

ニアフィールド現象の変遷に関する 動的解析手法の開発（Ⅱ）

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究概要)

技 術 資 料		
開示区分	レポートNo.	受 領 日
又	J1281 95-005	1995.6.30

この資料は技術管理室保存資料です
閲覧には技術資料閲覧票が必要です
動力炉・核燃料開発事業団 技術協力部技術管理室

1995年2月



この資料は、動燃事業団の開発業務を進めるため、特に限られた関係者だけに開示するものです。については、複製、転載、引用等を行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理してください。また今回の開示目的以外のことには使用しないよう特に注意して下さい。

本資料についての問合せは下記に願います。(注)

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団

技術協力部 技術管理部

ニアフィールド現象の変遷に関する 動的解析手法の開発（II）

（動力炉・核燃料開発事業団 委託研究概要）

1995年2月



要 旨

高瀬 博康*、中安 昭夫*

昨年度の研究において開発した広義拡散方程式によるアプローチを踏襲し、

- ・シナリオ
- ・モデル
- ・パラメータ

に含まれる多様な選択肢の存在という性能評価に含まれる主要な不確実性要因の全てについて、統一的な方法で体系的に感度解析を行う手法（動的解析手法）の開発を更に進めた。より具体的には、単核種（崩壊連鎖は考慮しない）の分子拡散による移行について溶解・沈澱、吸着、コロイド生成等を瞬時平衡仮説により取り扱うものであった昨年度のモデルを発展させ、

- ・3メンバーの崩壊連鎖
- ・ケイ素の溶解、沈澱、及び移行挙動を考慮したガラス溶解
- ・ガラス溶解と congruent な核種溶出
- ・速度論的な反応モデルによる安定相及び準安定相の溶解、沈澱
- ・真性コロイド生成解離、及び分子拡散
- ・真性コロイドの線形、可逆な捕捉（吸着）
- ・真性コロイドの不可逆な捕捉（凝集 等）
- ・準安定相から安定相への固相一固相変化（結晶化）
- ・ケイ素、鉄共沈による固化体近傍ケイ素濃度の低下とこれに起因するガラス溶解速度の増加

といった核種移行挙動自体についての種々のシナリオ、モデルを取り込んだものとした。また、これに加えて、ニアフィールド環境条件の変化が、核種移行の主要なパラメータである放射性元素の溶解度に及ぼす影響を解析することを可能とした。具体的には、環境変化を、

- 1) 時間的な変化のみ（位置依存性は無視）
- 2) 位置依存性（時間的な変化は無視）
- 3) 時間的な変化と位置依存性の両方を考慮

という3つのレベルに区分して段階的にモデル化し、これらによって引き起こされる核種移行への影響を定量的に検討可能なものとした。ここで、各レベルでの環境条件の取扱は、個別の事象を詳細にモデル化するのではなく、環境変化の時間・空間的なパターンを代表的な関数形で表現するShadow 関数を用いた。

以上の新たな手法・モデル開発に加え、その適用性を確認するために昨年度本研究で開発した汎用DAEソーバーSPADE上でプログラム化し、これを用いて核種移行挙動の各シナリオ、モデル及びパラメータ、さらに、

- ・放射線分解による地下水pe の変化
- ・海水準変動によるニアフィールド水理の変化
- ・隆起、浸食による地下水pe の変化
- ・seismic pumping による酸化性地下水の浸入

といった環境変化に関してShadow 関数に含まれるコントロールパラメータ（変化の範囲、程度等）を種々に変化させて感度解析を実施した。

本年度の研究における感度解析は、未だ、手法とモデルの適用性の確認に主眼を置く物であり、個々の解析で得られた結果は今後の研究開発の方向性を示すものとして有効ではあるが、安全性について確言するためには、さらに本研究を継続して行う必要がある。特

に、次年度はアクチニド1系列（3核種）、核分裂生成物2核種に限られていた対象核種を増やし、また、いわゆるshared solubilityの問題を含めて4崩壊系列を同時に解析できるような拡張を行うこと、及び、特にシナリオ、モデルの抽出を体系的なシナリオ作成の手法(Top down法、Bottom up法、あるいはこれらの複合)と組み合わせることにより、より体系的かつdefensiveなものとしていくことが重要と考えられる。

* 日揮株式会社 原子力・環境・エネルギー事業本部

SUMMARY

Hiroyasu Takase*, Akio Nakayasu*

Following the result of the study in financial year 1994, we further extended the methodology based upon the idea of "generalized diffusion equation". This methodology is aiming to treat quantitatively the uncertainty arising from all the major sources in the performance assessment such as;

- scenarios,
- models,
- parameters,

in a unified fashion. The model we developed last year was limited to;

- single nuclide (no decay chain),
- instantaneous equilibrium assumption of all the mass partitioning, e.g., dissolution/precipitation, sorption, and colloid formation.

Thus we extended the model in this financial year to cover the effects of;

- 3-member decay chain,
- glass dissolution coupled with the transport and reactions of silica,
- congruent dissolution of radioactive elements,
- kinetic dissolution/precipitation of both stable and meta stable solid species,
- formation and dissociation of true colloid,
- linear and reversible trap of true colloid such as sorption,
- irreversible trap of colloid such as aggregation,
- change of metastable solid phase to stable phase (crystallization),
- co-precipitation of silica and iron, and its effects on glass dissolution behaviour.

Furthermore, we incorporated the shadow functions representing the effects of evolving

environmental conditions upon the performance parameters such as solubility of radioactive elements. We developed the shadow functions of following three levels adding complexity in order;

- 1) evolution of spatially constant environment,
- 2) spatial variation of time-invariant environment,
- 3) formation of spatial patterns in environmental conditions and their evolution.

The methodology described above was implemented into SPADE (a general DAE solver) and was tested for various combinations of scenarios, models and parameters for nuclide migration in EBS and also for a number of environmental evolutions such as;

- growth of the oxidizing plume due to radiolysis,
- perturbation to the nearfield hydrology caused by sea-level change,
- intrusion of oxidizing near-surface water to the nearfield due to uplift and erosion,
- intrusion of oxidizing near-surface water to the nearfield due to seismic pumping.

Based upon these examples, the applicability of the methodology to the performance assessment has been confirmed.

In order to put our way forward and to utilize the methodology fully in the performance assessment of EBS, it is necessary;

- to incorporate multiple decay chains and solubility sharing,
- to couple this methodology with a formal scenario development approach such as Top-down method, Bottom-up method and their combinations so that the selection of scenarios and models could be more scientifically defensible.

* Nuclear & Advanced Technology Division, JGC Corporation

目 次

はじめに	1
1. 人工バリア中核種移行挙動	3
1.1 人工バリア中核種移行挙動に直接関係する現象に関する選択肢	3
1.2 人工バリア中核種移行挙動のモデル化に関する選択肢	3
2. 広義拡散方程式	5
2.1 広義拡散方程式の一般形	5
2.1.1 速い反応の表現	5
2.1.2 遅い反応の表現	6
2.2 反応速度項を含んだ広義拡散方程式の人工バリア中核種移行問題への適用	7
2.2.1 人工バリア形状	7
2.2.2 数学的定式化	7
2.2.2.1 リザーバ	7
2.2.2.2 緩衝材及びオーバーパック領域	9
2.2.2.3 ゆるみ域	11
2.2.2.4 崩壊連鎖の取扱	12
3. 核種移行挙動についての感度解析	14
3.1 基本ケースについての解析	14
3.1.1 ダミー変数及び反応速度項の具体形	14
3.1.2 解析条件	15
3.1.3 結果	16
3.2 核種移行挙動に関する代替ケースについての解析	22
3.2.1 コロイド生成・移行	22
3.2.1.1 ダミー変数及び反応速度項の具体形	22
3.2.1.2 解析条件	23
3.2.1.3 結果	23
3.2.2 鉄・ケイ素共沈	24
3.2.2.1 ダミー変数及び反応速度項の具体形	24
3.2.2.2 解析条件	24

3.2.2.3 結果	24
3.2.3 結晶化	24
3.2.3.1 ダミー変数及び反応速度項の具体形	24
3.2.3.2 解析条件	25
3.2.3.3 結果	25
 4. 環境条件変化についての感度解析	30
4.1 空間的に一様な環境条件の時間変化による影響	31
4.1.1 放射線分解による地下水peの変化	32
4.1.2 海水準変動によるニアフィールド水理の変化	34
4.1.3 隆起・浸食による地下水peの変化	34
4.2 時間的に一定な環境条件の位置依存性による影響	37
4.2.1 酸化性地下水浸入による地下水peの変化	37
4.3 時間・空間的に変動する環境条件による影響	39
4.3.1 放射線分解による地下水peの変化	39
4.3.2 酸化性地下水浸入による地下水peの変化	43
 参考文献	46

はじめに

高レベル放射性廃棄物地層処分の性能評価には、多様な不確実性が含まれる。この不確実性の種類を、性能評価の手順に則して分類すれば以下の様なものがそれぞれ挙げられる。

- (1) 処分された廃棄物中の放射性物質が人間に影響を及ぼす過程、あるいはこの影響程度を規定する環境条件の将来の変遷に関するFEPs(Features, events and processes)の選定に関する不確実性
- (2) 選定された個々のFEPs 及びFEPs 間の相関についての理解とその数学的定式化に関する不確実性
- (3) 定式化された数学モデルを用いて評価を行う際の入力データの選定に関する不確実性

上記のいずれにおいても(FEPs の選定、数学モデルの作成、及び入力データ値の選定) 選択の可能性は複数存在しており、しかも、評価対象となる時間・空間スケールの大きさに起因する観察結果や経験の不足のために、いずれの選択肢をとることが適切かを考える際に主観的な判断を完全に排除することは極めて困難であり、上述した種々の不確実性の影響が評価結果に含まれることが不可避である。

この様な種々の不確実性の要因が性能評価に含まれざるを得ないことは、性能評価研究を実施する各段階を通じて極めて重要な意味を持つこととなる。例えば、性能評価の実施に先立ち設計、シナリオ解析、モデル開発及びデータ収集を行う準備段階においては、これに引き続いて行われる評価に含まれる不確実性をできるだけ小さくすることが課題であり、このために、それぞれの不確実性を減らすための課題（設計変更によって該当する不確実性の影響を低減する、保守的なモデルを用いることによって該当する不確実性要因が顕在化することを防ぐ、現象理解・データ収集を行うことによって本質的な不確実性そのものを低減する等）の重要度分類を行うことが必要となる。性能評価研究が全体として多くの研究領域にまたがることを考えれば、この点はプロジェクト全体の収束性を保つ上で極めて重要である。

また、実際に評価を行い、地層処分の安全性についてのある（暫定的なものであったとしても）結論を導く際には、その判断の根拠としての評価結果に含まれる不確実性の種類と大きさとを付記することが必須である。これは、統計的な評価手法を用いる場合には勿論明示的に為されることとなり、また（保守的な）決定論的評価においても、評価結果が被ばく線量の上限を与えることの確実性（信頼性レベル）を示すことによって為されなくてはならない。

評価の各段階において必要となる不確実性の取り扱いが最も有効に行われてきたのは、はじめに述べた三種類の不確実性要因のうち(3)についてである。これは、パラメータの不確実性と呼ばれ、通常の性能評価モデルを用い、入力データをある統計分布を持つ母集団からサンプリングすることによって行われる感度解析・不確実性解析の手法により定量化することが可能である。この結果、例えば人工バリア中の核種挙動についてパラメータの不確実性の影響を低減するための課題として最も重要な物は溶解度を算出するための熱力学データベースの確立であり、インベントリ制限となるSe-79 や娘核種の沈殿成長という二次的問題を有するAm-241、Am-243 といった例外を除けば分配係数取得の重要性はあ

まり高くないといった重要度分類の結果も得られている。しかしながら、この結果はあくまで(1)及び(2)の不確実性を無視したものであり、感度解析に用いるモデル及びその前提条件が変われば結果も当然変わる可能性がある。実際、最近の研究では、放射性元素の濃度が溶解度に達すると瞬時に沈澱が形成され過飽和状態は決して生じないという従来のモデルに代わり、溶解・沈澱の反応速度を現実的にモデル化した例では、評価結果が溶解度に支配されるのは沈澱反応が数週間のタイムスケールで生じる速い反応の場合に限られ、反応がこれよりも遅い場合には溶解度は核種放出率を実効的に制限する要因とはなり得ないことが示されている[Takase and Grindrod, 1994]。従って、理想的には、他の二つの不確実性要因についても同様の定量的な解析手法を用いることが望ましい。しかし、現実的にはこれら二つの不確実性要因においてはじめに述べた選択肢(FEPs、数学的定式化)を変更することは即ちモデル自体の変更となってしまうために、これまでこれらの要因(シナリオの不確実性、及びモデルの不確実性とそれぞれ呼ばれる。)についての定量的解析手法は開発されていない。

本研究は、前出の三つの不確実性要因(シナリオ、モデル、及びパラメータの選択肢の存在)の全てについて、定量的な感度解析と不確実性解析とを行うことを可能とする手法の開発を目的とした物である。具体的には、人工バリア内の物質移動が分子拡散によって支配されることのみを前提として、溶存イオン、吸着種、コロイドあるいは沈澱といった複数の化学形態が相互に相転移しつつ移行する過程を種々の内部あるいは外部事象の影響により空間的にも時間的にも変化する環境条件の下に解析するという一般性の高い問題を、各現象が共通して持っている特性のみを括りだした広義拡散方程式により表現し、さらに、この方程式に含まれる自由度を広義拡散係数と呼ばれる量の代数的な表現として各現象に特有な性質を付加するという方法により取り扱う手法を用いる物である。昨年度の研究においては、単一核種について比較的簡単なモデルを作成し、上記手法の適用性を調べるための試算を行った。そして、種々の事象について合計400ケースの試算を行った結果、本手法が上記の目的のために利用できることを確かめた。

本年度の研究は、昨年度作成したモデルにガラス溶解挙動や、崩壊連鎖、及び溶解・沈澱反応の速度論的な表現といった事項を付加して拡張するとともに、このモデルを用いてより体系的な感度解析・不確実性解析を実施することにより前出の三つの不確実性要因さらに各要因の中のより具体的な事項の重要度分類について検討を加えたものである。

1. 人工バリア中核種移行挙動

昨年度の報告書[高瀬, 1994]に述べた様に、本手法はまず核種移行挙動を極力一般的にモデル化し、さらにこの際環境条件に依存すると考えられるパラメータを時間あるいは位置の関数として与えることによって核種移行挙動がこれらに対してどの様な応答を示すかを定量化するものである。

そこで、本年度の研究においても、まず、人工バリア中の核種移行挙動そのものについて考えられる選択肢を抽出することとする。

1.1 人工バリア中の核種移行に直接関係する現象の選択肢

ここでは、昨年度の研究における前提を踏襲し、人工バリア内の物質移動は分子拡散によって支配されていることを仮定する。この場合、核種移行に直接関係する現象としては、拡散による動きやすさの異なる化学形態の存在と、これらの形態間での核種の配分に寄与するプロセスを考える必要がある。

この観点から、OECD/NEA の作成したFEPsリスト及び事業団殿から提示されたFEPsリストの中から該当するものを抽出・整理すると、下表に示す物となる。

表1.1-1 核種の形態についての選択肢

- (1) ガラス固化体に固定化された状態
- (2) 溶存イオン
- (3) 吸着種
- (4) 真性コロイド
- (5) 疑似コロイド
- (6) 吸着あるいは捕捉されたコロイド
- (7) 沈澱（安定相）
- (8) 沈澱（準安定相）

表1.1-2 形態間の核種配分に寄与するプロセスの選択肢

- (1) ガラスからの（congruentな）核種溶出
- (2) 核種の溶解・沈澱
- (3) コロイド形成・解離
- (4) 溶存イオンの吸着・脱着
- (5) コロイドの吸着・脱着
- (6) コロイドの濾過及び凝集による沈澱
- (7) 結晶化
- (8) 放射性壞変

ここで、放射性壞変は单一元素について形態を変化させるものではないが、化学特性の異なる親核種から娘核種への変化は、引き続いて娘核種の各形態間での再配分につながるものであること[Umeki et al, 1991]から、上記表に含めることとした。以上をまとめ、移行途中の核種の相転移の全体像を図1.1-1に示す。

1.2 人工バリア中核種移行挙動のモデル化に関する選択肢

人工バリア中の核種移行挙動に直接関係する現象として前節で抽出された個々の選択肢

について、これまで多くの研究者が数多くの代替案を提出している（その全体像については、例えば[Andersson et al., 1993]に体系的に整理されている）。そして、これらの夥しい数の研究例を俯瞰して見ると、その全ての選択肢を一つの手法に収容することは極めて困難に思われる。しかしながら、これらの代替的なモデルのほとんどは現象を説明するという点で分岐しているものが多く、これらの具体像を一旦捨ててしまえば本研究で考えるべき”移行メカニズムとしての機能”にさほど多くのバリエーションがあるわけではない。そこで、本節ではこの点に焦点をあてて、個々の具体形のモデルが核種移行メカニズムの数学的表現としてどの様に分類されるべきかをまとめた。なお、ここでの調査・整理の対象としては、今期の解析対象として考えるガラス溶解・核種溶出、核種の溶解・沈澱、及びコロイド生成・移行に主眼を置くこととした。抽出されたモデル化オプションを表1.2.3-1にまとめる。

表1.2.3-1 人工バリア中核種移行挙動に関するモデル化オプションのまとめ

	基本モデル	代替モデル
ガラス溶解・核種溶出	シリカ濃度と飽和濃度との差による一次反応及び残存反応率の和としてガラス溶解速度をモデル化。核種溶出はcongruentであるとし、シリカ濃度は緩衝材中の石英等の反応により常に飽和濃度に保たれることを仮定（残存反応のみの寄与）	鉄とシリカの共沈によりシリカ供給と消費（共沈）の速度論的バランスに応じてシリカ濃度が不飽和となることを考慮。不飽和の程度に応じて左記モデルの第一項の寄与が顕在化。
核種溶解・沈澱	溶解・沈澱反応を一次反応速度式としてモデル化。生成する沈澱としては、安定相と準安定相の二種類を考慮。ただし、準安定相は液相を介してしか安定相へと変化しない。	準安定相から安定相への直接的かつ不可逆な変化（結晶化）を考慮。
コロイド生成・移行 (基本ケースでは考慮せず)	移行可能な程度に小規模であり従って超過飽和において速やかに生じるコロイドに着目し、その下限濃度を超えた分は全て瞬時にコロイドとなる（可逆）ことを仮定したモデル。遅延については瞬時・可逆の吸着のみ考慮。	遅延機構として、濾過・凝集による沈澱等の不可逆な捕捉が一定割合で生じるとしたモデル。

