

【小特集】

人工バリアからの核種放出に対する
溶解度等の影響特性の把握

大井 貴夫 仲島 邦彦*

東海事業所 環境技術開発部
* 原子力システム株式会社

資料番号: 102-2

Bounding Analysis for Solubility on the Nuclide Release
from the Engineered Barrier System.Takao OHI Kunihiro NAKAJIMA*
Waste Technology Development Division, Tokai Works
* Nuclear Energy System Inc.

本研究では、人工バリア中の核種移行に係わる主要パラメータである溶解度の影響特性に着目し、評価上意味のある溶解度の変動範囲を定量的に示すことを目的として、溶解度と緩衝材からの核種放出率に係わるガラス固化体中の核種インベントリ、定常溶出率、分配係数との関係を単純な解析解（円筒座標系一次元で崩壊を無視）を用いて検討した。

解析の結果、緩衝材外側からの放出率を変化させる内側境界濃度（溶解度）の最大値およびその値に相当する定常溶出率の最大値を分配係数毎に概略的に示した。また、インベントリの変動と放出率の変化の関係を示した。さらに、緩衝材外側からの核種放出率に影響を与える分配係数の影響特性を把握した。

In performance assessment of geological disposal systems for High Level Radioactive Waste (HLW), the change of environment over the long-term must be considered. Therefore, it is necessary to consider a wide range of parameters concerned with radionuclides migration, especially the dependence of solubility on geochemical environment. In this study, assuming that the release rate of the nuclides from buffer material is limited by inventory ultimately, the relationship between the initial inventory and the solubility that produces a solubility-invariant maximum release rate from the buffer is examined by using a simple steady-state analytical solution without decay.

As the result, the threshold of "effective" solubility in the performance assessment of the geological disposal systems for HLW is obtained as a function of initial inventory, distribution coefficient (K_d), diffusion coefficient, and thickness, porosity and density of the buffer. Also, the threshold of "effective" steady dissolution rate corresponding to the threshold of "effective" solubility and the differences in the sensitivities of the release rate to the variation of K_d were shown for each radionuclide.

キーワード

高レベル放射性廃棄物、地層処分、人工バリアシステム、インベントリ、溶解度、溶出率、分配係数、バウンディングアナリシス、解析解、数値解

High Level Radioactive Waste, Geological Disposal, Engineered Barrier System, Bounding Analysis, Analytical Solution, Numerical Solution, Inventory, Solubility, Dissolution Rate, Distribution Coefficient

1. はじめに

地層処分¹⁾は、高レベル放射性廃棄物が人間環境に有意な影響を及ぼさないようにするための措置であり、我が国においては、再処理施設において使用済燃料から分離される高レベル放射性廃棄物をガラス固化体という安定な形態にし、人の生活圏から離れた深地層中に安全に埋設することを

意味する。この地層処分においては、多重バリアシステム（廃棄体（ガラス固化体）、オーバーパック、緩衝材からなる人工バリアシステムと天然の地層からなる天然バリアシステムの総称）を設けることが高レベル放射性廃棄物の地層処分を検討している各国の共通の考えとなっている。これらのシステムの個々または全体の性能を評価するこ

と（性能評価）は、安全基準との比較によって行われるシステムの安全評価において極めて重要な役割を担うものである。

地層処分の特徴は、評価の対象となる期間が極めて長いことである。このような長期にわたる評価を必要とする地層処分の性能評価においては、地質学的なイベントによる環境の変化等により、対象となるシナリオ、モデルおよびデータに不確実性が含まれることになる。これらの不確実性を考慮し、様々な条件に対して網羅的に地層処分システムの性能を評価するためには、関連するパラメータの変動およびその組み合わせを変えた様々な評価ケースに対する解析が必要になる。そのため、数多くの評価ケースに対する解析^(2),3)ならびにパラメータの影響特性や影響の程度を把握するための影響解析・感度解析^(4)~7)が精力的に行われてきた。

このような不確実性を伴う地層処分システムの性能評価において、あらかじめ、評価上意味のあるパラメータの変動範囲を示すことができるならば、それらの情報は解析の効率向上だけでなく、データ取得やシナリオの絞り込み、さらにはシステムのバリア性能の向上に向けた研究開発に資する有益な情報になると考えられる。これまでに行われた人工バリアシステムからの核種放出挙動に関する研究^(2),3)から、ガラス固化体からの核種の溶出が内側境界濃度（溶解度）によって制限される場合（溶解度制限）、内側境界濃度が任意の値より大きくなると、緩衝材からの核種の放出率は変化しなくなり、緩衝材からの核種の放出率はインベントリで制限されることが示されている。

そこで本研究では、人工バリア中の核種移行に係わる内側境界濃度（溶解度）の影響特性を把握し、評価上意味のある溶解度の変動範囲を定量的に示すことを目的として、溶解度と緩衝材からの核種放出率に係わるガラス固化体中の核種インベントリ、定常溶出率、分配係数との関係を単純な解析解（円筒座標系一次元で崩壊を無視）を用いて検討した^(8),9)。本報ではこの解析によって得られた評価上意味のある溶解度の変動範囲と核種移行に係わる上記パラメータの影響特性について報告する。

2. 評価方法

解析の対象となる人工バリアシステム概念を図1に示す。解析においては、オーバーバックの寿命を1000年と仮定することによって、ガラス固化体からの核種の放出を処分後1000年で始まると

