

ニアフィールドにおけるアクチニドコロイドの移行に関する研究
(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

技術資料		
開示区分	レポート No.	受領日
ㄗ	J1602 96-001	1996.3.18
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		

1996年3月

東京大学工学部システム量子工学科

鈴木研究室

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。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下さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないように特に注意して下さい。

本資料についての問い合わ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 技術管理室

ニアフィールドにおけるアクチニドコロイドの移行に関する研究

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1996年3月

東京大学工学部システム量子工学科

鈴木研究室

ニアフィールドにおけるアクチノイドコロイドの移行に関する研究

鈴木篤之[※]，長崎晋也[※]

要旨

天然バリアを構成する岩盤の中で人工バリアに交差した亀裂では、亀裂中のある領域まではベントナイトで充填されているものと考えられている。人工バリア中での放射性核種の拡散は亀裂充填ベントナイト中を移行し、亀裂ネットワーク中の地下水流に放出されるが、こうした核種移行プロセスは人工バリアと天然バリアとの間の掘削影響領域に影響されることが予想される。しかし、このプロセスは非常に複雑であるため、掘削影響領域を模擬しアクチノイド元素の吸着やコロイド形成機構等を考慮した実験並びにモデルに基づいた数値解析が必要である。そこで本研究では、ベントナイトで充填された仮想的な岩盤亀裂中での種々の酸化還元電位 (Eh) に対して、アメリカシウム、ネプツニウムの吸着分配係数を実験により測定した。このとき、Eh の関数として実験的に求められた Kd を用いることにより、ベントナイトで満たされた亀裂中での放射性核種の移行を数値的に評価することができる。ベントナイトで満たされた亀裂中から天然バリア内亀裂ネットワークへの物質輸送についてシミュレーション解析を行った結果、ウランの同位体と娘核種の移行には影響がないことがわかった。

さらに、遺伝的アルゴリズムとファジー理論との融合による解析手法を用いて人工バリアにおける放射性核種の移行に関する不確実性解析を行った。

本報告書は、東京大学工学部が動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究内容結果である。

契約番号：070 D 0170

事業団担当部課室および担当者：環境技術開発推進本部 処分研究グループ 佐々木憲明

※：東京大学大学院工学系研究科システム量子工学専攻

DETERMINATION OF DISTURBED ZONE BETWEEN ENGINEERED AND NATURAL
BARRIERS FROM THE STANDPOINT OF RADIONUCLIDE TRANSPORT

Atsuyuki Suzuki[※]
Shinya Nagasaki[※]

Abstract

Mass transfer from the bentonite filled fractures into the water-flowing fracture network is mathematically analyzed. Bentonite is assumed to fill fracture segments intersecting the engineered barrier system up to a certain distance. Radionuclides diffusing in the EBS subsequently enter the fractures filled with bentonite, and are released to the groundwater flowing in a fracture network. Sorption distribution coefficients of americium and neptunium are measured experimentally for various values of redox potential (Eh) in a simulated rock fracture filled with bentonite. With the experimentally-obtained K_d as a function of Eh, we numerically evaluate radionuclide transport in the bentonite-filled fracture.

Release of radionuclides to the circulating water is reduced by radioactive decay while diffusion in the fracture is retarded by sorption and matrix diffusion. For americium, plutonium, and neptunium, if the environment is reducing, the region right next to the EBS including the bentonite filled fractures has special meanings with respect to radionuclide confinement. The region enveloped by the tips of the extruding bentonite must be treated separately. For uranium isotopes and their daughters, mainly because of their long half-lives, such a region has negligible meaning. Furthermore, we performed the uncertainty analysis on performance assessment for artificial barrier by using GA and fuzzy theory.

Work performed by The Faculty of Engineering, The University of Tokyo under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

PNCC Liaison : Isolation System Research Program, Radioactive Waste Management Project, Noriaki Sasaki

※ : The Graduate School of Engineering, The University of Tokyo

目次

1. 緒言	1
1. 1 序	1
1. 2 研究の目的	3
1. 3 研究内容	3
1. 4 研究スケジュール	4
2. 水/ベントナイト系におけるアクチニド元素の吸着挙動の実験	5
2. 1 序	5
2. 2 試料	5
2. 3 実験手順	7
2. 4 実験結果	8
2. 5 結論	8
3. 掘削影響領域における酸化還元フロントの移動を 考慮したシミュレーション解析	13
3. 1 序	13
3. 2 数学モデル	14
3. 3 数値計算	17
3. 3. 1 入力データ	17
3. 3. 2 数値計算結果	18
3. 4 結論	21
4. 人工バリア性能評価における不確実性解析への GA、ファジーの適用	29
4. 1 序	29
4. 2 計算手法	30
4. 2. 1 GAファジー法	30
4. 2. 2 SASCEB code	32
4. 2. 3 人工バリア性能評価における不確実性解析への適用手法	35
4. 3 結果と考察	37
4. 4 結論	40

1. 緒言

1. 1 序

高レベル放射性廃棄物（HLW）地層処分の性能評価を実施するためには、人工バリアならびに天然バリア中におけるアクチニド元素の地球化学的挙動を解明する必要がある。特に近年、アクチニド元素の地球化学的挙動の中でも吸着やコロイド形成とその移行挙動の重要性が指摘されるようになってきた。日本における最近の研究 [1]では次のことが述べられている。ホウケイ酸ガラス廃棄物、炭素鋼オーバーパック、ベントナイトで満たされた緩衝材領域を構成している多重人工バリアは、年摂取限度をはるかに下回り、人工バリアを取り巻く母岩へのほとんどすべての放射性核種の放出が制限できることや、少なくとも100メートルの厚みの母岩であれば、放射性核種の減衰が十分に達成できる。

こうした結果にさらに信頼性を与えるためには、人工バリア近傍の掘削影響母岩領域中での放射性核種の輸送について詳細に検討しなければならない。地球化学的、水理学的、地質力学的な特性は非掘削影響母岩領域とは全く異なっている。

廃棄物設置体では、ベントナイトは乾燥し密になっている。処分場建設のため、元々

存在している亀裂に加えて人工バリア近傍に新たな亀裂を作り出している。ベントナイト緩衝材に交差した亀裂中には地下水で満たされた亀裂ネットワークと連結しているものもあるが、そうでないものもある。

亀裂ネットワークは地下水が充填しているが、これと連結している亀裂を通して、地下水は乾燥したベントナイトに供給される。地下水が毛管作用で吸収された後、ベントナイトは膨潤する。膨潤した結果、余分のベントナイトはベントナイト緩衝材と交差した亀裂中へ入り込み充填する。

亀裂中に充填したベントナイト先端からの地下水の吸収はベントナイトが膨脹するにつれて次第に弱くなっていく。しかし、この吸収はベントナイト全体に行き渡るまで続く。ベントナイト全体が地下水を吸収する頃までには、いわゆる天然バリア内亀裂ネットワークとは連結してはいないが人工バリアに交差している小さな亀裂もまた、膨脹したベントナイトで充填されることになる。

亀裂中のベントナイト充填領域の長さは、天然バリア内亀裂ネットワークと連結する可能性が比較的大きい亀裂開口幅の大きな亀裂に対しては、より長くなるものと考えられる [2]。従って、天然バリアへの放射性核種の放出の観点から、人工バリアを天然バリア内亀裂ネットワークと連結する亀裂開口幅の大きな亀裂については最も重要である。本研究では、放射性核種の閉じ込めの観点から、亀裂中の充填ベントナイトの影響について着目した。

また、これまでの人工バリア内における核種の移行（拡散）に関しては多くの解析結果が報告されてきている。その中には、吸着分配比や溶解度といった核種自体のデータ不確実性を考慮した研究も含まれているが、未だ十分に確立しているとは言い難い。さらなる信頼性のある不確実性解析が必要とされる。

1. 2 研究の目的

人工バリア周辺の掘削影響領域を模擬した実験系で、アクチニド元素の吸着などの相互作用に関する実験を行うとともに、その実験結果を用いて掘削影響領域内における核種移行解析を行うことを目的とする。また、遺伝的アルゴリズムとファジー理論との融合による解析手法を用いて、人工バリア中での核種移行挙動の不確実性解析も行う。

1. 3 研究内容

本研究の内容は以下の通りである。

- (1) 掘削影響領域を模擬した実験系におけるアクチニド元素の吸着挙動を雰囲気制御下で実験的に測定し、酸化還元電位による吸着係数の変化などのデータを取得する
- (2) 実験で得られたデータや文献値を用いて、掘削影響領域における酸化還元フロントの移動を考慮した解析モデルを構築し解析を行う。
- (3) 遺伝的アルゴリズムとファジー理論との融合による解析手法を用いて、人工バリア中での核種移行挙動の不確実性解析を行う。

1. 4 研究スケジュール

本研究は以下のスケジュールにより実施した。

1. 平成7年 9月～平成8年1月

吸着挙動実験

2. 平成7年12月～平成8年2月

核種移行解析

3. 平成8年 3月

報告書作成

2. 水/ベントナイト系におけるアクチニド元素の 吸着挙動の実験

2. 1 序

水/ベントナイト系における放射性核種の吸着挙動を調べるために、亀裂充填ベントナイトを想定した円筒型の実験装置を用いて、種々の酸化還元電位（Eh）に対する、アメリシウム、ネプツニウムの吸着分配係数Kdを測定する。

2. 2 試料

0. 5 M硝酸中の²⁴¹AmをAmer shamから購入した。Am溶液をCMPOを用いて

繰り返し抽出・混合・逆抽出することにより、 1×10^{-8} MのAm母溶液を準備した。こうした手順により、 ^{237}Np のような娘核種を取り除き、 $^{241}\text{Am(III)}$ を精製することができる。

1 M硝酸中の ^{237}Np 溶液はCEAから購入した。Np(IV)溶液を準備するためにまず、Np母溶液を蒸発させ、乾固したNpを1 M塩酸に溶かした。この手順は、硝酸が存在していないことを確認する目的で3回繰り返した。1 M硝酸中のNp(V)イオンを取り除くため、 $\text{NH}_2\text{NH}_2 \cdot \text{HCl}$ を加えて熱した。Npの酸化状態は4価であることが分光分析により確認された。Np(IV)母溶液の濃度は 1×10^{-5} Mであった。一方、Np(V)溶液はNp(IV)、Np(VI)、 ^{233}Pa のような不純物を取り除くために、Np母溶液をCMPOを用いて繰り返し抽出することにより準備した。

クニミネ工業(株)で製のナトリウムベントナイト、Kunigel V1を本研究で使用した。他の全ての化学物質は等級試薬を用いた(ワコー純粋化学工業(株))。蒸留水は二度の蒸留操作で作成しさらにと使用直前に2 nm限外フィルタを使って(Molecut UFP1, Millipore)限外濾過した。

吸着セルはコンパクト化されたベントナイト(0.8 g/cm^3)を2つの円筒形の花崗岩(直径20 mm, 高さ20 mm)の試料により両端からゆるく挟み込むことによって準備した。ベントナイト層の厚みは0.3 mmであった。

2. 3 実験手順

Am溶液またはNp溶液を少量，母溶液（2 nm）の限外濾過を行った後すぐに，ベントナイト吸着セルへ添加した。CO₂フリーの，NaOH，HClを加えることによってpHを9に調節した。AmとNpの濃度は，それぞれ 1×10^{-9} Mと 1×10^{-8} Mであった。これらの濃度であれば，AmとNpの溶解度以下となり，吸着比を決定する際の，沈殿により生じる誤差を防ぐことができる [3][4]。

AmとNp(V)を使用した実験では，Ehはヒドラジンを加えることによって，酸化性（+200 mV）から還元性（-100 mV）までの条件に変化させた。Np(IV)が使用された他の実験では，Ehは還元性（-100 mV）から酸化性（0 mV）まで変化させた。pHとEhは，pH緩衝溶液により較正されて組立ガラス電極（ROSS型，オリオン社）と，白金電極（97-78型，オリオン社）により測定した。

吸着平衡（Amに対しては一週間，Npに対しては二週間）になった後，ベントナイト試料を遠心分離し，pHを測定した。上澄みからサンプルを採り，2 nmの限外フィルタにより限外濾過した。その後，限外フィルタ内のAmとNpの放射能をガスフローカウンタやウェル型Geカウンタによって測定した。溶液に添加した初期放射能強度と限外濾過後の放射能強度から，AmとNpの吸着分配係数Kdを計算した。管壁のAmやNpの吸着もまた，LieserとHillの実験手法 [5]に従い測定し，吸着分配係数の計算にあたって考慮した。

実験は窒素で満たした不活性気体中で行い。温度は 25 ± 0.5 °C。全ての試料は暗室で保管した。

2. 4 実験結果

実験結果は酸化還元電位の関数としてTable 2.1 にまとめた。Kunigel V1 のAmの吸着分配係数はおよそ、 6.5×10^3 ml/gであった。これは、OECD/NEAの吸着データベース (SDB) [6]における範囲内に存在している。

還元性の状態 (-100 mVから0 mVまでの間) において、Kunigel V1 のNp(IV)の吸着分配係数はほぼ、 6×10^4 ml/gとなっていた。これは、Pratopo等によって得られた結果 [7]と一致している。酸化性条件において、Np(V)の吸着分配係数は30から100 ml/g程であった。

2. 5 結論

AmとNpの酸化還元電位 (Eh) を変化させたときの、吸着分配係数 (Kd) を実験により測定した結果、AmはEh依存性がみられないことに対して、Npは還元性条件で 6×10^4 ml/gという高いKd値を示すことが確認された。一方、酸化性条件では、30から100 ml/gの値を示した。これは、既往の研究と定性的に一致するものであった。

• Am (aerobic to anaerobic)

Eh(mV)	194	149	88	62	-11	-49	-94
Kd(ml/g)	6.8×10^3	6.3×10^3	6.9×10^3	6.5×10^3	7.0×10^3	6.4×10^3	6.5×10^3

• Np (aerobic to anaerobic)

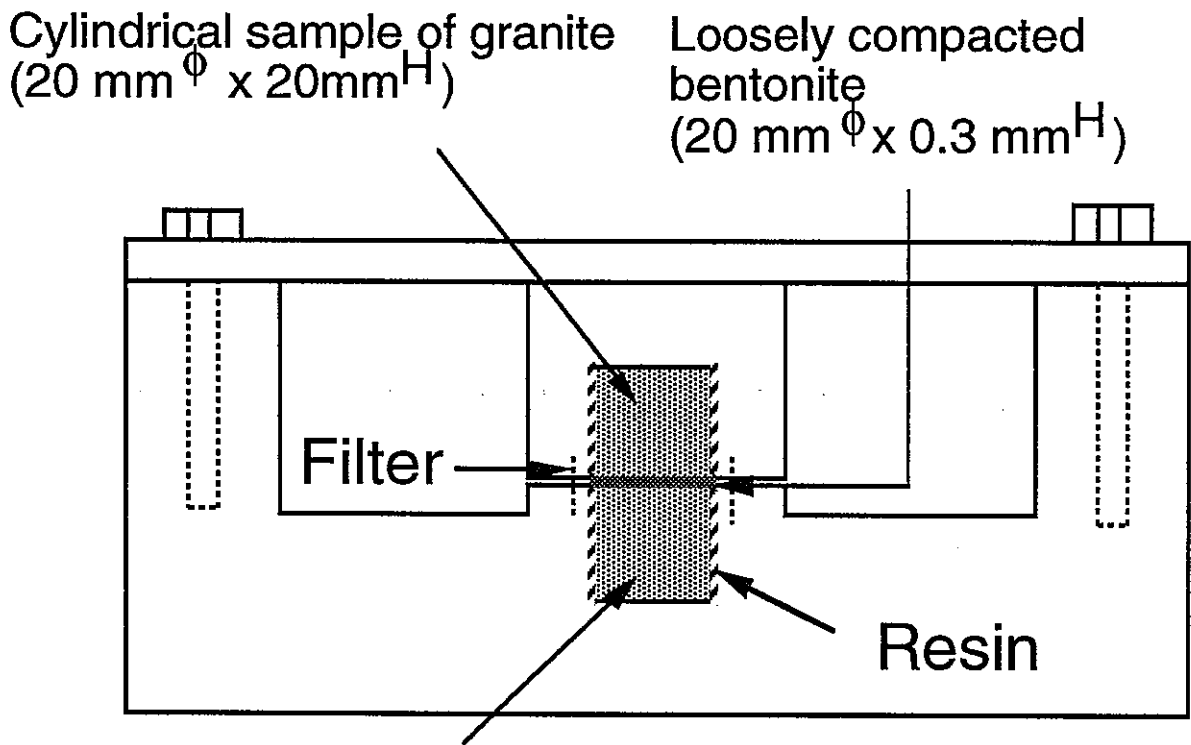
Eh(mV)	203	161	117	103	77	54	21
Kd(ml/g)	2.7×10^1	3.2×10^1	3.0×10^1	3.5×10^1	2.0×10^2	1.5×10^4	4.3×10^4

Eh(mV)	8	-25	-66	-105
Kd(ml/g)	4.0×10^4	6.0×10^4	7.2×10^4	6.1×10^4

• Np (Anaerobic to aerobic)

Eh(mV)	-89	-51	-34	-7
Kd(ml/g)	6.0×10^4	7.0×10^4	6.1×10^4	6.9×10^4

Table 2.1 実験によって得られたAmとNpの吸着分配係数



Cylindrical sample of granite
(20 mm ϕ x 20mmH)

