

# Review on Mechanisms and Possibility of Autocatalytic Criticality Phenomena by HLW in Geologic Repositories

A report submitted to Radioactive Waste Management  
Funding and Research Center (RWMC)

Joonhong Ahn

Department of Nuclear Engineering  
University of California, Berkeley

January, 2004

The author invites comments and would appreciate  
being notified of any errors in the report.

Joonhong Ahn  
Department of Nuclear Engineering  
University of California  
Berkeley, CA 94720  
USA

[ahn@nuc.berkeley.edu](mailto:ahn@nuc.berkeley.edu)

地層処分された高レベル廃棄物による  
臨界現象発生メカニズムと  
その可能性に関する既往の研究レビュー

カリフォルニア大学バークレー校  
原子力工学科

安 俊弘

Joonhong Ahn  
Department of Nuclear Engineering  
University of California, Berkeley

January, 2004

1.	序論.....	1
2.	ヤッカマウンテン処分場における臨界現象解析[5,6,7] .....	1
2.1.	臨界解析 .....	1
2.2.	プルトニウム・高濃縮ウランの地層中の輸送・蓄積解析 .....	8
2.3.	結論 .....	9
3.	高レベルガラス固化体・地下水飽和処分場の場合[8,9,10].....	9
3.1.	高レベル廃棄物と処分場 .....	9
3.2.	地層処分システム.....	11
3.3.	濃集したウランに対する臨界解析[8,9].....	12
3.3.1.	12%濃縮ウラン-岩-水系の臨界質量の最小値 .....	13
3.3.2.	連鎖反応の温度フィードバック効果 .....	15
3.3.3.	まとめ.....	17
3.4.	HLW からの核種放出と地中での輸送と濃集[8,9,10].....	17
3.4.1.	複数核種崩壊系列・単一独立固化体モデル[8,9].....	18
3.4.2.	U-235、U-238 に対するマルチコンパートメントモデルによる評価 [10]     22	
3.4.3.	まとめ.....	25
3.5.	結論 .....	25
4.	結言.....	25
5.	文献リスト .....	27

## 1. 序論

Bowman and Venneri [1] は、地層処分された高レベル放射性廃棄物に含まれる核分裂性物質の地層中での再分布の結果、温度に対する正のフィードバックを伴う核分裂連鎖反応 (Autocatalytic criticality、2 節参照) が起き短時間に多大のエネルギーが放出される可能性のあることを指摘した。彼らは、核兵器解体に伴って発生する兵器級プルトニウム ( $^{239}\text{Pu}$ 93%、 $^{240}\text{Pu}$ 7%) と研究炉と海軍船用炉から発生する高濃縮ウランをヤッカマウンテン処分場に埋設した場合を主として想定した。

地中における臨界現象の可能性は Bowman and Venneri が全く新たに提起したわけではなく、古くは、1979 年に Clayton [2] が、また、1981 年に Gore ら [3] が、使用済燃料の埋設に関して解析を行っている。また、アフリカのガボンにおいては約 20 億年前天然において原子炉現象が発生したことが発見されている [4]。Bowman and Venneri の指摘は、温度フィードバック効果による爆発的なエネルギーの放出の可能性を指摘したという点で注目を集めた。

カリフォルニア大学バークレー校原子力工学科(UCBNE)において、1995 から 97 年の 2 年間、これらのシナリオに関する詳細な解析 [5,6,7] が、ロスアラモス国立研究所のサポートを得て集中的に行なわれた。また、動力炉・核燃料開発事業団(当時)のサポートを得て、地下水飽和の処分場に再処理ガラス固化体を埋設した場合の解析が並行して行われた [8,9,10]。

本報告書では、地層処分された高レベル廃棄物の臨界現象に関する既往の研究をレビューする。

## 2. ヤッカマウンテン処分場における臨界現象解析 [5,6,7]

### 2.1. 臨界解析

$^{235}\text{U}$  や  $^{239}\text{Pu}$  の様な熱核分裂性物質 (Thermally Fissile Material, TFM) が地層中で核分裂連鎖反応を維持するためには、まず高速中性子が熱エネルギー領域まで減速される必要がある。岩盤、とくに、その主要成分であるシリカ  $\text{SiO}_2$  と空隙中に存在する水は、軽い水素、酸素原子を含んでおり、有効な中性子減速材である。

核分裂性物質の再分布によって実効中性子増倍係数  $k_{\text{eff}}$  が 1 を越え、かつ核分裂連鎖反応の熱エネルギー発生による体系の温度上昇に伴って  $k_{\text{eff}}$  も増加する状態 (正のフィードバックが働いている状態<sup>1</sup>) を 自己触媒的臨界 Autocatalytic criticality と定義する。

正のフィードバックが働いたとしても、いずれ負の反応度フィードバック機構が働き、連鎖反応は収束する<sup>2</sup>。この問題のキーポイントは、次のような「事象の連鎖」(図 1) [5,6] が発生し処分の安全性に重大な影響を及ぼすほどのエネルギーが放出さ

<sup>1</sup> より厳密には後述のように「水の排除」以外の正のフィードバックが働かなくてはならない。

<sup>2</sup> 例えば、地下核実験のように意図して爆発する体系を用意しても、反応初期は正のフィードバックがかかるが、爆発による TFM の分散により実効中性子増倍率はいずれ 1 よりも小さくなる。

れる可能性が無視できないくらい大きいかどうか、ということである。「事象の連鎖」は、7つの主たる事象（廃棄体の腐食・劣化、中性子毒の分離、TFMの地下水による移動、十分な量のTFMの蓄積、臨界形状の実現、正のフィードバック、相当量のエネルギー放出）で構成され、この順番で7番目の事象まで到達した場合処分の安全性に重大な影響があったと判断される。たとえば、6番目の正のフィードバックまで到達したとしても、比較的少量のエネルギー放出で負のフィードバックが卓越する場合は処分の安全性に悪影響が及ぶ懸念が少なくなる。

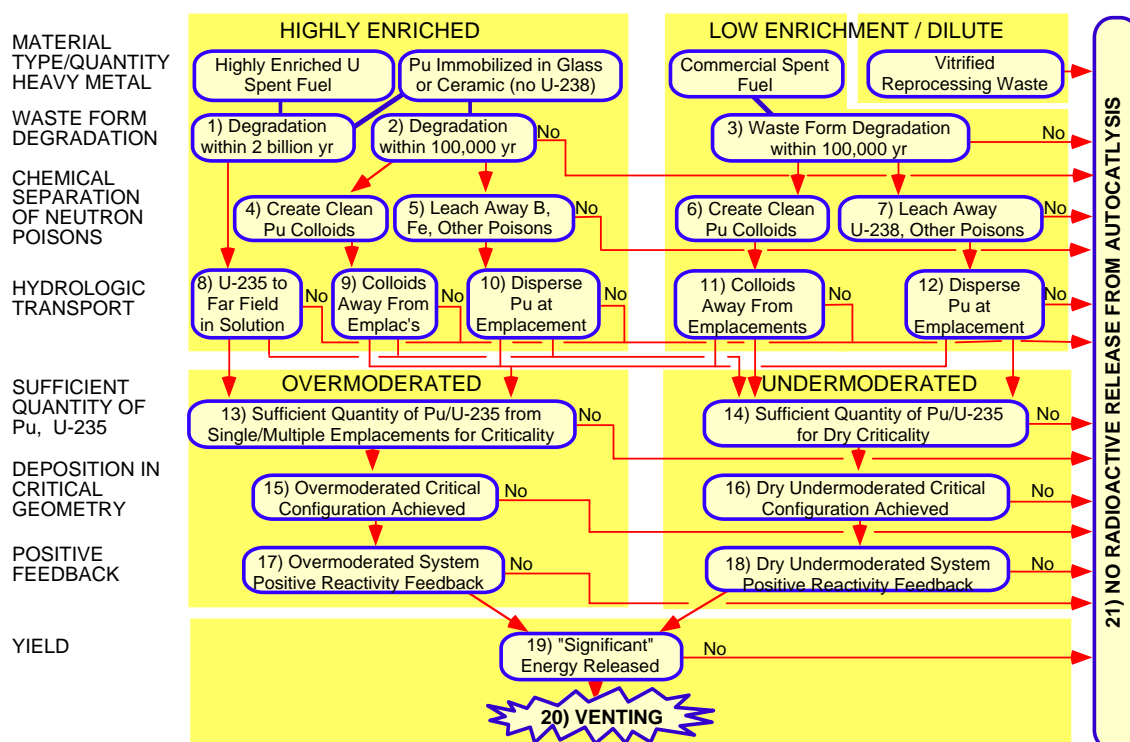


図1：自己触媒的臨界現象に至るまでの「事象の連鎖」[5,6]

図1に、出発点となる物質(地層処分される物質)を4つ挙げる。このうち、ヤッカマウンテン処分場で特に重要なのは、

- 埋設地点における臨界 (Under-moderated) :
  - 固化した兵器級 Pu を出発点とする 2-5-10-14 のパス、
  - 軽水炉使用済み燃料を出発点とする 3-7-12-14 のパス、
- ファーフールドにおける臨界(複数の固化体の関与；Over-moderated) :
  - 高濃縮ウラン HEU を出発点とする 1-8-13 のパス、
  - 固化した兵器級 Pu を出発点とし Pu コロイドの集積を伴う 2-4-9-13 のパス、
  - 軽水炉使用済み燃料を出発点とし Pu コロイドの集積を伴う 3-6-11-13 のパス、

- 再処理で発生する HLW ガラス固化体を出発点とし、Am-243、Pu-239 の崩壊により発生する U-235、あるいは Cm-245、Am-241、Np-237 の崩壊により生じる U-233 の集積を伴う 1-8-13 のパス。<sup>3</sup>

Bowman and Venneri[1]は埋設地点における自己触媒的臨界現象は次のようにして起きうると考えた。まず中性子毒が早い時期に廃棄体から流失し Pu-239 のような TFM が高い濃度で残存する。もとの地点から拡散などの現象により TFM が周囲の岩盤中に分散し、より多くの岩(減速材)を取り込むことによりやがて臨界に達する。核分裂エネルギーの発生に伴い TFM が蒸発し岩盤亀裂などを伝ってさらに分散する。これが正のフィードバック機構となりうる。

他の研究[11-14]によれば、このような状況における Pu-239 の最小臨界質量は純粋な二酸化珪素の体系において 35kg、ヤッカマウンテンで見られる火山性凝灰岩の場合 86kg であり、処分される廃棄体 1 体当たりの Pu-239、Pu-240 の質量がそれぞれ 60kg、40kg であることを考えると埋設地点における臨界を懸念する必要はないという結論に達している。また、必要であれば、Pu 含有の廃棄体の設計変更によってこのシナリオを完全に排除することができる。

これに対し、ファーフィールドでの TFM の蓄積を伴う第 2 のシナリオでは、処分場に埋設された複数の固化体から TFM が漏えいし、岩盤中を地下水流れによって輸送される途中のなんらかの環境変化により、岩盤中のある地点で TFM が水相から析出して蓄積しはじめることを想定する。複数の廃棄体の関与が可能で、処分場のデザインや周囲の地質環境などに依存するため、第 1 のシナリオよりも取り扱いが面倒である。

TFM のファーフィールドにおける蓄積点には地下水も存在する。水は、有効な減速材であると同時に、無視できない中性子吸収能がある。したがって、もし、体系内の水が連鎖反応維持に必要な量以上ある場合(過減速状態 overmoderated)、体系内から水を排除すると、水に吸収されて失われる中性子が減り、その分、TFM に吸収され核分裂を起こす中性子の数が増え、 $k_{eff}$  は増加する(図 2 左図”Water removal”矢印参照)。体系からの水の排除が核分裂反応による熱発生に伴っておきる場合、正のフィードバックになると考えられる。

