

イエローフェーズを含むガラス固化体の処分時影響評価試算結果の妥当性について

報告書

平成 20 年 11 月

日本原子力学会

「イエローフェーズ含有ガラス固化体評価」特別専門委員会

本報告書は、日本原子力学会が日本原燃株式会社の委託を受けて実施し作成した報告書です。

本報告書の供覧、複製、転載、引用等には、日本原燃株式会社の承認が必要です。

目 次

1. はじめに	
1.1 背景	1
1.2 目的	1
1.3 活動	1
1.3.1 委員会及び委員	1
1.3.2 委員会の活動	2
2. 特別委員会による妥当性評価と今後確認すべき事項に関する提言	3
2.1 総括	3
2.2 今後確認すべき事項	5
2.2.1 イエローフェーズの基礎物性把握	5
2.2.2 イエローフェーズによる影響に関するより包括的な検討	5
2.2.3 影響評価のシナリオの拡張	5
2.2.4 核種移行解析の前提条件とソースタームに関するより詳細な議論	5
2.2.5 ガラス固化体に求められる性能目標の明確化	6
3. おわりに	7

参考文献

添付資料

1.はじめに

1.1 背景

2007年11月から実施してきた日本原燃（株）六ヶ所再処理工場のガラス固化設備のアクティブ試験において、キャニスタへのガラス充填の際に低粘性流体の流下が認められた。この低粘性流体はガラス流下初期に観察され、ガラスへ溶け込まずキャニスタの底部付近でガラスと共に固体状で存在していると考えられている。また、その後の分析やこれまでの知見（文献調査）⁽¹⁾⁻⁽³⁾にもとづけば、これはガラス固化及び処分の研究において、イエローフェーズ（モリブデン酸塩を主成分とする結晶相）と称されているものと判断される。これについて日本原燃（株）は、（財）電力中央研究所に処分に関する環境影響評価を委託して概略評価を行い、今回生成した少量の低粘性流体を含むガラスを固化したガラス固化体（本報告書では「イエローフェーズを含むガラス固化体」と言う）であっても、含まないガラス固化体と同程度の環境影響であろうとの結果を得たとしている。そこで、原子力学会において「イエローフェーズ含有ガラス固化体評価」特別専門委員会（以下、「委員会」と言う）を設置し、この概略評価結果の妥当性及び今後確認すべき事項を評価検討する。

1.2 目的

今回生成した少量のイエローフェーズを含むガラス固化体が地層処分されることを想定し、（財）電力中央研究所が実施した処分時の環境影響評価の試算結果（添付資料(1)）の妥当性を評価する。

1.3 活動

1.3.1 委員会及び委員

委員会の構成委員、オブザーバ、関係者は以下の通りである。

（五十音順、敬称略）

委員

主査	出光 一哉	九州大学
	石黒 勝彦	原子力発電環境整備機構
	稲垣 八穂広	九州大学
	大江 俊昭	東海大学
	佐藤 努	北海道大学
	塩月 正雄	（独）日本原子力研究開発機構
	千葉 保	日揮（株）
	朽山 修	（財）原子力安全研究協会
	長崎 晋也	東京大学
	中山 真一	（独）日本原子力研究開発機構
	新堀 雄一	東北大学
	馬場 恒孝	（独）日本原子力研究開発機構

宮原 要	(独) 日本原子力研究開発機構
山田 憲和	三菱マテリアル (株)
山名 元	京都大学
幹事 田辺 博三	(財) 原子力環境整備促進・資金管理センター
オブザーバ	
大塚伊知郎	(独) 原子力安全基盤機構
田村 明男	原子力発電環境整備機構
関係者	
池田 孝夫	日揮 (株)
越智 英治	日本原燃 (株)
加藤 和之	電気事業連合会
塚田 毅志	(財) 電力中央研究所
中村 浩樹	日本原燃 (株)
藤田 智成	(財) 電力中央研究所
守屋 登康	日本原燃 (株)

1.3.2 委員会の活動

第1回 平成20年9月3日

- ① 委員会の設置について
- ② 今回の事象の概略説明と学会への依頼事項について
- ③ イエローフェーズを含むガラス固化体の処分に関する概略評価結果について
 - ・イエローフェーズに関する文献調査
 - ・イエローフェーズを含むガラス固化体の処分時影響の概略評価結果について
- ④ 評価の進め方 (案) について
- ⑤ 報告書の取り扱いについて
- ⑥ その他

第2回 平成20年10月3日

- ① 前回議事録の確認
- ② 「イエローフェーズを含むガラス固化体の処分時影響の概略評価結果」との比較計算結果
- ③ イエローフェーズを含むガラス固化体の処分時影響の試算結果の妥当性評価
- ④ 委員のレビュー
- ⑤ 報告書骨子 (案) について
- ⑥ その他

第3回 平成20年10月31日

- ① 報告書案について
- ② その他

2. 委員会による妥当性評価と今後確認すべき事項に関する提言

2.1 総括

(財)電力中央研究所が日本原燃(株)(以下、「JNFL」と言う。)からの委託により実施した「ガラス固化体処分時影響評価試算について」(以下、「電中研受託研究報告」と言う。添付資料(1))では、「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⁽⁴⁾」(以下、「HLW第2次取りまとめ」と言う。)に用いられている手法、レファレンスケースの解析条件を参照し、さらにガラス固化体の一部が速やかに溶解することを想定して核種移行解析+線量評価を行った結果として、ガラス固化体からの漏洩率及び緩衝材出口における一部の放射性核種(特にCs-135)のフラックスには有意な影響が出たものの、天然バリアの移行遅延効果により天然バリア出口でのフラックス及び生物圏における被ばく線量率に関しては有意な影響が出なかったとして、以下のように結論している。

「国内の処分に関する影響評価事例であるHLW第2次取りまとめを参考に、文献情報をもとに仮定や条件を設定することにより、ガラス固化体中に結晶相が生成した場合の、地層処分への影響を試算した。高レベルガラス固化体の処分時の評価核種として、Zr-93、Tc-99、Pd-107、Cs-135に着目し、種々の条件で核種移行解析を行った結果、結晶相生成の影響はない、または非常に小さいことが評価結果として得られた。」

この評価方法は、今回生成した少量のイエローフェーズを含むガラス固化体が処分に及ぼす影響を概略評価するという点では妥当なものであると判断する。また、計算結果についても、委員会が別途実施した比較計算¹(添付資料(2))においてもほぼ一致しているとの結論が得られていることから、やはり妥当なものであると判断する。

この評価では、ガラス固化体中のイエローフェーズが選択的かつ速やかに溶解する一方で他のバリア要素には影響を与えず、多重バリアはレファレンスケースの設定のまま機能するとの前提がとられている。処分システムは本来、多重バリアの概念により、一部のバリア要素に不具合があったとしてもシステム全体としての安全性に大きな影響を及ぼさないように頑健に設計されるものである。電中研受託研究報告は、「イエローフェーズを含むガラス固化体が発生したとしても、処分システムの頑健性により、結果としての評価に大きな影響を及ぼすことはないことを概略評価したものとしては妥当なものである」と委員会は考えるが、このようなガラス固化体の処分にあたっては、さらに詳細で包括的な評価が必要であり、その妥当性をより確かなものとするためには、次項に示す「今後確認すべき事項」について継続的に検討を行いつつ、着実に裏付けていくことが望ましいと判断する。なお、委員会において指摘されたコメントを、表1に整理する。

¹ 委員会より(独)日本原子力研究開発機構に委託。HLW第2次とりまとめと同一のモデルを用いて、電中研受託研究報告(解析コードとして改良版RAPRANを使用)の解析条件と整合を図り、比較計算を実施。添付資料(2)参照。

表1 電中研受託研究報告の各項目に対して委員会で指摘されたコメント

電中研受託研究報告の項目	コメント
3.1 評価の考え方	
3.1.1 地層処分システム	<ul style="list-style-type: none"> HLW 第2次取りまとめと同じシステムを選択することは現段階では妥当。
3.1.2 評価シナリオ	<ul style="list-style-type: none"> 論拠を構築する上では what if シナリオなども検討が必要。 イエローフェーズ（表中では YP と表示）影響の FEP 検討が必要。例えば、 <ul style="list-style-type: none"> YP 溶解に伴う塩濃度上昇の影響。 モリブデン酸によって酸化性雰囲気になる可能性。 一部核種が過剰に存在することで収着の非線形性。 モリブデン酸ポリマーの形成の可能性。
3.1.3 評価モデル	<ul style="list-style-type: none"> YP によって拡散支配の場が担保されなくなる可能性。
3.1.4 評価パラメータ	<ul style="list-style-type: none"> HLW 第2次取りまとめに準拠することは現段階では妥当。 YP の基本物性に関する広範かつ詳細な情報蓄積が必要。
3.1.5 不確実性の取扱い	<ul style="list-style-type: none"> 岩種、地下水性状の違いなどについても検討が必要。
3.2 評価方法	
3.2.1 核種移行解析コード RAPRAN	<ul style="list-style-type: none"> RAPRAN を使用することは妥当。
3.2.2 評価体系	<ul style="list-style-type: none"> HLW 第2次取りまとめに準拠することは現段階では妥当。
3.2.3 評価対象核種	<ul style="list-style-type: none"> Cs、Tc を主たる評価対象核種とすることは妥当であるが、YP に随伴する可能性のある他の核種（Mo、Se など）についても検討が必要。
3.2.4 評価パラメータ	<ul style="list-style-type: none"> HLW 第2次取りまとめに準拠することは現段階では妥当。
3.2.5 評価ケース	<ul style="list-style-type: none"> ワレンスケースを中心として概略評価することは妥当。 影響を及ぼしうるシナリオについても解析ケースとして検討が必要。
3.3 評価結果	
3.3.1 ガラス固化体からの核種溶出挙動	<ul style="list-style-type: none"> 比較評価によって妥当性を確認。（添付資料(2)参照）
3.3.2 緩衝材からの核種漏出挙動	<ul style="list-style-type: none"> 比較評価によって妥当性を確認。（添付資料(2)参照）
3.3.3 天然バリアからの核種漏出挙動	<ul style="list-style-type: none"> 比較評価によって妥当性を確認。（添付資料(2)参照）

2.2 今後確認すべき事項

2.2.1 イエローフェーズの基礎物性把握

イエローフェーズの量・組成・融点、溶解度、熱伝導度などイエローフェーズの基礎物性、イエローフェーズを含むガラス固化体の機械的強度、イエローフェーズに含まれる放射性核種の種類と量などについては、JNFL による観察や既往文献の調査などから推測されるものの、その信頼性をより高めるためには、調査の継続、理論的考察による推論、基礎物性を確認するための基礎データ取得による充実が望まれる。

2.2.2 イエローフェーズによる影響に関するより包括的な検討

電中研委託研究報告では核種移行解析に力点を置いた検討がなされているが、そこに絞り込むまでの課題として、処分環境条件（THMCR²）や個別現象などにおけるイエローフェーズに起因する影響の懸念事項に関して、さらなる網羅的、包括的な議論が必要であることを委員会は指摘する。具体的には、イエローフェーズが処分場性能に及ぼす影響に関する FEP³の洗い出しが必要であり、例えば、モリブデン酸塩、硫酸塩などによる間隙水性状への影響などについて今後確認することが望ましい。

2.2.3 影響評価のシナリオの拡張

電中研委託研究報告では、レファレンスケースをベースにした核種移行解析＋線量評価によって影響を評価しているが、これについて次の2点を指摘する。

ひとつは、レファレンスケースでは多重バリアの設定は全体として比較的良好であり、そのために、線量率を指標とする限りにおいては、イエローフェーズを含むガラス固化体と HLW 第2次取りまとめのガラス固化体との差異が見えにくくなっているという点である。

もうひとつは、HLW 第2次取りまとめがそうであるように、レファレンスケースの結果だけをもって安全性を主張しているのではなく、幅広く設定されたシナリオ・解析ケースによる評価も同時に行われているという点である。例えば、酸化性雰囲気下において溶解度制限が成立しないような状況となりうる変動シナリオや what if シナリオなど、イエローフェーズを含むガラス固化体の影響がより明瞭となる可能性のあるシナリオ・解析ケースについて、より広範に評価し、安全の論拠を構築することが望ましい。

2.2.4 核種移行解析の前提条件とソースタームに関するより詳細な議論

2.2.1 項及び 2.2.2 項に示したようなイエローフェーズに関する懸念事項が、レファレンスケースの核種移行解析における前提条件も阻害してしまう可能性について、確認する必要がある。委員会では、例えば、①ポリモリブデン酸を形成することによるコロイドソースの供給、②間隙水組成の変化によるガラスからの核種溶出挙動への影響、などを示唆した。

また、イエローフェーズを含むガラス固化体の核種移行解析においては、そのソースタームの

² Thermal (温度), Hydrological (水理), Mechanical (力学), Chemical (化学), Radiological (放射線) の頭文字を取ったもの。安全評価において記述すべき、核種移行の場の状態のこと。

³ Feature (特性), Event (事象) and Process (現象)。処分システムの将来挙動を記述するための基本要素。

設定が最も重要であることから、①イエローフェーズの分布状況、②イエローフェーズからの核種溶出メカニズム、③ホウケイ酸ガラス母相からの核種溶出（組成変化の影響、イエローフェーズ溶脱の影響など）、④放射線が局在化した場合のホウケイ酸ガラスの放射線損傷の可能性、などの留意点を示すとともに、今後とも議論が必要であることを指摘した。

2.2.5 ガラス固化体の長期的性能の現実的評価

今回の概略評価では、今回生成した少量のイエローフェーズを含むガラス固化体が発生したとしても、処分システムの頑健性により、結果としての評価に大きな影響を及ぼすことはないとしている。しかしながら、処分の影響評価の信頼性をより確かなものとするためには、ガラス固化体の長期的性能について過剰な保守性を見込むのではなく、その現実的な長期的性能を影響評価に取り込むことが重要であると委員会は判断する。

委員会は、以上の課題について、日本原子力学会としても、学術的立場から引き続き関与していくとともに、廃棄体製造者である JNFL は、処分事業実施主体である原子力発電環境整備機構や高レベル放射性廃棄物の処理・処分技術に関する研究開発機関である日本原子力研究開発機構等の各関係機関の協力を得て、今後も継続的に取り組んでいくことを期待する。

3. おわりに

地層処分の多重バリアシステムは、必ずしもバリア機能の完全な独立性を求めるものではなく、個々のバリア要素の機能低下がシステム全体の性能に重大な影響を及ぼさないように設計される。したがって、部分的に機能の劣るガラス固化体が製造段階で非定常的に発生した場合でも、本来、多重バリアシステムの相互補完性により、処分場全体のシステム性能に重大な影響を及ぼさないように対応できるものである。しかしながら、どのような性能のガラス固化体を製造してもよいと拡大解釈されてはならない。非定常的に発生したガラス固化体の処分にあたっては、その性能や他のバリアへの影響などについて包括的に検討しつつ、処分場全体のシステム性能に重大な影響を及ぼさないことを、慎重に確認すべきである。

また、処分の成立性をより確かなものとするためには、固化体を安定した品質で製造することも重要であると委員会は判断する。

これらの課題については、日本原子力学会としても、学術的立場から引き続き関与していくとともに、各関係機関においては、今後も継続的に取り組んでいくことを期待する。

参考文献

- (1) IAEA (1979) : Characteristics of Solidified High Level Waste Products, Technical Reports Series No. 187.
- (2) IAEA (1985) : Chemical Durability and Related properties of Solidified High Level Waste Forms, Technical Reports Series No. 257, pp.64.
- (3) Lutze, W. and Ewing, R.C. (edit.) (1988) : Radioactive Waste Forms for the Future, North-Holland, Amsterdam, pp.31-35.
- (4) 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」(HLW 第2次取りまとめ)、平成11年11月26日。

添付資料

- (1) 電力中央研究所、ガラス固化体処分時影響評価試算について、平成20年5月26日。
- (2) 日本原子力研究開発機構、「電中研受託研究報告の処分時影響評価試算結果」との比較計算、平成20年10月3日。

ガラス固化体処分時影響評価試算について

平成 20 年 5 月 26 日

(財) 電力中央研究所

本報告書は、日本原燃株式会社からの委託業務により財団法人電力中央研究所が実施したものであります。恐れ入りますが、本件に関するお問い合わせは日本原燃株式会社へお願い致します。

平成 20 年 1 1 月 日本原燃株式会社

目 次

1. はじめに	1
1.1 研究の背景	1
1.2 研究の目的	1
2. 結晶相生成に関する知見の調査	2
3. 結晶相を含むガラス固化体の処分への影響評価	3
3.1 評価の考え方	3
3.1.1 地層処分システム	3
3.1.2 評価シナリオ	4
3.1.3 評価モデル	4
3.1.4 評価パラメータ	5
3.1.5 不確実性の取り扱い	5
3.2 評価方法	6
3.2.1 核種移行解析コード RAPRAN	6
3.2.2 評価体系	10
3.2.3 評価対象核種	10
3.2.4 評価パラメータ	11
3.2.5 評価ケース	12
3.3 評価結果	20
3.3.1 ガラス固化体からの核種溶出挙動	20
3.3.2 緩衝材からの核種漏出挙動	22
3.3.3 天然バリアからの核種漏出挙動	26
3.4 評価結果に関する考察	29
4. まとめ	30
参考文献	30
付録ー 1	i
ガラスの溶解寿命の影響評価結果	
付録ー 2	vii
Cs-135 の結晶相への随伴率を 30%とした場合の評価結果	
参考資料	xi
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」の評価モデル、パラメータ等	

1. はじめに

1.1 研究の背景

高レベル放射性廃液のガラス固化体製造時にガラスマトリクスに取り込まれない低粘性流体の生成が観察された。化学分析によりその主成分がモリブデンの酸化物、あるいはモリブデン酸塩であること、放射性核種の一部が取り込まれていることが確認された。この低粘性流体は、冷却後はガラス相とは分離した状態の結晶相、いわゆるイエローフェーズと称される相として存在すると考えられる。仮に結晶相を含むガラス固化体を地層処分した際にどの程度の影響が見込まれるかを検討しておくことは、処分の安全性を検討する上で重要である。

短期的なガラスの溶解挙動については、類似した相としてモリブデン酸塩の生成に起因する失透化したガラスに関する研究例があり、短期的な溶解挙動に及ぼす影響は小さいことが確認されている^[1]。一方、高レベル廃棄物地層処分の安全評価では、高レベルガラス固化体の長期的な溶解挙動が重要視されており、この評価には長期的溶解速度定数と称される性能評価パラメータが用いられている^[2]。しかしながら、長期的な溶解速度への結晶相の影響については、これまで評価が十分になされていない。そこで、結晶相が生成したガラス固化体を処分した場合の影響を、核種移行評価計算により概略把握することが求められる。

1.2 研究の目的

本研究では、高レベル放射性廃液のガラス固化体製造時に生じた微量の結晶相に関する文献調査及び解析を行い、処分した場合の影響の評価に資することを目的とする。

すなわち、ガラス固化体の製造過程において発生する結晶相に関する国内外公開情報を調査・集約し、結晶相に関する研究状況や知見を明らかにする。

次に、一部の放射性核種が随伴する結晶相生成を想定したガラス固化体の地層処分時の核種漏出および被ばく線量への影響評価を、旧核燃料サイクル開発機構が取りまとめた「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」^[2]（以下、「HLW 第2次取りまとめ」）で行われた評価に準拠することにより実施し、地層処分時におけるガラス固化体の長期的性能に対する、結晶相の存在の影響の有無を検討し、影響がある場合には影響の程度を概略把握する。具体的には、ある量の結晶相が生成し、一部の放射性核種が随伴した場合を想定し、ガラス固化体処分時の影響の程度を核種移行解析により検討する。

2. 結晶相生成に関する知見の調査

ガラスの失透化は一般的なガラス製造過程での現象として知られており、失透化が生じる温度域等について古くからの知見がある^[3]。高レベル放射性廃液のガラス固化体製造時にも、元素の一部がガラス相に取り込まれることなく、結晶相として析出する場合もあることが知られている。この結晶相は黄色を呈することから「イエローフェーズ」と称されており、ガラス固化体による高レベル放射性廃棄物処分を計画する諸国で、結晶相の分離や生成条件、結晶構造に関する研究が行われてきた^[4-23]。IAEAのレポート^[9]によれば、結晶相はアルカリ金属の硫酸塩、クロム酸塩やモリブデン酸塩、およびアルカリ土類金属のモリブデン酸塩、クロム酸塩の混合物あるいは固溶体とされる。これらの研究から、モリブデン酸のグループはホウケイ酸ガラスのネットワーク内には固定されず、ネットワーク外の間隙中にアルカリ元素、アルカリ土類元素とともに存在しやすいこと^[14-16]、6価のモリブデン原子が酸素原子と結びついたテトラヘドラルの結晶構造を有すること^[14-17]、パウエル石 (powellite, CaMoO_4) は安定であるが、 Na_2MoO_4 は水への溶解性が高く、またセシウムを随伴する場合があること^[18]が明らかとなっている。また、モリブデンと硫黄成分との関係^[11]や、モリブデンおよび模擬廃棄物含有量とイエローフェーズ生成との関係^[19]、含有 Li_2O 量とパウエル石型モリブデン酸相の量との相関関係^[17]、低融点の CsLiMoO_4 相の早期形成が確認^[16, 20] されている。パウエル石については、その安定性に着目したモリブデンの固定化の研究^[21]がある。またパウエル石はガラスが水に溶解することにより生成する二次鉱物の一つであり、3価のアクチニドを収着する性質があることから、この鉱物生成に核種移行遅延を期待した研究^[22]もある。

これらの結晶相に随伴する元素を同定した研究^[1, 8, 10, 11, 23, 24]もあり、ガラスの製造条件が異なるものの、ナトリウムやカルシウムのモリブデン酸塩のほかに、リチウム、カリウム、マグネシウム、ストロンチウム、バリウム、ケイ素、ホウ素、アルミニウム、クロム、硫黄、リンが結晶相に随伴する可能性が報告されている^[10, 11]。また、イエローフェーズという名称の記載はないものの、失透化したガラスの結晶相に、ネオジム^[8]、セリウムや亜鉛^[23]、ジルコニウム、パラジウムとテルルの化合物、鉄、ルテニウム、ランタンなど^[24]が随伴するとの報告がある（各文献で重複する場合は元素名の記載を省略した）。

イエローフェーズの生成条件の研究が進められている一方で、添加物によるイエローフェーズ生成防止の研究^[25]なども行なわれており、今後実規模でのガラス固化体製造における最適条件の設定に役立つと考えられる。しかしながら、ガラス固化体の製造過程で起こりうるイエローフェーズ生成が、ガラス固化体の処分時の核種漏出および被ばく線量に与える影響の有無や大きさに関しても明らかにされた例が見あたらず、生成量と処分に与える影響の関係が明らかではない状況にある。

以上のように、モリブデン酸塩を主成分とする結晶相は、ガラス相から分離しており地

下水への溶解挙動がガラス相と異なること、一部の放射性核種を随伴する可能性があることから、地層処分への影響評価においては、あらかじめ核種漏出および被ばく線量への影響を把握することが重要と考えられる。

