

JAERI - M
86-095

低レベル放射性廃棄物陸地処分の総合安全評価に
関する部分モデルの開発 (I)
放射性核種浸出予測コード

1986年7月

大貫 敏彦・松鶴 秀夫

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division,
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1986

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 (株)原子力資料サービス

低レベル放射性廃棄物陸地処分の総合安全評価に
関する部分モデルの開発 (I)
放射性核種浸出予測コード

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部
大貫敏彦・松鶴秀夫

(1986年6月9日受理)

低レベル放射性廃棄物陸地処分総合安全評価モデルの主要な構成要素である人工バリアに関する部分モデルの開発として、放射性廃棄物固化体の浅地層処分におけるソースタームを評価するため、固化体からの放射性核種浸出予測コード (LEACH) を作成した。本コードでは、円柱形の有限固化体が半無限浸出媒体 (水) に浸漬された場合を想定し、固化体内における放射性核種に関する物質輸送方程式を3種類の境界条件を考慮して差分法で解いたものである。

本コードは放射性核種の固化体中における濃度分布、固化体からの積算浸出量、および浸出率の経時変化を与える事が出来る。また、本コードによって得られた浸出量の経時変化と上記物質輸送方程式を解析的に解いて得られたものとを比較した結果、両者は比較的良好な一致を示した。

Development of Partial Models of Comprehensive Safety Assessment Model
for Shallow Land Disposal of Low Level Radioactive Wastes(I)

Prediction Code (LEACH) for Radionuclide Leaching
from Solidified Waste Form

Toshihiko OHNUKI and Hideo MATSUZURU

Department of Environmental Safety Research,
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received June 9, 1986)

Prediction code (LEACH) for radionuclide leaching from solidified waste forms has been developed to estimate the source term concerning shallow land disposal of the waste forms, as a part of the development of the partial model on an engineered barrier which constitutes one of the major components of the comprehensive safety assessment model. The system considered here consists of a finite cylinder source and semiinfinite leaching medium in which the cylinder is immersed. The resulting mass-transport equation solved by a differential method under the three kinds of boundary conditions.

This code gives a two dimensional radionuclide concentration distribution within a waste form, a cumulative fraction leached out, and also a leaching rate as a function of time. The leaching fraction as a function of time predicted by the code is in excellent accordance with that calculated by the equation obtained by solving the mass-transport equation analytically.

Keywords: Leaching, Radionuclides, Prediction Code, Solidified Waste Form, Finite Cylinder Source Model, Differential Model, Safety Assessment, Shallow Land Disposal, Low Level Waste

目 次

1. 緒 言	1
2. 放射性核種浸出予測モデル	2
2.1 浸出に関する物質輸送方程式	2
3. 放射性核種浸出予測コード	2
3.1 領域およびメッシュ分割	2
3.2 初期および境界条件	3
3.3 放射性核種浸出予測コード	3
3.3.1 物質輸送方程式の差分分解	3
3.3.2 解 法	4
3.3.3 浸出量および浸出率の予測	6
3.3.4 放射性核種浸出予測コードの構成	6
3.4 出 力	7
4. 結果および考察	7
4.1 ベンチマーク試験	7
4.2 試 算	8
5. 結 論	8
謝 辞	9
参考文献	9

Contents

1.	Introduction	1
2.	Prediction model for radionuclide leaching	2
2.1	Mass-transport equation for radionuclide leaching	2
3.	Prediction code for radionuclide leaching	2
3.1	Region and mesh dividing	2
3.2	Initial and boundary conditions	3
3.3	Prediction code for radionuclide leaching	3
3.3.1	Differential model	3
3.3.2	Numerical analysis method	4
3.3.3	Prediction of radionuclide leaching	6
3.3.4	Components of prediction code for radionuclide leaching ...	6
3.4	Output	7
4.	Results and discussion	7
4.1	Bench mark tests	7
4.2	Test run	8
5.	Conclusions	8
	Acknowledgement	9
	References	9

1. 緒 言

低レベル放射性廃棄物の処分法の1つとしていわゆる浅地層処分があり、これを実施するに際しては、事前に処分の安全性を確認しておく必要がある。そのためには、処分場に関して、処分された廃棄物からの放射性核種の漏出から始まり人間への被曝に至る全ての経路について評価出来る総合安全評価手法（計算コードシステム）を開発しておかなければならない。これまで、総合安全評価コードシステムとしては、米国において開発されたNRCのモデル⁽¹⁾およびEPAのモデル⁽²⁾、英国NRPBで開発されたモデル⁽³⁾等が代表的なものとしてある。これらの計算コードシステムはそれぞれの国における処分方式、処分場環境条件並びに処分に係る安全規制方式を反映したものであり、そのまま我が国の処分の環境安全評価に適用することは困難である。したがって、我が国の状況に適合した総合安全評価コードシステムを開発することが望まれている。

総合安全評価コードシステムを開発するためには、処分された廃棄物からの放射性核種の漏出から始まり人間への被曝に至る全ての経路について、即ち、人工バリアからの核種漏出部分（固化体からの放射性核種浸出、容器からの核種漏出、充填材中での核種移行、および処分施設からの核種漏出）、浅地層中核種移動部分（通気層および帯水層中核種移動）、一般環境中核種移行部分並びに被曝評価部分における放射性核種の挙動を予測するための部分モデルを作成し、これらを、我が国における陸地処分の方式、処分場の環境条件、安全規制方式等との整合性を図り、適切なシナリオに基づいて総合化する必要がある。

部分モデルに関しては、今までに浅地層中核種移動予測コード⁽⁴⁾⁻⁽⁸⁾、被曝評価コード⁽⁹⁾⁻⁽¹⁰⁾等が数多く開発されてきたが、人工バリアからの放射性核種の漏出量を予測するコードは殆ど開発報告例がない。それゆえ、本研究では、人工バリアのうち放射性核種の放出に関する1次的バリアとして機能する固化体について、放射性核種の浸出挙動を解析し浸出量を予測する計算コードの開発を試みた。