濃集量が少ない状態では、過減速で未臨界( $k_{eff} < 1$ )である。その体系にさらに TFM が集積し何らかの理由(たとえば、地下水汲み上げなどによる体系からの水の排除による中性子吸収損失の減少)により臨界に達したとすると、核分裂による熱の発生がおき、さらに水が排除され  $k_{eff}$  が増大する。続いて、次のようなシナリオが考えられる：

---

<sup>3</sup> ガラス固化した HLW は臨界の可能性がないとして図 1 では直接 21 に矢印が向いている。後述のように UCBNE と PNC の共同研究の結果、この矢印は妥当であることが判明したが、シナリオ設定の段階では本来 1 に向けておくべき。

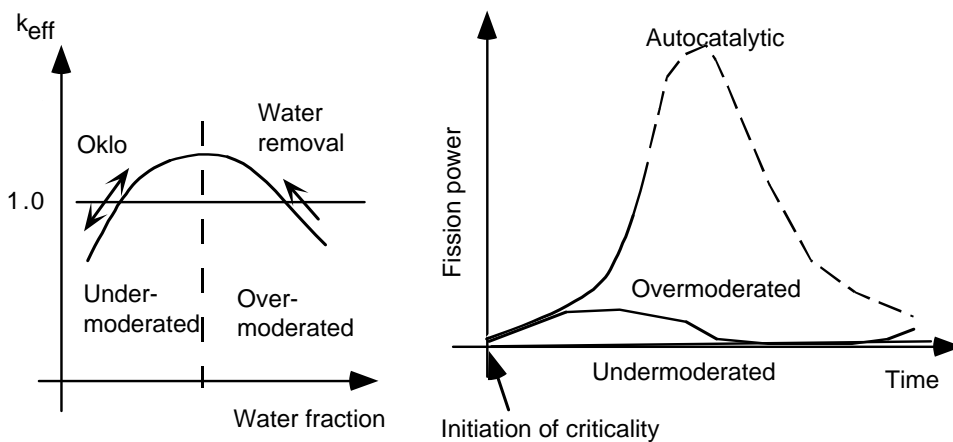


図 2 : 水による overmoderation と undermoderation

- 「水の排除」が唯一の温度に対する正のフィードバック機構である場合、ある程度の水の排除は連鎖反応を増進するが、さらに水が排除されると、中性子減速に必要な水も排除されることになり、水の排除は負のフィードバック機構に変わる (図 1 左参照)。連鎖反応が止まり温度が下がると、周囲の水が再び侵入し、再度、臨界となる。以後、TFM の濃縮度がある限界を下回るまで、間歇的に連鎖反応が維持される。これが、20 億年前 Oklo 天然原子炉現象[4]で実際おきたことであろうと推定される。
- 水の排除による負のフィードバックを凌駕するくらいの温度に対する強い正のフィードバック機構が体系に備わっている場合、核分裂連鎖反応は拡大し続け、自己触媒的になる (図 2 右)。

以上のことから、ファーフールドにおいて自己触媒的臨界を起こすためには、水の排除以外の正のフィードバック機構が系の温度上昇に伴って働くことが必要であることがわかる。

自己触媒的になるかどうかは、体系の非均質性にも依存する。TFM の蓄積が岩盤中の亀裂に沿う形で非均質におきると、臨界に必要な最小質量は均質な体系に比べて大きくなるが、水の排除に伴って正のフィードバックをもたらす。図 3 に水の排除の概念図、図 4 にそれに対する静的な核計算の結果を示す。ここで仮定されている岩盤はヤッカマウンテンでの凝灰岩である。水の排除とともに中性子増倍率が増加していく様子が見て取れる。

ヤッカマウンテンに埋設される兵器級プルトニウムや高濃縮ウランに対して行なわれた解析[5,6]の結果、地層中で想定される温度フィードバック機構について、「体系からの水の排除」の他に次のものが確認されている：

**TFM の温度上昇(一)**：もし、TFM の蓄積が岩盤中で非均質におきるとすると、核分裂で発生する熱は、まず、TFM を熱する。ドップラー効果により TFM 原子による核分裂断面積が増加すると同時に、中性子吸収能の大きい  $^{238}\text{U}$  や  $^{240}\text{Pu}$  の様な核種による吸収も増加する。このため、TFM 成分が 90%以上のような高濃縮の場



合でも、TFM 温度上昇に対するフィードバックは負になることが知られている。

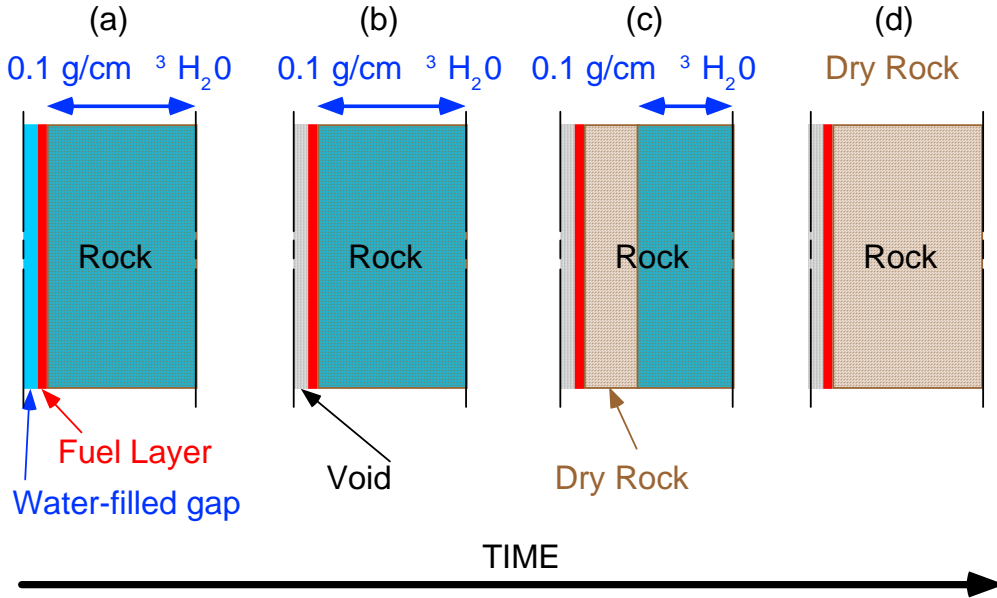


図 3：非均質に蓄積した TFM の核分裂による熱発生と岩盤中の水の排除の概念図。

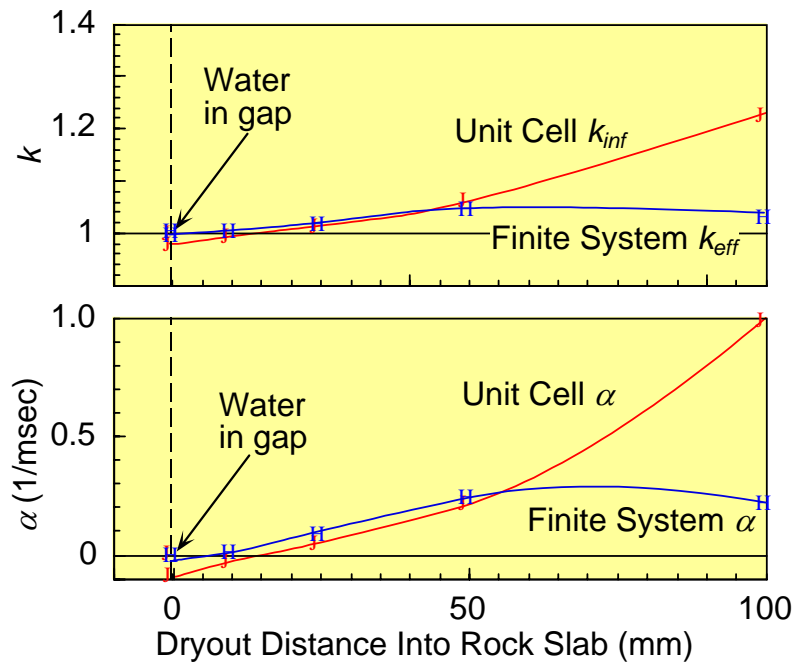


図 4：岩盤中の水の排除の進展と中性子増倍係数の増加。

岩盤の温度上昇(+/-)：中性子エネルギーが十分に熱平衡に達している体系では、岩盤（中性子減速材）の温度が上昇することにより、中性子エネルギースペ

ルトルが高エネルギー側にシフト（硬化）する。この効果は、均質体系と非均質体系で分けて考える必要がある。

高濃縮ウランが均質に岩、水と混合している体系では、熱中性子利用率  $f$  や 1 個の熱中性子が  $^{235}\text{U}$  に吸収されたときに放出される核分裂中性子の平均個数  $\eta$  が、減速材の温度上昇と共に減少するために、フィードバックは負になることが知られている。一方、兵器級プルトニウムの場合には、 $^{239}\text{Pu}$  が 0.3eV 付近にもつ吸収ピークのため、均質体系でもフィードバックは正になる。

岩盤中の亀裂壁面に岩とウラン層が区別されるような非均質な濃集をした場合には、ウランも正のフィードバックを示すことが高濃縮ウランを用いた解析で判明している。それは、中性子エネルギーの増加によりウランの実効中性子吸収断面積が減少し、減速材中にある中性子から見ると、ウラン層の厚みが見かけ上減少したことになるため、TFM 層の自己遮蔽が減少し、体系の熱中性子利用率  $f$  が増大するからである。

そのほか、岩盤の温度が上昇することにより、岩が膨張し、原子密度が低下するため、減速能が低下する。結果として、より多くの中性子が体系から漏れることになる。これは、負のフィードバックとして働くことが予想される。

TFM と岩の均質混合 (+) : TFM の温度が上昇し、非均質に濃集した TFM が近傍の岩を溶かして岩と TFM が均質な混合物層を作ると、高濃縮ウランの場合、均質化によって中性子が体系から逃げる確率が減少する効果が、その他の負の機構の効果を凌駕するため、正のフィードバック効果となる。図 5, 6 参照。

非均質に TFM が蓄積し Over-moderated の状態で臨界に達した場合、初期においてゆっくり加熱され水が排除される。岩の透水係数が小さい場合、数ミリメートルから数センチメートルの領域から水を排除するプロセスの時定数は秒から時間のオーダーであると考えられる。水で飽和した岩の場合、水の熱膨張係数は岩のそれよりも 1 桁以上大きいので、緩やかに摂氏 70 度の上昇をするとおよそ 3.5% の水を排除することになる。不飽和層の場合、温度勾配によって生じる水蒸気圧の勾配により蒸気が移動する。岩の熱膨張などの負のフィードバックが働くが水の排除は依然として続く。

核分裂によるエネルギーは 93% が核分裂生成物の運動エネルギーとなるが、それはほぼすべて TFM 層に付与される。残りのエネルギーは中性子の運動エネルギー、あるいは即発ガンマ線となり、回りの岩に付与される。TFM に付与されたエネルギーは直近の岩の温度を上昇させる。凝灰岩の場合、水で飽和しているとおよそ 720 度で岩が溶け始める。岩が溶けると TFM を巻き込み均質化が起きる。図 6 に示すように、均質化に伴い中性子増倍率が 1.3 程度になる可能性があり、そうなれば、系の半径が 1.5 倍から 2 倍程度膨張し減速材の密度が十分小さくなるまで増倍率が 1 を下回らない。

