



パラメータの時間的变化を考慮した 核種移行解析コード(TIGER)の開発

三原 守弘 大井 貴夫

東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部

Development of TIGER Code for Radionuclide Transport in a Geochemically Evolving Region

Morihiro MIHARA Takao OOI

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

TRU廃棄物の地層処分においては、セメント系材料を使用することが検討されている。セメント系材料は長期にわたり徐々に溶解し、処分施設の化学環境が変遷していく。既存の処分施設の安全性の評価においては、この変遷の仮定で最も安全側と考えられる核種移行パラメータを設定し評価を実施している。そこで、TRU廃棄物処分施設の安全性をより現実的に評価するために、核種移行パラメータを時間的に変化させることが可能な核種移行解析コード（TIGER）を開発した。本解析コードは、人工バリアや天然バリアの核種移行を対象としている。本報では、TIGERコードの数学モデルについて紹介するとともに、解析解や他の解析コードとの比較により実施した検証計算の結果について示す。本コードを開発することにより、TRU廃棄物処分施設のより現実的な核種移行解析が可能となった。

In a transuranic (TRU) waste geological disposal facility, using cementitious materials is being considered. Cementitious materials will gradually dissolve in groundwater over the long-term. In the performance assessment report of a TRU waste repository in Japan already published, the most conservative radionuclide migration parameter set was selected considering the evolving cementitious material. Therefore, a tool to perform the calculation of radionuclide transport considering long-term geochemically evolving cementitious materials, named the TIGER code, Transport In Geochemically Evolving Region was developed to calculate a more realistic performance assessment. It can calculate radionuclide transport in engineered and natural barrier systems. In this report, mathematical equations of this code are described and validated with analytical solutions and results of other codes for radionuclide transport. The more realistic calculation of radionuclide transport for a TRU waste geological disposal system using the TIGER code could be performed.

キーワード

TRU廃棄物、地層処分、セメント系材料、変遷、核種移行解析コード、人工バリア、天然バリア、数学モデル、検証計算

TRU Waste, Geological Disposal, Cementitious Material, Geochemically Evolving, Radionuclide Transport Code, Engineered Barrier, Natural Barrier, Mathematical Equations, Validation

1. はじめに

超ウラン核種を含む放射性廃棄物のうち、含まれる α 核種の放射能濃度が比較的高い放射性廃棄物（以下、「TRU廃棄物」という）の処分につい

ては地層処分が想定され、その概念が提示されている¹⁾。このTRU廃棄物の処分概念においては、処分施設の充てん材や構造材料などに土木・建築の分野で幅広く使用されているセメント系材料を用いることが検討されている¹⁾。処分概念の一例を図1に示す。処分施設閉鎖後、地下水が処分施設を飽和すると処分施設に用いられているセメント系材料は長期にわたり徐々に溶解していき、処分施設の化学環境が変遷していく。TRU廃棄物処分概念検討書¹⁾においては、セメント系材料の長期変遷を考慮して、その変遷の過程で安全側と考えら



三原 守弘

処分材料研究グループ
TRU廃棄物処分性能評価
チーム所属
副主任研究員
TRU廃棄物処分に係わる
性能評価に従事



大井 貴夫

処分材料研究グループ
TRU廃棄物処分性能評価
チーム
チームリーダー、副主任研究
員
TRU廃棄物処分に係わる
性能評価に従事

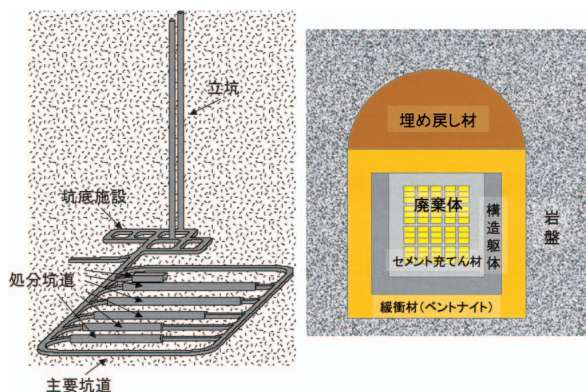


図1 TRU廃棄物の地層処分概念
(左図：処分場レイアウト概念，右図：人工バリア概念)

れる核種移行評価のパラメータを設定し評価を行っている。例えば，セメント系材料は長期的に変遷していくことから，それらに核種の拡散移行遅延や止水機能を期待していない（砂と同様な透水係数を設定している）。今後，TRU廃棄物処分施設の安全性をより現実的に評価するためには，核種移行パラメータの時間的変化を考慮した核種移行解析を行う必要がある。

既に Wakasugi, et al. により，高レベル放射性廃

棄物（ガラス固化体）の地層処分を対象にした一次元円筒座標系での人工バリア中の核種移行解析コード（MESHNOTE）が開発されている²⁾。

サイクル機構では，MESHNOTEコードの機能を考慮にいれつつ，TRU廃棄物の処分の評価が行なえるようにセメント系材料等の化学的な長期的変遷を考慮してパラメータを時間的に変化させることが可能な核種移行解析コード（TIGER：Transport In a Geochemically Evolving Region）の開発を実施してきた。本報ではその開発成果について報告する。

2. TIGERコードの概念モデル

TIGERコードの概念モデルを図2に示す。MESHNOTEコードでは，ガラス固化体（廃棄体），人工バリア（圧縮成型ベントナイト）及び掘削影響領域の核種移行を考慮しているが，TIGERコードでは，上述した領域の核種移行のみならず天然バリア及び断層などの核種移行も考慮できる。また，TRU廃棄物の中で放射能濃度の低い廃棄物は，低透水性の人工バリアを設置する必要がない可能性もあることから，人工バリア中での核種の移行として，核種の濃度勾配による移行（分子拡