Fig. 2.1 吸着実験用セル

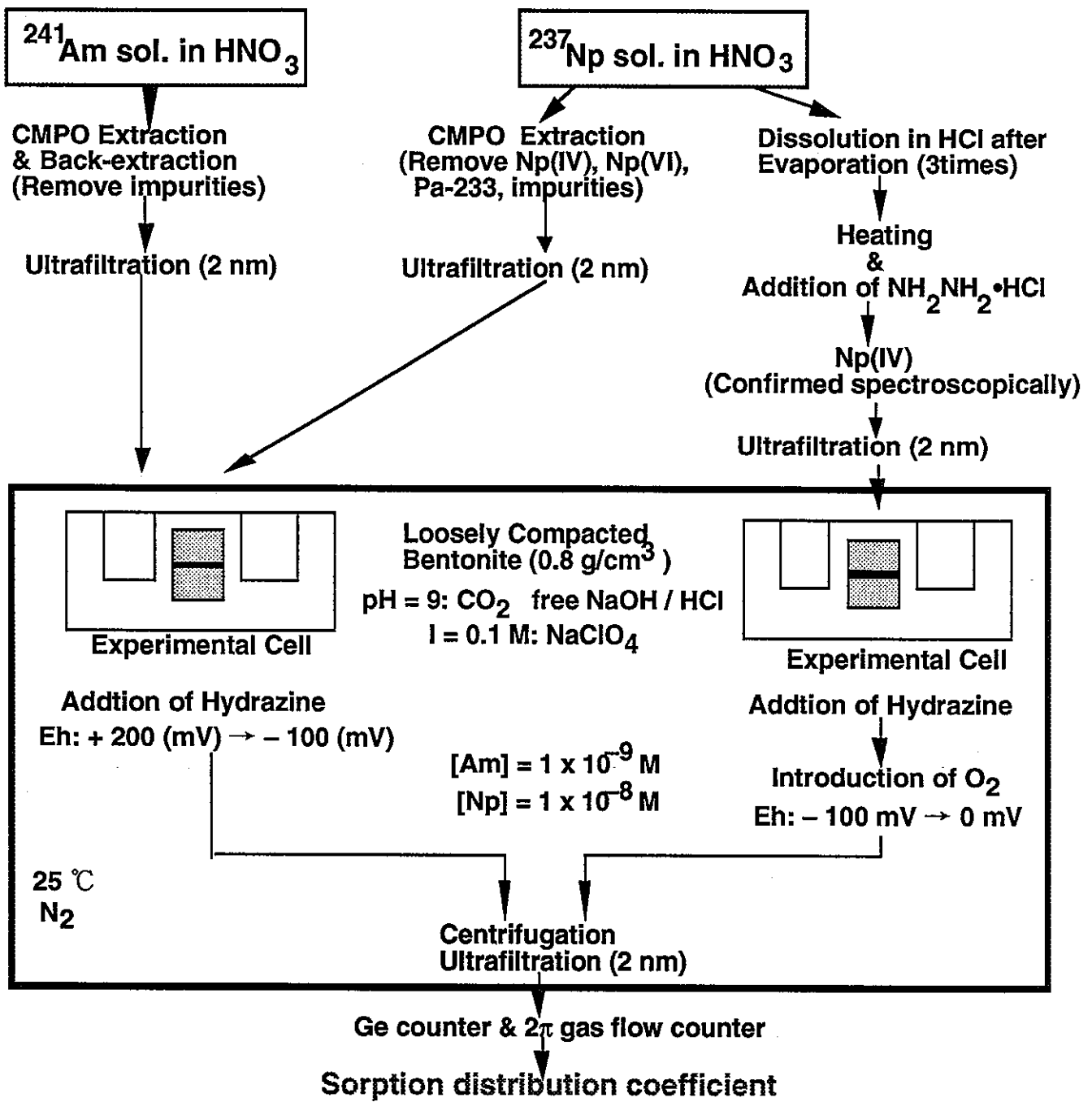


Fig. 2.2 実験手順

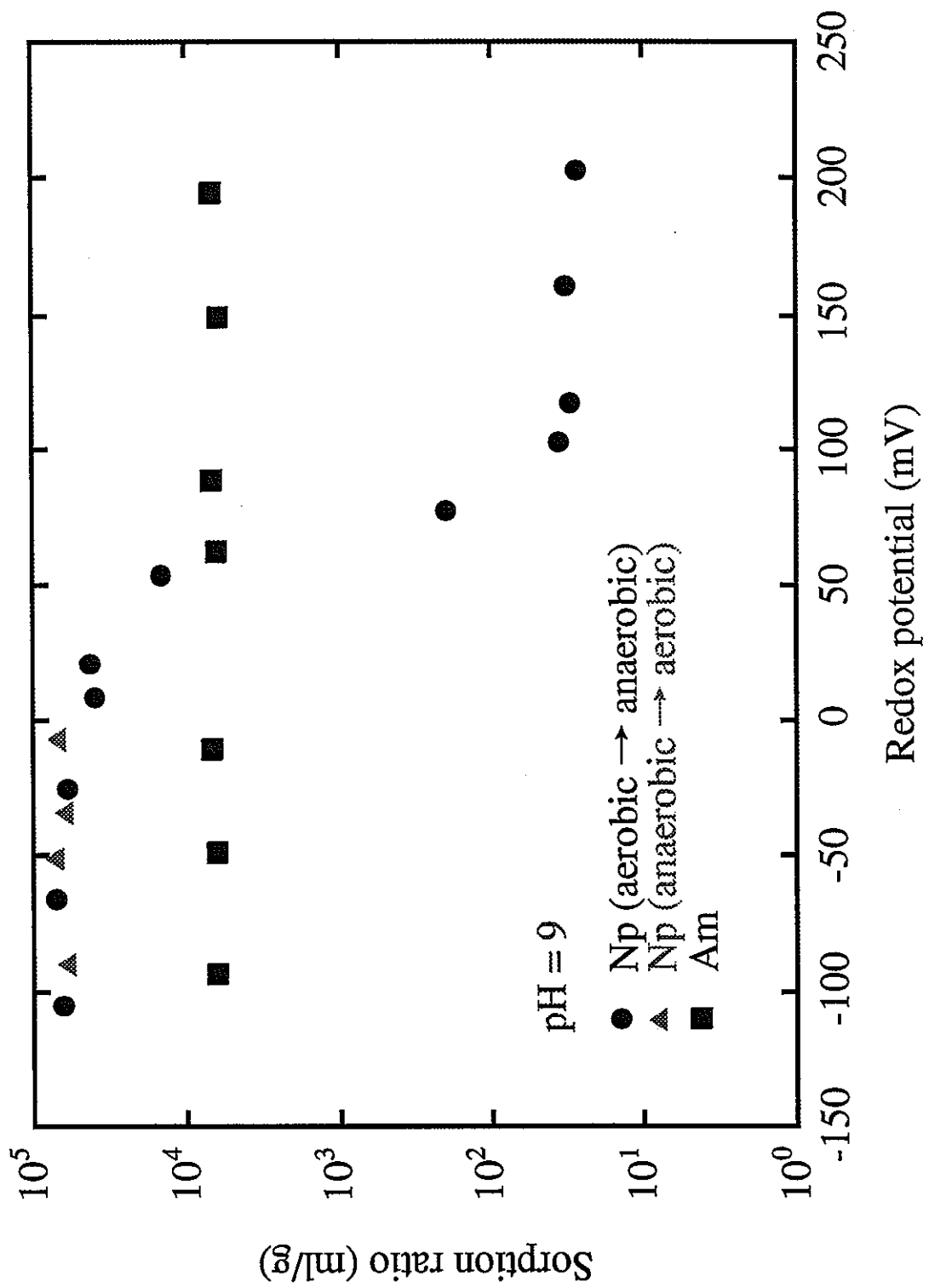


Fig. 2.3 NpとAmの吸着比の酸化還元
電位Eh依存性

3. 掘削影響領域における酸化還元フロントの移動を考慮したシミュレーション解析

3. 1 序

ベントナイト充填亀裂の核種減衰機能を調べるために、ベントナイトが充填された亀裂のモデル化を行った。解析では、減衰率 = (出口から放出される核種の総量) / (入口から供給される核種の総量) を定義することにより、これを計算することにした。その際、Thiele数、Sherwood数、Fourier数、規格化された岩盤中の拡散係数、規格化された亀裂開口幅等のパラメータを用いた。計算結果は、実際の放射性核種の挙動と比較することにより、亀裂充填ベントナイトのバリア効果についての検討を加えた。

またNpの放出は亀裂充填ベントナイトの酸化還元依存性についても調べた。

3. 2 数学モデル

人工バリアやそれを取り巻く掘削影響領域 (Figure 3.1) に対して次のような体系を考えることにする。数値解法を扱い易くするためには、平行平板体系が考えられるが、K a n g [7]が示したように、体系のいかんによっては、解析結果に幾らかの影響を及ぼすことになる。そこで、本研究では次のように仮定することにする。放射性核種は人工バリア中心に設置された廃棄体から放出されている。ここではベントナイトは廃棄体を取り巻いている。開口幅 $2\hat{b}$ の平行平板亀裂は隣接する亀裂までの距離 $2\hat{d}$ の間隔でベントナイト緩衝材層に直角に交差している。隣り合う亀裂間は母岩のマトリックスで満たされている。岩盤マトリックスは ϵ_p の空隙率を有している。また、隣り合う亀裂間に存在しているが、地下水流に連結していない小さな亀裂のその全ては岩盤マトリックスに含まれている。亀裂内には亀裂入口から距離 \hat{L} までベントナイトで充填されている。 \hat{L} は時間に対して一定であるとする。

廃棄体から放出された放射性核種はベントナイト全体に拡散する。岩盤マトリックスは、亀裂充填ベントナイトよりもはるかに空隙率が小さく屈曲しているため、岩盤マトリックス中の拡散は、亀裂充填ベントナイトの場合よりも小さくなると考えられている。人工バリア中のベントナイトの放射性核種は、ろうとのように作用する亀裂入口へ引きこまれ、亀裂充填ベントナイト中を拡散する。亀裂からのマトリックス拡散も考慮されている。亀裂中のベントナイト充填領域の先端から、放射性核種は亀裂中の地下水流中に放出される。

ベントナイトが充填した亀裂の役割を調べるために、次のことを仮定した。亀裂入口での境界条件は時刻、 \hat{t}_1 と \hat{t}_2 との間で一定濃度として簡単化されている (Figure 3.1

)。時刻 t_1 は人工バリア中の拡散による遅れ時間を表している。また、 $\hat{t}_2 - \hat{t}_1$ は放射性核種の人工バリアからの放出時間を表している。亀裂中のベントナイト充填領域の先端における境界条件に対して、物質移動係数を仮定する。

亀裂充填ベントナイトを通過する際の物質輸送に対する支配方程式が以下のように記述される。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - \Lambda C - \frac{q}{b}, 0 < x < 1, t > 0 \quad (1a)$$

$$\frac{\partial C_p}{\partial t} = \Delta \frac{\partial^2 C_p}{\partial y^2} - \Lambda C_p, 0 < x < 1, 0 < y < 1, t > 0 \quad (1b)$$

以下を境界条件とする。

$$C(x, 0) = 0, 0 < x < 1 \quad (2a)$$

$$C_p(x, y, 0) = 0, 0 < x < 1, 0 < y < 1 \quad (2b)$$

$$C(0, t) = C_{av}(t), t > 0 \quad (2c)$$

$$-\frac{\partial C}{\partial x} \Big|_{x=1} = 0, 0 < x < 1, t > 0 \quad (2d)$$

$$C_p(x, 0, t) = C(x, t), \quad 0 < x < 1, \quad t > 0 \quad (2e)$$

$$\left. \frac{\partial C_p}{\partial y} \right|_{y=1} = 0, \quad 0 < x < 1, \quad t > 0 \quad (2f)$$

ここで,

$$q = -\varepsilon_p \left. \frac{\partial C_p}{\partial y} \right|_{y=0}, \quad 0 < x < 1, \quad t > 0 \quad (3)$$

$$x = \frac{\hat{x}}{\hat{L}}, \quad y = \frac{\hat{y}}{\hat{d}}, \quad t = \frac{\hat{D}\hat{t}}{\hat{L}^2 R}, \quad C = \frac{\hat{C}}{\bar{C}}, \quad C_p = \frac{\hat{C}_p}{\bar{C}} \quad \text{であり,} \quad (4a)$$

$$\Lambda = \frac{\hat{\lambda}\hat{L}^2 R}{\hat{D}}, \quad \Delta = \frac{\hat{D}_p R \hat{L}^2}{\hat{D} R_p \hat{d}^2}, \quad b = \frac{\hat{D}\hat{b}\hat{d}}{\hat{D}_p \hat{L}^2}, \quad Sh = \frac{\hat{h}\hat{L}}{\varepsilon \hat{D}}, \quad t_1 = \frac{\hat{D}\hat{t}_1}{\hat{L}^2 R}, \quad t_2 = \frac{\hat{D}\hat{t}_2}{\hat{L}^2 R} \quad (4b)$$

である。

\hat{C} は亀裂充填ベントナイトの水相中での放射性核種の濃度である。 \hat{C}_p は岩盤マトリックスでの濃度である。 \bar{C} は \hat{t}_1 と \hat{t}_2 との間の人工バリア析出濃度である。 \hat{D} と \hat{D}_p は、それぞれ亀裂充填ベントナイト中及び岩盤マトリックス中での放射性核種の拡散係数である。 R と R_p は、それぞれ亀裂充填ベントナイト中及び岩盤マトリックス中

での遅延係数である。 \hat{h} は亀裂中のベントナイト充填領域の先端での物質移動係数である。 $\hat{\lambda}$ は放射性核種の崩壊定数である。 ϵ は亀裂充填ベントナイトの空隙率である。 Λ とShは、それぞれThiele数及びSherwood数と呼ばれている。

Δ は岩盤マトリックス中の規格化された拡散係数である。 $\Delta > 1$ は次の2通りに解釈される。すなわち、岩盤マトリックス中での拡散が亀裂充填ベントナイトでの拡散に比べて速いか、または亀裂空間 \hat{L} は、亀裂充填ベントナイトの広がり程度と比較して比較的小さいかのどちらかである。どちらか一方の場合において、隣り合う2つの亀裂間の岩盤マトリックスにおける水相での放射性核種の濃度はほとんど一定になっている。 $\Delta < 1$ の場合は、岩盤マトリックスでのマトリックス拡散による浸出は亀裂壁の近傍に限定される。

亀裂充填ベントナイトのバリア効果を表すために、亀裂入口から、亀裂充填ベントナイトに入り込む放射性核種全体の量に対する、先端での放出量の割合として、減衰率が定義されている。

上記で定義された問題は解析的に解くことができ、逆ラプラス変換により数値的に解かれる。

3. 3 数値計算

3. 3. 1 入力データ

Table 3.1 に代表的なパラメータ値が示されている。母岩の空隙率 (0. 0 1) と密度 (2. 6 g/cm³) に対して選ばれた値は花崗岩に対しては代表値であると考えられ

ている。拡散係数は、自由水の拡散係数が概ね $10^{-5} \text{ cm}^2/\text{sec}$ であることをまず考慮し、亀裂充填ベントナイトとベントナイト周辺の花崗岩に対してそれぞれ0.1, 及び0.001のtortuosityを掛け合わせるによって決定した。亀裂充填ベントナイトの密度、亀裂空間、亀裂の大きさ、亀裂中のベントナイト充填領域の長さに対する値はPuschの論文[2]から選択した。

これらの代表値より、無次元化された亀裂幅の大きさ b は0.15として計算した。亀裂幅が大きければ、ベントナイトは亀裂中をより遠くまで侵入できるが、多くの場合無次元化された亀裂幅 b はこの程度の範囲になると思われる。

Sherwood数はこれまでの解析から見積もられた。ここでは、Peclet数とSherwood数との間の関係が得られている[8]。代表的な処分場条件（Peclet数は1から100までの値）より、Sherwood数は0.03と1との間を範囲とした。

Table 3.2では、放射性核種データがまとめられている。アメリカシウムやネプツニウムの吸着分配係数は実験結果に基づいている。ネプツニウムに対しては、還元性や酸性条件に対する値が記載されている。母岩に対するアメリカシウムとネプツニウムの吸着分配係数は凡その見積もりとして、ベントナイトに対するものと同程度であると仮定されている。プルトニウムに対する値はAhn等の論文[9]に基づいている。特に重要なことは、無次元化された拡散係数 Δ は重要な放射性核種に対しては 1.8×10^{-5} となることである。

3.3.2 数値計算結果

Figure 3.2は、亀裂先端における規格化されたマスフラックスを、Fourier数の関数

として示した結果である。亀裂入口では、Fourier数が 10^{-2} から 10^3 までの間、放射性核種が供給されている。様々なThiele数に対して7つの曲線が描かれている。それぞれのカーブの形状から、亀裂先端でのマスフラックスがFourier数0.04から増加し始めることがわかる。 10^{-2} より小さいThiele数に対しては、尾を引いた形が得られるが、このことから次のことがわかる。もしも放射性崩壊による減衰速度が遅ければ、寿命が長いため岩盤マトリックスへ一度拡散した放射性核種は、入口境界での濃度がFourier数 10^3 で零になったのち、再び亀裂へ戻ってくるため尾を引いている。一方、放射性崩壊による減衰が速い放射性核種に対しては、マトリックス拡散が有意になる前に崩壊するためマトリックス拡散は無視でき、尾を引いた形は取らない。

拡散による岩盤マトリックスへの浸出はFigure 3.3 で描かれている。 ^{243}Am (Thiele数=8.12)の崩壊速度は、亀裂から岩盤マトリックスへの拡散と比較して速い。マトリックス拡散による拡散幅は亀裂空間の100分の1よりも小さい。その一方で、Thiele数の小さい ^{237}Np は亀裂空間の10分の1にまで拡散していることがわかる。

