8. 安全設計の基本要件及び安全評価の基本的考え方の整理

### 8.1 はじめに

地層処分の安全評価においては、処分サイトの違いや地質・気候関連事象を考慮した地下 水環境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(核種移行解析)及びそれに基づく生物圏における被ばく量をひとつな がりで評価する必要がある。つまり、既存の研究やこれまでの検討の結果を考慮し、 人工 バリアの各評価モデルの適切なリンケージの方法、 リスク論的考え方に基づく安全評価シ ナリオとそれらの長期評価における不確実性への対応を総合的に検討し、我が国で想定され る地層処分地下環境へ適用可能な総合的な安全評価手法としての方法論の全体とりまとめ (体系的な安全評価手法の整備)閉鎖後の安全評価を対象に、我が国における地層処分シス テムの基本構成(天然バリアと人工バリアの組み合わせ)と多重安全機能としてのバリアシ ステムのあり方(安全を担保するための特性や構造)についての検討を行うことが求められ る。

平成 23 年度までに、我が国の地層処分の閉鎖後の安全評価において想定される廃棄体・人 エバリアの長期変遷に係るシナリオを対象として、ガラス固化体や各人工バリアの性能評価 モデル、人工・天然バリア中における核種移行パラメータに対する評価手法及び確率論的安 全評価コード GSRW-PSA<sup>(1)(2)</sup>における相互の入出力データをリンケージさせた1万年までの 解析を試行した。この際、リスクや線量の代替指標として活用される重要核種の移行フラッ クス濃度の変化から、感度解析を行うことによって、評価パラメータ等の重要度分析を行っ た。

さらに、その結果をふまえ、安全評価上重要な廃棄体や人工バリア材の特性や構成等の基本的要件(安全機能)の観点から、安全評価の妥当性を判断するための判断指標を整理した。 このうち、初期条件の設定に係る判断指標は、事業者が申請書に記載すべき埋設施設の基本 設計ないし基本的設計方針の妥当性を判断する上で重要な項目であり、規制庁は廃棄体確認 や施設確認のプロセスにおいて、実際に埋設あるいは敷設される廃棄体や人工バリア等が申 請書に記載されたとおりの性能であるか等を確認する必要があるが、目視や書類確認のみで は判定が困難な事項も含まれるため、事業者においては「申請書どおり」であることを示す ための論拠を準備しておくことが肝要であることを示した。

これらを踏まえ、平成 24 年度は、我が国で想定される地下の水理、熱、化学環境の差異に よる安全評価上設定すべきシナリオに基づく総合的な核種移行解析を行い、想定される地下 の熱、水理、化学環境の範囲内での人工バリアと天然バリアの総合的な解析によって、長期 的な隔離機能の変化、核種遅延効果の変化に関する不確実性の評価を行った。「8.2 体系的 な安全評価手法の整備」では、人工バリア領域におけるリンケージや条件設定のアップデー ト及び天然バリア領域へのデータのリンケージの拡張方法を示した。これらに基づき、「8.3 人工バリアの変遷のシナリオを対象とした安全評価」では、特に処分サイトを想定しないジ ェネリックな環境条件における個々のモデル/コードに基づく人工バリアの変遷を考慮して 評価パラメータを核種移行解析にリンケージさせた安全評価を実施し、「8.4 我が国の地質 環境条件を踏まえたサイトを対象とした安全評価」では、特定の地質環境を想定した場合の 隆起・侵食の影響を考慮した予察的な地下水流動解析を行った上で、スペシフィックな環境 条件における人工バリアの変遷や個々のモデル/コードのリンケージを試適用させた安全評 価を実施した。さらに、「8.5 代替指標等に対するパラメータ等の重要度分析」では、これ らの安全評価の結果に対し、核種移行フラックスへの影響が大きいパラメータやシナリオ設 定など対する重要度分析を実施した。最後に、これらの結果及び本事業の他の実施内容の結果を総合的に検討し、「8.6 安全評価の妥当性を判断するための判断指標の整理」として、 安全評価上重要な廃棄体や人工バリア材の特性や構成等の基本的要件(安全機能)の観点か ら、安全評価の妥当性を判断するための判断指標を昨年に引き続き整理した。

8.2 体系的な安全評価手法の整備

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)を整備するため、昨年度は、これまで整備してきた人工バリアに関する各 評価モデルについての適切なリンケージの方法として、人工バリアの変遷に関する各評価モ デルの入出力の関係、また、人工バリアシステムの評価結果に基づくパラメータ値と確率論 的安全評価コードへの入力とのリンケージについて、リンケージに必要なパラメータの具体 化を図るとともにモデル間の関係をより詳細に整理した。

平成 24 年度は、平成 23 年度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、人工バリアの各評価モデルのより適切な リンケージの方法について検討し、温度変遷の考慮等の拡張を行った。さらに、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移行フラックス、生物圏における被ばく量を 一連で評価するため、隆起・侵食シナリオの影響を評価する手法を整備し、リンケージを天 然バリアまで拡張した。

8.2.1 人工バリア領域における安全評価手法の整備

平成 23 年度では、評価モデル、パラメータ、境界条件等の入力条件についてより具体的な 入出力の関係性についてリンケージを整理して構築した評価体系を図 8.2-1 に示す。平成 24 年度は、この評価体系について以下のアップデートを実施した。

(1)リンケージのアップデート

( a ) ガラス固化体の発熱の影響による OP 及び緩衝材中の温度変遷

これまでの評価体系における温度の取り扱いは、図 8.2-1 に示すように、物質移行 - 変質 連成コード(以下、MC-BUFFER)における入力パラメータ及び、MC-BUFFER からの時間及 び空間的変動を含む出力パラメータを受けて、核種移行パラメータ(核種溶解度、核種分配 係数、核種拡散係数)、オーバーパック寿命、ガラス固化体溶解速度および緩衝材中地下水流 速を設定するための各種評価コード、評価データベースへの入力パラメータとしていた。こ のため、温度は境界条件として設定が限定されてしまい、一定の温度条件での解析による系 全体の温度影響の解析は可能であるものの、ガラス固化体の発熱の影響によるオーバーパッ クや緩衝材中の時間・空間的な温度変遷を考慮した解析を実施することはできなかった。

平成 24 年度は、温度を変数として用いるパラメータが数多くあること、そして、その影響 は十分配慮するべきであるとの考えから、温度変遷の影響をリンケージに組み込むアップデ ートを実施した。なお、具体的な熱解析の機能拡張内容については 2.5.3(2)を参照していただ きたい。



図 8.2-1 人工バリアの性能評価モデル等をリンケージさせた評価体系

(b) MC-BUFFER コードへのリスタート機能の組込み

前述した(a)の温度と同様に、これまでの評価体系においては、図 8.2-1 に示すように、温 度以外の共通的入力条件についても一定の境界条件値の取り扱いであったため、時間・空間 的な変遷を反映させることができなかった。しかしながら、10万年といった長期間の安全評 価を実施する際には、処分場深度における様々な外的要因により地質環境が変化し、これに 伴い地下水組成も時間的に変化することが考えられるため、対応が必要になる。このため、 地下水組成を入力条件して取り扱っている MC-BUFFER の計算を任意の時間で中断させ、地 下水組成を変更させて再計算させる機能の組み込みを実施した。なお、具体的なリスタート 機能の内容については 2.5.3(3)を参照していただきたい。

# ( c ) オーバーパックの腐食による溶解速度設定

平成 23 年度で設定したオーバーパックの溶解速度を求める「OP 腐食影響評価」に使用したモデルをアップデートし、全面腐食時の最大 OP 溶解速度を本事業で実施した実験により整備したモデルに基づき見直した。この結果、最大溶解速度は、昨年度の 41.55 µ m/y から 1.5 µ m/y と小さな値となった。なお、具体的な評価モデル内容については 8.3.1(2)(d)を参照していただきたい。

(2)廃棄体の処分構造設定の拡張

これまでの処分場の解析体系は、ガラス固化体を中心に、オーバーパック、緩衝材、支保 工、母岩(EDZ)の構成が対象となっており、この処分構造をリファレンスとして解析を実 施してきた。この処分構造におけるこれまでの解析では、支保工の厚さの違いが及ぼす影響 を調べるために、支保工の厚さの設定を変えたケースも実施してきた。しかしながら、我が 国の地下環境をより幅広く考慮した場合、緩衝材と EDZ の間に支保工が介在しない構造を選 択する可能性はゼロではないことから、このような処分構造についても検討する必要性があ ると判断し、平成 24 年度は新たな処分構造設定として拡張を行った。なお、具体的な処分構 造の設定内容については 8.3.1(1)を参照していただきたい。

#### (3)地下水組成設定の拡張

これまでの処分場の解析体系では、EDZ 中の地下水組成については第2次とりまとめで設定された降水系地下水、海水系地下水をリファレンスとして解析を行ってきた。しかしながら、実際の処分においては、地下水環境は処分場構造物に大量に使用されるセメント系材料により高アルカリ化していることも考慮することが重要と考え、高アルカリ化した降水系地下水を新たな地下水組成設定として拡張した。なお、この設定に対しては、時間に伴い高アルカリ化した降水系地下水の水質が変遷することを考慮した。変遷を考慮した解析を行うために、平成24年度に実施した前述の「MC-BUFFER コードへのリスタート機能の組込み」により、ある時間で計算を中断させ、地下水組成条件を変遷後の組成に変更して計算を再開する操作を繰り返し行うことで実現させた。なお、具体的な地下水組成の変遷内容については8.3.1(1)(b)を参照していただきたい。

### 8.2.2 安全評価コード等のリンケージに係る拡張・整備

先述の評価体系(図 8.2-1)のうち、確率論的安全評価コード GSRW-PSA<sup>(1)(2)</sup>及び地下水流 動解析コード MIG2DF<sup>(3)</sup>に関して、以下の拡張を行った。

(1) GSRW-PSA の拡張

高レベル放射性廃棄物(HLW)や超ウラン核種等を含む放射性廃棄物(TRU 廃棄物)の地 層処分/併置処分に係る安全評価では、適切なシナリオ設定ならびに評価モデルや評価パラ メータが必要である。

日本原子力研究開発機構(以下、原子力機構)では、地層処分の確率論的安全評価コード GSRW-PSA(<u>Generic Safety Assessment Code for Geologic Disposal of Radioactive Waste for</u> <u>Probabilistic Safety Assessment</u>)<sup>(1)(2)</sup>を軸とするコード群(個別事象に関する一連の評価コード) の開発・整備を行うとともに、それら一連のコード群を用いたシナリオ、モデル、パラメー タの感度解析に基づき、安全規制における「安全評価の基本的考え方」の整理への反映を図 っている。

実際の安全評価は、適切に選定・設定された判断指標、シナリオ、モデル、パラメータに 基づいて実施されるべきであるが、高度な選定・設定の判断や非常に長期間に亘る評価の不 確実性などのため、その適切な取扱いが安全評価において重要となる。その際、現実的な評 価の適切性として、現実から乖離した過度に保守的な評価となることを避けること、審査の 拠り所としての安全評価手法に対する適切性として、評価が十分な保守性を有していること、 といった方向性の異なる考え方が求められる。

平成 23 年度は、ある処分環境を設定したうえで、数百から数千年オーダーの現象である人 エバリア内の個々のバリア材変質に関する解析を行い、その結果を核種移行評価と「リンケ ージ」させる考え方を整理した。「リンケージ」の考え方に基づき、比較的単純なパラメータ の時間変化を想定した決定論的手法による解析を実施し、「リンケージ」を考慮した安全評価 の見通しを示した。一方、より長期の時間スケールを対象とした場合、処分環境の変遷をも 考慮する必要が生じ、個々のバリア材に関する変質解析の詳細化、ならびに処分環境の変遷 との「リンケージ」の設定が重要となると予想される。

そこで、平成24年度は、個々のバリア材に関する変質解析の詳細な検討結果を核種移行評価に適切な入力値として「リンケージ」させるため、特に評価パラメータの時間変化機能の高精度化を図るものとした。また、時間変化に関して高精度の解を得るためにはより細かい時間ステップでの解析が必要であり、さらに、複数核種を対象とした解析や確率論的解析の

実行を考慮すると、計算時間の増大が予想され、数値解析の高速化が求められる。そこで、 確率論的安全評価コード GSRW-PSA に対して、パラメータの時間変化機能の高精度化及び OpenMP を用いた並列化による高速化に関する拡張を行った。なお、拡張の詳細は、Appendix -A に示した。

(2) MIG2DF の拡張

日本原子力研究開発機構(以下、原子力機構)にて開発中の多孔質媒体中での地下水流動・ 核種移行評価コード MIG2DF<sup>(3)</sup>に対し、塩水/降水境界処理コードの作成、地層境界面の時間 的・空間的変化を考慮した処理機能の追加、塩分濃度及び核種移行解析時における高精度化 を行い、多孔質媒体中での地下水流動・核種移行評価コードの整備に資することを目的とし た拡張を行った。なお、拡張の詳細は、Appendix -B に示した。

- 8.3 人工バリアの変遷のシナリオを対象とした安全評価
- 8.3.1 緩衝材変質・間隙水組成の変遷評価

地層処分システムにおいて、緩衝材は止水機能や核種移行抑制機能などの安全機能が発揮 されることが期待されており、緩衝材の有力な候補として、ベントナイト系緩衝材を用いる ことが検討されている。ベントナイト系緩衝材は、支保工などに使用するとされるセメント 系材料が地下水と接触することにより流入する高アルカリ性地下水によって長期的に劣化す ることが指摘されている。また、ベントナイト系緩衝材における間隙水組成によっては、オ ーバーパックの腐食状態や進展が促進され、早期破損することによりオーバーパックに期待 されている核種浸出抑制機能が失われることが指摘されている。それに伴い、オーバーパッ ク破損によってガラス固化体が地下水に接触することにより溶解・変質が生じ、放射性核種 が溶出することが懸念されている。溶出後もセレン(Se)やネプツニウム(Np)のような半 減期が長く、酸化還元に鋭敏な核種移行性は緩衝材中間隙水のEhやpHにより大きく左右さ れると言われている。これらの安全機能を評価する上では、我が国における処分環境を考慮 した緩衝材変質評価をする必要がある。

過去の原子力安全・保安院の委託事業である「放射性廃棄物処分の長期的評価手法の調査」 では、これまでにベントナイト変質を実験的に定量化し、ベントナイト系緩衝材に期待され ている止水機能の長期的な変動を評価するための手法となる評価モデルや評価式、評価デー タの開発を行ってきた。また、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のある鉱物モデルおよびセメント硬化体中における鉱物の溶解・生 成反応に伴う間隙構造変化と物質の拡散挙動との関係を定量化したモデルの構築し、これら 評価モデル等を踏まえ導入した物質移行 - 変質連成解析コードの整備・検証を行ってきた。 さらに、緩衝材中間隙水の酸化還元電位(Eh)がオーバーパックの腐食による還元作用への 影響を評価する手法として、「炭素鋼オーバーパックの腐食影響評価手法」を整備している。 これらはお互い個別の評価手法として確立されており、人工バリアの安全機能を評価するに は各評価手法を連動させ評価することが不可欠であり、平成 23 年度<sup>(1)</sup>には各評価手法を連動 させるため、処分施設における要件として、オーバーパック - 緩衝材 - 支保工とした条件設 定をし、物質移行 - 変質連成解析コード MC-BUFFER による緩衝材変質評価計算を実施して いる。本年度は、上述の条件設定や評価モデルの考慮等の見直しを図るとともに、廃棄体に よる人工バリアの温度変遷やセメント間隙水が混入した地下水条件などを新たに設定し、緩 衝材変質評価計算を実施した。

(1)解析体系

解析体系は、我が国の処分環境を考慮して HLW2 次取りまとめ<sup>(2)</sup>および第二次 TRU レポート<sup>(3)</sup>を参考に、平成 23 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 8.3-1 に本解析体系概念図を示す。オーバーパックについては、HLW2 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竪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 と提示さ れており、これを設定した。緩衝材については、HLW2 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 70cm に設定した。支保工につ いては、HLW2 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のうち 9cm、60cm を設定し、OP - 緩衝材体系となる支保工厚さ 0cm も新たに設定した。また、HLW2 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

として支保工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 8.3-1 本解析体系概念図

#### (2)解析条件

平成 23 年度での解析評価時間は1万年として評価を実施したが、オーバーパック破損後に ガラス固化体から溶出する放射性核種の人工バリア内核種移行を評価するには期間が短いこ とから、本解析では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1ヶ 月と設定しているが、10万年まで解析において、間隙の閉塞などが要因となり計算が止まっ 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1週間に変更することで10万年までの評価を実施した。なお、リ スタート計算にて変更する1ヶ月と1週間のタイムステップの差については、検討の結果、 溶解・生成反応時期に多少の差異は見られたが、計算結果には影響を与えるほどではないと 判断したため、継続計算するにあたりタイムステップ変更を採用している。

( a ) 温度

温度については、第2次TRUレポートで考慮されている25 と、人工バリアの指標となる100 以下の条件として90 を一定条件として設定した。さらに、人工バリアの温度変遷を模擬するため、オーバーパックの経時的な温度変化(100 ~47 )を設定した。オーバーパックの温度変化については、HLW2 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年中間貯蔵されたものを対象とした、処分孔竪置き方式による硬岩系岩盤、処分坑道離間距離10(2D)、廃棄体ピッチ4.44(2d)にて解析された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、HLW2 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定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 定温とした。図 8.3-2 にオーバーパック境界温度データを示す。