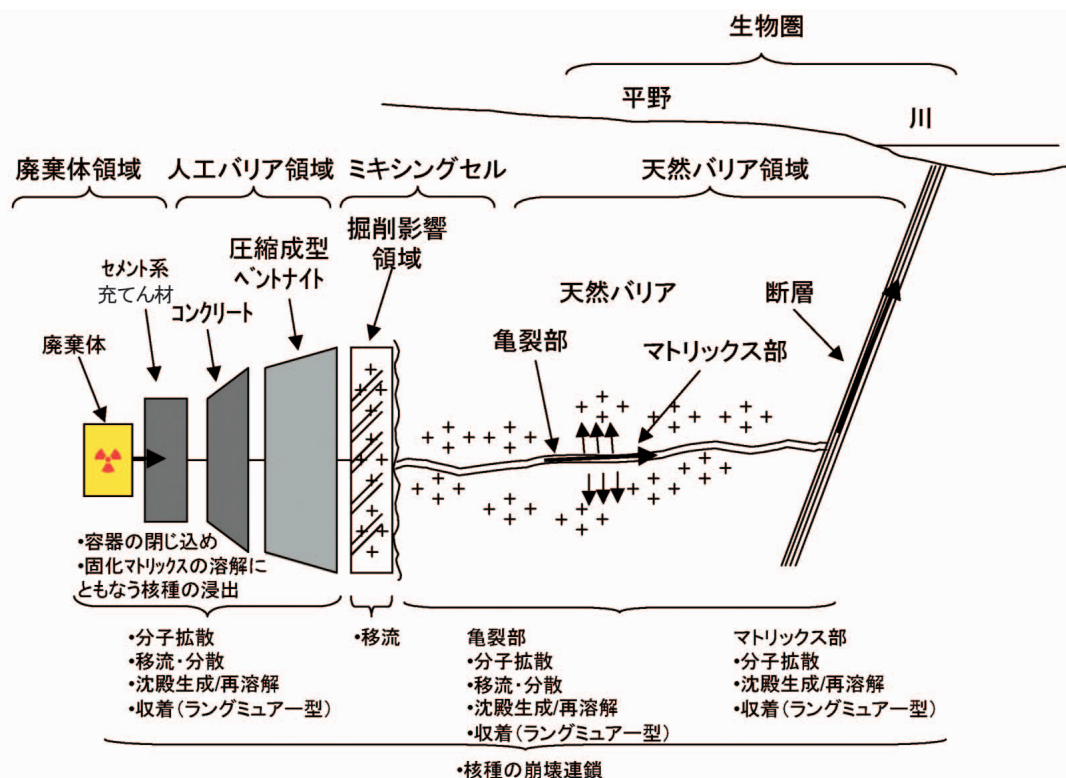


図2 TIGERコードにおける核種移行モデルの概念

散)のほかに地下水の流れによる移行(移流・分散)も考慮できるようにした。天然バリア及び断層については、亀裂性媒体も対象にすることを考慮して、亀裂中の分子拡散及び移流・分散に加えて亀裂表面から岩体内部(マトリックス)への分子拡散を考慮した。これらの核種移行を表現する方程式を直交一次元座標系における有限差分法を用いて数値解析し、生物圏への核種の移行率を算出可能とした。さらに、生物圏の評価で得られる線量換算係数を別途入力することにより、線量の出力も可能である。

また、MESHNOTEコードと共通する主要な機能は以下のとおりである。

- ・複数の崩壊連鎖(崩壊連鎖内での分岐/合流含む)
- ・沈澱生成/再溶解(同位体間での溶解度の分割を含む)
- ・収着(線形収着, ラングミュアー(Langmuir)型の収着等温式に基づく非線形収着)
- ・内側境界条件(溶解度制限, 廃棄体との調和溶解)
- ・人工バリア及び天然バリアの境界条件(ミキシングセル)

MESHNOTEコードと同様にタイムステップの自動設定により計算時間の低減が実現されている。なお、TIGERコードの機能の一部である天然バリア領域については、既に地層処分研究開発第2次取りまとめの変動ケースの解析に用いられている³⁾。TIGERコードの概念モデルを基に廃棄体領域、人工バリア領域、ミキシングセル及び天然バリア領域の各々の領域について核種移行を扱う数学モデルについて記述する。

3. 核種移行の数学モデル

3.1 廃棄体領域

図2に示したように廃棄体中の核種は固化マトリックスの溶解にともなってセメント系充てん材に浸出する。マトリックスの溶解期間(T_n [y])を設定することにより核種の浸出率を設定することができる。廃棄体の固化マトリックス中の核種 n の量を A_n [mol]とすると A_n [mol]の時間依存性を以下の式で表すことができる。

$$\frac{\partial A_n}{\partial t} = -\lambda_n A_n + \sum_p \lambda_p A_p \quad (1)$$

t は廃棄物処分後の期間[y], λ_n は核種 n の崩壊定数 $[1/y]$ ($=\ln(2)/T_{1/2,n}$; $T_{1/2,n}$ は核種 n の半減期[y]), λ_p 及び A_p は親核種の崩壊定数及び核種量である。廃棄体が強頑な容器に封入された場合を想定すると容器が破損するまでの期間 T_{cont} [y]を用いてセメント系充てん材への核種の浸出率(W_n)は以下のように与えられる。

$$W_n = \begin{cases} 0 & (t < T_{cont}) \\ A_n / T_n & (T_{cont} \leq t \leq T_{cont} + T_n) \\ 0 & (T_{cont} + T_n < t) \end{cases} \quad (2)$$

廃棄体領域で考慮されている核種移行プロセスは、分子拡散、移流・分散、沈澱生成/再溶解、収着及び核種の崩壊連鎖である。ここで、 N 個の放射性核種及び E 個の元素が対象とする空間に存在すると仮定する。核種 n の濃度は、液相に溶解している(dissolved)核種の濃度 C_d^n [mol/m³-liquid], 固相に収着している(sorbed)核種の濃度 C_s^n [mol/m³-solid], 沈澱している(precipitated)核種の濃度 C_p^n [mol/m³]として表すことができる。核種 n の全濃度 C_p^n [mol/m³]は以下の式で表すことができる。

$$c^n = \theta c_d^n + (1 - \theta) c_s^n + c_p^n \quad (3)$$

ここで、 θ は廃棄体領域の間隙率[-]である。廃棄体領域の体積 V [m³]に含まれる全体の核種量 k^n [mol]は Vc^n となる。元素に着目すると元素 e の元素量 K^e [mol/m³]は次式となる。

$$K^e = \sum_n k^n \quad (4)$$

核種の濃度を元素濃度として考え液相に溶解している元素濃度[mol/m³-liquid], 固相に収着している元素濃度[mol/m³-solid], 沈澱元素濃度[mol/m³]をそれぞれ C_d^e , C_s^e , C_p^e とする核種濃度と元素濃度の関係は以下の式で表される。

$$c_d^n = \gamma^n C_d^e, \quad c_s^n = \gamma^n C_s^e, \quad c_p^n = \gamma^n C_p^e \quad (5)$$

$$C_d^e = \sum_n c_d^n, \quad C_s^e = \sum_n c_s^n, \quad C_p^e = \sum_n c_p^n \quad (6)$$

$$\gamma^n = k^n / K^e \quad (7)$$

ここで γ^n は、同じ元素の核種の総量に対する核種 n の割合[-]である。領域の体積 V を用いると元素の総量 K^e は、以下ようになる。

$$K^e = V(\theta C_d^e + (1 - \theta)C_s^e + C_p^e) \quad (8)$$

固相に収着した元素の濃度 C_s^e は、ラングミュアー型の収着等温式を仮定することにより液相の元素濃度 C_d^e によって以下のように表現することができる。

$$C_s^e = \rho \frac{\alpha^e C_d^e}{1 + \beta^e C_d^e} \quad (9)$$

ここで、 ρ は廃棄体領域媒体の真密度 [kg/m³] であり、 α^e と β^e は対象としている元素の廃棄体領域媒体に対するラングミュアー定数である。線形収着を仮定すると β^e は、0 [m³/mol] となり、 α^e は収着分配係数 [m³/kg] に相当する。ここで有効遅延係数 R_{eff} [-] を以下の式で定義する。

$$R_{eff} = 1 + \frac{C_s^e}{C_d^e} = 1 + \frac{\rho \alpha^e}{1 + \beta^e C_d^e} \quad (10)$$

