

# Performance Assessment of HLW Geologic Disposal by Compartment Models

A Review of Studies Performed at UCBNE

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

Joonhong Ahn

Department of Nuclear Engineering  
University of California, Berkeley

February, 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)

高レベル廃棄物地層処分性能評価  
コンパートメントモデル  
に関する UCB におけ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

February, 2004

1.	概論.....	1
2.	コンパートメントモデルの定式化.....	3
2.1.	想定される処分場と核種輸送現象.....	3
2.2.	輸送現象の方程式.....	5
3.	コンパートメントモデルの計算コード[6, 7].....	8
4.	得られた知見.....	11
4.1.	処分性能評価.....	11
4.1.1.	臨界安全解析[1, 2].....	11
4.1.2.	HLW4 万本処分概念に対する性能評価[5,8].....	13
4.2.	理論的検討.....	15
4.2.1.	溶解度限界核種[3, 4, 10, 11].....	15
4.2.2.	調和溶解核種[12, 13].....	20
4.3.	処分容量との関係.....	22
4.3.1.	環境負荷指標[3, 4].....	22
4.3.2.	環境負荷指標と処分設計パラメタとの関係[9, 14, 15].....	24
5.	まとめと今後の展望.....	28
6.	レビューした文献一覧.....	29

## 1. 概論

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、1997 年から、高レベル放射性廃棄物処分場の性能評価解析のツールとして、コンパートメントモデルの開発が行われてきた。

発端は、1995 年から行われた処分場に埋設された核分裂性物質による臨界現象の可能性の解析である<sup>1</sup>。それまでの性能評価モデルでは、埋設された 1 本の廃棄体に着目し、そこからの漏洩と放射性核種の移行を解析した<sup>2</sup>。最終的に被ばく線量率を求める性能評価においては、このような 1 本の廃棄体を放出源とする解析から得られる結果(主に、放射性核種の地下水中の濃度あるいは生物圏への放出率)に埋設される廃棄体の数を掛けることにより「保守的」な結果が得られると考えられた。しかし、臨界解析のように、処分場内部における廃棄体の配列や処分場自体の空間的広がりが重要である場合、このような 1 本の廃棄体を基にしたモデルでは妥当な評価ができない<sup>3</sup>。

このような必要性から、最初のコンパートメントモデル[1, 2]が開発された。最初のバージョンでは、臨界シナリオで重要となる U-235 と U-238 の 2 つのウラン同位体に対して、溶解度限界メカニズムと上流に位置する廃棄体から放出されたウランの影響を考慮して処分場内部のウランの輸送を解析できるようにした。その結果、処分場外側領域(ファーフィールド)に存在する二つのウラン同位体の質量が時間の関数として求められた。

このコンパートメントモデルでは、各コンパートメントに含まれる人工バリアとして廃棄体マトリックスと拡散支配の緩衝材層を考慮した。緩衝材層からニアフィールド岩領域 (NFR) へ放出された核種は上流のコンパートメントの NFR からの汚染地下水と瞬時完全混合してさらに下流のコンパートメントの NFR 領域へと輸送される。複数のコンパートメントは、このように NFR 領域の地下水流れを介して 1 次元直列的に連結される。

このモデルの開発に伴い、2 つの点が認識された。

- 複数の廃棄体の影響を考慮に入れると、溶解度限界メカニズムが働くアクチニド核種の放出であっても、処分場境界から出て行く地下水中の核種濃度は廃棄体の配列に依存し、連結されたコンパートメントの数と処分場外へ出て行く核

---

<sup>1</sup> Kastenber, 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).

<sup>2</sup> たとえば、Ahn, J.: Integrated Radionuclide Transport Model for an HLW Repository in Water-Saturated Geologic Formations, *Nuclear Technology*, **121**, 24-39, January 1998.

<sup>3</sup> このことに関しては、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. に詳細が論じられている。

種濃度との間には非線形な関係が見出された。つまり、処分場内部のレイアウト、設計が処分の性能評価結果に影響を及ぼすことが確認された。

- 処分の安全性を定量的に示す指標は被ばく線量率が唯一ではなく、「安全」の中身が種々ありうるのに対応して複数考えられてもよい。被ばく線量率は地下水中に含まれる核種の濃度で決定される指標と考えられるのに対し、臨界安全性に対しては核分裂性物質の質量を指標に用いる。また、主に地下水中の核種濃度を見るこれまでの性能評価モデルでは、埋設される廃棄体中の放射性核種の質量が性能に重要な影響を与えると考えられていなかったが、これも処分性能に影響する因子のひとつであることがわかった[3, 4]。

このように、コンパートメントモデルを用いる処分性能評価の意義と利点が認識されたため、より一般的なケースに適用できるモデルとコードの開発が行われた[5]。その結果、1999年の段階で、(1) 複数核種崩壊系列、(2) 1次元直列複数コンパートメント、(3) 破損した廃棄体からの核種放出が溶解度限界か調和溶解かの自動判定機能を含むモデルとコードが完成し、VR (Virtual Repository) コードとなった[6, 7]。

VR コードは、C++言語で書かれており、複数の崩壊系列計算を同時に行うために、並列計算技術 Parallel Virtual Machine (PVM)<sup>4</sup>を応用している。入出力をわかりやすくするためのインターフェースを備え、Windows PC および Linux などの Unix 系の OS 上で走る。

VR コードを用いて軽水炉使用済み燃料を再処理して発生するガラス固化体4万本の処分の性能評価、環境負荷評価、臨界安全評価が行われた[8]。また、固化体は使用済み燃料の燃焼度の違いにより含まれる核種の量に違いがあることに着目した環境負荷解析が行われた[9]。

もう一方の流れとして、理論的解析も行われた。上述のガラス固化体4万本の環境負荷解析から Np-237 (溶解度限界溶解)、Cs-135 (調和溶解) が主たる環境負荷核種であることに着目し、それぞれの場合をより詳しく検討した。Np-237 に対しては、崩壊系列の上位に存在する核種が比較的短寿命であること、Np のほかの同位体が無視できること、人工バリア内部の濃度分布が比較的早く定常状態に達することなどの知見からモデルを簡略化した結果、処分場からの放出率を処分場内部での固化体の配列、一個の固化体に含まれる Np-237 の初期質量、人工バリア中の移行パラメータの関数で表すことができた[10, 11]。また、Cs-135 に対しては調和溶解であることを利用して、処分場からの放出率を解析的に得ることができた[12, 13]。

これらの解析的結果を用いて、処分場の設計パラメータ、固化体の仕様と環境負荷との間の関係を導出し、処分場によりもたらされる環境負荷を増大させることなく処分場の容量(発電量換算)を拡大する方策について検討が加えられた[14, 15]。

---

<sup>4</sup> A. Geist, et al., *PVM: Parallel Virtual Machine, A Users' Guide and Tutorial for Networked Parallel Computing*, MIT Press, ISBN 0-262-57108-0, 1994.

## 2. コンパートメントモデルの定式化

### 2.1. 想定される処分場と核種輸送現象

2次元平面に廃棄体が格子状に並ぶ状況を考える。廃棄体間隔は発熱や坑道安定性によって決定される設計パラメタである。廃棄体表面と廃棄体が定置される坑道表面の間は緩衝材が充填される。緩衝材中では地下水の流れが遅く破損した廃棄体からの核種の移行は拡散支配とする。緩衝材層の外側に岩盤が存在する。岩盤は、坑道掘削、廃棄体からの発熱などの影響で、透水性、地球化学的条件などがフェアフィールドのそれと異なっていると考えられ、コンパートメントモデルでは「ニアフィールド岩領域(NFR)」として異なるものとして扱う。格子状に並べられたすべての廃棄体とその周りの NFR を含む領域を「処分場領域」とし、その外側を「フェアフィールド領域」とする。

コンパートメントモデルでは、処分場領域を廃棄体の数に等しい数のコンパートメントに分割する。各コンパートメントは、1個の廃棄体、その周りの緩衝材、その周りの NFR で構成される。地下水は、あるコンパートメントの NFR から処分場領域に入り、いくつかのコンパートメント中の NFR をながれ、処分場領域から出て行く。その間、破損した廃棄体があり核種がすでに放出されていれば、地下水は汚染されて処分場領域を出て行くことになる。また、流路に含まれるコンパートメントのうち、下流に存在するコンパートメント中の NFR にはすでに汚染された地下水が流れ込むので、緩衝材中の核種の拡散プロファイルに影響することが考えられる。

現在のコンパートメントモデルでは、処分場領域から、同じ流路に含まれるコンパートメントを直列(1次元)に抽出し、それに対して物質移動を考える。その様子を図1に示す。

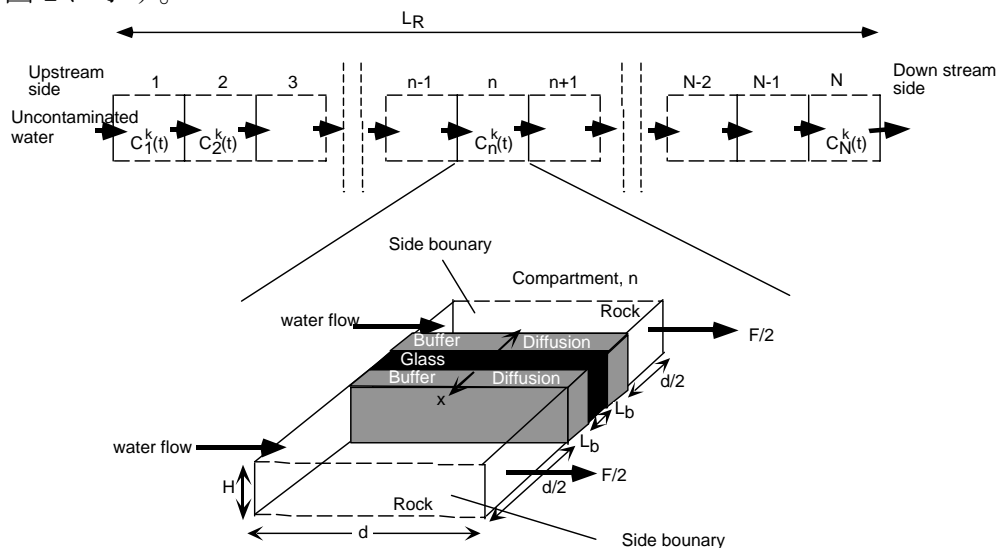


図1：コンパートメントモデル概念図

格子状に並んでいる2つの隣接する廃棄体間の中面がコンパートメントの境界面でNFR中に設定できる。廃棄体の埋設間隔が $d$  [m]であれば、コンパートメントは一辺が $d$ の正方形領域になる。

現在のコンパートメントモデルでは、通常円柱形状である廃棄体をスラブ体系に変換<sup>5</sup>し核種移行を考える。この場合、廃棄体の表面積 $S$ がスラブ体系でも同じになるように変換する。長方形の一辺が $d$ であるため、もう一辺 $H$  [m]は

$$2dH = S. \quad (1)$$

スラブ状廃棄体からの核種の放出はスラブの両面で起きると考えるので、係数2が含まれる。やはりスラブ状に変換される緩衝材の厚さ $L_b$  [m]は、元の中空円柱状緩衝材中での拡散時間が同じになるように定める。

廃棄体の破損により廃棄体内部の固化体は地下水と接触し溶解を始める。現在のコンパートメントモデルでは、すべてのコンパートメントにおいて廃棄体が同時に破損すると仮定されている。固化体の溶解により中に含まれていた放射性核種が調和的に<sup>6</sup>地下水中に溶け出す。固化体直近の地下水中の核種濃度は時間とともに増加する。