低レベル放射性廃棄物固化体からの放射性核種の浸出挙動を表現するための数学モデルは、今までに数多く提案されてきた⁽¹¹⁾。浸出現象を拡散律速と仮定したものとしては、半無限拡散源モデル⁽¹²⁾、無限円柱形拡散源モデル⁽¹³⁾、有限円柱形拡散源モデル⁽¹⁴⁾等があり、この他に拡散現象と化学反応（1次反応）が競争的に起こると仮定したモデル⁽¹⁵⁾等がある。本研究では、浸出現象が主として拡散に支配されるが発生項として核種の浸出媒体への溶解反応をも考慮することが望ましい場合があるという一般的知見に基き、且つ、処分される廃棄物固化体の形状が円柱形であることを考慮して、有限円柱形拡散モデルを用いて計算コードを開発した。尚、本モデルに基づく物質輸送方程式を差分法によって解く際に、処分された固化体がおかれる環境条件の多様性に対応して3種類の境界条件を設定した。

2. 放射性核種浸出予測モデル

2.1 浸出に関する物質輸送方程式

一般に、低レベル放射性廃棄物は円柱形の容器（例えば、200 ℓ ドラム缶）に封入されているので、ここでは浸出源として有限円柱体を想定する。また、放射性核種の浸出を検討する系は、巨視的に見て放射性核種が均一に分散している有限の固化体とそれが浸漬されている半無限で均質の浸出媒体（水）とから成っていると仮定する。浸出現象を支配するものとしては、固化体内部における拡散のみの場合と内部拡散および固化体内における核種の溶解反応の両者の場合とが考えられている⁽¹⁾。後者の場合、物質輸送方程式は次のように与えられる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \left(\frac{\partial^2 C}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial C}{\partial r} + \frac{\partial^2 C}{\partial Z^2} \right) + Q \quad (1)$$

$$Q = K (C_s - C) \quad (2)$$

ここで、C	: 固化体中における核種の濃度	(Ci/cm ³)
D	: 固化体中における核種の拡散係数	(cm ² /day)
Q	: 固化体中における核種の発生項	(Ci/cm ³ /day)
r	: 固化体の半径方向距離	(cm)
Z	: 固化体の鉛直方向距離	(cm)
K	: 核種の溶解速度	(day ⁻¹)
C _s	: 核種の溶解飽和濃度	(Ci/cm ³)

浸出現象が内部拡散のみに律速される場合は、(1)式において $Q = 0$ と置くことにより浸出過程が表現出来る。

上記のように、(1)および(2)式を適当な初期条件および境界条件のもとに解くことによって、固化体からの放射性核種の浸出挙動を予測することが出来る。

3. 放射性核種浸出予測コード

3.1 領域およびメッシュ分割

本コードでは、前記物質輸送方程式〔(1)式〕を差分法で解くため（単純な境界条件については解析解が得られるが複雑な境界条件については数値解析法を用いざるをえない）円柱座標のメッシュ分割（ r 、 Z ）を行う必要がある。配列の添字は、 r 方向を i で、 Z 方向を j で表現する。また、メッシュ番号の増加の方向は r 方向については上向に、 Z 方向については中心より外測向

2. 放射性核種浸出予測モデル

2.1 浸出に関する物質輸送方程式

一般に、低レベル放射性廃棄物は円柱形の容器（例えば、200 ℓ ドラム缶）に封入されているので、ここでは浸出源として有限円柱体を想定する。また、放射性核種の浸出を検討する系は、巨視的に見て放射性核種が均一に分散している有限の固化体とそれが浸漬されている半無限で均質の浸出媒体（水）とから成っていると仮定する。浸出現象を支配するものとしては、固化体内部における拡散のみの場合と内部拡散および固化体内部における核種の溶解反応の両者の場合とが考えられている⁽¹⁾。後者の場合、物質輸送方程式は次のように与えられる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \left(\frac{\partial^2 C}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial C}{\partial r} + \frac{\partial^2 C}{\partial Z^2} \right) + Q \quad (1)$$

$$Q = K (C_s - C) \quad (2)$$

ここで、C	: 固化体中における核種の濃度	(Ci/cm ³)
D	: 固化体中における核種の拡散係数	(cm ² /day)
Q	: 固化体中における核種の発生項	(Ci/cm ³ /day)
r	: 固化体の半径方向距離	(cm)
Z	: 固化体の鉛直方向距離	(cm)
K	: 核種の溶解速度	(day ⁻¹)
C _s	: 核種の溶解飽和濃度	(Ci/cm ³)

浸出現象が内部拡散のみに律速される場合は、(1)式において $Q = 0$ と置くことにより浸出過程が表現出来る。

上記のように、(1)および(2)式を適当な初期条件および境界条件のもとに解くことによって、固化体からの放射性核種の浸出挙動を予測することが出来る。

3. 放射性核種浸出予測コード

3.1 領域およびメッシュ分割

本コードでは、前記物質輸送方程式〔(1)式〕を差分法で解くため（単純な境界条件については解析解が得られるが複雑な境界条件については数値解析法を用いざるをえない）円柱座標のメッシュ分割（ r 、 Z ）を行う必要がある。配列の添字は、 r 方向を i で、 Z 方向を j で表現する。また、メッシュ番号の増加の方向は r 方向については上向に、 Z 方向については中心より外測向

きになるように設定した。時間に関する添字は n である。メッシュの分割とグリッド上の配列添字番号との関係をFig.1に示す。この図で、 NZ と NR はそれぞれ Z 方向および r 方向におけるメッシュ分割数である。物理量は全てグリッド上で定義した。

3.2 初期および境界条件

種々の条件にかける放射性核種の固化体からの浸出挙動を解析するため、初期条件は一定して、3種類の境界条件を設定して(1)式を解くことにした。

初期条件は、全ての境界条件に対して、

$$t = 0, \quad r < a : C = C_0 \\ -\ell < Z < \ell : C = C_0$$

を仮定した。境界条件は、ケース(a)~(c)を仮定した。

ケース(a):

$$t > 0, \quad r = 0 : dC/dr = 0 \\ r = a : C = 0 \\ Z = 0 : dC/dZ = 0 \\ Z = \pm \ell : C = 0$$

ケース(b):

$$t > 0, \quad r = 0 : dC/dr = 0 \\ r = a : dC/dr = A(Z) \\ Z = \pm \ell : dC/dZ = B$$

