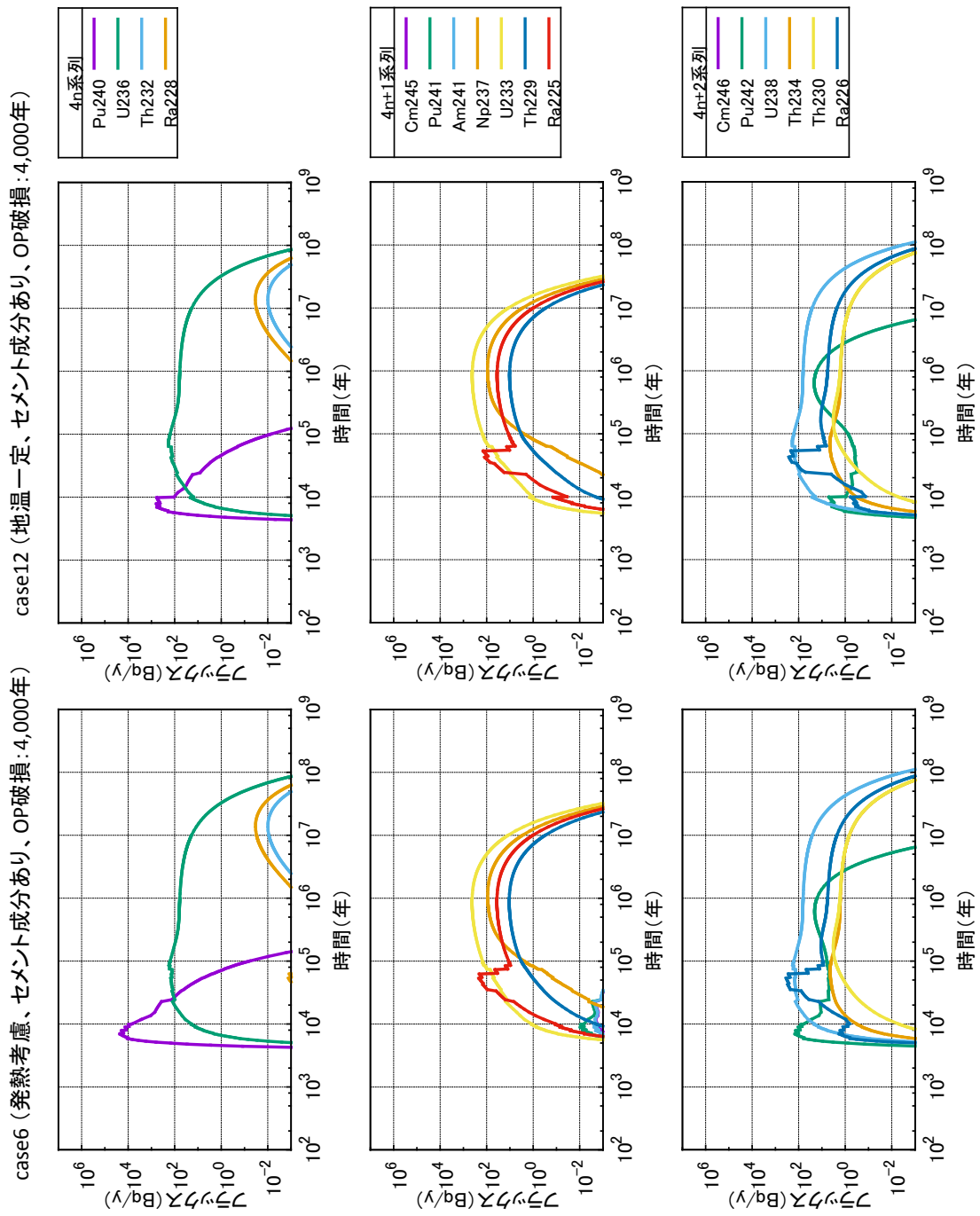


図 6.2-30 各解析ケースの核種移行フラックス (case6、12) (1/2)

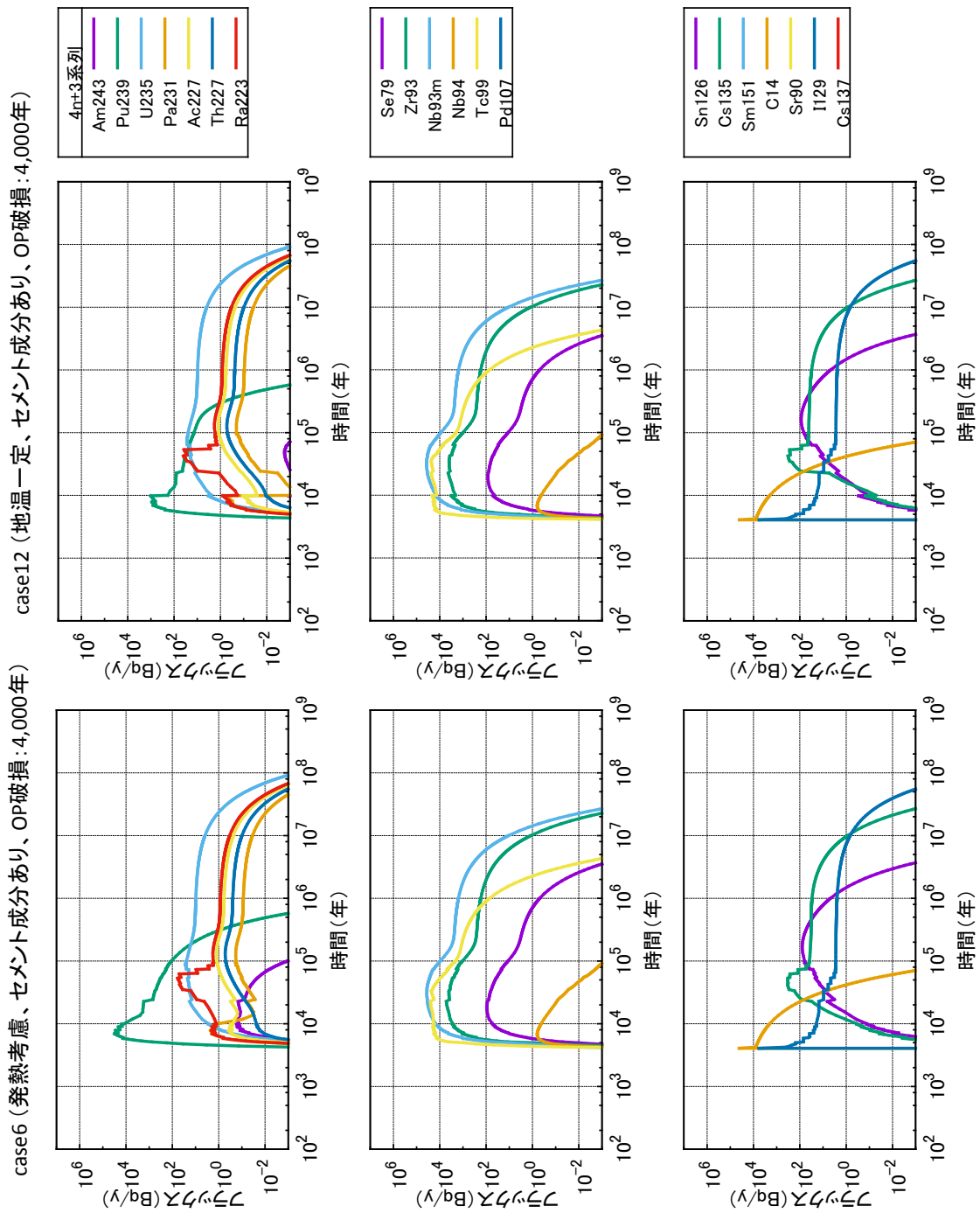


図 6.2-30 各解析ケースの核種移行フラックス (case6、12) (2/2)

case7 (発熱考慮、セメント成分あり、OP破損時期：50,000年)

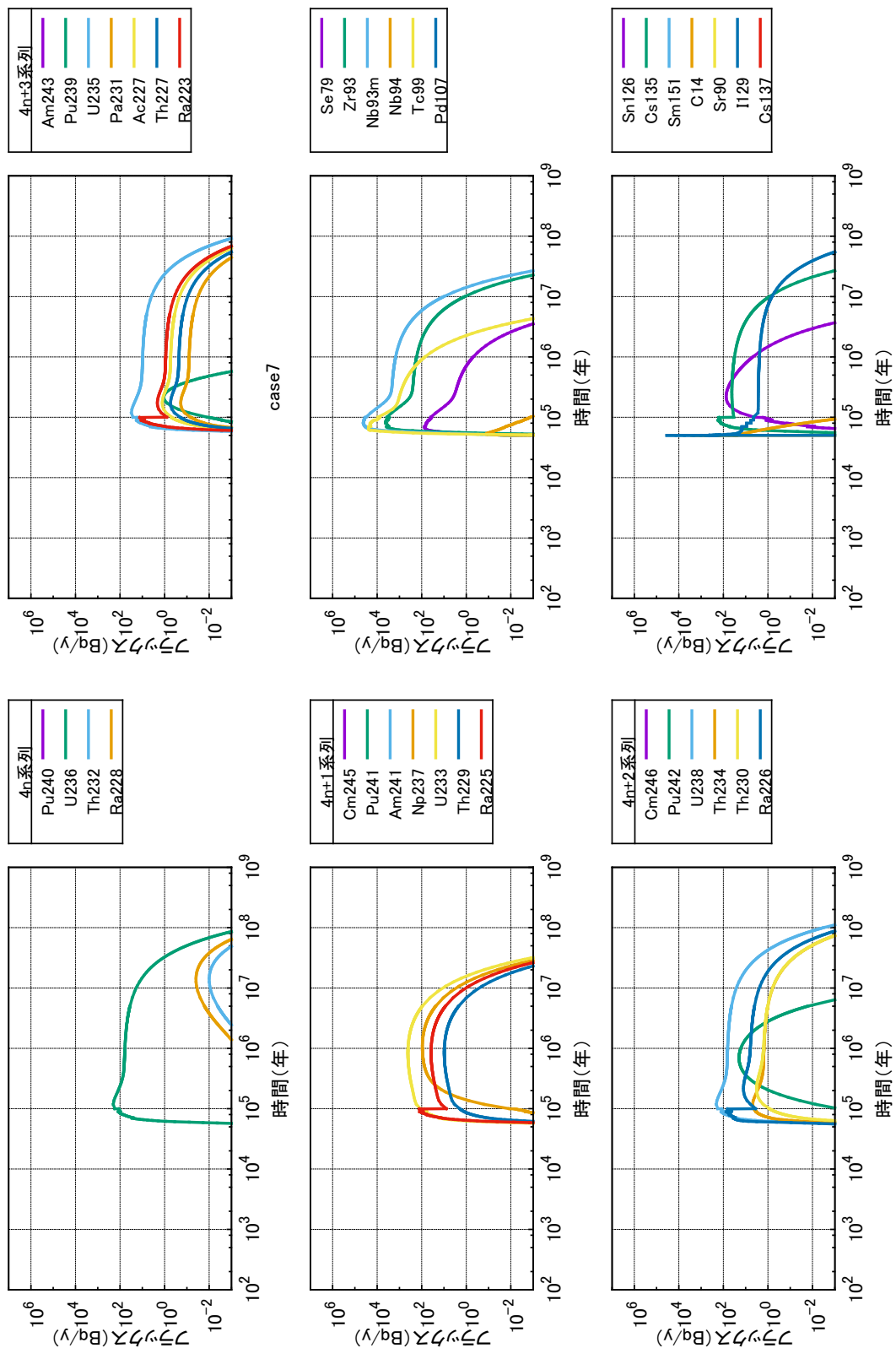


図 6.2-31 各解析ケースの核種移行フラックス (case7)

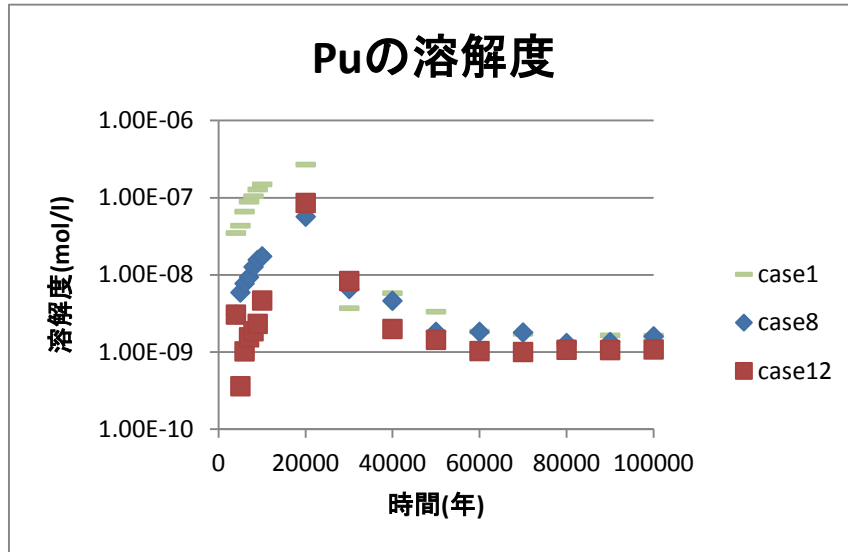


図 6.2-32 case1、case8、case12 の Pu の溶解度の経時変化

以上の発熱およびセメントによる影響結果をまとめたものを表 6.2-11 に示す。

表 6.2-11 発熱、セメント成分の影響による人工バリアからのフラックス経時変化の特徴

	発熱を考慮した場合、セメント成分を含むケース側に見られたフラックス経時変化の特徴
発熱による影響	放射平衡核種： <ul style="list-style-type: none"> ・発熱による影響は見られなかった。 他の系列核種： <ul style="list-style-type: none"> ・ Cm-245、Pu-241、Am-241 はピーク値が 2 桁程度上昇。 ・ Pu-240、Pu-239、Pu-242、Am-243 はピーク値が 1 桁程度上昇。 ・ Cm-246 のフラックスが出現。 その他の核種： <ul style="list-style-type: none"> ・発熱による影響は見られなかった。
セメント成分による影響	放射平衡核種： <ul style="list-style-type: none"> ・ Np-237 は立ち上がりが早くなりピーク値がやや上昇。 ・ Ra-225 および Ra-226 は $10^4 \sim 10^5$ 年にピークが出現。 ・ Pu-242 はセメントを含まないケースで出ていた 10^4 年のピークが 1 桁以上低下し、$10^5 \sim 10^6$ 年のピークが上昇。 他の系列核種： <ul style="list-style-type: none"> ・ Pu-240、Pu-239 は 1 桁以上低下。 ・ Ra-228 は立ち上がりが遅くなり、ピークはやや低下。 ・ Cm-245、Pu-241、Am-241 のピーク値が 2 桁程度低下。 ・ Am-243 のピーク値は 2 桁程度低下。 その他の核種： <ul style="list-style-type: none"> ・ Sn-126 は 1 桁程度上昇。 ・ Cs-135 は $10^4 \sim 10^5$ 年にピークが出現。

6.3 人工バリア安全機能に着目した感度解析

6.3.1 背景・目的

1Fにおいては、格納容器に落下したと考えられている燃料デブリの回収方法について検討が進められており、その処分へ向けた処理方法及び処分形態についてはその方針も示されていない。燃料デブリの特性に応じた処分形態が今後検討されるものと想定されるが、本検討では燃料デブリ処分において求められるバリア機能の概略的な把握を目的として、人工バリア安全機能の各条件に対して、感度解析を実施した。特に、燃料デブリ特性と人工バリアの各安全機能の関係を把握するため、バリア性能の応答を調べる感度解析を行った。

燃料デブリからの核種移行フラックスをHLW（ガラス固化体）と比較することで、燃料デブリの特徴を整理するとともに、感度解析により得られた結果から、燃料デブリ処分に求められる人工バリアの性能に関して検討を行った。

具体的には、人工バリアの安全機能の不確実性について感度解析ケースを設定し、核種の溶出特性（燃料デブリ浸出速度、瞬時放出割合）、核種の閉じ込め機能・設計（閉じ込め期間（OP破損時期）、緩衝材厚さ）及び、核種移行特性（溶解度、収着分配係数、拡散係数（ともに元素依存パラメータ））の観点から解析を実施した。標準ケースを設定し、仮想燃料デブリ Ver.1を対象とした評価を行い、HLW ガラス固化体を対象としたケースと比較するとともに、標準ケースに対して各パラメータの不確実性を考慮したパラメータ変化を与えて、感度の大きいパラメータを抽出した。

6.3.2 標準ケース

標準ケースは燃料デブリを対象とした解析の基本となるケースで、HLW 第2次とりまとめ⁽¹⁵⁾のレファレンスケースを参考として核種移行解析を行うものである。

(1) 放射能インベントリの設定

HLW 及び燃料デブリ 1本あたりの放射能インベントリを表 6.3-1 に示す。HLW については処分後 100年時点のインベントリを、燃料デブリについては事故後 50年時点で埋設処分されると仮定した仮想燃料デブリ Ver. 1のインベントリである。表中の-は含まれていないことを示す。

表 6.3-1 HLW 及び燃料デブリ 1本あたりの放射能インベントリ

系列	核種	半減期 (y)	HLW (Bq/本)	燃料デブリ (Bq/本)
		ICRP107	処分後 100 年	事故後 50 年
4n 系列	Pu-240	6.56E+03	3.93E+11	7.94E+11
	U-236	2.34E+07	4.93E+07	4.79E+08
	Th-232	1.41E+10	3.71E+00	1.24E+00
	Ra-228	5.75E+00	-	1.02E+00
	Th-228	1.91E+00	-	2.66E+07
4n+1 系列	Cm-245	8.50E+03	1.22E+10	2.32E+08
	Pu-241	1.44E+01	2.67E+10	1.78E+13
	Am-241	4.32E+02	2.43E+13	6.03E+12
	Np-237	2.14E+06	1.93E+10	4.93E+08
	Pa-233	7.38E-02	-	4.93E+08

系列	核種	半減期 (y)	HLW(Bq/本)	燃料デブリ(Bq/本)
4n+1 系列	U-233	1.59E+05	1.23E+07	1.16E+05
	Th-229	7.34E+03	9.73E+04	5.00E+02
	Ra-225	4.08E-02	-	5.00E+02
	Ac-225	2.74E-02	-	5.00E+02
4n+2 系列	Cm-246	4.76E+03	2.63E+09	3.72E+07
	Am-242m	1.41E+02	3.29E+11	1.21E+10
	Cm-242	4.46E-01	-	9.99E+09
	Pu-242	3.75E+05	3.70E+08	2.47E+09
	Pu-238	8.77E+01	5.04E+11	2.65E+12
	U-238	4.47E+09	3.88E+07	7.32E+08
	Th-234	6.60E-02	-	7.32E+08
	U-234	2.46E+05	4.81E+08	5.35E+08
	Th-230	7.54E+04	3.37E+06	1.45E+05
	Ra-226	1.60E+03	1.96E+05	1.20E+03
	Pb-210	2.22E+01	1.55E+05	3.84E+02
Po-210	3.79E-01	-	3.84E+02	
4n+3 系列	Cm-243	2.91E+01	-	5.59E+09
	Am-243	7.37E+03	7.83E+11	2.01E+10
	Pu-239	2.41E+04	7.02E+10	6.40E+11
	Np-235	1.08E+00	-	4.02E-08
	U-235	7.04E+08	2.67E+06	8.70E+07
	Pa-231	3.28E+04	8.64E+05	9.63E+04
	Ac-227	2.18E+01	8.57E+05	4.94E+04
	Th-227	5.11E-02	-	4.88E+04
Ra-223	3.13E-02	-	4.95E+04	
非系列核種	C-14	5.70E+03	-	1.63E+08
	Se-79	2.95E+05	3.64E+09	6.04E+07
	Sr-90	2.88E+01	7.81E+13	3.77E+13
	Zr-93	1.53E+06	7.38E+10	3.19E+09
	Nb-93m	1.61E+01	5.91E+10	2.71E+09
	Nb-94	2.03E+04	1.88E+08	2.42E+05
	Tc-99	2.11E+05	5.20E+11	2.22E+10
	Pd-107	6.50E+06	4.15E+09	1.52E+08
	Sn-126	2.30E+05	1.30E+10	9.95E+08
	I-129	1.57E+07	-	3.02E+07
	Cs-135	2.30E+06	1.83E+10	4.76E+08
	Cs-137	3.02E+01	1.18E+14	3.20E+13
	Sm-151	9.00E+01	4.82E+12	4.11E+11

(2) 廃棄物からの核種放出挙動とソースターム評価

燃料デブリには、 UO_2 ペレットとジルカロイ被覆管などの金属材料によって構成される使用済燃料中と同様に、超ウラン元素、核分裂生成物、放射化生成物など（以下、超ウラン元素を含む一連の崩壊系列を形成する核種を「系列核種」、核分裂生成物及び放射化生成物をあわせて「FP 核種等」と呼ぶ。）の多様な放射性核種が含まれる。

核分裂生成物のうち、Xe、Kr などの希ガス成分や、I、Cs などの揮発性成分は、ガス気泡を形成しながら、燃焼により生じる燃料内部の粒界（Grain Boundary）やひび割れ（Cracks）を介して、燃料・被覆管の隙間（Gap）に蓄積する⁽¹⁶⁾。また、Tc や Pd などの白金族元素は合金を形成して粒界近傍に析出し、希土類元素（Sm など）や Zr は酸化物として UO_2 と固溶体を形成する⁽¹⁶⁾。

そのため、使用済燃料では、放射性核種の不均質な存在状態の違いを考慮して、それぞれに対応した核種溶出挙動が想定される^{(16), (17), (18)}。すなわち、燃料部分では、粒界やひび割れ、隙間に存在する放射性核種のように容器破損時の地下水との接触によって瞬時に放出される「瞬時放出（IRF：Instant Release Fraction）」成分と、燃料マトリクス of 長期的な溶解に伴ってゆっくりと放出される「マトリクス溶解」成分に分けられる。

また、ジルカロイ被覆管などの放射化された構造材金属からの核種放出挙動に関しても、金属表面に形成される酸化皮膜⁽¹⁹⁾については、金属相よりも溶出速度が速いことから、第2次 TRU レポート⁽²⁰⁾では「瞬時放出」成分として扱われており、残りの金属相については各々の金属材料の腐食速度と調和的な「金属腐食溶解」成分として扱うことができる。

(a) 核種の瞬時放出成分と溶解律速成分への割り当て

はじめに、西原ら⁽²¹⁾の 1～3 号機原子炉内インベントリデータから、格納容器内で混合していると考えられる放射能インベントリについて、構造材金属と燃料デブリに分類した。そして、分類したそれぞれの瞬時放出成分と溶解律速成分について、直接処分第一次とりまとめ報告書⁽¹⁶⁾に基づき、分配した。その結果を表 6.3-2 に示す。

表 6.3-2 燃料デブリ中の構造材金属と燃料成分に対する瞬時放出と溶解律速の割合

核種	割合 (%)			
	構造材金属		燃料成分	
	瞬時放出	溶解律速	瞬時放出	溶解律速
C-14 (有機)	30	70	0	0
Se-79	0	0	4	96
Sr-90	0	0	1	99
Zr-93, Nb-93m	0	5	0	95
Nb-94	0	1	0	99
Tc-99	0	0	2	98
Pd-107	0	0	2	98
I-129	0	0	4	96
Sn-126	0	0	4	96
Cs-135,137	0	0	4	96
Sm-151	0	0	0	100

(b) 燃料マトリクスの溶解速度

燃料デブリ中の燃料成分については、その状態が不明であることから、溶解速度に関するデータがない。したがって本解析では、燃料マトリクスと同様の扱いとし、Nagra が設定した燃料マトリクスの溶解速度の時間変化⁽¹⁷⁾を参考とした。図 6.3-1 に燃料マトリクスに対する溶解速度の時間変化設定を示す。Nagra では 10 万年以降も溶解速度が減少する設定を与えているが、直接処分第一次とりまとめ⁽¹⁶⁾では溶解速度を 1×10^{-7} (1/y) と与えていることから、これを下限値として、10 万年以降は 1×10^{-7} (1/y) が継続するものとした。

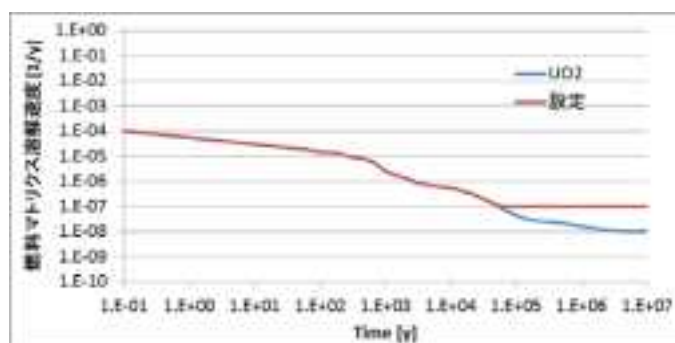


図 6.3-1 燃料マトリクスに対する溶解速度の時間変化設定

(c) 浸出率

表 6.3-3 に構造材金属の浸出率設定値を示す。構造材金属であるジルカロイとステンレス鋼で浸出速度に顕著な差はないので、すべてステンレス鋼の浸出速度を適用した。

表 6.3-3 構造材金属の浸出率設定

	浸出期間[y]	浸出率[1/y]
ジルカロイ	11400	8.77E-05
ステンレス鋼	8500	1.18E-04

(3) 人工バリアに関するパラメータ

人工バリアに関するパラメータ設定 (HLW) を表 6.3-4 に示す。基本的に JAEA-Research-2009-034⁽²²⁾に基づいて設定した。ただし、OP 破損時期については表中の 1,000 年ではなく、地層処分の安全審査報告書⁽²³⁾に基づいて 4,000 年とした。なお、燃料デブリについては、仮想燃料デブリ Ver. 1 の容器寸法を反映し、オーバーパック領域および緩衝材の断面積は、それぞれ 4.93 および 14.18 m²とした。表 6.3-5 に緩衝材中の元素別溶解度を、表 6.3-6 に緩衝材中の実効拡散係数を、表 6.3-7 に緩衝材中の分配係数を示す。溶解度は PHREEQC⁽²⁴⁾で計算し、解析に使用した熱力学データは、JAEA-TDB (version 100331c2)⁽²⁵⁾を基に、Yamaguchi et al⁽²⁶⁾がデータ選定プロセスの一貫性や溶解度評価の保守性、最新データの検証の観点からレビューし、選定したものを使用した。なお、標準ケースで用いた設定値に加え、6.3.3 で実施する感度解析のパラメータ設定範囲についても、最小値及び最大値として記載している。

表 6.3-4 標準ケースに適用した人工バリア関連パラメータ (HLW)

ガラス固化体	設定値	設定方法
ガラス溶解速度 [g/m ² /d]	4E-03	わが国で想定されているガラス固化体の組成に基づき、pH8~10、150℃以下、(試験時間) ^{0.5} × (S/V)が10,000以上の条件で、ガラス溶解過程の第2ステージ初期におけるボロンの溶出速度をアレニウスプロットし、80℃における値を選定した。
溶解に寄与する 反応表面積(ガラス 初期表面積) [m ²]	17	JNC「第2次取りまとめ」におけるキャニスタの幾何形状に基づき、外径430[mm]のキャニスタに0.15[m ³]の固化ガラスが封入された場合を想定して幾何学的表面積(1.7[m ²])を算出し、さらに冷却に伴う表面積の増大、及びハンドリング過程における表面積の増大を考慮して、幾何学的表面積の10倍に設定した。
体積 [m ³]	0.15	JNC「第2次取りまとめ」におけるガラス固化体の仕様(JNFL仕様)に基づき、初期体積を設定した。ただし、本解析ではガラス溶解速度と溶解に寄与するガラス表面積に応じて、溶解とともに減少するものとする。なお、「ガラス溶解速度」については別表参照。
真密度 [kg/m ³]	2670	JNC「第2次取りまとめ」におけるガラス固化体の仕様に基づき、固化ガラス重量を400[kg]、体積0.15[m ³]として算出した。間隙率はゼロとする。
インベントリ [mol]	—	評価対象核種、安定同位体に関するモル数を設定(別表参照)。

オーバーバック領域	設定値	設定方法
体積 [m ³]	1.075	ガラス固化体表面から緩衝材内側表面に至る領域(オーバーバック領域)の体積、断面積と長さの積として算出した。
断面積 [m ²]	3.51	JNC「第2次取りまとめ」における解析上の幾何形状に基づき、緩衝材内側の円筒側面積のみを核種移行に係る面積として算出した。
長さ [m]	0.190	JNC「第2次取りまとめ」設計仕様に基づいた、解析上の1次元長さを、固化ガラス表面から緩衝材内側表面に至る距離として算出した。
真密度 [kg/m ³]	5200	JNC「第2次取りまとめ」に基づき、炭素鋼オーバーバックのの腐食性生物として熱力学的に安定であると考えられる磁鉄基の真密度を設定した。
間隙率 [-]	0.41	JNC「第2次取りまとめ」に基づき、緩衝材と同じであると仮定して設定した。
オーバーバックの 維持期間 [y]	1000	JNC「第2次取りまとめ」において示されているオーバーバックの核種閉じ込め機能の維持期間1000年を仮定した。
実流速 [m/y]	1.5E-06	2次元地下水流動解析により緩衝材中の実流速を設定し、オーバーバック領域の流速はそれに律速されるものとする。なお左の値は、緩衝材が健全な場合の実流速である。
溶解度 [mol/m ³]	—	緩衝材と同じであると仮定して設定した。元素に依存する(別表参照)。
実効拡散係数 [m ² /s]	4E-09	60℃における自由水中の拡散係数の中で最大であるCaの値を、保守的にすべての核種に対して同じ値に設定した。
分配係数 [m ³ /kg]	0	保守的にオーバーバック領域における核種の吸着はないものとし、全ての核種に対して分配係数をゼロと設定した。

緩衝材	設定値	設定方法
体積 [m ³]	10.45	断面積と長さの積として算出した。なお本解析では、緩衝材の溶解・変質は考慮するが、緩衝材体積の変動はないものとする。
断面積 [m ²]	14.925	JNC「第2次取りまとめ」における解析上の幾何形状に基づき、緩衝材外側の円筒側面積のみを核種移行に係る面積として算出した。
長さ [m]	0.7	JNC「第2次取りまとめ」の設計仕様に基づいた、解析上の1次元長さを設定した。
真密度 [kg/m ³]	2710	JNC「第2次取りまとめ」に基づき、ケイ砂混合体(ベントナイト70%-ケイ砂30%)の乾燥密度1.8[Mg/m ³]、間隙率0.43[-]から算出した。
間隙率 [-]	0.41	JNC「第2次取りまとめ」の設計仕様に基づいた、ケイ砂混合体(ベントナイト70%-ケイ砂30%)の間隙率として設定した。
溶解度 [mol/m ³]	—	元素に依存して設定する(別表参照)。
実流速 [m/y]	1.0E-06	緩衝材の透水係数を1E-12[m/s]、岩盤の透水係数を4E-10[m/s]として2次元地下水流動解析を行い、その解析結果における実流速の対数平均値を設定した。
実効拡散係数 [m ² /s]	—	モンモリロナイトゲル密度が0.9~1.6[Mg/m ³]のデータの統計処理を行い、対数平均を設定した。元素に依存する(別表参照)。
分配係数 [m ³ /kg]	—	拡散試験で取得された実測値の対数平均値をもとに設定した。元素に依存する(別表参照)。

表 6.3-5 元素別溶解度

元素	溶解度 [mol/m ³ at 25°C]						
	間隙水 (降水系)	間隙水 (降水系)	間隙水 (降水系)	間隙水 (降水系)	間隙水(降水系)		
	HLW2	TRU2最大	H18	Yamaguchi 2014	設定値	最小値	最大値
C(有機)		可溶性			可溶性	可溶性	可溶性
Se	3.E-06	5.E-03	3.E-04	7.E-04	7E-04	7E-05	7E-03
Sr	8.E-03	5.E+00			6E-03	6E-04	6E-02
Zr	1.E-03	5.E-02	3.E-03	1.E-01	1E-01	1E-02	1E+00
Nb	1.E-01	5.E+01	7.E-04	2.E-02	2E-02	2E-03	2E-01
Tc	4.E-05	1.E-03	4.E-06	6.E-08	4E-06	4E-07	4E-05
Pd	1.E-06	可溶性	1.E-17	5.E-23	5E-23	5E-24	5E-22
Sn	5.E-03	5.E+02	1.E-04	1.E-04	1E-04	1E-05	1E-03
I		可溶性			可溶性	可溶性	可溶性
Cs	可溶性	可溶性	可溶性		可溶性	可溶性	可溶性
Sm	2.E-04	5.E-06	4.E-03		4E-03	4E-04	4E-02
Pb	2.E-03	5.E+01	1.E-03	1.E-03	1E-03	1E-04	1E-02
Po	2.E-03	5.E+01	1.E-03		1E-03	1E-04	1E-02
Ra	1.E-09	1.E-03	1.E-03		3E-02	3E-03	3E-01
Ac	2.E-04	5.E-06	4.E-03		4E-03	4E-04	4E-02
Th	5.E-03	1.E-03	3.E-04	1.E-04	1E-04	1E-05	1E-03
Pa	2.E-05	5.E-05	1.E-05	2.E+00	2E+00	2E-01	2E+01
U	8.E-06	5.E-06	3.E-03	2.E-02	2E-02	2E-03	2E-01
Np	2.E-05	5.E-06	3.E-04	7.E-05	7E-05	7E-06	7E-04
Pu	3.E-05	5.E-06	5.E-05	6.E-05	6E-05	6E-06	6E-04
Am	2.E-04	5.E-06	4.E-03	4.E-03	4E-03	4E-04	4E-02
Cm	2.E-04	5.E-06	4.E-03		4E-03	4E-04	4E-02

表 6.3-6 緩衝材中の実効拡散係数

元素	実効拡散係数 [m ² /s at 60°C]					備考(出典や設定根拠)
	間隙水 (降水系)	間隙水 (降水系)	間隙水(降水系)			
	HLW2	TRU2	設定値	最小値	最大値	
C(有機)	—	3.E-10	3.E-10	3.E-11	2.E-09	酸化性は無機炭素(TRUレポ)
Se	2.E-10	4.E-11	2.E-10	2.E-11	2.E-09	降水系はHLW及びIida(2011)、酸化性は表6.2-4
Sr	—	4.E-10	3.E-10	3.E-11	2.E-09	表面拡散は考慮しない(H26核種移行データベース報告書)
Zr	3.E-10	3.E-10	3.E-10	3.E-11	2.E-09	
Nb	3.E-10	3.E-10	3.E-10	3.E-11	2.E-09	
Tc	3.E-10	3.E-10	3.E-10	3.E-11	2.E-09	表6.2-4
Pd	3.E-10	3.E-10	3.E-10	3.E-11	2.E-09	
Sn	3.E-10	3.E-10	3.E-10	3.E-11	2.E-09	
I	—	4.E-11	4.E-11	4.E-12	2.E-09	酸化還元影響なし
Cs	6.E-10	4.E-10	3.E-10	3.E-11	2.E-09	Csの表面拡散は考慮しない(H26核種移行データベース報告書)
Sm	3.E-10	3.E-10	3.E-10	3.E-11	2.E-09	
Pb	3.E-10	3.E-10	3.E-10	3.E-11	2.E-09	
Po	—	—	2.E-10	2.E-11	2.E-09	同族元素のSeと同値
Ra	3.E-10	3.E-10	3.E-10	3.E-11	2.E-09	
Ac	3.E-10	3.E-10	3.E-10	3.E-11	2.E-09	
Th	3.E-10	3.E-10	3.E-10	3.E-11	2.E-09	
Pa	3.E-10	3.E-10	3.E-10	3.E-11	2.E-09	
U	3.E-10	3.E-10	3.E-10	3.E-11	2.E-09	表6.2-4
Np	3.E-10	3.E-10	3.E-10	3.E-11	2.E-09	表6.2-4
Pu	3.E-10	3.E-10	3.E-10	3.E-11	2.E-09	
Am	3.E-10	3.E-10	3.E-10	3.E-11	2.E-09	
Cm	3.E-10	3.E-10	3.E-10	3.E-11	2.E-09	

表 6.3-7 緩衝材中の分配係数

元素	分配係数[m ³ /kg]							備考(出典や設定根拠)
	間隙水 (降水系)	間隙水 (降水系)	間隙水 (降水系)	間隙水 (降水系)	間隙水(降水系)			
	HLW2	TRU2	JAEA- Research 2009-034	H26	設定値	最小値	最大値	
C(有機)	—	0			0	0	0	TRU2(酸化性は無機炭素)
Se	0	0	0		0.01	0.001	0.1	H26データベース報告書
Sr	—	0.001			0.001	0.0001	0.01	海水中のCa、Mg濃度上昇により保守的に0。最大値は降水の設定値。
Zr	10	1	5		1	0.1	10	保守的にTRU2(HLWで間隙水組成に依存しないことから、全ての条件で同じ値)
Nb	1	0.1	1		0.1	0.01	1	保守的にTRU2(HLWで間隙水組成に依存しないことから、全ての条件で同じ値)
Tc	0.1	1	2		0.1	0.01	1	保守的にTRU2(酸化性はHLW)
Pd	0.1	0.05	0.1		0.05	0.005	0.5	保守的にTRU2(酸化性でも化学形変わらず)
Sn	1	1	10		1	0.1	10	HLW、TRU
I	—	0			0	0	0	TRU2(最大値として設定上0.0001を与えることも可能)
Cs	0.01	0.05	0.07		0.05	0.005	0.5	H26データベース報告書、TRU2。海水は1桁下(HLW)
Sm	1	—	8		1	0.1	10	HLW
Pb	0.1	0.05	10		0.05	0.005	0.5	保守的にTRU2(HLWで間隙水組成に依存しないことから、全ての条件で同じ値)
Po	—	—	0.1		0.01	0.001	0.1	同族元素のSeと同値
Ra	0.01	0.001	0.06	0.01	0.01	0.001	0.1	H26データベース報告書、HLW
Ac	1	1	8	1	1	0.1	10	HLW、TRU、H26データベース報告書
Th	1	5	5	1	10	1	100	Iida(2016、印刷中)
Pa	1	5	5	1	1	0.1	10	保守的にHLW
U	1	5	5	1	1	0.1	10	H26データベース報告書
Np	1	5	5	1	1	0.1	10	保守的にHLW
Pu	10	5	5	1	1	0.1	10	保守的にTRU2
Am	10	1	8	10	10	1	100	HLW、H26データベース報告書
Cm	10	1	8	10	10	1	100	HLW、H26データベース報告書

(4) 天然バリアに関する核種移行パラメータ

天然バリアにおける核種移行条件は、第2次取りまとめ⁽¹⁵⁾のレファレンスケースにおける母岩および断層中での核種移行解析のデータを参照した。ただし、表 6.3-9 に 天然バリア中の実効拡散係数を、表 6.3-10 に 天然バリア中の分配係数を元素別に示すように設定の見直しを行った。また、亀裂内の地下水流速は、対数正規分布の累積 75% タイル値を採用し、3.7m/y とした。なお、標準ケースで天然バリア出口フラックスへの影響を確認するため、天然バリア機能が低下した設定（対数正規分布の累積 95% タイル値）を与えた。このときの地下水流速は 12m/y とし、分配係数も 1/10 を与えた。

表 6.3-8 第2次取りまとめのレファレンスケースにおける母岩および断層中での核種移行解析のデータ⁽¹⁵⁾

パラメータ	母岩 (1次元平行平板モデルの 重ね合わせ)	下流側断層 (1次元平行平板モデル)
岩種	花崗岩 (結晶質岩：酸性岩)	
地下水	降水系地下水	
動水勾配 (i) [-]	0.01	
入力とする核種移行率	人工バリアからの核種移行率 (5.3.5.2 参照)	母岩からの核種移行率 (5.3.5.3 参照)
移行距離 [m]	100	800
透水量係数 (T) [m ² s ⁻¹]	10 ⁻¹³ ~10 ⁻⁷ ；対数正規分布（対数平均-9.99, 標準偏差 1.07）の 48 分割区間の各中央値 (流速 ^{*1} : 0.05~50 m y ⁻¹)	10 ⁻⁷ (流速 ^{*1} : 50 m y ⁻¹)
開口幅 (2b)	経験則 2b = 2√T 対数正規分布（対数平均-4.69, 標準偏差 0.54）	経験則 2b = 2√T
縦方向分散長 ^{**} [m]	10 (=1/10×移行距離)	80 (=1/10×移行距離)
マトリクス拡散寄与面積率 [%]	50	
マトリクス拡散深さ [m]	0.1	
有効空隙率 [%]	2	
乾燥密度 [Mg m ⁻³]	2.64	
実効拡散係数 [m ² s ⁻¹]	3×10 ⁻¹²	
分配係数	表 5.3.2-2 参照	

*1 流速 v [m s⁻¹]は、動水勾配 i (=0.01), 透水量係数 T [m² s⁻¹]および開口幅 2b [m]より以下の式により算定する。

$$v = \frac{T \times i}{2b} \quad (5.3.2-15)$$

*2 横方向分散長は考慮しない。

表 6.3-9 天然バリア中の実効拡散係数

元素	実効拡散係数 [m ² /s at 60°C]			備考(出典や設定根拠)
	花崗岩 地下水 (降水系)	花崗岩 地下水 (降水系)	花崗岩 地下水 (降水系)	
	HLW2	TRU2	設定値	
C(有機)	—	3.E-12	3.E-12	TRU2
Se	3.E-12	3.E-12	3.E-12	HLW, TRU2
Sr	—	3.E-12	3.E-12	TRU2
Zr	3.E-12	3.E-12	3.E-12	HLW, TRU2
Nb	3.E-12	3.E-12	3.E-12	HLW, TRU2
Tc	3.E-12	3.E-12	3.E-12	HLW, TRU2
Pd	3.E-12	3.E-12	3.E-12	HLW, TRU2
Sn	3.E-12	3.E-12	3.E-12	HLW, TRU2
I	—	3.E-12	3.E-12	TRU2
Cs	3.E-12	3.E-12	3.E-12	HLW, TRU2
Sm	3.E-12	3.E-12	3.E-12	HLW, TRU2
Pb	3.E-12	3.E-12	3.E-12	HLW, TRU2
Po	—	—	3.E-12	同族元素のSeと同値
Ra	3.E-12	3.E-12	3.E-12	HLW, TRU2
Ac	3.E-12	3.E-12	3.E-12	HLW, TRU2
Th	3.E-12	3.E-12	3.E-12	HLW, TRU2
Pa	3.E-12	3.E-12	3.E-12	HLW, TRU2
U	3.E-12	3.E-12	3.E-12	HLW, TRU2
Np	3.E-12	3.E-12	3.E-12	HLW, TRU2
Pu	3.E-12	3.E-12	3.E-12	HLW, TRU2
Am	3.E-12	3.E-12	3.E-12	HLW, TRU2
Cm	3.E-12	3.E-12	3.E-12	HLW, TRU2

表 6.3-10 天然バリア中の分配係数

元素	分配係数[m ³ /kg]			設定根拠
	花崗岩 地下水(降水系)			
	HLW2	TRU2	設定値	
C(有機)	—	0.0001	0.0001	TRU2
Se	0.01	0.01	0.001	Iida2011
Sr	—	0.5	0.5	TRU2
Zr	0.1	0.1	0.1	HLW, TRU2
Nb	0.1	0.1	0.1	HLW, TRU2
Tc	1	1	1	H26データベース報告書、HLW, TRU2
Pd	0.1	0.1	0.1	HLW, TRU2
Sn	1	1	1	HLW, TRU2
I	—	0.0001	0.0001	TRU2
Cs	0.05	0.05	0.05	HLW, TRU2、表6.1.3.3-3
Sm	5	—	5	HLW
Pb	0.1	—	0.1	HLW, TRU2、表6.1.3.3-3
Po	0.01	0.01	0.001	同族元素のSeと同値
Ra	0.5	0.5	0.5	HLW, TRU2、表6.1.3.3-3
Ac	5	5	5	HLW, TRU2、表6.1.3.3-3
Th	1	1	1	HLW, TRU2、表6.1.3.3-3
Pa	1	1	1	HLW, TRU2、表6.1.3.3-3
U	1	1	1	H26データベース報告書
Np	1	1	1	HLW, TRU2、表6.1.3.3-3
Pu	1	1	1	HLW, TRU2、表6.1.3.3-3
Am	5	5	5	HLW, TRU2、表6.1.3.3-3
Cm	5	5	5	HLW, TRU2、表6.1.3.3-3

(5) 標準ケースの解析結果

標準ケースにおける核種移行フラックスの解析結果（HLW と燃料デブリ）を以下に示す。人工バリア出口及び天然バリア（母岩）出口の核種移行フラックスを核種別に比較する。なお、第2次とりまとめ⁽¹⁵⁾のレファレンスケースにおける75%タイル値では天然バリアのバリア機能が高く（流速が遅く、亀裂開口幅が狭いため、遅延機能が低い）、天然バリア出口の核種移行フラックスが小さいため、人工バリア出口フラックスの影響を確認できない可能性がある。そのため、天然バリアの機能が低い状態として、地下水流速を3.7m/y から12m/y へ上昇させるとともに、元素別の収着分配係数を1/10を設定した解析もあわせて示した。

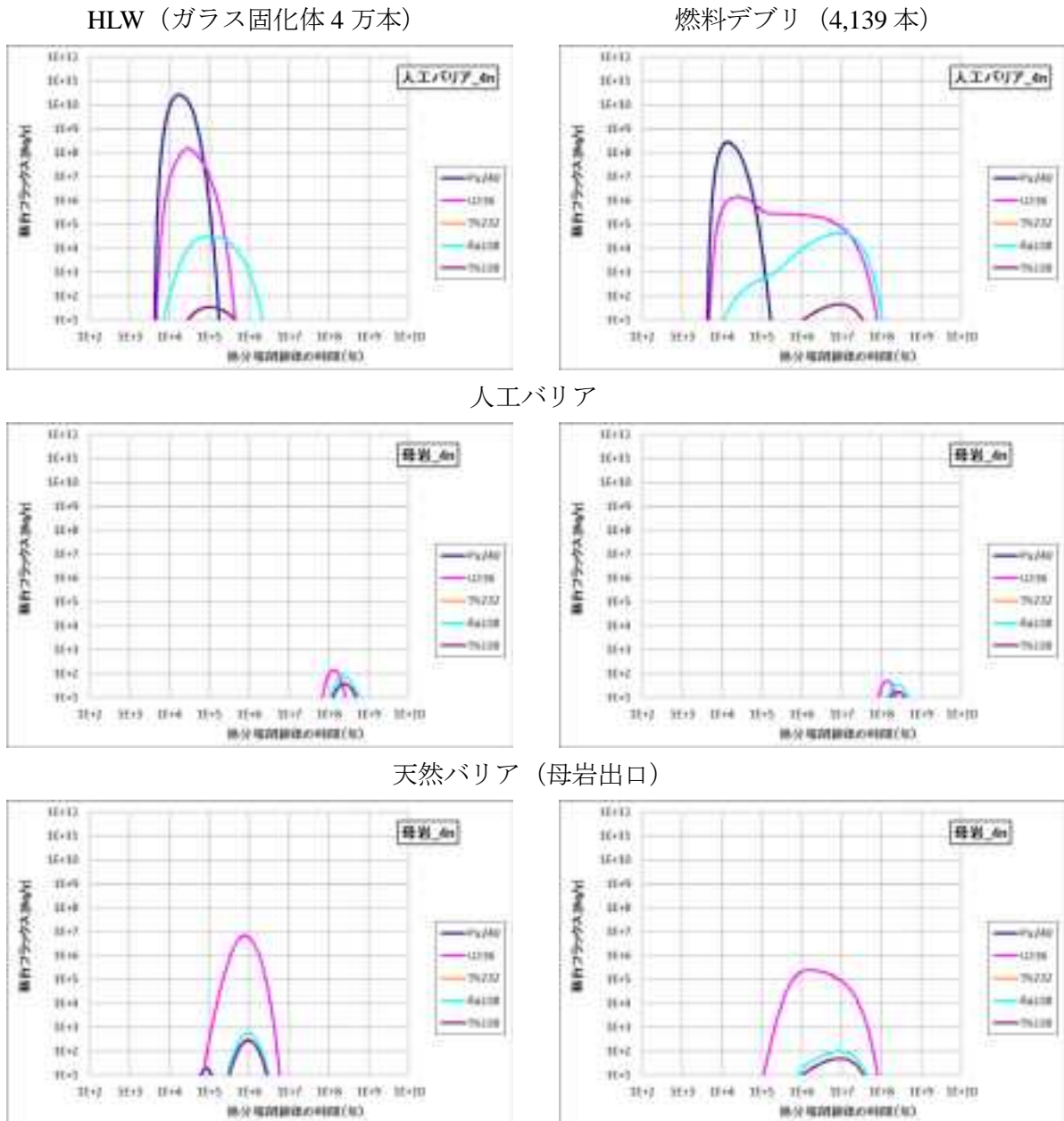
(a) 4n 系列核種

図 6.3-2 に核種別移行フラックスの経時変化を示す。人工バリア出口フラックスについて、HLW ガラス固化体はガラス溶解モデルにより評価しており、燃料マトリクス溶解モデルにより評価した燃料デブリの挙動と異なる。燃料マトリクス溶解速度が時間経過とともに低下するため、U-236 については10 万年以降フラックスがなだらかに低下し、Ra-228 については1000 万年にかけてフラックスが増加する傾向となっている。早期に溶出するHLW の方がPu-240 及びU-236 で最大のフラックスは1~2 桁程度高いが、系列の下の核種Ra-228 及びTh-228 につい

ては燃料デブリの方がやや高い値を示した。

天然バリア出口フラックスについては、HLW と燃料デブリの人工バリア出口でのフラックスの違いが緩和され、ともに1億年後にU-236がピークを示し、HLWの方が高い値となったが、その差は2倍程度となった。人工バリアで燃料デブリの方がピークフラックスの高かったRa-228についてもHLWの方が高い結果となった。

天然バリアの機能が低い条件では、U-236のピーク出現時間は1億年後から100万年後となり、そのフラックスも4桁以上増加した。Ra-228及びTh-228についてはピーク出現時間は同様に早くなるものの、そのフラックスの増加は1桁程度であった。



天然バリア (母岩出口) : 低バリア条件 (流速高 : 12m/y, Kd 低 : 1/10)

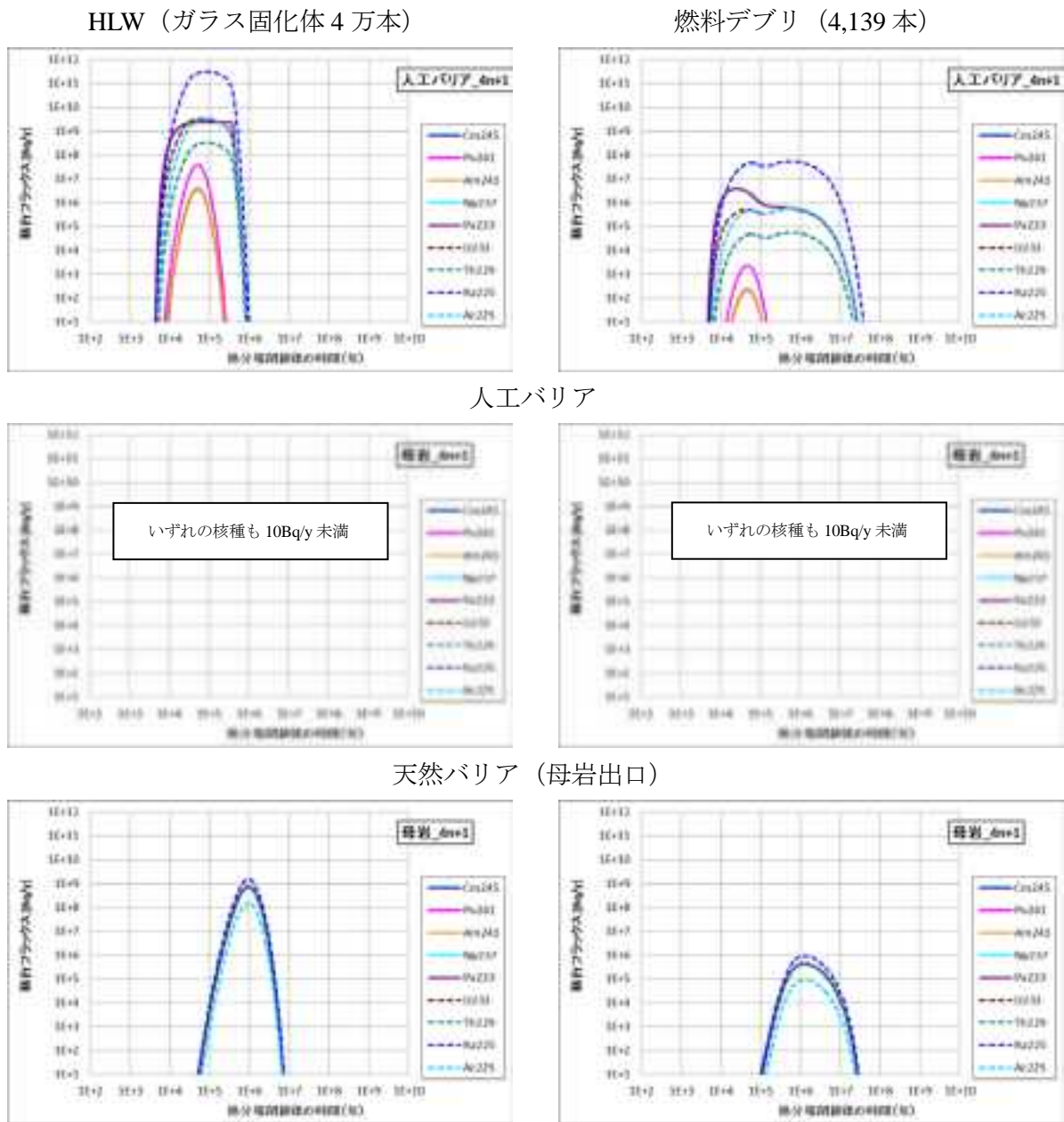
図 6.3-2 4n 系列核種の HLW と燃料デブリの解析結果

(b) 4n+1 系列核種

図 6.3-3 に核種別移行フラックスの経時変化を示す。人工バリア出口フラックスについて、HLWの方がピークフラックスが高く、全般的にピークフラックスは3桁以上高くなった。燃料デブリは燃料マトリックスの溶解速度に支配され、1000万年を超えてフラックスが継続的に放出される。4n系列核種よりも総じてフラックスは高い。

天然バリア出口フラックスは、いずれの核種も10Bq/y未満となり、第二次とりまとめのレファレンスケースの天然バリア条件では、相違を明らかにできない結果となった。

低バリア条件では、ともに100万年程度でピークフラックスを生じ、3桁程度HLWの方が高い結果となった。



天然バリア (母岩出口) : 低バリア条件 (流速高 : 12m/y、Kd 低 : 1/10)

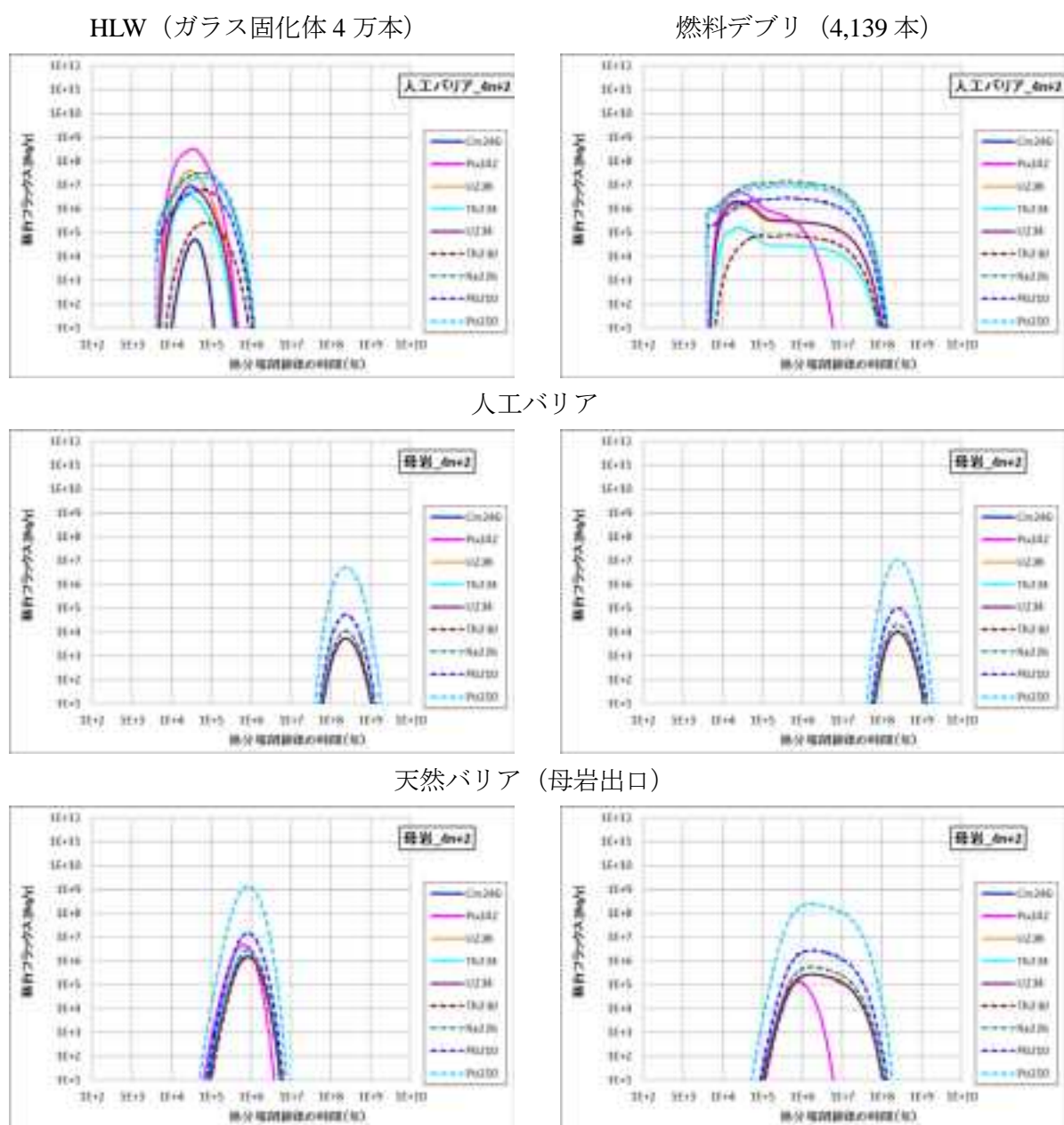
図 6.3-3 4n+1 系列核種の HLW と燃料デブリの解析結果

(c) 4n+2 系列核種

図 6.3-4 に核種別移行フラックスの経時変化を示す。人工バリア出口については、ピークフラックスは総じて HLW の方が高いが、100 万年までに放出を終えるのに対し、燃料デブリでは 1 億年にかけて継続的にほぼ一定の値を放出する結果となった。

天然バリア出口では、ピーク出現時間に大きな差はなく、燃料デブリの方がピークフラックスの値は高くなった。これは U-238 の総インベントリが燃料デブリの方が 1 桁程度高いことを反映した結果となった。

低バリア条件では、上記とは異なり、人工バリア出口のフラックスの経時変化を直接反映し、多くの核種で HLW の方が高いピークフラックスを示した。



天然バリア (母岩出口) : 低バリア条件 (流速高 : 12m/y、Kd 低 : 1/10)

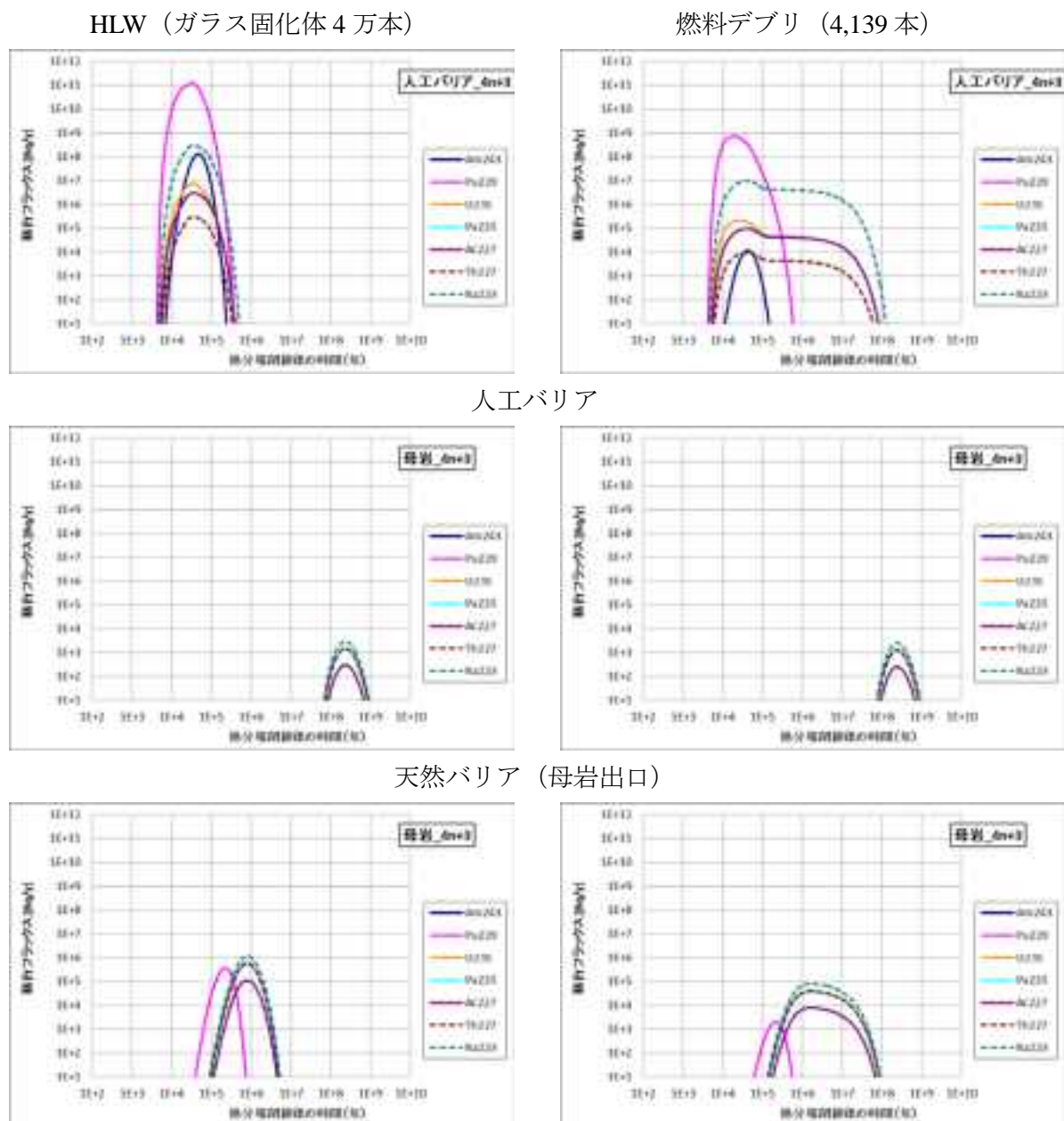
図 6.3-4 4n+2 系列核種の HLW と燃料デブリの解析結果

(d) 4n+3 系列核種

図 6.3-5 に 4n+3 系列核種の核種別移行フラックスの経時変化を示す。人工バリア出口については、これまでと同様に溶解モデルの差が現れており、ピークフラックスは HLW の方が 1~2 桁程度高くなった。燃料デブリでは Am-243 及び Pu-239 が 10~100 万年までで放出を終えるがそれ以外の核種は 1 億年程度まで継続している。

天然バリア出口では人工バリア出口での差は現れず、ほぼ同一の形状、値となった。

低バリア条件では、いずれも Pu-239 については 20 万年程度で、それ以外の核種では 100 万年程度でピークを示し、ピークフラックスも 1~2 桁程度 HLW の方が高い。



天然バリア (母岩出口) : 低バリア条件 (流速高 : 12m/y、Kd 低 : 1/10)

図 6.3-5 4n+3 系列核種の HLW と燃料デブリの解析結果

(e) FP 核種等

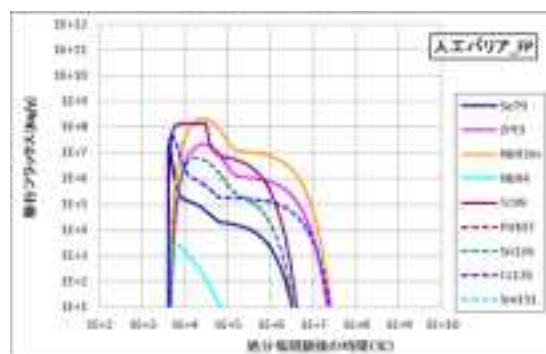
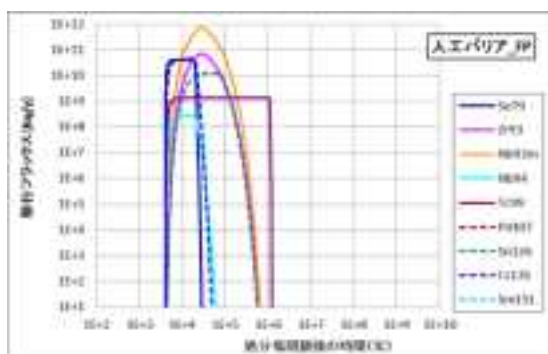
図 6.3-6 に FP 核種等の核種別移行フラックスの経時変化を示す。人工バリア出口については、溶解モデルの差が反映されるとともに、溶解度制限により移行フラックスが変化している。ピークフラックスについては、高いもので3桁以上 HLW の方が高くなっている。

天然バリア出口でもその差が反映されており、Se-79 で4桁程度、Cs-135 及び Nb-93m で3桁程度 HLW の方が高い値を示した。

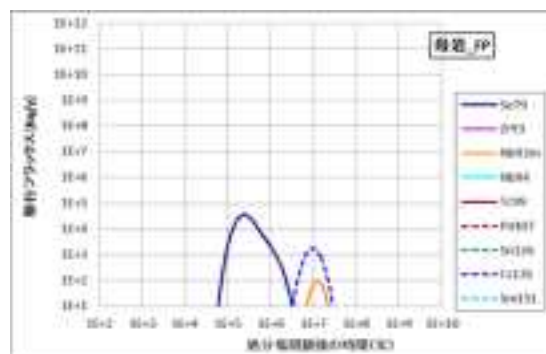
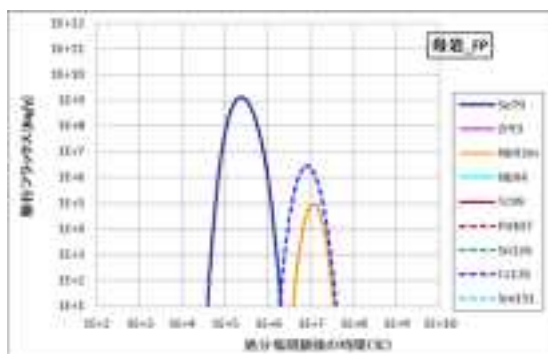
低バリア条件では上記核種に加えて、HLW では Nb-94, Sn-126, Tc-99 のフラックスがグラフに現れた。燃料デブリと比較すると3~4桁程度 HLW のピーク値が高い結果となった。

HLW (ガラス固化体4万本)

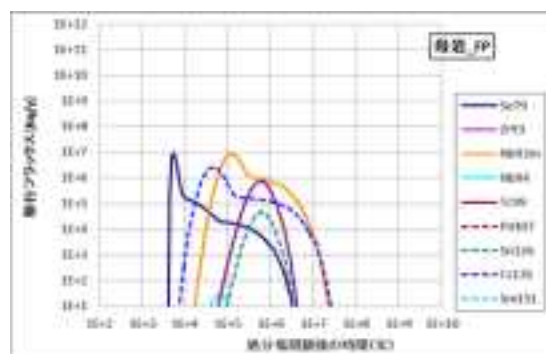
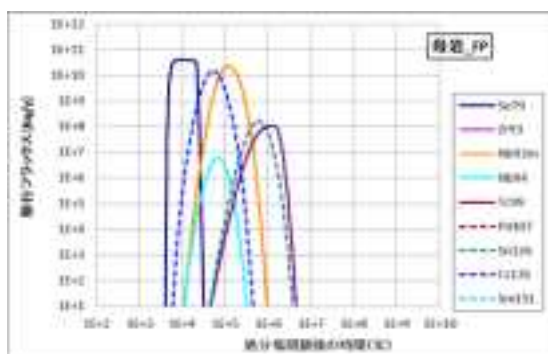
燃料デブリ (4,139本)



人工バリア



天然バリア (母岩出口)



天然バリア (母岩出口) : 低バリア条件 (流速高 : 12m/y、Kd 低 : 1/10)

図 6.3-6 FP 核種等の HLW と燃料デブリの解析結果

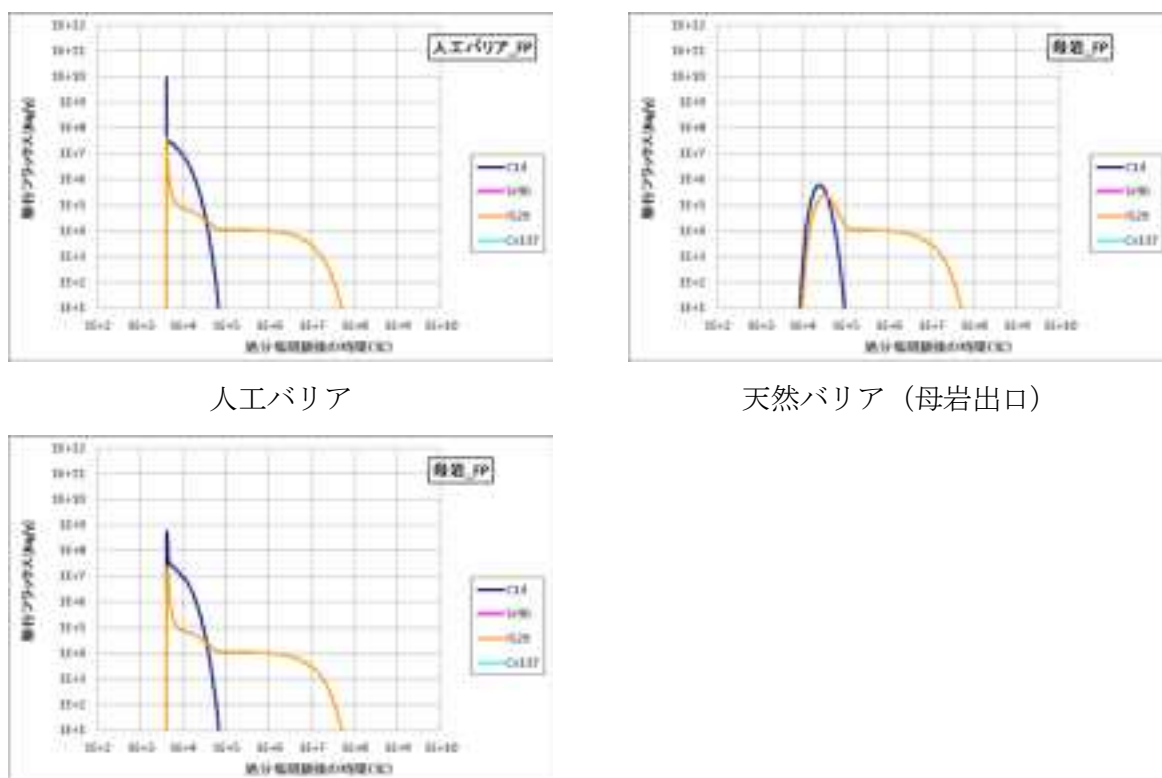
(f) 燃料デブリ含有 FP 核種等 (C-14, Sr-90, I-129, Cs-137)

図 6.3-7 に燃料デブリ含有 FP 核種 (C-14, Sr-90, I-129, Cs-137) の核種移行フラックスの経時変化を示す。Cs-137 及び Sr-90 については半減期が 30 年程度であり、人工バリア出口フラックスには出現しなかった。C-14 については瞬時放出成分が大きくオーバーパック破損と同時に高いピークを示す。I-129 についてもオーバーパック破損と同時にピークを示すが、C-14 よりもなだらかに減少し 5000 万年程度まで放出を継続する。

天然バリア出口では 2~5 万年程度にピークフラックスを示した。C-14 の半減期が 5700 年程度であり、ピーク出現時期には 1 桁以上減衰していることにより、I-129 とのピーク差が 1 桁以内に収まっている。

低バリア条件では、人工バリア出口フラックスの経時変化の形状がそのまま現れている。ピーク値については人工バリア出口と比較して C-14 で 1 桁程度、I-129 で 1/2 程度低下している。

燃料デブリ (4,139 本)



人工バリア

天然バリア (母岩出口)

天然バリア (母岩出口) : 低バリア条件 (流速高 : 12m/y、Kd 低 : 1/10)

図 6.3-7 燃料デブリのみに含まれる FP 核種の解析結果

(6) 標準ケースの結果のまとめ

HLW との比較から、インベントリの大きい U-238 を含む $4n+2$ 系列核種が人工バリア及び天然バリア出口のフラックスが大きく、燃料デブリの感度解析においては $4n+2$ 系列核種への影響を整理するのが適当と考えられる。また、FP 核種及び燃料被覆の放射化による C-14 は人工バリア及び天然バリア出口フラックスにおいて大きな値を示すことから、感度解析においてその不確かさの影響を確認するのに重要な核種と考えられる。したがって、以降の感度解析においては $4n+2$ 核種及び FP 核種 (C-14 含む) を対象とする。

