

# 人工バリアからの核種移行率に対する オーバーパックスの腐食膨張と緩衝材の 流出に関する感度解析

(研究報告)

1999年11月

核燃料サイクル開発機構  
東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転写する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1194 茨城県那珂郡東海村大字村松4-33  
核燃料サイクル開発機構 東海事業所  
運営管理部 技術情報室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :  
Technical Information Section,  
Administration Division,  
Tokai Works,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-33 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1194  
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)  
1999

# 人工バリアからの核種移行率に対するオーバーパックの腐食膨張と 緩衝材の流出に関する感度解析

(研究報告)

吉田隆史<sup>1)</sup>, 石原義尚<sup>1)</sup>, 仲島邦彦<sup>2)</sup>  
石黒勝彦<sup>1)</sup>, 大井貴夫<sup>1)</sup>

## 要 旨

地層処分システムの性能評価において、人工バリア中の核種移行に影響を及ぼす現象として、オーバーパックの腐食膨張および緩衝材の流出が挙げられている。このため、この二つの現象によって影響を受ける緩衝材パラメータ（緩衝材厚さ、空隙率、拡散係数）を変化させて人工バリア中核種移行の感度解析を行い、人工バリアから周辺岩盤への核種移行率の変動について調べた。

オーバーパックの腐食膨張と緩衝材の流出を考慮し、緩衝材厚さ、空隙率、拡散係数を変化させて解析を行った結果から、この二つの現象は半減期が1万年未満の核種の移行率に対して大きな影響を及ぼすことが分かり、オーバーパックの腐食膨張はこれらの核種の最大移行率を減少させ、緩衝材の流出は逆に最大移行率を増加させることが示された。しかしながら、半減期が100万年を超える核種（例えば、Cs-135やNp-237など）の移行率については、オーバーパックの腐食膨張および緩衝材の流出による緩衝材パラメータの変化が最大移行率に及ぼす影響はほとんどないことが示された。

---

1) 東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部

2) 原子力システム株式会社

## **Scoping Calculation of Nuclides Migration in Engineering Barrier System for Effect of Volume Expansion due to Overpack Corrosion and Intrusion of the Buffer Material**

Takashi, Yoshita<sup>1)</sup>, Yoshinao Ishihara<sup>1)</sup>, Kunihiko Nakajima<sup>2)</sup>  
Katsuhiko Ishiguro<sup>1)</sup>, Takao Ohi<sup>1)</sup>

### **Abstract**

Corrosion of the carbon steel overpack leads to a volume expansion since the specific gravity of corrosion products is smaller than carbon steel. The buffer material is compressed due to the corrosive swelling, reducing its thickness and porosity. On the other hand, Buffer material may be extruded into fractures of the surrounding rock and this may lead to a deterioration of the planned functions of the buffer, including retardation of nuclides migration and colloid filtration. In this study, the sensitivity analyses for the effect of volume expansion and intrusion of the buffer material on nuclide migration in the engineering barrier system are carried out.

The sensitivity analyses were performed on the decrease in the thickness of the buffer material in the radial direction caused by the corrosive swelling, and the change in the porosity and dry density of the buffer caused by both compaction due to corrosive swelling and intrusion of buffer material. As results, it was found the maximum release rates of relatively shorter half-life nuclides from the outside of the buffer material decreased for taking into account of a volume expansion due to overpack corrosion. On the other hand, the maximum release rates increased when the intrusion of buffer material was also taking into account. It was, however, the maximum release rates of longer half-life nuclides, such as Cs-137 and Np-237, were insensitive to the change of buffer material thickness, and porosity and dry density of buffer.

---

1) Waste Isolation Research Division, Waste Management and Fuel Cycle Research Center, Tokai Works

2) Nuclear Energy System Incorporated.

## 目 次

1. はじめに	1
2. 解析方法	2
2.1 核種移行モデル	2
2.2 データセット	4
2.3 解析ケース	8
3. 解析結果	9
3.1 オーバーパックの腐食膨張	9
3.2 緩衝材の流出	16
3.3 オーバーパックの腐食膨張と緩衝材の流出の複合現象	20
4. まとめ	22
参考文献	23
付録 A 腐食膨張と緩衝材流出に対する緩衝材形状パラメータの変化	24
付録 B ウラン同位体の移行率の変化	28
付録 C 1次元直交座標系の定常解析解	32
付録 D オーバーパック腐食膨張と緩衝材流出を同時の考慮した場合の 人工バリアからの核種移行率の解析結果	39

## 図表目次

表 2-1	緩衝材中の溶解度および分配係数	7
表 2-2	解析ケース一覧	8
図 2-1	人工バリア中の核種移行の概念モデル	2
図 2-2	オーバーパックの腐食膨張現象に関する解析上の取り扱い	3
図 2-3	緩衝材の流出現象に関する解析上の取り扱い	3
図 2-4	オーバーパック腐食膨張と緩衝材流出の複合現象に関する 解析上の取り扱い	4
図 2-5	オーバーパックの腐食膨張に伴う緩衝材幾何形状の変化	5
図 2-6	オーバーパック腐食膨張および緩衝材流出による空隙率の変化	6
図 2-7	オーバーパック腐食膨張および緩衝材流出による 実効拡散係数の変化	7
図 3-1	オーバーパックの腐食膨張に伴う緩衝材厚さの減少による 核種の最大移行率の変動	9
図 3-2	緩衝材厚さの減少に対する定常解析解の変化	11
図 3-3	オーバーパックの腐食膨張に伴う緩衝材厚さと空隙率の 変化による核種の最大移行率の変動	12
図 3-4	緩衝材厚さと空隙率の減少に対する定常解析解の変化	13
図 3-5	オーバーパックの腐食膨張に伴う緩衝材厚さ、空隙率、 拡散係数の変化による核種の最大移行率の変動	13
図 3-6	緩衝材厚さ、空隙率、拡散係数の変化に対する定常解析解の変化	14
図 3-7	オーバーパックの腐食膨張による核種の最大移行率の変動	15
図 3-8	緩衝材の流出に伴う空隙率の増大による核種の最大移行率の変動	16
図 3-9	空隙率の変化に対する定常解析解の変化	17
図 3-10	緩衝材の流出に伴う空隙率と拡散係数の変化による 核種の最大移行率の変動	17
図 3-11	実効拡散係数の変化に対する定常解析解の変化	18
図 3-12	緩衝材の流出による核種の最大移行率の変動	19
図 3-13	オーバーパックの腐食膨張と緩衝材の流出による 核種の最大移行率の変動	21
付図 A-1	人工バリアの幾何形状と解析上の取り扱い	27
付図 B-1	緩衝材液相中のウラン同位体の存在量の比較	29

付図 B-2	ウランの各同位体の液相中の存在量，沈殿中の存在量， および液相中の同位体存在比の比較 .....	31
付図 C-1	双曲線関数 .....	38
付図 D-1	人工バリアからの最大移行率の変動（流出割合 = 0.0） .....	39
付図 D-2	人工バリアからの最大移行率の変動（流出割合 = 0.1） .....	39
付図 D-3	人工バリアからの最大移行率の変動（流出割合 = 0.2） .....	40
付図 D-4	人工バリアからの最大移行率の変動（流出割合 = 0.3） .....	40
付図 D-5	人工バリアからの最大移行率の変動（流出割合 = 0.4） .....	41

## 人工バリアからの核種移行率に対するオーバーパックスの腐食膨張と緩衝材の流出に関する感度解析

### 1. はじめに

地層処分研究開発第2次取りまとめにおける安全評価で設定されたレファレンスケース（核燃料サイクル開発機構，1999a）では，人工バリアは期待される所期の安全機能をすべて発揮するものとして解析評価を行っている。しかし，レファレンスケースでは考慮していないものの，緩衝材形状に変化をもたらし，人工バリア中の核種移行に影響を及ぼす現象として，オーバーパックスの腐食膨張ならびに緩衝材の流出が挙げられている。

オーバーパックスの腐食膨張とは，オーバーパックスの材料として用いられる炭素鋼の腐食が進んだ際に，腐食生成物の比重が炭素鋼に比べて小さいために，体積の膨張が生じることである。腐食膨張は，緩衝材を外側方向に圧縮するため，緩衝材の半径方向の厚さを低減させるとともに，緩衝材が圧密されて空隙率が減少することになる。これにより，人工バリア中の核種移行に影響を与える可能性がある。

また，緩衝材の流出については，緩衝材が膨潤して人工バリア周辺の岩盤中の亀裂へ緩衝材が流出することによって空隙率が増大し，緩衝材に期待されている核種移行遅延機能やコロイドろ過機能など，設計で期待する機能が損なわれる可能性がある。なお，緩衝材の流出は，膨潤により亀裂へ侵入したベントナイト粒子が地下水の流れによって浸食されることにより起こると考えられている。

ここでは，上記の二つの現象によって影響を受ける緩衝材パラメータ（緩衝材の内側半径，空隙率，拡散係数）を変化させて，人工バリア中核種移行への影響について感度解析を行う。



## 2. 解析方法

### 2.1 核種移行モデル

地層処分研究開発第2次取りまとめのレファレンスケース（核燃料サイクル開発機構，1999a）において，人工バリア中の核種移行評価で使用しているモデルを図2-1に示す。

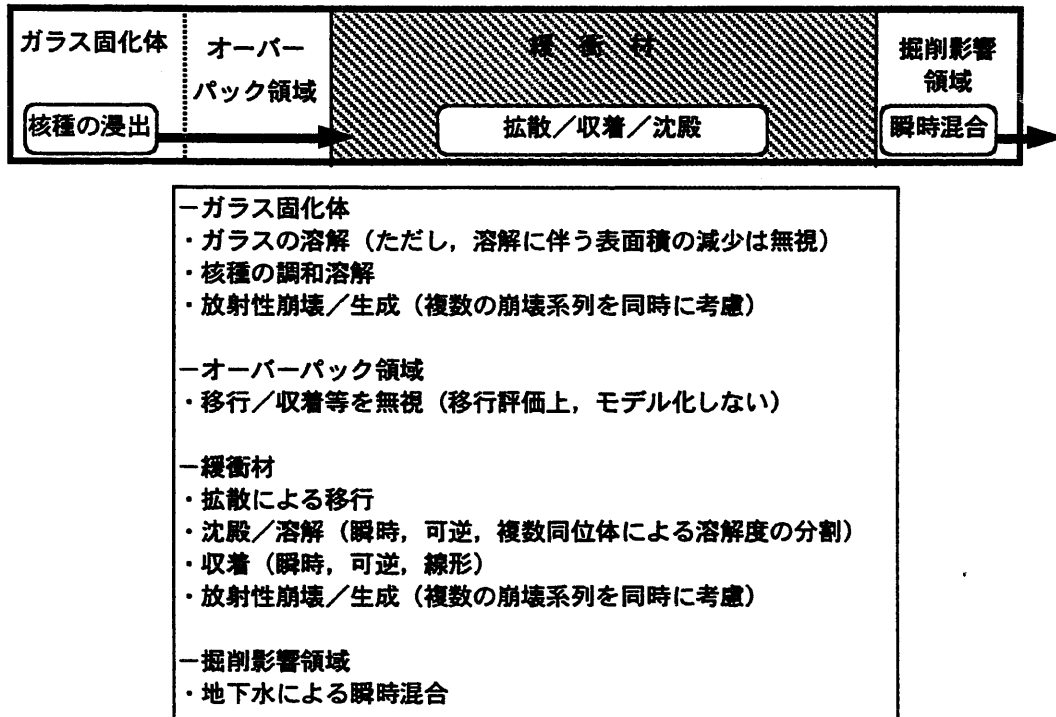


図2-1 人工バリア中の核種移行の概念モデル

このモデルを用いて，以下の仮定・考え方にしたがって，オーバーバックの腐食膨張と緩衝材の流出の二つの現象を取り込んだ核種移行解析を行う。解析では，腐食膨張および緩衝材流出をそれぞれ一つのパラメータ（体積膨張率と流出割合）で代表させ，それらと緩衝材パラメータ（内側半径，空隙率，拡散係数）との関係を定式化すること（付録A参照）により，体積膨張率と流出割合に応じて緩衝材パラメータを変化させて感度解析を行う。

#### (1) オーバーバックの腐食膨張

オーバーバックが腐食して腐食生成物となり，オーバーバックの側面方向および上下方向ともに同じ長さで膨張して，緩衝材領域を狭めることを想定する（図2-2参照）。その際，緩衝材の圧密に伴う空隙率および拡散係数の変化について考慮するが，緩衝材中での空隙率および拡散係数の空間的な変化はないものとする。また，オーバーバックは外側に向かってのみ膨張すると仮定し，内側への膨張やこれに伴うガラス固化体の割れの増加等は無視する。さらに，膨張したオーバーバック腐食

領域中の核種の移行および腐食生成物への収着は無視する。

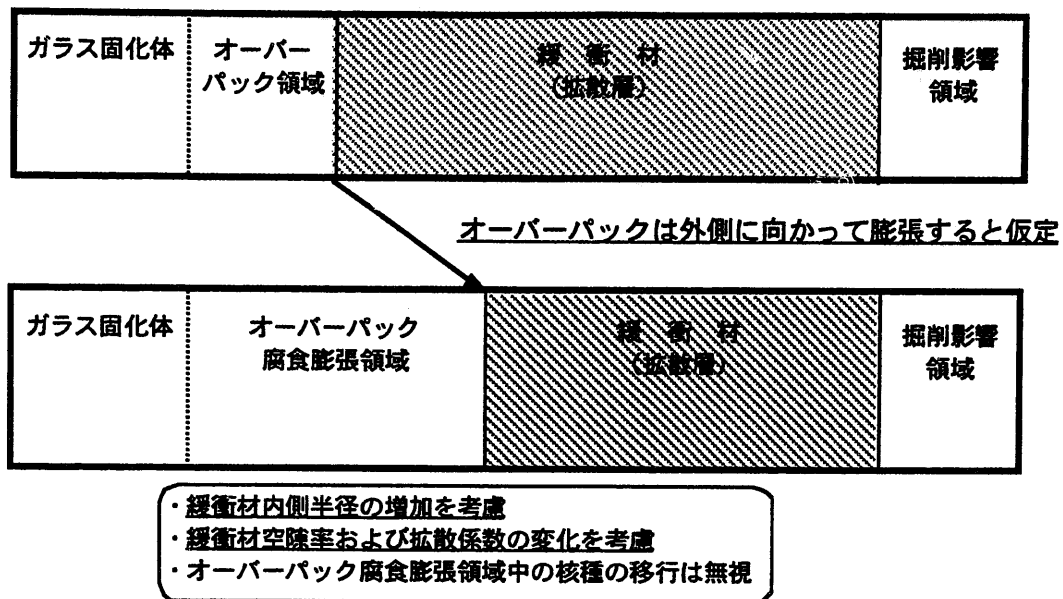


図 2-2 オーバーバックの腐食膨張現象に関する解析上の取り扱い

(2) 緩衝材の流出

緩衝材が膨潤することによって周辺岩盤中の亀裂へ緩衝材が流出し、この結果、緩衝材の空隙率が増加することを想定する（図 2-3 参照）。この際、緩衝材は均質に膨潤すると仮定し、緩衝材中での空隙率および拡散係数の空間的な変化はないものとする。また、緩衝材が亀裂中へ入り込むことによる掘削影響領域内の地下水の流量変化、ならびに掘削影響領域での核種の吸着は考慮しないこととする。

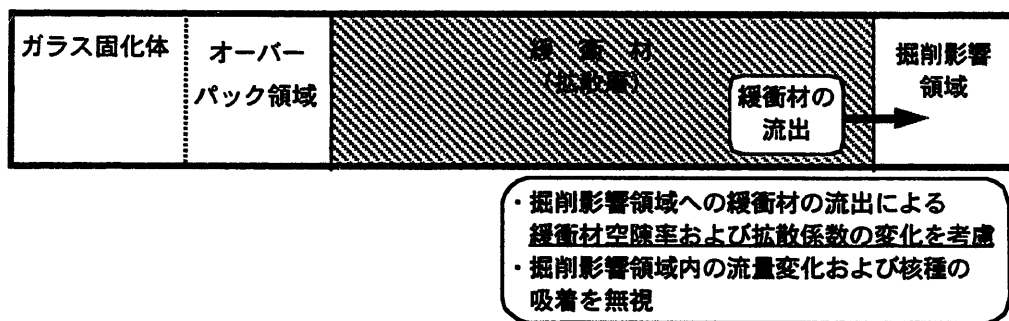


図 2-3 緩衝材の流出現象に関する解析上の取り扱い

(3) オーバーバックの腐食膨張と緩衝材の流出

上記の二つの現象が同時に起こることを考慮して、緩衝材パラメータを変化させた解析を行う（図 2-4 参照）。この際、腐食膨張と緩衝材流出による空隙率および拡散係数の変化については、体積膨張率と流出割合の組合せをすべて考慮する。