3. 結晶相を含むガラス固化体の処分への影響評価

結晶相を含む高レベルガラス固化体を地層処分した際の、結晶相に随伴した一部の放射性核種の早期の溶出を想定し、ガラス固化体から溶出した放射性核種の緩衝材、天然バリア中での移行計算を実施することにより、核種漏出および被ばく線量への影響を調べた。

3.1 評価の考え方

結晶相生成がガラス固化体からの核種の溶出挙動に与える効果として、一部の放射性核種が結晶相に随伴することによる早期の溶出を想定し、ガラス固化体から人工バリア、天然バリアを介した核種移行計算により、移行媒体中の核種漏出及び線量への影響の程度を把握することとした。すなわち、結晶相生成のないガラス固化体の溶解に調和的に放射性核種が溶出する場合の評価結果との比較により、結晶相の地層への影響の有無や程度を把握する。なお、結晶相に随伴する放射性核種は、その可能性が文献で示されている元素のうち、高レベル放射性廃棄物に放射性核種として含まれ、かつ地層処分の安全評価で重要となる核種、および低粘性流体の分析で存在が明らかとなった核種を選定して評価対象とした。解析では対象核種のインベントリの一部が結晶相に随伴し、ガラス固化体と地下水の接触後、早期かつ短期間にガラス固化体から溶出すると仮定した。具体的に設定した条件、および仮定については、3.2.3項、3.2.4項を参照されたい。

また、本評価は、ガラス固化体中の結晶相生成の有無に対して、地層処分の安全評価における被ばく線量などへの影響の有無や程度の確認を行なうことを主目的としている。ここで、地層処分システムや安全評価シナリオ、モデル、データなどは、可能な限り「HLW 第2次取りまとめ」^[2]の検討結果を参考とし、レファレンスケースとして設定された条件をもとに結晶相生成の影響把握に必要な条件を設定することとした。

3.1.1 地層処分システム

地質環境条件としては、地形は陸域の平野で陸水起源の地下水を想定した。岩種は結晶質岩と堆積岩の二種類を想定した。

処分場のレイアウトと人工バリアおよび処分施設の仕様は「HLW 第2次取りまとめ」^[2]の検討対象と同一とした。

生物圏とのインターフェースは河川を想定した。

地層処分システムに求められる各部材の性能も「HLW 第2次取りまとめ」^[2]と同様であ

る。

3.1.2 評価シナリオ

放射性廃棄物処分の安全評価では、「HLW 第2次取りまとめ」^[2]にもあるように、以下のシナリオに大別され、それぞれ評価計算が行われる。

- ① 地下水シナリオ：地下水により放射性物質が処分場から人間環境に移行する可能性に関するシナリオ
- ② 接近シナリオ：高レベル放射性廃棄物と人間との物理的距離が接近することによって人間環境に影響が及ぶ可能性に関するシナリオ

本研究で対象とした結晶相生成に伴うガラス固化体中の核種インベントリに変化は無いため、ボーリングコア観察などで人間がガラス固化体に接近することにより生ずる被ばくの影響は、結晶相が生成しない場合と変わらないと考えられる。従って、本研究では接近シナリオは対象とせず、地下水シナリオに限定した評価を行なうこととする。

「HLW 第2次取りまとめ」^[2]において地下水シナリオは、「処分システムの安全機能が期待どおりに働くことを想定し、地下水による放射性核種の移行を取り扱う」とされており、以下の三点が前提となる場合を「基本シナリオ」と称し、分類されている。

- ・現在の地質環境の条件が安定に将来まで継続する：
岩石の力学的、熱的な特性、地下水の水理学的、化学的な特性および地下水による物質移行に関する特性の時間的変化はない。
- ・人工バリアは期待する安全機能を発揮する：
人工バリアは、オーバーパックの核種閉じ込め性や、ガラス固化体による核種の地下水への溶出抑制、および緩衝材の膨潤性、可塑性、化学的緩衝性、核種移行遅延効果、コロイドフィルター効果などを発揮する。
- ・現在の地表環境が将来まで継続する：
気候、表層水系などの状態の時間的変化はない。

一方で、上述の前提が当てはまらない場合を「変動シナリオ」と定義し、処分システムの性能に有意な影響が及ぶことは考えにくいとしながらも、これらの影響の程度を把握するためのシナリオを複数設定することにより評価計算を実施し、シナリオの不確実性として議論している。

本研究では、対象とするガラス固化体中での結晶相の生成が処分時の核種漏出および被ばく線量へ及ぼす影響の把握に焦点を絞り、地下水移行シナリオの「基本シナリオ」を参照した条件設定により評価を実施することとした。

3.1.3 評価モデル

地層処分システムにおけるガラス固化体の定置、緩衝材の仕様、天然バリアの扱い方などは、基本的に「HLW 第2次取りまとめ」^[2]で評価されたものを踏襲し、モデル化するこ

ととした。但し、「HLW 第2次取りまとめ」^[2]の評価で採用された亀裂性岩盤を想定した天然バリア亀裂性媒体モデルでの亀裂の重ね合わせは考慮しない簡易な評価を行った。また、人工バリアからの核種漏出解析においては、保守的な評価結果を得る外側境界条件を採用することとした。モデルは可能な限り「HLW 第2次取りまとめ」^[2]の評価を踏襲するが、本研究で使用する評価コードの特徴により、完全に一致するモデルにはならない。しかしながら、本研究の目的は、「HLW 第2次取りまとめ」^[2]の評価結果との比較ではなく、ガラス固化体中の結晶相生成の影響評価であり、モデルを厳密に整合させる必要は無いものと考えられる。従って、本研究に用いた評価モデル・コードおよび評価手法で、処分時の核種漏出および線量への結晶相の影響を調べることにした。一方、「HLW 第2次取りまとめ」^[2]の評価では扱われなかった堆積岩系岩盤を想定した多孔質媒体モデルによる評価も実施した。評価モデルの詳細については後述する。

3.1.4 評価パラメータ

評価パラメータに関しても、可能な限り「HLW 第2次取りまとめ」^[2]の地下水シナリオ基本シナリオの評価で採用された値を採用することとした。但し、多孔質媒体モデルの評価については、地下水流速をはじめとして「HLW 第2次取りまとめ」^[2]に参考となるパラメータが示されていないため、他の評価事例として「TRU 廃棄物処分概念検討書」(以下、「第1次 TRU レポート」^[2.6])でレファレンスデータとして設定された値を採用することとした。詳細は次節に詳述する。

3.1.5 不確実性の取り扱い

「HLW 第2次取りまとめ」^[2]ではサイトを特定しない評価で、広範な不確実性の影響が検討されている。それに対し本評価は、ガラス固化体内の結晶相生成による地層処分時の被ばく線量などへの影響の確認を目的としているため、不確実性の取り扱いに関しては、被ばく線量への影響が大きいものに対象を絞ることとした。

「HLW 第2次取りまとめ」^[2]における処分システム性能の総合的解析によれば、種々のケースについての最大線量とその到達時間、および被ばくへの支配核種を整理した結果から、以下の傾向が示されている。

- ・ 地下水流動が小さくなるにしたがい、最大線量は減少しその到達時間は遅くなる。
- ・ 地下水流動を同じとして比較した場合、降水系地下水の方が海水系地下水の場合に比べて最大線量が小さくその到達時間が遅い。
- ・ 支配核種は、ほとんどのケースでCs-135であり、地下水流動が大きい場合にはTh-229が支配的になる。

また、線量の最大値への影響は地質環境の多様性をもっとも顕著であり、緩衝材厚さやコロイドによる核種移行への影響は小さく、深井戸を想定したケース、人工バリアのシーリングミスを想定したケースでも、地質環境の多様性による最大線量のばらつきを大

大きく超えることはないとされている。

地質環境の多様性を考慮した評価結果からは、以下が明らかにされている。

- ・ 岩種の違い（各岩種についての間隙率／乾燥密度／実効拡散係数および分配係数を考慮）による最大線量評価結果の幅は多くの条件で1桁以内。
- ・ 地下水や動水勾配の違いを組み合わせた場合の最大線量評価結果の幅はレファレンスケースを基準にして高線量側で2桁程度、低線量側で3桁程度。
- ・ 地質環境の多様性に深井戸といった天然バリアとの境界の多様性を組み合わせた場合の最も保守的な線量換算結果についても、諸外国の防護レベルに比べてほぼ1桁下回っている。

上記の評価結果の比較から、種々の不確実性の中で、地下水流の速度がもっとも被ばく線量への影響が大きいことが読みとれる。従って、評価結果の不確実性は地下水流速の不確実性で検討した。

また、モリブデン酸塩を主成分とする結晶相を含有するガラス固化体の、結晶相以外のガラス部の溶解に関しては、結晶相を含まないガラスと同程度の溶解速度データが短期的な溶解試験から得られているが^[1, 11, 13]、ガラス部の溶解寿命が変化する場合を想定し、溶解寿命をパラメータとした評価を行なうこととした。

3.2 評価方法

3.2.1 核種移行解析コード RAPRAN

評価コードは、電中研開発による核種移行解析コード RAPRAN^[27]を一部改良した版^(注)を使用した。同コードは、ガラス固化体からの核種溶出、緩衝材中での拡散と収着、天然バリア中での地下水流による核種移行、河川水飲用などを介した被ばく評価の一連の計算が可能である。

本研究では、緩衝材層からなる人工バリア領域については多孔質媒体モデルを、天然バリアについては亀裂性媒体モデルと多孔質媒体モデルの両方を用いた。多孔質媒体モデルを適用した人工バリア領域については差分法で解き、天然バリアについては、多孔質媒体モデルを適用した場合には差分法を、亀裂性媒体モデル（平行平板モデル）を適用した場合には解析解^[28]を用いて計算を行なった。

RAPRANの概要を以下に示す。

一次元飽和多孔質媒体中での核種移行の基礎方程式は次の移流拡散方程式で記述する。

$$\frac{1}{r^j} \cdot \frac{\partial}{\partial r} (\rho r^j D_i \frac{\partial C_i}{\partial r}) - \frac{\partial}{\partial r} (\rho u C_i) - \rho \phi R_i \lambda_i C_i + \rho \phi R_{i-1} \lambda_{i-1} C_{i-1} - S O = \frac{\partial}{\partial t} (\rho \phi R_i C_i) \quad (\text{式 3.2-1})$$

ここで、

C : 間隙水中核種濃度
 D : 実効拡散係数(分散項を含む)
 u : ダルシー流速
 λ : 崩壊定数
 R : 遅延係数
 ρ : 間隙水密度
 ϕ : 空隙率
 SO : 核種ソース強度
 r : 空間座標

I : 形状因子 (0 : 平板、1 : 円筒、2 : 球)

t : 時刻

であり、下添字 i は直線状崩壊系列の i 番目の核種を指す。実効拡散係数 D_i と遅延係数 R_i とは次式で与えられる、

$$D_i = D_{ei} + \alpha_L u \quad (\text{式 3.2-2})$$

$$R_i = 1 + \rho_s K_{di} \frac{(1-\phi)}{\phi} \quad (\text{式 3.2-3})$$

ここで、

D_e : 実効拡散係数(分散項を含まない)

α_L : 縦分散長

ρ_s : 多孔質媒体真密度

K_d : 平衡分配係数

である。

また、ガラス固化体からの核種溶出は、ガラスの溶解速度に比例して含有放射性核種が固化体周辺地下水に溶出する、以下の調和溶解モデルにより、時刻 t でのフラックス $J(t)$ として与える。

$$J_i(t) = J_{waste}(t) \frac{I_i(t)}{\rho_{waste} \cdot V_{waste}(t)} \quad (\text{式 3.2-4})$$

ここで、 J_{waste} 、 ρ_{waste} 、 V_{waste} 、 I は、それぞれ、ガラスの浸出率、密度、体積、それに廃棄体中の核種インベントリであり、下添字 i は核種を表す。

ただし、ガラス固化体に結晶相を含む場合、結晶相に随伴する放射性核種の溶出挙動は、随伴する割合をインベントリの $x\%$ とした場合、 J_{waste} を早期溶出(1年)に相当する数値に、 I を $0.01x$ 倍する。また、結晶相に随伴する放射性核種の溶出終了後は、結晶相以外のガラス部のインベントリ ($1 - 0.01x$) が調和溶解モデルで溶出するものとし、 J_{waste} をガラスの

浸出率、 I を $(1-0.01x)$ 倍とした。

多層の均質多孔質媒体から成る系での核種の移行は、層ごとに式(3.2-1)を適用することで計算する。各層の境界ではフラックス保存の式により質量保存則を満たすように式(3.2-1)を接続する。すなわち、以下の式となる。

$$A_{inner} \cdot J_{inner} = A_{outer} \cdot J_{outer} \quad (\text{式 3.2-5})$$

ここで、下添字 *inner*、*outer* はそれぞれ、層の境界の内(上流)側、外(下流)側を意味し、また、 J 、 A はそれぞれ、各層の単位面積あたりのフラックスと断面積である。

多孔質媒体モデルの場合、緩衝材と岩盤との接続で上記の関係を用いている。すなわち、緩衝材からの核種の流出フラックスがそのまま岩盤への流入フラックスとなり、フラックスは緩衝材と岩盤における核種の移行(拡散係数や流速、収着といったパラメータ)に依存する。この点は、「HLW 第2次取りまとめ」^[2]で採用されたモデル(緩衝材外側の岩盤領域に、ある流量を設定して緩衝材からの核種流速フラックスを算出し、この岩盤領域への緩衝材からの核種流出量を領域内の地下水量で除して濃度に変換し、この濃度に地下水流量を乗じてフラックスに換算したものを岩盤への流入フラックスとする)と異なっている。

亀裂性媒体中の移行式は一般的な平行平板亀裂性媒体中の物質移行式である。本コードで扱う亀裂性媒体は図 3.2-1 のようにモデル化をする。母岩は一次元平板型の均質多孔質媒体であり、縦(x)方向に幅 $2b$ の直線状の平板亀裂が $2d$ の間隔で存在する。亀裂中は母岩とは異なる物性の均質多孔質媒体で満たされているとする。母岩の間隙および亀裂中の間隙は水で飽和しているとする。なお、水の流動は亀裂中のみに限られ、亀裂に沿う方向の一様定常流と仮定する。

放射性核種は図 3.2-1 左側の上流側境界から流入し、亀裂中を移流分散・拡散によって移行する。層内では、亀裂壁面から母岩への拡散(マトリクス拡散)により核種の一部が亀裂から母岩に移行し、吸着される。あるいは、吸着された核種が母岩から亀裂中に戻る。核種の拡散領域は亀裂壁面から y 軸方向に深さ d までの範囲に限る。すなわち、 $y=d$ に反射型の境界条件をおく。

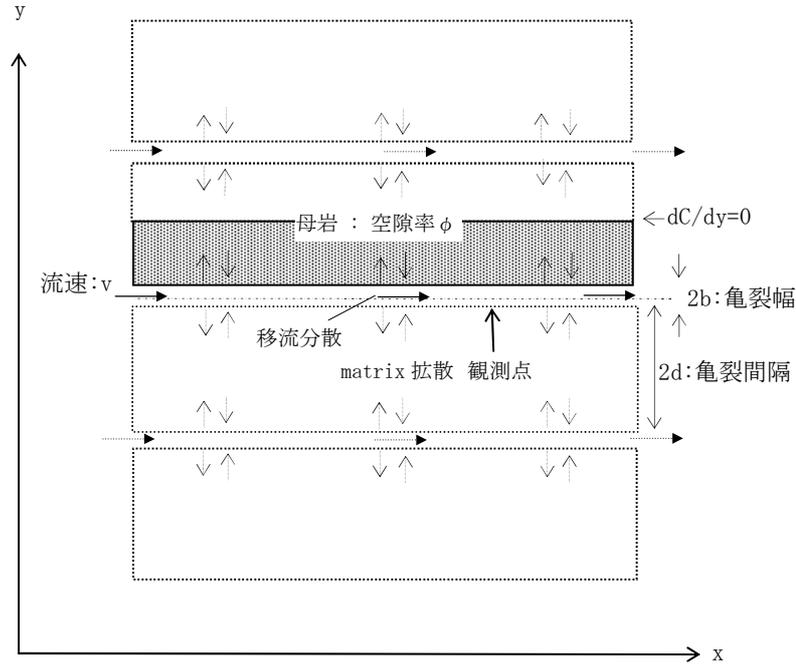


図 3.2-1 亀裂性媒体モデル模式図

上述のモデルに従う亀裂性媒体中での核種の移行は、次の式(3.2-6)、(3.2-7)の組で記述される。

$$\frac{\partial}{\partial x} (D_i \frac{\partial C_i}{\partial x}) - \frac{\partial}{\partial x} (u C_i) + \frac{D_i^m}{b} \frac{\partial C_i^m}{\partial y} \Big|_{y=0} - \phi R_i \lambda_i C_i + \phi R_{i-1} \lambda_{i-1} C_{i-1} + SO = \frac{\partial}{\partial t} (\phi R_i C_i) \quad (式 3.2-6)$$

$$D_i^m \frac{\partial^2 C_i^m}{\partial y^2} - \phi^m R_i^m \lambda_i C_i^m + \phi^m R_{i-1}^m \lambda_{i-1} C_{i-1}^m = \frac{\partial}{\partial t} (\phi^m R_i^m C_i^m) \quad (式 3.2-7)$$

ここで、上添字 m は母岩領域を意味し、変数 x, y は、それぞれ、縦、横方向の空間座標である。

RAPRAN では、亀裂性媒体モデルの解法としては、有限差分法に加え、計算時間を大幅に短縮できる解析解^[28]による方法を備えている。本検討においては、岩盤領域を亀裂性媒体モデルで解析する場合、解析解を解法として用いた。

前述の通り本研究では、緩衝材領域は多孔質媒体モデルで解析し、岩盤領域を亀裂性媒体モデル及び多孔質媒体モデルで解析を行っており、この二つのモデルでは領域間の核種移行の扱いが異なる。亀裂性媒体モデルを用いた検討では、緩衝材中核種拡散挙動の解析を放射性核種が最も流出しやすい条件で行なうために、緩衝材の外側境界としてゼロ濃度境界を設定し、緩衝材外側からの流出フラックスを亀裂への流入フラックスとして天然バリアの核種移行解析を行なった。

また RAPRAN では、核種移行に関連する種々の現象について、沈殿/溶解モデル、ガラス固化体等からの核種溶出モデル、空隙率の変化、線形吸着を仮定した分配平衡モデル等を用いてモデル化及び計算を行なっている。沈殿/溶解モデルでは、核種移行中の放射壊変に伴う元素溶解度の同位体分配や、媒体中での核種の沈殿フロント生成を扱っている。

3.2.2 評価体系

図 3.2-2 に本検討で用いた解析体系を模式的に表す。この解析体系は、細部を除いて「HLW 第 2 次取りまとめ」^[2] の評価体系とほぼ同一である（「HLW 第 2 次取りまとめ」の評価体系については参考図 1 を参照）。

ガラス固化体に含まれる放射性核種の一部が地下水に溶解しやすい結晶相に随伴した場合、地下水との接触時（処分後 1,000 年でオーバーパックが破損すると仮定）に早期（1 年）にガラス固化体から溶解した際の影響を、ガラス固化体 1 本に対して評価した。

ガラス固化体から、ガラスと調和溶解、あるいは早期溶出した核種放出量を緩衝材内側のフラックス境界として入力し、沈殿する放射性核種に関しては緩衝材内側表面での間隙水中で溶解度を設定して、緩衝材中の核種の拡散を多孔質媒体モデルで解析した。天然バリアを多孔質媒体モデルで解析する場合には、緩衝材外側からの各核種の流出フラックスをそのまま岩盤への流入フラックスとした。一方、天然バリアを亀裂性媒体モデルで解析する場合には、まず、緩衝材の外側境界としてゼロ濃度境界を設定し、放射性核種が最も流出しやすい条件として緩衝材中核種拡散挙動を解析し、緩衝材外側からの流出フラックスを亀裂への流入フラックスとして天然バリア中の核種移行を解析した。

3.2.3 評価対象核種

文献により、結晶相に随伴するとされる元素のうち、高レベル放射性廃棄物に含まれ、かつ地層処分の評価対象核種とされた Cs-135、Zr-93、Pd-107、および低粘性流体中に存在することが確認された Tc-99 を対象とした。短半減期の Sr-90 と Cs-137 はオーバーパックが健全な期間に減衰し、処分時の安全性に影響しないため考慮しない。セシウムに関しては低粘性流体への移行率が最大 3%程度と確認されていることから、これらの核種のインベントリの 10%が結晶相に随伴すると仮定した。但し、高レベルガラス溶融時には、Cs-135 の他に Cs-137 や安定な Cs-136 が多く存在し、結晶相への随伴の割合はセシウムの同位対比に比例すると考えることができる。

結晶相に随伴する放射性核種は、ガラス固化体が地下水と接触後、概念モデルとしては瞬時放出すると仮定した。ただし、数値計算上はオーバーパック破損後、1 年間で結晶相に随伴した核種が全量溶出するとした。なお、1 年間という期間の妥当性を確認するために、結晶相に随伴した核種が 1 ヶ月で溶出するケースも試算した。また、比較のために、ガラス固化体に含まれる核種の全量が、ガラス固化体の溶解速度に比例して調和的に溶解するとした評価計算も行った。

なお、IAEA のレポート^[9]には、セシウムが最大 30%まで随伴するという記載があるが、同レポート中で引用している文献の詳細情報が得られていない。そこで、予備的な評価として Cs-135 についてのみ随伴率が 30%の場合の評価も行った（付録参照）。

3.2.4 評価パラメータ

(1) 「HLW 第 2 次取りまとめ」^[2]に準拠したパラメータ

評価に用いるパラメータは可能な限り「HLW 第 2 次取りまとめ」^[2]（第 3 分冊の 5.3.1 人工バリアのモデルとデータ、および 5.3.2 天然バリアのモデルとデータより）のレファレンスケースの評価で用いられた値を引用した。以下にそれらのパラメータを示す。

- ・ 処分システム体系：ガラス固化体容積 (0.15m³) と密度、ベントナイト厚 (0.7m) (参考図 1 参照)
- ・ 核種インベントリ (処分後 1,000 年でオーバーパック破損が起こると仮定した設定値。参考表 1 参照)
- ・ 物性値：ガラスの溶解速度定数 (ガラス固化体の溶解寿命として 70,000 年)、ベントナイト、岩盤の密度および空隙率
- ・ 諸パラメータ：元素溶解度、実効拡散係数、分配係数、マトリクス拡散深さと寄与率 (参考表 2～6)
- ・ 岩盤の厚さ：100m、動水勾配 0.01
- ・ 生物圏での線量換算係数：河川水／平野での農作業による被ばくを想定した係数を用いた (参考表 7)。

実際の評価計算に用いた数値を表 3.2-1～3.2-4 にまとめて示す。

なお、ガラス固化体の溶解寿命は、「HLW 第 2 次取りまとめ」^[2]では約 70,000 年を規準として、一桁短いケースについてもその影響を調べている。ガラスの溶解速度への結晶相生成の影響は明確ではないため、本検討では、1桁短い 7,000 年のケースに加えて、1桁長い 700,000 年のケースについても評価し、ガラス固化体の溶解寿命の影響を調べることにした。