もし、核種の溶解度が低ければ溶解度に到達した時点で増加はとまり、溶解度が一定となる。その間も固化体が溶解を続けそこに含まれる核種が放出され続けると、溶けきれない核種は析出する。このような放出モードの場合、廃棄体領域の外から観測すると、廃棄体表面に存在する地下水中の濃度が溶解度が一定に保たれ周囲の緩衝材中に核種が拡散で広がっているように見える(これをここでは「溶解度限界モード」とよぶ)。モデルでは一旦溶解度に達した核種の廃棄体表面の濃度は、廃棄体領域内に存在するその核種の質量がゼロになるまで、溶解度になると仮定する。廃棄体領域内の核種の質量がゼロになったあとは廃棄体/緩衝材界面における濃度勾配がゼロであると仮定する。

もし、核種の溶解度が十分に高ければ、廃棄体表面の濃度は調和溶解により時間とともに増加する。廃棄体/緩衝材界面では固化体溶解速度によって決定される核種の調和溶解速度と拡散フラックスが等しいと仮定し境界条件とする。浸出時間以後は廃棄体領域内に核種は存在せず、廃棄体/緩衝材界面における濃度勾配がゼロであると仮定する。

緩衝材中の核種移行は、緩衝材中の空隙に存在する水相中の(1次元)拡散によって起きると仮定する。地下水の流れは無視する。緩衝材固相と空隙水相間の収着分配を仮定し、それにより決定される遅延係数を定義する。

緩衝材を拡散によって通過した核種は、NFR領域に放出される。放出された核

---

<sup>5</sup> 円柱をスラブ体系に変換して核種移行を考えるのは、円柱側面の曲率半径が大きいときにより近似となる。スラブ体系にすることにより廃棄体表面での濃度勾配(核種放出率)が過小評価され、保守的評価の観点からは望ましくない。

<sup>6</sup> 固化体からの核種放出率と固化体マトリックス(例えばガラスマトリックス)の放出率の比が、固化体マトリックス中の核種の質量と固化体マトリックスの質量の比に等しい。



種は、上流のコンパートメントの NFR 領域から流れ込んだ核種と瞬時完全混合すると仮定する。NFR 領域では地下水が一定の間隙流速  $v$  で流れているとする。NFR 領域を流れる地下水の流量  $F[\text{m}^3/\text{yr}]$  は、図 1 で示すコンパートメントの形状と寸法から、

$$F = vHd\varepsilon_p, \quad (2)$$

となる。ここで、 $\varepsilon_p$  は NFR 領域の空隙率である。

廃棄体領域、緩衝材領域、NFR 領域において核種は放射性崩壊により娘核種に変わる。崩壊系列を考慮する。

## 2.2. 輸送現象の方程式

上流から数えて  $n$  番目のコンパートメントの廃棄体領域に残存する放射性核種  $k$  (放射性崩壊系列中  $k$  番目) の質量  $M_{e(k)}^n(t)$  [mol] に対して、

$$\begin{aligned} \frac{dM_{e(k)}^n}{dt} &= -\lambda_{e(k)} M_{e(k)}^n(t) + \lambda_{e(k-1)} M_{e(k-1)}^n(t) - q_{e(k)}^n(t), \\ 0 < t < T_e^n, n &= 1, 2, \dots, N, k = 1, 2, \dots, i, \lambda_0 = 0, \end{aligned} \quad (3)$$

が成立する。下つき添え字  $e(k)$  はその核種  $k$  が元素  $e$  の同位体であることを示す。 $\lambda_{e(k)}$  [ $\text{yr}^{-1}$ ] 核種  $k$  の崩壊定数である。 $i$  は崩壊系列の中に含まれる核種の数、 $N$  は 1 次元に連結されるコンパートメントの数を示す。

(3)式右辺の項  $q_{e(k)}^n(t)$  [mol/yr] は核種  $k$  の廃棄体から緩衝材層への放出率を示す。(17a)と(17b)式参照。 $T_e^n$  は元素  $e$  がコンパートメント  $n$  の廃棄体領域からなくなる時刻であり、数値的に  $M_{e(k)}^n(t)$  を計算して求められる。

コンパートメント  $n$  の NFR 領域の間隙水相中で、核種  $k$  の濃度が  $C_{e(k)}^n(t)$  [mol/m<sup>3</sup>] で均一であると仮定する。コンパートメントの側面(流れと平行な側面)を横切る地下水の移動と核種の移動はないと仮定する。側面は隣接するコンパートメント列との境界面と考えられる。濃度  $C_{e(k)}^n(t)$  に対する支配方程式は、

$$\begin{aligned} \varepsilon_p R_{e(k)} V \frac{dC_{e(k)}^n}{dt} &= -\lambda_{e(k)} V \varepsilon_p R_{e(k)} C_{e(k)}^n + \lambda_{e(k-1)} V \varepsilon_p R_{e(k-1)} C_{e(k-1)}^n + FC_{e(k)}^{n-1} - FC_{e(k)}^n + Q_{e(k)}^n(t), \\ C_{e(k)}^0 &= 0, t > 0, n = 1, 2, \dots, N, k = 1, 2, \dots, i, \lambda_{e(0)} = 0 \end{aligned} \quad (4)$$

と書くことができる。ここで、 $V$  [m<sup>3</sup>] は 1 コンパートメント中の NFR の体積である。収着分配平衡を考慮し、遅延係数  $R_{e(k)}$  を

$$R_{e(k)} = 1 + \frac{\rho_p(1-\varepsilon_p)}{\varepsilon_p} K_{dp}^e \quad (5)$$

と定義する。ここで  $\rho_p$  [kg/m<sup>3</sup>] は NFR 領域の岩盤の密度、 $K_{dp}^e$  [m<sup>3</sup>/kg] は元素  $e$  に対する NFR 岩盤固相と間隙水相との間の収着分配係数である。

(4)式右辺第1, 2項は核種  $k$  の質量の放射性崩壊による変化を表す。第3項は上流のコンパートメント  $n-1$  から流れ込んでくる、第4項は当該コンパートメント  $n$  からひとつ下流のコンパートメントへ流れ出る核種  $k$  の単位時間当たりの質量を示す。 $Q_{e(k)}^n(t)$  [mol/yr] は緩衝材層と NFR 領域の界面を通過して NFR 領域へ放出される核種  $k$  の単位時間当たりの質量であり、(18)式で与えられる。

(3)(4)式は次の初期条件の下で解かれる。

$$C_{e(k)}^n(0) = 0, \quad n = 1, 2, \dots, N, k = 1, 2, \dots, i, \quad (6)$$

$$M_{e(k)}^n(0) = \overline{M}_{e(k)}^n, \quad n = 1, 2, \dots, N, k = 1, 2, \dots, i, \quad (7)$$

ここで、 $\overline{M}_{e(k)}^n$  [mol] はコンパートメント  $n$  の廃棄体に時刻0に存在する核種  $k$  の質量である。

緩衝材中の核種の拡散は1次元で定式化する。核種  $k$  の緩衝材間隙水相中の濃度  $N_{e(k)}^n(x, t)$  は

$$K_{e(k)} \frac{\partial N_{e(k)}^n}{\partial t} = D_{e(k)} \frac{\partial^2 N_{e(k)}^n}{\partial x^2} - K_{e(k)} \lambda_{e(k)} N_{e(k)}^n + K_{e(k-1)} \lambda_{e(k-1)} N_{e(k-1)}^n,$$

$$t > 0, 0 < x < L_b, n = 1, 2, \dots, N, k = 1, 2, \dots, i \quad (8)$$

と書くことができる。ここで、 $D_{e(k)}$  [m<sup>2</sup>/yr] は元素  $e$  の拡散係数である。また、収着分配並行による遅延を仮定し遅延係数  $K_{e(k)}$  を次のように定義する：

$$K_{e(k)} = 1 + \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon} \rho K d_e \quad (9)$$

ここで  $\rho$  [kg/m<sup>3</sup>] と  $\varepsilon$  は、それぞれ緩衝材の密度と空隙率である。 $K d_e$  [m<sup>3</sup>/kg] は緩衝材層における元素  $e$  の収着分配係数である。

式(3)の初期条件は

$$N_{e(k)}^n(x, 0) = 0, 0 < x < L_b, n = 1, 2, \dots, N, k = 1, 2, \dots, i \quad (10)$$

で与えられる。緩衝材と NFR の界面では境界条件として

$$N_{e(k)}^n(L_b, t) = C_{e(k)}^n(t), t > 0, n = 1, 2, \dots, N, k = 1, 2, \dots, i \quad (11)$$

を仮定する。廃棄体と緩衝材の界面  $x = 0$  における境界条件は廃棄体からの核種放出メカニズムに依存して決定される。2. 1節に記述したような放出メカニズムを考慮すると、時刻ゼロからしばらくの初期の間は固化体の溶解と調和的に核種が放出されるとし、境界条件は

$$-S\varepsilon D_{e(k)} \frac{\partial N_{e(k)}^n}{\partial x} \Big|_{x=0} = m_{e(k)}^n(t) \quad (12)$$

であらわされる。この条件は元素  $e$  の濃度がその溶解度  $N_e^*$  より小さい間、すなわち  $\sum_e N_{e(k)}^n(0,t) < N_e^*$  が満たされる間、適用される。元素の濃度は各同位体の濃度の輪で求める。

(12)式右辺の  $m_{e(k)}^n(t)$  [mol/yr]は核種  $k$  の調和溶解による放出率である。固化体が単位時間当たり一定の割合で浸出時間  $T_L$  [yr]の間溶ける場合、 $m_{e(k)}^n(t)$ は

$$m_{e(k)}^n(t) = \begin{cases} \frac{M_{e(k)}^n(t)}{T_L - t}, & 0 < t < T_L \\ 0, & t > T_L \end{cases} \quad (13)$$

と書くことができる。

もし、元素濃度が時刻  $T_L$  よりも前に溶解度に達した場合、すなわち

$$\sum_e N_{e(k)}^n(0, t_e^{n*}) = N_e^*, \quad t_e^{n*} < T_L \quad (14)$$

を満たす場合は、その時  $t_e^{n*}$  以降廃棄体／緩衝材界面の元素濃度は溶解度で固定され、その元素が廃棄体領域からなくなるまで継続する。時刻  $t_e^{n*}$  以降、元素濃度中に占める各同位体の濃度は廃棄体領域に残っている各同位体の執拗に比例して配分されると仮定する。したがって、(8)式に対する境界条件は、(14)が成立している場合、

$$N_{e(k)}^n(0, t) = N_e^* \gamma_{e(k)}^n(t), \quad t_e^{n*} < t < T_e^n, \quad n=1,2,\dots,N, \quad k=1,2,\dots,i \quad (15)$$

と書くことができる。ここで、同位体  $k$  に対する溶解度の配分係数  $\gamma_{e(k)}^n(t)$  は

$$\gamma_{e(k)}^n(t) = \frac{M_{e(k)}^n(t)}{\sum_e M_{e(j)}^n(t)}, \quad t_e^{n*} < t < T_e^n, \quad n=1,2,\dots,N, \quad k=1,2,\dots,i \quad (15a)$$

と書くことができ、式(3)を数値的に解くことにより各時刻において数値的に求めることができる。 $T_e^n$  は廃棄体領域から元素  $e$  がなくなる時刻である。

廃棄体領域から核種がなくなった後（溶解度限界になった場合は  $t > T_e^n$ 、 $t < T_L$  の間調和溶解であった場合は  $t > T_L$ ）、廃棄体領域からの放出がなくなるので、境界条件は

$$\frac{\partial N_{e(k)}^n}{\partial x} \Big|_{x=0} = 0 \quad (16)$$

と書ける。

廃棄体領域から緩衝材層への核種の放出率  $q_{e(k)}^n(t)$  は、(12)式の境界条件が適用されている場合、

$$q_{e(k)}^n(t) = m_{e(k)}^n(t) \quad (17a)$$

で計算される。また、(15)式が適用されている場合、

$$q_{e(k)}^n(t) = -S\varepsilon D_{e(k)} \left. \frac{\partial N_{e(k)}^n}{\partial x} \right|_{x=0} \quad (17b)$$