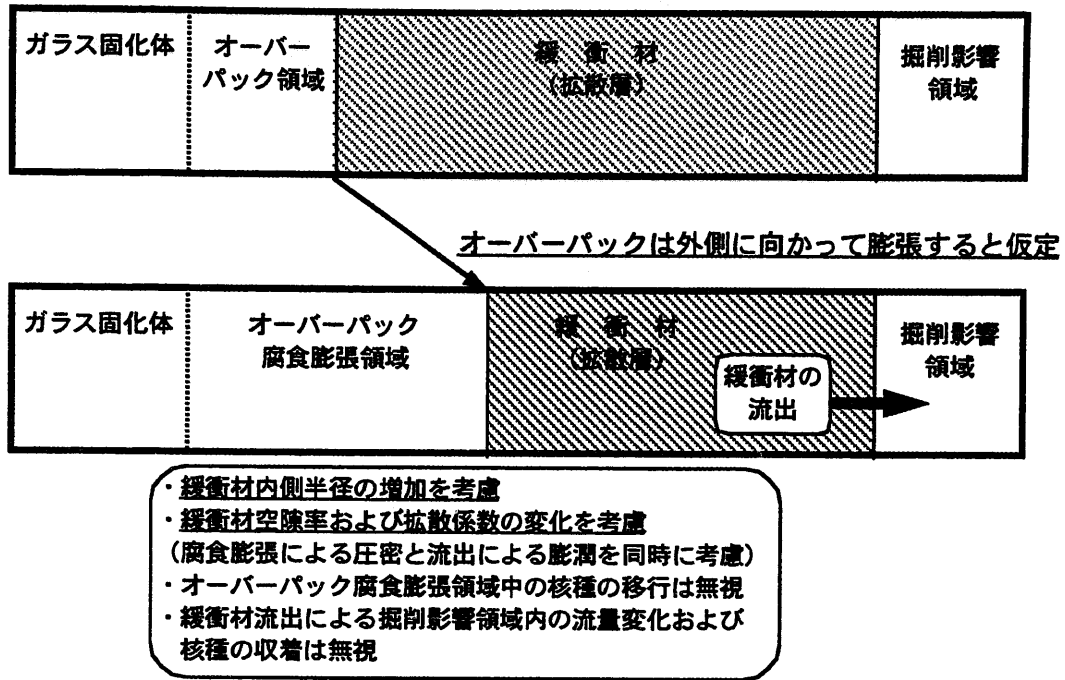


図 2-4 オーバーバック腐食膨張と緩衝材流出の複合現象に関する解析上の取り扱い

## 2.2 データセット

オーバーバックの腐食膨張と緩衝材の流出に関して、以下の仮定・考え方に従い、関連するデータを設定する。その他のデータについては、第2次取りまとめのレファレンスケースで使用したデータ（核燃料サイクル開発機構，1999a）と同じとする。

### (1) オーバーバックの体積膨張率

腐食後のオーバーバック領域の体積を腐食前の初期オーバーバック体積で除した値（倍率）を、オーバーバックの体積膨張率 [-] と定義する。

処分環境においてオーバーバックの腐食によって生成する腐食生成物の存在形態については、明確に表現できるだけの情報が不足している状況にあり、現実的にオーバーバックの体積膨張率を設定することは困難である。ここでは、処分環境で磁鉄鉱（鉄に対する体積膨張率 2.1（須田ほか，1992））が熱力学的に安定な鉄鉱物であることを参考にして、オーバーバックの体積膨張率として 1.0～5.0 の範囲を設定した。

### (2) 緩衝材の流出割合

流出した緩衝材量を流出前の初期緩衝材量で除した値を、緩衝材の流出割合 [-] と定義する。

地層処分基盤研究施設の緩衝材流出挙動試験設備（BENFLOW）を用いた試験結果

によれば、埋設後 10 万年で 8% 程度、100 万年で 20% 程度の乾燥密度の低下（すなわち、100 万年で 20% 程度の緩衝材の流出）が予測されている（核燃料サイクル開発機構，1999b）。ただし、この予測は、アクリル平行平板単一亀裂への緩衝材の流出試験結果に対して、亀裂幅、亀裂本数等のパラメータを仮定して見積もられたものであり、実際の処分環境における緩衝材流出割合には多くの不確実性が含まれていると考えられる。したがって、ここでは緩衝材の流出現象を保守的に取り扱うこととし、緩衝材の流出割合として 0.0~0.4 の範囲を設定した。

### (3) 緩衝材内側半径および高さ

オーバーパックの腐食膨張に伴う緩衝材の内側半径および高さ<sup>2-1)</sup>については、オーバーパックの体積膨張率に応じて、付録 A に示す相関式から設定した（図 2-5 参照）。なお、緩衝材の外側半径は一定とした。

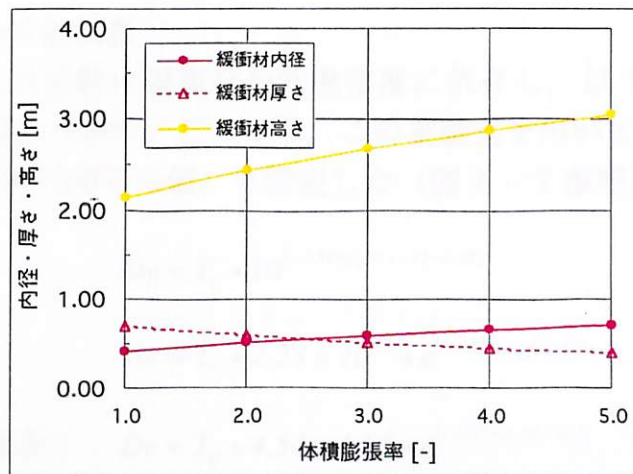


図 2-5 オーバーパックの腐食膨張に伴う緩衝材幾何形状の変化

### (4) 緩衝材空隙率

オーバーパックの腐食膨張に伴う緩衝材の圧密による空隙率の減少，ならびに緩衝材の膨潤に伴う緩衝材流出による空隙率の増加について、付録 A に示す相関式から空隙率を設定した（図 2-6 参照）。ただし、オーバーパックの体積膨張率と緩衝材の流出割合については独立した変数として取扱い（すなわち相関は無視），両者の組合せをすべて考慮した。

<sup>2-1)</sup> 緩衝材の高さについては、オーバーパックの全表面から浸出してくる核種が、1次元でモデル化している緩衝材領域にすべて流入するように設定している（付録 A 参照）。このため、オーバーパックの上下方向への膨張に伴って、解析上の緩衝材高さも増加することになる。

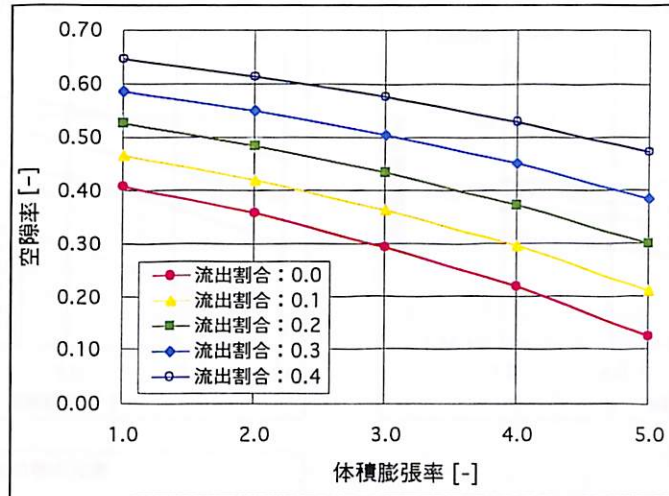


図 2-6 オーバーパック腐食膨張および緩衝材流出による空隙率の変化

(5) 緩衝材中の実効拡散係数

緩衝材中の実効拡散係数は緩衝材の乾燥密度に依存し、以下の実験式が得られている (Sato, 1998 ; 佐藤, 1999)。ここでは、この実験式を用いて、乾燥密度 (空隙率) に応じた実効拡散係数 (60°Cの値) を設定した (図 2-7 参照)。

$$Se : \quad De = T_c \cdot 10^{(-2.34 \cdot \rho_b \cdot (1-\epsilon) - 6.48)} \quad (2-1)$$

$$Cs : \quad De = T_c \cdot 2.23 \times 10^{-9} \cdot e^{(-1.31 \cdot \rho_b \cdot (1-\epsilon))} \quad (2-2)$$

$$\text{その他の元素} : \quad De = T_c \cdot 4.54 \times 10^{-9} \cdot e^{(-2.27 \cdot \rho_b \cdot (1-\epsilon))} \quad (2-3)$$

ここで、 $T_c$ は 25°Cの値から 60°Cの値への温度補正係数で、次式で表される。

$$T_c = \exp \left[ -\frac{Q}{R} \left( \frac{1}{333.15} - \frac{1}{298.15} \right) \right] \quad (2-4)$$

- $De$  : 緩衝材中の実効拡散係数 [m<sup>2</sup>/s]
- $\rho_b$  : 緩衝材の真密度 [g/cm<sup>3</sup>]
- $Q$  : 活性化エネルギー (1.505 × 10<sup>4</sup> [J/mol])
- $R$  : 気体定数 (8.314 [J/mol/K])

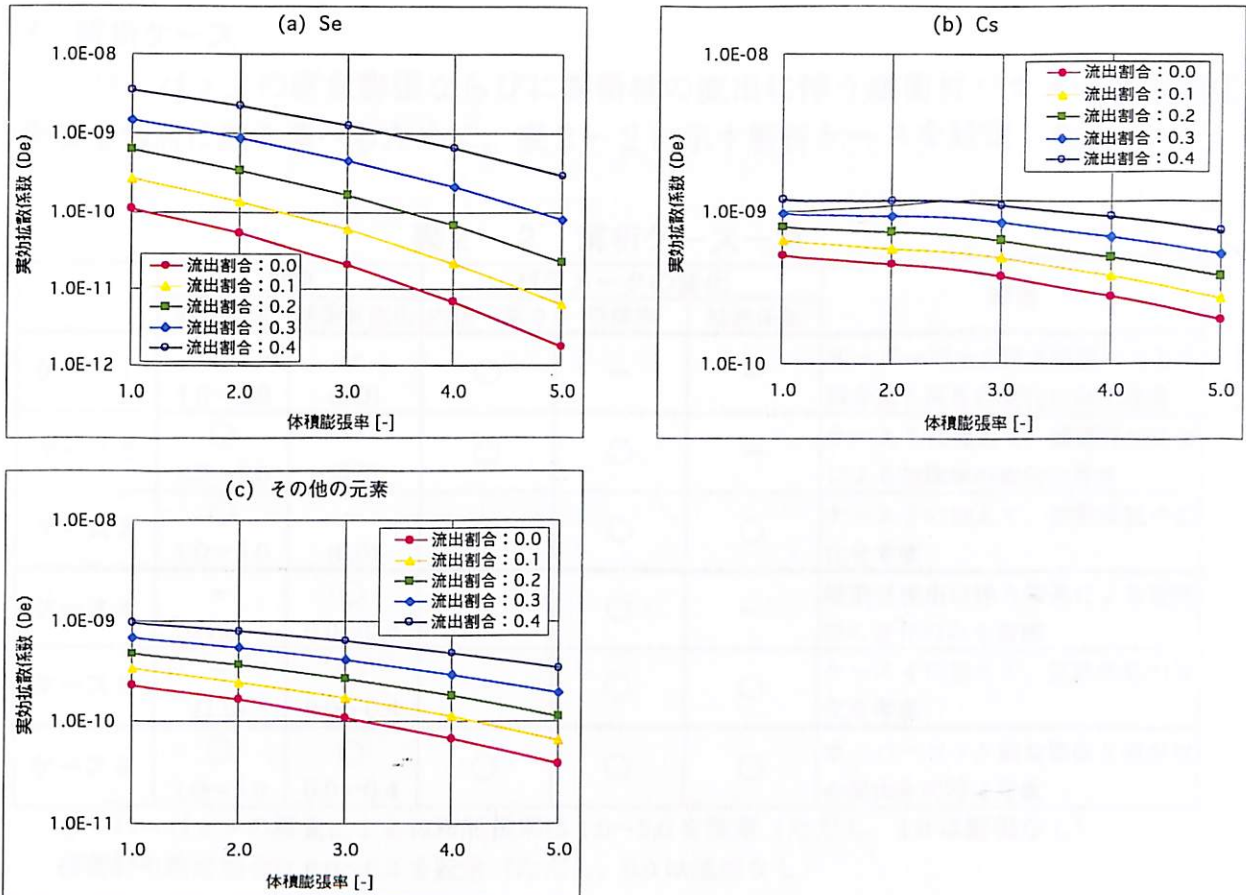


図 2-7 オーバーパック腐食膨張および緩衝材流出による実効拡散係数の変化

(6) その他のデータ

緩衝材への分配係数および溶解度 (表 2-1 参照), ガラスの溶解速度 ( $1 \times 10^{-3}$  g/m<sup>2</sup>/d), 掘削影響領域内の地下水流量 (0.001 m<sup>3</sup>/y), ガラス固化体中の核種インベントリは, 第 2 次取りまとめにおけるレファレンスケースのデータ (核燃料サイクル開発機構, 1999a) を用いた。なお, 緩衝材への分配係数の乾燥密度 (空隙率) に対する依存性については無視した。

表 2-1 緩衝材中の溶解度および分配係数

元素	溶解度 [mol/l at 25°C]	分配係数 [m <sup>3</sup> /kg]	元素	溶解度 [mol/l at 25°C]	分配係数 [m <sup>3</sup> /kg]
Se	$3 \times 10^{-9}$	0	Ra	$1 \times 10^{-12}$	0.01
Zr	$1 \times 10^{-6}$	10	Ac	$2 \times 10^{-7}$	1
Nb	$1 \times 10^{-4}$	1	Th	$5 \times 10^{-6}$	1
Tc	$4 \times 10^{-8}$	0.1	Pa	$2 \times 10^{-8}$	1
Pd	$1 \times 10^{-9}$	0.1	U	$8 \times 10^{-9}$	1
Sn	$5 \times 10^{-6}$	1	Np	$2 \times 10^{-8}$	1
Cs	可溶性	0.01	Pu	$3 \times 10^{-8}$	10
Sm	$2 \times 10^{-7}$	1	Am	$2 \times 10^{-7}$	10
Pb	$2 \times 10^{-6}$	0.1	Cm	$2 \times 10^{-7}$	10

## 2.3 解析ケース

オーバーパックの腐食膨張ならびに緩衝材の流出に伴う緩衝材パラメータの変化の影響を個別に順次調べるために、表2-2に示す解析ケースを設定した。

表2-2 解析ケース一覧

	現象		パラメータの変化			備考
	腐食膨張	緩衝材流出	内径・高さ	空隙率	拡散係数	
ケース1	○ 1.0~5.0	- (0.0)	○	-	-	オーバーパック腐食膨張による内側半径と高さの変化のみを考慮
ケース2	○ 1.0~5.0	- (0.0)	○	○	-	ケース1に加えて、緩衝材の圧密による空隙率の変化を考慮
ケース3	○ 1.0~5.0	- (0.0)	○	○	○	ケース2に加えて、拡散係数の変化を考慮
ケース4	- (1.0)	○ 0.0~0.4	-	○	-	緩衝材流出に伴う膨潤による空隙率の変化のみを考慮
ケース5	- (1.0)	○ 0.0~0.4	-	○	○	ケース4に加えて、拡散係数の変化を考慮
ケース6	○ 1.0~5.0	○ 0.0~0.4	○	○	○	オーバーパック腐食膨張と緩衝材の流出を同時に考慮

- ・オーバーパックの腐食による体積膨張率は1.0~5.0を設定（ただし、1.0は膨張なし）
- ・緩衝材の流出割合は0.0~0.4を設定（ただし、0.0は流出なし）

ケース1からケース3はオーバーパックの腐食膨張を対象にした解析ケースであり、ケース4とケース5は緩衝材の流出を対象とした解析ケースである。最後のケース6はオーバーパックの腐食膨張と緩衝材の流出を同時に考慮したケースであり、体積膨張率と流出割合のすべての組合せに対して解析を実施する。

感度解析に際しては、第2次取りまとめの人工バリア中核種移行解析で使用した1次元円筒座標系の数値計算コード（MESHNOTEコード）を使用し、ガラス固化体1本を対象として人工バリアから周辺岩盤への核種移行率を計算する。なお、腐食膨張や緩衝材流出に伴って、現実的にはパラメータ（緩衝材の内側半径、空隙率、拡散係数）が徐々に変化すると考えられるが、ここでは、ガラス固化体と地下水が接触する時点（核種移行計算の開始時点）でパラメータの時間的な変化は既に終了しているものとする。すなわち、前記「2.2 データセット」で設定したデータを初期値として入力して解析を行う。

### 3. 解析結果

#### 3.1 オーバーパックの腐食膨張

##### (1) 緩衝材厚さの変化のみを考慮した感度解析 (ケース1)

オーバーパックの腐食膨張に伴う緩衝材の内側半径の増加 (すなわち、緩衝材厚さの減少) を考慮した場合について、MESHNOTE コードを用いて人工バリアから周辺岩盤への核種移行率を計算した結果を図3-1に示す。図は、体積膨張率を変えたときの各核種の最大移行率を、体積膨張率 1.0 (膨張なし) の場合の最大移行率で規格化して示している。