Figure 3.4 では亀裂中のベントナイト充填領域におけるバリアとしての効果が示されている。ベントナイト充填領域の外側では、地下水による物質移動が速い場合、すなわち、Sherwood数が大きい場合、より多くの放射性核種は外側領域へ向けて放出される。したがって、減衰率は大きくなる。一方、Thiele数に対してはThiele数が大きいほど減衰率が大きくなる。その理由は放射性核種が生き残り亀裂先端で放出されるまでの間に、崩壊によって減衰するからである。Figure 3.4において、減衰率は10よりも大きいSherwood数に対しては、ほぼ一定となる。このことから、亀裂における物質輸

送過程が先端における速度律速過程になる程、亀裂での物質輸送は速くなっている。

Figure 3.5より、アメリシウムに対しては、Sherwood数の全範囲にわたり減衰率は極めて小さなものとなっている。ペントナイト充填領域であれば、アメリシウムは完全に崩壊してしまう。 ^{243}Am と ^{241}Am は、それぞれ ^{239}Pu と ^{237}Np に崩壊する。人工バリア内でのアメリシウムとプルトニウムの拡散についてのこれまでの解析の結果から、亀裂入口に到達したアメリシウムは、プルトニウムよりも既に2桁小さな量に減衰している。このことから、 ^{243}Am の ^{239}Pu への崩壊は ^{239}Pu に対する減衰率を増加させることにはならないと思われる。廃棄物ガラス固化体中の ^{237}Np のインベントリは ^{241}Am よりも凡そ20倍大きいものである。 ^{241}Am の半減期は ^{237}Np よりもはるかに小さい。それゆえ、両方の放射性核種が亀裂入口に到達するまでに、 ^{241}Am の大部分が既に ^{237}Np に崩壊している。このように、亀裂中での ^{241}Am の崩壊は ^{237}Np の減衰率を増加させることにはならないと思われる。

プルトニウムの減衰率に対しては、Sherwood数が 10^{-2} から1までの範囲において、 10^{-4} から 10^{-1} の間の値をとる。この時のSherwood数は、代表的な処分場条件である。

^{237}Np に対しては、2つの場合すなわち酸化性と還元性が考えられる。もし、環境が還元性ならば、減衰率は 10^{-2} のオーダー内に存在している。亀裂に入り込んでいる

^{237}Np の約1パーセントしか亀裂先端から放出されないことがわかる。

3. 4 結論

ベントナイト充填亀裂の核種減衰機能を表すため、減衰率 = (出口から放出される核種の総量) / (入口から供給される核種の総量) を定義し、計算した結果、Thiele数が1で、Sherwood数が1の時、およそ100分の1程度の減衰になることがわかった。この結果を実際の放射性核種のThiele数に照らし合わせてみると、Am, Cm, Puは、この領域でほぼ無視できるレベルまで減衰することがわかった。その結果、Am, Cm, Puの放出は、亀裂充填ベントナイトにより、十分抑制されると考えられる。

Npは還元性と酸化性とは減衰率が大きく異なっている、環境が還元性を維持していれば、Npの放出は十分抑制される。

以上より、ここで得られたThiele数 / Sherwood数 / 減衰率の関係から、亀裂充填ベントナイト中から天然バリア内亀裂ネットワークへの物質輸送に対してはウランの同位体と娘核種の移行にも影響がないことが予想される。

Parameter	Nomenclature	Value
Porosity of extruding bentonite	ε	0.3
Porosity of rock matrix	ε_p	0.01
Diffusion coefficient in extruding bentonite	\hat{D}	10^{-6} cm ² /sec
Diffusion coefficient in rock matrix	\hat{D}_p	10^{-8} cm ² /sec
Half spacing between two fractures	\hat{d}	30 cm
Bentonite extrusion distance	\hat{L}	10 cm
Half aperture of fracture	\hat{b}	0.1 mm
Density of extruding bentonite	$\hat{\rho}$	1.8 g/cm ³
Density of rock matrix	$\hat{\rho}_p$	2.6 g/cm ³
Normalized aperture	b	0.15
Sherwood number	Sh	0.03 ~ 1

Table 3.1 数値計算で用いたパラメータ

	Inventory in waste glass * (mol)	Half life (sec)	Sorption distribu- tion co- efficient (ml/g)	Retarda- tion fact- or in fracture, R ‡	Retarda- tion fact- or in rock matrix, R_p §	Thiele modulus, Λ	Normali- zed diff- usion co- efficient, Δ
^{243}Am	0.486	2.33 E11	6.5 E3	2.7 E4	1.7 E6	8.1	1.8 E-5
^{241}Am	0.282	1.37 E10	6.5 E3	2.7 E4	1.7 E6	1.4 E2	1.8 E-5
^{237}Np (red)	4.02	6.75 E13	6.0 E4	2.5 E5	1.5 E7	0.259	1.8 E-5
^{237}Np (oxy)	4.02	6.75 E13	3.0 E1	1.3 E2	7.7 E3	1.3 E-4	1.8 E-5
^{242}Pu	0.0180	1.22 E13	6.6 E2	2.8 E3	1.7 E5	1.6 E-2	1.8 E-5
^{240}Pu	0.200	2.06 E11	6.6 E2	2.8 E3	1.7 E5	0.93	1.8 E-5
^{239}Pu	0.254	7.60 E11	6.6 E2	2.8 E3	1.7 E5	0.25	1.8 E-5

$$\ddagger R = 1 + Kd \bar{\rho} (1-\epsilon)/\epsilon$$

$$\S R_p = 1 + Kd \bar{\rho}_p (1-\epsilon_p)/\epsilon_p$$

* From Ahn, et al. (1995). Per ton of spent fuel.