(2) 本検討で独自に設定したパラメータ

一部のパラメータはコード・モデルの特徴等の理由により「HLW 第 2 次取りまとめ」^[2]への準拠が困難であったため、可能な限り同報告書等による評価との整合を取りながら、既往の評価事例を参考に諸パラメータや条件を設定した。

地下水流速は、本検討で独自に設定した。まず、多孔質媒体モデルによる評価は「HLW 第 2 次取りまとめ」^[2]では実施されていないため、評価パラメータの引用ができない。そこで「第 1 次 TRU レポート」^[26]でレファレンス的な値として設定された透水係数 (1.0x10⁻⁹ m/s) と動水勾配 0.01 から算出されるダルシー流速 1x10⁻¹¹ m/s (3.5x10⁻⁴m/年) を設定

した。さらに、流速の影響を調べるために同レポートで評価されたダルシー流速の幅を考慮して、ダルシー流速が大きいケース (1.0×10^{-10} m/s) も設定した。

また、本検討で用いた亀裂性媒体モデルは単純な平行平板モデルであり、「HLW 第2次取りまとめ」^[2]で行われた亀裂の重ね合わせは実施していない。亀裂中の実流速は、「第1次 TRU レポート」の亀裂性媒体モデルでの評価での設定値である、3.5m/年 (約 1×10^{-7} m/s) を基本とした。なお、「HLW 第2次取りまとめ」^[2]の評価で、透水量係数の分布の中心値から算出した亀裂中実流速は約 1.6 m/年であり、本検討の基本的な設定値と同程度となる。また、多孔質媒体モデルの場合と同様にパラメータとして流速の幅の影響を調べるため、「HLW 第2次取りまとめ」^[2]での亀裂内流速の最大値を参考に、その値と同程度の値である 1×10^{-6} m/s も設定、評価した。亀裂内実流速を変化させる場合には、流速に透水量係数が比例すると仮定して、貯留則^[2]により亀裂開口幅を設定した。上記の亀裂中実流速の値 1×10^{-7} m/s は透水量係数 5×10^{-10} m²/s に対して求められた値であるため、これに相当する亀裂幅は 0.045 mm となる。これは「HLW 第2次取りまとめ」の中心値 0.01 mm よりやや大きな値である。亀裂間隔は「HLW 第2次取りまとめ」^[2] および「第1次 TRU レポート」^[4]の亀裂頻度から 0.5 m (2本/1m) と設定した。

3.2.5 評価ケース

以上のパラメータ設定を基に、具体的な評価計算ケースを設定した。設定にあたっては以下を考慮した。

まず、地質環境条件のうち地下水流速の範囲を既往評価を参考に設定し、その変動を考慮することにより、地下水流速と天然バリアモデルの違いによる、結晶相の有無の影響を比較することとした。亀裂性媒体モデルでは、「HLW 第2次取りまとめ」^[2]の評価における亀裂内実流速の中心的な値に近い、約 1×10^{-7} m/s およびそれより一桁速い流速 (1×10^{-6} m/s) を評価し、地質環境条件のうち地下水流速が変化した場合についての結晶相の影響の程度を明らかにする。また、「HLW 第2次取りまとめ」^[2]では扱われていない多孔質媒体モデルを用いて、「第1次 TRU レポート」の評価の中心的な値より一桁速い流速 (1×10^{-10} m/s) まで評価し、結晶相の影響の程度を明らかにする。

次に、ガラス固化体の溶解寿命の影響を調べるために、結晶相を含まないガラス部の溶解速度を一桁大きくした場合の溶解寿命による、結晶相の有無の影響を比較することとした。参考として、ガラス部の溶解速度が一桁小さい場合も調べることにした。これにより、亀裂性の岩盤について、ガラスの溶解寿命が「HLW 第2次取りまとめ」^[2]のレファレンスケースの 70,000 年より 1桁短くなった場合、逆に長くなった場合についての、結晶相の影響の程度を明らかにする。および、多孔質岩盤について、ガラスの溶解寿命が上記のように変化した場合の、結晶相の影響の程度を明らかにする (付録参照)。

各計算ケースでのパラメータ設定を表 3.2-5～3.2-6 に示す。また、解析対象媒体であるガラス固化体、緩衝材、地質媒体モデルごとに、解析条件や設定したパラメータ値を、ま

とめて表 3.2-7~3.2-12 に示す。

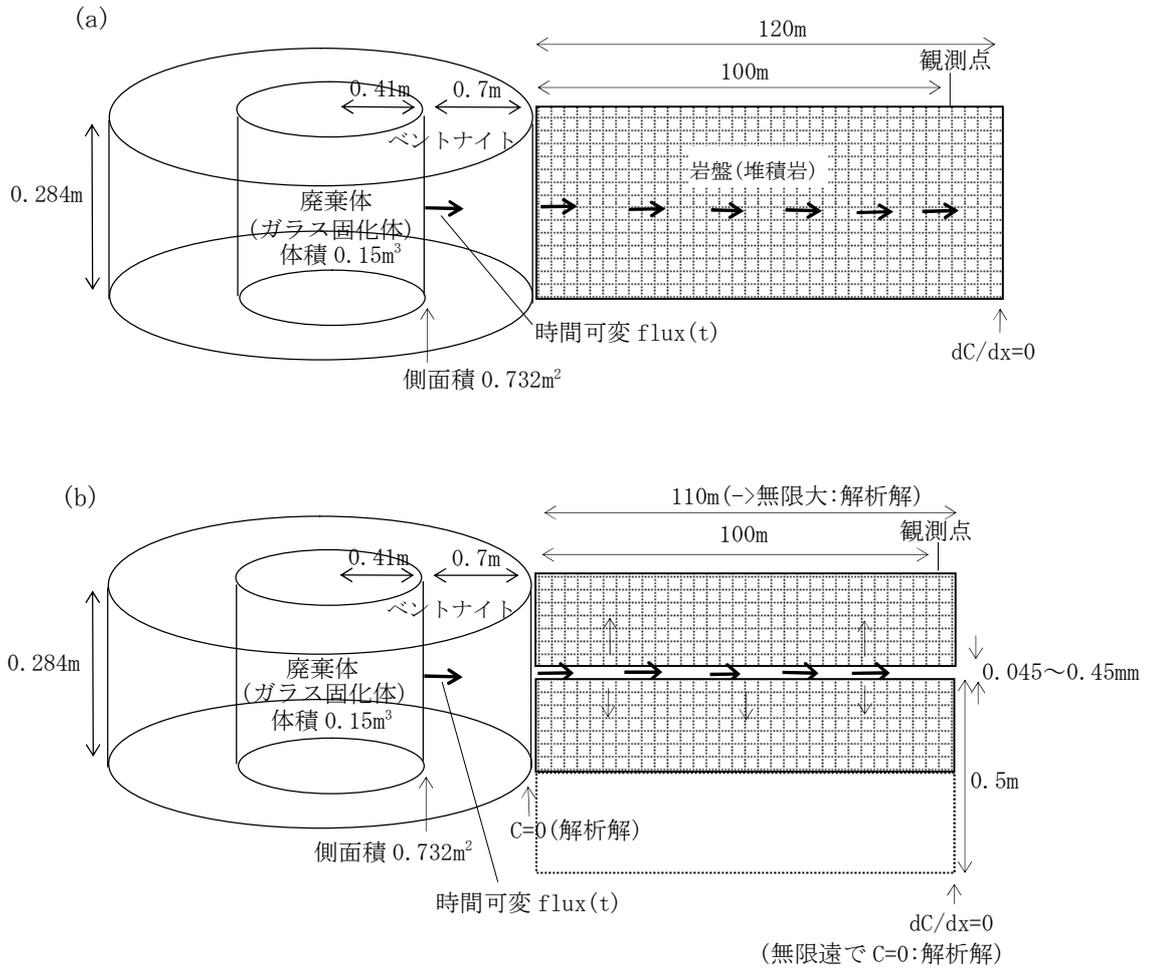


図 3.2-2 解析体系の模式図

(a) 多孔質媒体モデル、(b) 亀裂性媒体モデル

表 3.2-1 評価対象核種のインベントリ（ガラス固化体あたり）と線量換算係数

	半減期 (年)	インベントリ (Bq/ガラス)	線量換算係数 ^{注)} (Sv/Bq)
Zr-93	1.53×10^6	7.39×10^{10}	2×10^{-17}
Tc-99	2.13×10^5	5.14×10^{11}	1×10^{-17}
Pd-107	6.50×10^6	4.16×10^9	1×10^{-18}
Cs-135	2.30×10^6	1.83×10^{10}	1×10^{-16}

注) 生物圏シナリオ（河川水／平野、農作業）による岩盤外側での放射能フラックスと被ばく線量との換算係数

表 3.2-2 元素の溶解度と収着分配係数（評価対象核種について）

元素	溶解度 (mol/L)	収着分配係数 (m ³ /kg)		
		緩衝材	亀裂性岩盤	多孔質性岩盤
Zr	1×10^{-6}	10	0.1	1
Tc	4×10^{-8}	0.1	1	1
Pd	1×10^{-9}	0.1	0.1	1
Cs	1×10^{10}	0.01	0.05	0.1

表 3.2-3 元素の実効拡散係数

元素	実効拡散係数 (m ² /s)		
	緩衝材	亀裂性岩盤	多孔質性岩盤
Cs	6×10^{-10}	3×10^{-12}	9×10^{-12}
その他の元素	3×10^{-10}		

表 3.2-4 本検討の解析に用いたバリア材等の物性データ

物性値	ガラス固化体	緩衝材	亀裂性岩盤	多孔質性岩盤
密度 (kg/m ³)	2.7×10^3	1.6×10^3	2.64×10^3	2.16×10^3
間隙率 (-)	-	0.41	0.02	0.2
亀裂間隔 (1/m)	-	-	2	-
分散長 (m)	-	0	10	10

表 3.2-5 地下水流速を変化させるケースのパラメータ (動水勾配 0.01)

亀裂性媒体モデル		
亀裂内実流速 (m/s) *1	1×10^{-7}	1×10^{-6}
同 上 (m/年)	3.5	35
亀裂開口幅 (mm)	0.045	0.45
透水量係数算出値 (m^2/s) *2	5×10^{-10}	5×10^{-8}
ガラスからの核種溶出*3	ガラスの溶解と調和溶解 (沈殿考慮)	
	インベントリの 10%が早期溶出	
	Cs-135 のみインベントリの 30%が早期溶出 (付録参照) *4	
多孔質媒体モデル		
ダルシー流速 (m/s) *5	1×10^{-11}	1×10^{-10}
透水係数 (m/s)	1×10^{-9}	1×10^{-8}
ガラスからの核種溶出*2	ガラスの溶解と調和溶解 (沈殿考慮)	
	インベントリの 10%が早期溶出	
	Cs-135 のみインベントリの 30%が早期溶出 (付録参照) *3	

*1 計算では亀裂内実流速として 3.5m/年または 35m/年 (それぞれ 1.1×10^{-6} または、 1.1×10^{-7} m/s) を入力した。

*2 亀裂内実流速と亀裂開口幅の入力値から参考として貯留則で算出

*3 ガラス固化体の溶解寿命は 70,000 年

*4 予備的に Cs-135 のみについてレファレンス的に設定した地下水流速の場合について実施

*5 透水係数値に動水勾配 0.01 (平地を想定) を乗じてダルシー流速を算出

表 3.2-6 ガラスの溶解寿命を変化させるケースのパラメータ（動水勾配 0.01）

亀裂性媒体モデル	
亀裂内実流速 (m/s) *1	1×10^{-7}
同 上 (m/年)	3.5
亀裂開口幅 (mm)	0.045
透水量係数算出値 (m ² /s) *2	5×10^{-10}
ガラスからの核種溶出	ガラスの溶解（寿命 7,000 年）と調和溶解（沈殿考慮）
	ガラスの溶解（寿命 700,000 年）と調和溶解（沈殿考慮）
	インベントリの 10%が早期溶出
多孔質媒体モデル	
ダルシー流速 (m/s) *3	1×10^{-11}
透水係数 (m/s)	1×10^{-9}
ガラスからの核種溶出	ガラスの溶解（寿命 7,000 年）と調和溶解（沈殿考慮）
	ガラスの溶解（寿命 700,000 年）と調和溶解（沈殿考慮）
	インベントリの 10%が早期溶出

*1 計算では亀裂内実流速として 3.5m/年 (1.1×10^{-6} m/s) を入力した。

*2 亀裂内実流速と亀裂開口幅の入力値から参考として貯留則で算出

*3 透水係数値に動水勾配 0.01（平地を想定）を乗じてダルシー流速を算出

表 3.2-7 高レベルガラス固化体の解析条件

項目	入力値等	備考（「HLW 第2次取りまとめ」 ^[2] 該当箇所など）
体積、形状	0.15m ³ 、円筒形	図 5.3.1-1
密度	2.7×10 ³ kg/m ³	図 5.3.1-1
溶解寿命	70,000 年	基準値. 本文 V-40 項
	7,000 年、70,000 年	パラメータ（付録参照）
	1.0 年（早期溶出）	ガラス固化体溶解寿命より十分短い値
インベントリ	表 3.2-1 参照	表 5.3.1-2

表 3.2-8 緩衝材層の解析条件

項目	入力値等	備考（「HLW 第2次取りまとめ」 ^[2] 該当箇所など）
層厚、形状	0.7m、円筒形	図 5.3.1-1
密度	1.60×10 ³	表 5.3.1-4
分散長	0.0m	
空隙率	0.41	図 5.3.1-1
収着分配係数	表 3.2-2 参照	表 5.3.1-9
実効拡散係数	表 3.2-3 参照	表 5.3.1-8
元素溶解度	表 3.2-2 参照	表 5.3.1-6
下流端境界条件	濃度 0 境界	解析解亀裂岩盤モデル適用時のみ設定

表 3.2-9 多孔質岩盤層解析条件

項目	入力値等	備考（「HLW 第2次取りまとめ」 ^[2] 該当箇所など）
層厚、形状	120m、平板	移行評価距離は 100m
密度	2.16×10^3	表 7.1-2
分散長	10m	移行距離の 1/10（亀裂性岩盤の数値に準じる）
空隙率	0.2	表 7.1-2
収着分配係数	表 3.2-2 参照	表 5.3.2-2
実効拡散係数	表 3.2-3 参照	表 7.1-2
元素溶解度	表 3.2-2 参照	表 5.3.1-6
地下水流速 （ダルシー流速）	3.15×10^{-3} 、 3.15×10^{-4} m/年	透水係数 $1.0 \times 10^{-9} \sim 1.0 \times 10^{-8}$ m/s（「第1次 TRU レポート」を参考）、動水勾配 0.01.

表 3.2-10 亀裂性岩盤層の解析条件

項目	入力値等	備考（「HLW 第2次取りまとめ」 ^[2] 該当箇所など）
層厚、形状	無限大、平板	移行評価距離は 100m.
密度	2.64×10^3	表 5.3.2-4
分散長	10m	表 5.3.2-4、移行距離の 1/10
空隙率	0.02 1.0	母岩、表 5.3.2-4 亀裂中、任意設定
収着分配係数	表 3.2-2 参照	表 6.1.3.3-3
実効拡散係数	表 3.2-3 参照	表 5.3.2-4、母岩中
元素溶解度	表 3.2-2 参照	表 5.3.1-6
亀裂中実流速	3.5、35 m/年	「第1次 TRU レポート」 ^[26] を参考
亀裂開口幅	0.045mm（流速 3.5 m/年） 0.45mm（35 m/年）	同上
亀裂間隔	0.5m（亀裂頻度 2 本/m）	同上
マトリクス拡散深さ	0.1m	表 5.3.2-4
マトリクス拡散寄与率	0.5	表 5.3.2-4

表 3.2-11 多孔質岩盤層モデル解析ケース

ダルシー流速 (m/s)	早期溶出		調和溶解		備考
	割合 (%)	期間 (年)	割合 (%)	期間 (年)	
1×10^{-10}	10	1	90	70,000	基本ケース
1×10^{-11}				7,000	溶解速度を変える (付録参照)
				700,000	
1×10^{-10}	0	-	100	70,000	基本ケース
1×10^{-11}				7,000	溶解速度を変える (付録参照)
				700,000	
1×10^{-11}	30	1	70	70,000	Cs-135 (付録参照)

表 3.2-12 亀裂性岩盤層モデル解析ケース

亀裂中実流速 (m/s)	早期溶出		調和溶解		備考
	割合 (%)	期間 (年)	割合 (%)	期間 (年)	
1×10^{-6}	10	1	90	70,000	基本ケース
1×10^{-7}				7,000	溶解速度を変える (付録参照)
				700,000	
1×10^{-6}	0	-	100	70,000	基本ケース
1×10^{-7}				7,000	溶解速度を変える (付録参照)
				700,000	
1×10^{-7}	30	1	70	70,000	Cs-135 (付録参照)

3.3 評価結果

3.3.1 ガラス固化体からの核種溶出挙動

ガラス固化体1体あたりからの放射性核種の溶出挙動を図3.3-1に示す。縦軸は評価対象とした核種のフラックス、横軸はオーバーパック破損後の経過時間である。評価対象核種がガラスの溶解に調和して溶解する場合(図3.3-1上図)と、インベントリの10%が早期(溶出開始後1年間)に溶出した場合(図3.3-1下図)のそれぞれを示した。

図内の各線はそれぞれ、Zr-93(半減期 1.53×10^6 年)、Tc-99(半減期 2.13×10^5 年)、Pd-107(半減期 6.50×10^6 年)、Cs-135(半減期 2.30×10^6 年)の溶出挙動を示す。ガラスの溶解と調和して溶出した場合、いずれの核種ともガラスの溶解寿命に比較して半減期が十分長いため、減衰せずに一定速度で溶出する。

一方、それぞれの核種の10%が結晶相に存在し、かつ早期(1年間)に溶出し、残りの90%がガラスと調和溶解する場合では、10%の早期溶出により、初期の1年間はフラックスが3桁以上高くなるが、残りの90%の溶出挙動はガラスと調和溶解となるため、1年以降の溶解によるフラックスは上図と同様となる。なお、図中には示していないが、それぞれの核種の1%が早期溶出する場合も、10%早期溶出する場合と同様に最初の1年間は矩形の溶出となり、その期間の放射能フラックスは早期溶出が10%の場合の1/10になるという結果が得られている。

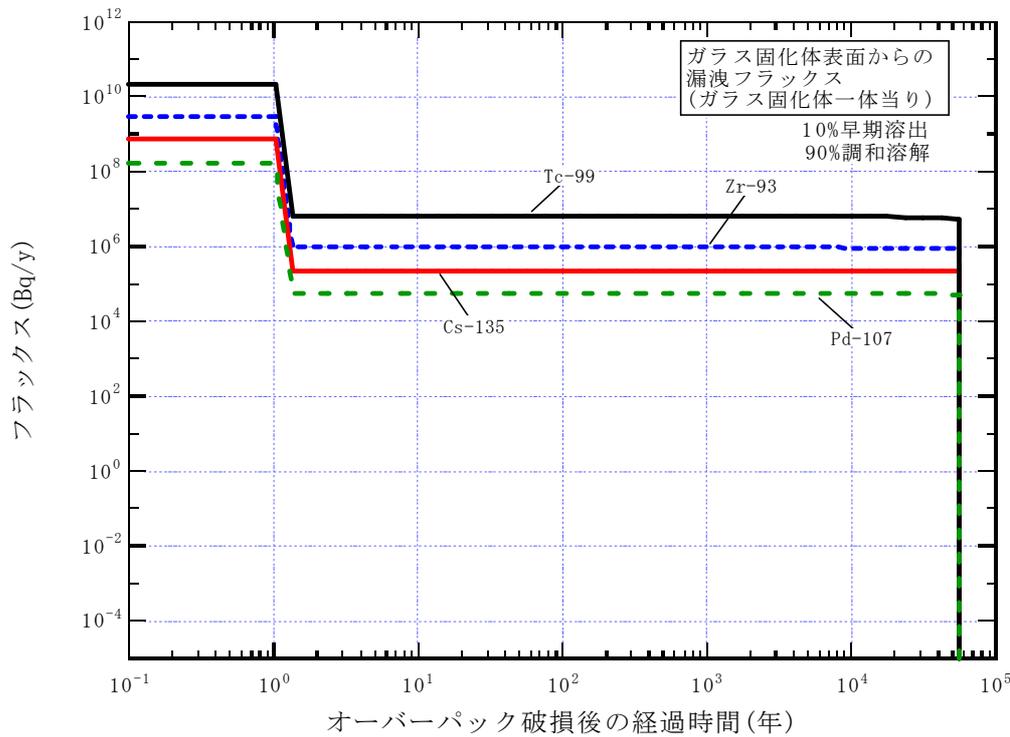
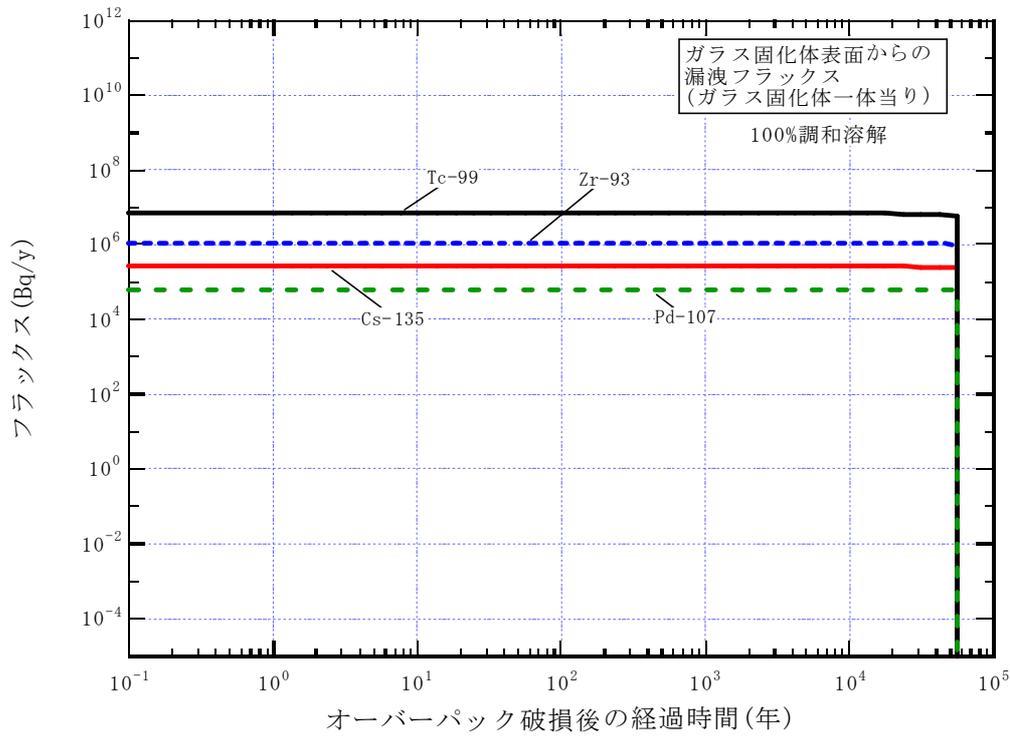