2. 広義拡散方程式

昨年度の研究においては、広義拡散方程式を核とした数学的な取り扱いに基づく、新たな核種移行解析の手法の開発といいくつかの例題に関する計算を実施した。この方法は、核種の様々な形態間に化学的な平衡関係が常に成立していることを前提として、核種全濃度について広義拡散係数を用いた偏微分方程式を解き、さらにその結果を平衡関係についてのpartitioningの規則を記述する代数方程式によって個々の化学形態に割り付けるという簡便な手法を用いた物であった。この手法を、合計400ケースの問題に対して適用することによって、これが人工バリアについての性能評価に対する有効な解析手法となり得ることが示された。

以上の成果を受け、本年度の研究としては、この手法を拡張することにより、以下の諸事項への対応を可能とすることを目標とする。

- ・ガラス溶解を考慮したより現実的なソースターム
- ・崩壊連鎖
- ・溶解、沈澱反応についての速度論的な表現

この様な改良を施すことにより、評価レベルの問題及び研究開発の対象となる個別事象の双方についてより密接に関連した解析を行うことが可能となるはずである。

本節では、上記の諸点に対応した改良と拡張についてまとめる。なお、ここでは、溶解度、反応速度定数等の変数については時間及び位置についての任意の連続関数として記述を進める。これらの変数の具体的な関数形の定義については、後節（各シナリオについてのシャドウ関数の作成）でまとめることとする。

2.1 広義拡散方程式の一般形

2.1.1 速い反応の表現

ここでは、まず、任意の環境条件で任意数の異なる移行形態を有する放射性元素の移行問題を各移行形態毎の方程式系として導き、更に、これらの移行形態間の遷移がいずれも瞬時のうちに生じる”速い反応”であった場合に、もとの方程式系を全濃度についての單一の方程式に統合する方法についてまとめる。なお、ここでは簡単のため崩壊連鎖は考慮しないこととする。

複数の移行形態がそれぞれ異なる拡散係数を有しており、一つの放射性元素の全量が拡散係数をパラメータとして分布している状態を考える（詳細については昨年度報告書参照）。この時、一般的の分布形について、拡散係数Dをもつ移行形態にある放射性元素の濃度が位置x、時刻tにおいて $c(x,t,D)$ であるとする。ここで、この移行形態にあるmassが化学反応等により他の移行形態に遷移しつつ分子拡散により移動する場合、物質収支式は、

$$(\theta c)_t = \nabla \cdot (\theta D \nabla c) - \sigma(c) - \lambda \theta c \quad (1)$$

但し、

θ ; 媒体の空隙率

σ ; 他の移行形態との間の化学反応等による
質量の交換フラックス

λ ; 崩壊定数

と表現される。ここで、 $\sigma(c)$ は線形ないしは非線形の反応項である。

(1)式は、各移行形態に対応する拡散係数Dの位置依存性がないことを仮定すると次の様に書き換えることができる。

$$(\theta c)_i = \nabla \cdot (\theta \nabla (Dc)) - \sigma(c) - \lambda \theta c \quad (2)$$

そこで、拡散係数Dについて積分を実施して全濃度Cを、

$$C_{(x,t)} = \int c_{(x,t,D)} dD \quad (3)$$

と定義すると、(2)式のDについての積分は、全濃度Cについての偏微分方程式として以下の様に定式化される。

$$(\theta C)_i = \nabla \cdot (\theta \nabla (\alpha C)) - \theta \lambda C \quad (4)$$

但し、 $\alpha = \alpha(x,t,C)$ は、次式で定義される平均拡散係数であり、本研究ではこれを広義拡散係数、(4)式を広義拡散方程式と呼ぶ。

$$\alpha = \frac{\int Dc dD}{\int c dD} \quad (5)$$

以上の全濃度方程式への統合は、遅い反応についても速い反応についても常に成立するものである。しかしながら、広義拡散方程式(4)は二つの未知数C, 及び α を有するため不定であり、これは(5)式により α が $x, t, \text{及び} C$ の関数として明示的に書かれる場合にのみ一意の解を計算することができる。従って、速い反応については、常に平衡関係が成立しており(5)式の右辺が $x, t, \text{及び} C$ の代数表現として与えられることから、この様なプロセスによる移行形態間の遷移を伴う移行問題を解く場合には、まず(4)式を解いて全濃度Cについての解を求め、その後にこれを(5)式によって各移行形態毎の濃度に再分配するという簡便な手法を用いることができる。後述する様に、本モデルを汎用DAE ソーバSPADE上でプログラムする際には、任意の速い反応を考えたシナリオにおいて共通部分である(4)式を核として、個々のプロセス毎に異なるダミー変数 α の代数表現の具体形を適宜入力して計算を実行するという手順が採られる。

2.1.2 遅い反応の表現

2.1.1に述べた方法では、(5)式が α に関する代数表現として明示されることが必須であるが、化学反応の速度論的な進展を考慮する必要のある程遅い反応については系は常に平衡状態にあるとは限らず、この様な代数表現は一般には見出すことができない。そこで、各移行形態を、相互に速い反応で関係づけられたものと、それ以外のものとに区分し、速度論的反応項を考慮する必要のあるものについてはそれぞれ個別に方程式をたてる必要がある。つまり、相互に速い反応で関係づけられた移行形態の全濃度をCとし、これらのうちのいずれかの移行形態と遅い反応Rで関係づけられた移行形態をsとすると、次の様な連立方程式系を解くこととなる。

$$\begin{aligned} (\theta C)_i &= \nabla \cdot (\theta \nabla \alpha C) - \lambda \theta C - R \\ (\theta s_i)_i &= \nabla \cdot (\theta D^s \nabla s) - \lambda \theta s + R \end{aligned} \quad (6)$$

但し、
 D_s ; 移行形態s の拡散係数 (沈澱、吸着等の場合は0)

ここで、反応項Rの具体的な形式は対象とするプロセスによってそれぞれ異なるため、上の α と同様に(6)式を広義拡散方程式として共通にプログラミングし、Rについての代数表現は考えるシナリオ毎に入力するという形で解析を実施する。

2.2 反応速度項を含んだ広義拡散方程式の人工バリア中核種移行問題への適用

2.2.1 人工バリア形状

解析対象とする人工バリアの形状・寸法を下図に示す。簡単のため、諸物性は原点を中心として対称であるものと仮定し、これと対応して円筒座標系一次元で問題の定式化を行う。

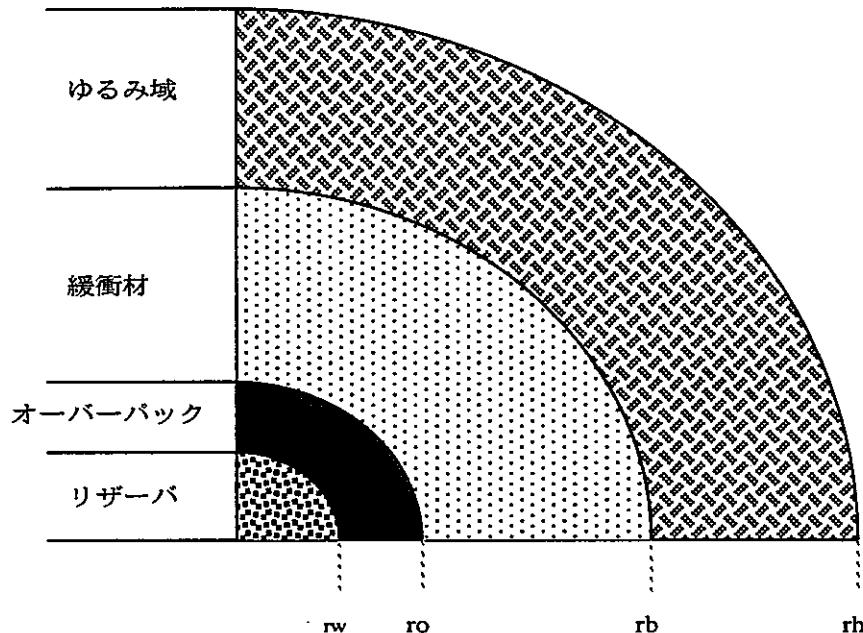


図2.2.1-1 人工バリアの形状

2.2.2 数学的定式化

ここでは、2.2.1に述べた広義拡散方程式を、3メンバーの崩壊連鎖を含む人工バリア中移行問題に適用する。このために、人工バリアシステムをリザーバ、オーバーパック+緩衝材、及びゆるみ域の3つの領域に区分し各箇所での方程式系を以下に定式化する。ここで定式化は、各シナリオについて共通して用いることのできるようダミー変数 α 、反応項R、及び環境条件に依存するパラメータの位置・時間の関数形については一般形として取り扱う。これらの具体的な形式については3.及び4.を参照されたい。

また、明示的に扱われる遅い反応としては放射性元素について安定相及び準安定相、シリカについてはアモルファスシリカと鉄一シリカ共沈とを考えることとする。なお、沈澱した放射性核種の崩壊によって生じる娘核種の形態は同種の（つまり安定相であれば安定相の、準安定相であれば準安定相の）沈澱であるとして定式化した。しかし実際には同じ準安定相であっても水酸化物とアモルファス等異なる化学種である場合があるため、選定された放射性元素に即してこの箇所は調整する必要がある。この点については、3.において具体例における取扱いを説明することとする。

2.2.2.1 リザーバ

リザーバは、ガラス固化体を含むオーバーパック内側の領域であり、ここではガラス

固化体の溶解に伴い各核種が congruent に溶出することを想定する。溶出した放射性元素及びシリカは、それぞれの溶解度に関して過飽和となった場合には所定の反応速度をもつてリザーバ内で沈殿を生成する。従って、引き続くオーバーパック及び緩衝材中の物質移動の内側境界条件となるリザーバ中の濃度は非平衡であることが許容されることとなる。また、シリカ及び核種量について、ガラス固化体中に残存する量と一旦溶出してリザーバ内にとどまる量に関して、リザーバ外への放出と放射性壊変を考慮して物質収支式を立式する。従って、この領域における支配方程式として、以下の常微分方程式群を得る。

ガラス固化体中残存量及び核種インベントリ

$$\begin{aligned}
 \frac{dG}{dt} &= -R_G, \\
 \frac{dI^{(1)}}{dt} &= -\lambda_1 I^{(1)} - R_G \frac{I^{(1)}}{G}, \\
 \frac{dI^{(2)}}{dt} &= -\lambda_2 I^{(2)} + \lambda_1 I^{(1)} - R_G \frac{I^{(2)}}{G}, \\
 \frac{dI^{(3)}}{dt} &= -\lambda_3 I^{(3)} + \lambda_2 I^{(2)} - R_G \frac{I^{(3)}}{G}.
 \end{aligned} \tag{7}$$

但し、

$$\begin{aligned}
 G &; \text{ガラス残存量 [g]} \\
 R_G &; \text{ガラス溶解速度 [g*yr^{-1}]} \\
 I^{(i)} &; \text{核種 } i \text{ のインベントリ [mol]} \\
 \lambda_i &; \text{核種 } i \text{ の崩壊定数 [yr^{-1}]}
 \end{aligned}$$

であるとする。

初期条件

$$\begin{aligned}
 G_{(0)} &= G_0, \\
 I_{(0)}^{(1)} &= I_0^{(1)}, I_{(0)}^{(2)} = I_0^{(2)}, I_{(0)}^{(3)} = I_0^{(3)}.
 \end{aligned} \tag{8}$$

リザーバ中のシリカ及び核種濃度

$$\begin{aligned}
\frac{\partial}{\partial t} (\phi_R V_R U_R^S) &= R_G + A_R \phi_{(r_w)} \left. \frac{\partial (\alpha^S U^S)}{\partial r} \right|_{r=r_w} - \phi_R V_R \{R_R^{amSi} + R_R^{feSi}\}, \\
\frac{\partial}{\partial t} (\phi_R V_R U_R^{(i)}) &= R_G \frac{I^{(i)}}{G} + A_R \phi_{(r_w)} \left. \frac{\partial (\alpha^{(i)} U^{(i)})}{\partial r} \right|_{r=r_w} \\
&- \phi_R V_R \{R_R^{hy(i)} + R_R^{ox(i)}\} - \phi_R V_R \lambda_i U_R^{(i)} + \phi_R V_R \lambda_{i-1} U_R^{(i-1)}, \\
\frac{\partial}{\partial t} (\phi_R V_R v_R^{amSi}) &= \phi_R V_R R_R^{amSi}, \\
\frac{\partial}{\partial t} (\phi_R V_R v_R^{feSi}) &= \phi_R V_R R_R^{feSi}, \\
\frac{\partial}{\partial t} (\phi_R V_R v_R^{hy(i)}) &= \phi_R V_R R_R^{hy(i)} - \phi_R V_R \lambda_i v_R^{hy(i)} + \phi_R V_R \lambda_{i-1} v_R^{hy(i-1)}, \\
\frac{\partial}{\partial t} (\phi_R V_R v_R^{ox(i)}) &= \phi_R V_R R_R^{ox(i)} - \phi_R V_R \lambda_i v_R^{ox(i)} + \phi_R V_R \lambda_{i-1} v_R^{ox(i-1)}.
\end{aligned} \tag{9}$$

但し、

V_R ; リザーバ容積 [m^3]

ϕ_R ; リザーバ空隙率 [-]

A_R ; リザーバ表面積 [m^2]

R_R^{amSi} ; アモルファスシリカの溶解・沈澱速度 [$g^*m^{-3}*yr^{-1}$]

v_R^{amSi} ; アモルファスシリカ濃度 [$g*m^{-3}$]

R_R^{feSi} ; 鉄シリカ共沈速度 [$g^*m^{-3}*yr^{-1}$]

v_R^{feSi} ; ケイ化鉄濃度 [$g*m^{-3}$]

U_R^S ; シリカ [$g*m^{-3}$]

$U_R^{(i)}$; 速い反応に寄与する核種 i の濃度 [$mol*m^{-3}$]

$U^{(i)}$; オーバーパック+緩衝材領域中速い反応に寄与する核種 i 濃度 [$mol*m^{-3}$]

$v_R^{ox(i)}$; 核種 i の酸化物(固相)濃度 [$mol*m^{-3}$]

$v_R^{hy(i)}$; 核種 i の水酸化物(固相)濃度 [$mol*m^{-3}$]

$R_R^{ox(i)}$; 核種 i の酸化物溶解・沈澱速度 [$g*m^3*yr^{-1}$]

$R_R^{hy(i)}$; 核種 i の水酸化物溶解・沈澱速度 [$g*m^3*yr^{-1}$]

であるとする。

初期条件

$$\begin{aligned}
U_{R(0)}^S &= U_{R0}^S, v_{R(0)}^{amSi} = 0, v_{R(0)}^{feSi} = 0, \\
U_{R(0)}^{(i)} &= 0, v_{R(0)}^{hy(i)} = 0, v_{R(0)}^{ox(i)} = 0.
\end{aligned} \tag{10}$$

2.2.2.2 緩衝材及びオーバーパック領域

緩衝材とオーバーパックとの間には、初期には明確な境界が存在する。しかしながら、時間の経過とともに双方の物質移動によってこの境界は曖昧な物となる可能性があるため、ここではこれら二つの領域を同時に考えることとし、これらの材料の相違は物性値(時間及び空間の関数となる)の相違として表現されることとなる。ここでの広義拡散方程式は、以下の形式のものとなる。

支配方程式

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial \phi U^S}{\partial t} &= \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left\{ \phi r \frac{\partial (\alpha^S U^S)}{\partial r} \right\} - \phi R^{amSi} - \phi R^{feSi}, \\
 \frac{\partial \phi U^{(i)}}{\partial t} &= \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left\{ \phi r \frac{\partial (\alpha^{(i)} U^{(i)})}{\partial r} \right\} - \phi R^{hy(i)} - \phi R^{ox(i)} - \phi \lambda_i U^{(i)} + \phi \lambda_{i-1} U^{(i-1)}, \\
 \frac{\partial \phi v^{amSi}}{\partial t} &= \phi R^{amSi}, \\
 \frac{\partial \phi v^{feSi}}{\partial t} &= \phi R^{feSi}, \\
 \frac{\partial \phi v^{hy(i)}}{\partial t} &= \phi R^{hy(i)} - \phi \lambda_i v^{hy(i)} + \phi \lambda_{i-1} v^{hy(i-1)}, \\
 \frac{\partial \phi v^{ox(i)}}{\partial t} &= \phi R^{ox(i)} - \phi \lambda_i v^{ox(i)} + \phi \lambda_{i-1} v^{ox(i-1)}.
 \end{aligned} \tag{11}$$

但し、

ϕ ; 緩衝材及びオーバーパックの空隙率 [-]

α^Y ; 物質Yの広義拡散係数 [m^2*yr^{-1}]

U^Y ; 物質Yの全濃度 [$mol*m^{-3}$]

v^Z ; 固相Zの濃度 [$mol*m^{-3}$]

R^Z ; 固相Zの溶解・沈澱速度 [$mol*m^{-3}*yr^{-1}$]

であるとする。

内側境界条件

$$\begin{aligned}
 \alpha_{(r_w)}^S U_{(r_w)}^S &= \alpha_R^S U_R^S, \\
 \alpha_{(r_w)}^{(i)} U_{(r_w)}^{(i)} &= \alpha_R^{(i)} U_R^{(i)}.
 \end{aligned} \tag{12}$$

外側境界条件

$$\begin{aligned}
 \alpha_{(r_b)}^S U_{(r_b)}^S &= \alpha_D^S U_D^S, \\
 \alpha_{(r_b)}^{(i)} U_{(r_b)}^{(i)} &= \alpha_D^{(i)} U_D^{(i)}.
 \end{aligned} \tag{13}$$

但し、

α_D^Y ; ゆるみ域内の物質Yの広義拡散係数 [m^2*yr^{-1}]

U_D^Y ; ゆるみ域内の物質Yの全濃度 [$mol*m^{-3}$]。

初期条件

$$\begin{aligned}
U_{(0,x)}^{\text{Si}} &= U_{(0,x)}^{\text{Si}}, \\
V_{(0,x)}^{\text{amSi}} &= V_{(0,x)}^{\text{amSi}}, \\
V_{(0,x)}^{\text{feSi}} &= 0, \\
U_{(0,x)}^{(i)} &= 0, \\
V_{(0,x)}^{\text{hy(i)}} &= 0, \\
V_{(0,x)}^{\text{ox(i)}} &= 0.
\end{aligned} \tag{14}$$