図から、緩衝材厚さの減少は、半減期が1万年未満の核種 (Pu-240, Cm-245, Pu-241, Am-241, Cm-246, Am-243, Pu-239, Sm-151) の移行率に対して、大きな影響を及ぼすことが分かる。これら半減期が比較的短い核種は、緩衝材への収着による移行遅延によって移行中に崩壊・減衰するため、緩衝材厚さの減少による移行率への影響が大きい。なお、Pu-241 と Am-241 は親核種である Cm-245 と放射平衡になっており、Cm-245 の移行率の変化とまったく同じ変化を示す。また、ウランについては、複数の同位体 (U-233, 234, 235, 236, 238) による溶解度分割を考慮しているため、同位体によって移行率の変化の傾向が異なっている (付録 B 参照)。

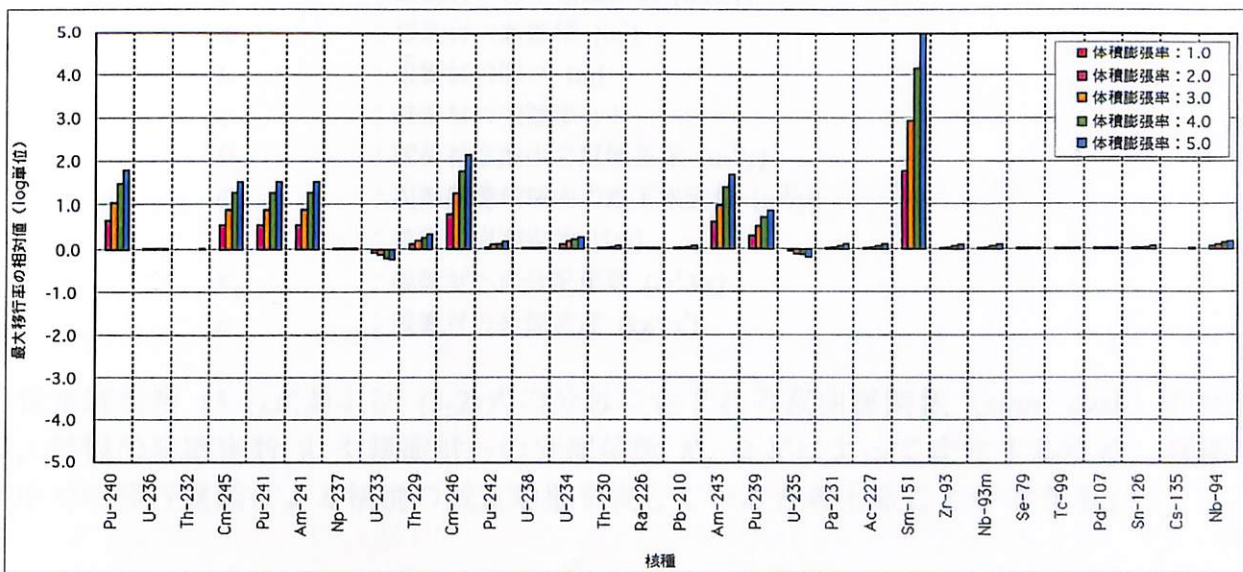


図3-1 オーバーパックの腐食膨張に伴う緩衝材厚さの減少による核種の最大移行率の変動  
(体積膨張率 1.0 の場合の最大移行率で規格化)

緩衝材の厚さが減少することによって、緩衝材を移行中の核種の崩壊・減衰の効果がどのように変化するかを調べるため、定常解析解を用いて検討を行った。ここでは、導出が比較的容易な1次元直交座標系の定常解析解を使用した。付録 C に示



したように、単一核種を対象として、緩衝材中での収着と崩壊を考慮した1次元直交座標系の定常解析解は、内側境界条件に応じて、次の2つの簡単な代数式で表される。

・内側境界：溶解度制限

$$\phi^{OUT} = \frac{QC^*}{\left( \frac{Q}{\alpha A \varepsilon D_p} \sinh(\alpha L) + \cosh(\alpha L) \right)} \quad (3-1)$$

・内側境界：一定流入率

$$\phi^{OUT} = \frac{\phi^{IN}}{\left( \frac{\alpha A \varepsilon D_p}{Q} \sinh(\alpha L) + \cosh(\alpha L) \right)} \quad (3-2)$$

ただし、

$$\alpha = \sqrt{\frac{\lambda}{D_p} \left( 1 + \frac{\rho K_d}{\varepsilon} \right)} \quad (3-3)$$

ここで、

$\phi^{OUT}$	: 人工バリアから周辺岩盤への核種移行率 [mol/y]
$C^*$	: 緩衝材中の溶解度 [mol/m <sup>3</sup> ]
$\phi^{IN}$	: 緩衝材への一定流入率 [mol/y]
$A$	: 緩衝材の断面積 [m <sup>2</sup> ]
$L$	: 緩衝材の厚さ [m]
$\varepsilon$	: 緩衝材の空隙率 [-]
$D_p$	: 緩衝材空隙中の拡散係数 [m <sup>2</sup> /y]
$Q$	: 掘削影響領域内の地下水流量 [m <sup>3</sup> /y]
$\lambda$	: 核種の崩壊定数 [1/y]
$K_d$	: 緩衝材への分配係数 [m <sup>3</sup> /kg]
$\rho$	: 緩衝材の乾燥密度 [kg/m <sup>3</sup> ]

定常解析解 (3-1)式および (3-2)式の分母に含まれる双曲線関数 ( $\sinh$ ,  $\cosh$ ) の値は、核種の崩壊定数  $\lambda$  や緩衝材への分配係数  $K_d$  などによって変化するため、緩衝材中での移行遅延による核種の減衰効果を表していると考えられる。

ここでは、Cs-135, Sm-151, Np-237, および Cm-245 について、上記の定常解析解<sup>3-1)</sup>を用いて定常移行率を調べた。なお、式中の緩衝材の断面積  $A$  は、円筒座標系における緩衝材外側表面積と同じ値を使用した。体積膨張率に応じて緩衝材厚さ  $L$

<sup>3-1)</sup> MESHNOTE コードによる計算結果から、Sm-151 と Np-237 は緩衝材の内側で沈殿が生じており、Cs-135 と Cm-245 は沈殿が生じていないことが分かった。このため、Sm-151 と Np-237 は溶解度制限境界に対する解である (3-1)式を、Cs-135 と Cm-245 は一定流入率境界に対する解である (3-2)式を用いて検討を行った。

を減少させたときの定常移行率の変化を図3-2に示す。図は、体積膨張率 1.0（膨張なし）の場合の移行率で規格化して示している。

半減期が比較的短い Cm-245 と Sm-151 では、厚さ  $L$  の減少に伴って定常移行率は増加している。これは、厚さ  $L$  が小さくなると、定常解析解に含まれる双曲線関数 ( $\sinh, \cosh$ ) の値が小さくなるためである。すなわち、緩衝材中での核種の減衰効果が小さくなることに相当する。特に、半減期が 90 年と短い Sm-151 では、厚さの減少による定常移行率の増加が顕著となる。一方、半減期が 100 万年を超える Cs-135 および Np-237 では、定常移行率はほとんど変化しない。これは、変数  $\alpha$  が崩壊定数  $\lambda$  に依存して小さいことから、厚さ  $L$  が減少しても双曲線関数の値 ( $\sinh(\alpha L) \approx 0, \cosh(\alpha L) \approx 1$ ) が変化しないためである。

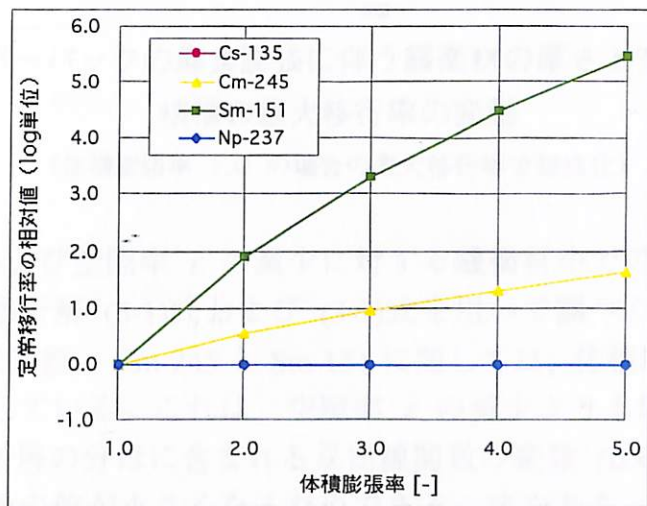


図3-2 緩衝材厚さの減少に対する定常解析解の変化  
(体積膨張率 1.0 の場合の定常移行率で規格化)

(2) 緩衝材の厚さと空隙率の変化を考慮した感度解析 (ケース 2)

オーバーパックの腐食膨張に伴う緩衝材の厚さと空隙率の減少を同時に考慮した場合<sup>3-2)</sup>について、MESHNOTE コードを用いて人工バリアから周辺岩盤への核種移行率を計算した結果を図3-3に示す。図から、緩衝材の厚さと空隙率の減少は、ケース1と同様に、半減期が1万年未満の核種 (Pu-240, Cm-245, Pu-241, Am-241, Cm-246, Am-243, Pu-239, Sm-151) の移行率に対する影響が大きいことが分かる。しかし、本ケースでは、体積膨張率が3.0までは最大移行率が若干増加するものの、体積膨張率が4.0を超えると最大移行率は一転して減少することが分かった。

<sup>3-2)</sup> 本ケースでは拡散係数 ( $D_p$ ) の変化は考慮しておらず、体積膨張率 1.0 (膨張なし) の場合の拡散係数を使用している。ただし、実効拡散係数 ( $D_e = \epsilon \times D_p$ ) は空隙率 ( $\epsilon$ ) に応じて変化する。

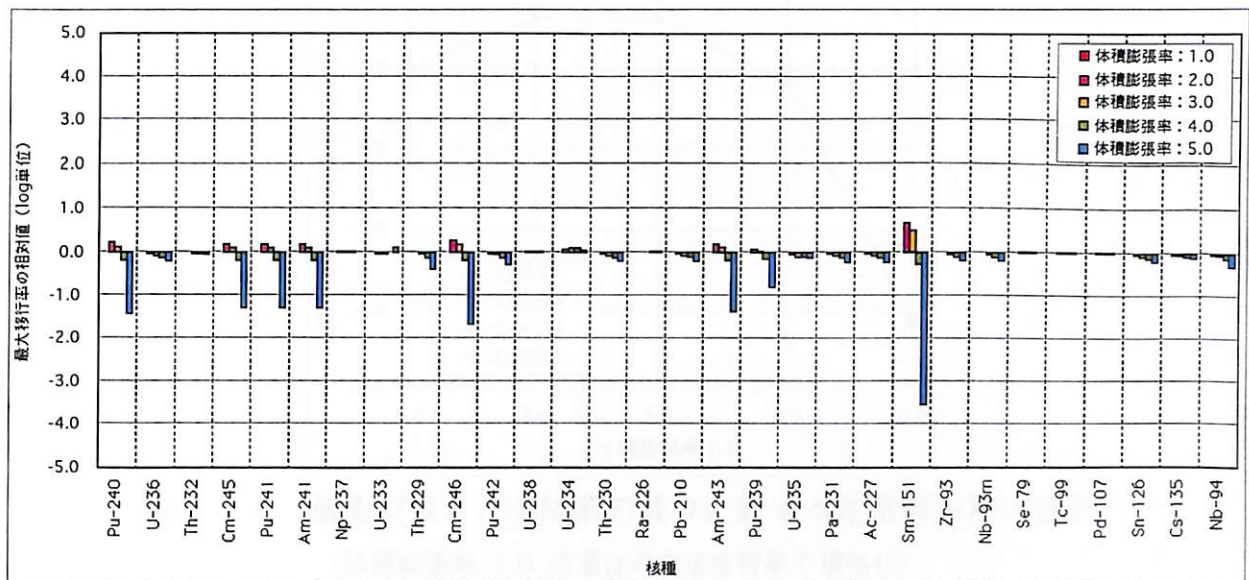


図3-3 オーバーパックの腐食膨張に伴う緩衝材の厚さと空隙率の変化による核種の最大移行率の変動

(体積膨張率 1.0 の場合の最大移行率で規格化)

緩衝材厚さ  $L$  および空隙率  $\epsilon$  の減少に対する緩衝材中での核種の減衰効果の変化について、定常解析解 (3-1)式および (3-2)式を用いて調べた。図3-4に示すように、半減期が比較的短い Cm-245 と Sm-151 に関しては、体積膨張率が 3.0 までは、定常移行率が増加している。これは、空隙率  $\epsilon$  の減少よりも厚さ  $L$  の減少の効果が大きく、定常解析解の分母に含まれる双曲線関数の変数  $(\alpha L)$  が小さくなり、その結果、双曲線関数の値が小さくなるためである。すなわち、厚さの減少により緩衝材中での核種の減衰効果が小さくなることを表している。一方、体積膨張率が 4.0 を超えると、定常移行率は減少している。これは、厚さ  $L$  の減少よりも空隙率  $\epsilon$  の減少の効果が大きくなり、この結果、双曲線関数の値が大きくなるためである。すなわち、空隙率の減少により緩衝材中での核種の減衰効果が大きくなることを表している。また、半減期が 100 万年を超える Cs-135 および Np-237 では、定常移行率はほとんど変化しない。これは、崩壊定数  $\lambda$  が小さいことから、空隙率  $\epsilon$  や厚さ  $L$  が減少しても双曲線関数の値 ( $\sinh(\alpha L) \approx 0, \cosh(\alpha L) \approx 1$ ) が変化しないためである。

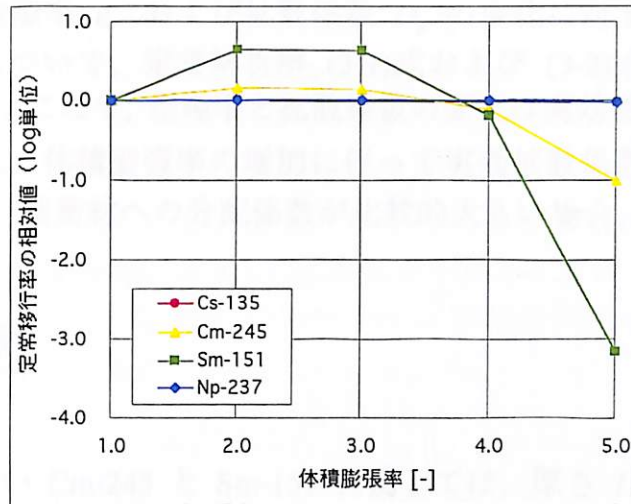


図3-4 緩衝材厚さと空隙率の減少に対する定常解析解の変化  
(体積膨張率 1.0 の場合の定常移行率で規格化)

(3) 厚さ，空隙率，拡散係数の変化を考慮した検討（ケース3）

オーバーパックスの腐食膨張に伴う緩衝材厚さ，空隙率，および拡散係数の変化を考慮した場合<sup>3-3)</sup>について，MESHNOTE コードを用いて人工バリアから周辺岩盤への核種移行率を計算した結果を図3-5に示す。図から，ケース1，ケース2と同様に，半減期が1万年未満の核種（Pu-240, Cm-245, Pu-241, Am-241, Cm-246, Am-243, Pu-239, Sm-151）の移行率に対する影響が大きいことが分かる。ただし，本ケースでは，体積膨張率の増加に伴って移行率は減少している。

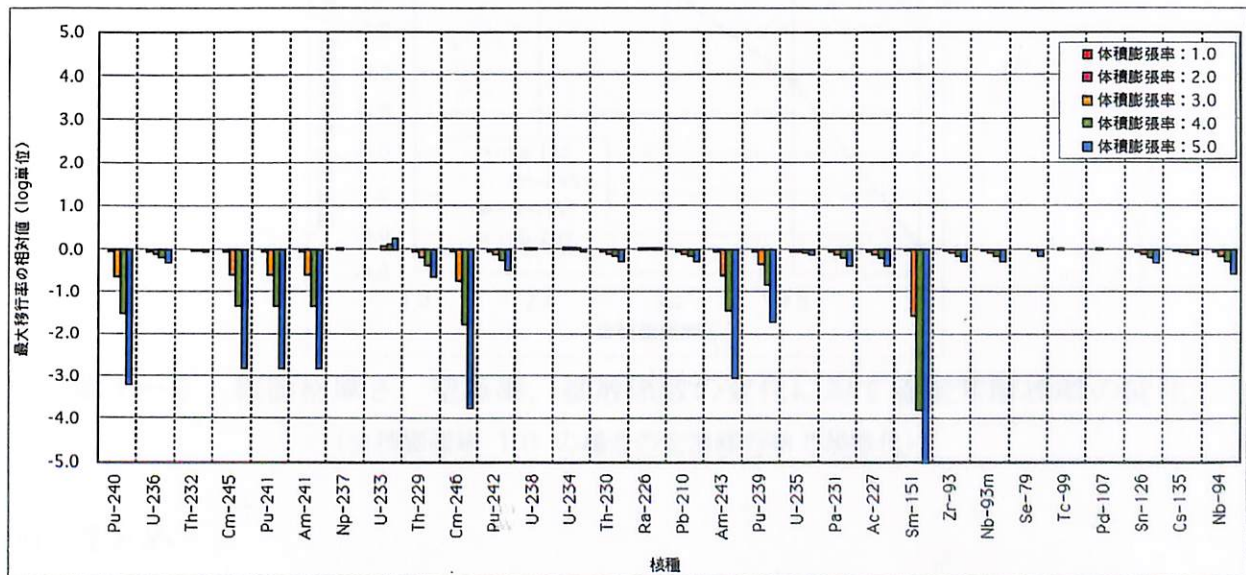


図3-5 オーバーパックスの腐食膨張に伴う緩衝材厚さ，空隙率，拡散係数の変化による核種の最大移行率の変動  
(体積膨張率 1.0 の場合の最大移行率で規格化)

