



# 高レベル放射性廃棄物処分場内における 複数固化体の影響を考慮した核種移行解析

畑中耕一郎

東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部

Radionuclide Transport Analysis Considering the Effects of Multiple Sources in a HRW Repository

Koichiro HATANAKA

Waste Isolation Research Division, Waste Management and Fuel Cycle Research Center, Tokai Works

本研究では、高レベル放射性廃棄物処分場内に埋設されたガラス固化体が複数ソースとして作用し、その結果生じると考えられる核種濃度の干渉現象に着目し、その影響を評価することができるモデル・コードを開発した。また、既存コードとの比較解析を通して、新たに構築したコードの検証を行なうとともに、第2次取りまとめレファレンスケースのデータを使用して濃度干渉効果の概括的評価を試みた。その結果、単一のガラス固化体を基本とした従来の評価手法から得られる核種移行率に比べ、濃度干渉効果を考慮に入れた解析から得られる核種移行率は約2オーダーのピーク値の低減効果が見られた。

*This study focused on the effect of multiple sources due to the disposal of high-level radioactive waste at different positions in the repository. By taking the effect of multiple sources into consideration, concentration interference in the repository region is possible. Therefore, a radionuclide transport model/code considering the effect of concentration interference due to multiple sources was developed to assess the effect quantitatively. The newly developed model/code was verified through comparison analysis with the existing radionuclide transport code used in the performance assessments analysis for the second progress report summarized by JNC. In addition, the effect of the concentration interference was evaluated by setting a simple one-dimensional problem. The result shows that the maximum peak value of the radionuclide transport rates from the repository was approximately two orders of magnitude lower than the analysis based on single canister configuration.*

## キーワード

地層処分, 処分場, 高レベル放射性廃棄物, 濃度干渉, 核種移行, 複数ソース, コンパートメントモデル, コード開発, コード検証, 第2次取りまとめ

*Geological Disposal, Repository, High Level Radioactive Waste, Concentration Interference, Multiple Sources, Compartment Model, Code Development, Code Verification, Second Progress Report*



畑中耕一郎

システム解析グループ  
チームリーダー  
地層処分における水理・物質移動に関する研究に従事

## 1. はじめに

地下水シナリオを想定した高レベル放射性廃棄物地層処分システムの安全評価においては、単一のガラス固化体を基本として、人工バリア中及び天然バリア中の核種移行解析が行われ、その結果に処分予定のガラス固化体の総本数を乗じることにより全体システムの安全性が評価されてきた<sup>1)~3)</sup>。この

単一のガラス固化体を基本とした安全評価では、処分場に設置されるすべての人工バリア及び処分坑道周辺岩盤中の核種は同じ移行挙動をすることが仮定されており、また、処分坑道間に存在する岩盤を考慮に入れた処分場内での核種移行は保守的に無視されている。しかしながら、処分坑道間に存在する岩盤は処分場のバリア性能を向上させる方向に作用することから、これを無視している従来型の単一のガラス固化体を基本とした安全評価では処分場が本来有するバリア性能を保守的仮定の下に過小に評価している可能性がある。また、処分場には多くの固化体が事前の配置計画に従って処分されることから、地下水シナリオを想定すると、地下水とガラス固化体が接触することによりガラス固化体から溶出した核種が人工バリアを経由して岩盤中に運ばれ、岩盤中で上流側のガラス固化体から運ばれた核種濃度と混合することによって、人工バリア内部及び岩盤内の核種移行に影響を及ぼすこと（本研究では、この現象を「濃度干渉」と定義する）が考えられる。したがって、処分坑道間に存在する岩盤も含めて処分場内の核種移行現象をモデル化し、これらが処分場のバリア性能に与える影響をより現実的に評価しておくことは必要である。図1は処分場内における濃度干渉の概念図を示している。Ahnら<sup>4)5)</sup>及びHatanakaら<sup>6)</sup>は、処分坑道間に存在する岩盤のうち、比較的透水性が高く、流量も多く流れる処分坑道周辺に形成される掘削影響領域に着目して、処分場内の核種移行現象をモデル化し、濃度干渉の影響についての評価を行っている。本研究では、同様の考え方を「第2次取りまとめ」の安全評価解析<sup>2)</sup>で採用されたレファレンスケースのパラメータセットに対して適用し、濃度干渉を考慮した核種移行解析を行い、単一のガラス固化体を基本とした解析結果との比較評価を行った。

## 2. 概念モデル

複数のガラス固化体から溶出した核種が人工バ

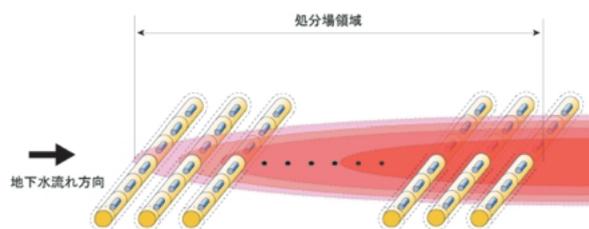


図1 処分場内における濃度干渉の概念図

リアを通過して周辺岩盤に到達したのち、処分場内を一様に流れている地下水によって下流側に運ばれ、人工バリア中での核種移行が抑制される濃度干渉が生じる場を考えた。本章では、この影響を評価するに当たっての、解析対象領域の設定について述べるとともに、解析対象領域における核種移行の概念について述べる。

### 2.1 解析対象領域

「第2次取りまとめ」における人工バリア中の核種移行解析を行う際に設定された掘削影響領域を通過する流量は、3次元亀裂ネットワークモデルを用いて処分坑道と垂直方向の動水勾配を設定することにより求められている<sup>7)</sup>。そこで本研究においては、解析対象領域として、処分場内に等間隔に配置された処分坑道内にガラス固化体が一定のピッチで埋設されており、処分坑道を垂直に横切って地下水が一様に流れている場を考えた。このような流れの場においては、処分場に埋設されたガラス固化体は相互に影響を及ぼすことが考えられる。つまり、個々のガラス固化体から溶出し、緩衝材を通過して岩盤中に放出された核種は処分場内岩盤中を下流側へ移流・分散により移動する。同時に、処分場内の下流側の領域では、その領域に埋設されている人工バリアから放出される核種及び上流側から移流・分散により運ばれてくる核種の影響を受け、核種濃度が徐々に上昇していく。その結果、下流側の緩衝材内の濃度勾配は上流側のそれに比べて減少し、緩衝材外側境界から周辺岩盤中への核種フラックスの放出は小さくなる。同時に、下流側に存在する人工バリアにおいては上流側に比べて核種が長期間保持される。