と書ける。

(17a)式の右辺は調和溶解の放出率であり、(13)で与えられる。(17b)の右辺は、廃棄体／緩衝材界面における拡散フラックスであり、(8)式を(15)式を含む境界条件で数値的に解いて求められる濃度プロファイルを基に数値的に求められる。

緩衝材層から NFR への放出率  $Q_{e(k)}^n(t)$  は

$$Q_{e(k)}^n(t) = -S\varepsilon D_{e(k)} \left. \frac{\partial N_{e(k)}^n}{\partial x} \right|_{x=L_b} \quad (18)$$

と書くことができる。右辺は界面における拡散フラックスであり、やはり緩衝材中の濃度プロファイルを基に数値的に求められる。

1次元コンパートメント列の最下流  $N$  番目のコンパートメントの NFR からは汚染された地下水が流れ出ることによって核種がファーフールドに放出される。ファーフールドに存在する核種の物質収支は

$$\frac{dM_{e(k)}^F}{dt} = -\lambda_{e(k)} M_{e(k)}^F + \lambda_{e(k-1)} M_{e(k-1)}^F + FC_{e(k)}^N(t), \quad t > 0, \quad M_{e(k)}^F(0) = 0 \quad (19)$$

で表される。右辺第 3 項は 1 次元コンパートメント列の最下流  $N$  番目のコンパートメントの NFR からファーフールドに放出される核種の放出率である。第 3 項に含まれる濃度  $C_{e(k)}^N(t)$  は(4)式により、それより上流のコンパートメントにおける NFR 中の濃度  $C_{e(n)}^n(t), n=1, \dots, N-1$  に依存するため、ファーフールド中の核種の質量  $M_{e(k)}^F(t)$  は処分場内部の核種輸送現象によって決定されることが指摘される。

### 3. コンパートメントモデルの計算コード[6, 7]

VR (Virtual Repository)は前節で説明されたような放射性核種の HLW 処分場領域内部における輸送現象を模擬するコードである。

VR コードは複数のオブジェクト *objects* から成っている。各オブジェクトは処分場を構成する物理的なパーツの機能と挙動を基に開発されるコード群である。処

分場の構成が変わった場合は、それに合わせて、これらのオブジェクトを修正、あるいは追加・削除すればよい。この点が従来の手続き型言語（FORTRAN や C）で書かれたコードと比べた場合の最大の利点である。

もうひとつの特徴は、VR は並列・分散計算技術を応用していることである(図 2 参照)。*Local Area Network* (LAN)で接続された複数の PC (Windows あるいは Linux) を用いて計算を行う。

VR は、シミュレーション・エンジン、インターフェース (HCI) 、データベースの 3 つの部分から構成される(図 3 参照)。

シミュレーション・エンジンは処分場内部の核種移行計算を行う。複数の PC を用いて並列計算する場合、並列計算実行上のホスト・コンピュータとスレイブ・コンピュータにそれぞれのエンジンをインストールする。1 台の PC で行うときはホスト用とスレイブ用の両方のエンジンをインストールする。シミュレーション・エンジンの部分は、オブジェクト指向言語 VisualC++を用いた。

インターフェース (HCI) を用いて、計算に必要なすべての入力データを作成する。また、計算結果は HCI を用いて図示することができる。この部分のコードは Microsoft Visual Basic を用いて開発された。

データベース部は計算の結果を蓄える。Microsoft Access を用いる。数値計算結果をユーザが指定する形式で呼び出し図示することができる。

インターフェース部とデータベース部はホスト・コンピュータ上にインストールされる。

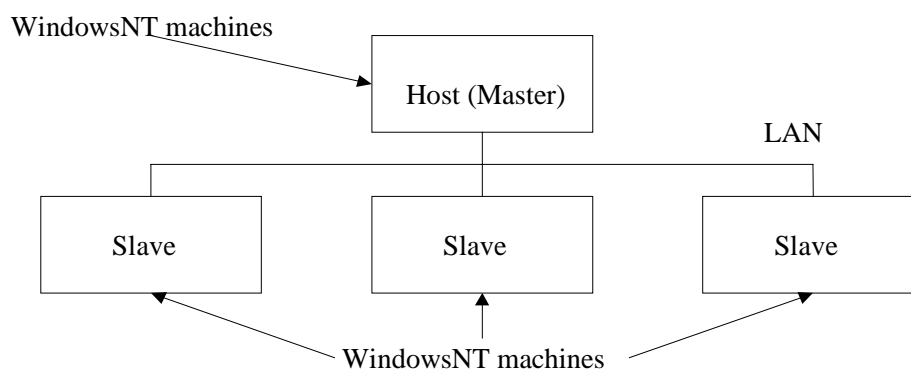


図 2 : VR を利用するときのハードウェアの構成

現在のところ動作が確認されているシステムの構成は

- Windows NT か、それより新しい Windows 系 OS、あるいは Linux<sup>7</sup>
- 64 MB 以上の RAM と Pentium III より新しい CPU
- VisualC++ 5.0 or 6.0
- PVM 3.4

<sup>7</sup> Linux は HCI とデータベースをはずした計算だけの機能に簡素化したバージョンで動作を確認している。

- Visual BASIC 6.0
- ACCESS 97

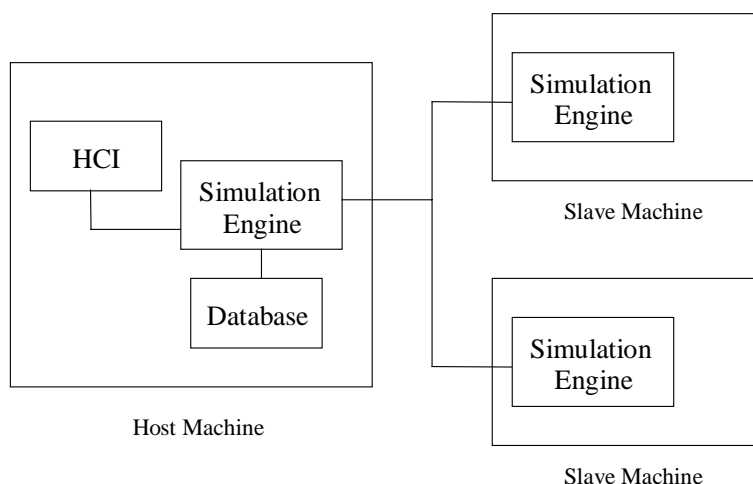


図 3 : VR 計算コードシステム構成図

図 4 にシミュレーション・エンジンの構造を示す。最下層にデータ通信層があり、並列計算に必要な情報のやり取りを行う。上部は実際の核種輸送計算を行う部分である。ホスト(マスター)とスレイブのそれぞれに対応する「クラス」を定義する。スレイブには、輸送計算の実際のコード群が含まれ、ホストには入出力などのオーバーヘッドを管理するコード群が含まれる。

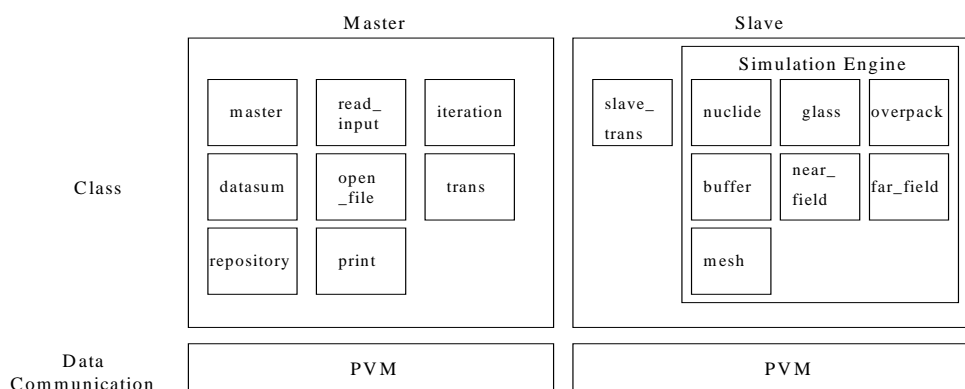


図 4 : シミュレーション・エンジンの構造

PVM (Parallel Virtual machine)は異機種間での並列計算を可能にするプラットフォームである。

VR では、それぞれのスレイブに、1 崩壊系列を割り当てる。ウラン、プルトニウムなどのアクチニドは各系列にそれらの同位体が含まれる。廃棄体からの放出を

計算するとき、溶解度限界になる場合には同位対比で溶解度を分配する必要があるため(式(15a)参照)、各時間ステップごとにその情報を更新する。具体的には、各時間ステップのはじまりに当たり、ホスト・コンピュータからスレーブ・コンピュータに向けて廃棄体中の同位体比が送られる。それを受け取ったスレーブは、それぞれの崩壊系列の計算に対してコンパートメント間の輸送計算を行い、その時間ステップ終了時の新しい核種の質量分布（各コンパートメント内部の廃棄体、緩衝材、NFR）をホストに返す。

#### 4. 得られた知見

コンパートメントモデルと VR コードを用いて、これまでに得られた知見を以下に要約する。

##### 4.1. 処分性能評価

###### 4.1.1. 臨界安全解析[1, 2]

軽水炉使用済み燃料再処理によって得られるガラス固化体を 4 万本処分する処分概念に対して、前節で述べたようなコンパートメントモデルに単純化を導入して U-235 と U-238 のファーフィールドでの蓄積量が評価された<sup>8</sup>。導入された単純化とは、

- 放射性崩壊の親核種を含まない。
- (3)式左辺の時間微分項をゼロとする。
- 廃棄体／緩衝材界面の境界条件は常に(15)式で表される。
- U-235 と U-238 の 2 つのウラン同位体を考える。溶解度はこの 2 つの同位体で配分される。

図 5 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。NFR 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がわかる。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 1 のように入力パラメ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 1 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する 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。

---

<sup>8</sup> 実際は、まず簡単なバージョンのモデルが開発され、それを基により一般的なバージョン(3節で説明されたもの)が開発された。

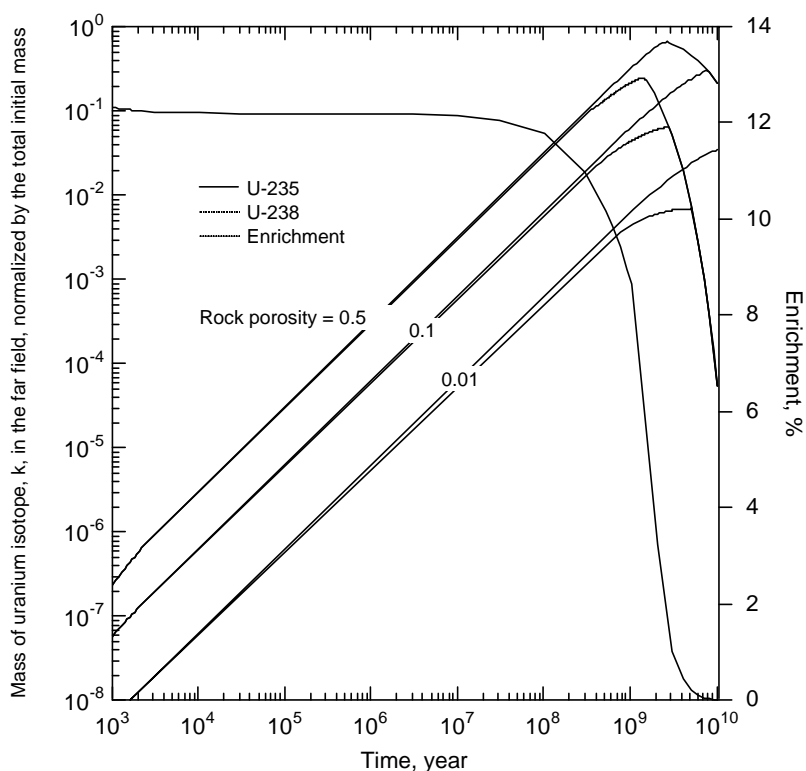


図5： ファーフィールドに存在するウラン同位体の質量と濃縮度の時間変化。

表1 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			
<b>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</b>			
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