図 8.3-2 オーバーパック境界温度データ

人工バリアを構成する材料の熱物性については、オーバーパックおよび緩衝材は HLW2 次 とりまとめの「岩盤および隙間の物性」より、支保工は TRU2 レポートの「各構成要素の熱 物性データ」より熱伝導率および比熱を用いた。なお、MC-BUFFER では比熱ではなく、容 積比熱での入力データとなるため、単位変換した値としている。表 8.3-1 に人工バリアを構 成する熱物性データを示す。なお、今回のケースでは各構成材料の変遷による熱物性データ の変化は考慮せず、初期値一定条件としている。

構成要素	熱伝導率	容積比熱	
	[W/mK]	$[J/m^3K]$	
オーバーパック	51.6	3.69E+06	
緩衝材	0.78	1.01E+06	
支保工	2.56	2.63E+06	

# 表 8.3-1 人工バリアを構成する熱物性データ

( b ) 地下水組成

地下水組成は平成23年度と同様にHLW2次とりまとめにて代表的地下水として設定されて いる降水系地下水および海水系地下水を設定した。また、地下水がアクセス坑道などで使用 するとされるセメント系材料に接触し、その間隙水が人工バリアに侵入してくることを想定 したセメント間隙水を新たに設定した。このセメント間隙水については、降水系地下水が支 保工のみに接触するとした支保工解析にて計算した間隙水組成であり、それぞれ、支保工解 析時間10年、1万年、4万年の間隙水組成を用いて設定した。表 8.3-2 に解析に使用した代 表地下水組成を、表 8.3-3 に支保工解析によって計算されたセメント間隙水組成を示す。

表 8.3-2 1	代表地	下水組成
-----------	-----	------

Temparature	25	
pH	8.5	
Na	3.42E-3	mol/L
K	6.20E-5	mol/L
Ca	1.10E-4	mol/L
Mg	5.00E-5	mol/L
С	3.50E-3	mol/L
S	1.10E-4	mol/L
Cl	1.50E-5	mol/L
Al	3.4E-7	mol/L
Si	3.4E-4	mol/L

降水系地下水

海水系地下水

Temparature	25	
	8	
Na	6.74E-1	mol/L
К	1.10E-2	mol/L
Ca	3.3E-4	mol/L
Mg	2.5E-4	mol/L
С	3.5E-2	mol/L
S	3.00E-2	mol/L
Cl	5.90E-1	mol/L
Al	3.20E-9	mol/L
Si	3.00E-4	mol/L

支保工解析時間	10 年後	1 万年後	4 万年後
解析使用期間	0~400 年	400~1,000 年	1,000~10 万年
Temperature [ ]	25	25	25
pH [-]	12.76	11.54	10.85
pe [-]	5.392	6.154	7.801
Na [mol/L]	2.758E-02	3.423E-03	3.423E-03
K [mol/L]	3.914E-02	6.198E-05	6.199E-05
Ca [mol/L]	5.512E-03	2.117E-03	6.084E-04
Mg [mol/L]	5.192E-09	9.247E-09	4.615E-09
C [mol/L]	1.196E-05	1.117E-05	1.992E-05
S [mol/L]	3.850E-04	1.571E-03	1.100E-04
Cl [mol/L]	1.320E-05	1.500E-05	1.500E-05
Al [mol/L]	7.729E-06	1.714E-04	1.079E-07
Si [mol/L]	9.373E-06	3.736E-04	3.806E-03
Fe [mol/L]	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00

表 8.3-3 支保工解析によって計算されたセメント間隙水組成

( c ) 鉱物組成

緩衝材領域のベントナイトについては、HLW2 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23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」と言う。)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、便宜的に間隙率40%の多孔質と仮定した。また Fe(c)の 30vol%については未反 応鉱物として仮定した。

二次鉱物は、平成 23 年度と同様に平成 21 年度報告書<sup>(4)</sup>の「セメント - ベントナイト接合 試験の結果を用いたセメント間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・ベントナイトの二次鉱物に、鉄鉱物として平成 17 年度<sup>(5)</sup>および平成 18 年度報告 書<sup>(6)</sup>の文献調査より選定されたシデライト、ウスタイト、マグネタイト、ヘマタイトを二次 鉱物として加えた鉱物モデルを設定した。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 8.3-4 に示す。

表 8.3-4 鉱物モデル

		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) <sub>2</sub>	17.0	平衡論
		C-S-H (1.8)	58.6	//
		Monosulfate (AFm)	10.6	//
		Hydrogarnet	11.7	//
		Brucite	2.1	//
		Montmorillonite	49.0	速度論
		Chalcedony	38.0	平衡論
ヘノトノイト	クニクル VI (含有率 70%)	Analcime	3.0	"
がんたい がしてい がしてい		Calcite	2.5	"
191共口到(17)		Pyrite	0.6	"
	ケイ砂	Quartz	100.0	速度論
オーバーパッ	ヮク初期鉱物	Fe(c)	100.0	"
		C-S-H(1.5) , (1.3) , (1.1) , (1.0) , (0.9) , (0.833) , (0.6) , (0.4)	0	平衡論
		Ettringite (AFt) 0		"
		Gypsum	0	"
		Laumontite	0	"
		Brucite	0	"
		Kaolinite	0	"
		Katoite	0	"
上記以外に生	成を許す鉱物	$AS_4H$	0	"
		Friedel's salt	0	"
		Gibbsite	0	"
		Sepiolite	0	"
		Hydrotalcite	0	"
		Siderite	0	"
		Wustite	0	"
		Magnetite	0	"
		Hematite	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、表 8.3-4 で示した鉱物 モデルを使用する。式(8.3-1)~式(8.3-6)に各評価モデル式を示す。なお、支保工の拡散係数に ついては、間隙率により変動するパラメータを考慮した設定とした。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(8.3-5)に示すように腐食反応速度 pH と硫化水素ナトリウム (NaHS)濃度で表されている が、式の特性上、NaHS 濃度が低い場合には式(8.3-7)に漸近するように NaHS 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、 NaHS を 0 とした、pH 依存性のみの式(8.3-7)を使用した。炭素鋼腐食反応速度モデルは最大 1.5  $\mu$  m/y の腐食速度を与えるが、平成 21 年度報告書の炭素鋼オーバーパック寿命評価モデル においては、全面腐食に関する還元性雰囲気の平均腐食速度の分布幅として、0.1  $\mu$  m/y~100  $\mu$  m/y と設定されていた。また、平成 23 年度は最大 41.55  $\mu$  m/y とし、腐食反応速度モデルを 用いて計算していた。今年度は最大 1.5  $\mu$  m/y とした腐食反応速度モデルを設定した。

・モンモリロナイトの溶解速度式

 $R_{\rm A} = 3500 (a_{\rm OH})^{1.4} e^{-51000/RT}$ (8.3-1) $R_{\rm A}$ :溶解速度(kg m<sup>-3</sup> s<sup>-1</sup>)  $a_{OH}$ -:OH<sup>-</sup>活量(mol dm<sup>-3</sup>) *T*:温度(K)  $R: 気体定数(8.314 \text{ Jmol}^{-1} \text{ K}^{-1})$ ・ベントナイト透水係数式  $Kw = 1.2 \times 10^{-7} Is^{1.5} 10^{-0.0042\rho_{\rm m}} (7.9 \times 10^{-5} T^2 - 1.9 \times 10^{-2} T - 0.21)$ (8.3-2) $K_W$ :透水係数(m s<sup>-1</sup>)  $\rho_{\rm m}$ :有効モンモリロナイト密度(kg m<sup>-3</sup>) *Is*:イオン強度(mol dm<sup>-3</sup>) T:温度(K) ・緩衝材中におけるアルカリ拡散係数式  $De = 5.0 \times 10^{-7}$  <sup>2.1</sup>  $e^{(-18600/RT)}$ (8.3-3)

De:有効拡散係数(m<sup>2</sup> s<sup>-1</sup>) :間隙率(-)

T:間隙水の絶対温度(K)

R:ガス定数(8.31kJ mol<sup>-1</sup> K<sup>-1</sup>)

・quartzの溶解速度式

 $R = k A (a_{\rm H+})^{\rm n} (1 - Q/K)$ (8.3-4)

*log k*: quartz の速度定数 (=-13.8 (70 )) (mol/m<sup>2</sup>/s) A: quartz の表面積 (=9.53×10<sup>3</sup>) (m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup>) *a*<sub>H+</sub>: H<sup>+</sup>の活量 n: 定数 (=-0.55 (70 )) (-) Q/K: quartz の飽和指数 (Q: イオン活量積、K:平衡定数)

### ・炭素鋼腐食反応速度式

$$R = \frac{\log(10^{1.5} + 10^{340[\text{NaHS}^-]^{0.85}})}{1 + 10^{(\text{pH}-9.6)}}$$
(8.3-5)

$$R = \frac{1.5}{1+10^{(\text{pH-9.6})}} \tag{8.3-6}$$

R:腐食反応速度(µm y<sup>-1</sup>) NaHS:硫化水素ナトリウム濃度(mol dm<sup>-3</sup>)

## ( 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 することができる Spron-JNC<sup>(7)</sup>をベースに、CSH ゲル(CSH(0.833) ~ CSH(1.8))に A. Atkinson<sup>(8)</sup> 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の熱力学データを使用した。なお、大塚ら<sup>(9)</sup>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

解析ケースについては、平成23年度実施した6ケースに、支保工厚さを考慮したケース、 オーバーパックの経時的な温度変化を考慮したケース、アクセス坑道などのセメント系材料 が溶脱したセメント間隙水を考慮したケースを加えた10ケースを設定した。表8.3-5に解析 ケース一覧を示す。case1~2、5~8については平成23年度に実施したケースである。新たに 追加したケースのうち case3~4については、25 定温での支保工厚さを60cmとした降水系・ 海水系地下水をそれぞれ設定した。case9については、オーバーパック(19cm)-緩衝材(70cm) -支保工(60cm)とした体系を用い、EDZ境界は濃度固定条件、オーバーパック境界は濃度 勾配0条件とした。熱の境界条件はオーバーパック境界を図8.3-2で示した温度データとし、 EDZ境界は温度変化に依存した条件とした。地下水条件は降水系地下水を設定した。case10 については、オーバーパック(19cm) - 緩衝材(70cm)体系を用い、地下水組成は表 8.3-3 に示した支保工解析によるセメント間隙水を用いた。セメント間隙水は支保工解析時間 10年 の間隙水組成を初期組成として用い、400年まで計算を行い、その後支保工解析時間 1万年 の間隙水組成にて 1,000年まで、それ以降 10万年までは支保工解析 4万年の間隙水組成を用 いた。

ケース		温度	地下水系	支保工厚さ	間隙水特性
		[]	[-]	[cm]	[-]
1	——————————————————————————————————————	25	降水系	9	純水、無酸素
2		25	海水系	9	純水、無酸素
3	- 支保工厚さ	25	降水系	60	純水、無酸素
4		25	海水系	60	純水、無酸素
5	高温特性	90	降水系	60	純水、無酸素
6		90	海水系	60	純水、無酸素
7	- 溶存酸素	25	降水系	9	純水、酸素 8ppm
8		25	海水系	9	純水酸素8ppm
9	オーバーパック温度変遷	100~47	降水系	60	純水、無酸素
10	セメント間隙水	25	セメント間隙水	0	純水、無酸素

表 8.3-5 解析ケース

### (4)解析結果

(3)項にて設定した解析ケースについて、解析結果を示す。なお、緩衝材領域における 経時変化分布については、透水係数は等価透水係数とし、拡散係数・有効モンモリロナイト 密度・間隙率については緩衝材領域平均とした。また、酸化還元電位および塩化物イオン・ 炭酸イオン・炭酸水素イオン・溶存酸素濃度、pHd・pHのグラフについては、緩衝材のオー バーパック接触領域における経時変化分布を示した。全領域における固相・液相・Kw(透水 係数)・De(拡散係数)・ m(有効モンモリロナイト密度)・Eps(間隙率)空間分布につい ては、初期、10年後、100年後、1,000年後、5,000年後、10,000年後、50,000年後、100,000 年後における空間分布をそれぞれ示した。

## ( a ) 地下水特性

地下水特性についての解析結果を、図 8.3-3~図 8.3-10 に示す。降水系地下水(以下、)降 水系」と言う。)のケースでは、経時変化分布を見ると有効モンモリロナイト密度は1万年頃 から上昇している。昨年度はモンモリロナイトが多少溶解していたために減少傾向の結果と なっていたが、本解析では殆ど溶解しないまま、間隙が多少閉塞傾向を示しているために上 昇しているものと考えられる。また、有効モンモリロナイト密度の上昇に伴い、透水係数は 1.0E-14 m s<sup>-1</sup>オーダーと低下傾向を示した。Ehは 1,000 年より-450mV 付近を示しているが、 昨年度の1万年の結果は-700mVと大きく低い値を示している。これは、Ehの炭酸支配が2,000 年以降に解消されたために低下したものであり、本解析では炭酸支配が継続しているものと 考えられる。空間分布を見ると、緩衝材領域では10年後から500年後にかけて鉄鉱物として Magnetite の生成が見られるが、その後消失しており、Pyrite のみとなった。平成23年度では Pyrite が変遷し、Magnetite が生成していたが、これは前述のとおり低い Eh のため、Magnetite の安定領域となったと考えられ、本解析では比較的高くなった Eh により Pyrite が安定となっ たと考えられる。他にも平成 23 年度は CSH が緩衝材領域に生成していたが、本解析では約 400 年後に消滅する。このことから、液相での OH-濃度は 400 年後には低下しており、アル カリ成分が枯渇している。これにより 10 万年まで固相で Analcime が Lmt に変遷する以外は ほぼ変化のない結果となった。

海水系地下水(以下、「海水系」と言う。)のケースでは、経時変化分布を見ると、降水系 と同様に殆どモンモリロナイトが溶解しないことから、10万年後では有効モンモリロナイト 密度は上昇する結果となった。透水係数については、7万年後までに1.0E-11m s<sup>-1</sup>オーダーと 上昇しているが、7万年後以降の透水係数の低下は、有効モンモリロナイト密度が上昇した ことによるものと考えられる。Eh は約100年で-350mV付近を示しているが、平成23年度は -450mV付近であることから、炭素鋼腐食速度を遅くしたことから、還元反応が弱まったもの と推測される。空間分布では、1万年後の固相を見ると、平成23年度の結果とほぼ同傾向で あることがわかる。それ以降は支保工領域での間隙の閉塞が進み、約3万年後には閉塞して しまうが、10万年後の緩衝材領域は1万年後とほぼ変動のない空間分布となり、緩衝材の変 遷は殆ど見られない結果となった。液相でも200年でアルカリ成分は枯渇していることから、 それ以降の隙水組成でも殆ど変動のない空間分布となった。

pHd の判定については、降水系・海水系どちらにおいても昨年度と同様に全期間全面腐食 判定となった。



透水係数・拡散係数・有効モンモリロナイト密度・間隙率





塩化物イオン・炭酸イオン・炭酸水素イオン・溶存酸素濃度





炭素鋼腐食に起因するイオン種濃度

図 8.3-3 緩衝材領域における経時変化分布 (ケース1、降水系)







- 8-19 -



透水係数・拡散係数・有効モンモリロナイト密度・間隙率

酸化還元電位



塩化物イオン・炭酸イオン・炭酸水素イオン・溶存酸素濃度





炭素鋼腐食に起因するイオン種濃度









( b ) 支保工厚さ

支保工厚さについての解析結果を図 8.3-11~図 8.3-18 に示す。経時変化分布を見ると、透 水係数は降水系で 1.0E-14m s<sup>-1</sup>オーダー、海水系で 1.0E-11m s<sup>-1</sup>オーダーと(a)項の支保工 厚さ 9cm の結果と同様の結果となった。しかし、支保工が厚くなったことから、モンモリロ ナイトを溶解するアルカリ成分が豊富になり、降水系では約3万後まで、海水系では10万年 後までモンモリロナイトの溶解が進んでおり、10万年後の有効モンモリロナイト密度はそれ ぞれ降水系 0.79g cm<sup>3</sup>、海水系 0.82 g cm<sup>3</sup>となったが、透水係数には影響を及ぼしておらず、 緩衝材の止水機能には影響しない結果であった。Eh については、降水系では10年後以降約 -450mV~-520mV 近辺を示しているが、3万年後に一度約-600mV まで落ちている。これは炭 酸イオン・重炭酸イオンも同様に濃度が低下しており、Eh の炭酸支配が、一時的に失われた ものと考えられる。海水系では、5千年後までに約-450mV を示しているが、6千年から約 -350mV まで上昇が見られた。これは支保工領域内液相のOH-の濃度勾配がなくなるタイミン グを一致しており、CSH の Ca が枯渇したことにより Calcite の生成が終息し、炭酸濃度が上 昇したことにより Eh も上昇したものと推測される。