本研究では、上述した濃度干渉の効果を考慮に入れて、処分場全体のバリア性能を評価することから、硬岩系岩盤、処分坑道横置き方式の場合において、処分場が単純に約1.7km<sup>2</sup>の面積を持つ正方形に近い形状をした1つのパネルから構成されると仮定した。この仮定に基づき算出した処分場のレイアウトパラメータと「第2次取りまとめ」の設計研究により設定されたパラメータ<sup>8)</sup>とを表1に示す。表1に示す処分場のレイアウトパラメータと上述した濃度干渉が生じる場での核種移行のシナリオを考慮して核種移行の解析対象領域を図2のように設定した。

表1 処分場レイアウトのパラメータ  
(硬岩質系岩盤, 処分坑道横置き方式)

処分坑道の直径 (m)	2.22
処分坑道間隔 (m)	13.32
処分坑道内廃棄体埋設ピッチ (m)	3.13
処分坑道本数 (本)	100
処分坑道内廃棄体本数 (本)	400
処分坑道長さ (m)	1252
処分坑道と垂直方向の長さ (m)	1332

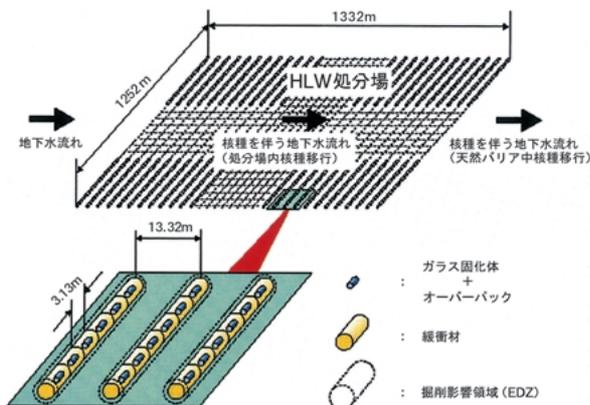


図2 処分場のレイアウトを考慮した核種移行解析対象領域

## 2.2 濃度干渉効果を考慮した核種移行概念モデル

本研究では、地層処分システムの構成要素のうちガラス固化体、オーバーバック、緩衝材、掘削影響領域を核種の移行媒体としてその中の核種移行をモデル化し、各構成要素間の核種移行については処分場のレイアウトを考慮して地下水流れに沿って隣り合う掘削影響領域間での核種移行率及び核種濃度の受け渡しを行うよう設定する。その他の処分システムの構成要素である処分坑道間に存在する掘削影響領域を除く岩盤については、モデルの簡単化のため、考慮しないこととした。オーバーバックについては、健全性を損失するまでの時間（1000年）以降においては、ガラス固化体から溶出した核種を瞬時に緩衝材内側境界部分に移行させる役割を持たせモデル化した。したがって、本研究で考えた解析対象領域における処分場内の核種移行の概念は図3に示すようにモデル化できる。また、処分場外側にある岩盤中の核種移行については、このモデルにおいては考慮していない。処分場外側にある岩盤の性能評価を行う場合、処分場から放出された核種はマトリクス

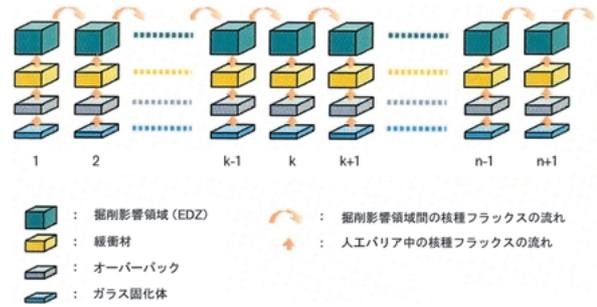


図3 濃度干渉効果を考慮した処分場内の核種移行の概念モデル

拡散を伴いながら岩盤中の主要亀裂中を移流分散により下流側へ移行し、大規模断層に到達し、瞬時に生物圏へ放出されると仮定した核種移行モデルが使用される<sup>2)</sup>。本研究で着目している処分坑道に埋設された人工バリア中（ガラス固化体、オーバーバック、緩衝材）と地下水流れ方向と交差する処分坑道周辺に形成された掘削影響領域間で考慮した核種移行プロセスを表2にまとめた。

## 3. 処分システム構成要素内の核種挙動モデル

処分場内での濃度干渉効果を考慮した核種移行現象を評価するためには、地下水流れに沿って存在する処分システムの構成要素を個々にモデル化し、それらを連成させることが必要である。核種移行のモデル化では図3に示されるように、地下水流れに沿って存在する処分坑道に埋設されているガラス固化体、オーバーバック、緩衝材の中での核種の挙動及び処分坑道周辺に形成される掘削影響領域間の核種移行を考慮する。地下水流れに沿った掘削影響領域間の核種移行のモデル化においては、地下水流れと交差する各々の処分坑道周辺に形成された掘削影響領域を核種が完全瞬時混合することにより均一濃度になるコンパートメントとして定義し、コンパートメント中での物質収支を考慮することによりモデル化を行った。また、各コンパートメントに対応する掘削影響領域、ガラス固化体、オーバーバック、緩衝材の中での核種移行挙動のモデル化においては表2に示すプロセスを考慮した。なお、オーバーバックについてはその中の核種の挙動を直接的にはモデル化していない。ガラス固化体処分後1000年にオーバーバックは健全性を喪失し、健全性を喪失したオーバーバック中をガラス固化体から溶出した放射性核種が瞬時に通り抜け、緩衝材内側境界に至るこ

表2 処分場内で考慮した核種移行プロセス

多重バリア構成要素	核種移行で考慮したプロセス	備考
ガラス固化体	放射性崩壊	複数崩壊系列
	ガラスとの調和溶解	ガラスの溶解と調和的な核種の溶解
オーバーパック	核種移行プロセスは考慮せず	機能損失時間1000年以降のガラス固化体から調和溶解した核種の緩衝材内側境界への瞬時の受け渡しを定義
緩衝材	放射性崩壊	複数崩壊系列
	拡散	Fick則に従う
	収着	Kdモデル(線形・瞬時平衡・可逆)
	沈殿/溶解	瞬時・可逆的沈殿/溶解モデル
	元素の溶解度の同位体比分割	核種の溶解度設定
掘削影響領域	放射性崩壊	複数崩壊系列
	移流	上流側掘削影響領域からの移流及び下流側掘削影響領域への移流
	収着	Kdモデル(線形・瞬時平衡・可逆)
	沈殿/溶解	瞬時・可逆的沈殿/溶解モデル
	元素の溶解度の同位体比分割	核種の溶解度設定
	完全瞬時混合	掘削影響領域内では核種濃度一定