最大値は図5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。

この解析と天然におけるウランの蓄積の状況などを比較して、高レベルガラス固化体4万本を地下水飽和花崗岩に埋設したとき、臨界事故が起きる可能性は事実上無視できることが示された。

#### 4.1.2. HLW4万本処分概念に対する性能評価[5,8]

同じ4万本処分場に対する性能評価を目的として、第2節で説明されたモデルに基づき、VRコードによって計算が行われた。

図6は、

$$\text{Toxicity index [m}^3 \text{ of water]} = \frac{\left\{ \frac{\lambda^{n(j)} M_f^{n(j)}(t) 6.02 \times 10^{23} [\text{atoms/sec}]}{3.7 \times 10^{10} [\text{disintegrations/sec} \cdot \text{Ci}]} \right\}}{\text{Maximum Permissible Conc. [Ci/m}^3]} \quad (20)$$

で定義される摂取毒性<sup>9</sup>の時間変化を示す。ここで対象となっているのは、ファーフールドに放出された核種である。

このような指標によって性能を観察する利点の一つは、図6を計算するに当たりファーフールドの条件を必要とせず処分場そのものの設計条件だけに依存すると言う点である。従来の性能評価結果に付きまとう不確実性の多くはファーフールドさらに生物圏に対する仮定から来るので、この指標は被ばく線量率評価など生物圏までの核種の移行をベースにする評価結果に比べて不確実性の入る余地が少ない。

図6の上部を推移する太線は全核種(処分場内外)の摂取毒性の総和であり、処分場に初期埋設した核種の量によって決まる。時間的に減衰しているのは放射性崩壊の効果のみである。一方、点線は、ファーフールドに存在する核種の毒性の総和である。したがって、この2本の曲線の差が各時刻において処分場内部に隔離されている毒性の総和となる。100万年後でも1対100の割合で処分場の内部にほとんどの毒性が隔離されていることがわかる。

ファーフールドに存在する核種のうち、摂取毒性に最も大きく寄与しているのがNp-237とその娘核種、続いてCs-135であることがわかる。これは、被ばく線量率で評価する結果と同じ順位である。

<sup>9</sup> ファーフールドに放出された核種のすべてが生物圏に入って将来の人間に摂取されることは考えにくいので、ここで示されているのは潜在的な処分の影響(の最大値)であると考えられる。

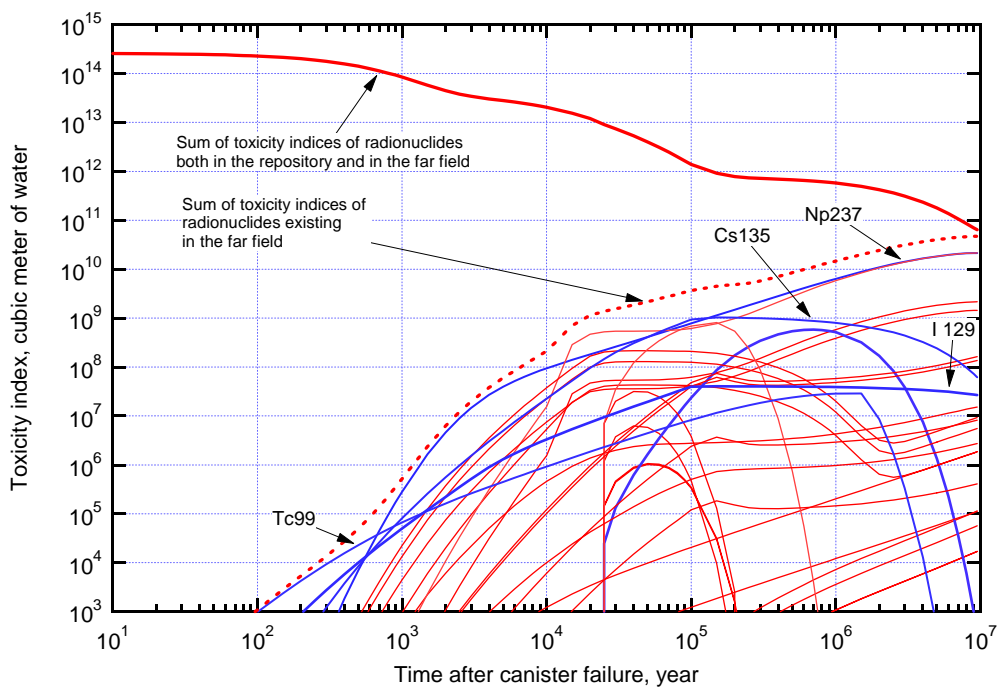


図6：4万本ガラス固化体を埋設した処分場から放出されファーフールドに存在する核種の摂取毒性の時間変化

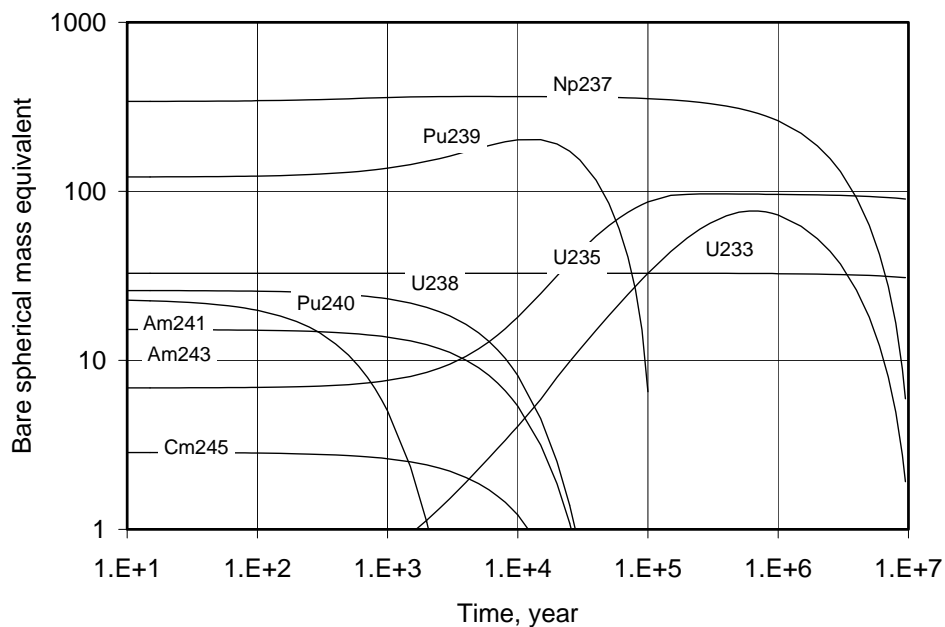


図7：4万本ガラス固化体を埋設した処分場に残留するアクチニドの質量。最小臨界質量で規格化してある。

図 7 は処分場に残存するアクチノイドの質量をそれぞれの最小臨界質量で割って得られる比をプロットしたものである。ウランを回収してもそこから爆発物を再構成するのは、天然ウランから製造するよりも格段に容易というわけではないことがわかる。一方、再処理後発生する HLW であっても 4 万本処分場の場合、依然として最小臨界質量の 140 倍の Pu が処分場の中に残ることを示している。

Np-237 は他の Np 同位体が存在しないため、同位体分離を必要とせず分離が比較的容易である。Np-237 の場合、500keV よりも大きい中性子エネルギー領域において核分裂断面積が U-235 と同程度になるため、最小臨界質量が比較的小さい 56kg となる。これは高濃縮ウランとほぼ同程度であり、盗掘された場合の懸念物質となりうる。図 7 は、最小臨界質量の 300 倍の Np-237 が処分場に存在することを示している。

## 4.2. 理論的検討

上述のガラス固化体 4 万本の解析から Np-237（溶解度限界溶解）、Cs-135（調和溶解）が主たる核種であることに着目し、それぞれの場合をより詳しく検討した。Np-237 に対しては、崩壊系列の上位に存在する核種が比較的短寿命であること、Np のほかの同位体が無視できること、人工バリア内部の濃度分布が比較的早く定常状態に達することなどの知見からモデルを簡略化した結果、処分場からの放出率を処分場内部での固化体の配列、一個の固化体に含まれる Np-237 の初期質量、人工バリア中の移行パラメータの関数で表すことができた[10, 11]。また、Cs-135 に対しては調和溶解であることを利用して、処分場からの放出率を解析的に得ることができた[12, 13]。

### 4.2.1. 溶解度限界核種[3, 4, 10, 11]

Np-237 の輸送を解析するため、第 2 節で説明されたモデルを次のように簡略化した：

- すべての先行核種の廃棄体内の初期インベントリを Np-237 のそれと足し合わせ、Np-237 の初期インベントリとする。先行核種の移行を省略する。
- 他の同位体が存在しないため、(15a)で定義される  $\gamma$  を 1 とする。
- 詳細な計算では廃棄体からの漏洩開始 1 年以内に廃棄体／緩衝材界面での Np 濃度が溶解度に達しているため、界面での境界条件は  $t=0$  から溶解度限界とする。

図 8 は、(15)式で用いられる  $T_e^*$  (核種が廃棄体領域からなくなる時刻)をコンパートメントの位置の関数でプロットしたものである。上流にあるコンパートメントから順に、早い時刻に Np-237 がなくなることがわかる。第 1 コンパートメントと第 64 コンパートメントでは、およそ 300 万年の差があることがわかる。上流に位置するコンパートメントには、常に核種濃度の低い地下水が NFR に流れ込むので、廃棄体表面（核種の溶解度で一定）と NFR 領域の核種濃度の間の濃度勾配が下流のコンパートメントよりも大きくなり、廃棄体領域からの放出が促進される。

図 9 は、最下流のコンパートメントの NFR から流出する地下水中の Np の濃度を時間の関数でプロットしたものである。また、流れ方向に連結するコンパートメントの数  $N=1, 2, 4, 8, 16, 32, 64$  の場合の結果を示す。どの場合の  $N$  に対しても濃度の変化が平坦になる時間領域がある。この時間領域においては、後述のように定常状態が成立していると考えられる。この平坦な領域の濃度は  $N$  に比例して大きくなっているのではなく非線形な関係があることがわかる ( $N=1$  の場合 0.035、 $N=64$  の場合 0.75 で、64 倍になっていない)。

