

JAERI-Research

97-049



岩石型及びMOX使用済核燃料
地層処分の環境影響評価

1997年7月

木村英雄・松鶴秀夫・高野秀機・室村忠純

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、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、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。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。

This report is issued irregularly.

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

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1997

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

岩石型及びMOX使用済核燃料地層処分の環境影響評価

日本原子力研究所東海研究所安定化プルトニウム燃料・燃焼法研究特別チーム
木村 英雄・松鶴 秀夫・高野 秀機・室村 忠純

(1997年6月11日受理)

使用済岩石型プルトニウム燃料は、一般軽水炉の使用済核燃料や再処理を伴う高レベル放射性廃棄物と同様に、地層処分されるものと考えられる。ここでは、環境安全性の観点から、岩石型プルトニウム燃焼法の有用性を示すために、同様にプルトニウムリサイクルを前提とするMOX燃料の直接処分と比較評価を行った。

評価解析は、ウラン燃料1トンに相当する使用済核燃料を花崗岩岩体に直接処分した場合について、地下水移行シナリオに基づいて実施し、飲料水摂取による個人被ばく線量を算出した。その結果、岩石型燃料の処分に起因する被ばく線量は、MOX燃料に比べ2桁以上低く、本燃焼法の優位性を確認することができた。

Environmental Safety of the Geologic Disposal of ROX and MOX Spent-fuels

Hideo KIMURA, Hideo MATSUZURU, Hideki TAKANO
and Tadasumi MUROMURA

Excess Plutonium Disposition Fuel Research and Development Team
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received June 11, 1997)

The plutonium ROX (Rock-like Oxide Fuel) spent-fuels, as well as standard LWR spent-fuels and high-level radioactive wastes from reprocessing plants, will be disposed into a deep geologic formation. In order to demonstrate the usefulness of ROX plutonium-burning system, a comparative study of environmental safety was carried out for the direct disposal of ROX and MOX spent-fuels, which intend to plutonium recycle.

Safety analyses were performed on a case that 1MTU of spent-fuels are disposed into a deep granite rock formation, and the individual dose equivalent due to the exposure pathway ingesting drinking water was calculated based on the groundwater migration scenario. The committed dose equivalents from ROX spent-fuels are less than those from MOX spent-fuels by 2 or more order of magnitude, and the usefulness of ROX plutonium-burning system was demonstrated.

Keywords: Geologic Disposal, Rock-like Oxide Fuel, Spent-fuel, Groundwater Migration Scenario, Dose Equivalent, Safety Assessment, Solubility, Radionuclide Migration, Groundwater Flow

目 次

1. はじめに	1
2. 処分概念及び評価シナリオ	1
3. 評価手法 (GSRW コード)	4
3.1 ソースタームモデル	5
3.1.1 モデル1 (調和溶解モデル)	6
3.1.2 モデル2 (溶解限度モデル)	8
3.2 天然バリアモデル	9
3.2.1 1次元移流・3次元分散モデル	10
3.2.2 1次元移流・分散モデル	12
4. 計算条件	12
4.1 核種インベントリー	12
4.2 ソースターム	12
4.3 地球化学的条件	14
4.4 水理学的条件	15
4.5 生態圏条件	16
5. 解析結果	17
5.1 4n0 系列核種による被ばく線量	17
5.2 4n1 系列核種による被ばく線量	17
5.3 4n2 系列核種による被ばく線量	17
5.4 4n3 系列核種による被ばく線量	22
6. まとめ	22
参考文献	24

Contents

1. Introduction	1
2. Disposal Concept and Assessment Scenario	1
3. Safety Assessment Methodology (GSRW code).....	4
3.1 Source Term Model	5
3.1.1 Model1 (Congruent Dissolution Model)	6
3.1.2 Model2 (Solubility-limit Model)	8
3.2 Geosphere Model	9
3.2.1 One-dimensional Advection and Three-dimensional Dispersion Model	10
3.2.2 One-dimensional Advection and Dispersion Model	12
4. Basic Assumptions and Input Data	12
4.1 Radionuclide Inventory	12
4.2 Source Term	12
4.3 Geochemistry	14
4.4 Hydrology	15
4.5 Biosphere	16
5. Dose Evaluation	17
5.1 Dose Equivalents from $4n0$ Decay Chain	17
5.2 Dose Equivalents from $4n1$ Decay Chain	17
5.3 Dose Equivalents from $4n2$ Decay Chain	17
5.4 Dose Equivalents from $4n3$ Decay Chain	22
6. Conclusions	22
Reference	24

1. はじめに

日本の核燃料サイクルにおいては、プルトニウムは計画生産され軽水炉及び高速炉の燃料として使用されることになっており、利用の透明度は非常に高い。しかしながら、世界的には、IAEAの報告にあるように、21世紀始めに利用が不透明な軽水炉級分離プルトニウムが120～200トン蓄積されるとして大きな問題となっている¹⁾²⁾。さらに、核軍縮により約10年間で戦略核の解体が進められ、その際に取り出される約100トン（米国50トン、ロシア50トン）の高純度Pu-239のプルトニウム（核兵器級Pu）は、20～30年の間に核変換するかまたは廃棄物として処分されることが期待されている^{3)～6)}。その方法については、核不拡散性、環境安全性及び経済性の観点から、世界的に検討が進められているが、まだ決め手がないのが現状である^{7)～11)}。原子力エネルギー利用の観点からは、このプルトニウムは計画外のものであり、核爆弾への再利用を避けるためには、完全に核変換することが望ましい。

プルトニウムの軽水炉利用は、高速増殖炉での利用までの間に必要なプロセスであると位置づけられており、技術的課題は少ないと考えられている。しかし、軽水炉から取り出したプルトニウム（原子炉級Pu）の軽水炉利用では、核分裂性プルトニウムの割合は、リサイクルに伴い急激に減少する。一方、アメリシウム（Am）、キュリウム（Cm）等の超プルトニウム元素の割合は増大する。このため、 α 、 γ 、中性子線量等が増加し、操業、安全等に対する新たな手当と、それによる技術、経済及び許認可上の新しい問題が生じる可能性がある。

原研では、このような状況を考慮して、平成6年10月、東海研究所に特別チームを設置して、原子炉級Pu及び核兵器級Puの岩石型燃料と軽水炉によるプルトニウム燃焼システムの基礎的研究を開始した。本システムは、核不拡散性、安全性及び経済性を考慮してプルトニウム燃焼用のイナータマトリックス燃料を開発し、プルトニウムを軽水炉で効率よく燃焼させるものであり、その使用済核燃料はそのまま安定な高レベル放射性廃棄物となって、特別な処理を施すことなく処分（直接処分）することが可能である¹²⁾。

我が国では、再処理過程で発生するガラス固化された高レベル放射性廃棄物は、30～50年間程度冷却のための貯蔵を行った後、地下数百メートル以深の安定な岩盤中に処分することになっており¹³⁾、同様に使用済岩石型燃料も安定な岩盤中に直接処分されるものと考えられる。本報告では、環境安全性の観点から、安定化プルトニウム燃焼法の有効性・有用性を示すために、同様にプルトニウムリサイクルを前提とするMOX燃料の直接処分との比較評価を行った。ガラス固化された高レベル放射性廃棄物では、再処理時に環境影響評価上重要な揮発性ガス（ヨウ素など）が回収又は放出されるため、使用済核燃料の直接処分と同じ条件では比較できないためである。

2. 処分概念及び評価シナリオ

使用済核燃料を直接深地層に処分することを想定して、地層処分の研究開発を進めている国としては、米国¹⁴⁾、カナダ¹⁵⁾、スウェーデン¹⁶⁾、ドイツ¹⁷⁾等があげられる。このうち、米国は不飽和凝灰岩層を、ドイツは岩塩層を処分対象地層として考えており、我が国の地質環境条件を考慮すると、これら2ヶ国の処分概念は本評価解析の対象としてふさわしくない。残るスウェーデン及びカナダは、ともに結晶質岩を処分対象地層として想定しており、我が国の処分候補地層の一つであるので、これらの処分概念を参考にして評価解析を実施することにする。このうちスウェーデンの処分方式は、KBS-3として知られ、その多重バリア（金属容器、緩衝

1. はじめに

日本の核燃料サイクルにおいては、プルトニウムは計画生産され軽水炉及び高速炉の燃料として使用されることになっており、利用の透明度は非常に高い。しかしながら、世界的には、IAEAの報告にあるように、21世紀始めに利用が不透明な軽水炉級分離プルトニウムが120～200トン蓄積されるとして大きな問題となっている¹⁾²⁾。さらに、核軍縮により約10年間で戦略核の解体が進められ、その際に取り出される約100トン(米国50トン、ロシア50トン)の高純度Pu-239のプルトニウム(核兵器級Pu)は、20～30年の間に核変換するかまたは廃棄物として処分されることが期待されている³⁾⁴⁾。その方法については、核不拡散性、環境安全性及び経済性の観点から、世界的に検討が進められているが、まだ決め手がないのが現状である⁵⁾⁶⁾。原子力エネルギー利用の観点からは、このプルトニウムは計画外のものであり、核爆弾への再利用を避けるためには、完全に核変換することが望ましい。

プルトニウムの軽水炉利用は、高速増殖炉での利用までの間に必要なプロセスであると位置づけられており、技術的課題は少ないと考えられている。しかし、軽水炉から取り出したプルトニウム(原子炉級Pu)の軽水炉利用では、核分裂性プルトニウムの割合は、リサイクルに伴い急激に減少する。一方、アメリシウム(Am)、キュリウム(Cm)等の超プルトニウム元素の割合は増大する。このため、 α 、 γ 、中性子線量等が増加し、操業、安全等に対する新たな手当と、それによる技術、経済及び許認可上の新しい問題が生じる可能性がある。

原研では、このような状況を考慮して、平成6年10月、東海研究所に特別チームを設置して、原子炉級Pu及び核兵器級Puの岩石型燃料と軽水炉によるプルトニウム燃焼システムの基礎的研究を開始した。本システムは、核不拡散性、安全性及び経済性を考慮してプルトニウム燃焼用のイナータマトリックス燃料を開発し、プルトニウムを軽水炉で効率よく燃焼させるものであり、その使用済核燃料はそのまま安定な高レベル放射性廃棄物となって、特別な処理を施すことなく処分(直接処分)することが可能である¹²⁾。

我が国では、再処理過程で発生するガラス固化された高レベル放射性廃棄物は、30～50年程度冷却のための貯蔵を行った後、地下数百メートル以深の安定な岩盤中に処分することになっており¹³⁾、同様に使用済岩石型燃料も安定な岩盤中に直接処分されるものと考えられる。本報告では、環境安全性の観点から、安定化プルトニウム燃焼法の有効性・有用性を示すために、同様にプルトニウムリサイクルを前提とするMOX燃料の直接処分との比較評価を行った。ガラス固化された高レベル放射性廃棄物では、再処理時に環境影響評価上重要な揮発性ガス(ヨウ素など)が回収又は放出されるため、使用済核燃料の直接処分と同じ条件では比較できないためである。

2. 処分概念及び評価シナリオ

使用済核燃料を直接深地層に処分することを想定して、地層処分の研究開発を進めている国としては、米国¹⁴⁾、カナダ¹⁵⁾、スウェーデン¹⁶⁾、ドイツ¹⁷⁾等があげられる。このうち、米国は不飽和凝灰岩層を、ドイツは岩塩層を処分対象地層として考えており、我が国の地質環境条件を考慮すると、これら2ヶ国の処分概念は本評価解析の対象としてふさわしくない。残るスウェーデン及びカナダは、ともに結晶質岩を処分対象地層として想定しており、我が国の処分候補地層の一つであるので、これらの処分概念を参考にして評価解析を実施することにする。このうちスウェーデンの処分方式は、KBS-3として知られ、その多重バリア(金属容器、緩衝

材等の人工バリア、及び地層の天然バリア)による防護システムは世界各国の放射性廃棄物深地層処分の基本概念となっているので、本評価解析においても、この処分方式を参考に処分概念を設定する。

本評価解析で想定した処分方式を図-1に示す。使用済核燃料は、内部充填物(ガラスビーズ)とともに金属容器(キャニスター)に封入され、圧縮ベントナイトでまわりを覆った形で、処分坑道に対して縦置きで結晶質岩体(花崗岩)中に埋設処分される。内部充填物はその物理的効果により、金属容器破損後、金属容器周辺の圧縮ベントナイト層の形状を大きく変化させずそのバリア性能を維持させるために使用される。金属容器に関しては、スウェーデンは銅製キャニスター、カナダはチタン製キャニスターを想定し、その長期的耐久性を実験データに基づき確率論的に評価しているが、本評価解析は後述するように決定論的評価のため、材質等は特定しない。緩衝材である圧縮ベントナイトには、その難透水性により廃棄体への地下水流フラックスを低減させ、その結果として廃棄体からの核種漏洩フラックスを低減させる効果とともに、処分孔周辺岩盤中に存在する亀裂のシーリング効果等が期待されている。現在、深地層処分に用いられると考えられている圧縮ベントナイトの透水係数は 10^{-11} m/s以下であり¹⁸⁾、緩