2.2.2.3 ゆるみ域

ゆるみ域においては、緩衝材から分子拡散により放出された放射性核種及びシリカが浸入する地下水と完全に混合されることを仮定したいわゆるmixing cell モデルを用いる。また、化学形態間の核種の配分に係る諸プロセスは、この領域においても作用するものと仮定する。

$$\begin{aligned}
\frac{\partial}{\partial t} (\phi_D V_D U_D^{\text{Si}}) &= -A\phi_{(r_b)} \left. \frac{\partial (\alpha^{\text{Si}} U^{\text{Si}})}{\partial r} \right|_{r=r_b} \\
&\quad - \phi_D V_D \{R_D^{\text{amSi}} + R_D^{\text{feSi}}\} - Q \{\delta_D^{\text{Si}} U_D^{\text{Si}} - \delta_G^{\text{Si}} U_G^{\text{Si}}\}, \\
\frac{\partial}{\partial t} (\phi_D V_D U_D^{(i)}) &= -A\phi_{(r_b)} \left. \frac{\partial (\alpha^{(i)} U^{(i)})}{\partial r} \right|_{r=r_b} \\
&\quad - \phi_D V_D \{R_D^{\text{hy(i)}} + R_D^{\text{ox(i)}}\} - Q \{\delta_D^{(i)} U_D^{(i)} - \delta_G^{(i)} U_G^{(i)}\} - \phi_D V_D \lambda_i U_D^{(i)} + \phi_D V_D \lambda_{i-1} U_D^{(i-1)}, \\
\frac{\partial}{\partial t} (\phi_D V_D v_D^{\text{amSi}}) &= \phi_D V_D R_D^{\text{amSi}}, \\
\frac{\partial}{\partial t} (\phi_D V_D v_D^{\text{feSi}}) &= \phi_D V_D R_D^{\text{feSi}}, \\
\frac{\partial}{\partial t} (\phi_D V_D v_D^{\text{hy(i)}}) &= \phi_D V_D R_D^{\text{hy(i)}} - \phi_D V_D \lambda_i v_D^{\text{hy(i)}} + \phi_D V_D \lambda_{i-1} v_D^{\text{hy(i-1)}}, \\
\frac{\partial}{\partial t} (\phi_D V_D v_D^{\text{ox(i)}}) &= \phi_D V_D R_D^{\text{ox(i)}} - \phi_D V_D \lambda_i v_D^{\text{ox(i)}} + \phi_D V_D \lambda_{i-1} v_D^{\text{ox(i-1)}}.
\end{aligned} \tag{15}$$

但し、

V_D ; ゆるみ域容積 [m^3]

ϕ_D ; ゆるみ域空隙率 [-]

Q ; ゆるみ域内地下水流量 [$\text{m}^3 \cdot \text{yr}^{-1}$]

δ_D^{Si} ; ゆるみ域におけるSi全濃度に対するSi可動成分濃度割合 [-]

δ_G^{Si} ; 地下水におけるSi全濃度に対するSi可動成分濃度割合 [-]

U_D^Y ; ゆるみ域内速い反応に寄与する物質Yの全濃度 [$\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$]

U_G^Y ; 浸入地下水中速い反応に寄与する物質Yの全濃度 [$\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$]

A ; 緩衝材外側表面積 [m^2]

v_D^Z ; ゆるみ域内固相Z 濃度 [$\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$]

R_D^Z ; ゆるみ域内固相Z 溶解・沈澱速度 [$\text{mol} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{yr}^{-1}$]

であるとする。

初期条件

$$\begin{aligned}
 U_{D(0)}^S &= U_{D0}^S, \\
 V_{D(0)}^{amSi} &= V_{D0}^{amSi}, \\
 V_{D(0)}^{feSi} &= 0, \\
 U_{D(0)}^{(i)} &= 0, \\
 V_{D(0)}^{hy(i)} &= 0, \\
 V_{D(0)}^{ox(i)} &= 0.
 \end{aligned} \tag{16}$$

2.2.2.4 崩壊連鎖の取扱

2.2.2.1～2.2.2.3に述べた方程式系を解くにあたっては、この方程式系の係数行列の各成分が同様の大きさを持ちしたがって固有値が1の近傍にあるようにした場合に反復計算の収束性が飛躍的に向上するものとなる。逆に、未知数のうちの一つが他よりも格段に小さい場合にはこの行列はsingularとなり計算効率が著しく低下する。

崩壊連鎖を含む移行問題を解法する際には、比較的短半減期の核種と長半減期の核種とが混在するため、長時間を経た後には係数行列が数十桁異なる成分を有するものとなり計算の効率が低下する。例えば、Am-241系列では、Np-237のインベントリが枯渇するまでにAm-241の減衰は100桁以上になってしまう。そこで、本解析では、各核種の濃度を自分と親核種（複数）のうち最も半減期の長いものの崩壊分を補償するようにrescaleした新たな変数に定義し直して定式化する。

具体的には、3.以降の解析対象とするAm-241；Np-237；U-233の系列について本来の移行方程式が、

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial c^{Am}}{\partial t} &= \mathcal{L}c^{Am} - R^{Am}(c^{Am}) - \lambda_{Am}c^{Am}, \\
 \frac{\partial c^{Np}}{\partial t} &= \mathcal{L}c^{Np} - R^{Np}(c^{Np}) + \lambda_{Am}c^{Am} - \lambda_{Np}c^{Np}, \\
 \frac{\partial c^U}{\partial t} &= \mathcal{L}c^U - R^U(c^U) + \lambda_{Np}c^{Np} - \lambda_Uc^U.
 \end{aligned}$$

但し、

\mathcal{L} ；物質移動についての偏微分演算子

R；反応項

c；各核種濃度

である場合、

$$\begin{aligned}\hat{c}^{Am} &= \exp(\lambda_{Am}t)c^{Am}, \\ \hat{c}^{Np} &= \exp(\lambda_{Np}t)c^{Np}, \\ \hat{c}^U &= \exp(\lambda_U t)c^U.\end{aligned}$$

というrescalingを行うことによって、新たな方程式系、

$$\begin{aligned}\frac{\partial \hat{c}^{Am}}{\partial t} &= \mathcal{Q}\hat{c}^{Am} - R^{Am}(\hat{c}^{Am}), \\ \frac{\partial \hat{c}^{Np}}{\partial t} &= \mathcal{Q}\hat{c}^{Np} - R^{Np}(\hat{c}^{Np}) + \lambda_{Am}\exp((\lambda_{Np}-\lambda_{Am})t)\hat{c}^{Am}, \\ \frac{\partial \hat{c}^U}{\partial t} &= \mathcal{Q}\hat{c}^U - R^U(\hat{c}^U) + \lambda_{Np}\hat{c}^{Np} + (\lambda_U-\lambda_{Np})\hat{c}^U.\end{aligned}$$

へと書き直される。この方程式系は、本来の方程式と異なり、減衰することなく常に各方程式がほぼ同じオーダーにあることが保証されることとなる。

U-233について、他と異なり自分自身の崩壊定数でrescaleしていない理由は上の第2式を見れば明らかである。つまり、もしU-233をNp-237と同様にrescaleした場合、
 $+ \lambda_{Np}\exp((\lambda_U-\lambda_{Np})t)\hat{c}_{Np}$ という項が現れるが、この指數関数の中は常に正であり、従って時間の経過とともに発散するためである。Np-237の場合には、Am-241の半減期がNp-237よりも短いために指數関数の中は負でありこの様な事態は生じない。

3. 核種移行挙動についての感度解析

2.において定式化した反応速度項付き広義拡散係数の一般形にダミー変数と反応速度項の具体的な代数表現を与えることによって種々のシナリオに対応した核種移行モデルを定義し、これらを用いた感度解析を実施した。解析対象核種としては、3メンバーの崩壊連鎖としてAm-241; Np-237; U-233の系列、核分裂生成物として可溶性のCs-135と難溶解性のTc-99を考え、基本ケースとしては各難溶解性元素の安定相と準安定相の速度論的な溶解・沈殿、残存反応によるガラス溶解とcongruentな核種溶出、線形・瞬時の核種吸着を考慮する。基本ケースに含まれるKd、ガラス浸出率及び溶解・沈殿反応速度という主要パラメータについては、通常の意味での（パラメータの）不確実性に焦点を当てた感度解析を実施した。また、代替ケースとして、真性コロイドの生成・移行、鉄・ガラス共沈によるガラス溶解速度増加、及び結晶化のそれぞれの影響について対応する代数表現を定義して解析を行った。なお、本章での解析は全て環境条件が時間的にも空間的にも一定であることを仮定した。環境条件の変化については4.を参照されたい。

3.1 基本ケースについての解析

3.1.1 ダミー変数及び反応速度項の具体形

基本ケースとしては、

- ・残存反応によるガラス溶解とcongruentな核種溶出、
- ・線形、瞬時の核種吸着、
- ・安定相、及び準安定相の速度論的な溶解・沈殿、

という三つの主要なプロセスを考え Am-241系列と核分裂生成物についてそれぞれ崩壊連鎖を含む方程式系と単核種についての方程式系とを定式化した。以下に、このケースに対応するダミー変数及び反応速度項の具体的な代数表現をまとめる。

(1) 溶解・沈殿反応の速度式

固相の溶解・沈殿反応についての最も簡単な速度式は、一次反応速度式である。この速度式は、物質移動と化学反応のタイムスケールの比較という最も本質的な点についての検討を定量的に行うこと可能とするものであるという点で本研究の目的には十分であるとともに、多くの反応について実際の反応の進展を良く近似するものであることが知られている。また、放射性元素についてのより現実的な速度論的数据が不足している現状で、より複雑な表現を用いることの妥当性は見あたらない。そこで、本研究では、全ての溶解・沈殿反応に以下の一次速度式を適用することとする。

$$R^x = \mu_x (\beta C - c^*) H [H[\beta C - c^*] + H[X]] \quad (1)$$

但し、

R^x ; 固相Xの溶解・沈殿速度

μ_x ; 反応速度定数

β ; 全濃度のうち溶解・沈殿反応に寄与するものの割合

C ; 速い反応に対応した全濃度

c^* ; Xに関する溶解度 (液相濃度)

(2) ダミー変数

前出の各プロセスに対応して、ダミー変数は以下の様に定義される。

$$\alpha = \frac{\frac{\alpha}{C}}{D_{\text{dissolv}} R_f} = \frac{D_{\text{dissolv}}}{R_f}. \quad (2)$$

$$\beta = \frac{\frac{\beta}{C}}{Rf} = \frac{1}{Rf} \cdot \underline{\delta} \quad (3)$$

$$\delta = \beta \quad (4)$$

但し、Rf；吸着による遅延係数

$$Rf = 1 + \frac{1-\phi}{\phi} \rho Kd$$

ϕ ；空隙率

ρ ；密度

Kd；分配係数

3.1.2 解析条件

各ケースで共通に用いるパラメータ値を表3.1.2-1にまとめる。なお、劣化後のオーバーパック領域（腐食生成物）、及び浸出後のガラス領域については空隙率、密度、分配係数の数値が未知であるため、ここでは緩衝材と同等であることを仮定した。

表3.1.2-1 基本ケースにおけるパラメータの標準値

<u>ガラス固化体仕様</u>	
・半径	0.2 m
・高さ	2.47 m
・重量	405 kg
・表面積（外表面積の10倍）	15.1 m ²
<u>緩衝材、オーバーパック仕様</u>	
・緩衝材厚さ	1.0 m
・オーバーパック厚さ	0.3 m
・緩衝材空隙率	0.33
・密度	2700 kg/m ³
<u>ゆるみ域仕様</u>	
・厚さ	1.5 m
・空隙率	0.1
・密度	2700 kg/m ³
<u>ガラス溶解速度</u>	
・kf	1.5 g/m ² /day
・kr	5.0 10 ⁻³ g/m ² /day
<u>分子拡散係数</u>	
	0.00946 m ² /yr

<u>溶解度</u>	
・アモルファスシリカ	7.8 10 ⁻¹ mol/m ³
・Am(OH)CO ₃	6.3 10 ⁻⁵ mol/m ³
・Np(OH) ₄	5.5 10 ⁻⁶ mol/m ³
・Np ₂	2.0 10 ⁻⁹ mol/m ³
・UO _{2(am)}	3.9 10 ⁻² mol/m ³
・UO _{2(cr)}	3.9 10 ⁻⁷ mol/m ³
・TcO ₂ · 2H ₂ O	3.5 10 ⁻¹¹ mol/m ³
・TcO ₂	1.0 10 ⁻¹⁵ mol/m ³
・Cs	-

<u>分配係数</u>	
・Si	0
・Am	10 m ³ /kg
・Np	0.1 m ³ /kg
・U	0.1 m ³ /kg
・Tc	0.001 m ³ /kg
・Cs	0.01 m ³ /kg

<u>放射性核種インベントリ</u>	
・Am-241	5.54 10 ¹ g
・Np-237	8.36 10 ² g
・U-233	2.46 10 ⁻¹ g
・Tc-99	1.06 10 ³ g
・Cs-135	4.96 10 ² g

<u>初期濃度</u>	
・Si濃度	21.8 g/m ³
・アモルファスシリカ	0 kg/m ³
リザーバー	600 kg/m ³
緩衝材、オーバーパック	600 kg/m ³
ゆるみ域	600 kg/m ³

<u>地下水流量</u>	
	1.0 m ³ /y

3.1.3 結果

3.1.2にまとめた各ケースについての解析結果を以下にまとめる。

(1) 反応速度定数の影響

解析結果では、いずれのケースにおいてもNp-237については準安定相及び安定相が生じている。これらの沈澱は、ガラスからの溶出が継続する期間（約6,500年）において外側に向けて発達し（過飽和）、その後液相濃度の低下による不飽和状態の出現と共に後退している。また、最も反応速度定数の大きいA-1ケースでは準安定相、安定相とともにゆるみ域までは到達しておらずこのケースでは瞬時平衡を仮定した溶解度限界モデルが良い近似となっている。これに対して、より反応速度定数の小さいケースA-2、及びA-3では準安定相は緩衝材中に留まっているが、安定相はゆるみ域にまで到達しており溶解度限界モ

ルとの差異が顕著である。さらに、最も反応速度定数の小さいケースA-4では、準安定相についてもゆるみ域まで到達しており、この条件では溶解度制限固相が事実上存在していないことを示している。

上記に対して、Am-241についてはいずれのケースでも沈澱が形成されていない。これは、Amのインベントリが比較的少ないことに加えて、Am-241の半減期がガラス溶解時間と比しても短い物であることに拠っているものと考えられる。

U-233については、いずれのケースにおいても安定相は形成され、準安定相は形成されていない。これは、準安定相の溶解度が他と比べて極めて高いことに拠るものである。また、ケースA-1、及びA-2において安定相のプロファイルに二つの段階が見られるのは、ガラスからU-233として放出されたものの沈澱と、同じ化学形態であるNp-237の安定相から崩壊によって生じたものとしてそれぞれ解釈される。従って、緩衝材外側領域では、U-233濃度が安定相について不飽和であるにも係わらずNp-237の沈澱が存在するためにUの沈澱が形成されている。

以上の各ケースについて、人工バリアからの核種放出率の経時変化をまとめた結果を図3.1.3-1に示す。上述した濃度プロファイルの傾向を反映して、Np-237については、ケースA-1とケースA-4との間には、最大放出率において約5桁の差が存在している。ケースA-1の最大放出率が、平成3年度成果報告書における酸化物系溶解度制限固相における結果とほぼ同じであることから、本研究で考えた反応速度の幅において溶解度制限固相モデルを5桁上回る放出率が生じ得るものと考えられる。また、ケースA-1とケースA-2との差異も1桁強あることから、準安定相形成のタイムスケール（閉鎖系で過飽和状態が減衰する際の半減期に相当する）が約1カ月、安定相のそれが約1年を下回るようになると溶解度限界モデルの非保守性が顕在化することになる。この結果は、通常数週間で行われる実験において生成が確認できる固相を用いる分には溶解度限界モデルを適用することが妥当であるが、ナチュラルアナログ等極めて長いスケールにおいて自然界で形成された固相をその生成速度を無視して溶解度制限固相として仮定することには大きな危険性が含まれることを示している。U-233については、同様の傾向が認められるものの核種放出率の変動幅は1桁程度と小さい。なお、Am-241についてはいずれの場合も有意な量の放出は認められなかった。

また、同様の解析を核分裂生成物であるTc-99について行った結果では、最も反応速度の大きいケースC-1と最も小さいケースC-4との最大放出率の差は、1~1桁以上に達している。これは、Tc-99のインベントリが比較的多く、かつ、溶解度は極めて小さいために、そもそもガラス浸出率律速のフラックスと溶解度限界のフラックスとの差が大きく、反応速度が変化することによって核種放出率がこれら二つの極値の間を推移するためである。また、ケースC-1における核種放出率も、平成3年度報告書における酸化物系溶解度制限固相の解析結果よりも約1桁大きく、安定相生成のタイムスケールが約1月であってもこれが実効的な溶解度制限固相とは成らない可能性があることを示唆している。

(2) 他のパラメータの影響

Np-237、U-233、及びTc-99についてガラス表面積（従ってガラスからの核種溶出率）、及び分配係数を変化させた諸ケースについての核種放出率の計算を行った結果、いずれのパラメータの変動もピーク到達時間は変動させ得るもの、最大核種放出率を顕著に変化させるものではないことがわかった。

以上、基本ケースにおける感度解析の各ケースにおける最大核種放出率と、その時刻とを図3.1.3-2(Np-237)、図3.1.3-3(U-233)、及び図3.1.3-4(Tc-99)にまとめる。

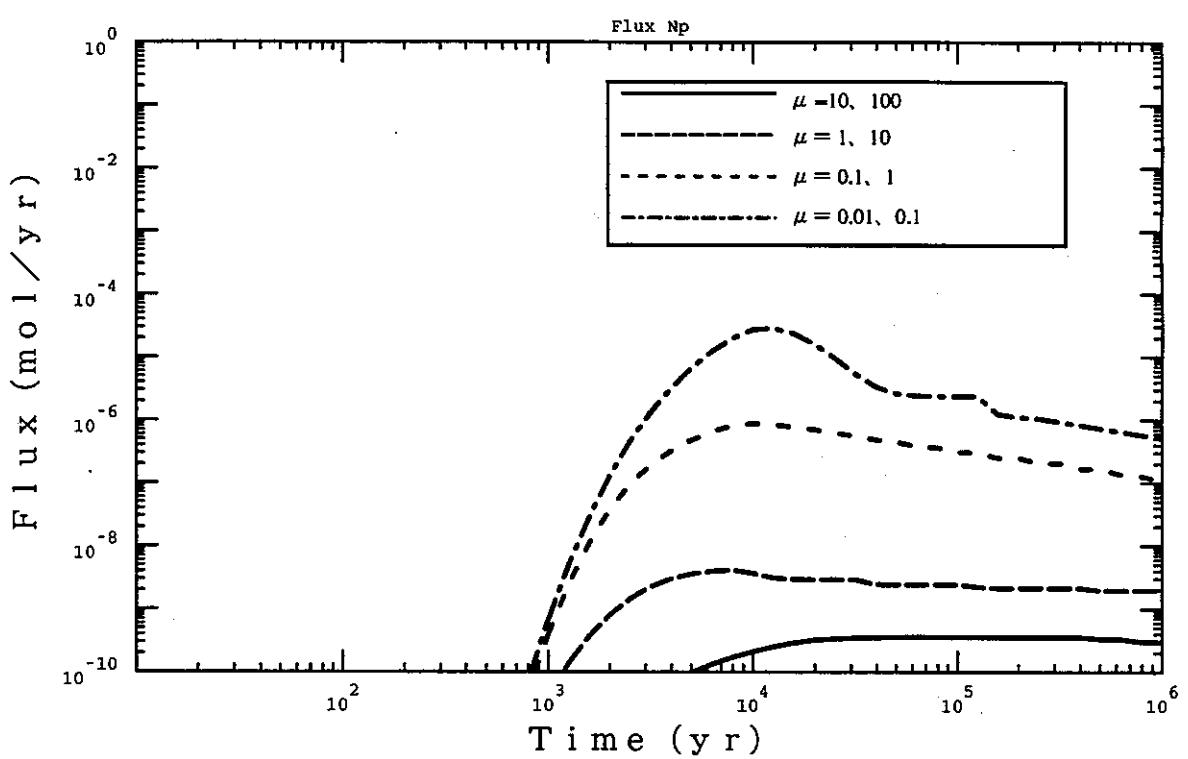


図 3.1.3-1 人工バリアからの核種放出率 (Np)
アクチニド基本ケース (A-1~4)