とを仮定した。

### 3.1 ガラスの溶解モデル

#### (1) ガラスの質量の時間変化を表すモデル

ガラス固化体を構成するガラス成分の溶解モデルとしては、以下に示すように浸出率一定のモデルを考えた。ここでは、まず、このガラス溶解モデルについて説明し、次に、ガラスの溶解に伴い調和的に生じる核種の溶解モデルについて説明する。

##### 1) ガラスの一定溶解速度モデル

ガラスは一定の速度で溶解すると仮定した。このとき、コンパートメント $k$ 内のガラス固化体の溶解は(1)式のようにモデル化される。

$$\frac{dM_{G,k}}{dt} = -q_G a_G \quad (1)$$

ここで、 $M_{G,k}$ ：ガラスの質量 [M]

$a_G$ ：ガラス固化体の表面積 [L<sup>2</sup>]

$q_G$ ：ガラスの一定溶解速度 [M/L<sup>2</sup>/T]

##### 2) 核種の調和溶解モデル

ガラス固化体中に閉じ込められている核種はガラスと調和的に溶解すると仮定した。調和溶解では、任意の時間 $t$ において、ガラス固化体からガラスと一緒に溶解する核種の質量比は健全なガラス固化体中に含まれる核種の質量比に等しくなることを前提としている。したがって、ガラス固化体中

のガラス部分の質量に対する核種の質量比は(2)式で表される。

$$\frac{M_{g,k}^{(j)}}{M_{G,k}} = \frac{dM_{g,k}^{(j)}/dt}{dM_{G,k}/dt} \quad (2)$$

ここで、 $k$ ：ガラス固化体中の核種の質量比 [-]

$M_{G,k}$ ：ガラス固化体中の核種の質量 [M]

$k$  はガラス固化体から単位時間に溶解するガラス中に含まれる核種の質量比に等しいと仮定していることから、任意の時間 $t$ においてガラスと調和的に溶解する核種の溶解速度は、

$$\frac{dM_{G,k}^{(j)}}{dt} \quad (3)$$

により表すことができる。(2)及び(3)式中の $k$ は崩壊系列を、 $j$ は崩壊系列を構成する核種(メンバー)を示している。崩壊系列及びメンバー核種を識別するために以降もこの表記を用いる。

### 3.2 ガラス固化体領域での核種質量変化モデル

#### (1) ガラス固化体中の核種質量変化モデル

ガラス固化体中の健全なガラス部に閉じ込められている核種は放射性崩壊及びガラスとの調和溶解によりその質量を減少させる。したがって、コンパートメント $k$ 内のガラス固化体中に閉じ込められている核種の質量変化は(4)式のようにモデル化できる。

$$\frac{dM_{g,k}^{(j)}}{dt} = \cdot {}^{(j)}M_{g,k}^{(j)} + {}^{(j-1)}M_{g,k}^{(j-1)} + {}^{(j)} \frac{dM_{G,k}}{dt} \quad (4)$$

ここで、 $\cdot$  : 核種の崩壊定数 [1/T]

## (2) 溶解したガラス中の核種質量変化モデル

ガラス固化体から調和溶解した核種は瞬時に健全性を喪失したオーバーパック中を通過し、緩衝材内側境界部に到達することを仮定した。緩衝材内側境界部における核種は、ガラスとの調和溶解、放射性崩壊及び緩衝材内側境界から緩衝材中への拡散散逸による移行によりその質量を変化させる。したがって、コンパートメント  $k$  内の緩衝材内側境界部に留まっている核種の質量変化は(5)式のようにモデル化できる。

$$\frac{dM_{b,k}^{(j)}}{dt} = \cdot {}^{(j)}M_{b,k}^{(j)} + {}^{(j-1)}M_{b,k}^{(j-1)} + {}^{(j)} \frac{dM_{G,k}}{dt} + {}_b D_b^{(j)} \left. \frac{C_{b,k}^{(j)}}{r} \right|_{r=r_0} \Big|_{a_{b,r}=r_0} \quad (5)$$

ここで、 $M_{b,k}$  : 緩衝材内側境界での核種質量 [M]

$C_{b,k}$  : 緩衝材空隙水中核種濃度 [M/L<sup>3</sup>]

$D_b$  : 緩衝材空隙水中核種拡散係数 [L<sup>2</sup>/T]

$a_{b,r=r_0}$  : 緩衝材内側境界の面積 [L<sup>2</sup>]

## 3.3 緩衝材中の核種移行モデル

コンパートメント  $k$  において、ガラス固化体からオーバーパックを経由し、緩衝材内側境界に到達した核種は崩壊、収着・遅延を伴いながら拡散により緩衝材空隙水中を移行する。移行中の核種の緩衝材固相部分への収着については、瞬時平衡、可逆性、線形性を仮定した。また、緩衝材中における同位体存在比を考慮した核種の溶解度変化及びそれに伴う核種の溶解・沈殿を考慮した。これらの現象を考慮に入れて、緩衝材内側境界から外側境界に向かって半径 1 次元方向に核種移行が生じると仮定すると、緩衝材中の核種移行を記述するモデルは(6)~(10)式ようになる。

$$\frac{A_{b,k}^{(j)}}{t} = {}_b D_b^{(j)} \frac{1}{r} \left[ r \frac{C_{b,k}^{(j)}}{r} \right] \cdot {}^{(j)}A_{b,k}^{(j)} + {}^{(j-1)}A_{b,k}^{(j-1)} \quad (6)$$

$$A_{b,k}^{(j)} = {}_b C_{b,k}^{(j)} + (1 \cdot {}_b) S_{b,k}^{(j)} + P_{b,k}^{(j)} \quad (7)$$

$$S_{b,k}^{(j)} = {}_b K d_{b,k}^{(j)} C_{b,k}^{(j)} \quad (8)$$

$$C_{b,k}^{(j)} = \begin{cases} C_{b,k}^{*(j)} & (C_{b,k}^{(j)} > C_{b,k}^{*(j)}) \\ C_{b,k}^{(j)} & (C_{b,k}^{(j)} \leq C_{b,k}^{*(j)}) \end{cases} \quad (9)$$

$$P_{b,k}^{(j)} = \begin{cases} C_{b,k}^{(j)} \cdot C_{b,k}^{*(j)} & (C_{b,k}^{(j)} > C_{b,k}^{*(j)}) \\ 0 & (C_{b,k}^{(j)} \leq C_{b,k}^{*(j)}) \end{cases} \quad (10)$$

