

JNC TN8400 99-094

濃度干渉を考慮した天然バリア中の核種移行モデルの開発

(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。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :

Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

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

濃度干渉を考慮した天然バリア中の核種移行モデルの開発 (研究報告)

畑中耕一郎*、亘信吾**、井尻裕二***

地下水シナリオを想定した地層処分システムの安全評価においては、従来より、単一のガラス固化体を基本として、人工バリア中及び天然バリア中の核種移行解析が行われ、その結果に生物圏の解析で得られた線量換算係数及び処分場に設置される予定のガラス固化体の総本数を乗じることにより全体システムの安全性が論じられている。このような性能評価手法に対し、本研究では、処分場内に埋設されたガラス固化体が多重ソースとして作用し、その結果生じると考えられる核種濃度の干渉現象に着目し、その影響を評価することができるモデル・コードを新たに構築した。また、既存コードとの比較解析を通して、新たに構築したコードの検証を行なうとともに、第2次取りまとめレファレンスケースのデータを使用して濃度干渉効果の概括的評価を試みた。その結果、単一のガラス固化体を基本とした従来の評価手法から得られる核種移行率に比べ、濃度干渉効果を考慮に入れた解析から得られる核種移行率は約2オーダーのピーク値の低減効果が見られた。ここでの結果は、濃度干渉効果が最大の場合に相当し、処分場内の2次元、3次元的な流れを考慮した検討が今後必要である。

* 東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部 システム解析グループ

** 現 株式会社 CRC 総合研究所 原子力システム部

*** 現 大成建設株式会社 エンジニアリング本部

Development of Repository-Wide Radionuclide Transport Model Considering the Effects of Multiple Sources

Koichiro Hatanaka*, Shingo Watari **, Yuji Ijiri ***

Safety assessment of the geological isolation system according to the groundwater scenario has traditionally been conducted based on the single canister configuration and then the safety of total system has been evaluated based on the dose rates which were obtained by multiplying the migration rates released from the engineered barrier and/or the natural barrier by dose conversion factors and total number of canisters disposed in the repository. The dose conversion factors can be obtained from the biosphere analysis.

In this study, we focused on the effect of multiple sources due to the disposal of canisters at different positions in the repository. By taking the effect of multiple sources into consideration, concentration interference in the repository region is possible to take place. Therefore, radionuclide transport model/code considering the effect of concentration interference due to the multiple sources was developed to make assessments of the effect quantitatively. The newly developed model/code was verified through the comparison analysis with the existing radionuclide transport analysis code used in the second progress report. In addition, the effect of the concentration interference was evaluated by setting a simple problem using the newly developed analysis code. This results shows that the maximum peak value of the migration rates from the repository was about two orders of magnitude lower than that based on single canister configuration.

Since the analysis code was developed by assuming that all canisters disposed of along the one-dimensional groundwater flow contribute to the concentration interference in the repository region, the assumption should be verified by conducting two or three-dimensional analysis considering heterogeneous geological structure as a future work.

* Repository System Analysis Group, Waste Isolation Research Division, JNC Tokai

** Applied System Group, CRC Research Institute, Inc

*** Nuclear Civil Engineering Project, Engineering Division, Taisei Corporation

目 次

1. はじめに	1-1
2. 概念モデル	2-1
2.1 解析対象領域	2-1
2.2 濃度干渉効果が生じる場での核種移行をモデル化するにあたっての仮定	2-2
2.3 濃度干渉効果を考慮した核種移行の概念モデル	2-4
3. 処分システム構成要素内の核種の移行挙動を表すモデル	3-1
3.1 ガラスの溶解モデル	3-1
3.1.1 ガラスの質量の時間変化を表すモデル	3-1
3.1.2 緩衝材内側境界部でのケイ酸の濃度変化モデル	3-4
3.2 ガラス固化体中の核種の質量変化を表すモデル	3-7
3.2.1 健全なガラス部に閉じ込められている核種の質量変化を表すモデル	3-7
3.2.2 溶解したガラス中に含まれる核種の質量変化を表すモデル	3-7
3.3 緩衝材中の核種移行モデル	3-8
3.4 掘削影響領域間の核種移行モデル	3-11
3.5 処分場外側岩盤中の核種蓄積モデル	3-14
4. 処分システム構成要素内での核種の移行挙動を表すモデルの離散化	4-1
4.1 ガラス固化体の溶解モデル	4-1
4.1.1 ガラス固化体の質量の時間変化を表すモデル	4-1
4.1.2 緩衝材内側境界部でのケイ酸の濃度変化モデル	4-2
4.2 ガラス固化体中の核種の質量変化を表すモデル	4-5
4.2.1 健全なガラス部に閉じ込められている核種の質量変化を表すモデル	4-5
4.2.2 溶解したガラス中に含まれる核種の質量変化を表すモデル	4-5
4.3 緩衝材中の核種移行モデル	4-6
4.4 掘削影響領域間の核種移行モデル	4-11
4.5 処分場外側岩盤中の核種蓄積モデルの離散化	4-12
5. 濃度干渉解析コードの検証	5-1
5.1 コード検証のための前提条件	5-1
5.2 人工バリア中核種移行解析コード「MESHNOTE」	5-1
5.3 検証解析の条件	5-2

5.4 データ	5-3
5.4.1 核種とインベントリ	5-3
5.4.2 ガラス固化体に関するデータ	5-5
5.4.3 緩衝材に関するデータ	5-6
5.4.4 掘削影響領域に関するデータ	5-8
5.5 検証解析の結果	5-8
6. 濃度干渉影響解析	6-1
6.1 モデル概要	6-1
6.2 影響解析の方法	6-2
6.3 解析データ	6-2
6.4 解析結果	6-3
6.4.1 処分場から放出される核種移行率	6-3
6.4.2 処分システム構成要素中に存在する核種量	6-4
6.4.3 ガラス固化体中の核種量	6-5
6.4.4 緩衝材中の核種量	6-6
6.4.5 処分場内岩盤中に存在する核種量	6-6
6.4.6 処分場外岩盤へ放出された核種量	6-6
7. 天然バリア評価解析	7-1
7.1 天然バリア評価モデルとデータ	7-1
7.1.1 解析対象領域	7-1
7.1.2 評価モデル	7-1
7.1.3 データ	7-4
7.2 解析結果	7-5
8. おわりに	8-1
9. 参考文献	9-1
10. 謝辞	10-1

目 次

図 2.1-1 処分場のレイアウトを考慮した核種移行解析対象領域	2-2
図 2.3-1 濃度干渉効果を考慮した処分場内の核種移行の概念モデル	2-4
図 5.5-1 濃度干渉解析コードの解析結果 (単一コンパートメント)	5-11
図 5.5-2 MESHNOTE コードの解析結果	5-11
図 6.4-1 処分場から放出される核種移行率 (Bq/y) の時間変化 (1コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)	6-7
図 6.4-2 処分場から放出される核種移行率 (Bq/y) の時間変化 (100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)	6-7
図 6.4-3 処分場から放出される核種移行率 (mol/y) の時間変化 (1コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)	6-8
図 6.4-4 処分場から放出される核種移行率 (mol/y) の時間変化 (100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)	6-8
図 6.4-5 処分システム構成要素中に存在する核種の全質量 (mol) の時間変化 (1コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)	6-9
図 6.4-6 処分システム構成要素中に存在する核種の全質量 (mol) の時間変化 (100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)	6-9
図 6.4-7 処分場内外に存在する核種の全質量 (mol) の時間変化 (1コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)	6-10
図 6.4-8 処分場内外に存在する核種の全質量 (mol) の時間変化 (100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)	6-10
図 6.4-9 ガラス固化体中の核種量 (mol) の時間変化 (1コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)	6-11
図 6.4-10 ガラス固化体中の核種量 (mol) の時間変化 (100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)	6-11
図 6.4-11 溶解したガラス中 (緩衝材内側境界) の核種量 (mol) の時間変化 (1コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)	6-12
図 6.4-12 溶解したガラス中 (緩衝材内側境界) の核種量 (mol) の時間変化 (100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)	6-12
図 6.4-13 緩衝材中の核種量 (mol) の時間変化 (1コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)	6-13
図 6.4-14 緩衝材中の核種量 (mol) の時間変化 (100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)	6-13

図 6.4-15	処分場内岩盤中に存在する核種量 (mol) の時間変化 (1コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)	6-14
図 6.4-16	処分場内岩盤中に存在する核種量 (mol) の時間変化 (100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)	6-14
図 6.4-17	処分場外岩盤へ放出された核種量 (mol) の時間変化 (1コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)	6-15
図 6.4-18	処分場外岩盤へ放出された核種量 (mol) の時間変化 (100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)	6-15
図 7.2-1	濃度干渉の影響を考慮した場合の母岩からの核種移行率 (100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)	7-7
図 7.2-2	濃度干渉の影響を考慮した場合の断層からの核種移行率 (100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)	7-7
図 7.2-3	濃度干渉の影響を考慮した場合の母岩からの核種移行率の線量への換算結果 (100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)	7-8
図 7.2-4	濃度干渉の影響を考慮した場合の断層からの核種移行率の線量への換算結果 (100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)	7-8
図 7.2-5	レファレンスケースにおける母岩からの核種移行率の線量への換算結果 (ガラス固化体 40,000 本分換算)	7-9
図 7.2-6	レファレンスケースにおける断層からの核種移行率の線量への換算結果 (ガラス固化体 40,000 本分換算)	7-9

表 目 次

表 2.1-1 処分場レイアウトのパラメータ（硬岩質系岩盤、処分坑道横置き方式）	2-2
表 2.3-1 処分場内（人工バリア中及び掘削影響領域間）で考慮した核種移行プロセス	2-5
表 5.4-1 第2次取りまとめの核種移行解析において考慮した放射性核種	5-4
表 5.4-2 ガラス固化体1本あたりの放射性核種および安定同位体のインベントリ （第2次取りまとめのデータ）	5-4
表 5.4-3 濃度干渉解析において考慮した放射性核種	5-5
表 5.4-4 ガラス固化体1本あたりの放射性核種および安定同位体のインベントリ （濃度干渉解析に使用したデータ）	5-5
表 5.4-5 ガラスの溶解に係るデータ	5-6
表 5.4-6 緩衝材の幾何形状データ	5-6
表 5.4-7 緩衝材間隙水中の放射性元素の溶解度	5-7
表 5.4-8 緩衝材中の放射性元素の実効拡散係数	5-7
表 5.4-9 放射性元素の緩衝材への分配係数と遅延係数	5-7
表 5.4-10 掘削影響領域に関するデータ	5-8
表 7.1-1 母岩及び断層中での核種移行解析に使用したデータ	7-4
表 7.1-2 放射性元素の花崗岩に対する分配係数	7-5

1. はじめに

地下水シナリオを想定した地層処分システムの安全評価においては、従来より、単一のガラス固化体を基本として、人工バリア中及び天然バリア中の核種移行解析が行われ、その結果に生物圏の解析で得られた線量換算係数及び処分場に設置される予定のガラス固化体の総本数を乗じることにより全体システムの安全性が評価されてきた（たとえば、動力炉・核燃料開発事業団、1992；NAGRA、1994）。この単一のガラス固化体を基本とした安全評価においては、処分場に埋設されるすべての人工バリア及び人工バリア中核種移行解析の外側境界条件を与える処分坑道周辺岩盤中で核種は同じ挙動をすることを仮定している。また、処分坑道間に存在する岩盤中の透水場の不均質性に起因する流量変化や核種の収着・遅延、あるいは処分場に埋設されている複数のガラス固化体から溶出した核種が岩盤中に移行し、それらが相互に影響を及ぼし干渉することにより、緩衝材外側境界から周辺岩盤中へ放出される核種フラックスを低減させる濃度干渉等の処分場内で生起すると予想される現象が核種移行に与える影響については保守的に無視されている。しかしながら、これらの現象は処分場が有する核種移行に対するバリア性能を向上させる側に作用すると考えられることから、これらの現象を無視した従来型の単一のガラス固化体を基本とした安全評価では処分場全体のバリア性能が保守的仮定のもとに過小に評価される可能性がある。したがって、処分場内で生じ得るこれらの核種移行現象を処分場のレイアウトを考慮してモデル化し、これらが処分場のバリア性能に与える影響をより現実的に評価しておくことは必要と考えられる。現段階では、実際の処分サイト、サイト調査手法、処分場の仕様等が具体的に決定されていないことから、詳細な処分場のレイアウトや処分場が設置される地質構造を考慮に入れた安全評価は困難であるが、いくつかの仮定を設け、これまでに実施された処分場の設計研究、性能評価研究で得られた知見や成果に基づき、これらの現象が処分場全体の性能にどの程度影響を与えるかを概括的に把握することは可能である。本研究では、上述した現象のうち、Ahnら（1997a）、Ahnら（1997b）及びHATANAKAら（1998）が着目し、評価検討が試みられた処分場内に埋設された複数のガラス固化体に起因する濃度干渉効果について、第2次取りまとめに記述されている処分場レイアウトに関する情報（核燃料サイクル開発機構、1999a）に基づき、評価領域の設定、モデル構築、コード開発を行ない、この現象が核種移行に与える影響についての概括的評価を試みた。

2. 概念モデル

一様な地下水流れが生じている処分場内において濃度干渉が生じる場合、複数のガラス固化体から溶出し、緩衝材を通過し、岩盤に到達した核種は、岩盤中において相互に影響を及ぼし合い、混合することにより濃度を上昇させ、緩衝材外側境界からその周辺岩盤中へ放出される核種フラックスを低減させる。本章では、この影響を評価するにあたっての、解析対象領域の設定について述べるとともに、解析対象領域における核種移行の概念モデル及び核種移行をモデル化するにあたっての仮定について述べる。

2.1 解析対象領域

解析対象領域としては、処分場内に等間隔に掘削されている処分坑道にガラス固化体が一定のピッチで埋設されており、処分坑道を垂直に横切る一様な地下水流れが生じている場を考えた。このような流れの場においては、処分場に埋設されたガラス固化体は多重ソースとして作用し、個々のガラス固化体から溶出し、緩衝材を通過して岩盤中に放出された核種は処分場内岩盤中を下流側へ移流・分散により移動する。同時に、処分場内の下流側の領域では、その領域に埋設されているガラス固化体から溶出してくる核種及び上流側から移流・分散により運ばれてくる核種の影響を受け、核種濃度が徐々に上昇していく。その結果、下流側の緩衝材内の濃度勾配は上流側に比べて減少し、緩衝材外側境界から周辺岩盤中への核種フラックスの放出が抑制される。

上で述べたような処分場領域内で生起すると考えられる濃度干渉に関する現象をモデル化するにあたっては、処分坑道の長さ、本数、処分坑道離間距離、処分坑道における廃棄体の埋設ピッチ等の処分場のレイアウトに関する情報が必要である。サイクル機構が実施した処分施設の設計研究においては、処分場のレイアウトについて人工バリアの寸法、処分場の建設・操業技術、処分坑道の空洞安定、ガラス固化体を熱源とするニアフィールドの温度の影響及び安全性と経済性等を考慮して、硬岩系岩盤、処分坑道横置き方式の場合、坑道離間距離 13.32m（処分坑道直径 2.22m の 6 倍）、廃棄体ピッチ 3.13m が合理的な組み合わせとして提示されている（核燃料サイクル開発機構、1999a）。このとき廃棄体 1 本あたりの処分場の占有面積は $41.69\text{m}^2/\text{本}$ となり、中間貯蔵 30～50 年を経た廃棄体約 40,000 本を単純に 1 つのパネルからなる処分場へ埋設することを考えると、処分場の面積は約 1.7km^2 の大きさとなる。

本研究では、処分場のレイアウトを考慮に入れて、処分場全体のバリア性能を概括的に評価することから、硬岩系岩盤、処分坑道横置き方式の場合において、処分場が単純に約 1.7km^2 の面積を持つ正方形に近い形状をした 1 つのパネルから構成されると仮定した。こ

の仮定に基づき算出した処分場のレイアウトパラメータ(核燃料サイクル開発機構、1999a)と設計研究により設定されたパラメータとを表 2.1-1 に示す。

表 2.1-1 処分場レイアウトのパラメータ
(硬岩質系岩盤、処分坑道横置き方式)

処分坑道の直径 (m)	2.22
処分坑道間隔 (m)	13.32
処分坑道内廃棄体埋設ピッチ (m)	3.13
処分坑道本数 (本)	100
処分坑道内廃棄体本数 (本)	400
処分坑道長さ (m)	1252
処分坑道と垂直方向の長さ (m)	1332

表 2.1-1 に示す処分場のレイアウトパラメータと上で述べた濃度干渉が生じる場での核種移行のシナリオを考慮して核種移行の解析対象領域を図 2.1-1 のように設定した。

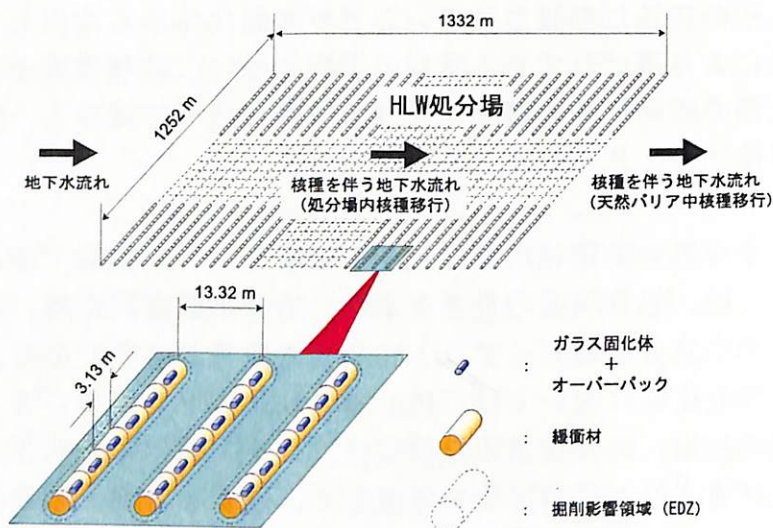


図 2.1-1 処分場のレイアウトを考慮した核種移行解析対象領域

2.2 濃度干渉効果が生じる場での核種移行をモデル化するにあたっての仮定

図 2.1-1 に示される濃度干渉効果をともなう処分場内での核種移行については、以下に述べる仮定に基づきモデル化を行った。

- ・ 解析対象領域は結晶質性の岩盤で構成されており、その中に処分坑道が掘削されている。

- ・ 地下水流れの下流側の処分場端から 100m の位置には透水性の高い大規模断層が存在している。
- ・ 地下水は処分坑道と直交する 1 次元方向に一様に流れており、流れの方向は 13.32m 間隔で並行に掘削されている 100 本の処分坑道と交差する。
- ・ 1 本の処分坑道内には 400 本のガラス固化体が 3.13m のピッチで埋設されている。
- ・ 地下水流れ方向に存在する 100 本の処分坑道の周辺には掘削の際の力学的擾乱により生じた掘削影響領域 (EDZ) が形成されており、擾乱を受けていない岩盤に比べて透水性が高くなっている。
- ・ 地下水流れ方向に存在する各処分坑道内に埋設されている人工バリア及びその周辺の掘削影響領域中における核種濃度はそれぞれ巨視的にみて処分坑道長さ方向に一様であるとみなすことができる。
- ・ 掘削影響領域を除いて、隣り合う処分坑道間に存在する岩盤中で生じる核種の遅延や崩壊については保守的に無視する。
- ・ 処分場内において、緩衝材外側境界から掘削影響領域へ放出された核種は、隣り合う下流側の掘削影響領域に移流により移行する。
- ・ ガラス固化体から溶出した核種は緩衝材中を拡散により移行し、処分坑道周辺の掘削影響領域に流入する。
- ・ ガラス固化体に閉じ込められている核種は地下水と接触することによりガラスと調和的に溶解する。
- ・ オーバーパックは処分後 1000 年でその健全性を喪失する。
- ・ オーバーパック腐食生成物又はゾーン中の核種移行は、保守的に考慮しない。
- ・ オーバーパックが健全性を喪失した直後から、ガラス固化体から溶出した核種は瞬時にオーバーパック腐食生成物又はゾーン中を通り抜け、緩衝材内側境界に到達する。
- ・ 地下水流れ方向に配置された 100 本の処分坑道はすべて処分場内の濃度干渉に寄与する。
- ・ 地下水流れ方向の核種移行は 100 本の処分坑道周辺に存在する掘削影響領域を流れ方向に、1 次元的に連結することによりモデル化できる。
- ・ 隣り合う上流側の処分坑道周辺の掘削影響領域及び緩衝材外側境界を通過し、掘削影響領域内に到達した核種は、瞬時に混合 (分散) され、均一濃度となる。
- ・ 掘削影響領域は巨視的にみると多孔質媒体とみなすことができる。
- ・ 処分場外側岩盤中へ移行する核種は下流側の処分場端のみから放出される。
- ・ 処分場内の核種移行経路である緩衝材中と掘削影響領域中で沈殿・溶解を考慮する。
- ・ 緩衝材中及び掘削影響領域中を移行する核種は同位体存在比を考慮して溶解度が設定される。
- ・ 溶解度は緩衝材中と岩盤中で同じとみなすことができる。

2.3 濃度干渉効果を考慮した核種移行の概念モデル

本研究では、処分システムの構成要素のうちガラス固化体、オーバーパック、緩衝材、掘削影響領域を核種の移行媒体としてその中での核種移行をモデル化し、各構成要素間の核種移行については処分場のレイアウトを考慮して隣り合う構成要素との核種移行率及び核種濃度の受け渡しを行うよう設定する。その他の処分システムの構成要素である処分坑道間に存在する掘削影響領域以外の岩盤については、保守性を考慮し、モデル化を行わないこととした。オーバーパックについては健全性を損失するまでの時間（1000年）のみを考慮しているのみであり、核種移行プロセスのモデル化は行わない。

2.2 で述べた仮定に基づくと、解析対象領域における処分場内の核種移行の概念は図 2.3-1 に示すようにモデル化できる。処分場内で個々のガラス固化体から溶出した核種は、破損したオーバーパック中を瞬時に通り抜け、緩衝材中を拡散により移行し、掘削影響領域まで到達する。掘削影響領域に到達した核種は上流側から地下水の流れにより移行してくる核種の濃度干渉を受けつつ下流側に移行し、処分場端に到達する。処分場から放出された核種は処分場外側岩盤中の任意の場所に蓄積され、放射性崩壊によりその量が減衰すると考えた。

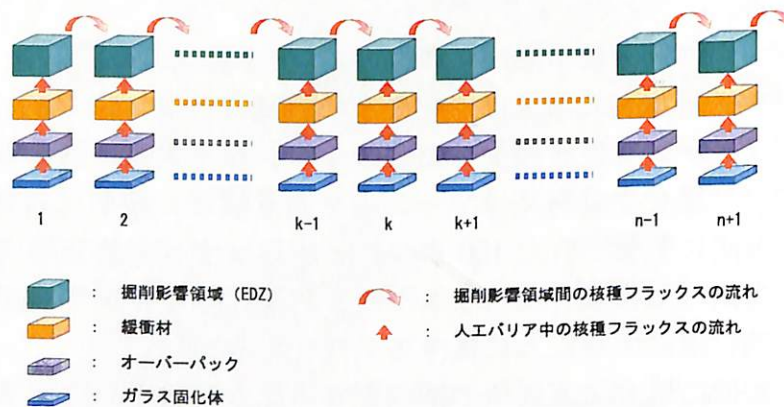


図 2.3-1 濃度干渉効果を考慮した処分場内の核種移行の概念モデル

また、処分場外側岩盤中の核種移行については、本モデル化においては考慮していない。その評価を行なうにあたっては、処分場から放出された核種はマトリクス拡散をとめないながら岩盤中の主要亀裂中を移流分散により下流側へ移行し、大規模断層に到達し、瞬時に生物圏へ放出されると仮定した天然バリアの評価モデルを使用することとした（核燃料サイクル開発機構、1999b）。そのモデル概要については7章にまとめた。

処分坑道に埋設された人工バリア中（ガラス固化体、オーバーバック、緩衝材）と地下水流れ方向と交差する処分坑道周辺に形成された掘削影響領域間で考慮した核種移行プロセスを表 2.3-1 に示す。

ガラス固化体中では、ガラスの溶解を一定溶解速度あるいは溶解反応モデルを用いて表現したモデルと核種の挙動をガラスとの調和的な溶解と放射性崩壊による生成・消滅を考慮したモデルを考えた。オーバーバック中では、上記したように、核種移行を直接的にモデル化はせず、オーバーバックの健全性が喪失した後、ガラスから溶出した核種は瞬時にオーバーバックの領域を通過し、緩衝材内側境界に到達すると仮定した。緩衝材中では、放射性崩壊による生成・消滅、線形・瞬時平衡型の収着、沈殿溶解を考慮した核種の拡散モデルを使用した。掘削影響領域については、その中での放射性崩壊による生成・消滅、線形・瞬時平衡型の収着、沈殿溶解、地下水流れ(移流)により運び込まれ、運び去られる核種移行率を考慮した完全瞬時混合モデルを使用した。緩衝材中及び掘削影響領域における核種の溶解度は同位体存在比により相当する元素の溶解度を分割することにより設定した。また、元素の溶解度は緩衝材中と掘削影響領域では同一と仮定した。