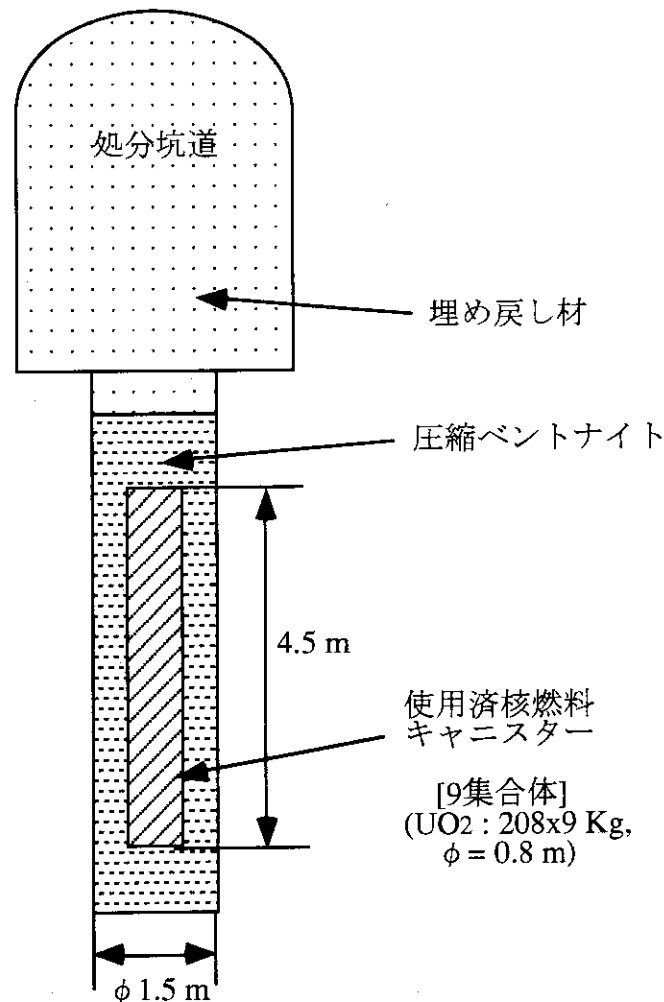


図-1 本評価解析で想定した処分方式(スウェーデンKBS-3)

衝材中における地下水流速は無視でき、放射性核種の移行は間隙水中における拡散に支配されることになる。

使用済岩石型燃料及びMOX燃料は、同一の処分条件で、地下数百メートルの均質岩体中に処分されるものとする。使用済核燃料の処分場は、図-2に示すように、亀裂帯の存在しない安定な岩体中に建設されるものと考えられる。これは、生態圏への短絡的な移行経路を避けるために必要な立地条件であると考えられる。この岩体は、当然様々な亀裂帯 (Regional fracture zone, Local fracture zone) によって囲まれることになるであろう。したがって、処分場を漏出した放射性核種は、卓越した亀裂のない岩体を移行した後、亀裂帯を通して生態圏に移行するものと考えられる。本評価では、このような岩盤層として、花崗岩均質岩体及び花崗岩亀裂帯を仮定する。

処分システムの安全性は、人工バリア (容器、緩衝材、処分場構造物等による閉じ込め性能)、天然バリア (核種の岩石への吸脱着による遅延効果及び地層中における分散・希釈効果など) すなわち多重バリアの性能に依存している。ここで、処分場からの漏出した放射性核種が生態圏へ到達するまでの移行シナリオとしては、以下のものが考えられる。

- 容器：廃棄体が地下水と一定期間 (～数千年) 接触しないようにする。
- 廃棄体：容器破損後は、地下水と接触し、廃棄体マトリックスの溶解及び含まれる化学種の溶解度に応じて、放射性核種が廃棄体から浸出する。
- 緩衝材：放射性核種は遅延メカニズムによって移行が遅延しながら周辺岩石へ拡散移行する。
- 処分場構造物：コンクリート製で、そのアルカリ成分により、ある期間溶解度の低下が期待

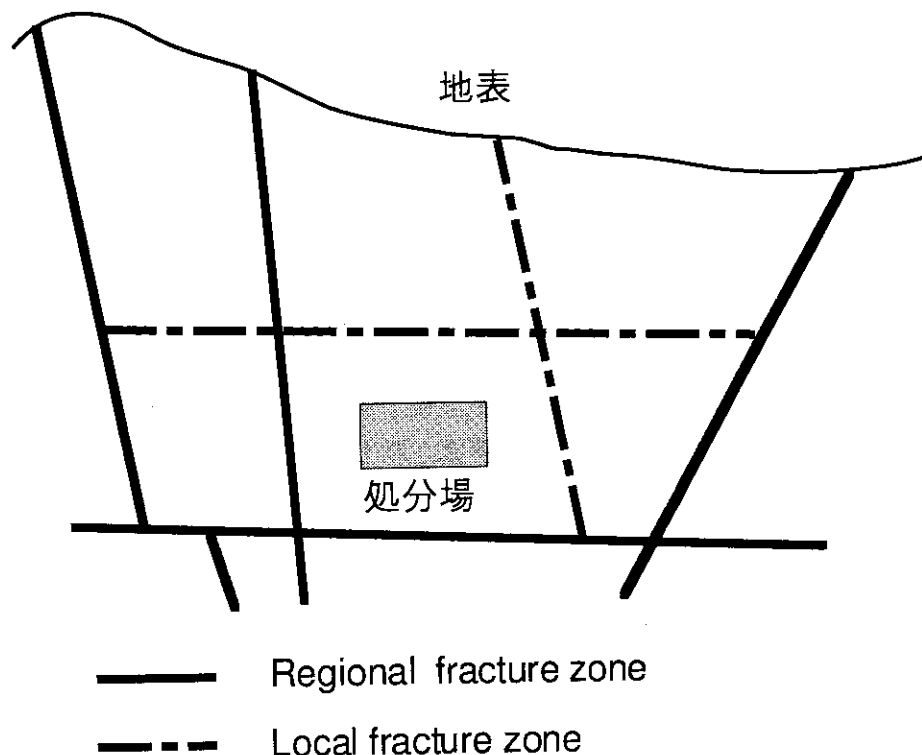


図-2 想定される高レベル放射性廃棄物処分場の位置

できる。

○地層：処分場から漏出した放射性核種は、様々な遅延メカニズムにより移行が遅延されながら、生態圏に移行する。

○生態圏：生態圏に移行した放射性核種は、地表水（帯水層、河川、湖沼、近海など）で希釈され、様々な経路を移行した後、最終的に人間に摂取される。

これは、地下水移行シナリオと呼ばれるものであり、処分システムの性能が確率的事象の影響を受けないという仮定に基づく基本シナリオである。シナリオでは、処分場閉鎖後、処分場の人工構造物は全て地下水で最終的に再飽和されることを想定している。この地下水と人工構造物との接触により、金属容器の腐食、廃棄体（使用済核燃料ペレット）の溶解が起こる。これらの過程を経て、緩衝材への放射性核種の漏出が始まる。緩衝材中では、止水効果（難透水性）により地下水流は無視でき、主に拡散によって岩石層へ移行する。引き続く地層中における移行は、亀裂あるいは多孔質媒体空隙中の地下水を媒体として行われる。その移行プロセスは、移流、分子拡散及び機械分散を含んだ分散、岩石鉱物との相互作用による遅延、放射性壊変などに支配される。放射性核種は地層から隣接した帯水層へ移行し、大量の地下水、さらにその他の地表水によって希釈される。

地層処分の安全評価モデルは、このような考え方をなわちシナリオに基づいて構築される。シナリオはそのサイトに大きく依存する部分（例えば、マトリックス拡散のような亀裂媒体に特有な現象のモデル化は、岩盤亀裂の存在状態など大きく依存する）がある。しかしながら我が国では、現在処分候補サイトは決定されていないため、詳細なシナリオ（サイトに特有なシナリオ）を設定することは困難であり、前記のような一般的な基本シナリオのみが設定されている。また、地震等の確率的事象を想定した確率的シナリオについても、サイトに大きく依存する部分があるので、現段階では同様に設定することには困難が伴う。したがって、本評価解析では、この一般的シナリオ（地下水移行シナリオ）に基づき、処分に伴う公衆の被ばく線量を決定論的に評価する。さらに、今回の評価はMOX燃料との比較評価に重点を置くため、生態圏における解析を簡略化し、一般的生態圏環境では被ばく線量が最も大きくなる井戸水飲用による内部被ばくのみを評価することとする。

3. 評価手法（GSRW コード）

評価解析は高レベル放射性廃棄物地層処分の一般的安全評価のために開発されたGSRWコード¹⁹⁾を用いて実施する。本計算コードの構成を図-3に示す。本コードは、基本シナリオ（地下水移行シナリオ）に基づく決定論的安全評価手法である。GSRWは、ソースタームモデル、天然バリアモデル及び生態圏モデルから構成されており、高レベル放射性廃棄物の地層処分に伴う放射線影響を評価する。

GSRW コードは、高レベル放射性廃棄物地層処分の一般的安全性を評価することを目的として、開発されたものである。そのため、コードの柔軟性及び実用性を考慮した上で、処分システムの中で起こりうる様々なメカニズムのうち、結果として重大な影響を与えると思われる主要なメカニズムをモデルに数多く取り入れている。その際、安全評価の観点から重要なメカニズムは、計算に必要とされるデータの取得性を考慮して、可能な範囲でモデル化されている。また、コード化に際しては、感度解析、不確かさ解析等を意識して、計算精度の安定性及び計算時間の短縮が図れるように解析解を可能な範囲で用いるようにした。さらに、GSRWのサブモデルはモ

できる。

○地層：処分場から漏出した放射性核種は、様々な遅延メカニズムにより移行が遅延されながら、生態圏に移行する。

○生態圏：生態圏に移行した放射性核種は、地表水（帯水層、河川、湖沼、近海など）で希釈され、様々な経路を移行した後、最終的に人間に摂取される。

これは、地下水移行シナリオと呼ばれるものであり、処分システムの性能が確率的事象の影響を受けないという仮定に基づく基本シナリオである。シナリオでは、処分場閉鎖後、処分場の人工構造物は全て地下水で最終的に再飽和されることを想定している。この地下水と人工構造物との接触により、金属容器の腐食、廃棄体（使用済核燃料ペレット）の溶解が起こる。これらの過程を経て、緩衝材への放射性核種の漏出が始まる。緩衝材中では、止水効果（難透水性）により地下水流は無視でき、主に拡散によって岩石層へ移行する。引き続く地層中における移行は、亀裂あるいは多孔質媒体空隙中の地下水を媒体として行われる。その移行プロセスは、移流、分子拡散及び機械分散を含んだ分散、岩石鉱物との相互作用による遅延、放射性壊変などに支配される。放射性核種は地層から隣接した帯水層へ移行し、大量の地下水、さらにその他の地表水によって希釈される。

地層処分の安全評価モデルは、このような考え方すなわちシナリオに基づいて構築される。シナリオはそのサイトに大きく依存する部分（例えば、マトリックス拡散のような亀裂媒体に特有な現象のモデル化は、岩盤亀裂の存在状態など大きく依存する）がある。しかしながら我が国では、現在処分候補サイトは決定されていないため、詳細なシナリオ（サイトに特有なシナリオ）を設定することは困難であり、前記のような一般的な基本シナリオのみが設定されている。また、地震等の確率的事象を想定した確率的シナリオについても、サイトに大きく依存する部分があるので、現段階では同様に設定することには困難が伴う。したがって、本評価解析では、この一般的な基本シナリオ（地下水移行シナリオ）に基づき、処分に伴う公衆の被ばく線量を決定論的に評価する。さらに、今回の評価はMOX燃料との比較評価に重点を置くため、生態圏における解析を簡略化し、一般的生態圏環境では被ばく線量が最も大きくなる井戸水飲用による内部被ばくのみを評価することとする。

3. 評価手法（GSRW コード）

評価解析は高レベル放射性廃棄物地層処分の一般的安全評価のために開発されたGSRWコード¹⁹⁾を用いて実施する。本計算コードの構成を図-3に示す。本コードは、基本シナリオ（地下水移行シナリオ）に基づく決定論的安全評価手法である。GSRWは、ソースタームモデル、天然バリアモデル及び生態圏モデルから構成されており、高レベル放射性廃棄物の地層処分に伴う放射線影響を評価する。

GSRW コードは、高レベル放射性廃棄物地層処分の一般的安全性を評価することを目的として、開発されたものである。そのため、コードの柔軟性及び実用性を考慮した上で、処分システムの中で起こりうる様々なメカニズムのうち、結果として重大な影響を与えると思われる主要なメカニズムをモデルに数多く取り入れている。その際、安全評価の観点から重要なメカニズムは、計算に必要とされるデータの取得性を考慮して、可能な範囲でモデル化されている。また、コード化に際しては、感度解析、不確かさ解析等を意識して、計算精度の安定性及び計算時間の短縮が図れるように解析解を可能な範囲で用いるようにした。さらに、GSRWのサブモデルはモ

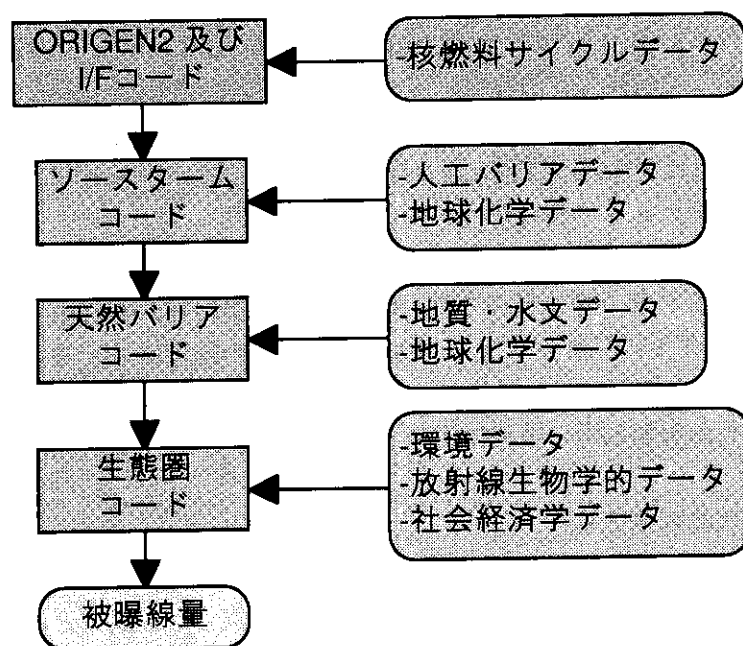


図-3 GSRW コードの構成図

ジュール化されており、必要に応じて個々のサブモデルを更新することが可能となっている。本コードは、ガラス固化された高レベル放射性廃棄物を想定して開発されたものであるが、用いるモデルパラメータを適宜変更することにより、使用済核燃料の直接処分の安全評価も行うことが可能である。