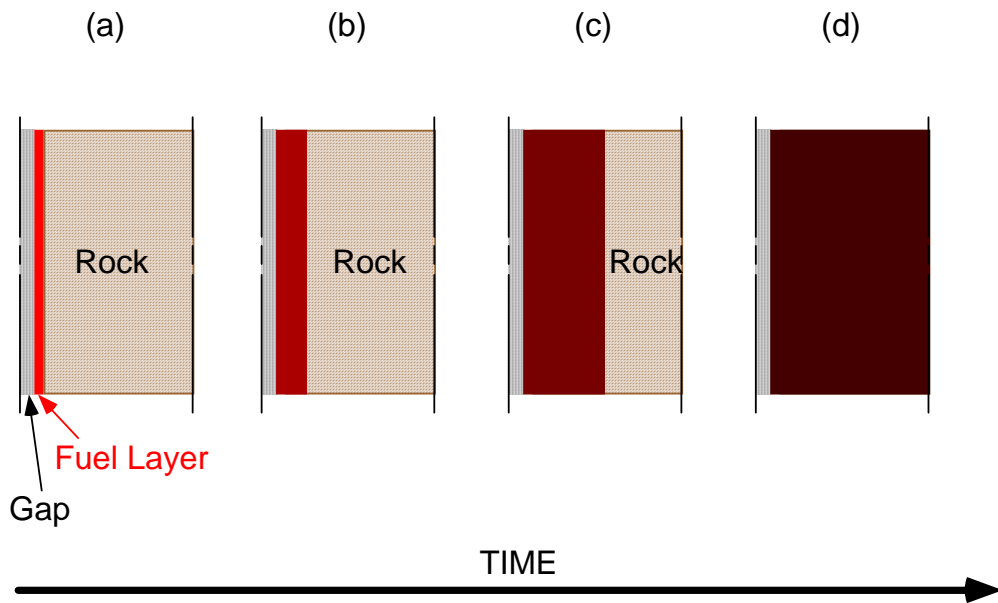


図5：非均質に蓄積した TFM の核分裂による熱発生と岩盤と TFM の均一化。

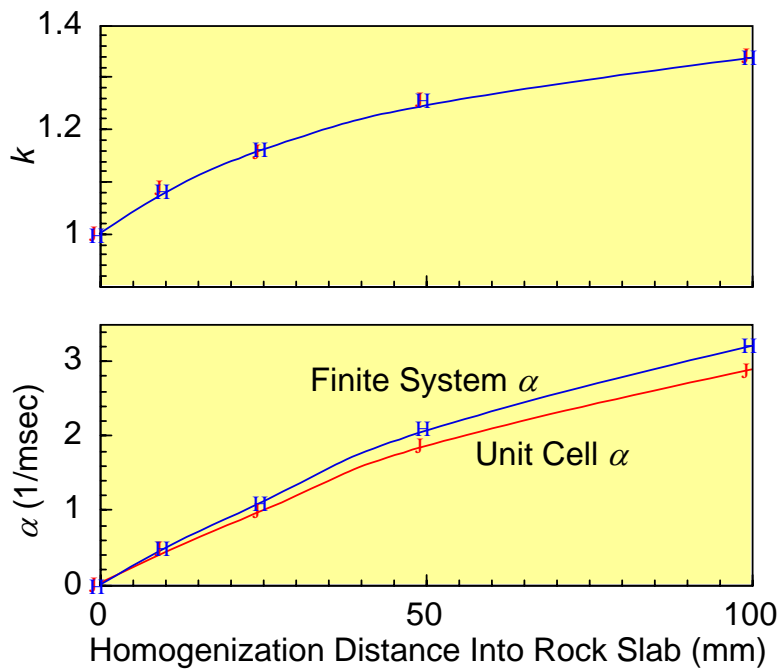


図6：岩盤と TFM 均一化の進展と中性子増倍係数の増加。

以上のような考察は、静的な計算に基づいたものであり、より詳しくは熱水-中性子輸送を結合したモデルでの解析を行う必要がある。特に、フィードバックが正

から負に反転し反応が終息するまでをシミュレートするためには結合したモデルで動的解析を行う必要がある。UCBNE の 1995, 96 年当時の研究においては、リバモア国立研究所の計算コード<sup>4</sup>を用いて 0.1g/cm<sup>3</sup>の水を含む凝灰岩の 2 メートルの半径の領域に非均質に分布した 254kg の Pu-239 の蓄積に対して計算した結果、反応度挿入後 5.8 ミリ秒で出力が急激に上昇し始め、6.8 ミリ秒で半径が 3.1 メートルまで膨張したところで系が未臨界になった。その場合の総出力は 0.32 キロトン(1.3 兆ジュール)と算出された。

ネバダ地下核実験場におけるこれまでの経験では、爆発中心の深度が 122×(出力[キロトン])<sup>1/3</sup>メートル以上であれば、爆発の結果生じる核分裂生成物は地層中に十分閉じ込められる。ヤッカマウンテン処分場の深度 200 メートルを用いると、4.4 キロトンまで許容される。つまり、たとえヤッカマウンテンの深度において自己触媒的臨界となるような系が出現したとしてもその出力は 0.32 キロトンと許容最小出力のさらに 1 桁以上小さいことがわかる。

## 2.2. プルトニウム・高濃縮ウランの地層中の輸送・蓄積解析

解体兵器 Pu をガラス固化した廃棄体の場合、容器の破損によるガラスの地下水への長期の溶解速度を 0.002g/m<sup>2</sup>day と見積もって、ガラスが溶けきるのにおよそ 10 万年の時間が必要であるとした。使用済み燃料の場合もおそらく同じ程度の時間が必要と考えられる。

Pu-239 の場合、半減期が 2 万 4 千年であるため、この溶解の時間スケールを考えると、廃棄体の溶解が起きても Pu として放出されるのはその一部に過ぎない。また、Pu の持つ非常に低い溶解度と岩盤への強い収着の為、たとえ地下水に溶け込んで移行しても廃棄体近傍にとどまると考えられた。

コロイドとなった Pu の移行に関する Ahn[7]による解析の結果、

- すべての Pu がコロイドとして放出され周辺の岩盤亀裂に流れ込んだとしても、最大で 0.025kg/m<sup>2</sup> の Pu が亀裂表面に付着する程度である。これは、臨界解析から得られた臨界の為に必要な最小の蓄積量より 2 桁小さい。
- すべての Pu が溶質として地下水中に溶け込み輸送された場合、溶解度が非常に小さく岩盤への収着が強いため、亀裂中の輸送はせいぜい 10 m 程度である。
- ほとんどの Pu-239 は処分場領域に存在する間に U-235 に崩壊する。
- 処分場下部に存在する TS w 層に到達する頃には Pu-239 はすべて U-235 となっていると考えてよい。その場合の U-235 の濃度は臨界のための最小値より 2 桁小さい。

これらのことから、解体兵器からの Pu をガラス固化した廃棄体から漏洩した Pu から臨界となるような Pu あるいは U の蓄積がヤッカマウンテン処分場近傍で生じる可能性はないことが示された。

ヤッカマウンテンのような酸化性地下水に環境では、ウランの溶解度は 1ppm 程

---

<sup>4</sup> 地下核実験のシミュレーションコードと言われている。

度であろうと推定された。収着分配平衡を考慮し空隙率が 10%、凝灰岩の密度が  $2.2\text{g/cm}^3$ 、収着分配係数が  $10\text{cm}^3/\text{g}$  と仮定すると、ウランの濃度は  $0.02\text{kg-U/m}^3$  となった。重量分率に換算すると 10 万分の 1 程度である。たとえすべてが U-235 であっても臨界にはならない。

ヤッカマウンテンには場所によって還元性地下水が存在することが知られている。例えば硫化物やマグネタイトが存在すると、U(VI)は還元されて不溶性の U(IV) となりピッチブレンドのような鉱物が生成する可能性がある。ヤッカマウンテン全体でのマグネタイトの平均含有率が 0.33 体積%であるため、これがすべてウランの還元に使われると  $10\text{kg-U/m}^3$  のウランが還元される。しかし、マグネタイトのような還元性の鉱物がヤッカマウンテンにおいて 200 万年以上の間、酸化性の地下水に曝されつつ存在し続けていることを考えると、新たに処分場から放出されてくる U(VI)を還元する反応にマグネタイトが関与する可能性は小さいと考えられる。

これらの考察から、ヤッカマウンテンに埋設された解体兵器 Pu と高濃縮ウランが地層中の輸送と地球化学的メカニズムによって蓄積する可能性は小さいと結論された。

### 2.3. 結論

中性子輸送・臨界解析の観点から、TFM、凝灰岩、水からなる系を自己触媒的臨界状態とすることは可能である。ヤッカマウンテン処分場に埋設された廃棄体が破損し漏洩した TFM が再配分することによってそのような系が出現する可能性は非常に小さい。Pu の移行距離は小さいし、大部分の Pu が放出される前に崩壊し U となっている。また、ウランは適切な還元剤があれば析出し特定の地点に蓄積する可能性があるが、現在のところそのような顕著な還元剤の存在を認めない。

## 3. 高レベルガラス固化体・地下水飽和処分場の場合[8,9,10]

日本の場合、ヤッカマウンテン処分場のような 90%以上の高濃縮ウランや解体兵器からの Pu の処分は想定されていないし、処分場サイトは未定でおそらく地下水飽和型であるため、2 節で述べたような結論をそのまま適応できない。[8,9,10] で想定された高レベル廃棄物と地層処分場の概念を以下にまとめ、それに対してどのような解析と結論が得られたかをまとめる。

### 3.1. 高レベル廃棄物と処分場

濃縮度 4.5 %、比出力 38 MW/MTU、燃焼度 45,000 MWD/MT の PWR 使用済燃料 1 トンを 4 年間冷却のち再処理して発生する高レベル放射性廃棄物が 1 本のガラス固化体になるとする。再処理段階において、99.3 %の Pu、99.85 %の U が回収される[15]。したがって、ガラス固化体には未回収の U、Pu、I、アクチニド核種、核分裂生成物が含まれる。ガラス固化体は固化後 50 年間冷却した後地中に埋設するとした。固化体からの核種の漏洩は埋設後 1000 年目からとした。再処理段階における各核種の回収率をもとに燃焼解析コード ORIGEN2 を用いて、固化体

に含まれる放射性核種のインベントリを計算した。

表 1 によると、1 本の固化体に含まれる TFM の量は、そのみでは臨界量に及ばない。しかし、 $^{245}\text{Cm}$ 、 $^{241}\text{Am}$ 、 $^{237}\text{Np}$  や  $^{243}\text{Am}$ 、および再処理の回収を免れたプルトニウムは崩壊しウランの同位体になる。これらの半減期は、 $^{235}\text{U}$  や  $^{238}\text{U}$  の半減期に比べて充分短く、ガラス固化体の溶解/変質に要する時間と同程度かそれよりも短いものが多い。また、岩盤中の濃集点までの到達時間がこれらの半減期よりも充分長い場合も想定される。そのような場合、ウランの親核種であるアクチニド核種は、濃集点に到達するまえにウラン同位体になっている。

表 1 1 トンの使用済燃料を再処理して得られる高レベル廃棄物ガラス固化体に含まれる核種の量 (ガラス固化体の溶解/変質開始時)。

核種	2200 m/s 断面積		半減期	インベントリ			
	核分裂	吸収		HLW		使用済燃料	
	[barn]			[mol]	[kg]	[mol]	[kg]
Pu-240	—	289.5	6.57E+3	2.00E-1	4.8E-2	2.86E+1	7.2
U-236	—	5.2	2.34E+7	5.59E-2	1.3E-2	3.73E+1	8.8
Cm-245	2020	345	9.30E+3	7.55E-3	1.8E-3	7.55E-3	1.8E-3
Am-241	3.15	916	4.58E+2	2.82E-1	6.8E-2	2.82E-1	6.8E-2
Np-237	0.02	169	2.14E+6	4.02	0.95	4.02	0.95
U-233	531.1	47.7	1.62E+5	1.24E-3	2.9E-4	8.27E-1	1.9E-1
Pu-242	<0.2	18.5	3.76E+5	1.80E-2	4.4E-3	2.57	6.5E-1
U-238	—	2.70	4.46E+9	5.83	1.4	3.87E+3	9.3E+1
U-234	—	100.2	2.45E+5	1.11E-2	2.6E-3	7.40	1.7
Am-243	—	154.5	7.37E+3	4.86E-1	1.2E-1	4.86E-1	1.2E-1
Pu-239	742.5	268.8	2.44E+4	2.54E-1	6.1E-2	3.63E+1	9.1
U-235	582.2	98.6	7.04E+8	7.00E-2	1.6E-2	4.67E+1	1.1E+1