Table 3.2 各核種の設定値

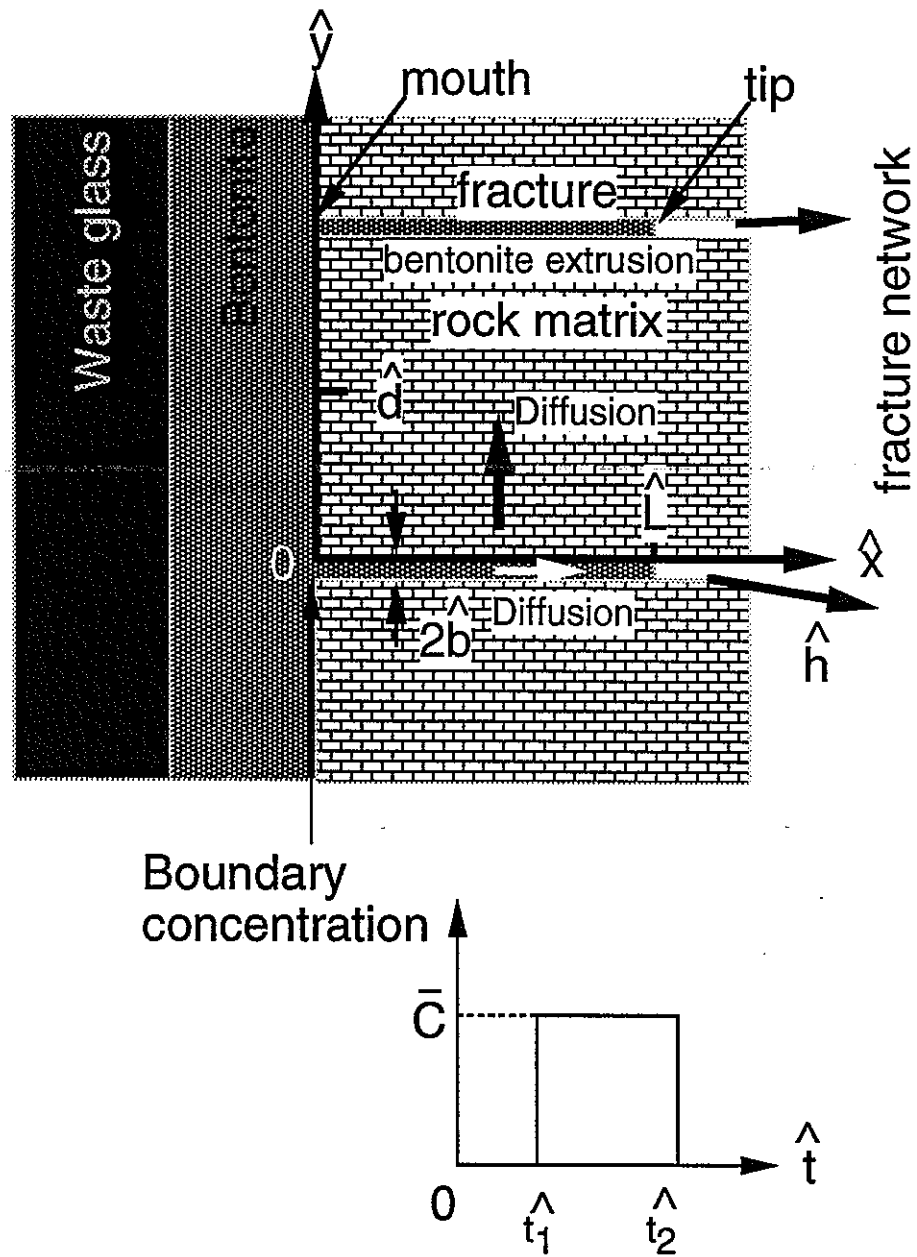


Fig. 3.1 掘削影響領域における放射性核種の拡散現象に対するモデル体系

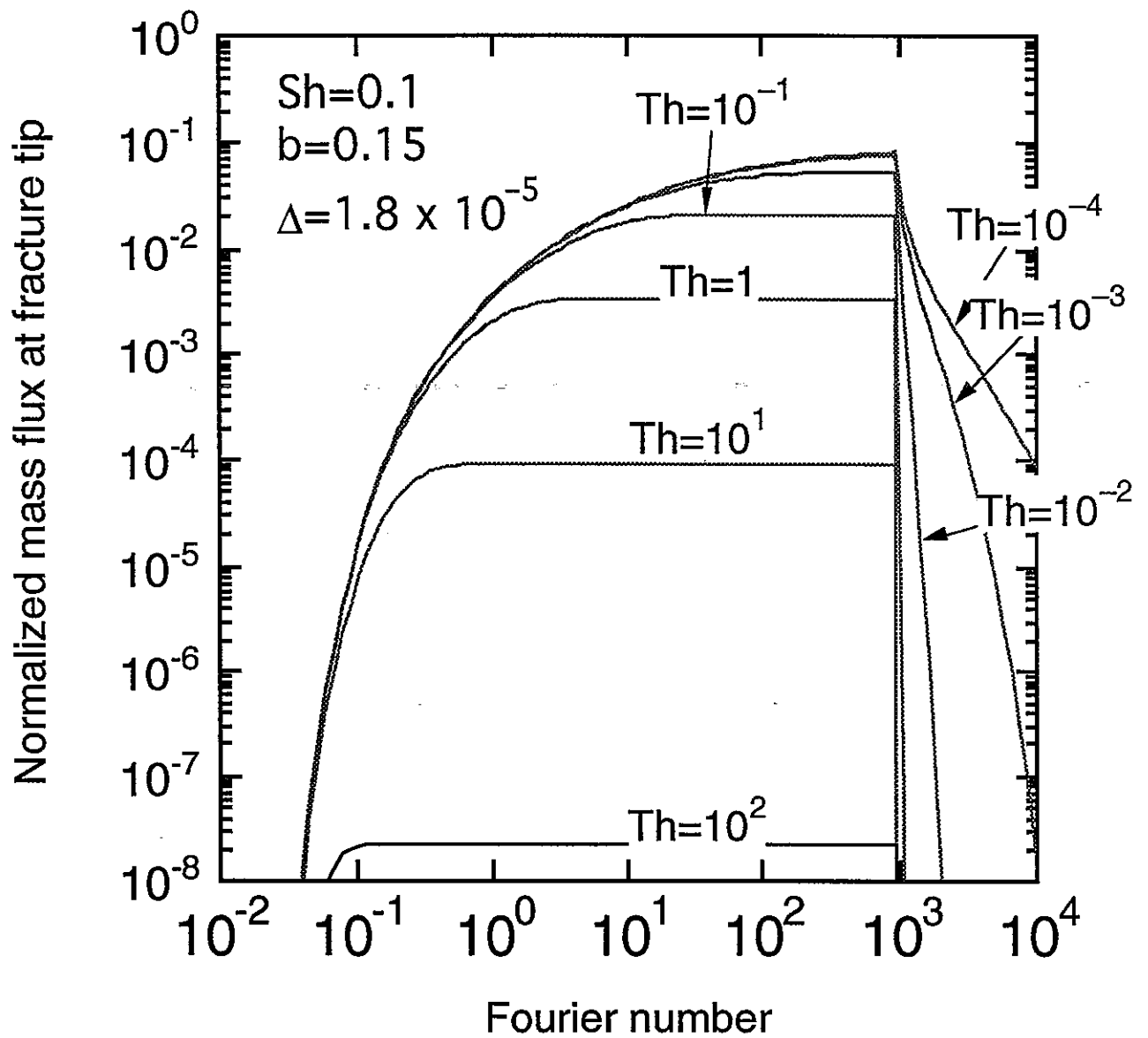


Fig. 3.2 亀裂中のベントナイト充填領域先端
におけるマスフラックス

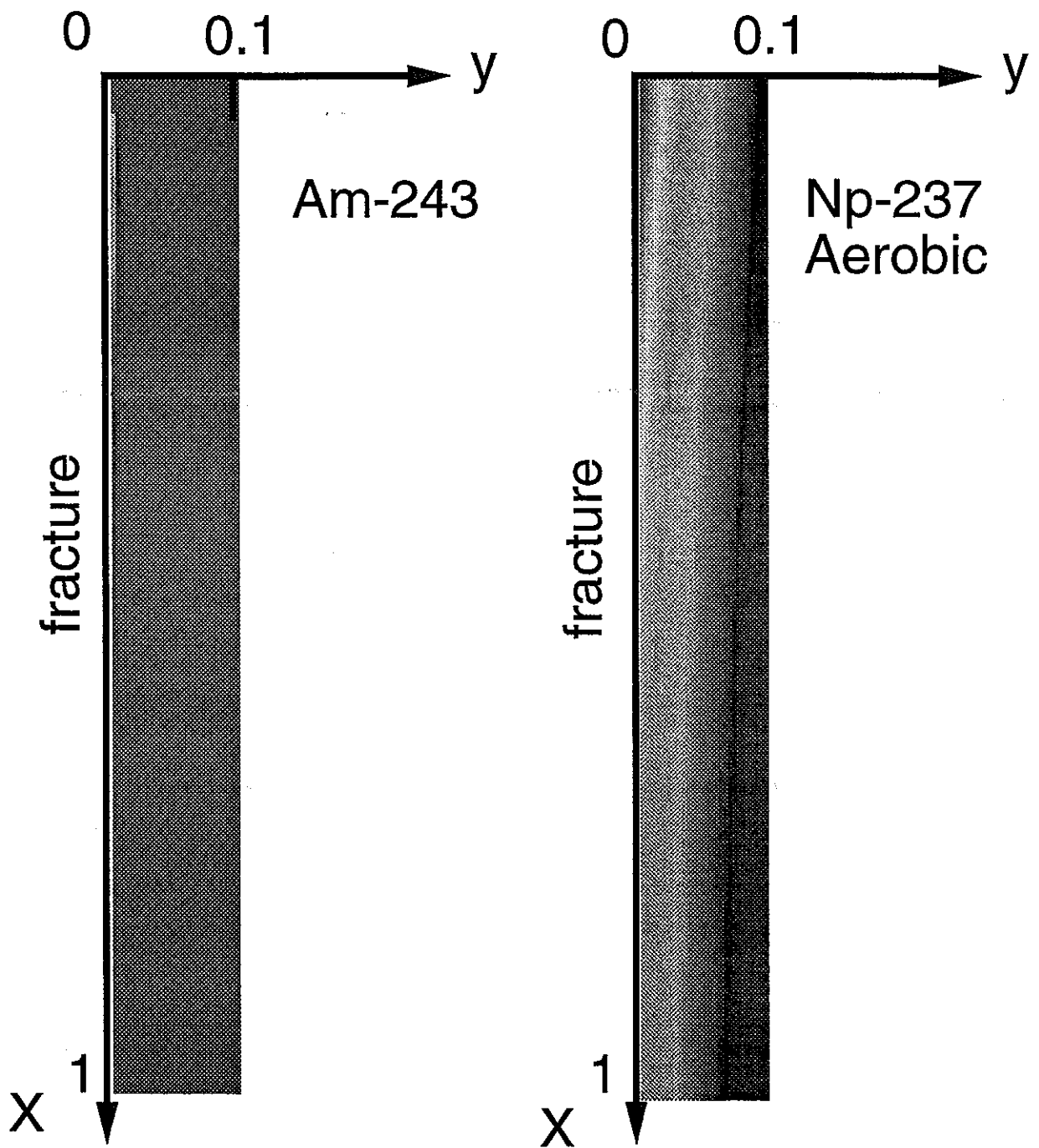


Fig. 3.3 放射性核種の濃度分布

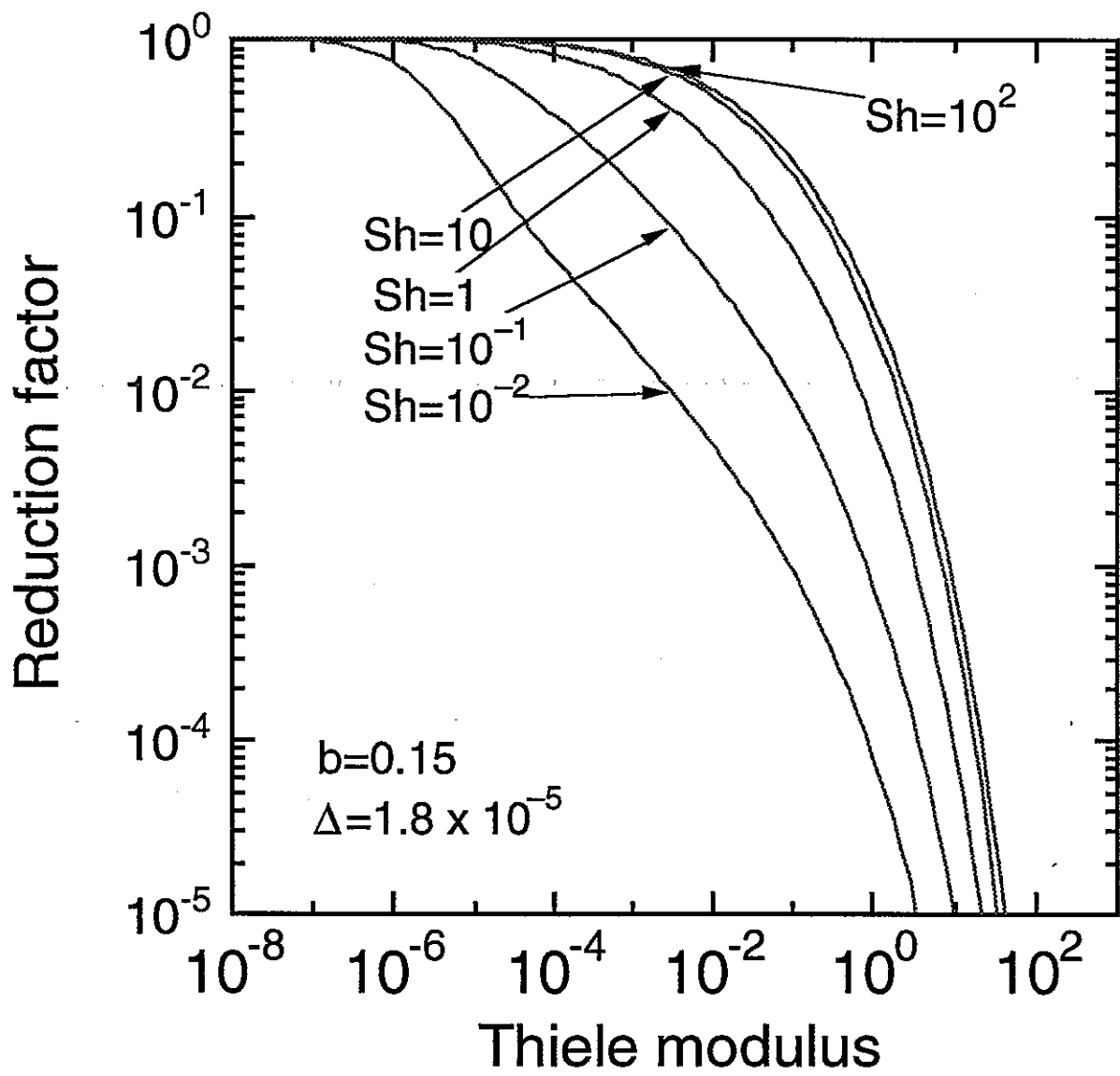


Fig. 3.4 減衰率のThiele数依存性

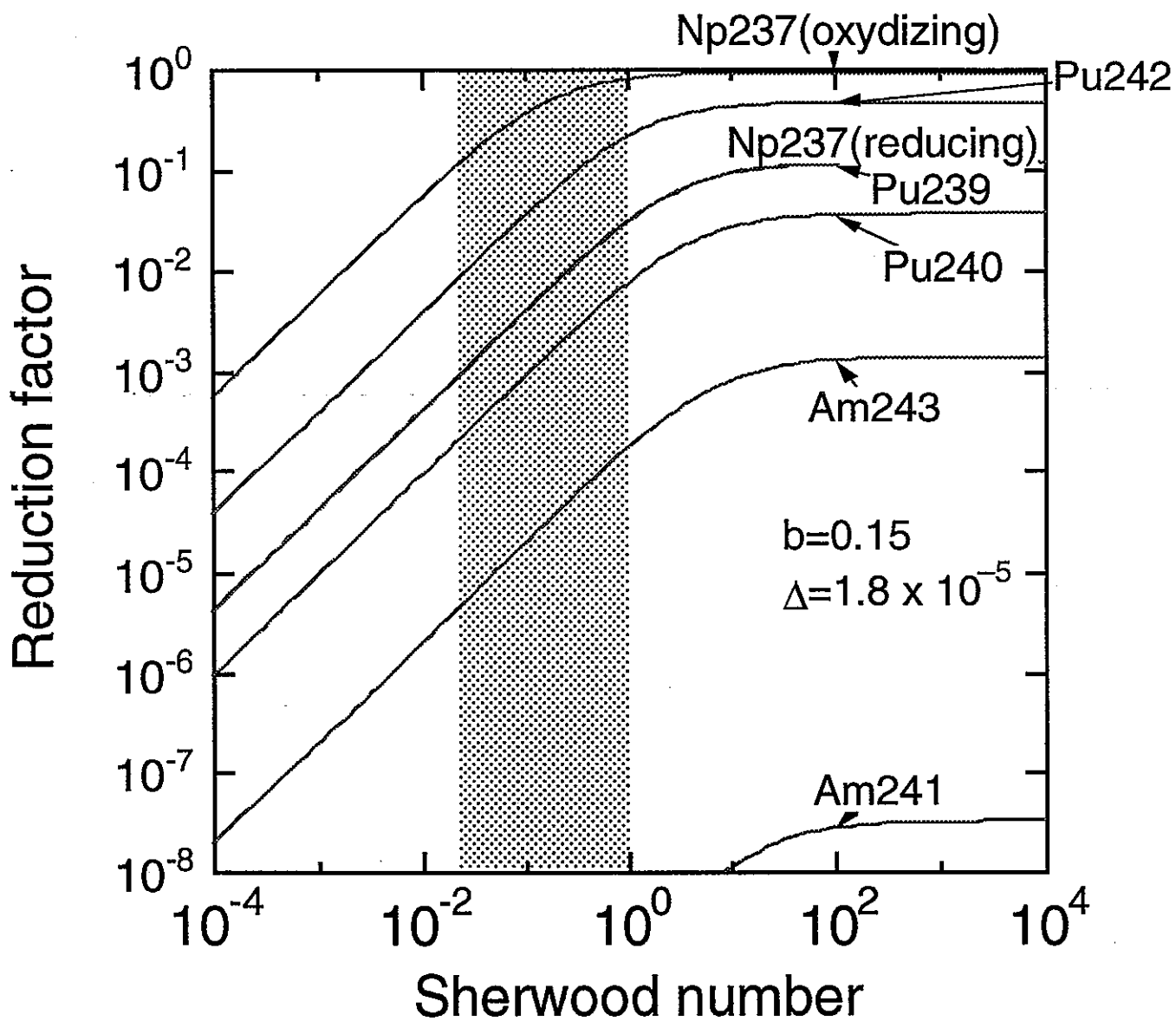


Fig. 3.5 減衰率のSherwood数依存性

4. 人工バリア性能評価における不確実性解析への GA、ファジーの適用

4. 1 序

高レベル放射性廃棄物(HLW)の処分法として、地下数百メートル以深に埋設する方法が、我が国や欧米諸国において有望と考えられ精力的にその安全評価が進められてきた。1990年代に入り、それまでに蓄積した地球化学的な知見、水理学的知見、地質学的知見などを結集して総合的な安全評価が各国において行われ、その結果が次々に発表されている。また、各国の成果 [10,11,12]をもとにした議論の結果、地層の安定性、水理学的安定性、地球化学的環境条件の適合の3つが安全確保の上で重要なファクタであるという共通の理解が得られるようになった。

廃棄物処分においては、核種の地球化学的挙動は複雑であり、各挙動を記述する熱力学的データの値は不確かであって、数万年を越える長期的な核種移行の予測評価には不確実性を伴う。従来の決定論的解析においては、その不確実性を伴う各パラメータに対

して保守的な値を用いることが多く、合理的な処分システムを構築するためには不確実性を持つ各データがシステムにどのような影響を与えるかを把握し、その不確実性を少なくすることが望まれている。

我が国のHLW処分としては、使用済み燃料を再処理しガラス固化体として地下数百メートル以深に埋設することが考えられている。その放射性核種の移行解析を行う際に、埋設するガラス固化体とオーバーパック、ベントナイト緩衝材においては人間の手が介在でき、天然バリアと比較してある程度不確実性を取り扱える。

不確実性解析においてこれまではモンテカルロ法等の確率的解析が行われてきた。本研究において提唱するGAとファジー理論を用いた手法では、既存の手法に比べて人間の主観的確率の組み込みや十分な入力分布の取り込みに対して有効であることが期待される。そこで、GAとファジー理論とを組み合わせることにより人工バリア性能評価における不確実性解析を行った。

4. 2 計算手法

4. 2. 1 GAファジー法

Fig. 4.1のようないくつかの入力に対して、出力が与えられるあるシステムに対し、GAはこれらの入力がある範囲で動くときの出力の最大値、最小値を求めるといような感度解析能力はあるが、入りに分布を持たせたときの出力の分布を計算することはできない。そこで分布を取り扱うことが出来るようにするために、ファジー理論 [13,14] を取り入れることにする。ここで採用するのはファジー推論のMin-Max原理 [15,16] である。ファジーでは、帰属度関数で分布を表すがその意味は、従来の確率分布とは違い、可能性を表している。よく使われる説明では、毎朝いくつ卵を食べたいかが可能性で、毎朝いくつ卵を食べるかが確率であるといわれる。ともに0から1の値で表されるが、

可能性と確率には直接関係はない [17]。つまり可能性が高いからといって確率が高いとは限らず、逆に確率が低いからといって可能性が低いとも限らない。

ただpossibility-probability consistency principle という法則があり、不可能な出来事については、可能性でも確率でも、ありそうもないように表されるという弱い関係がある。可能性は未知のデータを取り扱うのに対して、確率は既知のデータを取り扱うが、世の中の物は未知のものが多く、このようなものに対して可能性を使用する機会が多いと考えられる。以下に本研究で用いているGAファジー法について、Fig. 4.1のシステムを用いて具体的に説明する。

まず、ファジー理論の関数である帰属度関数（メンバーシップ関数とも言う）を各入力変数 X_1 、 X_2 、 X_3 について設定する。出力がある値 Y_1 となる入力パラメータの組み合わせがいくつがある際に、その各入力パラメータのセットについて、先に定義した帰属度関数をもとに帰属度を求め、そのセット内での最小の帰属度を求める。これを各セット毎に行い、各セットの最小値を求め、その中で最大の値を出力値 Y_1 の帰属度とする（Min-Max原理）が、入力パラメータの組み合わせの量が膨大である場合に計算が困難となる。そこで、GAを使って、このような Y_1 の帰属度を最大にする入力パラメータの組み合わせを探索する。GAは、すべての点を探索するランダムサーチに比べて大幅に計算時間が短縮され、また評価関数の値のみを使用するので、システムが非線形で評価関数の値が求められない際にも対応でき、多変数多峰形システムとなっても求めることができる。この計算を、様々な出力値に対して行い、出力の帰属度分布を算出する。このような手法により、入力パラメータが分布を持つときの出力の分布を可能性で表すことができる。

4. 2. 2 SASCEB code

放射性核種のガラス固化体からの放出と人工バリア内部での移行を評価する計算コードであり、わが国のHLW処分場として予想される条件を念頭に置き評価されている[18]。まず、OECD/NEA Sorption Data Baseに基づく保守的な収着分配係数を設定し、地球化学反応解析コードによるベントナイト緩衝材間隙水中での放射性核種の溶解度の評価を行っている。そして、物質移動論の基づくガラス固化体溶解解析と各放射性核種のガラス固化体からの放出モードの決定し、多核種崩壊連鎖と溶解度の同位体分配を考慮した人工バリア内の核種移行解析を行っている。

本研究では廃棄物として、濃縮度4.5%、比出力38MW/MtU、燃焼度45000 MWd/Mt のPWR使用済み燃料1tを4年間冷却の後再処理して発生するHLWが1個のガラス固化体になるとしている。再処理段階で99.3%のPu、99.85%のUが回収され、1%のヨウ素が廃棄物として処分されると仮定されていて、希ガスは再処理段階で全量回収され高レベル廃棄物には含まれないとされているので、ガラス固化体には未回収のU、Pu、I、アクチニド核種、核分裂生成物が含まれている。ガラス固化体は固化後50年間冷却した後地中に埋設するとし、廃棄体からの核種の漏洩は埋設後1000年目からとしている。

人工バリアでの核種移行解析における内側境界条件を定めるために、ガラス固化体の溶解速度を決定する必要があるが、ガラス固化体の溶解速度はガラスの溶解反応速度と溶解したケイ酸が周囲の人工バリアへ拡散する速さで決定される。人工バリア水相中のケイ酸濃度 $C(r,t)(\text{kg}/\text{m}^3)$ に対する支配方程式は以下のように表される。

$$K_{silica} \frac{\partial C}{\partial t} = D_{silica} \frac{1}{r^2} \cdot \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial C}{\partial r} \right) \quad (5)$$

$t > 0, r_1 < r < r_2$

ただし、 K_{silica} : ケイ酸の遅延係数

D_{silica} : ケイ酸の拡散係数(m^2/s)

r : ガラス固化体からの距離(m)

t : ガラス固化体溶解開始からの時間(s)

r_1 : ガラス固化体と人工バリアの境界面の半径(m)

r_2 : 人工バリアと母岩の境界面の半径(m)

侵入した地下水とベントナイトとの反応により、人工バリア水相中にはガラス固化体溶解前からケイ酸が溶存している。ここではガラス溶解前にベントナイトと地下水が十分長い間接触すると仮定して、溶解開始前には人工バリアにおいてケイ酸濃度は一様であると仮定している。そして、ガラスの表面における溶解の境界条件は

$$j_0 \left(1 - \frac{C(r_1, t)}{C^*} \right) + j_{res} = -\epsilon D_{silica} \frac{\partial C}{\partial r} \Big|_{r=r_1} \quad (t > 0) \quad (6)$$

と書ける。

また、ガラス固化体の浸出時間は

$$M_{silica}^0 = S \int_0^{T_L} m_{silica}(t) dt \quad (7)$$

を解くことで求められる。溶解度を一定とすれば

$$T_L = \frac{M_{silica}^0}{S m_{silica}^{ss}} \quad (8)$$

$$\text{ただし、} \quad m_{silica}^{ss} = j_0 \left(1 - \frac{C(r_1, \infty)}{C^*} \right) + j_{res} \quad (9)$$

である。

放射性核種の溶解度が小さい場合、ガラス固化体の溶解によってガラス固化体と人工バリアの界面において析出物が生成する。その場合、人工バリア中の放射性核種の移行

解析における内側境界では、溶解度で濃度が一定となる「溶解度限界境界条件」を適用している。一方、析出が発生しない場合、内側境界ではガラスの溶解に伴って放射性核種が放出される、「調和溶解境界条件」が適用される。ガラス固化体が溶解する地点における放射性核種の物質収支を考慮して析出物解析を行い、境界条件を核種毎に決定している。放射性核種kの析出物の量 $P_k(t)$ (mol)は以下のような微分方程式が表される。

$$\frac{dP_k}{dt} = S\{m_k(t)[h(t) - h(t - T_L)] - q_k(t)\} - \lambda_k P_k + \lambda_{k-1} P_{k-1} \quad (10)$$

ここで λ_k : 核種kの崩壊定数(s^{-1})

また、人工バリアの水相中に溶け込んだ放射性核種の拡散に関しては次のような拡散方程式を仮定している。

$$K_{ek} \frac{\partial N_k}{\partial t} + \lambda_k K_{ek} N_k = D_{ek} \frac{1}{r^2} \cdot \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial N_k}{\partial r} \right) + \lambda_{k-1} K_{ek-1} N_{k-1} \quad (11)$$

$t > 0, r_1 < r < r_2, k = 1, 2, \dots, i$

ただし

$N_k(r, t)$: 崩壊系列k番目の核種の水相中における濃度(mol/m^3)

K_{ek} : 核種kを同位体とする元素eの遅延係数

同一元素eに属する同位体核種は同じ化学的性質を持つので、遅延係数及び拡散係数も同じになる。遅延係数は

$$K_{ek} = 1 + \frac{\rho(1 - \varepsilon)}{\varepsilon} Kd_e \quad (12)$$

ここで、 ρ : 人工バリアの密度(kg/m^3)

Kd_e : 元素eの取着分配係数(m^3/kg)

と定義される。

支配方程式を以下のような初期境界条件のもとで解いている。

$$N_k(r,0)=0, r_1 < r < r_2, k=1,2,\dots,i$$

$$-A_k D_{e_k} \in \frac{\partial N_k}{\partial r} \Big|_{r=r_1} = -B_k N_k(r_1,t) + \Psi_k(t) \quad (13)$$

$$t > 0, k=1,2,\dots,i$$

$$N_k(r_2,t)=0, k=1,2,\dots,i$$

内側境界 r_1 で溶解度限界境界条件が適用される場合、 $A_k, B_k, \Psi_k(t)$ はそれぞれ次のように与えられる。

$$A_k \equiv 0, B_k \equiv 1$$

$$\Psi_k(t) = r_k(t) N_{e_k}^* [h(t) - h(t - T_L)] \quad (14)$$

調和溶解境界条件が適用される場合、

$$A_k \equiv 1, B_k \equiv 0$$

$$\Psi_k(t) = m_k(t) [h(t) - h(t - T_L)] \quad (15)$$

のように与えられる。

以上のような数学モデルをもとに計算を行っている。

4. 2. 3 人工バリア性能評価における不確実性解析への適用手法

前述のGAファジー法を人工バリア性能評価における不確実性解析に適用した。まず、入力変数の不確実性を考慮するため、各核種の溶解度と遅延係数及び浸出年数をファジーパラメータとして帰属度関数を設定した。Table 4.1はOECDのデータバンクに示されている各パラメータの標準値を表した図である。このOECDのデータバンクをもとに、浸出年数と各核種の溶解度に対しては対数一様分布を仮定して、標準値を中心に4桁の幅を持つ四角形型の帰属度関数を与えている。また、各核種の遅延係数に対しては

