



高レベル放射性廃棄物の
地層処分研究開発特集

地層処分研究

2. 性能評価研究

2-2 ニアフィールド研究

(5) ニアフィールド性能評価モデルの開発

環境技術開発推進本部
東海事業所 環境技術開発部

資料番号: 85-9

Research on Geological Disposal

2. Performance Assessment

2-2 Near-Field Study

(5) Development of Performance Assessment Model for
Near-Field

(Radioactive Waste Management Project, Waste Technology
Development Division, Tokai Works)

ニアフィールドの核種移行評価を行うためには、ガラス固化体、オーバーバック、緩衝材領域で起こる現象をより現実的に評価することが必要となる。これまでの研究により、オーバーバックの腐食とガラス固化体の溶出に関わる地球化学反応（腐食生成物、溶出したガラス成分および核種と地下水との反応）と、拡散による核種移行を結合させた性能評価コード(AREST-PNC)を開発するとともに、放射性核種の崩壊挙動に関わる緩衝材中の沈殿現象および同位体存在比の時間変化を考慮した核種移行コード(RELEASE)を開発している。本報告では、これらのコードについて紹介する。

1. はじめに

地層処分システムの性能評価研究では、地層処分の長期的な性能を解析・評価するために、現段階では、わが国の幅広い地質環境に対応したモデル開発を行うこととしている。そのためには、第一に、仕様の明確な工学システムを中心としたニアフィールドにおける現象に重点を置き、その中で起こる現象を詳細に解明することが必要である。ニアフィールドにおける核種移行現象を詳細に解析するためには、人工バリアの持つ機能に対応した、オーバーバックの腐食、ガラス固化体からの核種の溶出、緩衝材中の核種の移行挙動に関する現象を、より現実的に把握する必要がある。

これまでの研究から、より現実的な評価を行うためには、人工バリア内での地球化学反応を考慮することおよび人工バリア内での核種の崩壊挙動に関連した現象を考慮することの必要性が指摘されている。人工バリア内の地球化学反応は、溶解度に影響を与え、地下水中での核種の溶存量を変化させることから重要であり、核種の崩壊挙動は、緩衝材中で娘核種の沈殿を生じさせるとともに、人工バリア内での同位体存在比に影響を与え、人工バリアからの

核種の放出挙動を変化させるため重要となる。本報では、これらの現象を考慮したコードについて報告する。

2. ニアフィールド性能評価コード(AREST-PNC)

米国Battelle-PNLでは、使用済燃料地層処分における人工バリアシステムの性能評価を行うため、ARESTコード¹⁾を開発しており、これを用いて、ガラス固化体の地層処分に適合しうるニアフィールド性能評価コード(AREST-PNC)の開発を行った。ARESTコードからの主要な改良点は、ガラス固化体からの核種放出を扱うためのモデルを組み込んだことである²⁾。図1にAREST-PNCおよびその周辺コードの構成を示す。

AREST-PNCは核種放出解析モデルと影響因子解析モデルからなっている。前者には、オーバーバックの核種閉じ込め機能を評価するための腐食モデル、ガラス固化体からの核種放出を解析するモデルおよびこれに基づき人工バリアシステムからの核種放出を評価するための緩衝材中物質移動モデル（崩壊連鎖に関連する沈殿現象、緩衝材中での同位体存在比の時間変化は考慮されていない）が含まれ