GSRW コードは図-3に示すように、ソースタームモデル、天然バリアモデル、生態圏モデルの3つのサブモデルから構成されている。ORIGEN2²⁰⁾ 及びインターフェイスコードは、高レベル放射性廃棄物に含まれる放射性核種のインベントリを時間の関数として計算するものである。最初のソースタームモデルは、処分施設からの放射性核種の漏洩を評価するものであり、2種類のモデル（モデル1及びモデル2）が用いられている。モデル1は、ガラス固化体の溶解を解析し、その溶解に比例して含まれる放射性核種が浸出するのを評価する（使用済核燃料の場合は、核燃料ペレットがガラス固化体に相当することになる）。モデル2は、廃棄体と緩衝材の境界における放射性核種の濃度は溶解度で制限されると仮定し、核種の浸出を評価する。2番目の天然バリアモデルは、地層中における放射性核種の移行を解析するものであり、一次元移流、3次元分散あるいは1次元分散、平衡吸着及び放射性壊変を考慮した輸送方程式を解析解で解くものである。3番目の生態圏モデルは、生態圏における放射性核種の移行及び人間に対する放射線影響を評価するものであり、動的なコンパートメントモデル及び線量換算係数法が用いられている。以下に、ソースタームモデル及び天然バリアモデルの詳細を述べる。

3.1 ソースタームモデル

GSRWにおけるソースタームとは、処分ユニットの境界（緩衝材と岩盤の境界）における放射性核種の漏出率の時間変化を意味する。ここで処分ユニットは、廃棄体、金属容器（オーバー

パックも含む)、緩衝材から構成されている。放射性核種の漏出は、金属容器が破損した後、開始される。金属容器の劣化は、地下水と金属との接触により腐食するために起こる。このモデルでは、容器の破損に関して単純な方法を用いている。すなわち、容器の劣化は時間的に進行するが、容器の寿命（処分後、廃棄体の一部が地下水と接触するまでの時間）までは容器としての機能は健全であり、それ以降は容器は存在しないものとする。したがって、容器の寿命は放射性核種の漏出開始時間の遅れとして表現される。

金属容器の破損後、廃棄体は地下水と接触し、放射性核種の浸出が始まる。放射性核種の浸出は、対象となる核種により2つのモデルを使い分ける。すなわち、廃棄体の構成マトリックス（ガラス固化体の場合はアモルファスシリカ、使用済核燃料の場合は UO_2 またはジルコニア、トリウム）よりも溶解度の高い核種に対しては、モデル1の調和溶解モデルを用い、逆に廃棄体の構成マトリックスよりも溶解度の低い核種に対しては、モデル2の溶解度律速モデルを用いる。

3.1.1 モデル1（調和溶解モデル）

このモデルでは、解析解を得るため、廃棄体は球形又は回転楕円体として近似される。引き続き緩衝材中の移行は、一次元拡散でモデル化されており、廃棄体と緩衝材との境界における放射性核種のフラックスは、廃棄体の構成マトリックスの溶解速度と廃棄体に含まれる放射性核種の存在比の積として表現されその値で拘束される、もう一方の緩衝材と岩盤の境界では、地下水流による移流効果のため、核種濃度は0であると仮定する。この仮定は、濃度勾配が大きくなるため十分保守的であると考えられる。

様々な形状の廃棄体からの質量輸送に関する解析解が、Chambre'らによって求められている²¹⁾。低溶解度の化学種*i*の廃棄体表面における地下水濃度が飽和濃度（溶解度） N_i^{sat} (kg/m^3)にあるとすると、多孔質媒体で囲まれたこの廃棄体からの化学種*i*の溶解速度 f_i の定常解は次式で与えられる。

$$f_i = \frac{\beta D_e N_i^{sat}}{n_i} \quad (1)$$

ここで f_i : 化学種*i*の溶解速度 (1/s)、
 β : 廃棄体の形状因子 ($1/m^2$)、 ($= 3/r^2$ 半径*r*の球)、
 D_e : 間隙水中における実効拡散係数 (m^2/s)、
 n_i : 廃棄体内における化学種*i*の濃度 (kg/m^3)。

ここで、溶解速度はいかなる時でも定常解で近似できると仮定すると、球形廃棄体からの構成マトリックスの溶解速度 $m(t)$ は次式で与えられる。

$$m(t) = f_i M(t) = f_i n_s \frac{4}{3} \pi r(t)^3 = 4 \pi r(t) D_e N_i^{sat} \quad (2)$$

ここでサフィックス s は構成マトリックスを意味する。また $M(t)$ は廃棄体中の構成マトリックス成分の質量 (kg) である。その結果、浸出時間 T (廃棄体の溶解開始から溶解の終了するまでの時間) は次式で与えられる。

$$T = \frac{\rho r_0^2}{2D_e N_s^{\text{sat}}}, \quad (3)$$

ここで ρ : 廃棄体密度 (kg/m^3)、
 r_0 : 廃棄体半径 (m)、

そして半径 r 時間依存性は次式で与えられる。

$$r(t) = \sqrt{r_0^2 - \frac{2D_e N_s^{\text{sat}}}{\rho} t}. \quad (4)$$

放射性核種 i の浸出率 $S_i(t)$ は構成マトリックスの溶解速度 $m(t)$ 及び Bateman 方程式で表される存在比 $R_i(t)$ の積の形で表現される。

$$S_i(t) = m(t)R_i(t) \quad (5)$$

核種 i の浸出率 $S_i(t)$ は廃棄体と緩衝材との境界における核種フラックスとして用いられる。平衡吸着及び崩壊連鎖を考慮した拡散方程式は次式で表される。

$$K_i^B \frac{\partial N_i}{\partial t} = D_{f,i} \frac{\partial^2 N_i}{\partial x^2} - \lambda_i K_i^B N_i + \lambda_{i-1} K_{i-1}^B N_{i-1} \quad (6)$$

ここで K_i^B : 核種 i の緩衝材中の遅延係数 (-)、
 N_i : 緩衝材間隙水中における核種 i の濃度 (atom/m^3)、
 $D_{f,i}$: 間隙中の拡散係数 (m^2/s)、
 λ_i : 核種 i の崩壊定数 ($1/\text{s}$)。

境界条件はそれぞれ、廃棄体と緩衝材の境界で

$$-\varepsilon D_{f,i} \left. \frac{\partial N_i}{\partial x} \right|_{x=0} = S_i(t)/S \quad (7)$$

緩衝材と岩盤の境界で

$$N_i(L, t) = 0 \quad (8)$$

である ($x=L$)。ここで ε は緩衝材の間隙率 (-)、 S は緩衝材内側の面積 (m^2)、 L は緩衝材の厚さ (m) である。また $t=0$ では緩衝材中の核種濃度は0であると仮定する。式 (6) の解析解は3つまでの崩壊連鎖に対して求められ、その解をもとに、緩衝材と岩盤の境界における核種フラックスを計算する。

3.1.2 モデル2 (溶解限度モデル)

このモデルでは、解析解を得るために、廃棄体は球形として近似される。緩衝材中の放射性核種の移行は、球座標系における一次元拡散方程式によって表されるものとする。廃棄体表面 (廃棄体と緩衝材との境界) における放射性核種の濃度はその化学種の溶解度にあるものとし、一方、緩衝材と岩盤との境界では、放射性核種の濃度は、地下水の移流効果のため0であると仮定する。そして、放射性核種の漏洩率は、緩衝材からの拡散フラックスによって求める。拡散方程式は次式で与えられる。

$$K_i^B \frac{\partial N_i}{\partial t} = D_{r,i} \frac{1}{r} \frac{\partial^2}{\partial r^2} (rN_i) - \lambda_i K_i^B N_i + \lambda_{i-1} K_{i-1}^B N_{i-1}. \quad (9)$$

境界条件はそれぞれ、廃棄体表面 ($r=R_0$) で

$$N_i(R_0, t) = N_i^{\text{sat}}(t) \quad (10)$$

緩衝材と岩盤の境界 ($r=R_1$) で

$$N_i(R_1, t) = 0 \quad (11)$$

ここで R_0 は球形廃棄体の半径 (m)、 $N_i^{\text{sat}}(t)$ は時間 t における核種 i の溶解度 (kg/m^3)、そして R_1 は R_0 と緩衝材厚さ L (m) の和である。また $t=0$ では緩衝材中の核種濃度は0であると仮定する。式 (9) の解析解は3つまでの崩壊連鎖に対して求められ、その解をもとに、緩衝材と岩盤の境界における核種フラックスを計算する。このモデルでは、溶解度は時間依存性を考慮している、これは化学的環境が変化した場合 (例えば地殻変動など) の影響を考慮するためである。このモデルの浸出時間 T は、図-4に示すように、廃棄体と緩衝材との境界における浸出開始時間から時間 T までの核種フラックスを積分し、その積分量が廃棄体内に存在する放射性核種の量と等しいとして求める。廃棄体表面における放射性核種のフラックス解には、 $\delta(r-R_0)$ のような Dirac の δ 関数が含まれるが、フラックスの積分が廃棄体の近傍で行われると仮定すればこの項を無視することができる。

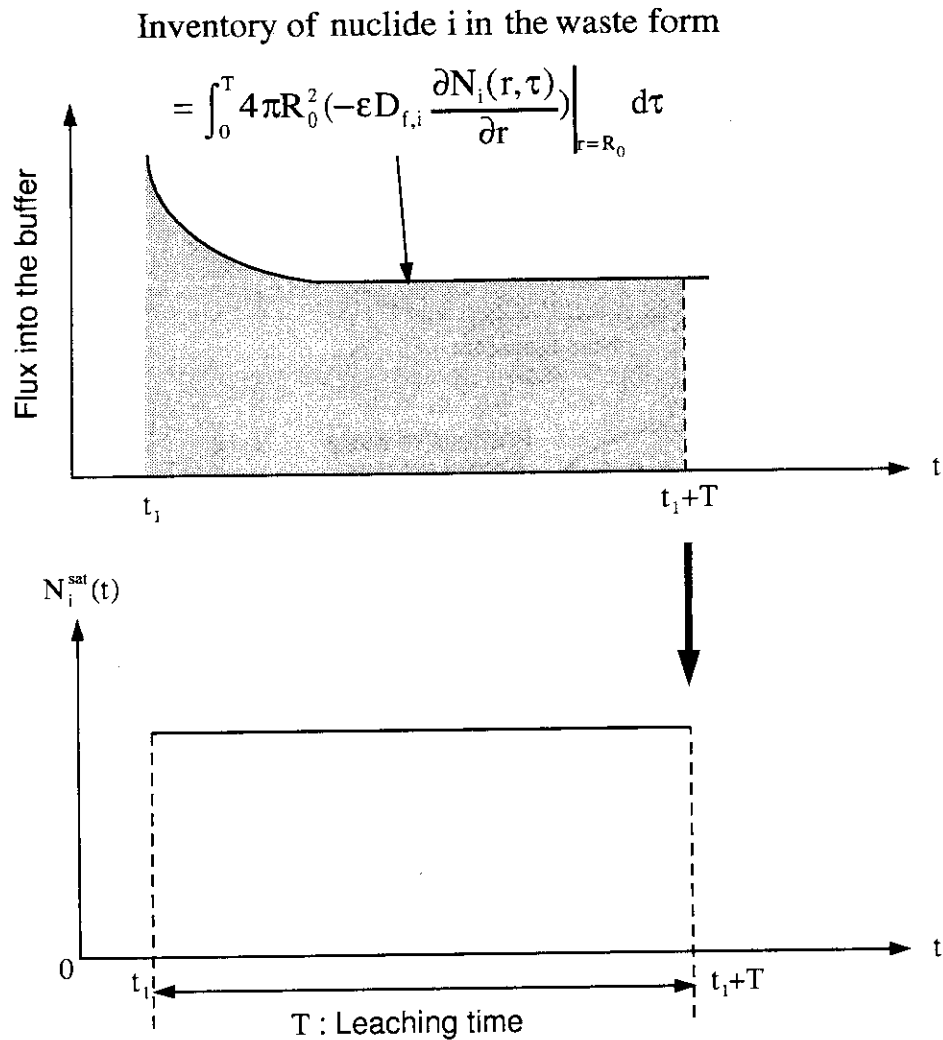


図-4 モデル2における浸出時間の評価法

3.2 天然バリアモデル

高レベル放射性廃棄物は、図-5に示すように、深地層の卓越した亀裂の存在しない安定な岩盤（均質岩体）中に処分されるであろう。したがって、卓越した亀裂のない安定な岩盤の大きさはサイトに依存するものであるが、そのような岩盤は均質であると仮定することができ、そこでの放射性核種の移行は、1次元移流、3次元分散モデルで表現できるものと考えられる。ここで、流れに垂直な方向の分散は、廃棄体の3次元の広がりの影響を考慮するために、導入した。廃棄物パッケージは、処分場の中に適切な間隔を置いて設置されるであろう。したがって、処分場内の廃棄物パッケージは、その大きさは均質岩体の大きさに比べれば十分小さいので、ポイントソースの3次元配列として表現することが可能である。ここで、個々のポイントソースからの放射性核種の湧き出し量は、ソースタームモデルで与えられる。

均質岩体を移行してきた放射性核種は、いくつかの経路を通して生態圏に移行するものと考えられる。この生態圏への移行経路は、おそらくいくつかの亀裂帯から構成され、そこを放射性核