ここで、 $A_{b,k}$  : 緩衝材中核種全濃度 [M/L<sup>3</sup>]

$S_{b,k}$  : 緩衝材固相部分核種濃度 [M/L<sup>3</sup>]

$P_{b,k}$  : 緩衝材中に沈殿した核種濃度 [M/L<sup>3</sup>]

$C_{b,k}^*$  : 緩衝材空隙水中核種溶解度 [M/L<sup>3</sup>]

$Kd_b$  : 緩衝材中核種分配係数 [L<sup>3</sup>/M]

緩衝材空隙水中の核種の溶解度はそれに対応する元素の溶解度に同位体存在比を乗じることにより得られる。同位体存在比については(11)式に示すように核種の全濃度とその核種を含む同位体の全濃度の総和の比で表されると仮定した。

$$r_{b,k}^{(j)} = \frac{A_{b,k}^{(j)}}{A_{b,k}^{(j)}} \quad (11)$$

ここで、 $r_{b,k}$  : 緩衝材中核種同位体存在比 [-]

$e$  : 元素を表す識別子 [-]

したがって、緩衝材中の核種の溶解度は(12)式で表される。

$$C_{b,k}^{*(j)} = r_{b,k}^{(j)} C^{*e} \quad (12)$$

ここで、 $C^{*e}$  : 元素  $e$  の溶解度 [M/L<sup>3</sup>]

## 3.4 掘削影響領域間の核種移行モデル

図3の概念モデルで示したように、地下水流れに沿った処分場内岩盤中の核種移行を処分坑道周辺に発達した掘削影響領域どうしの核種フラックスの受け渡しとしてモデル化する。隣り合う掘削影響領域間に存在する岩盤については濃度干渉の影響が顕著に観察できるようにするためと保守性を考慮したモデルの簡単化のためにそこでの遅延は考慮していない。コンパートメント  $k$  内の掘削影響領域中において、緩衝材外側境界から拡散により運ばれてくる核種と上流側に隣接するコンパートメント  $k-1$  内の掘削影響領域から地下水流れによって運ばれてくる核種が完全混合し、崩壊、収着・遅延を伴いながら、下流側に隣接するコンパートメント  $k+1$  内の掘削影響領域へ地下水流れにより運び去られる。同時に、掘削影響領域中における同位体存在比を考慮した核種の溶解度変化及びそれに伴う核種の溶解・沈殿が生じる。これらの現象を考慮に入れて、一様な地下水流れに沿って存在するコンパートメント内の掘削影響領域間の核種移行はコンパートメント  $k$  について(13)~(18)式のように記述される。収着モデルについては、瞬時平衡、可逆、線形性を仮定した。

$$V_{nr} \frac{dA_{nr,k}^{(j)}}{dt} = \cdot {}_b D_b^{(j)} \left. \frac{C_{b,k}^{(j)}}{r} \right|_{r=r_b} \Big|_{a_{b,r}=r_b} \cdot {}^{(j)}V_{nr} A_{nr,k}^{(j)} + {}^{(j-1)}V_{nr} A_{nr,k}^{(j-1)} + F_{nr} C_{nr,k}^{(j)} - 1 \cdot F_{nr} C_{nr,k}^{(j)} \quad (13)$$

$$A_{nr,k}^{(j)} = {}_{nr} C_{nr,k}^{(j)} + (1 \cdot {}_{nr}) S_{nr,k}^{(j)} + P_{nr,k}^{(j)} \quad (14)$$

$$C_{nr,k}^{(j)} = \begin{cases} C_{nr,k}^{*(j)} & (C_{nr,k}^{(j)} > C_{nr,k}^{*(j)}) \\ C_{nr,k}^{(j)} & (C_{nr,k}^{(j)} \leq C_{nr,k}^{*(j)}) \end{cases} \quad (15)$$

$$P_{nr,k}^{(j)} = \begin{cases} C_{nr,k}^{(j)} \cdot C_{nr,k}^{*(j)} & (C_{nr,k}^{(j)} > C_{nr,k}^{*(j)}) \\ 0 & (C_{nr,k}^{(j)} \leq C_{nr,k}^{*(j)}) \end{cases} \quad (16)$$

$$S_{nr,k}^{(j)} = nr Kd_{nr,k}^{(j)} C_{nr,k}^{(j)} \quad (17)$$

$$F_{nr} = nr a_{nr} V_{nr} \quad (18)$$

ここで、 $A_{nr,k}$  : 掘削影響領域中核種全濃度 [ M/L<sup>3</sup> ]

$C_{nr,k}$  : 掘削影響領域空隙水中核種濃度 [ M/L<sup>3</sup> ]

$S_{nr,k}$  : 掘削影響領域固相部分核種濃度 [ M/L<sup>3</sup> ]

$P_{nr,k}$  : 掘削影響領域中沈殿核種濃度 [ M/L<sup>3</sup> ]

$C_{nr,k}^*$  : 掘削影響領域空隙水中核種溶解度 [ M/L<sup>3</sup> ]

$nr_k$  : 掘削影響領域の空隙率 [ - ]

$V_{nr}$  : 掘削影響領域の体積 [ L<sup>3</sup> ]

$F_{nr}$  : 掘削影響領域中の地下水流量 [ L<sup>3</sup>/T ]

$V_{nr}$  : 掘削影響領域中の地下水流速 [ L/T ]

$Kd_{nr}$  : 掘削影響領域中核種分配係数 [ L<sup>3</sup>/M ]

$rb$  : 緩衝材の外側半径 [ L ]

$a_{b,r=rb}$  : 緩衝材外側境界の面積 [ L<sup>2</sup> ]

$a_{nr}$  : 地下水流れ方向掘削影響領域断面積 [ L<sup>2</sup> ]