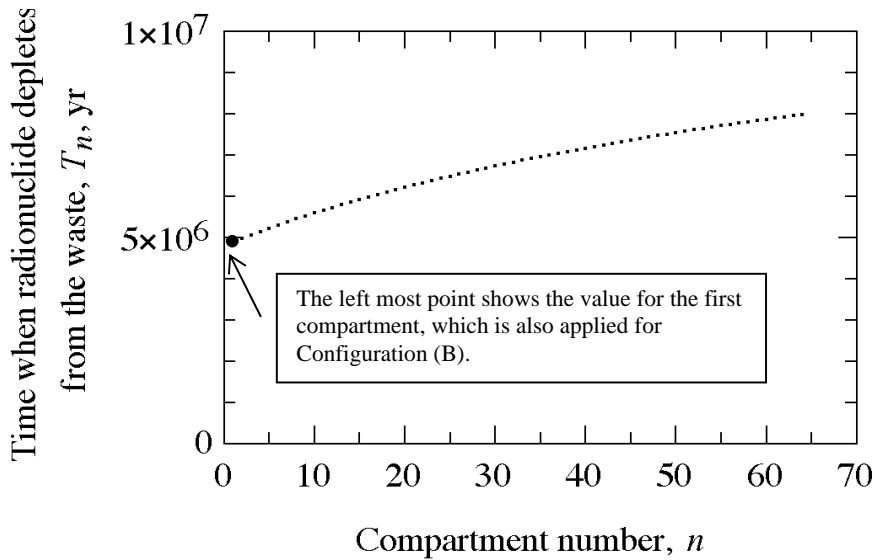


図 8： コンパートメントから Np-237 がなくなる時刻。

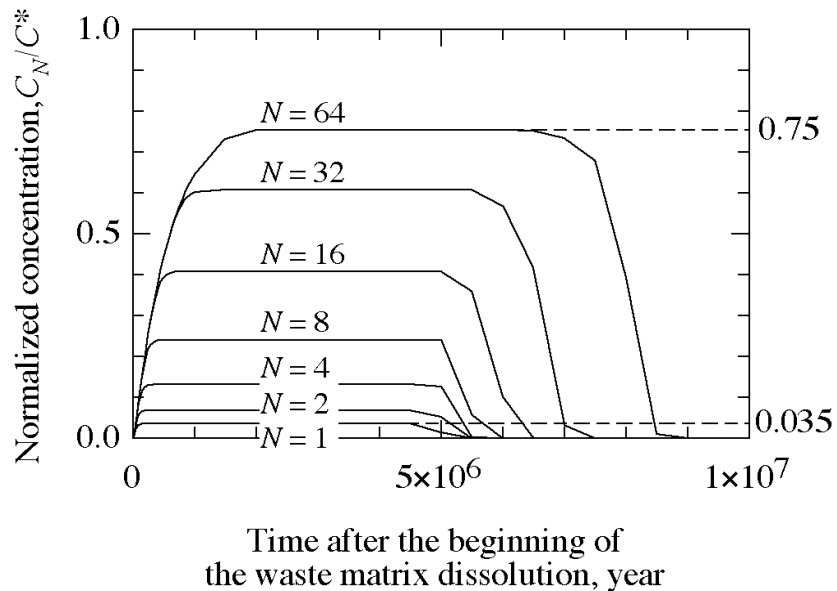


図 9： 最下流のコンパートメントから流出する地下水中の Np 濃度

平たん部の濃度がどのようにして決定されるかを調べるため、第2節で説明した定式化に追加の仮定を導入する。まず、濃度の時間変化が平たんであるということから、(4)式左辺の時間微分をゼロとおく。さらに、詳細な計算からこの時間領域の緩衝材中の濃度プロファイルが定常状態とみなしてよいことがわかっているため、(8)式左辺の時間微分をゼロとおく。その結果、緩衝材中の拡散方程式は解析的に解ける。解析解は[2]にすでに求められており、それを用いる。これらの簡単化の結果、平たん部における濃度は

$$C_N^{SS}/C^* = G f(N; \gamma), \quad N = 0, 1, 2, \dots, \quad (21)$$

となる。ここで、

$$f(N; \gamma) \equiv \begin{cases} \frac{1-\gamma^N}{1-\gamma}, & \text{if } \gamma \neq 1, \\ N, & \text{if } \gamma = 1, \end{cases} \quad \text{for } N = 0, 1, 2, \dots, \quad (22)$$

$$G \equiv \frac{\beta}{F + \zeta}, \quad \alpha \equiv \sqrt{\frac{K\lambda}{D}}, \quad \beta \equiv \frac{S\varepsilon D\alpha}{\sinh \alpha L}, \quad \gamma \equiv \frac{F}{F + \zeta}, \quad \zeta = \lambda R\varepsilon_p V + \beta \cosh \alpha L \quad (23)$$

である<sup>10</sup>。

最下流のコンパートメントから流出する地下水中の核種濃度(出口濃度)は、廃棄体に初期含まれる核種の質量とコンパートメントの連結の仕方にも依存する。図10はコンパートメント64個が流れに垂直な方向に並んでいる場合、図11はコンパートメント64個が流れと平行な方向に直列につながった場合の出口濃度の時間変化を、初期インベントリを変えて観察したものである。

図10は従来の性能評価で用いられる仮定(それぞれの廃棄体が独立に核種を放出する)と同等の状況である。図中に描かれた4本のプロファイルは廃棄体中に時刻ゼロで含まれるNp-237の質量を1/10, 1/100, 1/1000に減らした場合の出口濃度を示す。初期インベントリが減っても出口濃度の最大値は溶解度の数%程度の濃度でほとんど影響を受けない。ただし、放出が続く時間がインベントリの減少とともに短くなっている。インベントリが1/1000まで減少すると、出口濃度の最大値も減少する。緩衝材/廃棄体の境界面における濃度を詳細に観察した結果によれば、この場合境界面の濃度が溶解度に達しておらず、固化体との調和溶解でNp-237が緩衝材層に放出されているからであることがわかる。

この図で観察されていることは、従来の性能評価で言われてきたこと(溶解度限界核種の場合廃棄体中のインベントリを減らしても地下水中の濃度が減少しない)を確認するものである。

図11では、流れ方向に64個のコンパートメントが並んでいるので、下流に行

<sup>10</sup> ここで用いられている $\gamma$ は(15a)で定義されるものとは異なるものであることに注意。

くほど放出された Np が蓄積し濃度が高くなる。しかし、出口濃度は 1 個のコンパートメントが流れ方向にある場合(図 10 で示される)に比べて 64 倍にはならない。

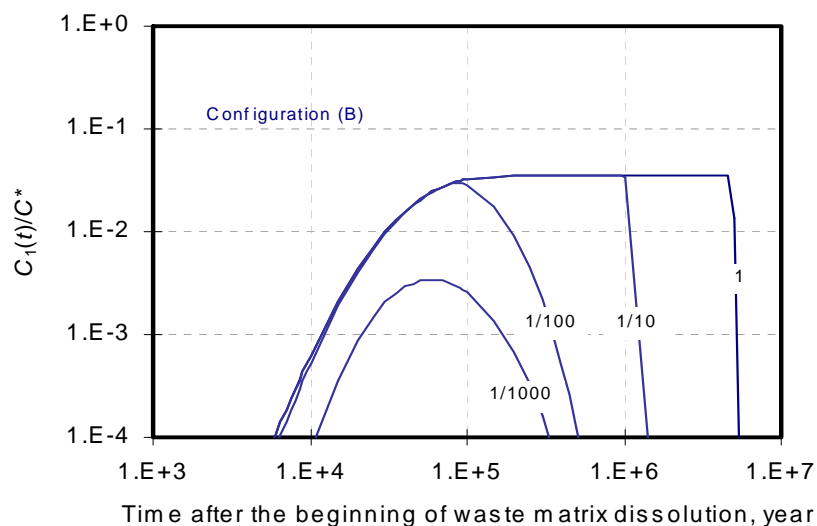


図 10：地下水流れと垂直な方向に 64 個並んだコンパートメントから流れ出る地下水中の Np-237 の濃度。図中の数字は Np-237 の廃棄体中初期インベントリの削減割合を示す。

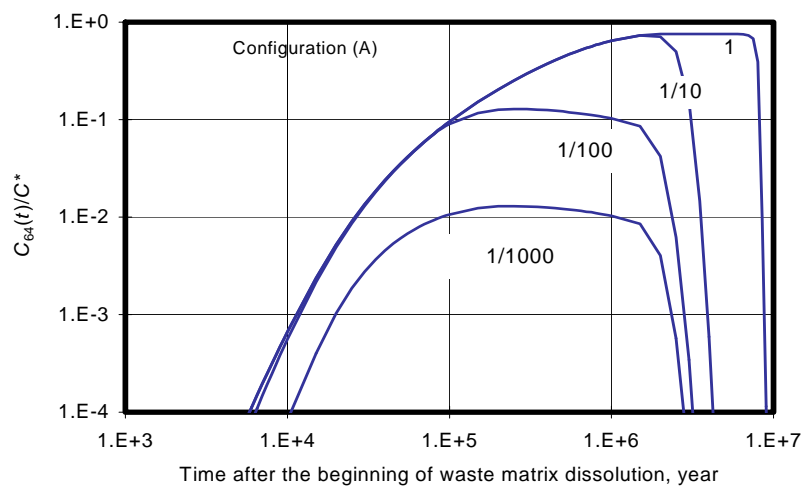


図 11：地下水流れと平行な方向に 64 個並んだコンパートメントから流れ出る地下水中の Np-237 の濃度。図中の数字は Np-237 の廃棄体中初期インベントリの削減割合を示す。

図 11 から観察されるもうひとつの重要なことは、初期インベントリを減らす効果が図 10 の場合に比べて顕著に現れる、ということである。処分場からの出口濃度は、ファーフールドでの濃度、生物圏での濃度に直接影響し、最終的に性能評価の結果を左右するものであるので、この結果から、性能評価に際しては処分場内部での地下水流れと廃棄体の連結状態を加味した解析を行う必要があることが指摘される。また、処分場設計の観点から言えば、処分サイト特有の地下水流れを利用して処分場内部の廃棄体の配置を工夫することで処分場の性能を向上させる可能性のあることが指摘できる。

図 12 と 13 は、ファーフールドと処分場内部に存在する Np-237 の質量の時間変化を示す。図 12 は流れと垂直に並んだ場合、図 13 は流れと平行に並んだ場合である。実線は処分場内部、点線はファーフールドである。

図 12, 13 いずれの場合も、初期インベントリを減らすとその割合に応じて処分場内部、ファーフールドそれぞれに存在する Np の質量が減少する。また、初期インベントリが少ないほど、処分場内部とファーフールドの線が交差する時刻が早くなる。交差する時刻は処分場の内外の Np の質量がちょうど等しくなったときであり、その時刻以後はファーフールド中に存在する質量の方が多くなる。

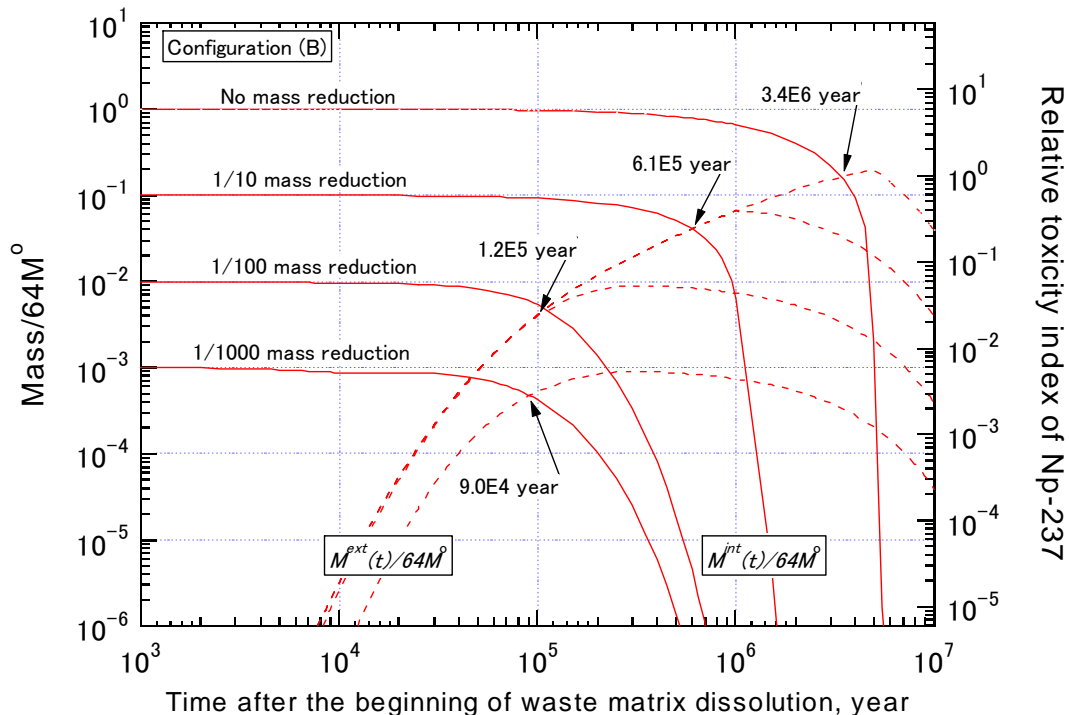


図 12：地下水流れに対して垂直に並んだ 64 個のコンパートメントから放出される場合のファーフールド中と処分場内部（実線）の Np-237 の質量(初期 64 個の廃棄体に存在する質量で規格化してある。)1/10、1/100、1/1000 は初期インベントリの削減割合を示す。