空間分布では、降水系において約400年後には緩衝材-支保工境界の支保工領域側で間隙 が閉塞しており、それ以降も継続する。しかし、EDZ境界でも間隙の閉塞が進んでおり、約 2万年後には支保工境界付近とほぼ同等に閉塞してしまう。その後、支保工境界付近の閉塞 は解消され、約3万年後では完全にEDZ境界付近に変遷する傾向が見られた。この閉塞の解 消傾向は CSH 溶解が起因となっており、CSH 消滅とともに間隙の閉塞も解消された。また、 液相では CSH の消滅により、アルカリ成分が枯渇したと推測される。EDZ境界付近の間隙閉 塞は主に Calcite、Sepiolite、Lmt、Quartzの二次鉱物で構成されており、10万年後まで継続す る結果となるが、Lmt は CSH 消滅後に、AS4Hへと変遷していく傾向が見られた。海水系に ついては、降水系と同様に約400年後には支保工領域側で間隙が閉塞しているが、2,000年後 にはその内側まで間隙の閉塞が進む傾向を示した。その後6,000年後ではEDZ境界付近へ間 隙閉塞が変遷しているが、同時期に CSH が消滅していることから、液相では OH-濃度が低下 し、アルカリ成分の枯渇が見られた。その後、1万7千年以降は固相・液相ともに大幅な変 化は見られず、10万年までほぼ安定する結果となった。

pHd 判定については、降水系において、平成 23 年度には見られなかった不動態の判定が出 現する結果となった。不動態化は 20 年後~30 年後の 20 年間に渡り出現しているが、短期間 での判定であることからオーバーパックの早期破損には繋がらないものと考えられる。今回 不動態化の判定が出現したのは、pHd 判定上、塩素濃度が 1.0E-5mol L<sup>-1</sup> オーダーと閾値の 3.0E-4mol L<sup>-1</sup>以下であり、溶存酸素も 0 であることから炭酸・重炭酸イオン濃度が支配的に なっているが、case1 の支保工厚 9cm 降水系の同時期と比較してもほぼ同じ濃度となっている。 このことから、pH が 11.3 と高いために不動態の判定となったと推測される。ただし、炭酸・ 重炭酸イオン濃度の減少傾向となっており、それらに影響を受け 40 年後には 11.5 と高い pHd となり、再度全面腐食の判定に戻る結果となっている。なお、海水系では、10 年後近辺で pHd と pH がほぼ差異がないまで値が接近するが、不動態の判定には至らない結果となった。



透水係数・拡散係数・有効モンモリロナイト密度・間隙率





塩化物イオン・炭酸イオン・炭酸水素イオン・溶存酸素濃度

pHd•pH



炭素鋼腐食に起因するイオン種濃度

図 8.3-11 緩衝材領域における経時変化分布 (ケース 3、支保工厚 60cm 降水系)



図 8.3-12 全領域における固相空間分布(ケース3、支保工厚 60cm 降水系)



図 8.3-13 全領域における液相空間分布(ケース 3、支保工厚 60cm 降水系)



図 8.3-14 全領域における Kw・De・ m・Eps 空間分布 (ケース 3、支保工厚 60cm 降水系)



透水係数・拡散係数・有効モンモリロナイト密度・間隙率





塩化物イオン・炭酸イオン・炭酸水素イオン・溶存酸素濃度

 $pHd \boldsymbol{\cdot} pH$ 



炭素鋼腐食に起因するイオン種濃度

図 8.3-15 緩衝材領域における経時変化分布 (ケース4、支保工厚 60cm 海水系)





Na-Mont

1E+2

1E+1

1E+0

[-] 1E-1 切尾線 1E-2 1E-3

1E-4

1E-5

1E-6

1E+2

1E+1

1E+0

[-] 1E-1 句子 1E-2 1E-3

1E-4

1E-5

1E-6



CSH

Sepiolit

100 年後

CSH

/ Sepiolit

ベントナイト系緩衝材

Magnetite

セメント系材料

**地** 水

ベントナイト系緩衝材

Quartz

Ca(OH)2

Magnetite

セメント系材料

AF

地下水

Brucite

Vc rock







10,000 年後



50,000 年後







図 8.3-17 全領域における液相空間分布(ケース4、支保工厚 60cm 海水系)



図 8.3-18 全領域における Kw・De・ m・Eps 空間分布 (ケース 4、支保工厚 60cm 海水系)

#### ( c ) 高温特性

高温特性についての解析結果を図 8.3-19~図 8.3-26 に示す。まず、経時変化分布では降水 系・海水系ともに有効モンモリロナイト密度が 0g cm<sup>3</sup>となったことから、モンモリロナイト の消失を確認した。降水系では4万6千年後に消失し、海水系では、7万年後に消失した。 このことから、緩衝材としての安全機能を完全に喪失したと言える。平成23年度の1万年後 の結果と比較すると、降水系では有効モンモリロナイト密度が0.71gcm<sup>3</sup>だったのに対し、本 解析では 0.64 cm<sup>3</sup>とモンモリロナイトの溶解が促進されていることがわかった。また、海水 系でも 0.73 g cm<sup>3</sup> だったのに対し、本解析では 0.58 cm<sup>3</sup> と降水系と同様にモンモリロナイト溶 解が促進していた。これは、本解析では支保工領域の拡散係数を間隙率変化に依存した任意 パラメータとして設定した結果、1.0E-10 m<sup>2</sup> s<sup>-1</sup>オーダーの拡散係数と速い拡散となってしま ったことが影響していると考えられる。、1万年後の拡散係数において、降水系・海水系とも に平成 23 年度に 1.0E-12 m<sup>2</sup> s<sup>-1</sup> オーダーであったのに対し、本解析では 1.0E-10 m<sup>2</sup> s<sup>-1</sup> オーダ ーと2桁高い値を示していることから、拡散による物質移行が明らかに速くなっていること が原因と考えられ、モンモリロナイトの溶解が早まったものと推測される。透水係数では、 モンモリロナイト消滅後の10万年において、降水系では1.0E-11ms<sup>-1</sup>オーダーであるのに対 し、海水系では 1.0E-7m s<sup>-1</sup>オーダーと 4 桁高い結果となった。ただし、本解析で採用してい るベントナイト透水係数評価モデルは、低有効モンモリロナイト密度および低イオン強度で の適用限界が指摘されており、モンモリロナイト消滅下においてはイオン強度依存性の影響 である。よって、また、平成23年度では緩衝材-支保工境界の緩衝材側において、1万年後 の透水係数が降水系で 1.0E-21 m s<sup>-1</sup>オーダー、海水系で 1.0E-18 m s<sup>-1</sup>オーダーと極度に低い透 水係数となっていたが、本解析では、降水系で 1.0E-10 m s<sup>-1</sup>オーダー、海水系で 1.0E-7m s<sup>-1</sup> オーダーと上述に近い透水係数を示した。これは、上述した間隙の閉塞傾向が支保工側に移 ったことから、間隙率がファクターとなる有効モンモリロナイト密度が極度に高くなること がなくなったことをうけ、透水係数が低下したものと考えられる。これらの緩衝材における 透水係数の考え方については、後述する「各評価へのデータリンケージ」にて述べる。

空間分布では、間隙の閉塞傾向について、平成23年度では緩衝材 - 支保工境界の緩衝材側 境界において閉塞が見られたが、本解析では降水系・海水系ともに支保工側境界が閉塞する 結果となった。これは上述のとおり、支保工領域の拡散係数が 1.0E-10 m<sup>2</sup> s<sup>-1</sup> オーダーと非常 に速い拡散のために支保工領域内にて鉱物反応が活発となり、閉塞したものと考えられる。 ただし、緩衝材 - 支保工境界における本解析での間隙閉塞は、降水系で約 300 年後、海水系 で約 600 年後に起きているが、MC-BUFFER の間隙率閾値として設定している 0.5%までは達 しておらず、その後閉塞傾向は解消されていく。間隙閉塞の解消は、前項でも述べたとおり CSH の溶解が起因しており、海水系では約4,000年後に CSH が消滅するとともに解消されて しまう。液相でも平成23年度と比較すると、アルカリ成分の枯渇によりOH-濃度に勾配がな くなっていることがわかる。これは、物質移行により緩衝材領域に流入し、モンモリロナイ ト溶解を促進させているだけではなく、EDZ 領域にも流出していることも大きな要因と考え られる。その後、緩衝材 - 支保工境界付近の間隙閉塞が解消されるとともに、前項と同様に EDZ 付近の間隙閉塞が進み、約2万年で閉塞する結果となった。その後も支保工内部に向か って間隙閉塞は進んでいき、10万年後には支保工厚 41cm の地点までの閉塞が確認できた。 降水系では、EDZ 付近の間隙閉塞は大幅に遅く、約9万年後になって閉塞する。降水系の閉 塞過程が遅い原因として、CSH 溶解時に支保工内で生成する二次鉱物のうち、Calcite、Sepiolite、 Analcime 以外に降水系ではLmt、海水系では Quartz が生成しており、EDZ 付近の間隙閉塞は、 このLmtおよびQuartzが溶解する挙動に連動しているものであることがわかった。このとき、

Quartz は約3万年で支保工領域から消失するが、Lmt は10万年経過しても消失することはな かった。これは、Quartz は支保工領域では瞬時平衡で扱われるために溶解も速く、Sepiolite に変遷していくために海水系での間隙閉塞が促進されたと推測される。鉄鉱物に関しては、 降水系では1万年後の緩衝材領域において、Pyrite の溶解が進み、Magnetite が一様に生成し ていることがわかる。しかし海水系では、緩衝材 - 支保工境界付近での溶解傾向が見られ、 Magnetite への変遷が見られた。平成23年度でのPyrite の溶解は、1万年後の降水系において は緩衝材 - 支保工境界付近のみ、海水系においては緩衝材中間程度まで溶解が進んでおり、 本解析とは逆の傾向となった。また、降水系では、約5,000年後から Magnetite の安定領域と なり、緩衝材領域の Pyrite が溶解が始まることで S 濃度が上昇し、H 濃度も上昇する。その 後 Magnetite の生成が進行し、1万5千年後には Pyrite は消失してしまう。しかし、約8万年 後からは、緩衝材 - 支保工境界付近の Pyrite の安定領域となることで再生成し、H 濃度も低 下するものと考えられる。逆に海水系では、初期に生成した Magnetite が Na-mont が消滅する 7万年とほぼ同じ時期に消滅し、それ以降は Pyrite が安定となる結果となった。

pHd の判定については、本解析は(b)項の解析条件から高温(90)としたケースであるが、数十年の初期における pH が低いことから不動態の判定は出現せず、降水系・海水系どちらにおいても全期間全面腐食判定となった。



透水係数・拡散係数・有効モンモリロナイト密度・間隙率

酸化還元電位



塩化物イオン・炭酸イオン・炭酸水素イオン・溶存酸素濃度

 $pHd \boldsymbol{\cdot} pH$ 



炭素鋼腐食に起因するイオン種濃度

図 8.3-19 緩衝材領域における経時変化分布 (ケース 5、降水系 90)



- 8-36 -






透水係数・拡散係数・有効モンモリロナイト密度・間隙率

酸化還元電位



塩化物イオン・炭酸イオン・炭酸水素イオン・溶存酸素濃度

pHd•pH



炭素鋼腐食に起因するイオン種濃度

図 8.3-23 緩衝材領域における経時変化分布 (ケース 6、海水系 90)







( d ) 溶存酸素

溶存酸素についての解析結果を図 8.3-27~図 8.3-35 に示す。降水系において、透水係数・ 拡散係数・有効モンモリロナイト密度・間隙率の経時変化では、溶存酸素が混入していない 条件である case1 と比較すると、初期の透水係数で若干低い透水係数となったが、ほぼ同様の 分布を示しており、溶存酸素が影響を及ぼしていないことが確認できた。Ehにおいては、case1 の初期は約-380mV であったが、本ケースでは約-420mV と低い結果となった。これは、C(-4) (CH4)とS(6)(SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)が case1と比較すると逆転しているための還元により Eh が低くなっ たものと推測され、溶存酸素が影響していると考えられる。また、平成23年度では初期で約 -650mV、1万年後で-700mV とかなり低い Eh を示していることから、本解析条件で低く設定 した炭素鋼腐食速度が影響しており、還元反応が抑えられた結果といえる。pH は、初期にお いて case1 で約9なのに対し、10と差異が見られた。これは、初期の重炭酸イオンが低いこ とが要因の1つと考えられる。また pHd では、昨年度は約2千年後で炭酸・重炭酸イオンが 落ちるために pHd の上昇が見られたが、本解析ではこの傾向が見られなかった。空間分布で は、固相は case1 と比較すると、1 万年後で AS4H が若干緩衝材内部に向かい生成しているの が見られるが、10万年を通して殆ど差異のない結果となった。今回地下水の溶存酸素が緩衝 材内部に混入する傾向は見られなかったが、AS4H が緩衝材内部に進行している傾向は、溶 存酸素に要因があるものと考えられる。液相や透水係数・拡散係数・有効モンモリロナイト 密度・間隙率の空間分布ではほとんど差異は見られなかった。

海水系においては、経時変化分布をみると、初期の透水係数で case1 と1 オーダーの差異が 見られたが、その後の分布は概ね一致している結果となった。また、平成23年度と比較する と1万年後において、若干高い傾向を示した。Eh でも case1 とは初期で差異が見られるが、 その後はほぼ同じ傾向を示している。これも上述のとおり C(-4)と S(6)の影響によるものと考 えられる。これにより、pHd および pH にも影響があり、分布に差異が見られている。空間分 布での固相をみると、概ね同傾向であることが確認できるが、緩衝材 - 支保工境界付近に Hematite が生成していることがわかる。イオン種濃度の空間分布をみると、溶存酸素が緩衝 材内部に侵入しているのが確認できた。この影響により Hematite が生成しているものと考え られる。溶存酸素の緩衝材侵入は、平成23年度には確認できなかった現象であり、これは、 炭素鋼の腐食速度を低くしたことと、支保工の間隙変遷を考慮した拡散が大きくなったこと によって溶存酸素が緩衝領域に達することで実現したものと考えられる。液相については、1 万年後の結果から緩衝材途中で Fe 濃度が落ちていることがわかる。これも Hematite が生成す ることにより、Fe が消費されたことが要因と思われる。透水係数・拡散係数・有効モンモリ ロナイト密度・間隙率の経時変化においては、緩衝材 - 支保工境界付近での間隙率変化によ って有効モンモリロナイト密度・透水係数に若干の変化は見られるが、傾向的には差異がな いことが確認された。



透水係数・拡散係数・有効モンモリロナイト密度・間隙率





塩化物イオン・炭酸イオン・炭酸水素イオン・溶存酸素濃度





炭素鋼腐食に起因するイオン種濃度

図 8.3-27 緩衝材領域における経時変化分布 (ケース7、降水系溶存酸素 8ppm)



図 8.3-28 全領域における固相空間分布(ケース7、降水系溶存酸素 8ppm)



図 8.3-29 全領域における液相空間分布(ケース7、降水系溶存酸素 8ppm)



図 8.3-30 全領域における Kw・De・ m・Eps 空間分布 (ケース 7、降水系溶存酸素 8ppm)



透水係数・拡散係数・有効モンモリロナイト密度・間隙率

酸化還元電位



塩化物イオン・炭酸イオン・炭酸水素イオン・溶存酸素濃度





炭素鋼腐食に起因するイオン種濃度

図 8.3-31 緩衝材領域における経時変化分布 (ケース 8、海水系溶存酸素 8ppm)



図 8.3-32 全領域における固相空間分布(ケース 8、海水系溶存酸素 8ppm)



図 8.3-33 全領域における液相空間分布(ケース 8、海水系溶存酸素 8ppm)



図 8.3-34 全領域における Kw・De・ m・Eps 空間分布 (ケース 8、海水系溶存酸素 8ppm)



図 8.3-35 全領域におけるイオン種濃度空間分布 (ケース 8、海水系溶存酸素 8ppm)

## ( e ) オーバーパック温度変遷

オーバーパック温度変遷についての解析結果を図 8.3-36~図 8.3-39 に示す。経時変化分布 をみると、透水係数では 1,000 年後まで温度変遷による影響を受けて低下する傾向が見られ るが、それ以降有効モンモリロナイト密度およびイオン強度の影響により 1 万年近辺で急上 昇する。しかし、1 万 2 千年後にはイオン強度が 0.004 mol L<sup>-1</sup> から 0.002 mol L<sup>-1</sup> に下がること により一度透水係数が下降する現象がみられた。有効モンモリロナイト密度では、温度変遷 の影響により、1 万年後までにモンモリロナイト溶解が促進されるが、それ以降は支保工の アルカリ成分が枯渇することにより、温度に依存した溶解速度によって溶解が進み、10 万年 後には約 0.6 g cm<sup>-3</sup> となった。pHd 判定では、pH が低いために不動態化する傾向までは至ら ず、終始全面腐食の評価となった。

空間分布では、1,000年後の固相空間分布をみると、緩衝材 - 支保工境界での間隙閉塞傾向 が、若干緩衝材側となっていることが確認できる。25 定温の case3 や90 定温の case5 では、 逆に支保工側にて確認できていたが、逆の傾向となった。case3 では支保工側にて CSH が生 成ピークに達しており、case5 では CSH と AFt が間隙を埋めているが、本ケースでは CSH の 境界付近での生成ピークが、緩衝材まで達しているためにこの傾向が出現したものと考えら れる。また、10万年後では、case3・case5 ともに EDZ 境界付近での間隙閉塞がみられるが、 本ケースでは殆ど閉塞しない傾向となった。これは、間隙を埋めている主鉱物が Calcite では あるが、case3 では Quartz・Lmt、case5 では Sepiolite が多く生成しており、本ケースでは Sepiolite・Lmt がそれほど生成していないために間隙を閉塞するまでに至らず、このような差 異が生まれている。鉄鉱物では、10万年後の緩衝材領域において、case3 では Pyrite、case5 では Magnetite が一様に生成していることが確認できたが、本ケースでは緩衝材中央付近で OP 側が Magnetite、支保工側が Pyrite と分かれる結果となった。なお、pHd 判定においては、 全期間全面腐食の判定となった。