元素の沈澱濃度 C_p^e は、元素の溶解度 C_*^e [mol/m³] に関連付けられる。ここで沈澱容量（沈澱が発生する時の液相、固相の元素量の最大値） K_*^e [mol] を以下の式で定義する。

$$K_*^e = V \left(\theta C_*^e + (1 - \theta) \frac{\rho \alpha^e C_*^e}{1 + \beta^e C_*^e} \right) \quad (11)$$

廃棄体領域における元素の沈澱量は、以下の式で表すことができる。

$$VC_p^e = \max(K^e - K_*^e, 0) \quad (12)$$

ここで、 $C_p^e > 0$ であるならば、液相中の核種 n の濃度 c_d^n [mol/m³] は次式となる。

$$c_d^n = \frac{k^n}{K^e} C^e \quad (13)$$

$C_p^e \leq 0$ 、すなわち沈澱が存在しない場合には、液相中の核種 n の濃度 c_d^n [mol/m³-liquid] は次式となる。

$$c_d^n = \frac{k^n}{\theta V R_{eff}} \quad (14)$$

廃棄体領域の任意の位置 x [m] での核種 n の総量 k^n [mol] の時間変化は次式で与えることができる（廃棄体領域は、1つのセルとして表現しているため、廃棄体領域の核種濃度は均一である）。

$$\frac{\partial k^n}{\partial t} = D^e \frac{\partial^2 (V \theta c_d^n)}{\partial x^2} - \frac{\partial (V q \theta c_d^n)}{\partial x} + \sum_p \lambda_p k_p^n - \lambda_n k^n \quad (15)$$

右辺の第一項は距離 x [m] における拡散・分散による核種 n の流入・流出項を、第二項は移流による流入・流出項を表している。第三項は、親核種からの生成項を、第四項は崩壊による消失項を示している。

ここで、 D^e ：間隙水中の元素 e の拡散・分散係数 [m²/y]

$$D^e = D_p^e + \frac{d_L q}{\theta}$$

D_p^e ：間隙水中の元素 e の拡散・分散係数 [m²/y]（拡散支配の場合は、 $D^e = D_p^e$ となる）

d_L ：分散長 [m]

q ：ダルシー流速 [m/y]

である。

3.2 人工バリア領域

人工バリア領域で考慮されている核種移行プロセスは、分子拡散、移流・分散、沈澱生成／再溶解、収着及び核種の崩壊連鎖とともに廃棄体領域で考慮されているものと同じであり、その数学モデルも同じである。

廃棄体領域と人工バリア領域の境界条件は、以下の式で与えられる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial k^n}{\partial t} = & -D^e \frac{\partial^2 (V \theta c_d^n)}{\partial x^2} \bigg|_{x=x_{obs_in}} + \frac{\partial (V q \theta c_d^n)}{\partial x} \bigg|_{x=x_{obs_in}} \\ & + \sum_p \lambda_p k_p^n - \lambda_n k^n \end{aligned} \quad (16)$$

人工バリア領域とミキシングセルの境界条件は、ミキシングセル内の地下水の流量を Q [m³/y] とすると以下の式で与えられる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial k^n}{\partial t} = & -D^e \frac{\partial^2 (V \theta c_d^n)}{\partial x^2} \bigg|_{x=x_{obs_out}} + \frac{\partial (V q \theta c_d^n)}{\partial x} \bigg|_{x=x_{obs_out}} \\ & - Q c_d^n + \sum_p \lambda_p k_p^n - \lambda_n k^n \end{aligned} \quad (17)$$

3.3 ミキシングセル

人工バリア領域及び天然バリア領域の境界にお

いて、掘削影響領域を想定したミキシングセルを設定することができる。ミキシングセルは、一つのセルで表現される。ミキシングセル内の核種の総量を以下の式で表すことができる。なお、ミキシングセルでは、核種の収着及び沈澱は考慮していない。

$$\frac{\partial k^n}{\partial t} = -Qc_d^n + \sum_p \lambda_p k_p^n - \lambda_n k^n \quad (18)$$

さらに、TIGERコードでは、人工バリア外側境界条件を0濃度境界（ミキシングセル流量を大きくすることと等価）として設定できる。また、ミキシングセルを考慮せずに人工バリア領域と天然バリア領域との濃度が連続した解析も行なうことができる。

3.4 天然バリア及び断層領域

天然バリア及び断層領域についても人工バリア領域と同様な核種移行プロセスが考慮されているが、2章で述べたように亀裂性の媒体を考慮しているため、核種の亀裂表面からのマトリックスへの分子拡散を考慮している。そのため核種移行の数学モデルは、次式で与えられる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial k^n}{\partial t} = & D^e \frac{\partial^2 (V\theta c_d^n)}{\partial x^2} - \frac{\partial (Vq\theta c_d^n)}{\partial x} \\ & + \sum_p \lambda_p k_p^n - \lambda_n k^n + \delta F^n \end{aligned} \quad (19)$$

ここで、 δ は亀裂単位体積あたりのマトリックスへの分子拡散に関する寄与面積 [m²/m³]（亀裂の体積と対象とするマトリックスへの分子拡散の面積比）である。亀裂からマトリックスへの核種nの消出項 F^n [mol/y] は次式となる。

$$F^n = D^{m-e} \theta^m \frac{\partial k_m^n}{\partial y} \bigg|_{y=0} \quad (20)$$

ここで、

y : マトリックスへの分子拡散深さ [m]

k_m^n : 核種nのマトリックス中の総量 [mol]

D^{m-e} : 元素eのマトリックス間隙水中の拡散係数 [m²/y]

θ^m : マトリックスの間隙率 [-]

$$\frac{\partial k_m^n}{\partial t} = D^{m-e} \frac{\partial^2 (V\theta_m c_d^n)}{\partial x^2} + \sum_p \lambda_p k_p^n - \lambda_n k^n \quad (21)$$