6.3.3 感度解析

(1) ケース設定

標準ケースにおいては、4n+2 系列核種及び FP 核種の核種移行フラックスが大きかったことから、感度解析においてはこれらの核種に焦点を絞って評価した。表 6.3-11 に感度解析ケースとパラメータ設定条件を示す。各ケースにおいて、標準ケースで設定した値に対して、最小値、最大値の評価を行い、それらの比較を行う。

表 6.3-11 感度解析ケースとパラメータ設定条件

No	不確実性	分類	パラメータ	最小値	設定値	最大値	単位
1	核種溶出特性	浸出速度	燃料マトリクス浸出速度	1.0×10^{-7}	時間変化	1.0×10^{-4}	1/y
			構造材金属浸出速度	1.18×10^{-5}	1.18×10^{-4}	1.18×10^{-3}	1/y
2		瞬時放出割合	瞬時放出割合	0	元素ごと	100	%
3	核種閉じ込め機能・設計	OP 破損時期	OP 破損時期	400	4,000	40,000 400,000*2	年
4	核種移行特性	元素依存パラメータ	溶解度	$\times 1/10$	元素ごと	$\times 10$	mol/L
			拡散係数	$\times 1/10$	元素ごと	$\times 10$	m ² /y
			分配係数*1	$\times 10$	元素ごと	$\times 1/10$	m ³ /kg
5	核種閉じ込め設計	緩衝材厚さ	設計厚さ	40	70	100	cm

*1 分配係数は小さいほど移行しやすくなる $\times 10$ を最小値、 $\times 1/10$ を最大値とした

*2 OP の素材として銅を想定した場合の値として設定した

(2) 感度解析の結果

(a) 浸出速度

図 6.3-8 に浸出速度をパラメータにしたケースの感度解析結果を示す。人工バリア出口フラックスにおいて、4n+2 系列核種の最小値 10^{-7} /y ではオーバーパック破損時のフラックスの立ち上がりが緩やかだが、最大値の 10^{-4} /y では立ち上がりが急峻になっている。標準ケースでは時間変化を与えており、オーバーパック破損時は最大値の方に近い設定となっているため、立ち上がりも最大値に近いものになっている。また、標準ケースが 10 万年以降 10^{-7} /y で一定としたため、10 万年以降に出現する系列の下の方核種のピークフラックスについては最小値と標準ケースはほぼ同じ値を示しているが、Pu-242, U-238, Th-234, U-234 については、浸出速度に律速されて、最小値のピークフラックスは 1 桁程度減少した。一方、FP 核種では、最小値と標準ケースはフラックスの時間変化の形状が比較的類似しているが、最大値では 50 万年までにすべての核種の放出が終了している。C-14 についてはピークフラックスは 10^{10} Bq/y で変化しなかった。Zr-93 及び Nb-93m についてはピークフラックスは最小値から最大値に向けて 1 桁以上増加した。

フラックスの時間変化の比較では、核種別の特徴を適切に整理できないことから、人工バリア出口及び天然バリア出口のピークフラックスを抽出して、各核種への影響を HLW との比較を含めて評価することとした。

図 6.3-9 に浸出速度に対する最大フラックスの比較グラフを示す。4n+2 系列核種について、人工バリア出口フラックスでは浸出率最大の場合標準と比較してフラックスは 1 桁以上大きい。一方、天然バリア出口フラックスでは、燃料デブリはいずれの条件でも HLW よりも数倍程度高くなったが、浸出速度の違いがフラックスに影響しない結果となった。FP 核種について、人工バリア出口フラックスで見ると、Zr-93, Nb-93m, Cs-135 は浸出速度が高いほどフラックスが高いが、Se-79, C-14, I-129 は浸出速度の感度はみられなかった。天然バリア出口フラックスで見ると燃料デブリの Se-79, Zr-93, Nb-93m, Cs-135 の最大フラックスは、いずれの条件でも HLW を上回ることはなかった。

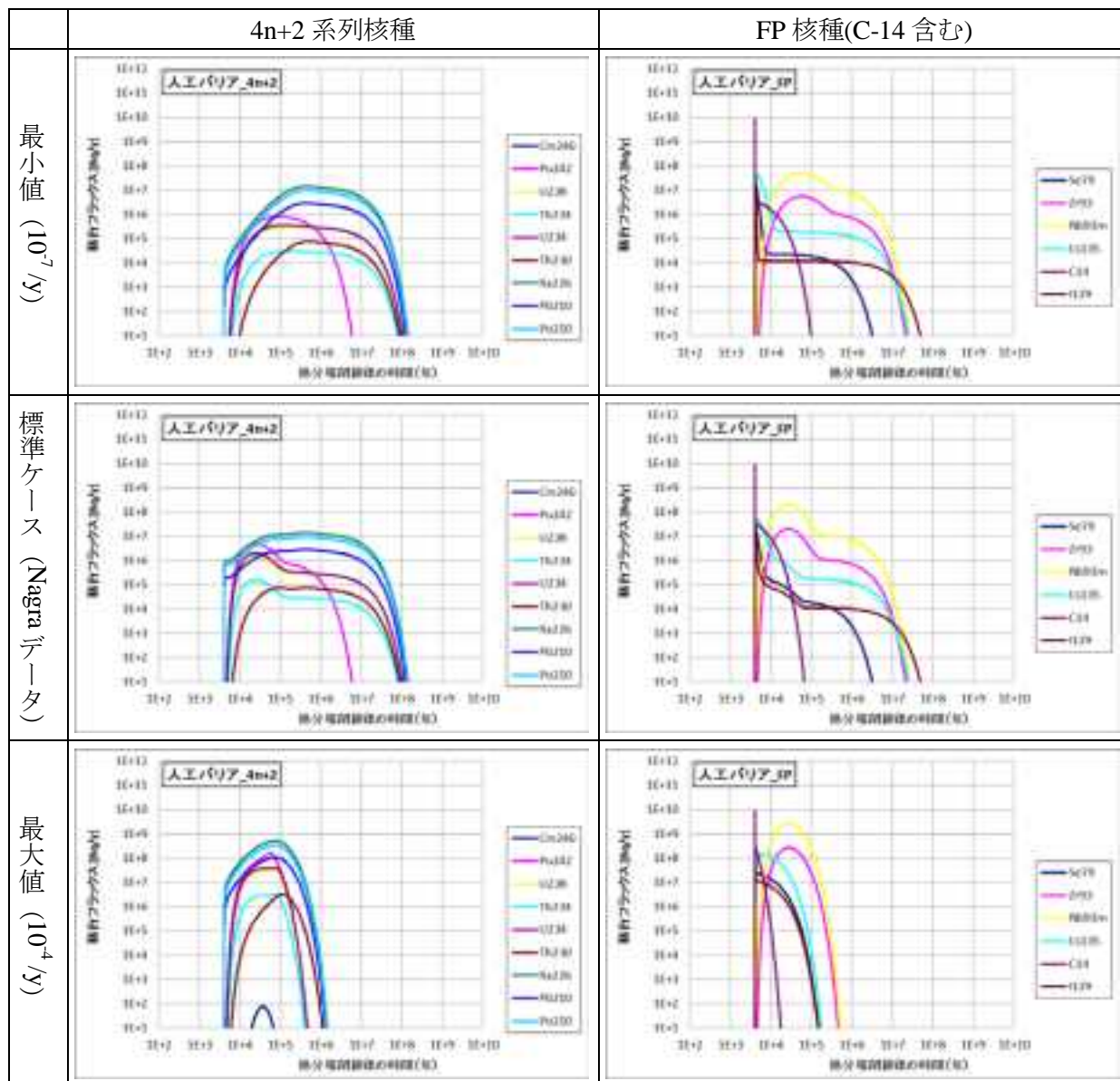


図 6.3-8 浸出速度をパラメータとした場合の核種移行フラックスの経時変化

(b) 瞬時放出割合

図 6.3-10 に瞬時放出割合に対する最大フラックスの比較グラフを示す。4n+2 系列核種について、人工バリア出口では、最大値である割合 100%は標準に比べ 1 桁以上フラックスが増加する。なお、標準と最小値の割合 0 は同条件である。天然バリア出口では、3 つ条件すべてで同じ最大フラックスであり、瞬時放出割合の違いが天然バリア出口へは影響しない結果となった。一方、FP 核種については瞬時放出割合が大きいほど人工バリア出口の最大フラックスが大きくなった。なお、C-14 は標準ケースで瞬時放出割合が 30%であるため、最大値の 100%としても増加率は他の核種に比べて小さい。天然バリア出口では、人工バリア出口フラックスの違いが最大フラックスも影響を与える結果となった。特に Se-79, I-129 の感度が大きい。燃料デブリの最大フラックスは、いずれの条件でも HLW を上回ることはない

(c) オーバーパック破損時期

図 6.3-11 にオーバーパック破損時期に対する最大フラックスの比較グラフを示す。4n+2 系列核種について、人工バリア出口では OP 破損時期の違いが最大フラックスに影響しない結果となった。しかし、OP 破損時期が 40 万年後になると系列の下核種についてはフラックスが上昇する。天然バリア出口では、この違いも吸収され、同一の値を示した。すなわち 4n+2 系列核種では OP 破損時期は最大フラックスに影響しない結果となった。一方、FP 核種では、人工バリア出口で、C-14 は OP 破損時期が 4 万年で最大フラックスが 2 桁、Se-79 は 40 万年で 1 桁程度低下する。C-14 は OP 破損時期が 40 万年になると最大フラックス 10Bq/y 未満となる。天然バリア出口では OP 破損時期が 4 万年の場合 C-14 のフラックスが人工バリアでの影響を受けついで低下するとともに、OP 破損時期 40 万年で Se-79 の最大フラックスは 1/3 程度に減少する。C-14, Se-79 については半減期と OP 破損時期の関係によるものである。半減期の長い Cs-135 及び I-129 については OP 破損時期が 40 万年に延長されても、天然バリア出口フラックスには影響を与えない結果となった。

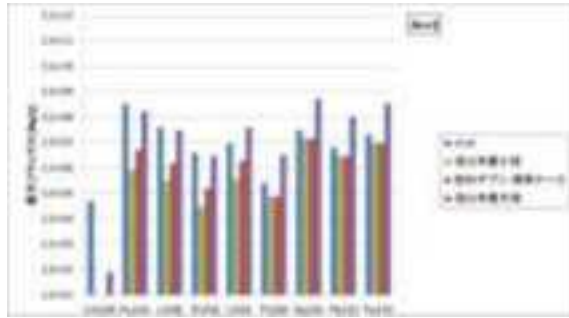
(d) 元素依存パラメータ

図 6.3-12 に元素依存パラメータに対する最大フラックスの比較グラフを示す。元素依存パラメータは溶解度、拡散係数、分配係数の 3 つのパラメータについて、標準ケースに対して核種移行を促進する方向の組合せ（溶解度 10 倍、拡散係数 10 倍、分配係数 1/10）を最大値、核種移行を抑制する方向の組合せ（溶解度 1/10、拡散係数 1/10、分配係数 10 倍）を最小値として評価したものである。4n+2 系列核種について、人工バリア出口では、最小値と最大値の場合の差は Pu-242 では 3 桁以上、U-238 で 2 桁程度となった。しかし、天然バリア出口におけるフラックスはその違いを吸収し、すべての核種で 3 つの条件で同じ値を示した。一方、FP 核種では、最小値と最大値の場合の差は、Se-79, Cs-135 で 3 桁以上、Zr-93, I-129 で 2 桁以上となった。天然バリア出口では各核種ともにわずかな差があるが、明確な傾向性は示されなかった。Zr-94 及び Nb-93m については最小値についてのみ標準、最大値に対して 1/3 程度の値となった。

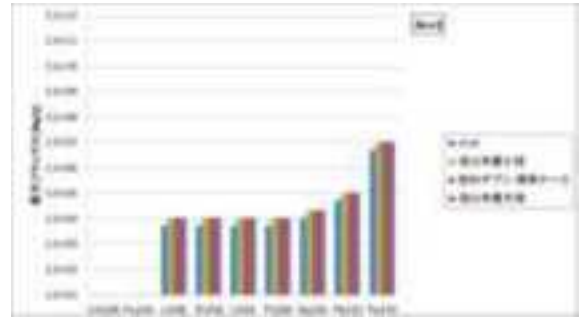
(e) 緩衝材厚さ

図 6.3-13 に緩衝材厚さに対する最大フラックスの比較グラフを示す。4n+2 系列核種について、人工バリア出口では緩衝材厚さが増加するにつれて Th-230 までの上位核種については最大フラックスは減少し、40cm と 100cm の場合の最大フラックスの差は 3 倍以内となったが、系列の下核種 Ra-226, Pb-210, Po-210 については最大フラックスは増加した。天然バリア出口ではすべての核種について最小値から最大値で最大フラックスは同一となり、緩衝材厚さによる

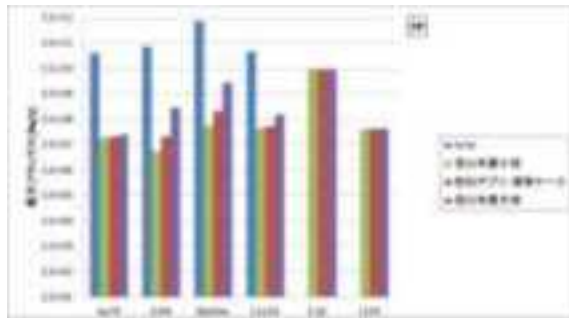
人工バリア出口フラックスの違いが影響しない結果となった。一方、FP 核種については、人工バリア出口ですべての核種について緩衝材厚さが増加するにつれて最大フラックスが減少し、最大値と最小値の差は1桁以内となった。天然バリア出口では最大フラックスは各核種ですべて同一となり、緩衝材厚さの違いが天然バリア出口の最大フラックスには影響を及ぼさない結果となった。



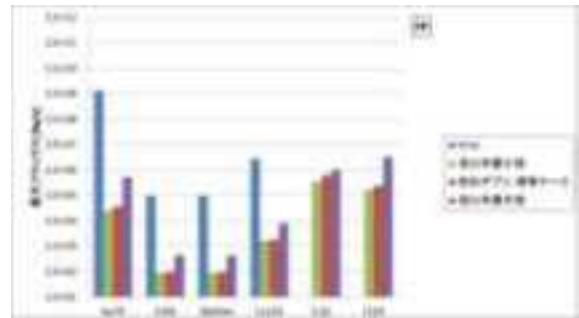
人工バリア出口 (4n+2)



天然バリア出口 (4n+2)



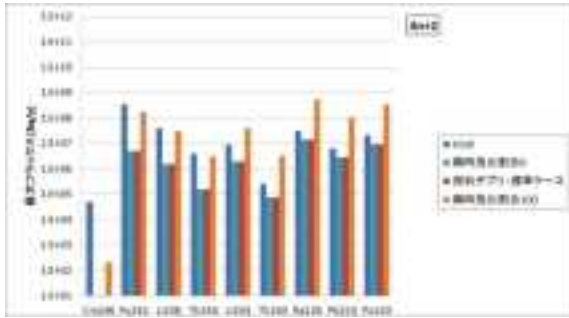
人工バリア出口 (FP 核種)



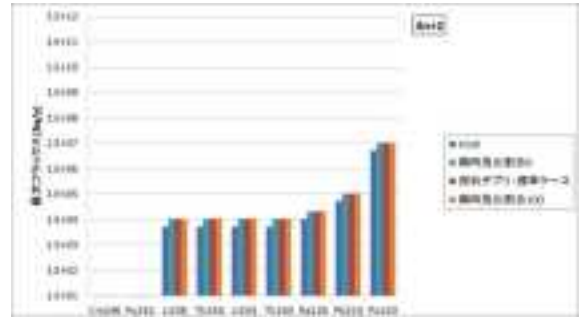
天然バリア出口 (FP 核種)

総量 (HLW : 4 万本、燃料デブリ : 4139 本)

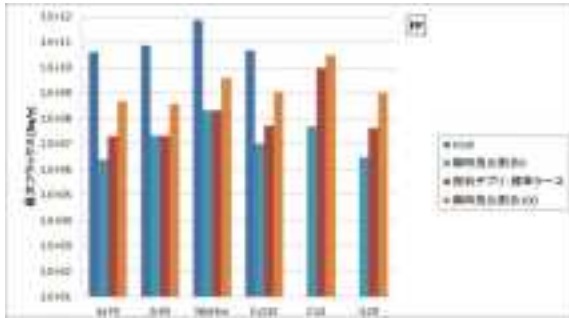
図 6.3-9 浸出速度に対する最大フラックスの比較



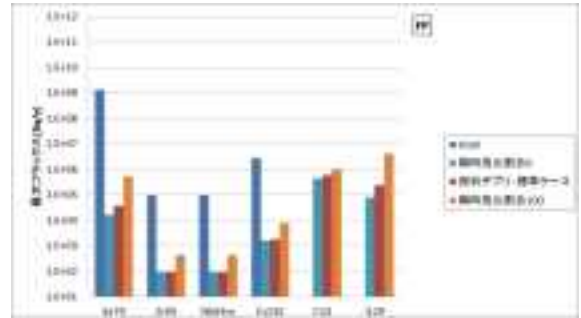
人工バリア出口 (4n+2)



天然バリア出口 (4n+2)



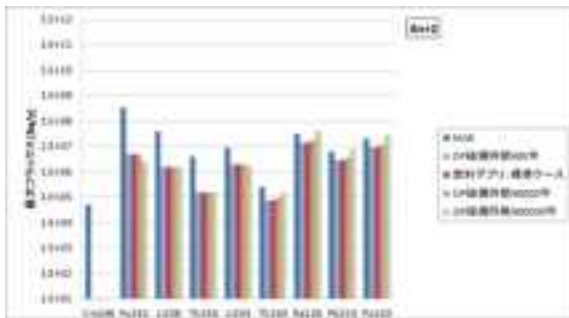
人工バリア出口 (FP 核種)



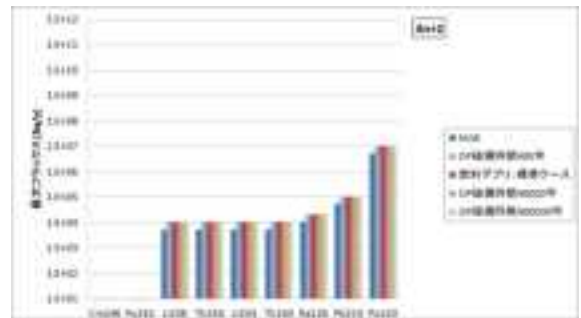
天然バリア出口 (FP 核種)

総量 (HLW : 4 万本、燃料デブリ : 4139 本)

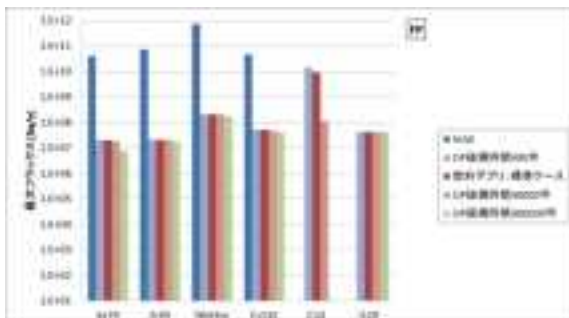
図 6.3-10 瞬時放出割合に対する最大フラックスの比較



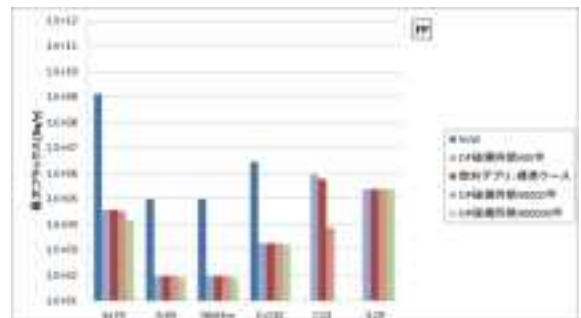
人工バリア出口 (4n+2)



天然バリア出口 (4n+2)



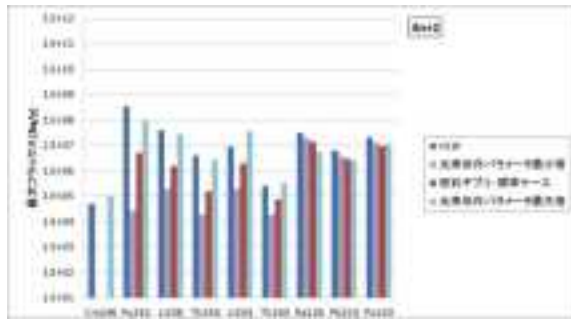
人工バリア出口 (FP 核種)



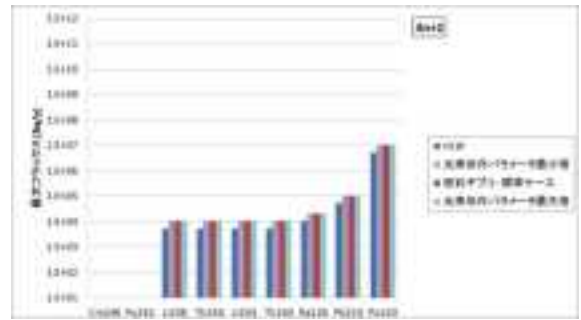
天然バリア出口 (FP 核種)

総量 (HLW : 4 万本、燃料デブリ : 4139 本)

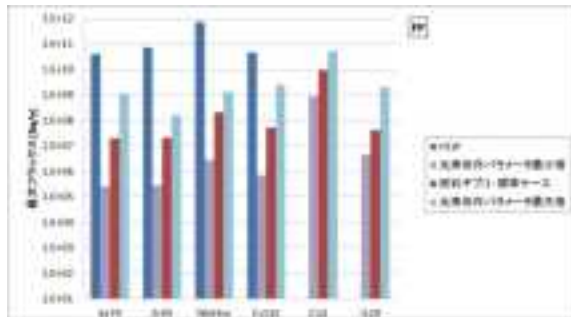
図 6.3-11 OP 破損時期に対する最大フラックスの比較



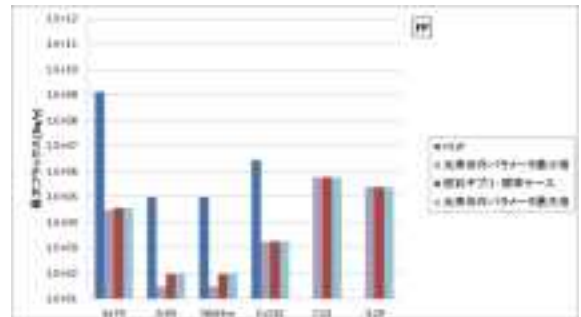
人工バリア出口 (4n+2)



天然バリア出口 (4n+2)



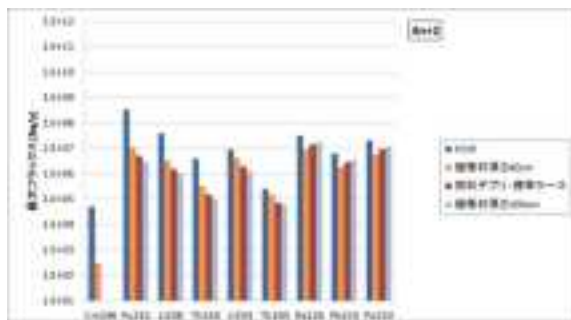
人工バリア出口 (FP 核種)



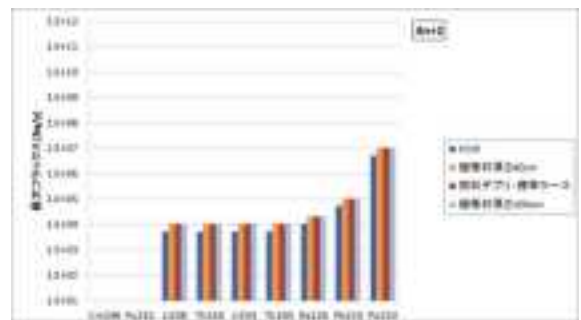
天然バリア出口 (FP 核種)

総量 (HLW : 4 万本、燃料デブリ : 4139 本)

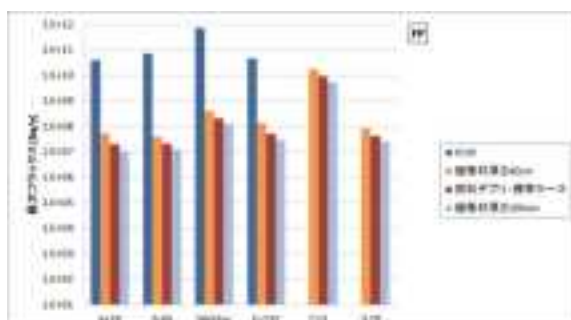
図 6.3-12 元素依存パラメータ (溶解度、拡散係数、分配係数) に対する最大フラックス比較



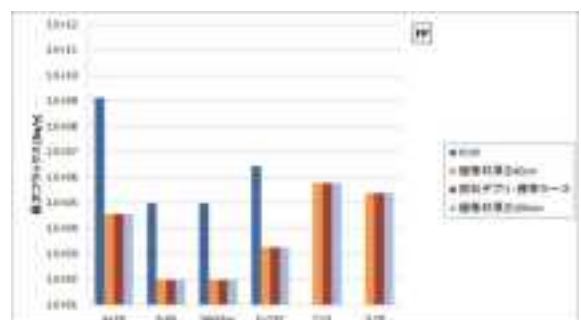
人工バリア出口 (4n+2)



天然バリア出口 (4n+2)



人工バリア出口 (FP 核種)



天然バリア出口 (FP 核種)

総量 (HLW : 4 万本、燃料デブリ : 4139 本)

図 6.3-13 緩衝材厚さに対する最大フラックスの比較

(3) 感度解析の結果のまとめ

表 6.3-12 に人工バリア出口フラックスへの影響の観点から整理した感度解析結果のまとめを示す。4n+2 系列核種は OP 破損時期以外のパラメータについては影響が大きく、特に燃料デブリに特有なパラメータである浸出速度及び瞬時放出割合といった廃棄物からの核種溶出に係る不確実性の影響は重要となる。また、半減期の比較的短い C-14, Se-79 については OP 破損時期が 4 万年、40 万年になると減衰の効果が認められる。

次に、表 6.3-13 に天然バリア出口フラックスへの影響の観点から整理した感度解析結果のまとめを示す。4n+2 系列核種については人工バリア出口のフラックスの違いをすべて吸収してしまい、すべてパラメータについて、天然バリア出口には影響を及ぼさない結果となった。分配係数が小さい核種については、人工バリア出口でのフラックスの違いが天然バリア出口にも反映され、特に浸出速度、瞬時放出割合について感度が大きい。また、半減期の比較的短い C-14, Se-79 については OP 破損時期が 4 万年、40 万年になると減衰の効果が認められる。

表 6.3-12 感度解析結果のまとめ（人工バリア出口フラックスへの影響）

分類	系列核種 (4n+2)	Se-79, C-14, I-129 (分配係数が小さい核種)	Zr-93, Nb-93m, Cs-135
浸出速度	人工バリアのフラックスに対して影響が大きい	緩衝材への分配係数が小さい核種では、瞬時放出成分により最大フラックスが支配されるため、人工バリアフラックスに対する浸出速度の影響は小さい	影響がみられた
瞬時放出割合	浸出速度と同様	瞬時放出割合が大きいほど人工バリア出口の最大フラックスが大きくなるため、影響が大きい	
OP 破損時期	影響は小さい	C-14（半減期：5700年）は4万年以上で、Se-79（ 2.95×10^5 年）は40万年以上で、減衰の効果がみられる	影響は小さい
元素依存パラメータ	浸出速度と同様	人工バリアフラックスに対しては影響がみられる	Zr-93 及びその子孫核種 Nb-93m については影響あり
緩衝材厚さ	浸出速度と同様	人工バリアのフラックスに対して影響がみられる	

表 6.3-13 感度解析結果のまとめ（天然バリア出口フラックスへの影響）

分類	系列核種 (4n+2)	Se-79, C-14, I-129 (分配係数が小さい核種)	Zr-93, Nb-93m, Cs-135
浸出速度	天然バリアにおいて遅延機能が見込まれる場合には、天然バリア出口フラックスへの影響は小さい	天然バリア出口フラックスに対する影響がみられる（C-14は瞬時放出割合が30%のため影響は小さい）	天然バリア出口フラックスに影響がみられた
瞬時放出割合	浸出速度と同様	瞬時放出割合が大きいほど天然バリア出口の最大フラックスが大きくなるため、影響が大きい	
OP 破損時期	影響は小さい	C-14（半減期：5700年）は4万年以上で、Se-79（ 2.95×10^5 年）は40万年以上で、減衰の効果がみられる	影響は小さい
元素依存パラメータ	浸出速度と同様	天然バリア出口フラックスに対する影響は比較的小さい	Zr-93 及びその子孫核種 Nb-93m については天然バリア出口フラックスにも影響
緩衝材厚さ	浸出速度と同様	天然バリアにおいて遅延機能が見込まれる場合には天然バリア出口フラックスへの影響は小さい	

6.3.4 人工バリア安全機能に着目した感度解析のまとめ

燃料デブリ処分において求められるバリア機能の概略的な把握を目的として、人工バリア安全機能の各条件に対して、感度解析を実施した。特に、燃料デブリ特性と人工バリアの各安全機能の関係を把握するため、バリア性能の応答を調べる感度解析を行った。

燃料デブリからの核種移行フラックスを HLW（ガラス固化体）と比較することで、燃料デブリの特徴を整理するとともに、感度解析により得られた結果から、燃料デブリ処分に求められる人工バリアの性能に関して検討を行った。

具体的には、人工バリアの安全機能の不確実性について感度解析ケースを設定し、核種の溶出特性（燃料デブリ浸出速度、瞬時放出割合）、核種の閉じ込め機能・設計（閉じ込め期間（OP 破損時期）、緩衝材厚さ）及び、核種移行特性（溶解度、収着分配係数、拡散係数（ともに元素依存パラメータ））の観点から解析を実施した。標準ケースを設定し、仮想燃料デブリ Ver.1 を対象とした評価を行い、HLW ガラス固化体を対象としたケースと比較するとともに、標準ケースに対して各パラメータの不確実性を考慮したパラメータ変化を与えて、感度の大きいパラメータを抽出した。

(1) 標準ケースの解析結果

4n+2 系列核種の天然バリア出口における最大フラックスにおいて、総インベントリ (U-238) の差の影響により、燃料デブリが HLW をわずかに上回る結果となった。それ以外の核種では HLW を超えることはなかった。U-238 は半減期 (4.47×10^9 y) が長く、燃料デブリではインベントリも多いため、安全評価において重要となる核種であり、4n+2 系列核種について系統的な評価が必要となる。また、燃料デブリでは有意な量の C-14 や I-129 が含まれており評価上重要である。

(2) 感度解析結果

4n+2 系列核種及び C-14 を含む FP 核種について感度解析を行った結果、浸出速度及び瞬時放出割合といった燃料デブリからの核種溶出に係る不確実性の影響は重要となることがわかった。特に FP 核種に対して重要であり、系列核種は天然バリアの性能に依存し、天然バリアの性能が低い場合には影響が現れてくる可能性がある。また、半減期が比較的短い核種に対しては OP 破損時期が評価上重要となる。さらに、C-14 や Se-79 に対しては OP の耐久年数を増加させることで有効に減衰させることが可能であることがわかった。

以上のことから、燃料デブリからの核種溶出に係るモデル及びパラメータの不確実性を低減することで、より精度の高い評価を行うこと可能となると考えられる。

(3) 今後の課題

本年度の感度解析では、天然バリアのパラメータについては固定して評価を行った。今後は、天然バリアのバリア性能との組合せを考慮した感度解析により、どのような天然バリア条件において人工バリアの不確実性が顕在化するか検討する必要がある。

6.4 海水準変動と隆起・侵食を組み合わせたシナリオを対象とした安全評価

日本原子力研究開発機構では、規制庁受託事業「地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備（核種移行データベースの整備）」において、処分システムへの影響の要因を以下の3タイプに分類し、各要因に対するシナリオ設定手法の整備を行った。

- ・建設・操業・閉鎖段階の事故・人的要因等に係るシナリオ
- ・人工バリア変遷に係るシナリオ
- ・地質・気候関連事象に係るシナリオ

このうち地質・気候関連事象に係るシナリオとしては、処分システムに対し考慮すべき事象として「火山・火成活動」、「地震・断層活動」、「隆起・侵食」、「気候・海水準変動」について、それぞれ個別に評価を行ってきた（図 6.4-1）。

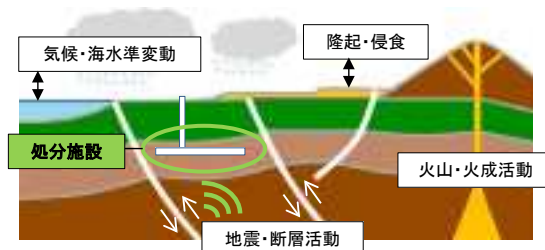


図 6.4-1 処分システムに対し考慮すべき地質・気候関連事象

しかし沿岸域のサイトを対象とした場合、「気候・海水準変動」と「隆起・侵食」は両者を組み合わせて考慮する必要がある。これは、沿岸域では地形変化による汀線位置の変化や、海水準変動に伴う海食の影響を考慮する必要があるためである。また、「隆起・侵食」はサイトへの依存性が大きい事象であるため、気候・海水準変動による地形変化への影響を考慮した上で、各サイトの特性に応じた将来の変遷を考慮する必要がある。

そこで本評価では、仮想的な沿岸域のサイトを対象に、気候・海水準変動を考慮した地形変化シミュレーションに基づき、将来十数万年の気候・海水準変動および隆起・侵食による、天然バリアにおける地下水流動および処分システムからの核種移行への影響を評価することを目的とする。核種移行への影響評価は、核種移行解析に必要な一連の解析のパラメータをリンクさせた総合的な安全評価体系により実施する（図 6.4-2）。

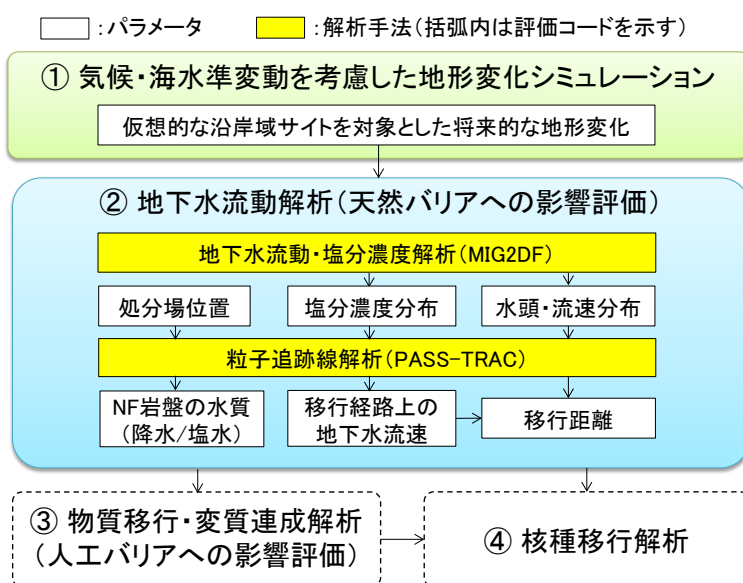


図 6.4-2 気候・海水準変動および隆起・侵食に対する影響評価体系

6.4.1 気候・海水準変動を考慮した地形変化シミュレーション

日本原子力研究開発機構では、気候・海水準変動を考慮した地形変化の評価として、平成 21 年度 規制庁受託事業「地層処分に係る水文地質学的変化による影響に関する調査」⁽¹⁾において房総半島を対象とした 3 次元地形変化シミュレーションを実施している。本評価ではこの結果を使用して、気候・海水準変動および隆起・侵食を考慮した影響評価を実施した。

以下に、上記事業での実施内容について簡単に示す。

(1) 評価概要

房総半島を対象とした 3 次元地形変化シミュレーションは、図 6.4-3 に示す範囲（東西方向 162.30km、南北方向 109.35km）を対象に実施されている。評価の流れを以下に示す。

①代表的な河川における河床縦断形シミュレーション

房総半島における代表的な河川である夷隅川に対し、過去から現在まで（氷期・間氷期 1 サイクル）の河床縦断形シミュレーションを実施し、現在の地形をシミュレートするパラメータを選定する。選定したパラメータに基づき、現在から将来まで（氷期・間氷期 1 サイクル）に対し同様のシミュレーションを実施し、将来の地形をシミュレートする。

②代表的な河川周辺領域における 3 次元地形変化シミュレーション

夷隅川流域（図 6.4-3 の赤枠内）において、①で選定したパラメータに基づき 3 次元地形変化シミュレーションを実施し、①で求めた将来の地形を再現するように、パラメータを調整する。

③房総半島全域における 3 次元地形変化シミュレーション

房総半島全域（図 6.4-3 に示す全領域）において、②で選定したパラメータに基づき 3 次元地形変化シミュレーションを実施する。

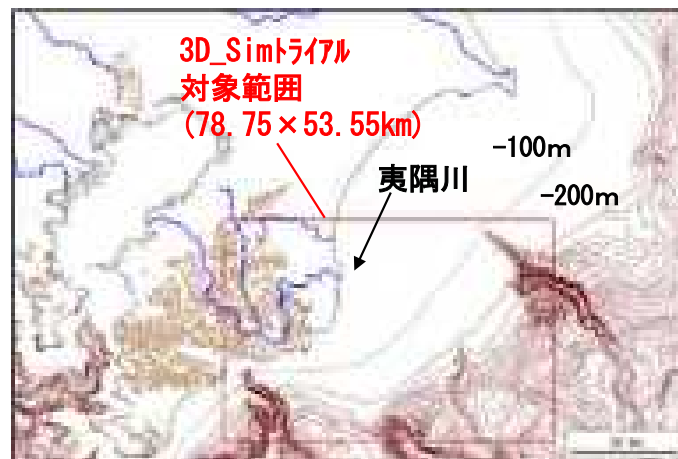


図 6.4-3 3 次元地形変化シミュレーションの試行範囲
（投影法：UTM（ユニバーサル横メルカトル図法）54 帯、
左上 UTM 座標：X=367,850, Y=3,970,200、右上 UTM 座標：X=530,150, Y=3,860,850）

3 次元地形変化シミュレーションは、既往の文献等から求めた多くのデータを組み合わせることで実施されている。シミュレーションの手順とデータの流れを、図 6.4-4 に示す。

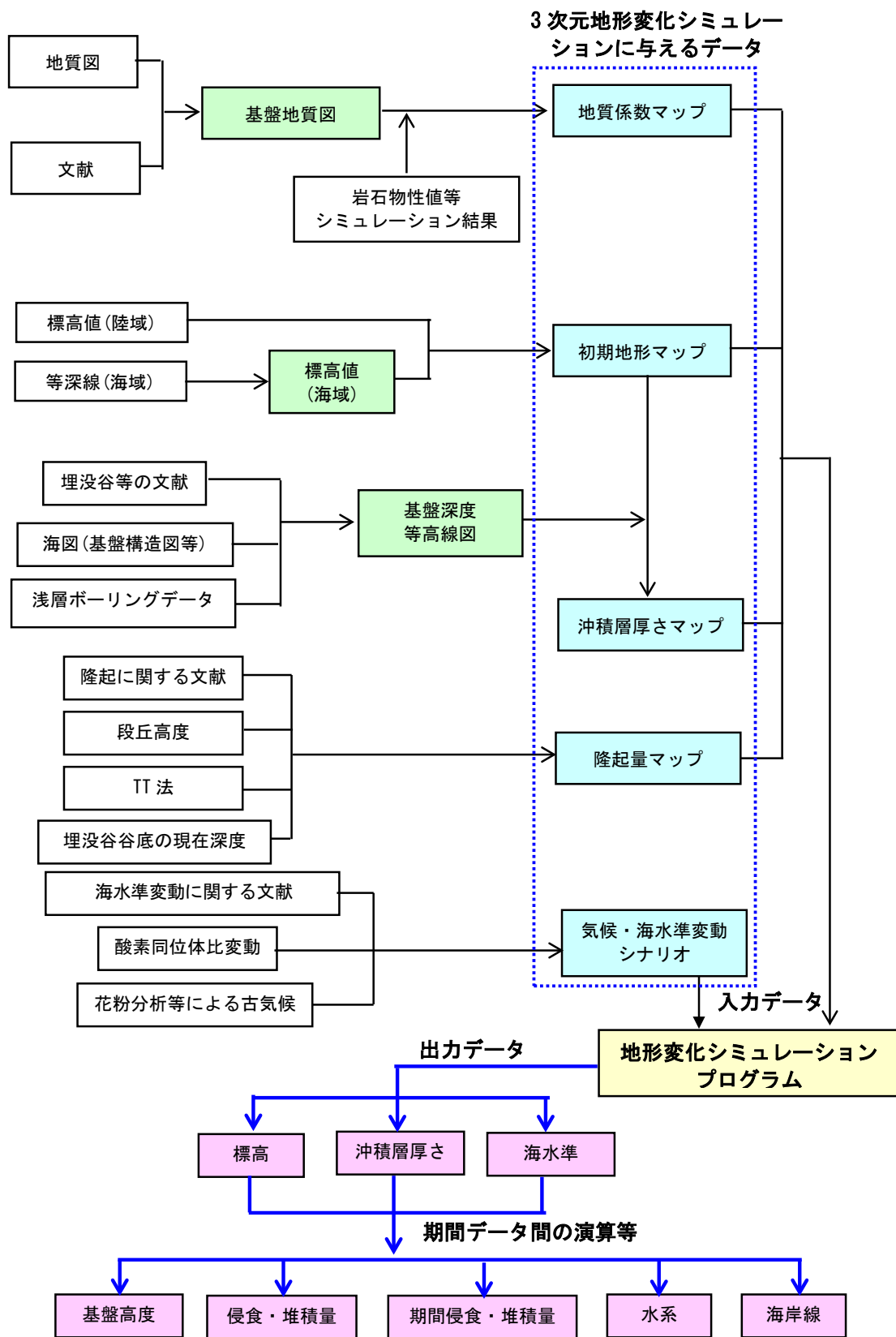
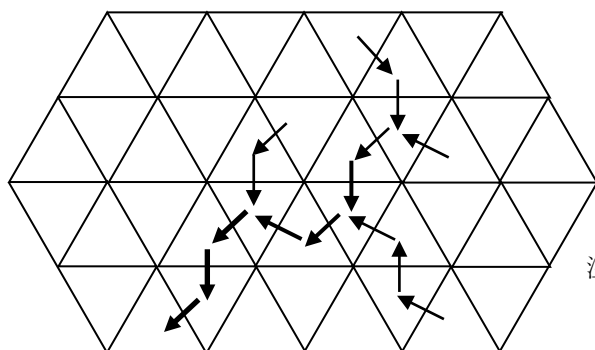


図 6.4-4 3次元地形変化シミュレーションの手順とデータの流れ

(2) 評価手法

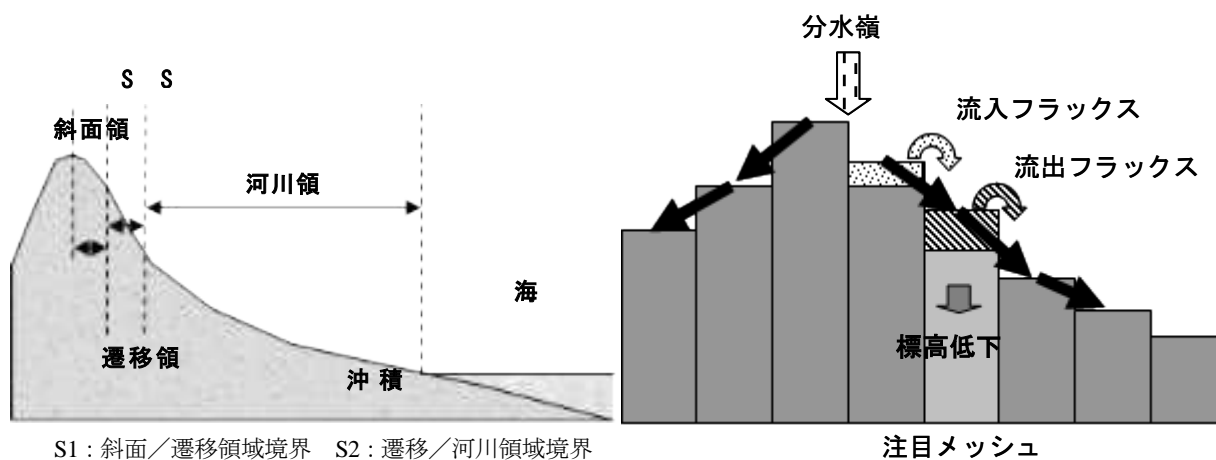
3次元地形変化シミュレーションは、領域を正三角形（1辺150m）のメッシュで区分し、各メッシュにおける隆起量、および、メッシュ間の侵食・堆積に伴う物質の流入・流出量を足し合わせることで評価される（図6.4-5）。



注) 矢印が落水方向で、太い矢印ほど集水面積が大きいことを表わす。

図 6.4-5 3次元地形変化シミュレーションのメッシュモデル

シミュレーションにあたっては、領域を図6.4-6に示すように陸域（斜面領域、遷移領域、河川領域）および海域に分類し、各領域に特有な侵食・堆積作用を考慮したアルゴリズムを使用している。



S1: 斜面/遷移領域境界 S2: 遷移/河川領域境界

(a) シミュレーションの4つの場
(草野ほか、2009⁽²⁾より引用)

(b) 侵食と標高変化の概要モデル
(日本原子力研究開発機構、2007⁽³⁾より引用)

図 6.4-6 シミュレーションの基本概念

(a) 侵食アルゴリズム

陸域での侵食量は上流部の斜面領域、中～下流部の河川領域、その間の遷移領域の3つの場によって区分され、それぞれの場の侵食量（流出フラックス）を次の基本式で計算する。

- ・斜面領域 ($x < S1$)

$$Outflux = (1/Geo_dd) \times DS \times DR \times GD \times W$$

- ・遷移領域 ($S1 \leq x < S2$)

$$Outflux = (1/Geo_dd) \times \{f \times DS + (1-f)\} \times DR \times GD \times W$$

- ・河川領域 ($S2 \leq x$)

$$Outflux = (1/Geo_dd) \times DR \times GD \times W$$

ここで、 $S1$ ：斜面領域/遷移領域の閾値（流下距離）、 $S2$ ：遷移領域/河川領域の閾値、
 Geo_dd ：地質係数、 DS ：斜面係数、 DR ：河川領域の拡散係数、
 GD ：勾配（下流側の点との勾配）、 W ：2点間の距離、
 f ：遷移領域での斜面式の重み [$f = (S2 - x) / (S2 - S1)$]

- ・海域

海食の影響を再現するために、海と隣接し基盤が露出している（沖積層厚さが10cm以下）メッシュに対してのみ、上式の侵食式を適用する。

(b) 堆積アルゴリズム

- ・斜面領域

斜面領域では流下距離にかかわらず年間の移動量を与え、生産された土砂はこの区間に均等に移動・堆積させる。

- ・河川領域

河川領域の先頭を基準として年間の土砂移動量を定義し、流下距離に対して指数的に堆積範囲（運搬距離）を増大させる。堆積範囲は次式によって計算する。

$$W = W_r \times \left(\frac{L}{L_s} \right)^{Diff_k}$$

ここで、 W ：任意点の堆積範囲、 W_r ：河川先頭で生産された土砂の堆積範囲、
 L ：河川域での任意点の流下距離（対数）、 L_s ：河川先頭の流下距離（対数）、
 $Diff_k$ ：礫径係数

- ・遷移領域

基本的に河川領域と同じ方法で計算する。この場合、前式における流下距離の比は1.0よりも小さくなり、堆積範囲は河川先頭を基準とした堆積範囲よりも短くなる。

- ・海域

Gaussian 関数により、河口からの距離が遠くなるほど堆積量を小さくする方法で拡散堆積させる。この際、拡散堆積する範囲は流域面積の平方根に比例するモデルを用いている。この方法で堆積させると、楔形の堆積構造をもつ海底堆積物が形成される。

ただし、東京湾において勾配が緩い底置層（bottomset bed：河口三角州の一番下にあって沖合まで広がる細粒の泥質物質の地層）と勾配の急な前置斜面（foreset slope：河口三角州の前面に形成される急勾配の斜面）から構成される沖積構造を見ると、前置斜面基部の水深は20 m前後となっている。このような構造は運搬されてきた土砂の砂と泥の篩い分けによって

形成される⁽⁴⁾。つまり、前置斜面は砂によって構成され、泥は海水中に長期間浮遊するために広範囲に拡散する。

この堆積方式を3次元地形変化シミュレーションに取り入れるため、水深20 mまでは拡散した土砂の全量が堆積するとし、20 m以深では30 mで半値となるGaussian関数で堆積量を減少させ、底地層範囲での堆積量を減少させた。なお、Gaussian関数により堆積させなかった土砂は、海流によって沖合（系外）に運搬されることとした。

シミュレーションで使用する各パラメータの概要を、表 6.4-1 に示す。

表 6.4-1 シミュレーションで使用するパラメータ

パラメータ名	内 容
礫径係数	流下距離に対する礫径の変化（分解の程度）を表わすパラメータで、大きな値ほど細かくなりやすく、堆積区間が長いことを示す。寒冷期には降水量減少に伴って河川運搬力が低下することにより、礫が分解されにくくなって凹型度が小さくなるという従来の知見を、礫径係数の変化で表現できることになる。
地質係数	沖積層を1.0としたときの地質の硬さの倍率を表す数値で、シミュレーションではその逆数を使用して侵食の受けにくさ（侵食耐性）を表す。一軸圧縮強度に関連する値と考えられる。
河川拡散係数 （河川係数）	河川領域における侵食力（侵食速度）に相当するパラメータで、これに2点間の勾配と距離を乗じて侵食量を求める。
斜面係数	河川領域の侵食力に対する斜面領域の侵食力の割合を表す係数で、斜面領域ではクリープによる非常にゆっくりとした土砂移動が主であることから、河川領域における侵食量にこの係数を乗じることによって侵食量を小さく抑える。
斜面／遷移／河川境界	クリープによる物質移動領域と、流水による運搬が卓越する領域および両者の遷移領域を区分するための数値で、シミュレーションでは斜面／遷移境界と遷移／河川境界をそれぞれ上流端からの距離として与える。
拡散範囲初期値 （初期堆積範囲）	河川領域の先頭で侵食された土砂の堆積範囲を表わす。任意点での堆積範囲はこの値を基準として、流下距離に応じて指数的に増大させる。
気候係数	氷期の河川流量減によって、礫径係数および拡散範囲初期値の値を温暖期（現在）に対してどれだけ減らせばよいかという比率を表わす。一般的には0.6～0.7程度の値となり、中間期の値は海水準に応じて比例式で与える。

(3) 評価条件

地形変化シミュレーションを実施するためには、図 6.4-4 に示した入力データ（初期地形、隆起量、地質係数、沖積層厚さ、海水準変動）が必要となる。以下にそれらの設定を示す。

(a) 初期地形

日本原子力研究開発機構による 100m メッシュの DEM（Digital Elevation Model：数値標高モデル）⁽⁵⁾より、陸域および海域の標高データを作成した（図 6.4-7）。

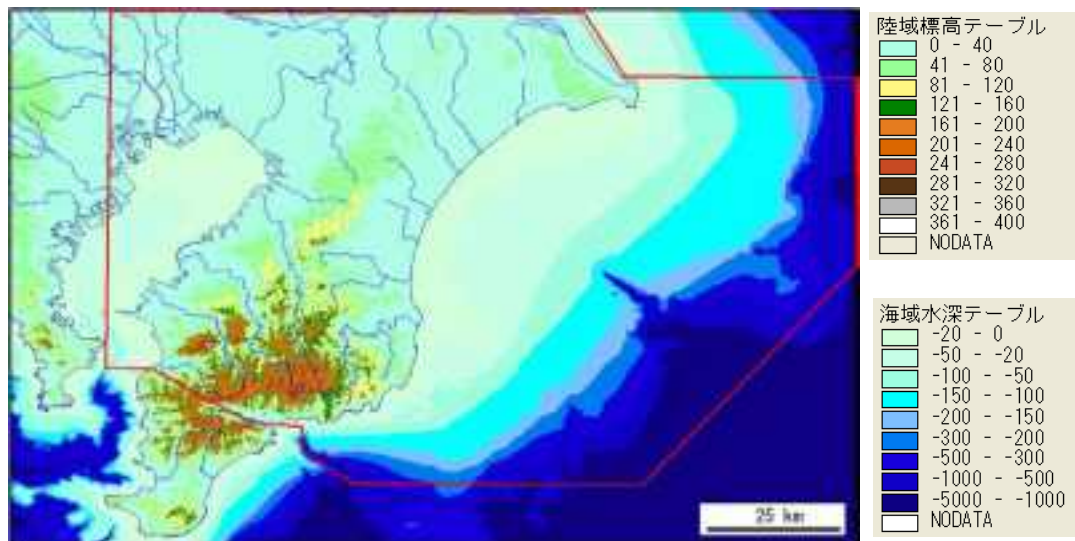


図 6.4-7 陸域および海域の標高データ（100 m メッシュ DEM）

房総半島における地質については、産業総合技術研究所による縮尺 1/20 万のシームレス地質図⁽⁶⁾、千葉県其自然史における表層地質図⁽⁷⁾、海上保安庁水路部発行の地質構造図⁽⁸⁾⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾⁽¹²⁾に基づき、図 6.4-8 のような 6 つの区分から成る基盤地質図を作成した。

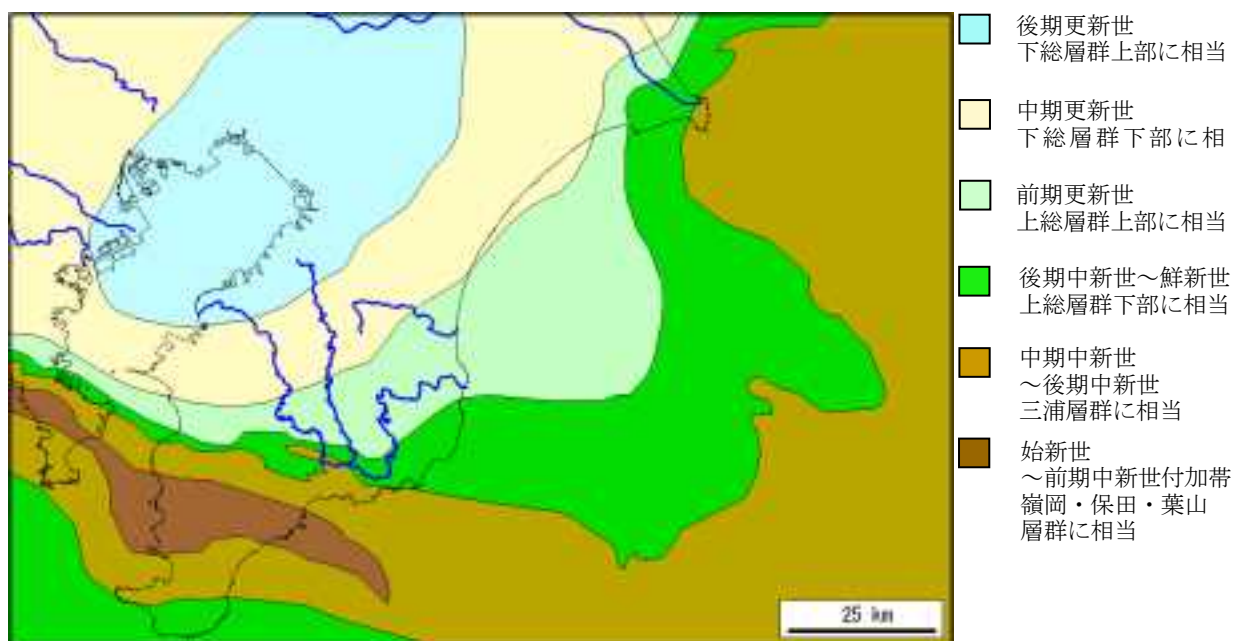


図 6.4-8 基盤地質データ

(b) 隆起量

陸域においては既往の文献⁽¹³⁾⁽¹⁴⁾に基づく領域に応じた海成段丘のデータ、海域においては最終氷期の最大海面低下期に形成された海底谷末端の高度から、隆起速度分布を推定している(図 6.4-9)⁽¹⁵⁾。シミュレーションで実際に使用する隆起速度分布は、等高線データから IDW (Inverse Distance Weighted : 逆距離荷重法) により内挿することで求めている。

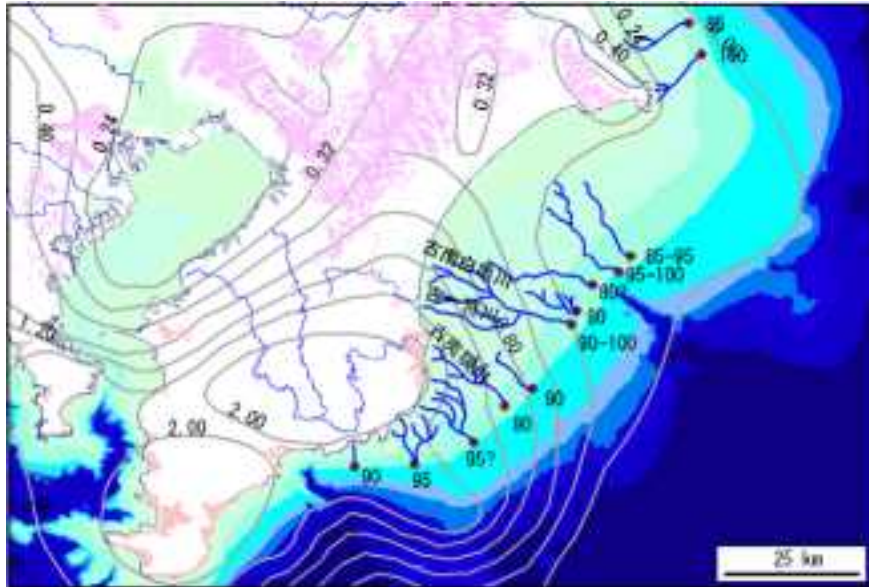


図 6.4-9 隆起速度分布データ

(c) 地質係数

地質係数は岩石の侵食に対する抵抗性の指標であり、この逆数を用いて単位時間当たりの侵食量が算出される。すなわち、沖積層が年間 10 cm 侵食される地点に地質係数 100 の基盤が現われている場合、沖積層侵食量の 1/100 となる年間 1 mm が侵食される計算となる。

河床縦断面シミュレーションの結果により、地質係数は P 波速度との関係性があることが確認されており、図 6.4-10 に示すように、P 波速度が大きくなる(すなわち固結度が高く、緻密な岩石である)ほど、地質係数が大きくなる(侵食されにくい)傾向にある。

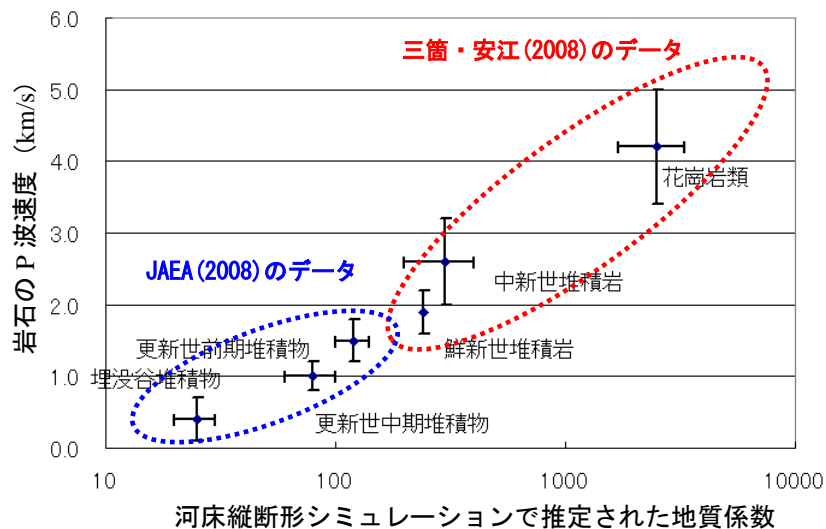


図 6.4-10 地質係数と P 波速度の関係⁽⁵⁾⁽¹⁶⁾

このことから、3次元地形変化シミュレーションは、P波速度に応じて設定した地質係数に基づき実施した(図 6.4-11)。

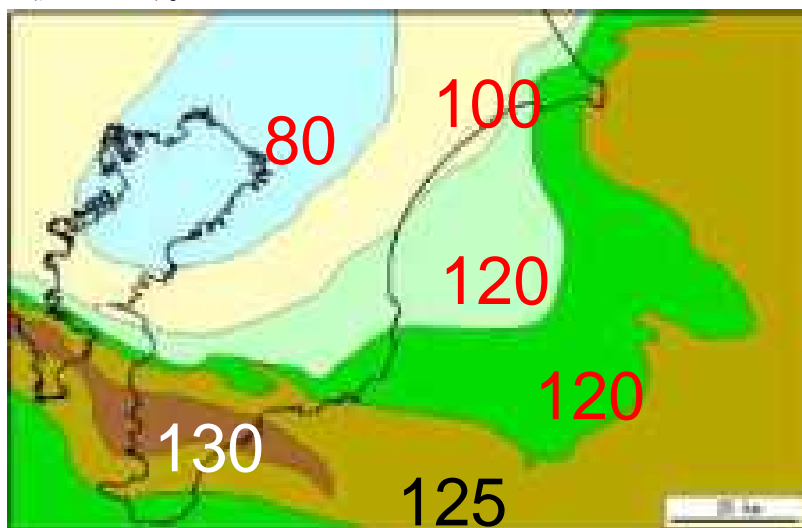
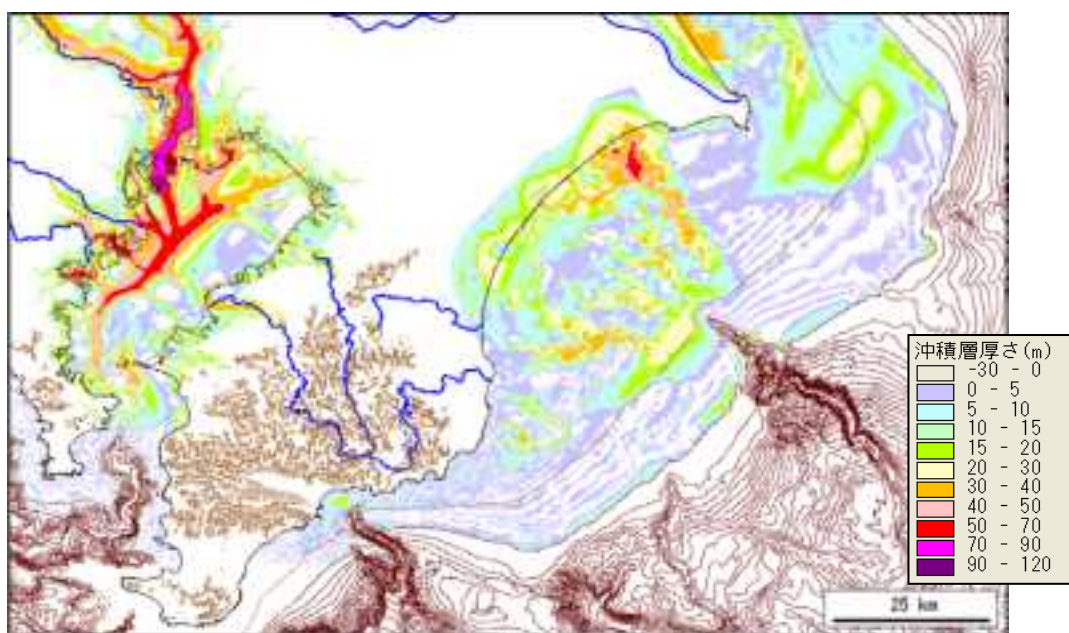


図 6.4-11 基盤地質の地質係数

(d) 沖積層厚さ

東京湾や九十九里浜では、氷期に形成された谷が沈水し沖積層に覆われた埋没谷が分布する。これら埋没谷では沖積層が厚く堆積しており、また、東京湾では埋没谷以外の海底にも厚い沖積層が堆積している。このような沖積層は未固結状態であり、海水準低下により陸化した際には、基盤よりも容易に侵食され、比較的短期間に地形変化が起きると考えられるため、沖積層の厚さを求めることが必要である。

沖積層厚さは、現在の地形データから既往の文献⁽¹⁷⁾⁽¹⁸⁾より作成した基盤等深度線の値を差し引くことで算出されている(図 6.4-12)。



注) 等高線・等深線は 100 m

図 6.4-12 沖積層厚さ分布データ

(e) 海水準変動

海水準変動は、Chappell (1994) ⁽¹⁹⁾による直近の氷期・間氷期 1 サイクルの変動曲線（基準シナリオ）に加え、Waelbroeck et al. (2004) ⁽²⁰⁾の海水準変動曲線および EPICA (2004) ⁽²¹⁾の酸素同位体比曲線から算出した海水準変動曲線に基づき、海水準変動規模に応じて選定した3つのシナリオを設定している（表 6.4-2）。

表 6.4-2 選定した4種類の海水準変動シナリオ

名称	海水準変動規模	平均海水準 (m)	変動幅 (m)	期間 (ka)		期間長 (万年)
				開始	終了	
基準シナリオ	中～大	-53.6	120	125	0	12.5
シナリオ1	大	-51.6	152	691	574	11.7
シナリオ2	中	-53.8	110	823	691	13.2
シナリオ3	小	-28.8	66	596	484	11.2

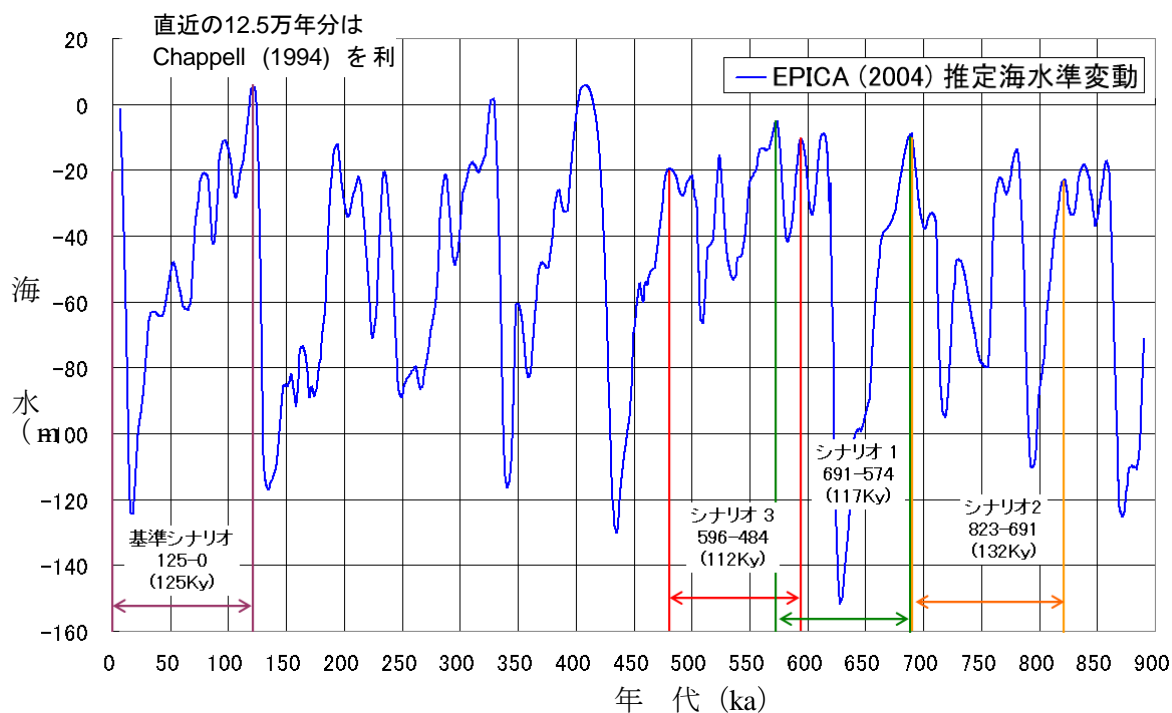
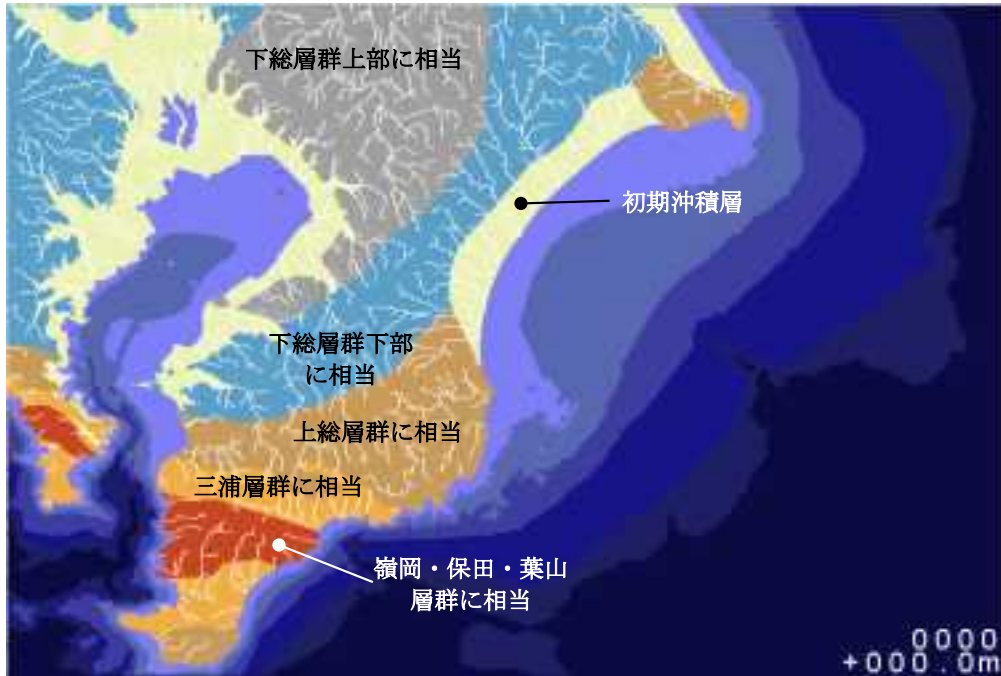


図 6.4-13 選定した4種類の海水準変動シナリオの年代位置

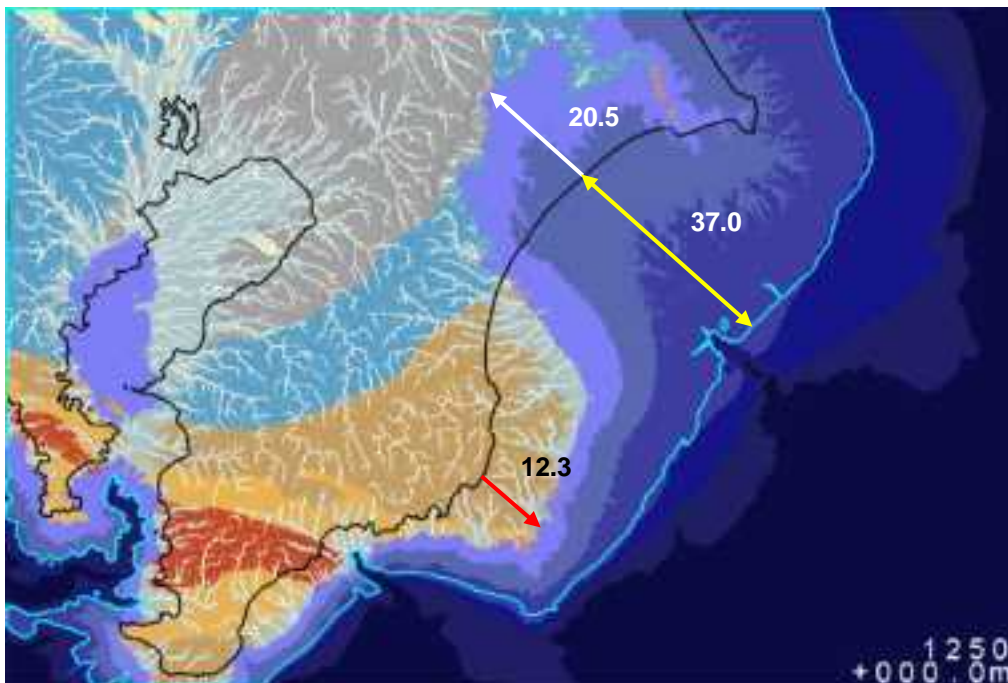
以下では、このうち最も直近のシナリオである基準シナリオに対する結果について述べる。

(4) 評価結果

初期状態における房総半島の表層地質図、および、3次元地形変化シミュレーションによって得られた12.5万年後(氷期・間氷期1サイクル経過後)の表層地質と海岸線の変化を、図 6.4-14 に示す。また、12.5万年間の標高変化量を図 6.4-15 に示す。