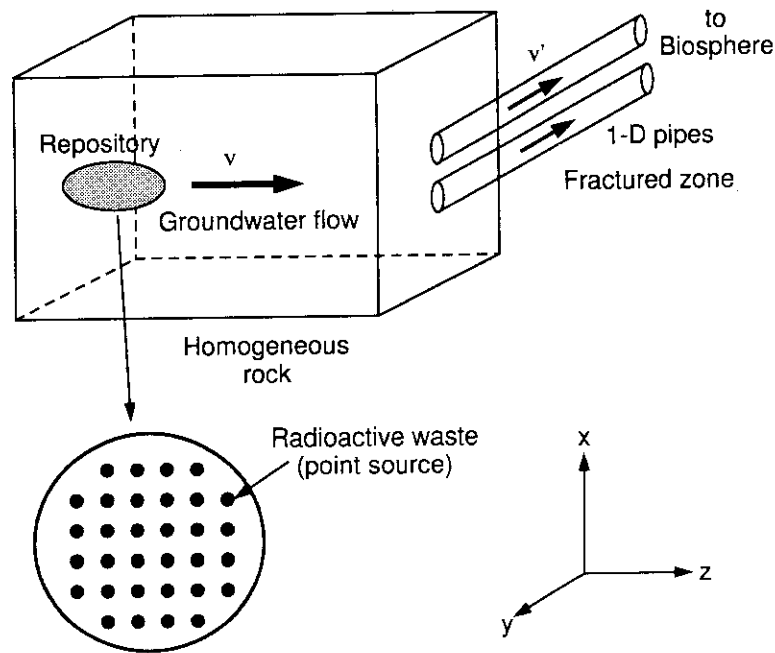


図-5 天然バリアモデルの概念図

種が1次元的(パイプ状)に移行するものと考えられる。そして、この1次元パイプ中の移行は、1次元移流、1次元分散モデルで表現することが可能であると考えられる。本評価手法では、この1次元パイプを複数考慮できるようにコード化してある。

このようにして、GSRWコードの天然バリアモデルは、2つに分けることができる。すなわち、均質岩体中の核種移行を解析する1次元移流-3次元分散モデルと、亀裂帯中の核種移行を解析する1次元移流-分散モデルである。

3.2.1 1次元移流-3次元分散モデル

本モデルでは、解析解を得るために、一様な1次元的な地下水流速場を仮定した。最初に、均質な無限多孔質媒体中において、ポイントソースから放出される放射性核種の移行を解析する。崩壊連鎖を持つ放射性核種の平衡吸着を仮定した輸送方程式は次式で与えられる。

$$K_i^G \frac{\partial N_i^G}{\partial t} = D_x \frac{\partial^2 N_i^G}{\partial x^2} + D_y \frac{\partial^2 N_i^G}{\partial y^2} + D_z \frac{\partial^2 N_i^G}{\partial z^2} - v_z \frac{\partial N_i^G}{\partial z} - \lambda_i K_i^G N_i^G + \lambda_{i-1} K_{i-1}^G N_{i-1}^G + S_i \quad (12)$$

$$D_x = \alpha_x v_x, \quad D_y = \alpha_y v_y, \quad D_z = \alpha_z v_z \quad (13)$$

ここで、

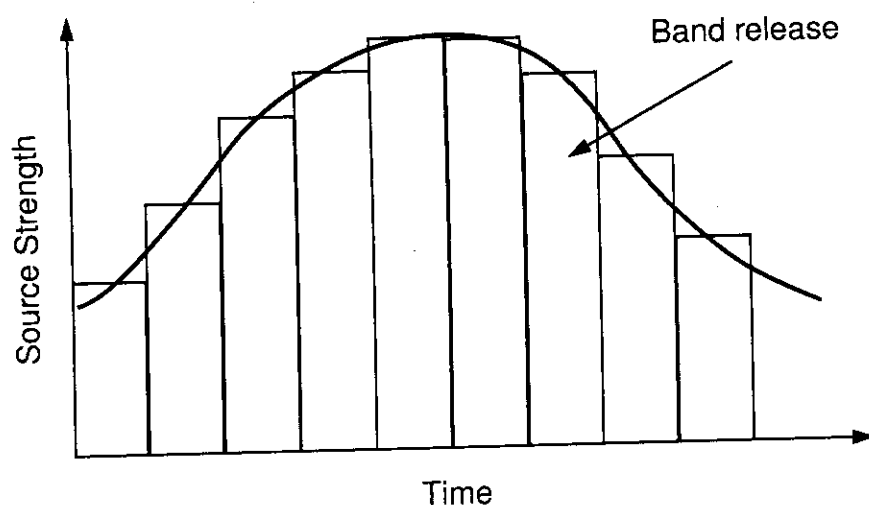


図-6 ポイントソースからの核種放出の計算法

- K_i^G : 核種 i の遅延係数 (-)、
 N_i^G : 核種 i の地下水中濃度 (atom/m³)、
 D_x : x 軸方向の分散係数 (m²/s)、
 D_y : y 軸方向の分散係数 (m²/s)、
 D_z : z 軸方向の分散係数 (m²/s)、
 v_z : 地下水流速 (m/s)、
 S_i : 核種 i のソースターム (atom/m³s)、
 α_x : x 方向の分散長 (m)、
 α_y : y 方向の分散長 (m)、
 α_z : z 方向の分散長 (m)。

無限媒体に対して、解くべき初期条件及び境界条件は次式の通りである。

$$N_i^G(x, y, z, 0) = 0 \quad \text{for any } x, y, z, \quad (14)$$

$$N_i^G(\pm\infty, y, z, t) = N_i^G(x, \pm\infty, z, t) = N_i^G(x, y, \pm\infty, t) = 0 \quad (15)$$

式 (12) の崩壊連鎖に関する回帰的な解析解は、Pigford らによって求められている²³⁾。このモデルでは、バンドリリースされる 4 つまでの崩壊連鎖核種に対する解析解が使われている。しかしながら、ポイントソースからの放出 (ソースタームフラックス) は一定ではないので、図-6 に示すように、その放出をいくつかのバンドリリース (このモデルではソースにおける放射性壊変を

考慮しないので、Pigfordらの定義するバンドリリースとは異なる)に分割して表現し、放出の時間変化に対応することとする。

有限の大きさのポイントソースの配列を想定すると、当然のことながら、下流側のポイントソースでは上流側のポイントソースから放射性核種フラックスの影響を受けることになるが、本モデルではその影響を無視することとし、ソース下流域における放射性核種濃度はポイントソースの重ね合わせによって求めることとする。この仮定は、実際の下流側ソースでは上流側のフラックスの影響のため漏洩率が小さくなるので保守的であると考えられることができる。

3.2.2 1次元移流-分散モデル

このモデルは2つの手法で解かれる。すなわち、均質媒体を仮定した場合の解析解と、多層媒体を仮定した場合の数値解である。両者とも移流-分散の他に、多孔質媒体における平衡吸着と崩壊連鎖を考慮している。この場合の支配方程式は式(12)において流れに垂直な方向(xとy方向)の分散を無視した形であり、この方程式の解析解は、式(12)の解析解とよく似たものとなっている²⁴⁾。多層媒体に対する数値解の場合は、陰解法に基づく通常の有限差分法を用いている。

4. 計算条件

4.1 核種インベントリー

軽水炉の使用済核燃料1MTUに相当(ウラン燃料1トン相当)する核種インベントリーについて比較評価を行った。燃焼計算(セル燃焼計算)は、原研熱中性子炉標準設計コードシステムSRAC²⁵⁾及びJENDL-3核データ²⁶⁾を用いて行った。評価対象とする岩石型燃料システムは、ROX燃料の反応度係数を改善するため、PuO₂-安定化ZrO₂-Al₂O₃(ジルコニア型)に20mol%のThO₂(Zr/Th: トリア系燃料)及び10mol%のUO₂(Zr/U: ジルコニア系燃料)をそれぞれ添加したものである²⁷⁾。

表-1に、PWR炉0.18MWd/cellで1000日燃焼させた場合の核種インベントリー(原子数、炉取り出し後1000年経過時点)を示す。なお、今回の評価計算は α 核種に限定した。これは現時点では、MOX及び岩石型使用済核燃料ペレットのクラックデータがないため、安全評価上重要なヨウ素等のガス成分の存在状態が不明なためである。表-1中のW及びRはそれぞれ核兵器級及び原子炉級Puを意味する。

4.2 ソースターム

岩石型燃料では、ほとんどの放射性核種は難溶性の構成マトリックス(ジルコニア及びトリア)に取り込まれるため、放射性核種の漏出はこの構成マトリックスの溶解度に依存し、構成マトリックスの溶解に比例して含まれる核種が浸出することになる(調和溶解モデル:モデル1)。この場合、核種の浸出は岩石燃料ペレット表面で起こると考えるべきであり、比表面積(S/V比)の効果を考慮する必要がある。本解析では、使用済核燃料用キャニスター内には、表面積の合計が71.6 m²となるような岩石燃料ペレット群が存在するものと考え、S/V比を考慮し、岩石型燃料を83756個の球形ペレット(半径0.00825 m)に置き換えて核種の浸出計算を実施した。したがって、1本のキャニスターからの核種漏洩フラックスは、個々の球形ペレットからの核種の浸出フラックスの算術和として計算される。

考慮しないので、Pigfordらの定義するバンドリリースとは異なる)に分割して表現し、放出の時間変化に対応することとする。

有限の大きさのポイントソースの配列を想定すると、当然のことながら、下流側のポイントソースでは上流側のポイントソースから放射性核種フラックスの影響を受けることになるが、本モデルではその影響を無視することとし、ソース下流域における放射性核種濃度はポイントソースの重ね合わせによって求めることとする。この仮定は、実際の下流側ソースでは上流側のフラックスの影響のため漏洩率が小さくなるので保守的であると考えられることができる。

3.2.2 1次元移流-分散モデル

このモデルは2つの手法で解かれる。すなわち、均質媒体を仮定した場合の解析解と、多層媒体を仮定した場合の数値解である。両者とも移流-分散の他に、多孔質媒体における平衡吸着と崩壊連鎖を考慮している。この場合の支配方程式は式(12)において流れに垂直な方向(xとy方向)の分散を無視した形であり、この方程式の解析解は、式(12)の解析解とよく似たものとなっている²⁴⁾。多層媒体に対する数値解の場合は、陰解法に基づく通常有限差分法を用いている。

4. 計算条件

4.1 核種インベントリー

軽水炉の使用済核燃料1MTUに相当(ウラン燃料1トン相当)する核種インベントリーについて比較評価を行った。燃焼計算(セル燃焼計算)は、原研熱中性子炉標準設計コードシステムSRAC²⁵⁾及びJENDL-3核データ²⁶⁾を用いて行った。評価対象とする岩石型燃料システムは、ROX燃料の反応度係数を改善するため、 PuO_2 -安定化 ZrO_2 - Al_2O_3 (ジルコニア型)に20mol%の ThO_2 (Zr/Th:トリア系燃料)及び10mol%の UO_2 (Zr/U:ジルコニア系燃料)をそれぞれ添加したものである²⁷⁾。

表-1に、PWR炉0.18MWd/cellで1000日燃焼させた場合の核種インベントリー(原子数、炉取り出し後1000年経過時点)を示す。なお、今回の評価計算は α 核種に限定した。これは現時点では、MOX及び岩石型使用済核燃料ペレットのクラックデータがないため、安全評価上重要なヨウ素等のガス成分の存在状態が不明なためである。表-1中のW及びRはそれぞれ核兵器級及び原子炉級Puを意味する。

4.2 ソースターム

岩石型燃料では、ほとんどの放射性核種は難溶性の構成マトリックス(ジルコニア及びトリア)に取り込まれるため、放射性核種の漏出はこの構成マトリックスの溶解度に依存し、構成マトリックスの溶解に比例して含まれる核種が浸出することになる(調和溶解モデル:モデル1)。この場合、核種の浸出は岩石燃料ペレット表面で起こると考えるべきであり、比表面積(S/V比)の効果を考慮する必要がある。本解析では、使用済核燃料用キャニスター内には、表面積の合計が71.6 m^2 となるような岩石燃料ペレット群が存在するものと考え、S/V比を考慮し、岩石型燃料を83756個の球形ペレット(半径0.00825m)に置き換えて核種の浸出計算を実施した。したがって、1本のキャニスターからの核種漏洩フラックスは、個々の球形ペレットからの核種の浸出フラックスの算術和として計算される。