<sup>3-3)</sup> 本ケースでは，「2.2 データセット」で設定した空隙率 ( $\epsilon$ )と実効拡散係数 ( $D_e$ ) から，体積膨張率に応じた拡散係数 ( $D_p$ ) を求めて解析に使用した。

緩衝材厚さ  $L$ 、空隙率  $\epsilon$ 、および拡散係数  $D_p$  の変化に対する緩衝材中での核種の減衰効果の変化について、定常解析解 (3-1)式および (3-2)式を用いて調べた。結果を図3-6に示す。ここで、空隙率と拡散係数の変化は実効拡散係数  $D_e (= \epsilon \times D_p)$  の変化として表され、体積膨張率の増加に伴って実効拡散係数  $D_e$  は減少する (図2-7参照)。また、緩衝材への分配係数が比較的大きい場合、(3-3)式は近似的に次式で表される。

$$\alpha \approx \sqrt{\frac{\lambda \rho K_d}{D_e}} \tag{3-4}$$

半減期が比較的短い Cm-245 と Sm-151 に関しては、厚さ  $L$  の減少よりも実効拡散係数  $D_e$  の減少の効果が大きく、定常解析解に含まれる変数  $(\alpha \times L)$  は体積膨張率の増加に伴って大きくなる。このため、双曲線関数の値が大きくなり、その結果、定常移行率は減少する (図3-6参照)。これは、実効拡散係数が減少することによって、緩衝材中での移行がより遅延され核種の崩壊・減衰の効果が大きくなることを表している。一方、半減期が100万年を超える Cs-135 および Np-237 は崩壊定数  $\lambda$  が非常に小さく、実効拡散係数  $D_e$  や厚さ  $L$  が変化しても双曲線関数の値 ( $\sinh(\alpha L) \approx 0, \cosh(\alpha L) \approx 1$ ) は変化せず、定常移行率もほとんど変化しない。

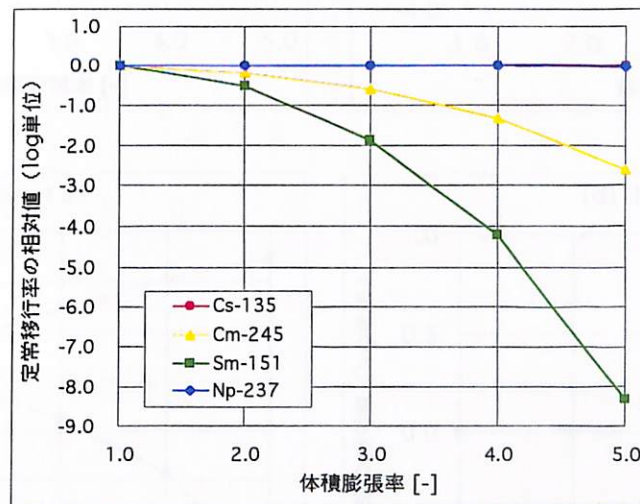


図3-6 緩衝材厚さ、空隙率、拡散係数の変化に対する定常解析解の変化 (体積膨張率 1.0 の場合の定常移行率で規格化)

(4) まとめ

オーバーパックの腐食膨張による人工バリア中の核種移行に関して、MESHNOTEコードを用いた解析で得られた Cs-135, Cm-245, Sm-151, および Np-237 の最大移行率を図3-7にまとめて示す。図は、体積膨張率 1.0 (膨張なし) の場合の最大移行率で規格化して示している。

半減期が比較的短い Cm-245 および Sm-151 の最大移行率は、緩衝材の厚さの減少のみを考慮した場合には増加するが、厚さと空隙率の減少を同時に考慮した場合は、体積膨張率の増加に伴って移行率がわずかに増加するものの、体積膨張率が 4.0 を超えると移行率は減少する。さらに、腐食膨張に伴う緩衝材の厚さ、空隙率、拡散係数を同時に変化させた場合は、体積膨張率の増加に伴って最大移行率は減少する。一方、半減期が 100 万年を超える Cs-135 および Np-237 では、いずれの場合も最大移行率はほとんど変化しない。ただし、Cs-135 は体積膨張率の増加に伴って最大移行率がわずかに減少している。

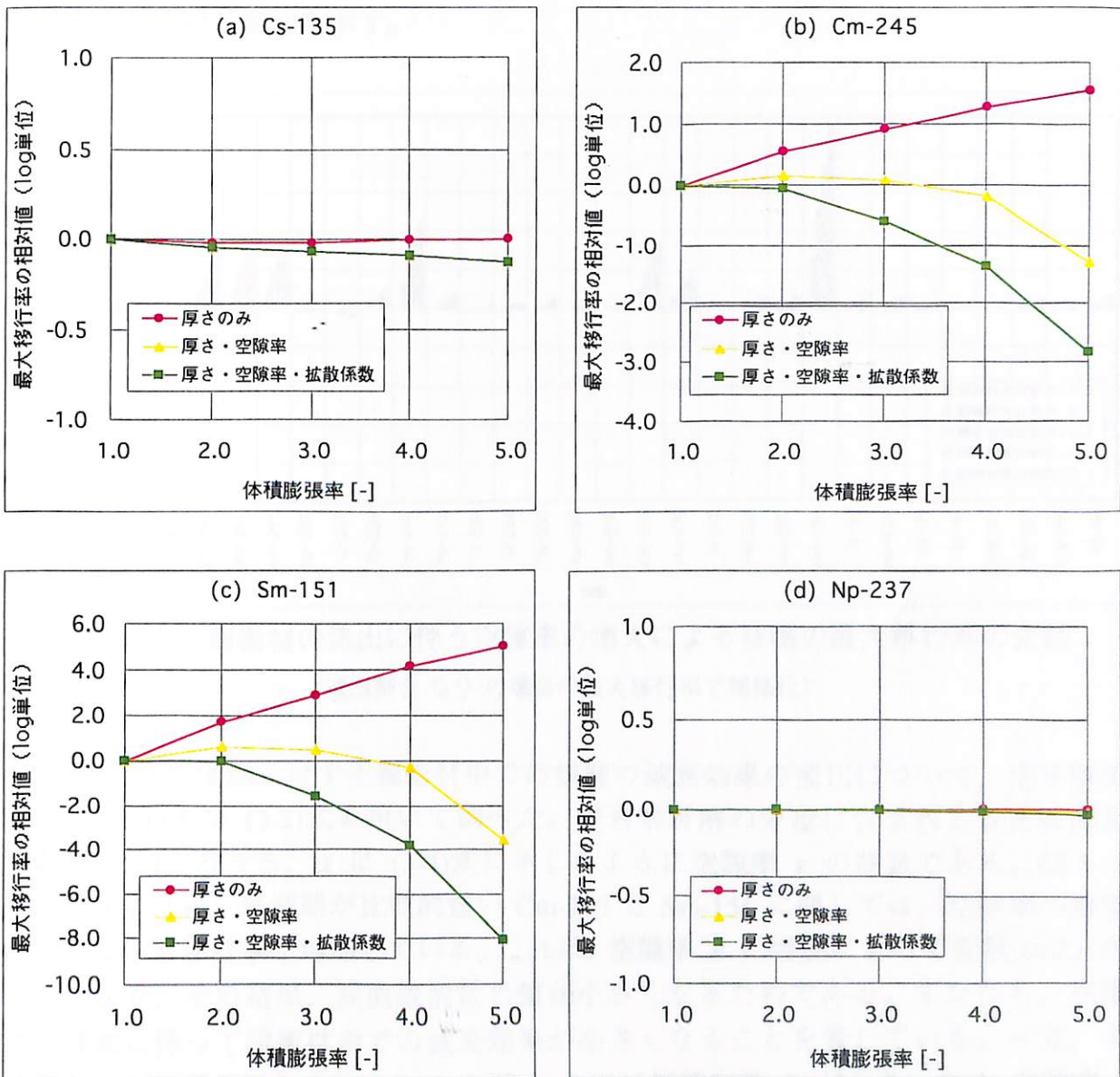


図 3-7 オーバーパックスの腐食膨張による核種の最大移行率の変動  
(体積膨張率 1.0 の場合の最大移行率で規格化)

### 3.2 緩衝材の流出

#### (1) 空隙率の増加のみを考慮した感度解析（ケース4）

緩衝材の流出に伴う緩衝材空隙率の増加を考慮した場合<sup>3-4)</sup>について、MESHNOTEコードを用いて人工バリアから周辺岩盤への核種移行率を計算した結果を図3-8に示す。図は、流出割合を変えたときの各核種の最大移行率を、流出割合0.0（流出なし）の場合の最大移行率で規格化して示している。図から、緩衝材の流出に伴う空隙率の増加は、半減期が1万年未満の核種（Pu-240, Cm-245, Pu-241, Am-241, Cm-246, Am-243, Pu-239, Sm-151）の移行率に対する影響が大きいことが分かる。なお、Pu-241とAm-241は親核種であるCm-245と放射平衡になっており、Cm-245の移行率の変化とまったく同じ変化を示す。

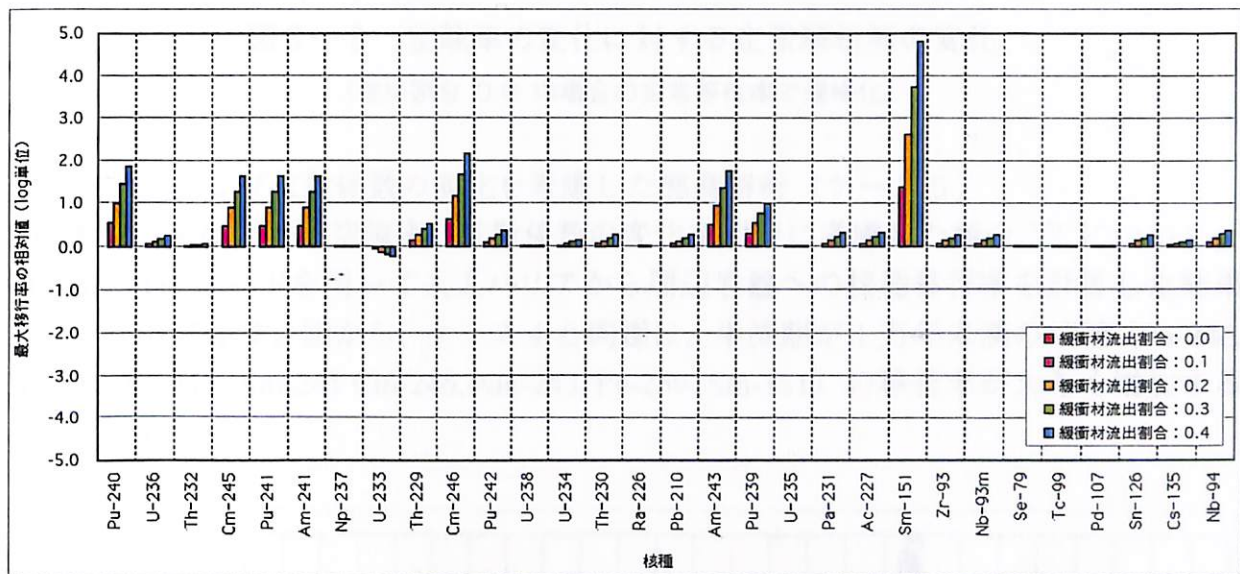


図3-8 緩衝材の流出に伴う空隙率の増大による核種の最大移行率の変動  
(流出割合 0.0 の場合の最大移行率で規格化)

空隙率  $\epsilon$  の増加に対する緩衝材中での核種の減衰効果の変化について、定常解析解 (3-1)式および (3-2)式を用いて調べた。定常解析解の分母に含まれる双曲線関数の変数 ( $\alpha xL$ ) のうち、 $\alpha$  は (3-3)式に示したように空隙率  $\epsilon$  の関数である。図3-9に示すように、半減期が比較的短い Cm-245 と Sm-151 に関しては、空隙率の増加に伴って定常移行率が増加している。これは、空隙率  $\epsilon$  の増加によって変数 ( $\alpha xL$ ) が小さくなり、その結果、双曲線関数の値が小さくなるためである。すなわち、空隙率の増加に伴って緩衝材中での減衰効果が小さくなることを表している。一方、半減期が100万年を超える Cs-135 および Np-237 は崩壊定数  $\lambda$  が小さいため、空隙率  $\epsilon$  が変化しても双曲線関数の値 ( $\sinh(\alpha L) \approx 0, \cosh(\alpha L) \approx 1$ ) が変化せず、定常移行率もほとんど変化しない。

<sup>3-4)</sup> 本ケースでは拡散係数 ( $D_p$ ) の変化は考慮しておらず、流出割合0.0（流出なし）の場合の拡散係数を使用している。ただし、実効拡散係数 ( $D_e = \epsilon \times D_p$ ) は空隙率 ( $\epsilon$ ) の変化に応じて変化する。

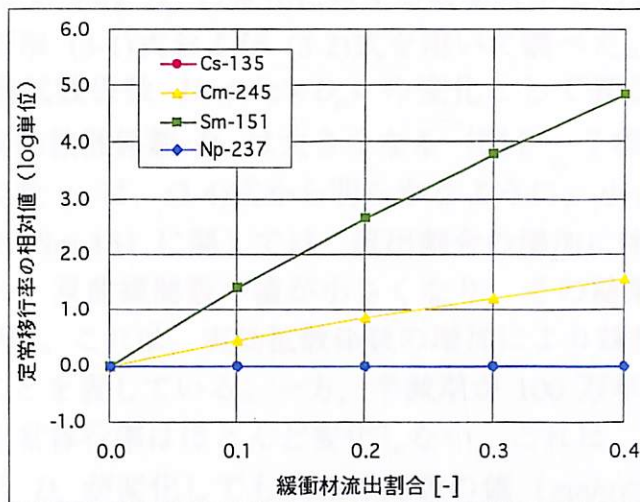


図3-9 空隙率の変化に対する定常解析解の変化  
(流出割合 0.0 の場合の定常移行率で規格化)

(2) 空隙率および拡散係数の変化を考慮した感度解析 (ケース5)

緩衝材の流出に伴う空隙率と拡散係数の変化を同時に考慮した場合<sup>3-5)</sup>について、MESHNOTE コードを用いて人工バリアから周辺岩盤への核種移行率を計算した結果を図3-10に示す。図から、ケース4と同様に、半減期が1万年未満の核種 (Pu-240, Cm-245, Pu-241, Am-241, Cm-246, Am-243, Pu-239, Sm-151) の移行率が大きく増加することが分かる。

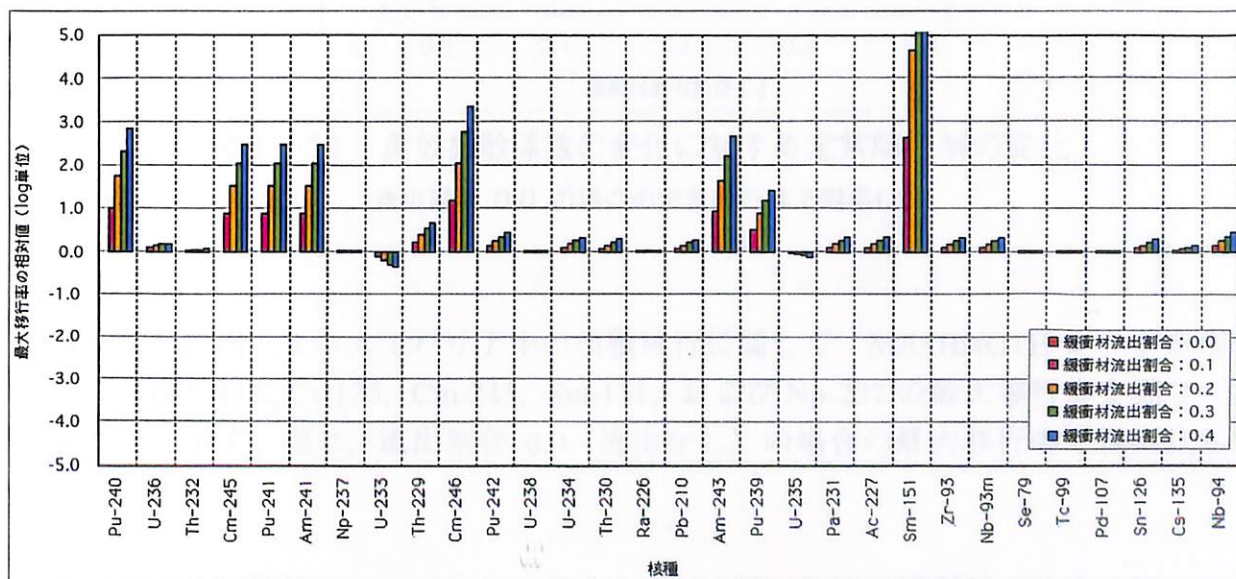


図3-10 緩衝材の流出に伴う空隙率と拡散係数の変化による核種の最大移行率の変動  
(流出割合 0.0 の場合の最大移行率で規格化)