ケース(c):

$$t > 0, \quad r = 0 : dC/dr = 0 \\ r = a : C = C_0 \exp(-\beta t) \\ Z = 0 : dC/dZ = 0 \\ Z = \pm \ell : C = C_0 \exp(-\beta t)$$

ここで、 $A(Z)$: 任意の関数

B : 任意の定数

β : 表面濃度減少係数 (day^{-1})

3.3 放射性核種浸出予測コード

3.3.1 物質輸送方程式の差分解

(1)および(2)式の各項を空間的に差分化すると次式ようになる。

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial C}{\partial r} \right) = \frac{1}{i (\Delta r)^2} \left[\left(i - \frac{1}{2} \right) C_{i-1,j} - 2i C_{i,j} + \left(i + \frac{1}{2} \right) C_{i+1,j} \right]$$

(3)

$$\frac{\partial^2 C}{\partial Z^2} = \frac{1}{(\Delta Z)^2} \left[C_{i,j-1} - 2C_{i,j} + C_{i,j+1} \right] \quad (4)$$

$$Q = K (C_s - C) = K (C_s - C_{i,j}) \quad (5)$$

また、時間に関する差分にはADI法⁽¹⁶⁾を用いて次式を得た。

(Step 1 : r 方向陰解法)

$$\frac{C^{n+1/2} - C^n}{\Delta t/2} = D \nabla_r^2 C^{n+1/2} + D \nabla_z^2 C^n + Q^n \quad (6)$$

(Step 2 : Z 方向陰解法)

$$\frac{C^{n+1} - C^{n+1/2}}{\Delta t/2} = D \nabla_r^2 C^{n+1/2} + D \nabla_z^2 C^{n+1} + Q^{n+1/2} \quad (7)$$

(6)および(7)式を整理すると(8)および(9)式がえられる。

$$\left(1 - D \frac{\Delta t}{2} \nabla_r^2 \right) C^{n+1/2} = \left(1 + D \frac{\Delta t}{2} \nabla_z^2 \right) C^n + \frac{\Delta t}{2} Q^n \quad (8)$$

$$\left(1 - D \frac{\Delta t}{2} \nabla_z^2 \right) C^{n+1} = \left(1 + D \frac{\Delta t}{2} \nabla_r^2 \right) C^{n+1/2} + \frac{\Delta t}{2} Q^{n+1/2} \quad (9)$$

3.3.2 解 法

前出の空間差分に関する(3), (4)および(5)式に対し、時間差分に関する解法Step 1およびStep 2の操作を行う。ここで、 n , $n+1/2$, $n+1$ は Δt における old 値, middle 値, new 値である。

(8), (9)式に(3), (4)および(5)式を代入すると(10)式が得られる。

$$A_{ri} C_{i-1,j}^{n+1/2} + B_{ri} C_{i,j}^{n+1/2} + C_{ri} C_{i+1,j}^{n+1/2} = D_{ri}^n \quad (10)$$

ここで、

$$A_{ri} = -\frac{DR}{2i} \left(i - \frac{1}{2} \right)$$

$$B_{ri} = 1 + DR$$

$$C_{ri} = -\frac{DR}{2i} \left(i + \frac{1}{2} \right)$$

$$\begin{aligned}
D_{ri} &= \frac{DZ}{2} C_{i,j-1}^n + (1-DZ) C_{i,j}^n + \frac{DZ^n}{2 i, j+1} + \frac{\Delta t}{2} K (C_s - C_{i,j}^n) \\
R &= \Delta t / (\Delta r)^2 \\
Z &= \Delta t / (\Delta Z)^2
\end{aligned}$$

同様に鉛直方向の解法として、(11)式が得られる。

$$A_{zj} C_{i,j-1}^{n+1} + B_{zj} C_{i,j}^{n+1} + C_{zj} C_{i,j+1}^{n+1} = D_{zj}^n \quad (11)$$

ここで、

$$A_{zj} = -\frac{DZ}{2}$$

$$B_{zj} = 1 + DZ$$

$$C_{zj} = -\frac{DZ}{2}$$

$$\begin{aligned}
D_{zj} &= \frac{DR}{2i} \left(i + \frac{1}{2} \right) C_{i+\frac{1}{2},j}^{n+\frac{1}{2}} + (1-DR) C_{i,j}^{n+\frac{1}{2}} + \frac{DR}{2i} \left(i - \frac{1}{2} \right) C_{i-\frac{1}{2},j}^{n+\frac{1}{2}} \\
&\quad + \frac{\Delta t}{2} K (C_s - C_{i,j}^{n+\frac{1}{2}})
\end{aligned}$$

Step 1, Step 2において、得られた連立1次元方程式を解いて新しいステップにおける各点の濃度を計算する。即ち、Step 1ではNR元連立1次元方程式をNZ組解き、Step 2ではNZ元連立1次元方程式をNR組解く。これらの連立1次元方程式は3重対角行列であるため、再帰的手法により解くことが出来る。この操作を半径方向陰解法を例にとり説明する。

(10)式より、 $C_{i,j}$ と $C_{i+1,j}$ との関係は次式で表される。

$$C_{i,j} = E_{i,j} C_{i+1,j} + F_{i,j} \quad (12)$$

$$C_{i+1,j} = E_{i-1,j} C_{i,j} + F_{i-1,j} \quad (13)$$

(13)式を(10)式に代入し、(12)式と比較することにより $E_{i,j}$ と $F_{i,j}$ を与える(14)式が得られる。

$$\begin{aligned}
E_{i,j} &= \frac{-C_{ri,j}}{A_{ri,j} E_{i-1,j} + B_{ri,j}} \\
F_{i,j} &= \frac{D_{ri,j} - A_{ri,j} E_{i-1,j}}{A_{ri,j} E_{i-1,j} + B_{ri,j}}
\end{aligned} \quad (14)$$

(14)式において $A_{ri,j}$, $B_{ri,j}$, $C_{ri,j}$ および $D_{ri,j}$ は既知であるので、 E_0 と F_0 が与えられれば $E_{i,j}$ ($i = 1 \sim NR-1$) および $F_{i,j}$ ($i = 1 \sim NR-1$) が求まる。さらに $C_{NR,j}$, $E_{i,j}$ および $F_{i,j}$ が求まれば、(13)式より $C_{i,j}$ ($i = 1 \sim NR$) が得られる。Z方向陰解法についてもこれと同様である。