透水係数・拡散係数・有効モンモリロナイト密度・間隙率





塩化物イオン・炭酸イオン・炭酸水素イオン・溶存酸素濃度





炭素鋼腐食に起因するイオン種濃度

# 図 8.3-36 緩衝材領域における経時変化分布 (ケース 9、OP 温度変遷)









Pyrite Sepiolit

1,000 年後

ベントナイト系緩衝材

etite

セメント系材料

毕水

1E-4

1E-5

1E-6







10,000 年後



50,000 年後









## ( f ) セメント間隙水特性

セメント間隙水特性についての解析結果を図 8.3-40~図 8.3-43 に示す。このケースでは、 平成 23 年度や他ケースと異なり、pHd・pH の経時変化をみると、20 年後から 400 年後まで の間、pHdをpHが超えることにより不動態の判定となった。この380年間継続した不動態判 定については、オーバーパックの早期破損となりうる可能性があると考えられる。オーバー パックの破損時間の最終的な評価については、8.3.2項にて後述するオーバーパック腐食寿命 解析の結果より判断する。有効モンモリロナイト密度の経時変化をみると、400 年後までに 0.75g m<sup>-3</sup> に低下し、10万年後には、0.41 g m<sup>-3</sup> まで低下する。400 年後までにモンモリロナイ ト溶解が促進される理由としては、その期間 pH の高い地下水接触から 10 年と初期のセメン ト間隙水を設定しているおり、式(8.3-1)のモンモリロナイト溶解速度式に大きく影響を与え ているためである。その後設定している1万年後・4万年後のセメント間隙水は徐々に pH が 下がっているため、その分モンモリロナイト溶解速度が低下していることがわかる。さらに、 固相空間分布をみると、10万年後にはモンモリロナイトは緩衝材 62cm のあたりまで消滅し ており、また残存している領域でも初期より半分以下に低下している結果となった。間隙率 については、1万年後までに緩衝材 - EDZ 境界にて CSH が生成することにより間隙が閉塞さ れる傾向が見られる。その後 CSH が溶解していくことにより間隙閉塞が解消傾向となり、10 万年後には 0.16 にまで解消された。緩衝材領域での鉄鉱物は、約3万年後から Magnetite が 安定領域となることで H 濃度が上昇し、Eh が低下する。その後 Magnetite 生成が進行してい き、10万年後にはほぼ Magnetite が一様に生成している状態となる結果となった。



透水係数・拡散係数・有効モンモリロナイト密度・間隙率



100000



塩化物イオン・炭酸イオン・炭酸水素イオン・溶存酸素濃度

pHd•pH



炭素鋼腐食に起因するイオン種濃度





図 8.3-41 全領域における固相空間分布 (ケース 10、セメント間隙水)



図 8.3-42 全領域における液相空間分布 (ケース 10、セメント間隙水)



図 8.3-43 全領域における Kw・De・ <sub>m</sub>・Eps 空間分布 (ケース 10、セメント間隙水)

(5) 各評価へのデータリンケージ

(4)項の解析結果より、各評価へ人工バリア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 ) オーバーパック腐食寿命評価
  - オーバーパック腐食寿命評価へのリンケージは、以下のデータを提供する。
    - ・塩化物イオン濃度(オーバーパック接触領域)
    - ・炭酸イオン濃度(オーバーパック接触領域)
    - ・炭酸水素イオン濃度(オーバーパック接触領域)
    - ・溶存酸素濃度(オーバーパック接触領域)
    - ・pH(オーバーパック接触領域)
- ( b ) ガラス溶解速度評価
  - ガラス溶解速度評価へのリンケージは、以下のデータを提供する。
    - ・間隙水組成(オーバーパック接触領域)
    - ・pH(オーバーパック接触領域)
    - ・Eh(オーバーパック接触領域)
- ( c ) 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。

- ・地下水組成
- ・間隙水組成(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)
- ・ナトリウム濃度(オーバーパック接触領域、支保工接触領域、緩衝材平均)
- ・カルシウムイオン濃度(オーバーパック接触領域、支保工接触領域、緩衝材平均)
- ・鉄イオン濃度(オーバーパック接触領域、支保工接触領域、緩衝材平均)
- ・カリウムイオン濃度(オーバーパック接触領域、支保工接触領域、緩衝材平均)
- ・鉱物組成(緩衝材平均)
- ・間隙率(緩衝材平均)
- ・乾燥密度(緩衝材平均)
- ( d ) 地下水流動評価
  - 地下水流道評価へのリンケージは、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リンケージデータの留意点および課題

他評価へのリンケージするデータの留意点として、地下水流動評価の評価に使用する透水 係数について、2章にて述べたとおり安全評価上の透水係数評価式の適用条件として、以下 のとおりとした。 ・適用範囲を踏まえたベントナイト透水係数式

通常の適用条件式

 $Kw = 1.2 \times 10^{-7} Is^{1.5} 10^{-0.0042\rho_{\rm m}} (7.9 \times 10^{-5} T^2 - 1.9 \times 10^{-2} T - 0.21)$ 

ただし、イオン強度 *Is* が 0.1 mol L<sup>-1</sup>以下の適用条件式  

$$Kw = 1.2 \times 10^{-7} \ 0.1^{1.5} \ 10^{-0.0042\rho_{\rm m}} (7.9 \times 10^{-5} T^2 - 1.9 \times 10^{-2} T - 0.21)$$
 (8.3-7)

また、 $\rho_{\rm m}$ が 0.04 g cm<sup>3</sup> 以下の適用条件式  $Kw = 1.2 \times 10^{-7}$  (7.9×10<sup>-5</sup>  $T^2 - 1.9 \times 10^{-2} T - 0.21$ ) (8.3-8)

*Kw*:透水係数(m s<sup>-1</sup>)
 ρ<sub>m</sub>:有効モンモリロナイト密度(kg m<sup>-3</sup>)
 *Is*:イオン強度(mol dm<sup>-3</sup>)
 *T*:温度(K)

上記の適用条件式を踏まえ、地下水流動評価への透水係数へデータ提供を行った。課題と しては、昨年度は支保工領域の拡散係数を一定値としていたため、本解析では間隙率により 変動する拡散係数を用いた。しかし、一般的なセメントの拡散係数と比較して拡散係数が非 常に速すぎたために、支保工領域でのCSHの生成・溶解反応や、それに伴うモンモリロナイ ト溶解反応が促進された可能性がある。このことから、支保工領域での拡散係数はセメント 間隙変遷モデルを適用することが必要と考えられる。また、本解析ではオーバーパック破損 後におけるガラス固化体から溶出される成分による緩衝材への影響を考慮していないことか ら、リンケージする炭素鋼オーバーパック腐食寿命評価からのフィードバックによりガラス 固化体の溶解挙動を再現することを今後検討する必要がある。

(7)まとめ

人工バリア領域における緩衝材変質・間隙水組成の変遷について評価するため、処分施設 を想定したオーバーパック - 緩衝材 - 支保工の解析体系にて緩衝材変質評価計算を実施した。 その結果、高温特性における評価では、降水系で4万6千年後、海水系で7万年後にモンモ リロナイトが消滅する結果となった。これにより、緩衝材の安全機能を完全に喪失したケー スとなった。これにより、透水係数はイオン強度に依存し、降水系で1.0E-11 m s<sup>-1</sup>オーダー であるのに対し、海水系では1.0E-7m s<sup>-1</sup>オーダーと4桁高い結果となった。また、セメント 間隙変遷特性の評価では、不動態の判定が20年後から400年後まで継続する結果となった。 この380年間継続した不動態判定は、オーバーパックの早期破損となりうる可能性が示唆さ れた。

これらの解析結果を元に、炭素鋼オーバーパックの腐食寿命評価およびガラス溶解速度評価、核種移行パラメータ評価、ニアフィールド地下水流動評価へのリンケージとして、数値データの提供を行った。データは緩衝材固相濃度および地下水組成、緩衝材間隙水組成、pH、Eh、透水係数、拡散係数、間隙率、有効モンモリロナイト密度について提供し、各評価の必要に応じて、空間的・時間的変化を考慮した形式とした。

8.3.2 炭素鋼オーバーパックの腐食寿命解析

8.3.1 で実施した人工バリアの変遷のシナリオを対象とした間隙水組成の解析結果に基づいて、炭素鋼オーバーパックの腐食寿命解析を実施した。

(1)解析条件

炭素鋼オーバーパック腐食寿命評価のフロー図を以下の図 8.3-44 に示す。炭素鋼オーバー パックの腐食は、緩衝材間隙地下水とオーバーパックが接触することにより開始する。処分 環境における炭素鋼オーバーパックの腐食形態は、炭素鋼が不動態化するか否かで大きく異 なる。オーバーパックの不動態化は、炭素鋼が不動態化する酸性側の臨界 pH として定義され る活性態-不動態遷移 pH (以下、pH<sub>d</sub>)と間隙地下水中の pH を比較により判断する。炭素鋼 の pH<sub>d</sub>よりも緩衝材間隙水中の pH がアルカリ側となった場合に炭素鋼が不動態化する。炭素 鋼が不動態化した場合に想定される腐食形態として、孔食、すきま腐食等の局部腐食が知ら れている。本解析では、炭素鋼が不動態化した場合に想定される代表的な腐食形態としてす きま腐食を考慮する。

一方、炭素鋼の pH<sub>d</sub>よりも緩衝材間隙水中の pH が酸性側となり炭素鋼が自己不動態化しな い場合には、想定される腐食形態として全面腐食及び炭酸塩応力腐食割れを考慮する。全面 腐食は、閉鎖後初期の酸化性雰囲気では、溶存酸素の還元反応を支配的なカソード反応とし た全面腐食が進行する。腐食の進展に伴い溶存酸素が消費され、次第に還元性雰囲気に移行 する。

想定した腐食形態に対する累積腐食進展量が、オーバーパックの外圧に対する耐力等により 決定される破損判定基準値を上回った場合に破損と判定する。



図 8.3-44 炭素鋼オーバーパック腐食寿命評価のフロー

#### ( a ) 局部腐食の発生判定

局部腐食は、以下の式(8.3-9)で表される活性態-不動態遷移 pH(pH<sub>d</sub>)とオーバーパック表面 近傍の pH を比較し、pH が pH<sub>d</sub>よりもアルカリ側となった場合に局部腐食の進展量を評価す る。一方、pH が pH<sub>d</sub>よりも酸性側となった場合には、全面腐食及び炭酸塩応力腐食割れを評 価する。

$$pH_d = 3.9 - 1.8 \cdot \log_{10}[i] + 0.55 \cdot \log_{10}[Cl] - 0.88 \cdot \log_{10}[C] + \frac{1100}{T}$$
 (8.3-9)  
*i* :溶存酸素拡散限界電流密度(A/cm<sup>2</sup>)  
*Cl* :塩化物イオン濃度(mol/l)  
*C* :炭酸イオン + 炭酸水素イオン濃度(mol/l)  
*T* :温度(K)

なお、式(8.3-9)の適用範囲は、

 $1 \times 10^{-4} \le C, \ 3 \times 10^{-4} \le Cl \le 3 \times 10^{-1}, 1 \times 10^{-6} \le i \le 2.5 \times 10^{-5}, 293.15 \le T$ 

とし、適用範囲外の場合は端点の値を用いる。また、溶存酸素拡散限界電流密度 *i* は、Fick の第一法則に基づいた以下の式(8.3-10)で算出する。

$$i = \frac{4FDC_{02}}{}$$
(8.3-10)
  
 $i$  :溶存酸素拡散限界電流密度(A/cm<sup>2</sup>)
  
 $F$  :ファラデー定数(C/mol)
  
 $D$  :溶存酸素拡散定数(mol/s)
  
 $C_{02}$  :溶存酸素濃度(mol/cm<sup>3</sup>)
  
:ネルンスト拡散層厚さ(cm)

( b )局部腐食の進展量評価

局部腐食の進展速度として、炭酸塩濃度 0.1mol/l、塩素濃度 0.027mol/l 溶液中に浸漬された すきま付試験片に観測された進展速度データ(試験期間 730 日)をオーバーパック表面積相 当に速度に極値統計処理した結果の最頻値である 0.5mm/y を設定した<sup>(1)</sup>。局部腐食の進展速 度は時間に依存しない一定速度として設定する。

( c )炭酸塩応力腐食割れの発生条件

炭酸塩応力腐食割れの発生条件は、平成 21 年度の本受託事業の検討結果より、炭素鋼の腐 食電位 *E*<sub>cor</sub>(*t*)、応力腐食割れが発生する腐食電位の下限値を *E*<sub>L\_scc</sub>(*t*)、上限値 *E*<sub>u\_scc</sub>(*t*)に対して、 次の式(8.3-11)を満たす時間が炭酸塩応力腐食割れの発生時間である。

$$E_{1 \text{ scc}}(t) \le E_{\text{corr}}(t) \le E_{u \text{ scc}}(t) \tag{8.3-11}$$

*E*<sub>corr</sub>(*t*) : オーバーパックの腐食電位(V vs. SHE)

E<sub>1 sc</sub>(t) :炭酸塩応力腐食割れが発生する腐食電位下限値(V vs. SHE)

E<sub>uscc</sub>(t):炭酸塩応力腐食割れが発生する腐食電位上限値(Vvs.SHE)

炭酸塩応力腐食割れ発生電位上限値 Eu scc(t)

1

炭酸塩応力腐食割れが発生する腐食電位の上限値は、炭酸水素イオン濃度、pH、温度に依 存するとして、以下の式(8.3-12)で算出する。

$$E_{u_{scc}}(t) = 0.78 + \left(2.6 \times 10^{-4} + 2.0 \times 10^{-4} \log_{10}[\text{HCO}_{3}(t)] - 4.0 \times 10^{-4} \text{pH}(t)\right) \cdot T(t)$$
(8.3-12)

$$E_{u_{scc}}(t)$$
:炭酸塩応力腐食割れ発生腐食電位上限値(V vs. SHE)

 $\text{HCO}_{3}^{-}(t)$ :間隙水中の炭酸水素イオン濃度(mol/l)

- pH(t):間隙水中 pH
- T(t):温度

炭酸塩応力腐食割れが発生する電位下限値 *E*<sub>L</sub>scc(*t*)

上限値の考え方と同様にして、炭酸塩応力腐食割れが発生する電位の下限値を以下の式 (8.3-13)により算出する。

$$E_{l_{-ucc}}(t) = 0.12 + \left(3.5 \times 10^{-4} - 2.0 \times 10^{-4} \cdot \text{pH}(t)\right) \cdot T(t)$$
(8.3-13)

 $E_{\rm u \ scc}(t)$ :炭酸塩応力腐食割れ発生電位下限値(V vs. SHE)

pH(t):間隙水中 pH

T(t):温度

( d ) 全面腐食の進展量評価

全面腐食の評価モデルは、これまでの腐食寿命評価で使用したモデル<sup>(2)</sup>に基づいた。還元 性雰囲気の平均腐食速度及び最大腐食深さは、第2次取りまとめ<sup>(3)</sup>の設定に基づいて、平均 腐食速度10µm/y、最大腐食深さを平均腐食深さの2倍とした。

( e ) オーバーパックの破損判定

全面腐食のみで腐食が進行するケース

オーバーパックの破損判定基準として、第 2 次取りまとめ<sup>(3)</sup>によると、炭素鋼オーバーパ ックの設計厚さ 190mm を決定する過程において、オーバーパックに必要な耐圧厚さを推定し ており、最も耐圧厚さの必要な蓋部において、軟岩系岩盤で 80mm、硬岩系岩盤で 110mm と されている。本解析では、オーバーパックの破損判定基準厚さとして、保守側の設定である 硬岩系岩盤における耐圧厚さ 110mm とした。最大腐食深さがこの耐圧厚さに到達する 80mm (=190mm - 110mm)に到達した時間をオーバーパックの破損時間とした。

局部腐食の発生ケース

局部腐食が発生した場合には、耐圧強度に関する知見はないことから、全面腐食の最大腐 食深さと局部腐食の進展量の合計値がオーバーパックの設計厚さ 190mm に到達した時間を 破損時間と設定した。ただし、上記の合計値が 190mm に到達するより速く全面腐食の最大腐 食深さが 80mm となった場合には、その時間を破損時間とする。

(2)解析結果

腐食形態判定の結果、緩衝材変質・間隙水組成の変遷評価結果から解析によって得られた 10 ケースの水質条件に対して、ケース 3 及びケース 10 に対して局部腐食が発生した。局部 腐食が発生したケース 3 及びケース 10 に対する pH、pH<sub>a</sub>の経時変化を示す。





ケース 3 は、約 20 年経過後に pH pH<sub>d</sub> となり局部腐食が発生したが、約 40 年後に再び pH < pH<sub>d</sub> となり全面腐食が進行する結果となった。局部腐食が進展する期間は約 20 年程度であったため、全面腐食が支配的な腐食形態として進行し、約 4020 年で破損した。一方、ケース 10 は解析開始から約 20 年後に pH pH<sub>d</sub> となり局部腐食が発生し、長期間に渡り高 pH が継続したために局部腐食の進展により 400 年で破損に至った。それ以外のケースは pH が pH<sub>d</sub> より も常に酸性側となり、局部腐食は発生せず全面腐食で進行する。オーバーパック表面に酸素 は到達しないため、還元性雰囲気で腐食が進行し、4,000 年で破損する結果となった。