<sup>3-5)</sup> 本ケースでは、「2.2 データセット」で設定した空隙率 ( $\epsilon$ )と実効拡散係数 ( $D_e$ ) から、流出割合に応じた拡散係数 ( $D_p$ ) を求めて解析に使用した。



空隙率  $\varepsilon$  および拡散係数  $D_p$  の変化に対する緩衝材中での核種の減衰効果の変化について、定常解析解 (3-1)式および (3-2)式を用いて調べた。ここで、空隙率と拡散係数の変化は実効拡散係数  $De (= \varepsilon \times D_p)$  の変化として表され、緩衝材の流出割合の増加に伴って実効拡散係数  $De$  は大きくなる (図 2-7 参照)。このとき、定常解析解に含まれる変数  $\alpha$  は、(3-4)式から明らかのように、小さくなる。半減期が比較的短い Cm-245 と Sm-151 に関しては、流出割合の増加に伴って変数 ( $\alpha \times L$ ) が小さくなる。このため、双曲線関数の値が小さくなり、その結果、定常移行率は増加する (図 3-11 参照)。これは、実効拡散係数の増加により緩衝材中での核種の減衰効果が小さくなることを表している。一方、半減期が 100 万年を超える Cs-135 および Np-237 では、定常移行率はほとんど変化しない。これは、崩壊定数  $\lambda$  が小さいため、実効拡散係数  $De$  が変化しても双曲線関数の値 ( $\sinh(\alpha L) \approx 0, \cosh(\alpha L) \approx 1$ ) が変化しないためである。

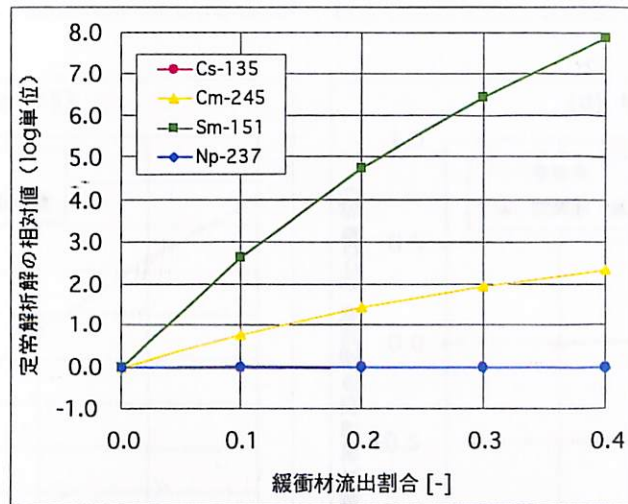


図 3-11 実効拡散係数の変化に対する定常解析解の変化  
(流出割合 0.0 の場合の定常移行率で規格化)

(3) まとめ

緩衝材の流出による人工バリア中の核種移行に関して、MESHNOTE コードを用いた解析で得られた Cs-135, Cm-245, Sm-151, および Np-237 の最大移行率を図 3-12 にまとめて示す。図は、流出割合 0.0 (流出なし) の場合の最大移行率で規格化して示している。

半減期が比較的短い Cm-245 および Sm-151 に関しては、緩衝材の流出に伴って最大移行率が増加する。空隙率の増加のみを考慮した場合よりも、空隙率と拡散係数の変化 (実効拡散係数の変化) を考慮した場合の方が、移行率の増加は大きくなる。一方、半減期が 100 万年を超える Cs-135 および NP-237 では、いずれの場合も最大移行率の変化はほとんどない。ただし、Cs-135 に関しては、緩衝材の流出に伴って

最大移行率がわずかに増加している。

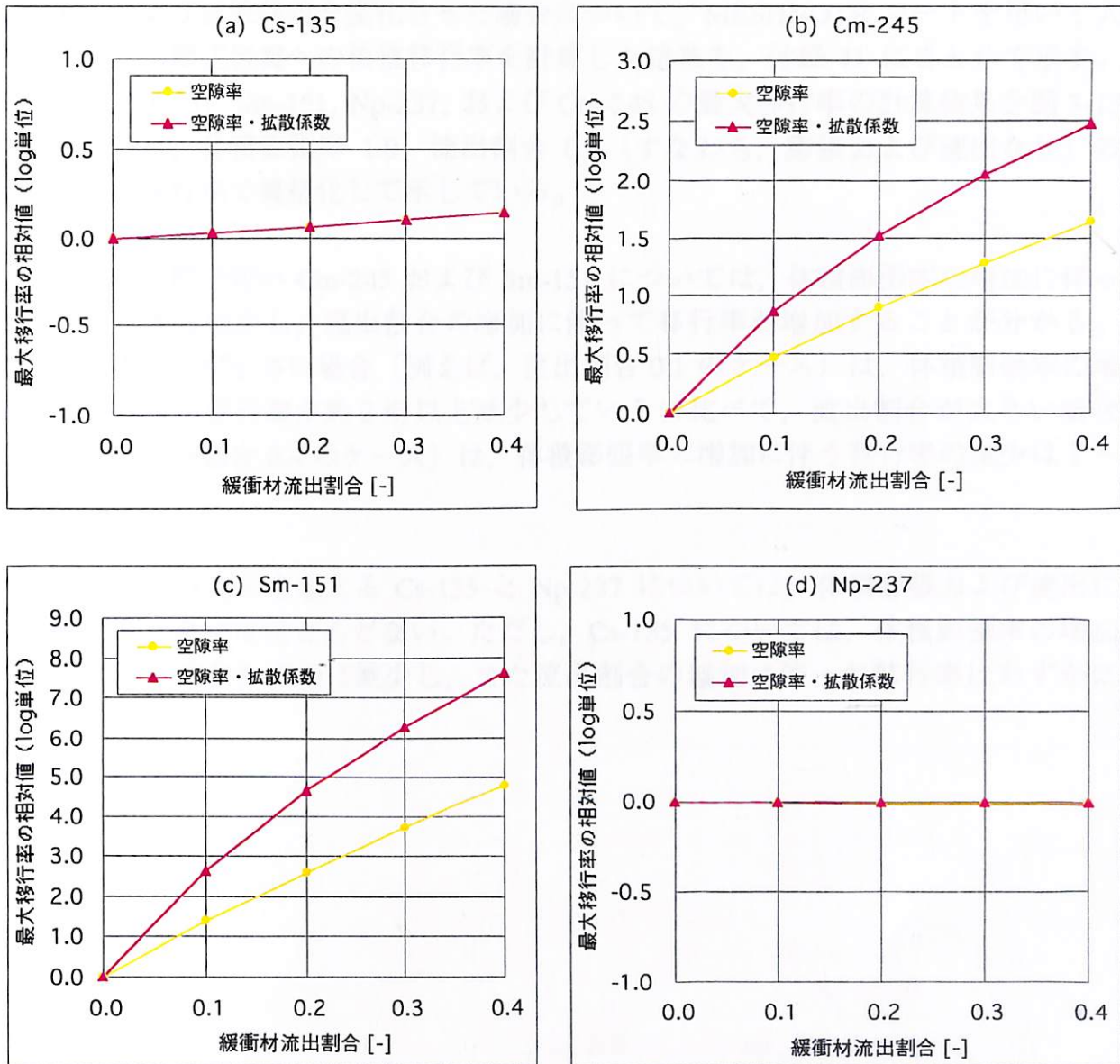


図3-12 緩衝材の流出による核種の最大移行率の変動  
(流出割合 0.0 の場合の最大移行率で規格化)

### 3.3 オーバーパックの腐食膨張と緩衝材の流出の複合現象

オーバーパックの腐食膨張と緩衝材の流出を同時に考慮し、緩衝材の内側半径、空隙率、および拡散係数を変化させた場合について、MESHNOTE コードを用いて人工バリアから周辺岩盤への核種移行率を計算した結果を、付録 D にまとめて示す。このうち、Cs-137, Sm-151, Np-237, および Cm-245 の最大移行率の計算結果を図 3-13 に示す。図は、体積膨張率 1.0, 流出割合 0.0 (すなわち、膨張および流出なし) の場合の最大移行率で規格化して示している。

半減期が比較的短い Cm-245 および Sm-151 については、体積膨張率の増加に伴って最大移行率は減少し、流出割合の増加に伴って移行率が増加することが分かる。また、流出割合が小さい場合 (例えば、流出割合 0.1 のケース) は、体積膨張率の増加によって最大移行率が約 2 桁以上減少しているに比べて、流出割合が大きい場合 (例えば、流出割合 0.4 のケース) は、体積膨張率の増加に伴う移行率の減少は 1 ~ 2 桁程度である。

半減期が 100 万年を超える Cs-135 と Np-237 については、体積膨張および流出による移行率の変化はほとんどない。ただし、Cs-135 については、体積膨張率の増加に伴って移行率がわずかに減少し、また流出割合の増加に伴って移行率はわずかに増加している。

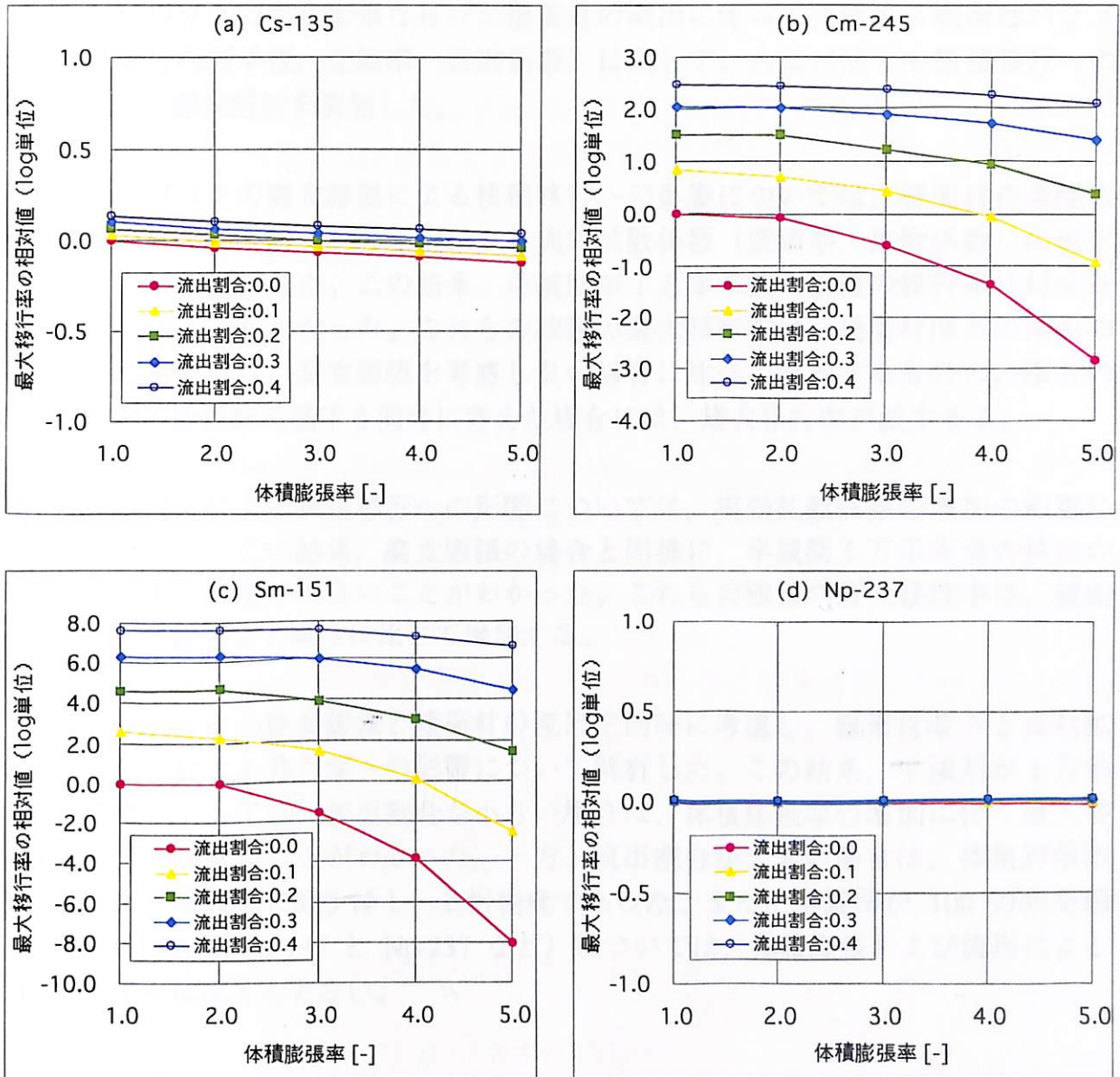


図 3-13 オーバーパックの腐食膨張と緩衝材の流出による核種の最大移行率の変動

(体積膨張率 1.0, 流出割合 0.0 の場合の最大移行率で規格化)

#### 4. まとめ

オーバーパックの腐食膨張ならびに緩衝材の流出に伴って変化する緩衝材パラメータ（緩衝材内側半径，空隙率，拡散係数）に関して，人工バリア中核種移行への影響について感度解析を実施した。

オーバーパックの腐食膨張による核種移行への影響については，緩衝材の半径方向の厚さの減少と，緩衝材の圧密による実効拡散係数（空隙率，拡散係数）の低下の影響について解析した。この結果，半減期が1万年未満の核種の移行率に対する影響が大きいことがわかった。これらの核種の最大移行率は，緩衝材厚さの減少のみを考えた場合には，腐食膨張を考慮しない場合に比べて増加するものの，厚さの減少と実効拡散係数の低下を同時に考えた場合には，最大移行率が減少する。

緩衝材の流出による核種移行への影響については，実効拡散係数の増加の影響について解析した。この結果，腐食膨張の場合と同様に，半減期1万年未満の核種の移行率に対する影響が大きいことがわかった。これらの核種の最大移行率は，緩衝材の流出を考慮しない場合に比べて増加する。

オーバーパックの腐食膨張と緩衝材の流出を同時に考慮し，緩衝材厚さと実効拡散係数の変化による移行率への影響について解析した。この結果，半減期が1万年以下の核種については，流出割合が小さい場合は，体積膨張率の増加に伴う最大移行率の減少が大きいことがわかった。一方，流出割合が大きい場合は，体積膨張率の増加に伴う移行率の減少は1～2桁程度であった。また，半減期が100万年を超える核種（例えば Cs-135 と Np-237 など）については，体積膨張および流出による移行率の変化はほとんどない。

## 参考文献

核燃料サイクル開発機構 (1999a)：わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性 ー地層処分研究開発第2次取りまとめー, 分冊3 地層処分システムの安全評価, JNC TN1400 99-023.

核燃料サイクル開発機構 (1999b)：わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性 ー地層処分研究開発第2次取りまとめー, 分冊2 地層処分の工学技術, JNC TN1400 99-022.

Sato, H. (1998) : Data Setting for Effective Diffusion Coefficients (De) of Nuclides in the Buffer for Reference Case in Performance Assessment of the Geological Disposal of High-Level Radioactive Waste (I) - A Dataset of De Values for Fresh-Reducing-High pH Groundwater (FRHP) -, PNC TN8410 98-097.

佐藤治夫 (1999)：第2次取りまとめにおける性能評価解析のための人工バリア中での核種の実効拡散係数 (De) データの設定, サイクル機構技術資料, JNC TN8400 99-063 (準備中) .

須田久美子, Misra Sudhir, 本橋賢一 (1992)：腐食びびわれ発生限界腐食量に関する解析的検討, コンクリート工学年次論文報告集, Vol. 14, No. 1, pp.751-757.