表 2.3-1 処分場内（人工バリア中及び掘削影響領域間）で考慮した核種移行プロセス

多重バリア構成要素	核種移行で考慮したプロセス	備 考
ガラス固化体	放射性崩壊	複数崩壊系列
	ガラスとの調和溶解	ガラスの溶解と調和的な核種の溶解
オーバーバック	核種移行プロセスは考慮せず	機能損失時間 1000 年のみをモデル化
緩衝材	放射性崩壊	複数崩壊系列
	拡散	Fick 則に従う
	収着	Kd モデル（線形・瞬時平衡・可逆）
	沈殿／溶解	瞬時・可逆的沈殿／溶解モデル
	元素の溶解度の同位体比分割	核種の溶解度設定
掘削影響領域	放射性崩壊	複数崩壊系列
	移流	上流側掘削影響領域からの移流及び下流側掘削影響領域への移流
	収着	Kd モデル（線形・瞬時平衡・可逆）
	沈殿／溶解	瞬時・可逆的沈殿／溶解モデル
	元素の溶解度の同位体比分割	核種の溶解度設定
	完全瞬時混合	掘削影響領域内では核種濃度一定

3. 処分システム構成要素内の核種の移行挙動を表すモデル

2.で述べたように処分場内では個々のガラス固化体からガラスとともに溶出した核種は、健全性を喪失したオーバーパック中を瞬時に通り抜け、緩衝材中を拡散により移行し、処分坑道周辺岩盤に形成された掘削影響領域まで到達する。緩衝材から掘削影響領域に到達した核種は、上流側の掘削影響領域から地下水流れにより移行してくる核種の影響を受けつつ、下流側に向かって移行していく。その結果、下流側の掘削影響領域の内側にある緩衝材中の濃度勾配が上流側に比べて小さくなり、緩衝材外側境界からの核種放出率が減少する濃度干渉効果が生じる。このような核種移行現象を評価するためには、地下水流れに沿って存在する処分システムの構成要素を個々にモデル化し、それらを連成させることが必要である。

核種移行のモデル化では図 2.3-1 に示されるように、地下水流れに沿って存在する処分坑道に埋設されているガラス固化体、オーバーパック、緩衝材の中での核種の挙動及び処分坑道周辺に形成される掘削影響領域間の核種移行を考慮する。地下水流れに沿った掘削影響領域間の核種移行のモデル化においては、地下水流れと交差する各々の処分坑道周辺に形成された掘削影響領域を核種が完全瞬時混合することにより均一濃度になるコンパートメントとして定義し、コンパートメント中での物質収支を考えることによりモデル化を行った。また、各コンパートメントに対応する掘削影響領域、ガラス固化体、オーバーパック、緩衝材の中での核種移行挙動のモデル化においては表 2.3-1 に示すプロセスを考慮した。なお、オーバーパックについてはその中での核種の挙動を直接的にはモデル化していない。ガラス固化体処分後 1000 年にオーバーパックは健全性を喪失し、健全性を喪失したオーバーパック中をガラス固化体から溶出した放射性核種が瞬時に通り抜け、緩衝材内側境界に至る。

したがって、本章では、核種の移行挙動についての直接的なモデル化を行わないオーバーパックを除いて、処分場システムを構成する基本要素であるガラス固化体、緩衝材、掘削影響領域及び地下水流れ下流側の処分場外側にある岩盤中での核種挙動を表す数学モデルについて記述する。また、処分場内での核種移行の出発点となるガラス固化体からの核種の溶出についてはガラス固化体自身の溶解と調和的に生じることを仮定していることから核種の調和溶解のモデル上での取り扱いについても併せて述べる。

3.1 ガラスの溶解モデル

3.1.1 ガラスの質量の時間変化を表すモデル

ガラス固化体を構成するガラス成分の溶解モデルとしては、以下に示すように 1 次溶解反

応及び水和反応を考慮したモデルと浸出率一定のモデルの2種類を考えた。ここでは、まず、これら2つのガラス溶解モデルについて説明し、次に、ガラスの溶解にともない調和的に生じる核種の溶解モデルについて説明する。

(1) 1次溶解反応及び水和反応を考慮したモデル

ガラス固化体は1次溶解反応及び水和反応にしたがい溶解すると仮定した。1次溶解反応については、動燃事業団の第1次取りまとめ（動力炉・核燃料開発事業団、1922）に示されているモデルを参考に、ガラスは緩衝材内側境界部におけるケイ酸濃度の影響を受けて1次的に溶解し、ケイ酸濃度が溶解度に到達するとガラスの溶解は停止するモデルを考えた。また、水和反応については、反応量が時間の平方根に比例することが実験により示されていることから（Mitsui et.al., 1999）、反応速度は時間の平方根に反比例するモデルを考えた。したがって、コンパートメント k 内のガラス固化体の溶解挙動については1次溶解反応と水和反応に関するモデルを線形的に加え合わせることにより(3.1.1)式のようにモデル化した。

$$\frac{dM_{G,k}}{dt} = - \left[k^+ \left(1 - \frac{C_{b,k,r=r0}^{Si}}{C^{*Si}} \right) + k_r \right] a_G \quad (3.1.1)$$

$$k_r = \frac{0.051}{2\sqrt{t}} \quad (3.1.2)$$

- ここで、 $M_{G,k}$: ガラスの質量 [M]
 k^+ : 初期溶解速度 [M/L²/T]
 k_r : 水和反応速度 [M/L²/T]
 $C_{b,k,r=r0}^{Si}$: 緩衝材内側境界部におけるケイ酸の濃度 [M/L³]
 C^{*Si} : ケイ酸の溶解度 [M/L³]
 a_G : 亀裂を考慮したガラス固化体の表面積 [L²]
 r : 緩衝材中の位置座標 [L]
 r_0 : 緩衝材内側境界部の位置座標 [L]
 t : 時間 [T]
 k : コンパートメント番号 [-]

なお、溶解したガラスは健全性を喪失したオーバーパックを瞬時に通過し、緩衝材の内側境界に到達することを仮定していることから、緩衝材内側境界におけるケイ酸濃度とガラス固化体近傍のケイ酸濃度とは等しくなる。したがって、ガラスの1次溶解モデルにおい

ては、緩衝材内側境界部におけるケイ酸濃度 $C_{b,k,r=0}^{Si}$ をガラス固化体近傍のケイ酸濃度として使用した。

ガラス固化体は埋設時からオーバーパックが健全性を喪失するまで地下水と接触せず、埋設時の質量が維持される。したがって、オーバーパックの健全性喪失時を $t=0$ とすると、ガラスの溶解モデルに対する初期条件としては、 $t=0$ において埋設時のガラスの質量が与えられる。

$$M_{G,k}(t=0) = M_{G0} \quad (3.1.3)$$

ここで、 M_{G0} : ガラス固化体埋設時のガラス部分の質量 [M]

(2) ガラスの一定溶解速度モデル

ガラスは一定の速度で溶解すると仮定した。このとき、コンパートメント k 内のガラス固化体の溶解は(3.1.4)式のようにモデル化される。

$$\frac{dM_{G,k}}{dt} = -q_G a_G \quad (3.1.4)$$

ここで、 q_G : ガラスの一定溶解速度 [M/L²/T]

(3.1.4)式に示す一定溶解速度モデルの初期条件も1次溶解反応及び水和反応を考慮したモデル(3.1.1)式と同じ初期条件(3.1.3)式が与えられる。

(3) 核種の調和溶解モデル

ガラス固化体中に閉じ込められている核種はガラスと調和的に溶解すると仮定した。調和溶解では、任意の時間 t において、ガラス固化体からガラスと一緒に溶解する核種の質量比は健全なガラス固化体中に含まれる核種の質量比に等しくなることを前提としている。ガラス固化体中の健全なガラス部分の質量に対するガラス固化体中に含まれる核種の質量比は(3.1.5)式で表される。

$$\beta_k^{v(j)} = \frac{M_{g,k}^{v(j)}}{M_{G,k}} = \frac{dM_{g,k}^{v(j)} / dt}{dM_{G,k} / dt} \quad (3.1.5)$$

ここで、 $\beta_k^{v(j)}$: 健全なガラス固化体中に含まれる核種の質量比 [-]

- $M_{g,k}^{v(j)}$: 健全なガラス固化体中に含まれる核種の質量 [M]
 $dM_{G,k} / dt$: 単位時間にガラス固化体から溶解したガラスの質量 [M/T]
 $dM_{g,k}^{v(j)} / dt$: 単位時間にガラス固化体から溶解したガラスに含まれる核種の質量 [M/T]

$\beta_k^{v(j)}$ はガラス固化体から単位時間に溶解するガラス中に含まれる核種の質量比に等しいと仮定していることから、任意の時間 t においてガラスと調和的に溶解する核種の溶解速度は、

$$\beta_k^{v(j)} \frac{dM_{G,k}}{dt} \quad (3.1.6)$$

により表すことができる。この項は、健全なガラス部に残っている核種の質量変化を記述するモデル中に消失項として、緩衝材内側境界部に留まっている調和溶解した核種の質量変化を記述するモデル中に生成項として含まれる。(3.1.5) 及び (3.1.6) 式中の v は崩壊系列を、 j は崩壊系列を構成する核種 (メンバー) を示している。

3.1.2 緩衝材内側境界部でのケイ酸の濃度変化モデル

(1) 1次溶解反応及び水和反応を考慮したガラス溶解モデル

ガラスの溶解が1次溶解反応及び水和反応により生じ、溶解したガラスが瞬時に健全性を喪失したオーバーパック中を通過し緩衝材内側境界部に到達すると仮定した場合、緩衝材内側境界部におけるケイ酸の濃度変化は1次溶解反応と水和反応によるガラスからのケイ酸の溶解、緩衝材中への拡散散逸、収着/脱着及び沈殿/溶解の影響を受ける。ケイ酸の固相への収着については瞬時平衡、可逆性、線形性を仮定した。このときコンパートメント k における緩衝材内側境界部でのケイ酸濃度の変化は(3.1.7)～(3.1.11)式のようにモデル化できる。

$$\delta V_{r=r0} \frac{\partial A_{b,k,r=r0}^{Si}}{\partial t} = \left[k^+ \left(1 - \frac{C_{b,k,r=r0}^{Si}}{C^{*Si}} \right) + k_r \right] a_G + \varepsilon_b D_b^{Si} \left. \frac{\partial C_{b,k}^{Si}}{\partial r} \right|_{r=r0} a_{b,r=r0} \quad (3.1.7)$$

$$A_{b,k,r=r0}^{Si} = \varepsilon_b C_{b,k,r=r0}^{Si} + (1 - \varepsilon_b) S_{b,k,r=r0}^{Si} + P_{b,k,r=r0}^{Si} \quad (3.1.8)$$

$$S_{b,k,r=r0}^{Si} = \rho_b K d_b^{Si} C_{b,k,r=r0}^{Si} \quad (3.1.9)$$

$$C_{b,k,r=r0}^{Si} = \begin{cases} C^{*Si} & (C_{b,k,r=r0}^{Si} > C^{*Si}) \\ C_{b,k,r=r0}^{Si} & (C_{b,k,r=r0}^{Si} \leq C^{*Si}) \end{cases} \quad (3.1.10)$$

$$P_{b,k,r=r0}^{Si} = \begin{cases} C_{b,k,r=r0}^{Si} - C^{*Si} & (C_{b,k,r=r0}^{Si} > C^{*Si}) \\ 0 & (C_{b,k,r=r0}^{Si} \leq C^{*Si}) \end{cases} \quad (3.1.11)$$

ここで、 $A_{b,k,r=r0}^{Si}$: 緩衝材内側境界部に存在するケイ酸の全濃度 [M/L³]

$C_{b,k,r=r0}^{Si}$: 緩衝材内側境界部空隙水中のケイ酸濃度 [M/L³]

$S_{b,k,r=r0}^{Si}$: 緩衝材内側境界部固相に収着したケイ酸濃度 [M/L³]

$P_{b,k,r=r0}^{Si}$: 緩衝材内側境界部に沈殿したケイ酸濃度 [M/L³]

C^{*Si} : 緩衝材内側境界部空隙水中のケイ酸の溶解度 [M/L³]

D_b^{Si} : 緩衝材空隙水中のケイ酸の拡散係数 [L²/T]

ε_b : 緩衝材の空隙率 [-]

ρ_b : 緩衝材固相部分の真密度 [M/L³]

Kd_b^{Si} : 緩衝材中のケイ酸の分配係数 [L³/M]

$a_{b,r=r0}$: 緩衝材内側境界の面積 [L²]

$\delta V_{b,r=r0}$: 緩衝材内側境界部の体積 [L³]

ケイ酸の沈殿が生じない場合、 $P_{b,k,r=r0}^{Si} = 0$ であるので、緩衝材内側境界部でのケイ酸の濃度変化を表すモデル(3.1.7)は(3.1.12)のように簡略化できる。(3.1.13)式は緩衝材中のケイ酸の遅延係数の定義を示している。

$$\varepsilon_b R_b^{Si} \delta V_{b,r=r0} \frac{\partial C_{b,k,r=r0}^{Si}}{\partial t} = \left[k^+ \left(1 - \frac{C_{b,k,r=r0}^{Si}}{C^{*Si}} \right) + k_r \right] a_G + \varepsilon_b D_b^{Si} \frac{\partial C_{b,k}^{Si}}{\partial r} \Bigg|_{r=r0} a_{b,r=r0} \quad (3.1.12)$$

$$R_b^{Si} = 1 + \frac{1 - \varepsilon_b}{\varepsilon_b} \rho_b Kd_b^{Si} \quad (3.1.13)$$

ここで、 R_b^{Si} : 緩衝材中のケイ酸の遅延係数 [-]

緩衝材内側境界部から拡散散逸により緩衝材中へ移行するケイ酸のフラックスは、緩衝材中及び掘削影響領域間のケイ酸の移行モデルを解くことにより得られる。緩衝材中及び掘削影響領域間のケイ酸の移行モデルは、以降で述べる緩衝材中及び掘削影響領域間での核種移行モデルと同じであるためここでは省略する。ケイ酸は放射性核種ではないので崩壊

定数は0である。また、ケイ酸の同位体は存在しないことを仮定しているため、溶解度の同位体分割はない。ケイ酸の溶解度については緩衝材中、掘削影響領域において同一と仮定した。

ガラス固化体埋設時からオーバーパックスの初期の健全性が失われ、ガラスの溶解が開始するまで緩衝材内側境界部に溶解性ケイ酸は存在しないと仮定する。この場合、緩衝材内側境界部におけるケイ酸の濃度変化モデルに対する初期条件は、オーバーパックスの健全性が喪失した時間を $t=0$ とすると、この時間において、溶解性ケイ酸濃度、固相部分に収着したケイ酸濃度、沈殿したケイ酸濃度はすべて0である。

$$C_{b,k,r=r0}^{Si}(t=0)=0 \quad (3.1.14)$$

$$S_{b,k,r=r0}^{Si}(t=0)=0 \quad (3.1.15)$$

$$P_{b,k,r=r0}^{Si}(t=0)=0 \quad (3.1.16)$$

したがって、 $t=0$ においては、緩衝材内側境界部でのケイ酸の全濃度は0になる。

$$A_{b,k,r=r0}^{Si}(t=0)=0 \quad (3.1.17)$$

(2) 溶解速度一定のガラス溶解モデル

ガラスの溶解が一定の溶解速度により生じる場合、緩衝材内側境界でのケイ酸の濃度変化はガラスの溶解が1次反応と水和反応で生じる場合と同様に(3.1.18)式のように表される。

$$\delta V_{r=r0} \frac{\partial A_{b,k,r=r0}^{Si}}{\partial t} = q_G a_G + \varepsilon_b D_b^{Si} \left. \frac{\partial C_{b,k}^{Si}}{\partial r} \right|_{r=r0} a_{b,r=r0} \quad (3.1.18)$$

ケイ酸の沈殿が生じない場合、 $P_{b,k,r=r0}^{Si}=0$ であるので、(3.1.18)式は(3.1.19)式のように簡略化できる。

$$\varepsilon_b R_b^{Si} \delta V_{b,r=r0} \frac{\partial C_{b,k,r=r0}^{Si}}{\partial t} = q_G a_G + \varepsilon_b D_b^{Si} \left. \frac{\partial C_{b,k}^{Si}}{\partial r} \right|_{r=r0} a_{b,r=r0} \quad (3.1.19)$$

3.2 ガラス固化体中の核種の質量変化を表すモデル

3.2.1 健全なガラス部に閉じ込められている核種の質量変化を表すモデル

ガラス固化体中の健全なガラス部に閉じ込められている核種は放射性崩壊及びガラスとの調和溶解によりその質量を減少させる。したがって、コンパートメント k 内のガラス固化体中に閉じ込められている核種の質量変化は(3.2.1)式のようにモデル化できる。

$$\frac{dM_{g,k}^{v(j)}}{dt} = -\lambda^{v(j)}M_{g,k}^{v(j)} + \lambda^{v(j-1)}M_{g,k}^{v(j-1)} + \beta_k^{v(j)} \frac{dM_{G,k}}{dt} \quad (3.2.1)$$

ここで、 $M_{g,k}^{v(j)}$: ガラス固化体中に閉じ込められている核種の質量 [M]
 $\lambda^{v(j)}$: 崩壊系列 v の核種 j の崩壊定数 [1/T]

ガラス固化体に閉じ込められている核種はガラス固化体埋設時からオーバーパックスの健全性が喪失するまでガラスとの調和溶解を開始しない。したがって、オーバーパックスの健全性が喪失した時間を $t=0$ とすると、健全なガラス固化体中の核種の質量変化を表すモデルに対する初期条件としては、 $t=0$ における核種のインベントリが与えられる。

$$M_{g,k}^{v(j)}(t=0) = M_{g0}^{v(j)} \quad (3.2.2)$$

ここで、 $M_{g0}^{v(j)}$: オーバーパックスが健全性を喪失した時のガラス固化体中の核種
 インベントリ [M]

3.2.2 溶解したガラス中に含まれる核種の質量変化を表すモデル

ガラス固化体から調和溶解した核種は瞬時に健全性を喪失したオーバーパックス中を通過し、緩衝材内側境界部に到達することを仮定した。緩衝材内側境界部における核種は、ガラスとの調和溶解、放射性崩壊及び緩衝材内側境界から緩衝材中への拡散散逸による移行によりその質量を変化させる。したがって、コンパートメント k 内の緩衝材内側境界部に留まっている核種の質量変化は(3.2.3)式のようにモデル化できる。

$$\frac{dM_{d,k}^{v(j)}}{dt} = -\lambda^{v(j)}M_{d,k}^{v(j)} + \lambda^{v(j-1)}M_{d,k}^{v(j-1)} - \beta_k^{v(j)} \frac{dM_{G,k}}{dt} + \epsilon_b D_b^{v(j)} \left. \frac{\partial C_{b,k}^{v(j)}}{\partial r} \right|_{r=r_0} \quad a_{b,r=r_0} \quad (3.2.3)$$

ここで、 $M_{d,k}^{v(j)}$: ガラス固化体から調和溶解し緩衝材内側境界に留まっている
 核種の質量 [M]

$$C_{b,k}^{v(j)} : \text{緩衝材空隙水中の核種濃度 [M/L}^3\text{]}$$

$$D_b^{v(j)} : \text{緩衝材空隙水中の核種の拡散係数 [L}^2\text{/T]}$$

ガラス固化体に閉じ込められている核種はガラス固化体埋設時からオーバーパックスの健全性が喪失するまでガラスとの調和的溶解は開始しない。したがって、オーバーパックスが健全性を喪失した時間を $t=0$ とすると、ガラスと調和的に溶解し、緩衝材内側境界部に留まっている核種の質量変化を表すモデルに対する初期条件は、 $t=0$ において核種の質量 0 である。

$$M_{d,k}^{v(j)}(t=0)=0 \quad (3.2.4)$$

3.3 緩衝材中の核種移行モデル

コンパートメント k において、ガラス固化体からオーバーパックスを経由し、緩衝材内側境界に到達した核種は崩壊、吸着・遅延をともしないながら拡散により緩衝材空隙水中を移行する。移行中の核種の緩衝材固相部分への吸着については、瞬時平衡、可逆性、線形性を仮定した。また、緩衝材中における同位体存在比を考慮した核種の溶解度変化及びそれにとりなう核種の溶解・沈殿を考慮した。これらの現象を考慮に入れて、緩衝材内側境界から外側境界に向かって半径 1 次元方向に核種移行が生じると仮定すると、緩衝材中の核種移行を記述するモデルは (3.3.1) ~ (3.3.5) 式のようになる。ガラス固化体から調和溶解した核種の緩衝材の中心軸方向と中心軸周りの角度方向には濃度勾配は生じておらず、核種は半径 1 次元方向のみに一様に移行する。

$$\frac{\partial A_{b,k}^{v(j)}}{\partial t} = \varepsilon_b D_b^{v(j)} \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial C_{b,k}^{v(j)}}{\partial r} \right) - \lambda^{v(j)} A_{b,k}^{v(j)} + \lambda^{v(j-1)} A_{b,k}^{v(j-1)} \quad (3.3.1)$$

$$A_{b,k}^{v(j)} = \varepsilon_b C_{b,k}^{v(j)} + (1 - \varepsilon_b) S_{b,k}^{v(j)} + P_{b,k}^{v(j)} \quad (3.3.2)$$

$$S_{b,k}^{v(j)} = \rho_b K d_{b,k}^{v(j)} C_{b,k}^{v(j)} \quad (3.3.3)$$

$$C_{b,k}^{v(j)} = \begin{cases} C_{b,k}^{*v(j)} & (C_{b,k}^{v(j)} > C_{b,k}^{*v(j)}) \\ C_{b,k}^{v(j)} & (C_{b,k}^{v(j)} \leq C_{b,k}^{*v(j)}) \end{cases} \quad (3.3.4)$$

$$P_{b,k}^{v(j)} = \begin{cases} C_{b,k}^{v(j)} - C_{b,k}^{*v(j)} & (C_{b,k}^{v(j)} > C_{b,k}^{*v(j)}) \\ 0 & (C_{b,k}^{v(j)} \leq C_{b,k}^{*v(j)}) \end{cases} \quad (3.3.5)$$

ここで、
 $A_{b,k}^{v(j)}$: 緩衝材中に存在する核種の全濃度 [M/L³]
 $C_{b,k}^{v(j)}$: 緩衝材空隙水中の核種濃度 [M/L³]
 $S_{b,k}^{v(j)}$: 緩衝材固相部分に収着した核種濃度 [M/L³]
 $P_{b,k}^{v(j)}$: 緩衝材中に沈殿した核種濃度 [M/L³]
 $C_{b,k}^{*v(j)}$: 緩衝材空隙水中の核種の溶解度 [M/L³]
 $D_b^{v(j)}$: 緩衝材空隙水中の核種の拡散係数 [L²/T]
 $Kd_b^{v(j)}$: 緩衝材中の核種の分配係数 [L³/M]

緩衝材空隙水中の核種の溶解度は対応する元素の溶解度と同位体存在比を乗じることにより得られる。同位体存在比については(3.3.6)式に示すように核種の全濃度とその核種を含む同位体の全濃度の総和の比で表されると仮定した。

$$\gamma_{b,k}^{v(j)} = \frac{A_{b,k}^{v(j)}}{\sum_e A_{b,k}^{v(j)}} \quad (3.3.6)$$

ここで、
 $\gamma_{b,k}^{v(j)}$: 緩衝材中の核種の同位体存在比 [-]
 e : 元素を表す識別子 [-]

したがって、核種の溶解度は(3.3.7)式で表される。

$$C_{b,k}^{*v(j)} = \gamma_{b,k}^{v(j)} C^{*e} \quad (3.3.7)$$

ここで、 C^{*e} : 元素 e の溶解度 [M/L³]

緩衝材中で沈殿が生じない場合、 $P_{b,k}^{v(j)} = 0$ であるので、緩衝材中の核種移行モデル(3.3.1)式は(3.3.8)式のように簡略化できる。(3.3.9)式は緩衝材中の核種の遅延係数の定義を示している。

$$R_b^{v(j)} \frac{\partial C_{b,k}^{v(j)}}{\partial t} = D_b^{v(j)} \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial C_{b,k}^{v(j)}}{\partial r} \right) - \lambda^{v(j)} R_b^{v(j)} C_{b,k}^{v(j)} + \lambda^{v(j-1)} R_b^{v(j-1)} C_{b,k}^{v(j-1)} \quad (3.3.8)$$

$$R_b^{v(j)} = 1 + \frac{1 - \varepsilon_b}{\varepsilon_b} \rho_b K_d^{v(j)} \quad (3.3.9)$$

ここで、
 $R_b^{v(j)}$: 緩衝材中の核種の遅延係数 [-]
 ρ_b : 緩衝材固相部分の真密度 [M/L³]

次に、緩衝材内側境界部における核種の挙動について述べる。緩衝材内側境界部における核種の挙動は、(3.2.1)式に示したようにガラスからの調和溶解による核種の溶出、核種の崩壊及び緩衝材内側境界から緩衝材中への拡散散逸による核種移行を考慮してモデル化できる。ガラスと一緒に調和溶解した核種は、瞬時にオーバパックを通過し、緩衝材内側境界に到達することを仮定していることから、(3.2.1)式に示した溶解したガラス中に含まれる核種の質量変化を表すモデルは、(3.3.10)式のように全濃度 $A_{b,k}^{v(j)}$ を用いて緩衝材内側境界部の核種の挙動を表すモデルに置き換えることができる。

$$\delta V_{b,r=r0} \frac{\partial A_{b,k,r=r0}^{v(j)}}{\partial t} = -\lambda^{v(j)} \delta V_{b,r=r0} A_{b,k,r=r0}^{v(j)} + \lambda^{v(j-1)} \delta V_{b,r=r0} A_{b,k,r=r0}^{v(j-1)} - \beta_k^{v(j)} \frac{dM_{G,k}}{dt} + \varepsilon_b D_b^{v(j)} \frac{\partial C_{b,k}^{v(j)}}{\partial r} \Bigg|_{r=r0} \quad a_{b,r=r0} \quad (3.3.10)$$

