

JAERI-M

88-089

低レベル放射性廃棄物浅地層処分の  
総合安全評価に関する部分モデルの  
開発（IV）

—複合バリア付き廃棄体からの  
放射性核種の浸出モデル—

1988年5月

若林 徳映・松鶴 秀夫・鈴木 篤之\*

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）で複写による実費頒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, 1988

---

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 日立高速印刷株式会社

低レベル放射性廃棄物浅地層処分の  
総合安全評価に関する部分モデルの開発(IV)  
—複合バリア付き廃棄体からの放射性核種の浸出モデル—

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

若林 徳映・松鶴 秀夫・鈴木 篤之\*

(1988年4月20日受理)

本研究は、放射性廃棄物の固化体、外被層及び廃棄体収納容器から構成される複合バリア付き廃棄体の有するバリア機能（放射性核種が一般環境中へ漏洩することを遅延または防止する機能）の有効性を評価することを目的としたものである。このため、上記の構造を持った廃棄体からの放射性核種の漏洩拡散過程を、ある厚さの外被構造を持ち、内部に放射性廃棄物固化体領域が接合する「不連続境界を持った1次元拡散問題」として定式化する方法を開発した。更に、外被構造物表面からの核種漏洩量評価式と外被構造物及び内部固化体領域の放射性核種濃度分布式を導出した。

「不連続境界を持った1次元拡散問題」は、パラメーター無次元化のための変数変換によって1つの「標準的な拡散問題」に帰着し、4つの本質的なパラメーターだけで決まることを示した。これらは、物理的減衰定数、外被層厚さ、外部領域と内部領域中の実効拡散係数比の平方根、及び境界定数である。したがって、全ての外被構造を持った廃棄物からの核種の漏洩量と濃度分布に関する拡散問題は、「標準的な拡散問題の解」に相似な解として与えられる。

不連続境界で必然的に生ずる自由度（境界定数）は、水を介在した核種の吸着・拡散機構を想定することで解釈できることを示した。この考え方を採用することにより、実効拡散係数だけで支配される系で、物質流束が1方向を向いている場合でも、通過する拡散媒体の層中には濃度の高低（したがって、放射性核種を多く吸着し濃縮している層とそうでない層）が存在することをモデル化することが可能となった。

最後に、本モデルで得た典型的な計算例での結果を付し、ここで想定した複合バリア層の有効性を明らかにした。

---

東海研究所：〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方字白根2-4

\* 東京大学

Development of Elementary Models of Comprehensive Safety Assessment Model  
for Shallow Land Disposal of Low-Level Radioactive Wastes (IV)  
—Modeling of Radionuclide Leaching from a Double Barried Waste Package—

Noriaki WAKABAYASHI, Hideo MATSUZURU and Atuyuki SUZUKI\*

Department of Environmental Safety Research

Tokai Research Establishment

Japan Atomic Energy Research Institute

Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received April 20, 1988)

In order to evaluate the barrier effect of a multi-barriered waste package consisting of a waste form, a coverage layer and a container, that retardds or prevents the leakage of radionuclides into environment, the diffusion processes in the package have been formulated as the one dimensional diffusion problem with a discontinuity between the waste form domain and the coverage domain. Solutions describing radionuclide leakage processes from the package and radionuclide distributions in the both domains have been derived from the model developed here.

The one dimensional diffusion problem with a discontinuity between two domains has been reduced to a single normalized diffusion problem by transforming variables to dimensionless forms. Thus the problem can be described throughly with four essential dimensionless parameters, i.e., square root of the ratio of effective diffusion coefficients in the both domains, the decay constant, thickness of the coverage and a boundary coefficient. Consequently, all kinds of solutions representing the leakage process and the radionuclide distribution were shown to be given by the solutions similar to those derived from the normalized diffusion problem.

---

\*University of Tokyo

One degree of freedom (defined as the boundary coefficient) arised inevitably at the discontinuous boundary can be successfully explained by assuming that the diffusion and adsorption mechanism controls the transport of radionuclides mediated by water. This assumption enables the modeling of the phenomena that the radionuclide concentration in a surrounding diffusion layer can be higher than that in the waste form domain, even if a mass flux keeps a specific one direction from the waste to the surrounding in the system controlled by the effective diffusion coefficient alone.

**Keywords:** Multi Barried Package, Radioactive Waste, Modeling, Diffusion, Mathematical Simulation, Mass-transport Equation, Leaching, Leakage, Normalized Equation, Dimensionless Parameter

## 目 次

1. 序 論 .....	1
2. 浸出系の設定 .....	3
3. 境界定数 .....	5
4. パラメータの無次元化と標準形 .....	7
5. Laplace 変換を用いた解法 .....	10
5.1 拡散の標準式 2 の解法 .....	10
5.2 拡散の標準式 1 の解法 .....	12
5.3 浸出量計算 .....	14
6. 廃棄体からの漏洩量評価への適用 .....	15
6.1 擬制固化体からの浸出比 .....	16
6.2 擬制廃棄体からの漏洩率 .....	17
7. 数値解析 .....	19
7.1 標準的な拡散問題の解析 .....	19
7.2 擬制廃棄体の漏洩量評価 .....	20
8. 結 論 .....	21
謝 辞 .....	22
参考文献 .....	23
付録 補題の証明 .....	35

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Description of Leaching System .....	3
3. Boundary Coefficient .....	5
4. Dimensionless Parameters and Normalized Equation .....	7
5. Solution Method with Laplace Transformation .....	10
5.1 Solution of Normalized Diffusion Equation 2 .....	10
5.2 Solution of Normalized Diffusion Equation 1 .....	12
5.3 Calculation of Leaching Rate .....	14
6. Application to the Estimation of Amount Leaked from Package .....	15
6.1 Leaching Fraction from Modeled Waste Form .....	16
6.2 Leakage Fraction from Modeled Package .....	17
7. Numerical Analysis .....	19
7.1 Analysis of Normalized Diffusion Problem .....	19
7.2 Estimation of Amount Leaked from Modeled Package .....	20
8. Conclusion .....	21
Acknowledgement .....	22
References .....	23
Appendix Proof of Lemma .....	35

## 1. 序 論

低レベル放射性廃棄物を浅地層に処分するに際して、廃棄物に含まれる放射性核種が処分環境中へ容易に漏洩しないように、廃棄物は何等かの方法によって安定化し、適切な容器に封入することが要請される。安定化の方法は廃棄物の性質によって異なる。例えば、軽水炉の運転廃棄物として発生する廃棄物の内、蒸発缶濃縮廃液、使用済イオン交換樹脂、焼却灰等は、セメント、アスファルト、プラスチックス等によって、巨視的に見て均一な固化体とし、適切な容器内に封入することができる。これが均一廃棄体と称され、この廃棄体に適用される浸出量評価モデルは既に確立され、評価に必要なデータも蓄積されている<sup>(1)-(5)</sup>。一方、不燃性雑個体廃棄物（金属、ガラス、コンクリート片等）は、切断、圧縮等の前処理が施されるが、これらを上記のような均一固化体に安定化することは不可能である。このような廃棄物は、セメントミルク、樹脂等の充填材によって容器内に固形化されることになる。これが不均一廃棄体と称され、浸出量を評価するためのモデルが確立されていない。ここでは、従来の均一廃棄体の評価手法を改良し、不均一廃棄体の評価の一部にも適用できる手法の開発を試みる。

不均一廃棄体の構成として下記のものが考えられる。

- ① 容器内に切断された廃棄物を収納し、空間を充填材でほぼ完全に満たす。
- ② ライナー付き容器に切断された廃棄物を収納し、空間を充填材でほぼ完全に満たす。
- ③ 容器内に圧縮された廃棄物を収納し、空間を充填材でほぼ完全に満たす。
- ④ ライナー付き容器に圧縮された廃棄物を収納し、空間を充填材でほぼ完全に満たす。

このような複合バリア付き廃棄体からの放射性核種の漏洩量を評価するためには、廃棄体に具備された要素（バリア機能）を考慮して、廃棄体からの放射性核種の拡散・浸出過程をモデル化する必要がある。

上記の廃棄体に関しては、バリア機能を有する要素の組合せとして下記のものが考えられる。

- ① 廃棄物と充填材の混合層 - 容器
- ② 廃棄物と充填材の混合層 - ライナー層 - 容器
- ③ 廃棄物 - 充填層 - 容器
- ④ 廃棄物 - 充填層 - ライナー層 - 容器

切断された廃棄物と充填層の混合層は、充填がほぼ完全に行われた場合は、均一固化体と同等と見なせる。したがって、①は均一廃棄体と同等なモデル<sup>(6)</sup>が適用できる。また、充填層とライナー層の材質が同等の拡散性を有する場合も、両者は均一の層と見なして、同様の扱いが可能である。

本研究では、廃棄物層、ライナー層または充填層（本研究では、これらを廃棄物層に対する外被層と総称する），及び容器から構成される廃棄体を対象にして、浸出量評価モデルを開発する。すなわち、廃棄物層からの放射性核種の拡散、外被層における放射性核種の拡散、及び金属容器の腐食をできるだけ単純にモデル化し、これらが持つバリア層としての機能（核種の漏洩阻止・遅延機能）を評価する必要がある。そのために、ここではこれらの機構を、「不連

続境界を持った 1 次元拡散問題」として単純化して取り上げることにする。

ここでいう「不連続境界を持った 1 次元拡散問題」とは、廃棄物層中からの核種の拡散流束と外被層中の拡散流束を不連続境界でバランスさせて、異なる拡散媒体中の核種濃度を同時に求める問題を指す。簡単のため、拡散方向を 1 方向（1 次元）のみとし、均質な廃棄物層（汚染物質、それ自身の固体化処理が漏洩阻止機能を持つ）と均質な外被層（人工バリア機能を持つもの）の 2 種類の拡散媒体にモデル化する。その他のバリア機能を持つ要素の内、金属容器腐食など拡散面積の広がりを示すもの（拡散漏洩現象の開始を遅延させる効果を持つ要素）は、本問題で得られた漏洩量に、時間に関する合成積をとることで、モデル化が可能である<sup>(6)</sup>。

また、同様な目的によって、今まででは、廃棄物固化体中の拡散のみを 1 次元拡散問題として取り上げる方法や、平板中の 1 次元拡散問題として取り上げる方法が用いられている<sup>(7)</sup>。前者は、廃棄物固化体自体が持つ含有放射性核種の漏洩阻止機能のみをモデル化し、後者は、廃棄物周囲の外被構造物が持つ漏洩阻止機能のみをモデル化することに対応している。本モデル化の方法は、これらの場合を、特殊な場合として含むことを示すことができる。

本研究で指向する「不連続境界を持った 1 次元拡散問題」は、上記の各モデルを唯一つの相似な問題（無次元化された問題）に帰着することができ、浸出量または漏洩量評価モデルを一般化しようとするものである。ここでは、この問題を所与の初期条件及び境界条件のもとに解き、これによって得られた解の曲線（標準的な曲線）を示す。具体的な廃棄体の諸条件を反映させた漏洩量評価は、これら標準的な場合から導くことができる。

## 2. 浸出系の設定

本研究で解析の対象とする浸出系では、無限平板（拡散媒体）の一端が均質で半無限な廃棄物（廃棄物自身も拡散媒体）に接し、他端（漏洩端）が均質で半無限の液層に接し、濃度0に固定された場合を想定する（Fig. 1）。時間  $t = 0$  の時（放射性廃棄物に平板が接した当初）には、平板状の拡散媒体中の拡散物質（放射性核種）濃度は0とする。この浸出系は、比較的大きな廃棄物固化体の表面を、比較的薄い外被物（この節では平板とよぶ）で覆った場合のモデルに相当する。この場合、廃棄物層が、内部に含まれる放射性核種の浸出を阻止・遅延させる効果を持つと共に、廃棄体における充填層またはライナー層に相当する平板（拡散媒体）が、廃棄物から浸出した放射性核種の廃棄体外部への漏洩拡散を阻止・遅延するバリア機能を持つことになる。

この浸出系における「漏洩端で濃度0」の仮定は、漏洩端での濃度勾配を過大に見積る結果となり、したがって、漏洩量（浸出量）の安全側の評価を与えるための仮定である。実際には、固液界面に拡散2重層が形成され、この中で拡散物質は濃度勾配を持つため、固層から液層への物質の拡散・移行速度は、上述の漏洩端で濃度0の仮想的な場合に比べて遅くなる。しかし、拡散量を支配する要因の1つである拡散2重層の厚さは、液層の物理的・化学的条件によって異なり一義的に与えられないので、ここでは安全側の仮定として、上記の漏洩端で濃度0の境界条件を採用している。

ここでは、解析を簡単にするため、前述の浸出系の想定から、拡散は平板に垂直な方向の1次元とする。2種類の拡散媒体の接合境界面では、濃度分布の不連続性は許容するが拡散物質流束はバランスすると考える。また、1種類の放射性核種の拡散のみを考える。数種類の核種が存在する場合でも、低濃度溶液の範囲で放射性核種の間に相互作用がなければ、拡散現象には線形性が成立すると見なせるので、各々の拡散現象の重ね合わせが可能である。

廃棄物・平板中の1次元拡散問題を支配する初期値・境界値問題を述べる。ここでは、以下の記号・単位を、用いる。

単位 時 間：	$T$ (y)
長 さ：	$L$ (cm)
核 種 量：	$M$ (pCi)
質 量：	$MS$ (g)
変数 $x$	：空間座標 ( $L$ )
$t$	：時間 ( $T$ )
$h$	：平板の厚さ ( $L$ )
$\lambda$	：物理的崩壊定数 ( $1/T$ )
$\mu$	：境界常数
$k$	：添字 = 1 平板領域 = 2 廃棄物領域

i.e.  $(x, t) \in [0, h] \times [0, \infty)$  : 平板領域  
 $(h, \infty) \times [0, \infty)$  : 廃棄物領域

$C_k(x, t)$  : 濃度分布 ( $M/L^3$ )

$C_0$  : 初期濃度 ( $M/L^3$ )

$D_k$  : 実効拡散係数 ( $L^2/T$ )

また、便宜上次の記号を用いる。

$$D_{12} = \sqrt{(D_1 D_2)} : \text{幾何平均拡散係数} \quad (1)$$

$$b = \sqrt{(D_1/D_2)} : \text{拡散係数比の2乗根} \quad (2)$$

$$\xi = (1 - \mu b)/(1 + \mu b) \quad (3)$$

ここで解析対象とする浸出系を支配する基本法則は、下記の3つである。すなわち、拡散媒体中の物質流束は濃度勾配に比例するというFickの法則、放射性核種の崩壊による減衰、及び、境界面も含めて任意断面での出力物質流束は入力物流束とバランスするという質量保存則である。これらにより、この浸出・拡散系を支配する物質輸送方程式は、次式で表わされる。

#### [拡散現象による濃度式]

$$\partial C_1 / \partial t = D_1 \partial^2 C_1 / \partial x^2 - \lambda C_1 \quad (4)$$

$$\partial C_2 / \partial t = D_2 \partial^2 C_2 / \partial x^2 - \lambda C_2 \quad (5)$$

初期及び境界条件は下記の通りである。

$$C_1(x, 0) = 0 \quad t = 0 \text{ の時。} \quad (6)$$

$$C_2(x, 0) = C_0 \quad t = 0 \text{ の時。}$$

$$C_1(0, t) = 0 \quad x = 0 \text{ の時。}$$

$$C_2(\infty, t) = C_0 \exp(-\lambda t) \quad x = \infty \text{ の時。}$$

$$C_1(h, t) = \mu C_2(h, t) \quad x = h \text{ の時。}$$

$$-D_1 \partial C_1 / \partial x (h, t) = -D_2 \partial C_2 / \partial x (h, t) \quad x = h \text{ の時。}$$

濃度に付随する諸量（漏洩端で、核種の漏洩量を評価するための量）は、次で定義する。但し、平板領域でのみ考え、添字を用いない。

$j(x, t)$  : 物質流束 ( $M/L^2/T$ )

$q(x, t)$  : 積算浸出量 ( $M/L^2$ )

$r(x, t)$  : 残存積算浸出量 ( $M/L^2$ )

$$j(x, t) = -D_1 \partial C_1 / \partial x \quad (7)$$

$$q(x, t) = \int_0^t j(x, \alpha) d\alpha \quad (8)$$

$$r(x, t) = \int_0^t j(x, \alpha) \exp\{-\lambda(t-\alpha)\} d\alpha \quad (9)$$

拡散方向に垂直な単位断面積当たりで考えて、 $j(x, t)$  は単位時間当たりに通過する物質

の量を示し、 $q(x, t)$  は、拡散開始時刻からその時間までに、その断面を通過した積算（累積）物質量を示す。いちど断面を通過した物質は、その後物理的減衰による影響を受けるので、その減衰効果を考慮して、断面通過後その外側に実際に残存する積算（累積）物質量を  $r(x, t)$  で表わす。

### 3. 境界定数

拡散現象による濃度式では、接合境界面における濃度分布の任意性（自由度、不連続性）を、境界定数  $\mu$  で代表させている。ここでは、これに関する物理的意味（解釈）を考える。

通常、均質な拡散媒体としての固体物質に対して、実効拡散係数 ( $D_k$ ) を考える。この場合、固化体（または固化体相当の固形化体）としてのマトリックス中に無数に存在する微細な空隙構造、そこを移動する水やその他の物質、及びマトリックス中での複雑な物理・化学的な相互作用を考慮して、マトリックス中の総合的な拡散・相互作用現象を含めた包括的な係数として、実効拡散係数を考えている<sup>(7)-(9)</sup>。すなわち、実験的に求められる実効拡散係数（見かけの拡散係数）には、マトリックス中での水を介在した複雑な物理的・化学的現象を反映した速度論的定数及び平衡論的要素が含まれていると考えるべきである。

一方、別の立場から同じ現象をモデル化することも可能である。そこで、ここでは、全ての拡散現象は、水（液体物質）が介在していると考える立場をとって、簡単のため、次の仮定を置く。

- ① 放射性核種の拡散は水中のみで生じ、固体物質（多孔質）中では、核種は化学的相互作用によって不動化される。
- ② マトリックス中での水の移流を無視する。
- ③ マトリックス中では、全ての物性は、巨視的には均質とする。
- ④ 水分中核種濃度は、多孔質マトリックスの空隙構造に関わらず連続とする。
- ⑤ 固体物質中に不動化される核種量は、その核種の水分中濃度のみに比例する（線形相互作用モデル、比例定数を相互作用係数と呼ぶ）。