図 3.3-1 ガラス固化体からの対象核種の溶出挙動 (ガラスの溶解寿命 70,000 年)
 上図：ガラスと調和溶解する場合、下図：インベントリの 10%が 1 年間で放出される場合

3.3.2 緩衝材からの核種漏出挙動

ガラス固化体からの放射性核種の溶出フラックスを緩衝材への流入量として計算した、緩衝材からの漏出挙動を図 3.3-2(1)～(4)に示す。

図 3.3-2(1)、(2)は天然バリアを亀裂性媒体モデルで解析した場合の結果であり、緩衝材外側地下水中の核種濃度をゼロとする境界条件で解析したフラックスを示している。

核種がガラスと調和溶解して溶出する場合の計算結果を図 3.3-2(1)に、評価核種の 10%が早期溶出、90%が調和溶解した場合の計算結果を図 3.3-2(2)に示す。Cs-135 は、10%早期溶出・90%調和溶解の場合には、全量調和溶解の場合に比較して 200 年程度にわたり、漏出フラックスが定常フラックス時の値より二桁程度高くなる期間が生じる。図 3.3-1(1)下図のガラス固化体からの溶出挙動と比較すると、フラックスの最大値は約 2 桁低下している。これは、1 年でガラス固化体から早期溶出された 10%の Cs-135 が、200 年以上かけて緩衝材外側から漏出し、その間の拡散によってフラックスが緩和された結果であると考えられる。一方、緩衝材材料であるベントナイトへの収着分配係数が大きい Zr-93 については、Cs-135 に比較して漏出フラックスピークの出現時期が遅く、早期溶出の影響が全く現れない。これは、多重バリアの一つである緩衝材の核種漏出遅延効果が示されたものであると考えられる。Tc-99 と Pd-107 はガラス固化体から地下水に溶解した時点で、緩衝材の内側界面で沈殿を生成するため、緩衝材外側からの定常状態の漏出フラックスが一定値となり、早期溶出が起こったとしても、沈殿生成による溶解度制限により緩衝材内側の地下水中濃度が調和溶解の場合と同じ濃度になるため、早期溶出の影響が現れない結果となっている。

なお、図 3.3-2(1)で示した各核種のフラックスは、「HLW 第 2 次取りまとめ」^[2]の結果と同程度、あるいは高い値となった。これは本評価では、緩衝材外側における核種濃度をゼロとする最も保守的な境界条件を設定して計算したためである。

なお、全体的な漏出挙動は、詳細なモデルによる違いはあるものの、「HLW 第 2 次取りまとめ」^[2]の評価での人工バリアからの核種漏出挙動（核種毎に核種の年間の移行率）と傾向は一致している（参考図 2 参照）。

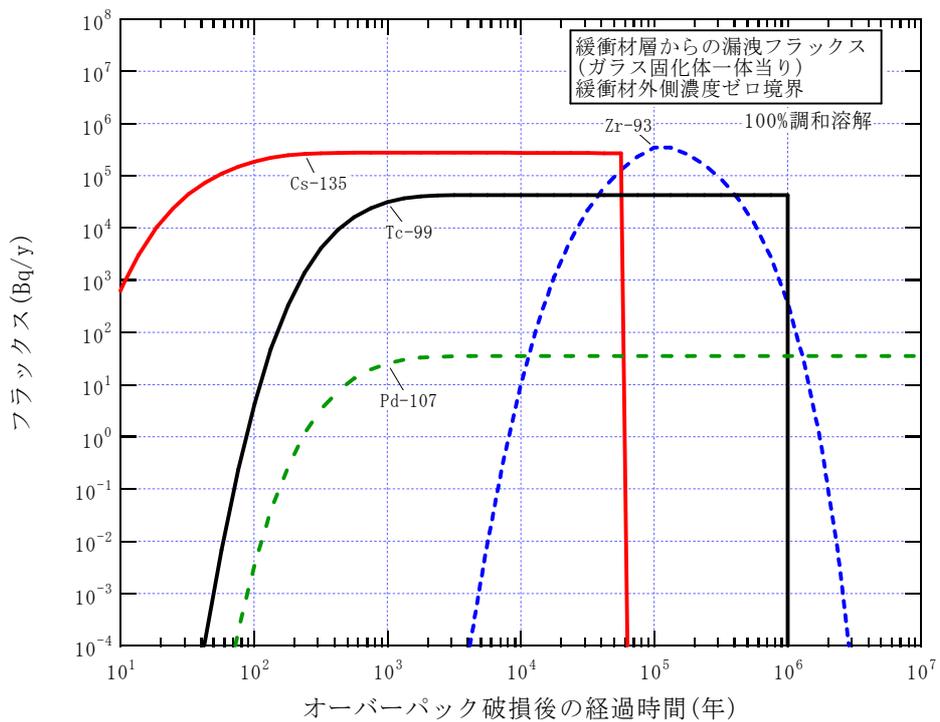


図 3.3-2(1) 緩衝材からの漏出挙動（ガラスと調和溶解の場合。天然バリアを亀裂性媒体モデルで評価。緩衝材外側での地下水濃度をゼロと設定）

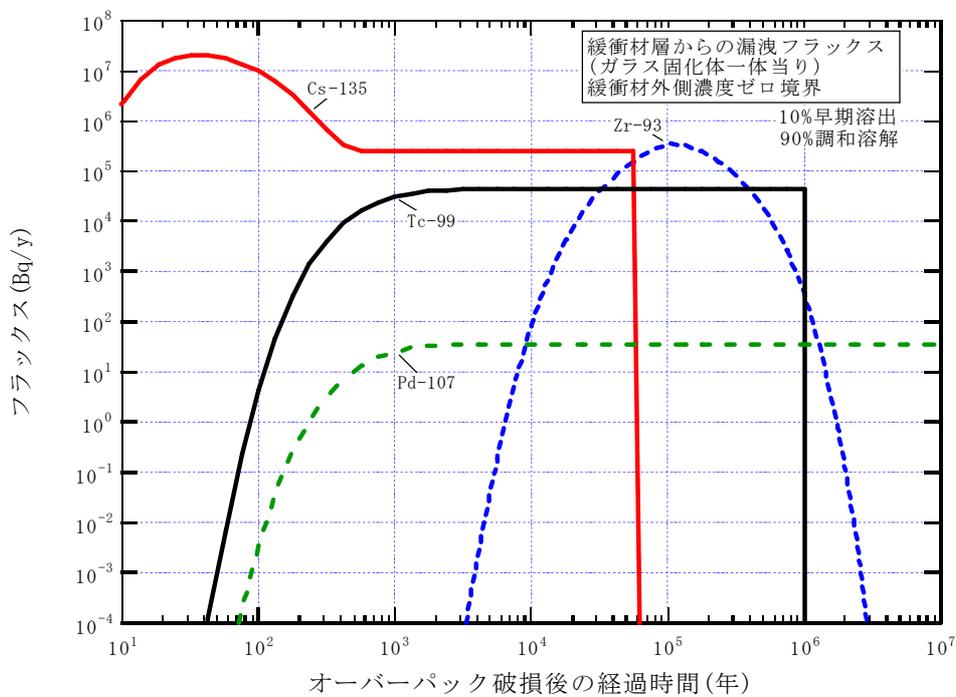


図 3.3-2(2) 緩衝材からの漏出挙動（インベントリの 10%が早期溶出する場合。天然バリアを亀裂性媒体モデルで評価。緩衝材外側での地下水濃度をゼロと設定）

図 3.3-2(3)、(4)に、天然バリアを多孔質媒体モデルで解析した場合の、緩衝材からの漏出フラックスの地下水流速依存性を示す。

まず、評価核種がガラスと調和溶解する場合の解析結果（図 3.3-2(3)）について検討する。前述のように、緩衝材領域のフラックスと天然バリア領域のフラックス間のマスバランスを考慮したため、天然バリア中のダルシー流速が大きいほど地下水中核種濃度が低下し、緩衝材からの漏出フラックスは大きくなる。また、差分解法上でフラックスのマスバランスを考慮した接続を行っており、特にガラス固化体からの核種供給が終了した時点以降について、緩衝材からの核種漏出挙動が、緩衝材外側濃度ゼロ境界での計算結果と比較してやや複雑となる。天然バリアを亀裂性媒体モデルで評価した図 3.3-2(1)の外側ゼロ濃度境界条件での結果と比較すると、ダルシー流速が大きいケース（ 1×10^{-10} m/s）でも、核種の漏出フラックスがより小さい結果となった。これは、この流速では緩衝材外側の地下水中の核種濃度が有意にあり、拡散によるフラックスが小さくなるためである。

次に、インベントリの 10%が早期溶出する場合の解析結果（図 3.3-2(4)）について検討する。地下水流速を 1×10^{-11} m/s として計算した場合は、ガラスからの早期溶出の効果が緩和され、漏出フラックスは定常状態より一桁高い程度であり、早期漏出の影響期間は 1,000 年以上にわたるという結果となった。これは天然バリアでの物質移動が拡散支配となるため^[26]、緩衝材外側地下水中の核種濃度があまり下がらず、その結果岩盤領域への核種のフラックスが小さくなるためである。Tc-99 と Pd-107 は沈殿生成により溶解度制限となるため、緩衝材外側からの定常状態の漏出フラックスがほぼ一定値となり、早期溶出の影響が現れない。

厳密には多孔質媒体モデルと亀裂性媒体モデルでは緩衝材領域とその外側の岩盤領域との接合モデルが異なることの考慮が必要であるが、図 3.3-2(3)、(4)のダルシー流速による漏出フラックスの傾向と、図 3.3-2(1)、(2)の緩衝材外側ゼロ濃度境界条件での結果は、緩衝材外側の地下水中の核種濃度を考慮すれば整合した結果であると言える。

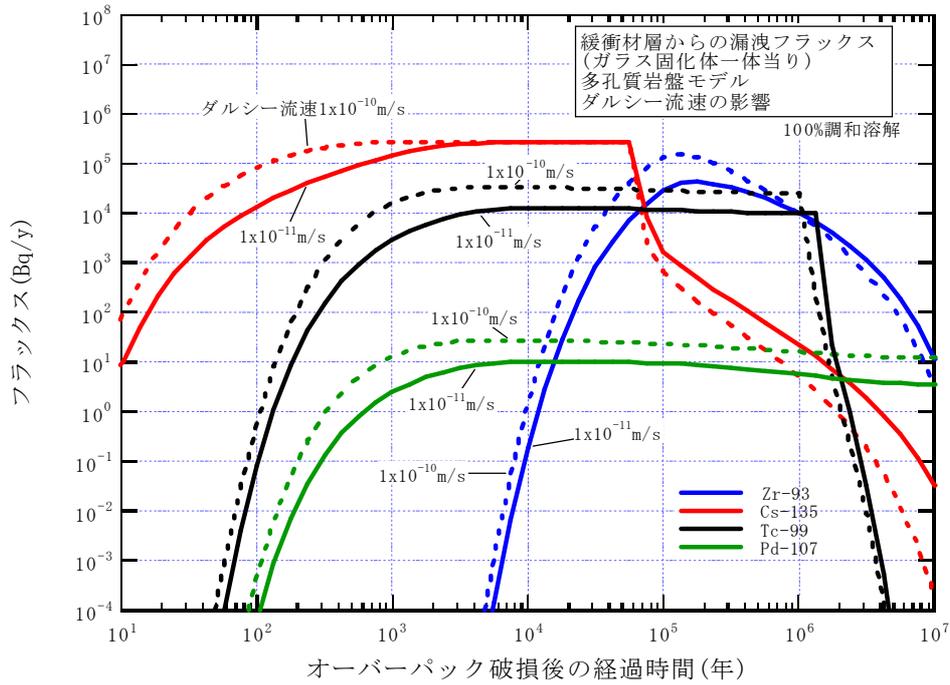


図 3.3-2(3) 緩衝材からの漏出挙動（ガラスと調和溶解の場合。天然バリアを多孔質媒体モデルで評価。天然バリア中地下水流速の影響）

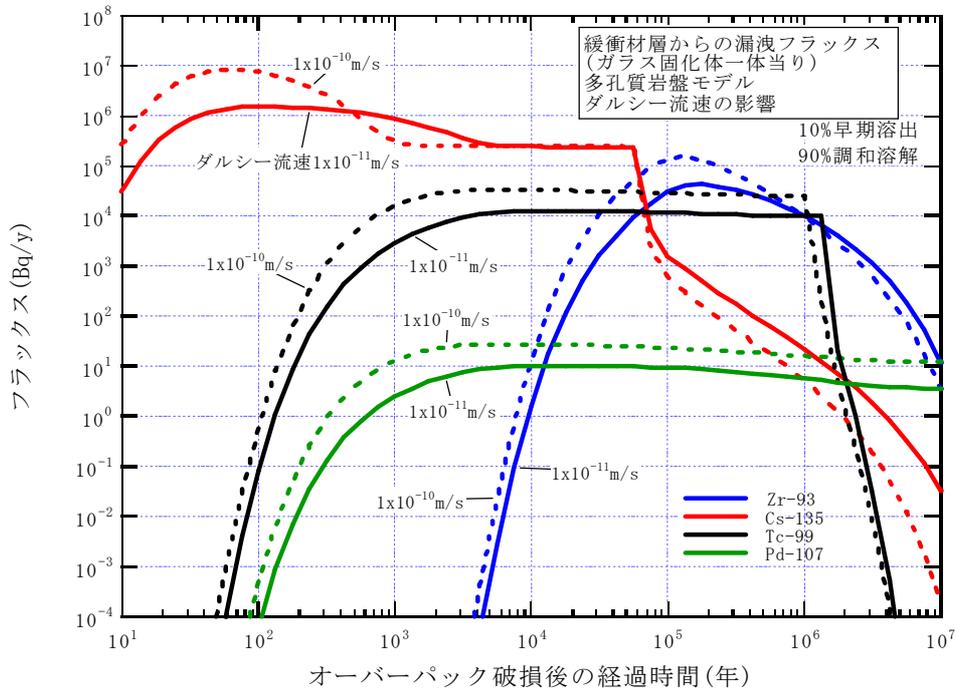


図 3.3-2(4) 緩衝材からの漏出挙動（インベントリの 10%が早期溶出する場合。天然バリアを多孔質媒体モデルで評価。天然バリア中地下水流速の影響）

3.3.3 天然バリアからの核種漏出挙動

緩衝材からの漏出挙動をもとに計算した天然バリアからの核種漏出挙動について、天然バリアに亀裂性媒体モデルを用いた計算結果を図 3.3-3(1)および(2)に、多孔質媒体モデルを用いた計算結果を図 3.3-3(3)および(4)に示す。なお、縦軸は線量率で表した。

総じて言えることは、いずれの岩盤モデルの場合も早期溶出の影響がほとんど見られないか、小さいということである。本検討で対象としたケースのうち、亀裂性媒体モデルの実流速 1×10^{-6} m/s (35 m/年) は、「HLW 第2次取りまとめ」^[2] の評価での最大値 50m/年に近い値であるが、100mの岩盤内亀裂中を移行する間に、結晶相に随伴した放射性核種の早期溶出の影響が緩和される結果となった。

Zr-93 については、線量率への早期溶出の影響は見られない。これは緩衝材に対する収着分配係数が大きいため (分配係数: $10 \text{ m}^3/\text{kg}$) であり、天然バリア中の移行挙動が、ガラス固化体からの溶出挙動ではなく、緩衝材中の移行と漏出挙動に律速されることによる。

Cs-135 についても、Zr-93 の場合と同様、早期溶出の影響が見られない、あるいは小さかった。これは、緩衝材と岩盤に対する収着は Zr-93 ほど大きくはないものの、人工バリアと天然バリアにおける遅延効果により (それぞれのバリア材への分配係数が 0.01 および $0.05 \text{ m}^3/\text{kg}$)、ガラス固化体からの溶出挙動ならびに緩衝材からの漏出挙動がほとんど線量評価計算結果に影響しないためである。これは、ガラス固化体からの核種溶出期間や緩衝材からの核種漏出期間に比較して、天然バリア中での核種移行に要する期間が長いこと、天然バリアの分散効果によりガラス固化体や緩衝材からの核種移行挙動の差が現れなくなることによる。

Tc-99 と Pd-107 については、前述のとおりガラス固化体から溶出した時点で沈殿が生成して溶解度制限条件となるため、緩衝材外側からの漏出フラックスに違いが見られない。従って、緩衝材外側での漏出フラックスをもとに計算した天然バリアからのこれらの核種の漏出による線量にも早期溶出の影響は見られないという結果となった。なお、これらの核種の線量への影響は、亀裂性岩盤モデルの亀裂内地下水実流速が 1×10^{-6} m/s のみ有意であり、その他のケースでは評価時間の範囲では影響が極めて小さいという結果となった。

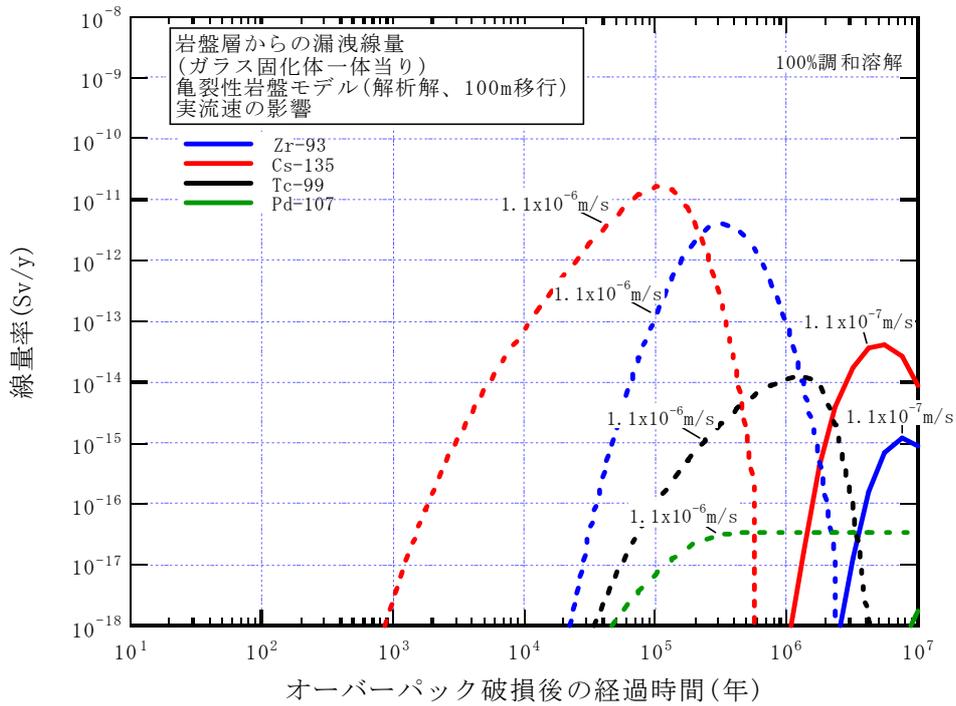


図 3.3-3(1) 岩盤（天然バリア）からの漏出挙動（ガラスと調和溶解の場合。ガラス固化体溶解寿命の影響。天然バリアを亀裂性媒体モデルで評価。）

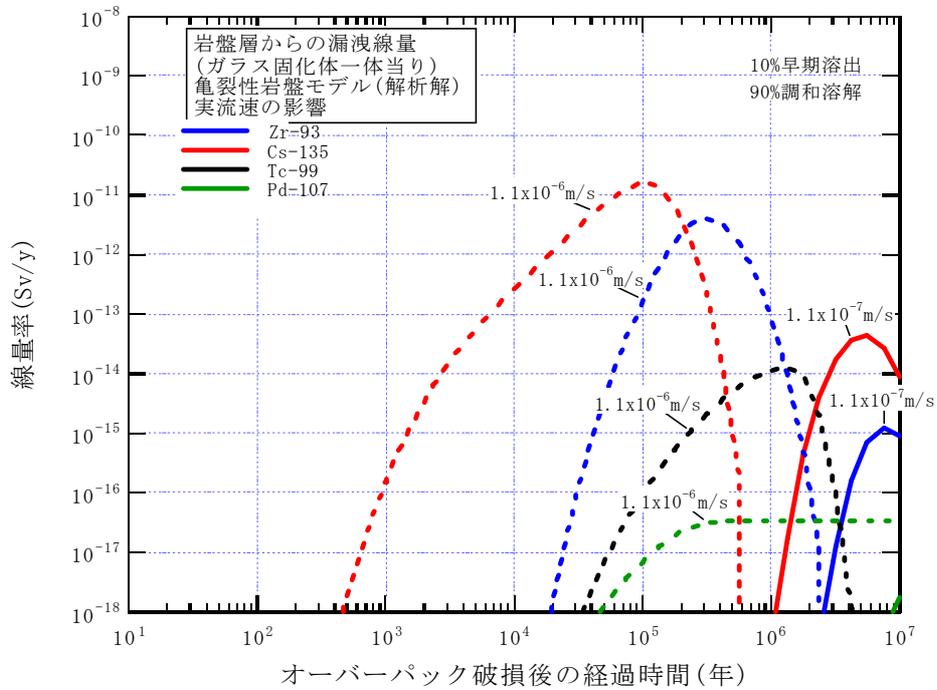


図 3.3-3(2) 岩盤（天然バリア）からの漏出挙動（インベントリの 10%が早期溶出する場合。ガラス固化体溶解寿命の影響。天然バリアを亀裂性媒体モデルで評価。）