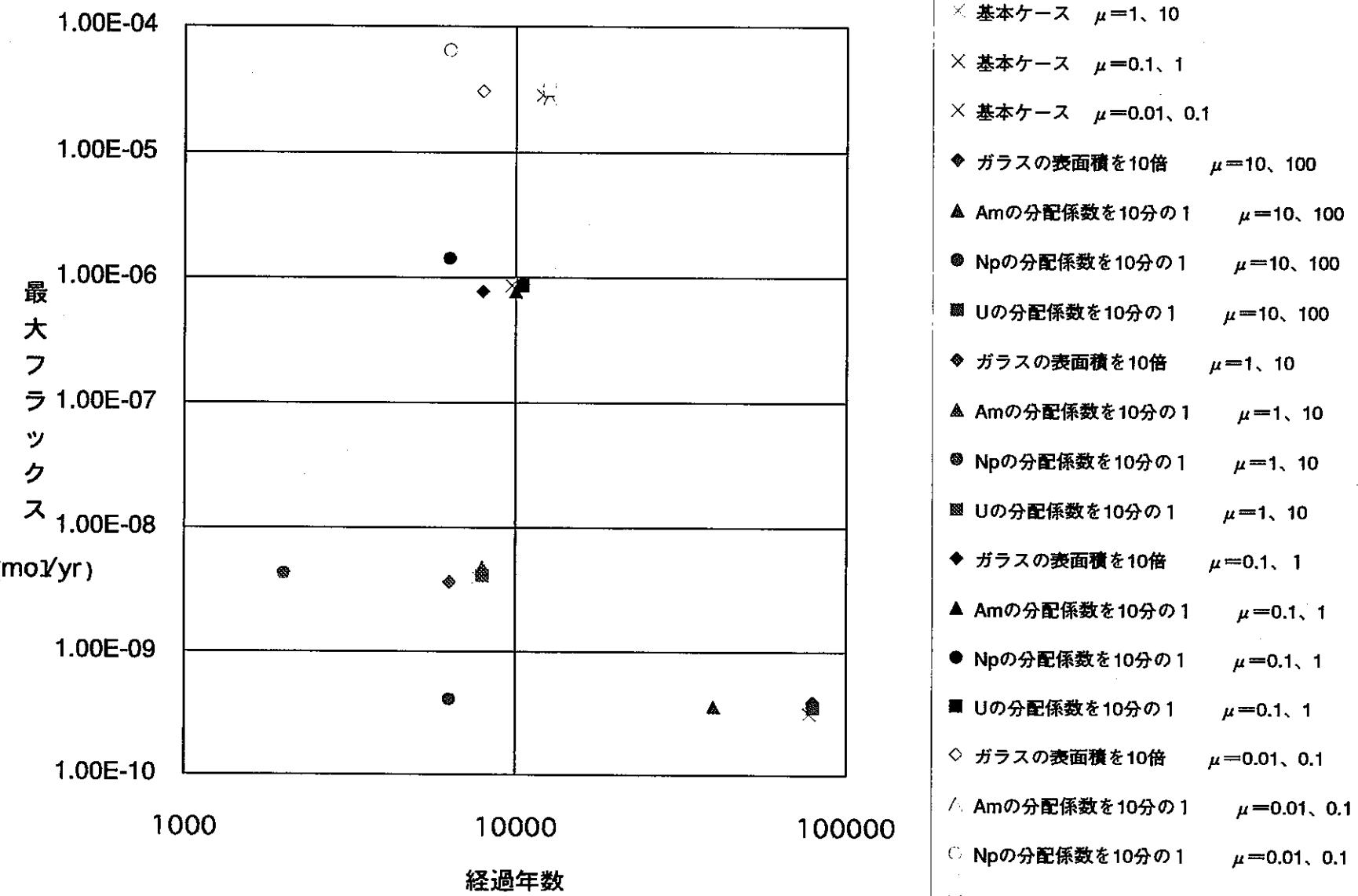


図 3.1.3-2 基本ケースについての感度解析結果のまとめ (Np-237)

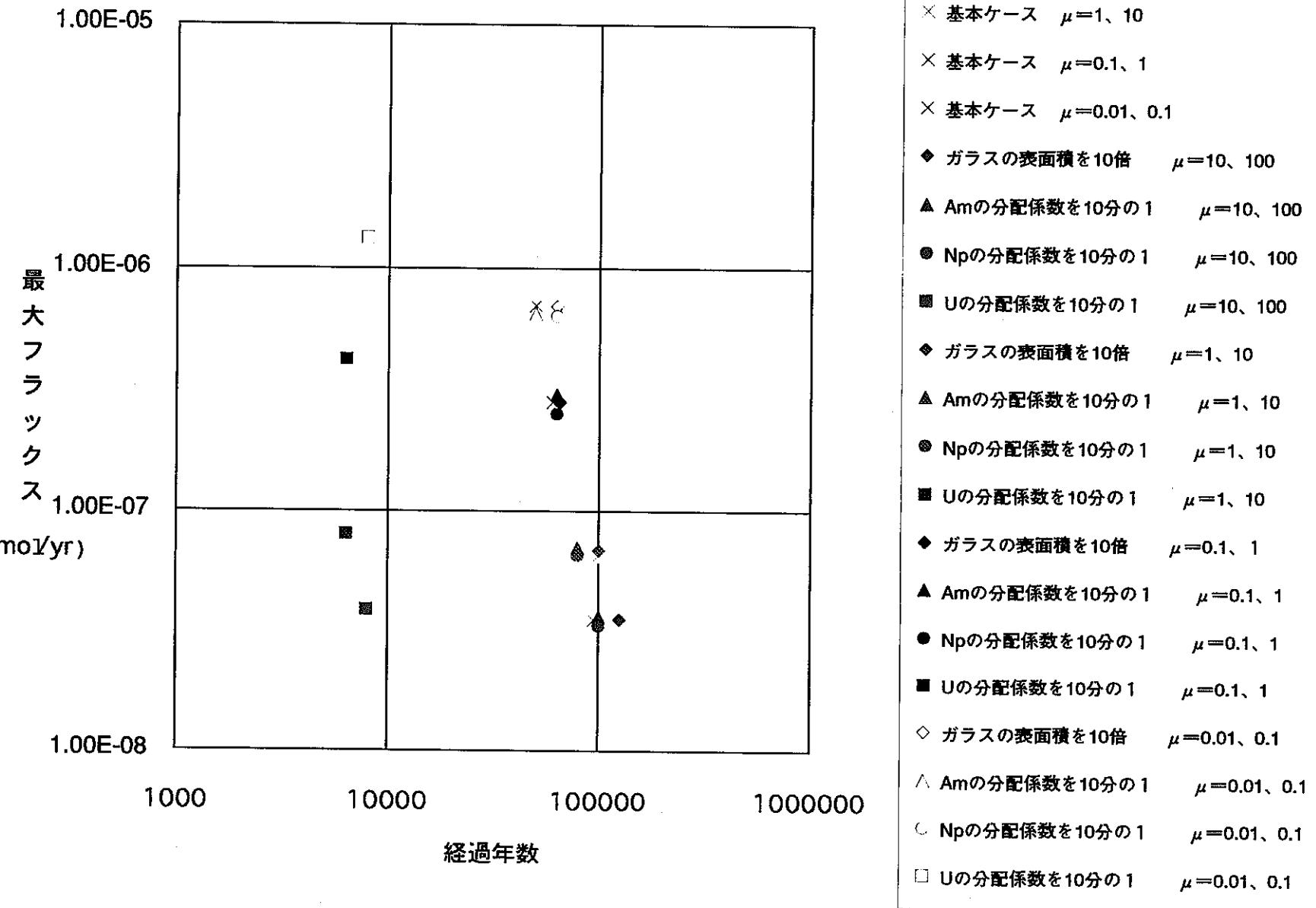


図 3.1.3-3 基本ケースについての感度解析結果のまとめ (U-233)

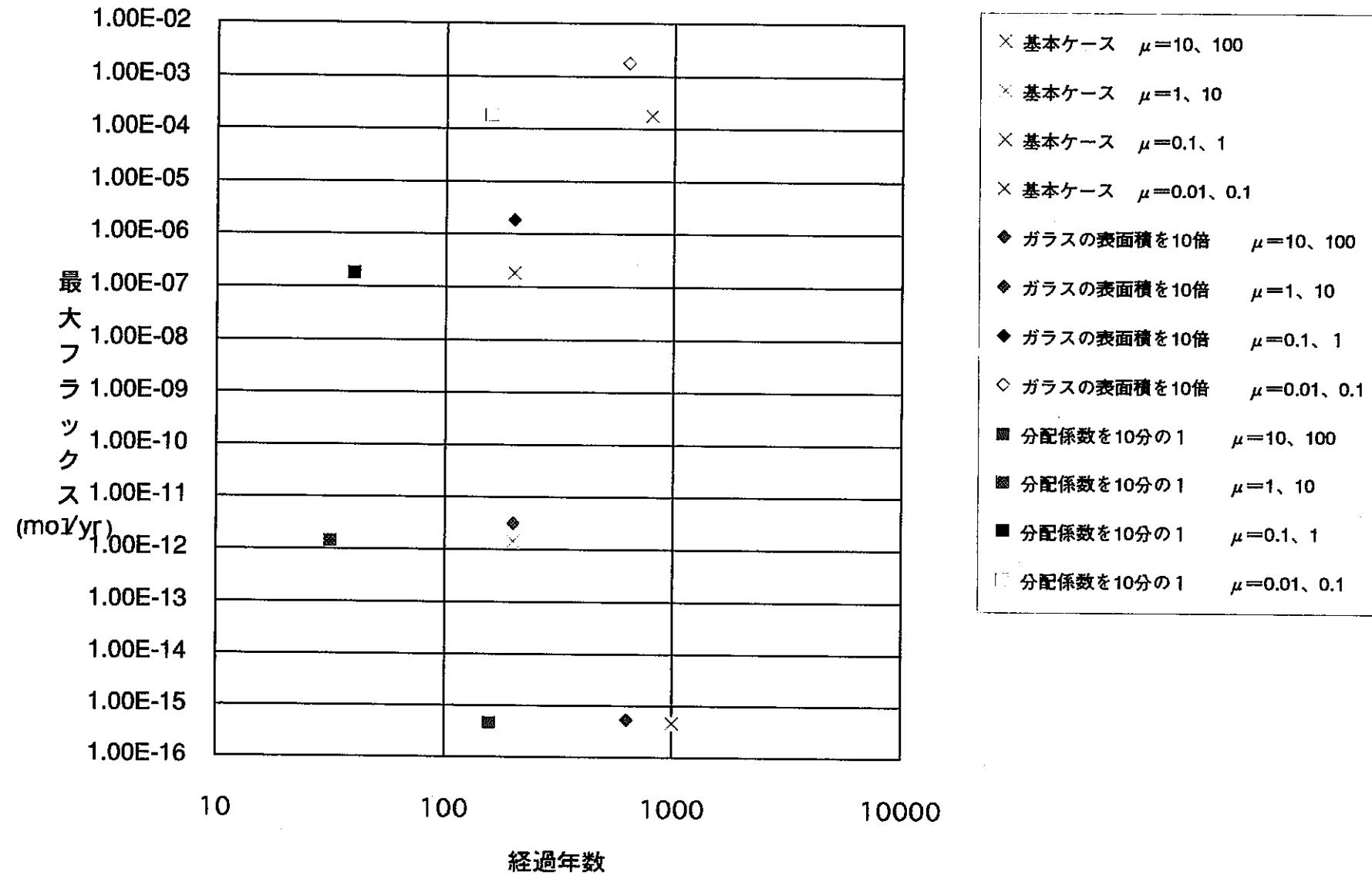


図 3.1.3-4 基本ケースについての感度解析結果のまとめ (Tc-99)

3.2 核種移行挙動に関する代替ケースについての解析

3.1に述べた核種の溶解・沈殿についての速度論的な効果を取り込んだ基本ケースに対して、ここでは、

- (1) コロイド生成・移行
- (2) 鉄・ケイ素共沈
- (3) 結晶化

をそれぞれ考慮した代替ケースにつき、対応するダミー変数と反応速度項の具体形を定義することによってモデル化を行い、計算を実施した。

3.2.1 コロイド生成・移行

3.2.1.1 ダミー変数及び反応速度項の具体形

1.2.3に述べた様に、ここではワイマルンの法則に従い比較的過飽和の程度が高い状態で速やかに生じる小粒径のコロイドに着目してモデル化を行うこととする。モデルとしては、液相濃度が一定程度過飽和となった時、これ以上の濃度上昇分は全て瞬時のうちに当該コロイドに変化するものと仮定し、このコロイド粒子の分子拡散と線形・瞬時・可逆な吸着、さらに液相濃度がコロイド生成のための下限値を下回った場合の溶存形への瞬時の解離とを考慮したものを基本とする。このモデルにおいては、ダミー変数は次の様に定義される。

$$\begin{aligned} \underline{\alpha} &= \frac{D_{\text{dissolv}}}{Rf}, & (0 \leq C < Rf c_{\text{colloid}}^*) \\ &= \frac{D_{\text{dissolv}} c^* + D_{\text{colloid}} \frac{C - Rf c^*}{1 + Tr}}{C}, & (Rf c_{\text{colloid}}^* \leq C). \end{aligned} \quad (5)$$

但し、

c_{colloid}^* ; コロイド生成のための液相濃度の下限

D_{colloid} ; コロイドの拡散係数

Tr ; 吸着されたコロイドと移行可能なコロイドとの比

$\underline{\beta}$

$$\begin{aligned} \beta &= \frac{1}{Rf}, & (0 \leq C < Rf c_{\text{colloid}}^*) \\ &= \frac{c_{\text{colloid}}^*}{C}, & (Rf c_{\text{colloid}}^* \leq C). \end{aligned} \quad (6)$$

$\underline{\delta}$

$$\delta = \frac{1}{Rf}, \quad (0 \leq C < Rf c_{\text{colloid}}^*)$$

$$= \frac{c_{\text{colloid}}^* + \frac{C - Rf c_{\text{colloid}}^*}{1 + Tr}}{C}, \quad (Rf c_{\text{colloid}}^* \leq C) \quad (7)$$

また、反応速度項についての代数表現は基本ケースにおける設定と全く同じであるが、表現の中に含まれる β の内訳は、上記の様に基本ケースと異なることに注意を要する。次に、コロイド粒子の凝集により粒径が増大し、ついにはコロイドとして浮遊することがで

きず準安定な沈殿を不可逆に生成するという効果を考えた代替的なモデルを定義する。この場合には、ダミー変数の定義は上と全く同じであるが、反応速度項を基本シナリオから変化させることが必要となる。すなわち、液相から準安定相への反応項として、基本シナリオに含まれている通常の溶解沈殿項Rに加えて、コロイド凝集による不可逆な沈殿生成に対応した項 $R_{\text{aggregation}}$ を以下の様に定義する。

$$R_{\text{aggregation}} = \mu_{\text{aggregation}} (C - R_f c_{\text{colloid}}^*) H [C - R_f c_{\text{colloid}}^*]. \quad (8)$$

但し、

$\mu_{\text{aggregation}}$; コロイド凝集による沈殿生成の時定数

3.2.1.2 解析条件

ここでは、アクチニドの崩壊連鎖(Am-241 系列)と難溶解性核分裂生成物(Tc-99)のそれについて、基本ケースにおける溶解沈殿反応速度が(10,100)及び(0.1,1)（ケースA-1, A-3）を選択し、これに加えてコロイド生成の下限濃度(c_{colloid}^*)を準安定相の溶解度の2あるいは10倍とし、吸着されたコロイドと移行可能なコロイドの比(Tr)を溶存形の核種の分配係数を変化させ遅延係数の1/10あるいは1/100になるようにして合計各8ケースの解析を行った。

また、コロイド凝集については、上記のうちケースF-2#2に対して、 $\mu_{\text{aggregation}}=0.1$ 及び1という二つのケースを想定し、これについても追加的に解析を実施した。

3.2.1.3 結果

コロイドの影響が最も顕著なケース（溶解沈殿速度が遅くコロイド形成の下限値が小さいもの）では、コロイドは人工バリアの全域に亘って存在しており、このため、溶存形の核種濃度は全域でコロイド生成の下限濃度一定であり、また、安定相及び準安定相のいずれもゆるみ域に到るまで形成されている。なお、Am-241, 及びU-233についてもいずれのケースにおいても液相濃度がコロイド生成のための下限濃度に達せず、従ってコロイドは形成されなかった。

アクチニドについて、溶解・沈殿が速いF-1の諸ケースにおいては、液相濃度が達し得る過飽和の程度も、また、過飽和の生じる領域も限定されているためにコロイドの生成量自体が少なく、いずれも基本ケースからの差異は有意ではない。しかし、溶解・沈殿反応が遅いF-2のケースでは、コロイド生成の下限濃度に対する過剰分が増大するためにコロイド濃度も上昇し、基本ケースよりも最大3桁程度高いNpの最大核種放出率が算出されている(Uについては1桁以内)。また、コロイド生成の下限濃度については、準安定相濃度の10倍としたケースよりも2倍としたケースの方が核種放出率は大きく、このことは、より低い過飽和の程度から移行可能なコロイドが生じる場合の方がコロイドの総量も大きく、結果への影響が大きいことを示している。また、コロイドに対する線形・可逆の吸着効果については、前出の二つのTrの値(Rf/10, 及びRf/100)では最大核種放出率が約1桁異なる。なお、コロイド生成・移行の影響が最も大きいF-2#2において、3段階のプラトーが現れているが、これらは大きい順に、1) ゆるみ域中にNpのコロイドが存在する条件での定常状態、2) ゆるみ域中に準安定相の沈殿が存在する状況での定常状態、及び3) ゆるみ域中には安定相の沈殿のみが存在する条件での定常状態、にそれぞれ対応するものと考えられる。