Np-237 は半減期が 214 万年と長いので、初期インベントリの量が小さくなると処分場内部で保持されている間に崩壊する効果が期待できない。図 12 の 1/10、1/100、1/1000 の 3 つの場合、点線と実線の最大値がほぼ等しい。図 13 の場合、インベントリが少ない場合でも蓄積現象の結果、下流の廃棄体からの放出が抑制されるため、点線のピーク値が実線のそれよりも小さくなる。

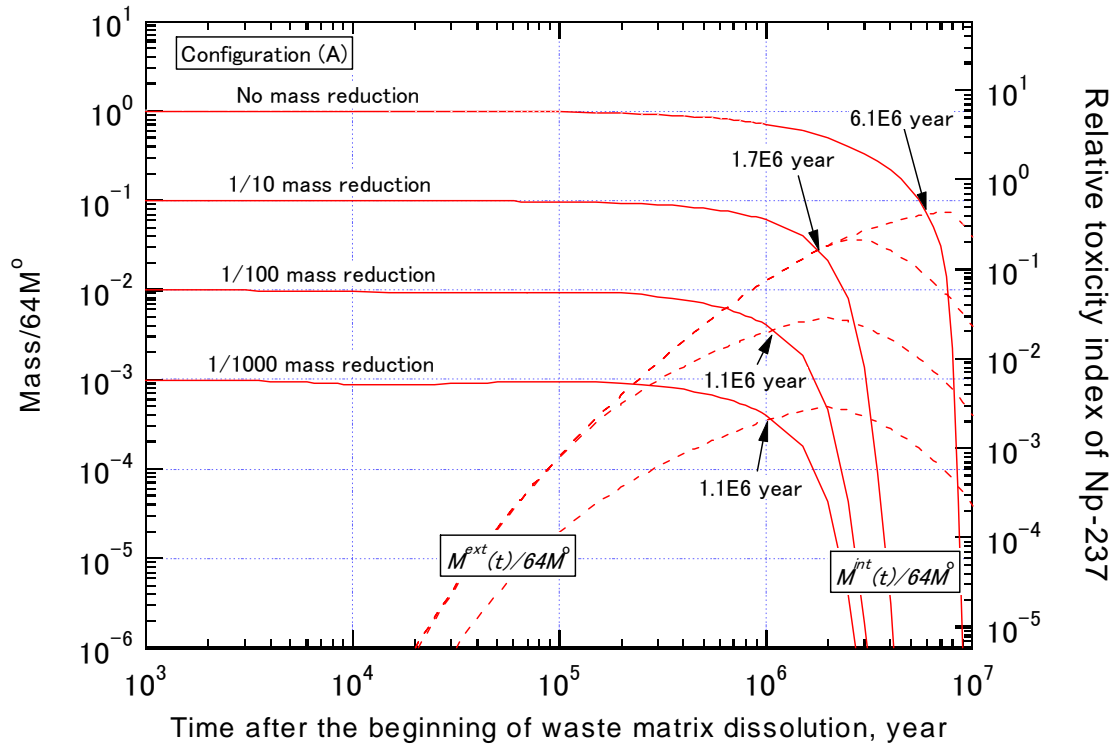


図 13：地下水流れに対して平行に並んだ 64 個のコンパートメントから放出される場合のファーフールド中と処分場内部（実線）の Np-237 の質量（初期 64 個の廃棄体に存在する質量で規格化してある。）1/10、1/100、1/1000 は初期インベントリの削減割合を示す。

#### 4.2.2. 調和溶解核種[12, 13]

第 2 節で説明したコンパートメントモデルにおいて、

- 廃棄体からの核種放出が調和溶解である、
- 崩壊系列中の先行核種を省略する、

の 2 点を仮定する。図 14 のようなコンパートメント列を考える。

図 15 は複数のコンパートメントを流れの方向に並べたときの Cs-135 に対する結果である。左図は固化体の浸出時間が 10 万年、右図は 1 万年の場合の結果を示す。浸出時間が長い左図の場合、一番上流のコンパートメントに地下水が入って最下流から出て行くまでの時間よりも浸出時間の方が長く、緩衝材層での拡散が比較的速いという仮定になっている。まだ固化体が溶解している間に緩衝材層での拡散



は定常状態に達するため、プロファイルに平坦部が現れる。第2節で述べた定式化において、緩衝材層での拡散方程式の時間微分項をゼロとおきこの平坦部の濃度を求めると連結するコンパートメントの数に比例して増大することがわかる。

右図では、浸出時間が短いため、最初のコンパートメントに入った水が8番目のコンパートメントを通過する頃、固化体の浸出が終わり、初期に固化体にあった核種はすべて放出されたことになる。その後は廃棄体領域から新たな核種の放出はないため、コンパートメントの数が増えても出口濃度は増加しない。コンパートメントの数が16, 32, 64の場合のプロファイルは、そのため、ある最大濃度で一定となる。<sup>11</sup>

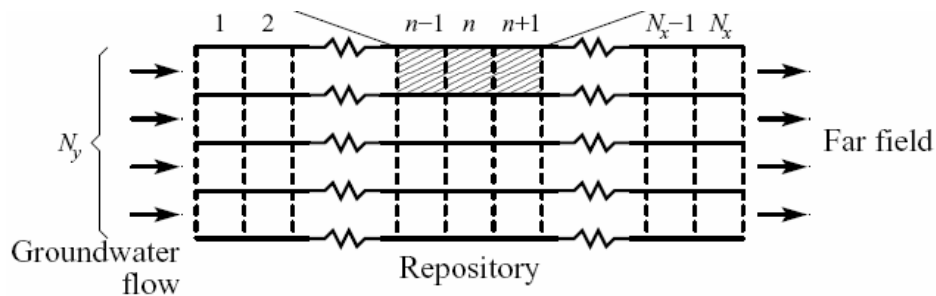


図14：処分場内部の2次元廃棄体配列と地下水流れ方向。

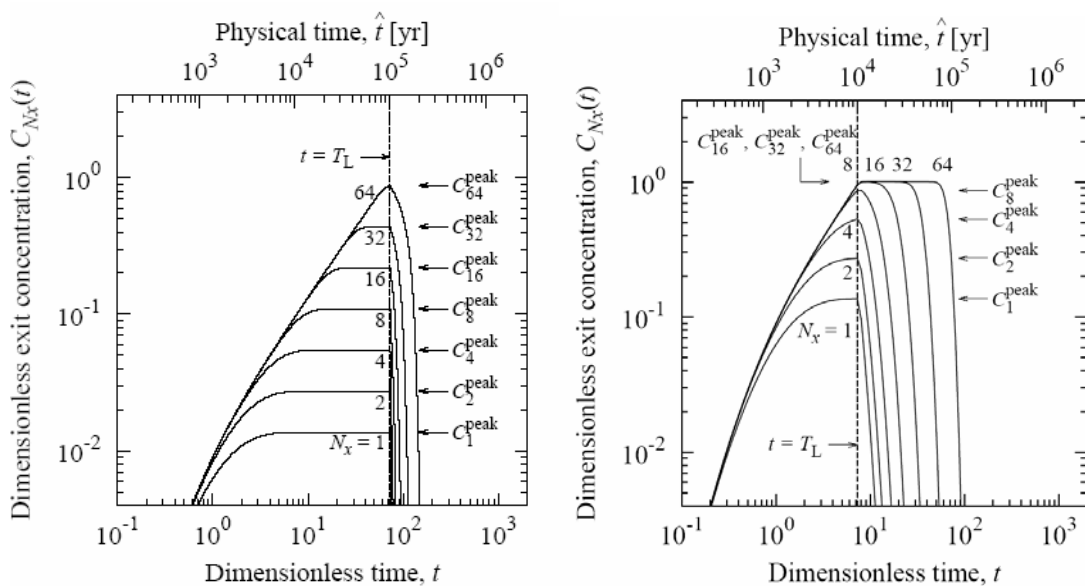


図15：調和溶解の場合のCs-135の出口濃度の時間変化。左図は浸出時間10万年、右図は浸出時間1万年の場合。濃度は(25)で表される上限値で規格化されている。

<sup>11</sup> 左図の場合でも、64コンパートメントより多くなった場合には右図と同じような状況が現れる。すなわち、浸出時間と地下水の処分場内部での滞在時間の比較でどちらのモードになるかが決定される。

従来の性能評価では、調和溶解核種の場合、廃棄体の数に比例して(無制限に)出口濃度が増大すると考えられてきたが、図 15 は、空間的な広がりを持つ処分場内部での核種移行時間(あるいは滞在時間)、固化体の浸出時間、1 廃棄体周りの人工バリアの核種保持能力によって決定される最大濃度が存在することを示している。

#### 4.3. 処分容量との関係

##### 4.3.1. 環境負荷指標[3, 4]

着目する核種のもたらす環境負荷  $I(t)$  [ $\text{m}^3\text{-water}$ ]は、親核種の存在を無視しその核種の処分場からの放出率[ $\text{mol}/\text{年}$ ]を  $\phi(t)$  とすると、

$$I(t)[\text{m}^3\text{-water}] = \frac{\lambda N_A}{3.7E10[\text{Bq}/\text{Ci}](\text{MPC})} \int_0^t \exp(-\lambda\tau) \phi(t-\tau) d\tau \quad (27)$$

で表される。ここで、 $\lambda$  は崩壊定数[ $1/\text{sec}$ ]、 $N_A$  は Avogadro 数 [ $1/\text{mol}$ ]である。また、MPC はその核種が経口摂取されるときの水溶液中の最大許容濃度 [ $\text{Ci}/\text{m}^3\text{-water}$ ]である。

式(27)中の積分は、着目核種の処分場外側領域における質量を表し、指数関数は崩壊により減少を補正する項である。長寿命核種の場合、この崩壊補正項の影響は小さい。処分場の最下流端から流れ出る地下水中の着目核種の濃度  $C(t; N_x)$ が求められると、放出率  $\phi(t)$  は流れと垂直方向に並ぶ廃棄体の本数  $N_y$  と地下水流量  $F$  により、

$$\phi(t) = N_y F C(t; N_x) \quad (28)$$

で表される (図 14 参照)。ここで、処分場は  $N_x \times N_y$  の配列で廃棄体が並んでいて、地下水は  $N_x$  の方向に流れていると仮定する。 $N_y$  列並ぶ  $N_x$  の廃棄体の列はどれも同等であると仮定する。 $F$  は一列あたりに流れる地下水流量である。最下流端から流れ出る地下水中の核種濃度  $C(t; N_x)$  は各廃棄体からの放出モードと  $N_x$  に依存する。