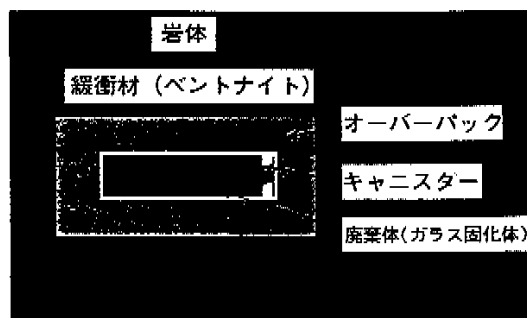


図1 人工バリアシステム概念

した。また、相互に関連し合うパラメータの影響を核種ごとに考慮し、解析を効率的に行うため、緩衝材中を移行する過程において発生する親核種の崩壊の影響（娘核種の生成）を無視し、単一核種での解析を行うこととした。この場合、親核種の崩壊を無視することによる放出率への影響を小さくするため、解析に用いる核種の初期インベントリを、溶出開始後のインベントリ（崩壊生成評価コードORIGEN2の計算結果）の最大値とした。

解析に用いたモデルは、緩衝材中での拡散による物質輸送、瞬時線形吸着、崩壊無視、内側境界で濃度一定（溶解度制限）、緩衝材外側で濃度0（0濃度境界）の境界条件を仮定した円筒座標系一次元の核種移行モデルである。

評価においては、このモデルに基づく解析解を用いて、溶解度と緩衝材からの核種放出率に係わるガラス固化体中の核種インベントリ、定常溶出率、分配係数との関係を把握し、評価上意味のある溶解度の変動範囲の導出を試みた。また、得られた結果と数値解（インベントリの枯渇および崩壊または崩壊連鎖を考慮）から得られる結果とを比較し、その妥当性を検討するとともに、緩衝材からの核種放出率に対する分配係数の影響特性についても検討した。

2.1 評価式

拡散による緩衝材中での物質輸送と瞬時線形吸着を仮定した円筒座標系一次元の核種移行は以下の式で表される。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{De}{rR} \left(\frac{\partial^2 C}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial C}{\partial r} \right) \quad (1)$$

ここで、

C : 核種の液相中の濃度 [gm^{-3}]

De : 実効拡散係数 [$\text{m}^2 \text{y}^{-1}$]

- ϵ : 緩衝材の空隙率 [-]
 R : 核種の遅延係数 [-]
 $[R = 1 + (1 - \epsilon) \rho Kd / \epsilon]$
 ρ : 緩衝材の真密度 [kg m^{-3}]
 Kd : 核種の緩衝材に対する分配係数
 $[\text{m}^3 \text{kg}^{-1}]$
 t : 溶出開始後の経過時間 [y]
 r : ガラス固化体中心からの距離 [m]

(1)式において緩衝材内側境界条件を溶解度制限、外側境界条件を濃度0とした場合、定常状態の濃度プロファイルは以下のように与えられる。

$$C = \frac{\ln(r/b)}{\ln(a/b)} C_0 \quad (2)$$

ここで、

- C_0 : 緩衝材の内側境界濃度 [g m^{-3}]
 a : 緩衝材の内側半径 [m]
 b : 緩衝材の外側半径 [m]

また、定常状態における緩衝材外側からの放出率は以下のように与えられる。

$$\phi = -\frac{2\pi H D \epsilon}{\ln(a/b)} C_0 \quad (3)$$

ここで、

- ϕ : 緩衝材外側からの定常放出率 [gy^{-1}]
 H : 緩衝材の高さ [m]

2.2 初期インベントリと内側境界濃度の関係

2.2.1 初期インベントリと内側境界濃度の関係の導出

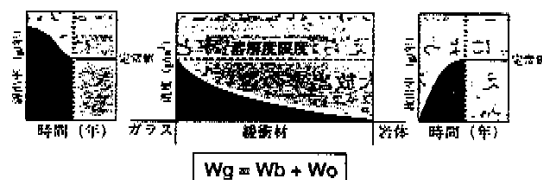
崩壊の影響を無視する場合、定常状態における緩衝材中の核種量 W_b は、緩衝材領域における吸着を考慮して(2)式を積分することにより以下のように与えられる。

$$W_b = [\epsilon + (1 - \epsilon) Kd \rho] \pi H C_0 \cdot \left[\frac{(a^2 - b^2)}{\ln(a/b)^2} - a^2 \right] \quad (4)$$

ここで、定常に達するまでにガラス固化体から放出される核種量を W_g 、定常に達するまでに緩衝材から放出される核種量を W_o とすると、以下の関係式が得られる (図2 参照)。

$$W_g = W_b + W_o \quad (5)$$

定常に達するまでにガラス固化体から放出される核種量 W_g が初期インベントリ I_o (溶出開始後のインベントリの最大値) と等しい場合、 W_b と W_o は最大になり、 I_o は W_b 、 W_o の最大値



W_g : 定常に達するまでにガラス固化体から放出される核種量
 W_b : 定常状態における緩衝材中の核種量
 W_o : 定常に達するまでに緩衝材から放出される核種量