掘削影響領域空隙水中の核種の溶解度は元素の溶解度に同位体存在比を乗じることにより得られる。同位体存在比については(19)式に示すように核種の全濃度とその核種を含む同位体の全濃度の総和の比で表されると仮定した。

$$r_{nr,k}^{(j)} = \frac{A_{nr,k}^{(j)}}{e A_{nr,k}^{(j)}} \quad (19)$$

ここで、 $r_{nr,k}$  : 掘削影響領域中核種同位体存在比 [ - ]  
したがって、掘削影響領域の核種の溶解度は(20)式で表される。

$$C_{nr,k}^{*(j)} = r_{nr,k}^{(j)} C_{nr,k}^{*e} \quad (20)$$

### 3.5 処分場外側岩盤中の核種蓄積モデル

処分場外側岩盤中においては、地下水流れ下流側の処分場端に相当するコンパートメント  $n$  内の掘削影響領域から地下水流れにより処分場外側岩盤に運ばれた核種はそのまま処分場外側岩盤中に蓄積し、時間とともに崩壊により減少していく。処分場外側岩盤中での核種移行はモデル化していない。その挙動を表すモデルは(21)式で表される。

$$\frac{dM_{nr}^{(j)}}{dt} = F_{nr} C_{nr,n}^{(j)} - {}^{(j)}M_{nr}^{(j)} + {}^{(j-1)}M_{nr}^{(j-1)} \quad (21)$$

ここで、 $M_{nr}$  : 処分場外側岩盤内核種蓄積量 [ M ]

$C_{nr,n}$  : 処分場端掘削影響領域中核種濃度 [ M/L<sup>3</sup> ]

## 4. 濃度干渉影響解析

3. で述べたモデルに基づき開発した濃度干渉解析コードについては、単一コンパートメントを考慮したケースについて「第2次取りまとめ」において使用されている緩衝材中核種移行解析コード「MESHNOTE」<sup>9)</sup>との比較解析を実施することにより、本研究で開発した濃度干渉解析コードが信頼性のある解析結果を与えることを確認した<sup>10)</sup>。本章では、濃度干渉解析コードを用いて、地下水が一樣に流れている場において、処分場領域に埋設された複数のガラス固化体が同時にソースとして作用した場合の核種移行解析を行い、濃度干渉効果が核種の遅延や移行に与える影響について評価した結果について述べる。

### 4.1 解析データ

濃度干渉解析コードを用いて100個のコンパートメントで構成されるモデル解析を実施し、その結果を1個のコンパートメントのみで実施したモデル解析の結果と比較することを通して濃度干渉の影響について評価した。解析では表3に示す核種を考慮に入れた。また、解析に使用した、核種のインベントリ、ガラス溶解に係るデータ、緩衝材の幾何学形状データ、緩衝材間隙水中の放射性元素の溶解度、緩衝材中放射性元素の実効拡散係数、放射性元素の緩衝材への分配係数と遅延係数及び掘削影響領域に関するデータをそれぞれ表4～表10に示す。比較評価においては、1コンパートメントモデルによる解析と100コンパートメントモデルによる解析により得られた結果をそれぞれ処分場内の総ガラス固化体本数(40,000本)分に換算することより濃度干渉の影響について評価した。

### 4.2 解析結果

#### (1) 処分場から放出される核種移行率

図4と図5はそれぞれ、1コンパートメントモ

表3 濃度干渉解析で考慮した放射性核種

核分裂生成物	Se 79, Tc 99, Cs 135
4N+1系列	Cm 245 Pu 241 Am 241 Np 237 U 233 Th-229
4N+2系列	Cm 246 Pu 242 U 238 U 234 Th 230 Ra 226 Pb 210

表4 ガラス固化体1本あたりの放射性核種及び安定同位体のインベントリ

元 素	同位体	半減期 [ y ]	モル数 [ mol/can ]
Se	79	6.50E+04	8.04E-02
	Stable	-	6.86E-01
Tc	99	2.13E+05	8.27E+00
Cs	135	2.30E+06	3.19E+00
	Stable	-	8.84E-00
Pb	210	2.23E+01	3.48E-09
	Stable	-	3.81E-03
Ra	226	1.60E+03	2.62E-07
Th	229	7.34E+03	2.51E-06
	230	7.70E+04	5.37E-05
U	233	1.59E+05	1.17E-03
	234	2.45E+05	1.50E-02
	238	4.47E+09	1.31E+01
Np	237	2.14E+06	3.74E+00
Pu	241	1.44E+01	1.23E-05
	242	3.87E+05	1.12E-02
Am	241	4.32E+02	1.88E-01
Cm	245	8.50E+03	7.26E-03
	246	4.73E+03	8.29E-04

表5 ガラスの溶解に係るデータ

データ項目	単 位	データ値
半径	[ m ]	0.22
高さ	[ m ]	1.34
幾何学的表面積	[ m <sup>2</sup> ]	1.70
表面積増加率	[ - ]	10.00
初期表面積	[ m <sup>2</sup> ]	17.00
初期体積	[ m <sup>3</sup> ]	1.50E-01
初期重量	[ g ]	4.12E+05
密度	[ g / m <sup>3</sup> ]	2.75E+06
一定溶解速度	[ g / m <sup>2</sup> / y ]	3.65E-01
Siの初期量	[ mol/can ]	3090.00

表6 緩衝材の幾何形状データ

データ項目	単 位	データ値
内側半径	[ m ]	0.41
外側半径	[ m ]	1.11
高さ	[ m ]	2.14
間隙率	[ - ]	0.41
乾燥密度	[ kg / m <sup>3</sup> ]	1600.00

表7 緩衝材間隙水中の放射性元素の溶解度

元 素	溶解度 [ mol / m <sup>3</sup> ]
Se	3.00E-06
Tc	4.00E-05
Cs	可溶性元素
Pb	2.00E-03
Ra	1.00E-09
Th	5.00E-03
U	8.00E-06
Np	2.00E-05
Pu	3.00E-05
Am	2.00E-04
Cm	2.00E-04

表8 緩衝材中の放射性元素の実効拡散係数

元 素	実行拡散係数 [ m <sup>2</sup> / y at 60 ]
Cs	1.89E-02
Se	6.15E-03
その他の元素	9.43E-03

表9 放射性元素の緩衝材への分配係数と遅延係数

元 素	分配係数 [ m <sup>3</sup> / kg ]	遅延係数 [ - ]
Se	0.00	1
Tc	0.10	391
Cs	0.01	40
Pb	0.10	391
Ra	0.01	40
Th	1.00	3903
U	1.00	3903
Np	1.00	3903
Pu	10.00	39025
Am	10.00	39025
Cm	10.00	39025