## 付録 A 腐食膨張と緩衝材流出に対する緩衝材形状パラメータの変化

オーバーパックの体積膨張率を  $F_E$  [-] とし、緩衝材の流出割合を  $f_R$  [-] とする。この二つのパラメータと緩衝材形状パラメータ（緩衝材の内側半径、高さ、および空隙率）の関係についての相関式をまとめる。

## (1) オーバーパック腐食後の半径および高さ

オーバーパックの腐食後の体積は、体積膨張率を用いて次式で表される。なお、オーバーパック内部にはガラス固化体を格納するための空間があり（付図 A-1 参照）、これを減じている。

$$V_{OP} - V_{in} = F_E (V_{OP}^0 - V_{in}) \quad (\text{A-1})$$

ただし、

$V_{OP}$	: オーバーパック腐食後の体積 [m <sup>3</sup> ]
$V_{OP}^0$	: オーバーパックの初期体積 [m <sup>3</sup> ]
$V_{in}$	: オーバーパック内側の空間体積 [m <sup>3</sup> ]
$F_E$	: オーバーパックの体積膨張率 [-]

ここで、オーバーパックの腐食により側面方向および上下方向に同じ長さで膨張すると仮定していることから、膨張による増加長さを  $\gamma$  とすれば、オーバーパックの腐食後の半径および高さは次式で表される。

$$\begin{aligned} a &= a_0 + \gamma \\ H &= H_0 + 2\gamma \end{aligned} \quad (\text{A-2})$$

ただし、

$a$	: オーバーパック腐食後の半径 [m]
$H$	: オーバーパック腐食後の高さ [m]
$a_0$	: オーバーパックの初期半径 [m]
$H_0$	: オーバーパックの初期高さ [m]
$\gamma$	: 膨張による増加長さ [m]

これを (A-1) 式に代入すれば、 $\gamma$  に対して次式が得られる。

$$\begin{aligned} \pi(a_0 + \gamma)^2(H_0 + 2\gamma) - V_{in} &= F_E(\pi a_0^2 H_0 - V_{in}) \\ \therefore 2\gamma^3 + (4a_0 + H_0)\gamma^2 + 2a_0(a_0 + H_0)\gamma &= \frac{F_E - 1}{\pi}(\pi a_0^2 H_0 - V_{in}) \end{aligned} \quad (\text{A-3})$$

したがって、(A-3) 式を解いて増加長さ  $\gamma$  を求めれば、オーバーパック腐食後の半径と高さは (A-2) 式から得られる。なお、(A-3) 式の解析に際しては Newton-Rapson 法を用いた。

## (2) 緩衝材の空隙率

オーバーパックの腐食膨張および緩衝材の流出後の、緩衝材の体積と重量は次式で表される。

$$\begin{aligned} V_{BF} &= V_{BF}^0 - \Delta V_{OP} \\ W_{BF} &= W_{BF}^0 (1 - f_R) \end{aligned} \quad (\text{A-4})$$

ただし、

$V_{BF}$	: 緩衝材の体積 [m <sup>3</sup> ]
$V_{BF}^0$	: 緩衝材の初期体積 [m <sup>3</sup> ]
$\Delta V_{OP}$	: オーバーパックの増加体積 [m <sup>3</sup> ]
$W_{BF}$	: 緩衝材の乾燥重量 [kg]
$W_{BF}^0$	: 緩衝材の初期乾燥重量 [kg]
$f_R$	: 緩衝材の流出割合 [-]

ここで、オーバーパックの増加体積は次式で表される<sup>A-1)</sup>。

$$\Delta V_{OP} = V_{OP}^0 (F_E - 1)$$

ただし、

$V_{OP}^0$	: オーバーパックの初期体積 [m <sup>3</sup> ]
$F_E$	: オーバーパックの体積膨張率 [-]

(A-4)式から、オーバーパック腐食膨張および緩衝材流出後の、緩衝材の密度は次式で表される。

$$\rho = (1 - \varepsilon) \rho_b = \frac{W_{BF}}{V_{BF}} = \frac{W_{BF}^0 (1 - f_R)}{V_{BF}^0 - \Delta V_{OP}} \quad (\text{A-5})$$

ただし、

$\rho$	: 緩衝材の乾燥密度 [kg/m <sup>3</sup> ]
$\varepsilon$	: 緩衝材の空隙率 [-]
$\rho_b$	: 緩衝材の真密度 [kg/m <sup>3</sup> ]
$V_{BF}^0$	: 緩衝材の初期体積 [m <sup>3</sup> ]

また、緩衝材の初期乾燥重量は次式で表される。

$$W_{BF}^0 = \rho_0 V_{BF}^0 = (1 - \varepsilon_0) \rho_b V_{BF}^0 \quad (\text{A-6})$$

ただし、

$\rho_0$	: 緩衝材の初期乾燥密度 [kg/m <sup>3</sup> ]
$\varepsilon_0$	: 緩衝材の初期空隙率 [-]

A-1) ここでは、緩衝材の体積を求めることが目的であり、オーバーパック（腐食生成物含む）の実体積ではなく、緩衝材中での占有体積が問題になる。このため、オーバーパック内側の空間の体積  $V_{in}$  を減じる必要はない。



これを (A-5)式に代入すると、オーバーパック腐食膨張および緩衝材流出後の、緩衝材空隙率は最終的に次式で表される。

$$(1-\varepsilon)\rho_b = \frac{(1-\varepsilon_0)\rho_b V_{BF}^0 (1-f_R)}{V_{BF}^0 - V_{OP}^0 (F_E - 1)} \quad (A-7)$$

$$\therefore \varepsilon = 1 - \frac{(1-\varepsilon_0)V_{BF}^0 (1-f_R)}{V_{BF}^0 - V_{OP}^0 (F_E - 1)}$$

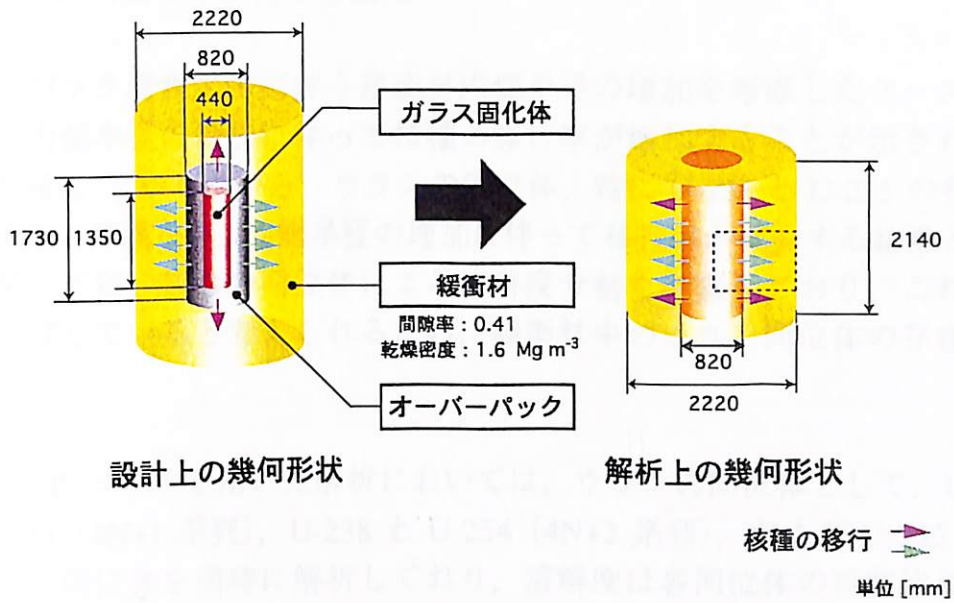
ただし、

$\varepsilon$	: 緩衝材の空隙率 [-]
$\varepsilon_0$	: 緩衝材の初期空隙率 [-]
$V_{BF}^0$	: 緩衝材の初期体積 [m <sup>3</sup> ]
$V_{OP}^0$	: オーバーパックの初期体積 [m <sup>3</sup> ]
$F_E$	: オーバーパックの体積膨張率 [-]
$f_R$	: 緩衝材の流出割合 [-]

### (3) 緩衝材の内側半径および高さ (解析上の取扱い)

地層処分研究開発第2次取りまとめのレファレンスケースにおける人工バリア中の核種移行評価では、オーバーパックの腐食領域での核種の移行・吸着を無視している。ここでも、レファレンスケースと同様に、オーバーパック腐食領域での移行を無視することとし、感度解析で使用する緩衝材の内側半径はオーバーパックの腐食後の半径を設定する。

また、第2次取りまとめのレファレンスケースでは、オーバーパックの全面（上下面および側面）から浸出する核種が、1次元でモデル化している緩衝材領域にすべて流入するように、移行評価上の緩衝材内側表面積がオーバーパックの全表面積（上下面および側面の合計面積）と等しくなるように、緩衝材の高さを設定している（付図 A-1 参照）。



付図 A-1 人工バリアの幾何形状と解析上の取り扱い

ここでも、レファレンスケースと同様に、緩衝材の内側表面積がオーバーパック腐食後の全表面積（上下面と側面の合計面積）と等しくなるように、緩衝材の高さを次式から設定した。

$$2\pi aH + 2(\pi a^2) = 2\pi aH_{BF} \tag{A-8}$$

$$\therefore H_{BF} = H + a = H_0 + a_0 + 3\gamma$$

ただし、

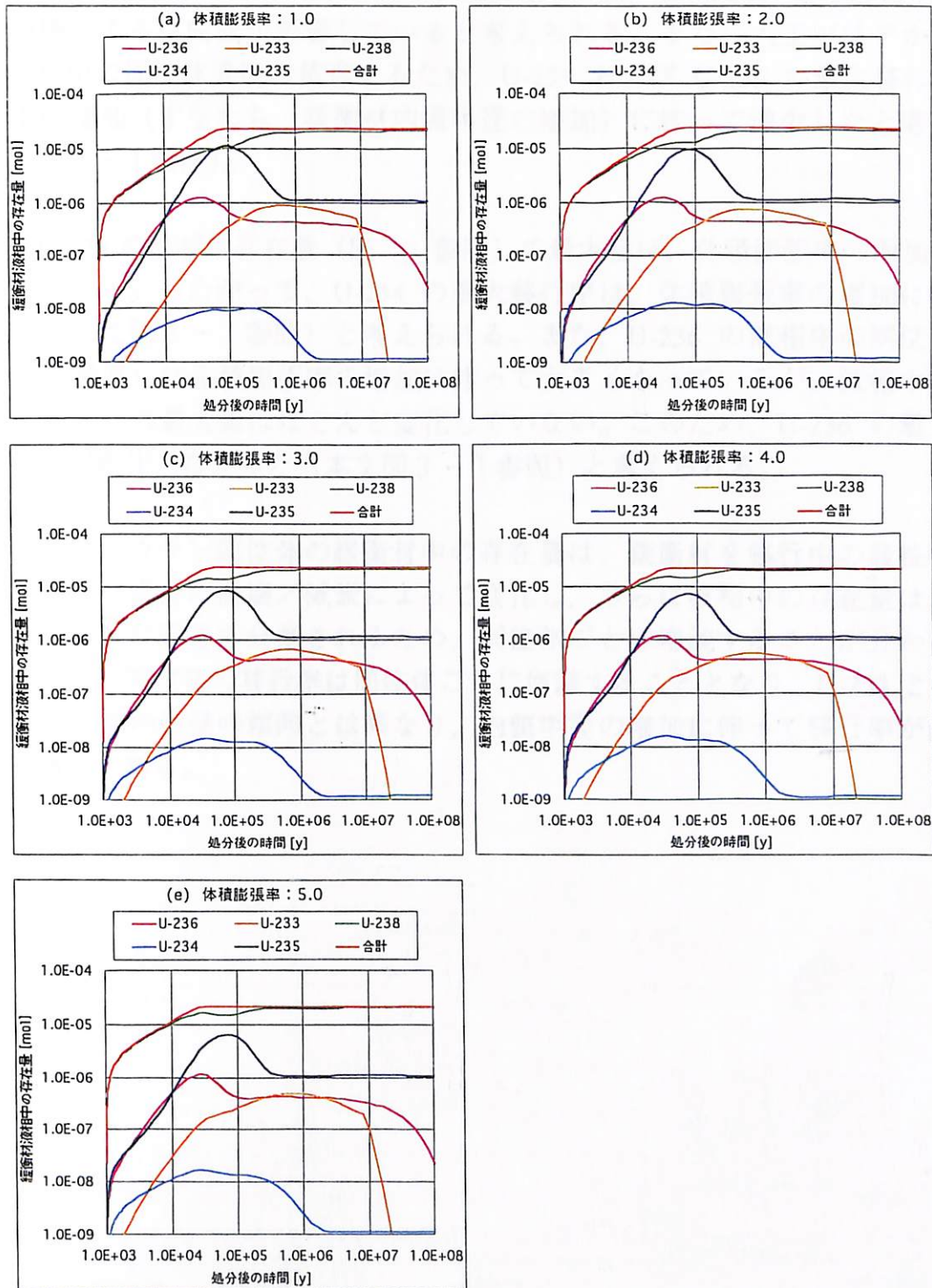
- $H_{BF}$  : 移行評価上の緩衝材高さ [m]
- $a_0$  : オーバーパックの初期半径 (= 緩衝材の初期内径) [m]
- $H_0$  : オーバーパックの初期高さ [m]
- $\gamma$  : オーバーパックの腐食膨張による増加長さ [m]

## 付録B ウラン同位体の移行率の変化

オーバーパック腐食膨張に伴う緩衝材内側半径の増加を考慮したケース1の解析結果では、内側半径の増加に伴って核種の移行率が増加することが示された（本文図3-1参照）。しかしながら、ウランの同位体、特にU-233とU-235の移行率は他の核種の傾向とは異なり、内側半径の増加に伴って移行率が減少する結果となった。ウランに関しては、複数の同位体による溶解度分割を考慮しており、これが移行率に影響を及ぼしていると考えられるため、緩衝材中のウラン同位体の存在量について調べた。

MESHNOTEコードを用いた解析においては、ウランの同位体として、U-236（4N系列）、U-233（4N+1系列）、U-238とU-234（4N+2系列）、およびU-235（4N+3系列）の5つの同位体を同時に解析しており、溶解度は各同位体の存在比に応じて分割される（溶解度分割）。この同位体存在比は、緩衝材を移行中の親核種（各系列の上位核種）の崩壊による生成や自身の崩壊/減衰により、緩衝材中で空間的・時間的に変化する。（これはコード内で自動的に計算される。）

このような同位体存在比の変化について確認するために、緩衝材液相中のウランの各同位体の濃度を積分して存在量を求め、その時間変化について比較した。結果を付図B-1に示す。図から、緩衝材液相中のウランの存在量（合計値）は、いずれのケースにおいても10万年以降ほぼ一定値となっており、これはウランの溶解度（ $8 \times 10^{-9}$  mol/l）から算出される存在量と等しい。すなわち、緩衝材の全域にわたって、液相中のウラン濃度は溶解度とほぼ等しくなっている。一方、各同位体ごとの存在量を比較すると、10万年付近でピークとなるU-235や100万年付近でピークとなるU-233の存在量は、体積膨張率が大きくなるに従って、すなわち緩衝材の内側半径の増加に伴って減少していることが分かる。これは、親核種（U-235はPu-239、U-233はNp-237）からの崩壊による生成量が影響していると考えられる。また、10万年頃のU-238の存在量は体積膨張率が大きくなるに従って増加しており、これはU-235の存在量が減少したために溶解度に対してU-238の存在量が相対的に大きくなったものと考えられる。