対数正規分布を仮定して標準値を中心に4桁の幅を持つ三角形型の帰属度関数を与えた[19]。不確実性を持たせる核種としては、まず、従来の決定論的解析例において人工バリア外側境界での毒性を支配するとされているPuと人工バリア内に強く保持されることが期待されるCm、Amについての不確実性解析を行った。次に、上述の3核種に長半減期で α 核種であるNp、U、Thを加えて計算を行った。これらの3核種は天然バリア外側境界での毒性に影響を及ぼすことが予測されている。このように、3核種に不確実性を持たせた場合と、6核種に不確実性を持たせた場合について計算を行い結果を比較した。

上述の人工バリア性能評価コードSASCEBをGAのアルゴリズムに組み込み、感度解析を行い、出力値となる人工バリア外側境界でのハザードの帰属度関数を分析している。具体的には、出力値の帰属度が α の時は、Min-Max原理より入力パラメータの組み合わせの中の帰属度の最小値が α でないといけない。つまり、入力パラメータの内、1つが帰属度 α で残りは α より大きくなるような範囲を与え、その各パラメータの組み合わせで、出力を最大にするものと、最小にするものをGAを用いて計算した。このような計算を出力の帰属度が0から1までを0.2刻みで計算した。

システムの性能を示す指標としては、人工バリア外側境界面を単位時間当たり通過する放射性核種の量とそれらの年摂取限度との比で表される無次元量「ハザード」を用いた。出力としては、Cm、Am、Pu、Np、U、Pa、Th、Ac、Ra、Tc、Iの合計のハザードと核種毎のハザードを考えた。但しF_pに関しては、遅延係数や溶解度は標準値に固定している。

また、どの核種の、どのパラメータが全ハザードの不確実性にどれだけ寄与しているかを調べるために、Cm、Am、Pu、Np、U、Thの溶解度、遅延係数と浸出年数の中で1つのパラメータだけに不確実性（標準値を中心に4桁の幅）をもたせ、残りのパラメータを標準値に固定して計算を行い、得られたトータルハザードの最大値と最小値の幅を計算した。この値が大きくなるパラメータほど、トータルハザードの不確実性への

影響が強いと考えられる。また、これとは逆にひとつのパラメータだけを標準値に固定し、残りのパラメータに不確実性（標準値を中心に4桁の幅）をもたせた計算も行った。この場合は、全てのパラメータには不確実性をもたせた結果に比べて、変化が大きくなるパラメータほど、トータルハザードの不確実性に対して支配的だと考えられる。

4. 3 結果と考察

Fig. 4.2は3核種に不確実性を持たせたときのトータルハザードの、千年後、一万年後、四万年後、十万年後の経時変化分布を、Fig. 4.3は6核種に不確実性を持たせたときのトータルハザードの同様の経時変化分布を表したものである。これは、従来モンテカルロ法等の確率的手法で計算された確率分布とは異なり、帰属度分布という形で可能性を表している。

また3核種に不確実性を持たせたときと6核種に不確実性を持たせたときで可能性分布にほとんど差がみられず、人工バリア内において千年後から十万年後においては、Cm、Am、Puの3核種のパラメータと浸出年数が不確実性を支配していると考えられる。

また、時間が千年から十万年と経過しても全ハザードの帰属度分布の幅にはほとんど変化がないことが分かる。

Fig. 4.4～Fig. 4.7は、Cm、Am、Pu、Np、U、Thの6核種に不確実性を持たせたときの各核種のハザード分布を、千年後、一万年後、四万年後、十万年後について計算した結果を示したものである。可能性が低い部分（帰属度が0）の各核種のハザードの最小値はほとんどが非常に小さい値となったが、ハザードの値が非常に小さい区間については結果に意味がないと考えられるので、ハザードが 10^{-8} 以下についてはグラフより削除した。図より千年後はPuやNpの分布が大きな値を持っていることが分かる。また

一万年後には、Puに続いてCmやAmの分布が大きな値をとり、四万年後にはPuに続いてAmやCmの分布が大きな値をとっている。十万年後にはやはりPuに続いてAmの分布が大きな値をとっていることが分かる。以上のことから、千年後から十万年後の間においては、Puのハザードの分布が最も大きな値をとることがわかり、この期間のトータルの不確実性にはPuのハザードが最も強く寄与していると考えられる。

Fig. 4.8には、6核種に不確実性を持たせた際の、トータルのハザード分布の各部分に対して、どの核種のハザードが寄与しているかを各時間について調べたものである。帰属度が0と1の場合の最大値と最小値について調べた。可能性が高い場合（帰属度が1）の最大値はPuが支配的であり、最小値は千年後はTcが支配的でその後はPuが支配的となる。可能性が低い部分（帰属度が0）については、最大値は千年後から一万年後はAmが支配的でその後はPuが支配的となり、最小値はTcが支配的である。Tcの不確実性は考慮していないので、トータルの不確実性を減らすにはPu遅延係数や溶解度の不確実性を小さくし、

Fig. 4.9~Fig. 4.12は、どのパラメータが全ハザードの不確実性にどれだけ寄与しているかを調べるために、ひとつのパラメータだけに不確実性をもたせ、残りのパラメータを標準値に固定した場合のハザードの幅を千年後、一万年後、四万年後、十万年後について計算した結果を示したものである。図より千年後はCmの遅延係数、Puの遅延係数、溶解度、浸出年数が不確実性に強く寄与すると考えられる。一万年後はPuの遅延係数が強く、ついでAmの遅延係数、溶解度、Puの溶解度、浸出年数が支配的と推測される。四万年後はほぼ一万年後と同様であり、十万年後にはPuの溶解度ついでPuの遅延係数が支配的である。また、同じことを調べるのに、逆にひとつのパラメータだけを標準値に固定し、残りのパラメータに不確実性をもたせた場合のハザードの幅を千年後、一万年後、十万年後について計算した。Fig. 4.13、Fig. 4.14~Fig. 4.18にその結果を

示す。ひとつのパラメータだけを固定する計算の方が、計算は時間がかかるが、実際にトータルハザード分布を求めた計算に近いとより不確実性への寄与を詳細に解析できると考えられる。図より千年後は浸出年数、Puの溶解度が支配的である。一万年後については、Puの溶解度が支配的であり、その他には浸出年数とPuの遅延係数とAmの溶解度が支配的である。十万年後については、Puの溶解度が支配的であることが分かる。

千年後、一万年後、四万年後、十万年後について2通りの感度解析を行った結果、この間では、Puの溶解度、遅延係数が全ハザードの不確実性に最も強く寄与していることが分かった。つまりPuの溶解度、遅延係数の不確実性を減らすことができれば、人工バリア外側境界におけるハザードの不確実性を小さくできると考えられる。

4. 4 結論

人工バリア内核種移行における不確実性解析においてGA、ファジーを適用することにより、確率分布を用いず可能性分布として人工バリア外側におけるハザード分布を評価した。その結果、千年後から十万年後においてはハザードの帰属度分布の幅は広がらず、不確実性はCm、Am、Puの3核種が支配していること、Puのハザード分布が大きな値を持つこと、ならびに不確実性へのPuの溶解度、遅延係数の寄与が大きいことが分かった。つまりPuの溶解度、遅延係数の不確実性を減らすことができれば、人工バリア外側境界におけるハザードの不確実性を小さくすることができると考えられる。

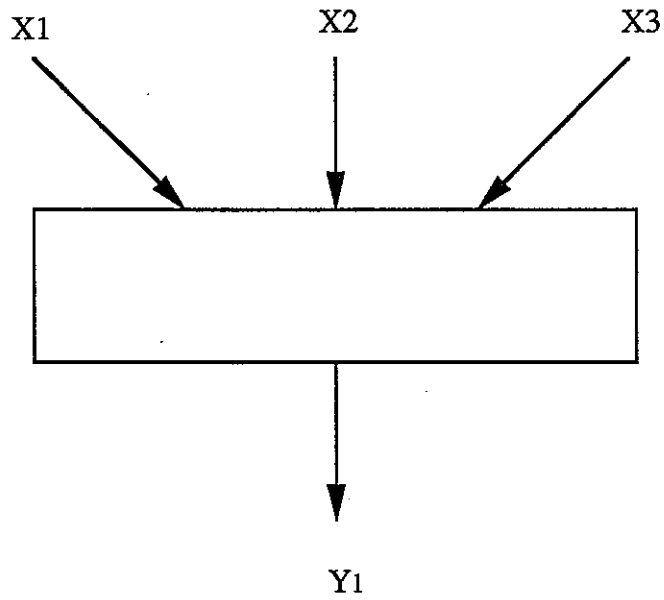
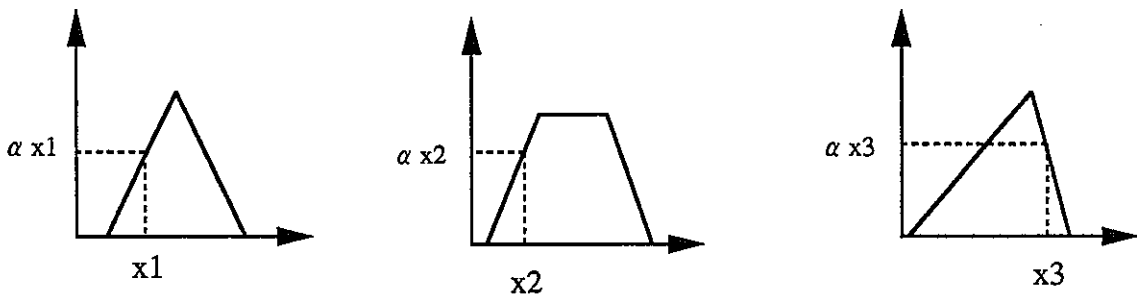
Table 4.1 入力パラメータと標準値

(a)

	遅延係数	溶解度
Cm	6.30×10^3	7.80×10^{-12}
Am	8.12×10^3	9.60×10^{-11}
Pu	4.17×10^2	5.20×10^{-12}
Np	4.32×10^2	2.00×10^{-15}
U	2.68×10^1	3.50×10^{-13}
Th	6.31×10^2	2.40×10^{-13}

(b)