図2 W_g と W_b 、 W_o の関係

$W_{b\text{MAX}}$ 、 $W_{o\text{MAX}}$ と(4)式および放出率が定常になる内側境界濃度の最大値 C_{MAX} によって以下のように与えられる。

$$\begin{aligned}
 I_o &= W_{b\text{MAX}} + W_{o\text{MAX}} \\
 &= [\epsilon + (1 - \epsilon) Kd \rho] \pi H C_{\text{MAX}} \\
 &\quad \cdot \left[\frac{(a^2 - b^2)}{\ln(a/b)^2} - a^2 \right] + W_{o\text{MAX}} \quad (6)
 \end{aligned}$$

ここで、定常状態に達するまでに緩衝材から放出される核種量 $W_{o\text{MAX}}$ が無視できると仮定すると、初期インベントリ I_o は、 C_{MAX} (緩衝材からの放出率が定常になる内側境界濃度の最大値の近似値) によって以下のように与えられる。

$$\begin{aligned}
 I_o &\approx [\epsilon + (1 - \epsilon) Kd \rho] \pi H C_{\text{MAX}} \\
 &\quad \cdot \left[\frac{(a^2 - b^2)}{\ln(a/b)^2} - a^2 \right] \quad (7)
 \end{aligned}$$

同一条件での直交座標系の非定常解析解に対する検討から、定常に至るまでに緩衝材から放出される核種量は、定常状態における緩衝材中の核種量の1.7倍であることがわかった。この傾向は円筒座標系においても同様であると考えられる。

このことは、(7)から求められる C_{MAX} は真に定常になる内側境界濃度の最大値 C_{MAX} よりも高い値になることを意味する。そのため、 C_{MAX} は緩衝材からの放出率が定常になる内側境界濃度の最大値の保守的な値となる。

一方、緩衝材からの放出率の最大値は、放出継続時間(内側境界濃度とインベントリに依存)と濃度勾配の変動(半減期、分配係数等に依存)との関係に依存して、内側境界濃度 C_{MAX} よりも高い内側境界濃度 C_{RMAX} によって与えられる場合がある。

この場合の C_{MAX} 、 C_{MAX} 、 C_{RMAX} の大小関係は以下のように与えられる。

$$C_{\text{MAX}} < C_{\text{MAX}} \leq C_{\text{RMAX}} \quad (8)$$

しかし、数値解 (崩壊ならびにインベントリの

枯渴を考慮)から導かれる結果との比較により、 $C_{\max}$ によって与えられる放出率と $C_{R\max}$ によって与えられる最大放出率の違いが無視できることがわかった(後述: 4 結果と考察参照)。

以上のことから本研究においては、 $C_{\max}$ を放出率が最大になり、変化しなくなる内側境界濃度の概略的な最大値とみなすこととした。

核種のインベントリを対象とする場合、(7)式から得られる内側境界濃度(溶解度)の最大値は核種に対する値となる。評価上必要となるデータは元素の溶解度であることから、元素としての内側境界濃度の最大値を求める必要がある。

元素に対する内側境界濃度の最大値 C_e と核種に対する内側境界濃度の最大値 C_{ni} の関係は以下のように与えられる。

$$C_{ni} = I_i / k \quad (9)$$

$$k = [\varepsilon + (1 - \varepsilon) K d \rho] \pi H \cdot \left\{ \frac{(a^2 - b^2)}{\ln(a/b)^2} - a^2 \right\} \quad (10)$$

$$\sum_i C_{ni} = \sum_i I_i / k = C_e \quad (11)$$

ここで、

i : 核種のインデックス

I_i : 核種 i の初期インベントリ(溶出開始後のインベントリの最大値)[g]

k : 定数 [m^3]

(11)式から、元素に対する内側境界濃度の最大値 C_e は、個々の同位体の初期インベントリ(溶出開始後のインベントリの最大値)の総和を(7)式に与えることによって求められる。

2.2.2 崩壊ならびに崩壊連鎖の影響

$C_{\max}$ は、崩壊ならびに崩壊連鎖を無視したモデルに基づいて導かれた値である。これらの影響については、以下のように考えることによって無視できる。

(1) 崩壊の影響

崩壊の影響は、溶解度と定常放出率の関係曲線が、崩壊を無視した解析解によって得られる直線から下方にずれることとして現れる。そのため、崩壊を無視して得られた内側境界濃度の概略的な最大値は実際の値に比べて低く見積もられる(後述: 4 結果と考察参照)。

しかし、崩壊の影響が大きく現れるケースに對

する値を崩壊の影響が小さいケースに対する値で代表させることによって、内側境界濃度の最大値を保守的に見積もることが可能になる。崩壊の影響が大きく現れるケースに対する内側境界濃度の最大値は、以下のようにして概略的に示される。

* 直交座標系一次元の解析解から近似的な定常時間(緩衝材からの核種放出率が定常になるまでの時間: $t_s = \varepsilon R L^2 / D e$; L , 直交座標系における緩衝材の厚さ)を算出する。分配係数等のパラメータ毎に与えられる定常時間と核種の半減期との比較から、半減期が定常時間よりも短くなるパラメータ値に対する結果は崩壊の影響が大きいと見なす。

(2) 崩壊連鎖の影響

ガラス固化体中での親核種の崩壊の影響(娘核種の緩衝材中の生成)は、緩衝材からの放出率を最大にする内側境界濃度(溶解度)を高めることとして現れる。

また、緩衝材中での親核種の崩壊の影響(娘核種の緩衝材中の生成およびそれに伴って生成する緩衝材中での娘核種の沈殿)は、緩衝材からの娘核種の放出率を高めることとして現われる^{(10),(11)}(後述: 4 結果と考察参照)。