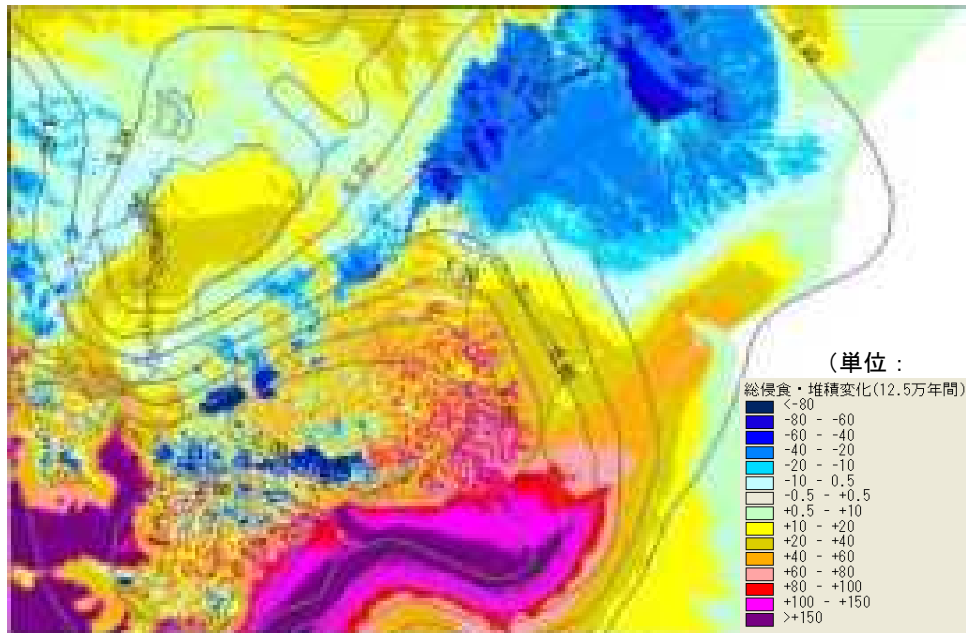
(a) 初期状態



背景は12.5万年後の表層地質図 黒線は現在の海岸線
水色は10万年後(海水準-93 m)の海岸線

(b) 12.5万年後(氷期・間氷期1サイクル経過後)

図 6.4-14 氷期・間氷期1サイクルによる表層地質と海岸線の変化



注) コンターと数値は隆起速度

図 6.4-15 12.5 万年間の標高変化量

3次元地形変化シミュレーションの結果より、房総半島における地形変遷について以下のことがわかった。

- 現在よりも海岸線が後退する地域が多く、後退量は海底地形と隆起量に影響されるが、房総南部は5 km程度、夷隅川付近で10数 km程度の後退量が推定される。一方、九十九里浜では海岸線が現在よりも20 km程度前進すると予測されたが、この地域では漂砂による土砂供給が考えられるために、それよりは後退するものと思われる。
- 隆起量の差と沖積層の形成によって東京湾は盆状構造となり、陸化ないし浅海となる。
- 内陸部の標高は環境（海岸までの距離、隆起量、海底地形等）によって地域的な違いが現れる。
- 夷隅川南側の海岸部では、隆起および海岸線の後退による標高の上昇が大きく、100 m程度上昇する地域も認められ、現在よりも険しい山地が形成される。
- 標高変動幅は房総半島北部で5 m程度と小さく、中部付近で10~20 m程度、南部では30~40 mと、南部ほど大きくなる。また、陸域に比較して海域で大きい。とくに大きな地域は房総半島南部の西海岸や三浦半島沖であり、100 m以上の変動幅が推定される。
- 外洋に面した沿岸域では海食による影響により変動幅が大きくなる。

6.4.2 地下水流動解析

(1) 解析概要

気候・海水準変動および隆起・侵食による天然バリアでの地下水流動の変化を調べるために、6.4.1 の房総半島に対する地形変化シミュレーションの結果に基づき、2次元非定常浸透流・塩分濃度解析（密度を考慮）による影響評価を実施した（解析コード：有限要素法による多孔質媒体中での2次元地下水流動評価コード MIG2DF⁽²²⁾（日本原子力研究開発機構所有））。

評価は、以下の点に着目して実施することとし、表 6.4-3 に示す解析ケースを設定した。

▶ サイトの特性による影響の違い

沿岸域のサイトを対象とした場合、気候・海水準変動および隆起・侵食による影響は以下の観点から分類できると想定される。

① 処分システムが、陸側／海側のどちらにあるか

② 対象領域が、遠浅／急峻な領域のどちらに対応するか

（遠浅：地形的に平坦であり、隆起量が小さい領域

急峻：地形的に急峻であり、隆起量が大きい領域）

これらのサイトの特性の違いが、結果にどのように反映されるかを調査する。

▶ 評価上重要な項目の検討

一般に海水準変動を考慮する場合、解析上簡単のために平均化した海水準変動により評価が行われる場合が多い（図 6.4-16）。これらの解析上の設定の違いが、結果にどのように反映されるかを調査する。

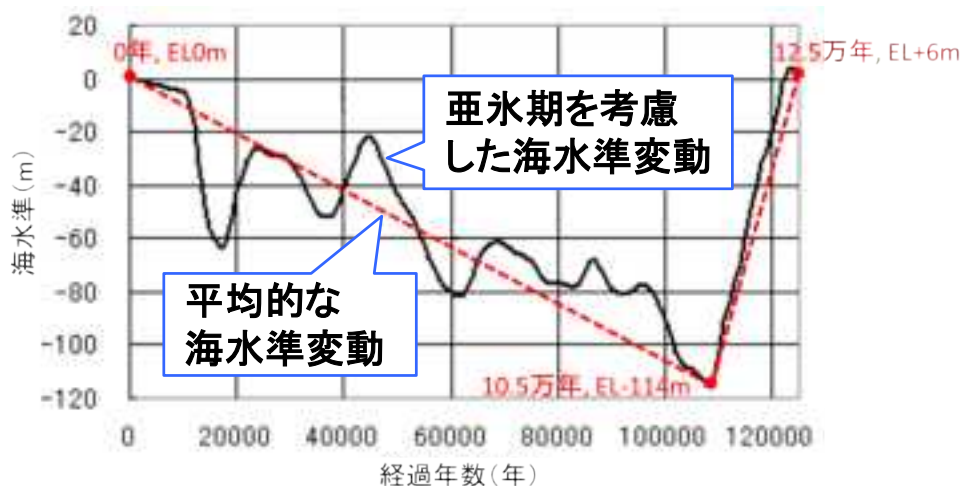


図 6.4-16 海水準変動の設定

表 6.4-3 解析ケース

解析ケース	モデル	処分場位置	海水準変動
A-1	遠浅モデル	陸側 / 海側	亜氷期を考慮した海水準変動
A-2			平均的な海水準変動
B-1	急峻モデル		亜氷期を考慮した海水準変動
B-2			平均的な海水準変動

解析の流れを図 6.4-17 に示す。

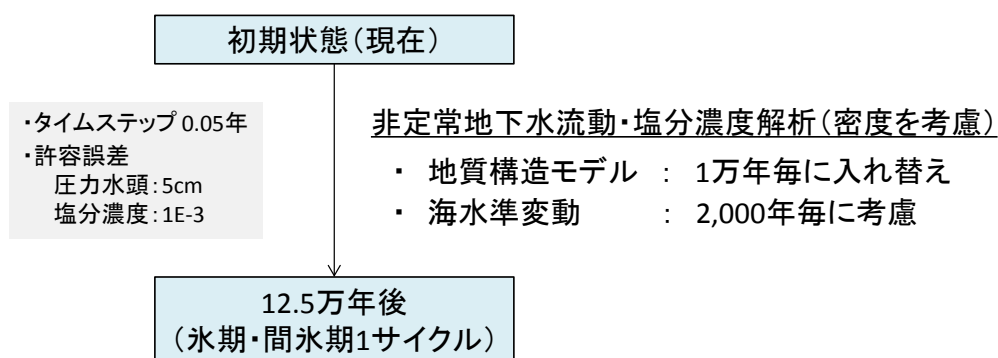


図 6.4-17 地下水流動解析の流れ

- ・地下水流動解析は、現在から 12.5 万年後（氷期・間氷期 1 サイクル経過後）まで実施することとした。実際には 12.5 万年後以降も気候・海水準変動／隆起・侵食の影響は継続する。しかし、地形変化シミュレーションは上記期間に対してのみ行われていること、海水準変動が 12.5 万年以降も同じサイクルを繰り返すとは言えないことから、本評価では解析期間を 12.5 万年間とした。
- ・地形変化シミュレーションに基づく地質構造の変化は、解析の都合上、地質構造モデルを 1 万年毎に入れ替えることにより評価した。
- ・MIG2DF では、塩分濃度解析において経時的に可変境界を設定できないため、2,000 年毎に海水準変動を考慮し、境界条件を入れ替えることとした。
- ・計算精度を上げるため、タイムステップは 0.05 年と十分細かく設定した。

(2) 地下水流動解析のための地質構造モデルの構築

(a) 2 次元断面の選定

地下水流動解析の対象とする 2 次元断面を選定するために、まず現在の標高および隆起速度の分布図から、遠浅モデル／急峻モデルに対応する領域として九十九里／鴨川周辺の領域を選定した（図 6.4-18）。

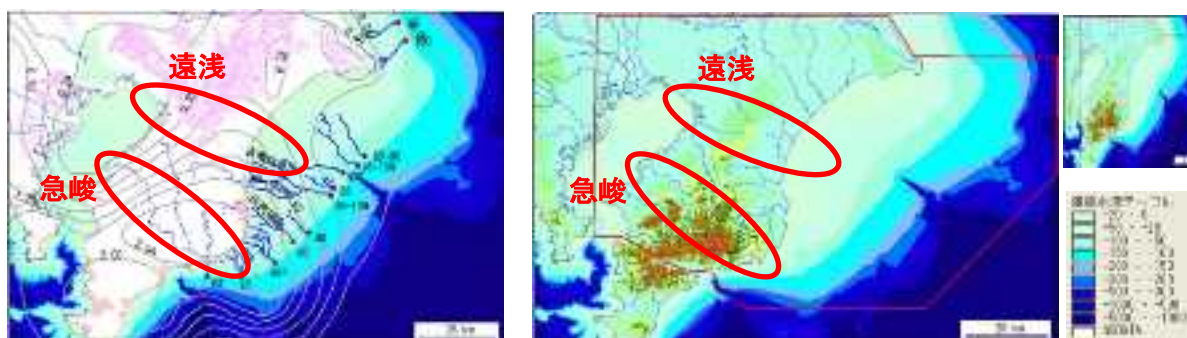


図 6.4-18 遠浅／急峻モデルに対応する領域
(左図：隆起速度分布図、右図：標高分布図)

各領域内での2次元断面方向は、断面が各領域における地質分布に直交するように選定した。

図 6.4-19 に房総半島の地質平面図を示す。図に示されるように、当地域は下位より前～中期中新統、三浦層群、上総層群、下総層群の順で北に向かうほど地層年代が新しく、一部火山起源の堆積物を含むがそれ以外は砂岩、泥岩、砂岩/泥岩互層である。前～中期中新統の部分には東西軸の背斜構造があり、その上に三浦層群が北傾斜で堆積している。さらに黒滝不整合を境としてその上位に北西傾斜（北東－南西走向）の上総層群、下総層群が分布している。黒滝不整合を境とし、上下で大きな地質構造の違いが存在するが、上総層群から下総層群にかけては北西の盆地中心である東京湾に向かって緩やかな単斜構造を呈しており、比較的走向方向に対して一様な地質が広がっているものと考えられる。以上より、鴨川および九十九里をとおって地質構造に直交する断面方向として、図 6.4-19 の赤点線位置を選定した。

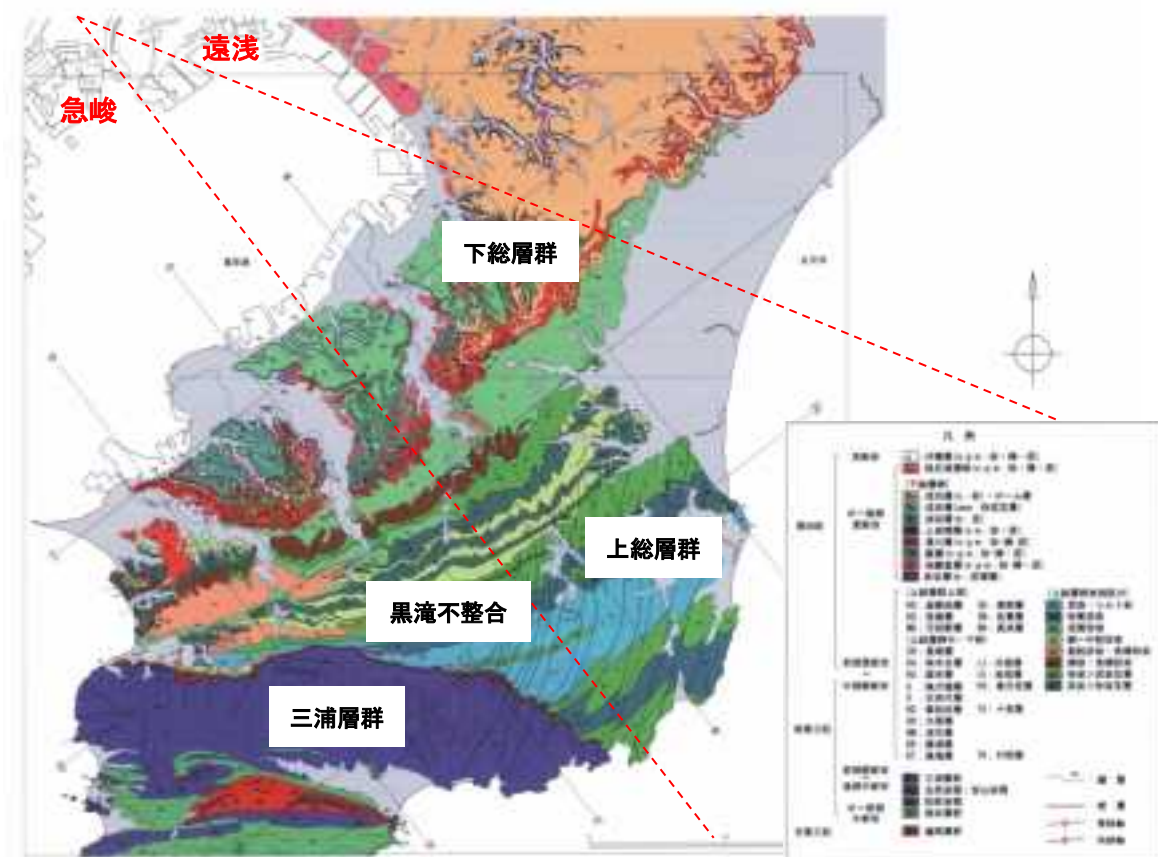


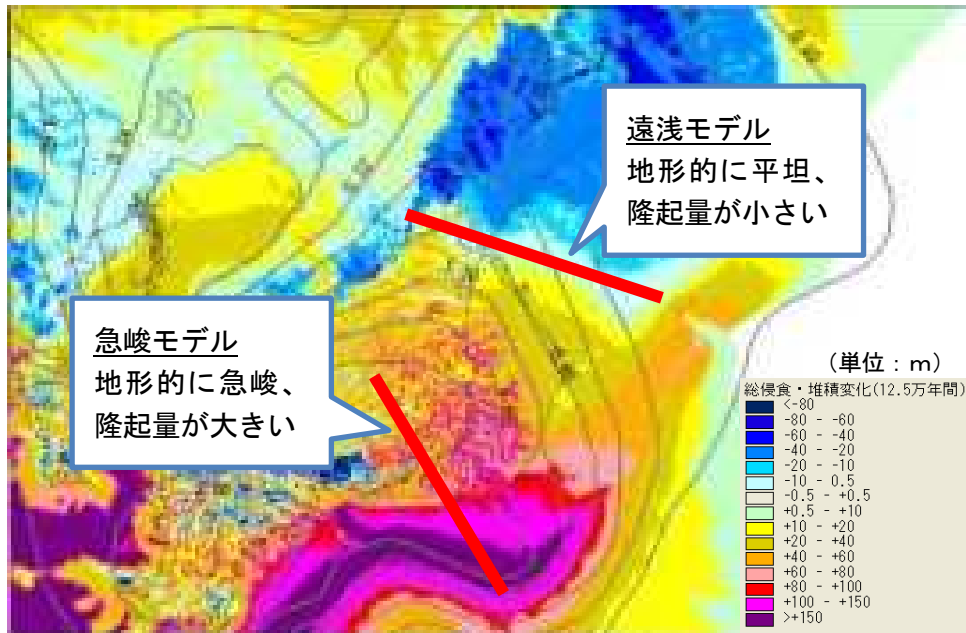
図 6.4-19 遠浅／急峻モデルに対する断面方向
(背景：房総半島の地質平面図⁽⁵⁾)

図 6.4-19 に示した各断面方向に対し、2次元断面の範囲を以下の様を選定した。

陸域：現在における標高が最も高い位置（分水嶺と仮定）

海域：氷期・間氷期1サイクルにおける最大海退時の汀線位置

最終的に選定した2次元断面を、図 6.4-20 に示す。



注) コンターと数値は隆起速度 (mm/y)

図 6.4-20 遠浅/急峻モデルに対応する2次元断面の選定位置
(背景: 地形変化シミュレーションによる12.5万年間の標高変化量)

各モデルの断面位置での地表面標高の変化の様子を、以下に示す。

① 遠浅モデル

現在 (0年)、5万年後、12.5万年後の遠浅モデルに対する地表面標高を、図 6.4-21 に示す。

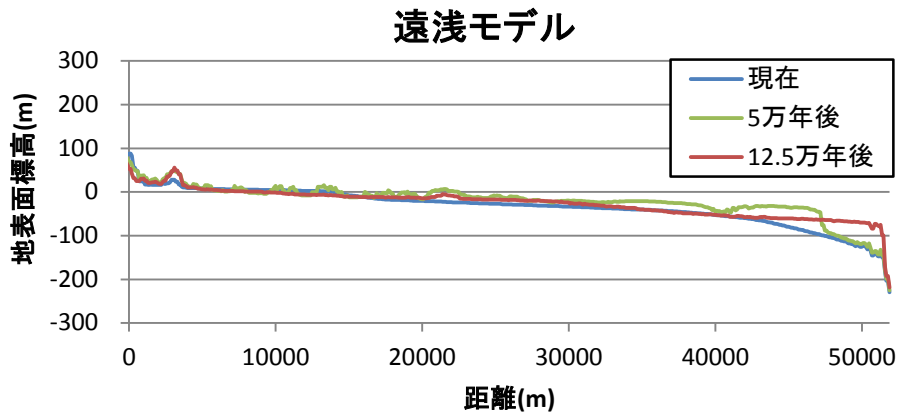


図 6.4-21 地表面標高の経時変化 (遠浅モデル)

遠浅モデルでは隆起量が小さいため、12.5万年間の地形変化はそれほど大きくない。ただし、陸棚周辺での地形形状は時間経過とともに変化している。5万年後において48,000m前後に階段状の地形が見られるが、これは4~6万年後の急速な海面低下と、その後の6~9万年後の海面の停滞によって、海岸線付近が侵食されたためであると考えられる。また、12.5万年後において5万年後に見られた段丘地形が消滅し平滑な地形となっているが、これは10万年以降の海進によって沖積層の堆積が進んだためであると考えられる。

② 急峻モデル

現在（0年）、5万年後、12.5万年後の急峻モデルに対する地表面標高を、図 6.4-22 に示す。

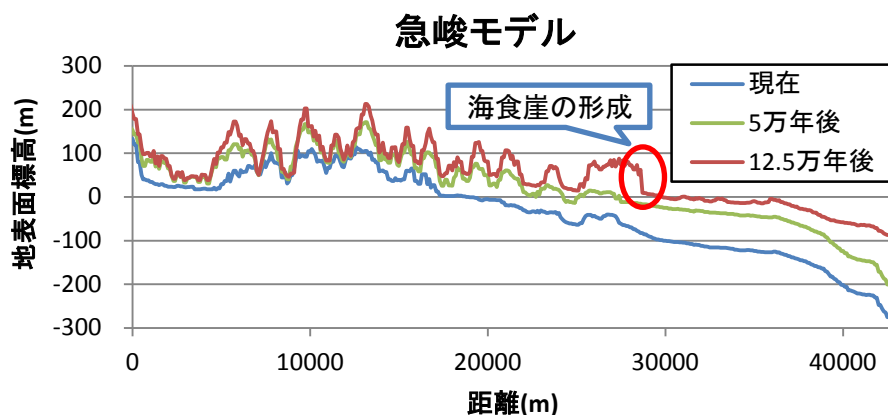


図 6.4-22 地表面標高の経時変化（遠浅モデル）

急峻モデルでは隆起量が大きいため、遠浅モデルに比べると地形の起伏が大きく、特に太平洋側の陸棚の標高が時間とともに上昇している。陸棚での隆起速度は1.6mm/year程度であるため、12.5万年間の隆起量は約200mであるが、地表面の上昇量は約100mであるため、100m前後の侵食を受けていることがわかる。また、約28,000mの位置に海食による高さ80m程度の海食崖が形成されているが、これは海進時に形成されたものと考えられる。

(b) 地質構造の設定

・現在の地質構造

房総半島の地質構造は、基本的には日本原子力研究開発機構（2008）⁽⁵⁾によって編集された地質図を踏襲し、地下深部については浅尾・伊藤（2011）⁽²³⁾のデータを参照して既往の日本原子力研究開発機構（2008）による地質図を修正することとした。

日本原子力研究開発機構（2008）によって編集された断面は北西—南東方向の4断面と北東—南西方向3断面であり、海域の一部については図 6.4-24 の断面測線（黒線）の端まですでに地質図が作成されている。これらは、陸域のボーリング、物理探査など数多くのデータに基づいて推定されていることから、地質境界位置に関しては信頼性が高いものと考えられる。一方、太平洋側の陸棚海域については別途、日本原子力研究開発機構（2008）によって編集された海域の地質編集図があるが、海底の表層堆積物、露岩等の表層のデータしかなく、地質図はそれら数少ない情報をもとに地質境界が推定されているのが現状である。

今回の解析対象である鴨川断面については日本原子力研究開発機構（2008）のC-C'断面と一致する（図 6.4-23）ことから、これをそのまま活用した。一方、九十九里断面に関しては、一致する断面がないため、陸域については九十九里断面と交差する既往のA-A'断面、①-①'および②-②'断面と③-③'断面および浅尾・伊藤（2011）の反射法地震探査記録と石油公団のデータを編集した図 6.4-24 を参考として作成した。

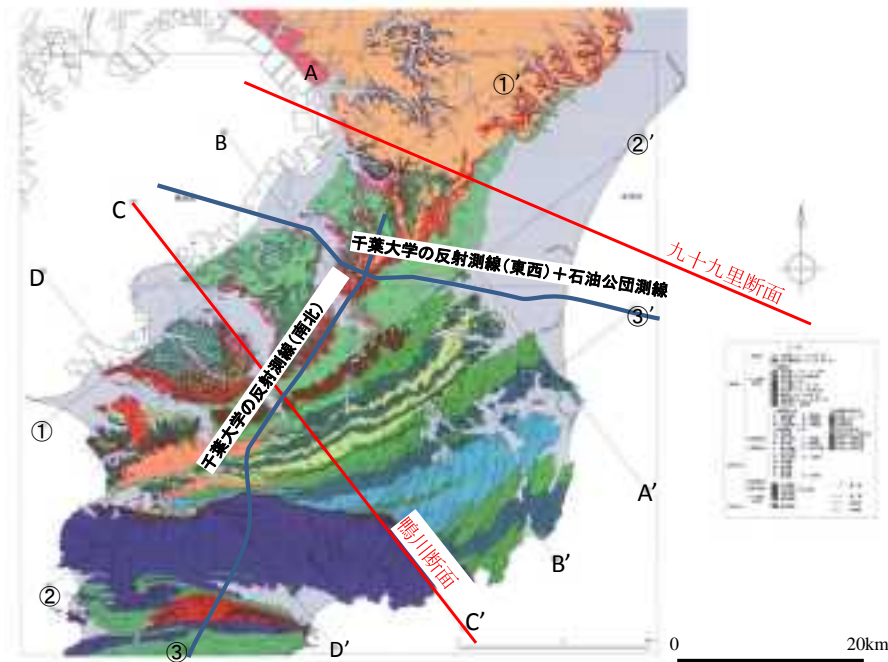


図 6.4-23 房総半島における対象断面位置（赤線）と既往反射測線（青線：千葉大学、千葉県、石油公団による探査実施測線、東西測線は図 6.4-24 の平面位置、黒線：日本原子力研究開発機構、2008）

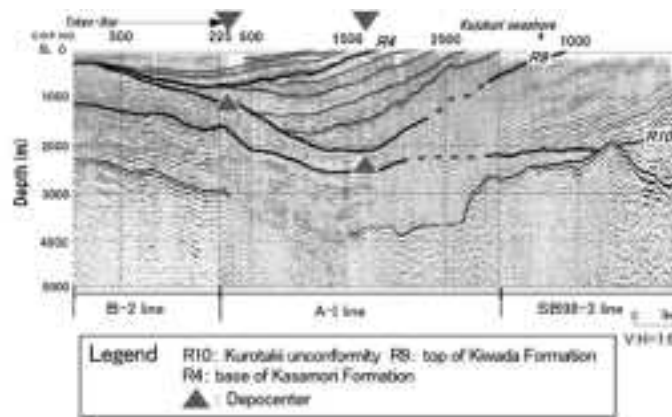


図 6.4-24 東京湾-房総半島-九十九里沖の反射法探査断面（東西断面）

図 6.4-25 は、日本原子力研究開発機構（2008）によって編集された房総半島太平洋側の海域の地質平面図と地質断面図である。図に示すように海底において基盤情報があるのは陸棚の東端のみであり、九十九里断面延長部にあたる D-D'断面では上総層群相当の B 層と三浦層群相当の C 層との境界が深度 1,000m 付近に推定されているが、その他の境界に関する情報は無い。E~G 断面においては、九十九里浜の海岸線沿いのボーリングデータがあり、深度 2,000m~1,000m の位置に上総層群基底が推定されていることから、その地点と九十九里浜沖合 40~50km の三浦層群相当の C 層上面と連続するものと解釈されている。したがって、上総層群基底面位置は、九十九里浜から沖合に向かって浅くなっており、西傾斜である。

上総層群内部の構造に関する情報は無いが、図 6.4-24 の反射法探査断面（東西断面）（浅尾・伊藤、2011）のうち九十九里沖を見ると上総層群は西傾斜をしつつも黄和田層~黒滝不整合間

(R9～R10 間)は層厚を増しながら東方に広がっている様子が読み取れる。なお、図 6.4-25 中の日本原子力研究開発機構(2008)の房総半島を横断する A-A'断面東端を見ても三浦層群よりも上位の上総層群はやはり層厚を増していることから、海域については日本原子力研究開発機構(2008)の構造をそのまま東方延長に外挿することとした。

陸域について浅尾・伊藤(2011)の地質断面図と日本原子力研究開発機構(2008)を九十九里浜で各地質境界の深度を比較した場合、浅尾・伊藤(2011)のほうが全体的に200～300m浅い傾向にあるが、各層の層厚、地層の傾斜方向等はおおむね一致していることから、これは断面図位置のオフセットによるずれと判断し、既往の日本原子力研究開発機構(2008)による地質構造の修正は行わなかった。以上のことを考慮し、現在の九十九里断面および鴨川断面を推定した結果を図 6.4-26、図 6.4-27 に示す。

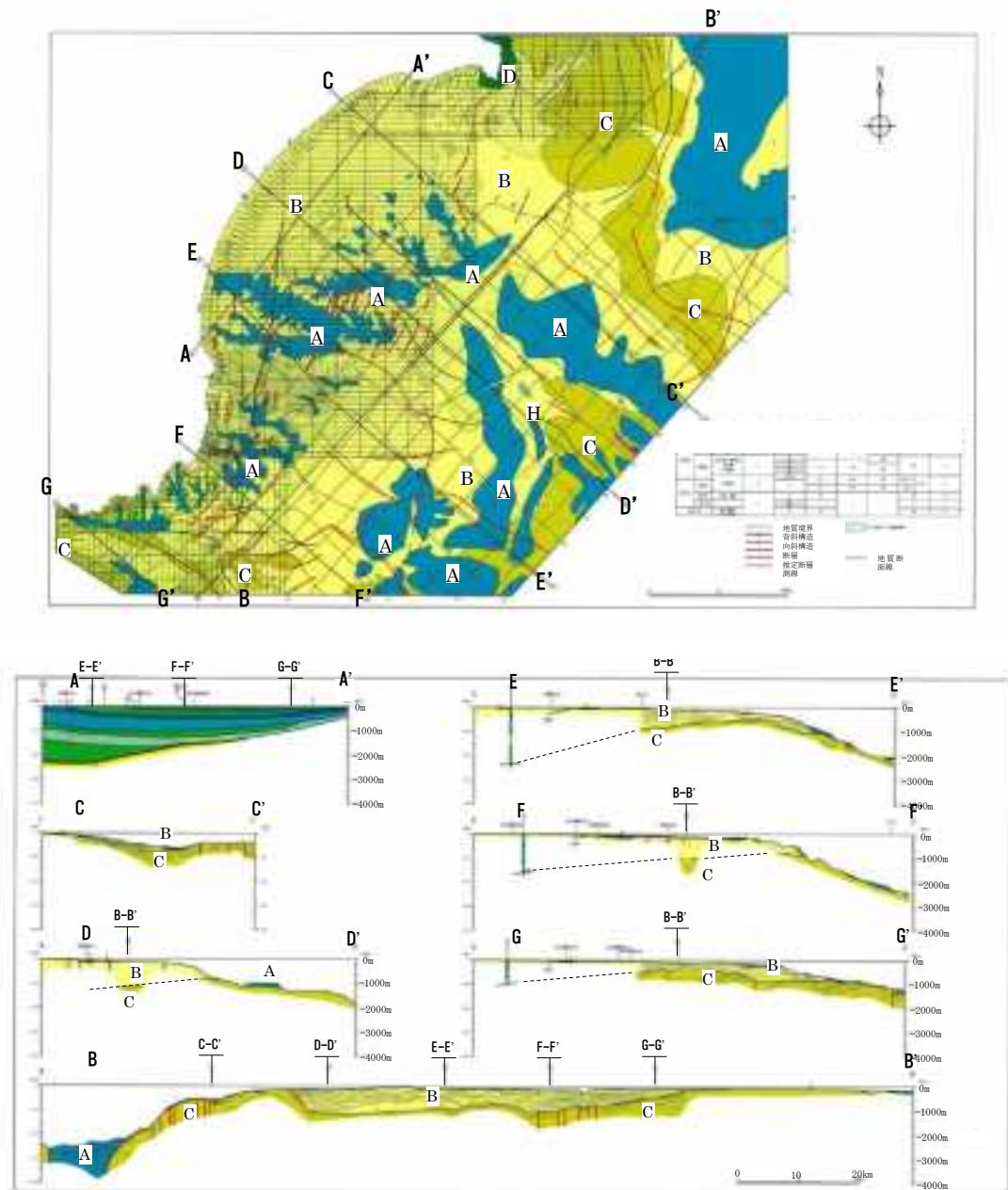


図 6.4-25 房総半島海域における地質平面図および断面図

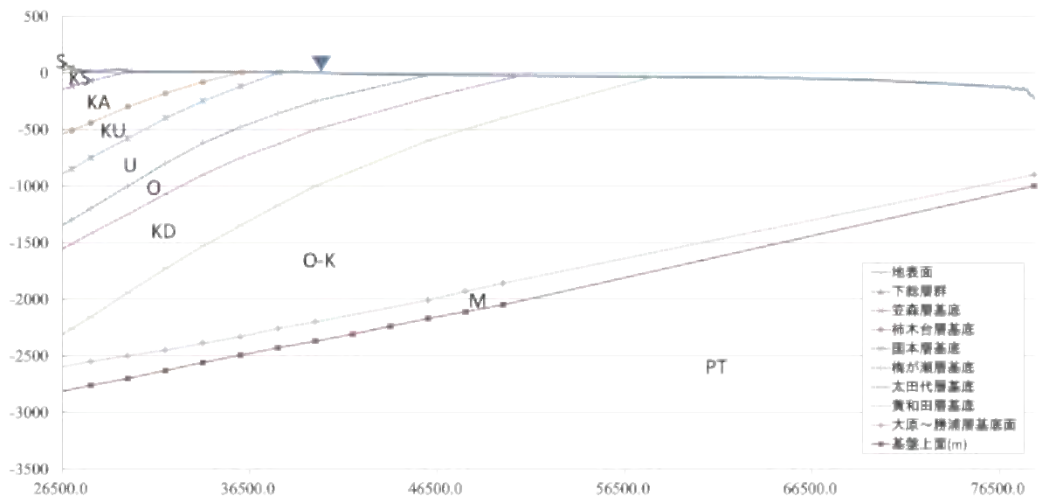


図 6.4-26 九十九里断面編集図

(S:下総層群、KS:笠森層、KA:柿ノ木層、KU:国本層、U:梅カ瀬層、O:太田代層、KD:黄和田層、O-K:大原層～勝浦層、M:三浦層群、PT 古第三系)、▼：海岸線位置)

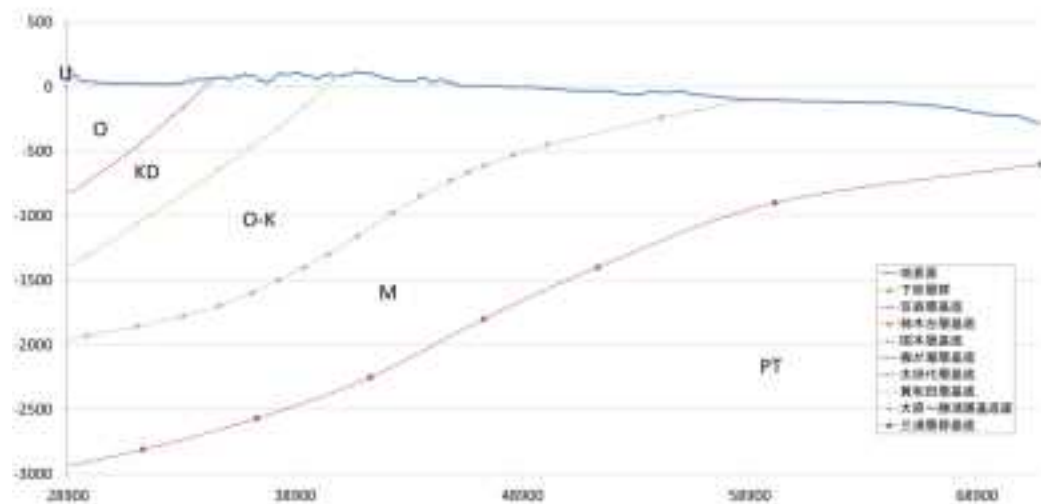


図 6.4-27 鴨川断面編集図 (凡例は図 6.4-26 と同じ)

図中、上総層群は笠森層 (KS) ～勝浦層(K)までであり、堆積中心である下総層群中央部に向斜軸を持ち、東の陸棚付近に背斜中心がある。地質構造としては、三浦層群直上に大きな不整合境界 (黒滝不整合) があり、上総層群、下総層群が順次、西傾斜の堆積構造を呈している。基本的には日本原子力研究開発機構 (2008) による地質断面図を反映した形となっているが、先に述べたように九十九里断面においては、起点から 5,000m～7,700m 間は海域の推定断面 (図 6.4-25) を参照しているため、大原層～勝浦層と三浦層群境界および大原層～勝浦層と古第三系との境界は、陸域からの西傾斜の構造をそのまま陸棚方向 (東方) に外挿している。なお、両地域とも、下総層群より以浅には第四紀後期の段丘堆積物、沖積層が上載しているが、層厚

が 20m～30m 以下であり、広域の地下水流動に与える影響は小さいことが予想されるため、図 6.4-26 および図 6.4-27 には表現しなかった。

・将来の地質構造

将来の地質構造は、将来の隆起量（沈降分）だけ現在の地質境界線が上昇（下降）するものとした。ただし、隆起した地質境界が地表部分を越えた場合、該当部分を削除し地質境界を居表面に接合することとした。

なお、隆起量分布図で示されている隆起量あるいは隆起速度は、年代値の明らかになっている段丘面の標高（m）をもとに地形学的に算出された値であるため、地下深部の地質境界にこれを適用して良いという保証はない。しかし、ここではそれに代わるデータは知られていないため、傾動隆起や褶曲等の水平方向への地盤の移動量は小さいものとし、既往の隆起（沈降）量は深度方向に同じ値であると見なして、同一地点の地表部の隆起量と地下の地質境界の隆起量は同じであるとした。

(3) 解析条件

(2) で作成した地質構造モデルに基づき、地下水流動解析を実施した。以下に、解析に使用したモデルおよび解析条件について示す。

(a) 解析モデル

解析対象は、(2) で作成した遠浅／急峻モデルの 2 つとする (図 6.2-28～図 6.2-31)。各モデルにおけるメッシュの大きさは、幅方向：100m (地形変化シミュレーションのデータ間隔)、深度方向：浅部～深部で 30～200m 間隔で徐々に大きくなるように設定した。

①遠浅モデル (幅約 52km×深さ約 3km、要素数 15,420、節点数 15,965)

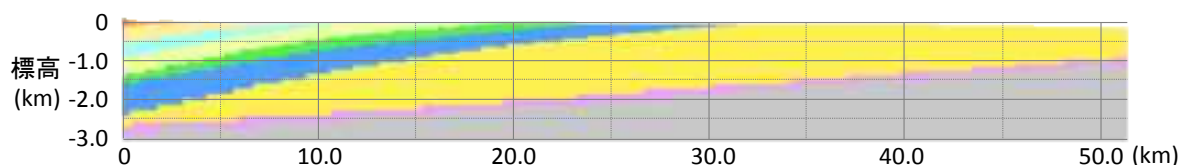


図 6.4-28 解析領域 (遠浅モデル) (背景：地質分布 (色区分は表 6.4-4 に準拠))

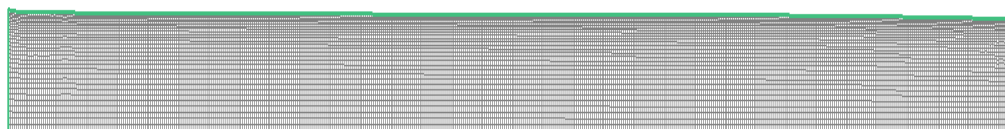


図 6.4-29 解析に使用したメッシュ (遠浅モデル)

②急峻モデル (幅約 43km×深さ約 3km、要素数 12,849、節点数 13,299)

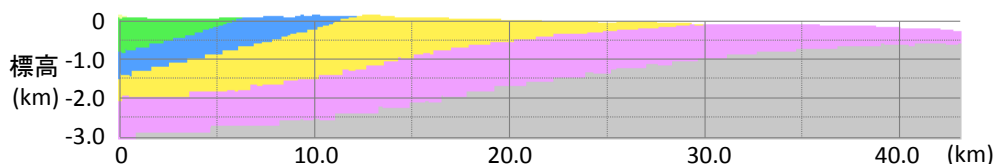


図 6.4-30 解析領域 (急峻モデル) (背景：地質分布 (色区分は表 6.4-4 に準拠))

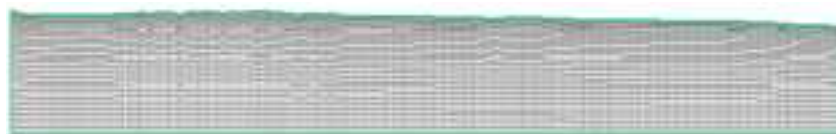


図 6.4-31 解析に使用したメッシュ (急峻モデル)

(b) 水理定数

各地層における水理定数は、房総半島を対象とした既往の地下水流動解析^{(24),(25)}に基づき、表 6.4-4 のように設定した。

大原～勝浦層の透水係数は、遠浅／急峻モデルで異なる設定としている。大原～勝浦層は、大原層 (泥岩優勢の砂質泥岩)・浪花層 (泥岩)・勝浦層 (砂質泥岩) から形成されており、透水係数が高いと想定される勝浦層は勝浦海岸 (鴨川周辺) を参考としている。そのため、本評価では九十九里周辺では勝浦層の分布が少ないと仮定し、遠浅モデルにおける大原～勝浦層の透水係数として、砂岩と泥岩の幾何平均値 $1.0E-6m/s$ を採用した

表 6.4-4 水理定数

地層	層相	透水係数 (m/s)	間隙率 (%)	比貯留係数 (1/m)
下総層群	砂岩主体	3.0E-05	50	5.00E-05
笠森層	泥岩主体	1.0E-07	50	
柿ノ木台層	砂岩～砂質泥岩	4.0E-05	45	
国本層	泥岩主体	1.0E-07	45	
梅ヶ瀬層	砂岩主体	4.0E-05	40	
大田代層	砂質泥岩	5.0E-07	45	
黄和田層	泥岩主体	1.0E-07	45	
大原～勝浦層	砂岩～砂質泥岩	4.0E-05 (急峻) 1.0E-06 (遠浅)	45	
三浦層群	砂岩～泥岩	3.0E-07	40	
古第三系～先第三系	砂岩～泥岩	2.0E-07	40	

(c) 海水準変動

海水準変動は、図 6.4-16 に示した以下の 2 ケースについて評価する。

- ・ 亜氷期を考慮した海水準変動
- ・ 平均化した海水準変動

(d) 涵養量

房総半島における現在の涵養量は、既往の地下水涵養量の推定例（近藤、1985）⁽²⁶⁾を参考に設定した（図 6.4-32）。既往の評価結果より、地下水涵養量は 262mm/年～905mm/年（平均約 600mm/年）となっていることから、本評価では現在の涵養量を 600mm/年と設定した。



年平均降水量(mm/y)

地下水涵養量の推定例

$$R = (1 - f) \cdot P - Et$$

Rは地下水涵養量、fは降水の直接流出率、
Pは降水量、Etは蒸発散量

調査地域の降水の直接流出率(f)を20%と
仮定→房総半島中央部で約600mm/yと推
定。極端な降雨ケースを想定して解析ケ
ースには、262mm/y～905mm/yを設定
(近藤1985)

図 6.4-32 房総半島の涵養量に関する評価例

将来の涵養量の変化は、将来の降水量に対する既往の評価（松末他、2000）⁽²⁷⁾から推定した。図 6.4-33 に、花粉データから算出した過去 8 万年間の年間降水量の変化（中日本気候区）と、推定した涵養量の変化を示す。

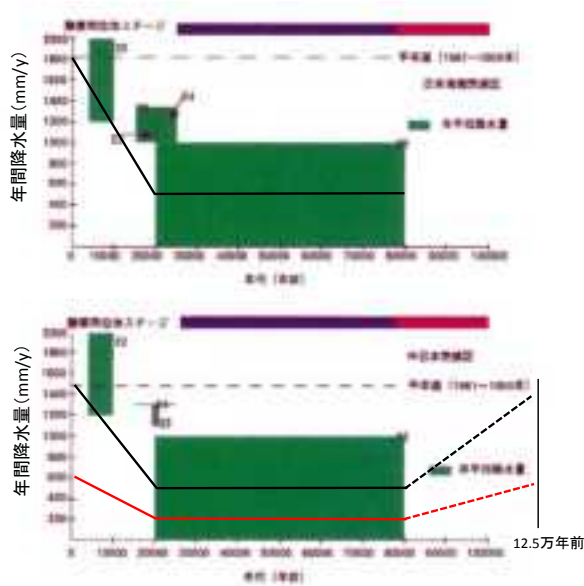


図 6.4-33 過去 8 万年間の年間降水量の変化と涵養量（推定値）の変化

過去 8 万年間の降水量は、全国的に寒冷期は 1,000mm/年以下（平均約 500mm/年）、2 万年前から現在にかけて徐々に降水量は増加する傾向にある。これは最終氷期から現在に向かって温暖期に入り、気温が上昇し湿潤気候に変化するためであると考えられている。涵養量に関する過去の情報は無いが、仮に涵養量の変化が降水量の変化（中日本の場合、涵養量/降水量が寒冷期は温暖期の約 1/3）と同じ割合で変化すると仮定すれば、現在の房総半島の涵養量 600mm/年は過去の寒冷期には 200mm/年前後であったものと思われる。ただし、12.5 万年前の最終間氷期～8 万年前までは、データがないため、図中、12.5 万年前の涵養量を現在と同じ 600mm/年とし、8 万年前まで直線的に涵養量が低下したと仮定して表示している。

本評価では、涵養量変化が過去～現在と同じ状態で将来も推移すると仮定し、現在 600mm/年の涵養量が将来の寒冷期に向かって徐々に低下し、次期氷期に 200mm/年に達した後、10.5 万年後までは一定で、次期間氷期に再び 600mm/年に戻ることと予想した（表 6.4-5）。

表 6.4-5 将来の涵養量変化の設定値

	時間 (yr)	涵養量 (mm/yr)
現在	0	600
現在～次期氷期	10000	500
	20000	400
	30000	300
	40000	200
	50000	200
	60000	200
	70000	200
	80000	200
	90000	200
	100000	200
次期氷期	105000	200
次期氷期～次期間標記	110000	300
次期間標記	120000	500
次期間氷期	125000	600

(e) 境界条件・初期条件

境界条件・初期条件を図 6.4-34、図 6.4-35 に示す。

・境界条件（浸透流解析（不飽和））

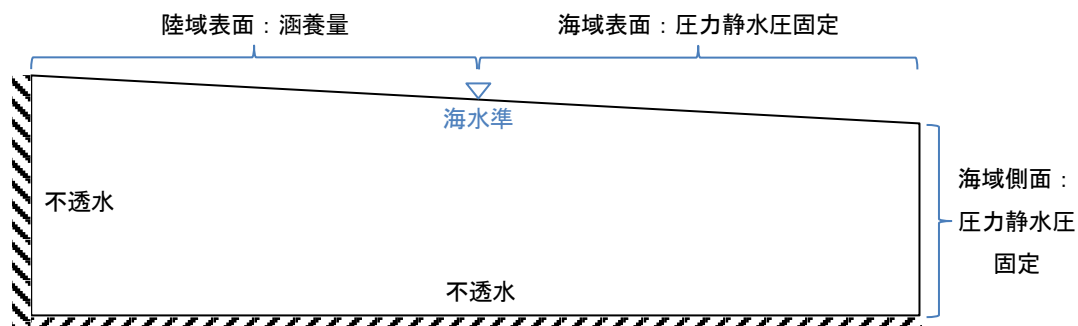


図 6.4-34 境界条件（地下水流動解析）

・境界条件（物質移行解析）

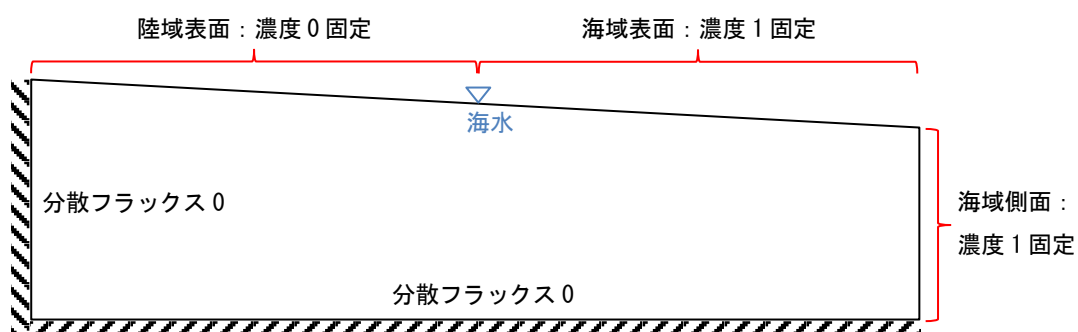


図 6.4-35 境界条件（物質移行解析）

・初期塩分濃度分布

初期塩分濃度分布については、各モデルに対して化石塩水で満たされた状態に対する洗い出し解析を行い、おおよそ定常となる塩分濃度分布を計算した（遠浅モデル：3 万年間、急峻モデル：7 万年間）。洗い出し解析は現在（0 年）の状態に対して行っており、地形変化や海水準変動を考慮していない。実際にはこれらの影響を考慮する必要があるが、過去から現在に対する 3 次元地形変化シミュレーションを行っていないことから、洗い出し解析においては現在の状態のみを考慮した。ただし計算した塩分濃度分布については、既存井戸データによる観測値から推定される塩淡境界（日本原子力研究開発機構、2008⁽⁵⁾）との比較を行い、大きく乖離していないことを確認した。

房総半島の九十九里／鴨川領域に対し、既存井戸データから推定される塩淡境界を、図 6.4-36 および図 6.4-37 に示す（青点線）。



JNC成東データ
蓮沼データ (AIST)

地下水データは、関東平野水質データ (AIST)、成東データ(JNC)、蓮沼データ (AIST)、その他(関ほか(2004))から引用

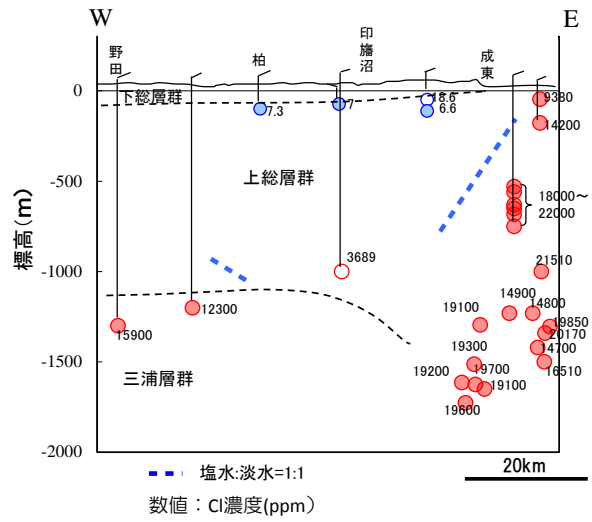
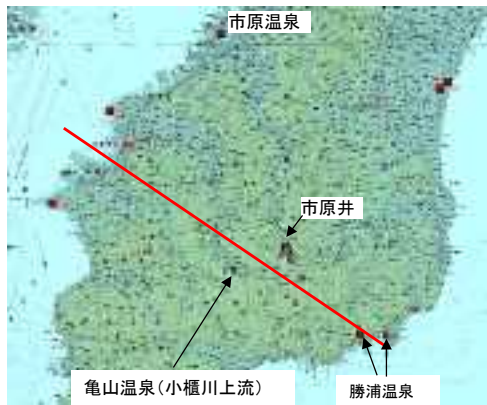


図 6.4-36 九十九里周辺の地下水分布 (青○～赤○：淡水，赤●：塩水)



地下水井戸データは関ほか(2004), 井戸台帳等に基づく

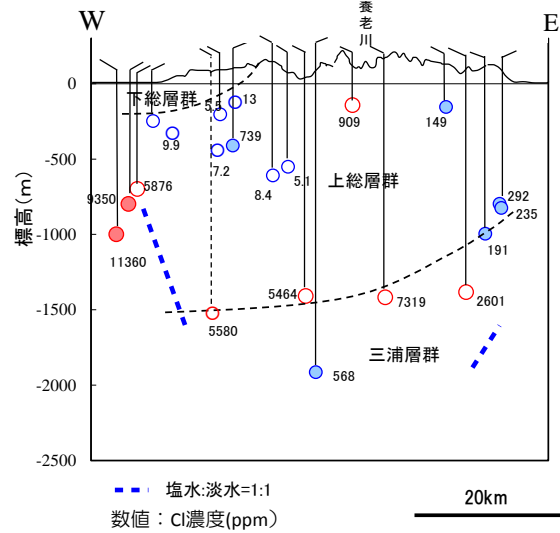


図 6.4-37 鴨川付近の地下水分布 (青○～赤○：淡水，赤●：塩水)

(4) 解析結果

(a) 現在（0年）に対する解析結果

現在（0年）における全水頭（密度を考慮）、流速分布、および、塩分濃度分布（海水を1に規格化、白点線：既存の井戸データによる推定塩淡境界）を図 6.4-38～図 6.4-43 に示す。

①遠浅モデル

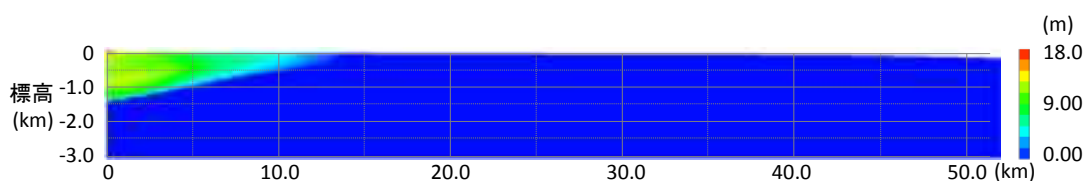


図 6.4-38 現在（0年）の全水頭（密度を考慮）（遠浅モデル）

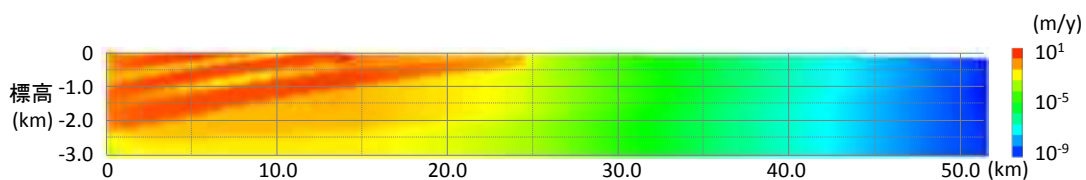


図 6.4-39 現在（0年）の流速分布（遠浅モデル）

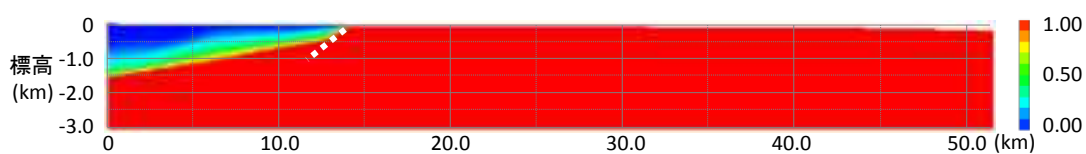


図 6.4-40 現在（0年）の塩分濃度分布（遠浅モデル）

②急峻モデル

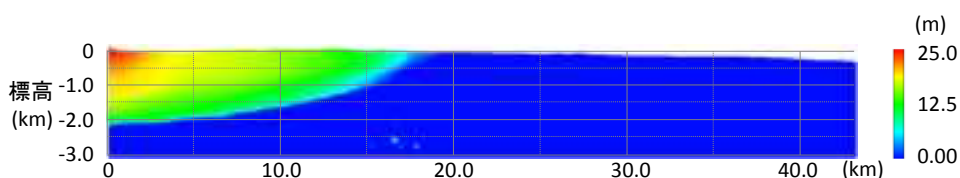


図 6.4-41 現在（0年）の全水頭（密度を考慮）（急峻モデル）

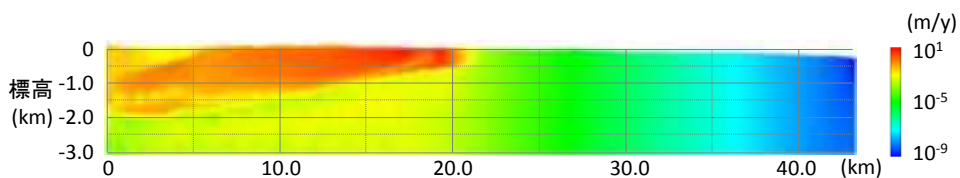


図 6.4-42 現在（0年）の流速分布（急峻モデル）

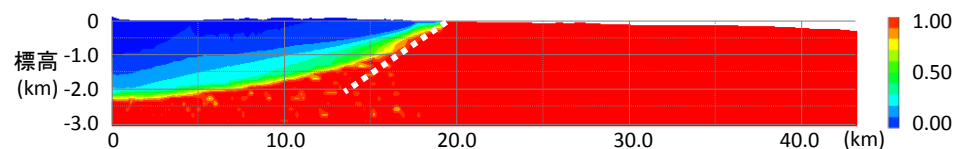


図 6.4-43 現在（0年）の塩分濃度分布（急峻モデル）

流速分布の結果より、流速は主に透水係数に比例していることが確認できる。

塩分濃度分布の結果より、洗い出し解析により求めた塩淡境界は、既存の井戸データから推定される塩淡境界と比較的一致していることが確認できる。

また、全水頭の分布が塩分濃度分布と類似していることから、流れの方向は塩分濃度分布に依存していることがわかる。急峻モデルに対して、塩淡境界前後での流れの方向を示した図を図 6.4-44 に示す。

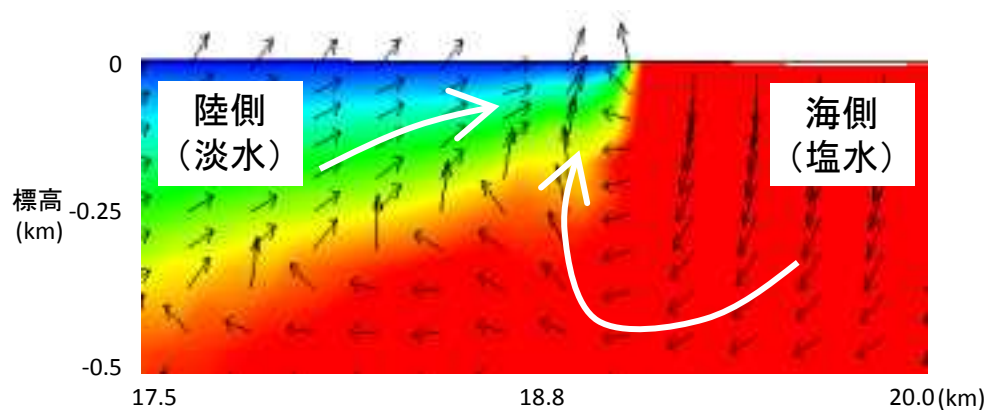


図 6.4-44 塩淡境界付近での流れ方向
(背景：塩分濃度分布)

これより海水準（塩淡境界）の前後では、塩水と海水の密度差により

陸側（淡水）：塩淡境界に沿って地表（海水準）へ向かう流れ

海側（塩水）：深部に潜り込んだ後に地表（海水準）へ向かう流れ

となることがわかった。このことは、海水準変動によって領域全体の流れが大きく変化することを示している。

(b) 海水準変動に伴う塩分濃度分布の変化

海水準変動に伴う遠浅/急峻モデル（亜氷期を考慮した海水準変動および平均化した海水準変動）での塩分濃度分布の経時変化を以下に示す。

① 遠浅モデル

- ・ 亜氷期を考慮した海水準変動

▼ : 汀線位置

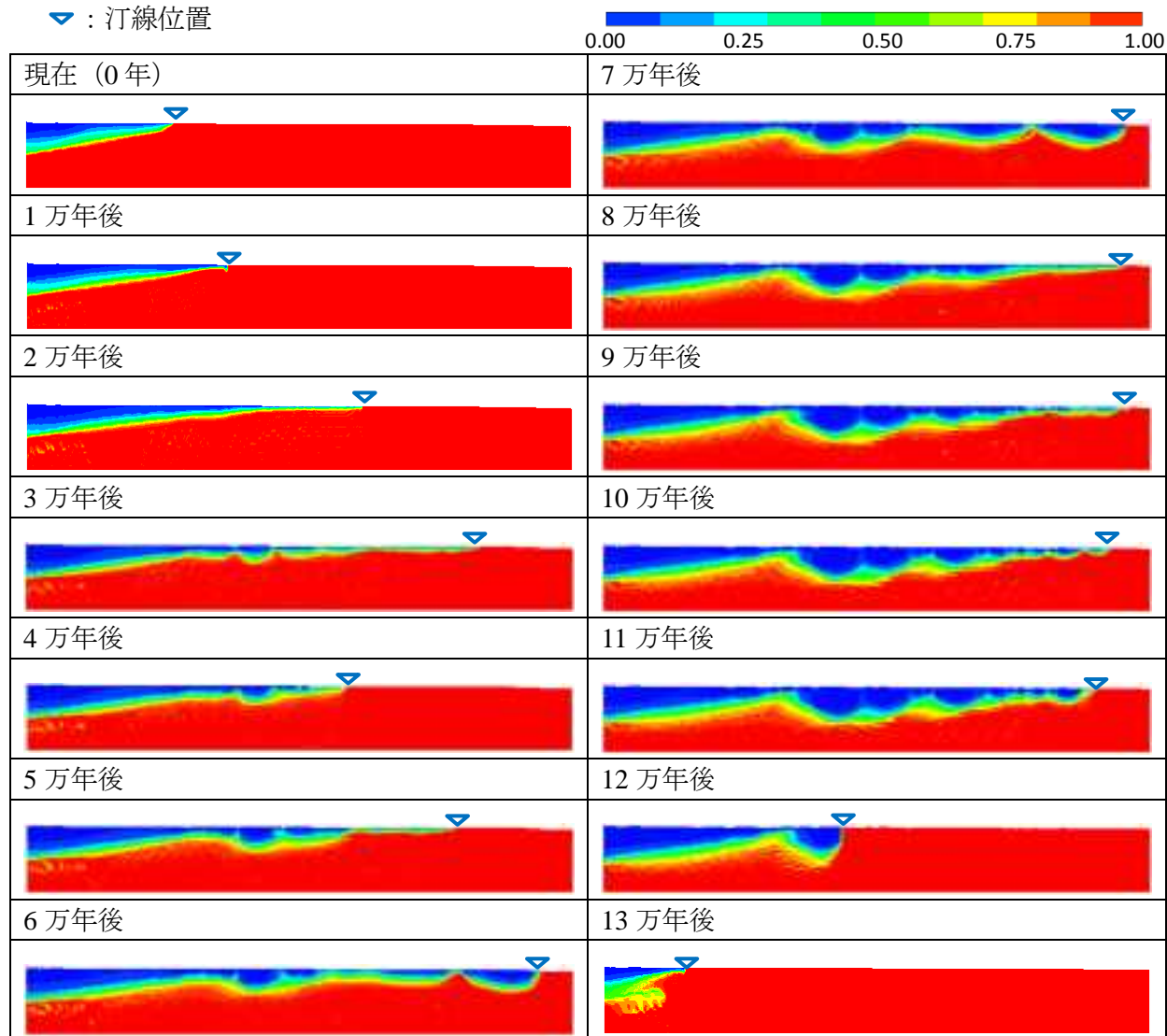


図 6.4-45 塩分濃度分布の経時変化（遠浅モデル：亜氷期を考慮した海水準変動）
 （※図は深度方向を2倍にしたスケールで表示している）

・平均化した海水準変動

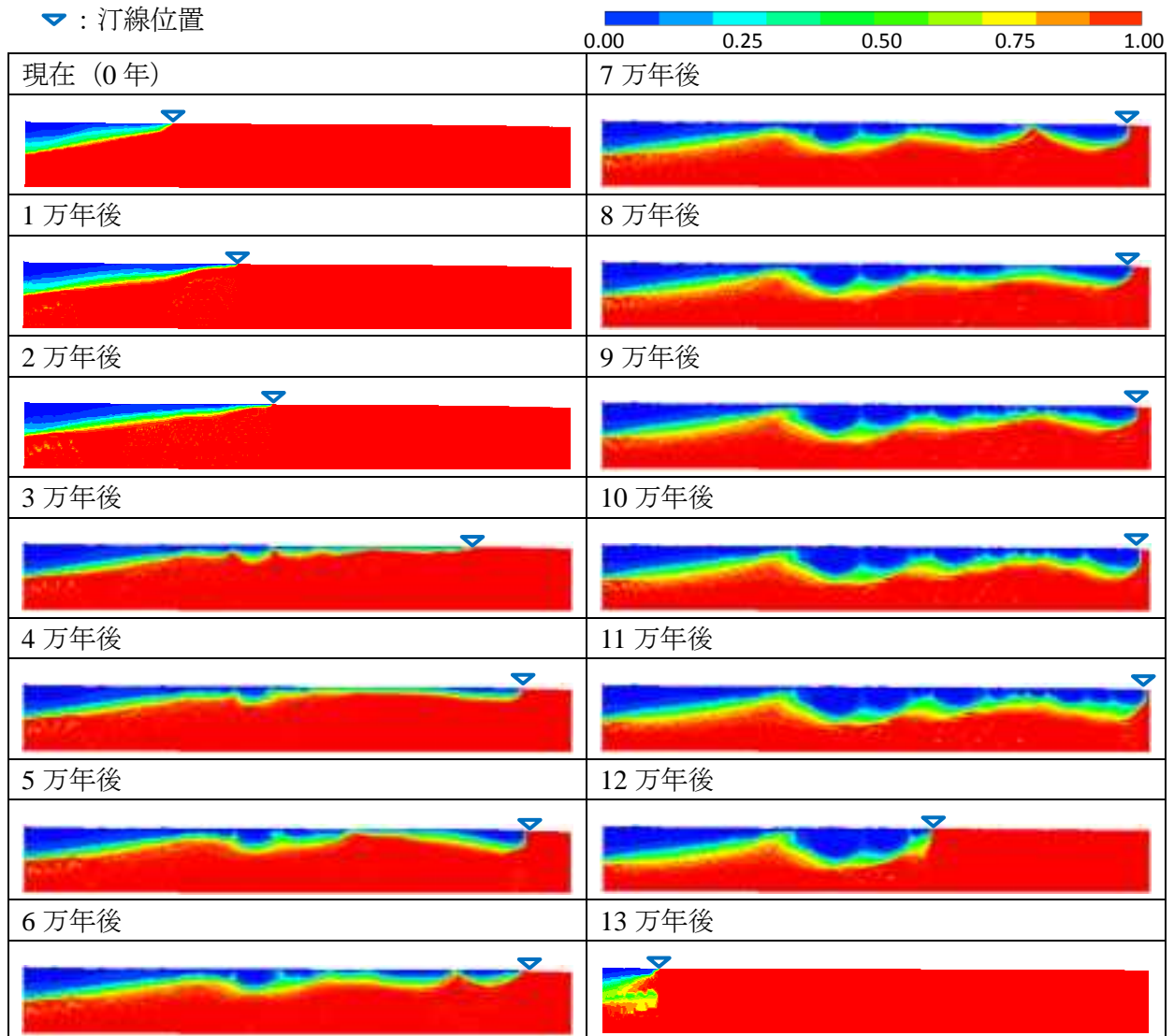
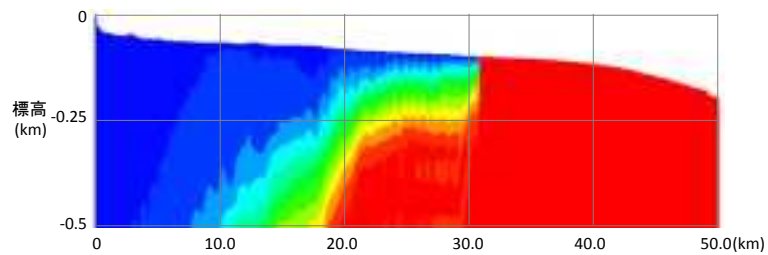


図 6.4-46 塩分濃度分布の経時変化 (遠浅モデル: 亜氷期を考慮した海水準変動)
(※図は深度方向を2倍にしたスケールで表示している)

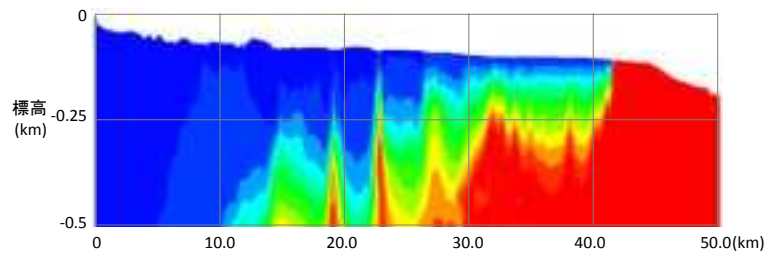
図 6.4-45 および図 6.4-46 より、淡水化は海水準変動による汀線位置の変化に追従して起きていることが確認できる。

亜氷期を考慮した海水準変動と平均化した海水準変動の違いとして、2 万年後における海退の影響、4~5 万年後および8~11 万年後における海進時の影響の有無による違いが見られる。

また、淡水域では地形変化に伴う局所流動系の影響が大きく現れていることが確認された。これをわかりやすく見るために、例として2 万年後と3 万年後の塩分濃度分布 (亜氷期を考慮した海水準変動) を、深度方向を30 倍のスケールで表示したものを図 6.4-47 に示す。



(a) 2 万年後



(b) 3 万年後

図 6.4-47 地形変化に伴う淡水化への影響
(※図は深度方向を 30 倍にしたスケールで表示している)

2 万年後においては、地形の起伏がそれほど大きくないために、淡水化が比較的なめらかに進んでいる様子が見られる。一方、3 万年後においては地形の起伏が大きくなり、それに応じて淡水化が波状に進んでいる。このとき地表面の起伏は数十 m 程度であるが、遠浅モデルでは領域全体の起伏が緩やかであるために、局所流動系の影響によって流れが大きく変化している。

また塩分濃度解析の結果より、地下深部において一部斑状に淡水化している領域が見られるが、これは地質構造に起因するものではなく、解析の精度に起因して起こっているものである。斑状に淡水化している領域は、地下深部の透水性が低い層（三浦層群以下）のみであるため、後述する流路解析への影響はそれほど大きくないと想定される。

- ② 急峻モデル
 ・ 亜氷期を考慮した海水準変動

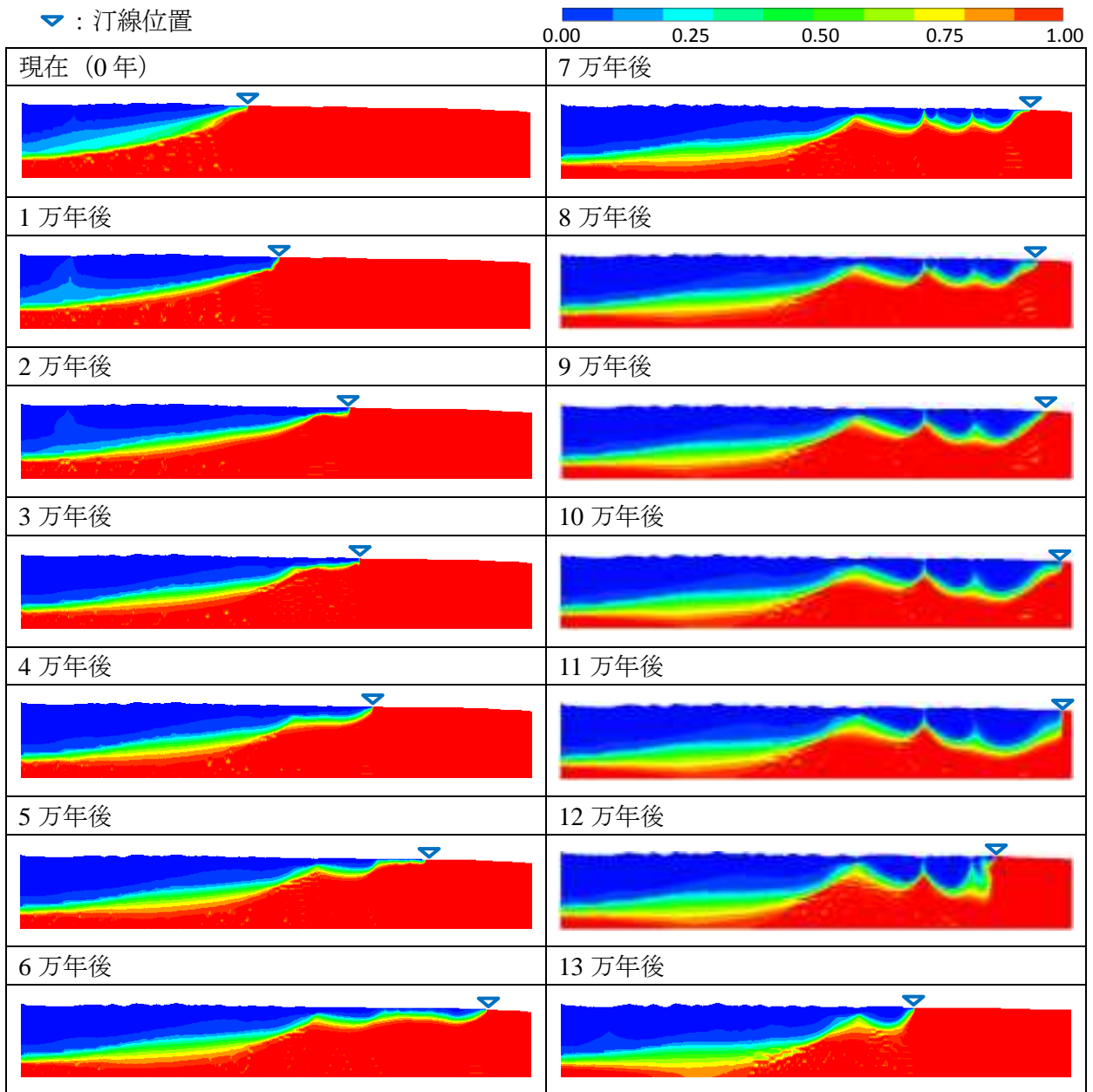


図 6.4-48 塩分濃度分布の経時変化 (急峻モデル: 亜氷期を考慮した海水準変動)
 (※図は深度方向を 2 倍にしたスケールで表示している)