Tc-99については、基本ケースにおいても述べた様に、インベントリが比較的大きいのに対して溶解度は小さく、潜在的に過飽和となる程度が大きい条件となっている。従つ

て、コロイド生成・移行を考えたいずれのケースにおいても十分な量のコロイドが生成されるために、最大核種放出率は 10^{-3} mol/yr/waste と、反応速度の大きい基本ケース（C-1）を13桁程度、反応速度の遅い基本ケース（C-3）をも4桁程度上回るものとなっている。また、ここでは全てのコロイドケースにおいて、コロイドが人工バリア全域に存在する条件での定常状態が達成されており、Tr や $c^*_{colloid}$ といったパラメータの最大放出率への感度は無視し得る程小さい物となっている。

以上、コロイドの線形・過逆な吸着を考えたコロイド基本モデルによる感度解析の結果を図3.2.1.3-1にまとめる。

上述したモデルに対して、代替的に、コロイド凝集による不可逆な沈澱形成の効果を取り入れたモデルで、上記F-2#2についての追加解析を行った結果が、図3.2.1.3-1である。ここでは、 $\mu_{aggregation}$ を0.1及び1.0としたいずれのケースにおいても、核種放出率は基本ケースと同程度に抑えられている。つまり、準安定相の形成と同様のタイムスケールでコロイド凝集による沈澱が生じ、これが不可逆なコロイド固定化のメカニズムとして期待できれば、コロイド問題の影響は無視し得る物となる可能性があることになる。

3.2.2 鉄・ケイ素共沈

3.2.2.1 ダミー変数及び反応速度項の具体形

鉄・ケイ素共沈問題は、これまでのケースでは考慮されていなかったケイ化鉄の沈澱形成を取り入れた物であり、ここでは、ケイ素についてアモルファスシリカに加えて第二の沈澱相を考えた解析を行う。従って、ダミー変数及び反応速度項の具体形は3.1.1に述べたものと同一であり、ケイ化鉄についての溶解度と反応速度定数とを設定することによって計算を行うことが可能である。

3.2.2.2 解析条件

本ケースでは、可溶性であり従ってガラス浸出率律速であるCs-135 を対象として基本ケース（ケイ化鉄の反応速度0）と、これに対する感度解析のための6ケースの解析を行った。

3.2.2.3 結果

感度解析の結果を図3.2.2.3-1にまとめる。いずれのケースでも、基本ケースからの上昇分は1桁以内であり、鉄・共沈が生じたとしてもその影響はさほど大きなものとはならないことが示された。これは、本解析で仮定しているガラス固化体の溶解速度の標準値がそもそも大きく、ケイ化鉄の沈澱速度定数10では常に供給過剰な状態、つまり、ガラス近傍のケイ素濃度がガラス溶解速度式の第一項が有意となるほどには濃度が低下しない状態にあるためと考えられる。そこで、ケイ化鉄の沈澱速度定数を100とした2ケース（アモルファスシリカの溶解速度定数をそれぞれ10及び100としている）の解析を行った。しかし、ここでも、基本ケースからの放出率の増加は有意なものではない。これは、保守的に設定された基本ケースのガラス溶解速度krが、Cs-135 のインベントリ限界放出の条件に近い物であることを示していると考えられる。

3.2.3 結晶化

3.2.3.1 ダミー変数及び反応速度項の具体形

本ケースでは、一旦準安定相として沈澱した核種が、その後液相に溶け出すことなく直接的に（固相一固相の変化として）安定相へと変化する結晶化を考え、モデル化を行った。ここでは、液相側の濃度配分は基本ケースと全く同じであるため、ダミー変数の形式

も3.1.1で定義したものと同じである。但し、反応速度項については、上記に対応して、基本ケースで考えたものに加えて準安定相から安定相への変化速度 $R_{\text{crystallisation}}$ を以下のように定義して解析を行った。

$$R_{\text{crystallisation}} = \mu_{\text{crystallisation}}(S_{\text{metastable}})H[S_{\text{metastable}}]. \quad (9)$$

但し、

$\mu_{\text{crystallisation}}$; 結晶化についての時定数
 $S_{\text{crystallisation}}$; 準安定相濃度

3.2.3.2 解析条件

解析条件としては、基本ケースにおいて溶解・沈澱速度の比較的遅いケースA-3を選択し、これに対して前節で述べた $\mu_{\text{crystallisation}}$ をそれぞれ0.1及び1.0とした二つのケースについて解析を行った。

3.2.3.3 結果

上記2ケースと基本ケースA-3の人工バリアからの核種放出率を比較した結果が、図3.2.3.3-1である。放出率がピークをすぎてやがて低下するまでの挙動は、結晶化を考慮した場合としない場合とでは大きく異なる。これは、基本ケースでは準安定相が人工バリア内に存在する条件での定常状態に対応するプラトーが40万年程度継続しているのに対して、結晶化を考慮したケースでは準安定相が不可逆的に安定相へと変化することによって消費されるために放出率がより速やかに低下しているためである。しかし、これらの相異は破過曲線のテイルについての物であり、核種放出率の最大値自体には全く変化は見られない。

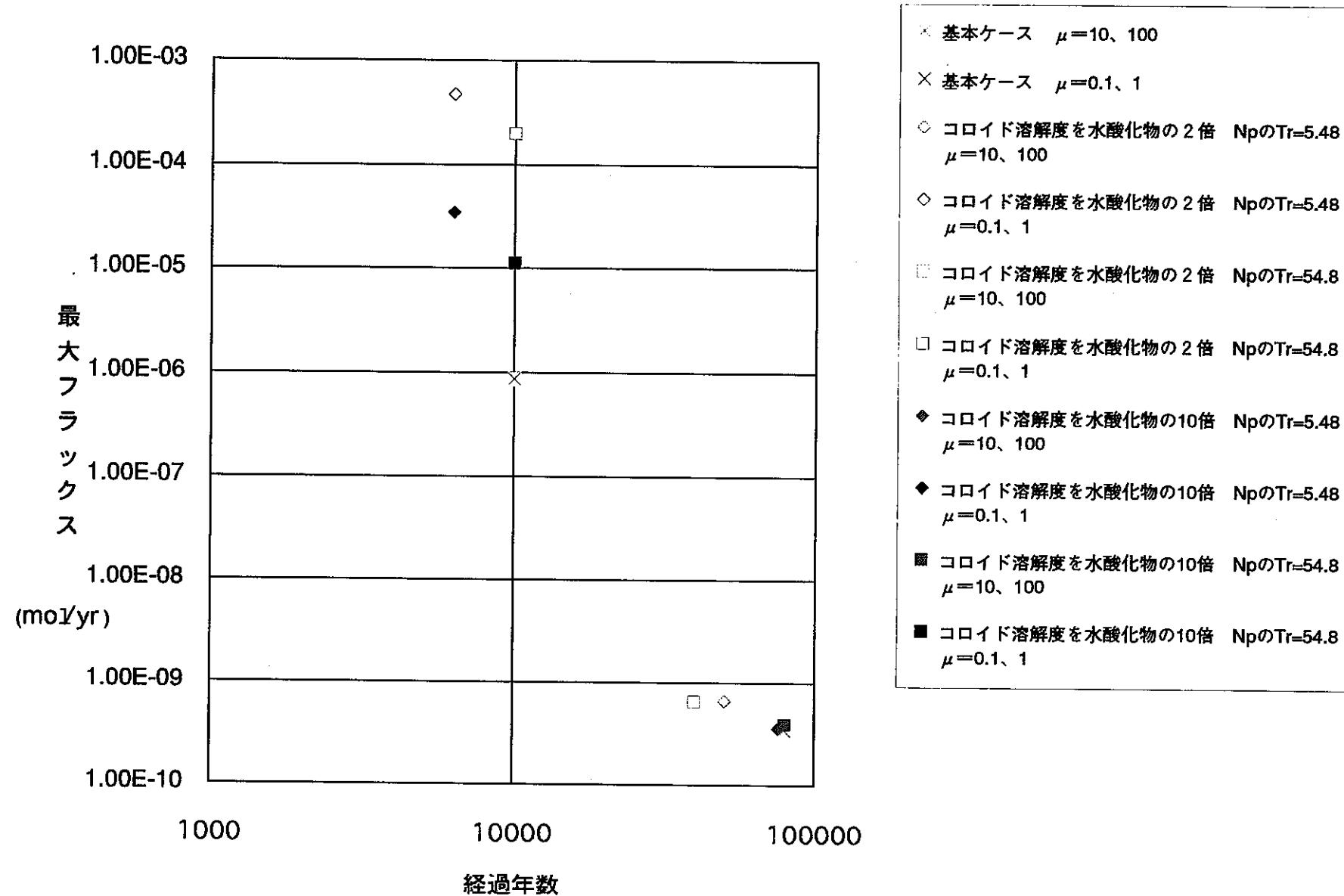


図 3.2.1.3-1 コロイド生成・移行についての
感度解析結果のまとめ (Np-237)

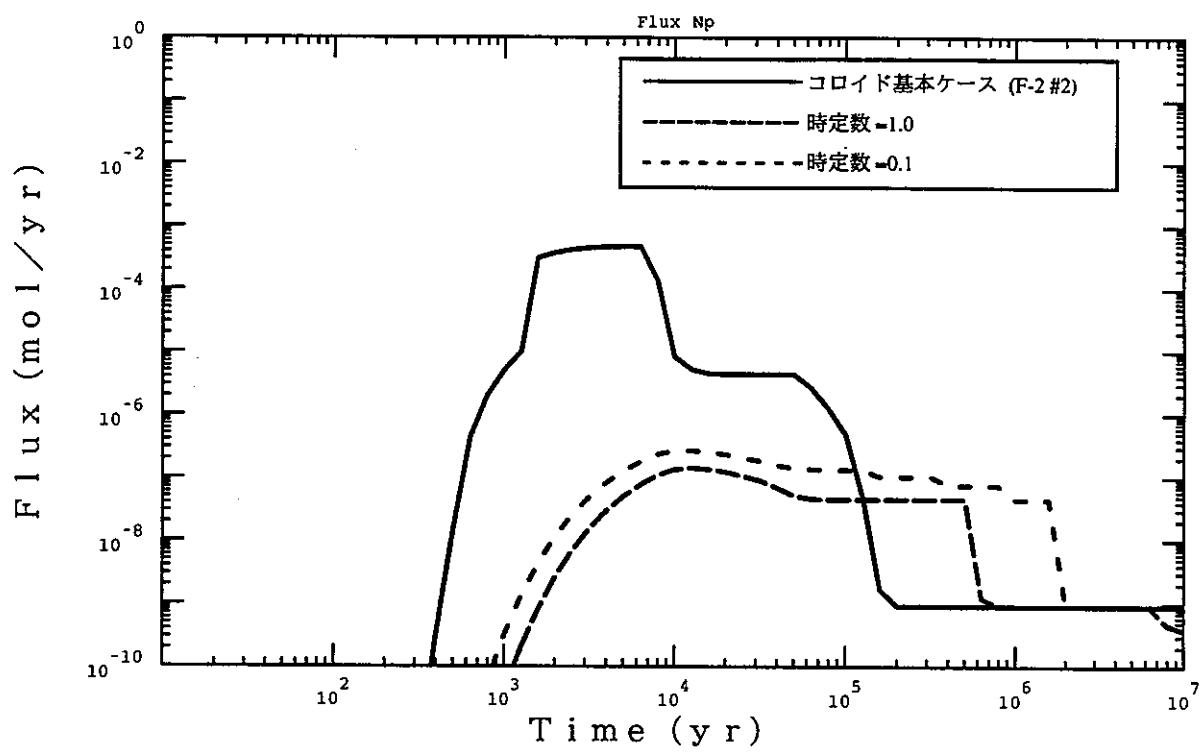


図 3.2.1.3-1 人工バリアからの核種放出率 (Np)

コロイド凝集についての解析ケース $\mu = 0.1, 1$

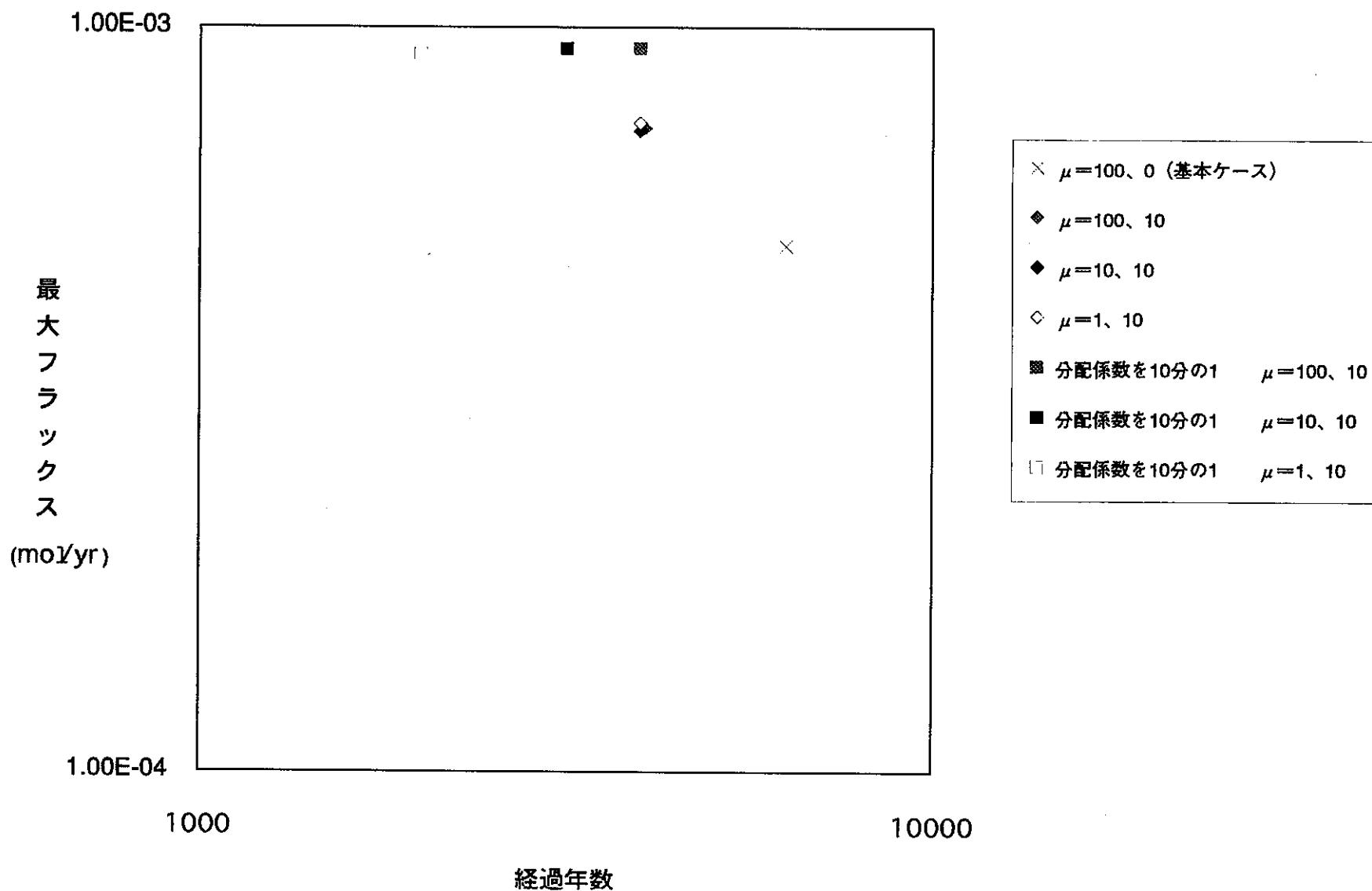


図 3.2.2.3-1 可溶性核分裂生成物についての基本ケース
及び鉄・シリカ共沈についての感度解析結果のまとめ

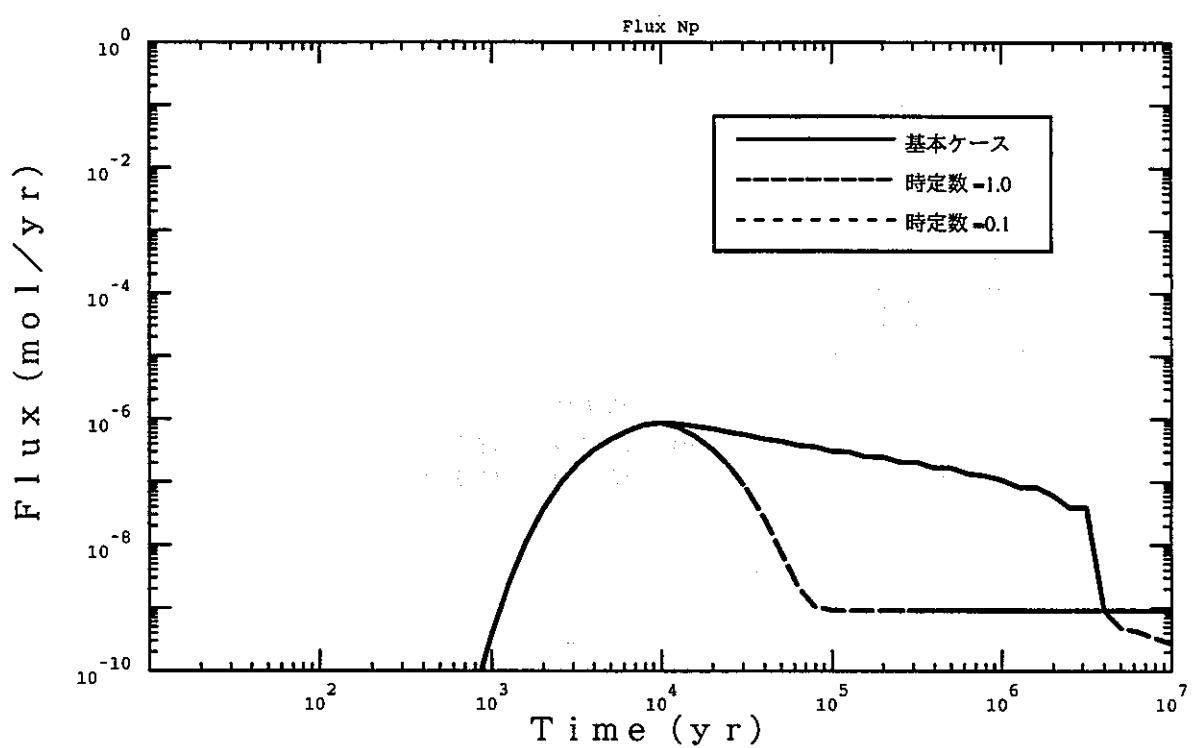


図 3.2.3.3-1 人工バリアからの核種放出率 (Np)
結晶化についての解析ケース $\mu = 0.1, 1$

4. 環境条件変化についての感度解析

3.に述べた核種移行挙動自体についての感度解析に引き続き、核種移行の生じる場（ニアフィールド）の環境条件が、時間あるいは空間的に一定ではない状況を考慮して、各種の環境条件変化が人工バリアからの核種放出率にどの様な影響を及ぼし得るかについて感度解析を実施した。