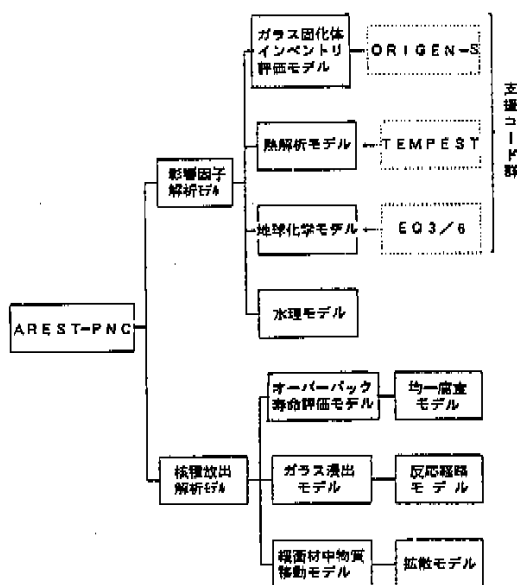


図1 AREST-PNCおよび周辺コードの構成

ている。これらのモデルによる解析を行うために必要な熱、地下水の地球化学的条件、地下水流速等のパラメータの情報を与えるのが影響因子解析モデルであり、これはガラス固化体インベントリ評価モデル、熱解析モデル、地球化学モデルおよび水理モデルからなっている。これらの影響因子解析モデルを扱うコード群（ORIGEN-S, TEMPEST, EQ3/6）は、AREST-PNCコードの周辺コードとして、外部から支援を行う構造となっている。現在のところ、放射線や応力の変化等の環境影響因子は含まれていない。

AREST-PNCでは、ガラス固化体と緩衝材の間で、物質収支をとるための物質収支域を考え、この中でガラスの溶解とそれに伴う地球化学反応、緩衝材への核種移行を取り扱っている。初期のAREST-PNCの開発においては、ガラスから溶出したSiとFeとの沈殿反応を考慮し、Siの消費項を物質収支域の中に取り入れることでSiの溶解で代表されるガラスの溶解反応が扱われていた。このとき、オーバーバックの腐食速度に対応して、物質収支域へ供給されるFeのすべてがSiの消費項となることを仮定していた。現在は、物質収支域内でFeについての独立した物質収支を考え、この物質収支式とガラスの溶解に関する物質収支式からSiと反応するFeの量が決定されるようになっている。以下にこれまでに開発されたAREST-PNCの概要を示す。

ガラスの溶解は物質収支域中で地下水とガラスの

反応および溶出したSiとFeの反応を考慮して計算される。

地下水とガラスの反応は、ガラスの溶解量、緩衝材への移行量および物質収支域中の単位体積当たりのガラスの供給量を表す反応進行度を用いた物質収支式で与えられる。ガラスの溶解はコングルエントに起こると仮定している。SiとFeの反応の関係は、上述の物質収支式から得られる反応進行度と物質収支域中のFeの濃度 ω とこれらの反応形態を示すパラメータ η を用いて表わされる。ここで、濃度 ω はオーバーバックの腐食量、溶解したガラス中のFeの量、緩衝材への移行量を用いて、物質収支域中で物質収支をとることにより求められる。

ガラスの溶解反応によって物質収支域中に供給されるガラス成分の地球化学的な反応は、影響因子解析モデルと物質収支域中の物質収支から導かれる値を用いて決定される。この地球化学的な反応計算により、物質収支域中の核種の濃度および珪酸塩の反応親和力が計算される。図2は反応進行度と反応形態 η に対する珪酸塩の反応親和力(Q/K)の変化を示したものの一例である。

地球化学的な反応計算により得られた任意の時間での固化体表面での濃度（物質収支域中の核種の濃度）は時間変化する内側境界条件として放射性核種の緩衝材中の移行計算に与えられる。この計算によって、緩衝材からの核種の放出率が時間の関数として求められる。

AREST-PNCの計算アルゴリズムを以下に示す。

- ① ソースタームコードORIGEN-Sを用いてインベントリの経時変化を計算する。
- ② 熱解析コードTEMPESTを用いて物質収支域の温度の経時変化を計算する。