断層から生物圏への核種の移行率を求めることができるため、線量への換算係数を乗ずることにより線量としての出力も可能である。

3.5 時間依存を考慮できるパラメータ

TIGERコードの数学モデルについて述べたが、数学モデルにおける時間依存性が考慮できるパラメータについて以下にまとめる。

- ・ダルシー流速
- ・間隙水中の拡散係数
- ・間隙率
- ・分散長
- ・溶解度
- ・ラングミュア一定数 (α , β)

ミキシングセルを除いてすべての領域でこれらのパラメータの時間的変化を考慮できる。ミキシングセルについては、流量のみ時間的変化が考慮できる。

3.6 数学モデルの離散化

上述した数学モデルは、非線形かつ非定常であり解析解を得る条件は限られている。したがって様々な条件にて解を得るためには数値的解法に頼らざるを得ない。TIGERコードでは、解析対象とする領域をセルに分割し有限差分法を用いて解を得る。マトリックス拡散が考慮されている天然バリア領域を例にとると、亀裂部分の各々のセルに対して以下の式が成り立つ。

$$\frac{dk^n}{dt} = F_U - F_D - F_M + VR^n + \sum_{ep} \lambda_{ep} k_p^n - \lambda_n k^n \quad (22)$$

ここで、 F_U , F_D 及び F_M は、それぞれ当該セルの上流側セルからの核種のフラックス、下流側への核種のフラックス及びマトリックス領域への核種のフラックスを示す。これらのフラックスは、以下のように定義される。

$$F_U^n = \chi q c_U^n - \theta \chi D \frac{(c_U^n - c^n)}{\frac{1}{2} \delta x} \quad (23)$$

$$F_D^n = \chi q c_D^n - \theta \chi D \frac{(c^n - c_D^n)}{\frac{1}{2} \delta x} \quad (24)$$

$$F_M^n = -\theta \chi D \frac{(c^n - c_M^n)}{\frac{1}{2} \delta x} \quad (25)$$

ここで、 δx は当該セルの長さを示している。分割したセル数の連立方程式を解くことによって各セルにおける核種の存在量 k を求めることができる。

4. 検証計算

3章で述べた数学モデルが解析コードにおいて正しく解かれているかを確認しておく必要がある。ここでは、解析解や上述した数学モデルが用いられている数値解析コードとの比較を行なうことによりTIGERコードの基本的な機能について確認を行なう。人工バリア領域についてはMESHNOTEコードを、天然バリア領域についてはMATRICSコードを用いることとする。これらのコードは、既に検証作業が実施されている²⁾⁴⁾。

4.1 解析解との比較

核種移行の数学モデルは、限られた条件において解析解が与えられる。ここでは、解析解を用いることにより、TIGERコードの基本的な核種移行モデルについて検証を行なう。

(1) 拡散支配の場合 (検証問題1)

核種の崩壊、収着及び沈澱を考慮しなければ、拡散支配における人工バリア領域の液相中の核種濃度 c_d [mol/m³-liquid] は以下の解析解で与えられる⁵⁾。

$$c_d = c_d^* \operatorname{erfc}\left(\frac{x}{2\sqrt{D^e t}}\right) \quad (26)$$

この解析解は、半無限遠の人工バリア領域を仮定し、境界条件として廃棄体領域と人工バリア領域との境界の核種濃度 $c_d|_{x=0} = C_d^*$ 、半無限遠の核種濃度 $c_d|_{x=\infty} = 0$ としたものである。この解析解で得られた人工バリア領域での核種濃度のプロファイルとTIGERコードで得られた核種濃度プロファイルと比較する。 $C_d^* = 1$ [mol/m³]、 $D^e = 0.03$ [m²/y]として解析を行なった。なお、TIGERコードでは、有限な領域を解析対象としているため、人工バリア領域の長さを100 [m]と仮定し、人工バリア領域10[m]までの核種濃度プロファイルと比較した。分割数は、200とした。人工バリア領域10[m]における核種濃度プロファイルを図3に示す。経過年、100年、1,000年、10,000年において、解析解とTIGERコードとの解析結果は一致しており、10,000年の濃度プロファイルの解析解との

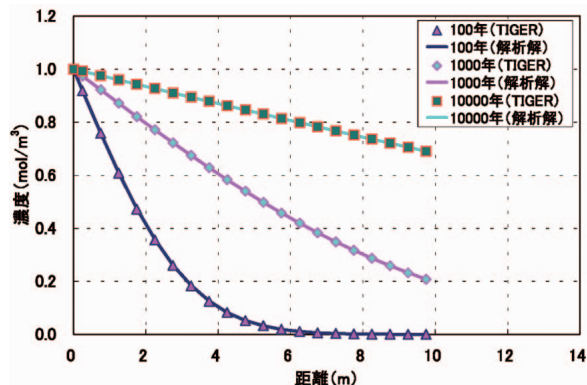


図3 TIGERコードの解析結果と解析解との比較 (拡散支配, 検証問題1)

相対誤差(解析解との差の絶対値と解析解との比)は7%以内であった。

(2) 移流支配の問題 (検証問題2)

移流を考慮した場合には、人工バリア領域の液相中の核種濃度 c_d [mol/m³-liquid] は以下の解析解で与えられる⁶⁾。

$$c_d = \frac{1}{2} c_d^* \left\{ \operatorname{erfc}\left(\frac{x - \frac{qt}{\theta}}{2\sqrt{D^e t}}\right) + \exp\left(\frac{qx}{\theta D^e}\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{x + \frac{qt}{\theta}}{2\sqrt{D^e t}}\right) \right\} \quad (27)$$

この解析解も、半無限遠の人工バリア領域を仮定し、境界条件として廃棄体領域と人工バリア領域との境界の核種濃度 $c_d|_{x=0} = C_d^*$ 、半無限遠の核種濃度 $c_d|_{x=\infty} = 0$ としたものである。(1)の条件と境界条件及び分子拡散係数を同じ条件に設定し、ダルシー流速 $q = 0.3$ [m/y]、間隙率 $\theta = 1.0$ とした。人工バリア領域10[m]における核種濃度プロファイルを図4に示す。経過年、1年、10年、100年において、移流を考慮した解析解もTIGERコー