E_0 , F_0 および $C_{NR,j}$ は、境界条件により次のように与えられる。

ケース(a):

(r 方向陰解法)

$$C_i = C_0 \quad ; \quad \therefore E_0 = 1, F_0 = 0$$

$$C_{NR} = 0 \quad ; \quad \therefore C_{NR} = 0$$

(Z 方向陰解法)

$$C_0 = 0 \quad ; \quad \therefore E_0 = 0, F_0 = 0$$

$$C_{NR} = C_{NR-1} \quad ; \quad \therefore C_{NR} = F_{NZ-1} / (1 - E_{NZ-1})$$

ケース(b):

(r 方向陰解法)

$$C_i = C_0 \quad ; \quad \therefore E_0 = 1, F_0 = 0$$

$$C_{NR-1} = C_{NR} - A(j, \Delta Z) \Delta r \quad ; \quad \therefore C_{NR} = (F_{NR-1} + A(j, \Delta Z) \Delta r) / (1 - E_{NR-1})$$

(Z 方向陰解法)

$$C_0 = C_i - B \Delta Z \quad ; \quad \therefore E_0 = 1, F_0 = -B \Delta Z$$

$$C_{NR-1} = C_{NR} - B \Delta Z \quad ; \quad \therefore C_{NR} = (F_{NZ-1} + B \Delta Z) / (1 - E_{NZ-1})$$

ケース(c):

(r 方向陰解法)

$$C_i = C_0 \quad ; \quad E_0 = 1, F_0 = 0$$

$$C_{NR-1} = C_{0,s} \exp[-\beta(n+1/2)\Delta t]; C_{NR} = C_{0,s} \exp[-\beta(n+1/2)\Delta t]$$

(Z 方向陰解法)

$$C_0 = C_{0,s} \exp[-\beta(n+1/2)\Delta t]; E_0 = 0, F_0 = C_{0,s} \exp[-\beta(n+1/2)\Delta t]$$

$$C_{NR} = C_{NR-1} \quad ; \quad C_{NR} = F_{NZ-1} / (1 - E_{NZ-1})$$

ここで、 $C_{(0,s)}$ は C_0 または C_s を示す。

3.3.3 浸出量および浸出率の予測

放射性核種の固化体からの浸出挙動を明らかにし安全評価においてソースタームとして用いるためには、積算浸出量および浸出率を時間の関数として求めておかなければならない。したがって、本計算コードではこれらをOutputとして与えられるようにした。放射性核種の固化体からの浸出量は、本コードでは2種類の方法で求めることが出来る。1つは、全てのメッシュからの浸出量を空間的、時間的に積分することにより求める方法であり、他は、与えられた放射性核種の初期量と各時間において計算により得られた濃度の積分値との差から求める方法である。放射性核種の浸出率は、全てのメッシュからの浸出量を空間的に積分することから求めることが出来る。

3.3.4 放射性核種浸出予測コードの構成

本コードのフローチャートをFig. 2に示す。本コードを構成するメインルーチン(LEACH)およびサブルーチンとの関係をFig. 3に示す。以下に、主なルーチンの概要について記す。

① LEACH

LEACHルーチンは、浸出コードのメインルーチンであり、放射性核種の固化体からの浸出計算を総合的にコントロールする。

② INPUT

INPUTルーチンは、カードイメージで入力データを読み込み、編集した入力データを出力するルーチンである。

③ TRAN

TRANルーチンは、差分により核種の浸出量を計算する部分をコントロールするルーチンである。

④ MESSAGE

MESSAGEルーチンは、計算時に発生したエラーのメッセージを出力する。

3.4 出力

本コードでは、固化体からの放射性核種の浸出挙動を予測するため、計算の結果をリストおよび図として以下に述べる形式で出力する。

リストとして出力出来るものは次の2項目である。

- ① ある時刻における放射性核種の浸出率および積算浸出量
- ② ある時刻における固化体内の放射性核種濃度分布

図として出力出来るものは次の3項目である。

- ① ある時刻における固化体内の放射性核種濃度分布
- ② 浸出量の経時変化
- ③ 浸出率の経時変化

4. 結果および考察

本コードのベンチマーク試験および計算を行った。ベンチマーク試験としては、ケース(a)の境界条件で、且つ、(2)式において $K=0$ の場合において得られる解析値と差分解を用いて計算される浸出量の比較を行った。

4.1 ベンチマーク試験

ベンチマーク試験において用いた入力データは下記のとおりである。

固化体の半径	:	2.25	cm
固化体の高さ	:	2.2	cm
固化体の半径方向分割数	:	100	
固化体の高さ方向分割数	:	160	

① LEACH

LEACHルーチンは、浸出コードのメインルーチンであり、放射性核種の固化体からの浸出計算を総合的にコントロールする。

② INPUT

INPUTルーチンは、カードイメージで入力データを読み込み、編集した入力データを出力するルーチンである。

③ TRAN

TRANルーチンは、差分により核種の浸出量を計算する部分をコントロールするルーチンである。

④ MESSAGE

MESSAGEルーチンは、計算時に発生したエラーのメッセージを出力する。

3.4 出力

本コードでは、固化体からの放射性核種の浸出挙動を予測するため、計算の結果をリストおよび図として以下に述べる形式で出力する。

リストとして出力出来るものは次の2項目である。

- ① ある時刻における放射性核種の浸出率および積算浸出量
- ② ある時刻における固化体内の放射性核種濃度分布

図として出力出来るものは次の3項目である。

- ① ある時刻における固化体内の放射性核種濃度分布
- ② 浸出量の経時変化
- ③ 浸出率の経時変化

4. 結果および考察

本コードのベンチマーク試験および計算を行った。ベンチマーク試験としては、ケース(a)の境界条件で、且つ、(2)式において $K=0$ の場合において得られる解析値と差分解を用いて計算される浸出量の比較を行った。