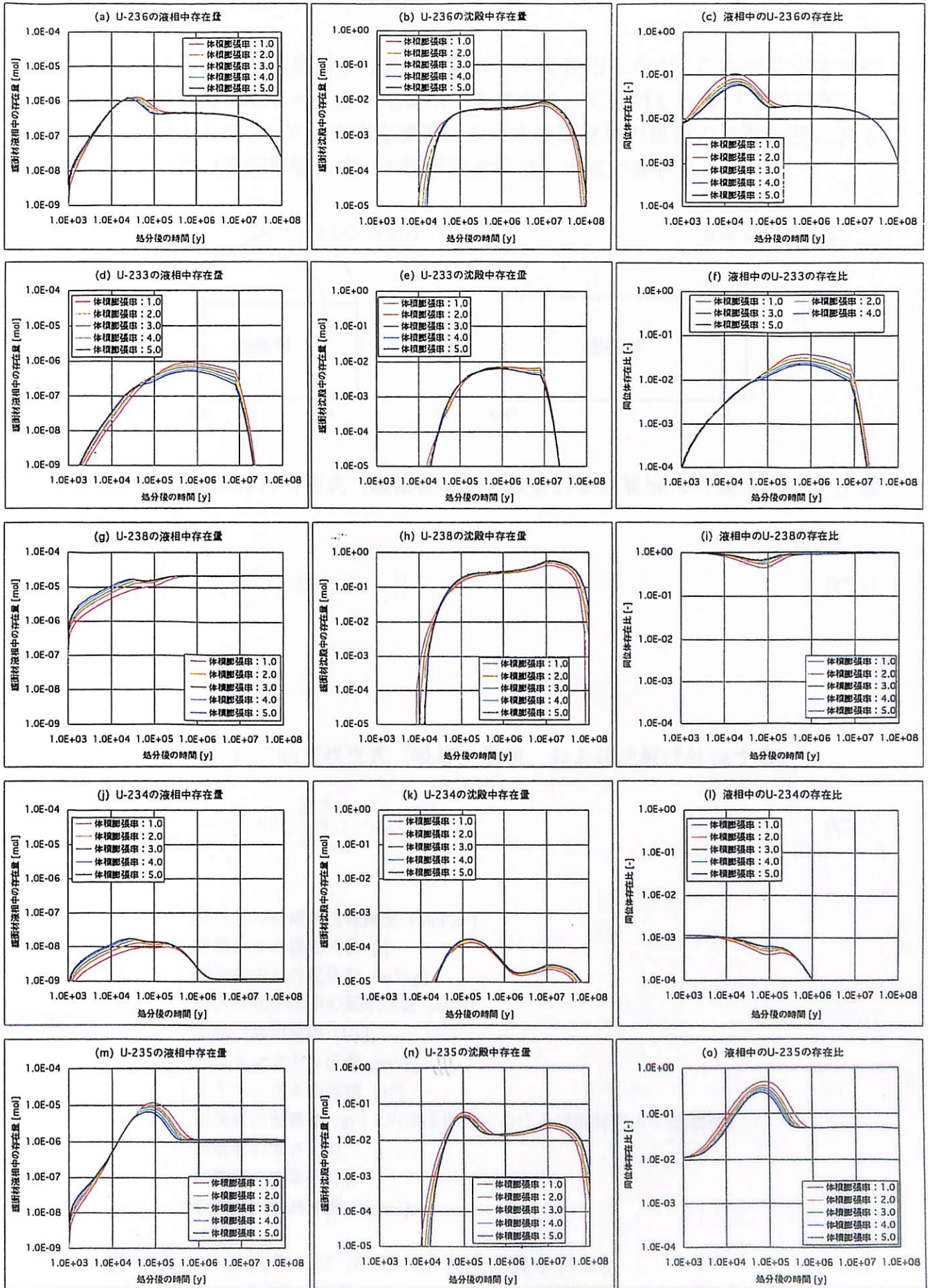
付図B-1 緩衝材液相中のウラン同位体の存在量の比較

次に、各同位体ごとに、緩衝材液相中の存在量、緩衝材中の沈殿量、ならびに液相中の同位体存在比を求めた結果を、付図B-2に示す。U-233の液相中存在量（図(d)参照）の最大値（100万年付近）、およびU-235の液相中存在量（図(m)参照）の最大値（10万年付近）は、体積膨張率の増加に伴って減少している。同様に、U-233とU-235の緩衝材中の沈殿量（図(e)および(n)参照）の最大値も、体積膨張

率の増加に伴って減少している。これは、親核種 (U-235 は Pu-239, U-233 は Np-237) からの崩壊による生成量が影響していると考えられる。また、人工バリアからの移行率は液相中の同位体濃度に依存するため、U-233 および U-235 の最大移行率は体積膨張率の増加 (すなわち、緩衝材内側半径の増加) に伴って減少したと考えられる (本文図 3-1 参照)。

一方、U-234 の液相中存在量 (図 (j) 参照) の最大値は、体積膨張率の増加とともに増加している。したがって、U-234 の最大移行率は、体積膨張率の増加に伴って増加した (本文図 3-1 参照) と考えられる。また、U-236 の液相中の同位体存在比 (図 (c) 参照) は体積膨張率の増加に伴って大きくなっているが、液相中存在量 (図 (a) 参照) の最大値はほとんど変化していない。このため、U-236 の最大移行率はほとんど変化しなかった (本文図 3-1 参照) と考えられる。

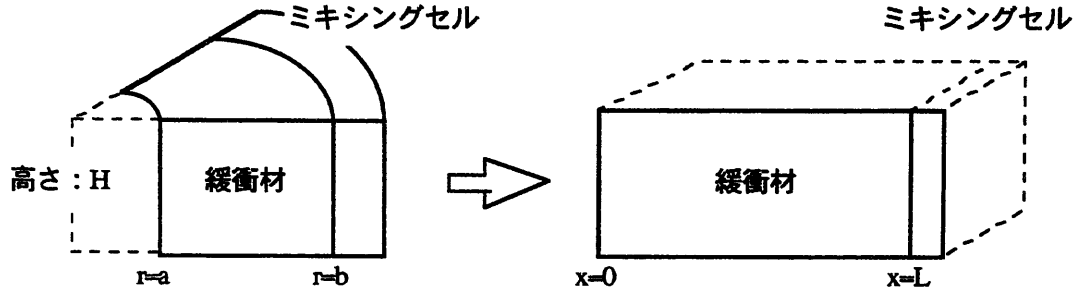
このように、ウラン同位体の緩衝材中の存在量は、緩衝材を移行中の親核種の崩壊による生成や自身の崩壊/減衰によって変化し、さらに液相中の存在量は溶解度が同位体存在比に応じて分割されるため、同位体ごとに増減することが分かる。この結果、ウラン同位体の移行率は同位体ごとに増減することとなり、U-233 と U-235 の移行率は、他の核種の傾向とは異なり、内側半径の増加に伴って移行率が減少したものと考えられる。



付図B-2 ウランの各同位体の液相中の存在量、沈殿中の存在量、および液相中の同位体存在比の比較

## 付録 C 1次元直交座標系の定常解析解

感度解析では1次元円筒座標系の数値計算コードを使用した<sup>が</sup>、ここでは定常解析解の導出が比較的容易な1次元直交座標系に座標変換して検討を行う（下図参照）。単一核種を対象として、1次元直交座標系における緩衝材中の核種の拡散方程式およびミキシングセル（掘削影響領域）の物質収支式は、次式で表される。



- ・緩衝材中の拡散移行方程式（緩衝材中での収着および崩壊は考慮する<sup>が</sup>、沈澱は無視する。）

$$R_d \frac{\partial C}{\partial t} = D_p \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - \lambda R_d C \quad (C-1)$$

ただし、

$$R_d = 1 + \frac{\rho K_d}{\varepsilon}$$

- ・ミキシングセル内の物質収支式（吸着、崩壊、および沈澱は無視する。）

$$V^m \frac{\partial C^m}{\partial t} = -A \varepsilon D_p \left. \frac{\partial C}{\partial x} \right|_{x=L} - Q C^m \quad (C-2)$$

ここで、

- $C$  : 緩衝材中の液相核種濃度 [mol/m<sup>3</sup>],
- $R_d$  : 緩衝材中の遅延係数 [-],
- $K_d$  : 緩衝材中の分配係数 [m<sup>3</sup>/kg],
- $D_p$  : 緩衝材間隙水中の拡散係数 [m<sup>2</sup>/y],
- $\lambda$  : 核種の崩壊定数 [1/y],
- $Q$  : ミキシングセル流量 [m<sup>3</sup>/y],
- $V^m$  : ミキシングセル体積 [m<sup>3</sup>],
- $A$  : 緩衝材の断面積 [m<sup>2</sup>] (円筒座標系における緩衝材の外側表面積),
- $L$  : 緩衝材の厚さ [m],
- $\varepsilon$  : 緩衝材の空隙率 [-],
- $\rho$  : 緩衝材の乾燥密度 [kg/m<sup>3</sup>]

定常状態では、(C-1)式および (C-2)式は次式で表される。

$$\frac{d^2 C}{dx^2} - \frac{\lambda R_d}{D_p} C = 0 \quad (\text{C-3})$$

$$Q C^m = -A \varepsilon D_p \left. \frac{dC}{dx} \right|_{x=L} \quad (\text{C-4})$$

ここで,

$$\alpha \equiv \sqrt{\frac{\lambda R_d}{D_p}} \quad (\text{C-5})$$

とおくと, (C-3)式の一般解は次式で与えられる。

$$C = a_1 \exp(\alpha x) + a_2 \exp(-\alpha x) \quad (\text{C-6})$$

この一般解を, 緩衝材内側の境界条件が溶解度制限の場合と一定流入率の場合について解き, 緩衝材からの定常放出率を求める。

### (1) 溶解度制限

境界条件は次式で与えられる。

$$C(0) = C^* \quad (\text{内側境界：溶解度制限}) \quad (\text{C-7})$$

$$C(L) = C^m \quad (\text{外側境界：定常ミキシングセル濃度}) \quad (\text{C-8})$$

ここで,

$C^*$  : 緩衝材中の溶解度 [mol/m<sup>3</sup>],

$C^m$  : ミキシングセル内の定常濃度 [mol/m<sup>3</sup>],

一般解 (C-6)式に (C-7)式および (C-8)式を適用すると,

$$C^* = a_1 + a_2$$

$$C^m = a_1 \exp(\alpha L) + a_2 \exp(-\alpha L)$$

となる。これより,

$$C^m = a_1 \exp(\alpha L) + (C^* - a_1) \exp(-\alpha L)$$

$$a_1 [\exp(\alpha L) - \exp(-\alpha L)] = C^m - C^* \exp(-\alpha L)$$

$$\therefore a_1 = \frac{C^m - C^* \exp(-\alpha L)}{\exp(\alpha L) - \exp(-\alpha L)}$$

が得られる。また,



$$a_2 = C^* - a_1 = C^* - \frac{C^m - C^* \exp(-\alpha L)}{\exp(\alpha L) - \exp(-\alpha L)}$$

$$\therefore a_2 = \frac{C^* \exp(\alpha L) - C^m}{\exp(\alpha L) - \exp(-\alpha L)}$$

となる。従って、内側境界条件が溶解度制限の場合の定常解析解として、最終的に次式が得られる。

$$C = \frac{C^m - C^* \exp(-\alpha L)}{\exp(\alpha L) - \exp(-\alpha L)} \exp(\alpha x) + \frac{C^* \exp(\alpha L) - C^m}{\exp(\alpha L) - \exp(-\alpha L)} \exp(-\alpha x) \quad (\text{C-9})$$

次に、(C-4)式と (C-9)式からミキシングセル濃度  $C^m$  を求める。(C-4)式の中の微分項は、(C-9)式から以下のように表される。

$$\begin{aligned} \left. \frac{dC}{dx} \right|_{x=L} &= [a_1 \alpha \exp(\alpha x) - a_2 \alpha \exp(-\alpha x)] \Big|_{x=L} \\ &= \frac{[C^m - C^* \exp(-\alpha L)]}{\exp(\alpha L) - \exp(-\alpha L)} \alpha \exp(\alpha L) - \frac{[C^* \exp(\alpha L) - C^m]}{\exp(\alpha L) - \exp(-\alpha L)} \alpha \exp(-\alpha L) \\ &= \frac{\alpha C^m [\exp(\alpha L) + \exp(-\alpha L)] - 2 \alpha C^*}{\exp(\alpha L) - \exp(-\alpha L)} \\ &= \frac{\alpha C^m}{\tanh(\alpha L)} - \frac{\alpha C^*}{\sinh(\alpha L)} \end{aligned}$$

これを、(C-4)式に代入すると、定常時のミキシングセル濃度が得られる。

$$Q C^m = -A \varepsilon D_p \left( \frac{\alpha C^m}{\tanh(\alpha L)} - \frac{\alpha C^*}{\sinh(\alpha L)} \right)$$

$$C^m \left( Q + \frac{\alpha A \varepsilon D_p}{\tanh(\alpha L)} \right) = \frac{\alpha A \varepsilon D_p C^*}{\sinh(\alpha L)}$$

$$C^m \left( \frac{\sinh(\alpha L)}{\alpha A \varepsilon D_p} Q + \frac{\sinh(\alpha L)}{\tanh(\alpha L)} \right) = C^*$$

$$\therefore C^m = \frac{C^*}{\left( \frac{\sinh(\alpha L)}{\alpha A \varepsilon D_p} Q + \cosh(\alpha L) \right)} \quad (\text{C-10})$$

最後に、ミキシングセル流量とミキシングセル内の定常濃度 (C-10)式から、緩衝材からの定常放出率  $\phi^{OUT}$  [mol/y] は次式で表される。

$$\phi^{OUT} = Q C^m = \frac{Q C^*}{\left( \frac{Q}{\alpha A \varepsilon D_p} \sinh(\alpha L) + \cosh(\alpha L) \right)} \quad (\text{C-11})$$

ただし,

$$\alpha = \sqrt{\frac{\lambda R_d}{D_p}}$$

$$R_d = 1 + \frac{\rho K_d}{\varepsilon}$$

ここで,

- $C^*$  : 緩衝材中の溶解度 [mol/m<sup>3</sup>],
- $R_d$  : 緩衝材中の遅延係数 [-],
- $D_p$  : 拡散係数 [m<sup>2</sup>/y],
- $\lambda$  : 崩壊定数 [1/y],
- $Q$  : ミキシングセル流量 [m<sup>3</sup>/y],
- $A$  : 断面積 [m<sup>2</sup>],
- $L$  : 緩衝材厚さ [m],
- $\varepsilon$  : 緩衝材空隙率 [-],
- $K_d$  : 緩衝材中の分配係数 [m<sup>3</sup>/kg],
- $\rho$  : 緩衝材の乾燥密度 [kg/m<sup>3</sup>]

## (2) 一定流入率

境界条件は次式で与えられる。

$$-A \varepsilon D_p \left. \frac{dC}{dx} \right|_{x=0} = \phi^{IN} \quad (\text{内側境界：一定流入率}) \quad (\text{C-12})$$

$$C(L) = C^m \quad (\text{外側境界：定常ミキシングセル濃度}) \quad (\text{C-13})$$

ここで,

- $\phi^{IN}$  : 緩衝材への核種の一定流入率 [mol/y],
- $C^m$  : ミキシングセル内の定常濃度 [mol/m<sup>3</sup>]

一般解 (C-6)式を (C-12)式に代入すると、次式が得られる。

$$-A \varepsilon D_p [a_1 \alpha \exp(\alpha x) - a_2 \alpha \exp(-\alpha x)] \Big|_{x=0} = \phi^{IN}$$

$$-A \varepsilon D_p \alpha (a_1 - a_2) = \phi^{IN}$$

$$\therefore a_2 = a_1 + \beta$$

ただし,

$$\beta = \frac{\phi^{IN}}{A \varepsilon D_p \alpha}$$

一方, (C-13)式から,

$$C^m = a_1 \exp(\alpha L) + a_2 \exp(-\alpha L)$$

となる。これより、

$$\begin{aligned} C^m &= a_1 \exp(\alpha L) + (a_1 + \beta) \exp(-\alpha L) \\ a_1 [\exp(\alpha L) + \exp(-\alpha L)] &= C^m - \beta \exp(-\alpha L) \\ \therefore a_1 &= \frac{C^m - \beta \exp(-\alpha L)}{\exp(\alpha L) + \exp(-\alpha L)} \end{aligned}$$

が得られる。また、

$$\begin{aligned} a_2 &= a_1 + \beta = \frac{C^m - \beta \exp(-\alpha L)}{\exp(\alpha L) + \exp(-\alpha L)} + \beta \\ \therefore a_2 &= \frac{C^m + \beta \exp(\alpha L)}{\exp(\alpha L) + \exp(-\alpha L)} \end{aligned}$$

となる。従って、内側境界条件が一定流入率の場合の定常解析解として、最終的に次式が得られる。

$$C = \frac{C^m - \beta \exp(-\alpha L)}{\exp(\alpha L) + \exp(-\alpha L)} \exp(\alpha x) + \frac{C^m + \beta \exp(\alpha L)}{\exp(\alpha L) + \exp(-\alpha L)} \exp(-\alpha x) \quad (\text{C-14})$$

次に (C-4)式と (C-14)式からミキシングセル濃度  $C^m$  を求める。(C-4)式の中の微分項は (C-14)式から以下のように表される。

$$\begin{aligned} \left. \frac{dC}{dx} \right|_{x=L} &= [a_1 \alpha \exp(\alpha x) - a_2 \alpha \exp(-\alpha x)] \Big|_{x=L} \\ &= \frac{[C^m - \beta \exp(-\alpha L)]}{\exp(\alpha L) + \exp(-\alpha L)} \alpha \exp(\alpha L) - \frac{[C^m + \beta \exp(\alpha L)]}{\exp(\alpha L) + \exp(-\alpha L)} \alpha \exp(-\alpha L) \\ &= \frac{\alpha C^m [\exp(\alpha L) - \exp(-\alpha L)] - 2 \alpha \beta}{\exp(\alpha L) + \exp(-\alpha L)} \\ &= \alpha C^m \tanh(\alpha L) - \frac{\alpha \beta}{\cosh(\alpha L)} \end{aligned}$$

これを、(C-4)式に代入すると、定常時のミキシングセル濃度が得られる。

$$\begin{aligned} Q C^m &= -A \varepsilon D_p \left( \alpha C^m \tanh(\alpha L) - \frac{\alpha \beta}{\cosh(\alpha L)} \right) \\ C^m \left( Q + A \varepsilon D_p \alpha \tanh(\alpha L) \right) &= A \varepsilon D_p \frac{\alpha}{\cosh(\alpha L)} \frac{\phi^{IN}}{A \varepsilon D_p \alpha} \\ C^m \left( Q \cosh(\alpha L) + A \varepsilon D_p \alpha \sinh(\alpha L) \right) &= \phi^{IN} \end{aligned}$$

$$\therefore C^m = \frac{\phi^{IN}}{Q \left( \cosh(\alpha L) + \frac{\alpha A \varepsilon D_p}{Q} \sinh(\alpha L) \right)} \quad (\text{C-15})$$