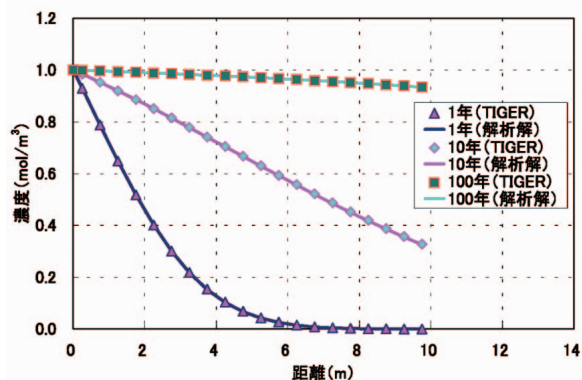


図4 TIGERコードの解析結果と解析解との比較 (移流支配, 検証問題2)

ドの解析結果とよく一致しており、100年の濃度プロファイルの解析解との相対誤差は0.08%以内であった。

4.2 MESHNOTEコードとの比較

4.1においては、基本的な核種移行モデルについて解析解との比較を行なった。ここでは、核種の崩壊を考慮した解析を同じ数値計算コードのMESHNOTEコードの計算結果と比較し、TIGERコードのモデルについて検証を行なう。MESHNOTEコードは円筒一次元の人工バリア領域を対象としており、人工バリア領域の内側境界条件と外側境界条件の面積が異なる。TIGERコードにおいて、内側と外側の面積をそれぞれMESHNOTEコードでの設定値と等しくなるように直交座標系で設定し解析を実施した。なお、計算対象とする体系は、Wakasugi, et al.の報告²⁾に基づくものとした。

(1) 単一崩壊系列核種を対象とした拡散支配問題（検証問題3）

解析体系及び解析対象崩壊系列核種（4n+1系列）とその移行パラメータをそれぞれ表1、2及び3にまとめる。人工バリア領域外側は、ミキ

シングセルとして設定し、解析対象期間は10年とした。

両解析コードによるミキシングセルからの核種の移行率の計算結果を図5に示す。両結果はよく一致している。さらに、今回想定した解析体系において、円筒系座標を一次元直交座標系で近似できている。

なお、TIGERコードの移行率（全核種合計）の最大値は 17.7×10^7 [Bq/y]、MESHNOTEコードでは 18.2×10^7 [Bq/y] であった。

(2) 複数の崩壊系列核種を対象とした拡散支配問題（検証問題4）

(1)の4n+1系列に他の3つの崩壊系列を追加することにより、核種の溶解度が分割される系の計算を実施した。追加した3つの系列の核種に特有なパラメータ設定以外の解析条件は4.2(1)（検証問題3）と同じである。追加した3つの系列の核種のパラメータ設定を表4及び表5に示す。

本解析では、4つの崩壊系列を同時に計算している。4n+1系列の両解析コードによるミキシングセルからの核種の移行率の計算結果を図6に示す。両結果はよく一致している。図5との比較において、U-233の移行率は低下しており、Uの沈

表1 検証問題3で設定した解析条件

	MESHNOTEコード	TIGERコード
対 象 崩 壊 系 列	Cm-245→Pu-241→Am-241→Np-237→U-233→Th-299	
人工バリア領域の内側の半径 (m)	0.41	—
人工バリア領域の外側の半径 (m)	1.11	—
人工バリア領域の高さ (m)	2.14	—
人工バリア領域の内側面積 (m ²)	—	5.51
人工バリア領域の外側面積 (m ²)	—	14.93
人 工 バ リ ア 厚 さ (m)	—	0.70
分 割 数 (-)	40	
間 隙 率 (-)	0.41	
人 工 バ リ ア の 真 密 度 (kg/m ³)	2,700	
ミキシングセル流量 (m ³ /y)	0.001	

表2 検証問題3で設定した核種の半減期及びインベントリー

核 種	半減期 (y)	インベントリー (mol)
4n+1系列		
Cm-245	8.50×10^3	7.29×10^3
Pu-241	1.44×10^1	1.23×10^3
Am-241	4.32×10^2	1.88×10^1
Np-237	2.14×10^6	3.74
U-233	1.59×10^5	1.17×10^3
Th-229	7.34×10^3	2.51×10^6

表3 検証問題3で設定した核種の移行パラメータ

元素	溶 解 度 (mol/m ³)	収着分配係数 (m ³ /kg)	間隙水中の拡散係数 (m ² /y)
Cm	2×10^4	10	0.03
Pu	3×10^5	10	
Am	2×10^4	10	
Np	2×10^5	1	
U	8×10^6	1	
Th	5×10^3	1	

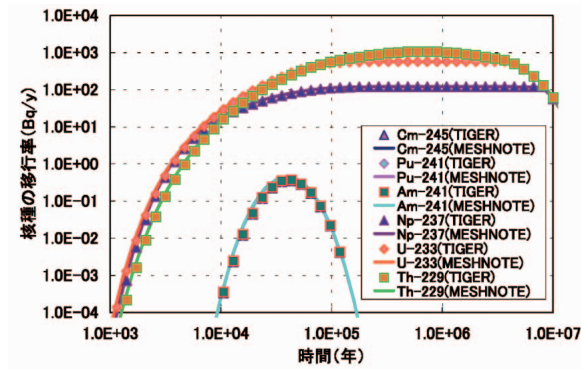


図5 TIGERコードとMESHNOTEコードとの解析結果との比較
(単一崩壊系列核種, 検証問題3)

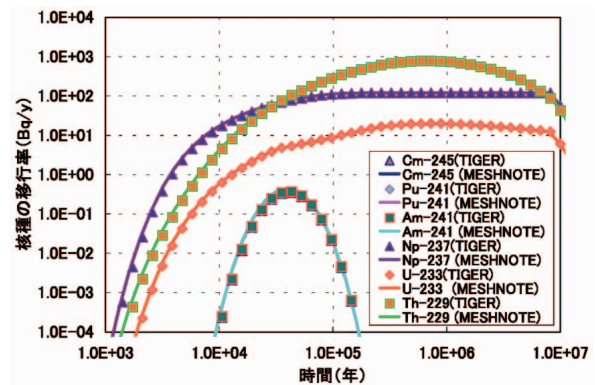


図6 TIGERコードとMESHNOTEコードとの解析結果との比較
(複数崩壊系列核種, 検証問題4)

表4 検証問題4で設定した核種の半減期及びインベントリ

	半減期 [y]	インベントリ [mol]
4n+2系列		
Cm-246	4.73×10^3	8.29×10^{-4}
Pu-242	3.87×10^5	1.12×10^{-2}
U-238	4.47×10^9	1.31×10^1
U-234	2.45×10^5	1.50×10^{-2}
Th-230	7.70×10^4	5.37×10^{-5}
Ra-226	1.60×10^3	2.62×10^{-7}
Pb-210	2.23×10^1	3.48×10^{-9}
4n+3系列		
Am-243	7.38×10^3	4.01×10^{-1}
Pu-239	2.41×10^4	1.60×10^{-1}
U-235	7.04×10^8	1.46×10^{-1}
Pa-231	3.28×10^4	2.23×10^{-6}
Ac-227	2.18×10^1	1.48×10^{-9}
4n系列		
Pu-240	6.54×10^3	1.78×10^{-1}
U-236	2.34×10^7	1.05×10^{-1}
Th-232	1.41×10^{10}	6.50×10^{-6}