そこで、親核種の固化体中の初期インベントリをそれぞれの崩壊系列中に存在するウランの同位体のインベントリに加算すると、理論上 1 本の固化体から供給可能なウランの質量がそれぞれの同位体に対して求められる。たとえば、 $^{235}\text{U}$  に対しては、 $^{243}\text{Am}$  と  $^{239}\text{Pu}$  の初期インベントリ 0.486 mol と 0.254 mol を  $^{235}\text{U}$  の初期インベントリ 0.07 mol に足しあわせて、0.81 mol となる。同様に、 $^{238}\text{U}$  に対しては、5.85 mol、 $^{233}\text{U}$  に対しては、4.31 mol、 $^{236}\text{U}$  に対しては、0.26 mol がえられる。これらの値を基に、濃縮度を計算すると、

$$\frac{{}^{235}\text{U} + {}^{233}\text{U}}{{}^{235}\text{U} + {}^{233}\text{U} + {}^{238}\text{U} + {}^{236}\text{U}} = \frac{0.81 + 4.31}{0.81 + 4.31 + 5.85 + 0.26} = 0.46$$

となり、46%という高濃縮度が得られる。また、 $^{233}\text{U}$  の比較的短い半減期を考慮して、この同位体の寄与を含めない場合でも、12%という比較的高い濃縮度が得られる。同様の計算を使用済燃料について行くと、 $^{238}\text{U}$  の桁違いに大きい初期インベ

トりのために、高々2.2%という濃縮度に過ぎないことがわかる。

ここまですを要約すると、日本の高レベル廃棄物処分場の大部分を占めると想定される高レベル廃棄物ガラス固化体の特徴は、

- 放射性崩壊によってUを生成するPu、Am、Np、Cmが含まれていること、
  - UとPuが再処理によって大部分除去されていること、
  - 中性子毒であるホウ素がガラスの中に多く含まれていること、
  - 廃棄体中、あるいは地層中の崩壊により蓄積が発生する時点と地点においてはアクチノイド核種はウラン同位体になっていると考えられ、その濃縮度は仮定された再処理での回収率<sup>5</sup>に対しては12%となる、
- と考えられる。

このように、現在想定されている再処理条件に基づけば、高レベル廃棄物ガラス固化体の埋設に伴って、比較的濃縮度の高いウラン濃集形成が理論上可能であるため、詳細な物質輸送解析と臨界解析が必要であることが指摘される。

### 3.2. 地層処分システム

処分場の母岩の選択は、アクチノイドの輸送と臨界の両面に影響する。ここでは花崗岩を対象とする。日本国内で見られる代表的な花崗岩として表2に示される成分を仮定する[16]。これは、臨界解析で用いられる。上述[5,6]のように、TFMが非均質に濃集した場合、温度に対する正のフィードバック効果が考えられるので、物質輸送は花崗岩亀裂中を流れる地下水によると仮定する。表2に示される成分には、水よりもよく中性子を吸収するもの(K, Mn, Fe, Ti)が含まれている。

表2 日本における標準的な花崗岩の組成[16]

酸化物	重量 %	酸化物	重量 %
SiO <sub>2</sub>	69.17	MgO	1.15
TiO <sub>2</sub>	0.39	CaO	3.15
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	15.00	Na <sub>2</sub> O	3.45
FeO	2.48	K <sub>2</sub> O	3.01
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.05	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.13
MnO	0.10		

計40,000本の固化体が、深さ約1,000mのところ埋設されるものとする。固化体は15m間隔で掘削された処分トンネル内に7m間隔で定置される。したがっ

<sup>5</sup> ここで見積もったウランの濃縮度は、再処理段階でのウランとプルトニウムの回収率に依存する。たとえば、ウランとプルトニウムの回収率が向上し、高レベル廃棄物に残るこれらの元素の量が半減する（つまり回収率をウラン99.925%、プルトニウム99.65%にする）と、濃縮度は16%とかえって高くなる。これは、ウランとプルトニウムが回収されたために、回収されないアクチノイド核種の寄与が相対的に大きくなるためである。

て、1本の固化体当たり、約100 m<sup>2</sup>の処分場面積が割り当てられることになり、40,000本を処分する処分場では400万 m<sup>2</sup> = 2,000 m × 2,000 mの広がりを持つ。

それぞれの固化体の周りには、図7で示されるような人工バリアを仮定する。固化体は処分トンネル内に水平に定置されており、その周りに、炭素鋼のオーバーパック、さらにその外側をベントナイト緩衝材が取り巻いている。

表1の計算で仮定したように、1,000年で腐食が完了し、内部のガラス固化体から緩衝材へ核種が漏れいと仮定する。腐食が起きる埋設直後の1,000年間に、外部岩盤から地下水がベントナイト領域に侵入し、ベントナイトはすでに飽和していると仮定する。また、同じ時間領域で、固化体の発熱は収まり、人工バリアの温度は周囲岩盤と同じになっていると仮定する。

オーバーパックの腐食とベントナイトと地下水の反応により、人工バリア内部の環境は還元性であると仮定する。このため、アクチニドの溶解度は低く抑えられ、ベントナイトへの吸着が強くなる。

ベントナイトの透水係数は、花崗岩のそれと比べても数桁低いいため、人工バリア中の物質移動は分子拡散のみと仮定する。固化体領域でコロイドが生成しても緩衝材を通過することはないと仮定し、物質輸送解析は地下水中の溶質のみに着目する。

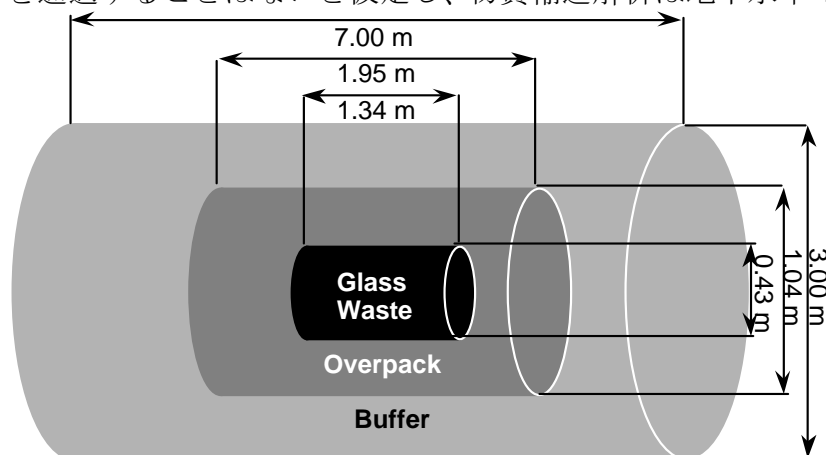


図7： 仮定された人工バリア仕様

### 3.3. 濃集したウランに対する臨界解析[8,9]

たとえ12%濃縮ウランが蓄積しても、(1) 臨界に要する質量が非現実的に大きいのか、(2) 温度に対する正のフィードバック機構がなければ、臨界事象の発生を懸念する必要はなくなる。

そこで、まず、12%濃縮ウランの花崗岩中における臨界量を求め、さらに、温度に対する正のフィードバック機構が存在するかどうか、解析が行われた。

高濃縮ウランに対して、花崗岩、水、ウランが均質に混合した系では臨界が自己触媒的にならないが、非均質に混合した場合、体系の温度上昇によるいくつかの正のフィードバック機構が確認されている[5,6]。同様のことが12%濃縮ウランについてもおきるかどうか、が解析上の着目点である。



解析には、ヤッカマウンテンに対する研究[5,6]で用いられたものと同じコードが用いられ<sup>6</sup>、同様の方法でベンチマーク計算が行われた<sup>7</sup>。12%濃縮ウランを水で減速した場合の臨界量の最小値は、<sup>235</sup>Uが1.5 kg、半径19 cmの球であった。

### 3.3.1. 12%濃縮ウラン—岩—水系の臨界質量の最小値

図8は12%濃縮ウランが水で飽和した岩と均質に混合して「炉心」を形成した場合、臨界に達する最小のウランの質量を求めるために想定した体系である。炉心は同じ空隙率をもつ岩（空隙は同様に水で飽和している）の反射体で覆われている。

臨界質量の最小値は、炉心の半径  $R$  と炉心内部の <sup>235</sup>U 濃度をパラメータとして臨界点をサーベイすることで求められる。表2に示したように、花崗岩にはシリカのほかに中性子をよく吸収する不純物が含まれているため、体系を構成する岩の代わりにシリカを仮定すると、実際よりも小さい臨界質量が得られて保守的になる。そこで、ここでは、まず、体系を構成する岩が10%の空隙をもつシリカと仮定した場合と、同じく10%の空隙をもつ花崗岩（成分は表2に示すもの）と仮定した場合について、臨界質量の最小値を求めた。その結果、シリカの場合、最小値が <sup>235</sup>U で17kg（12%濃縮ウランで142 kg）、そのときの半径が71 cmと求められた。また、花崗岩の場合、<sup>235</sup>U で60kg（12%濃縮ウランで480 kg）、そのときの半径が90 cmと求められた。

次に、花崗岩の空隙率が10%から30%になった場合、臨界量がどの程度になるか計算した。<sup>8</sup>

30%の水で飽和された空隙をもつ花崗岩の場合、臨界質量の最小値は <sup>235</sup>U で7kg（12%濃縮ウランで57 kg）、そのときの半径が57 cmと求められた。このように、岩盤空隙のもつ効果は非常に大きいことがわかる。

---

<sup>6</sup> 具体的には Los Alamos 国立研究所で開発された Monte Carlo Neutron-Photon (MCNP) コードと断面積ライブラリには ENDF/B-IV が用いられた。MCNP の自由気体モデルを用い、水以外の構成原子による熱中性子の上方散乱を考慮した。MCNP には、系の温度上昇による共鳴吸収のドップラー効果を含むためのアルゴリズムが組み込まれていないので、高温領域については別途断面積ライブラリを用意した。

<sup>7</sup> 既報の実験及び計算結果[Paxton, H. C., and Pruvost, N. L.: Critical Dimensions of Systems Containing <sup>235</sup>U, <sup>239</sup>Pu and <sup>233</sup>U, Los Alamos National Laboratory Report LA-10860-MS (1987)]と同条件でベンチマーク計算を行い比較した。比較計算には、12%を挟む値として、5%と30.3%の2ケースについて行った。共に水で減速される場合である。それらのどの場合についても、文献値と非常に良い一致を見た。

<sup>8</sup> 花崗岩の岩盤では破碎帯のように比較的空隙率の高い領域は想定可能である。そのような破碎帯は周辺の岩盤と化学的環境の異なることがしばしば観察されており、濃集に必要な化学的プロセスの起こりやすい場所であるとも言える。しかし、これらのことは、処分場を特定しない現段階ではすべて推論の域を出ない。