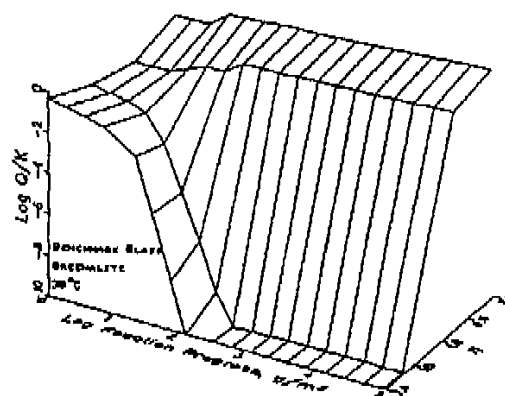


図2 ガラスの溶解に対する鉄の影響

- ③ 地球化学コードEQ3/6を用いて反応進行度 α およびSiとFeの反応形態 η をパラメータとして計算した化学種の濃度表を作成する。
- ④ 地下水とガラスおよび地下水とFeに関する物質収支式を解き、反応進行度 α およびSiとFeの反応形態 η を決定する。
- ⑤ ③と④から反応進行度 α および反応形態 η に対応する化学種の濃度、硫酸塩の反応親和力を求める。得られた化学種の濃度は緩衝材中の核種移行計算の入力値となり、反応親和力は次のタイムステップでのガラスの溶解量を求める際の入力値となる。
- ⑥ 緩衝材中での核種の移行計算を行い、緩衝材の外側からの核種の放出率を求める。
- ⑦ ④～⑥を繰り返す。

今後、核種移行モデルの詳細化、処分場を単位とした多重のソースの取扱いおよび周辺岩体の特性(多孔質媒体あるいは亀裂状媒体)に対応した取扱いが可能となるように改良を行う予定である。

3. 核種移行評価コード(RELEASE)の検証

ニアフィールドの核種移行評価コードRELEASE³⁾は、緩衝材中の核種濃度および緩衝材からの核種の放出率の計算により核種の移行挙動を評価することができるコードであり、平成3年度の技術報告書⁴⁾における評価で使用したコードである。RELEASEコードの特徴は、同位体存在比の経時変化を考慮し、核種の溶解度や溶解速度を核種毎に割り当てることが可能なこと、および緩衝材中での沈澱現象を考慮できることである。ここでは、RELEASEの幾何形状、数学モデルについて示すとともに、本コードの計算結果の妥当性を他のコードとの比較から示す。

(1) 核種移行評価コードRELEASE

1) RELEASEコードの概要

RELEASEは1次元円筒座標系有限差分法を用いた数値解析コードであり、ガラス固化体中の核種インベントリの経時変化、ガラス固化体から緩衝材への核種の放出率の経時変化、緩衝材または周辺岩盤中の核種の濃度の時間空間変化および緩衝材外側から周辺岩盤への核種の放出率の計算を行うことができる。RELEASEにおいて扱われる領域はガラス固化体、オーバーパック、緩衝材、周辺岩盤からなるニアフィールドである。図3にRELEASEの幾何形状を示す。RELEASEは緩衝材とその境界部を解析対象とし、緩衝材中の核種移行メカニズムとして拡散および線型吸着を仮定し、3核種までの崩壊連鎖、緩衝材中での沈澱現象、ガラス固化体中の核種