表10 掘削影響領域に関するデータ

項 目	単 位	データ値
EDZ厚さ	[ m ]	0.50
EDZ体積	[ m <sup>3</sup> ]	13.59
EDZ流量	[ m <sup>3</sup> / y ]	0.001
間隙率	[ - ]	0.02
乾燥密度	[ kg / m <sup>3</sup> ]	2640.00

EDZ：掘削影響領域

デルと100コンパートメントモデルにより得られた処分場から放出される核種移行率の時間変化であり、核種移行率を放射能量の単位 (Bq/y) で示している。これらの図から分かるように、1コンパートメントモデルによる核種移行率については、Cs 135が100年から50万年にかけて支配核種となっており、7万年でピーク値をもつ。100コンパートメントモデルによる核種移行率は100年以降のすべての時間においてCs 135が支配核種になっているが1コンパートメントモデルに比べてピーク値が2オーダー程小さくなっている。また、1コンパートメントモデルによるCs 135の核種移行率は7万年で瞬時にピーク値に達した後、急速に低下し、50万年でTc 99に支配核種が入れ代

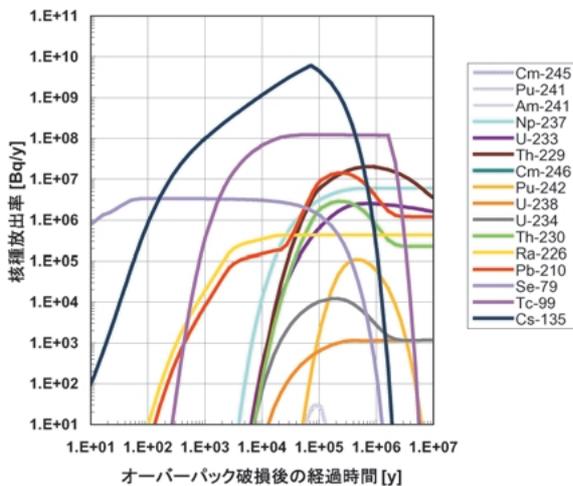


図4 処分場から放出される核種移行率 (Bq/y) の時間変化 (1コンパートメントモデルによる解析, ガラス固化体40,000本分換算)

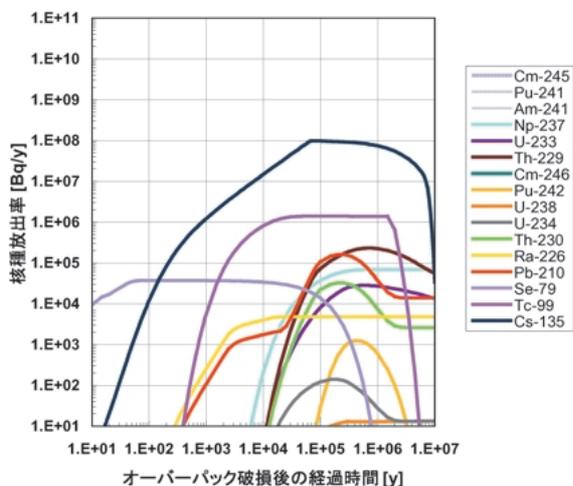


図5 処分場から放出される核種移行率 (Bq/y) の時間変化 (100コンパートメントモデルによる解析, ガラス固化体40,000本分換算)

わっているが、100コンパートメントモデルによるCs 135の核種移行率はピーク値に達した後、緩慢に低下し、処分場からの核種放出が1,000万年程度まで継続している。100コンパートメントモデルによるCs 135以外のほとんどの核種についてもそれぞれの移行率もつピーク値は1コンパートメントモデルによる核種移行率に比べて2オーダー小さくなっている。

100コンパートメントモデルによる核種移行率が1コンパートメントモデルによる核種移行率に比べて2オーダー低減していることについては、次のような理由が考えられる。

Csのような溶解度による制限を受けない可溶性の元素は、緩衝材内側境界部において、ガラス固化体からの溶出と緩衝材内部への濃度勾配を駆動力とした拡散移行とのバランスによりそこでの濃度が決定される。そのときの濃度は溶解度制限を受ける元素に比べて非常に高いものとなることから、濃度勾配も大きくなり、緩衝材中を拡散移行する核種フラックスもそれに比例して大きくなる。したがって、このとき緩衝材外側境界からはより多くの核種フラックスが掘削影響領域へ移行し、掘削影響領域中を流れている地下水により下流側の掘削影響領域へと運ばれる。

最も上流側に位置するコンパートメントでは常に上流から核種濃度を持たない新鮮な地下水が供給されることから、そこでの緩衝材外側境界における濃度勾配は地下水流れに沿って存在する100コンパートメントのうち最も急な濃度勾配を有することになる。下流側のコンパートメントに進むにしたがって、上流側のコンパートメントから地下水流れによって運ばれてくる核種の影響を受けて掘削影響領域の濃度は徐々に増加していき、緩衝材外側境界における濃度勾配は緩やかになってくる。そして、さらに下流側のコンパートメントの緩衝材中では濃度勾配は非常に小さくなり、緩衝材外側境界から放出される核種量は無視できるほどになる。このとき、上流側から移行してきた核種量はそのまま下流側へ運び去られる。このように、濃度干渉の条件の下では、上流側から下流側のコンパートメントに進むにしたがって、緩衝材中の濃度勾配は小さくなり、緩衝材外側境界から放出される核種量はそれに比例して抑制されることになる。

最も上流側コンパートメント内においては、核

種がその溶解度を保持できる程度まで残存している場合、緩衝材中の濃度勾配が最も大きくなることから、同時にガラス固化体から緩衝材を通り掘削影響領域へ放出される核種量も全コンパートメント中最大となる。したがって、上流側に存在するコンパートメントから下流側に向かって人工バリア中に保持されている核種量が徐々に枯渇していく。そして、最終的には処分場に埋設された全核種量が崩壊による減衰と処分場の外側への地下水による放出により失われることになる。図5から分かるように、濃度干渉を考慮すると、Cs 135の場合、半減期(230万年)の影響を受けるまで、濃度干渉の影響により処分場からの核種放出は継続する。

## (2) 処分システム構成要素中に存在する核種量

図6と図7は、それぞれ1コンパートメントモデルと100コンパートメントモデルにより得られた処分システム構成要素中に存在する核種の全質量の時間変化を示したものである。1コンパートメントモデルと100コンパートメントモデルにおけるそれぞれの構成要素中に保持されている核種量を比較すると、ガラス固化体中と緩衝材内側境界部に溶解したガラスについては大きな変化は見られない。オーバーパック破損後10万年まで、ほぼ大部分の核種がガラス固化体中と緩衝材内側境界部に保持されている。