・平均化した海水準変動

▽：汀線位置

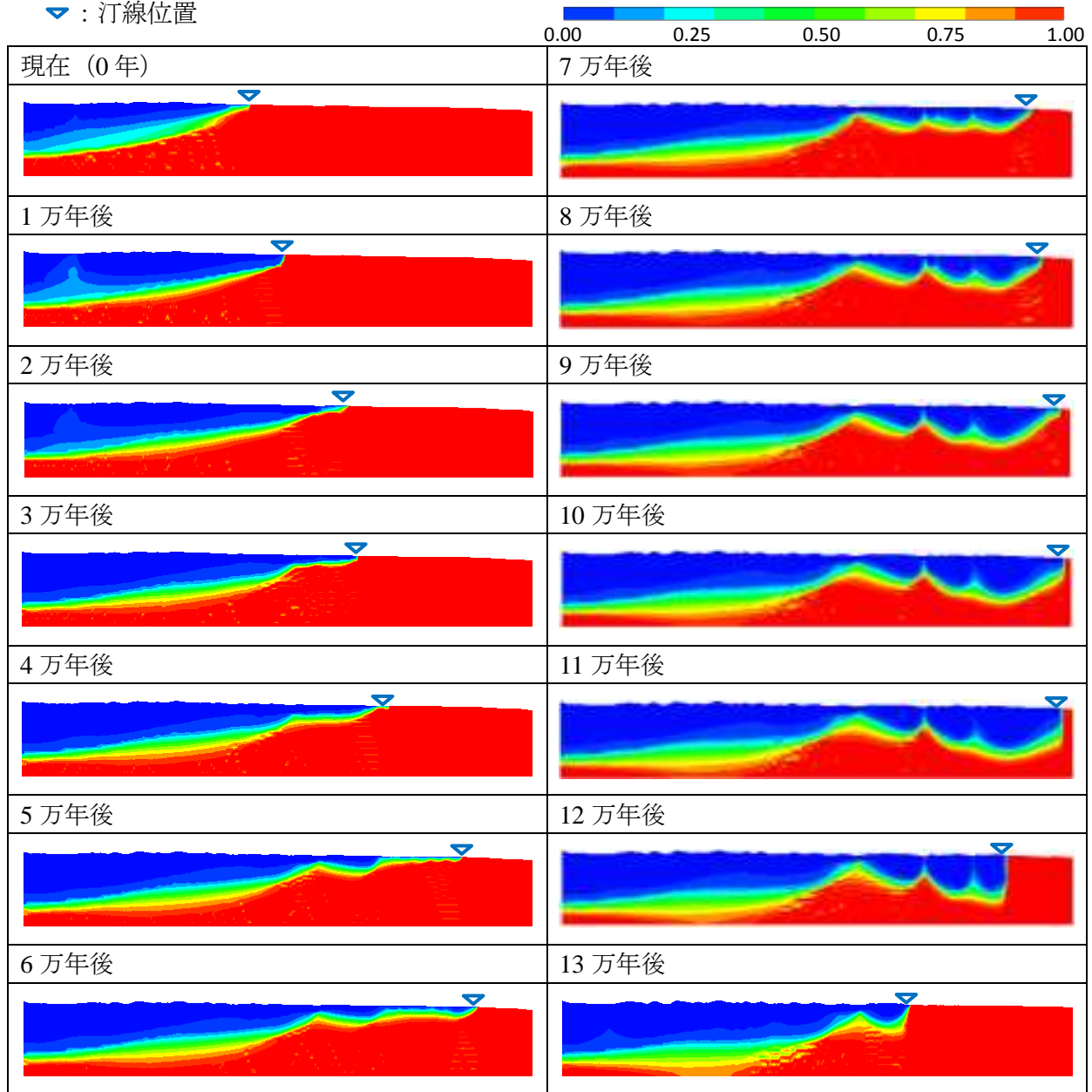


図 6.4-49 塩分濃度分布の経時変化（急峻モデル：平均化した海水準変動）
 (※図は深度方向を2倍にしたスケールで表示している)

急峻モデルでは、亜氷期を考慮した海水準変動と平均化した海水準変動の違いはそれほど見られない（図 6.4-48、図 6.4-49）。淡水域における地形変化に伴う局所流動系の影響は、遠浅モデルと同様大きく現れていることが確認された。

(c) 処分場からの移行経路の変化

沿岸域のサイトに対する気候・海水準変動および隆起・侵食の影響を評価するために、上で構築したモデルに対して仮想的な処分場を想定し、処分場からの流路が放出時刻によってどのように変化するかを調べた。流路解析は、2次元地下水流動解析コードMIG2DFと連動した粒子追跡法による移行時間・移行経路の解析コードPASS-TRACを用いて行った。

仮想的な処分場の想定位置

本評価では、沿岸域のサイト（陸側／海側）に対する影響を評価するために、処分場（幅2kmと仮定）が現海水準から±2kmに設置されると想定した。

処分場の設置位置は、深度300m以下とする。ただし、房総半島では透水性の高い砂岩と透水性の低い泥岩が互層構造になっており、高透水性の砂岩（透水係数： 10^{-5} m/s程度）に処分場が設置される可能性は低いと想定される。そのため、本評価では高透水性の層を避けて仮想的な処分場の位置を選定した。

各モデルに対して想定した処分場の位置を、図6.4-50および図6.4-51に示す。

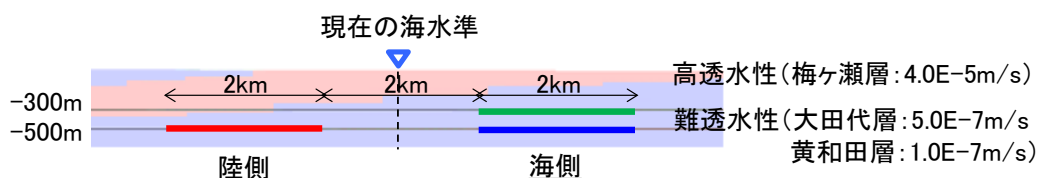


図 6.4-50 処分場の想定位置（遠浅モデル）

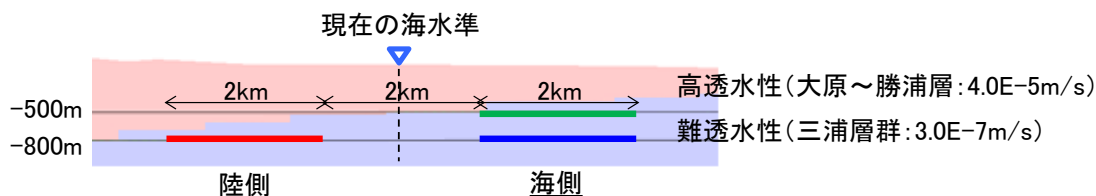


図 6.4-51 処分場の想定位置（急峻モデル）

流路解析は、処分場（幅2km）に対して等間隔に発生させた50点に対して実施した。粒子追跡開始時刻は0～13万年までの1万年毎とし、各時刻ごとに非定常な地下水流動解析の結果に対して流路解析を行った。

亜水期を考慮した海水準変動に対して流路解析を行った結果（移行経路、移行距離、地表到達までの平均速度）を、以下に示す。

① 遠浅モデル

移行経路を図 6.4-52、図 6.4-53 に示す。

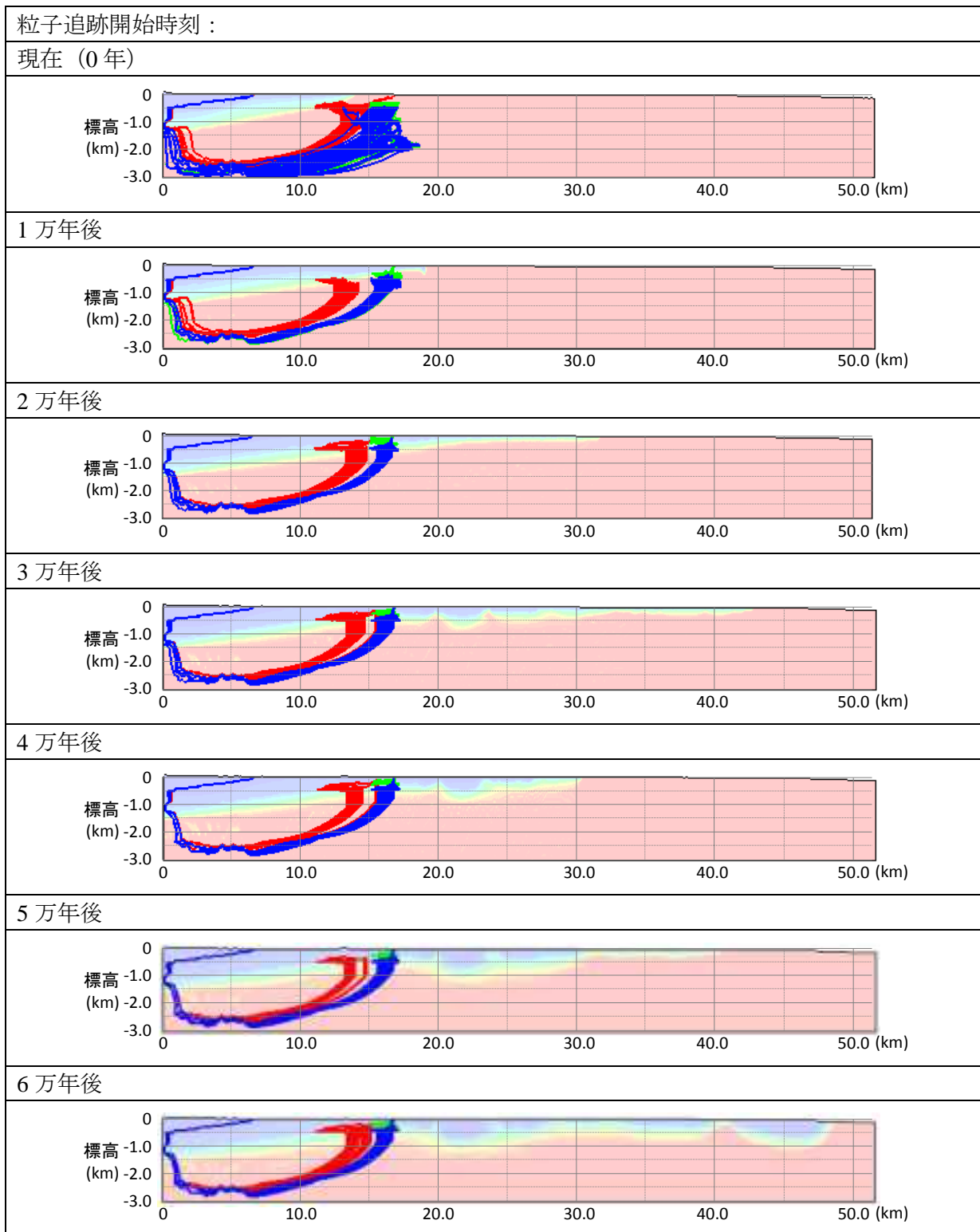
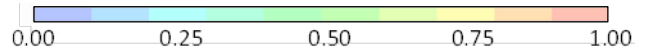
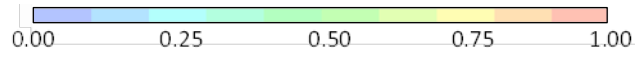
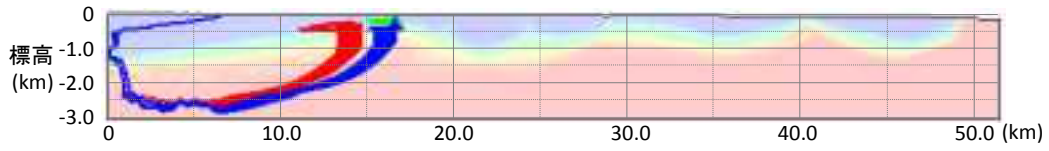


図 6.4-52 処分場からの移行経路 (1 / 2) (遠浅モデル：亜氷期を考慮した海水準変動)
(赤線：陸側 (深度 500m)、緑線：海側 (深度 300m)、青線：海側 (深度 500m)
からの移行経路、背景：塩分濃度分布)

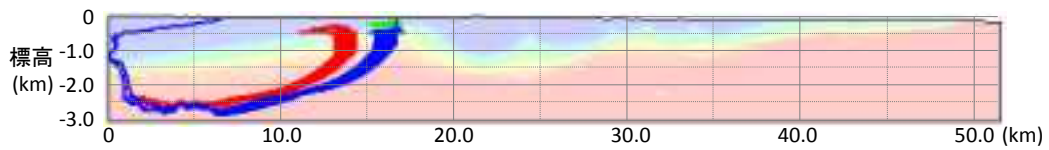


粒子追跡開始時刻：

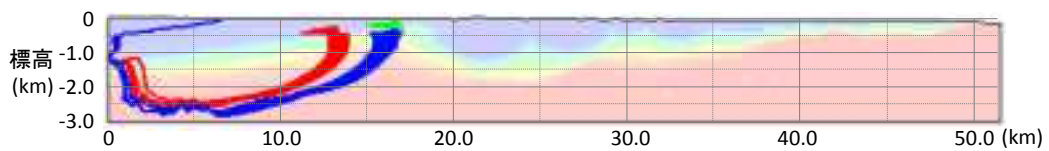
7 万年後



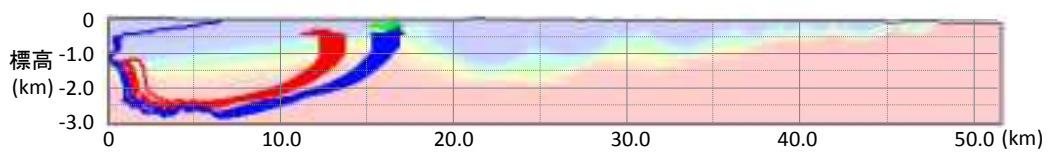
8 万年後



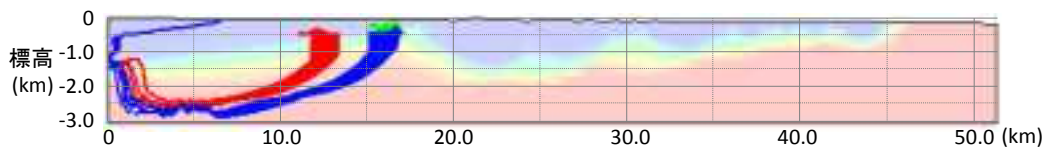
9 万年後



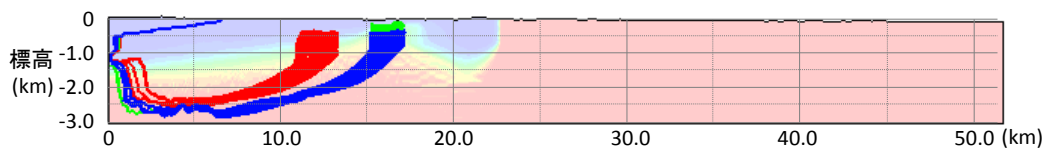
10 万年後



11 万年後



12 万年後



13 万年後

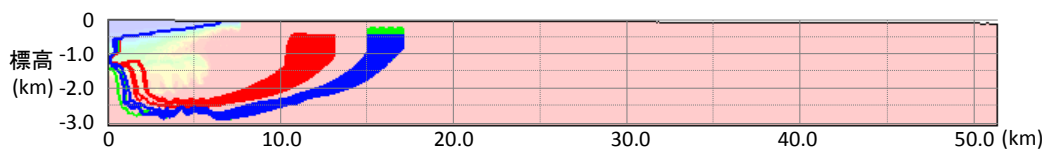


図 6.4-53 処分場からの移行経路 (2 / 2) (遠浅モデル：亜氷期を考慮した海水準変動)
 (赤線：陸側 (深度 500m)、緑線：海側 (深度 300m)、青線：海側 (深度 500m)
 からの移行経路、背景：塩分濃度分布)

移行距離を図 6.4-54 に示す。

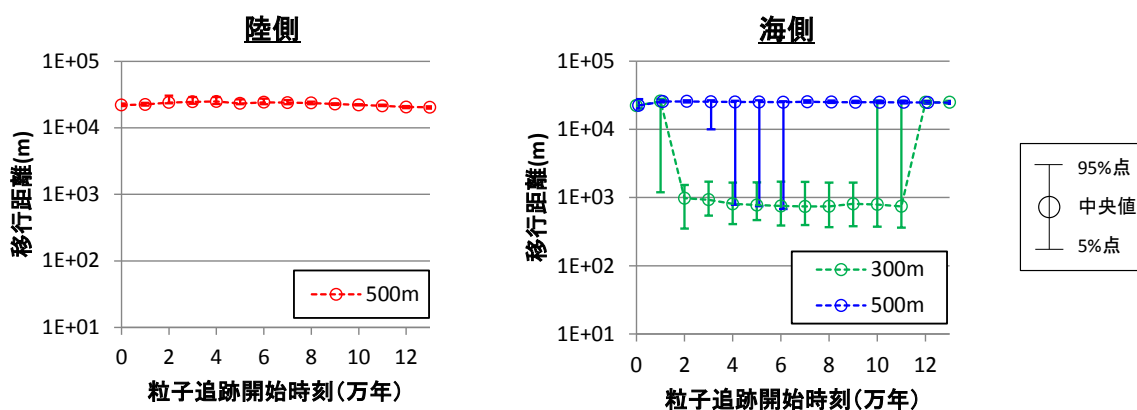


図 6.4-54 処分場からの移行距離（遠浅モデル：亜氷期を考慮した海水準変動）

平均流速を図 6.4-55 に示す。

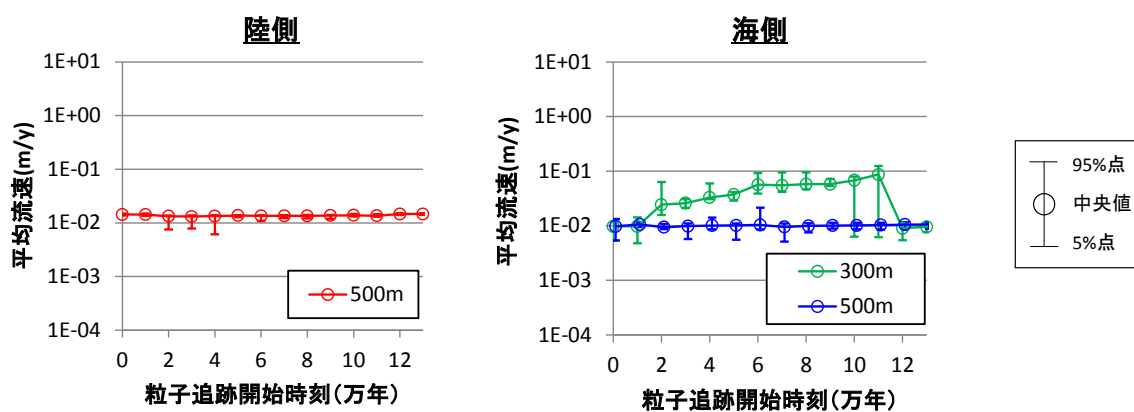


図 6.4-55 処分場からの平均流速（遠浅モデル：亜氷期を考慮した海水準変動）

以上より、遠浅モデルでは以下の特徴が確認された。

処分場（陸側）

処分場（陸側）からの移行経路は、地下深部へ潜って地表へ向かう経路である。

海水準変動に伴う経時的な変化は小さく、処分場内の位置によるばらつきも小さい。

処分場（海側）

処分場（海側）からの移行経路は、地下深部へ潜って地表へ向かう経路と、処分場から直接地表へ向かう経路の2つに大別される。

深度 300m では海水準変動に伴う経時的な変化、および、処分場内の位置によるばらつきが大きく、移行距離で最大 2 桁、平均流速で最大 1 桁程度変化する。

これらの影響は、深度を 500m 程度に下げることによって小さくなる。

② 急峻モデル

移行経路を図 6.4-56、図 6.4-57 に示す。

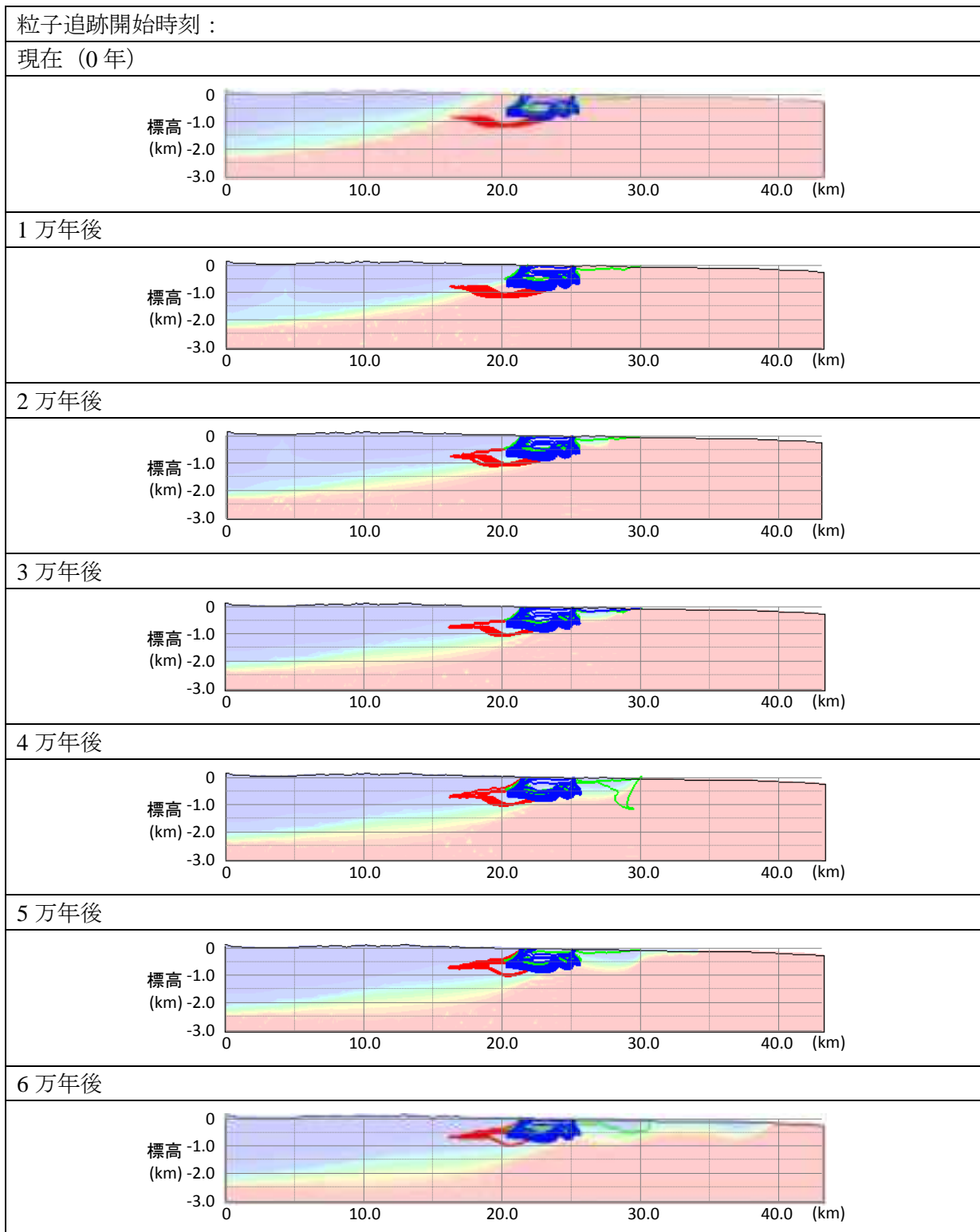
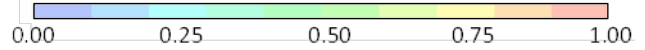
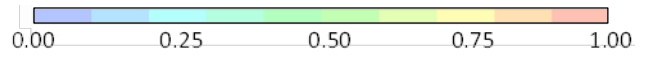
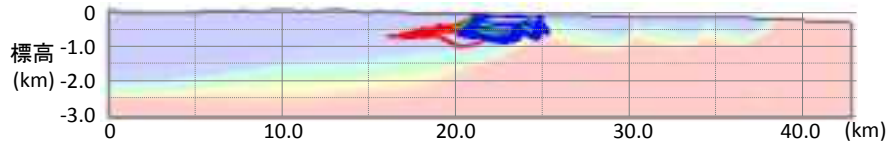


図 6.4-56 処分場からの移行経路 (1 / 2) (急峻モデル：亜氷期を考慮した海水準変動)
(赤線：陸側 (深度 800m)、緑線：海側 (深度 500m)、青線：海側 (深度 800m)
からの移行経路、背景：塩分濃度分布)

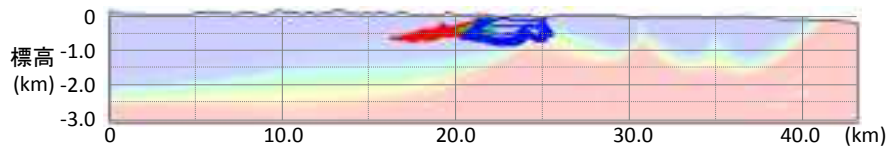


粒子追跡開始時刻：

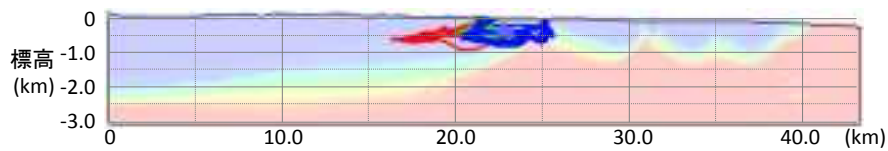
7 万年後



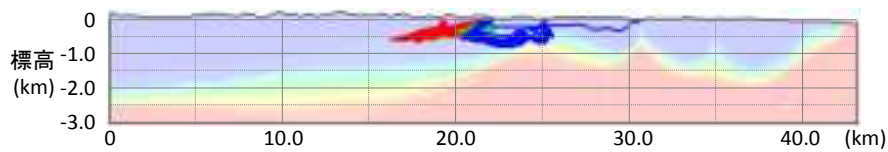
8 万年後



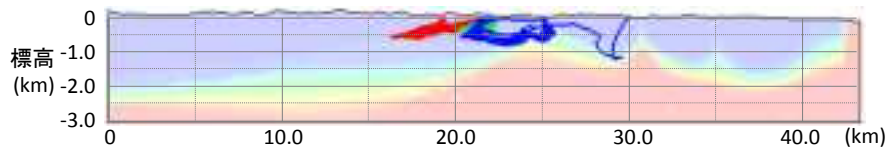
9 万年後



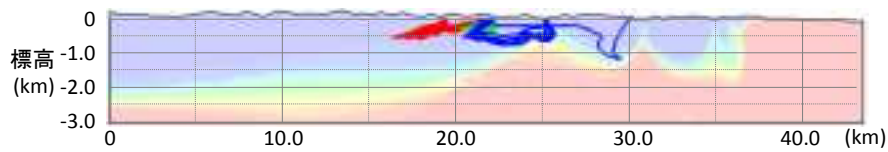
10 万年後



11 万年後



12 万年後



13 万年後

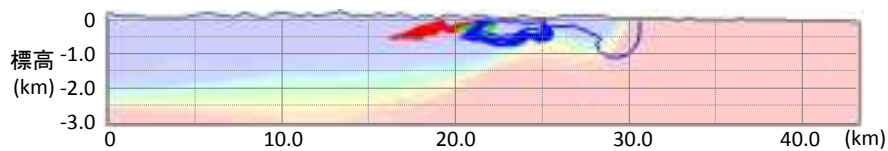


図 6.4-57 処分場からの移行経路 (2 / 2) (急峻モデル：亜氷期を考慮した海水準変動)
 (赤線：陸側 (深度 800m)、緑線：海側 (深度 500m)、青線：海側 (深度 800m)
 からの移行経路、背景：塩分濃度分布)

移行距離を図 6.4-58 に示す。

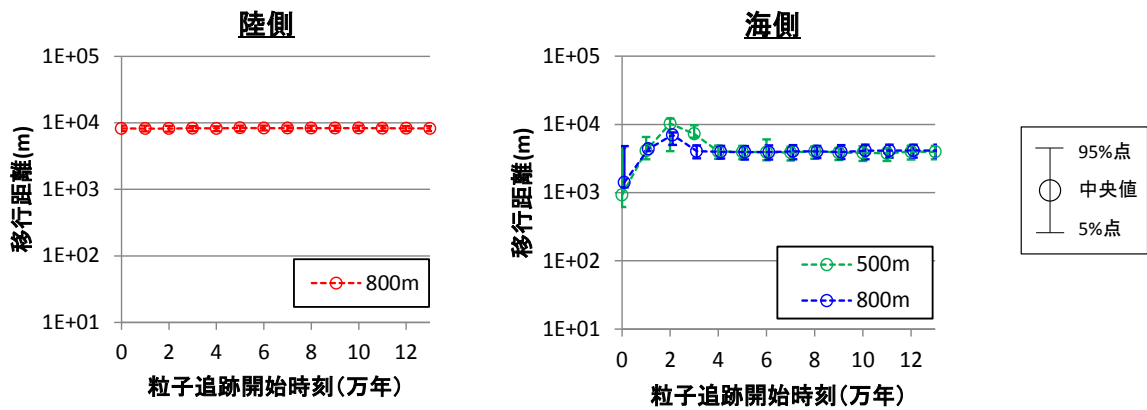


図 6.4-58 処分場からの移行距離（急峻モデル：亜氷期を考慮した海水準変動）

平均流速を図 6.4-59 に示す。

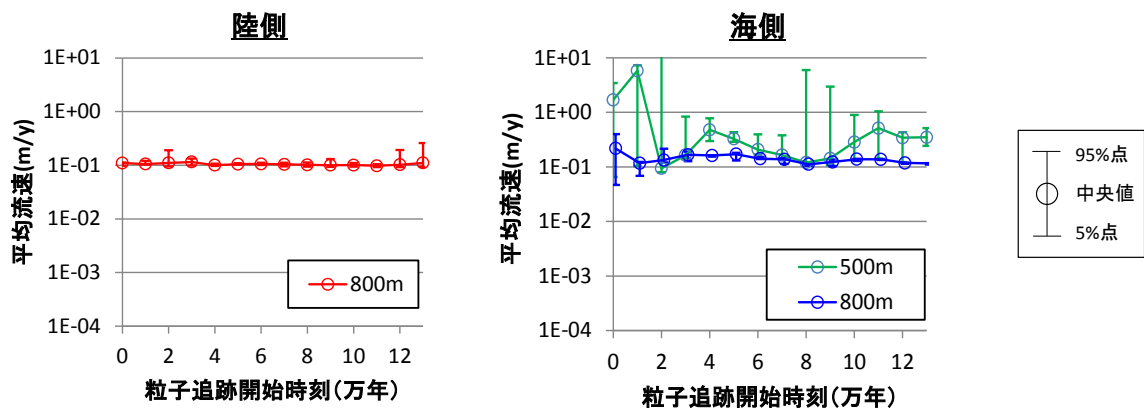


図 6.4-59 処分場からの平均流速（急峻モデル：亜氷期を考慮した海水準変動）

以上より、急峻モデルでは以下の特徴が確認された。

処分場（陸側）

処分場（陸側）からの移行経路は、処分場から直接地表へ向かう経路である。
海水準変動に伴う経時的な変化、および、処分場内の位置によるばらつきは小さい。

処分場（海側）

処分場（海側）からの移行経路は、処分場から直接地表へ向かう経路である。
深度 500m では海水準変動に伴う経時的な変化、および、処分場内の位置によるばらつきが大きく、移行距離で最大 1 桁、平均流速で最大 2 桁程度変化する。
平均流速に対する変動は、深度を 800m 程度に下げることによって小さくなる。

以上より、遠浅モデルでは深度 500m、急峻モデルでは深度 800m に処分場を仮定すれば、海水準変動に伴う経時的変化や処分場内の位置によるばらつきが抑えられることがわかった。

これらの深度に対し、平均化した海水準変動に対しても同様に流路解析を行い、亜氷期の海水準変動を考慮した場合の平均流速の結果と比較した。以下にその結果を示す。

①遠浅モデル（処分場深度：500m）

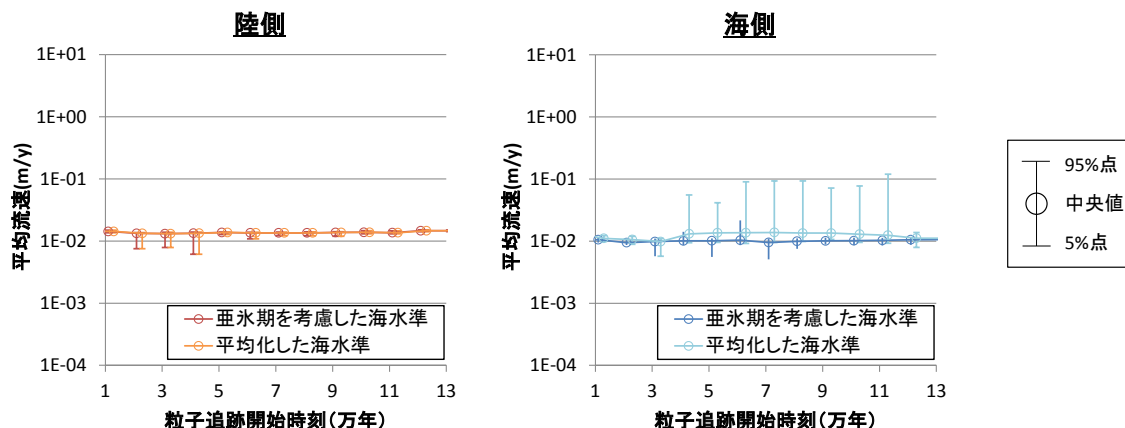


図 6.4-60 亜氷期を考慮した海水準変動と平均化した海水準変動の比較（遠浅モデル）

図 6.4-60 より、陸側では海水準を平均化することによる影響は見られなかった。海側では、平均化することによって処分場内の位置によるばらつきが大きく変化するものの、中央値の変動は少なかった。

②急峻モデル（処分場深度：800m）

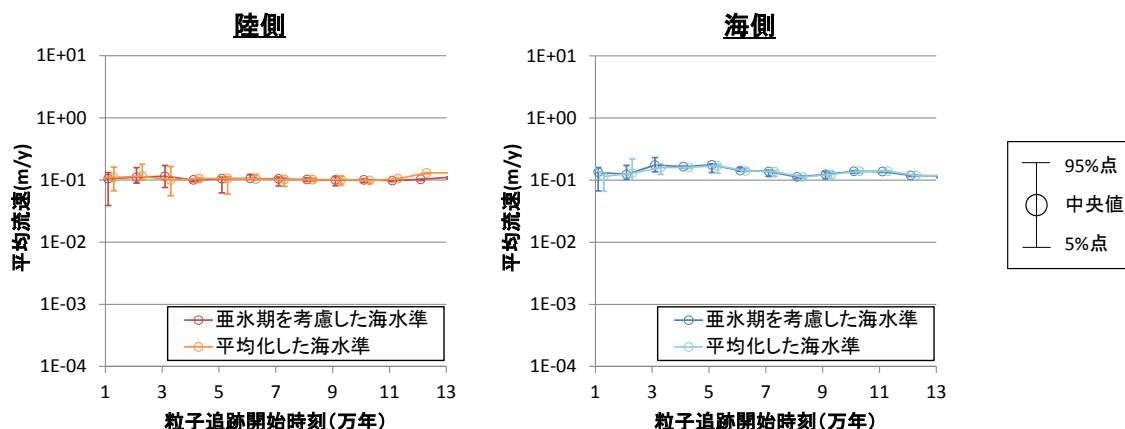


図 6.4-61 亜氷期を考慮した海水準変動と平均化した海水準変動の比較（急峻モデル）

図 6.4-61 より、急峻モデルでは陸側・海側の両者とも、海水準を平均化することによる影響は大きくないことが確かめられた。

以上より、今回想定した遠浅及び急峻のモデルに対しては、海水準変動のモデル化の違い（亜氷期を考慮した海水準変動と平均化した海水準変動）による平均流速への影響は小さかった。これは、海水準変動のモデルに依存した汀線位置が移行経路の空間的な範囲から遠く離れた位置で現れているためと考えられる。さらに海側に処分場位置を仮定した場合は、モデルの違いによる影響が見られると想定される。

海水準変動のモデルに依存した汀線位置が処分場位置からの移行経路に与える影響をより詳細に調べるため、例として急峻モデル（海側、処分場深度：800m）に対して、処分場位置として現海水準から+1～10km までの範囲を仮定し、1 万年に粒子が放出した場合について同様に流路解析を行った。平均流速の解析結果を図 6.4-62 に、移行距離の解析結果を図 6.4-63 に示す。

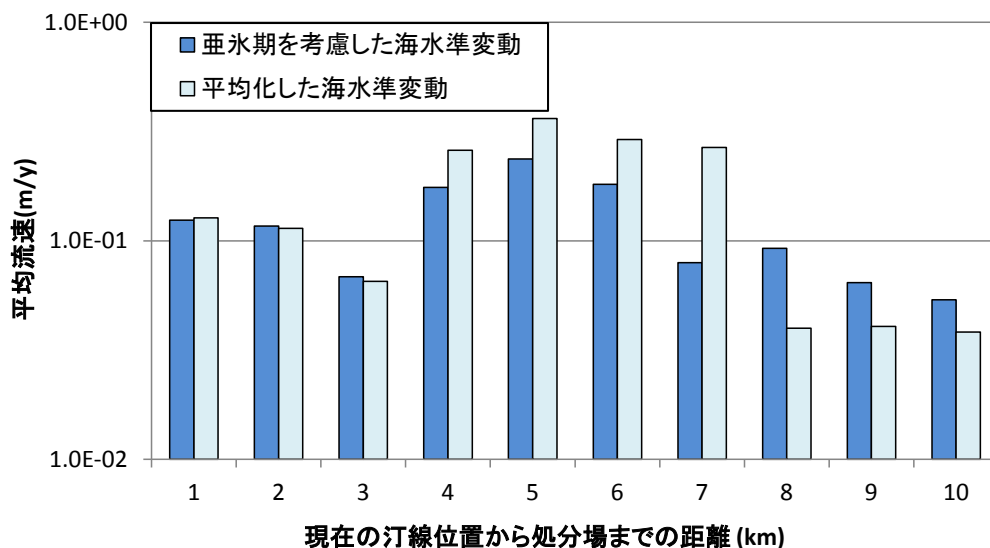


図 6.4-62 海水準変動のモデル化による平均流速の違い

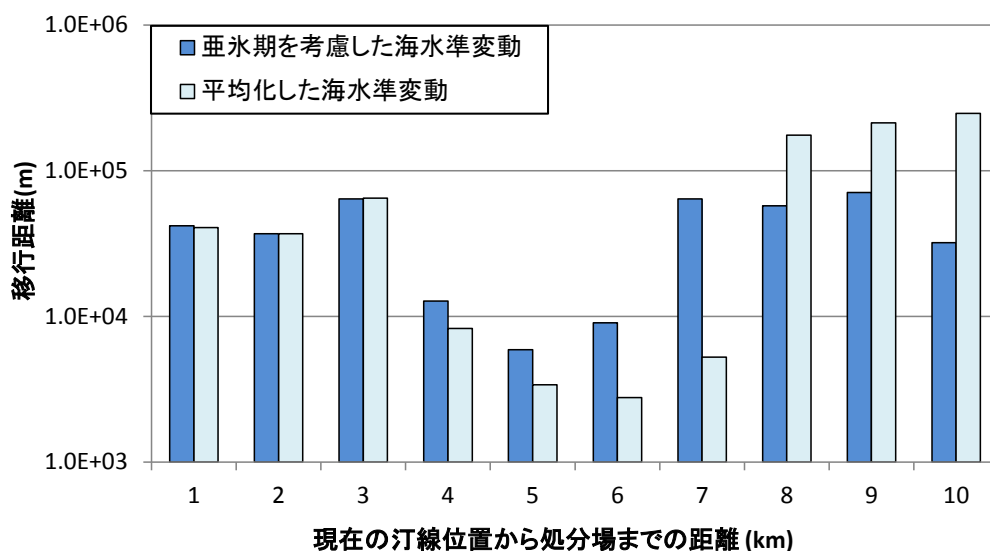


図 6.4-63 海水準変動のモデル化による移行距離の違い

図 6.4-62 および図 6.4-63 より、今回想定した急峻モデルに対しては、現在の汀線位置+4km 程度以降から海水準変動のモデルの違いにより結果に違いが見られ、モデルによる汀線位置の違いが顕著に現れる範囲（現在の汀線位置+7km 前後）においては、特にモデルによる平均流速・移行距離の違いが大きかった。

以上の地下水流動解析結果から沿岸地域における処分の留意事項をまとめると以下のようなになる。

- ・ 沿岸地域の急峻と遠浅地形のモデルによる解析結果の比較から、隆起・侵食による地形・地質構造の変化のより小さい遠浅地形のほうが、移行経路が長く平均流速が小さくかつそれらの経時的変化が抑えられる傾向を示し、遠浅地形の処分サイトは天然バリアの長期的な時間スケールを含めた移行抑制機能の評価の観点からより好ましい条件であると言える。
- ・ 陸側処分と海側処分の比較からは、陸側処分の方が海水準変動の影響を受けにくい傾向はあるもの、急峻及び遠浅地形のモデルの違いによらず海側処分において海水準の経時的変化の影響を受けにくい処分深度の条件があることが示された。さらに、汀線位置の将来の経時変化が移行経路や流速に影響を受けにくい海側処分の位置があることが解析より示され、将来の汀線位置との関係で移行距離や流速への影響を抑えた海側処分場の水平位置や深度を決めることが重要と考えられる。

6.4.3 核種移行パラメータ

人工バリアのパラメータ設定は、包括的感度解析の標準ケースを用いる（6.3章参照）。

天然バリアは多孔質媒体近似モデルを用い、房総半島の地下水組成（表 6.4-6）及び地質（表 6.4-7）に基づきパラメータを設定する。

表 6.4-6 房総半島の地下水組成

	地下水1	地下水2
pH	8.44125	7.5596
Eh	15.83333	-53.7273
Ca(ppm)	46.00571	281.152
Na	1700.813	10860.64
Cl	2120.011	18410.12
SO4	11.75462	6.790909
HCO3	768.0337	703.8708
F	0.543158	2.528667
Br	8.895455	117.748
NO3	2.071875	4.95375
K	55.62357	346.552
Mg	28.46667	378.5526
SiO2	51.84545	42.54286

表 6.4-7 房総半島の地質

地質	岩相			間隙率(%)
古第三系	砂岩～頁岩	→	泥岩	40
三浦層群	砂岩～頁岩	→	泥岩	40
大原層～勝浦層	砂岩優勢	→	砂岩	45
黄和田層	泥岩優勢	→	泥岩	45
太田代層	砂質泥岩	→	泥岩	45
梅ヶ瀬層	砂岩主体	→	砂岩	40
国本層	泥岩主体	→	泥岩	45
柿ノ木層	砂質泥岩	→	砂岩	45
笠森層	泥岩主体	→	泥岩	50
下総層群	砂岩主体	→	砂岩	50

6.4.4 核種移行解析

6.4.2 章の地下水流動解析の結果を受け、遠浅／急峻モデル、処分場位置陸側／海側の違いによる影響を確認するため、以下の4ケースについて核種移行解析を行った。急峻モデルでは地層が勾配を持って配置されているため、高透水層までの距離がおおよそ一致するように、陸側は処分場深度 800m、海側は処分場深度 700m とした。遠浅モデルでは海側、陸側ともに処分場深度 500m とした。ソースタームを燃料デブリとした場合と比較のため、ソースタームを HLW とした場合についても同じ天然バリアを設定して解析を行った。6.3 章の人工バリア安全機能に着目した確率論的評価機能を用いた包括的感度解析の結果、4 種の系列核種のうち燃料デブリにおいて特に重要であることが示された 4n+2 系列を対象核種とした。また、FP を代表して Se-79 および Cs-135 を対象核種とした。10¹⁰ 年までを対象として解析を行った。

- 急峻モデル、陸側 800m、亜氷期を考慮した海水準変動
- 急峻モデル、海側 700m、亜氷期を考慮した海水準変動
- 遠浅モデル、陸側 500m、亜氷期を考慮した海水準変動
- 遠浅モデル、海側 500m、亜氷期を考慮した海水準変動

(1) 天然バリア移行経路

図 6.4-64 に示すように、核種が人工バリアから放出される時間ごとに天然バリアの異なる経路を移行するものとして、人工バリア出口フラックスを 1～14 の各経路に割り当てて、GSRW-PSA による核種移行解析を実施した。そして、14 の経路別のフラックスはすべて同じ帯水層に供給されると仮定して足し合わせたものを天然バリア出口フラックスとして評価した。6.4.2 章の PASS-TRAC による流路解析の結果のうち、核種移行解析で用いた天然バリア移行経路を図 6.4-65～図 6.4-68 に示す（2次元の移行経路図は Appendix II -B に示す）。遠浅モデルにおいては、地下水流動解析の結果によると折り返して逆行するような経路を取るが、実際にこのような長い経路を通ることを保証できないため、核種移行解析上は保守的に逆行する経路を無視し、太田代層を通過した時点で帯水層下限（地表から 40m 地下）に到達したとみなすこととした。

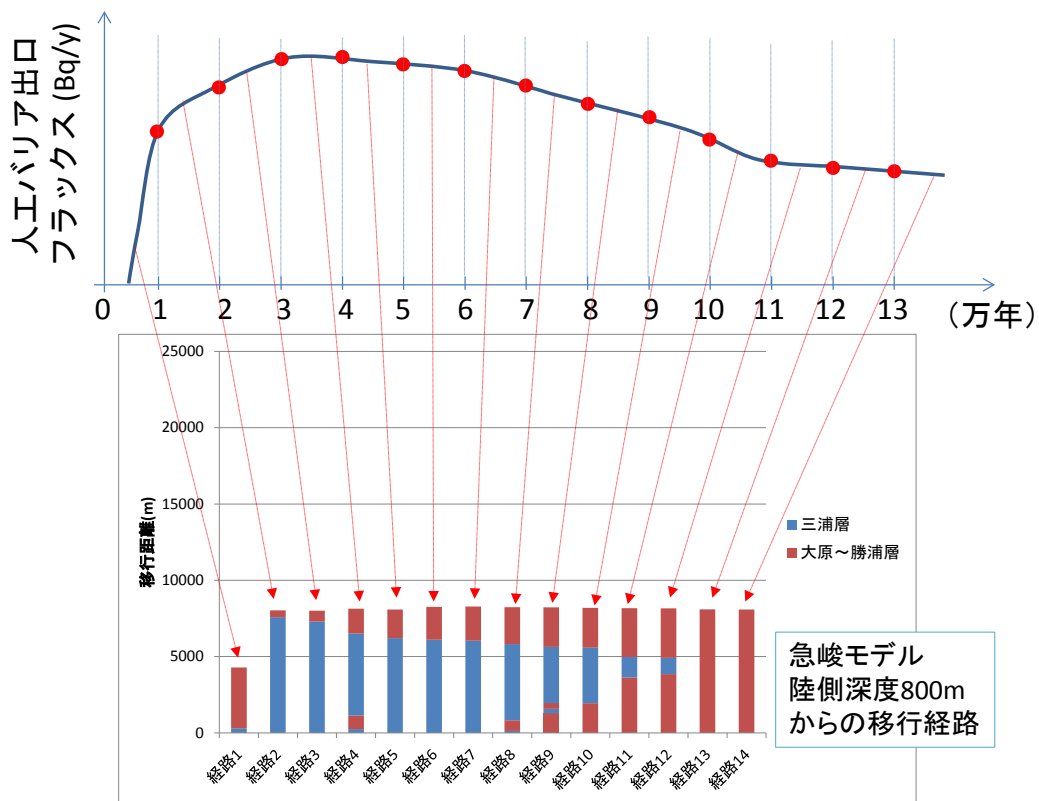


図 6.4-64 人工バリア出口フラックスの各経路への割り当て方法

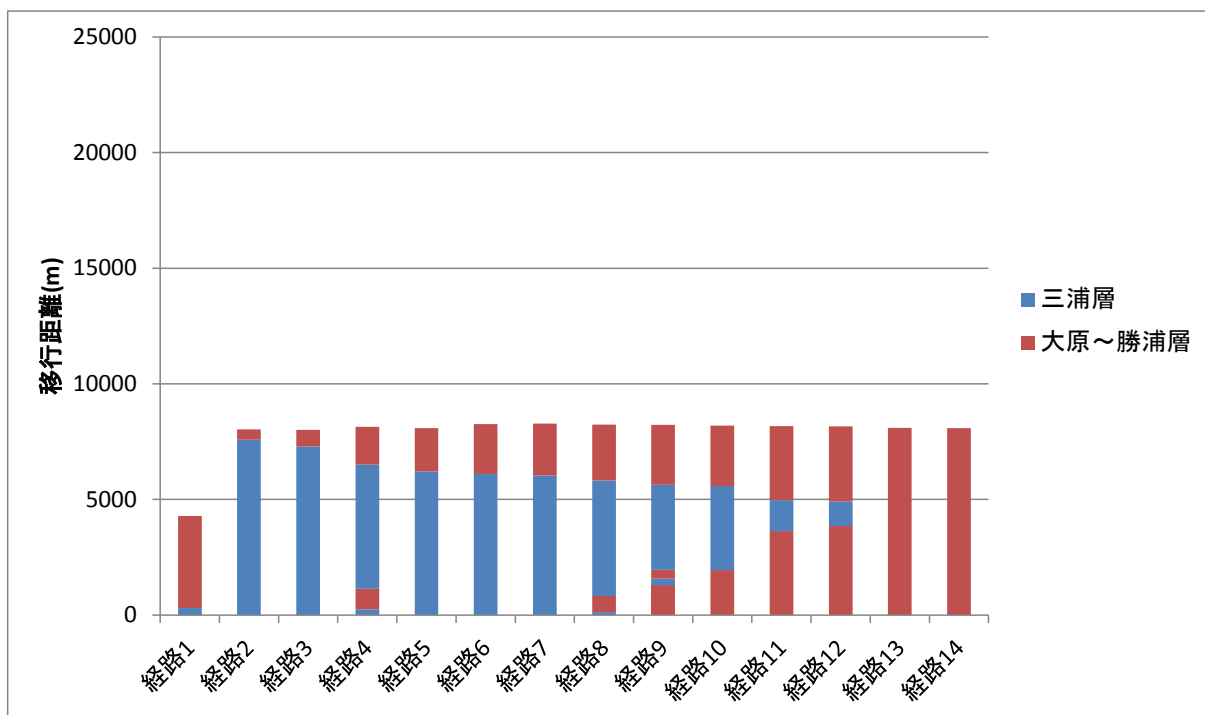


図 6.4-65 移行距離 (急峻モデル、陸側 800m)

経路 1 の 4,277～4,289m の 12m 間は地下水 2。それ以外は地下水 1。

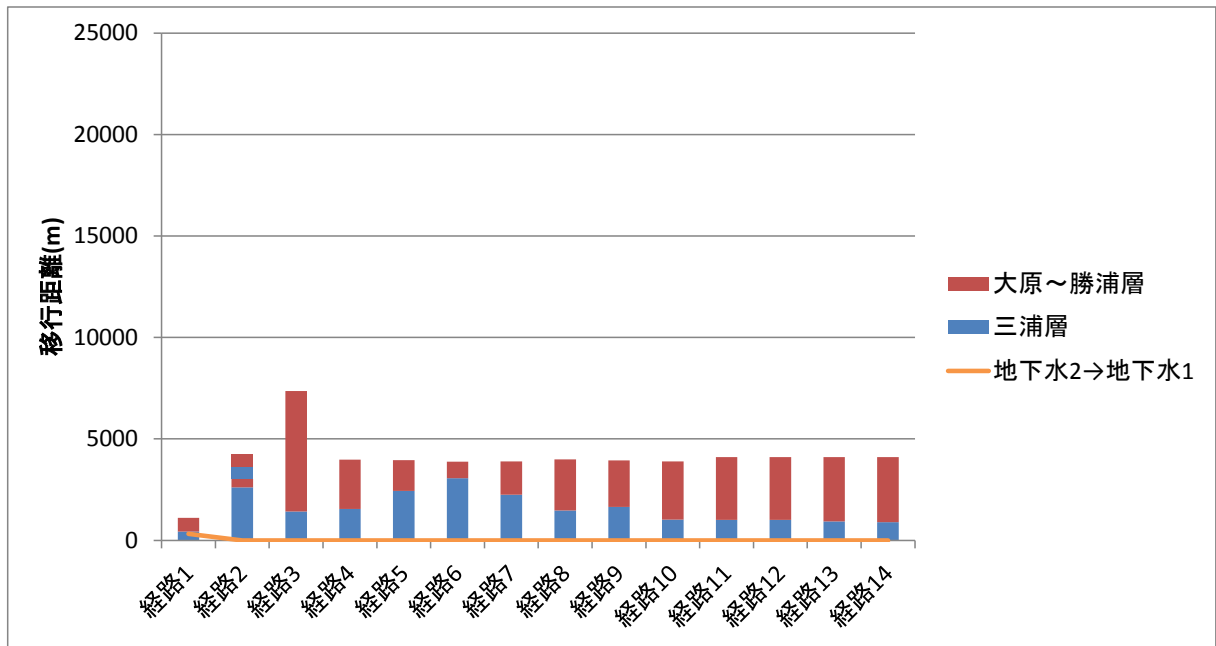


図 6.4-66 移行距離（急峻モデル、海側 700m）

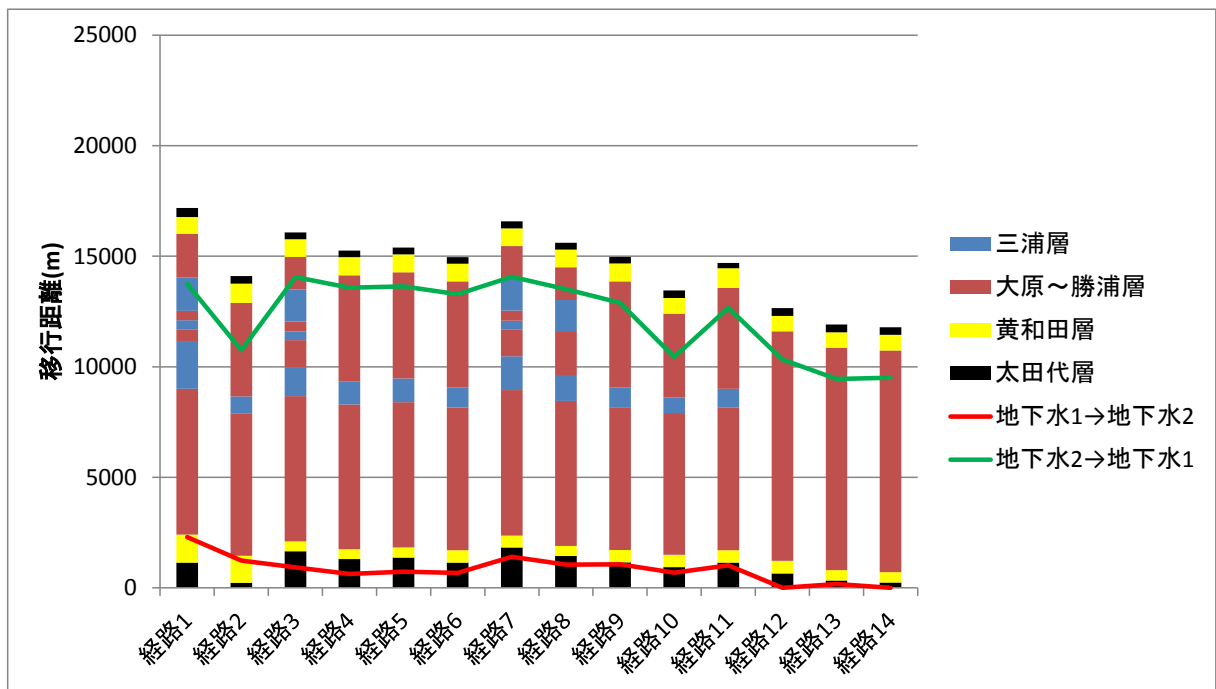


図 6.4-67 移行距離（遠浅モデル、陸側 500m）

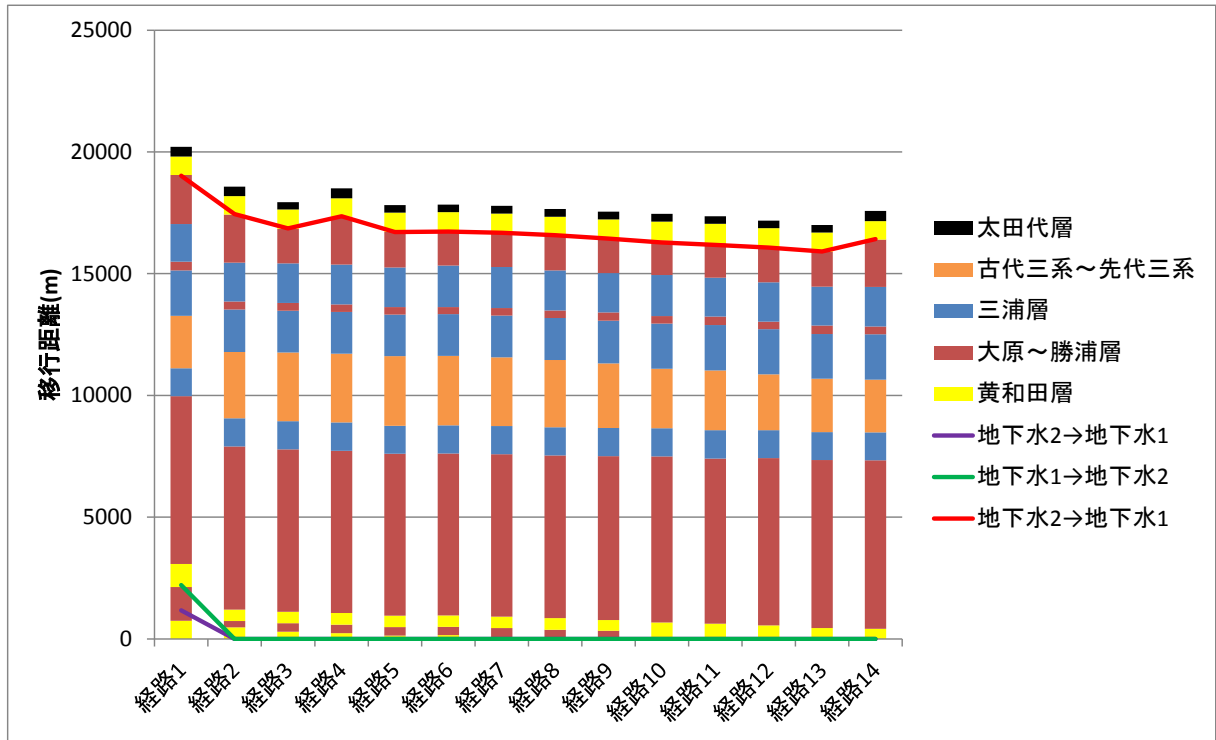


図 6.4-68 移行距離（遠浅モデル、海側 500m）

(2) 人工バリア出口フラックス

核種移行解析によって求められた人工バリア出口フラックスを図 6.4-69、図 6.4-70 に示す。燃料デブリあるいはガラス固化体 1 本あたりの評価結果である。この人工バリア出口フラックスの結果は 6.3 章の人工バリア安全機能に着目した感度解析の標準ケースと同じ結果である。HLW ではガラス溶解モデルとその溶解速度に支配されてフラックスが変化し、Se-79 及び Cs-135 では 4 万年程度までに $4n+2$ 系列核種でも 100 万年までにフラックスの放出を終えている。一方、燃料マトリクス溶解速度の時間変化に応じて、燃料デブリについては Cs-135 で 2000 万年程度まで、 $4n+2$ 系列核種は 1 億年程度まで放出が継続されている。

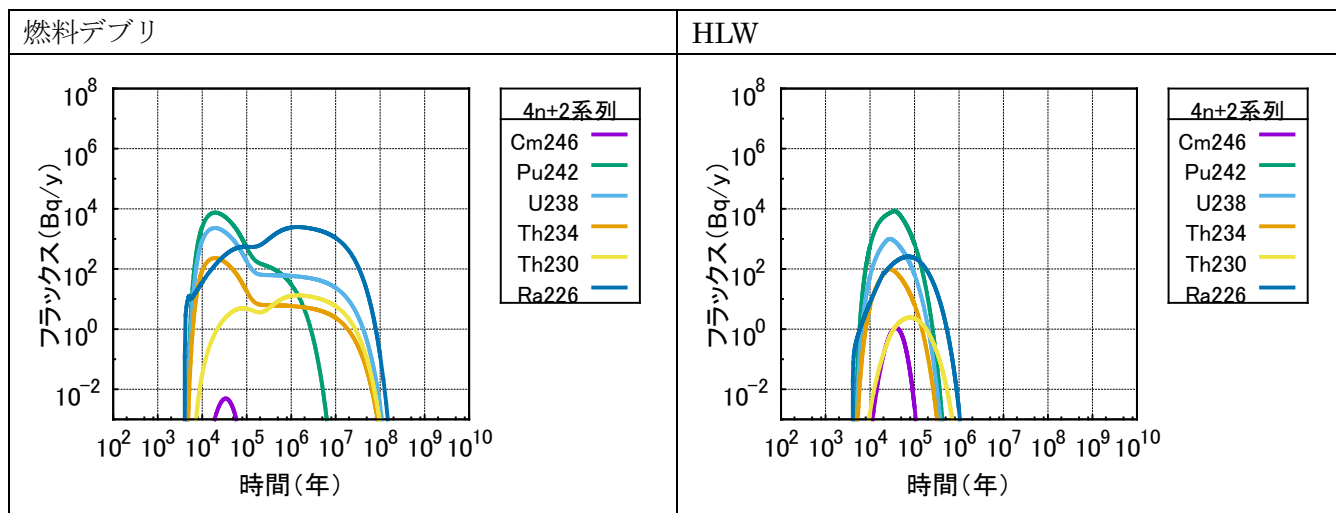


図 6.4-69 1 本あたりの人工バリア出口フラックス ($4n+2$ 系列)

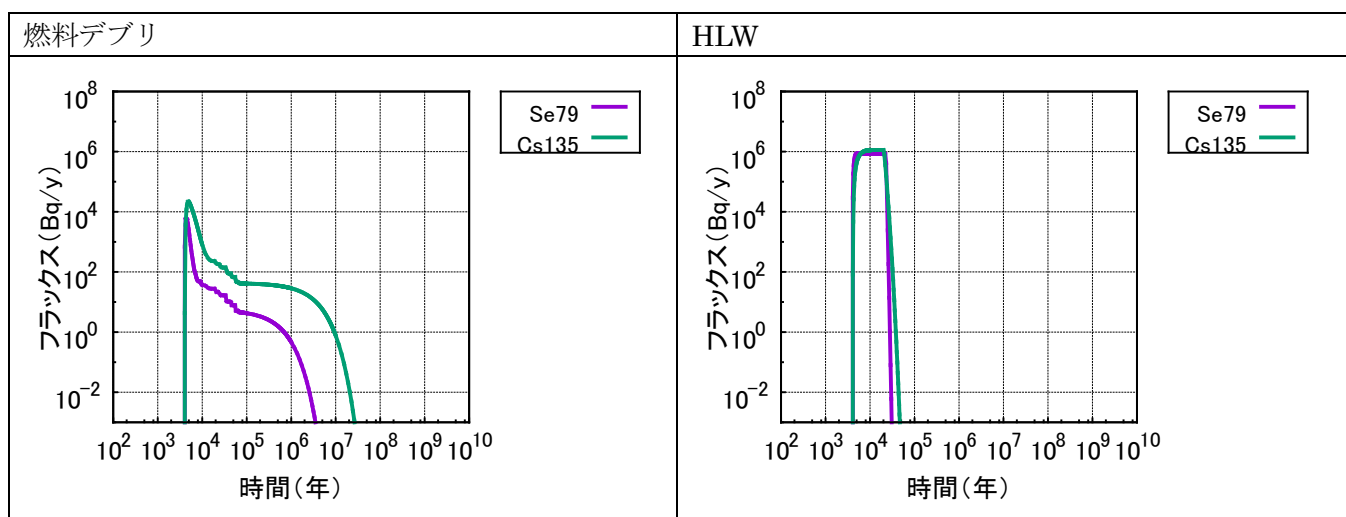


図 6.4-70 1 本あたりの人工バリア出口フラックス (Se-79 および Cs-135)

(3) 天然バリア出口フラックス (急峻モデル)

急峻モデル、陸側 800m の天然バリア出口フラックスを図 6.4-71、図 6.4-72 に示す。図中に①で示したピークは移行経路の短い経路 1 からのフラックスである。図中に②で示したピークは経路 2～経路 14 からのフラックスが足し合わされたものである。

天然バリア出口フラックスの最大値は、 $4n+2$ 系列では燃料デブリが HLW を上回り、Se-79 および Cs-135 では HLW が燃料デブリを上回った。これはインベントリの大小関係と一致する。

急峻モデル、海側 700m の天然バリア出口フラックスを図 6.4-73、図 6.4-74 に示す。また、経路ごとのフラックスを足し合わせる前の結果 (経路 1、経路 2、経路 14) を図 6.4-75、図 6.4-76 に示す。経路 3～経路 13 のフラックスは、 $4n+2$ 系列核種および燃料デブリの Se-79、Cs-135 では経路 2 とおおむね同じようなフラックスとなる。HLW の Se-79、Cs-135 の天然バリア出口フラックスは人工バリア出口フラックスの減少とともに減少し、経路 7～経路 14 では、 10^{-10} Bq/y 以上のフラックスは出現しなかった。

経路 1 からのフラックスは、Se-79、Cs-135 では他の経路より先行して出現する一方、U-238 およびその子孫核種では遅れて出現する。これは移行距離が短いために Se-79、Cs-135 のフラックスが早期に出現する一方、上流側 320m の水質が地下水 2 であり、U の分配係数が大きいために U-238 およびその子孫核種の移行が遅延されるためである。

燃料デブリでは、HLW に比べ長い時間人工バリアからの核種放出が継続する。その結果、経路 14 からのフラックスも長い時間継続し、経路 1 から遅れて出現する U-238 およびその子孫核種のフラックスと一部重なる結果となった。

天然バリア出口フラックスの最大値は、 $4n+2$ 系列核種では燃料デブリが HLW を上回り、Se-79 および Cs-135 では HLW が燃料デブリを上回った。これはインベントリの大小関係と一致する。

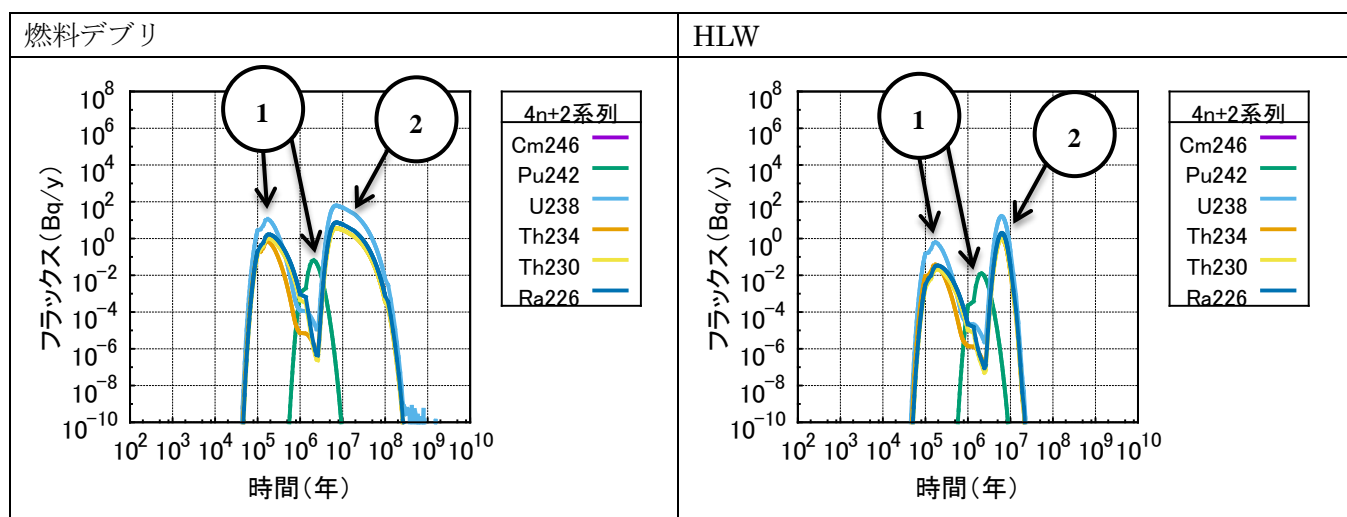


図 6.4-71 1本あたりの天然バリア出口フラックス (急峻モデル、陸側 800m、 $4n+2$ 系列)