緩衝材中で沈殿が生じない場合、緩衝材内側境界部分における沈殿濃度は $P_{b,k,r=r0}^{v(j)} = 0$ であるので、緩衝材内側境界部での核種の移行挙動を表すモデル(3.3.10)は間隙水中の核種濃度を従属変数として(3.3.11)のように表される。

$$\varepsilon_b \delta V_{b,r=r0} R_b^{v(j)} \frac{\partial C_{b,k,r=r0}^{v(j)}}{\partial t} = -\lambda^{v(j)} \varepsilon_b \delta V_{b,r=r0} R_b^{v(j)} C_{b,k,r=r0}^{v(j)} + \lambda^{v(j-1)} \varepsilon_b \delta V_{b,r=r0} R_b^{v(j-1)} C_{b,k,r=r0}^{v(j-1)} - \beta_k^{v(j)} \frac{dM_{G,k}}{dt} + \varepsilon_b D_b^{v(j)} \frac{\partial C_{b,k}^{v(j)}}{\partial r} \Bigg|_{r=r0} \quad a_{b,r=r0} \quad (3.3.11)$$

緩衝材外側境界における境界条件は後述するように、処分場内の地下水流れに沿って存在する掘削影響領域間の核種移行モデルから求められる核種濃度により与えられる。

オーバーパックが破損しその健全性が失われ、地下水と接触することによりガラス固化体から溶出した核種が拡散により緩衝材内側境界部を通過して緩衝材中に流入してくるまで緩衝材中には核種は存在しない。したがって、緩衝材中の核種移行モデルに対する初期条件は、オーバーパック破損時を $t=0$ とすると、この時間において、緩衝材の間隙水中の核種濃度、固相部分に収着した核種濃度、沈殿した核種濃度はすべてゼロである。

$$C_{b,k}^{v(j)}(t=0)=0 \quad (3.3.12)$$

$$S_{b,k}^{v(j)}(t=0)=0 \quad (3.3.13)$$

$$P_{b,k}^{v(j)}(t=0)=0 \quad (3.3.14)$$

したがって、 $t=0$ においては、緩衝材中の核種の全濃度はゼロになる。

$$A_{b,k}^{v(j)}(t=0)=0 \quad (3.3.15)$$

3.4 掘削影響領域間の核種移行モデル

処分場内岩盤中の核種移行を処分坑道周辺に発達した掘削影響領域間の核種移行としてモデル化を行う。コンパートメント k 内の掘削影響領域中において、緩衝材外側境界から拡散により運ばれてくる核種と上流側に隣接するコンパートメント $k-1$ 内の掘削影響領域から地下水流れによって運ばれてくる核種が完全混合し、崩壊、収着・遅延をとめないながら、下流側に隣接するコンパートメント $k+1$ 内の掘削影響領域へ地下水流れにより運び去られる。同時に、掘削影響領域中における同位体存在比を考慮した核種の溶解度変化及びそれにとまなう核種の溶解・沈殿が生じる。これらの現象を考慮に入れて、一様な地下水流れに沿って存在するコンパートメント内の掘削影響領域間の核種移行はコンパートメント k について(3.4.1)～(3.4.6)式のように記述される。収着モデルについては、瞬時平衡、可逆、線形性を仮定した。

$$V_{nr} \frac{dA_{nr,k}^{v(j)}}{dt} = -\varepsilon_b D_b^{v(j)} \left. \frac{\partial C_{b,k}^{v(j)}}{\partial r} \right|_{r=r_b} a_{b,r=r_b} - \lambda^{v(j)} V_{nr} A_{nr,k}^{v(j)} + \lambda^{v(j-1)} V_{nr} A_{nr,k}^{v(j-1)} + F_{nr} C_{nr,k-1}^{v(j)} - F_{nr} C_{nr,k}^{v(j)} \quad (3.4.1)$$

$$A_{nr,k}^{v(j)} = \varepsilon_b C_{nr,k}^{v(j)} + (1 - \varepsilon_b) S_{nr,k}^{v(j)} + P_{nr,k}^{v(j)} \quad (3.4.2)$$

$$C_{nr,k}^{v(j)} = \begin{cases} C_{nr,k}^{*v(j)} & (C_{nr,k}^{v(j)} > C_{nr,k}^{*v(j)}) \\ C_{nr,k}^{v(j)} & (C_{nr,k}^{v(j)} \leq C_{nr,k}^{*v(j)}) \end{cases} \quad (3.4.3)$$

$$P_{nr,k}^{v(j)} = \begin{cases} C_{nr,k}^{v(j)} - C_{nr,k}^{*v(j)} & (C_{nr,k}^{v(j)} > C_{nr,k}^{*v(j)}) \\ 0 & (C_{nr,k}^{v(j)} \leq C_{nr,k}^{*v(j)}) \end{cases} \quad (3.4.4)$$

$$S_{nr,k}^{v(j)} = \rho_{nr} Kd_{nr,k}^{v(j)} C_{nr,k}^{v(j)} \quad (3.4.5)$$

$$F_{nr} = \varepsilon_{nr} a_{nr} v_{nr} \quad (3.4.6)$$

- ここで、
- $A_{nr,k}^{v(j)}$: 掘削影響領域中に存在する核種の全濃度 [M/L³]
 - $C_{nr,k}^{v(j)}$: 掘削影響領域空隙水中の核種濃度 [M/L³]
 - $S_{nr,k}^{v(j)}$: 掘削影響領域固相部分に収着した核種濃度 [M/M]
 - $P_{nr,k}^{v(j)}$: 掘削影響領域中に沈殿した核種濃度 [M/L³]
 - $C_{nr,k}^{*v(j)}$: 掘削影響領域空隙水中の核種の溶解度 [M/L³]
 - ε_{nr} : 掘削影響領域の空隙率 [-]
 - V_{nr} : 掘削影響領域の体積 [L³]
 - F_{nr} : 掘削影響領域中の地下水浸透流量 [L³/T]
 - v_{nr} : 掘削影響領域中の地下水浸透流速 [L/T]
 - $Kd_{nr}^{v(j)}$: 掘削影響領域中の核種の分配係数 [L³/M]
 - rb : 緩衝材の外側半径 [L]
 - $a_{b,r=rb}$: 緩衝材外側境界の面積 [L²]
 - a_{nr} : 地下水流れ 1 次元方向の掘削影響領域の断面積 [L²]

掘削影響領域空隙水中の核種の溶解度は元素の溶解度に同位体存在比を乗じることにより得られる。同位体存在比については(3.4.7)式に示すように核種の全濃度とその核種を含む同位体の全濃度の総和の比で表されると仮定した。

$$\gamma_{nr,k}^{v(j)} = \frac{A_{nr,k}^{v(j)}}{\sum_e A_{nr,k}^{v(j)}} \quad (3.4.7)$$

- ここで、
- $\gamma_{nr,k}^{v(j)}$: 掘削影響領域中の核種の同位体存在比 [-]

したがって、核種の溶解度は(3.4.8)式で表される。

$$C_{nr,k}^{*v(j)} = \gamma_{nr,k}^{v(j)} C^{*e} \quad (3.4.8)$$

掘削影響領域中で沈殿が生じない場合、 $P_{nr,k}^{v(j)} = 0$ であるので、掘削影響領域間の核種移行モデル(3.4.1)は(3.4.9)のように簡略化できる。(3.4.10)式は掘削影響領域中の核種の遅延係数の定義を示している。

$$\begin{aligned} \varepsilon_{nr} V_{nr} R_{nr}^{v(j)} \frac{dC_{nr,k}^{v(j)}}{dt} = -\varepsilon_b D_b^{v(j)} \frac{\partial C_{b,k}^{v(j)}}{\partial r} \Big|_{r=rb} & a_{b,r=rb} - \lambda^{v(j)} \varepsilon_{nr} V_{nr} R_{nr}^{v(j)} C_{nr,k}^{v(j)} + \lambda^{v(j-1)} \varepsilon_{nr} V_{nr} R_{nr}^{v(j-1)} C_{nr,k}^{v(j-1)} \\ & + F_{nr} C_{nr,k-1}^{v(j)} - F_{nr} C_{nr,k}^{v(j)} \end{aligned} \quad (3.4.9)$$

$$R_{nr}^{v(j)} = 1 + \frac{1 - \varepsilon_{nr}}{\varepsilon_{nr}} \rho_{nr} K_d^{v(j)} \quad (3.4.10)$$

ここで、 $R_{nr}^{v(j)}$: 掘削影響領域中の核種の遅延係数 [-]
 ρ_{nr} : 掘削影響領域固相部分の真密度 [M/L³]

一様な地下水流れに沿った掘削影響領域間の核種移行モデルに対する初期条件は、解析初期（オーバーパック破損時を $t=0$ としている）において、掘削影響領域の間隙水中の核種濃度、固相部分に収着した核種濃度及び沈殿した核種濃度はすべてゼロである。

$$C_{nr,k}^{v(j)}(t=0) = 0 \quad (3.4.11)$$

$$S_{nr,k}^{v(j)}(t=0) = 0 \quad (3.4.12)$$

$$P_{nr,k}^{v(j)}(t=0) = 0 \quad (3.4.13)$$

したがって、 $t=0$ においては、掘削影響領域中の核種の全濃度はゼロになる。

$$A_{nr,k}^{v(j)}(t=0) = 0 \quad (3.4.14)$$

境界条件は、最も上流側に位置する1番目のコンパートメント内の掘削影響領域中において、上流側から移流により移行してくる核種フラックスはゼロである。すなわち、

$$F_{nr} C_{nr,0}^{v(j)}(t) = 0 \quad (3.4.15)$$

また、最も下流側に位置する n 番目のコンパートメント内の掘削影響領域と処分場領域外側岩盤との境界は自由流出境界であり、この境界からの核種移行率が、処分場領域外側岩盤中の核種蓄積モデルの入口側境界条件となる。

3.5 処分場外側岩盤中の核種蓄積モデル

処分場外側岩盤中においては、地下水流れ下流側の処分場端に相当するコンパートメント n 内の掘削影響領域から地下水流れにより処分場外側岩盤に運ばれた核種はそのまま処分場外側岩盤中に蓄積し、時間とともに崩壊により減少していく。処分場外側岩盤中での核種移行はモデル化していない。その挙動を表すモデルは(3.5.1)式で表される。

$$\frac{dM_{fr}^{v(j)}}{dt} = F_{nr} C_{nr,n}^{v(j)} - \lambda^{v(j)} M_{fr}^{v(j)} + \lambda^{v(j-1)} M_{fr}^{v(j-1)} \quad (3.5.1)$$

ここで、 $M_{fr}^{v(j)}$: 処分場外側岩盤内の核種の蓄積量 [M]

$C_{nr,n}^{v(j)}$: n 番目のコンパートメント (処分場端) における掘削影響領域中の核種濃度 [M/L³]

一様な地下水流れの下流側処分場端のコンパートメント n 内の掘削影響領域から地下水流れにより処分場外側岩盤に運ばれる核種の質量変化を表すモデルに対する初期条件は、解析初期 (オーバーパック破損時を $t=0$ としている) において、処分場外側岩盤中に存在する核種の質量はゼロである。

$$M_{fr}^{v(j)}(t=0) = 0 \quad (3.5.2)$$

4. 処分システム構成要素内での核種の移行挙動を表すモデルの離散化

処分システムの性能を総合的に評価するためには、処分システム構成要素中の核種の挙動を記述する各々のモデルを離散化し、それらを連成し、解析を行う必要がある。ここでは3. で述べた処分システム構成要素内での核種の移行挙動を表す各々のモデルの離散化について詳細に述べる。離散化には差分法を使用した。

4.1 ガラス固化体の溶解モデル

4.1.1 ガラス固化体の質量の時間変化を表すモデル

(1) 1次溶解反応及び水和反応を考慮したモデル

ガラスの溶解に関して1次溶解反応と水和反応を同時に考慮したモデル(3.1.1)式を差分法を用いて離散化すると(4.1.1)式ようになる。 Δt は時間増分[T]を表している。

$$\frac{M_{G,k}(t) - M_{G,k}(t - \Delta t)}{\Delta t} = -Q_{G,k}(t - \Delta t) \quad (4.1.1)$$

$$Q_{G,k}(t) = \left[k^+ \left(1 - \frac{C_{b,k,0}^{Si}(t)}{C^{*Si}} \right) + k_r(t) \right] a_G \quad (4.1.2)$$

$$k_r(t) = \frac{0.051}{2\sqrt{t}} \quad (4.1.3)$$

$Q_{G,k}(t)$ はガラスの溶解速度を表しており、その値は(4.1.2)式に含まれる定数である初期溶解速度 k^+ 、地下水中のケイ酸の溶解度 C^{*Si} 、亀裂を考慮したガラス固化体の表面積 a_G 、(3.1.7)式を解くことにより得られる緩衝材内側境界部空隙水中のケイ酸濃度 $C_{b,k,0}^{Si}$ 及び時間の関数である水和反応速度 k_r から決定される。

(4.1.1)式は(4.1.4)式のようにまとめられる。

$$M_{G,k}(t) = M_{G,k}(t - \Delta t) - Q_{G,k}(t - \Delta t) \Delta t \quad (4.1.4)$$

(2) ガラスの溶解速度一定モデル

一定の速度でガラスが溶解するモデル(3.1.4)式を差分法を用いて離散化すると(4.1.5)式のようになる。

$$\frac{M_{G,k}(t) - M_{G,k}(t - \Delta t)}{\Delta t} = -q_G a_G \quad (4.1.5)$$

(4.1.5)式は(4.1.6)式のようにまとめられる。

$$M_{G,k}(t) = M_{G,k}(t - \Delta t) - q_G a_G \Delta t \quad (4.1.6)$$

4.1.2 緩衝材内側境界部でのケイ酸の濃度変化モデル

(1) 1次溶解反応及び水和反応によりガラスが溶解する場合

ガラスの溶解モデルとして(3.1.1)式で示した1次溶解反応及び水和反応を考慮したモデルを採用する場合、緩衝材内側境界部でのケイ酸の全濃度変化は(3.1.7)式で表される。

(3.1.7)式はケイ酸の全濃度と緩衝材空隙水中のケイ酸濃度が従属変数として混在しており、直接本式を離散化してこれらのケイ酸濃度を求めることは困難である。したがって、離散化においては、沈殿が生じない場合の緩衝材空隙水中ケイ酸濃度で表された(3.1.12)式を用いることとした。沈殿濃度の算出に関しては、(3.1.12)式に基づく緩衝材空隙水中濃度を未知数とした差分式を解くことにより得られた解に対して(3.1.10)式及び(3.1.11)式で示す条件をあてはめ、沈殿が生じているか否かを判断した。(3.1.12)式を差分法により離散化すると(4.1.7)式のようになる。

$$\begin{aligned} \varepsilon_b R_b^{Si} \delta V_{b,0} \frac{C_{b,k,0}^{Si}(t) - C_{b,k,0}^{Si}(t - \Delta t)}{\Delta t} = \alpha \left\{ k^+ \left[1 - \frac{C_{b,k,0}^{Si}(t)}{C^{*Si}} \right] + k_r(t) \right\} a_G + \varepsilon_b D_b^{Si} \frac{C_{b,k,0}^{Si}(t) - C_{b,k,1}^{Si}(t)}{\Delta r} a_{b,0} \left. \right\} \\ + (1 - \alpha) \left\{ k^+ \left[1 - \frac{C_{b,k,0}^{Si}(t - \Delta t)}{C^{*Si}} \right] + k_r(t - \Delta t) \right\} a_G + \varepsilon_b D_b^{Si} \frac{C_{b,k,0}^{Si}(t - \Delta t) - C_{b,k,1}^{Si}(t - \Delta t)}{\Delta r} a_{b,0} \left. \right\} \end{aligned} \quad (4.1.7)$$

ここで、 Δr は緩衝材の半径方向厚さを等分割した場合の増分[L]である。 α は $0 \leq \alpha \leq 1$ の範囲内にある無次元の定数であり、 $\alpha = 1$ のとき陰解法、 $\alpha = 0.5$ のときクランク・ニコルソン法、 $\alpha = 0$ のとき陽解法となる。

(4.1.7)式について、左辺を時間 t の空隙水中のケイ酸濃度で、右辺を直前の時間 $t - \Delta t$ の空隙水中のケイ酸濃度と定数でまとめると(4.1.8)式のようになる。

$$A_1^{Si} C_{b,k,0}^{Si}(t) + A_2^{Si} C_{b,k,1}^{Si}(t) = A_3^{Si} C_{b,k,0}^{Si}(t - \Delta t) + A_4^{Si} C_{b,k,1}^{Si}(t - \Delta t) + A_5^{Si} + A_6^{Si} \quad (4.1.8)$$

$$A_1^{Si} = \varepsilon_b \delta V_{b,0} R_b^{Si} + \alpha \frac{k^+ a_G \Delta t}{C^{*Si}} + \alpha \frac{\varepsilon_b D_b^{Si} a_{b,0} \Delta t}{\Delta r} \quad (4.1.9)$$

$$A_2^{Si} = -\alpha \frac{\varepsilon_b D_b^{Si} a_{b,0} \Delta t}{\Delta r} \quad (4.1.10)$$

$$A_3^{Si} = \varepsilon_b \delta V_{b,0} R_b^{Si} - (1-\alpha) \frac{k^+ a_G \Delta t}{C^{*Si}} - (1-\alpha) \frac{\varepsilon_b D_b^{Si} a_{b,0} \Delta t}{\Delta r} \quad (4.1.11)$$

$$A_4^{Si} = (1-\alpha) \frac{\varepsilon_b D_b^{Si} a_{b,0} \Delta t}{\Delta r} \quad (4.1.12)$$

$$A_5^{Si} = \alpha (k^+ + k_r(t)) \mu_G \Delta t \quad (4.1.13)$$

$$A_6^{Si} = (1-\alpha) (k^+ + k_r(t-\Delta t)) \mu_G \Delta t \quad (4.1.14)$$

(4.1.8)式の右辺は既に計算された時間 $t-\Delta t$ での緩衝材空隙水中ケイ酸濃度及びガラスの溶解に係るパラメータにより表された式であるので、時間 t においては既知である。そこで、

$$B_0^{Si} = A_3^{Si} C_{b,k,0}^{Si}(t-\Delta t) + A_4^{Si} C_{b,k,l}^{Si}(t-\Delta t) + A_5^{Si} + A_6^{Si} \quad (4.1.15)$$

とおくと、(4.1.16)式を得る。

$$A_1^{Si} C_{b,k,0}^{Si}(t) + A_2^{Si} C_{b,k,l}^{Si}(t) = B_0^{Si} \quad (4.1.16)$$

(4.1.16)式中の未知数である時間 t での緩衝材内側境界部における空隙水中ケイ酸濃度は、以降で述べる沈殿が生じない場合の緩衝材空隙水中ケイ酸の移行モデルを離散化した式と連立することにより算出される。算出された緩衝材内側境界部における空隙水中ケイ酸濃度は、(3.1.10)、(3.1.11)式に示す溶解度を基準とした条件式により沈殿が生ずるか否かの判断がなされ、緩衝材内側境界部におけるケイ酸の空隙水中濃度及び沈殿濃度が決定される。

(2) 一定の溶解速度でガラスが溶解する場合

ガラスの溶解モデルとして(3.1.4)式で示した一定速度で溶解するモデルを採用する場合、緩衝材内側境界部でのケイ酸の全濃度変化は(3.1.18)式で表される。(3.1.18)式では1次

溶解反応及び水和反応を考慮した(3.1.7)式と同様に全濃度と緩衝材空隙水中のケイ酸濃度が従属変数として混在しており、直接本式を離散化してこれらのケイ酸濃度を求めることは困難である。したがって、離散化においては、ケイ酸の沈殿が生じない場合の(3.1.19)式を用いることとした。沈殿濃度の算出に関しては、(3.1.19)式に基づく緩衝材空隙水中ケイ酸濃度を未知数とした差分式を解くことにより得られた解に対して(3.1.10)式及び(3.1.11)式で示す条件を当てはめ、沈殿が生じているか否かを判断した。(3.1.18)式を差分法により離散化すると(4.1.19)式ようになる。

$$\begin{aligned} \varepsilon_b R_b^{Si} \delta V_{b,0} \frac{C_{b,k,0}^{Si}(t) - C_{b,k,0}^{Si}(t-\Delta t)}{\Delta t} = & \alpha \left\{ q_G a_G + \varepsilon_b D_b^{Si} \frac{C_{b,k,0}^{Si}(t) - C_{b,k,l}^{Si}(t)}{\Delta r} a_{b,0} \right\} \\ & + (1-\alpha) \left\{ q_G a_G + \varepsilon_b D_b^{Si} \frac{C_{b,k,0}^{Si}(t-\Delta t) - C_{b,k,l}^{Si}(t-\Delta t)}{\Delta r} a_{b,0} \right\} \end{aligned} \quad (4.1.19)$$

(4.1.19)式について、左辺を時間 t の緩衝材空隙水中ケイ酸濃度で、右辺を直前の時間 $t-\Delta t$ の緩衝材空隙水中ケイ酸濃度と定数でまとめると(4.1.20)式ようになる。

$$A_1^{Si} C_{b,k,0}^{Si}(t) + A_2^{Si} C_{b,k,l}^{Si}(t) = A_3^{Si} C_{b,k,0}^{Si}(t-\Delta t) + A_4^{Si} C_{b,k,l}^{Si}(t-\Delta t) + A_5^{Si} \quad (4.1.20)$$

$$A_1^{Si} = \varepsilon_b \delta V_{b,0} R_b^{Si} - \alpha \frac{\varepsilon_b D_b^{Si} a_{b,0} \Delta t}{\Delta r} \quad (4.1.21)$$

$$A_2^{Si} = \alpha \frac{\varepsilon_b D_b^{Si} a_{b,0} \Delta t}{\Delta r} \quad (4.1.22)$$

$$A_3^{Si} = \varepsilon_b \delta V_{b,0} R_b^{Si} + (1-\alpha) \frac{\varepsilon_b D_b^{Si} a_{b,0} \Delta t}{\Delta r} \quad (4.1.23)$$

$$A_4^{Si} = -(1-\alpha) \frac{\varepsilon_b D_b^{Si} a_{b,0} \Delta t}{\Delta r} \quad (4.1.24)$$

$$A_5^{Si} = q_G a_G \Delta t \quad (4.1.25)$$

(4.1.20)式の右辺は既に計算された時間 $t-\Delta t$ での緩衝材空隙水中ケイ酸濃度及びガラスの溶解に係るパラメータにより表された式であるので、時間 t においては既知である。そこで、

$$B_0^{Si} = A_3^{Si} C_{b,k,0}^{Si}(t - \Delta t) + A_4^{Si} C_{b,k,1}^{Si}(t - \Delta t) + A_5^{Si} \quad (4.1.26)$$

とおくと、(4.1.27)式を得る。

$$A_1^{Si} C_{b,k,0}^{Si}(t) + A_2^{Si} C_{b,k,1}^{Si}(t) = B_0^{Si} \quad (4.1.27)$$

(4.1.27)式中の未知数である時間 t での空隙水中ケイ酸濃度は、以降で述べる沈殿が生じない場合の緩衝材空隙水中ケイ酸の移行モデルを離散化した式と連立することにより算出される。算出された空隙水中ケイ酸濃度は、(3.1.10)、(3.1.11)式に示す溶解度を基準とした条件式により沈殿が生ずるか否かの判断がなされ、緩衝材内側境界部におけるケイ酸の緩衝材空隙水中濃度及び沈殿濃度が決定される。

4.2 ガラス固化体中の核種の質量変化を表すモデル

4.2.1 健全なガラス部に閉じ込められている核種の質量変化を表すモデル

(3.2.1)式を差分法を用いて離散化すると(4.2.1)式のようになる。

$$\frac{M_{g,k}^{v(j)}(t) - M_{g,k}^{v(j)}(t - \Delta t)}{\Delta t} = -\lambda^{v(j)} M_{g,k}^{v(j)}(t - \Delta t) + \lambda^{v(j-1)} M_{g,k}^{v(j-1)}(t - \Delta t) - Q_{g,k}^{v(j)}(t) \quad (4.2.1)$$

$$Q_{g,k}^{v(j)}(t) = -\beta_k^{v(j)} \frac{dM_{G,k}}{dt} \quad (4.2.2)$$

ここで、 $Q_{g,k}^{v(j)}(t)$ は単位時間あたりにガラス固化体からガラスと調和的に溶解する核種の量を表している。(4.2.1)式は(4.2.3)式のようにまとめられ、時間 t でのガラス固化体中の核種の質量が算出される。

$$M_{g,k}^{v(j)}(t) = (1 - \lambda^{v(j)} \Delta t) M_{g,k}^{v(j)}(t - \Delta t) + \lambda^{v(j-1)} M_{g,k}^{v(j-1)}(t - \Delta t) \cdot \Delta t - Q_{g,k}^{v(j)}(t) \cdot \Delta t \quad (4.2.3)$$