ここでは、簡略化のため、相互作用として瞬時に進行する可逆的な核種の吸着のみを考えるので、相互作用係数は分配係数で置き換える。

ここで、次の記号を用いる。

- $k = 1, 2$  : 2種の固体物質物性を表示するとして、
- $D_w$  : マトリックス中での水中拡散係数
- $n_k$  : 空隙率
- $\theta_k$  : 水分飽和度
- $\rho_k$  : 固体の真密度 ( $M_s/L^3$ )
- $D_k (= D_{ek})$  : 実効拡散係数 ( $L^2/T$ )
- $k d_k$  : 分配係数 ( $M/M_s/M/L^3$ )

の量を示し、 $q(x, t)$  は、拡散開始時刻からその時間までに、その断面を通過した積算（累積）物質量を示す。いちど断面を通過した物質は、その後物理的減衰による影響を受けるので、その減衰効果を考慮して、断面通過後その外側に実際に残存する積算（累積）物質量を  $r(x, t)$  で表わす。

### 3. 境界定数

拡散現象による濃度式では、接合境界面における濃度分布の任意性（自由度、不連続性）を、境界定数  $\mu$  で代表させている。ここでは、これに関する物理的意味（解釈）を考える。

通常、均質な拡散媒体としての固体物質に対して、実効拡散係数 ( $D_k$ ) を考える。この場合、固化体（または固化体相当の固形化体）としてのマトリックス中に無数に存在する微細な空隙構造、そこを移動する水やその他の物質、及びマトリックス中の複雑な物理・化学的な相互作用を考慮して、マトリックス中の総合的な拡散・相互作用現象を含めた包括的な係数として、実効拡散係数を考えている<sup>(7)-(9)</sup>。すなわち、実験的に求められる実効拡散係数（見かけの拡散係数）には、マトリックス中の水を介在した複雑な物理的・化学的現象を反映した速度論的定数及び平衡論的要素が含まれていると考えるべきである。

一方、別の立場から同じ現象をモデル化することも可能である。そこで、ここでは、全ての拡散現象は、水（液体物質）が介在していると考える立場をとって、簡単のため、次の仮定を置く。

- ① 放射性核種の拡散は水中のみで生じ、固体物質（多孔質）中では、核種は化学的相互作用によって不動化される。
- ② マトリックス中の水の移流を無視する。
- ③ マトリックス中では、全ての物性は、巨視的には均質とする。
- ④ 水分中核種濃度は、多孔質マトリックスの空隙構造に関わらず連続とする。
- ⑤ 固体物質中に不動化される核種量は、その核種の水分中濃度のみに比例する（線形相互作用モデル、比例定数を相互作用係数と呼ぶ）。

ここでは、簡略化のため、相互作用として瞬時に進行する可逆的な核種の吸着のみを考えるので、相互作用係数は分配係数で置き換える。

ここで、次の記号を用いる。

- $k = 1, 2$  : 2種の固体物質物性を表示するとして、
- $D_w$  : マトリックス中の水中拡散係数
- $n_k$  : 空隙率
- $\theta_k$  : 水分飽和度
- $\rho_k$  : 固体の真密度 ( $M_s/L^3$ )
- $D_k (=D_{ek})$  : 実効拡散係数 ( $L^2/T$ )
- $k_{d,k}$  : 分配係数 ( $M/M_s/M/L^3$ )

この時、次のように考える。

$C_{Wk}$  : 固体  $k$  中の水分中の核種濃度 ( $M/L^3$ )

$k d_k C_{Wk}$  : 固体  $k$  単位質量当たり吸着量 ( $M/M_s$ )

$(1-n_k) \rho_k k d_k C_{Wk}$  : 固体(多孔質)が単位体積当たり吸着する核種量  
水分中の拡散現象を支配する方程式は、次で与えられる<sup>(10)-(14)</sup>。

[水分中核種濃度の式]

$$\begin{aligned} & \{ n_k \theta_k + (1-n_k) \rho_k k d_k \} \partial C_{Wk} / \partial t \\ & = n_k \theta_k D_w \partial^2 C_{Wk} / \partial x^2 - \lambda \{ n_k \theta_k + (1-n_k) \rho_k k d_k \} C_{Wk} \quad k=1, 2, \dots \dots \dots \quad (10) \end{aligned}$$

初期及び境界条件は下記の通りである。

$$C_{W1}(x, 0) = 0 \quad t = 0 \text{ の時。} \quad (11)$$

$$C_{W2}(x, 0) = C_0 / \{ n_2 \theta_2 + (1-n_2) \rho_2 k d_2 \} \quad t = 0 \text{ の時。}$$

$$C_{W1}(0, t) = 0 \quad x = 0 \text{ の時。}$$

$$C_{W2}(\infty, t) = C_0 \exp(-\lambda t) / \{ n_2 \theta_2 + (1-n_2) \rho_2 k d_2 \} \quad x = \infty \text{ の時。}$$

$$C_{W1}(h, t) = C_{W2}(h, t) \quad x = h \text{ の時。}$$

$$-n_1 \theta_1 D_w \partial C_{W1} / \partial x (h, t) = -n_2 \theta_2 D_w \partial C_{W2} / \partial x (h, t) \quad x = h \text{ の時。}$$

ここで水分中の濃度ではなく、固体に吸着された量と水分中の濃度を合わせたマトリックス中の濃度に着目し、以下の記号を導入する。

$$C_{Sk} = \{ n_k \theta_k + (1-n_k) \rho_k k d_k \} C_{Wk} \quad \dots \dots \dots \quad (12)$$

: マトリックス  $k$  中の核種濃度(水分中濃度と吸着量の合計)

$$R_{Sk} = 1 + (1-n_k) \rho_k k d_k / n_k \theta_k \quad \dots \dots \dots \quad (13)$$

: 遅延係数

$$D_k = D_{e_k} = D_w / R_{Sk} \quad \dots \dots \dots \quad (14)$$

: 実効拡散係数

これによって方程式を書き換えると、以下に示す式が得られる。これらは本質的に(4)-(6)式と同じであって、この式の  $\mu$  が境界定数の一つの解釈を与える。

[固体中核種濃度の式]

$$\partial C_{Sk} / \partial t = D_{e_k} \partial^2 C_{Sk} / \partial x^2 - \lambda C_{Sk} \quad k=1, 2 \quad \dots \dots \dots \quad (15)$$

初期及び境界条件は下記の通りである。

$$C_{S1}(x, 0) = 0 \quad t = 0 \text{ の時。} \quad \dots \dots \dots \quad (16)$$

$$C_{S2}(x, 0) = C_0 \quad t = 0 \text{ の時。}$$

$$C_{S1}(0, t) = 0 \quad x = 0 \text{ の時。}$$

$$C_{S2}(\infty, t) = C_0 \exp(-\lambda t) \quad x = \infty \text{ の時。}$$

$$C_{S1}(h, t) / (n_1 \theta_1 R_{S1}) = C_{S2}(h, t) / (n_2 \theta_2 R_{S2}) \quad x = h \text{ の時。}$$

$$-De_1 \partial C_{W1} / \partial x(h, t) = -De_2 \partial C_{W2} / \partial x(h, t) \quad x = h \text{ の時。}$$

ここで、境界定数  $\mu$  は次式になっている。

$$\mu = (n_1 \theta_1 R_{S1}) / (n_2 \theta_2 R_{S2}) = \frac{n_1 \theta_1 / D_{e1}}{n_2 \theta_2 / D_{e2}} \quad \dots \quad (17)$$

相接する 2 層の物性（空隙率、水分飽和度、密度）と吸着性（分配係数）が等しければ、 $\mu = 1$  となる。平板領域 1 を粗な構造のセメント（空隙率 0.5、真密度 2.2）とし、廃棄体領域 2 を密な構造のセメント（空隙率 0.3、真密度 2.2）とすると、セシウム ( $kd \approx 1.02 \text{ cm}^3/\text{g}$ )、ストロンチウム ( $kd \approx 4.1 \text{ cm}^3/\text{g}$ )、コバルト ( $kd \approx 2.3 \text{ cm}^3/\text{g}$ ) では、 $\mu = 0.7 \sim 0.8$  と見積られる<sup>(1),(7)</sup>。

マトリックス内での相互作用としてセメント構造への吸着のみを想定した場合、式(14)の関係から、実効拡散係数は分配係数の高い核種ほど小さくなることが期待される。しかし、実際に実験的に求められた上記 3 核種の実効拡散係数は、セシウムで約  $3 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{d}$ 、ストロンチウムで約  $7 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{d}$ 、及びコバルトで約  $3 \times 10^{-11} \text{ cm}^2/\text{d}$  程度であって<sup>(7)</sup>、分配係数の値から予測される実効拡散係数の値の傾向とは逆になる。

この矛盾を解消するためには、相互作用として吸着以外の現象を考慮する必要があり、例えば、松鶴ら<sup>(7)</sup>により提案された精緻な理論が必要である。この理論では、放射性核種のマトリックス中の存在状態（化学形）を勘案して、拡散に関与し得る存在状態にある放射性核種の割合を熱力学的平衡定数から算出し、この割合を用いてマトリックス中の水中拡散係数に補正を加え実効拡散係数を推定している。

上記の補正是、実効拡散係数を求める際にのみ行われるので、実験的に求められた実効拡散係数を所与として用いる場合は、(15)～(17)式または(4)～(6)式で示される物質輸送方程式の展開では必ずしも考慮する必要がない。

#### 4. パラメータの無次元化と標準形

支配方程式の標準形を得るために、拡散層における距離、拡散層の厚さ、時間、放射性核種濃度、積算浸出比及び積算残存浸出比及び積算残存浸出比について、下記のような無次元化のための変数変換を行う。

$\lambda \neq 0$  の時

$$\begin{aligned} X &= x / (D_{12} / \lambda)^{1/2} \\ H &= h / (D_{12} / \lambda)^{1/2} \\ T &= \lambda * t \\ C_{11} &= C_1 / C_0 \\ C_{21} &= C_2 / C_0 \\ J &= j / C_0 / \sqrt{(\lambda D_{12})} \end{aligned} \quad \dots \quad (18)$$

$$C_{S1}(h, t) / (n_1 \theta_1 R_{S1}) = C_{S2}(h, t) / (n_2 \theta_2 R_{S2}) \quad x = h \text{ の時。}$$

$$-De_1 \partial C_{W1} / \partial x(h, t) = -De_2 \partial C_{W2} / \partial x(h, t) \quad x = h \text{ の時。}$$

ここで、境界定数  $\mu$  は次式になっている。

$$\mu = (n_1 \theta_1 R_{S1}) / (n_2 \theta_2 R_{S2}) = \frac{n_1 \theta_1 / D_{e1}}{n_2 \theta_2 / D_{e2}} \quad \dots \quad (17)$$

相接する 2 層の物性（空隙率、水分飽和度、密度）と吸着性（分配係数）が等しければ、 $\mu = 1$  となる。平板領域 1 を粗な構造のセメント（空隙率 0.5、真密度 2.2）とし、廃棄体領域 2 を密な構造のセメント（空隙率 0.3、真密度 2.2）とすると、セシウム ( $kd \approx 1.02 \text{ cm}^3/\text{g}$ )、ストロンチウム ( $kd \approx 4.1 \text{ cm}^3/\text{g}$ )、コバルト ( $kd \approx 2.3 \text{ cm}^3/\text{g}$ ) では、 $\mu = 0.7 \sim 0.8$  と見積られる<sup>(1),(7)</sup>。

マトリックス内での相互作用としてセメント構造への吸着のみを想定した場合、式(14)の関係から、実効拡散係数は分配係数の高い核種ほど小さくなることが期待される。しかし、実際に実験的に求められた上記 3 核種の実効拡散係数は、セシウムで約  $3 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{d}$ 、ストロンチウムで約  $7 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{d}$ 、及びコバルトで約  $3 \times 10^{-11} \text{ cm}^2/\text{d}$  程度であって<sup>(7)</sup>、分配係数の値から予測される実効拡散係数の値の傾向とは逆になる。

この矛盾を解消するためには、相互作用として吸着以外の現象を考慮する必要があり、例えば、松鶴ら<sup>(7)</sup>により提案された精緻な理論が必要である。この理論では、放射性核種のマトリックス中の存在状態（化学形）を勘案して、拡散に関与し得る存在状態にある放射性核種の割合を熱力学的平衡定数から算出し、この割合を用いてマトリックス中の水中拡散係数に補正を加え実効拡散係数を推定している。

上記の補正是、実効拡散係数を求める際にのみ行われるので、実験的に求められた実効拡散係数を所与として用いる場合は、(15)～(17)式または(4)～(6)式で示される物質輸送方程式の展開では必ずしも考慮する必要がない。

#### 4. パラメータの無次元化と標準形

支配方程式の標準形を得るために、拡散層における距離、拡散層の厚さ、時間、放射性核種濃度、積算浸出比及び積算残存浸出比及び積算残存浸出比について、下記のような無次元化のための変数変換を行う。

$\lambda \neq 0$  の時

$$X = x / (D_{12} / \lambda)^{1/2} \quad \dots \quad (18)$$

$$H = h / (D_{12} / \lambda)^{1/2}$$

$$T = \lambda * t$$

$$C_{11} = C_1 / C_0$$

$$C_{21} = C_2 / C_0$$

$$J = j / C_0 / \sqrt(\lambda D_{12})$$

$$R = r / C_0 / \sqrt{(D_{12} / \lambda)}$$

$\lambda = 0$  の時 ( $I = 1 (1/T)$  と書いて)

$$\begin{aligned}
 X &= x / (D_{12} / I)^{1/2} \\
 H &= h / (D_{12} / I)^{1/2} \\
 T &= I * t \\
 C_{12} &= C_1 / C_0 \\
 C_{21} &= C_2 / C_0 \\
 J &= j / C_0 / \sqrt(I D_{12}) \\
 Q &= q / C_0 / \sqrt(D_{12} / I) \\
 R &= r / C_0 / \sqrt(D_{12} / I)
 \end{aligned} \tag{19}$$

さらに、次のように書く。

$\lambda \neq 0$  の時,  $A = 1$ ,

$\lambda = 0$  の時,  $A = 0$ .

変数変換(18), (19)を, [拡散現象による濃度式] (4)–(6)に施し, 次の標準形をえる。

### [拡散の標準式 1]

$\lambda \neq 0$  の時 ( $A = 1$ )

ここで、初期及び境界条件は下記の通りである。

$$C_{11}(x, 0) = 0 \quad T = 0 \text{ の時。} \dots \dots \dots \quad 22$$

$$C_{21}(X, 0) = 1 \quad T = 0 \text{ の時。}$$

$$C_{11}(0, T) = 0 \quad X = 0 \text{ の時。}$$

$$C_{21}(\infty, T) = \exp(-T) \quad X = \infty \text{ の時。}$$

$$C_{11}(H, T) = \mu C_{21}(H, T) \quad X = H \text{ の時。}$$

$$-b \frac{\partial C_{11}}{\partial X}(H, T) = -b^{-1} \frac{\partial C_{21}}{\partial X}(H, T) \quad X = H \text{ の時。}$$

$\lambda = 0$  の時 ( $A = 0$ )

$$\frac{\partial C_{11}}{\partial T} = b \quad \frac{\partial^2 C_{11}}{\partial x^2} = \dots \dots \dots \quad (23)$$

ここで、初期及び境界条件は次式で与えられる。

$$C_{11}(X, 0) = 0 \quad T = 0 \text{ の時。}$$

$$C_{21}(x, 0) = 1 \quad T = 0 \text{ の時。} \dots \dots \dots \quad (25)$$

$$\begin{aligned} C_{11}(0, T) &= 0 & X = 0 \text{ の時。} \\ C_{21}(\infty, T) &= 1 & X = \infty \text{ の時。} \\ C_{11}(H, T) &= \mu C_{21}(H, T) & X = H \text{ の時。} \\ -b \partial C_{11} / \partial X(H, T) &= -b^{-1} \partial C_{21} / \partial X(H, T) & X = H \text{ の時。} \end{aligned}$$

また、以上の変数変換によって、濃度に付随する諸量には、次の関係が成立する。

$$R(X, T) = \int_0^T J(X, A) \exp\{-(T-A)\} dA = \exp(-T) \int_0^T J \exp(A) dA$$

..... 28

よって、本拡散現象に関する全ての解は、 $A$ ,  $H$ ,  $b$ ,  $\mu$ を本質的パラメータとする一つの標準的支配方程式の解に相似な解で構成されることが分かった。ここで、さらに、次の置換を行う。

$$C_{k1}(X, T) = C_{k2}(X, T) \exp(-T) \quad \lambda \neq 0 \quad (A=1) \text{ の時 } \quad k=1, 2, \dots \quad (29)$$

$$= C_{k2}(X, T) \quad \lambda = 0 \quad (A=0) \text{ の時 } \quad k$$

したがって、上述の拡散の標準式 1 は、 $\lambda$  の値にかかわらず、次に示す標準式 2 に帰着される。

### 〔拡散の標準式2〕

$$\frac{\partial C_{2,2}}{\partial T} = b^{-1} \frac{\partial^2 C_{2,2}}{\partial X^2} \quad \dots \dots \dots \quad (81)$$

ここで、初期及び境界条件は次の通りである。

$C_{12}(X, 0) = 0$	$T = 0$ の時。 ..... 32
$C_{22}(X, 0) = 1$	$T = 0$ の時。
$C_{12}(0, T) = 0$	$X = 0$ の時。
$C_{22}(\infty, T) = 1$	$X = \infty$ の時。
$C_{12}(H, T) = \mu C_{22}(H, T)$	$X = H$ の時。
$-b \frac{\partial C_{12}}{\partial X}(H, T) = -b^{-1} \frac{\partial C_{22}}{\partial X}(H, T)$	$X = H$ の時。

## 5. Laplace 変換を用いた解法

結局、本問題の拡散現象を解くことは、式(30)-(32)を解き、濃度に付随する諸量を計算することに帰着される。ここでは Laplace 変換を用いて上述の諸式を解く過程を述べる。本方法は、得られた解を用いて計算コードを作成するのに適していると考えられる。