表-1 岩石型及びMOX使用済核燃料1MTU当たりの核種インベントリ
(炉取り出し後1000年、原子数 $\times 10^{24}$ /MTU)

nuclide	Zr/U-W	Zr/U-R	Zr/Th-W	Zr/Th-R	MOX-W	MOX-R	UO ₂
Pb-210	4.955E-8	3.544E-7	2.632E-7	5.418E-7	3.855E-8	3.422E-7	4.621E-8
Ra-223	3.847E-16	3.938E-14	4.415E-8	3.999E-8	4.548E-16	2.733E-14	2.385E-15
Ra-226	3.862E-6	2.757E-5	2.034E-5	4.202E-5	3.004E-6	2.662E-5	3.594E-6
Ac-227	2.674E-13	2.736E-11	3.068E-5	2.779E-5	3.161E-13	1.899E-11	1.657E-12
Th-228	1.538E-13	2.166E-13	3.602E-8	3.139E-8	1.128E-12	1.216E-12	3.326E-12
Th-229	8.744E-11	3.649E-9	5.331E-2	4.962E-2	2.112E-10	3.441E-9	5.599E-10
Th-230	1.085E-3	7.643E-3	5.142E-3	1.120E-2	8.421E-4	7.389E-3	9.920E-4
Th-232	2.417E-5	4.110E-5	5.404E+2	4.506E+2	3.727E-5	6.261E-5	2.687E-4
Pa-231	4.025E-10	4.120E-8	4.619E-2	4.183E-2	4.759E-10	2.859E-8	2.495E-9
U-232	5.386E-12	7.587E-12	1.261E-6	1.099E-6	3.952E-11	4.259E-11	1.164E-10
U-233	1.473E-8	8.641E-7	1.276E+1	1.188E+1	2.127E-8	7.945E-7	6.985E-8
U-234	4.427E-1	3.104E+0	1.864E+0	4.350E+0	3.436E-1	3.002E+0	4.026E-1
U-235	8.996E-1	8.911E-1	7.710E-1	6.922E-1	2.883E+0	3.802E+0	1.541E+1
U-236	1.549E+0	2.674E+0	1.308E+0	2.387E+0	2.048E+0	3.787E+0	9.299E+0
U-238	2.161E+2	2.158E+2	6.014E-3	2.202E-2	2.061E+3	2.000E+3	2.097E+3
Np-237	1.039E+1	1.582E+1	9.460E+0	1.477E+1	9.272E+0	1.815E+1	3.861E+0
Np-239	7.261E-7	2.755E-6	7.116E-7	2.762E-6	5.069E-7	2.255E-6	2.432E-7
Pu-238	3.080E-4	1.522E-3	2.935E-4	1.497E-3	2.279E-4	1.552E-3	1.627E-4
Pu-239	2.363E+1	2.267E+1	1.598E+1	1.422E+1	3.325E+1	5.074E+1	1.149E+1
Pu-240	1.341E+1	2.352E+1	1.156E+1	2.126E+1	1.445E+1	3.059E+1	4.397E+0
Pu-241	1.222E-20	1.806E-20	1.113E-20	1.686E-20	1.072E-20	2.043E-20	3.436E-21
Pu-242	3.346E+0	1.189E+1	3.236E+0	1.188E+1	2.692E+0	1.118E+1	1.504E+0
Am-241	2.724E+0	4.145E+0	2.485E+0	3.876E+0	2.379E+0	4.705E+0	7.500E-1
Am-242	1.639E-9	4.438E-9	1.562E-9	4.239E-9	1.149E-9	5.200E-9	1.783E-10
Am-242m	1.369E-4	3.709E-4	1.305E-4	3.543E-4	9.602E-5	4.346E-4	1.489E-5
Am-243	8.312E-1	3.154E+0	8.147E-1	3.163E+0	5.803E-1	2.581E+0	2.784E-1
Cm-242	3.317E-7	8.985E-7	3.160E-7	8.583E-7	2.326E-7	1.053E-6	3.609E-8
Cm-243	1.380E-13	4.813E-13	1.336E-13	4.798E-13	8.021E-14	3.461E-13	2.159E-14
Cm-244	9.233E-18	5.226E-17	9.014E-18	5.280E-17	5.408E-18	3.294E-17	2.420E-18
Cm-245	3.447E-2	2.918E-1	3.374E-2	2.953E-1	1.708E-2	1.489E-1	5.866E-3
Cm-246	1.796E-3	2.158E-2	1.774E-3	2.239E-2	8.192E-4	7.007E-3	5.052E-4

一方、MOX燃料等の構成マトリックスは UO_2 であり、含まれる α 核種はその核種の溶解度に比例して浸出するものとした（溶解限度モデル：モデル2）。この場合、廃棄体内部（緩衝材内側領域、キャニスター内部）では、至るところで、間隙水中における核種濃度はその核種の溶解度になっているものと考えられるので、岩石型燃料の場合と異なり、キャニスター全体を1つの廃棄体と考え、緩衝材内側で核種濃度は溶解度、緩衝材外側で核種濃度は0の境界条件で核種漏洩量を評価することとする。

金属キャニスター及び燃料被覆管等の寿命は保守的に1000年を仮定し、1000年以降、これらの金属容器等は消滅しているものとする。緩衝材（圧縮ベントナイト）については、KBS-3を参考にその厚さを0.35 m、間隙率を0.3とした。また、緩衝材間隙水中における核種の拡散係数は、全ての核種に対して $10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ を仮定した。

4.3 地球化学的条件

深地層中の地下水は、酸素濃度が低いので、特別の電気化学的条件すなわち還元雰囲気にあると考えられる。放射性核種の溶解度及び吸着特性を決定する化学的雰囲気は、サイトの特性に大きく依存している。サイト特性を反映させた溶解度等を求めるには、通常EQ3/6²⁸⁾あるいはPHREEQE²⁹⁾のような地球化学計算コードが使用される。本解析では、このような状況を考慮して、SKI³⁰⁾、SKB³¹⁾及びPSI³²⁾の報告書から保守的な地球化学データを引用することとする。評価に用いた元素の溶解度及び分配係数を表-2に示す。岩石型燃料構成マトリックスの主成分であるジルコニア ZrO_2 の溶解度に関しては、Degueldreらの研究によれば³³⁾、pH3から9の中性領域では 10^{-10} mol/l 以下であると推定されているので、本解析では構成マトリックスの溶解度として 10^{-10} mol/l を仮定した。

さらに評価では、花崗岩均質岩体は還元雰囲気に、亀裂帯は生態圏と接続しているため酸化雰

表-2 本解析で用いた核種の溶解度及び分配係数

元素	溶解度 (mol/l)	分配係数(m^3/kg) (保守的)		
		緩衝材 (還元雰囲気)	均質岩体 (還元雰囲気)	亀裂帯 (酸化雰囲気)
Pa	-	-	0.01	0.001
Th	2E-8	0.002	0.01	0.01
U	1E-5	0.1	0.01	0.002
Np	4E-9	0.1	0.1	0.001
Pu	1E-5	0.1	0.5	1
Am	1E-5	0.25	0.5	0.5

表-3 想定した緩衝材及び花崗岩の空隙率及び密度

material/rock	porosity (-)	density (kg/m ³)
Buffer	0.3	1500
Granite (homogeneous)	0.03	2300
Granite (fractured zone)	0.1	2000

囲気にあるものと仮定した。遅延係数を算出するために用いた密度及び空隙率のデータを表-3に示す。以上の値は他の評価 (SKI, SKB など) と比較すると相対的に保守的な値となっている。

4.4 水理学的条件

使用済核燃料の処分場は、図-7に示すように、亀裂帯の存在しない安定な花崗岩均質岩体中に建設されるものと考えられる。したがって、処分場及びその近傍における核種移行は、近似的に1次元移流-3次元分散移行モデルで表現できる。均質岩体を移行した核種は、亀裂帯を通過して人間の生活環境 (生態圏) に移行するものと想定される。したがって、この亀裂帯における核種移行は、保守的には1次元移流-分散モデルで表現することができる。

基本的に、処分場から生態圏への移行経路は、特定のサイトの特性調査に基づいた詳細な地下水解析によって決定されなければならない。しかしながら、現時点では我が国において、そのような深地層処分場に特有でかつ詳細なデータは得られていないので、本解析では、我が国における典型的な水理学的条件を想定して、解析を実施することとした。地下水流速 v (実流速、m/y) は、次式で与えられる。

$$v = \frac{k}{\phi} I \quad (16)$$

ここで、

k : 透水係数 (m/s)

ϕ : 空隙率 (-)

I : 動水勾配 (-)

我が国の花崗岩層の透水係数及び空隙率のデータを表-4に示す³⁴⁾。動水勾配は当然のことながらサイトの水理学的条件に依存するが、ここではSKI³⁰⁾の評価で仮定された0.005を考慮して、0.01と仮定した。これは、処分場は動水勾配の低いところに建設されることを想定したものである。その結果、地下水流速は、均質岩体で0.00006から0.1 m/y、亀裂帯で0.1から3 m/yという値が得られる。解析では、保守的かつ丸めた地下水流速値として、均質岩体0.1 m/y、亀裂帯1 m/yを

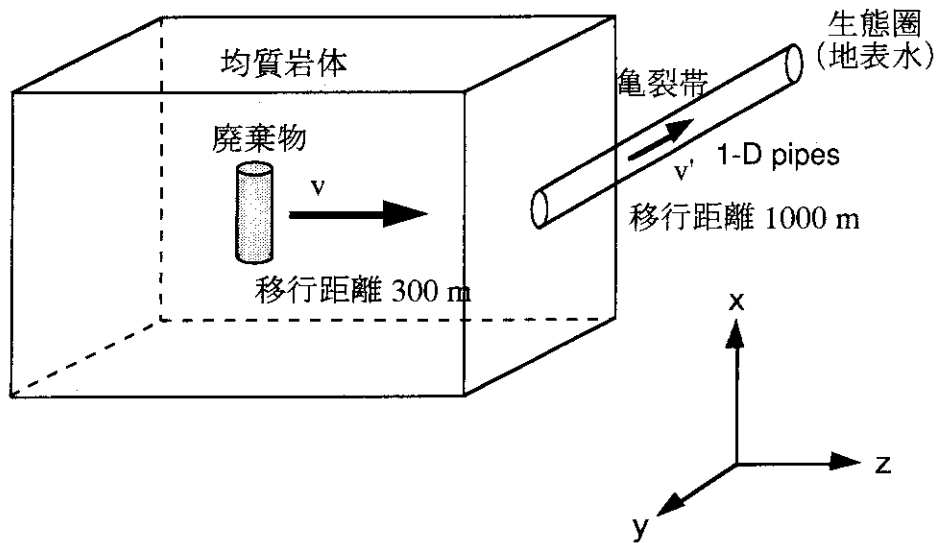


図-7 想定した処分条件（花崗岩均質岩体）

表-4 日本の花崗岩の透水係数及び空隙率

rock type	hydraulic conductivity (m/s)	porosity (-)
fractured zone	1E-7 ~ 1E-6	0.1 ~ 0.25
rock mass	1E-12 ~ 1E-9	0.003 ~ 0.05

仮定した。また、均質岩体の移行距離としては300 mを、亀裂帯の移行距離としては、1000 mを仮定した。

4.5 生態圏条件

処分場を漏出した放射性核種は、天然バリアである地層を移行し、隣接した帯水層に達し、その汚染された帯水層の地下水は飲料水として人間に摂取されるものと考え、その個人線量を算出する。帯水層に移行する際に、汚染地下水は希釈係数 10^{-3} で希釈されると仮定した。この値は、均質岩体中のダルシー流速 0.0003 m/y と我が国の平均降雨浸透率 0.001 m/day ³⁵⁾ との比から算出した。また、他の被ばく経路は、今回の評価では簡単化のため無視した。その他の解析条件としては、以下を仮定した。

○井戸水摂取量：年間一人当たり 0.73 m^3

○線量換算係数：ICRP Pub. 26 ³⁶⁾、30 ³⁷⁾ 及び 48 ³⁸⁾ に基づく

5. 解析結果

5.1 4n0 系列核種による被ばく線量

図-8a及び8bに、それぞれMOX及び岩石型使用済核燃料の直接処分に起因する個人内部被ばく線量(Sv)の経時変化を示す。MOX燃料の他に参考のため、通常の UO_2 燃料の被ばく線量もあわせて図-8aに示す。この系列で最大の被ばく線量を与えるのは、MOX及び岩石型燃料とも $U236$ であり、その値はそれぞれ $4.5 \times 10^{-10} Sv$ (MOX-原子炉級)、 $1.3 \times 10^{-12} Sv$ (ジルコニア系及びトリア系-原子炉級)となっており、岩石型燃料はMOX燃料と比べ、2桁以上低い線量となっている。岩石型燃料の構成マトリックスの溶解度が UO_2 の溶解度に比べ5桁低いにもかかわらず、被ばく線量の差が2桁程度になっているのは、岩石型燃料では使用済核燃料を83756個の球形ペレットに分けて浸出フラックスを計算しているためである。

MOX燃料では、核兵器級-Puと通常の UO_2 燃料とでほぼ同じ線量となっており、原子炉級-Puによる線量の約半分の値である。岩石型燃料では、ジルコニア系(Zr/U)で、 $U236$ の崩壊に伴い $Th232$ による線量が増加しているのがわかる。それに対して、トリア系(Zr/Th)では、 $Th232$ による線量は、構成マトリックスの溶解度に律速されて漏出期間中ほぼ一定となっている。また、核兵器級-Puによる線量は、トリア系における $Th232$ を除いて、原子炉級-Puによるものの半分以下になっていることがわかる。

5.2 4n1 系列核種による被ばく線量

図-9a及び9bに、それぞれMOX及び岩石型使用済核燃料の直接処分に起因する個人内部被ばく線量(Sv)の経時変化を示す。この系列で最大の被ばく線量を与えるのは、MOX及び岩石型燃料とも $Th229$ であり、その値はそれぞれ $6.0 \times 10^{-10} Sv$ (MOX-原子炉級)、 $1.9 \times 10^{-12} Sv$ (ジルコニア系及びトリア系-原子炉級)となっており、ここでも岩石型燃料はMOX燃料と比べ、2桁以上低い線量となっている。

MOX燃料では、被ばく線量は、原子炉級-Pu、核兵器級-Pu、通常の UO_2 燃料の順位であり、使用済燃料中に最初から含まれていた $U233$ の移行・崩壊によって生成された $Th229$ により、被ばく線量の最初のピークが生じている。一方、2番目のなだらかなピークは、 $Np237$ の移行・崩壊によって生じたものである。岩石型燃料では、核種の浸出が構成マトリックスの溶解度に律速されるため、MOX燃料のような顕著な2重ピークは見られない。トリア系(Zr/Th)では、 $Th232$ から燃焼過程で生成される $U233$ の初期インベントリーが多いため、小さな2重ピークが見られる。また、核兵器級-Puによる線量は、ここでも原子炉級-Puによるものの半分以下になっていることがわかる。

5.3 4n2 系列核種による被ばく線量

図-10a、10b、10c及び10dに、それぞれMOX及び岩石型使用済核燃料の直接処分に起因する $U238$ - $U234$ 及び $Th230$ - $Ra226$ による個人内部被ばく線量(Sv)の経時変化を示す。この系列で最大の被ばく線量を与えるのは、MOX及び岩石型燃料とも $Ra226$ であり、その値はそれぞれ $9.7 \times 10^{-11} Sv$ (MOX-原子炉級)、 $4.7 \times 10^{-13} Sv$ (トリア系-原子炉級)となっており、ここでも岩石型燃料はMOX燃料と比べ、2桁以上低い線量となっている。