4.2.2 溶解したガラス中に含まれる核種の質量変化を表すモデル

ガラスと調和溶解した核種は瞬時に破損したオーバーパックを經由して緩衝材内側境界部に到達することを仮定している。このため、(3.2.3)式で示した溶解したガラス中に含まれる核種の質量変化を表すモデルは(3.3.10)式で示した緩衝材内側境界部の核種挙動を表すモデルと等価となる。したがって、緩衝材中の核種移行解析を行うためのモデルの離散化

は以降に示す緩衝材内側境界部の核種挙動を表すモデルに対してのみ行い、溶解したガラス中に含まれる核種の質量変化を表すモデルの離散化は行わない。

4.3 緩衝材中の核種移行モデル

緩衝材中の核種移行モデルの離散化についても 4.1.2 で述べた緩衝材内側境界部でのケイ酸の濃度変化モデルの離散化の場合と同様に核種の全濃度で表した移行モデル(3.3.1)式を直接離散化して解くことはせず、まず核種の沈殿が生じない場合の(3.3.8)式を離散化して解き、緩衝材空隙水中の核種濃度を算出した。次に、沈殿が生じているか否かを確認するために、算出した緩衝材空隙水中の核種濃度に対して(3.3.4)式及び(3.3.5)式で示す条件を当てはめ、沈殿が生じているか否かを判断した。離散化は(3.3.8)式を展開し、両辺に $\varepsilon_b \delta V_{b,r}$ を乗じた(4.3.1)式に対して行った。

$$\varepsilon_b \delta V_{b,r} R_b^{v(j)} \frac{\partial C_{b,k}^{v(j)}}{\partial t} = \varepsilon_b \delta V_{b,r} D_b^{v(j)} \left(\frac{\partial^2 C_{b,k}^{v(j)}}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial C_{b,k}^{v(j)}}{\partial r} \right) - \lambda^{v(j)} \varepsilon_b \delta V_{b,r} R_b^{v(j)} C_{b,k}^{v(j)} + \lambda^{v(j-1)} \varepsilon_b \delta V_{b,r} R_b^{v(j-1)} C_{b,k}^{v(j-1)} \quad (4.3.1)$$

(4.3.1)式を差分法により離散化すると(4.3.2)式のようになる。

$$\varepsilon_b \delta V_{b,i} R_b^{v(j)} \frac{C_{b,k,i}^{v(j)}(t) - C_{b,k,i}^{v(j)}(t - \Delta t)}{\Delta t} = \alpha \left[\varepsilon_b \delta V_{b,i} D_b^{v(j)} \left\{ \frac{C_{b,k,i-1}^{v(j)}(t) - 2C_{b,k,i}^{v(j)}(t) + C_{b,k,i+1}^{v(j)}(t)}{(\Delta r)^2} + \frac{1}{r} \frac{C_{b,k,i+1}^{v(j)}(t) - C_{b,k,i-1}^{v(j)}(t)}{2\Delta r} \right\} - \lambda^{v(j)} \varepsilon_b \delta V_{b,i} R_b^{v(j)} C_{b,k,i}^{v(j)}(t) + \lambda^{v(j-1)} \varepsilon_b \delta V_{b,i} R_b^{v(j-1)} C_{b,k,i}^{v(j-1)}(t) \right] + (1 - \alpha) \left[\varepsilon_b \delta V_{b,i} D_b^{v(j)} \left\{ \frac{C_{b,k,i-1}^{v(j)}(t - \Delta t) - 2C_{b,k,i}^{v(j)}(t - \Delta t) + C_{b,k,i+1}^{v(j)}(t - \Delta t)}{(\Delta r)^2} + \frac{1}{r} \frac{C_{b,k,i+1}^{v(j)}(t - \Delta t) - C_{b,k,i-1}^{v(j)}(t - \Delta t)}{2\Delta r} \right\} - \lambda^{v(j)} \varepsilon_b \delta V_{b,i} R_b^{v(j)} C_{b,k,i}^{v(j)}(t - \Delta t) + \lambda^{v(j-1)} \varepsilon_b \delta V_{b,i} R_b^{v(j-1)} C_{b,k,i}^{v(j-1)}(t - \Delta t) \right] \quad (4.3.2)$$

(4.3.2)式の左辺を時間 t の核種濃度について、右辺を直前の時間 $t - \Delta t$ の核種濃度についてまとめると(4.3.3)式のようになる。

$$A_{1,i}C_{b,k,i-1}^{v(j)}(t) + A_{2,i}C_{b,k,i}^{v(j)}(t) + A_{3,i}C_{b,k,i+1}^{v(j)}(t) = A_{4,i}C_{b,k,i-1}^{v(j)}(t - \Delta t) + A_{5,i}C_{b,k,i}^{v(j)}(t - \Delta t) + A_{6,i}C_{b,k,i+1}^{v(j)}(t - \Delta t) + A_{7,i}C_{b,k,i}^{v(j-1)}(t) + A_{8,i}C_{b,k,i}^{v(j-1)}(t - \Delta t) \quad (4.3.3)$$

$$A_{1,i} = \alpha \frac{\varepsilon_b \delta V_{b,i} D_b^{v(j)} \Delta t}{\Delta r} \left(-\frac{1}{\Delta r} + \frac{1}{2r} \right) \quad (4.3.4)$$

$$A_{2,i} = \varepsilon_b \delta V_{b,i} \left(R_b^{v(j)} + 2\alpha \frac{D_b^{v(j)} \Delta t}{(\Delta r)^2} + \alpha R_b^{v(j)} \lambda^{v(j)} \Delta t \right) \quad (4.3.5)$$

$$A_{3,i} = -\alpha \frac{\varepsilon_b \delta V_{b,i} D_b^{v(j)} \Delta t}{\Delta r} \left(\frac{1}{\Delta r} + \frac{1}{2r} \right) \quad (4.3.6)$$

$$A_{4,i} = (1 - \alpha) \frac{\varepsilon_b \delta V_{b,i} D_b^{v(j)} \Delta t}{\Delta r} \left(\frac{1}{\Delta r} - \frac{1}{2r} \right) \quad (4.3.7)$$

$$A_{5,i} = \varepsilon_b \delta V_{b,i} \left(R_b^{v(j)} - 2(1 - \alpha) \frac{D_b^{v(j)} \Delta t}{(\Delta r)^2} - (1 - \alpha) R_b^{v(j)} \lambda^{v(j)} \Delta t \right) \quad (4.3.8)$$

$$A_{6,i} = (1 - \alpha) \frac{\varepsilon_b \delta V_{b,i} D_b^{v(j)} \Delta t}{\Delta r} \left(\frac{1}{\Delta r} + \frac{1}{2r} \right) \quad (4.3.9)$$

$$A_{7,i} = \alpha \varepsilon_b \delta V_{b,i} R_b^{v(j-1)} \lambda^{v(j-1)} \Delta t \quad (4.3.10)$$

$$A_{8,i} = (1 - \alpha) \varepsilon_b \delta V_{b,i} R_b^{v(j-1)} \lambda^{v(j-1)} \Delta t \quad (4.3.11)$$

(4.3.3)式の右辺は既に計算された時間 $t - \Delta t$ での核種濃度及びその時間での親核種の濃度で表された式であるので、時間 t においては定数である。そこで、

$$B_i = A_{4,i}C_{b,k,i-1}^{v(j)}(t - \Delta t) + A_{5,i}C_{b,k,i}^{v(j)}(t - \Delta t) + A_{6,i}C_{b,k,i+1}^{v(j)}(t - \Delta t) + A_{7,i}C_{b,k,i}^{v(j-1)}(t) + A_{8,i}C_{b,k,i}^{v(j-1)}(t - \Delta t) \quad (4.3.12)$$

とおくと、(4.3.13)式を得る。

$$A_{1,i}C_{b,k,i-1}^{v(j)}(t) + A_{2,i}C_{b,k,i}^{v(j)}(t) + A_{3,i}C_{b,k,i+1}^{v(j)}(t) = B_i \tag{4.3.13}$$

(4.3.13)式は緩衝材の半径方向の厚さを空間増分 Δr となるように均等に分割した場合の i 番目の格子に関する式であるので、緩衝材の半径方向厚さを m 個に分割した場合、(4.3.14)式に示すような $m-1$ 元の連立方程式となる。

$$\begin{aligned} A_{1,1}C_{b,k,0}^{v(j)}(t) + A_{2,1}C_{b,k,1}^{v(j)}(t) + A_{3,1}C_{b,k,2}^{v(j)}(t) &= B_1 \\ A_{1,2}C_{b,k,1}^{v(j)}(t) + A_{2,2}C_{b,k,2}^{v(j)}(t) + A_{3,2}C_{b,k,3}^{v(j)}(t) &= B_2 \\ A_{1,3}C_{b,k,2}^{v(j)}(t) + A_{2,3}C_{b,k,3}^{v(j)}(t) + A_{3,3}C_{b,k,4}^{v(j)}(t) &= B_3 \\ \dots & \\ \dots & \\ \dots & \\ A_{1,m-3}C_{b,k,m-4}^{v(j)}(t) + A_{2,m-3}C_{b,k,m-3}^{v(j)}(t) + A_{3,m-3}C_{b,k,m-2}^{v(j)}(t) &= B_{m-3} \\ A_{1,m-2}C_{b,k,m-3}^{v(j)}(t) + A_{2,m-2}C_{b,k,m-2}^{v(j)}(t) + A_{3,m-2}C_{b,k,m-1}^{v(j)}(t) &= B_{m-2} \\ A_{1,m-1}C_{b,k,m-2}^{v(j)}(t) + A_{2,m-1}C_{b,k,m-1}^{v(j)}(t) + A_{3,m-1}C_{b,k,m}^{v(j)}(t) &= B_{m-1} \end{aligned} \tag{4.3.14}$$

この $m-1$ 元連立方程式をマトリックス表示すると(4.3.15)式のようになる。

$$\begin{matrix} \begin{bmatrix} A_{1,1} & A_{2,1} & A_{3,1} & 0 & 0 & \dots & \dots & \dots & \dots & 0 & 0 \\ 0 & A_{1,2} & A_{2,2} & A_{3,2} & 0 & \dots & \dots & \dots & \dots & \vdots & \vdots \\ 0 & 0 & A_{1,3} & A_{2,3} & A_{3,3} & 0 & & & & \vdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & & & \vdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & & & \vdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & & & \ddots & \ddots & \ddots & & & \vdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & & & & \ddots & \ddots & & & \vdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & & & & & 0 & A_{1,m-3} & A_{2,m-3} & A_{3,m-3} & 0 \\ \vdots & \vdots & \dots & \dots & \dots & \dots & 0 & A_{1,m-2} & A_{2,m-2} & A_{3,m-2} & 0 \\ 0 & 0 & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & 0 & A_{1,m-1} & A_{2,m-1} & A_{3,m-1} \end{bmatrix} & \begin{bmatrix} C_{b,k,0}^{v(j)}(t) \\ C_{b,k,1}^{v(j)}(t) \\ C_{b,k,2}^{v(j)}(t) \\ C_{b,k,3}^{v(j)}(t) \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ C_{b,k,m-3}^{v(j)}(t) \\ C_{b,k,m-2}^{v(j)}(t) \\ C_{b,k,m-1}^{v(j)}(t) \\ C_{b,k,m}^{v(j)}(t) \end{bmatrix} & = & \begin{bmatrix} B_1 \\ B_2 \\ B_3 \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ B_{m-3} \\ B_{m-2} \\ B_{m-1} \end{bmatrix} \\ (m-1) \times (m+1) & (m+1) \times 1 & & (m-1) \times 1 \end{matrix} \tag{4.3.15}$$

(4.3.15)式で示される $m-1$ 元連立方程式は未知数が $m+1$ 個あり解けないので、境界条件を

導入することにより、未知数の数を減じることが必要である。

緩衝材内側境界部での核種の挙動を表すモデルの離散化についても、緩衝材中の核種移行モデルの離散化と同様に核種の沈殿が生じない場合の式(3.3.11)をまず離散化して解き、得られた緩衝材空隙水中の核種濃度に対して(3.3.4)式及び(3.3.5)式で示す溶解度を基準とした条件を当てはめて、沈殿が生じているか否かの判断を行う。(3.3.11)式を差分法により離散化すると(4.3.16)式のようになる。

$$\begin{aligned} \varepsilon_b \delta V_{b,0} R_b^{v(j)} \frac{C_{b,k,0}^{v(j)}(t) - C_{b,k,0}^{v(j)}(t - \Delta t)}{\Delta t} = \\ \alpha \left\{ \lambda^{v(j)} \varepsilon_b \delta V_{b,0} R_b^{v(j)} C_{b,k,0}^{v(j)}(t) + \lambda^{v(j-1)} \varepsilon_b \delta V_{b,0} R_b^{v(j-1)} C_{b,k,0}^{v(j-1)}(t) + Q_{g,k}^{v(j)}(t) \right. \\ \left. + \varepsilon_b D_b^{v(j)} \frac{C_{b,k,0}^{v(j)}(t) - C_{b,k,1}^{v(j)}(t)}{\Delta r} a_{b,0} \right\} \\ + (1 - \alpha) \left\{ \lambda^{v(j)} \varepsilon_b \delta V_{b,0} R_b^{v(j)} C_{b,k,0}^{v(j)}(t - \Delta t) + \lambda^{v(j-1)} \varepsilon_b \delta V_{b,0} R_b^{v(j-1)} C_{b,k,0}^{v(j-1)}(t - \Delta t) + Q_{g,k}^{v(j)}(t - \Delta t) \right. \\ \left. + \varepsilon_b D_b^{v(j)} \frac{C_{b,k,0}^{v(j)}(t - \Delta t) - C_{b,k,1}^{v(j)}(t - \Delta t)}{\Delta r} a_{b,0} \right\} \end{aligned} \quad (4.3.16)$$

4.1.1で既に述べたように、 $Q_{g,k}^{v(j)}(t)$ は単位時間あたりにガラス固化体からガラスと調和的に溶解する核種の量を表している。

(4.3.16)式の左辺を時間 t の核種濃度について、右辺を直前の時間 $t - \Delta t$ の核種濃度についてまとめると(4.3.17)式のようになる。

$$A_{1,0} C_{b,k,0}^{v(j)}(t) + A_{2,0} C_{b,k,1}^{v(j)}(t) = A_{3,0} C_{b,k,0}^{v(j)}(t - \Delta t) + A_{4,0} C_{b,k,1}^{v(j)}(t - \Delta t) + A_{5,0} C_{b,k,0}^{v(j-1)}(t) + A_{6,0} C_{b,k,0}^{v(j-1)}(t - \Delta t) + A_{7,0} \quad (4.3.17)$$

$$A_{1,0} = \varepsilon_b \delta V_{b,0} \left(R_b^{v(j)} + \alpha \frac{D_b^{v(j)} \Delta t}{(\Delta r)^2} + \alpha \lambda^{v(j)} R_b^{v(j)} \Delta t \right) \quad (4.3.18)$$

$$A_{2,0} = -\alpha \frac{\varepsilon_b \delta V_{b,0} D_b^{v(j)} \Delta t}{(\Delta r)^2} \quad (4.3.19)$$

$$A_{3,0} = \varepsilon_b \delta V_{b,0} \left(R_b^{v(j)} - (1-\alpha) \frac{D_b^{v(j)} \Delta t}{(\Delta r)^2} - (1-\alpha) \lambda^{v(j)} R_b^{v(j)} \Delta t \right) \quad (4.3.20)$$

$$A_{4,0} = (1-\alpha) \frac{\varepsilon_b \delta V_{b,0} D_b^{v(j)} \Delta t}{(\Delta r)^2} \quad (4.3.21)$$

$$A_{5,0} = \alpha \varepsilon_b \delta V_{b,0} R_b^{v(j-1)} \lambda^{v(j-1)} \Delta t \quad (4.3.22)$$

$$A_{6,0} = (1-\alpha) \varepsilon_b \delta V_{b,0} R_b^{v(j-1)} \lambda^{v(j-1)} \Delta t \quad (4.3.23)$$

$$A_{7,0} = \alpha Q_{g,k}^{v(j)}(t) \Delta t + (1-\alpha) Q_{g,k}^{v(j)}(t-\Delta t) \Delta t \quad (4.3.24)$$

(4.3.17)式の右辺は既に計算された時間 $t-\Delta t$ での核種濃度及びその時間での親核種の濃度で表された式であるので、時間 t においては定数である。そこで、

$$B_0 = A_{3,0} C_{b,k,0}^{v(j)}(t-\Delta t) + A_{4,0} C_{b,k,0}^{v(j)}(t-\Delta t) + A_{5,0} C_{b,k,0}^{v(j-1)}(t) + A_{6,0} C_{b,k,0}^{v(j-1)}(t-\Delta t) + A_{7,0} \quad (4.3.25)$$

とおくと、(4.3.26)式を得る。

$$A_{1,0} C_{b,k,0}^{v(j)}(t) + A_{2,0} C_{b,k,0}^{v(j)}(t) = B_0 \quad (4.3.26)$$

次に、緩衝材外側の境界条件について考える。外側境界条件は、処分場内の地下水流れに沿って存在する掘削影響領域間の核種移行解析を行うことにより与えられると仮定する。すなわち、処分場内の地下水流れが横切る k 番目の処分坑道周辺に形成される掘削影響領域空隙水中の核種濃度 $C_{nr,k}^{v(j)}(t)$ は、緩衝材外側境界 ($r=rb$) における緩衝材空隙水中の核種濃度に等しい。緩衝材中の核種移行計算を行う際の、外側境界に対応する格子番号が m であるので、外側境界条件の式は、

$$C_{b,k,m}^{v(j)}(t) = C_{nr,k}^{v(j)}(t) \quad (4.3.27)$$

のようになる。これを(4.3.14)式で示される連立方程式の第 m 番目の式に代入すると、

$$A_{1,m-1} C_{b,k,m-2}^{v(j)}(t) + A_{2,m-1} C_{b,k,m-1}^{v(j)}(t) + A_{3,m-1} C_{nr,k}^{v(j)}(t) = B_{m-1} \quad (4.3.28)$$

となり、左辺の第3項は既知であるので、これを右辺に移項すると(4.3.29)式を得る。

$$A_{1,m-1}C_{b,k,m-2}^{v(j)}(t) + A_{2,m-1}C_{b,k,m-1}^{v(j)}(t) = B_{m-1} - A_{3,m-1}C_{nr,k}^{v(j)}(t) \quad (4.3.29)$$

緩衝材の内側境界条件式(4.3.26)と外側境界条件式(4.3.29)を考慮して(4.3.15)式に示すマトリクスを再構成すると(4.3.30)式のようになり未知数の数と方程式の数が一致し、解法可能となる。

$$\begin{matrix}
 \begin{bmatrix}
 A_{1,0} & A_{2,0} & 0 & 0 & 0 & \dots & \dots & \dots & \dots & 0 \\
 A_{1,1} & A_{2,1} & A_{3,1} & 0 & 0 & \dots & \dots & \dots & \dots & \vdots \\
 0 & A_{2,2} & A_{2,2} & A_{3,2} & 0 & & & & & \vdots \\
 0 & 0 & \ddots & \ddots & \ddots & & & & & \vdots \\
 \vdots & \vdots & & \ddots & \ddots & & & & & \vdots \\
 \vdots & \vdots & & \ddots & \ddots & & 0 & 0 & & \vdots \\
 \vdots & \vdots & & & & 0 & A_{1,m-3} & A_{2,m-3} & A_{3,m-3} & 0 \\
 \vdots & \vdots & \dots & \dots & \dots & \dots & 0 & A_{1,m-2} & A_{2,m-2} & A_{3,m-2} \\
 0 & 0 & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & 0 & A_{1,m-1} & A_{2,m-1}
 \end{bmatrix}
 &
 \begin{bmatrix}
 C_{b,k,0}^{v(j)}(t) \\
 C_{b,k,1}^{v(j)}(t) \\
 C_{b,k,2}^{v(j)}(t) \\
 \vdots \\
 \vdots \\
 \vdots \\
 C_{b,k,m-3}^{v(j)}(t) \\
 C_{b,k,m-2}^{v(j)}(t) \\
 C_{b,k,m-1}^{v(j)}(t)
 \end{bmatrix}
 &
 = &
 \begin{bmatrix}
 B_0 \\
 B_1 \\
 B_2 \\
 \vdots \\
 \vdots \\
 \vdots \\
 B_{m-3} \\
 B_{m-2} \\
 B_{m-1} - A_{3,m-1}C_{nr,k}^{v(j)}(t)
 \end{bmatrix}
 \\
 m \times m & m \times 1 & & m \times 1
 \end{matrix} \quad (4.3.30)$$

時間領域の離散化に際して使用した重み係数 α については、 $\alpha=1$ のとき完全陰解法、 $\alpha=0.5$ のときクランクニコルソン法、 $\alpha=0$ のとき陽解法となる。(4.3.30)式は、緩衝材空隙水中の核種濃度分布を算出するためのマトリクス方程式であり、単純な3重対角行列である。このマトリクス方程式の解法にあたっては、Numerical Recipes in C (Press et. al., 1992)のサブルーチン tridag を使用した。

マトリクス表示した(4.3.30)式を解くことにより得られる時間 t での緩衝材空隙水中の核種濃度は、(3.3.4)、(3.3.5)式に示す同位体存在比に基づく核種の溶解度を基準とした条件式により沈殿が生ずるか否かの判断がなされ、緩衝材内側境界部及び緩衝材内部空隙水中の核種濃度及び沈殿濃度が決定される。

4.4 掘削影響領域間の核種移行モデル

処分場内の処分坑道周辺に発達した掘削影響領域間を核種が地下水によって運ばれると仮定した移行モデルの離散化についても 4.3 で述べた緩衝材中の核種移行モデルの離散化と

同様に沈殿が生じない場合の式(3.4.9)を離散化して解き、得られた掘削影響領域空隙水中の核種濃度に対して(3.4.3)式及び(3.4.4)式で示す条件を当てはめ、沈殿が生じているか否かを判断した。(3.4.9)式を時間に対して離散化すると、(4.4.1)式のようになる。

$$\varepsilon_{nr}V_{nr}R_{nr}^{v(j)}\frac{C_{nr,k}^{v(j)}(t)-C_{nr,k}^{v(j)}(t-\Delta t)}{\Delta t}=Q_{b,k}^{v(j)}(t)-\lambda^{v(j)}\varepsilon_{nr}V_{nr}R_{nr}^{v(j)}C_{nr,k}^{v(j)}(t-\Delta t)+\lambda^{v(j-1)}\varepsilon_{nr}V_{nr}R_{nr}^{v(j-1)}C_{nr,k}^{v(j-1)}(t-\Delta t)+FC_{nr,k-1}^{v(j)}(t-\Delta t)-FC_{nr,k}^{v(j)}(t-\Delta t) \quad (4.4.1)$$

(4.4.1)式は、

$$C_{nr,k}^{v(j)}(t)=\left\{1-\Delta t\lambda^{v(j)}-\frac{F_{nr}\Delta t}{\varepsilon_{nr}V_{nr}R_{nr}^{v(j)}}\right\}C_{nr,k}^{v(j)}(t-\Delta t)+\frac{F_{nr}\Delta t}{\varepsilon_{nr}V_{nr}R_{nr}^{v(j)}}C_{nr,k-1}^{v(j)}(t-\Delta t)+\frac{\Delta t}{\varepsilon_{nr}V_{nr}R_{nr}^{v(j)}}Q_{b,k}^{v(j)}(t)+\lambda^{v(j-1)}\frac{R_{nr}^{v(j-1)}}{R_{nr}^{v(j)}}\Delta tC_{nr,k}^{v(j-1)}(t) \quad (4.4.2)$$

$$Q_{b,k}^{v(j)}(t)=-\varepsilon_bD_b^{v(j)}\frac{C_{b,k,m-1}^{v(j)}(t)-C_{b,k,m}^{v(j)}(t)}{\Delta r}a_{b,m} \quad (4.4.3)$$

のようにまとめられ、以前の時間ステップでの掘削影響領域中の核種濃度と娘核種への崩壊量、親核種からの崩壊量及び現在の時間ステップで計算された緩衝材外側境界からの核種放出量により、現在の時間ステップでのコンパートメント k における掘削影響領域中の核種濃度 $C_{nr,k}^{v(j)}$ が計算できる。

(4.4.2)式により得られた時間 t での掘削影響領域中の核種濃度は、(3.4.3)、(3.4.4)式に示す同位体存在比に基づく核種の溶解度を基準とした条件式により沈殿が生ずるか否かの判断がなされ、掘削影響領域空隙水中の核種濃度及び沈殿濃度が決定される。

4.5 処分場外側岩盤中の核種蓄積モデルの離散化

処分場外側岩盤中における核種蓄積モデル(3.5.1)を離散化すると(4.5.1)式のようになる。

$$\frac{M_{fr}^{v(j)}(t)-M_{fr}^{v(j)}(t-\Delta t)}{\Delta t}=Q_{nr,m}^{v(j)}(t)-\lambda^{v(j)}M_{fr}^{v(j)}(t-\Delta t)+\lambda^{v(j-1)}M_{fr}^{v(j-1)}(t) \quad (4.5.1)$$

$$Q_{nr,m}^{v(j)}(t) = F_m N_m^{v(j)}(t) \quad (4.5.2)$$

(4.5.1)式は、

$$M_{fr}^{v(j)}(t) = (1 - \lambda^{v(j)} \Delta t) M_{fr}^{v(j)}(t - \Delta t) + \lambda^{v(j-1)} M_{fr}^{v(j-1)}(t) \Delta t + Q_{nr,m}^{v(j)}(t) \Delta t \quad (4.5.3)$$