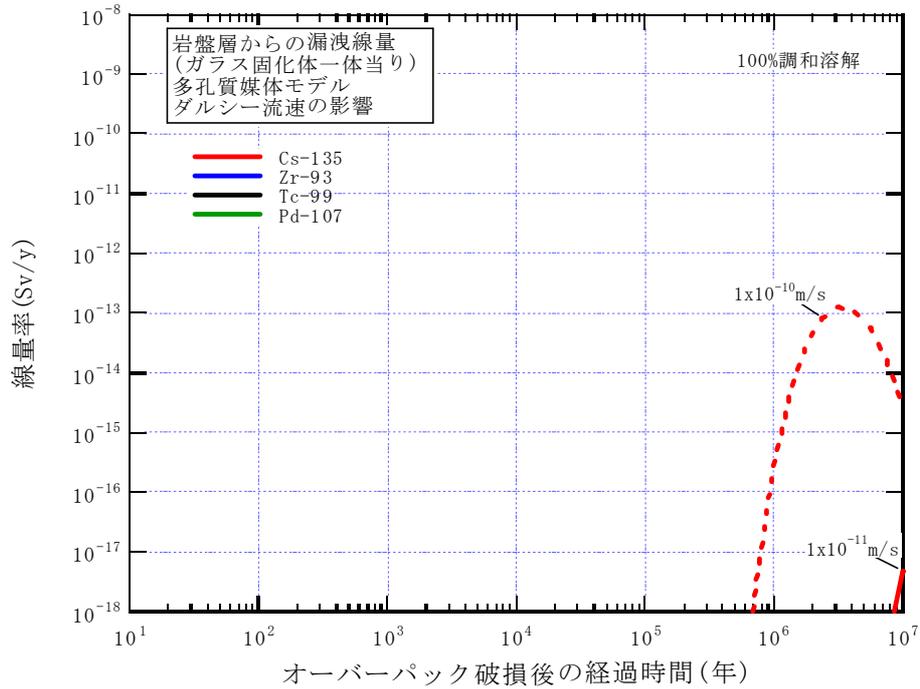


図 3.3-3(3) 岩盤（天然バリア）からの漏出挙動（ガラスと調和溶解の場合。ガラス固化体溶解寿命の影響。天然バリアを多孔質媒体モデルで評価。）

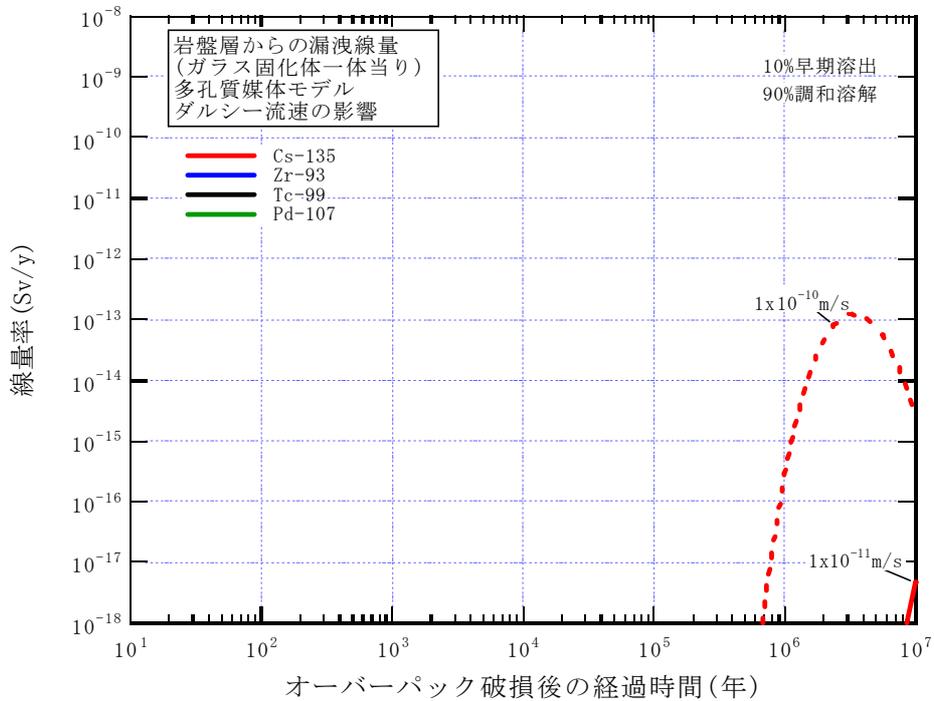


図 3.3-3(4) 岩盤（天然バリア）からの漏出挙動（インベントリの 10%が早期溶出する場合。ガラス固化体溶解寿命の影響。天然バリアを多孔質媒体モデルで評価）

3.4 評価結果に関する考察

本検討において実施した、地下水流速条件等をパラメータとして核種移行解析から、以下のことが言える。

緩衝材からの漏出フラックスは、結晶相生成による早期溶出の影響により、初期に Cs-135 のフラックスが高くなったが、Zr-93 には影響が見られなかった。Tc-99 と Pd-107 については、ガラス固化体から溶出して緩衝材領域に入った時点で沈殿を生成することにより溶解度制限となるため、早期溶出の有無に関わらず緩衝材外側からの漏出フラックスに違いが見られなかった。また、天然バリア領域の移行まで考慮した解析では、ガラス固化体からの Zr-93 および Cs-135 の早期溶出による被ばく線量への影響はほとんどないという評価結果となった。これは、緩衝材や天然バリア中での核種の収着による移行遅延や分散の効果により、ガラス固化体から早期に溶出した放射性核種の影響が無視できるほど小さくなったためである。Tc-99 と Pd-107 については前述の理由により、線量への早期溶出の影響は見られなかった。

なお、十分な文献情報は得られていないが、結晶相として存在する酸化物やモリブデン酸塩の量は微量であると推定できる点、および短半減期の同位体や安定核種とモリブデン酸との結晶相生成を考慮していない点を考慮すると、評価対象とした放射性核種のインベントリの 10%が結晶相に随伴するという本検討の想定は保守的であると考えられる。

また、結晶相に随伴する放射性核種の溶出期間については、1年間よりも短いケースとして 1 ヶ月の場合を試算した結果、緩衝材からの漏出フラックスや天然バリアからの放射性核種の被ばく線量率の結果にほとんど影響しないことを確認済みである。

さらに、本検討で対象とした放射性核種の早期溶出の影響評価結果とその考察を基に、今回評価を実施していない放射性核種についての影響の推察が可能である。すなわち、放射性廃棄物処分の安全評価時に被ばく線量に影響するとされる放射性核種の中で、Cs-135 と同程度の収着パラメータを有する核種については緩衝材からの漏出フラックスには早期溶出の影響が見られたとしても、線量への影響は無視できる程度と言える。Zr-93 のようにベントナイト緩衝材や岩石への収着分配係数が大きい核種が結晶相に随伴したとしても、緩衝材外側漏出フラックス、線量への影響はないと考えられる。Se-79 や Tc-99 に代表される緩衝材内側で沈殿を生成する可能性が高い放射性核種については、仮に結晶相にインベントリの一部が随伴し、ガラス固化体から核種の一部が早期に溶出したとしても、緩衝材からの漏出挙動や天然バリアからの核種漏出による線量への影響はない評価できる。被ばく線量への影響は小さいが、潜在的毒性の大きい TRU 元素も多くが沈殿生成により溶解度制限となるため、同様の理由により被ばく線量への影響はないと言える。

4. まとめ

国内の処分の影響評価事例である「HLW 第2次取りまとめ」^[2]を参考に、文献情報をもとに仮定や条件を設定することにより、ガラス固化体中に結晶相が生成した場合の、地層処分時の核種漏出および被ばく線量への影響を試算した。高レベルガラス固化体の処分時の評価核種としてZr-93、Tc-99、Pd-107、Cs-135に着目し、種々の条件で核種移行計算を行った結果、結晶相生成の影響はない、または非常に小さいことが評価結果として得られた。

参考文献

- [1] 井上 正、他、高レベルガラス固化体およびキャニスターの健全性評価と核種移行評価、電力中央研究所研究報告、総合報告 224、昭和 61 年 12 月。
- [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」、JNC TN1400 99-020、021、022、023、(1999)。
- [3] 作花 済夫他編、ガラスハンドブック、朝倉書店 (1975) など。
- [4] 山根 正之、中尾 泰昌、高レベル放射性廃棄物含有ガラスの分相、窯業協会誌 87[6], 51-55 (1980)。
- [5] 山根 正之、中尾 泰昌、奥山 雅彦、高レベル放射性廃棄物含有ガラスの分相に及ぼす種々の酸化物の添加の影響、窯業協会誌 88[1], 51-55 (1980)。
- [6] Ishiguro, K., Kawanishi, N., Nagaki, H., Naito, A., Chemical Status of Molybdenum in Radioactive Waste Glass, PNC Tokai Works Annual Progress Report PNCT N831-82-01, pp. 217-225 (1982)。
- [7] Schiewer, E., Rabe, H., Weisenburger, S.: The Material Balance –Scientific Fundamentals for the Quality Assurance of Vitrified Waste, Materials Research Society Symposium Proceedings, 11, (1982)。
- [8] 山中 裕、寺井 良平、若林 肇、福本 真次、川久保 輝樹、高レベル放射性廃棄物（模擬）含有ガラスにおけるモリブデン相の分離、大阪工業技術試験所季報 36[3] , 155-161 (1985)。
- [9] Chemical Durability and Related Properties of Solidified High-Level Waste Forms, IAEA Technical Reports Series, No. 257, p.67(1985)。
- [10] Morris, J. B., Chidley, B. E., Preliminary Experience with The New HARWELL Inactive Vitrification Pilot Plant, IAEA-SM-207/22, pp. 241-253 (1976)。
- [11] Schiewer, E., The Borosilicate Glass for ‘PAMELA’, Radioactive Waste Manage. Nucl. Fuel Cycle, 7(2), 121-137 (1986)。

- [12] Wakabayashi, H., Fukumoto, S., Yamanaka, H., Terai, R., Effect of MoO₃ Addition on Phase Separation in Borosilicate Glasses, *J. Ceram. Soc. Jpn. Inter. Ed.*, **95**, 439-446 (1987).
- [13] 捧 賢一、河村 和廣、五十嵐 寛、大内 仁、高廃棄物含有率固化ガラスの相分離、日本原子力学会「1994 年秋の大会」、(1994).
- [14] Calas, G., Le Grand, M., Galoisy, L., Ghaleb, D.: Structural Role of Molybdenum in Nuclear Glasses: An EXAFS Study, *Journal of Nuclear Materials*, **322** (1), pp. 15-20 (2003).
- [15] Hyatt, N.C., Short, R.J., Hand, R.J., Lee, W.E., Livens, F., Charnock, J.M., Bilsborrow, R.L.: The Structural Chemistry of Molybdenum in Model High Level Nuclear Waste Glasses, Investigated by Mo K-edge X-ray Absorption Spectroscopy, *Ceramic Transactions*, **168**, pp. 179-187 (2005).
- [16] Hand, R.J., Short, R.J., Morgan, S., Hyatt, N.C., Möbus, G., Lee, W.E.: Molybdenum in Glasses Containing Vitrified Nuclear Waste, *Glass Technology*, **46** (2), pp. 121-124 (2005).
- [17] Short, R.J., Hand, R.J., Hyatt, N.C., Möbus, G., Environment and Oxidation State of Molybdenum in Simulated High Level Nuclear Waste Glass Compositions, *Journal of Nuclear Materials*, **340** (2-3), pp. 179-186 (2005).
- [18] Caurant, D., Majérus, O., Fadel, E., Lenoir, M., Gervais, C., Pinet, O.: Effect of Molybdenum on the Structure and on the Crystallization of SiO₂-Na₂O-CaO-B₂O₃ Glasses, *Journal of the American Ceramic Society*, **90**(3), pp. 774-783 (2007).
- [19] Kawamura, K., Ohuchi, J.: Characterization of Highly Waste Loaded Glass for HLW, *Materials Research Society Symposium Proceedings*, **353**, pp. 87-93 (1995).
- [20] Morgan, S., Hand, R.J., Hyatt, N.C., Lee, W.E.: Interactions of Simulated High Level Waste (HLW) Calcine with Alkali Borosilicate Glass, *Materials Research Society Symposium Proceedings*, **807**, pp. 151-156 (2004).
- [21] Henry, N., Deniard, P., Jobic, S., Brec, R., Fillet, C., Bart, F., Grandjean, A., Pinet, O.: Heat Treatments Versus Microstructure in a Molybdenum-rich Borosilicate, *Journal of Non-Crystalline Solids*, **333** (2), pp. 199-205 (2004).
- [22] Bosbach, D., Rabung, T., Brandt, F., Fanghänel, T.: Trivalent Actinide Coprecipitation with Powellite (CaMoO₄): Secondary Solid Solution Formation During HLW Borosilicate-glass Dissolution, *Radiochimica Acta*, **92** (9-11), pp. 639-643 (2004).
- [23] Orhlac, X., Fillet, C., Phalippou, J.: Study of Crystallization Mechanisms in the French Nuclear Glass, *Materials Research Society Symposium Proceedings*, **556**, pp. 263-270 (1999).

- [24] Rose, P. B., Ojovan, M. I., Hyatt, N. C., Lee, W. E.: Crystallization Within Simulated High Level Waste Borosilicate Glass, Materials Research Society Symposium Proceedings, **824**, pp. 321-326 (2004).
- [25] Tomozawa, M., Singer, G.M., Oka, Y., Warden, J.T.: Phase Separation in Nuclear Waste Glasses, Applications of Cryogenic Technology, pp. 193-197
- [26] 電気事業連合会、核燃料サイクル開発機構、TRU廃棄物処分概念検討書、JNC TY1400 2000-001、TRU TR-2000-01、(2000).
- [27] 塚本 政樹、大江 俊昭、藤田 智成、人工バリアシステム安全評価簡易解析コードの改良、電力中央研究所研究報告、T92011、(1992).
- [28] 鈴木 篤之、長崎 晋也、「微小経路内でのアクチニドコロイドの移行に関する研究(II)」、動力炉・核燃料開発事業団 委託研究報告書、PNC Z J1602 93-002、(1993).

付録－ 1

ガラスの溶解寿命の影響評価結果

ガラス固化体の溶解寿命をパラメータとした場合の緩衝材からの核種漏出挙動を図付-1(1)～(4)に示す。

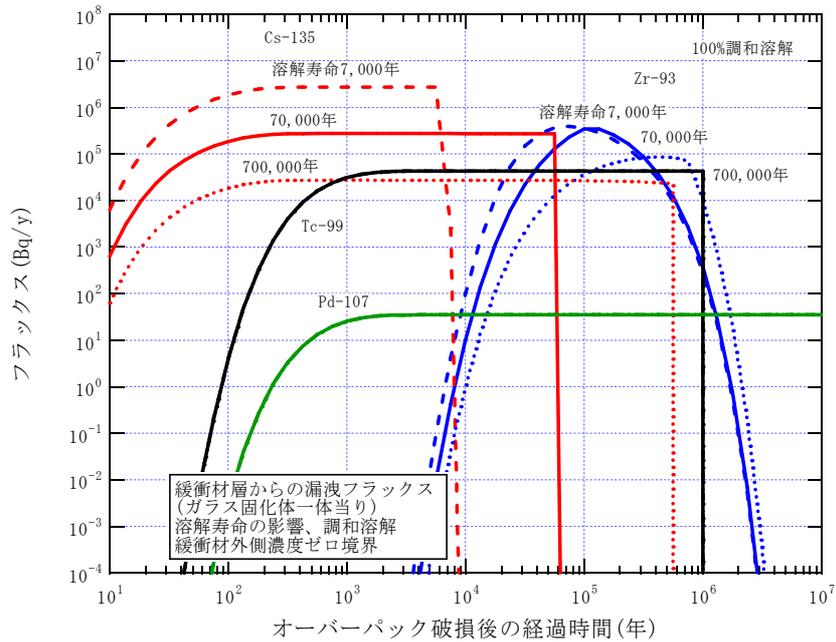
天然バリアを亀裂性媒体モデルで解析した場合（緩衝材外側地下水中の核種濃度をゼロとする境界条件）の解析結果を、図付-1(1)、(2)に示す。

ガラスの溶解と調和的に核種が溶出する場合の解析結果（図付-1(1)）について見ると、まず、溶解寿命が一桁短くなると Cs-135 の漏出フラックスは一桁大きく、逆に溶解寿命が一桁長くなるとフラックスは一桁小さくなる。これは、Cs-135 は緩衝材中での移行遅延の程度が小さいためと考えられる。一方、Zr-93 は緩衝材中の移行遅延効果が大きいため、ガラス固化体の溶解寿命が 7,000 年および 70,000 年の場合には、漏出フラックスの最大値の出現時期が溶解寿命以降となることから、漏出挙動に大きな差は見られない。ガラスの溶解寿命が 700,000 年の場合のみ、ガラス固化体からの溶解の速度の影響が緩衝材からの漏出挙動に現れる結果となった。Tc-99 と Pd-107 については、いずれのガラスの溶解寿命の場合も、ガラス固化体から溶出した時点で沈殿生成により溶解度制限となるため、緩衝材外側からの漏出フラックスに違いが見られない結果となった。

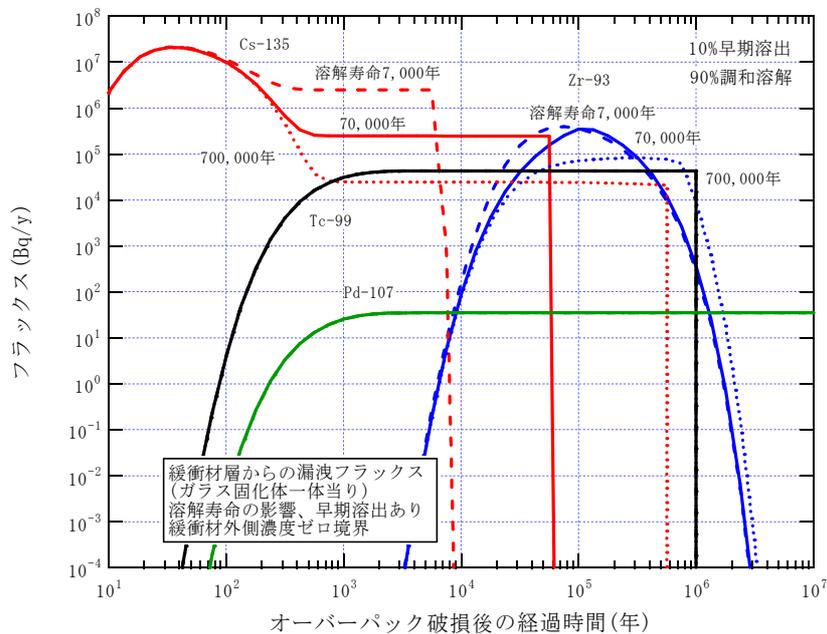
インベントリの 10%が早期溶出された場合の計算結果（図付-1(2)）を見ると、まず Cs-135 については処分後短期間（<100 年）のフラックスはガラスの溶解寿命にほとんど依存しないが、それ以降のフラックスはガラスの溶解寿命に依存することが分かる。一方で、Zr-93 の場合には、溶解寿命が 7,000 年と 70,000 年では、フラックスの最大値への影響はほとんど見られないものの、7000 年の場合には最大フラックスを与える時間が早くなる結果となった。Tc-99 と Pd-107 については、溶解度制限の理由によりガラス固化体溶解寿命の影響は見られず、早期溶出の影響もない。

図付-1(3)、(4)には、天然バリアを多孔質媒体モデルで解析した場合（ダルシー流速 1×10^{-11} m/s）での、緩衝材からの漏出フラックスを示す。

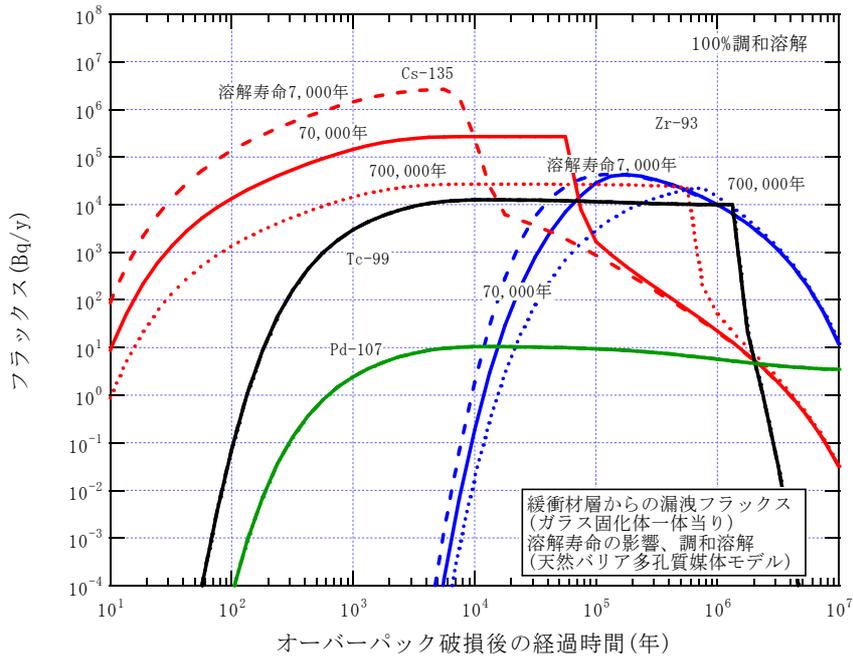
天然バリアを亀裂性媒体モデルで解析した結果（図付-1(1)、(2)）に比較して、全体的に漏出挙動がなだらかになっている。また、図付-1(4)の Cs-135 の早期溶出によるフラックスの影響は図付-1(2)に比較して小さかった。これは、溶解寿命が短い場合にはガラス固化体から緩衝材への Cs-135 の供給量が多くなり、緩衝材中での拡散に対する濃度勾配が大きくなるためと考えられる。Tc-99 と Pd-107 については、前述の理由によりガラス固化体溶解寿命、早期溶出の影響とも見られない。



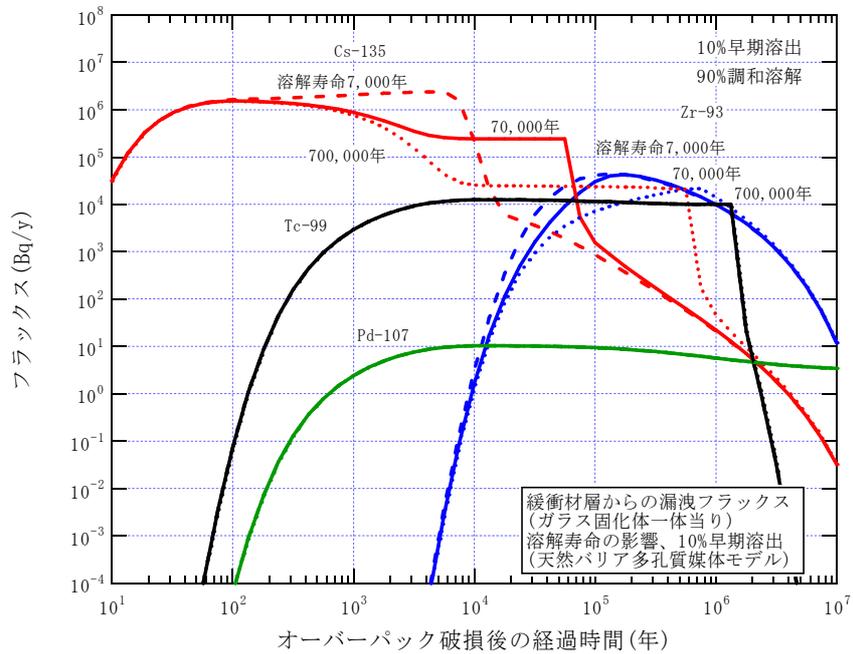
図付-1 (1) 緩衝材からの漏出挙動 (ガラスと調和溶解の場合。ガラス固化体溶解寿命の影響。天然バリアを亀裂性媒体モデルで評価。Tc-99 および Pd-107 については溶解寿命の影響は無く、プロットは重なっている。)



図付-1 (2) 緩衝材からの漏出挙動 (インベントリの 10%が早期溶出する場合。ガラス固化体溶解寿命の影響。天然バリアを亀裂性媒体モデルで評価。Tc-99 および Pd-107 については溶解寿命の影響は無く、プロットは重なっている。)