浸出年数	4.00×10^4
------	--------------------



$$\alpha Y1 = \max(\min(\alpha x1, \alpha x2, \alpha x3))$$

Fig. 4.1 Min-Max原理

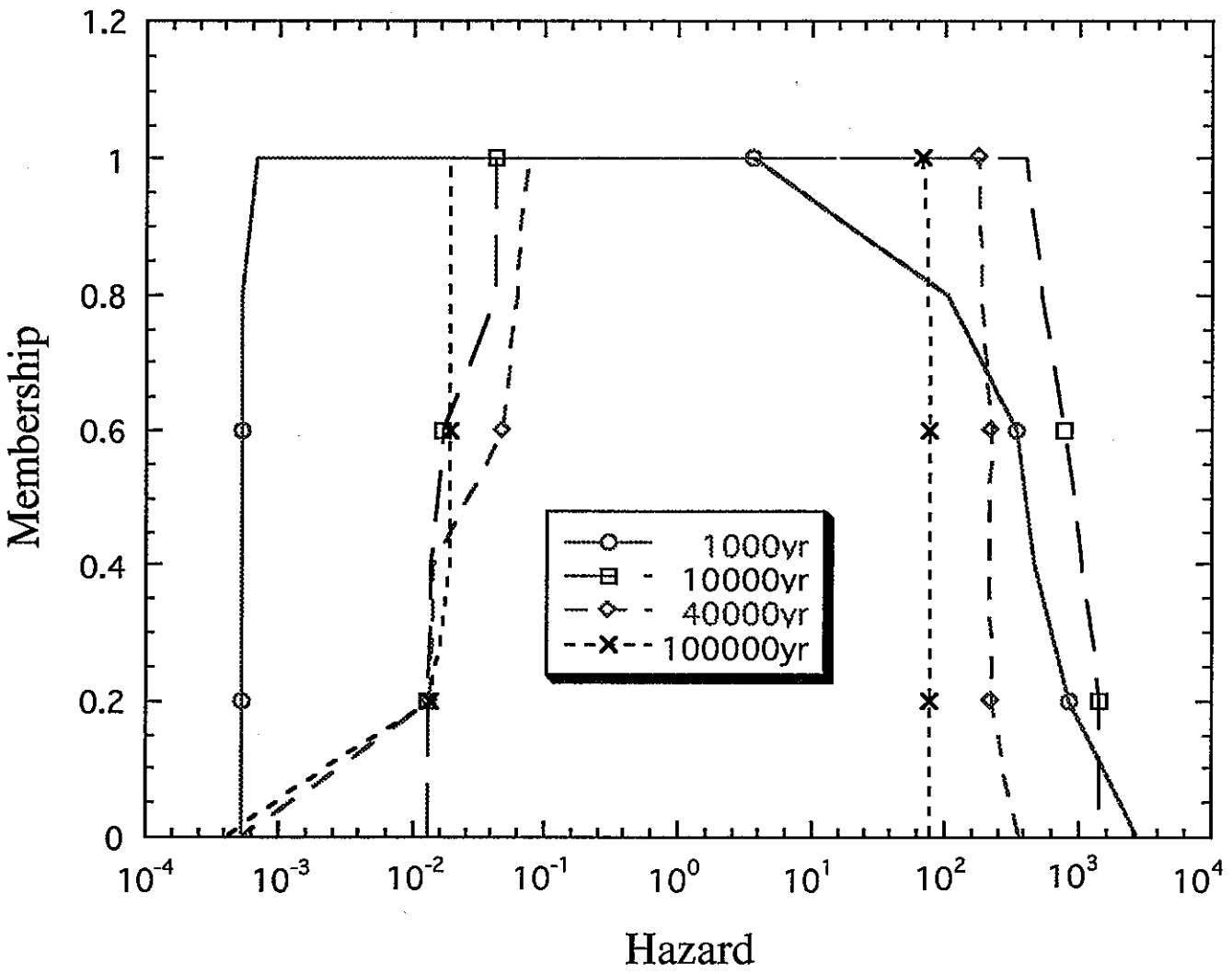


Fig. 4.2 3核種に不確実性を持たせた
ときのハザード分布

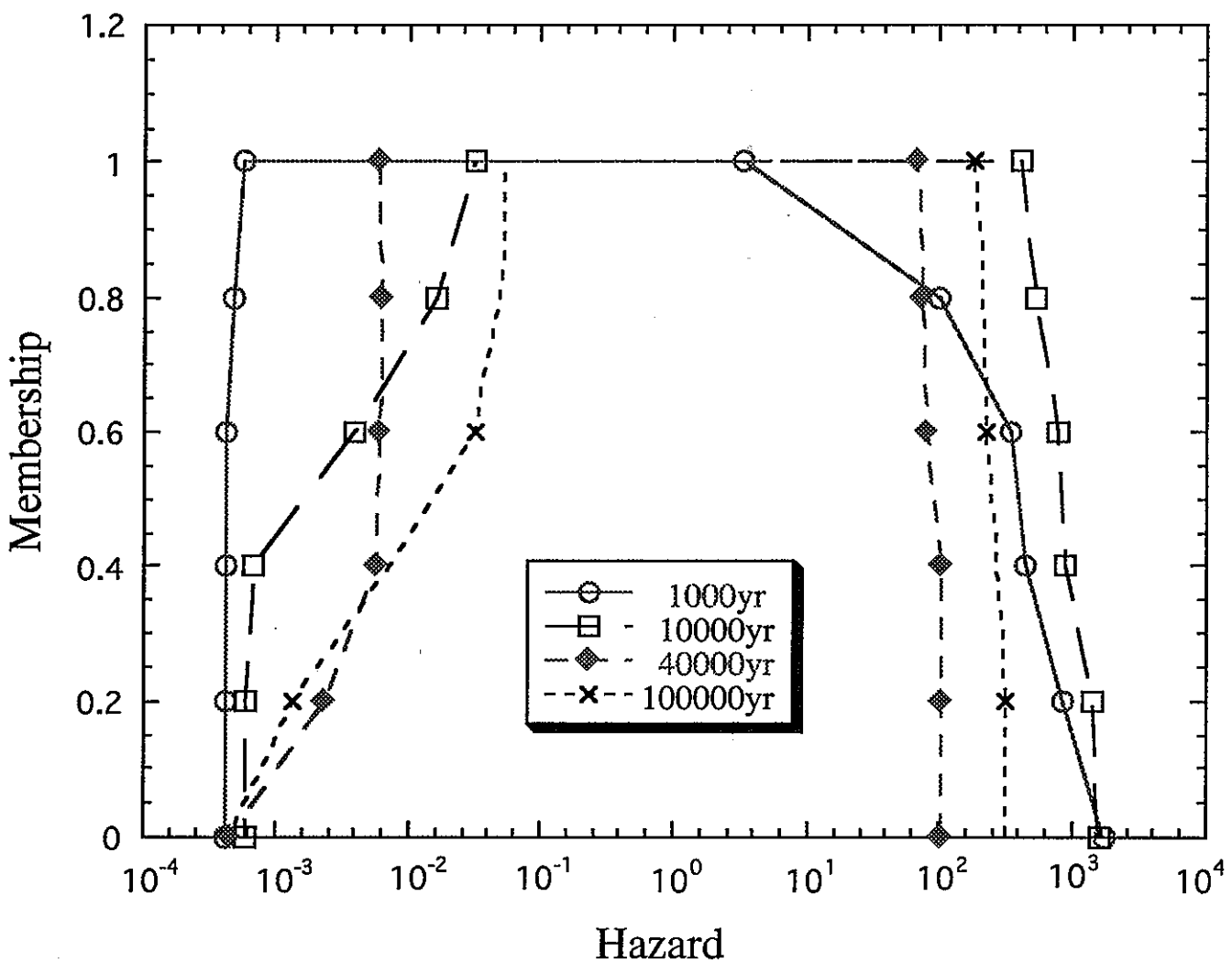


Fig. 4.3 6核種に不確実性を持たせた
ときのハザード分布

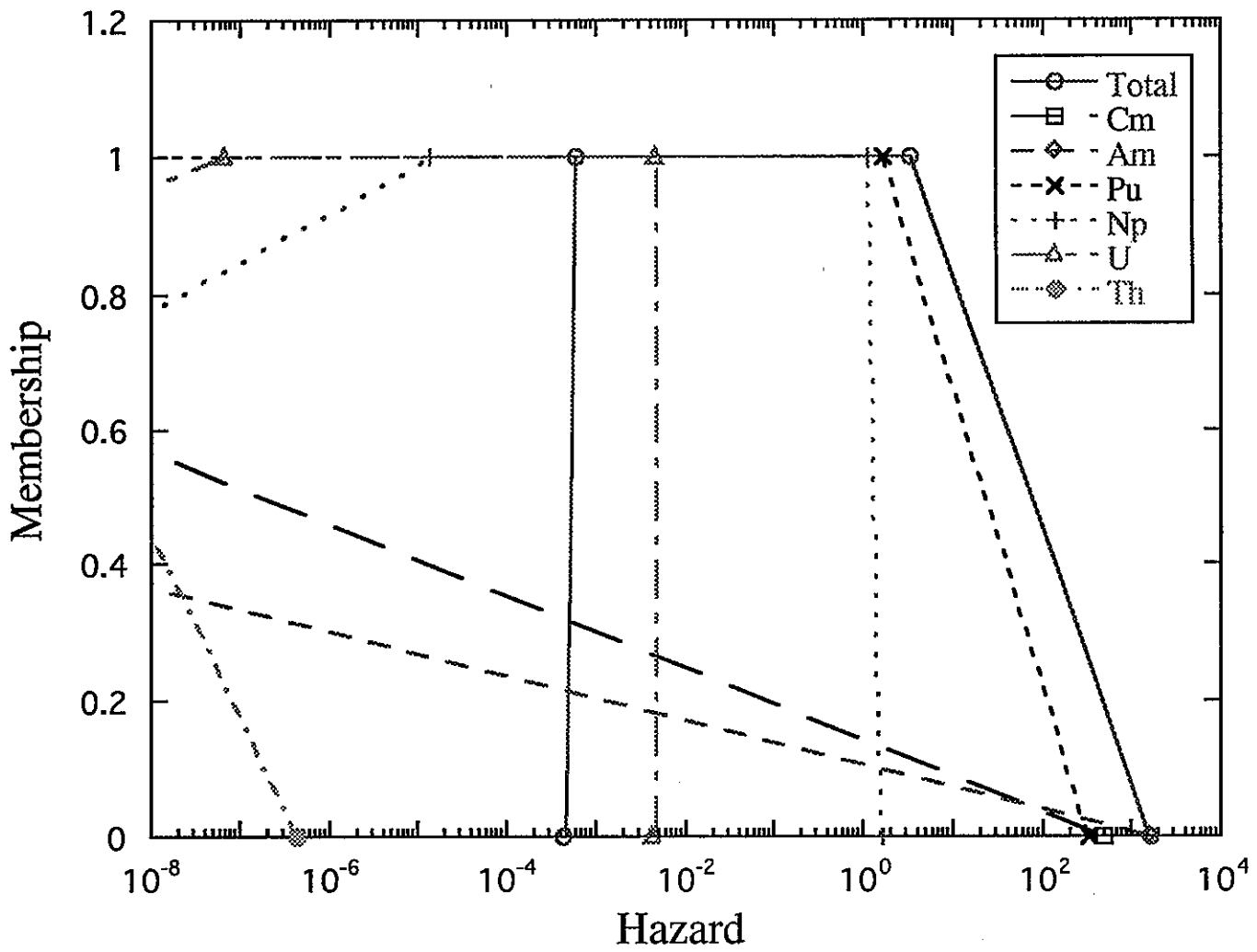


Fig. 4.4 千年後の各核種のハザード分布

Fig. 4.5 一万年後の各核種のハザード分布

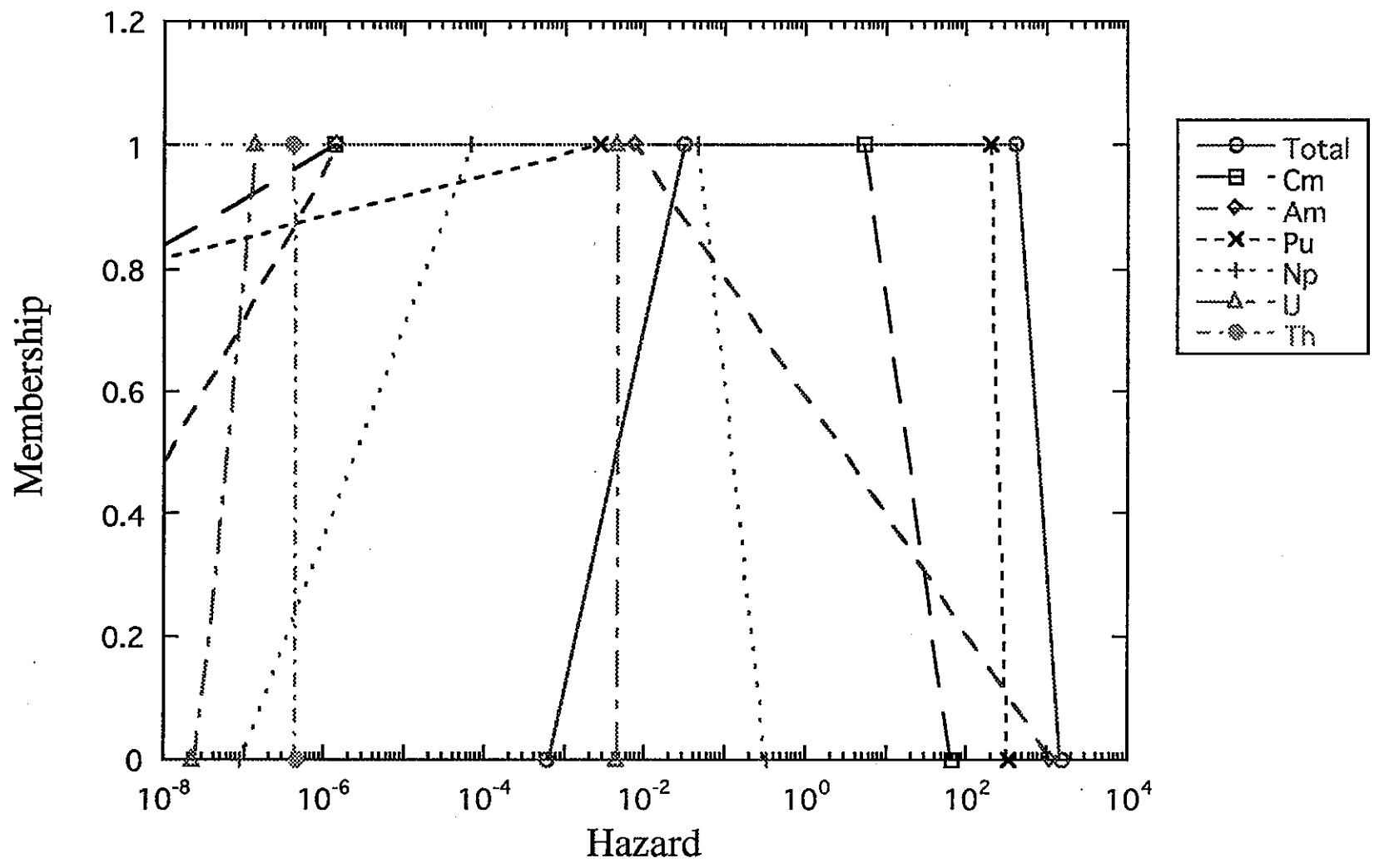


Fig. 4.6 四万年後の各核種のハザード分布

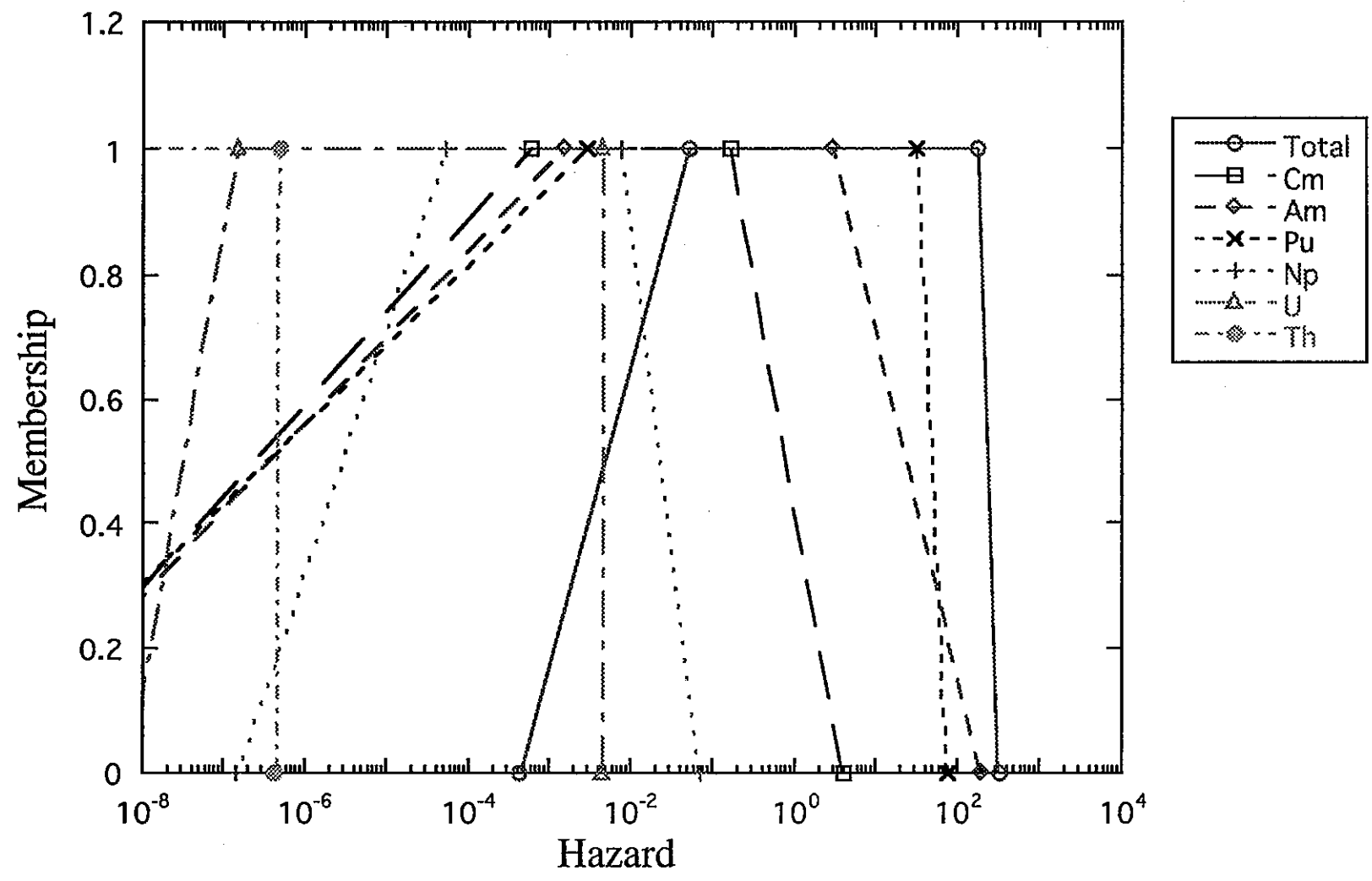
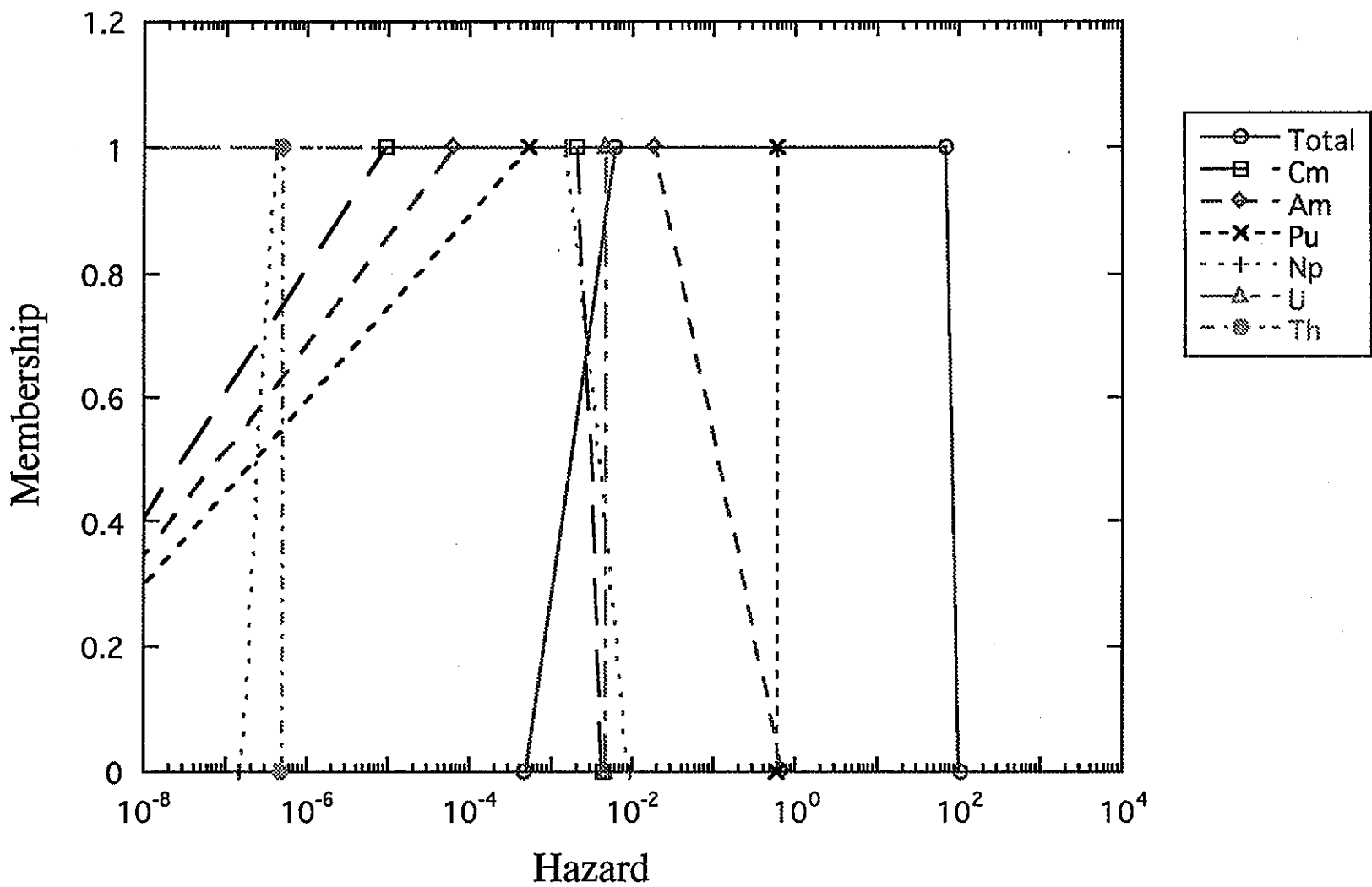
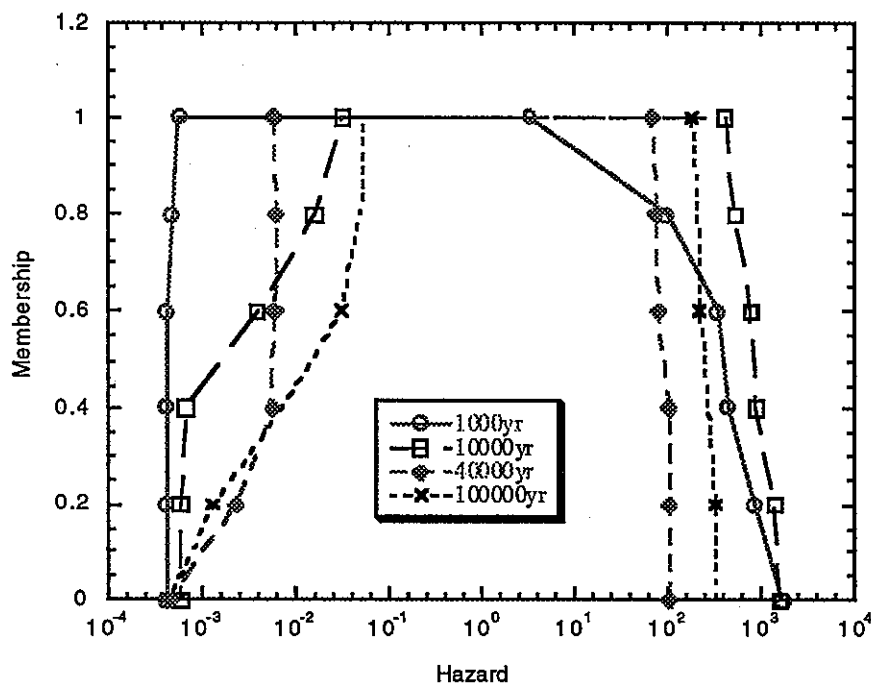