のようにまとめられ、以前の時間ステップにおける核種の蓄積量と崩壊量及び現在の時間ステップにおいて処分場端に位置するコンパートメント m 内の掘削影響領域から移流により移行してくる核種の移行量から現在の時間ステップにおける処分場外側岩盤中の核種の蓄積量が計算できる。

5. 濃度干渉解析コードの検証

4.で述べた離散化したモデルは、濃度干渉が生じる場での核種移行を計算するためのアルゴリズムにしたがってプログラミング言語 (FORTRAN、C 等) によりコンピューター上に記録され、コード化される。コード化された濃度干渉が生じる場での核種移行モデル (以下、「濃度干渉解析コード」という) は、初期条件すなわち地層処分するガラス固化体の処分時における核種インベントリを与えることにより、処分後の任意の時間における、ガラス固化体中、緩衝材中あるいは岩盤中に留まっている核種の量や、緩衝材から岩盤へ放出される核種の移行率あるいは処分場から処分場外の岩盤へ放出される核種の移行率等を算出することができる。しかしながら、3.で述べた処分場の各構成要素中での核種の挙動を記述する数学モデルが適切に離散化され、コード化されていなくては、濃度干渉解析コードにより算出される解析結果は意味を持たないものとなる。そこで、本章では、濃度干渉解析コードが適切にコード化されており、正常に作動することを確認するために既存の解析コードとの比較解析を試みた。

5.1 コード検証のための前提条件

3.で示したように、濃度干渉解析コードの基本となるモデルは、単一のコンパートメント内におけるガラス固化体、緩衝材、掘削影響領域の3つの構成要素中での核種の挙動を表すモデルである。濃度干渉効果は、地下水流れに沿って複数のコンパートメントを連結し、地下水流れによって上流側に隣接するコンパートメントから運び込まれ、下流側に隣接するコンパートメントへ運び去られる核種について掘削影響領域内で質量バランスをとることにより評価することができる。また、単一のコンパートメント中での核種移行解析を行う場合は、いわゆる通常の1本のガラス固化体を基本とした核種移行解析と同じものとなる。

したがって、濃度干渉解析コードの検証にあたっては、既存の人工バリア中核種移行解析コード「MESHNOTE」との比較解析を通して、その妥当性を確認することとした。MESHNOTEコードは第2次取りまとめの人工バリア中核種移行解析に使用されており、その妥当性は既に検証済みである (Wakasugi et.al, 1999)。また、検証解析においては、第2次取りまとめレファレンスケースのデータ (核燃料サイクル開発機構、1999b) を使用した。

5.2 人工バリア中核種移行解析コード「MESHNOTE」

ここでは、濃度干渉解析コードとの比較解析に使用する人工バリア中核種移行解析コード「MESHNOTE」について簡単に説明を加える。

MESHNOTE コードは、人工バリア中の核種移行評価を行うために開発された解析コードであり、ガラス固化体からの核種の溶出から、緩衝材中での核種の遅延・崩壊及び拡散による移行、緩衝材外側から周辺母岩への放出までを解析することができる。その解析領域はガラス固化体、ガラス固化体近傍の仮想的な領域、緩衝材領域および掘削影響領域の4つの領域である。ガラス固化体の領域では、核種の移行は考慮せず、ガラス固化体から近傍の仮想的な領域への核種の溶出のみを考慮している。ガラス固化体近傍の仮想的な領域はガラスの溶解を核種移行モデル中に取り込むための領域である。ガラス固化体から溶出した核種は、いったんこの領域に溶出してから緩衝材中へ移行するようモデル化されている。緩衝材領域では、核種は、収着、沈殿、崩壊しながらを拡散により移行し、緩衝材外側の掘削影響領域へ移行する。掘削影響領域に到達した核種は、掘削影響領域を通過する地下水と瞬時に混合し均一濃度となり、母岩に存在する亀裂中へ移行していく。緩衝材中での核種濃度については、軸方向および周方向の勾配はなく、半径方向にのみ勾配が生じると仮定されている。この仮定に基づき、緩衝材中の拡散による核種移行プロセスは1次元円筒座標系で表現されている。また、解析では複数の崩壊連鎖を同時に考慮することができる。核種移行モデルは差分法により離散化されている (Wakasugi et.al., 1999)。

濃度干渉解析コードは、ガラス固化体、緩衝材内側境界領域、緩衝材および掘削影響領域を解析領域として考慮しているが、緩衝材内側境界領域は MESHNOTE コードの場合のガラス固化体近傍の仮想的な領域に対応するものであり、解析領域としては双方同じ4つの領域を考慮していることになる。また、これら2つのコードのそれぞれの解析領域で考慮している核種移行プロセスや採用している座標系は同じである。ガラスの溶解モデルについては表現方法が異なるが、基本的には同一の調和溶解モデルとみなしてよい。

以上のことから、単一のコンパートメントを考慮した濃度干渉解析コードについて、その基本モデルが適切に離散化され、コンピュータ上に実装されている場合、MESHNOTE コードとの検証解析において、同一の解析条件のもとでは、両コードはほぼ同じ解析結果を与えるものと考えられる。

5.3 検証解析の条件

検証解析では、第2次取りまとめ (核燃料サイクル開発機構、1999b) に示されている単一のガラス固化体を基本とした人工バリア中の核種移行解析 (MESHNOTE コード使用) におけるレファレンスケースの解析結果とレファレンスケースのデータを用いて単一のコンパートメントのみを考慮して濃度干渉解析コードにより解析を行った結果を比較する。ここでは、検証解析を行うための条件および計算に使用したデータについて述べる。

5.2 で述べたように MESHNOTE コードは単一のコンパートメントのみを考慮した場合の濃度干渉解析コードとモデル化の条件は同じである。すなわち、濃度干渉解析コードの場合について述べると、単一のコンパートメント中の解析領域はガラス固化体、緩衝材内側境界領域、緩衝材及び掘削影響領域の4つの領域に分かれている。それぞれの領域でのモデル化の条件については3.に詳しく述べられているが、簡単にまとめると以下ようになる。

- ・ ガラス固化体：
人工バリア中の核種移行解析のソースとなる。ガラスとの調和溶解により核種が溶出する。
- ・ 緩衝材内側境界領域：
ガラス固化体から溶出した核種と緩衝材中へ拡散により移行してゆく核種との収支バランスから、緩衝材内側境界領域における核種濃度を計算し、緩衝材中の核種移行解析を行う際の内側境界条件を与える。
- ・ 緩衝材：
緩衝材内側境界条件と外側境界条件から半径方向1次元拡散モデルにより緩衝材中の核種濃度分布を計算する。
- ・ 掘削影響領域：
緩衝材から移行してきた核種と掘削影響領域中を流れる流量により運び去られる核種の収支バランスから、掘削影響領域中の核種濃度を計算し、緩衝材中の核種移行解析を行う際の外側境界条件を与える。

5.4 データ

単一のコンパートメントのみを考慮した濃度干渉解析コードを用いた解析に使用したデータは、考慮する核種数が少ないこと以外、第2次取りまとめの人工バリア中の核種移行解析（MESHNOTE コード使用）のレファレンスケースのデータと同一である。ここでは、解析で考慮する核種とインベントリ、ガラス固化体に関するデータ、緩衝材に関するデータ、掘削影響領域に関するデータの順で説明する。

5.4.1 核種とインベントリ

第2次取りまとめの安全評価解析（核燃料サイクル開発機構、1999b）で考慮されている放射性核種およびそのインベントリ（処分後、1,000年時点）をそれぞれ表5.4-1と表5.4-2に示す。

表 5.4-1 第 2 次取りまとめの核種移行解析において考慮した放射性核種

放射化生成物/ 核分裂生成物	Sm-151、Cs-135、Sn-126、Pd-107、Tc-99、Nb-94、 Zr-93→Nb-93m、Se-79
4N 系列	Pu-240→U-236→Th-232
4N+1 系列	Cm-245→Pu-242→Am-242→Np-237→U-233→Th-229
4N+2 系列	Cm-246→Pu-242→U-238→U-234→Th-230→Ra-226→Pb-210 Am-242m→Pu-238 ↑
4N+3 系列	Am-243→Pu-239→U-235→Pa-231→Ac-227

表 5.4-2 ガラス固化体 1 本あたりの放射性核種および安定同位体のインベントリ
(第 2 次取りまとめのデータ)

元素	同位体	半減期 [y]	モル数 [mol/can]	元素	同位体	半減期 [y]	モル数 [mol/can]
Se	79	6.50E+04	8.04E-02	Th	229	7.34E+03	2.51E-06
	Stable	-	6.86E-01		230	7.70E+04	5.37E-05
Zr	93	1.53E+06	8.54E+00	232	1.41E+10	6.50E-06	
	Stable	-	4.74E+01	Pa	231	3.28E+04	2.23E-06
Nb	93m	1.36E+01	7.21E-05	U	233	1.59E+05	1.17E-03
	94	2.03E+04	2.80E-04		234	2.45E+05	1.50E-02
	Stable	-	2.67E-02		235	7.04E+08	1.46E-01
Tc	99	2.13E+05	8.27E+00		236	2.34E+07	1.05E-01
Pd	107	6.50E+06	2.04E+00		238	4.47E+09	1.31E+01
	Stable	-	1.18E+01	Np	237	2.14E+06	3.74E+00
Sn	126	1.00E+05	2.25E-01	Pu	238	8.77E+01	6.49E-05
	Stable	-	6.82E-01		239	2.41E+04	1.60E-01
Cs	135	2.30E+06	3.19E+00		240	6.54E+03	1.78E-01
	Stable	-	8.84E+00		241	1.44E+01	1.23E-05
Sm	151	9.00E+01	3.20E-05		242	3.87E+05	1.12E-02
	Stable	-	3.33E+00	Am	241	4.32E+02	1.88E-01
Pb	210	2.23E+01	3.48E-09		242m	1.52E+02	5.79E-05
	Stable	-	3.81E-03		243	7.38E+03	4.01E-01
Ra	226	1.60E+03	2.62E-07	Cm	245	8.50E+03	7.26E-03
Ac	227	2.18E+01	1.48E-09		246	4.73E+03	8.29E-04

これらの核種の選定は、

- ・ ガラス固化体からの核種の浸出は処分後 1,000 年間、すなわちオーバーパックが破損するまで起こらない、
- ・ ガラスの溶解にともなって地下水に浸出した核種は、直ちに表層帯水層に運ばれる、
- ・ 帯水層中の地下水は井戸水として利用され、人がそれを摂取する、

との前提条件のもとに求められ、井戸水中の核種濃度が水中の濃度限度の 1/1,000 を超え

るものとして抽出された。

濃度干渉解析コードを使用した検証解析では、第2次取りまとめのレファレンスケースの解析より得られた母岩及び断層からの核種移行率の線量への換算結果（核燃料サイクル開発機構、1999b）において総和した線量変化を支配する核種に着目し、表5.4-3に示す核種を選定した。また、以降の章で述べる濃度干渉の影響を考慮した解析においても、表5.4-3に示した核種を考慮して計算を行った。また、表5.4-4は、濃度干渉解析コードを使用した解析で使用する各核種のガラス固化体1本あたりのインベントリをまとめたものである。

表5.4-3 濃度干渉解析コードを使用した解析で考慮した放射性核種

核分裂生成物	Se-79、Tc-99、Cs-135
4N+1 系列	Cm-245→Pu-241→Am-242→Np-237→U-233→Th-229
4N+2 系列	Cm-246→Pu-242→U-238→U-234→Th-230→Ra-226→Pb-210

表5.4-4 ガラス固化体1本あたりの放射性核種および安定同位体のインベントリ
(濃度干渉解析コードを使用した解析で使ったデータ)

元素	同位体	半減期 [y]	モル数 [mol/can]
Se	79	6.50E+04	8.04E-02
	Stable	-	6.86E-01
Tc	99	2.13E+05	8.27E+00
Cs	135	2.30E+06	3.19E+00
	Stable	-	8.84E+00
Pb	210	2.23E+01	3.48E-09
	Stable	-	3.81E-03
Ra	226	1.60E+03	2.62E-07
Th	229	7.34E+03	2.51E-06
	230	7.70E+04	5.37E-05
U	233	1.59E+05	1.17E-03
	234	2.45E+05	1.50E-02
	238	4.47E+09	1.31E+01
Np	237	2.14E+06	3.74E+00
Pu	241	1.44E+01	1.23E-05
	242	3.87E+05	1.12E-02
Am	241	4.32E+02	1.88E-01
Cm	245	8.50E+03	7.26E-03
	246	4.73E+03	8.29E-04

5.4.2 ガラス固化体に関するデータ

第2次取りまとめの安全評価解析（核燃料サイクル開発機構、1999b）で使用された、ガラスの溶解に係るガラス固化体の幾何学形状、初期体積・初期重量等についてのデータを表5.4-5にまとめる。3.1で述べたガラスの溶解モデルについての説明では、2種類の溶解モ

デルすなわち1次溶解反応及び水和反応を考慮した溶解モデルと一定溶解速度モデルについて説明したが、検証解析及び以降に述べる濃度干渉評価解析においては、一定速度溶解モデルを用いた。したがって、表5.4-5にはガラスの一定溶解速度も併せて示す。

表 5.4-5 ガラスの溶解に係るデータ

データ項目	単位	データ値
半径	[m]	0.215
高さ	[m]	1.34
幾何学的表面積	[m ²]	1.70
表面積増加率	[-]	10.00
初期表面積	[m ²]	17.00
初期体積	[m ³]	1.500E-01
初期重量	[g]	4.120E+05
密度	[g/m ³]	2.747E+06
一定溶解速度	[g/m ² /y]	3.65E-01
Siの初期量	[mol/can]	3090.00

5.4.3 緩衝材に関するデータ

第2次取りまとめの安全評価解析（核燃料サイクル開発機構、1999b）で使用された、緩衝材に関するデータのうち、幾何形状に係るデータを表5.4-6に、溶解度に係るデータを表5.4-7に、拡散係数に係るデータを表5.4-8に、収着に係るデータを表5.4-9に示す。

緩衝材中の核種移行を円筒座標系半径方向1次元でモデル化していることから、表5.4-6における緩衝材の高さについては、オーバーパック軸方向外側表面積からの核種移行も考慮することにより設定した。他のデータは設計仕様上のデータである。

表 5.4-6 緩衝材の幾何形状データ

データ項目	単位	データ値
内側半径	[m]	0.41
外側半径	[m]	1.11
高さ	[m]	2.14
間隙率	[-]	0.41
乾燥密度	[kg/m ³]	1600.00

表5.4-7は濃度干渉解析コードを使用した核種移行解析で考慮した放射性元素の緩衝材間隙水中の溶解度を示しており、可溶性であるCsを除く、すべての放射性元素に対して溶解度を設定した。これら放射性元素の溶解度は、降水系地下水が地下深部に埋設された緩衝材中に浸透してきたものと仮定することにより地球化学計算コード及び熱力学データを使用して算出された。

表 5.4-7 緩衝材間隙水中の放射性元素の溶解度

元素	溶解度 [mol/m ³]
Se	3.00E-06
Tc	4.00E-05
Cs	可溶性元素
Pb	2.00E-03
Ra	1.00E-09
Th	5.00E-03
U	8.00E-06
Np	2.00E-05
Pu	3.00E-05
Am	2.00E-04
Cm	2.00E-04

表 5.4-8 に示す実効拡散係数は室温状態 (25℃) で実測された値を拡散の活性化エネルギーに基づいて 60℃ に補正を行って得られた値である。

表 5.4-8 緩衝材中の放射性元素の実効拡散係数

元素	実効拡散係数 [m ² /y at 60℃]
Cs	1.89E-02
Se	6.15E-03
その他の元素	9.43E-03

表 5.4-9 にはレファレンスケースにおける各元素の緩衝材への分配係数のみならず、遅延係数も併せて示している。遅延係数は表 5.4-9 中の各元素の分配係数と表 5.4-6 に示す緩衝材の空隙率と乾燥密度を使用して、(3.3.9)式に基づき算出した。

表 5.4-9 放射性元素の緩衝材への分配係数と遅延係数

元素	分配係数 [m ³ /kg]	遅延係数 [-]
Se	0.00	1
Tc	0.10	391
Cs	0.01	40
Pb	0.10	391
Ra	0.01	40
Th	1.00	3903
U	1.00	3903
Np	1.00	3903
Pu	10.00	39025
Am	10.00	39025
Cm	10.00	39025

5.4.4 掘削影響領域に関するデータ

第2次取りまとめの安全評価解析（核燃料サイクル開発機構、1999b）で使用された、掘削影響領域に関するデータを表5.4-10に示す。

表5.4-10 掘削影響領域に関するデータ

項目	単位	データ値
EDZ厚さ	[m]	0.50
EDZ体積	[m ³]	13.59
EDZ流量	[m ³ /y]	0.01
間隙率	[-]	0.02
乾燥密度	[kg/m ³]	2640.00

EDZ:掘削影響領域

掘削影響領域の厚さは、日本及び諸外国で報告されているデータに基づき保守的に設定したものである。その体積は緩衝材の高さと外側半径及び掘削影響領域の厚さから算出した。掘削影響領域の間隙率2%については、レファレンスケースでの変質部と未変質部を含んだマトリクス部の有効間隙率が2%であること及び亀裂空隙部体積の岩盤全体の体積に対する割合は極めて小さいことを考慮して設定している。岩石の真密度は岩種にかかわらず2700kg/m³となることが報告されており、この値と間隙率2%から乾燥密度を算出した。掘削影響領域の通過流量については3次元亀裂ネットワークモデル中に処分坑道及び掘削影響領域をモデル化することにより算出された値を使用した。

検証解析及び以降で述べる濃度干渉評価解析では、第2次取りまとめレファレンスケースの人工バリア中の核種移行解析と同様、掘削影響領域では核種の遅延は考慮しないこととした。すなわち、解析におけるモデルパラメータである掘削影響領域の分配係数値を0に設定した。

5.5 検証解析の結果

5.4で設定したデータを使用して、濃度干渉解析コードにより、単一のコンパートメントのみを考慮した場合の解析を実施した。図5.5-1はその解析結果であり、1本のガラス固化体から緩衝材外側境界を通過して掘削影響領域へ放出された核種が単位時間に掘削影響領域から地下水流れによって運び去られる放射エネルギーのオーバーパック破損後の時間変化（核種移行率）を表している。図5.5-1からわかるように、解析で考慮した16核種（表5.4-3参照）の核種移行率は時間的に変化し、放射エネルギーの時間変化でみた場合、Se-79、Cs-135、Tc-99、Th-229がそれぞれこの順番で支配核種になっている。これらの支配核種の中で、Cs-135は、その地下水中への溶解が溶解度で制限されないことから、ガラス固化体からの溶解量と緩衝材中への核種移行量との質量バランスがとれるまで溶解する。したがって、緩衝材内側境界におけるCs-135の濃度は他の溶解度制限を受ける核種に比べて非常に大きくなること

から、図 5.5-1 にみられるように掘削影響領域から放出される Cs-135 の核種移行率は評価期間内において最も大きな値（最大ピーク値）をもつものと考えられる。図 5.5-1 に示す第 2 次取りまとめのレファレンスケースデータに基づく解析ケースにおいては 5 万年でピーク値に達している。また、崩壊系列をなす核種については、例えば $U234 \rightarrow Th230 \rightarrow Ra226 \rightarrow Pb210$ についてみると、それぞれの核種の移行率が親核種の崩壊による影響を受け変化している。また、これらの核種は、10 万年以降調和的に移行率が変化し、それぞれ一定の移行率に到達して定常状態を継続していることから、放射平衡状態にあることがわかる。

第 2 次取りまとめのレファレンスケースデータを使用し、MESHNOTE コードにより解析を行なって得られた緩衝材外側境界周辺に仮定した掘削影響領域からの核種移行率のオーバーパック破損後の時間変化を図 5.5-2（ガラス固化体 1 本分）に示す。第 2 次取りまとめの人工バリア中では表 5.4-1 で示した放射化生成物／核分裂生成物及び崩壊系列をなす核種に加えて、表 5.4-2 に示すようにインベントリ中に存在する安定同位体の影響も考慮に入れ、合計 40 核種について同時に解析を行なっている。図 5.5-2 には、レファレンスケースデータを使用して MESHNOTE コードで解析することにより得られた 40 核種についての核種移行率の時間変化から、表 5.4-3 に示す濃度干渉解析で考慮した核種（16 核種）についての計算結果を抜き出して示している。

図 5.5-1 に示す濃度干渉解析コードにより得られた核種移行率の時間変化と図 5.5-2 に示す MESHNOTE コードにより得られた核種移行率の時間変化を比較し、考察を加えると以下のようなことが言える。

- ・ 両コードによる解析結果はともに、オーバーパック破損時から 1,000 万年までの時間範囲において、核種放出率の時間変化を支配する核種は、オーバーパック破損時から 100 年の間では Se-79、100 年から 10 万年の間では Cs-135、10 万年から 100 万年の間では Tc-99、100 万年から 1,000 万年の間では Th-229 である。また、Se-79、Cs-135、Tc-99 の核種移行率は良好に一致しており、Th-229 については MESHNOTE コードによる解析結果が 2 倍程度大きくなっている。両コードとも、Se-79 と Cs-135 についてはそれぞれ安定同位体の影響を考慮し、Tc-99 については安定同位体の影響を考慮せずに全く同一条件で計算を行っているために良好な一致が得られている。しかしながら、Th-229 については、考慮している同位体数が濃度干渉解析コードでは 2 つ、MESHNOTE コードでは 3 つと異なるため、同位体存在比による溶解度分割で得られる Th-229 の溶解度が両コードの解析で異なっており、その影響のため解析結果も少し異なっている。
- ・ 濃度干渉解析コードを用いた解析では、崩壊系列をなす核種については $4N+1$ 系列と $4N+2$ 系列のみを考慮にいられており、しかも $4N+2$ 系列においては MESHNOTE コードにおける解析のように合流を考慮していない。これらの解析条件の考慮

すると、崩壊系列をなす核種のうち、両コードとも同一条件の下で解析を行っている核種は Np-237 のみである。すなわち、Np-237 については両コードとも解析で同位体を考慮していない。図 5.5-1 と図 5.5-2 の Np-237 の核種移行率を比較してみると、両者は良好に一致している。

- ・ 両コードによる解析条件の違いが顕著に現れているケースは 4N+2 系列をなす Pb-210 の 100 年から 1 万年の移行率の変化であるが、これは濃度干渉解析コードでは崩壊系列における Am-242m→Pu-238 の影響を U-234 の段階で考慮していないこと及びウランの同位体について U-235 と U-236 の影響は考慮していないことが原因として挙げられる。U-235 と U-236 のインベントリは U-234 に比べて 1 オーダー大きく、これら 2 つの核種の存在が同位体存在比に基づく核種溶解度の算定に与える影響は大きい。
- ・ 濃度干渉解析コードを用いた解析において、Np-237 や Pb-210 以外の崩壊系列をなす核種、例えば U-233、U-234、U-238、Pu-241、Pu-242 等についても、両コードによる解析結果に若干違いがみられるが、これについても両コードの解析において考慮している同位体数が異なり、このため同位体存在比により算定される核種溶解度に影響を与えることが原因である。

また、濃度干渉解析コードについては、別途、質量バランスを確認するための計算を実施しており、ガラス固化体、緩衝材、掘削影響領域及びファーフィールド岩盤からなるモデル体系全体において、質量が保存されることを確認している。

以上で述べた比較解析と質量バランス計算から得られた結果及びその検討を考慮すると、同位体を有する核種の解析においては、濃度干渉解析コードは MESHNOTE コードに比べて考慮している同位体数が少ないために、解析結果としては若干保守的な値を与え、また、同位体の影響を考慮していない核種については両者ほぼ同一の解析結果を与えることがわかる。したがって、濃度干渉解析コードと MESHNOTE コードは全く同一の解析条件の下では同一の解析結果を与えるものと考えられる。

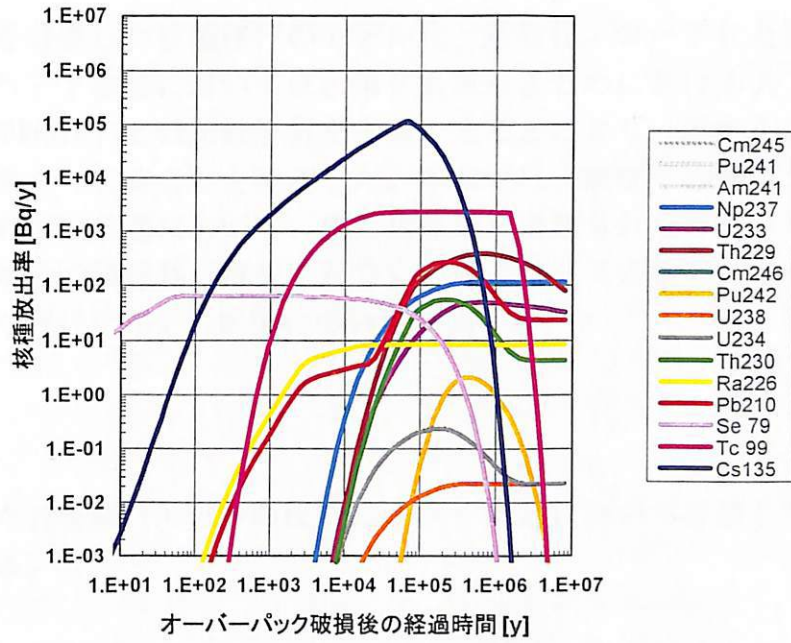


図 5.5-1 濃度干渉解析コードの解析結果
(単一コンパートメント)