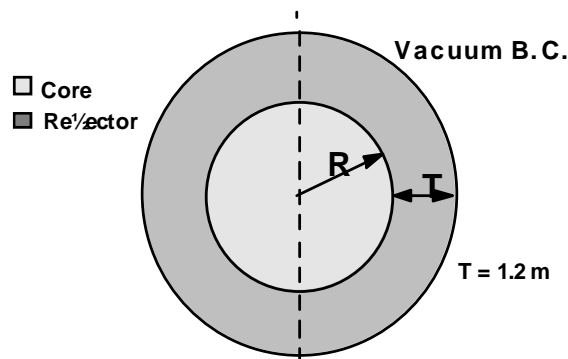


図 8：臨界解析における球状「炉心」体系。T は反射体の厚み。

これらの臨界質量は、図 2 でいえば、負のフィードバック領域の臨界量である。図 12 の様な体系が過減速状態で臨界になるためには、さらに多くのウランが集積する必要がある。そこで、まず、図 8 の体系で臨界状態をつくり、そこから体系内の水を減らすことによって中性子増倍係数が 1 から増えるか減るかを観察して、過減速状態における臨界質量の最小値を求めた。

図 9 は 30%空隙の花崗岩に 12%濃縮ウランが臨界質量まで蓄積している状態から水を 30%除去したときの中性子増倍係数の変化を示している。炉心の半径が 90 cm 以下の場合、水の除去は連鎖反応を終息させる。90 cm 以上の場合、水が除去されると、逆に連鎖反応が増大する。このことから、過減速状態で体系が臨界になるための最小質量は  $^{235}\text{U}$  で 35kg (12%濃縮ウランで 280 kg)、そのときの半径が 90 cm であるということがわかった。

同様の計算を空隙率 10%のシリカ、空隙率 10%の花崗岩についても行って、表 3 にまとめてある。空隙率 10%の花崗岩では過減速にならないため、自己触媒的臨界シナリオの可能性は否定できる。

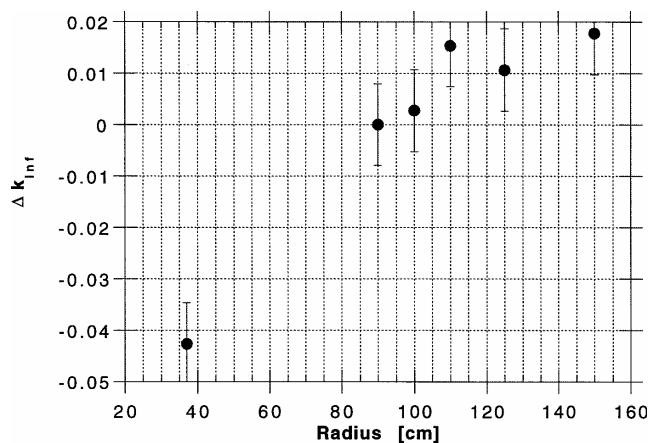


図 9：水で満たされた 30%空隙率を持つ花崗岩中で臨界状態にある 12%濃縮ウランの体系から水を排除したときの中性子増倍係数の変化。

表 3 均質球状で反射体を伴う 12%濃縮  $\text{UO}_2$  + 岩 + 水「炉心」が臨界となるための  $^{235}\text{U}$  の最小質量とその時の「炉心」半径

媒体（空隙率）	$^{235}\text{U}$ 臨界質量の最小値と炉心半径	過減速状態における $^{235}\text{U}$ 臨界質量の最小値と炉心半径
水	1.5kg 19 cm	—
$\text{SiO}_2$ (10%)	17 kg 71 cm	48 kg 130 cm
花崗岩 (10%)	60 kg 90 cm	—
花崗岩 (30%)	7.0 kg 37 cm	35 kg 90 cm

そこで、さらに、非均質に濃集した 12%濃縮ウランが温度に対するフィードバック効果を持つかどうか、調べることにする。

### 3.3.2. 連鎖反応の温度フィードバック効果

#### 3.3.2.1. 花崗岩の温度上昇と自己遮蔽効果

非均質なウランの濃集に対する温度フィードバック効果を調べるため、図 10 の様な体系を想定した。並行平板亀裂は、0.2 mm, 1.0 mm, 10 mm の厚さの 12%濃縮ウラン層で充填されている。花崗岩部は、空隙率 30%で水で満たされている。

それぞれのウラン層の厚さに対して、体系が臨界となるように花崗岩部の厚さを求めた。その結果、それぞれ、2.18 cm, 6.0 cm, 9.96 cm と決定された。

臨界となったそれぞれの体系の花崗岩温度を室温から上昇させたときの中性子増倍計数の変化を示したものが図 11 である。どの場合も、温度上昇に伴って、中性子スペクトルが硬化し、ウラン層の自己遮蔽効果が減少することによって、増倍係数が増加している。すなわち、12%濃縮ウランの場合も、高濃縮ウランの場合と同様に、非均質に濃集した場合には正のフィードバック効果がみられるということがわかる。

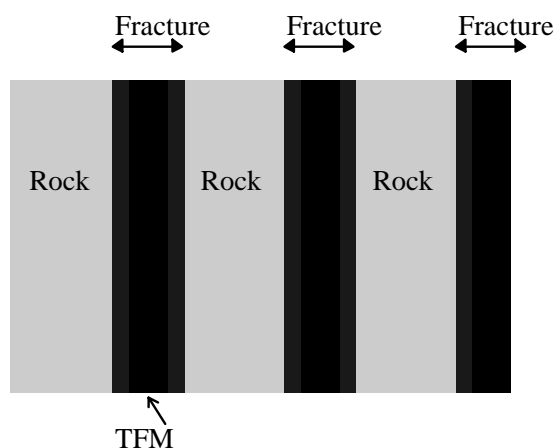


図 10：並行平板亀裂をもとにした非均質なウランの濃集の概念図

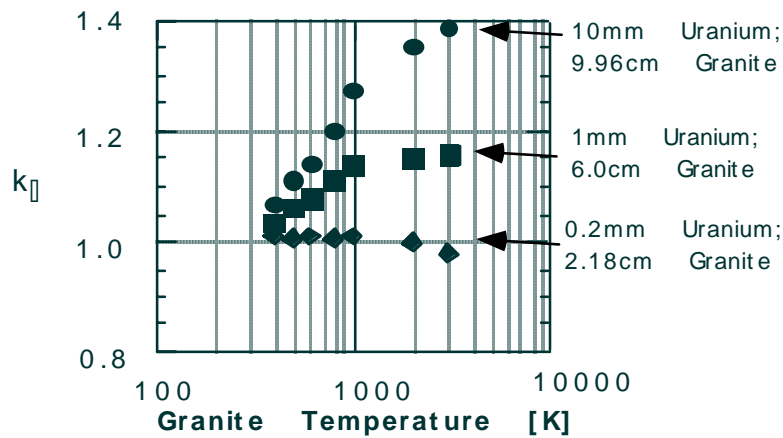


図 11：水で飽和した 30%空隙を持つ花崗岩中の並行平板亀裂に 12%濃縮ウラン  
が濃集した場合の花崗岩温度上昇による中性子増倍係数  $k_0$  の変化

### 3.3.2.2. ウラン層のドップラー効果

体系の温度上昇はまずウラン層からおきるので、その温度上昇によるドップラー効果（負のフィードバック機構）がどの程度かをまず調べ、つぎに、前節で議論した自己遮蔽効果との複合効果が正のフィードバックになりうるかどうかを調べる。

表 4 には、ウラン層の温度上昇の効果とシリカ層の温度上昇の効果がまとめられている。13.8 cm の厚みをもつシリカ（空隙率 10%）に 1 mm の厚さで 12%濃縮ウランが張り付いた体系は図 11 のウラン層 1 mm、花崗岩層 6.0 mm の場合とほとんど同じ挙動を示すので、その体系を用いて計算した。

表中、同じ縦の列の値を比べることによりウラン層温度上昇のドップラー効果が見て取れる。ウラン層、シリカ層ともに常温(293K)で臨界になっている体系はウラン層の温度を上昇させることで、未臨界になっている。一方、横の列の値を比べると、シリカ層の温度上昇の効果が見て取れる。図 11 でみたように、シリカの温度上昇と共に中性子増倍係数が増大している。

表中の対角線上の値（太字）はそれらの複合効果と考えることができる。わずかながら、増加しており、自己遮蔽効果がウラン層のドップラー効果に打ち勝って全体として正のフィードバック効果になっていることがわかる。

表 4 13.8 cm の厚みをもつシリカ（空隙率 10%）に 1 mm 厚の 12%濃縮ウラン  
が張り付いた体系の温度上昇による中性子増倍係数の変化

ウラン層温 度 [K]	シリカ温度 [K]		
	293	587	881
293	<b>1.000</b>	—	—
587	0.997	<b>1.068</b>	—
881	0.989	—	<b>1.090</b>

### 3.3.2.3. ウランと岩の均質混合効果

表 5 は臨界状態にあるウランの非均質な濃集が周辺の岩と完全に混合して均質化していく過程で中性子増倍係数が増加するか、を調べたものである。岩としてシリカを仮定し、3つの異なるウラン層の厚みと3つの異なる空隙率に対して計算を行った。

その結果、シリカの空隙率の大きいものほど(すなわち含水量の多いものほど)、また、初期のウラン層の厚みの大きいものほど、均質化後の増倍率は大きくなることがわかった。

表 5 亀裂壁面に濃集した 12%濃縮ウランがシリカと均質混合することによる中性子増倍係数の増大

SiO <sub>2</sub> 密度 [g/cm <sup>3</sup> ] (空隙率)	ウラン層 初期厚さ [mm]		
	0.2	1.0	10
2.20 (0.1)	1.054	1.265	1.387
1.96 (0.2)	1.071	1.319	1.491
1.71 (0.3)	1.084	1.347	1.526

### 3.3.3. まとめ

12%濃縮ウランに対して臨界解析を行い、花崗岩が 30%の空隙率をもち水で満たされている場合には、過減速状態の臨界になるためにすくなくとも 280 kg の 12%濃縮ウランが必要であることがわかった。空隙率が 10%の花崗岩に対しては過減速状態で臨界になる場合を見いだせなかった。

12%濃縮ウランが花崗岩などに非均質に濃集した場合には、体系の温度上昇によってさらに中性子増倍係数が大きくなる正のフィードバック効果を持つメカニズムの存在が指摘された。

### 3.4. HLW からの核種放出と地中での輸送と濃集[8,9,10]

高レベルガラス固化体から放出されるアクチニド核種がウラン同位体に崩壊することにより 12%濃縮度のウランが蓄積すると想定し、それに対し正のフィードバックをもつ臨界体系の存在が確認された。処分場に埋設される 4 万本の固化体からそのような体系が可能かどうか、輸送・蓄積解析が行われた。

解析の手順は次のように要約できる。

- 個々のガラス固化体が独立であると仮定し、1本の固化体当たり供給できるウラン同位体の質量と濃縮度を、固化体からの距離の関数であらわす。4万本処分場の外側にウランが蓄積する地点を設定し、4万本から放出されたすべてのアクチニドがその地点で蓄積すると仮定し、上記で求められた関数を 4万本に関して重ね合わせることで、理論上の蓄積量の最大値とそのときの濃縮度を求める。
- 上記で得られる知見を基に、モデルを簡略化し、また過度の保守性を除いて輸

送モデルを調整する。そのモデルを用いて諸パラメータの不確実性に伴うウラン蓄積量の不確実性を評価し、臨界解析で得られた最小臨界質量と比較する。

第1のステップは Ahn[17]により開発された単一固化体からの核種輸送を解析するモデルとコード TTB<sup>9</sup>に改造を加えることにより行われた。