しかし、核種の溶出開始後のインベントリの最大値(崩壊生成評価コード ORIGEN 2 の計算結果)を初期インベントリとすることによって、ガラス固化体中での娘核種の生成の影響を考慮した内側境界濃度の最大値の設定が可能になるとともに、内側境界濃度の最大値に対する緩衝材からの娘核種の放出率への影響を小さくすることができる。

2.3 内側境界濃度の最大値と一致する定常溶出率の最大値

ガラス固化体からの核種溶出が内側境界濃度によって制限される(溶解度制限)場合と同様に、核種溶出が定常溶出率によって制限される(溶出率制限)場合、ガラス固化体からの核種の定常溶出率が任意の値より大きくなると緩衝材からの核種の放出率は変化しなくなる。このような核種の定常溶出率の最大値は、内側境界濃度の概略的な最大値に相当する定常溶出率を見積もることによって示すことができる。

定常状態においては、緩衝材外側からの核種の放出率 ϕ とガラス固化体からの核種の定常溶出率 ϕ_0 が等しくなる。そのため、内側境界濃度の概略的な最大値に相当するガラス固化体からの核種の定常溶出率 ϕ_0 は、(3)式を用いて以下のように与えられる(図3参照)。

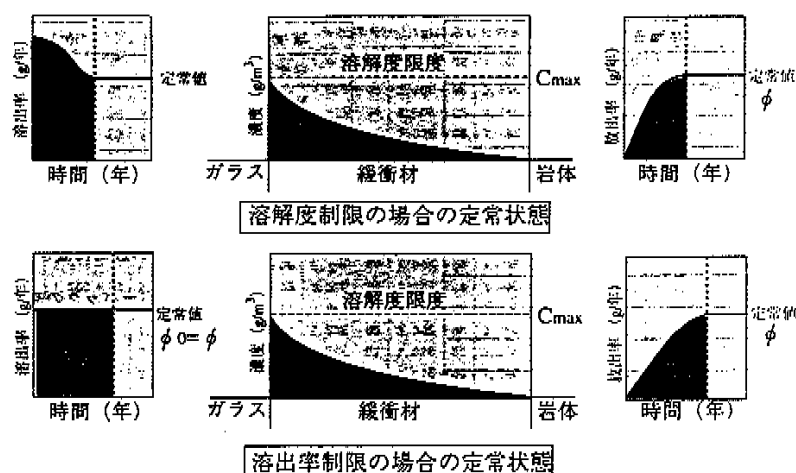


図3 C_{max} と ϕ_0 の関係

$$\phi_0 = -\frac{2\pi HDe}{\ln(a/b)} C_{max} \quad (12)$$

(7)式から内側境界濃度の概略的な最大値が与えられた場合、(12)式を用いることによって、放出率を変化させる核種の定常溶出率の最大値を概略的に設定することが可能になる。

上記の関係から導かれる核種の定常溶出率の概略的な最大値は、(7)式によって導出される内側境界濃度の概略的な最大値と同様に高めに見積もられる値である。

2.4 初期インベントリと内側境界濃度、定常溶出率の関係

(7)式から、初期インベントリと内側境界濃度の概略的な最大値が比例関係にあることがわかる。そのため、溶解度制限の場合のインベントリの変動に対する放出率への影響は、評価の際に入力値として用いる溶解度と(7)式から得られる内側境界濃度の概略的な最大値を比較することによって以下のように容易に推定される(図4参照)。

(1) 内側境界濃度の最大値が評価に用いる溶解度より低い場合(放出率がインベントリによって制限されているケース)

①内側境界濃度の最大値が評価に用いる溶解度と等しくなるようなインベントリまで、インベントリの増加に伴い放出率が増加する。

②インベントリの減少によって放出率が減少する。

(2) 内側境界濃度の最大値が評価に用いる溶解度より高い場合(放出率が溶解度によって制限されているケース)

①インベントリの増加は放出率に影響を及ぼさない。

②内側境界濃度の最大値が評価に用いる溶解度以下になるようなインベントリでは、インベントリの減少によって放出率が減少する。

このことは、定常溶出率が与えられている場合についても同様である。

3. 評価ならびに評価に用いた核種、データ

3.1 対象核種

「高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書—平成3年度—」²⁾(以下「H3レポート」という)において用いたSe-79、Cs-135、Np-237、Pu-239等の核種を対象核種とする。対象とした核種を表1に示す。

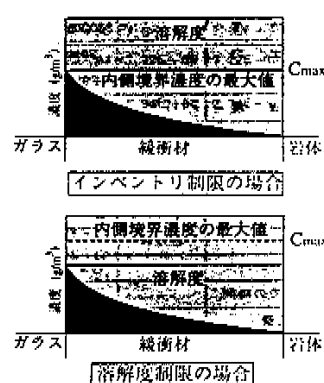


図4 初期インベントリの変動の影響

表1 対象核種

元素名	核種名
Am	Am-243, Am-241
Pu	Pu-240, Pu-239
Np	Np-237
U	U-238, U-235, U-236, U-234, U-233
Th	Th-232, Th-230
Cs	Cs-135
Sn	Sn-126
Pd	Pd-107
Tc	Tc-99
Zr	Zr-93
Se	Se-79