表5 検証問題4で設定した核種の移行パラメータ

	溶解度 [mol/m ³]	収着分配係数 [m ³ /kg]	間隙水中の拡散係数 [m ² /y]
Ra	1×10^{-9}	0.01	0.03
Pb	2×10^{-3}	0.1	
Pa	2×10^{-5}	1	
Ac	2×10^{-4}	1	

澱生成／再溶解の分配による影響が現れている。今回の解析で対象としている崩壊系列において、Npは4n+1系列のみで考慮されているため、図5と図6の移行率は同じ値を示している。

なお、TIGERコードの移行率（全核種合計）の最大値は 12.7×10^6 [Bq/y]、MESHNOTEコードで

は 12.1×10^6 [Bq/y] であった。

4.3 MATRICSコードとの比較

MATRICESコードの解析結果との比較により、天然バリア領域の核種移行解析の検証を行なう。MATRICESコードでは、単一の崩壊系列核種を対象に、亀裂中の核種の移流・分散と線形収着を考慮したマトリックスへの拡散が考慮されている。これらの数学モデルをもとに数値逆Laplace変換法を利用して天然バリア領域からの核種の移行率が求められる⁷⁾。ここでは、MATRICESコードと天然バリア領域からの核種の移行率の計算結果との比較により、TIGERコードの崩壊系列、亀裂中の核種の移流・分散、線形収着を考慮したマトリックスへの拡散のモデル（検証問題5）について検証を行なう。解析の対象をTRU廃棄物処分概念検討書における天然バリア領域¹⁾とする。

(1) 解析対象とした体系

亀裂長さを100[m]、亀裂開口幅を 4.5×10^{-5} [m]、岩体マトリックスへの分子拡散深さを0.1 [m]とした体系を解析対象とした。

(2) 対象核種と核種移行パラメータ

対象核種は検証問題3と同じ4n+1系列である。核種のパラメータ設定を表6にまとめる。解析対象とした核種をTRU廃棄物処分概念の設定条件で解析すると、その核種の移行率のピークが最大でも 10^{-6} [Bq/y]以下と小さな値となり、その自体の意味が薄れてくる。そのため亀裂内流速を50[m/y]と設定して解析を行なった。TIGERコードでは、亀裂内やマトリックス内の核種の沈澱を考慮することができるため、MATRICESコードとの

比較のため、元素の溶解度を 10^{10} [mol/m³] と非常に大きな値に設定した。

(3) 境界条件

亀裂入り口において、核種の移行率を与えるものとする。検証問題3でTIGERコードで得られたミキシングセルからの核種の移行率を亀裂入り口の境界条件として設定した。また、亀裂の出口については、核種の濃度が0 [mol/m³] となるように解析した。

(4) 解析結果

両解析コードによる天然バリアからの核種の移行率の計算結果を図7に示す。10⁵年以降の移行率の立ち上がりにおいてTIGERコードの移行率が若干高めているが、それ以降は非常によく一致している。

なお、TIGERコードの移行率（全核種合計）の最大値は、24.4 [Bq/y]、MATRICSコードでは23.8 [Bq/y] であった。

4.4 パラメータの時間的変化を考慮した解析

核種の移行が拡散支配に限定されているが、MESHNOTEコードも核種の移行パラメータ（溶

解度、ラングミュア一定数、間隙水中の拡散係数及びミキシングセル流量）の時間変化を考慮することができる。MESHNOTEコードとの比較によりパラメータの時間変化の機能について検証する（検証問題6）。

(1) 解析条件

検証問題3を基本にして、核種移行パラメータの溶解度、収着分配係数（線形収着を想定するためラングミュア一定数の α を設定、 β は0とする）及び境界条件のミキシングセル流量が変化した場合を想定する。4n系列において初期のインベントリーが大きく、半減期の最も長いNp-237については、10⁵年以降に溶解度を1桁低下、収着分配係数を1桁上昇及び間隙水中の拡散係数を1桁低下させた解析を行った。間隙水中の拡散係数については、全核種を対象とした。解析対象期間は10⁷年である。

(2) 解析結果

溶解度、収着分配係数及び間隙水中の拡散係数を時間変化させた解析結果を図8～10に示す。

核種移行パラメータを時間変化させたケースにおいても図8～10に示すようにTIGERコードとMESHNOTEコードの結果は一致している。本解析コードの特徴であるパラメータの時間変化の機能も正しく解析している。

以上のようにTIGERコードの数学モデルが解析解や同等の機能を持つ数値解析コードによって正しく解かれていることが検証された。

表6 検証問題5で設定した核種の移行パラメータ

元素	収着分配係数 [m ² /kg]	亀裂内間隙水中の拡散係数 [m ² /y]	マトリックス間隙水中の係数 [m ² /y]
Cm	5	0.005	0.005
Pu	1		
Am	5		
Np	1		
U	1		
Th	1		