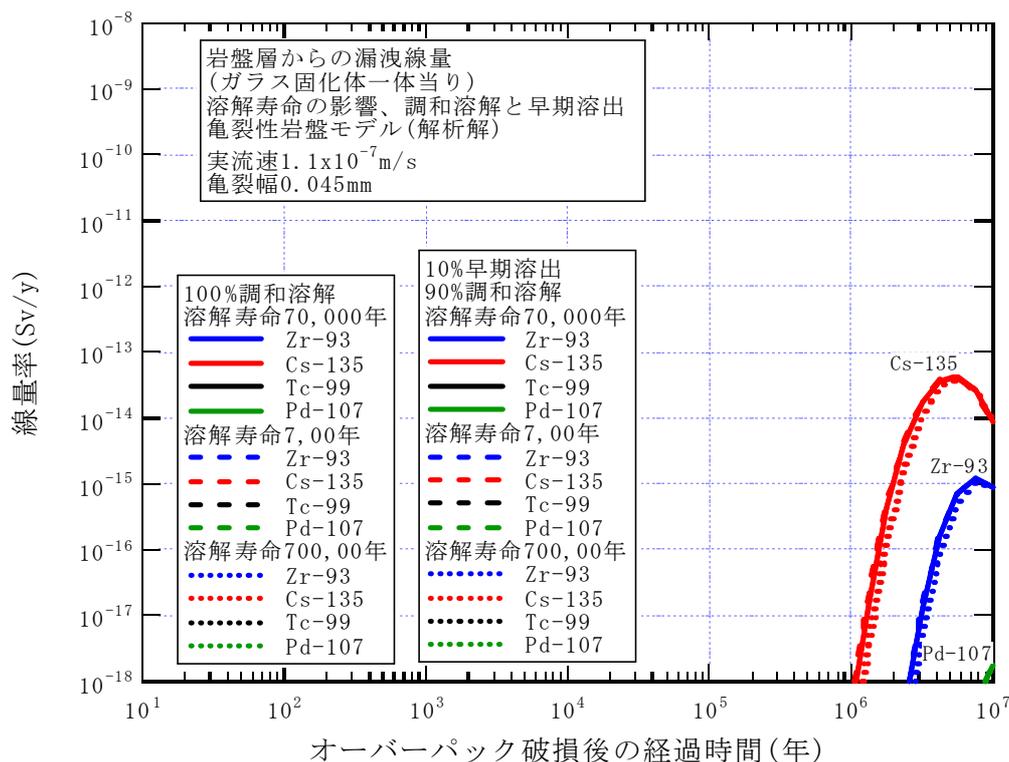


図付-1 (3) 緩衝材からの漏出挙動 (ガラスと調和溶解の場合。ガラス固化体溶解寿命の影響。天然バリアを多孔質媒体モデルで評価。)

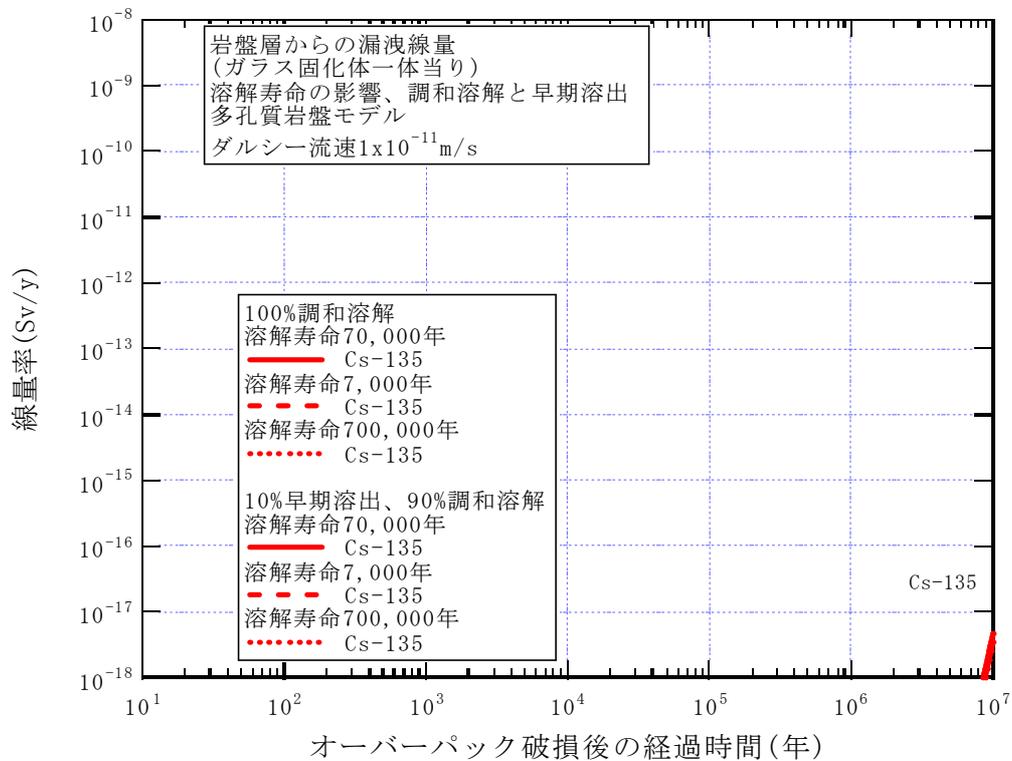


図付-1 (4) 緩衝材からの漏出挙動 (インベントリの10%が早期溶出する場合。ガラス固化体溶解寿命の影響。天然バリアを多孔質媒体モデルで評価。)

ガラス固化体の溶解寿命をパラメータとした場合の線量解析結果を図付-1 (5)、(6)に示す。溶解寿命、早期溶出の有無の影響が見られない結果となっている。多孔質媒体モデルの場合は、亀裂性媒体モデルに比較して岩盤中での遅延効果が大きく、図の範囲内にはほとんど現れないが、亀裂性媒体モデルの場合と同様に、早期溶出の影響やガラス固化体の溶解寿命の影響が見られないという結果が得られた。



図付-1 (5) 岩盤（天然バリア）からの漏出挙動
 (ガラス固化体溶解寿命の影響。天然バリアを亀裂性媒体モデルで評価。Zr-93 については線量率が小さく、この表示スケールに表れない。)



図付-1 (6) 岩盤 (天然バリア) からの漏出挙動
(ガラス固化体溶解寿命の影響。天然バリアを多孔質媒体モデルで評価。Zr-93、Tc-99、
Pd-107 については線量率が小さく、この表示スケールに表れない。)

付録－ 2

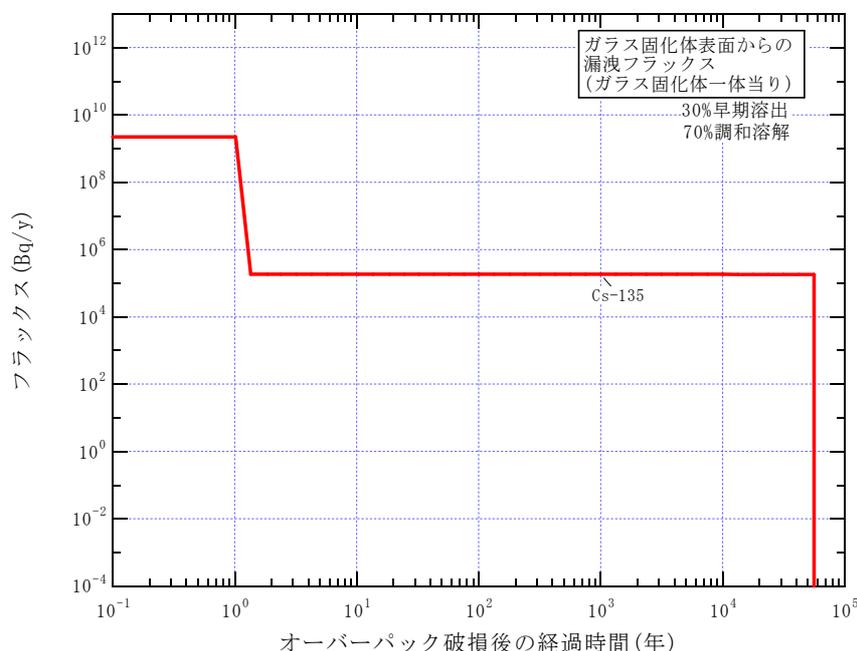
Cs-135 の結晶相への随伴率を 30%とした場合の評価結果

IAEA が取りまとめたレポート^[9]にある、セシウムが最大 30%まで随伴する、という記載に基づき、予備的に Cs-135 についてのみ、結晶相への随伴率を 30%として評価した結果を、図付-2 (1)～(5)に示す。

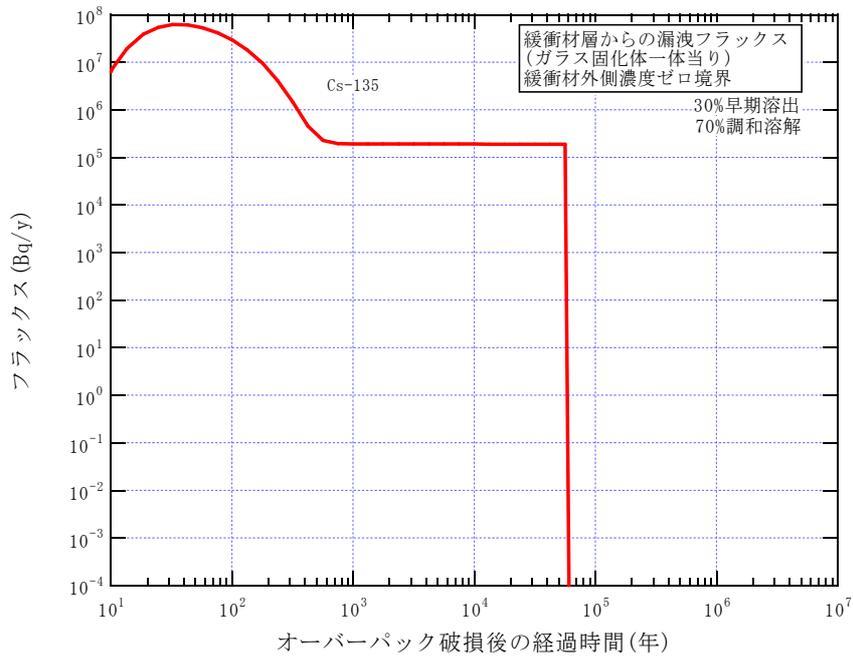
図付-2 (1)のガラス固化体からの溶出挙動は、本編の 10%早期溶出の結果と比較して、早期溶出期間である初期の 1 年間のフラックスが 3 倍となり、一方でその後の調和溶解期間のフラックスはインベントリが初期に低下することによってが約 8 割程度まで低下する。

図付-2 (2)および図付-2 (3)はそれぞれ、岩盤領域を亀裂性媒体モデル（緩衝材外側地下水の核種濃度をゼロとする境界条件）、多孔質媒体モデル（緩衝材領域と天然バリア領域をフラックス接続）により、解析した結果である。いずれの場合でも緩衝材からの漏出フラックスは、本編の 10%早期溶出の結果と比較して、早期溶出期間である初期の 1 年間の漏出フラックスが約 3 倍となるとともに、調和溶解期間に相当する漏出フラックスがやや低くなる結果となり、早期溶出の影響が僅かにみられる結果となった。図付-2 (1)ガラス固化体からの溶出挙動と比較すると、緩衝材領域を拡散により移行する際の分散によりフラックスが緩和される傾向は、10%早期溶出の解析結果と同様である。

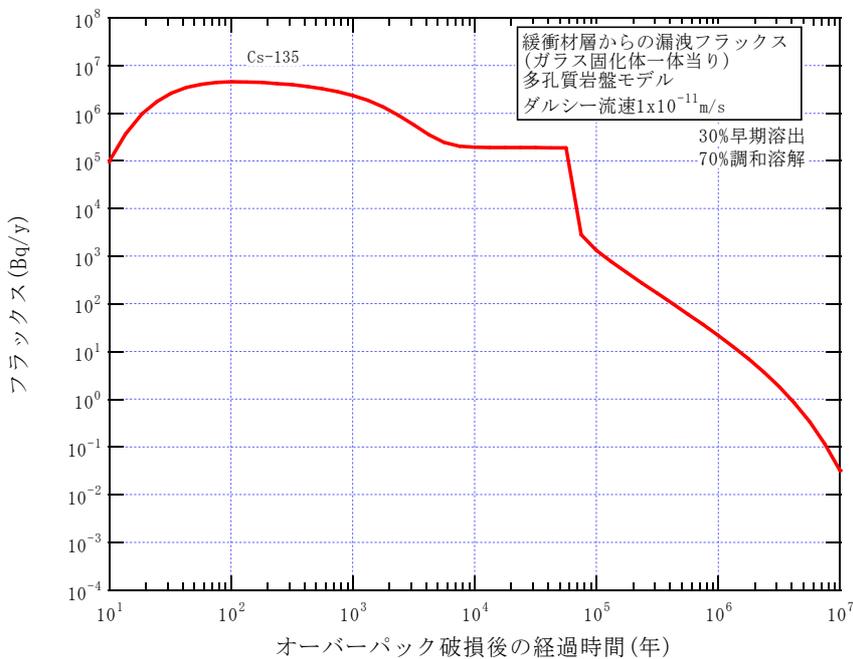
図付-2 (4)、(5)はそれぞれ、天然バリアを亀裂性媒体モデル、多孔質媒体モデルで解析した染料の評価結果である。本編の 10%早期溶出の評価結果と比較してわかるとおり、いずれのモデルでも 10%と 30%の随伴率の違いも含めて、早期溶出の影響はほとんど見られない。



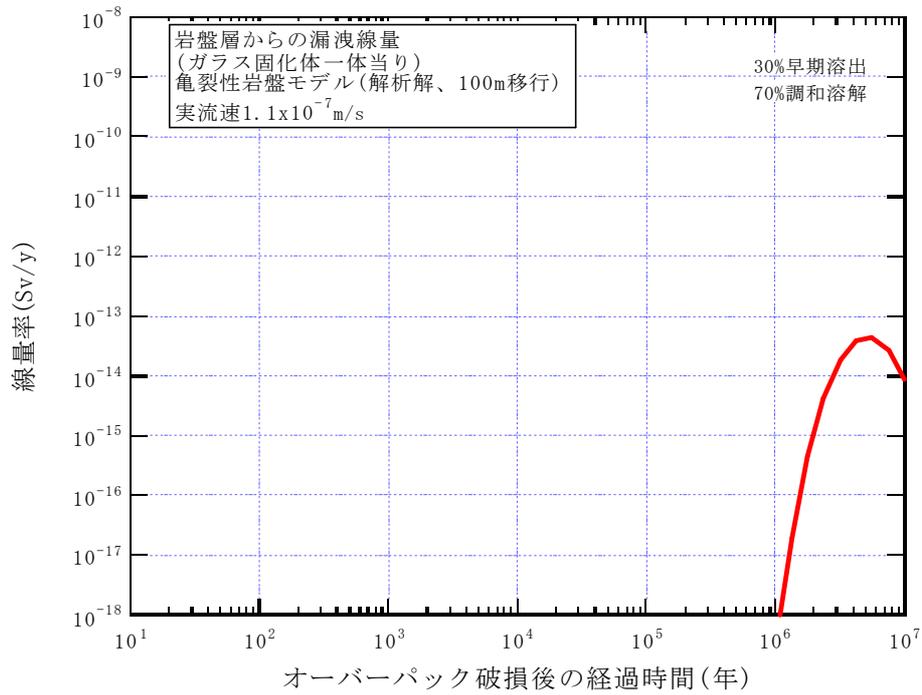
図付-2 (1) ガラス固化体からの Cs-135 の溶出挙動
(ガラスの溶解寿命 70,000 年。(インベントリの 30%が 1 年間で放出される場合))



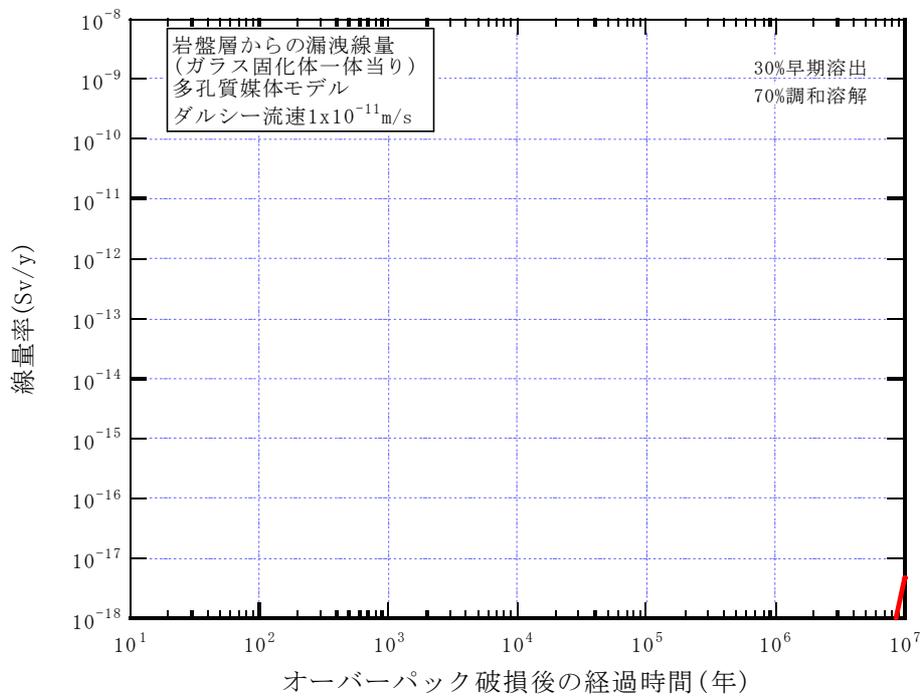
図付-2 (2) 緩衝材からの Cs-135 の漏出挙動 (インベントリの 30%が早期溶出する場合。天然バリアを亀裂性媒体モデルで評価。緩衝材外側での地下水濃度をゼロと設定)



図付-2 (3) 緩衝材からの Cs-135 の漏出挙動 (インベントリの 30%が早期溶出する場合。天然バリアを多孔質媒体モデルで評価。天然バリア中地下水流速 1×10^{-11} m/s の場合)



図付-2 (4) 岩盤（天然バリア）からの Cs-135 の漏出挙動（インベントリの 30%が早期溶出する場合。天然バリアを亀裂性媒体モデルで評価。）



図付-2 (5) 岩盤（天然バリア）からの Cs-135 の漏出挙動（インベントリの 30%が早期溶出する場合。天然バリアを多孔質媒体モデルで評価。）

参考資料

「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」（核燃料サイクル開発機構）の
評価モデル、パラメータ等

（出典は全て本文参考文献「HLW 第2次取りまとめ」第三分冊）

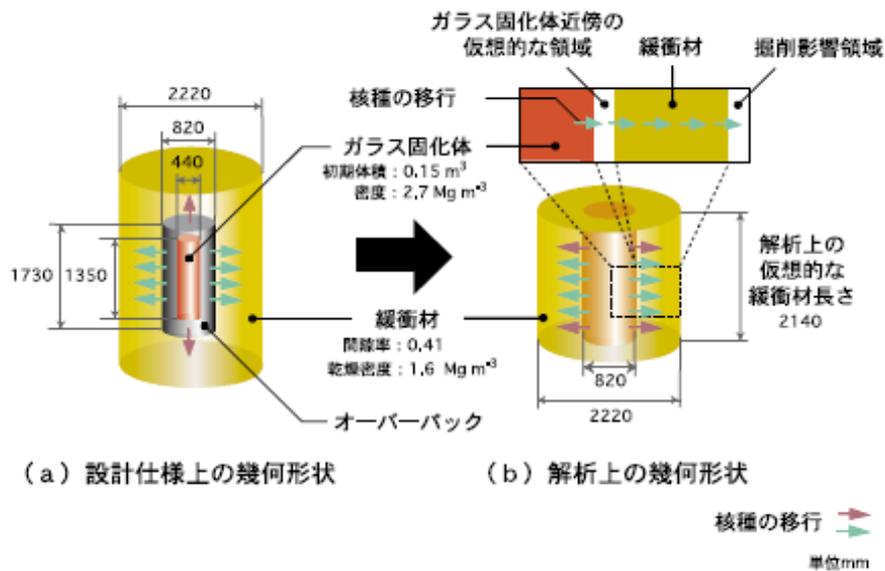


図 5.3.1-1 人工バリアの構成および幾何形状

参考図 1 「HLW 第 2 次取りまとめ」の評価体系 (その 1)

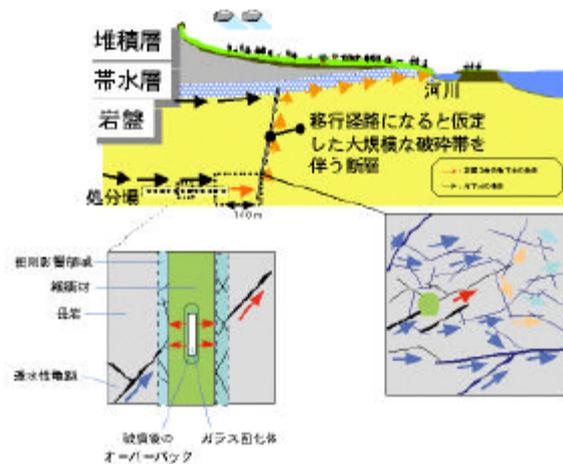


図 5.1-3 レファレンスケースで考慮する核種移行経路 (帯水層に至った核種は移行遅延を受けずすべて河川に至ると仮定: 5.3.3 参照)

参考図 1 「HLW 第 2 次取りまとめ」の評価体系 (その 2)

参考表1 本検討で考慮したインベントリデータ

表 5.3.1-2 ガラス固化体1本あたりの放射性核種および安定同位体のインベントリ (処分後1,000年時点)