ここでの解析では、核種移行モデル自体は基本ケース、すなわち3.1.1に述べたものを用いることとする。また、核種移行パラメータのうち最も重要性が高いと考えられる溶解度に着目することとして、溶解度を規定する環境条件である地下水化学、特にその酸化還元状態を中心として環境条件変化の影響を検討することとした。この解析を実施するためには、その前提として、酸化状態での地下水化学特性と、これに対応する放射性元素の溶解度を設定することが必要である。

まず、酸化性地下水の化学特性としては、King等[King and Chapman, 1994]の検討を参考として、酸素分圧が高い大気開放条件で岩石と化学平衡にあるsyntheticな水の組成を算出した。地球化学計算において前提とした花崗岩地層の鉱物リストを表4-1に、また、EQ3/6コードに、SUPCRTデータベース[Johnson et al., 1992]を適用して行った地下水特性の算出結果を表4-2にまとめる。また、解析対象とする元素は、Am, Np, 及びUとし、これらについてHATCHESデータベースとHARPHRQコードの組み合わせで準安定相、及び安定相の溶解度を算出した結果を表4-3にまとめる。

以上の前提の下に行った解析の内容と結果を以下にまとめる。なお、環境条件変化のパターンとしては、

- 1) 時間変化のみ
- 2) 空間的不均質性のみ
- 3) 時間及び空間的な変化

という3つのレベルについて順に検討を行った。また、これらの環境条件変化につき、昨年度報告書に詳述した様に、個々の事象を詳細にモデル化するのではなく、引き起こされるであろう条件変化のパターンを模擬的に位置あるいは時間の関数として表現すること(Shadow関数)により、核種移行に及び得る影響の種類と大きさとを定量的に解析するというアプローチを探った。

表 4-1 酸化性のsynthetic water の地球化学特性設定のために仮定した鉱物のリスト
(内陸部の花崗岩系地層を想定)

albite
microcline
calcite
phlogopite
muscovite
quartz
magnetite
hematite
pyrite

表 4-2 EQ 3/6 による地下水特性算出結果

計算のための 設定条件(*)	温度(°C) Eh (v) $\log f_{CO_2}$ (bars) Cl^- (mol/l)	10 +0.6 -3.5 1.0 E-3
算出結果	pH Na^+ (mol/l) K^+ (mol/l) Ca^{2+} (mol/l) Mg^{2+} (mol/l) $Al(OH)_4^-$ (mol/l) H_4SiO_4 (mol/l) Fe^{2+} (mol/l) Fe^{3+} (mol/l) HCO_3^- (mol/l)	9.6 5.0 E-2 2.4 E-5 8.8 E-6 8.5 E-6 7.4 E-8 3.4 E-4 2.3 E-6 8.7 E-12 4.1 E-2

* 地表近傍での温度と、酸化性帯水層の条件を想定し、値を設定した。

表 4-3 評価対象とする放射性元素の synthetic な酸化性地下水に対する溶解度

元素名	溶解度制限固相	基本ケースでの 溶解度 (mol/m ³)	酸化性地下水に対する 溶解度 (mol/m ³)
Am	Am(OH)CO ₃	6.30 E-5	6.30 E-5
Np	Np(OH) ₄ ; 準安定相	5.50 E-6	4.95 E-1
	NpO ₂ ; 安定相	2.00 E-9	2.20 E-4
U	UO _{2(am)} ; 準安定相	3.90 E-2	1
	UO _{2(cr)} ; 安定相	3.90 E-7	1

4.1 空間的に一様な環境条件の時間変化による影響

ここでは、時間的にのみ変化する環境条件の影響として、

- ・放射線分解による地下水pe の変化、
- ・海水準変動によるニアフィールド水理の変化
- ・隆起・浸食による地下水pe の変化

を例とした解析を行う。これらのいずれの事象についても、ニアフィールド内の環境条件変化は位置依存性も含むものと考えられるが、ここでは、前出の第一レベルとして、まず、空間的な一様性を仮定した解析により、ニアフィールド全域が同時に変化する場合の

影響を検討することとする。なお、位置依存性をも含めた解析（レベル3）については、4.3にまとめる。

4.1.1 放射線分解による地下水pe の変化

(1) Shadow 関数の設定

このケースでは、ガラス固化体中の α 放射性核種による地下水の放射線分解で過酸化水素等が過剰に形成されることにより人工バリア内が酸化性雰囲気となることを想定して環境条件変化の溶解度への影響をShadow関数として表現する。溶解度の時間変化を表現するShadow関数としては、昨年度の研究において作成した、

$$\Psi_{(t)} = \exp \left(-\frac{W_{(t)}}{\left(\frac{w}{T}\right)^2} \right) \quad (1)$$

但し、

$$W_{(t)} = \frac{1}{\pi} \left\{ \left(\frac{\pi}{2} \right) + \arcsin \left(\sin \left(\frac{2\pi t}{T} + \frac{\pi}{2} \right) \right) \right\}$$

w; 変化のタイムスケール (yr)

T; 変化の周期 (yr)

を用いて、以下を仮定する。

$$c^*_{(t)} = (1 - \Psi_{(t)}) c^*_{red} + \Psi_{(t)} c^*_{ox} \quad (2)$$

但し、

c^*_{red} ; 基本ケース（還元性雰囲気）での溶解度

c^*_{ox} ; 大気開放条件（酸化性雰囲気）での溶解度

また、放射線分解については、周期的に生じるものではなく、一過性と考えられることから、一回目の擾動のみを考え、以降は基本シナリオと同じ条件が継続するものと仮定した。パラメータは、放射線分解に主として寄与する最も短半減期の α 放射性核種であるAm-241の半減期に着目し、T=1000、また、wは200、100、50、25の4ケースを想定した。各パラメータ値での環境条件変化をUの溶解度の時間的変化を例として図4.1.1-1に示す。

(2) 解析条件

解析ケースとしては、核種移行に関して最も感度の大きいパラメータであった溶解・沈澱速度（3.参照）の速い場合と遅い場合、及びタイムスケールとの関係で影響を及ぼし得る分配係数が標準値である場合とその1/10である場合のそれについて、変化のタイムスケールを（1）に述べた4種類を想定した合計16ケースについて解析を実施した。

(3) 結果

最も影響が顕著に出ているのは、溶解・沈澱反応速度が大きくかつ分配係数も標準的なケースH-1であり、Np-237及びU-233の最大放出率はそれぞれ5桁及び1桁上昇している。これは、沈澱が速やかに進むためにガラス固化体近傍に存在する安定相及び準安定相の濃度が高く、これが放射性分解による酸化性雰囲気の出現のために一挙に溶け出しが原因と考えられる。これに対して、溶解・沈澱反応速度の小さいケースH-3、及びH-4では、人工バリア中の沈殿物の量が限られておりかつ再溶解の速度も小さいために基本ケースからの放出率の増加は顕著ではない。また、H-1と同じ溶解・沈澱反応速度で分配係数を1/10としたケースH-2では、H-1に比べて核種移行が速く従ってやはり沈殿物の量が低減されるためにH-1ほど顕著な影響は見られない。

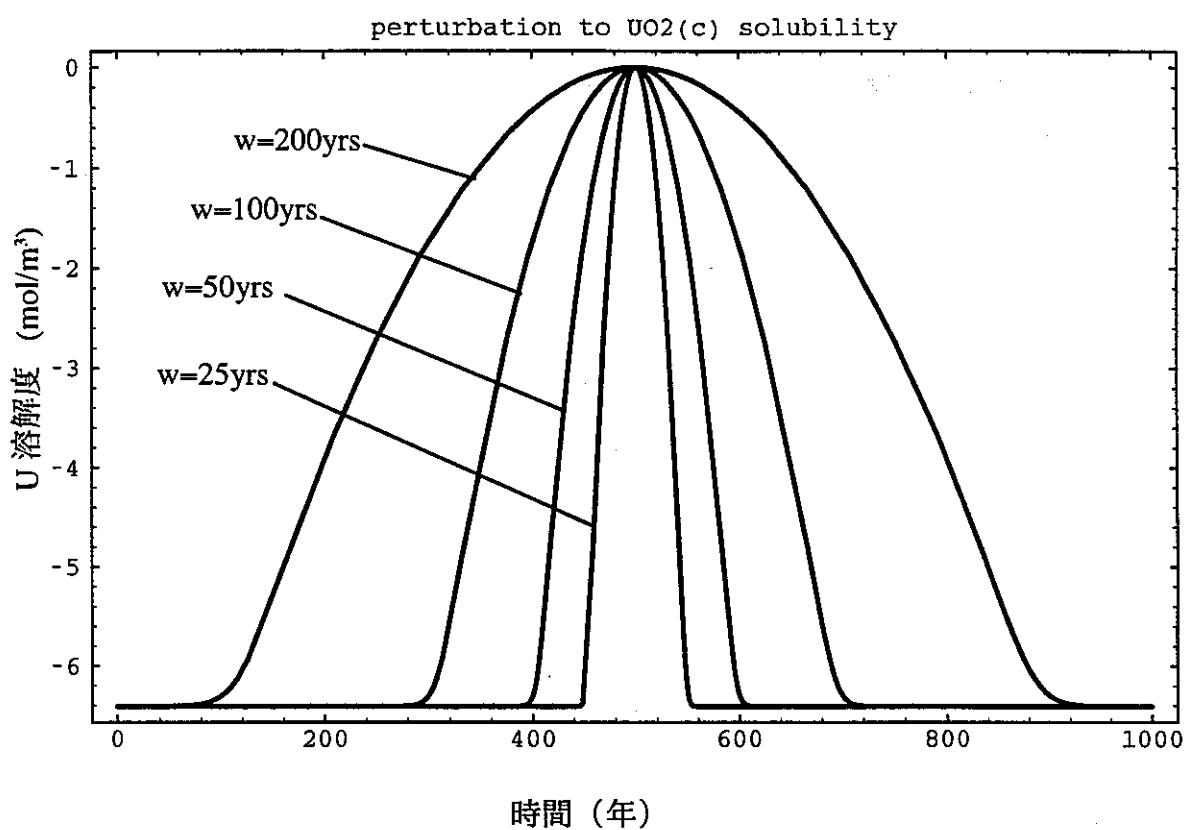


図 4.1.1-1 放射線分解による地下水 p_e の変化に対応した Shadow 関数

減されるためにH-1ほど顕著な影響は見られない。

4.1.2 海水準変動によるニアフィールド水理の変化

(1) Shadow関数の設定

このケースでは、建設当初は内陸に位置していた処分場が、海水準上昇により塩淡境界の海側へと変化することにより、ゆるみ域内の地下水流量（基本ケースでは $1\text{m}^3/\text{yr}$ ）が実質的には0となることを考え、この様な変化が気候変動と同じく約10万年周期で繰り返されることを想定して解析を行った。この様な変化を考えることにより、海水側に位置している間にゆるみ域に沈澱する核種が再び処分場が淡水側に到った際に比較的速やかに放出される可能性を定量的に検討することが可能となる。

ゆるみ域流量については、4.1.1と同じ波形関数 $\Psi(t)$ を用いて、以下の様な時間の関数として表現する。

$$q_{(t)} = (1 - \Psi_{(t)}) q_{inland} + \Psi_{(t)} q_{seabed} \quad (3)$$

但し、

q_{inland} ；基本ケース（内陸側）でのゆるみ域流量

q_{seabed} ；海水側でのゆるみ域流量

パラメータとしては、 $T=10^5$ 年とし、 w を $20,000, 10,000, 5,000, 2,500$ の4ケース設定することとした。対応するゆるみ域流量の時間変化を図4.1.2-1に示す。

(2) 解析条件

溶解・沈澱反応速度の大きい場合と小さい場合のそれぞれについて、(1)で設定した4つの条件変化パターンを考えた合計8ケースの解析を行った。

(3) 結果

(2)に述べた各ケースについて人工バリアからの核種放出率を算出した結果、処分場が内陸側に復帰する際の過渡的な放出率の増大はいずれのケースでも認められるが、有意なものではないことがわかった。

4.1.3 隆起・浸食による地下水peの変化

(1) Shadow関数の設定

ここでは、隆起・浸食によりサイトが徐々に削剥され、地表に漸近する可能性を想定し、地表近傍の帯水層に到った段階から徐々にニアフィールド地下水が酸化性へと変化した場合の、核種放出率への影響について解析を行った。隆起・浸食速度としては、Shimizu等[Shimizu et al., 1992]を参考として $0.1\text{m}/1000\text{yrs}$ と設定する。つまり1000万年間で1000mの隆起が生じ、隆起分が全て浸食されるという状況を想定することとなる。

この場合の溶解度の時間変化を(2)式で表現することとし、パラメータとして $T=2 \times 10^7$ yrs、また、 w を $1.06, 5 \times 10^5, 2.5 \times 10^5, 1.25 \times 10^5, 6.25 \times 10^4, 3.125 \times 10^5$ という6ケースを考えることとした。対応する溶解度のShadow関数(Uの例)を図4.1.3-1に示す。

(2) 解析条件

4.1.2と同様に、溶解・沈澱速度の大きい場合と小さい場合のそれぞれについて、(1)に述べた w の6種類の値を仮定した合計12ケースの解析を行った。

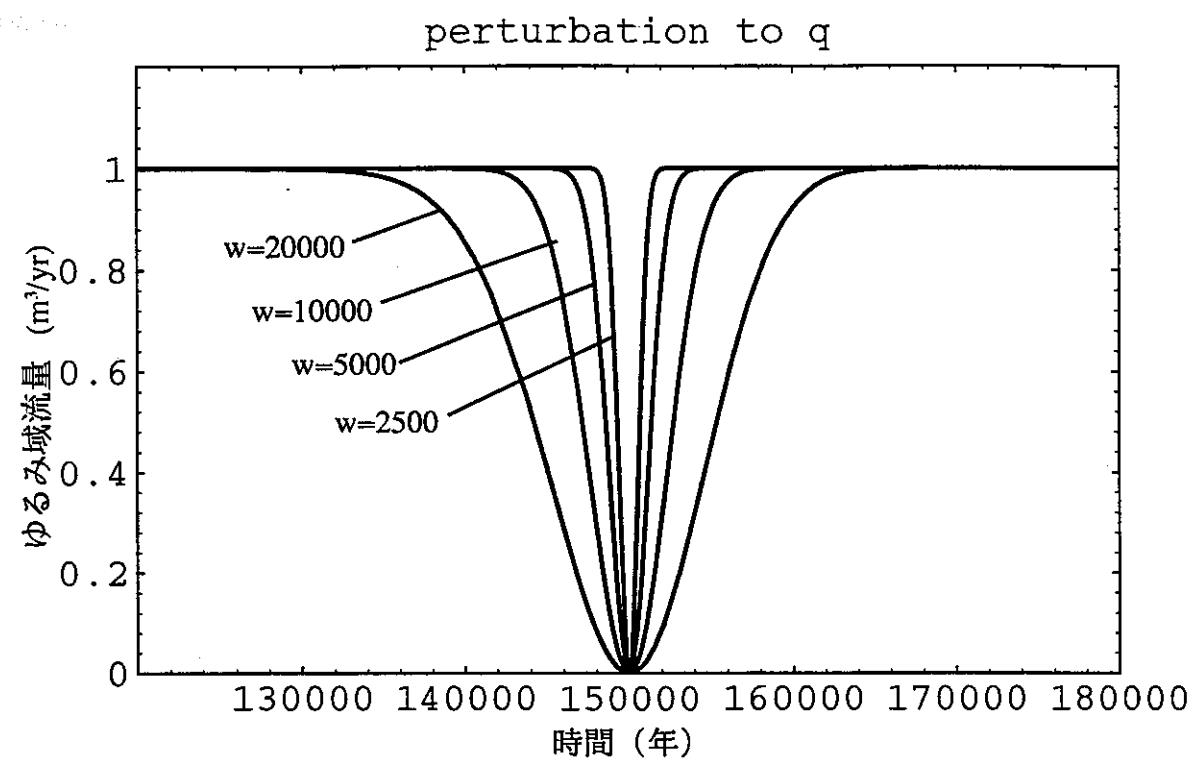


図 4.1.2-1 海水準変動によるニアフィールド水理の変化に対応した Shadow 関数

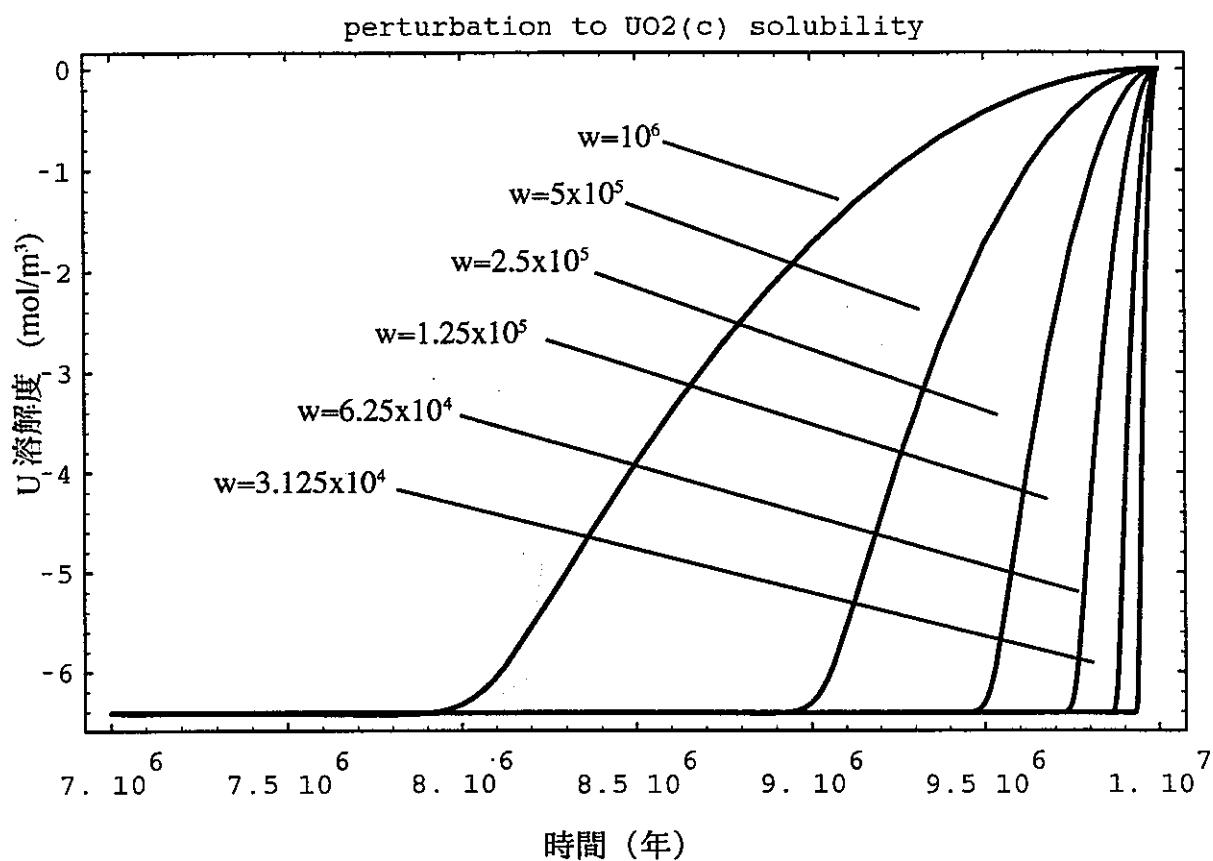


図 4.1.3-1 隆起・浸食による地下水 p_e の変化に対応した Shadow 関数

(3) 結果

Np-237については、いずれの場合にも核種放出率のピークが 10^{-6} mol/yrに達しており、溶解・沈澱反応速度の大きい基本ケースA-1と比べると約4桁の上昇が認められる。隆起・浸食の場合には、処分場が地表に接近する時期での天然バリア性能は長寿命核種について大きく期待できないことから、人工バリアからの核種放出率に基づく被ばく線量の概算を行って見た。ここで、固化体あたり 10^{-6} mol/yrという核種放出率は、処分数量40000本を考えると、総放出率として 2.4×10^7 Bq/yrに相当し、例えばこれを標準的な河川水量 3.8×10^8 m³/yrで希釈することを想定すると、この時の飲料水摂取による被ばく線量は、 1.8×10^{-4} mSv/yr程度となる。