これに対し、1コンパートメントモデルと100コンパートメントモデルにおける緩衝材中、処分場内岩盤中及び処分場外岩盤中の核種量を比較すると大きな変化が現れている。ここで、処分場内岩盤とは核種移行のモデル化で考慮している掘削影響領域のことである。それ以外の処分場内に存在する岩盤の存在については保守性を考慮したモデル単純化のために無視している。

上述した結果から、濃度干渉の影響を考慮した100コンパートメントモデルでは、1コンパートメントモデルに比べて、処分場内部により多くの核種量を長期間保持することができることが分かる。逆に、処分場外岩盤からみると、10万年程度まで2オーダー、10万年から100万年の間で1オーダーの処分場から放出される核種量が少なくなっている。

図8と図9は、それぞれ1コンパートメントモデルと100コンパートメントモデルにより得られた処分システム構成要素中に存在する核種の全質

量の時間変化を処分場内外に存在する核種の全質量の時間変化としてまとめ直して示したものである。双方のモデルとも、1,000万年までの時間範囲において、処分場領域内には10万年まで大部分の核種量が保持されており、10万年後においても依然として80%以上の核種量が保持されている。しかしながら、処分場外岩盤中の核種蓄積量については、100コンパートメントモデルが1コンパートメントモデルに比べて1オーダー核種蓄積の時間遅れがあり、ピーク値も1オーダー小さいことが分かる。つまり、100コンパートメントモデルの場合、濃度干渉の影響により、処分場から放出される核種量が抑制され、核種が処分場内に長期間にわたり保持される。

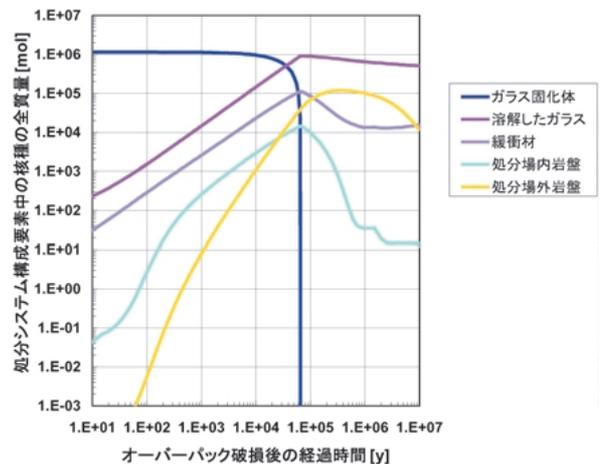


図6 処分システム構成要素中に存在する核種の全質量(mol)の時間変化(1コンパートメントモデルによる解析,ガラス固化体40,000本分換算)

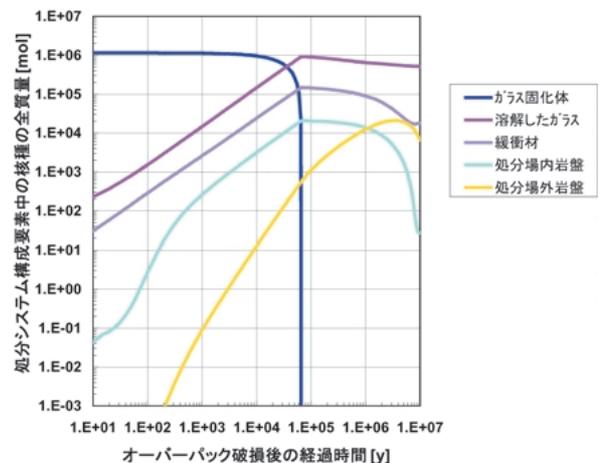


図7 処分システム構成要素中に存在する核種の全質量(mol)の時間変化(100コンパートメントモデルによる解析,ガラス固化体40,000本分換算)

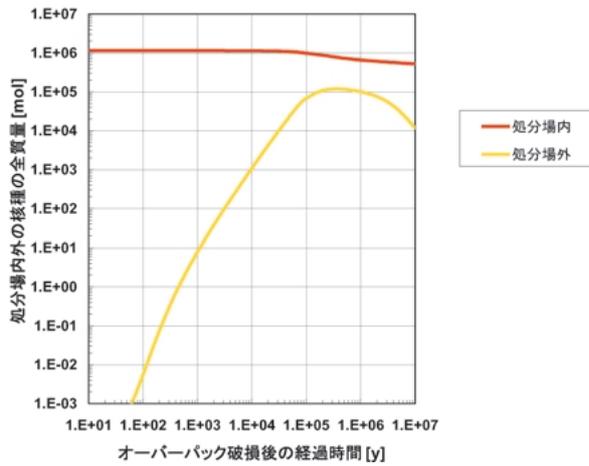


図8 処分場内に存在する核種の全質量 (mol) の時間変化 (1コンパートメントモデルによる解析, ガラス固化体40,000本分換算)

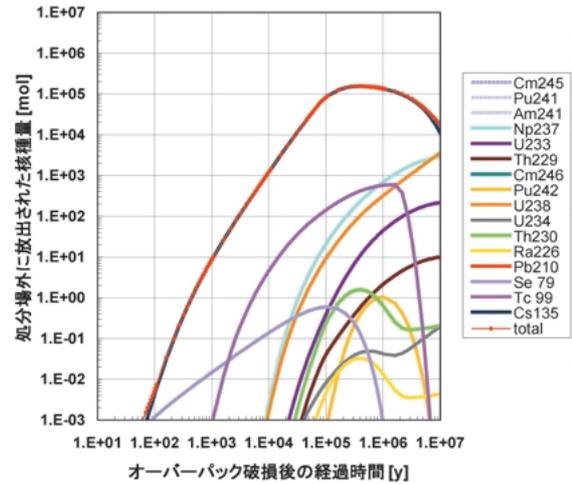


図10 処分場外岩盤へ放出された核種量 (mol) の時間変化 (1コンパートメントモデルによる解析, ガラス固化体40,000本分換算)