3.2 パラメータの設定

緩衝材の寸法、拡散係数等のパラメータは、H3レポートで用いた値と等しく与えた。表2に緩衝材の幾何形状、緩衝材の密度等の値を示す。また、表3および表4に初期インベントリを算出する際に用いた崩壊生成評価コードORIGEN2の入力条件および対象核種と元素毎の初期インベントリをそれぞれ示す。初期インベントリ値は、内側境界濃度の最大値に対する影響を小さくするため、核種溶出開始後（処分後1000年）の最大値を与えた。

感度解析の対象とした分配係数の変動範囲は、H3レポートの解析で用いた値を参考にし、 $0 \sim 10^2$ [$\text{m}^3 \text{kg}^{-1}$] とした。

溶解度の範囲は核種毎の特性が得られるように10桁を目処に分配係数の変動に応じて任意に設定した。

表3 ORIGEN2の入力条件

燃焼条件	燃焼度	33000MWD/MTU
	比出力	30MW/MTU
	燃焼サイクル	(275日燃焼+90日冷却) × 4 サイクル
	濃縮度	3.50%
再処理条件	再処理までの時間	炉取り出し後3年
	元素の除去率	U : 99.95%
		Pu : 99.99%
		他のアクチノイド : 0.0 % 希ガス : 100.0 %
固化条件	固化までの時間	再処理後1年
処分条件	処分までの時間	固化後30年
固化体仕様	重量	412kg
	半径	0.215m
	密度	$2.75 \times 10^3 \text{kg/m}^3$
コード		ORIGEN2
ライブラリ		DECAY26

表2 解析に用いたパラメータ値

緩衝材の高さ	H(m)	2.47
緩衝材の空隙率	ϵ	0.33
緩衝材の密度	$\rho (\text{kg/m}^3)$	2.70×10^3
緩衝材の拡散係数	$D (\text{m}^2/\text{y})$	9.47×10^{-13}
緩衝材内側までの距離	a(m)	0.52
緩衝材外側までの距離	b(m)	1.5

緩衝材の高さ：オーバーバックの全表面積からの放出を側面からの放出に置き換えた場合の緩衝材の高さ
(オーバーバックの高さ1.95m、半径0.52m)

表4 評価対象核種のインベントリ

核種名	半減期(y)	核種のインベントリの最大値(g)	最大値になる時間(y)	元素のインベントリの最大値(g)
Se-79	6.50×10^4	7.99×10^0	1.00×10^3	7.80×10^1
Zr-93	1.53×10^6	1.00×10^3	1.00×10^3	5.64×10^3
Tc-99	2.13×10^5	1.06×10^3	1.00×10^3	1.06×10^3
Pd-107	6.50×10^6	2.75×10^2	1.00×10^3	1.76×10^3
Sn-126	1.00×10^5	3.58×10^1	1.00×10^3	1.18×10^2
Cs-135	2.30×10^6	4.96×10^2	1.00×10^3	2.05×10^3
Th-230	7.70×10^4	4.40×10^1	2.00×10^5	5.14×10^1
Th-232	1.41×10^{10}	4.85×10^1	2.00×10^6	
U-233	1.59×10^5	5.26×10^1	6.00×10^5	2.20×10^3
U-234	2.45×10^5	2.37×10^0	2.00×10^3	
U-235	7.04×10^8	1.57×10^2	4.00×10^5	
U-236	2.34×10^7	4.97×10^1	7.00×10^4	
U-238	4.47×10^9	1.94×10^3	9.00×10^5	
Np-237	2.14×10^6	8.89×10^2	4.00×10^3	8.89×10^2
Pu-239	2.41×10^4	8.35×10^1	1.00×10^4	1.25×10^2
Pu-240	6.54×10^3	3.76×10^1	1.00×10^3	
Am-241	4.32×10^2	5.54×10^1	1.00×10^3	1.42×10^2
Am-243	7.38×10^3	8.71×10^1	1.00×10^3	

4. 結果と考察

4.1 結果

崩壊および崩壊連鎖を無視した単純なモデルに基づく解析解((7)式、(12)式)を用いて、放出率が最大になり、変化しなくなる内側境界濃度および定常溶出率の概略的な最大値を求めた。

表5に、処分後1000年以降の最大値を初期インベントリとした場合の核種に対する内側境界濃度の最大値を、表6に表5で示された内側境界濃度の最大値に相当する定常溶出率の最大値を、表7に元素に対する内側境界濃度の最大値をそれぞれ分配係数毎に示す（崩壊の影響が大きい分配係数に対する値は崩壊の影響が小さい分配係数に対する値で代表させた）。