4.1 ベンチマーク試験

ベンチマーク試験において用いた入力データは下記のとおりである。

固化体の半径	:	2.25	cm
固化体の高さ	:	2.2	cm
固化体の半径方向分割数	:	100	
固化体の高さ方向分割数	:	160	

放射性核種の初期量 : 1 Ci
 拡散係数 : $1.4 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{day}$

得られた解析解および差分解による放射性核種の浸出量を求め、両者を比較した結果をTable 1に示す。この表から、浸出量の初期においては解析解から得られたものに比べ差分解から得られた値は低くなる傾向が見られるが、時間の経過とともに両者の値の差は小さくなることがわかる。特に、この場合、5 days以降における両者の値の差は数%以内であり、両者は良好な一致を示していると見なせる。ごく初期における相違は、差分解では有限のメッシュ内の物質の拡散を計算して全体の浸出量を求めており、固化体の外側の核種濃度が0となる境界条件〔ケース(a)〕においては、濃度の傾きがごく初期において特に顕著に鈍るためと考えられる。この問題は、メッシュの幅をより小さくすることにより解決できる。しかしながら、処分に関する安全評価の時間軸は極めて長期にわたるものであり、このようなごく初期における積算値の不一致は全体として無視できるものである。したがって、浸出現象を詳細に解析するためにはメッシュ分割をさらに細かくすることによりこの問題を解決しておくことが望ましいが、単に安全評価におけるソースターム計算のためであればその必要はないと判断される。

4.2 試 算

ベンチマーク試験に用いたデータを使用して、放射性核種の固化体からの浸出挙動を予測した。Fig. 4に浸出開始後1時間における固化体内の放射性核種の濃度分布を示す。ここでは、固化体を1/4に分割した部分の濃度分布を示した。この図から、固化体の表面付近の放射性核種が浸出に寄与していることがわかる。Fig. 5には浸出量の経時変化を計算した結果を示す。Fig. 6には浸出率の経時変化を計算した結果を示す。Fig. 5から、浸出量は時間とともに増加するがある程度時間が経過すると飽和する傾向を示すことがわかる。また、これと対応して、浸出率は時間の経過とともに減少し、しだいに0に近づく。

5. 結 論

放射性核種の固化体からの浸出挙動を検討するため、拡散現象を主として考慮した物質輸送方程式に基づいた円柱形固化体からの放射性核種浸出予測コードを作成した。本コードは、放射性核種の浸出挙動を種々の条件で検討するため3種類の境界条件を設定して物質輸送方程式を差分法で解いて得たものであり、放射性核種の固化体中における濃度分布並びに固化体からの積算浸出量と浸出率の経時変化を与えるものである。

本コードにより差分法で得られた浸出量の経時変化と解析解から得られたものとを比較した結果、両者の間に良好な一致が見られ、本コードの数学的妥当性が検証された。今後、浸出試験で得られた実験値を解析しコードの有効性を検討する予定である。

放射性核種の初期量 : 1 Ci
 拡散係数 : $1.4 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{day}$

得られた解析解および差分法による放射性核種の浸出量を求め、両者を比較した結果をTable 1に示す。この表から、浸出量の初期においては解析解から得られたものに比べ差分法から得られた値は低くなる傾向が見られるが、時間の経過とともに両者の値の差は小さくなることがわかる。特に、この場合、5 days以降における両者の値の差は数%以内であり、両者は良好な一致を示していると見なせる。ごく初期における相違は、差分法では有限のメッシュ内の物質の拡散を計算して全体の浸出量を求めており、固化体の外側の核種濃度が0となる境界条件〔ケース(a)〕においては、濃度の傾きがごく初期において特に顕著に鈍るためと考えられる。この問題は、メッシュの幅をより小さくすることにより解決できる。しかしながら、処分に関する安全評価の時間軸は極めて長期にわたるものであり、このようなごく初期における積算値の不一致は全体として無視できるものである。したがって、浸出現象を詳細に解析するためにはメッシュ分割をさらに細かくすることによりこの問題を解決しておくことが望ましいが、単に安全評価におけるソースターム計算のためであればその必要はないと判断される。

4.2 試 算

ベンチマーク試験に用いたデータを使用して、放射性核種の固化体からの浸出挙動を予測した。Fig. 4に浸出開始後1時間における固化体内の放射性核種の濃度分布を示す。ここでは、固化体を1/4に分割した部分の濃度分布を示した。この図から、固化体の表面付近の放射性核種が浸出に寄与していることがわかる。Fig. 5には浸出量の経時変化を計算した結果を示す。Fig. 6には浸出率の経時変化を計算した結果を示す。Fig. 5から、浸出量は時間とともに増加するがある程度時間が経過すると飽和する傾向を示すことがわかる。また、これと対応して、浸出率は時間の経過とともに減少し、しだいに0に近づく。

5. 結 論

放射性核種の固化体からの浸出挙動を検討するため、拡散現象を主として考慮した物質輸送方程式に基づいた円柱形固化体からの放射性核種浸出予測コードを作成した。本コードは、放射性核種の浸出挙動を種々の条件で検討するため3種類の境界条件を設定して物質輸送方程式を差分法で解いて得たものであり、放射性核種の固化体中における濃度分布並びに固化体からの積算浸出量と浸出率の経時変化を与えるものである。

本コードにより差分法で得られた浸出量の経時変化と解析解から得られたものとを比較した結果、両者の間に良好な一致が見られ、本コードの数学的妥当性が検証された。今後、浸出試験で得られた実験値を解析しコードの有効性を検討する予定である。

謝 辞

本報告書をまとめるに当たって多くの助言を頂いた環境安全研究部低レベル廃棄物処理処分研究室、和達嘉樹室長に感謝します。

参 考 文 献

- (1) USNRC: NUREG-0782 (1981).
- (2) USEPA: Proposed Low-Level Radioactive Waste Standards (40 CFR 193), Background Information Document, March 13, 1985.
- (3) Pinner, A.V., Hemming, C.R., Hill, M.D.: MRPB-R161 (1984).
- (4) Oster, C.A.: NUREG/CR-2917 (1982).
- (5) Yeh, G.T., Strand, R.H.: ORNL/TM-8104 (1982).
- (6) Reeves, M., Gugid, J.O.: ORNL-4927 (1975).
- (7) 大貫敏彦、前村克彦: JAERI-M 85-130 (1985).
- (8) 大貫敏彦 : JAERI-M 84-136 (1984).
- (9) Loagan, S.E., et al.: Waste Management Conf., Tucson, AZ, p98 (1980).
- (10) Bonner, N.A., et al.: UCID-18652 (1980).
- (11) Goodbee, H.W., et al.: Nucl. Chem, Waste Management, 1, 29 (1980).
- (12) Hespe, E.D.: At. Energy Rev., 9, 195 (1971).
- (13) 寺島泰, 他: 土木学会論文報告集, 209, 51 (1972).
- (14) Nestor, C.W.: ORNL/CSD/TM-84 (1980).
- (15) Moore, J.G., et al.: Nucl. Technol., 32, 39 (1977).
- (16) 矢島信男, 野木達夫: 発展方程式の数値解析, 199, 岩波書店 (1977).