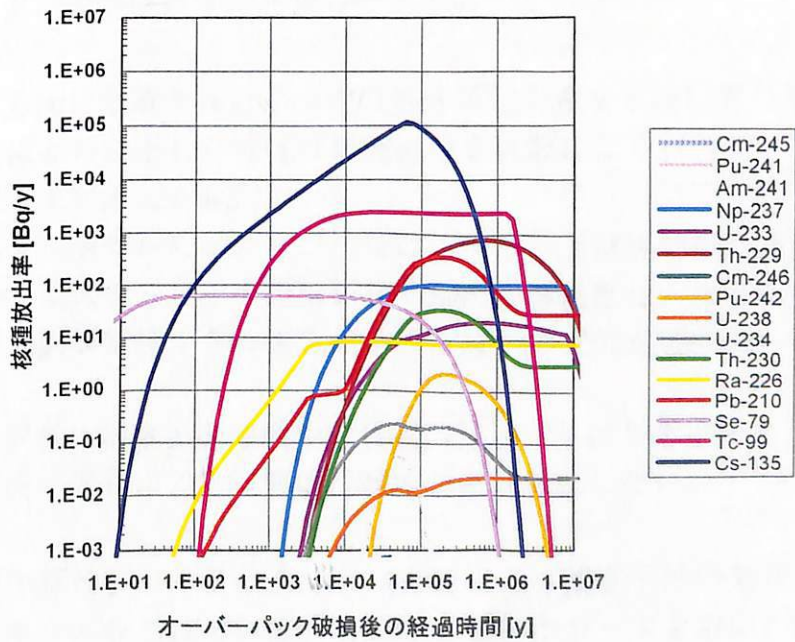


図 5.5-2 MESHNOTE コードの解析結果

6. 濃度干渉影響解析

これまで濃度干渉効果を考慮した核種移行のモデル化、離散化/コード化及びコード検証について述べてきた。コード検証においては、第2次取りまとめにおける人工バリア中核種移行解析コード「MESHNOTE」との比較解析を実施することにより、濃度干渉解析コードが信頼性のある解析結果を与えることを確認した。本章では、濃度干渉解析コードを用いて、地下水が一様に流れている場において、処分場領域に埋設されたガラス固化体が多重ソースとして作用した場合の核種移行解析を行ない、多重ソースの結果として生じる濃度干渉効果が核種の遅延や移行に与える影響について評価する。

6.1 モデル概要

濃度干渉効果を考慮した核種移行モデルの概念については2.において詳述した。ここでは、簡単にその概要を述べる。

濃度干渉効果は、地下水流れの経路上に複数のガラス固化体が存在することにより、上流側の処分坑道から放出された核種が下流側に運ばれ、下流側の処分坑道周辺（掘削影響領域）の核種濃度が上昇することにより緩衝材中での濃度勾配が減少し、その結果として人工バリアからの核種移行率が抑制されることにより生じる。濃度干渉効果を考慮したモデル構築にあたっての主要な仮定は以下のとおりである。

- ・ 地下水流れ方向に配置されたすべての処分坑道が濃度干渉に寄与する。
- ・ ガラス固化体から溶出した核種は緩衝材中を拡散により移行し、処分坑道周辺の掘削影響領域に流入する。
- ・ 上流側の処分坑道から放出された核種はすべて、下流側の処分坑道周辺の掘削影響領域内に流入する。その掘削影響領域の核種濃度は、緩衝材からの放出、上流側の掘削影響領域からの流入および下流側の掘削影響領域への流出により算定する。
- ・ 緩衝材中と同様に掘削影響領域中の核種の溶解・沈殿を考慮する。
- ・ 処分場領域内の母岩による核種移行遅延効果は考慮しない。

本研究で開発した濃度干渉解析コードは、3.で述べたように濃度干渉の効果が最大に発揮される状態を想定してモデル化されている。したがって、本コードを用いた核種移行解析から得られる処分場から放出される核種移行率は単一固化体を基本として核種移行解析を実施したケースに比べて非保守側となる。

6.2 影響解析の方法

2.、3.で述べているように、濃度干渉解析コードは、一様な地下水流れの場合を想定し、地下水流れの経路に沿ってガラス固化体が埋設されており、これらのガラス固化体がそれぞれソースとして作用することにより生じる濃度干渉の影響を評価することができる。

本章では、濃度干渉の影響について、以下のような手順で解析し、評価を行う。

- ① 濃度干渉解析コードを用いてガラス固化体、オーバーパック、緩衝材、掘削影響領域からなるコンパートメント1個のみの解析（以下、「1コンパートメントモデルによる解析」という）を行ない、地下水流れによって掘削影響領域外へ出て行く核種移行率の時間変化を算出する。算出した核種移行率を処分場へ埋設するガラス固化体本数（40,000本）倍することにより処分場全体から放出されるの全核種移行率とする（従来の解析方法）。
- ② 濃度干渉解析コードを用いてコンパートメントを100個連結した解析（以下、「100コンパートメントモデルによる解析」という）を実施し、処分場下流側境界からの放出される核種移行率の時間変化を算出する。算出した核種移行率を1本の処分坑道に埋設されるガラス固化体本数（400本）倍することにより処分場全体から放出されるの全核種移行率とする（濃度干渉の影響を考慮した評価方法）。
- ③ 従来の評価方法（1コンパートメントモデルによる解析・評価）及び濃度干渉の影響を考慮した評価方法（100コンパートメントモデルによる解析・評価）により算出された処分場から放出される全核種移行率及び処分システムの構成要素（ガラス固化体、緩衝材、掘削影響領域、処分場外側の岩盤）中に存在する核種量を比較することにより、濃度干渉の影響を定量的に把握する。

ここで、濃度干渉の影響を考慮した評価は、図 2.1-1 に示す処分場のレイアウトに基づいていることから、処分場全体からの核種移行率を算出するにあたっては、地下水流れの経路に沿って存在する100本のガラス固化体の影響を考慮して濃度干渉解析コードにより算出される処分場下流側境界からの核種移行率を、地下水流れの方向と直交する各処分坑道中に埋設されているガラス固化体の本数（400本）倍することにより処分場へ埋設されるガラス固化体本数（40,000本）分の影響を考慮することとした。また、処分システム構成要素中の核種量の時間変化についても、1コンパートメントモデル及び100コンパートメントモデルともに、処分場へ埋設されるガラス固化体本数（40,000本）分に換算した。

6.3 解析データ

本章では、濃度干渉解析コードを用いて100コンパートメントモデルによる解析を実施し、その結果を5.で実施した1コンパートメントモデルによる解析結果と比較することを通し

て濃度干渉の影響について評価する。解析に使用したデータは 5.4 で述べたデータと全て同一である。比較評価においては、6.2 に述べた方法にしたがって、1 コンパートメントモデルによる解析と 100 コンパートメントモデルによる解析により得られた結果をそれぞれ処分場内の総ガラス固化体本数 (40,000 本) 分に換算することより比較検討し、濃度干渉の影響について評価した。

6.4 解析結果

濃度干渉解析コードを用いて 6.3 で述べた入力データに基づき 100 コンパートメントモデルについての処分場領域内の核種移行解析を実施し、1 コンパートメントモデルで得られた解析結果と比較した。ここでは、それぞれのモデルを用いた核種移行解析によって得られた処分場から放出される核種移行率、処分システム構成要素中に存在する核種量、ガラス固化体中の核種量、緩衝材中の核種量、処分場内岩盤中に存在する核種量及び処分場外岩盤へ放出された核種量の時間変化について述べる。また、ここで述べるいずれの解析結果を示すグラフも横軸にオーバーパック破損後の経過時間をとっている。

6.4.1 処分場から放出される核種移行率

図 6.4-1 と図 6.4-2 はそれぞれ、1 コンパートメントモデルと 100 コンパートメントモデルにより得られた処分場から放出される核種移行率の時間変化であり、核種移行率を放射エネルギーの単位 (Bq/y) で示している。これらの図からわかるように、1 コンパートメントモデルによる核種移行率については、Cs-135 が 100 年から 50 万年にかけて支配核種となっており、7 万年でピーク値をもつ。100 コンパートメントモデルによる核種移行率は 100 年以降のすべての時間において Cs-135 が支配核種になっているが 1 コンパートメントモデルに比べてピーク値が 2 オーダー程小さくなっている。また、1 コンパートメントモデルによる Cs-135 の核種移行率は 7 万年で瞬時にピーク値に達した後、急速に低下し、50 万年で他の核種 (Tc-99) に支配核種が入れ代わっているが、100 コンパートメントモデルによる Cs-135 の核種移行率はピーク値に達した後、緩慢に低下し、処分場からの核種放出が 1,000 万年程度まで継続している。100 コンパートメントモデルによる Cs-135 以外のほとんどの核種についてもそれぞれの移行率をもつピーク値は 1 コンパートメントモデルによる核種移行率に比べて 2 オーダー小さくなっている。

100 コンパートメントモデルによる核種移行率が 1 コンパートメントモデルによる核種移行率に比べて 2 オーダー低減していることについては、次のような理由が考えられる。Cs のような溶解度による制限を受けない可溶性の元素は、緩衝材内側境界部において、ガラス固化体からの溶出量と緩衝材内部への濃度勾配に基づく拡散移行量のバランスによりその濃度が決定される。そのときの濃度は溶解度制限を受ける元素に比べて非常に高いもの

となることから、濃度勾配も急になり、緩衝材中を拡散移行する核種フラックスも大きくなる。したがって、緩衝材外側境界からは大量の核種フラックスが掘削影響領域へ移行し、掘削影響領域中を流れている地下水により下流側の掘削影響領域へと運ばれる。

最も上流側に位置するコンパートメント中の緩衝材外側境界における濃度勾配が地下水流れに沿って存在する 100 コンパートメントのうち最も急な濃度勾配を有し、下流側にいくにしたがって上流側から地下水流れによって運ばれてくる核種の影響を受けて濃度勾配が緩やかになってくる。そして、さらに下流側のコンパートメント中の緩衝材中では濃度勾配は非常に小さくなり、緩衝材外側境界を通して掘削影響領域中へ移行してくる核種量は非常に小さくなる。このとき、上流側から移行してきた核種量はそのまま下流側へ運び去られる。最も上流側コンパートメント内においては、核種が人工バリア中に保持されているなら、緩衝材中の濃度勾配が最も大きくなることから、これに比例してガラス固化体から緩衝材を通り掘削影響領域への移行する核種量も全コンパートメント中最大となる。したがって、上流側に存在するコンパートメントから下流側に向かって徐々に人工バリア中に保持されている核種量が枯渇してゆく。そして、最終的には全核種が崩壊による減衰と処分場の外側への放出により処分場内部の核種量が失われることになる。したがって、Cs-135 の場合、半減期の影響を受けるまで、濃度干渉の影響により処分場からの核種放出は継続する。

図 6.4-3 と図 6.4-4 は、それぞれ 1 コンパートメントモデルと 100 コンパートメントモデルにより得られた核種移行率を質量の単位 (mol/y) で示したものであるが、これらの結果からも上記したことが理解できる。また、Cs-135 は他の核種に比べて、1,000 万年までの時間範囲においては他の核種に比べて十分に大きな核種量が処分場から放出されていることがわかる。ガラス固化体のインベントリ中に最も大量にある U-238 は緩衝材中の非常に低い溶解度に抑えられて、大部分がガラス固化体及び緩衝材内側境界に保持されている。

6.4.2 処分システム構成要素中に存在する核種量

図 6.4-5 と図 6.4-6 は、それぞれ 1 コンパートメントモデルと 100 コンパートメントモデルにより得られた処分システム構成要素中に存在する核種の全質量の時間変化を示したものである。1 コンパートメントモデルと 100 コンパートメントモデルにおけるそれぞれの構成要素中に保持されている核種量を比較すると、ガラス固化体中と緩衝材内側境界部に溶解したガラスについては大きな変化はなく、U-238、Tc-99、Np-237 及び Cs-135 がこの順で支配的な核種になっている (図 6.4-9 と図 6.4-10 及び図 6.4-11 と図 6.4-12 参照)。オーバーパック破損後 10 万年まで、ほぼ大部分の核種がガラス固化体中と緩衝材内側境界部に保持されている。

これに対し、ガラス固化体中と緩衝材内側境界部に溶解したガラス中と異なり、1 コンパートメントモデルと 100 コンパートメントモデル双方において、緩衝材中、処分場内岩盤中及び処分場外岩盤中に存在する核種量を支配しているのは可溶性の Cs-135 である（図 6.4-13 と図 6.4-14、図 6.4-15 と図 6.4-16 及び図 6.4-17 と図 6.4-18 参照）が、両モデルにおいて Cs-135 の時間変化について大きな変化が見られる。ここで、処分場内岩盤とは核種移行のモデル化で考慮している掘削影響領域のことである。それ以外の処分場内に存在する岩盤の存在については保守的に無視している。

濃度干渉の影響を考慮した 100 コンパートメントモデルでは、1 コンパートメントモデルに比べて、処分場内部により多くの核種量を長期間保持することができる。処分場外岩盤については、10 万年程度まで 2 オーダー、10 万年から 100 万年の間で 1 オーダー多くの核種量を保持することができ、400 万年以降は崩壊により減衰していく。また、処分場外側岩盤中においては、核種挙動のモデル化において、移行は考慮しておらず、処分場から外側岩盤中に放出された核種の蓄積と放射性崩壊による自然減衰のみを考慮にしていることから、処分場外側岩盤中の核種移行遅延をさらにモデル化に反映させると、図 6.4-6 に示す処分場内岩盤中に保持される核種量は分散・希釈・遅延の影響を受け、さらに増加するものと考えられる。

図 6.4-7 と図 6.4-8 は、それぞれ 1 コンパートメントモデルと 100 コンパートメントモデルにより得られた処分システム構成要素中に存在する核種の全質量の時間変化（図 6.4-5 と図 6.4-6）を処分場内外に存在する核種の全質量の時間変化としてまとめ直して示したものである。1,000 万年までの時間範囲において、処分場領域内には 10 万年まで大部分の核種量が保持されており、1,000 万年後においても依然として 80% 以上の核種量が保持されている。また、処分場外側岩盤中の核種蓄積量については、100 コンパートメントモデルが 1 コンパートメントモデルに比べて 1 オーダー核種蓄積の時間遅れがあり、ピーク値も 1 オーダー小さいことがわかる。

6.4.3 ガラス固化体中の核種量

図 6.4-9 と図 6.4-10 は、それぞれ 1 コンパートメントモデルと 100 コンパートメントモデルにより得られたガラス固化体中に存在する核種量の時間変化を示したものである。ガラスの溶解については、一定溶解速度モデルを使用していることから、双方のモデルにおいて、ガラス固化体中の核種量の時間変化は同じであり、変化はみられない。全核種量を支配している核種は U-238、Tc-99、Np-237 及び Cs-135 である。また、ガラス固化体全量の溶解に要する時間は 7 万年である。

6.4.4 緩衝材中の核種量

図 6.4-11 と図 6.4-12 は、それぞれ 1 コンパートメントモデルと 100 コンパートメントモデルにより得られた緩衝材内側境界に保持されているガラスと調和的に溶解した核種量の時間変化を示したものである。双方のモデルにおいて、可溶性の Cs-135 を除く溶解度により制限される核種について、緩衝材内側境界領域中に保持される核種量の時間変化はほぼ同じであり、大きな変化はみられない。全核種量を支配している核種はガラスの溶解が終了する 7 万年まで U-238、Tc-99、Np-237 及び Cs-135 であり、その後 U-238、Np-237 及び U-233 と支配核種が入れ代わる。U-238 はガラス固化体中に最も多く含まれる核種であり、半減期も 44.7 億年と非常に長く、また溶解度が低いため、ガラスの溶解が終了したのちも大部分が緩衝材内側境界部分に留まる。可溶性の Cs-135 については、1 コンパートメントモデルに比べて 100 コンパートメントモデルはより多くの量を内側境界部分に保持している。

図 6.4-13 と図 6.4-14 は、それぞれ 1 コンパートメントモデルと 100 コンパートメントモデルにより得られた緩衝材内部に保持されている核種量の時間変化を示したものである。双方のモデルとも、緩衝材中では可溶性の Cs-135 が支配核種になっている。100 コンパートメントモデルによる解析において、Cs-135 は、濃度干渉の影響により緩衝材内部の濃度勾配が小さくなりより多くの核種量が緩衝材中に保持されている。一方、他の溶解度制限の核種については濃度干渉の影響は顕著にはみられない。

6.4.5 処分場内岩盤中に存在する核種量

図 6.4-15 と図 6.4-16 は、それぞれ 1 コンパートメントモデルと 100 コンパートメントモデルにより得られた処分場内岩盤中すなわち掘削影響領域中に保持されている核種量の時間変化を示したものである。双方のモデルによる解析において、処分場内岩盤中は緩衝材中に比べて Cs-135 の影響が顕著になっていることがわかる。100 コンパートメントモデルによる解析の場合、濃度干渉の影響により、支配核種である Cs-135 が処分場内岩盤中に長期間にわたり保持されている。

6.4.6 処分場外岩盤へ放出された核種量

図 6.4-17 と図 6.4-18 は、それぞれ 1 コンパートメントモデルと 100 コンパートメントモデルにより得られた処分場から外側岩盤中へ蓄積された核種量の時間変化を示したものである。処分場外側の岩盤においても全核種量は Cs-135 に支配されている。100 コンパートメントモデルでは濃度干渉の影響を受け、処分場から放出された核種の蓄積量が 1 コンパートメントモデルに比べて 10 万年までで 2 オーダー、10 万年から 1,000 万年で 1 オーダー小さい。このことは、濃度干渉を受けた場合、処分場からの核種放出は抑制され、より多くの核種が処分場内部に保持されることを意味している。

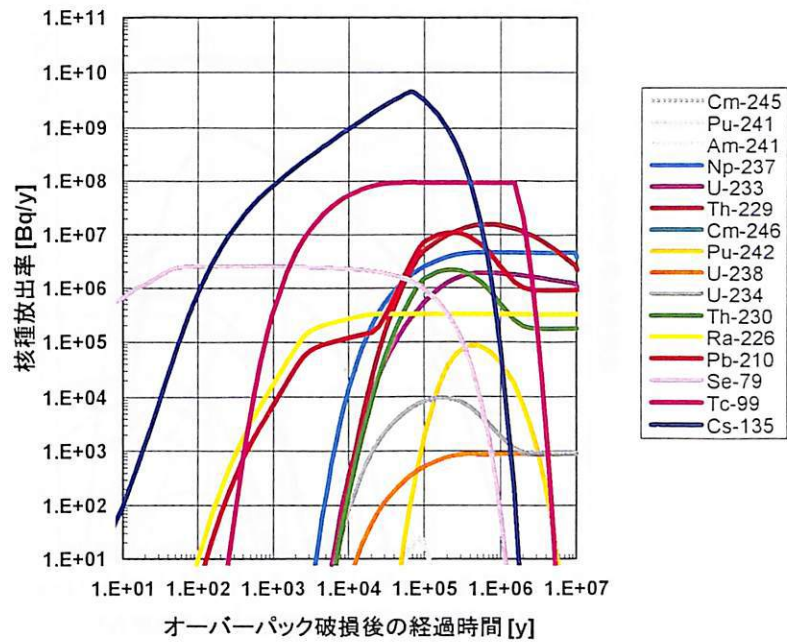


図 6.4-1 処分場から放出される核種移行率 (Bq/y) の時間変化
 (1コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)

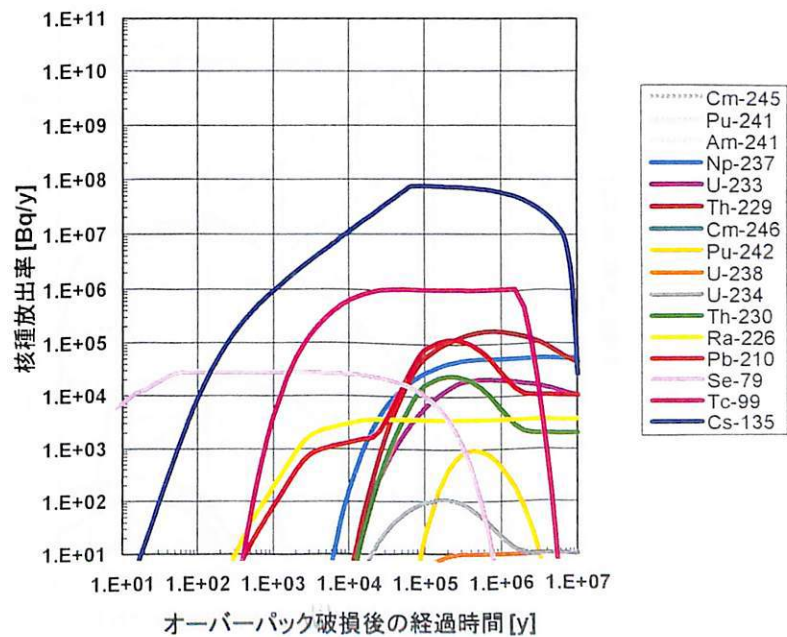


図 6.4-2 処分場から放出される核種移行率 (Bq/y) の時間変化
 (100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)

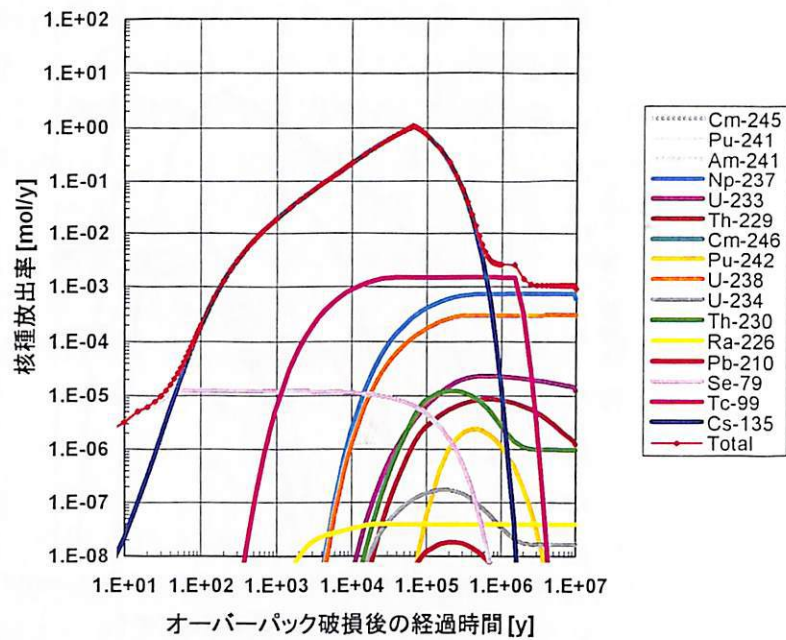


図 6.4-3 処分場から放出される核種移行率 (mol/y) の時間変化
(1コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)

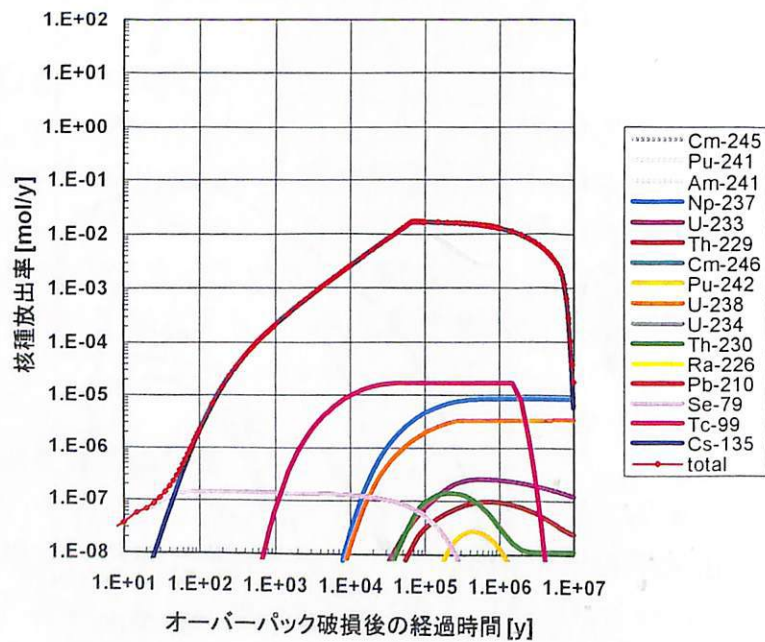


図 6.4-4 処分場から放出される核種移行率 (mol/y) の時間変化
(100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)