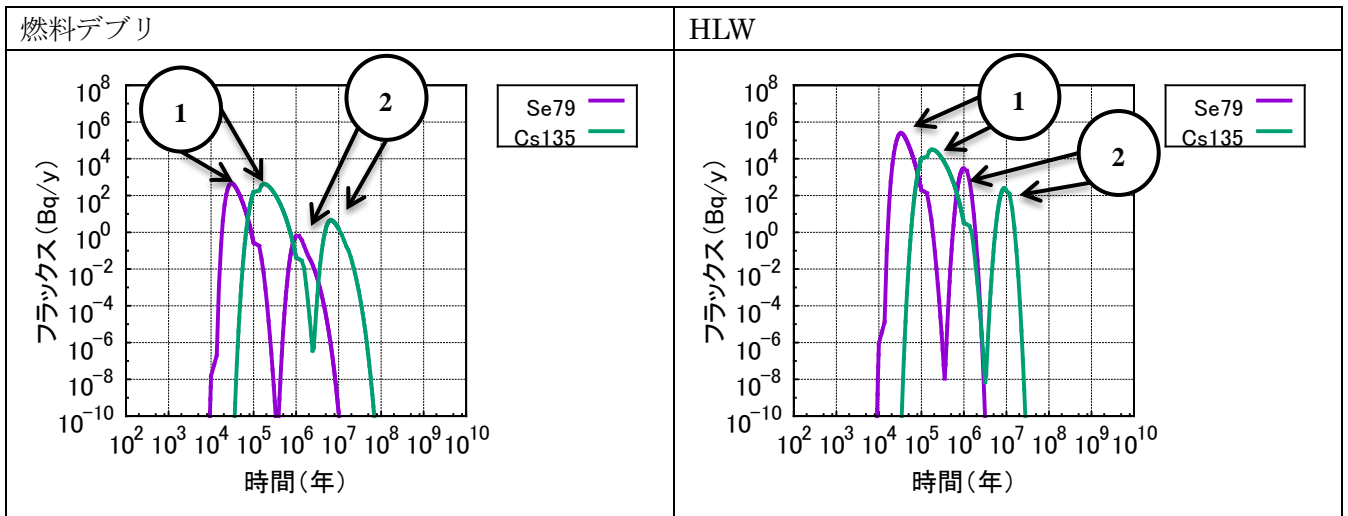


図 6.4-72 1本あたりの天然バリア出口フラックス（急峻モデル、陸側 800m、Se-79 および Cs-135）

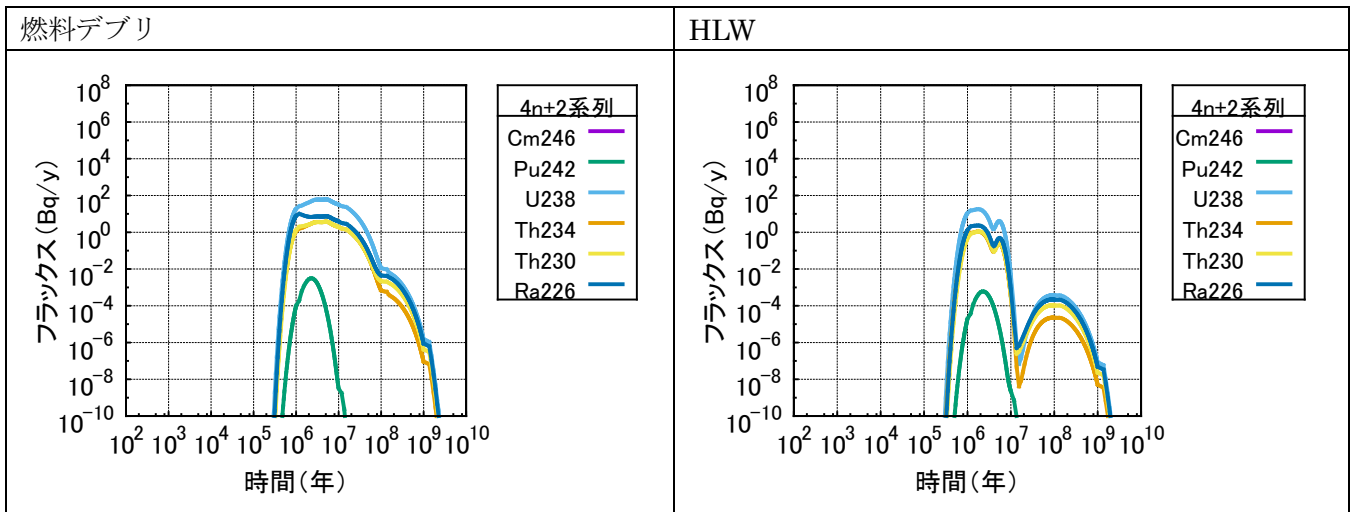


図 6.4-73 1本あたりの天然バリア出口フラックス（急峻モデル、海側 700m、4n+2 系列）

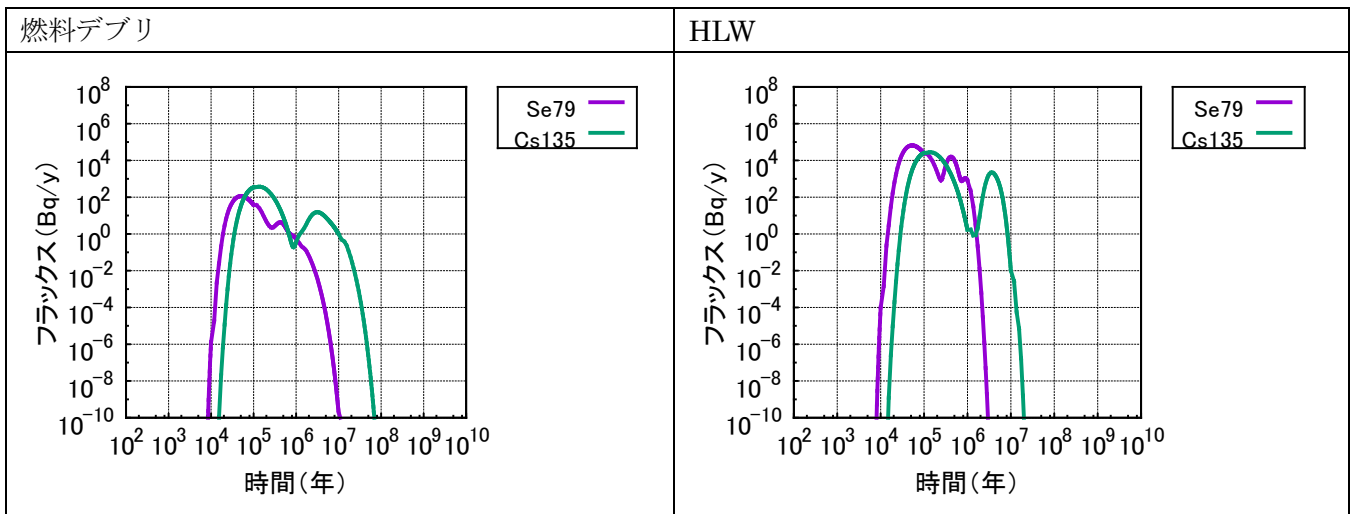


図 6.4-74 1本あたりの天然バリア出口フラックス（急峻モデル、海側 700m、Se-79 および Cs-135）

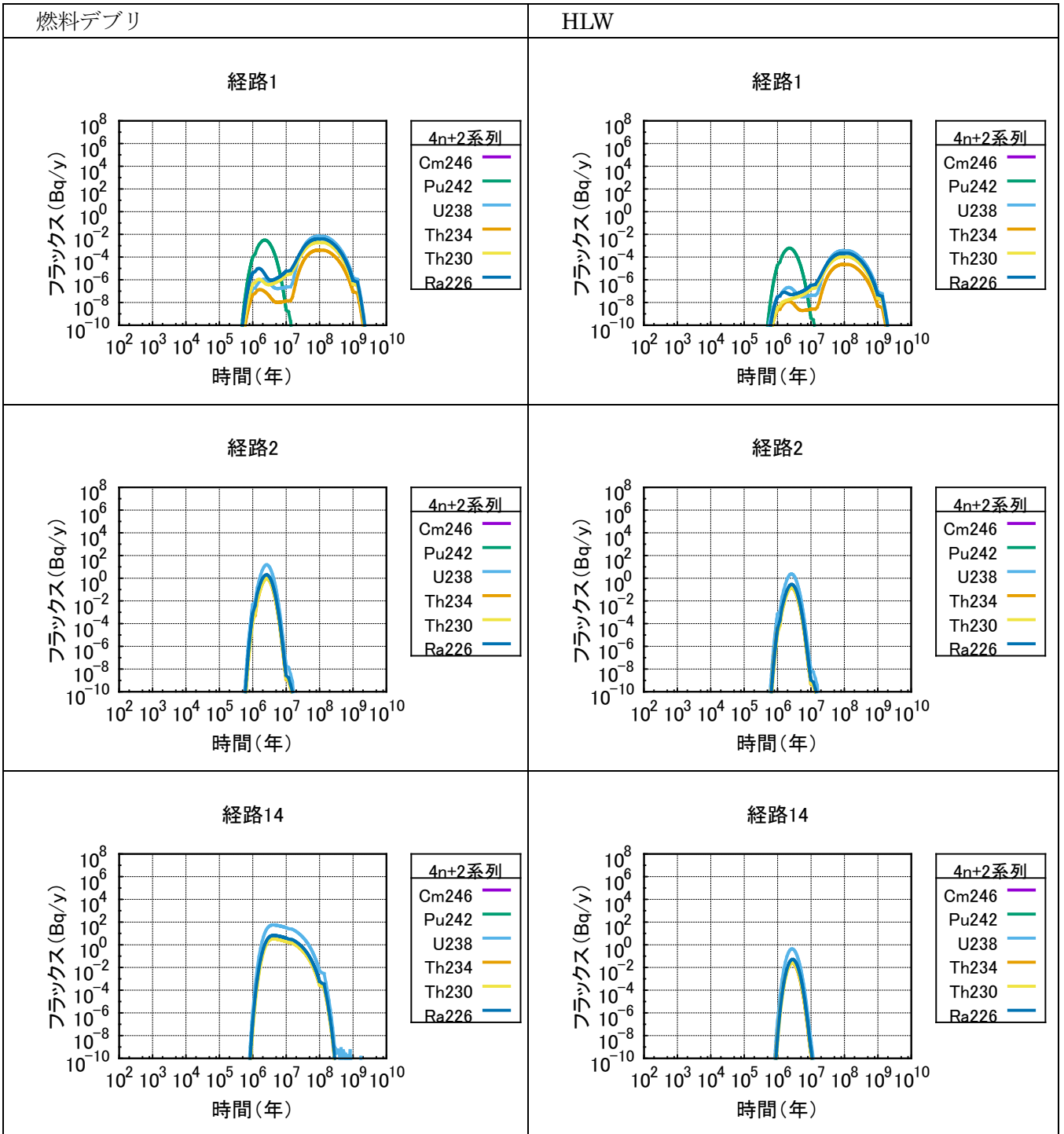


図 6.4-75 経路別の1本あたりの天然バリア出口フラックス (急峻モデル、海側 700m、4n+2 系列)

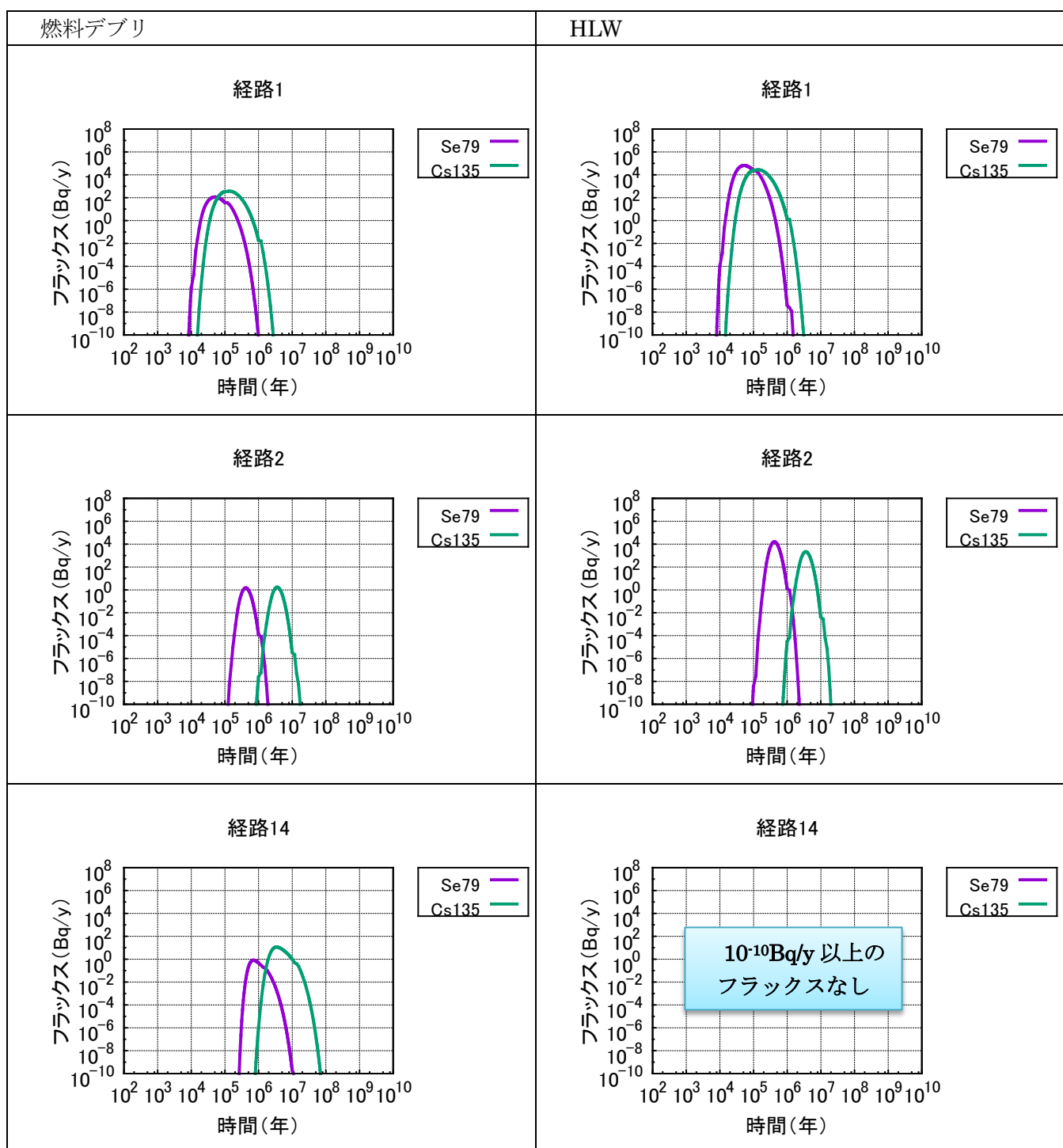


図 6.4-76 経路別の 1 本あたりの天然バリア出口フラックス (急峻モデル、海側 700m、Se-79 および Cs-135)

(4) 天然バリア出口フラックス (遠浅モデル)

遠浅モデル、陸側 500m の天然バリア出口フラックスを図 6.4-77、図 6.4-78 に示す。遠浅モデル、海側 500m の天然バリア出口フラックスを図 6.4-79、図 6.4-80 に示す。

遠浅モデルでは急峻モデルに比べて移行距離が長いため、すべての核種でフラックスは低減された。また経路上の水質は、急峻モデルでは地下水 1 が主要だったのに対し、遠浅モデルでは地下水 2 が主要になった。地下水 2 の分配係数は地下水 1 に比べ、U では大きくなり、Cs では小さくなる。このため、U-238 およびその子孫核種の移行はさらに遅延される一方、Cs-135 のフラックスの低減効果は他の核種に比べ小さかった。

陸側と海側を比較すると、海側の移行距離が陸側よりも長いため、より核種の移行が抑えられた。

4n+2 系列核種は 10^{10} 年までの解析では、陸側ではフラックスの立ち上がり部分のみ出現し海側では 10^{-10} Bq/y 以上のフラックスは出現しなかった。Se-79 は 10^{-10} Bq/y 以上のフラックスは出現しなかった。Cs-135 は海側の燃料デブリを除き、 $10^7 \sim 10^8$ 年付近にフラックスが出現した。

天然バリア出口フラックスの最大値は、4n+2 系列核種および陸側の Cs-135 で燃料デブリが HLW を上回る。4n+2 系列核種はインベントリの大小関係と一致するが、陸側の Cs-135 ではインベントリの大小関係とは逆転している。燃料デブリと HLW の核種浸出モデルの違いにより、燃料デブリでは経路 14 のフラックスが主要となる一方、HLW では経路 1~3 のフラックスが主要となっている。遠浅モデル陸側の経路 14 の移行距離が経路 1~3 よりも短いため、燃料デブリのフラックスが HLW を上回ったと考えられる。

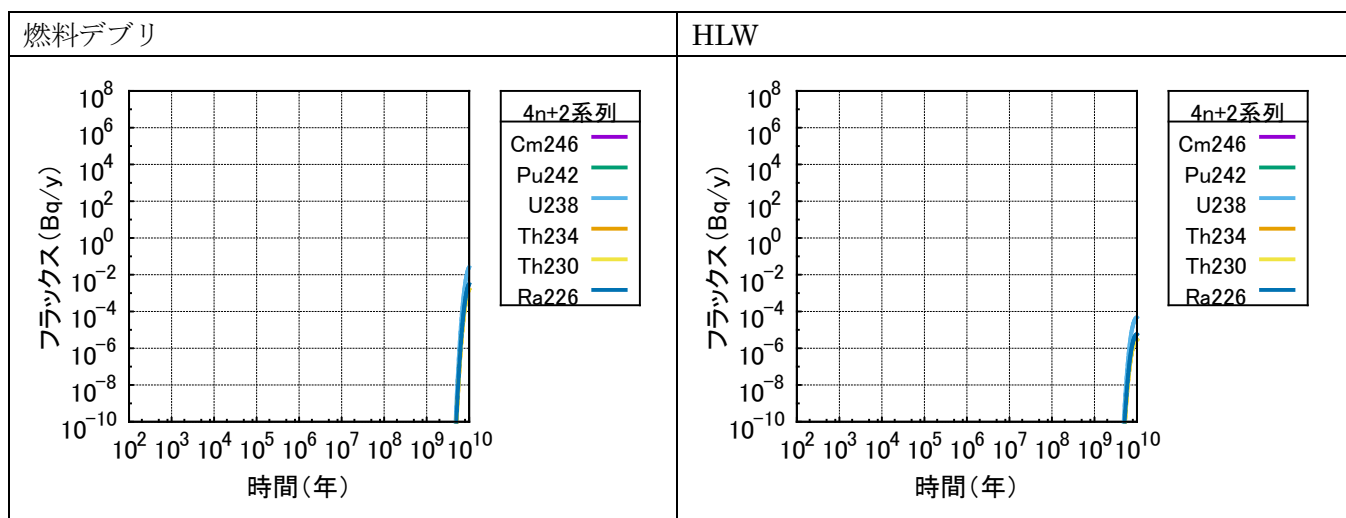


図 6.4-77 1本あたりの天然バリア出口フラックス (遠浅モデル、陸側 500m、4n+2 系列)

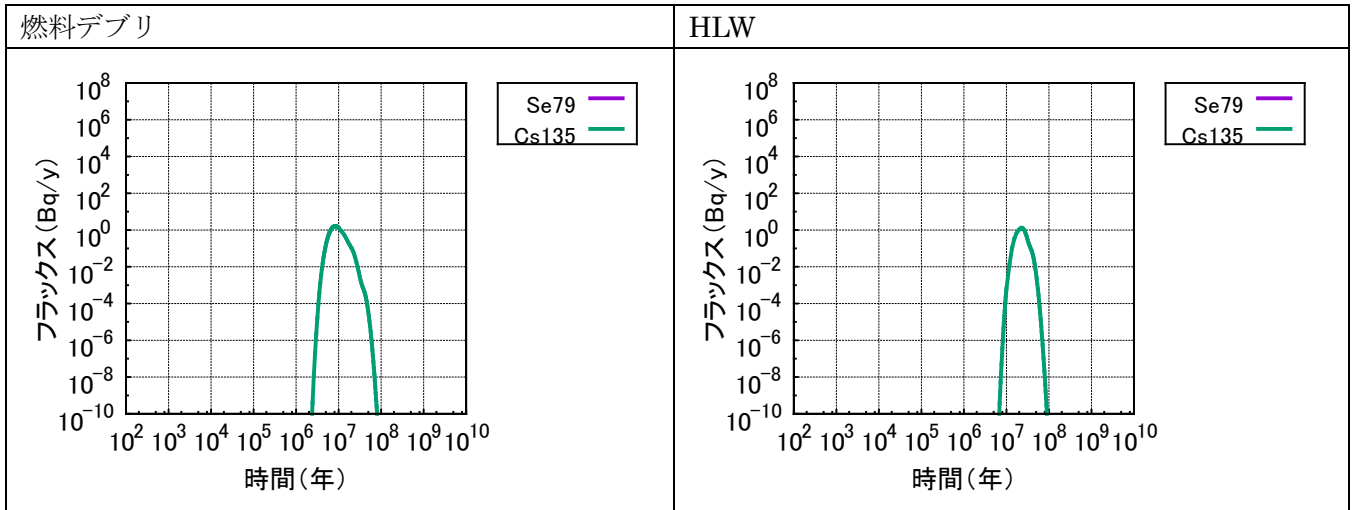


図 6.4-78 1本あたりの天然バリア出口フラックス（遠浅モデル、陸側 500m、Se-79 および Cs-135)

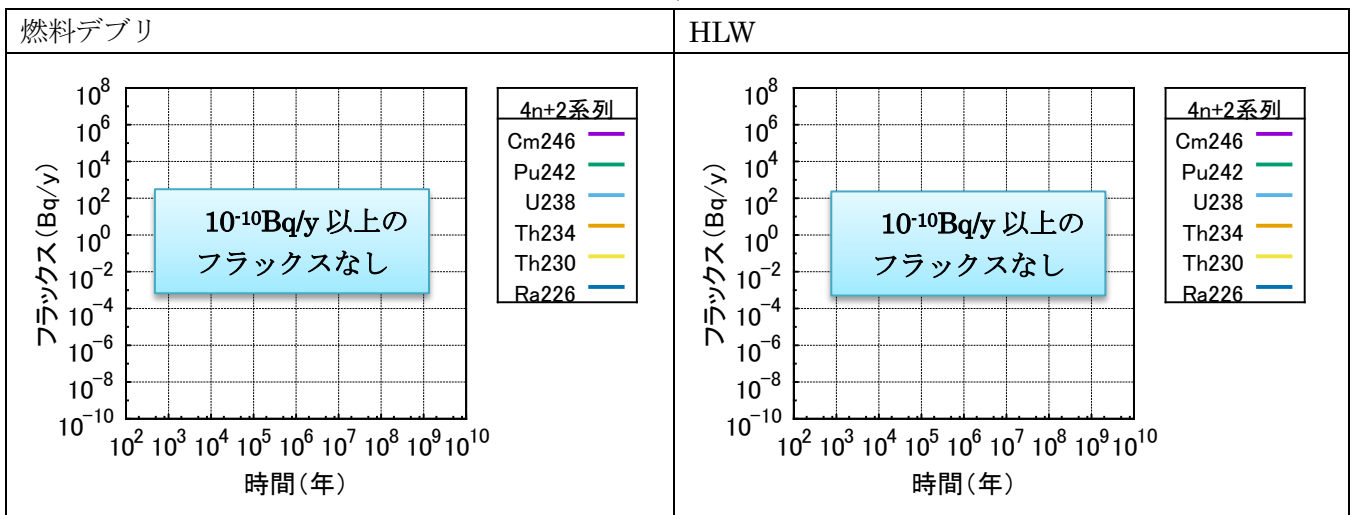


図 6.4-79 1本あたりの天然バリア出口フラックス（遠浅モデル、海側 500m、4n+2 系列)

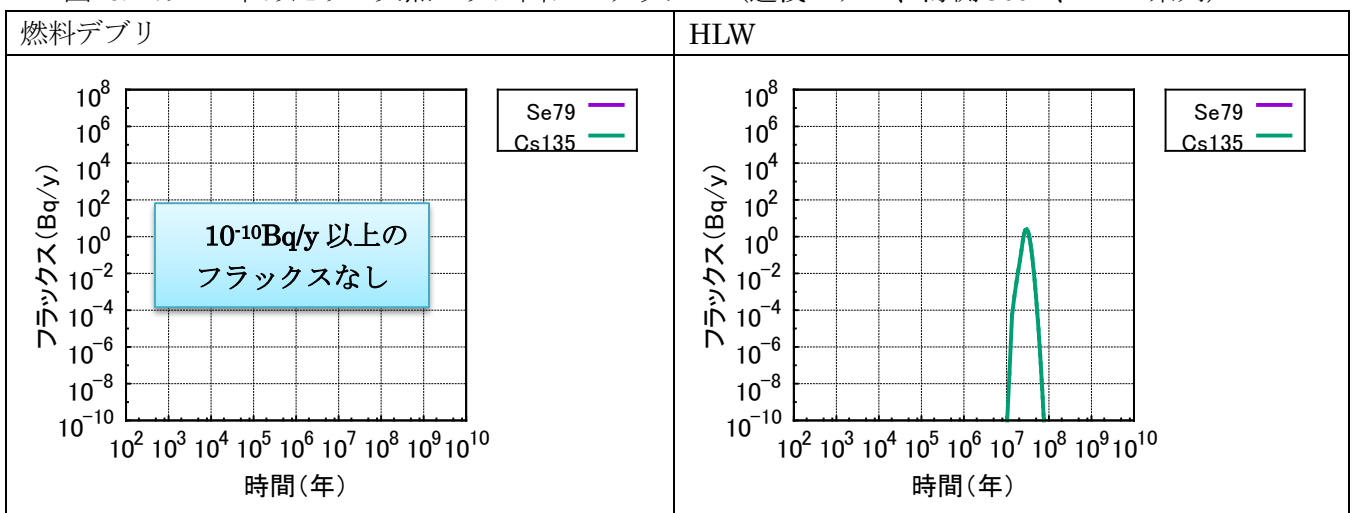


図 6.4-80 1本あたりの天然バリア出口フラックス（遠浅モデル、海側 500m、Se-79 および Cs-135)

(5) 核種移行解析のまとめ

6.4.2 章の地下水流動解析の結果を受け、遠浅／急峻モデル、処分場位置陸側／海側の違いによる影響を確認するため、核種移行解析を行った。隆起・侵食に伴う地形変化及び海水準変動により核種移行経路が時間経過とともに変化することから、核種が人工バリアから放出される時間ごとに天然バリアの異なる経路を移行するものとして評価した。ソースタームが燃料デブリの場合と HLW の場合について解析し、その結果を比較した。

核種移行解析の結果、陸側、海側ともに急峻モデルに比べ、遠浅モデルでは移行距離が長くなるのに加えて、地下水流速も小さくなり、さらに 4n+2 系列核種に対して分配係数の大きくなる水質（地下水 2）を長距離移行するため、天然バリア出口フラックスを低減できることが示された。また、燃料デブリと HLW の核種浸出モデルの違いを反映して、天然バリア出口フラックスでもフラックスの形状に違いが現れる場合があることが示された。人工バリアから放出される時間ごとに経路を変えることにより、経路の設定によっては燃料デブリと HLW の天然バリア出口フラックスの大小関係はインベントリの大小関係と必ずしも一致しないことが示された。

以上のことから、地形変化の大きい領域の沿岸地域を対象とした核種移行評価では、地形変化と汀線位置の変動によって、移行経路（移行距離、流速、地質・水質）が大きく変動して、天然バリア出口における核種移行フラックスの経時変化に大きな影響を与えることから、将来の地形変化と海水準変動を適切に組み合わせて、評価する必要がある。

6.5 まとめ

6.5.1 天然バリアに関する留意事項

第二次とりまとめのレファレンスケースの天然バリア条件であれば、系列核種については人工バリアの核種移行パラメータの不確かさによる人工バリア出口フラックスの変動を吸収して、その違いが現れない結果となった。一方、C-14を含むFP核種、特に天然バリアにおける分配係数の小さい核種については、人工バリア出口フラックスの違いが天然バリア出口にも現れた。系列核種についても、天然バリア機能が低下した設定では、天然バリア出口に人工バリア出口フラックスの影響が現れた。以上のことから、系列核種は天然バリア機能に大きく依存するため、地質・水質調査によって、現時点でバリア機能が十分であることはもとより、その性能を長期間維持することが見込まれる必要がある。

遠浅あるいは急峻領域の2か所の沿岸域のサイトを対象として、海水準変動と隆起・侵食の両者を考慮し、処分場を陸側あるいは海側に設置した場合について地下水流動解析を行った結果、海水準変動および隆起・侵食による影響は、遠浅なサイト（陸側）が最も小さかった。また、今回の解析条件では、海側に処分場を設置した場合、海水準変動に伴う経時的なばらつきが陸側より大きく見られた。透水性の高い層を避けて処分場を設置したとしても、深度が浅ければ（今回の評価モデル：遠浅300m、急峻500m）、処分場からの平均流速や移行経路の結果は、海水準変動に伴う経時変化や処分場内の位置によるばらつきが大きいことが確認された。以上のことから、処分場サイトを選定する際、同じ領域内でも、地形変化と海水準変動を適切に組み合わせて評価することにより、その影響を受けにくい処分場位置を選定することが可能であり、将来の地形変化及び海水準変動の不確かさを考慮しつつ、地下水流動及び塩分濃度解析を行うことが重要である。

地下水流動から得られた移行経路に基づく核種移行解析の結果、今回解析した条件では、遠浅のサイトは移行距離も長く、Uの収着分配係数の大きい地下水2（塩水系）の移行経路に占める割合が大きいため、移行時間が非常に長く、長寿命核種を多く含む燃料デブリの処分に有利と考えられる。一方、急峻領域では地形及び海水準が大きく変動することで、移行経路及び距離が大きく変動して、時間的にあとで人工バリアから放出された核種が先に放出された核種よりも先に天然バリア出口に到達することがあることがわかった。したがって、地形変化の大きい領域の沿岸地域を対象とした核種移行評価では、地形変化と汀線位置の変動によって、移行経路（移行距離、流速、地質・水質）が大きく変動して、天然バリア出口における核種移行フラックスの経時変化に大きな影響を与えることから、将来の地形変化と海水準変動を適切に組み合わせて、評価する必要がある。

6.5.2 人工バリアに関する重要な設計要件

緩衝材変質・間隙水組成の変遷評価では、デブリ廃棄体－緩衝材－支保工－EDZ地下水の体系で、緩衝材性能の変化に対する地下水水質による影響解析、発熱・セメント成分による影響解析、緩衝材－EDZ地下水の体系で海水成分による影響解析を実施した。

地下水水質による影響解析においては、ガラス固化体の場合と同様に、降水系地下水で緩衝材の支保工側で間隙率が低下する結果となり、地下水および支保工側から物質移行が抑制されたため、海水系地下水と比較して緩衝材全体としての有効モンモリロナイト密度が10万年まで保たれる結果となった。なお、海水系地下水の場合には、全ケースで時間に線形的な減少を示し、10万年までにモンモリロナイトは消失する結果であった。このような違いは、間隙率の局所的な低下に起因するものであり、本検討の場合には、地下水組成、支保工、緩衝材の相互の関係、各種モデリング（鉱物モデル、モンモリロナイト溶解速度モデル、拡散モデルなど）が

重疊的、相関的に影響し合った結果である。間隙が低下する現象自体は、自然界にも現れる現象であるため、人工バリアの変遷中にこのような現象が生じるか、その影響はどの程度なのかをより科学的に確認することは重要な設計要件になると考えられる。

発熱・セメント成分による影響解析においては、発熱自体がガラス固化体よりも少ないこと、影響が廃棄体埋設後短期間に限定されること、そして影響解析の結果から示されたこと等からも、緩衝材一支保工境界の非常に局所的かつ短期間の影響にとどまり、緩衝材全体の性能への影響は小さかった。このことから、臨界やガス発生などの他の要件と比較して、相対的重要度は低いと考えられる。一方、セメント成分については、少量のセメント成分の混入でも、緩衝材性能の低下に影響していたことから、廃棄体の設計、製作、廃棄物の処理、充填等について、適切な要件を設定する必要性が高いと考えられる。

海水成分による影響解析においては、今年度は予察的な解析にとどまったため、海水成分が緩衝材の変質に影響を与えるという結果は得られたものの、より現実的なシナリオ設定に基づく解析を継続することが課題となった。

緩衝材変質・間隙水組成の変遷の設定に基づく核種移行解析から、人工バリアからの核種移行フラックスに対する10万年以降の設定による影響解析、発熱・セメント成分による影響解析を実施した。

10万年以降の設定による影響解析においては、人工バリア材の変質挙動に対するシナリオ設定について、10万年時の緩衝材の状態設定を継続するケースと10万以降は緩衝材性能が喪失した状態を設定するケースとで、人工バリアからの核種フラックスについてOPの破損時期の違いによる影響を検討した。ガラス固化体に対する基本ケースとしてOP破損4000年、10万年以降も状態設定を継続するケースにおいては、Pu-240、Pu-239、Nb-93m、Tc-99、C-14、I-129のピークが 10^4 Bq/y以上と高かった。これらのうち、Pu-240、Pu-239、C-14については、OP寿命を5年以上に長くすることで大幅にピーク値を低減できるため、重要な設計要件となると考えられる。

10万年以降の人工バリアの変遷を継続/性能喪失としたことにより、多くの核種がフラックスへの影響を大きく受ける結果が得られた。特に、性能喪失に伴い保守的に分配係数をゼロと設定したことにより、特にOP破損5万年、10万年の設定でピーク値が大きく変化した核種が見られた。分配係数は、有効モンモリロナイトの減少、緩衝材中溶液の組成、pH、Ehに大きく影響される。燃料デブリのインベントリ元素には、Eh、pHで価数が変化する元素が多く、価数の変化で分配係数は大きく変化する。ガラス固化体と同じ設計とした場合、OPの鉄が溶解することで、高い還元環境が維持されるものの、鉄が完全に溶解した後は、緩衝材中溶液は周囲の地下水のpH、Ehに徐々に置き換えられるものと考えられる。今回の設定では10万年で完全に切り替わる設定としたが、この設定によるフラックスへの影響は大きかったため、どの程度の時間で切り替わるのかという観点も、重要な設計要件になると考えられる。

発熱・セメント成分による影響解析においては、人工バリア材の変質挙動に対する発熱のシナリオ設定について、ガラス固化体相当の緩衝材の熱変遷を設定するケースと発熱は無く処分深度の地温一定と設定するケース、また、セメント成分のシナリオ設定について、デブリ廃棄体内にMCCI生成物、セメント成分を含まないケースとそれぞれ30%ずつ含むケースを設定し、これらを組み合わせて解析を実施した。セメント成分を含まず発熱の影響を考慮しないケースでは、発熱の影響を考慮するケースと比べて、緩衝材の変質に対しては前述のとおりほとんど違いが無かったものの、人工バリアからの核種移行フラックスについては、Pu、Am、Cmにつ

いて、発熱の影響を考慮しないケースで溶解度制限によりピークフラックスが1桁以上低減された。一方で、U-238、U-235、Cs-135、Ra-226、Ra-223のフラックスは分配係数が低下することにより上昇するなど、元素、核種により傾向に違いが見られた。また、発熱の影響を考慮し、セメント成分を含むケースでは、セメント成分を含まないケースと比べて、緩衝材の変質に明確な影響があったが、その影響は人工バリアからの核種フラックスには、上記の発熱の影響と同様に、核種により相反する影響となって現れた。なお、影響の大きさは、「熱影響あり+セメントなし」→「熱影響なし+セメントなし」→「熱影響あり+セメントあり」→「熱影響なし+セメントあり」の順で大きくなった。これらのことから、特に、デブリ廃棄体に含まれる核種を対象として、10万年までの人工バリアからの核種移行フラックスのピーク値や変化の傾向に影響を及ぼすパラメータとして、緩衝材中の核種分配係数、核種溶解度が挙げられる。したがって、これらに影響を与える緩衝材中の溶液組成、固相組成を合理的に求める手法を提示することは、重要な設計要件になると考えられる。

4n+2系列核種及びC-14を含むFP核種について人工バリア安全機能に着目した感度解析を行った結果、浸出速度及び瞬時放出割合といった燃料デブリからの核種溶出に係る不確実性の影響は重要となることがわかった。特にFP核種に対して重要であり、系列核種は天然バリアの性能に依存し、天然バリアの性能が低い場合には影響が現れてくる可能性がある。以上のことから、燃料デブリからの核種溶出に係るモデル及びパラメータの不確実性を低減することが、重要な設計要件になると考えられる。

6.6 燃料デブリ処理・処分への留意事項

本年度の予察的調査における成果より、燃料デブリ処理・処分の際の留意事項について、以下に整理した。

(1) 燃料デブリ諸性状の調査に基づく仮想燃料デブリの設定

- 廃棄体中の水分量について、1Fの廃棄体容器はTMI-2と同様にベントがなされた状態で保管されると想定されるが、処分までには密封することが必要となる。乾燥処理により完全に水を除去して密封することが可能なのか、ある程度の水の残留（内圧上昇、腐食）を許容することが必要なのかは、今後検討されると考えられる。
- 燃料デブリ中のUが U_3O_8 に酸化されていた場合、核分裂生成物（FP）の地下水への溶出速度が大きくなり、地下水シナリオへの評価に影響がある。分析による U_3O_8 の同定は難しく、又 U_3O_8 以外の酸化物形態の可能性もある。
- 1F燃料デブリにおいてTMI-2同様にフィルターキャニスターの目詰まり防止のために有機凝集剤を使用する場合、デブリに有機物が含まれることになり、無機化処理をしない限り、有機物影響（化学反応、核種移行への影響等）を考慮する必要性が生じる。

(2) 燃料デブリの特性を踏まえたシナリオ設定および予察的解析

- ガス発生においては、初期に燃料デブリに含まれる水分量などが限定的であれば、ガス発生による内圧上昇がオーバーパックの設計圧力を超えることはなく、燃料デブリに含まれる水の量や燃料デブリの容器に対する充填率をコントロールすることで、オーバーパック内側での内圧上昇による早期破損の可能性をさらに低減可能であると示唆された。
- オーバーパック破損後における廃棄物の地下水との接触に伴う水の放射線分解によるガス発生を考慮すると、ガス発生速度が溶存水素ガスの拡散移行速度を上回り、オーバーパ

ックと緩衝材の界面に蓄積する可能性が示唆されたことから、今後の課題として、それらの力学的影響を含め、ガスが緩衝材を破過するときの間隙水の押出しの影響評価を行っていく必要がある。

- ガス蓄積量またはその影響を減弱するため、オーバーパック破損後の水の放射線分解によるガス発生に関し、廃棄体 1 本あたりに放出される放射線量 (特に α 線) を減らすこと (例えば、廃棄体 1 本あたりの放射性廃棄物量の減量や、放射性崩壊による放射エネルギー減衰の効果を期待したオーバーパックの長寿命化) である程度コントロールすることが可能であると考えられる。
- 処分容器内における臨界可能性については、濃縮度 5% の新燃料で構成される燃料デブリを収納し、オーバーパック破損後地下水が浸入しても、未臨界を維持できる容器直径は 22.5cm 以下となった。処分環境においても収納容器から流出しない中性子吸収材の配置や濃縮度を下げる効果のある劣化ウランの混合などによって、容器直径を大きくすることなど工学的な対策に応じた臨界解析が必要となる。
- 天然バリア中での臨界可能性については、移行経路中のある領域のウラン溶解度が処分場領域での溶解度よりも小さくなる場合に、臨界量を超えて濃集する可能性があるが、これが直ちに臨界となって核分裂連鎖反応が生じるわけではない。地質媒体中でのウランの沈澱やそれに伴う地下水流動の変化など、今後、ウランの配置体系について検討を行う必要がある。また、酸化性環境においては、ウランの溶解度が上昇して溶出しやすくなることから、酸化性環境に移行する可能性の低い処分サイトを選定する必要がある。

(3) 核種移行データ取得

- 高炭酸塩濃度の地下水が存在する地質環境下では、岩石及びその構成鉱物に対する Pu の Kd が小さくなる可能性があり、サイト選定においては上記観点からの調査が必要と考えられる。

(4) 燃料デブリの処分時の評価に対応した総合的安全評価の整備

- セメント成分については、少量のセメント成分の混入でも、緩衝材性能の低下に影響していたことから、廃棄体の設計、製作、廃棄物の処理、充填等について、適切な要件を設定する必要性が高いと考えられる。
- 海水成分による影響解析においては、より現実的なシナリオ設定に基づく解析を継続することが課題となった。
- OP 破損 4000 年で 10 万年以降も状態設定を継続するケースにおいては、Pu-240、Pu-239、Nb-93m、Tc-99、C-14、I-129 のピークが 10^4 Bq/y 以上と高かった。これらのうち、Pu-240、Pu-239、C-14 については、OP 寿命を 5 年以上に長くすることで大幅にピーク値を低減できるため、重要な設計要件となると考えられる。
- 10 万年以降の人工バリアの変遷を継続/性能喪失としたことにより、多くの核種がフラックスへの影響を大きく受ける結果が得られた。特に、性能喪失に伴い保守的に分配係数をゼロと設定したことにより、OP 破損 5 万年、10 万年の設定でピーク値が大きく変化した核種が見られた。燃料デブリのインベントリ元素には、Eh、pH で価数に変化する元素が多く、価数の変化で分配係数は大きく変化する。鉄が完全に溶解した後は、緩衝材中溶液は周囲の地下水の pH、Eh に置き換えられるものと考えられる。今回の設定では 10 万年で完全に切り替わる設定としたが、設定によるフラックスへの影響は大きいため、どの程度の時間で切り替わるのかという観点も、重要な設計要件になると考えられる。

- デブリ廃棄体に含まれる核種を対象として、10 万年までの人工バリアからの核種移行フラックスのピーク値や変化に影響を及ぼすパラメータとして、緩衝材中の核種分配係数、核種溶解度が挙げられた。したがって、これらに影響を与える緩衝材中の溶液組成、固相組成を合理的に求める手法を提示することは重要な設計要件になると考えられる。
- 燃料デブリに多く含まれる $4n+2$ 系列核種については、核種溶出率、瞬時放出割合、元素依存パラメータ、緩衝材厚さによって人工バリア出口フラックスが変動したが、天然バリア（第二次とりまとめレファレンスケース）ではその違いをすべて吸収してしまい、天然バリア出口には影響を及ぼさない結果となった。天然バリア機能が低い環境であれば、核種溶出率および瞬時放出割合の影響が大きく、これらのパラメータの不確実性を低減する必要がある。
- 燃料デブリに多く含まれる I-129, C-14, Zr-93 などについては、人工バリア出口フラックスの違いが天然バリア出口にも現れ、系列核種と同様に核種溶出率、瞬時放出割合の不確実性を低減する必要がある。
- 海水準変動と隆起・侵食の両者を考慮した解析を行うことで、核種移行への影響が小さい領域を選定することが可能であることが確かめられたため、処分場選定時には解析によって適切なサイト位置や処分場深度を選定することが望ましい。
- 核種移行解析の結果、今回解析した条件では、遠浅のサイトは移行距離も長く、U の収着分配係数の大きい地下水 2（塩水系）の移行経路の占める割合が大きいため、移行時間が非常に長く、長寿命核種を多く含む燃料デブリの処分に有利と考えられる。
- 地形変化の大きい領域の沿岸地域を対象とした核種移行評価では、地形変化と汀線位置の変動によって、移行経路（移行距離、流速、地質・水質）が大きく変動して、天然バリア出口における核種移行フラックスの経時変化に大きな影響を与えることから、将来の地形変化と海水準変動を適切に組み合わせて、評価する必要がある。

第6章の参考文献

6.2 の参考文献

- (1) 核燃料サイクル開発機構, わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ— 分冊3 地層処分システムの安全評価, JNC TN1400 99-023, 1999.
- (2) 電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 「TRU 廃棄物処分技術検討書—第2次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ—」, JNC TY1400 2005-013, 2005.
- (3) 日本原子力研究開発機構, 平成21年度放射性廃棄物処分の長期的評価手法の調査報告書, 平成22年3月, 2010.
- (4) Arthur, R.C., Sasamoto, H., Shibata, M., Yui, M. And Neyama, A., Development of Thermodynamic Databases for Geochemical Calculations, JNC Technical Report, JNC TN8400 99-079, 1999.
- (5) A. Atkinson et al., : Aqueous chemistry and thermodynamic modelling of CaO-SiO₂-H₂O gels at 80 °C, DoE, DoE-HMIP-RR-91-045, 1991.
- (6) 大塚伊知郎・瀧洋・山口徹治・飯田芳久・山田文香・稲田大介・田中忠夫, 処分場の緩衝材間隙水の酸化還元電位へのオーバーパック腐食の影響—重要パラメータの取得及び Eh の予備解析— (受託研究), JAEA-Research 2008-043, 2008.
- (7) 日本原子力研究開発機構, 平成25年度地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書, 平成26年3月, 2014.
- (8) Parkhurst, D. L., Appelo, C. A. J., User's Guide to PHREEQC (Version 2)--A Computer Program for Speciation, Batch-Reaction, One-Dimensional Transport, and Inverse Geochemical Calculations. Water-Resources Investigations Report 99-4259, U.S. Geological Survey, Denver, Colorado, 1999.
- (9) Kitamura, A., Fujiwara, K., Doi, R., Yoshida, Y.: Update of JAEA-TDB: Additional Selection of Thermodynamic Data for Solid and Gaseous Phases on Nickel, Selenium, Zirconium, Technetium, Thorium, Uranium, Neptunium, Plutonium and Americium, Update of Thermodynamic Data on Iodine, and some Modifications, JAEA-Data/Code 2012-006, Japan Atomic Energy Agency, 2012.
- (10) T. Yamaguchi, S. Takeda, Y. Nishimura, Y. Iida, T. Tanaka: U An attempt to select thermodynamic data and to evaluate the solubility of radioelements with uncertainty under HLW disposal conditions, (In press).
- (11) Kimura H.・Takahashi T.・Shima S.・Matsuzuru H, “A Generic Safety Assessment Code For Geological Disposal of Radioactive Waste: GSRW Computer Code User’s Manual”, JAERI-M 92-161, 1992.
- (12) 武田聖司・木村英雄, 確率論的評価手法 GSRW-PSA による地層処分システムの不確かさ解析: パラメータ不確かさおよび天然バリアの概念モデル不確かさの検討, JAREI-Research 2002-014, 2002.
- (13) 日本原子力研究開発機構, 平成23年度 地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書 [添付資料編], 2012.
- (14) 日本原子力研究開発機構, 平成25年度地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備報告書, 2014.

6.3 の参考文献

- (15) 核燃料サイクル開発機構, わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—分冊3, JNC-TN1400 99-023, 1999, 526p.
- (16) 日本原子力研究開発機構 (2015): わが国における使用済燃料の地層処分システムに関する概括的評価—直接処分第1次取りまとめ—, JAEA-Research, 2015-016, 327 p.
- (17) Nagra (2002): Project Opalinus Clay Safety Report, Demonstration of disposal feasibility for spent fuel, vitrified high-level waste and long-lived intermediate-level waste (Entsorgungsnachweis), Nagra NTB 02-05, 360 p.

- (18) Bruno, J. and Ewing, R. C. (2006): Spent Nuclear Fuel, Elements, vol.2, no.6, pp.343-349.
- (19) Yamaguchi, T., Tanuma, S., et al. (1999): A Study on Chemical Forms and Migration Behavior of Radio nuclides in Hull wastes, Radioactive Waste Management and Environmental Remediation — ASEM 1999.
- (20) 電気事業連合会、核燃料サイクル開発機構 (2005) : TRU 廃棄物処分技術検討書-第2次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ- , JNC TY1400 2005-013/FEPC TRU-TR2-2005-02, 505p.
- (21) 西原健司、岩元大樹、須山賢也 (2012) : 福島第一原子力発電所の燃料組成評価、 JAEA-Data/Code 2012-018.
- (22) 武田聖司、山口徹治、長澤寛和、渡邊正敏、関岡靖司、神崎裕、佐々木利久、落合透、宗像雅広、田中忠夫、木村英雄、中山真一 (2009) : 高レベル放射性廃棄物地層処分の安全性の評価; 地層処分システムの不確かさに対する確率論的解析手法の試適用(受託研究), JAEA-Research 2009-034.
- (23) 日本原子力研究開発機構 (2015) : 平成 26 年度地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備 (安全審査に向けた評価手法の整備) 報告書, 平成 27 年 3 月.
- (24) Parkhurst, D. L., Appelo, C. A. J. (1999): User's Guide to PHREEQC (Version 2)--A Computer Program for Speciation, Batch-Reaction, One-Dimensional Transport, and Inverse Geochemical Calculations. Water-Resources Investigations Report 99-4259, U.S. Geological Survey, Denver, Colorado.
- (25) Kitamura, A., Fujiwara, K., Doi, R., Yoshida, Y. (2012): Update of JAEA-TDB: Additional Selection of Thermodynamic Data for Solid and Gaseous Phases on Nickel, Selenium, Zirconium, Technetium, Thorium, Uranium, Neptunium, Plutonium and Americium, Update of Thermodynamic Data on Iodine, and some Modifications, JAEA-Data/Code 2012-006, Japan Atomic Energy Agency.
- (26) T. Yamaguchi, S. Takeda, Y. Nishimura, Y. Iida, T. Tanaka (2014): An attempt to select thermodynamic data and to evaluate the solubility of radioelements with uncertainty under HLW disposal conditions, Radiochim. Acta, 102(11), pp. 999-1008.

6.4 の参考文献

- (1) 日本原子力研究開発機構、平成 21 年度地層処分に係る水文地質学的変化による影響に関する調査報告書、2009.
- (2) 草野友宏、浅森浩一、黒澤英樹、谷川晋一、二ノ宮淳、根木健之、花室孝広、安江健一、山田国見、石丸恒存、梅田浩司、地質環境の長期安定性に関する研究 年度報告書(平成 20 年度)、 JAEA-Research 2009-076、2009.
- (3) 日本原子力研究開発機構、平成 19 年度地層処分に係る水文地質学的変化による影響に関する調査報告書、2007.
- (4) 貝塚爽平、自然は語る 2. 三角州の地表と地下、土と基礎、26 (8), pp. 71-76、1974.
- (5) 日本原子力研究開発機構、平成 20 年度地層処分に係る水文地質学的変化による影響に関する調査報告書、2008.
- (6) 産業技術総合研究所地質総合センター、20 万分の 1 日本シームレス地質図データベース DB084、2007.
- (7) 千葉県、千葉県の自然史、pp.299-334、1996.
- (8) 海上保安庁水路部、海の基本図 海底地質構造図 九十九里浜、2000.
- (9) 海上保安庁水路部、海の基本図 海底地質構造図 太東崎、2000.
- (10) 海上保安庁水路部、海の基本図 海底地質構造図 鴨川湾、2000.
- (11) 海上保安庁水路部、海の基本図 海底地質構造図 犬吠埼、2000.
- (12) 海上保安庁水路部、海の基本図 海底地質構造図 東京湾北部、2000.

- (13) 貝塚爽平、関東の第四紀地殻変動、地学雑誌、96 (4), pp. 51-68、1987.
- (14) 遠藤邦彦、関本勝久、高野司、鈴木正章、平井幸弘、特集「最終氷期以降の関東平野」3 関東平野の《沖積層》、アーバンクボタ、21、 pp. 26-43、1983.
- (15) 日鉱探開株式会社、気候変化・地形変化の影響に関するモデル化調査、日本原子力研究宇開発機構報告書、p2-14、2009.
- (16) 三箇智二、安江健一、河川縦断面形のシミュレーション、地形、29, 1, pp.27-49、2008.
- (17) 地質調査所、東京湾とその周辺地域—特殊地質図 (10 万分の 1)、1995.
- (18) 貝塚爽平、東京湾の地形・地質と水、築地書館、206p、1993.
- (19) J. Chappell, Upper Quaternary sea levels, coral terraces, oxygen isotopes and deep-sea temperatures, *Journal of Geography*, 103(7), pp.828-840, 1994.
- (20) C. Waelbroeck, L. Labeyrie, E. Michela, J.C. Duplessy, J.F. McManus, K. Lambeck, E. Balbona, M. Labracherie, Sea-level and deep water temperature changes derived from benthic foraminifera isotopic records, *Quaternary Science Reviews*, 21, pp. 295-305, 2002.
- (21) EPICA [European Project for Ice Coring in Antarctica] Community Members, Eight glacial cycles from an Antarctic ice core, *Nature*, vol.429, No.6692, pp. 623-628, 2004
- (22) Kimura, H., *The MIG2DF Computer Code User's Manual*, JAERI-M 92-115, 1992.
- (23) 浅尾一巳・伊藤谷生、房総半島中央部での反射法地震探査と地表地質、日本地質学会 118 年学術大会・日本鉱物科学会 2011 年年会合同学術大会、S3-O-5、2011.
- (24) 日本原子力研究開発機構、平成 22 年度地層処分に係る水文地質学的変化による影響に関する調査報告書、2011.
- (25) 山本肇、Keni Zhang、唐崎建二、丸井敦尚、二酸化炭素地下貯留に関する大規模シミュレーション技術の開発、大成建設技術センター報、40、pp.41-1~41-10、2007.
- (26) 近藤昭彦、千葉県市原地域における地下水流動系の水収支について、日本地下水学雑誌、27(3)73-87、1985.
- (27) 松末和之・藤原治・末吉哲雄、日本列島における最終氷期最寒冷期の気候、サイクル機構技報、6、 pp.93-104、2000.

Appendix – I 総合的な安全評価コード・モデルの整備

I -A 緩衝材中拡散モデルおよび物質移行-変質連成解析コードの整備

I -A 緩衝材中拡散モデルおよび物質移行-変質連成解析コードの整備

I -A-1 平成26年度に実施した新拡散モデルの導入に係る検討内容

(a) ベントナイト内におけるイオン種の拡散に係る評価方針

放射性廃棄物処分の分野では一般的に、ベントナイト系緩衝材中における放射性核種の移行は、収着を伴いながら、間隙を満たす水の中を拡散するという細孔拡散モデル⁽¹⁾で評価されている。当該モデルにおいて、核種に依存する見かけの拡散係数 (Da [m^2/s])、有効拡散係数 (De [m^2/s]) および収着分配係数 (Kd [m^3/kg]) は、核種の移行を決定するパラメータであり、その関係は式(I .A-1)のように表される。

$$Da = \frac{De}{\varepsilon + \rho Kd} = \frac{D_v G_f \varepsilon}{\varepsilon + \rho Kd} \quad (I .A-1)$$

ここで、

ε : 拡散媒体の間隙率 [-]

ρ : 拡散媒体の乾燥密度 [kg/m^3]

D_v : 自由水中の拡散係数 [m^2/s]

G_f : 形状因子 [-]

である。また、フィックの第1法則形で Da と De の定義を示せば、それぞれ式(I .A-2)、式(I .A-3)である。

$$J = -Da \frac{\partial C}{\partial x} \quad (I .A-2)$$

$$J = -De \frac{\partial cp}{\partial x} \quad (I .A-3)$$

ここで、

J : 拡散フラックス [$mol/m^2/s$]

C : 拡散媒体単位体積あたりで示した拡散種の濃度 [mol/m^3]

cp : 拡散媒体の間隙水中における拡散種の濃度 [mol/m^3]

x : 拡散距離 [m]

である。細孔拡散モデルを用いた核種移行評価においては、イオン種毎に De と Kd が設定されるが、 De を定義する際に使用される cp は便宜的に設定された仮想的な濃度であり、また、一部の陽イオンや陰イオンの拡散は細孔拡散モデルでは説明できないことがしばしば確認されている^{(2),(3)}。具体的には、実験で得られた De が、 D_v を用いて当該モデルにより想定される De よりも、前者では大きくなり、後者では小さくなるというものである。この原因としては、表面拡散や陰イオン排除が起こっていると解釈されており、評価の上では、 De にこれらの効果を考慮した改変を行い、実現象に合うようにしている研究事例もある^{(4),(5)}。しかしながら、これらの現象が実際にベントナイト中で起こっているかどうかについては現在のと

ころ不明である。

Sawaguchi et al.は、種々の溶液を用いて、ベントナイト中におけるCsの透過拡散試験を実施し、その拡散は De ではなく Da で拡散していること、すなわち、収着状態での拡散が支配的なメカニズムであることを示している⁽⁶⁾。主要な核種に係る既往の $De^{(3),(6)\sim(12)}$ と $Da^{(6),(7),(10),(13)\sim(15)}$ の比較においても、(特に陽イオン種および陰イオン種の) De はイオン強度に依存し、変動幅が大きいのに対して、 Da はイオン強度に依存せず、ほぼ一定の値を示した(図I.A-1、図I.A-2)。この結果は、Sawaguchi et al.の考えを支持するものであり、本質的な評価を行うためには、 Da で拡散現象を評価するのが合理的であると考えられる。また、式(I.A-2)に示した通り、 Da は単位体積あたりの濃度勾配による拡散であり、実測可能な濃度データを使用して導出できるという点でも、現実的なパラメータであると考えられる。

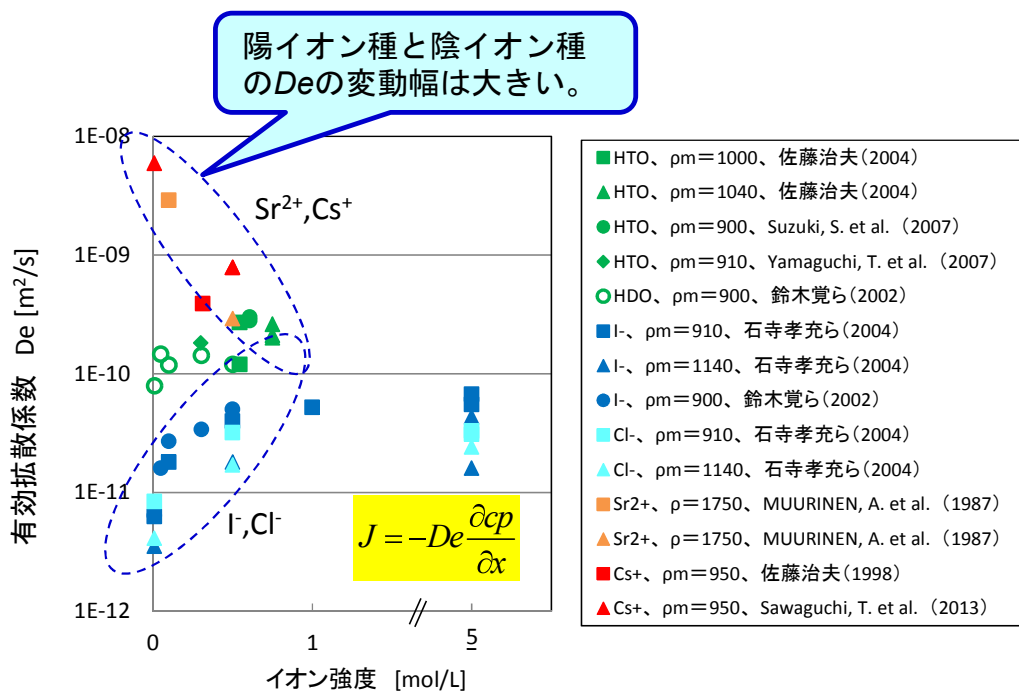


図 I.A-1 有効拡散係数 (De) とイオン強度依存性の関係^{(3),(6)\sim(12)}
(有効モンモリロナイト密度 ρ_m : 1,000 kg/m³程度※、温度 : 25°C程度)

※Sr²⁺の De は乾燥密度 1,750 kg/m³ のデータ

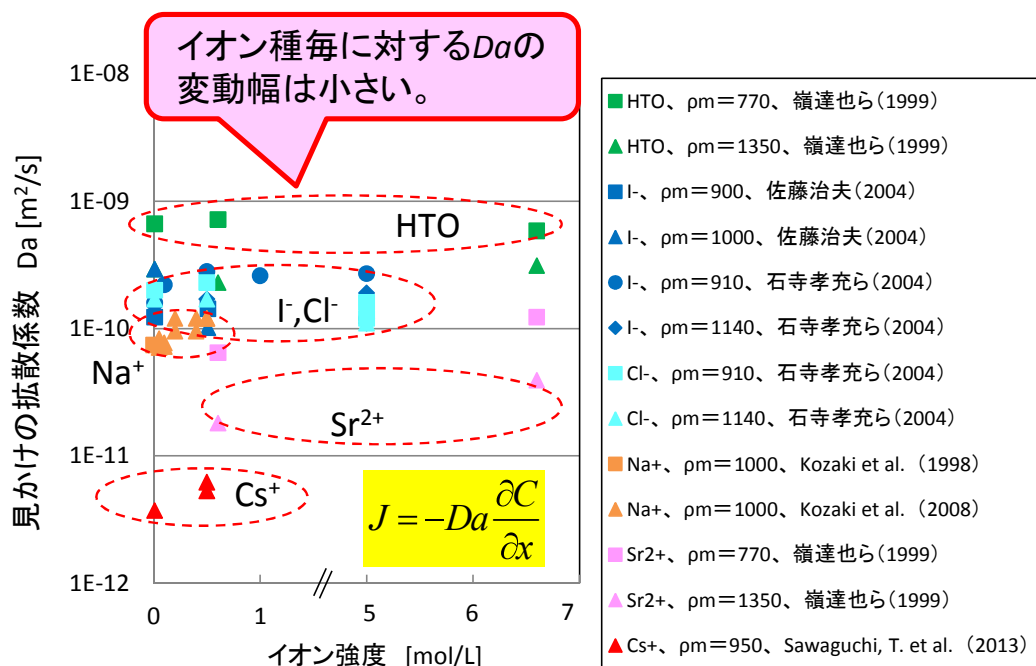


図 I .A-2 見かけの拡散係数 (Da) のイオン強度依存性の関係^{(6),(7),(10),(13)~(15)}
(有効モンモリロナイト密度 ρm : 1,000 kg/m³程度、温度 : 25°C程度)

一方、ベントナイト系緩衝材中の化学環境解析においても、ベントナイト中のイオン種の拡散現象は、鉱物の変質やそれに伴う物理的特性、間隙水組成等の変遷を決定する重要な評価項目である。ただし、核種移行評価とは異なり、化学環境解析における拡散評価では、緩衝材中の電荷バランスを取る必要があること、保守的に大きな拡散係数を用いることが出来ないこと、通常の化学環境解析コード（例えば、PHREEQC-TRANS⁽¹⁶⁾やRAIDEN 3⁽¹⁷⁾等）では、（イオン交換^{*1}、表面錯体を考慮した吸着相の設定はあるが） Kd の設定がないこと等、両者には違いがある。また、上述したようにMC-BUFFERを用いた緩衝材の化学環境解析における拡散評価では、OH⁻の透過拡散試験結果から構築した拡散評価式を用いて導出した De を全てのイオン種に対して一様に設定し、間隙水中の濃度勾配を駆動力として、間隙水中に溶けているイオン種のみ移行を評価している。

以上を踏まえ、現行の MC-BUFFER を用いた化学環境解析における圧縮ベントナイト中のイオン種の拡散評価の問題点を整理すると、

- ①全てのイオン種に対して同じ有効拡散係数が設定されていること
- ②評価に使用する間隙水中の濃度の定義が明瞭ではないこと

※1 ベントナイト層間にある交換性陽イオンの置換は、圧縮ベントナイトの膨潤性、ひいては物質移行特性に影響を及ぼす重要な変質現象と考えられる。一般的に化学環境解析では、イオン交換選択係数を用いたモデルでこの現象が評価されているが、当該係数は紛体試料を用いた試験から得られた値であることから、圧縮状態のベントナイトに対しても適用できるかは不明である。

③収着状態の陽イオンの拡散^{※2}が評価されていないこと。
 が挙げられる。そこで、本研究では、より現実的、適切なベントナイト内の拡散評価を実施するため、Sawaguchi et al.の研究結果^⑥を参考とし、これら問題（特に②、③）に影響されず、かつ、フィックの第一法則に則った本質的な拡散係数である D_a をベースとしたシンプルで科学的に合理的なベントナイト内拡散モデル（以下、「新拡散モデル」）を作成し、MC-BUFFER に導入することとした。

(b) 新拡散モデルの MC-BUFFER への導入方針

単位体積あたりのベントナイト中イオン種濃度を C_{bi} [mol/m³]とすると、 x 方向の拡散フラックス J_{xi} [mol/m²/s]、 y 方向の拡散フラックス J_{yi} [mol/m²/s]は、それぞれ式(I.A-4)、式(I.A-5)となる。

$$J_{xi} = -D_{ai} \frac{\partial C_{bi}}{\partial x} \quad (\text{I.A-4})$$

$$J_{yi} = -D_{ai} \frac{\partial C_{bi}}{\partial y} \quad (\text{I.A-5})$$

ここで、 D_{ai} はベントナイト中におけるイオン種の見かけの拡散係数 [m²/s]である。また、 D_{ai} は拡散源からの距離に依存せず一定であると仮定した場合、式(I.A-6)に示すフィックの第 2 法則を式(I.A-4)、式(I.A-5)を用いて展開すると式(I.A-7)となり、この式が MC-BUFFER に取り込む新拡散モデルの基本方程式となる。

$$\frac{\partial C_{bi}}{\partial t} = -\frac{\partial J_{xi}}{\partial x} - \frac{\partial J_{yi}}{\partial y} \quad (\text{I.A-6})$$

$$= D_{ai} \left(\frac{\partial^2 C_{bi}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C_{bi}}{\partial y^2} \right) \quad (\text{I.A-7})$$

境界条件となるベントナイト-液相境界における C_{bi} は、液相中のイオン種濃度 C_{li} [mol/m³]と保持因子 α_i [-]を用いて式(I.A-8)の形で表すことができる。また、陽イオンについては α_i を式(I.A-9)に示す形で表せられると仮定した。

※2 現行の MC-BUFFER を用いた化学環境解析では間隙水中に溶けたイオン種の移行しか評価しておらず、交換性陽イオンは移行しないとしている。しかしながら、圧縮モンモリロナイト中における Ca の拡散は層間拡散が支配的であるという報告⁽¹⁸⁾もあることから、この「収着状態の陽イオンの拡散」には、ベントナイト表面に収着した陽イオンのみではなく、交換性陽イオンの拡散も含まれると考えられる。

$$C_{bi} = \alpha_i C_{li} \quad (\text{I .A-8})$$

$$= (\varepsilon + \rho_b K_{di}) C_{li} \quad (\text{I .A-9})$$

ここで、

ρ_b : ベントナイトの乾燥密度 [kg/m³]

K_{di} : イオン種のベントナイトに対する分配係数 [m³/kg]

である。以上より、イオン種固有の（イオン種に依存する）因子は、 D_{ai} および α_i （または K_{di} ）であり、新拡散モデルを用いた評価を MC-BUFFER で行うためには、これら因子の設定について検討する必要がある。さらに、上述したように、化学環境解析では解析体系中の電荷バランスを取る必要があることから、各イオン種が各々の D_{ai} で拡散する場合、MC-BUFFER 内において電荷バランスを取る方法（例えば、ベントナイト中に多量にある Na⁺イオンで調整する等）についても考慮することが重要である。

App. I -A の参考文献

- (1) Neretnieks, I., Diffusion in the rock matrix: an important factor in radionuclide retardation?, *Journal of Geophysical Research*, 85, 4379-4397 (1980).
- (2) Eriksen, T. E. and Jansson, M., Diffusion of I, Cs⁺ and Sr²⁺ in compacted bentonite – Anion exclusion and surface diffusion. SKB Technical Report 96-16, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company (1996).
- (3) Yamaguchi, T., Nakayama, S., Nagao, S., Kizaki, M., Diffusive Transport of Neptunium and Plutonium through Compacted Sand-Bentonite Mixtures under Anaerobic Conditions. *Radiochim. Acta*, 95, 115-125 (2007).
- (4) Yu J-W. and Neretnieks I., Diffusion and sorption properties of radionuclides in compacted bentonite. SKB Technical Report 97-12, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company (1997).
- (5) Van Loon, L. R., Glaus, M. A. and Müller, W., Anion exclusion effects in compacted bentonites: Towards a better understanding of anion diffusion. *Applied Geochemistry*, 22, 2536–2552 (2007).
- (6) Sawaguchi, T., Yamaguchi, T., Iida, Y., Tanaka, T., Kitagawa, I., Diffusion of Cs, Np, Am and Co through compacted sand-bentonite mixtures - evidence of surface diffusion of cesium cations. *Clay Minerals*, 48, 411–422 (2013).
- (7) 佐藤治夫, 放射性廃棄物処分における緩衝材及び岩石マトリクス中の核種拡散移行過程での固液界面現象と移行モデルの高度化に関する研究, JNC-TN1400 2004-003 (2004).
- (8) Suzuki, S., Haginuma, M., Suzuki, K., Study of sorption and diffusion of ¹³⁷Cs in compacted bentonite saturated with saline water at 60°C. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 44, 81-89 (2007).
- (9) 鈴木覚, 佐藤治夫, 圧縮ベントナイト中のストロンチウムイオン、ヨウ化物イオン、重水の実効拡散係数の塩濃度依存性, JNC TN8400 2002-002 (2002).
- (10) 石寺孝充, 宮本真哉, 佐藤治夫, 圧縮ベントナイト中の C, Cl, I の拡散挙動に及ぼすケイ砂混合率及び NaNO₃ の影響, JNC TN8400 2004-001 (2004).
- (11) Muurinen, A., Penttila-Hiltunen, P., Rantanen, J., Diffusion Mechanisms of Strontium and Cesium in Compacted Sodium Bentonite, *Scientific Basis for Nuclear Waste Management X*, Vol. 84, 803-811 (1987).
- (12) 佐藤治夫, 放射性廃棄物地層処分における緩衝材および岩体中の核種移行に関する研究, PNC TN8410 97-202 (1998).
- (13) 嶺達也, 三原守弘, 加藤大生, セメント系材料の影響を受けた環境条件での圧縮成型ベントナイトに対する核種の分配係数, JNC TN8430 99-012 (1999).
- (14) Kozaki, T., Fujishima, A., Sato, S., Ohashi, H., Self-diffusion of sodium ions in compacted sodium montmorillonite. *Nuclear Technology* 121 (1), 63–69 (1998).
- (15) Kozaki, T., Liu, J. and Sato, S., Diffusion mechanism of sodium ions in compacted montmorillonite under different NaCl concentration. *Physics and Chemistry of the Earth*, 33, 957-961 (2008).
- (16) 電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, TRU 廃棄物処分技術検討書-第 2 次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ- 根拠資料集 分冊 2 地層処分の安全性の検討, JNCTY1450 2005-001(2), FEPC, TRU-TR2-2005-04 (2005).
- (17) Watson, C., Benbow, S., RAIDEN 3 v0.9.5 User Guide, Quintessa Report QRS-9018-1 (2004).
- (18) Kozaki, T., Sawaguchi, T., Fujishima, A., Sato, S., Effect of exchangeable cations on apparent diffusion of Ca²⁺ ions in Na- and Ca-montmorillonite mixtures. *Physics and Chemistry of the Earth*, 35, 254-258 (2010).