TTB による第1ステップの解析の結果 U-235、U-238 の2核種について着目すれば十分であることがわかったので、第2のステップでは、U 同位体の親になる核種のインベントリをそれぞれの U 同位体のインベントリにあらかじめ足し合わせおき、崩壊系列の計算を省略した。一方、上流の固化体から放出されたウランが流れてくることにより、下流の固化体からのウランの放出が抑制されることを考慮に入れた。そのためのマルチコンパートメントモデルとコードを作成した。このモデルを基に、パラメータの不確実性の影響をモンテカルロ法で解析した。

### 3.4.1. 複数核種崩壊系列・単一独立固化体モデル[8,9]

40,000 本の固化体から放出された物質の輸送と濃集について以下のような仮定をおく。

仮定1：1本の固化体から放出された物質は分散などにより途中で散逸することなく、すべて地下水流の下流に仮定された濃集点まで運ばれる。ただし、輸送途中の放射性崩壊による損失は考慮する。

仮定2：仮定された濃集点まで崩壊せずに生き残った核種は、そこですべて濃集する。さらに下流へ運ばれないものとする。

仮定3：処分場の固化体から放出された物質は、すべて、下流に設定された1点の濃集点に向けて運ばれる。

仮定4：隣接する固化体が当該固化体からの核種の放出に影響せず、それぞれを独立に取り扱えると仮定する。

図12に示すような並行平板亀裂モデルを用いる。亀裂内部と岩盤空隙内は地下水で満たされている。地下水は、亀裂中を流れるが、岩盤中では静止している。地下水流速 $v$ は一定で、亀裂内部のあらゆる地点で等しいものとする。

人工バリアから放出された放射性核種は、図12の亀裂左端から注入され、まず、亀裂中を地下水流れに乗って運ばれる。さらに、亀裂から分子拡散により、静止した岩盤空隙中の水に入っていく。輸送は亀裂内部に存在する物質（固相）との吸着分配平衡により遅延される。また、岩盤中の拡散も、岩との吸着分配平衡により遅延される。

緩衝材中の地下水は静止していると仮定する。ガラス固化体の変質によって放出される放射性核種は緩衝材空隙中の水相を分子拡散によって輸送される。また、緩

---

<sup>9</sup> このコードは複数核種を含む崩壊系列が地層中を移行するプロセスを対象としており、固化体からの核種放出は溶解度限界モード、調和溶解モードを自動的に判別する。それぞれのモードに適合する解析解が選択されて地層中の移行が計算される。地層中の移行は、亀裂性媒体、多孔質媒体の双方を扱うことができる。

衝材固相との吸着分配平衡により、拡散は遅延される。放射性崩壊を考慮する。

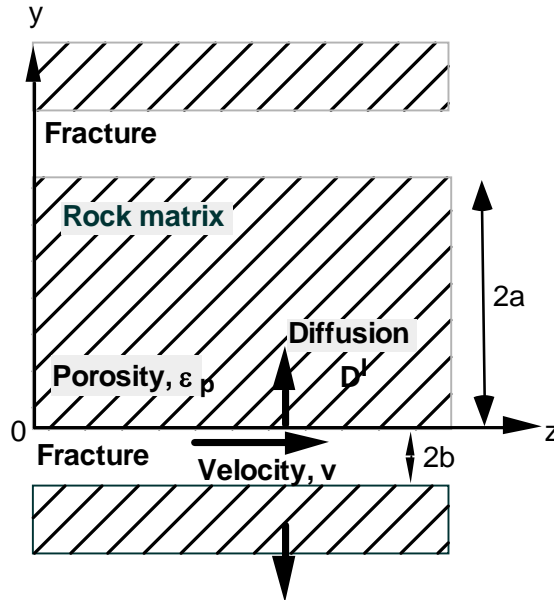


図 12 並行平板亀裂モデル

表 6 に各元素の溶解度及び分配係数とそれに対応する遅延係数をまとめた。それぞれの量には、妥当と考えられる不確実性の幅も示す。

それぞれの核種の半減期とガラス固化体が溶解/変質に要する時間を考えると、大部分のアクチノイド核種はガラス固化体内部、あるいは濃集点に到達する以前の輸送段階で崩壊し、ウランの同位体になっていることが予想される。そこで、モデルを用いた計算においては、次の3つのケースに着目することにした。

ケース(a)では、ウラン以外のアクチノイド核種に対して溶解度の上限値、吸着分配係数の下限値を設定し、ウランに対して溶解度の下限値、吸着分配係数の上限値を設定した。ケース(b)では、その逆に、アクチノイド核種に対して溶解度の下限値、吸着分配係数の上限値を、ウランに対して溶解度の上限値、吸着分配係数の下限値を与えた。ケース(c)では、すべての核種に対して、不確実性幅の中間値を設定した。

ケース(a)では、緩衝材中及び岩盤中で、水相中に存在する核種の量が、ウラン以外のアクチノイド核種に対して最大化されているのに対して、ウランについては最小化されている。つまり、ウランはガラス固化体からの放出後も、考えられるパラメータの範囲内でもっとも動きにくく設定されているのに対して、ウラン以外のアクチノイド核種はもっとも動きやすく設定されている。ケース(b)はその逆で、ウランがもっとも動きやすく設定され、それ以外はもっとも動きにくいように設定されている。

図 13 には 1 本の固化体から放出されそれぞれ 100 m および 1,000 m 離れた濃集点に留まる核種の量の時間変化を示す。前述の 3 ケースについて結果が示してある。

表 6 各元素に仮定されたパラメータの値

溶解度	[mol/m <sup>3</sup> ]	ケース (a)	ケース (b)	ケース (c)
Cm	10 <sup>-4</sup> ~ 10 <sup>-6</sup>	10 <sup>-4</sup>	10 <sup>-6</sup>	10 <sup>-5</sup>
Am	10 <sup>-4</sup> ~ 10 <sup>-6</sup>	10 <sup>-4</sup>	10 <sup>-6</sup>	10 <sup>-5</sup>
Pu	10 <sup>-5</sup> ~ 10 <sup>-7</sup>	10 <sup>-5</sup>	10 <sup>-7</sup>	10 <sup>-6</sup>
Np	10 <sup>-5</sup> ~ 10 <sup>-9</sup>	10 <sup>-5</sup>	10 <sup>-9</sup>	10 <sup>-7</sup>
U	10 <sup>-5</sup> ~ 10 <sup>-7</sup>	10 <sup>-7</sup>	10 <sup>-5</sup>	10 <sup>-6</sup>

緩衝材	遅延係数[無次元]	ケース (a)	ケース (b)	ケース (c)
Cm	4.9 × 10 <sup>4</sup>	4.9 × 10 <sup>4</sup>	4.9 × 10 <sup>4</sup>	4.9 × 10 <sup>4</sup>
Am	4.9 × 10 <sup>4</sup>	4.9 × 10 <sup>4</sup>	4.9 × 10 <sup>4</sup>	4.9 × 10 <sup>4</sup>
Pu	4.9 × 10 <sup>4</sup>	4.9 × 10 <sup>4</sup>	4.9 × 10 <sup>4</sup>	4.9 × 10 <sup>4</sup>
Np	4.9 × 10 <sup>2</sup> ~ 4.9 × 10 <sup>5</sup>	4.9 × 10 <sup>2</sup>	4.9 × 10 <sup>5</sup>	1.5 × 10 <sup>4</sup>
U	4.9 × 10 <sup>2</sup> ~ 4.9 × 10 <sup>5</sup>	4.9 × 10 <sup>5</sup>	4.9 × 10 <sup>2</sup>	1.5 × 10 <sup>4</sup>

母岩	遅延係数[無次元]	ケース (a)	ケース (b)	ケース (c)
Cm	26 ~ 6.4 × 10 <sup>4</sup>	26	6.4 × 10 <sup>4</sup>	1.3 × 10 <sup>3</sup>
Am	26 ~ 6.4 × 10 <sup>4</sup>	26	6.4 × 10 <sup>4</sup>	1.3 × 10 <sup>3</sup>
Pu	64 ~ 6.4 × 10 <sup>4</sup>	64	6.4 × 10 <sup>4</sup>	1.3 × 10 <sup>3</sup>
Np	2.6 ~ 2.6 × 10 <sup>5</sup>	2.6	2.6 × 10 <sup>5</sup>	8.2 × 10 <sup>2</sup>
U	0.26 ~ 2.6 × 10 <sup>5</sup>	2.6 × 10 <sup>5</sup>	0.26	2.6 × 10 <sup>2</sup>

ケース(a)では、ウランが媒体中で動きにくいいため、100 m および 1,000 m の濃集点で観測されるのは <sup>242</sup>Pu と <sup>237</sup>Np 及びそれらの娘である <sup>238</sup>U と <sup>233</sup>U である。これらのウラン同位体はもともとガラス固化体にあったものではなく、それらの親核種である <sup>242</sup>Pu と <sup>237</sup>Np が輸送される途中あるいは濃集した後で崩壊して発生したものである。たとえば、<sup>233</sup>U の濃集はいったん <sup>237</sup>Np が濃集したあと、その崩壊によって生成したものと考えられる。

ケース(a)の2つの輸送距離の結果を比べて、重要な結論が導かれる。すなわち、輸送距離 1,000 m の位置にあるガラス固化体 1 本からは、高々、10<sup>-5</sup> mol 程度の <sup>233</sup>U しか供給されない。また、100 m の輸送距離で最大 0.02 mol 程度の <sup>233</sup>U が供給される。そこで、濃集点が図 14 にあるように、処分場の一辺の直近にあり、かつ、そこから 100 m 以内の領域にあるすべてのガラス固化体（およそ 160 本）から放出される核種がその濃集点に運ばれると仮定しても、高々、3 mol 程度の濃集しかできない。さらに遠方の固化体からの寄与はもっと小さい。したがって、処分場にある全固化体が関与しても最大数モル程度の濃集であるため、ケース(a)は以後の検討から除外できる。

同様のことがケース(c)でも言える。ケース(c)では、100 m の濃集点では、<sup>235</sup>U の濃縮度が 10%弱というウラン同位体の混合した濃集が形成されるが、その量は 1



本の固化体から約 1 mol である。それが、1,000 m では、高々0.001 mol であり、濃集がはじまる時刻も 1 億年より先と遅い。ケース(a)と同様の議論により、濃集点から 100 m 以内の固化体から供給され得るウランの総量は高々200 mol 程度 (約 5 kg) である。したがって、この場合も以後の検討から除外できる。