調和溶解核種が複数の廃棄体から放出される場合、浸出時間に加えてもうひとつの特性時間が重要となる。それは、処分場に流入した未汚染の地下水が処分場内を流下し汚染されたあと処分場外部に出てくるまでの滞在時間である。処分場が流れ方向に十分な広がりを持つ場合 (すなわち、流れ方向に多くの廃棄体を配列する場合)、流入した地下水が処分場内部に滞在する時間は、浸出時間よりも長くなることがある。その場合、処分場から流出する地下水中の着目核種の濃度は時間とともに増加するが、その後一定の値を示す。その一定値は、その核種の廃棄体中の初期質量、廃棄体 1 体あたりに割り当てられた人工バリアと NFR の持つ核種保持能力 (緩衝材、NFR の持つ吸着分配能と体積、空隙率、密度で決定される)、地下水流速によって決定され、理論上の上限濃度であり、流下する廃棄体の数  $N_x$  に依存

しない。一方、流れ方向への処分場の広がり小さい場合、あるいは地下水流れが速い場合、流入した地下水は浸出時間終了前に流下し処分場外部に放出される。この場合は、濃度は理論上の上限値には達せず、放出までに流下した廃棄体の本数  $N_x$  に比例して濃度が増加する。

以上を要約すると調和溶解の場合には、 $(N_x, N_y)$  で示される廃棄体配列のそれぞれの場合の処分場からの核種の最大放出率  $\phi_{N_x, N_y}^{peak}$  は次式であらわされる。

$$\phi_{N_x, N_y}^{peak} = \begin{cases} N_x N_y \frac{M_o}{T_L}, & N_x T_1 < T_L \\ FN_y C_o, & N_x T_1 > T_L \end{cases} \quad (24)$$

ここで、 $T_L$  は浸出時間、 $C_o$  は

$$C_o = \frac{M_o}{R\varepsilon_p V + K\varepsilon SL} \quad (25)$$

で表される核種の濃度である。 $T_1$  は、

$$T_1 = \frac{R\varepsilon_p V + K\varepsilon SL}{F} \quad (26)$$

で定義される時定数であり、核種の 1 コンパートメント（廃棄体とその周辺の人口バリアと NFR を含む領域）における滞留時間を表す。

もうひとつの放出モードである溶解度限界放出に対しても同様の考察が成り立つが、この場合は調和溶解よりもメカニズムが複雑である。調和溶解の場合には、水相中への核種の放出が継続する時間は固化体の浸出時間としてあらかじめ規定できるが、溶解度限界モードの場合、放出継続時間は核種の溶解度、核種の析出固相近傍における物質移動特性（拡散係数、地下水流速、吸着分配係数など）、上流から流れてくる地下水中の着目核種の濃度によって決定されるため、廃棄体によって異なる(図 8 参照)。

このような複雑さが加わるものの、溶解度限界核種に対しても基本的には同様に扱うことができる。すなわち、 $(N_x, N_y)$  で示される廃棄体配列のそれぞれの場合の処分場からの核種の最大放出率  $\phi_{N_x, N_y}^{peak}$  は、(21)–(23) をもちいて、

$$\phi_{N_x, N_y}^{peak} = FN_y C^* \frac{\beta}{\zeta} \begin{cases} (1 - \gamma^{N_x}), & N_x < \frac{\bar{t}}{T_{res}} \\ \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{\zeta \bar{t}}{\varepsilon_p RV}\right) \right\}, & N_x > \frac{\bar{t}}{T_{res}} \end{cases} \quad (27)$$

と書ける。また、

$$M^0 \exp(-\lambda \bar{t}) - \frac{\beta}{\lambda} [1 - \exp(-\lambda \bar{t})] \{C^* \cosh(\alpha L) - \bar{C}\} = 0 \quad (28)$$

を解いて、 $\bar{t}$ が求められる。 $C^*$ は核種の溶解度である。

式(24)や(27)で見られる2つの領域は次のように解釈できる(図16参照)。上流側(灰色)はすでに移流先端が通過したあとで、隣り合う2つのコンパートメント内部における核種の濃度プロファイルは異なる。一方、下流側(オレンジ色)の領域はまだ移流先端が到達していないため、隣り合う2つのコンパートメント内部における核種の濃度プロファイルは同じである。このような2領域は調和溶解でも溶解度限界溶解でも出現する。灰色とオレンジ色の領域の境界は時間とともに下流側(右)に進むが、境界が右端に到達する前にオレンジ色領域のコンパートメントに存在する核種がすべて水相中に溶解しきってしまう状態になると、処分場から出て行く地下水の核種濃度が理論上の上限値をとる。

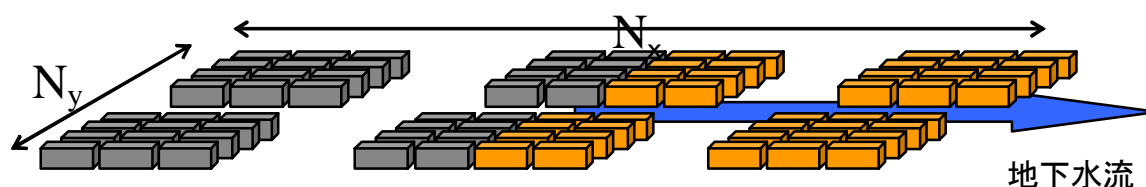


図16：処分場内部における2領域。

#### 4.3.2. 環境負荷指標と処分設計パラメタとの関係[9, 14, 15]

現在までに、3つのケースが検討された。

- 過去の発電用軽水炉での燃焼履歴を分析して4万本ガラス固化体の実際の中身を検討しガラス固化体を7つのグループに分類した。燃焼度と処分場の環境負荷の関係を調べた[9]。
- 4万本ガラス固化体処分場を40万本に拡張したとき、環境負荷を増やさないために最大の環境負荷因子である  $Np-237$  をどの程度除去すればよいか調べた[14]。
- ヤッカマウンテン処分場の環境負荷解析を行い、環境負荷を増やさない処分容量の拡張を検討した[15]。

日本の処分研究の標準である4万本処分場概念では、処分場に埋設される4万本すべての廃棄体が均一であると仮定しているが、実際は、初期の発電炉は比較的低燃焼度であったのに対し、最近のものは高燃焼度化が進んでいる。処分場に埋設される固化体の中に含まれる核種の質量は燃焼度と再処理での回収効率に依存する。これまでの商業用発電炉の燃焼実績を基に、どのような使用済み燃料が発生したかを計算した[9]。それに基づき、使用済み燃料を7つのグループに分類した(表2)。

ガラス固化体製造時に要求される諸条件(Na含有量、廃棄物の占める重量割合、Mo含有量、1体当たりの発熱量)を考慮して、7つのグループのそれぞれから発生

する固化体の成分と本数を計算した。それらを基に、固化体の本数が約 4 万本になるよう 7 つのグループの組み合わせを決めた。

VR を用いた計算の結果、

- 元になる使用済み燃料の平均燃焼度を 50% 増やしても、その結果発生するガラス固化体の処分場からもたらされる環境負荷の増大は無視できるくらい小さい。これは、Np-237 の溶解度が低いことと下流の廃棄体からの放出抑制効果(式(21)参照)の結果、Np の大部分が処分場内部に保持され崩壊するからである。
- 平均燃焼度を均一にして埋設本数を 4 万から 6 万に増加させても、流れ方向に廃棄体が並ぶ場合、環境負荷の増大は無視できるくらいに小さい。これは、環境負荷を増加させないで処分場の容量を 50% 増やしたことに等しい。
- 処分場内部に成分の異なる廃棄体を並べる場合、その配列の影響は小さい。

表 2：発電用軽水炉のこれまでの燃焼履歴と廃棄体。

炉型	燃焼度 (GWD/ton)	使用済み 燃料質量 (ton)	発生電力 (GWD)	廃棄体 本数	Np237 インベントリ (mol/廃棄体)	
					30 年貯蔵	50 年貯蔵
BWR	29.5	3,611	106,516	2,961	2.452	2.499
	33.0	2,410	79,533	2,244	2.487	2.533
	39.5	4,574	180,659	5,122	2.660	2.700
	45.0	9,632	433,445	12,425	2.767	2.803
PWR	32.0	2,532	81,024	2,347	2.348	2.386
	43.0	5,404	232,387	6,701	2.655	2.686
	48.0	6,801	326,437	9,249	2.878	2.906
合計		34,964	1,440,000	41,049	2.776	2.805

このことを理論的に調べるため、[14]では式(27)を用いて処分の環境負荷と容量の関係が検討された。

図 17 は、連結したコンパートメントの最下流端から放出される Np-237 の放出率を連結するコンパートメントの数の関数で表したものである。点線が、4 万本処分場の場合である。式(27)を用いて計算した。放出率は 1 個のコンパートメントからの放出率で規格化してある。連結するコンパートメントの数が比較的小さい(10 程度まで)とき、放出率は連結するコンパートメントの数の依存せずほぼ一定である。コンパートメント数が多くなると、コンパートメント数に反比例して放出率が減少する。

2 本ある実線のうち、上部にある線は廃棄体 1 体当たりの Np-237 の初期インベントリを同じに保ったまま廃棄体の数を 40 万本に拡張した場合である。 $(N_x, N_y) = (200, 200)$  の処分場を 10 倍に拡大する場合、流れと平行な方向に 10 倍する、流れと垂直な方向に 10 倍するの 2 つの極端が考えられる。それを図中で矢印で示す。

[9]で得られた結果でも見られるように、流れ方向に拡大してもファーフールドに放出される Np の量は変わらない。それに対し、流れと垂直方向に拡大すると放出率は 10 倍大きくなる。

Np の廃棄体あたりのインベントリを 10 分の 1 に減らしても、状況はまったく変わらない。これは図 11 で 10 分の 1 の場合のピーク出口濃度が Np を減らさない場合のピーク出口濃度とほとんど等しいことからわかる。しかし、100 分の 1 まで減らすと、ほぼ点線に等しいところまで放出率が減少する。そして、(200, 200) の配列から拡張してどのような配列で 40 万本を並べてももとの 4 万本と変わらない放出率になることがわかる。