### 5.1 拡散の標準式 2 の解法

[拡散の標準式 2 の解]

前述の標準式 2 の Laplace 変換法による濃度解は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} C_{12}(X, T) &= \frac{\mu}{(1+b\mu)} \sum_{i=0}^{\infty} \xi^i \left[ \operatorname{erfc}\left\{(2iH+H-X)/2\sqrt{bT}\right\} \right. \\ &\quad \left. - \operatorname{erfc}\left\{(2iH+H+X)/2\sqrt{bT}\right\} \right] \end{aligned} \quad \text{B3}$$

$$\begin{aligned} C_{22}(X, T) &= 1 - \left\{ b\mu/(1+b\mu) \right\} \operatorname{erfc}\left\{(X-H)\sqrt{b}/2\sqrt{T}\right\} \\ &\quad - \frac{2b\mu}{(1+b\mu)^2} \sum_{i=0}^{\infty} \xi^i \operatorname{erfc}\left[\{2iH+2H+b(X-H)\}/2\sqrt{bT}\right] \end{aligned} \quad \text{B4}$$

$$\text{但し, } b = \sqrt{(D_1/D_2)}, \quad \xi = (1-b\mu)/(1+b\mu)$$

$$\text{また, } |b\mu| > 1 \text{ より} \quad |\xi| < 1$$

以下に上記の濃度解を導いた過程の概要を述べる。

$$C_{k3}(X, p) = \int_0^\infty \exp(-pT) C_{k2}(X, T) dT \quad \text{B5}$$

と書いて、拡散の標準式 2 を Laplace 変換すると、次を得る。

$$\begin{aligned} b \partial^2 C_{13} / \partial X^2 - p C_{13} &= 0 \\ b^{-1} \partial^2 C_{23} / \partial X^2 - p C_{23} + 1 &= 0 \end{aligned} \quad \text{B6}$$

ここで、初期及び境界条件は次のように書き換えられる。

$$\begin{array}{ll} C_{13}(0, p) = 0 & X = 0 \\ C_{23}(\infty, p) = 1/p & X = \infty \\ C_{13}(H, p) = \mu C_{23}(H, p) & X = H \\ b \partial C_{13} / \partial X(H, p) = b^{-1} \partial C_{23} / \partial X(H, p) & X = H \end{array}$$

上記の諸条件の下に36を解くと、次の一般解が得られる。

$$\begin{aligned} C_{13} &= A_1 \exp \{ X\sqrt{(p/b)} \} + A_2 \exp \{ -X\sqrt{(p/b)} \} \\ C_{23} &= A_3 \exp \{ X\sqrt{(pb)} \} + A_4 \exp \{ -X\sqrt{(pb)} \} + 1/p \end{aligned}$$

境界条件より、以下に示す関係が得られる。

$$A_1 + A_2 = 0$$

$$A_3 = 0$$

$$A_1 = -A_2$$

$$\begin{aligned} &= \{ \mu/(1+b\mu) \} (1/p) \exp \{ -H\sqrt{(p/b)} \} / [1 - \xi \exp \{ -2H\sqrt{(p/b)} \}] \\ A_4 &= -\{ b\mu/(1+b\mu) \} (1/p) \exp \{ H\sqrt{(pb)} \} [1 + \exp \{ -2H\sqrt{(p/b)} \}] \\ &\quad / [1 - \xi \exp \{ -2H\sqrt{(p/b)} \}] \end{aligned}$$

上記の関係から以下に示す36式の解が与えられる。

$$\begin{aligned} C_{13} &= \{ \mu/(1+b\mu) \} (1/p) [\exp \{ -(H-X)\sqrt{(p/b)} \} - \exp \{ -(H+X)\sqrt{(p/b)} \}] \\ &\quad / [1 - \xi \exp \{ -2H\sqrt{(p/b)} \}] \\ C_{23} &= 1/p - \{ b\mu/(1+b\mu) \} (1/p) \exp \{ (H-X)\sqrt{(pb)} \} [1 + \exp \{ -2H\sqrt{(p/b)} \}] \\ &\quad / [1 - \xi \exp \{ -2H\sqrt{(p/b)} \}] \end{aligned} \quad \dots \quad 37$$

上式を以下に示す等比級数に展開して、( |  $\xi$  | < 1 より、一様絶対収束級数)

$$(1 - \xi \exp \{ -2H\sqrt{(p/b)} \})^{-1} = \sum_{j=0}^{\infty} \xi^j \exp \{ -2Hj\sqrt{(p/b)} \},$$

以下に示す濃度解が得られる。

$$\begin{aligned} C_{13} &= \{ \mu/(1+b\mu) \} \\ &\quad \cdot \sum_{j=0}^{\infty} \xi^j [\exp \{ -(2jH+H-X)\sqrt{(p/b)} \} - \exp \{ -(2jH+H+X)\sqrt{(p/b)} \}] / p \\ C_{23} &= 1/p - \{ b\mu/(1+b\mu) \} \exp \{ (H-X)\sqrt{(pb)} \} \\ &\quad \cdot \sum_{j=0}^{\infty} \xi^j [\exp \{ -2Hj\sqrt{(p/b)} \} + \exp \{ -(2Hj+2H)\sqrt{(p/b)} \}] / p \\ &= 1/p - \{ b\mu/(1+b\mu) \} \exp \{ (H-X)\sqrt{(pb)} \} \\ &\quad \cdot [1 + (\xi+1) \exp \{ -2H\sqrt{(p/b)} \}] \sum_{j=0}^{\infty} \xi^j \exp \{ -2Hj\sqrt{(p/b)} \} / p \\ &= 1/p - \{ b\mu/(1+b\mu) \} \exp \{ (H-X)\sqrt{(pb)} \} / p \\ &\quad - \{ 2b\mu/(1+b\mu)^2 \} \sum_{j=0}^{\infty} \xi^j \exp \{ -(2Hj+2H-bH+bX)\sqrt{(p/b)} \} / p \end{aligned} \quad \dots \quad 38$$

$C_{13}$ ,  $C_{23}$  は、項別に逆 Laplace 変換可能で、B3, B4 をえる。

(注) 一様絶対収束の時、次の変形が可能である。

$$\begin{aligned} (1+a) \sum_{j=0}^{\infty} \xi^j a^j &= 1 + \xi a + \xi^2 a^2 + \xi^3 a^3 + \\ &\quad + a + \xi a^2 + \xi^2 a^3 + \\ &= 1 + (\xi + 1) a \sum_{j=0}^{\infty} \xi^j a^j \end{aligned} \quad \dots \quad (39)$$

## 5.2 拡散の標準式 1 の解法

〔拡散の標準式 1 の解〕

標準式 1 は、前述の標準式 2 より次式で示す濃度解が得られる。但し、 $b = \sqrt{(D_1/D_2)}$ ,  $\xi = (1 - b\mu)/(1 + b\mu)$  とする。

$\lambda = 0$  の時 ( $A = 0$ )

濃度解は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} C_{11}(X, T, A=0) &= \frac{\mu}{(1+b\mu)} \sum_{i=0}^{\infty} \xi^i \left[ \operatorname{erfc}\left\{(2iH+H-X)/2\sqrt{(bT)}\right\} \right. \\ &\quad \left. - \operatorname{erfc}\left\{(2iH+H+X)/2\sqrt{(bT)}\right\} \right] \end{aligned} \quad \dots \quad (40)$$

$$\begin{aligned} C_{21}(X, T, A=0) &= 1 - \left\{ b\mu/(1+b\mu) \right\} \operatorname{erfc}\left\{(X-H)\sqrt{b}/2\sqrt{T}\right\} \\ &\quad - \frac{2b\mu}{(1+b\mu)^2} \sum_{i=0}^{\infty} \xi^i \operatorname{erfc}\left[\left\{2iH+2H+b(X-H)\right\}/2\sqrt{(bT)}\right] \end{aligned} \quad \dots \quad (41)$$

拡散係数と濃度勾配の積で定義される物質流束（無次元化された）は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} J(X, T, A=0) &= -\left\{ b\mu/(1+b\mu) \right\} \\ &\quad \cdot \sum_{i=0}^{\infty} \xi^i \left[ \exp\left\{-(2iH+H-X)^2/4bT\right\} + \exp\left\{-(2iH+H+X)^2/4bT\right\} \right] / \sqrt{\pi bT} \end{aligned} \quad \dots \quad (42)$$

物質流束を時間積分した単位面積当りの積算浸出量（無次元化された）は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} Q(X, T, A=0) &= -2 \left\{ \mu/(1+b\mu) \right\} \sqrt{(bT)} \\ &\quad \cdot \sum_{i=0}^{\infty} \xi^i \left[ \left( \exp\left\{-(2iH+H-X)^2/4bT\right\} + \exp\left\{-(2iH+H+X)^2/4bT\right\} \right) / \sqrt{\pi} \right. \\ &\quad \left. - \left\{ (2iH+H-X) / 2\sqrt{(bT)} \right\} \operatorname{erfc}\left\{(2iH+H-X)/2\sqrt{(bT)}\right\} \right. \\ &\quad \left. - \left\{ (2iH+H+X) / 2\sqrt{(bT)} \right\} \operatorname{erfc}\left\{(2iH+H+X)/2\sqrt{(bT)}\right\} \right] \end{aligned} \quad \dots \quad (43)$$

$\lambda \neq 0$  の時 ( $A = 1$ )

濃度解は次式で示される。

$$C_{11}(X, T, A=1) = \exp(-T) C_{11}(X, T, A=0) \quad \dots \quad (44)$$

$$C_{21}(X, T, A=1) = \exp(-T) C_{21}(X, T, A=0) \quad \dots \quad (45)$$

物質流束は次式で示される。

$$J(X, T, A=1) = \exp(-T) J(X, T, A=0) \quad \dots \quad (46)$$

単位面積当りの積算浸出量は次式で示される。

$$\begin{aligned}
Q(X, T, A=1) &= -0.5 \{ \mu / (1 + b\mu) \} \sqrt{b} \\
&\cdot \sum_{i=0}^{\infty} \xi^i \left[ \exp\left\{-\frac{(2iH+H-X)}{\sqrt{b}}\right\} \operatorname{erfc}\left\{\frac{(2iH+H-X)}{2\sqrt{bT}} - \sqrt{T}\right\} \right. \\
&- \exp\left\{-\frac{(2iH+H-X)}{\sqrt{b}}\right\} \operatorname{erfc}\left\{\frac{(2iH+H-X)}{2\sqrt{bT}} + \sqrt{T}\right\} \\
&+ \exp\left\{-\frac{(2iH+H+X)}{\sqrt{b}}\right\} \operatorname{erfc}\left\{\frac{(2iH+H+X)}{2\sqrt{bT}} - \sqrt{T}\right\} \\
&\left. - \exp\left\{-\frac{(2iH+H+X)}{\sqrt{b}}\right\} \operatorname{erfc}\left\{\frac{(2iH+H+X)}{2\sqrt{bT}} + \sqrt{T}\right\} \right] \\
&\dots \quad (47)
\end{aligned}$$

単位面積当りの残存積算浸出量は次式で示される。

$$R(X, T, A=1) = \exp(-T) Q(X, T, A=0) \quad \dots \quad (48)$$

以下に、上述の各解が導かれる過程の概要を述べる。拡散の標準式2の解  $C_{k2}(X, T)$  より、(40), (41), (44)及び(45)式が与えられる。また、(42)及び(46)式は各々  $C_{k1}(X, T)$  を、 $X$  で微分した結果である。微分可能性は、級数の一様絶対収束性から得られる。また、(43), (47)及び(48)の導出には次の補題を用いる<sup>(16)</sup>。この補題は、漏洩量計算にとって本質的であるので証明を巻末に付す。

[補題]

$$\begin{aligned}
① \quad \int_0^t \exp(-\lambda\alpha - B/\alpha) / \sqrt{\alpha} d\alpha &= 2 \int_0^{\sqrt{t}} \exp(-\lambda y^2 - B/y^2) dy \\
&= 0.5 \sqrt{\pi/\lambda} \left[ \exp\left\{-2\sqrt{B\lambda}\right\} \operatorname{erfc}\left\{\sqrt{B/t} - \sqrt{\lambda t}\right\} \right. \\
&\left. - \exp\left\{2\sqrt{B\lambda}\right\} \operatorname{erfc}\left\{\sqrt{B/t} + \sqrt{\lambda t}\right\} \right] \quad \dots \quad (49)
\end{aligned}$$

$$② \quad \int_0^t \exp(-B/\alpha) / \sqrt{\alpha} d\alpha = 2\sqrt{t} \cdot \exp\left\{-\left(B/t\right)\right\} - 2\sqrt{\pi B} \operatorname{erfc}\left\{\sqrt{B/t}\right\} \quad \dots \quad (50)$$

$$③ \quad \lambda \downarrow 0 \text{ の時, } ① \text{ の両辺は, } ② \text{ の両辺に収束する.} \quad \dots \quad (51)$$

(43)式は(42)式を項別に、(50)式によって積分することで得られる。(47)式は、同様に(46)式を項別に、(49)式によって積分することで得られる。(48)式の左辺は、(46)式の両辺に  $\exp(-T) \exp(\alpha)$  を掛けて積分するため、 $\exp(-T)$  を除いて(43)の右辺と同形である。

なお、拡散現象による濃度式の一般解は、解40～48に、無次元化の変数変換(18)～(19)を逆に施すことで、簡単に得られる。

### 5.3 浸出量計算

式40～48の計算には無限級数が含まれるため、相対的に大きなTの範囲では解が速やかに収束し、計算が容易である。しかし、47式のQの計算では、指数関数の項が見かけ上発散するため、次のような数値計算上の工夫を行う必要がある。その結果は、実際には指数関数と余誤差関数の組合せで、比較的早く減衰する項であることが示される。

○  $F(X, T) = \exp(X) \operatorname{erfc}(0.5 \cdot X / \sqrt{T} + \sqrt{T})$  の計算

#### ① 数値積分を用いる方法

$$\operatorname{erfc}(Y) = (2/\sqrt{\pi}) \int_Y^{\infty} \exp(-t^2) dt = \exp(-Y^2) (2/\sqrt{\pi}) \int_0^{\infty} \exp(-t^2 - 2Yt) dt \quad \dots \dots \dots \quad 52$$

$$I(Y) = (2/\sqrt{\pi}) \int_0^{\infty} \exp(-t^2 - 2Yt) dt \quad (\text{変数変換 } t - Y \leftrightarrow t)$$

により、次式が得られる。

$$F(X, T) = \exp\{-T - X^2/(4T)\} I(0.5 \cdot X / \sqrt{T} + \sqrt{T}) \quad \dots \dots \dots \quad 53$$

なお、Iの計算には、Gauss-Laguerre数値積分(N1点公式、N1～10程度)を用いる。

$$I(Y) = \int_0^{\infty} \exp(-t) (2/\sqrt{\pi}) \exp(-t^2 - 2Yt + t) dt \quad \dots \dots \dots \quad 54$$

$$f(t, Y) = (2/\sqrt{\pi}) \exp(-t^2 - 2Yt + t) \text{ とおいて,} \quad \dots \dots \dots \quad 55$$

N1点のゼロ点  $P_i$

Christoffel数  $\psi_i$

$$I(Y) = \sum_{i=1}^{N1} f(P_i, Y) \psi_i \quad \dots \dots \dots \quad 56$$

#### ② 漸近展開を用いる方法

以下に示す漸近展開において、

$$\operatorname{erfc}(Y) \sim (2/\sqrt{\pi}) \exp(-Y^2) \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n \{(2n-1)!!\} / \{2^{n+1} Y^{2n+1}\} \quad \dots \dots \dots \quad 57$$

$$(2n+1)!! = (2n+1)(2n-1) \cdots 3 \cdot 1, \quad (-1)!! = 1$$

N2項までとると(N2～10程度)，次式が得られる。

$$I(Y) = \left( 1 / Y \sqrt{\pi} \right) \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n \{ (2n-1)!! \} / \{ 2^n Y^{2n} \} \quad \dots \dots \dots \quad 58$$

ここで、分子分母の発散を避けるため、 $-(2j-1)/(2Y^2)$  を掛け合わせて計算する。

$$F(X, T) = \exp \left\{ -T - X^2 / (4T) \right\} I(0.5 \cdot X / \sqrt{T} + \sqrt{T}) \quad \dots \dots \dots \quad 59$$

### ○ $Q(X, T, A=1)$ の計算

ここで、以下の表記法を用いて、

$$F(X, T) = \exp(X) \operatorname{erfc}(0.5 \cdot X / \sqrt{T} + \sqrt{T}) \\ = \exp\{-T - X^2 / (4T)\} I(0.5 \cdot X / \sqrt{T} + \sqrt{T}) \quad \dots \dots \dots \quad (60)$$

$$X_1 = \{(2j+1)H - X\} / \sqrt{b},$$

$$X_2 = \{(2j+1)H + X\} / \sqrt{b},$$

と書くと、次式が得られる。

$$\begin{aligned}
 Q(X, T, A=1) &= -0.5 \left\{ \mu / (1 + b\mu) \right\} \sqrt{b} \\
 &\quad \cdot \sum_{i=0}^{\infty} \xi^i \left[ \exp \left\{ -X_1 \right\} \operatorname{erfc} \left\{ X_1 / 2\sqrt{T} - \sqrt{T} \right\} \right. \\
 &\quad \left. - \exp \left\{ -T - X_1^2 / (4T) \right\} I \left\{ X_1 / 2\sqrt{T} + \sqrt{T} \right\} \right. \\
 &\quad \left. + \exp \left\{ -X_2 \right\} \operatorname{erfc} \left\{ X_2 / 2\sqrt{T} - \sqrt{T} \right\} \right. \\
 &\quad \left. - \exp \left\{ -T - X_2^2 / (4T) \right\} I \left\{ X_2 / 2\sqrt{T} + \sqrt{T} \right\} \right]
 \end{aligned} \tag{61}$$

ここで得られた61式は計算可能な級数和である。即ち、どの項も減衰の早い項からなる級数和であることが示された。

## 6. 廃棄体からの漏洩量評価への適用

本節では、前述の拡散モデル（不連続境界を持った1次元拡散モデル）の具体的な廃棄体への適用について検討する。ここで解析の対象とする複合バリア付き廃棄体は、放射性廃棄物を何等かの方法で固形化処理し、さらにその周りを放射性物質を含まない物質（拡散媒体となる）から成る外被構造で覆い、最外面に金属製容器を有するものである。