4.2 考察

評価手法の妥当性を確認するとともに、緩衝材からの核種放出率に対する分配係数の影響特性を

表5 内側境界濃度(核種)の最大値

核種名	インベントリ の最大値(g)	半減期 (y)	分配係数(m^2/kg)に応じた内側境界濃度の最大値(mol/l)						
			0.00E+00	1.00E-03	1.00E-02	1.00E-01	1.00E+00	1.00E+01	1.00E+02
Th-232	4.85E+01	1.41E+10	1.23E-04	1.90E-05	2.20E-06	2.24E-07	2.24E-08	2.24E-09	2.24E-10
U-238	1.94E+03	4.47E+09	4.80E-03	7.41E-04	8.60E-05	8.74E-06	8.76E-07	8.76E-08	8.76E-09
U-235	1.57E+02	7.04E+08	3.94E-04	6.08E-05	7.07E-06	7.18E-07	7.19E-08	7.19E-09	7.19E-10
U-236	4.97E+01	2.34E+07	1.24E-04	1.91E-05	2.22E-06	2.26E-07	2.26E-08	2.26E-09	2.26E-10
Pd-107	2.75E+02	6.50E+06	1.51E-03	2.34E-04	2.71E-05	2.76E-06	2.76E-07	2.76E-08	2.76E-09
Cs-135	4.96E+02	2.30E+06	2.16E-03	3.34E-04	3.87E-05	3.94E-06	3.94E-07	3.94E-08	
Np-237	8.89E+02	2.14E+06	2.21E-03	3.41E-04	3.96E-05	4.02E-06	4.03E-07	4.03E-08	
Zr-93	1.00E+03	1.53E+06	6.33E-03	9.77E-04	1.13E-04	1.15E-05	1.15E-06	1.15E-07	
U-234	2.37E+00	2.45E+05	5.95E-06	9.19E-07	1.07E-07	1.08E-08	1.09E-09		
Tc-99	1.06E+03	2.13E+05	6.28E-03	9.69E-04	1.12E-04	1.14E-05	1.14E-06		
U-233	5.26E+01	1.59E+05	1.33E-04	2.05E-05	2.38E-06	2.42E-07	2.42E-08		
Sn-126	3.58E+01	1.00E+05	1.67E-04	2.58E-05	3.00E-06	3.05E-07	3.05E-08		
Th-230	4.40E-01	7.70E+04	1.13E-06	1.74E-07	2.02E-08	2.05E-09	2.05E-10		
Se-79	7.99E+00	6.50E+04	5.95E-05	9.18E-06	1.07E-06	1.08E-07	1.08E-08		
Pu-239	8.35E+01	2.41E+04	2.06E-04	3.17E-05	3.68E-06	3.74E-07			
Am-243	8.71E-01	7.38E+03	2.11E-04	3.25E-05	3.78E-06	3.84E-07			
Pu-240	3.76E+01	6.54E+03	9.22E-05	1.42E-05	1.65E-06	1.68E-07			
Am-241	5.54E-01	4.32E+02	1.35E-04	2.09E-05					

把握するため、(7)式から得られた結果を円筒座標系一次元の数値解¹²⁾から得られる結果(崩壊連鎖無視)およびH3レポートの結果(崩壊連鎖考慮)と比較した。

例として、Pu-239に関する比較結果を図5に示す。縦軸は最大放出率(Bq/y)、横軸下は溶解度(mol/l)、横軸上は、内側境界濃度(溶解度)に相当する核種の定常溶出率(g/y)およびガラスの定常溶出率(g/y)を表す。また、図5には以下の情報を併せて示す。

- (1) 崩壊を無視した定常状態の解析解から得られるPu-239の定常放出率と溶解度の関係(解析解: 赤の実線)
- (2) 数値解(崩壊連鎖無視)から得られるPu-239

の内側境界濃度(溶解度)の変動と最大放出率の変化の関係(分配係数毎に色分けされた実線)

(3) (7)式から得られる分配係数毎の内側境界濃度の最大値(最大境界値: 色別に塗りつぶした○)

(4) H3レポートの解析(崩壊連鎖考慮)で用いた溶解度とその溶解度に対する放出率(赤の細実線: 横軸に沿った赤の細実線の位置は溶解度の値、赤の細実線の高さは放出率を意味する)

(5) H3レポートの解析で用いたガラスおよびPu-239の定常溶出率

4.2.1 妥当性の確認

図5における C_{max} と崩壊連鎖を無視した数値解の結果(分配係数毎に色分けされた実線)との

表6 定常溶出率の最大値

核種名	インベントリ の最大値(g)	半減期 (y)	分配係数(m^2/kg)に応じた定常溶出率の最大値(g/y)						
			0.00E+00	1.00E-03	1.00E-02	1.00E-01	1.00E+00	1.00E+01	1.00E+02
Th-232	4.85E+01	1.41E+10	3.96E+00	6.11E-01	7.09E-02	7.21E-03	7.22E-04	7.22E-05	7.22E-06
U-238	1.94E+03	4.47E+09	1.58E+02	2.44E+01	2.84E+00	2.88E-01	2.89E-02	2.89E-03	2.89E-04
U-235	1.57E+02	7.04E+08	1.29E+01	1.98E+00	2.30E-01	2.34E-02	2.34E-03	2.34E-04	2.34E-05
U-236	4.97E+01	2.34E+07	4.06E+00	6.26E-01	7.27E-02	7.39E-03	7.40E-04	7.41E-05	7.41E-06
Pd-107	2.75E+02	6.50E+06	2.25E+01	3.46E+00	4.02E-01	4.09E-02	4.10E-03	4.10E-04	4.10E-05
Cs-135	4.96E+02	2.30E+06	4.05E+01	6.24E+00	7.25E-01	7.37E-02	7.38E-03	7.38E-04	
Np-237	8.89E+02	2.14E+06	7.25E+01	1.12E+01	1.30E+00	1.32E-01	1.32E-02	1.32E-03	
Zr-93	1.00E+03	1.53E+06	8.16E+01	1.26E+01	1.46E+00	1.49E-01	1.49E-02	1.49E-03	
U-234	2.37E+00	2.45E+05	1.93E-01	2.98E-02	3.46E-03	3.52E-04	3.52E-05		
Tc-99	1.06E+03	2.13E+05	8.62E+01	1.33E+01	1.54E+00	1.57E-01	1.57E-02		
U-233	5.26E+01	1.59E+05	4.29E+00	6.63E-01	7.69E-02	7.82E-03	7.83E-04		
Sn-126	3.58E+01	1.00E+05	2.92E+00	4.51E-01	5.23E-02	5.32E-03	5.33E-04		
Th-230	4.40E-01	7.70E+04	3.59E-02	5.54E-03	6.44E-04	6.54E-05	6.55E-06		
Se-79	7.99E+00	6.50E+04	6.52E+01	1.01E+01	1.17E-02	1.19E-03	1.19E-04		
Pu-239	8.35E+01	2.41E+04	5.82E+00	1.05E+00	1.22E-01	1.24E-02			
Am-243	8.71E+01	7.38E+03	7.11E+00	1.10E+00	1.27E-01	1.29E-02			
Pu-240	3.76E+01	6.54E+03	3.07E+00	4.73E-01	5.50E-02	5.59E-03			
Am-241	5.54E+01	4.32E+02	4.52E+00	6.97E-01					