謝 辞

本報告書をまとめるに当たって多くの助言を頂いた環境安全研究部低レベル廃棄物処理処分研究室、和達嘉樹室長に感謝します。

参 考 文 献

- (1) USNRC: NUREG-0782 (1981).
- (2) USEPA: Proposed Low-Level Radioactive Waste Standards (40 CFR 193), Background Information Document, March 13, 1985.
- (3) Pinner, A.V., Hemming, C.R., Hill, M.D.: MRPB-R161 (1984).
- (4) Oster, C.A.: NUREG/CR-2917 (1982).
- (5) Yeh, G.T., Strand, R.H.: ORNL/TM-8104 (1982).
- (6) Reeves, M., Gugid, J.O.: ORNL-4927 (1975).
- (7) 大貫敏彦, 前村克彦: JAERI-M 85-130 (1985).
- (8) 大貫敏彦 : JAERI-M 84-136 (1984).
- (9) Loagan, S.E., et al.: Waste Management Conf., Tucson, AZ, p98 (1980).
- (10) Bonner, N.A., et al.: UCID-18652 (1980).
- (11) Goodbee, H.W., et al.: Nucl. Chem, Waste Management, 1, 29 (1980).
- (12) Hespe, E.D.: At. Energy Rev., 9, 195 (1971).
- (13) 寺島泰, 他: 土木学会論文報告集, 209, 51 (1972).
- (14) Nestor, C.W.: ORNL/CSD/TM-84 (1980).
- (15) Moore, J.G., et al.: Nucl. Technol., 32, 39 (1977).
- (16) 矢島信男, 野木達夫: 発展方程式の数値解析, 199, 岩波書店 (1977).

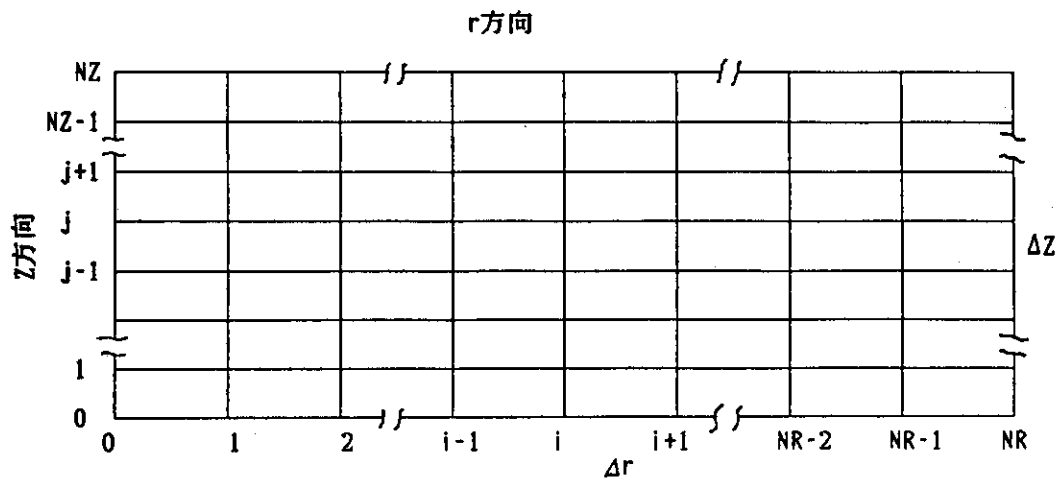


Fig. 1 Mesh divided in differential model.

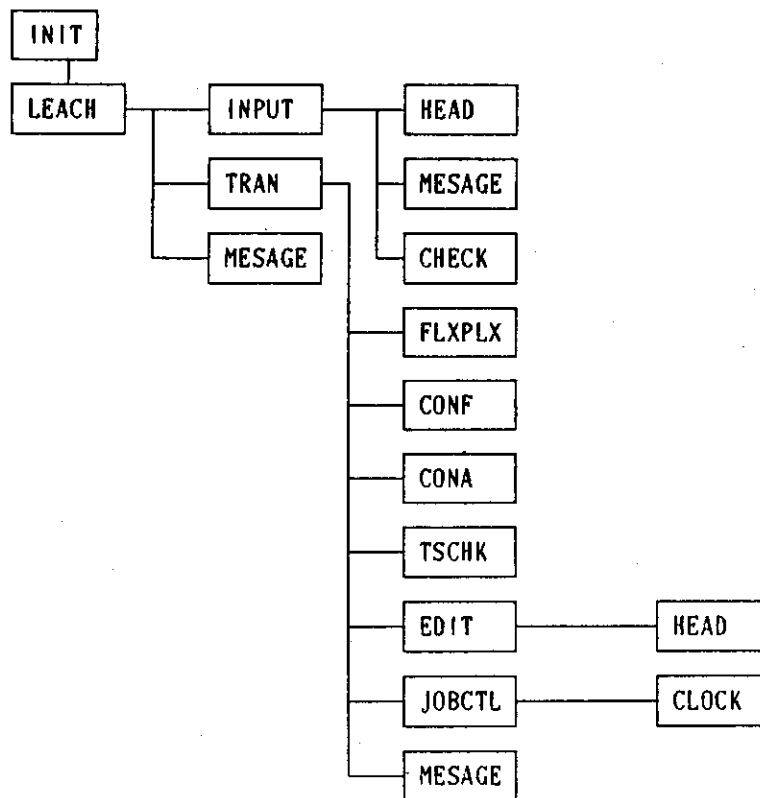


Fig. 2 Flow chart of LEACH.