(c)で示した炭酸塩応力腐食割れは、高い炭酸塩濃度と酸化性雰囲気の高い腐食電位の 条件が達成された場合に発生する。8.3.1の解析では、オーバーパック近傍の炭酸塩濃度が比 較的低く、オーバーパック表面に溶存酸素が到達しないため腐食電位が低く保たれ炭酸塩応 力腐食割れの発生条件を満たさないために、10ケースすべて対して炭酸塩応力腐食割れは発 生しない。

以上から、人工バリアの変遷のシナリオを対象とした安全評価では、オーバーパックの腐 食寿命は以下のように設定した。

ケース 10 : 400 年 上記以外のケース: 4,000 年

(3)まとめ

人工バリアの変遷のシナリオを対象とした間隙水組成の解析結果に基づいて、炭素鋼オー バーパックの腐食寿命解析を実施した。その結果、ケース3及びケース10で局部腐食が発生 した。ケース3は局部腐食の進展期間が約20年程度であったため、全面腐食が支配的な腐食 形態として進行し、約4020年で破損した。一方、ケース10は解析開始から約20年後に局部 腐食が発生し、長期間に渡り高pHが継続したために局部腐食の進展により400年で破損に至 った。それ以外のケースでは、還元性雰囲気で全面腐食が進行し4,000年で破損する結果と なった。また、すべてのケースに対して炭酸塩応力腐食割れは発生しない。以上から、人工 バリアの変遷シナリオを対象とした安全評価で設定する腐食寿命は、ケース10が400年、以 外のケースでは4,000年と設定した。

### 8.3.3 ガラス溶解速度評価

2.2.5 に示したガラス固化体の溶解速度モデルと適用範囲及び安全評価における判断指標に 基づいて、ガラス固化体の溶解速度評価パラメータを決定した(詳細については 2.2.5 を参照)。 また、8.3.2 の炭素鋼オーバーパックの腐食寿命解析結果をふまえて、ガラス固化体の溶解が 開始する時期は、ケース 10 が 400 年、その他のケースは 4,000 年目とした。

評価パラメータのうちガラス固化体の溶解ステージ、すなわちマトリクス溶解を伴う速い 溶解が生じるステージ(Stage I)と、マトリクス溶解が抑制された遅い溶解が生じるステージ(Stage II)については、既往の知見をふまえてガラス固化体の Si を消費するようなケイ酸 塩の生成条件に当てはまるか否かによって判定した。具体的な条件を表 8.3-6 に示す。

平成 22 年度と本年度に実施した実験的検討により、ガラス固化体に接触する溶液中のマグ ネシウム(Mg)イオン濃度が高い条件ではガラス固化体の溶解が抑制されないことがわかっ た。これをふまえて、ガラス固化体に接触する地下水中のMgイオン濃度が10<sup>-3</sup> mol/1 を超え る場合には Stage I でガラス固化体が溶解する設定とした<sup>(1)</sup>。また、平成 23 年度の時点では知 見不足ゆえ、地下水中に含まれるカルシウム(Ca)イオンについても、Mg イオンと同様の 溶解促進効果があるものと仮定していた。しかしながら、2.2.3 に述べたように、今年度に実 施した実験的検討によって、pH が約 11.5 以下の条件では、Ca イオンは Mg イオンとは逆に ガラス固化体の溶解を抑制する効果があることがわかった。これをふまえて、Ca イオンがガ ラス固化体の溶解を促進するとした平成 23 年度の設定を変更した。

また、ガラス固化体のマトリクス溶解を引き起こすことで知られているケイ酸塩鉱物の一種である analcime (NaAlSi<sub>2</sub>O<sub>6</sub>・H<sub>2</sub>O)については、わが国のガラス固化体組成では生成し難い と考えられるが<sup>(2)</sup>、pH11.5 程度以上のアルカリ性条件では生成する可能性も示唆されている ことから<sup>(3)</sup>、地下水 pH が 11.5 以上の場合に生成し、Stage I に移行するものとした。

	地下水条件	溶解速度
Stage I	[Mg]>10 <sup>-3</sup> M もしく はpH>11.5	0.013 g/m²/day
Stage II	[Mg]<10 <sup>-3</sup> M かつ pH<11.5	0.0016 g/m²/day

表 8.3-6 地下水条件に応じたガラス固化体の溶解ステージと溶解速度

8.3.1の解析によって得られたオーバーパックと緩衝材境界における間隙水と同じ組成の間 隙水が、オーバーパック破損後にガラス固化体に接触するものと仮定し、表 8.3-6 に示した 溶解ステージの判定方法をふまえて、ガラス固化体の溶解速度パラメータの設定を行った。

具体的には、case 1~10の全てのケースについて Stage II での溶解速度 0.0016 g/m<sup>2</sup>/day を設 定した。 8.3.4 核種移行パラメータ

8.3.1 で解析された間隙水および緩衝材特性(10 ケース)に基づき、核種移行パラメータを 評価した。評価したパラメータは、核種の溶解度、緩衝材中での拡散係数および緩衝材への 収着分配係数である。対象核種は Cs および Se とした。

(1)溶解度

難溶性核種の場合、ガラス固化体からの溶出あるいは親核種の崩壊によって間隙水中核種 濃度が上昇するものの、ある濃度を超えると沈殿により固相を生成し、最終的には沈殿固相 と間隙水中の溶存種とが化学平衡に達すると考えられる。この際、難溶性核種の間隙水中濃 度は、沈殿固相の溶解度によって評価される。難溶性核種の溶解度は、固相と溶存種の平衡 反応(溶解反応)の平衡定数(K<sup>0</sup>)と溶存種の活量係数(y)から算出される。例えば Se の 溶解反応

 $Se(solid) + H^+ + 2e^- = HSe^-$  (8.3-14)

では、それぞれの種の活量(a)と平衡定数の関係は、

$$a(\mathrm{HSe}^{-}) = K^{0} \cdot a(\mathrm{Se}) \cdot a(\mathrm{H}^{+}) \cdot a(\mathrm{e}^{-})$$
(8.3-15)

と表され、HSe<sup>-</sup>の溶解度(濃度)は以下の式から算出される。

$$[HSe^{-}] = a(HSe^{-}) \div \gamma_{(HSe^{-})}$$
(8.3-16)

ここで、活量係数は、塩濃度の低い条件(イオン強度<0.1M)では、Debye-Hückel や Davies 式等の簡便な活量補正式を用いて算出可能である<sup>(1)</sup>。しかしながら、今回設定した環境条件 には、海水環境のように塩濃度の高い条件(イオン強度 0.6M)も含まれる。そのため、よ り高い塩濃度条件(イオン強度<3.5M)で使用可能な SIT<sup>(2)</sup>モデルを用いて活量補正を行うこ ととした。本章では、8.3.1 で評価された間隙水の pH、pe およびイオン強度を反映して溶解 度を評価した。

( a ) Cs

間隙水条件によらず支配的な溶存種は Cs<sup>+</sup>であり、いずれの条件でも易溶性のため溶解度制限を考慮しない。緩衝材間隙水中の Cs 濃度は、ガラス固化体の溶解速度および緩衝材中の Cs 移行速度に依存するため、これらを考慮した濃度の設定が必要となる。

( b ) Se

Se(cr)を溶解度制限固相とした溶解度評価を実施した。8.3.1 での評価において間隙水は還元 性であることが示されており、安定な溶存種は HSe<sup>-</sup>および Se<sup>2-</sup>であると考えられる。したが って、想定される溶解反応および平衡定数は以下の通り<sup>(3)</sup>である。

$\operatorname{Se}(\operatorname{cr}) + \operatorname{H}^{+} + 2\operatorname{e}^{-} = \operatorname{HSe}^{-}$	$\log K^0 = -7.62$	(8.3-17)
$\operatorname{Se}(\operatorname{cr}) + 2\operatorname{e}^{-} = \operatorname{Se}^{2-}$	$\log K^0 = -22.42$	(8.3-18)
$2\text{Se}(\text{cr}) + 2\text{e}^{-} = \text{Se}_{2}^{2-}$	$\log K^0 = -19.56$	(8.3-19)
	0.51	

- 8-71 -

$3Se(cr) + 2e^{-} = Se_3^{2-}$	$\log K^0 = -17.29$	(8.3-20)
$4\text{Se}(\text{cr}) + 2\text{e}^{-} = \text{Se}_{4}^{2-}$	$\log K^0 = -16.67$	(8.3-21)

これらの反応を一般化すると

$$mSe(cr) + nH + 2e^{-} = H_nSe_m^{(n-2)}$$
 (8.3-22)

となり、Se 溶解度は以下の式によって算出される。

$$\log[Se] = -n pH - 2pe + \log K^0 - \log \gamma$$
(8.3-23)

式から明らかな通り、Se 溶解度は pH および pe の関数になる。8.3.1 で評価された間隙水の pH および pe に従い、Se 溶解度を評価した。また、活量係数 (y) は SIT モデル<sup>(2)</sup>

$$\log \gamma = -z^2 D + \varepsilon (\mathbf{M}^+, \mathbf{N}^-) I_{\mathrm{m}}$$
(8.3-24)

$$D = \frac{0.5091\sqrt{\text{Im}}}{1+1.5\sqrt{\text{Im}}}$$
(8.3-25)

により算出した。イオン強度 *Im* の値は 8.3.1 の解析結果を反映して設定し、イオン相互作用 係数 に Na<sup>+</sup>との相互作用係数<sup>(3)</sup>を適用することにより、以下の式により活量係数を算出した。

$$\log \gamma_{(\text{HSe}^{-})} = -\frac{0.509\sqrt{I_{\text{m}}}}{1+1.5\sqrt{I_{\text{m}}}} - 0.01I_{\text{m}}$$
(8.3-26)

$$\log \gamma_{(\text{Se}_n^{2-})} = -4 \times \frac{0.509\sqrt{I_m}}{1+1.5\sqrt{I_m}} - 0.03I_m.$$
(8.3-27)

オーバーパック直近のセルにおける溶解度評価結果を図 8.3-46 に示す。いずれのケースに おいても Se4<sup>2</sup>が支配的な溶存種であり、溶解度は pe の下降に伴い上昇している。かなり高い 濃度(10M 以上)が算出されているものもあるが、式(8.3-23)において考慮していない水分子 の活量や高濃度での溶存イオン活量係数の観点から現実的な値ではない。このような条件で は Se は易溶性と考えられ、緩衝材間隙水中濃度はガラス固化体の溶解速度および緩衝材中の Se 移行速度に依存して設定する必要がある。なお、ガラス固化体の溶解速度が遅く、間隙水 中の Se 濃度が低い場合、溶液中の Se が重合しにくくなることにより HSe が支配的な溶存種 になる可能性がある。拡散係数および収着分配係数の評価においては、この点に留意する必 要がある。


図 8.3-46 Se 溶解度の経時変化(1/3)



図 8.3-46 Se 溶解度の経時変化(2/3)



# (2) 拡散係数

緩衝材に用いられるベントナイトの主成分であるモンモリロナイトの表面は負に帯電して おり、間隙水に溶存しているイオンは表面電荷の影響を受ける。陽イオンである Cs<sup>+</sup>は表面に 濃集される一方、陰イオンである Se 溶存種は表面から排除される。特に幅の狭い層間間隙で はこの傾向が顕著となり、いわゆる陽イオンの表面拡散現象<sup>(4)</sup>および陰イオン排除効果<sup>(5)</sup>によ り、両イオンの拡散挙動に違いが生じる。また、表面近傍では、水分子が表面に電気的に拘 束されることにより、粘性が高くなると考えられている<sup>(6)</sup>。本章において、間隙水中で陽イ オン形態である Cs の拡散については細孔拡散モデル<sup>(7)</sup>、陰イオン形態である Se の拡散につ いては陰イオン排除モデル<sup>(6)</sup>を用い、8.3.1 で解析された緩衝材の乾燥密度およびモンモリロ ナイト含有率を反映して拡散係数評価を行った。なお、8.3.1 の解析においては環境の温度を 25 ~100 と変動させているが、拡散係数評価においては、地層処分環境で想定される温度 である 60 を環境の温度とした。

( a ) Cs

一般に、Cs<sup>+</sup>の拡散係数は HTO や陰イオンに比べ高い実験値が報告されている<sup>(8)</sup>。これは、 モンモリロナイト表面負電荷に Cs<sup>+</sup>イオンが引きつけられ、間隙水中 Cs 濃度が外部溶液中 Cs 濃度に比べて高い状態にあることから、拡散係数を外部溶液間の濃度勾配から算出した場合、 間隙内での実際の拡散係数より高い値となってしまうためである。実際の間隙内での Cs<sup>+</sup>イオ ンはモンモリロナイト表面に電気的に拘束されるため、電荷を持たない種に比べて拡散係数 は低くなることが予想される。本章では、保守性を考慮してこの効果を無視することとし、 緩衝材間隙内での Cs の拡散係数を一般的な細孔拡散モデル<sup>(7)</sup>に従い評価することとした。

$$D_{\rm p} = G_{\rm p} \frac{\eta_0}{\eta_{\rm p}} \phi_{\rm p} D_{\rm v}$$

$$(8.3-28)$$

ここで、 $G_p$  は間隙の形状因子、 $\eta_0$  はバルク水の粘性、 $\eta_p$  は間隙水の粘性、 $\phi_p$  は間隙率、 $D_v$  は自由水中の拡散係数 ( $Cs^+$ : 2.00×10<sup>-9</sup> m<sup>2</sup> s<sup>-1</sup> at 25<sup>(9)</sup>)である。形状因子と粘性のパラメータ

である $G_p \frac{\eta_0}{\eta_p}$ の値は、乾燥密度 1.6 g cm<sup>-3</sup> においてベントナイト (Kunigel V1) 混合率を変化

させて取得した HTO の拡散実験値<sup>(10)</sup>から算出した。

$$G_{\rm p} \frac{\eta_0}{\eta_{\rm p}} = 0.7379 R_{\rm b}^{-0.3792}$$
(8.3-29)

なお、ケース 5、6 では、1 万年後以降にモンモリロナイトが消失してしまう。モンモリロナ イト消失後の拡散係数は、保守的に $G_p \frac{\eta_0}{\eta_p} = 1$ として算出した。算出される拡散係数は 25

- 8-76 -

での値であるため、環境温度である 60 での拡散係数を評価するためには温度補正を行う必要がある。温度補正はアレニウスの式により行った。

$$D_{\rm p} = A \, \exp\!\left(\frac{-E}{RT}\right) \tag{8.3-30}$$

ここで、*A* は定数、*E* は活性化エネルギー(15.05 kJ mol<sup>-1(11)</sup>) *R* は気体定数、*T* は温度で あり、60 での拡散係数の値は 25 の 1.86 倍となる。60 での拡散係数評価結果を図 8.3-47 に示す。ケース 5、6 以外のケースでは、拡散係数は  $3 \times 10^{-10}$  m<sup>2</sup>/s 程度であり、大きな変動は 見られない。したがってこれらのケースでは、Cs の拡散係数は  $3 \times 10^{-10}$  m<sup>2</sup>/s 一定と設定する。 ケース 5、6 では、1 万年までは拡散係数は  $3 \times 10^{-10}$  m<sup>2</sup>/s 程度であり大きな変動は見られないも のの、モンモリロナイトの減少に伴い拡散係数は上昇し、モンモリロナイトが消失した時点 で  $1 \times 10^{-9}$  m<sup>2</sup>/s と評価された。

( b ) Se

還元環境における Se の拡散挙動についてはモデル化が行われている<sup>(6)</sup>。間隙水中で Se は 陰イオン形態をとり、モンモリロナイト表面負電荷との電気的反発により間隙から排除され る。特に幅の狭い層間間隙ではその効果が大きくなるため、本モデルにおいては、Se は幅の 広い粒子間間隙のみを移行するとしている。粒子間間隙の拡散係数は以下の式により求めた。

$$D_{\rm mp} = G_{\rm mp} \frac{\eta_{\rm o}}{\eta_{\rm mp}} \phi_{\rm mp} D_{\rm v}$$

$$\tag{8.3-31}$$

 $\phi_{mp}$ は粒子間間隙率、 $G_{mp}$ は粒子間隙の形状因子、 $\eta_{mp}$ は粒子間間隙水の粘性、 $D_v$ は Se 溶存種の自由水中での拡散係数(HSe<sup>-</sup>: 1.87×10<sup>-9</sup> m<sup>2</sup> s<sup>-1</sup>、Se<sub>4</sub><sup>2-</sup>: 1.8×10<sup>-10</sup> m<sup>2</sup> s<sup>-1</sup> at 25) であり、粒子間間隙率はベントナイト - 砂圧縮体の透水性から見積もられている。また、

$$G_{\rm mp} \frac{\eta_0}{\eta_{\rm mp}} \approx G_{\rm p} \frac{\eta_0}{\eta_{\rm p}} = 0.7379 R_{\rm b}^{-0.3792}$$
(8.3-32)

と近似されている。本モデルに従い Se の拡散係数を評価した。なお、ケース 5、6 では、1 万年後以降にモンモリロナイトが消失してしまう。モンモリロナイト消失後の拡散係数は、 保守的に

 $D_{\rm p} = \phi_{\rm p} D_{\rm v} \tag{8.3-33}$ 

として算出した。算出した拡散係数は、環境温度である 60 での値を評価するために、アレ ニウスの式による温度補正を行った。溶解度評価において、Seの支配的な溶存化学形は Se<sub>4</sub><sup>2-</sup> と評価されている。しかし、ガラス固化体の溶解が遅い場合は間隙水中の Se 濃度が低くなり、 HSe<sup>-</sup>の化学形で存在する可能性があること、-2 価の Se<sub>4</sub><sup>2-</sup>は-1 価の HSe<sup>-</sup>に比ベイオン排除効果