Fig. 4.7 十万年後の各核種のハザード分布



1000年	Tc 58.6% Pu 18.4% Cs 15.0%
10000年	Pu 93.9%
40000年	Pu 93.4% Am 3.2%
100000年	Pu 77.5% Tc 5.7% Pa 4.9%

1000年	Pu 69% Np 23.1%
10000年	Pu 100%
40000年	Pu 99.5%
100000年	Pu 99.7%



1000年	Tc 80.3% Cs 15.3% I 4.4%
10000年	Tc 58.2% Cs 32.4% U 3.9%
40000年	Tc 77.4% Th 7.6%
100000年	Tc 72.3% Pu 20.0% Th 3.0%

1000年	Am 96.4% Pu 3.6%
10000年	Am 77.3% Pu 22.5%
40000年	Pu 57.4% Am 42.0%
100000年	Pu 99.7%

Fig. 4.8 各核種のトータルハザード分布への寄与

Fig. 4.9 千年後の各パラメータの影響

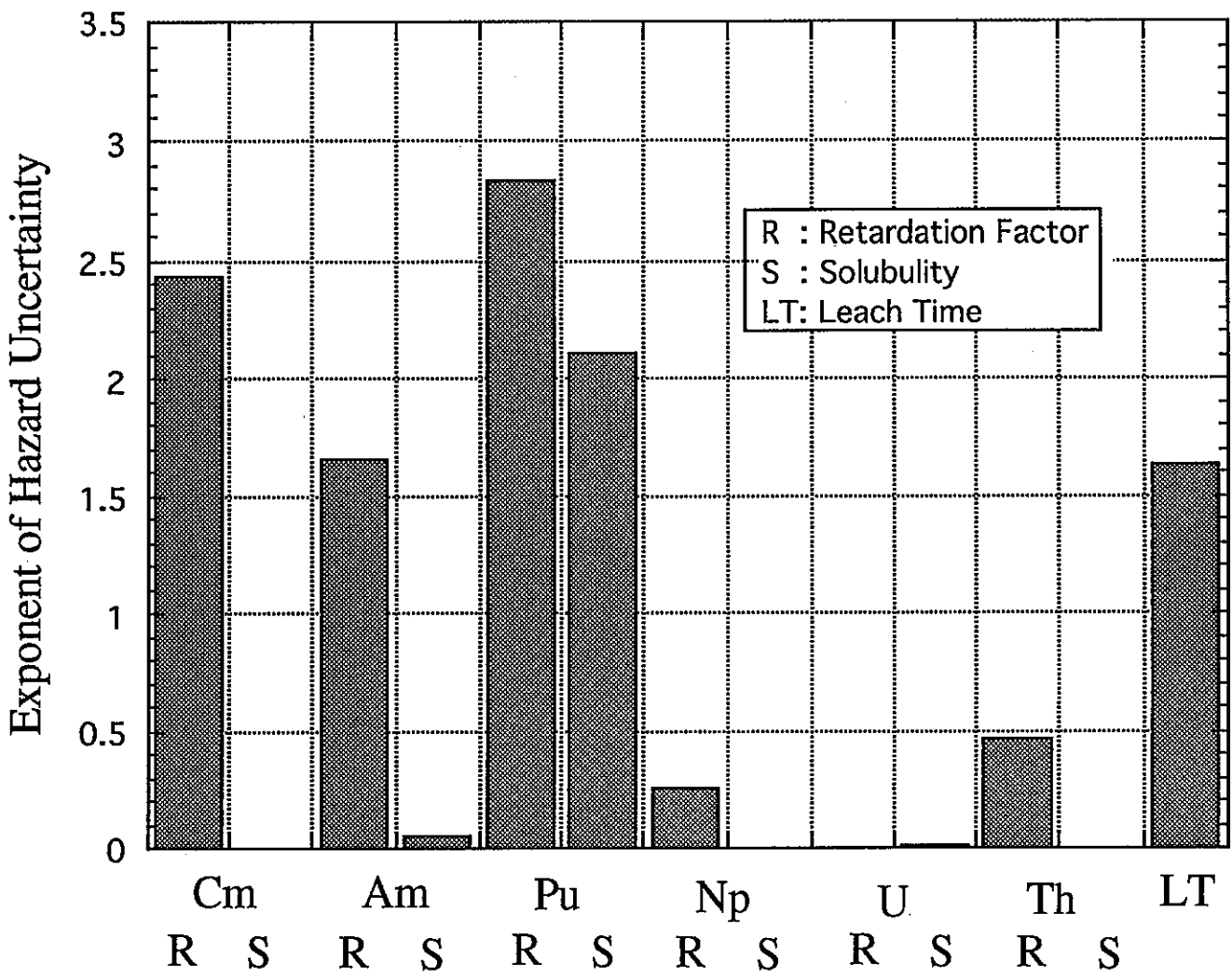


Fig. 4.10 一万年後の各パラメータの影響

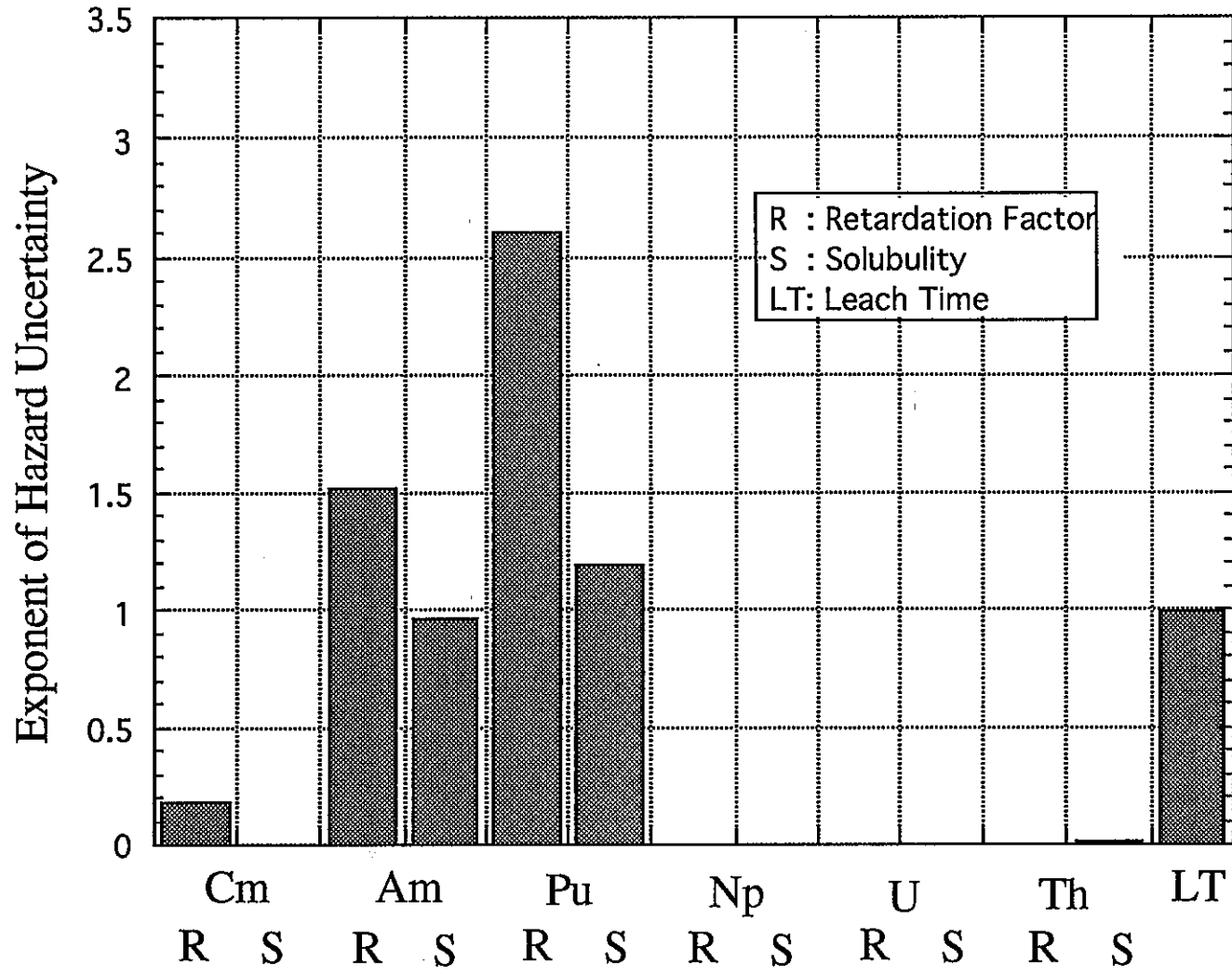


Fig. 4.11 四万年後の各パラメータの影響

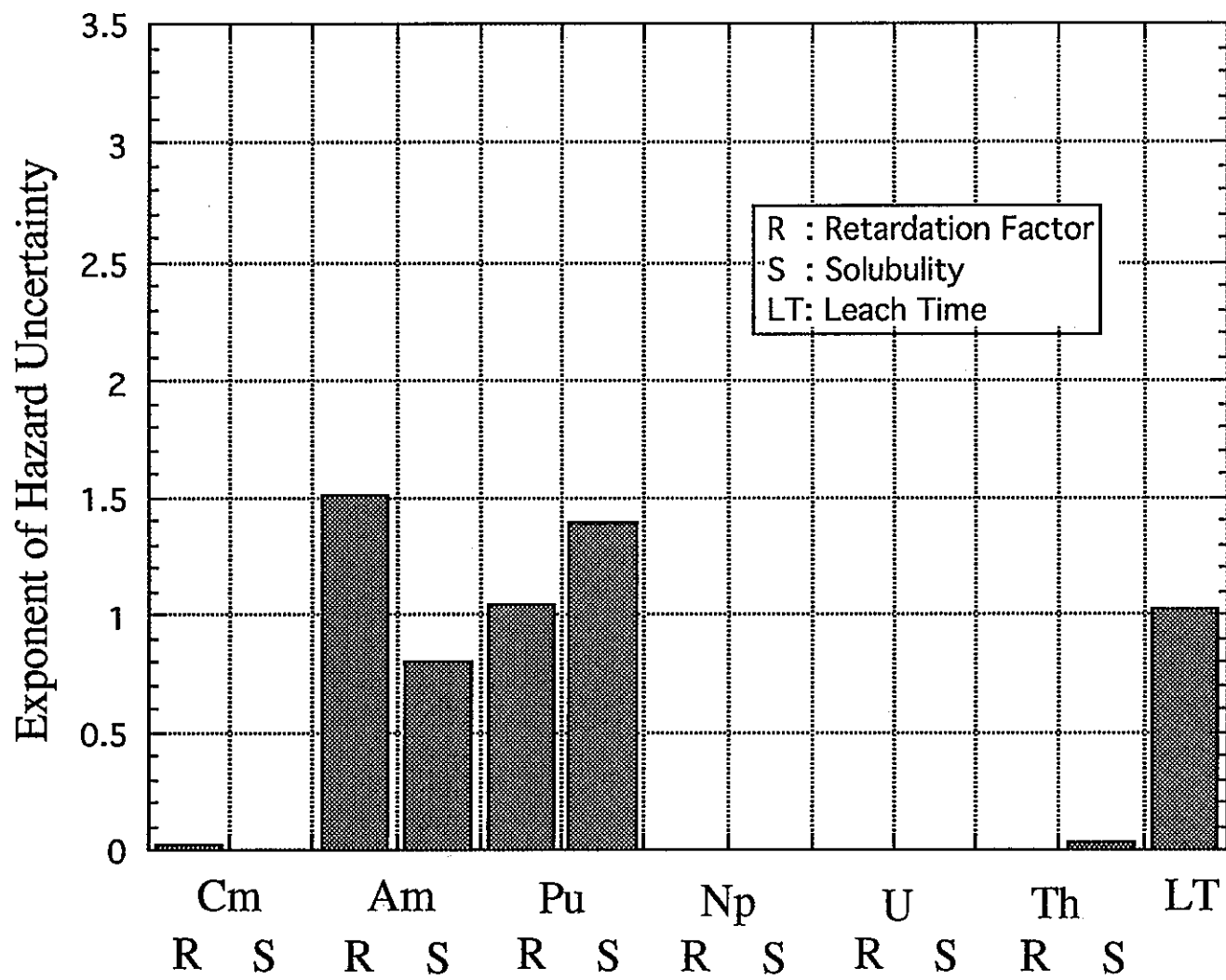
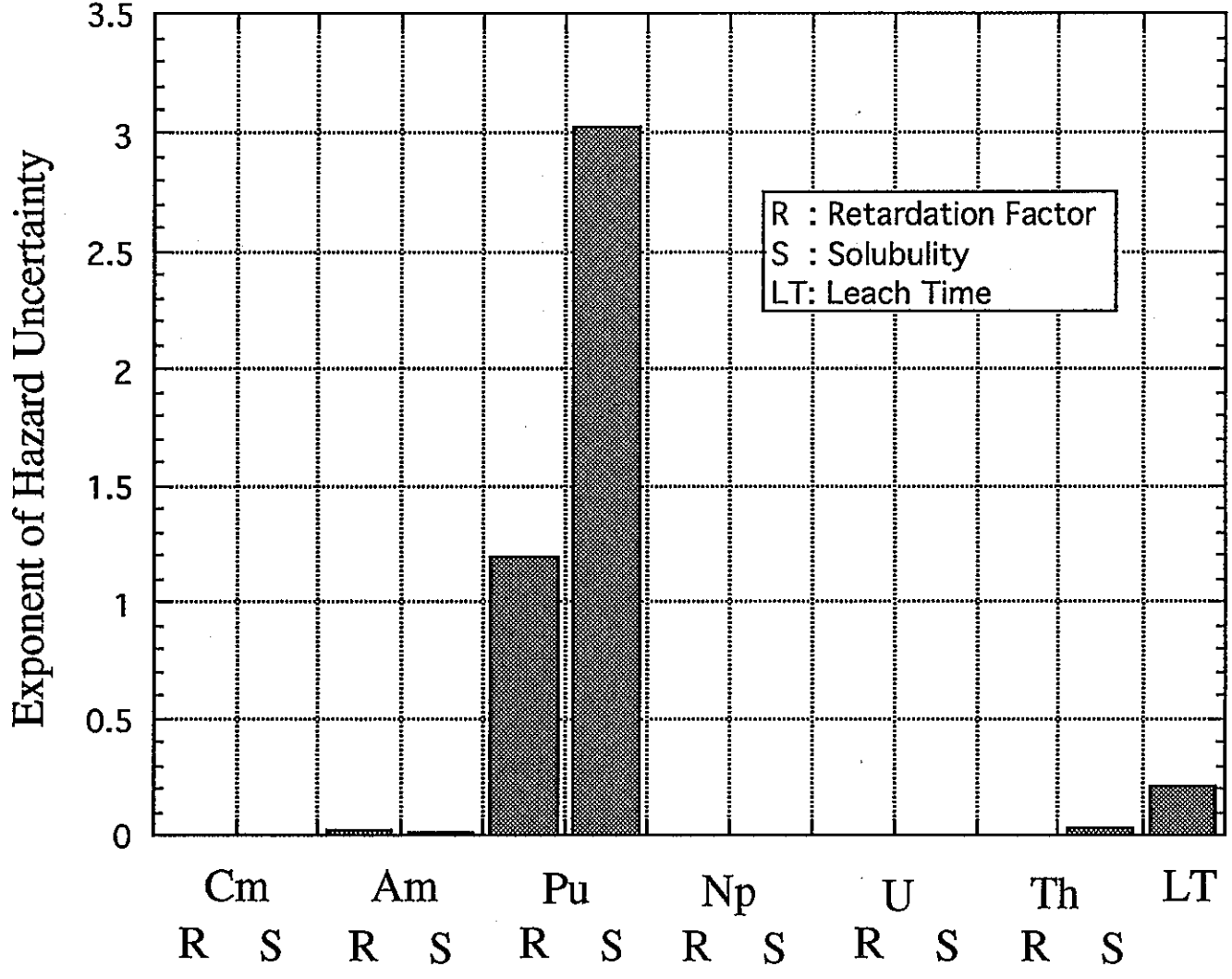