また、処分場が地表に露出した場合のNp、及びUの残存量が、1年以内に全て地表水に溶出したと仮定すると、対応する飲料水摂取による被ばく線量は、Np-237については $w > 2.5 \times 10^5$ 、U-233については $w > 1.25 \times 10^5$ といった緩やかな環境変化である場合には露出時に残存する放射性核種による被ばくも目安線量の0.01 mSv/yrと同程度以下であるが、酸化性地下水への変化が地表近傍数10mから急激に始まる場合には無視し得ない被ばくにつながる量の放射性核種が残留する可能性があるということがわかった。

以上の、時間変化のみを考慮した各ケースについての感度解析の結果を図4.1-1にまとめる。

4.2 時間的に一定な環境条件の位置依存性による影響

4.2.1 酸化性地下水浸入による地下水pe変化の影響

ここでは、環境条件変化の位置依存性に着目し、4.1とは逆に、時間変化を無視して性能評価パラメータ特に溶解度を位置の関数として表現した場合の解析（レベル2）を行った。想定する事象としては、ニアフィールドにおける新たな逆断層の形成により、地表近傍の酸化性の水が断層活動時の引っ張り的なelastic reboundにより地下深部に引き込まれるseismic pumping [Muir Wood, 1993]を考えることとした。

(1) Shadow関数の設定

このケースでは、ゆるみ域内の地下水は外部から導かれた酸化性の水によって完全に置換され、酸素が人工バリアに向けて内側へと拡散により浸入していくことを想定する。この際、オーバーパック部分に存在する腐食生成物は二価鉄イオンを大量に含み、従って大きな還元容量をもつことから、リザーバ部分の酸化還元電位は基本シナリオと同じ強還元性に保たれるものと仮定した。

以上の仮定から、位置依存の溶解度関数 $c_{(r)}^*$ を、リザーバ中での還元性条件での溶解度とゆるみ域中の酸化性条件での溶解度との間を内挿するShadow関数として、以下の様に表現した。

$$c_{(r)}^* = \left\{ 1 - \left(\frac{r - r_{\text{reservoir}}}{r_{\text{buffer}} - r_{\text{reservoir}}} \right) \right\}^n c_{\text{reducing}}^* + \left(\frac{r - r_{\text{reservoir}}}{r_{\text{buffer}} - r_{\text{reservoir}}} \right)^n c_{\text{oxidizing}}^* \quad (4)$$

但し、

$r_{\text{reservoir}}$; リザーバー半径

r_{buffer} ; 緩衝材外半径

n ; 定数

ここで、nは内挿関数の凹凸をコントロールするパラメータであり、浸入する酸素は緩

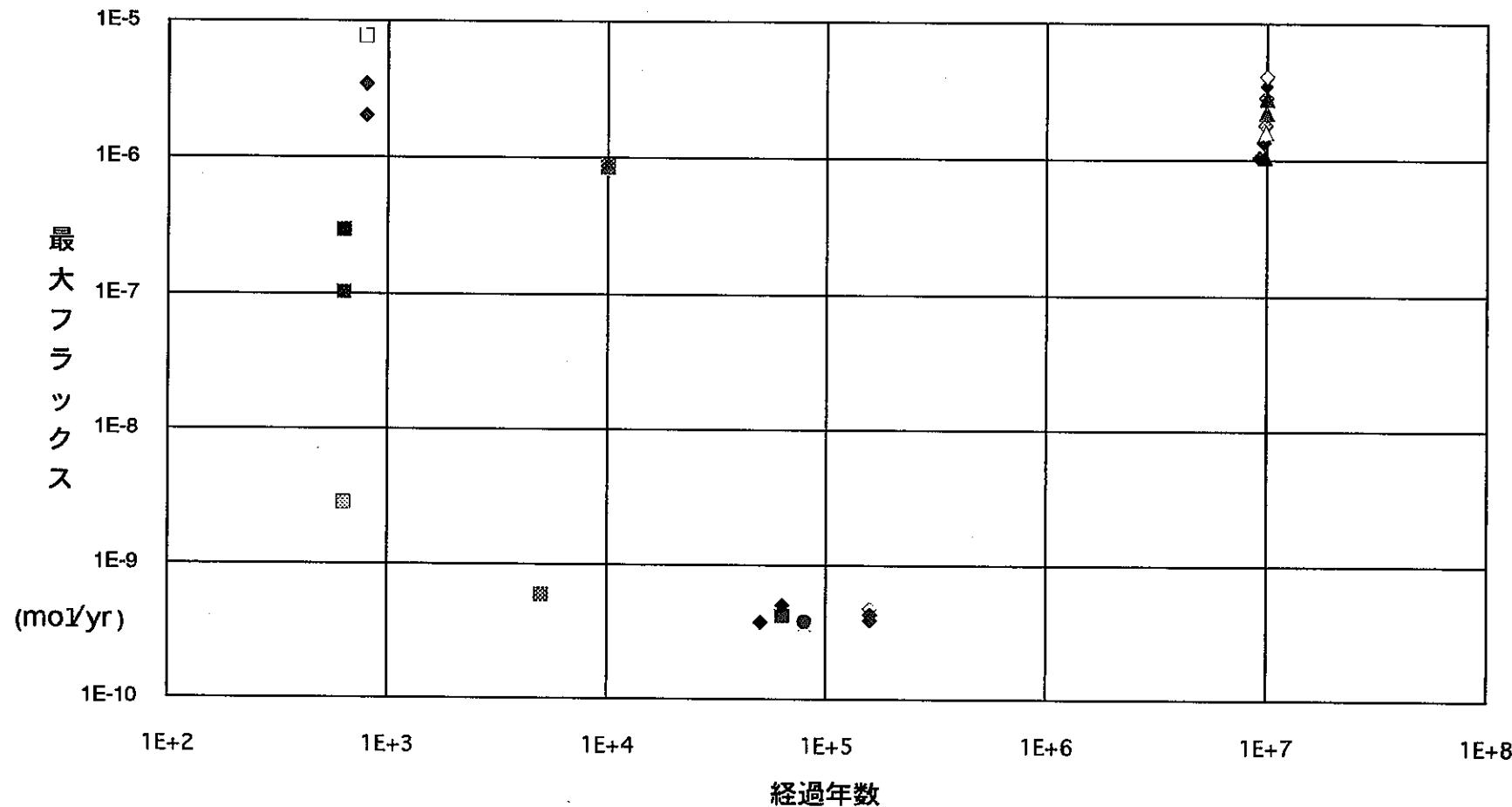
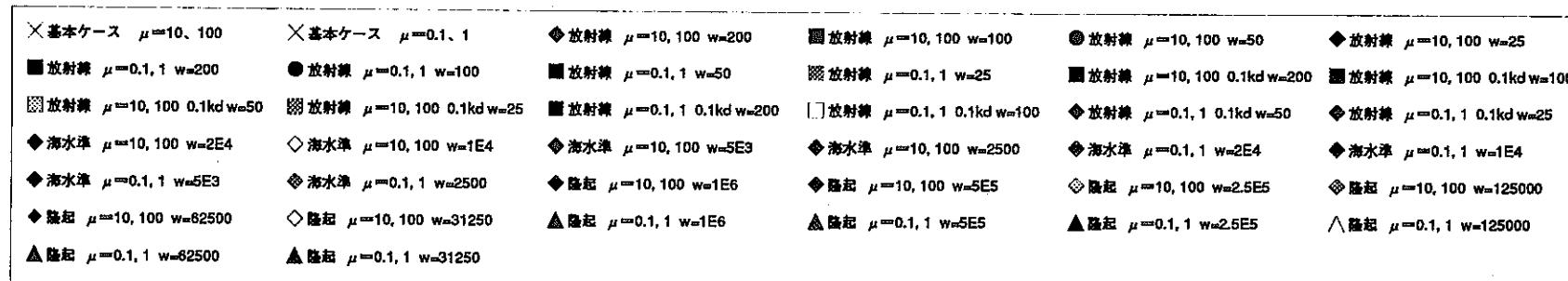


図 4.1-1(1) 空間的に一様な環境条件の時間変化の影響に関する感度解析結果のまとめ
(Np-237)

衝材中の黄鉄鉱との反応によっても消費される（つまりシンクタームを持つ）ために凹である必要があるため、 n として1以上の数値を設定した（1、10、100 の3種類）。図4.2.1-1に、 $c_{(r,t)}^*$ のShadow関数としての表現（Uの例）を示す。図から明らかな様に、 n が大きい程凹の程度は強くなり、つまり、酸化性地下水の影響が緩衝材外表面近傍に限られることとなる。

（2）解析条件

ここでも、溶解・沈澱速度が大きい場合と小さい場合のそれぞれについて（1）に述べた3種類のnの値を考えた合計6ケースについて解析を行うこととした。

（3）結果

核種放出率への影響は、U-233については顕著ではないが、Np-237では溶解・沈澱反応速度の大きいケースK-1で3桁程度の上昇、反応速度の小さいケースK-2で約1桁の上昇となっている。また、 $n=100$ とした場合でも核種放出率の上昇は大きく、酸化性地下水の影響が緩衝材の外表面の直近に限られる場合でも核種挙動に重要な影響を及ぼし得ることがわかる。

以上の感度解析の結果を、図4.2-1にまとめる。

4.3 時間・空間的に変動する環境条件による影響

本章では、レベル3として、4.1に述べた放射線分解の影響、及び4.2に述べた酸化性地下水浸入の影響について、溶解度の時間的な変化と位置依存性の双方を同時に考慮した解析を実施した。

4.3.1 放射線分解による地下水peの変化

（1）Shadow関数の設定

このケースでは、固化体中の α 放射性核種（特にAm-241）による地下水の放射線分解のために、リザーバ中の地下水が初期に酸化性へと変動し、比較的短半減期のAm-241が減衰した時点で再び還元性に回帰するものと考えた。また、ゆるみ域の地下水は、流量が大きく人工バリアから拡散で放出される酸化剤が希釈されること、及び母岩自体が還元能力を有することから常に還元性に保たれるものと仮定した。Shadow関数としては、時間的に変化するこれら両端での溶解度の間を(4)式で示される関数により位置的に内挿することとした。

$$c_{(r,t)}^* = \left\{ 1 - \left(\frac{r - r_{\text{reservoir}}}{r_{\text{buffer}} - r_{\text{reservoir}}} \right) \right\}^n c_{\text{reservoir}(t)}^* + \left(\frac{r - r_{\text{reservoir}}}{r_{\text{buffer}} - r_{\text{reservoir}}} \right)^n c_{\text{reducing}}^* \quad (5)$$

但し、

$c_{\text{reservoir}(t)}^*$ ：リザーバ中の溶解度

$$c_{\text{reservoir}(t)}^* = (1 - \Psi_{(t)}) c_{\text{red}}^* + \Psi_{(t)} c_{\text{ox}}^*$$

パラメータとしては、4.1と同じく $T=1000$ 、またここでは $w=200$ とそれぞれ固定し、 n を1及び0.01と変化させることとした（この場合には、 n が1より小の場合に $c_{(r,t)}^*$ は凹となる）。この場合の溶解度のShadow関数としての表現を図4.3.1-1に示す（Uの溶解度の例）。