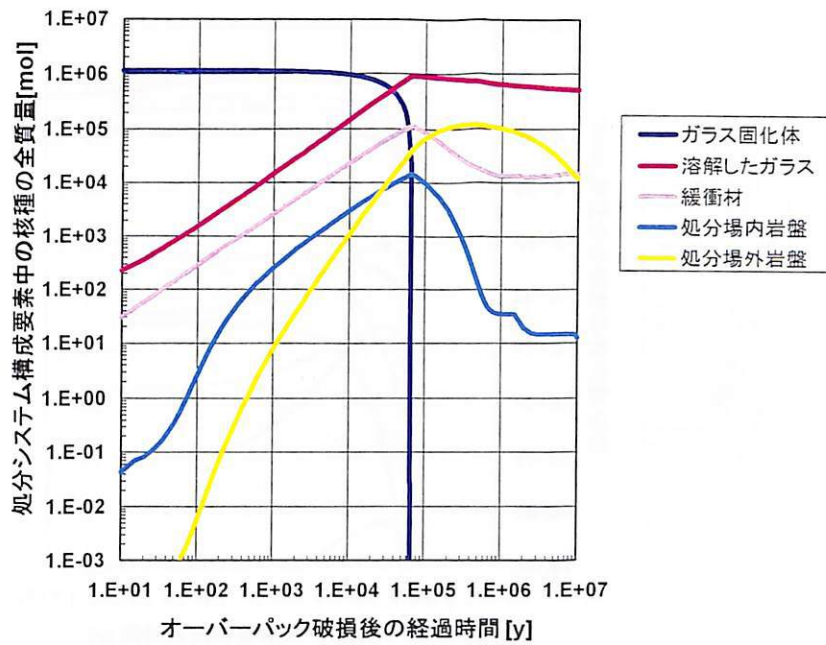


図 6.4-5 処分システム構成要素中に存在する核種の全質量 (mol) の時間変化 (1コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)

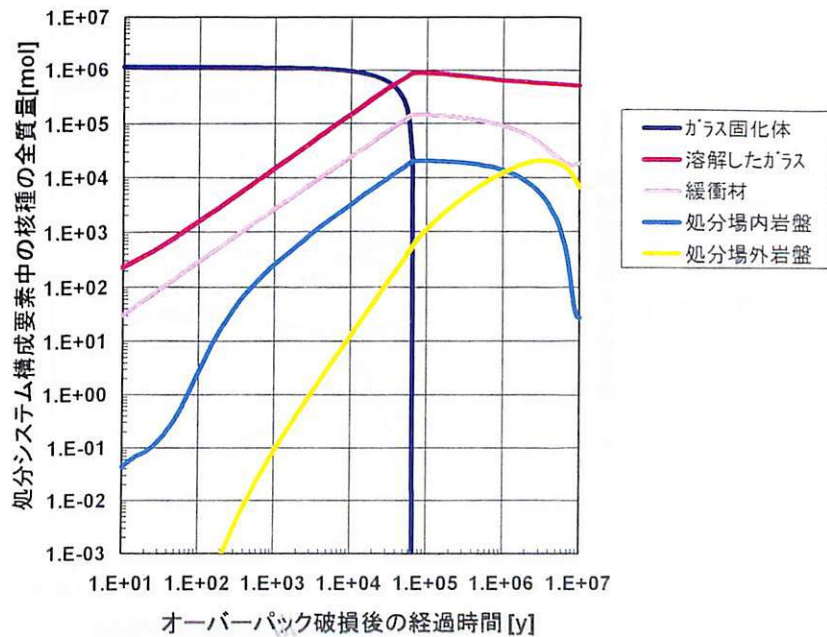


図 6.4-6 処分システム構成要素中に存在する核種の全質量 (mol) の時間変化 (100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)

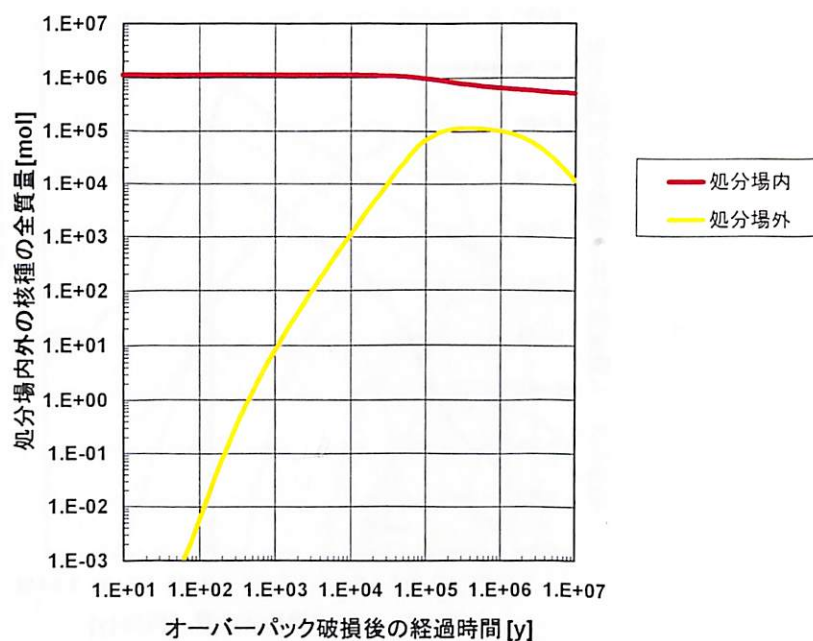


図 6.4-7 処分場内外に存在する核種の全質量 (mol) の時間変化
(1コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)

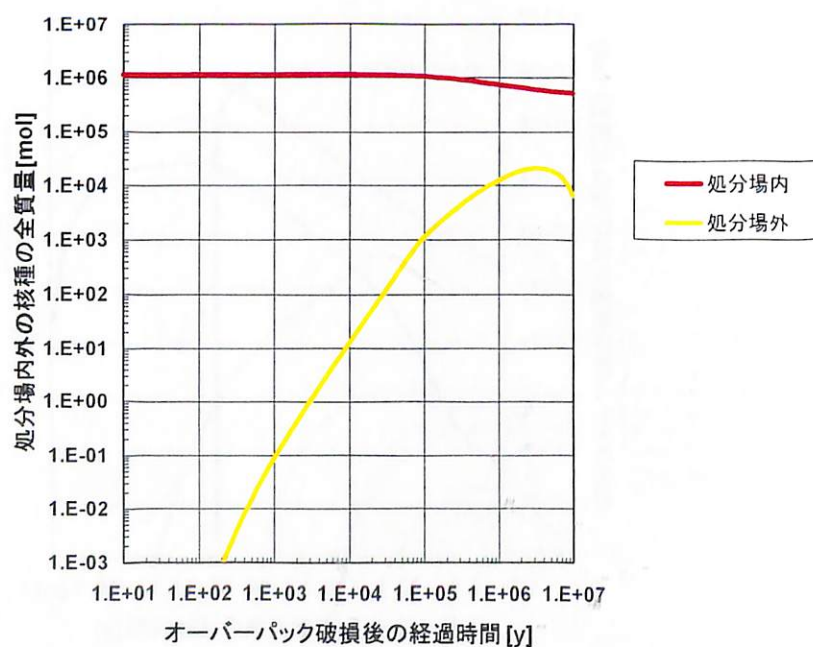


図 6.4-8 処分場内外に存在する核種の全質量 (mol) の時間変化
(100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)

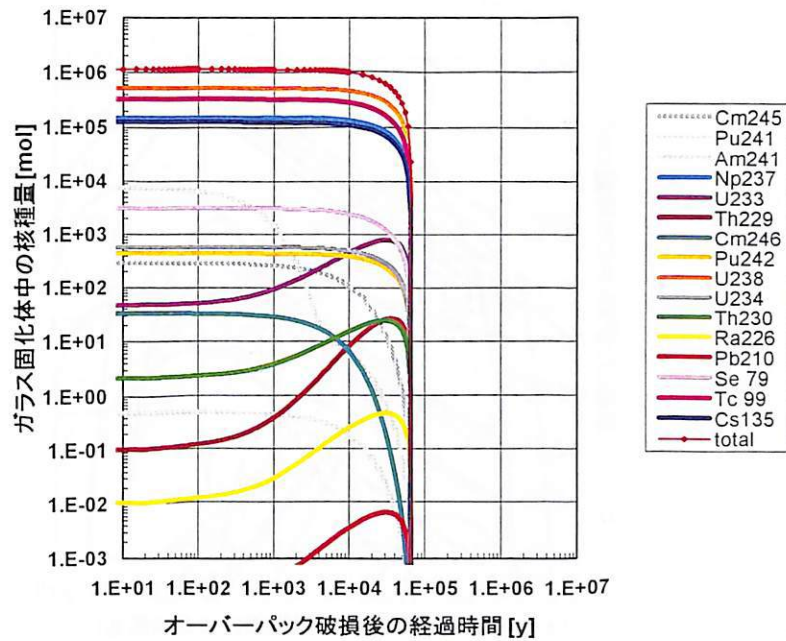


図 6.4-9 ガラス固化体中の核種量 (mol) の時間変化
(1コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)

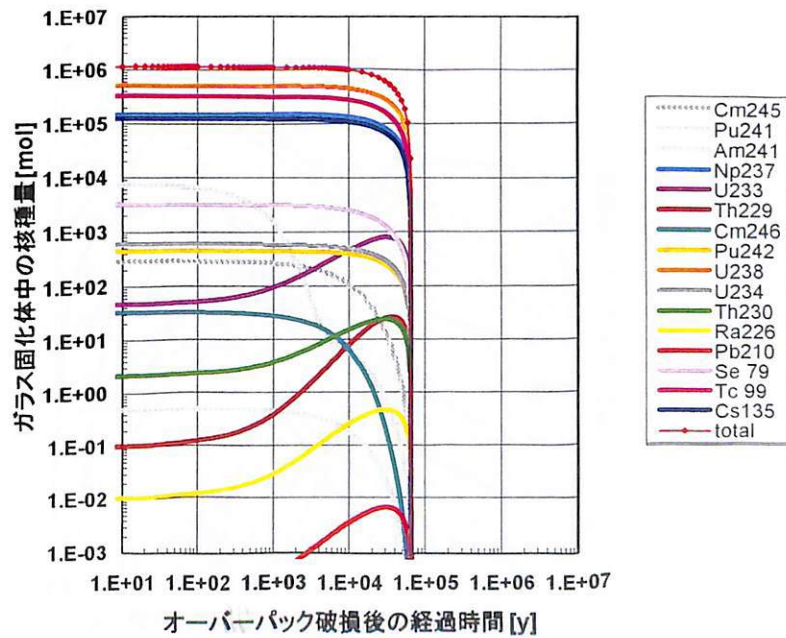


図 6.4-10 ガラス固化体中の核種量 (mol) の時間変化
(100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)

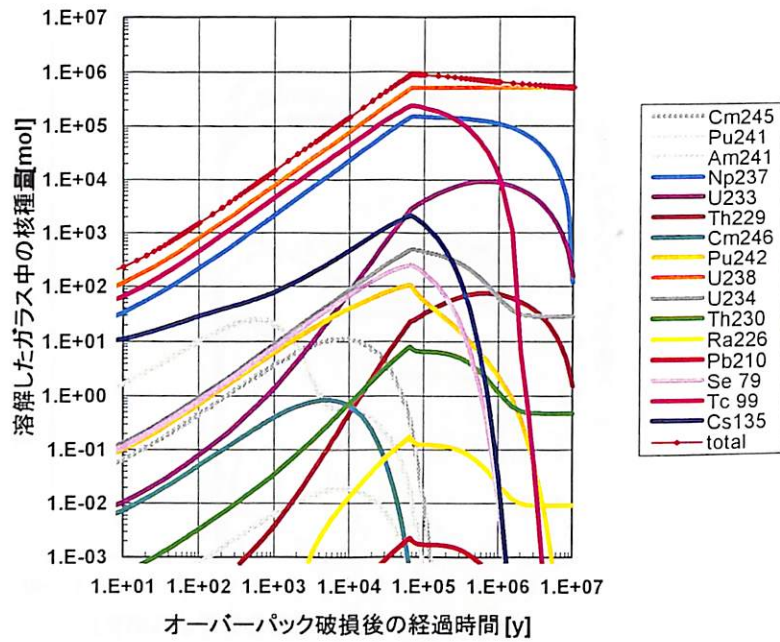


図 6.4-11 溶解したガラス中（緩衝材内側境界）の核種量（mol）の時間変化
 （1コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算）

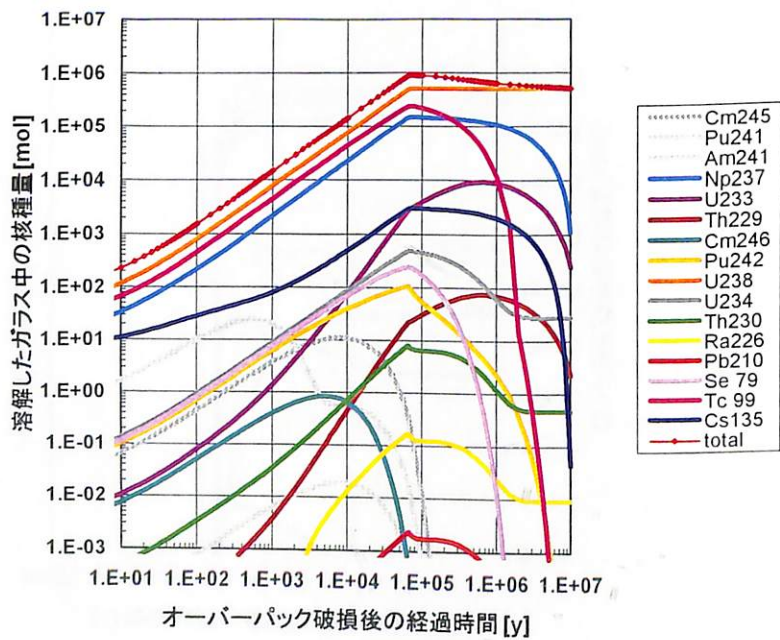


図 6.4-12 溶解したガラス中（緩衝材内側境界）の核種量（mol）の時間変化
 （100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算）

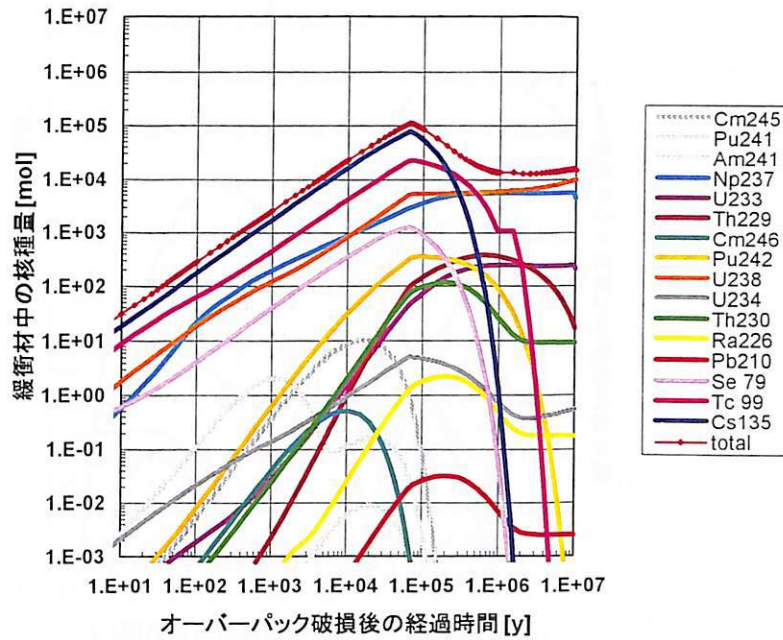


図 6.4-13 緩衝材内部の核種量 (mol) の時間変化
 (1コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)

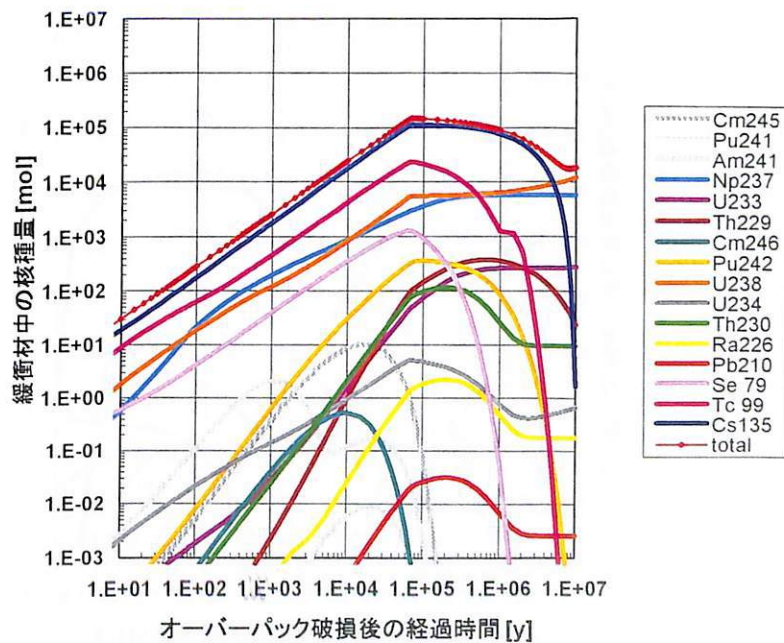


図 6.4-14 緩衝材内部の核種量 (mol) の時間変化
 (100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)

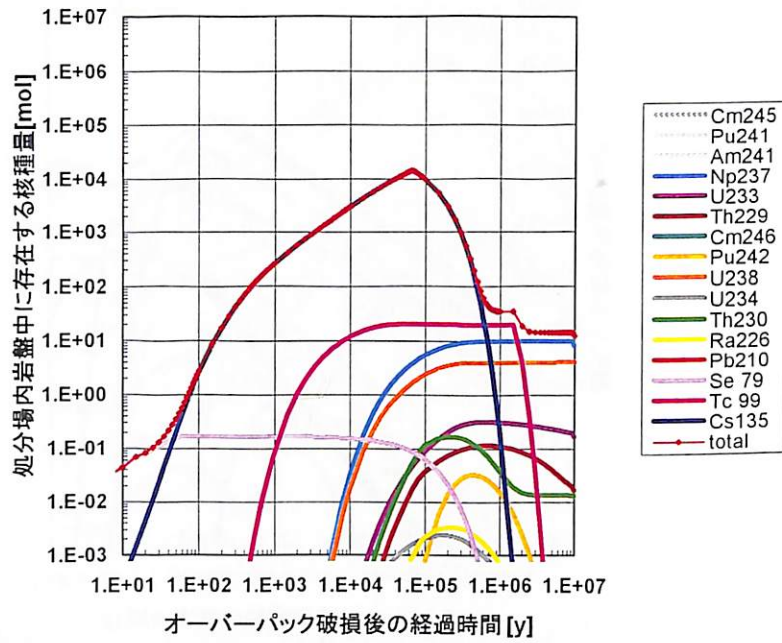


図 6.4-15 処分場内岩盤中に存在する核種量 (mol) の時間変化
(1コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)

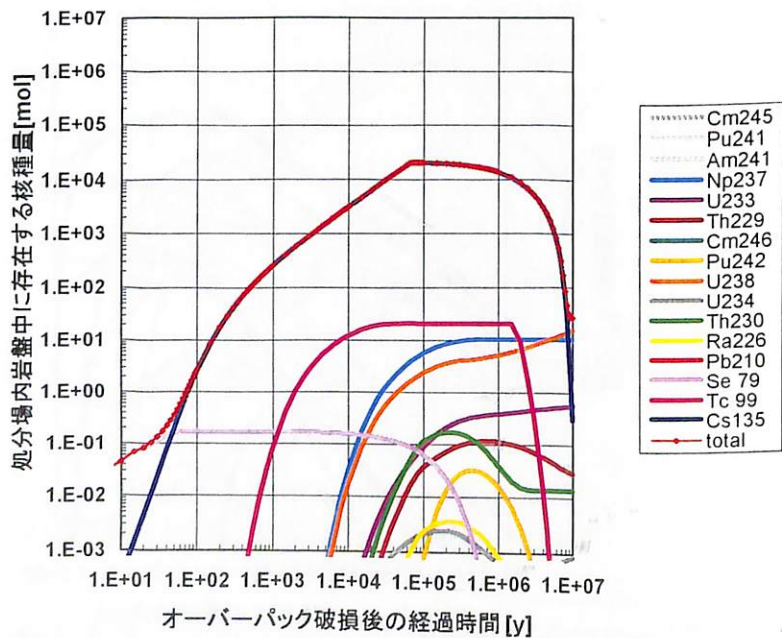


図 6.4-16 処分場内岩盤中に存在する核種量 (mol) の時間変化
(100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)

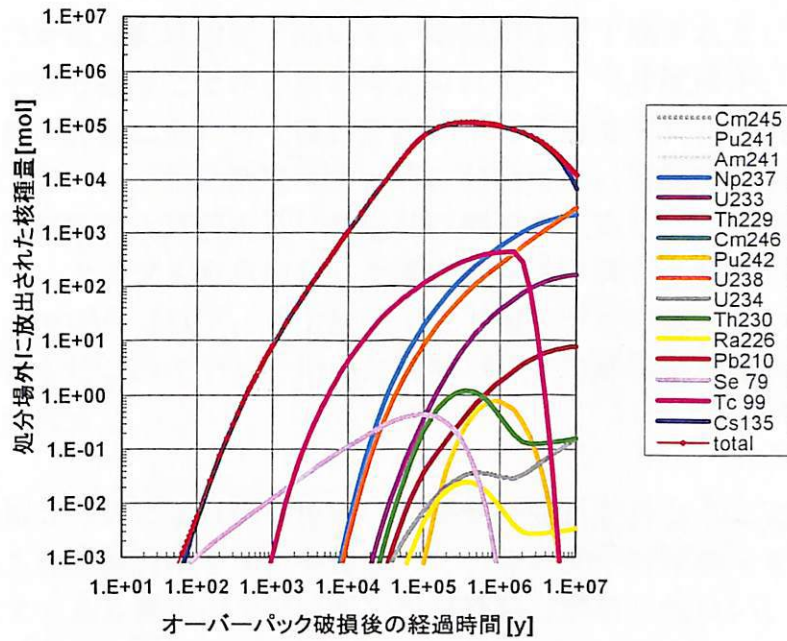


図 6.4-17 処分場外岩盤へ放出された核種量 (mol) の時間変化
(1 コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)

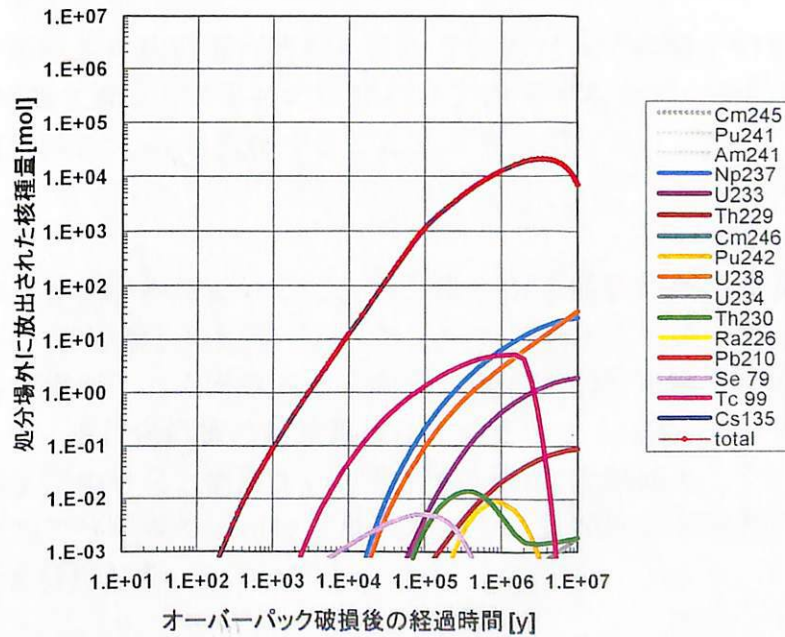


図 6.4-18 処分場外岩盤へ放出された核種量 (mol) の時間変化
(100 コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)

7. 天然バリア評価解析

わが国の岩盤は、一部の新第三紀堆積岩を除いて、亀裂が主要な地下水及び核種移行経路である亀裂性岩盤として取り扱うことが妥当と考えられている（井尻ほか、1999）。第1次取りまとめの岩盤性能の評価にあたっては、1次元平行平板モデルが使用された（動力炉・核燃料開発事業団、1992）。第2次取りまとめにおいては、岩盤を3次元亀裂ネットワークモデルで核種移行経路の水理解析及び核種移行解析を実施し、その結果と比較解析を通して、亀裂ネットワークモデルを単純化した透水量係数の異なる複数の1次元平行平板モデルを重ね合わせたモデル（以下、「1次元平行平板モデルの重ね合わせ」という）の適用性を確認するとともにこのモデルを用いた天然バリアの評価解析を実施した（核燃料サイクル開発機構、1999b）。

本章では、濃度干渉解析コードにより処分場内の核種移行解析を行なうことにより得られた処分場から放出される核種移行率を入力条件として、1次元平行平板モデルの重ね合わせを使用して天然バリアである母岩中及び断層中の核種移行解析を行ない、それらのバリア性能について検討した。

7.1 天然バリア評価モデルとデータ

ここでは、母岩中及び断層中の核種移行解析を行なうにあたっての解析対象領域、評価モデル、データをについて第2次取りまとめの天然バリアのモデルとデータに関する記述（核燃料サイクル開発機構、1999b）から抜粋することにより説明する。

7.1.1 解析対象領域

天然バリア中の核種移行評価解析においては、処分場が透水係数の高い大規模な破碎帯をともなう主要な断層から100m離して配置され、処分場から地下水によって母岩中に運ばれてきた核種は、処分場下流側にある断層内を上向きに流れて最短距離で帯水層に至ると仮定している。したがって、本評価解析の対象領域は、処分場から100m下流側の大規模な破碎帯を伴う断層に至るまでの母岩と断層を核種移行解析の対象領域とした。母岩中の核種移行解析モデルは1次元平行平板モデルの重ね合わせを、断層中の核種移行解析モデルは1次元平行平板モデルを使用した。