表 7 内側境界濃度(元素)の最大値

元素名	元素のインベントリ の最大値(g)	分配係数(m^3/kg)に応じた内側境界濃度(元素)の最大値(mol/l)							
		0.00E+00	1.00E-03	1.00E-02	1.00E-01	1.00E+00	1.00E+01	1.00E+02	
Se	7.80E+01	5.81E-04	8.96E-05	1.04E-05	1.06E-06	1.06E-07			
Zr	5.64E+03	3.57E-02	5.51E-03	6.39E-04	6.50E-05	6.51E-06	6.51E-07		
Tc	1.06E+03	6.30E-03	9.72E-04	1.13E-04	1.15E-05	1.15E-06			
Pd	1.76E+03	9.68E-03	1.49E-03	1.73E-04	1.76E-05	1.77E-06	1.77E-07	1.77E-08	
Sn	1.18E+02	5.51E-04	8.50E-05	9.87E-06	1.00E-06	1.01E-07			
Cs	2.05E+03	8.94E-03	1.38E-03	1.60E-04	1.63E-05	1.63E-06	1.63E-07		
Th	5.14E+01	1.30E-04	2.01E-05	2.34E-06	2.37E-07	2.38E-08			
U	2.20E+03	5.44E-03	8.39E-04	9.75E-05	9.91E-06	9.92E-07			
Np	8.89E+02	2.21E-03	3.41E-04	3.95E-05	4.02E-06	4.03E-07	4.03E-08		
Pu	1.25E+02	3.08E-04	4.75E-05	5.51E-06	5.60E-07				
Am	1.42E+02	3.44E-04	5.31E-05						

比較から、 C_{max} は、放出率が最大になり、変化しなくなる内側境界濃度の最大値と良く一致していること、および崩壊の影響が大きく現れる分配係数に対する値を崩壊の影響が小さい分配係数の値で代表させることによって、内側境界濃度の最大値が保守的に見積もられることがわかる。

また、崩壊連鎖を無視した数値解の結果および崩壊連鎖を考慮したH3レポートの解析結果との比較から、初期インベントリの値を核種溶出開始後の最大値とすることによって、 C_{max} に対する放出率と人工バリア中での娘核種の生成および緩衝材中での沈殿の影響を考慮した場合の娘核種の

放出率との違いが極めて小さくなり、 C_{max} を用いることによって、概略的ではあるが、放出率の最大値も示されることがわかる($K_d=10[m^3 Kg^{-1}]$ に対する C_{max} よりも低い溶解度領域においては崩壊連鎖に伴う沈殿の影響が大きく現れている。しかし、 C_{max} およびその値よりも高い溶解度領域での放出率の違いは極めて小さい)。

以上のことから、本研究の評価手法の妥当性が確認された。

4.2.2 緩衝材からの核種放出率に対する分配係数の影響特性

放出率への影響(減少)が大きくなる分配係数(この値よりも大きい分配係数を設定した場合、崩壊の影響により、放出率の減少が著しく現れる値： K_{d0})を表8に核種毎に示す。また、以下に、分配係数の影響特性を示す(図5参照)。

(1) K_{d0} よりも分配係数が小さく、 K_{d0} に対する C_{max} よりも溶解度が低い場合、最大放出率は分

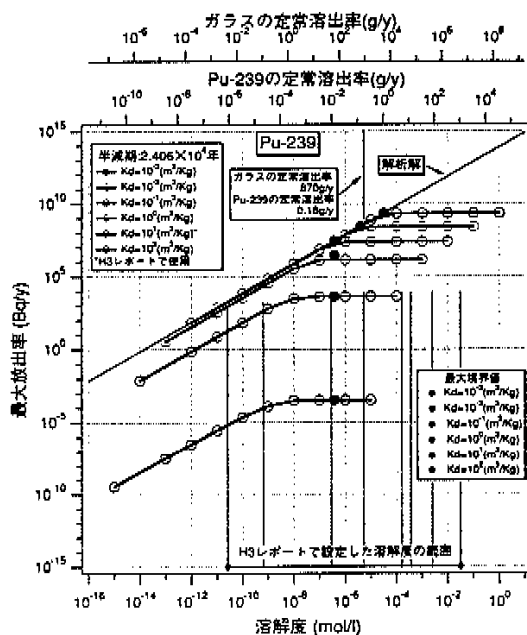


図5 最大放出率と溶解度、分配係数および定常溶出率の関係(Pu-239)