- 8-77 -

が大きく、拡散係数が小さい<sup>(6)</sup>ことから、保守性を考慮して溶存種を HSe<sup>-</sup>として拡散係数を 評価することとした。60 での拡散係数結果を図 8.3-47 に示す。ケース 5、6 以外のケース では、拡散係数は  $2\times10^{-10} - 4\times10^{-10} m^2$ /s の範囲であり、大きな変動は見られなかった。以上 より、Se の拡散係数は  $4\times10^{-10} m^2$ /s 一定と設定する。ケース 5、6 では、1 万年までは拡散係 数は  $3\times10^{-10} m^2$ /s 程度であり大きな変動は見られないものの、モンモリロナイトの減少に伴い 拡散係数は上昇し、モンモリロナイトが消失した時点で  $1\times10^{-9} m^2$ /s と評価された。



図 8.3-47 CsとSeの拡散係数の経時変化(1/3)

- 8-79 -



図 8.3-47 CsとSeの拡散係数の経時変化(2/3)





(3) 収着分配係数

緩衝材に用いられるベントナイトは、モンモリロナイト、石英、長石、方解石、黄鉄鉱な どから構成され、主要な核種の収着は主成分であるモンモリロナイトによって支配されるこ とが知られている<sup>(12)</sup>。モンモリロナイトは Si 四面体シート 2 枚の間に Al 八面体シートを挟 んだ 2:1 型層状ケイ酸塩であり、シロキサン表面の陽イオン交換サイトと、結晶端 / エッジ 表面水酸基による表面錯形成サイトの 2 種類の収着サイトをもつ<sup>(13)</sup>。シロキサン表面の陽イ オン交換サイトは主として層間間隙に存在し、Cs<sup>+</sup>等の陽イオンが選択的に収着される。この 際、収着は他の陽イオンとの競合になるため、収着性は間隙水塩濃度に影響される。一方、 結晶端 / エッジ表面水酸基の表面錯形成サイトは粒子間間隙に存在し、表面水酸基の解離状 態によって収着性が変化するため、収着性は pH に影響される。本章では、陽イオン形態で存 在する Cs はイオン交換、陰イオン形態で存在する Se は表面錯形成による収着が支配的とし て、8.3.1 で解析されたモンモリロナイト含有量、Na 濃度、pH を反映して収着分配係数の評 価を行った。

( a ) Cs

間隙水中では Na<sup>+</sup>が支配的な陽イオンであるため、Na<sup>+</sup>と Cs<sup>+</sup>のイオン交換吸着モデルによ り収着分配係数を評価した。収着反応式を以下に示す。

$$S-Na^+ + Cs^+ = S-Cs^+ + Na^+$$
 logK = 0.44<sup>(14)</sup> (8.3-34)

ここで、S-は収着サイトを示す。平衡定数(K)は以下の式で表される。

$$([S-Cs^{+}][Na^{+}]) / ([S-Na^{+}][Cs^{+}]) = K$$
(8.3-35)

分配係数 Kd は、Cs が収着しているサイト濃度([S-Cs(mol/kg)])と間隙水中 Cs<sup>+</sup>濃度(mol/m<sup>3</sup>)の比で表され、平衡定数から以下のように変換できる。

$$Kd (m^{3}/kg) = [S-Cs^{+} (mol/kg)] \div [Cs^{+} (mol/m^{3})]$$

$$= K \times [S-Na^{+} (mol/kg)] \div [Na^{+} (mol/m^{3})]$$
(8.3-36)

 $[S-Na^+ (mol/kg)] >> [S-Cs^+ (mol/kg)] とすると、モンモリロナイトの陽イオン交換容量(CEC: 100meq/100g(=1mol/kg)) およびモンモリロナイト含有率 <math>C_{mont}$ から、

$$Kd = K \times 1 \text{ (mol/kg)} \times C_{mont} \div [Na^{+} (mol/m^{3})]$$
(8.3-37)

と表される。ここで、イオン交換収着している Cs<sup>+</sup>イオンのうち、シロキサンの極表面(Stern 層)に存在するイオンは動けないものの、やや離れた場所(拡散層)に存在するイオンは可 動であることが Cs の拡散実験から言われている<sup>(15)</sup>。そのため保守性を考慮し、拡散層に存在 するイオンの収着性を無視して、Stern 層に存在するイオンのみを収着イオンとして分配係数 を評価した。Ochs らによると、Stern 層に存在するイオンは全イオン中の 68%と見積もられ ている<sup>(15)</sup>。従って、分配係数を式(8.3-37)で評価した Kd の 0.68 倍とした。Kd 評価式を以下 に示す。 なお、ケース 5、6 では、1 万年後以降にモンモリロナイトが消失してしまう。モンモリロナイト消失後の緩衝材に対する分配係数は、保守的に、石英に対する Cs の分配係数  $1 \times 10^4 \text{ m}^3/\text{kg}$  (イオン強度 1M、Cs 濃度  $10^4$ M の条件での値<sup>(16)</sup>)とした。分配係数の評価結果を図 8.3-48 に示す。

( b ) Se

ベントナイト系緩衝材の主成分は、モンモリロナイトおよび二酸化ケイ素(石英および玉 随)である。還元環境における Se の収着試験から、Se はモンモリロナイトには収着するも のの、石英にはほとんど収着しないことがわかっている<sup>(17)</sup>。そのため、モンモリロナイトに 対する Se の Kd から緩衝材に対する Kd を評価することとした。Se の収着形態は、モンモリ ロナイト結晶端 / エッジ表面水酸基への表面錯形成が支配的であると考えられている<sup>(17)</sup>。し かしながら、還元環境における Se の吸着について、現状では表面錯体モデルパラメータは整 備されていない。そのため、モンモリロナイトに対する Se 分配係数の実測値<sup>(17)</sup>から Kd を評 価することとした。実験データをフィッティングすることにより、モンモリロナイトに対す る Se の Kd 評価式を取得した。さらに、ベントナイト中のモンモリロナイト含有率を考慮す ることにより、ベントナイト変質による Kd の変動を表現することとした。Kd 評価式を以下 に示す。

 $\text{Kd} = 10^{(-0.3674 \text{pH} + 2.4189)} \times C_{\text{mont}}$ 

(8.3-39)

なお、ケース 5、6 では、1 万年後以降にモンモリロナイトが消失してしまう。モンモリロナイト消失後の分配係数は、保守的に 0 m<sup>3</sup>/kg とした。分配係数の評価結果を図 8.3-48 に示す。



図 8.3-48 CsとSeの分配係数の経時変化(1/3)



図 8.3-48 Cs と Se の分配係数の経時変化(2/3)



(4)まとめ

緩衝材変質の進行に伴う緩衝材中の核種移行挙動の変化を評価するため、緩衝材変質・間 隙水組成の変遷に係る解析により示された緩衝材間隙率、モンモリロナイト含有率および間 隙水組成の空間的・時間的変化の結果に基づき、核種の溶解度、拡散係数および収着分配係 数を評価した。対象元素は Cs および Se とした。

Cs はいずれの条件においても易溶性である。また、Se の溶解度評価の結果、ほとんどの条件で易溶性であると評価された。易溶性元素の緩衝材間隙水中濃度は、ガラス固化体の溶解 速度および緩衝材中の移行速度に依存する。

拡散係数は、Cs については細孔拡散モデル、Se については陰イオン排除モデルにより評価 した。その結果、ほとんどの条件・時間において同程度の値を示し、Cs の拡散係数は  $4\times10^{-10}$  m<sup>2</sup>/s、Se の拡散係数は  $3\times10^{-10}$  m<sup>2</sup>/s と評価された。モンモリロナイトが消失した条件では、Cs、 Se いずれの拡散係数も  $1\times10^{-10}$  m<sup>2</sup>/s と評価された。

Cs の分配係数はイオン交換モデル解析により、Se の分配係数は実測値のフィッティングに より評価した。Cs の分配係数は間隙水の塩濃度に依存して変動、Se の分配係数は間隙水の pH に依存して変動すると評価された。モンモリロナイトが消失した条件では、Cs の分配係 数を  $1 \times 10^{-4}$  m<sup>3</sup>/kg、Se の分配係数を 0 m<sup>3</sup>/kg と評価した。

# 8.3.5 ニアフィールド地下水流動

緩衝材変質の進行に伴う緩衝材中の地下水流速の変化を評価するため、「8.3.1 緩衝材変 質・間隙水組成の変遷評価」において評価された変質した緩衝材中の透水係数および間隙率 の空間的・時間的変化の条件を基に、多孔質系媒体中の地下水流動解析コード MIG2DF<sup>(1)</sup>を用 いて、変質した緩衝材およびその周辺母岩を解析領域とする地下水流動解析を実施した。さ らに、GSRW-PSA による人工バリア内の1次元核種移行解析の入力の1つとなる緩衝材中の 地下水流速を決定するため、地下水流動解析の結果に対し、緩衝材中に設定した粒子に対す るトラジェクトリ解析を行い、その結果から緩衝材中の実流速を決定した。以下に、その解 析条件、解析結果について述べる。

### (1)解析条件

本解析では、第2次取りまとめ<sup>(2)</sup>における人工バリアの仕様設定(処分孔竪置き方式)を 基に、計算体系として1つの処分孔を対象とした水平断面の2次元体系を考えた。地下水流 動解析のモデル概念図を図 8.3-49に示す。内側からガラス固化体とオーバーパックを含む廃 棄体、緩衝材および岩盤(母岩)の各領域とする。母岩は第2次取りまとめのレファレンス ケースと同様に亀裂帯を想定した。本解析では、図 8.3-49に示す亀裂の水平断面において左 から右へ向かう流動場を想定して、第2次取りまとめのレファレンスケースでの設定値であ る動水勾配が0.01になるよう、左右両側における一定の水頭値を設定した。また上側および 下側は不透水境界とした。計算体系の対称性から、図 8.3-49に示すような地下水流向の方向 に対し半部の領域(10m×5m)を解析対象とする。さらに、緩衝材中の地下水流速をトラジ ェクトリ解析の条件として設定し、粒子放出ポイントは図 8.3-49に示すように緩衝材を横切 る断面上の5点(No.1~No.5)と廃棄体表面からの距離0.05mの円周上の7点(No.6~No.12) を設定した。



図 8.3-49 ニアフィールド地下水流動解析のモデル概念図

廃棄体は均質領域と仮定し、廃棄体の透水係数及び間隙率は、健全な緩衝材の物性値と同等に設定し、透水係数は 1E-13 m/s、間隙率は 0.4 とした。岩盤は花崗岩を想定し、その透水係数は第 2 次取りまとめのレファレンスケースの透水量係数の対数平均値-9.99 m<sup>2</sup>/s、動水勾

配 0.01、マトリックス拡散深さ 0.1m および間隙率 0.02 より 5E-10 m/s を設定し、間隙率は第 2 次取りまとめのレファレンスケースより 0.02 を設定した。なお、緩衝材周辺の岩盤の透水 係数および間隙率は、空間的および時間的に変化しないと仮定した。

緩衝材に対しては、「8.3.1 緩衝材変質・間隙水組成の変遷評価」において示された緩衝材 中の透水係数および間隙率の空間的・時間的変化の解析結果から設定する。その解析では、 Case1 ~ Case10 の 10 ケース(表 8.4-7 参照)の緩衝材変質の変遷を評価しており、それらの 10 ケースの解析結果に対応したニアフィールドの地下水流動解析を行った。炭素鋼オーバー パックの核種閉じ込め機能の継続期間は、ケース1から9では4,000 年であり、ケース10で は400 年であると「8.3.2 炭素鋼オーバーパックの腐食寿命解析」において評価されたので、 ケース1 から9では4,000 年以降、ケース10 では400 年以降の透水係数および間隙率の計算 結果を本解析では使用する。Case1 ~ Case10 における処分場閉鎖後4,000 年(Case10 では400 年)および 10 万年後の緩衝材中の透水係数および間隙率の空間分布を図 8.4-47 ~ 図 8.3-53 に示す。

ケース	温度 ( )	支保上厚さ (cm)	地下水系特性	初期間隙水特性	
1	25	9	降水系·無酸素	純水·無酸素	
2	25	9	海水系·無酸素	純水·無酸素	
3	25	60	降水系·無酸素	純水·無酸素	
4	25	60	海水系·無酸素	純水·無酸素	
5	90	60	降水系·無酸素	純水·無酸素	
6	90	60	海水系·無酸素	純水·無酸素	
7	25	9	降水系·溶存無酸素8ppm	純水·溶存酸素8ppm	
8	25	9	海水系·溶存無酸素8ppm	純水·溶存酸素8ppm	
9	100 ~ 47	60	降水系·無酸素	純水 無酸素	
10	25	0	降水系(セメント間隙水)・無酸素	純水·無酸素	

表 8.3-7 緩衝材変質・間隙水組成の変遷評価における解析ケース一覧



図 8.3-50 4,000 年および 10 万年後の緩衝材中の透水係数、間隙率等の空間分布 (Case1) Kw:透水係数、eps:間隙率、 mont:有効モンモリロナイト密度



図 8.3-51 4,000 年および 10 万年後の緩衝材中の透水係数、間隙率等の空間分布(Case2~5) Kw:透水係数、eps:間隙率、 mont:有効モンモリロナイト密度



図 8.3-52 4,000 年および 10 万年後の緩衝材中の透水係数、間隙率等の空間分布(Case6~9) Kw:透水係数、eps:間隙率、 mont:有効モンモリロナイト密度



図 8.3-53 4,000 年および 10 万年後の緩衝材中の透水係数、間隙率等の空間分布(Case10) Kw:透水係数、eps:間隙率、 mont:有効モンモリロナイト密度

降水系地下水の6つの解析ケース(Case1, 3, 5, 7, 9, 10)のうち、セメント厚さ9cm、温度 25 の Case1.7 は、4.000 年および 10 万年後の緩衝材内部の透水係数は 1E-12 m/s 以下の空間 分布を示しており、緩衝材の低透水性の機能は維持された状態である。同様に、セメント厚 さ 25cm、温度 60 の Case3 は、支保工側の緩衝材中で 1E-11 m/s 程度の透水性のやや高い領 域が一部形成されるものの、4,000 年および 10 万年後の緩衝材内部の透水係数は 1E-12 m/s 程度の空間分布を示しており、緩衝材の低透水性の機能は維持された状態である。このよう に、Case1,3,7を比較すると、支保工厚さおよび溶存酸素による透水係数への影響はほとんど ない。また、セメント厚さ 60cm、温度 90 の条件である Case5 の透水係数が降水系では最も 高く、4,000年後の緩衝材内部の透水係数は、支保工側の緩衝材においてモンモリロナイトが '溶解することにより高い透水係数となり 1E-12~1E-6 m/s の空間分布を示しており、10 万年 後には、透水係数の空間分布は緩衝材全体のモンモリロナイトの消失により、一律 1E-6 m/s の高い値を示している。Case9では、4,000年後の緩衝材内部の透水係数は、支保工側の緩衝 材において間隙が閉塞されることにより低い透水係数となり 1E-15~1E-11 m/s の空間分布を 示しており、10万年後の透水係数は、支保工側の緩衝材のやや内側においてモンモリロナイ トが溶解することにより高い透水係数となり 1E-11~1E-9 m/s の空間分布を示している。 Case10 では、4,000 年後の緩衝材内部の透水係数は、支保工側の緩衝材のやや内側においてモ ンモリロナイトが溶解することにより高い透水係数となり 1E-12~1E-10 m/s の空間分布を示 しており、10万年後の透水係数は、支保工側の緩衝材のモンモリロナイトが消失することに より高い透水係数となり 1E-11~1E-7 m/s の空間分布を示している。

海水系地下水の解析ケース(Case2,4,6,8)は、全体的に降水系の透水係数に比べてより高 い傾向を示している。Case2,4,8の透水係数は、支保工側の緩衝材中で1E-13~1E-9 m/s 程度 の分布を示すものの、4,000年および10万年後の緩衝材内部の透水係数は1E-10 m/s 程度の空 間分布を示しており、緩衝材の低透水性の機能は維持された状態である。このように、Case2, 4,8を比較すると、降水系地下水と同様に支保工厚さおよび溶存酸素による透水係数への影 響はほとんどない。一方、セメント厚さ60cm、温度90の条件であるCase6は、海水系地下 水の解析ケースの中で透水係数が最も高く、4,000年後の緩衝材内部の透水係数は、支保工側 の緩衝材においてモンモリロナイトが溶解することにより高い透水係数となり1E-10~1E-6 m/s の空間分布を示しており、10万年後には透水係数の空間分布は Case5 と同様にモンモリ ロナイトの消失により、一律 1E-6 m/s の高い値を示している。