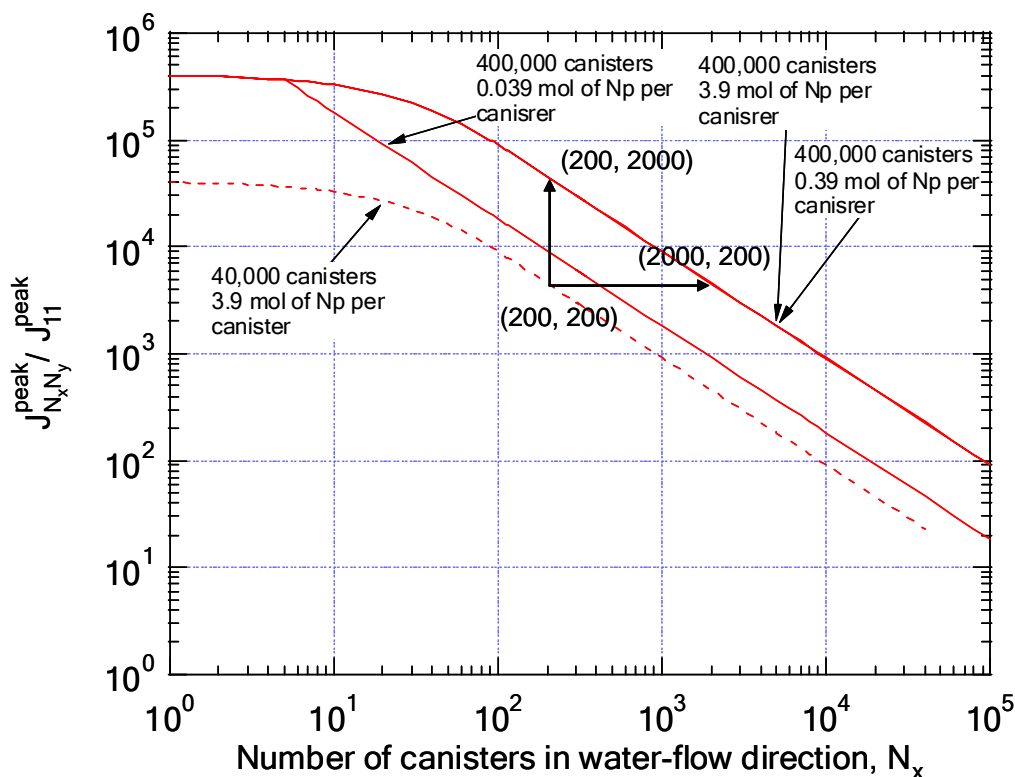


図 17：規格化された Np-237 の処分場からの放出率と流れ方向に連結するコンパートメントの数の関係。

同様の解析をヤッカマウンテン処分場について行った結果を示しているのが文献[15]である。ヤッカマウンテン処分場では、処分場平面が地下水流れと垂直であるため、 $N_x=1$  である。このため、モデルがさらに簡単化でき、ファーフールドでの核種の蓄積量の最大値を解析的に求めることができる。

$$M_{Np}^{peak} = \frac{\bar{\phi}}{\lambda_{Np}} N_T \frac{M_{Np}^o \exp(-\lambda_{Np} t_f)}{M_{Np}^o \exp(-\lambda_{Np} t_f) + \bar{\phi} / \lambda_{Np}} \cdot \bar{\phi} = \frac{F \beta C^*}{F + \zeta} \quad (29)$$

これを用いて、ファーフールドに存在する  $Np$  の質量と  $Np$  の廃棄体あたりのインベントリとの関係を示したのが図 18 である。YMR の線で示される関係を見ると、廃棄体あたりのインベントリを増加させてもファーフールドに放出され存在する  $Np$  の最大量は線形的には増加しない。例えば、インベントリが 7 倍になってもファーフールドでの最大量は 2.7 倍程度しか増加しない。

ヤッカマウンテン処分場の容量を 10 倍にしたいと考える。現在の地質環境を考えると、延べ面積を 2 倍程度拡張することができる。そこで、YMR x 2 の線上で初期インベントリ 5 倍のときのファーフールドでの最大量を読むと現在の処分場の 4.8 倍となる。つまり、10 倍の拡大をすると 4.8 倍の環境負荷がかかる。それを今のレベルまで下げるため、どの程度廃棄体あたりの初期インベントリを減らせばよいか、をみると、YMR x 2 の線上で縦軸の値が 1 になるところまで左に行くと現在の初期インベントリの 45% のレベルまで下げればよいことになる。もともと 5 倍のレベルに装荷しているので、 $5 / 0.45 = 11$  となり、ファクター 11 でインベントリを減らす必要があることがわかる。

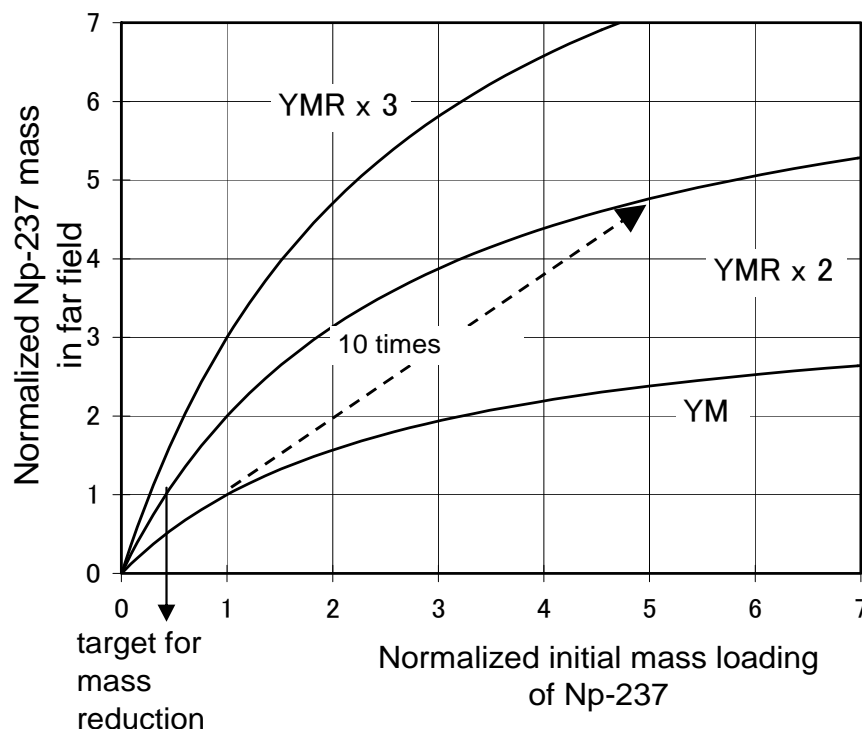


図 18 : ファーフールドに存在する  $Np$  の量と廃棄体あたりの初期インベントリとの関係。(1,1)の点は、現在のヤッカマウンテン処分場の状態を表す。

## 5. まとめと今後の展望

ここで概観したように、コンパートメントモデルによる地層処分性能評価、環境負荷解析は、3つの方面で進められてきた。

第1に、1次元直列コンパートメントモデルとコードの開発である。VRコードは、オブジェクト指向言語を用い並列計算技術を応用して開発された。複数核種を含む崩壊系列に対して、溶解度限界・調和溶解の自動判別、溶解度限界放出の場合の同位体間の溶解度分配などの機能を含んでいる。

第2に、処分場からの放出率を処分場のパラメタで表すコンパクトな関係式の導出である。崩壊系列の親核種の存在を省略し、溶解度限界、調和溶解のそれぞれの場合に対して、定常状態の放出率を表す簡便な式を導出した。これは、地層処分をシステムの一部として取り込み核燃料サイクルの比較や性能評価をする場合、便利であろう。

第3に、これらを用いた処分場容量と環境負荷との関係に関する研究である。最初の処分場の容量は決められているが、原子力の利用を続ける限り処分場の容量を拡大していかざるを得ない。その時、環境負荷を増やさずに容量を増やすにはどうすればよいかと言うのが重要な課題となってくるであろう。コンパートメントモデル/VRコードはそのような課題に対する有効なツールになることが示された。

コンパートメントモデルの発展と言う観点から、汎用的なモデルとコードの開発が望まれる。「汎用性」は次の点を考慮することが望ましい。

- 実際の人工バリアの形状や仕様を忠実に取り込める機能。現在は1次元スラブ形状に変換している。現実の人工バリア設計を基に、核種移行を模擬できるようにするため3次元体系でのコード化が必要。
- 地下水流れは処分場内部で複雑な流線を描くことが想定されるため、コンパートメントの連結も2次元的、あるいは3次元的にする必要がある。例えば、まず、処分場領域に対して地下水流動解析を行い、4万本の廃棄体の処分場内部での地下水流れによる連結状態を判定する。
- コンパートメントごとに異なる条件（廃棄体条件、緩衝材条件、NFR条件）を取り込めることも必要である。
- 現在のVRでは異なる収着分配係数を入力値として用意することで、地球化学的条件の違いを静的に反映することができるが、より現実的なシミュレーションのためには、動的な連成条件で計算できるようにすることが望ましい。たとえば、廃棄体の腐食により地下水の化学的条件が変化する。それが下流の廃棄体、緩衝材に及ぼす影響を考慮しながら核種移行が模擬できるようにする。
- 入出力部分のユーザ・インターフェースを改善する。設計情報、地質情報などのデータベースとリンクした入力条件の設定をグラフィカルに行うことができるインターフェース、任意の空間の断面、時刻で濃度分布が観察できる出力部の開発が望ましい。



## 6. レビューした文献一覧

---

- 1 Ahn, J., and D. A. Roberts, Effects of Multiple Canisters on Uranium Transport and Accumulation, *Transactions*, **76**, 200-201, 1997 Annual Meeting, Orlando, Florida, June 1-5, 1997, American Nuclear Society, 1997.
- 2 Ahn, J., Criticality Safety Assessment for a Conceptual High-Level-Waste Repository in Water-Saturated Geologic Media, *Nuclear Technology*, **126**, 303-318, June 1999.
- 3 Ahn, J., and P. L. Chambré, Alternative Measure for Performance of HLW Geologic Repository, Global 2001, International Conference on "Back-end of the fuel cycle: from research to solutions," Paris, France, 9/9-9/13, 2001.
- 4 Ahn, J., Relationship between Deposited Nuclide Inventory and HLW Repository Performance, *Advanced Nuclear Energy Systems Towards Zero Release of Radioactive Waste*, A special issue of *Progress in Nuclear Energy*, **40**(3-4), 415-422, 2002.
- 5 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.
- 6 Tsujimoto, K., and J. Ahn, Development of Object-Oriented Simulation Code for Repository Performance Assessment, 1999 Winter Meeting, Long Beach, November 14-18, 1999, American Nuclear Society, 1999.
- 7 Tsujimoto, K., D. Kawasaki, J. Ahn, and P. L. Chambré, Virtual Repository (VR) Version 1.0 Operation Manual, UCB-NE-4230, 2000.
- 8 Ahn, J., Possibility of Safety Improvement for Vitrified HLW Geologic Disposal by Partitioning and Transmutation, Global '99, International Conference on Future Nuclear Systems, August 29-September 3, 1999, Jackson Hole, Wyoming (1999).
- 9 Tsujimoto, K., T. Mitsuhashi, S. Ueta, and J. Ahn, Effects of Fuel Burn-up on Repository Performance, Global2003, "Atoms for Prosperity: Updating Eisenhower's GlobalVision for Nuclear Energy," New Orleans, Louisiana, American Nuclear Society, 11/16-20, 2003.
- 10 Kawasaki, D., J. Ahn, and P. L. Chambré, Analysis on Radionuclide Transport in a repository with Multiple Canisters, 2001 International High-Level Radioactive Waste Management Conference, April 29-May 3, 2001, Las Vegas, Nevada, American Nuclear Society, 2001.
- 11 Ahn, J., D. Kawasaki, P. L. Chambré, Relationship among Performance of Geologic Repositories, Canister-Array Configuration, and Radionuclide Mass in Waste, *Nuclear Technology*, **126**, 94-112, 2002.
- 12 Kawasaki, D., J. Ahn, P. L. Chambré, and W. G. Halsey, Canister-Array

- 
- Configuration and Congruent Release of Long-Lived Radionuclides, 2003 International High-Level Radioactive Waste Management Conference, March 30-April 2, 2003, Las Vegas, Nevada, American Nuclear Society.
- 13 Kawasaki, D., J. Ahn, P. L. Chambré, and W. G. Halsey, Congruent Release of Long-Lived Radionuclides from Multiple Canister Arrays, *Nuclear Technology*, in press
- 14 Ahn, J., An Environmental Impact Measure for Nuclear Fuel Cycle Evaluation, *Journal of Nuclear Science and Technology*, in press.
- 15 Ahn, J., D. Kawasaki, and P. L Chambré, Environmental Impact and Capacity Expansion of Geologic Repository, *Global2003*, "Atoms for Prosperity: Updating Eisenhower's Global Vision for Nuclear Energy," New Orleans, Louisiana, American Nuclear Society, 11/16-20, 2003.