Appendix – II 燃料デブリ処分時の評価に対応した総合的安全評価手法の整備

II - A 人工バリアの変遷のシナリオを対象とした安全評価

II - B 海水準変動と隆起・侵食を組み合わせたシナリオを対象とした安全評価

II-A 人工バリアの変遷のシナリオを対象とした安全評価

II-A-1 人工バリアの変遷シナリオを対象とした緩衝材変質解析結果

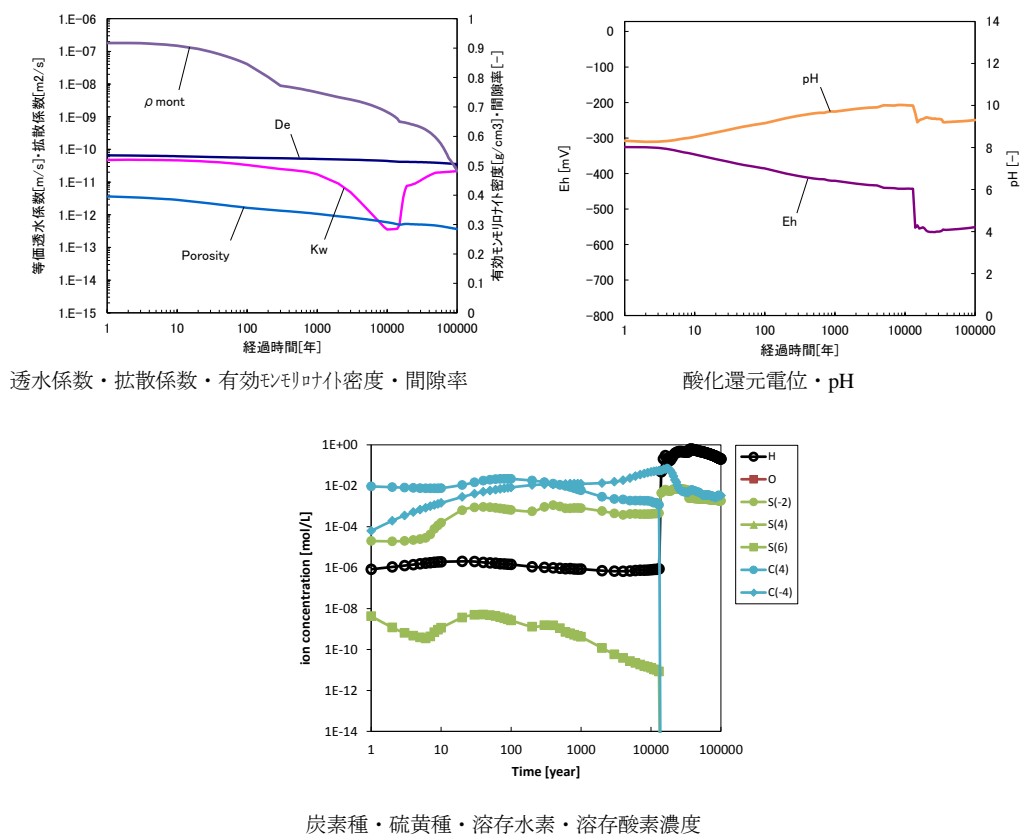


図 App. II. A-1 緩衝材領域における経時変化 (ケース 1)

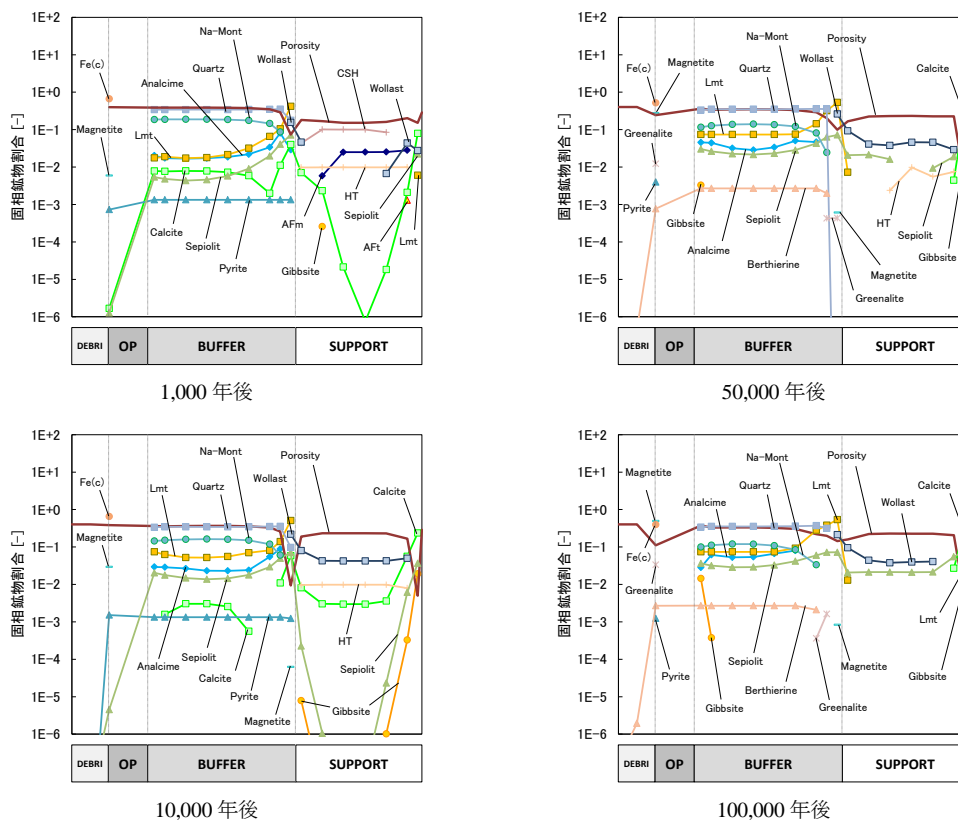


図 App. II. A-2 全領域における固相空間分布 (ケース 1)

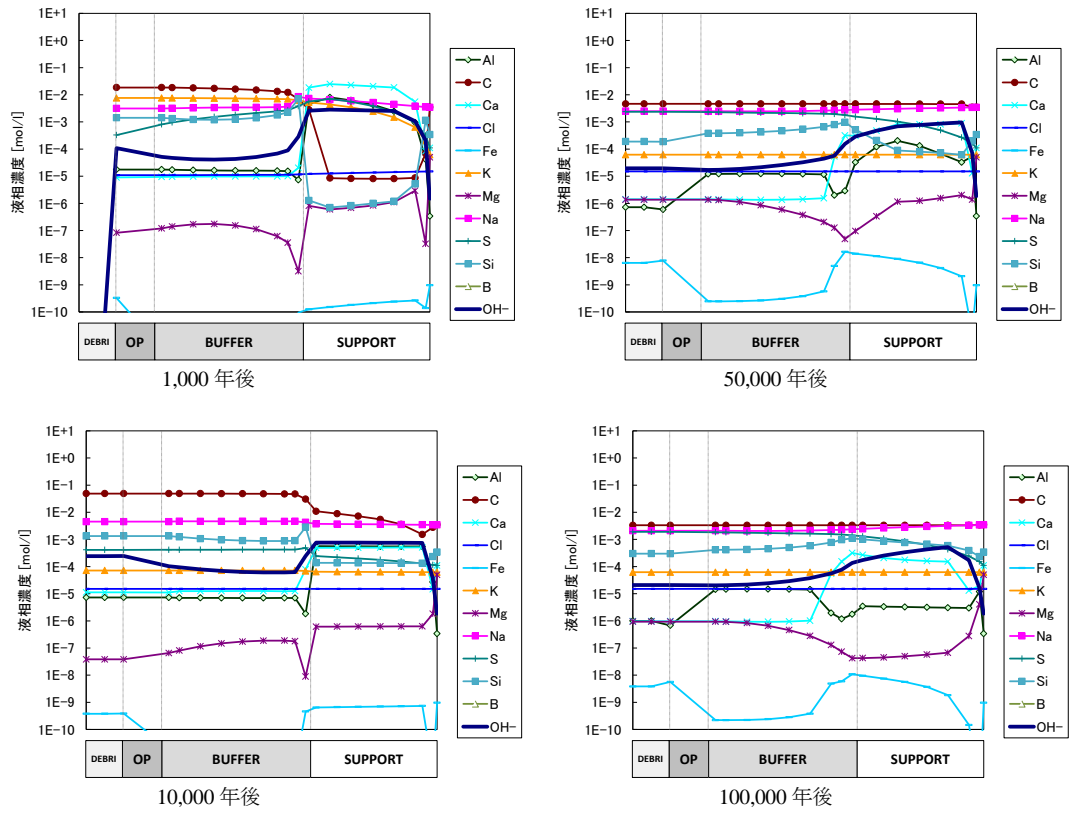


図 App. II . A-3 全領域における液相空間分布 (ケース 1)

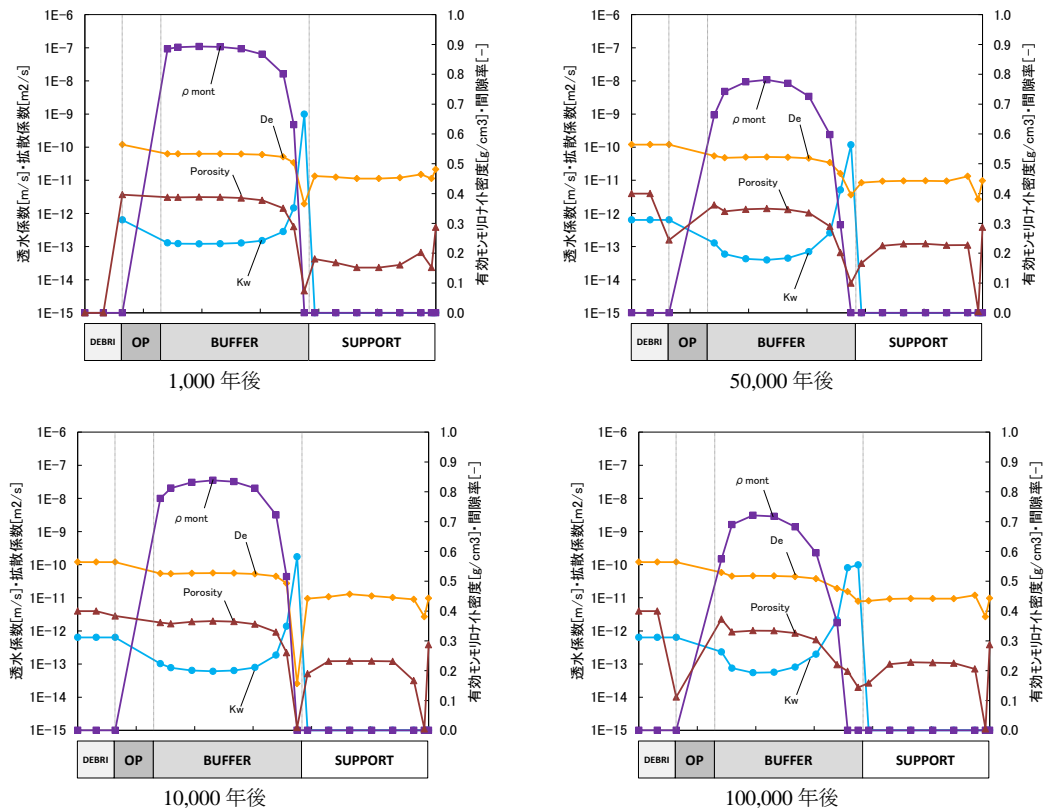
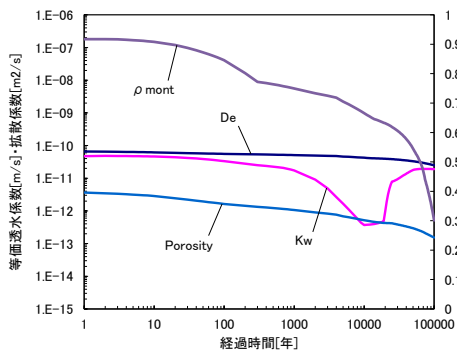
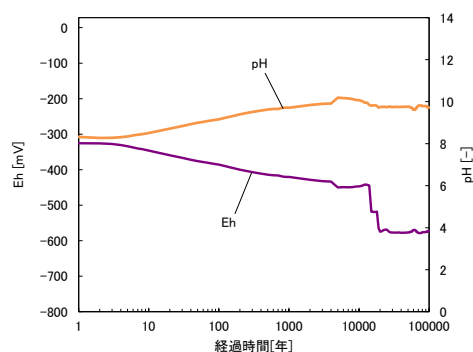


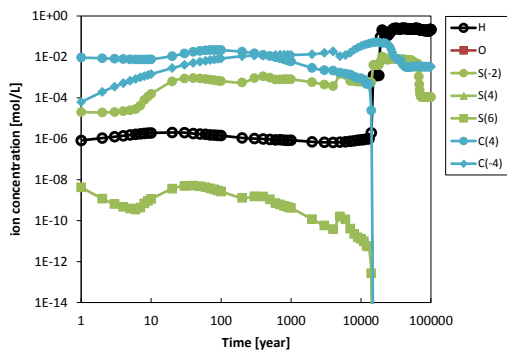
図 App. II . A-4 全領域における Kw · De · ρ_m · Eps 空間分布 (ケース 1)



透水係数・拡散係数・有効モリトト密度・間隙率

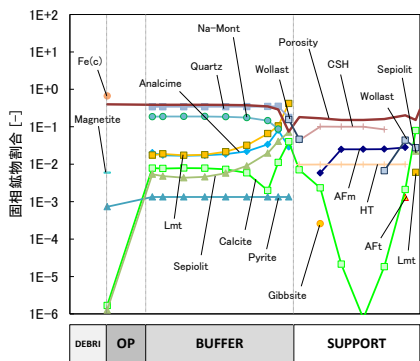


酸化還元電位・pH

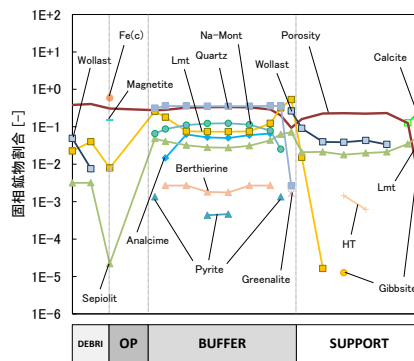


炭素種・硫黄種・溶存水素・溶存酸素濃度

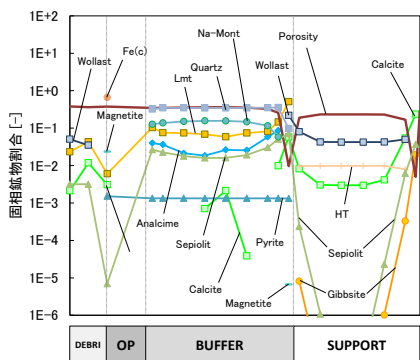
図 App. II . A-5 緩衝材領域における経時変化 (ケース 4)



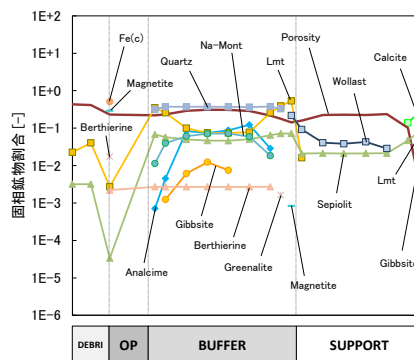
1,000 年後



50,000 年後



10,000 年後



100,000 年後

図 App. II . A-6 全領域における固相空間分布 (ケース 4)

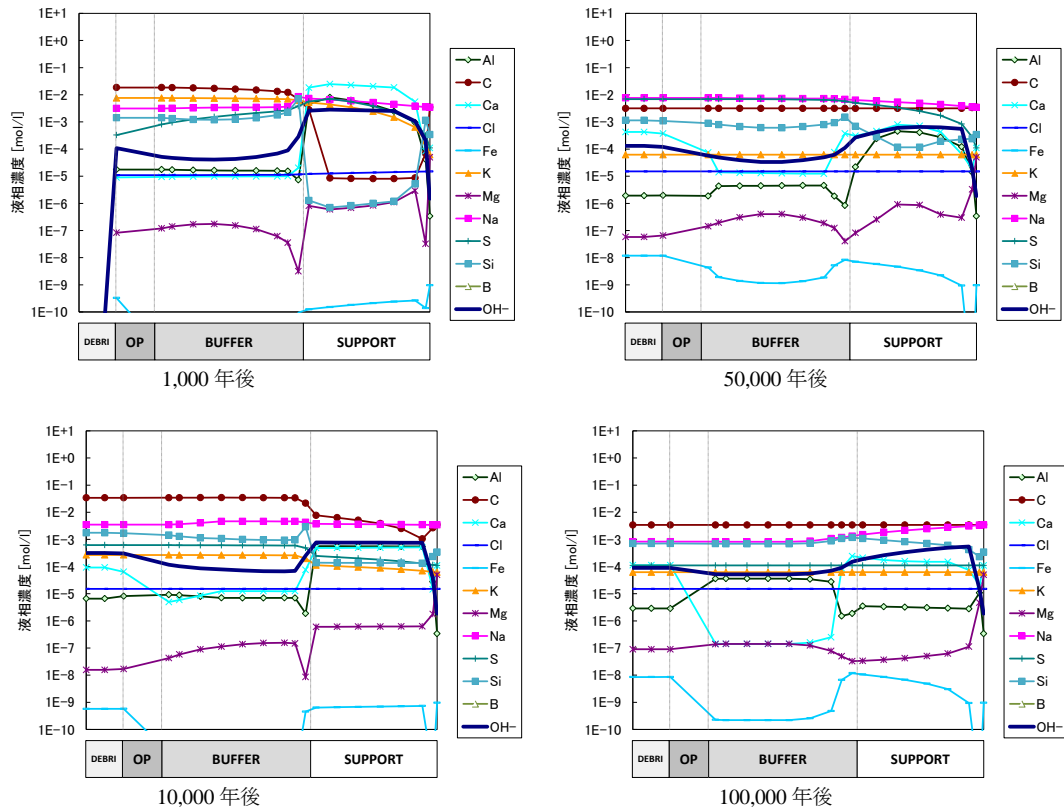


図 App. II . A-7 全領域における液相空間分布 (ケース 4)

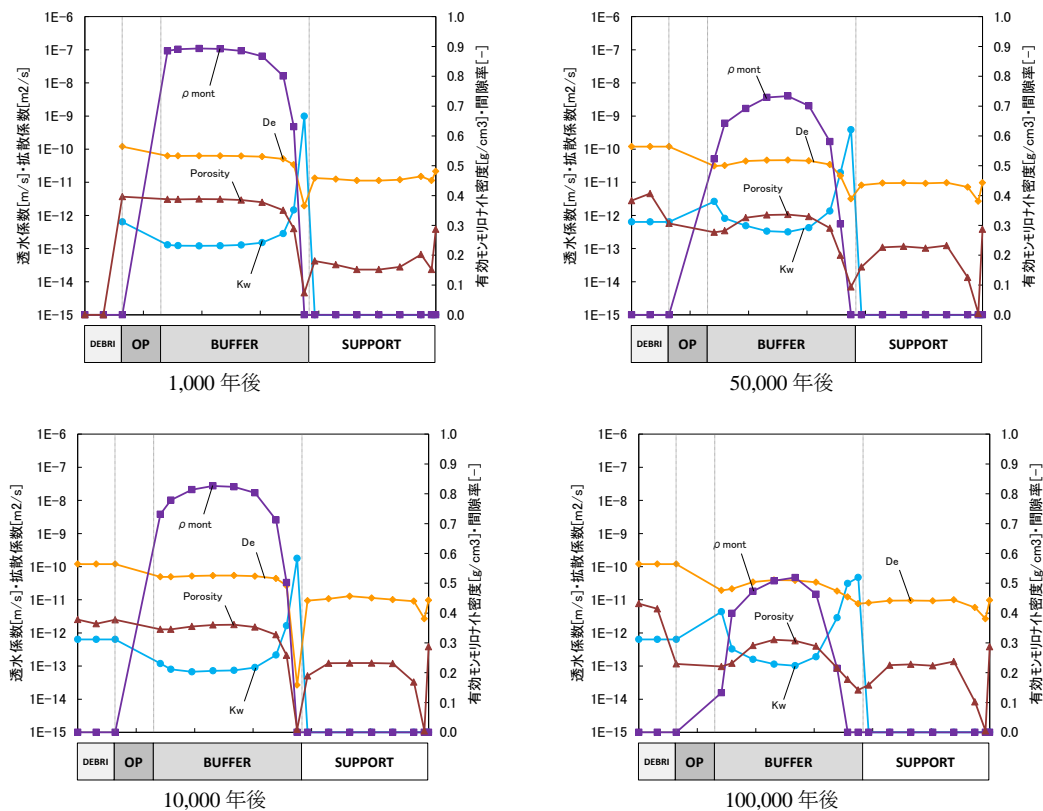
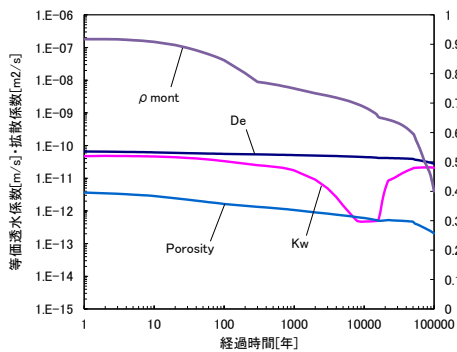
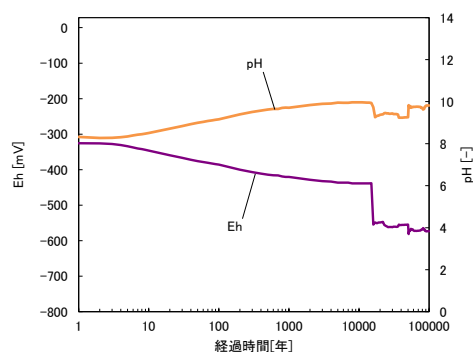


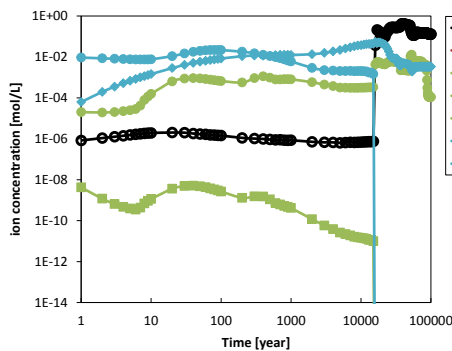
図 App. II . A-8 全領域における Kw · De · ρ_m · Eps 空間分布 (ケース 4)



透水係数・拡散係数・有効モリトト密度・間隙率

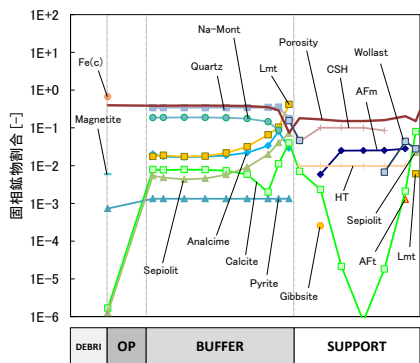


酸化還元電位・pH

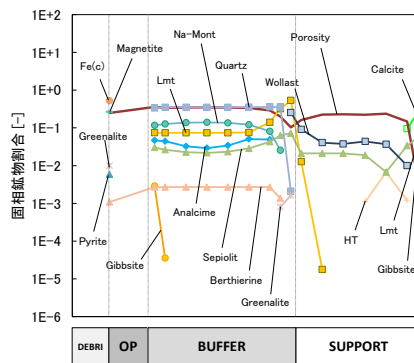


炭素種・硫黄種・溶存水素・溶存酸素濃度

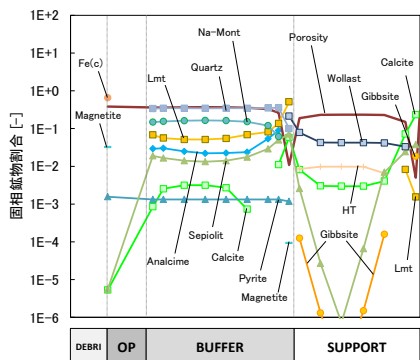
図 App. II . A-9 緩衝材領域における経時変化 (ケース 5)



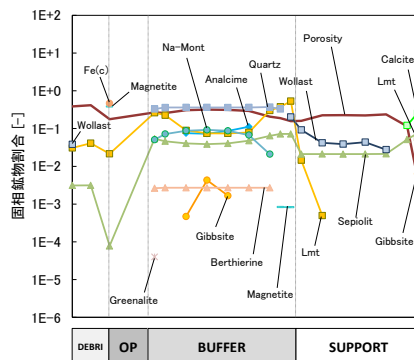
1,000 年後



50,000 年後



10,000 年後



100,000 年後

図 App. II . A-10 全領域における固相空間分布 (ケース 5)

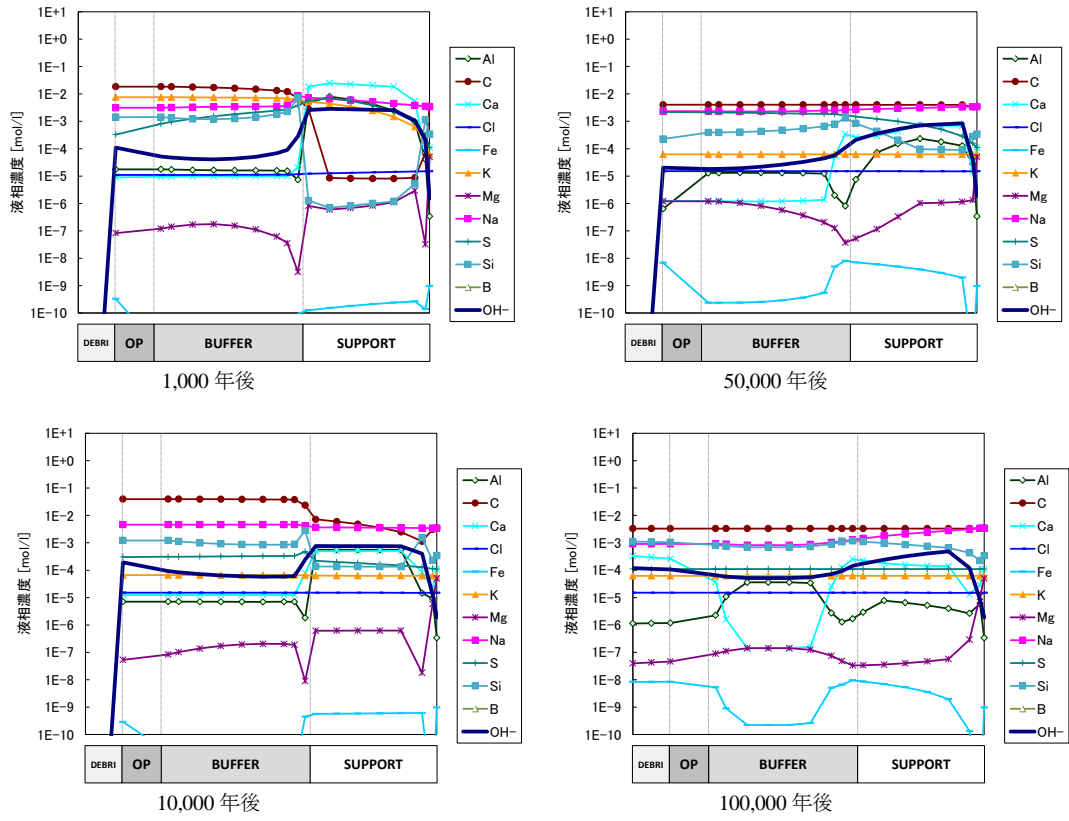


図 App. II . A-11 全領域における液相空間分布 (ケース 5)

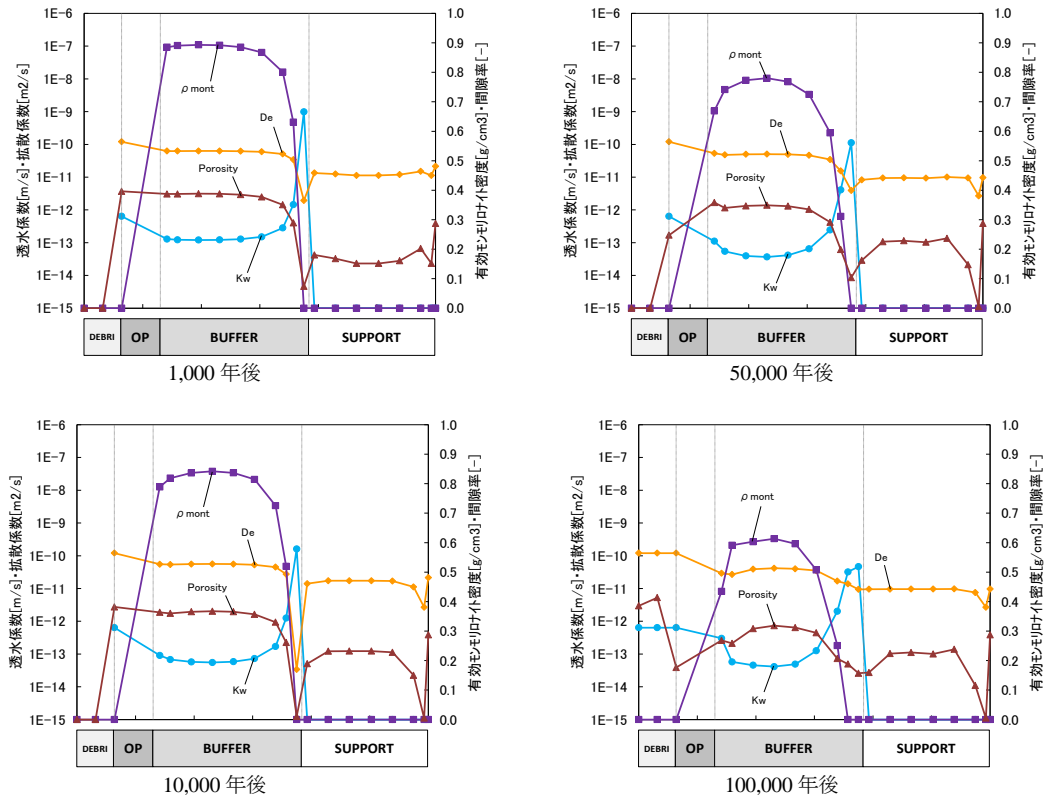
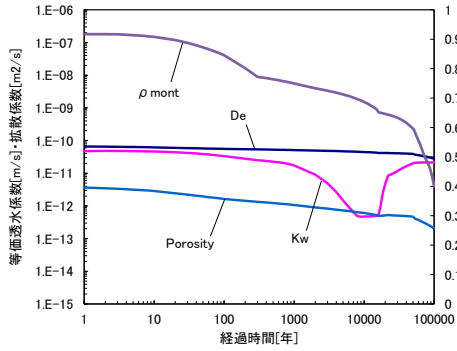
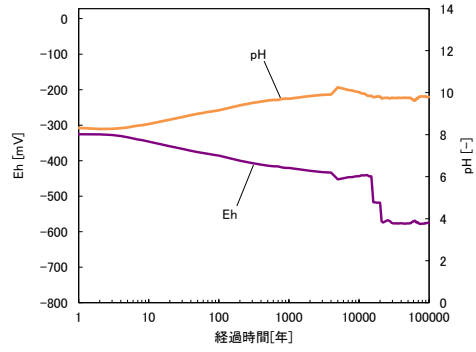


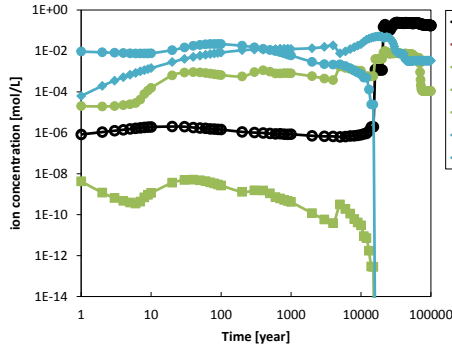
図 App. II . A-12 全領域における Kw · De · ρ_m · Eps 空間分布 (ケース 5)



透水係数・拡散係数・有効モリトト密度・間隙率

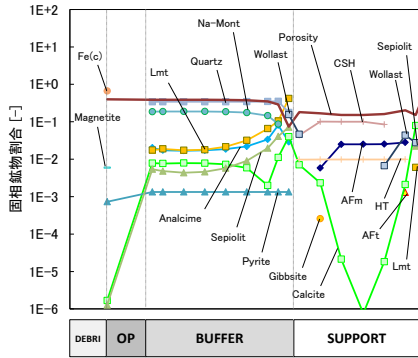


酸化還元電位・pH

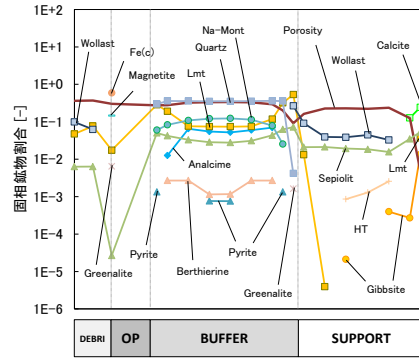


炭素種・硫黄種・溶存水素・溶存酸素濃度

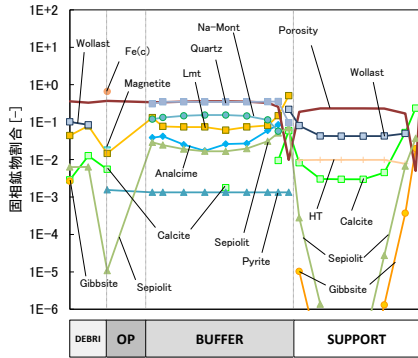
図 App. II. A-13 緩衝材領域における経時変化 (ケース 6)



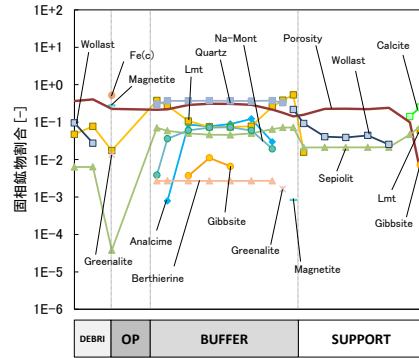
1,000 年後



50,000 年後



10,000 年後



100,000 年後

図 App. II. A-14 全領域における固相空間分布 (ケース 6)

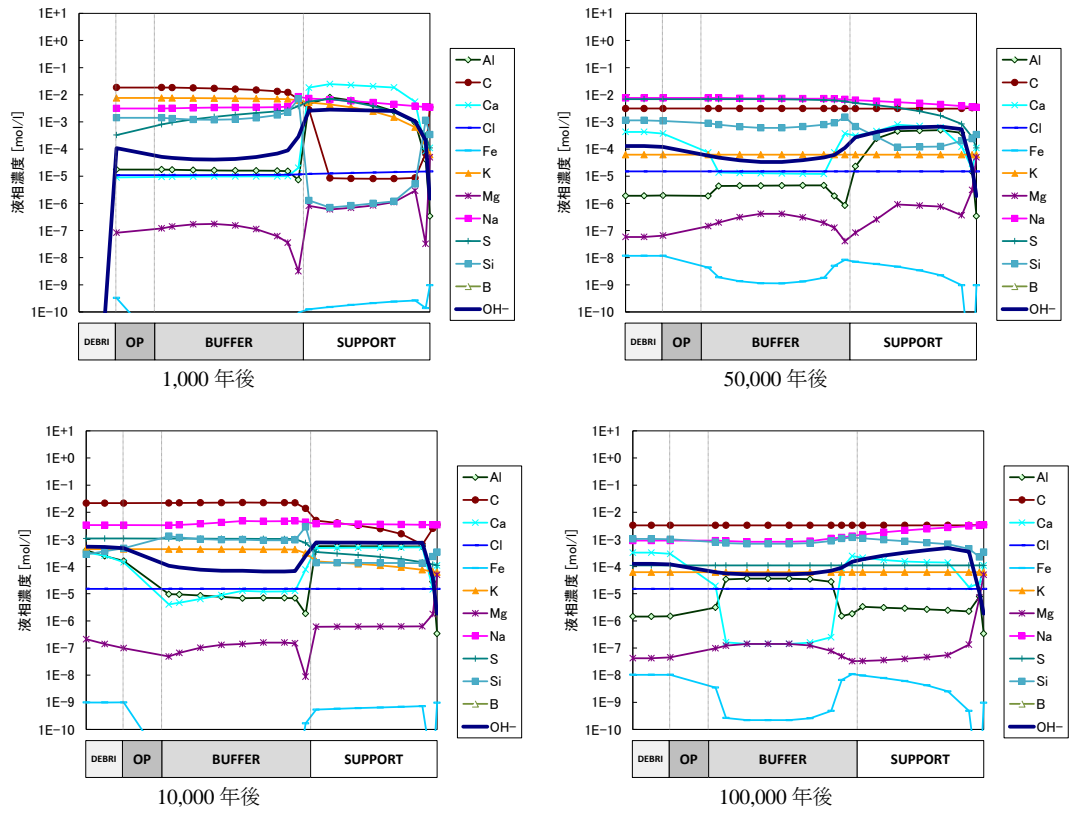


図 App. II . A-15 全領域における液相空間分布 (ケース 6)

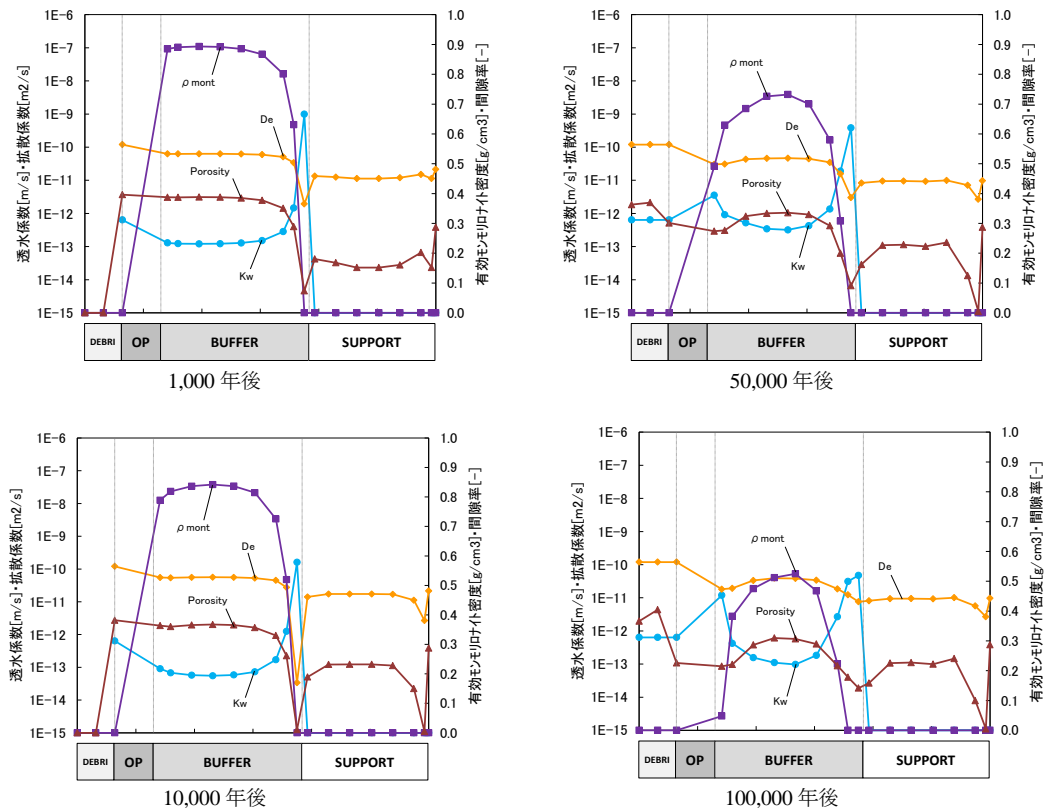
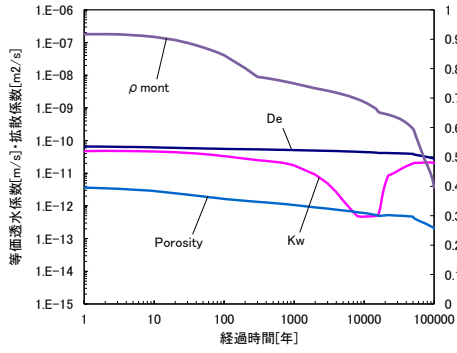
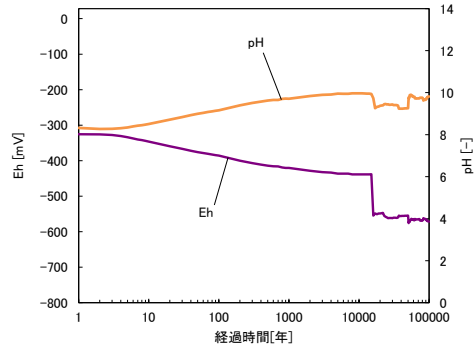


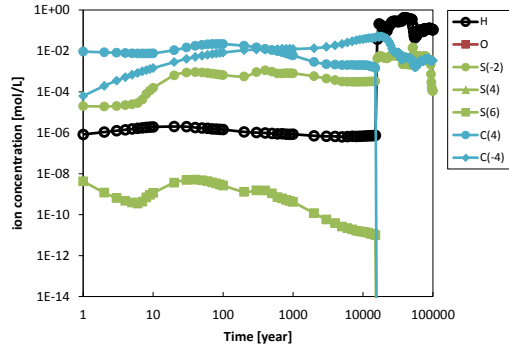
図 App. II . A-16 全領域における Kw · De · ρ_m · Eps 空間分布 (ケース 6)



透水係数・拡散係数・有効モリトナイト密度・間隙率

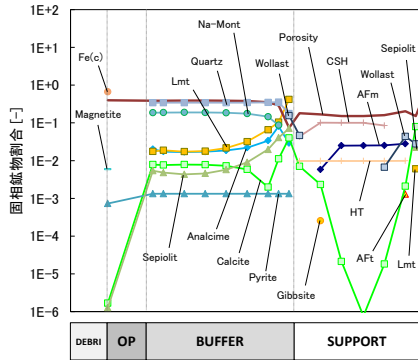


酸化還元電位・pH

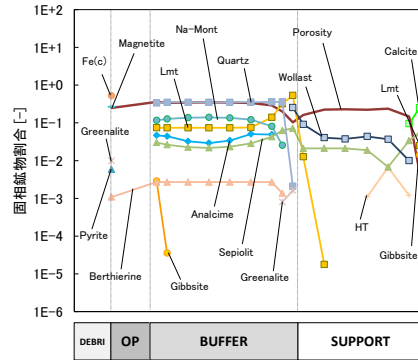


炭素種・硫黄種・溶存水素・溶存酸素濃度

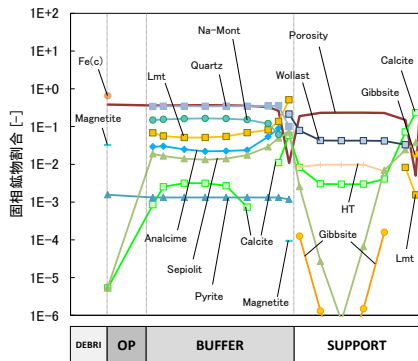
図 App. II . A-17 緩衝材領域における経時変化 (ケース 7)



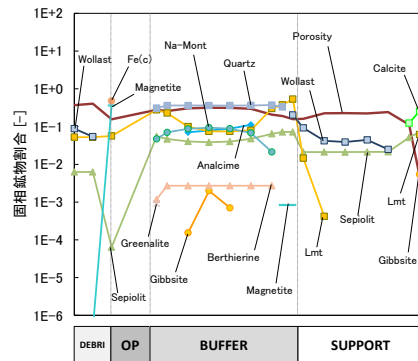
1,000 年後



50,000 年後



10,000 年後



100,000 年後

図 App. II . A-18 全領域における固相空間分布 (ケース 7)

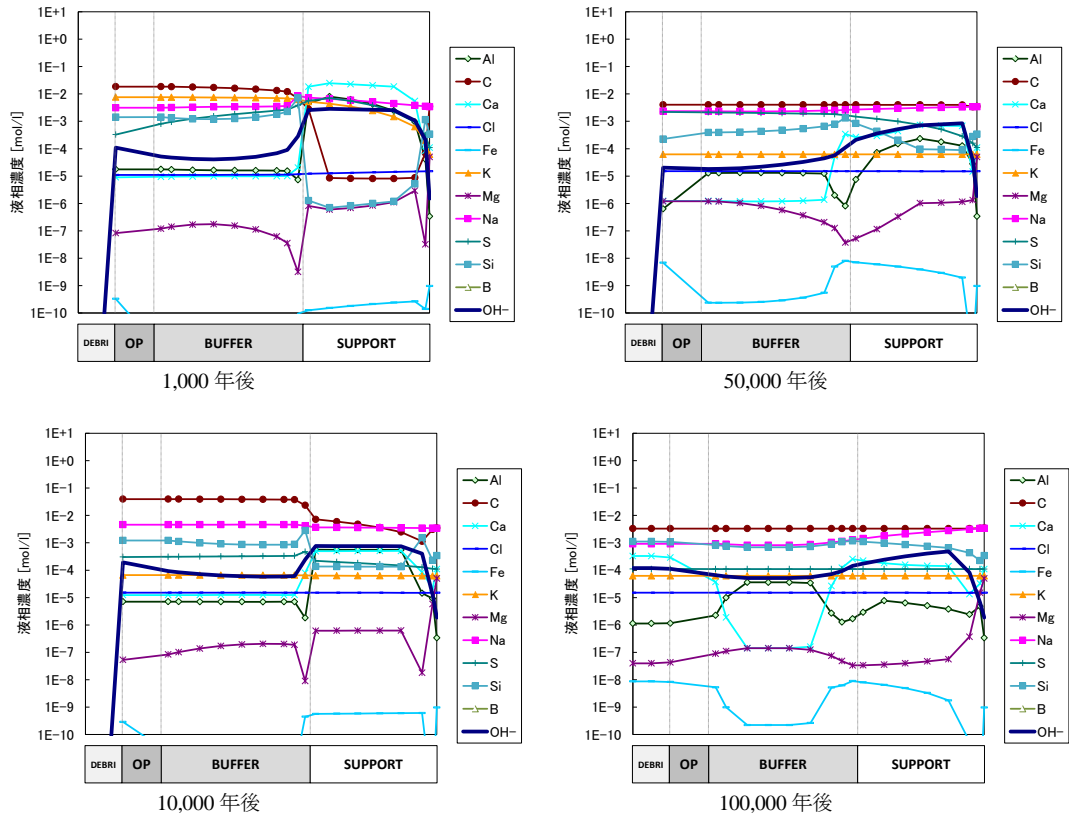


図 App. II. A-19 全領域における液相空間分布 (ケース 7)

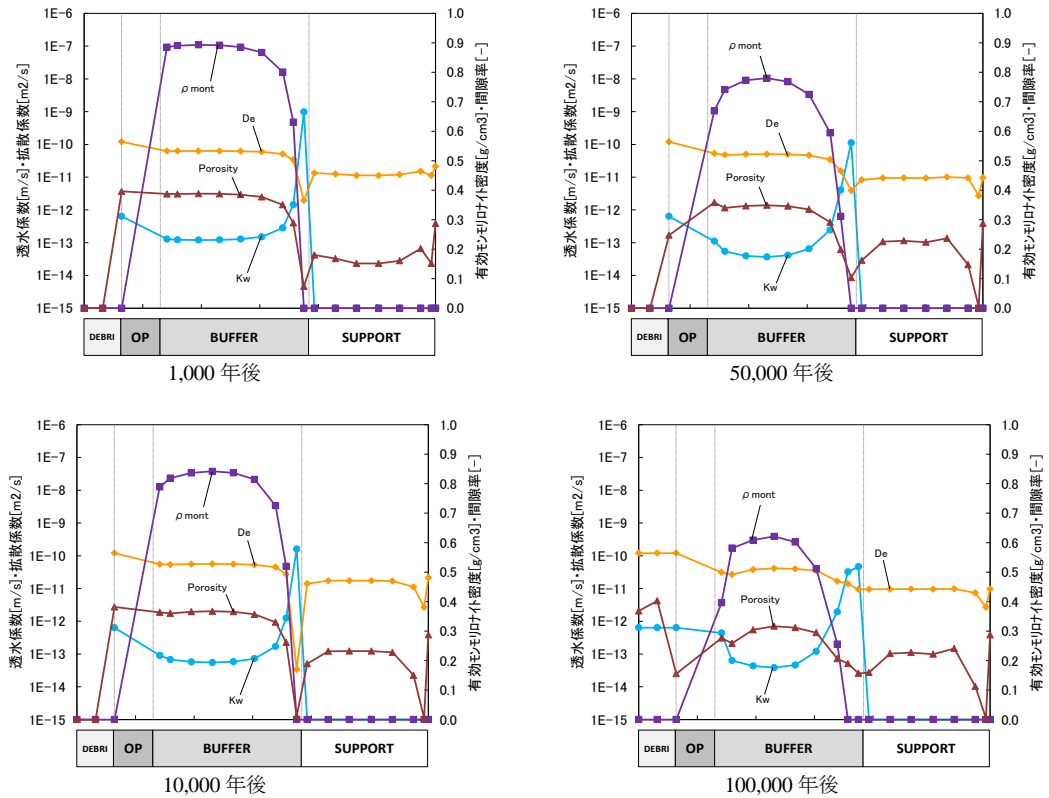
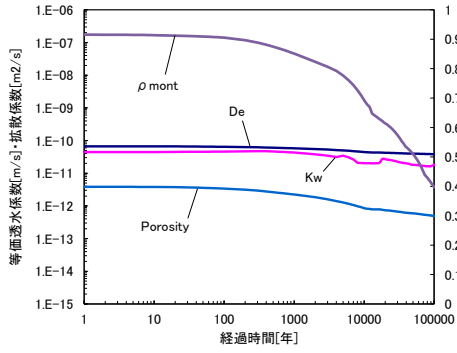
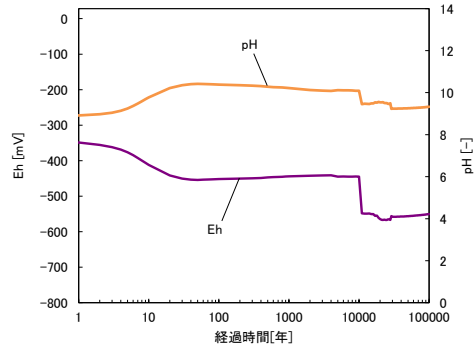


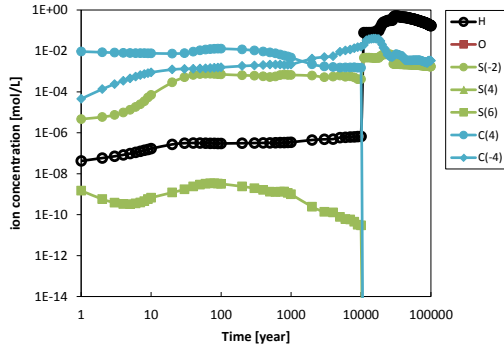
図 App. II. A-20 全領域における $K_w \cdot De \cdot \rho_m \cdot Eps$ 空間分布 (ケース 7)



透水係数・拡散係数・有効モリト密度・間隙率

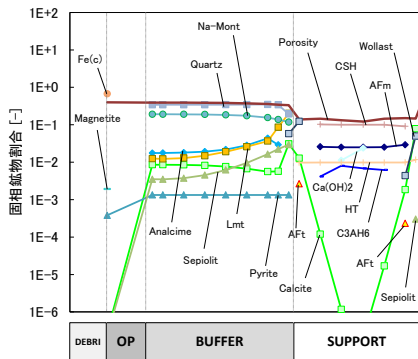


酸化還元電位・pH

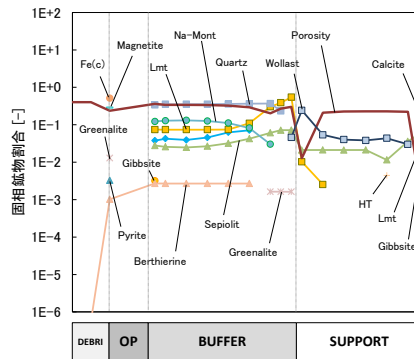


炭素種・硫黄種・溶存水素・溶存酸素濃度

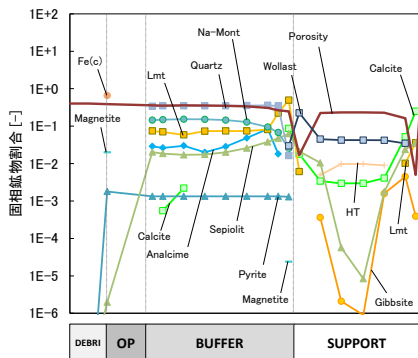
図 App. II. A-21 緩衝材領域における経時変化 (ケース 8)



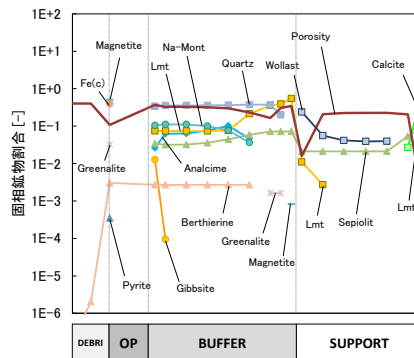
1,000 年後



50,000 年後



10,000 年後



100,000 年後

図 App. II. A-22 全領域における固相空間分布 (ケース 8)

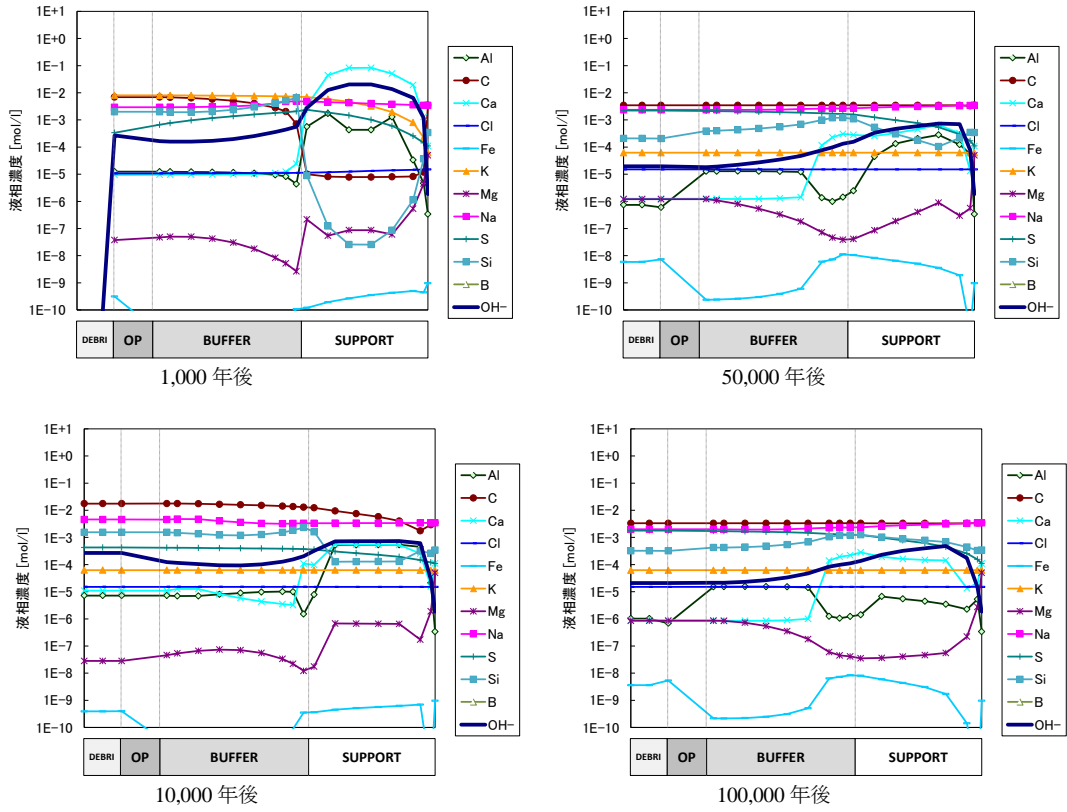


図 App. II . A-23 全領域における液相空間分布 (ケース 8)

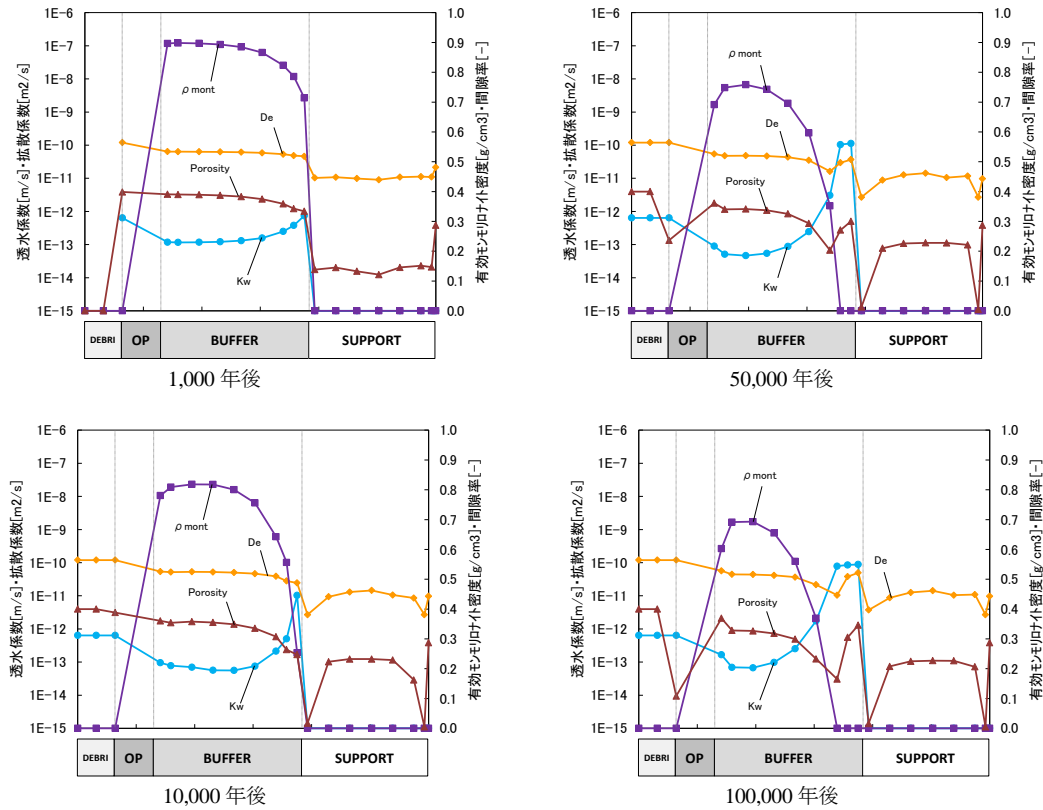
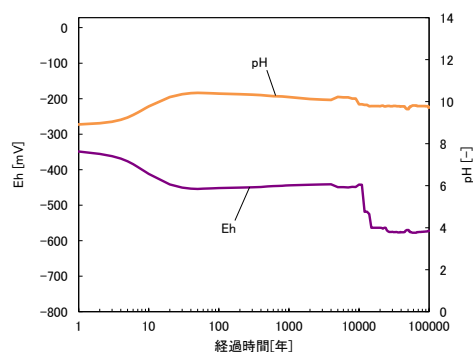
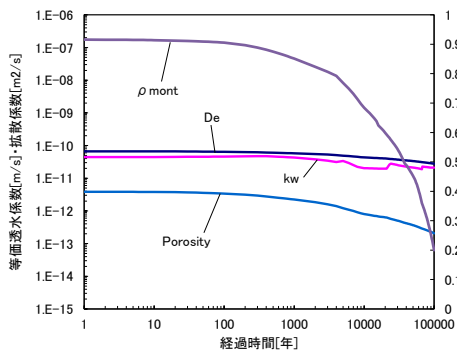
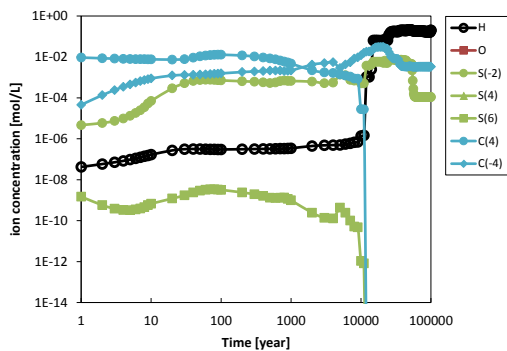


図 App. II . A-24 全領域における Kw · De · ρ_m · Eps 空間分布 (ケース 8)



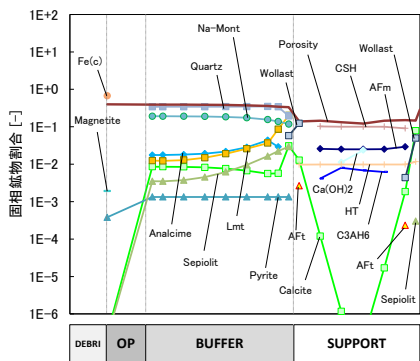
透水係数・拡散係数・有効モリッソト密度・空隙率

酸化還元電位・pH

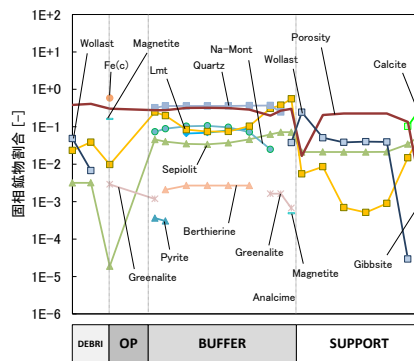


炭素種・硫黄種・溶存水素・溶存酸素濃度

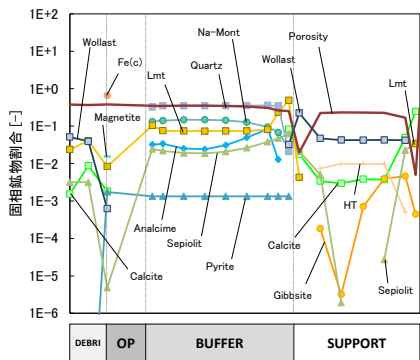
図 App. II. A-25 緩衝材領域における経時変化（ケース 10）



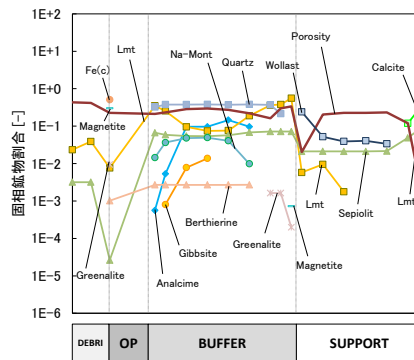
1,000 年後



50,000 年後



10,000 年後



100,000 年後

図 App. II. A-26 全領域における固相空間分布（ケース 10）

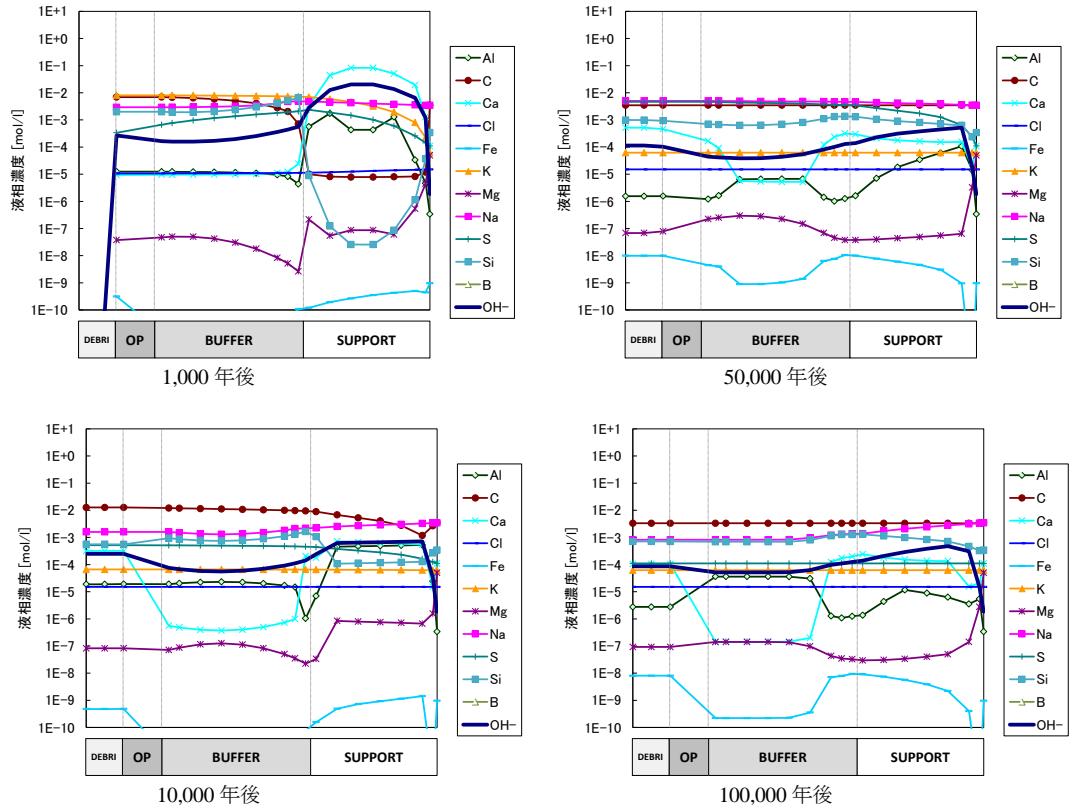


図 App. II . A-27 全領域における液相空間分布 (ケース 10)

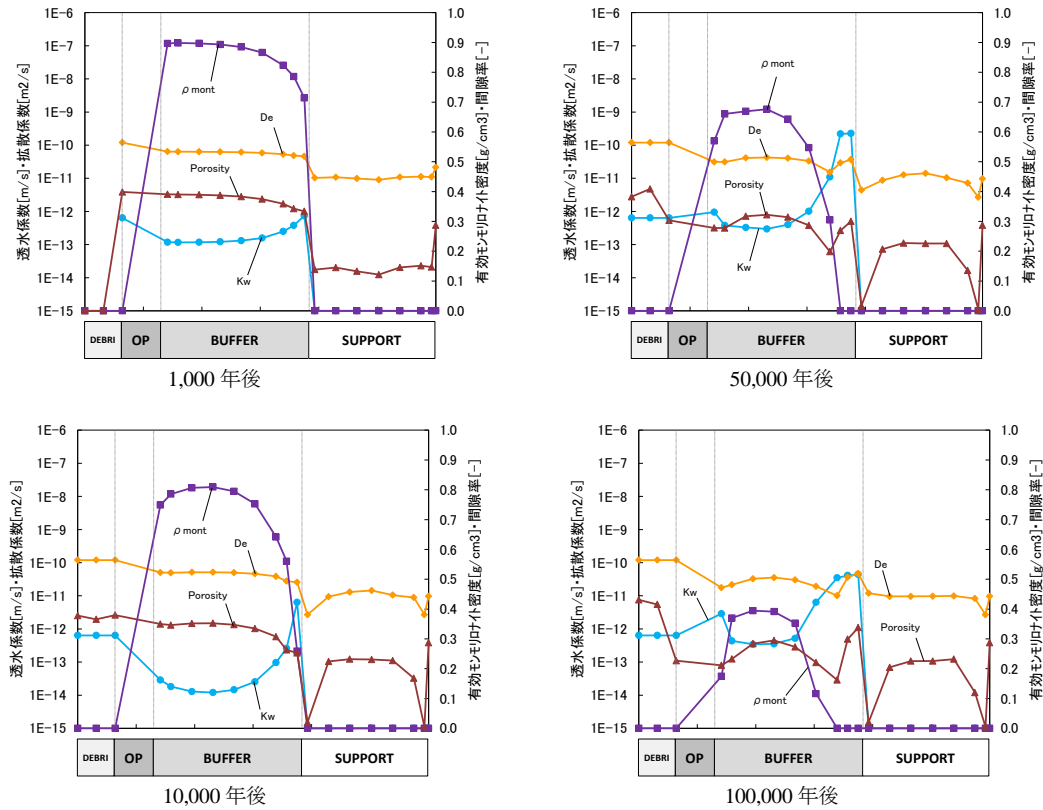
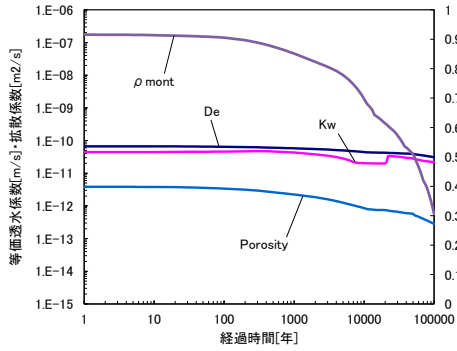
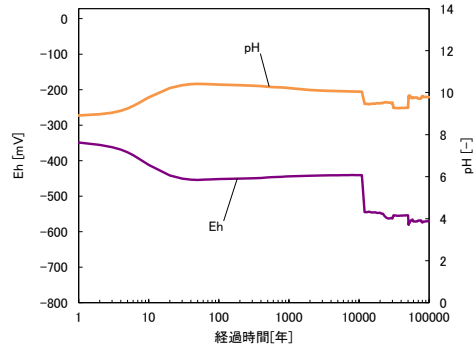


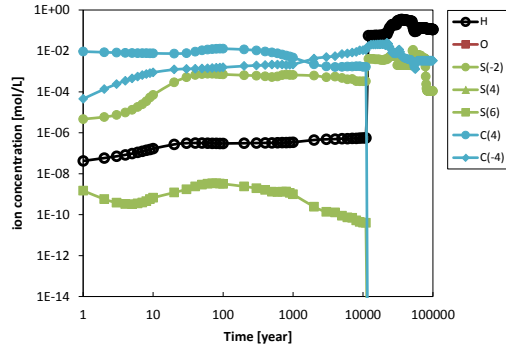
図 App. II . A-28 全領域における Kw · De · ρ_m · Eps 空間分布 (ケース 10)



透水係数・拡散係数・有効モリトト密度・間隙率

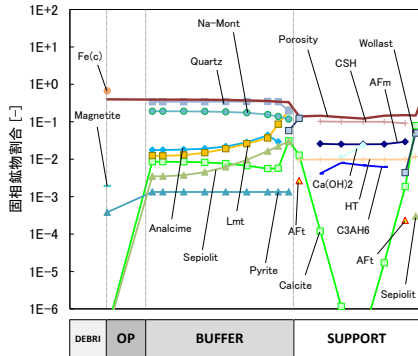


酸化還元電位・pH

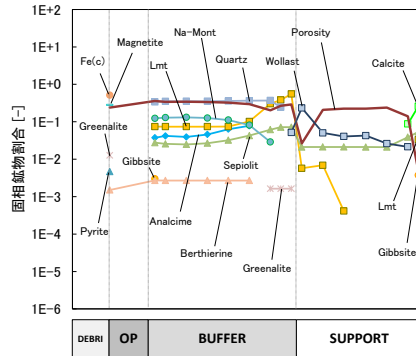


炭素種・硫黄種・溶存水素・溶存酸素濃度

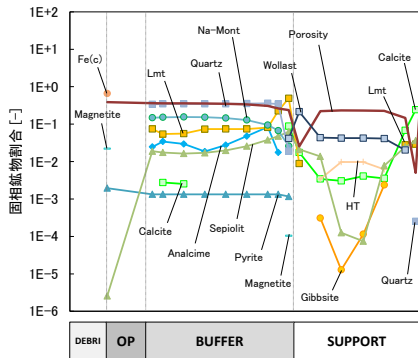
図 App. II. A-29 緩衝材領域における経時変化 (ケース 11)



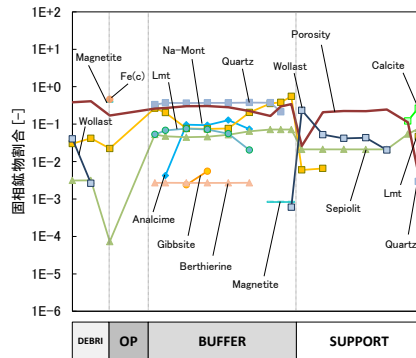
1,000 年後



50,000 年後



10,000 年後



100,000 年後

図 App. II. A-30 全領域における固相空間分布 (ケース 11)

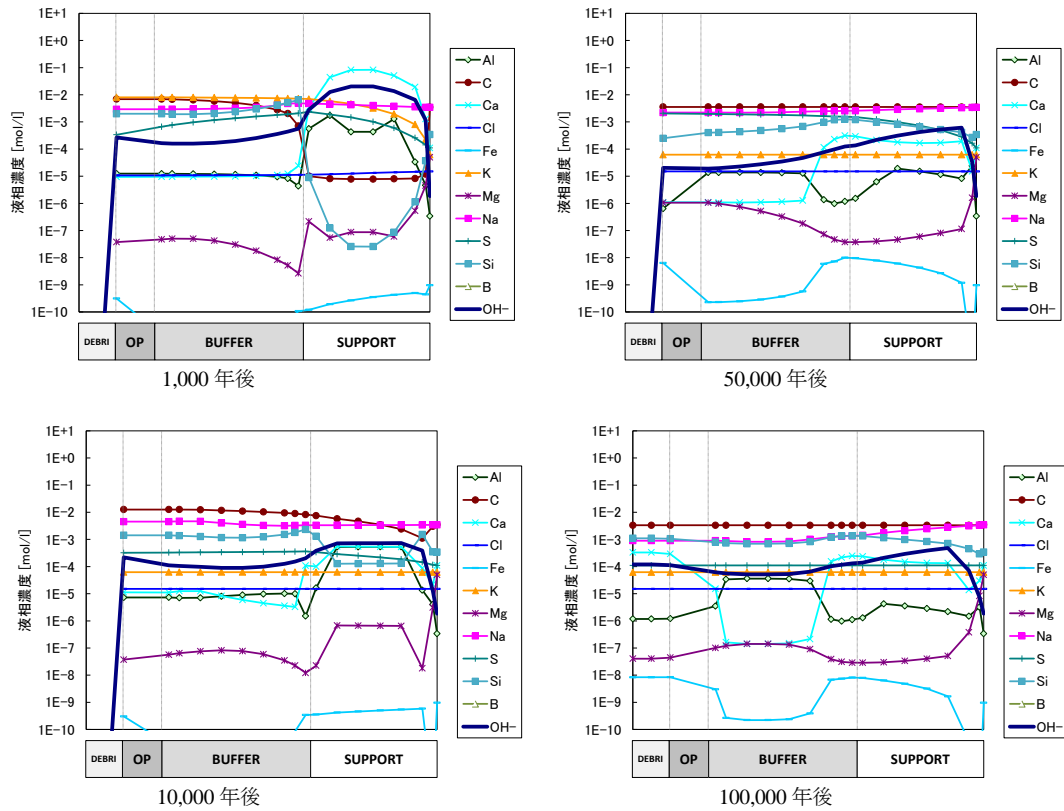


図 App. II . A-31 全領域における液相空間分布 (ケース 11)

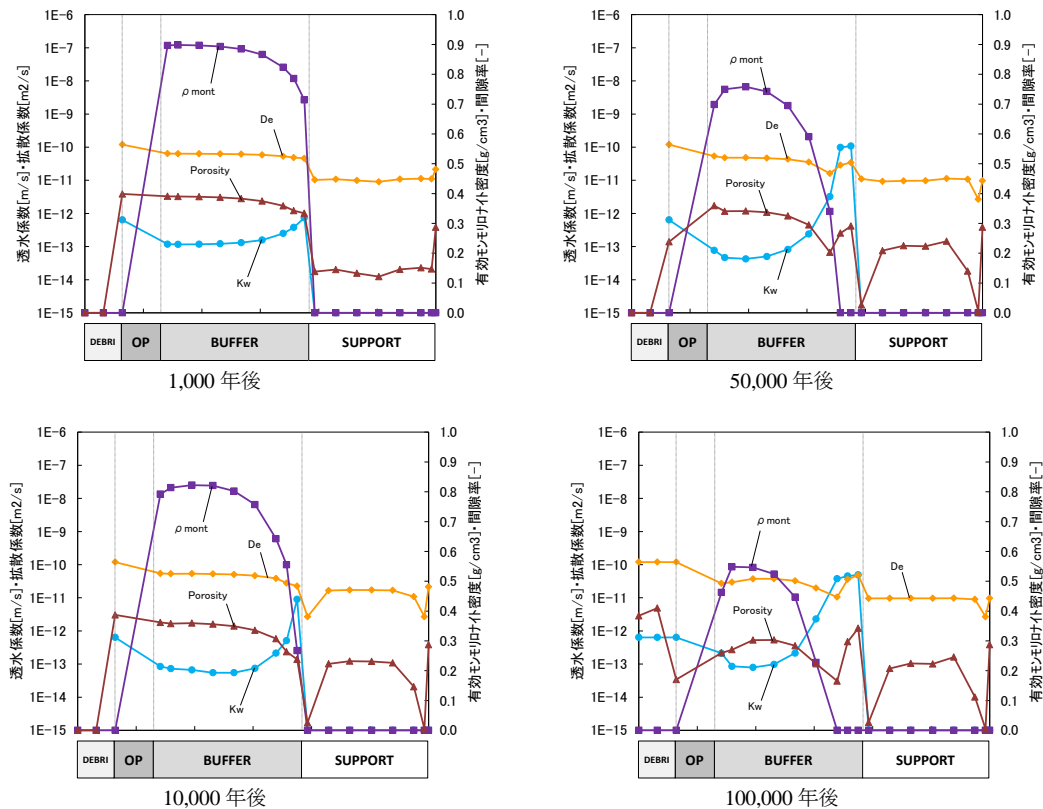
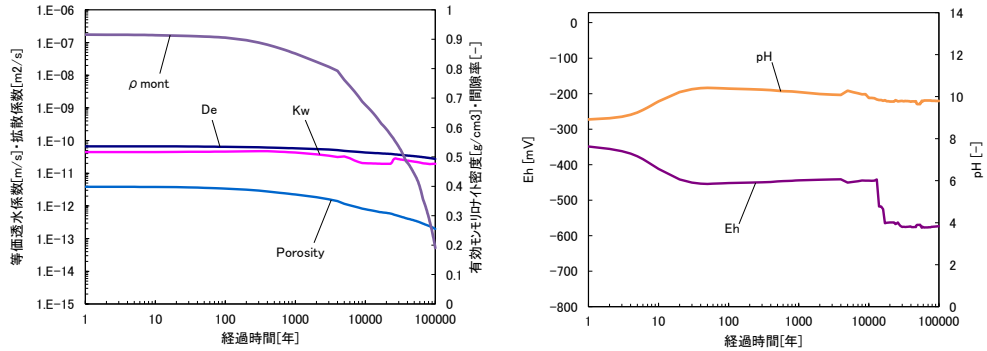
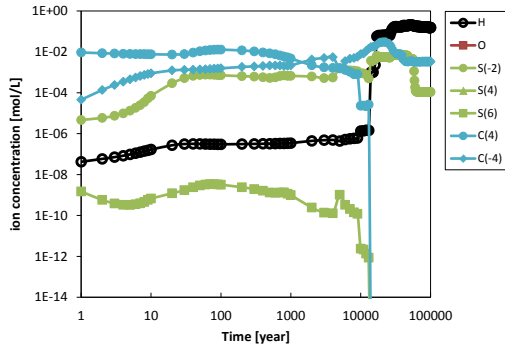


図 App. II . A-32 全領域における Kw · De · ρ_m · Eps 空間分布 (ケース 11)



透水係数・拡散係数・有効モリヤト密度・間隙率

酸化還元電位・pH



炭素種・硫黄種・溶存水素・溶存酸素濃度

図 App. II . A-33 緩衝材領域における経時変化 (ケース 12)