上述の構造を有する廃棄体モデルは、モノリス形式の処分施設からの放射性核種の漏洩量評価にも適用できる。すなわち、処分施設の構成は、

- 。 均一固化体-容器-充填層(モノリス)-外部コンクリート構造物  
となり、充填材にセメントを用いる場合、充填層と外部コンクリート構造物は近似的に同質と見なせるので、これらを一括して外被構造物と定義すれば、この構成は下記のように単純化される。

ここで、分子分母の発散を避けるため、 $-(2j-1)/(2Y^2)$  を掛け合わせて計算する。

$$F(X, T) = \exp \left\{ -T - X^2 / (4T) \right\} I(0.5 \cdot X / \sqrt{T} + \sqrt{T}) \quad \dots \dots \dots \quad 59$$

### ○ $Q(X, T, A=1)$ の計算

ここで、以下の表記法を用いて、

と書くと、次式が得られる。

$$\begin{aligned}
 Q(X, T, A=1) &= -0.5 \left\{ \mu / (1 + b\mu) \right\} \sqrt{b} \\
 &\quad \cdot \sum_{i=0}^{\infty} \xi^i \left[ \exp \left\{ -X_1 \right\} \operatorname{erfc} \left\{ X_1 / 2\sqrt{T} - \sqrt{T} \right\} \right. \\
 &\quad \quad \left. - \exp \left\{ -T - X_1^2 / (4T) \right\} I \left\{ X_1 / 2\sqrt{T} + \sqrt{T} \right\} \right] \\
 &\quad + \exp \left\{ -X_2 \right\} \operatorname{erfc} \left\{ X_2 / 2\sqrt{T} - \sqrt{T} \right\} \\
 &\quad - \exp \left\{ -T - X_2^2 / (4T) \right\} I \left\{ X_2 / 2\sqrt{T} + \sqrt{T} \right\}
 \end{aligned} \tag{61}$$

ここで得られた61式は計算可能な級数和である。即ち、どの項も減衰の早い項からなる級数和であることが示された。

## 6. 廃棄体からの漏洩量評価への適用

本節では、前述の拡散モデル（不連続境界を持った1次元拡散モデル）の具体的な廃棄体への適用について検討する。ここで解析の対象とする複合バリア付き廃棄体は、放射性廃棄物を何等かの方法で固形化処理し、さらにその周りを放射性物質を含まない物質（拡散媒体となる）から成る外被構造で覆い、最外面に金属製容器を有するものである。

上述の構造を有する廃棄体モデルは、モノリス形式の処分施設からの放射性核種の漏洩量評価にも適用できる。すなわち、処分施設の構成は、

- 均一固化体 - 容器 - 充填層(モノリス) - 外部コンクリート構造物  
となり、充填材にセメントを用いる場合、充填層と外部コンクリート構造物は近似的に同質と見なせるので、これらを一括して外被構造物と定義すれば、この構成は下記のように単純化される。

- 均一固化体 - 容器 - 外被構造物

この構造は、容器の腐食による損傷が漏洩開始時刻だけを支配するものとして単純化して、

- 均一固化体 - 外被構造物 - 容器

と同一の取扱いとなる（容器位置の変更）。一方、不均一廃棄体を処分する場合、処分施設の構成は以下に示すように若干複雑となる。

- 固形化廃棄物 - 充填層（ライナー） - 容器 - 充填層（モノリス） - 外部コンクリート構造物

ここで、ライナー及びモノリス充填層にセメントが用いられた場合を想定すると、これらは外部コンクリート構造物と近似的に同質と見なせるので、処分施設の構成は、以下に示すように単純化される。

- 固形化廃棄体 - 容器 - 外被構造物

したがって、外被構造物の材料にセメントのみが用いられた場合は、モノリス形式の処分施設からの放射性核種の漏洩量評価に、本研究で構築したモデルが適用できると考えられる。

しかし、ライナー及びモノリス充填層の材料が外部コンクリート構造物と異なるような処分施設の場合、拡散媒体の接合境界が複数となり、本モデルでは解析できなくなる。

さて、単純化して均一固化体 - 外被構造物 - 容器という構造を持った廃棄体（廃棄物パッケージ）またはモノリス形式の処分施設からの放射性核種の浸出漏洩量を評価するとき、局所的にみれば、内部に汚染廃棄物固化体があり、その外側に平板状の外被膜があって、最外側を漏洩端とする「不連続境界を持った1次元拡散問題」と見なすことができる（Fig. 2）。その漏洩端での単位面積当たり浸出量に表面積を掛けて漏洩量と考える。さらに、有限な大きさの固化体中の核種が浸出しきるまで続き、その時点で浸出が終了すると考える。このような機構を仮定した固化体をここでは擬制固化体と呼ぶ。このような仮定では、計算される浸出速度は実際の浸出速度より明らかに速く、漏洩量は過大となり、環境への影響に関して安全側の評価を与えることになる。ここでは、漏洩量は、放射性廃棄物初期処分量との比をとって、無次元量で考えることにする。

次に、固化体が金属容器に封入されていたり、固化体が金属膜で被覆されている場合を考える。これら金属外被膜、または、境界での拡散遮断膜は、時間と共に腐食されるので、擬制固化体は、その拡散方向断面積を、腐食を受けた面積だけ広げることになる。このように考えた処分廃棄体またはモノリスタイプの処分施設を擬制廃棄体と呼ぶことにする。

## 6.1 擬制固化体からの浸出比

ここで、以下の記号を用いる。

$j(x, t)$  : 物質流束 ( $M/L^2/T$ )

$q(x, t)$  : 積算浸出量 ( $M/L^2$ )

$r(x, t)$  : 残存積算浸出量 ( $M/L^2$ )

$h$  : 平板厚さ ( $L$ )

$S$  : 表面積 ( $L^2$ )

V : 体積 ( $L^3$ )

$\alpha$  : 表面積增加補正係数（ひび割れ効果）

#### ○ 擬制固化体(円筒形)のとき

$r_c$  : 半径 ( L )

$h_e$  : 高さ ( L )

$$S = 2\pi r_e h_e + 2\pi r_e^2 \quad \dots \dots \dots \quad (62)$$

### 。 擬制モノリス(直方体)のとき

$L_x$ ,  $L_y$ ,  $L_z$ : 尺法 ( L )

この時、積算浸出比 ( $f_q$ ) 及び残存積算浸出比 ( $f_r$ ) は次式で与えられる。

$$f_r = \begin{cases} \alpha r S / (VC_0) & f_q < 1 \\ \{\alpha r_m S / (VC_0)\} \exp\{-\lambda(t - t_m)\} & f_q = 1 \end{cases} \quad \dots \dots \dots \quad (67)$$

ただし、 $t_m$ は $\alpha q S / (VC_0) = 1$ となった時の時刻で、 $r_m$ はその時の $r$ の値である。実際には、 $q = q(H)$ ( $x=H$ 点での浸出量)を用いて、条件式 $\alpha q S / (VC_0) \leq 1$ とすべきであるが、ここでは便法として、 $q = q(0)$ を用いる。これは、過剰な浸出を許すことになり、安全側の評価となる。

○  $t_m, r_m$  (最大浸出時刻とその時の残存積算浸出比) の計算

$\alpha q S / (VC_0) \geq 1$  の条件で、 $t_m$ を求めれば、 $r_m$ は明かである。したがって、ここで  $t_m$  を求める。

に対して、 $f_q(0) < 1$  より  $f_q(t_0) > 1$  なる  $t_0$  の区間  $[0, t_0]$  では、単調増加関数の解は、唯一一つ存在する。したがって、次のいずれかの方法で解を求めることができる。

- ① 挾み打ち法  
② Newton-Raphson 法

## 6.2 擬制廃棄体からの漏洩率

金属膜の腐食により拡散方向断面積（接液面積）は増加する。この増加比を定義する接液面積率は、Logistic関数で表現できることが実験的に確認されている<sup>[15]</sup>。異なる時刻2点での

接液面積率が与えられれば、

$(t_i, \theta_i)$ : 時刻  $t_i$  で接液面積率  $\theta_i$        $i = 1, 2$

任意の時刻  $t$  における接液面積率 ( $C_R(t)$ ) は次式で与えられる。

但し、

$$B = (t_2 - t_1)^{-1} \ln \left\{ (\theta_1^{-1} - 1) / (\theta_2^{-1} - 1) \right\} \quad \dots \dots \dots \quad (70)$$

$$A = (\theta_2^{-1} - 1) \exp [t_2(t_2 - t_1)^{-1}] \ln \left\{ (\theta_1^{-1} - 1) / (\theta_2^{-1} - 1) \right\} \quad \dots \dots \quad [71]$$

ここで金属膜の効果は、擬制固化体の拡散漏洩の開始時期を遅延させる(きめる)ことと見なす。そして腐食面積と擬制固化体の浸出率の時間に関する合成積をとり、金属膜効果を、漏洩量評価に反映させることができる。

ここで、

T = 0 : 廃棄物の処分開始

$k = q$  または  $r$

と置くと、積算漏洩率は次の合成積で与えられる。

$$L_k(T) = C_R(0) f_k(T) + \int_0^T f_k(T-p) \left\{ dC_R(p)/dp \right\} dp \quad \dots \dots \dots \quad (72)$$

このとき、次のような変形も可能である。

$$L_k(T) = C_R(0) f_k(T) + AB \int_0^T f_k(T-p) \exp(-Bp) \{1 + A \exp(-Bp)\}^{-2} dp$$

$$= C_R(T) f_k(0) + \int_0^T C_R(p) \{df_k(T-p)/dp\} dp \quad \dots \dots \dots \quad (73)$$

なお、 $L_k(T)$  の計算には Gauss-Legendre 数値積分を用いる。

## 7. 数 値 解 析

### 7.1 標準的な拡散問題の解析

「不連続境界を持った1次元拡散問題」は、標準的な拡散問題に帰着されることを明らかにした。したがって、ここでは4つのパラメーター、即ち、2種類の実効拡散係数比の平方根( $b$ )、標準化された崩壊定数( $A$ )、境界定数( $\mu$ )及び標準化された外被層厚さ( $H$ )のみを考察すればよい。ここでいくつかの計算例を示し、パラメータの影響を考察する。

#### [計算ケース1(濃度分布)]

先ず、Fig. 3～5に $A=0$ ,  $b=2$ , 及び $\mu=0.7$ で、 $H=1, 2, 3$ の場合の濃度分布を示す。この計算例は、漏洩核種に物理的減衰がなく( $A=0$ )、外被層(平板領域)における実効拡散係数が内部の廃棄物固化体中の値に比べ4倍大きく( $b=2$ )、水を媒界にして解釈した拡散の遅延係数が小さい場合である。節4で示したように、実効拡散係数値の設定としては、密な製法によって作られたセメント固化体を、相対的に粗いマトリックス構造を持って固化したセメント外被物が覆う場合といえる。

外被層が薄い場合( $H=1$ , Fig. 3)は、内部固化体領域からの核種浸出によって早い時間に外被中の核種濃度分布が十分高くなり( $T=0.2$ 以前)，時間と共に、内部領域の濃度低下に伴って外部域も濃度低下する様子が観察される。一方、外被層が厚くなると( $H=3$ , Fig. 5)，内部領域では時間と共に濃度低下するが、逆に、外部被覆層では濃度が高くなっていく様子が観察される。これは、外被層が厚いために、内部から供給された核種が十分に分布しきれていないためである。 $H=2$ , Fig. 4の結果は、両者の中間である。この場合は、外被層における核種濃度分布は一旦増加し、十分な濃度分布を持った後、内部領域の濃度低下に伴って低下する様子が見られる。

#### [計算ケース2(濃度分布)]

次に同一の設定で、物理的減衰がある場合( $A=1$ )を、Fig. 6～8に示す。これらの結果は、計算ケース1で得られた結果に、物理的崩解による濃度低下が組み合わされたものとなっている。すなわち、外被層が十分な厚さを持つ場合、物理的減衰効果が組み合わされることにより、外被層内の濃度分布が十分高くならない前に、その上限が低下する効果が期待される。これが、人工バリアとしての外被層が十分な機能を発揮するための基本的要件である。

#### [計算ケース3(単位面積当たりの浸出量)]

ケース1と同じ条件( $A=0$ ,  $b=2$ , 及び $\mu=0.7$ )における、単位面積当たりの外被層からの積算浸出量の時間変化を、Fig. 9に示す。但し、外被層厚さを $H=0.5, 1, 2, 3$ に設定した。両対数軸をとることによって、外被層内の濃度分布が十分高くなった後の状態( $H=0.5$ )では、積算浸出量と時間の関係はほぼ直線に近くなる。これに対し、外被層での核種濃度分布が不十分な場合( $H=3$ )、及びある程度進展中( $H=2$ )の場合は、時間と共に次第に、核種濃度分布が飽和に近い状態の結果( $H=0.5$ )に漸近する様子が見られる。

## 〔計算ケース4（単位面積当たりの浸出量）〕

ケース2と同じ条件( $A=1$ ,  $b=2$ , 及び  $\mu=0.7$ )における、外被層単位面積当たりの積算浸出量及び残存積算浸出量と時間との関係を, Fig. 10~11に示す。但し、外被層厚さは  $H=0.5, 1, 2, 3$ に設定した。ここで得られた結果には、計算ケース3と類似の効果(外被層のバリア効果)に時間による物理的減衰の効果が組合わさっている。即ち、外被層厚さが増すにつれて、積算浸出量の到達しうる最大値が低減する効果が観察される。また、残存積算浸出量によって、外被層厚さが増すにつれて、最大漏洩時刻が遅れ、最大値も低減することがわかる。

## 〔計算ケース5〕

Fig. 12~13に  $A=1$ ,  $b=0.5$ , 及び  $\mu=1.43$ で、 $H=1, 2$ の場合の濃度分布を示す。これは、計算ケース2の場合の内部固化体領域と外被層領域の物性を入れ替わった場合である。計算結果では、外被層中の核種濃度が内部領域より高くなること( $\mu > 1$ の効果)、濃度分布変化が内部領域より大きいこと(内部領域における実効拡散係数が小さい)などの特徴が観察できる。この計算例は、放射性核種の漏洩拡散過程で、漏洩源から拡散した核種が漏洩源周辺の中間拡散媒体中に効果的に吸着(不動化)されることにより、漏洩源より核種濃度が部分的に高くなる層が存在し得ることをモデル化する例になっている。

## 7.2 擬制廃棄体の漏洩量評価

ここでは、具体的な廃棄体からの放射性核種 $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ の浸出量評価の例を示す。円筒形のセメントライナーを施した金属容器(ドラム缶)に円筒形セメント固化体を収納し、ライナー部分と廃棄体との間に隙間がないと仮定する。

## ◦ 金属容器仕様

幾何形状	円筒形
底面半径	2.8.3.5 cm
高さ	8.3 cm
表面積増大率	1

ここで、ひび割れの効果を表す表面積増大率は、便宜的に定めたもので、浸出量を大きく見積るために一種の安全率の役割を持っている。ここではこの効果を無視する為に、1を仮定する。

次いで、核種に依存する物性値を次表のようにとる。(文献<sup>(7)</sup>より換算)

	$^{137}\text{Cs}$	$^{90}\text{Sr}$
外被層（セメントライナー） 中の実効拡散係数	$1.826 \times 10^{-1} \text{ cm}^2/\text{Y}$	$3.653 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{Y}$
内部領域（セメント廃棄体） 中の実効拡散係数	$3.653 \times 10^{-2} \text{ cm}^2/\text{Y}$	$2.557 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{Y}$
境界定数	0.73	0.76
半減期	30.17 Y	28.5 Y

## 〔計算ケース6〕

先ず、金属被膜（容器）がない場合の積算浸出比と残存積算浸出比を、Fig. 14～15 ( $^{137}\text{Cs}$ )、Fig. 16～17 ( $^{90}\text{Sr}$ )に示す。ここで得られた結果は、標準的な拡散問題の場合と基本的なパターンは同じである。セメントライナーの厚さ（外被層厚さ）を、 $^{137}\text{Cs}$ に較べて $^{90}\text{Sr}$ では1桁小さくしているにも関わらず、実効拡散係数を2桁から3桁低く設定した $^{90}\text{Sr}$ の浸出比は、数桁小さくなっている。

次ぎに、金属容器の効果（腐食のモデル化）を考察するため、Fig. 18 の接液面積率曲線を仮定する。これは、10年で0.15、80年で0.9の腐食面積率（廃棄体の接液面積率、または、拡散が進行中の面積率）の場合に相当する。

## 〔計算ケース7〕

金属容器（被膜）がある場合の積算漏洩比と残存積算漏洩比をFig. 19～20 ( $^{137}\text{Cs}$ )、Fig. 21～22 ( $^{90}\text{Sr}$ )に示す。計算ケース6の結果と比較してみると、腐食率曲線との合成積をとったことによる残存積算漏洩（浸出）比の低下分が、廃棄体からの放射性核種の環境漏洩に対する金属容器のバリア機能の効果と言える。この場合には、 $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ のどちらの場合も、最初の100年間において、1桁程度の濃度低下が観察される。また、最大濃洩時刻の出現も、遅延することになる。

## 8. 結論

低レベル放射性廃棄物の陸地処分の安全性を評価するためには、処分廃棄体に含まれる放射性核種が一般環境中へ漏洩することを防ぐために設けられる人工構造物（廃棄物固化体、廃棄物収納容器、処分施設構造物等）が具備するバリア機能の有効性を評価しなければならない。本研究では、これらの構造を持った放射性核種の漏洩拡散過程を、ある厚さの外被構造を持った放射性廃棄物廃棄体からの核種漏洩モデルとして単純化した。そして、この核種漏洩モデルを「不連続境界を持った1次元拡散問題」として定式化し、外被構造物表面からの核種漏洩量

	$^{137}\text{Cs}$	$^{90}\text{Sr}$
外被層（セメントライナー） 中の実効拡散係数	1.826 E-1 $\text{cm}^2/\text{Y}$	3.653 E-4 $\text{cm}^2/\text{Y}$
内部領域（セメント廃棄体） 中の実効拡散係数	3.653 E-2 $\text{cm}^2/\text{Y}$	2.557 E-4 $\text{cm}^2/\text{Y}$
境界定数	0.73	0.76
半減期	30.17 Y	28.5 Y