MOX燃料では、核兵器級-Puと通常の UO_2 燃料とでほぼ同じ線量となっている。MOX原子炉

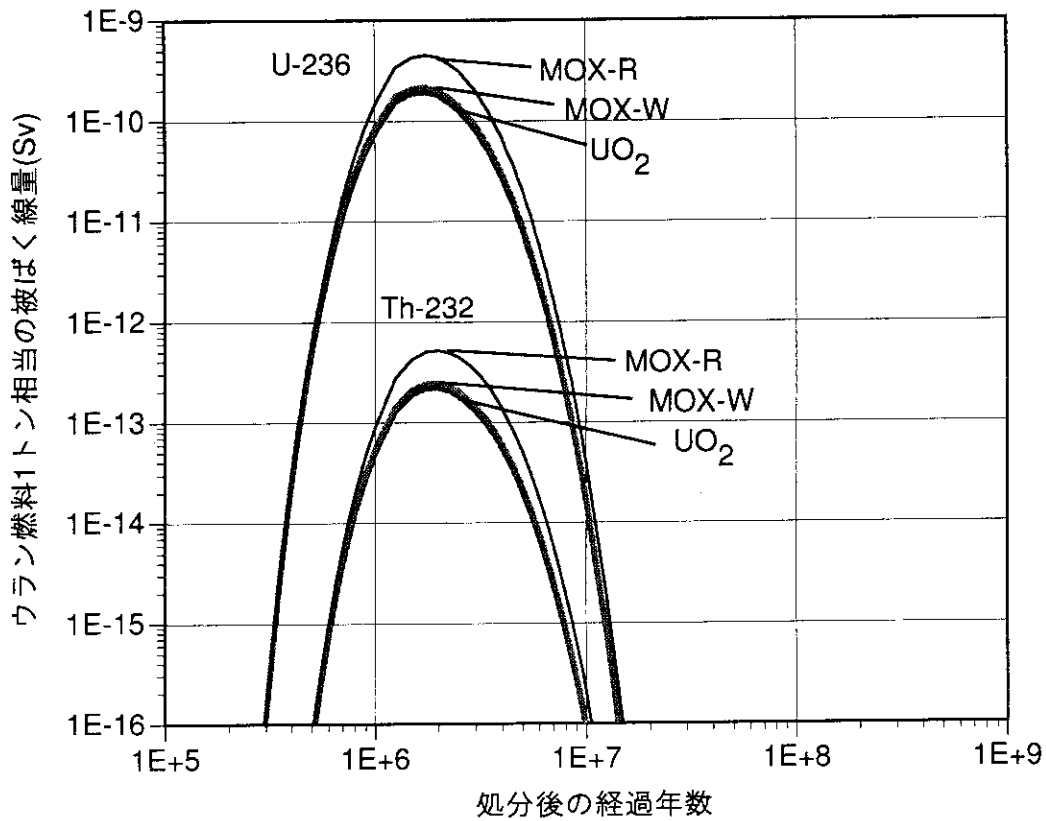


図-8a 4n0系列による個人被ばく線量 (MOX及びUO₂)

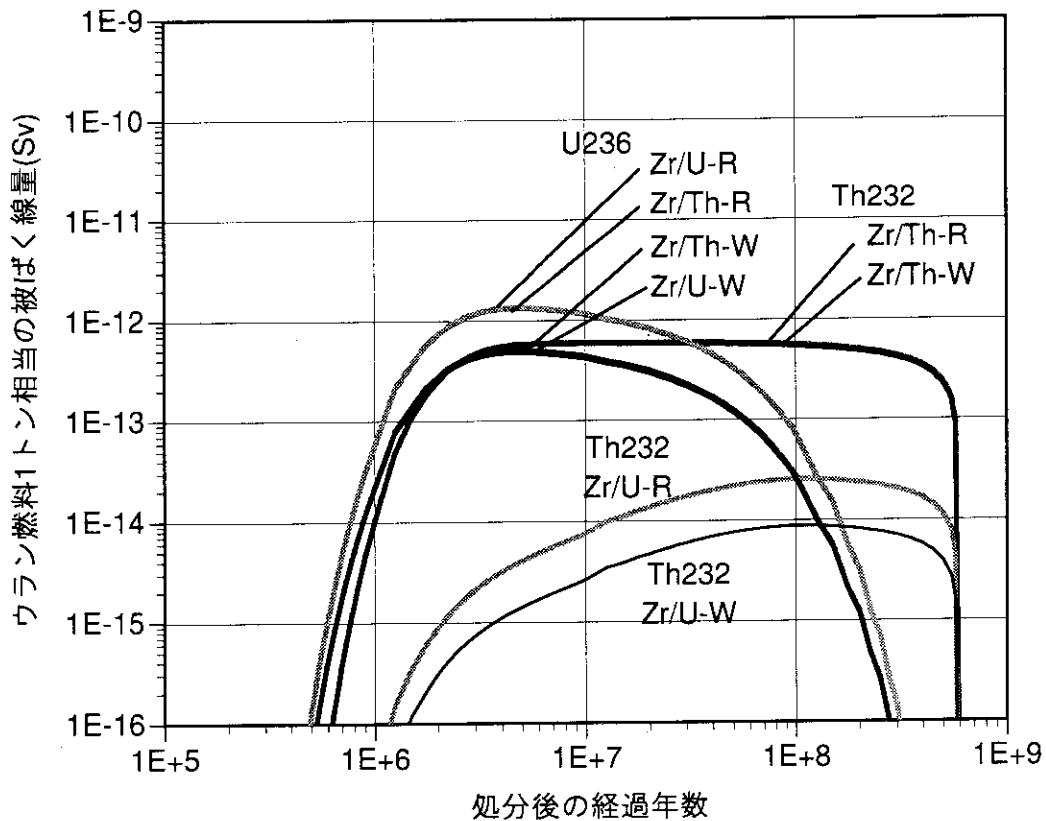


図-8b 4n0系列による個人被ばく線量 (岩石型燃料)

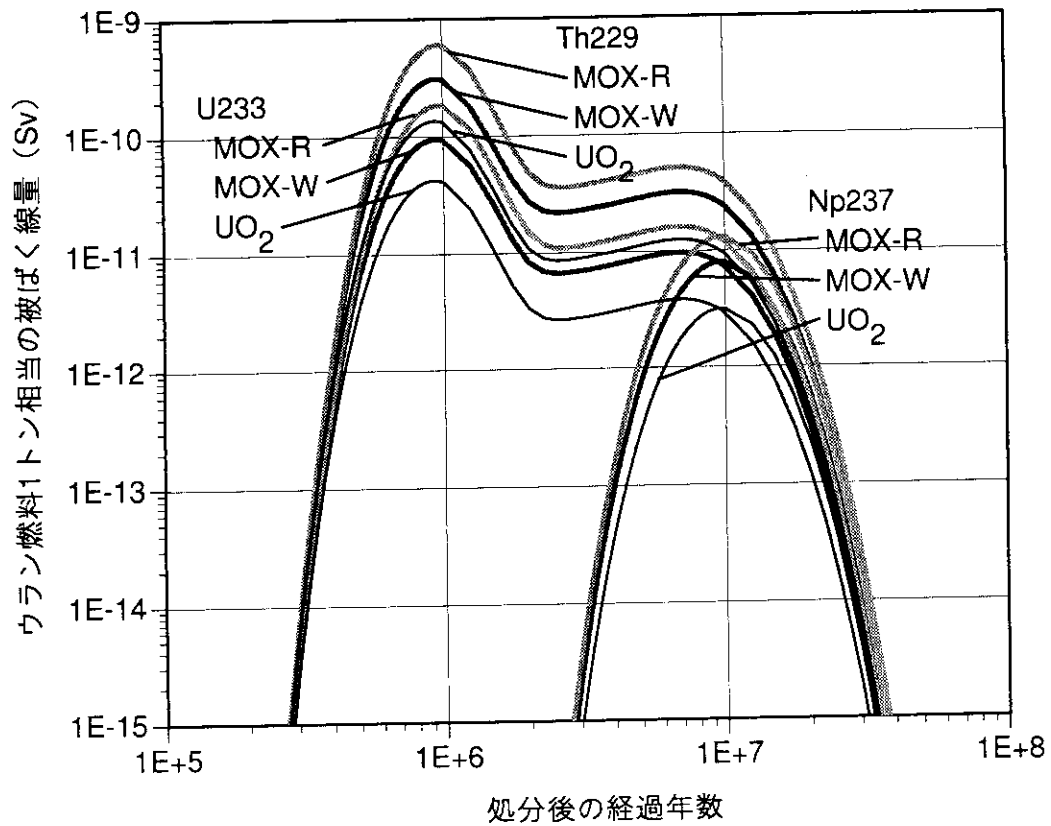


図-9a 4n1 系列による個人被ばく線量 (MOX 及び UO_2)

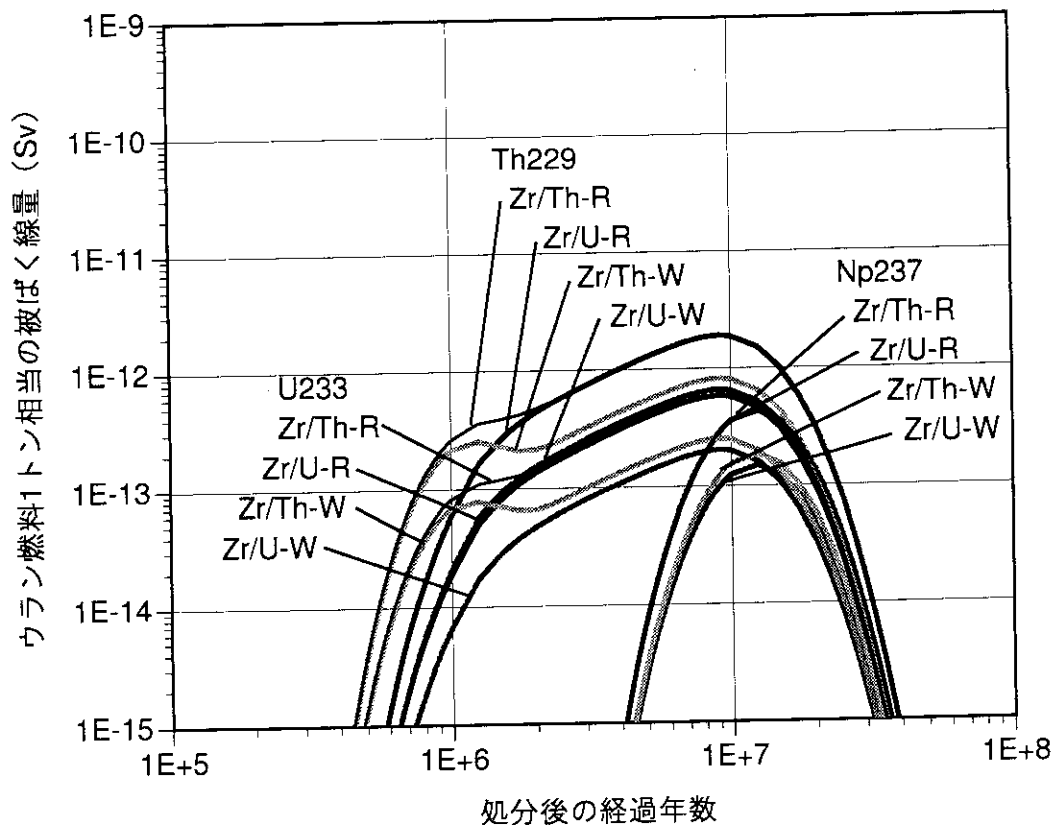


図-9b 4n1 系列による個人被ばく線量 (岩石型燃料)

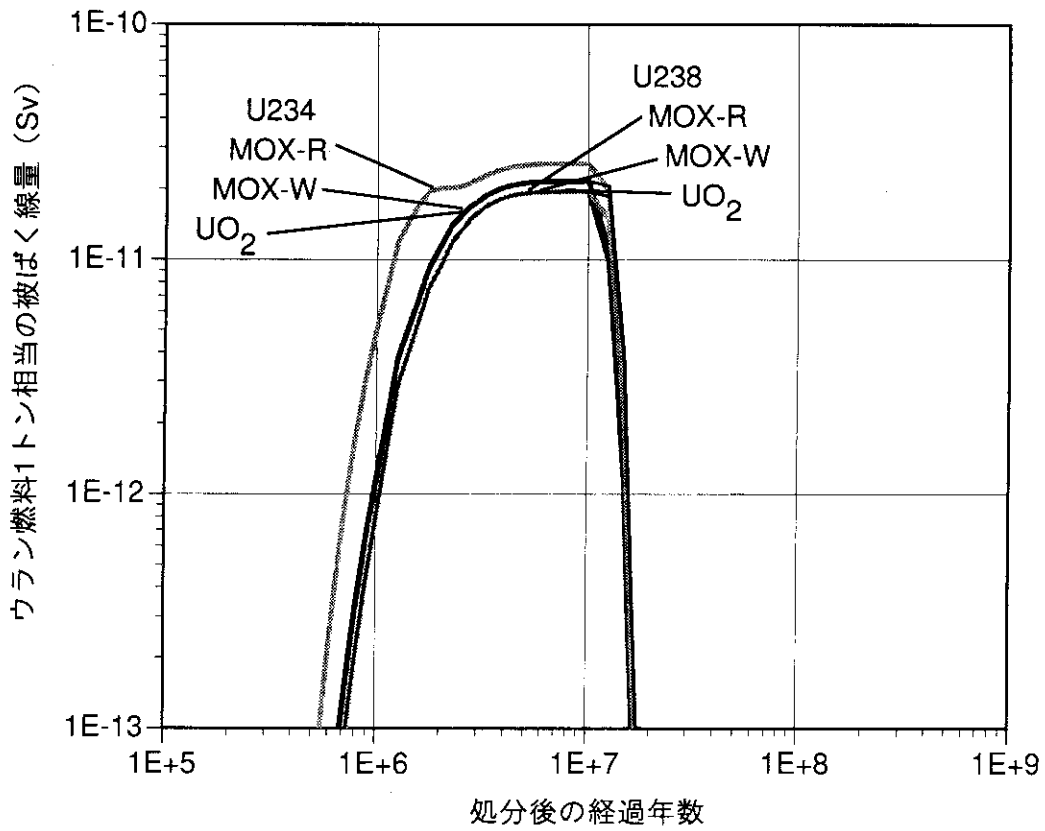


図-10a 4n2 系列による個人被ばく線量 (MOX 及び UO₂)