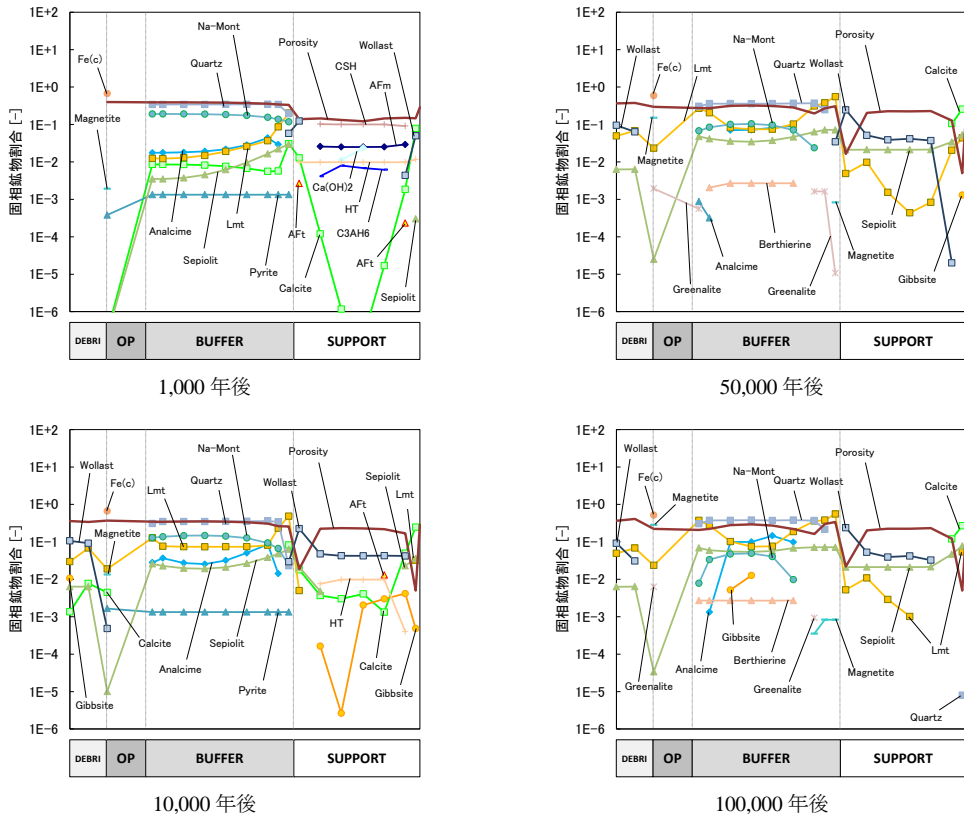


図 App. II . A-34 全領域における固相空間分布 (ケース 12)

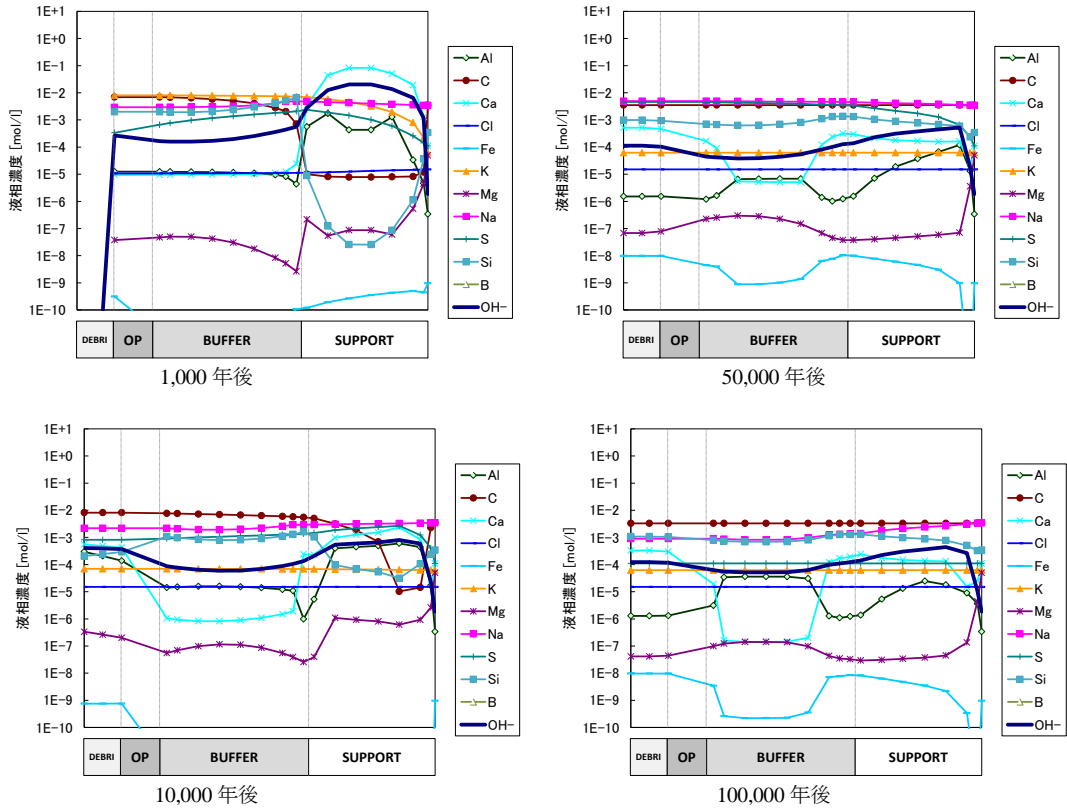


図 App. II . A-35 全領域における液相空間分布 (ケース 12)

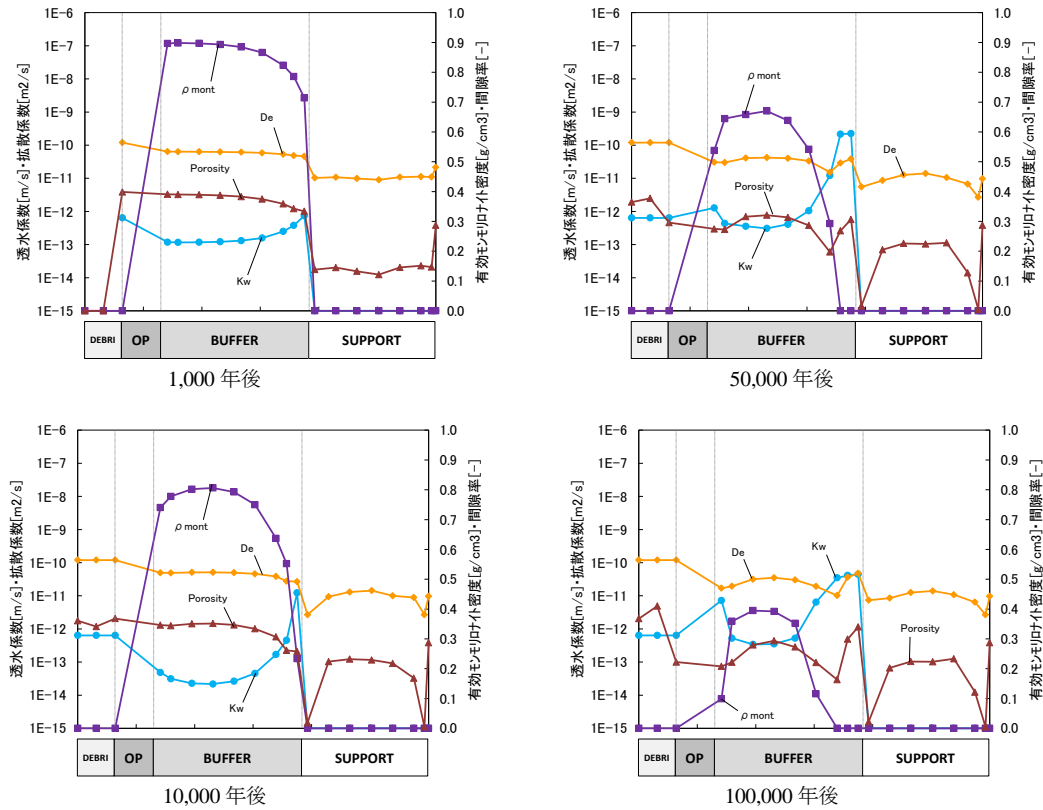
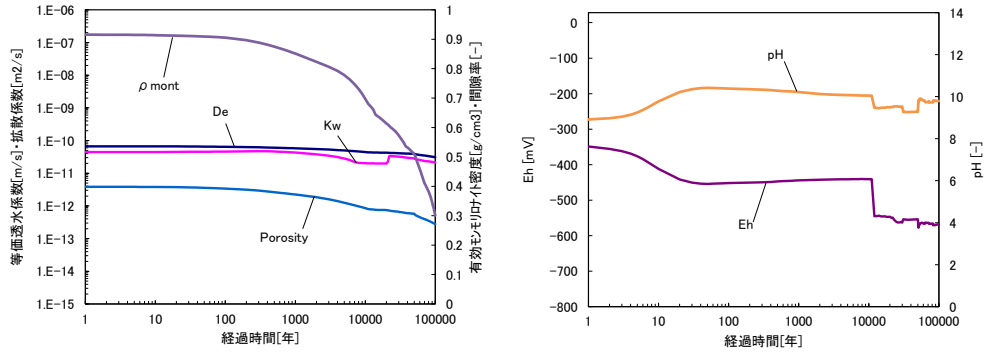
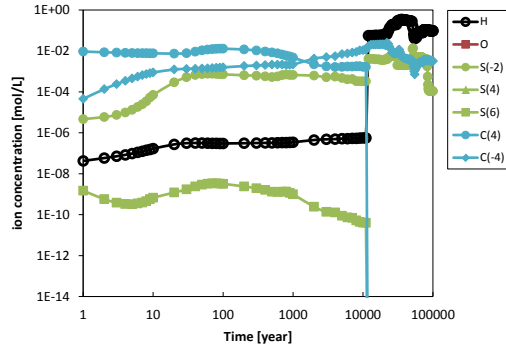


図 App. II . A-36 全領域における Kw · De · ρ_m · Eps 空間分布 (ケース 12)



透水係数・拡散係数・有効モリトト密度・間隙率

酸化還元電位・pH



炭素種・硫黄種・溶存水素・溶存酸素濃度

図 App. II. A-37 緩衝材領域における経時変化 (ケース 13)

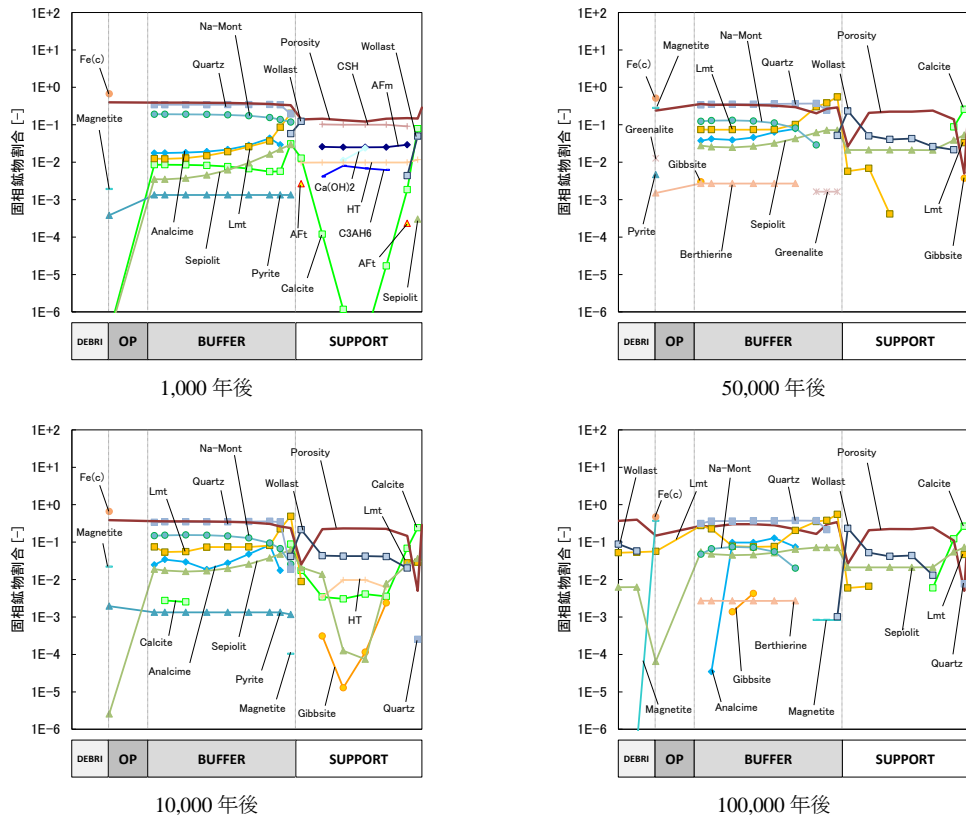


図 App. II. A-38 全領域における固相空間分布 (ケース 13)

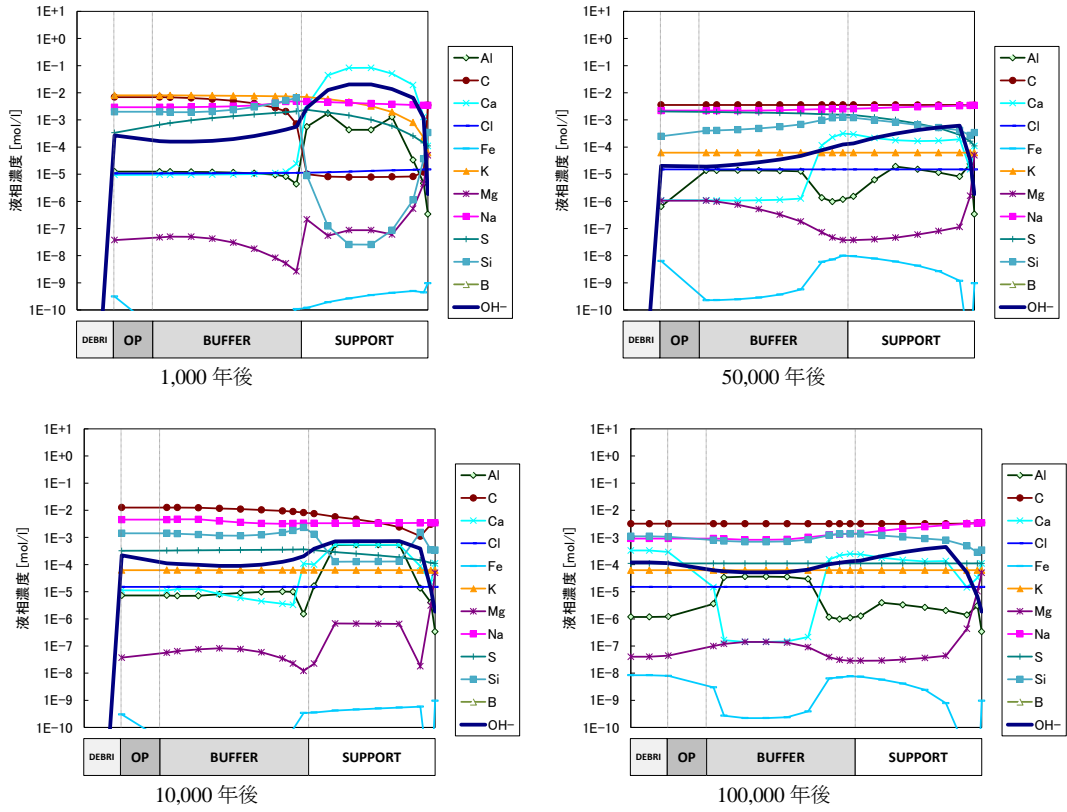


図 App. II . A-39 全領域における液相空間分布 (ケース 13)

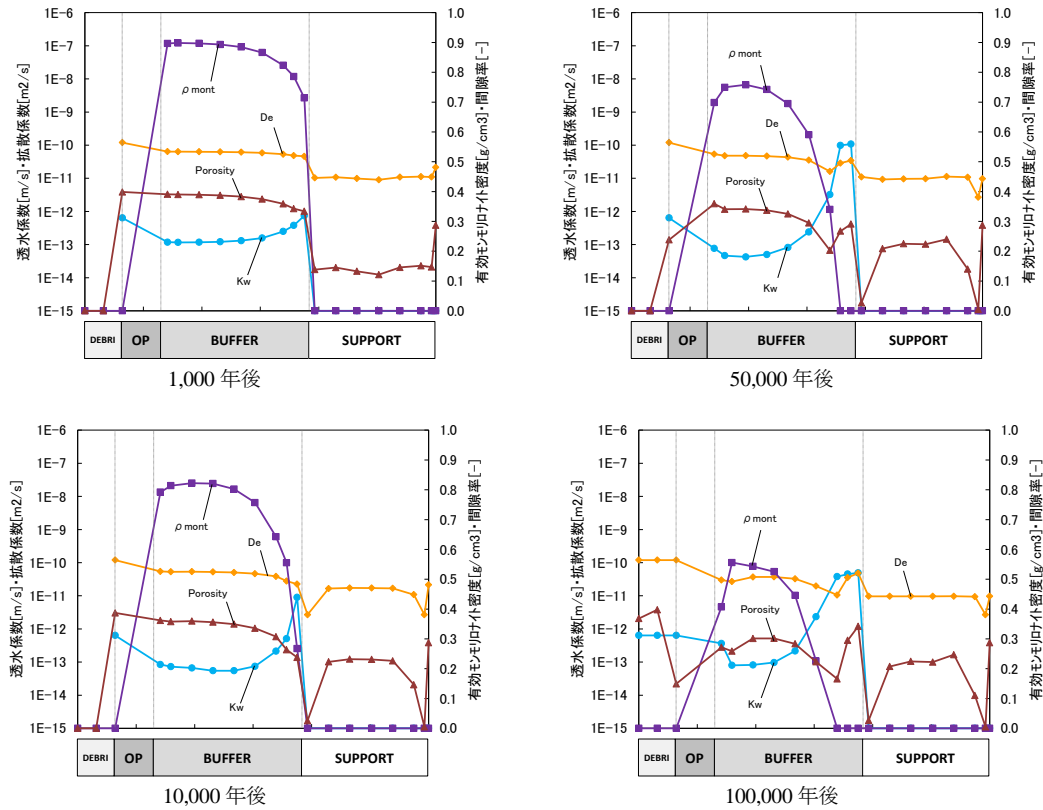
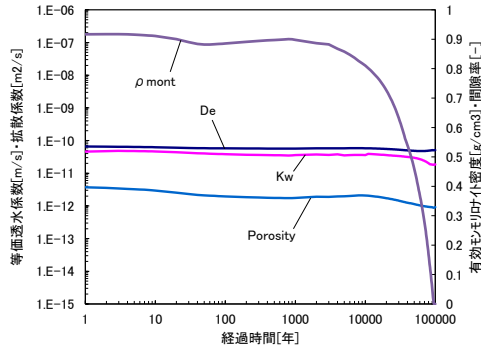
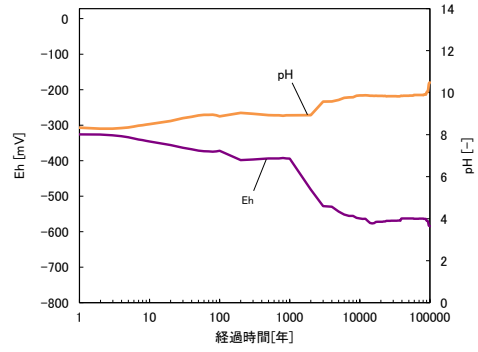


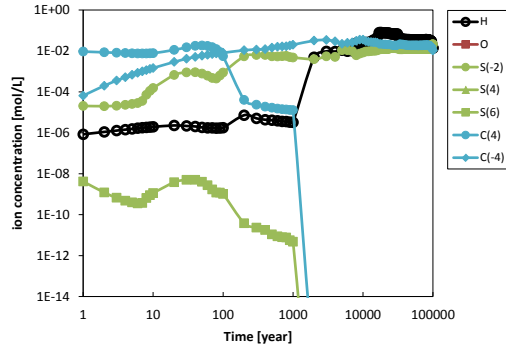
図 App. II . A-40 全領域における Kw · De · ρ_m · Eps 空間分布 (ケース 13)



透水係数・拡散係数・有効モリトト密度・間隙率

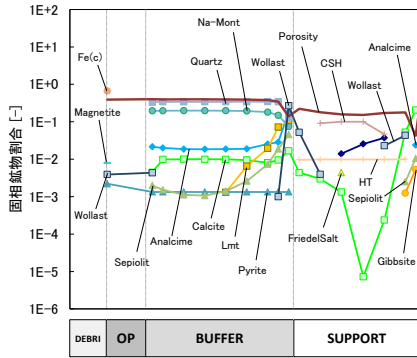


酸化還元電位・pH

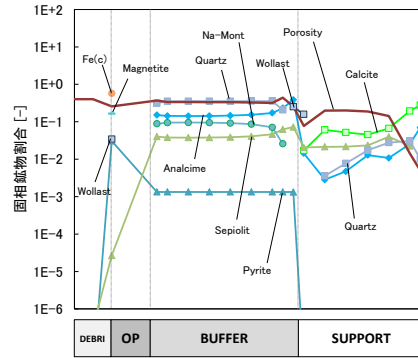


炭素種・硫黄種・溶存水素・溶存酸素濃度

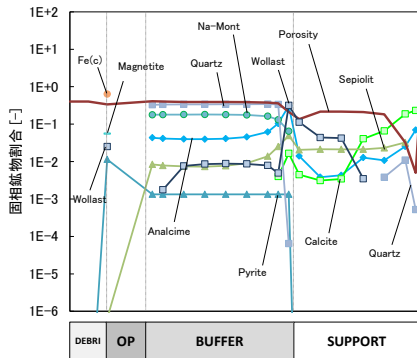
図 App. II. A-41 緩衝材領域における経時変化 (ケース 14)



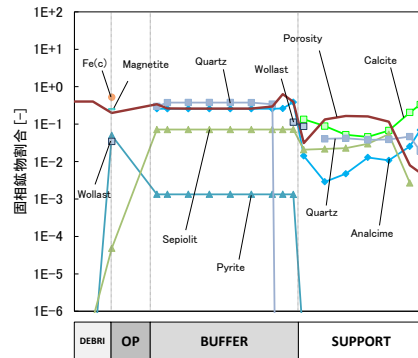
1,000 年後



50,000 年後



10,000 年後



100,000 年後

図 App. II. A-42 全領域における固相空間分布 (ケース 14)

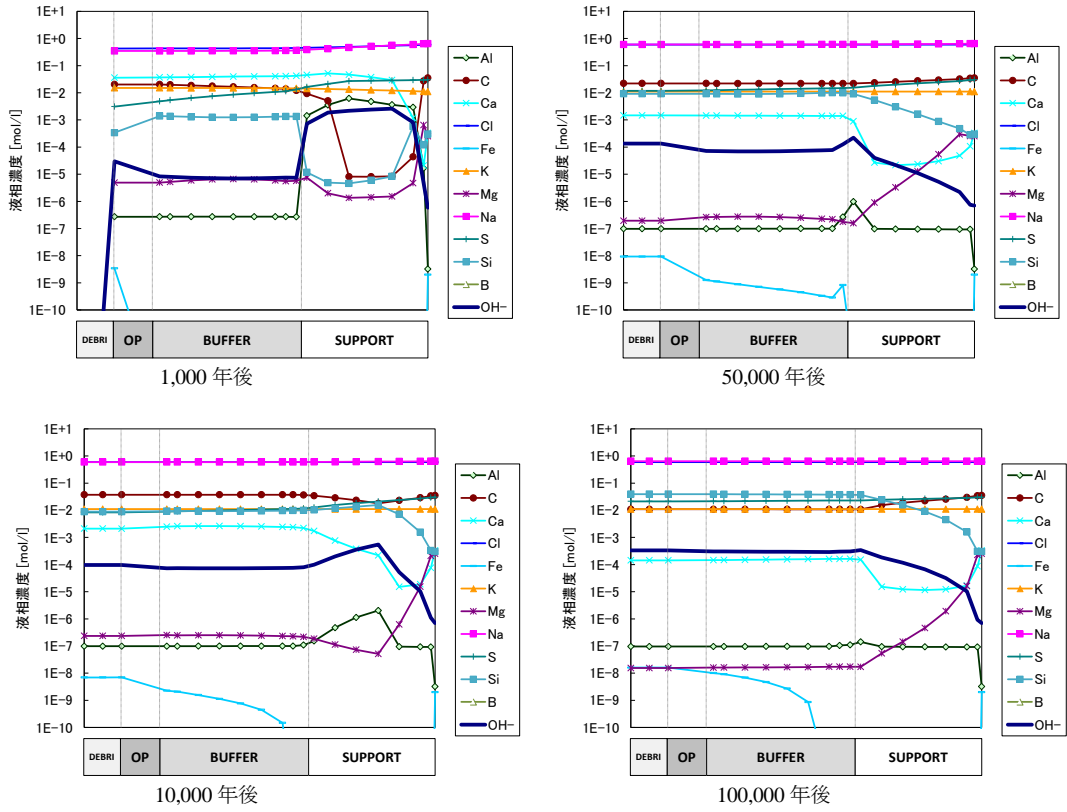


図 App. II . A-43 全領域における液相空間分布 (ケース 14)

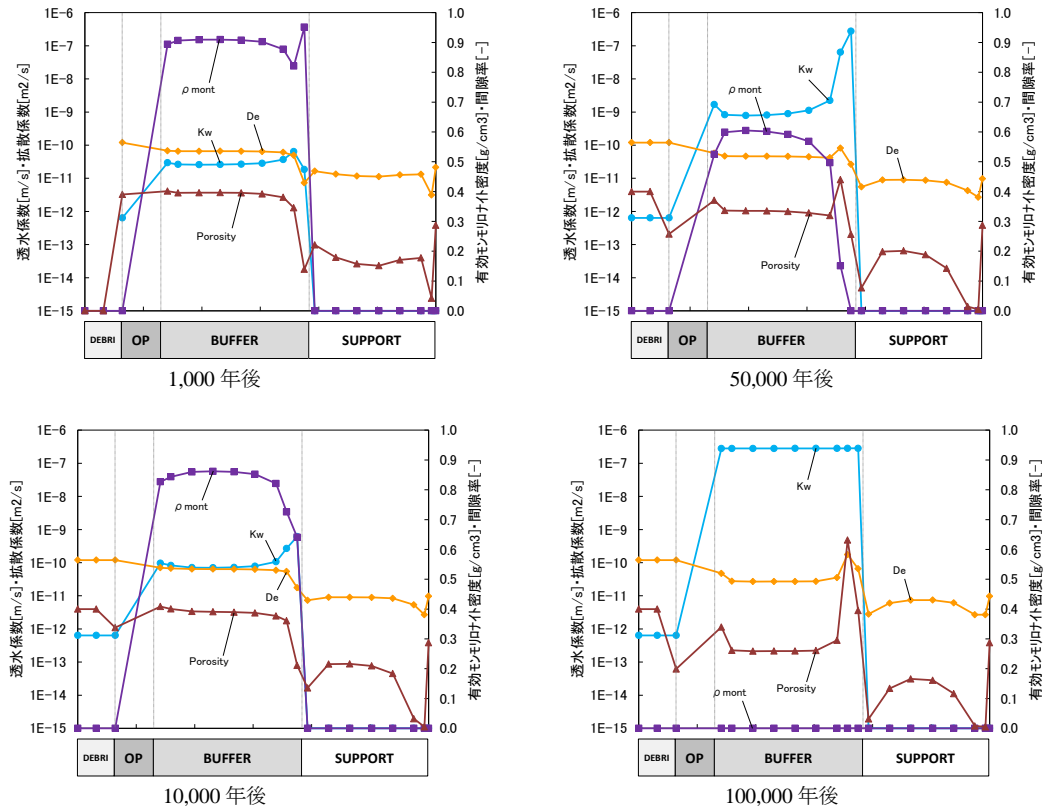
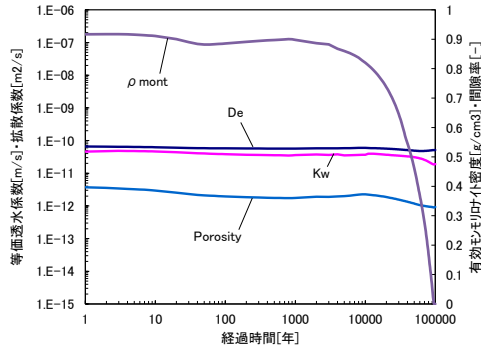
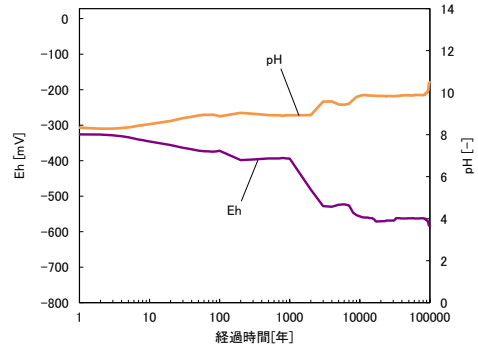


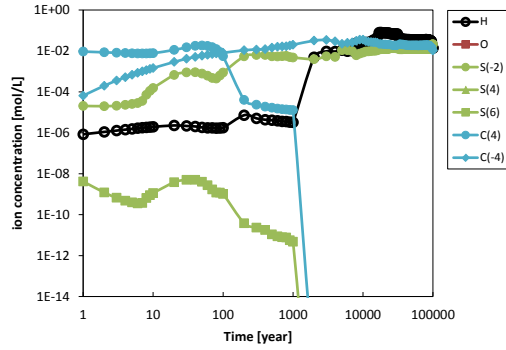
図 App. II . A-44 全領域における Kw · De · $\rho_m \cdot Eps$ 空間分布 (ケース 14)



透水係数・拡散係数・有効モリトト密度・間隙率

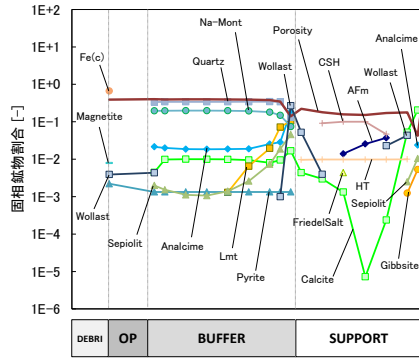


酸化還元電位・pH

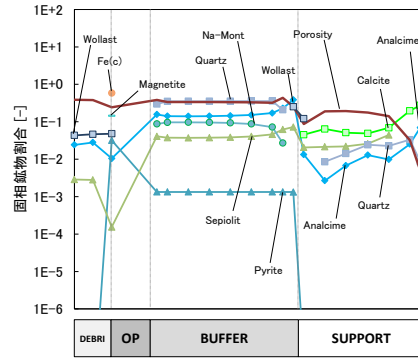


炭素種・硫黄種・溶存水素・溶存酸素濃度

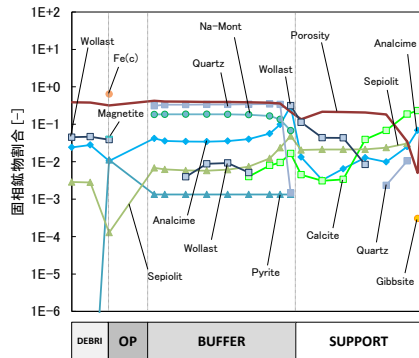
図 App. II. A-45 緩衝材領域における経時変化 (ケース 16)



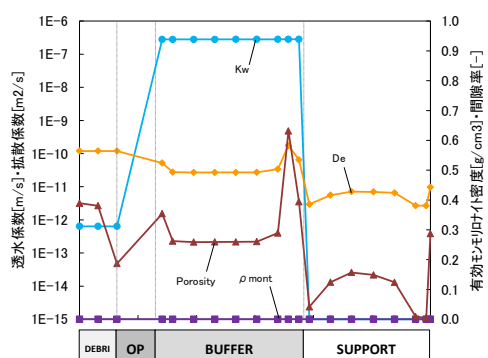
1,000 年後



50,000 年後



10,000 年後



100,000 年後

図 App. II. A-46 全領域における固相空間分布 (ケース 16)

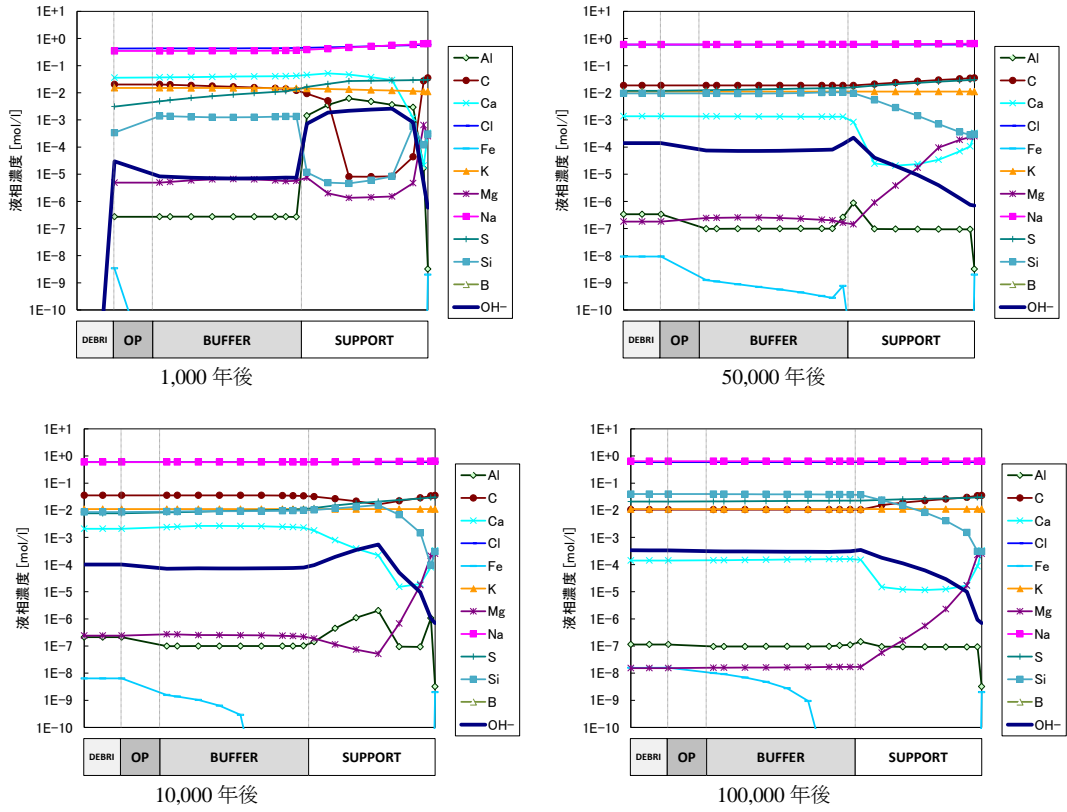


図 App. II . A-47 全領域における液相空間分布 (ケース 16)

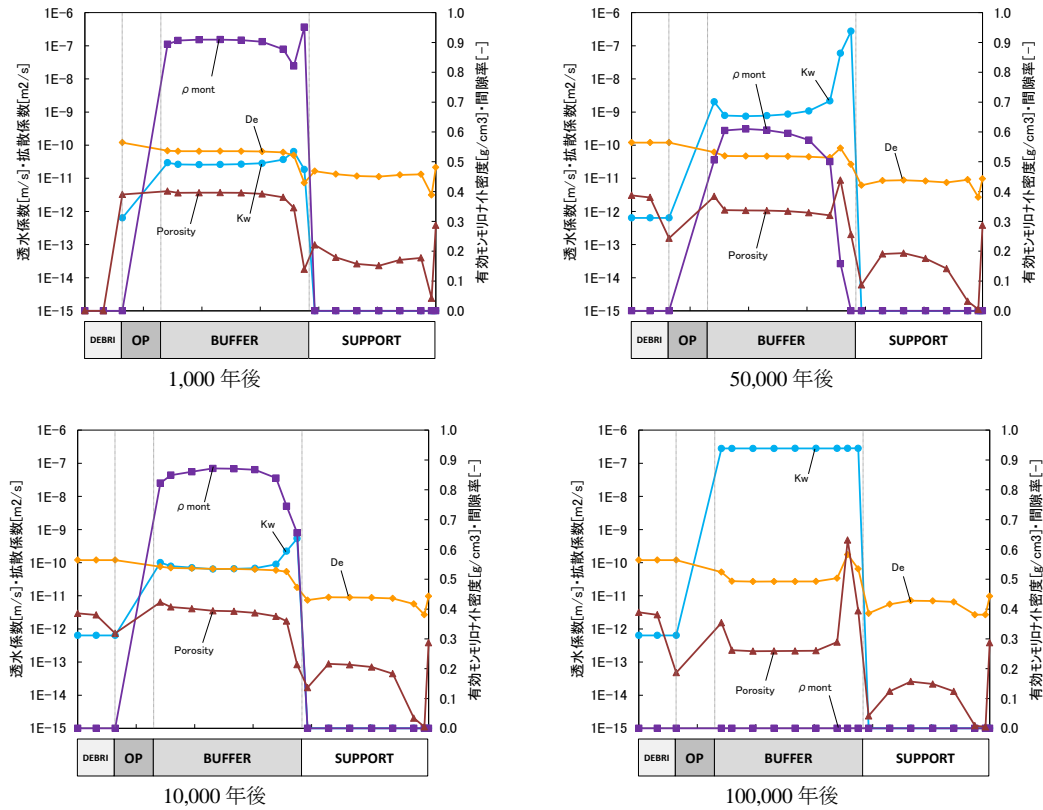
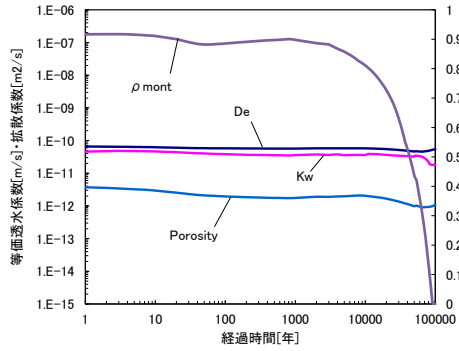
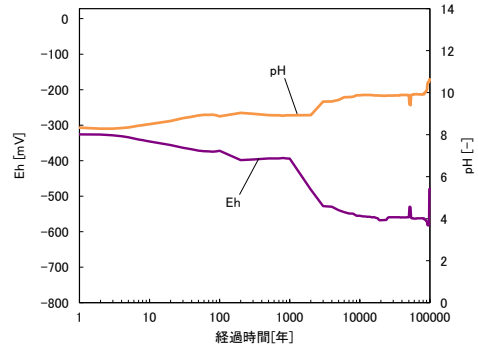


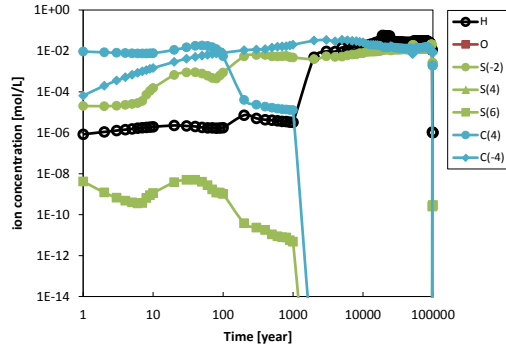
図 App. II . A-48 全領域における Kw · De · ρ_m · Eps 空間分布 (ケース 16)



透水係数・拡散係数・有効モリトト密度・間隙率

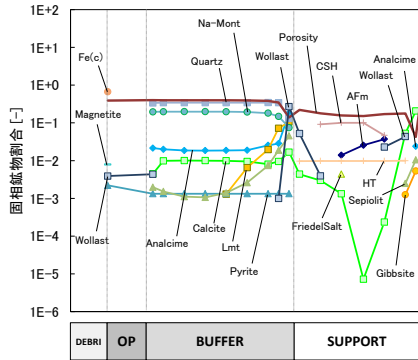


酸化還元電位・pH

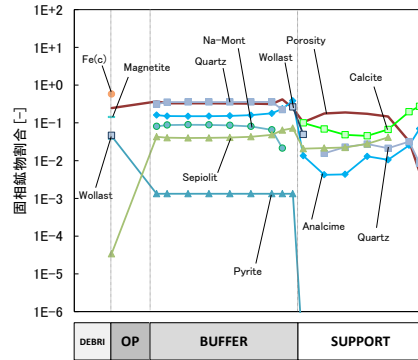


炭素種・硫黄種・溶存水素・溶存酸素濃度

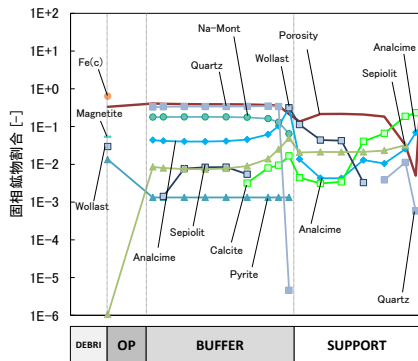
図 App. II. A-49 緩衝材領域における経時変化 (ケース 17)



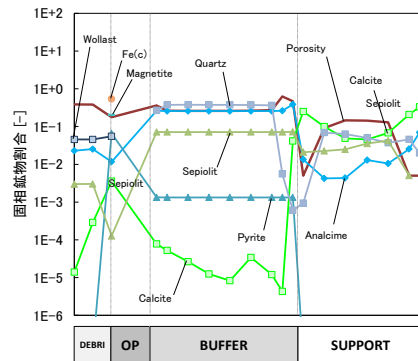
1,000 年後



50,000 年後



10,000 年後



100,000 年後

図 App. II. A-50 全領域における固相空間分布 (ケース 17)

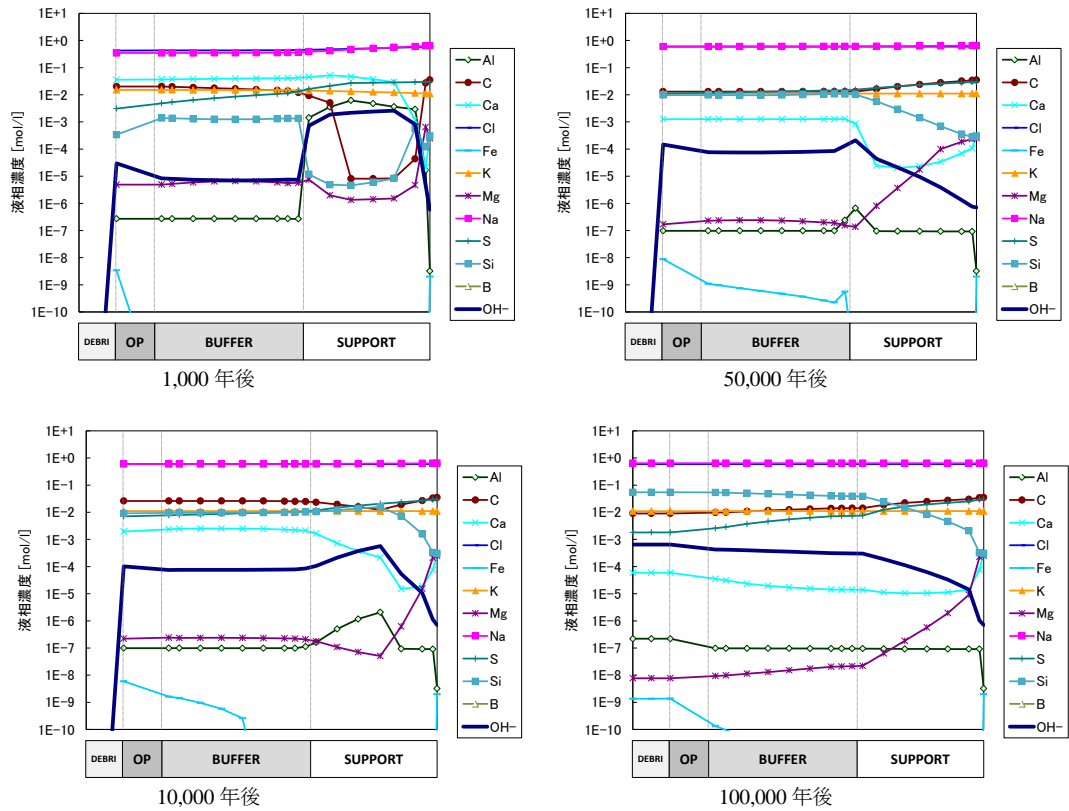


図 App. II . A-51 全領域における液相空間分布 (ケース 17)

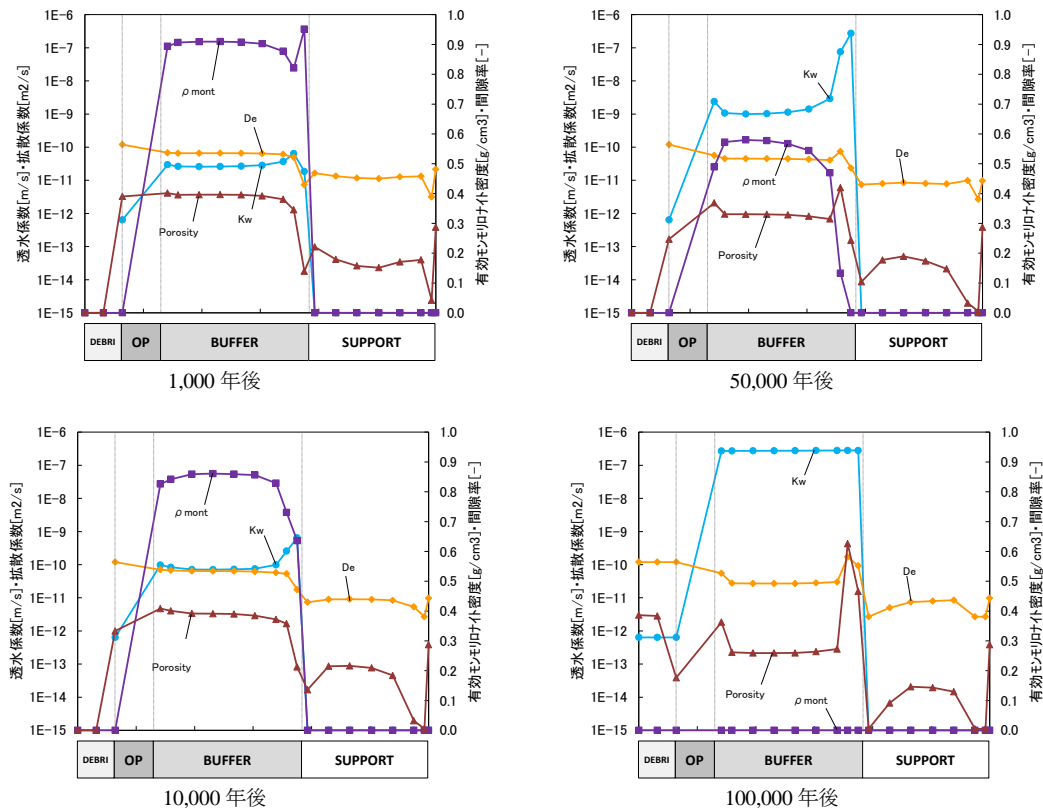
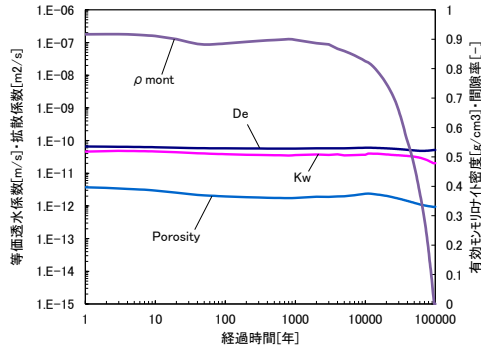
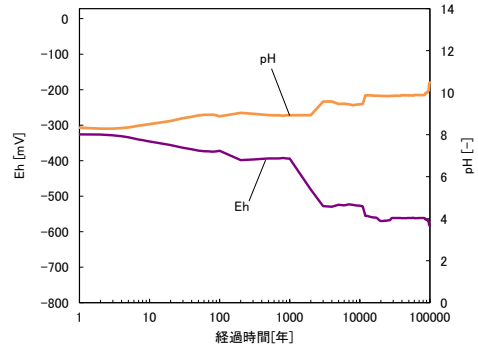


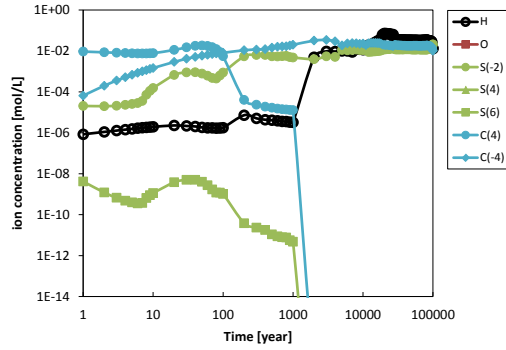
図 App. II . A-52 全領域における Kw · De · ρ_m · Eps 空間分布 (ケース 17)



透水係数・拡散係数・有効モリトト密度・間隙率

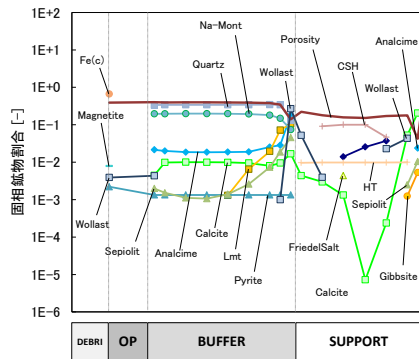


酸化還元電位・pH

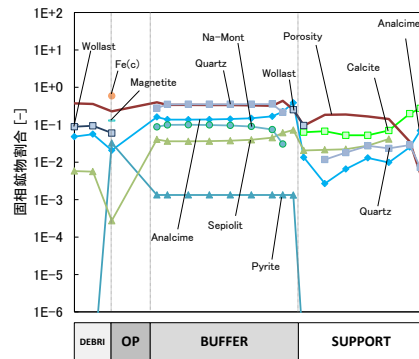


炭素種・硫黄種・溶存水素・溶存酸素濃度

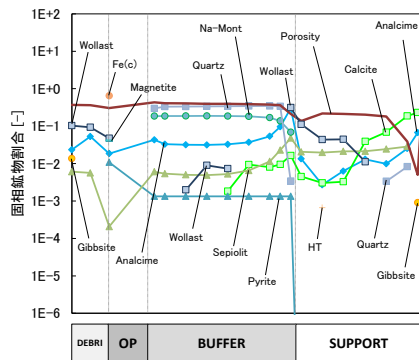
図 App. II. A-53 緩衝材領域における経時変化 (ケース 18)



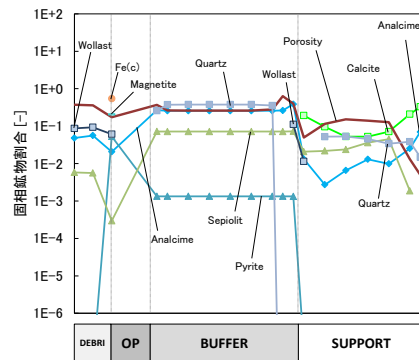
1,000 年後



50,000 年後



10,000 年後



100,000 年後

図 App. II. A-54 全領域における固相空間分布 (ケース 18)

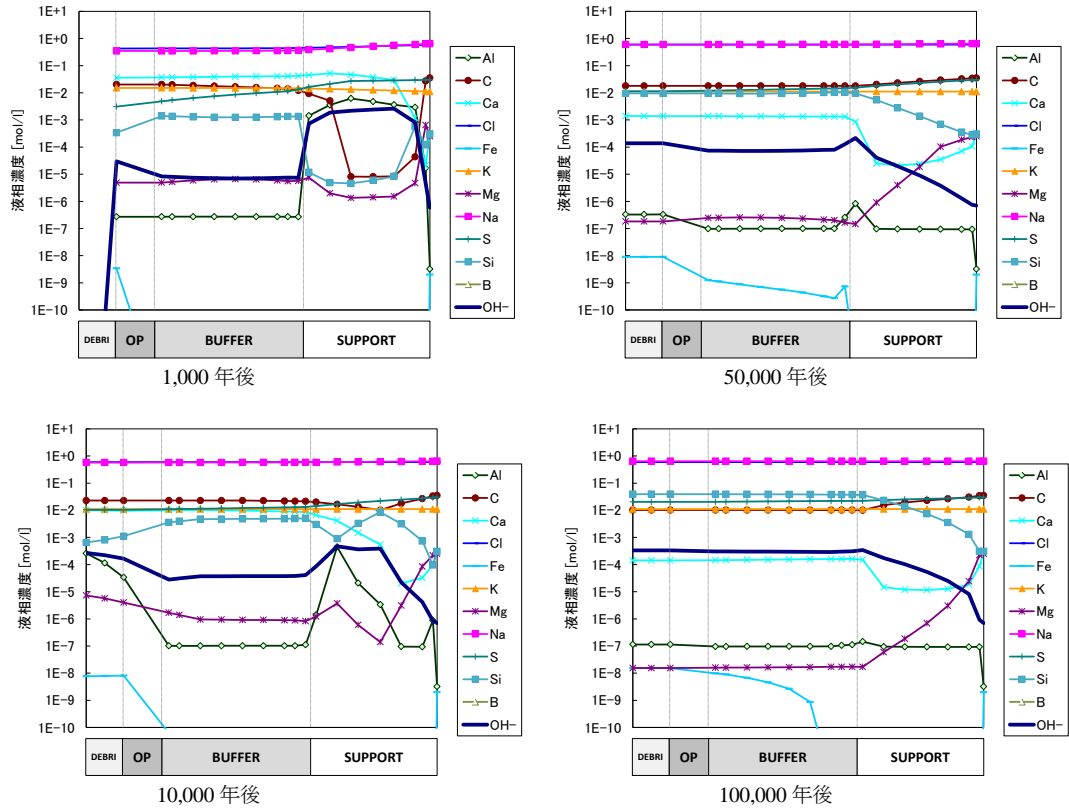


図 App. II . A-55 全領域における液相空間分布 (ケース 18)

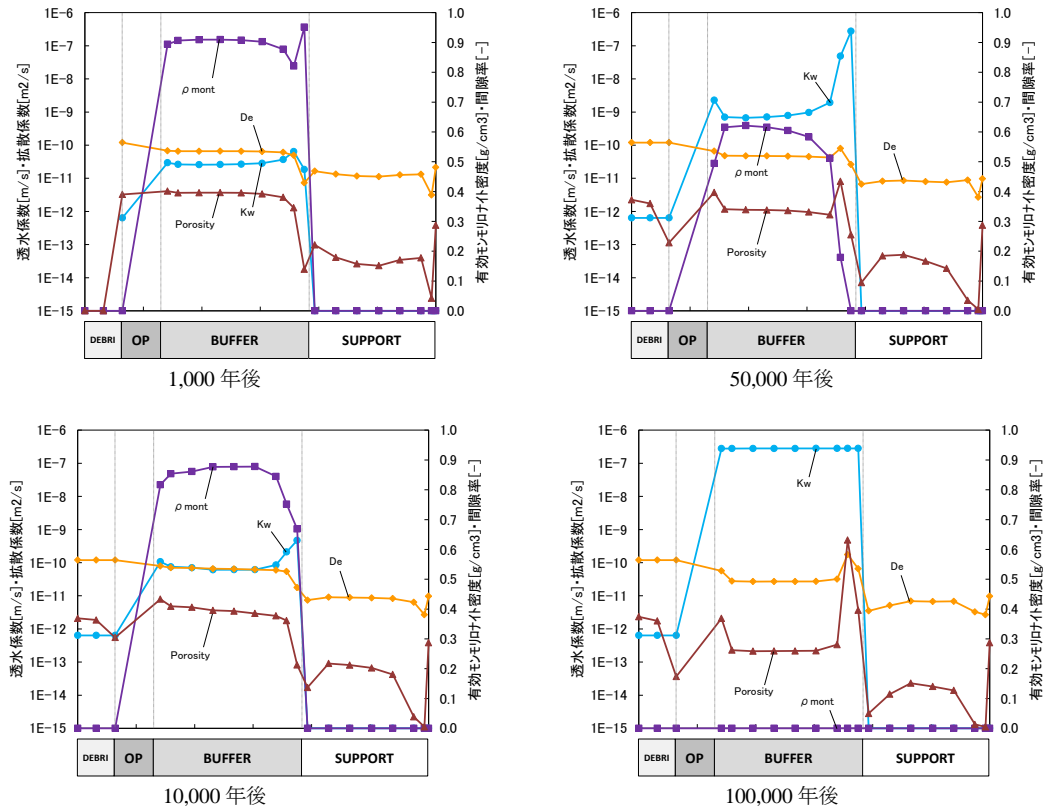
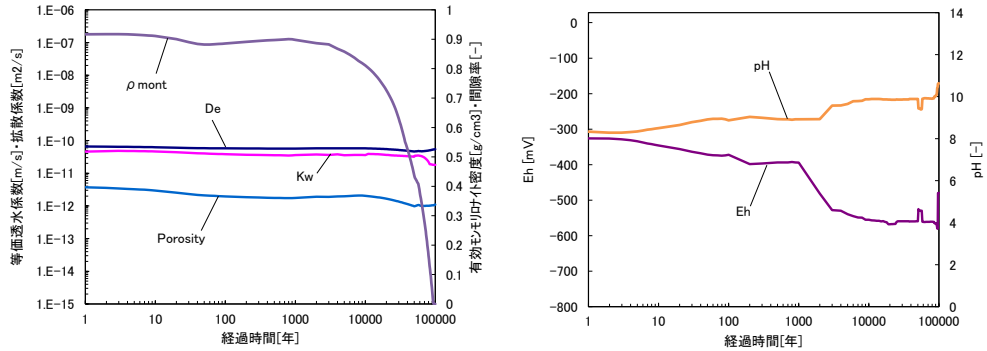
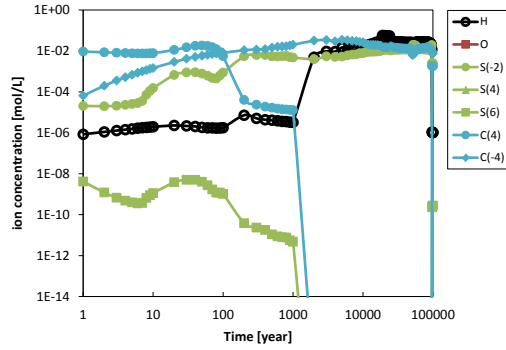


図 App. II . A-56 全領域における Kw · De · ρ_m · Eps 空間分布 (ケース 18)



透水係数・拡散係数・有効モリヤト密度・間隙率

酸化還元電位・pH



炭素種・硫黄種・溶存水素・溶存酸素濃度

図 App. II. A-57 緩衝材領域における経時変化 (ケース 19)

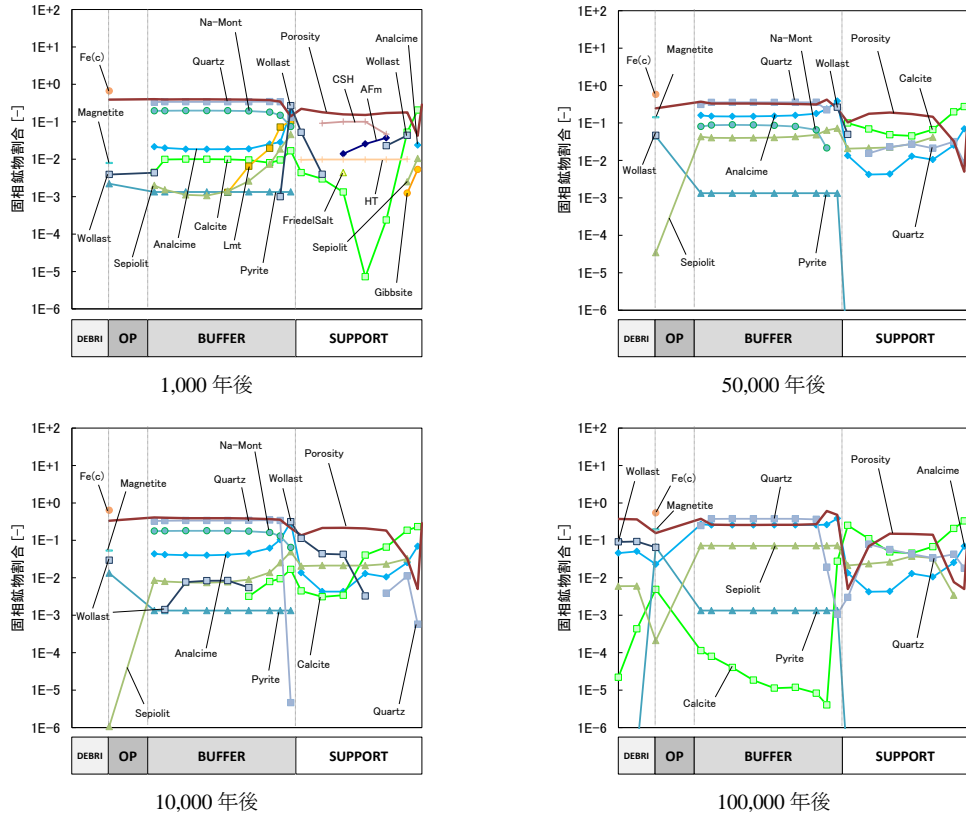


図 App. II. A-58 全領域における固相空間分布 (ケース 19)

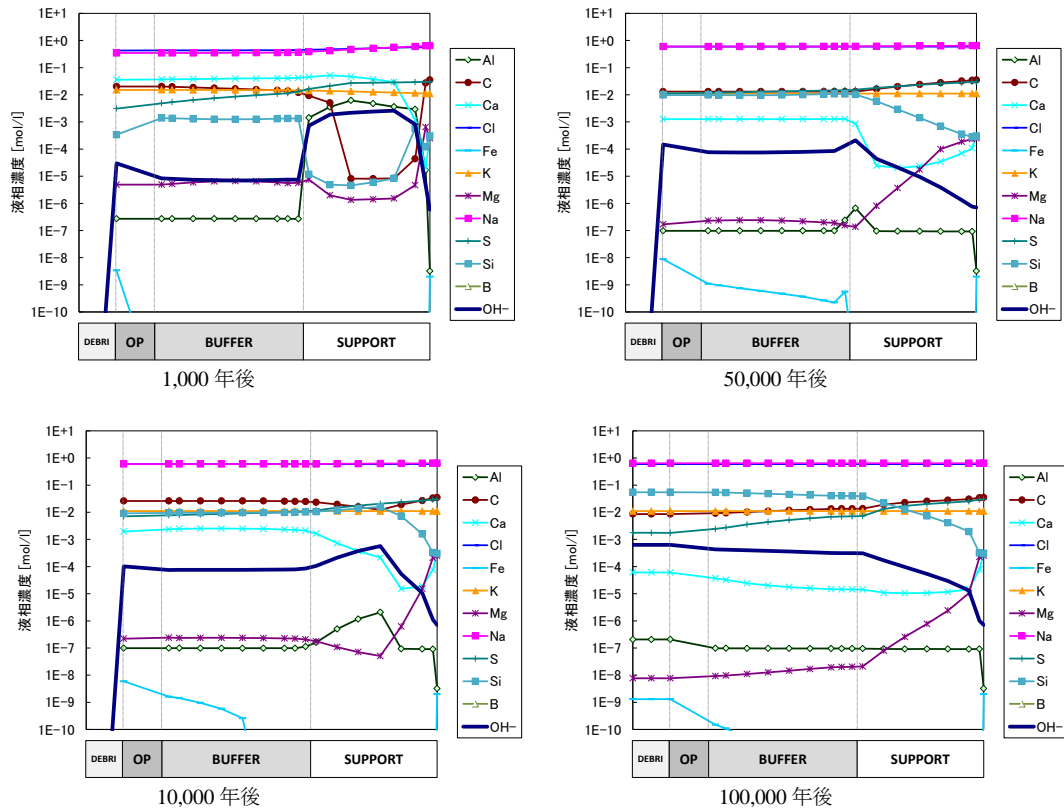


図 App. II . A-59 全領域における液相空間分布 (ケース 19)

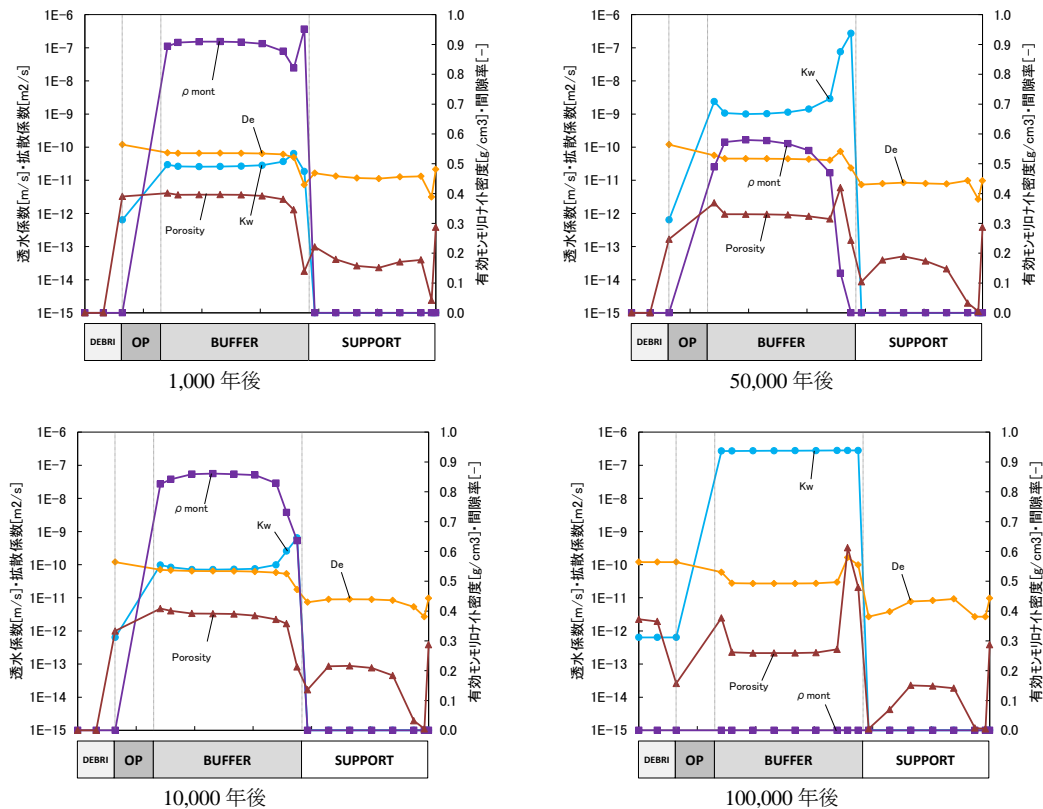
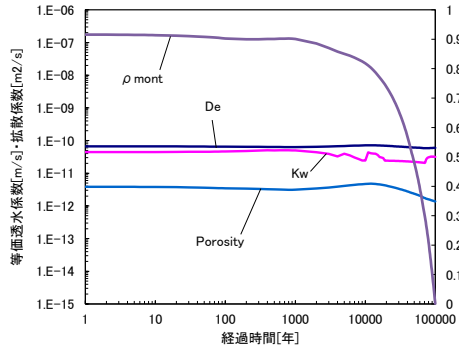
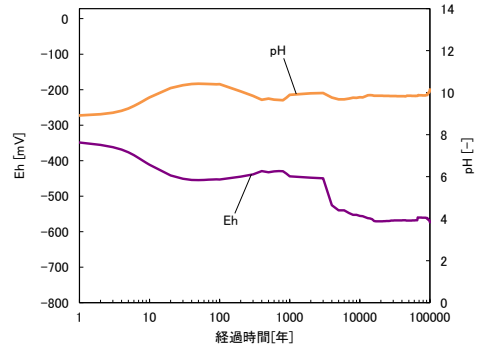


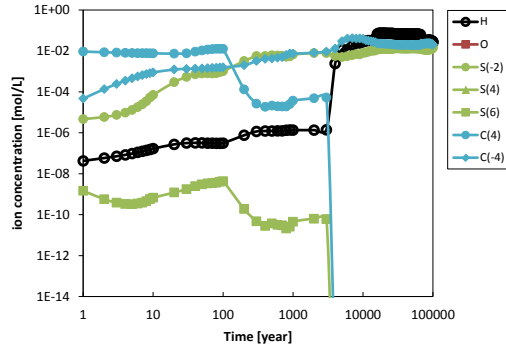
図 App. II . A-60 全領域における Kw · De · ρ_m · Eps 空間分布 (ケース 19)



透水係数・拡散係数・有効ポロシティ密度・間隙率

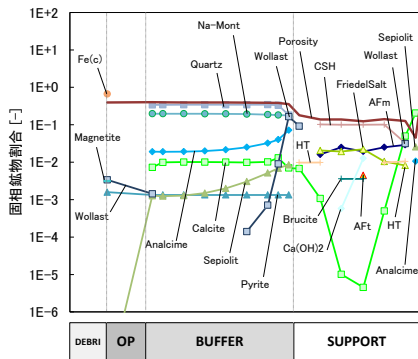


酸化還元電位・pH

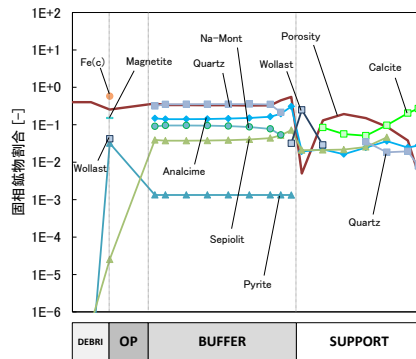


炭素種・硫黄種・溶存水素・溶存酸素濃度

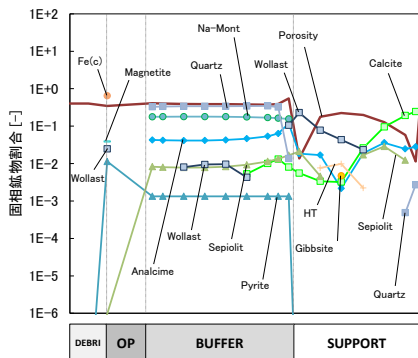
図 App. II. A-61 緩衝材領域における経時変化 (ケース 20)



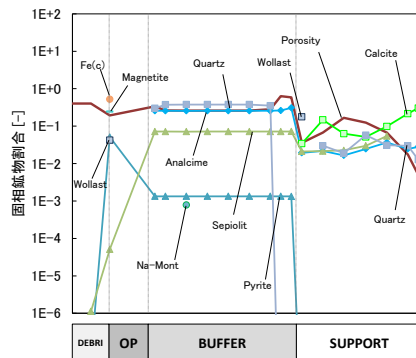
1,000 年後



50,000 年後



10,000 年後



100,000 年後

図 App. II. A-62 全領域における固相空間分布 (ケース 20)

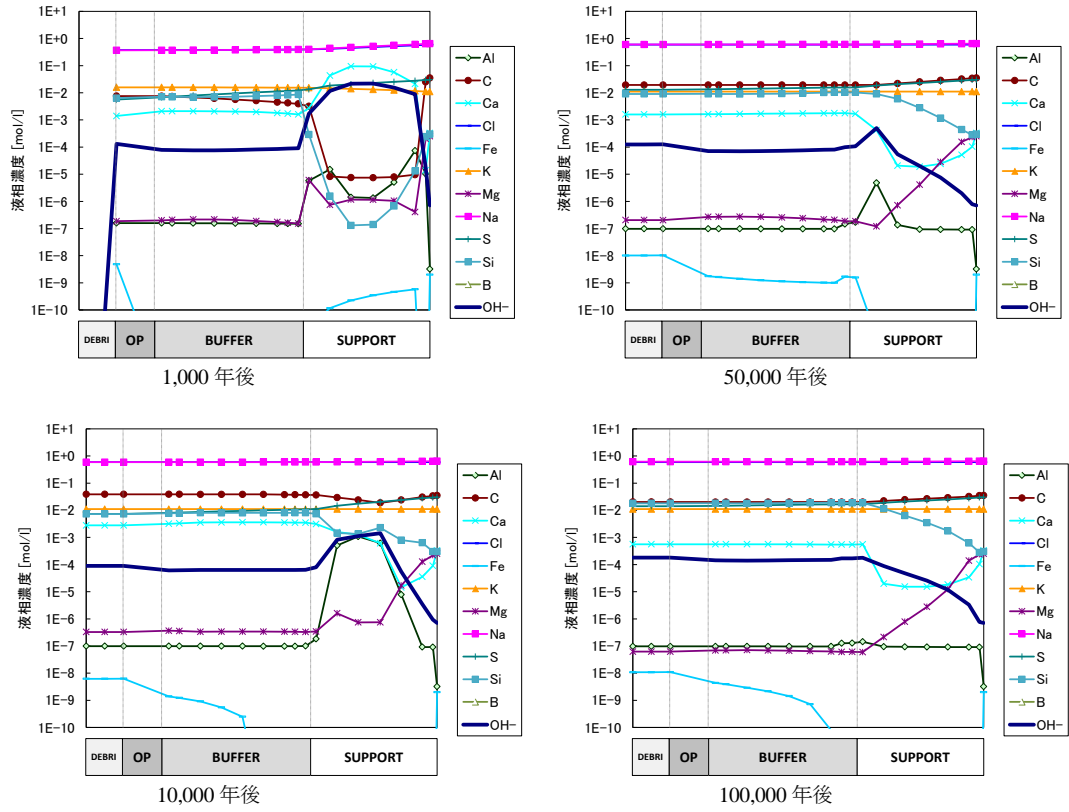


図 App. II . A-63 全領域における液相空間分布 (ケース 20)