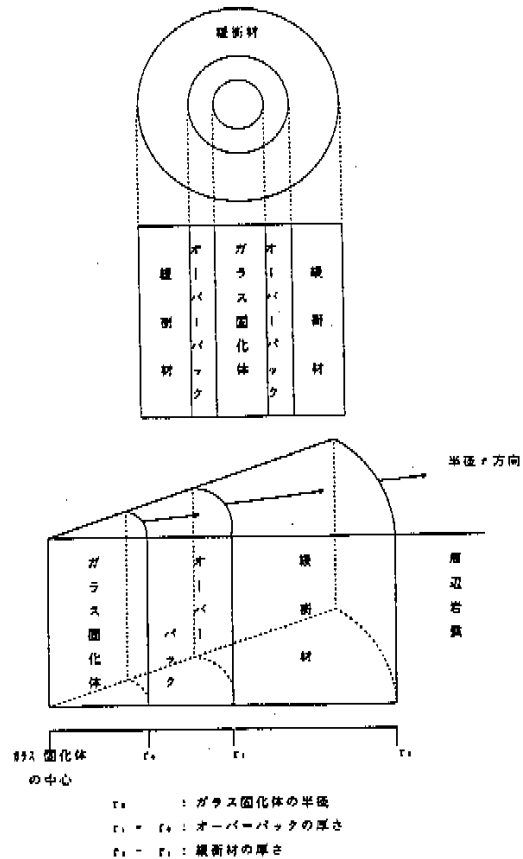


図3 RELEASEで扱う解析対象の幾何形状

の枯渇を考慮したモデルを用い、与えられた境界条件を基に解析対象内の核種の物質移動を計算する。ガラス固化体/緩衝材界面の境界条件については、ガラス固化体中の核種の同位体存在比の時間変化に対応して、溶解速度や溶解度を各核種に割り当てることができる。

2) 基本方程式

RELEASEの基本方程式は以下のように表わされる。

$$\begin{aligned}
 R_i \frac{\partial C_i}{\partial t} + \frac{\partial C_{pi}}{\partial t} \\
 = D_{pi} \left(\frac{\partial^2 C_i}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial C_i}{\partial r} \right) \\
 - \epsilon V \frac{\partial C_i}{\partial r} \\
 - \lambda_i R_i C_i + \lambda_{i-1} R_{i-1} C_{i-1} \\
 - \lambda_i C_{pi} + \lambda_{i-1} C_{pi-1}
 \end{aligned} \quad (1)$$

ここで、

C_i	: 核種の液相中の濃度	(g/m ³)
C_{pi}	: 核種の沈殿物の濃度	(g/m ³)
D_{pi}	: 空隙中の拡散係数	(m ² /y)
V	: 緩衝材中の地下水流速	(m/y)
λ_i	: 核種の崩壊定数	(1/y)
R_i	: 核種の遅延係数	(-)
i	: i 番目の核種	
t	: 処分後の経過時間	(y)
r	: ガラス固化体中心からの距離	(m)

遅延係数は次式で定義される。

$$R_i = 1 + \frac{1-\epsilon}{\epsilon} \rho K_d \quad (2)$$

ϵ	: 緩衝材の空隙率	(-)
ρ	: 緩衝材の真密度	(kg/m ³)
K_d	: 分配係数	(m ² /kg)

沈殿現象は沈殿物が拡散、吸着しないことを仮定して以下の式で示される。

$$\frac{\partial C_{pi}}{\partial t} = U(C_{pi})k(C_i - C_i^*) \quad (3)$$

k	: 沈殿、再溶解の反応速度	(1/y)
C_i^*	: 核種の溶解度 ($C^* \times P_i(t)$)	(g/m ³)
C^*	: 元素の溶解度	(g/m ³)
$P_i(t)$	: ガラス固化体中の同位体存在比	(-)
$U(C_{pi})$	$1 (C_{pi} > 0 \text{ または } C_i > C_i^*)$ $0 (C_{pi} = 0 \text{ かつ } C_i \leq C_i^*)$	

3) ガラス固化体/緩衝材界面の境界条件

ガラス固化体からの核種の溶出は上記基本方程式の内側境界条件として与えられる。RELEASEでは核種の溶出形態にしたがって同位体存在比の経時変化を考慮できる以下の4つのモデルを内側境界条件として扱うことができる。

- ① 溶解速度一定
- ② 溶解度一定
- ③ 一次反応
- ④ ガラス固化体の表面積に依存した溶解速度

4) 緩衝材/周辺岩盤界面の境界条件

緩衝材からの核種の放出は上記基本方程式の外側境界条件として与えられる。RELEASEでは、以下の3つの放出形態を仮定した境界条件を扱うことができる。

- ① 濃度 0
- ② ミキシングセル
- ③ 岩盤内部 (岩盤中の任意の距離) で濃度 0

(2) RELEASEの検証

緩衝材中の核種移行評価コードSTRENG⁵⁾との

比較から示されるRELEASEの妥当性について述べる。

1) STRENGの特徴

STRENGはNAGRA (放射性廃棄物処分全国組合: スイス) の委託によりIntera Sciencesによって開発された緩衝材中の核種移行評価コードであり、有限差分法を用い、一次元の円筒座標系での拡散による緩衝材中の核種の移行を計算することができる。モデルの幾何形状を図4に示す。STRENGは、ガラス固化体/緩衝材界面の濃度を溶解度で制限する内側境界条件、緩衝材/周辺岩盤界面の濃度を濃度0またはミキシングセル内で計算される濃度とする外側境界条件を扱うことができ、緩衝材中の濃度、緩衝材外側からの核種の放出率を計算できる。