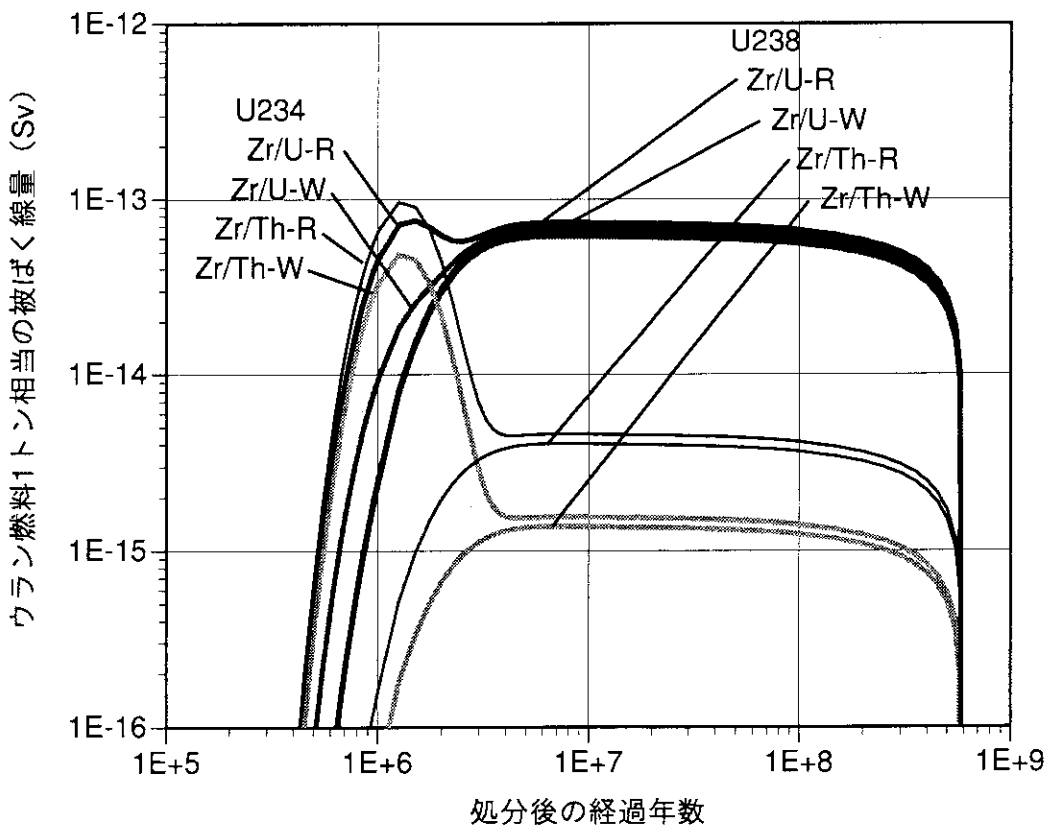


図-10b 4n2 系列による個人被ばく線量 (岩石型燃料)

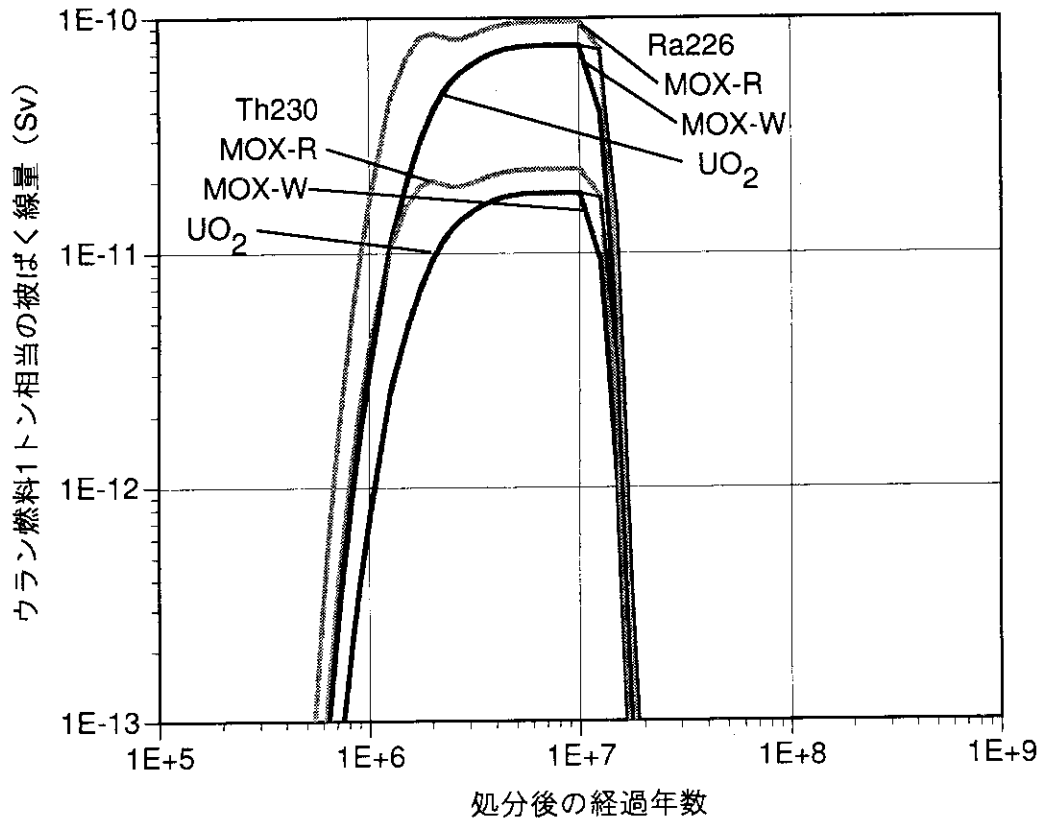


図 10c 4n2 系列による個人被ばく線量 (MOX 及び UO₂)

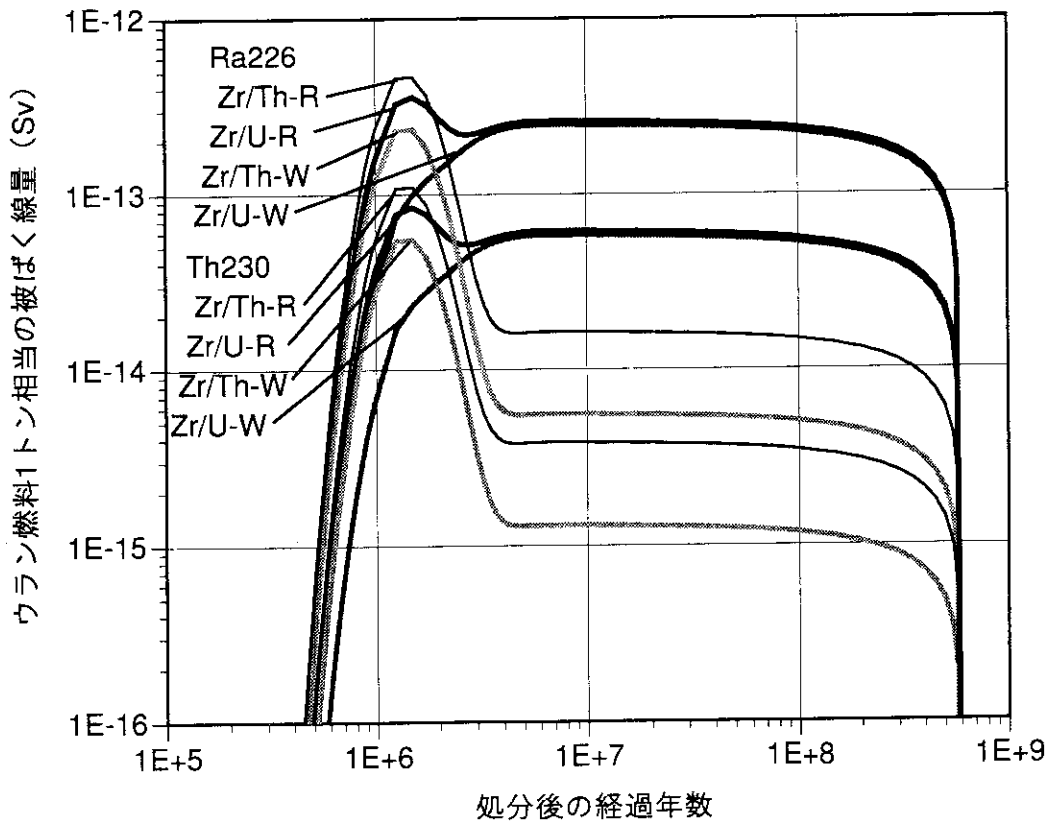


図 -10d 4n2 系列による個人被ばく線量 (岩石型燃料)

級-Puの場合、使用済燃料中に最初から含まれていたU234のため、U238の娘核種では、小さな2重ピークが生じている。岩石型燃料では、トリア系(Zr/Th)燃料において、U238の初期インベントリーが少ないため、U234以下の娘核種で顕著なピークが見られ、被ばく線量は同じ原子炉級でもジルコニア系よりも若干高くなっている。また、核兵器級-Puによる線量は、ここでも原子炉級-Puによるものより低くなっていることがわかる。

5.4 4n3系列核種による被ばく線量

図-11a及び11bに、それぞれMOX及び岩石型使用済核燃料の直接処分に起因する個人内部被ばく線量(Sv)の経時変化を示す。この系列で最大の被ばく線量を与えるのは、MOX及び岩石型燃料ともPa231であり、その値はそれぞれ 1.4×10^{-9} Sv(MOX-原子炉級)、 2.4×10^{-12} Sv(ジルコニア系-原子炉級)となっており、これは4つの崩壊系列中最大の線量寄与である。また、ここでも岩石型燃料はMOX燃料と比べ、2桁以上低い線量となっている。

MOX燃料では、核兵器級-Puと通常の UO_2 燃料とでほぼ同じ線量となっている。Pa231の被ばく線量は、U235の天然バリアにおける移行挙動に支配されるため、U235と同形の単純な曲線となっている(放射平衡)。岩石型燃料でも同様に、Pa231の被ばく線量曲線は、U235と放射平衡の関係になっている。この系列では、4n2系列とは逆に、ジルコニア系(Zr/U)燃料の方がトリア系(Zr/Th)燃料よりもPu240の初期インベントリーが多いため、被ばく線量が若干高くなっている。またここでも、核兵器級-Puによる線量は、原子炉級-Puよりも低くなっている。

6. まとめ

我が国で一般的に想定される花崗岩岩体を対象に、保守的な地球化学的条件を設定し、地下水移行シナリオ(基本シナリオ)に基づいて、MOX及び岩石型使用済核燃料直接処分の比較評価を行った。その結果、以下のことが明らかとなった。

- ・岩石型燃料直接処分に起因する被ばく線量は、MOX燃料よりも、4n0から4n3の全ての崩壊系列において2桁以上低く、その環境安全性における優位性を確認することができた。
- ・4つの崩壊系列のうち、最大の線量寄与を与える核種は、両者ともPa231であり、その値はウラン燃料1トン相当あたりそれぞれ 1.4×10^{-9} Sv(MOX-原子炉級)、 2.4×10^{-12} Sv(ジルコニア系-原子炉級)であった(実際に想定される処分量はウラン燃料で $10^3 \sim 10^4$ トン規模であり、この場合、MOX燃料では低レベル廃棄物浅地層処分の場合の目標線量 10^{-5} Svを上回ることも考えられる)。
- ・核兵器級及び原子炉級-Puの比較では、両者とも原子炉級-PuのTRU核種のインベントリー量が増加するため、核兵器級-Puの方が被ばく線量は低くなる。
- ・ジルコニア系(Zr/U)及びトリア系(Zr/Th)燃料の比較では、Pu240の初期インベントリーの差のため、トリア系燃料の方が若干被ばく線量が低く有利である。

今後は、試験研究成果に基づきFP核種による被ばく線量を評価するとともに、評価に用いた各種パラメータ(構成マトリックス及び核種の溶解度、移行距離、地下水流速など)の被ばく線量に対する感度特性を明らかにする予定である。

級-Puの場合、使用済燃料中に最初から含まれていたU234のため、U238の娘核種では、小さな2重ピークが生じている。岩石型燃料では、トリア系(Zr/Th)燃料において、U238の初期インベントリーが少ないため、U234以下の娘核種で顕著なピークが見られ、被ばく線量は同じ原子炉級でもジルコニア系よりも若干高くなっている。また、核兵器級-Puによる線量は、ここでも原子炉級-Puによるものより低くなっていることがわかる。

5.4 4n3系列核種による被ばく線量

図-11a及び11bに、それぞれMOX及び岩石型使用済核燃料の直接処分に起因する個人内部被ばく線量(Sv)の経時変化を示す。この系列で最大の被ばく線量を与えるのは、MOX及び岩石型燃料ともPa231であり、その値はそれぞれ 1.4×10^{-9} Sv(MOX-原子炉級)、 2.4×10^{-12} Sv(ジルコニア系-原子炉級)となっており、これは4つの崩壊系列中最大の線量寄与である。また、ここでも岩石型燃料はMOX燃料と比べ、2桁以上低い線量となっている。