元素	同位体	半減期 ^{*)} [y]	モル数 [mol]	放射能量 [Bq]	元素	同位体	半減期 ^{*)} [y]	モル数 [mol]	放射能量 [Bq]
Se	79	6.50×10^{14}	8.04×10^{-2}	1.64×10^{10}	Th	229	7.34×10^{13}	2.51×10^{-6}	4.52×10^{16}
	Stable	—	6.86×10^{-1}	—		230	7.70×10^{14}	5.37×10^{-5}	9.23×10^{16}
Zr	93	1.53×10^{16}	8.54	7.39×10^{10}		232	1.41×10^{10}	6.50×10^{-6}	6.13
	Stable	—	4.74×10^{11}	—	Pa	231	3.28×10^{14}	2.23×10^{-6}	8.99×10^{15}
Nb	93m	1.36×10^{11}	7.21×10^{-5}	7.02×10^{10}	U	233	1.59×10^{15}	1.17×10^{-3}	9.75×10^{17}
	94	2.03×10^{14}	2.80×10^{-4}	1.83×10^{18}		234	2.45×10^{15}	1.50×10^{-2}	8.14×10^{18}
	Stable	—	2.67×10^{-2}	—		235	7.04×10^{16}	1.46×10^{-1}	2.74×10^{16}
Tc	99	2.13×10^{15}	8.27	5.14×10^{11}		236	2.34×10^{17}	1.05×10^{-1}	5.94×10^{17}
Pd	107	6.50×10^{16}	2.04	4.16×10^{10}		238	4.47×10^{19}	1.31×10^{11}	3.89×10^{17}
	Stable	—	1.18×10^{11}	—	Np	237	2.14×10^{16}	3.74	2.31×10^{10}
Sn	126	1.00×10^{15}	2.25×10^{-1}	2.97×10^{10}	Pu	238	8.77×10^{11}	6.49×10^{-5}	9.79×10^{19}
	Stable	—	6.82×10^{-1}	—		239	2.41×10^{14}	1.60×10^{-1}	8.79×10^{10}
Cs	135	2.30×10^{16}	3.19	1.83×10^{10}		240	6.54×10^{13}	1.78×10^{-1}	3.59×10^{11}
	Stable	—	8.84	—		241	1.44×10^{11}	1.23×10^{-5}	1.13×10^{10}
Sm	151	9.00×10^{11}	3.20×10^{-5}	4.71×10^{19}		242	3.87×10^{15}	1.12×10^{-2}	3.82×10^{18}
	Stable	—	3.33	—	Am	241	4.32×10^{12}	1.88×10^{-1}	5.75×10^{12}
Pb	210	2.23×10^{11}	3.48×10^{-9}	2.07×10^{16}	242m	1.52×10^{12}	5.79×10^{-5}	5.04×10^{19}	
	Stable	—	3.81×10^{-3}	—	243	7.38×10^{13}	4.01×10^{-1}	7.18×10^{11}	
Ra	226	1.60×10^{13}	2.62×10^{-7}	2.16×10^{16}	Cm	245	8.50×10^{13}	7.26×10^{-3}	1.13×10^{10}
Ac	227	2.18×10^{11}	1.48×10^{-9}	8.98×10^{15}		246	4.73×10^{13}	8.29×10^{-4}	2.32×10^{19}

Stable : 安定同位体

*) : ORIGEN2.1 コードの DECAY ライブラリから引用した。この半減期データは、人工バリア、天然バリア、および生物圏の評価で共通に使用する。なお、Se-79の半減期については、最近の研究から、より長い半減期であることが示唆されているが (たとえば、Li et al. (1997) では $(1.13 \pm 0.17) \times 10^6$ 年)、半減期が長くなったとしてもレファレンスケースの評価結果に大きな影響を及ぼすことはないことを確認している (石原ほか, 1999b)。

参考表 2 本検討で考慮した元素溶解度データ

表 5.3.1-6 レファレンスケースにおける放射性元素の溶解度

元素	溶解度[mol l ⁻¹ at 25°C]	溶解度制限固相 ^{*3}	主要溶存化学種 ^{*3}
Se	3 × 10 ⁻⁹	FeSe ₂ (cr)	HSe ⁻
Zr	1 × 10 ⁻⁶ *1	ZrO ₂ (am)	Zr(OH) ₄ (aq)
Nb	1 × 10 ⁻⁴ *1	Nb ₂ O ₅ (am)	Nb(OH) ₅ ⁻
Tc	4 × 10 ⁻⁸	TcO ₂ · 2H ₂ O(am)	TcO(OH) ₂ (aq)
Pd	1 × 10 ⁻⁹ *1	Pd(cr)	Pd(OH) ₂ (aq)
Sn	5 × 10 ⁻⁶ *1	SnO ₂ (am)	Sn(OH) ₅ ⁻ ; Sn(OH) ₄ (aq)
Cs	可溶性	—	Cs ⁺
Sm	2 × 10 ⁻⁷	SmOHCO ₃ (cr)	Sm(CO ₃) ₂ ⁻ ; Sm(CO ₃) ₃ ³⁻ , SmCO ₃ ⁺
Pb	2 × 10 ⁻⁶	PbCO ₃ (cr)	PbCO ₃ (aq); Pb(CO ₃) ₂ ²⁻
Ra	1 × 10 ⁻¹² *2	Ra-Ca-CO ₃	Ra ²⁺
Ac	2 × 10 ⁻⁷	AcOHCO ₃ (cr)	Ac(CO ₃) ₂ ⁻ ; Ac(CO ₃) ₃ ³⁻ , AcCO ₃ ⁺
Th	5 × 10 ⁻⁶	ThO ₂ (am)	Th(OH) ₃ CO ₃ ⁻
Pa	2 × 10 ⁻⁸	Pa ₂ O ₅ (s)	PaO(OH) ₃ (aq)
U	8 × 10 ⁻⁹	UO ₂ (am)	U(OH) ₂ (CO ₃) ₂ ²⁻ ; U(OH) ₃ (aq)
Np	2 × 10 ⁻⁸	NpO ₂ (am)	Np(OH) ₂ (CO ₃) ₂ ²⁻ , Np(OH) ₃ (aq)
Pu	3 × 10 ⁻⁸	PuO ₂ (am)	Pu(OH) ₂ (CO ₃) ₂ ²⁻ ; Pu(CO ₃) ₂ ⁻ ; Pu(CO ₃) ₃ ³⁻ ; PuCO ₃ ⁺
Am	2 × 10 ⁻⁷	AmOHCO ₃ (cr)	Am(CO ₃) ₂ ⁻ ; Am(CO ₃) ₃ ³⁻ , AmCO ₃ ⁺
Cm	2 × 10 ⁻⁷	CmOHCO ₃ (cr)	Cm(CO ₃) ₂ ⁻ ; Cm(CO ₃) ₃ ³⁻ , CmCO ₃ ⁺

*1: 実測値に基づく設定

Zr: 渡谷・油井 (1998),

Nb: 矢島ほか (1992); 矢島 (1994), (参考) 計算値 7 × 10⁻⁷ mol l⁻¹

Sn: Oda and Amaya (1998), (参考) 計算値 2 × 10⁻⁷ mol l⁻¹

Pd: Oda et al. (1996), (参考) 計算値 ほぼゼロ

*2: Ca との簡易な共沈モデル (Bemer, 1995) と天然水の濃度上限の比較から大きな値を設定 (表 5.3.1-7 参照)。

*3: 固相の表記については、熱力学データベース開発での議論を踏まえて結晶質を(cr)、アモルファスを(am)及び現状ではこの両者に区分けできない固相(s)に分類している。電気的に中性の水溶性化学種については化学式の最後に(aq)を付記している (Yui et al., 1999b)。

参考表3 本検討で考慮した実効拡散係数

表 5.3.1-8 レファレンスケースにおける放射性元素の実効拡散係数

元素	溶存化学種	実効拡散係数 [m ² s ⁻¹ at 25°C]	実効拡散係数 [m ² s ⁻¹ at 60°C]
Cs	Cs ⁺	2.7×10 ⁻¹⁰	5.4×10 ⁻¹⁰ (6×10 ⁻¹⁰)*
Se	HSe ⁻	6.0×10 ⁻¹¹	1.2×10 ⁻¹⁰ (2×10 ⁻¹⁰)*
Cs, Se 以外の元素		1.2×10 ⁻¹⁰	2.4×10 ⁻¹⁰ (3×10 ⁻¹⁰)*

* 核種移行解析では括弧内に示した、1桁にまるめた値から求められる間隙水中での拡散係数を用いた。

参考表4 本検討で考慮した緩衝材への収着分配係数

表 5.3.1-9 レファレンスケースにおける放射性元素の
緩衝材への分配係数

元素	分配係数 [m ³ kg ⁻¹]	備考 (Da 値の出典)
Se	0	Sato (1997a) * ¹
Zr	10	Sato et al. (1995)
Nb	1	嶺ほか (1999b)
Tc	0.1	Kuroda et al. (1997) * ² , 加藤ほか (1999) * ¹
Pd	0.1	Tachi et al. (1999b)
Sn	1	小田ほか (1999c)
Cs	0.01	佐藤・澁谷 (1994) Idemitsu et al. (1998)
Sm	1	Sato (1997b)
Pb	0.1	Ni (Sato,1999b)のアナログ* ³
Ra	0.01	Tachi et al. (1999a)
Ac	1	Sm のアナログ
Th	1	U, Np のアナログ
Pa	1	Sn のアナログ
U	1	Idemitsu et al. (1994) * ² , 加藤ほか (1999) * ¹
Np	1	加藤ほか (1999) * ¹
Pu	10	館ほか (1999)
Am	10	佐藤・澁谷 (1994)
Cm	10	Am のアナログ

*¹ 還元性溶液に浸漬した試料に対する拡散試験

*² 鉄腐食生成物を拡散させた試料に対する拡散試験

*³ Pb を用いた拡散試験における解析結果からも設定値の保守性が示唆されている (芦田ほか, 1999)

参考表5 本検討で考慮した岩盤への収着分配係数

表 5.3.2-2 レファレンスケースにおける花崗岩に対する放射性元素の分配係数 (単位: $\text{m}^3 \text{kg}^{-1}$)

元素	分配係数	元素	分配係数	元素	分配係数
Se	0.01	Cs	0.05	Pa	1
Zr	0.1	Sm	5	U	1
Nb	0.1	Pb	0.1	Np	1
Tc	1	Ra	0.5	Pu	1
Pd	0.1	Ac	5	Am	5
Sn	1	Th	1	Cm	5

参考表6 本検討の亀裂媒体モデルの計算で考慮した諸パラメータ

表 5.3.2-3 レファレンスケースにおける母岩中の核種移行解析に用いたデータ一覧

	名称	設定値
地質環境 条件	岩種	花崗岩 (酸性結晶質岩)
	地下水	降水系地下水
	動水勾配 [-]	0.01
境界条件	入力とした核種移行率	掘削影響領域通過流量 $0.001 \text{ m}^3 \text{ y}^{-1}$ とした場合の人工バリアからの核種移行率 (5.3.5.2 参照)
亀裂 パラメータ	移行距離 [m]	100
	透水量係数 [$\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$]	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
	開口幅 [m]	経験則 $2b = 2\sqrt{T}$ 対数正規分布 (対数平均 -4.69, 標準偏差 0.54)
核種移行 パラメータ	分散長*1 [m]	縦方向分散長 10 (=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
	有効間隙率*2 [%]	2
	乾燥密度*2 [Mg m^{-3}]	2.64
	実効拡散係数*2 [$\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$]	3×10^{-12}
	分配係数	表 5.3.2-2 参照

*1 横方向分散長は考慮しない。

*2 岩石基質部の有効間隙率, 乾燥密度, 実効拡散係数は, 互いに相関を持つように設定した。

参考表7 「HLW 第2次取りまとめ」で用いられた線量換算係数（本検討では河川水／平野、農作業の値を使用）

表 6.1.1-3 種々の生物圏評価モデルを用いて算出した線量への換算係数（単位：[(mSv y⁻¹)/(Bq y⁻¹)]

核種	河川水／ 平野			河川水／ 丘陵			河川水／ 山地			河川堆積層／平野			河川堆積層／丘陵			河川堆積層／山地			深井戸／ 平野	深井戸／ 丘陵	沿岸海域 水／平野	沿岸海域 水／丘陵	沿岸海域 水／山地	沿岸海域 堆積／平野	沿岸海域 堆積／丘陵	沿岸海域 堆積／山地
	農作業	農作業	農作業	農作業	淡水漁業	海洋漁業	農作業	農作業	海洋漁業																	
Pu-240	1×10 ¹¹	1×10 ¹⁰	1×10 ⁹	3×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰	1×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰	1×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰	3×10 ¹⁰	1×10 ¹⁰	7×10 ¹⁰	7×10 ¹⁰	3×10 ¹⁰	1×10 ¹⁰	1×10 ¹⁰	1×10 ¹⁰								
U-236	1×10 ¹²	1×10 ¹¹	1×10 ¹⁰	1×10 ¹²	6×10 ¹²	2×10 ¹²	1×10 ¹¹	4×10 ¹²	2×10 ¹²	1×10 ¹⁰	4×10 ¹¹	2×10 ¹²	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹	2×10 ¹⁵	3×10 ¹²	3×10 ¹²	3×10 ¹²								
Th-232	2×10 ¹⁰	4×10 ¹⁰	2×10 ⁹	1×10 ⁸	8×10 ¹⁰	4×10 ⁹	2×10 ⁹	8×10 ¹⁰	4×10 ⁹	9×10 ¹⁰	1×10 ⁹	4×10 ⁹	8×10 ⁹	2×10 ⁹	2×10 ¹³	4×10 ⁹	4×10 ⁹	4×10 ⁹								
Ra-228	6×10 ¹²	6×10 ¹¹	6×10 ¹⁰	9×10 ¹²	4×10 ¹⁰	8×10 ¹³	6×10 ¹¹	4×10 ¹⁰	8×10 ¹³	5×10 ¹⁰	5×10 ¹⁰	8×10 ¹³	3×10 ¹⁰	3×10 ¹⁰	3×10 ¹³	7×10 ¹²	7×10 ¹²	7×10 ¹²								
Th-228	4×10 ¹²	4×10 ¹¹	4×10 ¹⁰	8×10 ¹³	9×10 ¹⁰	3×10 ¹³	9×10 ¹³	9×10 ¹⁰	3×10 ¹³	2×10 ¹²	9×10 ¹⁰	3×10 ¹³	1×10 ¹⁰	1×10 ¹⁰	5×10 ¹⁴	1×10 ¹²	1×10 ¹²	1×10 ¹²								
Cm-245	5×10 ¹¹	2×10 ¹⁰	2×10 ⁹	2×10 ⁹	3×10 ¹⁰	3×10 ¹⁰	4×10 ¹⁰	4×10 ¹⁰	3×10 ¹⁰	3×10 ¹⁰	4×10 ¹⁰	3×10 ¹⁰	2×10 ⁹	1×10 ⁹	2×10 ¹²	3×10 ¹⁰	3×10 ¹⁰	3×10 ¹⁰								
Pu-241	4×10 ¹³	3×10 ¹²	2×10 ¹¹	1×10 ¹¹	5×10 ¹²	7×10 ¹³	6×10 ¹²	6×10 ¹²	7×10 ¹³	5×10 ¹²	7×10 ¹²	7×10 ¹²	2×10 ¹¹	1×10 ¹¹	7×10 ¹⁵	9×10 ¹³	9×10 ¹³	9×10 ¹³								
Am-241	2×10 ¹¹	1×10 ¹⁰	1×10 ⁹	4×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰	2×10 ¹¹	2×10 ¹⁰	3×10 ¹⁰	2×10 ¹¹	2×10 ¹⁰	2×10 ¹¹	2×10 ¹¹	8×10 ¹⁰	7×10 ¹⁰	2×10 ¹²	3×10 ¹³	3×10 ¹³	3×10 ¹³								
Np-237	1×10 ¹¹	1×10 ¹⁰	1×10 ⁹	1×10 ¹¹	3×10 ¹¹	2×10 ¹¹	1×10 ¹⁰	1×10 ¹⁰	2×10 ¹¹	1×10 ⁹	8×10 ¹⁰	2×10 ¹¹	7×10 ¹⁰	7×10 ¹⁰	1×10 ¹³	1×10 ¹⁰	1×10 ¹⁰	1×10 ¹⁰								
Pa-233	2×10 ¹⁴	2×10 ¹³	2×10 ¹²	9×10 ¹⁷	5×10 ¹²	6×10 ¹⁷	1×10 ¹⁶	5×10 ¹²	6×10 ¹⁷	4×10 ¹⁶	5×10 ¹²	6×10 ¹⁷	9×10 ¹⁴	9×10 ¹⁴	4×10 ¹⁷	5×10 ¹⁵	5×10 ¹⁵	5×10 ¹⁵								
U-233	2×10 ¹²	2×10 ¹¹	1×10 ¹⁰	2×10 ¹²	6×10 ¹³	1×10 ¹²	2×10 ¹¹	5×10 ¹²	1×10 ¹²	1×10 ¹⁰	5×10 ¹¹	1×10 ¹²	9×10 ¹¹	8×10 ¹¹	2×10 ¹⁵	2×10 ¹¹	2×10 ¹¹	2×10 ¹¹								
Th-229	8×10 ¹¹	3×10 ¹⁰	2×10 ⁹	5×10 ⁹	1×10 ⁹	6×10 ¹⁰	1×10 ⁹	1×10 ⁹	6×10 ¹⁰	3×10 ¹⁰	1×10 ⁹	6×10 ¹⁰	4×10 ⁹	2×10 ⁹	3×10 ¹³	6×10 ¹⁰	6×10 ¹⁰	6×10 ¹⁰								
Cm-246	4×10 ¹¹	2×10 ¹⁰	2×10 ⁹	1×10 ⁹	2×10 ¹⁰	1×10 ¹⁰	3×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰	1×10 ¹⁰	3×10 ¹⁰	3×10 ¹⁰	1×10 ¹⁰	2×10 ⁹	1×10 ⁹	2×10 ¹²	1×10 ¹⁰	1×10 ¹⁰	1×10 ¹⁰								
Pu-242	1×10 ¹¹	1×10 ¹⁰	1×10 ⁹	3×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰	3×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰	7×10 ¹⁰	6×10 ¹⁰	3×10 ¹³	2×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰													
U-238	1×10 ¹²	1×10 ¹¹	1×10 ¹⁰	1×10 ¹²	8×10 ¹³	3×10 ¹³	1×10 ¹¹	5×10 ¹²	3×10 ¹³	1×10 ¹⁰	4×10 ¹¹	3×10 ¹³	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹	2×10 ¹⁵	4×10 ¹²	4×10 ¹²	4×10 ¹²								
U-234	1×10 ¹²	1×10 ¹¹	1×10 ¹⁰	1×10 ¹²	6×10 ¹³	4×10 ¹³	1×10 ¹¹	5×10 ¹²	4×10 ¹³	1×10 ¹⁰	5×10 ¹¹	4×10 ¹³	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹	2×10 ¹⁵	6×10 ¹²	6×10 ¹²	6×10 ¹²								
Th-230	4×10 ¹¹	7×10 ¹¹	3×10 ¹⁰	3×10 ⁹	1×10 ¹⁰	2×10 ⁹	4×10 ¹⁰	1×10 ¹⁰	2×10 ⁹	6×10 ¹¹	1×10 ¹⁰	2×10 ⁹	4×10 ¹⁰	4×10 ¹⁴	1×10 ⁹	1×10 ⁹	1×10 ⁹									
Ra-226	4×10 ¹¹	2×10 ¹⁰	1×10 ⁹	2×10 ¹⁰	3×10 ¹⁰	6×10 ¹¹	4×10 ¹⁰	3×10 ¹⁰	6×10 ¹¹	1×10 ⁹	5×10 ¹⁰	6×10 ¹¹	2×10 ⁹	1×10 ⁹	3×10 ¹³	5×10 ¹⁰	5×10 ¹⁰	5×10 ¹⁰								
Pb-210	3×10 ¹¹	3×10 ¹⁰	3×10 ⁹	1×10 ¹⁰	1×10 ¹⁰	4×10 ¹²	3×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰	4×10 ¹²	2×10 ⁹	1×10 ⁹	4×10 ¹²	2×10 ⁹	2×10 ⁹	1×10 ¹²											
Po-210	9×10 ¹²	9×10 ¹¹	9×10 ¹⁰	7×10 ¹³	6×10 ¹²	5×10 ¹³	6×10 ¹²	2×10 ¹¹	5×10 ¹³	6×10 ¹¹	1×10 ¹⁰	5×10 ¹³	2×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰	7×10 ¹²	6×10 ¹⁵	6×10 ¹⁵	6×10 ¹⁵								
Am-243	2×10 ¹¹	1×10 ¹⁰	1×10 ⁹	1×10 ⁹	5×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰	3×10 ¹⁰	5×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰	6×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰	1×10 ⁹	7×10 ¹⁰	2×10 ¹²	3×10 ¹⁰	3×10 ¹⁰	3×10 ¹⁰								
Pu-239	2×10 ¹¹	1×10 ¹⁰	1×10 ⁹	3×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰	1×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰	1×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰	3×10 ¹⁰	1×10 ¹⁰	7×10 ¹⁰	7×10 ¹⁰	3×10 ¹³	2×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰								
U-235	2×10 ¹²	2×10 ¹¹	1×10 ¹⁰	2×10 ¹²	2×10 ¹²	2×10 ¹²	2×10 ¹¹	6×10 ¹²	2×10 ¹²	1×10 ¹⁰	5×10 ¹¹	2×10 ¹²	8×10 ¹¹	8×10 ¹¹	2×10 ¹⁵	3×10 ¹³	3×10 ¹³	3×10 ¹³								
Pa-231	2×10 ¹⁰	2×10 ⁹	9×10 ⁸	2×10 ⁸	1×10 ⁹	3×10 ⁹	9×10 ⁹	1×10 ⁹	3×10 ⁹	3×10 ⁹	2×10 ⁹	3×10 ⁹	1×10 ⁸	8×10 ⁸	9×10 ¹⁴	3×10 ⁹	3×10 ⁹	3×10 ⁹								
Ac-227	9×10 ¹¹	8×10 ¹⁰	8×10 ⁹	3×10 ¹⁰	2×10 ⁹	1×10 ¹¹	3×10 ¹⁰	2×10 ⁹	1×10 ¹¹	1×10 ⁹	2×10 ⁹	1×10 ¹¹	4×10 ⁹	4×10 ⁹	1×10 ¹²	2×10 ¹¹	2×10 ¹¹	2×10 ¹¹								
Sm-151	2×10 ¹⁵	2×10 ¹⁴	2×10 ¹³	7×10 ¹⁵	2×10 ¹⁴	4×10 ¹⁶	8×10 ¹⁵	2×10 ¹⁴	4×10 ¹⁶	2×10 ¹⁴	3×10 ¹⁴	4×10 ¹⁶	8×10 ¹⁴	8×10 ¹⁴	8×10 ¹⁷	4×10 ¹⁶	4×10 ¹⁶	4×10 ¹⁶								
Cs-135	1×10 ¹³	1×10 ¹²	7×10 ¹²	8×10 ¹³	7×10 ¹⁴	2×10 ¹⁴	1×10 ¹²	3×10 ¹³	2×10 ¹⁴	6×10 ¹²	3×10 ¹²	2×10 ¹⁴	6×10 ¹²	5×10 ¹²	3×10 ¹⁶	6×10 ¹⁴	6×10 ¹⁴	6×10 ¹⁴								
Sm-126	1×10 ¹²	9×10 ¹²	5×10 ¹¹	3×10 ¹¹	2×10 ⁹	9×10 ¹⁰	4×10 ¹¹	2×10 ⁹	9×10 ¹⁰																	