Fig. 4.12 十万年後の各パラメータの影響



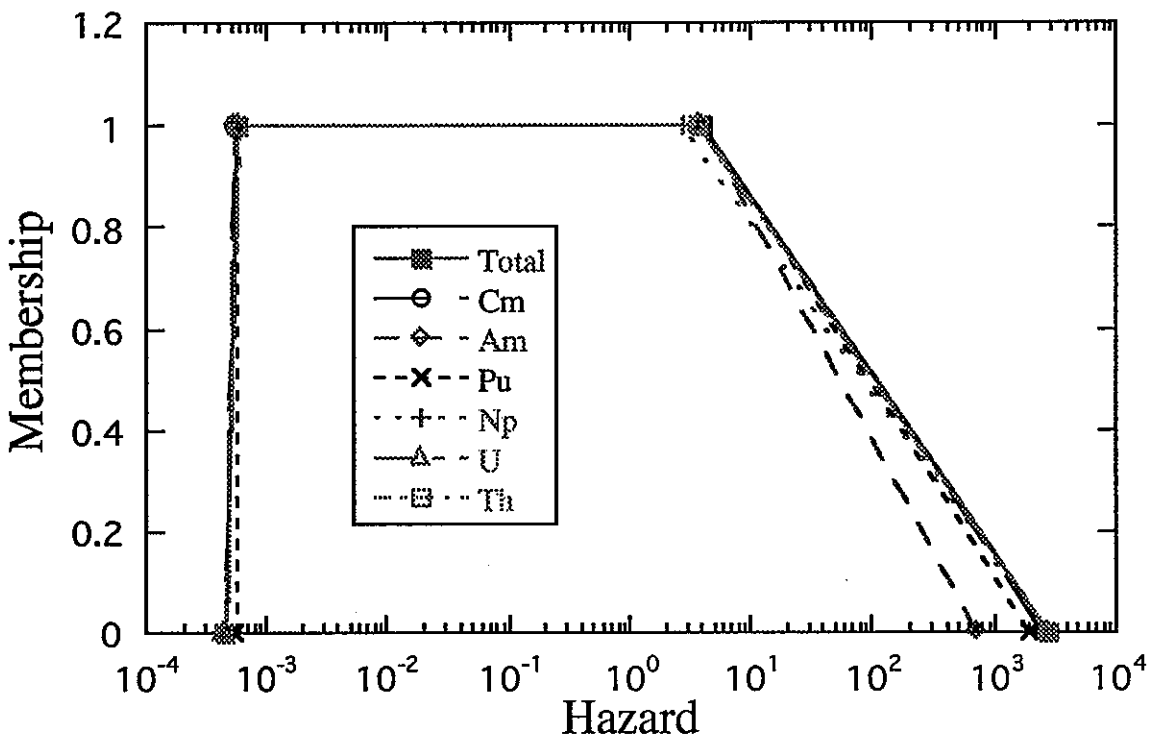


Fig. 4.13 千年後の遅延係数の影響

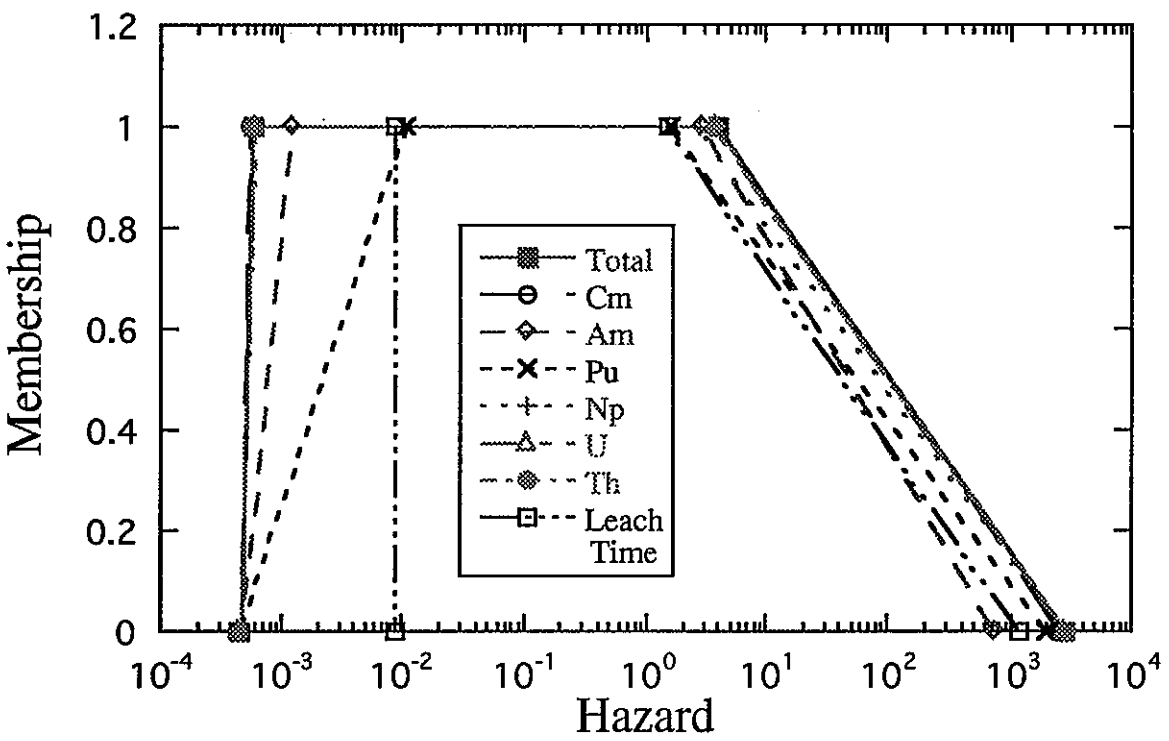


Fig. 4.14 千年後の溶解度と浸出年数の影響

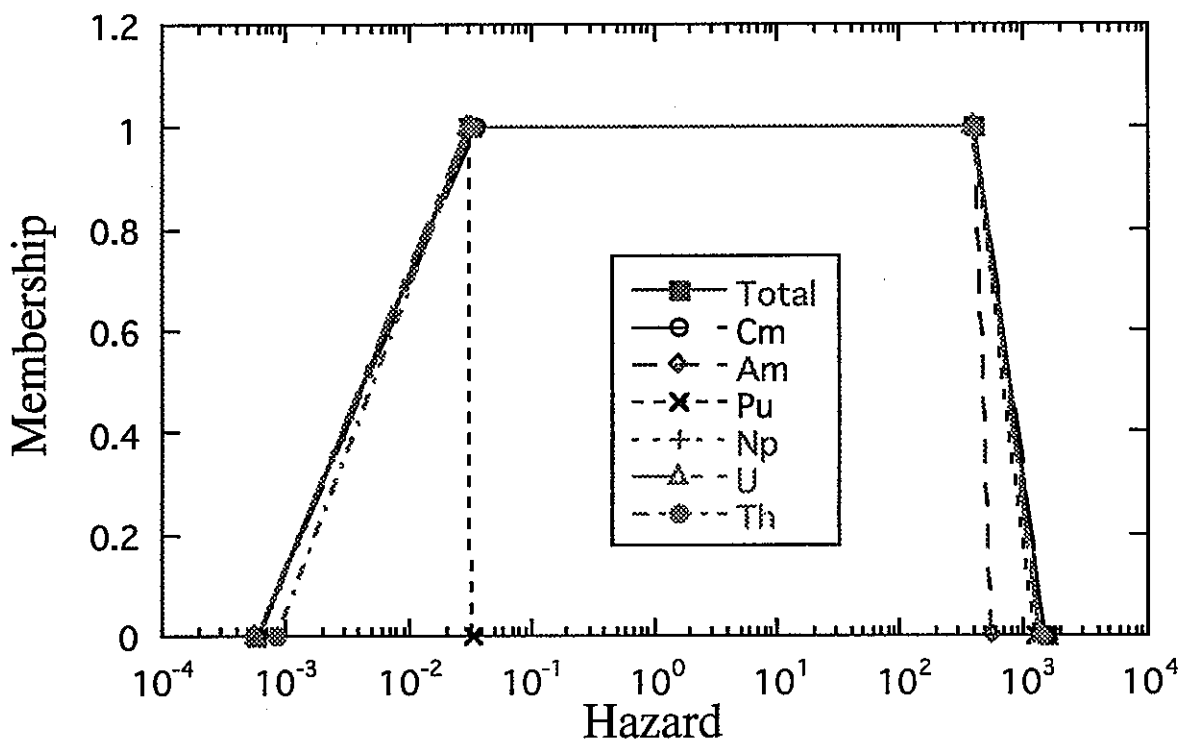


Fig. 4.15 一万年後の遅延係数の影響

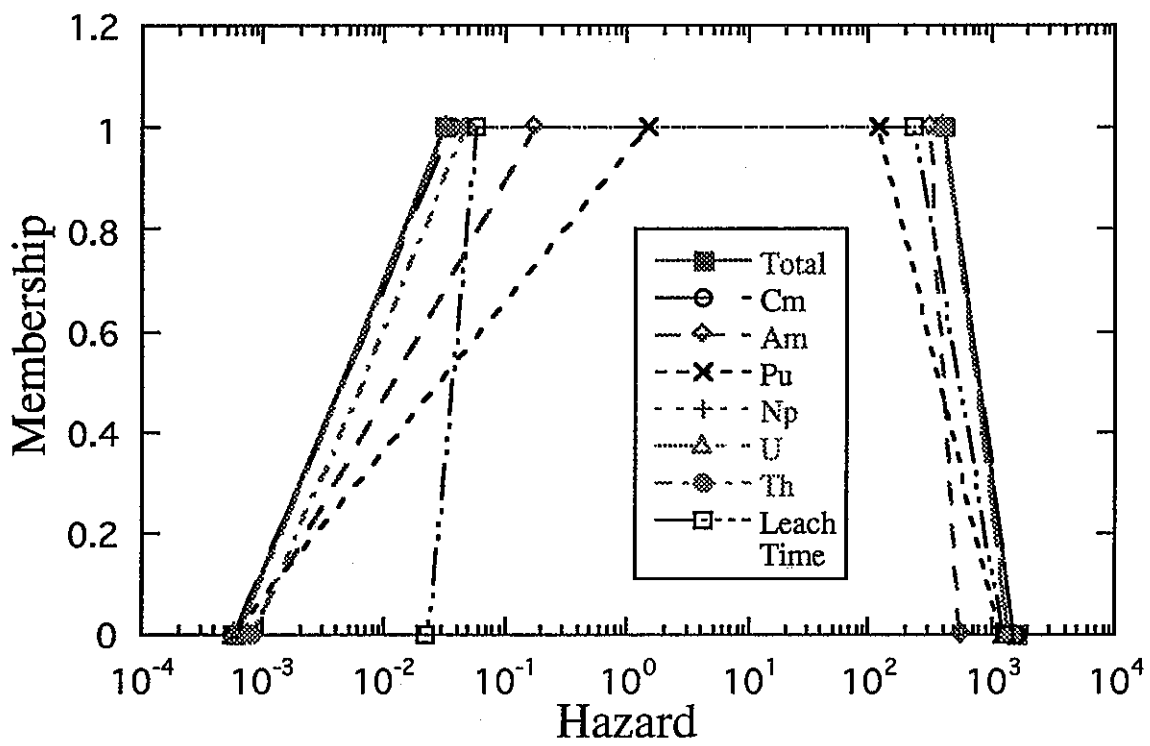


Fig. 4.16 一万年後の溶解度と浸出年数の影響

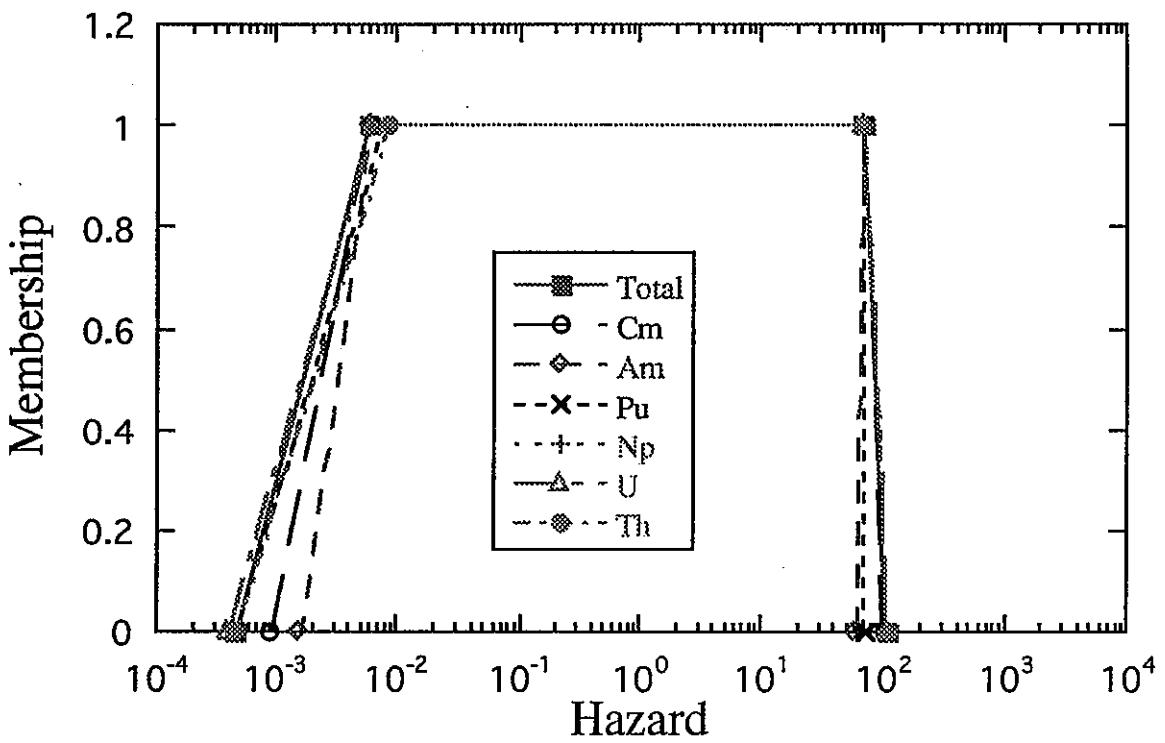


Fig. 4.17 十万年後の遅延係数の影響

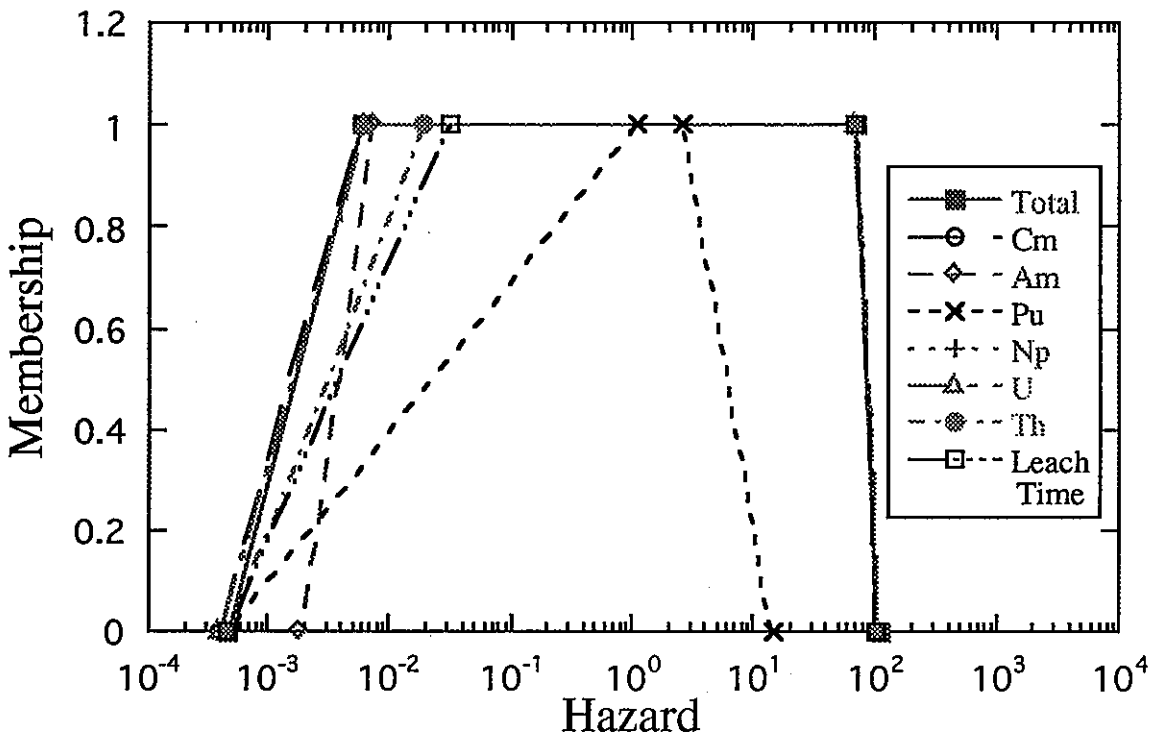


Fig. 4.18 十万年後の溶解度と浸出年数の影響

参考文献

- [1] Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corp. (PNC), 1992. PNC TN 1410 92-081
- [2] Pusch, R., 1983. Stability of bentonite gels in crystalline rock -- Physical aspects, KBS 83-04.
- [3] Felmy, A. R., D. Rai, and R. W. Fulton, 1990. Radiochim. Acta 50, 193.
- [4] Pratopo, M. I. , H. Moriyama, and K. Higashi, 1990. Radiochim. Acta 51, 27.
- [5] Lieser, K. H., and R. Hill, 1992. Radiochim. Acta 56, 141.
- [6] Ticknor, K. V., and B. Ruegger, 1989. A Guide to the NEA's Sorption Data Base, Version 2.0, OECD/NEA
- [7] Pratopo, M. I. , et al., 1993. J. Nucl. Technol. 30, 560.
- [8] Kang, C.-H., 1989. Mass Transfer and Transport of Radionuclides through Backfill in a Geologic Nuclear Waste Repository, Ph. D. Dissertation, Univ. of Calif., Berkeley.
- [9] Ahn, J., et al., 1995. J. At. Energy Soc. Japan 37(1), 59--77.
- [10] 動燃事業団：高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書、平成3年度 PNC TN 1410 92-081,(1992)
- [11] S.Kranbranslehantering Ab,"Final Disposal of Spent Nuclear Fuel,Importance of the Bedrock for Safety,SKB,92,20(1992)
- [12] Committee on Technical Bases for Yucca Mountain Standards,"Technical Bases for Yucca Mountain Standards",National Academy Press Washington,D.C.(1995)
- [13] A.Kaufmann,M.M.Gupta,ファジー数理と応用,オーム社
- [14] 菅野道夫,ファジー制御,日刊工業新聞社(1988)
- [15] 寺野寿朗,浅居喜代治,菅野道夫,ファジーシステム入門,オーム社(1987)
- [16] J.L.Castro,"Fuzzy Logic Controllers Are Universal Approximators",IEEE Trans.System,Man and Cybernetics,25(4),629(1995)

- [17] L.A.Zadeh, "Fuzzy Sets as a Basis for a Theory of Possibility", Fuzzy Sets and Systems, 1,3(1978)
- [18] 安、池田 他： "高レベル放射性廃棄物地層処分における多重バリア性能の定量的評価"、日本原子力学会誌37[1],59(1995)
- [19] M.R.Civanlar , H.J.Trussell , "Constructing Membership Functions Using Statistic Data", Fuzzy Sets and Systems, 18,1(1986)