最後に、ミキシングセル流量とミキシングセル内の定常濃度 (C-15)式から、緩衝材からの定常放出率  $\phi^{OUT}$  [mol/y] は次式で表される。

$$\phi^{OUT} = Q C^m = \frac{\phi^{IN}}{\left( \cosh(\alpha L) + \frac{\alpha A \varepsilon D_p}{Q} \sinh(\alpha L) \right)} \quad (\text{C-16})$$

ただし、

$$\alpha = \sqrt{\frac{\lambda R_d}{D_p}}$$

$$R_d = 1 + \frac{\rho K_d}{\varepsilon}$$

ここで、

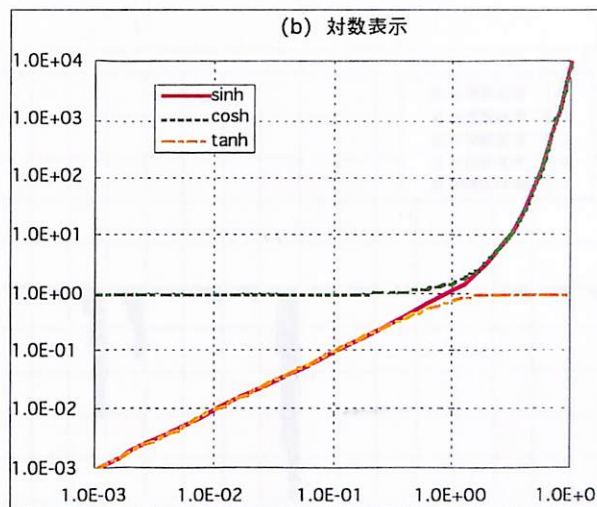
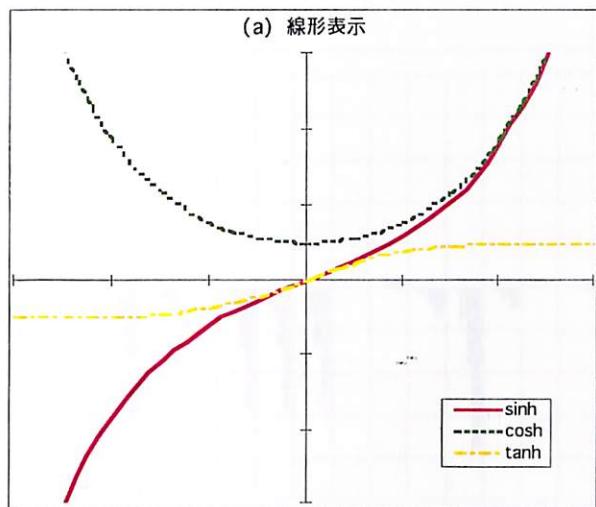
- $\phi^{IN}$  : 緩衝材への核種の定常流入率 [mol/y],
- $R_d$  : 緩衝材中の遅延係数 [-],
- $D_p$  : 拡散係数 [ $\text{m}^2/\text{y}$ ],
- $\lambda$  : 崩壊定数 [1/y],
- $Q$  : ミキシングセル流量 [ $\text{m}^3/\text{y}$ ],
- $A$  : 断面積 [ $\text{m}^2$ ],
- $L$  : 緩衝材厚さ [m],
- $\varepsilon$  : 緩衝材空隙率 [-],
- $K_d$  : 緩衝材中の分配係数 [ $\text{m}^3/\text{kg}$ ],
- $\rho$  : 緩衝材の乾燥密度 [ $\text{kg}/\text{m}^3$ ]

<参考：双曲線関数>

$$\sinh(x) = \frac{\exp(x) - \exp(-x)}{2}$$

$$\cosh(x) = \frac{\exp(x) + \exp(-x)}{2}$$

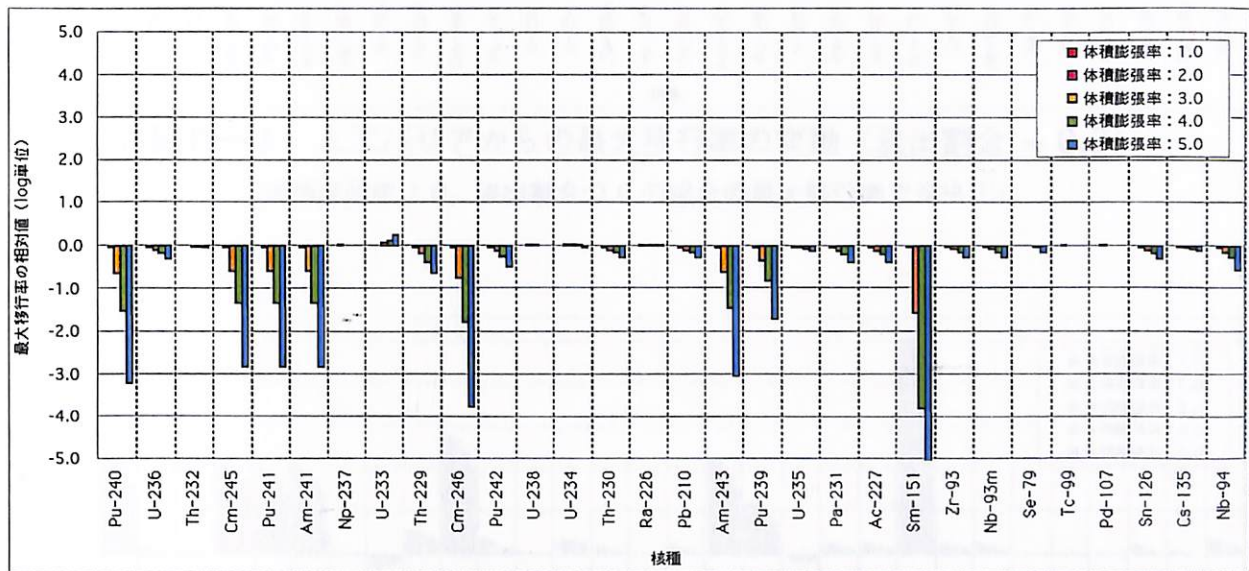
$$\tanh(x) = \frac{\sinh(x)}{\cosh(x)} = \frac{\exp(x) - \exp(-x)}{\exp(x) + \exp(-x)} = \frac{\exp(2x) - 1}{\exp(2x) + 1}$$



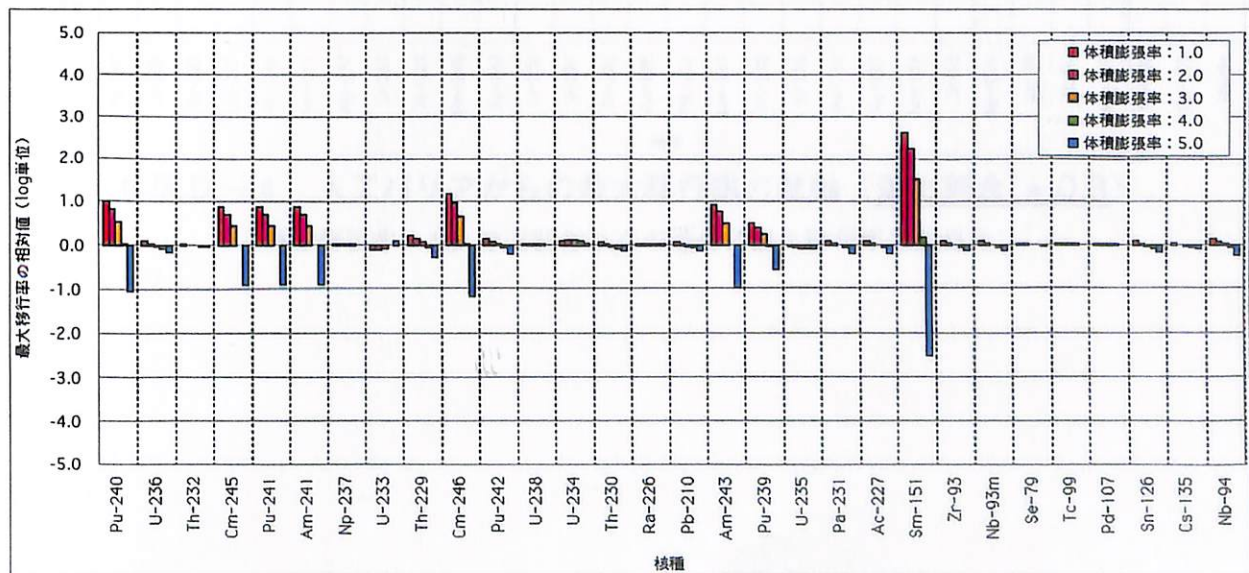
付図 C-1 双曲線関数

付録 D オーバーパック腐食膨張と緩衝材流出を同時に考慮した場合の人工バリアからの核種移行率の解析結果

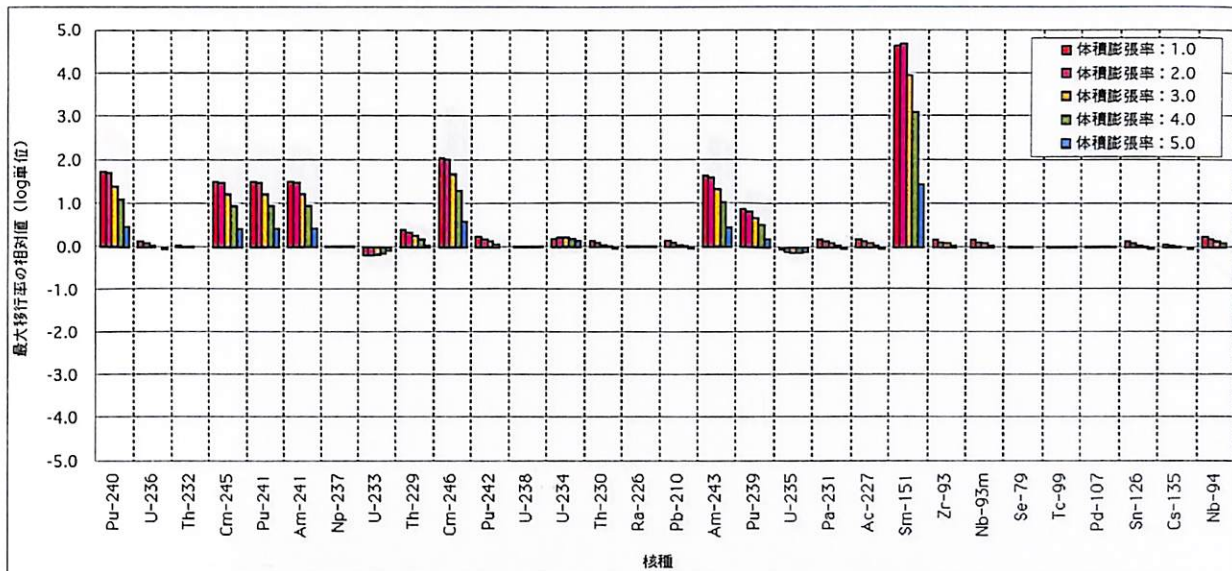
オーバーパックの腐食膨張と緩衝材の流出を同時に考慮し、緩衝材内側半径、空隙率、および拡散係数を変化させた場合について、MESHNOTE コードによる解析で得られた各核種の最大移行率を付図D-1～図D-5に示す。図はすべて、体積膨張率 1.0、流出割合 0.0（すなわち、膨張および流出なし）の場合の最大移行率で各ケースの最大移行率を規格化して表している。なお、付図D-1は本文中の図3-5と同じである。



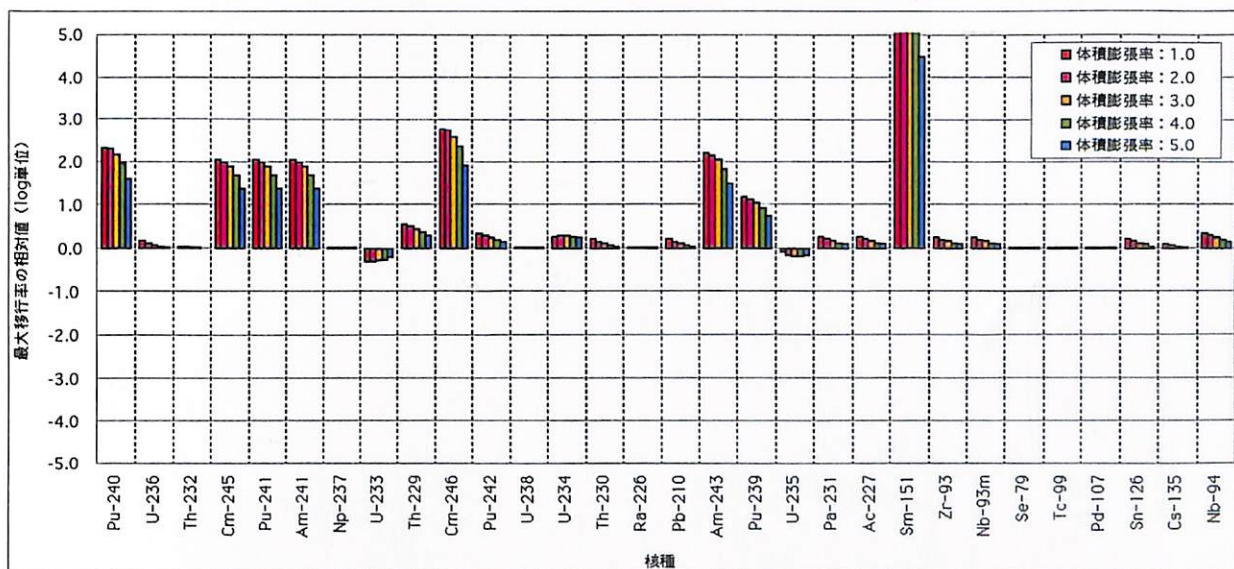
付図D-1 人工バリアからの最大移行率の変動 (流出割合 = 0.0)  
(体積膨張率:1.0, 流出割合:0.0 の場合の最大移行率で規格化)



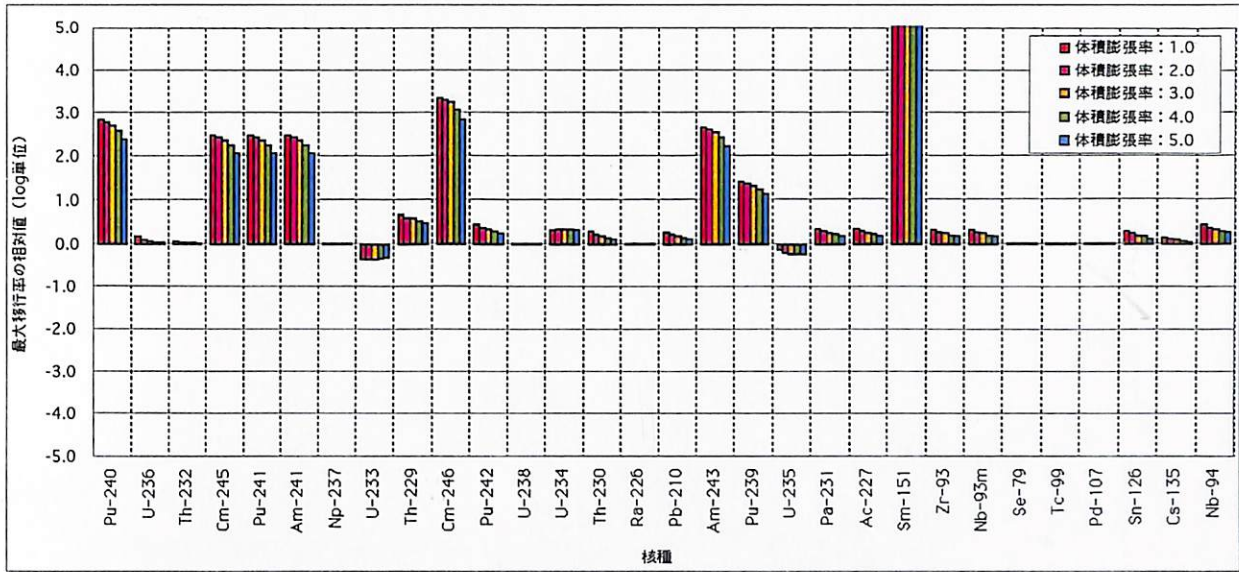
付図D-2 人工バリアからの最大移行率の変動 (流出割合 = 0.1)  
(体積膨張率:1.0, 流出割合:0.0 の場合の最大移行率で規格化)



付図D-3 人工バリアからの最大移行率の変動 (流出割合 = 0.2)  
 (体積膨張率:1.0, 流出割合:0.0 の場合の最大移行率で規格化)



付図D-4 人工バリアからの最大移行率の変動 (流出割合 = 0.3)  
 (体積膨張率:1.0, 流出割合:0.0 の場合の最大移行率で規格化)



付図D-5 人工バリアからの最大移行率の変動 (流出割合 = 0.4)

(体積膨張率:1.0, 流出割合:0.0 の場合の最大移行率で規格化)