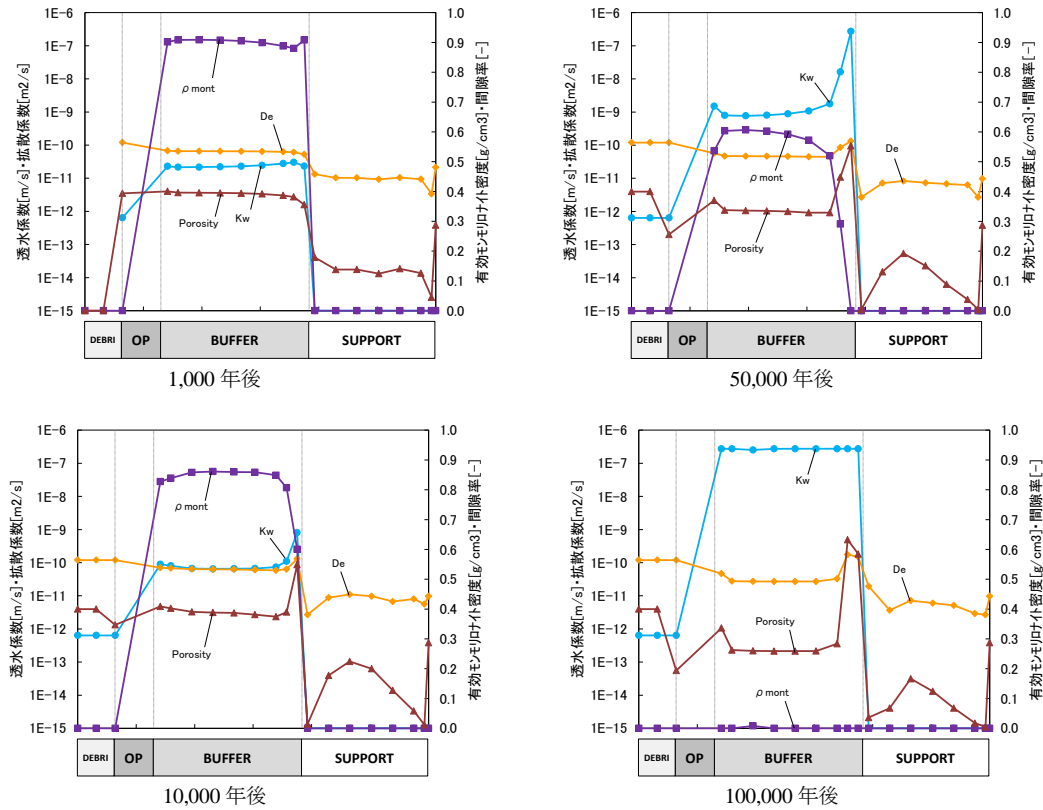
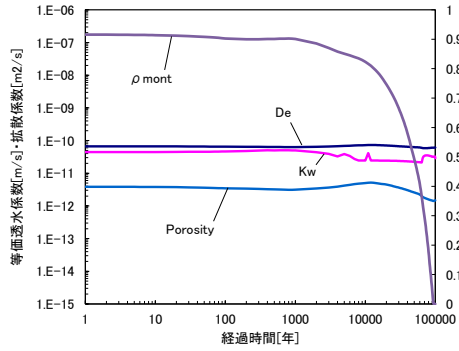
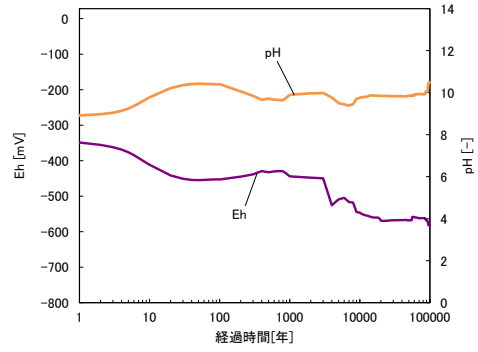


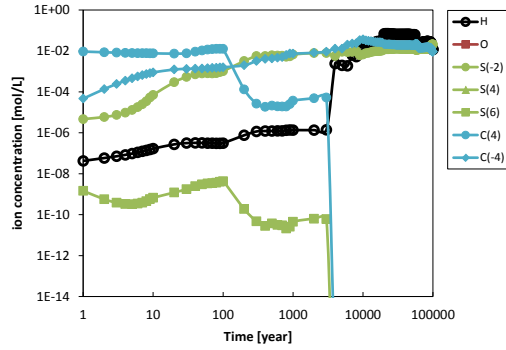
図 App. II . A-64 全領域における Kw · De · ρ_m · Eps 空間分布 (ケース 20)



透水係数・拡散係数・有効モリトト密度・間隙率

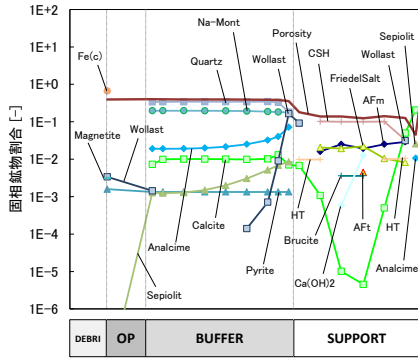


酸化還元電位・pH

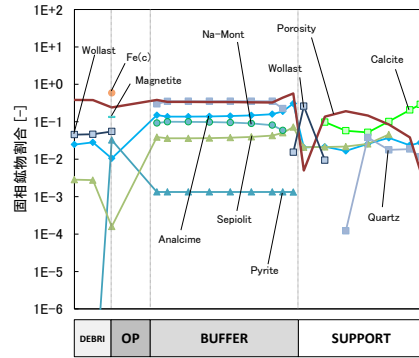


炭素種・硫黄種・溶存水素・溶存酸素濃度

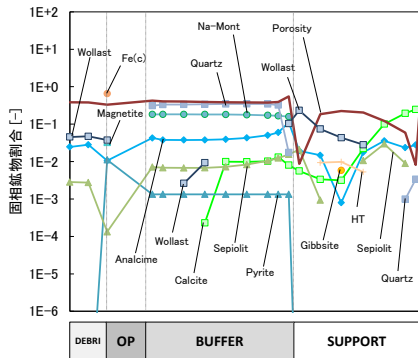
図 App. II . A-65 緩衝材領域における経時変化 (ケース 22)



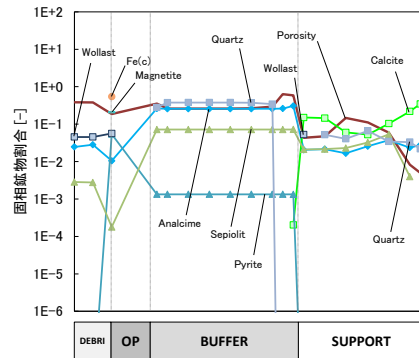
1,000 年後



50,000 年後



10,000 年後



100,000 年後

図 App. II . A-66 全領域における固相空間分布 (ケース 22)

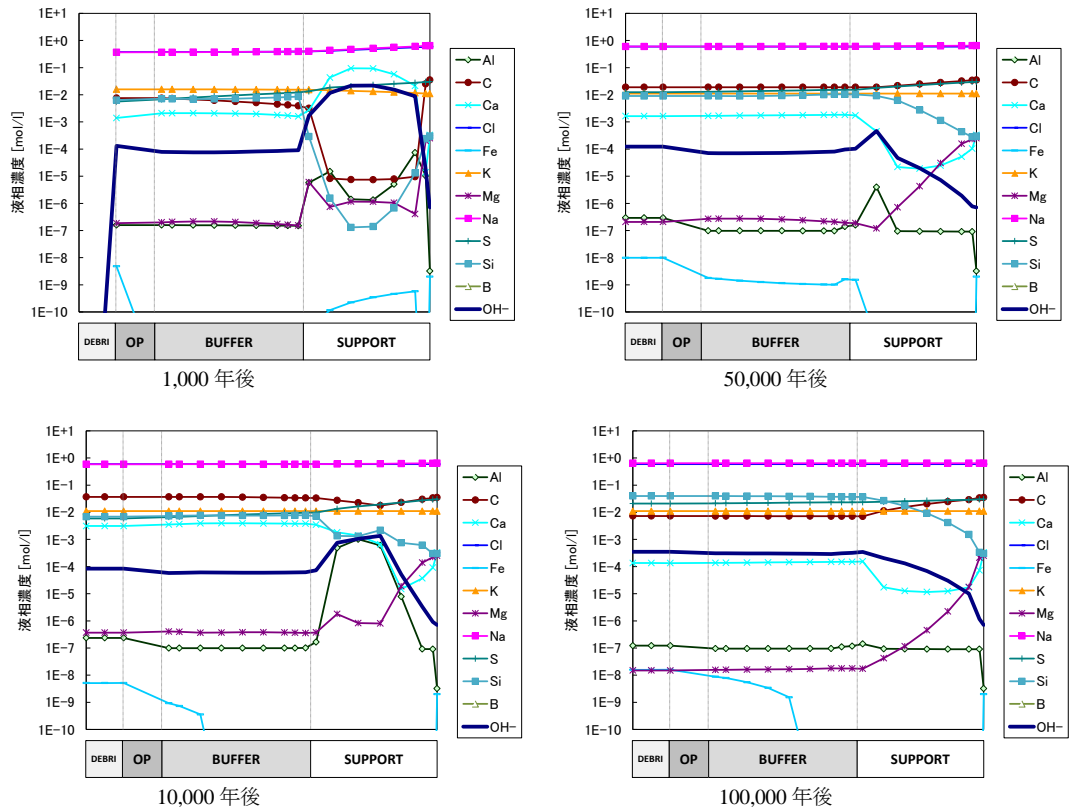


図 App. II . A-67 全領域における液相空間分布 (ケース 22)

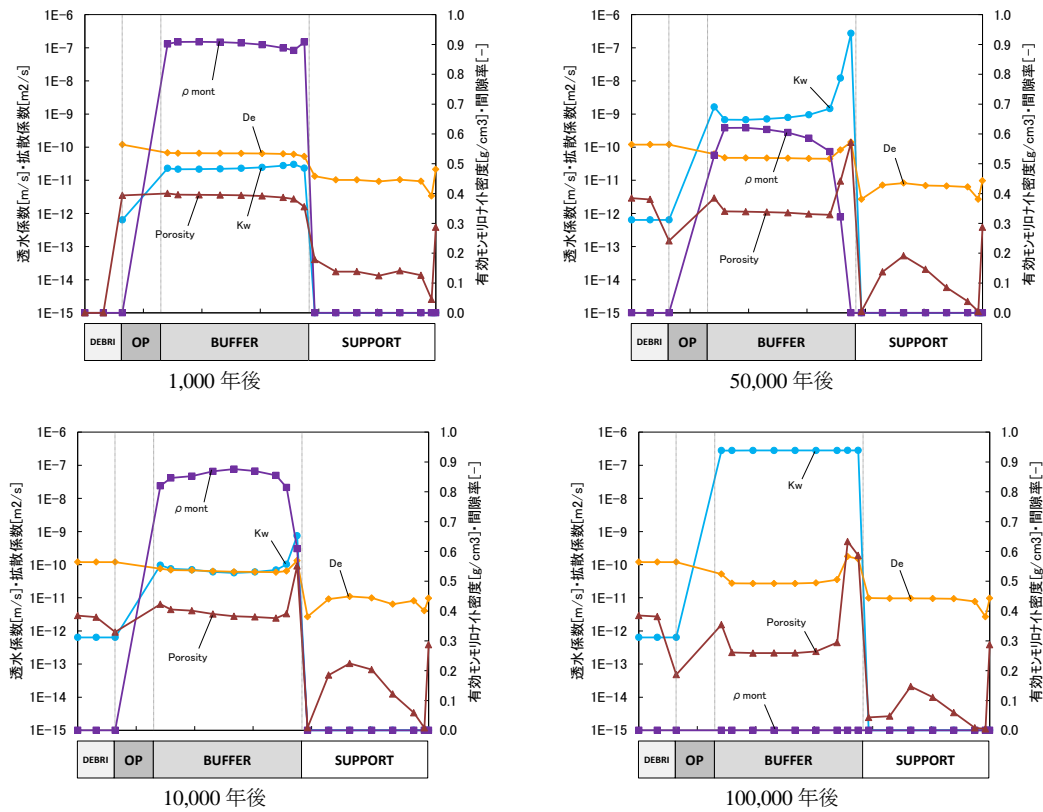
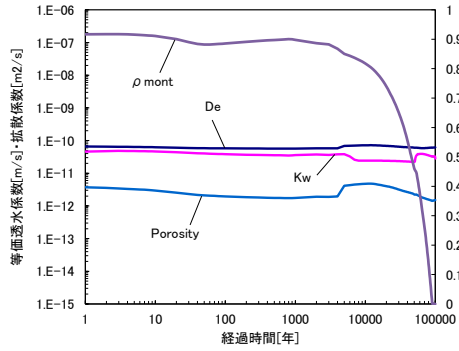
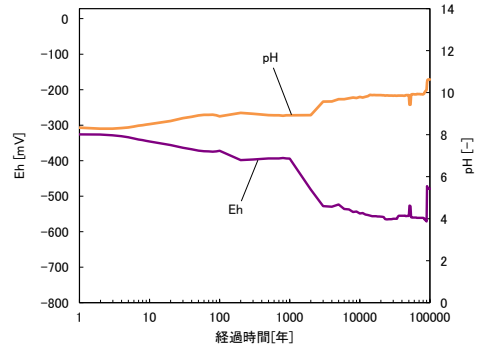


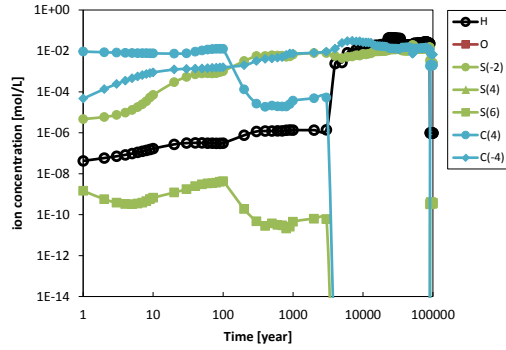
図 App. II . A-68 全領域における Kw · De · ρ_m · Eps 空間分布 (ケース 22)



透水係数・拡散係数・有効モリト密度・間隙率

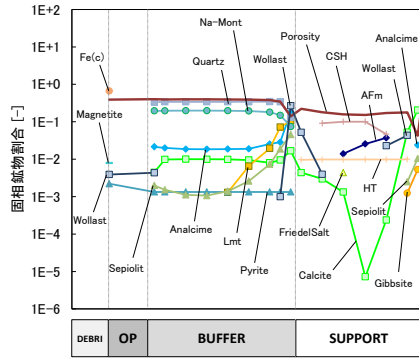


酸化還元電位・pH

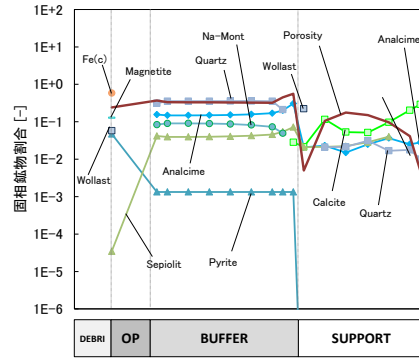


炭素種・硫黄種・溶存水素・溶存酸素濃度

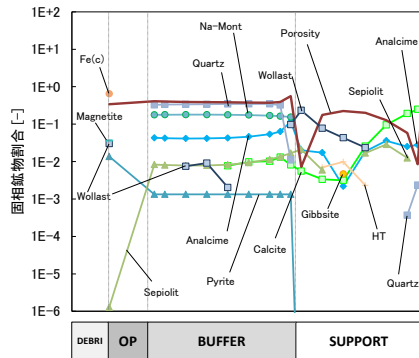
図 App. II. A-69 緩衝材領域における経時変化 (ケース 23)



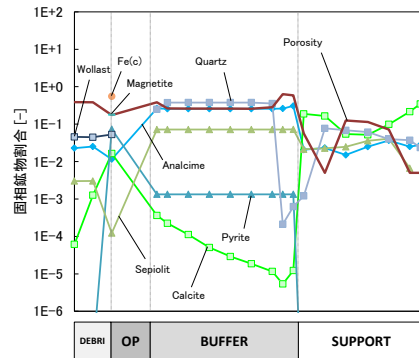
1,000 年後



50,000 年後



10,000 年後



100,000 年後

図 App. II. A-70 全領域における固相空間分布 (ケース 23)

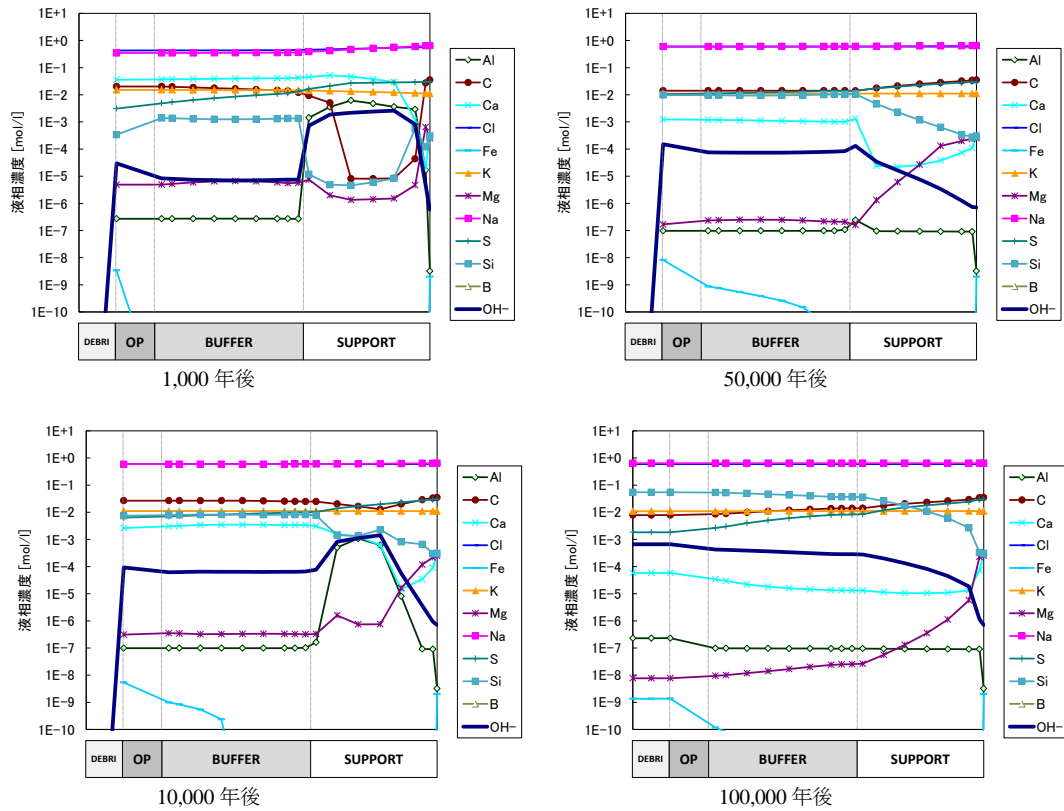


図 App. II . A-71 全領域における液相空間分布 (ケース 23)

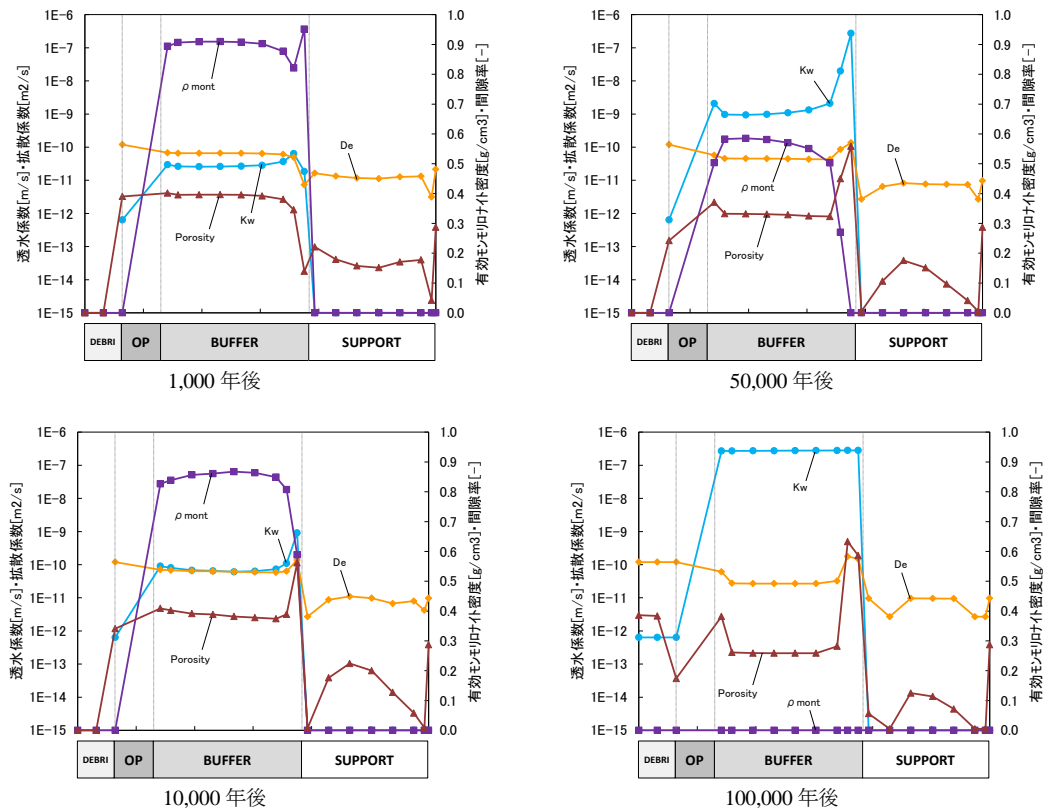
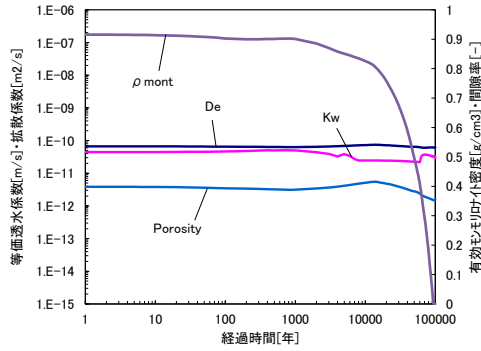
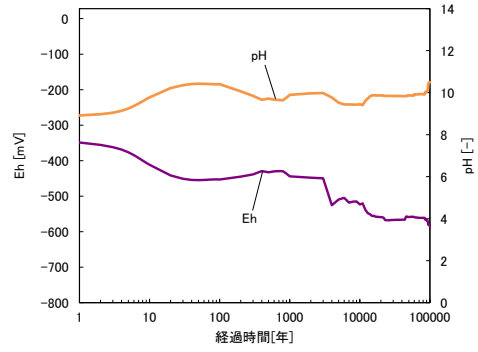


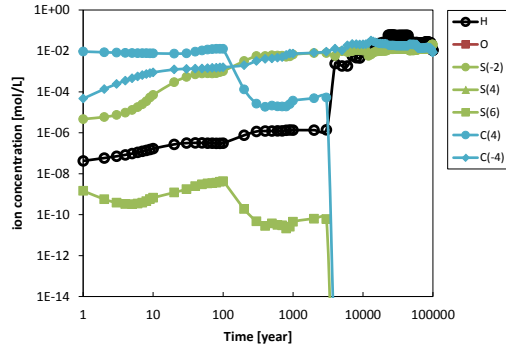
図 App. II . A-72 全領域における Kw · De · ρ_m · Eps 空間分布 (ケース 23)



透水係数・拡散係数・有効モリヤト密度・間隙率

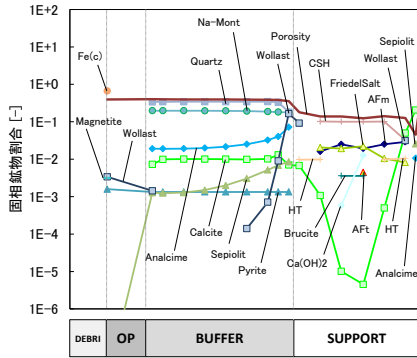


酸化還元電位・pH

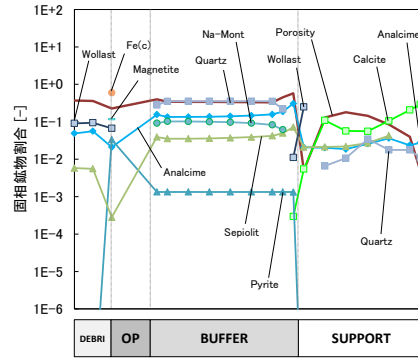


炭素種・硫黄種・溶存水素・溶存酸素濃度

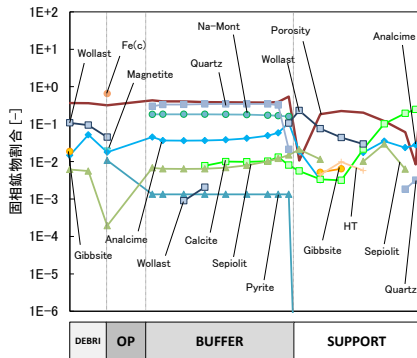
図 App. II. A-73 緩衝材領域における経時変化 (ケース 24)



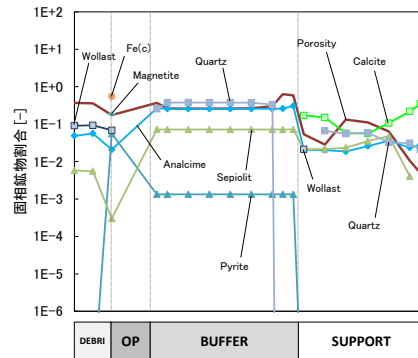
1,000 年後



50,000 年後



10,000 年後



100,000 年後

図 App. II. A-74 全領域における固相空間分布 (ケース 24)

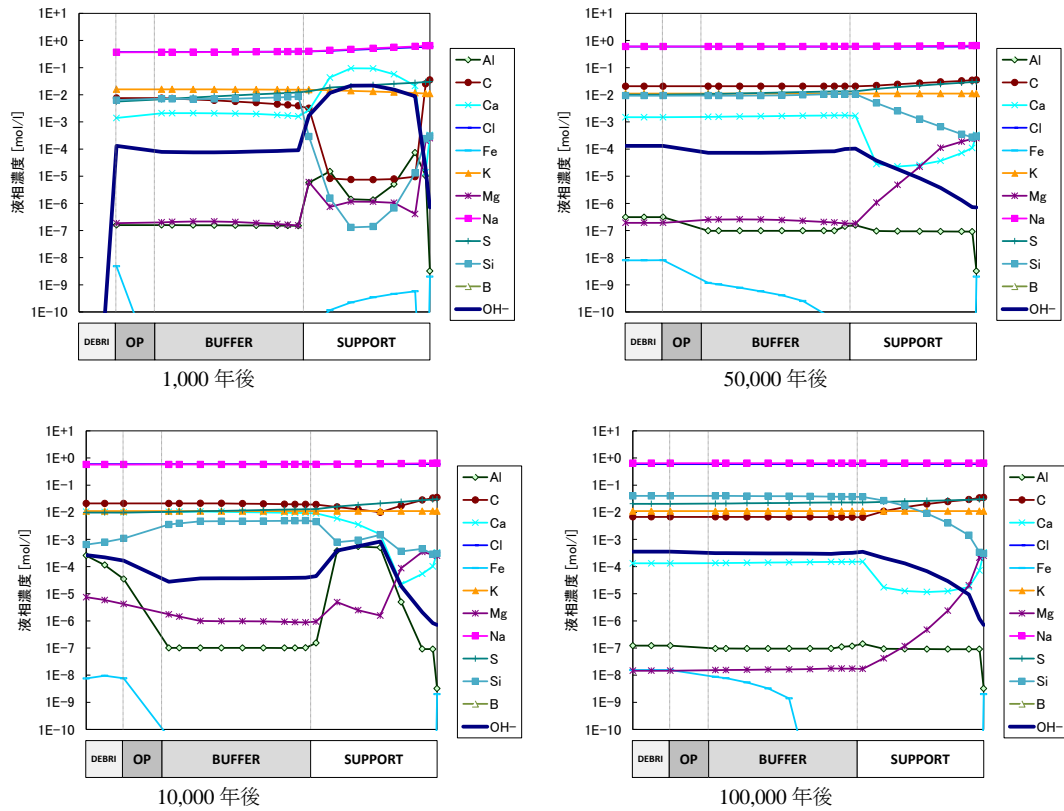


図 App. II . A-75 全領域における液相空間分布 (ケース 24)

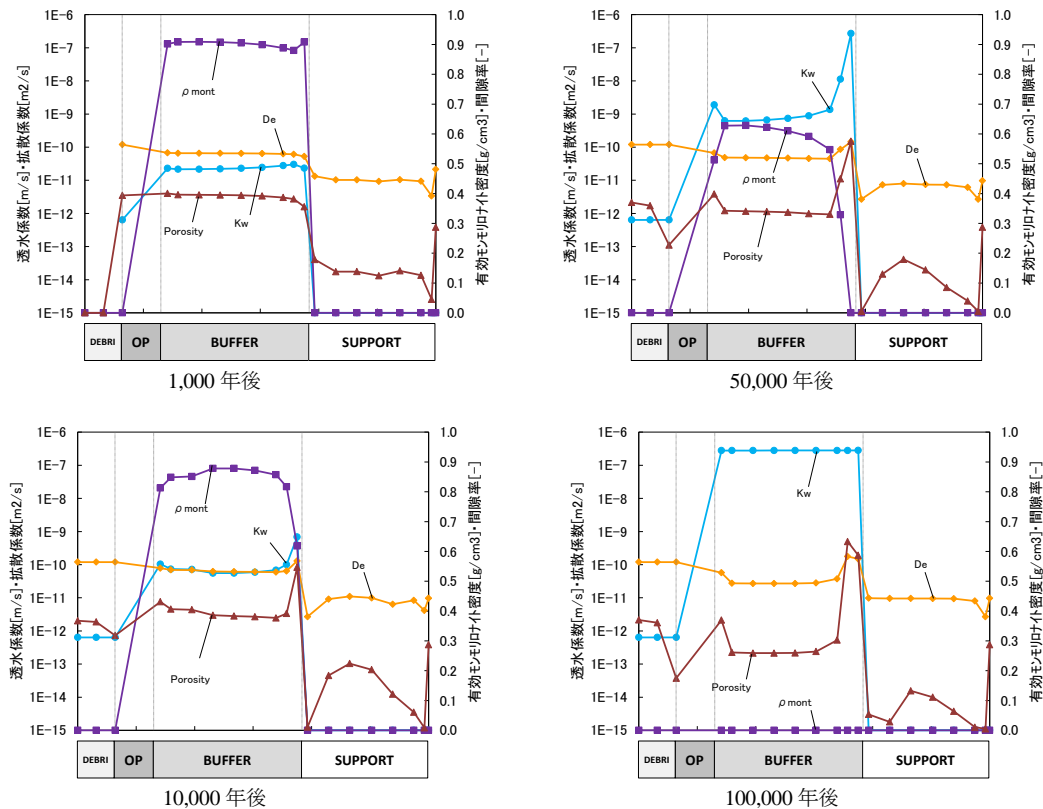
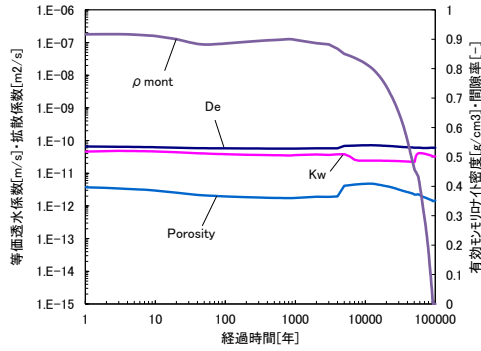
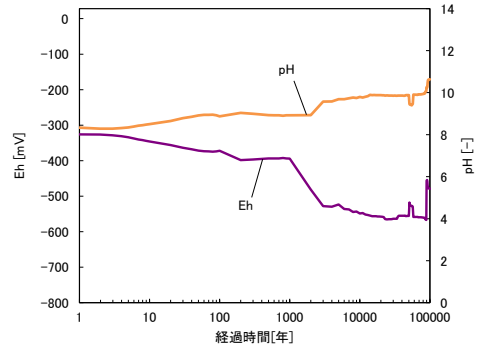


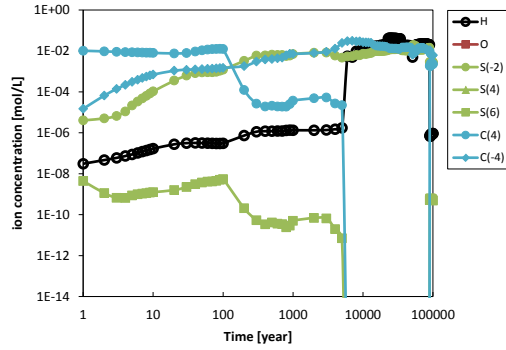
図 App. II . A-76 全領域における Kw · De · ρ_m · Eps 空間分布 (ケース 24)



透水係数・拡散係数・有効モリッホ密度・間隙率

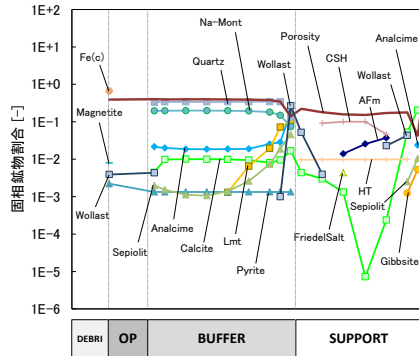


酸化還元電位・pH

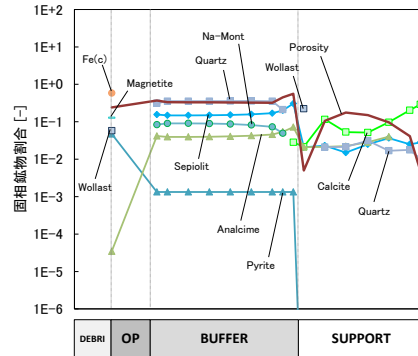


炭素種・硫黄種・溶存水素・溶存酸素濃度

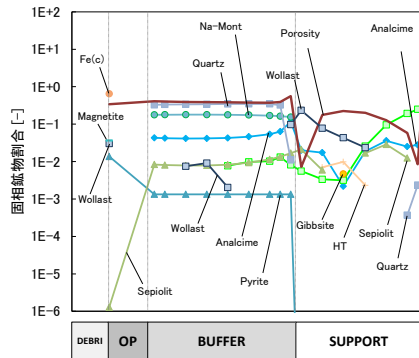
図 App. II. A-77 緩衝材領域における経時変化 (ケース 25)



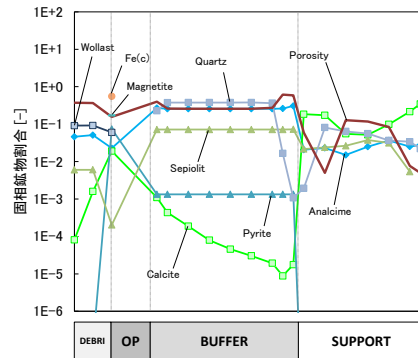
1,000 年後



50,000 年後



10,000 年後



100,000 年後

図 App. II. A-78 全領域における固相空間分布 (ケース 25)

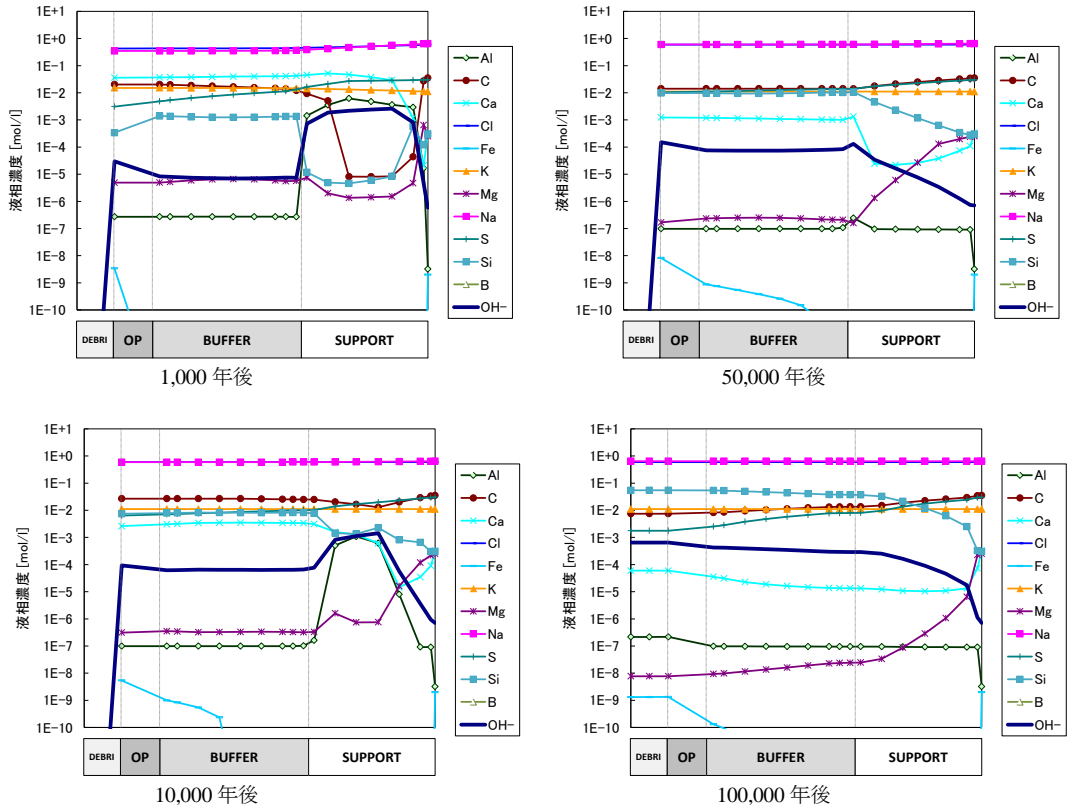


図 App. II . A-79 全領域における液相空間分布 (ケース 25)

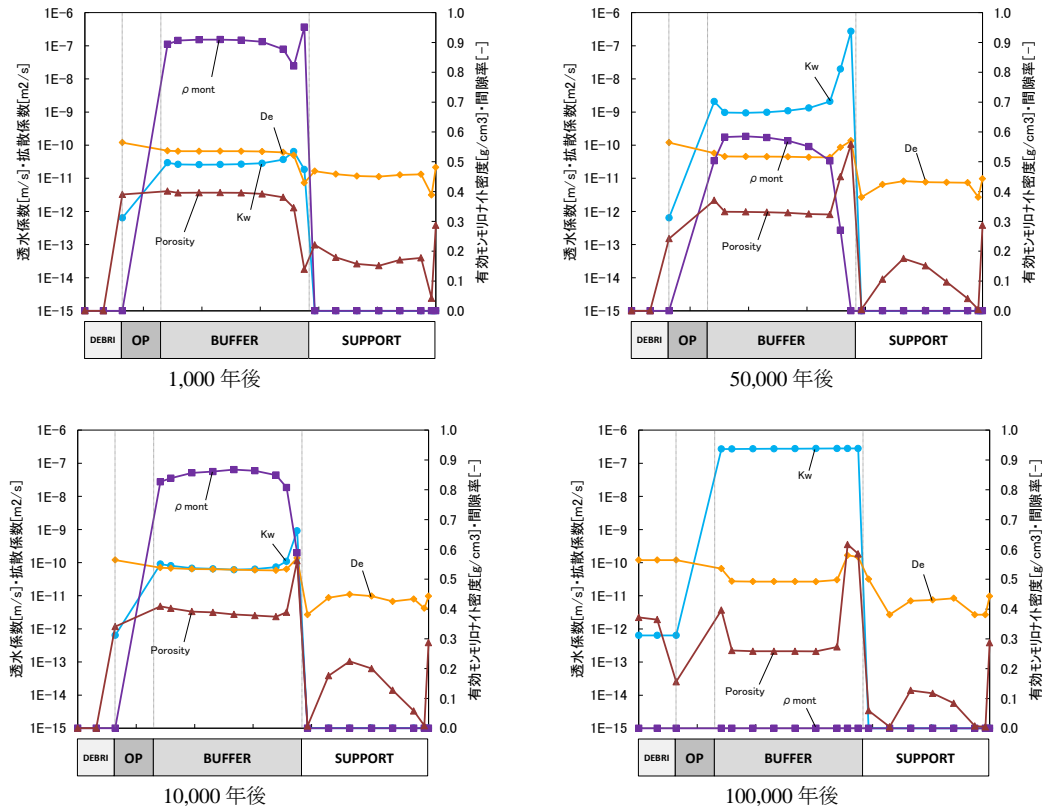


図 App. II . A-80 全領域における Kw · De · ρ_m · Eps 空間分布 (ケース 25)

II-B 海水準変動と隆起・侵食を組み合わせたシナリオを対象とした安全評価

II-B-1 核種移行解析で用いた移行経路

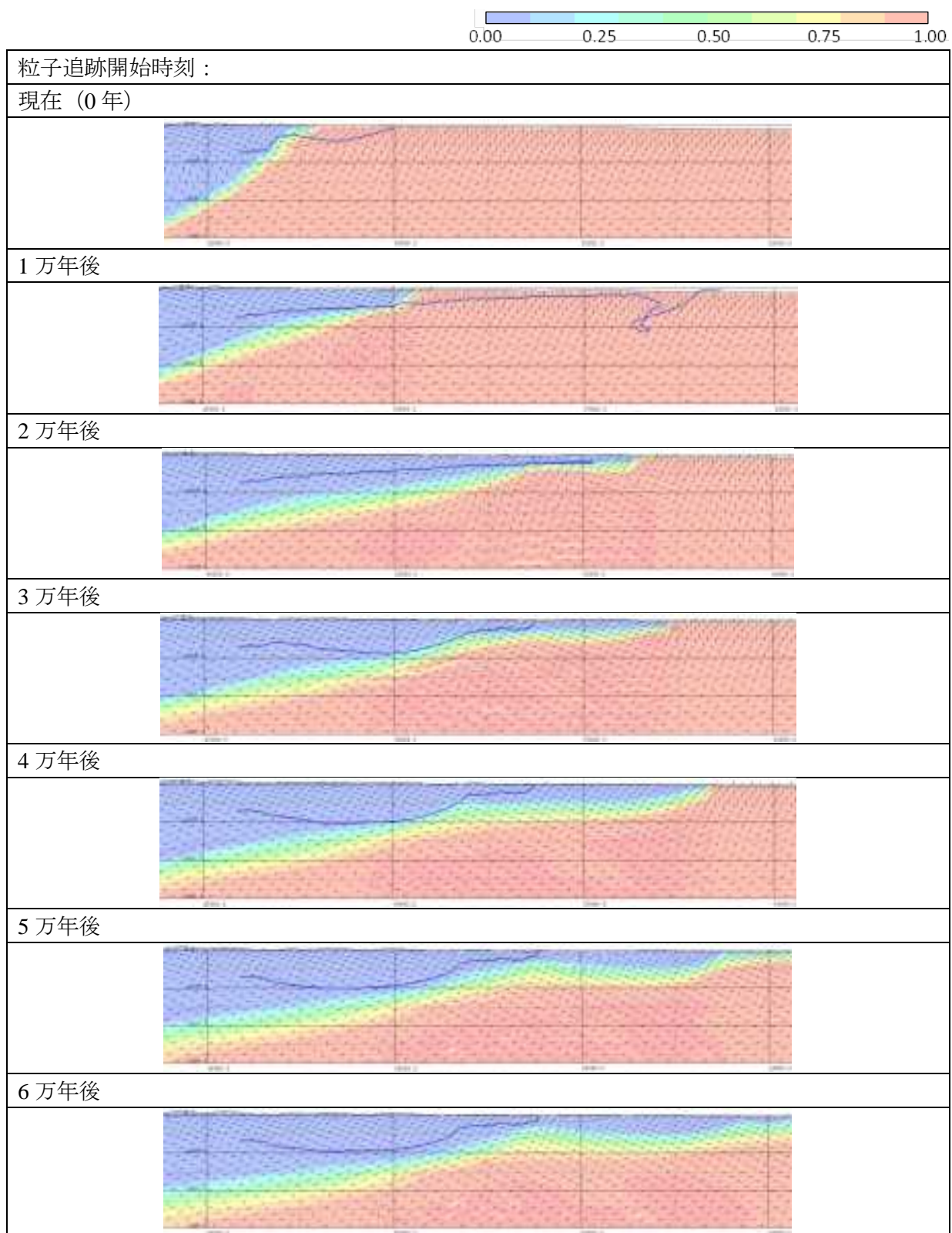


図 App. II. B-1 処分場からの移行経路 (1 / 2) (急峻モデル：陸側 (深度 800m)、背景：塩分濃度分布)

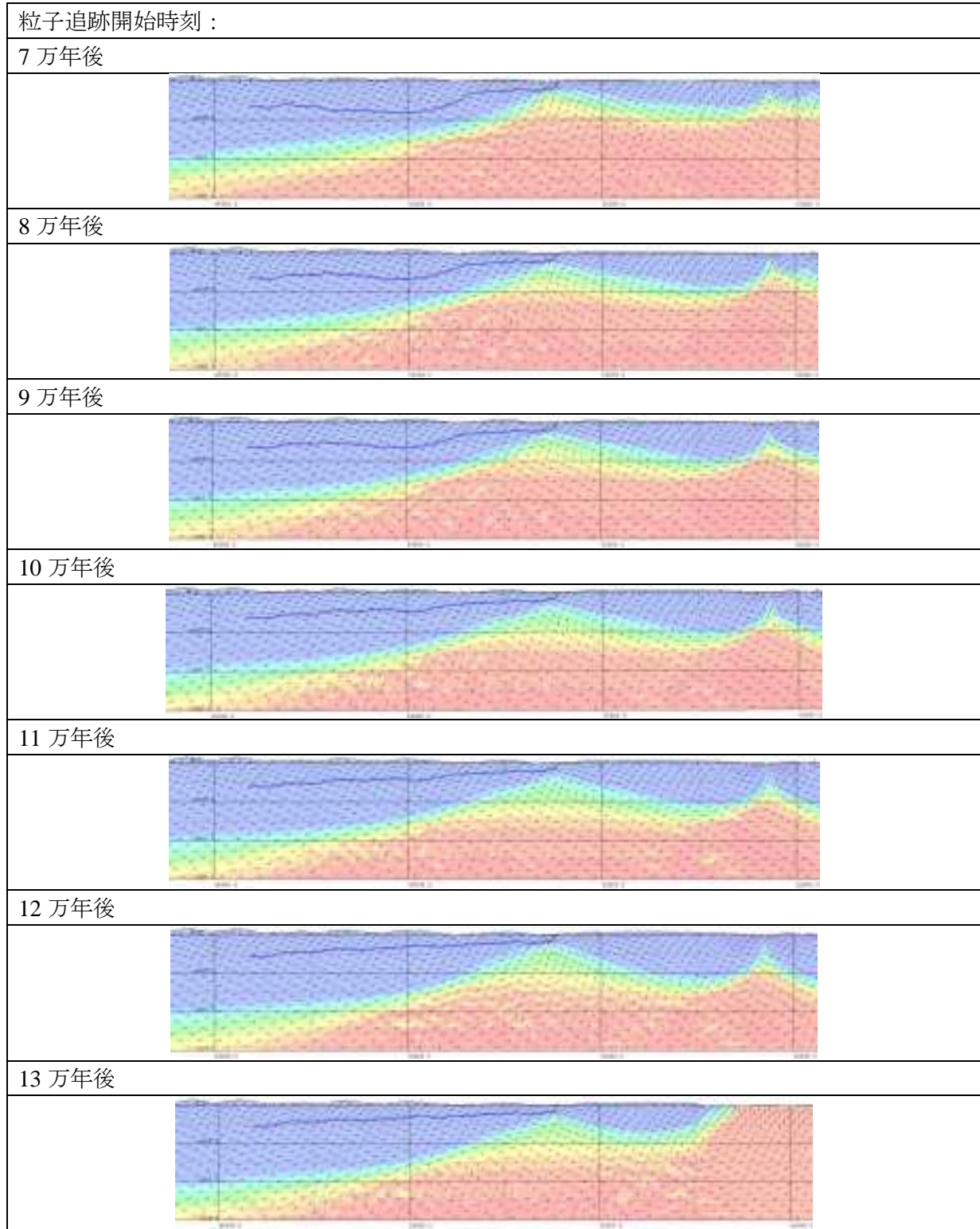
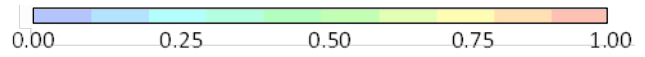


図 App. II. B-2 処分場からの移行経路 (1 / 2) (急峻モデル：陸側 (深度 800m)、背景：塩分濃度分布)

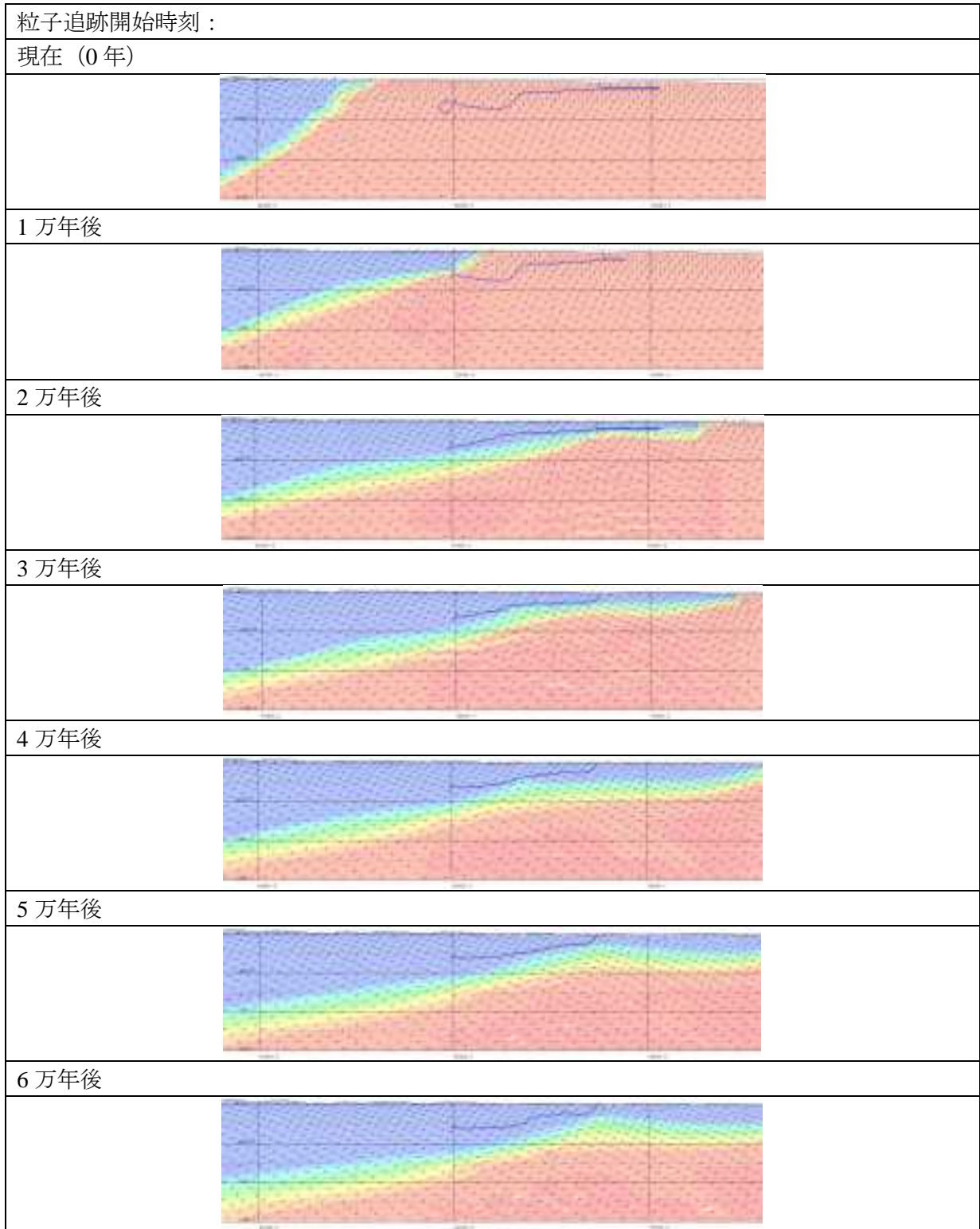
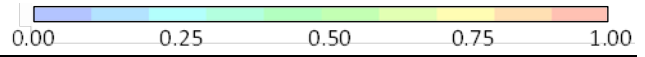


図 App. II. B-3 処分場からの移行経路 (1 / 2) (急峻モデル : 海側 (深度 700m)、背景 : 塩分濃度分布)

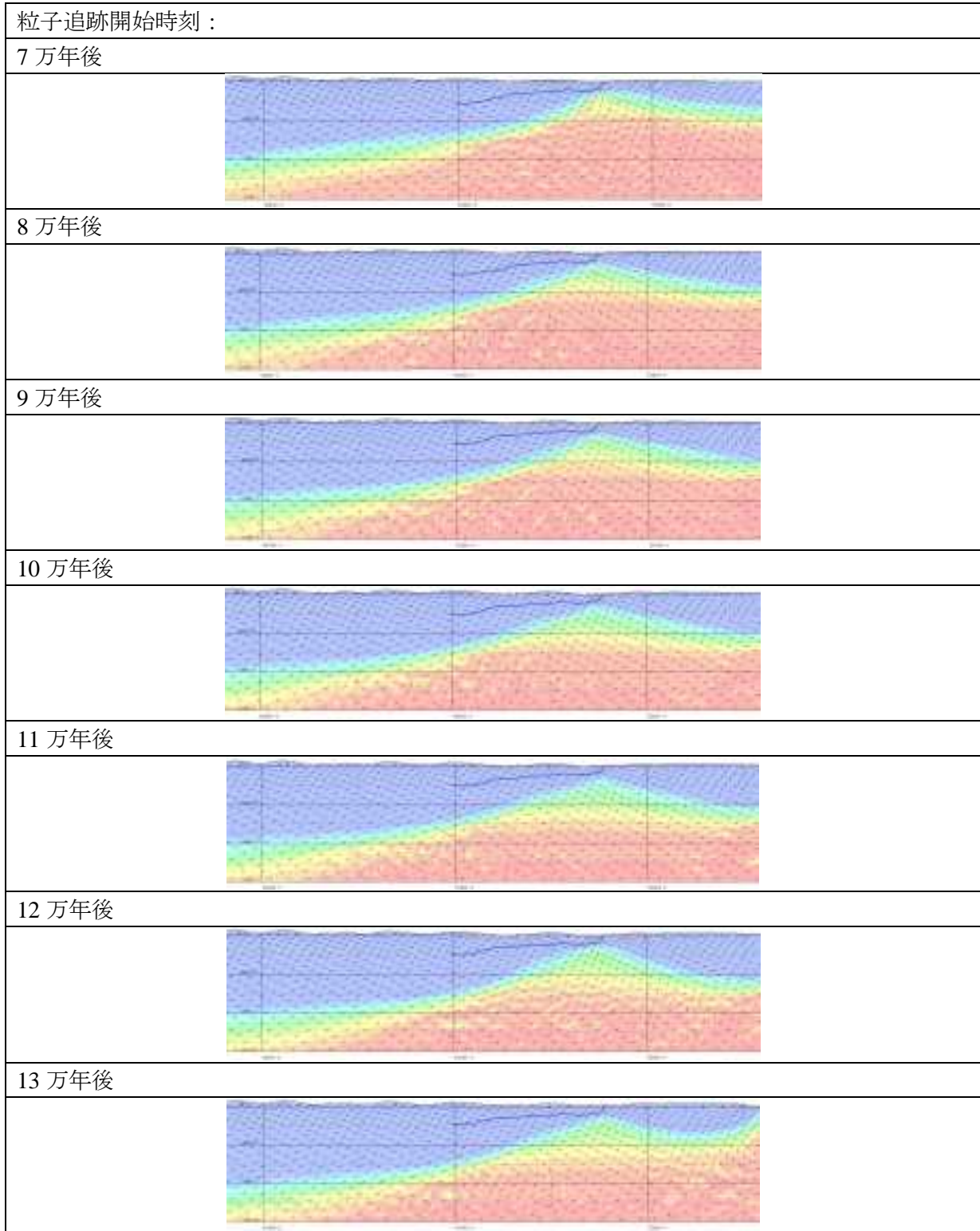
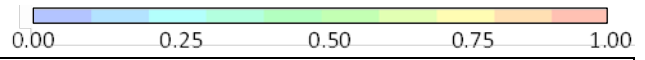


図 App. II. B-4 処分場からの移行経路 (1 / 2) (急峻モデル：海側 (深度 700m)、背景：塩分濃度分布)

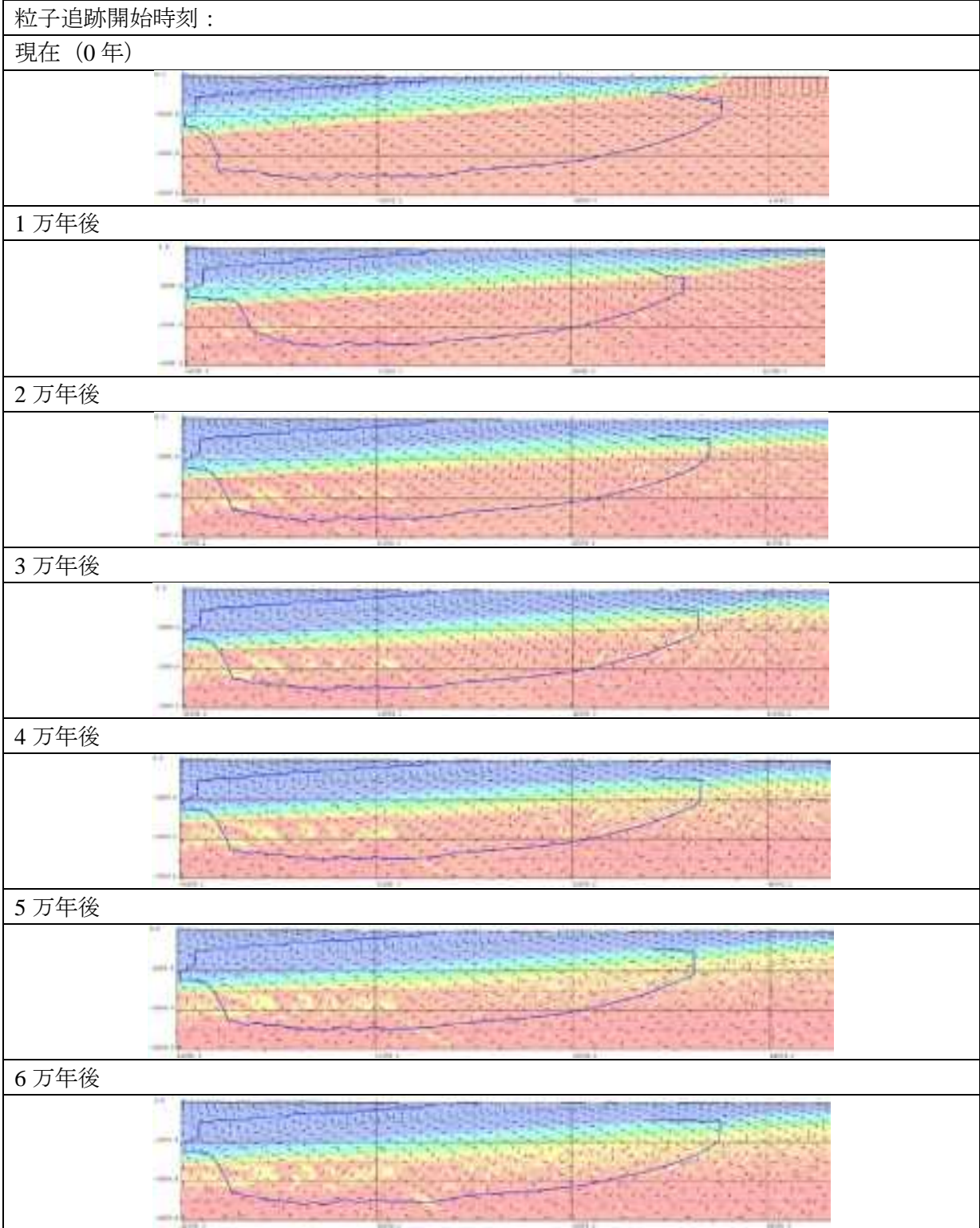
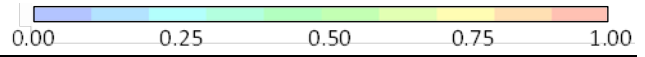


図 App. II. B-5 処分場からの移行経路 (1 / 2) (遠浅モデル：陸側 (深度 500m)、
 背景：塩分濃度分布)

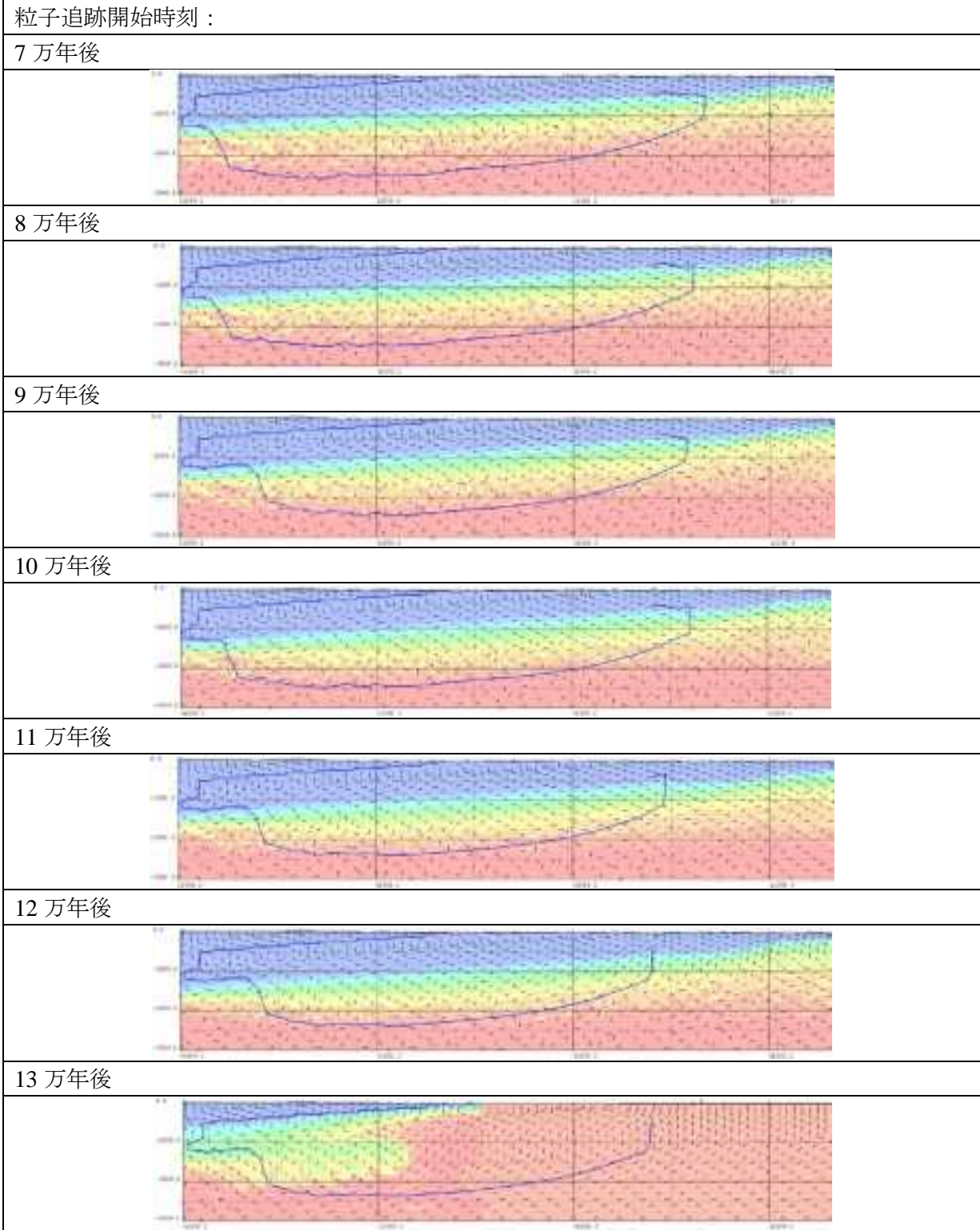
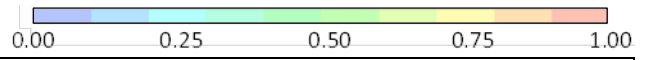


図 App. II. B-6 処分場からの移行経路 (1 / 2) (遠浅モデル：陸側 (深度 500m)、背景：塩分濃度分布)

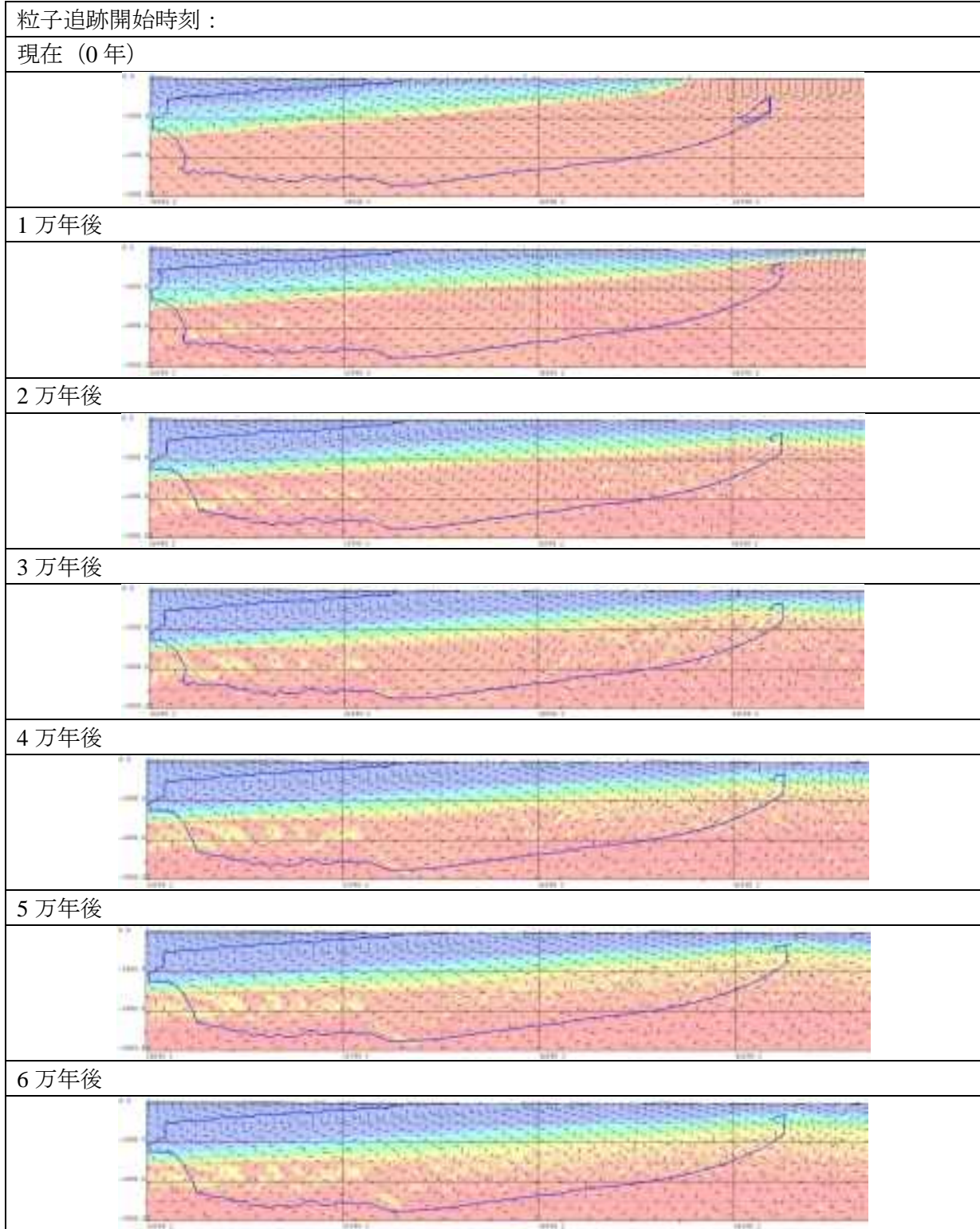
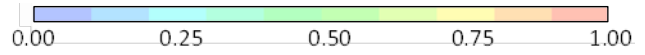


図 App. II. B-7 処分場からの移行経路 (1 / 2) (遠浅モデル：海側 (深度 500m)、背景：塩分濃度分布)

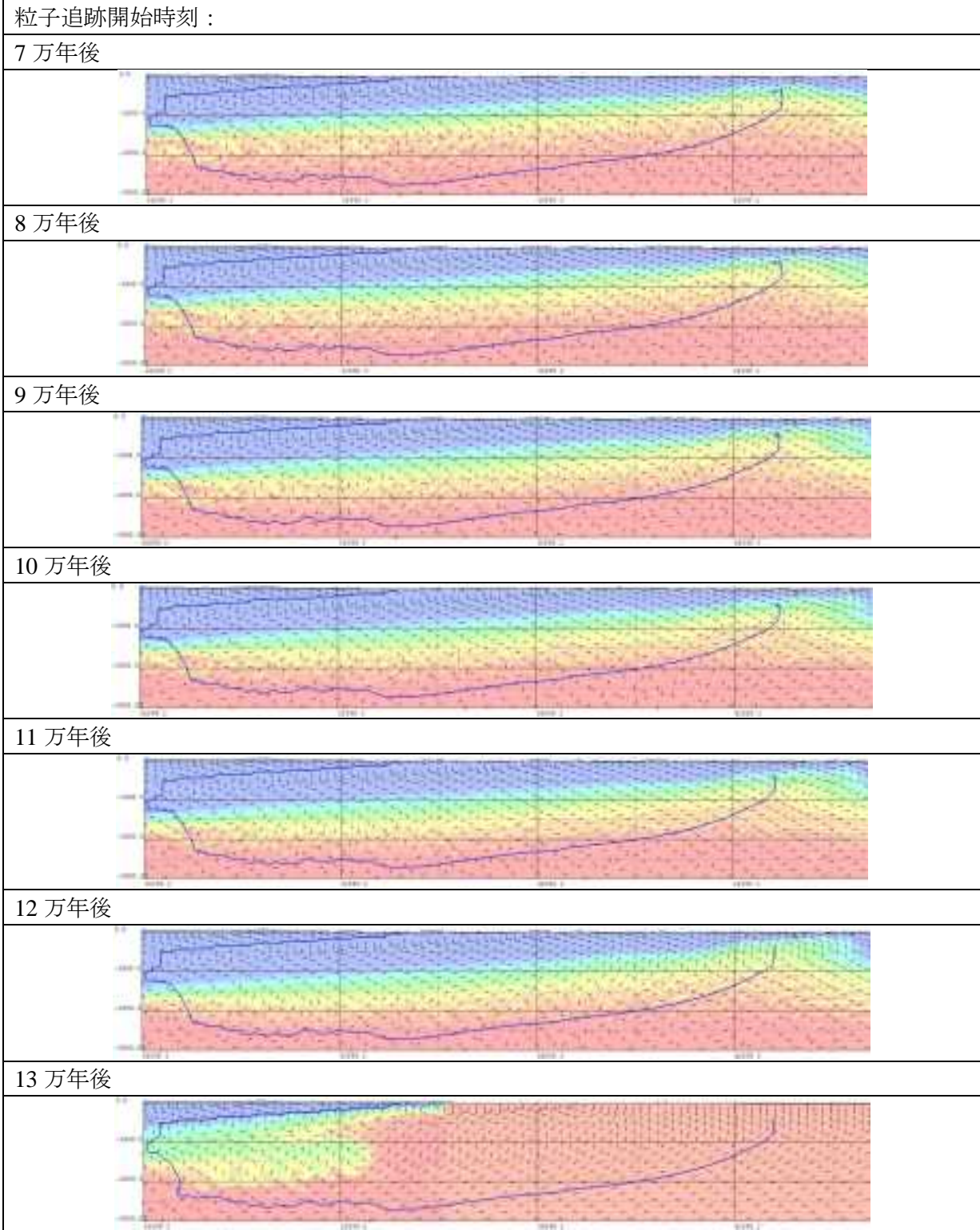
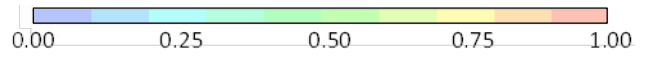


図 App. II. B-8 処分場からの移行経路 (1 / 2) (遠浅モデル：海側 (深度 500m)、背景：塩分濃度分布)

Appendix –III 検討委員会委員名簿

III-A 平成 27 年度「燃料デブリの処理・処分に関する予察的調査」検討委員会 委員名簿

III-A 平成 27 年度「燃料デブリの処理・処分に関する予察的調査」検討委員会
委員名簿

	氏名	所 属 ・ 職 位
委員長	大江 俊昭	東海大学 工学部 原子力工学科 教授
委員	稲垣 八穂広	九州大学大学院 工学研究院 エネルギー量子工学部門 准教授
〃	小崎 完	北海道大学大学院 工学研究院 エネルギー環境システム部門 教授
〃	高橋 知之	京都大学 原子炉実験所 原子力基礎工学研究部門 准教授
〃	藤本 慎司	大阪大学大学院 工学研究科 マテリアル生産科学専攻 教授
〃	山崎 晴雄	首都大学東京 大学院 都市環境科学研究科 地理環境科学域 教授

検討委員会開催日

第 1 回 平成 27 年 7 月 30 日

第 2 回 平成 28 年 1 月 22 日

第 3 回 平成 28 年 3 月 3 日