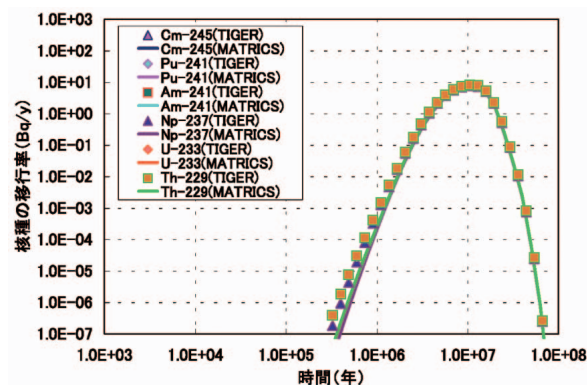


図7 TIGERコードとMATRICSコードとの解析結果との比較（単一崩壊系列核種、マトリックス拡散、検証問題5）

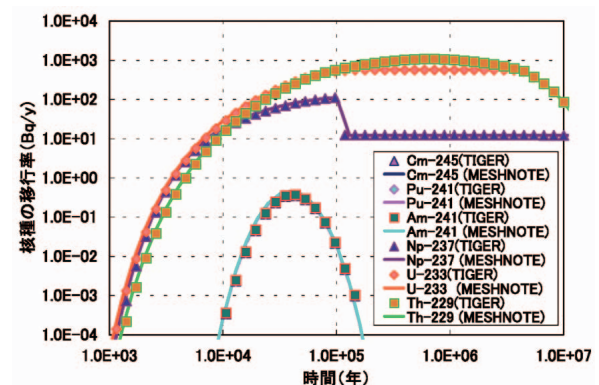


図8 TIGERコードとMESHNOTEコードとの解析結果との比較（溶解度の時間変化、検証問題6）

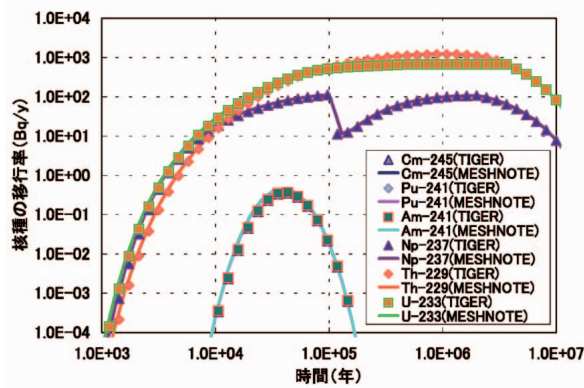


図9 TIGERコードとMESHNOTEコードとの解析結果との比較
(収着分配係数の時間変化, 検証問題6)

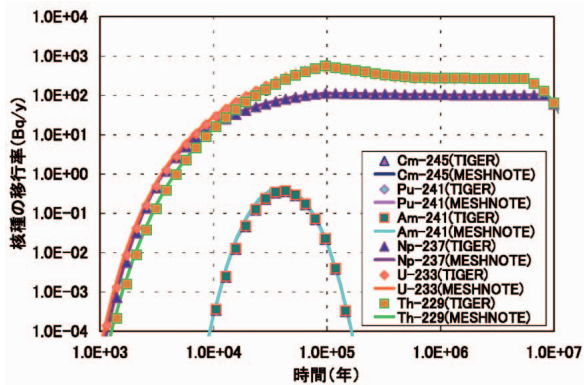


図10 TIGERコードとMESHNOTEコードとの解析結果との比較
(間隙水中の拡散係数の時間変化, 検証問題6)

5. セメント系材料の時間的変遷を考慮したTRU廃棄物の地層処分の解析

TRU廃棄物の地層処分において、セメント系材料の変遷を考慮して、核種移行パラメータを時間変化させた解析結果を例示する。

5.1 解析方法

TRU廃棄物処分概念検討書¹⁾で検討された結晶質岩での処分概念を想定し、核種のインベントリーが最も大きな廃棄体グループ2（使用済み核燃料を再処理する際に発生したせん断被覆管を圧縮処理した廃棄物）を評価の対象とし、セメント系材料の長期変遷にともなうセメント系充てん材中の核種の溶解度、収着分配係数及び間隙水中の拡散係数の時間的変化を考慮する。セメント系材料の変遷は、Bradbury and Sarrot⁷⁾が定義したようにRegion I～IIIに分けることができる。TRU廃

棄物処分概念検討書で示されている核種の溶解度及び収着分配係数を用いる。間隙水中の拡散係数については、TRU廃棄物処分概念検討書では、セメント系充てん材に核種の拡散移行遅延機能を想定していないため、設定されていない。土木学会のコンクリート標準示方書⁸⁾において、塩化物イオンのみかけの拡散係数がコンクリートの水・セメント比の関係で示されているため、これを参考に設定する。その他に間隙率の時間変化も考慮した。各々のRegionで設定されたセメント系充てん材の間隙率、核種の溶解度、収着分配係数及び間隙水中の拡散係数を表7にまとめる。

また、各々のRegionの期間をTRU廃棄物処分概念で検討されたように以下のように設定する。

Region I	Region II	Region III
～6,000年	～40,000年	40,000年以降

TRU廃棄物処分概念検討書¹⁾では、基本的なケース（ケース0）に廃棄体からのガス発生の影響が考慮されている。しかしながら、ガスの発生は核種の移行に影響しておらず²⁾、ここでは評価を簡略化するために考慮しないこととし、その他の基本条件は、TRU廃棄物処分概念検討書で示されたケース0と同じ設定とした。

5.2 解析結果

パラメータの時間的変化を考慮しない場合と、した場合の全線量の経時変化を図11に示す。ミキシングセル外側及び天然バリア外側で得られた核種の移行率に線量換算係数を乗ずることにより線量に換算した。天然バリアの長さは100[m]である。

パラメータの時間的変化を考慮しない場合のケースの結果は、TRU廃棄物処分概念検討書¹⁾と同じ結果となっていることを確認した。パラメータの時間的変化を考慮した、より現実的な評価では、ミキシングセル外側の線量がRegion I及びIIで大きく低減されている。ミキシングセル外側で線量を支配している核種を調べるとSr-90であった。セメント系材料のSrに対する溶解度及び収着分配係数は、時間依存がないものとしているので、セメント系材料中の拡散による移行遅延が大きく寄与している。セメント系材料がRegion IIIとなると、ほとんどの核種の収着分配係数は低下する。