## 〔計算ケース6〕

先ず、金属被膜（容器）がない場合の積算浸出比と残存積算浸出比を、Fig. 14～15 ( $^{137}\text{Cs}$ )、Fig. 16～17 ( $^{90}\text{Sr}$ )に示す。ここで得られた結果は、標準的な拡散問題の場合と基本的なパターンは同じである。セメントライナーの厚さ（外被層厚さ）を、 $^{137}\text{Cs}$ に較べて $^{90}\text{Sr}$ では1桁小さくしているにも関わらず、実効拡散係数を2桁から3桁低く設定した $^{90}\text{Sr}$ の浸出比は、数桁小さくなっている。

次ぎに、金属容器の効果（腐食のモデル化）を考察するため、Fig. 18 の接液面積率曲線を仮定する。これは、10年で0.15、80年で0.9の腐食面積率（廃棄体の接液面積率、または、拡散が進行中の面積率）の場合に相当する。

## 〔計算ケース7〕

金属容器（被膜）がある場合の積算漏洩比と残存積算漏洩比をFig. 19～20 ( $^{137}\text{Cs}$ )、Fig. 21～22 ( $^{90}\text{Sr}$ )に示す。計算ケース6の結果と比較してみると、腐食率曲線との合成積をとったことによる残存積算漏洩（浸出）比の低下分が、廃棄体からの放射性核種の環境漏洩に対する金属容器のバリア機能の効果と言える。この場合には、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ のどちらの場合も、最初の100年間において、1桁程度の濃度低下が観察される。また、最大濃洩時刻の出現も、遅延することになる。

## 8. 結論

低レベル放射性廃棄物の陸地処分の安全性を評価するためには、処分廃棄体に含まれる放射性核種が一般環境中へ漏洩することを防ぐために設けられる人工構造物（廃棄物固化体、廃棄物収納容器、処分施設構造物等）が具備するバリア機能の有効性を評価しなければならない。本研究では、これらの構造を持った放射性核種の漏洩拡散過程を、ある厚さの外被構造を持った放射性廃棄物廃棄体からの核種漏洩モデルとして単純化した。そして、この核種漏洩モデルを「不連続境界を持った1次元拡散問題」として定式化し、外被構造物表面からの核種漏洩量

評価方法を与えた。さらに、外被構造物及び内部固化体中の放射性核種の濃度分布とその時間変化を評価する方法を示した。

「不連続境界を持った1次元拡散問題」は、パラメータ無次元化のための変数変換によって、1つの「標準的な拡散問題」に帰着され、4つの本質的なパラメータにのみ支配されることになる。即ち、外部領域と内部領域における実効拡散係数比の平方根( $b$ )、標準化された崩壊定数( $A$ )、境界定数( $\mu$ )及び標準化された外被層厚さ( $H$ )である。全ての外被構造を持った廃棄体からの核種の漏洩量と濃度分布に関する具体的な拡散問題は、「標準的な拡散問題の解」に相似な解として与えられる。

「標準的な拡散問題」の解を、標準曲線として典型的な場合に求めておくと、具体的な核種での評価を、推定することができる。

不連続境界での自由度（境界定数 $\mu$ ）に対する考え方は、例えば、水を介在した拡散機構を想定することで解釈した。この結果は、また、実効拡散係数だけで支配される系で、物質流束が1方向を向いているときでも、通過する拡散媒体の層中には濃度の高低（従って、放射性核種を多く吸着し濃縮している層とそうでない層）が存在することをモデル化している。

### 謝 辞

本報告書を作成するに際し種々の御助言を賜った低レベル廃棄物処理研究室長和達嘉樹博士、並びに環境安全研究部前田頌氏に感謝する。また、本モデルに基づいて計算コードの作成の一部を担当して頂いた三井情報開発（株）佐野雅之氏に感謝する。

評価方法を与えた。さらに、外被構造物及び内部固化体中の放射性核種の濃度分布とその時間変化を評価する方法を示した。

「不連続境界を持った1次元拡散問題」は、パラメータ無次元化のための変数変換によって、1つの「標準的な拡散問題」に帰着され、4つの本質的なパラメータにのみ支配されることになる。即ち、外部領域と内部領域における実効拡散係数比の平方根( $b$ )、標準化された崩壊定数( $A$ )、境界定数( $\mu$ )及び標準化された外被層厚さ( $H$ )である。全ての外被構造を持った廃棄体からの核種の漏洩量と濃度分布に関する具体的な拡散問題は、「標準的な拡散問題の解」に相似な解として与えられる。

「標準的な拡散問題」の解を、標準曲線として典型的な場合に求めておくと、具体的な核種での評価を、推定することができる。

不連続境界での自由度（境界定数 $\mu$ ）に対する考え方は、例えば、水を介在した拡散機構を想定することで解釈した。この結果は、また、実効拡散係数だけで支配される系で、物質流束が1方向を向いているときでも、通過する拡散媒体の層中には濃度の高低（従って、放射性核種を多く吸着し濃縮している層とそうでない層）が存在することをモデル化している。

### 謝 辞

本報告書を作成するに際し種々の御助言を賜った低レベル廃棄物処理研究室長和達嘉樹博士、並びに環境安全研究部前田頌氏に感謝する。また、本モデルに基づいて計算コードの作成の一部を担当して頂いた三井情報開発（株）佐野雅之氏に感謝する。

## 参考文献

- (1) Moore, J. G. et al.: Nucl. Techno., 32, 39 (1977).
- (2) Matsuzuru, H. and Ito, A.: J. Nucl. Sci. Technol.: 15, 296 (1978).
- (3) Goodbee, H. W. et al.: Nucl. Chem. Waste Management, 1, 29 (1980).
- (4) Amarantos, S. G. and Peteropoulos, J. H.: DEMO 81/2 (1982).
- (5) Atkinson, A. et al.: AERE-R 10809 (1983).
- (6) 松鶴秀夫, 黒沢直弘, 鈴木篤之: JAERI-M 87-124 (1987).
- (7) 松鶴秀夫, 若林徳映, 和達嘉樹, 鈴木篤之: "セメント固化体浸出性に与える固化体と核種の特性の影響", (1987), RWM-87009 放射性廃棄物研究連絡会, または, 日本原子力学会「昭和62年秋の大会」予稿集.
- (8) Atkinson, A. and Nickerson, A. K.: AERE-R 10952 (1983).
- (9) Bear, J.: Dynamics of Fluids in Porous Media, Elsevier, New York (1972).
- (10) Duguid, J. O. and Reeves, M.: ORNL-4923 (1976).
- (11) Reeves, M. and Duguid, J. O.: ORNL-4927 (1976).
- (12) Yeh, G. T. and Ward, D. S.: ORNL-5567 (1979).
- (13) Yeh, G. T. and Ward, D. S.: ORNL-5601 (1981).
- (14) De Wiest, R. J. M.: Flow Through Porous Media, Academic Press, New York (1972).
- (15) Maeda, S. and Wadachi, Y.: JAERI-M 85-181 (1985).
- (16) Abramowitz, M. and Stegun, A.: "Handbook of Mathematical Functions with Formulas, Graphs, and Mathematical Tables", Dover Publications, Inc., (1965)

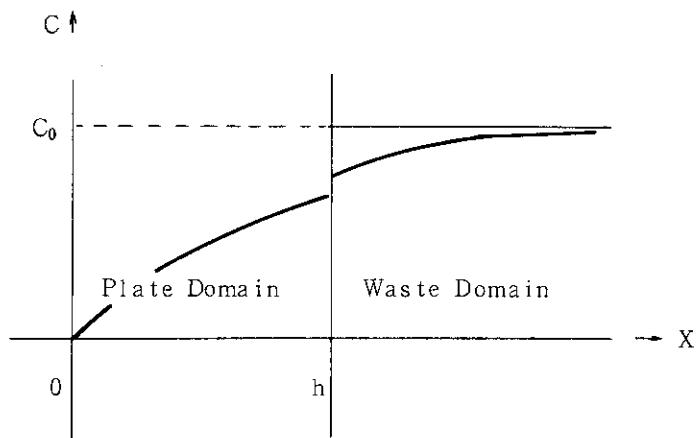


Fig. 1 Geometrical situation of a leaching system

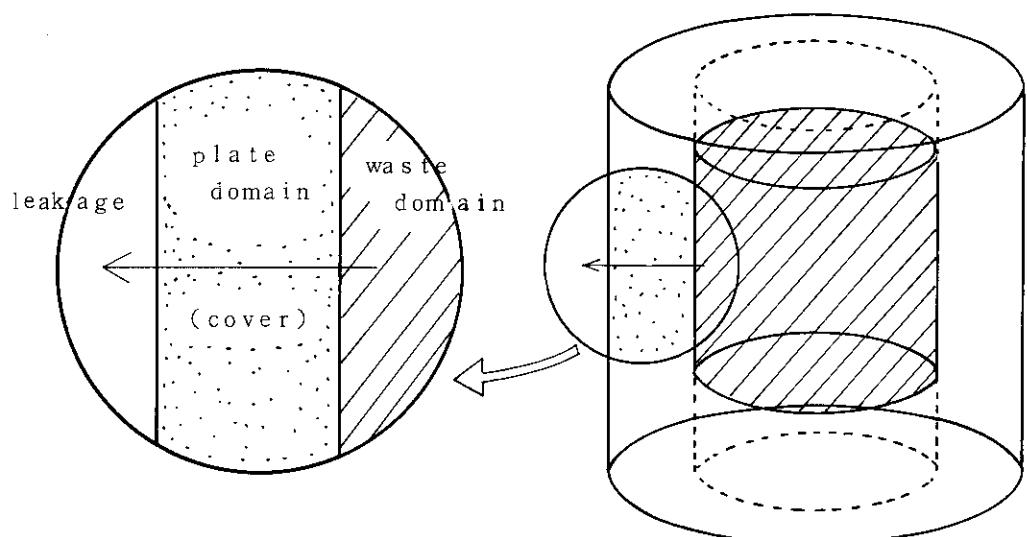


Fig. 2 Conceptual drawing of waste package

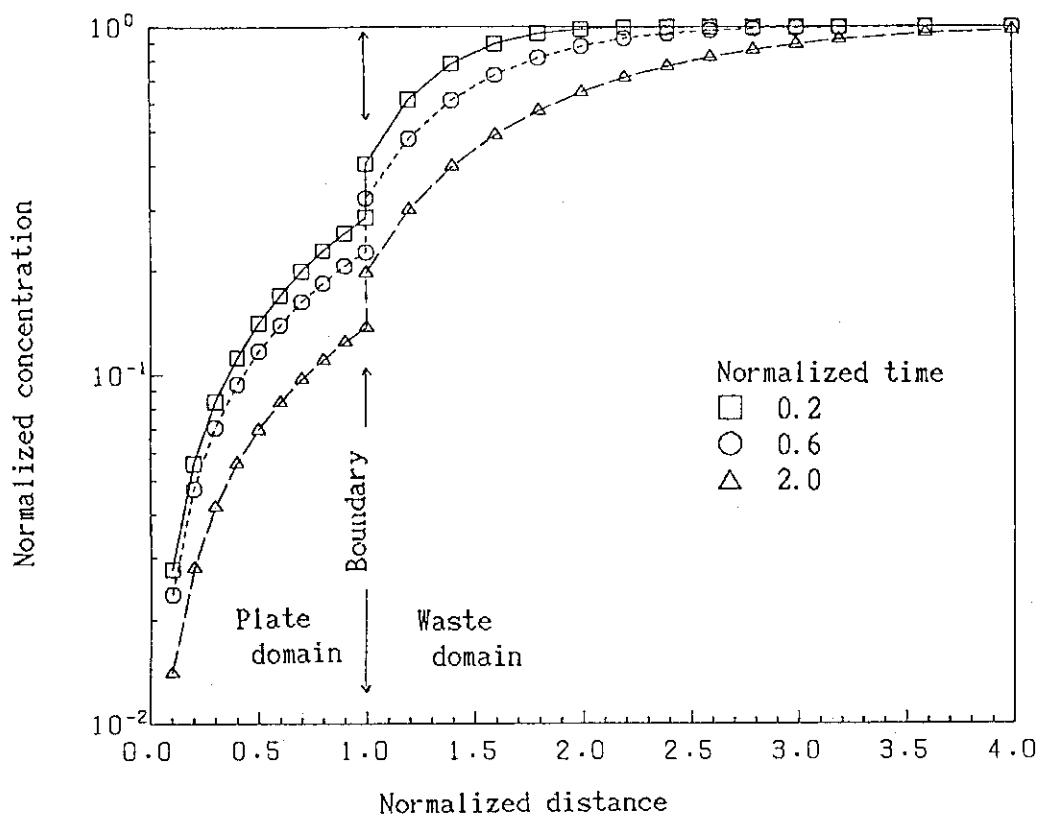


Fig. 3 Concentration distribution  
(Condition :  $A=0.$   $b=2.0$   $\mu=0.7$   $H=1.0$ )

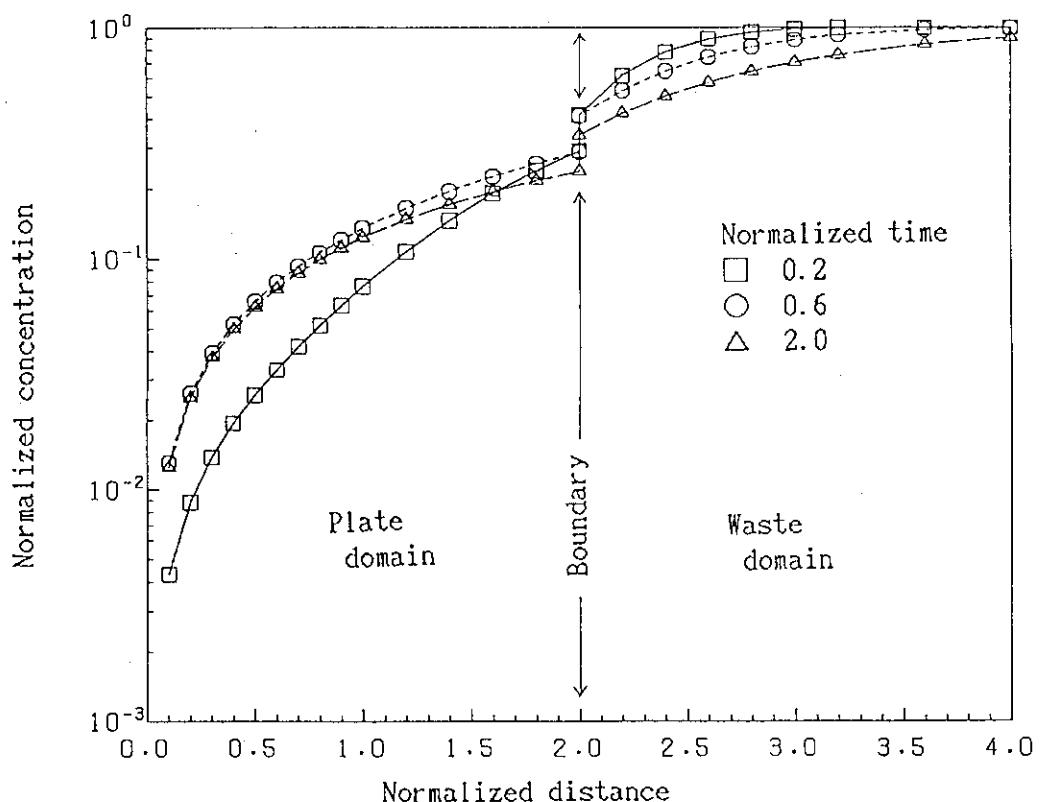


Fig. 4 Concentration distribution  
(Condition :  $A=0.$   $b=2.0$   $\mu=0.7$   $H=2.0$ )

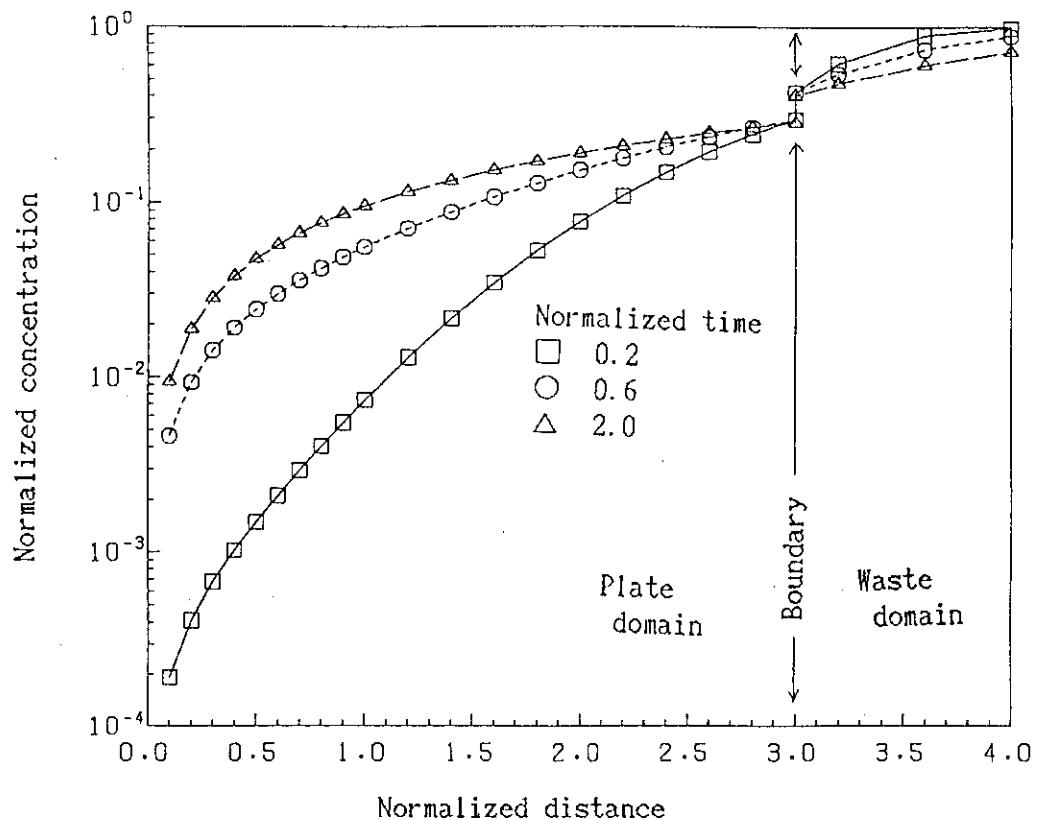


Fig.5 Concentration distribution  
(Condition :  $A=0$ ,  $b=2.0$   $\mu=0.7$   $H=3.0$ )