表8 放出率への影響が大きくなる分配係数

核種名	半減期 (y)	放出率への影響が大きくなる 分配係数(K_{d0} : m^3/kg)
Th-232	1.41E+10	$> 1.00E+03$
U-238	4.47E+09	$> 1.00E+03$
U-235	7.04E+08	$> 1.00E+03$
U-236	2.34E+07	$> 1.00E+03$
Pd-107	6.50E+06	$> 1.00E+03$
Cs-135	2.30E+06	$1.00E+02$
Np-237	2.14E+06	$1.00E+02$
Zr-93	1.53E+06	$1.00E+02$
U-234	2.45E+05	$1.00E+01$
Tc-99	2.13E+05	$1.00E+01$
U-233	1.59E+05	$1.00E+01$
Sn-126	1.00E+05	$1.00E+01$
Th-230	7.70E+04	$1.00E+01$
Se-79	6.50E+04	$1.00E+01$
Pu-239	2.41E+04	$1.00E+00$
Am-243	7.38E+03	$1.00E+00$
Pu-240	6.54E+03	$1.00E+00$
Am-241	4.32E+02	$1.00E+02$

配係数の変動によってほとんど影響を受けない。

(2) K_d よりも分配係数が小さく、 K_d に対する C_{max} よりも溶解度が高い場合、最大放出率は分配係数の変動とほぼ逆比例する。

(3) 分配係数が K_d 以上の場合、崩壊の影響が大きく、分配係数が大きくなるに従い放出率の減少が大きくなる。このような傾向は、半減期の短い核種ほど、より小さい分配係数で顕著に現れる。

5. おわりに

緩衝材外側からの放出率を変化させる内側境界濃度（溶解度）の最大値（ C_{max} ）およびその値に相当する定常溶出率の最大値を分配係数毎に概略的に示した。また、インベントリの変動と放出率の変化の関係を示した。さらに、緩衝材外側からの核種放出率に影響を与える分配係数の影響特性を把握した。

地層処分システムの性能評価の対象となるシナリオ、モデル、データには、長期にわたる評価期間に発生する様々なイベントの影響等により不確実性が含まれる。本研究で得られた結果は、データ取得および解析に資するだけでなく、緩衝材外側からの核種放出率に影響を与える主要なパラメータの同定や溶解度・溶出率に影響を及ぼす様々なシナリオの絞り込み・重要度分類、さらには、システムの最適化のための設計研究に資するものと考ええる。

参考文献

- 1) 原子力委員会原子力バックエンド対策専門部会：“高レベル放射性廃棄物の地層処分研究開発等の今後の進め方について”，平成9年4月，pp.1-3. (1997).
- 2) 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”，一平成3年度一，動燃事業団技術資料，PNC TN1410 92-091. (1992).
- 3) 大井貴夫，梅木博之，石黒勝彦，油井三和：“人工バリア中の核種移行解析”，動燃事業団技術資料，PNC TN8410 92-061. (1992).
- 4) I. Neretnieks：“Diffusivities of Some Constituents in Compacted Wet Bentonite Clay and the Impact on Radionuclide Migration in the Buffer”，*Nuclear Technology*, 71 pp.458-470. (1985).
- 5) M. J. Apted, D. P. Hodgkinson：“Logic Over Rhetoric: The Role of Performance Analysis in Guiding Near-Field Data Collection”，*Proceedings Nuclear Waste Packaging FOCUS '91*, pp.24-31. (1991).
- 6) S.J. Zavoshy, P. L. Chambre', and T. H. Pigford：“Mass Transfer in a Geologic Environment”，*Scientific Basis for Nuclear Waste Management VIII, Materials Research Society, Pittsburgh, PA*, 44, pp. 311-322. (1985).
- 7) T. H. Pigford and P. L. Chambre：“Near-Field Mass Transfer in Geologic Disposal Systems A Review”，*Scientific Basis for Nuclear Waste Management XI, Materials Research Society, Pittsburgh, PA*, 112, pp.125-141. (1988).
- 8) T. Ohi, K. Nakajima：“Bounding Analysis for Solubility”，*Scientific Basis for Nuclear Waste Management XX*, (1996) (be in press).
- 9) 大井貴夫：“核種移行パラメータの核種放出率に与える影響”，地層処分研究開発の現状（平成8年度），動燃事業団技術資料，PNC TN1410 96-071, pp.186-188. (1996).
- 10) T. Ohi, K. Miyahara, M. Naito, and H. Umeki：“Effects of Transport Model Alternatives Incorporating Precipitation on the Performance of Engineered Barriers”，*High Level Radioactive Waste Management Proceedings of the Seventh Annual International Conference*, pp. 274-275. (1996).
- 11) 大井貴夫，梅木博之，宮原要：“崩壊連鎖に伴う人工バリア中核種移行への影響要因の検討”，*放射性廃棄物研究 Vol.1*, No.2 日本原子力学会放射性廃棄物部会. (1995).
- 12) 大井貴夫，宮原要，梅木博之：“ユアフィールド核種移行評価コード (RELEASE)”，動燃事業団技術資料，PNC TN8410 92-060. (1992).