2) RELEASEとSTRENGの違い

2つのコードの主な違いは以下のとおりである。

- ① STRENGでは緩衝材中での沈殿現象を評価することができない。

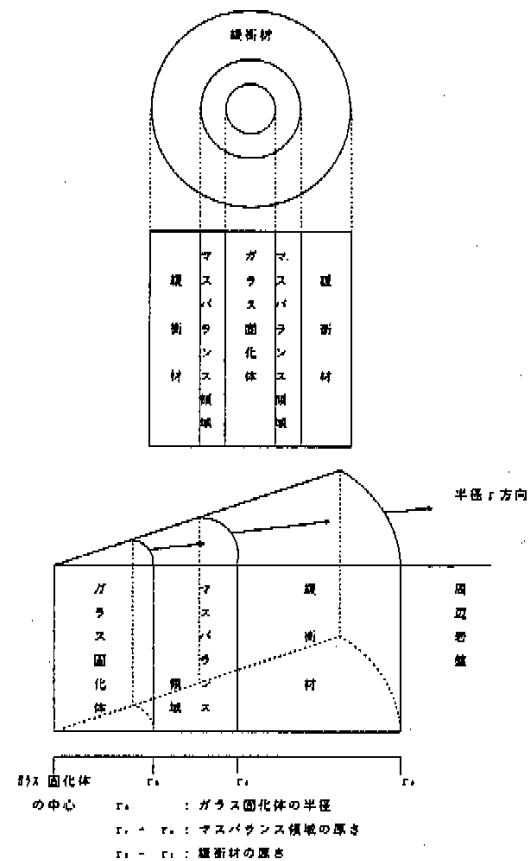


図4 STRENGで扱う解析対象の幾何形状

- ② ガラス固化体から緩衝材への核種の放出計算において、STRENGは緩衝材内側の表面積をマスバランス領域の外側表面積と等しく与えている。一方、RELEASEにおいては、オーバーパックの存在する空間を考慮しているため、緩衝材内側の表面積をオーバーパック外側の表面積と等しく与えている。
- ③ STRENGのマスバランス領域中の核種の濃度（内側境界濃度）は、ガラス固化体との調和溶解による核種の溶解量とこの領域から緩衝材に流出する核種量（拡散係数に依存）との収支と溶解度との比較から与えられるため、必ずしも溶解度にはならず、ガラス固化体中の核種の存在量の減少に応じて低下することが考えられる。一方、RELEASEの場合は、ガラス固化体中の核種が枯渇するまでは内側境界濃度が溶解度に保たれる。

3) 計算条件

比較においては、上記の違いの影響を除くため、以下のことを考慮する。

- ① RELEASEの計算では沈澱現象を無視する。
- ② RELEASEの緩衝材内側の表面積をガラス固化体の表面積と等しく与える。また、STRENGにおいてはマスバランス領域の幅を小さくすることによりマスバランス領域の影響を無視する。
- ③ STRENGの初期の内側境界濃度が溶解度になるようにインベントリを増加させる（ ^{243}Am :10倍）。STRENGの内側境界濃度が核種の崩壊にしたがい減少する影響は無視した。（モデルの違いからRELEASEとSTRENG内側境界濃度を一致させることはできない）