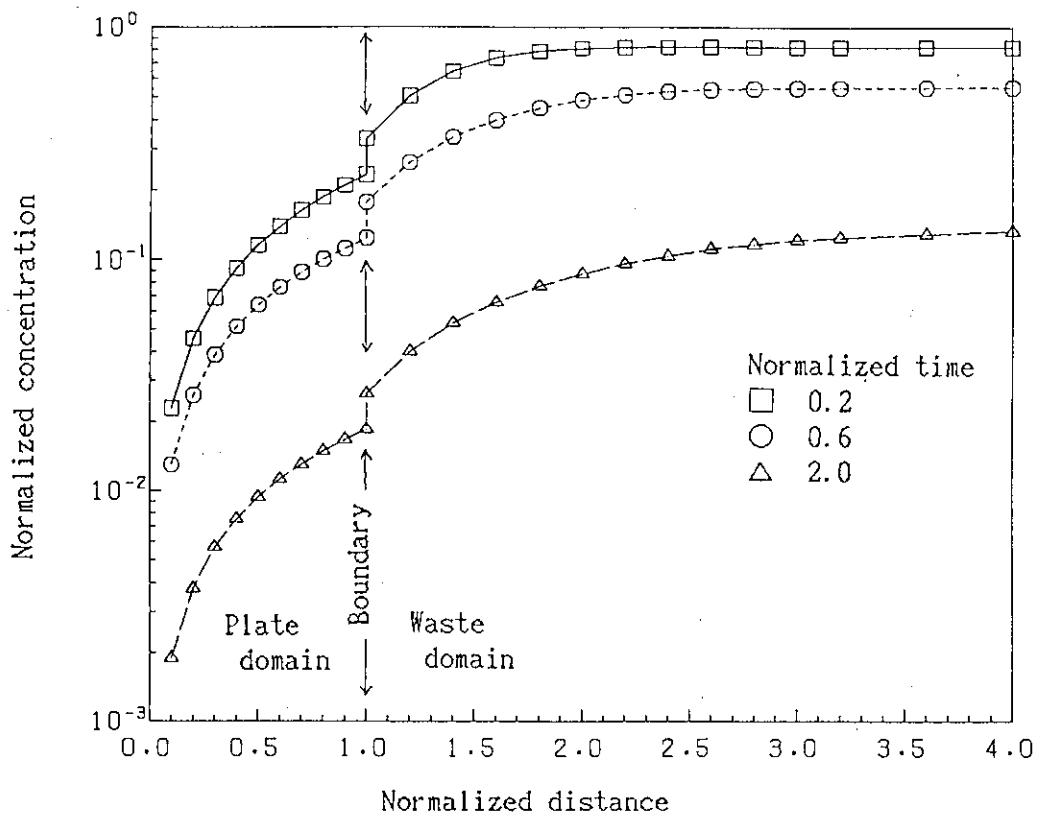


Fig.6 Concentration distribution  
(Condition :  $A=1$ ,  $b=2.0$   $\mu=0.7$   $H=1.0$ )

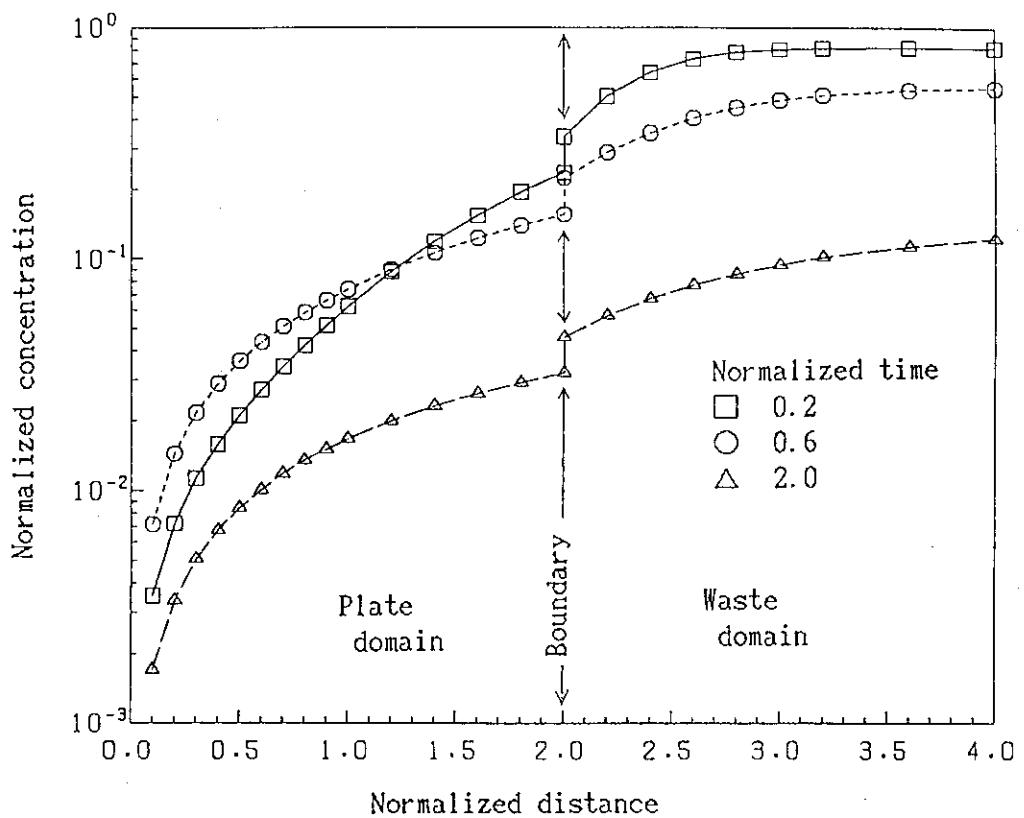


Fig. 7 Concentration distribution  
(Condition :  $A=1.$   $b=2.0$   $\mu=0.7$   $H=2.0$ )

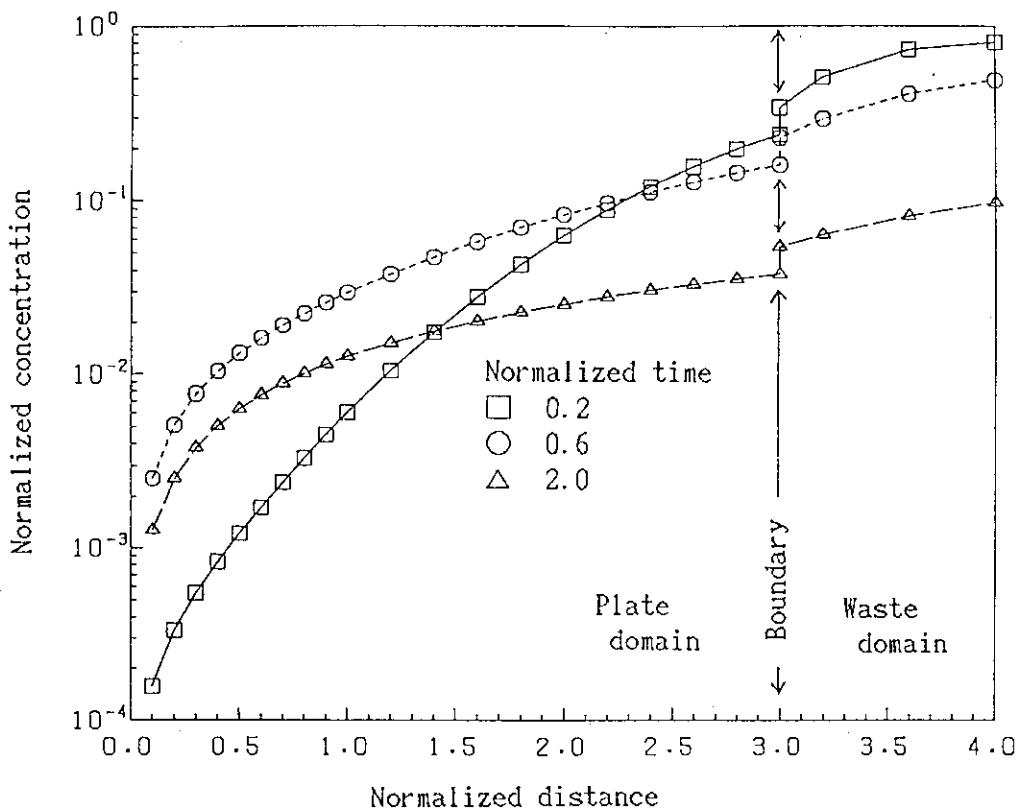


Fig. 8 Concentration distribution  
(Condition :  $A=1.$   $b=2.0$   $\mu=0.7$   $H=3.0$ )

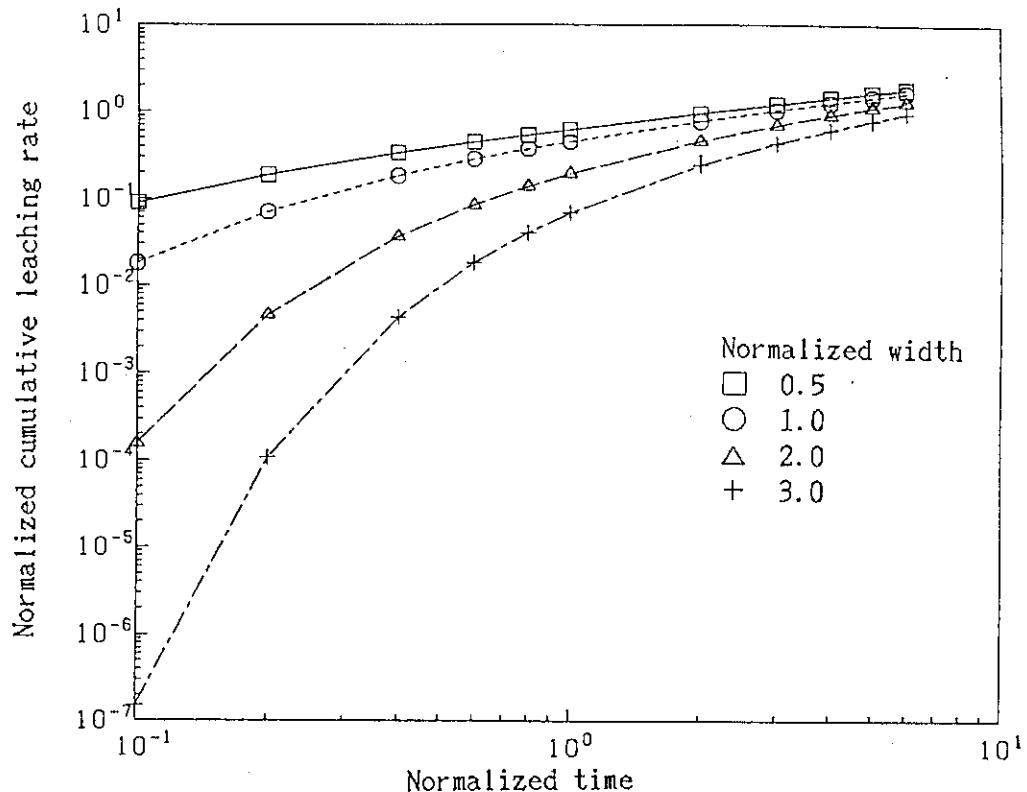


Fig. 9 Normalized cumulative leaching rate  
(Condition :  $A=0$ ,  $b=2.0$ ,  $\mu=0.7$ )

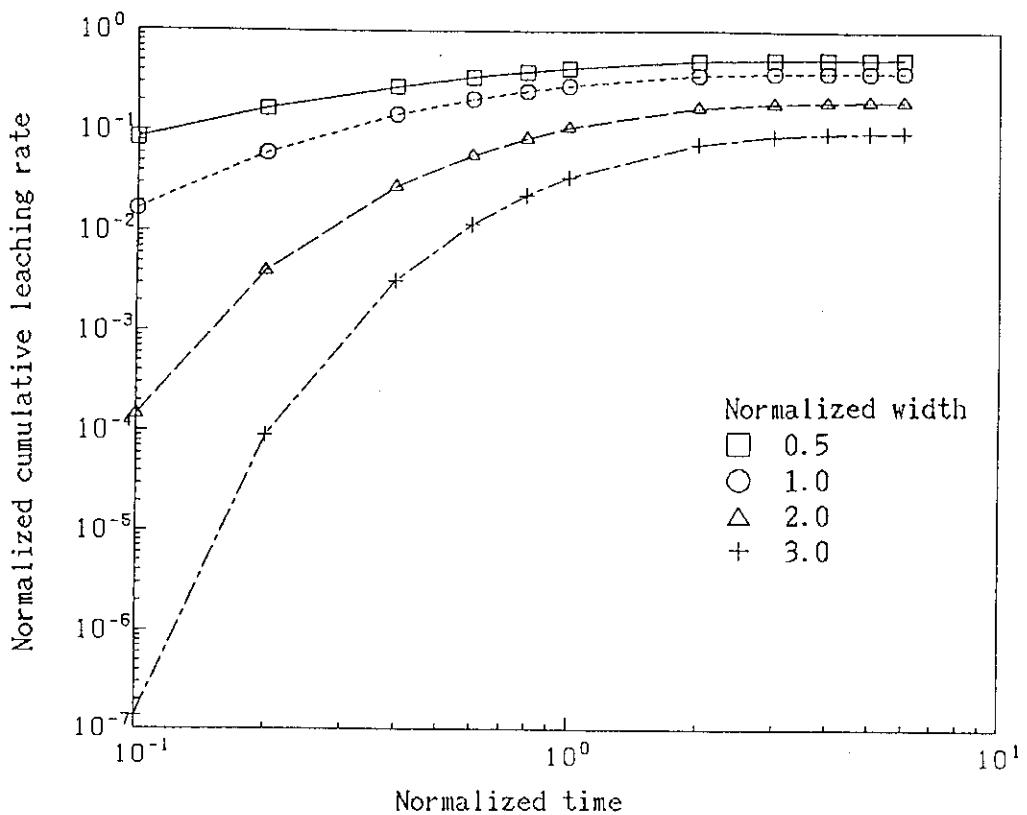


Fig. 10 Normalized cumulative leaching rate  
(Condition :  $A=1$ ,  $b=2.0$ ,  $\mu=0.7$ )

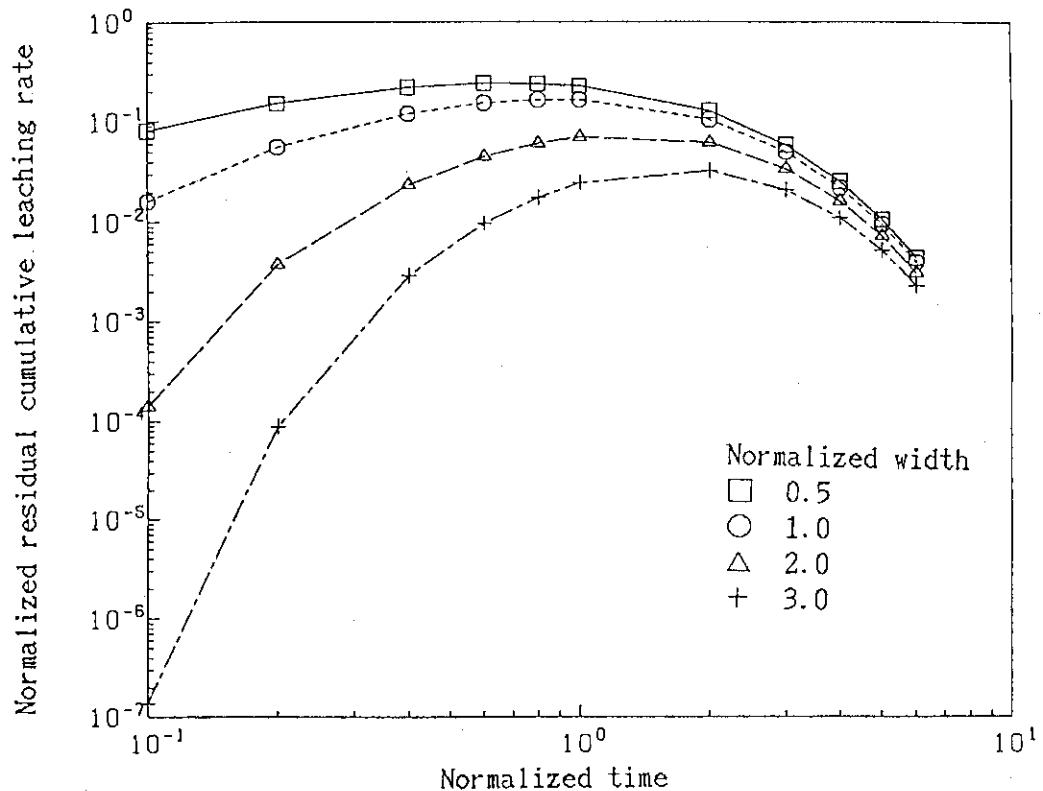


Fig. 11 Normalized residual cumulative leaching rate  
(Condition :  $A=1$ ,  $b=2.0$ ,  $\mu=0.7$ )