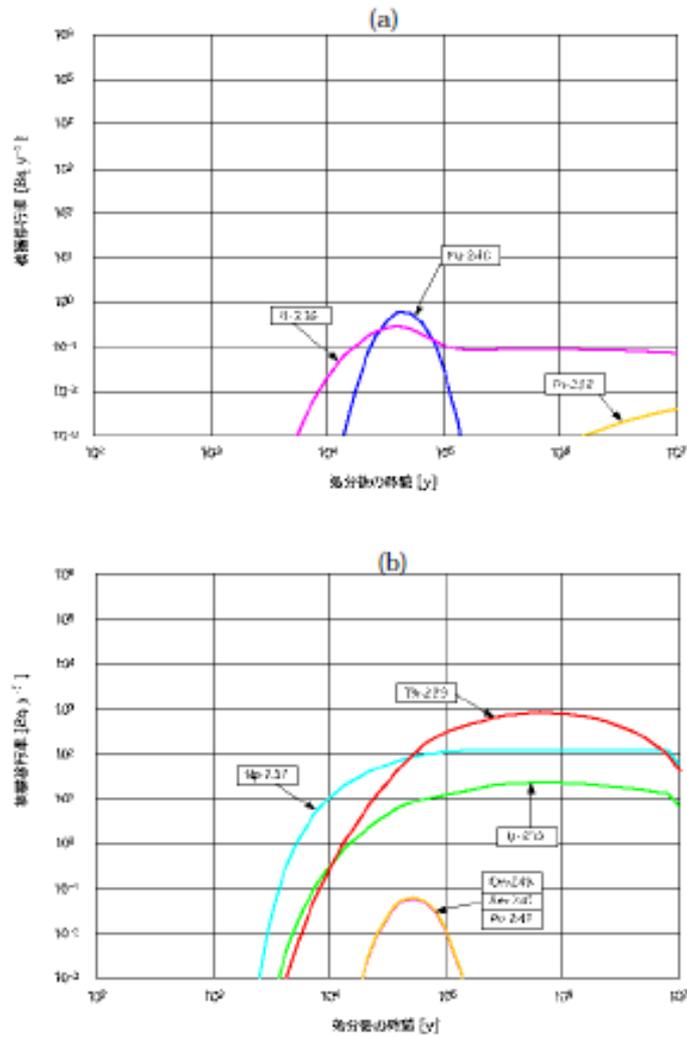
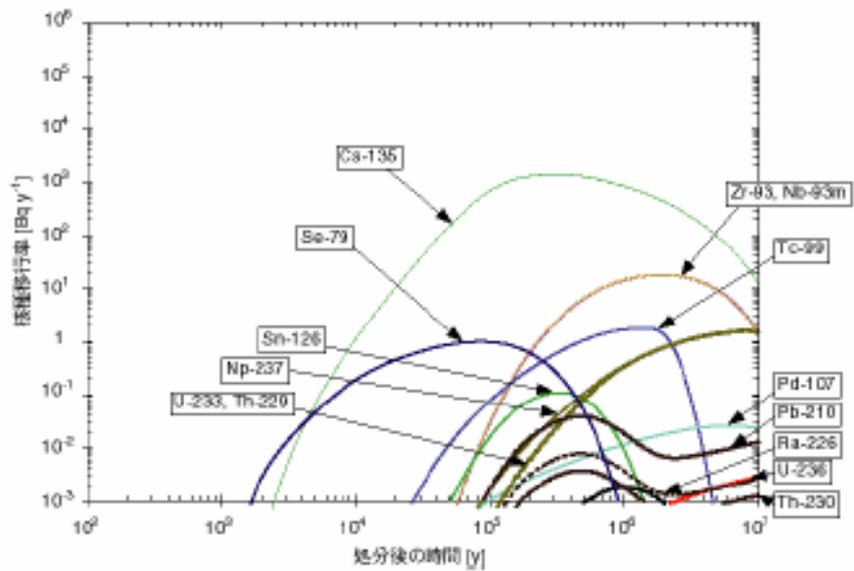
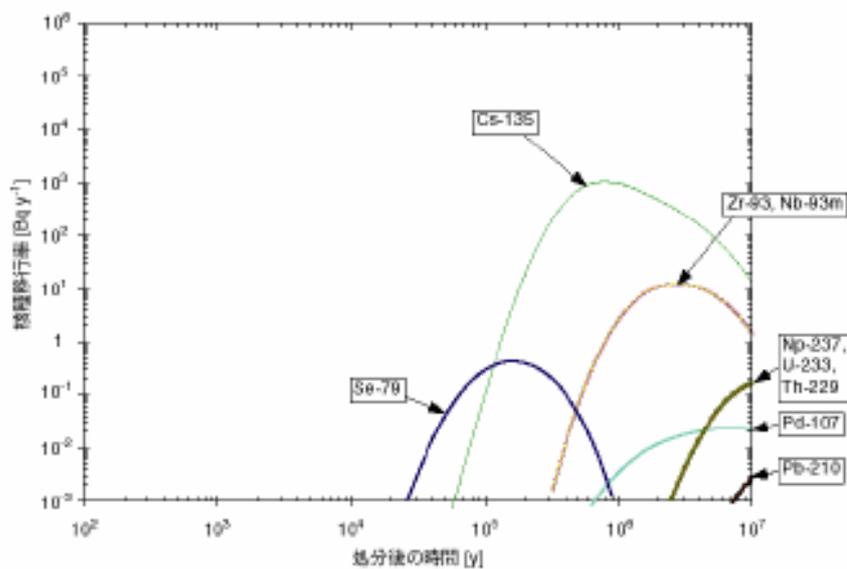


図 5.3.5-5 ガラス固化体 1 本を対象とした人工バリアからの核種移行率 (1/2)
((a)4n 系列, (b)4n+1 系列)

参考図 2 「HLW 第 2 次取りまとめ」による人工バリアからの各核種の漏洩挙動解析結果
(その 1)



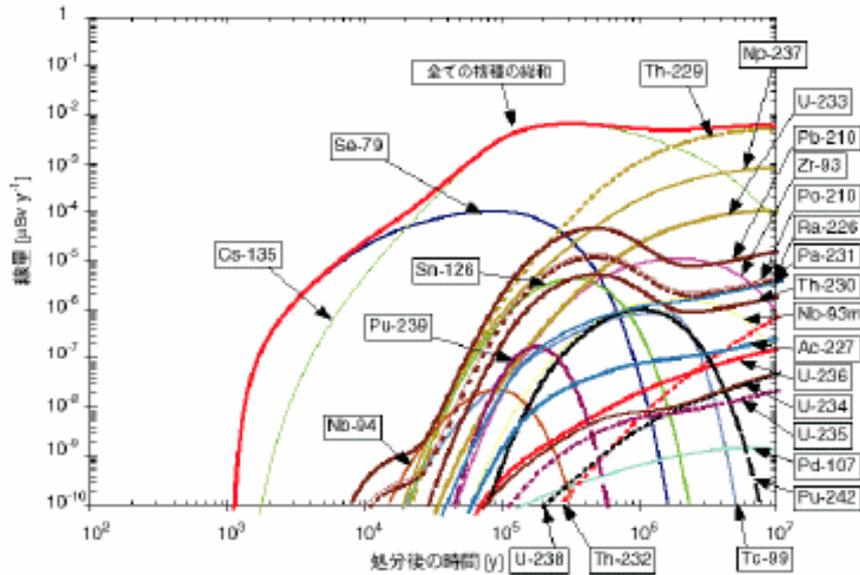
(a) 母岩からの核種移行率



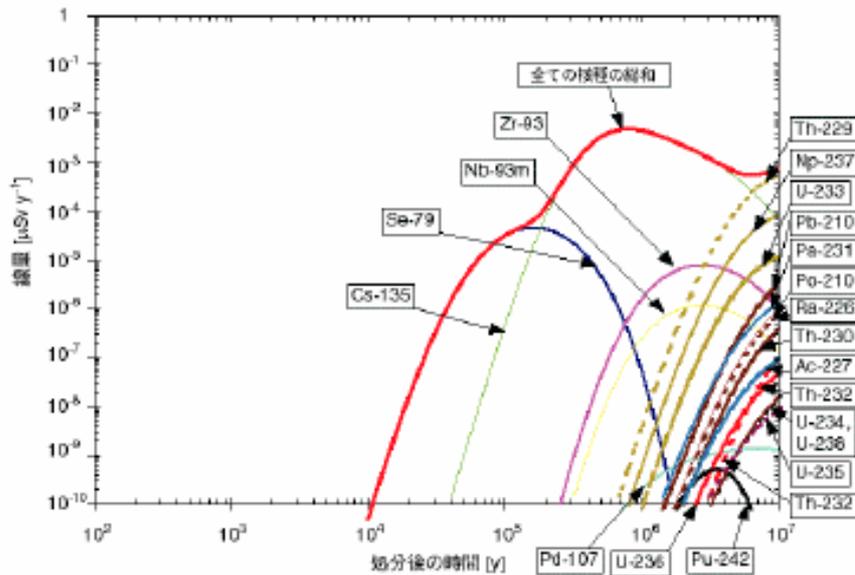
(b) 断層からの核種移行率

図 5.3.5-6 レファレンスケースにおける天然バリア中核種移行解析結果
(ガラス固化体 1 本に対する核種移行率)

参考図 3 「HLW 第 2 次取りまとめ」による天然バリアからの各核種の漏洩挙動解析結果
(上図の(a))



(a) 母岩からの核種移行率の線量への換算結果



(b) 断層からの核種移行率の線量への換算結果

図 5.3.5-7 レファレンスケースにおける天然バリア中核種移行率の線量への換算結果^{5.3-3)} (ガラス固化体 4 万本についての結果)

参考図 4 「HLW 第 2 次取りまとめ」による天然バリアからの各核種の線量評価結果 (上図の(a))

「電中研受託研究報告の処分時影響の概略評価結果」との比較計算

「イエローフェーズ含有ガラス固化体評価」特別専門委員会
第2回委員会

平成20年10月3日
日本原子力研究開発機構
地層処分研究開発部門

依頼事項



日本原子力学会バックエンド部会→日本原子力研究開発機構

- **日本原燃(株)は、電力中央研究所に処分に関する環境影響評価を委託し、概略評価**
 - **イエローフェーズを含むガラス固化体の影響は、含まないガラス固化体の処分時の影響に比して、有意な影響を与えない**
- **上記の核種移行解析では、電力中央研究所が開発したRAPRANコードを使用し、第2次取りまとめの核種移行パラメータ等を引用し、計算を実施**
- **特別専門委員会における計算結果の妥当性評価に資するため、第2次取りまとめにおける核種移行解析コードにより同等の計算を実施して頂きたい**

電中研報告書と第2次取りまとめの主な違い (解析条件)



		電中研報告書	第2次取りまとめ	
解析コード		RAPRANの改良版	MESHNOTE, MATRICS, AMBER	
安定同位体による溶解度分割		考慮せず	考慮	
ガラス固化体の溶解モデル		<ul style="list-style-type: none"> インベントリの一部が瞬時に溶解(1年) 上記以外のインベントリは、長期溶解速度により一定の割合で溶出 	長期溶解速度により一定の割合で溶出	
母岩	亀裂性媒体	人工バリアと天然バリアの接続	ゼロ濃度境界	
		亀裂性媒体モデル	単一の平行平板モデル	
	多孔質媒体	人工バリアと天然バリアの接続	緩衝材外側からの流出フラックスを母岩の入力フラックスとして取り扱う	評価せず
		多孔質媒体モデル	単一の多孔質モデル	
断層		評価せず	単一の平行平板モデル、多孔質媒体	

今回の比較評価で電中研報告書を踏襲した解析条件

比較計算の考え方



- **電中研の解析条件を再現し、電中研解析結果と比較計算**
- **比較計算の対象：電中研報告書の「3.3節 評価結果(ガラス固化体, 緩衝材, 天然バリアからの漏出挙動)」(天然バリアは亀裂性媒体のみ)**
- **解析コード：MESHNOTE・MATRICSと同一のモデルを用い、廃棄体の一部を早期に溶出させる機能を加えた***

*: シミュレーションプラットフォームGoldSim上において解析を実施

比較計算の設定(電中研報告書を踏襲)



- 第2次取りまとめのレファレンスケースに準拠
- ガラス固化体1本当たりについて計算
- ガラス部と結晶相で異なる溶解速度を設定
- 結晶相に随伴する核種を評価対象
- ガラス・緩衝材・天然バリアの各観測点での核種フラックスを, 結晶相がない場合と比較

地下水流速 (m/s)		ガラス部の溶解寿命 (年)		
10^{-7}	10^{-6}	7,000	70,000	700,000

■ 比較評価の対象

比較計算結果 (1)

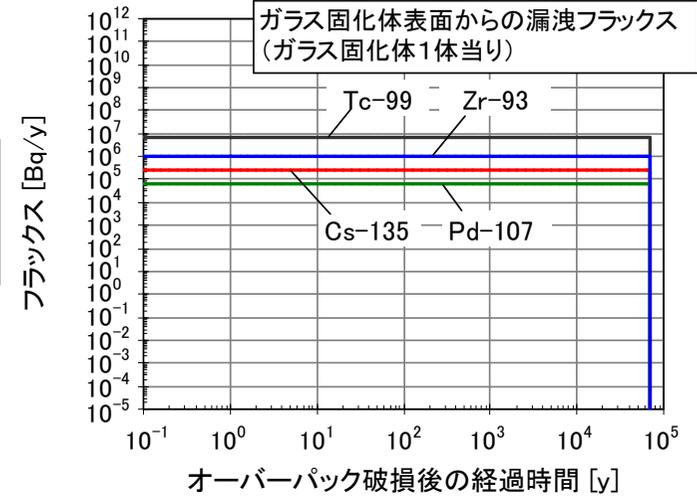
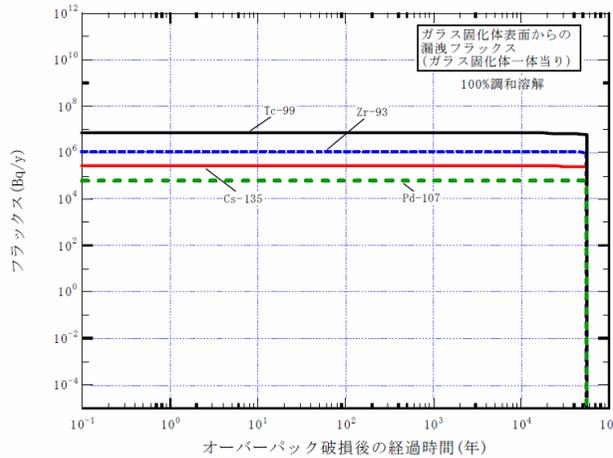
3.3.1 ガラス固化体からの核種漏出挙動



電中研の解析結果

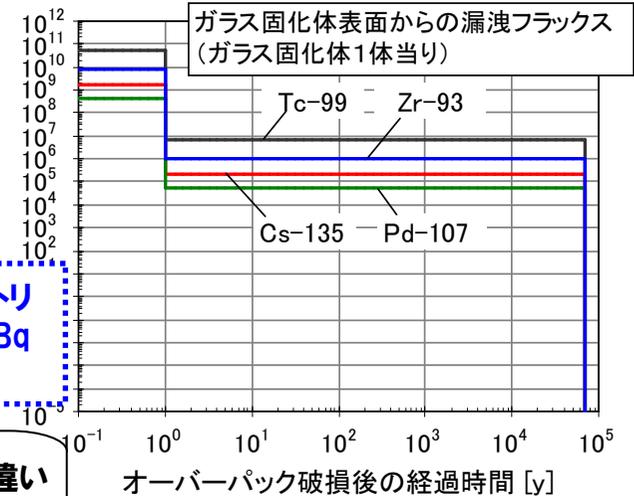
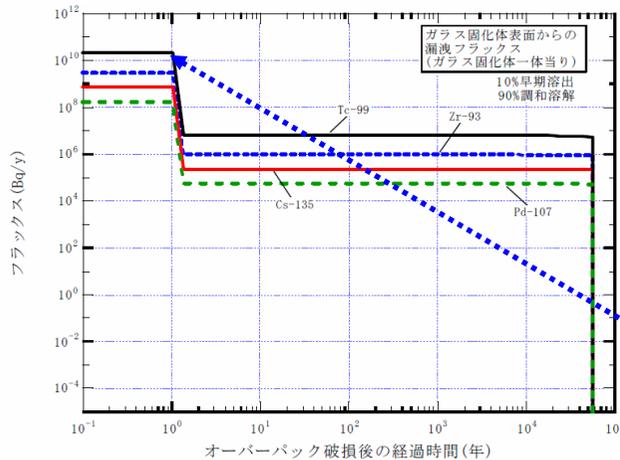
JAEAの解析結果

ガラスと
調和溶解
する場合



概ね
一致

インベントリの
10%が1年間で
早期溶出する
場合



概ね
一致

例えば、Tcのインベントリの10%は 5.14×10^{10} Bqだが、やや小さい

差分の取扱い方の違いによるものと考えられる

図 3.3-1 ガラス固化体からの対象核種の溶出挙動 (ガラスの溶解寿命 70,000 年)
上図: ガラスと調和溶解する場合、下図: インベントリの10%が1年間で放出される場合

比較計算結果 (2)



3.3.2 緩衝材からの核種漏出挙動(天然バリアが亀裂性媒体)

電中研の解析結果

JAEAの解析結果

ガラスと
調和溶解
する場合

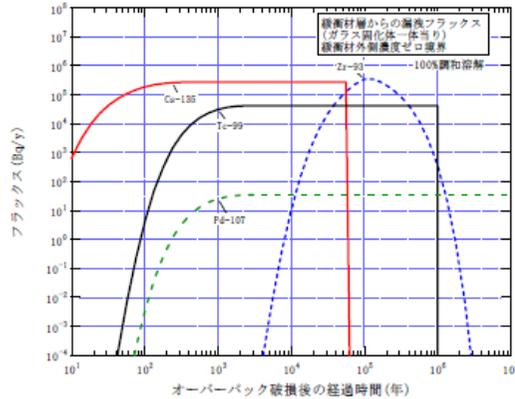
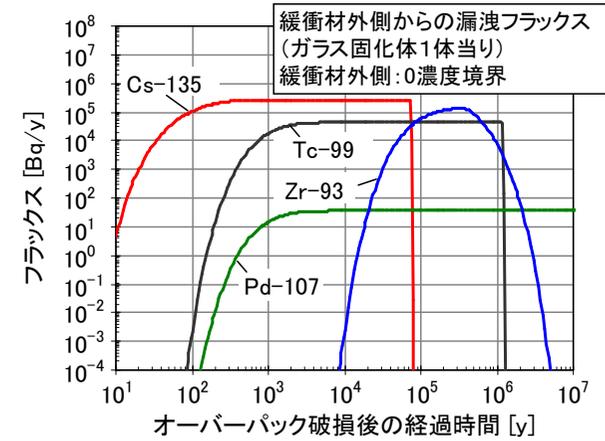


図 3.3-2(1) 緩衝材からの漏出挙動 (ガラスと調和溶解の場合。天然バリアを亀裂性媒体モデルで評価。緩衝材外側での地下水濃度をゼロと設定)

概ね
一致



インベントリの
10%が1年間で
早期溶出する
場合

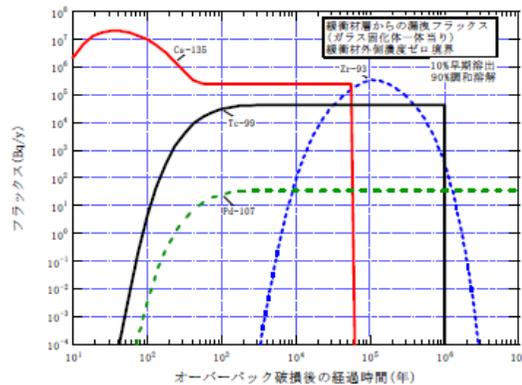
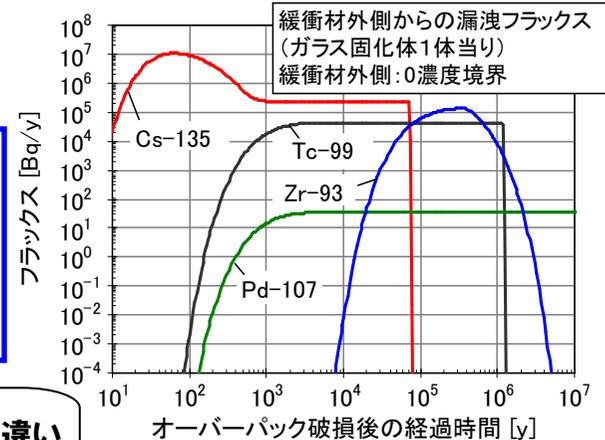


図 3.3-2(2) 緩衝材からの漏出挙動 (インベントリの10%が早期溶出する場合。天然バリアを亀裂性媒体モデルで評価。緩衝材外側での地下水濃度をゼロと設定)

概ね
一致

電中研の方が
立ち上がり
若干早い
(Cs-135)



差分の取扱い方の違い
によるものと考えられる

比較計算結果 (3)



3.3.3 天然バリアからの核種溶出挙動(天然バリアが亀裂性媒体)

電中研の解析結果

JAEAの解析結果

ガラスと
調和溶解
する場合

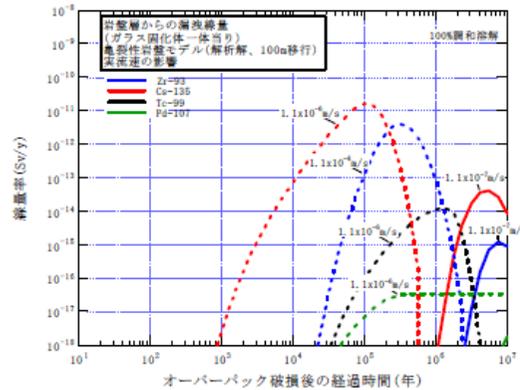
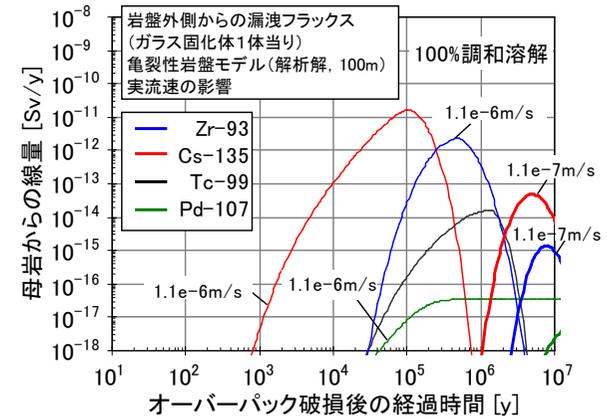


図 3.3-3(1) 岩盤 (天然バリア) からの漏出挙動 (ガラスと調和溶解の場合。ガラス固化体溶解寿命の影響。天然バリアを亀裂性媒体モデルで評価。)

概ね
一致



インベントリの
10%が1年間で
早期溶出する
場合

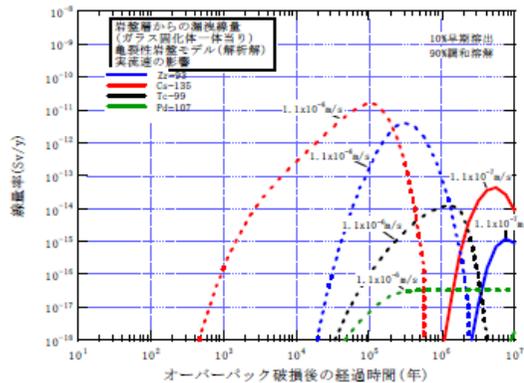


図 3.3-3(2) 岩盤 (天然バリア) からの漏出挙動 (インベントリの10%が早期溶出する場合。ガラス固化体溶解寿命の影響。天然バリアを亀裂性媒体モデルで評価。)

概ね
一致