7.1.2 評価モデル

ここでは、1次元平行平板モデルの重ね合わせの方法とその基本となる1次元平行平板モデルの数学的定式化について説明する。

1) 1次元平行平板モデルの重ね合わせ手法

1次元平行平板モデルの重ね合わせは、亀裂の透水量係数の確率分布をいくつかの区間に分割し、分割した区間ごとに1次元平行平板モデルを適用して得られたガラス固化体1本あたりの核種移行率を各区間の分布確率で重み付けし、全区間を足し合わせてガラス固化体1本あたりの母岩からの核種移行率を求める手法である。解析にあたっては、分割数を48区間とし、各区間の透水量係数には各区間の中央値を用いた。

2) 1次元平行平板モデルの数学的定式化

・ 支配方程式

定常な地下水流れ場における1次元平行平板亀裂中及び岩石基質中の核種移行支配方程式はそれぞれ以下のように表される。

$$R_n \frac{\partial C_n}{\partial t} + v \frac{\partial C_n}{\partial x} - \frac{\partial}{\partial x} D_L \frac{\partial C_n}{\partial x} + R_n \lambda_n C_n - R_{n-1} \lambda_{n-1} C_{n-1} + \frac{F}{b} D_e^m \frac{\partial C_n^m}{\partial \omega} \Big|_{\omega=0} = 0 \quad (7.1.1)$$

$$R_n^m \frac{\partial C_n^m}{\partial t} - \frac{\partial}{\partial \omega} D^m \frac{\partial C_n^m}{\partial \omega} + R_n^m \lambda_n C_n^m - R_{n-1}^m \lambda_{n-1} C_{n-1}^m = 0 \quad (7.1.2)$$

b	:	亀裂開口幅の1/2[L]
v	:	亀裂内流速[L/T]
D_L	:	亀裂内分散係数[L ² /T]
α_L	:	縦方向分散長[L]
D_0	:	自由水中の拡散係数[L ² /T]
λ_n	:	崩壊定数[1/T]
F	:	亀裂単位面積あたりのマトリクス拡散に寄与する亀裂面積の割合(マトリクス拡散寄与面積率)[-]
D_e^m	:	実効拡散係数[L ² /T] (= $\theta^m D^m$)
θ^m	:	岩石基質部の有効空隙率[-]
D^m	:	岩石基質部空隙中の拡散係数[L ² /T]
C_n, C_n^m	:	亀裂及び岩石基質中の核種濃度[M/L ³]
x	:	亀裂内の移行距離[L]
ω	:	亀裂表面から垂直方向の距離[L]
t	:	時間[T]

また、添字 n, m はそれぞれ核種及び岩石基質部を表わし、 R_n と R_n^m は亀裂及び岩石基質中の遅延係数で、瞬時/線形/可逆な収着を仮定して次式のように表わされる。

$$R_n = 1 + \frac{Ka_n}{b} \quad (7.1.3)$$

$$R_n^m = 1 + \frac{\rho_m Kd_n^m}{\theta^m} \quad (7.1.4)$$

- Ka_n : 亀裂表面への分配係数 [L]
 Kd_n^m : 岩石基質部の岩石鉱物への分配係数 [L³/M]
 ρ^m : 岩石基質部の乾燥密度 [M/L³]

評価解析においては、亀裂表面への収着による遅延は考慮しないため $R_n = 1$ である。

初期条件・境界条件

亀裂及びマトリクス中での初期濃度は 0 とする。

$$C_n(x, 0) = 0 \quad (7.1.5)$$

$$C_n^m(x, \omega, 0) = 0 \quad (7.1.6)$$

また、濃度干渉効果を考慮して得られた処分場内の核種移行解析により得られた核種移行率（フラックス）を 1 次元平行平板亀裂入り口側の境界条件として与える。

$$vC_n - D_L \frac{\partial C_n}{\partial x} = f_n \quad (7.1.7)$$

f_n : 核種 n の処分場からの核種移行率 [M/T]

亀裂表面とマトリクス拡散最大深度 d [L] における境界条件は以下のように表わされる。

$$C_n(x, t) = C_n^m(x, 0, t) \quad (7.1.8)$$

$$\left. \frac{\partial C_n^m}{\partial \omega} \right|_{\omega=d} = 0 \quad (7.1.9)$$

上述した支配方程式及び初期条件・境界条件に基づいてコード化されている MATRICS コードを母岩及び断層中の核種移行解析に使用した。

7.1.3 データ

母岩中の核種移行解析及び断層中の核種移行解析に使用したデータを併せて表 7.1-1 に示す。表 7.1-1 に示すデータは第 2 次取りまとめにおけるレファレンスケースのデータである。

なお、母岩中の核種移行解析における 1 次元平行平板亀裂入り口における境界条件としては濃度干渉解析コードにより得られた処分場からの核種移行率を、また、断層中の核種移行解析における 1 次元平行平板亀裂入り口における境界条件としては母岩中の核種移行解析で得られた 100m 地点での母岩からの核種移行率を与えた。

表 7.1-1 母岩及び断層中での核種移行解析に使用したデータ

パラメータ	母岩 (1次元平行平板モデルの重ね 合わせ)	断層 (1次元平行平板モデル)
岩種	花崗岩 (結晶質岩、酸性岩)	
地下水	降水系地下水	
動水勾配[-]	0.01	
入力とする核種移行率	処分場からの核種移行率	母岩からの核種移行率
移行距離[m]	100	800
透水量係数 (T) [m^2/s]	$10^{-13} \sim 10^{-7}$: 対数正規分布 (対数平均-9.99、標準偏差 1.07) の 48 分割区間の各中央値 (流速: 0.05~50 m/y)	10^{-7} (流速: 50m/y)
開口幅 ($2b$) [m]	経験則 $2b = 2\sqrt{T}$ 対数正規分布 (対数平均-4.03、標準偏差 0.54)	経験則 $2b = 2\sqrt{T}$
縦方向分散長[m]	10 (=1/10×移行距離)	80 (=1/10×移行距離)
マトリクス拡散奇与面積率[%]	50	
マトリクス拡散深さ[m]	0.1	
有効間隙率[%]	2	
乾燥密度 [Kg/m^3]	2.64	
実効拡散係数 [m^2/s]	3×10^{-12}	

平行平板亀裂中の流速 v は、動水勾配 i 、透水量係数 T 及び亀裂開口幅 $2b$ より以下の式により算定する。

$$v = \frac{T \times i}{2b} \quad (7.1.10)$$

また、横方向分散長は考慮しておらず、岩石基質部の有効間隙率、乾燥密度、実効拡散係数は互いに相関を持つように設定した。

分配係数については、処分場内岩盤（掘削影響領域）においては保守的に 0 を設定した。母岩及び断層中においては核種の収着を考慮しており、本解析においては表 7.1-2 に示す第 2 次取りまとめレファレンスケースのデータを使用した。

表 7.1-2 放射性元素の花崗岩に対する分配係数

元素	分配係数 [m ³ /kg]
Se	0.01
Tc	1.00
Cs	0.05
Pb	0.10
Ra	0.50
Th	1.00
U	1.00
Np	1.00
Pu	1.00
Am	5.00
Cm	5.00

7.2 解析結果

濃度干渉効果を考慮した場合の、母岩及び断層からの核種放出率を図 7.2-1 と図 7.2-2 に示す。これらの核種移行率は処分場に埋設する固化体本数（40,000 本）に換算して示してある。これらの核種移行率を線量に換算した結果を図 7.2-3 と図 7.2-4 に示す。線量への換算係数としては、換算した線量が最も高くなる農作業従事者グループに対する換算係数を用いた（核燃料サイクル開発機構、1999b）。比較のために、第 2 次取りまとめのレファレンスケースにおける母岩及び断層からの核種放出率を線量に換算した結果を図 7.2-5 と図 7.2-6 に示す。図 7.2-5 と図 7.2-6 は、第 2 次取りまとめレファレンスケースの解析で考慮した核種（表 5.4-1 参照）について算出された核種移行率のうちから、濃度干渉解析で考慮した核種（表 5.4-3）分について選んで示している。図 7.2-1～図 7.2-6 に示す図は、図 6.4-1～図 6.4-18 と異なりオーバーバックが破損するまでの時間（1,000 年）も考慮し

たガラス固化体処分後の時間に対してプロットされている。

母岩と断層からの核種放出率及び線量を比較してみると、1,000 万年までの評価時間内においては支配核種及びピーク値に関しては大きな変化はみられない。すなわち、母岩及び断層中からの核種移行率及び線量を支配する核種は、Se-79 と Cs-135 であり、Cs-135 が最大ピーク値をもつ。

処分場に埋設するガラス固化体本数 (40,000 本) 分を考慮に入れた処分場から外側岩盤への核種移行率を示す図 6.4-2 と 100m の母岩を通過後の核種移行率を示す図 7.2-1 を比較すると、母岩を考慮することにより支配核種である Cs-135 のピーク値は 1 オーダー低減しているものの、断層を考慮することによる Cs-135 のピーク値の低減はみられない。しかしながら、すべての核種において、断層からの放出開始時間は、母岩からの放出開始時間に対して 1 桁程度遅れていることがわかる。このことは、母岩は核種移行の遅延及びピーク値の低減双方に大きな効果を有するのに対し、断層はピーク値の低減効果はなく、移行距離が 800m あり母岩中の移行距離 100m よりも約 1 桁大きいことが、放出時間の遅れに寄与しているものと考えられる。

濃度干渉効果を考慮した場合の母岩からの核種移行率に対応する最大線量は、レファレンスケースのそれより 1 桁程度小さくなっている。また、支配核種である Cs-135 の線量は 1 桁程度小さくなるのに対し、Cs-135 以外の核種は核種の線量は 2 桁程度小さくなっている。これは、他の核種に比べて、Cs-135 は大量に処分場から放出されるが、岩盤中での分配係数小さく、また半減期が 230 万年と非常に長いために、母岩中でのピークの低減効果が小さくなるものと考えられる。

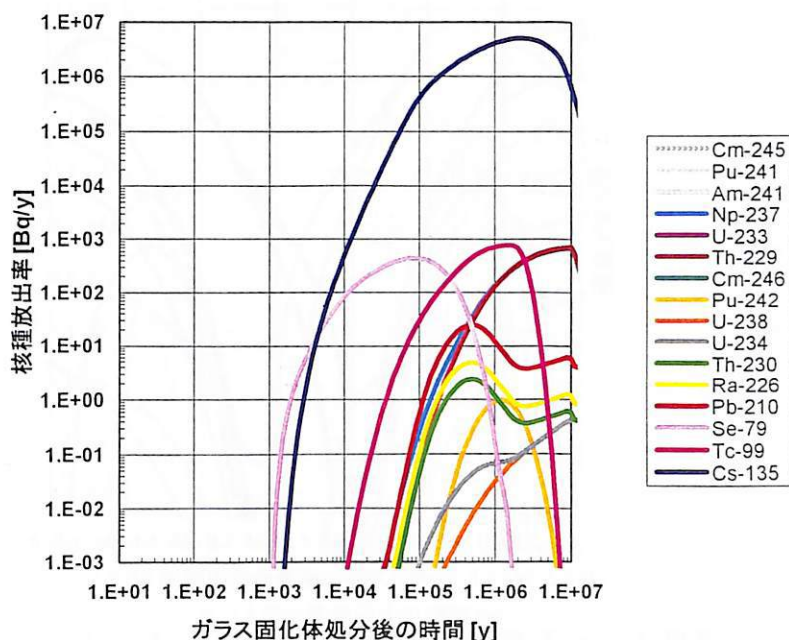


図 7.2-1 濃度干渉の影響を考慮した場合の母岩からの核種移行率
(100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)

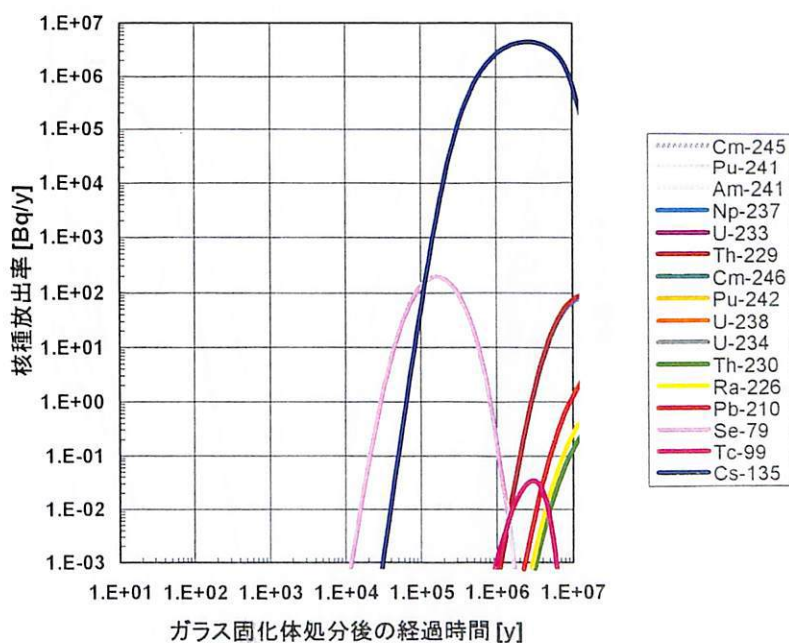


図 7.2-2 濃度干渉の影響を考慮した場合の断層からの核種移行率
(100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)

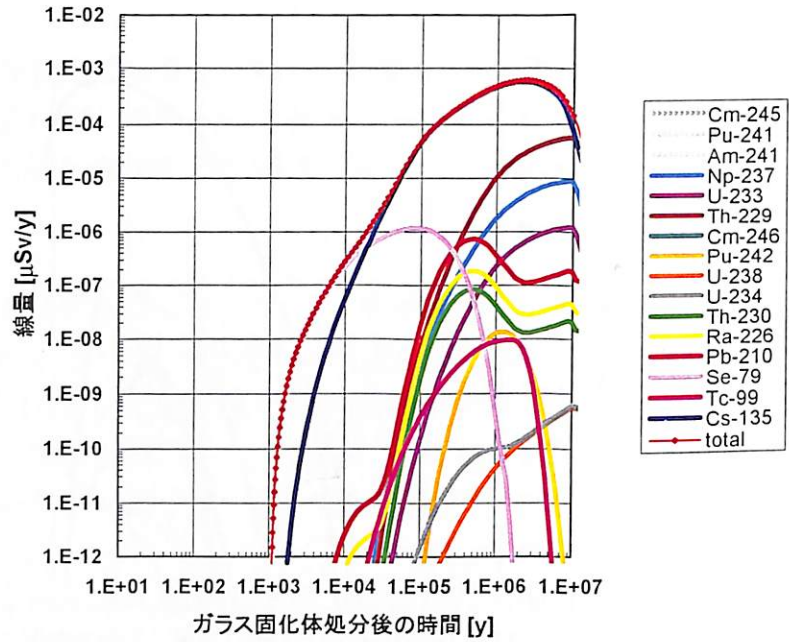


図 7.2-3 濃度干渉の影響を考慮した場合の母岩からの核種移行率の線量への換算結果
(100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)

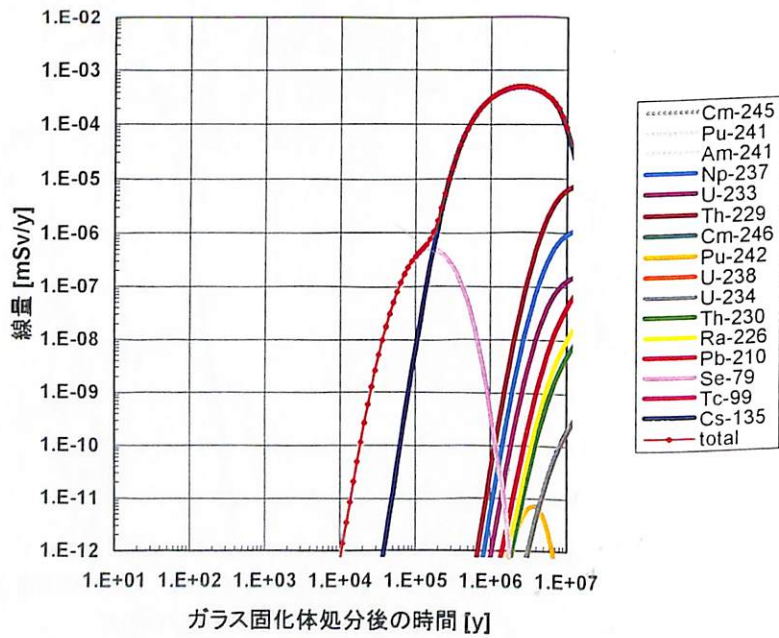


図 7.2-4 濃度干渉の影響を考慮した場合の断層からの核種移行率の線量への換算結果
(100コンパートメントモデルによる解析、ガラス固化体 40,000 本分換算)

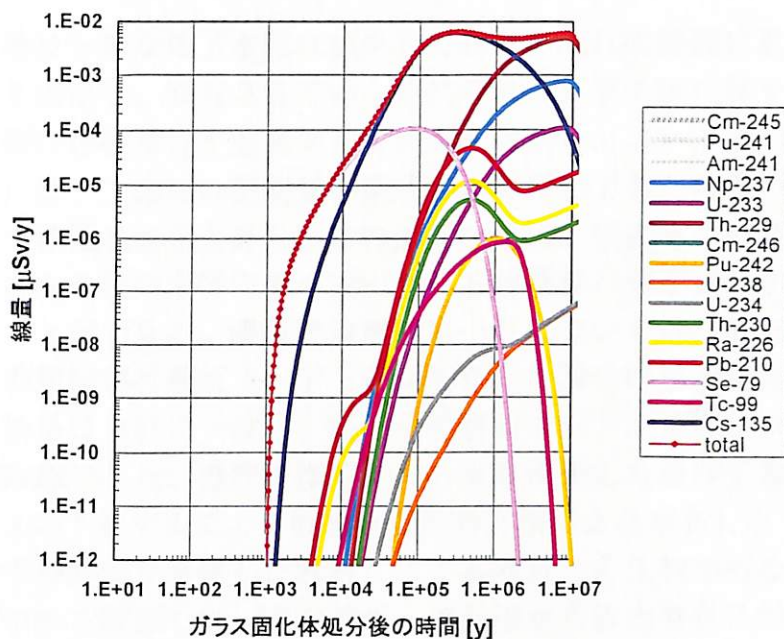


図 7.2-5 レファレンスケースにおける母岩からの核種移行率の線量への換算結果
(ガラス固化体 40,000 本分換算)

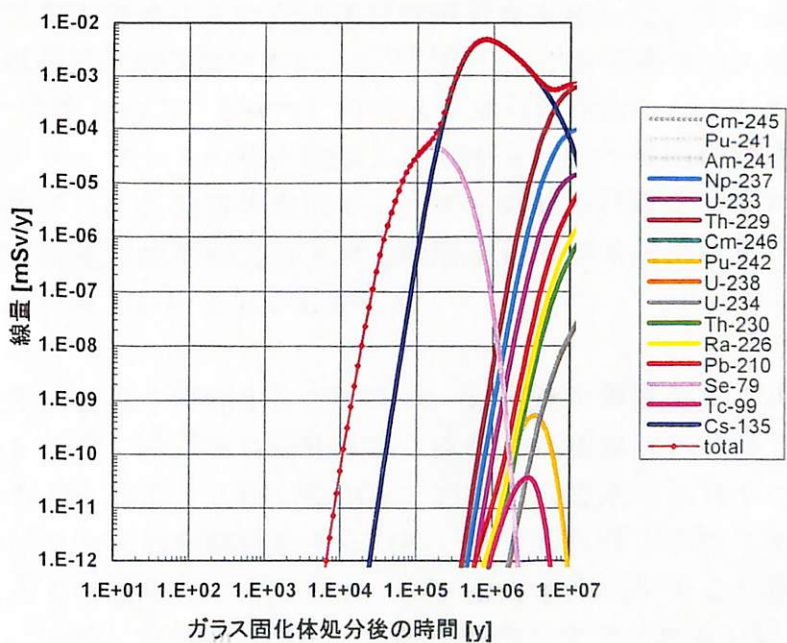


図 7.2-6 レファレンスケースにおける断層からの核種移行率の線量への換算結果
(ガラス固化体 40,000 本分換算)

8. おわりに

本研究では、処分場領域に一様な地下水流れが生じており、流れの経路に沿ってガラス固化体が埋設されていると仮定し、埋設されているそれぞれのガラス固化体をソースとした緩衝材中及び周辺岩盤間の核種移行を記述するモデルを構築し、コード化した。本コード（濃度干渉解析コード）は、上流側の掘削影響領域から移行してきた核種の影響により下流側の掘削影響領域中の核種濃度が上昇し、この影響を受け、緩衝材中の濃度勾配が小さくなることにより緩衝材から掘削影響領域へ放出される核種移行率が減少する濃度干渉効果をシミュレートすることができる。濃度干渉解析コードについては、既存の単一固化体を基本とした緩衝材中の核種移行解析コード「MESHNOTE」と同一の解析条件で比較解析を実施したところ双方の結果は良好に一致し、濃度干渉解析コードが適切にコード化され、正常に機能することが確認できた。濃度干渉解析コードを使用した濃度干渉影響解析については、1コンパートメントモデルによる解析（従来の方法による解析）と100コンパートメントモデル（濃度干渉効果を考慮した解析）による解析との比較を行なうことにより濃度干渉効果の影響について評価した。その結果、処分場から放出される核種移行率については、第2次取りまとめレファレンスケースの解析条件の下で、100コンパートメントモデルのケースは1コンパートメントモデルのケースに比べ約2オーダー低減することがわかった。また、第2次取りまとめレファレンスケースのデータを使用して天然バリアである母岩と断層のバリア性能も考慮に入れた核種移行解析も実施した。その結果、母岩出口及び断層出口における線量換算結果はともに支配核種がCs-135であり、断層が存在することによるCs-135のピーク値（約 10^{-3} $\mu\text{Sv}/\text{y}$ ）の低減は見られなかった。しかしながら、第2次取りまとめレファレンスケースの解析結果と比較すると処分場内の濃度干渉効果と天然バリアを考慮して算出された核種移行率は1オーダー低減されることがわかった。しかしながら、断層の存在は核種放出率の立ち上がり時間を遅らせる効果はあるものの、ピークを低減させる効果はほとんどないことがわかった。

本研究で開発した濃度干渉効果を評価するモデルは一定流速を仮定した1次元モデルであるため、上流側に存在する全てのガラス固化体は下流側の核種移行に寄与し、得られる核種移行率は非保守的なものとなる。しかしながら、岩盤中の透水係数は不均質性を有し、流れは2次元あるいは3次元的な挙動をするため、必ずしも地下水流れや核種移行が1次元モデルで近似できるとは限らない。したがって、濃度干渉効果をより現実性をもたせて評価を行なうために、今後、本研究で開発したモデルの2次元化あるいは3次元化を行なっていくとともに1次元モデルの適用範囲について明らかにしていく予定である。

9. 参考文献

Ahn, J. and Roberts, D. (1997a) : Effects of Multiple Canisters on Uranium Transport and Accumulation, Transactions of 1997 Annual Meeting, Volume 76, American Nuclear Society.

Ahn, J., Roberts, D.A. and Hatanaka, K. (1997b) : Development of Repository-Wide Mass Transport Model and Effect of Multiple Canisters, Abstract of Migration' 97, Sixth International Conference on the Chemistry and Migration Behavior of Actinides and Fission Products in the Geosphere, Sendai, Japan.

井尻裕二、澤田淳、赤堀邦晃 (1999) : 我が国の岩盤の水理特性について、サイクル機構技術資料、JNC TN8400 99-090.

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、一、地層処分研究開発第2次取りまとめ一、分冊2、地層処分の工学技術、JNC TN1400 99-022.

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、一、地層処分研究開発第2次取りまとめ一、分冊3、地層処分システムの安全評価、JNC TN1400 99-023.

動力炉・核燃料開発事業団 (1992) : 高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書一平成3年度一、PNC TN1410 92-081.

Mitsui, S, Kubota, M. and Futakuchi, K. (1999): Aqueous Alteration Mechanism of Waste Glass under Silica Saturation, Proceedings of International Topical meeting on Radioactive Waste Management: Commitment to the Future Environment, Antwerp, Belgium, Oct. 10-14, 1999, vol. 2, (the Belgian Nuclear Society, 1999) p. 344.

Nagra(1994): Kristallin-I, Safety Assessment Report, Nagra Technical Report NTB93-22.

Hatanaka, K. and Ahn, J. (1998): Repository-Wide Performance Assessment Model by Object Oriented Approach, 1998 International High-Level Radioactive Waste Management Conference, Las-Vegas, Nevada.

Press, W.H., Teukolsky, S.A, Vetterling, W.T. and Flannery B.P. (1992): Numerical Recipes in C, Second Edition, Cambridge University Press.

Wakasugi, K., Makino, H. and Robinson, P. (1999) : The Development of MESHNOTE Code for Radionuclide Migration in the Near Field, JNC Technical Report, JNC TN8400 99-095.

10. 謝 辞

本研究で開発した濃度干渉解析コードを検証するために、核燃料サイクル開発機構東海事業所処分研究部システム解析グループ若杉圭一郎氏より、第2次取りまとめ人工バリア中の核種移行解析結果を提供していただきました。また、天然バリア評価解析を実施するにあたり、核燃料サイクル開発機構東海事業所処分研究部システム解析グループ澤田淳氏より第2次取りまとめ天然バリア中の核種移行解析結果を提供していただきました。ここに感謝の意を表します。