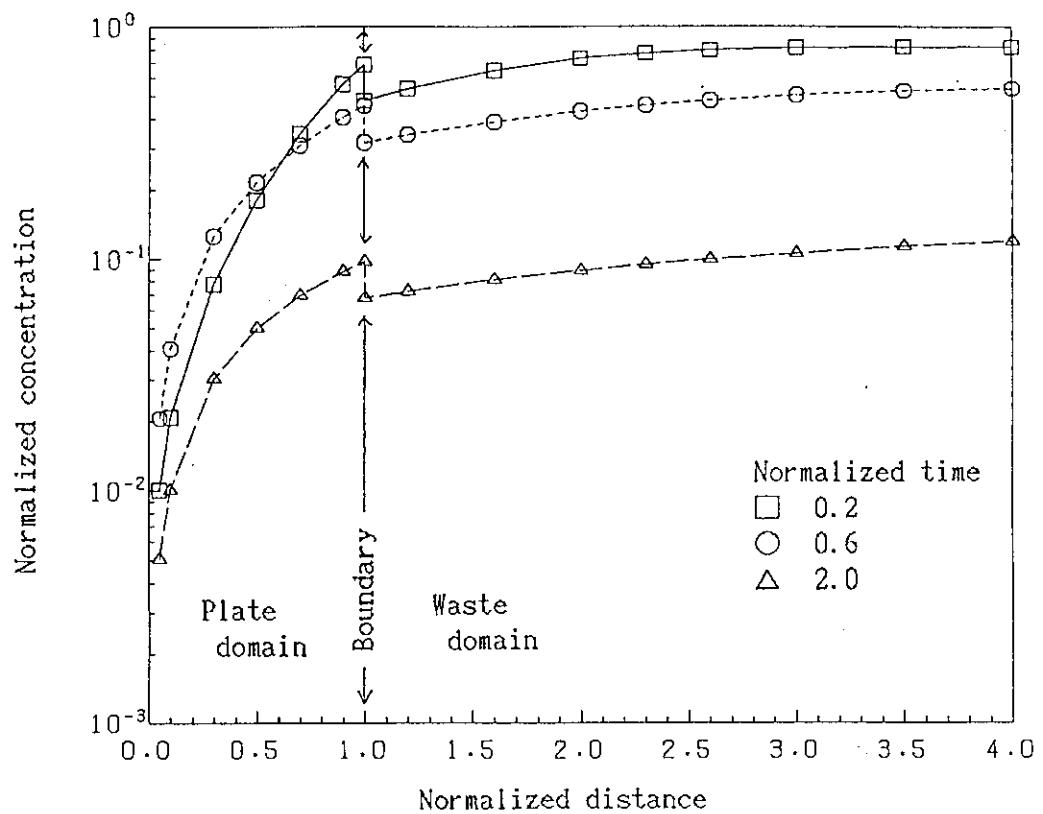


Fig. 12 Concentration distribution  
(Condition :  $A=1$ ,  $b=0.5$ ,  $\mu=1.42$ ,  $H=1.0$ )

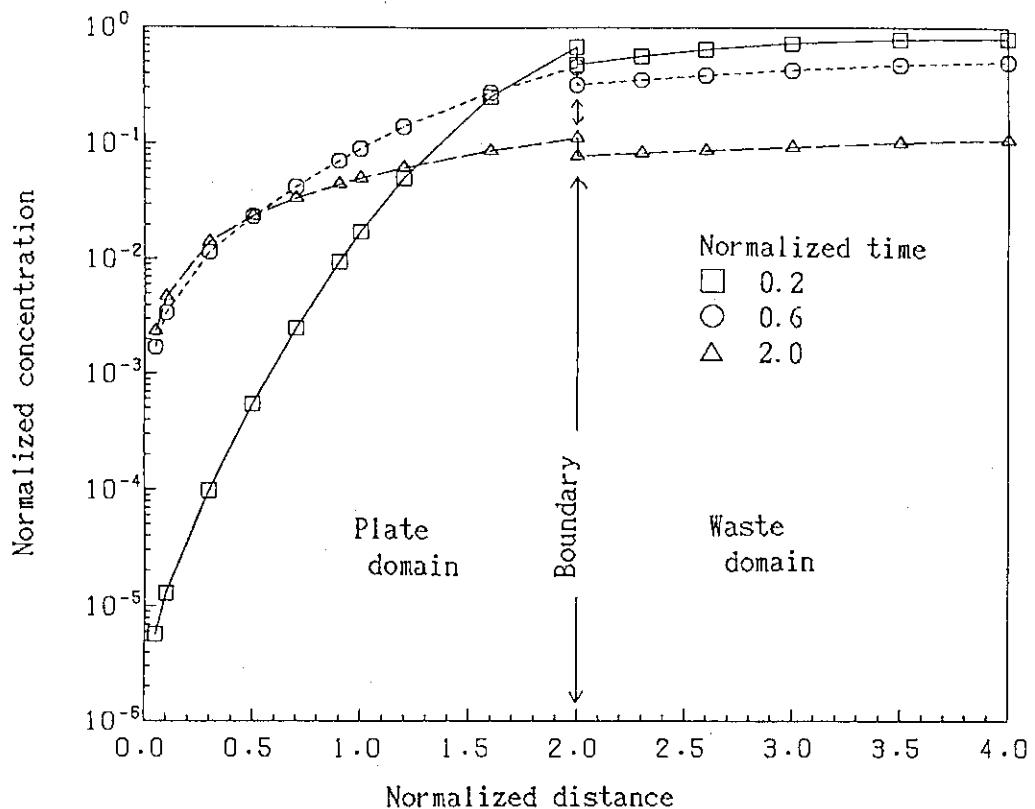


Fig. 13 Concentration distribution  
(Condition :  $A=1$ ,  $b=0.5$ ,  $\mu=1.42$ ,  $H=2.0$ )

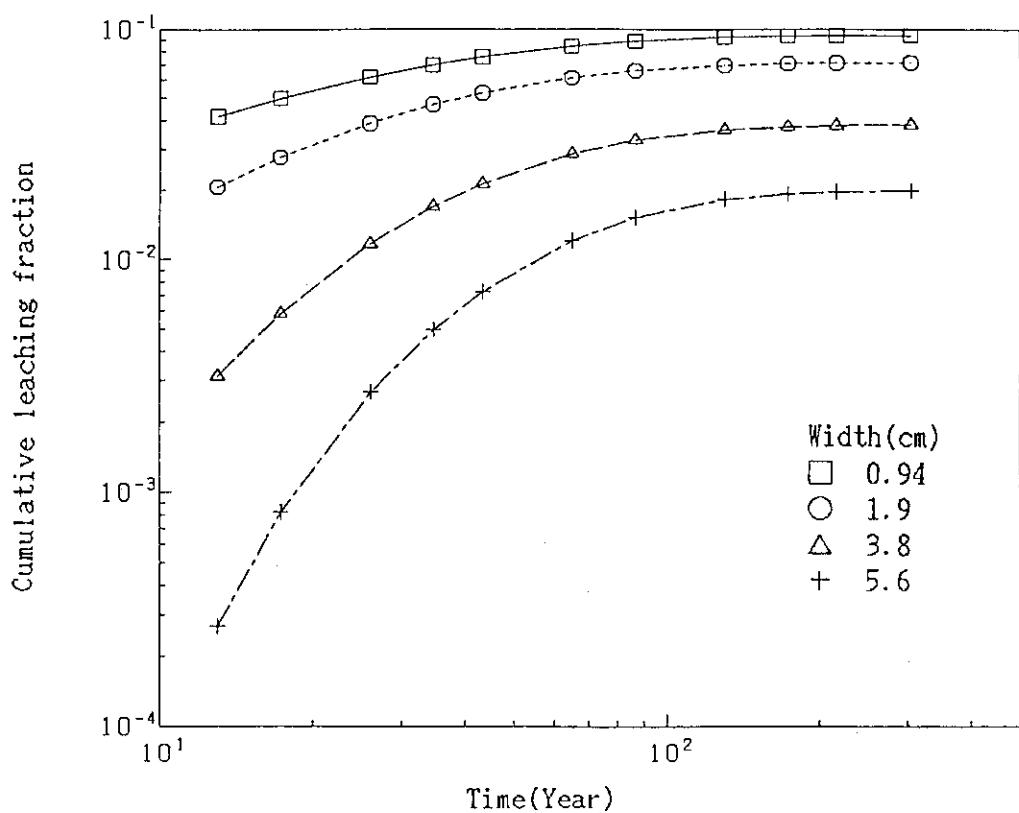


Fig. 14 Cumulative leaching fraction ( $^{137}\text{Cs}$ -case)  
( $D_1 = 1.8 \times 10^{-1} \text{ cm}^2/\text{y}$ ,  $D_2 = 3.65 \times 10^{-2} \text{ cm}^2/\text{y}$ ,  $\mu = 0.73$ )

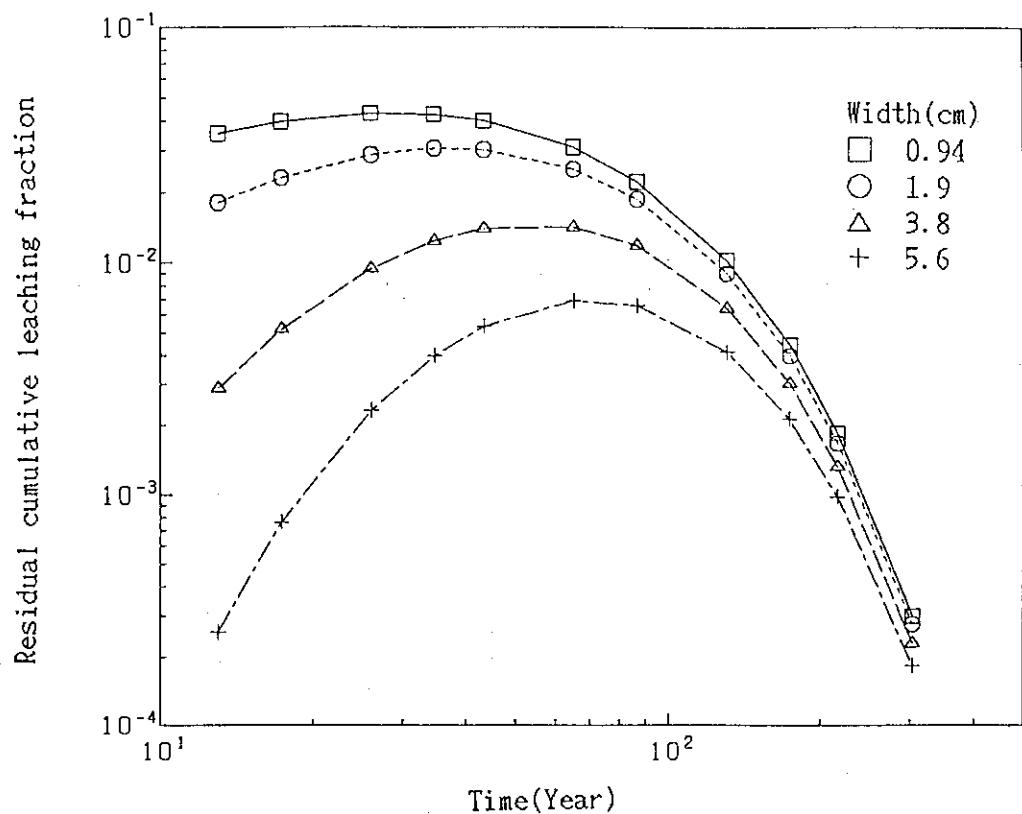


Fig.15 Residual cumulative leaching fraction ( $^{137}\text{Cs}$ -case)  
 $(D_1 = 1.8 \text{ E-}1 \text{ cm}^2/\text{y} \quad D_2 = 3.65 \text{ E-}2 \text{ cm}^2/\text{y} \quad \mu = 0.73)$

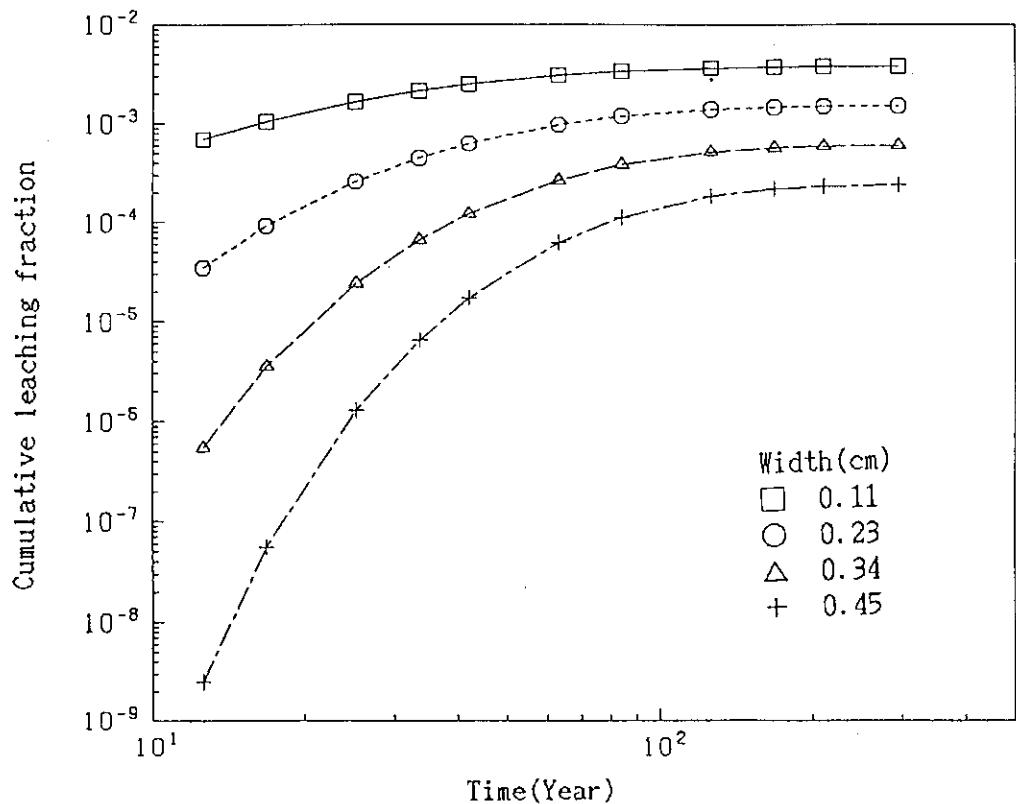


Fig.16 Cumulative leaching fraction ( $^{90}\text{Sr}$ -case)  
 $(D_1 = 3.65 \text{ E-}4 \text{ cm}^2/\text{y} \quad D_2 = 2.56 \text{ E-}4 \text{ cm}^2/\text{y} \quad \mu = 0.76)$

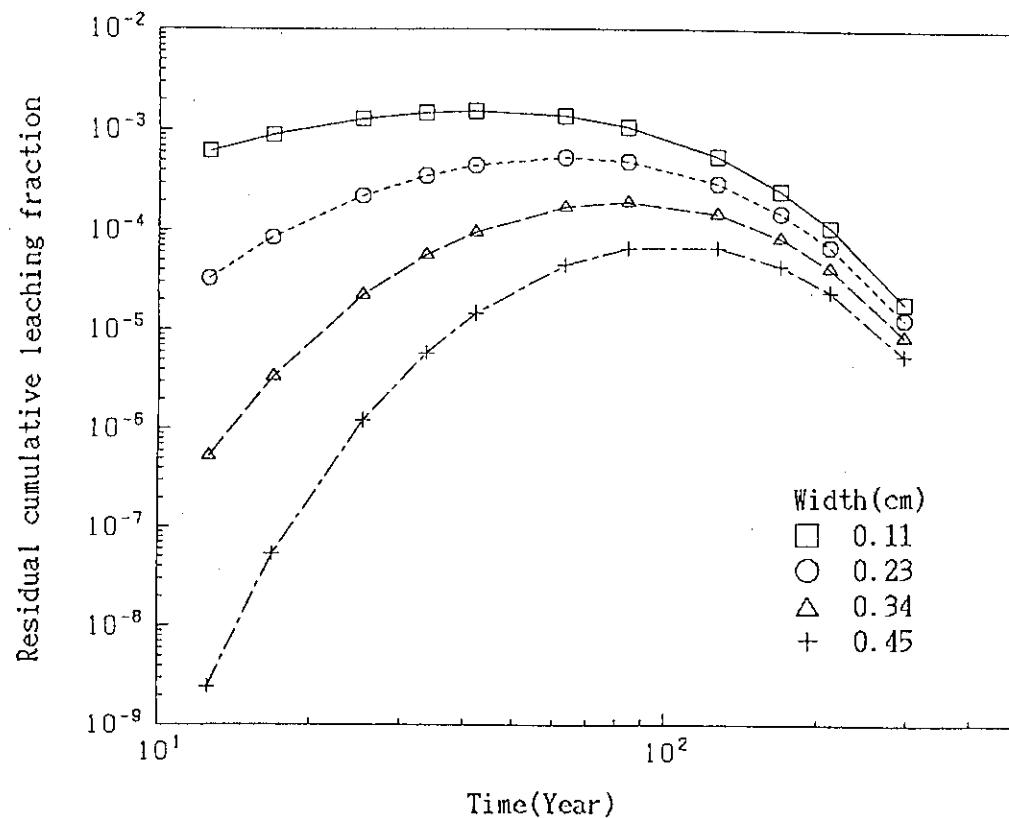


Fig.17 Residual cumulative leaching fraction ( $^{90}\text{Sr}$ -case)  
 $(D_1 = 3.65 \times 10^{-4} \text{cm}^2/\text{y} \quad D_2 = 2.56 \times 10^{-4} \text{cm}^2/\text{y} \quad \mu = 0.76)$