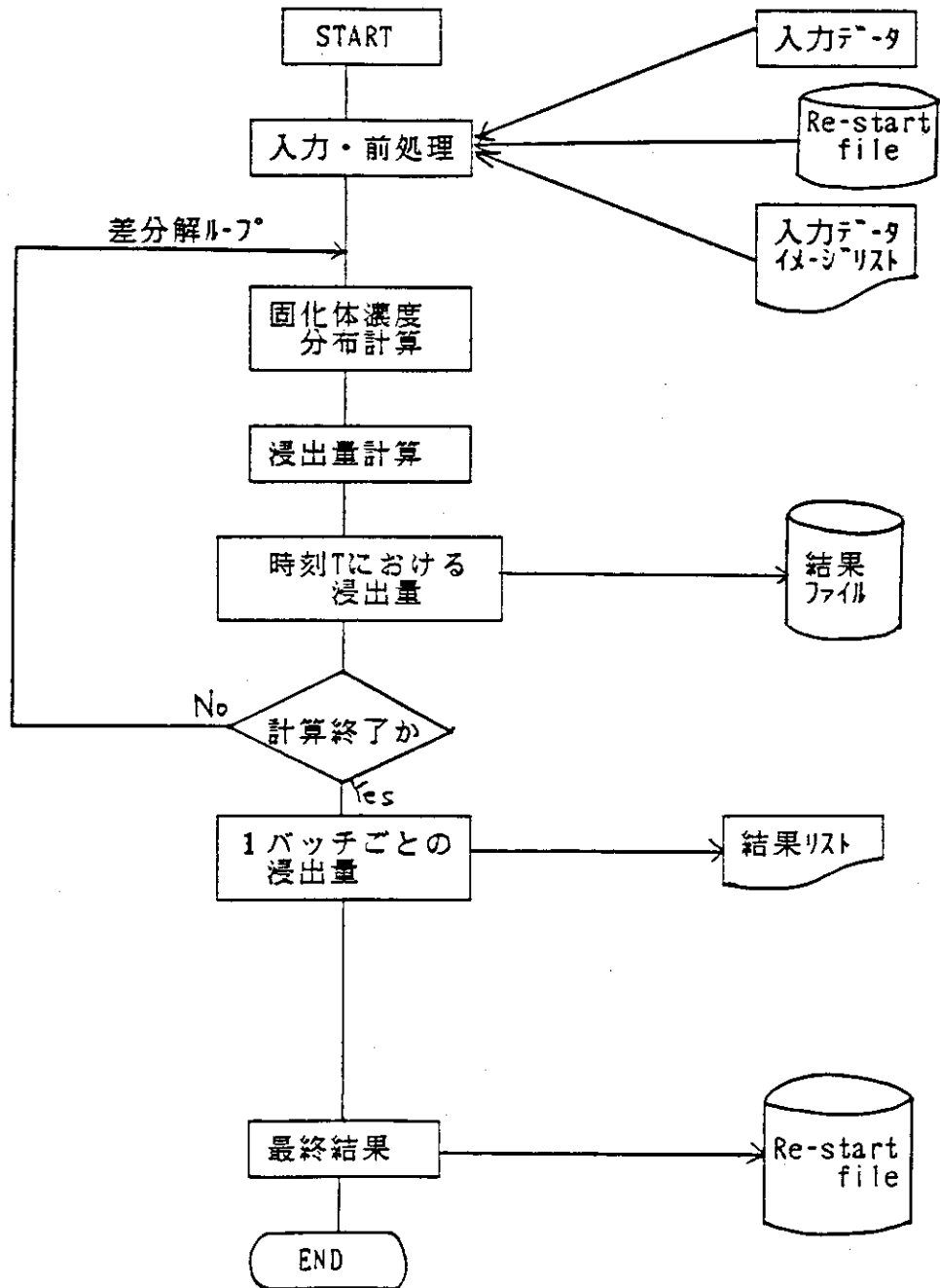


Fig. 3 Block diagram of LEACH.