表7 TRU廃棄物の地層処分の解析で設定したセメント系材料に対する核種の移行パラメータ

ケース	パラメータの時間的変化を考慮しない場合		パラメータの時間的変化を考慮した場合					
	保守的設定		Region I		Region II		Region III	
真密度	2,500[kg/m³]							
間隙率	0.35[－]		0.15[－]				0.35[－]	
間隙水中の 拡散係数	1.3×10 ⁻¹ [m²/y] (4.0×10 ⁻⁹ [m²/s])		3.1×10 ⁻⁴ [m²/y] (9.8×10 ⁻¹² [m²/s])＊				1.3×10 ⁻¹ [m²/y] (4.0×10 ⁻⁹ [m²/s])	
	溶解度 [mol/m³]	収着分配係数 [m³/kg]	溶解度 [mol/m³]	収着分配係数 [m³/kg]	溶解度 [mol/m³]	収着分配係数 [m³/kg]	溶解度 [mol/m³]	収着分配係数 [m³/kg]
C	1×10 ⁻²	0.005	7×10 ⁻⁵	0.005	7×10 ⁻²	1	1×10 ⁻²	5
Cl	易溶性	0.0001	易溶性	0.001	易溶性	0.001	易溶性	0.0001
Co	2×10 ⁻¹	0.01	2×10 ⁻¹	0.1	3×10 ⁻²	0.1	2×10 ⁻³	0.01
Ni	2×10 ⁻¹	0.01	2×10 ⁻¹	0.1	3×10 ⁻²	0.1	2×10 ⁻³	0.01
Se	2×10 ⁻³	0.0001	2×10 ⁻³	0.001	2×10 ⁻³	0.001	2×10 ⁻³	0.0001
Sr	1×10 ⁻¹	0.001	1×10 ⁻¹	0.001	1×10 ⁻¹	0.001	1×10 ⁻¹	0.001
Zr	2×10 ⁻²	0.1	2×10 ⁻²	1	4×10 ⁻³	1	2×10 ⁻⁴	0.1
Nb	易溶性	0.1	易溶性	1	易溶性	1	易溶性	0.1
Mo	1×10 ⁰	0.0001	1×10 ⁰	0.001	1×10 ⁰	0.001	1×10 ⁰	0.0001
Tc	4×10 ⁻⁵	0.1	4×10 ⁻⁵	1	4×10 ⁻⁵	1	4×10 ⁻⁵	0.1
Pd	3×10 ⁻⁴	0.01	3×10 ⁻⁴	0.1	3×10 ⁻⁵	0.1	7×10 ⁻⁶	0.01
Sn	5×10 ²	0.1	5×10 ²	1	4×10 ²	1	3×100	0.1
I	易溶性	0.0001	易溶性	0.001	易溶性	0.001	易溶性	0.0001
Cs	易溶性	0.001	易溶性	0.001	易溶性	0.01	易溶性	0.01
Pb	易溶性	0.05	易溶性	0.5	易溶性	0.5	3×10 ⁻¹	0.05
Ra	1×10 ⁻³	0.05	1×10 ⁻³	0.05	1×10 ⁻³	0.05	1×10 ⁻³	0.05
Ac	4×10 ⁻⁶	1	3×10 ⁻⁶	1	4×10 ⁻⁶	1	4×10 ⁻⁶	1
Th	8×10 ⁻⁷	1	6×10 ⁻⁷	5	7×10 ⁻⁷	5	8×10 ⁻⁷	1
Pa	2×10 ⁻⁵	1	2×10 ⁻⁵	5	2×10 ⁻⁵	5	2×10 ⁻⁵	1
U	1×10 ⁻⁵	1	1×10 ⁻⁵	5	1×10 ⁻⁵	5	1×10 ⁻⁵	1
Np	6×10 ⁻⁶	1	5×10 ⁻⁶	5	5×10 ⁻⁶	5	6×10 ⁻⁶	1
Pu	1×10 ⁻⁷	1	1×10 ⁻⁷	5	1×10 ⁻⁷	5	1×10 ⁻⁷	1
Am	9×10 ⁻⁶	1	2×10 ⁻⁶	1	3×10 ⁻⁶	1	9×10 ⁻⁶	1
Cm	9×10 ⁻⁶	1	2×10 ⁻⁶	1	3×10 ⁻⁶	1	9×10 ⁻⁶	1

*：コンクリートの水・セメント比を0.3と仮定し、塩化物イオンのみかけの拡散係数(Da)を算出、間隙水中の拡散係数(Dp)は、みかけの拡散係数と収着分配係数(α)、間隙率(θ)、真密度(ρ)で次式で表される。

$$D_p = (\theta + \alpha(1 - \theta)\rho) D_a / \theta$$

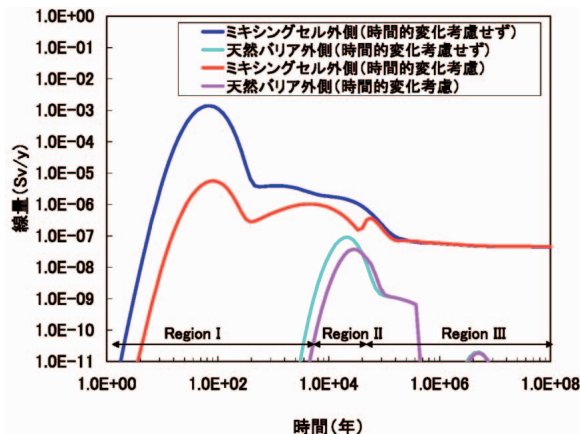


図11 パラメータの時間変化を考慮したTRU廃棄物(グループ2)の地層処分の解析例

このためRegion IIが維持される4万年において、線量の極大値が見られる。天然バリア外側になると、パラメータの時間的変化を考慮した場合としない場合との最大線量値の差は縮まってくるが、時間的変化を考慮した方が時間的変化を考慮しない場合に比べ3分の1程度の値となった。より現実的にパラメータの時間的変化を考慮することにより、ミキシングセル外側における線量は低減され、天然バリアに核種の移行の遅延を過度に期待する必要がなくなるものと考えられる。

6. おわりに

TIGERコードを開発したことにより、TRU廃棄物処分の人工バリア材料の時間的変遷を考慮した解析を行なうことが可能となった。これにより、過度に保守的な仮定を排除しより現実的な評価を行なうことができ、処分施設の設計の合理化への寄与が期待される。

なお、本解析コードは、C++で開発されており、フリーのGNU C Compiler⁹⁾によってコンパイルされている。現バージョンはWindows用であるが、GNU C Compilerは様々なプラットフォームの計算機でも用意されており、他の計算機への移植も容易に行なえることが期待される。本報の計算は、Windows XP Pentium4 2GHzの計算機で実施し、例えば、5章のTRU廃棄物グループ2の解析は、約15分で実施することができた。

7. 謝辞

本解析コード（TIGER）は、核燃料サイクル開発機構から日揮株式会社への委託研究によって開発され、その後、コードの機能が拡張されたものである。開発に携わった英国のQuantiSic社及びQuintessa社の関係各位に感謝を申し上げる次第である。

参考文献

- 1) 核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会 共同作業チーム：“TRU廃棄物処分概念検討書”，JNC TY1400 2000-001(2000)。
- 2) K.Wakasugi, H.Makino, et al.：“The Development of MESHNOTE Code for Radionuclide Migration in the Near Field”，JNC TN8400 99-095(1999)。
- 3) 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 TN1400 99-023(1999)。
- 4) 白川敏彦, 井尻裕二, 他：“核種移行解析コードMATRICSによる解析の信頼性の検証”，JNC TN8400 2000-021(2000)。
- 5) 例 え ば, J. Crank：“The Mathematics of Diffusion SECOND EDITION”，Oxford Science Publications, p.21(1975)。
- 6) 例 え ば, W. キンバッハ著（上田年比古監訳）：“パソコンによる地下水解析”，森北出版株式会社, p.181(1990)。
- 7) M.H.Bradbury, A.F.Sarrot：“Sorption databases for the Cementitious Near-Field of a L/ILW Repository for Performance Assessment”，Nagra Technical Report 93-08(1994)。
- 8) 土木学会：“【2002年制定】コンクリート標準示方書[施工編]”，p.80, 丸善。
- 9) GNU GCCホームページ (<http://gcc.gnu.org/>)。