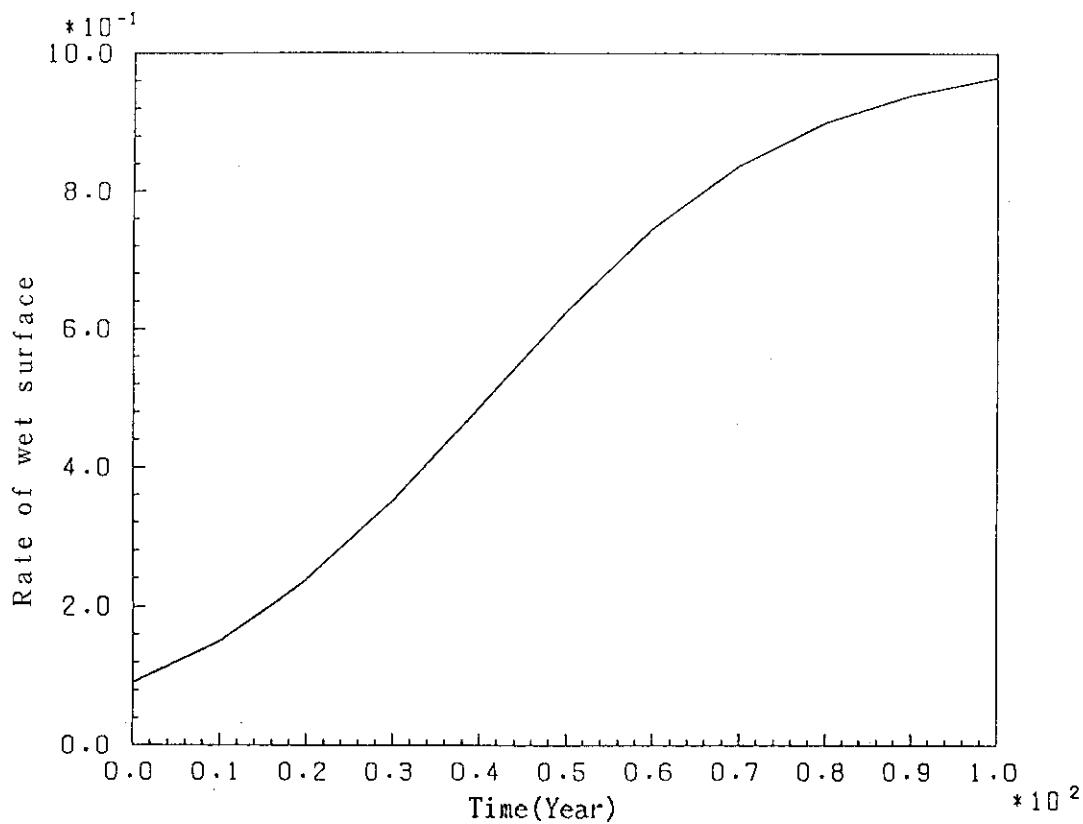


Fig.18 Rate of wet surface by corrosion

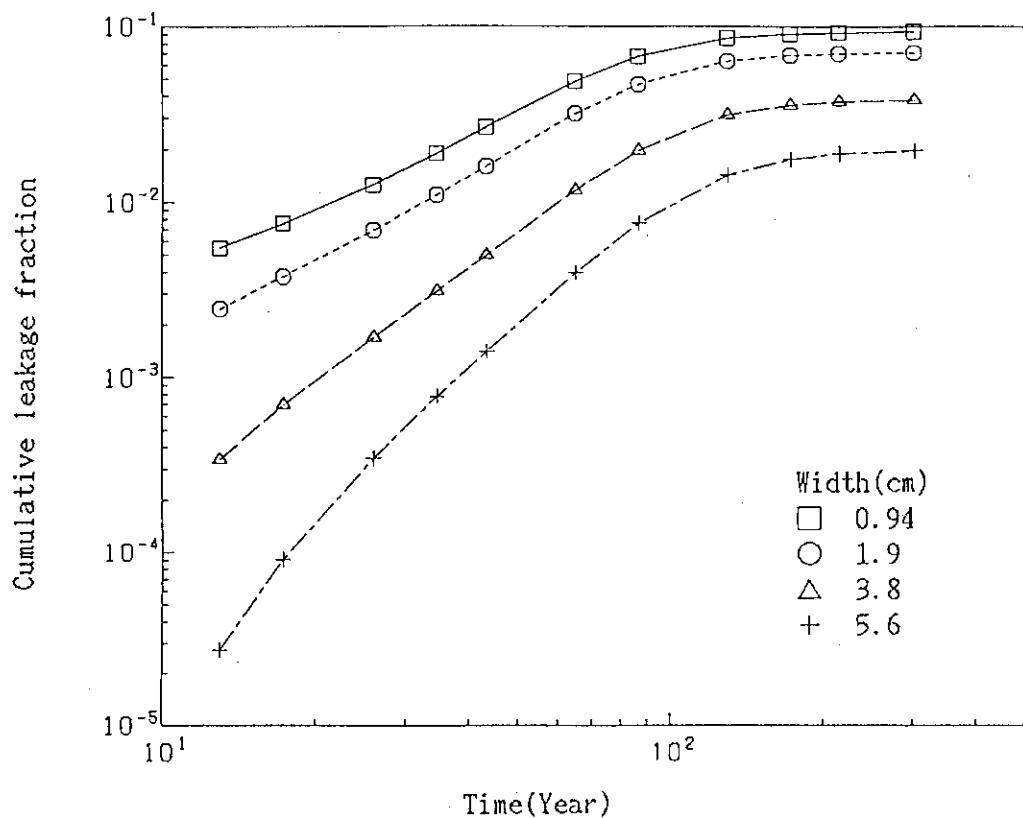


Fig. 19 Cumulative leakage fraction of metal-package  
( $^{137}\text{Cs}$ -case)  
( $D_1 = 1.8 \times 10^{-1} \text{cm}^2/\text{y}$     $D_2 = 3.65 \times 10^{-2} \text{cm}^2/\text{y}$     $\mu = 0.73$ )

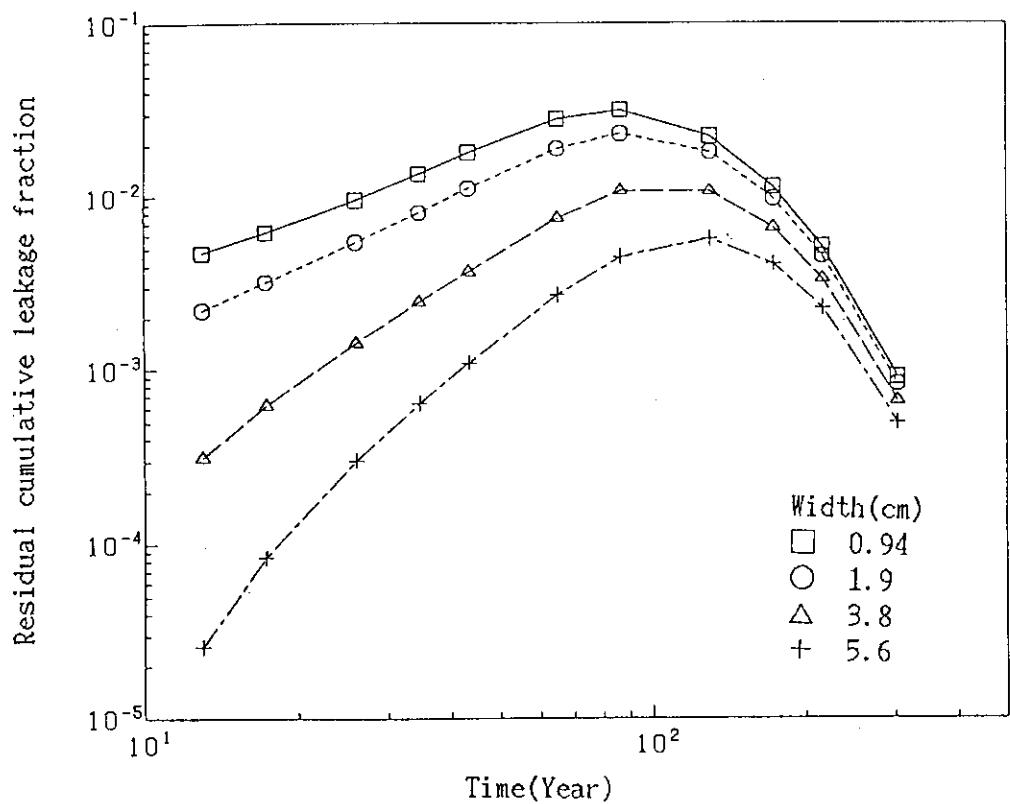


Fig. 20 Residual cumulative leakage fraction of metal-package  
( $^{137}\text{Cs}$ -case)  
( $D_1 = 1.8 \times 10^{-1} \text{cm}^2/\text{y}$     $D_2 = 3.65 \times 10^{-2} \text{cm}^2/\text{y}$     $\mu = 0.73$ )

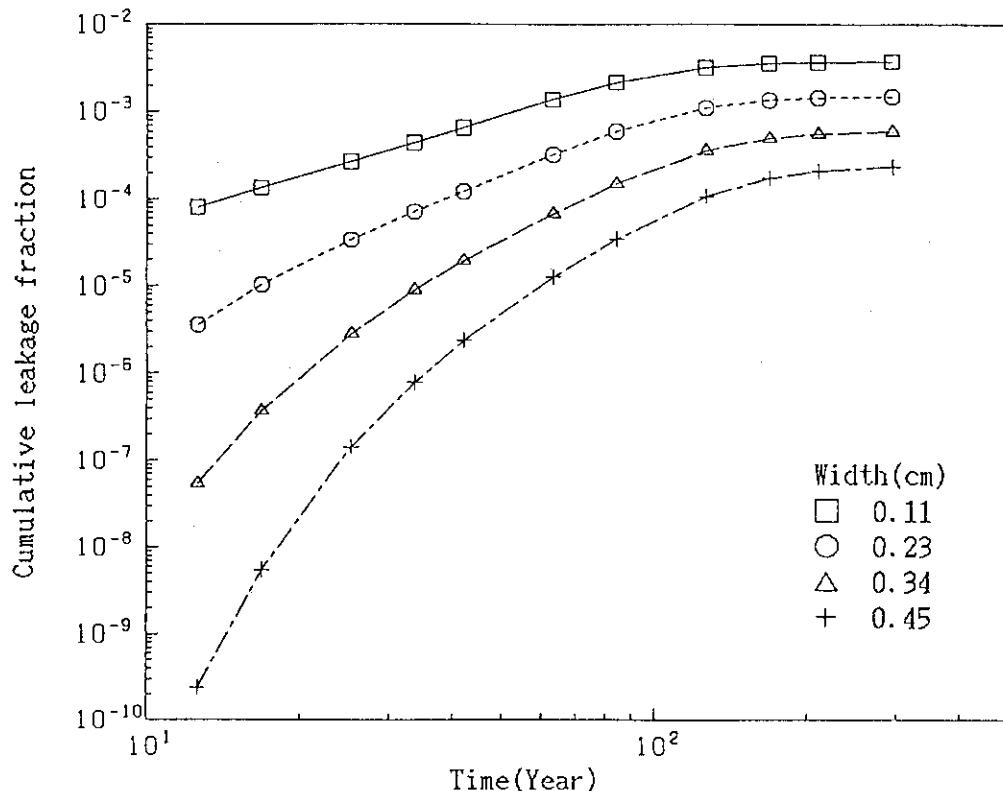


Fig. 21 Cumulative leakage fraction of metal-package  
( $^{90}\text{Sr}$ -case)  
( $D_1 = 3.65 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{y}$     $D_2 = 2.56 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{y}$     $\mu = 0.76$ )

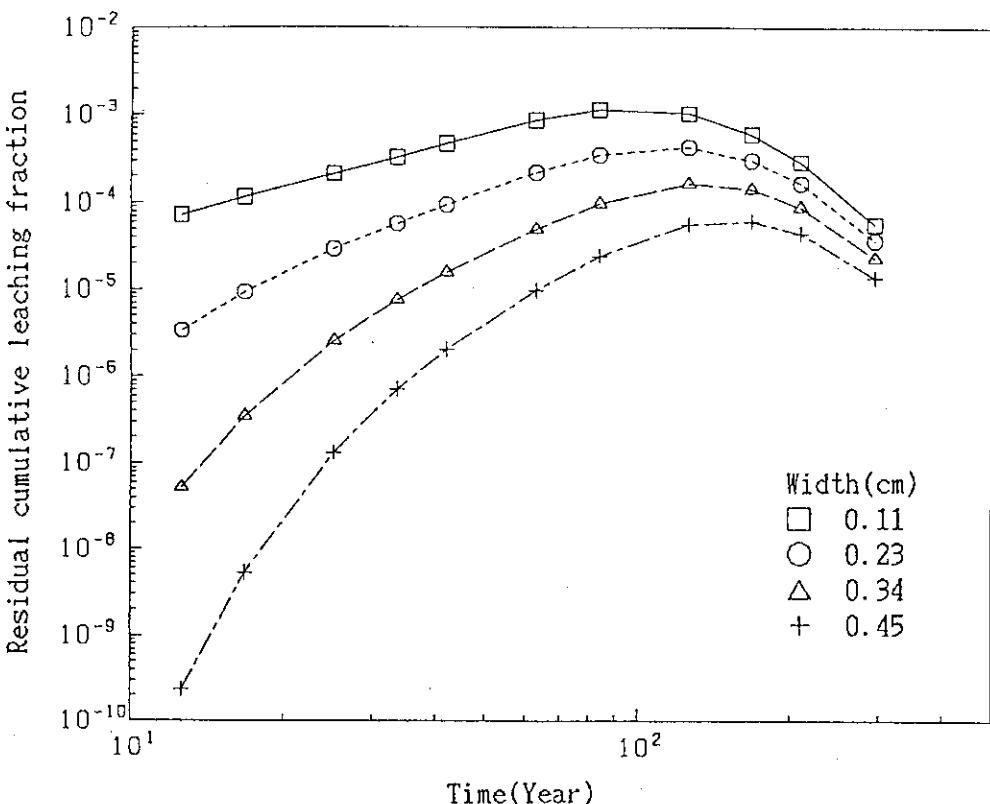


Fig. 22 Residual cumulative leakage fraction of metal-package  
( $^{90}\text{Sr}$ -case)  
( $D_1 = 3.65 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{y}$     $D_2 = 2.56 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{y}$     $\mu = 0.76$ )

## 付 錄 補題の証明

以下の補題は、文献<sup>(16)</sup>に結果が紹介されているが、本報告の吟味の便宜の為に、簡単な証明を付す。

[補題]

$$\begin{aligned} \textcircled{1} \quad & \int_0^t \exp(-\lambda \alpha - B/\alpha) / \sqrt{\alpha} d\alpha = 2 \int_0^{\sqrt{t}} \exp(-\lambda y^2 - B/y^2) dy \\ & = 0.5 \sqrt{(\pi/\lambda)} [\exp\{-2\sqrt{(B\lambda)}\} \operatorname{erfc}\{\sqrt{(B/t)} - \sqrt{(\lambda t)}\} \\ & \quad - \exp\{2\sqrt{(B\lambda)}\} \operatorname{erfc}\{\sqrt{(B/t)} + \sqrt{(\lambda t)}\}] \\ \textcircled{2} \quad & \int_0^t \exp(-B/\alpha) / \sqrt{\alpha} d\alpha = 2\sqrt{t} \cdot \exp(-(B/t)) - 2\sqrt{(\pi B)} \operatorname{erfc}\{\sqrt{(B/t)}\} \\ \textcircled{3} \quad & \lambda \downarrow 0 \text{ の時, } \textcircled{1} \text{ の両辺は, } \textcircled{2} \text{ の両辺に収束する。} \end{aligned}$$

補題の導出

先ず、以下の関係式を与える。

$$\int_0^t \exp(-\lambda \alpha - B/\alpha) / \sqrt{\alpha} d\alpha = 2 \int_0^{\sqrt{t}} \exp(-\lambda y^2 - B/y^2) dy = P(t)$$

これは、変数変換 :  $\sqrt{\alpha} = y$  の結果である。

さらに、次の関係式が成立する。

$$\exp(-\lambda y^2 - B/y^2) = \exp[-2\sqrt{(\lambda B)}] \exp[(-y\sqrt{\lambda} - y^{-1}\sqrt{B})^2]$$

そこで、

$$\begin{aligned} g_{\pm}(t) &= \int_0^{\sqrt{t}} \exp[-(y\sqrt{\lambda} \pm y^{-1}\sqrt{B})^2] \sqrt{\lambda} dy, \\ G_{\pm}(t) &= \int_0^{\sqrt{t}} \exp[-(y\sqrt{\lambda} \pm y^{-1}\sqrt{B})^2] (\pm y^{-2}\sqrt{B}) dy \quad \text{とおくと,} \end{aligned}$$

次式が得られる。

$$\begin{aligned} g_+ \exp[+2\sqrt{(\lambda B)}] &= g_- \exp[-2\sqrt{(\lambda B)}] = P(t)\sqrt{\lambda}/2 \\ -G_+ \exp[+2\sqrt{(\lambda B)}] &= G_- \exp[-2\sqrt{(\lambda B)}] \\ g_{\pm} + G_{\pm} &= \int_0^{\sqrt{t}} \exp[-(y\sqrt{\lambda} \pm y^{-1}\sqrt{B})^2] (\sqrt{\lambda} - y^{-2}\sqrt{B}) dy \\ &= -0.5\sqrt{\pi} \operatorname{erfc}\{\sqrt{(B/t)} \pm \sqrt{(\lambda t)}\} \\ & \quad (\text{変数変換 } y\sqrt{\lambda} \pm y^{-1}\sqrt{B} = X \text{ による}) \end{aligned}$$

$$g_- + G_- = (g_+ - G_+) \exp [4\sqrt{(\lambda B)}] = 0.5\sqrt{\pi} \operatorname{erfc} [\sqrt{(B/t)} - \sqrt{(\lambda t)}]$$

したがって、次式が成立する。

$$2g_+ = 0.5\sqrt{\pi} \left\{ -\operatorname{erfc} [\sqrt{(B/t)} + \sqrt{(\lambda t)}] + \exp [-4\sqrt{(\lambda B)}] \operatorname{erfc} [\sqrt{(B/t)} - \sqrt{(\lambda t)}] \right\}$$

これより、 $g_+$ ,  $P(t)$ が導かれ、補題①の関係が導出される。

$\lambda = 0$  の時、補題①の場合と同様に、

$$\int_0^t \exp(-B/\alpha)/\sqrt{\alpha} d\alpha = 2 \int_0^{\sqrt{t}} \exp(-B/y^2) dy = P(t) \quad \text{とおく。}$$

$$P(t) = 2\sqrt{\frac{B}{t}} \int_{-\infty}^{\infty} \exp(-x^2)/x^2 dx \quad (\text{変数変換 } B/y^2 = x^2)$$

$$= 2\sqrt{t} \cdot \exp(-B/t) - 2\sqrt{\pi B} \operatorname{erfc} [\sqrt{(B/t)}] \quad (\text{部分積分})$$

したがって、補題②の関係が導出される。

補題③については、補題①最右辺の分子分母を $\sqrt{\lambda}$ でそれぞれ微分し、 $\sqrt{\lambda} \downarrow 0$  とすると補題②の右辺が導かれる。左辺については自明である。(証明了)