以上の透水係数に対する結果から、降水系地下水の3つの解析ケース(Case1, 3, 7)に対し、 緩衝材中の透水係数は時間的・空間的に変化せず 1E-12 m/s を与えた。また、間隙率は 0.4 程 度を示していることから、0.4 に設定した (「降水系ケースA」として設定)。海水系地下水の 3 つの解析ケース(Case2,4,8)に対し、4,000 年以降の透水係数および間隙率は時間的・空間 的にほとんど変化しないことから、それぞれ 1E-10 m/s、0.4 に設定した (「海水系ケース A」 として設定)。一方、降水系地下水の Case5.9.10 と海水系地下水の Case6 に関しては、緩衝 材中の透水係数の時間的・空間的な変化が大きく、また、緩衝材のすべての領域における透 水係数の上昇が大きいことから、このケースでは、透水係数および間隙率の時間的・空間的 な変化の条件を設定した解析を行うこととした。降水系地下水の Case5 と海水系地下水の Case6 では、それぞれ 45.000 年と 69,000 年に緩衝材全域のモンモリロナイトが消失すること により緩衝材全域において透水係数が急激に上昇している(それぞれ「降水系ケース B、海 水系ケース B」として設定)。また、降水系地下水 Case9 では、温度変遷ケース(100~47 ) であり降水系ケース A より透水系係数が 1 桁高い (「降水系ケース C」として設定 )。降水系 地下水 Case10 では、支保工側の緩衝材のモンモリロナイトが 34,000 年から消失し、その領域 の透水係数が高くなるものの、それより内側の緩衝材の低透水性の機能は維持された状態で ある(「降水系ケースD」として設定)。

地下水流動解析の解析ケース一覧を表 8.3-8 に示す。

ケース名	解析ケースの概要	備考(*1)
降水系ケースA	4,000年以降の緩衝材中の透水係数、間隙率は時間的・空間的に変化せず、 1E-12[m/s]、0.4[-]を設定	Case1,3,7
降水系ケースB	4,000年、7,000年、18,000年、32,000年、39,000年、44,000年、45,000年における緩衝材中の透水係数および間隙率の空間的な変化の条件を設定(セメント側の緩衝材における2次鉱物の生成やモンモリロナイト溶解による各パラメータの変動を考慮)	Case5
降水系ケースC	4,000年、15,000年、57,000年、100,000年における緩衝材中の透水係数および間隙率の空間的な変化の条件を設定(セメント側の緩衝材における2次鉱物の生成やモンモリロナイト溶解による各パラメータの変動を考慮)	Case9
降水系ケースD	400年、1,900年、20,000年、32,000年、37,000年、56,000年、85,000年、 100,000年における緩衝材中の透水係数および間隙率の空間的な変化の条 件を設定(セメント側の緩衝材における2次鉱物の生成やモンモリロナイト溶解 による各パラメータの変動を考慮)	Case10
海水系ケースA	4,000年以降の緩衝材中の透水係数、間隙率は時間的・空間的に変化せず、 1E-10[m/s]、0.4[-]を設定	Case2,4,8
海水系ケースB	4,000年、19,000年、31,000年、41,000年、52,000年、55,000年、59,000年、 64,000年、68,000年、69,000年における緩衝材中の透水係数および間隙率の 空間的な変化の条件を設定(セメント側の緩衝材における2次鉱物の生成やモ ンモリロナイト溶解による各パラメータの変動を考慮)	Case6

表 8.3-8 地下水流動解析の解析ケース一覧

(\*1)「8.3.1 緩衝材変質・間隙水組成の変遷評価」における解析ケースとの対応を示している。

#### (2)解析結果

緩衝材中のトラジェクトリ解析結果を図 8.3-54~図 8.3-58 に示す。緩衝材の止水機能が維持された状態である降水系ケース A とこれより透水係数が2桁高い海水系ケース A では、図 8.3-54 に示すように、粒子放出ポイントが廃棄体表面から離れた位置(No.4, 5)からの移行 経路は動水勾配に沿った流れとなっており、廃棄体付近の位置(No.1, 6~12)からの初期の 移行経路は、廃棄体の透水性が低いため廃棄体表面に沿った流れとなっていて、その後、動 水勾配に沿った流れになっている。海水系ケースAの緩衝材の透水係数は降水系ケースAよりも高いことにより流速が速くなり、廃棄体表面に沿った流れになる傾向が強く現れている。

45,000年後に緩衝材全体の止水機能が維持されなくなる降水系ケース B は、4 万年あたり から急激に透水性が高くなり、支保工側半分と廃棄体付近の緩衝材の止水性がまったく確保 できなくなる。44,000年では廃棄体表面から 20cm 付近の一部の緩衝材の透水係数が 1E-8 m/s 程度であるため、図 8.3-55 に示す(c)44,000年後では、廃棄体表面から 5cm ~ 30cm あたりに おける粒子の移行経路は廃棄体表面の法線方向の流れとなっている。しかし、その外側の緩 衝材における移行経路は、透水係数が一律 1E-6 m/s 程度と高いため、廃棄体表面から 30cm 付近に沿った流れとなり、その後、動水勾配に沿った流れになっている。また、7 万年後に 緩衝材全体の止水機能が維持されなくなる海水系ケース B でも、図 8.3-56に示すように、降 水系ケース B と同様な移行経路の変化を示していて、図 8.3-56に示す(c)41,000年後では、廃 棄体表面から 10cm ~ 60cm あたりにおける粒子の移行経路は廃棄体表面の法線方向の流れと なっている。しかし、その外側の緩衝材での移行経路は、透水係数が一律 1E-6 m/s 程度と高 いため、廃棄体表面から 60cm 付近に沿った流れとなり、その後、動水勾配に沿った流れにな っている。

降水系ケース C は、図 8.3-57(b)に示すように、10万年後には支保工側の緩衝材の止水機能 が低下し、廃棄体表面から 60cm 付近に沿う流れを示している。また、10万年後には支保工 側の緩衝材の止水機能が維持されなくなる降水系ケース D は、図 8.3-58 に示すように、400 年後の早期において支保工側の緩衝材の止水機能が低下し、廃棄体表面から 50cm 付近にやや 沿う流れを示し、10万年後には支保工側の緩衝材の止水機能が低下し、廃棄体表面から 50cm 付近に沿う流れを示している。



図 8.3-54 緩衝材中のトラジェクトリ解析結果(降水系ケースA、海水系ケースA)



図 8.3-55 緩衝材中のトラジェクトリ解析結果(降水系ケースB)



図 8.3-56 緩衝材中のトラジェクトリ解析結果(海水系ケースB)



(a) 4,000 年後 (b) 100,000 年後 図 8.3-57 緩衝材中のトラジェクトリ解析結果(降水系ケースC)



図 8.3-58 緩衝材中のトラジェクトリ解析結果(降水系ケースD)

緩衝材中の実流速の解析結果を図 8.3-59 に示す。図の左側に粒子放出ポイントが緩衝材を 横切る断面上の5点(No.1~No.5)とその対数平均値の実流速を示し、右側に粒子放出ポイ ントが廃棄体表面からの距離0.05mの円周上の8点(No.1, No.6~No.12)の実流速を示して いる。すべてのケースにおいて右側の図が示すように、粒子放出ポイントが廃棄体表面から の距離0.05mの下流側円周上の7点(No.6~No.12)の実流速は、粒子放出ポイント No.1と 同程度であることが確認できた。

緩衝材全体にわたって低透水性の機能が維持された状態である降水系ケースAの平均実流 速1.5E-6 m/y に対し,透水係数の2桁高い設定である海水系ケースAの平均実流速は1.3E-4 m/y と速い結果となった。また,降水系ケースBの平均実流速は、支保工側から生じるモン モリロナイトの溶解により4,000年から急激に上昇して緩衝材の全域にわたってモンモリナ イトが溶解する4万年あたりでは1.6E-3 m/yとなり、すべてのケースの中で最も速い値にな った。海水系ケースBの平均実流速は、降水系ケースBと同様にモンモリロナイトの溶解に より4,000年から上昇しはじめ、10万年後には1.4E-3 m/yとなり、降水系ケースBの次に速 い流速になっている。また、降水系ケースCの平均実流速は、4,000年から上昇し、10万年 後には3.6E-5 m/y になっている。一方、降水系ケースDの平均実流速は、2万年あたりで支 保工側のやや内側の緩衝材における2次鉱物の閉塞による間隙率の低下により一度上昇し、3 万年あたりからモンモリロナイトの溶解による支保工側の緩衝材の透水係数の上昇の影響を 受けて、また上昇し10万年には8.8E-6 m/y になっている。



(a) 緩衝材位置 No.1 ~ No.とその平均実流速
 (b) 緩衝材位置 No.1, No.6 ~ No.10
 図 8.3-59 緩衝材中の実流速の解析結果(1/2)



(a) 緩衝材位置 No.1 ~ No.とその平均実流速
 (b) 緩衝材位置 No.1, No.6 ~ No.10
 図 8.3-59 緩衝材中の実流速の解析結果(2/2)

トラジェクトリ解析から実流速を決める方法は、上記の解析結果を基に、緩衝材の変質による部分的な実流速の増加の効果を安全評価上考慮することとし、No.1~No.5の実流速の対数平均値を GSRW-PSA の入力とする。GSRW-PSA による核種移行解析に設定する Case1~10 に対する緩衝材の実流速は、時間変動が顕著なケース(Case5, 6, 9, 10)については時間変動 を考慮し、すべてのケースについて空間変動を考慮するため、緩衝材を横切る断面上の5点 (No.1~No.5)の対数平均値とすることとして、以下のように設定する(図 8.3-60参照)。

- Case1, 3, 7: 4,000 年以降, 1.5E-6 m/y で一定(降水系ケース A の結果より)
- Case2, 4, 8: 4,000 年以降, 1.3E-4 m/y で一定(海水系ケースAの結果より)
- Case5 : 解析結果(降水系ケースBの結果)に基づいた 3.2E-6~1.6E-3 m/y までの

実流速の経時変化を想定

- Case6 : 解析結果(海水系ケースBの結果)に基づいた 3.6E-5~1.4E-3 m/y までの
   実流速の経時変化を想定
- Case9 : 解析結果(降水系ケースCの結果)に基づいた 6.0E-6~3.6E-5 m/y までの
   実流速の経時変化を想定
- Case10: 解析結果(降水系ケースDの結果)に基づいた 5.2E-6~1.4E-5 m/y までの
   実流速の経時変化を想定

なお、Case5 や Case6 の最大流速のときでもペクレ数は 0.01 程度であり、緩衝材における 核種移行はすべての時間に対して拡散支配となっている。



図 8.3-60 核種移行解析に用いる緩衝材中の実流速

(3)まとめ

緩衝材変質の進行に伴う緩衝材中の地下水流速の変化を評価するため、緩衝材変質・間隙 水組成の変遷に係る解析により示された緩衝材中の透水係数および間隙率の空間的・時間的 変化の結果に基づき、多孔質系媒体中の地下水流動解析コード MIG2DF を用いて、緩衝材お よびその周辺母岩の領域を対象とした2次元地下水流動解析を実施した。さらに、GSRW-PSA による人工バリア内の1次元核種移行解析の入力の1つとなる緩衝材中の地下水流速を決定 するため、地下水流動解析の結果に対し、緩衝材中に設定した粒子に対するトラジェクトリ 解析を行った。

その結果、緩衝材全体にわたって低透水性の機能が維持された状態である降水系ケース A に対し,透水係数の2桁高い設定である海水系ケースAの平均実流速は1.3E-4 m/y と2桁高い結果となった。また,降水系ケースBおよび海水系ケースBの平均実流速は、支保工側から生じるモンモリロナイトの溶解により上昇して4万年あたりでは1E-3 m/y 程度の速い流速になった。ただし、このように流速が上がっても、Se-79及びCs-135ともにペクレ数は0.01以下であり、Case1~10の全ての解析ケースで変質した緩衝材中の核種移行は拡散支配であることがわかった。

# 8.3.6 核種移行解析

8.3.1~8.3.5 では、緩衝材変質の進行に伴う収着分配係数、緩衝材中の地下水実流速などの 核種移行パラメータの変動を評価した。ここでは、これらの各種移行パラメータの解析結果 に基づいて、確率論的安全評価コード GSRW-PSA<sup>(1)(2)</sup>コードを用いて人工バリアフラックス、 天然バリアフラックス及び被ばく線量を計算した。人工バリア及び天然バリア中の核種移行 解析の条件及び解析結果を以下に示す。なお、被ばく線量の解析条件及び解析結果は、 Appendix -C に記述した。

(1)解析条件

( a ) 評価モデルの概要

本解析に使用した GSRW-PSA コードの核種移行評価の概念モデルを以下に示す。なお、評価モデルの詳細については、「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]」<sup>(3)</sup>を参照されたい。

人工バリア

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ガラス固化体、炭素鋼オーバーパック、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、ガラス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。

天然バリア

天然バリアの核種移行解析では、亀裂性媒体モデルを用いる。亀裂性媒体モデルでは、 岩盤内に放出された核種は地下水の流れが支配的な亀裂内を移行すると考える。亀裂性媒 体中の核種移行は、亀裂中の移流及び分散、亀裂内の収着、亀裂に接する岩石マトリクス 部の拡散及び収着遅延の移行現象であると考えられる。なお、亀裂は平衡平板亀裂を仮定 した。

( b )人工バリアにおける核種移行パラメータ

核種移行解析において使用する核種移行パラメータは、8.3.1~8.3.5の解析結果に基づい て設定する。以下において、人工バリアの核種移行解析で使用する主なパラメータの設定の 考え方の概要を記述する。表 8.3-9 に、それぞれの解析ケースに対する人工バリアの主な設 定パラメータまとめた。なお、天然バリアにおける核種移行解析及び生物圏における線量評 価の際において設定したパラメータは Appendix- C に示す。

	地下水移行シナリオ解析の主な設定パラメータ(人工バリア)								
ケース	OP腐食形態 <sup>,</sup> 寿命	ガラス溶解速度 (g/m <sup>2</sup> /day)	溶解度 (mol/L)	拡散係数 (m <sup>2</sup> /s)	分配係数 (m <sup>3</sup> /kg)	<b>間隙率</b> (-)	緩衝材中の地下水 実流速(m/y)	備考	
1			Cs∶易溶性 Se∶易溶性	Cs: $2.8 \times 10^{-10}$ Se: $2.2 \times 10^{-10}$	Cs:0.15 Se:0.031	0.39	1.5 × 10 <sup>-6</sup>		
2			Cs : 易溶性 Se : 8.6 × 10 <sup>-6</sup> ~ 3.7 × 10 <sup>-5</sup> *1	Cs: 2.8 × 10 <sup>-10</sup> Se: 2.2 × 10 <sup>-10</sup>	Cs∶9.2 × 10 <sup>-4</sup> Se∶0.058	0.4	1.3 × 10 <sup>-4</sup>	*1 図8.3-11参照	
3		全面腐食 4,000年	Cs∶易溶性 Se∶易溶性	$Cs: 3.0 \times 10^{-10}$ Se: 2.6 × 10 <sup>-10</sup>	Cs:0.092 Se:0.0084~0.017 *3	0.4	1.5 × 10 <sup>-6</sup>	*3 図8.3-13参照	
4			Cs∶易溶性 Se∶易溶性	Cs: $3.1 \times 10^{-10}$ Se: $2.5 \times 10^{-10}$	Cs:0.001 Se:0.013~0.038 *3	0.45	1.3 × 10 <sup>-4</sup>	*3 図8.3-13参照	
5	全面腐食 4,000年		Cs∶易溶性 Se∶易溶性	Cs: $2.8 \times 10^{-10} \sim$ 1.0 × 10 <sup>-9</sup> *2 Se: $2.8 \times 10^{-10} \sim$ 9.3 × 10 <sup>-10</sup> *2	Cs:1.0 × 10 <sup>-4</sup> ~ 0.15 *4 Se:0 ~ 0.033 *3	0.3	3.2 × 10 <sup>-6</sup> ∼ 1.6 × 10 <sup>-3</sup> *6	*2 図8.3-12参照 *3 図8.3-13参照 *4 図8.3-14参照 *6 図8.3-16参照	
6		0.0016	Cs∶易溶性 Se∶4.0 × 10 <sup>-5</sup> ~ 8.5 × 10 <sup>-4</sup> *1	$\begin{array}{c} \text{Cs:} 3.2 \times 10^{-10} \\ 1.1 \times 10^{-9} & *2 \\ \text{Se:} 3.1 \times 10^{-10} \\ 1.1 \times 10^{-9} & *2 \end{array}$	Cs:1.0 × 10 <sup>-4</sup> ~ 5.1 × 10 <sup>-4</sup> *4 Se:0 ~ 0.047 *3	0.36	3.6 × 10 <sup>-5</sup> ~ 1.4 × 10 <sup>-3</sup> *6	*1 図8.3-11参照 *2 図8.3-12参照 *3 図8.3-13参照 *4 図8.3-14参照 *6 図8.3-16参照	
7			Cs∶易溶性 Se∶易溶性	$Cs: 2.8 \times 10^{-10}$ Se: 2.2 × 10 <sup>-10</sup>	Cs∶0.16 Se∶0.035	0.39	1.5 × 10 <sup>-6</sup>		
8			Cs∶易溶性 Se∶7.0 × 10 <sup>-6</sup> ~ 3.4 × 10 <sup>-5</sup> *1	$Cs: 2.8 \times 10^{-10}$ Se: 2.2 × 10 <sup>-10</sup>	Cs∶9.3 × 10 <sup>-4</sup> Se∶0.059	0.4	1.3 × 10 <sup>-4</sup>	*1 図8.3-11参照	
9			Cs∶易溶性 Se∶易溶性	Cs: $3.0 \times 10^{-10}$ Se: $3.1 \times 10^{-10}$	Cs:0.08 Se:0.01	0.32	6.0 × 10 <sup>-6</sup> ~ 3.6 × 10 <sup>-5</sup> *6	*6 図8.3-16参照	
10	局部腐食 400年		Cs∶易溶性 Se∶易溶性	Cs: $3.6 \times 10^{-10}$ Se: $4.1 \times 10^{-10}$	Cs: 0.029 ~ 0.087 *4 Se: 0.0023 ~ 0.007 *3	0.29 ~ 0.40 *5	5.2 × 10 <sup>-6</sup> ~ 1.4 × 10 <sup>-5</sup> *6	*3 図8.3-13参照 *4 図8.3-14参照 *5 図8.3-15参照 *6 図8.3-16参昭	