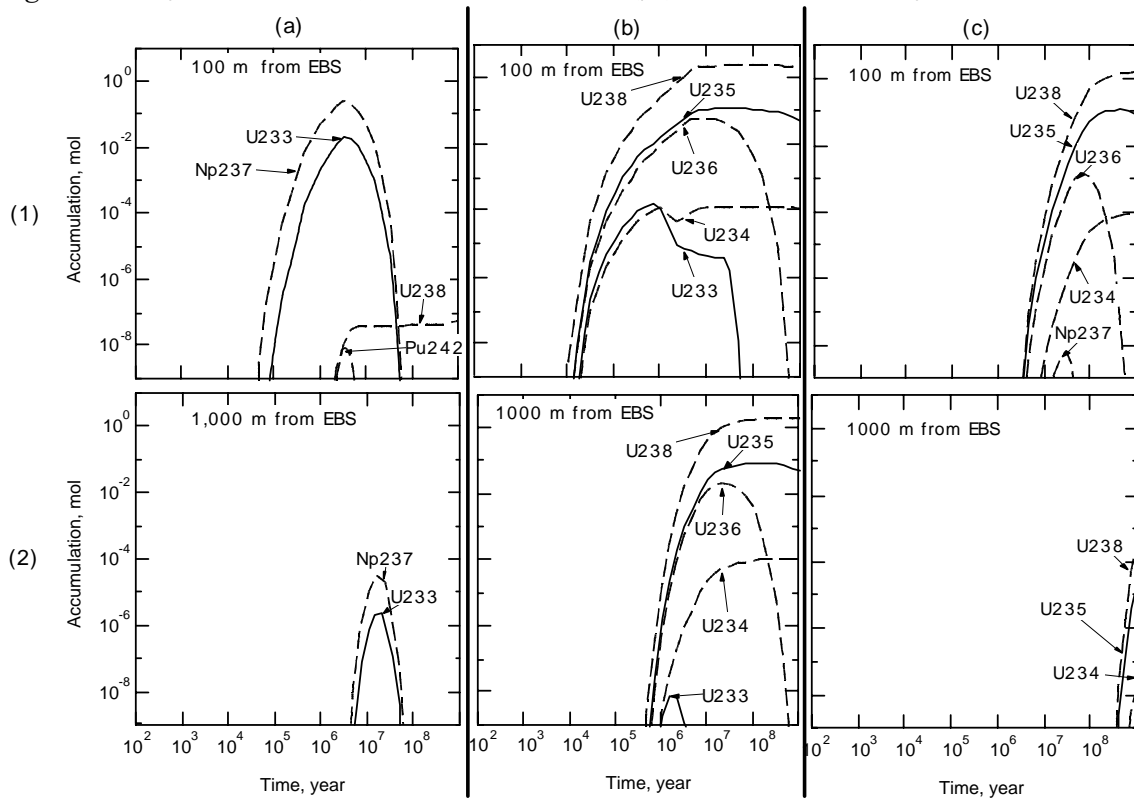


図 13 母岩中の濃集点における濃集量の時間変化

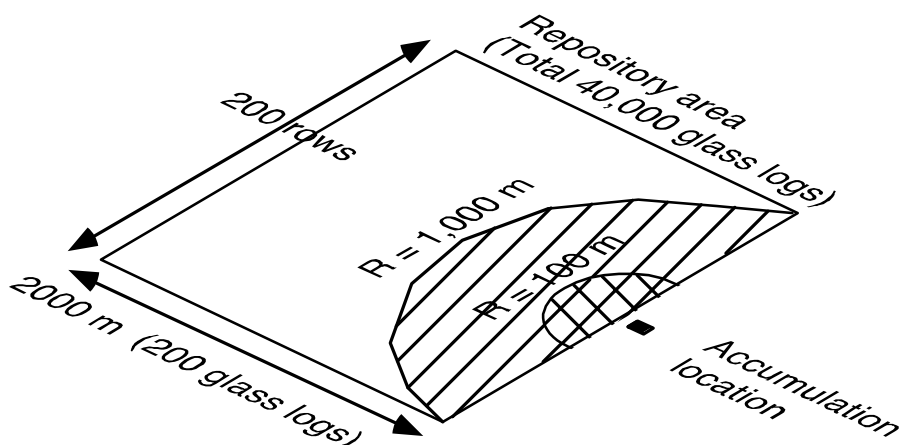


図 14 濃集に関与するガラス固化体

それに対し、ケース(b)の結果は、1,000 m 離れていても、1本の固化体からおおよそ1 molのウランを供給することができることを示している。これは固化体1本に初期含まれる全アクチノイド核種質量11.2 molのおおよそ1割弱に相当する。そのときの濃縮度は約12%である。処分場の広がり、2,000 m × 2,000 mであることを考えると、おそらく処分場内のどの固化体からも同程度の寄与が考えられる。

以上をまとめると、

- ウランの媒体中での動きやすさ（溶解度と吸着分配係数で定量化した）がここで仮定した幅の中間値よりも小さい場合、たとえ、処分場に埋設された40,000本の固化体から放出された核種がすべて1点に濃集したと仮定しても、発生できる濃集量は無視できるくらいに小さい。
- しかし、ウランの媒体中での動きやすさが仮定した幅の最大限にある場合、1,000 m 離れていても1本の固化体から約1 molの12%濃縮ウランを供給できる。処分場の大きさ（2000×2000 m<sup>2</sup>）を考慮すると、処分場内の各固化体から同程度の量は供給可能である。つまり、濃集可能なウランの質量は40,000 molと0の間にあり、上記のような放出された物質がすべて一点に集まると仮定する保守的物質輸送解析のみでは、シナリオの可能性を議論できない。

### 3.4.2. U-235、U-238に対するマルチコンパートメントモデルによる評価[10]

地下水で飽和した処分場の場合、地下水は処分場平面と並行に流れる場合が多い。その場合、上流に位置する固化体が破損し汚染された地下水が下流の固化体からの放出に影響を及ぼすことが考えられる。最上流に位置する固化体は常に汚染されていない地下水に曝されるため、固化体の溶解と核種の放出が最も速くなる。下流では、汚染された地下水に曝されるため、固化体表面と流れる地下水との間の濃度勾配がだんだん小さくなり、放出が遅くなる。

このような効果は、ウランのような長寿命の核種の場合特に顕著となる。それに比べて、Pu-239のように比較的短寿命で隣の固化体周りの領域に達する前に崩壊するような核種の場合、複数の固化体の連結効果はほとんど無視できる。

図15に示すようなマルチコンパートメントモデルを用いて、隣接する固化体の効果も含めたウラン同位体の輸送を解析し蓄積量を見積もった。各コンパートメントはスラブ形状に変換した固化体、緩衝材、ニアフィールド岩で構成される。固化体表面では地下水中のウラン濃度は溶解度に等しいとする。2つの同位体の間で、固化体内での存在比にあわせて溶解度を比例配分した。放出されたウラン同位体は緩衝材の中を拡散し、ニアフィールド岩領域に放出される。そこでは、空隙内を地下水が流れており、放出されたウラン同位体は下流のコンパートメントのニアフィールド岩領域に流れ込む。

最下流に位置するコンパートメントのニアフィールド岩領域から流れ出る地下水によりウラン同位体は処分場の外側の領域(ファーフィールド領域)に放出される。ファーフィールド領域に存在する各ウラン同位体の質量は、ファーフィールドに放出されたあと放射性崩壊により失われる分を考慮して、最下流のコンパートメント

から単位時間当たり放出されるウランの質量を時間積分して得られる。

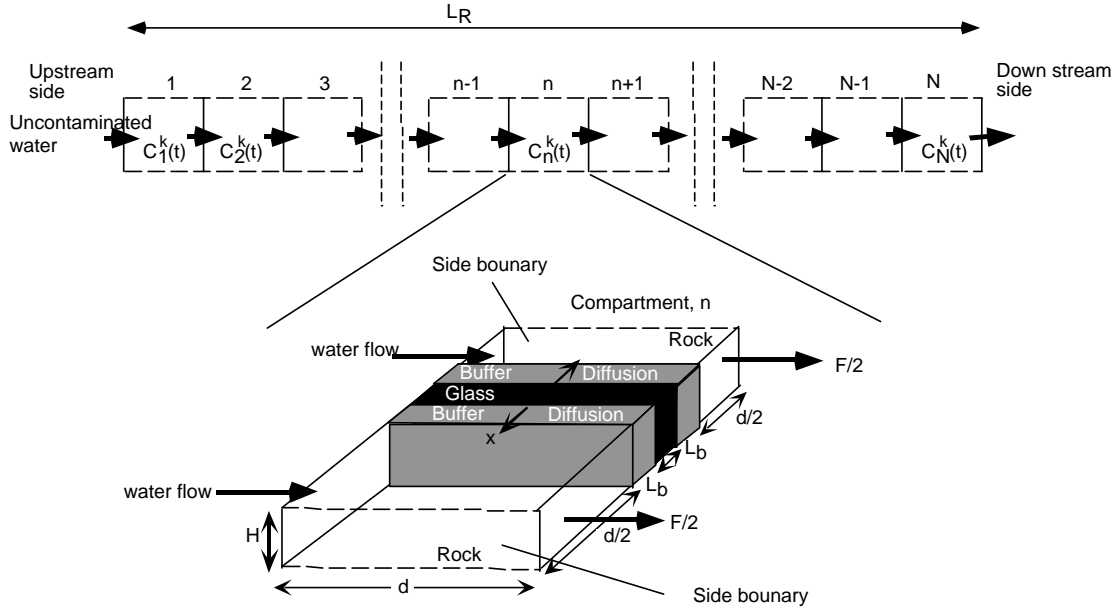


図 15 マルチコンパートメントモデルの概念図。

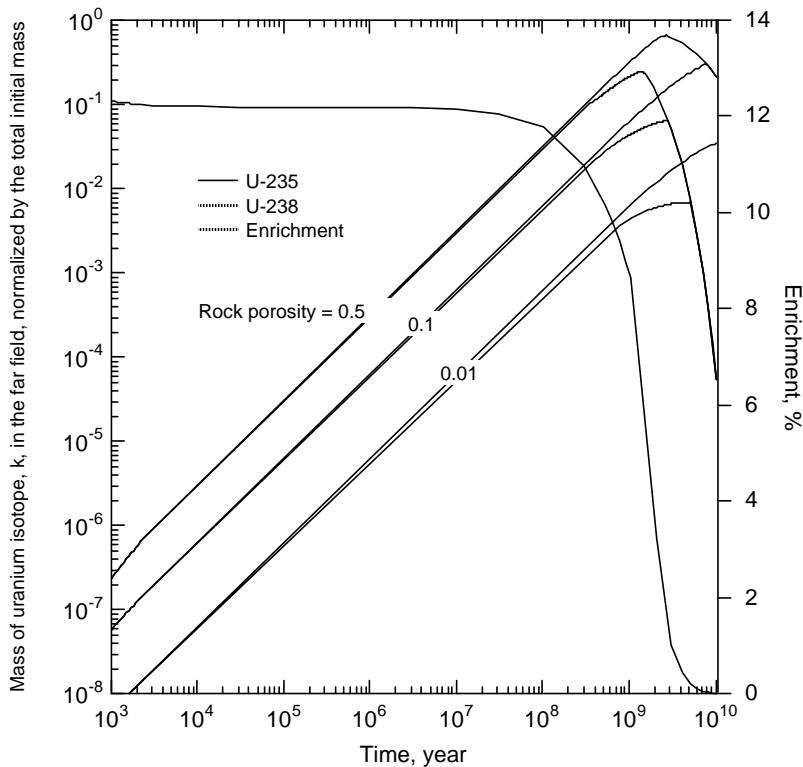


図 16 ファーフィールドに存在するウラン同位体の質量と濃縮度の時間変化。

図 16 は代表的なパラメタの値に対してコンパートメントモデルによりファーフ

フィールドにおけるウラン同位体の存在量を計算した結果である。処分場内部に初期存在したウラン同位体の質量で規格化してある。ニアフィールド領域の空隙率が大きいほどファーフィールドに放出されるウランの量は大きくなることわかる。濃縮度は空隙率に対してほとんど影響を受けず、およそ 1000 万年まで 12%である。それ以降は U-235 の崩壊が顕著となり濃縮度は減少する。

表 7 各パラメータの統計的分布関数とファーフィールド中の U-235 質量の統計分布

パラメータ	Case (a)	Case (b)	Case (c)
地下水流速	正規分布 0.1 ~ 10 m/yr		Fixed 1.0 m/yr
ニアフィールド岩空隙率	正規分布 0.001 ~ 0.5	正規分布 0.2 ~ 0.6	一様分布 0 ~ 0.02
緩衝材空隙率	一様分布 0.23 ~ 0.43		
緩衝材中拡散係数	対数正規分布		
ニアフィールド岩収着分配係数			
緩衝材収着分配係数			
ウラン溶解度			
規格化後のファーフィールドに存在する U-235 質量の最大値の統計分布			
5-Percentile	1. 12E-05	2. 12E-05	1. 54E-05
Median	9. 53E-04	1. 98E-03	1. 90E-04
95-Percentile	2. 69E-02	3. 89E-02	1. 04E-03
99-Percentile	6. 33E-02	9. 23E-02	1. 73E-03