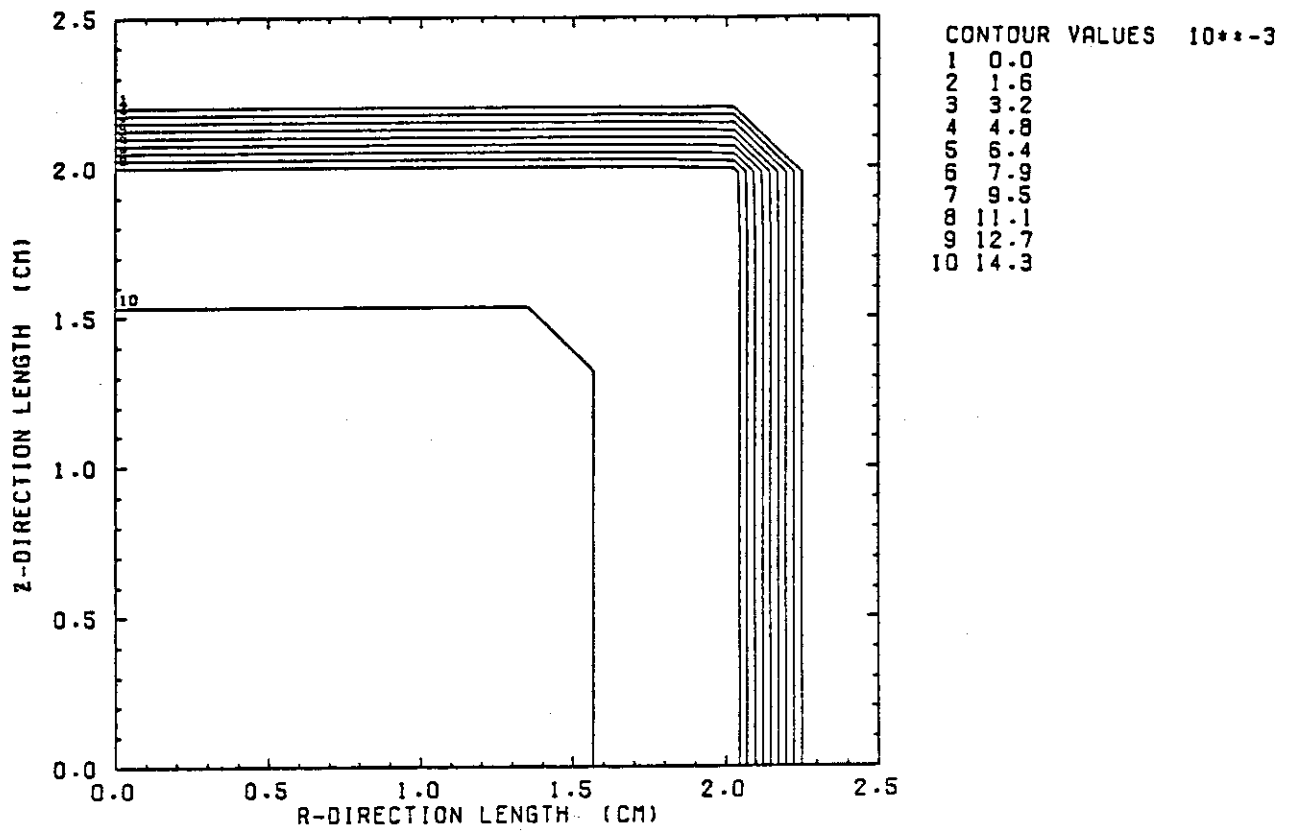


Fig. 4 Two dimensional concentration distribution of radionuclide in solidified waste form.

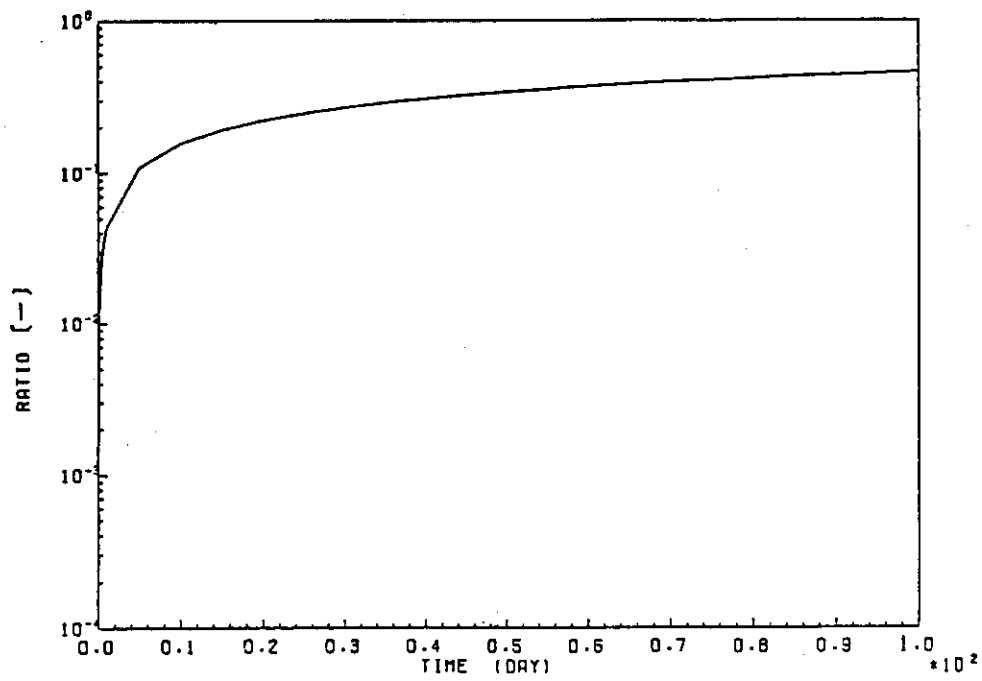


Fig. 5 Leaching fraction of radionuclide from solidified waste form as a function of time.

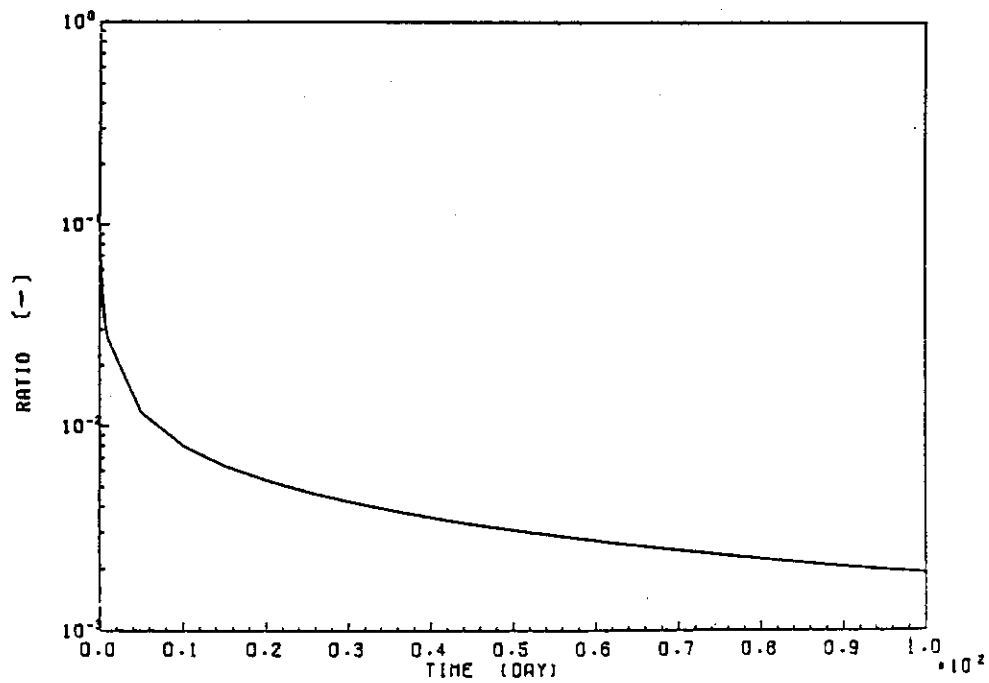


Fig. 6 Leaching rate of radionuclide from solidified waste form as a function of time.