表 8.3-9 地下水移行シナリオ解析の主な人工バリアの設定パラメータ

ガラス溶解速度

ガラス溶解速度は、8.3.3 で示したように、マグネシウム濃度[Mg]、カルシウム濃度[Ca]、 pHの時間変遷に対して、

・[Mg] < 1.0×10<sup>-3</sup> mol/l かつ pH<11.5

を満たす場合には、残存溶解速度 (Stage ) 0.0016g/m<sup>2</sup>/day となる。一方、

•  $[Mg] > 1.0 \times 10^{-3} \text{ mol/l} \text{ $\sharp$tc} pH > 11.5$ 

を満たす場合には、マトリクス溶解速度(Stage )0.013g/m<sup>2</sup>/day となる。本解析では、8.3.3 の物質移行-間隙水変遷解析の結果に対して上記の条件を適用することにより設定し、10 ケ ースすべてに対して残存溶解速度(Stage )0.0016g/m<sup>2</sup>/day の一定値を設定した。

# 核種移行の開始時間

8.3.2 で実施した炭素鋼オーバーパック腐食寿命解析により、ケース 1~9 については、 すきま腐食及び炭酸塩応力腐食割れは発生せず、全面腐食が進行することにより 4,000 年 後に破損するという結果が得られている。このことから、オーバーパックが破損し核種の 移行が開始する時間として、ケース 1~9 に対して 4,000 年と設定した。また、ケース 10 については、初期に全面腐食が発生し、その後局部腐食が発生しすることにより 400 年後 にオーバーパックが破損するという結果が得られている。このことから、オーバーパック が破損し核種の移行が開始する時間として、ケース 10 に対して 400 年と設定した。なお、 本解析では、オーバーパック 1 本に対する影響を示した。

### 溶解度

8.3.4 の溶解度評価結果より、Se に関しては 10 ケースすべてに対して Se<sub>4</sub><sup>2-</sup>が支配的な溶 存種であり、ケース 2, 6, 8 では  $1 \times 10^4$  mol/l 以下の溶解度であり、それ以外のケースにおい ては  $1 \times 10^4$  mol/l 以上であり易溶性の結果なっている。Cs に関しては、間隙水条件によら ず支配的な溶存種は Cs<sup>+</sup>であり、いずれの条件でも易溶性となる。したがって Se に関して は、 $1 \times 10^4$  mol/l 以下の溶解度であるケース 2, 6, 8 に対しては図 8.3-61 示すように時間変動 する溶解度を設定し、その他のケースに対してはすべて易溶性と設定した。Cs に関しては、 10 ケースのすべてに対して易溶性と設定した。



図 8.3-61 ケース 2, 6, 8 における Se の溶解度の設定

緩衝材実効拡散係数

緩衝材実効拡散係数は、8.3.4 で示したように、Cs については細孔拡散モデル、Se については陰イオン排除モデルにより評価し、経時変化の値が示されている。ケース5、6 では、Cs と Se ともに 1 万年までは拡散係数は  $3 \times 10^{-10}$  m<sup>2</sup>/s 程度であり大きな変動は見られないものの、モンモリロナイトの減少に伴い拡散係数は上昇し、モンモリロナイトが消失した時点で  $1 \times 10^{9}$  m<sup>2</sup>/s と評価されている。ケース5、6 以外では、Cs の拡散係数は  $3 \times 10^{-10}$  m<sup>2</sup>/s 程度であり、また、Se の拡散係数は  $2 \times 10^{-10} \sim 4 \times 10^{-10}$  m<sup>2</sup>/s の範囲であり、Cs と Se ともに大きな変動は見られない。以上から、時間変動の最小値に対して最大値が 2 倍以上と変動が大きいケース (ケース 5, 6) に関しては、図 8.3-62 に示すように時間変動する拡散係数を設定した。それ以外のケースに関しては、時間変動の最小値は最大値の 2 倍未満と変動が小さいことから、時間変動する値の最大値を一定値として表 8.3-9 に示す値を設定した。



図 8.3-62 ケース 5,6 における緩衝材実効拡散係数の設定

緩衝材収着分配係数

8.3.4 では、Cs の収着分配係数は、緩衝材中のモンモリロナイト含有率及び間隙水中のナトリウム濃度に依存した評価を行い、降水系では、ナトリウム濃度の変化に依存して 0.0001 ~ 0.16 m<sup>3</sup>/kg の間を変動する結果が得られている。海水系では、降水系と比較して緩衝材と 間隙水との反応によるナトリウム濃度変化が小さく 0.0001 ~ 0.001 m<sup>3</sup>/kg の間を変動する結 果が得られている。ケース 1~4 とケース 7~9 のケースに関しては、オーバーパック破損 時間である 4,000 年以降はナトリウム濃度の変動は小さく、分配係数の時間変動の最小値 に対して最大値が 2 倍未満と変動が小さいことから、時間変動する値の最小値を一定値と して表 8.3-9 に示す値を設定した。ケース 5,6,10 に関しては、ナトリウム濃度の変動が大 きく、Cs の収着分配係数の時間変動の最小値に対して最大値が 2 倍以上と変動が大きいこ とから、図 8.3-63 に示すように時間変動する収着分配係数を設定した。なお、ケース 5,6 では、1 万年後以降にモンモリロナイトが消失し、それ以降の緩衝材に対する分配係数は、 保守的に石英に対する Cs の分配係数  $1 \times 10^4$  m<sup>3</sup>/kg を設定した。



図 8.3-63 ケース 5, 6,10 における Cs の緩衝材収着分配係数の設定

一方、Seの緩衝材収着分配係数は、緩衝材中のモンモリロナイト含有率及び間隙水中の pHに依存した評価とし、ケース 2,5,6,8 では、間隙水中の pH が 8~9 とほかのケースより も低く、分配係数は 0.03 ~ 0.06 m<sup>3</sup>/kg 程度の値が得られている。また、ケース 1,4,7,9 では、 間隙水中の pH が 9~10 程度であり、分配係数は 0.03 m<sup>3</sup>/kg 程度の値が得られている。その ほかのケースでは間隙水中 pH は 11 程度であり、分配係数は 0.01m<sup>3</sup>/kg 程度の値が得られ ている。

ケース 1, 2, 7, 8,9 に関しては、オーバーパック破損時間である 4,000 年以降は pH の変動 は小さく、時間変動の最小値は最大値の 2 倍未満と変動が小さいことから、時間変動する 値の最小値を一定値として表 8.3-9 に示す値を設定した。ケース 3, 4, 5, 6, 10 に関しては、 pH の時間変動が大きく、Se の収着分配係数は時間変動の最小値に対して最大値が 2 倍以上 と変動が大きいことから、図 8.3-64 に示すように時間変動する収着分配係数を設定した。 なお、ケース 5, 6 では、1 万年後以降にモンモリロナイトが消失してしまう。モンモリロ ナイト消失後の分配係数は、保守的に 0 m<sup>3</sup>/kg とした。



図 8.3-64 ケース 3, 4, 5, 6,10 における Se の緩衝材収着分配係数の設定

緩衝材中地下水実流速

緩衝材中の地下水実流速は 8.3.5 の解析結果より、降水系条件 (ケース 1, 3, 7) では緩衝 材の低透水性の機能が維持され  $1.5 \times 10^{-6}$  m/y と遅く、これより透水係数が 2 桁高い海水系 条件 (ケース 2, 3, 8) では、 $1.3 \times 10^{-4}$  m/y と降水系より 2 桁速い結果となっている。また、 ケース 5, 6 の条件では、3,000 年あたりから支保工側の緩衝材のセメント接触面からモンモ リロナイトが失われ始め、4 万年あたりには緩衝材の全領域でモンモリロナイトが喪失す ることにより、地下水実流速は  $1 \times 10^{-3}$  m/y 程度に増大する。ケース 5, 6, 9, 10 では、時間 変動の最小値に対して最大値が 2 倍以上と変動が大きいため、図 8.3-65 に示す時間変動の 実流速を設定した。



図 8.3-65 ケース 5,6,9,10 における緩衝材中の地下水流速の設定

緩衝材の間隙率

緩衝材の間隙率は、8.3.1 の解析結果より時間変動の最小値に対して最大値が1.2 倍以上 と変動が大きいケース 10 に対しては、図 8.3-66 に示す時間変動を考慮した間隙率を設定 した。その他のケースに対しては、時間変動の最小値に対して最大値が1.2 倍未満と変動 が小さいため、表 8.3-9 に示す一定の値を設定した。



図 8.3-66 ケース 10 緩衝材の間隙率の設定

(2)解析結果

( a ) 人工バリア

Se-79

ガラス固化体 1 本当たりの Se-79 の人工バリアからの移行フラックスの経時変化を図 8.3-67 に示す。10 ケースの条件の中で人工バリア性能が最も発揮されているケースは、す なわち、移行フラックスのピークが最も小さいケースは、ケース 8 (温度条件 25 、海水 系、酸素濃度 8ppm、支保工厚さ 9cm)であった。一方、移行フラックスの最も高いケース は、ケース 5 (温度条件 90 、降水系、無酸素、支保工厚さ 60cm)であった。両ケースの 移行フラックスのピーク値を比較すると 1 割程度の相違であり、全てのケースにおいて移 行フラックスのピーク値はあまり差のない結果となった。ガラス溶解速度は残存溶解速度 (Stage )の遅い溶解速度 (0.0016 g/m<sup>3</sup>/day)であるため、全てのケースにおいて移行フ ラックスは上昇後に律速された形となっている。なお、ケース 2, 6, 8 では、時間変動の溶 解度を設定しているが、すべての時間に対して可溶性の結果となった。

ケース1及び2では、ケース1の収着分配係数がケース2より低いため、ピーク時間が 早期に出現する結果となったが、ピークフラックスにはほとんど変化は見られなかった。 緩衝材中の地下水実流速の影響に関しては、地下水実流速をケース2ではケース1より2 桁高く設定しているにもかかわらず移行フラックスは両ケースともにほとんど違いがみら れない。

ケース4の条件では、図に示すように6,000年あたりで1度フラックスの低下が現れている。これは緩衝材に対する収着分配係数の影響であり、6,000年あたりで収着分配係数が 上昇することにより移行フラックスが低下している。

ケース3及びケース8では、収着分配係数が他のケースより低い値であり緩衝材へのSeの収着が小さいことにより、移行フラックスは急激な立ち上がりを示している。

ケース 10 では、オーバーパックが 400 年に破損することにより、他のケースと異なり

1,000年以前に人工バリア移行フラックスの上昇が現れている。また、700年あたりで1度 フラックスの低下が現れており、これはケース4と同様に緩衝材に対する収着分配係数の 影響であり、700年あたりで収着分配係数が上昇することにより移行フラックスが低下し ている。

オーバーパック境界温度の異なるケース(ケース 3, 5)を比較すると、ケース 3(25) とケース 5(90)のフラックスの立ち上がりの相違は、オーバーパック破損後の初期期 間における Se の分配係数がが、25 では 0.0084 m<sup>3</sup>/kg、90 では 0.033 m<sup>3</sup>/kg と大きく異な ることにより生じている。温度変遷(100 ~47)のケース 9 とケース 3, 5 の比較では、 ケース 9 では温度が短期間で低下するため、25 のケース 3 に近いフラックスとなった。

以上から、Se-79 の人工バリアの移行フラックスに対して感度が高いパラメータとして、 収着分配係数が挙げられる。





図 8.3-67 Se-79の人工バリア移行フラックス(1/2)







Cs-135

ガラス固化体 1 本当たりの Cs-135 の人工バリアからの移行フラックスの経時変化を図 8.3-68 に示す。10 ケースの条件の中で人工バリア性能が最も発揮されているケースは、す なわち、移行フラックスのピークが最も小さいケースは、ケース 7(温度条件 25、降水 系、酸素濃度 8ppm、支保工厚さ 9cm)であった。一方、移行フラックスの最も高いケース 5(温度条件 90、降水系、無酸素、支保工厚さ 60cm)であった。両ケースの移行フラッ クスのピーク値を比較すると4割程度の相違であった。

降水系(ケース 1、3、5、7、9、10)と海水系(ケース 2、4、6、8)の移行フラックス を比較すると、海水系の収着分配係数が降水系よりも低いことにより、海水系の移行フラ ックスは降水系よりも急激な立ち上がりを示している。

降水系の緩衝材中の地下水流速を 1.5×10<sup>-6</sup> m/y に設定しているケース(ケース 1、3、7) と海水系の地下水流速を 1.3×10<sup>-4</sup> m/y に設定しているケース(ケース 2、4、8)の移行フ ラックスのピーク値を比較すると、海水系地下水中の Na イオンが高濃度であるため海水系 の収着分配係数が降水系よりも大幅に低いことにより海水系の移行スラックスのピーク時 間が早期に出現する結果となったが、ピークフラックスにはほとんど変化は見られなかっ た。緩衝材中の地下水実流速の影響に関しては、地下水実流速を海水系のケースでは降水 系のケースより 2 桁高く設定しているにもかかわらず移行フラックスは両ケースともにほ とんど違いがみられない。

ケース 5 の条件では、図に示すように 3 万年あたりの移行フラックスの上昇が現れている。これは緩衝材に対する収着分配係数の影響であり、モンモリロナイトの消失に伴い 2 万年以降の収着分配係数が急速に低下することにより移行フラックスが上昇している。

ケース1の条件における人工バリアからの移行フラックスの挙動は、ケース7と同様の 傾向となり、ケース2の条件における移行フラックスの挙動は、ケース4及びケース6と 同様の傾向となった。同様に、ケース3の条件における移行フラックスの挙動は、ケース 9と同様の傾向となった。

ケース 10 では、オーバーパックが 400 年に破損することにより、他のケースと異なり 1000 年以前に人工バリア移行フラックスの上昇が現れている。また、700 年あたりで 1 度 フラックスの低下が現れており、これは緩衝材に対する収着分配係数の影響であり、700 年あたりで収着分配係数が上昇することにより移行フラックスが低下している。

以上から、Cs-135の人工バリアの移行フラックスに対して感度が高いパラメータとして、 Se-79と同様に収着分配係数が挙げられる。



図 8.3-68 Cs-135の人工バリア移行フラックス(1/3)


















(b) 天然バリア(亀裂帯)

Se-79

天然バリアの解析結果として、亀裂帯からの Se-79 移行フラックスの経時変化を以下の 図 8.3-69 に示す。ピークフラックスの差は、亀裂帯からの Se-79 移行フラックスが最も低 いケース 5 と比較してすべて 1.01 倍以下となり、本解析で設定した条件では人工バリアの フラックスの違いが、天然バリアのフラックスの違いに現れていない。





ケース2













図 8.3-69 Se-79 の亀裂帯移行フラックス (2/2)

Cs-135

亀裂帯からの Cs-135 移行フラックスの経時変化を以下の図 8.3-70 に示す。海水系のピー クフラックスが降水系と比較して 1400 倍程度大きい。これは岩の分配係数の設定値の違い に起因するものである。降水系の分配係数が海水系よりも 1 桁大きいため、降水系の母岩 における Cs-135 の移行が遅延することにより Cs-135(半減期 230 万年)の減衰が大きくな り、降水系の亀裂帯からの Cs-135 移行フラックスは海水系より大きく低下している。降水 系 (ケース 1、ケース 3、ケース 5、ケース 7、ケース 9、ケース 10)のピークフラックス を比較すると、ほとんど違いは見られなかった。海水系 (ケース 2、ケース 4、ケース 6、 ケース 8)の比較においても同様にピークフラックスに違いはほとんど見られなかった。 天然バリアのバリア機能により移行フラックスの有意な増加は見られなかった。



ケース1

ケース2



ケース3









図 8.3-70 Cs-135 の亀裂帯移行フラックス(2/2)

(3)まとめ

緩衝材変質の進行に伴うバリア機能の変遷を評価するために、Se-79、Cs-135 を対象にして 緩衝材変質・間隙水組成の変遷評価に基づいて示された解析結果に基づいて、GSRW-PSA コ ードを用いて人工バリアフラックス及び天然バリアフラックスの解析を実施した。解析結果 は以下のようにまとめられる。

人工バリアの移行フラックスに関しては、Se-79 では、ケース8(温度条件25、海水系、 酸素8ppm、支保工厚さ9cm)が最もバリア機能が発揮された結果であった。Cs-135 では、ケ ース7(温度条件25、降水系、酸素8ppm、支保工厚さ9cm)が最もバリア機能が発揮され た結果であった。その他のケースに関しては、最もバリア機能が発揮されたこれらのケース と比較して、緩衝材収着分配係数の低下の影響により移行フラックスの増加がみられる結果 となった。一方、緩衝材の実流速の影響に関しては本解析の設定条件では拡散律速が維持さ れ、移行フラックスにはほとんど違いがみられなかった。以上から、Se-79、Cs-135の人工バ リアの移行フラックスに対して感度が高いパラメータとして、収着分配係数が挙げられた。

天然バリア(亀裂帯)の移行フラックスに関しては、本解析で設定した条件では、人工バ リアのフラックスの違いが、天然バリアのフラックスの違いに現れていない。