表 7 のように入力パラメータの値の分布関数を仮定しモンテカルロ計算を行った結果、ファーフィールドに存在する U-235 質量の最大値の統計分布が求められた。表 7 の下半分にその結果がまとめられている。

検討した 3 つのケースでは、90%信頼度水準においてファーフィールドに存在しうる U-235 の質量は、初期処分場に存在した全アクチニド質量の 5%を上回ることはないといえる。初期の全アクチニド質量がおよそ 32000 モルであるので、5%は 1600 モル (400kg) に相当する。最大値は図 16 を見ると 10 億年を越えた時点でおきる。処分の安全評価で通常考慮される時間スケールは高々 1 億年である。その時点での U-235 の質量は最大値と比べてほぼ一桁小さいことがわかるので、この解析からファーフィールド中に蓄積しうる U-235 の質量は 1 億年までの時間スケールにおいて最大 40kg(信頼度水準 90%)と結論される。

これは、処分場に埋設された 4 万本すべての固化体から放出されるアクチニドがファーフィールドに放出され存在する U-235 の最大質量である。実際はこれだけの質量の U-235 がすべて一箇所に集まることは考えにくい。

この 40kg という値は、表 3 の空隙率 30%花崗岩の Overmoderated な体系にお

ける最小臨界質量 35kg とほぼ同じ大きさである。

### 3.4.3. まとめ

1 億年の時間スケールではパラメタの不確実性を考慮に入れて評価すると、4 万本の固化体から漏洩してファーフールドに蓄積しうる U-235 の最大質量は 90% 信頼度水準で 40kg 程度、濃縮度はパラメタの不確実性の影響をほとんど受けず 12% である。

### 3.5. 結論

地下水で飽和した花崗岩中に高レベル廃棄物を処分した場合の自己触媒的臨界シナリオの可能性とメカニズムについて解析を行った。

物質輸送解析の結果、4 万本の固化体から漏洩してファーフールドに蓄積しうる U-235 の最大質量は 90% 信頼度水準で 40kg 程度、濃縮度はパラメタの不確実性の影響をほとんど受けず 12% である。

12%濃縮ウランが花崗岩に蓄積した場合、どの程度の質量で過減速状態の臨界になり、さらに自己触媒的臨界になるかどうか、を調べた結果、

1. 濃集点における花崗岩の空隙率が 10%以下のとき、12%濃縮ウランによる過減速状態での臨界の可能性はない、したがって自己触媒的臨界の可能性もない、
2. 濃集点における花崗岩の空隙率が 30%のとき、過減速状態の臨界になるためにすくなくとも 280 kg の 12%濃縮ウランが必要である、
3. 亀裂表面に濃集するような非均質な場合、高濃縮ウランの場合と同様、12%濃縮ウランでも温度に対する正のフィードバックメカニズムが存在する、

ことがわかった。

### 4. 結言

地層処分された TFM が地層中の物質輸送の結果再分布することによって自己触媒的な臨界現象が発生する可能性があると言う Bowman & Venneri[1]の指摘に始まり、1995 年から数年間にわたり UCBNE で実施された研究の成果を中心にレビューを行った。

解体兵器 Pu、高濃縮ウランを埋設する可能性のあるヤッカマウンテン処分場に対する解析からは、凝灰岩、水、TFM の組み合わせにより自己触媒的で爆発的な臨界現象を起こす体系を想定することができることが指摘された。しかし、たとえ爆発的な反応が起きてもその出力は核分裂生成物を地表に吹き上げるほど大きくないことが示された。また、処分された TFM がそのような体系に再分布する可能性はヤッカマウンテンの地下水、地球化学的環境を考えると非常に小さいことが指摘された。

日本においては、このような物質が処分される可能性は少なく、処分場も地下水で飽和した地層に建設されると考えられ、状況がかなり異なる。使用済み燃料再処

理後に発生するガラス固化体を主体とする処分場であると仮定した場合、再処理時のウランとプルトニウムの回収効率がファーフールドで蓄積しうるウランの濃縮度を決定する。回収効率がよいほど、高レベル廃棄物に含まれるほかのアクチニドの影響が重要となり、ファーフールドに出てくるウランの濃縮度は増大する。現在想定されている再処理でのウランとプルトニウムの回収効率を前提とすると12%濃縮度のウランがファーフールド中に蓄積され、その最大量は90%信頼度水準で40kg程度であることがわかった。これだけの質量のU-235が12%濃縮度で半径90cmの領域に非均質に集積した場合、正のフィードバックのかかった臨界体系となる。しかし、処分場から放出されるすべてのアクチニドが一箇所に集まる可能性は非常に低く、この場合も自己触媒的臨界が起きる可能性は低いと結論される。

どちらの場合も、適当な工学的方策を施すことにより、その可能性をさらに小さくすることができる。工学的方策は、

- 中性子毒を加えること、
- もともと含まれるTFMの量を減らすこと、
- TFMの集積を防ぐこと

の3つに大別できる。

中性子毒を加える場合、TFMの地層中での動きとほぼ同じ物質でなければならぬ。ホウ素は地下水中に溶けやすくすぐに流れ去ってしまうため、役に立たない。ヤッカマウンテンの研究では、ウランと化学的性質が似ているガドリニウム、ウランそのものである劣化ウランを廃棄体の中に加えることが提案されている。

再処理をする場合は、意図的にウランの回収率を低くし廃棄体に含まれるU-238の量を増やすことによって可能性をさらに小さくすることができる。

懸念の元となっているTFMそのものを廃棄体から減らす方策としては、解体兵器Puあるいは高濃縮ウランを燃料として再利用するのがもっとも自然であろう。そもそも、Bowman & Venneri[1]は核変換処理の有効性を主張する根拠としてこの問題を指摘した。再処理ガラス固化体の場合でもAmやNpなどのマイナーアクチニドを減らすことが方策として考えられる。

TFMの集積を減らす方策は、多くの場合処分場のサイト選定、設計で実現できる。現実的には、この方法が最もコスト的に有利であろう。人工バリアの空隙率を小さくすること、地下水流速を小さくすること、などがここでレビューした研究の結果から直ちに指摘できる方策である。

臨界現象に関しては、ここでレビューしたように多くの場合処分の安全性を脅かすような重要な問題になる可能性は小さいと考えられる。しかし、今後の課題としていくつかの点を指摘することができる。

- 日本の場合、臨界の懸念をできるだけ小さくするようなサイトを選ぶことが望ましい。そのための条件として母岩の空隙率が小さいこと、化学的環境が大きく変わるような破碎帯が近傍にないこと、破碎帯に向けて収斂するような地下

水の流れが見られないことなどが考えられる。サイト選定基準の一部として使えるように詳細な検討を行っておくことが望まれる。

- 実際にサイトが選定された後も、安全評価の一部として臨界安全性を確認することが必要となる。
- 使用済み燃料直接処分がガラス固化体処分と並行して行われる場合、U-238の量が多いため、ファーフールドで蓄積するウランの濃縮度はここで想定した12%より小さくなると考えられ、臨界事象発生の確率はさらに小さくなる。これは安全性向上のためには好材料である。一方で今後軽水炉燃料の高燃焼度化が進むため、直接処分される使用済み燃料に含まれるウラン以外のアクチニドの量が増えることが予想される。処分に用いられる使用済み燃料格納容器の破損までの時間にも依存するが、アクチニドがウラン同位体に崩壊する程度の期間、容器が健全性を保つと容器に保持されるウランの濃縮度が増大し、容器が破損して地下水の浸入が始まったとき臨界状態を作る可能性が懸念される。これらのことも含めて、使用済み燃料直接処分を考える場合には臨界安全解析を行うことが望ましい。

## 5. 文献リスト

- [1] Bowman, C. D., and Venneri, F.: *Underground Autocatalytic Criticality from Plutonium and Other Fissile Material*, Los Alamos National Laboratory, LA-UR-94-4022A, March (1995).
- [2] Clayton, E. D.: *Anomalies of Nuclear Criticality*, Pacific Northwest Laboratory, Richland, WA, PNL-SA-4868 Rev. 5, June (1979).
- [3] Gore, B. F., Jenquin, U. P., and Serne, R. J.: *Factors Affecting Criticality for Spent-Fuel Materials in a Geologic Setting*, Pacific Northwest Laboratory, PNL-3791, April (1981).
- [4] Cowan, G. A.: A Natural Fission Reactor, *Scientific American*, **235**, 36 (1976).
- [5] Kastenberg, W. E., Peterson, P. F., Ahn, J., Burch, J., Casher, G., Chambré, P. L., Greenspan, E., Olander, D. R., Vujic, J., Bessinger, B., Cook, N. G. W., Doyle, F. M., and Hilbert, B.: *Mechanisms for Autocatalytic Criticality of Fissile Materials in Geologic Repositories*, UCB-NE-4214 (1996).
- [6] Kastenberg, W. E., Peterson, P. F., Ahn, J., Burch, J., Casher, G., Chambré, P. L., Greenspan, E., Olander, D. R., Vujic, J., Bessinger, B., Cook, N. G. W., Doyle, F. M., and Hilbert, B.: Consideration of Autocatalytic Criticality of Fissile Materials in Geologic Repositories, *Nuclear Technology*, **115**, 298–310 (1996).
- [7] Ahn, J., Transport of Weapons-Grade Plutonium and Boron Through Fractured Geologic Media, *Nuclear Tehnology*, **117**(3), 316-328, 1997.
- [8] Ahn, J., E. Greenspan, and P. L. Chambré, A Preliminary Consideration for Underground Autocatalytic Criticality by Vitrified High-Level Waste

- in Water-Saturated Geologic Repository, *Journal of Nuclear Science and Technology*, **37(5)**, 465-476, 2000.
- [9] Ahn, J., E. Greenspan, and P. L. Chambré, Mechanisms and Possibility of Autocatalytic Criticality by High-Level Wastes Buried in Water-Saturated Geologic Formation, *Journal of Nuclear Fuel Cycle and Environment*, **4(2)**, 3-20, 1998.
- [10] Ahn, J., Criticality Safety Assessment for a Conceptual High-Level-Waste Repository in Water-Saturated Geologic Media, *Nuclear Technology*, **126**, 303-318, 1999.
- [11] G. H. Canavan, et al., "Comments on 'Nuclear Excursions' and 'Criticality Issues,'" LA-UR-95-0851, Los Alamos National Lab., 1995,
- [12] P. B. Parks, M. L. Hyder, and T. G. Williamson, "Final Issue of 'Consequences of the Bowman-Venneri Nuclear Excursion Thesis on the Prospects for Placing Vitrified Plutonium Canisters in Geologic Repositories,'" PDI-SPP-95-0023, Westinghouse Savannah River Company,
- [13] R. A. Van Konynenburg, "Comments on the Draft Paper 'Uncerground Supercriticality for Plutonium and Other Fissile Material,'" UCRL-ID-120990 COM, Lawrence Livermore National Lab., 1995
- [14] R. Sanchez et al., "Criticality Characteristics of Mixtures of Plutonium, Silicon Dioxide, Nevada Tuff, and Water," LA-UR-95-2130, Los Alamos National Lab., 1995.
- [15] 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－平成3年度、動燃事業団技術資料 PNC TN 1410 92-08 (1992).
- [16] 地学事典、増補改訂版、平凡社、東京 (1981).
- [17] Ahn, J.: Integrated Radionuclide Transport Model for an HLW Repository in Water-Saturated Geologic Formations, *Nuclear Technology*, in press.