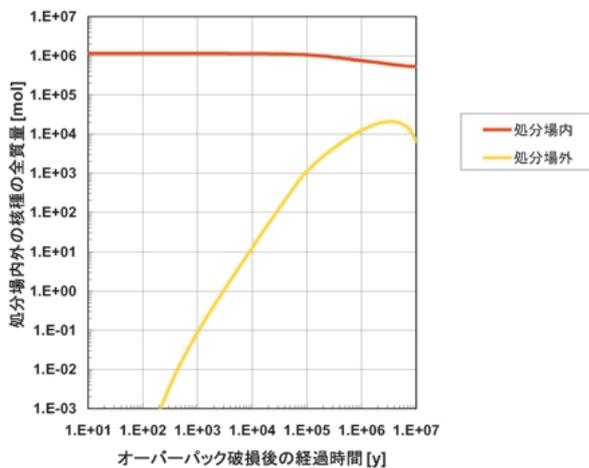


図9 処分場内に存在する核種の全質量 (mol) の時間変化 (100コンパートメントモデルによる解析, ガラス固化体40,000本分換算)

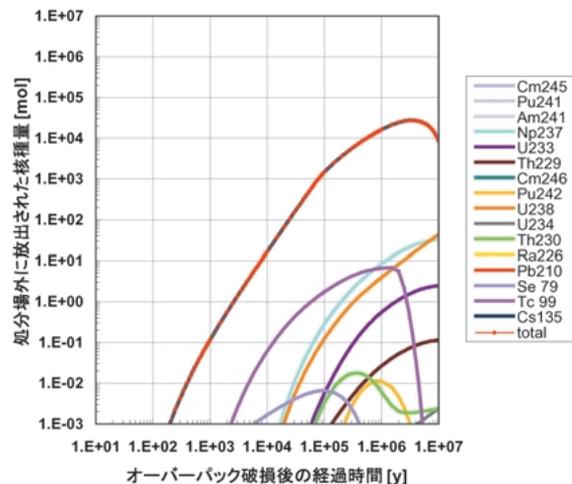


図11 処分場外岩盤へ放出された核種量 (mol) の時間変化 (100コンパートメントモデルによる解析, ガラス固化体40,000本分換算)

(3) 処分場外岩盤へ放出された核種量

図10と図11は、それぞれ1コンパートメントモデルと100コンパートメントモデルにより得られた処分場から外側岩盤中へ蓄積された核種量の時間変化を示したものである。処分場外側の岩盤においても全核種量はCs 135に支配されている。

100コンパートメントモデルでは濃度干渉の影響を受け、処分場から放出された核種の蓄積量が1コンパートメントモデルに比べて10万年までで2オーダー、10年から1,000万年で1オーダー小さい。このことは、濃度干渉を受けた場合、処分場からの核種放出は抑制され、より多くの核種が処分場内部に保持されることを意味している。

5. おわりに

本研究では、処分場領域に一樣な地下水流れが生じており、流れの経路に沿ってガラス固化体が埋設されていると仮定し、埋設されているそれぞれのガラス固化体をソースとした緩衝材中及び周辺岩盤間の核種移行を記述するモデルを構築し、コード化した。本コード(濃度干渉解析コード)は、上流側の掘削影響領域から移行してきた核種の影響により下流側の掘削影響領域中の核種濃度が上昇し、この影響を受け、緩衝材中の濃度勾配が小さくなることにより緩衝材から掘削影響領域へ放出される核種移行率が減少する濃度干渉効果をシミュレートすることができる。濃度干渉解析コードについては、既存の単一固化体を基本とし

た緩衝材中核種移行解析コード「MESHNOTE」と同一の解析条件で比較解析を実施したところ双方の結果は良好に一致し、濃度干渉解析コードが適切にコード化され、正常に機能することが確認できた。濃度干渉解析コードを使用した濃度干渉影響解析については、1コンパートメントモデルによる解析（従来の方法による解析）と100コンパートメントモデル（濃度干渉効果を考慮した解析）による解析との比較を行うことにより濃度干渉効果の影響について評価した。その結果、処分場から放出される核種移行率については、「第2次取りまとめ」のレファレンスケースの解析条件の下で、100コンパートメントモデルのケースは1コンパートメントモデルのケースに比べ約2オーダー低減することがわかった。

本研究で開発した濃度干渉効果を評価するモデルは一定流速を仮定した1次元モデルであるため、上流側に存在する全てのガラス固化体は下流側の核種移行に寄与し、得られる核種移行率は非保守的なものとなる。しかしながら、本来、岩盤中の透水係数は不均質性を有し、流れは2次元あるいは3次元的な挙動をするため、必ずしも地下水流れや核種移行が1次元モデルで近似できるとは限らない。したがって、濃度干渉効果をより現実性をもたせて評価を行うために、今後、本研究で開発したモデルを2次元化あるいは3次元化するとともに1次元モデルの適用範囲について明らかにしていく予定である。

#### 参考文献

- 1) 動力炉・核燃料開発事業団：“高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書 平成3年度”，PNC TN 1410 92 081 (1992)。
- 2) 核燃料サイクル開発機構：“わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性 - 地層処分研究開発第2次取りまとめ 分冊3”，地層処分システムの安全評価，JNC TN 1400 99 023 (1999)。
- 3) Nagra：“Kristallin I, Safety Assessment Report”，Nagra Technical Report NTB 93 22 (1994)。
- 4) Ahn, J. and Roberts, D.：“Effects of Multiple Canisters on Uranium Transport and Accumulation”，Transactions of 1997 Annual Meeting, Volume 76, American Nuclear Society, p 200 201 (1997)。
- 5) Ahn, J., Roberts, D. A. and Hatanaka, K.：“Development of Repository Wide Mass Transport Model and Effect of Multiple Canisters”，Abstract of Migration 97, Sendai, Japan, p 7 (1997)。
- 6) Hatanaka, K. and J. Ahn：“Repository wide Performance Assessment Model by Object Oriented Approach”，Proc., 8th International Conf., High Level Radioactive Waste Management, Las Vegas, Nevada, May 11 14, 1998, American Nuclear Society (1998)。
- 7) 澤田淳, 井尻裕二, 他：亀裂性岩盤を対象とした天然バリア中の核種移行解析, サイクル機構技術資料, JNC TN 8400 99 093 (1999)。
- 8) 核燃料サイクル開発機構：“わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性 - 地層処分研究開発第2次取りまとめ 分冊2”，地層処分の工学技術, JNC TN 1400 99 022 (1999)。
- 9) Wakasugi, K., Makino, et al.：“The Development of MESHNOTE Code for Radionuclide Migration in the Near Field”，JNC Technical Report, JNC TN 8400 99 095 (1999)。
- 10) 畑中耕一郎, 巨真吾, 他：“濃度干渉効果を考慮した天然バリア中の核種移行モデルの開発”，サイクル機構技術資料, JNC TN 8400 99 094 (1999)。