（2）解析条件

溶解・沈澱反応速度が大きい場合と小さい場合のそれぞれについて、（1）に述べた2

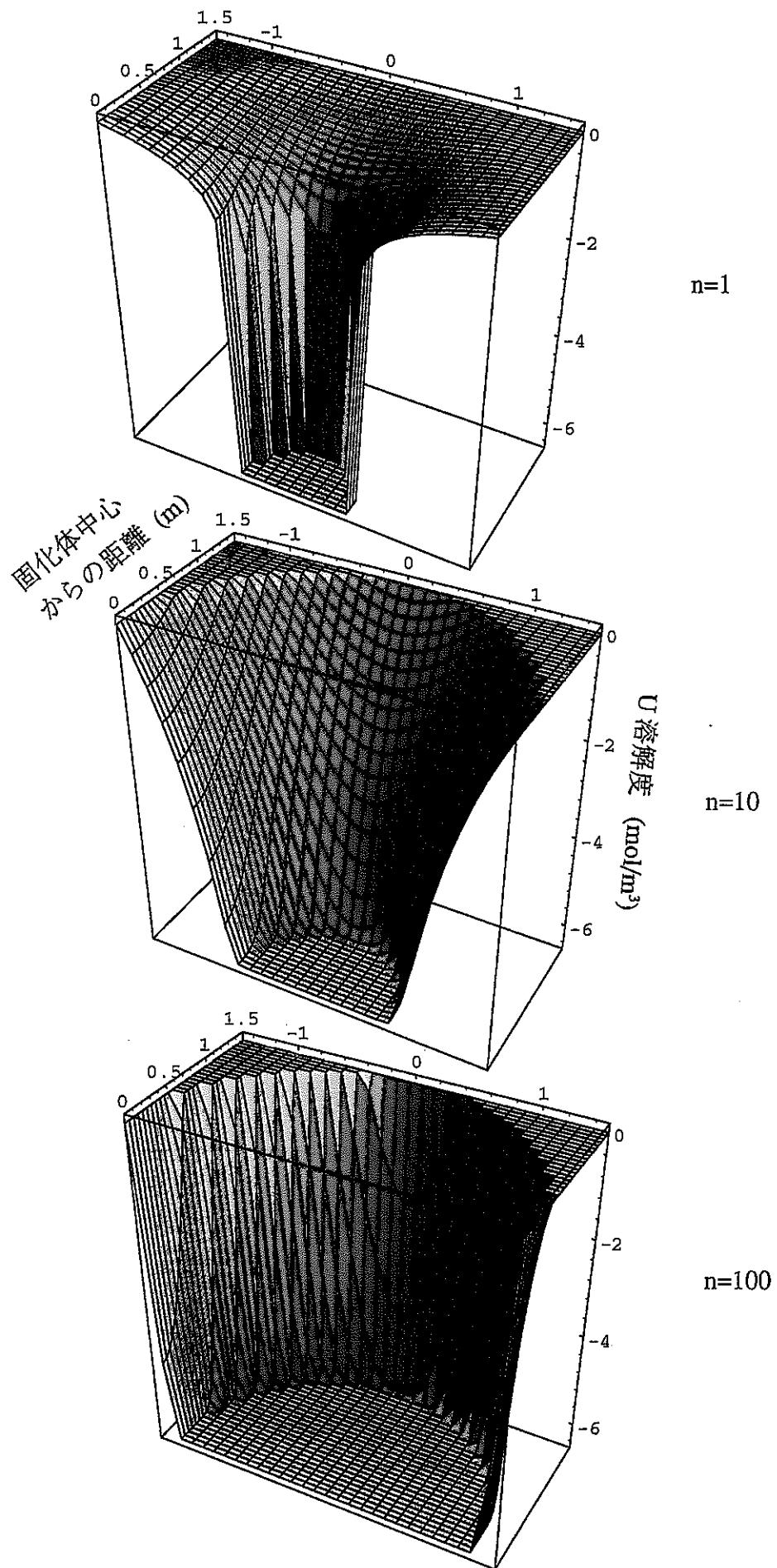


図 4.2.1-1 酸化性地下水の浸入による地下水 p_e の変化に対応した Shadow 関数

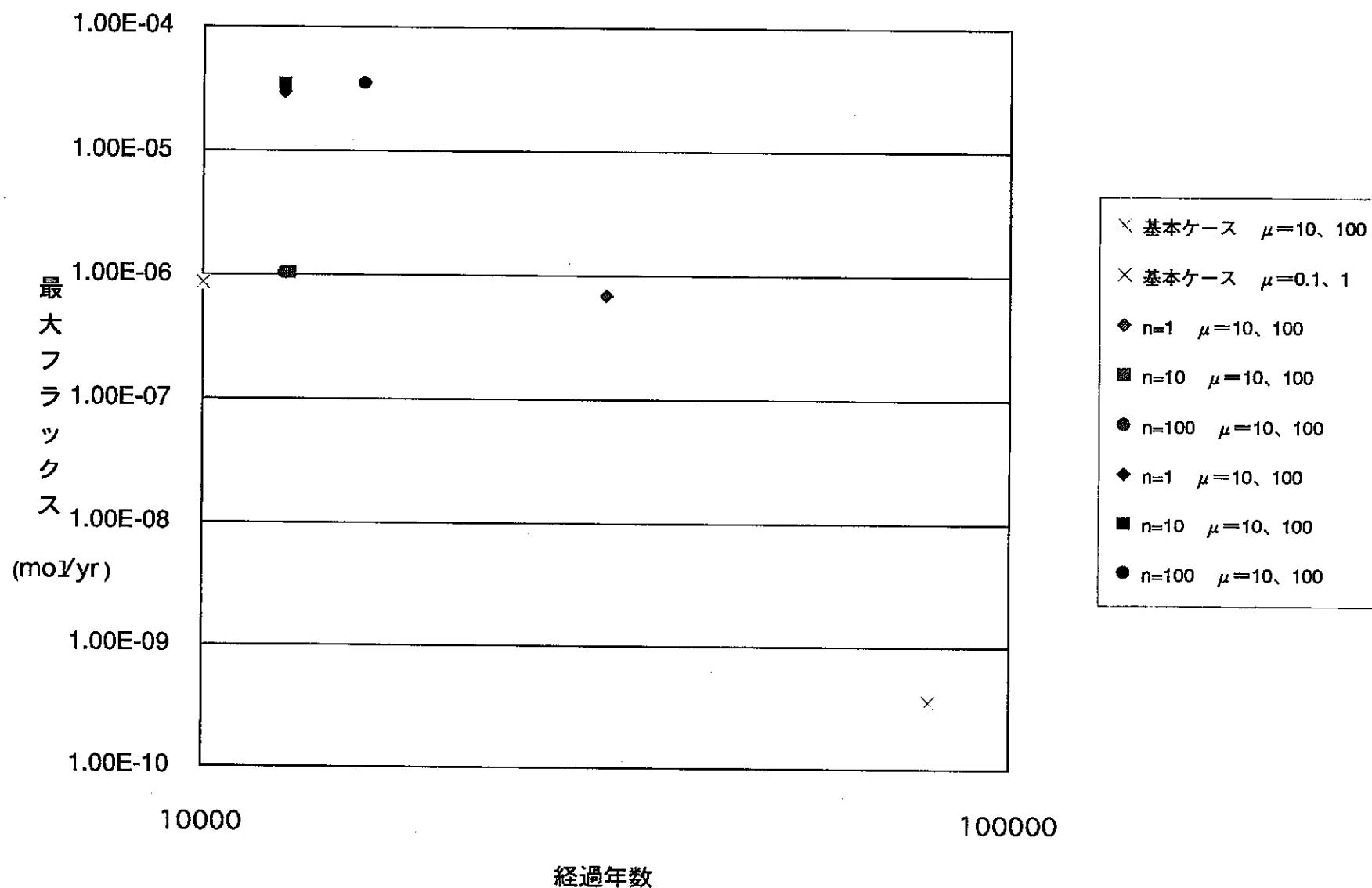
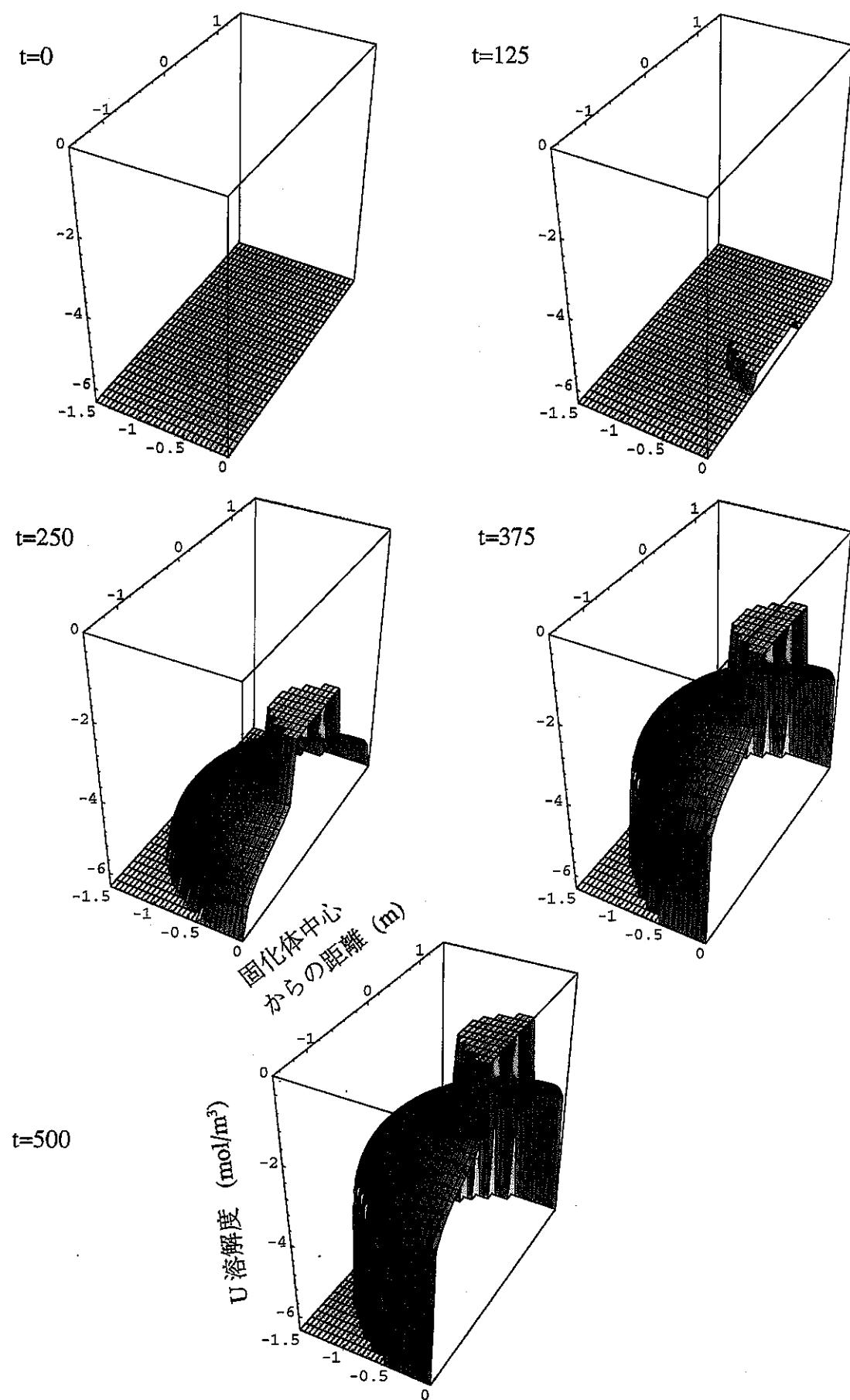


図 4.2-1(1) 時間的に一定な環境条件の位置依存性による
影響についての感度解析結果のまとめ (Np-237)



種類のShadow 関数を考慮した合計4 ケースの解析を行った。

(3) 結果

(1) で仮定した位置依存性を考慮した場合には、基本ケースとの差異はほとんど生じない。これは、放射線分解の有意に生じるであろう初期の段階では沈澱量が限られており、またこれが還元性に保たれている緩衝材外周部でほとんど沈澱してしまうためと考えられる。

4.3.2 酸化性地下水の浸入による地下水pe の変化

(1) Shadow 関数の設定

このケースでは、4.3.1とは逆に、酸化性地下水の浸入のためにゆるみ域内の地下水が一定期間酸化性に変化し、他方、リザーバ中の地下水は腐食生成物の還元能力により還元性に保たれることを想定した。この場合には、(5)式の $c^*(r,t)$ の内外の位置関係を逆転することにより、以下のShadow 関数が得られる。

$$c^*_{(r,t)} = \left\{ 1 - \left(\frac{r - r_{reservoir}}{r_{buffer} - r_{reservoir}} \right)^n \right\} c^*_{reducing} + \left(\frac{r - r_{reservoir}}{r_{buffer} - r_{reservoir}} \right)^n c^*_{decompressed(t)} \quad (6)$$

但し、

$c^*_{decompressed(t)}$; ゆるみ域中の溶解度

$$c^*_{decompressed(t)} = (1 - \Psi_{(t)}) c^*_{red} + \Psi_{(t)} c^*_{ox}$$

またここで、新たに形成された逆断層の影響が及ぶ期間を10万年程度 [King and Chapman, 1994] と考え、 $w=10^4$ と設定した。 n については、1 及び100の二種類を考えることとする。この場合の、溶解度のShadow 関数としての表現を図4.3.2-1に示す。

(2) 解析条件

溶解・沈澱反応速度が大きい場合と小さい場合のそれぞれについて、(1) に述べた2種類のShadow 関数を考慮した合計4 ケースの解析を行った。

(3) 結果

Np-237 については、いずれの場合も基本ケースからの放出率の上昇が有意であり、特にケースM-1においては、差異は3桁以上となっている。4.3.1との相異は、内外の位置関係の逆転以上に、変化のタイミングとタイムスケールが大きく異なること、つまり本ケースでは定常到達後に十分外側にまで沈澱が生成していること及び酸化性雰囲気の継続期間が長く放出率がこの条件に対応したピークにまで上昇し得るためと考えられる。

以上の時間・空間的環境条件変化についての感度解析の結果を図4.3-1にまとめる。

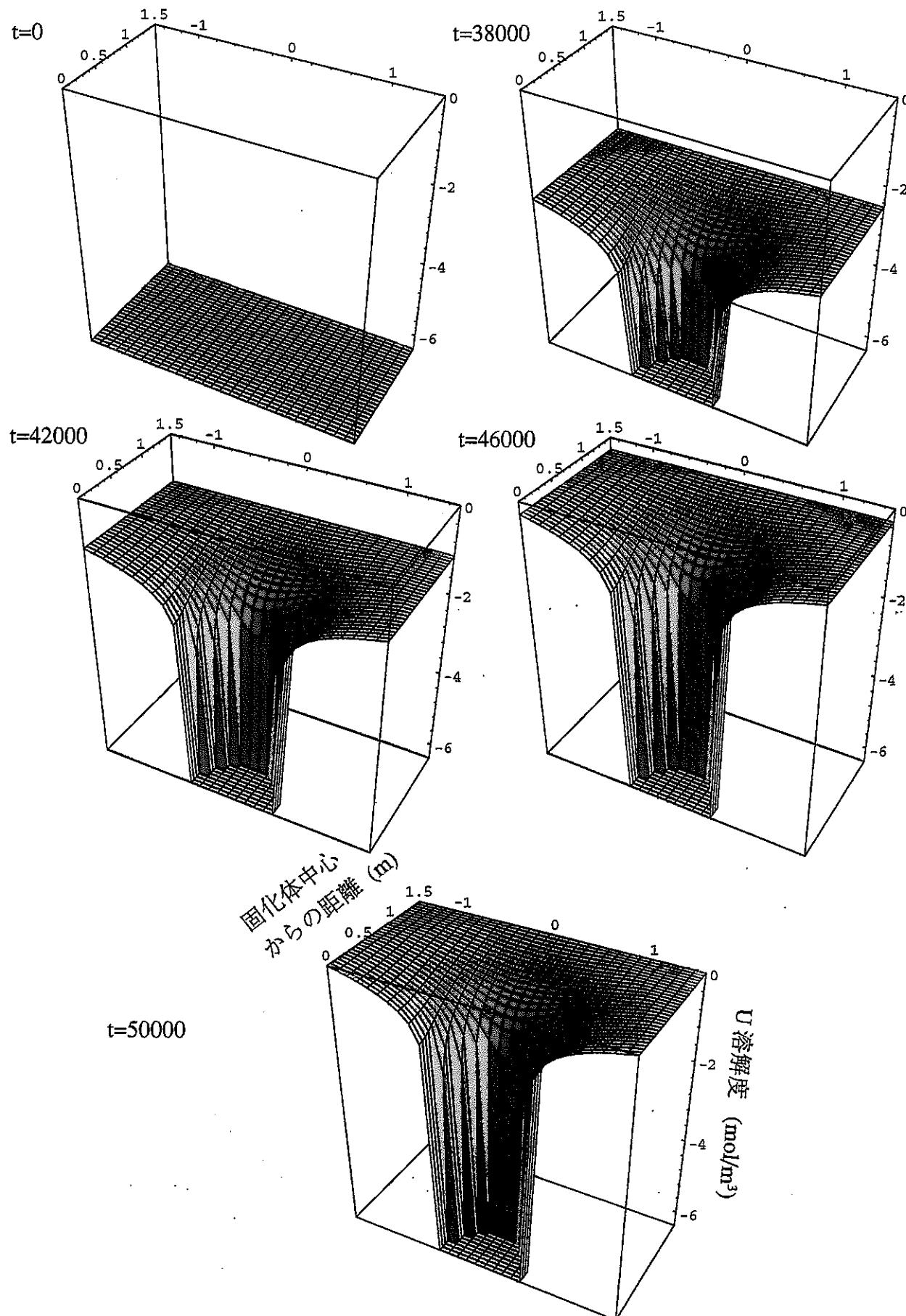


図 4.3.2-1 酸化性地下水の浸入による地下水 pe の変化（時間・空間的変化）に対応した Shadow 関数 ($n=1$)

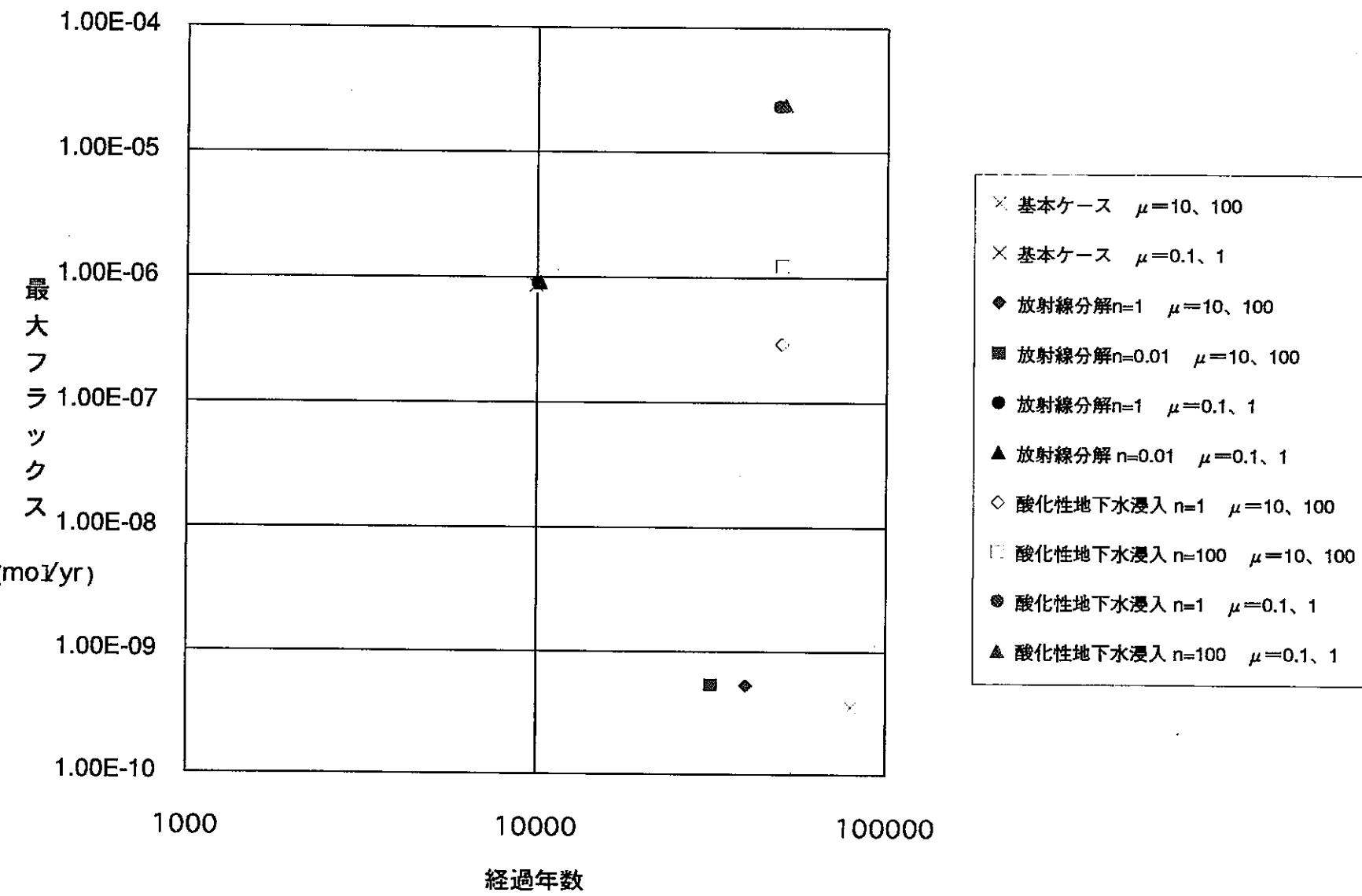


図 4.3-1(1) 時間・空間的に変動する
環境条件による影響(Np-237)

参考文献

- Andersson, K., M.J. Apted , R.C.Arthur, J.L.Conca, P.F.Salter, K.Worgan , and W.Zhou,** (1993), "Survey and Review of Near-Field Performance Assessment", Intera Information Technologies, Technical Report IED-O-9208-1
- Bourcier W. L.**, (1991), "Overview of Chemical Modelling og Nuclear Waste Glass Dissolution", in *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XIV*, ed. T. Abrajano and L. Johnson, Materials Research Society, Pittsburgh, PA, pp.3-18
- Chambré, P.L., C.H.Kang, W.W.Lee, and T.H.Pigford,** (1988), "The Role of Chemical Reaction in Waste-Form Performance", in *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XI*, eds. M.J.Apted and R.E.Westerman. Materials Research Society, Pittsburgh, PA, pp.285-291
- 動力炉・核燃料開発事業団、1992年、”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”**
- Grambow,B. and D.M. Strachan,** (1988), "A Comparison of the Performance of Nuclear Waste Glasses by Modeling" in *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XI*, eds. M.J.Apted and R.E.Westerman. Materials Research Society, Pittsburgh, PA
- Helgesson, H.C.**, (1979), "Mass Transfer Among Minerals and Hydrothermal Solutions", in *Geochemistry of Hydrothermal Ore Deposits*, ed. H. Barnes, Wiley-Interscience, New York
- Johnson, J.W., E.H.Oelkers, and H.C.Helgesson,** (1992), "SUPCRT92: a software package for calculating the standard molal thermodynamic properties of minerals, gases, aqueous species and reactions from 1 to 5000 bar and 0°C~1000°C", Computers and Geosciences 18: pp.899-947
- King, L.M. and N.A.Chapman,** (1994), "Technical Support for TEPCO Scenario Development", Intera Report IG3954-1 (Confidential)
- Mouche, E. and E. Vemaz,** (1988), "Aqueous Corrosion of the French LWR Solution Reference Glass: First Generation Model", in *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XI*, eds. M.J.Apted and R.E.Westerman. Materials Research Society, Pittsburgh, PA, pp.703-712
- Muir Wood, R.,** (1993), "Hydrological Signatures of Earthquake Strain", *Journal of Geophysical Research*, vol.98, No.812, pp.22,035-22,068
- 中垣正幸、福田清成、1993、”コロイド化学の基礎”、日本化学会編 新基礎化学シリーズ（5）、大日本図書**
- Prigogine, I. and R.Defay,** (1954), "Chemical Thermodynamics", Everett Longmans, New York
- Shimizu,K., K.Ishimaru, K.Furuya, and Y.Yusa,** (1992), "Natural processes and events relevant to long-term stability of geological environment in Japan", in *Waste Disposal and Geology; Scientific Perspectives, Proceedings of Workshop WC-1 of the 29th International Geological Congress*, Tokyo, pp. 381-394
- Takase, H. and P.Grindrod,** (1994), "Precipitation Kinetics of Radioactive Elements and Their Effect upon Redox Conditions of the Near Field", in *Proceedings of the fifth annual international conference of highlevel radioactive waste management*, American Nuclear Society.
- 高瀬 博康、1994、ニアフィールド現象の変遷に関する動的解析手法の開発、動力炉・核燃料開発事業団委託研究成果報告書、PNC ZJ1281 94-007**
- Umeki, H., K.Ishiguro,H.Takase, M.Yui, N.Sasaki, and S.Masuda,** (1991), "Site-generic approach for performance assessment of HLW disposal system in Japan", in *Proceedings of the second annual international conference of highlevel radioactive waste management*, American Nuclear Society.