MOX燃料では、核兵器級-Puと通常の UO_2 燃料とでほぼ同じ線量となっている。Pa231の被ばく線量は、U235の天然バリアにおける移行挙動に支配されるため、U235と同形の単純な曲線となっている(放射平衡)。岩石型燃料でも同様に、Pa231の被ばく線量曲線は、U235と放射平衡の関係になっている。この系列では、4n2系列とは逆に、ジルコニア系(Zr/U)燃料の方がトリア系(Zr/Th)燃料よりもPu240の初期インベントリーが多いため、被ばく線量が若干高くなっている。またここでも、核兵器級-Puによる線量は、原子炉級-Puよりも低くなっている。

6. まとめ

我が国で一般的に想定される花崗岩岩体を対象に、保守的な地球化学的条件を設定し、地下水移行シナリオ(基本シナリオ)に基づいて、MOX及び岩石型使用済核燃料直接処分の比較評価を行った。その結果、以下のことが明らかとなった。

- ・岩石型燃料直接処分に起因する被ばく線量は、MOX燃料よりも、4n0から4n3の全ての崩壊系列において2桁以上低く、その環境安全性における優位性を確認することができた。
- ・4つの崩壊系列のうち、最大の線量寄与を与える核種は、両者ともPa231であり、その値はウラン燃料1トン相当あたりそれぞれ 1.4×10^{-9} Sv(MOX-原子炉級)、 2.4×10^{-12} Sv(ジルコニア系-原子炉級)であった(実際に想定される処分量はウラン燃料で $10^3 \sim 10^4$ トン規模であり、この場合、MOX燃料では低レベル廃棄物浅地層処分の場合の目標線量 10^{-5} Svを上回ることも考えられる)。
- ・核兵器級及び原子炉級-Puの比較では、両者とも原子炉級-PuのTRU核種のインベントリー量が増加するため、核兵器級-Puの方が被ばく線量は低くなる。
- ・ジルコニア系(Zr/U)及びトリア系(Zr/Th)燃料の比較では、Pu240の初期インベントリーの差のため、トリア系燃料の方が若干被ばく線量が低く有利である。

今後は、試験研究成果に基づきFP核種による被ばく線量を評価するとともに、評価に用いた各種パラメータ(構成マトリックス及び核種の溶解度、移行距離、地下水流速など)の被ばく線量に対する感度特性を明らかにする予定である。

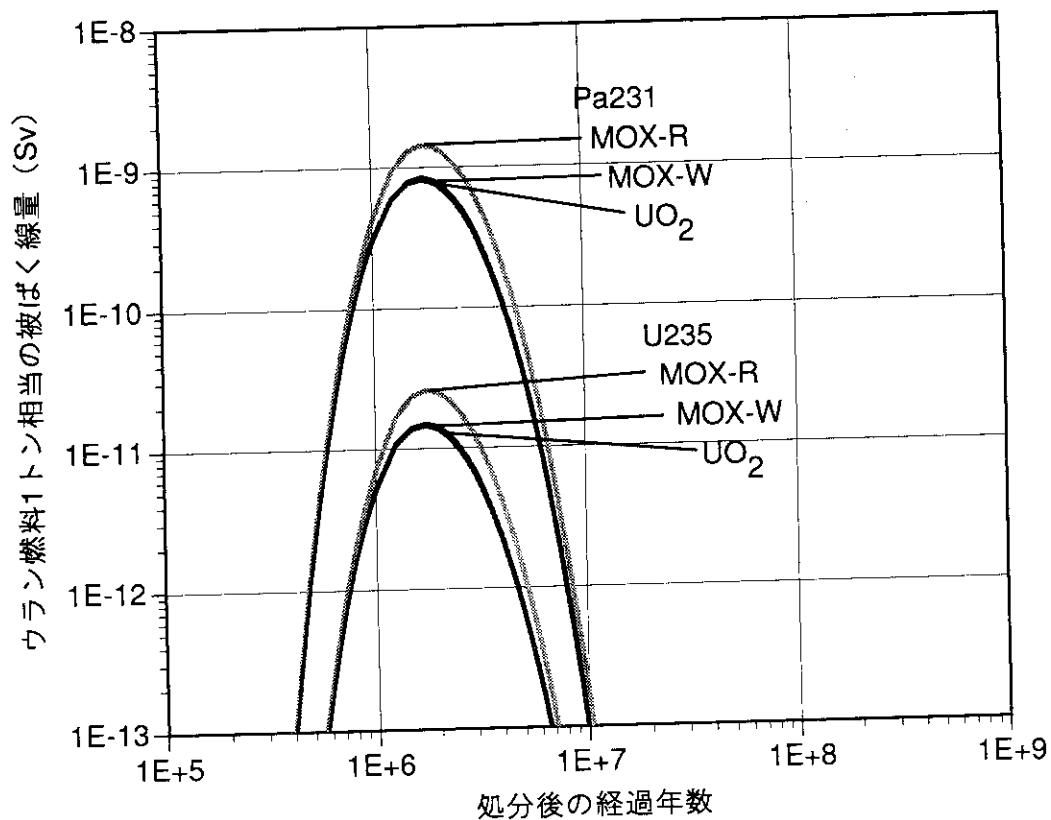


図-11a 4n3系列による個人被ばく線量 (MOX及びUO₂)

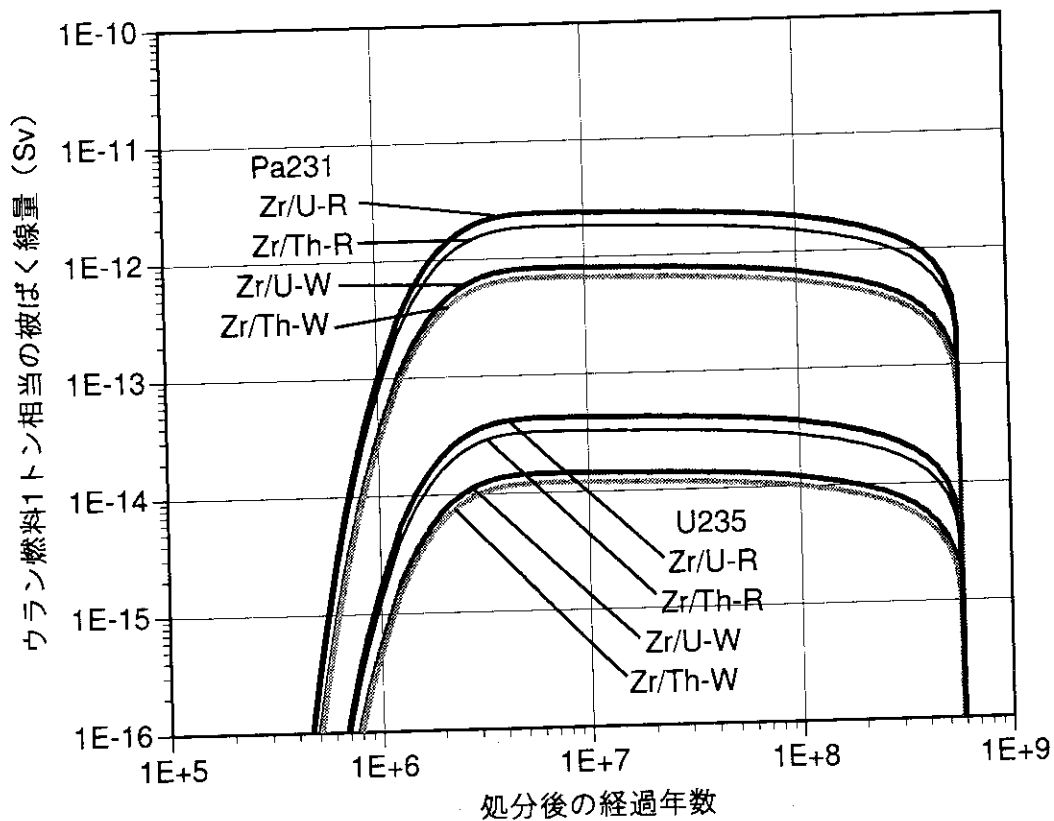


図-11b 4n3系列による個人被ばく線量 (岩石型燃料)

参考文献

- 1) IAEA Bull., 35, 3(1993).
- 2) Oi, N. : IAEA Activities on The Safe Handling and Disposition of Plutonium, "Proc. of the Fifth International Conf. on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation", ICEM'95, Vol.1, p489, (1995).
- 3) Albright, D. et al. "World Inventory of Plutonium and Highly Enriched Uranium, 1992", SIPRI, Oxford University Press, (1993).
- 4) USDOE, "Openness Press Conference, Fact Sheets", 21 (1993).
- 5) USDOE, "U. S. Department of Energy Plutonium Disposition Study", Technical Review Committee Report, July, (1993).
- 6) National Academy of Science, "Management and Disposition of Excess Weapons Plutonium", National Academy Press, Washington, D. C., (1995).
- 7) Willett, L. W. : Disposition of Excess Plutonium, Trans. Am. Nucl. Soc., 69 88 (1993).
- 8) von Hippel, F. and Feiverson, H. : Disposition Options for Separated Plutonium, Trans. Am. Nucl. Soc., 69 89 (1993).
- 9) Walter, C. E. and Omberg, R. P. "Proc. Int. Conf. and Technology Exhibition Future Nuclear Systems :Emerging Fuel Cycles and Waste Disposal Options (GLOBAL '93)", Seattle, Washington, Sept. 12-17, 1993, Am. Nucl. Soc. 846-858 (1993).
- 10) Alberstein, D. et al. : The MHTGR-Maximum Plutonium Destruction Without Recycle, Trans. Am. Nucl. Soc. 69 94-95 (1993).
- 11) Biswas, D. et al. : Characteristics of a 100% MOX-fueled PWR Design for Weapons Plutonium Disposition, Trans. Am. Nucl. Soc. 69 95-96 (1993).
- 12) Muromura, T. et al. : Plutonium Rock-like Fuel Integrated R&D (PROFIT), Unconventional options for plutonium disposition, IAEA-TECDOC-840, p 253, (1995).
- 13) 原子力委員会、「原子力の研究、開発及び利用に関する長期計画」、(1994).
- 14) USDOE, "Environmental Assessment, Reference Repository Location, Yucca Mountain Site, Nevada Vol. II, (1986).
- 15) Goodwin, B. W. et al. : Postclosure Assessment of a Reference System for Disposal of Canada's Nuclear Fuel Waste, AECL-10717, COG-93-7, (1993).
- 16) SKB/KBS, Swedish Nuclear Fuel Supply Co. : KBS-3, "Final Storage of Spent Nuclear Fuel", (1983).
- 17) CEC, "PAGIS : Performance Assessment of Geological Isolation Systems for Radioactive Waste, Summary", EUR 11775 EN, 145-189 (1988).
- 18) 動力炉・核燃料開発事業団、高レベル放射性廃棄物地層処分開発の技術報告書 - 平成3年度 -, (1992).
- 19) Kimura, H., et al. : A Generic Safety Assessment Code for Geologic Disposal of Radioactive Waste : GSRW Computer Code User's Manual, JAERI-M-92-161, (1992).
- 20) Croff, A. G., : User's Manual for the ORIGEN2 Computer Code, ORNL/TM-7175, ORNL, (1980).
- 21) Chambre', P. L., et al. : Analytical Performance Models for Geologic Repositories, LBL-14842, UC-70, (1982).
- 22) Pigford, T.H. and Chambre', P. L., : Near-field Mass Transfer in Geologic Disposal Systems : A

- Review, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 112, pp125-141, (1988).
- 23) Pigford, T. H., et al., : Migration of Radionuclides Through Sorbing Media, Analytical Solutions II, LBL-11616, UC-70, (1980).
 - 24) Harada, M., et al., : Migration of Radionuclides Through Sorbing Media, Analytical Solutions I, LBL-10500, UC-70, (1980).
 - 25) Tsuchihashi, K. et al. : Revised SRAC Code System, JAERI 1302, (1986).
 - 26) Shibata, K. et al. : Japanese Evaluated Nuclear Data Library, Version-3 JENDL-3, JAERI 1319, (1990).
 - 27) 秋江拓志他、私信 (to be published in JAERI-Research).
 - 28) Wolery, T. J. : Calculation of Chemical Equilibrium between Aqueous Solution and Minerals : EQ3/6 Software Package, UCRL-52658 (1979).
 - 29) Parkhurst, D. L. et al. : PHREEQE - A Computer Program for Geochemical Calculations, U. S. Geol. Surv. Water-Resour. Invest. 80-96, NTIS PB 81-167801 (1980).
 - 30) Andersson, K. : SKI Project-90, "Chemical Data", SKI Technical Report 91:21 (1991).
 - 31) SKB, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. : SKB91, "Final disposal of spent nuclear fuel. Importance of the bedrock for safety", SKB Technical Report TR 92-20 (1992).
 - 32) Eikenberg, J. : On the Problem of Silica Solubility at High pH, PSI-Bericht Nr. 74 (1990).
 - 33) Degueldre, C. et al. : Study of plutonium incineration in LWRs employing an uranium free fuel 'Inert matrix - Burnable poison - Actinide' approach, PSI, TM-43-95-12 (1995).
 - 34) 佐藤、渡辺 : 岩盤の透水性に与える種々の Crack 性状の影響、埼玉大、地盤水理年報、Vol. 4, pp. 104~118 (1978).
 - 35) 地下水ハンドブック、建設産業調査会、(1979).
 - 36) ICRP : Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, ICRP Pub. 26, Pergamon Press, (1977).
 - 37) ICRP : Limits for Intakes of Radionuclides by Workers, ICRP Pub. 30, Pergamon Press, (1982).
 - 38) ICRP : The Metabolism of Plutonium and Related Elements, ICRP Pub. 48, Pergamon Press, (1986).