用いた計算条件を表1に示す。

4) 結果および考察

RELEASEおよびSTRENGの計算結果を図5に示す。

RELEASEとSTRENGの計算結果の比較において、放出率の時間変化の形状および 3×10^4 年以降の放出率は良く一致したが、最大放出率に違いが見られた。

このケースでは ^{239}Pu 、 ^{235}U の溶解度が ^{243}Am の溶解度よりも低く ^{243}Am の緩衝材中での崩壊に依存し

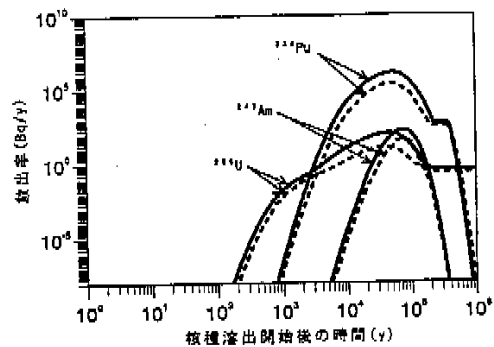


図5 RELEASE（実線）とSTRENG（破線）の放出率の時間変化の比較

て緩衝材中で著しい ^{239}Pu 、 ^{235}U の過飽和状態が発生することが予想される。したがって、 ^{239}Pu 、 ^{235}U の最大放出率は ^{243}Am の崩壊の影響がある間は ^{243}Am の緩衝材中での崩壊の影響を受け、それ以降はそれぞれの溶解度、分配係数に依存すると考えられる。STRENGの場合は内側境界条件の違いによりガラス固化体から放出される ^{243}Am の量がRELEASEよりも少なくなり、 ^{243}Am の緩衝材からの放出率は低くなると考えられる。したがって、緩衝材中で崩壊する ^{243}Am の量は少なくなり、 ^{239}Pu 、 ^{235}U の過飽和状態の形成はRELEASEの場合に比べて少なく、最大放出率は小さくなると考えられる。 3×10^5 年以降は ^{243}Am の崩壊による ^{239}Pu 、 ^{235}U の過剰状態が解消されるため ^{239}Pu 、 ^{235}U の放出率はそれぞれの溶解度、分配係数に依存するようになると考えられる。

(5) 検証計算のまとめ

RELEASEの検証を目的として、STRENGとの比較計算を行った。その結果、内側境界濃度の設定方法に起因すると考えられる相違を除けば、両者の結果はよく一致しており、RELEASEコードの妥当性を示すことができた。

4. まとめ

緩衝材中の沈澱現象および同位体存在比の時間変化を考慮した緩衝材中の核種移行評価コードRELEASEの内容を示した。また、同様な計算コードであるSTRENGとの計算条件を合わせた比較計算により、RELEASEの検証を行った。比較の結果、RELEASEとSTRENGの計算結果は良く一致し、RELEASEコードの妥当性を示すことができた。

表1 RELEASEとSTRENGとの比較計算の条件

内側境界条件 外側境界条件	溶解度制限 濃度 0		
	^{243}Am	^{239}Pu	^{235}U
対象核種			
インベントリ g	956.9	46.2	19.4
溶解度 g/m ³	1.1×10^{-2}	8.9×10^{-6}	1.0×10^{-4}
分配係数 ml/g	10000	1000	100

(環境技術開発推進本部 処分研究グループ
梅木博之)
(東海事業所 環境技術開発部 地層処分開発室
大井貴夫)

参考文献

- 1) Liebetrau, A.M., et al., "The Analytical Repository Source-Term (AREST) Model: Description and Document", PNL-6346, Pacific

- Northwest Laboratory, (1987).
2) Liebetrau, A.M., et al., "Preliminary Radionuclide Release Calculations Using the AREST-PNC Code", Proc. 1989 Joint Inter. Waste Manage. Conf., Kyoto, Japan, (1989).
3) 大井貴夫、宮原要、梅木博之、ニアフィールド核種移行評価コード (RELEASE), PNC TN8410 92-060 (1992).
4) 動燃事業団、高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書, PNC TN1410 92-081 (1992).
5) Grindrod, P., M. Williams, M. Impey and H. Grogan, STRENG: A Source Term Model for Vitrified High Level Waste, NAGRA TR 90-48 (1991).